

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)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

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

-FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター
東京大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
The University of Tokyo

January 2021

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, 2021

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)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター

東京大学

(2020年10月14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、令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業(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、研究課題のうち、平成30年度に採択された「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」の令和元年度の研究成果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英知事業における委託業務として、東京大学が実施した成果を取りまとめたものである。

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

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

— FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

The University of Tokyo

(Received October 14, 2020)

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 FY2019.

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 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” conducted in FY2019.

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 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（継続分）	2
3. 令和元年度 採択課題	5
付録 成果報告書	9

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project ..	1
2. Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~	2
3. Accepted Proposal in FY2019	5
Appendix Result Report.....	9

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)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（継続分）

平成 30 年度採択課題（継続分）については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題
(若手研究 6 課題、一般研究 5 課題)
- 課題解決型廃炉研究プログラム 6 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題
(日英共同研究)

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響	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

令和元年度は、4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：平成 31 年 4 月 24 日～令和元年 6 月 7 日
令和元年 5 月 30 日～令和元年 7 月 18 日 ※日露共同研究のみ
- ・ 課題数：19 課題
 - 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題
(若手研究 2 課題、一般研究 5 課題)
 - 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
 - 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題
(日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題)
 - 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	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	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

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦	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

本報告書は、採択課題のうち、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」の令和元年度の研究成果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.

令和元年度

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 31I043)

成果報告書

令和2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「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」の令和元年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-1
3. 令和元年度の実施内容および成果	3. 1-1
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. 1-4
3.1.3 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)	3. 1-5
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. 2-3
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. 3-9
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

表一覧

表 3.3.1-1	ガドリニウム同位体の天然存在比	3.3-4
表 3.3.1-2	405.4722nm におけるガドリニウムの同位体シフト	3.3-4
表 3.4.1-1	破碎に適する材料の種類と各種物理定数	3.4-6

図一覧

図 2.1-1	事業実施計画	2.1-1
図 3.1.1-1	試験体と微粒子捕集用の金属プレート	3.1-1
図 3.1.1-2	金属、セラミックス、コンクリートの各試験体から捕集した微粒子の電子線像と EDX 分析結果	3.1-2
図 3.1.1-3	カスケードインパクトによる微粒子捕集の様子	3.1-2
図 3.1.1-4	カスケードインパクトで捕集した金属微粒子の SEM 観察結果	3.1-3
図 3.1.2-1	レーザー出力による各試験体の挙動 (t=10 ms 後)	3.1-4
図 3.1.3-1	レーザー照射による微粒子、熔融物、破片の発生と飛散の様子	3.1-6
図 3.1.3-2	楢葉センターの QCW ファイバーレーザーの水中金属照射による泡の生成 (高速度カメラにより撮影)	3.1-6
図 3.2.1-1	重コンクリートの粒径スペクトル	3.2-2
図 3.2.2-1	空力学レンズ	3.2-3
図 3.2.2-2	微粒子捕集実験装置	3.2-4
図 3.2.2-3	重コンクリートサンプル	3.2-4
図 3.2.2-4	バックグラウンド (空気成分) の質量スペクトル	3.2-5
図 3.2.2-5	ステンレス鋼 (SUS34) の質量スペクトル	3.2-5
図 3.2.2-6	重コンクリートの質量スペクトル	3.2-6
図 3.2.2-7	エアロゾル捕集・粒径測定部の概略図	3.2-7
図 3.2.2-8	粒径測定部の設計図	3.2-7
図 3.2.2-9	ダイヤフラムポンプ	3.2-7
図 3.2.2-10	トリガー信号ケーブル	3.2-8
図 3.2.2-11	PSL 粒子の粒径測定結果	3.2-9
図 3.2.2-12	PSL 粒子 (幾何学径 0.097 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-9
図 3.2.2-13	PSL 粒子 (幾何学径 0.199 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-10
図 3.2.2-14	PSL 粒子 (幾何学径 0.299 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-10
図 3.2.2-15	PSL 粒子 (幾何学径 0.453 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-10
図 3.2.2-16	PSL 粒子 (幾何学径 0.596 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-11
図 3.2.2-17	PSL 粒子 (幾何学径 0.799 μm) の飛行時間スペクトル	3.2-11

図 3.3.1-1	波長計から確認された 739.1575THz の波長 (スクリーンショット) ……	3.3-2
図 3.3.1-2	フィードフォワード回路 ……	3.3-3
図 3.3.1-3	フィードフォワード制御により拡大された周波数掃引範囲 ……	3.3-3
図 3.3.1-4	構築した実験系の模式図 ……	3.3-5
図 3.3.1-5	エタロンにより確認されたシングルモード発振 ……	3.3-6
図 3.3.1-6	蒸気化されたガドリニウム原子の発光スペクトル ……	3.3-7
図 3.3.1-7	739.1575 THz における吸収信号 ……	3.3-7
図 3.3.1-8	732.7082 THz における吸収信号 ……	3.3-7
図 3.3.2-1	構築した微粒子原子化・核種同定用実験装置の模式図 ……	3.3-9
図 3.3.2-2	非共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過 強度の変化 (5 ショット) 500Pa-Air ……	3.3-11
図 3.3.2-3	共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過 強度の変化 (5 ショット) 500Pa の減圧空気中の場合 ……	3.3-11
図 3.3.2-4	ファイバーレーザーアブレーション時の吸収の高さ分布 500Pa-Air ……	3.3-12
図 3.3.2-5	共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度 の変化 大気圧空気中の場合 ……	3.3-13
図 3.3.2-6	ファイバーレーザーアブレーション時のカルシウム原子の吸収線幅の評価 ……	3.3-14
図 3.3.2-7	ファイバーレーザーアブレーション微粒子の YAG レーザーによる分解実験 大気圧空気中 ……	3.3-15
図 3.4.1-1	セルフエミッションの観察を目的とした実験配置図 ……	3.4-1
図 3.4.1-2	ビデオカメラ (フレームレート 30 fps) で撮影したセルフエミッションの画像 ……	3.4-2
図 3.4.1-3	高速度カメラ (フレームレート 2000 fps) で撮影したセルフエミッションの画像 ……	3.4-3
図 3.4.1-4	微粒子飛散の観察を目的とした単色インコヒーレント照明光学系の実験配置図 ……	3.4-3
図 3.4.1-5	高速度カメラ (フレームレート 2000 fps) で撮影したステンレス鋼サンプル から飛散する微粒子の単色影絵像 ……	3.4-4
図 3.4.1-6	高速度カメラによる波長 640 nm スペクトル幅±10 nm のインコヒーレント単色照 明による影絵像 ……	3.4-4
図 3.4.1-7	微粒子飛散の観察を目的とした He-Ne レーザーを用いた単色コヒーレント照明光 学系の実験配置図 ……	3.4-5

図 3.4.1-8 高速度カメラによる波長 633 nm スペクトル幅 10^{-3} nm 以下、コヒーレント長約
10 cm 以上のコヒーレント単色照明による影絵像 3.4-6

図 3.4.1-9 レーザー生成微粒子と大気中の代表的な微粒子等の大きさと捕集フィルター
..... 3.4-7

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。

本報告書では、令和元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

レーザー照射実験に参加し、発生微粒子をSEMなどで測定した。

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)

平成30年度の成果を踏まえ、レーザー照射チャンバーを用いてデブリ模擬体(金属、セラミックス)、コンクリートにレーザー照射を行い、レーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動の評価を行った。

③相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

平成30年度の成果を踏まえ、高速度カメラによりレーザーとデブリ模擬体(金属、セラミックス)、コンクリートとの相互作用の観察・記録を行い、物理過程等の考察を行った。また、泡の発生する水中での画像計測の課題を抽出し、可能性を調べた。

(2) 微粒子捕集・計測

①微粒子捕集の分布評価

平成30年度の成果に基づき、空力学レンズを試料照射チャンバーに設置し、微粒子捕集の最適化を行った。また、発生微粒子径の分布計測に着手した。

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)

平成 30 年度に整備した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置により、デブリ等の切断時に発生する微粒子の予備実験を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する装置を整備し、レーザー切断時に発生する微粒子を捕集・計測する装置を製作した。

(3) 微粒子原子化・核種同定

①核種同定手法の開発

平成 30 年度に製作したレーザーシステムの波長の制御により、吸収分光を行った。

②原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

平成 30 年度に引き続き、共鳴レーザー光を照射することで得られる共鳴信号の観察により、同位体選択性があり強い共鳴信号が得られる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)

平成 30 年度に引き続き、レーザー加工実験により得られた広範囲の画像データを観察・記録し、これまでの知見を踏まえてレーザーと物質の相互作用に関する評価・解析を行った。また解析手法の改良を行った。

(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、令和元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。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	令和元年度	令和2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
		装置試作 予備試験	照射試験	微粒子発生挙動の評価
		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
		予備実験準備	予備実験 装置検討	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
		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
		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・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。

(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ー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。

(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。

(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見解をまとめ、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。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進める。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 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法

令和元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

レーザー照射実験に参加し、発生微粒子を SEM など測定する。

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)

平成 30 年度の成果を踏まえ、レーザー照射チャンバーを用いてデブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートにレーザー照射を行い、レーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動の評価を行う。

③ 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

平成 30 年度の成果を踏まえ、高速度カメラによりレーザーとデブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートとの相互作用の観察・記録を行い、物理過程等の考察を行う。また、泡の発生する水中での画像計測の課題を抽出し、可能性を調べる。

(2) 微粒子捕集・計測

① 微粒子捕集の分布評価

平成 30 年度の成果に基づき、空力学レンズを試料照射チャンバーに設置し、微粒子捕集の最適化を行う。また、発生微粒子径の分布計測に着手する。

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)

平成 30 年度に整備した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置により、デブリ等の切断時に発生する微粒子の予備実験を行う。また、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する装置を整備し、レーザー切断時に発生する微粒子を捕集・計測する装置を製作する。

(3) 微粒子原子化・核種同定

① 核種同定手法の開発

平成 30 年度に製作したレーザーシステムの波長の制御により、吸収分光を行う。

② 原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

平成 30 年度に引き続き、共鳴レーザー光を照射することで得られる共鳴信号の観察により、同位体選択性があり強い共鳴信号が得られる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)

平成 30 年度に引き続き、レーザー加工実験により得られた広範囲の画像データを観察・記録し、これまでの知見を踏まえてレーザーと物質の相互作用に関する評価・解析を行う。また解析手法の改良を行う。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに 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. 令和元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

原子力機構・櫛葉遠隔技術開発センターで行っているレーザー照射実験に参加し、レーザー照射時に発生する微粒子を捕集し走査電子顕微鏡 (SEM: Scanning Electron Microscope) で観察を行った。図 3.1.1-1 に捕集の様子を示す。まず、各試験体で発生する粒子の性状を確認するため、試験体の下に金属プレートを設置し、試験体に上部よりレーザー照射を行い、金属プレート上に堆積した微粒子を導電性テープで捕集した。



図 3.1.1-1 試験体と微粒子捕集用の金属プレート

図 3.1.1-2 に金属(SUS304)、セラミックス(アルミナ、ジルコニア、酸化ガドリニウム)、コンクリートの各試験体から捕集した微粒子の電子線 (SEM) 像とエネルギー分散型 X 線分析 (EDX: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) による点分析の結果を示す。高速度カメラによる撮影では、非常に細かい粒子が飛散する様子が観察されていたが、金属プレート上では数 μm 以上の比較的大きな粒子が多数確認された。形状については、図 3.1.1-2 で示したような、レーザーの入熱により熔融したと考えられる球状の粒子等が観察された。EDX による点分析の結果、観察された粒子は、各試験体の主要元素で構成されていることが確認できた。

次に、より微小な粒子を測定するため、図 3.1.1-3 に示すようにカスケードインパクトを用いて捕集を行った。レーザー照射部近傍にチューブを設置し、発生した微粒子をカスケードインパクトに導入した。カスケードインパクトは 3 段から構成されており、1 段目が $2\mu\text{m}$ 以上の大きな粒子、2 段目が $0.3\mu\text{m}\sim 2\mu\text{m}$ の粒子、3 段目が $0.05\mu\text{m}\sim 0.3\mu\text{m}$ の小さな粒子をそれぞれ捕集できる構造となっている。試験体としては、高速度カメラの撮影から、より小さな粒子が多く発生していると考えられる金属(SUS304)を用いた。図 3.1.1-4 に SEM 観察の結果を示すが、数十 nm オーダーの粒子が集合して成長したと思われる $1\mu\text{m}$ 超の粒子や、数十 nm オーダーの粒子が数珠繋ぎに連なっている粒子が観察された。これらは、レーザー照射部で発生したのち空气中で凝集して大きくなったと考えられる。

3.1-1

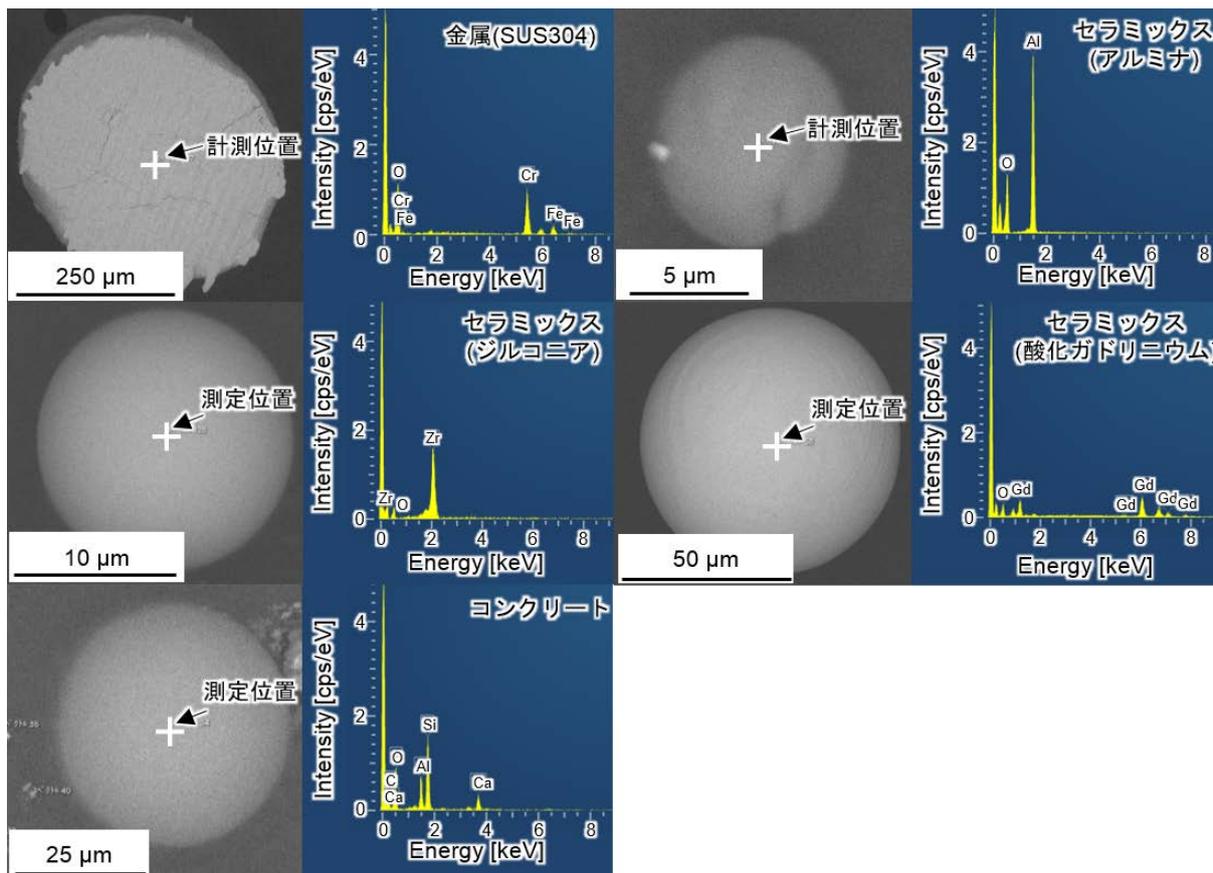


図 3.1.1-2 金属、セラミックス、コンクリートの各試験体から捕集した微粒子の電子線像と EDX 分析結果

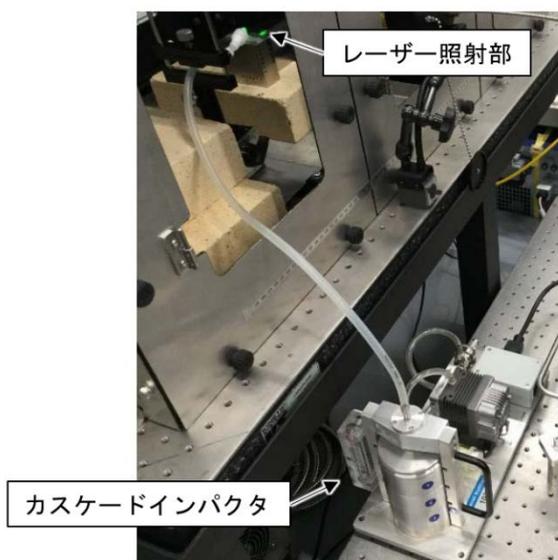


図 3.1.1-3 カスケードインパクトによる微粒子捕集の様子

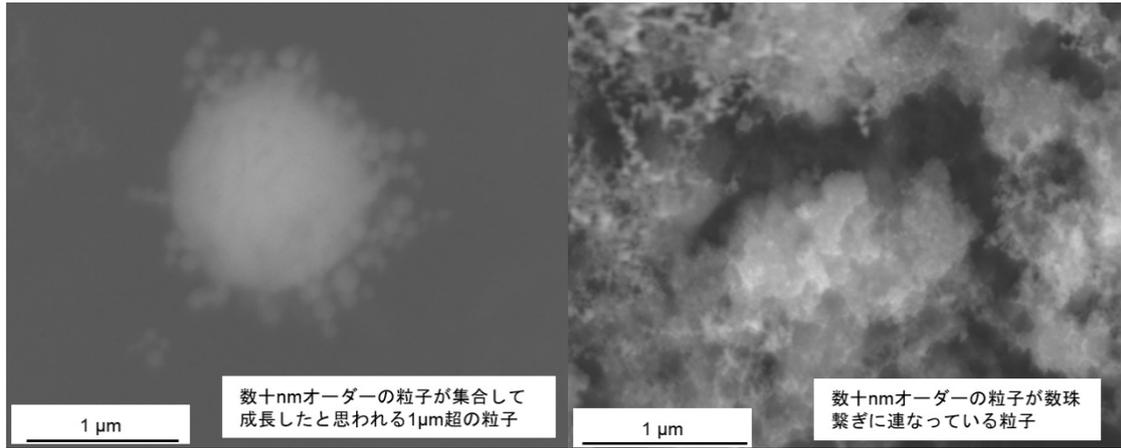


図 3.1.1-4 カスケードインパクトで捕集した金属微粒子の SEM 観察結果

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)

