

JAEA-Review 2023-024 DOI:10.11484/jaea-review-2023-024

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4年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

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) – FY2022 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

March 2024

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。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) 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(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) 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 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 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.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2024

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)

一令和4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

(2023年9月27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4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はじめとした 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、令和元年度に採択された研究課題のうち、「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4年度分の研究成果につい て取りまとめたものである。

本研究では、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 2023-024

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)

FY2022 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 September 27, 2023)

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 FY2022.

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 FY2022.

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	,
5.	令和3年度 採択課題 10	1
6.	令和4年度 採択課題 12	;
付約	録 成果報告書	ý

Contents

1.	Outline of Nuclear	Energy Science & Technology and Human Resource Development P	roject
			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
6.	Accepted Proposal	in FY2022	12

Appendix R	lesult	Report	15)
------------	--------	--------	----	---

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	渡邊 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
ー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 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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

JAEA-Review 2023-024

6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日~令和4年5月6日(課題解決型) 令和4年4月7日~令和4年6月16日(国際協力型 日英共同研究)

課題数:8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)

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4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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニ タの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3 次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利 用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技 術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射 線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシ ブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立 大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイ ム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

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	
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの 開発	渡邊 実	岡山大学	
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ 微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の 探求	塚原 剛彦	東京工業 大学	

本報告書は、以下の課題の令和4年度分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4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 R04I014)

成果報告書

令和5年3月 国立大学法人福島大学

JAEA-Review 2023-024

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4年 度分の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略
1. はじめに 1-1
2. 業務計画 2-1
2.1 全体計画 2-1
2.2 実施体制
2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法 2-4
2.3.1 分析法の開発 2-4
2.3.2 インフォマティックスに関する研究 2-4
2.3.3 人材育成(福島大学) 2-5
2.3.4 研究推進(福島大学) 2-5
3. 実施内容および成果 3-1
3.1 分析法の開発 3-1
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)(令和元年度~令和4年度)2-1
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)(令和元年度~令和4年度)
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)(令和元年度~令和4年度) 3-14
3.1.4 アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発
(福島大学、再委託先:化研、PerkinElmer、連携先:JAEA)(令和4年度). 3-22
3.2 インフォマティックスに関する研究 3-28
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
(福島大学、再委託先:PerkinElmer) (令和元年度~令和4年度) 3-28
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) (令和元年度~令和4年度) 3-40
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) (令和元年度~令和4年度)
3.3 人材育成
3.3.1 令和3年度までの実施内容および成果(概要) 3-52
3.3.2 令和4年度実施内容および成果3-52
3.3.3 まとめ
3.4 研究推進
3.4.1 令和3年度までの実施内容および成果(概要) 3-65
3.4.2 令和4年度実施内容および成果3-68
3.4.3 まとめ
4. 粘言
シ 老

執筆者リスト

事業代表者

国立大学法人福島大学	教授 教授 教授	高貝慶隆 藤本勝成 山口克彦
再委託先 PerkinElmer Japan 合同会社 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 2.1-1	年度別全体計画	 2-1
表 3.1-1	LIBS の装置と測定条件	 3-8
表 3.1-2	LIBS の1回測定と連続測定の条件	 3-8
表 3.1-3	ビッカース硬さ試験の試験条件	 3-8
表 3.1-4	金属微粒子ごとの粒子径、抽出率とゼータ電位	 3-18
表 3.2-1	材料一覧	 3-29
表 3.3-1	全体会議出席者	 3-53

図一	覧
----	---

図 2.2-1	全体の体制図	 2-2
図 2.2-2	再委託先(民間企業)における体制図	 2-2
⊠ 2.2-3	連携ラボ(JAEA)との体制図	 2-3
図 3.1-1	⁹⁰ Sr 添加模擬試料の分析結果	 3-2
図 3.1-2	汚染ゼオライト中 ⁹⁰ Sr および安定 Sr の定量イメージング	 3-3
図 3.1-3	模擬デブリ片の元素強度イメージング	 3-3
図 3.1-4	模擬デブリ片の PCA スコアマッピング	 3-4
図 3.1-5	PCA スコアプロットと K 平均法マッピングの組み合わせ	 3-4
図 3.1-6	試料1:CMMR0-1 試験体	 3-7
図 3.1-7	試料2:マッピング測定用試料	 3-7
図 3.1-8	機械学習手法 NMF による LIBS スペクトルデータ分析法の流れ	 3-9
図 3.1-9	試料2のFe マッピング像のカラーフィルタリングによる背景の透	
	明化	 3-10
図 3.1-10	ピークフィッティング処理の流れ	 3-11
図 3.1-11	Savitzky-Golay 法とガウス関数処理による鉄スペクトルのピーク	
	フィッティング	 3-12
図 3.1-12	ニッケル板測定値と DB 登録したニッケル (NIST)の関数値の一致度	
	評価	 3-13
図 3.1-13	令和元年度から令和4年度までの受入れ状況	 3-15
図 3.1-14	pH 変化によるゼータ電位と抽出率	 3-18
図 3.1-15	機械学習アルゴリズムによる微粒子の同定	 3-19
図 3.1-16	金ナノ粒子の 3D 画像	 3-20
図 3.1-17	NH ₃ ガスとアクチノイドの反応挙動	 3-23
図 3.1-18	酸化性ガスと Pu、Am、U の反応挙動	 3-24
図 3.1-19	DGA resinへのアクチノイドの吸着率	 3-25
図 3.1-20	DGA resinからのアクチノイド溶出結果	 3-25
図 3.1-21	構築したアクチノイド自動分析システム	 3-26
図 3.1-22	構築した分析システムによる 10 核種の分析結果	 3-26
図 3.2-1	各材料からの抽出手順	 3-30
⊠ 3.2-2	Mn および W の溶出割合	 3-30
⊠ 3.2-3	各元素の成分分率(図上)と正規化後の成分分率(図下)	 3-32
図 3.2-4	標準偏差による正規化を行ったデータを用いた塩酸/硝酸データの	
	階層クラスタリング	 3-33
図 3.2-5	標準偏差による正規化を行ったデータを用いた各 pH 域データ群の	
	階層クラスタリング	 3-34
図 3.2-6	令和3年度メソッドと令和4年度知見によるメソッドでの分類傾向	
	の改善	 3-35
図 3.2-7	SUS430 データに真鍮データを合成した分類シミュレーション	 3-36
図 3.2-8	確信度Dの考え方	 3-37
図 3.2-9	階層クラスタリングと確信度を用いた材料判別	 3-38

図 3.2-10	令和4年度実施 材料プロファイリングメソッドの概要まとめ	 3-39
図 3.2-11	測定データから放射線源位置を探すことは難しい	 3-40
図 3.2-12	円筒内に ¹³⁷ Cs 線源を配置したモデル	 3-42
図 3.2-13	各計測面におけるシミュレーション結果	 3-42
図 3.2-14	各種配置パターンを実測するための測定系	 3-42
図 3.2-15	ある配置パターン(中央図)に対する各メッシュでの測定スペクト	
	N	 3-43
図 3.2-16	スペクトルデータと配置パターンの関係を学習させるニューラルネ	
	ットワーク	 3-43
図 3.2-17	検証のための各種配置パターンと推定結果	 3-44
図 3.2-18	欠測箇所を考慮した学習モデル	 3-45
図 3.2-19	推定誤差の欠測箇所数依存性	 3-45
図 3.2-20	PCV 内部の VR システムのプロトタイプ	 3-48
図 3.2-21	組成比と NMF 因子スコアの関係	 3-49
図 3.2-22	液性(pH10)分類の決定木	 3-50
図 3.2-23	SUS 分類の決定木 (pH10)	 3-50
図 3.3-1	全体会議の様子	 3-52
図 3.3-2	実証実験(左)および 3D 形状測定(右)の様子	 3-54
図 3.3-3	ゲルマニウム半導体検出器講習会の様子	 3-55
図 3.3-4	NARREC 見学の様子	 3-56
図 3.3-5	専門科目「放射線科学」講義風景	 3-56
図 3.3-6	加速器に関する教育の講義風景	 3-57
図 3.3-7	福島県立医科大学サイクロトロン見学の様子	 3-57
図 3.3-8	環境再生事業見学の様子	 3-58
図 3.3-9	JASIS 見学の様子	 3-59
図 3.3-10	pH メーター実習の様子	 3-59
図 3.3-11	JAEA 東海での実習の様子	 3-60
🗵 3. 3-12	加藤准教授による講演会の様子	 3-61
🗵 3. 3-13	令和4年度放射線取扱主任者試験合格者	 3-61
図 3.3-14	平田教授による講演会の様子	 3-62
図 3.3-15	伝承館および NARREC 見学の様子	 3-62
図 3.3-16	1F 視察の様子	 3-63
図 3.3-17	JAMSTEC 講習の様子	 3-63
図 3.3-18	コロラド州立大学での実験の様子	 3-64
図 3.4-1	三春研究進捗報告会の様子	 3-65
図 3.4-2	学会発表受賞者一覧	 3-67
図 3.4-3	文部科学大臣賞受賞 高貝教授と山口教授	 3-68

AI	:	Artificial Intelligence	(人工知能)
CLADS	:	Collaborative Laboratories for Adv (廃炉環境国際共同研究センター)	vanced Decommissioning Science
CMMR	:	Core Material Melting Relocation	
EPMA	:	Electron Probe Micro Analyzer	(電子プローブマイクロアナライザー)
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)
FI	:	Flow Injection	(フローインジェクション)
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)
LIDO		Laser-Induced Breakdown	(レーザー誘起ブレークダウン分
LIBS	:	Spectroscopy	光法)
NMF	:	Nonnegative Matrix Factorization	(非負値行列因子分解)
NIST	:	National Institute of Standards and Technology	(アメリカ国立標準技術研究所)
PCA	:	Principal Component Analysis	(主成分分析)
PLS	:	Partial Least Squares	(部分的最小二乗法)
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)
SUS			(ステンレス合金)
TEM	:	Transmission Electron Microscope	(透過型電子顕微鏡)
VR	:	Virtual Reality	
1F	:	東京電力ホールディングス株式会社福	富島第一原子力発電所
PCV 内動画	:	福島第一原子力発電所2号機原子炉格	\$納容器内部調查動画
VR データ	:	JAEA 楢葉遠隔技術開発センター1F 原	子炉建屋内データ
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	
PerkinElmer	:	PerkinElmer Japan 合同会社	
福島大学	:	国立大学法人福島大学	

略語一覧

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(以下、「東京電力」と略す。)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。)-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。)
 - ④ アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発
- (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、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、令和元年度は、従来の同位体希釈法をオ ンライン化し、LA-ICP-MS での定量イメージング分析を可能にするため、ハイブリッドチャン バーを用いて LA で生じたサンプル由来のエアロゾルと⁸⁶Sr 濃縮安定同位体スパイク溶液を混 合してプラズマへ導入する試料導入系を構築した。

令和 2 年度は、Sr を添加した模擬試料(タングステンフィラメント)を用いて安定元素の 強度マッピング分析が可能であることを確認した。

令和3年度は、試料エアロゾル側およびスパイク溶液側から ICP-MS までの導入効率の違い を調査し、その補正式を考案した。ガラス認証標準物質を用いた妥当性確認試験により、オ ンライン同位体希釈法による安定元素(Sr)の定量が可能であることを確認した。したがっ て、引き続き⁹⁰Sr 定量の妥当性確認を行う必要がある。一方で、LA-ICP-MS を用いた⁹⁰Sr 添加 試料の⁹⁰Sr 強度マッピング分析では、⁹⁰Sr と非常に近い質量電荷比を持つ同重体イオン(⁹⁰Zr) や多原子イオン(⁸⁹Y¹H、⁷⁴Ge¹⁶0、⁵⁸Ni¹⁶O₂等)が質量スペクトル干渉を生じる可能性が示唆され た。 令和4年度は、令和3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、様々な試料を分析して、インフォマティックとの連携を検討した。

(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、令和元年度には、変位計と電動ステージを導入して、LIBS によるマッピング のための装置を設計・作製した。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開始するとともに、多変量解析を 導入して材料の特定(プロファイリング)の検討を開始した。JAEA 大洗研究所高速炉基盤技 術開発部ナトリウム機器技術開発 Gr.より、電子プローブマイクロアナライザー(以下、

「EPMA」と略す。)によってあらかじめマッピングデータを取得した模擬デブリを借用し、 この試料に対して LIBS 測定し、EPMA マッピング結果と LIBS 計測結果を比較し妥当性に関す る評価を開始した。

令和2年度には、令和元年度に引き続き、マッピングのための変位計と電動ステージを導入 した LIBS 装置の最適化を行った。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。 多変量解析を導入のための材料の特定(プロファイリング)の検討を行った。マッピング解 析のためのソフト開発を開始した。令和元年度に製作した自動マッピング装置を用いて模擬 デブリを計測できるかを検討した。元素情報の濃淡を決定することができるか基礎データの 取得を開始した。

令和3年度には、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。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を検討した。令和2年度から開始したマッ ピング解析ソフトを作成し、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。

令和4年度には、LIBSで得られたデータをインフォマティックス技術と融合させた。また、 LIBSで得られた組成データから硬さ分布を検討した。さらに、未知試料とデータベースのフ ィッティングを検討した。

(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、令和元年度には、 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。)の移動とともに設備備品を設置し、実験環境を整えた。 JAEA(三春)の装置群の使用方法を習得して、標準物質(例:金属ナノコロイド)の計測を 行い、粒子径、形状を確認した。また、界面活性剤を合成し、その同定および相分離現象の 諸条件を確認した。JAEA(三春)の微粒子計数の準備を整えた。コロイド粒子計測システム および現有の ICP-MS にナノ粒子計数キットおよびガスの流量をコントロールするためのマス フローを導入して稼働させた。標準微粒子を濃縮して、TEM による濃縮微粒子の粒子径、形状、 元素マッピングを計測して濃縮前の標準物質との違いを確認した。

令和2年度には、JAEA CLADS ヘクロアポ教員および特研生を配属させるとともに、設備備 品を稼働させて研究・実験を実施した。研究においては、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。

令和3年度には、クロアポ教員、ポスドクおよび特研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が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、濃縮前後で計測した。ビックデータとするための基礎 情報を取得した。

令和4年度には、クロアポ教員、ポスドクおよび特研生を配属させるとともに、設備備品 を稼働させて研究・実験を実施した。様々な微粒子を計測し、抽出特性ならびに粒子状態を 確認するとともに 3D 画像撮影を検討した。インフォマティックスとの融合を図るため、情 報のアウトプットについて検討した。

