

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—

Analysis of Microparticles Generated by Laser Processing and  
Development of a Methodology for Their Nuclear Identification  
(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  
東京大学

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

September 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

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

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 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 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).  
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.  
For inquiries regarding this report, please contact 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

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

東京大学

(2022年3月29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、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」の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめたものである(令和3年度まで契約延長)。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取りまとめた。

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)

— 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

The University of Tokyo

(Received March 29, 2022)

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 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 from FY2018 to FY2021 (this contract was extended to FY2021). Since the final year of this proposal was FY2021, the results for four fiscal years were summarized.

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 .....	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 .....	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
Appendix Result Report .....	11

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、従来プログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

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評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【一般研究】

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

## 課題解決型廃炉研究プログラム

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

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

## 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
$\alpha$ / $\beta$ / $\gamma$ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邊 豊	東北大学
$\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

本報告書は、以下の課題の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめたものである（令和3年度まで契約延長）。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取りまとめた。

## 共通基盤型原子力研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
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

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

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 R02I021-1)

成果報告書

令和 3 年 9 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」の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめたものである（令和3年度まで契約延長）。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取りまとめた。

目次

概略	ix
1. はじめに	1. 1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.1.1 実施体制図	2. 1-3
2.2 各年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-1
2.2.1 平成30年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-1
2.2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-2
2.2.3 令和2年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-3
3. 業務の実施内容および成果	3. 1-1
3.1 レーザー加工・評価【平成30～令和2年度】	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：JAEA）	3. 1-2
3.1.3 相互作用の評価・解析（再委託先：レーザー総研）	3. 1-5
3.2 微粒子捕集・計測【平成30～令和2年度】	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：JAEA）	3. 2-4
3.3 微粒子原子化・核種同定【平成30～令和2年度】	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：JAEA）	3. 3-10
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【平成30～令和2年度】	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【平成30～令和2年度】	3. 5-1
4. 結言	4-1

執筆者リスト

事業代表者	国立大学法人東京大学	教授	長谷川 秀一
		助教	寺林 稜平
		学術専門職員	井上 薫
		学術支援専門職員	Wells, Stephen Robert
再委託先	公益財団法人レーザー技術総合研究所	特別研究員	大道 博行
連携先	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	マネージャー	宮部 昌文
		課長	伊藤 主税
		研究副主幹	柴田 卓弥
		研究副主幹	山田 知典*
		*現所属	公益財団法人若狭湾エネルギー研究センター

表一覧

表 3. 1. 3-1	廃炉関連金属とコンクリートの物理的、機械的特性.....	3. 1-8
表 3. 1. 3-2	廃炉関連セラミックスの物理的、機械的特性.....	3. 1-8
表 3. 3. 1-1	ガドリニウム同位体の天然存在比.....	3. 3-5
表 3. 4. 1-1	各種ターゲットの照射痕.....	3. 4-10

図一覧

図 2. 1-1	事業実施計画.....	2. 1-1
図 2. 1. 1-1	実施体制図.....	2. 1-3
図 3. 1. 1-1	高速度カメラにより撮影した金属微粒子の飛散挙動.....	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 SEM・EDX 観察結果.....	3. 1-2
図 3. 1. 2-1	照射チェンバーを用いた試験の様子.....	3. 1-3
図 3. 1. 2-2	レーザー出力に着目した微粒子飛散挙動の評価.....	3. 1-3
図 3. 1. 2-3	高速度カメラによる撮影結果.....	3. 1-4
図 3. 1. 3-1	セラミックスとレーザーの相互作用.....	3. 1-5
図 3. 1. 3-2	蒸気の過冷却による核の形成.....	3. 1-6
図 3. 1. 3-3	高レーザー強度 ( $\gg 10^{10}$ W/cm <sup>2</sup> ) における高密度プラズマ生成.....	3. 1-6
図 3. 1. 3-4	電子顕微鏡によるステンレス鋼微粒子の画像 (左) 観察に用いた超高分 解能電界放出形走査電子顕微鏡 (JAEA CLADS 富岡に設置) (右) .....	3. 1-7
図 3. 1. 3-5	レーザー照射後の溶融ステンレス鋼 (左) 測定配置 (右) .....	3. 1-7
図 3. 2. 1-1	ステンレス鋼製配管中のナトリウムエアロゾルの伝送効率の計算結果....	3. 2-1
図 3. 2. 1-2	レーザー照射チェンバーの設計概念図.....	3. 2-2
図 3. 2. 1-3	電気泳動式により測定したガドリニアの粒径スペクトル.....	3. 2-3
図 3. 2. 2-1	微量ナトリウム分析装置.....	3. 3-4
図 3. 2. 2-2	空力学レンズの粒子透過特性.....	3. 3-5
図 3. 2. 2-3	イオン源.....	3. 2-6
図 3. 2. 2-4	V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル .....	3. 2-7
図 3. 2. 2-5	W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル .....	3. 2-7
図 3. 2. 2-6	エアロゾル質量分析計の設置状況 (正面側) .....	3. 2-8
図 3. 2. 2-7	エアロゾル質量分析計の設置状況 (制御部背面) .....	3. 2-8
図 3. 2. 2-8	空力学レンズ.....	3. 2-9
図 3. 2. 2-9	微粒子捕集実験装置.....	3. 2-10
図 3. 2. 2-10	コンクリートサンプル.....	3. 2-10
図 3. 2. 2-11	バックグラウンド (空気成分) の質量スペクトル.....	3. 2-11
図 3. 2. 2-12	ステンレス鋼 (SUS304) の質量スペクトル.....	3. 2-11
図 3. 2. 2-13	アルミナの質量スペクトル.....	3. 2-12
図 3. 2. 2-14	ジルコニアの質量スペクトル.....	3. 2-13
図 3. 2. 2-15	ガドリニアの質量スペクトル.....	3. 2-13
図 3. 2. 2-16	ガドリニアの測定による $m/z=150\sim 170$ の質量スペクトル.....	3. 2-14
図 3. 2. 2-17	コンクリートの質量スペクトル.....	3. 2-14
図 3. 2. 2-18	集積板による微粒子の捕集実験体系.....	3. 2-15
図 3. 2. 2-19	改造後の捕集装置.....	3. 2-15
図 3. 2. 2-20	集積板.....	3. 2-16
図 3. 2. 2-21	ガドリニア微粒子の集積実験後の集積板の SEM 画像.....	3. 2-16
図 3. 2. 2-22	SEM-EDX によるガドリニア微粒子の集積実験後の集積板の元素分析結果 .	3. 2-17

図 3.2.2-23	エアロゾル捕集・粒径測定部の概略図	3.2-18
図 3.2.2-24	粒径測定部の設計図	3.2-18
図 3.2.2-25	チョッパーの外観	3.2-19
図 3.2.2-26	トリガー信号ケーブル	3.2-19
図 3.2.2-27	ダイヤフラムポンプ	3.2-20
図 3.2.2-28	PSL 粒子の粒径測定結果	3.2-21
図 3.2.2-29	PSL 粒子（幾何学径 0.097 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-21
図 3.2.2-30	PSL 粒子（幾何学径 0.199 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-22
図 3.2.2-31	PSL 粒子（幾何学径 0.299 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-22
図 3.2.2-32	PSL 粒子（幾何学径 0.453 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-22
図 3.2.2-33	PSL 粒子（幾何学径 0.596 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-23
図 3.2.2-34	PSL 粒子（幾何学径 0.799 $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル	3.2-23
図 3.2.2-35	バックグラウンド（空気成分）の粒径スペクトル	3.2-24
図 3.2.2-36	ステンレス鋼の粒径スペクトル	3.2-25
図 3.2.2-37	アルミナの粒径スペクトル	3.2-26
図 3.2.2-38	ジルコニアの粒径スペクトル	3.2-26
図 3.2.2-39	ガドリニアの粒径スペクトル	3.2-27
図 3.2.2-40	ガドリニアの測定による $m/z=155$ 、 $156$ 、 $157$ 、 $158$ 、 $160$ の粒径スペクトル	3.2-27
図 3.2.2-41	コンクリートの粒径スペクトル	3.2-28
図 3.3.1-1	グロー放電中性原子蒸気源を用いたガドリニウム原子分光実験体系	3.3-2
図 3.3.1-2	ガドリニウム原子発光スペクトル	3.3-3
図 3.3.1-3	ガドリニウム原子吸収スペクトル（405 nm 帯）	3.3-3
図 3.3.1-4	アブレーション共鳴分光装置の模式図	3.3-4
図 3.3.1-5	吸収波形のアブレーション光強度依存性	3.3-6
図 3.3.1-6	アブレーション原子密度とパルスエネルギーの関係	3.3-6
図 3.3.1-7	吸収ピーク幅とアブレーション強度の関係	3.3-7
図 3.3.1-8	透過率とアブレーション強度の関係	3.3-7
図 3.3.1-9	吸収スペクトルの観測時刻による変化	3.3-8
図 3.3.1-10	吸収スペクトルのプローブレーザーパワー依存性	3.3-8
図 3.3.1-11	吸収スペクトルのガス圧力と観測時刻による変化	3.3-9
図 3.3.1-12	吸収スペクトルの観測高さによる比較	3.3-10
図 3.3.1-13	検量線の直線性と LOD の評価	3.3-10
図 3.3.2-1	構築した微粒子の原子化実験装置の構成	3.3-12
図 3.3.2-2	原子化による透過光の吸収の代表例	3.3-13
図 3.3.2-3	原子化レーザーのタイミングによる吸収パルスの変化	3.3-14
図 3.3.2-4	フラグメンテーションで生じた Ca 原子の吸収スペクトル	3.3-15
図 3.3.2-5	フラグメンテーション光（627 nm）のパルスエネルギーに対する吸光度 の変化	3.3-16
図 3.3.2-6	構築した微粒子原子化・核種同定用実験装置の模式図	3.3-17
図 3.3.2-7	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）500 Pa-Air	3.3-18

図 3.3.2-8	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) 500 Pa の減圧空気中の場合	3.3-19
図 3.3.2-9	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 500 Pa-Air	3.3-19
図 3.3.2-10	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	3.3-20
図 3.3.2-11	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	3.3-21
図 3.3.2-12	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 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	3.3-22
図 3.3.2-13	ファイバーレーザー照射時の共鳴プローブ光の透過強度の変化	3.3-23
図 3.3.2-14	ファイバーレーザーアブレーション時のクロム原子の吸収線幅の評価	3.3-24
図 3.3.2-15	ファイバーレーザー照射スポットと共鳴レーザービームの位置関係	3.3-24
図 3.3.2-16	クロム原子による吸収量の高さ分布 180 Pa-Air	3.3-25
図 3.3.2-17	ガドリニウム原子による吸収量の高さ分布 180 Pa-Air 同軸上	3.3-26
図 3.3.2-18	非共鳴プローブ光の微粒子による光散乱	3.3-26
図 3.4.1-1	QCW レーザー照射実験配置 (左) 写真 (右)	3.4-1
図 3.4.1-2	微粒子捕集用カスケードインパクトおよびレーザー照射部を囲むように配置された円錐台形状の微粒子捕集用カバー (黒枠で表示) (左) 実験配置写真 (右)	3.4-2
図 3.4.1-3	実験に用いたターゲット	3.4-2
図 3.4.1-4	高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のステンレスターゲットのスナップショット	3.4-3
図 3.4.1-5	SEM で観察したステンレス鋼の微粒子	3.4-3
図 3.4.1-6	EDX による元素分析の結果	3.4-4
図 3.4.1-7	高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のアルミナターゲットのスナップショット	3.4-4
図 3.4.1-8	電子顕微鏡で観察したアルミナの微粒子	3.4-5
図 3.4.1-9	EDX による飛散した粒子の元素分析	3.4-5
図 3.4.1-10	高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のコンクリートターゲットのスナップショット	3.4-6
図 3.4.1-11	電子顕微鏡で観察したコンクリートの微粒子	3.4-6
図 3.4.1-12	EDX による飛散した粒子の元素分析結果	3.4-7
図 3.4.1-13	高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のスナップショット	3.4-7
図 3.4.1-14	(a) ジルコニア、(b) 酸化ガドリニウムターゲットから飛散した球状粒子の SEM 像	3.4-8
図 3.4.1-15	デジタルマイクロスコープ (株式会社キーエンス製 VHX-5000) による照射痕、断面形状の測定	3.4-8
図 3.4.1-16	デジタルマイクロスコープにより観察したステンレス鋼の照射痕	3.4-9
図 3.4.1-17	(a) USB 顕微鏡、(b) デップスゲージ、(c) 電子天秤	3.4-9

