ISSN 2434-1088 KURNS-EKR-3 PRINT ISSN 2434-6209 PRINT KR- 1

# 京都大学複合原子力科学研究所 「第53回学術講演会報文集」

Proceedings of the 53th KURNS Scientific Meeting

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

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

# 第53回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会プログラム

開催日:平成31年2月5日(火)10:30 ~ 2月6日(水)15:10
ロ 頭 発 表:京都大学複合原子力科学研究所 事務棟会議室
ポスター発 表: 同 図書棟会議室

# 2月5(火) 10:30~17:10

開会の挨拶 (10:30~10:40) 所長 川端祐司

# トピック講演

# 新人講演

-------(休 憩) 12:00~13:00 -------

# トピック講演

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

# トピック講演

# プロジェクト研究成果講演

PJ1) 14:20~15:00 座長 沖 雄一
 福島原発事故で放出された放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明・・・・・・・・・・・ 7
 粒子線基礎物性研究部門(同位体利用化学研究分野)
 高宮幸一 他

(休 憩)

憩) 15:00~15:10

ー般講演(ポスター発表) (15:10~17:10)

- P4) Measurement of <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio of caesium micro-particles and contaminated soil particles using well-type germanium detector
   M. Soliman, F. Futagami, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, and T. Ohtsuki (KURNS)
- P6) ヒト水晶体内 αA-クリスタリン中における Asp58 部位の重要性と白内障との関係 ……16 〇高田匠、守島健、井上倫太郎、佐藤信浩、杉山正明、藤井紀子(京大複合研)
- P8) B-3小型多目的中性子回折計の進捗状況 2018 ····· 18
   ○森一広、奥村良、吉野泰史、金山雅哉(京大複合研)、佐藤節夫(高エネ研)、平賀晴弘(KAERI)、 岩瀬謙二(茨城大工)、奥村明央、小林史幸(京大院工)
- P10) フッ化物イオン電池用 Ce0.95Sr0.05F2.95 固体電解質の構造および電気化学特性 ······ 20
   ○奥村明央(京大院工)、森一広(京大複合研)、藤崎布美佳(京大産官学)、
   米村雅雄(高エネ研)、石川 喜久(CROSS)

P11)	海塩粒子の塩素及び臭素損失・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21
P12)	Eu:LiCAF を用いた加速器 BNCT における中性子測定技術開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22
P13)	原子炉中性子によって生じる DNA 損傷の分析 ○寺東宏明(岡大)、徳山由佳、森加奈恵(佐大)、長田直之(岡大)、田中浩基、齊藤毅 (京大複合研)	23
P14)	クライオ電顕のための牛心筋 FoF1ATP 合成酵素の試料調整······ ○慈幸千真理(京大複合研)、ゲーレ・クリストフ(阪大蛋白研)、森本幸生(京大複合研)	24
P15)	1.5 MW 大強度高繰り返しシンクロトロンにおけるビーム挙動の解析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25
P16)	超遠心分析とX線小角散乱を用いたタンパク質溶液の相補的構造解析・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	26
P17)	アミロイドβタンパク質産生量を減少させるタンパク質 ILEI の物理化学的解析 〇日比野絵美(滋賀医大)、守島健、井上倫太郎、杉山正明(京大複合研)、中野将希、 渡邊直希、杉拓磨 、西村正樹(滋賀医大)	27
P18)	原子炉および電子加速器を用いた種々のメスバウアー線源の作成 〇北尾真司、小林康浩、窪田卓見、齋藤真器名、増田亮、黒葛真行(京大複合研)、細川修一 田嶋寛介、矢崎慎一郎(京大理)、瀬戸 誠(京大複合研)	28
P19)	耐放射線小型軽量撮像素子の開発-構成要素のガンマ線照射下における挙動・・・・・・・ 〇後藤康仁、森藤瑛之(京大院工)、半田裕典(京大工)、長尾昌善(産総研)、岡本保、 猪狩朋也、福井貴大(木更津高専)、増澤智昭、根尾陽一郎、三村秀典(静大電研)、 佐藤信浩(京大複合研)、秋吉優史(大阪府大放射線セ)、高木郁二(京大院工)	29
P20)	水溶液中のトリチウムに対する水酸化物のプロトン交換反応 〇橋爪秀夫(物・材機構)、上原章寛(量研機構)、福谷哲(京大複合研)、藤井和子、 安藤寿浩(物・材機構)	30
P21)	ウランの金属酸化物への収着反応に関する分光学的評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	31
P22)	福島第一原発周辺土壤に沈着した FP の深部移行挙動・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	32
P23)	金属間化合物合金に対する量子線照射効果による微細構造変化・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	33
P24)	J-PARC MLF BL06 MIEZE 型スピンエコー分光器の現状 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	34
P25)	照射還元法により合成した Cu 合金ナノ粒子の安定化と微細構造······ 〇内村祐也、戸田晋太郎、田中元彬(大阪府大院)、水越克彰(東北大金研)、田口昇、 田中真悟(産総研)、松井利之(大阪府大推進機構)、徐虬(京大複合研)、堀史説 (大阪府大院)	35

P26)	高純度タングステンにおける電子線照射誘起空孔の回復挙動・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	36
P27)	<ul><li>KUCAにおける DT 加速器開発の現状・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ul>	37
P28)	垂直ロッドバンドル流路内における局所界面積濃度の特性に関する研究・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	38
P29)	化学交換法による同位体分別研究・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	39
P30)	高速度中性子イメージングにおける時間分解能の向上・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	40
P31)	鉛ビスマス−窒素二相流の分布特性に関する研究・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	41
P32)	多点センサを用いた静電容量式液膜厚さ計測手法の高度化 〇松下貴博 (京大院)、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)	42
P33)	多孔質内における気液二相流圧力損失に及ぼす偏流の影響······ ○栗崎達也(京大院)、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司(京大複合研)	43

# 2月6日(金) 10:00~15:40

# トピック講演

# トピック講演

# トピック講演

\_\_\_\_\_(休 憩) 12:00~13:00

# トピック講演

 T7) 13:00~13:40
 座長 齊藤泰司

 大口径流路内多次元気液二相流の流動機構解明に関する研究・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・52

原子力基礎工学研究部門(研究炉安全管理工学研究分野) 沈 秀中 他

# プロジェクト研究成果講演

PJ2) 13:40~14:20 座長 伊藤大介
 中性子イメージングの高度利用・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・55
 安全原子力システム研究センター (熱エネルギーシステム研究分野)
 齊藤泰司 他

# プロジェクト研究成果講演

閉会の挨拶(15:00~15:10) 所長 川端祐司

# (T1) 京都大学臨界集合体実験装置における加速器駆動システム実験

#### (京大複合研) 〇山中 正朗

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

2.実験:実験では、KUCA-A 架台に2種類の燃料 体(中央:ウラン-鉛、外周:ウラン-ポリエチレン(通称 EE1 燃料体))により構成された炉心を用いた。制 御棒の挿入または燃料置換によって未臨界度を変化 させた。中性子源には14 MeV 中性子および100 MeV の陽子を Pb-Bi ターゲットに衝突させることで生じ る核破砕中性子を用いた。検出器には炉心外周に設 置された複数個の BF<sub>3</sub>検出器を用いた。 $\beta_{\rm eff}/\Lambda$ はパル ス中性子源法のフィッティングにより得られた即発 中性子減衰定数  $\alpha$  と面積比法による\$単位の未臨界 度を組み合わせて測定した。実験解析では MCNP6.1 と ENDF/B-VII.1 を用いた固有値計算により $\beta_{\rm eff}/\Lambda$ を 求めた。

3. 結果: 図1計算で得られたαに対するβett/Λの分 布を示す。実験および計算を通して、αの値が1000

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



図1 β<sub>eff</sub>/Λの実験および固有値計算(MCNP)の比較 参考文献

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

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

Accelerator-Driven System Experiment at Kyoto University Critical Assembly Masao Yamanaka m-yamanaka@rri.kyoto-u.ac.jp (京大複合研) 〇山村朝雄

#### 1. はじめに

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

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

2. アクチノイド物性化学分野における課題

原子力発電で生成するマイナーアクチノイド(ネプ ツニウム、アメリシウム、キュリウム等の超ウラン 元素)は長寿命放射性廃棄物として原子力の社会受 容性の根本問題である。一方、アクチノイド元素に は非常に興味深い性質があり、従来はマイスナー効 果などで相反する現象と見られていた超伝導と強磁 性の共存がウランにおける発見[8]や、アクチニウム 錯体が転移性ガンに劇的に効果のある核医薬[9]とし て脚光を浴びている。他方、福島第一原子力発電所 事故の廃止措置で取り出すデブリの劣化評価を始め、 基礎研究からの支援の必要性が増している。 これらいずれの分野でも、核的性質は正確に把握されているものの、電子的性質の把握とこれに基づく 物質設計に未解決の課題がある。

3. 分野の問いかけと研究計画

上記の課題に基づいてアクチノイド物性化学とい う分野の「問いかけ」は以下のように考えている。 (1) 重元素かつ 5f 内遷移元素であるアクチノイドの 性質はどんな孤立系物質(または周期性物質との境 界)で顕になるか?このような凝縮系物質の性質は 医療、放射性廃棄物の処理に応用できるのでは? (2) 高いアルファ放射能のため取扱数量が規制され 実験研究が困難になっているが、極微少量の研究で 打開可能ではないか?また、このような非統計的扱 いは科学全体の方向性と合致するのではないか? (3) アクチノイドの電子状態の計算は相対論的効果 の取り込みの困難があるが、実験研究のサポートの ため、積極的に照合してその適用性と限界を明らか にする必要があるのではないか?

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

#### 参考文献

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



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

Subjects and research programs in the division of Condensed-matter Chemistry in Actinides Tomoo Yamamura, yamamura@rri.kyoto-u.ac.jp

(京大複合研) ○石 禎浩

# 1. はじめに:京都大学複合原子力科学研究所

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

#### 2. FFAG 加速器:

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

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

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

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

#### 3. KURNS における FFAG 加速器開発:

加速器複合系は当初、図1の破線枠"Original Injector System"に示す通り、イオンベータ・ブースタ ー・主リングの3つのFFAGリングから構成された[2]。 2009 - 2010年の期間は、このシステムを用いて京都 大学臨界集合体(以下KUCA)ヘビームを供給し、世界 初のADS実験を実施した[3]。

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



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



Fig. 2: FFAG Accelerator Complex at KURNS.

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

最終段加速を行う主リングは、主電磁石にリター ンヨークフリーという奇抜な構造を採用している。 磁極で発生する磁束を戻す鉄の構造体(リターンヨ ーク)が存在しないため、ビームの入射・取出しが 容易にできる。その反面、主電磁石間に設けられた 直線部に磁場が漏洩するため、様々な困難を誘発す る。このため、ビームコミッショニングは長期に及 んだが、2008年度内にKUCAでのADS実験が実現した。

# 4. KUCA での ADS 実験:

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





#### 5. ビーム強度増強と種々の照射実験:

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

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

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

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

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

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

#### 6. 今後の展開:

これまで、KUCAでのADS実験では燃料・ターゲット・ 炉心条件等、様々な異なる条件の下、加速器駆動未 臨界燃料体系でのデータ収集を行って来た。ADSのさ らに詳細な研究のためには、異なるエネルギーの陽 子ビームを用いた実験が望まれている。日本原子力 研究開発機構では、400 MeVの陽子ビームを用いた ADSの基礎実験を計画中であるが、加速器と原子炉を 結合させてADS実験を実施できる施設は2018年現在、 KURNSのみである。KURNSのFFAG加速器が200 MeV-400 MeVの中間のエネルギーの陽子ビームをKUCAに供給 できるならば、ADS炉心の陽子エネルギーに対する反 応の基礎データを収集することができ、今後のADS 建設に必須な知見が得られるものと期待できる。そ こで、現在の主リングを入射器としたエネルギー可 変型FFAGリングの可能性を検討中である(図4参照) [5]。



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

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



Fig. 5: ERIT mechanism to produce secondary particles.

参考文献

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

# (京大複合研) 福谷 哲

1.はじめに:放射性廃水中トリチウム(<sup>3</sup>H,(T);半 減期12.3年)はほぼHTOの化学形態で存在しており、 その同位体化合物である水(H<sub>2</sub>O)と分離する、すなわ ち処理する事は非常に難しい。施設外の環境に排水 する際の放射性物質濃度は法令で定められており、 トリチウムは、化学形態を水として、濃度限度は 60Bq/cm3(6.0×10<sup>4</sup>Bq/L)である。従来、原子力発電所 では PWR で 10<sup>14</sup> Bq、BWR で 10<sup>13</sup>Bq オーダーの年 間放出管理目標値を定めて、トリチウムを処理する 事無く海に放出してきた。福島第一原子力発電所に 関連するいわゆる汚染水は、2018 年現在 100 万トン 程度タンク群に貯留されていると言われており、そ のトリチウム濃度は 10<sup>5</sup>~10<sup>6</sup>Bq/L であると公表され ている。

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

#### $2H_2O \rightarrow 2H_2 + O_2 \quad \cdots (1)$

H<sub>2</sub>O と HTO が混入する水であれば、H<sub>2</sub>O の分解速度 の方が早く、HTO が液相に濃縮される。われわれも 環境中の微量トリチウムを測定する際にはこの手法 でトリチウムを濃縮し測定しているが、この分離技 術を汚染水処理に用いると莫大なエネルギーが必要 となり現実的でない。今回われわれはスピネル型結 晶構造をもった二酸化マンガンに着目し、トリチウ ムの分離を試みた[1]。実験系をFig.1に示す。LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> をあらかじめ塩酸によってプロトンを付加する((2) 式)。

LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> + x HCl  $\rightarrow$  Li<sub>1-x</sub> Mn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>· H<sub>x</sub> + x LiCl ···(2) このプロトン化した Li<sub>1-x</sub> Mn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>· H<sub>x</sub> を、HTO を含ん だ模擬廃水に反応槽で接触させる。反応槽は密閉系 でヘッドスペースにエアポンプで空気を送り、槽内 の水蒸気を後段の純水を入れたガス洗浄びんにて回 収するような系である。随時模擬廃水を採水し、廃 水中トリチウム濃度を液体シンチレーションカウン ターで測定した。