レーザー照射パラメータとして、レーザー出力に着目し照射を行った。試験体は、平成30年度から使用している金属(SUS304)、セラミックス(アルミナ)、コンクリートである。レーザー発振器は、最大3 kWでパルス照射が可能な準連続(QCW)ファイバーレーザーであり、レーザー出力は30%(880 W)、60%(1800 W)、90%(2700 W)の3条件とし、パルス幅10 msで固定し、各試験体に対し上部からレーザーを1パルス照射した。レーザー照射部の挙動は側面から高速度カメラで撮影した。高速度カメラの撮影条件は、撮影速度2,000 fps、露光時間0.5 msである。図3.1.2-1にレーザー照射から2 ms後の画像を示す。レーザー照射により発生するレーザー誘起プラズマの向きは、出力によらず、試験体表面に対し垂直上向きに発生していることが確認できた。レーザー出力が増加するとレーザー誘起プラズマも大きくなり、その周囲に飛散している微粒子も多くなっていることが、高速度カメラの画像から確認できる。また、微粒子の大きさに着目すると、セラミックスでは大きな粒子が大量に飛散している様子が伺えるが、コンクリートでは量が少なくなっており、金属では大きな粒子が少ないことが確認できた。

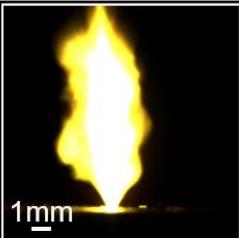
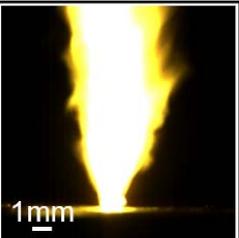
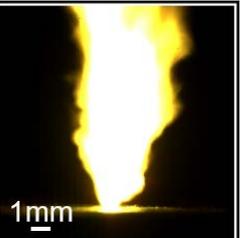
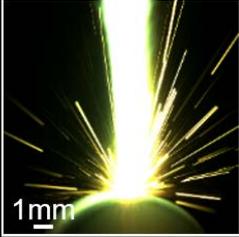
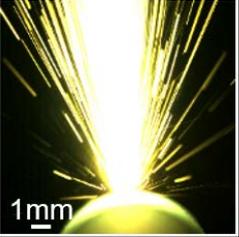
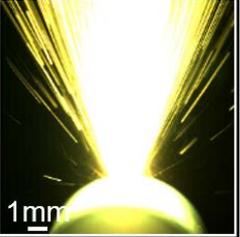
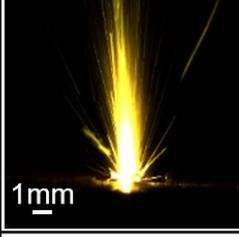
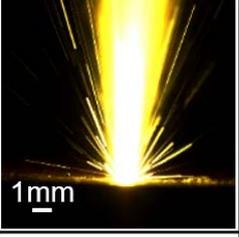
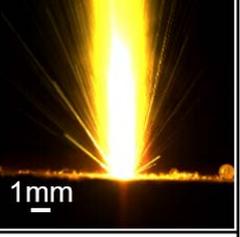
金属 (SUS304)			
	1mm	1mm	1mm
	887 W	1800 W	2700 W
セラミックス (アルミナ)			
	1mm	1mm	1mm
	887 W	1851 W	2680 W
コンクリート			
	1mm	1mm	1mm
	887 W	1834 W	2685 W

図 3.1.2-1 レーザー出力による各試験体の挙動(t=10 ms 後)

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・檜葉遠隔技術開発センターに設置されている最大出力3 kW、パルス幅10 ms、繰り返し周波数10 Hz、波長1.07 μm の準連続(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に伴う微粒子発生過程の観察を主題とした実験を令和元年度は4回行った。1回あたり概ね一週間にわたり実験した。令和元年度は平成30年度の結果を踏まえ、レーザーと金属材料としてステンレス鋼 (SUS304) サンプル、セラミックス材料としてアルミナ、酸化ガドリニウム、ジルコニアサンプル、さらに重コンクリートサンプルから発生するプルームの発光像と単色影絵法を併用して微粒子発生時の高速度カメラによる観察および記録を行った。記録したデータ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および微粒子発生過程の物理的考察を試みた。以下に微粒子発生過程と高速度カメラによる観察事項を箇条書きにする。

1. レーザーエネルギー吸収。
2. 融点を超えると照射部溶融開始。溶融部から液滴が飛散。照射部周辺から破砕片が飛散 (図3.1.3-1)。
3. レーザーエネルギー吸収進展。
4. 沸点を超えると蒸発が支配的。
5. 電離が進展するとレーザーエネルギーの吸収が急激に進む。
6. レーザー照射が終了すると膨張・熱伝導による冷却および酸化反応等が進行。
7. 凝縮核の形成と濃縮が起こり、微粒子が発生、飛散。
以上の過程に対応し観察できること。
8. 微粒子飛散、プルーム形成：高速度カメラで観察
9. 微粒子・プルームとレーザー光との相互作用：高速度カメラで観察
10. 微粒子・プルームと大気との相互作用：8、9を基礎に実験条件を工夫することにより高速度カメラで観察可能
11. 溶融部および熱応力破砕と思われる部分からの飛散微粒子：高速度カメラで観察
12. 飛散する微粒子捕捉データ：高速度カメラで観察した微粒子の結果を物理的考察するため相補的データとして活用。
13. 以上をまとめ、相互作用を物理的に考察。

以上に着目して、3.4節で実験データおよび解析結果を紹介する。

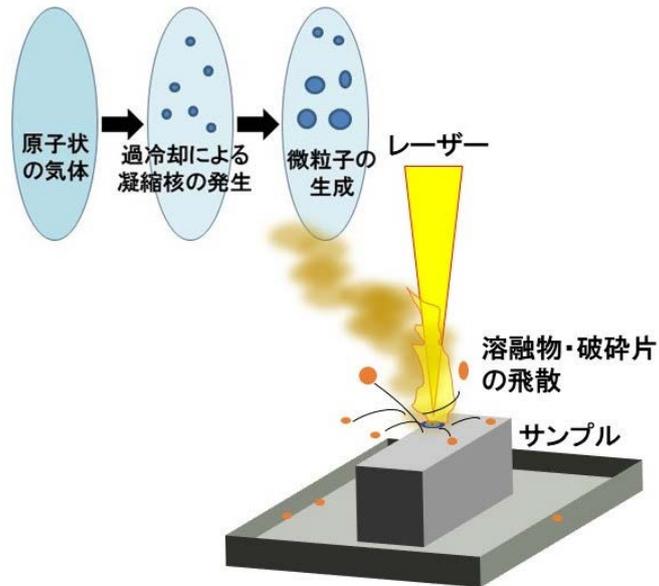


図3.1.3-1 レーザー照射による微粒子、溶融物、破砕片の発生と飛散の様子

レーザー照射が終了すると膨張・熱伝導による冷却が進行し、凝縮核の形成と濃縮が起こり、 $0.1\ \mu\text{m}$ 程度の大きさの微粒子が生成、飛散する[1]。またレーザー照射部から $>1\ \mu\text{m}$ 以上の大きさの溶融物が飛散する。さらに脆性物質ではさらに大きい破砕片が飛散する。

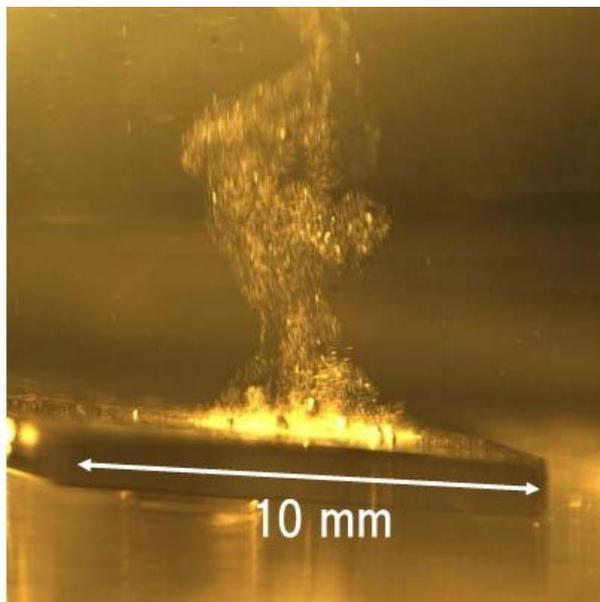


図 3.1.3-2 檜葉センターのQCW ファイバーレーザーの水中金属照射による泡の生成
(高速度カメラにより撮影)

泡の発生する水中での画像計測の課題を抽出し、可能性を調べた。水中に空洞形成用のガスを噴射しないときには図3.1.3-2のように直径 $100\ \mu\text{m}$ 以下の泡が多数形成される。

この実験はレーザーの水中透過距離が数mm以下であれば、レーザー光はほとんど減衰しない[2]ことを用いたレーザー加工法[3]において、微粒子の発生とここに示す泡が微粒子輸送に及ぼす効果の検討に繋がることが動機になっている。微小でかつ大量の泡は微粒子の観察を邪魔することになるが、高速度カメラにより泡の時間変化を止めて観察することにより、微粒子発生の様子は部分的に捉えることができる可能性がある。泡の発生する環境での観察では照明ビームの単色化や波長の最適化、照射方向の最適化などが高品質画像の取得に必要であると考えられる。

なお泡による微粒子の捕捉のメカニズムはプールスクラビングモデル(Pool scrubbing model)として知られている[4]。泡による微粒子の捕捉に関する主要な物理機構は微粒子のサイズに対し

1. 拡散 : Particle diffusion: サイズ<0.1 micro-meter
2. 捕捉 : Interception: サイズ 0.1-1 micro-meter
3. 慣性力 : Inertial deposition: サイズ>5 micro-meter

であることが知られている[4]。水を使う方法は、微粒子の低減に繋がる有効な方法と考えられるので、本研究課題とは別に関連事項として検討を深めることが望まれる。

参考文献

- [1] B. S. Luk' yanchuk, W. Marine, S. I. Anisimov, Condensation of Vapor and Nanoclusters Formation within the Vapor Plume, Produced by ns-Laser Ablation of Si, Laser Phys. 8, 291-302 (1998).
- [2] G. M. Hale and M. R. Querry, Optical Constants of Water in the 200-nm to 200- μ m Wavelength Region, Appl. Opt. 12, 555-563(1973).
- [3] T. Yamada, T. Hanari, T. Takebe, Y. Matsunaga, N. P. Long, T. Muramatsu, Proc. the International Congress on Applications of Lasers & Electro-Optics (ICALEO) 2014, Paper number 103, San Diego, California, USA, October 19-23, 2014.
- [4] E. Porcheron E. S. Peillon, T. Gelain, C. Chagnot, C. Journeau, D. Roulet. Fukushima Dai-ichi Fuel Debris Retrieval: Aerosol Scrubbing Efficiency Applied to Laser Cutting of Corium Simulants Underwater, Proc. 14th Triennial International Conference on Liquid Atomization and Spray System (ICLASS 2018), Chicago Illinois USA, July 22-26, 2018.

3.2 微粒子捕集・計測

3.2.1 微粒子捕集の分布評価

平成 30 年度の成果に基づき、空力学レンズを試料照射チャンバーに設置し、微粒子捕集の最適化を行った。また、発生微粒子径の分布計測に着手した。

(1) 微粒子捕集の最適化

平成 30 年度に整備した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置による微粒子捕集予備実験により (3.2.2(1)参照)、バックグラウンド成分および一部の成分が検出できた重コンクリートサンプルから発生した微粒子が適切な信号強度で測定できるよう、空力学レンズと試料照射チャンバーの位置等を最適化した。

主なパラメータの一例は、以下の通り。

- ・レーザー照射のパラメータは、パルス幅 10 ms、繰り返し周波数 10 Hz、繰り返し回数 10 回。
- ・採取位置は、照射チャンバーの鉛直方向中央段のポート (サンプルはチャンバー底部中央にセット。照射位置からポート位置までの鉛直方向距離は 17 cm)。
- ・照射チャンバーと空力学レンズの距離は 47 cm (照射位置から空力学レンズ入口までの水平方向距離は 61 cm)。

また、サンプルへのレーザー照射により発生した微粒子をカスケードインパクトで捕集し、FE-SEMによる観察とEDXによる元素分析を行った結果、電気抵抗加熱炉による蒸気化では検出できなかったステンレス鋼 (SUS304) について、数十 nm オーダーの粒子が集合して成長したと思われる $1\mu\text{m}$ 超の粒子や、数十 nm オーダーの粒子が数珠繋ぎに連なっている粒子が観察された (3.1.1 参照)。今回整備した装置の空力学レンズは粒径 $0.06\mu\text{m}\sim 2\mu\text{m}$ の粒子を捕集できる設計であり、用意できた粒径 $0.1\mu\text{m}\sim 0.8\mu\text{m}$ の標準粒子の測定とそれを用いた粒径の校正が行えたことから (3.2.2(2)参照)、ステンレス鋼にレーザーを照射して発生した微粒子の捕集は期待できる。

なお、カスケードインパクトで捕集した粒子の SEM 観察画像は、粒子象が重なるほど多数の粒子が捕集されているが、レーザー出力 30% で 1 パルス照射であることから (3.1.1 参照)、空力学レンズのレファレンスであり、補完手法となるカスケードインパクトで粒径分布を把握するためには、微粒子プルームの希釈等の工夫が要求され、必要性に応じて今後検討することとする。

(2) 発生微粒子径の分布計測の着手

後述する 3.2.2(2)において、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する装置を整備したことから、レーザー照射により発生した微粒子の粒径分布計測に着手した。令和元年度は、その一部が捕集できた重コンクリート中の硫酸塩のフラグメント成分の粒径分布の測定を試みた。

後述する 3.2.2(1)における重コンクリートの捕集予備実験と同一のセットアップおよ

び実験条件により、3.2.2(2)で整備した粒径分布測定を行った結果を図3.2.1-1に示す。

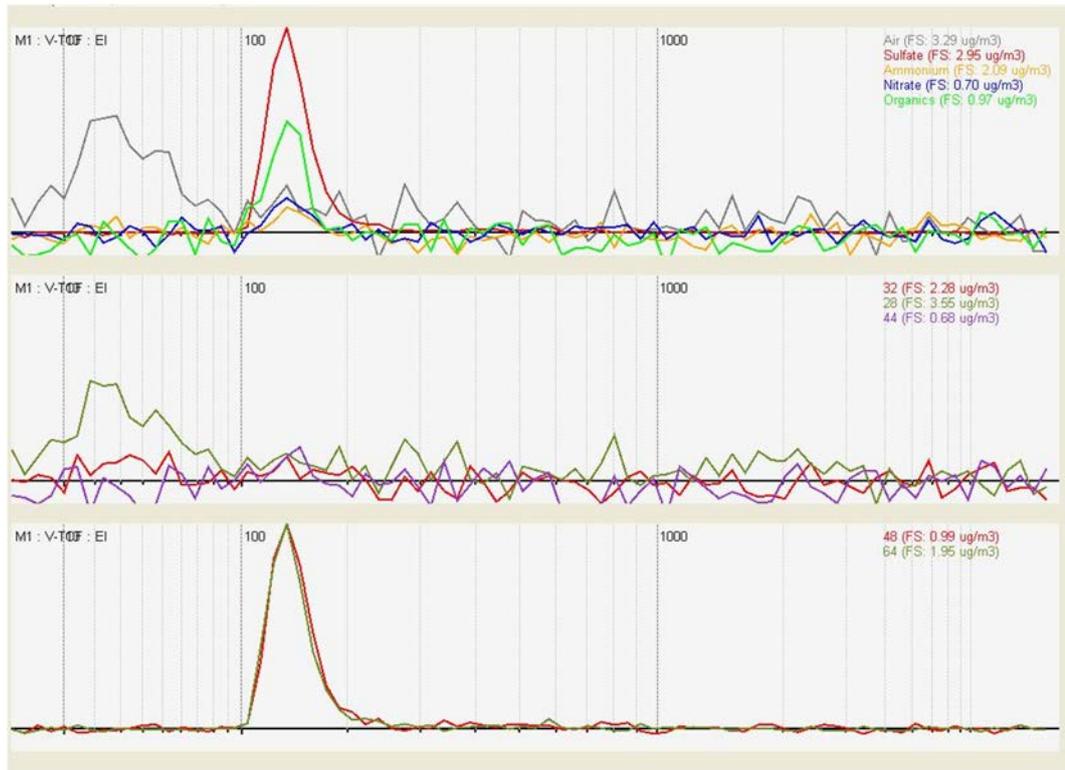


図 3.2.1-1 重コンクリートの粒径スペクトル

重コンクリート中の硫酸塩のフラグメント成分 SO ($m/z=48$) および SO_2 ($m/z=64$) については、粒径 $0.13 \mu\text{m}$ に明瞭なピークが検出され、粒径分布が測定できる結果が得られた。また、バックグラウンドの空気成分 N_2 ($m/z=28$)、酸素 O_2 ($m/z=32$) については、粒径 $0.02 \mu\text{m} \sim 0.03 \mu\text{m}$ にピークが検出され、この領域の粒径の測定の可能性も示された。カスケードインパクトによるステンレス鋼の測定では粒径数十 μm の微粒子が観察されており (3.1.1 参照)、それらが空力学レンズにより捕集できることが期待できる。

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)

平成 30 年度に整備した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置により、デブリ等の切断時に発生する微粒子の予備実験を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する装置を整備し、レーザー切断時に発生する微粒子を捕集・計測する装置を製作した。

(1) 微粒子捕集予備実験

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。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 をベースとしてレーザー共鳴イオン化への改造を行ったものであるが、本研究において、微粒子捕集および粒径計測への適用を目指すため、平成 30 年度に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作業を行った。

これにより、空力学レンズにより捕集した微粒子を電気抵抗加熱炉で約 600℃まで昇温して蒸発させ、タングステンフィラメントに通電して発生させた熱電子を照射してイオン化する方法（電子衝撃イオン化）が整備された。令和元年度は、この装置を用いて、空力学レンズによる微粒子捕集の予備実験を行った。