図 3.4.1-18	(a) レーザーと金属との相互作用、(b) レーザーとセラミックスの相互作用 .....	3.4-11
図 3.4.1-19	レーザーとコンクリートとの相互作用.....	3.4-11

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
レーザー総研	: 公益財団法人レーザー技術総合研究所
SEM	: Scanning Electron Microscope (走査電子顕微鏡)
EDX	: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分析)
ECDL	: External Cavity Diode Laser (外部共振器型半導体レーザー)

## 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、破碎等がある。レーザー加工技術の特長は(1)小型ヘッドとフレキシブルな光ファイバーによる狭隘部加工が可能、(2)制御されたレーザービームにより mm の切断幅が可能。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 $\alpha$ 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。すでに国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」と略す。)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、平成30～令和2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

微粒子粒径分布に対するレーザー加工パラメータ依存性を実験により検討した。

#### ② 照射試験および微粒子発生挙動評価(連携先: JAEA)

令和元年度の結果を踏まえ、デブリ模擬体(金属、セラミックス)、コンクリートを用いてレーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動との関係の評価を行った。

#### ③ 相互作用の評価・解析(再委託先: 公益財団法人レーザー技術総合研究所(以下、「レーザー総研」と略す。))

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を明らかにするため高速度カメラの画像および捕捉した微粒子等を記録し、評価および考察を行った。

### (2) 微粒子捕集・計測

#### ① 微粒子捕集の分布評価

空力学レンズによる微粒子の粒子線への収束性能について検討した。また、レーザー加工により発生する微粒子の粒径分布の評価を行った。

#### ② 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測(連携先: JAEA)

微粒子を捕集・計測する装置を用いてレーザー切断時に発生する微粒子の捕集実験を行い、効率的に微粒子が粒子線に収束できるエアロゾルの導入条件や空力学レンズの最適化を行っ

た。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の粒子の速度分布を計測し、微粒子の粒径分布評価に基づき、微粒子計測技術の最適化へフィードバックさせた。

(3) 微粒子原子化・核種同定

① 核種同定手法の開発

レーザー加工により発生する原子に対して吸収分光を行い、核種同定手法の性能を評価した。

② 原子化手法の開発（連携先：JAEA）

レーザー加工時に発生する原子や微粒子を、共鳴レーザー光を照射して得られる共鳴信号により観測して、分析性能を評価するとともに、レーザー加工時の核種同定手法の適用性について評価した。

(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）

微粒子等の影絵を得るレーザー照明法を採用し、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、レーザーと物質の相互作用に関する評価・解析をまとめ、その総合評価を行った。

(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、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

以上、平成 30～令和 2 年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

## 1. はじめに

廃炉に向けたレーザーの活用には、レーザー診断、レーザー加工等がある。レーザー加工技術には構造物の切断、はつり、破碎等がある。レーザー加工技術の特長は(1)小型ヘッドとフレキシブルな光ファイバーによる狭隘部加工が可能、(2)制御されたレーザービームによる切断幅 $\sim$ mmが可能。他の熱加工に比べ溶融量が小さいこと、(3)加工時に反力がほとんどないので、加工装置の保持が比較的容易であること、(4)材料による加工の難易度が比較的少なく、金属、金属酸化物(セラミックス)、コンクリートとそれらの混合物等への適用が可能であること、(5)水中加工も可能であること等での特長を有している。一方、課題は、(1)熱加工特有の有害な各種微粒子が発生すること、(2)水中加工では加工ヘッドにガス噴射装置が取り付けられ、空洞を形成しレーザーを伝送する手法がとられ、泡による微粒子の移行が起こること、(3)加工効率の把握と向上、が挙げられる。熱加工特有の発生微粒子の量、サイズの分布等は計測されているが、その閉じ込めを考えると発生、成長、移行過程を踏まえた性状の分析手法の開発が急務である。すでに JAEA 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  $0.05\sim 10\ \mu\text{m}$  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よく、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
		←	←	←
② 照射試験及び微粒子発生挙動評価 (JAEA)		装置試作 予備試験	照射試験	微粒子発生挙動の評価
		←	←	←
③ 相互作用の評価・解析 (レーザー総研)		観察	様々な試料での観察・記録	記録・評価
		←	←	←
(2) 微粒子捕集・計測 ① 微粒子捕集の分布評価 (東大)		設置検討	設置 分布評価準備	捕集検討 分布評価
		←	←	←
② 微粒子捕集及び微粒子の粒径分布計測 (JAEA)		予備実験準備	予備実験 装置検討	装置製作 測定
		←	←	←
(3) 微粒子原子化・核種同定 ① 核種同定手法の開発 (東大)		レーザー製作	微粒子の原子化	核種同定
		←	←	←
② 原子化手法の開発 (JAEA)		装置の構築	微粒子光分解試験	分析性能評価試験
		←	←	←
(4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析 ① 高速度カメラの画像データ解析 (レーザー総研)		評価・解析	課題抽出 実験立案	総合評価
		←	←	←
(5) 研究推進		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価
		←	←	←

図 2.1-1 事業実施計画

(1) レーザー加工・評価

レーザーを試験体に時間的、空間的に高度に制御された形で照射し、レーザー照射パラメータ依存性や微粒子発生挙動、レーザーと試験体との相互作用を評価する。

(2) 微粒子捕集・計測

レーザー照射により発生する微粒子を捕集・計測し、微粒子の粒径分布を測定する。また、粒径分布評価に基づき、微粒子計技術の最適化へフィードバックさせる。

(3) 微粒子原子化・核種同定

レーザーアブレーションで生じる粒子種の元素・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。

(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

レーザーと物質の相互作用に関する評価・解析により、微粒子発生の見解をまとめ、総合評価を行う。

(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。

2.1.1 実施体制図

事業実施体制を図 2.1.1-1 に示す。

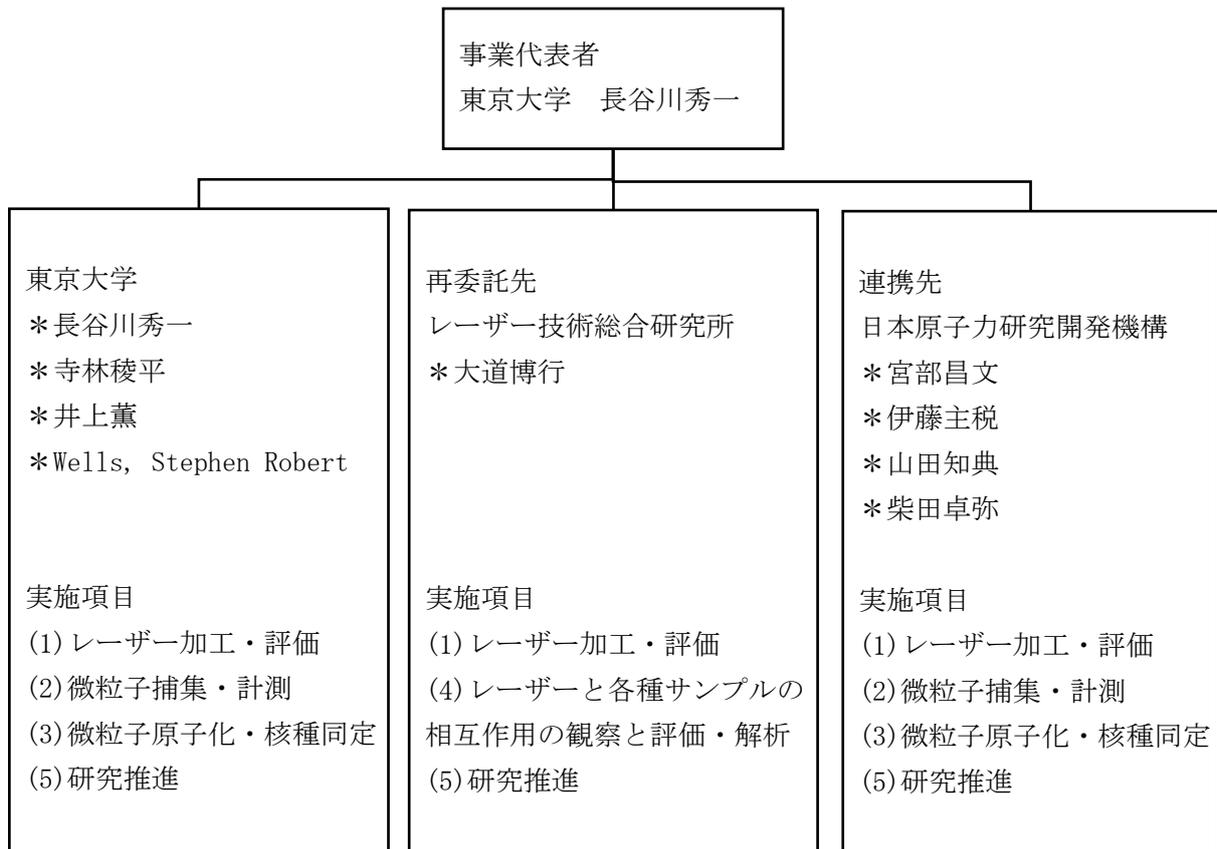


図 2.1.1-1 実施体制図

## 2.2 各年度の成果の目標および業務の実施方法

### 2.2.1 平成 30 年度の成果の目標および業務の実施方法

#### (1) レーザー加工・評価

##### ① 微粒子パラメータ依存性の検討

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

##### ② 照射試験および微粒子発生挙動評価（連携先：JAEA）

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

##### ③ 相互作用の評価・解析（再委託先：レーザー総研）

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

#### (2) 微粒子捕集・計測

##### ① 微粒子捕集の分布評価

試料照射チェンバーと空力学レンズの 2 つに位置取りの調整と検討を行う。

##### ② 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測（連携先：JAEA）

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

#### (3) 微粒子原子化・核種同定

##### ① 核種同定手法の開発

核種分析に必要な狭帯域半導体レーザーシステムを製作し、光学系の検討を行う。

##### ② 原子化手法の開発（連携先：JAEA）

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

#### (4) レーザーと各種サンプルの相互作用の観察と評価・解析

##### ① 高速度カメラの画像データ解析（再委託先：レーザー総研）

得られた画像データをレーザー総研において、詳細な観察とレーザーと物質の相互作用に関する解析を行う。

#### (5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに 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。

## 2.2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法

### (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 などにて測定する。

#### ② 照射試験および微粒子発生挙動評価（連携先：JAEA）

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：JAEA）

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：JAEA）

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。

## 2.2.3 令和2年度の成果の目標および業務の実施方法

### (1) レーザー加工・評価

#### ① 微粒子パラメータ依存性の検討

令和元年度の結果を踏まえ、微粒子粒径分布に対するレーザー加工パラメータ依存性を実験により検討する。

#### ② 照射試験および微粒子発生挙動評価（連携先：JAEA）

令和元年度の結果を踏まえ、デブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートを用いてレーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動との関係の評価を行う。