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

 $\begin{array}{l} Li_{1\text{-}x}\ Mn_2O_4 \!\!\cdot H_x + yOT^{\text{-}} \!\rightarrow\! Li_{1\text{-}x}\ Mn_2O_4 \!\!\cdot H_x \!\cdot\! (H_{x\text{-}y}T_y) \\ &+ yH^+ + y\ (2e^{\text{-}}) + y\ ({}^{1\!\!/}_2O_2) \quad \cdots (3) \end{array}$ 

 $\begin{array}{ll} Li_{1-x}Mn_2O_4 & H_x \cdot (H_{x-y}T_y) + yOH^- \rightarrow Li_{1-x} & Mn_2O_4 & H_x \\ & + yT^+ + y & (2e^-) + y & (\frac{1}{2}O_2) & \cdots & (4) \end{array}$ 

New Approach for Tritium Separation from Water Satoshi Fukutani fukutani@rri.kyoto-u.ac.jp  $2yH^+ + 2yT^+ + y(4e^-) + 2y(O) \rightarrow 2yHTO ···(4)$ という反応が進み HTO が回収されると考えられる。 水中には H2O と HTO から電離した OH-と OT-が存 在しているが、(3)式のところで選択的に OT-との反 応が起こると考えられている。今後理論を詳細に検 討し、プラント化に向けて取り組んでいきたい。







Fig.2 Variation in T radioactive concentrations in tested water

参考文献

[1] H. Koyanaka & S. Fukutani, Tritium separation from parts-per-trillion level water by a membrane with protonated manganese dioxide, J Radioanal Nucl Chem (2018) 318:175-182. (京大複合研、京大院工<sup>1</sup>、京大工<sup>2</sup>、岡山大自生セ<sup>3</sup>、東北大多元研<sup>4</sup>) ○高宮幸一、田中徹<sup>1</sup>、新田真之助<sup>1</sup>、西山雄大<sup>2</sup>、西澤佑介<sup>1</sup>、二上文夫<sup>2</sup>、竹内裕弥<sup>1</sup>、沖雄一、長田直之<sup>3</sup>、 石禎浩、上杉智教、栗山靖敏、阪本雅昭、桐島陽<sup>4</sup>、小野寺将規<sup>4</sup>、佐藤修彰<sup>4</sup>、関本俊、大槻勤

1. はじめに

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

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

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

溶液状放射性エアロゾルの製造法の開発(高宮・2015)

・強射線場で生成する放射性エアロゾルの測定法の 開発と生成メカニズムの解明(沖・2015-2018)

・高温環境下で生成する合金状放射性エアロゾル(関本,高宮・2015-2017)

・放射性エアロゾルの性状・化学状態(高宮・2016) ・塩化ナトリウムを主成分としたエアロゾルに放射 性物質が付着したエアロゾル(二宮・2015-2017)

・模擬エアロゾルを用いた放射性セシウムの環境中 での移行分析(桐島・2016)

溶液状放射性エアロゾルの生成メカニズムの解明

とモデル構築(高宮・2017-2018)

・不溶性放射性微粒子の性状分析(高宮・2018)

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

2. 主な研究成果

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

(京大複合研 沖 雄一)

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

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

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



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

 2) 溶液状放射性エアロゾルの製造と生成メカニズ ムの解明

(京大複合研 高宮幸一)

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

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



Fig. 2 Radioactive aerosol generation system composed by solution aerosol generator and chamber in which <sup>252</sup>Cf source is placed.

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

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



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

3) 模擬エアロゾルを用いた放射性セシウムの環境 中での移行分析

(東北大多元研 桐島 陽)

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

2)で紹介した放射性エアロゾルの製造法を適用し て 0.4 wt%の CsCl 溶液エアロゾルを生成し、懸濁粒 子に対し 90 秒および 2.5 時間連続してエアロゾルの 吹き付けを行なった。粒子に付着したセシウムの総 量は、吹き付け後の粒子試料の一部からセシウムを 溶離して ICP-MS により定量し、それぞれ 6.9 µg/g (90 秒)、113µg/g(2.5 時間)と見積もった。吹き付 け後の粒子試料は人工海水中に 6 日間浸漬した後に、 上澄みをろ過してろ液中に存在するセシウムの量を ICP-MS によって定量し、懸濁粒子からのセシウムの 脱着率を見積もった。その結果、2.5 時間の吹き付け を行なった試料では、人工海水に浸漬することで 90%以上のセシウムが脱着することがわかった。一 方、90 秒の吹き付けを行なった試料からの脱着率は 30%であった。137Csを含んだ模擬河川水溶液中と懸 濁粒子を混合することによってセシウムを吸着させ た粒子では、懸濁粒子中のセシウムは海水により 30%が脱着することがわかっており、これは90秒間 のセシウム溶液エアロゾルの吹き付けによってセシ ウムを吸着させた粒子の脱着率と一致した。このこ とから河川懸濁粒子からのセシウムの脱着挙動は、 セシウムの吸着がどのような形態で行われたかより も、粒子が保持するセシウムの量に依存することが わかった。

# 4) 不溶性放射性微粒子の性状分析

(京大複合研 高宮幸一)

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

まず、土壌試料の IP 画像上に不溶性放射性微粒子



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

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

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

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

#### 発表論文

1. K. Takamiya *et al.*, "Observation of attachment ratio of fission products on solution aerosol" J. Radioanal. Nucl. Chem. **307** (2016) 2227-2230.

2. K. Takamiya *et al.*, "Attachment Behavior of Fission Products to Solution Aerosol" J Radiat. Prot. Res. **41** (2016) 350–353.

3. M. Onodera *et al.*, "Desorption of radioactive cesium by seawater from the suspended particles in river water" Chemosphere, **185**, (2017) 806–815.

Production mechanism of radioactive aerosols released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Koichi Takamiya, Toru Tanaka, Shinnosuke Nitta, Yudai Nishiyama, Yusuke Nishizawa, Fumio Futagami, Yuya Takeuchi, Yuichi Oki, Naoyuki Osada, Yoshihiro Ishi, Tomonori Uesugi, Yasutoshi Kuriyama, Masaaki Sakamoto, Akira Kirishima, Masaki Onodera, Nobuaki Sato, Shun Sekimoto, Tsutomu Ohtsuki takamiya@rri.kyoto-u.ac.jp

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

(原子力機構<sup>1</sup>、JST さきがけ<sup>2</sup>、北大理<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>) 〇中川洋<sup>1,2</sup>、斉尾智英<sup>2,3</sup>、杉山正明<sup>4</sup>、 井上倫太郎<sup>4</sup>

#### 1. はじめに:

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

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

#### 2. 実験:

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

#### 3. 結果:

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



Fig.1 主成分解析から明らかにしたドメイン運動

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

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

#### 参考文献

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

Solution structure of multi-domain protein

Hiroshi Nakagawa, Tomohide Saio, Masaaki Sugiyama, Rintaro Inoue nakagawa.hiroshi@jaea.go.jp

# (P2) フィブリノーゲンによるインスリン B 鎖アミロイド線維の形成阻害

(神戸大院理、京大複合研<sup>1</sup>) 〇茶谷絵理、山本直樹、赤井大気、井上倫太郎<sup>1</sup>、杉山正明<sup>1</sup>、田村厚夫、

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

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

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

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

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



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

参考文献

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

Inhibition of amyloid fibril formation of insulin B chain by fibrinogen Eri Chatani, Naoki Yamamoto, Taiki Akai, Rintaro Inoue, Masaaki Sugiyama, Atsuo Tamura chatani@crystal.kobe-u.ac.jp (原子力機構、京大複合研<sup>1</sup>、豊橋技科大<sup>2</sup>) 〇大場洋次郎、日野正裕<sup>1</sup>、足立望<sup>2</sup>、戸高義一<sup>2</sup>、井上倫太郎<sup>1</sup>、 杉山正明<sup>1</sup>

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

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

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

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



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

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

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

# 参考文献

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

Characterization of microstructures in steels using small-angle X-ray scattering Yojiro Oba, Masahiro Hino, Nozomu Adachi, Yoshikazu Todaka, Rintaro Inoue, Masaaki Sugiyama ohba.yojiro@jaea.go.jp

# (P4) Measurement of <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio of caesium micro-particles and contaminated soil particles using well-type germanium detector

(Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University<sup>1</sup>, Egypt Second Research Reactor, Atomic Energy Authority, Cairo, Egypt<sup>2</sup>) OM. Soliman<sup>1,2</sup>, F. Futagami, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, and T. Ohtsuki

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

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

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

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

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

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

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

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



**References:** 

[1] K. Hirose, Sci. Total Environ. 470 (2014) 800.

[2] K. Adachi, et al., Sci.Rep. 6 (2016) 20548.

[3] Y. Satou et al., Anthropocene 14 (2016) 71.

Measurement of <sup>134</sup> Cs / <sup>137</sup> Cs activity ratio of cesium micro-particles and contaminated soil particles using well-type germanium detector

M. Soliman, F. Futagami, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki

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

#### ○はじめに

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

#### ○反射率と成膜手法

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

従来、ボールオンディスク実験等の摩擦試験に耐 えうる成膜は出来ていなかったが、KUR-IBS を用い ることでボールオンディスク実験にも利用可能とタ フでかつ平滑な鉄膜の作製が可能となった。 KUR-IBS は、大面積で高性能多層膜中性子ミラー製 作のための装置であり、平滑な多層界面が製作可能 であるが、膜厚が厚くなるとどうしても粒界サイズ は増大する。これはX線反射率(XR)法でも再現性良 く確認されている[4]。この特徴を利用して、厚みを 変えることで組織(粒界サイズ)を制御した。実験 は 50, 500, 5000, 4200nm 厚さの鉄膜を作製し、豊橋 技科大グループによってボールオンディスク実験を 行った。4 つの膜厚依存に伴って摩擦係数に違い、 つまり膜厚の減少(ナノ組織化)に伴って、摩擦係 成膜レートを求めて、100nm 以上の厚さは成膜時間 でコントロールしている。これは中性子スーパーミ ラー等ナノメートル以下の膜厚制御が必要な多層膜 にも良く機能している[5]。京大複合研のラボ XR で Kissing fringe からの膜厚が計測できるのは、100nm 程度以下であるため、機能性膜の吸着実験も、鉄膜 厚としては 50nm 以下で行っている。これは微細な ナノ組織化された極限として位置づけにある。

#### ○潤滑油膜の制御に向けて

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

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

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

- [1] T.Hirayama, et al., Tribol. Int. 54 (2012) 100.
- [2] T.Hirayama, et al., Lubrication Science. 2018;1.
- [3] 大場洋次郎, 他 本学術講演会報文集
- [4] 日野正裕, 他 第 52 回学術講演会報文集, p21.
- [5] M.Hino, et al., Nucl.Inst.Meth. A797 (2015) 265.
- [6] M.Hino, et al., J.Nuc. Sci. Tech. 54 (2017) 1223.
- [7] 小田達郎, 他 本学術講演会報文集

ここで鉄膜の厚みは、100nm以下の厚みを成膜し、

A trial for structural evaluation of lubrication interface by X-ray and neutron reflectometry II Masahiro Hino, Nozomu Adachi, Yoshikazu Todaka, Yojiro Oba, Tomoko Hirayama hino@rri.kyoto-u.ac.jp

(京大複合所)〇高田匠、守島健、井上倫太郎、佐藤信浩、杉山正明、藤井紀子

#### 1.はじめに:

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

#### 2.実験:

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

# 3.結果:

加齢後ヒト水晶体凝集体画分中の aA-Cry 中にお いて Asp58 残基が著しく異性化していた。該当 Asp 部位の疎水性を増加させた aA-Cry M に関して、野 生型よりも大きい凝集体を形成することが判明した。 高次構造変化が見られた一方で、二次構造に変化は 見られなかった。いずれの変異体に関しても水晶体 透明性維持に大きな役割を果たすシャペロン機能 (蛋白質凝集抑制能)の低下がみられた。 4.考察:

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

Asp Isomerizations Caused Lens Protein Insolubilization

Takumi Takata, Ken Morishima, Rintaro Inoue, Nobuhiro Sato, Masaaki Sugiyama, Noriko Fujii. takumi@rri.kyoto-u.ac.jp

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

1. 背景

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

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

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

#### 2. 実験

模擬燃料デブリは燃料成分として U0<sub>2</sub>、コンクリー ト成分として Ca および Si、燃料被覆管の酸化物と して ZrO<sub>2</sub>を用い、これらを所定の比率でめのう乳鉢 を用いて磨砕混合し、高温加熱処理して(U, Zr)O<sub>2</sub> 固 溶体を調製した(以下、MCCI デブリ)。さらにこの模 擬デブリ成分とガラス成分としての SiO<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>O を所定の比率でめのう乳鉢を用いて磨砕混合した。 この混合物をアルミナるつぼに入れ、大気雰囲気で 4 時間、高温加熱(1200℃)処理を行った。また一部の 試料については、あらかじめ空気通気下で予備的に 酸化加熱処理を施した後、同様に高温加熱処理を行 った。加熱処理した混合物を炉冷した後、目視によ りガラス回化の進行を確認した。

