

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
(委託研究)

—平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Analysis of Microparticles Generated by Laser Processing and
Development of a Methodology for their Nuclear Identification
(Contract Research)

-FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology
and Human Resource Development-

廃炉国際共同研究センター
東京大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
The University of Tokyo

福島研究開発部門
福島研究開発拠点

Fukushima Research Institute
Sector of Fukushima Research and Development

March 2020

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。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2020

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（委託研究）
－ 平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 －

日本原子力研究開発機構
福島研究開発部門 福島研究開発拠点

廃炉国際共同研究センター

東京大学

(2019 年 11 月 25 日受理)

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉国際共同研究センター（CLADS）では、平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成 30 年度「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」について取りまとめたものである。

レーザー加工は様々な長所を有するが、利用に際して多量の微粒子が発生することが知られており、放射性物質で汚染されている廃炉廃棄物に対する適用が躊躇されているが、その発生メカニズムは不明な点が多い。そこで、本研究は、その微粒子発生を基礎に立ち戻って検討するとともに、エアロダイナミックレンズを用いて微粒子を捕集することで粒径分布を測定し、さらに微粒子を構成する核種をレーザーによりオンラインで計測するための原理装置を開発する。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の委託業務として、東京大学が実施した成果に関するものである。

廃炉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

Analysis of Microparticles Generated by Laser Processing and Development of a Methodology for their
Nuclear Identification (Contract Research)
— FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource
Development —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

The University of Tokyo

Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received November 25, 2019)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), conducted the Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development (hereafter referred to “the Project”) in FY2018. The Project aimed to contribute to solving problems in the field of nuclear energy represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development was promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barriers 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 following the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA created 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 process are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the “Analysis of microparticles generated by laser processing and development of a methodology for their nuclear identification”.

Although laser processing has various advantages, one well-known disadvantage is that it generates a large amount of microparticles during the processing. Therefore, the application of laser processing to decommissioning waste contaminated with radioactive materials has been hesitant because the mechanism generating the microparticles has not been fully understood. In this study, the mechanism of microparticle production by laser processing is investigated from fundamentals. Also, we develop a laser on-line principle device to examine the nuclides present in the microparticles that are produced, based on the measurement of the particle size distribution by collecting the microparticles using aerodynamic lenses.

Keywords: Laser Processing, Laser Generated Microparticles, Decommissioning, Nuclide Detection Technique, Laser Spectroscopy

This work was performed by The University of Tokyo under contract with the 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
付録 成果報告書	5

Contents

1. Outline of Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development	1
2. Accepted Proposal in FY2018	2
Appendix Result Report	5

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。)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)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(平成31年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度採択課題

平成 30 年度は「共通基盤型原子力研究プログラム」、「課題解決型廃炉研究プログラム」、「国際協力型廃炉研究プログラム」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：平成 30 年 5 月 22 日（火）～6 月 22 日（金）
平成 30 年 5 月 22 日（火）～7 月 12 日（木）※日英共同研究のみ
- ・ 提案数：
共通基盤型原子力研究プログラム 49 課題（若手研究 14 課題、一般研究 35 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム 28 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 5 課題

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、その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、表 2-1 に掲げる 19 の採択課題を決定した。

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧（1/3）

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

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (2/3)

課題名	研究代表者	所属機関
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

【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

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (3/3)

課題名	研究代表者	所属機関
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	大学共同利用機関法人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

国際協力型廃炉研究プログラム (日仏共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
採択なし	—	—

本報告書は上記のうち、共通基盤型原子力研究プログラム【一般研究】「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」について記したものである。

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.

平成 30 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

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
(契約番号 30I113)

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人東京大学

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、国立大学法人東京大学が実施した平成 30 年度「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」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	iv
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 平成30年度の成果の目標および業務の実施方法	2.2-1
3. 平成30年度の実施内容および成果	
3.1 レーザー加工・評価	3.1-1
3.1.1 微粒子パラメータ依存性の検討	3.1-1
3.1.2 照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)	3.1-2
3.1.3 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)	3.1-4
3.2 微粒子捕集・計測	3.2-1
3.2.1 微粒子捕集の分布評価	3.2-1
3.2.2 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先：原子力機構)	3.2-2
3.3 微粒子原子化・核種同定	3.3-1
3.3.1 核種同定手法の開発	3.3-1
3.3.2 原子化手法の開発(連携先：原子力機構)	3.3-6
3.4 レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析	3.4-1
3.4.1 高速度カメラの画像データ解析開発(再委託先：レーザー総研)	3.4-1
3.5 研究推進	3.5-1
4. 結言	4-1

図一覧

図 2. 1-1	事業実施計画	2. 1-1
図 3. 1. 1-1	レーザー照射により発生する微粒子とその観察	3. 1-1
図 3. 1. 1-2	既存のチェンバーを用いた予備試験	3. 1-2
図 3. 1. 1-3	高速度カメラにより撮影した微粒子の飛散挙動	3. 1-2
図 3. 1. 2-1	試作したレーザー照射チェンバー	3. 1-3
図 3. 1. 2-2	試作したレーザー照射チェンバーを用いた予備試験	3. 1-3
図 3. 1. 3-1	試作した照射チェンバーを用いた予備試験結果 (t=10 ms 後)	3. 1-4
図 3. 1. 3-2	実験装置の写真 (原子力機構・檜葉遠隔技術開発センター)	3. 1-4
図 3. 2. 1-1	ステンレス鋼製配管中のナトリウムエアロゾルの伝送効率の計算結果	3. 2-1
図 3. 2. 2-1	微量ナトリウム分析装置	3. 2-3
図 3. 2. 2-2	空力学レンズの粒子透過特性	3. 2-3
図 3. 2. 2-3	イオン源	3. 2-5
図 3. 2. 2-4	V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル	3. 2-6
図 3. 2. 2-5	W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル	3. 2-7
図 3. 2. 2-6	エアロゾル質量分析計の設置状況 (正面側)	3. 2-7
図 3. 2. 2-7	エアロゾル質量分析計の設置状況 (制御部背面)	3. 2-8
図 3. 2. 2-8	V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル (檜葉)	3. 2-8
図 3. 2. 2-9	W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル (檜葉)	3. 2-8
図 3. 2. 2-10	チョッパの外観	3. 2-10
図 3. 3. 1-1	製作した 405 nm ECDL システムの外観	3. 3-2
図 3. 3. 1-2	フラッシング作業の様子	3. 3-5
図 3. 3. 1-3	405 nm ECDL の注入電流と光強度の関係	3. 3-6
図 3. 3. 2-1	構築した微粒子の原子化基礎実験用装置の構成	3. 3-8
図 3. 3. 2-2	原子化による透過光の吸収の代表例	3. 3-9
図 3. 3. 2-3	原子化レーザーのタイミングによる吸収パルスの変化 上からアブレーション後 10、50、90ms	3. 3-10
図 3. 3. 2-4	フラグメンテーションで生じたカルシウム原子の吸収スペクトル	3. 3-11
図 3. 3. 2-5	フラグメンテーション光 (627 nm) のパルスエネルギーに対する吸光度の変化	3. 3-12
図 3. 4. 1-1	レーザー照射サンプルで発生したプルームからの微粒子発生過程の概念図 [5, 6]	3. 4-1
図 3. 4. 1-2	サイズ 60mm×60mm×30mm のステンレス鋼 (SUS304)	3. 4-2
図 3. 4. 1-3	厚さ 10 mm の重コンクリート	3. 4-2
図 3. 4. 1-4	直径 9 mm のシリンダー状アルミナ	3. 4-2
図 3. 4. 1-5	レーザー照射時の光学系	3. 4-3
図 3. 4. 1-6	QCW レーザー照射の時間波形 (ハッチングの部分)	3. 4-3

図 3.4.1-7	ステンレス鋼(SUS304)サンプルにレーザーを上方向から垂直下向きに照射したときのプルーム	3.4-4
図 3.4.1-8	重コンクリートサンプルにレーザーを上方向から垂直下向きに照射したときのプルーム	3.4-5
図 3.4.1-9	アルミナ(セラミックス)サンプルに上方向から垂直下向きにレーザーを照射したときのプルーム	3.4-5

This is a blank page.

概略

廃炉に向けたレーザーの活用には、レーザー診断、レーザー加工等がある。レーザー加工技術には構造物の切断、はつり、破砕等がある。レーザー加工技術の特長は(1)小型ヘッドとフレキシブルな光ファイバーによる狭隘部加工が可能、(2)制御されたレーザービームによる切断幅 \sim mm が可能。他の熱加工に比べ溶融量が小さいこと、(3)加工時に反力がほとんどないので、加工装置の保持が比較的容易であること、(4)材料による加工の難易度が比較的少なく、金属、金属酸化物(セラミックス)、コンクリートとそれらの混合物等への適用が可能であること、(5)水中加工も可能であること等での特長を有している。一方、課題は、(1)熱加工特有の有害な各種微粒子が発生すること、(2)水中加工では加工ヘッドにガス噴射装置が取り付けられ、空洞を形成しレーザーを伝送する手法がとられ、泡による微粒子の移行が起こること、(3)加工効率の把握と向上、が挙げられる。原子力損害賠償・廃炉等支援機構(NDF)の6つの課題の基本方針の中で④廃炉工程で発生する放射性微粒子挙動の解明で、予想される多量の α ダストの対策、閉じ込め管理の必要性が記載されている。熱加工特有の発生微粒子の量、サイズの分布等は計測されているが、その閉じ込めを考えると発生、成長、移行過程を踏まえた性状の分析手法の開発が急務である。とりわけ、サイズが $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子の閉じ込め法が安全性の観点で重要であることから、本研究の主要な研究対象とする。さらに廃炉にとって重要な水中加工ではこれにマイクロバブルが絡んだ発生、成長、移行プロセスも確認されており、複雑な過程が関係している。すでに原子力機構等により発生する微粒子の量とサイズの分布を各種切断方式において試験が行われ、比較対比されているが、それらに加えて発生微粒子の物理的、化学的性質、元素分析等が、回収と処理法に密接に関係するため重要な課題になる。本研究では、レーザー加工に伴う発生微粒子に関する新しい性状分析手法の原理実証試験を行うことを目的とする。

廃炉では廃棄物がどの程度汚染しており、どのような処理処分方法が適するのかを定める上で、組成情報が重要である。また炉内構造物の核種組成は、事故の進展挙動を解明する上でも貴重となる可能性がある。精度の高い核種組成は、実績のある放射化学分析によるとしても、廃炉廃棄物の量が膨大で、汚染濃度も高いことを考慮すれば、分析施設に試料搬送するだけでも大きな時間的、経済的負担が生じる。このため、高度な分析にかかる試料のスクリーニング分析の必要性が指摘されている。レーザー分光分析手法はこうした要求にこたえられる数少ない遠隔核種分析法である。これは、NDFの6つの課題の③画期的なアプローチによる放射線計測技術のニーズにも合致したものである。廃炉作業において、解体加工の際に発生する微粒子からこうした情報が得られれば、改めて分析を行う負担が軽減する。また、レーザー加工の様々な段階で発生する微粒子の組成情報は、物質移行の機構解明にも有用である。さらに、微粒子による飛散放射性物質の監視により、加工作業そのものの安全性向上にも貢献できる。本研究は、レーザー加工で発生する微粒子を対象として、このような原子分光法による元素・同位体組成分析が可能であることを実証することを達成目標とする。

本研究で得られた知見は、廃炉における他の熱的加工や機械加工における微粒子の発生にも有益な知見を与えられると期待される。付加的な効果として、産業界において適用分野の拡大しているレーザー加工技術に伴う微粒子の移行に関し、本研究の分析法が役立つものと期待される。

デブリの切断によって生じる微粒子の粒径や元素・同位体組成を分析するためには、その性状の変化を伴う前処理(特に化学処理)を行わずにその場遠隔測定できることが重要で、そのために

は効率的かつその後の分析に供する形態で微粒子を捕集することが重要となる。特に、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径は $0.05\text{--}10\ \mu\text{m}$ とされ、この領域は拡散しやすいこともあり、吸引して吸着等により捕集する手法は困難を伴う。そこで、本研究では、空力学(エアロダイナミック)レンズを用いて微粒子の濃縮ビームを生成する革新的な手法を提案する。また、空力学レンズで生成されたビームは、微粒子の粒径に応じた速度分布を有するため、飛行時間法によりビームを破壊せずに粒径をその場測定する技術を開発できる。さらに、微粒子が濃縮されたビームは、狭い領域に働きかけるレーザー光との相性も良く、前段の粉塵発生部と後段のレーザーによる原子化やイオン化と組み合わせるオンライン化を図る。レーザー加工で生じる微粒子の元素・同位体組成を分光学的に知るには、散乱光等の観察では原理的に困難で、微粒子の原子化が不可欠である。本研究は、レーザー加工時に生じる微粒子等から原子吸光分析を行うため、様々な手法を適用し、分析に適した手法や動作条件の検討を行う。

以上を平成 30(2018)年度、令和元(2019)年度、令和 2(2020)年度にわたって遂行していく。

本報告書では、平成 30 年度の成果の概略を以下に述べる。

(1) レーザー加工・評価

① 微粒子パラメータ依存性の検討

試料設置とともにレーザー照射窓、微粒子取り出し口、空力学レンズ設置位置に関して検討を行った。

② 照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)

レーザー加工時に発生するヒューム、粉塵を回収するための照射チェンバーの試作を行った。また、試作したチェンバーを用いた予備試験としてデブリ模擬体(セラミックス、金属)や所有のコンクリートを用いてレーザー照射を行った。

③ 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

レーザー照射実験に参加し、高速度カメラによりレーザーと物質の相互作用の観察・記録を行った。

(2) 微粒子捕集・計測

① 微粒子捕集の分布評価

試料照射チェンバーと空力学レンズの 2 つに位置取りの調整と検討を行った。

② 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先：原子力機構)

既往研究で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体のレーザー照射で発生する微粒子の捕集の予備実験の準備を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を評価する手法を検討した。

(3) 微粒子原子化・核種同定

① 核種同定手法の開発

核種分析に必要な狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行った。

② 原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

レーザーアブレーションとレーザー共鳴分光を組み合わせた元素・核種分析装置を構築した。レーザーアブレーションで生じる微粒子を原子化し、原子やイオンの共鳴信号を観測した。共鳴信号強度やスペクトル分解能の観点から、分析に適した原子化手法や動作条件を検討した。

(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

① 高速度カメラの画像データ解析(再委託先：レーザー総研)

得られた画像データをレーザー技術総合研究所に持ち帰り、詳細な観察とレーザーと物質の相互作用に関する解析を行った。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉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、平成30年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

1. はじめに

廃炉に向けたレーザーの活用には、レーザー診断、レーザー加工等がある。レーザー加工技術には構造物の切断、はつり、破碎等がある。レーザー加工技術の特長は(1)小型ヘッドとフレキシブルな光ファイバーによる狭隘部加工が可能、(2)制御されたレーザービームによる切断幅 \sim mm が可能。他の熱加工に比べ溶融量が小さいこと、(3)加工時に反力がほとんどないので、加工装置の保持が比較的容易であること、(4)材料による加工の難易度が比較的少なく、金属、金属酸化物(セラミックス)、コンクリートとそれらの混合物等への適用が可能であること、(5)水中加工も可能であること等での特長を有している。一方、課題は、(1)熱加工特有の有害な各種微粒子が発生すること、(2)水中加工では加工ヘッドにガス噴射装置が取り付けられ、空洞を形成しレーザーを伝送する手法がとられ、泡による微粒子の移行が起こること、(3)加工効率の把握と向上、が挙げられる。熱加工特有の発生微粒子の量、サイズの分布等は計測されているが、その閉じ込めを考えると発生、成長、移行過程を踏まえた性状の分析手法の開発が急務である。すでに原子力機構等により発生する微粒子の量とサイズの分布を各種切断方式において試験が行われ、比較対比されているが、それらに加えて発生微粒子の物理的、化学的性質、元素分析等が、回収と処理法に密接に関係するため重要な課題になる。本研究では、レーザー加工に伴う発生微粒子に関する新しい性状分析手法の原理実証試験を行うことを目的とする。

廃炉では廃棄物がどの程度汚染しており、どのような処理処分方法が適するのかを定める上で、組成情報が重要である。また炉内構造物の核種組成は、事故の進展挙動を解明する上でも貴重となる可能性がある。精度の高い核種組成は、実績のある放射化学分析によるとしても、廃炉廃棄物の量が膨大で、汚染濃度も高いことを考慮すれば、分析施設に試料搬送するだけでも大きな時間的、経済的負担が生じる。このため、高度な分析にかかる試料のスクリーニング分析の必要性が指摘されている。レーザー分光分析手法はこうした要求にこたえられる数少ない遠隔核種分析法である。これは、NDFの6つの課題の③画期的なアプローチによる放射線計測技術のニーズにも合致したものである。廃炉作業において、解体加工の際に発生する微粒子からこうした情報が得られれば、改めて分析を行う負担が軽減する。デブリの切断によって生じる微粒子の粒径や元素・同位体組成を分析するためには、その性状の変化を伴う前処理(特に化学処理)を行わずにその場遠隔測定できることが重要で、そのためには効率的かつその後の分析に供する形態で微粒子を捕集することが重要となる。特に、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径は $0.05\text{--}10\mu\text{m}$ とされ、この領域は拡散しやすいこともあり、吸引して吸着等により捕集する手法は困難を伴う。そこで、本研究では、空力学(エアロダイナミック)レンズを用いて微粒子の濃縮ビームを生成する革新的な手法を提案する。また、空力学レンズで生成されたビームは、微粒子の粒径に応じた速度分布を有するため、飛行時間法によりビームを破壊せずに粒径をその場測定する技術を開発できる。さらに、微粒子が濃縮されたビームは、狭い領域に働きかけるレーザー光との相性も良く、前段の粉塵発生部と後段のレーザーによる原子化やイオン化と組み合わせることでオンライン化を図る。レーザー加工で生じる微粒子の元素・同位体組成を分光学的に知るには、散乱光等の観察では原理的に困難で、微粒子の原子化が不可欠である。本研究は、レーザー加工時に生じる微粒子等から原子吸光分析を行うため、様々な手法を適用し、分析に適した手法や動作条件の検討を行う。