#### ③ 相互作用の評価・解析（再委託先：レーザー総研）

令和元年度の結果を踏まえ、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を明らかにするため高速度カメラの画像および捕捉した微粒子等を記録し、評価および考察を行う。

### (2) 微粒子捕集・計測

#### ① 微粒子捕集の分布評価

空力学レンズによる微粒子の粒子線への収束性能について検討する。また、レーザー加工により発生する微粒子の粒径分布の評価を行う。

#### ② 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測（連携先：JAEA）

令和元年度に製作した微粒子を捕集・計測する装置を用いてレーザー切断時に発生する微粒子の捕集実験を行い、効率的に微粒子が粒子線に収束できるエアロゾルの導入条件や空力学レンズの最適化を行う。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の粒子の速度分布を計測し、微粒子の粒径分布評価に基づき、微粒子計測技術の最適化へフィードバックさせる。

### (3) 微粒子原子化・核種同定

#### ① 核種同定手法の開発

レーザー加工により発生する原子に対して吸収分光を行い、核種同定手法の性能を評価する。

#### ② 原子化手法の開発（連携先：JAEA）

令和元年度の成果に基づき、レーザー加工時に発生する原子や微粒子を、共鳴レーザー光を照射して得られる共鳴信号により観測して、分析性能を評価するとともに、レーザー加工時の核種同定手法の適用性について評価する。

### (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

#### 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）

令和元年度に開発した微粒子等の影絵を得るレーザー照明法を採用し、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、レーザーと物質の相互作用に関する評価・解析をまとめ、その総合評価を行う。

### (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. 業務の実施内容および成果

#### 3.1 レーザー加工・評価【平成 30～令和 2 年度】

##### 3.1.1 微粒子パラメータ依存性の検討

レーザー加工時に発生するヒューム、粉塵等の微粒子の発生挙動を観察し、空力学レンズへの導入を可能にするための照射チェンバーの設計を行うため、JAEA で所有する既存の照射チェンバーを用いた予備試験を実施した。平成 30 年度に実施した観察結果の一例を図 3.1.1-1 に示す。試験体は金属であり、レーザー照射部はレーザーエネルギーの入熱により熔融し、レーザーと同軸方向にレーザー誘起プルームが生成する様子が観察された。プルーム中には超微粒子が含まれることから、これらはこのプルームに乗って上部に拡散されていると考えられる。また、レーザー照射から 6.1 ms 後には、照射部から熔融物が飛散する様子が観察された。この結果から、比較的大きな粒子はレーザー照射部を中心に同心円状に拡散すると考えられる。そこで、円柱状の容器でレーザー照射部を囲い、周囲へ漏れない構造とした。また、微粒子の発生挙動の観察や空力学レンズへの導入を行うため、レーザー照射部の観察を可能とする観察窓兼微粒子取り出し口を複数設置する構造にした。

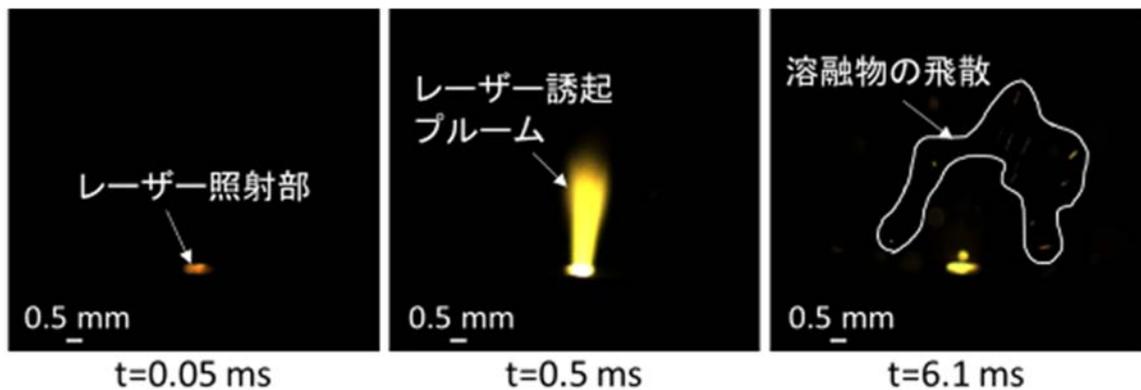


図 3.1.1-1 高速度カメラにより撮影した金属微粒子の飛散挙動

レーザー照射により発生する微粒子を評価するため、試験体を載せた金属プレート上に堆積した比較的大きな粒子を捕集し、走査電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope、以下、「SEM」と略す。)で観察した。令和元年度に実施した金属(SUS304)、セラミックス( $Al_2O_3$ )、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エネルギー分散型 X 線分析(Energy Dispersive X-ray Spectroscopy、以下、「EDX」と略す。)による点分析の結果を図 3.1.1-2 に示す。捕集した粒子には、一度熔融したと考えられる球状の物や、熔融せずに破片として飛散したと考えられるような物が存在した。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。

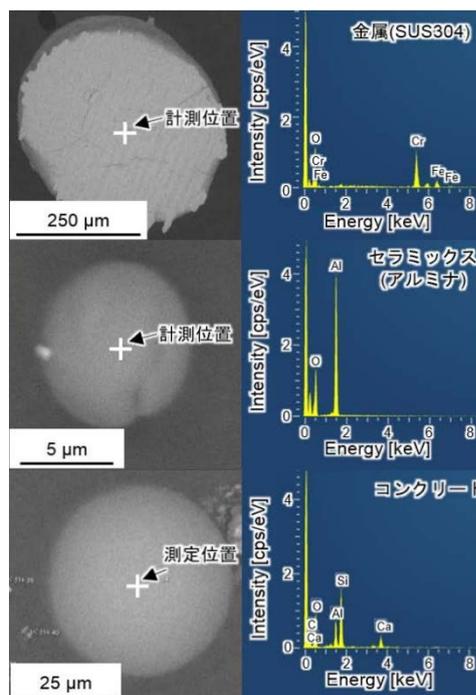


図 3.1.1-2 金属、セラミックス、コンクリートの各試験体から捕集した微粒子の SEM・EDX 観察結果

レーザー加工パラメータとしてレーザー出力に着目し、微粒子粒径分布に対する依存性を検討した。粒子分布の測定には NanoScan (SMPS3910) を使用しており、レーザー照射により発生した微粒子をホースで吸引し測定した。NanoScan の計測範囲は 10 nm から 420 nm であり、60 s ごとにデータが表示される仕様である。ここでは、測定結果の一例として金属 (SUS304) にレーザー照射を行い、レーザー照射停止から 60 s~120 s 間の測定データについて述べる。レーザー出力に対する依存性として、微粒子の個数に着目するとピークの値は、レーザー出力 1 kW の場合は、2 千個のオーダーであるのに対し、レーザー出力 2 kW の場合は、5 万個を超えていた。さらに、レーザー出力 3 kW の場合は、7 万個を超えることが確認できた。この結果から、レーザー出力が増加すると、微粒子の個数が急激に増加することが確認できた。粒径分布については、レーザー出力 1 kW の場合は、20.5 nm 付近、86.6 nm 付近、365.2 nm 付近にピークが見られたが、レーザー出力 2 kW の場合は、11.5 nm 付近、86.6 nm 付近にピークがあり、レーザー出力 3 kW では、20.5 nm 付近、86.6 nm 付近にピークが見られた。この結果から、レーザー出力により発生する微粒子の分布が異なっていることが確認できた。以上のように、目標である微粒子粒径分布に対するレーザー加工パラメータ依存性として、レーザー出力に着目した依存性を検討することができた。(令和 2 年度実施)

### 3.1.2 照射試験および微粒子発生挙動評価 (連携先: JAEA)

検討結果に基づきレーザー加工時に発生するヒューム、粉塵等の微粒子を回収するための照射チェンバーを製作し、JAEA 所有の準連続 (以下、「QCW」と略す。)ファイバーレーザーや高速度カメラ、照明と組み合わせることでレーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動との関係性を評価した。平成 30 年度に製作した照射チェンバーと試験の様子を図 3.1.2-1 に示す。照射試験では、照射チェンバーの内部に試験体を設置し、照射チェンバー上部にある照射窓から試験体に向けてレーザーを照射した。照射チェンバーの側面には合計 12 ヶ所の観察窓があり、

中段の1ヶ所の観察窓を空力学レンズと接続することで、レーザー照射により発生した微粒子の捕集が可能である。微粒子発生挙動の評価では、下段の観察窓を利用し、レーザー照射中の様子を高速カメラで観察することで行った。

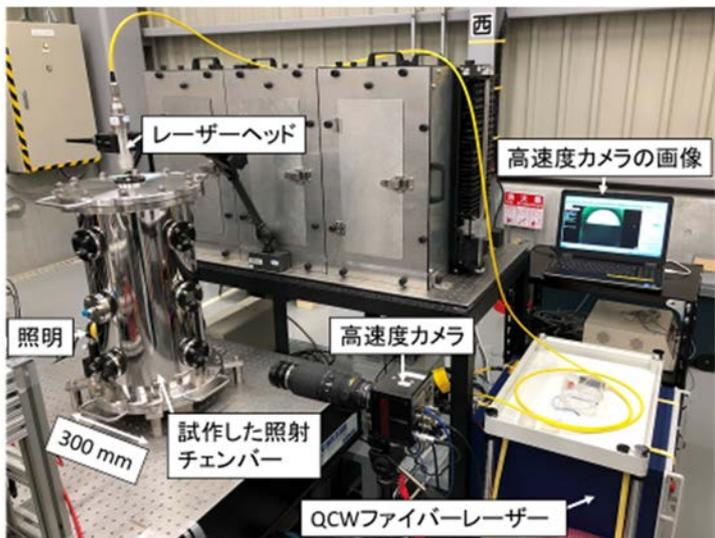


図 3. 1. 2-1 照射チェンバーを用いた試験の様子

レーザー照射パラメータとして、レーザー出力に着目し、各試験体に対しレーザー照射を行った。レーザー発振器は、最大 3 kW でパルス照射が可能な QCW ファイバーレーザーである。レーザー出力は 880 W、1800 W、2700 W の 3 条件とし、パルス幅 10 ms で試験体に対し上部からレーザー照射を 1 パルス照射した。令和元年度に実施した結果の一例としてレーザー照射から 2 ms 後の画像を図 3. 1. 2-2 に示す。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。また、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、その周囲を飛散する微粒子の数も多くなっていることが、高速カメラの画像から確認できた。

金属 (SUS304)			
	1mm	1mm	1mm
	887 W	1800 W	2700 W
セラミックス (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )			
	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. 2-2 レーザー出力に着目した微粒子飛散挙動の評価

図 3.1.2-2 で示したように試験体にレーザーを照射すると、レーザー照射部からレーザーと同軸方向にレーザー誘起プルーム等が発生するため、微粒子の大半はその発光に隠れていると考えられた。そこで、試験体を挟むように照明と高速度カメラを設置し、高速度カメラの先端に取り付けたバンドパスフィルターで、照明の波長のみを透過させて影絵撮影を行うことで、レーザー誘起プルーム等の発光を除外した。比較結果を図 3.1.2-3 に示す。レーザーの照射条件は、レーザー出力 887 W、パルス幅 10 ms で統一した。図 3.1.2-3 中の時間は、レーザーを照射したタイミングとして高速度カメラの画像で試験体に変化があった瞬間を  $t=0$  ms とし、7 ms 後の画像を比較している。図 3.1.2-3(a) は、高速度カメラのみで撮影した結果であり、図 3.1.2-2 で示した結果と同様にレーザー誘起プルームが観察される。それに対し、図 3.1.2-3(b) の影絵撮影では、レーザー誘起プルームは観察されず、照明の赤い光が観察された。動画では、レーザー照射部で試験体として用いた金属 (SUS304) が溶融し、周囲に微粒子が拡散する様子が鮮明に確認できるが、静止画では、照明の発光により微粒子が部分的にしか見えないため、Image J を使用してバックグラウンドの除去を行った。バックグラウンド除去後の画像を図 3.1.2-3(c) に示す。これにより、レーザー照射により溶融した金属の挙動やレーザー照射部を中心に上向きに飛散する微粒子の挙動を鮮明に捉えることができた。