京都大学複合研 (KUR) ホットラボの圧気輸送管 No. 2 (Pn-2)、水圧輸送管 (Hyd) において固相試料に対 し熱中性子照射を行い、照射試料は生成核インベン トリを測定した後、中性 pH(~7、含 pH 緩衝材 PIPES)、 イオン強度 I = 0.1 (NaClO<sub>4</sub>)の水溶液に浸漬した。恒 温振とう器 (25°C)で所定時間振とうした後、浸漬液 の一部を分取し、孔径 0.45 $\mu$ mのメンブランフィル タでろ過し、0.1 M HNO₃で希釈して U 濃度を ICP-MS で測定するとともに、一部を蒸発乾固して点線源様 とした試料のγ線スペクトロメトリーを行った。得 られた結果から、式(1)で示すような各核種の溶出率 を算出し、溶出挙動を評価した。

$$R_{\rm M}(t) = \frac{A_{\rm M}(t)}{A_{i,\rm M}} \tag{1}$$

3. 結果と考察

3-1. (U, Zr) 0<sub>2</sub>-ガラス成分系

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



# Fig. 1 ガラス化処理後の外観(左:#GA05,右:GA05)

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

# 3-2. MCCI-ガラス成分系

MCCI デブリの含有率が 5wt% (GC05) および 15wt% (G C15) においては、ガラス化の状態に顕著な違いが確 認された (Fig. 2)。



# Fig. 2 ガラス化処理後の外観(左:GC05,右:GC15)

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

#### 参考文献

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

Vitrification of simulated MCCI debris and dissolution behavior of nuclides

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

# (P8) B-3 小型多目的中性子回折計の進捗状況 2018

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

1. はじめに:京都大学研究用原子炉(KUR)のB-3実験孔には単結晶用4軸中性子回折計(4CND)が 設置されていたが、老朽化によって稼働率が低迷し ていた。しかしながら、B-3 実験孔は 10<sup>5</sup> n/s·cm<sup>2</sup>(試 料位置、5MW 運転時)の中性子ビーム強度を有して おり、中性子波長も1.0Åと短いため、広い運動量空 間(Q空間)で観測することが可能である。そのた め、中性子バックグラウンドを極力低減することが できれば、KUR 共同利用装置として再び活用するこ とができる。また、中性子を利用することで、物質中 の軽元素(水素、リチウム及び酸素など)の原子存在 位置を精度良く決定できることから、蓄電池、水素 吸蔵材料及び燃料電池のようなエネルギー材料研究 への利用が期待される。以上のような理由から、B-3 実験孔をリニューアルし、新たに小型多目的中性 子回折計を設計・製作した。本発表では、今年度(2018 年度)の進捗及び利用状況について報告する。

2. 装置仕様: Fig.1 に小型多目的中性子回折計 (B-3実験孔)を示す。中性子バックグラウンドを極力低 減するため、B<sub>4</sub>C10%入りポリエチレン((株)アトム シールド製)および B<sub>4</sub>C レジン、B<sub>4</sub>C ゴムが使用さ れている。B-3 実験孔は、Cuモノクロメータを利用して 単色中性子ビーム(波長:1.0 Å)を供給している。4CND で使用していた Cuモノクロメータ制御用ゴニオメータを 撤去し、新たに2軸小型ステージ(回転及びスイベル ステージ、神津精機(株)製)を設置した。さらに、 4CND の4サークル・ゴニオメータを撤去し、新たに ビームシャッター及び2軸ゴニオメータ (Huber 440/ 430) を設置した。Huber 440 のアーム上には、新設 の検出器バンクが取り付けられている。これまで 4CND のメイン・カウンター部では BF<sub>3</sub>比例計数管 が1本使用されていたが、これを撤去し、新たに<sup>3</sup>He ガス検出器(直径:1/2 インチ、有効長:約 300 mm)を25 本導入した。<sup>3</sup>He ガス検出器は新設の検出器バンク内 に1°間隔で配置している。また、空間分解能の悪化 を抑制するため、<sup>3</sup>He ガス検出器の間には Cd 板による コースコリメータが挿入されている。なお、試料から検出 器までの距離(L<sub>2</sub>)は 1200 mm である。 測定可能な回折 角(20)の範囲は、5°≤2θ≤150°である。ゴニオメータ の制御、中性子数の計測、等については、すべてパー ソナルコンピューター上で行う。今年度、データ集 積システムを一新し、J-PARC MLF で使用している NEUNET の最新版 NEUNET-c(イベントデータ方式)を 導入した。これにより、測定終了後でも、測定データの

検証および回折データの再構築が可能となった。

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



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



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

The current state for the compact versatile neutron diffractometer on the B–3 beam port, 2018 Kazuhiro Mori, Ryo Okumura, Hirofumi Yoshino, Masaya Kanayama, Setsuo Sato, Haruhiro Hiraka, Kenji Iwase, Akihiro Okumura, and Fumiyuki Kobayashi kmori@rri.kyoto-u.ac.jp

# (P9) 小麦タンパク質グリアジンの凝集体構造の SAXS による解析

(京大複合研、京大院農<sup>1</sup>) 〇裏出令子、佐藤信浩、杉山正明、東野ゆうき<sup>1</sup>、井上倫太郎、守島健

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

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

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



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



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

参考文献

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

SAXS analysis of nanostructures of hydreated wheat gliadins

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

(京大院工(院生)、京大複合研<sup>1</sup>、京大産官学<sup>2</sup>、高エネ研<sup>3</sup>、CROSS<sup>4</sup>) 〇奥村 明央、森 一広<sup>1</sup>、藤﨑 布美 佳<sup>2</sup>、米村 雅雄<sup>3</sup>、石川 喜久<sup>4</sup>

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

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

2.実験方法:Sr を 5%添加した Ce<sub>0.95</sub>Sr<sub>0.05</sub>F<sub>2.95</sub> 固体電解質は、CeF<sub>3</sub>粉末および SrF<sub>2</sub>粉末を化学量論 比で混合した後、メカニカルアロイング(MA)法 および熱処理により作製した.本試料を用いて電 気伝導度測定等の評価を行った.また、大強度陽 子加速器施設/物質生命科学実験施設(J-PARC MLF)の BL09 特殊環境中性子回折装置(SPICA) を用いて中性子回折実験および精密結晶構造解析 を行った.

3.実験結果: Ce0.95Sr0.05F2.95および CeF3 の電気伝 導度の温度依存性を Fig.1 に示す.Sr を 5%添加し たことで、電気伝導度が大幅に改善されているこ とがわかる.本結果より、固体電解質として求め られる電気伝導度 10<sup>4</sup> S/cm 以上を満たすために は、140°C 以上昇温させる必要があることが分か った.Fig.2 に Ce0.95Sr0.05F2.95 固体電解質の高温中 性子回折実験(400 K)の結果を示す.結晶構造解 析(リートベルト解析)より、タイソナイト構造 (空間群: P-3c1)を用いることで、良好なフィッ ティング結果を得ることができた.Ce0.95Sr0.05F2.95 固体電解質の結晶構造を Fig.3 に示す.解析の結 果、Sr 置換で導入されたフッ素欠損は、特定のサ イト(F1 サイト)に集中していることが分かった.

#### 参考文献

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



Fig. 1. Electrical conductivities of  $Ce_{0.95}Sr_{0.05}F_{2.95}$  and  $CeF_3$ .



Fig. 2. Neutron diffraction data of  $Ce_{0.95}Sr_{0.05}F_{2.95}$  collected at 400 K using SPICA of J-PARC MLF.



Fig. 3. The crystal structure of  $Ce_{0.95}Sr_{0.05}F_{2.95}$  at 400 K.

Structural and electrochemical properties of  $Ce_{0.95}$  Sr<sub>0.05</sub> F<sub>2.95</sub> solid electrolyte for Fluoride Ion Batteries Akihiro Okumura, Kazuhiro Mori, Fumika Fujisaki, Masao Yonemura, Yoshihisa Ishikawa okumura.akihiro.45e@st.kyoto-u.ac.jp

# (P11) 海塩粒子の塩素及び臭素損失

(大阪府大、京大複合研1)○伊藤憲男、溝畑 朗、飯沼勇人1、奥村 良1

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

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

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







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

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

(JAEA、筑波大<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>) 〇仁尾大資、坂佐井馨、中島宏、田中進<sup>1</sup>、熊田博明<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>2</sup>

導入:加速器 BNCT において、患者の照射線量を最 適化するために、中性子束をリアルタイム測定する ことが必要である。しかしながら、BNCT で要求さ れる中性子束は10%(n/cm<sup>2</sup>/s)と高く、リアルタイム測 定はこれまでに実現していない。我々は図1に示す 光ファイバー一体型の Eu:LiCAF 製中性子検出器を



検出器

一体型 Eu:LiCAF 製中性子

用いて、リアルタイム測 定に挑戦している。今年 度は筑波大学中性子医療 研究センター(iBNCT)で 得られた知見を元に KUR 傾斜照射孔で実験 を行い、検出器の中性子 束に対する線形性及び変 動に対する追従性を測定 した。

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



図3 傾斜照射孔への設置状態

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





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

これらの結果を元に、KUR 傾斜照射孔における最 大約10<sup>12</sup>(1/cm<sup>2</sup>s)の中性子束の計数に向けた実験を計 画している。

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

Development of neutron detection technology using Eu:LiCAF scintillator

Daisuke Nio, Kaoru Sakasai, Hiroshi Nakashima, Susumu Tanaka, Hiroaki Kumada, Koichi Takamiya nio.daisuke@jaea.go.jp

# (P13) 原子炉中性子によって生じる DNA 損傷の分析

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

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

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

中性子の線量率は金箔の放射化により 2Gy h<sup>-1</sup>と推定されたが、原子炉中性子線にはさまざまなエネル ギーを持つ $\gamma$ 線がコンタミしていることから、 $\gamma$ 線 の寄与率を熱蛍光線量計によって推定し、その結果、 中性子の線量率は1 Gy h<sup>-1</sup>と見積もった。細胞は照 射後、ドライアイスで素早く凍結し、分析時まで保 管した。DNA 損傷の分析は、塩基損傷については質 量分析で、DNA 鎖切断については電気泳動法で行っ た。分析方法の詳細はいずれも既報の方法による [2-4]。 3. 結果:塩基損傷の分析は放射線によって特異的 に生じると考えられる酸化塩基損傷を中心に行った。 細胞から定法に基づいて染色体 DNA を抽出し、ヌ クレアーゼ処理により DNA をヌクレオチド単位に 分解し、質量分析を行った[3,4]。その結果、中性 子照射によってグアニンの酸化損傷である 8-オキソ デオキシグアノシン(8-OHdG)が線量依存的に増 加することが示された(Fig.1)。

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

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

#### 参考文献

H. Terato *et al.*, J. Radiat. Res., **49** (2008) 133-146.
 Y. Tokuyama *et al.*, J. Radiat. Res., **56** (2015) 446-455.
 K. Kudo *et al.*, J. Electrostat., **73** (2015) 131-139.

[4] K. Kudo et al., J. Phys. D. Appl. Phys., 48 (2015) 365401.







DNA damage with the neutrons from reactor

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

(京大複合研、阪大蛋白研<sup>1</sup>) 〇慈幸千真理、ゲーレ・クリストフ<sup>1</sup>、森本幸生

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

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

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

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



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

#### 参考文献

[1]Boyer, "The ATP Synthase-A Splendid Molecular Machine" *Annu. Rev. Biochem.*, vol.66, 717-749, (1997). [2]Davies *et al.*, " Structure of the yeast F1Fo ATP synthase dimer and its role in shaping the mitochondrial cristae." *PNAS*, (2012).

[3]Jiko *et al.*, "Bovine F1Fo ATP synthase monomers bend the lipid bilayer in 2D membrane crystals" *eLife*, (2015).

[4]Kucharczyk *et al.*, "Mitochondrial ATP synthase disorders: Molecular mechanisms and the quest for curative therapeutic approaches" *BBA*, vol.1793, 186-199, (2009). [5]Hauer *et al.*, "GraDeR: Membrane Protein Complex Preparation for Single-Particle Cryo-EM" vol.23, 1769-1775, *Structure*, (2015).

Preparation of bovine FoF1ATPsynthase for cryo-EM structural analysis Chimari Jiko, Christoph Gerle, Yukio Morimoto jiko.chimari.5x@kyoto-u.ac.jp (京大複合研) 〇不破康裕、石 禎浩、上杉智教、栗山靖敏

#### 1. はじめに:

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

2. プロトタイプの基本パラメータ:

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

#### 3. ビーム安定性の評価

大強度加速器ではシステム維持管理のためのアク セスを阻害する放射化を避けるため、高いビーム安 定性が要求される。安定なビーム加速実現の第1段 階としてビーム光学系の動的口径を評価した。評価 体系には、これまで設計したビーム光学系のレイア ウト [6]をもとに、ビーム集束の色収差補正用の非 線形磁場成分や磁石端部の漏れ磁場を含む磁場分布 を用いた。評価対象には機能分離型光学系と機能結 合型光学系の両者を使用し、確保可能な動的口径の 大きさを比較した。その結果として短周長の円形加 速器で十分な動的口径の確保を実現するには、機能 結合型光学系がより適していることが示された。こ れは、機能結合型偏向電磁石に色収差補正用磁場成 分を広く分布させることで非線形な磁場成分の絶対 値を小さくできることに起因していると考えられる。 この結果をもとに、高温交流超伝導コイルの低損失 性とビーム安定性を両立する電磁石の開発が今後の 主な研究対象となる。

#### 4. 共鳴ビーム取り出し:

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

#### 謝辞

本研究は文部科学省の原子力システム研究開発事 業の助成を受けたものです。

#### 参考文献

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

Analysis of Beam Dynamics in a 1.5 MW High-Intensity Rapid Cycle Synchrotron Yasuhiro Fuwa, Yoshihiro Ishi, Tomonori Uesugi, Yasutoshi Kuriyama fuwa@rri.kyoto-u.ac.jp

(京大複合研) 〇守島 健、佐藤信浩、井上倫太郎、杉山正明

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

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

2. 実験: <u>SAXS</u>:京都大学複合原子力科学研究所の 実験室設置型 Cu-SAXS 装置(KUMASAKU, NA-NOPIX; リガク)を用い、高強度モード、カメラ距 離 1330 mm (散乱ベクトル q 範囲: 0.009 - 0.2 Å<sup>-1</sup>)、 温度 25℃にて SAXS 測定を行った。

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

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

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

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

多成分系の原点散乱強度 I(0)は、全体濃度 c

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

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

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

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



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



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

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

Structural analysis of a protein solution by complementary use of analytical ultracentrifugation and small angle X-ray scattering. Ken Morishima, Nobuhiro Sato, Rintaro Inoue, and Masaaki Sugiyama morishima@rri.kyoto-u.ac.jp

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

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

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

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

2. 実験:ILEI (55-227) -His を大腸菌発現系にて作 製、Ni-NTA レジンおよびサイズ排除クロマトグラフ ィー (SEC) により精製した。非還元状態での SDS-PAGE および SEC で、それぞれ単一バンドおよ び単一ピークであることを確認している。約 1.5 mg/mL の ILEI タンパク質溶液を各種 pH の緩衝液に 透析し、サンプル調製した。続いて、単量体一二量 体における結合一解離を分析するために分析用超遠 心機 (AUC) によりした。測定温度は 25℃、回転数 は 60,000 rpm および 20,000 rpm とした。

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

さらに AUC 測定から観測された多量体が実際に ILEI の結合―解離により生じている可能性を確認す るために、20,000 rpm での測定を行なった。その結 果、60,000 rpm で分離していた多量体のピークは 20000 rpm では単一のピークに集約されたことから (data not shown)、ILEI は単量体—多量体の平衡にあ ることが示唆された。またこれらの存在比率から、 解離定数を算出したところ、 $K_D$  (25°C、pH7.3) = 4.3×10<sup>4</sup> M,  $K_D$  (25°C、pH8.0) = 1.0×10<sup>4</sup> M であった。

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



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

参考文献

[1] H. Hasegawa et al., Nat. Commun., 5:3917 (2014).

