

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5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)

－ FY2023 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
福島大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research and Engineering Institute
Fukushima University

July 2025

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

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

(委託研究)

ー令和5年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

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

福島大学

(2025年1月16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5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」の令和元年度から令和5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、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～ポスト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、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

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)
— FY2023 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

Fukushima University

(Received January 16, 2025)

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 FY2023.

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 from FY2019 to FY2023.

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

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

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

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度 採択課題	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
5. 令和 3 年度 採択課題	10
6. 令和 4 年度 採択課題	12
7. 令和 5 年度 採択課題	14
付録 成果報告書	17

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
7. Accepted Proposal in FY2023.....	14
Appendix Result Report	17

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）

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 2 課題、日露 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 康一郎	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DESTAL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・ エネルギー
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	慶應義塾大学

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）

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）

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
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

課題名	研究代表者	所属機関
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）

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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～)
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
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

7. 令和 5 年度 採択課題

令和 5 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 5 年 3 月 1 日～令和 5 年 4 月 14 日（課題解決型）

令和 5 年 4 月 12 日～令和 5 年 6 月 15 日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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 5 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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的な $n \cdot \gamma$ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速 3 次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和元年度から令和 5 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 5 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 R05I041)

成果報告書

令和 6 年 3 月
国立大学法人福島大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人福島大学が実施した「化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成」の令和元年度から令和5年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	vii
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	2-2
2.3 令和5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【令和元年度～令和5年度】	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、連携先：JAEA）【令和元年度～令和5年度】	3-1
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5年度】	3-6
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5年度】	3-10
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～令和5年度】	3-19
3.2 インフォマティックスに関する研究【令和元年度～令和5年度】	3-23
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5年度】	3-23
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5年度】	3-27
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5年度】	3-31
3.3 人材育成【令和元年度～令和5年度】	3-36
3.3.1 実施内容および成果（概要）【令和元年度～令和4年度】	3-36
3.3.2 実施内容および成果（概要）【令和5年度】	3-36
3.3.3 学生の基礎教育および人材育成教育プログラムについて 【令和元年度～令和5年度】	3-39
3.3.4 まとめ【令和元年度～令和5年度】	3-56
3.4 研究推進【令和元年度～令和5年度】	3-57
3.4.1 実施内容および成果【令和元年度～令和4年度】	3-57
3.4.2 実施内容および成果【令和5年度】	3-62
3.4.3 まとめ【令和元年度～令和5年度】	3-64
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

研究代表者

国立大学法人福島大学

教授

高貝慶隆

教授

藤本勝成

教授

山口克彦

再委託先

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	ビッカース硬さ試験機と試験条件		3-7
表 3. 1-2	金属微粒子ごとの粒子径、抽出率とゼータ電位		3-13
表 3. 2-1	落下・堆積物のクラス分類		3-33
表 3. 3-1	全体会議出席者		3-37
表 3. 3-2	放射線取扱主任者試験年度別合格者数		3-55

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
図 2.2-3	連携ラボ（JAEA）との体制図		2-3
図 3.1-1	四重極マスフィルターの質量分解能および干渉イオン除去に必要な 質量分解能		3-2
図 3.1-2	$^{90}\text{Sr}^+$ に対する干渉イオンの多段分離		3-3
図 3.1-3	測定モードおよび DRC 内 O_2 流量による各イオン相対強度への影響		3-3
図 3.1-4	受け入れ状況の総括（令和元年度から令和 5 年度まで）		3-11
図 3.1-5	ZrO_2 、 Fe_2O_3 微粒子の 3D 画像		3-14
図 3.1-6	物体検出アルゴリズムによる微粒子の同定		3-16
図 3.1-7	YOLO による液相中微粒子の動画からの同定		3-17
図 3.2-1	測定データから放射線源位置を探すことは難しい		3-27
図 3.2-2	放射線源を設置した U8 容器		3-29
図 3.2-3	燃料デブリ収納缶を想定した測定系		3-29
図 3.2-4	ブロックノイズフレーム		3-32
図 3.2-5	削除された光量・ピント不良フレーム		3-32
図 3.2-6	GAN を応用して生成したフェイクデブリ		3-33
図 3.2-7	SVM による未知試料分類器		3-34
図 3.3-1	全体会議の様子		3-36
図 3.3-2	マイクロ스코プを用いた測定の様子		3-38
図 3.3-3	廃炉インフォセミナーの様子		3-39
図 3.3-4	ALPS 処理水セミナーの様子		3-40
図 3.3-5	東京電力松本氏による講演会の様子		3-40
図 3.3-6	中間貯蔵施設見学の様子		3-41
図 3.3-7	鈴木氏による講演会の様子		3-41
図 3.3-8	平田教授による講演会の様子		3-42
図 3.3-9	ゲルマニウム半導体検出器講習会の様子		3-42
図 3.3-10	加速器に関する教育の講義風景		3-43
図 3.3-11	環境再生事業見学の様子		3-43
図 3.3-12	NARREC 見学の様子		3-44
図 3.3-13	伝承館見学の様子		3-45
図 3.3-14	JAMSTEC 講習の様子		3-45
図 3.3-15	福島県立医科大学サイクロトロン見学の様子		3-46
図 3.3-16	加藤准教授による講演会の様子		3-47
図 3.3-17	鷺山准教授による講演会の様子		3-47
図 3.3-18	専門科目「放射線科学」講義風景		3-48
図 3.3-19	1F および 2F 視察の様子		3-49
図 3.3-20	コロラド州立大学での海外演習の様子		3-50
図 3.3-21	JASIS 見学の様子		3-51
図 3.3-22	JAMSTEC での実習の様子		3-52

図 3.3-23	pH メーター実習の様子		3-53
図 3.3-24	JAEA 東海での実習の様子		3-53
図 3.3-25	J-PARC 見学の様子		3-54
図 3.3-26	放射線取扱主任者試験合格者		3-55
図 3.4-1	JAEA（三春）研究進捗報告会の様子		3-58
図 3.4-2	文部科学大臣賞受賞 高貝教授（中央）と山口教授（右）		3-58
図 3.4-3	令和 5 年度学長表彰表彰式		3-62

略語一覧

AI	: Artificial Intelligence	(人工知能)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
CMMR	: Core Material Melting Relocation	(模擬燃料加熱試験体)
DRC	: Dynamic Reaction Cell	(ダイナミックリアクションセル)
EPMA	: Electron Probe Micro Analyzer	(電子プローブマイクロアナライザー)
FI	: Flow Injection	(フローインジェクション)
FP	: Fission Products	(核分裂生成物)
HCA	: Hierarchical Cluster Analysis	(階層クラスター分析)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry	(誘導結合プラズマ質量分析)
IT	: Information Technology	(情報技術)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	(国立研究開発法人日本原子力研究開 発機構)
LA	: Laser Ablation	(レーザーアブレーション)
LIBS	: Laser-Induced Breakdown Spectroscopy	(レーザー誘起ブレイクダウン分光法)
NMF	: Nonnegative Matrix Factorization	(非負値行列因子分解)
PCA	: Principal Component Analysis	(主成分分析)
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査動画	
PerkinElmer	: PerkinElmer Japan 合同会社	
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)
SSD	: Single Shot multibox Detector	(物体検出アルゴリズム)
SUS	: Steel Use Stainless	(ステンレス合金)
SVM	: Support-Vector Machine	(サポートベクターマシン)
TEM	: Transmission Electron Microscope	(透過型電子顕微鏡)
YOLO	: You Only Look Once	(物体検出アルゴリズム)
1F	: 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所	
クロアポ	: クロスアポイントメント	
スパコン	: スーパーコンピュータ	
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	
福島大学	: 国立大学法人福島大学	

概略

本研究の背景として、東京電力ホールディングス株式会社（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挙げられる。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クス、バイオインフォマティクス、マテリアルインフォマティクス等、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する。

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令和元年度から令和 5 年度の 5 ヶ年で実施する。

(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、JAEA（三春）を主拠点として、富岡、南相馬の 3 拠点をサテライトとして活用するとともに、JAEA（三春）では、本研究の実施に必要な多種多様な分析機器群や下限数量・濃度以下の放射性物質を利用して人材育成を図る。

(4) 研究推進

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

これら実施項目において、令和元年度から令和 5 年度の成果の概要は以下のとおりである。

(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 ^{86}Sr 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 ^{90}Sr 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 ^{90}Sr 添加試料の ^{90}Sr 強度マッピング分析では、 ^{90}Sr と非常に近い質量電荷比を持つ同重体イオン（ $^{90}\text{Zr}^+$ ）や多原子イオン（ $^{89}\text{Y}^+\text{H}^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ 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、インフォマティクスとの連携を検討した。

令和5年度は、令和4年度に引き続き、同位体希釈法を組み合わせたLA-ICP-MSによる定量マッピングについて検討した。また、令和4年度に引き続き、LA-ICP-MSによる固体直接分析法とインフォマティクスとの融合を行った。最終年度として、固体試料中の元素を定量できる分析技術および局所領域中に存在する安定同位体と放射性同位体の濃度を同時に定量できる分析技術をまとめた。

(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。令和元年度に作製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。

令和5年度には、LIBSで得られたデータをインフォマティクス技術と融合した。また、LIBSで得られた組成データから硬さ分布を引き続き検討した。

(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、令和元年度に以下の4項目を行った。

- 1) 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。
- 2) 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。
- 3) JAEA（三春）の微粒子計数の準備を整え、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。
- 4) 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、クロアボ教員、ポスドクおよび特研究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。ビッグ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、クロアボ教員、ポスドクおよび特研究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。

令和5年度には、クロアボ教員、ポスドクおよび学生を配属させるとともに、設備備品を稼働させて研究・実験を実施した。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した。また、令和4年度に引き続き、3D画像撮影を検討し、インフォマティクスとの融合を検討した。研究成果をまとめ、水溶液中に浮遊するコロイド粒子の状態を液体相のまま計測・分析できるシステムを構築した。

(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、令和4年度には、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。

令和5年度には、構築した分析システムについて、検出下限値等の性能を調査した。放射性物質の代替元素について調査を実施した。本法の妥当性を確認した。

(2)-① 金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング（再委託先：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出るかを検討した。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づけを行った。また、多因子計測データを多変量解析に組み、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。

令和 5 年度には、測定データを可視化し、プロファイリングする手法をまとめた。

(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 他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（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。

令和 5 年度には、取出し後に管封入されるデブリをモデル化し、管外部の放射線測定から管内部のデブリ性状把握が行える深層学習アルゴリズムを引き続き検討し、放射性物質分布の評価と合わせて、状態を放射線測定から判断できるシステムの開発を行った。

(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。

令和 5 年度には、令和 4 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・実装を実施した。ここで学習に用いるデータは、独自診断による代替データを使用した。今後の撮影対象・方法について留意すべき点を検討した。また、令和 4 年度までに検討・開発された各アプローチからの全体の状態の推定値（確信度）や、それを支持する証拠の結合に基づく、診断・評価システムを実装した。ここで検証に用いるデータは、独自診断による代替データを使用した。

(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ボ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、JAEA（三春）を主拠点としてクロアボ教員および特研生の受け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。

令和 5 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。

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た。

(4) 研究推進（福島大学）は、令和元年度から令和 5 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。

以上、この 5 カ年において、計画どおり所期の目標を達成した。

前年度までの成果報告書

- ・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
JAEA-Review 2023-024
URL : <https://doi.org/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 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業
JAEA-Review 2022-030
URL : <https://doi.org/10.11484/JAEA-Review-2022-030>
- ・化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成（委託研究）令和 2 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業
JAEA-Review 2021-035
URL : <https://doi.org/10.11484/JAEA-Review-2021-035>
- ・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）令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業
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挙げられる。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。そこで、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捉えている。

- ・固体表面のマイ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、マイ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、マイクロからマクロの展開から、微分方程式で表されるマイクロモデルを時間・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

り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いものとする。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 ヶ年で実施する。

（1）分析法の開発

- ① LA-ICP-MS による定量
- ② LIBS による硬度計測法
- ③ TEM による液体中金属微粒子測定法
- 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、JAEA（三春）を主拠点として、富岡、南相馬の 3 拠点をサテライトとして活用するとともに、JAEA（三春）では、本研究の実施に必要な多種多様な分析機器群や下限数量・濃度以下の放射性物質を利用して人材育成を図る。

（4）研究推進

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

そのなかでも令和 5 年度は、5 ヶ年計画の最終年度として、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。

本業務の全体計画を表 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 年度別全体計画

項目	年度	令和元年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度
(1) 分析法の開発 ①レーザーアブレーション-高周波誘導結合プラズマ質量分析 (LA-ICP-MS) 法による定量 (福島大学、JAEA)	装置整備・試料製作	←	開発・試験	開発・試験	開発・試験	試験および評価まとめ
	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
	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
	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
(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 (PerkinElmer、福島大学)	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
	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
	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
	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
(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
	推進会議の開催	←	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加	推進会議の開催 学会等への参加

2.2 実施体制

全体の体制図を図 2.2-1 に示す。また、再委託先（民間企業）における体制図を図 2.2-2 に示す。

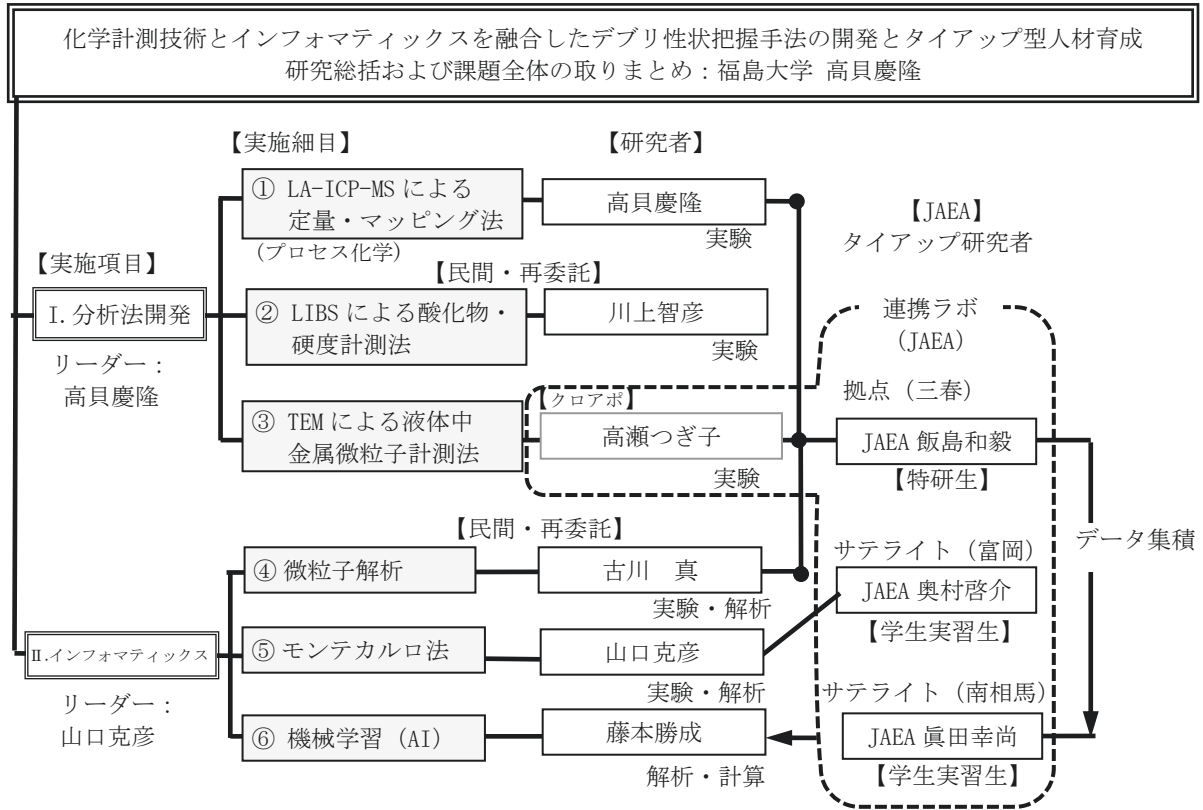


図 2.2-1 全体の体制図

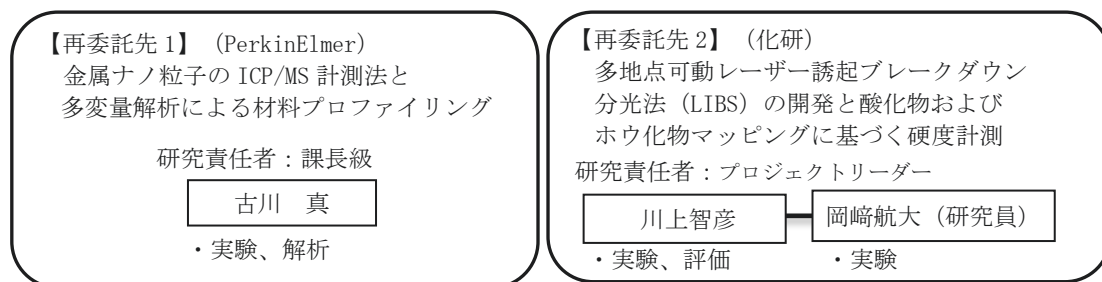


図 2.2-2 再委託先（民間企業）における体制図

連携ラボ（JAEA）との体制図を図 2.2-3 に示す。

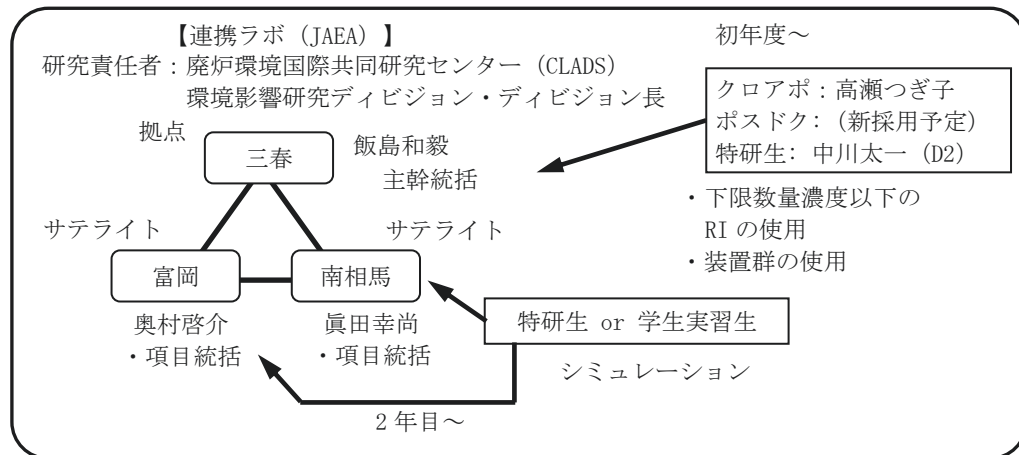


図 2.2-3 連携ラボ（JAEA）との体制図

2.3 令和5年度の成果の目標および業務の実施方法

令和5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4年度に引き続き、同位体希釈法を組み合わせた LA-ICP-MS による定量マッピングについて検討する。
 - ・令和4年度に引き続き、LA-ICP-MS による固体直接分析法とインフォマティックスとの融合を行う。
 - ・最終年度として、固体試料中の元素を定量できる分析技術および局所領域中に存在する安定同位体と放射性同位体の濃度を同時に定量できる分析技術をまとめる。
- (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する。
 - ・LIBS で得られた組成データから硬さ分布を引き続き検討する。
- (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)
 - ・クロアポ教員、ポスドクおよび学生を配属させるとともに、設備備品を稼働させて研究・実験を実施する。
 - ・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。
 - ・令和4年度に引き続き、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検討する。
 - ・研究成果をまとめ、水溶液中に浮遊するコロイド粒子の状態を液体相のまま計測・分析できるシステムを構築する。
- (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)
 - ・構築した分析システムについて、検出下限値等の性能を調査する。
 - ・放射性物質の代替元素について調査を実施する。
 - ・本法の妥当性を確認する。