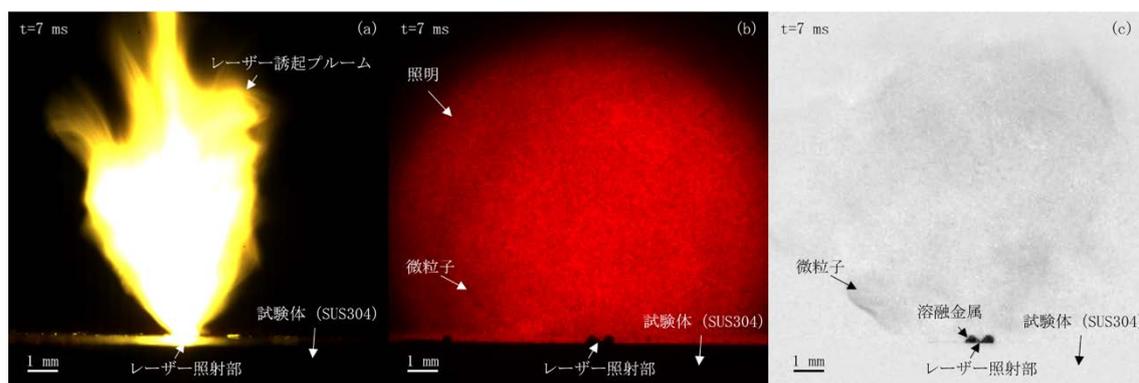


図 3.1.2-3 高速度カメラによる撮影結果

影絵撮影による微粒子発生挙動の評価では、先ほどと同様にレーザー照射パラメータとしてレーザー出力に着目し、試験体にレーザー照射を行った。ここでは、金属 (SUS304)、セラミックス ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、コンクリートの結果について述べる。レーザー出力は 887 W、1834 W、2680 W の 3 条件である。

金属 (SUS304) の場合は、レーザー出力 887 W では溶融金属の飛散は殆どなく、レーザー照射部を中心に上方向に飛散するヒュームや粉塵等の微粒子が観察された。レーザー出力 1834 W になると、溶融金属の飛散量が増加する傾向があり、レーザーの照射方向に近い方向に飛散する溶融金属も観察された。ヒュームや粉塵等の微粒子はレーザー照射部を中心に上部方向に拡散しており、レーザー出力を向上させると発生量も増加しているように見えた。図 3.1.2-3(c) で示したバックグラウンド除去後のデータを用いて二値化処理を行い、レーザー照射時間と微粒子発生数を評価した。この評価では、高速度カメラの画像から粒子として検出できる数十  $\mu\text{m}$  以上が対象であるため、nm オーダーのヒューム等は対象外である。微粒子が発生し始めるタイミングとして、レーザー出力が 887 W の場合は、レーザー照射開始から 2.5 ms 後までは微粒子が殆ど発生していないが、レーザー出力が向上すると微粒子が発生するまでの時間が短くなる

傾向があり、例えば、レーザー出力 1834 W の場合は、0.6 ms 後から微粒子が発生し始めることが確認できた。各時間における微粒子の数は、レーザー出力が多いほど増加する傾向があり、金属 (SUS304) を対象とした場合、レーザーを停止する 10 ms 頃まで常に発生し続けていることが確認できた。

セラミックス ( $Al_2O_3$ ) やコンクリートの場合は、レーザー照射部を中心に熔融物や破片が飛散する様子が観察され、レーザー出力を向上させると発生量が増加する傾向があった。レーザー照射中の微粒子発生挙動としては、セラミックス ( $Al_2O_3$ ) では、発生するタイミングに起伏があり、例えば、レーザー出力 2680 W の場合は 3 ms 付近と 7.5 ms 付近で微粒子数が増加し、その前後で微粒子数が少なくなる傾向があった。また、コンクリートでは、レーザー照射開始直後に微粒子が大量に発生し、それ以降の発生量は少なくなる傾向があった。

以上のように、レーザー照射パラメータとしてレーザー出力に着目し、目標である微粒子発生挙動との関係性を評価することができた (令和 2 年度実施)。

### 3.1.3 相互作用の評価・解析 (再委託先：レーザー総研)

廃炉に際し、種々の原子炉構造物等の切断、取出しにレーザー加工技術の適用が期待されている [3.1-1]。この中でレーザー加工に伴う種々の放射性物質を含んだ微粒子等の発生の評価とその飛散抑制、回収が課題となっている。このような背景の下、微粒子等の特性を深く理解するため、レーザーとデブリ構成物質である金属、セラミックス、コンクリートとの相互作用を基礎に立ち戻って主として実験的に研究した。その中で、高速度カメラの画像、捕捉した微粒子および照射痕等を記録し、それぞれの物質ごとの特性評価およびデータの解析を行った [3.1-2] (令和 2 年度実施)。

これまでの相互作用に関する実験結果を評価、解析し、以下の知見が得られた。

(1) レーザーエネルギー吸収の開始に着目すると金属とセラミックスで大きく異なる。すなわち金属ではナノメートルオーダー (スキン長) の表面で吸収、反射が起こる。それに対し、図 3.1.3-1 に示すようにセラミックスでは部分的にレーザー光が透過し、数 mm のオーダーで物質内部に入り込み、そこで吸収が起こると推定される (令和 2 年度実施)。

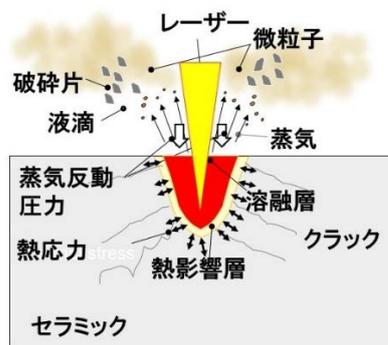


図 3.1.3-1 セラミックスとレーザーの相互作用  
金属では物質表面でレーザーエネルギーの吸収が起こる。

(2) 金属、セラミックス、コンクリートではレーザー照射部の溶融開始に伴い溶融池から液滴が飛散する[3.1-3]。またセラミックス、コンクリートでは図 3.1.3-1 に示すように照射部周辺から大きさが数十  $\mu\text{m}$  から数  $\text{mm}$  におよぶ破砕片が飛散する。

(3) 図 3.1.3-2 に示すように照射部が沸点を超えると沸騰が支配的になり蒸気の発生が支配的になる。発生蒸気の冷却に伴い、核生成と蒸気の凝集が起こり数十～数百  $\text{nm}$  のサイズの微粒子が発生する[3.1-4]。

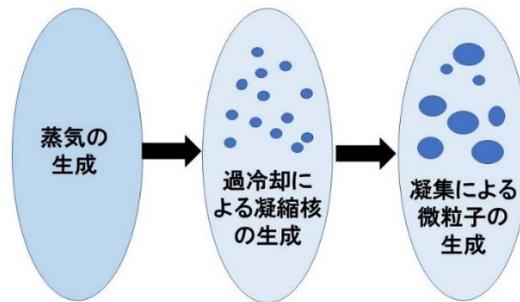


図 3.1.3-2 蒸気の過冷却による核の形成  
核に蒸気が凝集し数十～数百  $\text{nm}$  のサイズの微粒子が生成。

(4) レーザー照射強度が高くなり電離が進展し、照射部が高密度プラズマ化するとレーザーエネルギーの吸収が急激に進むが、レーザーエネルギーは被照射物質に届かなくなり、図 3.1.3-3 に示すように溶融、蒸発は進行しないとされる[3.1-5]。今回の実験では  $10^7 \text{ W/cm}^2$  以下のレーザー照射強度であり、この領域にはない。

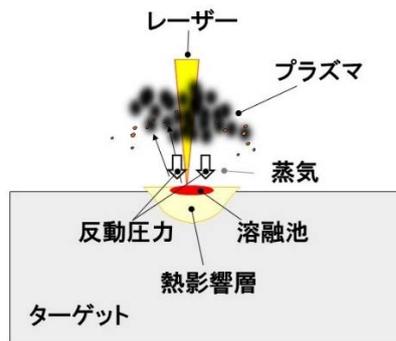


図 3.1.3-3 高レーザー強度 ( $\gg 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ) 照射における高密度プラズマ生成

(5) 蒸気や微粒子とレーザー、蒸気や微粒子と大気との相互作用と酸化に注目した。カスケートインパクトにより取得したレーザー照射ステンレス鋼からの微粒子の電子顕微鏡写真と用いた電子顕微鏡写真を図 3.1.3-4 に示す。白いブドウの房のようなナノ粒子は導電性が低く、酸化されていることを示唆している。

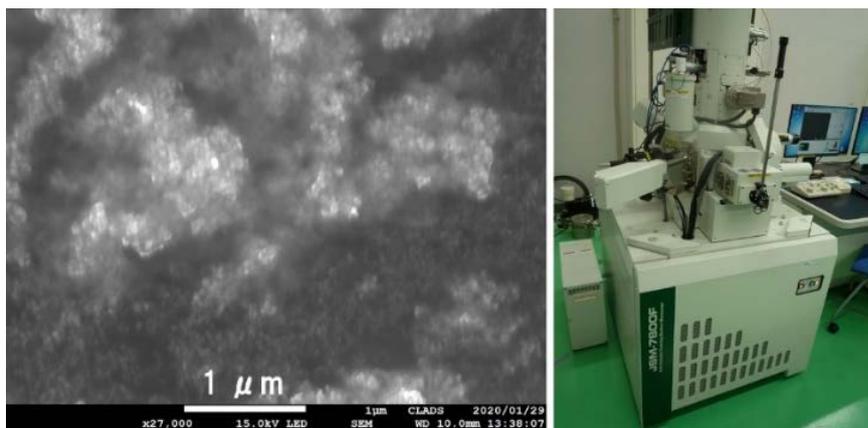


図 3.1.3-4 電子顕微鏡によるステンレス鋼微粒子の画像（左）  
 観察に用いた超高分解能電界放出形走査電子顕微鏡（JAEA CLADS 富岡に設置）（右）  
 [3.1-2]（令和元年度実施）

(6) 図 3.1.3-5 に実験配置図と高速度カメラの画像を示す。その解析の結果、レーザー照射が終了すると気体部分は膨張、熔融部、固体領域は主として熱伝導による冷却が進行すると考えられる。

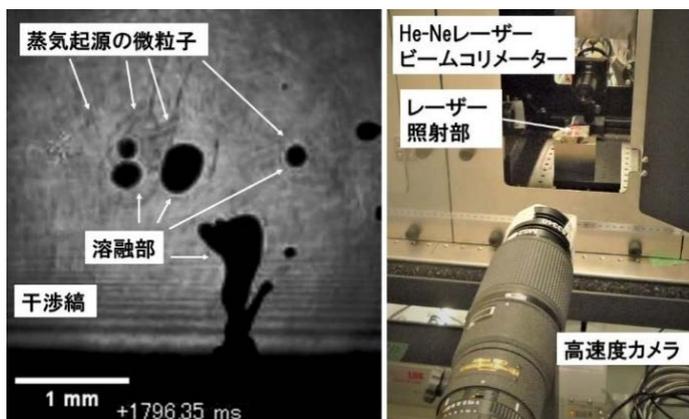


図 3.1.3-5 レーザー照射後の熔融ステンレス鋼（左）測定配置（右） [3.1-2]