2. 業務計画

2.1 全体計画

レーザー加工は様々な長所を有するが、利用に際して多量の微粒子が発生することが知られており、その発生メカニズムは不明な点が多く、放射性物質で汚染されている廃炉廃棄物に対する適用が躊躇されている。そこで、本業務ではその微粒子発生を基礎に立ち戻って検討するとともに、空力学レンズを用いて微粒子を捕集して粒径分布を測定し、さらに微粒子を構成する核種をレーザーにより計測するための原理装置の開発を行うことを目的とし、実施する。

事業実施計画を図 2.1-1 に示す。

項目	年度	平成30年度	平成31年度	平成32年度
(1) レーザー加工・評価 ① 微粒子パラメータ依存性の検討 (東大)		設計検討	照射試験 粒径測定	パラメータ依存性検討
		←→	←→	←→
② 照射試験及び微粒子発生挙動評価 (JAEA)		装置試作 予備試験	照射試験	微粒子発生挙動の評価
		←→	←→	←→
③ 相互作用の評価・解析 (レーザー総研)		観察	様々な試料での観察・記録	記録・評価
		←→	←→	←→
(2) 微粒子捕集・計測 ① 微粒子捕集の分布評価 (東大)		設置検討	設置 分布評価準備	捕集検討 分布評価
		←→	←→	←→
② 微粒子捕集及び微粒子の粒径分布計測 (JAEA)		予備実験準備	予備実験 装置検討・設計 装置製作	測定
		←→	←→	←→
(3) 微粒子原子化・核種同定 ① 核種同定手法の開発 (東大)		レーザー製作	微粒子の原子化	核種同定
		←→	←→	←→
② 原子化手法の開発 (JAEA)		装置の構築	微粒子光分解試験	分析性能評価試験
		←→	←→	←→
(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析 ① 高速度カメラの画像データ解析 (レーザー総研)		評価・解析	課題抽出 実験立案	総合評価
		←→	←→	←→
(5) 研究推進		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価
		←→	←→	←→

図 2.1-1 事業実施計画

(1) レーザー加工・評価

[研究目標]

レーザーをデブリ模擬体、コンクリート等に時間的、空間的に高度に制御された形で照射する。

[方法]

原子力機構保有の準連続(QCW)ファイバーレーザー装置と照射装置、チェンバーを用いる。微粒子回収のための照射チェンバーの試作を行うことで、発生微粒子の空間分布、量、形状の観察を可能にする。これに微粒子の測定、元素分析装置を接続する。

①微粒子パラメータ依存性の検討

試料設置とともにレーザー照射窓、微粒子取り出し口、空力学レンズ設置位置に関して検討を行う。

②照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)

レーザー加工時に発生するヒューム、粉塵を回収するための照射チェンバーの試作を行う。また、試作したチェンバーを用いた予備試験としてデブリ模擬体(セラミックス、金属)や所有のコンクリートを用いてレーザー照射を行う。

③相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

レーザー照射実験に参加し、高速度カメラによりレーザーと物質の相互作用の観察・記録を行う。

(2)微粒子捕集・計測

[研究目標]

空力学レンズによりレーザー切断時に発生する微粒子を捕集し、その粒径分布を測定する手法を開発する。

[方法]

既往研究で開発した空力学レンズを用いてレーザー切断による発生を模擬した微粒子を捕集する予備実験を行い、シミュレーションと比較して、レーザー切断時に発生する微粒子の捕集に最適な空力学レンズを開発する。また、微粒子の粒径を測定するため、高速回転する遮板によるチョッパやレーザー計測による飛行時間法で空力学レンズにより生成した微粒子ビームの速度分布を測定する技術を整備し、速度分布から粒径分布を評価する。

①微粒子捕集の分布評価

試料照射チェンバーと空力学レンズの2つに位置取りの調整と検討を行う。

②微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先：原子力機構)

既往研究で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体のレーザー照射で発生する微粒子の捕集の予備実験の準備を行う。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を評価する手法を検討する。

(3)微粒子原子化・核種同定

[研究目標]

レーザー加工で発生する微粒子の元素・同位体組成が、レーザー共鳴分光分析法を用いて計測可能であることを実証し、計測条件や分析性能を明らかにする。

[方法]

減圧希ガス中のレーザーアブレーションで生じる微粒子に強いパルス光や、放電等によるプラズマを作用させて原子化する予備実験を行う。発生した原子種に波長可変半導体レーザー光を透過させ、共鳴信号を観測する。アブレーションから原子化までの時間差や、パルス光のエネルギー、放電電圧等を変化させ、パラメータを最適化する。また、レーザー加工、微粒子捕集・測定装置と元素・各種分析装置を接続し、レーザー加工で得られる微粒子を同様に原子化して共鳴信号の観測を試みる。組成の異なる模擬試料を用いて共鳴信号を観測し、分析に適した動作条件や分析性能を評価する。

①核種同定手法の開発

核種分析に必要な狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行う。

②原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

レーザーアブレーションとレーザー共鳴分光を組み合わせた元素・核種分析装置を構築する。レーザーアブレーションで生じる微粒子を原子化し、原子やイオンの共鳴信号を観測する。共鳴信号強度やスペクトル分解能の観点から、分析に適した原子化手法や動作条件を検討する。

(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

[研究目標]

レーザー加工実験におけるレーザーと物質の相互作用に関する知見の整理と微粒子発生の知見をまとめ、実験計画策定に資すること。

[方法]

レーザー加工実験の高速度カメラによる記録データを詳細に分析し、これまでの知見を踏まえた解釈、解析を行い記録を積み上げてゆく。

①高速度カメラの画像データ解析(再委託先：レーザー総研)

得られた画像データをレーザー技術総合研究所に持ち帰り、詳細な観察とレーザーと物質の相互作用に関する解析を行う。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉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。

2.2 平成30年度の成果の目標および業務の実施方法

本年度の成果の目標および業務の実施方法は以下の通りである。

(1) レーザー加工・評価

① 微粒子パラメータ依存性の検討

試料設置とともにレーザー照射窓、微粒子取り出し口、空力学レンズ設置位置に関して検討を行う。

② 照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)

レーザー加工時に発生するヒューム、粉塵を回収するための照射チェンバーの試作を行う。また、試作したチェンバーを用いた予備試験としてデブリ模擬体(セラミックス、金属)や所有のコンクリートを用いてレーザー照射を行う。

③ 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

レーザー照射実験に参加し、高速度カメラによりレーザーと物質の相互作用の観察・記録を行う。

(2) 微粒子捕集・計測

① 微粒子捕集の分布評価

試料照射チェンバーと空力学レンズの2つに位置取りの調整と検討を行う。

② 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先：原子力機構)

既往研究で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体のレーザー照射で発生する微粒子の捕集の予備実験の準備を行う。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を評価する手法を検討する。

(3) 微粒子原子化・核種同定

① 核種同定手法の開発

核種分析に必要となる狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行う。

② 原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

レーザーアブレーションとレーザー共鳴分光を組み合わせた元素・核種分析装置を構築する。レーザーアブレーションで生じる微粒子を原子化し、原子やイオンの共鳴信号を観測する。共鳴信号強度やスペクトル分解能の観点から、分析に適した原子化手法や動作条件を検討する。

(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

① 高速度カメラの画像データ解析(再委託先：レーザー総研)

得られた画像データをレーザー技術総合研究所において、詳細な観察とレーザーと物質の相互作用に関する解析を行う。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉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. 平成 30 年度の実施内容および成果

3.1 レーザー加工・評価

3.1.1 微粒子パラメータ依存性の検討

試験に使用する照射チェンバーの設計を行うにあたり、試料設置とともにレーザー照射窓、微粒子取り出し口、空力学レンズ設置位置に関して、実験条件に適した設計を行うための検討を行った。レーザーは任意の方向から試験体に照射することができるが、本研究では図 3.1.1-1 に示すように試験体に対して上部より照射を行い、その様子を側面から高速カメラ等で観察することで、発生するヒュームおよび粉塵等の微粒子の挙動を評価することにした。大きな粒子は、重力等により試験体の周囲に落下するため、レーザー照射後に回収して観察することとし、小さな粒子は浮遊するため、これを捕集することで観察を行う。

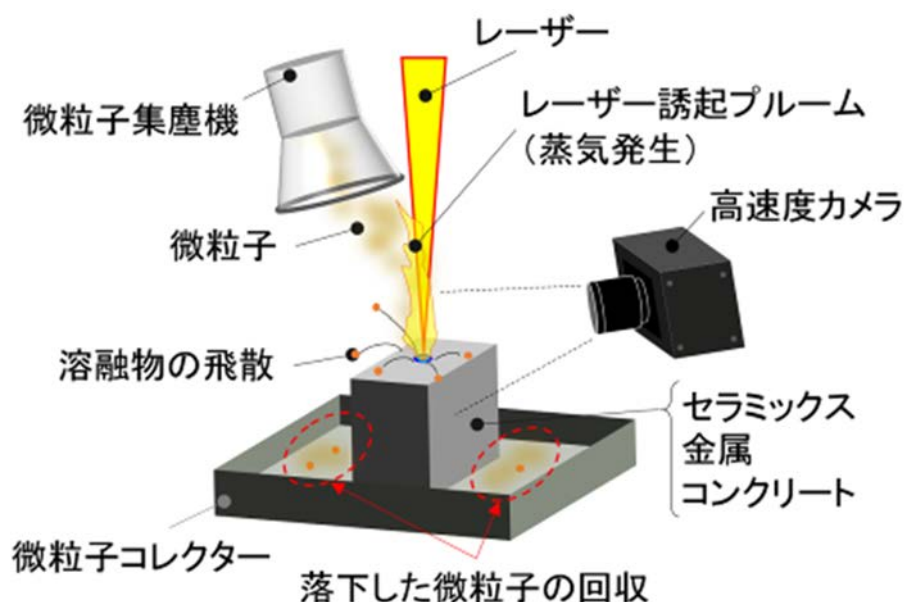


図 3.1.1-1 レーザー照射により発生する微粒子とその観察

図 3.1.1-2 に原子力機構で所有する既存の照射チェンバーを用いた予備試験の結果を示す。図 3.1.1-1 と同様の実験配置で金属に対し上部よりレーザー照射を行い、照射部の様子を側面より高速カメラで撮影を行った。図 3.1.1-3 に観察結果の一例を示す。レーザー照射部はレーザーエネルギーの入熱により溶融し、レーザーと同軸方向にレーザー誘起プルームが生成する様子が観察された。プルーム中には超微粒子が含まれることから、これらはこのプルームに乗って上部に拡散されていると考えられる。また、レーザー照射から 6.1ms 後には、照射部から溶融物が飛散する様子が観察された。このことから、比較的大きな粒子はレーザー照射部を中心に同心円状に拡散すると考えられる。

本研究で試作する照射チェンバーは、これらの微粒子を回収して分析する必要があることから、円柱状の容器とすることで周囲へ漏れない構造とすることとし、さらに円周上に観察用窓兼微粒子取り出し口を複数設置することで、任意の場所での観察および微粒子の回収を可能とする構造にすることとした。

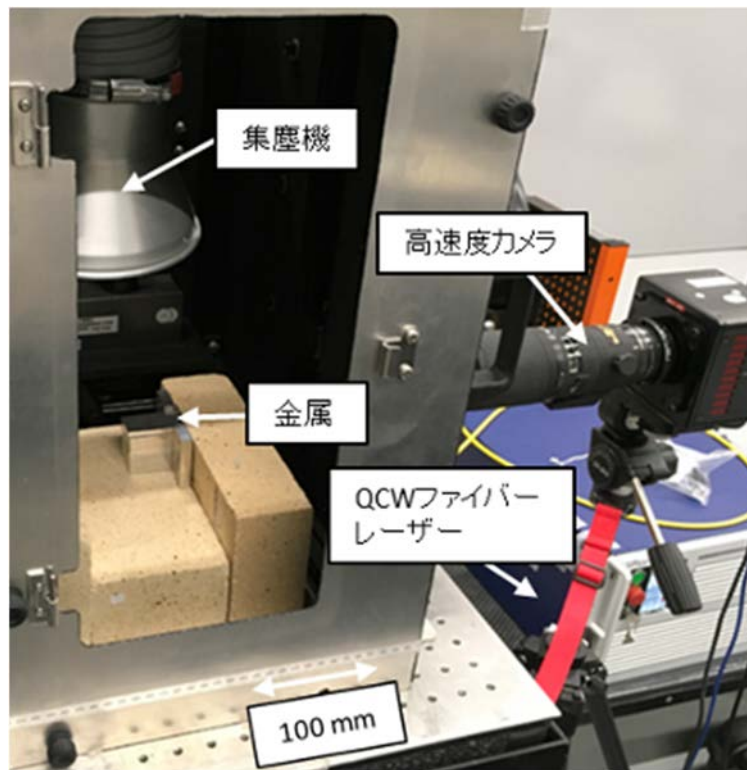


図 3.1.1-2 既存のチェンバーを用いた予備試験

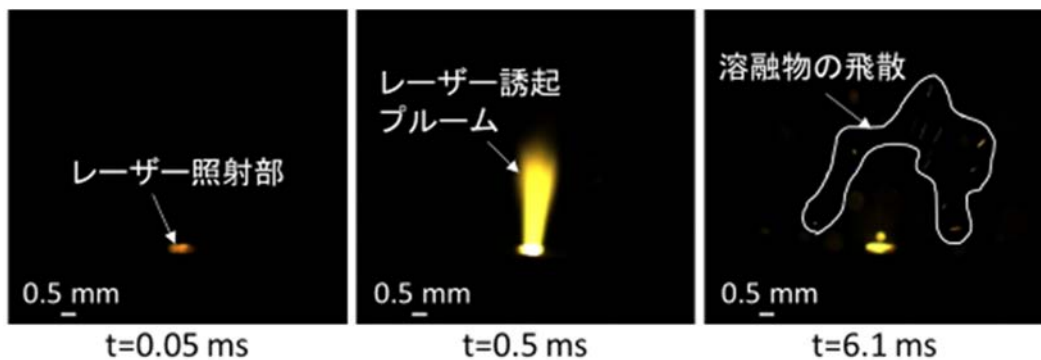


図 3.1.1-3 高速度カメラにより撮影した微粒子の飛散挙動

3.1.2 照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)

検討結果に基づきレーザー加工時に発生するヒューム、粉塵を回収するための照射チェンバーの試作を行った。図 3.1.2-1 に照射チェンバーの外観を示す。内部に試験体を設置し、上部の照射窓からレーザー照射を行う。上部フランジおよび下部フランジの取り外しが可能であり、試験体の交換や微粒子の回収はここから行う。観察窓は合計 12 ヶ所に設置しており、高速度カメラ等での観察を行える構造であるとともに、この窓に継手を設置することで、空力学レンズとの接続が可能である。図 3.1.2-1 では、中段に継手を設置しており、照射チェンバー内を浮遊した微粒子は、ここから空力学レンズへ導入される。

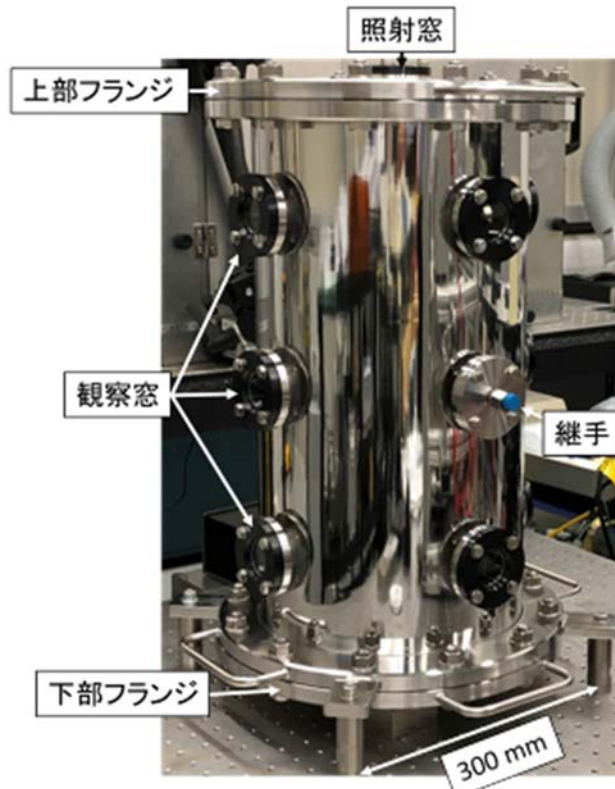


図 3.1.2-1 試作したレーザー照射チェンバー

図 3.1.2-2 に試作した照射チェンバーを用いた予備試験の様子を示す。試験体としてセラミックス、金属、コンクリートを照射チェンバー内に設置し、上部の照射窓よりレーザー照射を行った。結果については後述の 3.1.3 項に示すように仕様通りの性能を確認できた。

