

JAEA-Review 2021-027 DOI:10.11484/jaea-review-2021-027

マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の 高度化と同位体の直接計測への挑戦 (委託研究)

- 令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

Challenge to Advancement of Debris Composition and Direct Isotope Measurement by Microwave-enhanced LIBS (Contract Research) -FY2020 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 アイラボ

> Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science, Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development i-Lab., Inc.

November 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 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. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en</u>). Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under

the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, 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

マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦 (委託研究)

-令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

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

アイラボ

(2021年9月7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2年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業(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、令和2年度に採択された「マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成 計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦」の令和2年度の研究成果について取りまとめたもの である。

LIBS (レーザー誘起ブレークダウン分光法) は、核燃料デブリの遠隔組成計測への応用が想定され ているものの、放射線の影響による光ファイバーでの損失、レーザ伝送出力の低下及びデブリ性 状等により、想定外の信号強度の低下が懸念される。また、一般的にはLIBS は、同位体計測には 適さないとされていることから改善すべき課題がある。本研究では、LIBS の測定点に、アンテナを 用いてマイクロ波を重畳し、信号強度の大幅な増倍と SN 比を改善することで、軽量コンパクトなシス テムの実現を目指した。さらに、LIBS の発光強度の向上により、今まで実現が困難だったウラン同位体 のその場計測の実現性についても検討を行った。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、アイラボ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

i

Challenge to Advancement of Debris Composition and Direct Isotope Measurement by Microwave-enhanced LIBS

(Contract Research)

- FY2020 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

i-Lab., Inc.

(Received September 7, 2021)

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 FY2020.

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 FY2020, this report summarizes the research results of the "Challenge to advancement of debris composition and direct isotope measurement by microwave-enhanced LIBS" conducted in FY2020.

Although LIBS (laser-induced breakdown spectroscopy) is commercially available for application to remote composition measurement, it is not suitable for high radiation environment due to loss in optical fibers derived from the influence of radiation, reduction in laser transmission output, and nuclear fuel debris properties. There are general concerns of the signal strength decrease. In addition, since LIBS is generally considered to be unsuitable for isotope measurement, there are problems to be improved. In this research, we aimed to realize a lightweight and compact system by superimposing microwaves on the measurement points of LIBS using an antenna to significantly increase the signal strength and improve the SN ratio. Furthermore, the feasibility of in-situ measurement of uranium isotopes, which was difficult to achieve until now, was also examined by improving the emission intensity of LIBS.

Keywords: LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy), Microwave-enhanced, Nuclear Fuel Debris, Isotope Measurement

This work was performed by i-Lab., Inc. under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1.	英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2.	平成 30 年度 採択課題	2
3.	令和元年度 採択課題	5
4.	令和2年度 採択課題	8
付	録 成果報告書	11

Contents

1.	Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project
2.	Accepted Proposal in FY2018 2
3.	Accepted Proposal in FY20195
4.	Accepted Proposal in FY2020
App	pendix Result Report

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平 成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材 育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃 炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、 機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課 題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究 センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホ ールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏 まえ、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。) に係る研究開発を進めている。

また、平成 29 年 4 月に CLADS の中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏 まえ、今後は CLADS を中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎 的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指す ことが期待されている。

このため、本事業では平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行 することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成 をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤 型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、 ④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

- 1 -

2. 平成 30 年度 採択課題

平成30年度採択課題については以下のとおりである。

課題数:19課題

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

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための 半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマ ップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性 微粒子回収法の高度化	山﨑 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部 被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変 異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低い ストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオ ライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の 開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種 同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基 盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場 環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止 技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能 イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デ ブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム(日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク 低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム7 課題(若手研究2課題、一般研究5課題)課題解決型廃炉研究プログラム4 課題国際協力型廃炉研究プログラム4 課題(日英共同研究2課題、日露共同研究2課題)研究人材育成型廃炉研究プログラム4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ー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 ^(令和元年度まで) 大曲 新矢	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 号機ペデ スタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化 技術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 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 ^(令和2年度 まで) 岡山大学

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

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	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合した デブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育 成	高貝 慶隆	福島大学
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 ^(平成 30 年度まで) 竹下 健二	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

JAEA-Review 2021-027

4. 令和2年度 採択課題

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

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

課題数:10課題

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

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審 査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD(プログラムディレクター)・PO(プログラムオフィサー)会議での審議を経て、採 択課題を決定した。

令和2年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れ の調査	楊 会龍	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の 分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料 研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド 中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー 加速器研究 機構
α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納 容器系統内広域防食の実現:ナノバブルを用いた 新規防食技術の開発	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X線同時解析による迅速・高感度放射性核 種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析 センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄 筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高 度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム(日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技 術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン 技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・ 航空技術 研究所

本報告書は、以下の課題の令和2年度の研究成果を取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測 の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

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2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

マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦(契約番号 R02I144)

成果報告書

令和3年3月

アイラボ株式会社

JAEA-Review 2021-027

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、アイラボ株式会社が実施した「マイ クロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体 の直接計測への挑戦」の令和2年度の研究成果を取りまと めたものです。

目次

概略vi
1. はじめに 1.1-1 1.1 研究開発の必要性及び研究開発目標 1.1-1 1.2 研究内容の革新性、独創性、新規性 1.1-3 1.3 研究効果及び研究の有効性、発展性、相乗効果 1.1-4
2. 業務計画2.1-12.1 全体計画2.1-12.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法2.2-12.2.1 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策2.2-12.2.2 マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究2.2-12.2.3 SN比向上、測定精度改善に関する研究2.2-22.2.4 全体システム構築に関する研究2.2-22.2.5 LIBS プローブ実装による評価研究(連携先:JAEA)2.2-32.2.6 研究推進2.2-3
 3. 令和2年度の実施内容及び成果
4. 結言
参考文献5-1

執筆者リスト

- 事業代表者 アイラボ株式会社 ディレクター 池田 裕二
- 連携機関 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター 遠隔技術ディビジョン長 若井田 育夫

表一覧

表 2.1-1	全体計画	 2.1-	3
表 3.1-1	マイクロ波発振装置(試作機 1)の仕様	 3.1-	2
表 3.1-2	RF 電力測定結果	 3. 1-	4
表 3.1-3	メイン制御部の各ブロックの機能	 3.1-	6
表 3.1-4	1.2 kW パワーアンプモジュール部の各ブロックの機能	 3.1-	6
表 3.1-5	電源部の各ブロックの機能	 3.1-	7
表 3.1-6	アナログ発振部の構成	 3.1-	8
表 3.1-7	Power 部の構成	 3.1-	8
表 3.1-8	Driver 基板の構成	 3. 1-	9
表 3.1-9	PA 基板の構成	 3.1-	9
表 3.2-1	アンテナシミュレーション結果	 3. 2-	3
表 3.5-1	LIBS プローブの比較	 3. 5-	2

図一覧

炉内及び炉外での計測系の切り分け1.1-1
レーザープラズマとマイクロ波重畳レーザープラズマ1.1-2
マイクロ波システムの小型化1.1-2
マイクロ波発振装置の小型化2.2-1
マイクロ波発振装置(試作機1)と従来のマイクロ波発振装置との比較 3.1-1
出力波形測定外観3.1-2
測定結線図3.1-3
出力モニタ結果3.1-3
RF 電力測定結果
周波数スペクトラム結果3.1-5
マイクロ波発振装置(試作機1)の基板構成図3.1-7
アンテナの構成のイラスト3.2-1
アンテナのシミュレーション領域3.2-2
マイクロ波を重畳した LIBS 測定装置構成(レンズ光学系)3.3-1
アンテナギャップと信号強度との関係3.3-2
A1 と Mo でのマイクロ波重畳 LIBS スペクトル(左)とその増強効果(右) 3.3-3
種々のレーザー強度とマイクロ波エネルギーの Al の LIBS スペクトルへの影響
レーザー強度を固定し(11 mJ)マイクロ波エネルギーを変化(0、1、2、3、
4、5、8、10 ms) させたときの A1 の LIBS スペクトルへの影響 3.3-5
マイクロ波を重畳した LIBS 測定装置構成(光ファイバー光学系) 3.3-6
マイクロ波の高振動と電力を使用することによる高電界の LIBS のスペクトル
増強への影響
テーブルトップ LIBS 光学系の構築 3.4-1
A10 ₃ 、Mo、Pb、Fe、Cuのスペクトラム3.4-2
従来の光ファイバーLIBS とマイクロチップレーザーLIBS の概念
マイクロチップレーザーLIBS プローブ部の概要 3.5-3
マイクロチップレーザーLIBS プローブ部の製作仕様 3.5-3
製作したマイクロチップ LIBS プローブ部3.5-4
分光試験のセットアップ状況3.5-4
発光スペクトル測定例(0%Gdと5%Gdの比較)3.5-5

略語一覧

JAEA : Japan Atomic Energy Agency(国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

LIBS : Laser-induced Breakdown Spectroscopy (レーザー誘起ブレークダウン分光法)

