

令和3年度 共同利用成果報告書

目次

1. 大型設備の経過報告
 - 1.1 ライナック経過報告
 - 1.2 重照射 (HIT) 経過報告
 - 1.3 ブランケット経過報告
2. 共同利用成果報告 (F, L, H, Y 各シリーズ)
 - 2.1 弥生オフパイル (F シリーズ) : 計6テーマ (別表)
 - 2.2 ライナック (L シリーズ) : 計10テーマ (別表)
 - 2.3 重照射 (H シリーズ) : 計11テーマ (別表)
 - 2.4 弥生研究会 (Y シリーズ) : 計3テーマ (別表)
3. 令和3年度専攻内行事一覧
4. 各種委員会名簿
5. 令和3年度UTNSレポート一覧

1.1 大型設備の経過報告『ライナック経過報告』

ライナック管理部 山下真一、橋本英子、安見厚志

概要

2020 年度に引き続き新型コロナウイルス感染症が流行していたものの、対策を万全に行った上で 2021 年度も共同利用は年間を通じて実施した。学生を対象として実習は専門職大学院生対象のもののみ実施した。本郷の学生を対象としたビーム実習は延期を繰り返しつつ開催のチャンスをうかがったものの開催とは至らなかった（2020 年度、2021 年度と不開催）。なおライナック運転資格取得講習会はオンラインにて開催し、現場での安全教育のみ初回来訪時に実施する形とした。

ライナック利用運転

2021 年度は以下の 10 テーマを受け付けた。

課題 No.	課題名	代表者 (所属)
2021L-01	水溶液の放射線効果の研究	山下 真一 (東京大)
2021L-02	フォトカソード RF 電子銃の高性能化	山下 真一 (東京大)
2021L-03	高速応答シンチレータの開発と性能評価	越水 正典 (東北大)
2021L-04	MA 分離抽出剤の放射線分解メカニズムの研究	樋川 智洋 (JAEA)
2021L-05	放射線誘起活性種の時間分解ラマン分光	山下 真一 (東京大)
2021L-06	放射線に誘発される化学種への磁場効果	坂田 洞察 (QST)
2021L-07	不定比金属組成、微細組織を制御した超伝導体結晶のピンニング特性に及ぼす電子線照射効果	下山 淳一 (青学大)
2021L-08	高温・超臨界触媒の放射線化学	室屋 裕佐 (大阪大)
2021L-09	パルス&プローブ法を用いる超高速反応の研究	室屋 裕佐 (大阪大)
2021S-01	フェムト秒ライナックのためのマシンスタディ	山下 真一 (東京大)

18L の状況

電子銃に入射しているレーザー光の再生増幅器の DPM (diode pump module) が 2020 年度末に故障し、レーザー増幅ができない状態となっていた。2021 年度に半年かけて更新を行った。更新後は、安定に稼働している。

35L の状況

2021 年度中盤よりビーム強度が徐々に低下している。入射部付近で微弱な真空度低下が起きているため、付近の RF 窓 (加速管への高周波導入用セラミクス製窓) のリークが原因と推測される。40 年以上使用しており、ロウ付け箇所劣化が予想され、2022 年度のメンテナンス期間に交換予定である。また、トリガ信号配信システムの一部にも経年劣化による不調が生じており、構成機器の更新を進めている。

高周波が不安定になり、サイラトロン (クライストロンの大電力開閉器として使われるガス封入型滅陰極管) の交換を 10 年ぶりに行った。RF 電源の故障の原因としてはサイラトロンの劣化が最も多い。

学生実習に向けて、ストリークカメラの調整中に故障した。カメラの心臓部ともいえる掃引回路の不良により、時間分解分光ができなくなった。シングルビームのピコ秒計測可能な唯一の計測器だった。代替となる測定システムを検討している。

また、冷却水配管より水漏れが生じたが、増し締めにより解消した。同様の問題が生じる

可能性をふまえ、定期的な点検を行う。

その他

地下階電気室の亀裂箇所から水漏れは、ライナック棟南側の地面空洞化によるものであることが分かった。雨水の浸食によって地中の柔らかい地層が削り取られたことが原因と推測され、空洞の充填および雨水管整備によって解消された。また建屋のごく一部の基礎部分に雨水が溜まっていることが判明したため、速やかに対策（水の除去、雨水流入経路と予想されるコンクリートの経年劣化部分の補修、乾燥促進のための空気孔設置）を施した。

1.2 大型設備の経過報告『重照射（HIT）経過報告』

重照射研究管理部 叶野翔、楊会龍、崔麗娟、尾亦孝男、小菌雅美、阿部弘亨

- 抄録 -

令和3年度は11件(年度内の共同利用計画を含む)の共同利用研究課題に対し、計25週のFe、Wイオンビームを供給した。また、バン・デ・グラーフ加速器の廃棄を受け、HIT施設における二重照射設備を更新するため、最大加速電圧200kVの小型のイオン注入装置を設置し、そのビーム輸送を完了した。

1. HITの概要

HITは2台のメガボルト級イオン加速器(1.7MVタンデトロンと3.75MVバン・デ・グラーフ)を有する照射施設であり、原子炉や宇宙環境等の過酷環境下で使用される材料の劣化評価、さらに、はじき出し損傷と核変換による水素あるいはヘリウムの蓄積を同時に模擬できる二重照射ビームラインを有した施設である。

これらの加速器は、東日本大震災で被災し、稼働できない状況となったが、タンデトロン加速器については、平成25年度に原子力国際専攻より移設し、放射線発生装置の変更申請後、全国共同利用設備として、その利用を再開した。一方で、3.75MVバン・デ・グラーフについては、管理部において補修、修繕を進めているが、機器の経年劣化が進んでおり、その廃止を決定した。

2. タンデトロン運転・保守状況

令和3年度は1.7MVタンデトロンを利用した11課題の共同利用課題を採択し、計26週の共同利用運転を実施した。応募課題の内訳としては、軽水炉材料については3課題、核融合炉材料は6課題、高エネルギー加速器材料は1課題、そして、原子炉・ビーム実習の1課題であり、この中で、原子炉・ビーム実習における加速器の利用は実施しなかった。なお、COVID-19のため本学に来訪できないユーザーに対しては、管理部による代理照射実験を実施した。

当該年度については、加速器の重篤なトラブルもなく、予定した共同利用運転を実施した。ただし、年度末頃より、加速タンク部での異音を確認しており、このメンテナンスないしは、その修理が必要と考えている。

また、バン・デ・グラーフ加速器の廃棄を受け、HIT施設における二重照射設備を更新するため、最大加速電圧200kVの小型のイオン注入装置を設置し、そのビーム輸送を完了した。次年度以降も引き続き、ビームオプティクスやビームトランスポート系の更新等の作業を計画している。

3. バン・デ・グラーフ保守状況

加速器の廃止に向けて、不要ビームラインの撤去を実施した。具体的は、上記のイオン注入装置の導入に当たり、ビームライン4(BL-4)の一部を撤去した。今後は、RI承認使用に係る変更承認申請書の準備を進めながら、逐次、その廃棄に向けた作業を計画としている。

4. 建屋・サポート系の保守状況

当施設は供用開始から 30 年強を迎えており、空調設備、外壁、冷却水、圧縮空気等のサポート系の老朽化が確認されている。令和 3 年度は、屋上階に設置している建屋の実験用チラーの台座部の腐食が著しかったことから、当該機器の故障による共同利用運転中止等のリスクを減じるため、タンデトロン加速器に関わる実験用冷却水を個別化する対策を講じた。これにより、該当する装置類については建屋の冷却水系統から完全に切り離し、その運用を開始した。なお、現在までに、この更新によるトラブルは確認されていない。

1.3 大型設備の経過報告『ブランケット経過報告』

ブランケット管理部 長谷川秀一、戸田賀奈子、井上薫、梶川絵理

1. ブランケット棟の概要

ブランケット棟は3台の放射線発生装置と1台のエックス線発生装置（ともに電子ライナック）、非密封RI（トリチウム）などを使用する施設である。また、大型流動槽や材料試験装置などを有しており、さまざまな実験に使用されている。

2. 各室の研究進捗状況（実験設備の更新を中心に）

医療用小型ライナック室では、医療用小型ライナック室では、2021F03, 04のテーマと関係して4つのX-band電子ライナックの開発と利用の研究が進んでいる。おもに950 keVと3.95 MeVの可搬型電子ライナックX線源を用いた大型建造物の非破壊検査試験の実証実験に取り組んでいる。実橋梁での非破壊検査の実用化のために、950 keVと3.95 MeV X線源の可搬性の向上のため、ケーブルコネクタ類の一部の屋外仕様品への交換等を行った。実験室内では、福島第一原発の核燃料デブリ分析への応用を目指して、燃料デブリ収納缶を想定した厚肉ステンレス容器を用意し、容器内の模擬デブリサンプルのCT画像取得の実証実験を行った。3.95MeV機による中性子線発生装置での実験(放射化測定)も遂行した。

民間鉄鋼会社との共同研究で、転炉内の鉄の挙動のX線透視動画による観測も進めている。

6MeV Xバンド加速器及び30MeV Xバンド型加速器については、経年劣化による不具合の調査を行い、設備更新の検討を行っている。

レーザープラズマビーム源室では、上記の非破壊検査のための橋梁切り出しサンプルの保管およびオフライン調査を行っている。100keV X線CT装置等の装置の有効利用等、非破壊検査研究の拡充を推進している。研究促進のため、使用しなくなった実験装置等の廃棄やクリーンルームの撤去を行った。これにより非破壊検査研究開発推進の為の空間を確保出来た。ゲルマニウム半導体検出器を用いて、3.95MeV機による中性子線発生装置での実験で放射化した金サンプルの放射能の定量測定も行った。

超電導工学実験室では、様々な外部資金により、実験が継続されている。具体的には、微粒子挙動評価実験装置(UTARTS)や凝縮基礎実験装置、高温バックリング実験装置、高温酸化試験装置、共晶反応試験装置などの多数の実験装置が活用されている。

重イオン加速器室では、Fシリーズ(2021F05)ならびにHシリーズ(2021H01-05, 09-10)の研究課題において、試料調整、機械強度試験、腐食試験、イオン照射 試料の微細組織等を実施した。また、機器経年劣化に伴い、一部の空調機器が故障したため、これらをリプレイスした。なお、当該居室の多くは蛍光灯照明を使用しているため、次年度以降、これらのLED化を計画している。

汎用実験室では、化学系の実験室として運用している。2021F06の研究課題において、試料調整、試料採取準備を実施した。令和3年度は、ラマン分光光度計(Jasco NRS-4500)

とグローブボックス(グローブボックスジャパン GBJV065)、シェーカー、凍結乾燥機等の設置を進めた。

3. 実験環境・サポート環境の整備

トリチウム実験室では、実験室の汚染検査を実施した。

機械室・電気室等では、保守・管理を行なっている。

その他建屋については、廃棄物処分、雨水排水系統補修工事と雨漏り対策を実施した。

2021年度 共同利用テーマ一覧(Fシリーズ)

採番	テーマ名	研究テーマ代表者	実験参加代表者	専攻内幹事
2021F01	V&Vのための精度保証実験データベース構築	岡本 孝司	岡本 孝司	岡本 孝司
2021F02	Xバンド加速器の応用研究	長谷川 秀一	長谷川 秀一	長谷川 秀一
2021F03	電子ライナック駆動小型中性子源の開発と利用	長谷川 秀一	長谷川 秀一	長谷川 秀一
2021F04	レーザーを用いた核物質分光分析システムの検討	長谷川 秀一	長谷川 秀一	長谷川 秀一
2021F05	腐食特性を向上させたZr基、Fe基合金の開発	阿部 弘亨	叶野 翔	叶野 翔
2021F06	土壌中での放射性核種の動態評価	斉藤 拓巳	斉藤 拓巳	斉藤 拓巳

2021年度のFシリーズの研究テーマは6件(うち新規0件)

2021年度 共同利用テーマ一覧(Lシリーズ)

採番	テーマ名	研究テーマ代表者	実験参加代表者	専攻内幹事
2021L01	水溶液の放射線効果の研究	山下 真一	山下 真一	山下 真一
2021L02	パルス&プローブ法を用いる超高速反応の研究	室屋 裕佐	室屋 裕佐	山下 真一
2021L03	不定比金属組成を精密に制御した超伝導体のピンニング特性に及ぼす電子線照射効果	下山 淳一	下山 淳一	叶野 翔
2021L04	高温・超臨界溶媒の放射線化学	室屋 裕佐	室屋 裕佐	山下 真一
2021L05	フォトカソード RF 電子銃の高性能化	山下 真一	山下 真一	山下 真一
2021L06	高速応答シンチレータの開発と性能評価	越水 正典	越水 正典	山下 真一
2021L07	MA分離抽出剤の放射線分解メカニズムの研究	樋川 智洋	樋川 智洋	山下 真一
2021L08	放射線誘起活性種の時間分解ラマン分光	山下 真一	山下 真一	山下 真一
2021L09	放射線に誘発される化学種への磁場効果	坂田 洞察	坂田 洞察	山下 真一
2021S01	フェムト秒ライナックのためのマシンスタディ	山下 真一	山下 真一	山下 真一

2021年度のLシリーズの研究テーマは10件(うち新規1件(斜体))

2021年度 共同利用テーマ一覧(Hシリーズ)

採番	テーマ名	研究テーマ代表者	実験参加代表者	専攻内幹事
2021H01	先進原子炉構造材の照射効果	叶野 翔	叶野 翔	叶野 翔
2021H02	原子炉構造材料の照射劣化機構の研究	藤井 克彦	三浦 照光	叶野 翔
2021H03	核融合炉材料の照射効果	叶野 翔	叶野 翔	叶野 翔
2021H04	大強度陽子加速器標的環境に耐える新材料の照射損傷の基礎研究	石田 卓	石田 卓	叶野 翔
2021H05	Developing method to analyze the behaviors of point defects influenced by dose rate	関村 直人	CHEN Dongyue	叶野 翔
2021H06	核融合炉ブランケット用機能性被覆の照射・腐食相乗効果	近田 拓未	近田 拓未	叶野 翔
2021H07	低放射化フェライト鋼およびその酸化皮膜の照射下相安定性	中島 基樹	中島 基樹	叶野 翔
2021H08	Study on the heavy ion induced defect and surface microstructural changes effect on retention in tungsten	Gon-Ho-kim	叶野 翔	叶野 翔
2021H09	イオン照射を用いた照射劣化モデル化研究	村上 健太	村上 健太	叶野 翔
2021H10	酸化物分散強化鋼における多方向冷間圧延による微細組織と機械特性の改善	申 晶潔	申 晶潔	叶野 翔
2021S02	イオンビーム照射による原子力材料の照射損傷実験	叶野 翔	叶野 翔	叶野 翔

2021年度のHシリーズの研究テーマは11件(うち新規0件)

2021年度 共同利用テーマ一覧(Yシリーズ)

採番	研究会名称(開催回数)	場所時期及び開催場所	主催者	申請者
2021Y01	原子力専攻施設共同利用成果報告会(12)	コロナ禍のため中止	長谷川秀一	山下真一
2021Y02	原子・分子の分光分析技術とその応用(6)	コロナ禍のため中止	長谷川秀一	長谷川秀一
2021Y03	界面での放射線効果(5)	2021年5月28日 2021年6月2日 2021年6月4日 オンライン開催	山下 真一	山下 真一

2021年度のYシリーズの弥生研究会は3件(うち新規0件)

原子力発電所の安全設計、シビアアクシデント評価や、福島第一原子力発電所廃炉に関する研究を行っている。実機条件を評価するためのシミュレーション技術開発に加えて、シミュレーションの検証、妥当性確認と不確かさ定量化(V&V/VVUQ)を推進するための基礎実験を実施している。

キーワード : SiC, Oxidization, Micro-particle, aggregation, eutectic reaction

1. Research on HTGR

At present, the most critical accident for HTGR design is air ingress, which is caused by the guillotine-type break of the main coolant pipe. This air reacts with hot graphite at elevated temperature and results in several types of exothermic and endothermic reactions that cause mechanical degradation of graphite structures and accumulation of explosive CO and CO₂ gases in the reactor. SiC has good resistive properties against oxidation compared to graphite, and graphite compact can be replaced with the SiC compact. However, based on temperature and partial oxygen pressure, SiC may also have passive and active oxidation. Since SiC also reacts with oxygen, it is essential to confirm the safety in the event of an air intrusion accident, which should be considered in a high-temperature gas reactor.

The preliminary experiments are performed at different oxygen concentrations. The objective of these experiments is to understand the thermal and oxidation behavior of SiC and use this data to develop a numerical model.

2. Interaction of mist and micro-particle

The recent NRA evaluation report suggests that at the Fukushima Daiichi nuclear power station, the concrete shield plugs above the Primary Containment Vessel (PCV) have particularly high radiation levels at Units 2 and 3. It is extremely important to ensure the radiation safety of workers in such a high radiation environment. Thermal cutting methods such as lasers and plasma cutters have a high rate of radioactive aerosol generation, but they also have advantages over mechanical cutting operations in terms of high output and a high degree of freedom. During the decontamination operations,

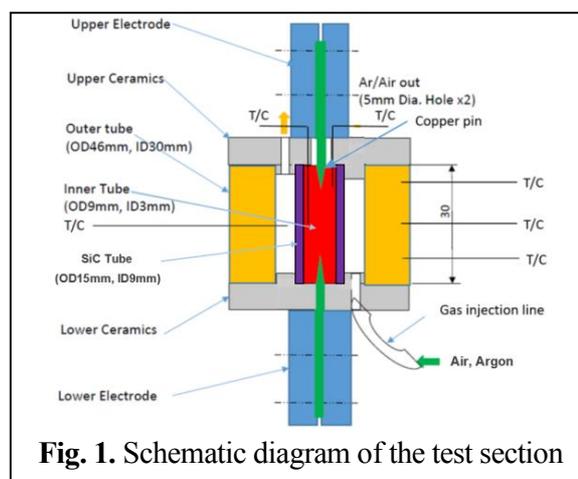


Fig. 1. Schematic diagram of the test section

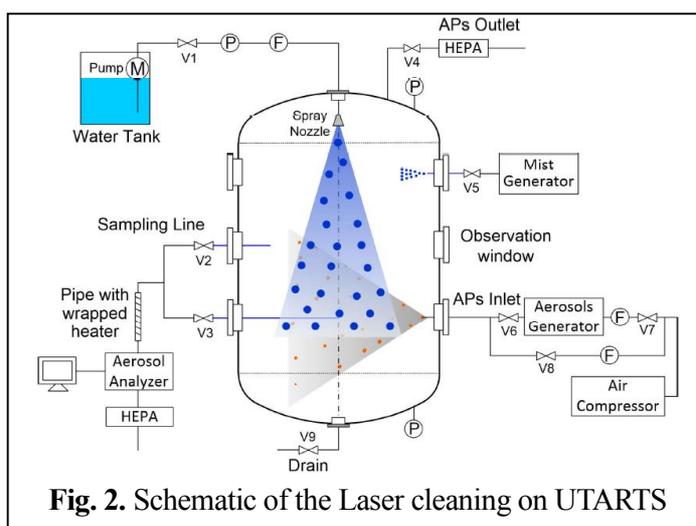


Fig. 2. Schematic of the Laser cleaning on UTARTS

generated submicron radioactive aerosol particles need to be removed. The traditional sprays cannot effectively scavenge aerosol particles with diameters in the range of 0.2–1 μm from gas environments. The scattering of fine particles by laser decontamination can be controlled by combining the water mist and spray technology.

An experiment setup, UTARTS (Aerosol Removal Tests using Water Spray in The University of Tokyo) facility, is built to conduct the aerosol scavenging experiments by spray system with different mist concentrations, different spray droplet properties, and different aerosol properties to evaluate the aerosol scavenging performance. Figure 2 depicts the schematic layout of the test vessel, instrumentation, and associated equipment. The UTARTS facility is composed of a cylindrical vessel, aerosol generator, mist generation system, spray injection system and aerosol measurement system. During the laser cleaning, the aerosol injection system is disconnected from the UTARTS, and aerosols are directly generated using laser irradiation on the different test specimens.

3. Eutectic Phenomena of SUS and B4C

The structure details of the experimental system are shown in Figure 1. Joule heating method is adopted to heat up the sample. The characteristics of the method is stated as follows. The sample can be heated up uniformly, which suits the need of simulating the behavior of a real control rod. The signals and the data is obtained in real-time, for the purpose of investigating the eutectic reaction quantitatively with high-resolution.

A closed-circuit is necessary in the Joule heating process. Therefore, two copper electrodes are set in the facility, being connected to the power supply by wires and cables. The electrodes are fixed by the supporting structures. The sample is installed between the top electrode and the bottom electrode, being clamped by two copper blocks. The copper blocks also work as a part of the electrodes. When the power supply is turned on, a closed-circuit will be created. Then the sample is heated up by the generated current. The heating power can be adjusted, in order to control the current and the sample temperature. K-type thermocouples are attached at the surface of the middle part of the sample tube to measure the temperature of the reaction region. All the sensors are linked to a data logger, which is employed to obtain the temperature, pressure, voltage and current signals during the experiment. For preventing high temperature damage to the facility, cooling fins are set on the electrodes so that the generated heat can be transferred to the atmosphere. One cover is installed on the supporting structures to maintain the inert atmosphere and to ensure researchers' safety.

成果リスト

- 1) P. Chai, Y. Wu, K. Okamoto, Experimental determination of the emissivity of nuclear graphite at high temperature conditions, *Mechanical Engineering Letters*, Vol. 6, 20-00204 (2020)

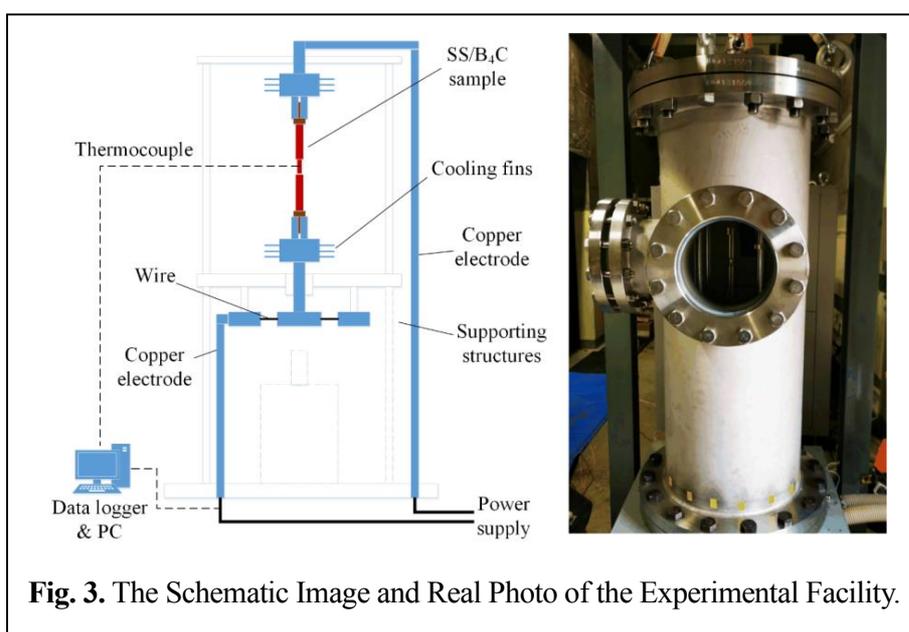


Fig. 3. The Schematic Image and Real Photo of the Experimental Facility.