2.3.2 インフォマティックスに関する研究

- (1) 金属ナノ粒子の ICP-MS 計測法と多変量解析による材料プロファイリング (福島大学、再委託先：PerkinElmer)
 - ・測定データを可視化し、プロファイリングする手法をまとめる。
- (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)
 - ・取出し後に管封入されるデブリをモデル化し、管外部の放射線測定から管内部のデブリ性状把握が行える深層学習アルゴリズムを引き続き検討し、放射性物質分布の評価と合わせて、状態を放射線測定から判断できるシステムの開発を行う。

(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 4 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・実装を実施する。ここで学習に用いるデータは、独自診断による代替データを使用する。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 4 年度までに検討・開発された各アプローチからの、全体の状態の推定値（確信度）や、それを支持する証拠の結合に基づく、診断・評価システムを実装する。ここで検証に用いるデータは、独自診断による代替データを使用する。

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【令和元年度～令和5年度】

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、連携先：JAEA）【令和元年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

1F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ことが不可欠である。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、酸やアルカリ溶融による溶液化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必要である。LA-ICP-MS は周期表上のほとんどの元素について $10^{-4} \sim 10^{-1}$ mg/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 1,000 年未満の放射性核種については長半減期の放射性核種に比べて相対的に感度が低いため、1,000 年未満の短半減期を持つ放射性核種の分析に LA-ICP-MS を適用した例はほとんどなかった。

このような LA-ICP-MS の分析上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る複雑な質量スペクトル干渉を除去することに加え、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直接定量および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 ^{90}Sr （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 ^{86}Sr 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。一方で、LA-ICP-MS を用いた ^{90}Sr 添加試料の ^{90}Sr 強度マッピング分析では、 ^{90}Sr と非常に近い質量電荷比を持つ同重体イオン（ $^{90}\text{Zr}^+$ ）や多原子イオン（ $^{89}\text{Y}^+\text{H}^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ など）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、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）を組み合わせる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 ^{90}Sr の直接定量および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。

(2) 令和 5 年度実施内容および成果

令和 5 年度は、開発したオンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS システムの適用可能範囲を明確化するため、同重体イオンや多原子イオン（例： $^{90}\text{Sr}^+$ に対する $^{90}\text{Zr}^+$ 、 $^{89}\text{Y}^+\text{H}^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ など）といった干渉イオンの除去性能や $^{90}\text{Sr}^+$ に対する $^{88}\text{Sr}^+$ のテーリングの影響について調査した。また、同システムによって得られるマッピング分析データ処理にかかる労力や時間を削減するため、罰則項付非対称最小二乗法を基盤としたピークトップ検出法を開発し、データ処理を自動化した。

① 干渉除去性能の調査

図 3.1-1 に示したように、本法で使用した PerkinElmer 製 ICP-MS/MS NexION 5000 が持つ四重極マスフィルターの質量分解能 ($m/\Delta m$, FWHM 法) は 179 であり、 $^{90}\text{Sr}^+$ と干渉イオンを質量分離するために必要な質量分解能よりも低いことから、四重極マスフィルター単独での分離は不可能である。同重体イオン ($^{90}\text{Y}^+$ 、 $^{90}\text{Zr}^+$) を除去するためには、0 原子移動反応 ($\text{M}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{MO}^+ + \text{O}$) における O_2 に対する M^+ の反応性の違いを利用して、同重体イオンのみを DRC 内で酸化物イオンへ変換（マスシフト）させ、後段の四重極マスフィルターにて系外へ排出するのが一般的である。しかし、DRC 内へ O_2 を導入した場合 (1.6 mL/min) においては $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ (全 Ni 由来イオンに対する割合：0.18%) や $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ (全 Ge 由来イオンに対する割合：24.23%) が DRC 内で生成し、新たな干渉源となることがわかった。

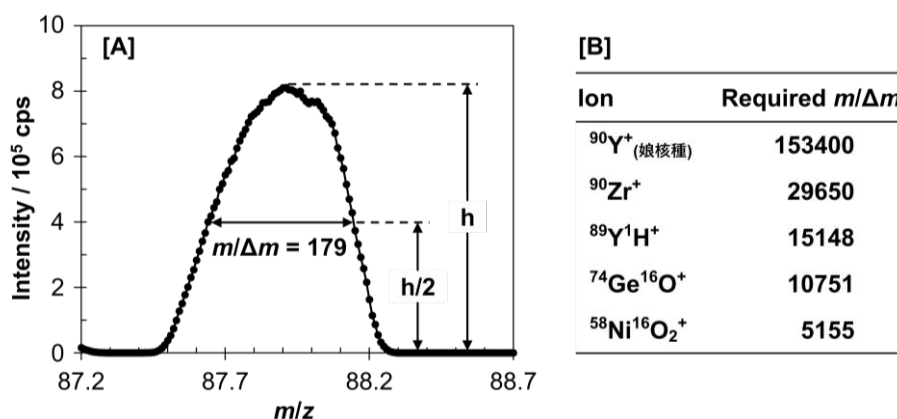


図 3.1-1 四重極マスフィルターの質量分解能および干渉イオン除去に必要な質量分解能
 [A] $^{88}\text{Sr}^+$ ピークから算出された NexION 5000 四重極マスフィルター (Q3) の質量分解能 (測定試料：Sr 1 $\mu\text{g/L}$ in 0.2 M HNO_3 溶液)、[B] ^{90}Sr に対する干渉イオン除去に必要な質量分解能

そのため、本法では DRC 内酸化反応と MS/MS モード (NexION 5000 付属ソフトウェア上では Q1 と Q3 の両方で同じ m/z を設定して質量分離を行う測定モードを「MS/MS モード」と呼称) を組み合わせることで、Q1 により多原子イオン ($^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{89}\text{Y}^+\text{H}^+$) の原因となる共存イオン (Ni^+ 、 Ge^+ 、 Y^+) をあらかじめ除去し、後段の DRC および Q3 にて酸化物イオンとなった同重体イオンのみを系外へ排出することで目的の Sr^+ のみを選択的に検出する多段分離ステップを考案した (図 3.1-2)。MS/MS モードは、Q3 のみで質量分離を行う測定モード (以下、「Q3 only モード」と呼称、従来のシングル四重極 ICP-MS に相当) では除去できない多原子イオン ($^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{89}\text{Y}^+\text{H}^+$) の生成抑制に有効と考えられる。Q3 only モードと MS/MS モードでの O_2 流量による各イオン強度への影響を図 3.1-3 に示した。 O_2 流量 1.6 mL/min のとき、 Y^+

および Zr^+ の除去率は Q3 only モード (Y^+ : 99.999%、 Zr^+ : 99.999%) と MS/MS モード (Y^+ : 99.989%、 Zr^+ : 99.995%) でほとんど差はなかった。一方、Q3 only モードでは、 O_2 流量に比例して $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ および $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ の強度が増加したが、MS/MS モードでは Q3 only モードで得られた $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ および $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ の強度と比較してそれぞれ 99.849% および 99.464% 減少した。これは $^{58}\text{Ni}^+$ および $^{74}\text{Ge}^+$ が Q1 (m/z 90 に設定) にて除去された結果、 $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$ および $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ の生成を抑制できたためと考えられる。

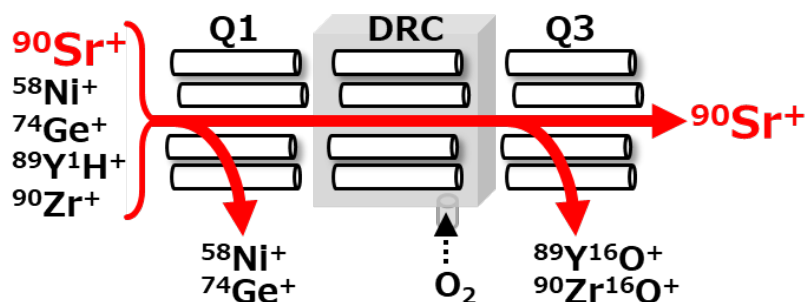


図 3.1-2 $^{90}\text{Sr}^+$ に対する干渉イオンの多段分離

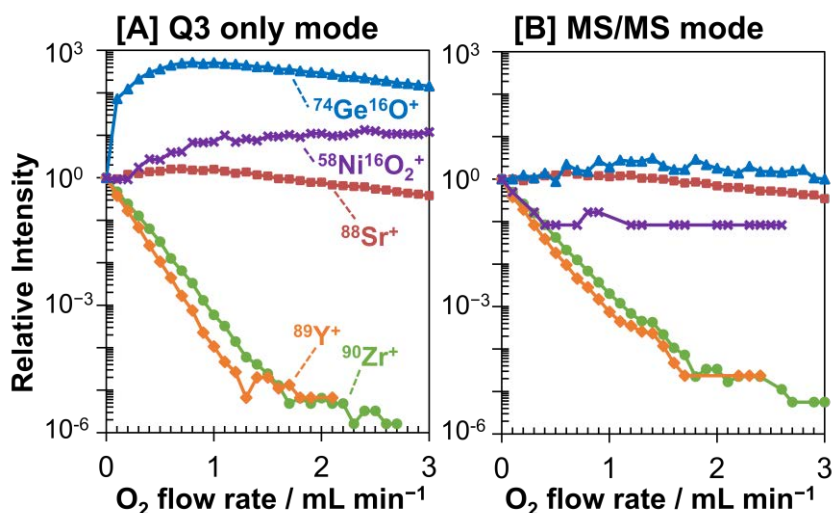


図 3.1-3 測定モードおよび DRC 内 O_2 流量による各イオン相対強度への影響

[A] Q3 only モード、[B] MS/MS モード

O_2 存在下 (1.6 mL/min) にて Q3 only モードおよび MS/MS モードを使用し、10 kBq/L (= 2 ng/L) の ^{90}Sr と干渉元素 (1 $\mu\text{g/L}$ Ni、Ge、Y、Zr) を含む溶液を測定した。Q3 only モードでは干渉イオンが m/z 90 にオーバーラップするため ^{90}Sr の定量値が真値よりも高くなる可能性があることが示唆された。一方、MS/MS モードでは m/z 90 およびその周辺の干渉イオンが完全に除去され、 $^{90}\text{Sr}^+$ 由来のピークを検出することができた。

最適条件 (O_2 流量: 1.6 mL/min、MS/MS モード) において既知量 (1 μg) の干渉元素を添加したタングステン板をスポットサイズ: 100 μm のレーザーでアブレーションしながら m/z 90 におけるバックグラウンド (BG) 強度を測定した。干渉元素の影響の程度に比例すると考えられ、Ni、Ge、Y については Q3 only モードよりも MS/MS

モードの方が BG 強度への影響が少ないことが推測された。無添加タングステン板の測定により得られたブランク強度 $BG+3\sigma$ (≈ 15 cps) との交点は、 $BG+3\sigma$ 以内の BG 強度を与え得る最大の干渉元素濃度であると言え、また、干渉元素に対する本法の許容限度濃度とも言い換えることができる。本法の許容限度濃度および $BG+3\sigma$ に相当する ^{90}Sr のモル数に対する干渉元素の許容限度に相当するモル数の比において、Zr に対する許容限度濃度は Q3 only モードと MS/MS モードでほとんど変わらなかったが、Ni、Ge、Y に対する許容限度濃度は Q3 only モードよりも MS/MS モードの方が 2～300 倍優れていた。

また、Sr 純物質（純度 99.9%）をアブレーションして得られた ^{88}Sr 強度 (4.8×10^9 cps、 ^{86}Sr 強度から換算）および m/z 90 における BG 強度 (0.13 cps) から算出した本法のアバンダンス感度 ($^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$) は 2.8×10^{-11} だった。従来のシングル四重極 ICP-MS のアバンダンス感度は $10^{-10} \sim 10^{-9}$ であり、本法の方が 1～2 桁優れることから従来よりも幅広い試料に適用できることが示された。

② マッピング分析データ処理の自動化

これまでの成果により、本法は微量元素や放射性核種の定量マッピング分析に適用可能であることが示されている。しかし、測定点が多いほどデータ量は膨大となり、手動処理には多大な時間と労力を要する。本研究では罰則項付き非対称最小二乗法を用いたピーク自動検出法を開発するとともに、LA-ICP-MS のデータ処理を自動化し、直感的に操作可能な GUI を構築することとした。

LA によって生じたエアロゾルが ICP-MS に導入されると過渡的なピーク状信号が得られ、これは各測定点に対応する。出力された信号強度データから分析対象核種の分布画像を作成するには (1) ピークの検出、(2) ピーク強度の積分、(3) レーザー照射位置情報との対応付けが必要であり、これらは従来 Excel などにより手動で処理されていた。本研究ではまず (3) について罰則項付き非対称最小二乗法を用いて計測データ $y = (y_1, \dots, y_m)$ に対する $z = (z_1, \dots, z_m)$ を式 3.1-1 より求め、 z を上回る y をピークとして検出する方法を開発した。

$$z = \{\sum_{i=1}^m w(y_i - z_i)^2 + \lambda \sum_{i=1}^m (\Delta^2 z_i)^2\} \quad (\text{式 3.1-1})$$

ここで、 λ は罰則項の正則化パラメータであり、 w は非対称重みである。ピーク検出ができない（すなわち、分析対象核種を含有していない）場合、検出済みのピーク間距離および頻度を参照し、ランダムに振り分けることで、測定点数に対応したデータ数を確保できるようにした。また、(1)～(3)について Python により自動処理プログラムを作成し、さらに、このプログラムを直感的に操作できるよう Tkinter を用いて GUI を構築した。

プログラムの動作確認のため、エネルギー：10 J/cm²、繰返し率：10 Hz、スポットサイズ：50 μm のレーザー条件にて、アカネズミ奥歯の樹脂包埋試料（分析領域：3.25 cm×1.90 cm、2,470 測定点）を測定した。レーザー照射は各測定点で 2 秒間行い、30 秒間の待機時間を挟んで次の照射を行った。ICP-MS はレーザー照射中の信号強度を連続的に取得した。前述で得たデータを手動で処理すると 20 時間かかったが、本 GUI を用いることで約 2 分にまで短縮でき、99.8%の時間削減を実現した。燃料デブリの分析では様々な分析方法で得られたデータを多角的に解析する必要があり、

データ解析にかかる労力や作業時間の削減が課題となることが予想されるが、開発した GUI はマッピング分析データの効率的な解析に資すると期待できる。

(3) まとめ

令和 5 年度は、オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS システムの干渉イオン除去性能の調査およびマッピング分析データ解析作業の自動化検討を行った。最適測定条件 (O_2 流量 : 1.6 mL/min、MS/MS モード) における本法の干渉元素許容限度濃度を算出し、本法の適用範囲を明確化した。また、罰則項付非対称最小二乗法を基盤としたピークトップ検出法を開発・自動化したことによりマッピング分析データの処理にかかる労力および作業時間の大幅な削減が可能になった。

現時点で想定される今後の課題として、本法で求めた ^{90}Sr の絶対量 (Bq) を ^{90}Sr 濃度 (Bq/kg) へ換算するにはレーザー照射による掘削量 (=掘削体積×試料の密度) が必要であり、現状は、本システム以外の装置 (デジタルマイクロスコープによる 3D スキャン、密度計) を用いて別途測定を行っているが、高レベル放射性である燃料デブリを複数の分析装置にわたって分析することは、周囲の汚染リスクや分析者の被ばくリスクなどを考慮すると実用的でない。したがって、将来的には 3D スキャン機能や密度測定機能を本システムに統合した一体型分析システムの開発が必要である。

総括として、本研究ではオンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS による ^{90}Sr の直接定量および定量マッピング分析法を開発し、その分析性能調査を実施した。本法は、従来の ^{90}Sr 分析法 (放射線計測法、ICP-MS、TIMS) では不可能だった定量とマッピングの両立が可能であり、非常に少ない試料量 (μg レベル)、短い時間 (数秒) で 1 回の分析ができる。原理上、安定同位体を 2 種類以上持つ元素および放射性核種に適用できるため、 ^{90}Sr のみならず様々な分析に応用できる可能性があり、ミクロスケールにおける燃料デブリ中の極微量無機成分の局在を定量的に評価するうえで大いに役立つことが期待できる。

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5年度】

(1) 令和4年度までの概要

LIBSは、原子発光分析法の1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わかっている^{[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LIBS装置の最適化、標準物質のスペクトルのデータベース化を実施し、多変量解析による材料の特定（プロファイリング）の検討を行った。また、マッピング測定データを解析するソフトウェアの開発を開始した。さらに、令和元年度に作製した自動マッピング装置を用いて模擬デブリ計測の検討を行い、解析ソフトにより元素情報をマッピング表示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デブリを用いて硬さ測定等を行い、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の検討および未知試料とデータベースのフィッティングを検討した。

(2) 令和 5 年度実施内容および成果

① 試料

試料は模擬デブリである Core Material Melting Relocation (以下、「CMMR」と略す。) 0-1 試験体を用いた。この試料は、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 (SUS)、ウラン燃料を模擬した燃料ペレット (ZrO₂) で構成されており、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。