概略

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(以下、「1F」と略す。)の廃炉を進 めるにはデブリの組成計測が必須である。デブリの遠隔組成計測にレーザー誘起ブレークダウン 分光法(Laser-induced Breakdown Spectroscopy、以下、「LIBS」と略す。)が想定されている。 しかし、放射線等の影響で光ファイバーでの損失、レーザー伝送出力の低下、デブリの性状の影 響などにより、想定外の信号強度の低下が予想される。また、一般的には同位体計測にはそぐわ ない。そこで本業務では、マイクロ波をLIBSの測定点にアンテナを用いて重畳することで、信号 強度の大幅な増倍と SN 比の改善を狙うと同時に、従来困難であった超高分解能分光器による同位 体計測に挑戦するものである。

今回の成果は次の通りである:

(1) 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策

2.45 GHz の通信用半導体素子を用いたアンプ回路を設計、試作した結果、自由な波形パターン 設定と PC による入力波形作成が可能となった。内蔵のパラメータモニターシステムの正常動作を 確認した。小型化の手段として方向性結合器、チューナーをシステムに組み込み、基本設計、一 次試作、評価実験を実施した。マイクロ波発振装置内部の方向性結合器、チューナーは問題なく 動作することを確認した。

(2) マイクロ波アンテナの設計最適化

設計最適化のための電磁界シミュレーション:電界強度分布の高い部位を形成する条件抽出を 電磁界シミュレーションで実施した。できるだけアンテナから距離が取れる条件を探した。さら に、空間的に広域で形成されるように設計パラメータの最適化を実施した。従来の箸型、平面型 及びコイル型アンテナについて電界評価を実施し、近電界の最大値については箸型が最も小さく、 箸型に比べ平面型は、3.0~4.3倍最大電界値が大きく、コイル型は11.6~68.8倍大きいことが判 明した。

(3) SN比向上、測定精度改善に関する研究

基本システムでの評価・ファイバー光学系での評価:

標的サンプルにA1とMoを用いて基本システムであるレンズ光学系のみでマイクロ波を重畳したLIBS測定システムのパラメータを変化させて、SN比に与える基本条件の評価を行い、光学パラメータの仕様を検討した。A1で8倍、Moで7倍のスペクトル増強を確認した。

標的サンプルとして同様にA1とMoを用いて、ファイバー光学系での評価実験を行った。レー ザースポットサイズ、エネルギー密度を変化させ、散乱光強度、SN比に与えるパラメータを検 討した。しかし、検討時間が不足し、レンズ光学系で得られたようなスペクトルの取得に至っ ていない。これらについては、来年度に引き続き検討する。

- (4) 全体システム構築に関する研究
 - ハードウェア構築:

テーブルトップLIBS光学系の構築を行い、光学系等の精度向上のためのシステムのバージョ ンアップを検討した。構築したLIBSによるPb、A1等による基礎評価を行い、計測性の向上効果 と全体システムの評価を行った。600 µmの光ファイバーを用いた小型化システムを試作した。 これらについても、来年度に引き続き検討する。 (5) LIBSプローブ実装による評価研究(連携先:日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」 と略す。)

LIBS基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験:

LIBSプローブヘッドの幾何学的形状等に関して、アイラボ株式会社(以下、「アイラボ」と 略す。)と情報を共有し、マイクロ波重畳評価試験専用のファイバーLIBSプローブを構築した。 構築したLIBSプローブ系と、波長分解能1/50,000の分光器を組み合わせ、模擬試料による試験 を実施することで、マイクロ波を重畳しない従来法の基本性能を確認した。LIBS基本特性評価 試験と模擬デブリによる実証試験を実施した。またCe(ウラン模擬試料)、Zr、Gdの混合酸化 物試料に適用して元素由来のスペクトルが取得できることを確認した。 1. はじめに

1.1 研究開発の必要性及び研究開発目標

1F の廃炉にはメルトダウンによって形成された核燃料デブリを安全に取り出し、輸送し、現場を 回復することが必要である。デブリの安全な取り出しのためにはデブリのその場組成計測が必須であ る。しかし、対象が核燃料物質である場合は、そのスペクトルの複雑性から、市販ベースの装置 は使えないのが実情である。

LIBS は個体の物質表面の組成を計測するシステムとしてほぼ確立している。LIBS は火星探索 計画でも用いられている物質組成分光システムである。オークリッジ国立研究所では原子力研 究に応用する技術開発もなされている。またレーザーの小型化、分光器の小型化等によりコン パクトなシステムとして市場に出回っている。例えば、日立ハイテクアナリティカルサイエン ス社製ハンドヘルド LIBS 分析装置 Vulcan シリーズが挙げられる (https://hha.hitachihightech.com/ja/product-range/products/handheld-rxf-libs-analysers/handheld-libs-analysers)。

LIBS を用いたウランの同位体計測の可能性は今まで調査・検証されてきたが、分光器でのスペクトル分解が不十分なため、デコンボリューション手法(装置関数によるスペクトルなどのボケを取り除き、真のスペクトルを得る手法)を用いなければ評価が困難であった。

図 1-1 に示すように炉内及び炉外での計測系の切り分けを想定している。その場合、デブリのLIBS 測定の課題として、放射線等の影響で光ファイバーでの損失、レーザー伝送出力の低下、デブリの性状の影響などにより、想定外の信号強度の低下が予想される。さらには、根本的要因として、レーザー誘起プラズマという、過渡的な短寿命非平衡プラズマに起因する不安定性が存在する[1]。



図 1-1 炉内及び炉外での計測系の切り分け

これらを克服する手段として、当社では1ダウンされたプラズマにマイクロ波を重畳させ、 レーザー生成プラズマを種として低密度非平衡プラズマを長時間持続(準定常)させることに より、プラズマ発光の安定性と分光強度の拡大を図ってきた(図1-2)。金属としてはPb、A1、 Cu そして 0 ラジカル、OH ラジカル等の分子の計測も可能としてきた。マイクロ波の重畳によ り、測定精度は約1000倍の信号レベルの向上が図れている[2][3][4][5][6]。



レーザー(Laser) プラズマのイラスト(左上)と写真(左下)及び マイクロ波(MW)重畳レーザープラズマのイラスト(右上)と写真(右下) 図 1-2 レーザープラズマとマイクロ波重畳レーザープラズマ

本業務はマイクロ波をLIBSの測定点にアンテナを用いて重畳することで信号強度の大幅な増倍と SN 比の改善を狙うと同時に、従来困難であった超高分解能分光器によるデブリのその場組成計測に 挑戦するものである。その骨子は次のとおりである。まず、マイクロ波システムを半導体型発振 装置として小型化する。片手に乗る大きさ、重さである(図 1-3)。



530 mm×220 mm⇒290 mm×315 mm⇒195.5 mm×100 mm⇒60 mm×60 mm(Name card size) 図 1-3 マイクロ波システムの小型化

1.1-2 - 23 - さらに、マイクロ波を放射するアンテナも数 cm 程度に小型化する。高放射能環境下でノイズ の増大と SN 比の低下対策にとって、本システムは大変有用である。これにより、遠隔計測におい ても、発振源を現場近くに配置して伝送ロスを軽減し着実な LIBS 信号取得が可能となる。信号強度 の増倍と SN 比の向上を図ることにより、デブリの組成その場計測における、ウランなどの核物質の 計測に貢献できる。%未満の計測も視野に入る。さらに、LIBS 発光強度の向上で今まで実現が困難だ ったウランの同位体のその場計測の実現性についても検証する。

連携研究を実施する JAEA での分光器の検討で、ウランの LIBS 分光で使用している 1/50,000 の分解能での計測では、分解能の不十分さと信号強度不足から SN 比に問題があることが明らか となっている。これまでの弊社と JAEA との共同研究により、プラズマ発光源の高輝度化の方向 性が見られたことから、JAEA では、1/150,000 の超高分解能分光器を準備し、基礎研究を開始 している[1][7][8][9][10][11][12][13][14]。このマイクロ波の効果で信号強度が向上すれば、 ウランなどの同位体計測が実現できる。さらに、小型、軽量、安価なシステムとしてデブリ取 り出し速度の迅速化、高精度化を図る。LIBS は物質の表面での計測であるが、その場計測では迅速 なスクリーニングとして廃炉に貢献することができる。さらに、簡易計測用としては、1 台のコスト として 500 万円以下のシステムを実現する。

1.2 研究内容の革新性、独創性、新規性

デブリ取り出しの現場での組成計測の際、放射線のために LIBS の各電子部品化が影響を受け、その結果として計測精度が大きく低下する。そこでマイクロ波重畳を行い、LIBS のプラズマを拡大して、計測精度の低下分を補い、U やデブリ内元素組成を明らかにする。LIBS にマイクロ波を重畳させることでブレークダウンしたプラズマを非平衡状態で空間内に一定時間維持し、得られる信号を時間積分することにより、より安定性の高いスペクトル取得を実現する。

LIBS を用いたデブリの組成計測はサンプルの表面計測となる。マイクロ波で拡大化されたプ ラズマでの体積計測という非常に独創性の高い計測システムである。LIBS を用いた燃料デブリ 等の計測とそのシステムの計測稼働における問題点を大きく改善させることができる。

U等について1%未満の測定下限で計測できる、計測時間はmsec単位である。レーザー出力 等の問題に対応して、精度の向上ができる。デブリ取り出しのロボットアームに装着すること が可能となる。