原子炉の廃炉工程にレーザー加工技術を適用するためには、加工効率とともに周囲の安全な環境保持のため加工に伴う微粒子等の発生とその閉じ込め、回収に着目して技術の適用を図ってゆく必要がある。ここに示した被加工材料の性質に関する知見を踏まえ、研究を進めてゆくことが期待される。表 3.1.3-1 にステンレス鋼、コンクリートの物理的、機械的特性を示す。表 3.1.3-2 に過酷事故により炉心熔融が起こる際生成されると想定される [3.1-6] 多くのセラミックスの中で本研究のレーザー照射ターゲットとして用いた材料の機械的性質、物理的性質を示す [3.1-6] [3.1-7]。比較のため燃料デブリに含まれる酸化ウラン ( $UO_2$ ) の性質を記載している。ジルコニアとよく似た性質であることが分かる。これら表の数値は文献により多少異なるので、性質を考察するための大まかな表と理解していただきたい。

表 3.1.3-1 廃炉関連金属とコンクリートの物理的、機械的特性

	ステンレス鋼	コンクリート
弾性定数 GPa	200	50
熱膨張係数 $10^{-6}/K$	17	12
ポアッソン比	0.3	0.2
質量密度 $g/cm^3$	7.9	2.3
比熱 $J/(g \cdot K)$	0.5	1
熱伝導係数 $W/m \cdot K$	15-25 (20-800°C)	2-1 (20-600 °C)
融点 (°C)	1420	1500
沸点 (°C)	2750 (Iron)	
溶融潜熱	276 J/g	
蒸発潜熱	6088 J/g	

本研究では、微粒子発生を基礎に立ち戻って検討し、相互作用に関する知見が得られた。すなわち金属、セラミックス（金属酸化物）について適切な大きさのターゲットに加工し、それにレーザーを照射してそれぞれの物質ごとの知見が得られた。また混合物としてコンクリートをターゲットとしてレーザーを照射し、溶融と固体状物質の飛散など複雑なプロセスを観察し、評価、解析を行い、知見が得られた。（令和2年度実施）今後のステップとしては、金属相、セラミックス相が入り混じった混合物に相互作用の対象を広げて行くことが求められる。それぞれの相が、どのような大きさ、質量比、体積比等々になるかによって、加工現象が異なると考えられるので、実験およびデータ解析に機械学習技術などを援用しシステムチックに行うことが求められている。

表 3.1.3-2 廃炉関連セラミックスの物理的、機械的特性

	アルミナ	ジルコニア	ガドリニア	酸化ウラン
弾性定数 GPa	360-150 (20-1500°C)	185-87 (25-1500°C)		180-160 (20-800°C)
熱膨張係数 $10^{-6}/K$	7	11		9-13 (27-1260°C)
ポアッソン比	0.23	0.3		0.30
質量密度 $g/cm^3$	3.6	6	7.07	7.9
比熱 $J/(g \cdot K)$	0.79	0.46		0.5
熱伝導係数 $W/m \cdot K$	20-5 (20-800°C)	3-2 (20-800 °C)		9.6-3.4 (100-1000 °C)
融点 (°C)	2072	2715	2420	2757
沸点 (°C)	2977	4300		4346
溶融潜熱 kJ/g	1.5	0.71		0.22
蒸発潜熱 kJ/g	6.5	5.2		2.11

参考文献

- [3.1-1] Pilot, G., Fauvel, S., Gosse, X., Dinechin, G. and Vernhet, D., Measurement of Secondary Emissions during Laser Cutting of Steel Equipments, Nucl. Eng. Design, Vol.238, 2008, pp.2124-2134.
- [3.1-2] Daido, H., Yamada, T., Ito, C., Miyabe, M., Shibata, T., Furukawa, H. and Hasegawa, S., Generation of Particles and Fragments by Quasicontinuous Wave Fiber Laser Irradiation of Stainless Steel, Alumina, and Concrete Materials, J. Laser Appl., Vol.33, 2021, 012001 pp.1-16.
- [3.1-3] Liu, C., Mao, X., Mao, S. S., Greif, R. and Russo, R. E., Particle Size Dependent Chemistry from Laser Ablation of Brass, Anal. Chem., Vol.77, 2005, pp.6687-6691.
- [3.1-4] Luk`yanchuk, B. S., Marine, W., Anisimov, S. I., Condensation of Vapor and Nanoclusters Formation within the Vapor Plume, Produced by Ns-Laser Ablation of Si, Laser Phys. Vol.8, 1998, pp.291-302.
- [3.1-5] Ready, J. F., Industrial Applications of Lasers, 1978, Chapter 13, pp.335-342, Academic, New York.
- [3.1-6] Dazon, C., Porcheron, E., Journeau, C., Suteau, C., Chagnot, C., Doyen, L., Excoffier, E. and Roulet, D., Characterization of Chemical Composition and Particle Size Distribution of Aerosols Released during Laser Cutting of Fuel Debris Simulants, Environ. J., Chem. Eng., Vol.8, 2020, 103872, pp.1-14.
- [3.1-7] Samsonov, G. V., The Oxide Handbook, 1973, 524p., Springer, Boston.

### 3.2 微粒子捕集・計測【平成30～令和2年度】

#### 3.2.1 微粒子捕集の分布評価

##### (1) 微粒子捕集の評価（平成30～令和2年度）

レーザー加工により発生した微粒子を空力学レンズで捕集し、その粒径分布を評価するため、レーザー照射試験に使用する照射チェンバーと空力学レンズの構成を検討し、それに基づきエアロゾル捕集装置を整備・最適化した。この装置を用いて行われた微粒子捕集実験により、空力学レンズによる微粒子の粒子線への収束性能について検討し、効率的に微粒子が粒子線に収束できるエアロゾルの導入条件や空力学レンズの最適化を行った。

“1.はじめに”で述べたように、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径は0.05～10  $\mu\text{m}$ とされている。既往研究において窒素ガス流体中のナトリウムエアロゾルの伝送効率のエアロゾル粒径分布依存性を計算した結果を図3.2.1-1に示す[3.2-1]。

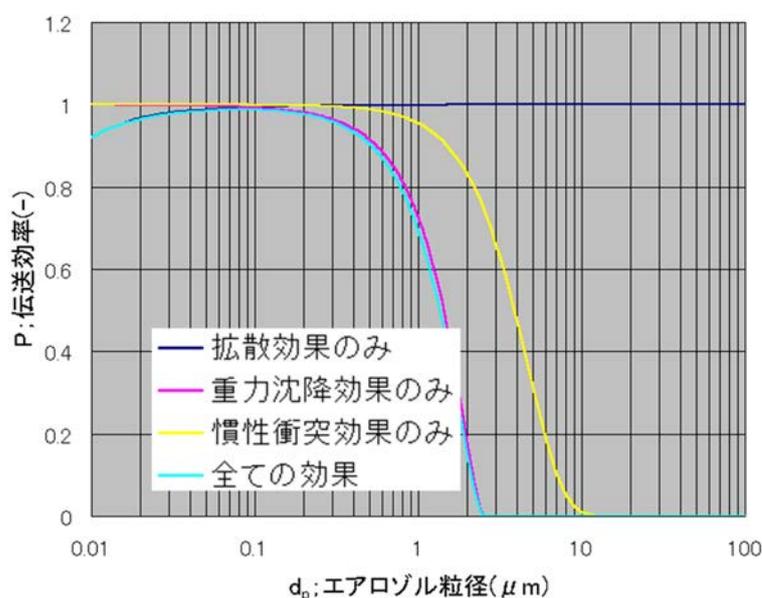


図 3.2.1-1 ステンレス鋼製配管中のナトリウムエアロゾルの伝送効率の計算結果

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

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

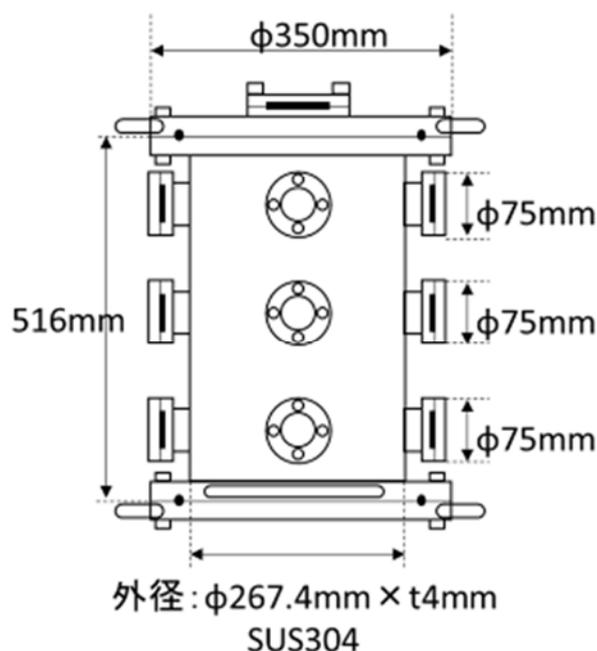


図 3.2.1-2 レーザー照射チェンバーの設計概念図

また、接手は、レーザー照射チェンバーと空力学レンズへの導入部において慣性衝突の影響が生じないように、側壁面から垂線方向に直管で空力学レンズまで導かれる構成とした。この設計結果は、レーザー照射チェンバーの試作に反映され、これと、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、繰り返し回数十回。
- ・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）。(平成 30～令和元年度実施)

後述する(3)において、ガドリニアのサンプルにレーザー照射して発生した微粒子が空力学レンズにより捕集できたことが確認された。一方、その粒径については、(4)において、その粒径は統計量が不十分なものの、 $0.4 \sim 0.5 \mu\text{m}$  付近にピークが検出できる可能性が見いだされ、(2)により、蒸気からの核形成・凝縮・凝集プロセスのモデルにおいて凝縮または核形成→凝集のプロセスを経て生成された  $10^{-1} \mu\text{m}$  オーダーの微粒子を検出したものと考えると、核形成による  $10^{-2} \mu\text{m}$  オーダーの微粒子は検出されていない。

当該空力学レンズの粒子特性特性は、 $0.06 \sim 3 \mu\text{m}$  の粒子を透過するように設計されており、この粒径の領域は、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径とされる  $0.05 \sim 10 \mu\text{m}$  の大部分を

含み、かつ、伝送（透過）挙動の粒径依存性が変化する 0.1 μm 前後の領域を含むことから、本研究に適合すると判断して選定したものであるが、レーザー加工により発生した蒸気→核形成→凝集のプロセスを核形成の段階でも捕集できるように、粒径 0.01 μm 程度までの微粒子を透過できるような改良設計が有効と考えられる。

また、本研究では、ガドリニア以外のセラミックス、金属、さらにはコンクリートの主成分（ケイ素等）の信号を明確に取らせることができなかった。これは、(3)で後述するように、電気抵抗加熱炉では約 600 °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ほとんど蒸気化されず、イオン化されなかった可能性が考えられる。これより、イオン源をプラズマやレーザーアブレーション（測定対象が定まっている場合はレーザー共鳴も有効）に置き換えることにより、本研究の対象とする金属やコンクリート等の原子炉構造材料への適用性が拡大できることが期待できる。（令和 2 年度実施）

