



中赤外レーザー分光によるトリチウム水
連続モニタリング手法の開発
(委託研究)

－令和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 the Continuous Monitoring of Tritium Water
by Mid-infrared Laser Spectroscopy
(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
自然科学研究機構

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

July 2025

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

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

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

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

中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発
(委託研究)

—令和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—

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

自然科学研究機構

(2025年2月25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3年度に採択された研究課題のうち、「中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発」の令和3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、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を行った。

令和5年度は、(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製(再委託先:弘前大学)を行った。(1)については、核融合科学研究所の計測実験棟2F実験室に光学ベンチを用意し、各水素同位体濃度のレーザー吸収分光を行うことで、測定感度の評価と計測指針の作成を行った。さらに、令和4年度までに実証した、量子カスケードレーザーの光増幅を進展させ、狭線幅の量子カスケードレーザー増幅と波長可変試験を行った。その結果、波長4.3 μm の量子カスケードレーザーを鉄イオン添加媒質を用いたレーザー増幅器で光増幅を行い、最大出力390 mWを狭線幅30 MHz以下で得た。試験結果に基づき、更なる高性能化と他分野への展開についてまとめを行った。(2)においては、標準試料の作製として市販の重水試薬をBG水(トリチウムフリー水)で希釈し、約100 Bq/Lの標準試料を作製した。屋内外の同位体比計測については、トリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、パッシブ法(月間)でトリチウムの測定を行い、日々の水素同位体比(δD)測定を行って、弘前市の大気水蒸気について δD とトリチウム濃度の関係性を評価した。以上より、中赤外レーザーを用いたトリチウム水短時間計測の原理実証を行った。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、自然科学研究機構が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター:〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

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

— 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

National Institutes of Natural Sciences

(Received February 25, 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 FY2021, this report summarizes the research results of the “Development of the continuous monitoring of tritium water by mid-infrared laser spectroscopy” conducted from FY2021 to FY2023.

The present study aims to demonstrate the principle for rapid measurement of tritiated water at a concentration level of 60 Bq/cc using a cavity ring-down spectroscopy system with a mid-infrared laser. In fiscal year 2023, research focused on (1) developing the cavity ring-down apparatus and (2) evaluating hydrogen isotope composition and preparing standard samples under environmental conditions (subcontracted to Hirosaki University). For (1), an optical bench was set up at the NIFS to perform laser absorption spectroscopy of various hydrogen isotope concentrations, enabling the evaluation of measurement sensitivity and establishment of guidelines. The light amplification of a quantum cascade laser, was further developed, achieving light amplification of a 4.3 μm quantum cascade laser with an iron ion-doped medium, yielding a maximum output of 390 mW with a linewidth of less than 30 MHz. For (2), standard samples were prepared by diluting commercially available heavy water with BG water (tritium-free water) to create samples with approximately 100 Bq/L. Isotope ratio measurements were conducted indoors and outdoors using a high-time-resolution atmospheric water vapor collection system for tritium measurement, and daily measurements of the hydrogen isotope ratio (δD) were conducted. The relationship between δD and tritium concentration in atmospheric water vapor in Hirosaki City was evaluated. Thus, the principle for the rapid measurement of tritiated water using a mid-infrared laser was successfully demonstrated.

Keywords: Mid-infrared Laser, Water Isotope, Laser Spectroscopy

This work was performed by National Institutes of Natural Sciences under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度 採択課題	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
5. 令和 3 年度 採択課題	10
6. 令和 4 年度 採択課題	12
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・ エナジー
アパタイトセラミックスによるALPS沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (～R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1～)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (~R3. 3. 31) 岡山大学 (R3. 4. 1~)

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

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ティアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (~R2. 3. 31) 竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

4. 令和2年度 採択課題

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

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

課題数：10 課題

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

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・γ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DESTAL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 3 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。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録
成果報告書

This is a blank page.

令和 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

中赤外レーザー分光によるトリチウム水

連続モニタリング手法の開発

(契約番号 R05I048)

成果報告書

令和 6 年 3 月

大学共同利用機関法人

自然科学研究機構核融合科学研究所

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、大学共同利用機関法人自然科学研究機構核融合科学研究所が実施した「中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発」の令和3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	vi
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年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-3
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 キャビティリングダウン装置に関する研究【令和3年度～令和5年度】	3-1
3.1.1 中赤外キャビティリングダウン試験【令和3年度～令和5年度】	3-1
3.1.2 トリチウム水検出用光源の開発【令和3年度～令和5年度】	3-5
3.1.3 まとめ	3-7
3.2 環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製 (再委託先：弘前大学)【令和3年度～令和5年度】	3-8
3.2.1 標準試料の作製【令和3年度～令和5年度】	3-8
3.2.2 屋内外の同位体比計測【令和3年度～令和5年度】	3-10
3.2.3 まとめ	3-14
3.3 研究推進	3-15
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

研究代表者

大学共同利用機関法人
自然科学研究機構核融合科学研究所 教授 安原 亮

再委託先

国立大学法人弘前大学
被ばく医療総合研究所 教授 赤田 尚史

表一覧

表 1	調整した重水試薬	3-9
表 2	全体会合の実施状況	3-15

図一覧

図 1	H ₂ O、HDO、HTO の中赤外領域での吸収波長	1-1
図 2	全体計画図	2-1
図 3	実施体制図	2-2
図 4	吸収分光計測実験概要	3-1
図 5	重水の吸収分光スペクトル	3-1
図 6	吸収分光計測実験の様子	3-3
図 7	水素同位体・酸素同位体の吸収分光スペクトル	3-4
図 8	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要 (令和 4 年度)	3-5
図 9	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性 (令和 4 年度)	3-5
図 10	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要	3-6
図 11	量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性	3-7
図 12	使用した測定器群	3-9
図 13	日本における近年の降水中トリチウム濃度の測定地域	3-11
図 14	月間降水の取得の様子	3-12
図 15	弘前市の大気水蒸気の δD とトリチウム濃度の関係	3-12
図 16	弘前市といわき市の降水の測定結果	3-13
図 17	富岡町の降水の測定結果	3-13

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	(国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
核融合研	: 大学共同利用機関法人自然科学研究機構核融合科学研究所	
CRDS	: Cavity RingDown Spectroscopy	(キャビティリングダウン分光法)
弘前大学	: 国立大学法人弘前大学	

概略

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

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

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

令和 5 年度は、(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）を行った。(1)については、核融合研の計測実験棟 2F 実験室に光学ベンチを用意し、各水素同位体濃度のレーザー吸収分光を行うことで、測定感度の評価と計測指針の作成を行った。さらに、令和 4 年度に実証した量子カスケードレーザーの光増幅を発展させ、狭線幅の量子カスケードレーザー増幅と波長可変試験を行った。その結果、波長 4.3 μm の量子カスケードレーザーを、鉄イオン添加媒質を用いたレーザー増幅器で光増幅を行い、最大出力 390 mW を狭線幅 30 MHz 以下で得た。試験結果に基づき、更なる高性能化と他分野への展開についてまとめを行った。(2)においては、標準試料の作製として市販の重水試薬を BG 水（トリチウムフリー水）で希釈し、約 100 Bq/L の標準試料を作製した。屋内外の同位体比計測については、トリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、パッシブ法（月間）でトリチウムの測定を行い、日々の水素同位体比 (δD) 測定を行って、弘前市の大気水蒸気について δD とトリチウム濃度の関係を評価した。

前年度までの成果報告書：

1) 中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発（委託研究）；
令和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 2022-059

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

2) 中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発（委託研究）；
令和4年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