通信用に開発された 2.45 GHz の半導体をパルス駆動でマイクロ波照射するシステム開発を 10年にわたり開発を行なってきた。携帯電話の中継基地の拡大の要求で大出力の RF Power 素 子の開発が進んできた。これらの素子は 200~300 W で連続発信している、これをパルス駆動と して 1 kW のピークパワーとしてプラズマに重畳するのである。本業務では、自動車で要求され るコストレベルよりは柔軟性に富んでいる。故に、LIBS 装置に装着が可能となる。

LIBS のプラズマに近接させる同軸ケーブルはアンテナ構造になっている。数センチの大きさに小さくできる。自動車用に行なってきた品質保証、耐久性は確保出来ていることが計測装置としては優れている。

システムの被曝防御にコストをかけるよりも、使い捨て構造とし、量産体制も検討し、数百 万円/台とする計画である。システムの大きさも片手にのる程度であるため、必要に応じて適時、 随時使用が可能である。多量のデブリ詳細計測の必要性が出た場合にも、人員、ソフト、装置 としても即時対応が可能である。

ウランなどの同位体計測をLIBS システムのみで行うことの革新性は高く、デブリの素性計測 は無論のこと、デブリ中に含まれる燃料の装荷位置の推定、精度は低いものの反応度評価等を 簡便に評価できる可能性を開くもので、廃炉工程への貢献は極めて高い。この同位体計測が現 場で迅速にできる可能性は高く、それが実現できれば、デブリ出しとその後の処理プロセス時 間を短くすることができる。

1.3 研究効果及び研究の有効性、発展性、相乗効果

デブリ取り出し時に LIBS 装置にマイクロは重畳システムを重ね、その組成成分を%~ppm で 実測できることの有用性は大きい。デブリ取り出し時に一旦格納して計測する場合と、ロボッ トアームに装着する場合とが有り得る。発展系として、この取り出しロボットアーム装着型が 最終形態と考えている。LIBS システムの小型化と使い勝手の向上が課題となる。このシステム のコストは数百万円で実用化が可能となる。ウランなどの同位体計測が現部で行うことができ れば、実用性は高い。

研究の実施にあたっては、同位体計測や現場適用性、簡便な耐放射線性評価について、連携 先の JAEA の協力で実施し、最終的には、IF への導入を目指す。これを実現するための実施体制 として、本業務はその試行となると考えている。本研究により、マイクロは重畳 LIBS システム を実計測する組織へ提供することが可能となる。IF 廃炉の基盤技術にとどまらず、現実的に現 場貢献できるものである。

- 2. 業務計画
- 2.1 全体計画

本業務は、令和2年度(10月~3月)、令和3年度(4月~3月)、令和4年度(4月~3月) に亘る3年半の業務である。その目標は、従来のLIBSシステムにマイクロ波発振装置からの電 波を、アンテナを用いて重畳し、プラズマの拡大化、持続時間の延長、信号レベルの向上を実 現し、核燃料デブリを測定できる装置を開発することである。

本業務は、具体的には、マイクロ波発振装置の小型化、マイクロ波アンテナの設計最適化、 SN 比向上、測定精度改善、全体システム構築、LIBS プローブ実装による評価研究の5つに分け て開発を進める。全体計画を表 2.1-1 に示す。

(1) 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策・評価機での試験(アイラボ)

2.45 GHz の携帯基地通経基地用に開発された RF Power Device を使用する。今回はパルス駆動・マイクロ秒での制御を行う。我々はすでに小型化に成功している。しかしこれは直流電源を必要としている。さらに制御用には PC を利用している。方向性結合器、反射波モニタリング用回路の開発が必要である。試作機での実験には成功している。手のひらサイズの大きさにマイクロ波発振装置の小型化を図る。設計後の制作は米国の会社に委託して製造を行う。

パルス幅、Duty、バースト数、ピーク値、反射波、位相を検知し、常温・標準圧場で評価を行 う。LIBS との合体後にも、ノイズ対策を検討する。プラズマ発信で生じるピーキーなノイズを、 フィルター等を用いで対策する。

(2) マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究(アイラボ)

LIBS で生成されるプラズマ自体の大きさは数 mm 程度である。マイクロ波を注入してそのプ ラズマサイズの拡大と持続時間の延長を行う。アンテナ素材としては今までの研究で耐久性を 考え、銅タングステンが最適である。電磁界シミュレーションで電解密度の高い所をアンテナ から遠方で、広域に形成される最適化が必要である。シミュレーションをしても、実際のプラ ズマの拡大化を100%予測はできない。従って、使い勝手の良さと、空間誤差の大きなものを採 用することとする。マイクロ波発振装置から同軸ケーブルを用いて、コネクタによりアンテナ に接続される。このコネクタでの反射が大きくなるとその場でプラズマが発生することがわか ってきた。設計最適化のための電磁界シミュレーションとアンテナの試作、評価を予定してい る。アンテナ保持部の素材をセラミックとする案もある。使用時の使い勝手、誤差、反射波で の損傷等を検討して試作を行う。製作時に発生する個体差を低減するためにも、アンテナは10 個/デザインとして行う。マイクロ波発振装置は発熱する。効率が60%程度であるので、水冷シ ステムが必要となる。パソコン用、小型冷蔵庫用の水冷システムを小型化して装着する。アイ ラボ内にある装置組み立て場で行う。アンテナの位置とプラズマの位置の最適化が必要となる。 小型 3 次元トラバース装置の制御と、LIBS システムの制御システムを一体化する。小型マイコ ンに組み込みソフトを開発する。遠隔地からの駆動制御用のソフト開発も行う。マイクロ波電 磁波計測システム、電磁波シミュレーション解析により、アンテナ構造の最適化を図る。これ も外注で行う。アンテナ構造の設計をアイラボで行い、アンテナの材料選定を行う。セラミッ ク化された一体物も比較検討する。

(3) SN 比向上、測定精度改善に関する研究(アイラボ)

LIBS で得られる信号精度の向上には、プラズマ生成用レーザーの高出力化、プラズマ分光計 測装置の高性能化が挙げられる。今回の SN 比向上はこの前者のレーザー出力の向上と同じ効果 が得られる。さらにマイクロ波を断続的に照射してプラズマを空間中に保持されることを実現 する。パルス幅と先頭ピーク値で初期プラズマが生成され、バースト状のマイクロ波投入で空 間に保持されることになる。使用する分光器の波長分解能を上げると、暗くなる。従ってプラ ズマの発光量か、分光器の開閉時間の拡大を図る必要がある。まずは、基本システムでの評価 を行い、ファイバー光学系での評価実験に続ける。光ファイバー長さも発光強度の減衰と大き く関わっているため、パラメータとなる。最後に、マイクロ波発振条件の最適化条件を抽出す る。

標準試料での検量線、精度確保のパラメータ抽出を行い、ウランなどの同位体計測に移行する。使用する詳細分光システムで減衰するスペクトルを数百倍程度の強度向上を図るパラメータ抽出を行う。これはアイラボで開発されたシステムを JAEA に持ち込んで行う。

(4) 全体システム構築に関する研究(アイラボ)

LIBS による Pb、A1 等による基礎評価を行い、計測性の向上効果と全体システム評価を行う。 まず、ハードウェア構築し、そのノイズ耐力とライフタイム計測を行う。レーザーの出力低 下に伴い、マイクロ波の重畳レベルを上げて、最終的な測定精度の平準化を行う。サンプル違 い、サンプルの表面の形状等の条件を入力すると最適な計測時間とサンプル数、等が得られる ことが望ましい。データ解析ソフトウェアの構築も同時に進め、実際の 1F サイトで使用を可能 としたい。耐久テストとして想定しているのは被曝ではなく、一般の電子製品に要求されるも のを想定している。

LIBS の分光データの中で、U 等に着目して、詳細分光データのバージョンアップとマイクロ 波重畳のパルス幅、回数、分光器感度調整等、最適プログラムを用いて行う。ウランの同位体 計測への適用化も同様のプロセスでパラメータ抽出を行い、操作性を考えたプログラムへ加え る。

(5) LIBS プローブ実装による評価研究(JAEA)

連携先の JAEA では、①LIBS 基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験と②耐放射線性 試験を行う。

	令和2年度	令和3年度	令和4年度
期待される主 な成果	マイクロ波発 振部の小型 化、ノイズ対 策。	アンテナの設計最適化、 小型化。	1,000~10,000 倍の信号強 度改善。 システム小型化(コス ト:数百万円)。 JAEA で模擬 U 実測、同位 体の計測。
 (1) 半導体マ イクロ波発 振装置の小 型化・ノイ ズ対策 	基本設計・排 熱処置・モニ ター回路 ◆ 一次試作・評 価	制御システム ← →→ 二次試作・評価 ← →→	三次試作・バッテリー駆 動 ◀
 (2) マイクロ 波アンテナ の設計最適 化に関する 研究 	最適化のための 解析 ◀──►	試験、評価	
 (3) SN 比向 上、測定精 度改善に関 する研究 	仕様検討 ◀───►	評価用発振器による評価 ◆	小型発振器の試作・評価
(4) 全体シス テム構築に 関する研究	基本光学系の構 築 ◀──►	ファイバー光学系構築 ◆ → → トラバース導入評価改良 ◆ → → ソフトウェア 仕様検討 制作 ◆ → ◆ →	全体システム統合、評 価・改良 ● 評価・改良
(5) LIBS プロ ーブ実装に よる評価 (JAEA)	LIBS 計測系整備 ◀───►	マイクロ波実装 ◆ ◆ ◆ 様擬試料評価 ◆ ◆ ◆ ◆ ● ● ● ●	模擬デブリ実証 ◆ → → → → → → → → → → → → → → → → → → →
(6) 研究推進 (アイラボ)	打合せや会議 の開催 ↓ まとめ	打合せや会議の開催 ◀ → ↓ まとめ	打合せや会議の開催 ◀──► まとめ

