



JAEA-Review

2024-025

DOI:10.11484/jaea-review-2024-025

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
(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 the Continuous Monitoring of Tritium Water
by Mid-infrared Laser Spectroscopy
(Contract Research)

-FY2022 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project-

福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター
自然科学研究機構

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research and Engineering Institute
National Institutes of Natural Sciences

October 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

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 研究開発推進部 科学技術情報課
〒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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

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
(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—

日本原子力研究開発機構 福島廃炉安全工学研究所
廃炉環境国際共同研究センター

自然科学研究機構

(2024年4月8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3年度に採択された研究課題のうち、「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」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。

本研究は、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度60Bq/ccレベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を成果目的とする。令和3年度は、上記目標を達成するため(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製(再委託先:弘前大学)を行った。核融合科学研究所の計測実験棟2F実験室に光学ベンチを用意し、ガスセル中に充填した重水の中赤外光源を用いた吸収分光計測に成功した。次にキャビティリングダウン計測必須なレーザー光源を開発した。キャビティリングダウン計測において、光源性能は計測精度に支配的であるため、波長4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを光増幅器等で出力を向上させた。波長4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを独自開発の光増幅器によって、レーザー出力を200mWから870mWへ向上させた。(2)においては、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。加えて、市販の重水試薬を用いて、約100Bq/Lの標準試料を作製した。次に、これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量(H/D)を求めた。その結果、弘前市の降水中水素同位体計測を行い、濃度レベルの把握と変動傾向を把握した。

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、自然科学研究機構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

Development of the Continuous Monitoring of Tritium Water by Mid-infrared Laser Spectroscopy
(Contract Research)
— FY2022 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

National Institutes of Natural Sciences

(Received April 8, 2024)

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 FY2021, this report summarizes the research results of the “Development of the continuous monitoring of tritium water by mid-infrared laser spectroscopy” conducted in FY2022.

The present study aims to demonstrate the principle of short-time measurement of tritiated water at the "60 Bq/cc level" using a cavity ring-down measurement system with a mid-infrared laser. To achieve the above goal, (1) research on the cavity ring-down system and (2) evaluation of hydrogen isotope composition under environmental conditions and preparation of standard samples (subcontractor: Hirosaki University) were conducted this fiscal year. In (1), The absorption spectroscopy measurements of heavy water filled in a gas cell using a mid-infrared light source were successfully performed. Next, we developed a laser light source essential for cavity ring-down measurements. Also, we developed a 4.0- μm wavelength quantum cascade laser with an optical amplifier to increase the output power. The new optical amplifier increased the output power of a 4.0- μm wavelength quantum cascade laser from 200 mW to 870 mW. In (2), we prepared hydrogen isotope standard solutions using commercially available heavy water standard solutions from several reagent companies and determined hydrogen isotope ratios and tritium concentrations. In addition, a standard sample of about 100 Bq/L was prepared using a commercially available heavy water reagent. Next, we collected atmospheric vapor and determined the hydrogen isotope ratio. As a result, hydrogen isotope measurements in precipitation in Hirosaki City were conducted to determine the concentration levels and trends of fluctuations.

Keywords: Tritium Water, Cavity Ring Down, Mid-infrared Laser Spectroscopy, Quantum Cascade Laser

This work was performed by National Institutes of Natural Sciences 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
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

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
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result 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	山崎 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
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号機ペダ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	渡邊 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	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とティアップ型人材育成	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	渡邊 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 啓太郎	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	浅間 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

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年度分の研究成果について取りまとめたものである。

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
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

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

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

(契約番号 R04I032)

成果報告書

令和 5 年 3 月

大学共同利用機関法人

自然科学研究機構核融合科学研究所

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、大学共同利用機関法人自然科学研究機構核融合科学研究所が実施した「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」の令和4年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.2 実施項目	2-1
2.2.1 キャビティリングダウン装置に関する研究	2-1
2.2.2 環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（弘前大学）	2-1
2.3 実施体制	2-2
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 令和4年度実施内容(1)「キャビティリングダウン装置に関する研究」及びその成果	3-1
3.1.1 中赤外キャビティリングダウン試験	3-1
3.1.2 トリチウム水検出用光源の開発	3-2
3.1.3 まとめ	3-3
3.2 令和4年度実施内容(2)「環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製」 及びその成果	3-4
3.2.1 標準試料の作製	3-4
3.2.2 屋内外の同位体比計測	3-5
3.2.3 まとめ	3-5
3.3 研究推進	3-6
3.3.1 令和4年度の研究推進まとめ	3-6
4. 結言	4-1