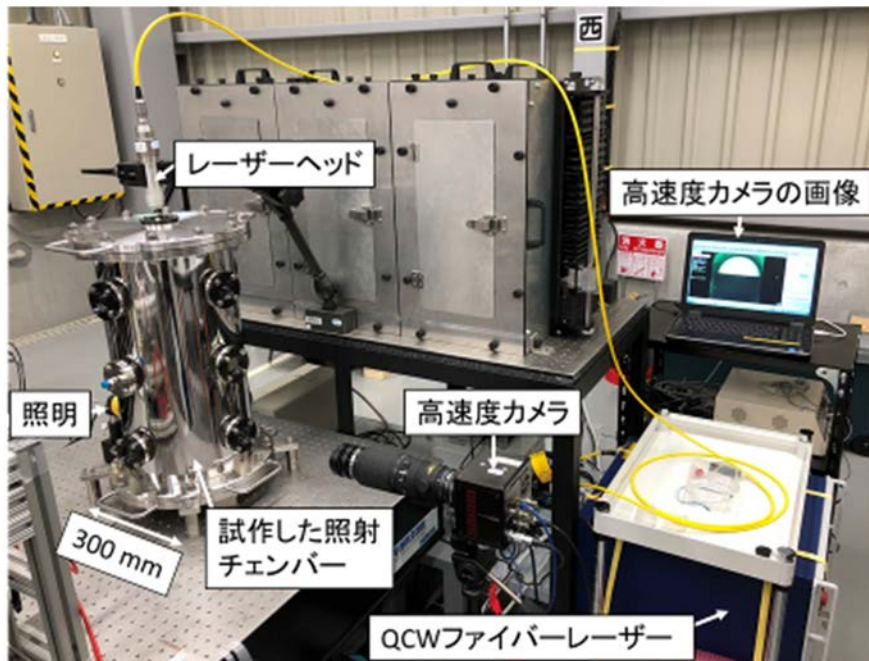


図 3.1.2-2 試作したレーザー照射チェンバーを用いた予備試験

3.1.3 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

原子力機構・櫛葉遠隔技術開発センターに設置されている準連続(QCW)ファイバーレーザーを用いた各種サンプルへのレーザー照射実験に本年度は1回あたり一週間にわたる実験を3回行った。同センターに設置されている高速度カメラを用いレーザー照射によるセラミックス、金属、コンクリートから噴き出したプルームの観察・記録を行った。図3.1.3-1に試作した照射チェンバーを用いた予備試験結果を示す。照射条件は、レーザー出力887W、パルス幅10ms、繰り返し周波数10Hz(1パルス目)、スタンドオフ：48cmであり、高速度カメラの撮影速度2000fps、露光時間0.5msである。レーザー照射条件は同じであるが、試験体により微粒子の発生挙動が異なることが確認できた。これらの照射チェンバーを用いて得られた記録や、図3.1.3-2に示す照射チェンバー完成前に行った予備試験結果については、レーザー技術総合研究所において、さらに詳細な画像観察とレーザーと物質の相互作用に関する解析を試みた。

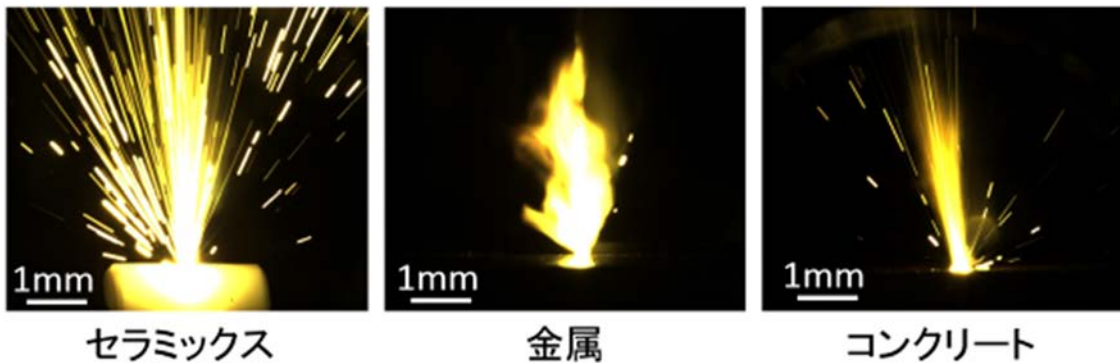


図 3.1.3-1 試作した照射チェンバーを用いた予備試験結果(t=10 ms 後)

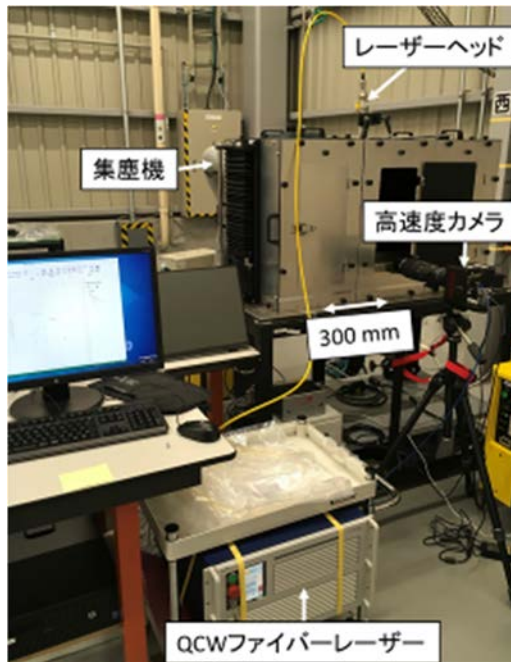


図 3.1.3-2 実験装置の写真(原子力機構・櫛葉遠隔技術開発センター)

3.2 微粒子捕集・計測

3.2.1 微粒子捕集の分布評価

レーザー加工により発生した微粒子を空力学レンズで捕集し、その粒径分布を評価するため、レーザー照射試験に使用する照射チェンバーと空力学レンズの位置取りについて検討した。

“1.はじめに”で述べたように、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径は $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$ とされている。既往研究において窒素ガス流体中のナトリウムエアロゾルの伝送効率のエアロゾル粒径分布依存性を計算した結果を図3.2.1-1に示す[1]。

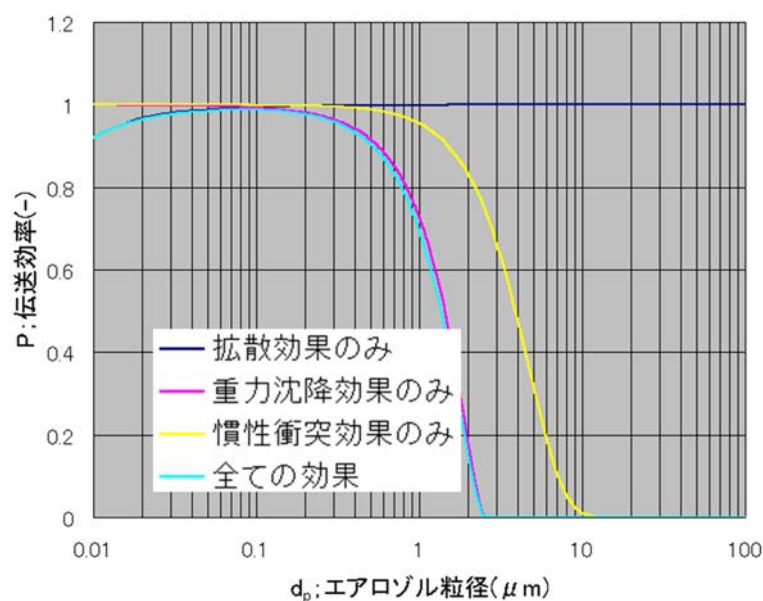


図 3.2.1-1 ステンレス鋼製配管中のナトリウムエアロゾルの伝送効率の計算結果

当該結果を参照すると、粒径 $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$ のエアロゾルにおいては、粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の領域では重力沈降の影響が大きく、粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以下の領域では拡散効果の影響が支配的である。両者の分岐点である粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 前後の領域では、伝送を抑制する因子がほぼ存在しない。これらより、照射チェンバー内にセットしたサンプルにレーザーを照射して発生させた微粒子は、粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の大粒径の粒子は沈降していく一方、粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以下の小粒径の微粒子は、気体のようにチェンバー内に拡散していくと考えられる。粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 前後の微粒子は、そのどちらの影響も小さく、チェンバーの継ぎ手から空力学レンズ側への空気の流れを発生させた場合、最も効率よく空力学レンズへ移行することが予想される。

これらより、チェンバー内で発生した微粒子のプルームの発生後の挙動を調査できるよう、重力沈降の効果を観察するためチェンバーの鉛直方向に複数の継ぎ手を設置できるとともに、拡散効果を観察するためプルーム発生場所を取り巻くように鉛直方向に加えて周方向にも複数の継ぎ手を設置できるようにポートを設けたレーザー照射チェンバーを設計した。この設計によるレーザー照射チェンバーの概念図を図3.2.1-2に示す。

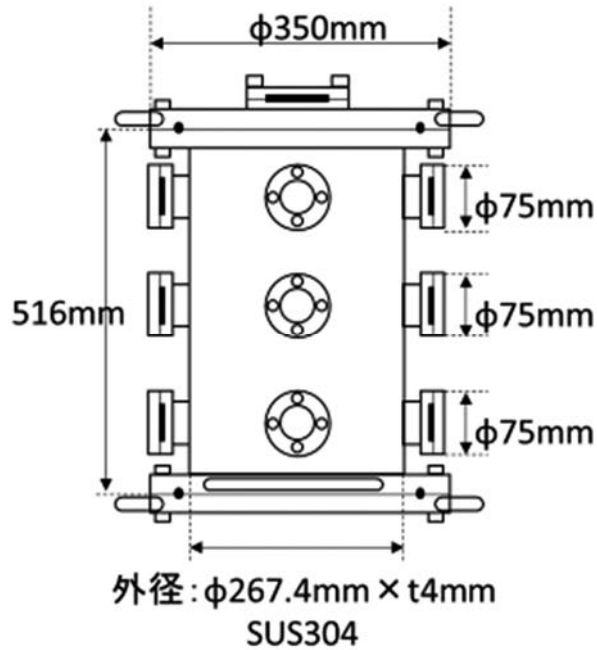


図 3.2.1-2 レーザー照射チェンバーの設計概念図

また、接手は、レーザー照射チェンバーと空力学レンズへの導入部において慣性衝突の影響が生じないように、側壁面から垂線方向に直管で空力学レンズまで導かれる構成とした。この設計結果は、3.1.2 項に示すレーザー照射チェンバーの試作に反映され、レーザー照射チェンバー試作・据付後、レーザー照射チェンバーと空力学レンズ側の位置取りの調整が行われた。

3.2.2 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測（連携先：原子力機構）

レーザー加工により発生した微粒子の捕集技術の開発に向けて、既往研究[2]で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体へのレーザー照射で発生する微粒子の捕集の予備実験の準備を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を評価する手法を検討した。

(1) 微粒子捕集予備実験の準備

過去に実施したナトリウム冷却型高速炉におけるナトリウム微少漏えい検知技術の開発に関する研究において、高速炉の冷却系配管から漏えいしたナトリウムにより発生するナトリウムエアロゾルを空力学レンズで捕集し、質量分析によりナトリウム核種を分析する技術を開発した[3]。この技術開発において試作した空力学レンズおよびエアロゾル質量分析計から構成される微量ナトリウム分析装置の概略を図 3.2.2-1 に示す。

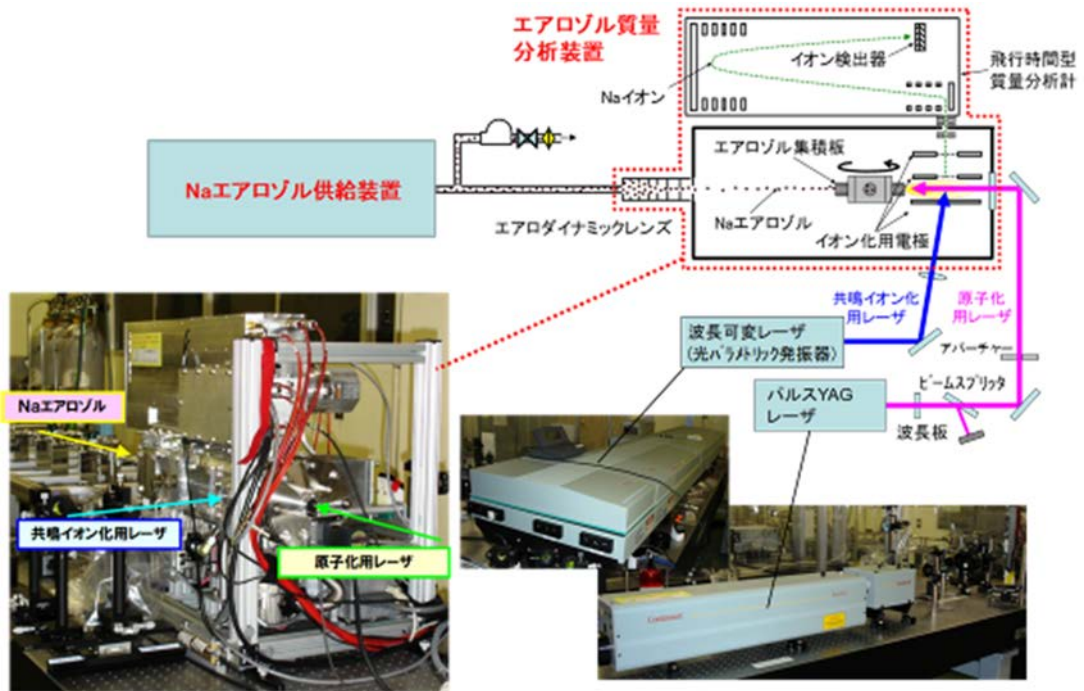


図 3.2.2-1 微量ナトリウム分析装置

空力学レンズは、Zhang らにより開発され[4]、直径 1/2 インチのステンレス鋼製の直管の内部に軸方向へオリフィスおよびノズルが連なったものである。これらのオリフィスによって粒子は細いビーム状に整流される。粒子の運動は以下の Stokes 数により記述される。

$$Stk = \frac{\rho D_v^2 C_c U}{18\eta\chi L} \quad (1)$$

ここで、 Stk は Stokes 数、 ρ は密度、 D_v は体積等価粒径、 C_c はすべり補正係数、 U は速度、 η は粘性係数、 χ は形状因子、 L はオリフィス径を示す。

空力学レンズの粒子透過特性については、過去、PM2.5 等の大気汚染物質等がメンテナンスであった同レンズについては、前述の研究では、高温の液体金属ナトリウムが窒素と酸素の混合ガス（高速炉の一次冷却系配管からの漏えいを模擬し、酸素含有率を 1%未満に調整している。）と接触して発生するナトリウムエアロゾルの捕集を目的として空力学レンズを新たに設計し、シミュレーションでは概ね粒径 0.06 ~ 2 μm のエアロゾルが通過する設計の空力学レンズを開発した。開発した空力学レンズの粒子透過特性の粒径（空力学径）依存性を図 3.2.2-2 に示す。

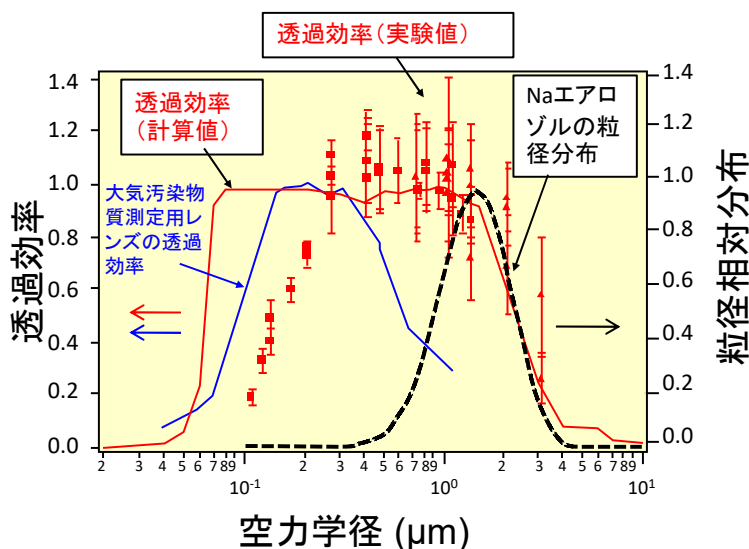


図 3.2.2-2 空力学レンズの粒子透過特性

この粒径の領域は、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径とされる $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$ 大部分を含み、かつ、伝送（透過）挙動の粒径依存性が変化する $0.1 \mu\text{m}$ 前後の領域を含む。図 3.2.2-2 では、シミュレーションにおいては、粒子の化学系は密度や粘性係数に畳み込まれている。一方、実験では、粒径がよく分かっていて制御できる硝酸アンモニウムとポリスチレンラテックスを用いており、ナトリウムエアロゾルや本研究でターゲットとしている模擬デブリや原子炉構造材（重金属やステンレス鋼の主要成分、ジルコニウム等）とは特性が異なる可能性はある。これより、この設計の空力学レンズは、レーザー切断時に発生する微粒子の捕集へ適用できる可能性があることから、同装置を用いて微粒子捕集予備実験を行うこととし、同装置を整備した。