表 2.1-1 全体計画

2.1-3 - 28 - 実施体制

役割分担は次のとおりである。

アイラボ:

- 小型・軽量システムの開発。
- ブレークダウンされたプラズマに 2.45 GHz のマイクロ波を重畳させ、低密度非平衡プラ ズマを長時間持続(準定常、プラズマ発光の安定性と分光強度の拡大)。
- Pb、A1、Cu、0 ラジカル、OH ラジカル等の分子の計測マイクロ波の重畳により、測定精度 は約 1000 倍の信号レベルの向上。
- LIBS+マイクロ波システムを JAEA に持ち込み、模擬ウランの組成計測を狙う。

JAEA :

- 光ファイバー小型 LIBS プローブへのマイクロ波重畳システムの実装とその性能評価 (1/50,000の分光器による基本性能を確認)。
- 模擬デブリ試料による高感度・高分解能化を検証。
- マイクロ波システムの耐放射線性を評価。
- 超高分解能分光器(1/150,000)により、発光強度、波長分解能、SN 比評価。
- 模擬デブリの取り扱いが可能な施設にて、同位体計測の可能性を評価。

- 2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法
 - 2.2.1 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策
 - 評価機での試験

マイクロ波発振装置の基本設計、試作をして、そのシステムを評価機として、マイクロ 波発振パターンの試験を標準状態の空気を用いて行う。さらに、排熱処理、モニター回路 の検討を行う。

② 小型化

方向性結合器、チューナーをシステムに組み込み、小型化するための基本設計、一次試 作、評価実験を行う。具体的には2.45 GHzの携帯基地通経基地用に開発されたRF Power Deviceを使用する。今回はパルス駆動・マイクロ秒での制御を行う。さらに制 御用にはPCを利用している。 方向性結合器、反射波モニタリング用回路の開発が必要で ある。試作機での実験には成功している。図2.2-1のように手のひらに乗る大きさにマイ クロ波発振装置の小型化を図る。設計後の制作は米国の会社に委託して製造を行う。

パルス幅、Duty、バースト数、ピーク値、反射波、位相を検知し、常温・標準圧場で評価 を行う。LIBSとの合体後にも、ノイズ対策を検討する。プラズマ発信で生じるピーキーな ノイズを、フィルター等を用いて対策する。



530 mm×220 mm⇒290 mm×315 mm⇒195.5 mm×100 mm⇒60 mm×60 mm (Name card size) 図2.2-1 マイクロ波発振装置の小型化

2.2.2 マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究

設計最適化のための電磁界シミュレーション

電界強度分布の高い部位を形成する条件抽出を電磁界シミュレーションで行う。できる だけアンテナから距離が取れる条件を探す。さらに、空間的に広域で形成されるように設 計パラメータの最適化を行う。

LIBSで生成されるプラズマ自体の大きさは数mm程度である。マイクロ波を注入してその プラズマサイズの拡大と持続時間の延長を行う。アンテナ素材としては今までの研究で耐 久性を考え、銅タングステンが最適である。電磁界シミュレーションで電解密度の高い所 をアンテナから遠方で、広域に形成される最適化が必要である。シミュレーションをして も、実際のプラズマの拡大化を100 %予測はできない。従って、使い勝手の良さと、空間 誤差の大きなものを採用することとする。マイクロ波発振装置から同軸ケーブルを用いて、 コネクタによりアンテナに接続される。このコネクタでの反射が大きくなるとその場でプ ラズマが発生することがわかってきた。設計最適化のための電磁界シミュレーションとア ンテナの試作、評価を予定している。アンテナ保持部の素材をセラミックとする案もある。 使用時の使い勝手、誤差、反射波での損傷等を検討して試作を行う。製作時に発生する個 体差を低減するためにも、アンテナは数種類のデザインを行う。マイクロ波発信回路は発 熱する。効率が60 %程度であるので、水冷システムが必要となる。パソコン用、小型冷蔵 庫用の水冷システムを小型化して装着する。アイラボ内にある装置組み立て場で行う。ア ンテナの位置とプラズマの位置の最適化が必要となる。マイクロ波電磁波計測システム、 電磁波シミュレーション解析により、アンテナ構造の最適化を図る。これも外注で行う。 アンテナ構造の設計をアイラボで行い、アンテナの材料選定を行う。セラミック化された 一体物も比較検討する。

- 2.2.3 SN比向上、測定精度改善に関する研究
 - 基本システムでの評価・ファイバー光学系での評価

LIBS光学系のパラメータを変化させて、SN比に与える基本条件の評価を行い、光学パラ メータの仕様を検討する。次に、ファイバー光学系での評価実験を行う。LIBSで得られる 信号精度の向上には、プラズマ生成用レーザーの高出力化、プラズマ分光計測装置の高性 能化が挙げられる。今回のSN比向上はこの前者のレーザー出力の向上と同じ効果が得られ る。さらにマイクロ波を断続的に照射してプラズマを空間中に保持されることを実現する。 パルス幅と先頭ピーク値で初期プラズマが生成され、バースト状のマイクロ波投入で空間 に保持されることになる。使用する分光器の波長分解能を上げると、暗くなる。従ってプ ラズマの発光量か、分光器の開閉時間の拡大を図る必要がある。まずは、基本システムで の評価を行い、ファイバー光学系での評価実験に続ける。光ファイバー長さも発光強度の 減衰と大きく関わっているため、パラメータとなる。最後に、マイクロ波発振条件の最適 化条件を抽出する。標準試料での検量線、精度確保のパラメータ抽出を行い、ウランなど の同位体計測に移行する。

2.2.4 全体システム構築に関する研究

ハードウェア構築

テーブルトップ LIBS 光学系の構築を行い、光学系等の精度向上のためのシステムのバ ージョンアップを検討する。構築した LIBS による Pb、A1 等による基礎評価を行い、計測 性の向上効果と全体システムの評価を行う。まず、ハードウェアを構築し、そのノイズ耐 力とライフタイム計測を行う。レーザーの出力低下に伴い、マイクロ波の重畳レベルを上 げて、最終的な測定精度の平準化を行う。サンプル種、サンプルの表面の形状等の条件を 入力すると最適な計測時間とサンプル数、等が得られることが望ましい。データ解析ソフ トウェアの構築も同時に進め、実際の 1F で使用を可能としたい。耐久テストとして想定 しているのは被曝ではなく、一般の電子製品に要求されるものを想定している。LIBS の分 光データの中で、U等に着目して、詳細分光データのバージョンアップとマイクロ波重畳のパルス幅、回数、分光器感度調整等、最適プログラムを用いて行う。

2.2.5 LIBSプローブ実装による評価研究(連携先: JAEA)

LIBS基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験

LIBSプローブヘッドの幾何学的形状等に関して、アイラボと情報を共有し、マイクロ波 重畳評価試験専用のファイバーLIBSプローブを構築する。

構築したLIBSプローブ系と、波長分解能1/50,000 の分光器を組み合わせ、模擬試料に よる試験を実施することで、マイクロ波を重畳しない従来法の基本性能を確認する。

2.2.6 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター(以下、「CLADS」 と略す。)等との連携を密にして、研究を進める。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2年度の実施内容及び成果

 3.1 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策
 原子炉内評価用としてのマイクロ波重畳 LIBS 装置において現状使用中のマイクロ波発振装
 置は大型であるため小型化が望ましい。その第一段階としてマイクロ波発振装置(以下、「試作 機1」と略す。)を開発し、その性能を検討した(図 3.1-1)。



図 3.1-1 マイクロ波発振装置(試作機 1)と従来のマイクロ波発振装置との比較

試作機1では、表3.1-1に示すように自由な波形パターン設定とPCによる入力波形作成が可能 となり、ピーク出力1.2 kW、パルス幅 twが4 ms Maxが実現できた(繰り返し周波数100 ms (10 Hz))。内蔵のパラメータモニターシステムは外部PCにより正しく動作していること、発振装 置内部の方向性結合器、チューナーも正常動作が確認できた。

以下に評価結果の詳細を説明する。

① マイクロ波発振装置(試作機1)評価結果

機能試験、通信試験においてPCとのtelnet接続試験、PCとのftp接続試験は全て合格であった。コマンド動作確認において15種のコマンド(use, set, trig, ctrl, zm, ptnlst, ptn, freq, power, bias, status, eepw, eepr, tc, version)の正常動作を確認した。

② 出力波形測定

出力波形測定の外観を図 3.1-2 に、結線図を図 3.1-3 に示す。
 測定器等は、次の通りである。
 オシロスコープ : アジレント・テクノロジー株式会社製 DS0-X4034
 50 Ω負荷 : Pasternack Enterprises 製 PE6039