2021F02

Xバンド加速器の応用研究

長谷川 秀一¹, 高橋 浩之¹, 三津谷 有貴¹, 井上 薫¹, 土橋 克広¹,
藤原 健², 草野 穰一³

1: 東京大学, 2: 産業技術総合研究所, 3: (株)NAT

可搬型 950 keV/3.95 MeV X線・中性子線源により、東京電力福島第1発電所における燃料デブリに対して、その場でのU量の分析を行うことが可能となるシステムの研究開発を継続している。

キーワード： 可搬型 950 keV/3.95 MeV X線・中性子線源, 福島燃料デブリその場分析, U量有無の仕分けと保管

研究成果 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業による「可搬型 950keV/3.95MeV X線・中性子源による福島燃料デブリウラン濃度評価・仕分けとレギュラトリサイエンス」を推進している。現場において取り出された燃料デブリの成分分析を行うことのできるシステムの開発を目指して、可搬型小型加速器 X線源に基づく2色 X線 CT, 及び同加速器に基づく小型中性子源による中性子共鳴透過分析のシステムを提案し

ている。可搬型小型加速器 X線源は、X線エネルギーが最大 950 keV の 950 keV X線源, 及び最大 3.95 MeV の 3.95 MeV X線源の二種類がある。それぞれを用いて三次元 CT を実施し、直径 200 mm 程度のユニット缶中の模擬燃料デブリに関して 5 分以内での計測実施, 10 分以内での成分判定を行うことを目標としている。

共同利用実験としては、模擬デブリでの2色 X線 CT を行った。燃料デブリ取り出し時の収納缶として、薄肉収納缶及び厚肉収納缶を想定して実験を実施した。本年度の2色 X線 CT 実験に利用した模擬燃料デブリは、大型の金属溶融混合物サンプル及び MCCI 模擬試料である。重金属であるウランの代用として、本研究では鉛 (Pb) を用いている。

X線スペクトルのプレハードニングを目的とし、950 keV X線源では Pb フィルタ 5 mm, 3.95 MeV X線源では Pb フィルタ 20 mm を照射窓付近に設置した。検出器には、Varex XRD1622 AO19 IMG を用いた。2048×2048 画素の検出器を 1732×1552 画素の範囲で使用した。また、ゲイン/フレームレート設定は、950 keV での測定時は 1 pF / 2.0 spf, 3.95 MeV での測定時は 4 pF / 1.8 spf とした。FPD の画素ピッチは 200 μm で、ADC 分解能は 14bit, 蛍光体は PI200

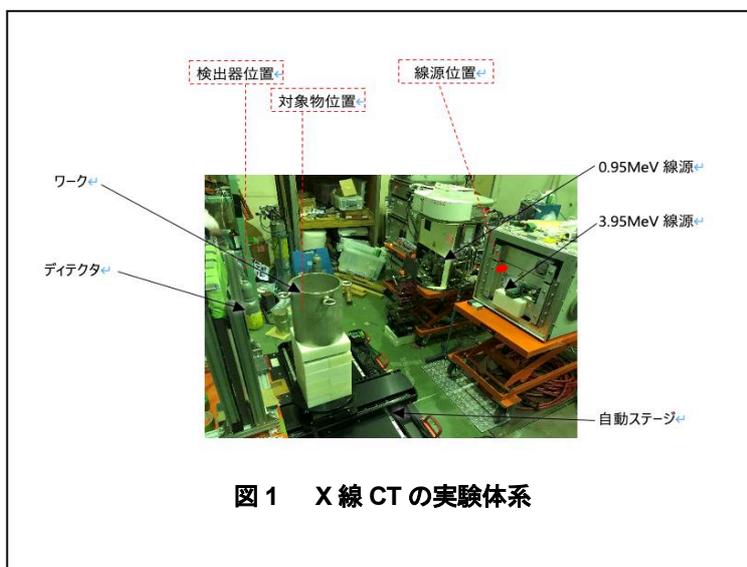


図1 X線CTの実験体系



図2 模擬燃料デブリの状況

(GOS)で膜厚 約 200 μm である。

図 1 に X 線 CT 撮像の体系を示す。X 線源と検出器が正対し、模擬燃料デブリ試料は収納缶中に格納された状態で自動回転ステージ上に置かれている。

図 2 に、模擬燃料デブリの状況の写真を示す。収納缶中に土砂（コンクリートを模擬）中に模擬デブリ試料を

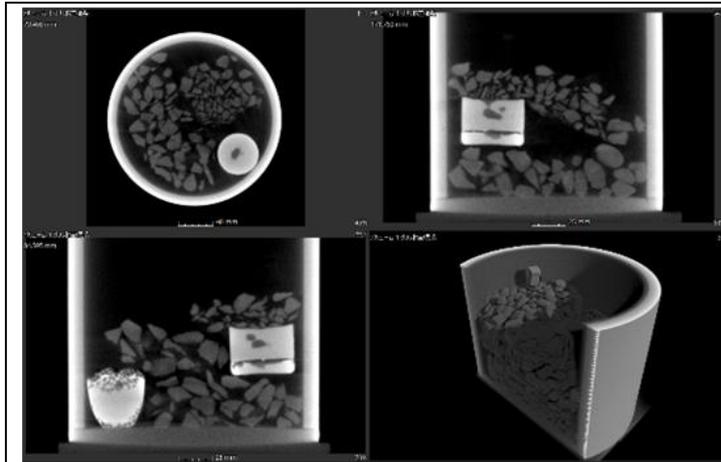


図 3 X 線 CT 結果. 3.95 MeV 機での撮像.

配置した体系である。このような状況では、取り出し物のうち、通常の見視ではウランを含有している可能性のあるものを識別することはできない。しかしながら、高い透過力を有する X 線源を用いて CT を行うことによって、ウランを含有している物体を識別することが可能と考えられる。図 3 が X 線 CT を行った結果である。重金属を含有している物体は CT 輝度値が高く示され、そうでない箇所に比べて非常に鮮明に物体を識別することが可能である。このことによつて、X 線 CT による燃料デブリ収納缶の

分析の効果が高いことが示された。

2021F03

電子ライナック駆動小型中性子源の開発と利用

長谷川 秀一¹、高橋 浩之¹、三津谷 有貴¹、

井上 薫¹、土橋 克広¹、藤原 健²

1: 東京大学、2: 産業技術総合研究所

橋梁コンクリート水分検出と核燃料デブリ共鳴透過分析 NRTA(Neutron Resonance Transmission Analysis)を目的として、可搬型小型中性子源を開発し利用している。今年度は、3.95 MeV の Xバンドライナック中性子源で発生する中性子線による放射化の検証を行った。

キーワード: 3.95MeV 電子ライナック駆動中性子源, 橋梁コンクリート水分検出, 近距離中性子共鳴透過分析.

1. はじめに

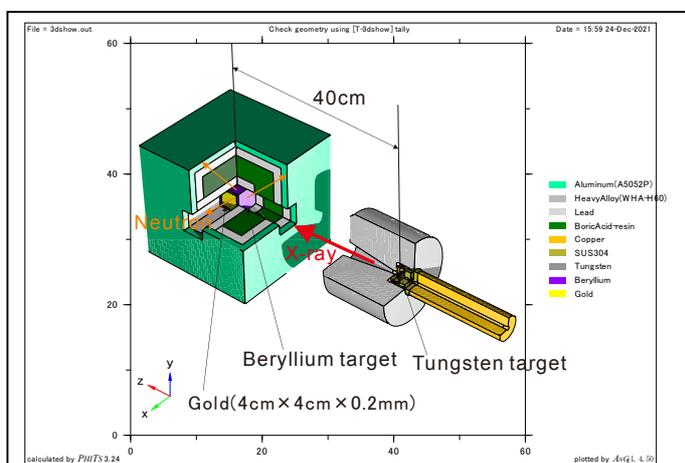


図1 PHITS と DCHAIN-SP による放射化の計算のための PHITS ジオメトリ

本研究では、Xバンド X線非破壊検査装置 (3.95MeV) を用いて中性子線を発生し、中性子線吸収による核種同定等を行う橋梁コンクリート水分検出と核燃料デブリ共鳴透過分析を行っている。中性子線は様々な核種(対象試料に限らず、装置自体や周辺の物体を構成する物質)に吸収されることによりその核種を放射性核種に変換することが多い。放射化物については、その放射性核種の種類や放射能によって、管理上の問題が発生する。そのため、Xバンド X線非破壊検査装置 (3.95MeV) を用いて中性子線を発生する際の放射化の影響を予め数値計算等で見積もっておくことは重要である。さらに、数値計算等で見積もった放射化の数値が妥当であるか検証

の必要がある。ここでは、放射能測定で感度の良いと言われている金(Au)を用いて、数値計算の結果の妥当性を実験と比較することにより検証した。

2. 方法



図2 中性子照射のための Xバンド X線非破壊検査装置 (3.95MeV) とターゲットステーションのセットアップ

金(Au)サンプルに対して、PHITS3.27 と DCHAIN-SP による放射化計算を行った。PHITS に入力したジオメトリを図1に示す。運動エネルギー 3.95MeV の電子ビームはタングステンターゲット(標的)に入射し、最大 3.95MeV の制動放射 X線が発生する。発生した X線はターゲットステーション内のベリリウムターゲットに入射し、中性子線を発生する。発生した中性子線は、金サンプルを

放射化する。

この計算では、放射化生成物の100%が ^{198}Au であり、照射直後の比放射能は $1.23 \times 10^4 [\text{Bq/cc}]$ 、放射能は $3.9 \times 10^3 [\text{Bq}]$ (相対誤差は0.13)であった。

次に、ターゲットステーション内のベリリウムターゲット直近に金サンプルを設置して中性子線を照射して金サンプルを放射化し、ゲルマニウム検出器で放射性核種からの γ 線を定量測定することにより放射化の定量的評価を行った。

図2に、中性子照射のためのXバンドX線非破壊検査装置(3.95MeV)とターゲットステーションのセットアップを示す。X線発生位置とベリリウムターゲット(ターゲットステーション内部)の距離が40cmとなるように位置を調整した。図2では、確認のため、ターゲットステーションの上にベリリウムターゲットを置いて撮影している。金サンプルの質量実測値は0.0694 gである。金の密度が19.3であることから、この金サンプルの体積は $0.003596 [\text{cc}]$ である。前述の数値計算による比放射能は $1.23 \times 10^4 [\text{Bq/cc}]$ であることから、ビーム強度が100%の場合の8時間照射後の放射能は44[Bq]である。

ベリリウムターゲットに金サンプルをテープで張り付けた状態で、ビーム電流 $40 \mu\text{A}$ (0.2C/pulse、200pps)にて8時間照射した。定格の50%のビーム電流での照射となった。

照射後の金サンプルは、ゲルマニウム半導体検出器(Ge検出器)にてガンマ線のエネルギースペクトルを測定することにより放射化の測定を行った。

3. 結果と考察

Ge検出器により金サンプルの10000秒間(Livetime)のガンマ線の測定を行ったところ、 ^{198}Au の412keVのカウント数(Net)は6353カウントであった。検出頻度は $0.6353 [\text{cps}]$ となる。Ge検出器については予め ^{133}Ba 放射能標準チェックソースを用いて412keVのガンマ線に対するピーク検出効率を測定算出してあり、 $0.0231 [\text{cps}/\gamma]$ であることが分かっている。そのため、 ^{198}Au の412keV放出割合である $0.947 [\gamma/\text{Bq}]$ を考慮すると、金サンプルの放射能は26[Bq]となる。

数値計算値は、ビーム強度が50%であることを考慮すると $22 [\text{Bq}]$ である。数値計算値の相対誤差の範囲から外れており一致するとは言えないが、致命的な差があるとも言えない。この数値計算値と測定値の差異を、当該数値計算値の不確実性と考える。

測定の誤差としては、Ge検出器の検出効率の見積りの影響が大きい可能性が高く、改善の余地がある。また、今回の測定では中性子線の積算線量の測定は行わなかったが、個体飛跡検出器(Allyl Diglyco Cabonate: ADC 通称CR-39)と ^{10}B または ^7Li コンバーターの組み合わせや、TLD(^6LiF と ^7LiF)の組み合わせによる中性子線の積算線量の測定を併用する方が望ましいと考えられる。

数値計算値の妥当性の検証のためには、今回の測定以外に、他の物質をサンプルとするか、もしくは、モデレーター(減速材)で中性子線のエネルギー分布を変化させた上で金に照射する等の、他の例を加える事も考えられる。但し、金以外の物質の放射化の測定は、感度が低いので容易では無いと推察される。中性子照射時間に制限があるため、安易に照射時間を延ばすことは出来ない。したがって、Ge検出器の環境放射線の影響を抑えることで実質的な感度を向上させる等の対策が必要と思われる。

レーザー分光に基づく放射性核種分析法の開発を目的として、特に ^{90}Sr をその対象とし、3 段階励起スキームを用いた同位体選択的共鳴イオン化手法の開発、および Sr を含む分子の同位体シフトを利用した高感度吸収分光法の実現を行っている。460.9 nm–655.2 nm–426.3 nm の 3 本の半導体レーザーを用いて、海水模擬試料中の ^{90}Sr 共鳴イオン化スペクトルの取得に成功した。また、高感度吸収分光法の実現に向け、SrO の赤外域振動回転遷移を発光分光実験および遷移計算の両面から評価した。

キーワード: 放射性核種分析, ストロンチウム, レーザー, 共鳴イオン化, 吸収分光, 光共振器, 同位体シフト

1. はじめに

ストロンチウム 90 (^{90}Sr , 半減期 28.8 年, 純 β 崩壊核種) は、福島第一原子力発電所の事故で環境中に放出された主要な核種の一つであり、カルシウムと同族のアルカリ土類元素であるため体内摂取に伴う内部被ばくの問題が指摘されている。従来の放射線計測法では娘核種のイットリウム 90 (^{90}Y , 半減期 64.1 時間) との放射平衡に数週間程度の時間が必要で迅速分析は困難と言われており、一般的な質量分析法ではジルコニウム 90 (^{90}Zr) の同重体干渉のほか特に Sr 安定同位体濃度の高い海洋試料では主要な安定同位体 ^{88}Sr 由来のスペクトル干渉が問題となる。

本研究は、レーザーと物質の相互作用を利用し、核種を選択的に分析可能なレーザー分光に基づく手法に着目し、これまでにない放射性核種分析法の開発を目指すものである。今年度は ^{90}Sr 原子の共鳴イオン化分析実現のために、より高い同位体選択性をもつ ^{90}Sr の 3 段階励起スキームの開発、及びそれを用いた人工海水中 ^{90}Sr 共鳴イオン化スペクトルの取得実験を行った。同時に、原子と比較して大きな同位体シフトをもつ SrO 分子の赤外振動回転遷移に着目し、光共振器を用いた高感度レーザー吸収分光に基づく分析手法について、基礎検討を行った。具体的には、SrO の赤外域振動回転遷移 (A-X バンド) を発光分光により実験的に観測し、遷移計算結果と比較することで吸収分光におけるターゲット遷移の検討を行った。

2. 3 段階励起スキームを用いた ^{90}Sr 原子のレーザー共鳴イオン化

Sr 原子の同位体選択的レーザー共鳴イオン化手法として、 Sr^+ イオンの $4d\ ^2D_{3/2}$ 準位に収束する Rydberg 系列のうち、有効主量子数 $n_{\text{eff}} \sim 39$ の自動電離準位に遷移させる 3 段階励起スキーム：460.9 nm–655.2 nm–426.3 nm が有効である。2 段階目 (波長 655.2 nm) の遷移における ^{90}Sr の同位体シフトを測定するため、3 段階目のレーザーで遷移幅の広い $n_{\text{eff}} \sim 37$ の自動電離準位に遷移させて近共鳴遷移による影響を抑制し、2 段階目のレーザー周波数をスキャンして ^{90}Sr 及び安定同位体 ^{84}Sr の共鳴イオン化スペクトルを測定した。試料には、海洋試料を模擬する形で Sr レジンに通した人工海水に ^{90}Sr 及び Sr 安定同位体の標準溶液を混合した溶液試料を用意した。この溶液を Ti フォイルに塗布し真空中で加熱することで Sr 原子蒸気を発生させ、共鳴イオン化された Sr^+ イオンを市販の四重極質量分離フィルターを通して MCP で検出した。

図 1 に観測された ^{90}Sr 及び ^{84}Sr の共鳴イオン化スペクトルを示す。 ^{84}Sr の信号は 1/15 倍して表示している。各々のピーク周波数の差から、 ^{84}Sr に対する ^{90}Sr の同位体シフトを 804.1 ± 1.3 MHz (誤差は統計誤差のみ、他に波長制御等に起因する系統誤差 10 MHz 程度) と評価した。

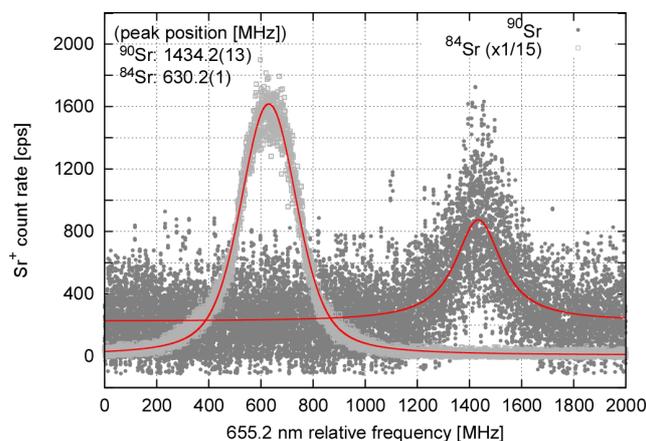


図 1 2 段階目 (波長 655.2 nm) 周波数スキャンによる ^{90}Sr 及び ^{84}Sr の共鳴イオン化スペクトル

3. Sr を含む分子の同位体シフトを利用した高感度レーザー吸収分光法

上述した共鳴イオン化による手法は、Sr の原子を対象とするためロータリーポンプとターボ分子ポンプを組み合わせた超高真空装置が不可欠である。このため、装置全体の大型化・大電力化は否めず、実験室レベルでの運用が想定される。これに対し、より小型で、将来的には可搬可能な装置の実現が期待できる新たな分析手法として、高反射率光共振器を利用してその感度を飛躍的に向上させた光共振器強化型レーザー吸収分光法、特にキャビティリングダウン分光法 (Cavity Ringdown spectroscopy: CRDS) に着目した。分子の同位体シフトは原子のそれと比較して数桁大いため、これを利用して ^{90}Sr を含む分子の吸収を CRDS により選択的に測定できれば、新たな ^{90}Sr 分析法が実現できる。一方このためには、対象分子についてエネルギー遷移の詳細な調査を行い、同位体シフトを考慮したうえで、同位体選択性の高い、すなわち他の遷移や同位体由来の吸収との重なりが少ない吸収線を選定する必要がある。そこで本年度は Sr を含む分子として SrO を選定し、SrO の赤外域振動回転遷移 (A-X バンド) を発光分光により実験的に観測する基礎実験を行った。

純度 99.9% の SrCO_3 ペレット状試料に、大気圧環境下で Nd:YAG レーザー (繰り返し率 10 Hz, 波長 532 nm, パルスエネルギー 150 mJ/pulse) を照射し、アブレーションプラズマを発生させた。プラズマによる発光を、光ファイバーを通して高波長分解能分光器 (に導入し SrO 由来の発光スペクトルを取得した。図 2(a) に取得された SrO の A-X バンド発光スペクトルの一例を示す。振動量子数 (3,0), (2,0), (1,0), (0,0) の遷移、およびそれに付随する回転遷移による周期的なスペクトルを観測することができた。また、最も明瞭に確認された (1,0) バンドのバンドヘッド近傍についてダンハム展開を用いた計算と比較した (図 2(b))。結果より、本波長領域においては、実験で得られた遷移位置は計算とよく一致しており、同位体シフトを考慮した計算を行うことで吸収分光におけるターゲット遷移の決定が可能である見込みを得た。

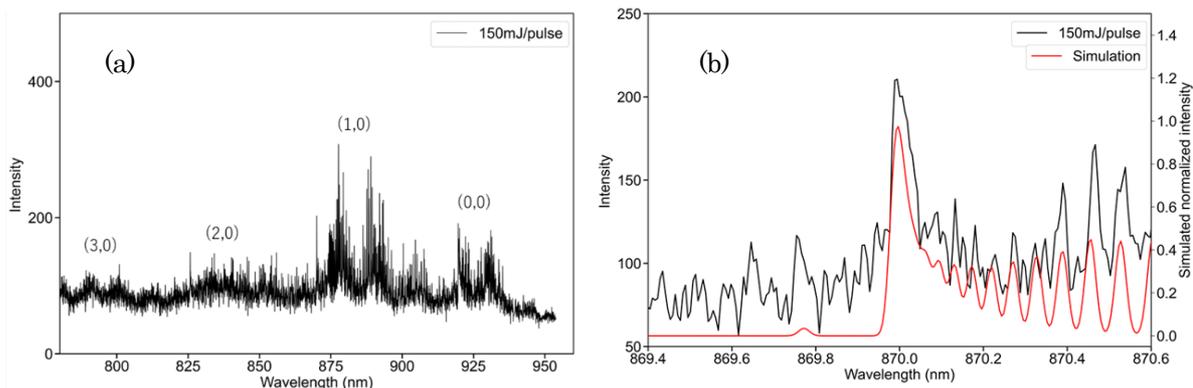


図 2 SrO A-X バンド発光スペクトル: (a) 領域全体 (b) (1,0) バンドヘッド近傍

4. まとめと今後の予定

3 段階励起スキーム: 460.9 nm—655.2 nm—426.3 nm の 3 段階励起 Sr 共鳴イオン化スキームを用いて、人工海水に ^{90}Sr 及び Sr 安定同位体の標準溶液を混合した溶液を試料として、 ^{90}Sr 共鳴イオン化スペクトルおよび同位体シフトの観測を行った。また ^{90}SrO に対する高感度吸収分光実現に向け、SrO の赤外域 A-X バンド発光スペクトルを観測し計算と比較した。今後、同位体シフトを考慮した計算を行い、ターゲット遷移を決定し、吸収分光実験を行う計画である。

成果リスト

- [1] Yoshihiro Iwata et al., Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 265 (2021) 107549 (7 pages).
- [2] 寺林稜平 他, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン開催, 口頭発表 (2021).
- [3] 寺林稜平 他, 日本原子力学会 2022 年春の年会, オンライン開催, 口頭発表 (2021).

Abstract:

The static corrosion behaviors of Cr-based dilute binary alloys were investigated under high pressure and high temperature autoclave corrosion tests, to accumulate the fundamental knowledge required for material selection in developing the accident tolerant fuel cladding in light water reactors.

Keywords: Static corrosion; Accident tolerant fuel; Cr alloy; Microstructure; Alloying effect

1. Introduction

The inherent demerits of Zr-based nuclear fuel claddings utilized in light water reactors such as rapid oxidation and hydrogen production under high-temperature steam was underlined in the case of severe accidents. Therefore, the concept of accident tolerant fuel (ATF) has been proposed to achieve an enhanced safety margin under higher burnup and even accident conditions. Cr-coated Zircaloy has been confirmed as one of the most promising near-term ATF claddings in light-water reactors due to their excellent oxidation resistance under high temperature. However, pure-Cr is fairly brittle and always exhibit a ductile-brittle transition behavior at near room temperature or even higher, which makes the Cr-coating layer vulnerable to embrittlement failure and/or easy crack propagation. Alloying of Cr is considered as one of the effective approaches to alleviate such risk and to improve the ductility of Cr-coating layer. However, as the nuclear fuel cladding, oxidation resistant behavior has to be primarily concerned to ensure the safety margin during both normal operation and accident scenarios. Therefore, the purpose of this study is firstly to prepare the dilute Cr-bases alloys, and secondly to investigate the corrosion resistance of these candidate Cr-bases alloys under simulated pressurized water reactor condition.