[2] A.M. Jansson et al., J. Biol. Chem., **297** (2017) 15501-15511.

Physicochemical study on ILEI suppressing amyloid-β generation.

Emi Hibino, Ken Morishima, Rintaro Inoue, Masaaki Sugiyama, Masaki Nakano, Naoki Watanabe, Takuma Sugi, Masaki Nishimura emih@belle.shiga-med.ac.jp

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

#### 1. はじめに

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

本研究所ではこれまでより、密封線源による<sup>57</sup>Fe、 <sup>119</sup>Sn、および<sup>151</sup>Euのメスバウアー分光による研究を 積極的に行ってきた。また KURの中性子照射により 非密封線源を作成することにより<sup>125</sup>Te、<sup>129</sup>I、およ び<sup>197</sup>Auのメスバウアー分光を実施してきた。本研究 では、KUR と LINAC を相補的に利用し、メスバウア ー分光の実用可能な核種の拡大に向けた実験を実施 しており、<sup>61</sup>Ni,<sup>67</sup>Zn,<sup>127</sup>I,<sup>157</sup>Gd,<sup>161</sup>Dy,<sup>166</sup>Er,<sup>169</sup>Tm, <sup>170</sup>Yb,<sup>193</sup>Ir などのさまざまな核種のメスバウアー分 光の実施をめざし、試行を行ってきた。本稿では一 例として<sup>161</sup>Dy メスバウアー分光の現状を報告する。 2.実験と結果

<sup>161</sup>Dv メスバウアー分光は<sup>161</sup>Tb (半減期 6.88 日) を線源として用いることができる。<sup>160</sup>GdのKUR照射 により<sup>161</sup>Gd が生成するが、<sup>161</sup>Gd が β 崩壊すること により生成する<sup>161</sup>Tb を線源として利用する。メスバ ウアー線源としてはメスバウアースペクトルがシン グルピークになる線源を作成する必要があり、本研 究では Dy0.5Gd0.5F3 化合物を合成して実験を行った。 線源物質の合成は、混合した Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を HC1 に 溶解して HF を加えて沈殿させ、沈殿を洗浄後、真空 中で適切な温度制御にて加熱することにより無水 Dy0.5Gd0.5F3を得る方法を用いた。KUR 照射は、圧気輸 送管による 1MW 運転で 4 時間行った。Gd としては、 同位体濃縮していない天然のものを使用したため、 副生成物として<sup>159</sup>Gd(半減期 18.5 時間)が生成す るが、照射から1週間程度待ってから使用すること により副生成物を減衰させることができる。Fig.1 は、シングルピークの吸収体 DyF3を用いて<sup>161</sup>Dy メ

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



Fig. 1.  $^{161}$ Dy-Mössbauer spectrum of DyF<sub>3</sub> using  $^{161}$ Tb source in Dy<sub>0.5</sub>Gd<sub>0.5</sub>F<sub>3</sub> irradiated at KUR.





また、本研究所においては、LINAC の電子線を Pt ターゲットに照射して高エネルギーのγ線を発生さ せ、これを用いた光核反応による核種生成が可能で ある。メスバウアー線源の<sup>161</sup>Tb は<sup>162</sup>Dy の  $(\gamma, p)$ 反応により生成することが可能である。ここでは、 Dy 金属を照射してメスバウアー分光実験の試行を 行った。Fig.2 はシングルピーク吸収体である DyF<sub>3</sub> を用いて、<sup>161</sup>Dy メスバウアースペクトルを測定した ものである。天然の Dy の照射では<sup>161</sup>Dy の (γ, p) 反応により<sup>160</sup>Tb(半減期72.3日)が副生成物となり、 減衰を待って影響を小さくすることができず、Ge 検 出器などでガンマ線のエネルギーを弁別する必要が ある。LINAC による線源作成では、線源物質の改善 や測定の効率化が必要になるが、161Dy メスバウアー 線源が作成可能であることが確かめられた。本研究 で KUR と LINAC の相補的な線源作成の可能性が示さ れ、KUR を活用した多用な核種のメスバウアー分光 実験を推進することに加え、KUR を使用しないメス バウアー分光法の可能性を広げることで、多様な分 野における応用研究を展開することが期待できる。

Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Takumi Kubota, Makina Saito, Ryo Masuda, Masayuki Kurokuzu, Shuichi Hosokawa, Hiroyuki Tajima, Shin-ichiro Yazaki and Makoto Seto

kitao@rri.kyoto-u.ac.jp

Various Mössbauer source preparation using reactor and electron accelerator

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

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

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

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

3. 結果:図1にFEAのアノード電流を示す。黒 丸は照射前、赤丸は照射後の特性で、白抜きの青丸、 緑丸がそれぞれγ線照射中の特性である。エミッタ 電圧の絶対値が高いところではほぼ重なっている。 エミッタ電圧の絶対値の低いところでは、照射の有 無で電流が異なる。この理由は $\gamma$ 線照射に伴い、FEA および特性計測を行っているケーブルにおける $\gamma$ 線 励起電流が流れるためと考えられる。実際に照射前 と照射中(20 分経過)のアノード電流の差を取ると、 低電圧ではほぼ 10 nA で一定であるが、放出電子量 が大きくなると、この差も大きくなり、最大 50 nA 程度となった。また、光電変換膜における $\gamma$ 線励起 電流密度は1 kGy h<sup>-1</sup>あたり 100 nA cm<sup>-2</sup>程度であり、 膜厚の低減とともに低減することが明らかとなった。



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

参考文献

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

Development of radiation tolerant compact image sensor – characteristics of components under gamma-ray irradiation. Yasuhito Gotoh, Teruyuki Morito, Yusuke Handa, Masayoshi Nagao, Tamotsu Okamoto, Tomoya Igari, Takahiro Fukui, Tomoaki Masuzawa, Yoichiro Neo, Hidenori Mimura, Nobuhiro Sato, Masafumi Akiyoshi and Ikuji Takagi Gotoh.yasuhito.5w@kyoto-u.ac.jp

(物・材機構、量研機構<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>) 〇橋爪秀夫、上原章寛<sup>1</sup>、福谷哲<sup>2</sup>、藤井和子、安藤寿浩

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

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

2. 実験: HTO を含んだ水は京都大学複合原子力科 学研究所に保管している水を用いた。イオン交換剤 の Mg (OH) 2 と Ca (OH) 2 は市販品を使用した。イオン交 換剤1gを密栓付き試料ビンに加え、HTOを含んだ 水を希釈した希釈水 8 cm<sup>3</sup>を加え、密栓し、回転式 撹拌機により室温で5時間撹拌した。撹拌時間はイ オン交換の時間依存性を調べた結果から得た。希釈 は原液を1として、7/8、3/4、5/8、1/2、3/8、1/4、1/8 倍希釈をした。撹拌終了後、懸濁液は遠心分離によ り固相と液相に分離し、液相の上澄み液は0.45 また は 0.2 µm のフィルターで処理した。液相および原液 を発光剤で 1/20 倍に希釈し、シンチレーションカウ ンターで溶液中の T の濃度を測定した。イオン交換 量は E=(C<sub>0</sub>-C)•V/W(E:イオン交換量、C<sub>0</sub>: 原液の Tの濃度、C:上澄み液のTの濃度、V:溶液の体積、 W:イオン交換剤の重さ)で求めた。イオン交換等 温線を Langmiur や Freundlich の経験式に当てはめた。 Langmuir の式:  $E=a \cdot E_s \cdot B/(1+a \cdot B)$ (1)Freundlich の式:  $E=K_{f} \cdot B^{1/n}$ (2)

ここで、E<sub>s</sub>:飽和イオン交換量、B: 平衡濃度、a、K<sub>f</sub>、 n:定数である。

 結果:図1にイオン交換等温線を示す。表1は 経験式のパラメータである。Mg(OH)2の場合、平衡 濃度が約5x10<sup>5</sup> Bqでイオン交換が平衡に達し、イオ ン交換量は約650 Bq・g<sup>-1</sup>であった。Ca(OH)2は Mg(OH)2よりイオン交換量が少なく、平衡濃度が約 5x10<sup>5</sup> Bqで約100 Bq・g<sup>-1</sup>でイオン交換がほぼ平衡 に達した。図1ではデ-タのばらつきが大きくなっている。これはイオン交換量が少ないことが原因と考えられる。今後、実験データの数を増やし、経験式のパラメータの精度を上げる予定である。



Fig. 1 Isotherms for ionic exchagne of tritium by  $Mg(OH)_2$  (a), and  $Ca(OH)_2$  (b). The broken and black lines are for Langmuir and Freundlich equation, respectively.

Table 1. Parameters of Langmuir and Freundlichequation.

	Langmu	ir	Freundlich			
	$Mg(OH)_2$	$Ca(OH)_2$	Ν	/Ig(OH) <sub>2</sub>	$Ca(OH)_2$	
а	-8.69x10 <sup>-6</sup>	-2.56x10 <sup>-6</sup>	$K_{\mathrm{f}}$	79.3	0.337	
$E_{s}$	400	1.62	1/n	0.144	0.377	

参考文献

[1] H.Koyanaka & H. Miyatake (2015) Separation Science Technology, **50**, 2142-2145.

[2] 橋爪秀夫ら(2016) 特願 2016-135839.

[3] 橋爪秀夫ら(2018) 特願 2018-43792.

Hideo Hashizume, Akihiro Uehara, Satoshi Fukutani, Kazuko Fujii, Toshihiro Ando

HASHIZUME.Hideo@nims.go.jp

Exchange reaction of proton in hydroxide with tritium in aqueous solution

(京大院工) 〇春本大樹、小林大志、佐々木隆之

#### 1. 背景

ウランは還元的環境下の地下水中で主に4価イオ ンとして存在するが、酸化還元平衡で存在する6価 ウラニルイオンの炭酸イオンとの錯生成が強いこと から、高い炭酸濃度条件下ではウラニルイオン錯体 が支配化学種となる可能性がある。そのため、ウラ ンの核種移行評価において、ウラニルイオンの収着 挙動把握は重要である。ATR-FTIR法は収着化学種の 状態や収脱着量の変化を評価でき、これまでFe, Al, Tiのような鉱物中に広く存在する金属の酸化物や水 酸化物への収着挙動が調べられてきた[1-3]が、TRU 廃棄物中に含まれるジルカロイについての知見は見 られない。本報では、ウラニルイオンの酸化ジルコ ニウム(ZrO<sub>2</sub>)への収着挙動について検討した。

#### 2. 実験

室温、大気雰囲気中で ZrO<sub>2</sub>を超純水に溶解し、懸 濁液とした。FTIR 測定を行う VERTEX 70v (Bruker) のダイアモンドプリズム(ATR 部)に懸濁液を 1 $\mu$ l 塗 布して風乾し、これを 2 回繰り返して ZrO<sub>2</sub>膜を調製 した。これに以下の①~③の溶液を 0.1 ml/min で順 次通液しながら、所定の時間間隔でスペクトルを記 録した;①0.1 M NaCl (pH 6.07)、②2×10<sup>-5</sup> M ウラニ ル溶液 (pH 6.01)、③0.1 M NaCl (pH 6.07)。なお、各 溶液には大気平衡の炭酸イオンが溶存している。

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

#### 3. 結果

図1に溶液②の通液時の差スペクトルを示す。こ の過程において、907 cm<sup>-1</sup>に見られる正のピークは、 ウラニルイオンのZrO2への収着であると考えられる。 熱力学計算によれば、溶液②の液性におけるウラン の溶液内支配化学種は(UO2)3(OH)5<sup>+</sup>であり、ピーク波 数は923 cm<sup>-1</sup>と報告されている[4]。収着化学種がこ のウラニル水酸化物であると仮定した場合、図1で 見られたピーク波数とのずれは、固相への収着に起 因するものと解釈される [2]。

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



図1 ウラニル溶液(②)通液時の差スペクトル

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

参考文献

 K.Müller *et al.*, "Sorption of U(VI) at the TiO<sub>2</sub>-water interface: An in situ vibrational spectroscopic study", Geochimica et Cosmochimica Acta. **76** (2012) 191-205.
 K.Gückel *et al*, "Binary and ternary surface complexes of U(VI) on the gibbsite/water interface studied by vibrational and EXAFS spectroscopy", Chemical Geology. **326-327** (2012) 27-35.

[3] H.Foerstendorf *et al*, "The complexation of uranium(VI) and atmospherically derived CO2 at the ferrihydrite-water interface probed by time-resolved vibrational spectroscopy", Journal of Colloid and Interface Science. **377** (2012) 299-306.

[4] F. Quilès, A.Burneau, "Infrared and Raman spectra of uranyl(VI) oxo-hydroxo complexes in acid aqueous solutions: a chemometric study", Vibrational Spectroscopy**23** (2000) 231-241.

[5] G.Busca, V.Lorenzelli, "Infrared spectroscopic indentification of species arising from reactive adsorption of carbon oxides on metal oxide surfaces", Materials Chemistry. **7** (1982) 89-126.

