JAEA-Review
2022-030
DOI:10.11484/jaea-review-2022-030

JAEA-Review

化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成（委託研究）

ー令和３年度　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

Development of Methodology Combining Chemical Analysis Technology with Informatics Technology to Understand Perspectives Property of Debris and Tie-up Style Human Resource Development
(Contract Research)
-FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project-

福島研究開発部門　福島研究開発拠点　廃炉環境国際共同研究センター
福島大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Fukushima University

December 2022
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（https://www.jaea.go.jp）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　JAEA イノベーションハブ　研究成果利活用課
〒 319-1195　茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

JAEA-Review 2022-030

化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成
（委託研究）
－令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－

日本原子力研究開発機構　福島研究開発部門　福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター

福島大学

（2022 年 8 月 31 日受理）

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉環境国際共同研究センター（CLADS）では、令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、令和元年度に採択された「化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成」の令和 3 年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、新しい化学分析法の構築によるインフォマティックスとの融合技術の実現を目指し、少ない情報量で全体像を推定するシステムの開発を実施することを目的とする。JAEA 研究者とのタイアップ方式による研究を実施することで、博士前期課程～ポスドクまでの研究者の地域実践型の深化する横断的な人材育成を行うとともに、国際感覚豊かな人材の育成を目指し、実施している。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、福島大学が実施した成果を取りまとめたものである。
廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

JAEA-Review 2022-030

Development of Methodology Combining Chemical Analysis Technology with Informatics Technology to Understand Perspectives Property of Debris and Tie-up Style Human Resource Development
(Contract Research)
－ FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project －

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Fukushima University

(Received August 31, 2022)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2021.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2019, this report summarizes the research results of the “Development of methodology combining chemical analysis technology with informatics technology to understand perspectives property of debris and tie-up style human resource development” conducted in FY2021.

The present study aims to Goal of this study is to implement a research plan relate to a development of combinational technology of new chemical analysis with informatics, and the aim is to develop new system for whole image estimation system using small quantities of information. Conducting the collaboration study with JAEA researchers (tie-up style) make connect to the development of human resource from master’s course student to post-doctoral researchers who are progress in the local-based and/or many academics fields research. We are in progress to grow international-minded human resources.

Keywords: Chemical Analysis, Informatics, Human Resource Development, Tie-up Style

This work was performed by Fukushima University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 1
2. 平成 30 年度 採択課題 2
3. 令和元年度 採択課題 5
4. 令和 2 年度 採択課題 8
5. 令和 3 年度 採択課題 10

付録　成果報告書 13

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project 1
2. Accepted Proposal in FY2018 2
3. Accepted Proposal in FY2019 5
4. Accepted Proposal in FY2020 8
5. Accepted Proposal in FY2021 10

Appendix Result Report 13

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン（平成 26 年 6 月文部科学省）」等を踏まえ、平成 27 年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」（以下、「本事業」という。）を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」という。）では、平成 27 年に廃炉国際共同研究センター（以下、「CLADS」という。現：廃炉環境国際共同研究センター）を組織し、「東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所廃炉（以下、「1F 廃炉」という。）に係る研究開発を進めている。

また、平成 29 年 4 月に CLADS の中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後は CLADS を中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム（令和元年度より新設）に再編した。

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム	11 課題（若手研究 6 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム	6 課題
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題（日英共同研究）

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山﨑 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム　7 課題（若手研究 2 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム　4 課題
国際協力型廃炉研究プログラム　4 課題（日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題）
研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (～R2.3.31) 大曲 新矢 (R2.4.1～)	産業技術総合研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島 2･3 号機ペデスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立 GE ニュークリア・エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (～R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1～)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (～R3.3.31) 岡山大学 (R3.4.1～)

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (～R2.3.31) 竹下 健二 (R2.4.1～)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

4. 令和 2 年度 採択課題

令和 2 年度は、2 つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和 2 年 3 月 17 日～令和 2 年 5 月 14 日（課題解決型）
令和 2 年 5 月 13 日～令和 2 年 7 月 15 日（国際協力型）

課題数：10 課題
課題解決型廃炉研究プログラム　8 課題（若手研究 2 課題、一般研究 6 課題）
国際協力型廃炉研究プログラム　2 課題（日英共同研究）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。
その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

令和 2 年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム
【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍（～R4.7.31） 村上 健太（～R4.8.1）	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
α／β／γ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X 線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

5. 令和 3 年度 採択課題

令和 3 年度は、2 つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和 3 年 3 月 16 日～令和 3 年 5 月 17 日（課題解決型）
令和 3 年 4 月 13 日～令和 3 年 7 月 1 日（国際協力型 日英共同研究）
令和 3 年 7 月 12 日～令和 3 年 8 月 18 日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題
課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英)、2 課題（日露）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英・日露共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和 3 年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データーベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太朗	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (～R4.1.31) 三輪 修一郎 (R4.2.1～)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	淺間 一	東京大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一発電所 2､3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和 3 年度の研究成果を取りまとめたものである。

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録

成果報告書

This is a blank page.

令和３年度

日本原子力研究開発機構
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成

（契約番号　R03I031）

成果報告書

令和４年３月
国立大学法人福島大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人福島大学が実施した「化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成」の令和 3 年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略 vii

1. はじめに 1

2. 業務計画 3
2.1 全体計画 3
2.2 実施体制 4
2.3 令和3年度の成果の目標および業務の実施方法 6
2.3.1 分析法の開発 6
2.3.2 インフォマティックスに関する研究 6
2.3.3 人材育成（福島大学） 7
2.3.4 研究推進（福島大学） 7

3. 令和3年度の実施内容および成果 8
3.1 分析法の開発 8
3.1.1 レーザーアブレーション－高周波誘導結合プラズマ質量分析（LA-ICP-MS）法による定量（福島大学） 8
3.1.2 多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）の開発（再委託先：化研） 11
3.1.3 透過型電子顕微鏡（TEM）による液相中微粒子の計測法の開発（連携先：JAEA） 23
3.2 インフォマティックスに関する研究 31
3.2.1 金属ナノ粒子のICP-MS計測法と多変量解析による材料プロファイリング（再委託先：パーキンエルマー） 31
3.2.2 放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発（福島大学） 44
3.2.3 撮影画像からの目視判断AIおよび化学分析データからの脆性判断AIの開発（福島大学） 52
3.3 人材育成 60
3.3.1 令和2年度までの実施内容および成果（概要） 60
3.3.2 令和3年度実施内容および成果 60
3.3.3 まとめ 66
3.4 研究推進 67
3.4.1 令和2年度までの実施内容および成果（概要） 67
3.4.2 令和3年度実施内容および成果 67
3.4.3 まとめ 67
4. 結言 68

執筆者リスト

事業代表者
国立大学法人福島大学　教授　高貝慶隆
教授　藤本勝成
教授　山口克彦

再委託先
株式会社パーキンエルマージャパン
プリンシパルプロダクトスペシャリスト（課長相当）　古川　真

再委託先
株式会社化研　技術部　兼）開発部　部長　川上智彦

連携先
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
環境影響研究ディビジョン長　飯島和毅

表一覧

表 2-1　年度別全体計画 3
表 3.1-1　LIBS 装置と設定条件 13
表 3.1-2　LIBS の 1 回測定と連続測定の条件 13
表 3.1-3　ビッカース硬さ試験の試験条件 14
表 3.1-4　ライブラリ化した標準物質 14
表 3.1-5　硬さ測定結果 19
表 3.1-6　Spotfire の標準機能 20
表 3.2-1　購入した標準材料のリスト 32
表 3.2-2　材料解析に使用した未知濃度の材料（合金）リスト 38
表 3.2-3　材料解析に使用した認証標準物質リストと認証元素濃度 38
表 3.3-1　全体会議出席者 60

図一覧

図 2-1　全体の体制図 4
図 2-2　再委託先（民間企業）における体制図 4
図 2-3　連携ラボ（JAEA）との体制図 5
図 3.1-1　試料 1：CMMR0-1 試験体の画像および概略図 12
図 3.1-2　試料 2：マッピング分析用リファレンス試料 13
図 3.1-3　NIST の鉄スペクトルを用いたフィッティングの再現性の確認 15
図 3.1-4　SUS 実測定データと鉄ホウ化物ガウス関数の鉄ピークのフィッティング結果（波長域 438.11～438.46 nm） 16
図 3.1-5　マッピング解析ソフトの画像処理機能と結果 17
図 3.1-6　B/Zr（LIBS ピーク面積比）と硬さの評価 18
図 3.1-7　CMMR0-1 試験体のビッカース硬さ試験の測定位置 19
図 3.1-8　CMMR0-1 試験体の LIBS マッピング分析データの Spotfire 解析結果 21
図 3.1-9　濃縮前 ZrO_2 微粒子 25
図 3.1-10 濃縮後 ZrO_2 微粒子 26
図 3.1-11 濃縮後 ZrO_2 微粒子の TEM 画像と EDX による元素マッピング像 26
図 3.1-12 界面活性剤の初期濃度と抽出相体積との関係 27
図 3.1-13 抽出相体積と ZrO_2 微粒子の抽出率との関係 27
図 3.1-14 pH と ZrO_2 微粒子の関係 28
図 3.1-15 pH 調製された微粒子 28
図 3.1-16 濃縮前後微粒子の粒度分布 29
図 3.2-1　各抽出条件と解析手法の概要 32
図 3.2-2　マイクロウェーブ加熱分解装置（Anton Paar GmbH 製 Multiwave 3000）を使用した時の手順フローチャート 33
図 3.2-3　20 w/w%硝酸を使用して試料を 3 日間浸漬した場合の手順フローチャート 33
図 3.2-4　マイクウェーブ酸分解による材料プロファイリング（PCA） 35
図 3.2-5　デンドログラムによる類似性分類（階層クラスタリング） 36
図 3.2-6　液性の違い（pH 2～12、硝酸抽出）による材料分類 37
図 3.2-7　ARCONIC 製 CRM7 種、各 40 箇所のデータからの PCA プロット 39
図 3.2-8　各 CRM について 40 箇所の平均値を使った PCA プロット 39
図 3.2-9　ARCONIC 製 CRM 認証値を使った PCA プロット 40
図 3.2-10 各サンプルの測定強度積層および強度割合 41
図 3.2-11 各材料データから得られた PCA プロットとその Median を用いた PCA プロット 42
図 3.2-12 材料プロファイリング精度向上を目指した各種解析手法 43
図 3.2-13 測定データから放射線源位置を探すことは難しい 44
図 3.2-14 これまでの機械学習で用いている 2 次元面モデルの配置図の例 45
図 3.2-15 ニューラルネットワークによる機械学習プロセスのスキーム 46
図 3.2-16 検証データによる推定結果 46
図 3.2-17 線源分布面から異なる距離にある検出面の設定 47
図 3.2-18 異なる距離ごとの検出面上スペクトルを学習データに用いたアルゴリズム（遮蔽体なし） 47

図 3.2-19 各検出距離における検証用の線量分布、線源分布および推定結果 48
図 3.2-20 異なる距離ごとの検出面上スペクトルを学習データに用いたアルゴリズム（遮蔽体あり） 48
図 3.2-21 遮蔽体が挿入された場合の各検出距離における線量分布、線源分布および推定結果 49
図 3.2-22 遮蔽体として U を設定した場合の推定結果 49
図 3.2-23 3 次元配置モデル 50
図 3.2-24 各検出面の学習データを用いた場合の誤差関数 51
図 3.2-25 5×5×5 の領域に分散した放射線源と各検出面からの推定 51
図 3.2-26 モデルの正解率の推移 54
図 3.2-27 動画中の SIFT 特徴点数の推移 55
図 3.2-28 LIBS スペクトルのバックグラウンド補正 56
図 3.2-29 NMF により導出された 5 因子 57
図 3.2-30 ホウ化物分類の決定木 58
図 3.2-31 因子スコアの散布図 58
図 3.3-1 連携ラボ（JAEA）による教育 62
図 3.3-2 専門科目「放射線科学」講義風景 62
図 3.3-3 令和 3 年度放射線取扱主任者試験合格者 63
図 3.3-4 中間貯蔵施設見学の様子 63
図 3.3-5 鈴木氏による講演会の様子 64
図 3.3-6 平田教授による講演会の様子 65
図 3.3-7 1F 視察の様子 65
図 3.3-8 楢葉遠隔技術開発センター見学の様子 66

略語一覧

AI	:	Artificial Intelligence（人工知能）
ASAS	:	Automated Standard Addition System （オンライン自動標準液添加装置）
CLADS	:	Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science （廃炉環境国際共同研究センター）
GED	:	Gas Exchange Device（気体中金属微粒子導入システム）
ICP-MS	:	Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry （誘導結合プラズマ質量分析）
DRC	:	Dynamic Reaction Cell（ダイナミックリアクションセル）
FP	:	Fission Products（核分裂生成物）
IT	:	Information Technology（情報技術）
JAEA	:	Japan Atomic Energy Agency （国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）
LA	:	Laser Ablation（レーザーアブレーション）
LIBS	:	Laser-Induced Breakdown Spectroscopy （レーザー誘起ブレークダウン分光法）
NIST	:	National Institute of Standards and Technology （アメリカ国立標準技術研究所）
NTA	:	Nanoparticle Tracking Analysis（ナノトラッキング分析）
PCA	:	Principal Component Analysis（主成分分析）
sp-ICP-MS	:	Single Particle Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry （シングルパーティクル誘導結合プラズマ質量分析）
Spotfire	:	TIBCO Spotfire®（統計解析処理ソフトウェア）
TEM	:	Transmission Electron Microscope（透過型電子顕微鏡）
1F	:	東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所
クロアポ	:	クロスアポイントメント
スパコン	:	スーパーコンピューター
化研	:	株式会社化研
東京電力	:	東京電力ホールディングス株式会社
特研生	:	特別研究生
パーキンエルマー	:	株式会社パーキンエルマージャパン
福島大学	:	国立大学法人福島大学

概略

本研究の背景として、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す。）の廃炉の実現において、デブリの全体像を知ることの重要性があげられる。しかしながら、サンプリングされる断片試料は少量で小さく、検体数も少ない。少ない試料から全体像を把握するには多くの困難がある。このように知りたい情報は多いものの、例えば、炉内に存在するデブリの健全性や脆性の情報等、その情報の取得を妨げる要因が存在する。さらに、化学計測の面でも課題が多く、現在の化学計測では限定的な情報しか得られない等の課題があり、ミクロな視点から成分分析する新しい分析技術が必要不可欠である。

その一方で、炉内のデブリ全体像を推定する手法として情報技術（以下、「IT」と略す。）や数値計算によるモデルや物理シミュレーションを活用した手法が存在する。物理シミュレーションは、ミクロからマクロの展開から、微分方程式で表されるミクロモデルを時間・空間で解くことにより得られる全体像であるが、モデルはモデルであり、化学分析によって得られるデータを付加することでより実際に即したものとなる。すなわち、シミュレーションと化学分析は、相補的な関係であることが明らかであり、新しい情報の取得技術（＝新しい分析技術）が求められる。

近年、多因子計測データ（ビッグデータ）を用いることで、ある方向性を導く数学的な解析手法が、盛んに研究されている。例えば、多変量解析によるプロファイリングや人工知能（以下、「AI」と略す。）による機械学習である。化学情報を活用した例として、ケミカルインフォマティックス、バイオインフォマティックス、マテリアルインフォマティックス等、特定の分子、素材を合成するための指標として活用されたことはある。しかしながら、化学情報を、マッピング情報やカメラ画像等の 2D 情報と複合して、画像から全体像の状態把握や脆性情報に転換する研究はほとんど行われていない。

このような状況を背景に、本課題では、国立大学法人福島大学（以下、「福島大学」と略す。）が提案する新しい化学分析法の構築によるインフォマティックスとの融合技術の実現を目指し、少ない情報量で全体像を推定するシステムの開発を実施することを目的とする。また、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。）とのタイアップ方式による研究を実施することで、博士前期課程～ポスドクまでの研究者の地域実践型の深化する横断的な人材育成を行うとともに、国際感覚豊かな人材の育成を目指して実施している。

すなわち、本研究の目的は、(I)新しい化学分析法の構築による(Ⅱ)インフォマティックスとの融合（物理シミュレーションや AI による包括プロファイリング）を目指し、(Ⅲ)少ない情報で全体像を推定するシステムを構築することである。

化学分析の結果である微細（ミクロ）情報を炉内デブリの全体像（マクロ）を推定できる方法論の開発を行い、分析法を開発するとともに、少ない情報（例：多因子のデータであるが検体数が少ない、検体数はあるが因子が少ない等）で全体像を把握する試みである。デブリの性状把握に寄与する包括的・相補的なシステムを研究し、デブリ取り出しの設計指針、構造物（内壁）の健全性の解明に役立つ技術の構築を目指す。

また、JAEA 研究者とのタイアップ方式による研究を実施することで、博士前期課程～ポスドクまでの研究者の地域実践型の深化する横断的な人材育成を行う。

本研究の実施項目は、「分析法の開発」、「インフォマティックスに関する研究」、「人材育成」、「研究推進」の 4 項目に分かれており、それぞれ以下の項目を 5 ヵ年で実施する。

(1)　分析法の開発

①　固体標準物質を使用しないレーザーアブレーション（以下、「LA」と略す。）－高周波誘導結合プラズマ質量分析（以下、「ICP-MS」と略す。）法による安定同位体と放射性同位体の同時定量法とマッピング化への展開（以下、「LA-ICP-MS による定量」と略す。）

②　多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（以下、「LIBS」と略す。）の開発と酸化物およびホウ化物マッピングに基づく硬度計測（以下、「LIBS による硬度計測法」と略す。）

③　水中に分散するナノ～マイクロコロイドの高効率な液相捕集と透過型電子顕微鏡（以下、「TEM」と略す。）による金属微粒子同定方法の開発（以下、「TEM による液体中金属微粒子測定法」と略す。）

(2)　インフォマティックスに関する研究

①　金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング

②　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発

③　撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発

(3)　人材育成

連携ラボ（大学等）による JAEA 研究者と実質的なタイアップ研究を実施し、JAEA 職員とともに包括的な人材育成（博士前期課程～ポスドク）を行う。連携ラボ（JAEA）は、三春を主拠点として、富岡、南相馬の 3 拠点をサテライトとして活用するとともに、三春では、本研究の実施に必要な多種多様な分析機器群や下限数量・濃度以下の放射性物質を利用して人材育成を図る。

(4)　研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させる。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

これら実施項目において、令和 3 年度は、主に 5 ヵ年の 3 年目として、以下の内容を実施したので概説する。

(1)-①　LA-ICP-MS による定量（福島大学）では、令和 2 年度に引き続き、LA-ICP-MS による同位体希釈法ならびにマッピングについて検討した。また、LA-ICP-MS 同位体希釈の定量値が添加量と一致するか検討した。本法においては、申請時に様々な失活が起こることが予想されるため補正等の対策を検討した。あわせて内標準物質の必要性を検討した。

(1)-②　LIBS による硬度計測法の開発（再委託先：株式会社化研（以下、「化研」と略す。））では、LIBS で取得した標準試料データのラベリング・ライブラリ化を進めた。令和 3 年度はさらに、公的データベースサイトにあるデータも順次取り込み、ライブラリの情報量を増やした。未知試料のフィッティング方法の検討も同時に行った。令和 2 年度から開始したマッピング解析ソフトを引き続き作製し、その妥当性を評価した。また JAEA 大洗研究所から借用している模擬サンプルを用いて硬度測定等を行い、多変量解析等で解析した。

(1)-③　TEM による液体中金属微粒子測定法の開発（連携先：JAEA）では、JAEA がクロスアポイントメント（以下、「クロアポ」と略す。）教員および学生（特別研究生：以下、「特研生」と略す。）を CLADS へ配属させるとともに、設備備品を稼働させて研究・実験を実施した。研究においては、微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を検討し、単位体積内にどの程度の粒径の粒子

数を封じ込めることができるのか検討を行った。金属微粒子の実験条件を変えて、濃縮前後で計測し、ビッグデータとするための基礎情報を取得した。

(2)-①　金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング（再委託先：株式会社パーキンエルマージャパン（以下、「パーキンエルマー」と略す。））は、模擬試料等を用いて金属属粒子のプロファイリング等の調査検討を開始した。標準物質の分析データを用いて多変量解析を行い、材料プロファイリングができるかを検討した。各種分析によって得られるデータで、局所のプロファイリングができるか検討した。

(2)-②　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発（福島大学）では、導入したワークステーションを福島大学で開発したスーパーコンピューター（以下、「スパコン」と略す。）を用いて研究した。燃料デブリに核分裂生成物（以下、「FP」と略す。）および原子炉材料も溶け込んでいることを想定したモデルに対して放射線輸送計算を行った。デブリ性状推定用深層学習アルゴリズムの実用化について検討した。このモデルを用いて、現実的な臨界性、線量率、崩壊熱等を検討し、放射線計測からデブリの安全性を確認するための実用モデルについて検討した。

(2)-③　撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発（福島大学）では、令和 2 年度に引き続き、東京電力ホールディングス株式会社（以下、「東京電力」と略す。）等の専門家・技師と議論の場を持ちながら、実際に撮影された格納容器内の画像（動画・静止画）を検証した。今後の撮影においての撮影対象・方法について留意すべき点についても検討した。令和 2 年度までの議論・検討を踏まえ、撮影画像中の変質や注目対象に対して部位の推定・ラベル付けを行うシステムのプロトタイプの開発を開始した。様々なカメラ（赤外線・深度・トラッキング）を通して得られる情報を統合して、格納容器の内部およびその周辺の立体地図の作成のための手法の開発に向けた議論・検討を行った。格納容器の内部およびその周辺の立体地図上に、各種（位置情報・放射線量・部材名等）の空間データを埋め込む際のデータ構造に関する議論・検討を行った。取得可能な化学計測データに対して、機械学習的なデータマイニング手法の適用可能性について議論・検討を行った。

(3)　人材育成（福島大学）は、連携ラボ（大学等）および連携ラボ（JAEA）において、JAEA 研究者と全体会議を開催し状況等を協議した。研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、学生の基礎教育等を実施した。学生に国内外の学会等における発表の機会を与え、教育プログラムを実施した。

(4)　研究推進（福島大学）は、研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

以上、現在までに大きな問題は見られず、令和 3 年度の所期の目標を達成した。

前年度までの成果報告書；

令和 2 年度

JAEA-Review 2021-035

https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-035

令和元年度

JAEA-Review 2020-065

https://doi.org/10.11484/jaea-review-2020-065

1.　はじめに

本研究の背景として、1F の廃炉の実現にはデブリの全体像を知ることの重要性があげられる。しかしながら、サンプリングされる断片試料は少量で小さく、検体数も少ない。少ない試料から全体像を把握するには多くの困難がある。このように知りたい情報は多いものの、例えば、炉内に存在するデブリの健全性や脆性の情報等、その情報の取得を妨げる要因が存在する。具体的な弊害としては、

・炉内カメラからの画像からは断片的な情報しか得られない。
・放射能濃度が高く、少量かつ断片的な試験片により炉内の全体像を推定する必要がある。
・現在の化学分析では、局所分析・成分分析はできるが、全体像の把握は難しい。

等がある。

それに加えて、化学計測の面でも課題が多い。例えば、炉内の部材は、原形を留めていない材料となり、腐食した箇所、付着物を有する箇所、炉心溶融とともに溶融した箇所等が混在する不均一な未知試料（一部は水中に浮遊する微粒子として存在）となっていると考えられる。現在の化学計測で、この材料の成分分析を行う場合、X 線分析や電子線分析が考えられるが、表面の定性分析しかできない。特に、以下は喫緊の問題となっており、本研究ではこれらを解決すべき課題としてとらえている。

・固体表面のミクロ領域における安定元素と放射性元素の同時定量法は難しい。
・放射能分析ではマッピング画像は得られず、全体像の把握は難しい。
・局所領域の脆性（硬度）評価は難しい。
・腐食等の要因で水中に分散した金属微粒子の状態を計測することは難しい。

このように、炉内のデブリは、固体-液体-気体の物質の三態状態が混在し、マトリックス（母体）が不明瞭な不均一状態を形成しているため、ミクロな視点から成分分析する新しい分析技術が必要不可欠である。

その一方で、炉内のデブリ全体像を推定する手法として IT や数値計算によるモデルや物理シミュレーションを活用した手法が存在する。物理シミュレーションは、ミクロからマクロの展開から、微分方程式で表されるミクロモデルを時間・空間で解くことにより得られる全体像であるが、モデルはモデルであり、化学分析によって得られるデータを付加することで、より実際に即したものとなる。すなわち、シミュレーションと化学分析は、相補的な関係であることが明らかであり、新しい情報の取得技術（＝新しい分析技術）が求められる。

近年、多因子計測データ（ビッグデータ）を用いることで、ある方向性を導く数学的な解析手法が、盛んに研究されている。例えば、多変量解析によるプロファイリングや AI による機械学習である。化学情報を活用した例として、ケミカルインフォマティックス、バイオインフォマティックス、マテリアルインフォマティックス等、特定の分子、素材を合成するための指標として活用されたことはある。しかしながら、化学情報を、マッピング情報やカメラ画像等の 2D 情報と複合して、画像から全体像の状態把握や脆性情報に転換する研究はほとんど行われていない。

本研究の目的（ねらい）は、(I)新しい化学分析法の構築による(Ⅱ)インフォマティックスとの融合（物理シミュレーションや AI による包括プロファイリング）を目指し、(Ⅲ)少ない情報で全体像を推定するシステムを構築することとする。

すなわち、原型を留めていない材料（少量の試験片）やそこに付着する成分ならびに浮遊する微粒子等を特定する新しい分析技術の開発を基軸として、そこから得られる多因子計測データ（ビッグデータ）をインフォマティックス技術と融合させることを特徴とする。化学分析の結果から材料および付着物の傾向を多変量解析でプロファイリングする一方で、技術者の知見に基づ

く経験則とともに AI による機械学習を行い、カメラ画像（2D 情報）からの炉内および燃料デブリの全体像を推定できるシステムを開発する。また、モンテカルロシミュレーションにおけるモデルをより現実に近づける。この研究により化学分析の結果である微細（ミクロ）情報を炉内デブリの全体像（マクロ）を推定できる手法へと導く。少ない情報（例：多因子のデータであるが検体数が少ない、検体数はあるが因子が少ない等）で全体像を把握する試みである。デブリの性状把握に寄与する包括的・相補的なシステムを研究し、デブリ取り出しの設計指針、構造物（内壁）の健全性の解明に役立つ技術の構築を目指す。また、JAEA 研究者とのタイアップ方式による研究を実施することで、博士前期課程～ポスドクまでの研究者の地域実践型の深化する横断的な人材育成を行うものである。

このように、本研究の構想は、(I)新しい分析法の構築および(Ⅱ)インフォマティックスとの融合（物理シミュレーションや AI による包括プロファイリング）により、脆性情報や燃料デブリや炉内の全体像を推定することができるシステムを開発することを目標とする。その研究の実施において、JAEA 研究者とのタイアップ方式の研究を行いながら、単位を無理なく取得する深化実践型の人材育成を行う。

これを実現するために、本研究の実施項目は、「分析法の開発」、「インフォマティックスに関する研究」、「人材育成」、「研究推進」の 4 項目に分かれており、それぞれ以下の項目を 5 ヵ年で実施する。

(1)　分析法の開発

①　LA-ICP-MS による定量

②　LIBS による硬度計測法

③　TEM による液体中金属微粒子測定法

(2)　インフォマティックスに関する研究

①　金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング

②　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発

③　撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発

(3)　人材育成

連携ラボ（大学等）による JAEA 研究者と実質的なタイアップ研究を実施し、JAEA 職員とともに包括的な人材育成（博士前期課程～ポスドク）を行う。連携ラボ（JAEA）は、三春を主拠点として、富岡、南相馬の 3 拠点をサテライトとして活用するとともに、JAEA（三春）では、本研究の実施に必要な多種多様な分析機器群や下限数量・濃度以下の放射性物質を利用して人材育成を図る。

(4)　研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させる。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

その中でも令和 3 年度は、5 ヵ年計画の 3 年目としてすでに導入した設備備品等を使用して、4 項目とそれに付する 6 細目を実施した。

2.　業務計画

2.1　全体計画

本業務の特徴である「化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発ならびに人材育成」を実施するため、(1)分析法の開発、(2)インフォマティックスに関する研究、(3)人材育成、(4)研究推進を実施する。また、(1)分析法の開発、(2)インフォマティックスに関する研究に関しては、それぞれ 3 項目ずつに区分して実施する。表 2-1 に、本業務の計画時の線表を記す。