同装置の質量分析部は、Aerodyne Research, Inc. 製 高分解能 TOFMS 搭載型エアロゾル質量分析計 WToF-AMS をベースとし、図 3.2.2-1 に示すようにレーザー共鳴イオン化への改造を行ったものであるが、本研究では、微粒子捕集とともに粒径計測を目標とすることから（詳細は後述する。）、同装置の開発のベースとした標準型に戻して予備実験を行うこととした。

既往研究は、原子力機構大洗研究開発センター（現・同機構大洗研究所）で行われ、同装置も大洗研究所に設置されていた。これを標準型へ戻すとともに整備を行い、使用できることを確認して、レーザー照射実験と接続して微粒子捕集実験を行う檜葉遠隔技術開発センターへ輸送し、据付、調整、試運転を行った。

イオン源部をレーザー共鳴イオン化用から標準型に搭載されていた電子衝撃型へ戻すため、標準仕様のイオン源を取り付け、抵抗加熱炉、熱電対の導通確認、イオン源各部の絶縁について問題がないことを確認した。取り付けた標準型イオン源を図 3.2.2-3 に示す。

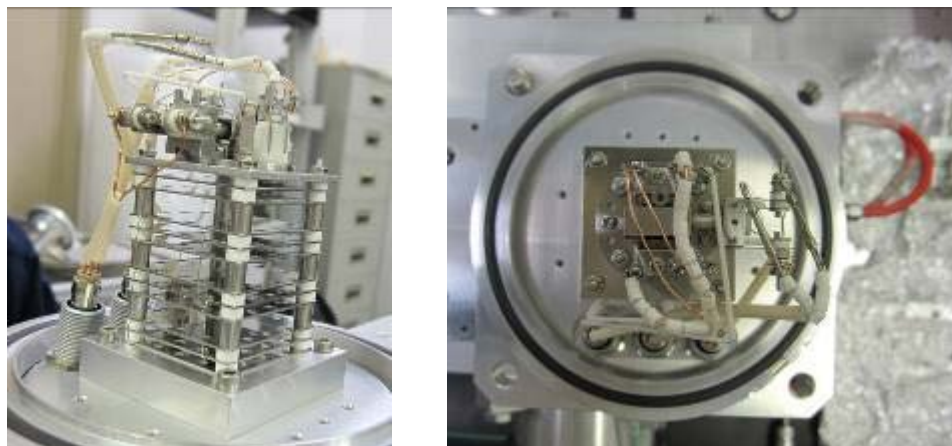


図 3.2.2-3 イオン源

続いて、イオン化チャンバーの円筒を共鳴イオン化用レーザーが通過するための穴あき仕様のものから、標準型の穴なしのものへ交換した。装置構成を標準型に戻した後、制御用パーソナルコンピュータを起動し、同パーソナルコンピュータが正常に稼働することを確認した。

装置各部の確認まで終了できたので、前段真空ポンプの電源を投入して装置内部の真空引きを開始し、その後、合計 5 台のターボ分子ポンプの電源も順次投入して真空引きを行った。この間、並行して、質量分析部の制御信号線、データ信号線等の結線を行った。

すべてのターボ分子ポンプの回転数が定格回転数に到達した後、19 時間真空引きを継続して、質量分析部（飛行管内）の真空度が 1×10^{-3} Pa 以下まで到達したことを確認した。なお、ターボ分子ポンプの排圧が、装置新規時から上昇しており、前段真空ポンプの劣化が示唆されたので、今後メンテナンスを検討する。

真空度 1×10^{-3} Pa 以下到達後、イオン源の抵抗加熱炉に電源を投入した。抵抗加熱炉への通電電流量を調整しながら抵抗加熱炉の温度が 500°C を超えるまで昇温できることを確認した。続いて、質量分析部の高圧電源を印加し、イオン化部のタングステンフィラメントが発光したことをイオン化チャンバーの窓から目視確認し、測定の準備が整ったことが確認できた。

本装置は、飛行時間型質量分析部によるリフレクトロンを 1 回経由する V-ToF モードとリフレクトロンを 3 回経由する W-ToF モードを有する。感度については V-ToF モードが高感度で、質量分解能については W-ToF モードが高分解能であり、分析対象の種類や濃度、要求精度等に応じてモードを切り替えることができる。両モードにおいてバックグラウンドのマスペクトル測定を行い、各電源等のパラメータ調整、キャリブレーション等を実施し、バックグラウンドのマスペクトル測定を行った。

V-ToF モードおよび W-ToF モードにおけるマスペクトルを図 3.2.2-4 および図 3.2.2-5 に示す。

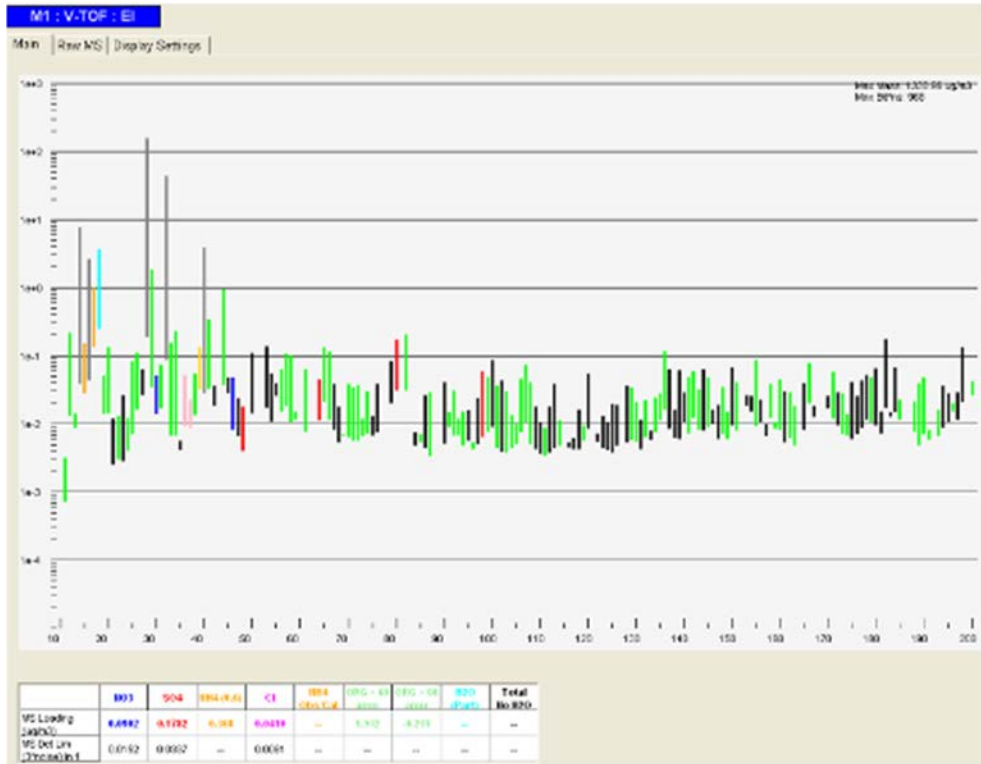


図 3.2.2-4 V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル

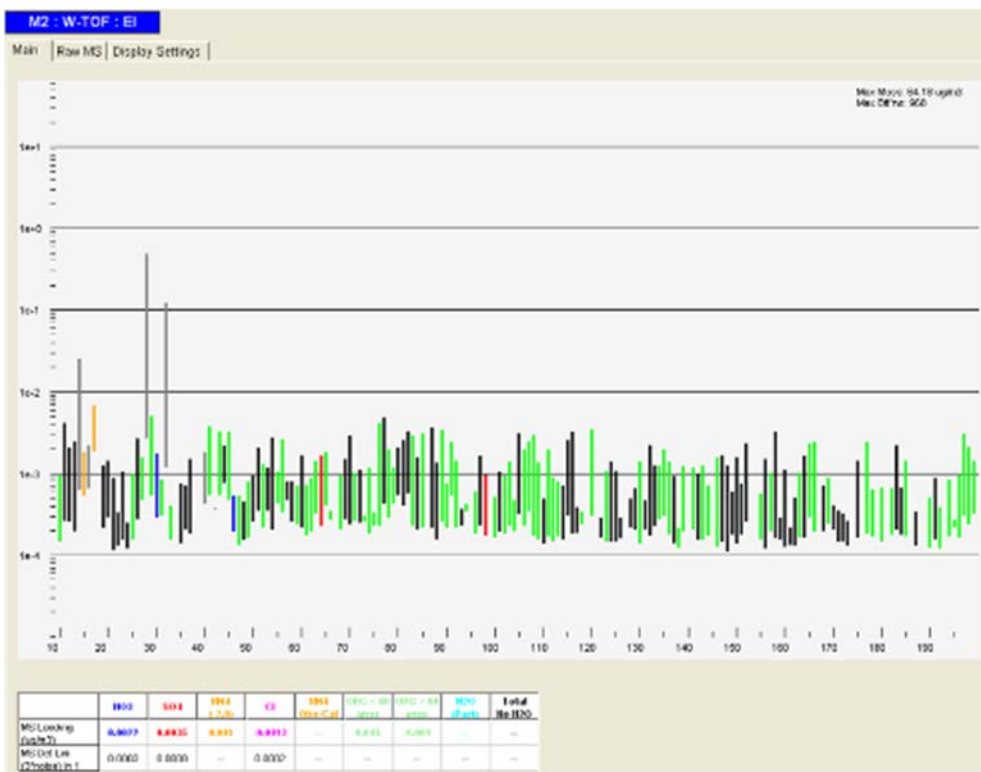


図 3.2.2-5 W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル

抵抗加熱炉、タングステンフィラメントともに長期間使用していなかったため、付着物、酸化物等が焼き出されて種々のピーク信号が検出されたが、測定を継続することにより、これらは減少し、空力学レンズを通過した空気ビームのピーク信号とフィラメント材であるタングステンのピーク信号からなるマススペクトルが測定されるようになった。

これより、空力学レンズとエアロゾル質量分設計が微粒子捕集予備実験に適用できると判断し、同装置を大洗研究所から檜葉燃核技術開発センターへ輸送し、装置を据え付け、電源ケーブル、質量分析部の制御信号線、データ信号線等の結線を行った。装置の設置状況を図 3.2.2-6 および図 3.2.2-7 に示す。

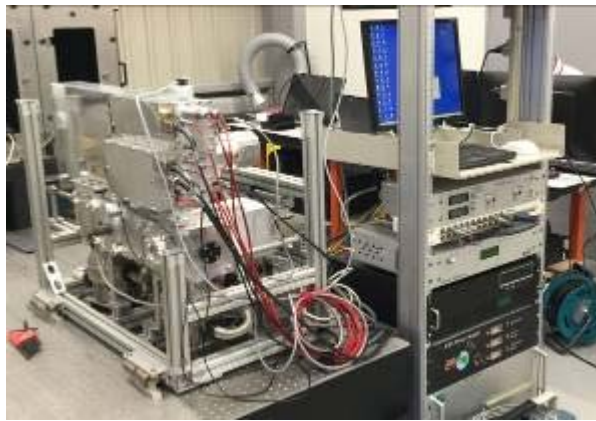


図 3.2.2-6 エアロゾル質量分析計の設置状況（正面側）

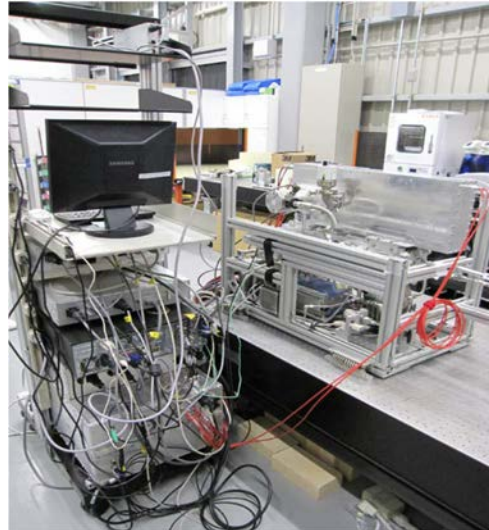


図 3.2.2-7 エアロゾル質量分析計の設置状況（制御部背面）

装置据付後、装置内部の真空引き、制御部起動、抵抗加熱炉、タングステンフィラメント、質量分析部各部への高圧電源印加について、大洗研究所での操作と同一手順により実施して同様に作動することを確認し、V-ToF モードおよび W-ToF モードにおけるマススペクトル測定を行った。得られたマススペクトル（空気成分領域）を図 3.2.2-10 および図 3.2.2-11 に示す。

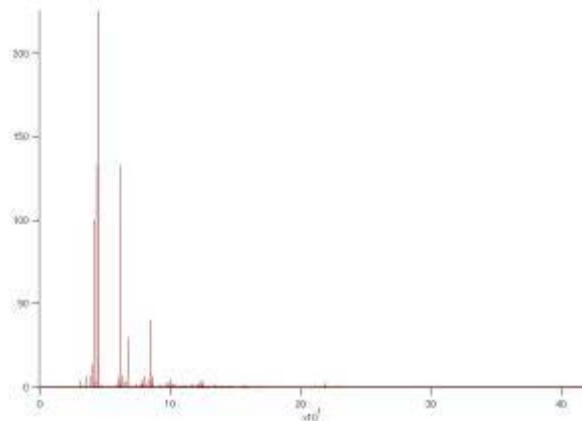


図 3.2.2-8 V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル (檜葉)

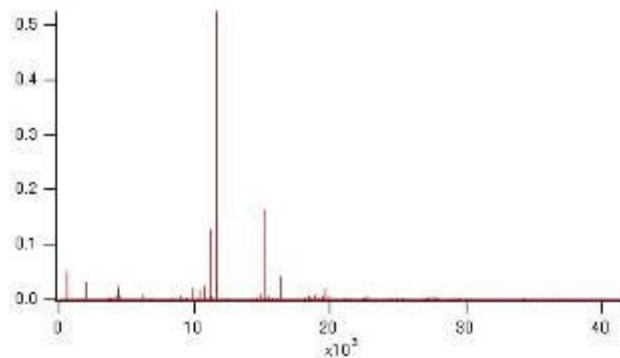


図 3.2.2-9 W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル (檜葉)

大洗研究所での測定と同様にバックグラウンドとして空気成分のマススペクトルが得られた。この結果から、大洗研究所で整備したエアロゾル質量分析計が檜葉遠隔技術開発センターでセットアップされ、レーザー切断時に発生する微粒子を捕集する予備実験の準備ができた。

(2) 微粒子の粒径分布評価手法の検討

空力学レンズは、前述のとおりステンレス鋼製の直管の内部にオリフィスおよびノズルが連なったもので、粒子の運動は Stokes 数（前述の式(1)）により記述され、最終段のノズルを出る際に、空気分子は急激な断熱膨張により $500 \sim 600 \text{ ms}^{-1}$ の超音速流となる。粒子は空気分子との衝突によって加速されるが、その速度は粒子の慣性に依存するため、粒径の違いによる速度差が生じる。この速度差を利用して、空力学レンズを透過した微粒子ビームの飛行時間を計測することにより粒径分布を測定する方法を検討した。

エアロゾル質量分析計には、空力学レンズの出口を出たところに 1 周期の 1 % に相当する開口面積のスリットを有し、 $100 \sim 150 \text{ Hz}$ で回転するチョップが取り付けられており、微粒子ビームを制御することができる。これを用いると、微粒子ビームは、連続線から周期的なパルスビーム状へ変調でき、既知の飛距離での粒子の時間分解検出により、粒子速度を求めることができ、それより、真空中の空力学径を得ることができる。

チョッパからイオン化部までの飛行距離は数 10 cm 程度であり、 $500 \sim 600 \text{ ms}^{-1}$ の超音速流では、 $700 \sim 800 \text{ ms}$ の飛行時間を要する。一方、矩形ビームの時間長は、概念的には $1/(100 \sim 150 \text{ Hz}) \times 1\%$ であり、 $70 \sim 100 \text{ ms}$ となることから、矩形ビームの時間長を超えて飛行し、粒径に依存した（飛行時間差による）分布が形成されることが期待できる。ここで、質量分析は、V-ToF モードで 20 kHz 、W-ToF モードでも 12 kHz で m/z （統一原子質量単位で表したイオンの質量と電荷の比）を走査できるため、個々の微粒子のマスペクトルを分析することが可能であり、粒子速度と m/z の情報を得ることができる。

ここで、エアロゾル質量分析計により測定される粒径は、真空中の空力学径 d_{va} であり、これと体積透過粒径 D_v の関係は以下のように表される。

$$d_{va} = \frac{\rho}{\lambda\rho_0} D_v \quad (2)$$

ここで、 ρ_0 は単位密度を表す。同じ体積透過粒径であっても密度が大きいほど真空中の空力学径は大きく、非球形であるほど小さくなる。

この手法を用いてエアロゾル質量分析計により微粒子の飛行時間が測定できるかどうか調査した。既往研究では、ナトリウムエアロゾルの粒径分布計測はイメージング法（微粒子を集積板で捕集し、その集積板表面を電子顕微鏡で撮像して、得られた画像に撮影された粒子の粒径を個々に測定する方法）を用いたため、チョッパは使用しておらず、既往研究で当該装置導入後、チョッパの操作は初めてとなることから、チョッパの外観、動作、制御等について調査し、令和元年度以降の実験準備に向けた整備項目を抽出した。