執筆者リスト

事業代表者

大学共同利用機関法人

自然科学研究機構 核融合科学研究所 教授 安原 亮

再委託先

国立大学法人

弘前大学 被ばく医療総合研究所 教授 赤田 尚史

図一覧

図 1	H ₂ O、HD0、HT0 の中赤外領域での吸収波長	1-1
図 2	実施体制図	2-2
図 3	吸収分光計測実験概要	3-1
図 4	重水の吸収分光スペクトル	3-2
図 5	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要	3-3
図 6	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性	3-3
図 7	標準試料作製の概略	3-4
図 8	同位体比測定の概略	3-5

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	(国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
核融合研	: 核融合科学研究所	
CRDS	: Cavity RingDown Spectroscopy	(キャビティリングダウン分光法)

概略

本研究は、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を成果目的とする。

令和 3 年度は、上記目標を達成するため(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）を行った。(1)においては、中赤外キャビティリングダウン試験を行った。実験室に光学ベンチ（3 m×1.2 m）を設置し、光学ベンチ上に設計した光キャビティを構築した。次にキャビティリングダウン計測に必須なレーザー光源を開発した。波長 4.34 μm から 4.72 μm の範囲に可変可能で、最高出力 22 mW、ビーム品質 $M2=1.1$ のレーザー開発に成功した。(2)においては、標準試料の作製として、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進め、安定同位体である重水試料の準備を行った。また、市販の重水試薬を購入し、約 100 Bq/L の標準試料作製準備が整った。さらに、屋内外の同位体比計測の測定準備を行った。低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置の性能評価を行い、試料量 10 mL で 2,400 分計測すると検出下限値は約 0.6 Bq/L であることを確認した。これにより、一般環境中トリチウム濃度を計測する準備を整えた。

令和 4 年度は、(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）を行った。核融合研の計測実験棟 2F 実験室に光学ベンチを用意し、ガスセル中に充填した重水の中赤外光源を用いた吸収分光計測に成功した。次に、キャビティリングダウン計測に必須なレーザー光源を開発した。キャビティリングダウン計測において、光源性能は計測精度に支配的であるため、波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを光増幅器等で出力を向上させた。波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを独自開発の光増幅器によって、レーザー出力を 200 mW から 870 mW へ向上させた。(2)においては、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。加えて、市販の重水試薬を用いて、約 100 Bq/L の標準試料を作製した。次に、これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量 (H/D) を求めた。その結果、弘前市の降水中水素同位体計測を行い、濃度レベルの把握と変動傾向を把握した。

前年度までの成果報告書：

JAEA-Review 2022-059

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-059>

1. はじめに

トリチウム水は、トリチウム（三重水素）及び酸素の化合物で、ほとんどが水素（H）を含んだHTOの形態で存在する。液体状のHTOは主として液体シンチレーションカウンター法で、水蒸気状は電離箱や比例計数管を用いた方法で計量が行われている。これらの手法は信頼性の高い手法として放射線管理で多くの実績を有する。しかしながら、前者は測定のための前処理が必要であり、測定にも時間を要する。後者は比較的容易に使用できるが、測定対象によっては感度が十分でない。そのため、連続測定やその場計測または遠隔計測に不向きである。本研究では、法令排水濃度（3月平均）：60 Bq/cc以下の測定感度を目標として、連続かつその場観察可能な「中赤外レーザーによる超高感度トリチウムモニタシステム」を開発する。