表 2-1　年度別全体計画

項目＼年度	令和元年度	令和２年度	令和３年度	令和４年度	令和５年度
(1) 分析法の開発 ①レーザーアブレーション-高周波誘導結合プラズマ質量分析（LA-ICP-MS）法による定量 （福島大学）	装置整備・試料製作	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
②多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS） （化研）	装置整備・予備試験	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
③透過型電子顕微鏡（TEM）による液相中微粒子の計測法の開発 （原子力機構）	装置整備・予備試験	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
(2) インフォマティックスに関する研究 ①金属ナノ粒子のICP-MS計測法と多変量解析による材料プロファイリング （パーキンエルマー）	予備試験	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
②放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発 （福島大学）	予備試験	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
③撮影画像からの目視判断AIおよび化学分析データからの脆性判断AIの開発 （福島大学）	装置整備	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験及び評価まとめ
(3)人材育成 （福島大学）	全体会議の開催	全体会議の開催 教育プログラムの実施	全体会議の開催 教育プログラムの実施	全体会議の開催 教育プログラムの実施	全体会議の開催 教育プログラムの実施
(4)研究推進 （福島大学）	推進会議の開催	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加

2.2　実施体制

本業務の全体の体制図を図 2-1 に記す。

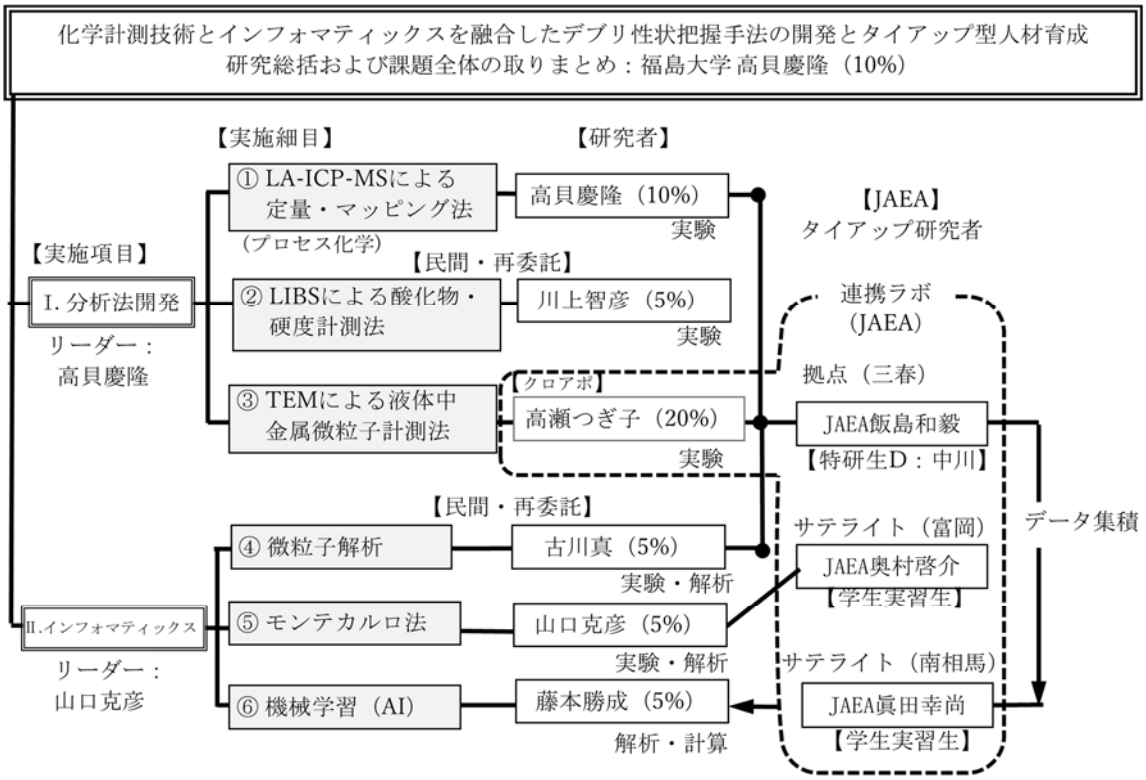


図2-1　全体の体制図

本業務の再委託先における体制図を図 2-2 に記す。

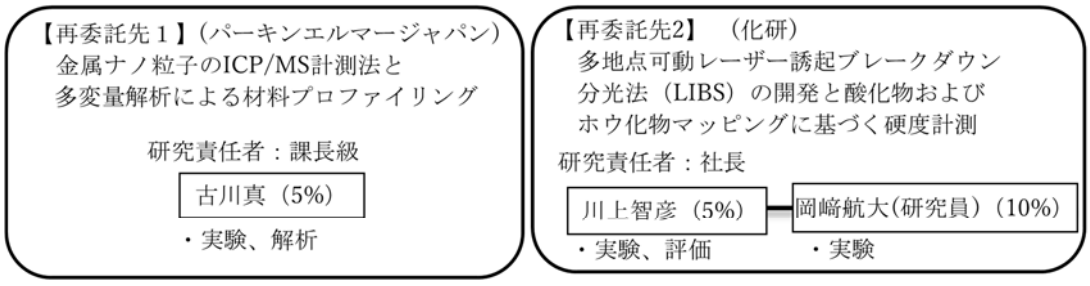


図2-2　再委託先（民間企業）における体制図

本業務の連携ラボ（JAEA）との体制図を図 2-3 に記す。

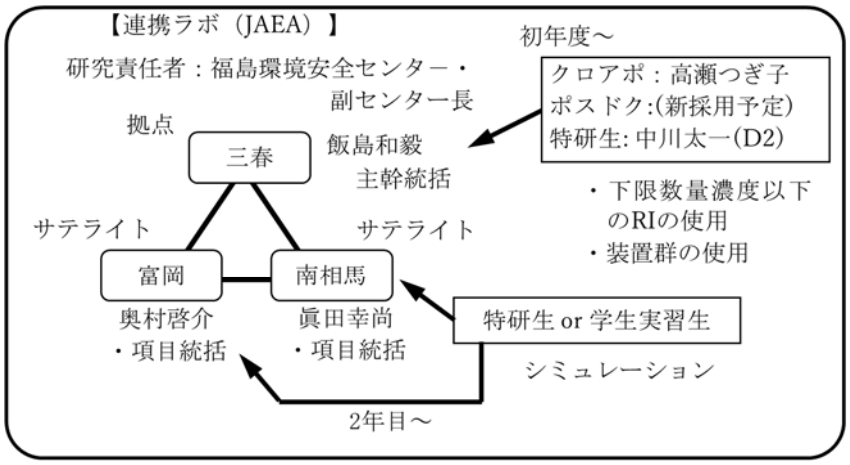


図2-3　連携ラボ（JAEA）との体制図

2.3　令和 3 年度の成果の目標および業務の実施方法

令和 3 年度の業務実施の方法を記す。

2.3.1　分析法の開発

(1)　レーザーアブレーション－高周波誘導結合プラズマ質量分析（LA-ICP-MS）法による定量（福島大学）

・令和 2 年度に引き続き、LA-ICP-MS による同位体希釈法ならびにマッピングについて検討する。
・ LA-ICP-MS 同位体希釈の定量値が添加量と一致するか検討する。本法においては、様々な失活が起こることが予想されるため補正等の対策を検討する。
・ 内標準物質の必要性を検討する。

(2)　多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）の開発（再委託先：化研）

・ LIBS で取得した標準試料データについて、ラベリング・ライブラリ化を進める。令和 3 年度はさらに、公的データベースサイトにあるデータを取り込み、ライブラリの情報量を増やし、未知試料のフィッティング方法の検討を行う。
・ 令和 2 年度から開始したマッピング解析ソフトを作製し、その妥当性を評価する。
・ JAEA 大洗研究所から借用している模擬サンプルを用いて硬度測定等を行い、多変量解析等で解析する。

(3)　TEM による液相中微粒子の計測法の開発（連携先：JAEA）

・ クロアポ教員、ポスドクおよび学生を配属させるとともに、設備備品を稼働させて研究・実験を実施する。
・ 微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を検討し、単位体積内にどの程度の粒径の粒子数が封じ込めることができるのか検討を行う。
・ 金属微粒子の実験条件を変えて、濃縮前後で計測する。ビッグデータとするための基礎情報を取得する。

2.3.2　インフォマティックスに関する研究

(1)　金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング（再委託先：パーキンエルマー）

・ 模擬試料等を用いて金属属粒子のプロファイリング等の調査検討を開始する。
・ 標準物質の分析データを用いて多変量解析を行い、材料プロファイリングができるかを検討する。
・各種分析によって得られるデータで、局所のプロファイリングができるかの検討を開始する。

(2)　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発（福島大学）
・ 燃料デブリに FP および原子炉材料も溶け込んでいることを想定したモデルに対して放射線輸送計算を開始する。
・ デブリ性状推定用深層学習アルゴリズムの実用化について検討する。このモデルを用いて、現実的な臨界性、線量率、崩壊熱等を検討し、放射線計測からデブリの安全性を確認するための実用モデルについて検討する。

(3)　撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発（福島大学）
・ 令和２年度に引き続き、東京電力等の専門家・技師と議論の場を持ち、実際に撮影された格納容器内の画像（動画・静止画）を検証し、今後の撮影においての撮影対象・方法について留意すべき点を検討する。
・ 令和２年度の議論・検討を踏まえ、撮影画像中の変質や注目対象に対して部位の推定・ラベル付けを行うシステムのプロトタイプの開発を開始する。
・ 様々なカメラ（赤外線・深度・トラッキング）を通して得られる情報を統合して、格納容器の内部およびその周辺の立体地図の作成のための手法の開発に向けた議論・検討を開始する。
・ 格納容器の内部およびその周辺の立体地図上に、各種（位置情報・放射線量・部材名等）の空間データを埋め込む際のデータ構造に関する議論・検討を開始する。
・ 取得可能な化学計測データに対して、機械学習的なデータマインニング手法の適用可能性について議論・検討を開始する。

2.3.3　人材育成（福島大学）

・ 連携ラボ（大学等）および連携ラボ（JAEA）において、JAEA 研究者と実質的なタイアップ研究を実施するために全体会議を実施し、状況等を協議する。
・ 研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、学生の基礎教育等に協力する。
・ 学生に国内外の学会等における発表の機会を与え、また、教育プログラムを利用して教育の機会を与える。

2.3.4　研究推進（福島大学）

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させる。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

3. 令和 3 年度の実施内容および成果

3.1 分析法の開発

3.1.1 レーザーアブレーション－高周波誘導結合プラズマ質量分析（LA-ICP-MS）法による定量（福島大学）

(1) 背景と目的

1F の廃炉作業において、原子炉建屋内に存在する高レベル放射性の燃料デブリの取り出しは大きな課題の一つである。燃料デブリは核燃料ペレットや被覆材、炉心周辺の構造物等がともに溶融した後、固化してできたものであるため、その形状や材質は不均一であると予想されているが、化学的組成を含めた全体像は未解明のままである。したがって、炉内の燃料デブリの化学組成等を推定するためには、令和 3 年度から開始される試験的取り出しによって得られる微少な燃料デブリ片から詳細な情報を取得する必要がある。しかし、放射性核種の分析法として一般的に用いられる放射能分析法では、試料中に共存する核種の化学分離が必要となるため、固体試料の直接分析は困難であり、燃料デブリ分析への適用は難しい。

そこで、本研究では固体試料を直接分析する方法の一つとして良く知られる LA-ICP-MS に着目した。LA-ICP-MS は固体試料をミクロスケール（4～110 μm）で直接サンプリングでき、高い感度で元素および同位体の情報を取得できる。また、マッピングや深さプロファイリング等の分析目的に応じて、データを取得・変換できる点も魅力である。材料組成によってレーザーとの相互作用に違いが生じるため、分析対象物の正確な定量のためには、材料組成が類似した認証標準物質を測定するのが一般的であるが、不均一な組成を持つ燃料デブリの場合、適切な認証標準物質を入手するのは困難である。認証標準物質を用いる従来の定量法の代替法としては同位体希釈法が知られる。同位体希釈法では、天然存在比と異なる安定同位体存在比を持つスパイクを添加した試料を測定し、得られた安定同位体比から元素の存在量を決定する。

本研究では、同位体希釈 LA-ICP-MS による元素および放射性核種の定量法の開発を目的としている。この実現のためには、サンプルエアロゾルと濃縮安定同位体溶液を混合し、同時に ICP-MS へ導入する導入システムが必要であるため、2 種類の異なる導入系を連結可能なハイブリッドチャンバー（福島大学およびパーキンエルマーにより共同開発）を用いることとし、令和元年度より検討を開始した。分析対象は Sr および ^{90}Sr とした。これは、^{90}Sr が核分裂収率の大きい放射性核種の一つであり、核燃料が混在する燃料デブリ中にも大量に存在すると見込まれるためである。

(2) 令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

① 実施内容

1) 試料導入系の構築

令和元年度は、2 種類の異なる導入系を連結可能なハイブリッドチャンバーを用い、ハイブリッドチャンバー導入系を構築した。

2) ガラス認証標準物質 SRM610 中 Sr の定量

令和元年度は、ガラス認証標準物質 SRM610（アメリカ国立標準技術研究所（以下、「NIST」と略す。）製）中の Sr を定量した。スパイクには ^{86}Sr 濃縮 $SrCO_3$（オークリッジ国立研究所製）を溶解・希釈し、1～100 μg/L に調整したものを使用した。

3)　Sr 添加模擬試料の強度プロファイル取得

タングステン（W）製のワイヤー（サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社製、幅：0.7 mm、厚み：0.035 mm）に、原子吸光用 Sr 1000 mg/L 標準溶液（富士フイルム和光純薬株式会社製）を通電加熱によって焼き付けて調製した模擬試料を LA し、強度対時間プロファイルを取得した。

②　成果

1)　試料導入系の構築

どちらの試料導入系においても想定通りのデータが得られたことから、オンライン同位体希釈法への適用が可能と判断した。

2)　ガラス認証標準物質 SRM610 中 Sr の定量

得られた定量値は認証値（515.5±0.5 mg/kg）よりも低く、一致率は 9.84～32.20%だった。定量性については継続的な研究が必要であることがわかった。

3)　Sr 添加模擬試料の強度プロファイル取得

Sr 添加 W ワイヤーを模擬試料として測定したところ、どちらの試料導入系でも Sr 分布に対応した強度プロファイルが得られたことから、時間を位置情報へ変換することで強度マッピングを作成できることが示唆された。また、セシウム（Cs）を用いて同様の実験を行ったところ、Sr と同様に良好なプロファイルを取得することができ、他元素への応用も可能であることがわかった。

(3)　令和 3 年度実施内容および成果

①　実施内容

1)　導入効率補正の検証

令和 2 年度までの成果から、サンプルエアロゾル側およびスパイク側における ICP-MS 検出器までの導入効率の違いが定量値へ影響している可能性が示唆されたため、ハイブリッドチャンバー導入系における各系統の導入効率をそれぞれ算出した。

掘削深さは、材料によって変化する可能性があるため、マイクロスコープ（株式会社キーエンス製、VHX-8000）を用いて測定した。シングルパーティクル誘導結合プラズマ質量分析（以下、「sp-ICP-MS」と略す。）で測定した。

流速は、流速計（Glass Expansion 製、TruFlo）を用いて測定した。

Sr 濃度の異なるガラス認証標準物質（SRM610、SRM612、SRM614）の定量を行った。また、W ワイヤーに既知量（0.0277 μg）の Sr を添加した模擬試料を顕微鏡で表面観察した後、焼き付けた液滴の範囲に対して定量を行った。

2)　^{90}Sr 添加模擬試料の強度マッピング

LA-ICP-MS を用いた測定では、^{90}Sr と非常に近い質量を持つ同重体（^{90}Y、^{90}Zr）や多原子イオン（^{74}Ge^{16}O、^{58}Ni^{16}O$_2$、^{58}Fe^{16}O$_2$、^{52}Cr^{38}Ar、^{50}V^{40}Ar 等）がスペクトル干渉となるため、その除去を目的としてダイナミックリアクションセル（以下、「DRC」と略す。）内の O_2 流量（0～1.5 mL/min）の最適化を行った。また、最適 O_2 流量において ^{90}Sr 添加模擬試料をラインスキャン分析し、^{84}Sr、^{88}Sr、^{90}Sr、^{91}Zr の時間対強度データを取得した後、測定時間を模擬試料の位置情報へ変換することでマッピング像を得た。

② 成果

1) 導入効率補正の検証

Sr 濃度の異なるガラス認証標準物質（SRM610、SRM612、SRM614）を定量した。いずれの定量値も認証値に対して±10%以内と良い一致を示した。

また、既知量（27.7 ng）の Sr を添加した W ワイヤー模擬試料を同位体希釈 LA-ICP-MS により分析した。602 点のデータポイントの各点で得られた ^{86}Sr および ^{88}Sr の強度から $^{88}Sr/^{86}Sr$ 強度比を算出し、Sr 量を決定した。全データポイントの Sr 量は 28.8 ng で、添加値に対する一致率は 104%だった。また、マッピングツールを用いてデータを画像化したところ、顕微鏡像で見られた Sr 標準溶液の固着痕と類似したマッピング像が得られた。

さらに、内標準物質の必要性について検討した。その結果、ハイブリッドチャンバーを介して ^{86}Sr 安定同位体濃縮スパイク溶液を導入した結果、信号強度が安定し、スパイク溶液が内標準物質と同様の効果として得られることがわかった。そのため、Sr 以外の元素による内標準を用いずスパイク溶液のみで実験することとした。

2) ^{90}Sr 添加模擬試料の強度マッピング

O_2 流量の増加にともなって $^{74}Ge^{16}O$ や $^{58}Ni^{16}O_2$ の生成が促進される可能性が示唆されたことから、さらなるスペクトル干渉除去を継続的に検討する必要がある。m/z 84、88 および 90 で類似したマッピング像が取得され、安定 Sr 同位体と ^{90}Sr の同時マッピングが可能になった。

(4) まとめ

令和 2 年度までに同位体希釈 LA-ICP-MS のための導入系として、ハイブリッドチャンバー導入系および GED-ASAS 導入系が良好に稼働することを確認した。令和 2 年度までには認証値に対する定量値の一致率が 32.30%と定量性に課題があったが、令和 3 年度は、補正をすることで、Sr 濃度の異なる 3 種類のガラス認証標準物質（SRM610、SRM612、SRM614）に対して同位体希釈 LA-ICP-MS を行った結果、認証値に対する一致率は 97.0～108.7%と良く一致した。また、Sr を既知量添加した模擬試料に対しても定量値は 104%の一致率が得られ、各データポイントより構成された Sr 存在量のマッピング像は顕微鏡像で見られた固着痕と概ね一致した。

^{90}Sr の同重体である ^{90}Y や ^{90}Zr の除去には DRC への O_2 添加が効果的であり、^{90}Zr 強度は最大 99.8%まで低減できた。一方で、O_2 流量の増加にともなって $^{74}Ge^{16}O$ や $^{58}Ni^{16}O_2$ 等の酸化物イオンの生成が促進される可能性が示唆されたことから、ICP-MS/MS によるさらなるスペクトル干渉除去に関して継続的な研究が必要であることがわかった。また、LA-ICP-MS による ^{90}Sr 添加模擬試料のラインスキャン分析を行い、安定同位体（^{84}Sr、^{88}Sr）と放射性同位体（^{90}Sr）の同時検出およびマッピングが可能であることがわかった。これらの成果から、同位体希釈 LA-ICP-MS による放射性 ^{90}Sr の定量マッピングの実現に大きな可能性を見出すことができた。その一方で、現在、ICP-QMS を基盤とした計測装置を利用して $^{74}Ge^{16}O$ や $^{58}Ni^{16}O_2$ 等の酸化物イオンの許容濃度が 0.1 mg/kg 程度であるため、1F 廃炉の材料分析へ実際に適用するにあたりこの許容濃度を向上させる必要がある。そのため、ICP-MS/MS などを利用してその許容量の改善に努め、^{90}Sr 分析感度の向上を相乗効果的に狙いたい。

3.1.2　多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）の開発（再委託先：化研）

(1)　背景と目的

LIBS は、原子発光分析法の一種であり、レーザーを試料に照射し、励起された元素からの発光を測定する分析法である。LIBS は基本構造が簡単であり（光学系のため）、非接触分析かつ取り扱いが容易であるため、高レベル廃棄物や燃料デブリの分析に大きな期待が持たれている。しかしながら、LIBS は試料表面の環境・状態によって発光強度が大きく変動するため、定性分析、もしくは特定元素の検出で大きな威力を発揮するが、定量分析には不向きな面があった。

それを解決するために、我々は、酸素原子の発光（770 nm 付近）を同時に測定することで、励起された金属原子との強度比を補正できることを見出した。この強度比が材料に対して同一のプロファイルを示すことに着目し、材料に対する発光強度比のライブラリをデータベース化することで、発光強度比から材料を特定できると考えた。本研究では、様々な材料、特に、原子炉内部の材料について標準試料を取り寄せて、様々な元素と酸素の発光強度比をデータベース化することを目標としている。

その一方で、LIBS は、レーザーのスポット照射のため単地点での計測となり、俯瞰的な情報（マッピング）を得ることはできなかった。本研究では、試料を可動にすることで、前述したプロファイリング（強度比から材料を同定する手法）をスキャンしながら取得することができ、材料分布を可視化できる機能を開発する。また、これまでの予備的検討によって、LIBS 計測では、金属酸化物およびホウ化物を計測すると、材料の硬度と相関性があることが独自の研究でわかっている。

このことは、前述した酸素（酸化物）／金属の強度比に、新たな指標であるホウ素の発光強度を加味することで、材料同定と材料硬度の情報を同時に取得するできることを示唆するものである。

そこで、本研究では、LIBS を用いて、金属、酸化物およびホウ化物の強度比を測定することで、分析対象の素材を明らかにし、硬度マッピング情報への変換を試みる研究を行う。

(2)　令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

令和 2 年度は、変位計と電動ステージによる多地点 LIBS 計測システムの最適化を行った。令和元年度に製作した電動ステージのシーケンサーと LIBS 計測ソフトを連動させ、連続的な LIBS データを取得することを可能にした。令和元年度に引き続き、デブリに含まれると想定される化合物を標準物質として LIBS で計測し、標準物質のスペクトルのデータベース化を実施した。さらに、放電プラズマ焼結（SPS）により標準試料ペレットを作製し LIBS スペクトルの収集を行った。多変量解析による材料の特定（プロファイリング）の導入として、標準物質の LIBS スペクトルを用い、各元素の最適な波長域を選定した。

また、マッピング解析のためのソフト開発を開始し、マッピング分析で得られた膨大な情報の迅速な処理・解析が可能となった。模擬サンプルの自動測定と解析により約 1900 点の連続的なデータを用いたマッピング像を得ることができたが、試料画像とマッピング像が鏡像となる問題が生じた。

(3)　令和 3 年度実施内容および成果

令和 2 年度は LIBS で取得した標準物質のスペクトルデータについて、ラベリング・ライブラリ化を進めた。令和 3 年度はさらに、公的データベースサイトにあるデータを取り込み、ライブラリの情報量を増やし、新たに元素検索機能および関数を用いた未知試料のフィッティング機能を設けフィッティング手法の妥当性を検討した。また、令和 2 年度から製作を開始したマッピング解析ソフトに関して、令和 2 年度の課題解決とその妥当性を評価した。JAEA 大洗研究所から借用しているプラズマ加熱試験体（CMMR 試験体）や標準物質を用いて、多変量解析等により元素組成分布から硬さ分布を求める検討を行った。

①　試料および使用装置と測定条件

1)　試料

a)　試料 1：CMMR（Core Material Melting Relocation）0-1 試験体

JAEA 大洗研究所より借用した BWR 炉心を模擬した試験体であり、被覆管（Zr）、制御材（B_4C）、制御ブレード基材（SUS）、ウラン燃料を模擬した燃料ペレット（ZrO_2）で構成されている。模擬試験体を酸素濃度約 5%の雰囲気下でプラズマトーチにより溶解した後エポキシ樹脂で固定し、9 cm×10 cm×2 cm（高さ）程度に切断し切断面を研磨した。図 3.1-1 に CMMR0-1 試験体の写真と概略図を示す。概略図の緑線で囲まれた部分が試験体、赤線で囲まれた部分は未試験材料である。

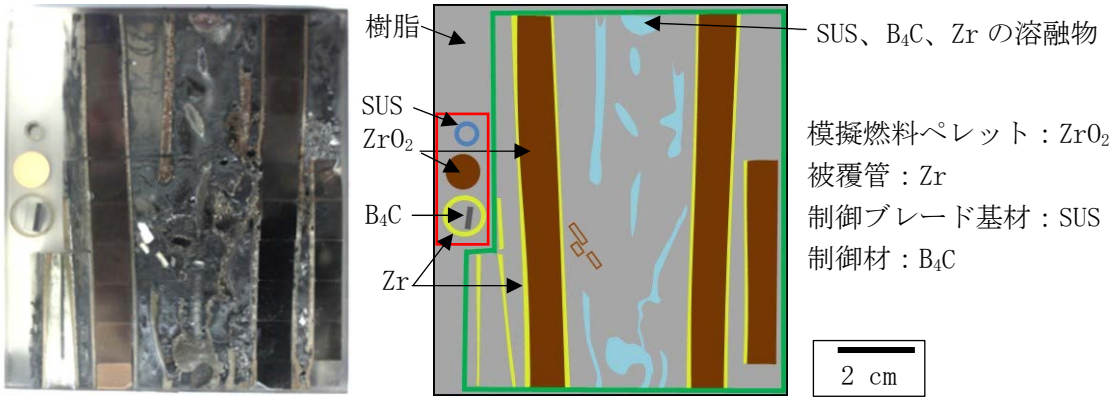


図 3.1-1　試料 1：CMMR0-1 試験体の画像および概略図

b)　試料 2：マッピング分析用リファレンス試料

樹脂基板に、SUS、B_4C（粉体）、ZrB_2（粉体）を両面テープで貼り付け試料とした（図 3.1-2）。

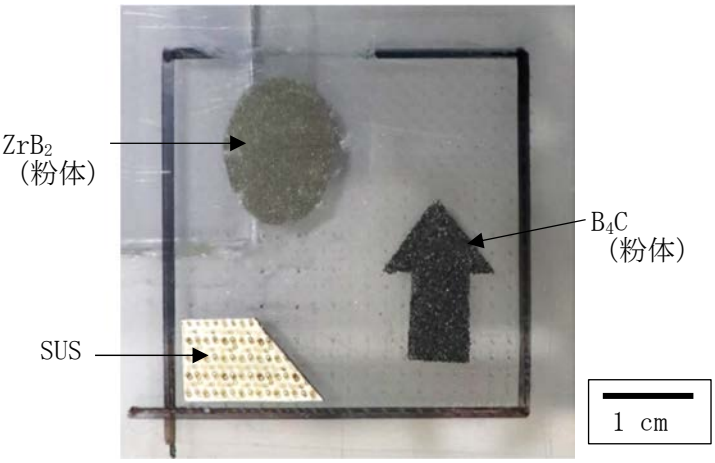


図 3.1-2　試料 2：マッピング分析用リファレンス試料

2)　使用装置および測定条件

a)　LIBS 測定

使用装置と測定条件を表 3.1-1、表 3.1-2 に示す。

表 3.1-1　LIBS 装置と設定条件

装置	Applied Photonics Limited 製　LIBSCAN-100		
検出器	AvaSpec2048（185～907 nm）		
レーザー	1064 nm Nd YAG レーザー	レーザー出力	50 mJ
レーザー周期	10 Hz	レーザーショット	5 回（積算）

表 3.1-2　LIBS の 1 回測定と連続測定の条件

試料	遅延時間 (μs)	測定雰囲気	測定範囲 縦×横 mm	測定間隔 mm/step
試料 1：CMMRO-1 試験体	1.28	N_2	8×9	2
試料 2：マッピング分析用リファレンス試料	1.28	大気	4×4	1
試料 3：標準物質	1.28	N_2	-	-

b)　ビッカース硬さ試験

装置は株式会社ミツトヨ製を使用した。試験機と試験条件を表 3.1-3 に示す。

表 3.1-3　ビッカース硬さ試験の試験条件

試験機	圧子	試験力（kgf）	保持時間（s）
ビッカース硬さ試験機　HV-114	HV	3～30	10
マイクロビッカース硬さ試験機 HM-220	HK	0.05～1.0	15