② 装置および測定条件

ビッカース硬さ試験に使用した機器と試験条件を表 3. 1-1 に示す。

表 3. 1-1 ビッカース硬さ試験機と試験条件

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クス技術の融合

令和 4 年度は、遅延時間 1.28 μs、窒素雰囲気下で LIBS 計測を実施したが、令和 5 年度は、測定の最適化を図るため遅延時間を S/N が最適となる 3.28 μs とし、窒素雰囲気とアルゴン雰囲気で計測した。CMMR0-1 試験体を多地点 LIBS 計測し、多変量解析ソフト (TIBCO Spotfire) を用いて各測定点を組成①～⑦に分類した。この際、まず組成① (模擬燃料ペレット) と組成② (被覆管) を決定した。窒素雰囲気では令和 4 年度と同様に酸素とジルコニウムのピーク面積比 (O/Zr) から模擬燃料ペレットと被覆管を抽出したが、アルゴン雰囲気には適用できなかった。罰則項付き非対称最小二乗法により、アルゴン雰囲気のスペクトルデータからベースラインを求めたところ、搭載する 6 つの分光器ごとに山なりの形状を示し、分光器 3 (波長 314～415 nm) では、模擬燃料ペレットのみ他の基材と異なるベースラインを示した。金属元素の影響を受けない分光器 6 (波長 723～907 nm) を装置感度の基準とし、分光器 3 と分光器 6 の面積を算出し相関性を確認したところ、回帰直線に起因する測定点を被覆管とすることで模擬燃料ペレットと被覆管の抽出が可能であった。組成①、②以外の測定点は検出元素の種類から組成③～⑦に分類し、組成分布を作成した。測定雰囲気によらず、令和 5 年度の結果は令和 4 年度とほぼ同等であったが、遅延時間 3.28 μs では溶融物が混在する部分で模擬燃料ペレットの検出が散見され、検討の余地が残った。

LIBS 組成分布の妥当性を評価するため、EPMA の元素マッピング像^[5]から作成した組成分布と比較した。EPMA の元素マッピング像は解像度を落とし LIBS の測定条件と合わせた後、組成分布を作成した。EPMA による LIBS 組成分布の妥当性評価結果は、模擬燃料ペレットの一致率は最大 85%と良好であったが、被覆管は最大 50%が一致した。被覆管の一致率が低いのは LIBS の測定間隔を 2 mm としたため、2 mm 以下の対象物が測定できなかったことが原因と考える。広範囲測定を目的とした本測定条件では、妥当な結果を得ることができた。

2) LIBS で得られた組成データの硬さ分布の変換

アルゴン雰囲気組成⑥～⑦を令和 4 年度と同様に文献等を基にして硬さへ変換後、8 GPa 未満を金属、8 GPa 以上 13 GPa 未満を酸化物、13 GPa 以上をホウ化物に分類し、硬さ分布を作成した。窒素雰囲気（遅延時間 1.28 μ s）とアルゴン雰囲気（遅延時間 3.28 μ s）の硬さ分布の妥当性を評価するため、ビッカース硬さ試験を実施し、硬さ分布の値（分布値）とビッカース硬さ試験の値（実測値）の照合を行った。測定雰囲気に問わず、金属と酸化物の分布値と実測値は概ね一致したが、ホウ化物は実測値が分布値より低い値となった。

窒素雰囲気のホウ化物の解析結果を示す。高解像度の EPMA 元素マッピング像で作成した組成分布から、分布値 > 実測値であった箇所では、ホウ素を含む溶融物が数 mm 程度の大きさで分布していた。ビッカース硬さ試験付近の組成を確認した結果、ホウ素の測定強度が十分に取得できており、鉄や炭素の比率が少ない場合は、分布値 = 実測値となり、ホウ素の測定強度が不十分な場合は Fe/B、C/B の値に関わらず、分布値 > 実測値となった。LIBS 測定点とビッカース硬さ試験の位置のずれが分布値と実測値が一致しない原因であるとともに、多変量解析方法の改善も必要な結果となった。

(3) まとめ

① 令和 5 年度のまとめ

令和 5 年度は、令和 4 年度に引き続き LIBS 測定データとインフォマティクス技術の融合、LIBS で得られた組成データの硬さ分布の変換を実施した。

1) LIBS で得られたデータとインフォマティクス技術の融合

実用化に向け測定条件の最適化を図るため窒素雰囲気他にアルゴン雰囲気で測定を行った。アルゴン雰囲気では、罰則項付き非対称最小二乗法によりスペクトルから求めたベースラインを用いることで組成分布の作成が可能であった。EPMA の組成分布により窒素雰囲気とアルゴン雰囲気の組成分布の妥当性評価を行った結果、ペレットは一致率最大 85%、被覆管は一致率最大 50%であり、測定間隔 2 mm の測定条件では妥当な結果となった。

2) LIBS で得られた組成データの硬さ分布の変換

窒素雰囲気とアルゴン雰囲気の硬さ分布の値（分布値）とビッカース硬さ試験の値（実測値）を照合し妥当性評価を行った結果、金属と酸化物は良好であったが、ホウ化物は実測値が分布値より低い部分があった。EPMA の組成分布から、分布値と実測値が一致しない部分のホウ化物の大きさは数 mm 程度であることがわかった。

また、LIBS 測定点とビッカース硬さ試験の測定位置のずれが分布値と実測値が一致しない原因であることを特定した。ビッカース硬さ試験付近の組成から、ホウ素の測定強度は十分に取得できており、鉄や炭素の比率が少ない場合において分布値と実測値を一致させることができた。

用いた CMMR 試験体のホウ化物の多くは微粒子で存在するため、レーザースポット径が約 1 mm の LIBS 測定と試験痕が 100 μm 程度のビッカース硬さ試験では測定位置を完全に一致することができない。大きさが 2 mm 以上で、様々な組成のホウ化物が混在する試料をマッピング計測・解析することで硬さ変換の妥当性を評価できる。また、組成の異なるホウ化物の LIBS 測定とビッカース硬さ試験のデータ数を増やすことで硬さ変換の精度の向上が期待できる。

② 総括

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量分析には不向きな面があるが、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、硬さ分布情報への変換を試みる研究を行った。

標準物質の LIBS 計測を実施し、スペクトルデータのラベリング・ライブラリ化を実施するとともに、機械学習手法（非負値行列因子分解（以下、「NMF」と略す。))によりスペクトルデータ分析を行い、スペクトルの強度や形状等を評価することにより、未知試料に含まれる金属元素や化合物の分類・推定を可能とした。

雰囲気制御可能なチャンバーを搭載した多地点可動 LIBS を開発し、模擬デブリのマッピング計測を実施し俯瞰的な情報を得た。測定データの解析に多変量解析と機械学習を適用し組成分布を作成することで、材料分布の可視化を可能とした。金属酸化物やホウ化物の組成と硬さの相関性を利用して組成を硬さへ変換後、金属、酸化物、ホウ化物の 3 種類の硬さで作成した硬さ分布は、金属と酸化物は良好な結果であり、鉄や炭素の比率が少ない場合においてホウ化物も良好に測定することができた。

本研究により、LIBS 計測で得た元素情報から組成解明と硬さ変換を可能とした。

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5年度】

(1) 令和4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、沈降せずに滞留している微粒子はナノサイズの微粒子であり、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。そこで本研究では、微粒子の抽出報告がある界面活性剤の相分離現象を利用した曇点抽出法を用いて、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。また、微粒子から得られるのは局所的な情報であり、炉内状況を把握するためには、多量の微粒子を観察する必要がある。そのため、インフォマティックス（機械学習）を用いて、多成分の微粒子が含まれるサンプルから迅速に微粒子を同定する手法を開発する。

令和元年度には、クロアポ教員 1 名および特研究生 1 名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）で曇点抽出による微粒子の抽出率と抽出前後の状態を確認するために、微粒子の粒子径と数を計測する必要があり、計測のための準備として、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。

令和2年度には、JAEA へ新たに特研究生を 1 名配属させるとともに、設備備品を稼働させて曇点抽出による微粒子の抽出実験を実施した。曇点抽出により標準微粒子（金ナノ粒子）を濃縮し、TEMを用いてその濃縮微粒子の粒子径、形状、元素マッピングを計測し、濃縮前の標準微粒子（金ナノ粒子）と濃縮後で粒子径・粒子形状に違いがないことを確認した。令和元年度に整備した微粒子計測システムを用いて曇点抽出による微粒子の最大濃縮倍率、最大抽出量を検討し、単位体積内の界面活性剤相内にどの程度の粒径の粒子を何個封じ込めることができるのか検討した。

令和3年度には、ポスドク 1 名および特研究生を 2 名配属させた。炉内に含まれると想定される微粒子（金属酸化物微粒子）の最大濃縮倍率、最大抽出量を検討し、単位体積内の界面活性剤相内にどの程度の粒径の粒子を何個封じ込めることができるのか検討した。金属酸化物微粒子の抽出に対する基礎情報を取得した。

令和4年度には、様々な微粒子（金属酸化物微粒子）の粒子径・粒子形状・抽出前後の粒子濃度とゼータ電位を計測し、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。

(2) 令和 5 年度実施内容および成果

① クロアポ教員、博士研究員および特研生の受け入れならびに設備備品の稼働による研究実施

環境影響研究ディビジョン（JAEA 三春）にて、令和 4 年度に引き続き、クロアポ教員 1 名、ポスドク 1 名および特研生 2 名（博士後期課程 1 名、博士前期課程 1 名）を受け入れた。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適宜、打合せを行った。

本研究 5 年間に於いて、環境影響研究ディビジョン（JAEA 三春）では、クロアポ教員 1 名、博士研究員 1 名、特研生 5 名を受け入れた。その 5 年間の総括を図 3.1-4 に示す。

各人の新規配属前には、JAEA および福島大学の間で受け入れに伴う打合せを複数回にわたって実施した。JAEA は、受け入れ前にデスクワークに必要な PC 等の設備、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などを行い、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、研究活動を進めるにあたって必要な事務手続きについて説明した。

JAEA 三春では、実験室に新たに実験スペース、安全に実験をするために必要な保護具、実験用資機材などを確保した。また、JAEA 職員は研究に関する打合せ、意見交換、実験の指導などを適宜行った。得られた成果は、共同で学会や論文を通じて発信した。

ポスドクおよび特研生の就職先は、東京電力や JAEA など、原子力関連が大部分を占めた。

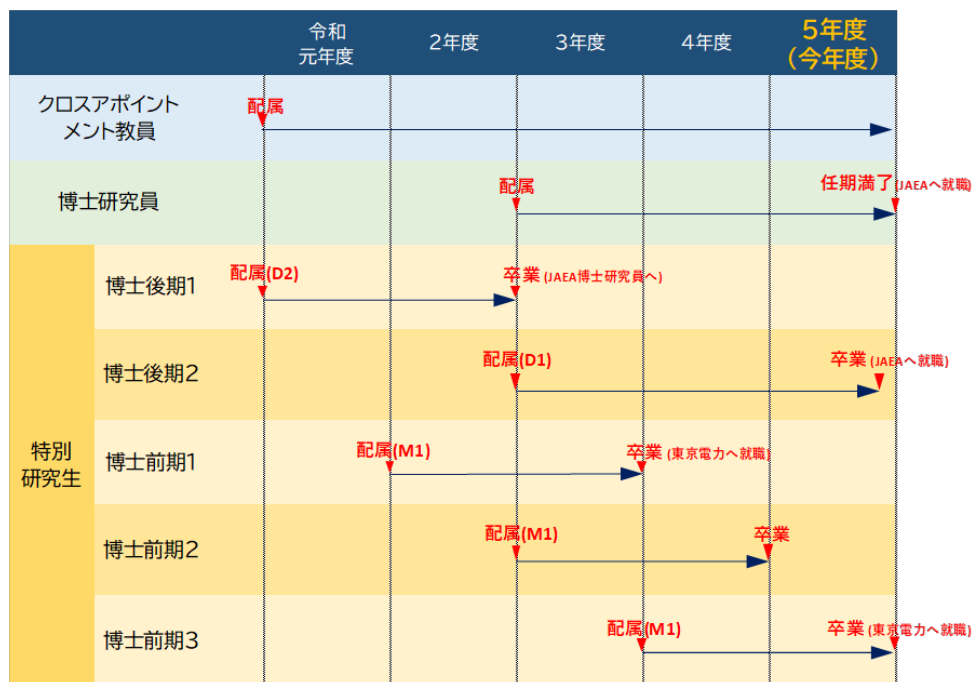


図 3.1-4 受け入れ状況の総括（令和元年度から令和 5 年度まで）

② 様々な金属酸化物微粒子の抽出特性の把握

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。金属酸化物微粒子は、ゼータ電位がゼロになる値を等電点と言い、その等電点から酸性側では微粒子は正電荷を帯び、アルカリ側は負電荷を帯びる。そのため、これまでに、モデル物質として、燃料被覆管に使用されているジルコニウムや炉内構造材に含まれる鉄の酸化物微粒子を中心に界面活性剤による抽出特性を検討した。

令和5年度は、燃料デブリを想定して CeO_2 （U の模擬物質）、 ZrC （燃料被覆管）と炉内構造材（ Al_2O_3 、 CuO 、 Cr_2O_3 ）などの様々な金属酸化物微粒子に対する pH による分散性の変化、両性イオン界面活性剤による金属酸化物微粒子の抽出挙動とゼータ電位の影響などの詳細について確認した。

1) 実験

a) 金属酸化物微粒子溶液の調製

金属酸化物微粒子溶液の標準溶液がないため、粉末から遊星型ボールミルを使用して、粒子径が nm オーダーの標準溶液を調製した。45 mL ジルコニア容器に金属微粒子粉末（ Fe_2O_3 、 Al_2O_3 、 CuO 、 Cr_2O_3 、 ZrC 、 CeO_2 ）1～2 g、超純水 10～20 mL と 0.5 mm ZrO_2 ビーズを加え 1,000 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、3,000 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 μm のシリンジフィルターでろ過し、それぞれ金属酸化物微粒子溶液とした。 ZrO_2 は、Sigma-Aldrich 製の ZrO_2 微粒子溶液を使用した。

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 $^{\circ}\text{C}$ 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 $^{\circ}\text{C}$ 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、2,000 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 2 mL 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 3.1-2 より算出した。

$$E = 100 - \left(\frac{N_w \times V_w}{N_h \times V_h} \times 100 \right) \quad (\text{式 3.1-2})$$

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（ $\mu\text{g/L}$ ）

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（ $\mu\text{g/L}$ ）

V_w ：水相の体積

V_h ：均一溶液の体積

c) 結果と考察

様々な微粒子 (Fe_2O_3 、 Al_2O_3 、 CuO 、 Cr_2O_3 、 ZrO_2 、 ZrC 、 CeO_2) に対して、pH 変化によるゼータ電位、抽出前後の粒子径と抽出率を評価した結果を表 3.1-2 に示す。それぞれの微粒子は、酸性側で正電荷、アルカリ性側では負電荷を帯びていることを確認した。抽出率は Al_2O_3 、 CuO を除いて、アルカリ性では抽出率が低下した。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、ゼータ電位が -40 mV 以下では抽出率が低下している。抽出率は、一定の閾値 (-40 mV) で低下する可能性がある。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は、酸性、中性条件では、高い抽出率を示し、抽出前後の粒子径の変化は誤差範囲内に収まっていた。炉内水の pH は中性付近であるため、両性イオン界面活性剤による曇点抽出を用いて炉内水の微粒子を凝集体形成させることなく抽出が可能であると考ええる。

表 3.1-2 金属微粒子ごとの粒子径、抽出率とゼータ電位

想定物質	粒子の種類	pH	抽出前の 粒子径/ nm	抽出後の 粒子径/ nm	抽出率 %	ゼータ電位/ mV
燃料デブリ	CeO_2	2.2	59 ± 31	84 ± 45	84.1	45.7 ± 1.5
		7.7	110 ± 37	119 ± 41	99.9	3.4 ± 2.0
		12.6	81 ± 29	102 ± 42	31.2	-38.2 ± 3.2
	ZrO_2	2.1	126 ± 43	213 ± 105	99.8	44.6 ± 2.5
		7.3	217 ± 108	253 ± 115	99.9	18.4 ± 2.5
		12.1	178 ± 127	147 ± 49	33.0	-45.5 ± 2.6
	ZrC	2.0	57 ± 27	112 ± 45	86.5	53.9 ± 3.9
		6.6	86 ± 47	85 ± 49	97.3	-7.9 ± 2.2
		12.1	48 ± 22	71 ± 36	14.6	-47.1 ± 2.0
炉内構造材	Fe_2O_3	2.2	82 ± 42	122 ± 72	90.3	18.4 ± 0.7
		6.5	101 ± 56	129 ± 70	82.6	-18.2 ± 0.5
		12.1	121 ± 58	140 ± 77	72.8	-45.1 ± 2.1
	Al_2O_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
	Cr_2O_3	1.9	106 ± 51	118 ± 57	99.2	53.5 ± 5.7
		12.6	76 ± 23	105 ± 41	14.7	-46.7 ± 1.1
	CuO	2.4	124 ± 75	164 ± 81	99.4	2.5 ± 0.1
		12.7	145 ± 80	191 ± 86	98.4	-15.0 ± 2.1

③ TEM による 3D 画像撮影の検討

インフォマティックス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しているため、微粒子が重なりあい微粒子の輪郭が不鮮明な微粒子においては識別が困難になる。そのため、微粒子の重なりあった場合でも微粒子を評価するために 3D 画像の撮影を検討した。令和 4 年度では、標準微粒子として金ナノ粒子で検討を行い撮影角度範囲と倍率を調整した。令和 5 年度では、炉内水に含まれると想定される ZrO_2 、 Fe_2O_3 微粒子に対して 3D 画像を取得した。

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 40,000-150,000 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 CeO_2 、 ZrO_2 微粒子溶液を 10 μL 滴下後、室温下で 8 時間乾燥し作製した。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 -56° 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

結果を図 3.1-5 に示す。TEM 画像からは、球形粒子が連なっていることが確認できる（図 3.1-5[A][D]）。中央付近のコントラストが濃く表示されているため微粒子が重なっていると考えられ、3D 画像により球形粒子の重なりが確認できた（図 3.1-5[B][C][E][F]）。3D 画像から重なった微粒子の外観情報を取得することが可能となった。これにより、異なる微粒子が重なりあった状態でも微粒子を識別ができる可能性がある。

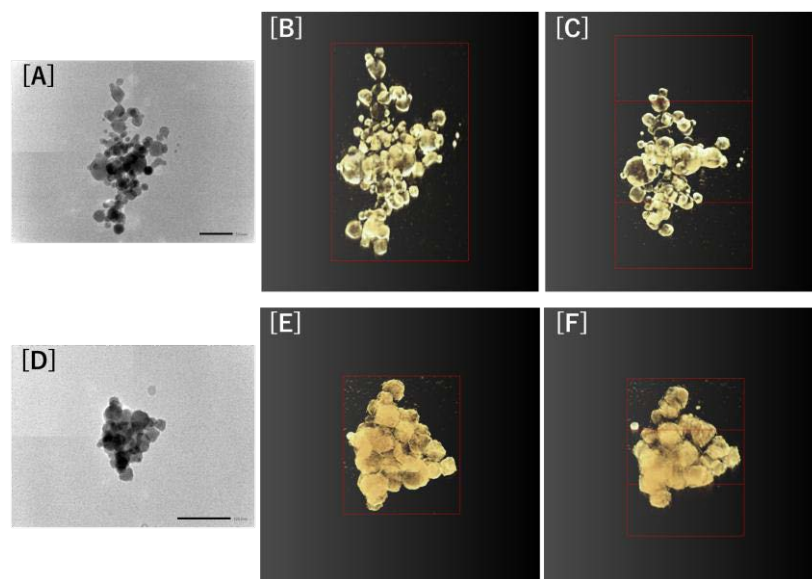


図 3.1-5 ZrO_2 、 Fe_2O_3 微粒子の 3D 画像

- | | |
|--|--|
| [A] ZrO_2 微粒子 TEM 画像 | [B] ZrO_2 微粒子 Tilt X = 0° |
| [C] ZrO_2 微粒子 Tilt X = 40° | [D] Fe_2O_3 微粒子 TEM 画像 |
| [E] Fe_2O_3 微粒子 Tilt X = 0° | [F] Fe_2O_3 微粒子 Tilt X = -40° |