空力学レンズは、図 3.2.2-1 に示すように、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、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。

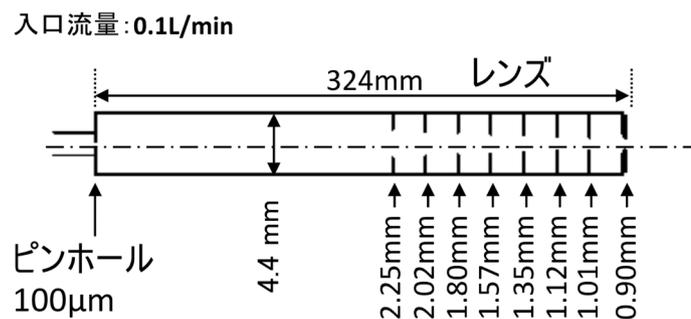


図 3.2.2-1 空力学レンズ

空力学レンズの粒子透過特性については、前述の研究においてシミュレーションにより概ね粒径 0.06 ~ 2 μ m のエアロゾルが通過する結果を得ており、平成 30 年度に実施した検討結果から本研究に適合する可能性が期待できることから、これを利用した。

微粒子捕集の予備実験は、原子力機構・楡葉遠隔技術開発センターに設置されている最大出力 3 kW、パルス幅 10 ms、繰り返し周波数 10 Hz、波長 1.07 μ m の準連続(QCW)ファイバーレーザーを試験体に照射し、発生したプルームを空力学レンズに導入すること

により行った。試験体は、デブリ等の切断時に発生する微粒子を想定し、レーザー照射による微粒子発生挙動および相互作用の評価（3.1.2 および 3.1.3）を参照して、それらの実験に供された試験体から、金属材料としてステンレス鋼（SUS304）サンプルおよび重コンクリートサンプルを選定した。QCW ファイバーレーザーの出力は 30 %（880 W）とし、10 パルス程度（約 10 秒間）照射した。実験体系を図 3.2.2-2 に、試験体の例として、レーザー照射チャンバーの底部にセットされた重コンクリートサンプルを図 3.2.2-3 に示す。

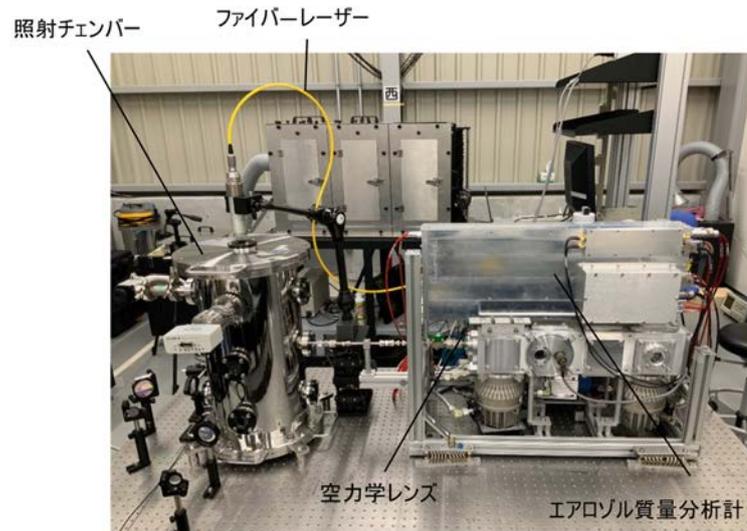


図 3.2.2-2 微粒子捕集実験装置



図 3.2.2-3 重コンクリートサンプル

ステンレス鋼サンプルおよび重コンクリートサンプルの実験に先立ち、バックグラウンドとなる空気成分を空力学レンズで捕集し、質量分析計で質量スペクトルを測定した結果を図 3.2.2-4 に示す。空気の主成分である窒素 N_2 ($m/z=28$)、酸素 O_2 ($m/z=32$)、二酸化炭素 CO_2 ($m/z=44$)、水 H_2O ($m/z=18$) とそれらのフラグメント ($m/z=14, 16$ など) が検出され、高 m/z 側には、水の同重体に水素等が結合したクラスターのピークが周期的に観察された。

3.2-4

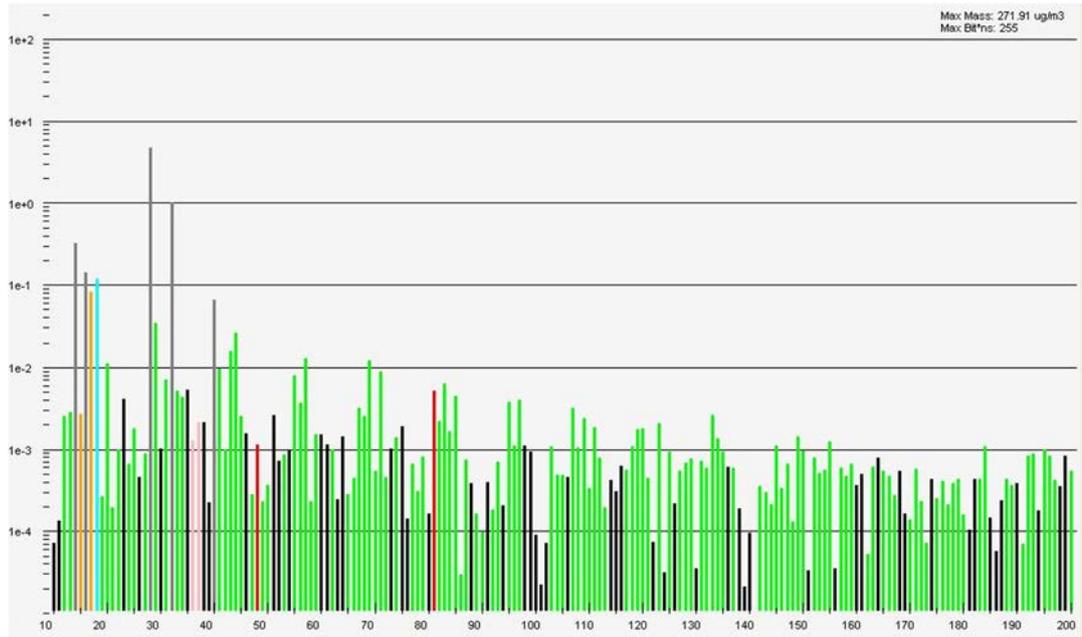


図 3.2.2-4 バックグラウンド（空気成分）の質量スペクトル

次に、ステンレス鋼（SUS304）サンプルにレーザー照射して発生した微粒子を捕集し、質量スペクトルを測定した結果を図 3.2.2-5 に示す。水 H_2O ($m/z=18$) およびの同重体に水素等が結合したクラスターの信号はバックグラウンドより 1 桁程度高い値を示したが、Fe, Cr, Ni 等の金属成分は検出されなかった。しかし、電気抵抗加熱炉では約 $600^{\circ}C$ までしか昇温できないため、空力学レンズにより捕集された微粒子のうち金属成分は蒸気化されず、イオン化されなかった可能性が考えられる。

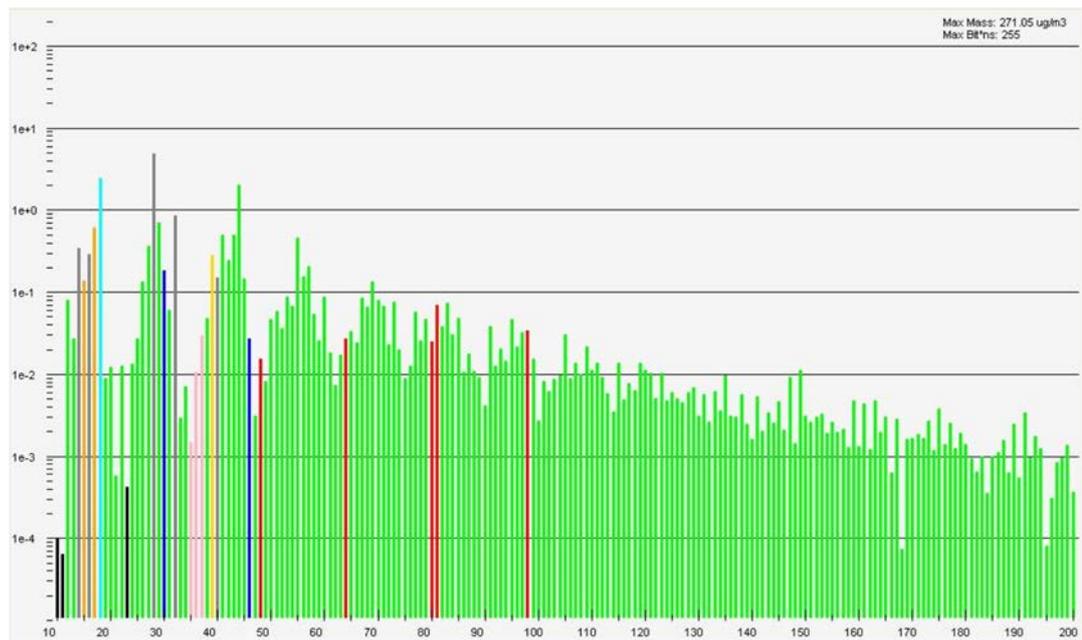


図 3.2.2-5 ステンレス鋼（SUS34）の質量スペクトル

重コンクリートサンプルにレーザー照射して発生した微粒子を捕集し、質量スペクトルを測定した結果を図 3.2.2-6 に示す。バックグラウンドの測定では有意に検出されなかった $m/z=48$ および $m/z=64$ にピークが検出された。これらは、重コンクリートに含まれる硫酸塩のフラグメント SO ($m/z=48$) および SO_2 ($m/z=64$) と考えられ、重コンクリート成分が捕集されたことを示唆している。重コンクリートの主成分である Ca, Al, Si 等と思われるピークは検出されなかったが、これは、ステンレス鋼の実験と同様に、電気抵抗加熱炉による昇温不足によりこれらの成分は蒸気化されなかったものと考えられる。

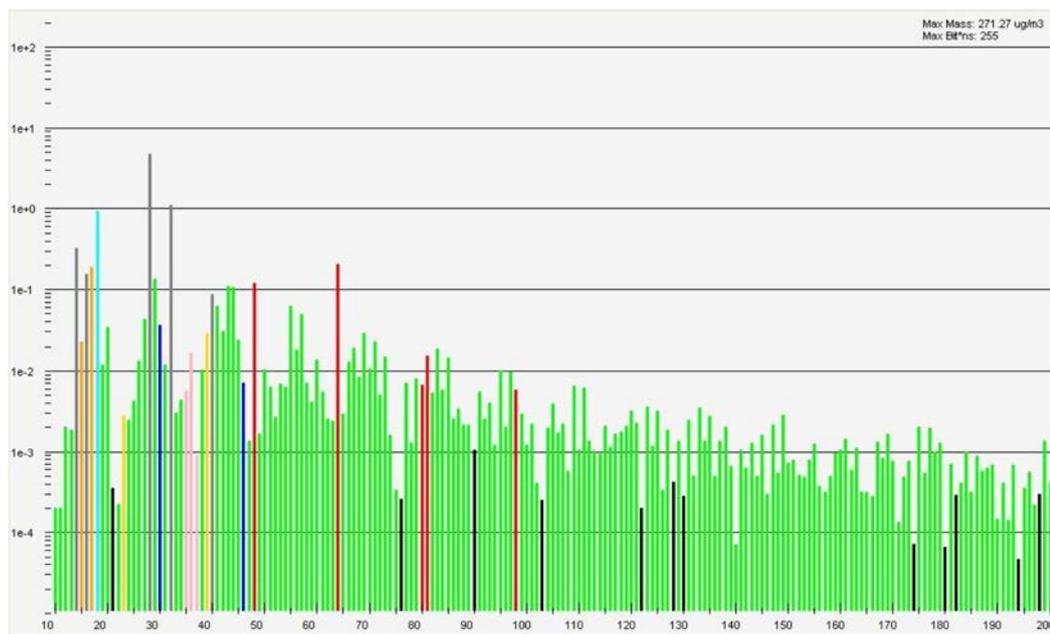


図 3.2.2-6 重コンクリートの質量スペクトル

これらの予備実験の結果から、非金属成分についてはレーザー照射により発生した微粒子を捕集できる可能性が示唆された。一方、対象とする燃料デブリや原子炉構造材等の主成分である金属成分については、現行の電気抵抗加熱炉による熱蒸発では蒸気化されずイオン化できない。このため、同装置の粒径計測部を整備して空力学レンズによる捕集可能な粒径の範囲を把握するとともに、カスケードインパクトで微粒子の粒径分布を観察し、それらから空力学レンズの捕集性能を把握する必要がある（3.1.1 参照）。

空力学レンズにより捕集した燃料デブリや原子炉構造材等の主成分を分析するためには、金属成分を蒸気化し、それを計測する技術が必要であり、本研究で提案しているレーザーアブレーションによる原子化+共鳴吸収分光が有効であると考えられる（3.3.2 参照）。

(2) 微粒子捕集・計測装置の製作

前述のエアロゾル捕集装置を整備して、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する機能を追加した。装置の概略を図 3.2.2-7 に、粒径測定部の設計図を図 3.2.2-8 に示す。

3.2-6

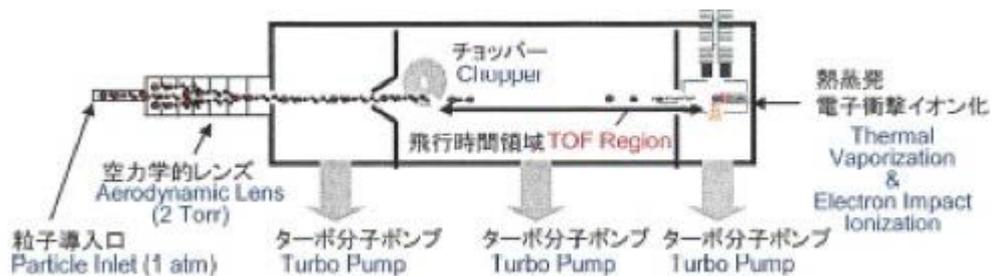


図 3. 2. 2-7 エアロゾル捕集・粒径測定部の概略図

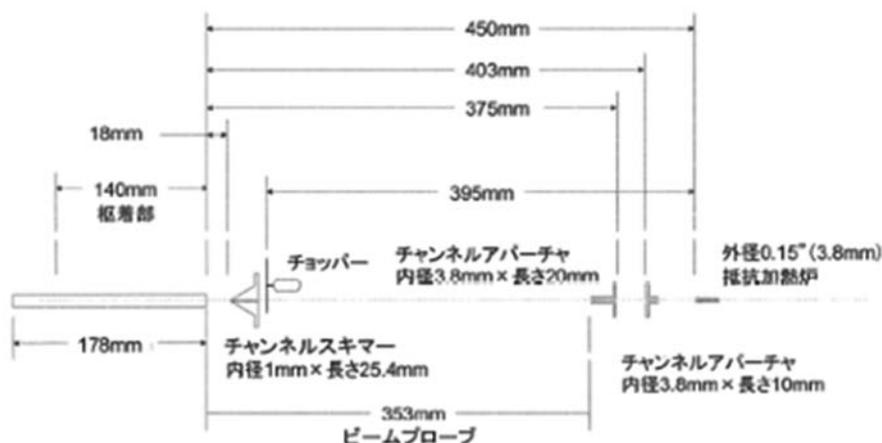


図 3. 2. 2-8 粒径測定部の設計図

当該機能の追加においては、空力学レンズ部、飛行時間領域、蒸気化・イオン化部における多段の差動排気の安定性が重要であり、各部位のターボ分子ポンプの前段に位置するダイヤフラムポンプについて、粒径測定に適合した差動排気が安定して行えるよう交換を行った。粒径測定用のダイヤフラムポンプの取り付け状況を図 3. 2. 2-9 に示す。



図 3. 2. 2-9 ダイヤフラムポンプ

また、微粒子の飛行時間はイオン化後の質量分析計で測定するため、微粒子の飛行時間測定の開始に相当するチョッパーの通過時刻と質量分析計のイオン検出器の測定開始時刻を同期させるための信号ラインを新設した。当該信号ラインの新設に伴い取り付けられたトリガー信号ケーブルを図 3.2.2-10 に示す。



図 3.2.2-10 トリガー信号ケーブル

これらの整備後、ダイヤフラムポンプの電源を投入し、装置内の真空引きを開始した。その後、各ターボ分子ポンプも順次電源投入した。全ターボ分子ポンプの回転数が規定回転数に到達した後、そのまま 20 時間真空引きを継続した。

装置内の各部位が高真空状態に到達したことを確認してから電気抵抗加熱炉の電源を投入し、加熱炉の温度が 500°C を超えるまで待った後、イオン源フィラメント、電極、イオン検出器等への所定の高圧電源を印加し、粒径測定の前準備を完了した。

粒径測定機能の動作確認を行うため、粒径標準粒子として一般的に使用される粒子径が非常に揃った真球状ポリスチレンラテックス粒子の水分散体（以下、PSL 粒子という。）を測定した。その測定結果の一例を図 3.2.2-11 に示す。

図 3.2.2-11 では、質量スペクトル（同図の上部のグラフ）において、バックグラウンドである空気成分とともに、スチレン分子 ($m/z=104$) のピークが測定され、PSL 粒子が捕集・検出できている。

同図の下部の小さな 3 個のグラフは飛行時間（表示上は、初期設定の校正値により粒径に換算されている。）スペクトルで、左側は空気 ($m/z=28$ と $m/z=32$ の和)、右側上部は空気成分のうち窒素と酸素を別々に表示 ($m/z=28$ 、 $m/z=32$)、右側下部はスチレン分子 ($m/z=104$) のピークが測定された。これより、空力学レンズにより捕集された微粒子の飛行時間を測定し、粒径分布を求める機能が作動することが確認できたので、ポリスチレンラテックス粒子を用いて粒径の校正を行った。