方向性結合器	:Connecticut Microwave Corp.製 4413-11
スタブチューナー	:Maury Microwave 製 1878
電源	: 菊水電子工業株式会社製 PAG40-38B
PC	:Dell Technology 製 Latitude E7440

仕様項目	仕様内容		
寸法	$20 \times 15 \times 4.4$ (1320 cm ³)		
最大出力電力	1.2 kW@t _w =4 msMax*		
	$(t_p=100 ms)$		
出力モニタリング	有り (PCより確認可能)		
出力パターン仕様	パターンエディタで事前にパターン作成する		
	必要あり。パワーは固定。		
	t _{d1} t _{d2} t _{dn}		
冷却方法	空冷		
RF 出力の ON/OFF	ON→OFF のみ PC より可能**		
*:内部電源を外部	*:内部電源を外部から供給時		
**:安全対策として	**:安全対策として立ち上げ時は必ず前面 S/W を押す仕様		

表 3.1-1 マイクロ波発振装置(試作機 1)の仕様



図 3.1-2 出力波形測定外観



図 3.1-3 測定結線図

出力モニタ結果は、図 3.1-4 に示す通り問題なかった。

(a)Pd=55 dBm,tw=4 ms



(b)P	d=60 dBm, tw=4 ms	
2.00W 2	50 50mV/ 30 50mV/ 1.000ms/	1 / 1 Tito
Ţ		
¢		
Ţ		
Q		



図 3.1-4 出力モニタ結果

3.1-3 - 35 -

③ RF 電力測定

RF 電力測定をパルス幅 20 us、10 ms 周期内部トリガモード、電源改造ありの条件にて、ア ンリツ株式会社製パワーメータ ML2488A を使用して行った。その時の電源条件は Vcc=32 V、 C=66000 uF、菊水電子工業株式会社製電源 PAG40-38、無出力時電源電流(0.60 A) であった。 結果を表 3.1-2 及び図 3.1-5 に示す。出力電力は高電力側で設定値より減少が見られたが、仕 様上は許容範囲であった。

SN	設定電力	ピーク電力	平均電力	電源電流
	61 dBm	60.3 dBm	36.5 dBm	1.02 A
20800112	60 dBm	59.8 dBm	35.5 dBm	1.00 A
20000112	55 dBm	56.0 dBm	33.2 dBm	0.93 A
	50 dBm	51.2 dBm	29.6 dBm	0.89 A

表 3.1-2 RF 電力測定結果



図 3.1-5 RF 電力測定結果

④ 周波数スペクトラム

周波数スペクトラム (パルス幅 20 us、10 ms 周期内部トリガモード、power=55 dBm)、サン プル番号 SN # 20B00112 の測定結果を図 3.1-6 に示す。ほぼ設定値通りで問題なかった。



C)f=2.50 GHz



図 3.1-6 周波数スペクトラム結果

- ⑤ マイクロ波発振装置(試作機1)内部構成解析 改良開発を行うために、内部解析を実施した。 以下、各ブロックを説明する。
- ・メイン制御部(基板は4枚)
 表 3.1-3 にメイン制御部の各ブロックの機能を示す。インターフェースは Ethernet、CAN を備えていた。ADC は出力電力(入射、反射)モニタ用、FPGA は主にパルス制御(パルス幅、 出力値、出力の 0N/0FF 等)を担う。プリアンプ部は最大 100 W 程度まで増幅する仕様にな っている。

番号	ブロック名	機能
1	ETHERNET PHY	イーサネット物理層
2	LS/HS PHY	CAN インターフェース物理層 (LS/HS)
3	水晶発振子	FPGA 用クロック発振子
4	LCD	LCD 表示
5	SDRAM	FGPA (MCU) 用 RAM メモリ
6	UART	コンソール用シリアル通信
\overline{O}	ADC	アナログ・デジタル変換器。出力値の検出。
8	ETHERNET	イーサネット通信
9	I2C	周辺制御用インターフェース
10	CAN	CAN 通信
(11)	16kB EEPROM	データ保管用メモリ
12	CLOCK	クロック生成部
(13)	SPI	FPGA 用シリアルインターフェース
14	SPI	LCD 用シリアルインターフェース
15	1 MB FLASH	プログラム用メモリ及びデータ保管用メモリ
(16)	EXT MEM	外部メモリ用インターフェース
(17)	TEMP センサ	プリアンプ出力部温度確認用センサ
18	FPGA	MCU 内蔵 FPGA 内部シーケンス及び論理回路構成
(19)	PLL	発振周波数発振 2.4 GHz~2.5 GHz
20	AGC	可変アンプ 0~10 dB
21)	GATE S/W	発振のゲーティング
22	AMP1	初段アンプ Po=5 ₩
23	AMP2	2 段目アンプ Po=100 W G=13 dB
24)	Volt REGs	内部安定化電源
25	BIAS	アンプ用バイアス電源
26	コンパレータ	波形のパルス化
27)	ミキサ	発振成分の抽出
28	デテクタ	出力を包絡線検波により DC 成分に戻し、計測する。

表 3.1-3 メイン制御部の各ブロックの機能

・1.2 kW パワーアンプモジュール部

表 3.1-4 に 1.2 kW パワーアンプモジュール部の各ブロックの機能を示す。固定増幅度の 増幅器。出力制御は前段の出力値により決まる。サーキュレータにより無効電力の影響を回 避し、方向性結合器により、入射/反射信号をモニタすることが可能となる。温度センサに より Tr の温度情報を読み取ることが可能となる。

表 3.1-4 1.2 kW パワーアンプモジュール部の各ブロックの機能

番号	ブロック名	機能
29	AMP3	最終段アンプ Po=1.2 kW、G=11 dB
30	サーキュレータ	出力トランジスタ保護
31)	方向性結合器	出射と反射信号の収集
32	TEMP センサ	出力トランジスタ部温度確認用センサ
33	EEPROM	設定パラメータ用メモリ
34)	DRAIN CURRENT	出力トランジスタのドレイン電流確認用

・電源部

表 3.1-5 に電源部の各ブロックの機能を示す。一般的な降圧型 DC-DC コンバータにより内部電圧を供給している。

表 3.1-5 電源部の各ブロックの機能

番号	ブロック名	機能
35	DC/DC コンバータ	10~32 V/32 V DC-DC コンバータ

⑥ マイクロ波発振装置(試作機1)の実物内部解析 実物を分解して内部解析実施した。

·基板構成図

マイクロ波発振装置(試作機1)の基板構成図を図3.1-7に示す。内部解析した結果を説明する。6枚基板で構成されており、以下に各基板に搭載のデバイス情報をまとめる。



図 3.1-7 マイクロ波発振装置(試作機 1)の基板構成図

・Main CTRL 基板

本ボードにより各部の制御が行われる。FPGA により入力パラメータによる論理回路制御 を行い、全体の制御マネージメントは ARM Core の MCU が行っている。Ethernet インタフェ ースドライバを MCU が制御することにより、外部とのインターフェースを取っている。

・アナログ発振部

2.4 GHz の発振を生成及びアナログ処理する部分。外部制御信号により、任意の発振波形 が得られる。

主要部品の構成は表 3.1-6 の通りであった。

	主要部品				
U5	AD9912ABCPZ	AD	クロックジェネレータ、PLL、周波数シンセ サイザ		
U28	LTC5510	AD	1 MHz to 6 GHz Wideband High Linearity Active Mixer		
U27	ADF4360-1	AD	Integrated Synthesizer and VCO		
U30、 31	LTC1407-1	AD	12 ビット/14 ビット、3 Msps 同時サンプリング ADC		
U33、 34	SKY73009-11	SKYWORKS	400-3000 MHz Direct Quadrature Demodulator		
U40	SKY66397-12	SKYWORKS	2300 to 2700 MHz Wide Instantaneous Bandwidth High-Efficiency Power Amplifier		

表 3.1-6 アナログ発振部の構成

• Power 部

外部 DC 電源より内部 32 V 電圧を生成する。出力 Tr 供給電力が大きいため平滑コンデン サを多く使用している。出力平滑コンデンサ 2200 uF/35 V×5 並列接続。ただし、電解コン デンサのトップクリアランスが殆どなく、防爆弁が開かない恐れがある。 主要部品の構成は表 3.1-7 の通りであった。

表 3.1-7 Power 部の構成

			主要部品
A1	NQ40W40QTC35NNS	NiQor	9-40 Vin/0-40 Vout@35 A DCDC Converter
R1	2670 Ω		チップ固定抵抗 for RVSET
			DCDC Convert 出力電圧設定=32.52 V

• Driver 基板

アナログ発振部の信号を十分な電力まで拡大するプリアンプである。スプリアスの防止の ためシールドケースを使用している。PAの前段に配置されており、プリアンプの役割と思わ れる。

主要部品の構成は表 3.1-8 の通りであった。

	表	3.	1-	-8	Driver	基板の構成
--	---	----	----	----	--------	-------

		主要部長	
U1	BLM2425M7S60P	NXP	LDMOS 2-stage power MMIC
A1、A2	X3C26P1-03S	Anaren	RF Directional Coupler

・PA 基板

1 kW 出力を出すためのパワーアンプ。無効電力による出力 Tr を損傷されないよう出力部 にサーキュレータを入れている。スプリアスの防止のためシールドケースを使用している。 また放熱のため大きな放熱板でケースに取り付けられている。