JAEA-Review 2024-025

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2024-025>

1. はじめに

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

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

水酸基伸縮基本モードの吸収ピーク波長

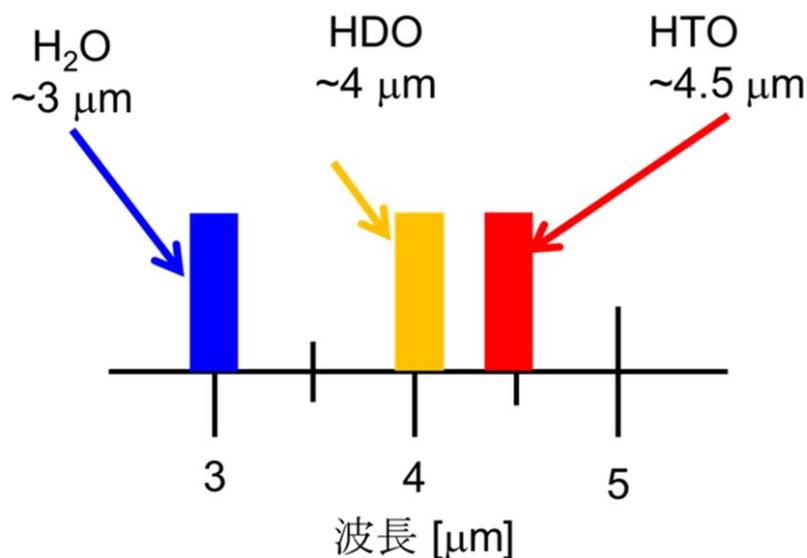


図1 H₂O、HDO、HTOの中赤外領域での吸収波長

2. 業務計画

2.1 全体計画

全体計画を図2に示す。

項目	年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度
		要素研究フェーズ (要素開発、理論検討)		検証フェーズ (トリチウム水測定感度評価)
(1) キャビティリングダウン装置に関する研究		中赤外キャビティリング ダウン光学系の構築	安定同位体を用いたキャビティ リングダウン装置試験及び評価	トリチウム水を用いたキャビティリング ダウン装置試験及び評価まとめ
① 中赤外キャビティリングダウン試験				
		キャビティリングダウン光源 準備と高性能化	キャビティリングダウン光源の高性能化	光源高性能化試験及び評価まとめ
② トリチウム水検出用光源の開発				
(2) 環境条件下における水素同位体組成評価と 標準試料作製 (弘前大学)		標準試料作製準備・測定	標準試料準備と評価	試料の評価と取りまとめ
① 標準試料の作製				
		同位体比計測 準備	重水・軽水比の評価 とフィールド計測	フィールド計測と取りまとめ
② 屋内外の同位体比計測				
(3) 研究推進		技術評価委員会の開催	技術評価委員会の開催	技術評価委員会の開催
		△ △	△ △	△ △
		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価

図2 全体計画図

2.2 実施体制

実施体制を図3に示す。

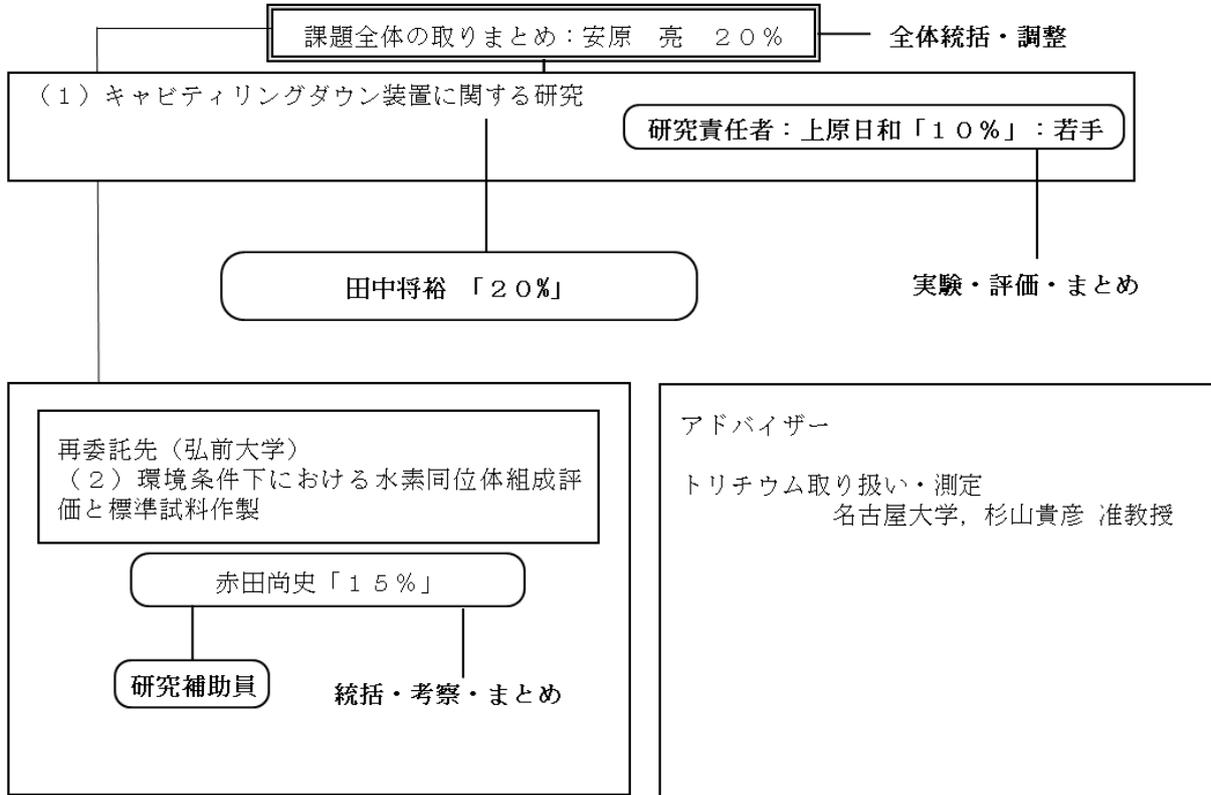


図3 実施体制図

2.3 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法

本業務では、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度60Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を成果目的とする。高性能量子カスケードレーザーを用いたキャビティリングダウンシステムを構築し、重水等を用いた光学特性評価を基にトリチウム水計測を試みる。

(1) キャビティリングダウン装置に関する研究

① 中赤外キャビティリングダウン試験

令和4年度までに用意した量子カスケードレーザー光源及びキャビティリングダウン装置を用いて、トリチウム水の検出試験を試みる。また、計測装置の検出限界の定量化のために重水を用い感度試験を行い、目標とするトリチウム水濃度60 Bq/cc レベルの短時間計測の試験結果をまとめ、実用化へ向けた指針を得る。

② トリチウム水検出用光源の開発

令和4年度に実証した量子カスケードレーザーの光増幅を発展させ、狭線幅の量子カスケードレーザー増幅と波長可変試験を行う。試験結果に基づき、更なる高性能化と他分野への展開についてまとめを行う。

(2) 環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）

① 標準試料の作製

重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液を作製する。作製した溶液の安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定する。また、評価結果を統括し、トリチウム水の光計測への指針を得る。

② 屋内外の同位体比計測

トリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、フィールドでの大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量を求める。また、測定結果を統括し、トリチウム水の光計測への指針を得る。

(3) 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（CLADS）等との連携を密にして、研究を進める。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. 実施内容及び成果

3.1 キャビティリングダウン装置に関する研究【令和3年度～令和5年度】

3.1.1 中赤外キャビティリングダウン試験【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施概要】

令和3年度は、キャビティリングダウンシステムの構築に、中赤外レーザー光を高効率で閉じ込めることが可能な光キャビティの構築が必須であるため、核融合研の光学ベンチ上に中赤外キャビティリングダウン光学系を核融合研の計測実験棟2F実験室に光学ベンチ(3 m×1.2 m)を設置し、この光学ベンチ上に光キャビティを構築した(図4)。