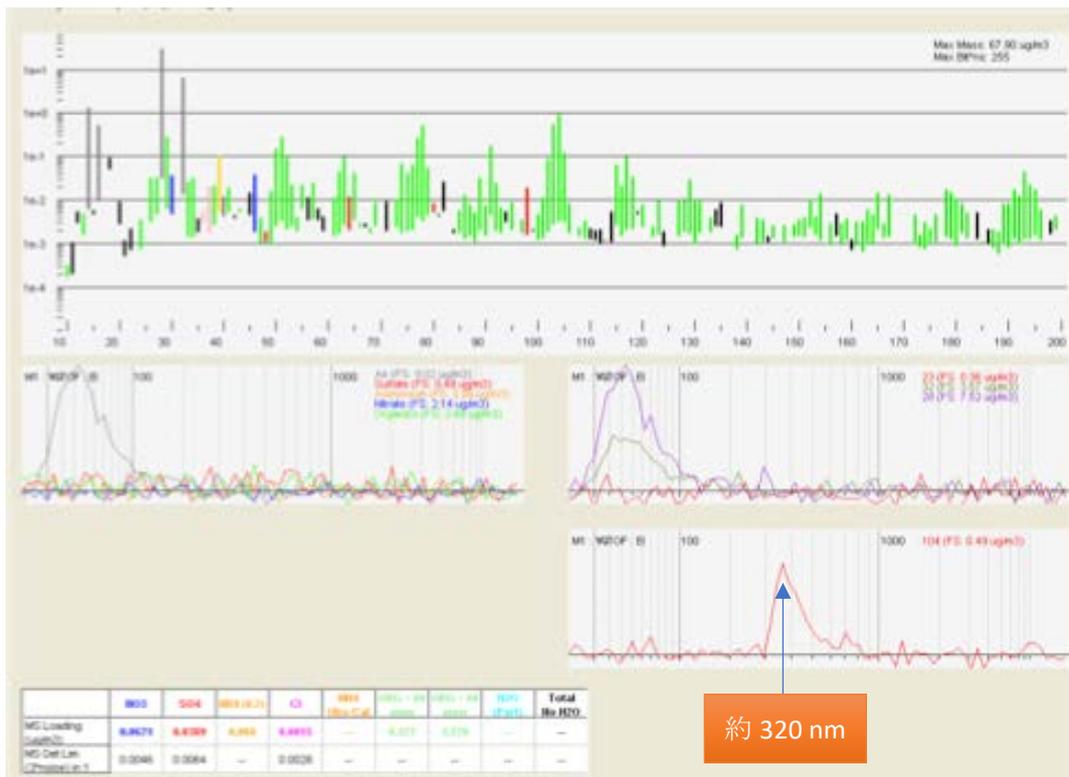


図 3.2.2-11 PSL 粒子の粒径測定結果

粒径（幾何学径） $0.1\mu\text{m} \sim 0.8\mu\text{m}$ の6種類の粒径のPSL粒子について、それぞれアトマイザーでエアロゾル状にして空力学レンズに導入し、空力学レンズを通過した粒子がチョッパーを通過してから電気抵抗加熱炉に到達するまでの飛行時間を測定し、得られた測定値がその粒径となるように校正を行った。

PSL 粒子の測定結果を図 3.2.2-12～図 3.2.2-17 に示す。

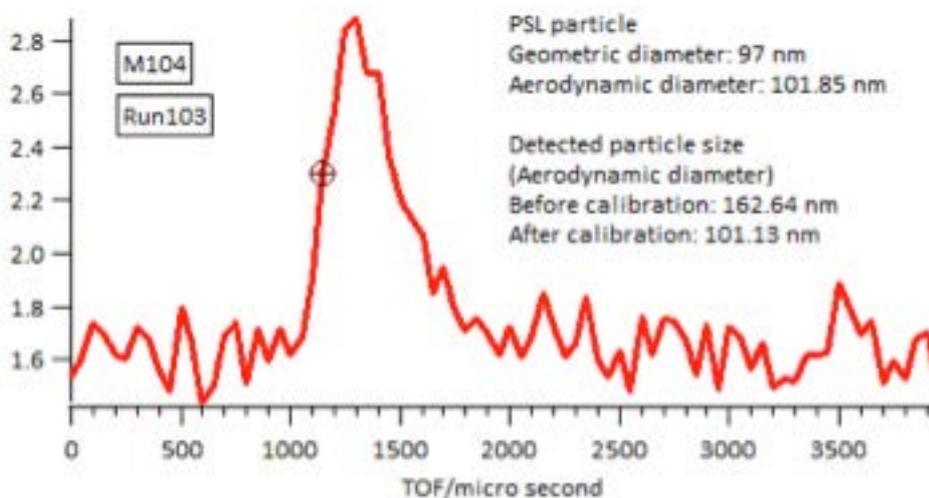


図 3.2.2-12 PSL 粒子（幾何学径 $0.097\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

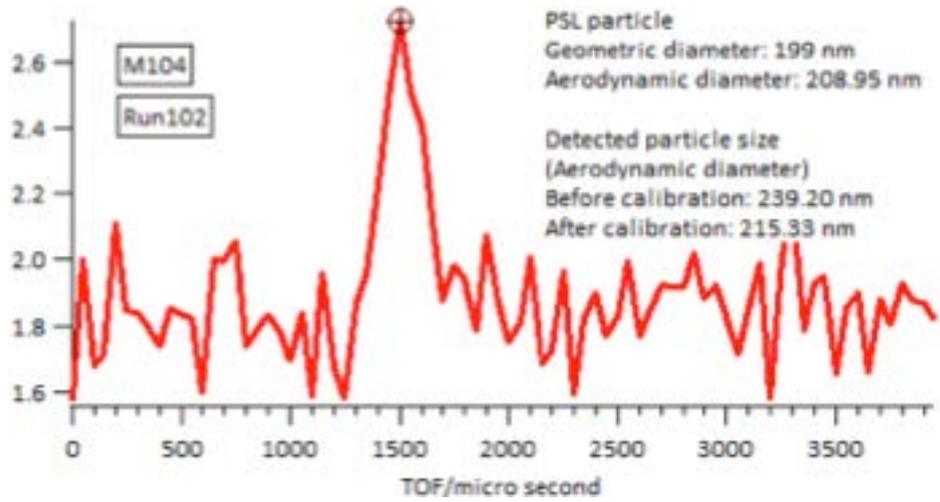


図 3.2.2-13 PSL 粒子（幾何学径 $0.199 \mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

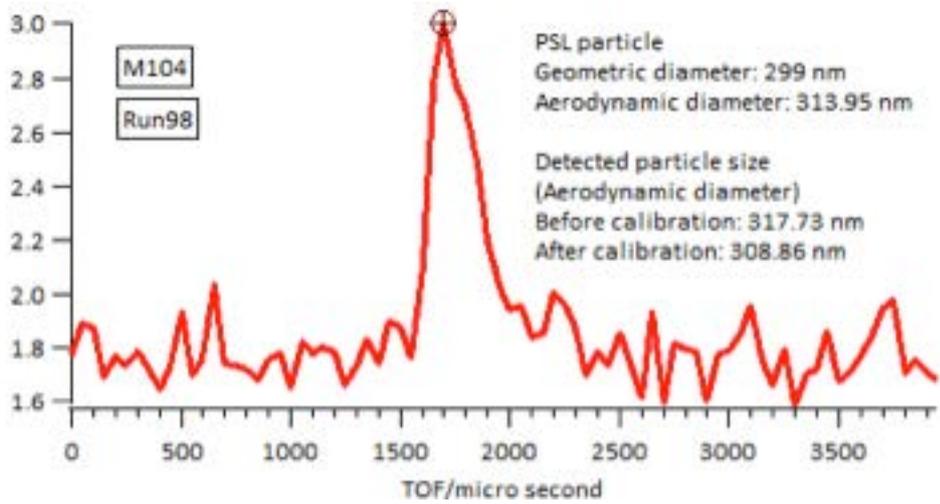


図 3.2.2-14 PSL 粒子（幾何学径 $0.299 \mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

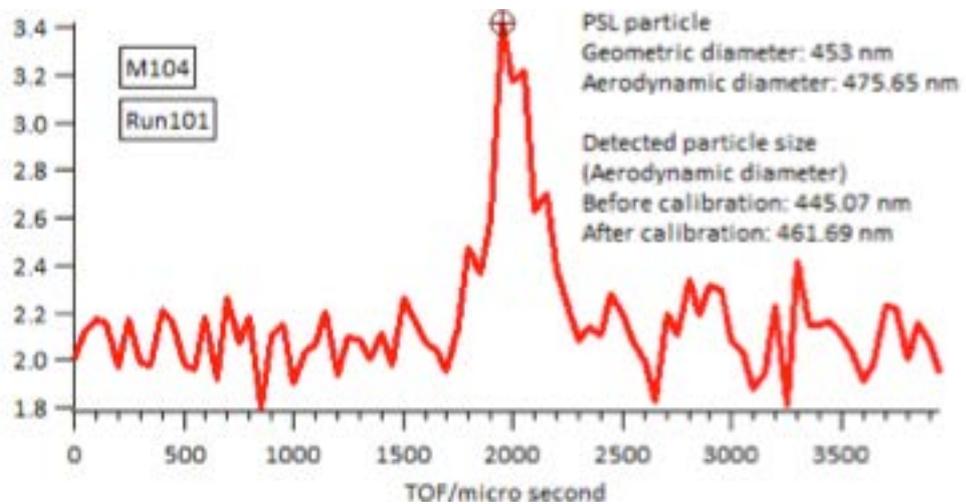


図 3.2.2-15 PSL 粒子（幾何学径 $0.453 \mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

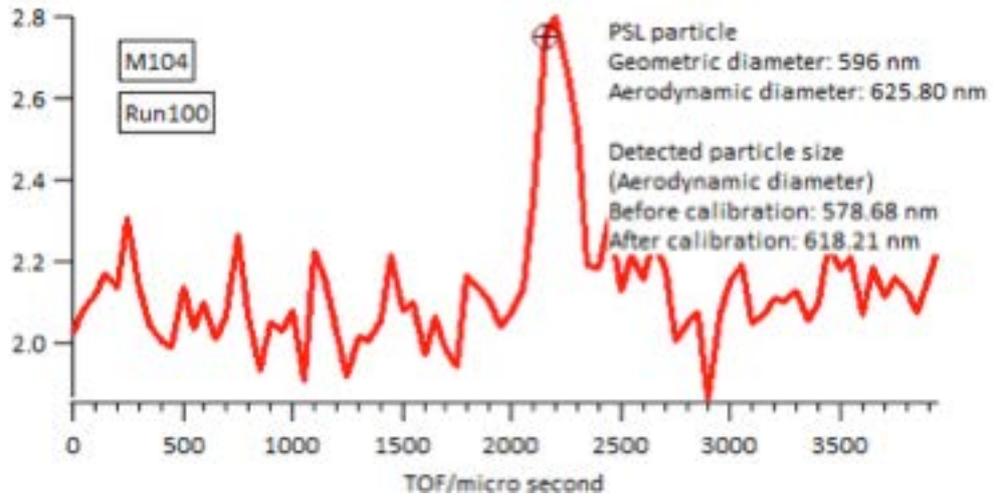


図 3.2.2-16 PSL 粒子（幾何学径 0.596 μm ）の飛行時間スペクトル

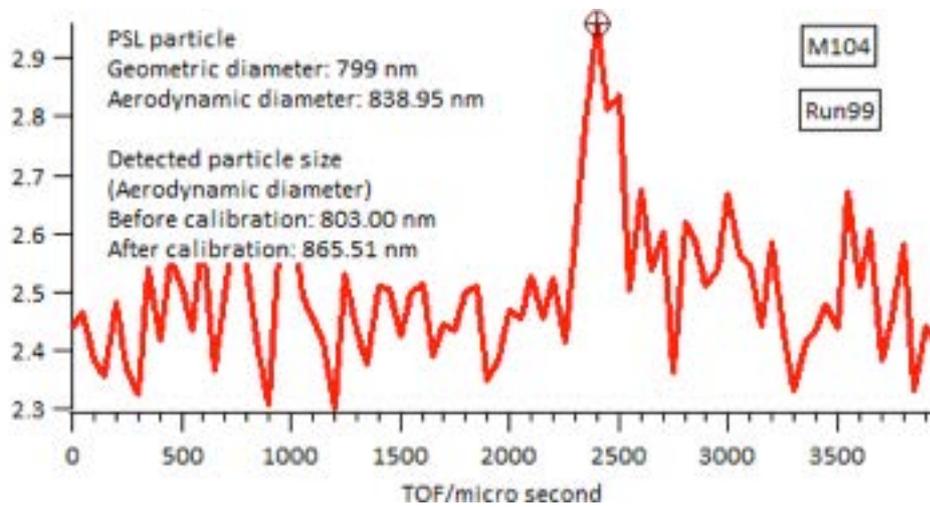


図 3.2.2-17 PSL 粒子（幾何学径 0.799 μm ）の飛行時間スペクトル

これらの結果を用いて粒径計測部で測定される飛行時間スペクトルは校正されて粒径スペクトルが得られるようになり、微粒子を捕集・計測する装置を製作が完了した。

3.3 微粒子原子化・核種同定

3.3.1 核種同定手法の開発

平成 30 年度に製作したレーザーシステムの波長の制御により、吸収分光を行った。ガドリニウムを対象にして、元素の吸収に対応した波長を、本レーザーシステムで発振するよう調整し、そこを中心にして波長制御を行い、掃引することで、ガドリニウム原子の吸収スペクトルの取得に成功した。

以下具体的な内容について報告する。

(1) 波長制御

① 波長出し

狭帯域半導体レーザーの波長を適切に調節することで、対象遷移である波長での発振を達成した。

一個の半導体レーザー素子で発振できる波長範囲は青紫領域の素子で 5 nm 程度とされている。発振波長が連続的に変化する範囲は狭く、不連続な変化(モードポップ)を繰り返しながら変化する。半導体レーザーを分光分析に用いる場合は、対象遷移の共鳴波長の光を発振させることが必要であることから、半導体レーザーの発振波長を安定化し、適切な波長に調整する技術が不可欠である。波長を変化させるのに有効な調整部位は、回折格子調整部、メインプレートの押しねじ、電流、温度、ピエゾ電圧が挙げられる。

ここでは、具体的な波長の調節方法を説明する。光源から出た光を波長計でモニタリングし、フラッシングから外れない様に注意しながら、回折格子角度を調節し、目標周波数の±300 GHz まで近づける。次に、3本のファインピッチねじを調節し、目標周波数の±100 GHz まで近づける。次に、温度コントローラとピエゾコントローラで目標周波数±10 GHz 程度まで近づけ、電流コントローラで微調節する。以上の作業により、目標遷移である 739.1575 THz の発振を確認した(図 3.3.1-1)。

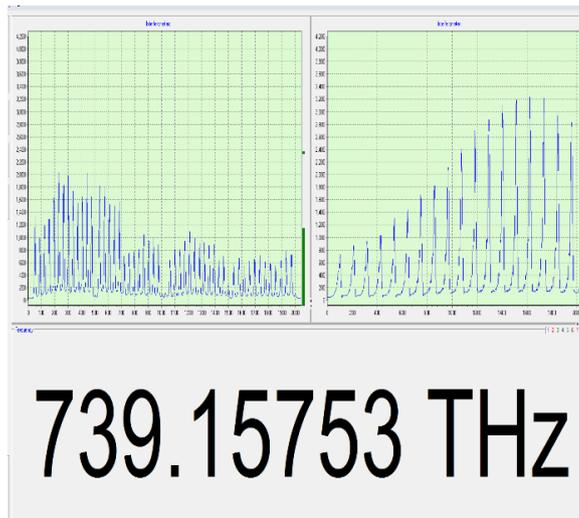


図 3.3.1-1 波長計から確認された 739.1575THz の波長
(スクリーンショット)

②フィードフォワード制御

半導体レーザーの駆動電流を補償するフィードフォワード回路を構築し、対象遷移の同位体シフトによる信号を包含するのに十分な周波数掃引範囲である 10.7 GHz を達成した。

一般に、外部共振器型半導体レーザー (External Cavity Diode Laser: ECDL) のグレーティングによる周波数掃引の幅は約 2-3 GHz 程度である。この範囲を超えると、モードポップという現象が起き周波数が大きく変化する。モードポップとは、その時発振しているシングルモードから他のシングルモードまたはマルチモードに変化する現象のことである。フィードフォワード制御をしない場合の本装置の波長掃引範囲は 2.8 GHz であった。

モードポップを防ぐには、回折格子の角度や外部共振器長を制御するピエゾ素子の印加電圧を変えて波長を掃引する際に、ピエゾ電圧に比例してレーザーダイオード (Laser Diode: LD) の駆動電流も変化させ、モードポップを抑えながら波長を連続的に変化させるフィードフォワード法が有効である。

これを実現するために、フィードフォワード回路(図 3.3.1-2)を作製した。フィードフォワード回路にピエゾ出力が入力されると、入力電圧は 1/100 に減衰され、反転回路によって信号が反転される。反転された信号は、出力前の可変抵抗によって信号が定数倍されて電圧を出力する。フィードフォワード回路から出力された電圧は電流ドライバの外部入力へ送られ、LD の注入電流が操作される。出力前の可変抵抗の値を調整することにより、LD の注入電流を制御する。

フィードフォワード回路の最適パラメータを求めるために、共鳴周波数である 739.1575 THz を含む、モードポップしない範囲において電流およびピエゾ電圧の周波数の変化幅の比を求めた。その結果、 -0.295 mA/V であることがわかった。つまり、ピエゾ電圧が 1V 大きくなった際に、注入電流を 0.295 mA 小さくすれば良い。電流ドライバの外部入力における注入電流の変化量は 20 mA/V となっていることを考慮し、フィードフォワード回路の出力が入力の $-0.295/20 = -0.01475$ 倍になるように可変抵抗の抵抗値を調整した。調整には、ピエゾドライバの出力を 10 V とし、フィードフォワード回路からの出力をオシロスコープによってモニタリングしながら手動で行った。この回路によってフィードフォワード制御を行ったところ、対象遷移の同位体シフトを包含するのに十分な 10.7 GHz の周波数掃引範囲が得られた (図 3.3.1-3)。