④ インフォマティクスとの融合

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、炉内状況を把握するためには、多量の微粒子を観察する必要がある、TEM に付帯しているエネルギー分散型 X 線分析により微粒子を一つ一つ同定するのは困難であった。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判別（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、機械学習を用いた物体検出アルゴリズム YOLO (You Only Look Once) と SSD (Single Shot multibox Detector) を使用した。どちらのアルゴリズムも精度と処理速度は、トレードオフの関係にあるが、YOLO は処理速度が速く、SSD は精度が高いとされている。TEM 画像による物体検出の例はないため、令和 4 年度では、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 Sm_2O_3 微粒子を用いて検討を行い、微粒子を識別した。令和 5 年度では、燃料デブリ由来として燃料被覆管由来として ZrO_2 と構造材由来として Fe_2O_3 微粒子を用いて検討を行った。それぞれ 100 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、 ZrO_2 と Fe_2O_3 微粒子を混ぜ、TEM 画像を取得し、YOLO と SSD により同定を行い、2 つのアルゴリズムの比較検討を行った。

2) 結果と考察

結果を図 3.1-6 に示す。 ZrO_2 と Fe_2O_3 のように外観が似ている微粒子でも、YOLO と SSD とともに TEM 画像から ZrO_2 と Fe_2O_3 の微粒子群がどちらの微粒子で主に構成されているか判別することができる。YOLO では平均適合率が ZrO_2 : 0.95、 Fe_2O_3 : 0.88 であり、SSD では ZrO_2 : 0.91、 Fe_2O_3 : 0.84 とどちらも高い値であった。平均適合率から平均精度の平均 (Mean Average Precision : MAP) を算出し、YOLO と SSD を比較すると MAP は、YOLO で 91.52%、SSD で 87.58% であり、YOLO と SSD とともに高い精度であることがわかった。このことから、TEM 画像からの微粒子識別では、処理速度が速い YOLO を採用した。YOLO を用いることで、微粒子の迅速な識別が可能となった。

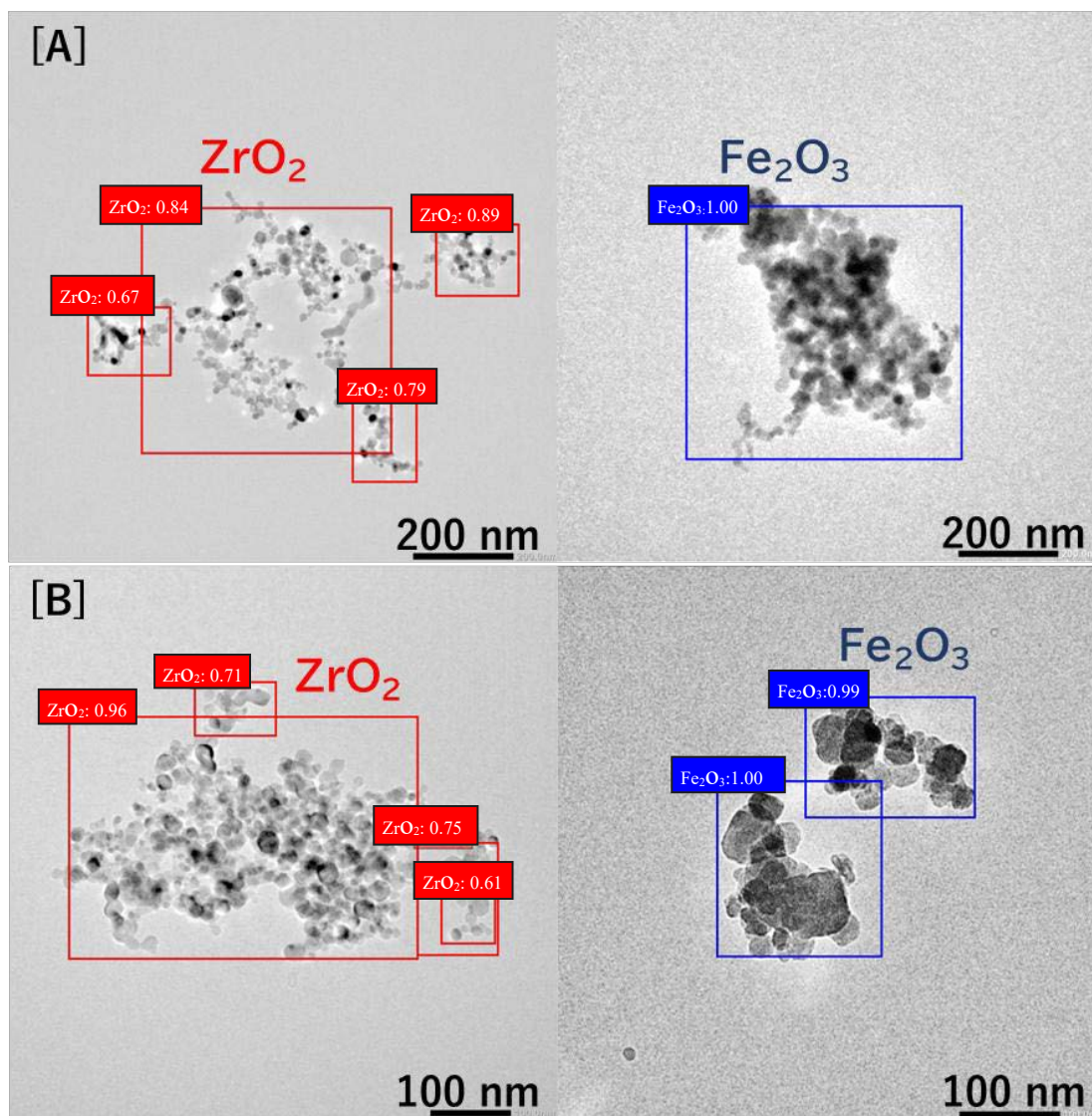


図 3.1-6 物体検出アルゴリズムによる微粒子の同定

[A] YOLO、[B] SSD

⑤ 水溶液中微粒子を液体相のまま計測・分析するシステム

これまでの検討により、界面活性剤を用いた曇点抽出法により液体相中の微粒子を、状態を変化させることなく抽出し観察することが可能となった。しかし、液体相のまま直接観察し微粒子を分析することはできていなかったため、あくまでも曇点抽出による微粒子の状態維持は、sp-ICP-MS による間接的な評価であった。そこで、本研究では液中観察試料ホルダー（Poseidon、Protochips 製）を用いた液体相中微粒子の TEM 観察を検討した。Poseidon は、窒化シリコン製の観察窓を持つチップで液体相を挟み込むことで、液体相の TEM 観察を可能にする。課題として電子線を液体相中の微粒子に照射することで、放射線分解反応により水和電子等が発生し、遊離のイオンが還元され微粒子状態が変化することがある。そのため、元素マッピングのような長時間電子線照射を要する元素分析は困難であった。そこで、物体検出アルゴリズム YOLO を用いて、迅速な微粒子識別法を検討した。

1) 実験

TEMはJEM-2800（日本電子株式会社製）を使用し、加速電圧 200 kV で観察した。観察用試料は、窒化シリコン観察窓を備えた small-E チップ（Protochips 製）に ZrO_2 、 Fe_2O_3 微粒子溶液 0.4 μL 滴下し、Large-E チップで上から挟み込み Poseidon にセットすることで作製した。動画キャプチャーソフト HyperCam2 を用いてディスプレイ上に表示される観察視野を動画として取得し、物体検出アルゴリズム YOLO による微粒子識別を行った。

2) 結果と考察

結果を図 3.1-7 に示す。液相中微粒子の形状は抽出後の微粒子と同様に球形粒子が連なるような形状をしていた。このことから、曇点抽出後の微粒子状態は液体相中の微粒子状態と近いことが確認できた。YOLO による微粒子識別は、 ZrO_2 、 Fe_2O_3 とともに観察視野内に入ると同時に微粒子識別タグが表示された。動画から ZrO_2 、 Fe_2O_3 が識別され、正答率は ZrO_2 : 91%、 Fe_2O_3 : 90% で高い精度を示した。倍率 300,000–500,000 倍の観察においては、倍率を変化させても微粒子識別が可能であった。これにより、長時間の電子線を照射させることなく微粒子の識別が可能となった。TEM の観察視野をリアルタイムで取り込むことで、YOLO による液相中微粒子のリアルタイム識別ができると考える。

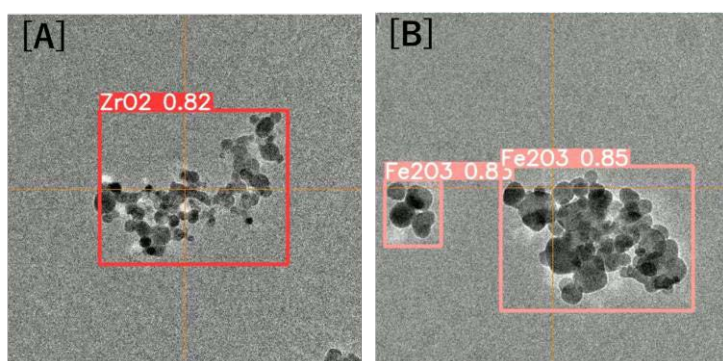


図 3.1-7 YOLO による液相中微粒子の動画からの同定

[A] ZrO_2 、[B] Fe_2O_3

(3) まとめ

① 令和5年度のまとめ

令和5年度は、1Fの炉内水中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。曇点抽出による微粒子の抽出は微粒子のゼータ電位によって挙動が変化することがわかり、 -40 mV以下の強い負電荷を帯びた微粒子は界面活性剤との静電的相互作用により抽出率が低下する。炉内汚染水中のpHは中性付近であるため、ゼータ電位は0に近い値であると想定されるため抽出率は高い値を示し、曇点抽出による微粒子の抽出は可能である。TEMによる3D画像の取得は、ZrとFeの酸化物微粒子に対して行い、微粒子の重なりや深さ方向の外観情報など、2DのTEM画像よりも多くの微粒子識別に必要な情報が取得可能となった。インフォマティックスとの融合においては、TEM画像を学習データとしたYOLOによる微粒子識別法を検討し、外観が酷似したZrとFe酸化物微粒子に対して90%以上の高い精度で識別を可能とした。

また、水溶液中微粒子を液体相のまま計測・分析するシステムについては、液中観察試料ホルダーPoseidonを使用することで、液体相中微粒子の観察を可能とした。また、長時間電子線照射を要する元素分析は、微粒子状態が変化する可能性があり困難だったが、YOLOを用いた方法では、視野に微粒子が入ると瞬時に識別でき、短時間の電子線照射での元素分析を可能とした。

② 総括

両性イオン界面活性剤の曇点抽出により、様々な金属酸化物微粒子を液体相中の状態を維持したまま捕集することができた。また、TEM観察により微粒子の3D画像を撮影し、物体検出アルゴリズムYOLOを用いることで、目的物質の微粒子を迅速に発見することが可能となった。TEM観察に液中観察試料ホルダーPoseidonを用いると、YOLOによって液体相のまま微粒子を観察・識別することができ、曇点抽出後の微粒子画像群を教師データとして用いることで、より短時間の電子線照射で正確に液体相中の微粒子の組成が推定できると考える。本研究は、TEMによる液相中微粒子の計測を可能とし、汚染水浮遊微粒子の組成に基づく燃料デブリ性状推定の一助となることが期待できる。

今後の課題としては、炉内汚染水中の微粒子はより複雑な組成をしているため、学習データとなるTEM画像および3D画像の充実と機械学習への適応を進めることが必要である。また、汚染水中には鉄さび等の構造材由来の微粒子が多く存在するため、燃料デブリ由来微粒子を発見することは困難となる。そのため、TEM観察と機械学習による微粒子同定を自動化し、より大量の試料を観察するシステムを構築する必要がある。これらの課題を解決することで、炉内汚染水中の微粒子への適応が期待できる。

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～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

α 線放出核種の放射線計測（ α スペクトロメトリーなど）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、分析時間の増加および分析作業員への負担が懸念される。令和4年度には、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した。従来、ICP-MS計測が抱えていた同重体による干渉（ $^{241}\text{Am}^+$ に対する $^{241}\text{Pu}^+$ の干渉、ICP-MS内で多量の ^{238}U から生成する $^{238}\text{UH}^+$ 、 $^{238}\text{UH}_2^+$ の $^{239}\text{Pu}^+$ 、 $^{240}\text{Pu}^+$ への干渉）を除くために、固相抽出（SPE）とICP-MS内の反応セル（コリジョン・リアクションセル（以下、「CRC」と略す。））におけるリアクションガスを利用した分離検討を実施した。そして、FI流路を構築してICP-MSと連動させ、U、Pu等を用いた実証試験を行った。

(2) 令和5年度実施内容および成果

① 実施内容

構築した分析システムは、FI流路、超音波ネブライザー（Teledyne製U5000AT+）、ICP-MS/MS（PerkinElmer製NexION5000）から構成される。FI流路は、次に示す装置群（スイッチングバルブ：Gilson製Valvemate II×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、装置類とPCを接続するためのインターフェース×1台）によって構築され、専用ソフトウェア（Gilson製TRILUTION LH Software）でシーケンス制御した。FI流路のスイッチングバルブには、Eichrom製DGA resinを約220 mg充填したPEEKカラム（PerkinElmer製エンプティカラム、材質：PEEK、内径3.5 mm×長さ50 mm）を2本直列に繋げて装着した（充填樹脂量は計440 mg）。試料、洗浄液、溶出液は、ペリスタルティックポンプにより流速4.2 mL/minで送液した。試料溶液は、4 M HNO_3 +0.1 M NaNO_2 +0.2 M $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ に調製後、カラムへと通液した。4 M HNO_3 で樹脂を洗浄後、以下に示す溶離液を①～④の順で通液してアクチノイドを逐次溶出した（① U溶出：0.2 M HNO_3 、② Am、Cm溶出：0.5 M HCl 、③ Pu溶出：0.5 M HCl +1.0% アスコルビン酸、④ Th溶出：0.02 M シュウ酸）。FI流路のインターフェースとICP-MS/MS（PerkinElmer製NexION5000）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FI流路のソフトウェアからICP-MS/MSへ測定開始信号を発信し、データを取得した。ICP-MS/MSのリアクションセルには、 O_2 ガスを2.0 mL/minで流し、 α 線放出核種を酸化体として検出した（Th： ThO_2^+ 、U： UO_2^+ 、Pu： PuO_2^+ 、Am： AmO^+ 、Cm： CmO^+ ）。

試験に用いた ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{232}Th の標準試薬には、PerkinElmer製混合標準溶液（B、Th、U）、 ^{242}Pu の標準試薬は、NIST（アメリカ国立標準技術研究所）製標準液、 ^{241}Am と ^{244}Cm 標準試薬には、Eckert & Ziegler Isotope Products製をそれぞれ用いた。

1) 構築した分析システムの性能評価

1F燃料の α 線の放射能組成の大部分は、主に5核種（ ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm ）であり、これらの分析ニーズが高いと予想される。よって、構築した分析システムについて、これら5核種に対する干渉物質の影響、検出下限値などの性能評価を行った。

2) 放射性物質の代替元素に係る調査

Pu の標準試薬 (^{242}Pu など) は入手が難しく、なおかつ利用場所が限定的、管理業務の増大など、その使用には多くの制約を抱える。これらの制約を除くため、代替元素の検量線を用いた Pu 同位体の計測技術を検討した。本研究では、Pu の代替元素に Th を選定した。その理由として、① 第一イオン化エネルギーが Pu と近いこと (Th : 6.08 eV、Pu : 6.06 eV)、② 構築した分析システムで用いる気相反応により Th は Pu と同じ二酸化物に変換する、といった点がある。しかしながら、この構築した分析システムには、Pu/Th 比の変動させる可能性を持つ要因がいくつか存在しており、それらの調査・把握が必要となる。以下に変動要因の調査項目を挙げる。

- ・ SPE カラムにおける Pu/Th 比の変動 : a) 検出時の溶媒の影響 : 現行の溶液プログラムでは、SPE カラムからの Pu と Th の溶離液が異なるため、送液効率やイオン化率へ影響を与える可能性がある。よって、Pu と Th を同時に溶出させる検討を実施し、この変動要因を除く検討を行った。また、SPE カラムにおける Th と Pu の回収率の変動も Pu/Th 比へと影響を与えるため、複数の実サンプル (標準液、地下水、海水、土壌分解物) を用いた回収率の変動を調査した。
 - ・ CRC 内酸化反応が Pu/Th 比へと与える影響 : Pu と Th の酸化のしやすさが異なるため、CRC 内での O_2 流量における Pu/Th 比を調査した。
- 最終的に、構築した分析システムで得られた実測の Pu/Th 比と変動要因から推定した Pu/Th 比を比較することで、代替元素として利用できるか評価した。

3) 本法の妥当性確認

各核種を添加した環境試料 (地下水、河川水、海水、堆積物の分解溶液) を、構築したシステムにて測定し、本法の妥当性を確認した。地下水、河川水、海水は、0.45 μm フィルターでろ過して使用した。堆積物の分解溶液は、認証標準物質である IAEA-384 をマイクロウェーブ分解装置で分解して調製した。(分解手順 : マイクロウェーブ容器に、IAEA-384 0.5 g、硝酸 (60%) 6 mL、塩酸 (35%) 2 mL を入れ、蓋をして 1,000 W (220 $^{\circ}\text{C}$) で 35 分加熱した。分解した溶液を回収し、ホットプレートで蒸発乾固した後、8.0 M HNO_3 10 mL を添加して、0.45 μm フィルターでろ過)。構築したシステムによる実際の定量値と添加値または認証値を比較し、本法の妥当性を評価した。