Spectroscopic evaluation on sorption reaction of uranium to metal oxide Daiki Harumoto, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki Harumoto.daiki.62u@st.kyoto-u.ac.jp (京大院工)〇的場大輔、佐々木隆之、小林大志

1. 緒言

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

#### 2. 実験

2.1. 深度プロファイルの測定

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

# 2. 2. 逐次抽出

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

#### 結果と考察

測定により減重率、<sup>137</sup>Cs および<sup>90</sup>Sr 濃度の深度プ ロファイルの一例を図 1 に示す。灰化減重率は木の 根や落ち葉等の有機物成分が多く含まれる表層ほど 高い。<sup>137</sup>Cs は表層付近での濃度が高く強い収着が示 唆された一方、<sup>90</sup>Sr は <sup>137</sup>Cs より深部へ移行した割合 が高い。

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







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

#### 参考文献

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

Vertical migration behavior of FP deposited on soil around Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Daisuke Matoba, Takayuki Sasaki, Taishi Kobayashi matoba.daisuke.38u@st.kyoto-u.ac.jp (大阪府大、九大応力研<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>)○鷹野陽弘、角倉優雅、杉田健人、大澤一人<sup>1</sup>、徐虬<sup>2</sup>、堀史説

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

2.実験:  $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ の結晶バルク材を厚さ 0.5mm 程度のディスク状に切り出したものを用いた。粒子 線照射を電子線、Hイオン、Xe イオンについて行っ た。電子線照射は加速電圧 8MeV で照射量 2.0×  $10^{18}$ /cm<sup>2</sup>、Hイオン照射は加速電圧 1.5MeV と 380keV で照射量はどちらも 5.0× $10^{16}$ /cm<sup>2</sup>として照射を行っ た。Xe イオン照射は加速電圧 200MeV で照射量は  $1\times10^{14}$ /cm<sup>2</sup>、 $5\times10^{14}$ /cm<sup>2</sup>で行った。照射前後の試料 に対して、X線回折測定、陽電子寿命測定、同時計 数ドップラー拡がり測定、ビッカース硬さ測定を行 った。

3.結果: Fig.1 に電子線照射前後及び H イオン照 射前後 Xe イオン照射前後における Zr<sub>50</sub>Cu<sub>40</sub>Al<sub>10</sub> 合 金の X線回折測定のプロファイルを示す。また Table.1 に Zr<sub>50</sub>Cu<sub>40</sub>Al<sub>10</sub> 合金への粒子線照射前後に おける陽電子寿命値を示す。未照射の Zr<sub>50</sub>Cu<sub>40</sub>Al<sub>10</sub> 合金については主に Zr<sub>2</sub>Cu と Zr<sub>7</sub>Cu<sub>10</sub>の結晶構造を もつことがわかった。今回の実験ではいずれの粒子 線照射の前後においても X線回折で観察されるよう なハローピークは現れなかった。よってアモルファ ス化は起こらず結晶構造を維持していることが確認 できた。電子線照射前後で大きなピークの変化は見 られなかった。よって構造の変化など長距離秩序構 造の変化は見られなかった。H イオン照射をすると Zr7Cu10のピークが一部消失した。Zr2Cuの構造は保持された。はじき出された原子がエネルギーを持ち、 さらなるはじき出しを引き起こすカスケード損傷に より、電子線照射と比較しておおきな欠陥が導入さ れたと考える。とくに高エネルギーの照射で、表面 の構造が乱れた。さらに大きなエネルギーを持つ Xe イオンを照射すると、構造の乱れが顕著に表れた。

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



Fig. 1. Result of X-ray diffraction measurement of Zr30Cu40Al10 alloy before and after irradiation with particle beam.

 $Table. 1. \mbox{ Positron lifetime before and after irradiation of particle beam to} $$Zr50Cu40Al10 alloy.$ 

試料-Zr50Cu40Al10合金	陽電子寿命(ps)		
未照射	154.2		
e - 8MeV 1e18/cm <sup>2</sup>	177.7		
H <sup>+</sup> 380keV 5e16/cm <sup>2</sup>	160.2		
H <sup>+</sup> 1.5MeV 5e16/cm <sup>2</sup>	158.6		
Xe <sup>14+</sup> 200MeV 1e14/cm <sup>2</sup>	175.8		
Xe <sup>14+</sup> 200MeV 5e14/cm <sup>2</sup>	180.0		

#### 参考文献

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

Microstructural change of intermetallic compounds irradiated with particle beam Akihiro Takano, Yuga Sumikura, Kento Sugita, Kazuhito Osawa, Gyu jo, Huminobu Hori mc106004@riast.osakafu--u.ac.jp

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

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

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

茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL06 中性子共鳴スピンエコー分光器群 (VIN ROSE) [3] には, NRSE (Neutron resonance spin echo) と MIEZE の2種類の共鳴型スピンエコー装置が建設されてい る.図1.(a,b)に MIEZE 分光器の模式図と共鳴スピ ンフリッパーによる中性子エネルギー変化の図を示 す. 第1, 第2 共鳴スピンフリッパーの振動数がω1 と $\omega_2$ のとき,  $\pi/2 - \pi - \pi - \pi/2$ 体系では, MIEZEの 実効振動数は 2(ω2 -ω1) となる. 低振動数では最小 構成の π/2-π/2 体系を用い,これまで BL06 では, 20 kHz から 800 kHz の実効振動数の TOF-MIEZE シグナルを観測した. 図 1. (c, e, f) に振動数 400 kHz の MIEZE シグナルを示す [4]. 図 1. (d) は (c) の MIEZE シグナルを Fourier 変換した周波数スペクト ルであり、 400 kHz の位置に明瞭なピークが観測で きる.中性子パルスの繰り返し周波数 12.5 Hz の 2nd フレームを用いると,およそ 0.3 から 1.2 nm の波長 を利用できる. 試料-検出器間距離 (Lsd) 1.0 m の 条件では、振動数を切り替えることで、分解能の指 標である Fourier 時間としては数 ps から数 ns をカ バーできる.

今後冷凍機やマグネットなどの試料環境の整備を 進めるとともに、広い時空間領域に対応できるよう に試料一検出器間距離の延長や大面積検出器の整備 を行い、MIEZE 分光器での試料測定を進める.



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

#### 参考文献

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

Current status of the MIEZE-type neutron spin echo spectrometer at J-PARC MLF BL06 Tatsuro Oda, Masahiro Hino, Yuji Kawabata, Hitoshi Endo t oda@rri.kyoto-u.ac.jp

# (P25) 照射還元法により合成した Cu 合金ナノ粒子の安定化と微細構造

(大阪府大院、東北大金研<sup>1</sup>、独立行政法人産総研<sup>2</sup>、大阪府大推進機構<sup>3</sup>、京大原子炉<sup>4</sup>) ○内村祐也、戸田晋太郎、田中元彬、水越克彰<sup>1</sup>、田口昇<sup>2</sup>、田中真悟<sup>2</sup>、松井利之<sup>3</sup>、徐虬<sup>4</sup>、堀史説

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

#### 2.【実験方法】

同時還元による合金粒子合成

純水に濃度比を変えて酢酸銅Cu(COOCH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·H<sub>2</sub>O, 四塩化金酸ナトリウムNa(AuCl<sub>4</sub>)・2H<sub>2</sub>O, 界面活性剤 ドデシル硫酸ナトリウムNaC<sub>12</sub>H<sub>25</sub>SO<sub>4</sub>を加え20 mlに 調製した。これを10分間Arガスで脱気し、プラステ ィック容器に試料を封入した。この密封容器をγ線照 射(京都大学原子炉実験所にて線量率2.0kGy/h, 照射 線量20 kGyを行った。

二段階照射によるCu-Auナノ粒子の合成

純水に Na (AuC14)・2H20 0.5 mM, 界面活性剤 SDS 8.0 mM を加え調製し, 10 分間 Ar ガスで脱気し, γ 線照射(線量率 2.0 kGy/h, 照射線量 10 kGy)を行っ た. その後照射した試料に Cu (COOCH3) 2・H20 1.0 mM と界面活性剤 SDS 8.0 mM を加えたのち一度目と同じ 条件でγ線照射を行った。同様に金と銅イオンの添 加照射順を逆にして同様の実験も行った。照射直後 の溶液は吸光度分析(UV-vis)、透過型電子顕微鏡観 察を行った。更に、粒子の安定性を調べるために試 料を大気に暴露して放置したのちに UV-vis 測定を 行った。ナノ粒子の微細構造は走査型透過電子顕微 鏡による観察を行った。

3.【結果】図1は混合比Cu:Au=2:1の濃度比で同時 還元生成したナノ粒子のEDS分析電子顕微鏡写真で ある。この写真より、ナノ粒子が中心にAuで表面を Cuが覆っているコアシェル構造になっていること がわかる。この構造は、いずれの順番の2段階の照 射によっても同じであった。ただし粒径が大きい順 にAu-Cu2段階(40nm)、同時混合(10nm)、Cu-Au2 段階(6nm)照射であった。逆の照射順でも同じタイプ のコアシェル型になったのは、還元電位の強いAu が先に生成していたCu粒子に対し、Auが還元反応 して析出することでCuが再溶解したためではない かと考えられる。そのため、混合比を変えることに より構造制御の可能性が示唆された。一方、生成し たコアシェル型ナノ粒子を大気中に2ヶ月以上暴露 後しても安定に存在していることがわかった(図2)。



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





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

Yuya Uchimura, Shintaro Toda, Motoaki Tanaka, Yoshiteru Mizukoshi, Noboru Taguchi, Shingo Tanaka, Toshiyuki Matsui, Xu Qiu, Fuminobu Hori

mc106002@riast.osakafu-u.ac.jp

(京大院工、京大複合研<sup>1</sup>) 〇田中美穂、薮内敦<sup>1</sup>、木野村淳<sup>1</sup>

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

 2.実験:本実験では5mm×10mm×0.8mmに切り 出した高純度タングステン(金属技研株式会社、 99.999%)を使用した。機械研磨、2473 K以上での アニールを行った後、KURRI-LINACで8 MeVの電 子線照射を行った。照射量は5×10<sup>19</sup> e<sup>-/</sup>cm<sup>2</sup>とし、冷 却水中で100 ℃以下に保ちながら照射した。冷却水 からの水素導入を防ぐため、試料をアルミ管中に封 入した。

電子線照射後、室温から 1423 K まで 50 K 間隔で温 度を上げながら等時焼鈍を行った。各温度で 15 分間 焼鈍した後、室温で陽電子寿命測定を行った。

3. 結果:図1 に等時焼鈍過程における陽電子寿命 スペクトルの解析結果を示す。電子線照射直後のス ペクトルを二成分解析すると、短寿命 τ<sub>1</sub>=49.1 ps、 長寿命 τ<sub>2</sub>=174.2 ps が得られた。τ<sub>2</sub>が単空孔の寿命値 173 ps[8]と近い値をとっており、573 K以下では90% 以上の陽電子が単空孔で消滅していることが分かる。 623K から空孔で消滅する陽電子の割合が減少し始 め、623-723 K で空孔成分の寿命値の増加とその強 度の減少が著しく見られることから、空孔が移動し 始め、クラスタリングが起こっていると考えられる。 1373 K でのアニール後は強度が10%以下になってお り、空孔クラスターが回復したことを示している。 本実験では、タングステン中の空孔同士の結合エネ ルギーが正であることを示唆する結果が得られた。



Fig. 1. positron lifetimes ( $\tau_1$ ,  $\tau_2$ , and  $\tau_M$ ), intensity (I<sub>2</sub>), and variance of the fit ( $\chi^2$ /ndf) obtained for electron-irradiated tungsten samples as a function of annealing temperature.

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

参考文献

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

Irradiation-Induced Vacancy Defects and Its Recovery Behavior in High-Purity Tungsten Miho Tanaka, Atsushi Yabuuchi, Atsushi Kinomura tanaka.miho.57a@st.kyoto-u.ac.jp

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

#### 1. はじめに:

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

#### 2. フィラメント製作:

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

#### 3. イオン源引き出し部の放電事象の抑制:

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

#### 4. ビーム診断系の整備:

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

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

#### 5. 運転状態記録の遡及性:

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

6. まとめ:

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





Fig. 1. Deuteron Ion-source

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

参考文献

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

Development Status of DT Accelerator at KUCA

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

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

(京大複合研、北大工<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、パーデュー大<sup>3</sup>) 〇沈秀中、三輪修一郎<sup>1</sup>、肖毅赓<sup>1</sup>、孫昊旻<sup>2</sup>、日引俊<sup>3</sup>

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

2.実験:概略を図1に示す空気一水二相流実験装置を用いた。循環ポンプ、圧縮機から吐出された水及び空気流量はフローメータで計測された後、気水 混合部に入る。気水混合部で生成された二相流は、 垂直試験部に沿って上昇し、気水分離器で二相に分離される。試験部は、長さ3m内部辺長10cmの正方 形断面ダクトと36本直径10mmのアルミ棒から構成 される。水力等価直径*D*<sub>H</sub>は18.7mmである。全試験 部に対して6箇所の差圧計(DP1~6)と上部1箇所 (*z*/D<sub>H</sub>=149)のダブルセンサープローブ[1]を設置し、 局所計測を行った。局所計測領域は、断面内1/8 三 角ゾーン(16点での測定)である。



Fig. 1. Schematic of experimental apparatus.

3. 結果:本実験の局所計測結果の一部を、図 2~4 に示す。図2と3の典型的なボイド率と界面積濃度 (断面内 1/8 三角ゾーン)は径方向コアピーキング 分布を形成している。サブチャネルの平均法を利用 した実測断面平均ボイド率と界面積濃度を、図4に おいてドリフトフラックスモデルと界面積濃度相関 式の予測値と比較した。その比較結果により両者が 大概一致することが分かった。

![](_page_43_Figure_8.jpeg)

Fig. 2. Typical void fraction profiles

![](_page_43_Figure_10.jpeg)

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

![](_page_43_Figure_12.jpeg)

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

参考文献

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

Experimental study on interfacial area concentration in gas-liquid two-phase flows in a rod bundle flow channel Xiuzhong Shen, Shuichiro Miwa, Yigeng Xiao, Haomin Sun, Takashi Hibiki xzshen@rri.kyoto-u.ac.jp

(大產大、東工大原子炉<sup>1</sup>、阪大工<sup>2</sup>、京大炉<sup>3</sup>)○硲隆太、義本孝明、佐久間洋一<sup>1</sup>、藤井俊行<sup>2</sup>、福谷哲<sup>3</sup>、 芝原雄司<sup>3</sup>

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

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

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

#### 参考文献

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

![](_page_44_Figure_7.jpeg)

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

![](_page_44_Figure_9.jpeg)

Fig 2. Ca concentration in aqueous phase (circle) and organic phase (triangle) for the process of LLE. Iteration is six times, zero is feed solution for CaCl<sub>2</sub> aqueous and crown-ether organic (CHCl<sub>3</sub>) phase. : Preliminary.