2. Experimental methods

Fe, Al, and Sn were selected to alloy the Cr in this study. The chemical compositions of these were decided based on the phase diagrams. Pure-Cr, Cr-2Fe (wt.%, similarly hereinafter), Cr-7Fe, Cr-0.5Sn, Cr-3Sn, Cr-2Al, and Cr-9.5Al ingots were fabricated using vacuum arc melting, followed by heat treatment and surface preparation. The microstructure characterization of the prepared ingots was conducted using x-ray diffraction (XRD), scanning electron microscope-energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDS). After surface preparation, static autoclave corrosion test at 360 °C and 17.8 MPa, with exposure times of 7, 14, 28, and 56 days was conducted according to ASTM G2M-19 standard. Weight gains of the samples with different corrosion periods were recorded and plotted to apply the oxidation law. The surface morphology after corrosion and the thickness of oxidation layer were characterized using grazing incident x-ray diffraction (GIXRD), SEM-EDS, and transmission electron microscope (TEM).

3. Results and discussion

A roughly heterogeneous grain size distribution was observed in all ingots, despite it tends to show a fine grain near the outside surface of the ingot, due to the relatively faster cooling rate compared to the center of the ingot. Severe void formation

was observed in Cr-Sn alloys, microscopic voids were identified in Cr-Fe and Cr-Al alloys, and almost no void could be observed in Cr. The chemical composition of each ingot was measured by SEM-EDS, results show the designed composition was achieved with the application of vacuum arc melting. Based on elemental-mapping, distribution of Al in Cr-Al ingots is rather homogeneous, however grain boundary segregation of Sn and Sn-rich cluster were observed in Cr-Sn ingots, and Fe-rich segregation was observed in Cr-Fe ingots.

Weight gain plotting results show that Cr-0.5Sn and Cr-2Al specimens have similar kinetic corrosion performance compared to commercial Cr, in addition, Cr-2Fe and Cr-7Fe specimens have similar kinetic corrosion performance with each other, and are slightly higher than Cr, Cr-0.5Sn and Cr-2Al specimens. In contrast, plotted kinetic behaviors of Cr-3Sn and Cr-9.5Al do not follow the expected exponential law, with the presence of weight loss at the early corrosion stage. The application of gravimetric data to the oxidation law gives rise to the kinetic parameters, the exponent of these alloys falls in $\sim 0.4-0.7$. Phase identification of the oxide layer was conducted by GIXRD, results show single Cr_2O_3 phase formed in pure-Cr, however the co-existence of Cr_2O_3 , Fe_3O_4 , and Fe_2O_3 phases in Cr-Fe alloys, the co-existence of Cr_2O_3 , SnO, SnO_2 phases in Cr-Sn alloys, and the co-existence of Cr_2O_3 and Al_2O_3 for Cr-Al alloys. TEM observation in Cr-9.5Al corroded after 28 days exhibited an oxide layer of ~ 20 nm, indicating the excellent corrosion resistance in such alloys. Grain boundary assisted corrosion behaviour, multiple layer formation in Cr-Fe alloys, and Sn-segregation behaviour were also confirmed in this study.

4. Summary and future work

For developing the Cr-coated ATF cladding, the chemical composition of dilute Cr-based binary alloys was determined based on phase diagram. The specimens were prepared by vacuum arc-melting and then subjected to static autoclave corrosion tests. The alloying effect on the corrosion behavior in Cr was investigated based on weight gain plotting, phase identification, and direct surface oxide layer observation. The corrosion behavior under different water chemistries will be investigated in the future.

Achievements

[1] JOVELLANA John Andrew Kane, 東京大学大学院, 修士論文 (2022).

2021F06

土壌中での放射性核種の動態評価

齊藤拓巳¹, ZHOU Qian¹, 室田健人², YILDIRIM Anil Can², 西 柝作²,
Koraphat Fairat², 田中琢朗², 服部隼也²

東京大学大学院工学系研究科 ¹原子力専攻, ²原子力国際専攻

本研究では、福島県内で採取された、比較的セシウム¹³⁷の滞在時間が長い土壌や河川等の堆積物を対象に、原試料あるいは抽出試料中の放射性セシウム濃度の測定を行い、放射性セシウム¹³⁷の化学形や交換性を評価することで、その移動度や生物学的利用能を調べた。

キーワード： 放射性セシウム、DGT デバイス、福島、移動度、生物学的利用能

1. 本文

研究の目的

東京電力福島第一原子力発電所事故によって、原発周囲の広範囲が放射性セシウム¹³⁷(¹³⁷Cs)によって汚染された。その後の除染活動により、居住地では除染が進んでいるものの、山林の大部分は手つかずの状態である。長期的な放射性セシウムによる汚染状態の変化を理解し、近隣住民の被ばく低減につなげるためには、放射性セシウム¹³⁷の環境動態の理解が必要である。本研究では、環境の中でも、比較的セシウム¹³⁷の滞在時間が長い土壌や河川等の堆積物を対象に、原試料あるいは抽出試料中の放射性セシウム濃度の測定を行い、放射性セシウム¹³⁷の化学形や交換性を評価することで、その移動度や生物学的利用能を調べることを目的としている。

実験方法

本研究では、福島県内で土壌試料や河川、溜池、河口の堆積物試料などの環境試料を採取する。また、それらの原位置で、セシウム¹³⁷に対して特異的な吸着剤を含む樹脂を備えたDGT (diffusive gradient in thin films)デバイスと呼ばれるパッシブサンプラーに、直接、交換可能なセシウム¹³⁷を直接トラップさせる。これらの試料中の¹³⁷Cs濃度をGe半導体検出器を用いて評価する。また、汎用準備室にて、採取した土壌や堆積物試料に対する逐次抽出実験を行い、抽出液中の¹³⁷Cs濃度を上述のGe半導体検出器を用いて評価する。これらの結果から、放射性セシウム¹³⁷の全濃度や交換可能成分の濃度、異なる化学形にあるセシウム¹³⁷の濃度を調べ、移動度や生物学的利用能の理解に繋げる。

DGT デバイスは、環境中の微量金属イオンの置換活性成分をその場測定するために、1992年にW. Davisonらによって開発されたサンプリング装置である¹(図1)。DGT デバイスは、吸着ゲル、拡散ゲルと呼ばれる2枚のアクリルアミド製のヒドロゲル膜を重ね、その上にメンブレンフィルターを設置し、ポリエチレン製のホルダーで挟み込んだ構造を持つ。吸着ゲルには、測定対象元素に合わせた吸着剤が担持されており、環境中の金属イオンはホルダー開口部から、メンブレンフィルター、拡散ゲルを通過し、吸着ゲル内の吸着剤によってデバイス内部に固定される。本研究では、吸着ゲルとして、セシウム¹³⁷に対する選択性の高いフェロシアン化銅(CFCN)をポリアクリルアミドゲルに担持させたものを用いた。DGT デバイスは、適用環境に応じて、半径1.0 cmの円形状の開口部を持つ水環境用(図1左)と、2.0×14.0 cm²の長方形の開口部を持つ土壌環境用(図1右)の2つが存在する。

2021年度では、作製したCs用のDGTデバイスを、2021年9月27日から10月5日までの8日間、請戸川の大柿ダム上流域(UKER-19, UKER-20)、大柿ダム下流域(UKER-18(合流前)、(合流後)), 下流域(UKER-7)、高瀬川の上流域(TAKR-8)、下流域(TAKR-3)に設置した。特に、2020年度と同様の調査において、ゲルの破損や検出下限を下回ることがあったため²、本年度は、デバイス保護のため開口部にナイロンメッシュを設置すると共に、一箇所に複数個のデバイスを設置し、まとめて測定することで、低¹³⁷Cs濃度試料の測定を可能とした。DGTデバイスを回収後、分解して、吸着ゲルを取り出し、Ge半導体検出器(GMX-type, ORTEC)を用いて取り込まれた¹³⁷Csの放射能を測定した。また、各設置場所で、迅速くん²と呼ばれる放射性Cs回収装置を用いて、河川水中に含まれる溶存態¹³⁷Cs濃度、懸濁態¹³⁷Cs濃度を測定した。さらに、各地点で河川水試料を採取し、全有機炭素計(TOC-V_{C_{SH}}, 島津製作所)を用いて溶存有機炭素(TOC)濃度を、イオンクロマトグラフ(930コンパクトIC Flex, Metrohm)を用いて陰イオン(Cl)濃度を、プラズマ発光分析装置(ICPS-7510 J, 島津製作所)を用いて陽イオン(Na, Mg, Si, K, Ca)濃度をそれぞれ測定した。

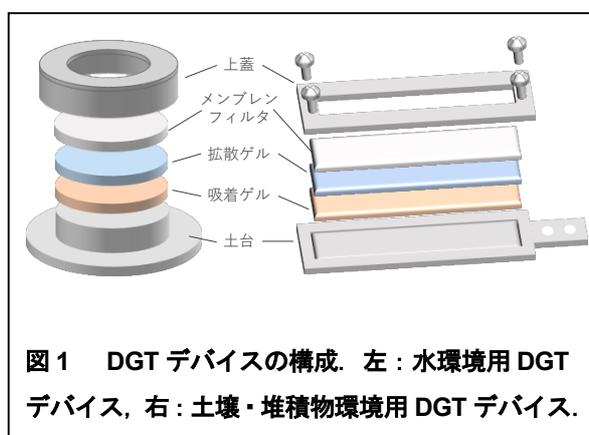


図1 DGT デバイスの構成. 左: 水環境用 DGT デバイス, 右: 土壌・堆積物環境用 DGT デバイス.

結果と考察

UKER-18 支流においてのみ、デバイスが流されていたため回収ができなかった。それ以外のポイントに関してはデバイスを回収することができ、放射能測定の結果が検出下限を下回るサンプルもなかった。

得られた ^{137}Cs の DGT 測定濃度と溶存態濃度の関係を図 2 に示した。DGT 測定濃度と溶存態濃度は良好な正の相関を示しており、式(4)の仮定と矛盾しない結果となっている。また、UKER-18 本流を除く全てのポイントにおいて、DGT 測定濃度が溶存態濃度を上回っていることから、福島県の河川においては有意な量の置換活性な ^{137}Cs が存在すると言える。実際、その差が最も大きい TAKR-3 においては、置換活性成分が溶存成分の倍以上の濃度で存在している。なお、UKER-18 本流は、支流からの流入とダムからの放流の合流地点であり、環境的にも特異なポイントなため、このような結果になったと考えられる。なお、前述の通り、置換活性成分とは固相からの脱離成分であると考えられている。従って、 ^{137}Cs の置換活性成分濃度と懸濁態濃度には一定の関係性が現れると考えられる。しかし ^{137}Cs 置換活性成分濃度と懸濁態濃度の関係では、両者の間に単純な線形関係は見られなかった。一方で、高瀬川と請戸川それぞれに分けて見ると、流域ごとに別の傾向があると考えられる。懸濁物質からの脱離が、懸濁物質の量やそこに含まれる ^{137}Cs の量のみで決まるわけではないとすると、脱離挙動に影響を与える他のパラメータが存在すると言える。すなわち、懸濁物の種類や河川水の性質など、流域環境の違いが置換活性成分に影響を与えている可能性がある。

TOC・陰イオン・共存陽イオン濃度をそれぞれ測定し、置換活性成分濃度との関係を求めた。(図 3)。TOC 濃度と置換活性成分濃度の間には、相関は見られなかった。一方で、DGT 測定濃度は TOC 濃度が高くなるにつれて小さくなるという良好な関係を示した。有機物の存在が、それ自体への吸着や、鉱物への吸着の阻害といった機能を通じて、河川水中に存在する ^{137}Cs の置換活性成分に対して影響を与えている可能性がある。陰イオンとして Cl を測定した。置換活性成分濃度や DGT 測定濃度と Cl 濃度の間に、有意な相関は見られなかった。陽イオンとして、Na・K・Ca・Mg の濃度を測定した。Si を除く 4 種類のイオンについては同様の傾向を示したため、代表して K 濃度を取り上げた。図 3 の(b)は全体として右肩下がりの傾向を示しており、共存陽イオンの存在が懸濁態への吸着に影響を与えていると考えられる。また、(c)では、流域ごとに見ると Si 濃度と ^{137}Cs 置換活性成分濃度が正の相関を示している。Si 濃度は懸濁態 ^{137}Cs 濃度と良好な正の相関を示すことから、珪酸塩鉱物の存在量を反映していると思われる。置換活性成分が、懸濁物質の中でも特に珪酸塩鉱物に影響される可能性が示唆される。

参考文献

1. W. Davison, H. Zhang, *Nature*, **367**, 545 (1994).
2. 田中琢朗, 東京大学卒業論文 (2021).

成果リスト

[1] 田中 琢朗, 齊藤 拓巳, 戸田 賀奈子, 藤原 健壯, 寺島 元基, 中西 貴宏, 小林 奈通子, 田野井 慶太郎, 「DGT を用いた福島県河川における ^{137}Cs 置換活性成分の評価 (2) 河川流域における検討」, 日本原子力学会 2022 年春の年会, 2022.3. (オンライン開催)

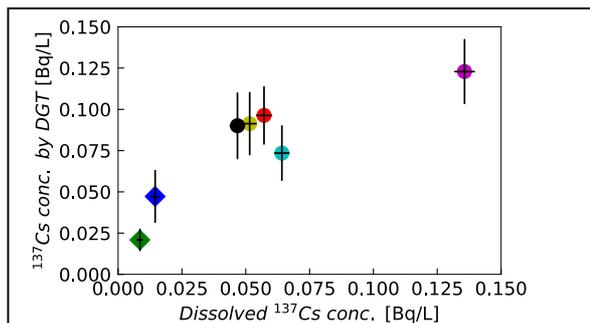


図 2 ^{137}Cs の溶存態濃度と DGT による測定濃度の関係。破線は 1 対 1 を表す線。

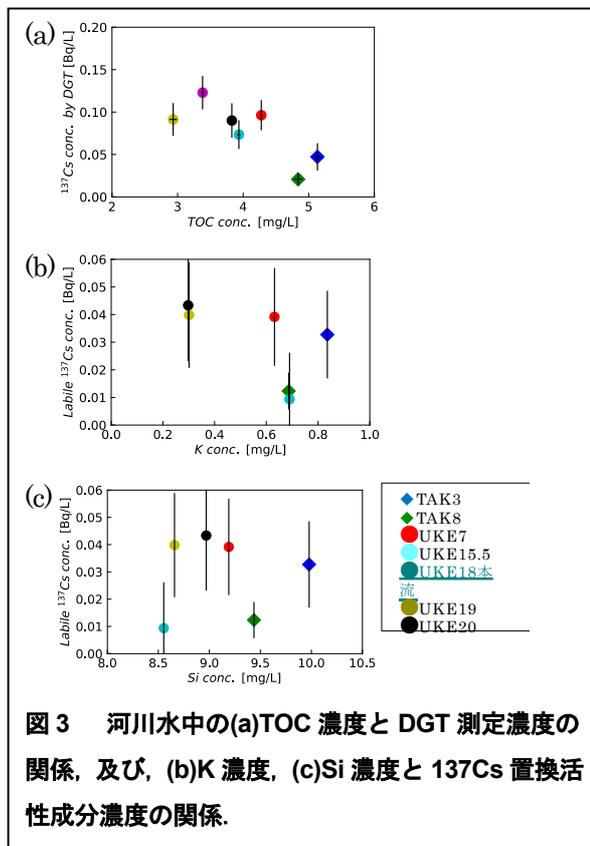


図 3 河川水中の(a)TOC 濃度と DGT 測定濃度の関係、及び、(b)K 濃度、(c)Si 濃度と ^{137}Cs 置換活性成分濃度の関係。

2021L01

水溶液の放射線効果の研究

山下真一¹, 于嵩¹, 木村敦², 上野美穂^{3,2}, 新井唯史^{3,2}, 楠本多聞⁴, 小平聡⁴

1: 東京大学, 2: QST 高崎, 3: 群馬大学, 4: QST 放医研

LINAC からの 10 ns の短パルスを用い、瞬間的に放射線分解を起こし、その後の時間挙動を直接追跡している (パルスラジオリシス法)。放射線によって誘発される DNA 損傷の初期過程、放射線を利用した高分子材料の機能化、有害物質の分解、リソグラフィ基礎過程、など様々な水溶液系の放射線化学反応について研究を進めている。

キーワード: パルスラジオリシス, ラジカル, 時間分解測定, 反応機構, 放射線化学

1. はじめに

水は人類の生活環境においてもっともありふれた物質の一つであり生体主成分でもある。放射線の生体影響のメカニズム解明だけでなく、様々な分野での放射線利用を高度化するためにも、放射線場における水の分解や水溶液中での化学反応は重要である。LINAC からの短パルス電子ビームを用いることで、放射線により誘発される現象を時間分解で観測することができる (パルスラジオリシス法)。本課題では、光吸収の時間変化から水溶液試料中での化学反応を追跡している。

2. パルスラジオリシス法

加速エネルギー 35 MeV, 直径 5 mm, パルス半値幅 1-10 ns の電子ビームを用いた。パルスあたりの吸収線量は最大 100 Gy 程度で、必要に応じて Cu や Pb 等の減弱板を用いて減少させた。遅延発生器 DG535/DG645 (Stanford Research Systems) を用い、電子線パルスと分析光のタイミングを揃え (同期制御)、照射にともなう透過光強度の変化を観測した (光強度の変化から吸光度を求めた)。電子線パルス照射していないときの光強度が I_0 、電子線パルス照射したときの光強度が I のとき、吸光度は $Absorbance = \log_{10}(I/I_0)$ となる。吸光度の時間変化から、化学反応の時定数や反応速度定数が評価し、時間各波長で取得した吸光度の時間変化 (過渡吸収) を任意の時間 (電子線パルスからの経過時間) で切り出すことにより、その時間における過渡吸収スペクトルが得られる。

3. 結果と考察

3. 1 オリゴペプチドと OH ラジカルの反応性 (木村ら) [1]

MRI や PET などの最新の医療診断技術において、疾患の早期発見や詳細な画像取得のためには造影剤などのイメージング剤の使用は必要不可欠である。一方で、これらのイメージング剤は副作用により患者に負荷をかけるものもあるため、薬剤を少量かつ効率的に患部に送達する新規ナノ・イメージング剤の開発が求められている。QST 高崎では、生体適合性の高いオリゴペプチドを分子設計・合成し、その水溶液に放射線を照射してペプチドナノ粒子を作製することで、がん診断に応用可能な新規ナノ・イメージング剤のプラットフォームを構築することを目指している。がんのナノ・イメージングに適した大きさの粒子を作製するためには、水中のオリゴペプチドの放射線化学反応機構の解明が必要不可欠である。そこで、各種オリゴペプチドと OH ラジカルの反応性を、パルスラジオリシス法により評価した。

放射線架橋に関与するフェニルアラニン(F), チロシン(Y), ヒスチジン(H), およびタンパク質の主要アミノ酸残基であるグリシン (G)を含む 3 種のオ

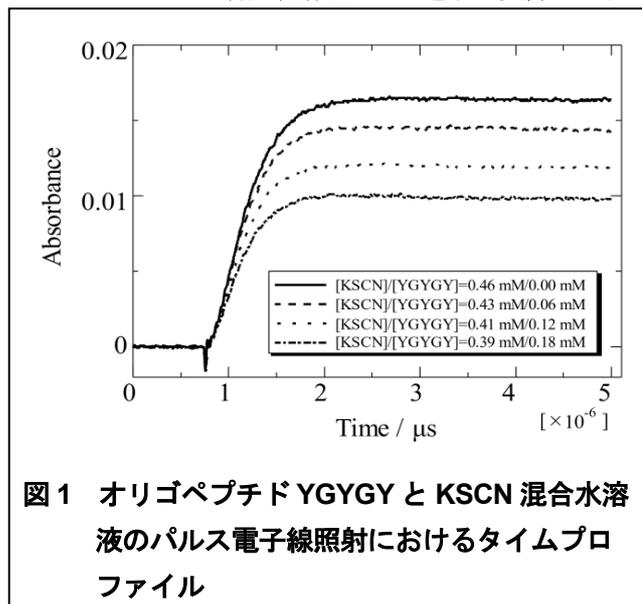


図1 オリゴペプチド YGYGY と KSCN 混合水溶液のパルス電子線照射におけるタイムプロファイル

リゴペプチド FGFGF, YGYGY, HGHGH を固相合成法により合成し、チオシアン酸カリウム (KSCN) との混合水溶液を亜酸化窒素飽和条件で照射し、 $(\text{SCN})_2^{\cdot-}$ の生成量の変化を観測した。パルス電子線照射直後の各種オリゴペプチドおよび KSCN 混合水溶液の 500 nm における吸光度は、添加したオリゴペプチド濃度の増加に伴い、減少した (図 1)。この結果、各種オリゴペプチドと OH ラジカルとの反応速度定数を $k_{(\text{FGFGF})} = 8.8 \times 10^9 \text{ L/mol/s}$, $k_{(\text{YGYGY})} = 1.5 \times 10^{10} \text{ L/mol/s}$, $k_{(\text{HGHGH})} = 4.2 \times 10^9 \text{ L/mol/s}$ と求めた。これは、各アミノ酸単体と OH ラジカルとの反応速度定数 (F : $7.2 \times 10^9 \text{ L/mol/s}$, Y : $1.0 \times 10^{10} \text{ L/mol/s}$, H : $4.3 \times 10^9 \text{ L/mol/s}$) と同程度か、より大きい値となった。オリゴペプチドはアミノ酸単体と比較して、OH ラジカルとの反応部位が多いためと考えられる。

3. 2 水分解ラジカルの減衰挙動における線量率の影響 (楠本ら)

通常の治療線量率 (0.03 Gy/s) よりも 1000 倍以上高い線量率 (40 Gy/s 以上) でおこなう超高線量率治療のメカニズム解明を目的とし、パルスラジオリシス法を用いた水和電子の収率の線量率依存性に取り組んでいる。線量率効果における酸素の役割を明らかにするために Ar 飽和雰囲気とすることで溶存酸素を除去し、無酸素状態での実験も実施した。

図 2 に水和電子の G 値 (放射線化学収率: 放射線のエネルギーを 100 eV 吸収した際の反応数) と照射後の経過時間の関係を示す。Ar ガスを用いた低酸素条件での照射実験では、照射後 800 ns 経過後においても水和電子が生き残っていることが確認できる図 2 (a)。一方酸素存在下での実験には、水和電子は急激に低下し、照射後 500 ns 経過後にはほとんど存在していない図 2 (b)。これは水和電子が水中の酸素と反応により消滅したためである。水中の酸素は水和電子 (もしくは水素ラジカル) との反応によって失われることが知られている。しかしながら、18.4 Gy 照射後においても酸素存在下では生き残る水和電子がほとんどいないことから、水中には十分な酸素が残っていると考えられる。次に水和電子の収率の線量率依存性を考える。酸素の存在の有無にかかわらず、1 パルス当たりの照射線量 (即ち線量率) の増加に伴って G 値が減少している。大気下での照射では G 値と時間の関係は全ての線量率でほぼ同じ傾向を示している。一方低酸素状態では、3.6 Gy 以下の照射においては 100 ns を超えたあたりから G 値が一定となっているのに対し 18.4 Gy の照射では 100 ns を超えても G 値が単調に減少していることが分かる。これは線量の増加に伴って、飛跡構造が密になることが原因だと考えられる。飛跡の構造が疎な場合、形成されたスパークは独立であり、生成する化学種同士の反応は 1 つ 1 つのスパーク内でのみ起こると考えることができる。これと比較して密な飛跡構造が形成された場合、トラック間の距離が近くなる。そのため、隣接するトラックで形成されるスパークの重なりが起き、スパーク間で化学種同士の反応が起こる。故に水和電子の G 値は高線量率においては単調に減少すると考えられる。

今後は照射下における酸素濃度を直接測定すると共に、水和電子の収率のパルス幅の依存性を明らかにしたいと考えている。1 秒間の照射線量を一定とし、パルス幅を変えた照射をおこなうことで、どのように収率が変化していくのかを明らかにしようと考えている。

成果リスト

[1] 上野美穂, 群馬大学大学院, 修士論文 (2022).