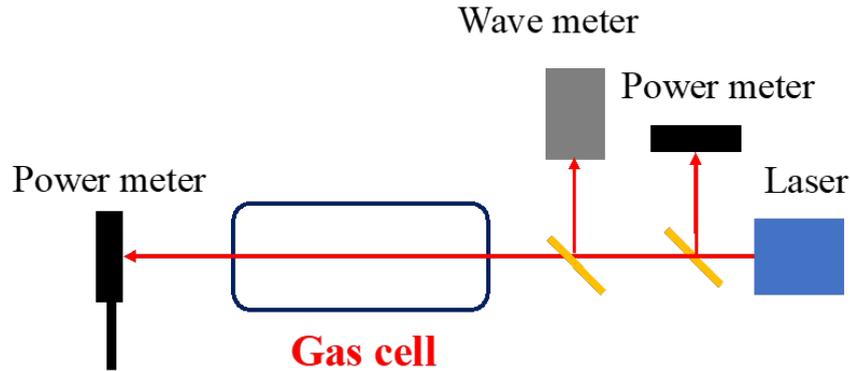


図4 吸収分光計測実験概要

令和4年度は、令和3年度に作製したキャビティリングダウン装置を用いて、核融合研の計測実験棟2F実験室の光学ベンチ上で、キャビティの性能評価と中赤外光源を用いたガスセル中に充填した重水の吸収分光計測(水素同位体検出試験)に成功した。量子カスケードレーザーは、波長7,366 nmから7,378 nmまで変化させて測定を行った。7,370 nmから7,372 nmの間に重水に特徴的な吸収ピークが観測された(図5)。

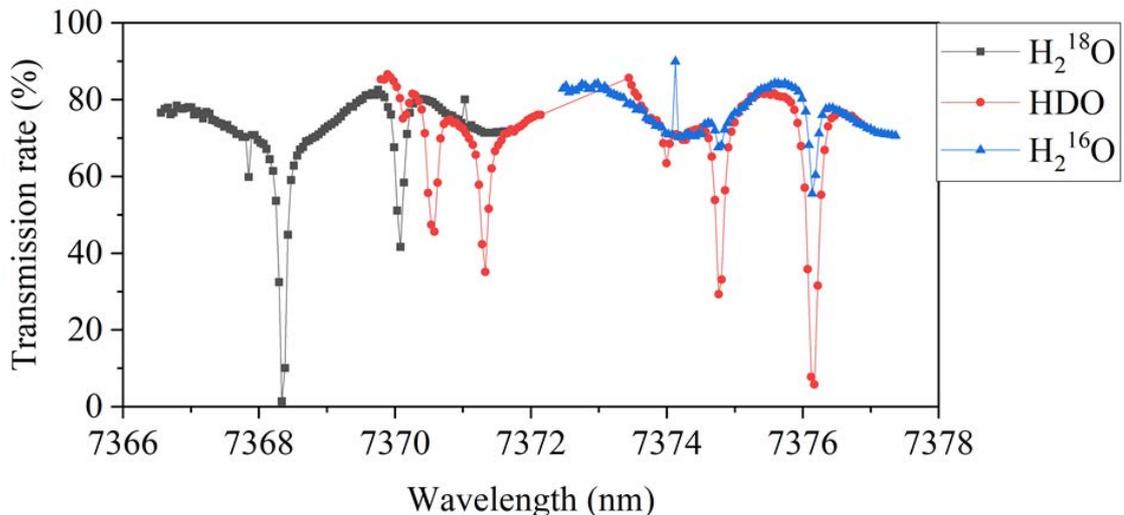


図5 重水の吸収分光スペクトル

【令和5年度実施内容及び成果】

令和4年度までに用意した量子カスケードレーザー光源及びキャビティリングダウン装置を用いて、トリチウム水の検出試験を試みた。また、計測装置の検出限界の定量化のために重水を用い感度試験を行い、目標とするトリチウム水濃度 60 Bq/cc レベルの短時間計測の試験結果をまとめ、実用化へ向けた指針を得た。

核融合研の計測実験棟 2F 実験室の光学ベンチ上に構築したガスセルにおいて、各水素同位体濃度のレーザー吸収分光を行うことで、測定感度の評価と計測指針の作成を行った。中赤外レーザーを用いた吸収分光計測のための実験の様子を図6に示す。量子カスケードレーザーから出力された中赤外レーザーはガスセルを介して、赤外ディテクタで検出した。今回はマルチパス分光セルを用いることで、ガスセル光路長の増大を行った。ガスセルには軽水、重水、蒸気を封入した。量子カスケードレーザーの波長を可変することで水素同位体、酸素同位体由来する吸収ピークの観測を試みた。光学システムは大気の影響を除くため、図6で示すように乾燥空気で密閉した。測定は独自開発した自動計測ソフトウェアを用いて、量子カスケードレーザーの波長を掃引しながら光強度を計測した。

(1) トリチウム水の検出試験

トリチウム水の検出試験として、ホット環境下に本装置を、持ち込み試験をすることが困難であることから、弘前大学で定量したトリチウム水と同等の、最大 7,200 Bq/L のトリチウムが含まれる低濃度トリチウム水で検出試験を試みた。低濃度のため顕著な HT0 の吸収ピークは見られなかった。このため、重水リッチの模擬トリチウム水を用いた水素同位体の光計測を実施した。水素同位体及び酸素同位体で構成される D₂O を 2.5% 含有した水蒸気をサンプルとして用いており、図6に示すガスセルチャンバーにサンプルを導入し、中赤外量子カスケードレーザーを用いて測定した透過スペクトルを図7に示す。3.1.2項に示す量子カスケードレーザーの光増幅と狭線幅の改善によって、波長 7,904 nm から 7,928 nm まで変化させて測定した結果、波長 7,904 nm から 7,928 nm までの間で HD0、H₂O、D₂O、H₂¹⁸O 等の重水に特徴的な吸収ピークが観測された。

これらのピーク波長は、データベースから得られる同位体の分光計測の吸収ピークと一致しており[1]、破線はトリチウム水のピーク位置であり、破線部近辺には他の大きな吸収ピークは存在しないことから、本研究の当初の課題であった「トリチウム水の吸収ピークが他の分子の吸収ピークと重なって検出が困難になるのではないか」という点に対して、測定は可能であることが示された。

(2) 計測装置の検出限界の定量化

放射能と放射性物質の関係は、以下の式で表せる。

$$A = \lambda N \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$N = A / \lambda \quad \dots \dots \dots (2)$$

ここで、

- A : 放射能 (Bq)
- λ : 壊変定数 (s⁻¹) $\lambda = 0.693 / T_H$
- T_H : 半減期 (s)
- N : 放射性物質の量 (個)

$$N = A \times T_H / 0.693 \quad \dots \dots \dots (3)$$

1 L の水の重さは 1 kg であり、トリチウムの濃度が排水中の濃度限度の 1 kg あたり $A=60,000$ Bq の場合、トリチウムの半減期 $T_H=12.3$ 年 $\times 365 \times 24 \times 60 \times 60=3.88 \times 10^8$ sec であるので、(3)式を利用すると 60,000 Bq/L の時、トリチウムの数は 1 kg の水中に約 3.4×10^{13} 個あることになる。

1 L あたりの水の分子数はおよそ 3.3×10^{25} 個であり、1.0 ppt (1×10^{-12}) の検出ができれば、濃度 60 Bq/cc (60,000 Bq/L) レベルの測定が可能となる。

従来の研究では、 CO_2 検出で ppq (1×10^{-15}) が実証されており、今回の重水リッチの模擬トリチウム水を用いた実験では、計測時間が 1 分以下でスペクトル計測が可能であり HD0 でおよそ 100 ppm (1×10^{-6}) がクリアに観測された。本実験では、0.1 V の測定性能であったが、検出器の性能及びノイズ比を向上させることにより 0.01 mV まで測定可能となり、構築した計測システムをそのまま使うと、10 ppb (1×10^{-9}) 程度の感度が想定される。この結果から外挿すると、キャビティの往復回数を増加させることにより、光路長を 1,000 倍にすることでニアに感度は向上し、10 ppt (1×10^{-12}) レベルの測定は可能である。さらに、より高いサンプリングレートのデータ収集系を用いることで、同等の測定時間で 1.0 ppt (1×10^{-12}) レベルの測定を見通すことができた。HD0 水を利用したデータ外挿によって、HTO においても同等の性能が期待され、トリチウム水においても短時間計測が原理的に可能であることが本研究によってわかった。