環境中の水を構成するOH基、OD基、OT基は、波長2.7 μmから5 μmの中赤外光に、伸縮振動モードに起因する大きな吸収ピークがある。それぞれは異なった吸収ピークを持ち、分光的な手法によって分別可能である。我々の研究グループでは、環境中の軽水、重水の移動拡散現象の解明を目的として、中赤外レーザーによるこれらの検出技術の開発を行ってきた。本課題では、上記の基盤技術を基に、OH基、OD基、OT基の吸収ピークである光波長3.0 μm、4.0 μm及び4.47 μmの中赤外レーザー波長（図1）へシステム適応させ、環境中でのトリチウム水、重水、軽水のリアルタイム検出に挑む。すでに他の分子検出で多くの研究実績が報告されているキャビティリングダウン方式を用いた検出手法（CO₂検出では10-15 ppqが実証）に独自開発した中赤外レーザーを適応することで、高感度な水素同位体検出が可能となる。最先端の光科学やレーザー工学及び水素同位体科学の研究者が協力することで、以下を達成目標として研究を進める。

- 中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証

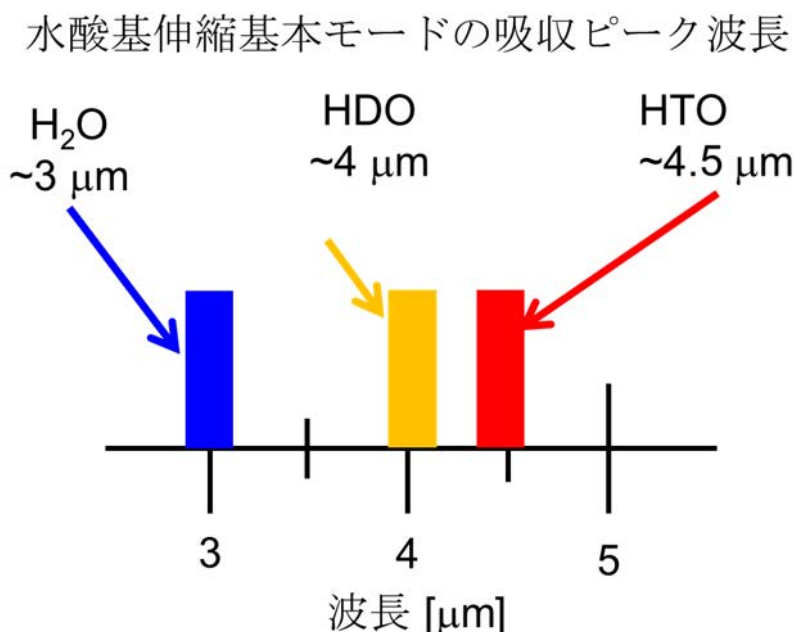


図1 H₂O、HDO、HTOの中赤外領域での吸収波長

2. 業務計画

2.1 全体計画

本課題では、中赤外レーザーを用いた、キャビティリングダウン計測による中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を目標に研究を進める。

2.2 実施項目

2.2.1 キャビティリングダウン装置に関する研究

中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン装置によって、「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を行う。中赤外キャビティリングダウン試験について、計測システムの開発に当初からトリチウム水を用いると試作時間が制限されることが予想される。したがって、重水を模擬物質として用いた計測システムの開発を行う。重水とトリチウム水では吸収ピーク波長が 500 nm 程度の差があるが、光学システムとしては全く同一のものが使用できるため、重水で用いたものはトリチウム水に波長を変更するだけでそのまま適応できる。重水で実証したのち、他の実施項目での成果を合わせて、名古屋大学トリチウム使用管理区域にてトリチウム検出実験を行う。また、トリチウム水検出用光源の開発について、光源性能は計測精度に支配的であるため、キャビティリングダウン用光源の準備とトリチウム水検出感度向上のための高性能化を行う。

2.2.2 環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（弘前大学）

本テーマで製作される装置を評価するため、ワイドレンジをカバーする同位体標準溶液を製作する。また、実用化を想定して、環境条件下における水素同位体について、その組成を把握する。標準試料の作製については、市販の試薬を用いて既知同位体比標準試料を製作する。環境下における水素同位体比の把握については、サンプルを採取し、学内共同利用機器や学外の全国共同利用機器を利用して測定する。トリチウム水については、独自開発した膜モジュール装置で捕集し、軽水、重水については、コールドトラップで捕集する予定である。