チョッパの外観を図 3.2.2-10 に示す。目視観察上、有意な傷等は認められなかった。エアロゾル質量分析計の整備後、チョッパ駆動部の電源を投入し、チョッパの回転数の調整、チョッパの台座の平行移動（チョッパを無効にする位置へずらすことができる。既往研究ではチョッパ無効位置で使用していた。）およびその位置の読み取りが正常に行えることを確認した。



図 3.2.2-10 チョッパの外観（窓の奥、スリットが手前側に見える。）

なお、既往研究では、チョッパを使用しなかったことから、チョッパの制御と質量分析計によるイオン信号の計測を同期するための配線がなされていない。チョッパを駆動した状態でのバックグラウンド測定等のシステム全体の操作については、チョッパと質量分析部の同期が可能となるように制御系を整備してから確認し、粒径測定に向けた整備を行っていく。

参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構、平成 21 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「レーザを用いた超高感度分析技術による高速炉のプラント安全性向上に関する研究」成果報告書 (2010)
- [2] Takafumi AOYAMA, Koki OKAZAKI, Chikara ITO, Hideki HARANO, Kenichi WATANABE and Tetsuo IGUCHI, “Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry - Design and Functional Test Using Prototype Sodium Detection System -”, Proceedings of ICAPP ‘09 Tokyo, Japan, May 10-14, 2009, Paper 9112 (2009)
- [3] C. Ito, Y. Araki, H. Naito, Y. Iwata, T. Aoyama, “Development of high sensitive and reliable FFD and sodium leak detection technique for fast reactor using RIMS,” Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Challenges and Opportunities (FR09). Proceedings of an International Conference held in Kyoto, Japan, 7-11 December 2009, 02-04 (2012)
- [4] Zhang, X., K.A. Smith, D.R. Worsnop, J.L. Jimenez, J.T. Jayne, and C.E. Kolb, “A Numerical Characterization of Particle Beam Collimation by an Aerodynamic Lens-Nozzle System. Part I: An Individual Lens or Nozzle”, Aerosol Science and Technology 36 617-631 (2002)

3.3 微粒子原子化・核種同定

3.3.1 核種同定手法の開発

核種分析に必要となる狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行った。レーザーシステムの光学系を調整することでフラッシングを確認した。

以下に具体的な内容について報告する。

(1) 狭帯域半導体レーザーシステム

半導体レーザーは、効率的なレーザー光源として広く利用されているが、レーザー分光分析に用いるにあたっては、多くのモードから1つのモードを選び出し、単一波長光を得る必要がある。また、高い精度でその波長を制御する必要がある。単一波長を得るためにモードを選択するには、半導体レーザーの外部に共振器を設置することで、単一モードを取り出すことが可能となる。また、発振波長の調整には、回折波長に角度依存を有する回折格子を利用できる。このような半導体レーザーに外部共振器を追加で設置するものは、外部共振器型半導体レーザー(External Cavity Diode Laser : ECDL)と総称されている。さらに波長調整に回折格子を利用するものは、Littrow型とLittman/Metcalf型という2つの形式がある。このうち、Littrow型は、半導体からのレーザー光を回折格子に照射して、その回折光を直接レーザーに返すことで、外部共振器と波長選別を同時に実現できるため、簡易な光学系で構成可能である。

具体的には、外部に設けた回折格子の格子間隔を d (m)、波長を λ (m)とすると、レーザーダイオード素子から出た光が回折格子と往復する距離が、隣り合う回折溝どうしで波長の整数倍だけ差がある条件を満たすとき、可干渉な放出光を強め合う事で、レーザー素子外部で $2d \cdot \sin \theta = n\lambda$ の条件のとき共振器となる。

(2) ECDLの組立てと調整

組立てを行ったECDLシステムは大きく分けてレーザーマウント、メインプレート、回折格子調整部の3つで構成される。

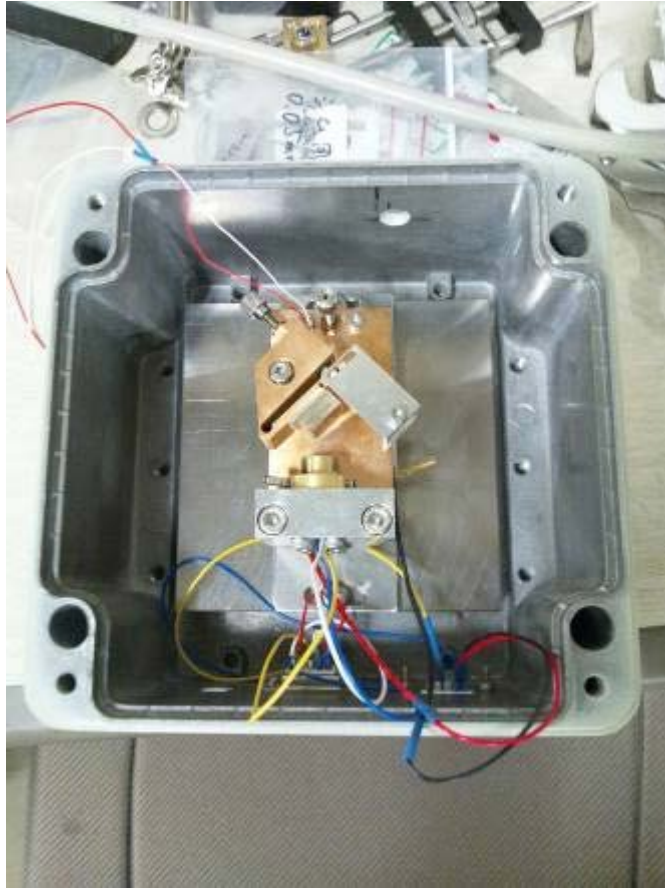


図 3.3.1-1 製作した 405 nm ECDL システムの外観

(3) レーザーマウントの組立て

まず、レーザーダイオード (LD) ホルダにコリメーションレンズ (Thorlabs 354710-A) を取り付ける。次に LD ホルダのコリメーションレンズとは逆方向に LD 素子 (Thorlabs DL5146-101S) を取り付け、リング状のネジで LD 素子を後ろから抑え、あらかじめケーブルを繋いでおいた LD ソケットに LD 素子の端子を挿す。LD の前方には下から支えるネジ (M4×ピッチ 0.5 mm) および、左右上方からの微調整ネジ (M3×ピッチ 0.25 mm) による 3 点支持で、LD 素子から出る光の軸の向きと角度、LD が LD ホルダ中に保持される位置が調整されるようになっている。平行光を得るためのコリメーション作業で行う LD 素子の位置調整が後のフラッシングに最も重要で、LD マウント中で LD の位置がホルダの中心かつ、コリメーションレンズに対して垂直、中心にくるように配置する必要がある。

LD を取り付けた LD ホルダをレーザーマウントに取り付けたら、メインプレートに取り付ける。メインプレートに取り付けた後、レーザー電源 (ARROYO INSTRUMENTS 4205 DUAL RANGE 250mA/500mA Laser Source) から電流制御で電流をかける。このとき閾値が 20 mA 前後であるので、その程度に電流値を抑えておく。

LD に電流を流すと閾値電流辺りで発光する。この状態で LD からの光軸は光学台の水平より大きくずれている。まず、コリメーションレンズを固定しているリング状のネジで数度程度角度をずらしながらレンズ位置を前後に調整し、LD 近くから室内の壁の近くや壁ま

で、できるだけ近くで焦点を結ばずに、遠くでもビーム半径が広がらないように調整する。

光学台やベースプレート部材、レーザーマウント等は、 ~ 0.01 mm を熱変形によるマテリアルの加工限界および、工作機械の特性とそれを補正する経験による機械精度で平行にできている。LD からの光軸が平らな光学台と極めて平行になるように、LD ホルダの微調整ネジの調整や LD ホルダへの LD の固定具合を探りながら根気よく調整を繰り返す。フォーカシング、コリメーション、アライメント等の作業を行う時には、赤外では感熱紙、カード型の IR ビューワ等に光を当ててビーム光の位置や形状を見るが、可視光では白い紙でよい。定規で高さを目盛りの 10 分の 1 で読みながら合わせるのが教科書的だが、もう少し簡便な方法としてしばしば名刺が用いられる。名刺は可視のレーザーが裏面にも程々に透けて見えるため、ECDL の戻りの回折光の調整で LD からの光と光軸位置を合わせやすい。また、2 mm 程度の小さな文字が目盛りで代わる目印となる。

40 cm 先で 4 mm 程度光軸が上に行くようであれば、レーザーマウントとメインプレート間に、厚さ 0.3 mm 分くらいまでのシムを挟む事で光軸を下へ 2 mm 程度なら下げて光軸を修正する事ができる。残る 2 mm 程度上までならベースプレートの調整で許容できる。但しそれ以上シムを挟むのは、フォーカシングレンズと LD 素子との間で角度のずれが大きいため、フラッシングに支障がある恐れが増すため、再度より正確に LD の調整を行う。

(4) 回折格子調整部の組立て

回折格子へ LD から入射する光の入射角 α 、回折角 β とすると、 $d \cdot \sin \alpha$ と $d \cdot \sin \beta$ を合せた分の光路長の差があり、 $d \cdot (\sin \alpha + \sin \beta) = m \cdot \lambda$ の関係(但し d は回折格子の格子間隔、 m は干渉次数)がある。入射角と反射角の大きさがともに θ として $2d \cdot \sin \theta = m \lambda$ (但し m は整数)となる。

回折格子の溝のスリット模様が縦縞上下方向に向き、左右に段々に並んでいるとき、LD からのビームの光軸が仮にわずかに上を向いていると、スリット面に垂直な方向に対して下から斜めにビームが入射する分だけ、反射光や回折光も上へ斜めに出ることになる。

また、回折格子の縦縞のスリット模様がわずかに回転して斜めに向いているとき、例えば反時計周りで左上から右下の縦縞模様になっている場合、回折光はスリットの縦縞模様に垂直な面方向に回折光を出すため、回折光の出る向きが次数ごとに左は若干下向きに、右は若干上向きにとずれて差が出てしまう。

回折格子は角度 θ に応じて奥行きのある斜めに配置しているため、1 本のスリット溝でも上側が手前、下側が奥に傾斜してしまい、1 本のスリットの中で LD からの距離が等しくなくなる。

そのため、回折格子調整部の組立てを行う際には、回折格子が回転方向に微調整できるような仕様にはなっていないので、回折格子の縦縞をできるだけ正確に上下に向くように取り付ける必要がある。

回折格子は機械精度で正方形の形状をしている。また回折格子調整部も上下の面は機械精度で平行にできていて、回折格子を貼り付ける面も機械精度で上下の面に垂直にできている。そこで、回折格子調整部の回折格子取り付け部分に両面テープを貼った後、精密な光学台の上に回折格子調整部と回折格子 (Thorlabs 社製 GR13-1850) を逆さまに置き、両

者を両面テープで貼り付ける事で、回折格子のスリットの向きを合わせた。

回折格子調整部は支点となるヒンジ機構と力点となるピエゾ素子取り付け部分があり、その間に回折格子を取り付ける。ふつうピエゾの伸縮量に対して、ヒンジに近く取り付けるとピエゾによる回折格子の動きが小さくなる。今回は真ん中辺りに回折格子を貼り付けた。回折格子調整部をネジで固定する穴は並んで2つ開いている。LDと回折格子の間隔に合わせて、適宜どちらかを使う。

(5) メインプレートの調整

レーザーマウントと回折格子調整部を取り付けるメインプレートは、放熱や熱伝導のよい銅でできている。メインプレートには途中まで切り込みが入れてあり、それを微調整ネジで押しつけて切り込みを開く、またはその左右2本を引きネジとして閉じるようにできている。ペルチェ素子もメインプレートについている。押しネジの微調整ネジ(M4.5×ピッチ0.5 mm)とメインプレートの間には銅でできた変換ナットがあり、変換ナットとメインプレートの間はM8×ピッチ0.5 mmとなっている。ここは先に述べたLDのビーム軸のコリメーションのずれや、回折格子のアライメントのずれといった部分への角度調整にあたる部分だが、メインプレートおよび変換ナットは銅でできており柔らかい金属なので繊細で壊れやすい。また、バネのような戻る反発力を感じにくくメインプレート自体が変形して形状を維持する。変形するには微調整ネジと変換ナットに大きな力がかかり変換ナットを破損しやすい部分のため、コリメーションや回折格子の取り付けの垂直さを正確にすることで、メインプレートでの上下の仰角の調整は、40 cm先で残る2 mm程度光軸が上下にずれる程度に対する微調整で済むようにした。

メインプレートを切り欠き上下でまず凡そ平行に調整しておく。そこに回折格子の付いた回折格子調整部を取り付ける。回折格子調整部をボルトで付けただけだと、角度を回す際に摺動部分ががたつき、上下方向にも振れて自由度が増えてしまう。そこで作業の再現性と精密さ、経年での保持を確保するため、回折格子調整部を押さえつける力が働く様にバネワッシャーをボルトとの間に入れた。

(6) フラッシング

0次回折の戻り光とLDからの出射光を、出射光を遮らないように注意しながら、名刺で両側から当て、透かしながらビームや中心が重なるように回折格子調整部を回して水平方向にずらす。微調整する時には、ドライバー型の六角レンチではなく、微調整できるようにL字型の六角レンチを用い、レンチの長さをを用いて微妙な調整角度分だけ回すようにする。

回折格子からの1次光を白い紙に映して暗い部屋で見ると、回折格子からの0次の戻り光とLDからの出射光が重なる時 Littrow 角となり光が増幅されて、より明るくなる。白い紙のようなスクリーン上では、回折格子からの1次回折光の横に小さな回折光の点が見え、その2点が重なるようにすると、回折格子のスリット各段の微小な範囲くらいのずれで強弱が変化し、チカチカと明滅する事が確認できる。後日、明滅しなくなった場合には、回折格子調整部を固定したボルトを若干緩め、六角レンチで上下方向も1周程度探してみ

る。フラッシングできていれば L 字型の六角レンチに微妙に触れるだけでチカチカと明滅する。以上のようにして、ECDL のフラッシングを行った。



図 3.3.1-2 フラッシング作業の様子

(7) 光強度の測定

フラッシングした ECDL は、ミラーのステイではずれてしまうため、光学台の上で短辺に 1 本、長辺に 2 本のボルトを位置決めピンとして用いて、他方の 2 辺をミラーのステイで押さえる事で光学台に固定した。この状態でパワーメーター(TEC 社製 POWER DETECTOR XLP12-3S-H2GEN)およびモニター(Genetic Model:MAESTRO)を設置($\lambda = 405 \text{ nm}$)し、部屋を暗くして測定を行った。

次に、できるだけ条件を変えずにフラッシングなしのパワーを測定するため、この状態で回折格子からの 1 次回折のフラッシング光をマグネティックベースに定規と白い紙を貼ったものに投影し、マグネティックベースを固定して、ビーム形状を描き込んでフラッシングが容易に再現できる状態を確保した。回折格子調整部のボルトを締めて固定する場合は、ずれない様に、この投影先に合わせたままボルトを締めればよい。これで回折格子調整部を水平方向にずらし Littrow 角度から外す事でフラッシング無しとしてパワーメーターで測定した。通常、抵抗値等を電流や電圧等で物理測定する場合には、電流や電圧を上げる方向、下げる方向の両方を測定し平均を取るような操作をする場合や、ネジのガタ等でどちらかのみ採用する場合がある。こうした事は測定器の癖を知らないと、理論値と計算値と実験値に不用意なずれを生む原因となる。ここでは出力を下げる方向では、パワーメーター内で放熱するための時間変化の影響があり、正確な値からずれてしまうため、パ

ワーを下げる方向の測定はせず、上げる方向での測定を行い、 $\lambda \sim 405 \text{ nm}$ の LD 素子について ECDL を作成しフラッシングありと無しについて電流と光強度の関係を得た。以上のように、核種分析に必要となる狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行った。