(2) 微粒子の粒径分布の評価（令和 2 年度）

後述する 3.2.2(4)において、ガドリニアのサンプルにレーザー照射して発生した微粒子の粒径分布を測定した結果、空力学レンズにより微粒子が捕集できたことが確認され、粒径分布については統計量が不十分なものの、0.4~0.5 μm 付近にピークが検出できる可能性が見いだされた。

ここで、既往研究によると、大気粒子の生成過程は、蒸気からの核形成により 10<sup>-2</sup> μm オーダーの微粒子成分が、凝縮により 10<sup>-2</sup> μm オーダーと 10<sup>-1</sup> μm オーダーの微粒子が形成されるとともに、10<sup>-2</sup> μm オーダーの微粒子が凝集して 10<sup>-1</sup> μm オーダーの微粒子へ成長する、という形成・成長過程が報告されている[3.2-2]。

粒子として生成する機械加工とは異なり、レーザー加工では熱的なプロセスを経て微粒子が形成されていくので、蒸気を起点としたプロセスで説明できることが期待される。

ガドリニアの測定結果は、この過程における 10<sup>-1</sup> μm オーダーの微粒子ピークを検出したものと考えられる。

レファレンスとして、ガドリニアのサンプルにレーザー照射して発生した微粒子の粒径分布を電気泳動式により測定した結果を図 3.2.1-3 に示す。

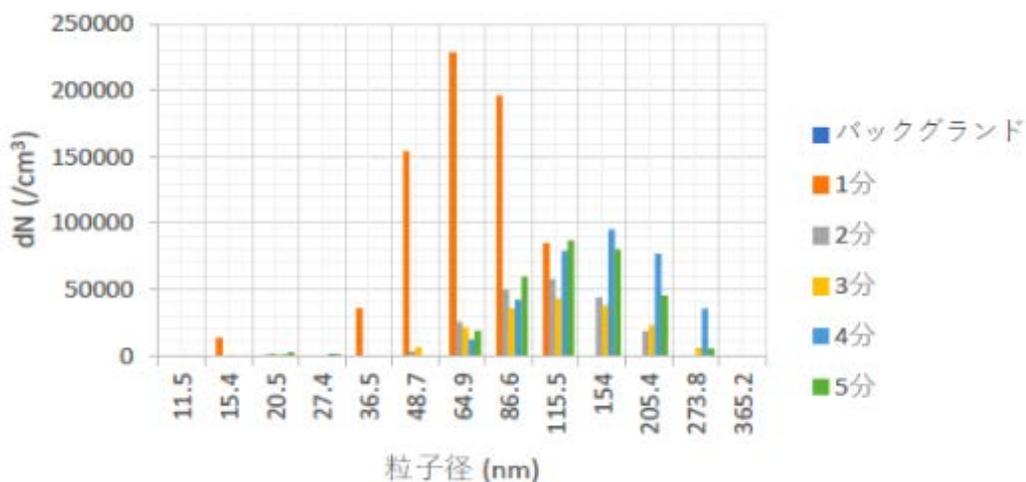


図 3.2.1-3 電気泳動式により測定したガドリニアの粒径スペクトル

レーザー照射から早いうち（図中の1分）では  $10^{-2}$   $\mu\text{m}$  にピークが、時間が経つと（2～5分）ピークが  $0.1\sim 0.15$   $\mu\text{m}$  へシフトしていく様子が観察されており、前述のモデルの核形成→凝集のプロセスが観測できた可能性がある。

これらより、レーザー加工で発生した微粒子の粒径分布については、蒸気種からの微粒子生成過程モデルに基づき、 $10^{-2}\sim 10^{-1}$   $\mu\text{m}$  の領域を調査していくことが有効である。（令和2年度実施）

### 3.2.2 微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測（連携先：JAEA）

レーザー加工により発生した微粒子の捕集技術の開発に向けて、既往研究[3.2-3]で開発した空力学レンズを用いたエアロゾル捕集装置を整備し、デブリ模擬体へのレーザー照射で発生する微粒子の捕集実験を行った。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の微粒子の粒径分布を測定した。

#### (1) 微粒子捕集装置の整備（令和元年度）

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量漏えい検知技術の開発に関する研究において、高速炉の冷却系配管から漏えいしたナトリウムにより発生するナトリウムエアロゾルを空力学レンズで捕集し、質量分析によりナトリウム核種を分析する技術を開発した[3.2-4]。この技術開発において試作した空力学レンズおよびエアロゾル質量分析計から構成される微量ナトリウム分析装置の概略を図3.2.2-1に示す。

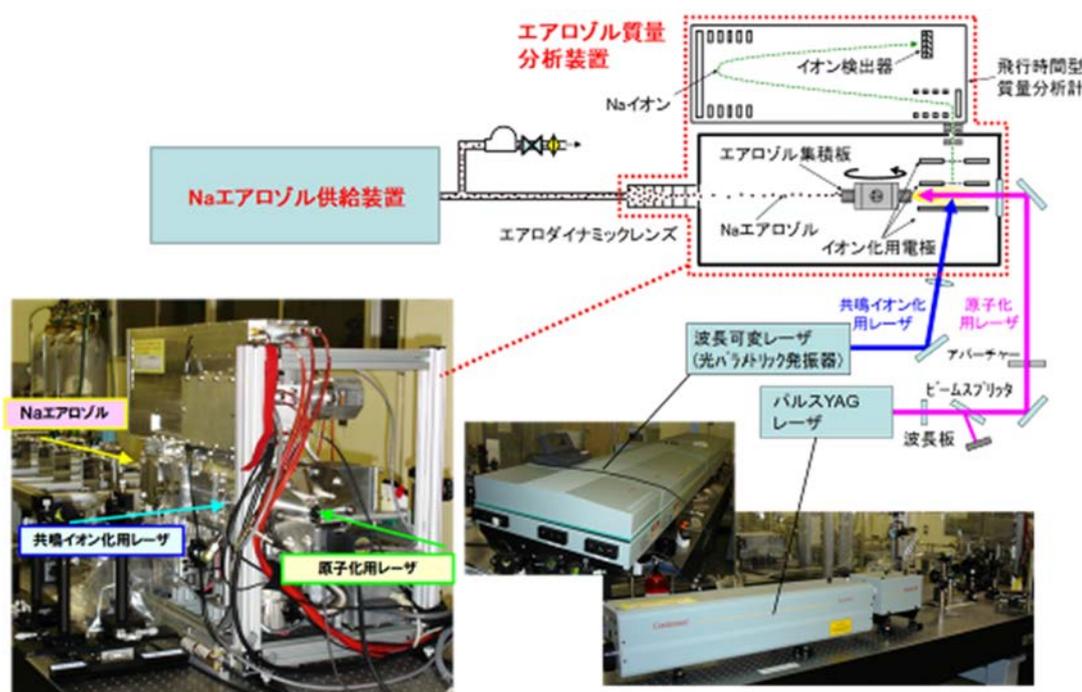


図 3.2.2-1 微量ナトリウム分析装置

空力学レンズは、Zhang らにより開発され[3.2-5]、直径 1/2 インチのステンレス鋼製の直管の内部に軸方向へオリフィスおよびノズルが連なったものである。これらのオリフィスによって粒子は細いビーム状に整流される。粒子の運動は後述の Stokes 数、式(1)により記述される。

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

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

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

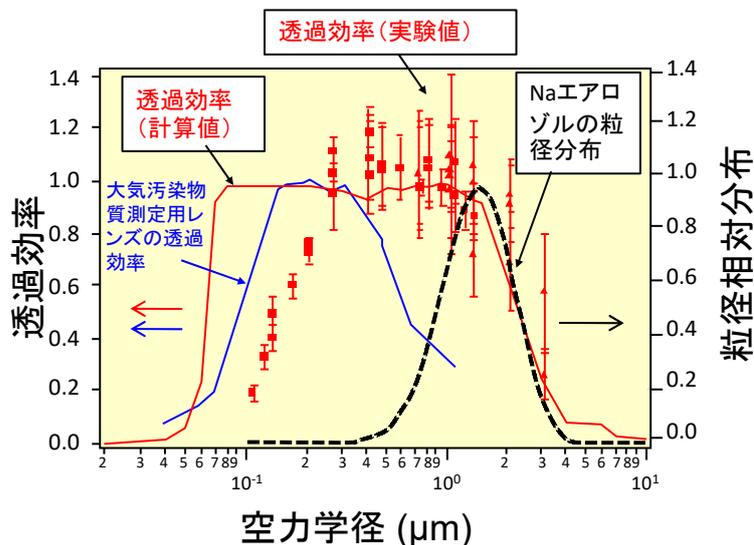


図 3.2.2-2 空力学レンズの粒子透過特性

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

同装置の質量分析部は、Aerodyne Research, Inc. 社製 高分解能 TOFMS 搭載型エアロゾル質量分析計 WToF-AMS をベースとし、図 3.2.2-1 に示すようにレーザー共鳴イオン化への改造を

行ったものであるが、本研究では、微粒子捕集とともに粒径計測を目標とすることから（詳細は後述する。）、同装置の開発のベースとした標準型に戻して予備実験を行うこととした。

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

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

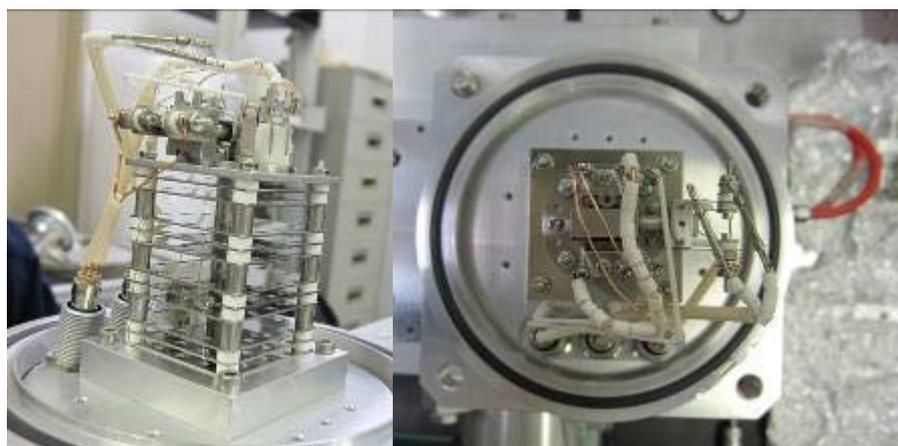


図 3.2.2-3 イオン源

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

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

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

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

本装置は、飛行時間型質量分析部によるリフレクトロンを 1 回経由する V-ToF モードとリフレクトロンを 3 回経由する W-ToF モードを有する。感度については V-ToF モードが高感度で、質量分解能については W-ToF モードが高分解能であり、分析対象の種類や濃度、要求精度等に応じてモードを切り替えることができる。両モードにおいてバックグラウンドのマススペクト