②　実験と結果

1)　ラベリング・ライブラリ化および未知試料の検索検討

a)　標準物質の LIBS スペクトルを用いたデータベース作成

LIBS で取得した標準試料データについて、ラベリング・ライブラリ化を進めた。データベースは LIBS スペクトルを基に各元素のピーク情報を登録する。登録するピーク情報は、各ピークの波長領域およびガウス関数（式 3.1-1）を用いてフィッティングを行い算出した係数である。LIBS スペクトルは 1 元素で非常に多くのピークが出現するため、1 元素につき複数のピークを任意で選定し登録できるようにした。

$$f(x) = a \cdot e^{-\frac{(x-b)^2}{2c^2}} \qquad (式\ 3.1\text{-}1)$$

係数 a、b、c はフィッティング関数算出時に決定される係数

標準物質および NIST データベースの LIBS スペクトルを用いて約 100 種類の化合物（元素）情報登録を行い、データベース（ライブラリ）とした。ライブラリ化した標準物質を表 3.1-4 に示す。

データベースサイトである NIST のデータを取り込み、元素のライブラリの情報量を増やすことができた。必要に応じてライブラリ情報を容易に拡張することが可能となった。

表 3.1-4　ライブラリ化した標準物質

種類	標準物質
ジルコニウムホウ化物	$Zr_{86}B_{14}$、$Zr_{78.5}B_{21.5}$、$Zr_{68}B_{32}$、$Zr_{58}B_{42}$、ZrB、ZrB_2、ZrB_{12}
クロムホウ化物	$Cr_{87}B_{13}$、Cr_2B、Cr_5B_3、CrB、Cr_3B_4
鉄ホウ化物	$Fe_{92.8}B_{7.2}$、$Fe_{84}B_{16}$、FeB、$Fe_{37}B_{63}$
ニッケルホウ化物	Ni_3B、Ni_2B、Ni_4B_3、NiB
構造材　他	B_4C、SUS、Zr、ZrO_2、B
データベースサイト（NIST）	Cr、Fe、Ni、O、B

b)　未知試料の元素検索機能の付加

未知試料の元素検索機能を付加した。未知試料の LIBS スペクトルを指定し検索を実行すると、データベースに登録したピークのガウス関数値と比較を行い式 3.1-2 から決定係数を求め、決定係数の高い順番にピークが表示される機能とした。式 3.1-2 の y_i は未知試料のピーク強度の実測値、y_r は検索元素ピークのガウス関数値であり、R^2 は 1 に近いほど一致度が上がる。

$$R^2 = 1 - \frac{\sum (y_i - y_r)^2}{\sum (y_i - \bar{y})^2} \qquad \text{(式 3.1-2)}$$

R^2 ： 決定係数、y_i ： 実測値、y_r ： 基準値（関数値）、$\bar{y}$ ： 実測値平均値

また、未知試料ピークと登録ピークのガウス関数波形はグラフ表示でき、決定係数を確認することができる。これらの機能により未知試料に含まれる元素をデータベースから検索し定性的に判断することを可能にした。

c)　未知試料のフィッティング検討結果

初期検討として、NIST の鉄ピーク（波長 275 nm）をデータベースに登録し、このガウス関数と登録に用いた鉄ピーク（実データ）でフィッティングを行った（図 3.1-3）。ガウス関数と実データの決定係数は 0.9999 以上であり、フィッティングの再現性を確認できた。

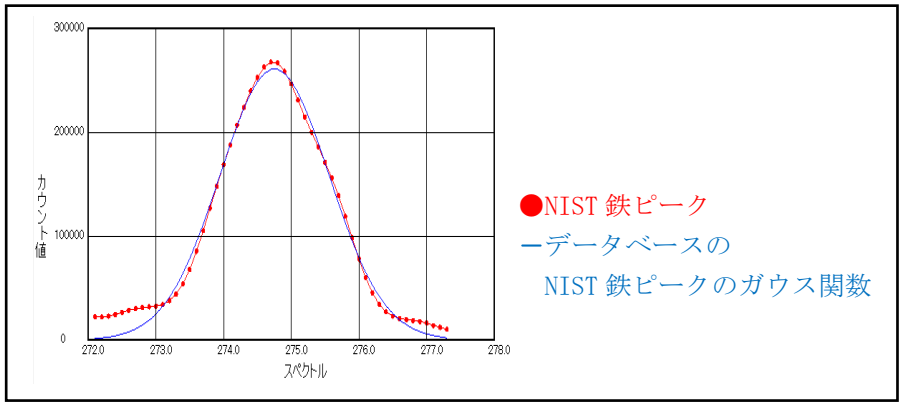
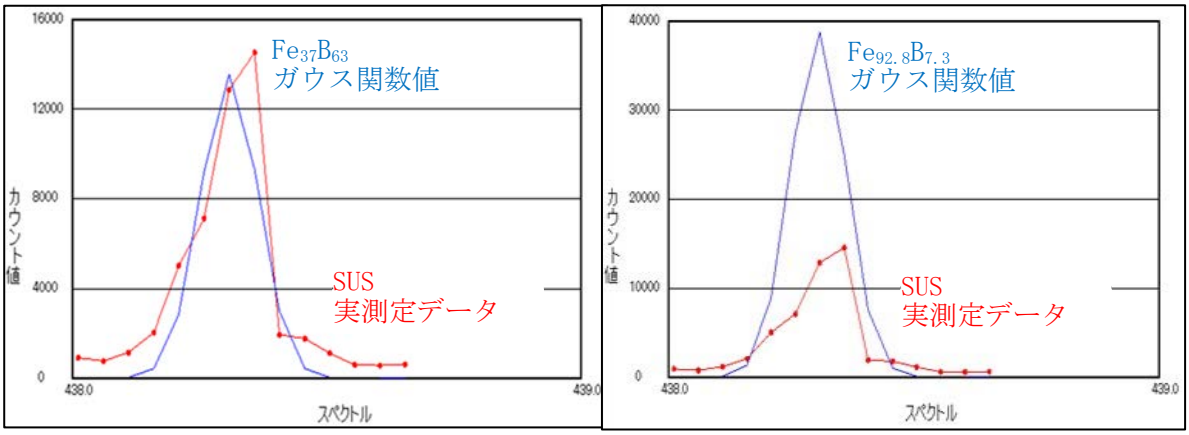


図 3.1-3　NIST の鉄スペクトルを用いたフィッティングの再現性の確認

図 3.1-4 に SUS の LIBS 測定データと鉄ホウ化物のガウス関数のフィッティング結果を示す。鉄ホウ化物の鉄スペクトルを標準としてライブラリに登録し、SUS の鉄スペクトルとフィッティングしている。ガウス関数を用いたフィッティングは係数にピーク強度の因子が含まれるため、未知試料と登録元素のピーク強度が異なると一致度が下がり検索結果から漏れることが判明した。ピーク強度に関係なく定性ができるように改善が必要であり、令和 4 年度の課題となった。



$Fe_{37}B_{63}$ とのフィッティング結果
決定係数：0.83

$Fe_{92.8}B_{7.3}$ とのフィッティング結果
決定係数：-3.42

図 3.1-4　SUS 実測定データと鉄ホウ化物ガウス関数の鉄ピークのフィッティング結果
（波長域 438.11～438.46 nm）

2)　多地点 LIBS 計測システムの開発

a)　マッピング解析機能の改良および測定点描画機能の追加

令和 2 年度は CMMR0-1 試験体（試料 1）の LIBS 連続測定を行い試料形状の 3D 描画や元素のマッピング像を得ることができたが、試料画像と元素マッピング像が鏡像となる課題が残った。

マッピング像は着目する元素について波長範囲を指定し、そのピーク面積を算出する。このピーク面積と試料形状測定で取得した座標（x、y）情報と統合し、強度の違いを色で表現しマッピング像として 2D および 3D 表示が可能である。位置情報は基準点となるピンがステージの端にあり、その位置情報により X-Y 値が決まる。この基準点を変更することで鏡像になる問題は改善した。

令和 3 年度は鏡像となる課題の改善の他に、ソフト上で試料画像と 2D マッピング像を合成する機能、および合成像に測定点の情報を付与する機能を追加した。

試料画像とマッピング像の合成は、マッピング解析ソフト上で試料画像とマッピング像を読込んだ後、各像で連続測定の開始点と終了点を指定して測定範囲のみの像とし、重ね合わせて作成する。

読み込んだ試料画像は台形補正や回転が可能で、マッピング像と向きをソフト上で合わせることができ、試料画像とマッピング像で開始点と終了点を指定することで、合成時の像の位置を一致させた。台形補正を考慮し、試料の写真撮影は正方形が確認できる方眼紙等の上で実施することで像同士の位置合わせ精度が向上した。合成後、マッピング像は透明度や輝度の変更ができ、試料画像は移動ができる仕様とし、像の僅かなずれの調整を可能とした。

合成像にはさらに LIBS 測定情報を関連付けて表示する測定点描画機能を追加した。描画した各点は測定情報を有しており、ファイル名、座標、ピーク面積、LIBS スペクトルを確認できる。

リファレンス試料（試料 2）のマッピング分析結果を用いて、マッピング解析を実施した。測定条件を表 3.1-1、表 3.1-2、マッピング解析結果を図 3.1-5 に示す。試料画像中の ZrB_2 と B_4C はホウ素マッピング像とずれることなく合成できており、合成像に表示した測定点から正しく情報を表示することを確認した。

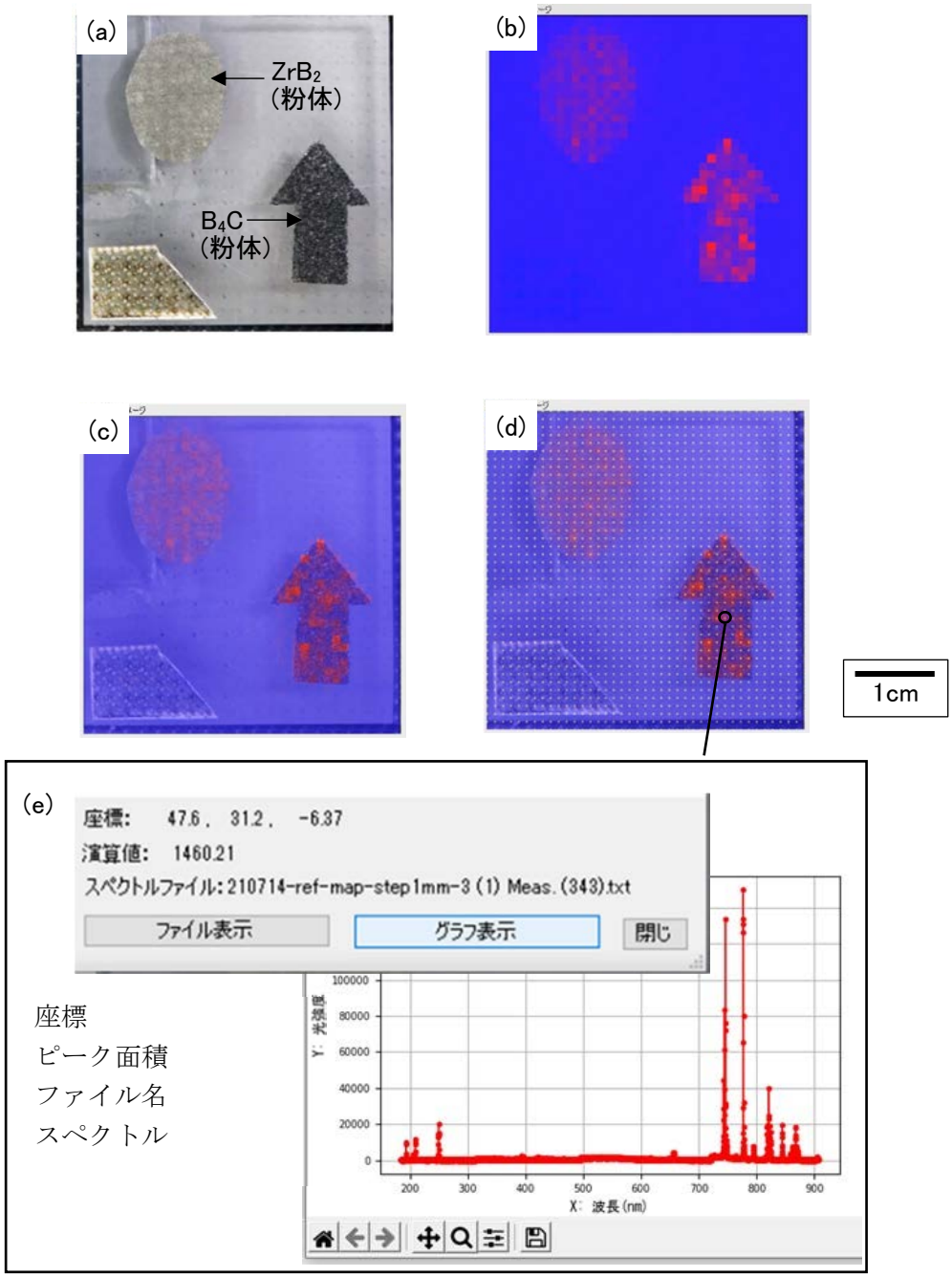


図 3.1-5　マッピング解析ソフトの画像処理機能と結果
（a）試料画像
（b）ホウ素のマッピング像
（c）試料画像（a）とマッピング像（b）の合成像
（d）合成像（c）と測定点の重ね合わせ表示
（e）測定点に含まれる測定情報

b)　変位計と電動ステージによる多地点 LIBS 計測システムの最適化

これまでに、電動ステージと LIBS 計測ソフトウェアを連携させることでマッピングの自動分

析を可能とした。多地点 LIBS 計測システムでは、まず試料形状を電動ステージと変位計を用いて測定を行い X、Y 座標と試料高さ情報（H）を取得し、次に試料形状情報を基に LA の焦点に試料の高さ（Z 軸）を調整しながら X、Y 方向にステージを走査し LIBS 測定を行う。このとき、LIBS 計測ソフトの連続測定上限が 500 点と決まっており、500 点以上のマッピング分析を行う際は 500 点以内で試料を区分けし、試料形状測定と LIBS 測定を交互に繰り返していた。この場合、両方のソフトの再設定が必要であり座標にズレが生じる恐れや、チャンバーの大気開放やガス置換に時間を要するといった問題があった。

令和 3 年度は LIBS 計測を実施する際に指定した測定点で一時停止する機能と、一時停止の位置からステージ走査を再開するリスタート機能を設けた。この機能により 500 点以上の多地点 LIBS 計測は、試料形状測定を 1 回で終了し、多地点 LIBS 計測は 500 点を超えない数で一時停止するが連続測定が可能となり、チャンバー内のガス置換は最初の試料設置の 1 回となった。本機能により全測定点が 1886 点の CMMR0-1 試験体（試料 1）のマッピング分析では、測定に要する期間を 2 日から 1 日に短縮できた。

試料形状測定や多地点 LIBS 測定では座標データが欠落する不具合があり、制御信号のタイミングの最適化を行い改善した。また移動位置表示グラフを新たに設け可視化することで、座標データ欠落や進行状況をリアルタイムで確認できるように改善した。

3) LIBS による硬さ計測検討

a) 標準物質の硬さ測定および LIBS 測定値と硬さの相関性の評価

標準物質（表 3.1-4）の硬さ試験は、ビッカース硬さ試験機（HV-114）およびマイクロビッカース硬さ試験機（HM-220）で行った。標準物質（デブリに存在する可能性がある金属ホウ化物をアーク溶解法により合金化し作製した。作製試料は ICP により組成を確認し、目的の金属ホウ化物であることを確認した。SEM 観察により表面状態を確認した。）は晶出物が分布し試料内でマイクロレベルの範囲で硬さが異なるため、平均的な硬さは HV-114 で試験し、結晶相毎の硬さは HM-220 で試験した。硬さ試験の条件を表 3.1-3 に示す。

表 3.1-4 に示すジルコニウムホウ化物の LIBS 測定値から B と Zr のピーク面積比（B/Zr）を算出し、硬さとの相関性を調べた。図 3.1-6 に B/Zr の LIBS ピーク面積比と硬さについての評価結果に示す。材料組成の B 濃度が増加するほど LIBS ピーク面積比 B/Zr は増加した。また硬さの増加に伴い B/Zr も増加した。よって、LIBS 組成比は硬さの評価に有効な手段であることが確認できた。

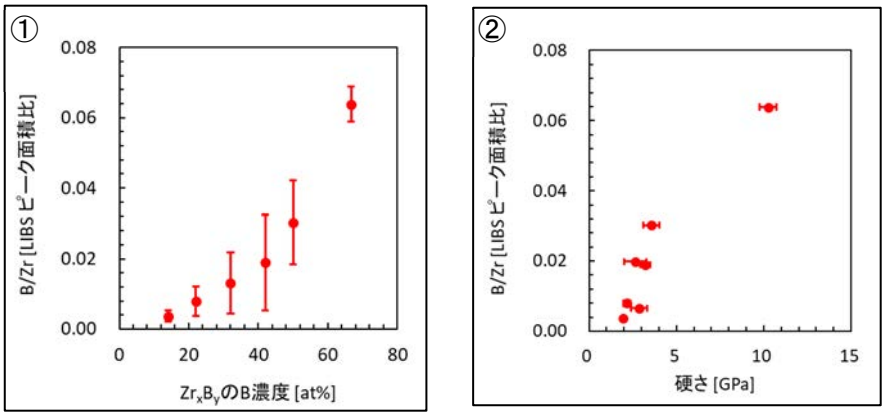


図 3.1-6 B/Zr（LIBS ピーク面積比）と硬さの評価
①：B 濃度増加に伴う B/Zr の変化、②：硬さ増加に伴う B/Zr の変化

b)　CMMR0-1 試験体の硬さ測定

ビッカース硬さ試験機（HV-114）により、CMMR0-1 試験体（試料 1）の硬さ測定を行った。硬さ試験位置を図 3.1-7、試験結果を表 3.1-5 に示す。被覆管は、溶融試験前は約 2　GPa であり溶融試験後は約 5　GPa であった。被覆管、SUS、制御材が溶融し混在している部分は 5～13　GPa の硬さであった。

本研究では、制御材のビッカース硬さ試験は制御材が非常に硬いため、支えとなる樹脂材が耐え切れず測定ができなかった。

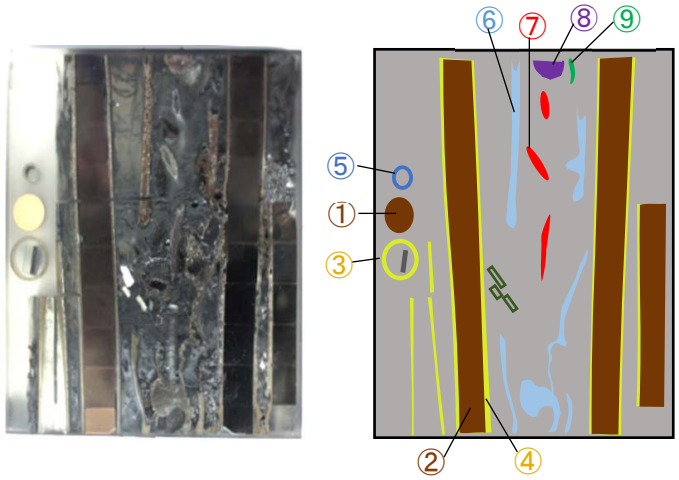


図 3.1-7　CMMR0-1 試験体のビッカース硬さ試験の測定位置

表 3.1-5　硬さ測定結果

測定位置		硬さ（GPa）	
		平均値	CV 値
①	ZrO_2-ref	7.3	0.04
②	ZrO_2	10.1	0.12
③	被覆管-ref	1.7	0.03
④	被覆管	4.0	0.47
⑤	SUS-ref	1.4	0.04
⑥	溶融物 A	4.8	0.33
⑦	溶融物 B	6.4	0.64
⑧	溶融物 C	10.0	0.26
⑨	溶融物 D	12.6	0.22

c) LIBS マッピング分析データの多変量解析の検討

多変量解析ソフトとして TIBCO Spotfire®（パーキンエルマー製）（以下、「Spotfire」と略す。）を使用した。詳細を表 3.1-6 に示す。Spotfire はデータに基づく意思決定を行うためのツールとして世界の多くの企業で利用されており、スモールデータ、ビッグデータ、定型、非定型にかかわらず、収集したデータをわかりやすい形に見える化し共有することができるソフトウェアである。

表 3.1-6 Spotfire の標準機能

可視化ツール	統計ツール
クロステーブル、グラフィカルテーブル 棒グラフ、複合グラフ、円グラフ ラインチャート、ウォーターフォールチャート 散布図、3D 散布図 マップチャート、KPI チャート ツリーマップ、ヒートマップ 平行座標プロット、BoxPlot	階層的クラスタリング K 平均法クラスタリング 回帰モデリング ライン類似性検索 Data Relationships Image Discovery

2)-b)で算出した CMMRO-1 試験体（試料 1）の座標と各元素のピーク面積について解析を行った。Spotfire 解析結果を図 3.1-8 に示す。O と Zr の散布図、ヒートマップにより X 座標・Y 座標に対する Zr の面積値を色の濃淡で表示した Zr の分布を記載する。Spotfire はグラフ等が全て連動しており、散布図で有効にした点はヒートマップでも有効になる。散布図で O と Zr に正の相関が認められる部分を A 群、Zr リッチ部分を B 群とする。ヒートマップと試料画像を照らし合わせた結果、A 群は ZrO_2、B 群は被覆管（Zr）であった。

本研究により、多変量解析ソフトを用いることで O と Zr のピーク面積比率から、ZrO_2 と Zr を区別して表示することが可能となった。今後多変量解析による解析を進め、硬さへの検討を進める。

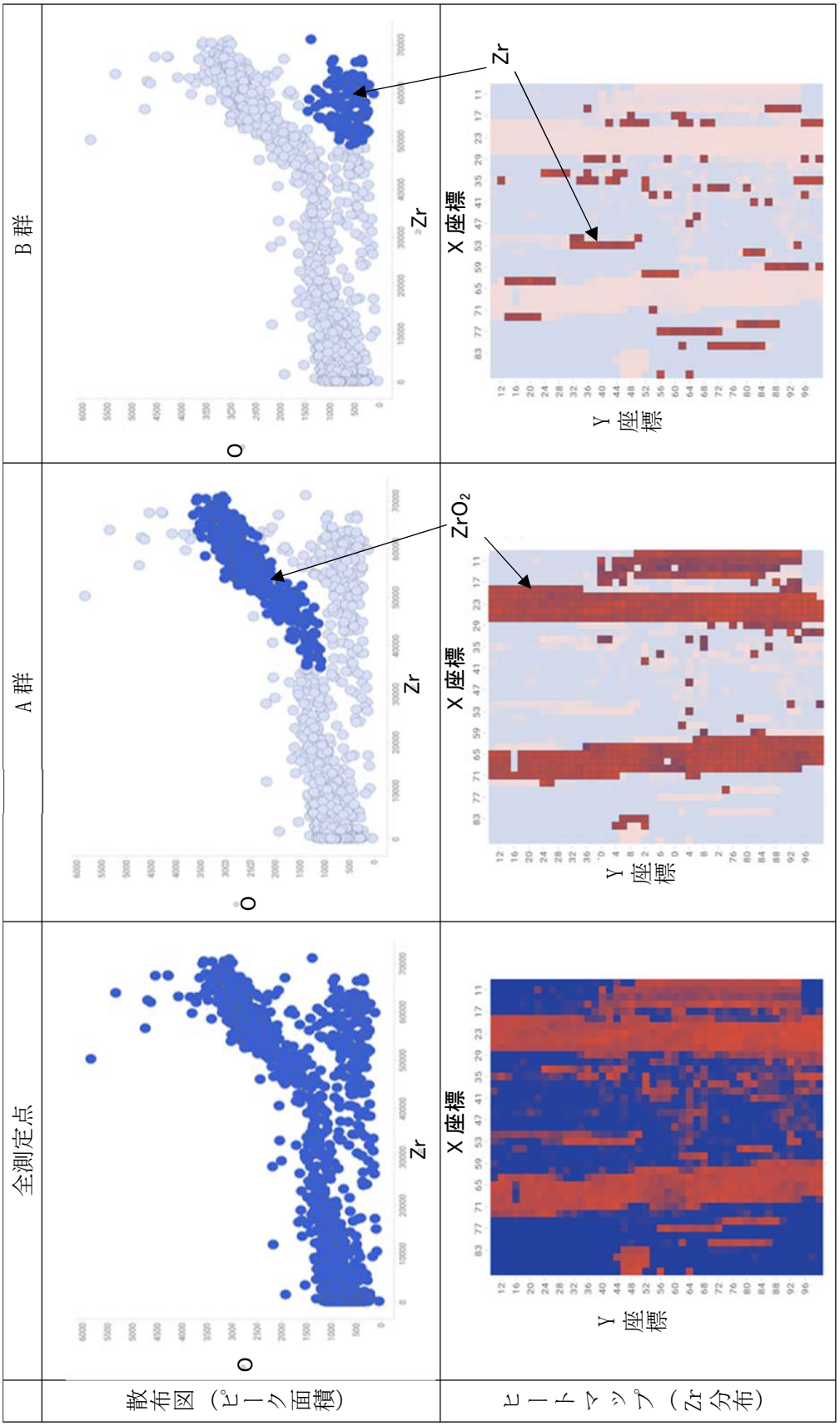


図 3.1-8　CMR0-1 試験体の LIBS マッピング分析データの Spotfire 解析結果

(4) まとめ

令和 3 年度は引き続き、装置や多地点 LIBS 解析ソフトの開発を行い、令和 2 年度の課題解決とマッピング分析の最適化を図るとともに、LIBS による硬度計測方法の検討を行った。

① LIBS で取得した標準試料データについて、ラベリング・ライブラリ化を進めた。未知試料の組成解明のためには、燃料デブリに含まれると想定される元素あるいは化合物を網羅し、解析精度を高める必要がある。令和 3 年度はさらに、公的データベースサイトにあるデータを取り込み、ライブラリの情報量を増やし、新たに元素検索機能を設け関数を用いた未知試料のフィッティング方法を検討した。元素検索機能で用いるガウス関数は、係数にピーク強度の因子が含まれるため、未知試料と登録元素のピーク強度が異なると一致度が下がり検索結果から漏れる問題が残り、令和 4 年度の課題となった。課題解決のため、ベースライン補正によるピーク強度の調整や機械学習を用いたフィッティングを検討する予定である。

② 令和 2 年度から開始したマッピング解析ソフトの開発では、試料画像とマッピング像の合成を行い視覚的な効果を高め、合成像上に分析情報を含む測定点を表示する機能を追加した。試料画像とマッピング像および分析情報を含んだ測定点の合成を可能とし、視覚効果や作業性を向上させた。

マッピング分析の最適化を図り、LIBS マッピング測定において測定時間を短縮するための一時停止プログラムを作成した。CMMR0-1 試験体のマッピング分析において約 1900 点の連続分析に要する時間を 2 日（16 時間）から 1 日（8 時間）に短縮することができ、1000 点ほどの測定点であれば 4 時間ほどであり実用レベルに達した。

③ LIBS データを用いた硬度変換の検討として、標準物質および JAEA 大洗研究所から借用している CMMR 試験体を用いて LIBS による硬度計測方法を検討した。標準物質の Zr_xB_y において、ホウ素濃度と LIBS ピーク面積比（B/Zr）には正の相関が認められ、硬さに依存して B/Zr も増加したことから、LIBS 組成比から硬度変換が可能であることを示唆した。

また、多変量解析ソフトを用いて CMMR 試験体の組成分布評価の検討を行い、組成分布から硬さ分布を求める検討を行った。O と Zr のピーク面積比率から、ジルコニウム酸化物と金属ジルコニウム区別して表示することが可能となった。令和 4 年度は CMMR0-1 試験体に含まれる材料、およびその溶融物の分布を表示する方法をさらに検討し、多変量解析による化合物や組成分布評価方法の構築とともに硬さ分布への変換法についても検討する。燃料デブリの構成物質の硬さは金属類が 2～10 GPa、酸化物は 5～13 GPa、ホウ化物は 15～20 GPa 程度と想定する。LIBS 組成比から金属、酸化物、ホウ化物を分類し硬さへ変換することを想定し、その精度は 5 GPa 以下、10 GPa 前後、15 GPa 以上の 3 段階で適当と考える。