2.3 実施体制

実施体制を図2に示す。

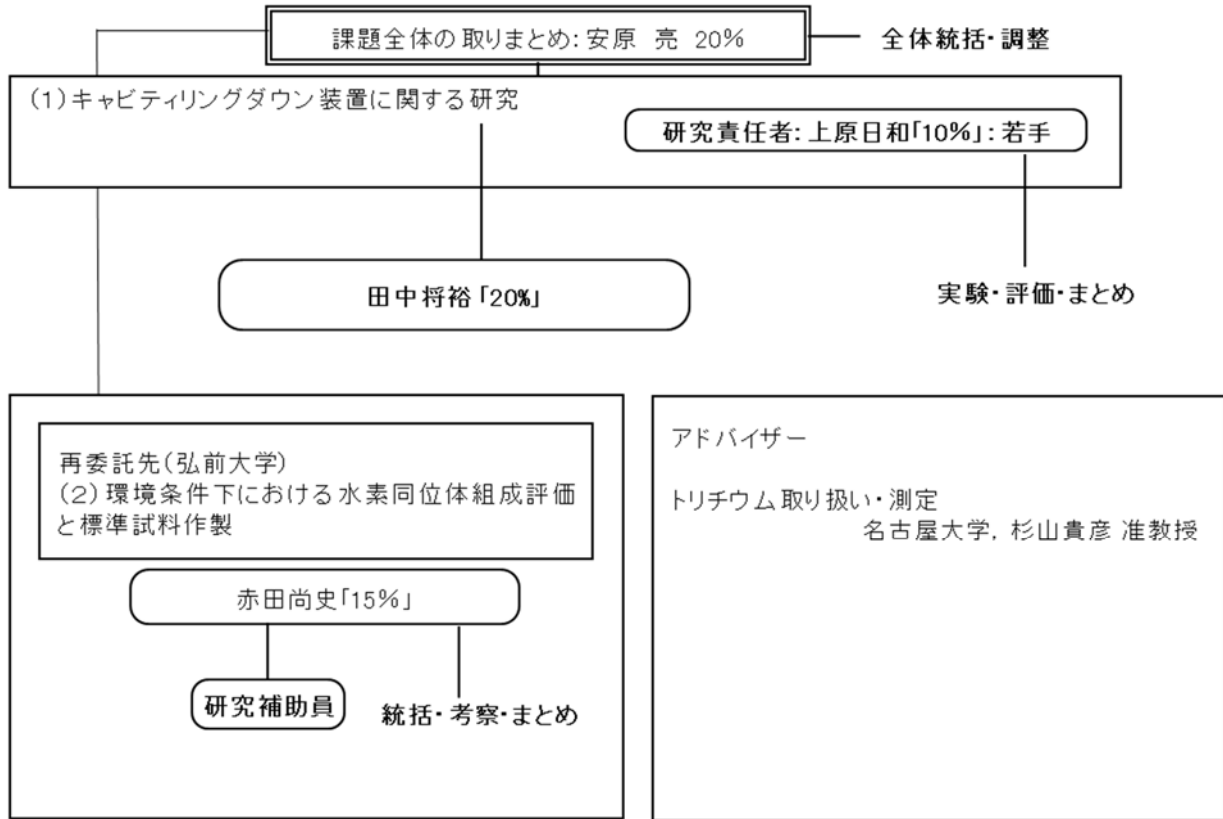


図2 実施体制図

3. 実施内容及び成果

3.1 令和4年度実施内容(1)「キャビティリングダウン装置に関する研究」及びその成果

3.1.1 中赤外キャビティリングダウン試験

<実施内容>

令和3年度に設計したキャビティリングダウン装置を用いて、核融合研の光学ベンチ上で重水を用いた水素同位体検出試験を行った。

<成果>

核融合研の計測実験棟 2F 実験室に用意した光学ベンチ上に構築されたガスセル中に重水を充填し、中赤外光源を用いた吸収分光計測に成功した。図3は、中赤外レーザーを用いた吸収分光計測装置の概要である。量子カスケードレーザーから出力された中赤外レーザー光をビームスプリッターで分離し、パワーメータ、波長計に導光した。ビームスプリッターの透過光は、ガスセルに入射した。ガスセル中には重水蒸気を封入し、透過光をパワーメータで観測した。量子カスケードレーザーの波長を可変することで重水に由来する吸収ピークの観測を試みた。ガスセル中には重水 (HD₂O)、軽水 (H₂¹⁶O) 及び酸素同位体で構成される H₂¹⁸O の三種を測定した。