以上、重水等の水素同位体の中赤外光での吸収分光で検出結果から、トリチウム水の排水中濃度限度以下の検出は、測定原理上可能であるという実用化に向けての指針（検討結果）が得られた。

今後、光路長の更なる増大や検出器の感度向上及び②で開発した高性能レーザー光源を組み合わせることで、「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測が実現する科学的な指導原理が得られ、当初の目標を達成した。

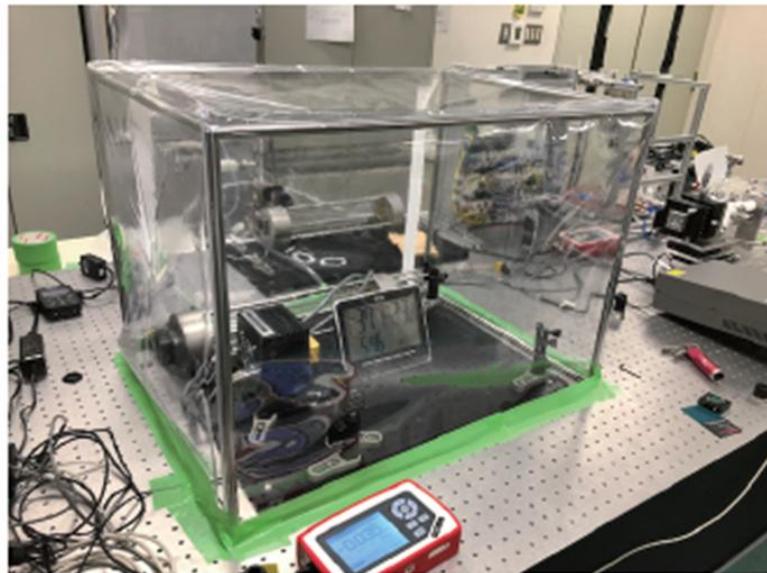


図 6 吸収分光計測実験の様子

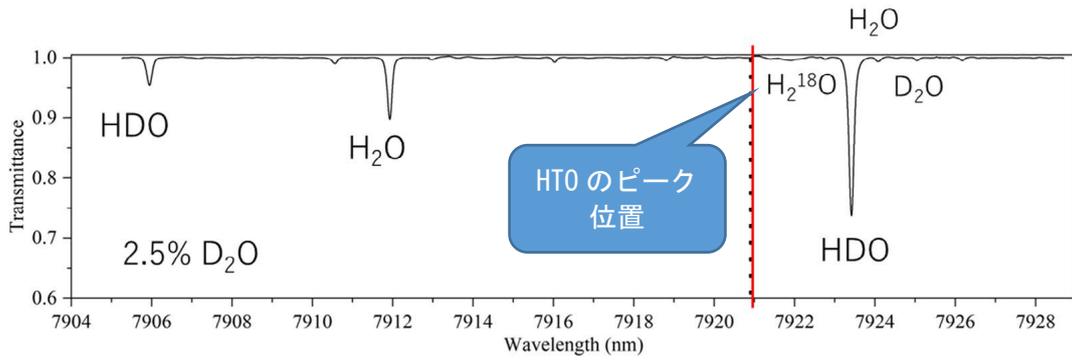


図7 水素同位体・酸素同位体の吸収分光スペクトル

3.1.2 トリチウム水検出用光源の開発【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施概要】

令和3年度は、キャビティリングダウン計測において光源性能は計測精度に支配的であるため、キャビティリングダウン用光源の準備とトリチウム水検出感度向上のための高性能化を行った。回折格子を用いた外部共振器型量子カスケードレーザーを設計開発し、波長 $4.34\ \mu\text{m}$ から $4.72\ \mu\text{m}$ の範囲に可変可能で、最高出力 $22\ \text{mW}$ 、ビーム品質 $M^2=1.1$ のレーザー開発に成功した。ビーム品質 $M^2=2$ 以下、出力 $1\ \text{mW}$ 以上を達成した。

令和4年度は、キャビティリングダウン計測における光源の性能が計測精度に支配的であるため、波長 $4.0\ \mu\text{m}$ 帯の量子カスケードレーザーを独自開発の光増幅器によって、レーザー出力を $200\ \text{mW}$ から $870\ \text{mW}$ へ向上させた（図8、図9）。

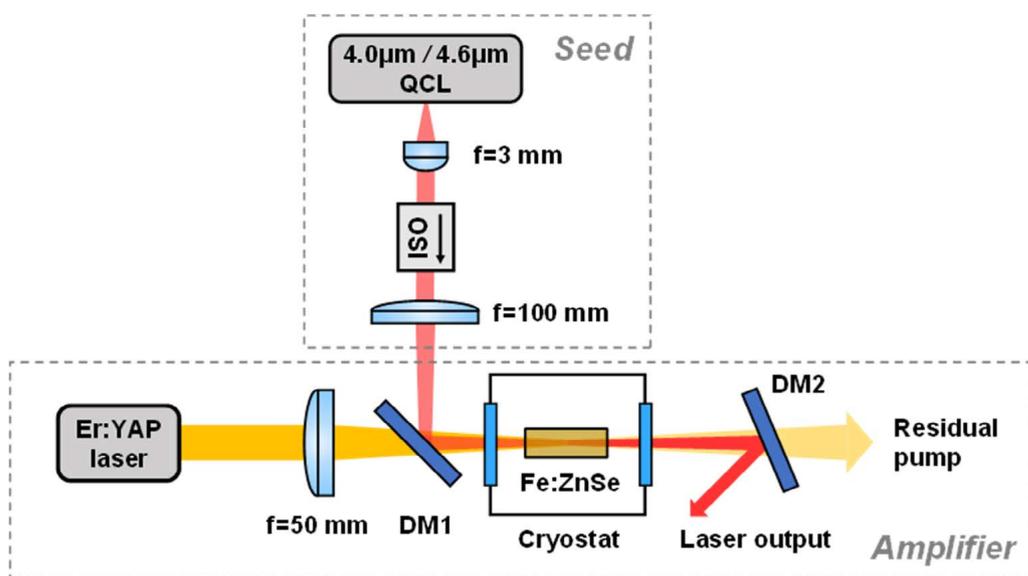


図8 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要（令和4年度）

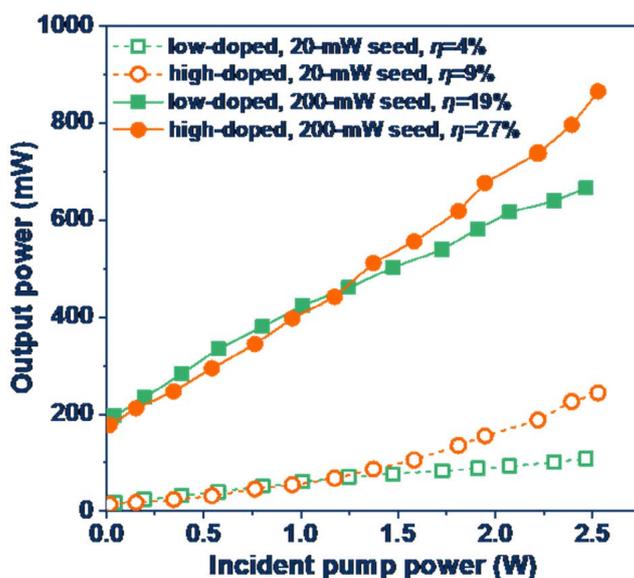


図9 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性（令和4年度）

【令和 5 年度実施内容及び成果】

令和 4 年度に実証した量子カスケードレーザーの光増幅を発展させ、狭線幅の量子カスケードレーザー増幅と波長可変試験を行った。試験結果に基づき、更なる高性能化と他分野への展開についてまとめを行った。