3.1.3 透過型電子顕微鏡（TEM）による液相中微粒子の計測法の開発（連携先：JAEA）

(1) 背景と目的

1F 原子炉内の滞留水には、燃料デブリや構造材等を起源とする様々な微粒子が存在していると考えられる。この滞留水中の微粒子を分析することで、炉内状況や構造材等の劣化度を把握できる可能性がある。しかし、ナノサイズの微粒子は、浄化装置等のフィルターの細孔よりも小さく、回収が難しい。また、微粒子の観察に使用する TEM は測定時に乾燥させる必要があるが、乾燥によって微粒子は様々な共存微粒子と凝集体を形成し、燃料デブリを起源とする微粒子本来の組成判別が困難になり、粒径・粒状・表面状態等が変化し粒子自体の組成も全く異なる可能性がある。加えて、滞留水の粒子組成や濃度も不明であり、分析時の干渉や感度不足が考えられるため、微粒子の濃縮・抽出方法が必要となる。本研究では、目的の試料から状態（形状、粒子径、組成等）を変化させずに微粒子を抽出・濃縮し、液体状態で分析する手法を開発する。

(2) 令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

・CLADS へクロアポ教員 1 名および学生 2 名（博士後期課程 1 名、博士前期課程 1 名）を配属させるとともに、設備備品を稼働させて研究・実験を実施した。
・標準微粒子を濃縮できるか検討した。また、TEM を用いてその濃縮微粒子の粒子径、形状、元素マッピングが計測できるか検討した。濃縮前の標準微粒子との違いを確認した。
・微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を検討し、単位体積内にどの程度の粒径の粒子数が封じ込めることができるのか検討を開始した。

(3) 令和 3 年度実施内容および成果

① クロアポ教員、ポスドクおよび学生の受け入れならびに設備備品の稼働による研究実施

CLADS 環境影響研究ディビジョン（三春）にて、クロアポ教員 1 名、ポスドク 1 名および特研生 3 名（博士後期課程 1 名、博士前期課程 2 名）を受入れた。新規配属となるポスドク 1 名および特研生 2 名（博士後期課程 1 名、博士前期課程 1 名）とは、JAEA および福島大学の間で事前に受入れに伴う打合せを複数回にわたって実施した。JAEA は当該ポスドクおよび特研生の受入れ前に、業務用デスク、パソコン（インターネットの接続、スケジュール管理ソフトへの登録、Microsoft Office やウイルス対策ソフトのインストール等を含む）、書類収納キャビネット等のオフィス業務に必要な設備を整備した。また、実験室には新たな実験スペースを確保した（クロアポ教員および博士前期課程の特研生 1 名については、令和 2 年度から継続）。

新規に受入れたポスドク 1 名および特研生 2 名は、令和 3 年 4 月より放射線計測技術開発グループへと配属され、各自に職員番号、身分証明書、JAEA の作業着、JAEA のメールアドレス、センター内外で連絡を取るためのワイヤレス電話機および内線番号の付与等に係る手続きを行い、JAEA 職員との連絡を円滑に行えるようにした。また、JAEA 内インターネット（イントラネット）、プリンタ、スケジュール管理ソフト、グループ内サーバーの使用方法、論文の検索・ダウンロード方法、出勤簿の記入方法、学会発表・物品購入・国内外の出張等に係る事務手続きについて説明した。ポスドクおよび各特研生については、大学で実施している研究内容について簡単なプレゼンを実施し、現在の状況を関係者間で共有した。また、JAEA の担当テーマである「TEM による液体中金属微粒子測定法」の実施体制や研究の方向性について打合せを行った。

各装置の管理者・使用状況、消耗品の保管場所、実験室内で薬品・高圧ガス・ドラフトチャン

バー等を使用するにあたってのルールについて、施設内を見学しつつ、JAEA 担当者から説明した。また、安全に実験を行うための白衣、安全靴、保護眼鏡等の物品を準備し、配布した。

以上の準備を終え、ポスドクおよび特研生は、令和元年度に準備した JAEA の設備備品と JAEA が保有している ICP-MS 等を稼働させて、令和元年度からの研究テーマに取り組んだ。また、クロアポ教員も令和 2 年度同様、研究業務のサポートや各固相分析装置における分析手法についての試験および情報収集を進めた。

② 単位体積内に封じ込められる微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量の検討

本研究では、界面活性剤の曇点による相分離現象を利用した曇点抽出により、微粒子の抽出を行った。界面活性剤には、両性イオン界面活性剤であるノルニルアルキルジメチルアンモニオプロピルサルフェート（C_9-$APSO_4$、65 ℃以上で均一溶液、65 ℃未満で相分離）を使用した。令和 2 年度までの成果として、標準微粒子（金ナノ粒子）を用いて、C_9-$APSO_4$ の最大濃縮倍率、最大抽出容量を確認した。令和 3 年度は、核燃料ペレット被覆管の材料として使用されているジルコニウムに着目し、その酸化物微粒子を用いた。抽出により微粒子の状態に変化（凝集）が起こるか、粒子径・形状・元素マッピングを計測して確認した。また、最大濃縮倍率、最大抽出量を算出した。

【実験】

標準金属微粒子（ジルコニウム酸化物：ZrO_2）の濃縮前後の状態を評価するために、Merck KGaA 製の粒径〈100 nm の ZrO_2 微粒子溶液を C_9-$APSO_4$ により曇点抽出を行った。10 mL 遠沈管に 5 wt%の C_9-$APSO_4$ 水溶液 0.5 mL、蒸留水 0.5 mL を加え、オイルバス中で加熱し（108 ℃、5 分間）均一溶液とした。この溶液に、ZrO_2 粒子溶液 0.5 mL を加え、さらに 5 分加熱した。オイルバスから取り出した後、直ちに溶液が白濁するまで 10 ℃の流水に遠沈管を晒すことで冷却して界面活性剤相を形成させ、遠心分離（3000 rpm、5 分間、室温）により水相と界面活性剤相を分離した。水相を取り除いた後、界面活性剤相へメタノールを 1.0 mL 加えて、界面活性剤相を溶解させた。その後、TEM とナノトラッキング分析（以下、「NTA」と略す。）にて粒子状態を観察した。

抽出後の界面活性剤相に閉じ込められる ZrO_2 微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を求めるために以下の実験を行った。

10 mL 遠沈管に 3、3.5、4、5、7、9 wt%の C_9-$APSO_4$ 水溶液 1.0 mL をそれぞれ加え、オイルバス中で加熱し（108 ℃、5 分間）均一溶液とした。この溶液に、ZrO_2 微粒子（2.0 mM、2.0×10^{13} particles/L）0.5 mL を加え、さらに 5 分加熱を行った。オイルバスから取り出した後、直ちに溶液が白濁するまで流水で冷却し、遠心分離（3000 rpm、5 分間、室温）を行い完全に相分離させた。冷却前の均一溶液、相分離後の水相、界面活性剤相を水で希釈し、ICP-MS、sp-ICP-MS で測定を行った。ICP-MS は単位体積相へ封じ込められるジルコニウムイオン量、sp-ICP-MS は単位体積相へ封じ込められる ZrO_2 微粒子の粒子数を評価した。また、抽出率は式 3.1-3 より算出した。

$$E = 100 - \left(\frac{N_w \times V_w}{N_h \times V_h} \times 100\right) \quad (式\ 3.1\text{-}3)$$

E：抽出率（%）、N_w：相分離後の水相中の粒子数濃度（particles/mL）またはジルコニウムイオン濃度（μg/L）、N_h：相分離前の均一溶液中の粒子数濃度（particles/mL）またはジルコニウムイオン濃度（μg/L）、V_w：水相の体積、V_h：均一溶液の体積

【結果と考察】

曇点抽出前後でのジルコニウム酸化物微粒子の変化を確認するため、NTA 測定と TEM 観察を行った。濃縮前の NTA 測定によるジルコニウム酸化物微粒子の粒度分布と TEM 画像を図 3.1-9 に示す。濃縮前のジルコニウム酸化物微粒子は、NTA 測定から（a）、粒子径 119±48 nm（最頻度径 95 nm）で 30 nm から 430 nm 程度まで分布していることがわかった。形状は、TEM 画像より（b）、15 nm 程度の球形粒子が集合しており、粒子径は 100～200 nm 程度であった。

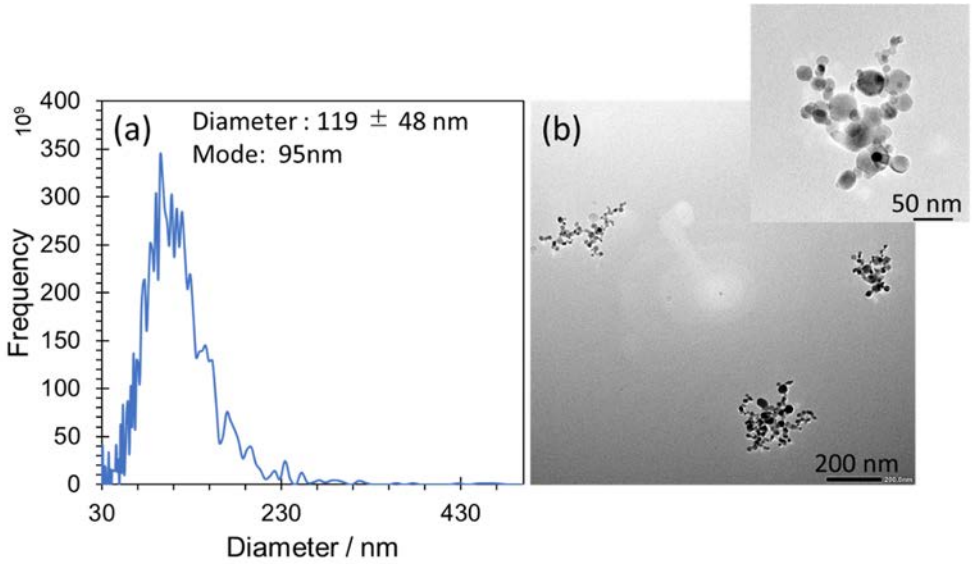


図 3.1-9　濃縮前 ZrO_2 微粒子
（a）NTA 測定粒度分布、（b）TEM 画像

次に、界面活性剤に濃縮された ZrO_2 微粒子の NTA 測定結果と TEM 画像を図 3.1-10 に示す。濃縮後の粒子径は（a）119±65 nm（最頻度径 97 nm）で 30 nm から 430 nm 程度まで分布しており濃縮前と同様の結果となった。形状に関しても濃縮前と同様に球形粒子が集合した形をしており、濃縮前後で粒子径、粒度分布、形状ともに大きな変化は見られなかった。また、濃縮後の ZrO_2 微粒子に EDX 分析による元素マッピングを行ったところ、ZrO_2 微粒子に起因する Zr、ZrO_2 と界面活性剤に起因する O、濃縮前には観察されなかった界面活性剤に起因する S の元素マッピングが一致した（図 3.1-11）。この結果から、濃縮後の ZrO_2 微粒子は界面活性剤によって表面が保護されていることが示唆された。よって、両性イオン界面活性剤を用いた曇点抽出により、ZrO_2 微粒子の状態（粒子径・形状・分散状態）を変化させずに抽出・濃縮できることを確認した。

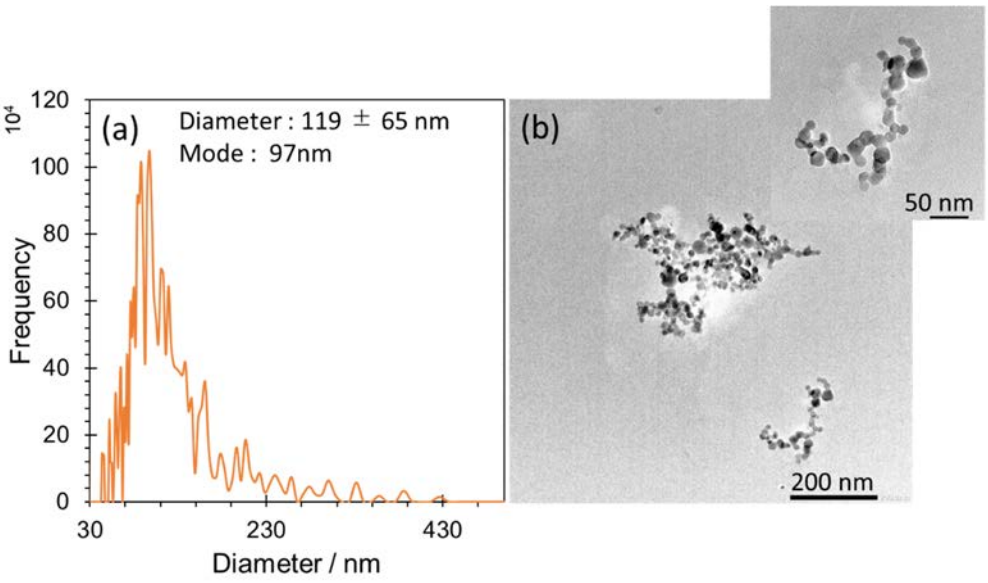


図 3.1-10　濃縮後 ZrO_2 微粒子
（a）NTA 測定粒度分布、（b）TEM 画像

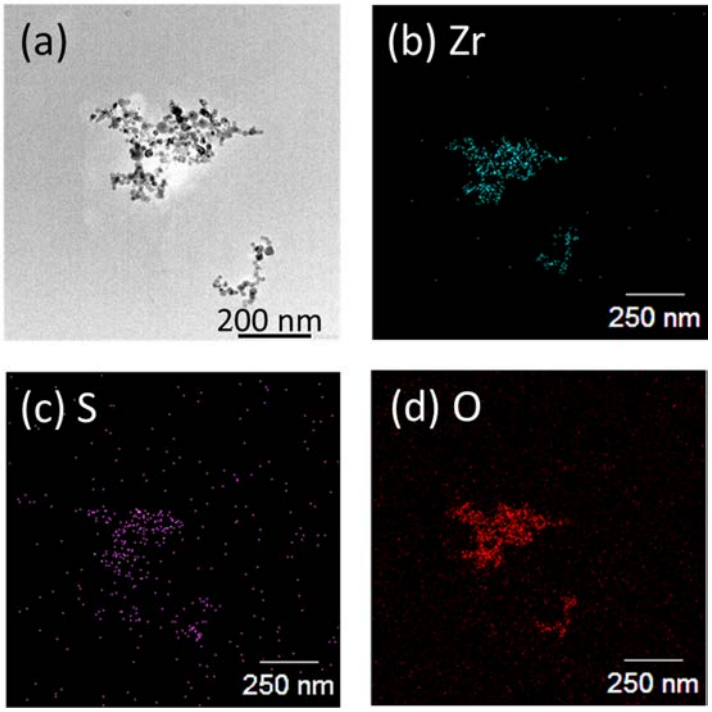


図 3.1-11　濃縮後 ZrO_2 微粒子の TEM 画像と EDX による元素マッピング像
（a）TEM 画像、（b）ジルコニウム、（c）硫黄、（d）酸素

次に、ZrO_2 微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を算出した。元液の界面活性剤濃度（初期濃度）と抽出後の界面活性剤相体積（抽出相体積）の関係を図 3.1-12 に示す。初期濃度と抽出相体積には一定の比例関係が認められた。なお、初期濃度 2.0 w/w%未満では明確な界面活性剤を確認することができなかった。抽出前後の溶液を ICP-MS および sp-ICP-MS で計測し、抽出率を算出した（図 3.1-13）。初期濃度 2.0～6.0 w/w%の濃度範囲で抽出率は粒子数濃度、ジルコニウムイオン濃度どちらかの算出でも 99%であった。2.0 w/w%条件で最大濃縮倍率を抽出相体積から算出したところ、最大濃縮倍率は 333 倍であった。また、2.0 w/w%条件の結果から、単位体積当たりの最大抽出容量は、ジルコニウムイオンで 27 mmol/L（ICP-MS）、ZrO_2 微粒子で 4.1×10^{14} particles/L（sp-ICP-MS）と算出された。

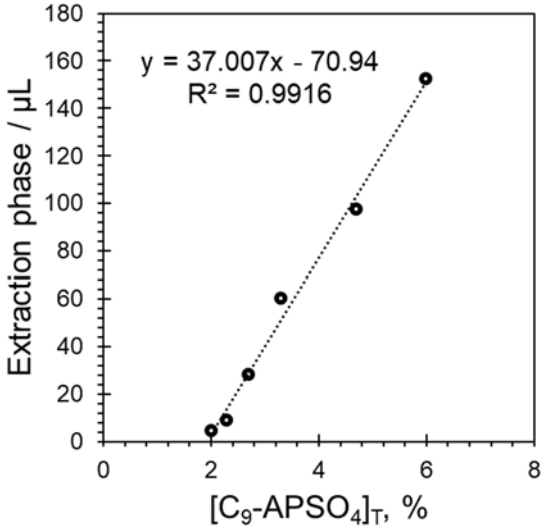


図 3.1-12　界面活性剤の初期濃度と抽出相体積との関係

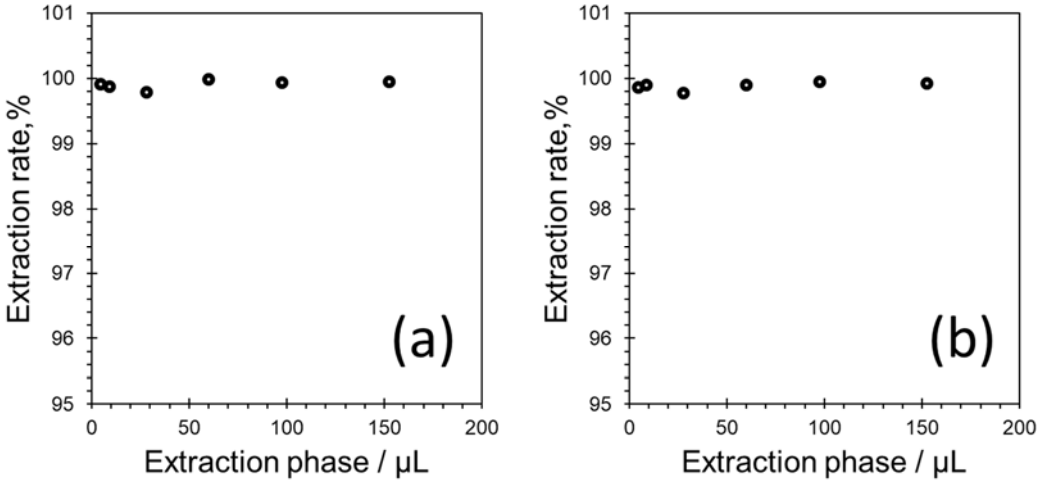


図 3.1-13　抽出相体積と ZrO_2 微粒子の抽出率との関係
(a) ICP-MS、 (b) sp-ICP-MS

③　ビッグデータとするための基礎情報の取得

【実験】

令和 4 年度から構築予定のビッグデータに必要と思われる基礎的情報について、ジルコニウム微粒子をモデルとして用いて各種測定（粒子径、形状、抽出率）を行い、環境における微粒子の移行挙動や曇点抽出の抽出挙動を推定するための物性データを取得した。10 mL 遠沈管に 5 wt%の C_9-$APSO_4$ 水溶液 1.0 mL を加え、オイルバス中で加熱し（108 ℃、5 分間）均一溶液とした。この溶液に、pH 2、pH 7、pH 12 に調製した ZrO_2 微粒子 0.5 mL を加え、さらに 5 分加熱を行った。オイルバスから取り出した後、直ちに溶液が白濁するまで 10 ℃の流水に遠沈管を晒すことで冷却して界面活性剤相を形成させ、遠心分離（3000 rpm、5 分間、室温）により水相と界面活性剤相を分離した。冷却前の均一溶液、相分離後の水相、界面活性剤相を水で希釈し、sp-ICP-MS で測定を行った。

【結果と考察】

酸化物微粒子は pH に依存した、微粒子表面の電位に伴い抽出挙動が変化する。図 3.1-14 に表面電位と pH の関係を示す。pH 2、pH 12 において高い表面電位を示し、分散性が向上している。等電点は pH 7～8 にあり、これは文献値と一致する。pH 2、pH 7、pH 12 に調製した ZrO_2 微粒子を TEM で観察した（図 3.1-15）。形状は球形粒子が集合した形をしている。等電点付近の pH 7 は凝集体が形成されているのが確認された。抽出前後の溶液を sp-ICP-MS で計測し粒度分布を得た（図 3.1-16）。また、抽出率を算出した。抽出前後の粒度分布で大きな変化はなかった。抽出率は、pH 2：99.8%、pH 7：99.9%、pH 12：33.0%であった。表面電位に依存して抽出挙動が変わることを確認した。

以上のように、本検討では pH を変えた場合の粒子径、形状、抽出率を計測し、ビッグデータとするための基礎情報を得た。

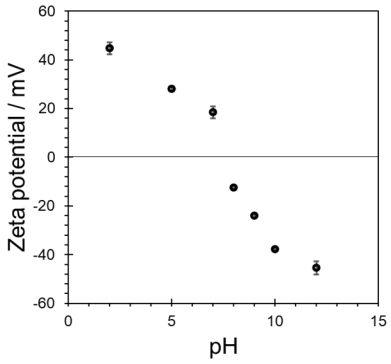


図 3.1-14　pH と ZrO_2 微粒子の関係

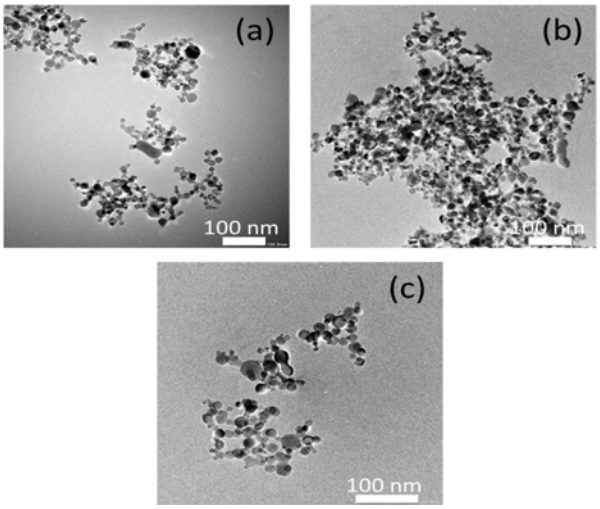


図 3.1-15　pH 調製された微粒子
(a) pH 2、 (b) pH 7、 (c) pH 12

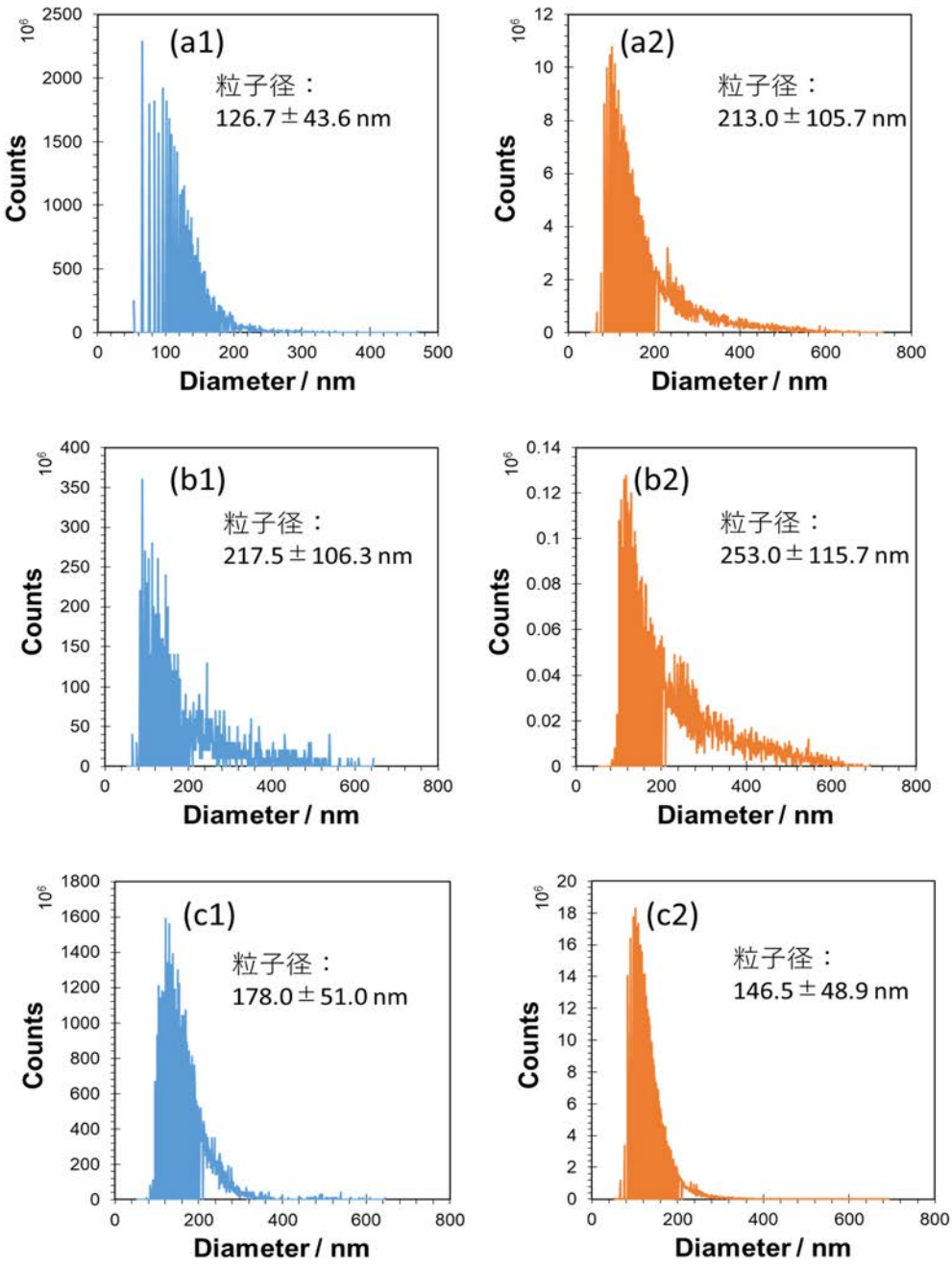


図 3.1-16　濃縮前後微粒子の粒度分布
（a）pH 2、（b）pH 7、（c）pH 12、
（1）濃縮前、（2）濃縮後

(4) まとめ

令和 3 年度は、1F の炉内滞留水に含まれると予測されるジルコニウムの酸化物微粒子に着目して実験を行った。ビッグデータとするための基礎的な情報として実験条件（pH）を変えて、濃縮前後の微粒子形状、粒子径、粒度分布、抽出率を得た。TEM 観察で得られた微粒子画像（元素マッピング）を微粒子の物性値（文献/測定データ）をバックグラウンドとして画像解析および機械学習を実施することで材料判別や元素組成把握へつながる可能性を見出した。

炉内中に存在すると予測される鉄やニッケルなどの主要元素についても同様の試験を実施するための準備を進めており、機械学習で用いる必要量のデータ数を取得できる見通しである。

3.2　インフォマティックスに関する研究

3.2.1　金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング（再委託先：パーキンエルマー）

(1)　背景と目的

1F の原子炉内の燃料は、溶融しそれが固化したものに加えて構造材やコンクリート、溶融には至らなかった燃料棒の一部も含めて燃料デブリとして存在していると考えられている。燃料デブリは、塊状、粒状、殻状等様々な形態を示し、その組成は、核燃料物質、被覆管成分、構造材成分からなる。また、金属質や酸化質のものがある等、複雑で様々な形状や組成、相状態のものが想定されている。

1F の廃炉作業において、燃料デブリの状態解析や化学組成の分析は喫緊の大きな課題である。しかし、原子炉内や燃料デブリは高線量であり、試験片取り出しにおいては大量のサンプルを採取することができないことから、燃料デブリの状態や組成を直接確認することは困難である。

一方で、1F 事故後には、放射性 Cs 微粒子が放出されていることや、1F から放出された鉄や亜鉛等の粒子と共存した Cs 含有微粒子が存在していることが徐々に明らかになっている。また、2、3 号機トーラス室滞留水を、0.1 μm フィルターでろ過し、フィルター上に残った試料を分析した結果、2 号機では 3～5 μm のウラン含有微粒子が、3 号機では 10 μm 程度の有機物粒子に微量のウランが付着していることが確認されている。さらに、3 号機格納容器内部調査装置（水中ロボット）の表面を拭き取り採取した試料を分析した結果、金属酸化物粒子とそのナノ粒子が凝集したような凝集粒子が存在することも確認されていることから、汚染水（滞留水）には nm オーダーの粒子が浮遊している可能性があると考えられる。そこで、常時炉内から排水されており、大量のサンプルを採取できる汚染水中に分散している金属ナノ粒子を分析することで、燃料デブリの状態や組成を間接的に予想することができるのではないかと考えた。汚染水中に分散している金属ナノ粒子は、燃料棒や被覆管、構造物等燃料デブリ由来の情報を有していると考えることができるため、汚染水に含まれるナノ粒子を分析することで様々な情報が取得できる可能性がある。しかし、そのナノ粒子を計測するために、ナノ粒子の標準分散液が必要であるが、現在、標準分散液として市販されている元素は、金ナノ粒子や銀ナノ粒子等に限られており、原子炉内の構造材に使用されている元素のナノ粒子標準分散液は市販されていない。そのため、本研究では基礎研究として、模擬試料となる種々の金属ナノ粒子の標準液を作製した。また、各種分析法における粒子径等の測定値の比較・評価を実施した。