Study of Isotope Separation via Chemical Exchange Reaction

Ryuta Hazama, Takaaki Yoshimoto, Yoichi Sakuma, Toshiyuki Fujii, Satoshi Fukutani, Yuji Shibahara hazama@est.osaka-sandai.ac.jp

(京大複合研) 〇伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司

1. はじめに

気液二相流は、軽水炉における安全性向上やシビ アアクシデント評価において非常に重要な現象の一 つである。しかしながら、空間的な分布が時間とと もに大きく変動する非常に複雑な流れであるため、 その流動の詳細な把握のためには、高い時空間分解 能を有した計測手法が必要となる。従来、様々な手 法の開発が行われてきていが、特に中性子を利用し たイメージング技術は金属管内の流動分布を可視化 計測できることから、二相流に対して非常に有効な 手法である。しかし、蒸発や凝縮を伴う高速二相流 動構造を理解するためには、中性子イメージング手 法の時間分解能の向上が必要不可欠である。そこで 本研究では、中性子イメージングシステムの改良に よって時間分解能の向上を図り、また被写体の移動 による画像ボケを評価することで、高速度中性子イ メージング技術の高度化を行うことを目的とする。 2. 高速度中性子イメージングシステム

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

![](_page_45_Figure_5.jpeg)

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

Improvement of temporal resolution in high speed neutron imaging Daisuke Ito, Kei Ito, Yasushi Saito itod@rri.kyoto-u.ac.jp 3. 回転円盤装置を用いた評価

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

![](_page_45_Picture_10.jpeg)

(a) 0 m/s (2000 frames are averaged) (b) 0.6 m/s (c) 1.2 m/s (d) 2.5 m/s (e) 5 m/s

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

#### 参考文献

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

# (P31) 鉛ビスマス-窒素二相流の分布特性に関する研究

(京大院エネ,京大複合研<sup>1</sup>) 〇有吉玄,伊藤大介<sup>1</sup>,伊藤啓<sup>1</sup>,齊藤泰司<sup>1</sup>

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

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

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

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

![](_page_46_Figure_7.jpeg)

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

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

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

参考文献 [1] 佐藤,世古口,日本機械学会論文集,41 (1975).

Distribution characteristics in LBE/nitrogen gas two-phase flow Gen Ariyoshi, Daisuke Ito, Kei Ito, Yasushi Saito ariyoshi.gen.46n@st.kyoto-u.ac.jp

(京大院エネ、京大複合研<sup>1</sup>) 〇松下貴博、伊藤大介<sup>1</sup>、伊藤啓<sup>1</sup>、齊藤泰司<sup>1</sup>

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

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

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

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

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

![](_page_47_Figure_7.jpeg)

![](_page_47_Figure_8.jpeg)

![](_page_47_Figure_9.jpeg)

Fig.2 Experimental setup for liquid film measurement.

![](_page_47_Figure_11.jpeg)

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

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

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

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

参考文献

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

Development of electrical capacitance method for liquid film thickness measurement by use of multipoint liquid film sensor Takahiro Matsushita, Daisuke Ito, Kei Ito, Yasushi Saito matsushita.takahiro.47z@st.kyoto-u.ac.jp

# (P33) 多孔質内における気液二相流圧力損失に及ぼす偏流の影響

(京大院エネ、京大複合研<sup>1</sup>) 〇栗﨑達也、伊藤大介<sup>1</sup>、伊藤啓<sup>1</sup>、齊藤泰司<sup>1</sup>

1. はじめに:ナトリウム冷却高速炉における炉心 溶融事故時において、炉心領域に残留した損傷燃料 の冷却(インプレース冷却)は事故の影響を炉容器 内にとどめるための重要な要素の一つとなっている。 このインプレース冷却挙動を評価する一つの指標と して、デブリベッド内の気液二相流圧力損失が挙げ られ、その予測式として Lipinski モデル[1]が提案さ れている。しかしながら Lipinski モデルは均一な空 隙率分布を仮定しており、空隙率の空間分布がある 場合には、予測精度が低下すると考えられる。実際 のデブリにおいても空隙率分布が存在することによ って不均一な流れが生じ、冷却挙動に影響を与える と考えられるため、空隙率分布を考慮する必要があ る。そこで本研究では、Lipinskiモデルに基づき、空 隙率分布を考慮した多孔質内気液二相流圧力損失計 算手法を構築し、実験値と計算値の比較を行った。 2. 実験装置: Figl.に実験装置を示す。試験部に球

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

3. 計算手法: Lipinski モデルは式(1),(2)から構成される。

$$\begin{split} \frac{\Delta P_L}{L} &= \rho_L g + \frac{150\mu_L v_L (1-\varepsilon)^2}{k_L \varepsilon^3 d^2} + \frac{1.75(1-\varepsilon)\rho_L v_L^2}{\eta_L \varepsilon^3 d} \quad (1)\\ \frac{\Delta P_G}{L} &= \rho_G g + \frac{150\mu_G v_G (1-\varepsilon)^2}{k_G \varepsilon^3 d^2} + \frac{1.75(1-\varepsilon)\rho_G v_G^2}{\eta_C \varepsilon^3 d} \quad (2) \end{split}$$

相対係数である k, n は様々な値が提案されているが 本報では Hu et al.[2]の係数を用いた。従来のモデル による計算においては流路断面で空隙率を一定とし ているが、本報で提案する手法では Fig.2 のように、 流路断面を中心と壁近傍の 2 領域に分割し、空隙率 分布モデル[3]から両領域の空隙率を与えた。その上 で、それぞれの領域において Lipinski モデルを用い た圧力損失算出を行い、壁面近傍と中心領域で圧力 損失が等しくなるようにボイド率比および気液相み かけ速度比を変化させ、繰り返し計算を行った。 4. 結果:Fig3.に本実験で得られた結果を示す。横 軸は圧力損失の実験値であり、縦軸は計算値である。

空隙率分布を考慮しない計算値(白抜き)は実験値 より大きな値をとる。一方、空隙率分布を考慮した 計算値(塗りつぶし)は、実験値に近い値をとった。 これは、実際の試験体系における壁近傍の大きな空 隙率を考慮できたことによって、実験値に近づいた と考えられる。また壁近傍の影響が大きくなると考 えられる大きい粒径ほど実験値に近づいた。

![](_page_48_Figure_9.jpeg)

Fig. 1 Experimental setup.

![](_page_48_Figure_11.jpeg)

Fig.2 Area split in modified model

![](_page_48_Figure_13.jpeg)

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

参考文献

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

Effect of drift on a gas-liquid two-phase pressure drop in porous media Tatsuya Kurisaki, Daisuke Ito, Kei Ito, Yasushi Saito kurisaki.tatsuya.64z@st.kyoto-u.ac.jp

(京大複合研) 〇高橋知之

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

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

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

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

放射線の影響について評価を行うために 1955 年 に国際連合に設置された「原子放射線の影響に関す る国連科学委員会(UNSCEAR)」は、このような原子 力施設の事故が発生した際に、研究者が集まって線 量評価を実施する。本事故においても、世界18ヶ国 から派遣された専門家 80 名以上で構成するチーム が設置され、主として2012年9月末までに発表され たデータ及び文献に準拠して線量評価が実施された。 この評価結果は 2013 年国連総会報告書として公開 されている<sup>2)</sup>。この報告書では、将来のガン統計に おいて、本事故による放射線被ばくによる疾患発生 率の全体的な上昇は、日本人の基準生涯リスクに対 して検出するには小さすぎる(有意な変化が見られ るとは考えがたい)こと、推定値の上限に近い甲状 腺吸収線量では、十分に大きな集団において識別可 能な甲状腺がんの発生率上昇をもたらす可能性があ るが、チェルノブイリ原発事故の時のように多数の 放射線誘発性甲状腺がんが発生するというように考 える必要はないことなどが報告された。

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

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

3.現状評価:環境モニタリングは、調査時点にお ける被ばく線量を評価する上で極めて重要である。 事故後数年間経過した時点においては、地表面等に 沈着した放射性セシウムによる外部被ばくと、放射 性セシウムを含む食品の経口摂取による内部被ばく が主な被ばく経路であり、これらの被ばく経路によ る被ばく線量を評価するためには、それぞれに関連 したモニタリングが必要である。

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

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

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

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

5. 放射線・放射能測定データの収集:本事故によ る公衆の被ばく線量をできるだけ正確に評価するた めには、特に事故初期に測定された環境モニタリン グデータを活用することが重要である。このような モニタリングデータは、国、地方自治体、研究機関 等や、研究者個人等が事故直後から測定を実施し、 多くのデータは公開されたが、公開されていない有 用なデータも多く存在すると考えられた。また、一 度公開された情報であっても、ウェブサイトの閉鎖 等に伴ってデータが消失してしまうことが危惧され た。一方、社会科学分野からは、データそのものは 信頼性の観点等から被ばく評価には使われなくても、 今回の事故において、様々な機関や個人が、それぞ れの目的を持ってデータを測定したという事実を記 録として留め、後世に残すということの社会的意味 も重要であると考えられた。

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

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

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

[1] 高橋知之, Jpn. J. Health Phys., 47 (1) (2012) 9-12.

[2] UNSCEAR, 2013 年報告書第 I 巻 科学的附属書 (2014).

[3] UNSCEAR,国連科学委員会による今後の作業計画を指し示す 2015 年白書(2015).

[4] IAEA; IAEA Technical Report Series **472**, Vienna (2010).

[5] 藤原慶子他, Jpn. J. Health Phys., **51** (1) 19-26 (2016) 19-26.

[6] K. Fujiwara et al., Jpn. J. Health Phys., **52**(3) (2017) 192-199.

[7] T. Takahashi *et al.*, Jpn. J. Health Phys., **53**(1) (2018) 12-18.

[8] 日本原子力研究開発機構,平成 29 年度放射性 物質測定調査委託費(東京電力株式 会社福島第一原 子力発電所事故に伴う放射性物質の 分布データの 集約)事業成果報告書(2018).

[9] M. Tanigaki *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **781** (2015) 57-64.

[10] 明石真言(研究代表者)、厚生労働行政推進調査 事業費補助金(食品の安全確保推進研究事業)平成 27-29年度総合研究報告書, 201723028A(2018).

[11] S. Kinase *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., DOI: 10.1080/00223131.2017.1365659 (2017).

[12]農林水産省,「平成 29 年度福島県産農産物等流 通実態調査」報告書(2018). (京大複合研) 〇喜田昭子

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

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

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

#### 3. 結果

3-1. 重水内タンパク質試料変性/構造再生

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

![](_page_52_Figure_8.jpeg)

図1. 重水中タンパク質変性/構造再生のモデル

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

3-2.変性/再生試料のX線結晶構造解析 前項で作製した,各重水内変性/再生試料およびコ ントロール試料の結晶は,全てほぼ同じ結晶化条件 から得ることができた.またX線回折実験を行った ところ,格子定数,得られた回折強度データの質, 得られた構造ともに差違はなかった.これらの結果 は,重水内での変性/巻き戻しは,分子内部の重水 素化以外はコントロールと同じであることを示して いる.すなわち,中性子線回折実験用試料調製のた めの,重水素化数増加の手法として有効である可能 性があることを示している[1].

3-3.大型結晶作製 変性/再生試料でコントロールから比べて増加し た重水素化部位は、まさに変性部位であると考える ことができる. これら重水素位置=変性部位を明ら かにするために中性子線回折実験に供するための巨 大結晶を作製した.フィルターで夾雑物を極力取り 除いた試料を用い、結晶が析出した結晶化バッチに 試料溶液を逐次追加していく方法で結晶を成長させ た.結晶成長の例を図2.に示す.

![](_page_53_Picture_1.jpeg)

図2. 大型結晶作製

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

![](_page_53_Picture_4.jpeg)

Rma

2 8-4 5Å wavelength range https://neutrons.ornl.gov/imagine

Crystal: Refolded from NaOD Denature

18 hr./frame Exposure time 35.25-2.29 (2.42-2.29) Resolution 0.156 (0.285) Total Refs. 33,224 (3,775) 4,857 (600) 6.0 (4.0) Unique Refs. Mean((I)/sd(I)) Completeness(%) 87.7 (76.0) 6.8 (6.3) Multiplicity

![](_page_53_Figure_8.jpeg)

![](_page_53_Picture_9.jpeg)

図4.得られた核密度図の例

Elucidation of denatured protein using deuteration. Akiko Kita kita@rri.kyoto-u.ac.jp

Protein Data Bank (https://www.rcsb.org/)に登録されて いる,重水置換リゾチウム結晶の中性子線構造 (11zn.pdb)では、図4右図に示したトリプトファン側 鎖には H(軽水素)が結合しているが[2]、本構造で は重水素に置換されているのが観測された.これは, 塩基性変性/再生の結果、初めて置換されたもので ある. この例をはじめとして、X 線回折実験では決 して判断できない,変性によるHからD(重水素) への置換が本実験により確認された.

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

![](_page_53_Picture_14.jpeg)

図5. 塩基性変性/再生結晶構造(βシート部)

![](_page_53_Picture_16.jpeg)

図6. 塩基性変性/再生結晶構造における 重水素置換部位 (αヘリックス部)

#### References

[1] A. Kita and Y. Morimoto, An effective deuterium exchange method for neutron crystal structure analysis with unfolding-refolding processes, Mol. Biotechnol., 58 (2016) 130-136.

[2] C. Bon, M.S. Lehmann, C. Wilkinson, Quasi-Laue neutron-diffraction study of the water arrangement in crystals of triclinic hen egg-white lysozyme, Acta Cryst. D55 (1999) 978-987.