鉄添加 ZnSe 結晶 (Fe:ZnSe) を用いた光増幅器に入射させることによって、最大出力 55 mW の波長 4.3 μm の分布帰還型量子カスケードレーザーの出力を向上させる実証実験を行った。単純化した量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要を図 10 に示す。基本構成は、令和 4 年度の量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッドシステムと同じだが、出力される光波長が狭帯域化している点が令和 5 年度の大きな成果である。量子カスケードレーザーより出力された光は、レンズを用いて平行光にした後、光アイソレータを経て、再びレンズで集光され、ダイクロイックミラーで反射された後、Fe:ZnSe に入射する。Fe:ZnSe は、波長 2.92 μm で発振する Er 添加 YAP レーザーを励起させ、4.3 μm の利得を得る Fe:ZnSe は、光学窓を持つ真空容器中で冷却され、結晶ホルダに固定されている。Fe:ZnSe を透過した利得を得た量子カスケードレーザー光は、増幅され、再びダイクロイックミラーに反射され、出力される。この出力光をパワーメータ及びファブリーペロー共振器より光出力及び線幅測定し、光出力特性を評価した。

量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性を図 11 に示す。レーザーの入出力特性を図 11 の上図に示し、ファブリーペロー共振器で測定した線幅を図 11 の下図に示す。入出力特性から本方式を用いることで、最大出力 390 mW まで光出力が増大したことがわかった。また、この時の線幅は 30 MHz と吸収分光計測に適応可能な狭線幅を維持していることがわかった。波長の可変範囲が 10 nm 以上で、レーザー光は TEM₀₀ の空間モードであり、非常に良好であることがわかった。これらより、感度向上を図る際に生じる課題、ディテクタでの光強度不足を解決する手法が実証される結果となった。さらには、Fe:ZnSe 増幅器を追加し、光増幅を多段化することや、光励起パワーを増大し、増幅率を向上されるといったレーザー光の高出力化への見通しを本研究の結果実験的に得ることができた。本業務終了後に性能向上の取り組みを継続する予定である。また、本波長領域の光源技術は、水酸基の伸縮振動が持つ大きな光吸収を利用した樹脂やガラス等の高効率なレーザー加工へと適応可能である。高出力化への道が実現したことで、これらの応用技術へも展開をしていく予定である。

以上、令和 4 年度に実証した量子カスケードレーザーの光増幅を発展させ、狭線幅の量子カスケードレーザー増幅と波長可変試験を行った。試験結果に基づき、更なる高性能化と他分野への展開についてまとめを行った。

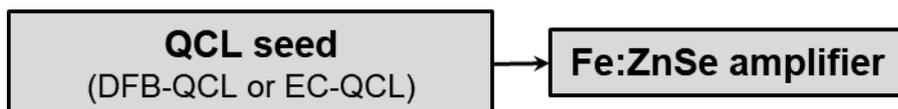


図 10 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器の概要

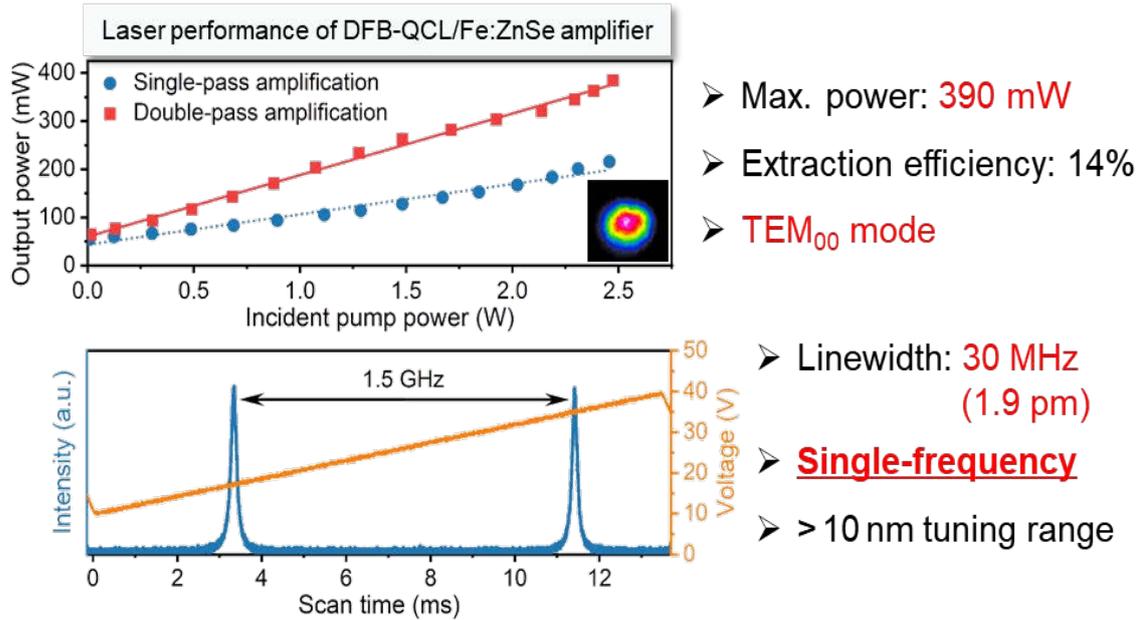


図 11 量子カスケードレーザー、固体レーザーハイブリッド光増幅器出力特性

3.1.3 まとめ

乾燥空気をパージした光学実験装置を構築し、ガスセル中に充填した種々の水素同位体・酸素同位体で構成される水蒸気の中赤外吸収分光計測に成功した。さらに、中赤外レーザー吸収分光での課題である光源の高出力化について、独自の量子カスケードレーザー、固体レーザーを開発し、最大出力 390 mW までの光出力増大を実証した。また、この時の線幅は、30 MHz と吸収分光計測に適応可能な狭線幅光源性能であった。光路長の増大に際して課題となる高出力光源の具体的な実現方法を実証した。

これらの取り組みにより当初の目的である、トリチウム水のレーザー吸収分光について技術的な見通しを得た。

3.2 環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製（再委託先：弘前大学）

【令和3年度～令和5年度】

3.2.1 標準試料の作製【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施概要】

令和3年度は、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進め、安定同位体である重水試料の準備を行った。市販の重水試薬を購入し、約100 Bq/Lの標準試料作製準備を行った。

令和4年度は、令和3年度に引き続き、複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液作製を進めるとともに、安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。市販の重水試薬を用いて、約100 Bq/Lの標準試料を作製した。

【令和5年度実施内容及び成果】

重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液を作製した。作製した溶液の安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。また、評価結果を統括し、トリチウム水の光計測への指針を得た。

弘前大学において、所有する計測装置群（図12）を用いて複数の試薬会社より市販されている重水標準溶液を利用して、水素同位体標準溶液作製を進めた。市販の試薬としては、同メーカーのロットナンバーの異なるものも準備し測定を行った。その結果、重水純度（99.9%以上）は同じではあるが、トリチウム濃度は大きく異なる傾向にあった。この傾向は、論文などでの報告例と同程度であった[2]。

これらの原液をトリチウムフリー水で希釈することにより、調整済みのトリチウム水として1,400 Bq/L、760 Bq/L、7,200 Bq/L及び570 Bq/Lの4種類のサンプルの準備に成功した（表1）。本成果は「目標とする60 Bq/cc（60,000 Bq/L）レベル計測」の約10分の1か、それ以下のものである。目標となる60 Bq/ccを計測するためには、検出下限値をそれ以下に設定する必要があり、約10分の1は妥当であると言え、このサンプル作製に成功したことにより計測への科学的実施手段が得られた。

以上、重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液を作製した。作製した溶液の安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。また、このサンプルを3.1節に供することにより、今後のトリチウム水の光計測の指針（低濃度測定及び同位体比率の変化による検出下限濃度への影響などの課題抽出）の策定が可能となった。