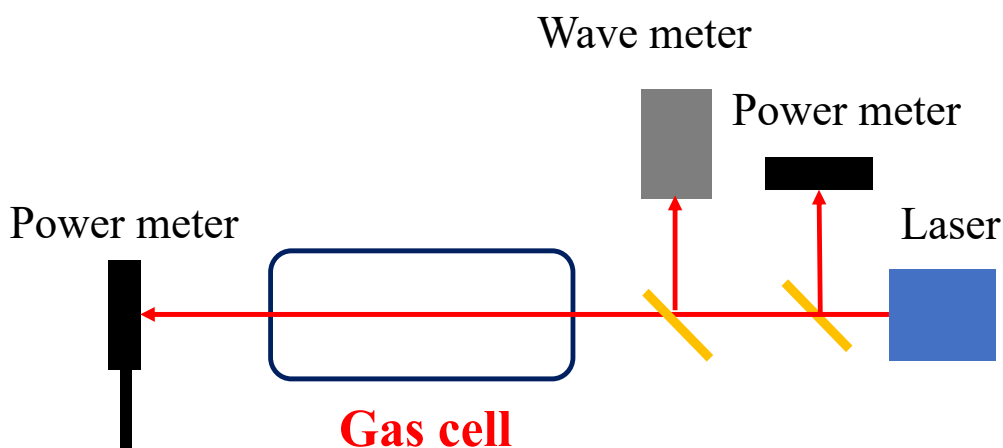


図3 吸収分光計測実験概要

図4に、重水 (HD₂O)、軽水 (H₂¹⁶O) 及び酸素同位体で構成される H₂¹⁸O の中赤外光で測定した透過スペクトルを示す。量子カスケードレーザーは、波長 7,366 nm から 7,378 nm まで変化させて測定を行った。7,370 nm から 7,372 nm の間に重水に特徴的な吸収ピークが観測された。これらのピーク波長はデータベースから得られる重水のピークと一致しており、重水に関して、分光計測による特徴抽出が成功したことを示した。