(1)-④ アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発では、ICP-MS 装置内の反応セルにてガスとアクチノイドの反応を調査した。固相抽出樹脂による分離の検討を行った。フローインジェクション(以下、「FI」と略す。)流路を構築し、ICP-MSと連動させた分析システムについて試行した。ウラン(U)、プルトニウム(Pu)等を用いて実証試験を行った。

(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(再委 託先:PerkinElmer Japan 合同会社(以下、「PerkinElmer」と略す。))は、令和元年度に は、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。 分散剤や元素組成によって粒子径に違いがでるかを検討した。他の計測法と比較して同様の 粒子径となるか、TEM、動的光散乱光度計、小角 X 線回折装置を用いて比較した。時間の関 数等の因子とともに粒子径および粒子数に加えて粒度分布の再現性を検討した。

令和2年度には、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。分散剤や元素組成による粒子径の違いを検討 した。ICP-MSとして得られる安定元素の濃度プロファイリングを取り込み、多変量解析を 行い、材料プロファイリングができるか検討を開始した。実際の健全な試料を利用し、材料 測定データからの分類について検討を開始した。

令和3年度には、模擬試料等を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。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の検討を開始した。

令和4年度には、令和3年度に引き続き、検体数を増やして、傾向に特徴付けを行った。 多因子計測データを多変量解析に組み込んだ。プロファイリングとシミュレーション結果を 合致させて、検証した。

(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、令和元年度には、JAEAが開発したモンテカルロシミュレーションコード PHITS を導入し、これまで福島大学で作成し放射性 Cs に限定して利用してきた放射線輸送計算プ ログラムとの整合性を検証した。また深層学習に特化したワークステーションを導入し、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。)用並列計算コー ドと同様の高速化を実現するための環境整備を行った。併せて、今後の 1F の現場需要を踏 まえた事前学習用データとして使用する比較的簡易な試験用シミュレーションモデルを作成 した。

令和2年度には、令和元年度に引き続き、導入したワークステーションを、福島大学で開 発したスパコン用並列計算コードと同様の高速化を実現するための調整を行った。併せて、 今後の1Fの現場需要を踏まえた事前学習用データとして使用する比較的簡易な試験用シミ ュレーションモデルの作成を引き続き実施した。燃料デブリ内の放射性物質としてUに限定 し、PHITS を用いてデブリ形状・U 濃度分布の条件を変化させた際の放射線輸送計算を開始 した。得られるデブリ周囲の放射線分布とエネルギースペクトル結果を事前学習データとし て、深層学習アルゴリズムの改良を開始した。モデルとなったデブリの形状・濃度分布をど の程度の精度で推定できているかの検証も開始した。また、深層学習の結果を、燃料デブリ の臨界性や崩壊熱評価へ反映させる基礎モデルの検討を開始した。

令和3年度には、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開始した。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。

令和4年度には、実際の燃料デブリスケールに近づくように規模を拡大させたモデルを用 いて放射線輸送計算を行い、深層学習アルゴリズムによるデブリ性状推定を行った。また、 測定可能箇所が制限される実際の測定現場において、より少ない測定データからデブリ性状 の全体像を推定可能とするために、放射線計測箇所に欠損があった場合の推定アルゴリズム について検証を行った。

(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、令和元年度には、計算システムを導入し稼働させた。東京電力等の専門家と 議論の場を持ち、実際に撮影された内部画像を基に、どの程度推測が可能か等のプロジェク トの方向性について検討した。

令和2年度には、令和元年度に引き続き、計算システムが正常稼働であるか検証した。令 和元年度に引き続き、東京電力等の専門家と議論の場を持ち、実際に撮影された画像・動画 の提供を受けた。これらを基に、どの程度、内部状況の推測が可能か等のプロジェクトの方 向性について検討した。撮影画像・動画中の変質や注目対象に対して部位の推定・ラベル付 けに関する議論・検討を開始した。

令和3年度には、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した。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 開始した。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。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・検討を開始した。

令和4年度では、令和3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、格納容器内の落下物・堆積 物等の物体認識システムの開発・実装に着手した。また、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3年度に検討された結果を受け、これを実現する多因子データ の統合システムを開発・実装した。また、化学的アプローチ、画像解析的アプローチによっ て得られた全体像の推定結果を支持する証拠・確信度を積み上げ、統合するシステムの仕様 について検討した。 (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、 令和元年度には、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、 準備状況等を協議した。また、JAEA(三春)を主拠点としてクロアポ教員および特研生を受 け入れる準備を整え、ショート教育プログラムとして JAEA(富岡)ならびに JAEA(南相馬) の2拠点で受け入れるための議論を行った。さらに、国際感覚豊かな人材の育成を実施する ために、国内外の研究者と実施内容を協議した。

令和2年度には、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。また、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。さらに、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、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。

令和3年度には、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。また、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、学生に国内外の学 会等における発表の機会を与え、さらに、教育プログラムを利用して教育の機会を与えた。

令和4年度では、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。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。

(4) 研究推進(福島大学)は、令和元年度から令和3年度において、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4年度では、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、 研究を進めるとともに、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4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3年度

JAEA-Review 2022-030

URL: https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-030

令和2年度

JAEA-Review 2021-035

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

令和元年度

JAEA-Review 2020-065

URL: 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が、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。

- 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
 - ④ アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発
- (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 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。

そのなかでも令和4年度は、5ヵ年計画の4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 2.1-1に、 本業務の計画時の線表を記す。

年度 項目	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 遠達講社会 ブラブマ常 景分板 (1.4	壮要教徒,计约制成				
iCP-MS)法による定量 (複良大学 JAFA)	-2012 12111 100,44 2011	▲ 開発·試験	開発・試験	開発·試験 ▶	試験および評価まとめ
 ②多地点可動レーザー誘起ブレー 	装置整備・試験準備 ◀─────	開発・試験	開発·試験	開発·試験	▲ 試験および評価まとめ 。
クダウン分光法(LIBS)の開発 (化研)				-	
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	装置整備・試験準備 ◀─────	開発・試験	開発·試験	開発·試験	試験および評価まとめ
(JAEA) ④アルファ線放出核種の全自動	壮震教准,静能体准				
ICP-MS分析法の開発 (福島大学、化研、PerkinElmer、 JAFA)	装直登幅 '风积华幅 ◀────	開発・試験 ◀	開発 · 試験	開発・試験	試験および評価まとめ
(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	予備試験	開発·試験	開発·試験	開発·試験	試験および評価まとめ
(PerkinElmer、福島大学)	••••	4		•	• •
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 たの間や	予備試験	開発・試験	開発·試験	開発·試験	▲ 試験および評価まとめ
(福島大学)					
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晩性判断	装置整備	開発・試験	開発·試験	開発・試験	< 試験および評価まとめ
↓ IO 開発 (福島大学)					
(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
		• • • • • •		•	•

表 2.1-1 年度別全体計画

2.2 実施体制

全体の体制図を図 2.2-1 に示す。



図 2.2-1 全体の体制図

再委託先(民間企業)における体制図を図2.2-2に示す。



図 2.2-2 再委託先(民間企業)における体制図

連携ラボ (JAEA) との体制図を図 2.2-3 に示す。



図 2.2-3 連携ラボ (JAEA) との体制図

- 2.3 令和4年度の成果の目標および業務の実施方法 令和4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、連携先: JAEA)
 - ・令和3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。
 - ・様々な試料を分析して、インフォマティックとの連携を検討する。
 - (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で得られたデータをインフォマティックス技術と融合させる。
 - ・LIBS で得られた組成データから硬さ分布を検討する。
 - ・未知試料とデータベースのフィッティングを検討する。
 - (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、ポスドクおよび特研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。
 - ・様々な微粒子を計測し、抽出特性ならびに粒子状態を確認するとともに 3D 画像撮影 を検討する。
 - ・インフォマティックスとの融合を図るため、情報のアウトプットについて検討する。
 - (4) アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発(福島大学、再委託先:化研、 PerkinElmer、連携先: JAEA)
 - ・ICP-MS 装置内の反応セルにてガスとアクチノイドの反応を調査する。
 - ・固相抽出樹脂による分離の検討を行う。
 - ・FI 流路を構築し、ICP-MS と連動させる。
 - ・U、Pu等を用いて実証試験を行う。
 - 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(福島大 学、再委託先:PerkinElmer)
 - ・ 令和3年度に引き続き、検体数を増やして、傾向に特徴付けを行う。
 - ・多因子計測データを多変量解析に組み込む。
 - ・プロファイリングとシミュレーション結果を合致させて、検証する。
 - (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)
 - ・実際の燃料デブリスケールに近づくように規模を拡大させたモデルを用いて放射線輸送計算を行い、深層学習アルゴリズムによるデブリ性状推定を行う。また、測定可能箇所が制限される実際の測定現場において、より少ない測定データからデブリ性状の全体像を推定可能とするために、放射線計測箇所に欠損があった場合の推定アルゴリズムについて検証を行う。

- (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3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、格納容器内の落下物・堆積物等の物体認識システムの開発・実装に着手する。また、今後の撮影対象・方法について留意すべき点を検討する。
 - ・令和3年度に検討された結果を受け、これを実現する多因子データの統合システムを 開発・実装する。また、化学的アプローチ、画像解析的アプローチによって得られた 全体像の推定結果を支持する証拠・確信度を積み上げ、統合するシステムの仕様につ いて検討する。
- 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。
- 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、研究を進めると ともに、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. 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)(令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

IF の廃止措置においては、分析によって燃料デブリ中の放射性核種を定性・定量 し、燃料デブリの安全かつ効率的な処理処分・管理方法を策定する必要がある。燃 料デブリは試料の入手が非常に困難であり、得られるデブリ片は極微量かつ難溶性 であることから、酸による溶解が必要な従来の放射能分析法や ICP-MS ではなく、固 体試料中の放射性核種を直接分析できる新しい分析方法が求められている。LA-ICP-MS は周期表上のほとんどの元素についてµg/kg レベルの検出限界値を持ち、複数の 同位体を同時分析できる固体直接分析法である。しかし、分析対象イオンと類似し た質量電荷比 (m/z) を持つ共存元素由来の干渉イオン (同重体イオンや多原子イオ ン)の除去が困難であり、また、半減期が 1000 年を超えない放射性核種に対しては 感度が低いため、短半減期の放射性核種の分析への適用例はこれまでなかった。

これらの問題を解決するため、本研究ではセル内気相反応と質量分析を組み合わ せて複雑な質量スペクトル干渉を除去し、また、新たに考案した安定同位体希釈法 に基づく放射性核種の定量理論(オンライン同位体希釈法)を適用することで、従 来法では実現困難だった放射性核種の定量マッピング分析の開発を目的としている。 ここでは、燃料デブリ中の評価対象核種の一つである純β線放出核種の⁹⁰Sr(半減 期:28.79年)をモデル分析対象核種として分析システムを設計し、本法の分析性能 や適用性を調査した。

令和元年度は、従来の同位体希釈法をオンライン化し、LA-ICP-MS での定量イメージング分析を可能にするため、ハイブリッドチャンバーを用いて LA で生じたサンプル由来のエアロゾルと⁸⁶Sr 濃縮安定同位体スパイク溶液を混合してプラズマへ導入する試料導入系を構築した。令和 2 年度は、Sr を添加した模擬試料(タングステンフィラメント)を用いて安定元素の強度マッピング分析が可能であることを確認した。令和 3 年度は、試料エアロゾル側およびスパイク溶液側から ICP-MS までの導入効率の違いを調査し、その補正式を考案した。ガラス認証標準物質を用いた妥当性確認試験により、オンライン同位体希釈法による安定元素(Sr)の定量が可能であることを確認した。したがって、引き続き⁹⁰Sr 定量の妥当性確認を行う必要がある。 一方で、LA-ICP-MS を用いた⁹⁰Sr 添加試料の⁹⁰Sr 強度マッピング分析では、⁹⁰Sr と非常に近い質量電荷比を持つ同重体イオン(⁹⁰Zr)や多原子イオン(⁸⁹Y¹H、⁷⁴Ge¹⁶0、⁵⁸Ni¹⁶0₂等)が質量スペクトル干渉を生じる可能性が示唆された。

(2) 令和4年度実施内容および成果

令和4年度は、ICP-MS装置内の反応セルであるダイナミックリアクションセル (以下、「DRC」と略す。)での酸化反応とタンデム型質量分析装置(MS/MS)を組 み合わせたオンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS システムを構築し、様々な認証 標準物質や模擬試料を分析することで、本法による⁹⁰Srの定量マッピング分析の妥 当性や適用性を評価した。また、インフォマティックスとの連携を検討するため、 LA-ICP-MSを用いて模擬燃料デブリの元素マッピング分析を行った。 ① オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS における ⁹⁰Sr 定量の妥当性確認

本法では、システムを用いて⁹⁰Sr を定量する。本法の妥当性を確認するため、ま ずは安定 Sr 濃度が既知でマトリックスが異なる2種類の認証標準物質(ガラス、合 金)を分析し、本法で得られた安定 Sr 濃度と認証値を比較した。

次に、タングステン板(純度:99.95%)に、担体として安定 Sr を含む ⁹⁰Sr 標準溶 液を 3~10 μ L 滴下し、ホットプレート(200 °C)上で乾固させた模擬試料を本法 により分析した。乾固した液滴を含む 2.5 mm×2.5 mmの領域で得られた 1020 点の測 定値を積算して添加値と比較した結果、図 3.1-1に示すように測定値は添加値と良く 一致した。一致率は安定 Sr で 89.8~97.4%、⁹⁰Sr で 88.0~112.3%だった。よって、 本法が安定 Sr および ⁹⁰Sr を同時定量可能であることが確認できた。1 測定点あたり の測定時間は非常に短く(1 秒以内)、100 μ mのレーザーサイズで 2.5 mm×2.5 mm の領域全ての領域を分析するのに必要な時間は 20 分だった。本法の LOD は安定 Sr で 6.8 μ g/g、1.4×10-1 μ g/g (703 Bq/g) だった。