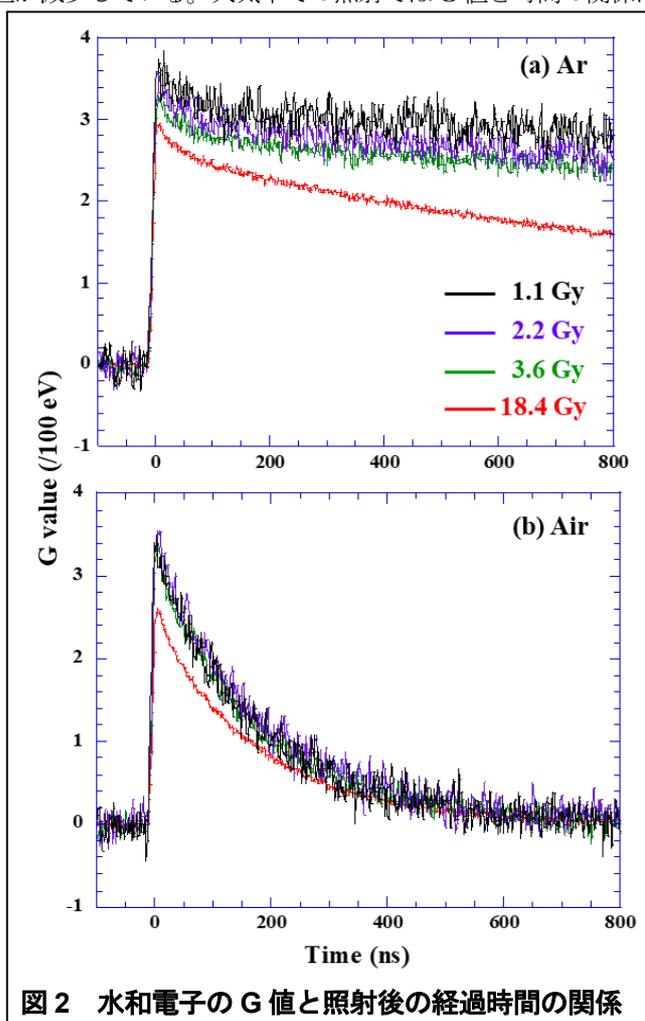


図 2 水和電子の G 値と照射後の経過時間の関係

金属酸化物ナノ粒子レジストは次世代リソグラフィ材料として期待されており、良好なパターン形成能と耐エッチング性能を有しているが、ビーム照射による不溶化の反応機構はよくわかっていない。そこで有機配位子として用いられる種々のカルボン酸について、量子ビーム誘起反応の初期過程を調べた。

キーワード： 金属酸化物ナノ粒子レジスト、ピコ秒・ナノ秒パルスラジオリシス、放射線分解反応初期過程

1. はじめに

金属酸化物ナノ粒子レジストは、数 nm サイズの金属酸化物と有機配位子から構成されるコアシェル構造を持った有機無機ハイブリッド材料である。ビーム照射により速やかに有機溶媒に対して不溶化する。良好なパターン形成能と耐エッチング性能を有していることから、電子線(EB)や極端紫外線(EUV)を用いる次世代のリソグラフィ材料として注目されている。しかし、ビーム照射による不溶化の反応機構はよくわかっておらず、実用化には多くの課題が残されている。一方で、メタクリル酸(MAA)などの不飽和カルボン酸を配位子に用いることでレジストの性能が向上したという報告があり²⁾、配位子の量子ビーム誘起反応を制御することが重要であると考えられる。本研究では、パルスラジオリシス法(ピコ秒およびナノ秒)を用いて、有機配位子として用いられる種々のカルボン酸の量子ビーム誘起反応の初期過程を調べた。

2. 実験

水和電子やラジカルカチオンとの反応を調べるために、それぞれ純水、塩化メチレンまたは n-ドデカンを溶媒として用いた。これらの溶媒に Table 1 に表記したカルボン酸を溶解させ、捕捉剤として t-BuOH (OH ラジカル捕捉剤) や EtOH (カチオン捕捉剤) または CH₂Cl₂ (電子捕捉剤) を添加することでサンプルを調製した。水溶媒系では pH 調整に NaOH を用いた。また、全てのサンプルについてアルゴン脱気を行った。

3. 結果と考察

【水和電子との反応】カルボン酸(濃度 1~100 mM)の 0.1 M t-BuOH 水溶液に対しパルスラジオリシスを行った。過渡吸収スペクトルを比較すると、MAA, TiA, AA について 300 nm 付近にいずれも吸収が見られた。時間プロファイルより、水和電子およびプロトン付加が二段階で起こっており、 α 炭素ラジカルに帰属された³⁾。一方、飽和カルボン酸の IBA は、酸性・塩基性条件ともに水和電子との反応性が低く、生成物の吸収も見られなかった。これらより、電子が二重結合部位に付加することが示唆された。BA, o-TA, p-TA などの芳香族カルボン酸は水和電子と良好に反応し、300 nm にラジカルアニオンに帰属される吸収が見られたが⁴⁾、上述の二段階反応は見られなかった。いずれのカルボン酸も大きな pH 依存性が見られた。塩基性状態の時、カルボン酸イオンが占めるようになり、電子との反応は起きにくくなっていると考えられる。一方、MAA や TiA, p-TA を配位子として用いたレジストの感度評価が行われ、TiA > MAA > p-TA > BA = o-TA と評価されている^{2,5)}。これは Table 1 に示す電子との反応性と必ずしも一致していない。しかし、pKa の大きさと感度が良い相関が見られる。レジストの金属コアは表面が正に帯電しており、配位子は解離非解離の状態にそれぞれ配分されている。pKa が大きいほど非解離成分が多いため、電子と反応性が高く、感度向上に寄与しているものと考えられる。

【ラジカルカチオンとの反応】カルボン酸(濃度 100 mM)の CH₂Cl₂ 溶液に対し、1 M EtOH の有無による過渡吸収スペクトルの差分を取った。全ての試料で 350 nm に吸収が見られるが、これは neat CH₂Cl₂ で見られるイオンペアと一致する。芳香族では近赤外にダイマーラジカルによる吸収が確認された。IBA 以外のカルボン酸は 450 nm

近傍に吸収が見られ、これがラジカルカチオンに帰属される。時間プロファイルより、不飽和系は極めて速く減衰し (< 20 ns)、芳香族系はこれより長く (> 100 ns)、一次減衰を示した。これよりラジカルカチオンが生成した後、不飽和系はすぐにプロトン脱離が起きるが、芳香族系は CH_2Cl_2 の解離性電子付着で生じる Cl^- との再結合を経てプロトン脱離に至ると考えられる。さらに、ラジカルカチオンとの反応速度定数を調べるために、カルボン酸の (濃度 100~300 mM) 1 M CH_2Cl_2 ドデカン溶液に対し、ピコ秒パルスラジオリシスを行った (Fig. 1)。結果を Table 1 にまとめる。全てのカルボン酸について反応速度定数は 10^9 オーダーであり、高い反応性を持つことがわかった。直接イオン化だけでなく金属コアからのホール移動による酸化を経てラジカルカチオン生成物を形成すると考えられるが、その反応性は前述のレジスト性能と一致していないことから、ラジカルカチオンよりも電子との反応が重要であることが示唆された。

【参考文献】

1) C. K. Ober et al., Proc. of SPIE, 7972, 79721C, 2011. 2) J. Jiang, J. Photopolym. Sci. Technol, 27, 663, 2014. 3) V. Madhavan, N. N. Lichtin, G. Casalbore-Miceli, Radiat. Phys. Chem., 33, 29, 1989. 4) T. Shida, Electronic absorption spectra of radical ions, Amsterdam: Elsevier, 1988. 5) J. Jiang, B. Zhang, C. K. Ober et al., J. Photopolym. Sci. Technol., 28, 4, 2015

成果リスト (抜粋)

- [1] Tepei Yamada, Satoshi Ishihara, Yusa Muroya, Julius Joseph Santillan, Shinichi Yamashita, Toshiro Itani, and Takahiro Kozawa, "Pulse radiolysis of methacrylic acid ligand for zirconia nanoparticle resist", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 58, 036503 (2019)
- [2] Tepei Yamada, Yusa Muroya, Shinichi Yamashita, Yoshitaka Komuro, Daisuke Kawana, Akiyoshi Yamazaki, and Takahiro Kozawa, "Pulse radiolysis of carboxylic acids used as ligands of metal oxide nanocluster resists", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 58, 096504 (2019)
- [3] Ikeuchi, Kengo, Muroya Yusa, Ikeda Takuya, Komuro Yoshitaka, Kawana Daisuke, Kozawa Takahiro, "Study on radical dianions of carboxylates used as ligands of metal oxide nanocluster resists", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 60, 076503 (2021)
- [4] Yi Wang, Jialiang Chen, Lan Wang, Hanqin Weng, Zhihao Wu, Limin Jiao, Yusa Muroya, Shinichi Yamashita, Sheng Cheng, Fuhai Li, Hongbing Chen, Wei Huang, Mingzhang Lin, "Gamma-Radiation synthesis of ultrasmall noble metal (Pd, Au, Pt) nanoparticles embedded on boron nitride nanosheets for high-performance catalysis", *Ceramics Int.*, 47, 26963-26970 (2021)
- [5] Sunuchakan Sanguanmith, Jintana Meesungnoen, Yusa Muroya, Jean-Paul Jay-Gerin, "Scavenging of "dry" electrons prior to hydration by azide ions: effect on the formation of H-2 in the radiolysis of water by Co-60 gamma-rays and tritium beta-electrons", *Can. J. Chem.*, 99, 881-889 (2021)
- [6] Tomoe Otsuka, Yusa Muroya, Takuya Ikeda, Yoshitaka Komuro, Daisuke Kawana and Takahiro Kozawa, "Decarboxylation efficiency of carboxylic acids as ligands of metal oxide nanocluster resists upon gamma-ray irradiation", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 61, 036503 (2022)

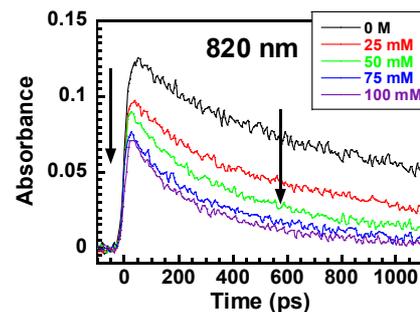


Fig. 1. Time behaviors of n-dodecane radical cation at different concentration of o-TA measured by picosecond pulse-probe.

Table 1. Rate constants for the reaction carboxylic acid with e-aq and dodecane radical cation evaluated by nanosecond and picosecond pulse radiolysis

Carboxylic acid	pKa	$k(e_{aq}^- + S)$ [$\text{M}^{-1}\text{s}^{-1}$]		$k(n\text{-C}_{12}\text{H}_{26}^+ + S)$ [$\text{M}^{-1}\text{s}^{-1}$]
		acidic(pH<4)	basic(pH>9)	
Methacrylic acid (MAA)	4.7	1.7×10^{10}	3.2×10^9	2.6×10^9
Tiglic acid (TiA)	5.0	9.3×10^9	3.8×10^8	7.9×10^9
Angelic acid (AA)	4.3	8.3×10^9	4.4×10^8	7.6×10^9
Isobutyric acid (IBA)	4.8	8.8×10^8	4.5×10^6	3.5×10^9
benzoic acid (BA)	4.2	1.6×10^{10}	3.2×10^9	7.1×10^9
<i>o</i> -toluic acid (<i>o</i> -TA)	3.9	1.5×10^{10}	2.9×10^8	9.2×10^9
<i>p</i> -toluic acid (<i>p</i> -TA)	4.4	1.8×10^{10}	3.7×10^9	6.4×10^9

不定比金属組成を制御した高温超電導体の ピンニング特性に及ぼす電子線照射効果

富久琢磨**、三輪将也**、元木貴則**、

叶野 翔*、安見 厚志*、下山淳一**

東京大学大学院工学系研究科*、青山学院大学理工学部**

表題の研究課題のもと、令和 3 年度も継続して化学組成を精密に制御した高温超伝導体について電子線照射によるピンニングセンター導入の効果調べる研究に取り組み、超伝導体の系による照射前後の臨界電流特性の変化の違いや照射効果の化学組成依存性を系統的に調べた。

キーワード： 高温超伝導体、銅酸化物、電子線照射、ピンニング、不定比金属組成

1. はじめに

超伝導体への電子線照射により導入される欠陥はピンニングセンターとなり、臨界電流特性を大きく向上させることが可能である。ピンニングセンターは欠陥や常伝導析出物の形状、大きさ、分布のほか、超伝導母相の凝縮エネルギーの改善もピンニング力に寄与する。超伝導凝縮エネルギーに影響する RE/Ba 固溶の制御のため、仕込金属組成を制御したバルクについて、電子線照射により点欠陥状のピンニングセンターを導入し、その前後の超伝導特性を調べることで臨界電流特性の改善の指針を確立することを目指している。比較的 RE/Ba 固溶の起こりやすい Gd123 溶融凝固バルクから切り出した試料への電子線照射を行い、臨界電流特性を調べた。加えて、Ba 量を増やした仕込組成から育成すること Gd/Ba 固溶の抑制を試みた Gd123 溶融凝固バルクについても電子線照射を行い、欠陥導入による臨界電流の変化を測定した。また、これまでに、水蒸気を含む雰囲気中でアニールをすることで多数の Y124(YBa₂Cu₄O₈)型の積層欠陥が導入されるとともに臨界温度 T_c はほとんど低下せず酸素拡散が高速化することを見出している[T. Motoki et al., *Supercond. Sci. Technol.* **33** (2020)]。この意図的な積層欠陥を導入した Y123 溶融凝固バルクに対しても電子線照射を行い、臨界電流特性の変化を調べた。

2. 実験方法

原料粉末を $x = 0$ が Gd123 : Gd211 = 7.5 : 2.5 に相当する Gd : Ba : Cu = 1.25 : 1.75+x : 2.5 のカチオン比から $x = 0, 0.1, 0.2$ の組成で混合、焼成した粉末に Ag₂O 10 wt%, Pt 0.1 wt% を添加した前駆体ペレットを成型した。前駆体ペレットは熱処理した後、Eu-QMG[®] (日本製鉄) を seed plate とした単一方向結晶成長法により all *c*-growth Gd123 溶融凝固バルクを作製し、還元アニールと酸素アニールにより化学組成を制御した。seed plate から 2 mm の位置から試料を切り出し、電子線照射前、電子線照射 1 回後、2 回後に SQUID 磁束計により磁化ヒステリシス測定を行い臨界電流密度 J_c を拡張 Bean モデルを用いて見積もった。照射量は 1 回目が $4.2 \times 10^{17} / \text{cm}^2$ 、2 回目が $4.9 \times 10^{17} / \text{cm}^2$ である。2 つのシングルドメインの Y123 溶融凝固バルクは、Y123(YBa₂Cu₃O₇) と Y211(Y₂BaCuO₅) を 7:3 のモル比で含む混合粉末を円盤状に成型し、Nd123 単結晶を種結晶として用いて部分溶融状態から徐冷することにより育成した。一方の試料は乾燥酸素気流中で、もう一方の試料は水蒸気を含む酸素雰囲気中 ($P_{\text{H}_2\text{O}} \sim 2 \text{ kPa}$)、400°C でそれぞれ長時間の酸素アニールを行い Y123 の酸素量 y を制御した。これらの試料に計 3 回(合計照射量 $1.34 \times 10^{18} \text{ cm}^2$) 電子線照射を行い、照射前、各照射後の臨界電流特性を Gd123 溶融凝固バルクと同様な方法で調べた。

3. 結果と考察

Fig.1 に電子線照射を行った Gd123 溶融凝固バルクの 77 K における J_c の外部磁場依存性と磁化率の温度依存性を示す。図中の #1 は 1 回目 ($4.2 \times 10^{17} / \text{cm}^2$)、#2 は 2 回目 ($4.9 \times 10^{17} / \text{cm}^2$) の照射を示す。2 回目の照射後の各試料の T_c は照射前の試料と比べて低下が見られた。1 回目の照射では $x = 0$ の試料で T_c がわずかに上昇しており、照射前にはややオーバードープ状態であった可能性がある。いずれの試料においても電子線照射により J_c の改善が見られ、特に 3 T 以下の低磁場において顕著であった。特に Ba 量を増やした試料では J_c が大きく向上し、77 K, 1 T の J_c は約 3 倍になっていた。これは Gd/Ba 固溶が抑制されたことにより超伝導凝縮エネルギーが増大し、照射欠陥のピンニング力が大きくなったことを示唆する。また、Ba 量を増やした試料では 2 回目の電子線照射による J_c の変化がほぼ見られず、1 回目の照射で概ね最適欠陥導入量となったことが考えられる。

図 2(a), (b) に乾燥酸素もしくは含水蒸気酸素アニールを行った Y123 溶融凝固バルクの複数回照射前後の磁化率の温度依存性をそれぞれ示す。初期状態で欠陥の少ないと考えられる乾燥酸素アニール試料では照射による T_c の低下は見られず鋭い超伝導転移を示した一方、積層欠陥を多数導入した含水蒸気酸素アニール試料では、照射による顕著な転移のブロードニングが観測された。図 3(a), (b) に、同じく乾燥酸素もしくは含水蒸気酸素アニールを行った試料の照射前後の 77 K における J_c の磁場依存性をそれぞれ示す。乾燥酸素アニール試料では、照射によ

り低磁場での顕著な J_c の改善が見られた。3 回照射試料では照射の追加による J_c の改善はほとんど見られず、有効なピン止め中心が飽和していることが考えられる。含水蒸気酸素アニール試料でも同様に低磁場では J_c 向上が見られたものの、第 2 ピークが消失し、不可逆磁場が低下したことから、欠陥の過剰導入により超伝導母相の超伝導凝縮エネルギーの低下が示唆された。

今後は、Gd123 溶融凝固バルク、Y123 溶融凝固バルクとも微細組織を調べ、金属組成や積層欠陥密度と照射欠陥密度と臨界電流特性の関係の総合的な理解を進める。

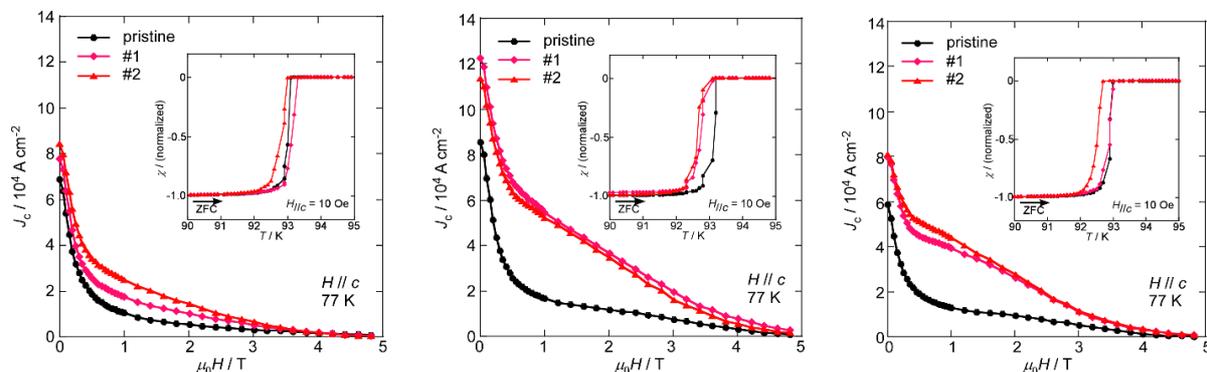


Fig. 1 電子線照射を行った仕込 Ba 量が異なる Gd123 溶融凝固バルクの 77 K における臨界電流 J_c の外部磁場依存性と磁化率の温度依存性 (内挿図) Ba 過剰量 x : (左) $x=0$ (中) $x=0.1$ (右) $x=0.2$

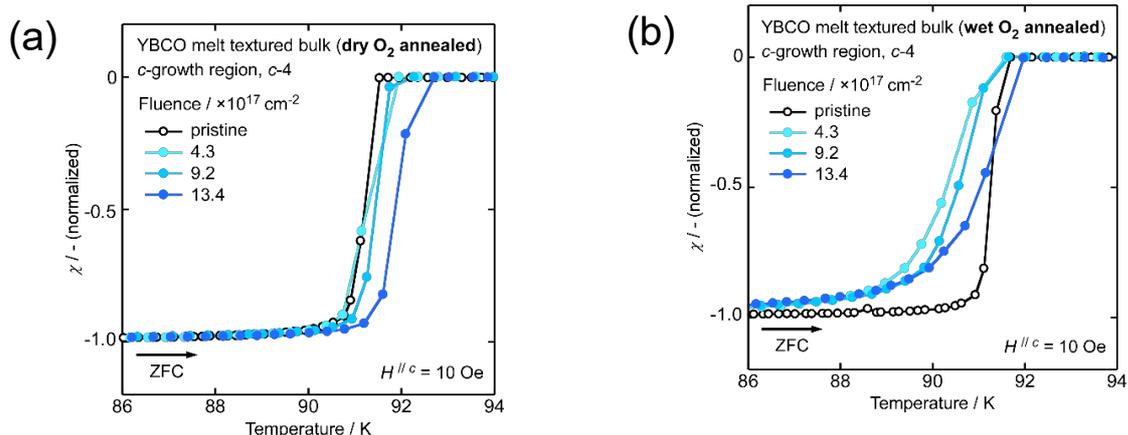


図 2. 乾燥酸素アニール(a)および含水蒸気酸素アニール(b)を行った Y123 溶融凝固バルクの複数回照射前後の磁化率の温度依存性

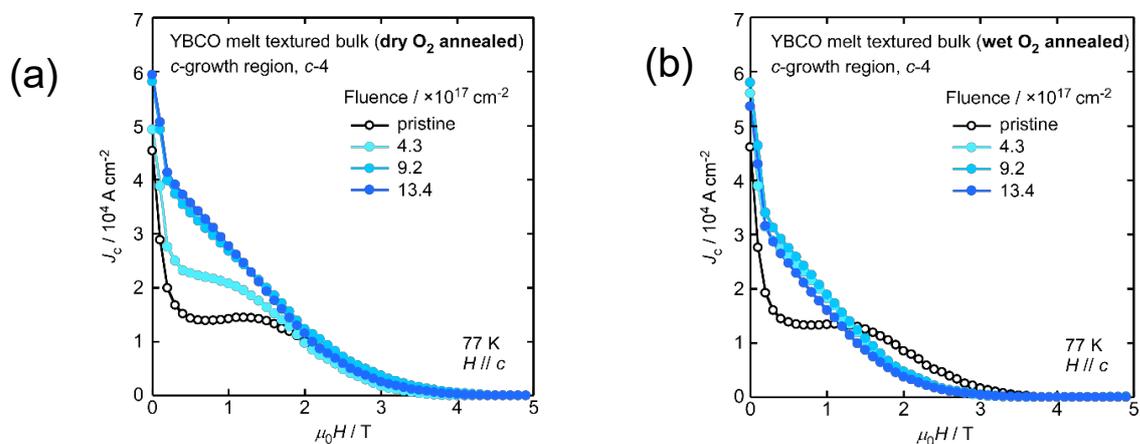


図 3. 乾燥酸素アニール(a)および含水蒸気酸素アニール(b)を行った Y123 溶融凝固バルクの複数回照射前後の 77 K における J_c の磁場依存性(b)