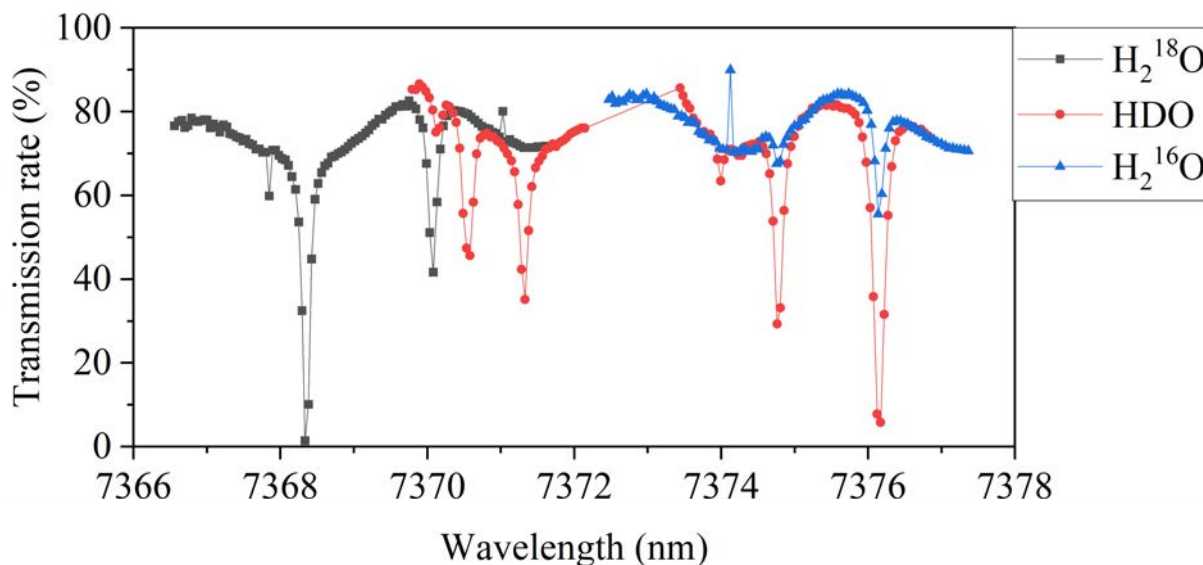


図4 重水の吸収分光スペクトル

3.1.2 トリチウム水検出用光源の開発

<実施内容>

キャビティリングダウン計測において光源性能は、計測精度に支配的である。本項目では、波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを光増幅器等で出力向上する。

<成果>

波長 4.0 μm 及び 4.6 μm の量子カスケードレーザーを、鉄添加 ZnSe 結晶を用いた光増幅器によって出力向上を行った。図 5 に、量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要を示す。量子カスケードレーザーより出力された光は、レンズを用いて平行光にした後、光アイソレーターを経て、再びレンズによる集光し、ダイクロイックミラーを反射し鉄添加 ZnSe 結晶に入射される。鉄添加 ZnSe は、波長 2.92 μm で発振する Er 添加 YAP レーザーによって励起され、4.0 μm 及び 4.6 μm の利得を得る。鉄添加 ZnSe 結晶は光学窓を持つ真空容器中で冷却され、結晶ホルダに固定される。利得を得た鉄添加 ZnSe 結晶を透過した量子カスケードレーザー光は、増幅され再びダイクロイックミラーに反射され出力される。この出力光をパワーメータにより測定し、光出力特性の評価を行った。

図 6 に量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性を示す。波長鉄添加量の違う 2 種類のレーザー媒質で増幅特性の違いを調べた。量子カスケードレーザーから出力される種光の出力が 200 mW の時、高い添加濃度のレーザー媒質を用いた場合、増幅後に 870 mW へレーザー出力が向上した。中赤外レーザーを用いた同位体計測に向けて、信号量増大に有望な結果となった。

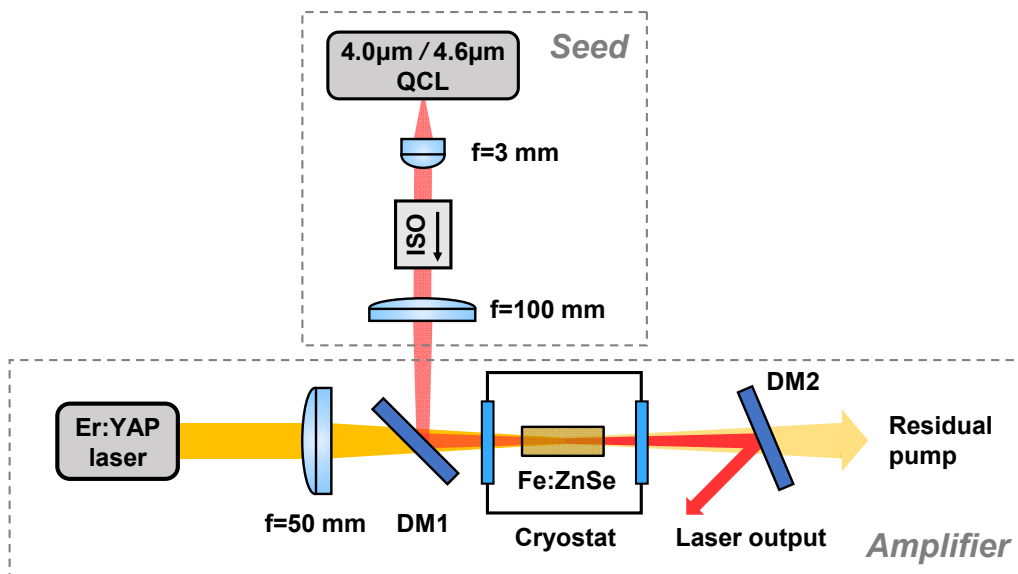


図5 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要
 (QCL : 量子カスケードレーザー、Er : エルビウム、ZeSe : セレン化亜鉛、
 DM : ダイクロイックミラー、ISO : 光アイソレーター)