図 3.1-1 ⁹⁰Sr 添加模擬試料の分析結果

また、本法による定量イメージング分析の実例として ⁹⁰Sr により汚染された未知 試料の定量イメージング分析を行った。模擬試料として、⁹⁰Sr 標準溶液に一晩浸漬・ 乾燥させることで、⁹⁰Sr により汚染されたゼオライト片を用いた。ゼオライト片をミ ネラルタックによって LA 装置内のアブレーションセル内で平坦になるように固定し た後、本法によって分析した。各測定点で得られた安定 Sr および ⁹⁰Sr の測定値は、 アブレーションした位置情報 (X-Y 値) と紐づけし、Surfer (Golden Software 社製) を用いて 2D 画像を作成した。図 3.1-2 に示すように、ゼオライトのある白点線内に 不均一に分布する安定 Sr および ⁹⁰Sr をミクロスケールで可視化すると同時に定量す ることができた。⁹⁰Sr は白点線外(ミネラルタックがある部分)からは検出されなか ったことから共存元素による干渉の影響なく、⁹⁰Sr を特異的に検出できたことが示さ れた。



図 3.1-2 汚染ゼオライト中⁹⁰Sr および安定 Sr の定量イメージング

② インフォマティックスとの連携

LA-ICP-MS を用いて不均一な元素組成を持つ模擬デブリ片の任意領域を元素マッピング分析し、得られたデータを主成分分析(以下、「PCA」と略す。)および K 平均法により解析することで、LA-ICP-MS 分析とインフォマティックスとの連携を検討した。模擬デブリ上の 1.6 mm×0.9 mm の領域(558 点)において m/z 7~238 の強度イメージングデータを取得し、主成分元素である¹¹B、⁵²Cr、⁵⁸Ni、⁶³Cu、⁹⁰Zr、¹⁷⁸Hf について、Surfer を用いて 2D 画像を作成した結果が図 3.1-3 のとおりである。



図 3.1-3 模擬デブリ片の元素強度イメージング

多変量解析ソフトウェアである TIBCO Spotfire (PerkinElmer 製)を用いて、PCA により LA-ICP-MS 分析で得られた 234 同位体のデータを圧縮し、PCA スコアマッピン グとして表現した (図 3.1-4)。これにより、234 同位体の個々のデータを確認しな くとも、図3.1-5のように分析領域における元素組成の違いを俯瞰的に把握すること ができるようになった。さらに、K 平均法クラスタリングによって任意の数にジャン ル分けを行い、PCA スコアプロットと組み合わせることで、元素組成が類似した箇所 を容易に把握できるようになった(図 3.1-5)。インフォマティックスと連携することで、分析者の勘や経験によらず、試料表面の元素分布を容易に特徴付けることが 可能になった。



図 3.1-4 模擬デブリ片の PCA スコアマッピング



図 3.1-5 PCA スコアプロットと K 平均法マッピングの組み合わせ

(3) まとめ

令和4年度は⁹⁰Srの定量イメージングを達成するため、オンライン同位体希釈LA-ICP-DRC-MS/MSシステムを構築し、その妥当性確認を実施した。また、模擬デブリの元素マッ ピングデータを用いてインフォマティックスとの連携を検討した。

- ① 認証標準物質および ⁹⁰Sr 添加模擬試料を分析することで、オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS による安定 Sr および ⁹⁰Sr 定量の妥当性を確認した。いずれも測定 値は添加値に対して良く一致した。1 測定点あたりの分析時間は1 秒以内であり、局 所分析およびイメージング分析が可能であることが確認された。干渉元素の影響に ついては引き続き調査が必要である。
- ② PCA および K 平均法クラスタリングを用いて模擬デブリの LA-ICP-MS データを解析 することで、大量のデータを圧縮、ジャンル分けを行った。PCA スコアプロットと K 平均法クラスタリングを組み合わせると、元素分布が類似した箇所と良く一致した ことから、LA-ICP-MS 分析にインフォマティックスを利用することで試料組成の特徴

3-4

付けが容易になる可能性が示された。234 同位体のデータから類似した組成を材料の 特徴として視覚的に抽出しており、このインフォマティックスを利用したマッピン グでは主成分スコアが類似しているスポットは、類似した材料によって構成されて いることが予想でき、その寄与因子を考察することで組成材料の予想に応用するこ とができる。

- 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) (令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

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 さと相関性があることが独自の研究で分かっている^{[1][2]}。

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、硬さマッピング情報への変換を試みる研究 を行う。

令和元年度には、変位計と電動ステージを導入して、LIBS によるマッピングのため の装置を設計・作製した。また、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開始するとともに、多変 量解析を導入して材料の特定(プロファイリング)の検討を開始した。JAEA大洗研究所 高速炉基盤技術開発部ナトリウム機器技術開発 Gr.より、EPMA によってあらかじめマッ ピングデータを取得した模擬デブリを借用し、この試料に対して LIBS 測定し、EPMA マ ッピング結果と LIBS 計測結果を比較し妥当性に関する評価を開始した。

令和 2 年度には、令和元年度に引き続き、マッピングのための変位計と電動ステージを導入した LIBS 装置の最適化を行った。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。多変量解析を導入のための材料の特定(プロファイリング)の検 討を行った。マッピング解析のためのソフト開発を開始した。令和元年度に製作した自 動マッピング装置を用いて模擬デブリを計測できるかを検討した。元素情報の濃淡を決 定することができるか基礎データの取得を開始した。

令和3年度には、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。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を検討した。令和2年 度から開始したマッピング解析ソフトを作成し、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模擬サンプルを用いて硬さ測定等を行 い、多変量解析等で解析した。

- (2) 令和4年度実施内容および成果
- ① 試料
 - 1) 試料1 Core Material Melting Relocation (以下、「CMMR」と略す。) 0-1 試験体

JAEA 大洗研究所より借用した沸騰水型軽水炉(BWR) 炉心を模擬した試験体^{[3][4]} であり、被覆管(Zr)、制御材(B₄C)、制御ブレード基材(ステンレス合金(以 下、「SUS」と略す。))、ウラン燃料を模擬した燃料ペレット(ZrO₂)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 3.1-6 に CMMRO-1 試験体の写真を示す。赤枠は未試験材料、緑枠は材料 の溶融物が存在する部分である。



図 3.1-6 試料 1: CMMR0-1 試験体

2) 試料2 マッピング測定用試料

樹脂基板に SUS、B₄C(粉体)、ZrB₂(粉体)を両面テープで貼り付け、試料とした(図 3.1-7)。



図 3.1-7 試料 2:マッピング測定用試料

3-7 - 44 - ② 使用装置および測定条件

LIBS 測定に使用した装置と測定条件を表 3.1-1、表 3.1-2 に示し、ビッカース硬さ 試験に使用した試験機と試験条件を表 3.1-3 に示す。

表 3.1-1	LIBS	の装置	と測定条件
- M O. I I		· 40 E	

装置	APPLIED PHOTONICS 社製 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	測定 回数	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 CMMR0-1 試験体	連続	1.28	窒素	9×8	2
試料2 マッピング測定用試料	連続	1.28	大気	4×4	1
試料3 標準物質	1 回	1.28	窒素	_	_

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=9.8N)	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

- ③ 実施内容および成果
 - 1) LIBS で得られたデータとインフォマティックス技術の融合

LIBS は非常に多くのピークが出現するため、重複しない単独ピークを選定する 現在の方法は作業効率が悪い。令和4年度は、機械学習手法非負値行列因子分解 (以下、「NMF」と略す。)によりスペクトル全体の強度や形状等を含む評価を行 い、未知試料に含まれる金属元素や化合物の分類・推定を検討した。NMF による LIBS スペクトルデータ分析法の流れを図3.1-8に示す。本研究で使用した LIBS は 検出波長域が異なる6つの検出器を搭載しており、検出器の切り替わりやホワイト ノイズ等がベースラインに影響するため、罰則項付き非対称最小二乗法によりベー スライン除去を行い、スペクトルを標準化した。標準試料を用いてあらかじめ因子 数を指定し NMF を行い次元を削減したデータに変換した(因子の影響度を表す因子 スコアに変換した)。化合物種を分類するための因子スコアの閾値を機械学習にお ける決定木の手法を用いて導出した。未知試料のスペクトルデータは、標準試料の 因子を用いて未知試料の因子スコアを算出し、前記閾値を用いて化合物種を同定し た。



図 3.1-8 機械学習手法 NMF による LIBS スペクトルデータ分析法の流れ

- 2) LIBS で得られた組成データから硬さ分布の検討
 - (a) マッピング解析ソフトの改良

令和3年度は試料画像とマッピング像の合成等を実施し作業性の向上を図った が、作成した解析ソフトはマッピング像の背景を色指定し着色する仕様であった ため、試料画像と合成した際に対象物の位置が分かり難いことが課題であった。

令和4年度は、マッピング像にカラーフィルタリング機能を追加し、「フィル タリング」と「カラー減色法」の2通りで背景の透明化を検討した。フィルタリ ングは赤(R)、緑(G)、青(B)の値を0~255の範囲で指定し、範囲指定した 値のみ表示する機能である。カラー減色法は、元のR、G、Bの値から任意の値を 引くことにより、特定の色を減色する機能である。図3.1-9に試料2のFeマッピ ング像のカラーフィルタリングにより背景を透明化した結果を示す。「フィルタ リング」と「カラー減色法」とも対象物のみ色付けし、背景は透明とすることが できた。これにより対象物の位置の確認が容易となった。



図 3.1-9 試料 2 の Fe マッピング像のカラーフィルタリングによる背景の透明化

3-10 - 47 - 3) 未知試料とデータベースのフィッティングの検討

 (a) 標準物質のLIBS スペクトルを用いたデータベース(DB)作成 データベースの作成はスペクトルから元素ごとにピークを選定し、ピークの波 長領域およびガウス関数処理(式 3.1-1)により算出した係数を登録する。登録 に使用できるピークは単独ピークに限られており、多元素系の試料では重複する ピークが多く登録に適した単独ピークを探すことが困難となっていた。

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

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

令和4年度は、Savitzky-Golay 法による微分処理を追加し、フィッティングの最適化を図るとともに重複ピークの個別処理を可能にした。図3.1-10にピークフィッティング処理の流れを示し、図3.1-11に Savitzky-Golay 法とガウス関数処理による鉄スペクトルのフィッティング結果を示す。微分処理によりピーク点を決定することで、重複ピークを別々にピークフィッティングすることが可能となった。これにより各元素で複数のピークの登録が可能となり、定性の精度向上につながった。



図 3.1-10 ピークフィッティング処理の流れ



図 3.1-11 Savitzky-Golay 法とガウス関数処理による鉄スペクトルの ピークフィッティング

(b) 未知試料の元素検索の改善

元素検索は、(式 3.1-2)から R²を算出し一致度を評価するが、登録ピークの ガウス関数処理で得られる係数 a はピーク強度の因子が含まれるため、未知試料 と登録ピークの強度が異なると R²が下がり検索結果から漏れることが課題であっ た。

令和4年度は、元素検索の際に(式3.1-3)を用い係数aに定数kを乗じること で未知試料ピークと登録ピークの強度を揃え、ピーク強度に関係なく定性ができ るように改善を行った。

$$R^{2} = 1 - \frac{\sum (y_{i} - y_{r})^{2}}{\sum (y_{i} - \bar{y})^{2}}$$
(式 3.1-2)

R²:決定係数(1に近いほど一致度が高い) y_i:実測値、y_r:基準値(関数値)、<u>y</u>:実測値平均値

$$f(x) = (k \times a) \cdot e^{-\frac{(x-b)^2}{2c^2}}$$
 (式 3.1-3)

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、k は任意の値

ニッケル板の測定値と DB 登録したニッケル(アメリカ国立標準技術研究所 (以下、「NIST」と略す。)製)の関数値の一致度を図 3.1-12 に示す。令和 3 年度は R²=-1041 と不一致であったが令和 4 年度は R²=0.98 と一致し、公的デ ータベースを使用した定性が可能となった。



図 3.1-12 ニッケル板測定値と DB 登録したニッケル (NIST) の関数値の一致度評価

(3) まとめ

令和4年度は、令和3年度の課題解決とLIBS測定データのインフォマティックス技術の融合、LIBSによる硬度計測方法の検討を行った。

① LIBS 測定データとインフォマティックス技術の融合

非対称最小二乗法によりベースライン除去を行いスペクトルを標準化した後、機械 学習手法 NMF による LIBS スペクトルデータ分析を検討し、スペクトルの強度や形状等 を含む評価が可能となり、未知試料に含まれる金属元素や化合物の分類・推定が可能 となった。

② LIBS 測定データの硬さ変換の検討

マッピング解析ソフトを改良し、マッピング像において背景を透明にする機能を追 加し、試料画像とマッピング像を合成した際に、対象物の位置を特定しやすくした。

CMMR0-1 試験体の元素マッピング情報を多変量解析し、酸化ジルコニウムは 0/Zr 比を抽出条件とし、それ以外は測定点に含まれる元素の種類を抽出条件として 8 種類の 組成のマッピング像を作成した。組成マッピング像は EPMA の分析結果と一致しており、 元素情報から組成変換が可能となった。組成ごとに硬さを決定後、硬さに応じて金属、 酸化物、ホウ化物の 3 つに再分類し、硬さマッピング像を作成した。試験体の硬さの 実測値と文献値を照合した結果、金属と酸化物は良好な結果を得たが、ホウ化物は不 良となり今後検討が必要となった。

③ ラベリング・ライブラリ化および未知試料の検索検討

Savitzky-Golay法による微分工程の後にガウス関数処理することで重複ピークの個別処理が可能となり、各元素で複数のピークの登録ができることで定性の精度向上につながった。未知試料の元素検索では、登録ピークのガウス関数値の係数 a に定数 k を乗じることで、未知試料と登録ピークのピーク強度が異なる場合でも定性でき、これにより NIST のスペクトルデータとの比較が可能となった。

- 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) (令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

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る(粒径・粒状・表面状 態等が変化し粒子自体の組成が変化する)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。

令和元年度には、クロアポ教員および特研生の移動とともに設備備品を設置し、実験 環境を整えた。JAEA(三春)の装置群の使用方法を習得して、標準物質(例:金属ナノ コロイド)の計測を行い、粒子径、形状を確認した。また、界面活性剤を合成し、その 同定および相分離現象の諸条件を確認した。JAEA(三春)の微粒子計数の準備を整えた。 コロイド粒子計測システムおよび現有の ICP-MS にナノ粒子計数キットおよびガスの流 量をコントロールするためのマスフローを導入して稼働させた。標準微粒子を濃縮して、 TEM による濃縮微粒子の粒子径、形状、元素マッピングを計測して濃縮前の標準物質と の違いを確認した。

令和2年度には、JAEA ヘクロアポ教員および特研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(金ナノ粒子)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。

令和3年度には、クロアポ教員、ポスドクおよび特研生を配属させるとともに、設備 備品を稼働させて研究・実験を実施した。微粒子(金属酸化物微粒子)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 のか検討を行った。ビッグデータとするための基礎情報を取得した。