主要部品の構成は表 3.1-9の通りであった。

表 3.1-9 PA 基板の構成

		主要語	新品
Q1	BLM2425M9LS700PV	Ampleon	LDMOS
A2	RFCR2849D-01	RFCI	RF Circulator Isolator
A5	X3C26P1-03S	Anaren	RF Directional Coupler

・ディスプレイ基板

表示板用基板。タッチパネル機能あり。信号はMCUと接続されている。主要部品は、タッ チパネル対応 LCD である。

・マイクロ波発振装置(試作機1)の最大出力電力の確認

tw=~4 ms (tp=100 ms)、P=1.2 kW であれば動作可能との通知を受けているが、tw を大き くした場合どうなるのか確認した。tw=~5 ms (tp=100 ms)、P=1.2 kW の設定で出力印加後、 出力電圧が正常値から半減した。出力 Tr が故障したと考えられる。

Tr の内部状態を確認したところ内部 AL ボンディングワイヤの切断が見られた。そのため 内部抵抗が上昇し出力電圧が低下したものと考えられる。

従って、tw=4 ms (tp=100 ms)、P=1.2 kW を超える条件では使用できないと結論される。 なお、故障したマイクロ波発振装置(試作機1)は故障した出力 Tr を交換することにより、 正常動作するようになった。 3.2 マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究

3.2.1 設計最適化のための電磁界シミュレーション

電界強度分布の高い部位を形成する条件抽出を電磁界シミュレーションで実施した。できる だけアンテナから距離が取れる条件を探した。さらに、空間的に広域で形成されるように設計 パラメータの最適化を実施した。

アンテナのシミュレーション環境として、

1)ソフトウェア: ANSYS Inc. 社製Electronics Desktop 2020R2 (HFSS他)

2)PC:Dell Technology製Precision3440、Windows10Pro、Corei-9-10900、128GBRAM を使用した。

アンテナの構成として、図 3.2-1 に示すように、アンテナ部と金属同軸部と SMA-SMA コネク タ部で想定した。アンテナ部は平面アンテナ及び立体的なアンテナについて数種検討した。

金属同軸部は金属(真鍮)と絶縁物(ステアタイト ϵ =6)を同軸状に構成し、特性インピー ダンス Zo が 50 Ω となるように構造設計した。なお、シミュレーションでは SMA-SMA コネクタ は含まず、金属同軸端に Zo=50 Ω の発振源を接続した形でシミュレーションを実施した。

図 3.2-2 に示すように電界値はアンテナ先端中央部を中心として 10 mm の球面での近磁界値 をシミュレーションした。



図 3.2-1 アンテナの構成のイラスト



図 3.2-2 アンテナのシミュレーション領域

アンテナシミュレーション結果代表例を表3.2-1に示す。従来の箸型、平面型及びコイル型ア ンテナについて電界評価を実施し、近電界の最大値については箸型が最も小さく、コイル型が 最も大きいことが判明した(箸型に比べ平面型は、3.0~4.3倍最大電界値が大きい。箸型に比 ベコイル型は、11.6~68.8倍最大電界値が大きい)。

アンテナ 名称	アンテナ形状	先端より 10 mm 距離 球面での電界分布	最大電界値 (P=1 kW)	対箸型 電界比
1. 箸型			19.8 kV/m	1
2. 平面型 1	D		84.1 kV/m	4.3
3. 平面型 2	0		59.9 kV/m	3.0
4. 平面型 3	0		64.7 kV/m	3. 3
5. コイル型 縦1			349.5 kV/m	17.7
6. コイル型 縦 2			230.6 kV/m	11.6
7. とぐろ型2	6		349.4 kV/m	17.6

表3.2-1 アンテナシミュレーション結果

- 3.3 SN比向上、測定精度改善に関する研究
 - 3.3.1 基本システムでの評価・ファイバー光学系での評価
 - (1) マイクロ波重畳LIBSの増強効果の測定(レンズ光学系)

標的サンプルにアルミナ板とMo板を用いて基本システムであるレンズ光学系のみでLIBS測定 システムのパラメータを変化させて、SN比に与える基本条件の評価を行い、光学パラメータの 仕様を検討した(図3.3-1参照)。

使用機器は次の通りである。

- ・Nd-YAGパルスレーザー光源: DAWA-200 (Beamtech Optronics社製)、パルス幅7 ns、周波数 10 Hzの532 nmレーザーパルス。レーザー直径5 mmで、エネルギー範囲は0.1~100 mJ。
- ・プラズマのスペクトル線収集:50 mmのコリメートレンズを備えた光ファイバー
- ・分光計: Czerny-Turner分光計MS327 (Newport社製)、2400溝/10 mmのグレーティング、ICCD カメラ (Andor iSTar、Oxford Instruments社製)
- ・スペクトル解析ソフト:Oxford Instruments社製 AndorSolis

図3.3-1に、マイクロ波アンテナを用いたLIBS試験系の概略図を示す。レーザー、集光レンズ (レンズ焦点距離50 mm)、光ファイバー受光部を一列に設置した。徐々にレーザー出力を上げ て、アルミナ板上でプラズマ音が鳴るレーザー強度を探した。

マイクロ波オシレータからのマイクロ波はアイソレータ、スタブチューナー、方向性結合器 を通過した後に同軸ケーブルで接続したアンテナに導かれる。

アンテナ先端は標的サンプル面で生成するプラズマの近傍に設置し、プラズマにマイクロ波が 吸収されるようにした。マイクロ波のプラズマへの吸収は音とマイクロ波の反射波の低下(プ ラズマに吸収されることによる)をオシロスコープで確認した。



図3.3-1 マイクロ波を重畳したLIBS測定装置構成(レンズ光学系)MW:マイクロ波

アンテナギャップと信号強度との関係

マイクロ波を発信するアンテナギャップ(アンテナ先端と標的サンプルとの距離)とLIBS信

号強度との関係性を調べた。標的サンプルにアルミナ板を用いて、レーザーエネルギーは13 mJ、 マイクロ波発振期間を1 msとした際の395 nm付近のA1発光ピークを観測した。アンテナギャッ プを1.5、2.0、2.5 mmと変化させて、発光強度への影響を調査した(図3.3-2)。その結果、ギ ャップが2.0 mmの時にA1発光ピークが最大となり、アンテナギャップには最適値が存在するこ とが分かった。



Laser 13 mJ/RF 1 ms,60 dBm/A1203/Antenna1.5 mmのBreak down 時の



図3.3-2 アンテナギャップと信号強度との関係(1/2) (A) アンテナギャップ1.5 mm、(B) アンテナギャップ2.0 mm

3.3-2 - 46 -



Laser 13 mJ/RF 1 ms,60 dBm/A1203/Antenna2.5 mmのBreak down時の

レーザーエネルギー0.17 mJ、マイクロ波エネルギー1 kWでマイクロ波を重畳したLIBSを実施 した。A1(増強効果8倍)とMo(増強効果7倍)のスペクトル増強を確認した(図3.3-3)。





標的サンプルとしてアルミナ板を用いて、レーザー強度とマイクロ波エネルギーを変化させて、LIBSスペクトルへの影響を調査した。レーザー強度は、3、5、15、30、45 mJ、マイクロ波 エネルギーは、0、1、2、3、4、5、8、10 msと変化させた。結果を図3.3-4に示す。

Laser condition		MW condition		Spectrometer condition	
Laser input energy, mJ	3~45	MW frequency, GHz	2.45	Spectrometer	MS257
Laser pulse width, ns	8	MW peak power, kW	1.7	Grating, lines/mm	1200
Repetition rate, Hz	10	MW oscillation pattern	CW	Exposure time, s	1.0
Focal length of lens, mm	200	MW oscillation duration, ms	0~10	Accumulation, times	10



図3.3-4 種々のレーザー強度とマイクロ波エネルギーのA1のLIBSスペクトルへの影響

次に、レーザー強度を11 mJに固定しマイクロ波エネルギーを0、1、2、3、4、5、8、10 msと 変化させた(図3.3-5)。マイクロ波エネルギーが3 ms以上でA1のLIBSスペクトル強度が30~48 倍に増強された。

Laser condition		MW condition		Spectrometer condition	
Laser input energy, mJ	11	MW frequency, GHz	2.45	Spectrometer	MS257
Laser pulse width, ns	8	MW peak power, kW	1.7	Grating, lines/mm	1200
Repetition rate, Hz	10	MW oscillation pattern	CW	Exposure time, s	1.0
Focal length of lens, mm 200		MW oscillation duration, ms	0~10	Accumulation, times 10	



図3.3-5 レーザー強度を固定し(11 mJ)マイクロ波エネルギーを変化(0、1、2、3、4、5、 8、10 ms)させたときのA1のLIBSスペクトルへの影響

(2) マイクロ波重畳LIBSの増強効果の測定(ファイバー光学系)