高温水の放射線誘起反応はこれまでナノ秒・マイクロ秒以降の化学過程（スパー形成後の化学反応）は精力的に調べられてきたが、より高速な物理化学過程（スパー形成過程）の議論はほとんどなされていない。物理化学過程の代表的な現象として溶媒のイオン化から生成する電子の溶媒和過程が挙げられ、ピコ秒パルスラジオリシス法を用いて高温水中の電子溶媒和過程を調べた。

キーワード： 高温ピコ秒パルスラジオリシス、放射線分解反応、物理化学過程、電子溶媒和過程

1. はじめに

軽水炉炉心の化学環境を把握する上で、冷却水のラジオリシスの理解は重要である。水の放射線分解に伴う水素発生は古くから知られ、主に水和電子 (e_{aq}^-) に由来するとされてきたが、近年、水和前の電子（前駆体）も積極的に寄与することが指摘された^{1,2)}。イオン化から溶媒和までを含めた電子の振る舞いを、室温および高温下でも把握することが重要であるが、水中の電子溶媒和過程は極めて速く (<1ピコ秒)、実験的に直接観測することは容易ではない。高温ピコ秒パルスラジオリシス法および溶媒和前電子捕捉剤を用いて、室温～高温水中における電子溶媒和過程を調べた。

2. 実験

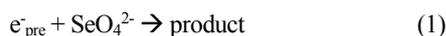
レーザーフォトカソードを電子銃とする 18L ライナック（照射ビーム源）およびフェムト秒レーザー（分析光源）を用いたピコ秒パルスプローブ実験を行った。高温高压セルで試料を高温高压に保持し、ピコ秒～ナノ秒領域において、可視～近赤外領域の過渡吸収をマルチチャンネル（2048 ch）にて計測した。

3. 結果と考察

セレン酸水溶液 (SeO_4^{2-}) を用いてピコ秒パルスプローブを行い、水和電子 (e_{aq}^-) の時間挙動を測定した。図 1 左には室温条件における結果を示す。 SeO_4^{2-} 濃度が増加するほど、水和電子のピコ秒領域の減衰が速くなることから、水和電子はセレン酸との反応を引き起こしていることが分かる。さらに、セレン酸濃度が高いほど、照射直後の吸収立ち上がり、即ち水和電子の初期生成量も減少していることから、セレン酸は水和電子のみならず、その前駆体 (e_{pre}) も捕捉していることが分かる。

得られた結果を基に、 e_{aq}^- の生存確率（捕捉反応を逃れる確率）を 37% (= 1/e) に低下させる捕捉剤濃度 (C_{37}) を評価した結果、室温では $C_{37} = 0.33$ M であった。同様の捕捉剤濃度依存性を高温条件下でも行った結果を図 1 中および図 1 右に合わせて示す。65 °C では 0.55 M、100 °C では 0.88 M と、高温ほど増加する傾向が見られた。

電子前駆体に対し、捕捉剤による捕捉反応（反応(1)）と、捕捉剤からの逃散すなわち電子溶媒和（反応(2)）は競争反応の関係にあると考えられる。



実験結果より、高温ほど反応(2)より反応(1)の割合が大きくなることから、捕捉から逃れて溶媒和に至りやすい、即ち電子の溶媒和は高温ほど高速化するものと考えられる。捕捉剤が電子の緩和過程のどの段階で効率的な捕捉を行っているかは現段階では不明である。高温下の C_{37} は報告例が皆無であり、室温条件下でも水やメタノール～プロパノールといった比較的分子量低分子かつ溶媒和の速い溶媒については報告がなされているが、溶媒和の遅い溶媒については報告例は極めて少ない。今後、直鎖の長いアルコールも対象に高温下の C_{37} を評価することで、これを基に

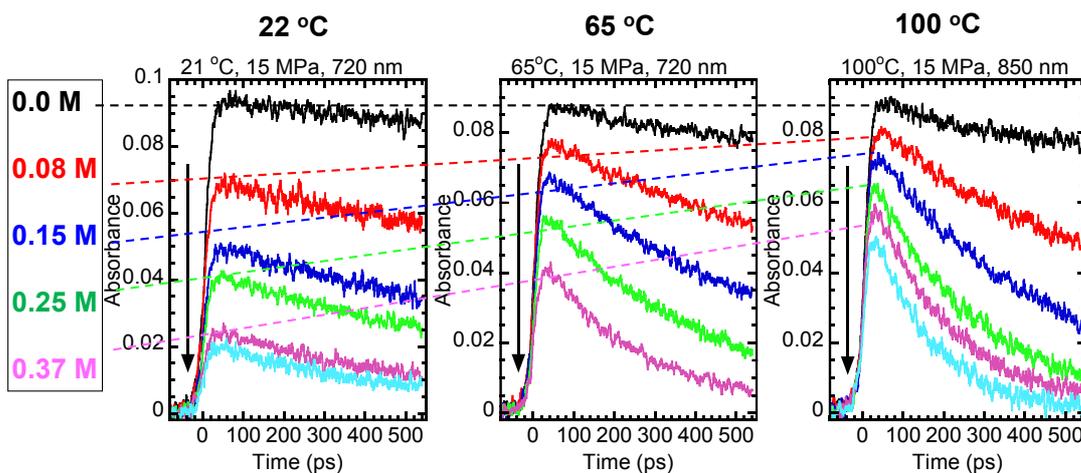


Fig. 1. Time behaviors of the hydrated electron (e_{aq}^-) in Na_2SeO_4 aqueous solution at elevated room temperature measured by picosecond pulse-probe.

更に詳細に溶媒和過程を明らかにしていきたいと考えている。

【参考文献】

- 1) J. A. LaVerne et al., *J. Phys. Chem. A*, 104, 9820 (2000).
- 2) M. Sterniczuk et al., *J. Phys. Chem. A*, 120, 200 (2016).

成果リスト (抜粋)

- [1] Ikeuchi, Kengo, Muroya Yusa, Ikeda Takuya, Komuro Yoshitaka, Kawana Daisuke, Kozawa Takahiro, “Study on radical dianions of carboxylates used as ligands of metal oxide nanocluster resists”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 60, 076503 (2021)
<https://doi.org/10.35848/1347-4065/ac06db>
- [2] Yi Wang, Jialiang Chen, Lan Wang, Hanqin Weng, Zhihao Wu, Limin Jiao, Yusa Muroya, Shinichi Yamashita, Sheng Cheng, Fuhai Li, Hongbing Chen, Wei Huang, Mingzhang Lin, “Gamma-Radiation synthesis of ultrasmall noble metal (Pd, Au, Pt) nanoparticles embedded on boron nitride nanosheets for high-performance catalysis”, *Ceramics Int.*, 47, 26963-26970 (2021)
<https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.05.327>
- [3] Sunuchakan Sanguanmith, Jintana Meesungnoen, Yusa Muroya, Jean-Paul Jay-Gerin, “Scavenging of “dry” electrons prior to hydration by azide ions: effect on the formation of H-2 in the radiolysis of water by Co-60 gamma-rays and tritium beta-electrons”, *Can. J. Chem.*, 99, 881-889 (2021)
[dx.doi.org/10.1139/cjc-2020-0504](https://doi.org/10.1139/cjc-2020-0504)
- [4] Tomoe Otsuka, Yusa Muroya, Takuya Ikeda, Yoshitaka Komuro, Daisuke Kawana and Takahiro Kozawa, “Decarboxylation efficiency of carboxylic acids as ligands of metal oxide nanocluster resists upon gamma-ray irradiation”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 61, 036503 (2022)
<https://doi.org/10.35848/1347-4065/ac4b43>

2021L-05

フォトカソード RF 電子銃の高性能化

山下真一¹, 室屋裕佐², 橋本英子¹, 安見厚志¹

1: 東京大・院工, 2: 大阪大・産研

本課題ではフォトカソード RF 電子銃の高性能化のための基礎研究を実施している。昨年度は電子銃に入射しているレーザー光の再生増幅器の DPM (diode pump module) が故障し、レーザー増幅ができない状態となっていたため更新を行った。

キーワード: 電子銃, フォトカソード

1. 18L ビームラインの現状

18L ビームラインは、光陰極 RF 電子銃 (1.6 セル、BNL-typeIV)、ソレノイド磁石、進行波型加速管、四極磁石、シケイン型磁気パルス圧縮器からなる (図 1)。Ti:Sapphire レーザー (780-790nm) を光陰極励起用及びプローブ用光源として用いている。レーザー励起により発生した電子ビームの時間構造は、レーザーの時間構造を反映するため、空間電荷効果によるエミッタンス増大が抑えられ、パルス当たりの電荷量が高く、エミッタンスが小さい電子ビームを発生することができる。レーザーエネルギーの増幅方法として再生増幅方式を採用している。一昨年度末、この再生増幅器 DPM 内で冷却管からの水漏れにより故障し、レーザーを増幅できない状況となった。そこで昨年度、半年かけて更新を行い、後期からは安定に稼働している。

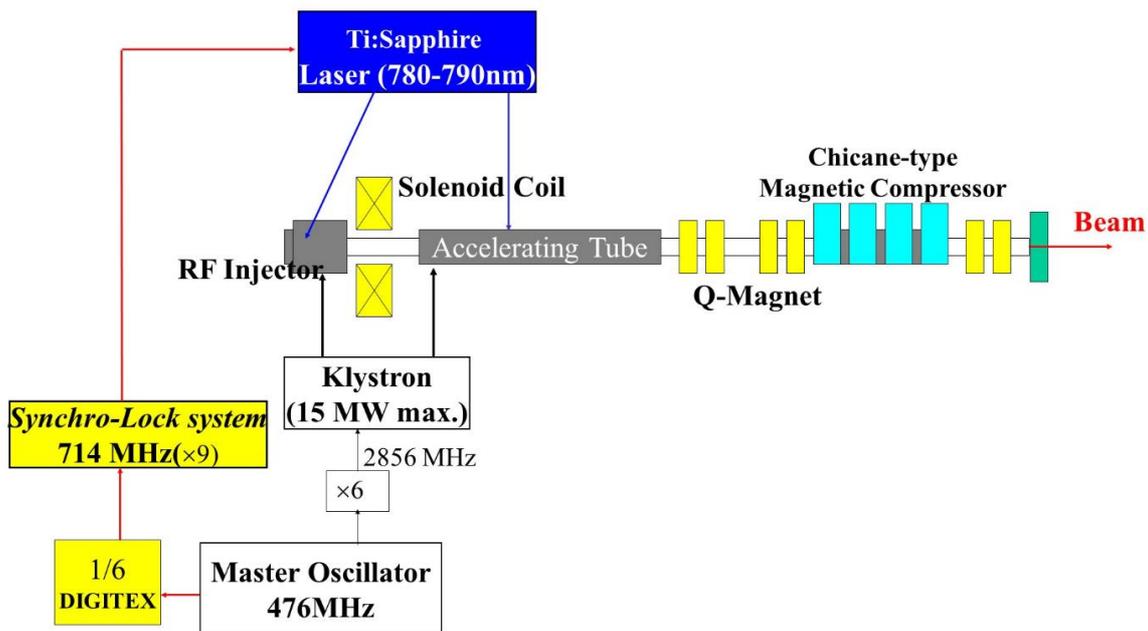


図 1 18L ビームラインの概要図

発光中心として Yb²⁺イオンの添加された絶縁体結晶は、Yb²⁺イオンの 5d-4f 遷移を利用したシンチレータとして注目を集め始めている。一方で、その発光特性は、スピン許容およびスピン禁制遷移に帰属される 2 成分の存在と、それらの発生に関わる熱活性過程の関与により、非常に複雑である。本研究ではこの一端を明らかにすべく、CsCaCl₃:Yb における低温でのシンチレーションを観測し、スピン許容遷移における温度消光を明らかにした。

キーワード：シンチレーション、5d-4f 遷移、温度依存性、項間交差

1. はじめに

放射線計測用の蛍光体であるシンチレータについて、特に無機シンチレータでは、希土類元素などが発光中心として微量添加されていることが多い。従来、Ce や Eu が代表的な発光中心であったが、近年、Yb も、その 2 価イオンの 5d-4f 遷移を用いたシンチレータで使用されてきている。Yb²⁺イオンの発光における特徴は、スピン許容および禁制の 2 種類の蛍光過程が存在することであり、項間交差やスピン禁制遷移での熱活性過程の存在も報告されている。本研究では、そのような熱活性過程をシンチレーションにおいて観測するため、短パルス電子線を励起源としたシンチレーション観測系において、試料温度を変化させて減衰挙動を観測した。

2. 実験方法

CsCaCl₃:Yb 結晶について、熔融固化法を用いて育成した。これを試料とし、その温度を変化させてシンチレーション減衰挙動を観測した。励起源として東京大学原子力専攻の線形加速器から発生する短パルス電子線を用い、MCP 内蔵型光電子増倍管にてシンチレーションを観測し、デジタルオシロスコープを用いて検出波形を記録した[1]。

3. 結果と考察

図 1 に、異なる温度でのシンチレーション減衰挙動を示す。295 K においては、チェレンコフ光と推察されるスパイク状の信号以外に、この時間スケールよりも長い成分のみが観測された。これまでの研究において、室温では、スピン禁制遷移に帰属される 100 μs 以上の減衰成分があることが明らかである[2]。一方で、200 K および 100 K へと温度を低下させるにつれ、徐々に減衰の遅くなる成分が観測された。このことは、室温以下でのスピン許容遷移の成分の温度消光を強く示唆する結果である。

4. 参考文献

- [1] Kengo Shibuya, Masanori Koshimizu, Keisuke Asai, Yusa Muroya, Yosuke Katsumura, Naoko Inadama, Eiji Yoshida, Fumihiko Nishikido, Taiga Yamaya, and Hideo Murayama, Rev. Sci. Instrum., 78 (2007) 083303.
- [2] Kohei Mizoi, Miiki Arai, Yutaka Fujimoto, Daisuke Nakauchi, Masanori Koshimizu, Takayuki Yanagida, Keisuke Asai, J. Lumin. 227 (2020) 117521.

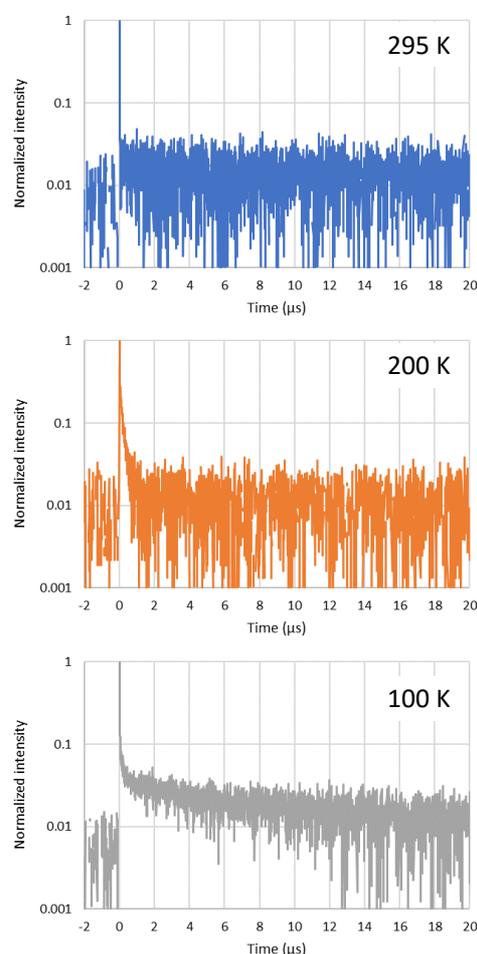


図 1 CsCaCl₃:Yb 結晶のシンチレーション減衰挙動

マイナーアクチノイド(MA)分離プロセスで利用が見込まれる抽出剤である *N,N,N',N'*-テトラオクチルジグリコールアミド(TODGA)の、ドデカンやアルコールをはじめとする種々の溶媒中における放射線分解挙動をパルスラジオリシスによる時間分解計測により調べた。

キーワード: マイナーアクチノイド, 溶媒抽出, TODGA, パルスラジオリシス

1. 本文

原子力機構では、高レベル放射性廃液に含まれる放射性元素のうち、半減期が長く、かつ放射性毒性の高い MA を分離するため、MA と選択的に錯形成することにより廃液中から除去可能なジグリコールアミド抽出剤の開発を進めてきた(Y. Sasaki, et al., *J. Nucl. Sci. Tech.*, **44**, 405 (2007)). 溶媒抽出法に基づいた分離プロセスでは、多くの場合において抽出剤はドデカンにより希釈して使用されるが、ジグリコールアミド抽出剤を用いる分離プロセスでは、相分離及び沈殿物抑制の観点から体積分率で数十パーセントの高級アルコールが添加される(Y. Ban, et al., *Solv. Extr. Ion Exch.*, **37**, 27 (2019)). 抽出剤の放射線分解過程に対するアルコール添加の影響については、アルコール分子が抽出剤の分解反応に寄与するドデカンラジカルカチオンのスカベンジャーとして働くことが報告されているが、一方でアルコールの添加による抽出剤の分解抑制効果は見られず(G. P. Horne, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **22**, 24978 (2020)), その詳細についてはまだ明らかになっていない。そこで昨年度は、TODGA を対象に、抽出剤の放射線分解過程に対するアルコールの影響についてパルスラジオリシス法を用いて調べた。

2. 実験

TODGA を、*n*-ドデカン(DD), 1-オクタノール(OcOH), エタノール(EtOH), テトラヒドロフラン(THF)及びアセトン(AC)に 0.1 mol/dm³ の濃度で希釈した溶液を調製し、アルゴンガスで脱気したものを、試料として用いた。パルスラジオリシス実験では、東京大学大学院が有する線形加速器から供給される 35 MeV 電子線(パルス幅: 20 ns)を線源として、電子線と同期したキセノンフラッシュランプを分析光源として用いた。

3. 結果と考察

種々の溶媒中における TODGA の、放射線照射 1 μ s 後の吸収スペクトルを図 1 に示す。溶媒の種類を変えることで、370 nm 付近及び 520 nm 付近の 2 種類の吸収帯が主に観測された。DD 中で観測された 370 nm の吸収帯については、これまでの研究から TODGA の三重項励起状態(³TODGA*)であることが示唆されている(T. Toigawa, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **23**, 1343 (2021)). またこの生成過程として、DD のラジカルカチオンと TODGA との反応が明らかにされている。一方、OcOH や EtOH などのアルコール中では、520 nm に ³TODGA*とは異なる吸収帯が観測された。アルコール中で生じるラジカルカチオンは、生成後すぐに中性分子とプロトン移動反応することによって、炭素中心ラジカルになると考えられている。またアルコール中で生成する溶媒和電子を観測したところ、TODGA は溶媒和電子と反応することが確認された。つまり 520 nm の吸収帯は、TODGA とアルコールの炭素中心ラジカルもしくは溶媒和電子との反応生成物であるという 2 つの可能性が考えられる。しかしアニオン生成溶媒として知られる THF 中ではこの生成物が観測されなかったことから、溶媒和電子との反応生成物ではないことが示唆された。これらの結果から、アルコール中で TODGA は炭素中心ラジカルや溶媒和電子と反応することで分解へと至るといふ、ドデカン中とは異なる経路を辿ることが示唆された。

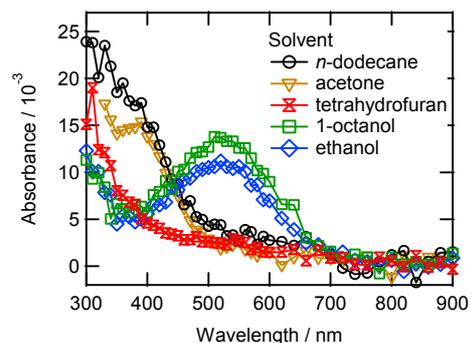


図 1 種々の溶媒中における TODGA の放射線照射 1 μ s 後の吸収スペクトル

成果リスト

特になし

LINAC からの 10 ns の短パルスを用い、瞬間的に放射線分解を起こし、その後の時間挙動を直接追跡している（パルスラジオリシス法）。水溶液系の放射線化学反応についてこれまで吸収分光を用いて研究を進めてきたが、透明度の低い試料には適用できず、より複雑な系での測定を見据え、ラマン分光を導入した。ハロゲン化物イオンのダイマーラジカルアニオンを観測した。波長可変レーザーも導入した。

キーワード：放射線効果，パルスラジオリシス法，ラジカル，共鳴ラマン分光，時間分解測定

1. はじめに

放射線効果の研究は、放射能や放射線の発見後、すぐに始まった。特に初期過程の研究ではパルスラジオリシス法が広く普及し、大きな成果を挙げてきた。パルスラジオリシス法では、化学変化を紫外可視域の吸収分光により検出することがほとんどである。歴史的にはチェレンコフ光を分析光に用いたことが起源だが、測定系を構築しやすいことも広く普及した理由である。しかし、吸収分光は元々透明な試料でないこと測定が行えない。また、多くの過渡生成物は似たような波長域に吸収帯を持ち、個々の時間挙動を分離することが困難なケースも多い。そこで、電子励起ではなく振動励起あるいは回転励起に対応した振動分光に着目している。振動分光としては赤外域の吸収分光とラマン分光が候補となる。しかし、赤外域に強い光源や感度の高い検出器が乏しい。そこでラマン分光をパルスラジオリシス体系に導入し、従来の紫外可視吸収分光とは異なる観点で放射線誘起化学反応を追跡できるように体系を改良している。ラマン分光は信号が微弱だが、電子励起による光吸収がある波長の光に対しては共鳴が起こって信号が大幅に改善される。そこで本課題ではこの共鳴を利用している。

2. 方法

図 1 に時間共鳴ラマン分光体系を示す。

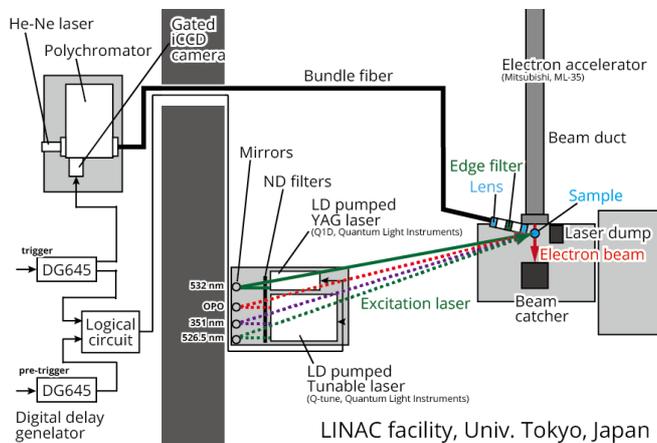


図 1 時間分解共鳴ラマン分光体系

電子線加速器の先端にサンプルを設置し、電子線パルスを照射し、タイミングを合わせて励起レーザーもあて、散乱した光を検出する。励起レーザーには主に、安定性と強度に優れた LD 励起固体レーザー Quantas Q1-1064-Q1D-SH (Quantum Light Instruments) の二倍高調波 (532 nm, ~16 mJ/pulse, <10 Hz) を用いている。異なる波長の励起レーザーを用いる際には、光パラメトリック発振器 (OPO, optical parametric oscillator) Q-tune E-10 (Quantum Light Instruments) を利用した。ラマン散乱の信号は微弱なため、放射線ノイズや電磁ノイズを避けるために検出系は隣の測定室に設置し、光ファイバー (バンドルファイバー) で伝送している。励起レーザーと同じ波長が散乱されるレイリー散乱の成分は強すぎるため、エッジフィルタにより 532 nm 以下の波長を除去している。ラマン散乱のうち、長波長側に波長が変化するストークス散乱した成分を観測している。散乱光の検出にはツェルニターナ型イメージング分光器 SR-500I-B1 (Andor Technology) とゲート付き CCD カメラ DH340T-18F-A3 (Andor Technology) を用いている。電子線パルス、励起レーザーパルス、検出器の同期には遅延発生器 DG645 (Stanford Research System) を用いている。

3. 結果と考察

電子線，レーザー，測定系について動作のタイミングと位置を慎重に合わせることで時間分解共鳴ラマン散乱の信号が取得できた。試料の位置や励起レーザーの集光位置は，電子線パルスを照射していない状態で水分子のラマンスペクトルが最も感度よく観測されるよう調整した（図 2）。また，この水分子のピーク面積から積算時の安定性についても確認を進めた。

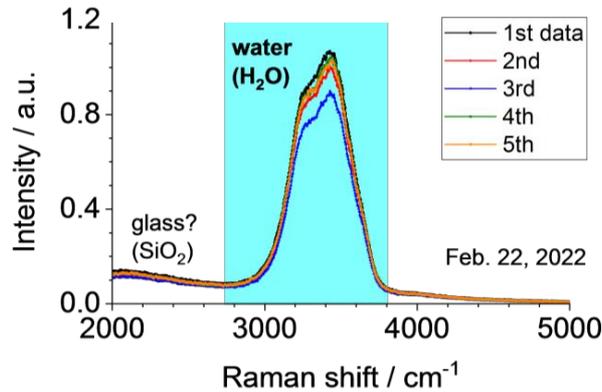


図 2 電子線パルスを照射していない状況での水分子のラマンスペクトル

(SCN)₂⁻，Cl₂⁻，Br₂⁻については報告値と対応するラマンシフトでピークが観測された（図 3）。I₂⁻については，安定生成物である I₃⁻の蓄積の影響で観測できなかった。X₂⁻の前駆体に相当する XOH⁻は観測されず，これは対称性の乏しさによるラマン活性の低さが原因と考えられる。このため，X₂⁻と XOH⁻の挙動を分離して評価できる可能性が示されたともいえる。

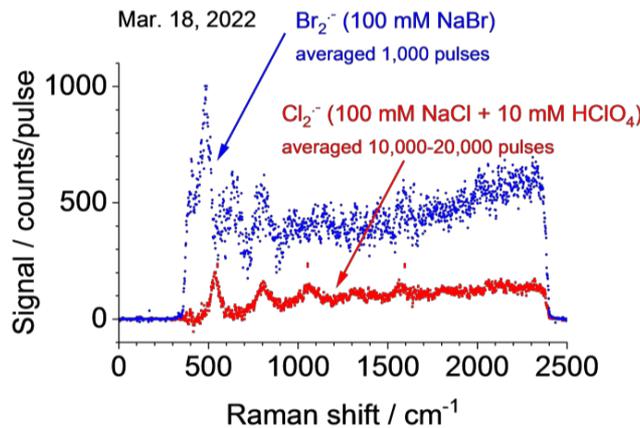


図 3 NaBr および NaCl 水溶液の電子線照射で観測された時間分解共鳴ラマンスペクトル

4. まとめと今後の予定

今後は測定の自動化や効率化のために LabVIEW を用いたプログラミングもさらに進めていく。

謝辞

装置設計では藤塚守先生および藤乗幸子先生（ともに大阪大）に，実際の測定については I. Janik 先生（米国ノートルダム大）に助言いただいた。本研究は JSPS 科研費 18H03891 および 19H00880 の助成を受け，東京大学原子力専攻の共同利用研究の一環として実施した。

成果リスト

- [1] 山下真一，YU Hao，WENG Hanqin，室屋裕佐，“パルスラジオリシス体系への時間分解共鳴ラマン分光の導入”，第 59 回アイソトープ・放射線研究発表会，オンライン，2022.7.6-8.