- (2) 令和4年度実施内容および成果
- クロアポ教員、博士研究員および特研生の受入れならびに設備備品の稼働による研 究実施
 - 1) 令和元年度から令和4年度までの受入れ状況

福島大学から CLADS にクロアポ教員、ポスドクおよび特研生を受け入れ、JAEA 職員とともに研究を進めている。その受入れ状況について図 3.1-13 に示す。



図 3.1-13 令和元年度から令和4年度までの受入れ状況

2) 令和4年度の実施内容

環境影響研究ディビジョン(JAEA 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 となる特研生1名(博士前期課程)については、事前に、JAEAおよび福島大学の間 で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、ポスドクおよび 特研生2名については、令和3年度から継続)。

新規に受け入れた特研生1名は、令和4年4月より環境分析研究グループへと配属され、各自に職員番号、職員証、JAEA の作業着、JAEA 職員としてのメールアドレス、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、論文の検索およびダウンロード方法、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、新規配属の特研生は、令和元年度に準備した JAEA の設備備 品と JAEA が保有している装置等を稼働させて、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、ポスドクおよび特研生2名も令和3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 様々な微粒子の抽出特性の確認

本研究では、炉内水中から燃料デブリ・構造材由来の微粒子を抽出するために、 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。界面活性剤は両性イオン界面活性剤(高温で均一溶液、室温で相分離)を使 用した。令和3年度までの成果として、標準微粒子(金ナノ粒子)によって両性イ オン界面活性剤の抽出挙動を確認し、燃料被覆管に使用されているジルコニウムの 酸化物微粒子に対する pH による分散性の変化と、両性イオン界面活性剤によるジ ルコニウム酸化物微粒子の抽出挙動とゼータ電位の影響について検討した。令和4 年度は、炉内に含まれる様々な元素(Fe、A1、Cu、Cr、Ce、Zr)の微粒子に対して 界面活性剤を用いて抽出し、抽出特性ならびに粒子状態の確認を行った。

- 1) 実験
 - a) 金属微粒子溶液の調製

金属微粒子溶液は、遊星型ボールミルを使用して調製した。45 mL ZrO₂容器に 金属微粒子粉末(Fe₂O₃、Al₂O₃、CuO、Cr₂O₃、ZrC、CeO₂) 1~2 g、超純水 10~20 mL と 0.5 mm ZrO₂ビーズを加え 1000 rpm、10 分で粉砕・分散させた。その後、2 mL マイクロチューブに粉砕後の溶液を分取し、3000 rpm、5 分間遠心分離するこ とで得た上澄み液をポアサイズ 5 μ m のシリンジフィルターでろ過し、金属微粒 子溶液とした。

b) 界面活性剤による金属微粒子の抽出

10 mL 遠沈管に 10 w/w%両性イオン界面活性剤溶液 0.5 mL を加え 108 ℃に調温 したオイルバスで 1 分加熱した。その後、金属微粒子溶液 3 mL を加え、108 ℃ に調温したオイルバスで 5 分間加熱した。曇点温度以下の温度になるまで室温で 5 分間静置した。静置後、2000 rpm で 4 分間遠心分離をすることで水相と抽出相 (界面活性剤相)とを分離させた。

金属微粒子溶液、水相、抽出相(メタノール2mLで溶解)に含まれる金属微粒子の粒径と状態は、sp-ICP-MSとTEMで観察することで確認した。また、抽出率は(式3.1-4)より算出した。

$$E = 100 - \left(\frac{N_w \times V_w}{N_h \times V_h} \times 100\right)$$
 (式 3. 1-4)

E:抽出率(%)

 $N_w: 相分離後の水相中の粒子数濃度(particles/mL) または金属イオン濃度(<math>\mu$ g/L) N_h: 相分離前の均一溶液中の粒子数濃度(particles/mL) または金属イオン濃度(μ g/L) V_w: 水相の体積、V_h: 均一溶液の体積

c) 結果と考察

曇点抽出前後の Fe₂0₃ 微粒子の変化を確認するために sp-ICP-MS による測定を行なった。抽出前の粒子径は、101±56 nm であり、抽出後は 129±70 nm であった。 抽出前後の粒子径は、誤差範囲内の変化に収まっていた。また、抽出率は、 88.5%と高い抽出率を示した。Fe₂O₃ 微粒子を抽出前後において粒子状態を変化させることなく高効率に抽出することが可能である。

Fe₂0₃ 微粒子の pH 変化による抽出挙動を確認した。pH ごとのゼータ電位と抽出 率を図 3.1-14[A]に示す。ゼータ電位がゼロなる値を等電点と言い、等電点から 酸性側では微粒子表面にプロトンが付加するためプラスチャージを帯び、アルカ リ側は脱プロトン化によりマイナスチャージを帯びる。Fe₂0₃の等電点は pH6 付近 にあり、これは文献^[5] (pH6.7) と一致する。Fe₂0₃ は酸性・中性では高い抽出率 を示すが、アルカリ性では、抽出率が低下する。酸化物微粒子以外にも ZrC に関 しても同様に pH によるゼータ電位と抽出率の変化を確認した。結果を図 3.1-14[B]に示す。ZrC も Fe₂0₃ と同様に酸性・中性では高い抽出率を示すが、アルカ リ性では抽出率が低下する。酸化物微粒子だけでなく炭化物微粒子もpH によって 抽出挙動は変化する。

さらに様々な微粒子(Ce0₂、Cr₂O₃、Al₂O₃、Cu0)に対しても、pH 変化によるゼ ータ電位と抽出率を計測した。結果を表 3.1-4 に示す。いずれの微粒子も抽出前 後の粒子径は、誤差範囲内の変化に収まっていた。CeO₂、Cr₂O₃はFe₂O₃と同様にア ルカリ性では抽出率が低下した。一方、Al₂O₃、Cu0 は酸性、アルカリ性ともに抽 出率は高い値を示した。それぞれの微粒子のアルカリ性条件下でのゼータ電位を 比較すると、抽出率が低い条件ではゼータ電位は-40 mV 付近である。抽出率の低 下は、界面活性剤と微粒子表面の静電的相互作用によるものか、脱プロトン化に より界面活性剤と微粒子表面の水素結合が切れたことが原因だと考えられる。ま た、これまでの結果から、両性イオン界面活性剤による曇点抽出法は、酸性、中 性条件下では、様々な微粒子に対して高い抽出率を示し、抽出前後において粒子 状態は大きく変化しない。



粒子の種類	10 11	抽出前の	抽出後の	₩旧效 0/	ガニカ電告/ mV
	рп	粒子径/nm	粒子径/ nm	1田山平 70	ビーク 电位/ 皿/
CaO	2.2	59 ± 31	84 ± 45	84.1	45.7 ± 1.5
CeO_2	12.6	81 ± 29	102 ± 42	31.2	-38.2 ± 3.2
Cr_2O_3	1.9	106 ± 51	$118~\pm~57$	99.2	53.5 \pm 5.7
	12.6	76 ± 23	105 ± 41	14.7	-46.7 ± 1.1
$A1_{2}O_{3}$	2.0	75 ± 39	104 ± 46	97.5	38.9 ± 0.7
	12.5	88 ± 43	88 ± 37	91.2	-35.8 ± 0.7
CuO	2.4	124 ± 75	164 ± 81	99.4	2.5 ± 0.1
	12.7	145 ± 80	$191~\pm~86$	98.4	-15.0 ± 2.1

表 3.1-4 金属微粒子ごとの粒子径、抽出率とゼータ電位

③ インフォマティックスとの融合

滞留水・汚染水等から微粒子を抽出した場合、水中には鉄さび(鉄酸化物)由来等 の燃料デブリ・構造材由来の微粒子以外の物質(夾雑物)も多く存在し、それらの微 粒子も一緒に抽出される。様々な微粒子が存在する中から、目的の微粒子(燃料デブ リ・構造材由来)を検出する必要がある。しかし、TEM に付帯しているエネルギー分 散型 X 線分析による微粒子の同定には、時間がかかるため、多くの微粒子の中から目 的の微粒子を同定することは困難であった。そこで、機械学習(AI)による物体検出 に着目した。TEM 画像からは形状・粒子径の情報が得られるため、これを学習データ として、機械学習により微粒子の同定または、微粒子の大別(目的物質と夾雑物)手 法を検討した。

1) 実験

微粒子同定には、物体検出アルゴリズム YOLO を使用した。TEM 画像による物体検 出の例はないため、形状・粒子径ともに大きく異なる、球形の金ナノ粒子と直方体 の Sm₂O₃ 微粒子を用いて検討を行った。それぞれ 50 枚の TEM 画像を撮影し、これを 学習データとしインプットした。その後、金ナノ粒子と Sm₂O₃ 微粒子を混ぜ、TEM 画 像を取得し、YOLO により同定を行った。 2) 結果と考察

結果を図 3.1-15 に示す。TEM 画像から金ナノ粒子と Sm₂O₃ 微粒子を、それぞれ識別することができた(図 3.1-15[A])。また、微粒子同士が重なっていても図 3.1-15[B]のように識別が可能である。さらなる検討として、 ZrO_2 微粒子に対しても学習データを撮影し、識別を行っている(図 3.1-15[C])。しかし、 ZrO_2 微粒子の凝集体と Sm₂O₃ 微粒子を識別することは、できなかった(図 3.1-15[D])。この課題解決のために、さらに多くの学習データをインプットするか、さらなる微粒子形状情報を取得する必要がある。

今後は、これまでの撮影した様々な微粒子に対しても学習データをインプットし、 数種類の微粒子での識別を行っていき、必要な学習データ等の課題を検討する。



[A] [B] 金ナノ粒子と Sm₂O₃ 微粒子、[C] ZrO₂ 微粒子、[D] ZrO₂ 微粒子凝集体

図 3.1-15 機械学習アルゴリズムによる微粒子の同定

3-19 - 56 - ④ TEM による 3D 画像撮影の検討

AI による微粒子の同定・大別手法は、微粒子の形状・粒子径等の外観情報から微粒 子を識別するが、学習データの不足により正確な識別ができていない。そのため、2 次元の TEM 画像よりも微粒子状態の情報量が多い 3D 画像の撮影を検討した。

1) 実験

TEM は JEM-1400 型(日本電子株式会社製)を使用し、加速電圧 120 kV、倍率 80000 倍で観察した。観察用試料は、支持膜貼付 Cu メッシュグリッドに Sigma-Aldrich 製の粒子径 60 nm 金ナノ粒子溶液を 10 μ L 滴下後、室温下で 8 時間乾燥し 作成した。3D 画像撮影のために高傾斜試料ホルダーを使用し、Tilt X 55°から -10°まで 1°ごとに傾斜させて撮影を行った。画像取得には、Recorder 120 kV、 3D 画像構築には、Composer、3D 画像編集には、Visualizer Kai を使用した。

2) 結果と考察

3D 画像は、様々な角度から TEM 画像を取得し、Composer を使用して構築する。 本実験では、角度範囲 55°から-10°、倍率 80000 倍で画像を取得した。角度条件 と倍率は、高角度(60°付近)ではグリッド穴の影が TEM 画像に写り、倍率を高く するほど角度変化によってサンプルが視野内から移動してしまうため、角度範囲 ±50°、倍率 10000~80000 倍が撮影に適切な条件だと思われる。この条件におけ る、金ナノ粒子(粒子径 60 nm)の 3D 画像撮影の結果を図 3.1-16[A]に示す。金ナ ノ粒子は、球形であることが知られており、3D 画像からも球形であることが確認 できた。しかし、撮影角度(Tilt X)以外(Tilt Y)の面は不鮮明である(図 3.1-16[B])。より細かな角度で撮影する必要がある。また、高倍率での撮影を行った ことによるドリフトにより、画像が不鮮明になった可能性があるため低倍率での撮 影を検討する必要がある。金属微粒子は、様々な組成ごとに形状が異なるため、今 後、様々な微粒子に対して 3D 画像を取得し、形状情報を蓄積する。



 Axis Length info:赤:X 116.03 nm、緑:Y 152.05 nm、青:Z 154.48 nm

 図 3.1-16 金ナノ粒子の 3D 画像([A]Y30° X10° 、[B]Y30° X-15°)

3-20 - 57 - (3) まとめ

令和 4 年度は、1F の炉内滞留水に含まれると予測される様々な元素の微粒子に対し て、両性イオン界面活性剤による曇点抽出の抽出挙動を確認した。本法では、微粒子の ゼータ電位によって抽出挙動は変化することが分かった。インフォマティックスとの融 合は、TEM 画像による、金ナノ粒子と Sm₂O₃ 微粒子の同定を検討した。金ナノ粒子に対し て 3D 画像の取得を検討した。

今後、様々な微粒子に対して 3D 画像取得を検討し、インフォマティックスとの融合 は、これまでの学習データをインプットし、より複雑な系に対応を検討する。 3.1.4 アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発

(福島大学、再委託先:化研、PerkinElmer、連携先: JAEA) (令和4年度)

(1) 概要

IFの滞流水等には高エネルギーの α 線を放出するアクチノイドが含まれている。その 分析には主に α スペクトロメトリーによる放射能分析が利用されるが、アクチノイドか ら発生する α 線のエネルギーが重なり定量が困難になるため、核種ごとの分離操作が必 要となる。その分離操作は、煩雑な工程や焼付けによる放射性核種の飛散といった課題 があり、分析時間の増加や分析作業員への負担が懸念される。この課題解決のために、 ICP-MS を用いた α 線放出核種(Th、U、Np、Pu、Am、Cmの同位体)の一斉分析が可能な 自動分析システムを構築する。本法の課題は、質量数が同じ同位体のピークが重なり、 定量が阻害される同重体干渉である。主な同重体干渉が、²⁴¹Amに対する²⁴¹Pu(β 線放出 核種)の干渉、²³⁸Puに対する²³⁸Uの干渉、そして多量の²³⁸U 由来にて装置内で発生する 水素化物(²³⁸UH、²³⁸UH、²⁴⁰Pu への干渉である。この課題解決に向けて、ICP-MS 内の反応セルにおけるリアクションガスを利用した分離検討と装置導入前の固相抽出 による分離を検討する。最終的に、それらを組み合わせた自動分析システムを構築する。

- (2) 令和4年度実施内容および成果
- 実施内容

^{235、238}U、²³²Th の試験溶液は、PerkinElmer 製混合標準溶液(B、Th、U)を適宜希釈し て調製した。²⁴²Pu の試験溶液は、NIST 製標準液を希釈して調製した。²⁴¹Am と²⁴⁴Cm 標準 液は、Eckert & Ziegler Isotope Products 製を希釈して調製した。