ル測定を行い、各電源等のパラメータ調整、キャリブレーション等を実施し、バックグラウンドのマススペクトル測定を行った。

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

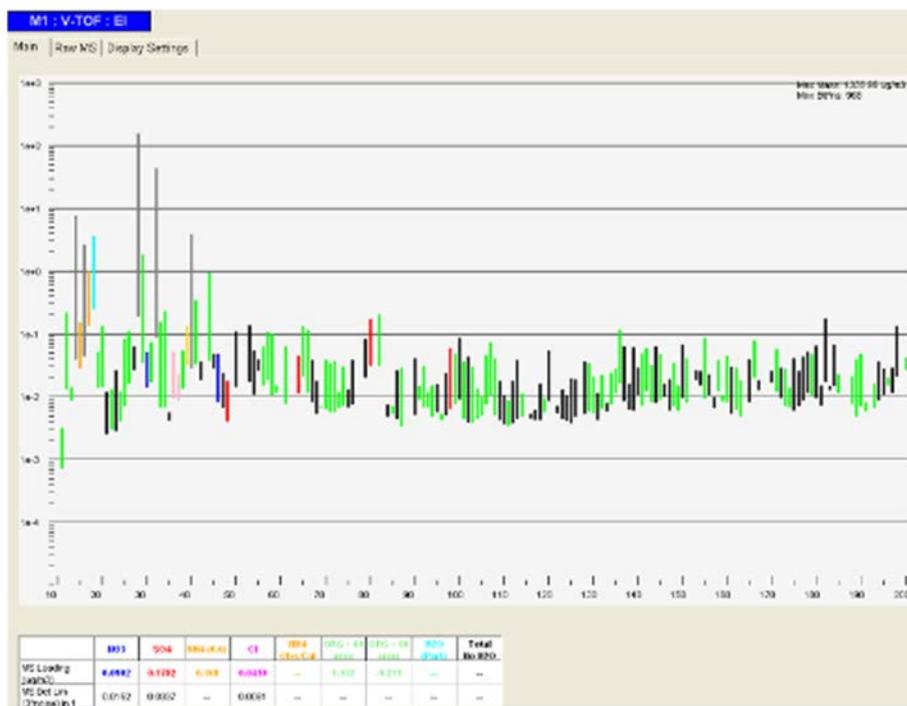


図 3.2.2-4 V-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル

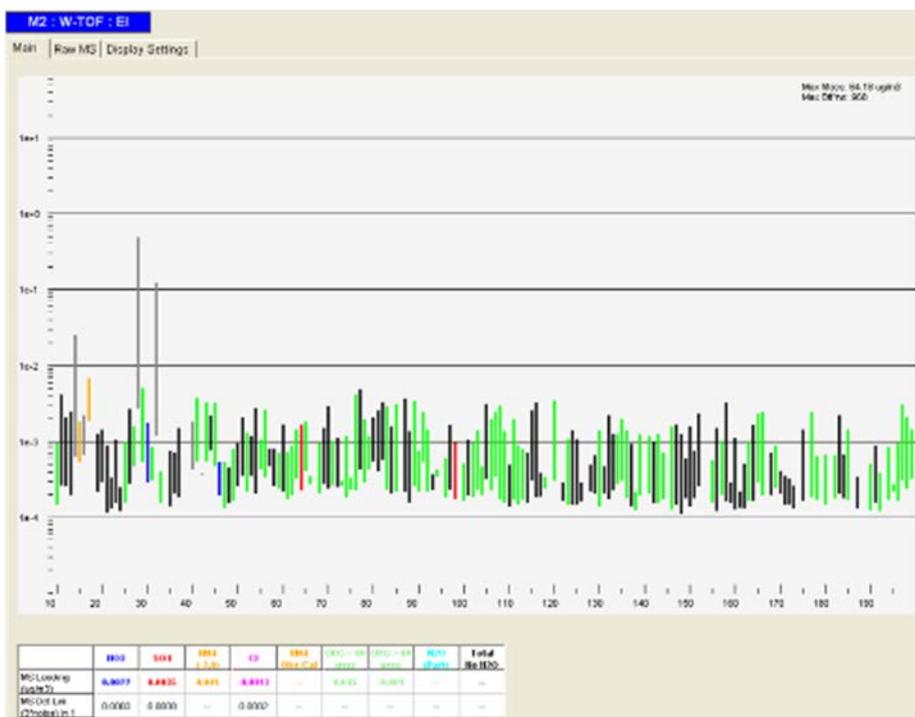


図 3.2.2-5 W-ToF モードにおけるバックグラウンドのマススペクトル

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

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



図 3.2.2-6 エアロゾル質量分析計の設置状況（正面側）

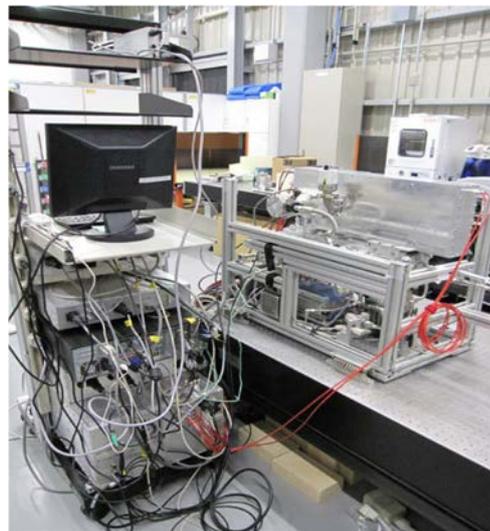


図 3.2.2-7 エアロゾル質量分析計の設置状況（制御部背面）

装置据付後、装置内部の真空引き、制御部起動、抵抗加熱炉、タングステンフィラメント、質量分析部各部への高圧電源印加について、JAEA 大洗研究所での操作と同一手順により実施して同様に作動することを確認し、微粒子捕集実験装置の整備が完了した。

(2) 微粒子捕集実験（令和元～令和2年度）

上記で整備した微粒子捕集装置を用いて、空力学レンズによる微粒子捕集実験を行った。

空力学レンズは、図 3.2.2-8 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。

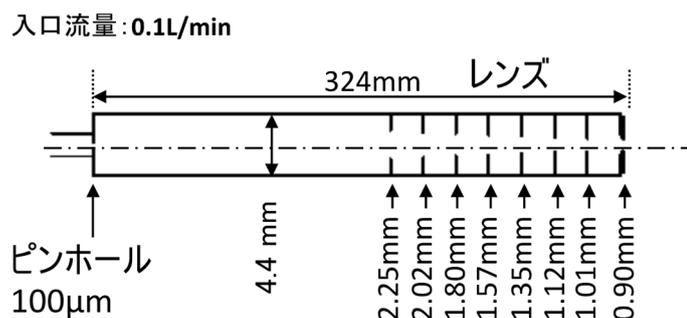


図 3.2.2-8 空力学レンズ

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  $\mu$ 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。

微粒子捕集実験に先立つ予備実験として、整備した装置をそのまま用いて、空力学レンズを透過した粒子を質量分析計で測定した。

JAEA 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  $\mu$ m の 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に合わせて、金属、セラミックス（金属酸化物）、コンクリートを選定し、金属はステンレス鋼（SUS304）、セラミックスはアルミナ、ジルコニア、ガドリニアを対象とした。

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 3.2.2-9 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コンクリートサンプルを図 3.2.2-10 に示す。

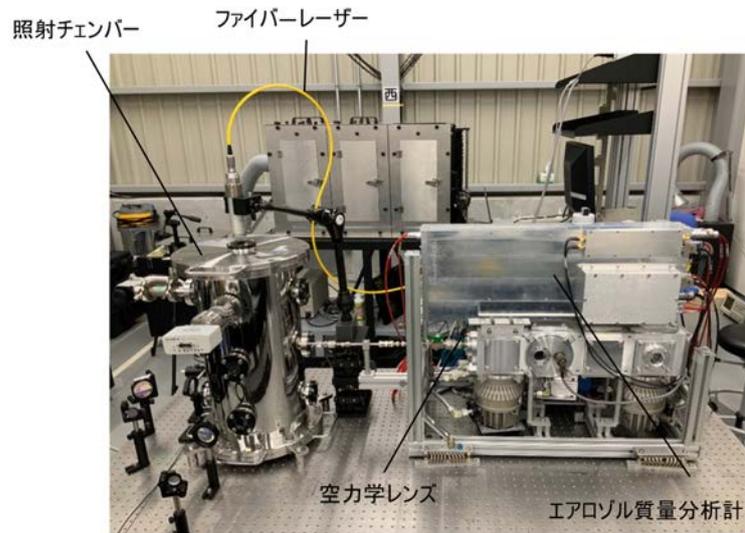


図 3.2.2-9 微粒子捕集実験装置



図 3.2.2-10 コンクリートサンプル

金属、セラミックス、コンクリートの実験に先立ち、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 3.2.2-11 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、炭化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。

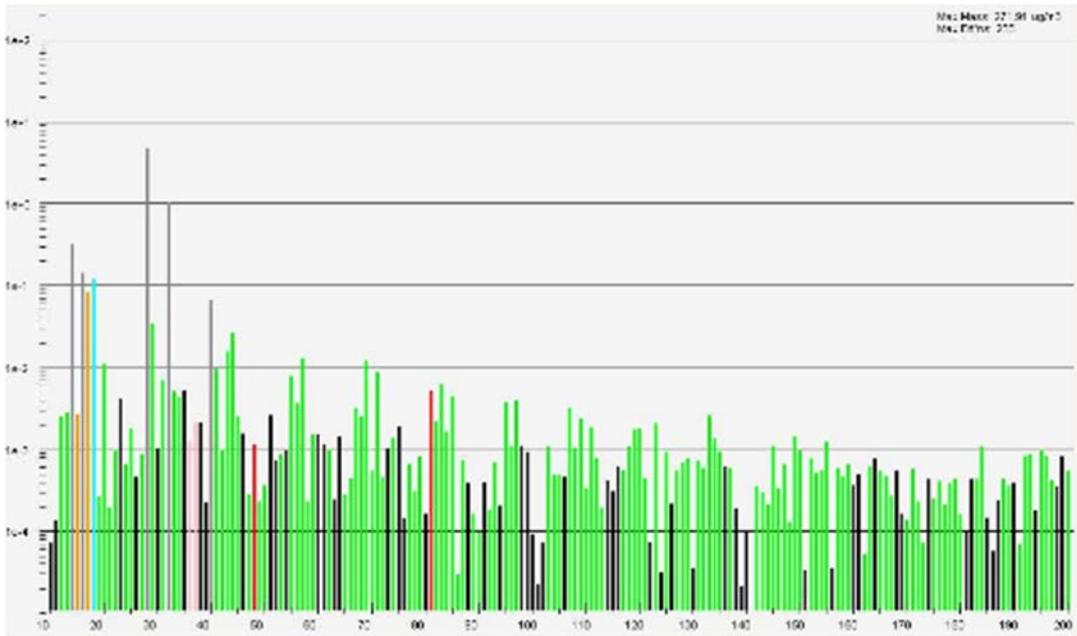


図 3.2.2-11 バックグラウンド（空気成分）の質量スペクトル

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 3.2.2-12 に示す。水  $H_2O$  ( $m/z=18$ ) および炭化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 °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ほとんど蒸気化されず、イオン化されなかった可能性が考えられる。（平成 30～令和元年度実施）

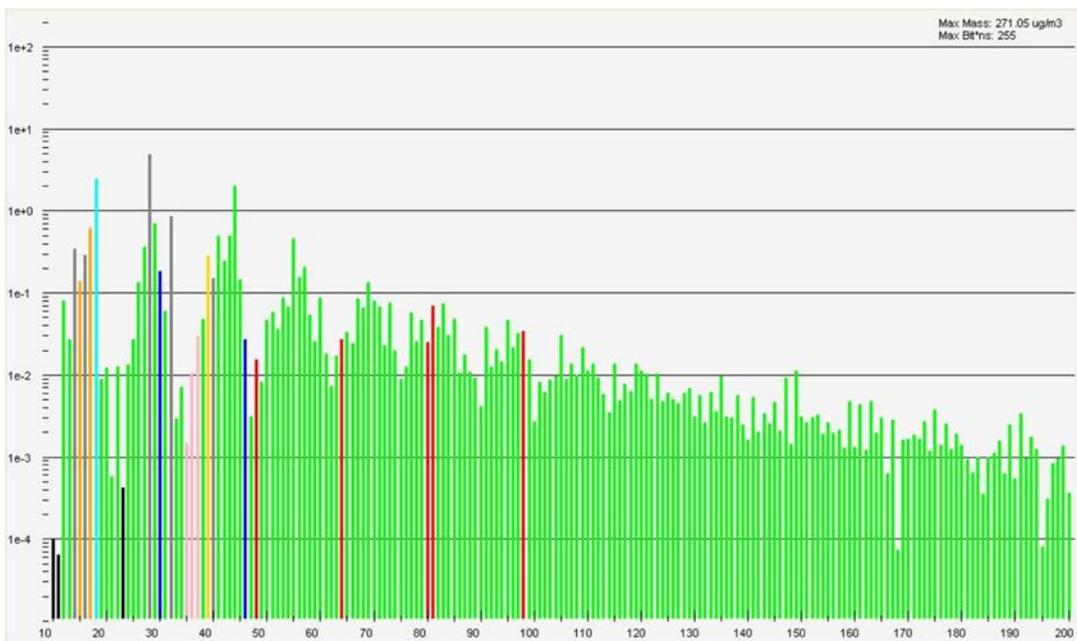


図 3.2.2-12 ステンレス鋼（SUS304）の質量スペクトル

セラミックス（金属酸化物）であるアルミナ、ジルコニア、ガドリニアの各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 3.2.2-13～図 3.2.2-15 に示す。