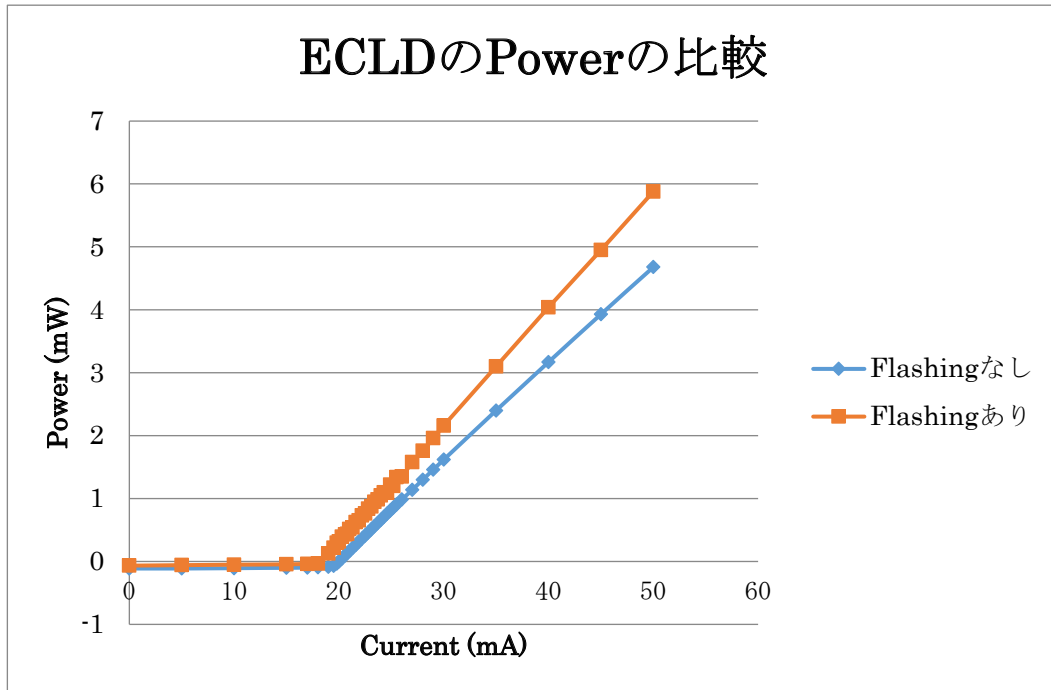


図 3.3.1-3 405 nm ECDL の注入電流と光強度の関係

3.3.2 原子化手法の開発（連携先：原子力機構）

(1)はじめに

レーザーアブレーションで発生したプルーム中の中性原子は、雰囲気ガスとの相互作用によって、数 $10 \mu\text{s}$ から数 ms の間に、分子やナノクラスターに変化し、さらに会合を繰り返して微粒子へと成長していく（以下、分子、クラスターも含めて微粒子と呼ぶ）。このため、アブレーションプルームを用いた原子分光では、原子の発光線や吸収線はアブレーション直後に極大となった後は急激に減衰してしまう。この減衰は、アブレーションプルームが膨張し、プローブレザーの光路内に存在する原子密度が低下することに因るだけではなく、原子の微粒子化の要因が大きいと考えられる。従って微粒子が膨張して飛散する前に、再び結合を解いて原子に戻すことができれば、アブレーション直後とは異なった環境中で原子分光を行う事も可能になるため、サンプリング方法や分析性能等の点で有利に働く可能性がある。このことから、アブレーションで生じた微粒子を再び原子化する手法の研究開発が必要である。

原子化には幾つかの方法が考えられるが、例えば、①強いパルスレーザー光によって分子結合を強制的に切断するフラグメンテーションや、②分子の光吸収による内部励起を利用して、特定の化学結合を切断する光解離過程、③放電プラズマやレーザープラズマ中の

高速粒子との衝突過程、④集積板に捕集した微粒子の再アブレーション過程等は、比較的容易に微粒子を原子化できる方法である。しかし、それぞれのプロセスは複雑であり、分析に利用できる十分な量の原子を、安定的に生成できる手法やプロセス条件等は、これまでのところよく知られていない。本プロジェクトの3年間を通じての最終目標は、レーザー加工時に発生する微粒子から、分析に利用できるような十分な量の原子を安定的に生成できる方法を探し、その可能性があれば、最適な実験条件を提示することにある。

(2) 実験装置の構築

アブレーション起源の微粒子の原子化は、これまでほとんど報告例が無いことから、基礎プロセスを解明することから研究が必要である。そのためには、実際のレーザー加工環境である大気圧空気中に限らず、減圧希ガス雰囲気中等、より単純化され、コントロールされた環境で、実験できることが重要である。また、上述した様々な原子化手法を試す必要から、汎用性の高い装置構成とすることも重要である。このため、原子力機構、原子力科学研究所内に既に設置されている複数台の波長可変パルスレーザーや半導体レーザーから成る光源システムと真空チャンバー等を再構成して、原子化手法の研究開発のための基礎実験装置を新たに構築した。

装置の全体構成を図 3.3.2-1 に示す。レーザー加工を模擬し、レーザーアブレーションを起こすためのレーザーには Nd:YAG レーザー (LOTIS-TII 製、SHG 最大出力:200 mJ、繰り返し:10 Hz) を用い、その光のパルスエネルギーを $\lambda/2$ 板と偏光ビームスプリッターを用いて 0.2 mJ 程度まで下げて、試料に対して直上から、焦点距離 200 mm の凸レンズを介して照射した。また微粒子をフラグメンテーションあるいは光解離させるためのレーザーとしては、もう 1 台の Nd:YAG レーザー (LOTIS-TII 製、SHG 最大出力:200 mJ、繰り返し:10 Hz) で励起される色素レーザー (LIOP-TEC 製、LIOPSTAR、色素:DCM、溶媒:メタノール、発振波長 607-663 nm) を使用した。この光が試料に直接当たってアブレーションを起こすことの無いように、焦点距離 150 mm の凸レンズを通して、試料表面から約 2 mm の高さを、表面に対して並行に、かつ試料上でビームウエストになり、アブレーションビームやプローブビームとも交差するように調整して導入した。2 台の Nd:YAG レーザーは 4 チャンネル遅延パルス発生器 (Stanford Research Systems 製 DG645) でフラッシュランプと Q スイッチをトリガし、アブレーション光とフラグメンテーション光の時間間隔を自由に変えられるようにした。パルス光強度はサーモパイル式フォトディテクター (OPHIR 製 12A-P) やジュールメーター (OPHIR 製 PE25) によってモニターし、光解離用パルス光の波長はパルス光用の波長計 (Coherent 製 WaveMaster) でモニターした。

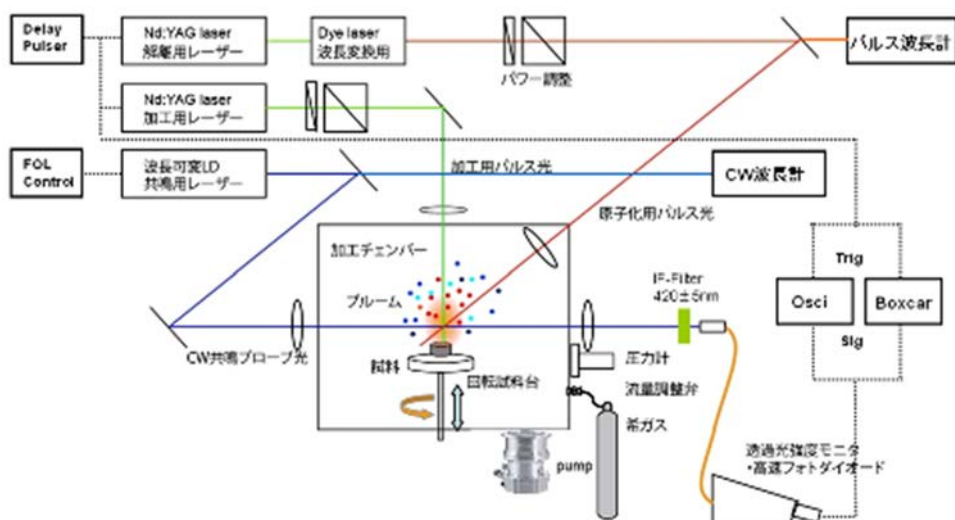


図 3. 3. 2-1 構築した微粒子の原子化基礎実験用装置の構成

原子のプローブ光としては、外部共振器半導体レーザーを使用した。本研究ではカルシウムの基底状態からの非常に強い遷移である 422.7918 nm が発振可能な LD 素子 (Roithner 製 RLT425-50CMG) を使用した。その光と、波長安定化ヘリウムネオンレーザー (Thorlabs 製 HRS015) による周波数基準光を、走査型エタロン干渉計 (CVI 製、FSR: 300 MHz 、フィネス $100\text{--}200$) に重ねて入射し、それぞれの光の干渉縞を常時モニターした。干渉縞の位置と縞間隔をデジタル回路によって 2 つの TTL パルスに変換し、各パルスの時間幅をカウンタボード (National Instruments 製 PCI-6602) を介して PC で計測することにより、レーザーの周波数変動を検知した。PC では TTL パルス長をコントロールするためのソフトを C++ で動作させ、変動した発振波長を必要波長に戻すための電圧変化を計算して、DA コンバーター (CONTEC 製) を介して DC 信号として出力させ、半導体レーザーの波長を制御するピエゾ素子の電圧コントローラー (Thorlabs 製 MDT694B) にフィードバックした [1]。この様にして得られたプローブ光の一部は、ビームスプリッタで連続発振光用精密波長計 (HighFinesse 製 WS-7) へと導き、設定通りの発振波長であることを常時モニターした。

プローブ光の強度はバリアブル ND フィルターを用いて、検出器の量子ノイズが影響しない範囲でなるべく弱くなるように (0.2 mW 程度) 調整した。また、プルーム中のプローブ位置の分解能を高めるため、照射の直前と直後に焦点距離 200 mm の凸レンズを通し、プルーム付近でビームウエストになるようにした。さらにプルームを透過した光は、混入するプラズマ発光成分を除去するため、 532 nm のノッチフィルター (CVI 製 RNF-532) および 420 nm を中心波長とし、透過帯域幅 10 nm の干渉フィルター (Edmund Optics 製 BP420NM) を通したのち、高速フォトディテクター (Thorlabs 製 PDA36A) で受光し、デジタルオシロスコープ (岩通製 DS-5624A) で光強度の時間変化を観測した。また、同じ信号はボックスカー積分器 (Stanford Research Systems 製 SR250) にも導き、吸収パルスが観測される時刻に測定ゲートを設定して、 $30\text{--}100$ ショットの積算信号を、AD コンバーター (CONTEC 製) を介して PC に記録した。

試料にはセメント粉約 1 g を直径 10 mm ϕ 、高さ 7 mm に圧縮成型したペレットを使用し

た。その試料を真空容器内にある回転ステージ上に乗せ、ステッピングモーターにより約 1 rpm の速度で回転させることにより、表面のクレーター効果を抑えた。真空容器は直径 300 mm、高さ 200 mm のステンレス容器で、O リングシールで蓋を取り外せるようにした。大気開放状態で、アブレーション光、フラグメンテーション光およびプローブ光の 3 つのレーザービームが、試料表面直上約 2 mm の位置で交差するように、各光学系を調整した。調整後に真空容器をロータリーポンプで粗排気した後、ポンプで排気しながらヘリウムガスを導入し、ガス圧力が 1.3 kPa 程度で安定するよう、バリアブルリークバルブ (ANELVA 製) を微調整した。容器内のガス圧力は真空マンメーター (MKS 製) やクリスタルゲージ (ANELVA 製 M-320XG) で常時モニターした。

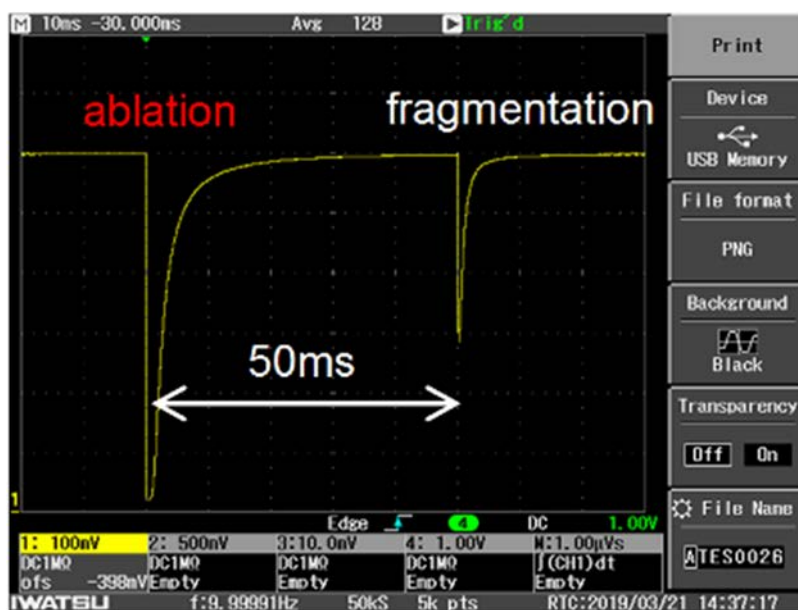


図 3.3.2-2 原子化による透過光の吸収の代表例

(3) 原子化手法の検討

“ (1) はじめに ” でも述べたように原子化には幾つかの方法があるが、最も汎用的で有望と考えられる方法は、強いパルスレーザー光により分子結合を強制的に切断するフラグメンテーション過程である。そこで本年度は、構築した基礎実験装置の機能確認を兼ねて、この方法による分光実験を行った。

図 3.3.2-2 にアブレーション光とフラグメンテーション光の時間差を 50 ms に設定して測定した 422.7918 nm の光の透過強度の時間変化を示す。縦軸は透過光強度、横軸は経過時間である。アブレーション光を照射した直後に生じている深い窪み (左側の強い吸収) は、基底状態のカルシウム中性原子を多く含んだアブレーションルームが、プローブ光を横切っているために生じている。この光吸収が 10 ms 程度で消滅しているのは、ルーム中の基底状態原子が、粒子衝突・会合等の過程を経て微粒子へと変化してしまうためである。50 ms 後にフラグメンテーション用のレーザーパルスを同じ位置に照射すると、その位置に留まっている微粒子が分解されて基底状態の中性原子が再び生じるため、透過光の吸収が現れている (右側の吸収)。この吸収が、フラグメンテーション光が試料に当たりアブレーションが起きたためでないことは、アブレーション光をブロックし、フラグメンテーシ

オン光だけを照射した場合に、この吸収が完全に消えることから確認した。

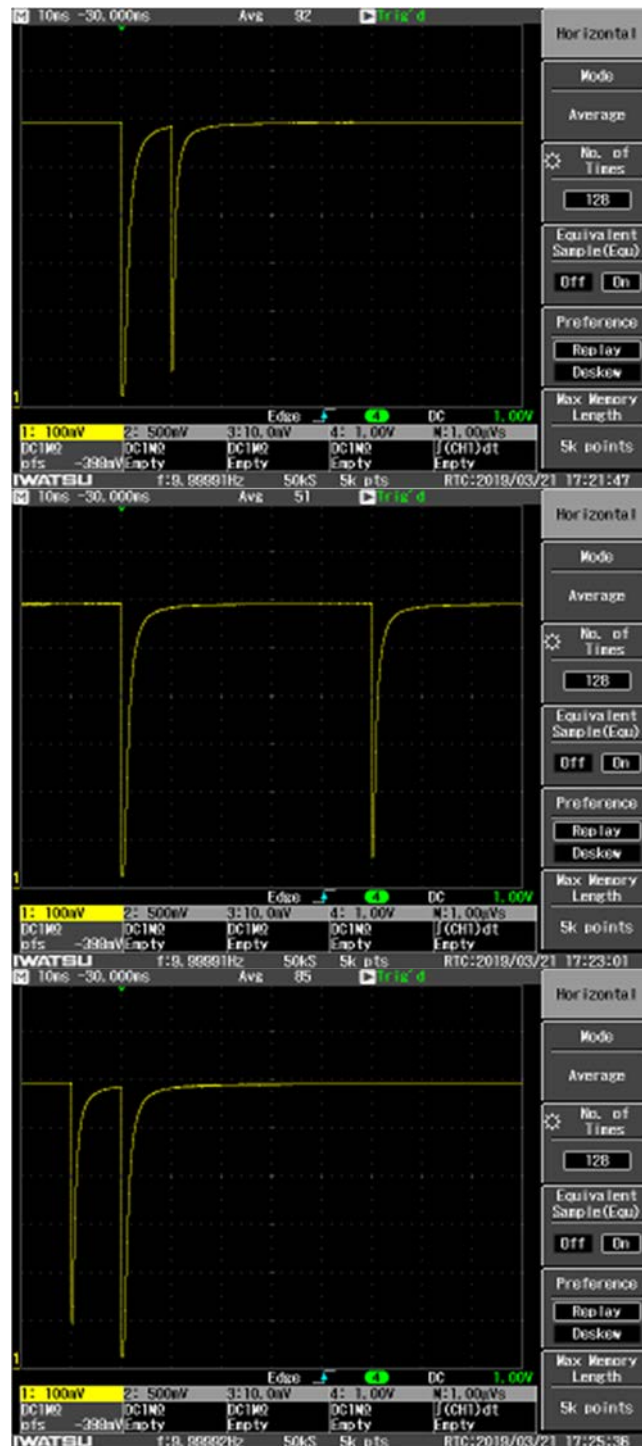


図 3.3.2-3 原子化レーザーのタイミングによる吸収パルスの変化
上からアブレーション後 10、50、90 ms

図 3.3.2-3 にアブレーション光とフラグメンテーション光の時間差を 10、50、90 ms に変化させて測定した 422 nm 光の透過光強度の時間変化を示す。フラグメンテーション用のレーザーパルスのタイミングが変わっても、共鳴吸収パルスの強さは殆ど変化がないことが分かった。このことは、今回の実験条件では、膨張の停止したブルーム中の

微粒子が殆ど同じ位置に留まり続け、10 Hz で発振するアブレーション光の次のパルスが照射される時点においても存在していること、また時間とともに微粒子サイズが成長しても、フラグメンテーションでほぼ同じ量の原子が生じることを示していると考えられる。この結果はレーザー加工に伴って発生し、その場に漂うヒュームを計測する手法として、ショット毎だけではなく、ショット積算値の計測も行える可能性を示している点で興味深い。