次に、標的サンプルとして同様にA1とMoを用いて、ファイバー光学系での評価実験を行った (図3.3-6)。レーザー、集光レンズ、光ファイバー受光部をまず一列に設置し、別に光ファイ バー出力部(レンズ焦点距離50 mm)、標的サンプルを一列に配置する。FC-LIBS実験では光の 集光角を小さくしてエネルギー密度を低減しファイバー端面へのダメージを回避するために 200 mmのレンズを使用した。徐々にレーザー出力を上げて、光ファイバー受光部ではプラズマ 音がしない状態で、かつアルミナ板上ではプラズマ音が鳴るレーザー強度を探した。レーザー からの光を集光レンズ(レンズ焦点距離50 mm)によって光伝送用ファイバーに入射する。ファ イバーの他端はレンズホルダーに接続し、光ファイバーを通過した光を集光し、集光位置に設 置したターゲットであるアルミナサンプル板表面でプラズマ生成させ、増強を確認した。

レーザースポットサイズ、エネルギー密度を変化させ、散乱光強度、SN比に与えるパラメー タを検討した。しかし、検討時間が不足し、レンズ光学系で得られたようなスペクトルの取得 に至っていない。これらについては、令和3年度に引き続き検討する。



図3.3-6 マイクロ波を重畳したLIBS測定装置構成(光ファイバー光学系) MW:マイクロ波

LIBS のスペクトル増強のための鍵となる因子は、マイクロ波からの電界の増加による荷電粒子の加速である。図 3.3-7 に、マイクロ波の高振動と電力を使用することによる高電界のLIBSのスペクトル増強への影響を示す。光ファイバー結合レーザーによる A1 の LIBS スペクトルにおいて、パルスマイクロ波(パワー1.9 kW 及び発振持続時間 8 ms)を使用して 1000 倍のスペクトル増強が観測された(以前のデータ)[2]。今回のレンズ光学系での結果に基づき、光ファイバーによるレーザー光照射とマイクロ波発振源のアンテナの新しい設計によりスペクトル増強1000 倍を目標に改善を図る。



高電界のLIBSのスペクトル増強への影響

3.3-6 - 50 -

- 3.4 全体システム構築に関する研究
 - 3.4.1 ハードウェア構築

図3.4-1に示すようにテーブルトップLIBS光学系の構築を行い、光学系等の精度向上のた めのシステムのバージョンアップを検討し、構築したLIBSによるPb、A1等による基礎評価を行 い、計測性の向上効果と全体システムの評価を行う、という計画に対し、小型化マイクロ波発 振装置と600 µmの光ファイバーを用いた小型化システムを試作した。このシステムで光ファイ バー接続有無でのA1と他の材料 (Mo、Pb、Fe、Cu)の測定を行なったが、図3.4-2に示すよう なスペクトルが得られた。ただし、詳細スペクトル計測により、精度を議論するためには、更 にデータを追加する必要がある。これらについても、令和3年度に引き続き検討する。



図3.4-1 テーブルトップLIBS光学系の構築



図 3.4-2 A10₃、Mo、Pb、Fe、Cuのスペクトラム

3.5 LIBSプローブ実装による評価研究(連携先: JAEA)

3.5.1 LIBS 基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験

LIBS プローブヘッドの幾何学的形状等に関して、アイラボと情報を共有し、マイクロ波重畳 評価試験専用のファイバーLIBS プローブを構築した。

構築した LIBS プローブ系と、波長分解能 1/50,000 の分光器を組み合わせ、模擬試料による 分光試験を実施し、マイクロ波を重畳しない場合の基本性能を確認した。

- (1) LIBS プローブの構築
- ① LIBS プローブの選択

JAEA では2種類の光ファイバーLIBS プローブを開発している。一つは、従来から利用してい ている光ファイバーLIBS プローブで、レーザー光源からのレーザー光を光ファイバーで伝送さ せ、再収束してプラズマ発光を生成し、生成された蛍光を同一の光ファイバーを逆向きに伝送 させて分光器に入力し、分光する。もう一つは、発想を転換し、超小型レーザー(マイクロチ ップレーザー)それ自身を光ファイバーの先端に配置する方法である。この方法では、外部か らレーザー励起エネルギーを光ファイバーを介してマイクロチップレーザーに注入し、レーザ ー光を生成して集光照射することでプラズマ発光を得る。これら二つの手法の概念を図 3.5-1 に示す。



図 3.5-1 従来の光ファイバーLIBS とマイクロチップレーザーLIBS の概念

先行技術である光ファイバーLIBS では、レーザー光源が外部にあることから、レーザー出力 の調整や交換が容易であること、プローブ先端は光ファイバーとレンズのみで構成されること から、構造の簡便化、軽量化が可能である、といった長所がある。一方、高いパルスエネルギ ーのレーザー光を光ファイバーで搬送することから、搬送可能なレーザー光強度に制限がある こと、光ファイバーに対する負荷が大きいこと、このため比較的太いファイバーを用いる必要 がありファイバーの柔軟性に欠けること、長距離伝送に対するレーザー光の減衰に配慮する必 要があること(従来技術で 50 m)、光ファイバーから出射されるレーザー光は短焦点距離でな ければ再収束しにくいこと、といった欠点もある。 これに対し、新技術であるマイクロチップレーザーLIBS では、手のひらサイズのレーザー発 振器その物を炉内に挿入するプローブ先端に配置し、発振するパルスレーザー光を直接利用す る。発振器の励起に必要なエネルギーは準連続的なレーザー光エネルギーを利用することから、 従来技術のようにプラズマを生成する高強度パルスレーザー光を光ファイバーで搬送する必要 がない。このため、利用する光ファイバーを細くすることが可能で、曲げ自由度も高くなる。 また、長距離伝送(50 mから100 m)であっても、エネルギー伝送ができればよいので、発振 するレーザー光の質の劣化がない。さらに、出力されるレーザー光は、光ファイバーから発散 出力されるレーザー光と異なり、極めて集光性が高く、長焦点距離でもプラズマ生成が可能で ある。

これら2つの方法を、外部アンテナによるマイクロ波重畳法との組み合わせを考慮して比較した。結果を表3.5-1に示す。

比較項目	従本注	マイクロチップ	マイクロ波重畳	
儿我没日	使不过	レーザーLIBS	法の要求	
プローブ構造	単純	若干複雑	—	
プローブ大きさ	小	小	小	
レーザー出力可変性	容易	複雑	不要	
光ファイバーへの負荷	大	小	—	
光ファイバーの長さ	長い	超長尺	—	
発光強度	比較的強い	比較的強い	小で可	
生成プラズマ寿命	比較的長い	短い	—	
集光性	悪い	極めて良い	無関係	
焦点距離	短い	長焦点距離可能	長い	
マイクロ波重畳方との整合性	\bigtriangleup	O	—	

表 3.5-1 LIBS プローブの比較

ここで最も注目したいのが、長焦点距離でもプラズマ生成が可能である長所である。マイク ロ波重畳法では、アンテナを介してマイクロ波エネルギーを供給する。アイラボの検討から、 平面的なアンテナより、コイル状のアンテナが有利であることが予測されていることから、LIBS プローブと試料との間に一定の間隔が必要である。

以上の検討から、LIBS プローブ部として、マイクロチップレーザーLIBS プローブを選定する こととした。

② マイクロチップレーザーLIBS プローブの構築

マイクロチップレーザーの概念は、図 3.5-1 に示すとおりであるが、従来のレーザー発振器 との本質的な違いは、受動素子による Q スイッチ発振である。従来のレーザー発振器では、ポ ッケルスセルによる能動的 Q スイッチ発振で、外部からの電気信号で発振タイミングが決定さ れる。これに対して、マイクロチップレーザーの Q スイッチ発振は、Cr⁺⁴:YAG の可飽和吸収体 による受動的 Q スイッチ動作による発振である。可飽和吸収体は、入射光量が一定量以下の場 合は比較的高い吸収効果を維持し、この間、レーザー媒質である Nd⁺³:YAG 内に利得エネルギー が蓄積される。しかし、入射光量が一定量を超えると透明化し、レーザー媒質に蓄積されたエ ネルギーが短時間で放出されレーザー発振に至る。このタイミングは、励起エネルギーの蓄積 時間に依存することから、一定範囲内に制御できるものの、そのタイミングを外部から制御す ることは困難である。LIBS では、レーザー照射直後の高温プラズマ生成からマイクロ秒遅延後 の緩和過程における分光が求められる時間分解分光が必要となる。このため、レーザー発振タ イミングを観測するため、発振したレーザー光の一部を光ファイバーで分光器まで伝送し、ス ペクトル観測に必要な同期信号を得ることとした。

一方、集光照射により生成されたプラズマ発光については、従来同様、集光系のレンズはレ ーザー光の集光系と共有するものの、レーザー媒質が障害となるため、可視・近赤外領域の波 長帯域をダイクロイックミラーにより分岐し、別途専用の光ファイバーで分光器まで搬送する こととした。この結果、マイクロチップレーザーLIBS プローブには、励起レーザー用光ファイ バー、発振タイミング伝送用光ファイバー、分光信号伝送用光ファイバーの3本の光ファイバ ーを用いることとなった。

マイクロチップレーザーLIBS プローブ部の概要を図 3.5-2 に、製作仕様を図 3.5-3 に示す。 また、実際に製作したプローブ部の写真を図 3.5-4 に示す。



図 3.5-2 マイクロチップレーザーLIBS プローブ部の概要



図 3.5-3 マイクロチップレーザーLIBS プローブ部の製作仕様

3.5-3



プローブ部全体

マイクロチップレーザー部

(2) 模擬試料による基本性能試験

製作したマイクロチップレーザーLIBS プローブと、波長分解能 1/50,000 の分光器を組み合わせ、模擬試料による分光試験を実施し、マイクロ波を重畳しない場合の基本性能を確認した。 試験のセットアップ状況を図 3.5-5 に示す。