② 成果

1) 構築した分析システムの性能評価

核種 (^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm) に対する干渉物質、1F 燃料を試料と想定した場合の分離目標値、構築したシステムにおける干渉物質の分離率、そして各核種の検出下限値を示した。その結果、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm に関しては、目標分離率を達成し、一斉分析が可能であった。これら 4 核種の検出下限値は、1 Bq/L 以下となった。また、本システムは、 ^{232}Th 、 ^{238}U 、 ^{242}Pu も同時に計測できることを確認しており、これらの検出下限値はそれぞれ 1.35 ppt (5.5×10^{-3} mBq/L)、1.41 ppt (1.7×10^{-2} mBq/L)、 2.2×10^{-3} ppt (0.32 mBq/L) となった。なお、 ^{238}Pu は、 ^{238}U の影響が大きく、本システムでは、目標分離率を満たしていないが、 NH_3 により ^{238}U の精密除去が可能である (令和 4 年度の本研究において報告済み)。前述 4 核種

とともに一斉分析するのは難しいが、個別の測定により分離目標値を達成し、定量することが可能である。

2) 放射性物質の代替元素に係る調査

・ SPE カラムにおける Pu/Th 比の変動

a) SPE カラムからの溶離液の影響

まず、異なる溶媒（3%硝酸、0.02 M シュウ酸）における Pu と Th の強度変動を確認した。その結果、3%硝酸溶媒時の Pu/Th の強度比は 0.69 に対し、0.02 M シュウ酸溶媒時の Pu/Th の強度比は 0.43 と変動することが確認された。よって、Pu と Th を 0.02 M シュウ酸で同時溶出することでこの変動要因を解消できるか検討した。分析システムの溶出プログラムを変更し（溶出プログラム：① U 溶出：0.2 M HNO_3 、② Am、Cm 溶出：0.5 M HCl 、③ 0.1 M シュウ酸アンモニウム）回収率を評価したところ、従来法と同等の回収率が得られた。なお、Pu と Th の同時溶出によって、Pu の定量値に Th が影響を与えることはなかった。

また、変更後の溶出プログラムを用いて、SPE カラムにおける Th と Pu の回収率を様々な環境試料を用いて評価した。この時、Pu/Th 比は 0.812～0.865 の範囲であり、その平均は 0.833 となった。

・ CRC 内酸化反応が Pu/Th 比へと与える影響

CRC 内での O_2 ガスに対する Pu と Th の反応のしやすさが異なるため、 O_2 ガス流量に対する Pu/Th 比の傾向を調査した。この調査では、CRC に O_2 ガスを導入しており、Pu と Th 比はいずれも二氧化物へと変換されるため、 PuO_2^+ と ThO_2^+ の強度比となる。その結果、 O_2 ガス流量に応じて、Pu/Th 比は変動した。構築した分析システムの O_2 流量は 2.0 mL/min であり、その時の Pu/Th 比は 0.662 となった。

これらの変動要因の調査（DGA resin 充填カラムの回収率の平均値である 0.833 と CRC 内酸化反応における強度比である 0.662）から、構築した分析システムにおける Pu/Th 比は 0.550 と算出される。構築した分析システムを用いて Th と Pu の検量線を作成し、その傾きから Pu/Th 比を計算すると 0.542 と近い値が得られた。このことから、Th を Pu の代替検量線として利用できる見込みを得た。

3) 本法の妥当性確認

構築した分析システムを用いて、環境試料（地下水、河川水、海水、堆積物の分解溶液）を分析した。主要核種である ^{241}Am 、 ^{244}Cm 、Pu に関しては、添加値と同等の値を得ており、本法の妥当性を確認した。なお、主要核種には含まれないが、海水と堆積物の分解溶液の場合、U の回収率が低下しており、マトリックスの影響を受けたものと考えられる。

(3) まとめ

① 令和5年度のまとめ

令和5年度においては、構築した分析システムの性能（干渉物質の分離性能、検出下限値）を評価した。その結果、1F 燃料の α 線の放射能の大部分を占める5核種（ ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm ）のうち、 ^{238}Pu を除く4核種に対して、目標分離率を満たしており、滞留水などの全 α の放射能組成の内、大部分を一斉に分析できる見込みを得た。Pu標準液の使用に係る制約が大きいという現状を踏まえ、Puと性質が類似するThを代替元素とした代替定量法を検討した。Pu/Th比が変動する要因を詳細に調査することで、Pu/Th比の予測値と実測値が近い値となることがわかったことから、Th標準液をPu標準液の代替物質として利用できる見込みを得た。最後に、環境試料を用いた添加回収試験を行い、添加値（予測値）と同等の定量値を得たことから、本法の妥当性が確認できた。

② 総括

本研究は、1Fの滞流水等に含まれる高放射能の α 線放出核種を迅速、簡便、かつ安全に分析可能な手法を目指して研究開発を行った。従来の放射線計測では、 α 線のエネルギーが重なりやすく、目的とする α 線放出核種を分離して個別に分析する必要がある。質量分析装置の一つであるICP-MSは、それらの α 線放出核種を同時分析できる可能性を有しているが、同じ質量数を有する物質が干渉するといった課題を抱えていた。本研究では、それらの干渉を複数の分離場で相乗・相補的に分離できる機構を考案し、FIシステムとICP-MS/MSを用いた全自動分析システムを構築した。本システムは、10核種以上の α 線放出核種を40分程度で一斉分析することが可能である。しかし、実際の利用現場では、過剰な測定妨害成分を含む試料が存在すると考えられ、その高濃度マトリックスがSPEカラムの吸着率やICP-MSのシグナルへと与える影響を今後把握していく必要がある。その評価結果に応じた改良（さらなる分離機構や定量値補正技術など）を検討していくことで、実用化への進展が期待できる。

3.2 インフォマティックスに関する研究【令和元年度～令和5年度】

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5年度】

(1) 令和4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られるため、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出るかを検討した。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。また、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、傾向に特徴づけを行った。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) 令和 5 年度実施内容および成果

① 材料プロファイリングに関する検討

SUS301（金属片）を含む合金を購入し、これらを模擬試料として用いて材料プロファイリング等の調査検討を令和 4 年度に引き続き実施した。9 ジャンル 31 種類についてプロファイリングの対象とした。なお、ポリマーは認証標準物質であり、ABS 樹脂に複数の元素を添加混合されたペレット状の材料である。

これらの材料は令和 4 年度と同様に、pH 緩衝液（pH2、4、5、8、10、12 の各溶液）にて浸出または濃硝酸での浸出、硝酸を用いたマイクロウェーブ分解によって測定溶液を調製し、ICP-MS によって各元素濃度を定量したデータを利用した。

階層クラスター分析（以下、「HCA」と略す。）によって各浸出条件によって得られたデータ群を解析したところ、特に pH10 で浸出したデータ群による HCA によって、ステンレスが他の材料と明確に区別されることが判明した。

材料の類似性は、デンドログラムの距離によって判断することができ、ステンレス材料は類似した結果が得られている。よって、材料からの部分溶出成分から、その元となる材料を判別・区別することができた。同様に主成分分析（以下、「PCA」と略す。）によって材料群の差異を確認したところ、ステンレス由来のデータのクラスターが確認された。

各主成分軸に正方向に寄与した因子として Rh（質量数 103）や Pd（質量数 106）など成分が見られた。データ解析において、濃度値の大小は正規化しているため、含有量が多いという意味ではなく、分類に対し寄与が大きい検出成分を示したものである。

一方で、HCA および PCA は、材料群が特定できているときにクラスターを見ることで、どの材料に近いかを判別することができるが、混合成分であった場合、どの程度その標準的な材料に近いかを判断することが難しい。そのため、判断方法として、確信度（D）の導入を検証した。この確信度（D）は、あるクラスターとあるデータの距離を用い、その材料由来と思われる確からしさを表す尺度である。

ステンレスについての確信度は、デンドログラムの距離を用いて判断でき、

1. 標準的なステンレス材料データのクラスターに含まれる場合：D = 1
2. 標準的なステンレス材料データのクラスターから最も遠い場合：D = 0 とする。

ここで、 $0 < D < 1$ の時、確信度 D は式 3.2-1 で表すことができる。

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

D 値は数値として、その材料であるかどうかの類似性を表現することができる。

確信度 D を検証するために、模擬試料としてステンレスと Ga-Ge 材料を任意の割合で混合したデータを分類した。未知の複合材料があったとき、ある材料の確信度が $D > 0.9$ となれば、その材料は含まれていると判断できる。

② K 平均法による材料グループの分類

取得したデータ群の母数（材料数）が未知であった場合、任意の材料群数に分けたいケースを想定し、K 平均法クラスタリングの併用を検証した。この方法は、取得したデータ群を任意のグループ数に分ける際に利用できる。各材料の全元素濃度をラインチャートとしてデータ形成し、距離の計測をコリレーションの類似性で分類した。K 平均法の特徴としてクラスター数は任意設定できるため、6、20 グループに分けた。

この K 平均法クラスタリングと前述の階層クラスタリングを併用すると、未知数のデータ群を任意の類似グループ数で区分けすることが可能になることが確認された。データ群を 16 個に分け、それらが類似した階層クラスターの場所にあることがわかった。

③ 表面局所の材料プロファイリング

LA-ICP-MS で得られた材料表面の強度情報についても、局所データ間の類似性を見極めることができるかを検証した。福島大学で実施した模擬デブリ試料測定データについて、各元素の強度マッピング（元素ごとに 100% にスケールリング）、これら各元素強度群を PCA 実行により得られた主成分値での PCA スコアマッピング、これら 2 つのデータ群を利用した階層クラスタリングを行った。

また、局所データについても、階層クラスタリングを併用することで類似箇所の特定が行えることが示唆された。

(3) まとめ

① 令和 5 年度のまとめ

多変量解析法を適用し、部分的に溶出した微量成分の挙動を捉えることで材料プロファイリングの手法を確立した。なお、今回は pH10（酢酸-ホウ酸-リン酸緩衝液）で材料浸出した場合に、ステンレス材料が他の材料と最も区別できることが確認された。未知試料の特定には他の材料との類似性を数値化することができる確信度 D の導入を行い、また材料群を分類するために K 平均法による任意数の材料に区分することも可能となった。この概念を表面分析データにも適用できることを確認した。

② 総括

測定溶液から材料を特定するプロファイリングシステムは、大量の測定データ（今回は ICP-MS による多元素定量データ）を容易に扱い、データの縮分と可視化できることを検証した。結果として、材料そのものではなく、材料に接触した溶液から、もともとの材料を推定することと、その材料かどうかの数値化（確信度 D 値）を可能とした。このことは、デブリ等を直接分析するだけでなく、間接的に得られたモニタリングサンプル等から、もともとの素性を推定する場面においての利用が期待できる。また、得られた知見は、材料表面の局所データについても適用することができ、局所間の類似性も明らかにすることができる。

これまでは模擬サンプルによるプロファイリングを行ってきたが、実試料（デブリ

等)への適用に際し、環境由来の夾雑物の影響を受け材料判別が不明瞭になる可能性が考えられる。実際の現場周辺から得られる測定データを追加することで、プロファイリング精度を上げることができると見込まれる。

3.2.2 放射線計測データからデブリ性状推定を行うシミュレーション手法の開発 (福島大学)【令和元年度～令和5年度】

(1) 令和4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な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、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Cs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の方法が取られている(図3.2-1)。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 3.2-1 測定データから放射線源位置を探すことは難しい

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

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) 令和 5 年度実施内容および成果

廃炉過程において取り出され、その後に管封入される燃料デブリ等の放射性物質をモデル化し、管外部の放射線測定から管内部の放射性物質の分布等の性状把握を行うための深層学習アルゴリズムを検討した。管内の放射性物質の性状を外部から検証する手法は燃料デブリ用封入管のみに限らず、原子炉建屋内の配管中に侵入した可能性のある放射性物質を把握するためにも重要である。

管封入された放射性物質の物理モデルとしてステンレスパイプ内に密封線源を置けるようにした測定系を設定した。密封線源として、約 10 kBq の ^{137}Cs および 100 kBq の ^{60}Co を想定している。管内には、図 3.2-2 のように U8 容器内に 3 段の仕切りを置き、15 段の異なる位置に放射線源を配置できるようにした。放射線源から管外部に放出される γ 線エネルギースペクトルを NaI スペクトロメータにより上下方向 11 箇所にて測定する。ただし、実際の測定では図 3.2-3 のように、NaI スペクトロメータの位置を固定し、ラボジャッキに載せたステンレスパイプを上下に移動させている。

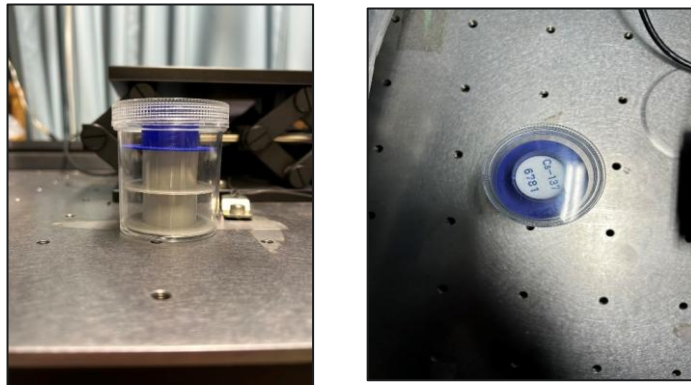


図 3.2-2 放射線源を設置した U8 容器

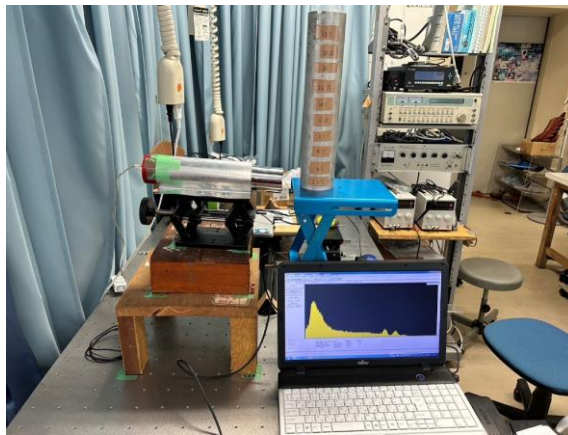


図 3.2-3 燃料デブリ収納缶を想定した測定系

以上の測定系に合わせた体系で学習データを得るために、JAEA他が開発したモンテカルロシミュレーションコードである PHITS を用いて計算系を設定した。計算時間を短縮するために NaI スペクトロメータを同時に 5 つ設定している。

^{137}Cs を 2 箇所配置した際に、検出位置③⑥⑨の 3 箇所測定された γ 線エネルギースペクトルのデータと同じ配置に対して、PHITS を用いて計算された際の結果では同じ配置系の結果であるにもかかわらず、実測と計算でのスペクトルに大きな差があらわれてしまう。そのため、多様な配置に対して計算された結果を学習データとして訓練されたニューラルネットワークに、このまま測定結果を検証データとして与えると推定精度が大きく落ちてしまう。そこで、測定データを計算スペクトルに合わせるための機械学習プロセス（以下、「ML2」と呼称。）を追加し、その後に線源位置推定を行うようにした。2 つの ^{137}Cs を配置した際に測定された γ 線エネルギースペクトルに対して ML2 による変換を施したスペクトルを示しているが、この結果は計算されたスペクトルによく一致することがわかった。

2 つの ^{137}Cs を配置した際の推定結果と ^{137}Cs と ^{60}Co を 1 個ずつ配置した際の推定結果は、いずれも式 3.2-2 で表される Loss 関数の値は 10^{-1} 程度であり、概ねの位置推定が行えていることがわかる。

$$E = \sum_{k=1}^n (y_k - a_k)^2 \quad (\text{式 3.2-2})$$

前述のように、パイプ内に置かれた放射性物質の分布評価を行うことができた。また、異なる核種が混在した場合であっても γ 線エネルギースペクトルを分離して推定できていることから、分布評価と合わせて核種の混合状態を放射線測定から判断できるシステムが構築されたと言える。

(3) 令和5年度のまとめおよび総括

令和5年度は、管内に置かれた放射性物質に対して、管外部の γ 線エネルギースペクトルを測定することにより、核種分析と放射性物質の分布推定を行うことができた。

総括として、本研究では、核種や空間分布の不明な放射性物質に対して、周囲に放出されている γ 線エネルギースペクトルを測定することにより、位置推定を行うことができるシステムの構築を目指してきた。 γ 線エネルギースペクトルは線量の多寡だけでなく、コンプトン散乱などによるエネルギープロファイルの変化を情報として捉えることで、放射線源の遠近や遮蔽体の有無などを推定することができる。ただし、その推定を現実的に行うためには、従来進められてきた逆問題的なアプローチでは複雑な体系に対して解を求めることは困難であった。これに対して、本研究では深層学習を用いた手法を採用することにより、現実的に放射性物質の分布推定を行えることがわかった。この手法を実際の廃炉工程で活用することで、より安全に廃炉作業を進めることが可能になると期待される。

なお、実用化に際して次の点を解決することにより、今後さらに精度の向上と適用範囲の拡大が期待できる。

- ・原子炉建屋のように、サイズが大きく複雑な形状である領域に対して必要とされる測定点の増大に対応するための計算規模と計算速度の向上
- ・放射性物質分布推定をしたい領域を取り囲んで実際に多点測定を行うための移動機器システムの構築
- ・放射性物質が広く拡散したエリア内で、ノイズ源となってしまう周囲から届く γ 線と切り分けて特定領域に存在する放射性物質の分布を推定するノイズ低減手法の開発
- ・燃料デブリの特定を行うための相補的測定として、 γ 線に合わせて中性子線の測定を行い、そのデータも含めて推定できるシステムの構築
- ・限られた測定点から推定した放射性物質分布を基に再シミュレーションを行い、次にどの地点の測定を行うのが最大の情報量を得られるのかをフィードバックできるシミュレーションシステムの構築と高速化
- ・推定された放射性物質分布をリアルタイムで可視化して、実際にどこに放射性物質が滞留しているのかをわかりやすく提示するVR/AR技術
- ・逆問題解析等、機械学習推定と相補的な関係にある手法による推定精度の検証

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5年度】

(1) 令和4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わかっている等の環境条件から、目視、シミュレーション、化学計測等からの接近を可能としている。また、デブリ等に付着する成分ならびに浮遊する微粒子等を特定する工程は、裁判による事実認定プロセスとの類似性が見て取れる。つまり、不完全な証拠を積み上げることによって、事実の蓋然性を高めていくプロセスといえる。化学分析によって得られる種々の証拠、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・確認を行うなど、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繋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。前述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。

令和4年度には、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。さらに、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。

(2) 令和5年度実施内容および成果

① 時短処理・ダイジェストアルバム・広域画像生成

原子炉格納容器内調査動画における種々の問題点、1) 非常に長時間(8時間超におよぶものもある)、2) 同一被写体が長時間映り続けている冗長シーンが多い、3) 光量・ピント不良による不鮮明シーンが多い、4) 接写シーンにおける画角の狭さ、等に対応するため、令和4年度までにプロトタイプとして作成してきた、a) 時短処理(冗長箇所および光量・ピント不良箇所の削除)、b) 調査動画のダイジェスト画像アルバ