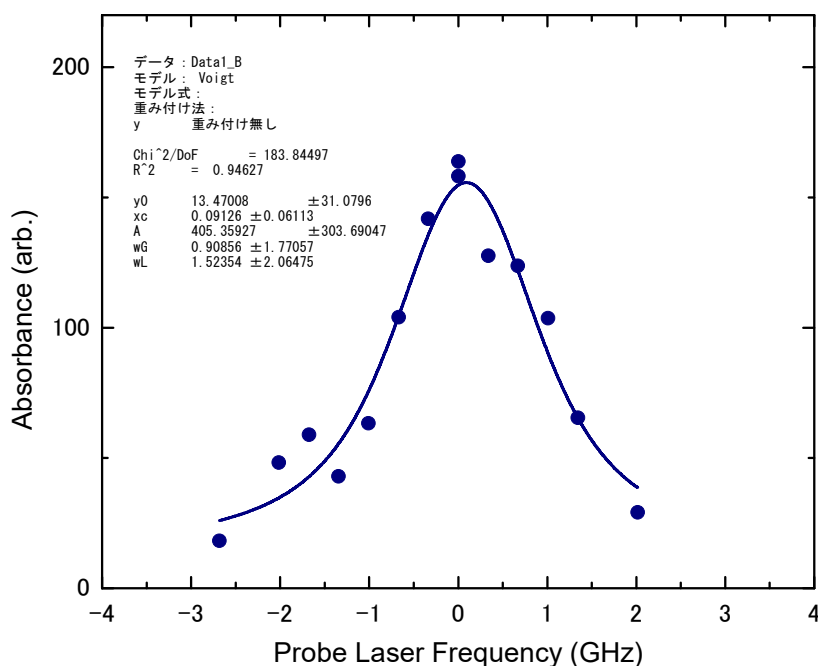


図 3.3.2-4 フラグメンテーションで生じたカルシウム原子の吸収スペクトル

図 3.3.2-4 にアブレーションから 50 ms 後にフラグメンテーション光を照射して測定したカルシウム原子の 422 nm における吸収スペクトルを示す。縦軸は透過率 I/I_0 (I : 透過光強度、 I_0 : 入射光強度) から、

$$Abs = -const * \log_{10}\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (3)$$

の式を用いて(但し比例定数=100)求めた吸光度 Abs (任意単位)であり、横軸は共鳴周波数からのレーザーのずれ(GHz)を表している。また実線は測定値をフォクトプロファイル関数で最小自乗近似した結果である。このスペクトルの半値幅は約 2 GHz と評価される。これまでに原子力機構で実施したプルトニウムの LAAS 分光[2]では、波長 400 nm 付近の吸収スペクトルの半値幅は 700 MHz 程度と測定され、この幅からプルーム中の原子の並進温度はほぼ室温の 360 K と評価している。この半値幅が全てドップラー効果によるものとし、カルシウム原子も同じように室温程度の並進温度になっていると仮定すると、ドップラー幅が(4)式で表されることから、

$$\Delta\nu = \sqrt{\frac{8kT \ln 2}{mc^2}} \times \nu \quad (4)$$

但し、k: ボルツマン定数、T: 並進温度、m: 原子質量、c: 光速、 ν : 光周波数
 カルシウムの 400 nm 付近のドップラー幅は 1.7 GHz 程度と計算され、今回の測定結果と矛盾しない事が分かった。このことは、少なくとも今回の実験条件では、フラグメンテーションによる原子化に伴って、吸収スペクトルの分解能を悪化させるような、荷電粒子や高速原子の大量発生が起きていないことを示している。

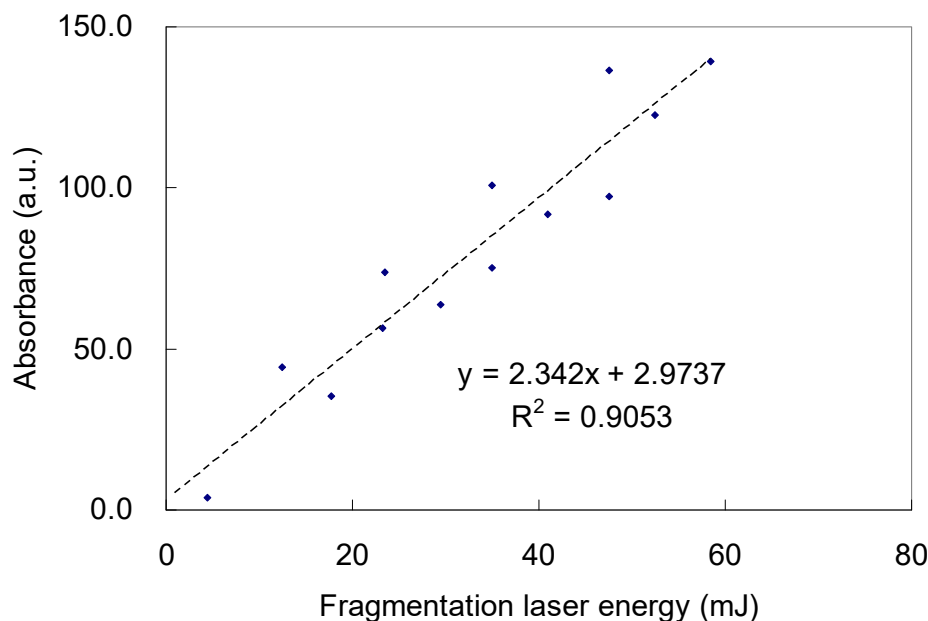


図 3.3.2-5 フラグメンテーション光 (627 nm) のパルスエネルギーに対する吸光度の変化

図 3.3.2-5 に遅延時間 50 ms 後にフラグメンテーション光を、パルスエネルギーを変化させながら照射して測定した吸光度とパルスエネルギーの関係を示す。吸光度はエネルギーに対してほぼ直線的に増加しており、信号が飽和するレベルまでは達していないことが分かった。従って、十分な量の微粒子をフラグメンテーションで安定的に原子化するためには、最低でも 60 mJ 以上のパルスエネルギーが必要と考えられる。但し、この結果は、発生するアブレーションルームや微粒子サイズ等に大きく左右されると予想され、アブレーション(加工レーザー)のパルスエネルギーや、雰囲気ガスの種類や圧力、ターゲット物質の種類等をパラメーターとした、系統的かつ広範囲な実験条件の最適化研究が必要であると考えられる。

(4)まとめ

平成 30 年度は原子力科学研究所にすでに設置されているパルス色素レーザーや半導体レーザー、真空チャンバー等を組み合わせ、元素・核種分析のための基礎実験装置を構築した。この装置を用いて、セメントの圧縮成型ペレットをアブレーションさせて生じる微粒子をフラグメンテーションによって再原子化し、生じた基底状態のカルシウ

ム原子による共鳴吸収信号を観測することに成功した。観測された信号強度やスペクトル分解能から、フラグメンテーションによる原子化の特徴や実験条件について考察した。またこれらの結果から、次年度以降の原子化手法開発の見通しを得ることができた。

参考文献

(1) M. Miyabe, M. Oba, M. Kato, I. Wakaida, K. Watanabe, “Development of frequency stabilized laser system for long-lived isotope analysis, 3; Computer-based laser frequency tuning system”, JAERI-Tech 2005-043 (2005).

(2) M. Miyabe, M. Oba, K. Jung, H. Iimura, K. Akaoka, M. Kato, H. Otobe, A. Khumaeni, and I. Wakaida, “Laser ablation absorption spectroscopy for isotopic analysis of plutonium: Spectroscopic properties and analytical performance”, Spectrochim. Acta B134, 42-51, (2017).

3.4 レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

3.4.1 高速度カメラの画像データ解析開発(再委託先：レーザー総研)

原子力機構・楢葉遠隔技術開発センターに設置されている高出力ファイバーレーザーを用いた各種サンプルへのレーザー照射実験を行い、特に同センターに設置されている高速度カメラを用い、レーザー照射時に発生する照射部の発光であるプルーム[1]の観察に注力した。得られた画像データをレーザー技術総合研究所において、さらに詳細な観察とレーザーと物質との相互作用に関する解析を試みた[2, 3]。プルームの振舞いを観察することによりレーザー加工時に発生する微粒子(粉塵、ヒューム、ミスト、エアロゾル)発生メカニズムに迫ることを目指している[4]。微粒子発生メカニズムの着眼点は、図3.4.1-1に示すようにレーザーにより固体が加熱され液体となりさらに加熱されることにより原子状の気体である蒸気になり、レーザー照射部から飛散する。その気体が急冷される過程で微粒子(エアロゾル)になるとされている[5, 6]。このような過程は高いエネルギー密度で物質を照射することができるレーザーを用いた切断加工技術の特徴である。この他のメカニズムとして熔融池の圧力勾配による液滴の飛散とそれらが固化することにより発生する微粒子、アシストガスによる液体(ドロス)の飛散による微粒子があると考えられる。これらの過程は機械切断等切断部が高温になる技術にも適用可能と考えられる。またこれらを総合し、発生する種々のサイズの微粒子の発生メカニズムを整理することも廃炉以外のレーザー加工技術の高度化に貢献する重要な課題であると認識している。

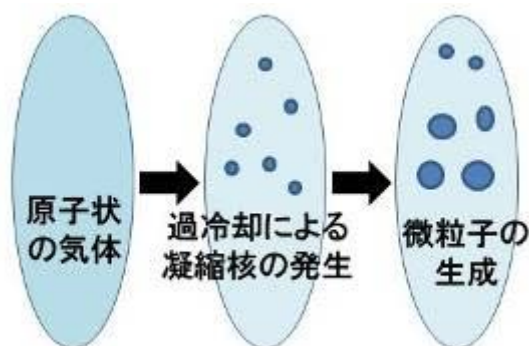


図 3.4.1-1 レーザー照射サンプルで発生したプルームからの微粒子発生過程の概念図 [5, 6]

ファイバーレーザー光を照射したサンプルはステンレス鋼、重コンクリート、アルミナ(セラミックス)である。写真を図3.4.1-2から図3.4.1-4に示す。アルミナは室温では熱伝導がよく、ステンレスよりも高い。しかし温度特性が金属と逆であり、摂氏1000度になるとステンレス鋼の約1/6になる[7]。耐熱衝撃性や高温強度(摂氏1000度)が低い。このような特性を有するため、レーザー切断加工ではステンレス鋼はレーザー照射部をできるだけ細くして熔融部の体積をできるだけ小さくすることも可能である。但し熱伝導が高温になるほど大きくなり、熔融に使われるエネルギーが制限されることが特徴である。一方アルミナは高温では熱伝導が悪くなり、かつ熱衝撃に弱いので熔融が一部おこりつつも、発生する応力によりサンプルが砕ける(脆性破壊)という現象を示す場合もある[8]。一方、重コンクリートは固体の状態でも、内部の水分が蒸発により失われたり、変性が起こった

りして機械的性質は変化する。レーザーにより加熱すると重コンクリートを構成するシリコンが溶融することや微粒子上の噴出物が確認されているが、現象は複雑である[9]。本年度はこれらステンレス鋼、アルミナ(セラミックス)、重コンクリートへのレーザー照射によるプルームの観察を、高速度カメラを用いて行った。いずれの試験体に対してもレーザーはサンプルの上方向から照射した。

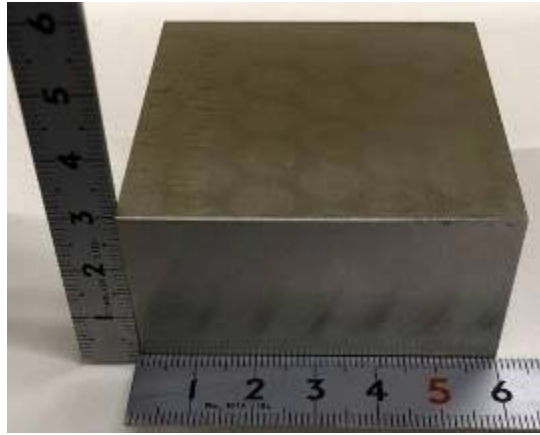


図 3. 4. 1-2 サイズ 60mm×60mm×30mm のステンレス鋼 (SUS304)



図 3. 4. 1-3 厚さ 10 mm の重コンクリート

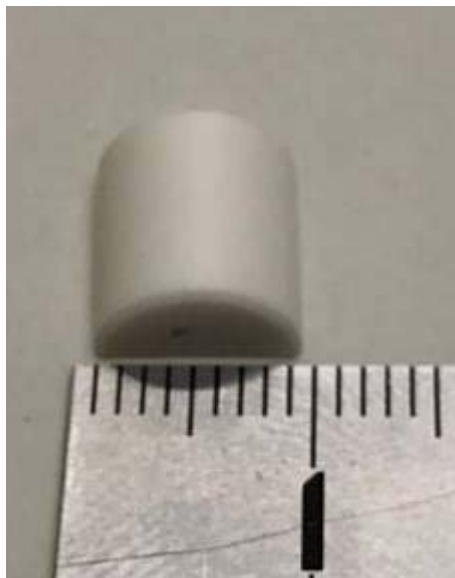


図 3. 4. 1-4 直径 9 mm のシリンダー状アルミナ

これらサンプルにレーザー光を照射した際に起こる現象を高速度カメラで撮影した。レーザーをレンズでサンプル上に集光照射すると、光エネルギーをサンプルが吸収し、溶融が始まる。サンプルの加熱が進むとその沸点を超える温度になり、蒸気が発生する。蒸気がさらに加熱され電離が起こると発生した電子雪崩が進行し光エネルギーの吸収がさらに進む[2]。このような過程を経てプルーム(プラズマ発光)が発生する。プルーム発生時にレーザーの照射は継続するのでレーザー光とプルームとの相互作用は複雑になる[1]。以下に高速度カメラで撮影された典型的なプルームの振舞いを示す。この測定では通常のビデオカメラを用いた撮影も行っており、照射の様子をより大きなサイズと長い時間にわたって記録した。これはレーザー照射時のプルームの振舞いを追うことは不可能であるが、高速度カメラのデータを補完する貴重な相補的記録になっている。レーザーの照射条件を次に記述する。図 3. 4. 1-5 に示すように、レーザー照射の F 数(焦点距離 f /レーザー光の直径 d)は $f=480$ mm、 $d=8.06$ mm とすると $F=59.6$ であり、長焦点集光系となっている。集光点での直径 s は 0.5 mm とするとレーザー照射強度 I はレーザーパワー P を用いて

$$I=P/\{\pi (s/2)^2\} \tag{5}$$

と書くことができる。以下に示した 1800 W の場合、 $s=0.5$ mm とすれば 2.9×10^6 W/cm² である。またレーザー照射の時間波形は図 3. 4. 1-6 に示すように一つのパルスの時間幅は 10 ms で繰り返し 10 Hz から 1 Hz で動作した。

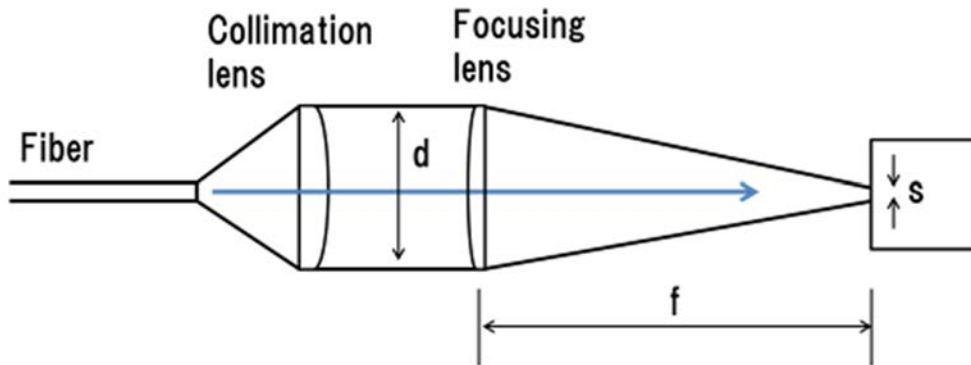


図 3. 4. 1-5 レーザー照射時の光学系

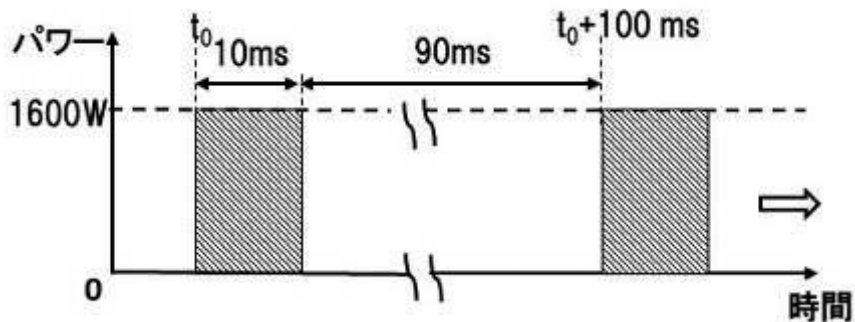


図 3. 4. 1-6 QCW レーザー照射の時間波形(ハッチングの部分)