1) ICP-MS 内反応セルにてガスとアクチノイドの反応を調査

ICP-MS (PerkinElmer 製 NexION2000) にアクチノイド試験溶液(Th、U、Pu、Am、Cm)をそれぞれ通液し、DRC に4種類のガス(0₂、C0₂、N0、NH₃)を個別に導入した。
 そして、各アクチノイドとガスの反応性を調査し、その反応性の違いを利用して同重体元素の分離を検討した。

2) 固相抽出樹脂によるアクチノイドの分離検討

固相抽出樹脂は、DGA resin (Eichrom Technologies 製)を選定した。この樹 脂は、対象となるアクチノイド (Th、U、Np、Pu、Am、Cm)を全て吸着し、吸着 したアクチノイドを逐次溶出できる。2 本の PerkinElmer 製エンプティカラム (材質:PEEK、内径 3.5 mm×長さ 50 mm) へ DGA resin を約 220 mg ずつ充填 (計 440 mg) し、直列に接続して使用した。各溶液 (試料、洗浄液、溶出液) は、ペ リスタルティックポンプ (Gilson 製 Minipuls 3)を用いて流速 4.2 mL/min で通 液した。吸着時の溶液条件は、a) 4 M HNO₃+1% H₂O₂ と、b) 4 M HNO₃+0.1 M NaNO₂+0.2 M Fe(NO₃)₃の2条件を検討した。DGA resin に吸着したアクチノイド は、以下に示す溶離液を①~④の順で通液して逐次溶出した (①U 溶出:0.2 M HNO₃、②Am、Cm 溶出:0.5 M HC1、③Pu 溶出:0.5 M HC1+1.0% アスコルビン酸、 ④Th 溶出:0.1 M シュウ酸アンモニウム)。最終的に、固相抽出樹脂における各 アクチノイドの回収率を算出した。 3) 自動分析システムの構築とアクチノイド標準液を用いた実証試験

FI システムは、以下の装置群(スイッチングバルブ:Gilson 製 ValvemateII×3 台、ペリスタルティックポンプ:Gilson 製 Minipuls 3×2台、オートサンプラー: Gilson 製 223 オートサンプラー×1台)を用いて流路を構築し、専用のソフトウェ アで連動させた。このシステムに DGA resin を充填した PEEK カラム 2 本を装着し た。このシステムのインターフェースと ICP-MS をトリガーケーブルで接続し、アク チノイドがカラムから溶出するタイミングで ICP-MS へ信号を送り、測定データを取 得した。本システムを用いて、アクチノイド 10 核種 (²³²Th、²³⁷Np、²³⁵U、²³⁸U、²⁴⁰Pu、 ²⁴²Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm、²⁴⁵Cm、²⁴⁶Cm)の混合溶液を一斉検出する試みを行った。

- ② 成果
- 1) ICP-MS 内反応セルにてガスとアクチノイドの反応を調査

4 種類のガス (NH₃、NO、0₂、CO₂)を用いてアクチノイドの質量分離を検討した。 NH₃ ガスの場合、Pu⁺の強度変動は見られなかった(ほとんど反応しなかった)が、 U⁺の強度は 1000 分の 1 以下にまで減少した。(図 3.1-17)これは、U⁺が NH₃ と反応 してクラスターイオンへと変換されたためである。²³⁸UH⁺、²³⁸UH₂⁺も同様にクラスタ ーイオンへの変換によって除去可能であり、NH₃ は ²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu の分析に効果 的であると推定される。一方で、Cm⁺も同時に除去されており、Cm 分析には適さな い。また、Am⁺と Pu⁺が同様の反応挙動を示しており、²⁴¹Am/²⁴¹Pu の分離は難しい。 加えて、Th⁺が多くのクラスターイオンを生成しており、他のアクチノイドに干渉 する恐れがある。例えば、形成が確認された ThN⁺や ThNH⁺は、試料中に ²²⁸Th、²³⁰Th、 ²³²Th が存在する場合、m/z 242~246 へのカウントが発生し、Pu 同位体(²⁴²Pu、²⁴⁴Pu) や Cm 同位体(²⁴²Cm、²⁴³Cm、²⁴⁴Cm、²⁴⁵Cm、²⁴⁶Cm)の定量を阻害する可能性がある。こ れらのことから NH₃ガスはアクチノイドの一斉分析には適さないと判断した。



図 3.1-17 NH₃ガスとアクチノイドの反応挙動

3-23 - 60 - 一方、酸化性ガス(N0、0₂、C0₂)の場合は、Am と Pu を酸化の進みやすさの違い を利用した質量分離が可能であった(図 3.1-18)。NO は、流量の増加に伴い、Pu⁺ が Am⁺よりも酸化されやすいことを利用して Am⁺を検出することが可能である。0₂ と C0₂の場合、Am⁺はAm0⁺、Pu⁺はPu0₂⁺へと反応を進めることで質量分離が可能である。 これらのガスのなかで、最適な流量における Am と Pu の分離率を比較すると、最も Am の検出に効果的なのは 0₂ ガスを用いた Am0⁺検出であり、Pu の検出に効果的なの は C0₂ を用いた Pu0₂⁺検出である。今回は、²⁴¹Am の検出を優先して 0₂ ガスをリアク ションガスへと選定した(²⁴¹Pu は、 β 線放出核種であるため)。この時、U は Pu と 同様に U0₂ に変換されると同時に U0₂H⁺と U0₂H₂⁺も形成しており、²³⁸Pu0₂⁺、²³⁹Pu0₂⁺、 ²⁴⁰Pu0₂⁺へと干渉することが確認された。よって、Pu/Uの分離に重点を置いた固相抽 出によるアクチノイドの逐次抽出法を検討した。



図 3.1-18 酸化性ガスと Pu、Am、Uの反応挙動

3-24 - 61 - 2) 固相抽出樹脂によるアクチノイドの分離検討

図 3.1-19に DGA resin を充填したカラムによる試料中のアクチノイド吸着結果を 示す。試料液量は、FI システムのオートサンプラーへとセットできる最大量の 50 mL まで検討した。Am、Th、U は、(A) と(B)の両条件において、90%以上の吸着率 を示した。しかし、Pu は、(A)の条件では液量の増加に伴い、吸着率が徐々に低 下した。DGA resin は、4 価の Pu を吸着するが、 H_2O_2 濃度を 0.3~3.5%の範囲で変化 させても吸着率は向上せず、 H_2O_2 では Pu イオンの価数を全て 4 価に調整するのが難 しいと考えられる。よって、吸着時の条件は、50 mL 液量まで対象アクチノイドを 90%以上吸着できる(B)に決定した。図 3.1-20 に DGA resin からのアクチノイド溶 出結果を示す。4 つの溶離液を使用することで、U、Am、Pu、Thを逐次抽出しており、 U/Pu、Am/Pu が分離された。



(A) 4 M HNO₃+1 % H₂O₂
 (B) 4 M HNO₃+0.1 M NaNO₂+0.2 M Fe (NO₃) 3
 図 3.1-19 DGA resin へのアクチノイドの吸着率



図 3.1-20 DGA resin からのアクチノイド溶出結果

3-25 - 62 - 3) 自動分析システムの構築とアクチノイド標準液を用いた実証試験

α 核種の自動分析システムの外観を図 3.1-21 に示す。本システムを用いて、4 つ のアクチノイド標準液の混合溶液を測定した結果を図 3.1-22 に示す。一度の測定で、 10 核種 (²³²Th、²³⁷Np^{*1}、²³⁵U、²³⁸U、²⁴⁰Pu^{*2}、²⁴²Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm、²⁴⁵Cm^{*3}、²⁴⁶Cm^{*3})を 一斉に検出できることを確認した(※1:²⁴¹Am 標準液に娘核種として含有、※2:²⁴⁴Cm 標準液に娘核種として含有、※3:²⁴⁴Cm 標準液の共存物質)。



図 3.1-21 構築したアクチノイド自動分析システム



左軸:²³⁸U および ²³²Th 右軸:²³⁸UO₂H⁺、²³⁸UO₂H₂⁺、²³⁵U、²³⁷Np、²⁴⁰Pu、²⁴²Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm、²⁴⁵Cm、および ²⁴⁶Cm

図 3.1-22 構築した分析システムによる 10 核種の分析結果

(3) まとめ

ICP-MS 測定を阻害する同重体干渉の除去に向け、ICP-MS 内反応セルおよび固相抽出 樹脂を用いた各アクチノイドの分離検討を行った。その結果、反応セルでは、酸化性ガ スによる Am と Pu の酸化のしやすさの差を利用した質量分離が可能となった。特に、02 ガスを用いることで²⁴¹Am に対する干渉物質(²⁴¹Pu)の許容比率が最も高くなった。

また、固相抽出樹脂を用いて、アクチノイドを逐次抽出し、U/Pu、Am/Pu を分離した。 最終的にこれらの分離機構を一つにまとめた自動分析システムの構築を行い、アクチノ イド 10 核種の同時検出を行った。

今後は、認証標準物質等の環境試料を用いて、認証値(添加値)と定量値が一致する か検討する。

- 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(福島大学、 再委託先:PerkinElmer)(令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

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。

令和元年度には、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。分散剤や元素組成によって粒子径に違いがでるかを検討した。 他の計測法と比較して同様の粒子径となるか、TEM、動的光散乱光度計、小角X線回折 装置を用いて比較した。時間の関数等の因子とともに粒子径および粒子数に加えて粒 度分布の再現性を検討した。

令和 2 年度には、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。分散剤や元素組成による粒子径の違いを検討した。ICP - MS として得られる安定元素の濃度プロファイリングを取り

込み、多変量解析を行い、材料プロファイリングができるか検討を開始した。実際の 健全な試料を利用し、材料測定データからの分類について検討を開始した。

令和3年度には、模擬試料等を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。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 グができるかの検討を開始した。

- (2) 令和4年度実施内容および成果
- 多変量解析による材料プロファイリング 合和2年度に引き続き 55 種類の合金を購入しプロファイリング

令和3年度に引き続き55種類の合金を購入しプロファイリング対象として用いた。 表3.2-1に材料名および材料ジャンルを一覧として示す。

材料ID	ジャンル	材料名
1	w	DENSIMET#176
2	ステンレス	SUS301
3	ステンレス	SUS302
4	ステンレス	SUS304
5	ステンレス	SUS310S
6	ステンレス	SUS316
7	ステンレス	SUS316L
8	ステンレス	SUS321
9	ステンレス	SUS347
10	ステンレス	SUS430
11	ステンレス	SUS631
12	Al-Mg	アルミ・マグネシウム
13	Al-Li	アルミ・リチウム
14	Ni	インコネル600
15	Ni	インコネル601
16	Ni	インコネル625
17	Ni	インコネルX-750
18	ステンレス	SUS15-7PH
19	ステンレス	SUS17-7PH
20	Cu	真鍮
21	Fe-Cr	鉄クロム10
22	アドバンス	アドバンス
23	Fe-Cr-Al	アルクロム-0
24	Al-Mg-Si	アル・マグ・シリコン
25	Al-Si	アルミ・シリコン
26	Cu-Ni	セラマワイヤ No36(27%ニッケル被覆銅線)
27	Be-Cu	ベリリウム銅
28	Cu-W	銅・タングステン

表 3.2-1 材料一覧

14 見		
材料ID	ジャンル	材料名
29	Cu-Ni	キュプロニッケル(白銅)
30	Cu-Ni-Fe	デュメット
31	Cu-Zn	ギルディング・メタル
32	Au-Sb	金アンチモン
33	Au-Ga	金ガリウム
34	Au-Mo	金モリブデン
35	Ni-Cr-Mo	ハステロイ C-276
36	インバー	36インバー
37	Fe-Cr	鉄クロム30
38	Fe-Cr-Al	カンタル
39	Fe-Cr-Ni	コバール
40	Cu-Mn-Ni	マンガニン
41	Ni-Cr	モレキュロイ
42	Ni-Cu	モネル
43	Ni-Cr	ニクロム
44	パーマロイ	45パーマロイ
45	パーマロイ	78パーマロイ
46	炭素鋼	ピアノ
47	Cu-Sn-P	リン青銅
48	Pt-Rh	白金・ロジウム
49	Cu-Ni	コンスタンタン
50	ThO ₂ -W	1%トリア・タングステン
51	Au-Pd	金・パラジウム
52	Ga-Ge	ガリウム・ゲルマニウム
53	ポリマー	ABS樹脂ペレット8103-a
54	ポリマー	ABS樹脂ペレット8102-a
55	ケイ素	セラミックス用炭化ケイ素微粉末(α型)

1) 試料調整および解析手順

各材料からの抽出手順(図 3.2-1)に示すように、各サンプルを数 mg の金属片とし、 濃塩酸または濃硝酸、または各 pH 緩衝液(pH2、4、6、8、10、12)に5日間浸漬し振 とう後、一部を分取し 0.45 μ m のシリンジフィルターでろ過後、適時、超純水にて希 釈し ICP-MS によって 63 元素を測定した。得られた各元素の定量値を材料プロファイ リングに用いた。


図 3.2-1 各材料からの抽出手順

pH緩衝溶液は0.4 M、広域緩衝溶液(1.2 M、酢酸、ホウ酸、リン酸、各100 mL) を2 M、NaOHでpH 調製した Britton-Robinson Buffer 溶液(pH2、pH4、pH6、pH8、 pH10、pH12)とした。各材料・各溶出条件によって得られた測定溶液を ICP-MS に より測定したところ、各溶出液条件に依存して、各材料から溶出される元素の濃 度・割合が異なることが分かった。例えば、マンガン(Mn)は酸性で溶出しやすく、 タングステン(W)はアルカリ性で溶出されやすい挙動が確認された。図 3.2-2 は、 材料毎、各 pH での Mn または W の溶出割合(縦軸 100 分率表示)を示した。これは 元素の化学的性質に起因していると考えられる。



図 3.2-2 Mn および Wの溶出割合

一方で、溶出された各元素濃度は、高濃度から低濃度まで様々であり、多変量解 析において高い強度を与える成分群が全体の結果(分類傾向)に強く影響を与えて しまう懸念がある。つまり、低濃度の成分がその材料の特徴を明確に示すのに重要 な因子であったとしても、高濃度の成分がその因子を隠してしまう懸念である。