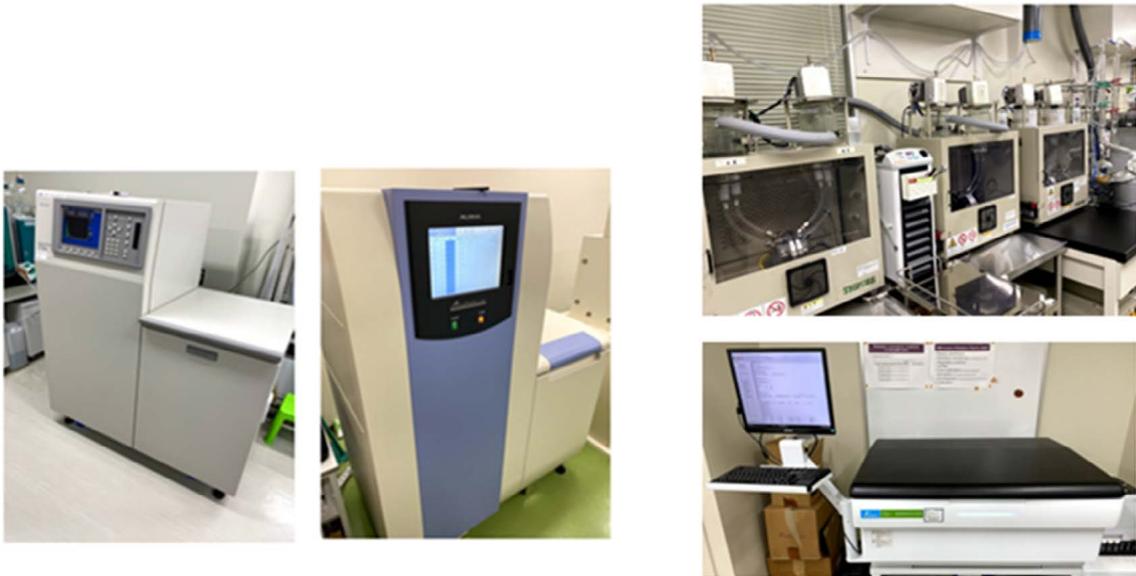


図 12 使用した測定器群

表 1 調整した重水試薬

試薬 No	トリチウム濃度	 購入した重水試薬の例
⑤	1,400 Bq/L	
⑥	760 Bq/L	
⑦	7,200 Bq/L	
⑧	570 Bq/L	

3.2.2 屋内外の同位体比計測【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施概要】

令和3年度は、屋内外の同位体比計測の測定準備を行った。低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置の性能評価を行い、試料量10 mLで2,400分計測すると検出下限値は約0.6 Bq/Lであることを確認した。これにより一般環境中トリチウム濃度を計測する準備が整った。

令和4年度は、これまでに開発を進めてきたトリチウム測定用長時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、実験室内だけでなく屋外の大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量(H/D)を求めた。弘前市の降水中水素同位体計測を行い、濃度レベルの把握と変動傾向の把握を行った。

【令和5年度実施内容及び成果】

トリチウム測定用長時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、フィールドでの大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量を求めた。また、図15から図17に示すように、各観測点でのバックグラウンド値が季節変動や大きな地域差を与えることがわかった。これらの測定結果を統括すると、トリチウム水の正確な値付けのためには、バックグラウンド値のデータベース化が必須である。このように本研究によって、トリチウム水の光計測ではバックグラウンド値の把握と、それを基にしたトリチウム水の計測値のデータ解析が重要であるという指針を得た。

日本における近年の降水中トリチウム濃度の測定地域を図13に示す。本研究で採取した地域を図中の★に示す。

各地の屋外の同位体比計測の測定を行った。図14に月間降水の取得の様子を示す。図15～図17に弘前市、いわき市、富岡町の結果を代表事例として示す。図15に弘前市での大気水蒸気の観測結果を、図16に弘前市といわき市の降水の測定結果を、図17にいわき市と富岡町の降水中トリチウム濃度の関係と、富岡町の降水中トリチウム濃度と環境水中トリチウム濃度のまとめを示す。図15より、令和4年と令和5年の大気水蒸気中トリチウム濃度は、それぞれ0.30～0.96 Bq/L及び0.31～0.89 Bq/Lとほぼ同レベルであり、春季に高くなる傾向にあった。一方、水素安定同位体比は、おおよそ-100‰から-150‰の間で推移しており、令和5年春季には日毎の変動が大きくなるものの、明瞭な季節変動傾向は認められていない。図16より、弘前市の月間降水から得られるトリチウム濃度は春季に高い傾向があるが、水素同位体比については季節変動の傾向がないことがわかる。また、いわき市のトリチウム濃度も同様に春季に高い傾向があるが、水素同位体比については季節変動の傾向がない。各地点のトリチウム濃度を比較すると、弘前市での測定結果の方がより高い傾向にあり、これは緯度効果によると考えられる。一方、令和4年11月より、いわき市の約50 km北に位置する富岡町においても月間降水を採取し、トリチウム濃度を測定した結果、両者はおおよそ1:1のラインにプロットされ($R^2=0.822$)、同様な濃度レベル及び変動傾向であることが明らかとなった(図17)。また、福島第一原子力発電所(図13の◎印)に近い富岡町の降水や環境水には、福島第一原子力発電所からのトリチウムの影響は認められなかった。ここで緯度効果であるが、比較的地球の磁場が弱い極域において宇宙線強度が強いこと、極東アジアの中緯度地域では、春季などに圏界面ギャップが発達して構想大気の自由大気への供給量が増えること、大陸からの季節風により高緯度空気塊が、日本列島に輸送される等の様々な環境因子により起こる現象である。そこで、日本における近年の降水中トリチウム濃度の地域特性を明らかにするため、可能な範囲で月間降水を採取して測定を行った。北日本である北海道札幌市と弘前市では、令和5年にはそれぞれ0.28～1.17 Bq/L、0.28～0.76 Bq/Lの範囲であり、既報と同程度の濃度レベルであった[3][4]。

西日本である広島県広島市、長崎県長崎市、鹿児島県鹿児島市で令和5年に採取された月間降水の測定結果は、それぞれ0.19～1.11 Bq/L、0.12～0.37 Bq/L、0.12～0.67 Bq/Lの範囲であり、北日本より低い傾向にあった。一方、我々はこれまでに継続して福島県浪江町において月間降水を採取し、その濃度レベルを明らかにしている[5]。令和5年の浪江町における測定結果は、0.06～0.84 Bq/Lの範囲であり、富岡町やいわき市と同程度であった。その他、文部科学省では環境放射能データベースとして近年の青森県むつ市、福島県福島市、千葉県千葉市、京都府京都市における月間降水中トリチウム濃度データを公開している(図13 ★印)。また、新潟県新潟市や茨城県つくば市、島根県松江市などでの観測結果も論文として公開されている(図13 ◎印)。これら報告されているデータの結果は、我々の観測結果における緯度分布と一致しており、春季に高く夏季に低くなる季節変動傾向、高緯度地域ほど濃度が高くなる傾向は日本全国で見られる現象であった。環境水を対象としたこれまでの報告値は、トリチウムもしくは安定同位体比のみの測定結果であり、両者を揃えたデータセットは貴重なものである。このことから、一般環境試料において光計測をした際にも、これらの影響をしっかりと理解した上でデータ解析する必要があると言える。

以上のように、トリチウム測定用高時間分解能大気水蒸気捕集装置を用いて、フィールドでの大気水蒸気捕集を行い、水素同位体比存在量を求めた。これらの測定結果から環境中のトリチウム水を光計測に適用する際には、バックグラウンドとなるトリチウムとその同位体による影響を考慮する必要がある、日本におけるバックグラウンド濃度、その同位体存在量等、基礎データを取りまとめ、環境中の低濃度トリチウム水の光計測のための指針(留意点)を得た。