2021L09

放射線に誘発される化学種への磁場効果

坂田洞察^{ab}、山下真一^c、于嵩^c、田中創大^a、稲庭拓^a

a)量子医科学研究所 物理工学部、

b)大阪大学 大学院医学系研究科、c)東京大学 原子力専攻

抄録：細胞に放射線を照射する際、放射線と平行に磁場を印加すると放射線に誘発される細胞致死率が增加する現象が見出された。この現象のメカニズムは不明であるが、荷電粒子の受ける磁場効果だけでは説明できない。本研究では放射線による水分解を介して生成される化学種(特にOHラジカル)の受ける磁場効果をパルスラジオリシスの手法を用いて測定した。KSCN/NaBr水溶液を用いたOHラジカルの測定実験で、微弱ながらOHラジカルの生成と関連する $\text{SCN}_2\cdot^-/\text{Br}_2\cdot^-$ の測定量が増加した。また、 $\text{SCN}_2\cdot^-/\text{Br}_2\cdot^-$ の二次反応速度定数も増加した。

キーワード：OHラジカル、パルスラジオリシス、電離放射線、磁場効果、細胞殺傷能力

1. 本文

はじめに

2019年、全く新しい放射線生物現象が発見された。平行磁場印加による放射線の生物学的効果比(RBE)の増感である。細胞の放射線照射中、照射ビーム方向に平行な磁場を印加すると、非磁場印加時に比べ細胞の生存率が著しく低下する事が分かった。この感受性増感は極めて甚大で、陽子線治療と炭素線治療の効果比ほどの差がある。本現象は荷電粒子の受ける磁場効果では説明できず、本研究では放射線による水分子分解を介して生じる化学種の受ける磁場効果に注目した。特に本研究ではOHラジカルの受けるスピン偏極を起因とするOHラジカルペアの相互作用の変化を調べる。

方法

東京大学原子力専攻所有のライナックを用いたパルスラジオリシス実験を行う事で、OHラジカルの収量を測定する。KSCN、或いはNaBrを主体とした水溶液を用い電子線を照射する。OHラジカルが溶液内で発生すると $\text{SCN}_2\cdot^-$ や $\text{Br}_2\cdot^-$ が発生する。電子線(図1白矢印)と直行した解析光(図1灰矢印)を照射し、 $\text{SCN}_2\cdot^-$ や $\text{Br}_2\cdot^-$ の吸収が最大となる波長での光吸収強度を測定する事で、電子線照射に誘発されるOHラジカルの発生量を推定する。電子線の軸に対し平行に0.6Tとなる磁場を発生させられる磁気回路(黒線)を設置する事で水溶液を封入する試料セル(黒点線)の周辺に磁場を発生させる。磁場を発生させる時とさせない時のOHラジカルの収量を比較する事でOHラジカルの生成に対する磁場効果を調べる。

結果と考察

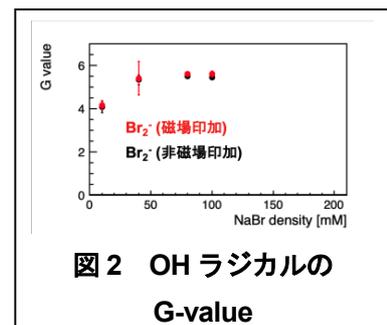
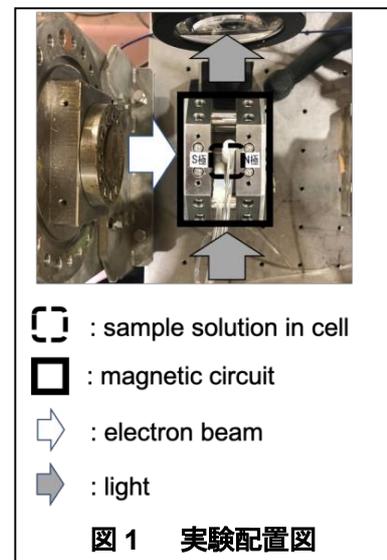
図2にNaBr溶液を用い、 $\text{Br}_2\cdot^-$ の光吸収強度から推定したOHラジカルのG値を示す。磁場非印加時に対して、磁場を印加した際G値が上昇した。また、5-15 μ 秒間の $\text{Br}_2\cdot^-$ の二次反応速度定数も磁場を印加すると大きくなった。これは磁場の効果により、OHラジカルのスピンの偏極したことで、OHラジカルペアの結合が阻害される事で、OHラジカルの残存量が増加した事が原因と考えられる。

まとめと今後の予定

平行磁場印加による放射線の生物学的効果比(RBE)の増感に関与しうるOHラジカルの収量を、パルスラジオリシスの手法を用いて測定した。OHラジカルの収量は $\text{SCN}_2\cdot^-$ や $\text{Br}_2\cdot^-$ の光吸収強度から推定した。電子線と平行に磁場を印加すると、OHラジカルの収量が増加すると共に、電子線照射から比較的時間が経った後(5-15 μ 秒間)でも二次反応速度定数が高くなった。本研究により、磁場の効果により、OHラジカルのスピンの偏極したことで、OHラジカルペアの結合が阻害される事が示唆された。今後はOHラジカル収量の時間変化をより詳しく調べ、磁場強度の変化も調べる。

成果リスト

[1]招待講演 D. Sakata, "Current challenges on longitudinal static-magnetic field effect", Centre for Medical Radiation Physics Seminar at University of Wollongong, 9/July/2021



電子ビームの短パルス化及びその安定化、高輝度化は極短パルスを用いた応用実験に有効雨滴に貢献してきた、本課題では高輝度フェムト秒電子ビームの安定生成、総合的な極短電子ビームパルスの研究を行うことを目的とする。昨年度は、各パーツの故障が頻発し、対応に追われた。

キーワード：電子銃，Sバンド

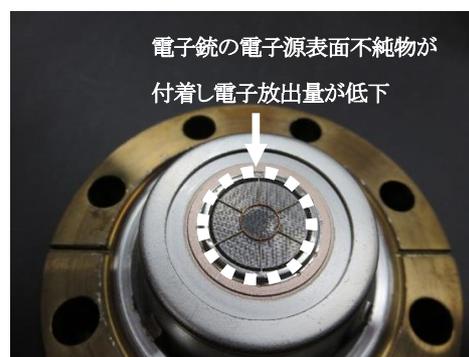
1. 35L ビームラインの現状

一昨年よりビーム強度が徐々に低下傾向にある。入射部付近で微弱な真空度低下が起きているため、付近のRF窓（加速管への高周波導入用セラミクス製窓）のリークによる電子銃カソード表面への不純物付着が原因と推測される。40年以上使用しており、ロウ付け箇所の劣化が予想される。

マイクロ波はOFFの状態、カソード表面を連続8時間程度加熱した（エミッションエージング）。繰り返しは、通常10もしくは14ppsだが、電子銃パルサー電源の最大繰り返し数である50ppsで行った。エミッションエージングを開始した直後は、加速管内の真空度 $1.0E-5Pa$ で、度々放電が起こったがエージング回数を重ねると真空度は $5.0E-6Pa$ 程度で留まるようになった。エージング後、ビーム強度が定格の8割まで回復することを確認した。カソード表面に付着した不純物が除去され、有効電子放出面積の増加によりエミッションが増加したのではないかと推測する。今年度10月に、大規模な保守作業を計画しており、電子銃、RF窓交換を行う。

トリガ信号配信システムの一部に、経年劣化による不調が生じており、構成機器の更新を進めている。グリッドパルサーへのトリガ信号発生器の出力が不安定になることがあるため更新を進めている。また、高周波にジッターが発生し不安定になり、サイラトロン（クライストロンの大電力開閉器として使われるガス封入型滅陰極管）の交換を10年ぶりに行った。

ストリークカメラの心臓部ともいえる掃引回路の故障により、時間分解分光ができなくなった。シングルビームのピコ秒計測可能な唯一の計測器だった。代替となる測定システムを検討している。



電子銃の電子源表面不純物が付着し電子放出量が低下

図1 35L ビームラインで使用しているBa含浸型熱電子銃（EIMAC社、Y796）

Abstract:

Microstructure characterization was performed in ion irradiated pure Cr of different depth. The Burgers vector of dislocation loops was determined to be $\frac{1}{2}\langle 111 \rangle$ in all regions, while the nature of loops changed with the irradiation depth from approaching half interstitial and half vacancy in the irradiated region to more than 80% beyond the irradiated region. At the dose peak, the void swelling was determined to be 0.3 %/dpa.

Key words: Accident tolerant fuel cladding, Chromium, Ion irradiation, Dislocation loops, Void swelling

1. Introduction

The Cr-coated Zr alloy claddings have been widely recognized as one of the most promising and achievable methods for the loss of coolant accident (LOCA) in light water reactors. Due to the intense in-reactor neutron fluxes, radiation damage that occurred in structural materials can lead to severe degradation in their performances and therefore has to be seriously considered. For the application of Cr-coated Zircaloy ATF, the knowledge of radiation damage effects in Zr based alloys has been wildly accumulated in the past five decades. On the contrary, there is still a lack of studies into the radiation damage in the Cr-coating layer. To the knowledge of authors, pure Cr and Cr-based alloys have never been applied in any of the current nuclear energy system. To get a better understanding of the in-pile degradation behaviors of Cr-coated for Zircaloy ATF application, it is important to investigate the fundamental knowledge of radiation damage in pure Cr.

2. Experimental procedure

Pure Cr (99.95 wt.%) with impurity elements of O (357 appm), Fe (93 appm), Al (193 appm), Si (120 appm), C (108 appm), and N (74 appm) was used as the experimental material. A bulk specimen was irradiated with 2.8 MeV Fe^{2+} at 550 ± 2 °C to 3 dpa, which was accelerated by a 1.7 MV tandem accelerator, at the High Fluence Irradiation Facility of the University of Tokyo. Focus ion beam was used to prepare transmission electron microscope samples and followed by a flashing electrolytic polishing to remove the beam damage.

3. Results and discussions

The morphology of voids, dislocation loops and lines in 2.8 MeV Fe^{2+} irradiated Cr at 550 °C was carefully observed. The characteristics of the voids, swelling, and dislocation loops were discussed in the three regions: the front region (FR, in the depth of 0-1000 nm), the low-density defect region (LDDR, in the depth of 1000-1300 nm), and the defect diffusion region (DDR, in the depth of 1300-2400 nm). The FR was further separated into two regions, region 1 (FR I) is in the depth of 0-500 nm and region 2 (FR II) is in the depth of 500-1000 nm. Voids in FR II exhibit moderate number density but the greatest size, resulting in the highest swelling (0.59%) with a peak swell rate at 800 nm being 0.3 %/dpa. In comparison with the FR I, the dislocation loops in FR II exhibit higher density with smaller average size. The ratios of the interstitial loops in the two regions are similar close to half. Although the LDDR refers to the low density of defects, among all the regions the number density of loops and defect clusters in the LDDR shows the highest value. This is due to the low density in LDDR

represents the density of the total dislocation or defect length, including dislocation loops, lines and small defect clusters. In the DDR, the size of the dislocation loop decreases with depth. At 1300-1600 nm, the average size is 4.4 nm and decrease to 2.1 nm at the depth of 2.2-2.4 μm , and further decrease to less than 1 nm at the end of the DDR. The density of the loops first increases from $2.2 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ at the depth of 1300-1600 nm to $6.2 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ at 2.4 μm , then disappear in the depth of 3.5 μm . In addition, the ratio of interstitial loops increases with the depth from approaching half to more than 80% at the DDR, despite the dislocation loops examined in this study may not be sufficiently enough.

The DDR is located beyond both the irradiation region and the implanted Fe-ion distribution region, referring that the formation of DDR is not related to the irradiation damage profile, but probably is a result of defects diffusion at high temperature. The formation of loops beyond the irradiated region is not only observed here in the irradiated pure Cr but also observed in other materials, including bcc pure tungsten and fcc pure nickel. The size of the loops at the deeper diffusion zone signifies that the initial size of the diffused defects can be very small (less than 2 nm). Based on the current results, the size of diffused defects is still unknown, and they can be either defect clusters, point defects, or small dislocation loops. The mixing of interstitial loops and vacancy loops in the DDR implies that the diffused defects include both interstitial and vacancy defects. The increasing fraction of interstitial loops with depth reveals that the diffused defects are dominated by the interstitial types. This is because the migration energy of the interstitial type defect clusters normally increases with the size and is smaller than the vacancy type defect clusters. Since the size of the diffused defects is small, the formation of the coarse loops at the front region of DDR should be caused by the loop coarsening due to the high-temperature annealing effect. A much-favored diffusion of the interstitials relative to the vacancies is considered as the reason why the formation of voids is constrained with the irradiation region, whereas interstitial predominant loops were formed in the DDR beneath the irradiation region.

4. Summary and future work

The void formation was in the irradiated region up to the depth of 1.3 μm , whereas the loops/defect clusters were present up to 3.5 μm . The swelling rate close to the peak region is around 0.3%/dpa. All the dislocation loops were identified to $\frac{1}{2}\langle 111 \rangle$ pure edge loops. The fraction of interstitial loops increases with irradiation depth from around half to more than 80%. The effects of irradiation dose and irradiation temperature on the formation of irradiation loops and voids in Cr will be studied in the future.

Achievement

[1] Cui, L. J., et al. Journal of Nuclear Materials (2022): 153920

核融合炉構造材料では、弾き出し損傷と核変換元素（H、He）の蓄積による相乗効果による材料劣化が危惧されている。本研究では、HIT 施設において既設のタンデトロン加速器のビームラインに小型イオン注入装置からのビームラインを連結し、新しい二重照射設備の構築を実施した。

キーワード : Fusion reactor materials; Dual ion beam irradiation; He-embrittlement; HIT;

1. はじめに

核融合炉ではプラズマに最も近い位置にブランケットと呼ばれる構造材料が設置され、従来の核分裂炉（原子炉）と比較して、14 MeV 近傍に大きなピークスペクトルを持った高エネルギー中性子照射下で利用される。これにより、弾き出し損傷だけでなく核変換生成物である He や H といったガス原子が材料中に多量に蓄積し、これによる強度特性劣化の加速が懸念されている。しかし、現状では核融合中性子スペクトルを忠実に再現し、尚且つ、十分な中性子フラックスをもった照射場が存在していないため、原型炉ブランケット設計では、その初期設計は原子炉照射によって得られたデータを下に実施される。このため、その利用限界は核融合中性子照射データから大きく逸脱しない条件内、即ち、核融合中性子照射特有の照射効果が発現しない臨界条件内と想定され、本来の材料スペック以下で運用される。このように、核融合中性子照射効果予測については、A-FMS 等による核融合中性子照射下での材料特性変化評価は当然のことながら、ここでの照射体積や照射時間は限られているため、シームレスな核融合炉開発に対しては、これまでの原子炉照射やイオン照射によって築かれた膨大な実験結果を基にした材料劣化現象の機構論的解釈によるブランケット設計が必要と考えられている。

上述の通り、核融合炉環境下における材料特性劣化予測に対し、これまでに国内外で実施されてきている複数イオンビームの同時照射、所謂、デュアル/トリプル照射実験が果たすべき役割は大きいと言える。ただし、近年の国内イオン照射場の状況については必ずしも万全と言えず、機器の老朽化や人材不足等の理由から、年々その利用が難しくなっている。本学施設（HIT）についても例外ではなく、HIT では、もとより、2 台のメガボルト級イオン加速器を有し、はじき出し損傷と核変換 H/He の蓄積を同時に模擬できる二重照射ビームラインを有した施設であったが、2011 年の震災によって二台の加速器が被災した。幸いにもタンデトロン加速器については、平成 25 年度に原子力国際専攻から移設され、その運用が進められているものの、3.75 MV バン・デ・グラーフについては、機器の経年劣化が深刻であり、その修理によって加速器の再稼働の目途はあったが、十分な費用対効果を見出すことが難しく、その廃止を決定した。

このように、デュアルイオンビーム照射が有する工学的、学術的な意味合いは高いものの、その実施にあたっては年々、困難な状況となっている。そこで、本研究では、HIT 施設において、既設のタンデトロン加速器のビームラインに小型イオン注入装置からのビームラインを連結することで、HIT 施設における二重照射設備を更新、ないしは、再稼働することを研究目的とした。

2. 実施内容

小型イオン注入装置としてフジ・インバック株式会社製の CN-RE200 を導入した。当該装置は既設の二重照射用のビームライン（BL-4）上に設置することで、タンデトロンのビームラインを変更せず、さらに、既設のビームラインにおいて利用されていた 60° 偏向マグネットや四重極レンズ、ビームステアラー等のトランスポート系を再利用し、比較的早期に二重照射実験を再開することが可能となる。また、当該装置は RF 型イオンソースにより H や He の軽元素ビームを生成し、高電圧ターミナル部において最大 200 kV までのビーム加速が可能な設計とした。ここで、当該装置は、最大エネルギーが 1MeV 以下であるため、1MeV 以上の X 線を発生させないので放射線同位元素等の規制に関する法律では規制されないが、電離放射線障害防止規則では X 線発生装置、ないしは、荷電粒子を加速する装置として規制される。このため、労働基準監督署への届出をもって令和 4 年 3 月に装置設置を完了した。

3. 結果

二重照射設備の構築に当たり、まずは、小型イオン注入装置からのビーム輸送実験を実施した。ここでは、RF イオンソースにおける高周波出力を 20 W に設定し、H、He イオンビームをビーム末端の試料部において均一かつ高強度のイオンビームが得られるように、プローブやソレノイド、エクストラクター、フォーカス、偏向分析マグネット、四重極レンズへの印加電圧、ないしは、印加電流量を調整した。その結果、H⁺ビームでは、加速器出口付近において 70 μ A のビームを確認し、試料部でのイオン束は $1.0 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ であった。他方、He⁺ビームでは、加速器出口付近で 50 - 60 μ A のビーム電流量を確認し、試料部でのイオン束は $2 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ であった。更なるビームオプティクスは必要であるが、本研究結果では、試料端における He⁺ビーム強度は H⁺ビームよりも 10 倍程度高いことが分かった。なお、加速器出口部、偏向マグネット部には直径 20、10 mm のファラデーカップが備え付けられており、当該箇所における He⁺ビーム輸送率は、送率偏向分析マグネット部で $\sim 100\%$ 、試料部では $\sim 20\%$ と見積もられ、概ね、良好なビーム輸送率であった。また、He⁺ビーム試料端部において 10^{13} s^{-1} のイオン束が確認されたことから、イオンビーム照射によるビームヒーティングを計測した。ここでは、試料表面と試料ステージ部の温度を計測し、種々の加熱条件、照射条件下における温度差からビームヒーティング量を計測した。その結果、ビームヒーティング量は低温照射条件で大きく、例えば、試料ステージ温度 473 K におけるビームヒーティング量は $\sim 30 \text{ K}$ であったが、ステージ温度 573 K では $\sim 20 \text{ K}$ と見積もられた。

4. まとめ

このように、本研究では、本国におけるより多くのデュアルイオンビーム照射場を確保することを目的とし、既設のタンデロン加速器のビームラインに小型のイオン注入装置のビームラインを連結することで、HIT 施設における二重照射設備を更新、ないしは、その再稼働を試みた。その結果、導入した小型イオン注入装置により、概ね、期待された軽イオンビーム (H⁺、He⁺) が生成されることを確認した。ただし、トランスポート系については、更なる改善の余地が残されており、引き続き、これらの改修作業と、比較的早急に重イオンと軽イオンからの二重照射実験を実施することとしている。

成果リスト

- [1] 叶野翔、楊会龍、阿部弘亨 他, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 2021/09/08–2021/09/10
- [2] Sho Kano, Huilong Yang, Kenta Murakami, and Hiroaki Abe, Modification of the High Fluence Irradiation Facility at the University of Tokyo: Assessment of Radiation-induced Amorphization of Zr(Cr,Fe)₂ Laves Phase under 180 keV-He⁺ Irradiation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, (2022). (Under review)

2021H04

大強度陽子加速器標的環境に耐えうる新材料の照射損傷の基礎研究

石田卓¹、牧村俊助¹、若井栄一²、叶野翔³、阿部弘亨³、楊会龍³、K.Ammigan⁴、S.Bidhar⁴

¹KEK、²JAEA、³東京大学大学院工学系研究科、⁴FNAL

大強度陽子加速器施設では、ビームの直撃を受ける生成標的やビーム窓に用いるための、極限環境に耐えうる新材料の開発が急務となっている。ビーム窓用チタン合金と標的用高靱性タングステン合金を中心に、照射損傷による特性劣化を低減した新材料の開発およびその損傷機構の解明を、イオンビーム照射試験により効率的に実施する。