最終的な目標としては、金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリングを実施することを目的としているが、令和 3 年度は、材料プロファイリングの検討を開始した。

(2)　令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

・令和元年度に引き続き、標準ナノ粒子を用いて水中に分散させる手法（分散剤および溶液調製法）の探索を行った。種々の分析装置により測定し、ナノ粒子の存在を確認した。
・TEM と sp-ICP-MS による粒子径の測定値がほぼ一致することがわかり、特に、sp-ICP-MS の利便性が大きいことがわかった。また、粉砕法による金属ナノ標準粒子の調製方法を検討し、実試料においても特段の分散剤を添加する必要性はないと考えられる。
・ICP‐MS による安定元素の濃度プロファイリングを取り込み、多変量解析の 1 つである主成分分析（以下、「PCA」と略す。）解析を行った結果、主成分に起因する寄与因子が確認できた。

今後、より詳細な検討が必要であるが、材料プロファイルの可能性が高いことが明らかになった。

(3)　令和 3 年度実施内容および成果

材料プロファイリングに関する基礎的検討

SUS301（金属片）を含む 22 種類の合金を購入して、これを模擬試料として用いて金属粒子のプロファイリング等の調査検討を開始した。以下、表 3.2-1 に材料および組成を一覧として示す。

表 3.2-1　購入した標準材料のリスト

	材料ID	材料名	材料ID	材料名	材料ID	材料名
	1	DENSIMET#176	19	ステンレス17-7PH	37	42インバー
	2	SUS-301	20	真鍮	38	36インバー
	3	SUS302	21	鉄クロム10	39	スーパーインバー
	4	SUS-304	22	アドバンス	40	鉄クロム30
	5	SUS310S	23	アルクロム-o	41	カンタル
SUS系	6	SUS316	24	アル・マグ・シリコン	42	コバール
	7	SUS316L	25	アルミ・シリコン	43	マンガニン
	8	SUS321	26	セラマワイヤ No36(27%ﾆｯｹﾙ被覆銅線)	44	モレキュロイ
	9	SUS347	27	ベリリウム銅	45	モネル
	10	SUS430	28	銅・タングステン	46	ニクロム
	11	SUS631	29	キュプロニッケル(白銅)	47	45パーマロイ
	12	アルミ・マグネシウム	30	デュメット	48	78パーマロイ
Al系	13	アルミ・リチウム	31	ジュラルミン	49	ピアノ
	14	インコネル600	32	ギルディング・メタル	50	リン青銅
	15	インコネル601	33	金アンチモン	51	白金ロジウム
	16	インコネル625	34	金ガリウム	52	アルメル・クロメル
	17	インコネルX-750	35	金モリブデン	53	コンスタンタン
	18	ステンレス15-7PH	36	ハステロイ C-276	54	1%トリア・タングステン
					55	金・パラジウム

SUS301（金属片）等購入した合金材料（図 3.2-1）を溶液（酸～中性～アルカリ）に浸漬した溶出液で材料の特定を試みた。

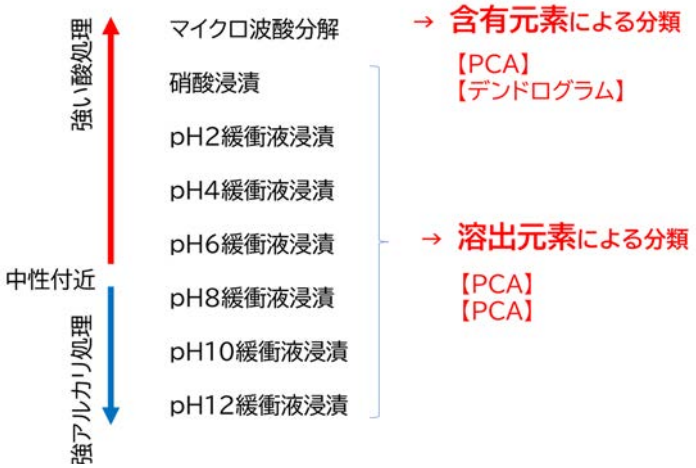


図 3.2-1　各抽出条件と解析手法の概要

【手順】

各抽出条件で得られた各材料の抽出液の全元素定量データを用い、材料分類を検証した。この解析では抽出液中の濃度を利用するものであり、材料によって溶解のしづらさが異なるため、材料の元素含有濃度とは異なる。材料がなんらかの溶液と接触し、溶け出てきた成分から元の材料を特定しようとする行為である。各抽出条件の手順を示す（図 3.2-2、図 3.2-3）。

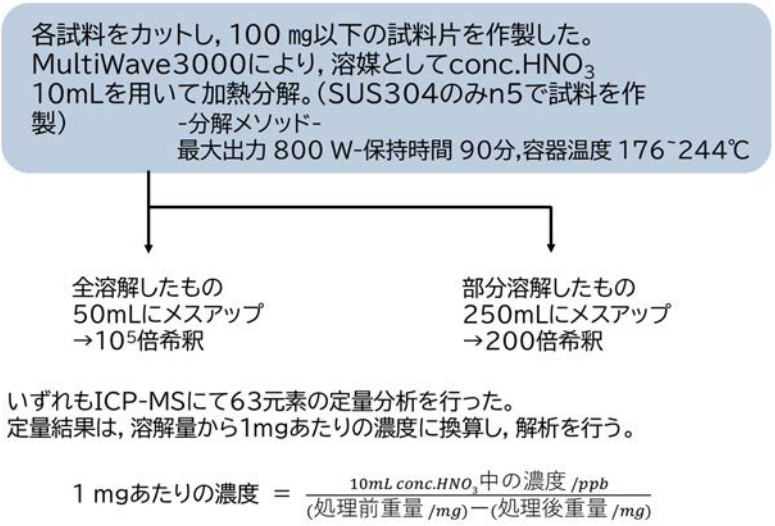


図 3.2-2　マイクロウェーブ加熱分解装置（Anton Paar GmbH 製 Multiwave 3000）を使用した時の手順フローチャート

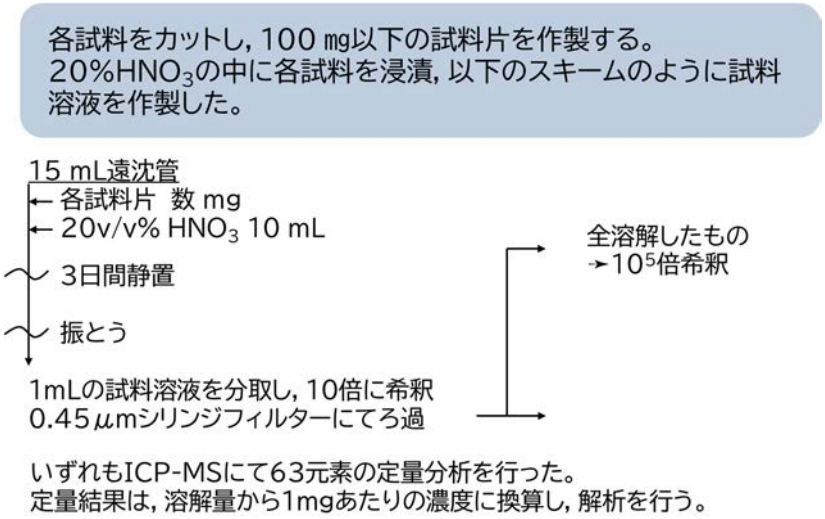


図 3.2-3　20 w/w%硝酸を使用して試料を 3 日間浸漬した場合の手順フローチャート

ICP-MS によって各元素の濃度を定量して、多変量解析を実施した。

多変量解析の方法は、ICP-MS にて測定した安定 63 元素のイオン強度を入力データとして使用した。すなわち、計 60 因子の強度データを 55 種の標準試料に対して PCA 解析をした。PCA 解析は以下の手順で実施した。

インプットする測定データ X を行列 A（p 列×d 行：本研究では p＝63 種、d＝60 因子）で表記した（式 3.2-1）。

$$A = \begin{bmatrix} X_{1\,1} & \cdots & X_{p\,1} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ X_{1\,d} & \cdots & X_{p\,d} \end{bmatrix} \quad (式\ 3.2\text{-}1)$$

この行列 A を式 3.2-2 により標準化した。

$$X' = \frac{X - X_{Ave.}}{\sigma} \quad (式\ 3.2\text{-}2)$$

ここで、X’は標準化されたデータ、$X_{Ave.}$は X 列の平均値、σ は X 列の標準偏差である。また、X’を行列 A’として式 3.2-3 に表記した。

$$A' = \begin{bmatrix} X_{1\,1}{}' & \cdots & X_{p\,1}{}' \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ X_{1\,d}{}' & \cdots & X_{p\,d}{}' \end{bmatrix} \quad (式\ 3.2\text{-}3)$$

標準化した行列 A’をラグランジェの未定数乗法を用いると分散共分散行列 S が得られる（式 3.2-4）。

$$S = \frac{1}{j-1}\sum_{i=1}^{j}\left(x_{ij} - x_{Ave.}\right)\left(x_{ij} - x_{Ave.}\right)^{T} \quad (式\ 3.2\text{-}4)$$

ここで、x_{ij}は測定データ A’の p 種についての組成ベクトル（i＝1、2、…、d、j＝1、2、…、p）であり、$x_{Ave.}$は d 因子の元素データの平均値を取った平均元素組成ベクトルである。^{T}は転置行列を示す。

P 種の測定データ A’により得られた x_{ij}は、直交する d 因子の主成分軸 y_i（すなわち、ローディング）としたとき、それに射影される分散 σ_i^2は、式 3.2-5 と表記できる。

$$\sigma_i^2 = w_i^T S w_i \quad (式\ 3.2\text{-}5)$$

ここで w_i は係数ベクトル（w_i＝w_1、w_2、…、w_d）とする。w^Tは w_i の転置行列（$w^T w_i$＝1）である。その一方で、式 3.2-4 について特異値分解を解くと固有方程式、式 3.2-6 と表すことができる。

$$S w_i = \lambda_i w_i \quad (式\ 3.2\text{-}6)$$

このとき、λ_i＝λ_1、$\lambda_2 \cdots \lambda_d$（$\lambda_1 \geq \lambda_2 \geq \cdots \geq \lambda_i$）が得られる。それにともない、先に定義した係数ベクトル w_i が得られる。

これによって、主成分軸 y_i によって主成分スコア x”$_i$ を求めることができる（式 3.2-7）。

$$y_i = w_1 x_1 + w_2 x_2 + \cdots w_d x_d = w_i^T x''_i \quad (式\ 3.2\text{-}7)$$

本研究では、y_1、y_2、y_3 をそれぞれ Comp. 1、Comp. 2 および Comp. 3 とし、xyz 軸として表現した（$\lambda_1 \geq \lambda_2 \geq \cdots \geq \lambda_i$）。

一方、分散 σ が主成分軸（y_i）にどの程度寄与しているかを寄与率で示した。ここで第 k 主成分の寄与率 v_k は、式 3.2-8 で求めた。

$$v_j = \frac{\lambda_i}{\Sigma_p \lambda_i} \qquad \text{(式 3.2-8)}$$

本法は、Spotfire の PCA 機能を使用した。

その結果、PCA（図 3.2-4）とデンドログラム（階層クラスタリング（図 3.2-5）を利用すると、雑多な材料群から SUS、Al 系材料を抽出できた。また、同一サンプルも階層クラスタリングで同じものであることが確認できた。

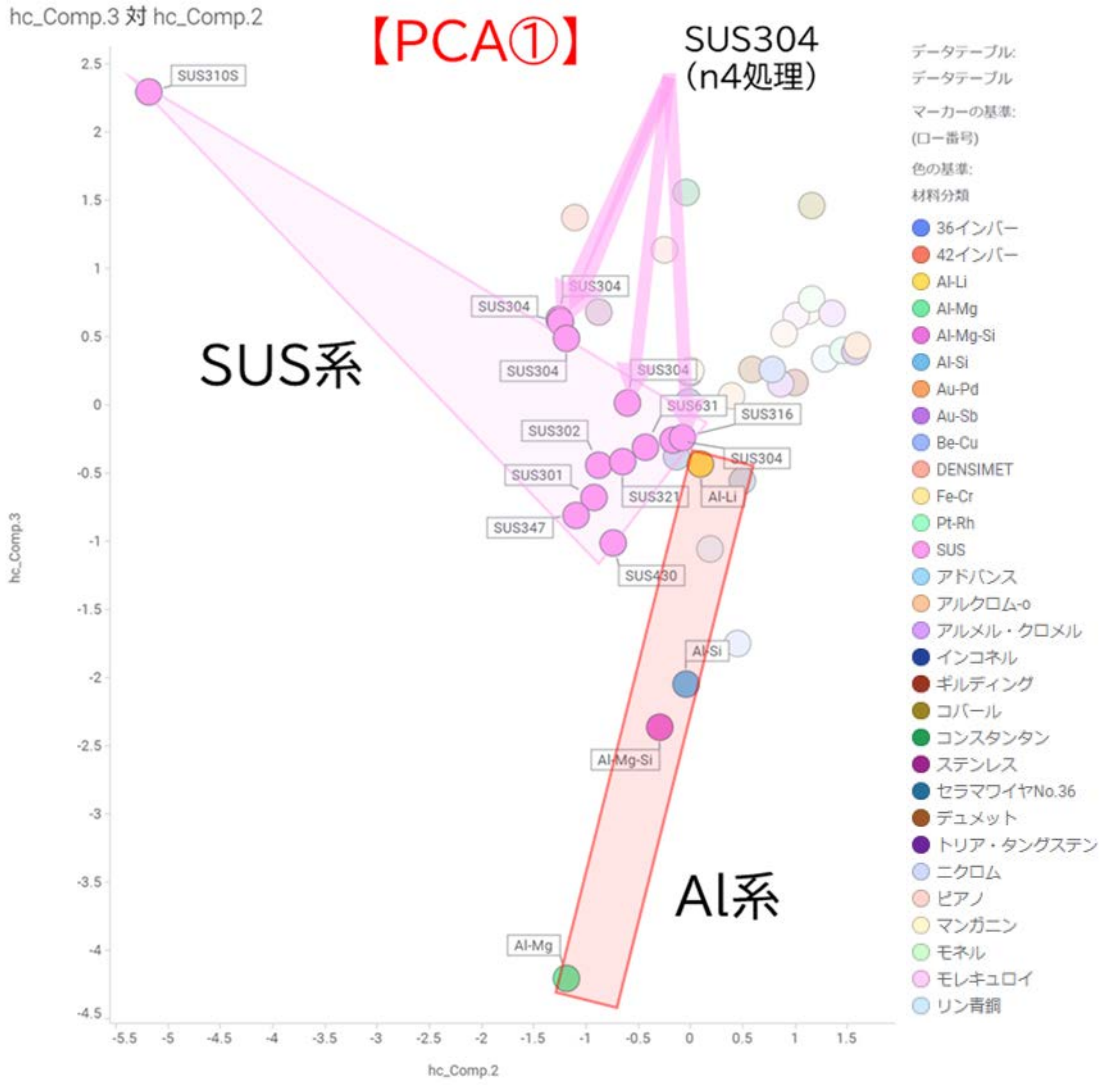


図 3.2-4　マイクウェーブ酸分解による材料プロファイリング（PCA）

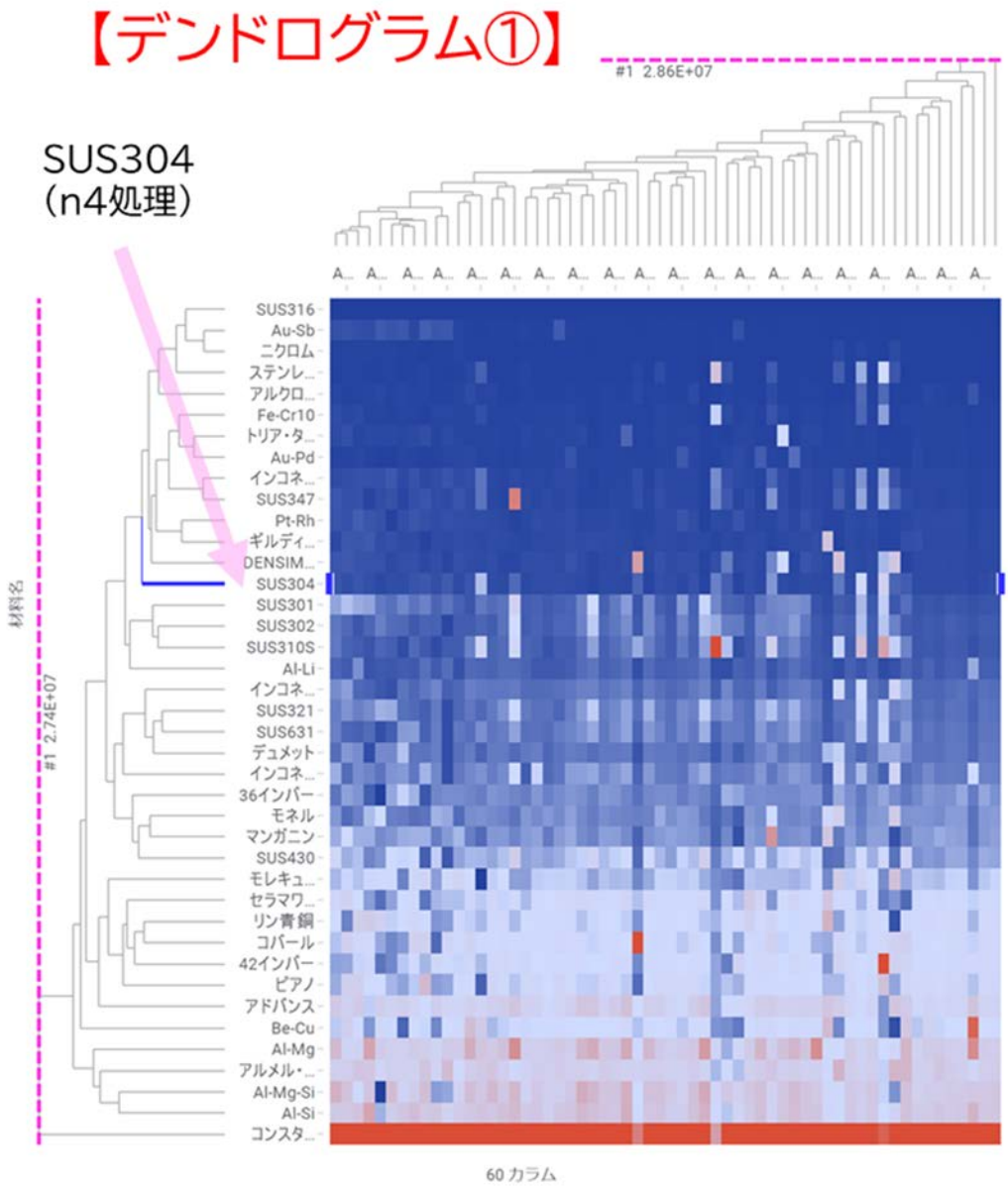


図 3.2-5　デンドログラムによる類似性分類（階層クラスタリング）

抽出液の液性（pH や酸性度）が異なっても、溶出液から材料分類が可能であることがわかった（図 3.2-6（左））。また、液性が中性付近の溶液で溶出した場合でも、材料特定に至る可能性があることがわかった（図 3.2-6（右））。

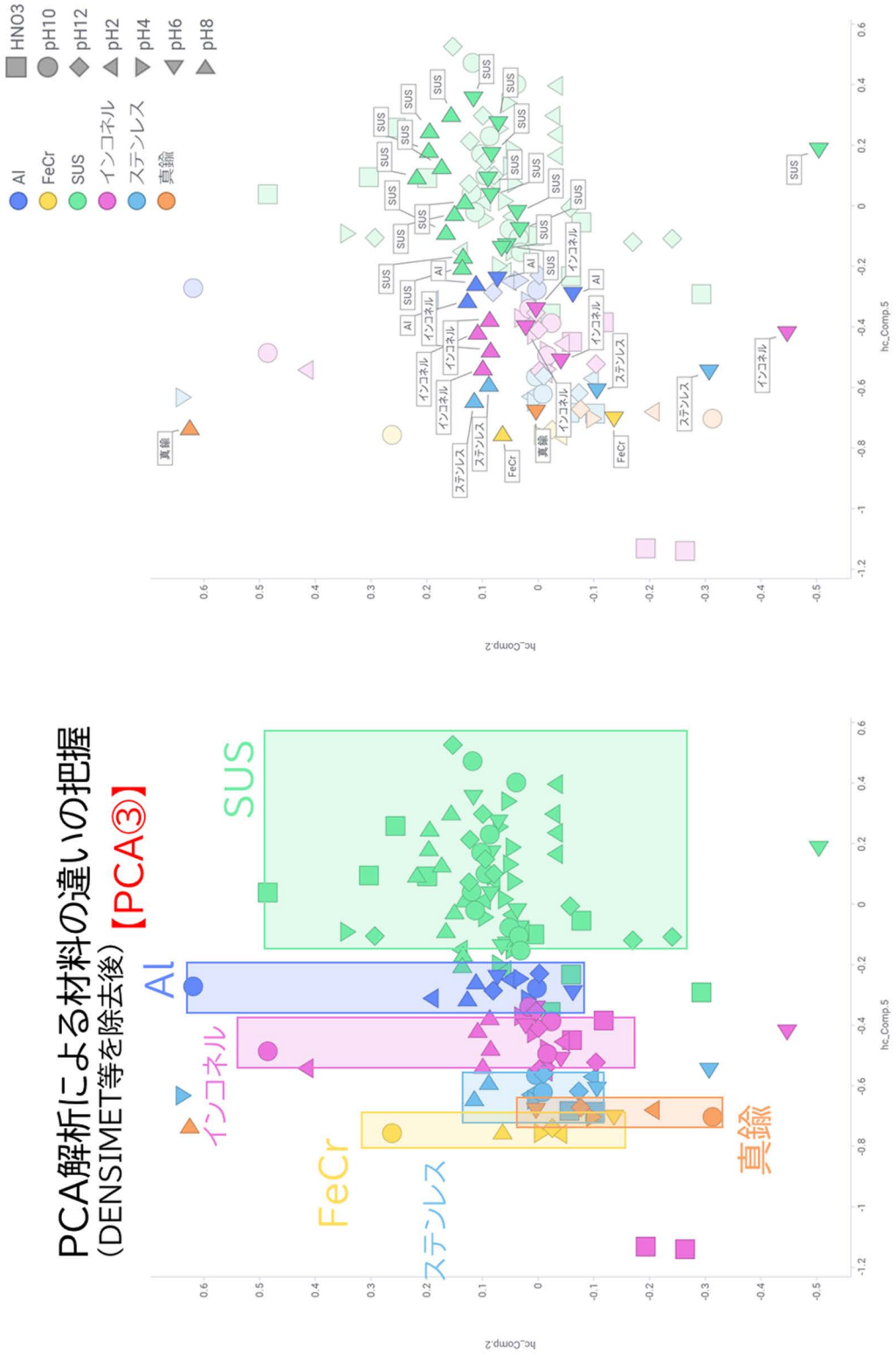


図 3.2-6　液性の違い（pH 2～12、硝酸抽出）による材料分類
左図：Comp.1～Comp.3、右図：Comp.2～Comp.5

次に、LA-ICP-MS 等の各種分析によって得られるデータで、主に PCA 等の解析を用いて局所のプロファイリングができるかの検討を開始した。

まず、模擬サンプルとして標準物質 22 種類の材料（合金および ARCONIC 製の認証標準物質（MicroCRMs）を含む）、表 3.2-2 の分析データを用いて PCA を行い、材料プロファイリングを検討した。このとき使用した ARCONIC 製の標準物質の組成を表 3.2-3 に示す。

表 3.2-2　材料解析に使用した未知濃度の材料（合金）リスト

○ニラコ社　合金	○ARCONIC社　合金
(ID1) DENSIMET#176	(ID1100) MSS-1100
(ID2) SUS301	(ID2055) MSS-2055
(ID3) SUS302	(ID6061) MSS-6061
(ID7) SUS316L	(ID7050) MSS-7050
(ID8) SUS321	(ID7075) MSS-7075
(ID9) SUS347	(ID356) MSS-356
(ID10) SUS430	(ID383) MSS-383
(ID18) ステンレス15-7PH	(ID390) MSS-390
(ID19) ステンレス17-7PH	
(ID12) Al-Mg	
(ID15) インコネル601	
(ID16) インコネル625	
(ID17) インコネルX-750	
(ID20) 真鍮	

表 3.2-3　材料解析に使用した認証標準物質リストと認証元素濃度

CRM No.	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Ti	他
MSS-1100	0.18	0.5	0.15	0.04	0.03	0.08	0.02	不明
MSS-2055	0.02	0.03	3.6	0.28	0.34	0.5	0.03	不明
MSS-6061	0.65	0.35	0.3	0.05	1	0.08	0.04	不明
MSS-7050	0.08	0.15	2.4	0.03	2.3	6.2	0.04	不明
MSS-356	7.1	0.35	0.12	0.05	0.35	0.1	0.12	不明
MSS-383	11	1	2.5	0.35	0.25	2.5	0.08	不明
MSS-390	16.5	0.9	4.5	0.25	0.25	0.5	0.1	不明

【方法】

LA にて上記の標準材料の金属エアロゾルを作製し、ICP-MS にてイオン強度データを取得した。各標準試料は 2 cm 角の大きさにカットした。1 試料あたり 1 mm の走査レーザーを照射し、ICP-MS にて発生したエアロゾル強度を取得した。ICP-MS の条件は、測定モード DRC モード 1.5 mL/min（東京高圧山崎株式会社製の高純度メタン（純度 >99.999%））、滞在時間 30 ms、Rpa＝0、RPq＝0.90 にて実施した。

ARCONIC 製 CRM7 種の PCA プロットを図 3.2-7 に示した。CRM 毎に色分けをしプロットしたところ、概ね CRM によって類似の分布傾向が見られることが確認された。次に、これら各 CRM について 40 箇所の平均値を使い PCA プロットをしたものを図 3.2-8 に示す。

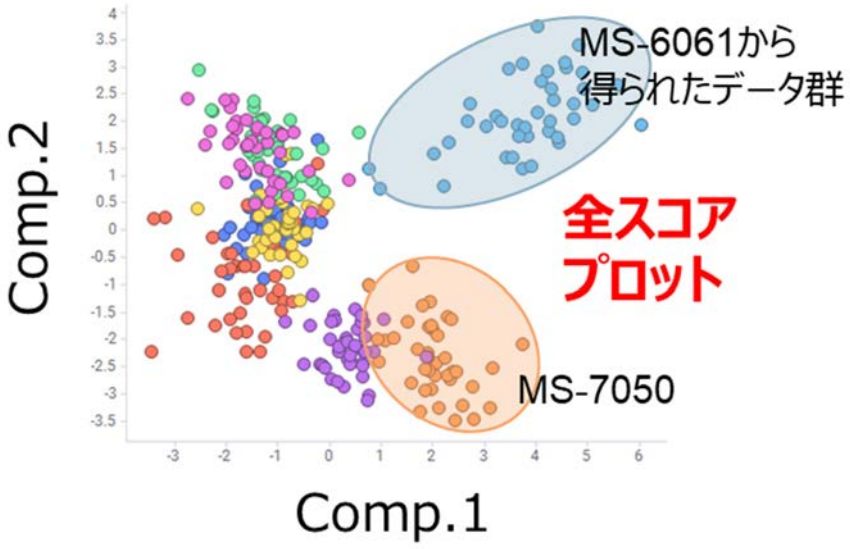


図 3.2-7　ARCONIC 製 CRM7 種、各 40 箇所のデータからの PCA プロット

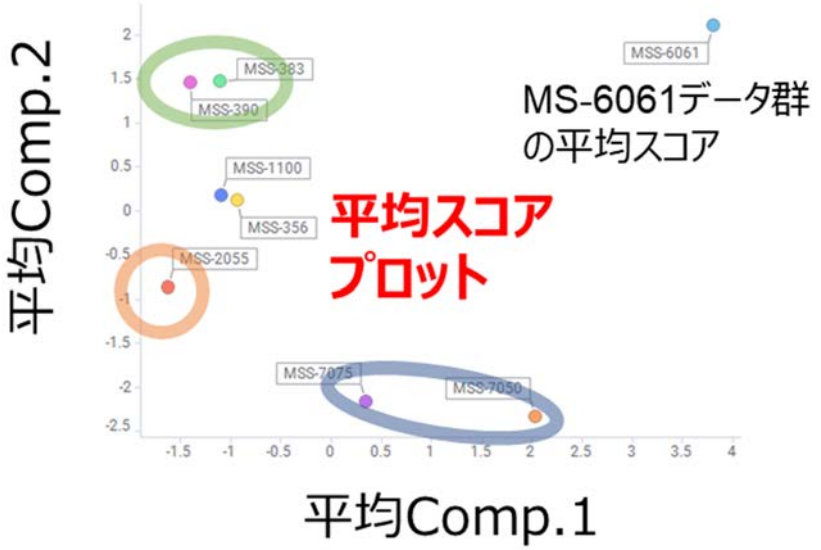


図 3.2-8　各 CRM について 40 箇所の平均値を使った PCA プロット

このように、材料表面から得られる強度データのみで（濃度情報は不明な状態で）、サンプル表面に偏析等があっても多点のデータ群（平均や Median）を用いれば、PCA によって材料表面の材料分類ができる可能性が示唆された。また、この分類傾向について、CRM 認証値だけでの分類傾向（図 3.2-9）と比較すると、概ね類似しており、定量値での分類と、強度情報だけでの分類は、同等の精度になると考えられた。定量が不要であることは、LA-ICP-MS の問題である定量性の担保が難しい状況に遭遇しても利用できる手法となる。しかし、一部、MSS-356 と MSS-1100 といった材料は、強度情報だけだと分離不明瞭である課題は残っており、今後調査を続ける。