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

(京大複合研、ANSTO<sup>1</sup>)○井上倫太郎、守島健、高田匠、佐藤信浩、Kathleen Wood<sup>1</sup>, 裏出令子、藤井紀子、 杉山正明

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

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

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

3. 結果及び考察:予備的な計算から 75d- *a*Bは 100% D<sub>2</sub>0 で不可視化出来ることが予め分かっている。そ こで、Fig. 1 に調整した 75d-*a*Bが体積分率 100% D<sub>2</sub>0 中で不可視化出来るかを確認するために濃度で規格 化した SANS profile を示す。体積分率 0%  $D_20$  中で は  $\alpha B$ -クリスタリンに対応する散乱パターンが確認 されたが、 $D_20$ の体積分率が上昇すると散乱強度の低 下が確認され、体積分率 100%  $D_20$  中では非干渉性散 乱に由来する散乱のみが観測された。つまり、今回 調整した 75d- $\alpha B$ は 100%  $D_20$  中で SANS 的にほぼ不可 視化出来ることが実験的に確認できた。また、Fig. 1

![](_page_54_Figure_7.jpeg)

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

(b)に 100%  $D_20$  中での 28.5 mg/mL の 75d- $\alpha$ Bと 0.45 mg/mL の h- $\alpha$ Bの散乱プロファイルを比較した。28.5 mg/mL の 75d- $\alpha$ Bは 100%  $D_20$  中では完全に不可視化出来なかったが、濃度にして 60 倍程度も差があるにも関わらず 0.45 mg/mL の h- $\alpha$ Bの小角側の散乱強度は 5 倍程度も高いことが確認された。この結果は 0.45 mg/mL の h- $\alpha$ Bが 28.5 mg/mL の 75d- $\alpha$ Bと混合してもh- $\alpha$ B由来のシグナルを実験的に捕らえることを保証している。今後、より完全な 75d- $\alpha$ Bの 100%  $D_20$ 中での不可視化を実現するために事前にサンプルの重水素化率の検定などが必要とされる。

次に、どのように SANS によりサブユニット交換が

観測されるかを簡単に説明する。SANS で観測される 前方散乱強度 (I(0)) は  $I(0)=NV^2(\rho_{p-}, \rho_s)^2$ で表され、  $N, V, \rho_p, \rho_s$ はそれぞれ数密度、分子体積、タンパク 質 (= $\alpha$ B-クリスタリン)の散乱長密度、溶媒の散乱 の $h-\alpha B/75d-\alpha B$ ), 0.038 (0.45 mg/mLの $h-\alpha B/28.5$ mg/mLの $75d-\alpha B$ )と実験誤差範囲内で一致した。つまり、 $\alpha B$ -クリスタリンを構成するサブユニットは

![](_page_55_Figure_2.jpeg)

Fig. 2. Schematic view of scattering length density of  $\alpha$ b-crystallin as a function of number of 75% deuterated subunits.

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

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

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

![](_page_55_Figure_7.jpeg)

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

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

我々はその謎の解明のために 28.5mg/mL 及び 0.45 mg/mLのh-αBに対して AUC 測定を行い溶液中での会 合数の分布を調べた。Fig. 5 (a), (b)は 40000 rpm で測定した 28.5mg/mL 及び 0.45 mg/mL h-αB会合体 の結果を示す。S20=10-15 付近に αB会合体由来する ピークが確認されたのと同時に Son=2 付近に僅かな ピークが観測された。より低分子量側の成分の分離 能を向上させるため同試料に対して 60000 rpm での 測定を行った(Fig. 5(c)及びFig. 5(d))。両サン プルに対して非常に明確な単量体由来のピークが S20=1.5付近に観測され、更に二量体、三量体由来の ピークも観測された。つまり、溶液中において会合 体のみならず主に単量体が共存していることが両濃 度に対して明らかとなった。更に、単量体と会合体 との重量比は濃度に依存せずに 0.015 程度であった。 この結果を踏まえて、我々は会合体からの単量体の 解離・再結合の過程がサブユニット交換における素

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

![](_page_56_Figure_1.jpeg)

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

![](_page_56_Figure_3.jpeg)

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

Clarification of mechanism of subunit dynamics of  $\alpha$ -crsytallin through deuteration assisted small-angle neutron scattering and analytical ultra-centrifuge

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

参考文献

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

# (T7) 大口径流路内多次元気液二相流の流動機構解明に関する研究

(京大原子炉、米国パーデュー大<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>) 〇沈秀中、日引俊<sup>1</sup>、中村秀夫<sup>2</sup>

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

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

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

Items	Measuring method for large non-spherical bubbles	Measuring method for small spherical bubbles		
Interfacial area concentration (IAC), <i>a<sub>i</sub></i>	$a_{i} = \sum_{l=1}^{2N_{b}} \frac{\sqrt{A_{01,l}^{2} + A_{02,l}^{2} + A_{03,l}^{2}}}{ A_{0} }$ (Kataoka et al. [3])	$a_{i} = \frac{1}{\Omega} \sum_{h=1}^{N_{h}} \frac{\left[ \left( A_{01,h} \right)^{2} + \left( A_{02,h} \right)^{2} + \left( A_{03,h} \right)^{2} \right]}{ A_{0} } \\ \times \left\{ \frac{\sqrt{(B_{01,2h})^{2} + (B_{02,2h})^{2} + (B_{03,2h})^{2}}}{\left  A_{01,h} B_{01,2h} + A_{02,h} B_{02,2h} + A_{03,h} B_{03,2h} \right } \\ + \frac{\sqrt{(B_{01,2h+1})^{2} + (B_{02,2h+1})^{2} + (B_{03,2h+1})^{2}}}{\left  A_{01,h} B_{01,2h+1} + A_{02,h} B_{02,2h+1} + A_{03,h} B_{03,2h+1} \right } \right\}$		
Bubbly or interfacial velocity vector*, $\mathbf{V}_{b,h}$ or $\mathbf{V}_{i,l}$	$\mathbf{V}_{i,l} = \frac{A_0 \left( A_{01,l} \mathbf{i} + A_{02,l} \mathbf{j} + A_{03,l} \mathbf{k} \right)}{\left( A_{01,l} \right)^2 + \left( A_{02,l} \right)^2 + \left( A_{03,l} \right)^2}$ (Shen and Nakamura [4])	$\mathbf{V}_{b,h} = \frac{A_0 \left( A_{01,h} \mathbf{i} + A_{02,h} \mathbf{j} + A_{03,h} \mathbf{k} \right)}{\left( A_{01,h} \right)^2 + \left( A_{02,h} \right)^2 + \left( A_{03,h} \right)^2}$ (Shen and Nakamura [5])		
Bubble diameter, $D_{h,l}$	N/A	$D_{h,l} = \frac{\sqrt{(B_{01,l})^2 + (B_{02,l})^2 + (B_{03,l})^2}}{ A_0 }, \ l=2h \text{ or } 2h+1$ (Shen and Nakamura [5])		
Spherical and non-spherical bubble classification	$C_{dv} = \frac{ a_{i,2h} - a_{i,2h+1} }{a_{i,2h} + a_{i,2h+1}} = \frac{  \cos\theta_{i,2h}  -  \cos\theta_{i,2h} }{ \cos\theta_{i,2h}  +  \cos\theta_{i,2h} }$ (Shen and Nakamura [5])	$\frac{\mathbf{s}\boldsymbol{\theta}_{i,2h+1}}{\mathbf{s}\boldsymbol{\theta}_{i,2h+1}} ,  \begin{cases} C_{dv} \leq C_{dv,crit} & \text{Spherical bubble} \\ C_{dv} > C_{dv,crit} & \text{Non-spherical bubble} \end{cases}$		

Table 1. Developed four-sensor probe techniques

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

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

![](_page_58_Figure_1.jpeg)

Fig. 1. Schematic of a four-sensor probe

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

3-1.ドリフトフラックスモデル開発:大口径流路内3次元気液二相流動の実験データに基づき、気泡流からキャップー気泡流まで連続的に変化する流動様式遷移に対して、以下のドリフトフラックス式の分布定数 C<sub>0</sub>とドリフト速度 V<sub>GJ</sub>の構成式を提案した[12]。

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

3-2.界面積濃度予測相関式の開発:既存の気液 二相流の界面積濃度輸送モデルには大まかに2種類 が並存している。一つは界面積濃度が直接に算出で きる界面積濃度予測相関式で、もう一つは界面積濃 度の連続変化を予測できる界面積濃度輸送方程式で ある。本研究では、気泡を抵抗に基づいて大小の二 群に分類し、フォーセンサー・プローブの実験デー タに基づく小気泡の一群と大気泡の二群のボイド率 予測モデルを構築し、更に実験データと既存気泡速 度理論に基ついた解析を行い、次のような二群気泡 の界面積濃度予測相関式を提案・検証した[13]。 ① 一群気泡と二群気泡のボイド率(<α,>と<α>)予

① 一样気泡と一样気泡の小イト率( $\alpha_1$ )と $(\alpha_2$ ) 測相関式:

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

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

② 一群気泡と二群気泡の界面積濃度(<a<sub>i1</sub>>と<a<sub>i2</sub>>)
 予測相関式:

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

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

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

$$(6)$$

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

Researchers	Geometry	$z/D_h$	Р	$\langle j_g \rangle$	$\langle j_g \rangle$	Measured local	Techniques
		[-]	[MPa]	[m/s]	[m/s]	parameters	1
Shen et al. [6]	Round pipe, $D_h=0.2 \text{ m}$	12, 60	0.1	0.0322 - 0.218	0.148 - 1.12	$\alpha, a_i, v_{gz}$	Four-sensor probe
Shen et al. [7]	Round pipe, $D_h=0.2 \text{ m}$	41.5, 82.8, 113	0.1	0.0127 - 0.373	0.0505 - 0.312	$\alpha, a_i, v_{gz}, \alpha_l, a_{il}, v_{gl}, \alpha_2, a_{i2}, v_{g2}$	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.152$ m	2.09, 14.1, 28	0.28	0.13 - 11.21	0.21 - 1.81	$lpha, a_i, v_{gz}, lpha_l, a_{il}, v_{gl}, \ lpha_{2}, a_{i2}, v_{g2}$	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.203$ m	21	0.28	0.28 - 3.87	0.42 - 0.46	$lpha, a_i, v_{gz}, lpha_l, a_{il}, v_{gl}, \ lpha_{2}, a_{i2}, v_{g2}$	Four-sensor probe
Schlegel et al. [8]	Round pipe, $D_h=0.304$ m	14	0.28	0.3 - 2.33	0.46 - 0.48	$lpha, a_i, v_{gz}, lpha_l, a_{il}, v_{gl}, \ lpha_{2}, a_{i2}, v_{g2}$	Four-sensor probe
Sun et al. [9]	Square duct, $D_h=0.136$ m	16	0.1	0.045 - 0.226	0.500 - 1.00	$\alpha, a_i, v_f$	Four-sensor probe
Shen et al. [10, 11]	Square duct, $D_h=0.1 \text{ m}$	8.3, 18.3, 28.3	0.1	0.00 <del>6</del> 9 - 0.0360	0.168 – 1.113	$\alpha, a_i, v_{gx}, v_{gy}, v_{gz}, D_{av}$	Four-sensor probe

Table 2. Collected local flow database

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

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

$$K_{WE} \left[ \frac{\mathfrak{s}(\rho_f - \rho_g)g\alpha(1 - \alpha)}{\rho_f} \right]^{1/3} v_r^{1/3} a_i^{5/3} exp \left[ -C_{WE} \frac{\rho_f^{1/2} \varepsilon^{1/3}}{\sigma^{1/2}} \left( \frac{6\alpha}{a_i} \right)^{5/6} \right]$$
(9)

$$v_r = \frac{1 - c_0 \alpha}{1 - \alpha} \frac{J_g}{\alpha} - C_0 \frac{J_f}{1 - \alpha} \tag{10}$$

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

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

 $C_0 =$ 

$$\begin{cases} exp \left[ 0.475 \left( \frac{j_g}{j_f + j_g} \right)^{1.69} \right] \left( 1 - \sqrt{\frac{p_g}{\rho_f}} \right) + \sqrt{\frac{p_g}{\rho_f}}, \frac{j_g}{j_f + j_g} < 0.9 \\ \left[ \left[ -2.88 \left( \frac{j_g}{j_f + j_g} \right) + 4.08 \right] \left( 1 - \sqrt{\frac{p_g}{\rho_f}} \right) + \sqrt{\frac{p_g}{\rho_f}}, \frac{j_g}{j_f + j_g} \ge 0.9 \end{cases}$$

$$(12)$$

小口径管と大口径管の直径は、次式で区別する。

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

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

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

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

#### 参考文献

(7)

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

Study on flow mechanism of multi-dimensional gas-liquid two-phase flow in large-diameter channels Xiuzhong Shen, Takashi Hibiki, Hideo Nakamura xzshen@rri.kyoto-u.ac.jp

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

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

各分担研究の研究テーマおよび担当者は以下の通 りである。(〇印は研究分担代表者)

- 中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダイナミ ックス計測に関する研究
   ○ 齊藤泰司、伊藤大介
- 2) 中性子ラジオグラフィによる機器内流動の可視化 計測
  - ○浅野 等、村川 英樹、杉本 勝美
- 3) 中性子ラジオグラフィによるヒートポンプ機器 内熱物質輸送の可視化計測
- ○浅野 等、村川 英樹、杉本 勝美
- 4)中性子ラジオグラフィを利用した超臨界水反応場の in-situ 観察
  - ○塚田隆夫、庄司衛太、久保正樹、高見誠一
- 5)強制流動沸騰系内部のボイド率分布 〇梅川尚嗣、網 健行
- 6)中性子ラジオグラフィを用いた熱交換器の着霜・ 除霜の評価
  - ○松本亮介
- 7) 中性子ラジオグラフィによる光学素子等の生産 技術の解析
  - 〇山形 豊、森田晋也、
- 8)中性子ラジオグラフィの植物研究への応用 〇松嶋卯月
- 9) 中性子イメージングを用いたセメント硬化体中の水分測定
  - ○沼尾達弥、原田隆郎
- 10) 中性子ラジオグラフィによる加熱下におけるコンクリート内部の水分挙動に関する研究
   ○兼松 学
- 11) フラットヒートパイプ型ヒートスプレッダ内部における冷媒分 布の測定
  - ○水田 敬
- 12) 工業製品の高度化に資するための金属間有機物の可視化に関する研究
   ○瓜谷 章、広田克也

- 中性子-3He吸収反応を介したHeエキシマの蛍光
  - 〇辻 義之、玉置昌義
- 14) 中性子イメージング撮像技術の高度化と応用○酒井卓郎、松林征仁

2. 研究成果:以下に分担研究ごとの研究成果の概 要を述べる。

2-1. 中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダイナミ ックス計測に関する研究[1.2,3]

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

![](_page_60_Figure_29.jpeg)

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

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

![](_page_61_Picture_0.jpeg)

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

2-2. 中性子ラジオグラフィによる機器内流動の可視 化計測[4]

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

![](_page_61_Picture_4.jpeg)

(a) Dry condition

![](_page_61_Picture_6.jpeg)

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

Fig.3 Visualized images by neutron radiography.