この問題を解決するために、得られたデータ群を正規化(強弱差を保ちながら同 等に評価できる強度に均す)することを試みた。データ群の正規化方法は、平均値 による正規化、平均値による正規化と基本平均値による再スケーリング、トリム平 均値による正規化、トリム平均値による正規化と基本トリム平均値による再スケー リング、パーセンタイルによる正規化、パーセンタイルによる正規化と基本パーセ ンタイルによる再スケーリング、0から1の間のスケーリング、平均値を減算によ る正規化、中央値を減算による正規化、符号比率による正規化、Logの比率による 正規化、標準偏差単位でのLog比率による正規化、2スコアによる正規化、標準偏 差による正規化を実行し、これらを階層クラスタリングにかけることで材料ジャン ルに分けやすい正規化法を検証した。その結果、低濃度成分も材料分類に影響を与 え、材料の特徴分類に最も適していたと考えられたのは標準偏差による正規化であ ると考えられた(図3.2-3)。

なお、この評価の際の階層クラスタリングメソッドは単一結合、距離の計測をコ リレーションとした。分類結果を図 3.2-4 に示した。まず、塩酸溶出データのみ、 硝酸溶出データのみの各データによっては分類状況が不明瞭な点が多々見受けられ たが、塩酸溶出データと硝酸溶出データを統合し階層クラスタリングすることで分 類傾向は改善された。このことは、塩酸または硝酸に依存する元素溶出挙動が異な るためであり、それぞれの条件を組み合わせることで材料の差異が大きく見えてき ていることが示唆された結果である。

同様に、pH2~6 の酸性抽出データ群、pH8~12 のアルカリ性抽出データ群、pH2~12 の全 pH 域抽出データ群についての階層クラスタリングの結果を図 3.2-5 に示 す。材料・元素によって抽出されやすい元素挙動の違いを反映しているため、全 pH 域でのデータを利用することで材料特徴の差異を明確にできた。なお、ステン レス群を他群と分けるには pH10 のデータが最もよく分類できており、分類したい 対象に絞って pH 抽出条件や組み合わせを変えることで任意の材料を分類すること も可能になると考えられる。

今回得られた正規化法ならびに階層クラスタリングメソッドの知見を前年度実施 取得したデータ群に対しても適用したところ、材料分類傾向がさらに改善できるこ とが分かった(図 3.2-6)。





3.2-3 X

3-32 - 69 -









3-34 - 71 -



3-35 - 72 -

次に、SUS301 の強度データを 100 分の 1 にした場合の分類位置を調査したとこ ろ、SUS301 と同じものと判別された。このことは、強度の大きさ(定量値)に依 存せず、その材料と特定できることを示している(図 3.2-7)。また、混合材料を 想定し、SUS430 測定データに真鍮データを組み合わせ、その比率を変え分類傾向 を調査した。図内の黄色枠に示すように、データ混合比率に依存して SUS430 寄り または真鍮寄りクラスタリングの距離が移動することが確認された。



図 3.2-7 SUS430 データに真鍮データを合成した分類シミュレーション

3-36 - 73 -

このことから、測定されたデータが濃度や混合に依存せず、どの材料組成に近い かを判別することが可能であると考えられたが、明確に数値として把握するために、 新たに確信度Dを指標として考案した。この確信度Dとは、階層クラスタリングに おける距離の近さを利用し、未知試料を他の測定データに類似していることを数値 的に帰属する目的の指標である。概念は、図 3.2-8 に示す。



確信度Dの概略図

図 3.2-8 確信度 D の考え方

計測データ群がステンレスかを判断する際においては、確信度 D が1 に近いほど、 ステンレスに近いデータであると判断する。D=1 であれば、ステンレスのデータ クラスターに含まれ、D=0 であれば異なると判断する。0<D<1 のときの確信度 D は (式 3.2-1) で導出する。

$$D = 1 - \frac{d_n - d_{SUS}}{d_u - d_{SUS}}$$
 (式 3.2-1)

確信度 D により、未知試料データを数値として材料分類を行うことができるかを 検証するために、ステンレスとガリウム-ゲルマニウム合金(Ge-Ga)の計測データ を任意の比率で混合し、階層クラスタリングを実行し、確信度 D を算出した。

確信度 D を算出した結果、データの混合比率が変わってもそれぞれの材料の混合 物であることが確信度 D>0.9 として明示可能であった(図 3.2-9)。



図 3.2-9 階層クラスタリングと確信度を用いた材料判別

(3) まとめ

図 3.2-10 に令和 4 年度に実施した、材料プロファイリングメソッドの概要を示す。 これは、多因子抽出条件で取得したデータ群を標準偏差による正規化を行い、階層クラ スタリングし分類し、PCA も併用しデータ分離を行う分類メソッドである。

固体試料から溶出した微量の成分の情報を損なうことなく利用し材料組成の判別を行 うことができた。また、固体試料の全溶解をせずに、材料に接触した溶液(浸漬抽出) から材料の判別ができる可能性を示した。このことは、燃料デブリ周辺の情報を汚染水 から推定する場合の情報源として利用できる。さらに、確信度Dによる評価により、複 合材中の材料判別も数値として判定できる可能性が示唆された。



2 - 10

с.

X

3-39

- 76 -

- 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) (令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

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 3.2-11)。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 3.2-11 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分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。

一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。

令和元年度には、JAEA が開発したモンテカルロシミュレーションコード PHITS を 導入し、これまで福島大学で作成し放射性 Cs に限定して利用してきた放射線輸送計 算プログラムとの整合性を検証した。また深層学習に特化したワークステーション を導入し、福島大学で開発したスパコン用並列計算コードと同様の高速化を実現す るための環境整備を行った。併せて、今後の 1F の現場需要を踏まえた事前学習用デ ータとして使用する比較的簡易な試験用シミュレーションモデルを作成した。

令和2年度には、令和元年度に引き続き、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用並列計算コードと同様の高速化を実現するための調整を 行った。併せて、今後の1Fの現場需要を踏まえた事前学習用データとして使用する 比較的簡易な試験用シミュレーションモデルの作成を引き続き実施した。燃料デブ リ内の放射性物質としてウラン(U)に限定し、PHITSを用いてデブリ形状・U 濃度 分布の条件を変化させた際の放射線輸送計算を開始した。得られるデブリ周囲の放 射線分布とエネルギースペクトル結果を事前学習データとして、深層学習アルゴリ ズムの改良を開始した。モデルとなったデブリの形状・濃度分布をどの程度の精度 で推定できているかの検証も開始した。また、深層学習の結果を、燃料デブリの臨 界性や崩壊熱評価へ反映させる基礎モデルの検討を開始した。

令和3年度には、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した。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) 令和4年度実施内容および成果

令和4年度は、実際の燃料デブリスケールに近づくように規模を拡大させたモデルを用いて放射線輸送計算を行い、深層学習アルゴリズムによるデブリ性状推定を行った。まず、これまで検証に用いていた10 cm 四方の2次元モデルを拡大し、図3.2-12のように直径100 cm、高さ100 cm、厚み5 cm の鉄の円筒中の底に¹³⁷Cs を配置した際の外部への放射線量を計算するためのモデルを検証した。放射線量の分布は図3.2-13左の立方体の6面(①~⑥)を検出面としたところ、図3.2-13右のように線源の位置を十分に反映した計算結果を得ることができた。さらに実際の測定値を用いて実証できるように図3.2-14に示す測定システムを構築した。1メッシュ7 cm 四方の正方形を4×4メッシュ並べ、測定器としてφ2インチのNaIシンチレーションスペクトロメータ(CANBERRA 製 802および Osprey-DTB)を4台配置し、4メッシュでのγ線を同時に測定できるよう組んでいる。メッシュ上には¹³⁷Cs、⁶⁰Coの標準線源を複数配置できるようにした。また、遮蔽材料として鉛板を線源と測定器の間に挟めるようにしている。



図 3.2-12 円筒内に ¹³⁷Cs 線源を配置したモデル



図 3.2-13 各計測面におけるシミュレーション結果



図 3.2-14 各種配置パターンを実測するための測定系

3-42 - 79 - 例えば図 3.2-15 のように¹³⁷Cs を 2 個、⁶⁰Co を 1 個配置した場合に、各メッシュで 測定された y 線エネルギースペクトルが示される。なお、使用した NaI シンチレー ションスペクトロメータのエネルギースペクトルは 1024 ch に分割されるが、ニュー ラルネットワークの入力層ノードの負荷を低減するために 64 ch まで平均化した。そ の結果、図 3.2-16 のように入力層は 64ch×16 メッシュ=1024 ノードとなる。



図 3.2-15 ある配置パターン(中央図)に対する各メッシュでの測定スペクトル



図 3.2-16 スペクトルデータと配置パターンの関係を学習させるニューラルネットワーク

3-43 - 80 - このように測定された y 線エネルギースペクトルデータのみから学習を行い、さらに学習に用いていない配置の検証パターンを用いたところ、図 3.2-17 で代表されるような結果が得られた。これにより、検証パターン (f) -1 や (f) -3 のように高い精度で正解データと一致するものが見られる一方で、 (f) -2 のように空間分解能が少し悪いものや(f)-4 や(f)-5 のように¹³⁷Cs の1つは推定精度が高いものの2 つめの推定ができていないもの、⁶⁰Co の位置を¹³⁷Cs の位置としてしまう場合もあった。これは、シミュレーションデータに比べて、学習に用いることのできる実験データのパターン数が少ないことによるものだと考えられる。



図 3.2-17 検証のための各種配置パターンと推定結果

3-44 - 81 - また、測定可能箇所が制限される実際の測定現場において、より少ない測定デー タからデブリ性状の全体像を推定可能とするために、放射線計測箇所に欠損があっ た場合の推定アルゴリズムについて検証を行った。そのために、図 3.2-18 左に示す 10 cm 四方に配置された¹³⁷Cs の様々なパターンに対して、検出面の一部(黒いメッ シュ部分)では測定ができない欠測箇所があると仮定し、図 3.2-18 右のようなニュ ーラルネットワークで推定を行った。欠測箇所の数を増やした場合に推定の誤差が どの程度増大するかを図 3.2-19 に示す。これより欠測箇所が増えても誤差は線形的 に増大しているため、20%程度の欠測箇所があっても本手法は適用可能と考えられる。



図 3.2-18 欠測箇所を考慮した学習モデル



(3) まとめ

令和4年度は、令和3年度より規模を拡大させたモデルに対してもこれまでの手法を 用いることが可能であることを示した。また、シミュレーションデータではなく測定デ ータを用いて推定が可能であることを示した。さらに、測定可能箇所が制限される実際 の測定現場を想定し、放射線計測箇所に欠損があった場合の推定アルゴリズムについて 検証を行い、一定程度欠測箇所があっても本手法が適用可能であることを示した。

- 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) (令和元年度~令和4年度)
 - (1) 令和3年度までの概要

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あらかじめ分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. 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、令和元年 度には、計算システム (PC および開発環境)の導入および関連マニュアル等の整備を 行った。また、東京電力等の専門家からのヒヤリングを通して今後の研究体制につい て議論・確認を行った。つまり、令和2年度以降の研究環境の整備を行った。

令和 2 年度には、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。そのうえで、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年度には、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、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(静止画)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、化合物種を迅速に推定する AI システムのプロトタイプを構築した。

- (2) 令和4年度実施内容および成果
- 格納容器内の画像(動画・静止画)の検証と検討

令和4年5月に行われた1号機原子炉格納容器内部調査(水中ROV-A2)における 上部、後方、気中、水中監視カメラによる4面同時撮影動画を、東京電力より入手 した。1)先に実施された2号機の内部調査画像と比較して、視認性が向上している こと。2)各監視カメラが独立して、画角変更等が行われていること等が確認された。 これらの動画に対して、令和3年度に実装した調査動画のダイジェスト画像抽出シ ステムを適用し、その有効性を確認した。また、調査動画は非常に長く、同一シー ンが長時間続く冗長な箇所や光量等の問題で不明瞭な箇所が多い。これらを、違和 感なく視聴できる短い(例えば、30%、50%、70%時間短縮等)動画に変換するシステ ムを実装した。今後は、ダイジェスト画像アルバムからの冗長画像の抽出・削除や、 ダイジェスト画像の広域画像化を行う必要がある。

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 (2)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ものもあり、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。 この一連の作業の自動処理を行うことによる専門家支援を目的として、以下のような 落下物・堆積物のリアルタイム物体識別 AI のプロトタイプを実装した。令和3年3月 に行われた、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、動画中より、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) に分類したものを抽出し、これを訓練用データとした。また、訓練データが十分に確 保できないため、転移学習(YOLO v5)を利用してリアルタイム物体識別モデルのプ ロトタイプを実装した。プロトタイプとしては、概ね良好な結果を得たと考えられる。 今後は、物体識別におけるバウンディングボックスの適正化と、なぜ、転移学習が良 好な結果をもたらしているのかについて、Class Activation Mapping (CAM)等を通 して検証していく必要がある。

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。 JAEA 楢葉遠隔技術開発センターより、1F 原子炉建屋内データ(以下、「VR データ」 と略す。)を入手し、調査動画等との連携について検討を行った。また、PCV 内部の Virtual Reality(以下、「VR」と略す。)化に向け、以下のような、バーチャル・リ アリティヘッドセット OculusQuest2 を通して体験可能な VR の試作を行った。
 - 1) VR データ上に、令和3年度に作成を開始した広域画像生成モジュールによって 生成された広域画像を貼り付ける(図3.2-20上)。
 - 2) VR 上で、当該画像を指定し、【動画再生】を選択すると、その周辺の動画が再 生される(図 3.2-20 左下)。
 - 3) 当該画像を指定し、【詳細表示】を選択すると、令和3年度に作成を開始した 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(静止画) によって得たれた物体認識の詳細情報が提示される(図3.2-20下中央)。
 - 4) メニューから【マップ】を選択すると、PCV内部の平面地図が提示され、VR上の任意地点のへ視点移動ができる(図 3.2-20 右下)。ただし、現段階では、調査動画中の被写体のPCV内での位置情報が公開されていない、広域画像生成モジュールおよび物体識別(目視判断)AIのプロトタイプ(静止画)が開発途上である等の問題がある。これらの問題の解決が進めば(例えば、複眼カメラによる VSLAM や、3D-LiDAR等による立体位置情報の導出等)、本システムは、PCV内部の状態把握に大きく寄与するものと期待できる。

3-47 - 84 -



図 3.2-20 PCV 内部の VR システムのプロトタイプ

④ LIBS スペクトルデータに対する機械学習的なアプローチの検討

令和3年度までに、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(3-6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、NMF を通した新たな未知試料推定法が提案された。