キーワード： 大強度陽子加速器、生成標的、ビーム窓、チタン合金、タングステン合金、照射損傷

1. はじめに

長基線ニュートリノ振動やミューオン電子変換実験、核破砕中性子を用いた物性実験等、素粒子物理学や物質生命科学の新たな展開のために、従来達成できなかった大強度の陽子加速器開発が進められている。これら先端加速器での安定した大強度運転のため、陽子ビームに直接さらされる二次粒子生成標的やビーム窓等に用いられる極限環境に耐えうる新材料の開発と、その照射損傷による特性劣化のメカニズムの解明が世界的な急務となっている。

現在ビーム窓として用いられている高強度 64 チタン(Ti64)合金は、僅か0.1dpa程度の照射量で急激に照射硬化・脆化してしまうことが分かっており、年間数dpaと予想される将来の加速器大強度運転では、ビーム熱衝撃による高サイクル疲労によって破壊し、実験の遂行に重大な支障をきたすことが懸念されている。チタン合金は室温での相状態により α (HCP)合金・ $\alpha\beta$ 二相合金(Ti64含む)・準安定 β (BCC)合金に大別されるが、その照射損傷に対する挙動は大きく異なることが明らかになりつつあり、特にTi-153をはじめとする準安定 β 合金の耐照射損傷性は、粒内に超高密度で分散するナノスケール粒子(非熱的 ω 相)によるシンク効果で極めて高いこと、時効熱処理の最適化により耐照射性が300°C程度まで保たれる可能性がHIT等における我々の研究で示されつつある[1]。

核破砕中性子生成やミューオン電子変換実験用の標的材料候補であるタングステンは、 ~ 1200 °Cを超えると再結晶により著しく脆化するとともに、照射によっても脆化する。耐照射性能を高めるためメカニカルアロイング(MA)により炭化チタンやチタン酸化物を粒内に分散させ微細粒化したW-TiC合金(NIFS-W)[2]や、脆い粒界を遷移金属炭化物(TiC)で強化した高靱性タングステン合金(TFGR-W)の開発を進めている[3]。本研究では、多様なチタン合金のスクリーニングと熱処理法の最適化をイオンビーム照射試験によって効率的に実施するとともに、高靱性タングステン合金など次世代加速器標的材料の照射損傷に関する初のデータを取得する。

2. 方法

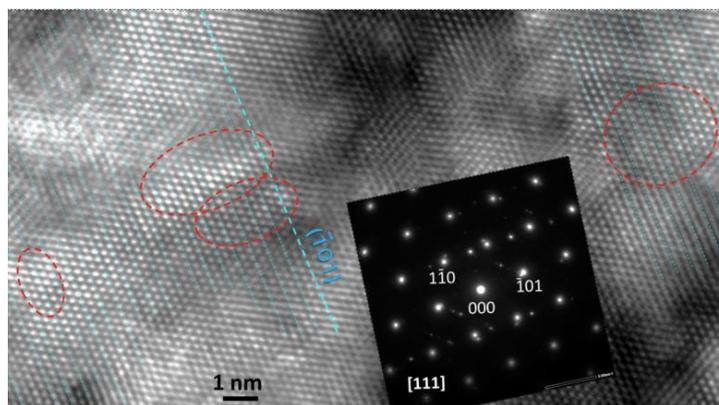
2021年9月のラン(1週間)では、HITタンデトロン加速器から供給される2.9MeV W^{2+} イオンビームを、NIFSにて調整した分散粒子微細化W-TiC合金(NIFS-W)および純タングステン、高靱性タングステン合金(TFGR-W)に対して、照射温度500°Cで損傷量0.66dpaのデータを取得した。TFGR-Wについては、あらかじめ観察用に電解研磨した薄肉部を持つTEM観察用 $\Phi 3$ ディスクを室温照射して、0.5dpa・0.33dpaのデータを取得。これらの材料について、照射前後でのナノ硬度測定、XRD相分析、SEM-EDS金相観察・元素マッピング、透過型電顕による照射損傷・微細析出物の観察などを実施して、イオン照射による影響を評価した[2]。

2022年3月のラン(2週間)ではこれらのタングステン合金についてより高照射領域での照射挙動を調べるため、2.8MeV Fe^{2+} イオンビームを用いて、照射温度500°Cで損傷量約10dpaのデータ等を取得した。チタン合金の候補材料Ti-153 2段階時効材、およびDAT54について照射温度300°Cで10dpa(153は加えて30dpa)、核破砕中性子

源の液体水銀標的容器に用いられる SUS316L・LN についてもデータを初めて取得した(200°Cで 4.6dpa)。

3. 結果と考察

NIFS-W-TiC 合金は、メカニカルアロイングと高温静水圧焼結により、粒径 1~2 μm の微細なマトリクスの粒内・粒界に 100nm 大の小粒のチタンまたは酸化チタンナノ粒子を分散させた複合材である。この材料に 500°Cで 0.66dpa までタングステンイオンを照射した。通常この照射条件では著しい照射硬化が起こることが知られているが、ナノインデンテーションによる硬度変化を観測したところ、照射前 $6.4 \pm 1.2\text{GPa}$ 、照射後 $6.4 \pm 1.4\text{GPa}$ と、統計誤差の範囲内で硬度変



図：[111]方向から見た照射 W-TiC 複合体の高分解能格子像と回折パターン[2]。赤色点線で囲んだ領域には、原子配列の歪みが見られる一方で、ミスフィット転位は観察されない。

化が観測されなかった。走査型透過電子顕微鏡による微細構造及び原子配列の観察から得られた結晶格子像では、1 ナノメートル以下の格子（原子配列）歪みが観察される一方で、ミスフィット転位は観察されなかった。この結果は、照射前にナノメートル以下の格子歪みが形成されたことで、照射欠陥クラスターの形成・成長が抑制されたために、照射硬化が著しく抑制されたことを示唆している。

4. まとめと今後の予定

今回明らかになったタングステン合金の高耐照射性能は、高エネルギー加速器の大強度ビーム下での標的システムや、ダイバータなど高温プラズマに近接する核融合炉の壁材などへの利用にとって大変魅力的な特性であり、今後、さらに耐照射性試験、熱負荷試験、各種強度試験、微細構造観察などを行って、材料の改良を進めていく予定である。

チタン合金については、今回取得した Ti-153 2 段階時効材や DAT54 などの高照射領域での硬度変化のデータを取得するとともに、航空宇宙用途に開発された β 21 S や Ti-1100 などの先端チタン合金材料の耐照射損傷性についても調査を行う。

さらにナノ硬度測定時の応力履歴にシミュレーションによる逆解析を適用して、硬度に加えて延性を評価する手法の開発を行い、ステンレス鋼照射材やチタン合金材について延性評価を試みる予定である。

成果リスト

- [1] T. Ishida, Investigation into Contrasting Radiation Damage Behavior between High-Strength Titanium Alloy Classifications and Micro-Structural Optimization, the 20th edition of the International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-20), 24-29 October 2021, online event. <https://www.icfrm-20.com/index>.
- [2] E. Wakai, H. Noto, S. Kano, S. Makimura, T. Ishida, T. Shibayama, Titanium/Titanium Oxide Particle Dispersed W-TiC Composites for High Irradiation Applications, Research & Development in Material Science, 16(2022), pp.1879-1885.
- [3] 牧村俊助、大強度粒子加速器標的材として採用可能な超耐熱タングステン合金の微細組織解析、大洗・アルファ合同研究会、2021年9月30日 ポスター発表。

2021-H05 **Developing method to analyze the behaviors of point defects influenced by dose rate**

陳 東鉞 村上 健太 楊 会龍 阿部 弘亨 関村 直人
東京大学

Method was successfully developed to focus on the cascade damage effects brought up by different dose rates. It was found that defect disappearance was more distinct at high dose rate. Defect nucleation was also enhanced at high dose rate, but the extent of enhancement was less obvious as that observed at higher temperature in our previous work.

キーワード : dose rate, combined irradiation, cascade effects.

1. Introduction

The importance of dose rate (or flux) on irradiation behavior has been recognized for long time; however, the precise mechanism is not known yet, partly limited by the available experimental methodology for detailed analysis. Dose rate effects are closely related to the formation, diffusion and recombination behaviors of point defects, which cannot be observed directly. Dose rate may affect the microstructure through multiple mechanisms, some of which may have synergistic effects; in other words, some mechanisms may enhance or cancel out each other, bringing complexity to experimental analysis.

In our previous work, based on the concept of combined irradiation, a method of quasi-in-situ irradiation was developed to study dose rate effects. The quasi-in-situ irradiation has two major advantages. First, similar to the standard in-situ irradiation, the quasi-in-situ irradiation tracks the microstructure evolution at a fixed location with temporal resolution, although its temporal resolution is significantly lower than that of the standard in-situ irradiation. Second, the quasi-in-situ irradiation keeps some of the characteristics of the traditional bulk irradiation which are better than the in-situ irradiation, e.g., low surface contamination, high spatial resolution, high flexibility in irradiation and TEM (transmission electron microscopy) observation. The quasi-in-situ irradiation was previously applied in high-temperature irradiation, which focused on the diffusion of point defects to sinks at different dose rates. In this work, low-temperature irradiation was attempted to limit point defect diffusion, emphasizing the role of cascade damage at different dose rates.

2. Experimental

The model alloy of 316L stainless steel (Fe-16.6Cr-11.8Ni-2.22Mo-0.99Mn-0.51Si) was used for irradiation, and was irradiated twice to fulfill the quasi-in-situ irradiation. In the first irradiation, bulk specimen was irradiated by 3 MeV Fe²⁺ ions at 450 °C to 0.1 dpa. Irradiation dose was calculated by SRIM-2013 with displacement energy of 40 eV, and the calculated dose was an average value from 0 nm depth to the damage peak. In this step, sparse black dots and dislocation loops were created in the bulk, which were used as the indicators of point defect behavior in the second irradiation. TEM foils were picked up from the irradiated bulk by focused ion beam, and were then electro-chemically polished. The sampling depth was ~700 nm, corresponding to ~0.14 dpa in the 1st irradiation. TEM observation was performed on the foils to record the information of the black dots and dislocation loops formed in the first irradiation.

In the second irradiation, the observed TEM foils were installed into conventional irradiation chamber and were irradiated again. To enhance cascade effects, the heavy ion of 3 MeV Fe²⁺ was used, and the ion beam was continuous and defocused (no rastering). The irradiation dose of 0.2 dpa was averaged in the foil thickness direction, calculated by assuming the thickness to be 200 nm. Two fluxes were selected. In the low-flux (LF) case, the irradiation time was 15420 s (~1.3×10⁻⁵ dpa/s in dose rate); in the high-flux (HF) case, the irradiation time was 370 s (~5.4×10⁻⁴ dpa/s in dose rate). The irradiation was conducted at room

temperature (RT, $\sim 27^\circ\text{C}$) controlled by water cooling system. After the second irradiation, the same location in the foil specimen was observed by TEM again.

3. Results and Discussion

As expected, small and sparse dislocation loops and black dots were created in the first irradiation, as shown in Fig. 1. Since the second irradiation was performed at RT, the defects were even smaller in size, and dense in number density. On the other hand, the irradiation and TEM observation at RT under satisfactory vacuum (in the order of 10^{-6} Pa) maintained the condition of the foil specimen, making the TEM observation of tiny defects possible. The number density and average size of the defects formed in the first irradiation was similar between the two foil specimens (Fig.1 (a1) and (b1)), which shows the reliability of the experiment design.

In the second irradiation, some pre-existing defects disappeared or resized, and some new defects were nucleated. Defect disappearance was more distinct in the HF case, which may be attributed to the quick generation of vacancies or the mixing effect of cascade at HF. Size change was small, as a result of the low irradiation temperature which limited point defect diffusion. Defect nucleation was enhanced at HF, which was consistent with the results at 400°C in our previous work; however, the extent of enhancement was much less distinct at RT compared to 400°C . It indicates the possible differences in the mechanism of nucleation enhancement at the two different temperatures.

4. Conclusions

Method was developed to study the detailed influence of dose rate on microstructure evolution. The dose rate effects at low temperature were focused in the study, and was compared with the results of previous years at high temperature. It was found that defect disappearance was more distinct in the HF case; defect nucleation was enhanced at HF, but the extent of enhancement was less obvious as that observed at higher temperature (400°C) in our previous work.

成果リスト*

[1] D. Y. Chen, K. Murakami, H. L. Yang, Hiroaki Abe, N. Sekimura, Stability and growth of radiation defects influenced by cascade damage at different fluxes, Annual Meeting of AESJ, 2022, Online, Japan: Oral presentation.

[2] D. Y. Chen, K. Murakami, H. L. Yang, L. Chen, Hiroaki Abe, N. Sekimura, Synergistic Effects of Irradiation Flux and Alloy Composition on Point Defect Behaviors by Tracking Loop Nucleation and Growth, Annual Meeting of AESJ, 2021, Online, Japan: Oral presentation.

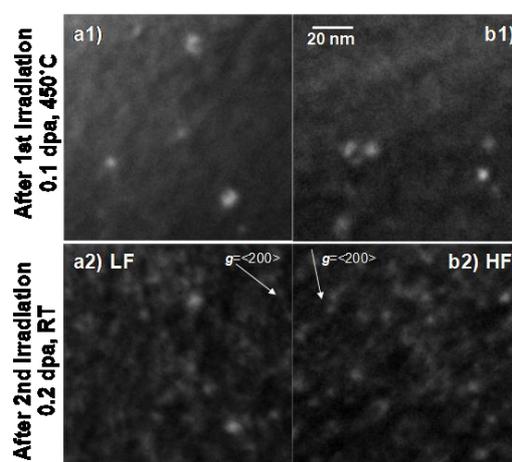


Fig.1 Dark field images of defect evolution before and after the second irradiation at (a) low flux and (b) high flux.

2021H06

核融合炉ブランケット用機能性被覆の照射・腐食相乗効果

近田拓未¹、三浦颯太¹、法月亮介¹、藤原輝¹、叶野翔²

¹静岡大学、²東京大学

核融合炉ブランケット用機能性被覆に対して、重イオンを照射した後に電気測定および重水素透過試験を行った結果、電気伝導率と重水素透過フラックスの両者において照射欠陥の導入および回復の影響とみられる変化が確認され、電気特性と水素同位体透過挙動との関連性が示唆された。

キーワード： トリチウム、透過、セラミックス被覆、照射、電気伝導率

1. 緒言

核融合炉ブランケットにおいて、構造材料からのトリチウムの透過漏洩による燃料効率の低下や周辺環境の汚染は極めて重要な課題である。トリチウムの透過を抑制するために、セラミックスを用いた機能性被覆について研究が進められてきた。近年では、炉内での中性子照射による損傷を模擬するために重イオン照射試験が実施され、被覆の微細構造や水素同位体透過挙動に与える照射影響が詳細に調べられている。しかし、照射後の微細構造および被覆特性は主に破壊検査によって評価され、試料加工などにおいて多大な時間と労力を要するため実機材料には適用し難い。そこで本研究では、実用的な被覆評価技術の確立に向けて、簡便な手法である電気化学インピーダンス測定と従来の重水素透過試験を用いて、機能性セラミックス被覆に対する重イオン照射影響および電気特性と水素同位体透過挙動の関連性を調べた。

2. 方法

低放射化フェライト鋼 F82H (Fe-8Cr-2W) を基板として用い、高周波マグネトロンスパッタリング法により、膜厚約 700 nm の酸化イットリウム (Y₂O₃) 被覆を作製した。その後、被覆の結晶化および粒成長を促進するために高真空下 (< 10⁻⁵ Pa) で 600 °C、24 時間の熱処理を実施した。次に、照射シミュレーションコード SRIM-2013 を用いた損傷密度計算を行い、HIT にて損傷密度が最大 1.0 dpa となるまで 2.8 MeV の鉄イオンを照射した。照射後試料に対して、電気化学インピーダンス測定を 200~550 °C、掃引周波数 1~10⁵ Hz、重水素透過試験を 300~550 °C、導入圧力 10~80 kPa の条件で実施した。

3. 結果と考察

図 1 に 1.0 dpa の損傷密度を与えた試料の昇温および降温過程における伝導率の周波数依存性を示す。300 °C 以下の測定において伝導率は 10⁰~10³ Hz の周波数範囲で一定の値を示し、かつ、350 °C で測定した値よりも高かった。また、350~550 °C では伝導率は温度および周波数に依存して増加した。一方、550 °C まで加熱した後の降温過程での測定では、伝導率は温度の減少に伴い単調に減少し、周波数に対する特異的な挙動はみられなかった。したがって、温度変化に対する伝導率の不可逆な変化は照射欠陥の影響と考えられる。図 2 に非照射および各損傷密度を与えた Y₂O₃ 被覆試料に対する電気伝導率の温度依存性を示す。非照射試料の伝導率は 250~550 °C において温度に対して増加した。鉄イオンを照射した試料の伝導率は 300 °C 以下において非照射試料と比較して最大で 2 桁程度高い値を示した一方で、350 °C 付近で一度減少した。さらに温度が増加すると伝導率は線形的に増加したが非照射試料よりも低い値を示した。また、0.1 dpa 照射試料では 300 °C 以上で、1.0 dpa 照射試料では 350 °C 以上で伝導率の温度依存性がみられた。したがって、200~300 °C の低温領域では、照射欠陥の導入によって伝導率が増加する可能性が示された。一方、350 °C 以上では照射欠陥の回復が示唆された。また、高温になるにつれて伝導率に及ぼす影響は、被覆の結晶構造が支配的であると考えられる。以上より、電気特性の変化からセラミックス被覆

に対する照射影響の評価が可能であることが示唆された。

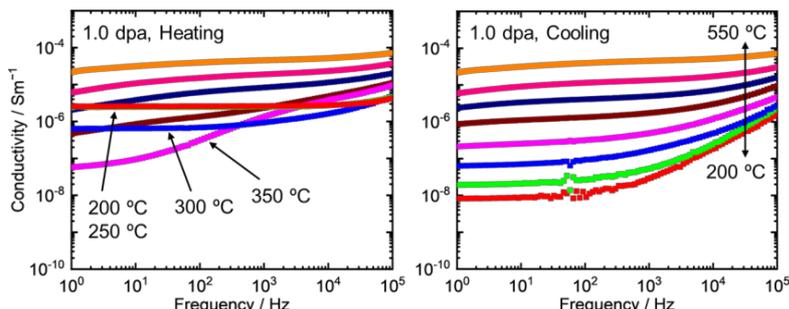


図1 1.0 dpa 照射した Y_2O_3 被覆試料の昇温および降温過程における電気伝導率の周波数依存性

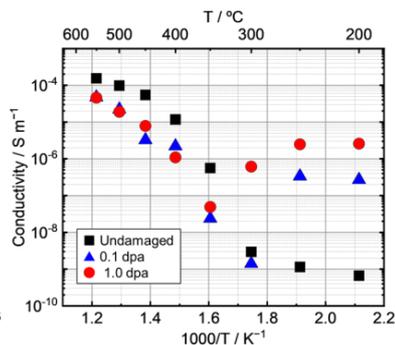


図2 非照射および照射後 Y_2O_3 被覆試料の電気伝導率の温度依存性

図3に非照射およびニッケルイオンを0.32 dpaおよび1.0 dpa照射した Y_2O_3 被覆試料の重水素透過フラックスの温度依存性を示す。非照射試料の透過フラックスは450 °Cにおいてわずかに減少し、500 °Cではさらに1桁程度減少した。これは、熱による粒成長や結晶化が進行し、被覆の結晶構造が変化することで重水素の透過が抑制されたため、透過フラックスが減少したと考えられる。一方、0.32 dpa照射試料では、透過フラックスは400 °C以下において非照射試料の1/2程度の値を示し、照射欠陥が重水素の拡散を阻害したことが予想される。また、透過フラックスは450 °Cで横ばいに推移した後、500 °Cで非照射試料と同等の値を示した。これは、熱による照射欠陥の回復に伴い、非照射試料と類似の結晶構造を形成したためと考えられる。1.0 dpa照射試料の透過フラックスは400 °C以下では非照射試料よりも低く、450 °Cでは温度変化に応じて増加した。0.32 dpa照射試料に比べて、損傷密度が大きいことから照射欠陥の量が多いため被覆の構造変化を妨げたと考えられる。

以上の結果から、伝導率は透過フラックスと同様に、照射欠陥の導入および回復に伴う被覆の構造変化によって変化する可能性が示され、機能性被覆における電気特性と水素同位体透過挙動の関連性が示唆された。

成果リスト

学術論文

[1] H. Fujiwara et al., *Nucl Mater. Energy* **30**, 101141 (2022).

[2] S. Miura et al., *Nucl Mater. Energy* **30**, 101109 (2022).

招待講演

[3] T. Chikada, Science and technology of multifunctional ceramic coating for fusion reactor, 14th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology S29: Ceramics and Ceramic Matrix Composites for Next Generation Nuclear Energy, Virtual Edition, December 13, 2021.

[4] T. Chikada, Recent advances in multi-functional coating research for fusion reactors, THERMEC'2021 (11th International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials), Virtual Edition, June 4, 2021.