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

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

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

![](_page_61_Figure_12.jpeg)

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

![](_page_61_Picture_14.jpeg)

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

Fig.5 Void fraction distributions.

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

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

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

しかしながら、超臨界水による超重質油の接触分 解プロセスを具現化するためには、超臨界水/超重 質油啓の相平衡や輸送物性といった熱物性値の獲得 が必要となるため、本研究では、充填層型反応器内 における超重質油流れの可視化を行った。 図 6 は、実験装置の概略を示しており、実験装置 は、試験部の充填層と超重質油供給系とガス供給系 からなり、超重質油が下向きに窒素ガスが上向きに 対向流として充填層内を流れる。なお、充填層内の 充填物としては球状のアルミナを用いている。

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

![](_page_62_Figure_2.jpeg)

Fig.6 Schematic diagram of experimental apparatus.

![](_page_62_Figure_4.jpeg)

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

#### 2-5. 強制流動沸騰系内部のボイド率分布[6,7]

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

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

![](_page_62_Figure_9.jpeg)

![](_page_62_Picture_10.jpeg)

0/200s 3/200s 6/200s 9/200s 12/200s 15/200s Fig.9 Quenching phenomena.

2-6. 中性子ラジオグラフィを用いた熱交換器の着 霜・除霜の評価[8]

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

図10は、使用した実験装置の概略であり、熱交換 器部分は、XYステージと回転ステージ上に設置され、 任意の角度から中性子像が得られるようにした。 図11は、(a)がデジタルカメラで撮像した可視光によ る可視化画像、(b)が中性子像を表す。図12は、CT 法により得られた霜密度の3次元分布であり、フィン のエッジ近傍に大きな霜密度が生じていることがわか る。

2-7. 中性子ラジオグラフィによる光学素子等の生産 技術の解析[9]

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

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

![](_page_63_Figure_0.jpeg)

![](_page_63_Figure_1.jpeg)

Fig. 11 Digital camera image and Neutron image.

![](_page_63_Figure_3.jpeg)

Fig.12 Three dimensional frost density distributions.

2-9. 中性子イメージングを用いたセメント硬化体中の水分測定[11]

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

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

本研究では、建築材料中の水分移動現象について, 中性子ラジオグラフィにより定量的に明らかにする ことを目的とし,1)高温下におけるコンクリート中 の水分挙動の評価、および2)保水性建材の非等温過 程における建材中の水分挙動の観測を行うこと目的 とし、実験を実施し、材料依存性を調べた。

2.11. フラットヒートペイプ型ヒートスプレッダ内部における冷媒 分布の測定[13]

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

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

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

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

![](_page_63_Figure_15.jpeg)

Fig.13 X-axis projection of detector indicator.

2-13. 中性子-3He 吸収反応を介した He エキシマの 蛍光[15]

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

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

![](_page_64_Figure_0.jpeg)

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

![](_page_64_Figure_2.jpeg)

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

2-14. 中性子イメージング撮像技術の高度化[16,17]

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

![](_page_64_Figure_6.jpeg)

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

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

![](_page_64_Picture_9.jpeg)

Fig. 17 Results of fluorescent plates neutron imaging.

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

参考文献

- [1] Y. Saito, *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., A., **651** (2011) 36-41.
- [2] Y. Saito and D. Ito, Proc. WCNR11, (2018).
- [3] D. Ito and Y. Saito, Physics Procedia, 69 (2015).
- [4] H. Asano, et al., Physics Procedia, 69 (2015).
- [5] E. Shoji, *et al.*, Proc. WCNR11,(2018).K. Sugioka *et al.*, AIChE Journal, **60** (2014).
- [6] H. Umekawa et al., Physics Procedia, 69 (2015).
- [7] D. Ito, et al., Proc. WCNR11, (2018).

[8] R. Matsumoto, *et al.*, Proceedings of the International Heat Transfer Conference IHTC-15, IHTC15-9144, Kyoto,pp. 3603-361.

- [9] J.Guo et al., Optics Express, 22 (2014).
- [10] U. Matsushima et al., KURRI progress Report 2012, (2012) 128.

[11] T. Numao, *et al.*, Proc. 67th Annual Academic Lecture of Japan Society of Civil Engineers, V-040 (2012).

- [12] M. Kanematsu et al, PJCI, vol36, No.1, 2014.
- [13] K. Mizuta et al., Physics Procedia, 69 (2015).
- [14] K. Hirota *et al.*, KURNS progress Report 2018, (2018).
- [15] Y. Tsujia et al., KURNS progress Report 2018, (2018).

[16] T. Sakai *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., B., **332** (2014) 1238.

[17] T. Sakai *et al.*, KURNS progress Report 2018, (2018).

Development on Neutron Imaging Application

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

(京大複合研、東北大金研<sup>1</sup>、鹿児島大<sup>2</sup>、法政大<sup>3</sup>、大阪府立大<sup>4</sup>、福井大<sup>5</sup>、兵庫県立大<sup>6</sup>、産総研<sup>7</sup>) 〇木野村 淳、井上 耕治<sup>1</sup>、佐藤 紘一<sup>2</sup>、西村 智朗<sup>3</sup>、秋吉 優史<sup>4</sup>、鬼塚 貴志<sup>5</sup>、神田 一浩<sup>6</sup>、中尾 節男<sup>7</sup>

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

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

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

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

2.1 陽電子減速用材料の高効率利用に関する研究(代表:木野村淳)

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

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

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

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

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

![](_page_65_Figure_12.jpeg)

図1 Fe 中の Cu の拡散係数のアレニウスプロット。

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

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

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

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

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

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

厚さ 450  $\mu$  mの GaN 単結晶 ~ 160 kGy のガンマ線 照射を行ったところ、抵抗率は未照射の 30  $\Omega$  cm から照射後 10<sup>4</sup>  $\Omega$  cm ~ 増加した。ガンマ線照射により 発生したコンプトン電子が格子欠陥を生成したと考 えられる[2]。プロトンビームを用いたラザフォード 後方散乱により窒素原子の変位が観測され、照射後 の高抵抗化は格子間窒素原子に起因する伝導帯下約 960 meV の深いエネルギー準位(Kuriyama et al., Solid State Commun. 205,1(2015))が伝導帯中の電 子の補償欠陥として作用していることが示唆される。 また、フォトルミネッセンス測定から未照射試料で 観測された 557 nm(2.22 eV)のイエロールミネッセ ンスのピークが、照射後 11 meV ほど高エネルギー側 ヘシフトした。これは生成された浅い窒素原子空孔 からガリウム原子空孔への遷移に起因すると考えら れる(International Conf. Physics of Semicond. (2016)北京で発表)。浅い窒素原子空孔ドナーの電子 は、深いエネルギー準位の格子間窒素原子に補償さ れ高抵抗化する。

一方、厚さ 500  $\mu$ mの Zn0 単結晶へ 170 kGy のガ ンマ線照射を行ったところ抵抗率は未照射の 10<sup>4</sup> Ω cm から照射後 10<sup>2</sup> Ω cm へ減少した。フォトルミネ ッセンス測定から 530 nm 付近のブロードなグリーン ルミネッセンス強度のわずかな増加が観測された。 このルミネッセンスは亜鉛原子空孔、酸素原子空孔、 格子間酸素に起因していると言われている。酸素原 子空孔の存在は電子スピン共鳴でg値が 1.996 の Vo<sup>+</sup> 状態として観測された。ガンマ線照射後の低抵抗化 の起源としては伝導帯下約 30 meV に位置する格子間 亜鉛に起因すると考えられる (International Conf. Physics of Semicond. (2018)モンペリエで発表)。

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

本研究では、核融合炉ダイバータの候補材に対す る照射効果の解明を目的としている。これまでの共 同研究で開発してきた高エネルギー電子線照射環境 で使用可能な照射ホルダーを用いて、タングステン 試料及び SiC セラミックスに対する電子線照射を行 った。試料はφ3 mm×0.5 mm の TEM Disk サイズの 微小試験片であり、従来物性試験が困難な試験片で あった。この試験片に対して、熱拡散率測定を可能 とするために、20µs のパルス幅でのフラッシュ加 熱が可能な NETZSCH LFA-467 を用いた測定技術の開 発を行った。試料治具の開発の他、表面処理手法、 室温付近での測定を行わずに高温測定からの外挿に よる評価、試料厚さ測定手順など、多岐にわたる測 定プロトコルの開発により、微小試験片でも全く問 題無く熱拡散率の測定が可能となった。さらに、こ の微小試験片一枚のみを用いて陽電子寿命測定を可 能とするシステムの開発を産総研、JAEA 等とも共同 して進めており、試料を取り囲む形状のプラスチッ クシンチレーターと光電子増倍管、デジタルオシロ スコープを用いた測定系により、従来の測定手法と 遜色ない結果を得られるようになっている。<br />
その一 方で測定に従来の数倍の時間がかかるようになって いるため、複数の BaF2 検出器からの信号を Start, Stop 両方で活用することで、例えば3本の検出器で は6倍の速度で測定を可能とするシステムの開発を 行っている。

また、液体金属ダイバータの開発が次期日米協力 事業核融合炉分野の FRONTIER プロジェクトで進め られることになっているが、照射時の液体金属と固 体材料の腐食挙動の評価を可能とするため、ステン レスキャプセル中に液体金属とアルミナ被覆ステン レス材を封入しての照射を行った。新規開発の空冷 ホルダーにおいて、プリアパーチャーに想像以上の 熱負荷がかかる、キャプセル自体の照射軸に対する 水平方向熱伝導率が低かったため、中央部に熱負荷 が集中する等の不具合が多数見られたが、照射時挙 動の評価という極めて重要な研究に必要な基礎的知 見を得ることが出来た[3]。

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

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

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

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

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

2.8 ダイヤモンド状カーボン膜の耐熱性評価に関す る研究(代表:中尾節男)

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

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

#### 3.1 電子線照射用試料ホルダー

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

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

一方で、高温照射の場合には、照射が始まるまで は、試料は室温であるが、照射開始時に室温から照 射温度まで大きく温度が変わる。照射中の温度変動 は欠陥状態に影響するため、その対策を講じている。 試料ホルダーには、加熱用ヒーターと冷却用ファン を備え、照射開始前は照射予定温度まで試料ホルダ ーを加熱しておき、照射開始後は試料ホルダーを冷 却する。A1 パイプの試料格納部位はフィードバック 制御する合計400₩のセラミクスヒーターで加熱し、 一方、冷却のため風量可変で最大風量 2.5 m<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。主要な研究対象である金属材 料は大気中では表面が酸化するため、それを防ぐた め、本研究で開発する試料ホルダーでは照射試料を He 雰囲気の容器に入れる方式を取った。図2に開発 した試料台の写真を示す。

![](_page_68_Picture_0.jpeg)

図2電子線照射用試料ホルダーの写真

![](_page_68_Figure_2.jpeg)

図3陽電子ビームラインの温度測定点。

# 3.2 KUR 低速陽電子ビームシステム

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

# 3.2.1 5MW 運転時のビーム利用

KUR は1 MW または5 MW の出力で運転されるが、5 MW 運転時にコイル励磁なしの場合でも線源部温度が約 300℃に達する。コイル励磁するとさらなる温度 上昇が予想されるため、先端部に設置した陽電子増 強用の Cd キャップへの影響を考え、当初 5MW 運転時 にはコイル励磁を行わずビーム取り出しを実施して いなかった。これに対して、ビームラインを構成す るインナースリーブと真空ダクトの間の部分に空気 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行った。2 L/min の He ガス導入を行うと、5 MW 運転時にコイル励磁した場 合でも、250℃程度まで先端部温度の低減可能なこと が示された。さらに、ビームラインの真空ダクトの 支持部と、モデレータ基部に新たに熱電対を設置し、 ビームライン各部の温度をより正確に把握できるよ うにした(図3)。これら改良の結果、5MW 運転時に もビームラインが利用可能となり、測定時間の短縮 のみならず、同時計数測定など実験の可能性が大き く広がった。

3.2.2 ビーム位置制御と試料サイズの確認

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

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

# 参考文献

[1] "Evaluation of the optical performance of a brightness enhancement system developed for the KUR slow positron beamline", Y. Kuzuya, N. Oshima, A. Kinomura, A. Yabuuchi, K. Sato and Q. Xu, Journal of Physics Conference Series 791 (2017) 012012.

[2] "Modification of the yellow luminescence in gamma-ray irradiated GaN bulk single crystal", Y. Torita, N. Nishikata, K. Kuriyama, K. Kushida, A. Kinomura, Q. Xu, Journal of Physics Conference Series, 864 (2017) 012016.

[3] "Validation of miniature test specimens for post-irradiation thermal diffusivity measurement", M. Akiyoshi, R. Kasada, Y. Ishibashi, L.M. Garrison, J.W. Geringer, W.D. Porter and Y. Katoh, Fusion Engineering and Design 136 Part A (2018) 513.

Advancement of Characterization Techniques in High-Energy-Particle Irradiation Studies

Atsushi Kinomura, Koji Inoue, Koichi Sato, Tomoaki Nishimura, Masafumi Akiyoshi, Takashi Onitsuka, Kazuhiro Kanda and Setsuo Nakao

akinomura@rri.kyoto-u.ac.jp

# あとがき

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

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

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

平成31年1月

学術公開チーム

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

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

発行所 京都大学複合原子力科学研究所

発行日 平成31年1月

住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目

TEL (072) 451-2300