令和4年度では、以下のようなLIBS スペクトルの NMF 因子スコアから、未知試料 (未知化合物)の組成比を推定する手法の検討・開発を行った。令和3年度同様、標 準試料として、4種類のホウ化物(ZrB₂、NiB₂、FeB₂、CrB₂)、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 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+ B+機器特性」の5つを想定したからである)。これらの因子を用いて、組成比の異な るホウ化クロム(組成比(Cr:B):3:4、1:1、2:1、5:3、87:13の5種類)と ホウ化鉄(組成比(Fe:B):37:63、1:1、84:16、93:7の4種類)をそれぞれ、 図3.2-21のように NMF 因子スコアプロットを行った。このとき、ホウ化クロムは、第 1-3因子平面上で、ほぼ直線上に、かつ、組成比順に並んだ(図3.2-21左)。また、 ホウ化鉄は、第1-4因子平面上で、ほぼ直線上に、かつ、組成比順に並んだ(図3.2-21右)。これらの結果より、LIBS スペクトルデータによる化合物の組成比推定の可能 性が示唆された。今後は、同定できる化合物種を増やしていくことと、適切な因子数 同定の手法の開発が必要である。



図 3.2-21 組成比と NMF 因子スコアの関係

⑤ ICP-MS データに対する機械学習的なアプローチの検討

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 (3-28 ページ~) においても研究が進められているように、燃料デブリの材料組成を、 汚染水中の溶出成分からプロファイリングすることができれば、燃料デブリの生成プ ロセス解明の一助となる。ここでは、合金標準材料(ステンレス(9種)、A1合金(4 種)、Ni合金(4種)、Fe-Cr合金等全55種類・224試料)に対して、種々の液性下 における浸漬試験を実施した。これらの標準合金材料に対して、ICP-MSを用いて39元 素(Th、Bi、Pb、Au、Pt、Ir、Os、Re、W、Ba、Te、Sb、Sn、Cd、Ag、Pd、Rh、Ru、Mo、 Nb、Zr、Y、Sr、Se、Ge、Ga、Zn、Cu、Ni、Co、Fe、Mn、Cr、Ti、K、A1、Mg、Be、 Li)を定量した。また、これらのデータには、材料ジャンル(標準合金の種類)、液 性(pHの情報)をラベル付けしている。これらのデータを用いて、以下のような2段 階からなる SUS の判別手法を検討・開発した。

第1段階として、浸透試験時の液性の推定を行った。39元素の定量値データを説明 変数に、液性を目的変数とした部分的最小二乗法(以下、「PLS」と略す。)によっ て、(第3主成分までの)3次元データに次元削減を行い、決定木を用いて液性の判 別を実施した。その結果、アルカリ液性(pH8、10、12)の液性の判別が高精度で行 えることが分かった。分類精度は、pH8:訓練データ100%、検証データ90%、pH10:訓 練データ100%、検証データ100%、pH12:訓練データ100%、検証データ90%であった。 また、pH10の分類における決定木を図3.2-22に示す。これより、第2主成分によっ て、pH10の分類がほぼ行えたことが見て取れる。

JAEA-Review 2023-024



図 3.2-22 液性(pH10)分類の決定木

第2段階では、第1段階で推定された液性別に、SUSの分類を行った。ここでは、 39元素の定量値データを説明変数に、材料ジャンルを目的変数(SUS:1、その他:0) とした PLS によって、(第3主成分までの)3次元データに次元削減を行い、決定木 を用いて SUS の判別を実施した。分類精度は、pH8:訓練データ98%、検証データ96%、 pH10:訓練データ100%、検証データ100%、pH12: 訓練データ98%、検証データ95%で あった。ここで、pH10の SUS 分類における決定木を図3.2-23に示す。これより、第1 主成分によって、SUS の分類が行えたことが見て取れる。以上のことから、SUS 含有デ ブリがアルカリ液性下で溶出した場合、汚染水からの生成プロセスの推定ならびに材 料プロファイリングが行える可能性が示唆された。今後、他の手法との組み合わせる ことにより、デブリ生成プロセスおよび材料組成推定の蓋然性を高めるための手法と 統合システムの検討・開発が必要である。



図 3.2-23 SUS 分類の決定木 (pH10)

3-50 - 87 - (3) まとめ

以上のように、令和4年度は、①格納容器内の画像(動画・静止画)の検証と検 討:東京電力との情報交換を通して、1号機の調査動画を入手した。この動画を分 析・広報に利活用における利便性向上のための変換・再編集システムの検討・プロト タイプの実装・検証を行った。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:訓練データ不足補うため、転移学習(YOLO v5)を利用した、 リアルタイム動画処理が可能な、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を行った。③格納容器の内部の立体地図の作成に向けての検 討:JAEA 楢葉遠隔技術開発センターVR データを入手し、上記①、②の成果を連携させ たポータブルな VR システムの試作を行った。④LIBS スペクトルデータに対する機械 学習的なアプローチの検討:LIBS スペクトルの NMF 因子スコアから、未知試料(未知 化合物)組成比を推定する手法の検討・開発を行った。⑤ICP-MS データに対する機械 学習的なアプローチの検討:燃料デブリの材料組成を、汚染水中の溶出成分からプロ ファイリングするため、デブリ生成時の液性(pH)と、SUS 含有の有無の判別を行う 機械学習システムのプロトタイプの実装・検証を行った。

3.3 人材育成

3.3.1 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和元年度は、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、準備状況等を協議した。また、 JAEA(三春)を主拠点としてクロアポ教員および特研生を受け入れる準備を整え、ショー ト教育プログラムとして JAEA(富岡)ならびに JAEA(南相馬)の2拠点で受け入れるため の議論を行った。さらに、国際感覚豊かな人材の育成を実施するために、国内外の研究者 と実施内容を協議した。

令和2年度には、連携ラボ(大学等)および連携ラボ(JAEA)において、JAEA研究者と 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。また、 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。さらに、 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、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。

令和3年度には、連携ラボ(大学等)および連携ラボ(JAEA)において、JAEA研究者と 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。また、 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、学生に国内 外の学会等における発表の機会を与え、さらに、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4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4年12月26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、図3.3-1)。

令和4年度の業務計画の確認、中間フォロー、令和5年度業務計画等について協議を行った。



図3.3-1 全体会議の様子(写真掲載について承諾済み)

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	福島大学
5	再委託	株式会社パーキンエルマージャパン	古川 真	福島大学
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	岡﨑航大	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	福島大学
10	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
11	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
12	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
13	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
14	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
15	事務局	国立大学法人福島大学	鈴木 賢	福島大学

表3.3-1 全体会議出席者

(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、特研生3名(内訳:博士後期課程1名、博士 前期課程2名)を送り出し、JAEAは連携ラボ(JAEA)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、新型コロナウィルス感染症(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))。
- ・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。
- ・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。
- ・楢葉遠隔技術開発センター見学および遠隔ロボットに関する指導。
- ・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(View Sizer)、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や取扱い、前処理等に
 関する指導。
- ・生物試料の前処理に関する指導。
- ・樹脂の元素吸着に係る実証実験(図3.3-2左)。
- ・デジタルマイクロスコープを用いた3D形状測定(図3.3-2右)。
- ・放射線施設を利用する共同実験(中性子小角散乱および管理区域内での 吸着実験)。



図 3.3-2 実証実験(左)および 3D 形状測定(右)の様子(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 学生を対象とする人材育成プログラム(ゲルマニウム半導体検出器講習会)
- 【開催日】 令和4年5月30日
- 【 会 場 】 福島大学
- 【参加者】 12名
- 【概要】 放射線を測定するための計測機器には、様々な機器、測定方法が存在 するが、そのなかでもゲルマニウム半導体は、y線放出核種の同定と 濃度を測定する強力な測定装置である。その原理やスペクトルデータ の理解を深めるために装置や実際のスペクトルを用いて講習した。ま た、放射線にかかわる学生の人材育成を後押しするため、福島大学で は、放射線取扱主任者の国家試験を受験することを支援しており、研 究等で実際に使用する学生だけでなく、資格試験勉強の一環として勉 強する者も聴講した(図3.3-3)。



図 3.3-3 ゲルマニウム半導体検出器講習会の様子(写真掲載について承諾済み)

- ② 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4年6月3日
 - 【会場】 楢葉遠隔技術開発センター (NARREC)
 - 【参加者】 4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、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))にて、概要説明を受けた後、VRシステ ムの見学を行った(図3.3-4)。



図 3.3-4 NARREC 見学の様子(写真掲載について承諾済み)

③ 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4年6月9日
- 【会場】 オンライン
- 【参加者】 3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。

④ 学生を対象とする人材育成プログラム(JAEA職員による教育)

- 【開催日】 令和4年6月30日、令和4年7月7日
- 【 会 場 】 福島大学
- 【参加者】 19名
- 【概要】 JAEA職員が、福島大学の教育に連携して関わり、共生システム理工学 類の専門科目「放射線科学」において、JAEA 植頭康裕氏による放射 線の管理技術に関する講義が行われた(図3.3-5)。



図 3.3-5 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)

- ⑤ 学生を対象とする人材育成プログラム(加速器に関する教育)
- 【開催日】 令和4年7月15日
- 【 会 場 】 福島大学
- 【参加者】 17名
- 【概要】 原子炉を使用せずに放射性物質を製造する手段として加速器がある。 特にサイクロトロンは、医療用の放射性薬剤の創薬のためよく使用さ れる。今後の放射線の有効利用を考えるとき、サイクロトロンをはじ めとする加速器の知識は、人材育成において非常に有効な手段となる。 今回、加速器の種類、原理等を理解することを目的として演示実験も 含めて実施した(図3.3-6)。





図 3.3-6 加速器に関する教育の講義風景(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(サイクロトロン見学)
- 【開催日】 令和4年7月22日
- 【 会 場 】 福島県立医科大学
- 【参加者】 8名
- 【概要】 福島県立医科大学の先端臨床研究センターにおいて、サイクロトロン の実機を見学し、概要説明および医学における放射線利用に関する講 習を受けた。放射線取扱主任者試験を受験する学生が、医大教員によ る事前の概要説明の受講後に実物を見学し、また放射線取扱主任者試 験の問題を踏まえながらの説明を聞くことができ、理解を深めること ができた(図3.3-7)。



図 3.3-7 福島県立医科大学サイクロトロン見学の様子(写真掲載について承諾済み)

- (7) 学生を対象とする人材育成プログラム(環境再生事業見学)
- 令和4年9月1日 【開催日】
- 【会場】 福島県飯舘村長泥地区(帰還困難区域内)
- 【参加者】 12名
- 【概要】 飯舘村長泥地区で実施している環境再生事業(除染で出た土を処理し 豊地造成に再生利用する事業)について、同事業に対する認知度や理 解度を高めるために、事業エリアでの現地見学会に参加した。具体的 には、①事業概要についての説明、②農地造成盛土エリア、花卉栽培 ハウス見学、③超大型の放射線測定装置(バルクスキャン)の見学等 を行った(図3.3-8)。



図 3.3-8 環境再生事業見学の様子(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 (JASIS)

- 【開催日】 令和4年9月7日
- 【会場】 幕張メッセ国際展示場(千葉市)
- 【参加者】 7名

【概要】 本事業において、レーザー技術、質量分析技術、切換えバルブ等は、 分析システムを構築するうえで必要不可欠な技術である。 その一方で、その技術の進展は世界的な競争とともに加速しており、 市場における素早い情報収集が研究活動に非常に重要である。 この「JASIS2022」は、研究開発・品質管理・生産技術を支援する科 学機器をはじめ、分析、計測機器および設備・関連製品を一堂に会す る国内最大の分析機器の展示・説明会である。各社の先端分析機器、 新技術の説明を実物を見ながら情報を直接聞くことができる年に一度 の貴重な機会であり、先端研究を実施するうえで、その原理等の理解 を深めることが容易となる。 そこで、廃炉分析技術をより進展させるため、レーザー技術、質量分 析技術、切換えバルブ等の本研究にかかわる先端装置の情報収集と世 界・日本各社の動向を調査することを目的とし、学生にその機会を与 えて、先端分析に触れることで、より斬新な発想力を高め、この機会

3-58



図 3.3-9 JASIS 見学の様子(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(民間企業によるセミナー)

- 【開催日】 令和4年10月12日、令和4年10月26日
- 【会場】 オンラインおよび福島大学
- 【参加者】 101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「電子天秤の原理と使用に関する講習」、株式会社堀場アドバンスドテクノによる「pH メーターの原理と実際に関する実習」、ザルトリウス・ジャパン株式 会社による「マイクロピペッタの原理と実際に関する講習」、オルガ ノ株式会社による「水、イオン交換水、蒸留水、超純水の違いに関す 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(図3.3-10)。



図 3.3-10 pHメーター実習の様子(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での実習)

- 【開催日】 令和4年10月13日~10月15日
- 【会場】 JAEA 原子力科学研究所(東海村)
- 【参加者】 5名
- 【 概 要 】 JRR-3で滞留水中微粒子捕集のための曇点抽出とその相構造を解明す るために、集光型偏極中性子超小角散乱装置(SANSJ)を利用して実 験を行った(図3.3-11)。



図 3.3-11 JAEA 東海での実習の様子(写真掲載について承諾済み)

⑪ 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4年11月30日
- 【会場】 1F 化学分析楝
- 【参加者】 11名
- 【概要】 歴史に残る1F事故は、安全な社会を創るための教訓として、研究・学 習し、継承することが重要な課題になっている。また、長期にわたる 廃炉作業も、直接的、間接的に私たちの生活と関わらざるを得ない状 況であり、現在廃炉作業が進められている1Fの分析棟での作業現場を 視察することにより、廃炉支援の課題を理解することを目的とした。 学生は、廃炉についての理解を深めるとともに自身のこれからの廃炉 研究の向上に役立てることができた。
- ② 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4年12月26日
- 【 会 場 】 福島大学
- 【参加者】 24名
- 【概要】 コロラド州立大学環境放射線保健科学学部加藤宝光准教授を講師とし て、「放射線が生命に影響を与える仕組み」と題し、講演会を行った。 低線量放射線の生物影響についての知見は、廃炉作業における防護や 汚染地域における生物への影響評価等、1Fに関連する諸課題を考える 基礎として、極めて重要であり、放射線が生命にどのように影響を与 えるかを生命の基礎単位である細胞、そして遺伝をつかさどるDNAに 着目して解説した。また、放射線の効果を制御する方法を紹介し、放 射線によっておこる細胞死、遺伝変異の仕組みについても解説した (図3.3-12)。



図 3.3-12 加藤准教授による講演会の様子(写真掲載について承諾済み)