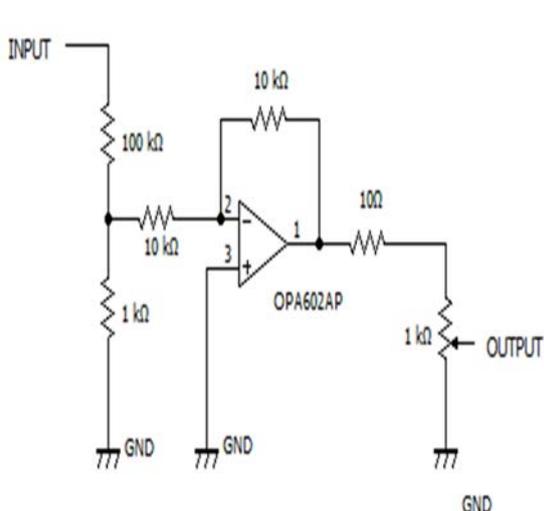


図 3.3.1-2 フィードフォワード回路

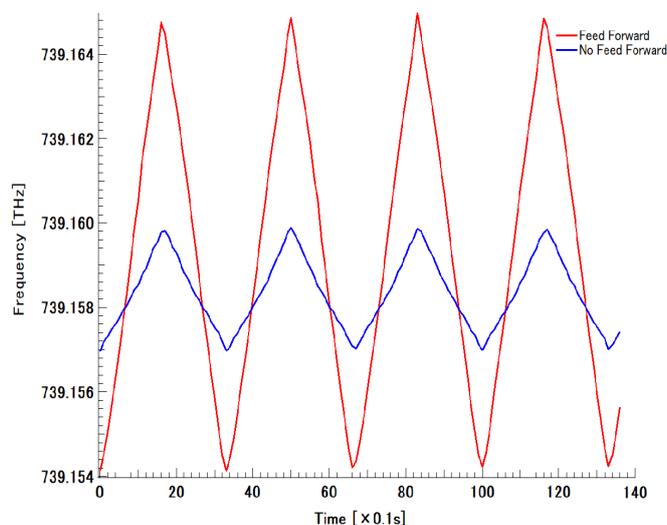


図 3.3.1-3 フィードフォワード制御により
拡大された周波数掃引範囲

(2) グロー放電吸収分光法

グロー放電吸収分光法とは、グロー放電させたプラズマ中に、レーザー光を通過させて吸収分析を行う手法である。グロー放電プラズマによる電子衝突を利用して、プラズマ内の原子を様々なエネルギー準位に励起することで、測定したい吸収遷移への励起が可能となる。

本手法の利点は、スパッタリングを行うことで、複雑な化学形を有する固体試料を化学的な前処理を行うことなく中性原子として気相化可能であることが挙げられる。

平成 30 年度製作した狭帯域半導体レーザーシステムを利用し、カソード電極上に静置されたガドリニウム金属試料をグロー放電によりスパッタリングさせて気相化させることで、その吸収信号を取得した。

(3) ガドリニウム固体試料の信号

本研究では、試料として、ガドリニウムを選定した。ガドリニウムは原子番号 64 の希土類元素である。ガドリニウムは中性子吸収断面積が非常に大きいことから、原子炉の制御材料に用いられる。中性子吸収材として核燃料中に装荷されることが多い。ガドリニウムの組成と含有率は燃料デブリ分析における最重要項目の一つとして挙げられる[1]。対象遷移としては、基底からの遷移である $4f^7 ({}^8S^0)5d6s^2 ({}^9D^0) [J=2] \rightarrow 4f^7 ({}^8S^0)5d({}^7D^0)6s6p ({}^3P^0) [J=2]$ とした。共鳴波長は 405.4722 nm, 共鳴周波数は 739.1575 THz であることが報告されており[2]、平成 30 年度製作した狭帯域半導体レーザーで調節可能な波長である。

①同位体シフト

同じ元素であっても異なる中性子数を持つ同位体では、遷移エネルギーに差が生じる。この差を同位体シフトという。

ガドリニウムの同位体のうち天然に生成するものには ${}^{154}\text{Gd}$ 、 ${}^{155}\text{Gd}$ 、 ${}^{156}\text{Gd}$ 、 ${}^{157}\text{Gd}$ 、 ${}^{158}\text{Gd}$ 、 ${}^{160}\text{Gd}$ の 6 種類が存在する。その存在比を表 3.3.1-1 に示す。本研究の対象遷移である 405.4722 nm 遷移の同位体シフトは Wei-Guo らによって報告されており[2]、表 3.3.1-2 に示す。7.586 GHz よりも広いスキャン幅で波長を変化させれば、同位体シフトによる全ての吸収遷移を包括して信号を観測できることが確認できる。

表 3.3.1-1 ガドリニウム同位体の天然存在比

同位元素	自然界存在比
${}^{154}\text{Gd}$	21.86%
${}^{155}\text{Gd}$	24.84%
${}^{156}\text{Gd}$	15.65%
${}^{157}\text{Gd}$	20.47%
${}^{158}\text{Gd}$	14.80%
${}^{160}\text{Gd}$	2.18%
${}^{152}\text{Gd}$ (放射性同位体)	0.20%

表 3.3.1-2 405.4722nm におけるガドリニウムの同位体シフト[2]

Transition (nm)	Isotope shift (MHz)				
	160-158	158-157	158-156	156-155	156-154
405.4722	-1614.2	-1269.8	-1554.4	-1066.1	-2081.5

(4) 実験系の構築

吸収信号取得の為の実験系を構築した。実験系の模式図を（図 3.3.1-4）に示す。光源は、平成 30 年度製作した狭帯域半導体レーザーを使用した。駆動には電流コントローラ（Thorlabs, LDC201CU）・温度コントローラ（Thorlabs, TED200C）・ピエゾコントローラ（Thorlabs, MDT694B）を使用している。また、半導体レーザーのモードポップを防ぐために、フィードフォワード回路を構築し、半導体レーザーの駆動電流変化を補償している。光源から出た光は、アイソレータを通してエタロン、中性原子蒸気源と 30 MHz の精度で波長校正可能な波長計（High Finesse, WS-U30）に同時接続される。エタロンと中性原子蒸気源から透過した光は光検出器によって観測される。

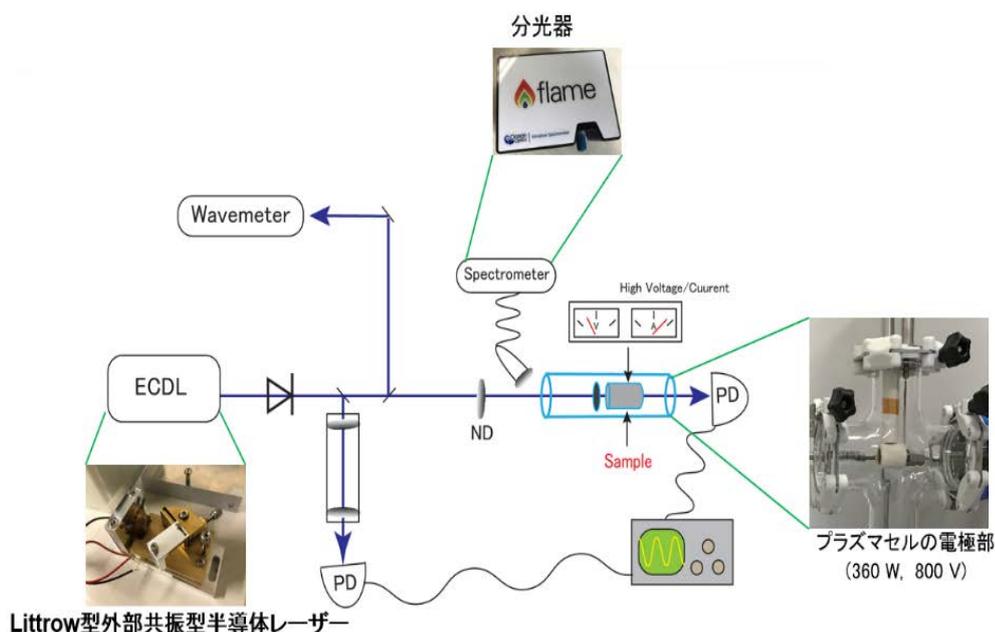


図 3.3.1-4 構築した実験系の模式図

①光アイソレータ

戻り光によるレーザーの損傷、不安定化、干渉によるノイズを防止するために、光路上に光アイソレータ（CASTECH, ISOLATOR. HP ISO-PS-30-3-405-N-A04）を設置した。光アイソレータとは、順方向に進む光のみを透過し、逆方向の光を遮断する性質を持つ。動作波長は 405 nm±10 nm、室温での挿入損失は 0.21 dB、逆方向から光を入射した場合の遮断特性は 30.1 dB である。

②エタロン

高分解能レーザー分光に必要なシングルモード発振を確認するために、高反射率ミラーによるエタロンを構築した。エタロンは凹面ミラー（シグマ光機, LCM-98Q-12.7C05-10-250-350/420）の曲率半径 250 mm、350～420 mm での反射率 95 %の反射誘電体ミラー2枚で構成されている。エタロンの透過光は光検出器により観測を行っている。

このエタロンを用いて、狭帯域半導体レーザーのシングルモード発振を確認した[図 3.3.1-5]。

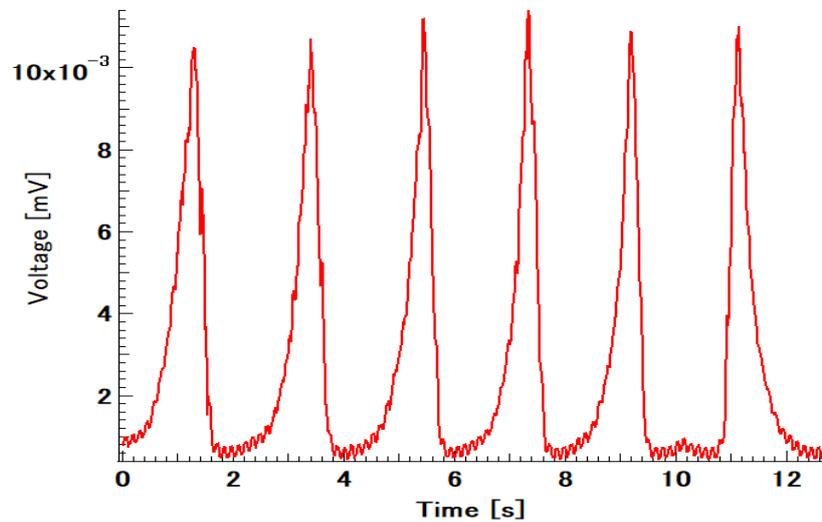


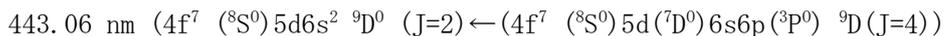
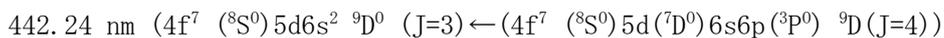
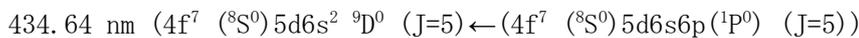
図 3.3.1-5 エタロンにより確認されたシングルモード発振

(5) ガドリニウム金属の気相化の確認

金属固体の吸収信号を取得するには、中性原子蒸気源において金属固体の気相化を確認する必要がある。そこで、グロー放電中性原子蒸気源を用いてガドリニウム金属固体の気相化を確認するため、発光信号の取得を行った。試料として厚さ0.25 mm、純度99%のガドリニウム金属箔をカソード電極上に導入した。発光信号の取得には分光器 (Czerny-Trener 型 OceanOptics, Flame-S) を使用した。

ガドリニウム中性原子由来の発光信号は、試料を導入した状態と導入していない状態の信号を比較することで確認した。また、バッファガスによる干渉の可能性を排除するために、バッファガスとして Ar および Ne を採用し、それぞれの信号を比較した。

Ar では電極間電圧 192 V、電流 187 mA、200 Pa において、Ne では電極間電圧 151 V、230 mA、120 Pa において以下の3つの遷移のガドリニウム中性原子由来の発光信号を確認した(図 3.3.1-6)。



以上により、グロー放電中性原子蒸気源内でガドリニウム金属がスパッタリングにより中性原子として気相化されることを確認した。

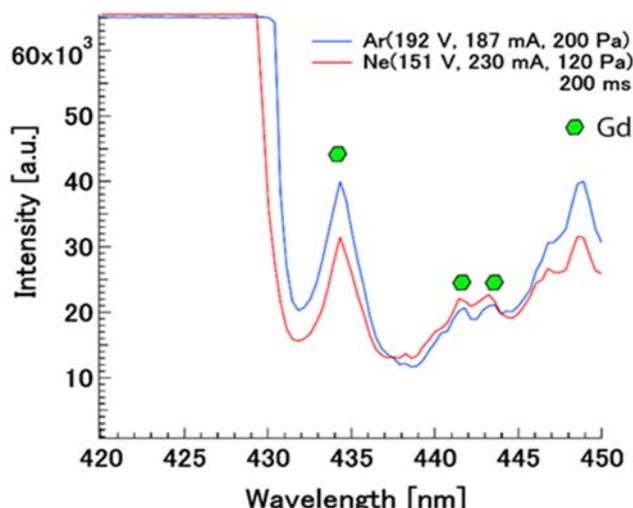


図 3.3.1-6 蒸気化されたガドリニウム原子の発光スペクトル

(6) 吸収信号

令和元年度構築した実験系を用いて、ガドリニウムの吸収分光を行った。具体的には、共鳴周波数 739.1575 THz 、 000.000 cm^{-1} $4f^7(^8S^0)5d6s^2(^9D^0)[J=2] \rightarrow 24655.639 \text{ cm}^{-1} 4f^7(^8S^0)5d(^7D^0)6s6p(^3P^0)[J=2]$ の遷移について、プラズマセルを透過した光と、透過前の光の強度信号の差分を取ることで、吸収信号を観測した[図 3.3.1-7]。この時の実験条件は、Ar 270 Pa, 電極間電圧 301 V, 電流 190 mA である。

また、発振波長を変えて吸収分光を行うことで、実験条件(Ar 240 Pa, 電極間電圧 291 V, 電流 190 mA)のもと、 732.7082 THz 、 215.124 cm^{-1} $4f^7(^8S^0)5d6s^2(^9D^0)[J=3] \rightarrow 24655.639 \text{ cm}^{-1} 4f^7(^8S^0)5d(^7D^0)6s6p(^3P^0)[J=2]$ の遷移の吸収信号を観測した[図 3.3.1-8]。このように、本実験系を用いることで、ガドリニウム金属吸収信号が得られることを確認した。

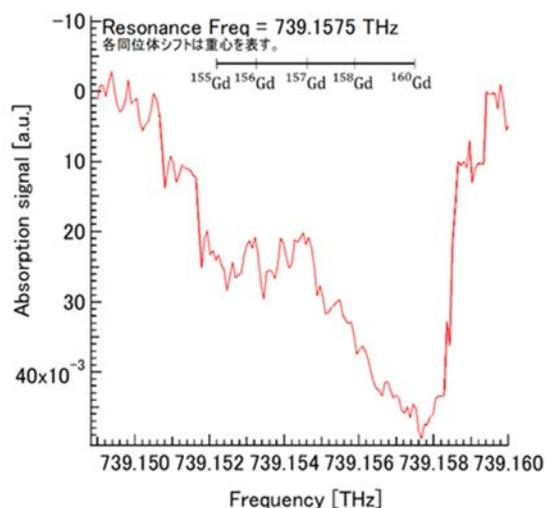


図 3.3.1-7 739.1575 THz における吸収信号

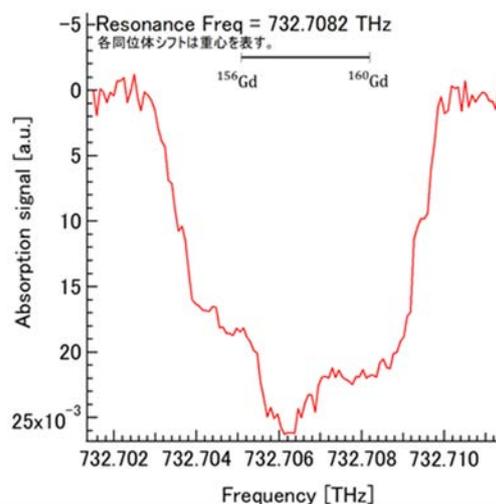


図 3.3.1-8 732.7082 THz における吸収信号

参考文献

- [1] 東京電力・日本原子力研究開発機構, 放射性物質分析・研究施設第 2 棟における燃料 デブリの分析に係る検討について, <https://www.nsr.go.jp/data/000273570.pdf> (参照日: 2019 年 7 月 3 日) .
- [2] Wei-Guo JIN, Hiroaki ONO, and Tatsuya MINOWA, Hyperfine Structure and Isotope Shift in High-Lying Levels of Gd I, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.80, 124301 [4pages], 2011.