ムの作成、などの各モジュールの改善を行うとともに、c) ダイジェストアルバム中の画像の広域画像（パノラマ画像）化モジュールの開発・実装を行った。前述 a) に関しては、特に図 3.2-4 に示すような、いわゆるブロックノイズフレームを各ピクセル単位の RGB 値の分散のフレーム内総和をベースにした手法によって削除することに成功した。



図 3.2-4 ブロックノイズフレーム

また、光量・ピント不良による不鮮明シーンについては、キャニーエッジ検出法を利用したエッジ検出において、十分にエッジが検出されないフレームを不鮮明シーンとして削除した。削除されたフレームの例を図 3.2-5 に示す



図 3.2-5 削除された光量・ピント不良フレーム

また、前述 c) に関しては b) により作成された調査動画のダイジェストアルバム中の画像の広域画像を、周辺シーンとの画像スティッチングの手法を利用することにより、生成することに成功した。

② PCV 内部の落下物・堆積物の検出・識別

令和 4 年度までに、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）のデブリの概況に関する招待講演におけるクラス分けを参考に、動画中より落下・堆積物を 5 クラスに分類し、VGG16 および YOLO v5 等の物体検出・識別モデルからの転移学習を用いたデブリ等の検出・識別（目視判断）のための AI システムのプロトタイプを開発・実装してきた。これらのプロトタイプの改善を目的に、令和 5 年度では、新たな学習用データとして、9 クラス（表 3.2-1）に分類したものを調査動画を用いて作成した。これらの学習データを基に、YOLO v5 を利用して、より詳細にリアルタイムで対象の検出・識別ができる物体認識モデルにバージョンアップした。さらに、学習データの不足を補うために、転移学習に加えて生成系 AI（GAN）の手法を応用して、前述学習データを基に新たな学習データとして、フェイクデブリ画像を生成した（図 3.2-6）。

表 3.2-1 落下・堆積物のクラス分類

	ラベル名	特徴
①	Peb_smooth	小石状、表面滑らか（デブリ）
②	Peb_rough	小石状、表面粗い（デブリ）
③	Big_pebble	大粒（デブリ）
④	Pla_smooth	プレート状、表面滑らか（デブリ）
⑤	Pla_rough	プレート状、表面粗い（デブリ）
⑥	Semi-molten	半熔融金属系（デブリ）
⑦	Pillar	鉄骨
⑧	Pillar+Plate	鉄骨と付着したデブリ
⑨	Grating	グレーチング



図 3.2-6 GAN を応用して生成したフェイクデブリ

③ 多地点可動レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）の開発との連携

令和 4 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」において研究が進められている、超高硬度デブリ（ZrO、ZrB 等）検出を目的とした、未知試料の LIBS スペクトル分析の中で、NMF を用いた化合物種の迅速推定 AI システムのプロトタイプを開発してきた。令和 5 年度では、Cr、Fe、Ni、Zr、CrB、FeB、NiB、ZrB、ZrO の 9 種の化合物へと分類対象を拡大して、これまでのプロトタイプ of 精度および機能向上を目的としたシステムのバージョンアップを行った。非階層クラスタリングで、適切クラスター数を推定するためのエルボー法を本システムに応用し、適切因子数の推定を行うとともに、分類精度の向上のために、これまでの決定木による未知試料推定を仮推定として用いる多段のサポートベクターマシン（以下、「SVM」と略す。）による未知試料推定のためのシステム（図 3.2-7）を開発・実装した。

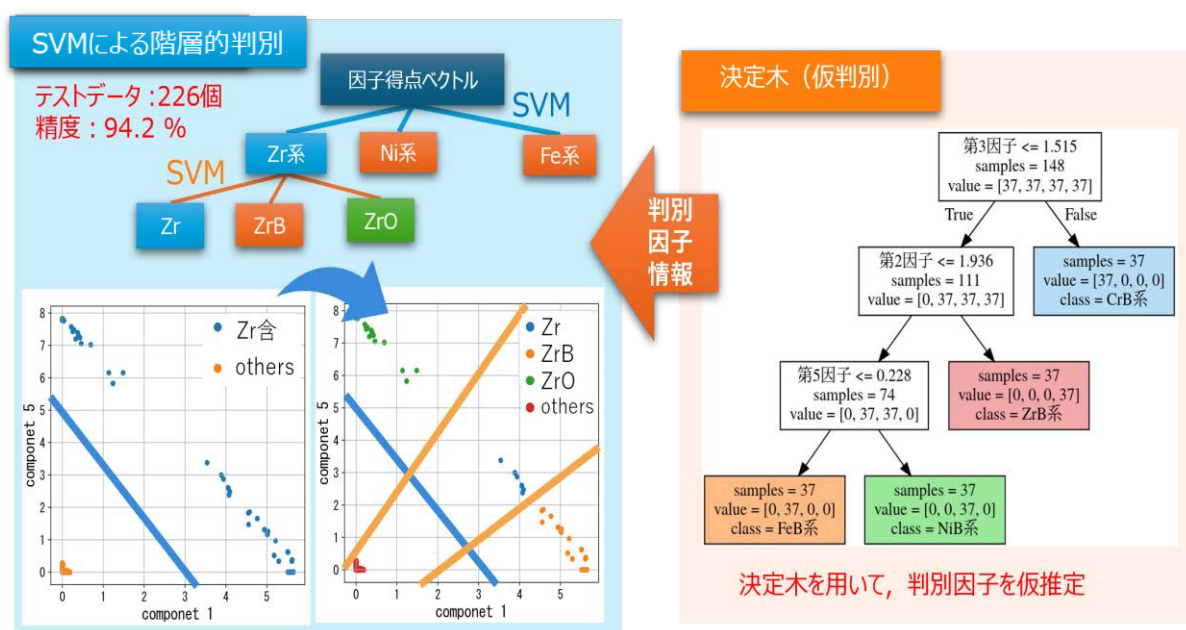


図 3.2-7 SVM による未知試料分類器

④ 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との連携

令和 4 年度には、「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」において研究が進められている研究の中で、55 種類・224 試料からなる合金標準材料に対して、種々の液性下において浸漬試験を実施した。そして、ICP-MS を通して得られた、これらの溶出成分に対する 39 元素の定量値から、溶出時の液性を推定するシステムを開発・実装した。

令和 5 年度では、溶出成分の定量値と推定された液性から、試料を材料ジャンル（ステンレス、インコネル、炭素鋼、Al、Au、Cu、Ni、Ga-Ge 合金、W 合金、高分子樹脂等）への、パターン分類を可能にするクラスタリング手法（定量値ベクトル間の距離構造の導入）の開発・実装を行った。

はじめに、ICP-MS を通して得られた定量値ベクトルを線形判別分析（LDA）を用いて次元削減を行い、これを以下のような階層・非階層クラスタリング手法を用いて、パターン分類を行った。階層クラスタリングにおいては、データ間距離にユークリッ

ド距離を採用した密度ベースクラスタリングである Ordering Points to Identify the Clustering Structure (OPTICS) によって、ステンレス以外のパターン分類が可能であることがわかった。また、非階層クラスタリングにおいては、データ間距離にキャンベラ距離を採用した重み付き平均法によって、材料ジャンルごとのパターン分類が可能であることがわかった。これらのパターン分類の結果を用いて、未知試料に対する ICP-MS データとの類似度を通じた確信度を伴う材料推定を行うシステムの構築を行った。

(3) まとめ

以上のように、令和 5 年度は、① 時短処理・ダイジェストアルバム・広域画像生成では、東京電力との情報交換を通して入手した原子炉格納容器の調査動画の 1) ノイズ箇所、光量・ピントの不良箇所、冗長シーンを削除・再編集を行うモジュール、加えて、2) 動画全体のダイジェスト画像アルバムとして注視箇所の一覧を生成するとともに、これらを広域画像（パノラマ画像）化するモジュールを開発した。これらにより、研究・分析・広報において、調査動画の利活用を容易にするためのシステムを開発・実装したことになる。ただし、現時点においては、ダイジェスト画像アルバムとして抽出された画像に重複がある点、広域画像を現時点よりもさらに広域化する等、いくつかの改善の余地は残されている。② PCV 内部の落下物・堆積物の検出・識別では、限られた学習データを転移学習・フェイクデブリの生成等の手法を通して、動画視聴時・動画撮影時において、落下・堆積物を、確率（確信度）を付加して、検出・識別をするための AI システムを開発した。これによって、調査・分析における見落とし防止等支援も含めた撮影画像からの目視判断（支援）AI システムを開発・実装したことになる。今後の調査の進展に伴い、落下物・堆積物等の識別の細分化や精度向上、また、2 号機以外への適用などの課題が残されている。③ LIBS の開発との連携では、LIBS スペクトルデータのピークサーチを必要としない新たなスペクトル分析手法を提案するとともに、これらを用いた未知試料の迅速推定のための、「次元削減（NMF）－決定木分類－多段 SVM 分類」からなる超硬度デブリ判別のための未知試料推定システムの開発・実装を行った。現時点においては、模擬デブリ、アルゴン・窒素雰囲気下での適用事例のみである。LIBS 計測は、比較的早期に現場投入が想定される計測法であるため、液体中での適応可能性についても検証することが課題の 1 つである。④ 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との連携では、金属系デブリから部分溶出した成分を、ICP-MS によって計測した定量値を通して、溶出時の液性推定ならびに、材料ジャンルごとのパターン分類をするためのシステムを開発・実装した。本手法研究は、予備的性質が強いため、落下物・堆積物として想定される、より現実に近い材料に対しても、溶出成分からのプロファイリングが可能であるかの検証が課題となる。

これらのシステムを統合することによって、画像分析により、確信度付きのデブリ分類が可能となり、それらとその周辺の物理・化学計測データからの材料推定における確信度をリンクすることにより、デブリの性状把握が促進され、デブリの取り出しの作業実現に対する大きな貢献が期待される。

3.3 人材育成【令和元年度～令和5年度】

3.3.1 実施内容および成果（概要）【令和元年度～令和4年度】

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究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、JAEA（三春）を主拠点としてクロアポ教員および特研究生の受け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た。

3.3.2 実施内容および成果（概要）【令和5年度】

(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5年12月26日に実施した。中間フォローについて、令和5年度研究の活動報告、最終年度における取りまとめ等について協議を行った（図3.3-1、表3.3-1）。



図3.3-1 全体会議の様子（写真掲載について承諾済み）

表3.3-1 全体会議出席者

No	区分	機関（学校・団体・機関等）名称	氏名
1	代表機関	国立大学法人福島大学	高貝慶隆
2	代表機関	国立大学法人福島大学	山口克彦
3	代表機関	国立大学法人福島大学	藤本勝成
4	代表機関	国立大学法人福島大学	高瀬つぎ子
5	再委託	PerkinElmer Japan 合同会社	古川 真
6	再委託	株式会社化研	川上智彦
7	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
8	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
9	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
10	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
11	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
12	JAEA 富岡	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	寺島頭一
13	事務局	国立大学法人福島大学	鈴木 賢

(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2名（内訳：博士後期課程1名、博士前期課程1名）を送り出し、JAEAは連携ラボ（JAEA）として受け入れを行った。学生の常駐ならびに受け入れについては、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。

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。
- ・ 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・発表（学生がJAEA職員の前で研究の進捗を発表）。
- ・ CLADS（富岡）見学。
- ・ 檜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り扱い、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。
- ・ 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）。
- ・ 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 マイクロスコープを用いた測定の様子（写真掲載について承諾済み）

3.3.3 学生の基礎教育および人材育成教育プログラムについて【令和元年度～令和5年度】

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、人材育成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（廃炉インフォセミナー）

【開催日】 令和2年9月25日

【会場】 Web ミーティング

【参加者】 18名

【概要】 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ため廃炉インフォセミナーを開催した。大学生、大学院生がそれぞれ研究発表を行い、討論、議論を行うことにより研究内容についての理解を深め、また、再委託先機関および客員研究員等からアドバイスを受け、今後の研究の参考にすることができた（図 3.3-3）。



図 3.3-3 廃炉インフォセミナーの様子（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（ALPS処理水セミナー）

【開催日】 令和2年10月7日（同内容で、3回に分けて行った）

【会場】 福島大学

【参加者】 55名

【概要】 1F では汚染水および処理水を敷地内のタンクにためている。現在（令和2年当時）のタンク計画では、令和4年夏頃には満杯となる見込みであり、海洋放出等が検討されているが、処理水に含まれる放射性物質の中でもトリチウムを除去することは容易ではない。また、このことに不安を感じている国民も多く、福島県産の農林水産物への影響や風評被害発生への懸念もある。

そこで、ALPS 処理水についての理解を深めることを目的として、内閣府 由良氏および経済産業省 木野氏を講師として、ALPS 処理水について学ぶセミナーを開催した。まず福島大学共生システム理工学類 高貝教授から、放射性物質になじみのない学生に対しての基本的な説明を行い、その後、由良氏から「処理水とは何か？安全性は確認できているのか？」「処分すれば風評被害が出てしまうのではないか？」といった内容について説明が行われた。

説明後には、質疑応答の時間が設けられ、学生から活発に質問が出された。また、セミナー後に行われたアンケートによると「普段のニュース等では知りえないような詳細を知ることができ、とても良い機会になった」「こういった説明会をもっと広く行うべき」等の感想があり、処理水について、学生自身で考える機会になり、理解を深めることができた（図 3.3-4）。



図 3.3-4 ALPS 処理水セミナーの様子（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（講演会）

【開催日】 令和3年6月4日

【会場】 福島大学

【参加者】 185名

【概要】 共生システム理工学類1年生の必修講義である「共生の科学Ⅰ」において、東京電力松本純一取締役が「地域の課題に向き合うために」をテーマとして講義を行った。1Fの状況、課題について概説を行ったのち、これからの1Fの課題に必要な技術、将来等について説明した（図3.3-5）。



図 3.3-5 東京電力松本氏による講演会の様子（写真掲載について承諾済み）

4) 学生を対象とする人材育成プログラム（ICP-MSセミナー）

【開催日】 令和3年7月14日、令和4年6月9日

【会場】 オンライン

【参加者】 令和3年度 18名、令和4年度 3名

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

5) 学生を対象とする人材育成プログラム（中間貯蔵施設見学）

【開催日】 令和3年8月6日

【会場】 福島県大熊町 中間貯蔵工事情報センター

【参加者】 12名

【概要】 福島大学において、福島県中間貯蔵施設等対策室 紺野慎行主任および羽田副主査を講師として「除去土壌の行方」と題した中間貯蔵施設についての講義を受講したのち、大熊町へ移動し中間貯蔵施設を見学した。

参加した学生からは、福島県の環境回復について興味を持つことができた等の感想があり、学生自身で考える機会になり理解を深めることができた（図 3.3-6）。



図 3.3-6 中間貯蔵施設見学の様子（写真掲載について承諾済み）

6) 学生を対象とする人材育成プログラム（講演会）

【開催日】 令和3年10月25日

【会場】 福島大学

【参加者】 10名

【概要】 国立研究開発法人海洋研究開発機構海洋機能利用部門（海底資源センター）センター長 鈴木勝彦氏を講師として、同位体比分析と地球の動態に関する講演会を開催した（図 3.3-7）。



図 3.3-7 鈴木氏による講演会の様子（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（講演会）

【開催日】 令和3年12月1日、令和5年1月19日

【会場】 福島大学

【参加者】 令和3年度21名、令和4年度41名

【概要】 日本の ICP-MS の先駆者である東京大学 平田岳史教授を講師として「分析化学が創り出す驚愕と諧謔（かいぎゃく）」と題して、講演会を開催した。平田教授は、隕石や地球の岩石に含まれる超微量元素の同位体情報を用いて、元素の起源や太陽系形成過程、地球表層環境と生命の共進化を調べており、最近では独自に開発した高感度質量分析技術を生命化学分野に応用し、微量元素イメージング分析を通じた金属代謝機構の解明やナノ粒子の毒性評価を行っている。生命体を含めた全地球規模での元素循環を通じて、宇宙の誕生から生命機能解明までを包括的に扱う「地球メタロミクス」を展開している。このような、平田教授が取り組んでいる研究課題を例示しながら、これまでに直面してきた様々な課題・問題点をどのように捉え、解決してきたかの「過程」が説明された（図 3.3-8）。



図 3.3-8 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）

8) 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、その中でもゲルマニウム半導体は γ 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、放射線に係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 3.3-9）。



図 3.3-9 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）

9) 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、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3.3-10）。

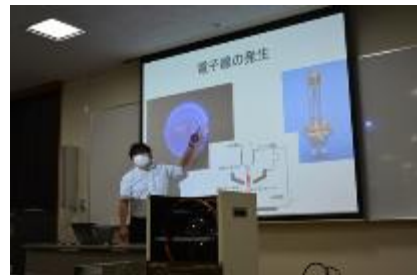


図 3.3-10 加速器に関する教育の講義風景（写真掲載について承諾済み）

10) 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）

【開催日】 令和4年9月1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農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3.3-11）。



図 3.3-11 環境再生事業見学の様子（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（JAEA施設見学）

- 【開催日】 令和3年12月6日、令和4年6月3日、令和5年2月6日
- 【会場】 檜葉遠隔技術開発センター（NARREC）
- 【参加者】 令和3年度14名、令和4年度14名
- 【概要】 1Fの廃炉推進のために遠隔操作機器（ロボット等）の開発実証施設として整備された JAEA NARREC にて、概要説明を受けた後、VR システムの見学、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た。また、施設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ことができた（図 3.3-12）。

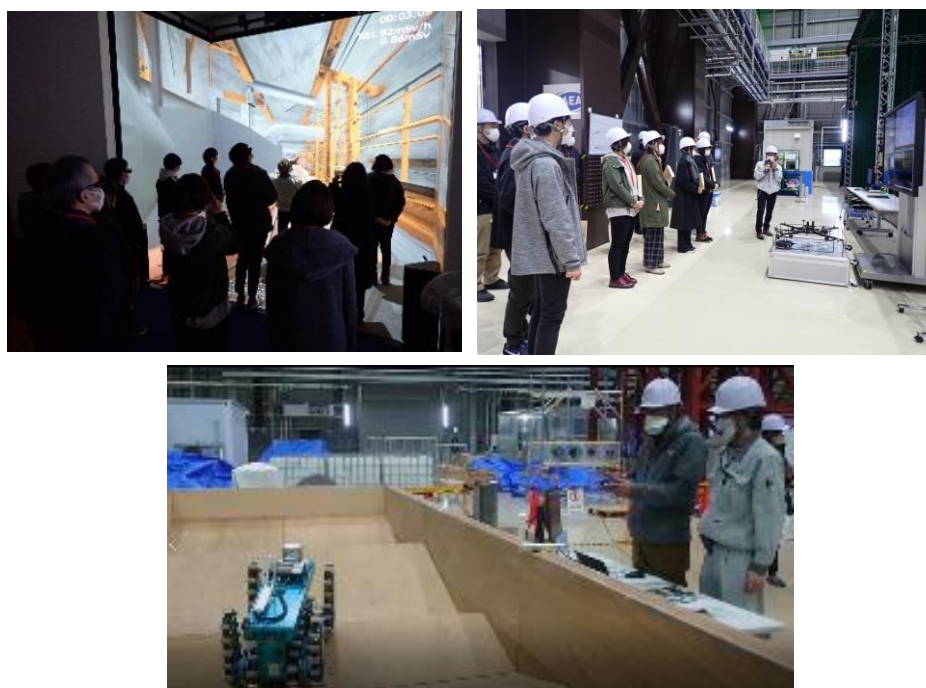


図 3.3-12 NARREC 見学の様子（写真掲載について承諾済み）

12) 学生を対象とする人材育成プログラム（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
 【参加者】 10名
 【概要】 東日本大震災において、未曾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んだ（図 3.3-13）。