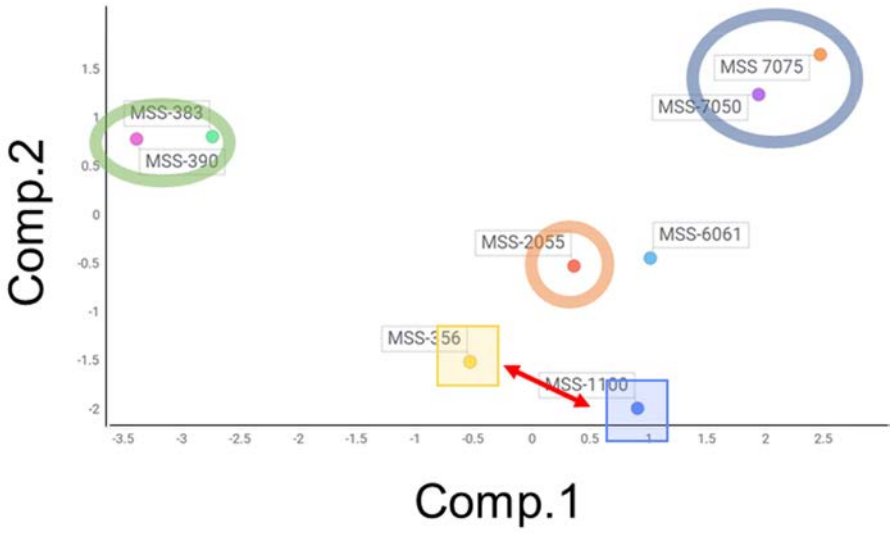


図 3.2-9　ARCONIC 製 CRM 認証値を使った PCA プロット

次に、ARCONIC CRM を含む未知材料群を用い、材料プロファイリングできるかを検証した。図 3.2-11 には強度積層（図 3.2-10 上図）および強度割合（図 3.2-10 下図）の棒グラフ表現を示した。各サンプルによって主成分、構成成分が異なることがわかる。ここでは DENSIMET、SUS、真鍮、その他といった 4 グループ程度の判別は容易である。強度の積層棒グラフを見ると、SUS やインコネル等は他の材料に比べ合計強度が低い。このことは、LA によってエアロゾルが発生しにくかったものと考えられる。材料により最適な LA 設定が異なると考えられるが、組成比として比較することで材料差を特定できる。

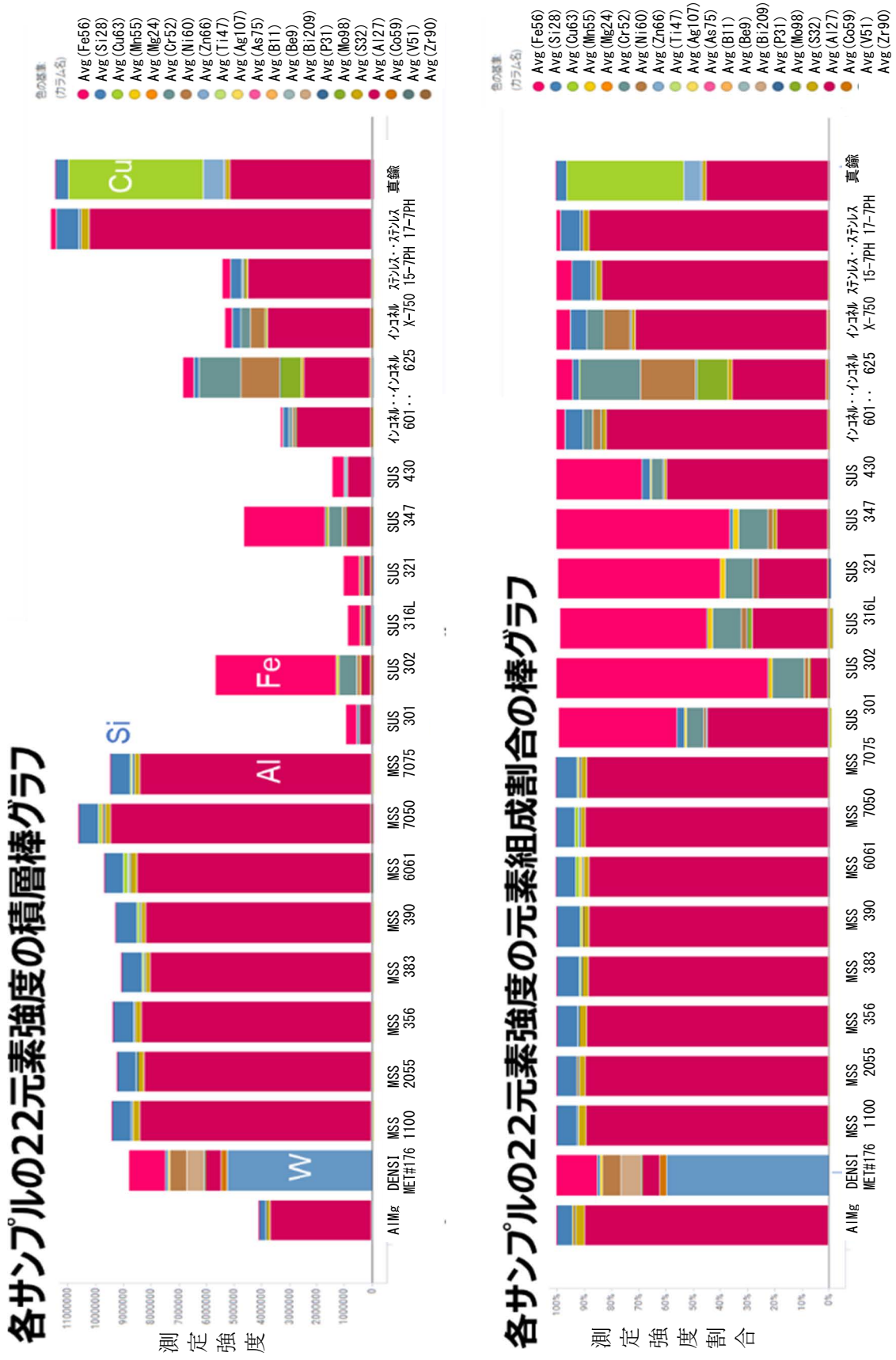


図 3.2-10　各サンプルの測定強度積層（上図）および強度割合（下図）

これらのデータを使い PCA によるプロットを行った。図 3.2-11 には各 PCA スコアによるプロット（図 3.2-11 上図）と各材料の PCA スコアの Median を使った PCA スコアプロット（図 3.2-11 下図）を示した。Al 合金である CRM に、一部のステンレスが類似していると分類されたが、先に示した組成比を見返すことで、CRM と当該ステンレスに Fe 割合で違いが認められるため、別材料であることが判別できた。PCA で大きく分類し、組成比等の別の比較軸を用いることで、材料プロファイリングの精度を上げることができる例であり、今後、どのような解析と連携することが良いか検証を続ける。

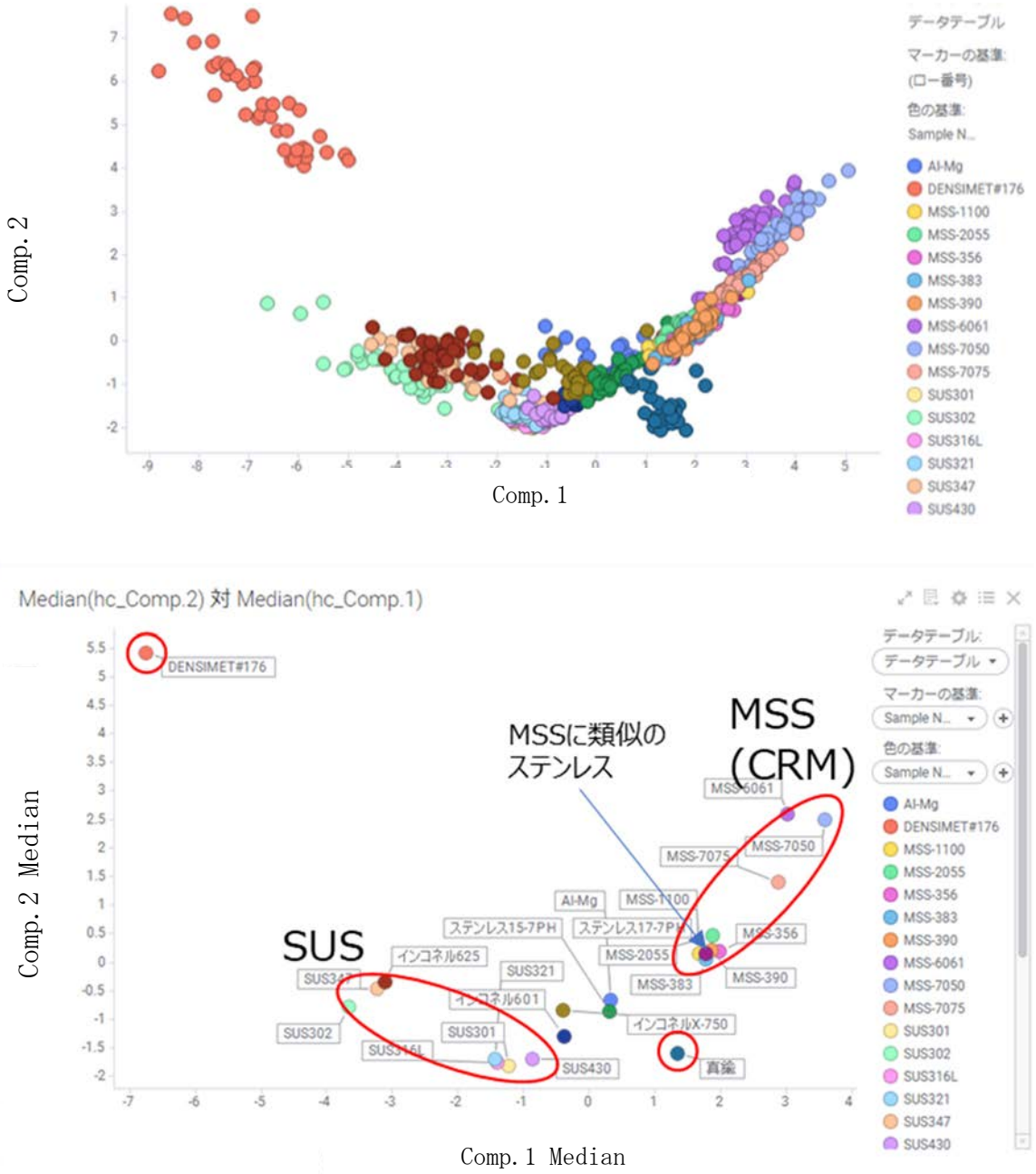


図 3.2-11　各材料データから得られた PCA プロット（上図）と
その Median を用いた PCA プロット（下図）

図 3.2-12 には材料プロファイリング精度を向上させるために、元素組成比、元素相関図、PCA、階層クラスタリングを示した。今後、このように複数の解析手法を連動させることで材料プロファイリングを引き続き行っていく。

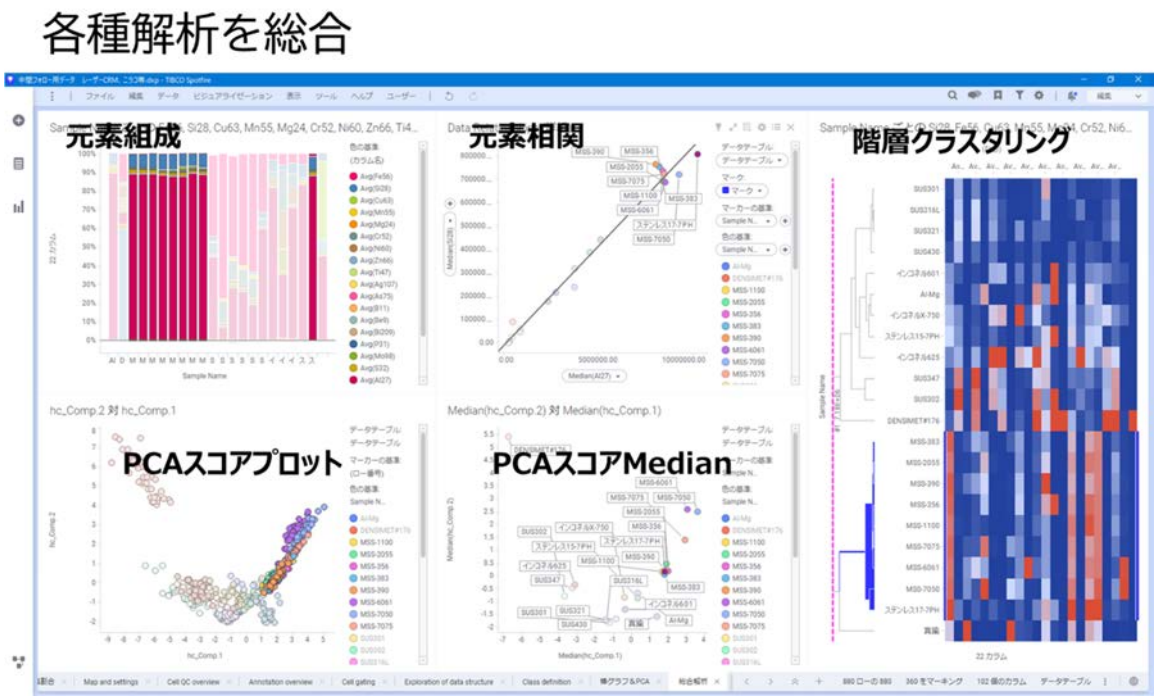


図 3.2-12　材料プロファイリング精度向上を目指した各種解析手法

(4)　まとめ

ICP-MS による安定元素の濃度情報だけではなく、強度だけの情報で材料プロファイリングができるかを検証した。CRM や未知材料データを取り込み、PCA や他の解析手法との連携が材料プロファイリング精度向上に重要であることが確認できた。今後、材料データを増やし、より詳細な検討が必要である。

3.2.2　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発（福島大学）

(1)　背景と目的および令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

放射線源および周囲の遮蔽体の性状が明示的に設定された場合に、放射線検出位置で放射線量およびエネルギースペクトルがどのようになるかについては、現在、放射線輸送計算用モンテカルロシミュレーションを用いて高い精度を持って算出することが可能である。これは設定された原因から結果を導く順問題を扱っているからである。

一方、2011 年（平成 23 年）に起きた 1F の事故以降、環境中の放射線量やエネルギースペクトルを測定し、そのデータから放射性セシウムの飛散濃度が高いいわゆるホットスポットを探して除染を進める作業が進められてきた。この場合、数理モデルを用いたホットスポット探索はほとんど用いられず、サーベイメータを頼りに線量の高いところを探し当てる宝探し的な方法が取られている（図 3.2-13）。これは測定量という結果から線源位置という原因を見つける逆問題を扱わなければならない困難が克服されていないためである。

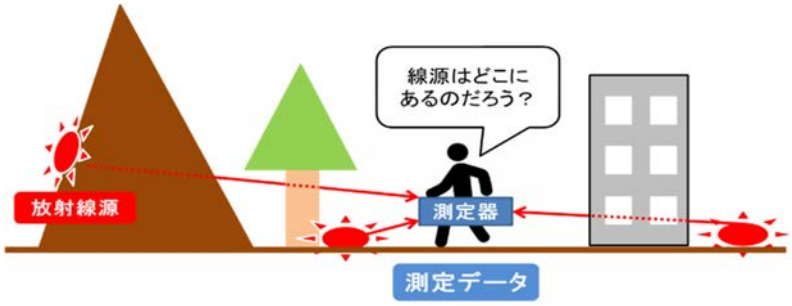


図 3.2-13　測定データから放射線源位置を探すことは難しい

例えばヘリコプターを使った上空からの放射線量測定マップに基づく線源位置の推定について、いくつかの逆問題解法が示されているが、地形等の空間条件や森林・建物等の遮蔽物を加味した現実的な解を得ることはできていない。同様に 1F では廃炉に向けて原子炉内のデブリや瓦礫の状況を知る必要があるが、原子炉外部で測定される放射線特性データから推定することは難しく、現在カメラを搭載したロボットが短時間原子炉内部に投入されることで一部の状況がわかるようになってきたに過ぎない。これも放射線の放出源となっている線源の種類や位置分布が不明な状況で結果である放射線特性データから推定しなければならない逆問題の困難性に起因している。原理的には、線源や遮蔽体の配置等考えられる全ての状況を設定し順問題としてそれぞれ放射線分布特性を算出し、実測データに合う条件を探すことも考えられる。しかし、状況設定があまりにも多様となってしまい、現実的な計算時間内で算出することは不可能である。

ひとつ可能性があるのは、近年盛んにビッグデータ解析に用いられるようになった機械学習の活用である。機械学習では有限ではあるが十分に多くの条件下でのデータから特徴量を抽出し、その原因となるパラメータを解析する試みが進められている。放射線場を想定した際に有利なことは、放射線間の相互作用が小さいために線形的な物理モデルとして機械学習の解析手法を適用することができるところにある。このアイデアを具現化できるか、すなわち、「機械学習のアルゴリズムを用いて、結果である放射線分布特性から原因である線源・遮蔽体の性状を導くことは可能か？」という問いが本研究の出発点にあり、これを廃炉に実際に適用できるレベルに構築し

ていくことが本研究の目的である。

(2) 令和 3 年度実施内容および成果

①放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発

機械学習では「有限ではあるが十分に多くの条件下でのデータから特徴量を抽出」する必要がある。しかし廃炉となる原子炉を対象に様々なデブリや遮蔽体を置き「多様な状況ごとに測定データを取って学習データとする」等ということは不可能である。

そこで、放射線輸送計算用モンテカルロシミュレーションにより順問題として擬似的な測定データを準備することとした。シミュレーションであれば、計算時間に配慮する必要はあるものの特徴量を抽出するだけの多様な状況を設定し、この結果を学習データとして用いることができる可能性が高いからである。通常の機械学習では推定のためのデータ（検証データ）が実験値であれば対応する学習データも実験値を準備するが、十分に精度の高い基礎方程式をもつ物理系の場合、学習データにはシミュレーション結果を適用し、検証データには測定結果を与えることにより、推定が可能になるのではないかと考えた。この点が本研究における独自性である。なお、本研究では輸送計算用モンテカルロシミュレーションコードとして JAEA の開発した PHITS を利用している。

令和 2 年度までに検証した結果の 1 部を用いて、本研究の具体例を示す。基本的なモデルとして、10×10 メッシュに区分された 2 次元面上に配置された放射線源分布を考え、その 1 cm 上部に検出面があるとし、その間に任意形状の遮蔽体が挿入されているとする（図 3.2-14）。様々な配置を想定した放射線源分布から放出されるγ線について PHITS によりシミュレーションを行い、検出面の各メッシュでのγ線エネルギースペクトルを計算し学習データとして用いることができる。放射線源としては 1 つの核種に限らず複数核種を設定することも可能である。これまでに密封線源として扱いやすい、^{137}Cs と ^{60}Co の複合線源を用いて検証を進めている。

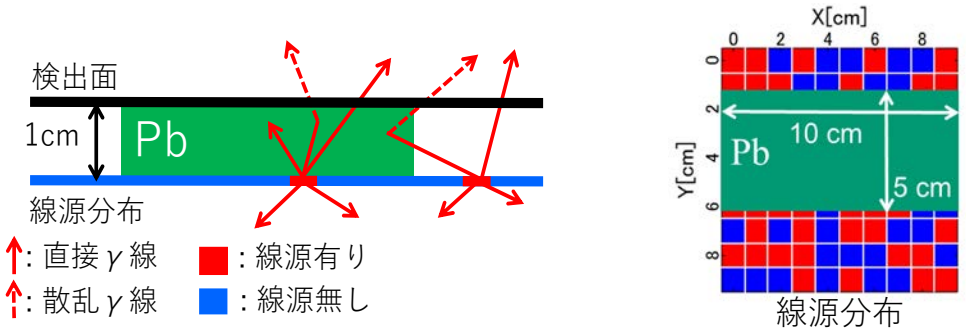


図 3.2-14　これまでの機械学習で用いている 2 次元面モデルの配置図の例

図 3.2-15 はニューラルネットワーク（NN）の概略図を示しており、設定された ^{137}Cs、^{60}Co と鉛の配置（正解データ）を図の右側（Output layer）に置き、検出面の各マス目において PHITS の結果として得られたγ線のエネルギースペクトル情報を左側（Input layer）に入力している。様々な線源分布と遮蔽体位置の組み合わせによって、この教師付き学習データを 1000 パターン作成している。NN の各 layer 間の重みパラメータは 1000 パターンの原因-結果の対応が最も適切になるよう逆誤差伝搬法により決定される。学習後に 1000 パターンに含まれていない検証用データを読み込ませることで、図 3.2-16 のように ^{137}Cs、^{60}Co と鉛の配置がある程度の確度で推定できることを確認している。

ただし、図 3.2-16 で示されたものは 2 次元面のごく小さいモデルであり、実際のサイズの燃料デブリ性状推定に用いるためには、検出面を遠方にした際の推定精度向上や 3 次元モデルへの適用を検討する必要がある。また、燃料デブリに FP や原子炉材料が溶け込んだ複合物質での推定やデブリの臨界性や崩壊熱に関わる燃料密度分布を推定するためのモデルの検討等も求められるところである。

令和 3 年度はこのように実用化にむけての試みを中心に研究を進めてきた。

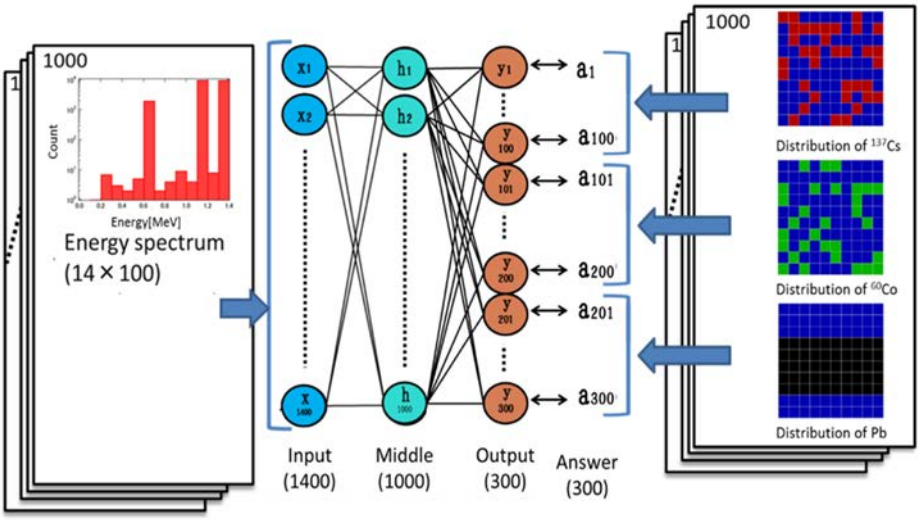


図 3.2-15　ニューラルネットワークによる機械学習プロセスのスキーム

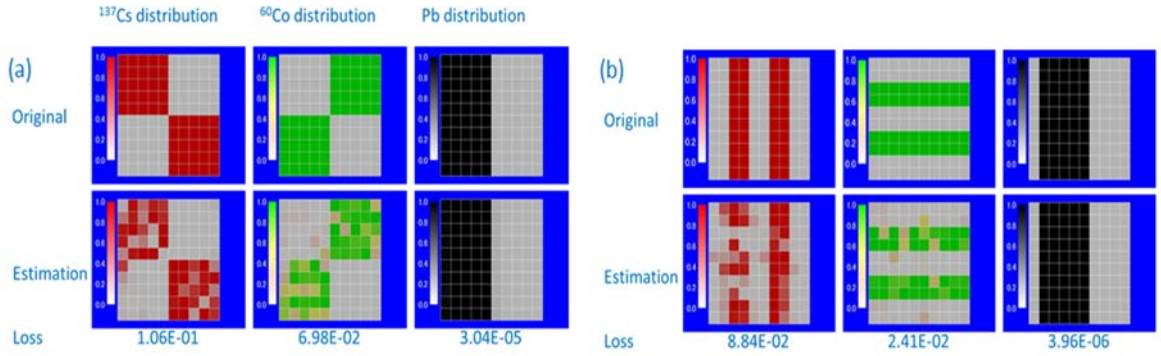


図 3.2-16　検証データによる推定結果

② 異なる距離にある検出面での推定精度

前述した 2 次元モデルにおいて検出面を放射線源から離していった場合に、放射線源分布の推定精度の変化はどのようになるのかを検証した。そのため図 3.2-17 のように ^{137}Cs を配置した同一放射線源分布に対して異なる距離にある検出面を設定し、各検出面における 10×10 メッシュごとのγ線エネルギースペクトルを PHITS により計算してこれを学習データとした。

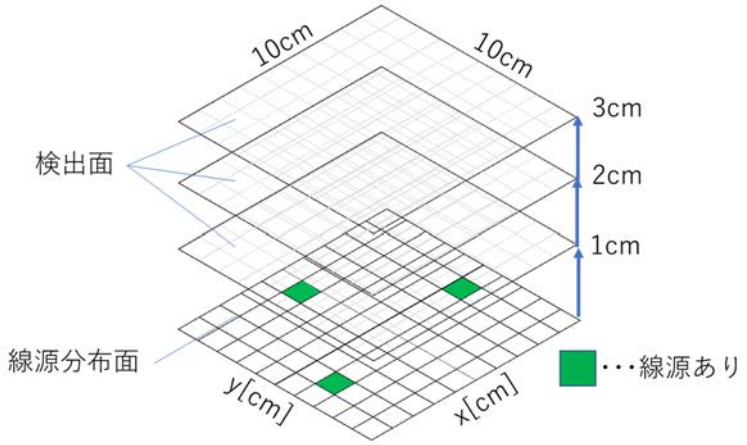


図 3.2-17　線源分布面から異なる距離にある検出面の設定

計算で得られたγ線エネルギースペクトルは 0 keV から 700 keV の区間で 7 分割し簡略化したものを入力層に取り込むようにしている（図 3.2-18）。なお、γ線エネルギースペクトルの積分値は測定場所での線量と等価としている。