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生じるプラームの性状は、照射するレーザー光のパワーやパルス長、ビームスポット径などの光照射条件や、雰囲気ガスの種類、圧力などの環境条件によって様々に変化する。これまでの研究から、YAG レーザーを用いた減圧空気中でのコンクリートのアブレーションでは、カルシウム原子は数 $100 \mu\text{s}$ の時間経過でクラスターに変化することが示唆されている。このため、レーザー加工等で実際に使用される疑似連続発振 (QCW) のファイバーレーザーのように、数 10ms 以上の長い光照射時間で生じるアブレーションプラームで、原子共鳴吸収がどのように観測されるのかを検証することは、廃炉作業への本分析法の適用に向けて極めて重要である。そこで、令和元年度はレーザー加工で利用される QCW レーザー光をコンクリート試料に照射した場合のアブレーションプラームに対して共鳴吸収分光実験および微粒子の原子化実験を実施した。

(2)実験装置の構築

QCW ファイバーレーザーによるアブレーション時の原子共鳴吸収は、我々の知る限り、これまでに報告例が全く無いことから、大気圧空気中のほか、減圧希ガス雰囲気中など、より単純でコントロールされた環境で、系統的にその特徴を調べるのが重要である。そこで、令和元年度はその手始めとして原子力機構・櫛葉遠隔技術開発センターに平成 30 年度設置した加工チャンバーとファイバーレーザーに、原子力機構・原子力科学研究所で使用している波長可変半導体レーザーと計測システムを組み合わせる実験装置を構築した。

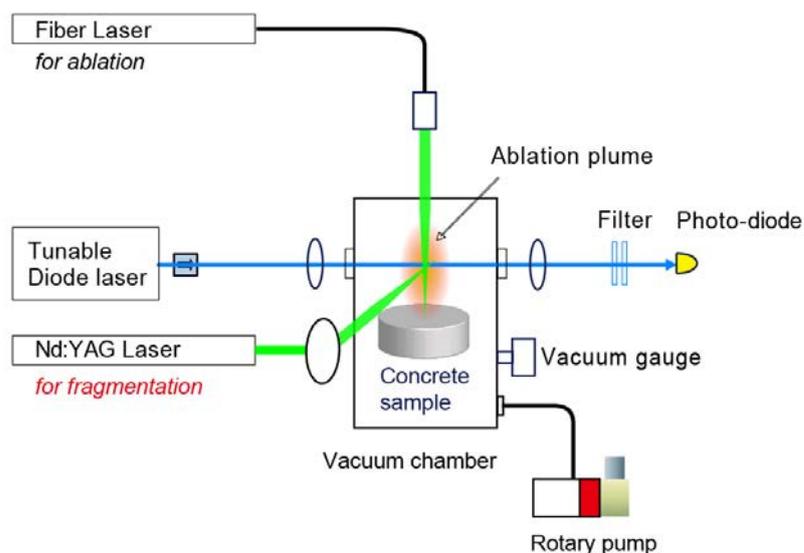


図 3.3.2-1 構築した微粒子原子化・核種同定用実験装置の模式図

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、アブレーションを起こすためのレーザーにはイッテルビウムファイバーレーザー (IPG Photonics 製 YLR-300/3000-QDW、パルス長:0.2-50 ms、平均出力:300 W、ピーク出力:3000 W、波長:1070

nm)を用い、試料に対して直上から、焦点距離～900 mmのコリメーションレンズを介して光を照射した。生じたアブレーションプルームにはさらに、外部共振器半導体レーザーによるプローブ光(422.791 nm、連続発振光)を透過させ、透過光は、ファイバーレーザーの波長に対応する1070 nm近傍のノッチフィルター(CVI製 RNF-1064)およびプローブレーザーの波長のみを透過させるバンド幅10 nmの干渉型バンドパスフィルター(Edmund製 65136、中心波長420 nm)、集光用レンズ(焦点距離250 mm)を介して、高速フォトディテクター(Thorlabs製 PDA36A)へと導き、透過光強度の時間変化をデジタルオシロスコープ(岩通製 DS-5624A)で観測した。このレンズ、フィルター、ディテクターから成る光検出部はパルスレーザーの乱反射光の混入を防ぐため、全体を暗幕で覆った。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光源には、Nd:YAGレーザー(Quantel製 Q-Smart850、基本波最大出力:850mJ、繰り返し:10 Hz)を使用した。この光(基本波1064 nm又は2倍波533 nm)が試料に直接当たってアブレーションを起すことが無いように、焦点距離150 mmの凸レンズを介して集光し、試料表面から約4mm(減圧空気中)または1 mm(大気圧空気中)の高さを、表面に対して並行に、かつ、ビームウエスト付近でアブレーションビームやプローブビームと交差するように調整して導入した。YAGレーザーの光強度はサーモパイル式フォトディテクター(OPHIR製 12A-P)によってモニターし、半導体レーザーの波長は簡易型波長計(Coherent製 WaveMaster)によって常時モニターした。減圧空気中の測定では、加工チャンバーをロータリーポンプによって排気し、クリスタル真空ゲージ(Cannon-ANELVA製 M-320XG)でチャンバー内の圧力が500 Paになるよう調整した。

(3) 実験結果と議論

ファイバーレーザーは最大出力の30%程度でも約880 Wの光出力があり、1ショットでコンクリート試料に10 mm程度の穴があくほどである。プルームの飛散状態は穴の深さによって大きく変わるため、レーザー自体は繰り返し周波数10 Hzで発振可能であるが、試料の照射位置を変えるため、測定は1ショット毎に行った。加工用チャンバーには試料位置を変える電動ステージ等が備えられていないため、1ショット毎に共鳴レーザーの透過信号波形をオシロスコープで記録し、測定のたびに加工チャンバーの蓋を開けて、穴の開いていない位置に試料位置を調整した。またファイバーレーザーの散乱光をモニターするフォトダイオードからの信号をオシロスコープのトリガに用い、オシロスコープをシングルショットモードで動作させることによって、1ショット毎の波形データを取得した。

図3.3.2-2に500 Paの減圧空気中で観測した、試料直上4 mmの高さを通る非共鳴光に対する、プローブレーザーの透過強度波形(5ショット)を示す。緑のトレースがファイバーレーザーの乱反射光をフォトダイオードで測定したもので、ディップが深いほどレーザー強度が強いことを意味する。ディップの時間幅は約10 msである。一方、黄色のトレースは半導体レーザーの透過光強度を示しており、ファイバーレーザーによるアブレーションが起こっても全く減光されないことがわかる。

一方、半導体レーザーの波長を基底状態のカルシウム原子の共鳴波長422.791 nm(真

空中)に同調させ、その他の条件は変えずに観測した共鳴信号波形 (5 ショット) を図 3.3.2-3 に示す。ファイバーレーザー光が照射されている間、黄色のトレースのように、半導体レーザーの透過光強度は減衰し、基底状態のカルシウム原子がアブレーションによって発生することがわかる。但し、2、3、4 ショット目はファイバーレーザー光を照射中、半導体レーザー光はずっと 100% 近く吸収されているが、1 ショット目と 5 ショット目は途中で吸収が弱まる様子も確認され、原子の飛散にはショット毎、あるいは時間経過によって、大きなばらつきが認められる。

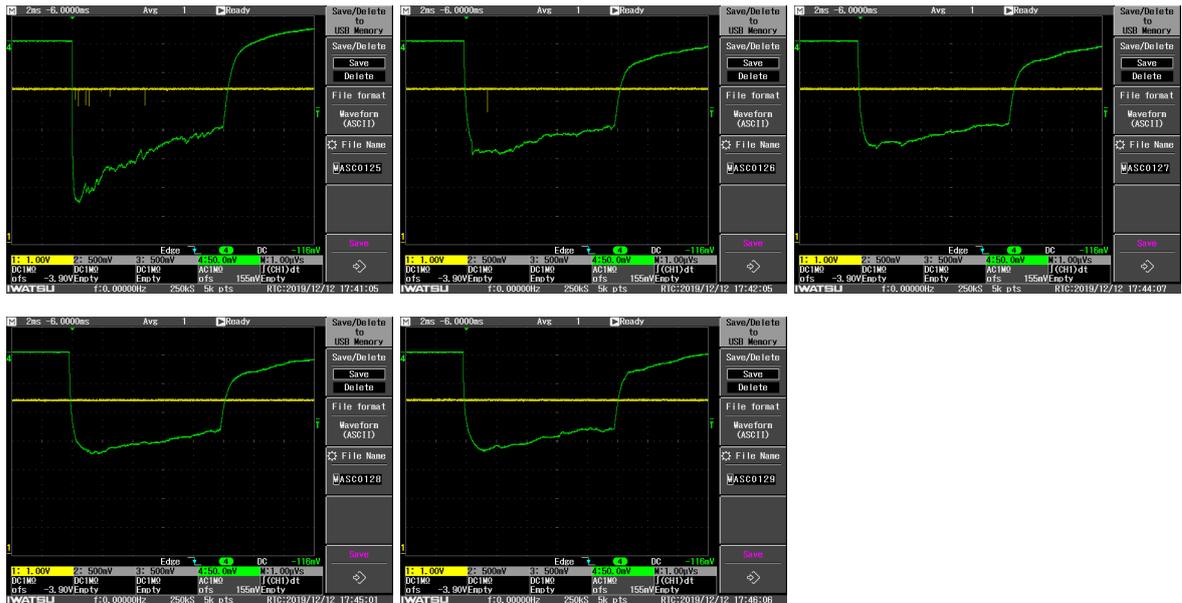


図 3.3.2-2 非共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 (5 ショット) 500Pa-Air

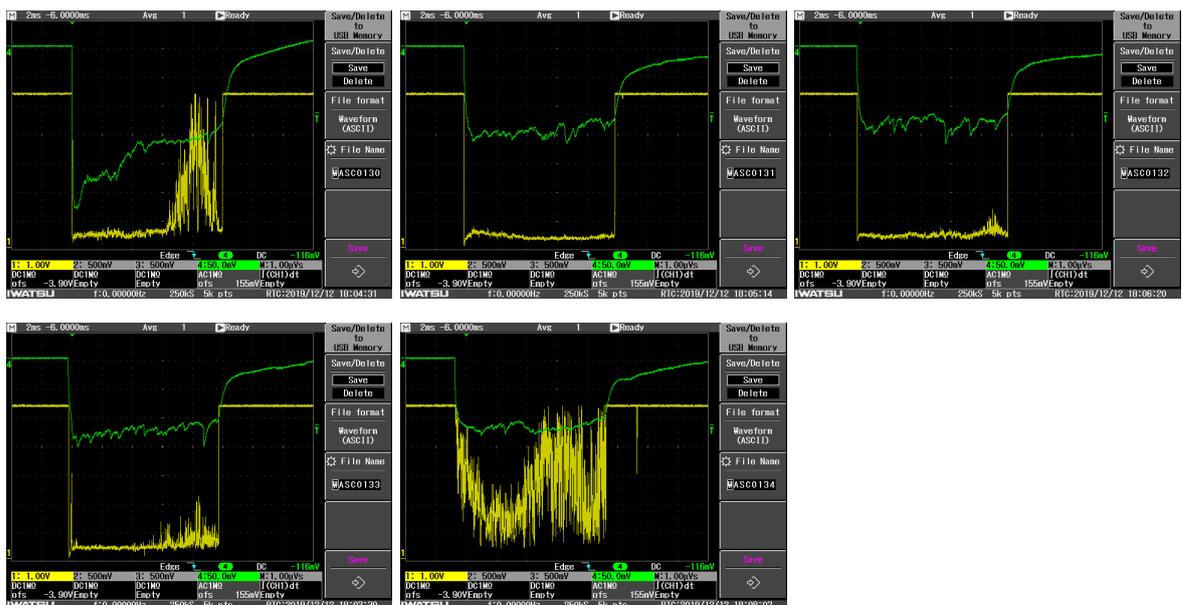


図 3.3.2-3 共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 (5 ショット) 500Pa の減圧空気中の場合

原子力機構・原子力科学研究所における実験で、アブレーションルームは 500Pa の減圧空気中で、試料から約 3~4 mm の高さまで最終的に膨脹する様子が観測されているが、これはパルス長 10ns 程度、パルスエネルギー 0.5 mJ の YAG レーザー光を照射した場合の結果である。ファイバーレーザーの場合はパルス長 10 ms、1kW 程度の光照射であることから、ルームの拡がりはこれよりもずっと広いことが予想される。そこでプローブレーザーの試料表面からの高さを変化させて透過光量の変化を調べた。その結果を図 3.3.2-4 に示す。ここで縦軸の吸光度はパルス長 10ms 間の吸光度の積算値（相対値）である。プローブレーザーを加工チャンバーの光学窓の上端近く（試料表面から 12~13mm）に通した場合でも、吸光度はほぼ一定であり、減圧空気中では中性原子の存在する範囲が広いことがわかった。

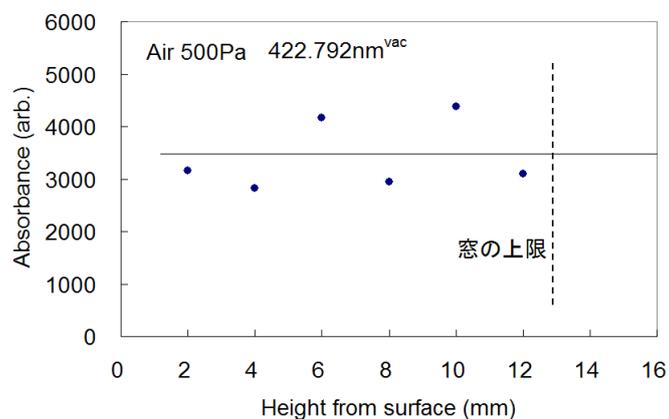


図 3.3.2-4 ファイバーレーザーアブレーション時の吸収の高さ分布 500Pa-Air

廃炉における共鳴吸収信号の観測は、減圧空気中よりも大気圧空気中に行える方が望ましい。前述の実験からわかったように、減圧環境中では非常に大きいルームが形成されることから、大気圧空気中でも試料表面近傍なら中性原子がある程度観測できるのではないかと考えられる。そこで次に、大気圧空気中で試料表面 1 mm における吸収波形を観測した。その結果を図 3.3.2-5 に示す。黄色と緑色のトレースはこれまでと同じであり、赤紫のトレースはファイバーレーザーの光強度に応じて出力されるモニタパルスの信号である。時間的な吸光量のばらつきが大きいものの、10 ms 間を通じた平均値では吸光量の定量評価が可能であることがわかった。これが微粒子等による乱反射起源ではなく、原子による共鳴吸収起源であることは、プローブレーザーの波長を非共鳴にすると、吸収が図 3.3.2-2 と同じ様に完全に消えることから確認した。

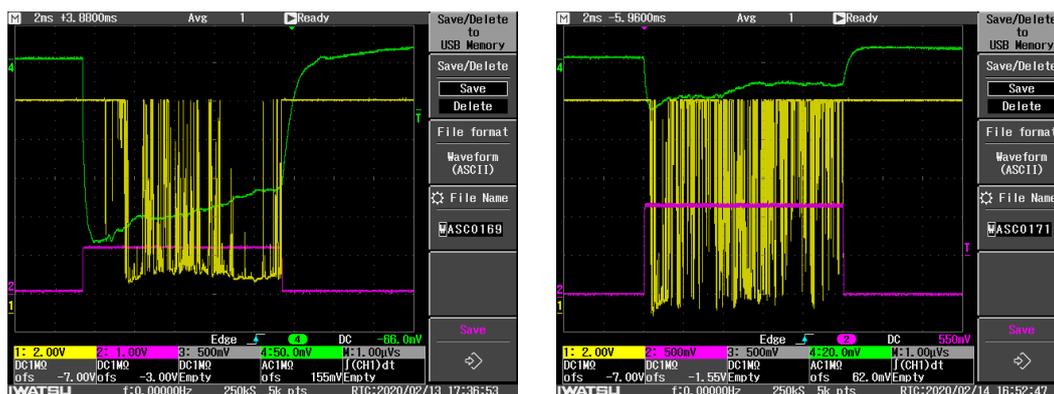


図 3.3.2-5 共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 大気圧空気中の場合

共鳴吸収法で元素組成や同位体組成を求める場合、着目する元素・同位体の共鳴線と、比較すべき別の元素・同位体の共鳴線のスペクトルが重ならないことが必要である。このような元素・同位体選択性を決める重要な分光性能がスペクトル線幅である。これまでの研究により、この線幅は、アブレーションルーム内の荷電粒子や高速粒子によるシュタルク効果やドップラー効果による広がりや、雰囲気ガスによる圧力広がりなどの影響によって、時々刻々変化することが分かっている。ファイバーレーザーの場合、パルス長が 10 ms と長く、パルス光が消えた後すぐに原子吸収が消失するため、半導体レーザーの発振波長を 1 ショット毎に変化させ、パルス光が照射されている 10 ms の間の吸光度の総和を、測定した吸収波形から評価した。その結果を図 3.3.2-6(a) に示す。共鳴ピーク中心部は、吸光度がほぼ 100% に達しているため頭打ちになっているが、吸収の飽和が起こらない条件ではピークはさらに高いことが予想されるため、この結果は、減圧空気中のスペクトル線幅の上限が 5 GHz で、実際はこれよりも狭いことを示唆している。また大気圧空気中の線幅も同様に評価した結果を図 3.3.2-6(b) に示す。大気圧空気中では線幅はさらに広がって 10 GHz 程度あり、この条件で核種分析を行うためには同位体シフトの大きい遷移を用いる必要があることがわかった。(^{238}U - ^{235}U は 15 GHz 程度の遷移が幾つかある)

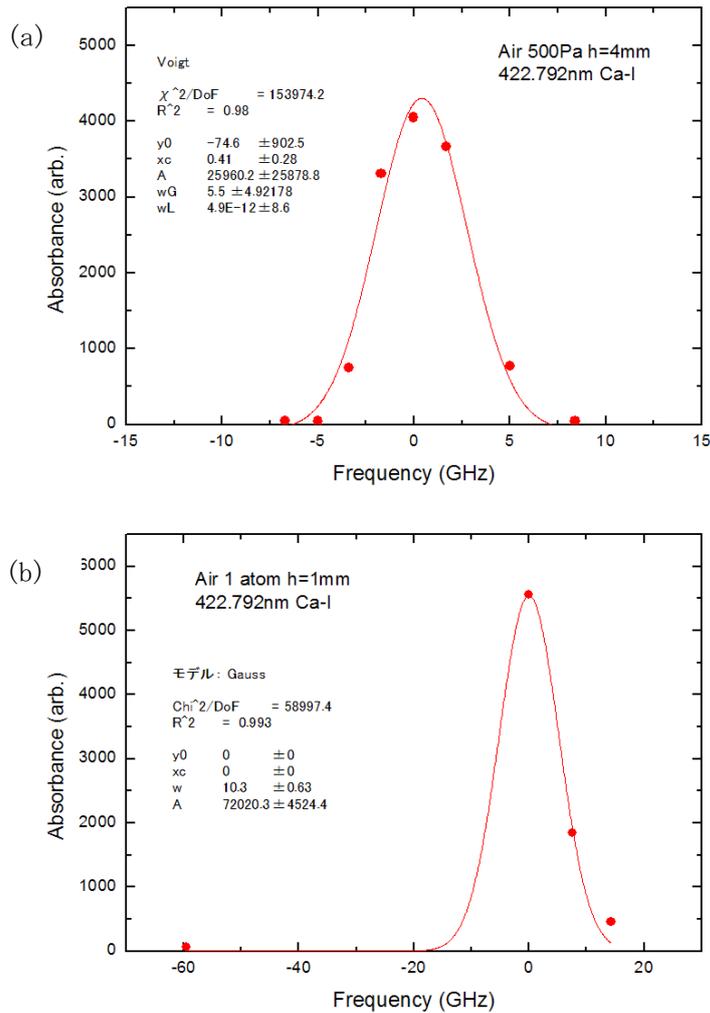


図 3.3.2-6 ファイバーレーザーアブレーション時のカルシウム原子の吸収線幅の評価
(a) 500 Pa-Air (b) 1 atom-Air

これまでに述べたように、QCW レーザーによるコンクリートのアブレーションで生じるカルシウム原子に対して共鳴吸収分光が可能であることが明らかになった。このことはレーザー加工時のヒューム中の微粒子を再原子化して共鳴吸収させる方法に比べて手間が省けるだけでなく、微粒子の会合・凝集過程や移送過程、再原子化過程における元素依存性や質量依存性の影響を受けることなく分析が行えるという点で、分析精度や分析感度からも好ましい結果である。本研究によってレーザー加工時の核種分析の実現性がより高まったと考えられる。但し、空気中を浮遊するヒュームを利用する分析も必要となる場合が想定されることから、次に、プルーム内で生じる微粒子を再原子化する実験を試みた。