図 3.3-13 伝承館見学の様子（写真掲載について承諾済）

13) 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 3.3-14）。



図 3.3-14 JAMSTEC 講習の様子（写真掲載について承諾済み）

14) 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、令和5年6月9日

【会場】 福島県立医科大学

【参加者】 令和4年度 8名、令和5年度 9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 3.3-15）。



図 3.3-15 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）

15) 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、令和5年6月15日

【会場】 福島大学

【参加者】 令和4年度 24名、令和5年度 23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、放射線によって起こる細胞死、遺伝変異の仕組みについても解説した（図 3.3-16）。



図 3.3-16 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）

16) 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6月22日
- 【会場】 福島大学
- 【参加者】 23名
- 【概要】

福島県立医科大学 鷲山幸信准教授を講師として「放射能・放射線・放射性核種の関係とがん治療への応用について」と題し、講演会を開催した。放射能とは？放射線とは？放射性核種とは？その本質は単独で理解するものではなく、三者の関係性から導き出される。そして、この三者を知ることは、他分野への応用の可能性を拓く。本講演では、放射能と放射線、放射性核種という三要素について理解を深めるとともに、福島県立医科大学がその特性をどのようにがん治療に繋げたのかを概説しながら、核化学について解説した（図 3.3-17）。



図 3.3-17 鷲山准教授による講演会の様子（写真掲載について承諾済み）

17) 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）

【開催日および参加人数】

年度	開催日	参加人数
令和3年度	7月8日、7月15日、7月29日	20
令和4年度	6月30日、7月7日	19
令和5年度	7月6日、7月13日	15

【会 場】 福島大学

【概 要】 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。放射線の管理技術について、核燃料サイクル工学研究所にて発生した汚染事象を基に汚染発生および空気汚染への拡大原因と放射線計測について講義を行った。

学生は、物理量、防護量、実用量、被ばくの単位その他、様々なサーベイメータや目的に応じた放射線計測器・環境放射能分析等に用いる測定器等について学ぶことができた（図 3.3-18）。



図 3.3-18 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）

18) 学生を対象とする人材育成プログラム（1F視察）

【開催日、会場および参加人数】

年度	開催日	会場	参加人数
令和2年度	令和2年10月12日	1F（4号機）	9名
令和3年度	令和3年12月6日	1F	14名
令和3年度	令和3年12月15日	1F	16名
令和4年度	令和4年11月30日	1F 化学分析棟	11名
令和4年度	令和5年2月8日	1F	20名
令和5年度	令和5年8月2日	1Fおよび2F	10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。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。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、廃炉支援の課題を理解することを目的として、現在廃炉作業が進められている 1F の作業現場等の視察を行った。

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（図 3. 3-19）。

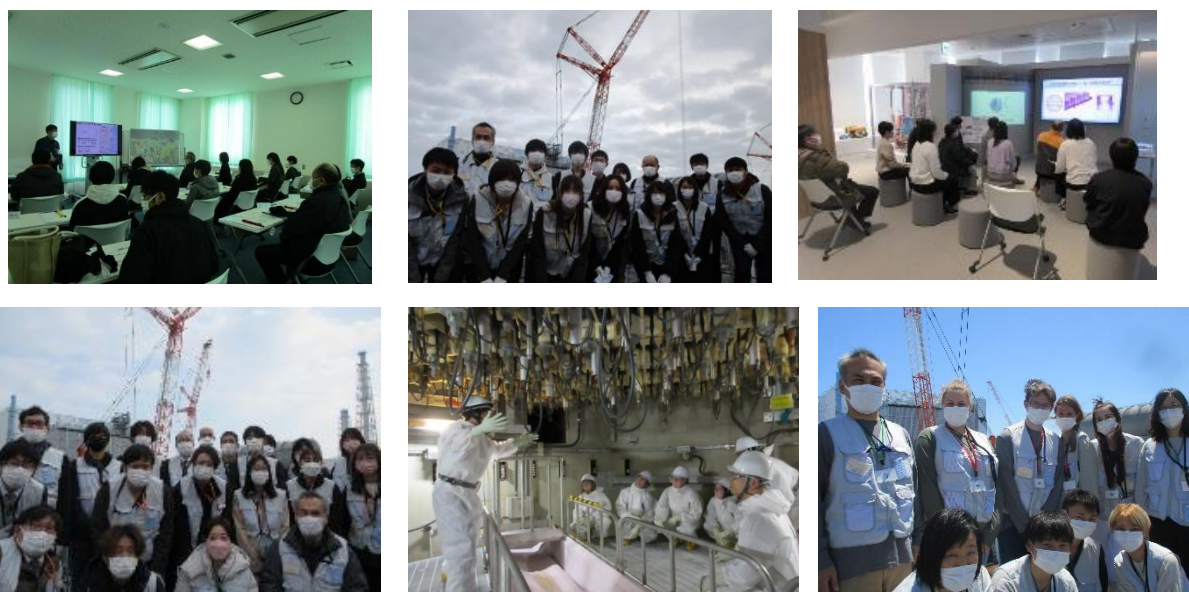


図 3. 3-19 1F および 2F 視察の様子（写真掲載について承諾済み）

19) 学生を対象とする人材育成プログラム（海外演習）

年度	開催日	参加人数
令和4年度	令和5年3月13日～3月23日	4（引率教員を含む）
令和5年度	令和5年8月26日～9月5日	4（引率教員を含む）

【 会 場 】 コロラド州立大学（USA）

【 概 要 】 放射線教育に関する人材育成教育として、コロラド州立大学において放射線をテーマとした講義、実験、施設見学等のプログラムから構成される海外演習を実施した。

講義では、放射性壊変等の基礎的事項や液体シンチレーションカウンタ等の放射線測定器、放射線が人体に与える影響について講義が行われ、理解を深めることができた。

実験では、沈殿およびキレート作用を利用した放射性核種の化学的な分離の手法または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を行った。

稼働している原子炉見学等を行い、見識を高め、さらに学生はホームステイを実施して、海外文化を体験することができた（図3.3-20）。



図 3.3-20 コロラド州立大学での海外演習の様子（写真掲載について承諾済み）

20) 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、令和5年9月7日
 【会場】 JASIS (幕張メッセ国際展示場)
 【参加者】 令和4年度 7名、令和5年度 6名
 【概要】 本研究において、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 JASIS (Japan Analytical and Scientific Instruments Show) 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係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、先端分析に触れることで、より斬新な発想力を高めるため、この機会を廃炉人材育成の場として活用した (図 3.3-21)。

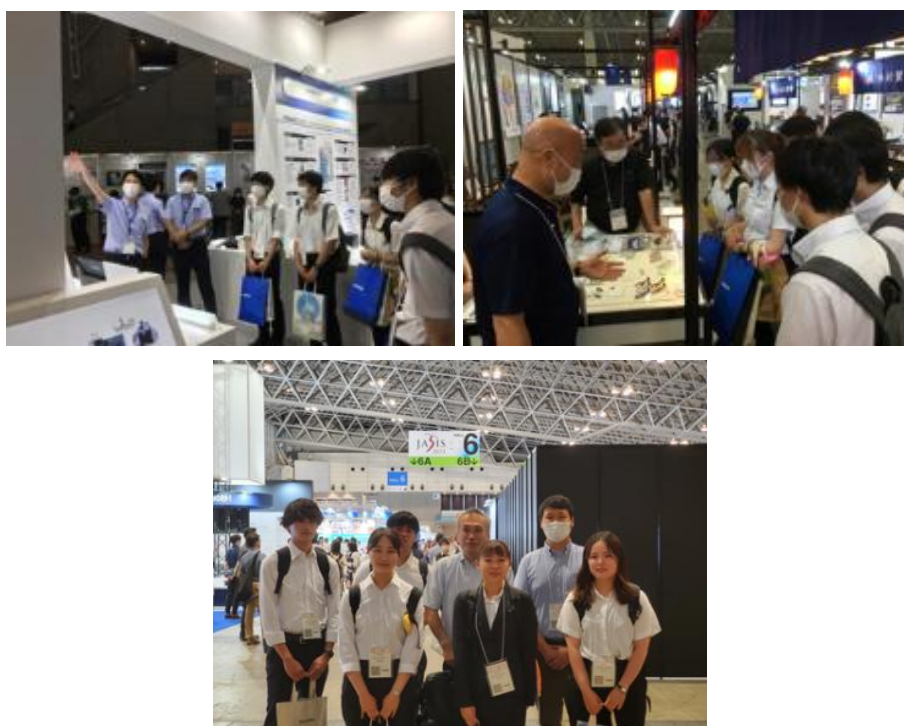


図 3.3-21 JASIS 見学の様子 (写真掲載について承諾済み)

21) 学生を対象とする人材育成プログラム（同位体希釈法実習）

- 【開催日】 令和5年9月26日～9月28日
 【会場】 国立研究開発法人海洋研究開発機構（JAMSTEC）横須賀市
 【参加者】 3名
 【概要】 RI において同位体比は非常に重要な概念であり、原子力の分野に限らず、年代測定など大きな意味を有している。特に、RI 分析において、同位体希釈法の方法論の理解は学生にとって難解であり、JAMSTEC の専門家から理論やノウハウを含めて座学と実習を同時に実施することを目的とする。
- 具体的には、同位体希釈法の計算、スパイクとは（最適なスパイク-サンプル混合比の決定）、ラボでの実習（標準溶液の希釈、スパイク-スパイクの混合、フィラメントローディング）等の講義および実習が行われた。
- また、クリーンルームでの実習を行うことにより、クリーンルームについての基礎知識を習得することができた（図 3. 3-22）。



図 3. 3-22 JAMSTEC での実習の様子（写真掲載について承諾済み）

22) 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）

年度	開催日	参加人数（4講習の延べ人数）
令和3年度	令和3年10月6日	88名
令和4年度	令和4年10月12日、10月26日	101名
令和5年度	令和5年10月25日、12月1日	56名

- 【会場】 オンラインおよび福島大学
 【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。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. 3-23）。



図 3.3-23 pH メーター実習の様子（写真掲載について承諾済み）

23) 学生を対象とする人材育成プログラム（JAEAでの実習）

年度	開催日	参加人数
令和4年度	令和4年10月13日～10月15日	5
令和5年度	令和5年11月6日～11月8日	5
	令和6年3月4日～3月6日	7

【 会 場 】 JAEA 原子力科学研究所（東海村）

【 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（SANS-J）を利用して実験を行った（図 3.3-24）。



図 3.3-24 JAEA 東海での実習の様子（写真掲載について承諾済み）

24) 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12月12日～12月13日

【会場】 JAEA 原子力科学研究所 (東海村)

【参加者】 21名

【概要】 1F の廃炉措置等に係る分析技術者ならびに廃炉支援者の教育を行うことを目的とし、J-PARC の概要を知り施設見学をすることで、多角的な視点で原子力を考える一助とするために、JAEA 施設見学を行った。

1 日目は、J-PARC の概況および大強度陽子加速器の概要説明等を受けたのち現場見学を行った。2 日目は、STACY、JRR-1、JRR-3 などの施設見学を行い、JRR の歴史、実験で利用されている材料やシステム、臨界実験や中性子ビーム等について理解を深めることができた (図 3.3-25)。



図 3.3-25 J-PARC 見学の様子 (写真掲載について承諾済み)

25) 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5年度は、第1種試験5名、第2種試験5名が合格した。

令和元年度から令和5年度の5年間で、第1種および第2種合格者延べ25名を輩出し、学生の基礎教育等に協力した（表3.3-2、図3.3-26）。

表3.3-2 放射線取扱主任者試験年度別合格者数

年度	第1種 合格者数	第2種 合格者数	備考
令和元年度	0名	1名	
令和2年度	2名	0名	コロナのため学部生の派遣見合わせ
令和3年度	2名	4名	
令和4年度	4名	2名	
令和5年度	5名	5名	



令和2年度合格者



令和3年度合格者



令和4年度合格者



令和5年度合格者

図 3.3-26 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）

3.3.4 まとめ【令和元年度～令和5年度】

(1) 令和5年度のまとめ

福島大学はクロアポ教員1名、特研究生2名（内訳：博士後期課程1名、博士前期課程1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（1F 視察、J-PARC 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5年度は計7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。

(2) 総括

JAEA（三春）にクロアポ教員、ポスドク、特研究生が常駐して研究を行い、タイアップ方式の研究・教育スタイルを行った。また、研究開発や発表等を学生と協働して実施しつつ、民間企業・官公庁・東京電力等と連携した各種の人材育成プログラムを実施することにより、実効的に学生の教育向上に繋げることができた。

さらに、放射線教育の集大成として難易度の高い国家資格である「放射線取扱主任者試験」の受験を奨励し、5年間で第1種および第2種合格者延べ25名の合格者を輩出し、学生の基礎教育等に協力した。

本研究に参画した研究室の学生の大学院進学率の高い傾向にあり、JAEA や東京電力を就職先を選ぶ学生を毎年一定数輩出するなど、学生のキャリアパスとすることができた。

3.4 研究推進【令和元年度～令和5年度】

3.4.1 実施内容および成果【令和元年度～令和4年度】

令和元年度から令和4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。学内共同研究者と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回の定例会議の実施、さらに、東京電力の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。

【令和元年度】

CLADSとの打合せ：令和元年10月7日、10月30日、11月1日、11月6日、11月25日、12月27日、
令和2年2月12日

全体会議：令和元年12月27日

【令和2年度】

・CLADSとの連携

CLADS研究打合せ：令和2年8月31日、令和2年9月2日

CLADS 人材育成委員会：令和2年11月19日

CLADS Web会議：令和2年11月25日

全体会議：令和2年12月25日

・学内共同研究者との連携

学内会議：令和2年6月15日

定例会議：令和2年11月27日、令和3年1月18日、3月15日

【令和3年度】

・CLADSとの連携

連携ラボ推進会議：令和3年8月11日

全体会議：令和3年12月23日

・学内共同研究者との連携

定例会議：月1回第3週目に実施

【令和4年度】

・CLADSとの連携

JAEA（三春）研究進捗報告会（図 3.4-1）：令和4年4月27日

研究発表会および打合せ：令和4年7月1日

全体会議：令和4年12月26日

・学内共同研究者との連携

定例会議：月1回第3週目に実施



図 3. 4-1 JAEA（三春）研究進捗報告会の様子（写真掲載について承諾済み）

(1) 受賞【令和元年度～令和 4 年度】

- ・ 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. 4-2 参照）



図 3. 4-2 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）

(2) 学術論文（査読有）【令和元年度～令和 4 年度】

【令和元年度】本研究が令和元年 10 月開始のため実績なし

【令和 2 年度】

- ・ T. Uemura, K. Yamaguchi, Estimation of radiation source distribution using machine learning with γ ray energy spectra, Journal of Advanced Simulation in Science and Engineering, Vol. 7, No. 1, pp. 71-81, <https://doi.org/10.15748/jasse.7.71>
- ・ T. Nakagawa, W. L. Hinze, Y. Takagai, Rapid Micelle-Mediated Size-Controlled Fabrication of Calcium Sulfate Nanorods Using Silver Nanoparticles, Langmuir, 36(26), pp. 7456-7462, <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.0c01043>
- ・ 藤本勝成, 多属性スコアを持つ評価データ群の統合・集計方法とその解釈に関する一思案, 知能と情報, Vol. 33 (4) pp. 792-796, https://doi.org/10.3156/jssoft.32.4_792

- T. Nakagawa, A. Hibara, W. L. Hinze, Y. Takagai, Nanoparticle induced formation of self-assembled zwitterionic surfactant microdomains which mimic microemulsions for the in situ fabrication and dispersion of silver nanoparticles, *RSC Advances*, 10(56), pp.34161-34166, <https://doi.org/10.1039/D0RA06824A>
- C. Ito, R. Shimode, T. Miyazaki, S. Wakaki, K. Suzuki, Y. Takagai, Isotope Dilution-Total Evaporation-Thermal Ionization Mass Spectrometric Direct Determination of Radioactive Strontium-90 in Microdrop Samples, *Analytical Chemistry*, 92(24), pp.16058-16065, <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.0c03673>

【令和 3 年度】

- M. Matsueda, K. Yanagisawa, K. Koarai, M. Terashima, K. Fujiwara, H. Abe, A. Kitamura, Y. Takagai, Online solid-phase extraction-inductively coupled plasma-quadrupole mass spectrometry with oxygen dynamic reaction for quantification of technetium-99, *ACS Omega*, 6(29), pp.19281-19290, DOI: 10.1021/acsomega.1c02756
- A. Waragai, T. Nakagawa, W. L. Hinze, Y. Takagai, Shape and Size-Controlled Fabrication of Gold Nano-Urchins via Use of a Mixed Sodium Borohydride and Ascorbic Acid Reductant System, *Langmuir*, 37(36), pp.10702-10707, <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.1c01303>
- J. Aoki, C. Oonuma, R. Sudowe, Y. Takagai, Adsorption Behavior of Pu(IV), Am(III), Cm(III), and U(VI) on Desferrioxamine B-immobilized Micropolymer and Its Applications in the Separation of Pu(IV), *Analytical Sciences*, 37(11), pp.1641-1644, DOI: 10.2116/analsci.21n028
- S. Wakaki, J. Aoki, R. Shimode, K. Suzuki, T. Miyazaki, J. Roberts, H. Vollstaedt, S. Sasaki, Y. Takagai, A Part Per Trillion Isotope Ratio Analysis of $^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$ using Energy-Filtered Thermal ionization mass spectrometry, *Scientific Reports*, 12, p.1151, DOI: 10.1038/s41598-022-05048-7

【令和 4 年度】

- K. Yanagisawa, M. Odashima, M. Matsueda, M. Furukawa, Y. Takagai, Online solid-phase extraction-inductively coupled plasma-quadrupole mass spectrometric quantification of ^{90}Sr using $^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope dilution method, *Talanta*, 244, p.123442, <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2022.123442>
- M. Matsueda, T. Kawakami, K. Koarai, M. Terashima, K. Fujiwara, K. Iijima, M. Furukawa, Y. Takagai, Using CO_2 Reactions to Achieve Mass-Spectrometric Discrimination in Simultaneous Plutonium-Isotope Speciation with Inductively Coupled Plasma-Tandem Mass Spectrometry, *Chemistry Letters*, 51(7), pp.678-682, <https://doi.org/10.1246/cl.220160>