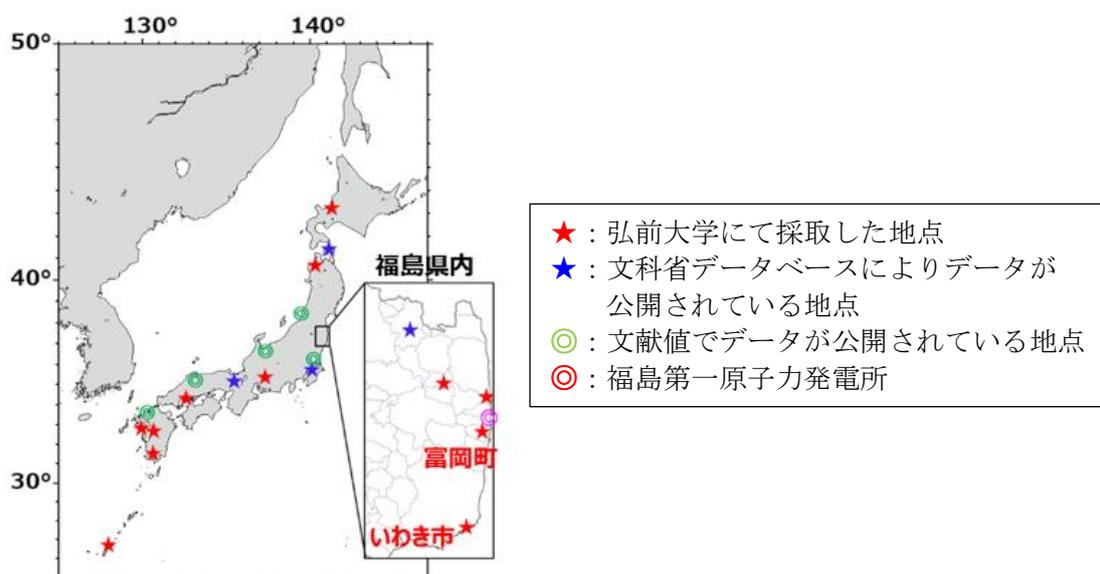


図13 日本における近年の降水中トリチウム濃度の測定地域



富岡町役場



福島県水産海洋研究センター

図 14 月間降水の取得の様子

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

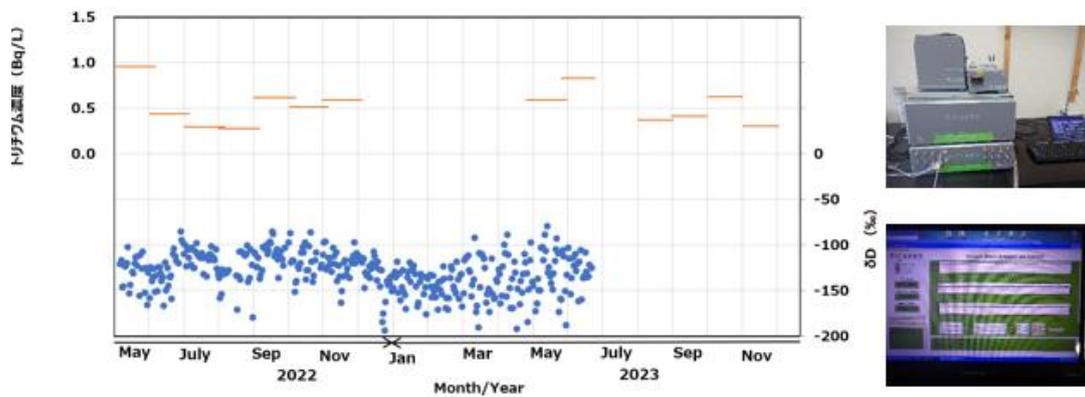
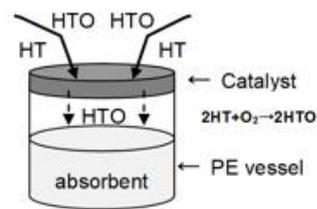


図 15 弘前市の大気水蒸気の δD とトリチウム濃度の関係

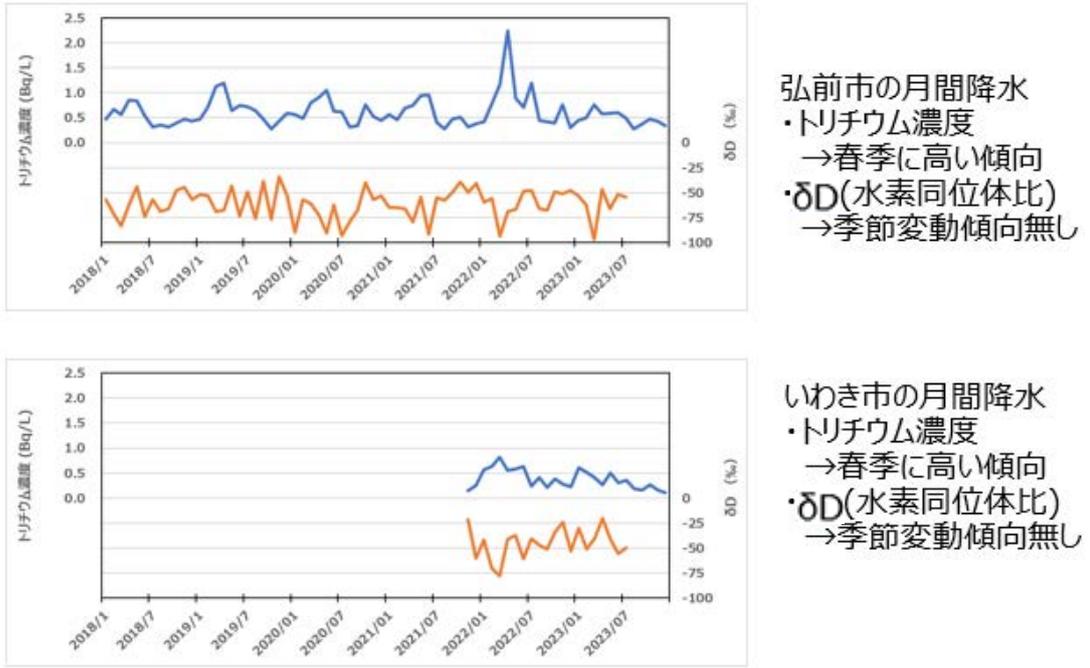


図 16 弘前市といわき市の降水の測定結果

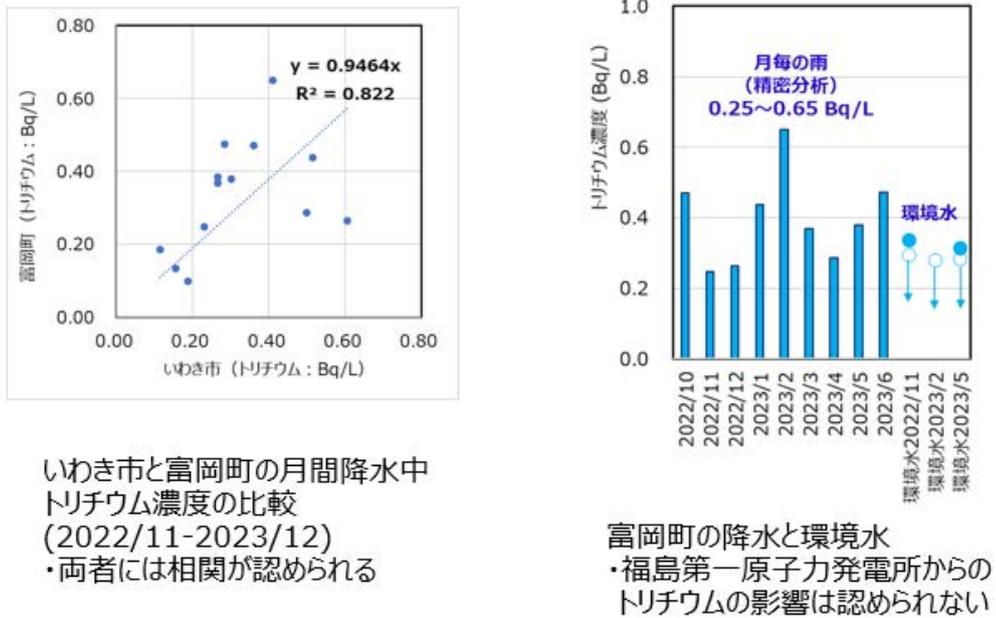


図 17 富岡町の降水の測定結果

3.2.3 まとめ

重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液を作製し、溶液の安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。調整済みのトリチウム水として、1,400 Bq/L、760 Bq/L、7,200 Bq/L 及び 570 Bq/L の 4 種類のサンプルの準備に成功した。また、屋外の同位体比計測の測定を行った。弘前市の月間降水から得られるトリチウム濃度は春季に高い傾向があるが、水素同位体比については、季節変動の傾向がないことがわかる。また、いわき市のトリチウム濃度も同様に春季に高い傾向があるが、水素同位体比については季節変動の傾向がない。各地点のトリチウム濃度を比較すると、弘前市での測定結果の方がより高い傾向にあり、これは緯度効果によると考えられる。結果はトリチウム水の光計測を行う際、バックグラウンド値として重要な指針(留意点)となる。