ファイバーレーザーのパルス照射が終わると共鳴吸収も消失することから、飛散した原子は、光照射終了時点で分子やクラスター・微粒子化しているものと考えられる。そこで、平成 30 年度 YAG レーザーのプルームで実施したのと同じ様に、共鳴吸収が消えたタイミングで YAG レーザー光 (1064 nm 又は 533 nm, 600 mJ) を照射し、再び共鳴吸収信号が現れるかどうかを観測した。その結果の一例を図 3.3.2-7 に示す。左上から順

に、ファイバーレーザーパルスの照射後 20、12、7、 2 ms 後に YAG レーザーを照射しているが、どのタイミングでも黄色のプローブ光の減衰は観測されなかった。また図 3.3.2-7 右下の-7 ms はファイバーレーザーと YAG レーザーの照射が重なっている状態であるが、この場合でも、共鳴吸収信号が強まることはなく、逆に弱まる傾向すら認められた。これらの結果は、YAG レーザーの波長を基本波(1064 nm)と 2 倍波(532 nm)、雰囲気ガスを減圧空気(500 Pa)と大気圧空気に変えても変化はなかった。

このことから、コンクリートのファイバーレーザーアブレーションで生じる微粒子は、YAG レーザーによるフラグメンテーションや解離が起こりにくい性質を持つ可能性があることがわかった。

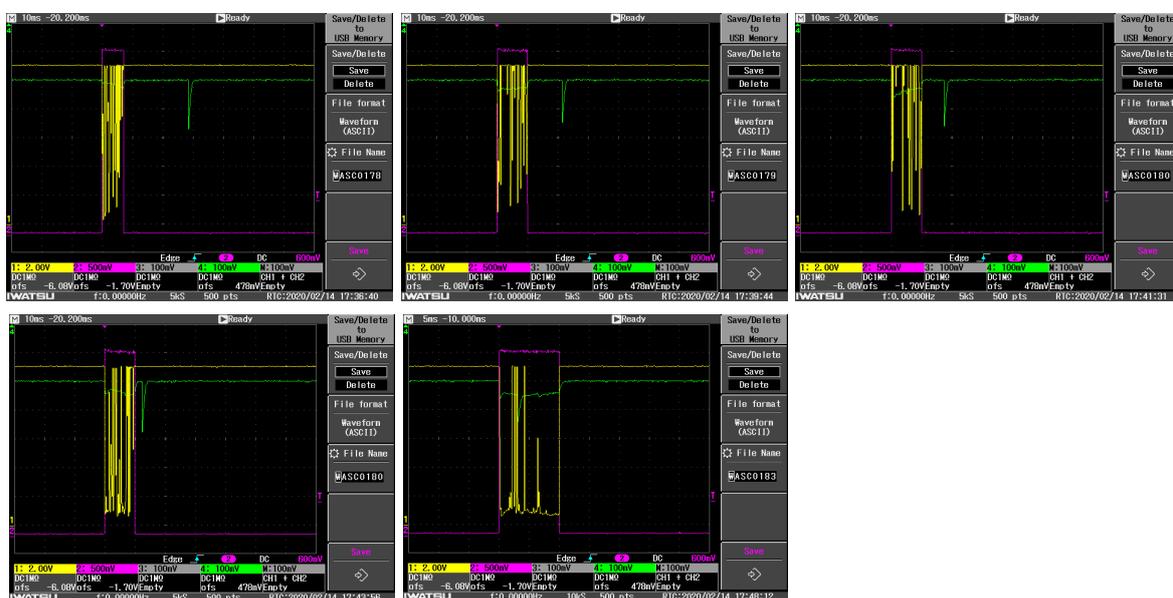


図 3.3.2-7 ファイバーレーザーアブレーション微粒子の YAG レーザーによる分解実験
大気圧空气中 再原子化レーザーの照射タイミングを、左上からファイバー
レーザー光の照射終了から 20, 12, 7, 2, -7 ms 後に変えた場合の様子

(4)まとめ

令和元年度はレーザー加工等によく利用される 10 ms 以上の光照射で生じるアブレーションルームに対して、原子共鳴吸収や微粒子の再原子化が可能かどうかを検証するため、原子力機構・檜葉遠隔技術開発センターに整備した加工チャンバーとファイバーレーザーに、原子力機構・原子力科学研究所で使用している波長可変半導体レーザーと計測システムを組み合わせる実験装置を構築した。この装置を用いてコンクリートをアブレーションさせ、減圧空気中のほか大気圧空気中でも、カルシウム原子の共鳴吸収信号が観測可能であることをはじめて実証した。このことはレーザー加工時のヒュームを再原子化して共鳴分光する方法に比べて工程が省略できるだけでなく、微粒子の会合・凝集過程や移送過程、再原子化過程における元素依存性や質量依存性の影響を受けることなく分析が行えることを意味しており、分析精度や分析感度からも大きな意味を持つ

ている。一方、プルーム内で生じる微粒子を再原子化する実験では、再原子化の信号は認められず、照射パルス長によって、微粒子の再原子化の起こり易さに違いがある可能性が示唆された。

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)

(1)はじめに

令和元年度は平成30年度に引き続き、レーザー照射実験により得られた広範囲の画像データを観察・記録し、これまでの知見を踏まえてレーザーと物質の相互作用に関する評価・解析を行った。また解析手法の改良を行った。発生微粒子はレーザー被照射物質からの蒸気に由来するもの[1]、熔融物の飛散に由来するものが知られている[2]が、セラミックスの一種であるアルミナや重コンクリートでは物質内部の応力破砕に由来すると考えられる粒径の大きな破砕物[3]と蒸気、熔融物由来の物が混合する結果となった。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高出力ファイバーレーザー (Ytterbium fiber laser, Wavelength=1.07 μ m, YLR-300/3000-QCW-MM-AC, IPG Corporation) を用い金属サンプルとしてステンレス鋼 (SUS304) セラミックスサンプルとしてアルミナ、酸化ガドリニウム、ジルコニアと重コンクリートにレーザー照射を行った。その際、同センターに設置されている高速度カメラ (Photoron社製) を用いレーザー照射時に発生し飛散する微粒子等の観察を行った。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。以下に、ステンレス鋼、アルミナ、重コンクリートの観察結果を紹介する。

(2)実施した実験とその結果

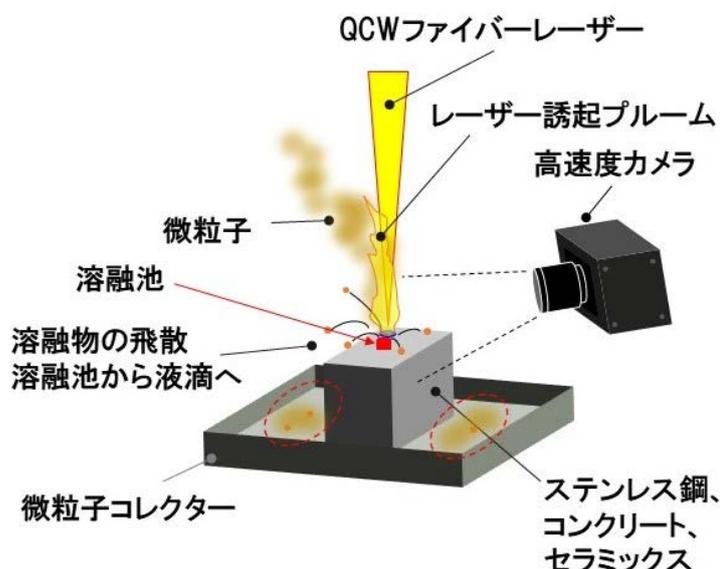


図 3.4.1-1 セルフエミッションの観察を目的とした実験配置図

図 3.4.1-1 にセルフエミッションの観察を目的とした実験配置図を示す。まずこの発光を家庭用ビデオで撮影した。撮影した動画の内レーザー照射に対応する各種サンプルのセルフエミッション画像を図 3.4.1-2 に示す。

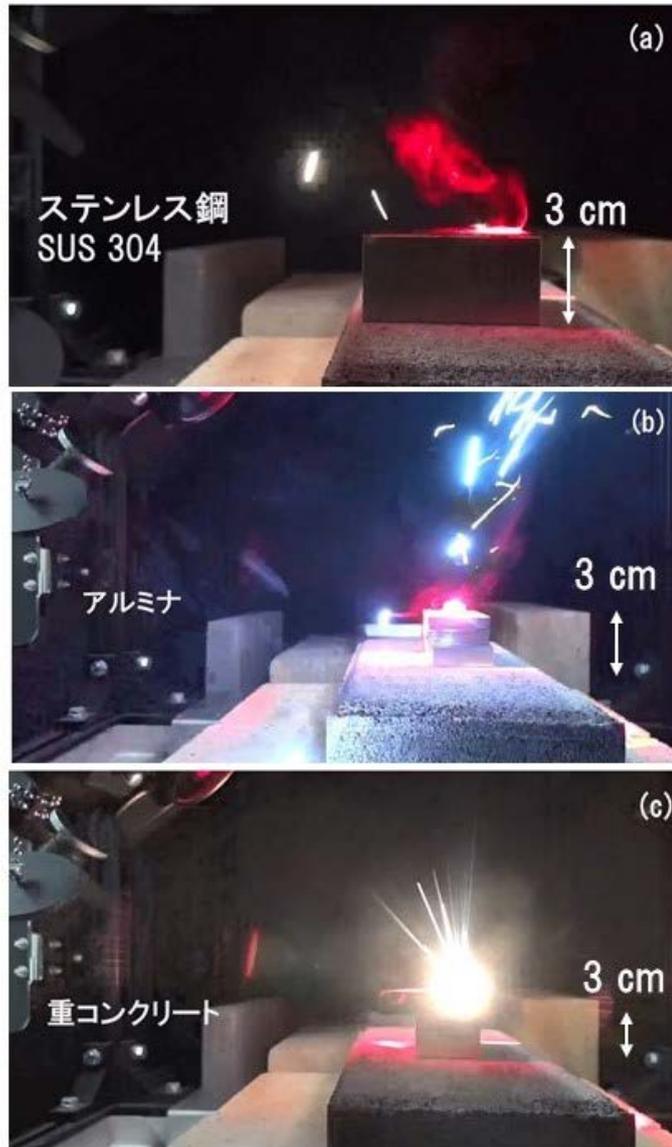


図 3.4.1-2 ビデオカメラ（フレームレート 30 fps）で撮影したセルフエミッションの画像(a)ステンレス鋼 (b)アルミナ (c)重コンクリート：レーザーパワー1.8 kW

このビデオ画像ではレーザー照射中の詳細な相互作用は観察することはできないが、実験の俯瞰画像を得ることができる。一方、高速度カメラはレーザー照射部付近を拡大し、かつ時間をフレームレートに対応して微細に分解し記録することが可能であり、貴重な物理過程の考察に役立てることができる。両者はこのように相補的な関係にあり、相互に比較することによりデータの信頼性を高めることに寄与している。例えば図3.4.1-2(a)ステンレス鋼では煙のような発光が得られている。一方、(b)アルミナでは破片と思われる発光体が飛散している。(c)重コンクリートでは、直線状の発光が観察されている。これらの空間スケールは数 cm にも及んでおり、通常高速度カメラで観察することのできる範囲の1~2桁大きい。

図 3.4.1-3 にステンレス鋼、アルミナ、重コンクリートサンプルにレーザーを照射したときに観察されるセルフエミッション像を示す。これはレーザー照射により高温にな

った蒸気や微粒子の原子発光によるものでプルームとも呼ばれる。レーザー照射中の像は図 3. 4. 1-2 に示した像と定性的に一致した形状となっている。

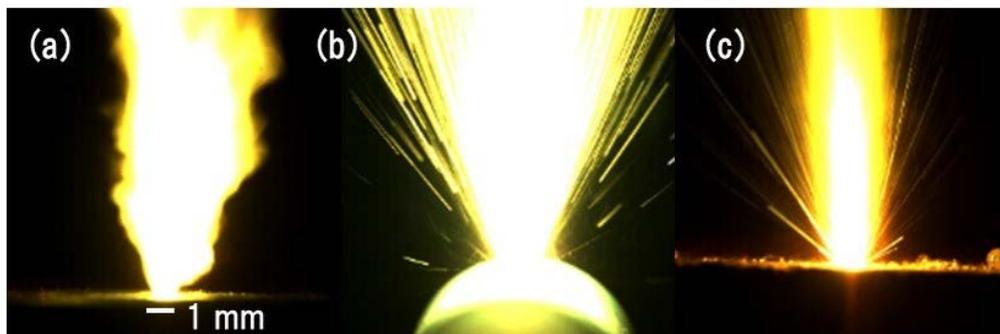


図 3. 4. 1-3 高速度カメラ（フレームレート 2000 fps）で撮影したセルフエミッションの画像(a)ステンレス鋼(b)アルミナ(c)重コンクリート：レーザーパワー1.8 kW

図 3. 4. 1-3 に示す高速度カメラでは時間分解された像の進展の観察が可能である。例えばステンレス鋼サンプルでは溶融部は照射時間の数倍の長さにわたり光り続け、プルームはレーザー照射軸の周囲を蛇行する。

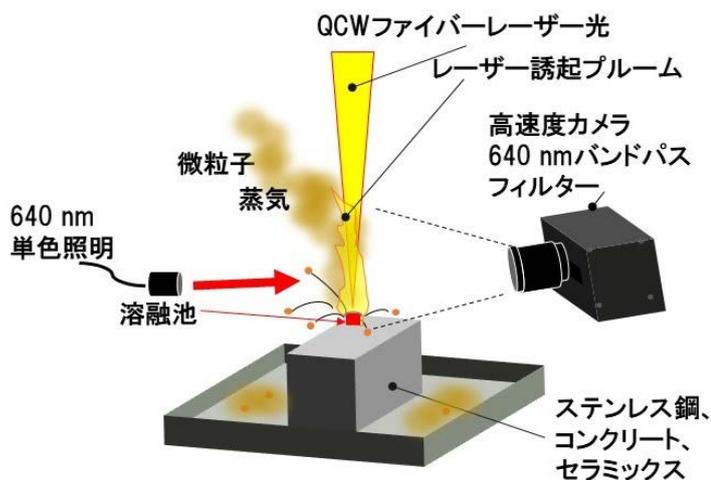


図 3. 4. 1-4 微粒子飛散の観察を目的とした単色インコヒーレント照明光学系の実験配置図

ところでセルフエミッションの像は飛散粒子の発光を撮影したもので、飛散粒子を直接撮影したものではない。この飛散粒子の影絵像（shadow-graph）を撮影するため単色インコヒーレント照明光学系を組み立てた。概略図を図 3. 4. 1-4 に示す。照明の波長は 640 nm であり、スペクトル幅は±10 nm である。高速度カメラの絞りを最大に絞り、照明による影絵が支配的になるようにした。結果の一例としてステンレス鋼サンプルの影絵像を図 3. 4. 1-5 に示す。(a)はレーザー照射開始前で背景ノイズが写っている。(b)はレーザー照射中の画像である。照明波長は 640 nm、スペクトル幅は±10 nm。(b)の白色の楕円で囲んだ部分に微粒子の像が写っていることが動画では判別できるが個別の画面では背景ノイズが重なって判別がやや困難である。動画では煙状の微粒子が観察できるが、図のとおり静止画では判別がやや困難である。またノイズ成分が重畳された状態で

は信号成分を強調することが困難である。そこで画面の定常的背景ノイズ成分を除去するための画像処理ソフト ImageJ [4] を用いて背景ノイズの除去を行った。結果を図 3.4.1-6 に示す。レーザー照射により発生する粒子の飛散の様子が明瞭に観察できた。図 3.4.1-3 と図 3.4.1-6 を比較すると、セルフエミッションではレーザー照射初期から発光があるが、単色影絵像ではレーザー照射後セルフエミッションに少し遅れて煙状の物質の飛散が観察されることがわかった。さらに図 3.4.1-6 (b), (c) に示されているように微粒子とともに数百 μm の粒子がレーザー照射部付近から飛散することもわかった。

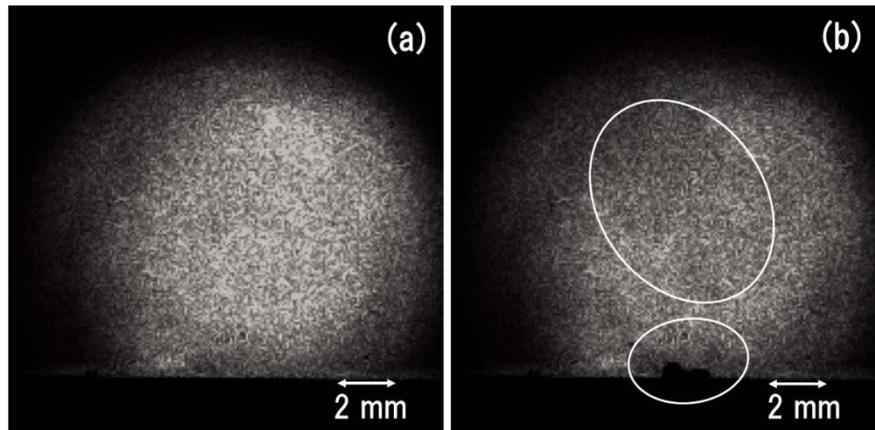


図 3.4.1-5 高速度カメラ（フレームレート 2000 fps）で撮影したステンレス鋼サンプルから飛散する微粒子の単色影絵像 (a) レーザー照射開始前 (b) レーザー照射中

図 3.4.1-5 は高速度カメラで撮影したステンレス鋼サンプルから飛散する微粒子の単色影絵像である。(a) はレーザー照射開始前で背景ノイズが写っている。(b) はレーザー照射中の画像である。照明波長は 640 nm、スペクトル幅は ± 10 nm。(b) の白色の楕円で囲んだ部分に微粒子の像が写っていることが動画では判別できるが個別の画面では背景ノイズが重なって判別がやや困難である。