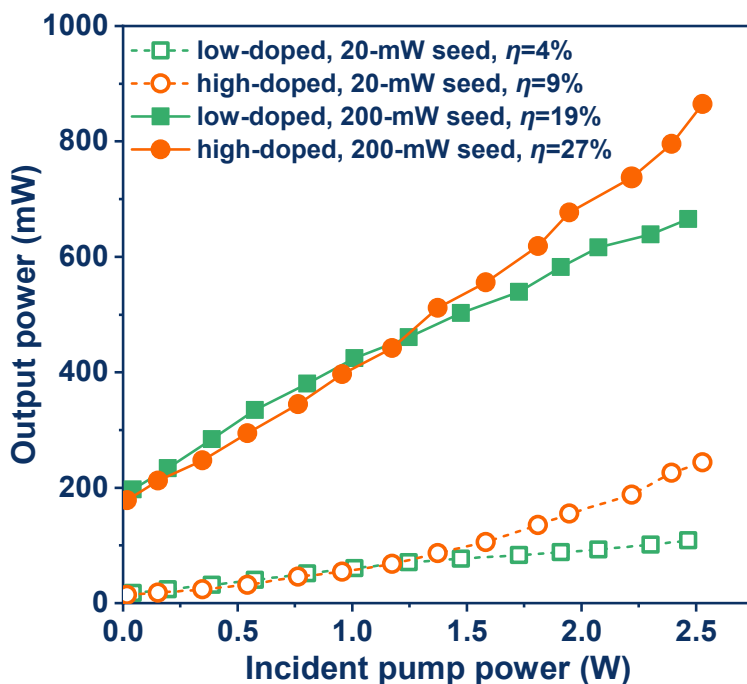


図6 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性

3.1.3 まとめ

核融合研の計測実験棟 2F 実験室に光学ベンチを用意し、ガスセル中に充填した重水の中赤外光源を用いた吸収分光計測に成功した。次に、キャビティリングダウン計測に必要なレーザー光源を開発した。キャビティリングダウン計測において、光源性能は計測精度に支配的であるため、波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを光増幅器等で出力を向上させた。

波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを独自開発の光増幅器によって、レーザー出力を 200 mW から 870 mW へ向上させた。これらにより、最終年度の目標達成に向けた準備が整った。

3.2 令和4年度実施内容(2)「環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製」及びその成果

3.2.1 標準試料の作製

<実施内容>

引き続き、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定する。

<成果>

令和3年度に引き続き、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。その結果、市販の重水試薬を用いて、約 100 Bq/L の標準試料を作製した (図 7)。

市販の重水試薬を購入し、BG水 (トリチウムフリー水) で希釈
→ 約100Bq/Lの標準試料作製を目指す

試薬⑤
試薬⑥
試薬⑦



トリチウム濃度
140 ~ 5000 Bq/L

トリチウム濃度
118.17±0.39 Bq/L



購入した重水試薬の例
(昨年度と異なるD₂O純度)

今後

- 調整した試薬の水素安定同位体比の計測
 - ・質量分析法 (重水素濃度が高いことが予想されるため)
- 天然水に近い安定同位体組成でトリチウム濃度が1000 Bq/L程度の試料の作成
 - ・トリチウム濃度が大きく異なる試料の処理と汚染防止対策



図 7 標準試料作製の概略

3.2.2 屋内外の同位体比計測

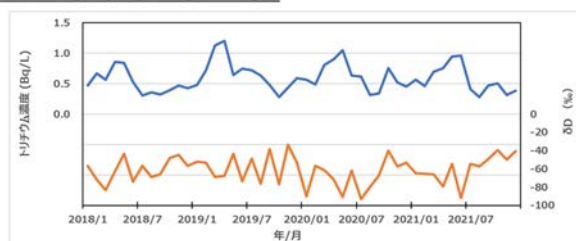
<実施内容>

これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量 (H/D) を求める。

<成果>

屋内外の同位体比計測の測定を行った。図 8 に結果を示す。弘前市の降水中の水素同位体の測定を行い、濃度レベルの把握及び変動傾向の把握を行った。また、大気水蒸気中の水素同位体計測を行い、トリチウムについてはパッシブ法で月間値を、水素同位体比については日毎の観測を行った。これらの観測により、中赤外レーザーを用いた水素同位体計測時のバックグラウンド評価等に用いる環境データの収集が開始された。