20m長光ファイバケーブル使用

」IBSプローブヘッドと実験系外観

図 3.5-5 分光試験のセットアップ状況

時間分解分光に必要なタイミングは、マイクロチップレーザーの一部をモニタリングする光 ファイバーからのレーザー光を、逆バイアスさせたピンフォトダイオードで検出し、これを基 本トリガーとして時刻を定め、遅延パルス発振器により分光器の検出器であるイメージインテ ンシファイアー付き CCD カメラを駆動した。

LIBS プローブ部は、Z ステージに固定し、適切な焦点距離で固定した。試料は XY ステージ上 に配置し、照射位置を調整した。レーザー光の焦点距離は、長焦点の 50 mmである。

パルス幅が1 ns 未満(800 ps)で発振するマイクロチップレーザーで生成されるプラズマの 寿命は、ナノ秒のパルスレーザーで生成されたものに比べると比較的短い。このため、観測遅 延時間は、レーザー発振後、500 ns とした。なお、光ファイバー中の光の伝達速度は、一般的 な石英の屈折率を1.2 とした場合、約2×10⁸ m/s である。今回使用した光ファイバーの長さは、

図 3.5-4 製作したマイクロチップ LIBS プローブ部

20 mであることから、光の伝送による遅延時間だけで100 ns に及び、遅延パルス発振器内の 内部遅延時間、85 ns を合わせると、約 200 ns の遅延時間が発生していることを念頭に置く必 要がある。

試験で用いた模擬試料は、Ceをウランの模擬元として、Ce酸化物中にZr酸化物、Gd酸化物 を混入させて仮焼結した試料を利用した。Zrの混入率は約25%で固定し、Gdが存在しない試 料と5%混入させた試料を準備し、Gdのスペクトル強度に注目して両者を比較した。代表的な スペクトル取得例を図3.5-6に示す。



図 3.5-6 発光スペクトル測定例(0 %Gd と 5 %Gd の比較)

測定例から、Ce、Zr が混在した中においても、Gd 成分が S/N 良く観測されていることがわか る。Gd (5 %)のスペクトル強度(信号成分:S)と、Gd (0 %)のスペクトル強度(ノイズ成分: N)との単純比較から、S/N として、約 10 が得られ、当該測定においては、Gd の有効感度とし て約 0.5 %が得られている。

(3) まとめと令和4年度の計画

LIBS プローブヘッドの幾何学的形状等に関して、アイラボと情報を共有し、マイクロ波重畳 評価試験専用のファイバーLIBS プローブを構築した。この結果、最大3 mJ のパルス出力を得 た。また、焦点距離 50 mmの集光照射でも、プラズマ発光が生成できることを確認した。 構築した LIBS プローブ系と、波長分解能 1/50,000 の分光器を組み合わせ、Ce をウラン模擬 元素とした Ce/Zr/Gd 混合酸化物試料による試験を実施した。この結果、元素に特化したスペク トルが観測され、5 %の Gd が S/N~10 程度で確認でき(有効感度:0.5 %相当)、マイクロ波を 重畳しない場合の基本性能を確認した。

以上の成果を踏まえ、令和4年度は、アイラボから提供を受けたマイクロ波システムを実装し、 模擬試料により、発光強度、波長分解能に及ぼす影響、SN比等に関する評価を実施する。

- 3.6 研究推進
- COVID-19 感染防止のために出張での打ち合わせは実施できず。対策として下記を実施した。
- ・ CLADS との連携:メールや電話で密に実施した。
- ・ 連携先の JAEA との打ち合わせ・会議:メール、オンライン会議、電話で実施した(約5回程 度/月)。
- ・ 社内や外注先との打合せや会議:メールやオンライン会議、電話でタイムリーに実施した。

4. 結言

従来の LIBS システムに発振装置からのマイクロ波をアンテナを用いて重畳し、プラズマの拡大 化、持続時間の延長、信号レベルの向上を実現し、核燃料デブリを測定できる装置を開発するこ とを目標に、マイクロ波発振装置の小型化、マイクロ波アンテナの設計最適化、SN 比向上/測定精 度改善、全体システム構築、LIBS プローブ実装による評価研究の5つにおいて検討を進め、計画 に対し70 %程度の成果が得られたと評価する。

残りの2年間でシステムの実用化を図るため、令和2年度の未達成事項も含め小型化したシス テムを用いたマイクロ波重畳 LIBS プローブの開発を JAEA と共同で実施していく。また、耐放射 線性については、堅ろうなシステムを開発するより、安価で交換性に富むものを選定する計画で はあるが、最低限の耐放射線性については、交換頻度、放射線環境対応性の観点から必要である と認識しており、JAEA の協力でこれを実施する。また、ウラン同位体の検出計測の可能性評価に ついても、当該技術・経験を有する JAEA の協力を仰ぐ。

研究終了時には、LIBSに装着可能システムとして現場計測が可能となる。コストも考え、実施 研究者のスキルに頼ることのない高精度計測システムとして、量産化プロジェクトへ移行する。

参考文献

- [1] 大場弘則,若井田育夫,平等拓範,過酷環境下での遠隔レーザー分析技術,日本原子力学会 誌 ATOMOΣ, vol.62, No.5, 2020, pp.263-267.
- [2] Ikeda Y., Ofosu J. A., Wakaida I., Development of Microwave-enhanced Fibre-Coupled Laser-induced Breakdown Spectroscopy for Nuclear Fuel Debris Screening at Fukushima, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol. 171, 2020, 105933.
- [3] Ikeda Y., Tsuruoka R., Characteristics of Microwave Plasma Induced by Lasers and Sparks, Applied Optics, vol.51, no.7, 2012, B183-B191.
- [4] Ikeda Y., Moon A., Kaneko M., Development of Microwave-enhanced Spark-induced Breakdown Spectroscopy, Applied Optics, 2010, vol. 49, no. 13, 2010, pp. C95-C100.
- [5] Ofosu J. A. and Ikeda Y., A 2.45 GHz Microwave-Enhanced Fiber-Coupled Laser-Induced Breakdown Spectroscopic System for Debris Detection and Radiation Measurement, International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research, Fukushima, Japan Conference Proceedings, 2019, FDR2019-1095.
- [6] Ofosu J. A. and Ikeda Y., Elemental Analysis and Mixture Ratio Determination in Fine Powder Metals Using Microwave-sustained Plasma Ball Spectroscopy, Spectrochimica Acta Part B, vol. 160, 2019, 105693.
- [7] Oba M., Miyabe M., Akaoka K. and Wakaida I., Development of Microwave-assisted, Laser-induced Breakdown Spectroscopy without a Microwave Cavity or Waveguide, Japanese Journal of Applied Physics, vol.59, no.6, 2020, 062001. DOI: 10.35848/1347-4065/ab8b3f.
- [8] Miyabe M., Oba M., Akaoka K., Kato M., Hasegawa S., Wakaida I., Development of Laser Ablation Absorption Spectroscopy for Nuclear Fuel Materials: Plume Expansion Behavior for Refractory Metals Observed by Laser-induced Fluorescence Imaging Spectroscopy, Applied Physics A: Materials Science & Processing, vol. 126, no. 213, 2020. DOI: 10.1007/s00339-020-3368-0.
- [9] 若井田育夫,大場弘則,宮部昌文,赤岡克昭,大場正規,田村浩司,佐伯盛久,核燃料サイ クルおよび福島第一原子力発電所廃炉への適用を念頭としたレーザー誘起ブレークダウン 分光と関連分光技術,光学,vol. 48, no. 1, 2019, pp. 13-20.
- [10] Matsumoto A., Ohba H., Toshimitsu M., Akaoka K., Ruas A., Wakaida I., Sakka T., Yae S., Enhancement of Molecular Formation in Fiber-optic Laser Ablation with a Long Nanosecond Pulsed Laser, Spectrochim Acta B, vol. 155, 2019, pp. 56–60.
- [11] Matsumoto A., Ohba H., Toshimitsu M., Akaoka K., Ruas A., Sakka T., Wakaida I., Fiber-optic Laser-induced Breakdown Spectroscopy of Zirconium Metal in Air: Special Features of the Plasma Produced by a Long-pulse Laser, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol. 142, 2018, pp. 37-49.

- [12] Miyabe M., Oba M., Jung K., Iimura H., Akaoka K., Kato M., Otobe H., Khumaeni A., Wakaida I., Laser Ablation Absorption Spectroscopy for Isotopic Analysis of Plutonium: Spectroscopic Properties and Analytical Performance, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol. 134, 2017, pp. 42-51.
- [13] Oba M., Miyabe M., Akaoka K. and Wakaida I., Effect of Defocusing on Laser Ablation Plume Observed by Laser-induced Fluorescence Imaging Spectroscopy, Jpn. J. Appl. Phys., vol.55, 2016, pp.022401_1-022401_4.
- [14] 赤岡克昭, 宮部昌文, 音部治幹, 若井田育夫, レーザー誘起ブレークダウン分光の核燃料物 質分析への適用, レーザー研究, vol. 42, no. 12, 2014, pp. 918-922.