図 3.4.1-7 から図 3.4.1-9 に高速度カメラでの撮影結果を示す。レーザー照射条件は、いずれの場合もレーザー出力 1800 W、パルス幅 10 ms、繰り返し周波数 10 Hz (1 パルス目)、スタンドオフ 47.9 cm であり、高速度カメラは高倍率撮影のためテレコンバータ使用 (2 倍) を使用し、撮影速度 2000 fps、露光時間 0.5 ms で撮影を行った。ステンレス鋼 (SUS304) のプルームは図 3.4.1-7 に示すようにレーザー照射軸の周囲を蛇行する。蛇行の時間スケールは 0.1 ms 以下であった。それに対し図 3.4.1-8 に示すように重コンクリートからのプルームはレーザー照射軸に沿っている。さらにサイズの大きい発光体が周囲に飛散している。図 3.4.1-9 にアルミナ(セラミックス)にレーザーを照射したときのプルームの振舞いを示す。重コンクリートによく似た振舞いだが、プルーム角度が少し狭く、飛散する発光粒子の数が多いのが特徴である。これらは時間幅 10 ms の QCW レーザーの第一パルスの照射時間内のプルームの様子である。ここで示した図とは別に繰り返し 10 Hz の照射で照射される重コンクリートやアルミナからのプルームの挙動を注意深く観察していると凡そ 3~7 回目のレーザー照射あたりからステンレス鋼からのプルームの振舞いに近づく。すなわちレーザー照射部から大きな発光体の飛散が少なくなり、プルームがレーザー照射軸の周りに蛇行するようになる。この現象の解釈はコンクリートやアルミナではレーザー照射当初は溶融とともに表面の微細な破砕が起こり、それらが飛散し発光体として撮影されていること、サンプル本体の溶融池の流体としての粘弾性の効果がステンレス鋼に比べ大きく、方向のそろったプルームになっていることが推測される [10, 11]。一方、溶融池に引き続きレーザーが照射されると粘弾性が低下した溶融池となり、ステンレス鋼とよく似たプルームになったものと推測される。これらの物理過程の詳細な検討は今後の課題である。

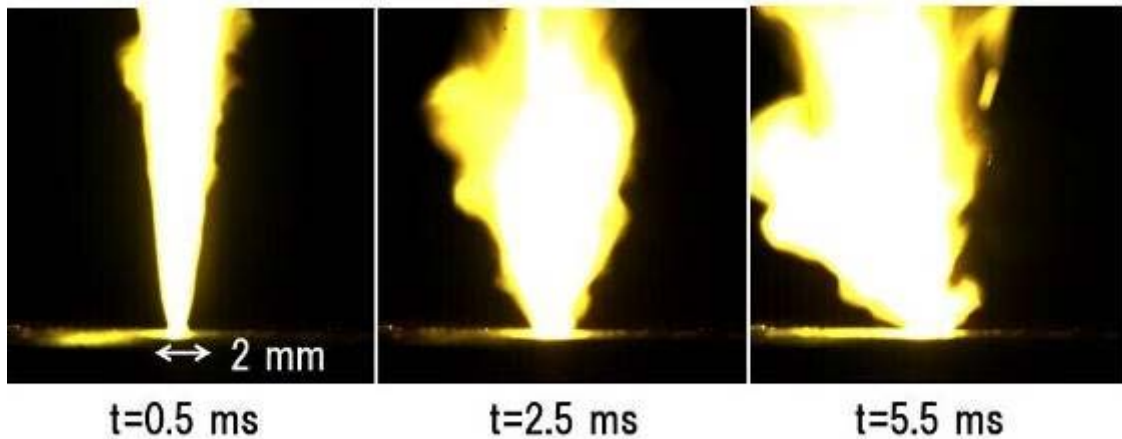


図 3.4.1-7 ステンレス鋼 (SUS304) サンプルにレーザーを上方向から垂直下向きに照射したときのプルーム

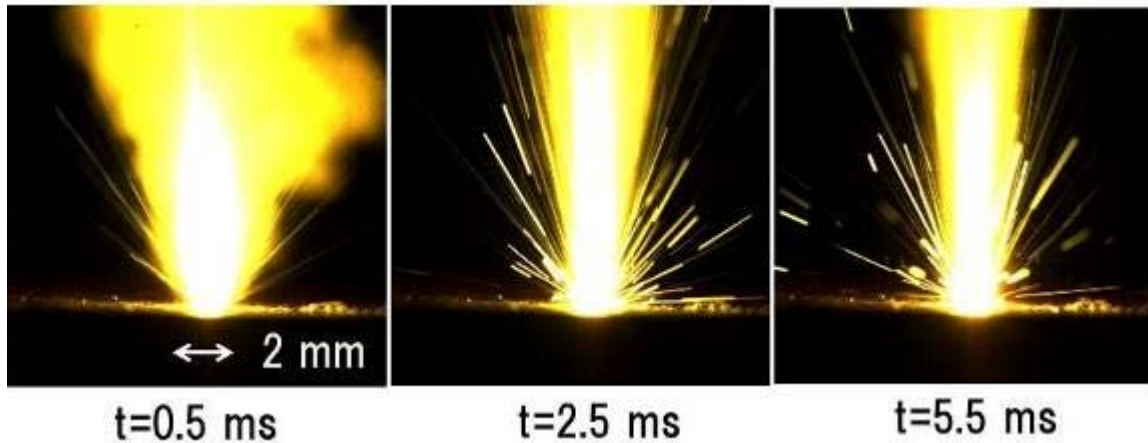


図 3.4.1-8 重コンクリートサンプルにレーザーを上方向から垂直下向きに照射したときのプルーム

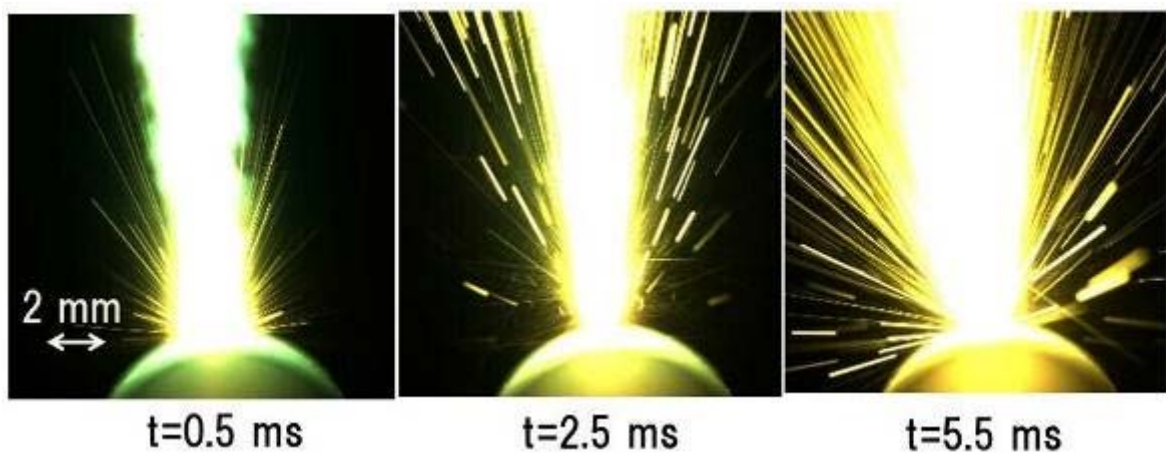


図 3.4.1-9 アルミナ(セラミックス)サンプルに上方向から垂直下向きにレーザーを照射したときのプルーム

以上が高速度カメラを用いたプルームの解析結果である。以上により平成 30 年度の目標は達成した。

ここで述べたプルームは大きさ $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子のソースの一つであり、現在得られているデータを次年度引き続き解析してレーザー加熱によるプルーム生成から微粒子に至る過程、レーザー加熱により生成された熔融池から飛散し微粒子に至る過程等、微粒子生成過程を究明する予定である。またプルーム周辺で発生した微粒子捕集装置の測定結果等 [12] を参考にして、プルームと微粒子双方の観点で物理的考察を進める予定である。さらに、ここで述べたプルームの振舞いの解析を踏まえ、これまで主としてナノ秒のパルスレーザーで行われた微粒子生成の理論的研究 [11, 12] 等を参考にして微粒子発生過程の物理的考察を進める。これら物理的考察を基に、次年度実験に向けた提案を行う予定である。

参考文献

- [1] 川人洋介 他、高出力ファイバーレーザーによるステンレス鋼溶接時のレーザー誘起プルームの高速観察および分光分析、溶接学会論文集 第 25 巻 第 3 号(2007) p. 455-460
- [2] M. Allen and A. Blatter、Laser-Beam Interactions with Materials 2nd Edition Springer Berlin 1994
- [3] S. I. Anisimov, V. A. Khokhlov, Instabilities in Laser-Matter Interaction 1995 CRC Press
- [4] 山根國秀、低ヒューム溶接材料について 溶接学会誌 75(2005)7-13
堀澤秀之、レーザー加工における有害物質の発生特性評価と環境対策 (公財)アマダ財団 FORM TECH REVIEW 2001 Vol.11, No.1 (2001) 26-31
- [5] B. S. Luk' yanchuk et al. Condensation of Vapor and Nanoclusters Formation within the Vapor Plume, Produced by ns-Laser Ablation of Si Laser Phys. Vol.8, No. 1 1998
- [6] 古河裕之、乗松孝好、レーザー核融合炉液体壁チェンバー内のアブレーション生成プルームのシミュレーション、プラズマ核融合学会誌 87(2011)51-55
- [7] 京セラ Kyocera Characterization of Kyocera Technical Ceramics 材料特性表 2014 年 4 月制作
- [8] 大道博行、レーザー加工技術(1) 原子力分野への新展開 電気学会誌 Vol . 136、No .7、2016 pp. 422-425
- [9] N. Phi Long, H. Daido, T. Yamada et al., Experimental characterization of concrete removal by high-power quasicontinuous wave fiber laser irradiation, J.Laser Appl. 29, 041501 (2017)
- [10] M. L. Wilkins, Calculation of Elastic-Plastic Flow, Methods in Computational Physics Vol.3 Academic London 1964 pp. 211-263
- [11] 矢部孝、講座 レーザーアブレーション物理と応用 3. レーザーアブレーションプラズマの膨張・冷却過程 プラズマ核融合学会誌 79(2003)1160-1168
- [12] T. Ohkubo et al., Numerical analysis of nanocluster formation within ns-laser ablation plume, ppl. Phys. A77(2003)271-275

語句説明

微粒子：[粉塵] 固体がその化学的組成が変わらないままで、粉碎、研磨、穿孔等により粒状になり空気中に分散したもの。[ヒューム] 固体が気化した後、急冷却凝縮して生成された固体粒子のこと。サイズは、1 μ m 以下のものが多い。[ミスト] 空気中に浮遊する微小な液体粒子の総称。[エアロゾル] 空気中を浮遊する微粒子の総称。

プルーム：金属等へのレーザー照射により照射部付近に発光が起こる。この発光は金属やアシストガス等が加熱されて生じるものであり、電離された成分も含む。このため便宜的にプラズマと呼ぶ場合もある。プルームは微粒子の発生源になる。

QCW レーザー：レーザー発振には時間的に連続してレーザー光を出し続ける連続波レーザー（CW レーザー）、時間的に定まった時間のみレーザー光を出すパルスレーザーがある。パルスは一定の周期で繰り返される場合もある。これらに対し、QCW レーザー（準連続波レーザー）とはパルスの時間幅が概ねミリ秒以上の周期的に繰り返されるレーザー発振のことを指す。一つ当たりのパルスの時間幅が多くのパルスレーザーに比べて長く、時間幅ナノ秒以下の短パルスレーザーとは異なったレーザーと物質との相互作用を示す場合が多い。

3.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉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。

【期間】2019年1月15日(火)～2019年1月18日(金)

【場所】檜葉遠隔技術開発センター

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー技術総合研究所：大道博行
- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、原子力機構で所有する既存のチェンバーを用いてレーザー照射試験を行い、セラミックス、金属、コンクリートの各試験体にレーザー照射を行った際の傾向を確認した。

【期間】2019年1月28日(月)

【場所】東京大学本郷キャンパス

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー技術総合研究所：大道博行
- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業の進捗および今後の研究計画に関して関係者と打合せを行った。進捗としては、本年度は研究計画通り進めることができ、問題ないことが確認できた。また、今後の研究計画としては、2月、3月に予定している実験日程や機器移設および調整作業の日程を確認するとともに、次年度以降の研究計画について確認を行った。

【期間】2019年2月7日(木)

【場所】大洗研究所

【出席者】

- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、レーザー加工時に発生する微粒子の捕集に関して関係者と打合せを行い、試作中のレーザー加工チェンバーと捕集装置との接続については、計画通りであることを確認した。

【期間】2019年2月8日(金)

【場所】大洗研究所

【出席者】

- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、レーザー加工時に発生する微粒子の捕集に関して関係者と打合せを行い、捕集装置の動作に問題無いことを確認するとともに、捕集した微粒子の評価方法について検討した。

【期間】2019年2月18日(月)～2019年2月22日(金)

【場所】大洗研究所、檜葉遠隔技術開発センター

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー技術総合研究所：大道博行
- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、エアロゾル質量分析計を大洗研究所から檜葉遠隔技術開発センターに移設した。また、原子力機構で所有する既存のチェンバーを用いて、試作中の照射チェンバーを想定した機器の配置でレーザー照射試験を行い、各試験体の挙動を観察した。

【期間】2019年3月4日(月)～2019年3月8日(金)

【場所】檜葉遠隔技術開発センター

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー技術総合研究所：大道博行
- ・日本原子力研究開発機構：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、エアロゾル質量分析計の調整作業を行い、動作に問題が無いことを確認した。また、試作した照射チェンバーを用いて各試験体にレーザー照射を行った。

【期間】2019年3月22日(金)

【場所】東京大学東海村キャンパス

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー技術総合研究所：大道博行
- ・日本原子力研究開発機構：宮部昌文、伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業において、本年度のまとめとして各テーマの進捗と次年度以降の計画について打合せを行った。進捗状況については問題が無く計画通り進めることができていることから、成果報告書にまとめて提出することとし、次年度以降も研究計画の通り進めることとした。

4. 結言

空力学レンズを用いて微粒子の濃縮ビームを生成する革新的な手法を提案した。また、空力学レンズで生成されたビームは、微粒子の粒径に応じた速度分布を有するため、飛行時間法によりビームを破壊せずに粒径をその場測定する技術を開発できる。さらに、微粒子が濃縮されたビームは、狭い領域に働きかけるレーザー光との相性も良く、前段の粉塵発生部と後段のレーザーによる原子化やイオン化と組み合わせることでオンライン化を図る。レーザー加工で生じる微粒子の元素・同位体組成を分光学的に知るには、散乱光等の観察では原理的に困難で、微粒子の原子化が不可欠である。本研究では、レーザー加工時に生じる微粒子等から原子吸光分析を行うため、様々な手法を適用し、分析に適した手法や動作条件の検討を行う。

以上を平成 30(2018)年度、令和元(2019)年度、令和 2(2020)年度にわたって遂行していく。

平成 30 年度の成果の概略を以下に述べる。

(1) レーザー加工・評価

①微粒子パラメータ依存性の検討

試料設置とともにレーザー照射窓、微粒子取り出し口、空力学レンズ設置位置に関して検討を行った。

②照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先：原子力機構)

レーザー加工時に発生するヒューム、粉塵を回収するための照射チェンバーの試作を行った。また、試作したチェンバーを用いた予備試験としてデブリ模擬体(セラミックス、金属)や所有のコンクリートを用いてレーザー照射を行った。

③相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

レーザー照射実験に参加し、高速度カメラによりレーザーと物質の相互作用の観察・記録を行った。

(2) 微粒子捕集・計測

①微粒子捕集の分布評価

試料照射チェンバーと空力学レンズの 2 つに位置取りの調整と検討を行った。

②微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先：原子力機構)

既往研究で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体のレーザー照射で発生する微粒子の捕集の予備実験の準備を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を評価する手法を検討した。

(3) 微粒子原子化・核種同定

①核種同定手法の開発

核種分析に必要となる狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行った。

②原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

レーザーアブレーションとレーザー共鳴分光を組み合わせた元素・核種分析装置を構築した。レーザーアブレーションで生じる微粒子を原子化し、原子やイオンの共鳴信号を観測した。共鳴信号強度やスペクトル分解能の観点から、分析に適した原子化手法や動作条件を検討した。

(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

①高速度カメラの画像データ解析(再委託先：レーザー総研)

得られた画像データをレーザー技術総合研究所に持ち帰り、詳細な観察とレーザーと物質の相

相互作用に関する解析を行った。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉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、平成30年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方 / SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b) / m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b) / m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ² / m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m / m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s / m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C	s A / m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A / m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V / m ² kg s ⁻³ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A / m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V / m ² kg s ⁻³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs / m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ² / kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A / m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C	K
光路長	ルーメン	lm	cd sr ^(c) / cd
放射線量	グレイ	Gy	lm/m ² / m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq	s ⁻¹ / m ⁻² cd
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg / m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg / m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat	s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s
表面張力	ニュートンメートル	N m
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m
角速度	ラジアン毎秒	rad/s
角加減	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³
電表面積	クーロン毎平方メートル	C/m ²
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²
誘電率	ファラド毎メートル	F/m
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol
モルエンタルピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr
放射線輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)
酵素活性化濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクタ	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
ストルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フォト	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウエル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe≡(10 ³ /4π) A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「≡」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15℃」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロ	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