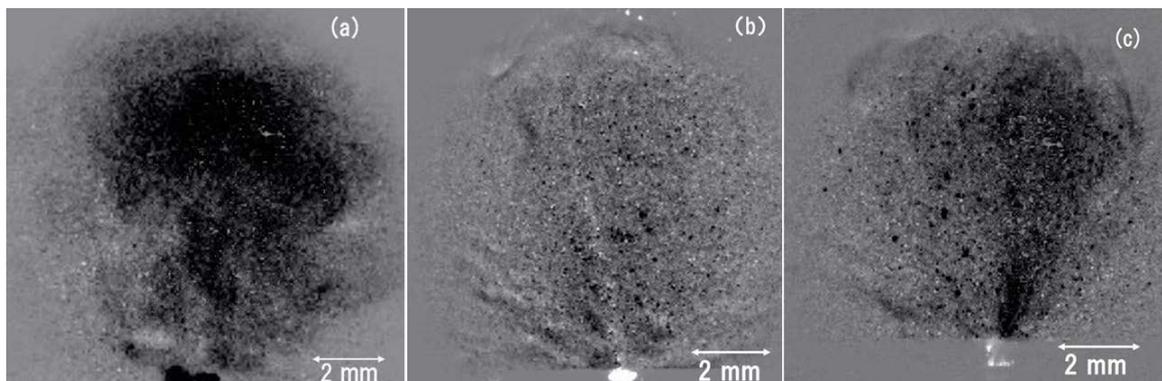


図 3.4.1-6 高速度カメラによる波長 640 nm スペクトル幅 ± 10 nm のインコヒーレント単色照明による影絵像 (a) ステンレス鋼 (b) アルミナ (c) 重コンクリート：レーザーパワー 1.8 kW、パルス幅 10 ms

さらに単色照明の効果調べるため、スペクトル幅が 10^{-3} nm 以下の He-Ne レーザーを平行化して照明光源として用いた。図 3.4.1-6 に示されたこれまでの照明のスペクトル幅が 20 nm であり、この照明は 4 桁狭いスペクトル幅となる。実験配置図を図 3.4.1-7 に示す。また高速度カメラの絞りは最大に絞り、照明による影絵が支配的になるようにした。撮影結果を図 3.4.1-8 に示す。この画像は背景ノイズの除去を行わない生データである。コヒーレント照明に特有なフリンジが観察されるが、特段の支障はない。むしろ粒子の周囲にフリンジが生じるので輪郭が明瞭になる効果があり、微粒子の観察にとってはより鮮明な画像が得られた。念のため背景ノイズの除去も試みたが、それを行わないときに対して特段の画質向上はなく、むしろ全体的に少し鮮明さが減少したので、この手法で得られた画像には背景ノイズ除去は適用しないことにした。図 3.4.1-8(a) のステンレス鋼の像では、飛散する黒い煙状の微粒子の集団が膨張・冷却時に発生していることがわかった。微粒子は黒色の盛り上がった溶融部の上に写っている。図 3.4.1-8(b) のアルミナでは溶融部の噴出と黒く写っている多くの破片の噴出が観察された。図 3.4.1-8(c) の重コンクリートでは溶融物や破片が飛散していることが観察された。別の実験で捕集した微粒子の電子顕微鏡による観察と合わせて物理過程の考察を行っている。これらの詳細は原著論文としてまとめているのでそちらを参照されたい[5]。

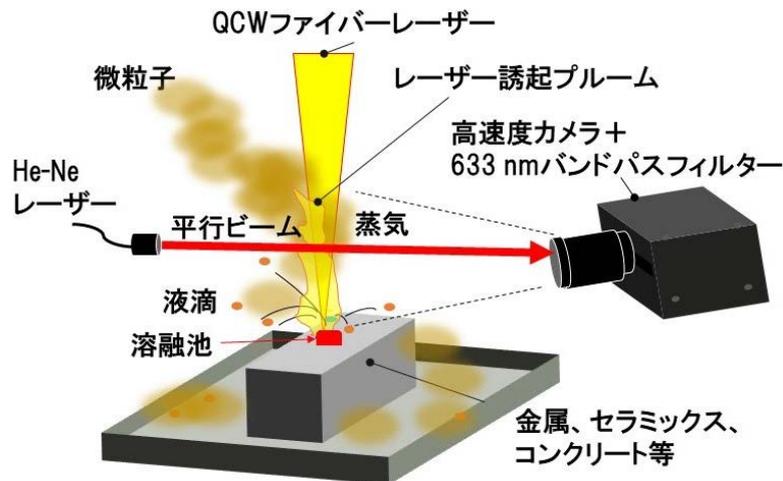


図 3.4.1-7 微粒子飛散の観察を目的とした He-Ne レーザーを用いた単色コヒーレント照明光学系の実験配置図

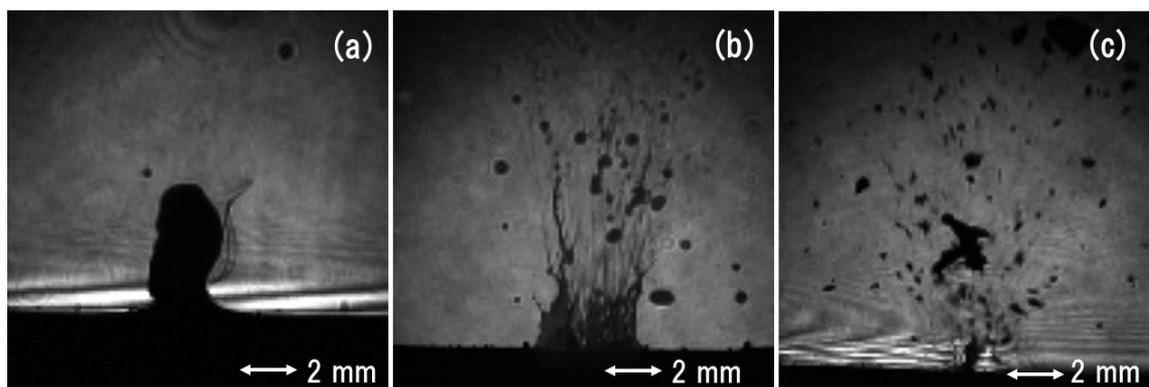


図 3.4.1-8 高速度カメラによる波長 633 nm スペクトル幅 10^{-3} nm 以下、コヒーレント長約 10 cm 以上のコヒーレント単色照明による影絵像 (a)ステンレス鋼(b)アルミナ(c)重コンクリート：微粒子発生用レーザーパワー1.8 kW、パルス幅 10 ms

ここで紹介した図 3.4.1-7 や図 3.4.1-8 に示されているように、レーザー加熱によりサンプル内部の応力によると考えられる破砕片が噴出している。これは脆性物質を中心に起こるとされている[6]。文献[6]によればレーザー熱衝撃破砕の起こりやすさを示す Figure of merit f は

$$f = E \alpha \rho c / K,$$

と表される。ここで E は弾性係数、 α は熱膨張率、 K は熱伝導率、 ρ は密度、 c は比熱である。すなわち熱伝導率が低く、熱膨張率が高く、弾性係数が大きく局所的に大きな応力が発生しやすい物質に破砕が起りやすいことになる。

表 3.4.1-1 に破砕に適する材料とレーザー照射条件に関する考察を示す。

表 3.4.1-1 破砕に適する材料の種類と各種物理定数 [7-11]

	コンクリート	アルミナ	ジルコニア	ステンレス鋼
弾性係数 E GPa	50	280	200	200
熱膨張率 α $10^{-6}/K$	12	7	11	17
密度 ρ g/cm ³	2.3	3.6	6	7.9
比熱 c J/(g·K)	1	0.79	0.46	0.5
熱伝導率 K W/m·K	2 at 20 °C 1 at 600 °C	20 at 20 °C 5 at 800 °C	3 at 20 °C 2 at 800 °C	15 at 20 °C 25 at 800 °C
Figure of merit 高温時の値	~1400	~1100	~3000	~500
融点(°C)	>1000	2072	2715	1420
沸点(°C)	>2000	2977	4300	鉄 2750

ステンレス鋼は温度が上がると熱伝導係数も大きくなるが、セラミックスは室温では比較的大きな熱伝導係数を有するが温度が上がると低下する場合が多い。この温度特性も破砕に寄与していると考えられる。ここに紹介した破砕片についても捕集した破砕片の電子顕微鏡観察と合わせてまとめを原著論文に発表する予定である[5]。

レーザー加工を用いると照射部に高いパワーを集中できることから、様々な加工を比較的自在に行うことができる。例えば切断幅を狭くすることも高いエネルギーの集中性があることから可能になる。一方で高いエネルギー集中性は照射部の温度を高め大量の蒸気を生じる。ここで述べてきたように、この蒸気から $0.1\mu\text{m}$ 以下のサイズの微粒子が発生する。図3.4.1-9 にレーザー生成微粒子と大気中の代表的な微粒子等の大きさとそれらの捕集フィルター等をまとめた [12]。これから、粒子の捕集を考えると $0.1\mu\text{m}$ 以下のサイズの微粒子の発生制御と高効率捕集、移送の制御が課題であることが示唆される。一方、 μm から mm に及ぶ比較的大きいサイズの粒子の飛散制御もサンプリング等への有用な応用のことも考慮すると研究課題として興味深い。さらにここで紹介した種々のサイズの微粒子の観察と発生メカニズムとを整理することは福島第一原子力発電所の廃炉技術への基礎的研究としての貢献に限らず、産業界で用いられているレーザー加工技術の高度化や高出力レーザーと物質の相互作用の研究に貢献する[13]重要な課題であると考えている。

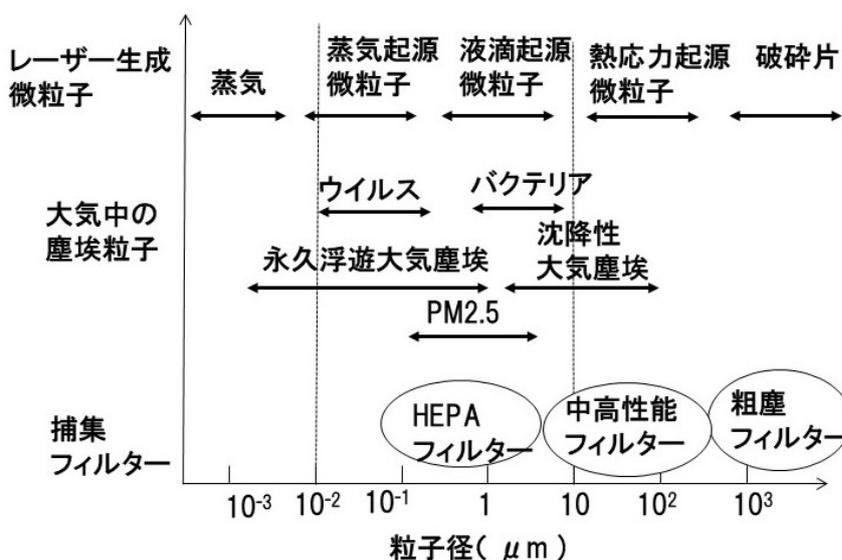


図 3.4.1-9 レーザー生成微粒子と大気中の代表的な微粒子等の大きさと捕集フィルター[12]

参考文献

[1] R. Hergenroder, Laser-generated Aerosols in Laser Ablation for Inductively Coupled Plasma Spectroscopy, Spectrochimica Acta Part B 61, 284-300 (2006), とその中の引用文献.
 [2] C. Liu, X. Mao, S. S. Mao, R. Greif, and R. E. Russo, Particle Size Dependent Chemistry from Laser Ablation of Brass, Anal. Chem 77, 6687-6691(2005).

- [3] T. Yamada, T. Hanari, T. Takebe, Y. Matsunaga, N. P. Long, T. Muramatsu, Proc. the International Congress on Applications of Lasers & Electro-Optics (ICALEO) 2014 Paper number 103, San Diego, California, USA, October 19-23, 2014.
- [4] ImageJ, <http://scienceandtechnology.jp/archives/25990> (accessed 2020/03/01).
- [5] H. Daido, T. Yamada, H. Furukawa, C. Ito, M. Miyabe, T. Shibata and S. Hasegawa, Characterization of Fine Particles, Liquid Droplets and Crushed Fragments Generated During Laser Processing of Metallic, Ceramics and Concrete Materials Prepared for Publication, April 2020.
- [6] 池田正幸他編、レーザープロセス技術ハンドブック、普及版第 1 刷、朝倉書店、209p.、2009.
- [7] 村松壽晴他、レーザー光を用いた燃料デブリ・炉内構造物取出しに向けた研究 (I)、JAEA-Research 2013-024、49p.、2013.
- [8] 長尾覚博他、高温加熱されるコンクリートの熱伝導率、コンクリート工学年次論文報告集 12-1、1990.
- [9] KYOCERA, Characteristics of Kyocera Fine Ceramics 材料特性表, <https://www.kyocera.co.jp/prdct/fc/product/pdf/material.pdf>, (参照日: 2020年3月1日).
- [10] ステンレス協会、ステンレスの導電率、透磁率、熱膨張率などの物理的性質について、<http://www.jssa.gr.jp/contents/faq-article/q6/>, (参照日: 2020年3月1日).
- [11] 野口貴文他、高強度コンクリートの圧縮強度とヤング係数との関係、日本建築学会構造系論文集 60、No. 474、1-10、1995.
- [12] 日本エアロゾル学会編、エアロゾル学の基礎、森北出版、240p.、2003.
- [13] M. von Allmen and A. Blatter, Laser-Beam Interactions with Materials, Second Ed. Springer, Berlin, 327p., 1995.

3.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。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。

以下に、成果発表、全体会議について報告する。

●成果発表

- ・長谷川 秀一、宮部 昌文、大道 博行、伊藤 主税、山田 知典、柴田 卓弥、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 (1) 全体計画及び分光分析法の検討、日本原子力学会 2019 年秋の大会、富山、2019 年 09 月
- ・山田 知典、大道 博行、伊藤 主税、宮部 昌文、柴田 卓弥、長谷川 秀一、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 (2) 微粒子の特性評価のためのレーザー照射試験、日本原子力学会 2019 年秋の大会、富山、2019 年 09 月
- ・大道 博行、山田 知典、伊藤 主税、宮部 昌文、柴田 卓弥、長谷川 秀一、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 (3) 高速度カメラを用いた微粒子発生過程の観察、日本原子力学会 2019 年秋の大会、富山、2019 年 09 月
- ・伊藤 主税、山田 知典、大道 博行、宮部 昌文、柴田 卓弥、長谷川 秀一、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 (4) 空力学レンズを用いた微粒子計測方法の提案、日本原子力学会 2019 年秋の大会、富山、2019 年 9 月
- ・大道 博行、山田 知典、伊藤 主税、宮部 昌文、柴田 卓弥、古河 裕之、長谷川 秀一、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 (2) (1) レーザー照射金属、セラミックス、コンクリートにおける微粒子発生過程の観察、日本原子力学会 2020 年春の年会、2020 年 3 月
- ・渡邊 悠介、石川 大裕、長谷川 秀一、大道 博行、山田 知典、伊藤 主税、宮部 昌文、柴田 卓弥、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 (2) (2) 微粒子核種分光分析に向けた半導体レーザー装置の開発、日本原子力学会 2020 年春の年会、2020 年 3 月

●全体会議

【期間】2019 年 11 月 5 日(金)

【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：宮部昌文、山田知典

【用務内容・成果】

今後の研究の進め方について、これまでの各分担研究者の進捗状況を踏まえながら議論した。各分担の進捗について大きな問題が無いことが確認でき、檜葉遠隔技術開発センターでの研究計画について調整を行った。

【期間】2019年12月9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】

今後の研究の進め方について、中間フォロー等の内容を踏まえながら議論した。中間フォローにおいて、研究の進捗に問題無いことが確認できたので、引き続き令和元年度の計画通り研究を進めることとした。

【期間】2020年1月27日(月)

【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】

令和元年度の報告書および今後の研究計画に関して打合せを行った。報告書については、中間フォローでのコメントを踏まえて作成することとし、研究計画としては、成果発表も含めて内容を補強することとした。

【期間】2020年3月27日(月)

【場所】TV会議 (Skype)

【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、山田知典

【用務内容・成果】

令和元年度の報告書の内容および来年度の研究計画に関して打合せを行った。報告書については、4月上旬を内部締め切りとして取りまとめることとし、来年度は各分担研究者の状況を踏まえ、問題なく研究を遂行できるように打ち合わせを行った。

4. 結言

この研究では、燃料デブリの切断を念頭において、レーザー加工で問題となる微粒子発生について、基礎に立ち戻って検討するとともに、その微粒子粒径分布を測定し、構成核種についてレーザー分光により測定する原理装置を開発することを目的としている。令和元年度では、各項目について、以下の成果を得た。

(1) レーザー加工・評価

① 微粒子パラメータ依存性の検討

レーザー照射実験に参加し、発生微粒子を SEM などにて測定した。

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)

平成 30 年度の成果を踏まえ、レーザー照射チャンバーを用いてデブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートにレーザー照射を行い、レーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動の評価を行った。

③ 相互作用の評価・解析(再委託先：レーザー総研)

平成 30 年度の成果を踏まえ、高速度カメラによりレーザーとデブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートとの相互作用の観察・記録を行い、物理過程等の考察を行った。また、泡の発生する水中での画像計測の課題を抽出し、可能性を調べた。

(2) 微粒子捕集・計測

① 微粒子捕集の分布評価

平成 30 年度の成果に基づき、空力学レンズを試料照射チャンバーに設置し、微粒子捕集の最適化を行った。また、発生微粒子径の分布計測に着手した。

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)

平成 30 年度に整備した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置により、デブリ等の切断時に発生する微粒子の予備実験を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビームの速度分布を飛行時間法で測定する装置を整備し、レーザー切断時に発生する微粒子を捕集・計測する装置を製作した。

(3) 微粒子原子化・核種同定

① 核種同定手法の開発

平成 30 年度に製作したレーザーシステムの波長の制御により、吸収分光を行った。

② 原子化手法の開発(連携先：原子力機構)

平成 30 年度に引き続き、共鳴レーザー光を照射することで得られる共鳴信号の観察により、同位体選択性があり強い共鳴信号が得られる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)

平成 30 年度に引き続き、レーザー加工実験により得られた広範囲の画像データを観察・記録し、これまでの知見を踏まえてレーザーと物質の相互作用に関する評価・解析を行った。

また解析手法の改良を行った。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに 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、令和元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 ^(e)	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
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 ⁻¹ s ⁴ 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 ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウエーバ	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
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
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間には1:1の関係がある。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	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面積	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

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	ヘクト	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=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm 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 =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フォトル	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(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=1cGy=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=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