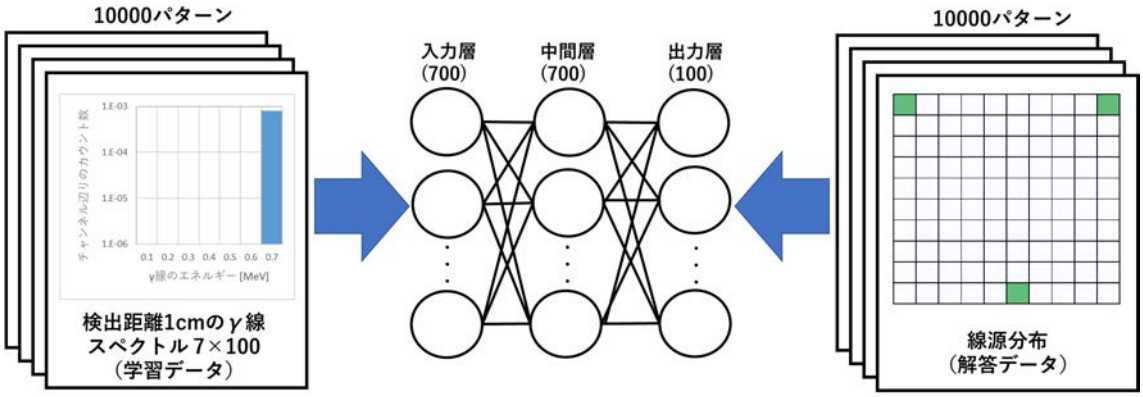


図 3.2-18　異なる距離ごとの検出面上スペクトルを学習データに用いたアルゴリズム（遮蔽体なし）

まず遮蔽体がない場合のモデルの結果を説明する。図 3.2-18 のアルゴリズムにより充分学習させた後に学習データとして用いていない線源分布を与えて、検出距離ごとの推定結果を検証した結果が図 3.2-19 である。上から順に検出距離が 1 cm、2 cm、3 cm としている。入力データとして用いたものはメッシュごとのγ線エネルギースペクトルであるが、図 3.2-19 左列では比較しやすいようにエネルギースペクトルを積分した線量値として表示した。検出距離が離れるほど左列の線量分布はぼやけるが、推定結果（右列）を見るとどれも解答データ（中列）をよく再現していることがわかる。

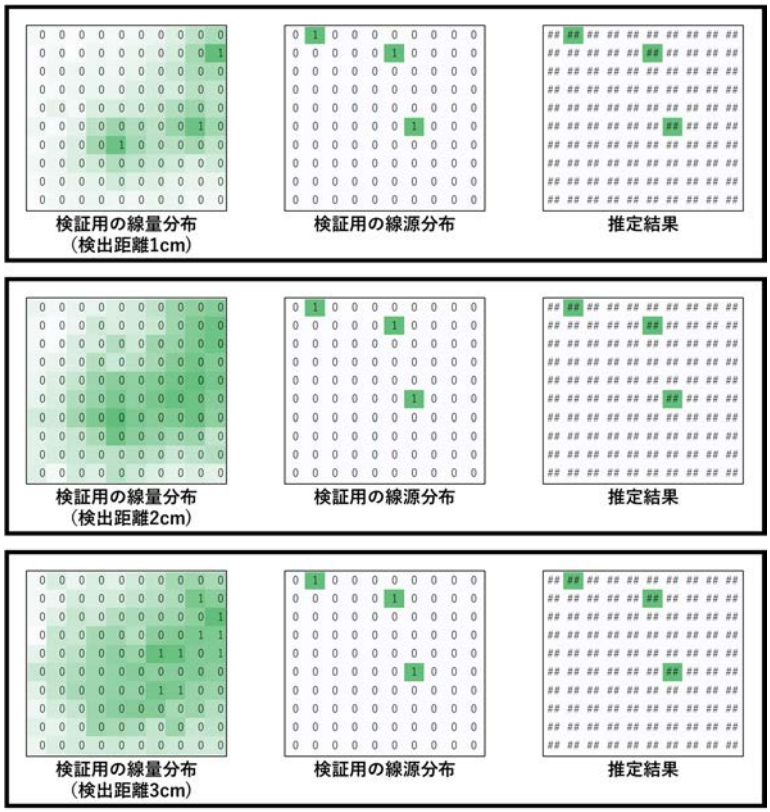


図 3.2-19　各検出距離における検証用の線量分布および推定結果

一方で遮蔽体を挟んだモデルの場合にはアルゴリズムとしては図 3.2-20 のように解答データに遮蔽体位置を含むため出力層を 200 ノードとして学習させている。なおここでの遮蔽体は Pb としている。

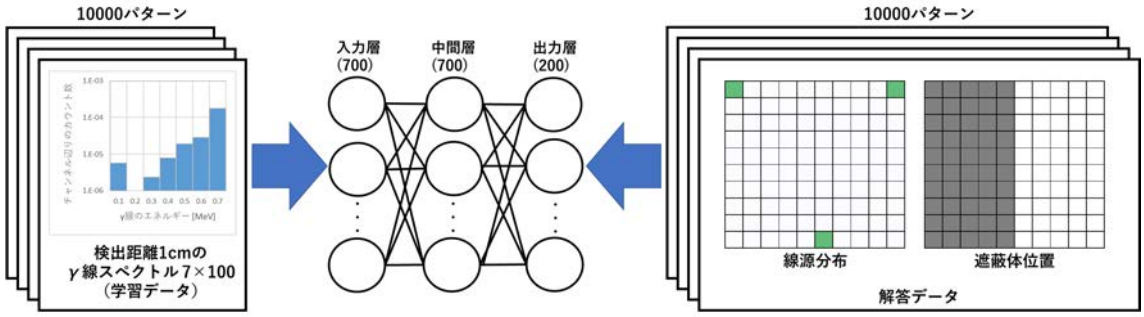


図 3.2-20　異なる距離ごとの検出面上スペクトルを学習データに用いたアルゴリズム
（遮蔽体あり）

遮蔽体が挿入されている場合には、図 3.2-21 に示されるように、2 cm までは解答通りの推定結果を与えるが、3 cm 離れると本来放射線源が存在していない位置に偽の推定結果を与えることがある。検出距離や遮蔽体がどのような配置の場合に偽の放射線源位置を与えるのかについては、引き続き検証中である。ただし、遮蔽体の位置については、距離が離れたものでも充分推定できている。そのため、この遮蔽体を U に設定すると、^{137}Cs 等の FP が放つγ線がちょうど光源とな

って U を含んだ燃料デブリを影絵のように照らし出せる可能性がある。例えば、図 3.2-22 は中央に ^{137}Cs が集まっている横に U が置かれた配置での推定結果を与えているが、U のサイズが小さくても左下に存在している様子がわかる。遮蔽体として配置した U のサイズと個数を変化させ U 間の距離を制御し、現実的な臨界性の有無および崩壊熱等への影響を検討した。その結果、U 分布の推定は、U 間の平均距離が短くなる、すなわち密度が大きくなるほど精度が上がり、本手法は安全確保のために有利な検証方法であることが示唆された。

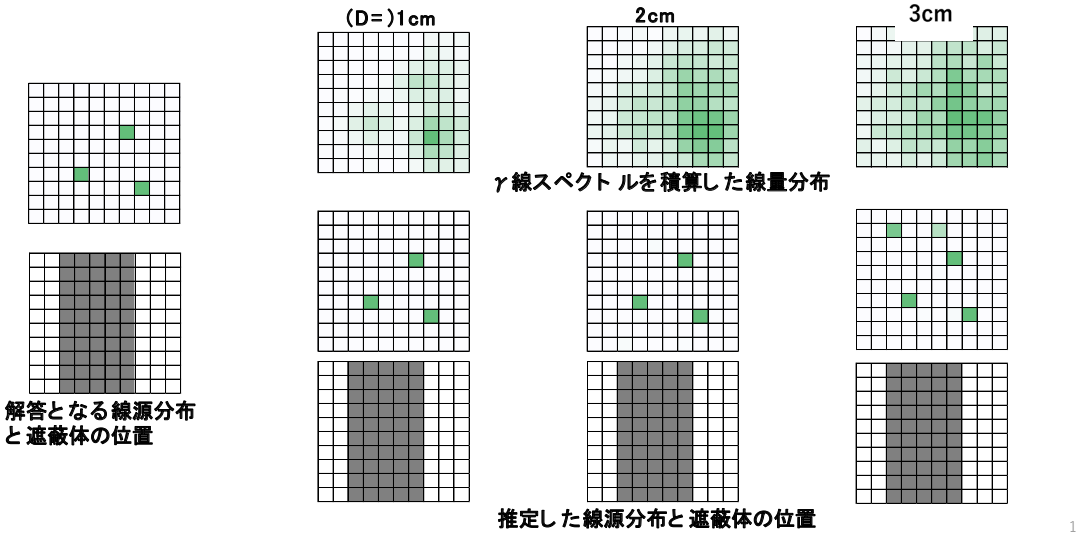


図 3.2-21　遮蔽体が挿入された場合の各検出距離における線量分布、線源分布および推定結果

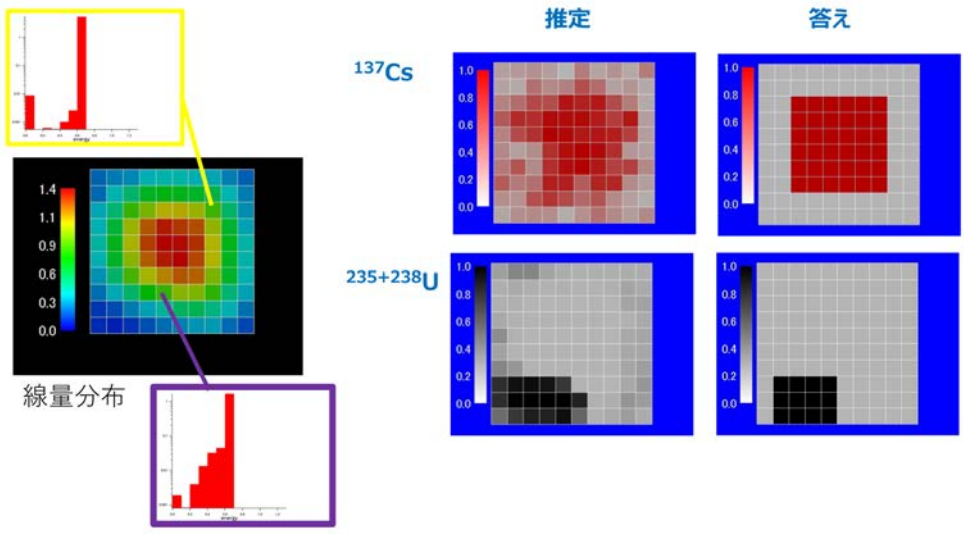


図 3.2-22　遮蔽体として U を設定した場合の推定結果

なお、遮蔽体を原子炉材料にも含まれる Fe にした場合には Pb よりも密度が小さいため、より遠い検出面でも推定精度が落ちないと考えられる。そのため、原子炉材料が一部燃料デブリに溶け込んだ想定での推定モデルを検証する価値がある。

③　3 次元配置での推定精度

前述までは放射線源は 2 次元の単一平面に配置されたモデルを用いていたが、③では 3 次元に分散した放射線源の推定について述べる。3 次元モデルを対象とすることは実際の廃炉に適用するためにはどうしても必要なステップである。ここでは図 3.2-23（左）のように 5×5×5 のメッシュに区切られた立方体中に、図 3.2-23（中）のように様々な配置で放射線源が分散した場合にそこから放出されるγ線を、立方体の周囲を取り囲む 6 つの平面にて検出するとした場合の推定精度を考える。ただし、今回はまだ遮蔽体を考えていないモデルとしている。なお、検出面は図 3.2-23（右）のように立方体表面（5×5 メッシュが 6 面）、表面から 1 cm 離れた位置での 7×7 メッシュが 6 面および表面から 2 cm 離れた位置での 9×9 メッシュの 6 面の 3 種類を想定する。各検出面でのメッシュ数 150、294、486 をそれぞれ入力ノード数としたニューラルネットワークを組み学習させた。また、単一距離にある検出面だけでなく 7×7 メッシュ検出面と 9×9 メッシュ検出面の両方を合わせて学習させるニューラルネットワーク（この場合の入力データは 294＋486＝780）等も試行してみた。以下では 5×5 メッシュの検出面を 55 のように略記する。

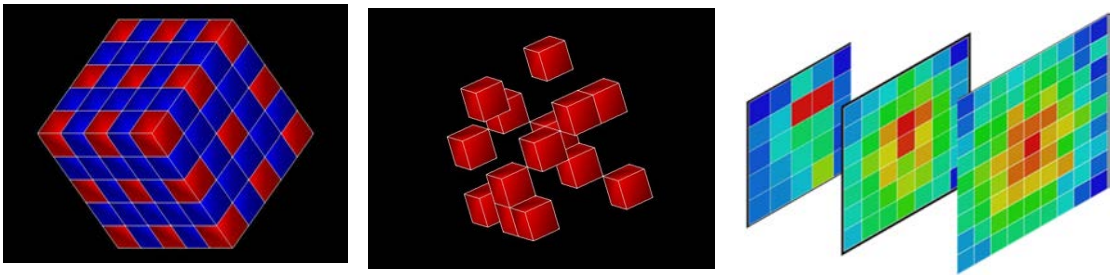


図 3.2-23　3 次元配置モデル

図 3.2-24 は、各検出面による誤差関数の減少動向を示したグラフである。放射線源配置領域に最も近い検出面 55 は計算開始後すぐに誤差が下がるが、その後下げ止まりが見られる。検出面 77 は 55 に比べてゆっくり誤差が低下するが下げ止まる値は同程度である。ところが 55&77 や 77&99 の 2 種類の検出面を合成した場合には、最終的に 55 単独よりも遥かに低い誤差に到達する。しかも単独面では、55 より推定精度の低い 77、99 を組み合わせることでも 55 の精度を超えることが可能である。これは、3 次元モデルの場合には、離れた位置で検出する際に異なる 2 面でのγ線データを活用する価値が高いことを示唆しているといえるだろう。おそらく 2 面を設定することで、γ線の移動方向というベクトルデータが新しい情報を与えているものと思われる。

各検出面からの学習を充分に行った後に、学習データにない検証用データを与えて推定させた結果が図 3.2-25 である。立方体の表面に近い放射線源はいずれの検出面でも推定できているが、検出面から距離の遠い中央部に置かれた放射線源は推定精度が低くなっており、より精度を向上させる手法を検討している。

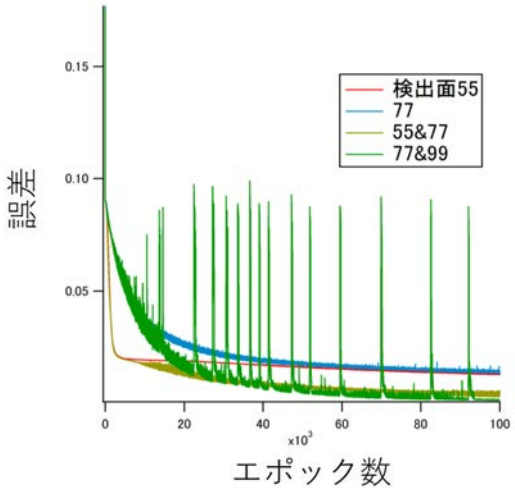
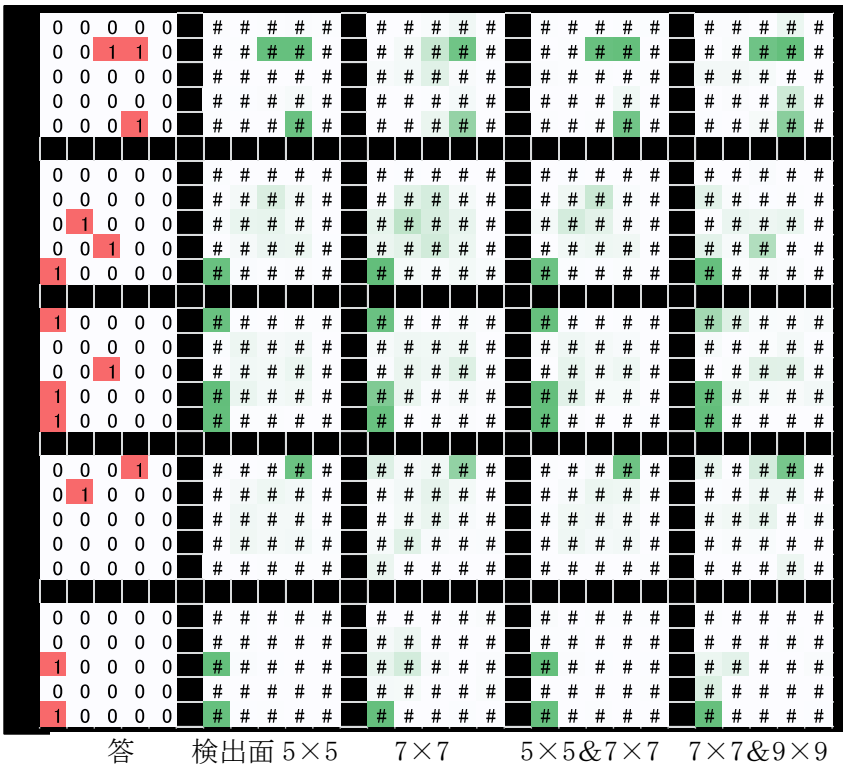


図 3.2-24　各検出面の学習データを用いた場合の誤差関数



最上段が立方体の最上面、最下段が立方体の最下面を表す

図 3.2-25　5×5×5 の領域に分散した放射線源（左列）と各検出面からの推定

(3)　まとめ

令和 3 年度までに本研究の骨格となる推定手法について基本的な検証を進めることができた。令和 4 年度からはサイズや形状、材料の種類等より現場に近い条件を設定して実用化を目指していく。

3.2.3 撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発（福島大学）

(1) 背景と目的

原子炉格納容器内部のデブリの性状把握は、放射線源が非常に近く密閉空間であり、かつ、部材等の構成要素が予めわかっている等の環境条件から、目視、シミュレーション、化学計測等からの接近を可能としている。また、デブリ等に付着する成分ならびに浮遊する微粒子等を特定する工程は、裁判による事実認定プロセスとの類似性が見て取れる。つまり、不完全な証拠を積み上げることによって、事実の蓋然性を高めていくプロセスといえる。

1. 化学分析によって得られる種々の証拠
2. 物理シミュレーションによって得られる種々の証拠
3. カメラ画像から得られる種々の証拠

等の証拠を積み上げ・結合することによって、対象となるデブリ等に関して推定される状況の蓋然性を、高めていくことである。本研究では、これらのマルチチャンネルから得られる情報・データに加え、専門技術者の経験や勘を統合した AI システムによって、デブリ等の性状把握・脆性判断を行うことを目指す。研究計画に従い、令和 2 年度では、主にどのようなデータが存在するかを調査するとともに、それらのデータの入手ならびに検証を行った。その上で、令和 3 年度以降の研究に向けての開発環境の整備を行った。令和 3 年度では、令和 2 年度に引き続き、東京電力等の専門家と議論の場を持ち、提供を受けた 2 号機 PCV の内部調査動画（以下、「PCV 内動画」と略す。）中の落下物や堆積物に関する目視判別等の方向性に関する確認を受けた。また、専門家の目視判断やデータ分析の自動化を目的として、以下のような研究を行った。上記 3 に関連して、東京電力より提供を受けた 2 号機の PCV 内動画中の落下物や堆積物の物体識別（目視判断）AI のプロトタイプの実装を行った。さらに、PCV 内動画からの立体地図作成に向けて、動画中の複数のフレームをつなぎ合わせて広域画像を作成するモジュールの作成を開始した。上記 1 に関連して、未知試料の LIBS スペクトルデータから、化合物種を推定する AI システムのプロトタイプを構築した。

(2) 令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

- 東京電力等の専門家・技師と議論の場を持ち、実際に撮影された格納容器内の画像を検証し、今後の撮影対象・方法について留意すべき点を検討した。
- 令和元年度の議論・検討を踏まえ、令和 2 年度は撮影画像中の変質や注目対象に対して部位の推定・ラベル付けを行うシステムのプロトタイプの開発を開始し、落下物や堆積物の物体認識の学習・検証を進めた。
- 様々なカメラからの情報を統合して、格納容器の内部およびその周辺の立体地図の作成手法の開発に向けた議論・検討を開始し、動画からの広域画像生成を進めた。
- 格納容器の内部およびその周辺の立体地図上に、各種（位置情報・放射線量・部材名等）の空間データを埋め込む際のデータ構造に関する議論・検討を開始した。
- 化学計測データに対して、機械学習的な data mining 手法の適用可能性について議論・検討を開始し、LIBS スペクトルからの未知試料同定のシステム開発を進めた。

以上のように令和 2 年度では、主にどのようなデータが存在するかを調査するとともに、それらのデータの入手ならびに検証を行った。その上で、令和 3 年度以降の研究に向けての開発環境の整備を行った。

(3) 令和 3 年度実施内容および成果

① 格納容器内の画像（動画・静止画）の検証と検討

実際に撮影された格納容器内の画像（動画・静止画）には、非常に多くの 1）冗長部分（長時間のビデオカメラの静止等）、2）ピンボケ等の撮影不良部分が存在することが確認された。また、特定の器具等の長時間の映り込み等も確認された。これらの画像の検証を通して、今後の撮影および撮影画像・対象物の分析ついて留意すべき点を検討した。

② 格納容器の内部の堆積物・落下物の物体認識システムのプロトタイプの実装

デブリ等の性状の分析が進み、専門家によって、目視による堆積物等の性状判断・推測が可能となった場合、PCV 内動画等により、PCV 内各所における状態把握が可能となる。しかしながら、調査動画は、非常に長時間にわたる（例えば、実際の 2 号機の PCV 内動画は 8 時間超のものもある）ものであり、専門家が、動画を視聴しながら、逐次、堆積物を発見・判断・推測を行うことは、現実的ではない。この一連の作業を専門家に代わって、自動処理を行うことを目的として、以下のような、落下物・堆積物の物体識別 AI のプロトタイプを実装した。

令和 3 年 3 月開催の第 6 回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンスにおける倉田正輝氏（JAEA）によるデブリの概況に関する招待講演におけるデブリ等のクラス分けを参考に、落下物・堆積物を 5 クラス（堆積物 3 クラス、落下物 2 クラス）に分類した。2 号機 PCV 内動画より、それぞれのクラスに対応する画像を 60 画像ずつ（60 画像×5 クラス＝300 画像）をクロップした。これらのうち、50 画像を訓練用画像、10 画像を検証用画像とした。

物体認識モデルは、VGG16 へ、バッチ正規化層、ドロップアウト層、全結合層（256 ユニット、シグモイド関数）、バッチ正規化層、ドロップアウト層、全結合層（256 ユニット、シグモイド関数）の 6 層を追加した転移学習により作成した。ただし、出力層は、ソフトマックス活性化関数を用いた全結合層とし、訓練用画像は Keras 製の ImageDataGenerator によってデータ拡張を行っている。モデルの訓練時（training）と検証時（validation）の正解率（accuracy）の推移を図 3.2-26 に示す。epoch 数が 50 を超えたあたりから、検証用データにおいても、正解率が 80 %程度を維持しており、プロトタイプとしては、概ね良好な結果を得たといえる。

また、検証用画像に対する識別出力結果に対しては、グレーチングであると判定しているが、付着物の特徴より半溶融燃料が次点となっていることが見て取れる。

プロトタイプでは、検証用画像として、動画よりクロップした画像を用いたが、今後は動画中より自動的に対象物の発見・識別を行うモデルを作成する必要がある。

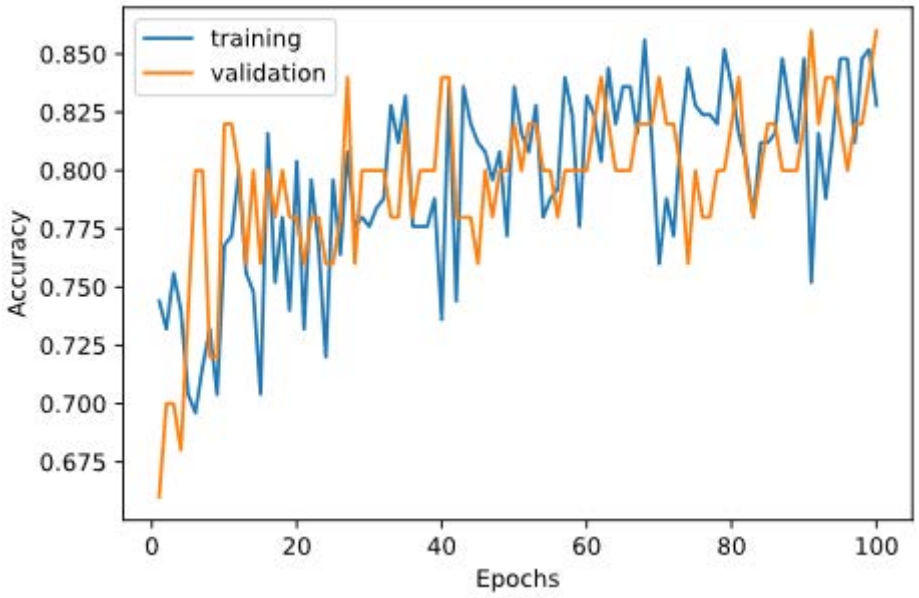


図 3.2-26　モデルの正解率の推移

③　格納容器の内部の立体地図の作成に向けての検討

様々なカメラを通して得られる情報を統合して、格納容器の内部およびその周辺の立体地図を作成することができれば、地図上に様々な情報を搭載することができる。また、情報の搭載に関しては、地図情報としてデータを埋め込むべきなのか、情報を得るためのモジュールを搭載した立体地図とすべきなのか等の検討を行った。加えて、以下のような、動画中の複数のフレームをつなぎ合わせて広域画像を作成するモジュールの作成を開始した。まず、動画中のフレーム毎の SIFT 特徴点を検出し、その個数をカウントする。これを、2 号機 PCV 内動画（前処理済）に適用し、時系列に沿ってプロットしたグラフを図 3.2-27 に示す。このとき、カメラの移動速度とグラフの傾きの間に強い相関があることが、動画の視聴を通して確認できた。例えば、図 3.2-27 の A 領域では、静止画に近い状態、領域 B では、映像が大きく変化していた。

次に、カメラの動き（動画中の画面の変化）を考慮し、動画中のフレームを複数枚抽出する。これらのフレーム（画像）に image stitching の手法を適用することにより、広域画像を生成した。今後は、複眼のカメラを利用することにより、奥行き情報を持った広域画像を生成することを必要である。

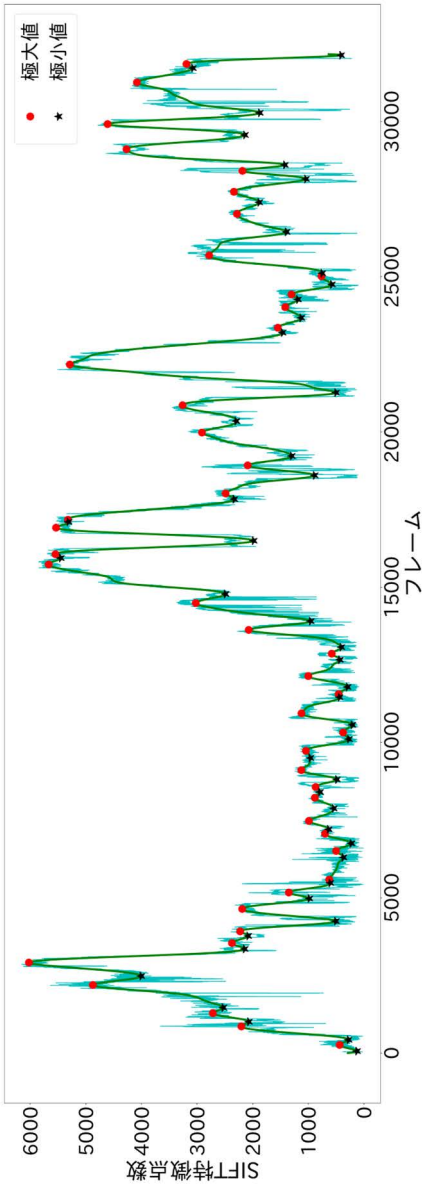


図 3. 2-27　動画中の SIFT 特徴点数の推移

④　化学計測データに対する機械学習的なアプローチの検討

3.1.2 項多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）の開発（11 ページ～）において研究が進められている LIBS スペクトルデータの分析においては、1）バックグラウンド（ベースライン）補正と 2）シグナルピークサーチにおいて、非常に高いスキルと時間的コストを要する。この一連の作業を専門家に代わって、自動処理を行うことを目的として、以下のような、未知試料の化合物同定システムのプロトタイプを実装した。