- K. Yanagisawa, M. Matsueda, M. Furukawa, Y. Takagai, Sensitivity enhancement in inductively coupled plasma mass spectrometry using nebulization methods via nitrogen mixed gas effect, *Analytical Sciences*, 38(8) pp.1105-1114, <https://doi.org/10.1007/s44211-022-00140-4>
- M. Matsueda, J. Aoki, K. Koarai, M. Terashima, Y. Takagai, Mass-spectrometric determination of iodine-129 using O₂-CO₂ mixed-gas reaction in inductively coupled plasma tandem quadrupole mass spectrometry, *Analytical Sciences*, 38(11) pp.1371-1376, <https://doi.org/10.1007/s44211-022-00180-w>
- Y. Takagai, M. Nagasaku, T. Nakagawa, T. Takase, W. L. Hinze, Preparation of Highly Concentrated Uniform-Sized Silver Nanoparticles via Use of Thermoresponsive Zwitterionic Surfactants, *Langmuir*, 38(44) pp.13577-13583, <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.2c02322>
- T. Tanji, M. Furukawa, S. Taguma, K. Fujimoto, H. Sato, N. Shibasaki, Y. Takagai, Analysis of Groundwater Flows under the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Reactors Using Contaminated Water from 42 Subdrain-Pits, *ACS ES&T Water*, 3(1) pp.139-146, <https://doi.org/10.1021/acsestwater.2c00455>
- 横田裕海, 藤本勝成, 川上智彦, 長山咲子, 岡崎航大, 幕内悦予, 阿部雄太, 大高雅彦, ピークサーチとデータベース参照を必要としない新たな LIBS スペクトルデータ分析法, *知能と情報*, 35(1), pp.561-566, https://doi.org/10.3156/jsoft.35.1_561
- J. Aoki, S. Wakaki, H. Ishiniwa, T. Kawakami, T. Miyazaki, K. Suzuki, Y. Takagai, Direct Quantification of Attogram Levels of Strontium-90 in Microscale Biosamples Using Isotope Dilution-Thermal Ionization Mass Spectrometry Assisted by Quadrupole Energy Filtering, *Analytical Chemistry*, 95(11) pp.4932-4939, <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.2c04844>

(3) 学会発表【令和元年度～令和4年度】

【令和元年度】

- 令和元年 11月5日～7日 The 38th Japan Society for Simulation Technology Annual International Conference on Simulation Technology (JSST2020) (ニューウェルシティ宮崎)
- 令和元年 11月15日～16日 第24回 曖昧な気持ちに挑むワークショップ (日本知能情報ファジィ学会) (関西大学)
- Pittcon 2020 conference & Expo (Chicago, USA)

【令和2年度】

- 令和2年 5月23日 第80回分析化学討論会 (オンライン開催)
- 令和2年 9月16日～18日 原子力学会 2020年秋の大会 (オンライン開催)
- 令和2年 11月16日～18日 19th Biennial IEEE Conference on Electromagnetic Field Computation (CEFC2020) (オンライン開催)

- ・令和2年12月5日 JAEA 福島復興部門成果報告会
- ・令和3年3月3日 第6回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス (NDEC-6) (オンライン開催)
- ・令和3年3月19日～22日 日本化学会第101春季年会 (オンライン開催)

【令和3年度】

- ・令和3年9月1日～3日 The 40th JSST Annual International Conference on Simulation Technology (Online)
- ・令和3年9月22日～24日 日本分析化学会第70年会 (オンライン)
- ・令和3年10月2日 令和3年度化学系学協会東北大会 (オンライン)
- ・令和3年11月27日 令和3年度日本分析化学会東日本分析化学若手交流会 (オンライン) ◆優秀発表賞1件受賞
- ・令和3年12月7日 JAEA 福島復興部門成果報告会 (富岡町文化交流センター学びの森) ◆イノベーション促進賞3件受賞
- ・令和3年12月7日 RSC Tokyo International Conference 2021 (Online)
- ・令和3年12月16日～21日 Pacifichem 2021 (Online)
- ・令和4年3月11日 第7回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス (NDEC-7) (オンライン開催) ◆研究奨励賞2件および最優秀発表賞1件受賞
- ・令和4年3月23日～26日 日本化学会第102春季年会 (オンライン開催)

【令和4年度】

- ・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) 1件受賞
- ・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「アリオス」)
- ・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1件受賞
- ・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2件受賞
- ・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3件受賞
- ・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件受賞

- ・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件受賞、最優秀フロンティアスピリット賞1件受賞
- ・令和5年3月15日 日本知能情報ファジィ学会令和4年度東北支部研究会（秋田大学）◆研究会奨励賞2件受賞

3.4.2 実施内容および成果【令和5年度】

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を随時行い、全体会議を12月26日に開催した。

- ・CLADS との連携
全体会議：令和5年12月26日
- ・学内共同研究者との連携
定例会議：月1回開催

(1) 受賞【令和5年度】

- ・令和5年度学長教育特別表彰受賞（図3.4-3）
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」が、福島大学の教育活動の推進に貢献。



図 3.4-3 令和5年度学長表彰表彰式（写真掲載について承諾済み）

(2) 学術論文（査読有）【令和5年度】

- ・T. Tanji, M. Furukawa; K. Fujimoto, Y. Takagai, Analysis of groundwater flow line of the Goshiki-numa pond community using elevation-considered principal component analysis, Analytical Sciences, 39(9), pp.1585-1589, DOI: 10.1007/s44211-023-00357-x
- ・M. Matsumoto, K. Suzuki, K. Yamaguchi, Fundamental study on magnetohydrodynamic simulation method using deep learning, Journal of Advanced Simulation in Science and Engineering, 10(1), pp.144-163, <https://doi.org/10.15748/jasse.10.144>

- ・相良翼, 松本正晴, 鈴木健司, 山口克彦, 深層学習を用いた静電場シミュレーション, 日本シミュレーション学会論文誌 15(1), pp. 20-26,
<https://doi.org/10.11308/tjsst.15.20>
- ・K. Yanagisawa, M. Matsueda, M. Furukawa, H. Ishiniwa, T. Wada, T. Hirata, Y. Takagai, Quantitative imaging of trace elements in solid samples by online isotope dilution laser ablation-inductively coupled plasma-mass spectrometry, *The Analyst*, 148(18), pp. 4291-4299, DOI: 10.1039/D3AN01028G
- ・丹治珠緒, 古川真, 高貝慶隆, 階層クラスター分析と確信度の併用による複合材料の化学データを用いた段階的識別, 知能と情報, 35(4), pp. 501-504,
https://doi.org/10.3156/jsoft.35.4_742
- ・佐々木 健太, 藤本 勝成, 原子炉格納容器内部調査動画からのダイジェスト画像および広域画像作成への試み, 知能と情報 35(4), pp. 737-741,
https://doi.org/10.3156/jsoft.35.4_737
- ・J. Aoki, Y. Takagai, Direct Quantification of femtogram per liter (fg/L) level ^{90}Sr in Rainwater using Thermal Ionization Mass Spectrometry, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 39(2), pp. 408-413,
<https://doi.org/10.1039/D3JA00294B>

(3) 学会発表【令和5年度】

- ・令和5年5月7日～5月12日 RANC-3 (3rd International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry) (ハンガリー)
- ・令和5年5月12日 プラズマ分光分析研究会 第119回講演会 (東京電機大学)
- ・令和5年5月20日～21日 第83回分析化学討論会 (富山大学)
- ・令和5年6月23日 令和5年度日本分析化学会東日本分析化学若手交流会 (東北大学)
- ・令和5年7月6日 プラズマ分光分析研究会 2023 筑波セミナー (つくば国際会議場) ◆フラッシュプレゼンテーション賞および JAAS ポスター賞を受賞
- ・令和5年7月9日～14日 2023 Goldschmidt Conference (フランス)
- ・令和5年7月15日 みちのく分析科学シンポジウム (東北大学) ◆フロンティアラボ賞 (ポスター賞) 受賞
- ・令和5年7月26日～28日 65th International Conference on Analytical Sciences and Spectroscopy (ICASS 2023) (カナダ)
- ・令和5年8月28日 第7回福島第一廃炉国際フォーラム (いわき芸術文化交流館「アリオス」)
- ・令和5年8月29日～31日 The 42nd JSST Annual International Conference on Simulation Technology (新潟大学)
- ・令和5年9月7日～8日 第31回インテリジェント・システム・シンポジウム (九州大学)
- ・令和5年9月8日 International Symposium for the 80th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan (東北大学) ◆Excellent Poster Awards (優秀ポスター賞)
- ・令和5年9月6日～8日 日本原子力学会 2023 秋の大会 (名古屋大学)
- ・令和5年9月11日～13日 化学工学会 第54回秋季大会 (福岡大学)
- ・令和5年9月13日～15日 日本分析化学会第72年会 (熊本城ホール)
- ・令和5年9月21日～23日 日本放射化学会第67回討論会 (2023) (広島大学)
- ・令和5年10月11日 ASIANALYSIS XVI、2023 (マレーシア)
- ・令和5年11月12日～15日 21st International Symposium on Applied Electromagnetics and Mechanics 2023 (東京都)
- ・令和5年11月24日 第59回フローインジェクション分析講演会 (徳島大学)
◆「最優秀口頭発表賞」、「最優秀ポスター発表賞」、「優秀ポスター賞」

- ・令和 5 年 12 月 1 日 第 17 回茨城地区分析技術交流会（水戸市 ザ・ヒロサワ・シティ会館）
- ・令和 5 年 12 月 2 日～3 日 第 28 回 曖昧な気持ちに挑むワークショップ（関東学院大学）
- ・令和 6 年 2 月 28 日 地球化学若手会（東京大学）
- ・令和 6 年 3 月 18 日～21 日 日本化学会第 104 春季大会（日本大学理工学部）
- ・令和 6 年 3 月 21 日～22 日 第 9 回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス（NDEC9）（富岡町文化交流センター 学びの森）◆「ポスター部門 優秀発表賞」

3.4.3 まとめ【令和元年度～令和 5 年度】

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。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うなど連携を密にした。また、学生等に積極的に研究成果発表の機会を与え、その結果として教員ならびに学生らは多くの授賞を得た。

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た。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た。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 ヶ年計画で実施した。

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、 α 線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発を実施した。

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 の開発を実施した。

これらの実施項目において、令和 5 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、オンライン同位体希釈 LA-ICP-DRC-MS/MS による ^{90}Sr の直接定量および定量マッピング分析法を開発し、その分析性能調査を実施した。本法は、従来の ^{90}Sr 分析法（放射線計測法、ICP-MS、TIMS）では不可能だった定量とマッピングの両立が可能であり、非常に少ない試料量（ μg レベル）、短い時間（数秒）で 1 回の分析ができる。原理上、安定同位体を 2 種類以上持つ元素および放射性核種に適用できるため、 ^{90}Sr のみならず様々な分析に応用できる可能性があり、ミクロスケールにおける燃料デブリ中の極微量無機成分の局在を定量的に評価するうえで大いに役立つことが期待できる。令和 5 年度は、同位体希釈法を組み合わせた LA-ICP-MS による定量マッピングに関する検討ならびに LA-ICP-MS による固体直接分析法とインフォマティックスとの融合を行った。固体試料中の元素を定量できる分析技術および局所領域中に存在する安定同位体と放射性同位体の濃度を同時に定量できる分析技術としてまとめることができた。構築された本技術は、廃炉措置におけるデブリ分析に十分に対応できる技術と考えられる。

(1)-② LIBS による硬度計測法の開発では、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量分析には不向きな面があるが、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、硬さ分布情報への変換を試みる研究を行った。

標準物質の LIBS 計測を実施し、スペクトルデータのラベリング・ライブラリ化を実施するとともに、機械学習手法（NMF）によりスペクトルデータ分析を行い、スペクトルの強度や形状等を評価することにより、未知試料に含まれる金属元素や化合物の分類・推定を可能とした。

雰囲気制御可能なチャンバーを搭載した多地点可動 LIBS を開発し、模擬デブリのマッピング計測を実施し、俯瞰的な情報を得た。測定データの解析に多変量解析と機械学習を適用し組成分布を作成することで、材料分布の可視化を可能とした。金属酸化物やホウ化物の組成と硬さの相関性を利用して組成を硬さへ変換後、金属、酸化物、ホウ化物の 3 種類の硬さで作成した硬さ分布は、金属と酸化物は良好な結果であり、鉄や炭素の比率が少ない場合においてホウ化物も良好に測定することができた。構築された本技術は、LIBS 計測で得た元素情報から組成解明と硬さ変換できることを実証したものであった。

(1)-③ TEM による液体中金属微粒子測定法の開発では、両性イオン界面活性剤の曇点抽出により、様々な金属酸化物微粒子を液体相中の状態を維持したまま捕集することができた。また、

TEM 観察により微粒子の 3D 画像を撮影し、物体検出アルゴリズム YOLO を用いることで、目的物質の微粒子を迅速に発見することが可能となった。TEM 観察に液中観察試料ホルダー Poseidon を用いると、YOLO によって液体相のまま微粒子を観察・識別することができ、曇点抽出後の微粒子画像群を教師データとして用いることで、より短時間の電子線照射で正確に液体相中の微粒子の組成が推定できると考える。炉内汚染水中の微粒子は、より複雑な組成をしているため、学習データとなる 3D 画像の充実と機械学習への適応を進めることで、汚染水浮遊微粒子の組成に基づく燃料デブリ性状の推定の一助となることが期待できる。

(1)-④ α 線放出核種の全自動 ICP-MS 分析法の開発では、1F の滞流水等に含まれる高放射能の α 線放出核種を迅速、簡便かつ安全に、分析可能な手法を目指して研究開発を行った。従来の放射線計測では、 α 線のエネルギーが重なりやすく、目的とする α 線放出核種を分離して個別に分析する必要があった。質量分析装置の一つである ICP-MS は、それらの α 線放出核種を同時分析できる可能性を有しているが、同じ質量数を有する物質が干渉するといった課題を抱えていた。本研究では、それらの干渉を複数の分離場で相乗・相補的に分離できる機構を考案し、FI システムと ICP-MS/MS を用いた全自動分析システムを構築した。本システムは、10 核種以上の α 線放出核種を 40 分程度で一斉分析することが可能であり、試料中のマトリックスがカラムや ICP-MS へと与える影響の評価や測定値の高精度化などの検討を進めることで、現場での活用も期待できる。

(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、大量の測定データ（今回は ICP-MS による多元素定量データ）を容易に扱い、データの縮分と可視化できることを検証した。結果として、材料そのものではなく材料に接触した溶液から、もともとの材料を推定することと、その材料かどうかの数値化（確信度 D 値）を可能とした。このことは、デブリ等を直接分析するだけでなく、間接的に得られたモニタリングサンプル等から、もともとの素性を推定する場面において材料プロファイリングとしての利用が期待できる。また、得られた知見は、材料表面の局所データについても適用することができ、局所間の類似性も明らかにすることができる。

(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、核種や空間分布の不明な放射性物質に対して、周囲に放出されている γ 線エネルギースペクトルを測定することにより、位置推定を行うことができるシステムの構築を目指してきた。 γ 線エネルギースペクトルは線量の多寡だけでなく、コンプトン散乱などによるエネルギープロファイルの変化を情報として捉えることで、放射線源の遠近や遮蔽体の有無などを推定することができる。ただし、その推定を現実的に行うためには、従来進められてきた逆問題的なアプローチでは複雑な体系に対して解を求めることは困難であった。これに対して、本研究では深層学習を用いた手法を採用することにより、現実的に放射性物質の分布推定を行えることがわかった。この手法を実際の廃炉工程で活用することで、より安全に廃炉作業を進めることが期待できる。

(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、① 時短処理・ダイジェストアルバム・広域画像生成では、東京電力との情報交換を通して入手した原子炉格納容器の調査動画の 1) ノイズ箇所、光量・ピントの不良箇所、冗長シーンを削除・再編集を行うモジュール、加えて 2) 動画全体のダイジェスト画像アルバムとして注視箇所の一覧を生成するとともに、これらを広域画像（パノラマ画像）化するモジュールを開発した。これらにより、研究・分析・広報において、調査動画の利活用を容易にするためのシステムを開発・実装したことになる。② PCV 内部の落下物・堆積物の検出・識別では、限られた学習データを転移学習・フェイクデブリの生成等の手法を通して、動画視聴時・動画撮影時において、落下・堆

積物を確率（確信度）を付加して、検出・識別をするための AI システムを開発した。これによって、調査・分析における見落とし防止等支援も含めた撮影画像からの目視判断（支援）AI システムを開発・実装したことになる。③LIBS の開発との連携では、LIBS スペクトルデータのピークサーチを必要としない新たなスペクトル分析手法を提案するとともに、これらを用いた未知試料の迅速推定のための「次元削減（NMF）ー決定木分類ー多段 SVM 分類」からなる超硬度デブリ判別のための未知試料推定システムの開発・実装を行った。④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との連携では、金属系デブリから部分溶出した成分を、ICP-MS によって計測した定量値を通して、溶出時の液性推定ならびに材料ジャンルごとのパターン分類をするためのシステムを開発・実装した。これらのシステムを統合することによって、画像分析により確信度付きのデブリ分類が可能となり、それらとその周辺の物理・化学計測データからの材料推定における確信度をリンクすることにより、デブリの性状把握が促進されデブリの取り出しの作業実現に対する大きな貢献が期待できる。

(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。教育プログラムを実施するとともに、学生に国内外の学会等における研究成果発表の機会を与え、多くの学生が優秀賞等を受賞するなどの活躍を見せた。また、多くの学生が国家資格である放射線取扱主任者に合格するとともに、東京電力や JAEA などの 1F 廃炉措置に係る機関等に就職した。

(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。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。また、次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス（NDEC）、JAEA 福島部門成果発表会、国際廃炉シンポジウムなどの関連する企画に積極的に参加した。

以上、5 ヶ年計画の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

参考文献

- [1] M. Takano, 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] Y. Abe, 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] Y. Abe, I. Sato, T. Nakagiri, A. Ishimi, Y. Nagae, Development of Non-transfer 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] Y. Abe, T. Yamashita, I. Sato, T. Nakagiri, A. Ishimi, Development of Experimental Technology for Simulated Fuel-assembly Heating to Address Core-material-relocation Behavior During Severe Accident, Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science, Vol.6(2), 2020, 021113, <https://doi.org/10.1115/1.4045450>
- [5] 阿部雄太他, プラズマ加熱試験の材料分析を用いた評価手法の確立(1)プラズマ加熱試験の材料分析を用いた評価手法の概要, 原子力学会 2017 年秋の大会, 2017.