降水中水素同位体 (弘前)



弘前市の月間降水
 ・濃度レベルの把握
 ・変動傾向の把握

大気水蒸気中水素同位体 (弘前)

トリチウム
 →パッシブ法 (月間)
 水素同位体比 (δD)
 →毎日
 (市販の装置による観測)
 東大生産研のPicaroを借用

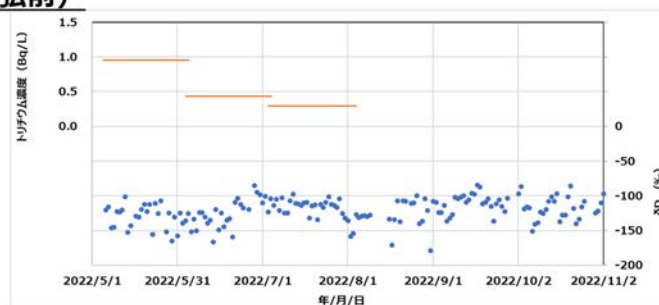


図 8 同位体比測定のご略

3.2.3 まとめ

複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。加えて、市販の重水試薬を用いて、約 100 Bq/L の標準試料を作製した。次に、これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量 (H/D) を求めた。その結果、弘前市の降水中水素同位体計測を行い、濃度レベルの把握と変動傾向を把握した。

3.3 研究推進

3.3.1 令和4年度の研究推進まとめ

令和4年度は、昨年度に引き続き、コロナ禍の下、研究推進には特別な工夫が必要であった。その中で、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（CLADS）等との連携を密にして、研究を進めることができた。特に、研究グループでは、Web会議システムを用いた打ち合わせ、メールでの意見交換等または感染状況が落ち着いているタイミングでの対面での打ち合わせによって円滑に研究を進めることができた。年度の後半は徐々にコロナの状況も改善し、12月5日には、森PO（Project Officer）が核融合研に来所し、Web参加の木村RS（Research Supporter）とともに中間フォローを行い、研究状況の確認と今後の進め方について議論した。

これらの結果、令和4年度は当初の目標を達成することができた。次年度は最終年度になるため、本課題の目標を達成するために、万全の態勢で研究を推進する。

4. 結言

本研究は、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を成果目的とする。令和 4 年度は、(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）を行った。核融合研の計測実験棟 2F 実験室に光学ベンチを用意し、ガスセル中に充填した重水の中赤外光源を用いた吸収分光計測に成功した。次に、キャビティリングダウン計測に必須なレーザー光源を開発した。キャビティリングダウン計測において、光源性能は計測精度に支配的であるため、波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを光増幅器等で出力を向上させた。波長 4.0 μm 帯の量子カスケードレーザーを独自開発の光増幅器によって、レーザー出力を 200 mW から 870 mW へ向上させた。(2)においては、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。加えて、市販の重水試薬を用いて、約 100 Bq/L の標準試料を作製した。次に、これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量 (H/D) を求めた。その結果、弘前市の降水中水素同位体計測を行い、濃度レベルの把握と変動傾向を把握した。

研究推進においては、令和 4 年度は、昨年度に引き続き、コロナ禍の下、研究推進には特別な工夫が必要であった。その中で、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 (CLADS) 等との連携を密にして、研究を進めることができた。特に、研究グループでは、Web 会議システムを用いた打ち合わせ、メールでの意見交換等または感染状況が落ち着いているタイミングでの対面での打ち合わせによって円滑に研究を進めることができた。年度の後半は徐々にコロナの状況も改善し、12 月 5 日には、森 P0 が核融合研に来所し、Web 参加の木村 RS とともに中間フォローを行い、研究状況の確認と今後の進め方について議論した。

これらの結果、令和 4 年度は当初の目標を達成することができた。次年度は最終年度になるため本課題の目標を達成するために、万全の態勢で研究を推進する。

This is a blank page.