1）　バックグラウンド（ベースライン）補正

LIBS 計測機では、広範な波長域において同時計測するため、複数の分光器が搭載されている。また、分光器毎に、そのバックグラウンドが異なる（図 3.2-28（A））。本研究では、バックグラウンドの推定に、機械学習の手法の 1 つである罰則項付き非対称最小 2 乗法を利用した回帰曲線を利用した。その回帰曲線（バックグラウンド）を図 3.2-28（A）、その拡大図を図 3.2-28（B）の赤色の曲線で示す。また、図 3.2-28（A）の LIBS スペクトルより、推定されたバックグラウンドを除去した（バックグラウンド補正を施した）スペクトルを図 3.2-28（C）に示す。

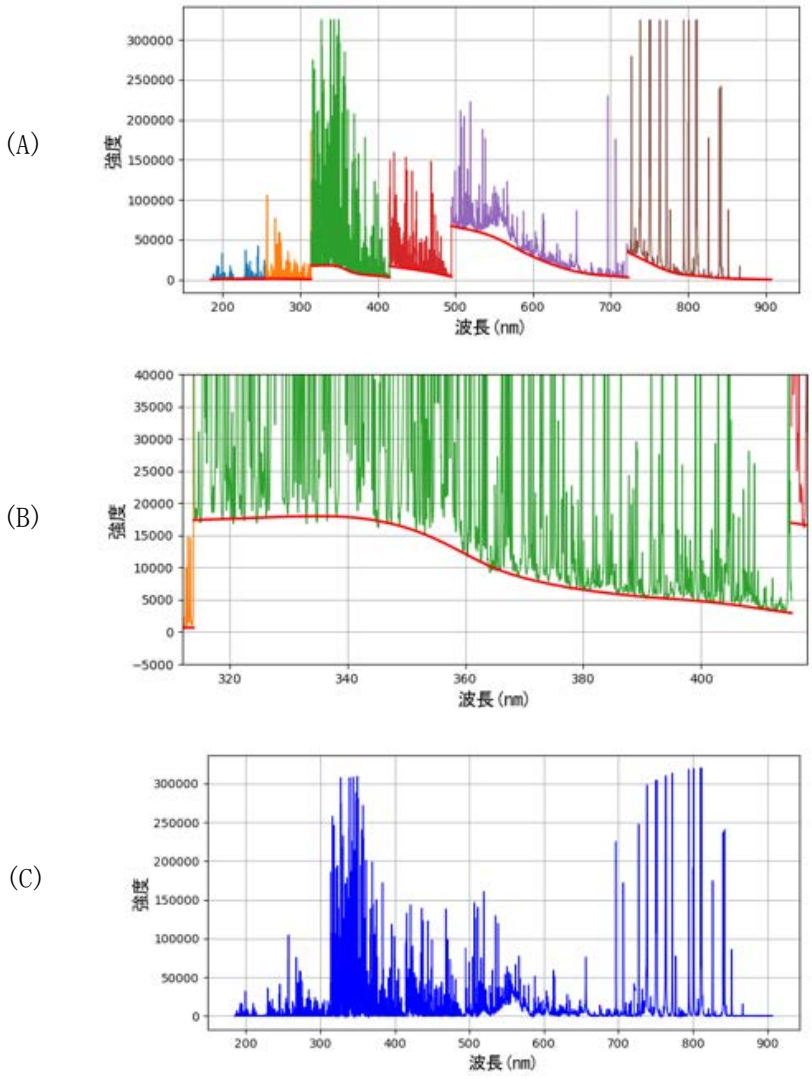


図 3.2-28　LIBS スペクトルのバックグラウンド補正

2)　未知試料の化合物同定

通常の未知試料の同定においては、スペクトルのピークサーチを行い、NIMS 等のデータベース上の単体元素の LIBS スペクトルデータと比較しながら、未知試料の組成を推定・同定している。本研究では、ピークサーチを行うことなく全波長におけるスペクトルデータを利用した未知試料の同定システムのプロトタイプを実装した。本プロトタイプでは、4 種類のホウ化物（ZrB_2、NiB_2、FeB_2、CrB_2）の識別・同定を目的とした。

はじめに、標準試料として、4 種類のホウ化物、それぞれについて、37 点（37 点×4 化合物＝148 点）の LIBS スペクトルデータ（波長次元数＝11562）を準備し、これらのデータを非負値行列因子分解（NMF）により、5 つの因子に分解した。5 つとした理由は、スペクトルデータの差異に影響を与える要因として、Zr、Ni、Fe、Cr、および雰囲気の 5 つを想定したからである。導出された 5 つの因子を図 3.2-29 に示す。これらの因子を用いて、11562 次元の LIBS スペクトルを、5 次元の因子スコアベクトルに変換する。

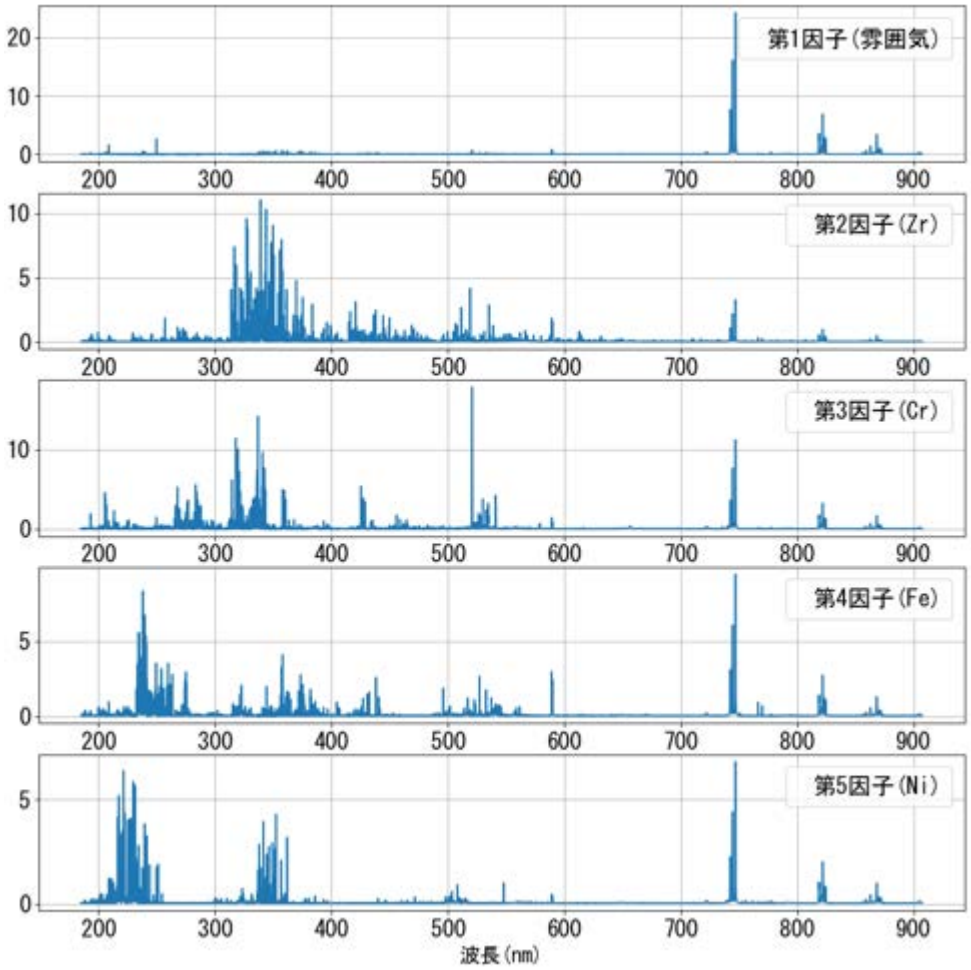


図 3.2-29　NMF により導出された 5 因子

次に、148 点の各 LIBS スペクトルデータに対応する（因子スコアベクトル、化合物名）を、訓練データとして、機械学習の手法の 1 つである決定木を用いて、4 種類のホウ化物の分類器を構築した（図 3.2-30）。訓練データにおける分類精度は 100%であった。また、図 3.2-31 に、それぞれの因子スコアベクトルを 2 次元プロットしたグラフを示す。これにより、分類木の最初の分岐で CrB_2 が、第 2 分岐で ZrB_2 が分類・同定できることが見て取れる。

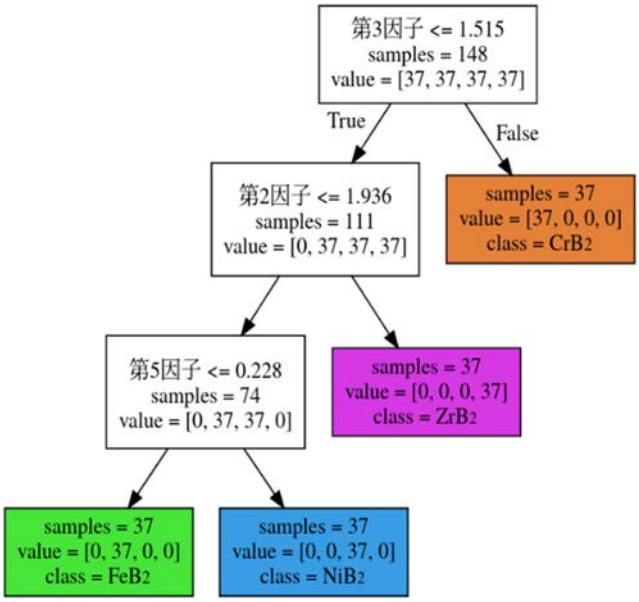


図 3.2-30　ホウ化物分類の決定木

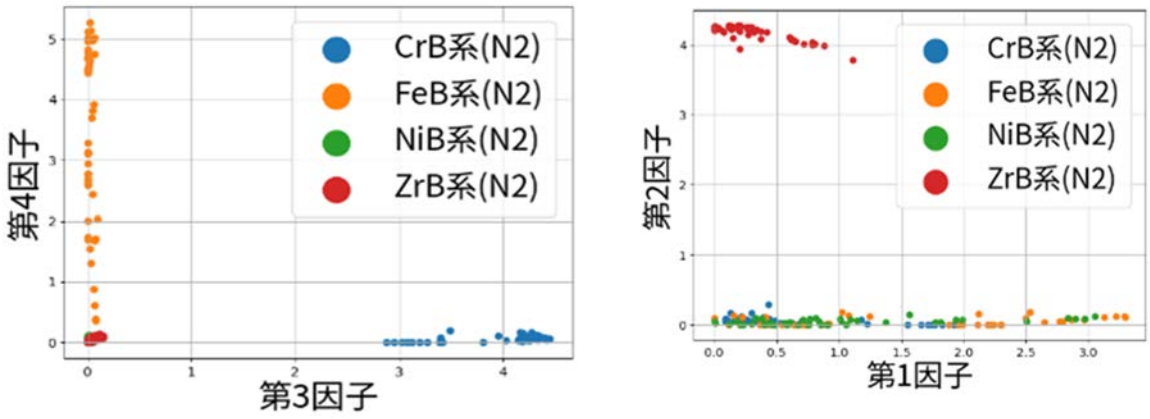


図 3.2-31　因子スコアの散布図

上記において構築した 4 種類のホウ化物の分類器の精度検証を行った。ここでは、4 つのホウ化物から、それぞれ 8 点の LIBS スペクトルを取得し、上記のバックグラウンド補正を行い、上記で導出した 5 因子を通して、5 次元の因子スコアベクトルに変換し、上記で作成した分類木を用いて分類した。精度検証においても 100%の精度でホウ化物種の同定が行えた。

今後は、同定できる化合物種を増やしていくことと、化合物の組成比の同定を行えるようにする必要がある。

(4) まとめ

以上のように、令和 3 年度は、①東京電力との情報交換、②PCV 内の落下物、堆積物の物体認識システムのプロトタイプの実装、③PCV 内の立体地図作成への検討と動画からの広域画像の作成モジュールの試作、④LIBS スペクトルデータからの未知試料同定システムのプロトタイプの実装を行った。いずれにおいても、令和 4 年度以降の研究計画に沿って研究を進めるにあたって、肯定的な結果を得ることができた。

3.3　人材育成

3.3.1　令和 2 年度までの実施内容および成果（概要）

・連携ラボ（大学等）および連携ラボ（JAEA）において、JAEA 研究者と実質的なタイアップ研究を実施するために全体会議を実施し、状況等を協議した。
・JAEA（三春）を主拠点としてクロアポ教員および特研生の受入れ対応について議論した。
・研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、学生の基礎教育等に協力した。
・学生に国内外の学会等における発表の機会を与え、また、教育プログラムを利用して教育の機会を与えた。

3.3.2　令和 3 年度実施内容および成果

(1)　全体会議の実施

連携ラボ（大学等）および連携ラボ（JAEA）において、JAEA研究者と実質的なタイアップ研究を実施するために、全体会議を令和3年12月23日に対面会議ならびにWeb会議によるハイブリッド方式で実施した（表3.3-1参照）。

令和3年度の業務計画の確認、中間評価、中間フォロー、令和4年度業務計画等について協議を行った。

表3.3-1　全体会議出席者

No	区分	機関（学校・団体・機関等）名称	氏名	参加方法
1	代表機関	国立大学法人福島大学	高貝慶隆	福島大学
2	代表機関	国立大学法人福島大学	山口克彦	福島大学
3	代表機関	国立大学法人福島大学	藤本勝成	福島大学
4	代表機関	国立大学法人福島大学	高瀬つぎ子	WEB
5	再委託	株式会社パーキンエルマージャパン	古川　真	WEB
6	再委託	株式会社化研	川上智彦	福島大学
7	再委託	株式会社化研	岡崎航大	WEB
8	再委託	株式会社化研	長山咲子	WEB
9	JAEA三春	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	飯島和毅	WEB
10	JAEA三春	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	藤原健壮	福島大学
11	JAEA三春	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	寺島元基	福島大学
12	JAEA三春	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	松枝　誠	福島大学
13	JAEA三春	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	中川太一	福島大学
14	JAEA富岡	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	奥村啓介	WEB
15	JAEA富岡	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	寺島顕一	福島大学
16	JAEA大洗研	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	阿部雄太	WEB
17	事務局	国立大学法人福島大学	齊藤　裕	福島大学

(2)　連携ラボ（JAEA）における教育について

①　クロアポ教員および特研生について

福島大学はクロアポ教員1名、博士研究員1名、特研生2名（内訳：博士前期課程2名）を送り出し、JAEAは連携ラボとして受入れを行った。学生の常駐ならびに受入れについては、福島大学およびJAEA（三春）とで高い頻度（少なくとも月1回以上）で連絡を取り合い、密に対話を実施した。加えて、新型コロナウイルス感染症（COVID-19）の影響もあり、大学およびJAEAにおける管理体制、危機管理における指示系統の確認、遠隔講義等の教務関係等の詳細を確認した。

②　JAEA職員による教育

JAEA職員が実施した教育（図3.3-1）により、「理工学セミナーⅠ（2単位）」、「理工学セミナーⅡ（2単位）」、「理工学セミナーⅢ（2単位）」、「地域実践研究Ⅰ（2単位）」、「理工学セミナーⅡ（2単位）」の計10単位が認定された。

具体的には、以下の項目において、学生が上記科目ごとに設定された単位認定基準を満たすことで単位が認定された。

- JAEA職員の研究成果の聴講。
- JAEA福島研究開発部門成果発表会での研究発表およびその指導。
- 各種学会発表ならびに論文執筆。
- 論文検索・雑誌会の指導。
- 下限数量・濃度以下のRIに関する指導。
- 研究のアドバイス・月例発表（学生がJAEA職員の前で研究の進捗を発表（1回/月））。
- JAEA大熊分析研究センター見学および高線量燃料デブリ用のセルやマニピュレータの使用方法に関する指導。
- JAEA CLADS（富岡）見学およびコンプトンカメラを利用した空間線量測定に関する指導。
- JAEA楢葉遠隔技術開発センター（Naraha Center for Remote Control Technology Development：NARREC（ナレック））見学および遠隔ロボットに関する指導。
- JAEA福島県環境創造センターの薬品管理やガスボンベの取り扱いに関する指導。
  消防訓練への参加と、緊急時の対応に関する指導。
  各種分析機器（ICP-MS、ICP-MS/MS、TEM、イオンクリーナー、NTA（株式会社堀場製作所、ViewSizer）、Ge半導体検出器）に関する指導。
- ハイフネーション分析に関する注意と指導。
- ウラン鉱石（自然鉱石）を用いて、サーベイメータの取扱い、前処理等に関する指導。
- 生物試料の前処理に関する指導。

図3.3-1　連携ラボ（JAEA）による教育（写真掲載について承諾済み）

(3)　学生の基礎教育および教育プログラムについて

研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、学生の基礎教育等に協力した。また、学生に国内外の学会等における発表の機会を与え、また、教育プログラムを利用して教育の機会を与えた。

以下に具体的な実施内容とその成果の詳細を示す。

①　JAEA職員による教育

【開催日】令和3年7月8日、令和3年7月15日、令和3年7月29日

【会　場】福島大学

【参加者】20名

【概　要】JAEA職員が、福島大学の教育に連携して関わった。具体的には、共生システム理工学類の専門科目「放射線科学」において、7月8日および7月15日に植頭康裕氏による管理技術に関する講義（図3.3-2）、7月29日に中村仁宣氏による核セキュリティーに関する講義が行われた。

図3.3-2　専門科目「放射線科学」講義風景（写真掲載について承諾済み）

②　東京電力による教育

【開催日】令和3年6月4日

【会　場】福島大学

【参加者】185名

【概　要】1年生の必修講義である「共生の科学Ⅰ」において「地域の課題に向き合うために」をテーマとして、東京電力より松本純一取締役が、1Fの状況、課題について概説を行ったのち、これからの1Fの課題に必要な技術、将来等について講義を行った。

③　放射線教育および放射線取扱主任者試験

福島大学は教育プログラムの一環として放射線教育を行い、国家資格である「放射線取扱主任者試験」への挑戦を推奨している。令和3年度は、第一種試験2名、第二種試験4名、計6名（うち1名は両試験とも合格）の合格者（図3.3-3）が出た。

図 3.3-3　令和 3 年度放射線取扱主任者試験合格者（写真掲載について承諾済み）

④　学生を対象とする人材育成プログラム（ICP-MSセミナー）

【開催日】令和3年7月14日

【会　場】オンライン

【参加者】18名

【概　要】東京大学最先端計測化学研究室によるICP-MSセミナー（WEB）が開催され、コリジョン・リアクションセルや高時間分解能イオン検出器を装備したICP質量分析計、飛行時間型ICP質量分析計の動作原理と最新の応用分析例等が紹介された。

⑤　学生を対象とする人材育成プログラム（中間貯蔵施設見学）

【開催日】令和3年8月6日

【会　場】福島県大熊町　中間貯蔵工事情報センター

【参加者】12名

【概　要】福島大学において、福島県 生活環境部 中間貯蔵・除染対策課 紺野慎行主任および羽田副主査を講師として、「除去土壌の行方」と題した中間貯蔵施設についての講義を受講したのち、大熊町へ移動し、中間貯蔵施設を見学した（図3.3-4）。参加した学生からは、福島県の環境回復について興味を持つことができた等の感想があり、学生自身で考える機会になり理解を深めることができた。

図 3.3-4　中間貯蔵施設見学の様子（写真掲載について承諾済み）

⑥　学生を対象とする人材育成プログラム（民間企業によるセミナー）
【開催日】令和3年10月6日
【会　場】オンライン
【参加者】88名（4講習の延べ人数）
【概　要】民間企業の講師による分析技術に関する講習会をオンラインで開催した。具体的には、メトラー・トレド株式会社による「電子天秤の原理と校正、使用方法に関する講習」、株式会社堀場アドバンスドテクノによる「pHメーターの原理と校正、使用方法に関する講習」、ザルトリウス・ジャパン株式会社による「マイクロピペットの原理と校正、使用方法に関する講習」、オルガノ株式会社による「純水･イオン交換水･超純水･蒸留水の違いと使用に関する講習」といった4つの内容で行われた。
　学生は、各種実験および研究に不可欠であるこれらの内容について、基礎知識を修得することができた。

⑦　学生を対象とする人材育成プログラム（講演会）
【開催日】令和3年10月25日
【会　場】福島大学
【参加者】10名
【概　要】国立研究開発法人海洋研究開発機構海洋機能利用部門（海底資源センター）センター長鈴木勝彦氏を講師として、同位体比分析と地球の動態に関する講演会（図3.3-5）を開催した。

図 3.3-5　鈴木氏による講演会の様子（写真掲載について承諾済み）

⑧　学生を対象とする人材育成プログラム（講演会）
【開催日】令和3年12月1日
【会　場】福島大学
【参加者】21名
【概　要】日本のICP-MSの先駆者である東京大学平田岳史教授を講師として、ICP-MSセミナーを開催した（図3.3-6）。セミナー後に希望者による研究会も開催され、ICP-MS等に関する疑問点等を直接質問する機会を得ることができた。

図 3.3-6　平田教授による講演会の様子（写真掲載について承諾済み）

⑨　学生を対象とする人材育成プログラム（1F視察）
【開催日】令和3年12月6日、令和3年12月15日
【会　場】1F
【参加者】6日：14名、15日：16名
【概　要】廃炉作業を安全に進展させ、安全な社会を創造するためにも地元大学として英知を結集し、直接・間接的に廃炉作業を支えていくことが重要な使命になっている。こうした観点から廃炉の現場や廃炉作業の実情を視察し、廃炉支援の課題を理解することを目的として、1F視察を行った。（図3.3-7）

図 3.3-7　1F 視察の様子（写真掲載について承諾済み）

⑩　学生を対象とする人材育成プログラム（JAEA施設見学）
【開催日】令和3年12月6日（1F視察と同日程）
【会　場】楢葉遠隔技術開発センター
【参加者】14名
【概　要】1Fの廃炉推進のために遠隔操作機器（ロボット等）の開発実証施設として整備された、楢葉遠隔技術開発センターにて、実際にクローラロボット実習やROV実習（図3.3-8）を行い、廃炉についての理解を深めるとともに施設の見学を行うことにより、自身のこれからの廃炉研究の向上に役立てる機会となった。

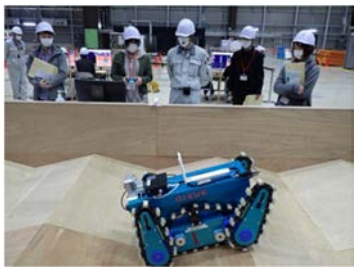


図 3.3-8　楢葉遠隔技術開発センター見学の様子（写真掲載について承諾済み）

⑪　学会発表

・令和3年9月1日～3日　The 40th JSST Annual International Conference on Simulation Technology（オンライン）
・令和3年11月27日　令和3年度日本分析化学会東日本分析化学若手交流会（オンライン）※優秀発表賞受賞1件
・令和3年12月7日　JAEA福島復興部門成果報告会（富岡町文化交流センター学びの森）※イノベーション促進賞受賞3件
・令和3年12月7日　RSC Tokyo International Conference 2021（オンライン）
・令和3年12月16日～21日　Pacifichem 2021（オンライン）
・令和4年3月11日　第7回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス（NDEC-7）（オンライン）※研究奨励賞2件および最優秀発表賞1件受賞
・令和4年3月23日～26日　日本化学会第102春季年会（オンライン）

3.3.3　まとめ

福島大学は、クロアポ教員１名、博士研究員１名、特研生２名を JAEA 三春（連携ラボ（JAEA））に常駐させ、教育を JAEA（三春）と実施した。放射線教育の集大成として学生に国家資格である「放射線取扱主任者試験」の受験を奨励して、令和 3 年度は計 6 名の合格者を輩出した。また、人材育成プログラムを企画して、先端の研究者による講演会、政府が政策として実施している施設・設備（中間貯蔵施設、1F 視察、JAEA 楢葉遠隔技術開発センター等）を見学した。民間企業によるオンライン講習（無償で）を取り入れ、民のちからを取り入れた教育を実施した。

最終的に、学生はこれらの教育を通じて実施した研究成果を様々な学会において発表し、多くの受賞を得ている。

3.4　研究推進

3.4.1　令和2年度までの実施内容および成果（概要）

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

3.4.2　令和 3 年度実施内容および成果

これまでと同様に研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため設備等を稼働させた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

(1)　CLADS との連携

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

令和 3 年度第 1 回　連携ラボ推進会議：令和 3 年 8 月 11 日

全体会議：令和 3 年 12 月 23 日

(2)　学内共同研究者との連携

学内共同研究者との研究に関する進捗状況の確認、情報交換等を行うため、令和 2 年 11 月から実施している定例会議を、月 1 回第 3 週目に実施した。

(3)　東京電力との連携

福島第一廃炉推進カンパニー廃炉技術開発センターならびに防災・放射線センター 放射線・環境部とも協議をしながら協力体制を整えた。

3.4.3　まとめ

研究を推進するために、全体会議を実施して連携を密とした。学内、東京電力および CLADS 関係者とも種々の会議を通して情報交換を行った。

4. 結言

1F の廃炉の実現において、新しい化学計測法の開発と IT を利用した新しい情報の取得技術を実施している。また、JAEA とのタイアップ方式の研究を実施することで、分野横断的な人材育成を行うとともに、国際感覚豊かな人材の育成を目指している。本研究は、「分析法の開発」、「インフォマティックスに関する研究」、「人材育成」、「研究推進」の 4 項目に分けて、それぞれ以下の項目を 5 ヵ年計画で実施するものである。

分析法の開発では、LA-ICP-MS による定量、LIBS による硬度計測法の開発、TEM による液体中金属微粒子測定法の開発を実施している。

また、インフォマティックスに関する研究では、金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング、放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発、撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発を実施している。

これら実施項目において、令和3年度は業務計画書に記載された内容を到達目標として実施した。

(1)-① LA-ICP-MS による定量では、LA-ICP-MS による同位体希釈法ならびにマッピングについて検討し、同位体希釈の定量値が添加量と一致する等良好な結果が得られた。同位体希釈 LA-ICP-MS による放射性 ^{90}Sr の定量マッピングの実現に大きな可能性を見出すことができた。引き続き、詳細な検討が必要であり、次の段階へ進めることがわかった。

(1)-② LIBS による硬度計測法の開発では、LIBS で取得した標準試料データについて、ラベリング・ライブラリ化を進めた。未知試料と登録元素の一致に関して若干の課題が残り、引き続き検討すべき課題があきらかになった。マッピング解析ソフトの開発では、視覚効果や作業性を向上させることができた。LIBS データを用いた硬度変換の検討では、LIBS 組成比から硬度変換が可能であることを示唆された。多変量解析ソフトを用いた化合物や組成分布評価方法の構築と伴に硬さ分布への変換法についても検討を始めた。

(1)-③ TEM による液体中金属微粒子測定法の開発では、1F の炉内滞留水に含まれると予測されるジルコニウムの酸化物微粒子に着目して実験を行い、ビッグデータとするための基礎的な情報として実験条件（pH）を変えて、濃縮前後の微粒子形状、粒子径、粒度分布、抽出率を得ることができた。今後、炉内中に存在すると予測される元素に関して、同様の検討を行い、基礎的情報を取得しビッグデータとすべく、引き続き検討項目となった。

(2)-① 金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリングでは、ICP-MS による安定元素の濃度情報だけではなく、強度だけの情報で材料プロファイリングができるかを検証した。その結果、CRM や未知材料データを取り込み、PCA や他の解析手法との連携が材料プロファイリング精度向上に重要であることが確認できた。今後、材料データを増やし、より詳細な検討が必要であることもわかった。

(2)-②　放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発では、導入したワークステーションを福島大学で開発したスパコンを用いて研究した。燃料デブリに FP および原子炉材料も溶け込んでいることを想定したモデルに対して放射線輸送計算を行った。デブリ性状推定用深層学習アルゴリズムの実用化について検討した。このモデルを用いて、現実的な臨界性、線量率、崩壊熱等を検討し、放射線計測からデブリの安全性を確認するための実用モデルについて検討した。

(2)-③　撮影画像からの目視判断 AI および化学分析データからの脆性判断 AI の開発では、東京電力との情報交換、PCV 内の落下物、堆積物の物体認識システムのプロトタイプの実装、PCV 内の立体地図作成への検討と動画からの広域画像の作成モジュールの試作、LIBS スペクトルデータからの未知試料同定システムのプロトタイプの実装を行った。いずれにおいても、肯定的な結果を得ることができ、引き続き、次の研究段階に進むための準備ができた。

(3)　人材育成（福島大学）は、連携ラボ（大学等）および連携ラボ（JAEA）において、JAEA 研究者と全体会議を開催し状況等を協議した。研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、学生の基礎教育等を実施した。学生に国内外の学会等における発表の機会を与え、教育プログラムを実施した。

(4)　研究推進（福島大学）は、研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めるため、設備等を稼働させた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

以上、現在までに大きな問題は見られず、令和 3 年度の所期の目標を達成した。