3.3 研究推進

【令和4年度まで】

令和3年度は、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。研究グループで、Web会議システムを用いた打合せ、メールでの意見交換等を行い、連絡を密に研究を進めた。1月28日に小山P0 (Project Officer) 等と中間フォローを行い、研究状況の確認と今後の進め方について議論した。

令和4年度は、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。研究グループで、Web会議システムを用いた打合せ、メールでの意見交換等を行い、連絡を密に研究を進めた。12月8日に森P0等と中間フォローを行い、研究状況の確認と今後の進め方について議論した。

【令和5年度】

令和5年度は、過去2年に問題となっていたコロナ禍の影響からようやく抜け出し、機動的な研究推進が可能となり、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、研究を進めることができた。コロナ禍で得られたツールであるWeb会議システムを用いた打合せ、メールでの意見交換等を活用しながら、弘前大学での中間フォローをはじめとした対面での情報交換及び研究推進も行った (表2)。

これらの結果、令和5年度は当初の目標を達成することができ、本課題の目標に掲げた原理実証とトリチウム水測定への見通しについて大きく進展した。

表2 全体会合の実施状況

令和5年度			
第1回	令和5年4月21日	オンライン	令和4年度の成果報告 令和5年度の業務計画
第2回	令和5年10月25日	弘前大学	令和5年度の研究進捗状況の報告
第3回	令和6年2月16日	オンライン	令和5年度の研究実施状況の報告

なお、これまでの研究成果は国際的に著名な雑誌である、Nature Photonics (Nature Photonics 17, pp. 468-469 (2023)) に注目すべき研究として取り上げられるとともに、令和4年度には、当該分野の主要雑誌である、Optics & Laser Technology誌 (IF=5) に出版する等の成果を上げている。令和5年度の研究成果についても、当該分野での主要雑誌である [Infrared Physics & Technology 136, 2024] に発表し、レーザー学会年次大会では、安原等により、招待講演を行った。さらに、レーザー吸収分光の実験結果については、現在投稿準備中である。

4. 結言

本研究は、中赤外レーザーを用いたキャビティリングダウン計測システムによる「濃度 60 Bq/cc レベル」トリチウム水短時間計測の原理実証を成果目的とする。令和 5 年度は、(1)キャビティリングダウン装置に関する研究及び(2)環境条件下における水素同位体組成評価と標準試料作製(再委託先:弘前大学)を行った。(1)においては、乾燥空気をパージした光学実験装置を構築し、ガスセル中に充填した種々の水素同位体・酸素同位体で構成される水蒸気の中赤外吸収分光計測に成功した。さらに、中赤外レーザー吸収分光での課題である光源の高出力化について、独自の量子カスケードレーザー、固体レーザーを開発し、最大出力 390 mW までの光出力増大を実証した。また、この時の線幅は 30 MHz と吸収分光計測に適応可能な狭線幅光源性能であった。光路長の増大に際して課題となる、高出力光源の具体的な実現方法を実証した。

これらの取り組みにより、当初の目的であるトリチウム水のレーザー吸収分光について技術的な見通しを得た。なお、令和 5 年度の研究成果について、当該分野での主要雑誌である [Infrared Physics & Technology 136, 2024] に発表した。さらに、レーザー吸収分光の実験結果については、現在投稿準備中である。(2)においては、重水標準溶液を利用して水素同位体標準溶液を作製し、溶液の安定水素同位体比及びトリチウム濃度を決定した。結果として、1,400 Bq/L、760 Bq/L、7,200 Bq/L 及び 570 Bq/L の 4 種類のサンプルの準備に成功した。また、屋外の同位体比計測の測定を行った。弘前市の月間降水から得られるトリチウム濃度は春季に高い傾向があるが、水素同位体比については、季節変動の傾向がないことがわかる。また、いわき市のトリチウム濃度も同様に春季に高い傾向があるが、水素同位体比については季節変動の傾向がない。各地点のトリチウム濃度を比較すると、弘前市での測定結果の方がより高い傾向にあり、これは緯度効果によると考えられる。結果はトリチウム水の光計測を行う際、バックグラウンド値として重要な留意点となる。

令和 5 年度は、過去 2 年に問題となっていたコロナ禍の影響からようやく抜け出し、機動的な研究推進が可能となり、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、研究を進めることができた。コロナ禍で得られたツールである Web 会議システムを用いた打合せ、メールでの意見交換等を活用しながら、弘前大学での中間フォローをはじめとした対面での情報交換及び研究推進も行った。

これらの結果、令和 5 年度は当初の目標を達成することができ、本課題の目標に掲げた原理実証とトリチウム水測定への見通しを得た。

トリチウム水の測定に関して、ホット環境下での測定が可能な名古屋大学の放射線施設を利用することを想定していたが、ホット環境下での測定では、光学機器の感度調整やアライメントに莫大な労力を要することと、本研究の資金等の研究リソースの制限の中、最も効率的で合理的な方法を検討して実験にあたった。その結果、安定同位体である重水リッチの模擬トリチウム水を用いた計測結果から推察することで、当初の目的の「トリチウム水の光計測の原理実証」は十分可能であると結論し研究を進めた。なお、本業務終了後も実験機器を移動して計測を行う予定である。

参考文献

- [1]. Pierre P. CHERRIER and John REID, HIGH-SENSITIVITY DETECTION OF TRITIATED WATER VAPOUR USING TUNABLE DIODE LASERS, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 257, 1987, pp.412-416.
- [2]. Ohta T, Fukutani S, Kuboita T, Mahara Y, Tritium concentration in the modern commercial D₂O reagents, Analytical Science, 2024.
doi.org/10.1007/s44211-024-00615-6
- [3]. Akata N, Kakiuchi H, Tanaka M, Ishikawa Y, Kurita N, Furukawa M, Hegedus M, Kovacs T, Gusyev M, Sanada T, Isotope and chemical composition of monthly precipitation collected at Sapporo, northern part of HJapan during 2015-2019, 2021.
doi.org/10.1016/j.fusengdes.2021.112434
- [4]. Kuwata H, Akata N, Okada K, Tanaka M, Tazoe H, Kurita N, Otashiro N, Negami R, Suzuki T, Tamakuma Y, Shiroma Y, Hosoda M, Monthly precipitation collected at Hirosaki, Japan; its tritium concentration and chemical and stable isotope compositions, 2022. doi.org/10.3390/atmos13050848
- [5]. Yamada R, Hasegawa H, Akata N, Kakiuchi H, Ochiai S, Kuwata H, Kheamsiri K, Tokonami S, Ueda S, Temporal variation of tritium concentration in monthly precipitation collected at a difficult-to-return zone in Namie Town, Fukushima Prefecture, Japan, Environ. Sci. Pollu. Res., 2024. doi.org/10.1007/s11356-023-31652-9