[5] T. Chikada, Development of ceramic coatings with hydrogen, corrosion, irradiation, and electrical resistance, SurfCoat Korea 2021, Virtual Edition, May 28, 2021. (Keynote speech)

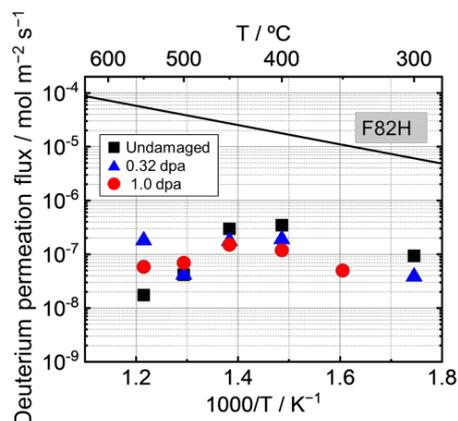


図3 非照射および照射後 Y_2O_3 被覆試料の重水素透過フラックスの温度依存性

核融合ブランケット供用中に高温高压水にさらされることによって低放射化フェライト鋼の表面に形成される酸化皮膜の照射下安定性について検討するため、あらかじめ高温高压水中で腐食試験を実施し、酸化皮膜を形成させた低放射化フェライト鋼に対して重イオン照射を行い、酸化皮膜の特性変化について検討した。

キーワード： 低放射化フェライト鋼、高温高压水中腐食、酸化皮膜、イオン照射

1. はじめに

日本では核融合原型炉ブランケットにおいて水冷却固体増殖方式を主案として開発を進めている。本方式のブランケットでは冷却材として高温高压水を用いることから構造材料である低放射化フェライト鋼 F82H と高温高压水の共存性評価が必要となる。原型炉の実機共用中には核融合中性子によって、腐食特性の様々な変化が生じることが懸念される。例えば、水の放射線分解による水質の変化、F82H の照射損傷に伴う耐食性の変化、F82H の表面に形成される酸化物の照射損傷による防食性の変化などが考えられる。本研究では流動高温高压水中で F82H の表面に酸化皮膜を形成させ、その酸化皮膜を対象に東京大学重照射研究設備 (HIT) でのイオン照射試験により酸化皮膜への照射影響について評価を行った。

2. 実験方法

供試材は低放射化フェライト鋼 F82H-BA12 である。イオン照射試験を実施する前に流動高温高压水中で腐食試験を実施した。流動腐食試験は外径 275 mm、内径 130 mm、厚さ 3 mm のドーナツ状の円盤試験片を用いて、温度 270°C、圧力 6.3 MPa の高温高压水中で実施した。ブランケット条件を模擬するため試験片端部の周速度は 5 m/s となる回転速度で試験を実施した。溶存酸素濃度は 5 ppb 以下、溶存水素濃度は 3.5 ppm と加圧水型原子炉一次冷却水相当の濃度とした。試験時間は 100 時間である。試験後に円盤試験片の端部から 15 mm × 15 mm × 3 mm の照射試験片を切り出した。試験片の表面は片面のみ鏡面研磨し酸化皮膜を取り除いた。照射試験は HIT のタンデム加速器を用いて 300°C で 2.8 MeV-Fe²⁺ を最大 83.4 ks 照射し、損傷ピークでの照射量が 2.0, 3.6, 5.2, 7.0 dpa の試験片を作製した。照射前後の微細組織評価として、入射角 (ω) は 0.5-15° の範囲で GIXRD を実施した。

3. 結果

図1に腐食試験前後の重量変化を示す。過去に報告[1]しているように流動腐食試験では静水腐食試験と異なり、水の流れがあることによって重量変化の傾向が異なる。静水腐食試験では外層酸化物と内層酸化物の2種類の酸化物が形成することにより重量が増加するのに対して、流動腐食試験では静水試験における外層酸化物が形成されず、内層酸化物のみ1層のみとなり、保護性の外層酸化皮膜が形成されないため重量が減少する。流動腐食試験後に断面を観察すると、試験片の表面に厚さ 1.5 μ m 程度の鉄とクロムの酸化物が形成されていた。

酸化皮膜に対する照射影響については叶野らによって報告[2]されている。照射した酸化皮膜に対し XRD を実施した結果、すべての照射試料で FeCr₂O₄ 相からのピークが明瞭に観察され、ピーク強度や強度比に明らかな変化は見られず、少なくとも 7.0 dpa までは FeCr₂O₄ 相の結晶性が維持されていることが報告されている。一方で、照射量の増加に伴い鉄-bcc 相の強度が減少しており、酸化物層中に存在する残留マトリックス相が照射下で不安定になったことも示唆している。特に、高角入射条件では減少が大きく、流動腐食によって形成された酸化物層に存在する残留マトリックスが照射により不安定化または活性化され、酸化物層から消失したことが示唆された。

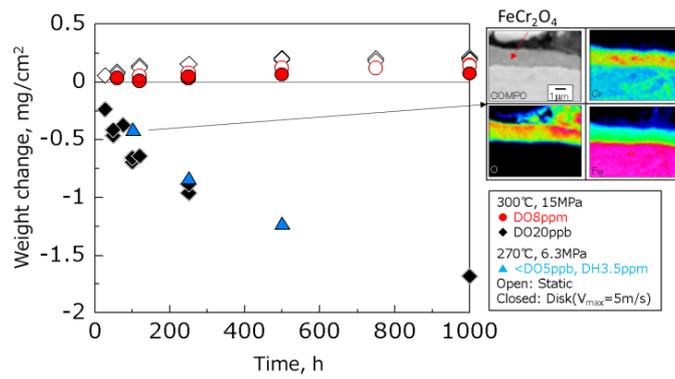


図1 高温高圧水腐食試験結果及び酸化皮膜のEPMA分析結果

[1] M. Nakajima, T. Nozawa, H. Tanigawa, Effect of hydrogen on corrosion properties of reduced activation ferritic/martensitic steel, F82H, Fusion Eng. Design, 146 (2019) 1912-1915.

[2] Sho Kano, Huilong Yang, John McGrady, Motoki Nakajima, Masami Ando, Takashi Nozawa, Hiroaki Abe, Phase decomposition of oxide film of flow accelerated corroded F82H steel under high-temperature iron irradiation, J. Nucl. Mater., 563 (2022) 153639.

成果リスト

Sho Kano, Huilong Yang, John McGrady, Motoki Nakajima, Masami Ando, Takashi Nozawa, Hiroaki Abe, Phase decomposition of oxide film of flow accelerated corroded F82H steel under high-temperature iron irradiation, J. Nucl. Mater., 563 (2022) 153639.

2021H08

Study on the heavy ion induced defect on deuterium retention in tungsten

Gon-Ho Kim, Ki-Baek Roh, Myeong-Geon Lee
Seoul National University

To simulate cascade defect induced by self-ion (W), 2.8 MeV W ion was irradiated on tungsten. The retention property of damaged tungsten was measured with TDS after D ion and D gas irradiation.

キーワード : Tungsten, Divertor, Retention, Self-ion damage, Safety limit

1. 本文

(The specific figure with data is not included in this report because it is still under the discussion. Please excuse of it.)

For the investigation of plasma facing material property such as the defect generated by self-ion (W) is simulated by using heavy ion irradiated on tungsten. It causes the change of retention rate with introducing the incident hydrogen ions on PFM. The defects created by irradiation of heavy ions affects the hydrogen isotope trapping sites. Those properties are necessary to determine the lifetime, dust release rate and safety limit of plasma facing material. Thus, this experiment focuses on the investigation of heavy ion induced defect formation and the related static hydrogen retention rate of tungsten.

The hydrogen ion transport in tungsten such as diffusion, trapping and nucleation is determined by the defects such as vacancy, vacancy cluster and grain boundary. The vacancies and vacancy clusters are created in the subsurface of by heavy ion irradiation on the purpose of the simulation of the neutron and self-ion irradiation. To choose the fusion plasma condition, we irradiated 2.8 MeV W²⁺ ion beam on the pure W up to 0.7 dpa. After the heavy ion irradiation, deuterium ion was irradiated with our facility, SNU-ECR to make hydrogen-isotope retain in tungsten. Also for the comparison, the damaged tungsten is exposed to 1 atm deuterium gas for 1 hour at several hundreds kelvin temperature condition. After that, retention of the tungsten is measured with SNU-TDS in our group. The retention properties were measured in 7 days after the hydrogen isotope irradiation to reach saturation condition of static retention. For the specimen condition, the tungsten specimens are polished to the mirror surface (Ra~16 nm).

The total retention amount was measured along dpa condition on the ion-driven retained tungsten. The total retention amount was saturated before 1 dpa, so the defect concentration in tungsten is expected to be saturated before 1 dpa condition. At the higher dpa condition, TDS peak at the higher temperature increases because of the defect cluster trapping. The exposure temperature was variable for the gas retention. The total retention amount at the gas-driven retention was linearly decreased at the exposure temperature from 400 K to 850 K. The results will be cross validated with the MD simulation results.

成果リスト

[1] -

By taking the Ni-Si precipitates in stainless steel as an example, method was developed to analyze the early stage of precipitation. It was found that Si clustering can be confirmed in the stainless steel irradiated at 290 °C to the dose as low as 0.8 dpa, whereas the clustering of Ni was less distinct.

キーワード : atom probe tomography, solute clustering, cluster nucleation, post analysis.

1. Introduction

Theoretically, atom probe tomography (APT) has near-atomic resolution and can provide precious experiment data to help construct multi-scale modeling. However, the understanding and interpretation of APT results is still in an early stage of development. The raw data of APT contains huge amount of information, but such information may be partly lost or biased during post-analysis due to the complexity and the potential artifacts in APT methodology. For example, the maximum separation method (MSM) is a common practice to identify solute clusters from APT raw data. When the size of solute clusters is tiny, or when the concentration gradient at cluster-matrix interface is gradual instead of steep, the reliability of the MSM results can be reduced largely. This issue is further exacerbated when the artifacts of APT is taken into consideration, as some types of the artifacts lower the positional accuracy of the detected atoms.

The shorting coming of APT and MSM limits the research about the early stage of precipitation in alloys. For example, the Ni-Si precipitates in stainless steel are believed to form at high dose through the mechanism of radiation induced segregation, and they may have a gradual concentration gradient at the cluster-matrix interface. Recently, signs of the precursors of the Ni-Si precipitates were found at low doses (even at 0.5 dpa); however, those tiny precursors cannot be analyzed in detail, due to the low reliability of the MSM in such situation. In this study, by taking the Ni-Si precipitates in stainless steel as an example, method was developed to analyze the early stage of precipitation. The reliability of the method was verified, and the role of Ni and Si in precipitate nucleation was discussed.

2. Methodology

Generally, most existing methods to analyze solute clusters are either density/distance based (atom/nm^3) or concentration based (%). It is difficult to precisely define tiny solute clusters no matter using the density or the concentration criteria. Therefore in this work, we do not define tiny solute clusters; instead, the extent of Ni-Ni, Ni-Si, Si-Si clustering was analyzed to reveal the nucleation phenomena. The analysis is based on local solute concentration instead of local solute density or solute distance, because local solute concentration is believed to be more robust to the local density variation in atom maps and the high Ni concentration in the matrix.

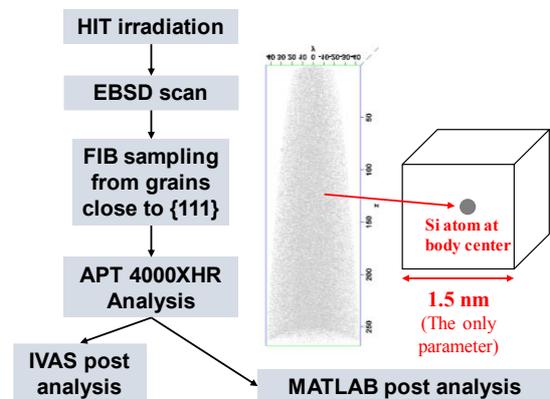


Fig. 1 A schematic diagram of the analysis method

As shown in Fig. 1, in a raw atom map, the local solute concentration of each atom was calculated in the vicinity of the atom using MATLAB software. A cubic of $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ nm}^3$ was used to define the vicinity volume of the atom. The value of 1.5 nm was used, because roughly ~ 100 atoms existed in the cubic considering an APT deflection efficiency of 37%. Take Si-Si clustering for instance, the local Si concentration in the vicinity of all the Si atoms was calculated, which was considered as a good parameter to describe the extent of Si-Si clustering in the alloy. Such information is further analyzed, by plotting histograms and visualizing 3D maps of the Si atoms which have the local Si concentration exceeding a threshold value.

The analysis was first preformed on stainless steels containing large Ni-Si clusters and was compared with traditional methods, by which the reliability of the method was verified. Then, the stainless steels which may contain early-stage clustering were used for analysis.

3. Results and Discussion

When tested on the large Ni-Si clusters in irradiated stainless steel with 1.88 at.% Si content, the binding of Si-Si, Ni-Ni and Ni-Si was obvious compared to a randomized atom map of the same composition. When the Si atoms with the local Si concentration larger than 10 at.% were screened and visualized in an atom map, they revealed the shape, size and location of Si clustering, which matched well with the Si isosurface map visualized by IVAS software. Those trials confirmed the reliability of our post-analysis method.

Then, the same stainless steel irradiated to 0.8 dpa at 290 °C was used for the study of early-stage clustering. In the raw atom map plotted by IVAS, Si clustering cannot be visually observed. However, when checking the extent of Si-Si clustering in the experiment data, it was found that the local Si concentration in the vicinity of Si atoms ranged between 0–18 at.%, whereas the range was 0–11 at.% in a randomized atom map of the same composition. This was a clear sign of Si-Si binding in the irradiated stainless steel. The gathering of Ni atoms near Si atoms was also observed, but the extent of clustering was weaker compared to the Si-Si clustering; the extent of Ni-Ni clustering was the weakest. The matrix noise and the APT artifacts may have interfered the post-analysis results to some extent, and the benchmark of those influences is under development.

4. Conclusions

The reliability of the clustering analysis was verified, and the method was applied into a stainless steel irradiated to 0.8 dpa at 290 °C, which may be in the early stage of Ni-Si clustering. It was found that Si clustering can be confirmed obviously, whereas the clustering of Ni was not so distinct. The brings quantitative hints to the modeling of precipitate nucleation. Further work is desired to evaluate the influence of the potential artifacts of APT technique.

成果リスト*

[1] K. Murakami, Hiroaki Abe, D. Y. Chen, N. Sekimura, Verifying primary radiation damage models in iron-based alloys using low temperature ion irradiation, Annual Meeting of AESJ, 2022, Online, Japan: Oral presentation.

[2] D. Y. Chen, K. Murakami, K. Dohi, K. Nishida, N. Sekimura, Statistical Analysis of Ni and Si Co-clustering in Stainless Steels Irradiated to Low Dose, Annual Meeting of AESJ, 2022, Online, Japan: Oral presentation.

[3] K. Murakami, D. Y. Chen, Y. Miyake, N. Sekimura, L. Chen, Ngyuen V. B. C, Phongsakorn P. T., X. J. Chen, Recent progress of APT analysis of RPV surveillance materials in the University of Tokyo, IGRDM update, 2021, Online: Oral presentation.

酸化物分散強化鋼における多方向冷間圧延による 微細組織と機械特性の改善

申 晶潔¹、楊 会龍²、叶野 翔²、阿部 弘亨²

¹核融合科学研究所、²東京大学

Abstract: A multi-directional cold rolling process and subsequent annealing were developed to obtain uniform recrystallized microstructure of 12Cr oxide dispersion strengthened (ODS) steel. Ion irradiation effects on cold rolled and recrystallized 12Cr ODS steel at room temperature and high temperatures were investigated.

Keywords: ODS steel; Recrystallization; Irradiation effects; Microstructure; Oxide particles

1. Introduction

Oxide dispersion strengthened (ODS) steel is considered as candidate materials for fuel cladding in fast breeder reactors and structural components in fusion reactors. To improve the high-temperature strength and irradiation damage resistance, this alloy is generally produced by powder metallurgy including mechanical alloying, which introduces a high density of nanoscale oxide particles in the matrix that can impede the dislocation movement and provide large amounts of sinks for the irradiation-induced defects. In the previous study, to enhance the ductility and reduce the anisotropic microstructure, a multi-directional cold rolling process, up to 90% thickness reduction, and subsequent annealing were developed to obtain uniform recrystallized microstructure of ODS steel. The stability of the nanoscale oxide particles under severe plastic deformation, high-temperature and irradiation conditions is essential to maintain the adequate strength for applications. Heavy ion irradiation experiments are generally helpful to simulate the neutron irradiation environments. In this study, aiming at revealing the stability of oxide particles, the microstructure changes of cold-rolled and recrystallized 12Cr ODS steel under ion irradiation have been investigated.

2. Experimental methods

12Cr ODS steel with nominal composition of Fe-12Cr-2W-0.3Ti-0.25Y₂O₃ (wt%) was used in this study. It was fabricated by mechanical alloying, hot extrusion at 1423 K, hot forging at 1423 K, annealing at 1373 K for 1 h, cold rolling with a thickness reduction of ~40% and final annealing at 1323 K for 1 h with air cooling. Regarding the cold rolled specimens, ~3 mm specimens were prepared by cutting through the original normal direction (ND)-transverse direction (TD) section from the as-fabricated plate. Then, specimens were cold rolled to ~0.3 mm thick sheet shape on the original ND-TD section with a thickness reduction of 90%. With respect to the recrystallization process, the cold rolled specimens were annealed at 1373 K for 3 h in a vacuum. SSJ tensile specimens with a gauge section of 5 mm x 1.2 mm x 0.25 mm were prepared for tensile tests, which were performed from the room temperature to 973 K with a strain rate of $6.67 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

Ion irradiation experiments were conducted at room temperature (RT) and 673 K with 2.8 MeV Fe²⁺ at the High Fluence Irradiation Facility, The University of Tokyo. The irradiation doses were in the range of 0.5 ~ 15 displacements per atom (dpa), which were estimated at the peak damage (~800 nm from the surface) based on SRIM calculation. After irradiation experiments, nanoindentation hardness tests were carried out with the indenter down to the depth of 150 nm from the irradiated surface.

3. Results and discussion

Comparing with the as-fabricated specimen, the ultimate tensile strength and yield strength of recrystallized specimens were lower, and the total elongation and uniform elongation were higher in the test temperature range. Fracture observation showed obvious slip bands and necking occurred during tensile tests, which indicated that the ductility was improved via the recrystallization process.

As for the irradiation experiments, the nanoindentation hardness of the cold rolled specimen was not evidently changed up to 15 dpa at both RT and 673 K, indicating that deformation dislocations provide the sinks for the irradiation defects. The nanoindentation hardness of recrystallized specimen was increased with increasing irradiation dose at both RT and 673 K. The hardening at 673 K was more obvious than RT at irradiation damage level of 0.5 dpa. The microstructure analysis is in progress to reveal the hardening mechanisms.

4. Summary and future work

In this study, multi-directional cold rolling with 90% thickness reductions and subsequent 1273 – 1373 K annealing were selected to obtain the recrystallized microstructure for 12Cr ODS steel. Comparing with the as-fabricated specimen, the ductility was enhanced via recrystallization process. To clarify the deformation mechanisms of the recrystallized specimens under high temperatures, the creep tests are ongoing.

With respect to the irradiation effects on the ODS steel, high irradiation dose experiments at various temperature range will be considered based on this collaboration research.

Achievements

[1] Jingjie Shen, et al., The 12th International Symposium of Advanced Energy Science, September 7th, 2021. Online poster presentation.

2021-Y03

弥生研究会 ～界面での放射線効果～

山下 真一

東大・院工・原子力専攻

長く継続して来た弥生研究会～放射線効果の解明と応用～では主に均一な系の放射線効果に注目して放射線誘起現象の解明とその産業・医学利用に貢献する成果を取り上げてきた。これを発展させ、不均一な系すなわち界面を含む系での放射線効果を含んだ形にアップデートした。今年度は5月末から6月はじめにかけてオンラインで小規模に開催した。

キーワード：放射線効果， 界面， ラジカル， 電荷移動， エネルギー移動， 表面改質， 生物影響， 原子力

1. 概要

主に均一な系の放射線効果に注目して放射線誘起現象の解明とその産業・医学利用に貢献する成果を取り上げ、長く継続して来た弥生研究会～放射線効果の解明と応用～を発展させ、不均一な系すなわち界面を含む系での放射線効果を含んだ形にアップデートした。物質として界面を含む系を意識しているものの、均一系から複雑系まで様々な対象への放射線効果の解明と応用に関する議論を行う枠組みとなっている。

今年度は5月28日，6月2日，6月4日の三日間にかけて，計5時間半オンラインで開催した。参加者は12名程度で，以下の発表があった。

- 内田俊介（JAEA）「福島第一原子力発電所での放射性核種の短/中/長期挙動の評価」
- 唐澤英年，木野千晶（エネ総研）「放射性核種の長期的移行モデル作成に必要な定数」
- 高宮幸一（京都大）「放射性エアロゾルの模擬生成」
- 牟田仁（東京都市大）「研究実績と今後の検討予定（確率論的リスク評価など）」
- 植田滋，岩間崇之（東北大）「製鉄スラグ成分の選択溶出，FP溶出挙動への応用」
- 山下真一（東京大）「水の放射線化学（放射線分解，ラジオリシス）」
- 高島容子（JAEA）「建屋内汚染状況解明の分析データの利用」
- 駒義和（JAEA）「廃棄物処理・処分技術の開発に係る放射化学分析データ」

2021年度専攻内行事一覧等

年月日	行 事 内 容 等
2021. 4. 1	原子力専攻（専門職大学院）入学式
2021. 7. 1	運営諮問会議（WEB開催）
2021. 5. 13～ 2021. 5. 21	原子力安全管理委員会（メール審議）
2021. 6. 23～ 2021. 6. 30	危機対策管理委員会（メール審議）
2021. 8. 3～ 2021. 8. 9	原子力安全管理委員会（メール審議）
2021. 8. 13	第16回先進原子力科学技術に関する連携重点研究討論会および原子力機構・量研機構施設利用共同研究, 弥生研究会成果報告会（Webex開催）
2021. 8. 13	第18回連携重点研究運営委員会（Webex開催）
2021. 8. 27	原子力安全管理委員会（WEB会議）
2021. 9. 1～ 2021. 9. 10	危機対策管理委員会（メール審議）
2021. 10. 8	危機対策管理委員会（WEB開催）
2021. 10. 8	消防訓練の実施（WEB開催）
2021. 11. 10	核物質防護訓練の実施
2021. 12. 24	原子力防災訓練の実施
2022. 1. 14	原子力防災訓練
2022. 1. 5～ 2022. 1. 7	危機対策管理委員会（メール審議）
2022. 1. 19	第40回一般共同研究専門委員会（ZOOM開催）
2022. 3. 14	第95回原子力機構施設利用共同研究委員会（ZOOM開催）
2022. 3. 24	原子力専攻（専門職大学院）学位記授与式
2022. 3. 25	危機対策管理委員会（WEB開催）
2022. 3. 29	2021年度（令和3年度）共同利用運営委員会（ZOOM開催）

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻 共同利用運営委員会委員名簿

区分	氏名	所属機関	職名	名称	委嘱期間
3.3(1)	長谷川 秀一	東大(院・工)原子力専攻	専攻長	委員	30.4.1～
〃	山口 彰	〃 〃	教授	〃	30.4.1～
〃	岡本 孝司	〃 〃	〃	〃	28.4.1～
〃	阿部 弘亨	〃 〃	〃	〃	27.10.1～
3.3(2)	石川 顕一	〃 原子力国際専攻	〃	委員長	R3.4.1～R5.3.31
3.3(3)	瓜谷 章	名大(院・工)総合エネルギー工学専攻	〃	委員	R3.4.1～R5.3.31
〃	齊藤 泰司	京都大学複合原子力科学研究所	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	浅井 圭介	東北大(院・工)応用化学専攻	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	松山 成男	東北大(院・工)量子エネルギー工学専攻	〃	〃	R3.4.7～R5.3.31
〃	鷲尾 方一	早大・理工学術院先進理工学研究科	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	関東 康祐	茨城大(院・工)機械システム工学専攻	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	河原林 順	東京都市大(工)原子力安全工学科	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	佐々木 晶	阪大(院・理)宇宙地球科学専攻	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	渡辺 幸信	九大(院)総理工 エネルギー科学部門	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	加美山 隆	北大(院・工)量子理工学部門	〃	〃	R3.4.1～R5.3.31
3.3(4)	大井川 宏之	日本原子力研究開発機構	理事	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	羽島 良一	量子科学技術研究開発機構	グループ リーダー	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	鈴木 良一	産業技術総合研究所	首席研究員	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	小関 忠	高エネルギー加速器研究機構	施設長	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	田野井 慶太郎	東大(院・農)アイソトープ農学教育研究施設	教授	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	細谷 紀子	〃(院・医)疾患生命工学センター	准教授	〃	R3.4.1～R5.3.31
〃	村上 健太	〃(院・工)レジリエンス工学研究センター	准教授	〃	R3.5.18～R5.3.31
8	星 勝信	〃(工・情)事務部	総務課長	幹事	R2.4.1～
〃	山下 真一	〃・(院・工)原子力専攻	准教授	〃	30.4.1～
9	家田 芳之	〃 〃	副課長	事務	30.7.1～

<東京大学大学院工学系研究科原子力専攻共同利用運営委員会規程より抜粋>

第3条 3 委員は、専攻長が委嘱した次の各号に掲げるものとする。

- (1) 専攻教授 (2) 東京大学大学院工学系研究科教授
(3) 他大学の原子力研究関連教員 (4) その他の学識経験者

第8条 委員会に、幹事若干名を置く。

2 幹事は、東京大学大学院工学系・情報理工学系研究科等の教職員のうちから専攻長が委嘱する。

第9条 委員会及び専門員会の庶務は、専攻事務室が取り扱う。

令和3年度 UTNL レポートリスト

No.	著者名	標題
R-502	共同利用管理室	令和2年度 共同利用成果報告書