③ 学生を対象とする人材育成プログラム(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4年度は、 第一種試験4名、第二種試験2名、計5名(うち1名は両試験とも合格)が合格した(図3.3-13)。



図3.3-13 令和4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(講演会)
- 【開催日】 令和5年1月19日
- 【 会 場 】 福島大学
- 【参加者】 41名



図 3.3-14 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)

⑮ 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5年2月6日

【会場】 東日本大震災・原子力災害伝承館および楢葉遠隔技術開発センター

- 【参加者】 10名
- 【概要】 東日本大震災において、未曽有の複合災害について福島で 何が起き、どう向き合ってきたかを伝える「東日本大震災・ 原子力災害伝承館」(伝承館)を訪問し、震災の実態と風評 被害について学ぶ。

また、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、JAEA楢葉遠隔技術開発セ ンター(NARREC)にて、実際にクローラロボット実習やROV実 習を行い、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(図3.3-15)。



図 3.3-15 伝承館および NARREC 見学の様子(写真掲載について承諾済み)

- 16 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5年2月8日
- 【会場】 1F
- 【参加者】 20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3.3-16)。



図 3.3-16 1F 視察の様子(写真掲載について承諾済み)

- ① 学生を対象とする人材育成プログラム(同位体比分析実習)
- 【開催日】 令和5年2月26日~3月3日
- 【会場】 国立研究開発法人海洋研究開発機構 (JAMSTEC) 高知コア研究所
- 【参加者】 3名
- 【概要】 放射性同位体の質量分析について、原理の説明、装置・施設の見学、 同位体比の重要性と同位体比分析の役割に関する説明、TIMSに関する 基礎講習(原理・前処理)、試料の分解研修等をJAMSTEC研究員の講 習を受けながら実施した。また、実習としてTIMSによるSr計測および 同位体希釈法解析をJAMSTEC研究員指導のもと、共同で実施した(図 3.3-17)。



図 3.3-17 JAMSTEC 講習の様子(写真掲載について承諾済み)

- 18 学生を対象とする人材育成プログラム(海外演習)
- 【開催日】 令和5年3月13日~3月23日
- 【 会 場 】 コロラド州立大学 (USA)
- 【参加者】 4名(引率教員を含む)
- 【概要】 放射線教育に関する人材育成教育として、U、Np、Am、Cm、Pu等の放射性物質を吸着剤に吸着させる実験や中性子放射化実験、稼働している原子炉見学等を行い、見識を高めた。また、学生はホームステイを実施して、海外文化を体験した(図3.3-18)。



図 3.3-18 コロラド州立大学での実験の様子(写真掲載について承諾済み)

3.3.3 まとめ

福島大学はクロアポ教員1名、特研生3名(内訳:博士後期課程1名、博士前期課程2 名)をJAEA(三春)(連携ラボ(JAEA))に常駐させて教育をJAEA(三春)とで実施し、 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。

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の開催、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)の見学、民間企業によるオンライン講習(無償)を取り入れる等の教育を実施した。

また、放射線教育の集大成として国家資格である「放射線取扱主任者試験」の受験を 奨励して、令和4年度は計5名の合格者を輩出するなど、学生の基礎教育等に協力した。

3.4 研究推進

3.4.1 令和3年度までの実施内容および成果(概要)

令和元年度から令和3年度において、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4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4年4月27日 三春研究進捗報告会(図3.4-1)
- ・令和4年7月1日 英知事業 研究発表会および打合せ
- ·令和4年12月26日 全体会議



図 3.4-1 三春研究進捗報告会の様子(写真掲載について承諾済み)

- (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、月1回定 例会議を実施した。
- (3) 東京電力との連携 1F 廃炉技術開発センターならびに環境化学部とも協議をしながら協力体制を整えた。
(4) 学会発表(受賞については、図 3.4-2 を参照)

- ・令和4年5月13日~14日 第82回分析化学討論会(茨城大学)
- ・令和4年7月11日~14日 The 8th International Symposium on Metallomics (金 沢商工会議所)
- ・令和4年7月23日 みちのく分析化学シンポジウム(東北大学)※フロンティアラ ボ賞(優秀ポスター賞)受賞 1件
- ・令和4年8月29日 第6回福島第一廃炉国際フォーラム(いわき芸術文化交流館)
- 令和4年8月31日~9月2日 The 41st JSST Annual International Conference on Simulation Technology (JSST2022、九州工業大学)
- ・令和4年9月7日~9日 日本原子力学会2022秋の大会(茨城大学)
- ・令和4年9月14日~16日 日本分析化学会第71年会(岡山大学)※優秀ポスター賞 受賞1件
- ・令和4年9月14日~16日 第38回ファジィ システム シンポジウム (オンライン) ※FSS 優秀発表賞 受賞 2件
- ・令和4年9月15日~17日 日本放射化学会第66回討論会(東京大学)
- ・令和4年10月14日~16日 福島廃炉研究国際会議2022(Jヴィレッジ)
- ・令和4年11月24日~25日 第41回溶媒抽出討論会(東京工業大学)
- ・ 令和 4 年 12 月 6 日 令和 4 年度福島研究開発部門成果報告会(富岡町文化交流セン ター学びの森) ※廃炉環境回復促進賞受賞 3 件
- ・令和4年12月9日~10日 第8回先端計測技術の応用展開に関するシンポジウム (SAAMT2022)(姫路・西はりま地場産業センター)※優秀発表賞 1件
- ・令和5年3月9日 第8回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス(NDEC-8)
 (福島大学)、研究奨励賞分析技術部門賞 1件、最優秀フロンティアスピリット賞
 受賞 1件
- ・令和5年3月15日 日本知能情報ファジイ学会令和4年度東北支部研究会(秋田大学) ※研究会奨励賞 2件

JAEA-Review 2023-024



図 3.4-2 学会発表受賞者一覧(写真掲載について承諾済み)

(5)受賞

・2021 年度文部科学大臣賞(工学教育賞)日本工学教育協会-文部科学省 高貝慶隆、山口克彦 「理工学的専門教育と福島の地域課題に向き合う放射線教育の相 乗効果による次世代人材育成プログラム」(図 3.4-3 参照)



図 3.4-3 文部科学大臣賞受賞 高貝教授(中央)と山口教授(右) (写真掲載について承諾済み)

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4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) 分析法の開発

(1)-① LA-ICP-MS による定量では、令和4年度は⁹⁰Sr の定量イメージングを達成するため、 オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS システムを構築し、その妥当性確認を実施した。また、 模擬デブリの元素マッピングデータを用いてインフォマティックスとの連携を検討した。

認証標準物質および⁹⁰Sr 添加模擬試料を分析することで、オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS による安定 Sr および⁹⁰Sr 定量の妥当性を確認した。いずれも測定値は添加値に対して良く 一致した。1 測定点あたりの分析時間は 1 秒以内であり、局所分析およびイメージング分析が可 能であることが確認された。干渉元素の影響については引き続き調査が必要である。

また、PCA および K 平均法クラスタリングを用いて模擬デブリの LA-ICP-MS データを解析する ことで、大量のデータを圧縮、ジャンル分けを行った。PCA スコアプロットと K 平均法クラスタ リングを組み合わせると、元素分布が類似した箇所と良く一致したことから、LA-ICP-MS 分析に インフォマティックスを利用することで試料組成の特徴付けが容易になる可能性が示された。

(1)-② LIBS による硬度計測法の開発では、令和4年度は、令和3年度の課題解決と LIBS 測 定データのインフォマティックス技術の融合、LIBS による硬度計測方法の検討を行った。

LIBS 測定データとインフォマティックス技術の融合では、非対称最小二乗法によりベースライン除去を行い、スペクトルを標準化した後、機械学習手法 NMF による LIBS スペクトルデータ分析を検討し、スペクトルの強度や形状等を含む評価が可能となり、未知試料に含まれる金属元素や化合物の分類・推定が可能となった。

LIBS 測定データの硬さ変換の検討では、マッピング解析ソフトを改良し、マッピング像におい て背景を透明にする機能を追加し、試料画像とマッピング像を合成した際に、対象物の硬さ分布 を特定しやすくした。

また、CMMR0-1 試験体の元素マッピング情報を多変量解析し、酸化ジルコニウムは 0/Zr 比を抽 出条件とし、それ以外は測定点に含まれる元素の種類を抽出条件として 8 種類の組成のマッピン グ像を作成した。組成マッピング像は EPMA の分析結果と一致しており、元素情報から組成変換 が可能となった。組成ごとに硬さを決定後、硬さに応じて金属、酸化物、ホウ化物の 3 つに再分 類し、硬さマッピング像を作成した。試験体の硬さの実測値と文献値を照合した結果、金属と酸 化物は良好な結果を得たが、ホウ化物は不良となり今後検討が必要となった。 ラベリング・ライブラリ化および未知試料の検索検討では、Savitzky-Golay法による微分工程 の後にガウス関数処理することで重複ピークの個別処理が可能となり、各元素で複数のピークの 登録ができることで定性の精度向上につながった。未知試料の元素検索では、登録ピークのガウ ス関数値の係数 a に定数 k を乗じることで、未知試料と登録ピークのピーク強度が異なる場合で も定性でき、これにより NIST のスペクトルデータとの比較が可能となった。

(1)-③ TEM による液体中金属微粒子測定法の開発では、令和4年度は、1Fの炉内滞留水に含まれると予測される様々な元素の微粒子に対して、両性イオン界面活性剤による曇点抽出の抽出挙動を確認した。本法では、微粒子のゼータ電位によって抽出挙動は変化することが分かった。

インフォマティックスとの融合は、TEM 画像による、金ナノ粒子と Sm₂O₃ 微粒子の同定を検討した。金ナノ粒子に対して 3D 画像の取得を検討した。

今後、様々な微粒子に対して 3D 画像取得を検討し、インフォマティックスとの融合は、これ までの学習データをインプットし、より複雑な系に対応を検討する。

(1)-④ アルファ線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発では、ICP-MS 測定を阻害する同重 体干渉の除去に向け、ICP-MS 内反応セルおよび固相抽出樹脂を用いた各アクチノイドの分離検討 を行った。その結果、反応セルでは、酸化性ガスによる Am と Pu の酸化のしやすさの差を利用し た質量分離が可能となった。特に、0²ガスを用いることで²⁴¹Am に対する干渉物質(²⁴¹Pu)の許容 比率が最も高くなった。

また、固相抽出樹脂を用いて、アクチノイドを逐次抽出し、U/Pu、Am/Pu を分離した。FI 流路 を利用した分離機能を備えた自動分析システムの構築を行い、アクチノイド 10 核種の同時検出 を行った。

今後は、認証標準物質等の環境試料を用いて、認証値(添加値)と定量値が一致するか検討する。

(2) インフォマティックスに関する研究

(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、令和3 年度に引き続き、傾向に特徴付けを行うために検体数を増やして実施した。材料組成の判別を行 う固体試料から溶出した微量の成分の多因子計測データを損なうことなく利用し、多変量解析に よる材料組成の判別を行うことができた。また、固体試料の全溶解をせずに、材料に接触した溶 液(浸漬抽出)から材料の判別ができる可能性を示した。このことは、プロファイリングとシミ ュレーションの結果が合致することを示唆するものであり、燃料デブリ周辺の情報を汚染水から 推定する場合の情報源として利用できる。さらに、確信度 D による評価により、複合材中の材料 判別も数値として判定できる可能性が示唆された。

(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、令和 4 年度は、令和 3 年度より実際のスケールに近づくように規模を拡大させたモデルに対してもこ れまでの放射線輸送計算手法を用いることが可能であることを示した。また、シミュレーション データではなく測定データを用いて深層学習アルゴリズムによるデブリ性状推定が可能であるこ とを示した。さらに、測定可能箇所が制限される実際の測定現場を想定し、放射線計測箇所に欠 損があった場合の推定アルゴリズムについて検証を行い、一定程度欠測箇所があっても本手法が 適用可能であることを示した。

(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、令和4年度は、格納容器内の画像(動画・静止画)の検証と検討では、東京電力との情報交換を通して、1号機の調査動画を入手した。この動画を分析・広報に利活用における利便性向上のための変換・再編集システムの検討・プロトタイプの実装・検証を行った。

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では、訓練デー タ不足補うため、転移学習(YOL0 v5)を利用した、リアルタイム動画処理が可能な、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を行った。

格納容器の内部の立体地図の作成に向けての検討では、JAEA 楢葉遠隔技術開発センターより、 VR データを入手し、上記の成果を連携させたポータブルな VR システムの試作を行った。

化学的アプローチである LIBS スペクトルデータに対する機械学習的なアプローチの検討では、 LIBS スペクトルの NMF 因子スコアから、未知試料(未知化合物)組成比を推定する手法の検討・ 開発を行った。

化学的アプローチである ICP-MS データに対する機械学習的なアプローチの検討では、燃料デ ブリの材料組成を、汚染水中の溶出成分からプロファイリングするため、デブリ生成時の液性 (pH)と、SUS 含有の有無の判別を行う機械学習システムのプロトタイプの実装・検証を行った。

(3) 人材育成(福島大学)では、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)では、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4年度の所期の目標を達成した。

4-3 - 108 -

参考文献

- Takano, M. et al., Characterization of Solidified Melt among Materials of UO₂
 Fuel and B₄C Control Blade, J. Nucl. Sci. Technol, Vol. 51, Nos. 7-8, (2014),
 pp. 859-875 , https://doi.org/10.1080/00223131.2014.912567
- [2] Abe, Y. et al., A New Measuring Method for Elemental Ratio and Vickers Hardness of Metal-oxide-boride Materials Based on Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), ICAPP-000225(2019), Internet, 7p.
- [3] Abe, Y., Sato, I., Nakagiri, T., Ishimi, A., Nagase, Y., Development of Nontransfer Type Plasma Heating Technology to Address CMR Behavior During Severe Accident with BWR Design Conditions, Proceedings of 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (CD-ROM) (ICAPP 2017), 17646.
- [4] Abe, Y., Yamashita, T., Sato, I., Nakagiri, T., Ishimi, A., Development of Experimental Technology for Simulated Fuel-assembly Heating to Address Corematerial-relocation Behavior During Severe Accident, Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, Vol. 6(2), 2020, 021113, 9p., https://doi.org/10.1115/1.4045450
- [5] George A. Parks, The Isoelectric Points of Solid Oxides, Solid Hydroxides, and Aqueous Hydroxo Complex Systems, Chem. Rev., Vol. 65, No. 2, 1965, pp. 177–198, https://doi.org/10.1021/cr60234a002

This is a blank page.