ステンレス鋼と同様に、空気成分、水  $H_2O$  ( $m/z=18$ ) および炭化水素等が結合したクラスターの信号が観測され、バックグラウンドより 1～2 桁程度高い値を示した。

アルミナについては、 $m/z=27$  の信号は検出されているが、 $m/z=27\sim 28$  付近を頂点とする炭化水素系のクラスターと思われるピークの一部とみられ、空気成分と考えられる  $m/z=28, 32$  によく突出していないため、質量数 27 の Al を検出したと見做すことはできなかった。ジルコニアについても、 $m/z=90, 91, 92$  において、炭化水素系のクラスターと思われるピークから突出したピークは認められなかった。

一方、ガドリニアにおいては、 $m/z=155, 156, 157, 158, 160$  において、より低  $m/z$  側の  $m/z=120\sim 150$  付近の信号値より高いピークが検出されており、隣接する  $m/z=154, 159, 160$  の信号強度は約 1 桁小さい。 $m/z=150\sim 170$  の領域について信号強度を線形表示した結果を図 3.2.2-16 に示す。

$m/z=155, 156, 157, 158, 160$  については、Gd の天然存在比 ( $^{155}\text{Gd}:15\%$ 、 $^{156}\text{Gd}:21\%$ 、 $^{157}\text{Gd}:16\%$ 、 $^{158}\text{Gd}:25\%$ 、 $^{160}\text{Gd}:22\%$ ) と概ね一致し、Gd が検出されたと判断できる。

ステンレス鋼の結果で述べたように、特に酸化物であることから、蒸気化はごくわずかであったと考えられるが、Gd については質量数が大きく、炭化水素系のクラスターの生成量も低下する領域にあって  $m/z=120$  以降の高  $m/z$  側では明確な炭化水素系のクラスターのピーク（山）が見えないことから、相対的に Gd イオンのピークが浮き上がるように観測できたと考えられる。

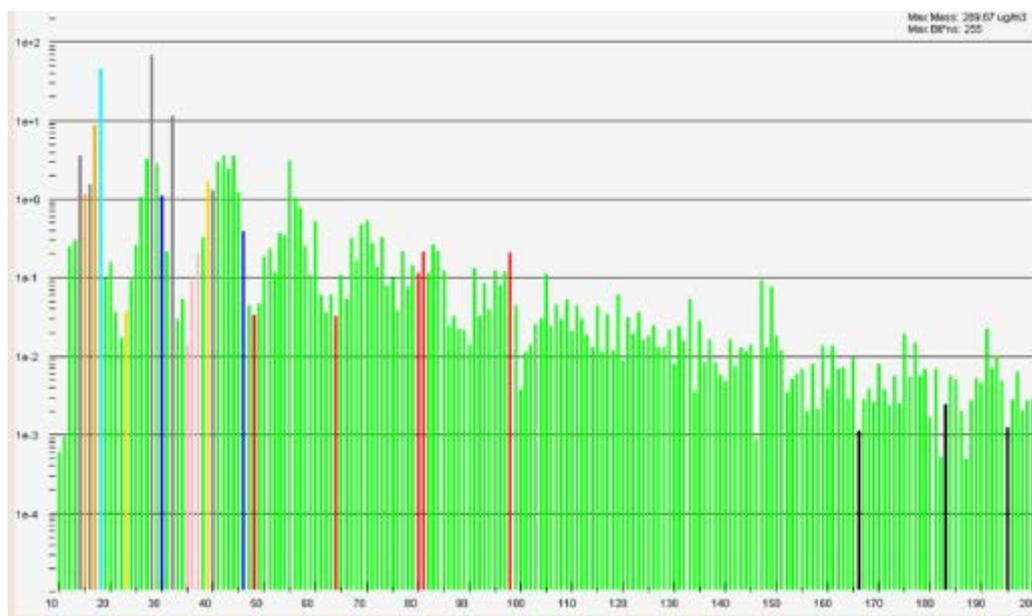


図 3.2.2-13 アルミナの質量スペクトル

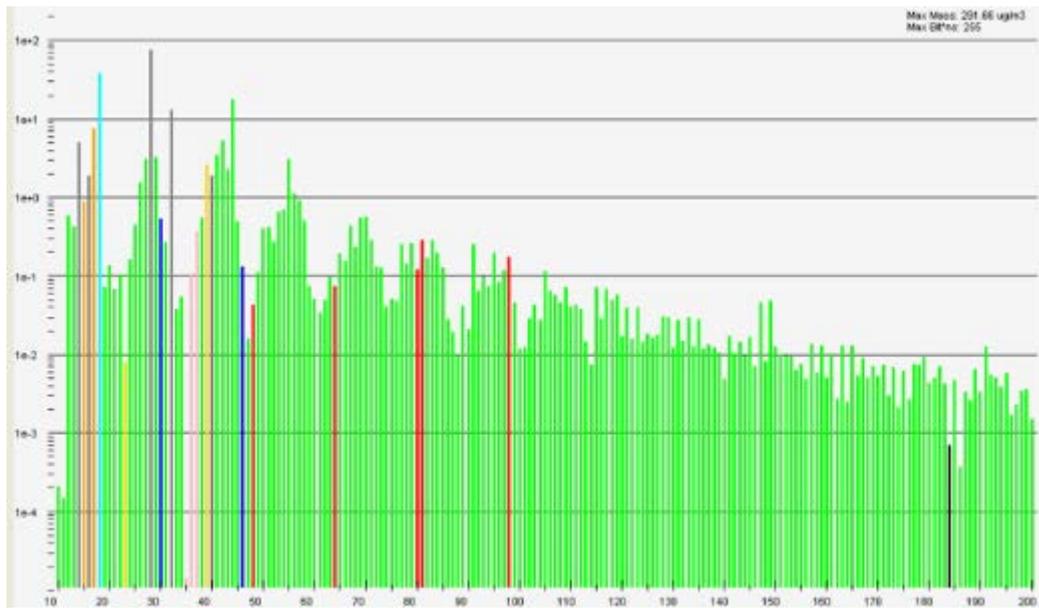


図 3.2.2-14 ジルコニアの質量スペクトル

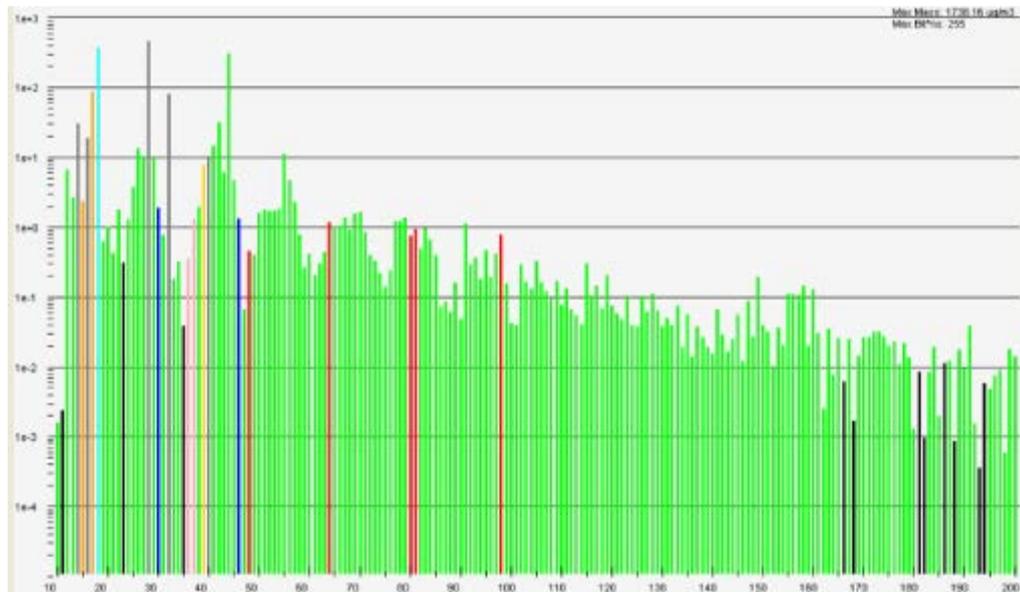


図 3.2.2-15 ガドリニアの質量スペクトル

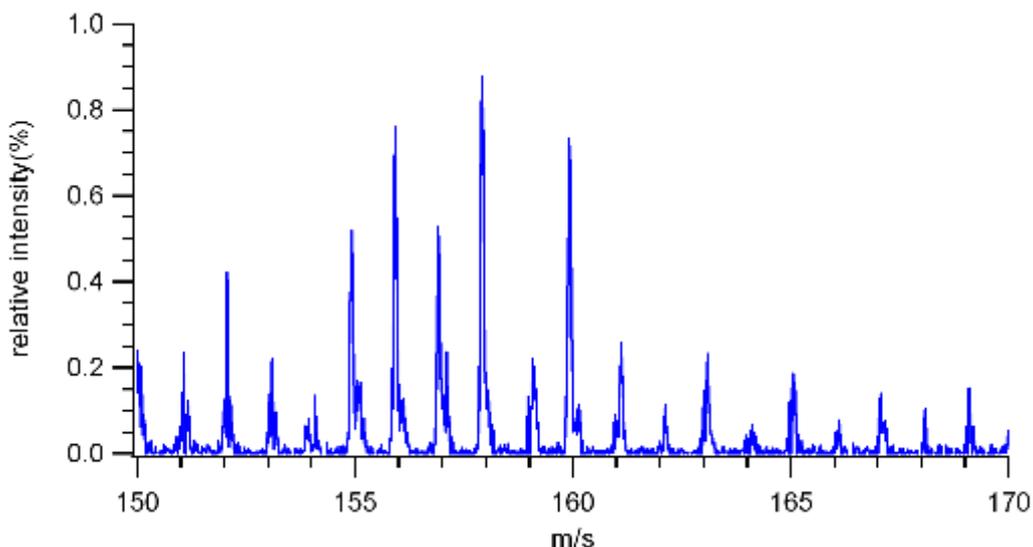


図 3.2.2-16 ガドリニアの測定による  $m/z=150\sim 170$  の質量スペクトル  
(信号強度を線形表示)

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 3.2.2-17 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  $\text{SO}$  ( $m/z=48$ ) および  $\text{SO}_2$  ( $m/z=64$ ) 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  $\text{Ca}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Si}$  等と思われるピークは検出されなかったが、これは、金属やセラミックスの実験と同様に、電気抵抗加熱炉による昇温不足によりこれらの成分はほとんど蒸気化されなかったものと考えられる。

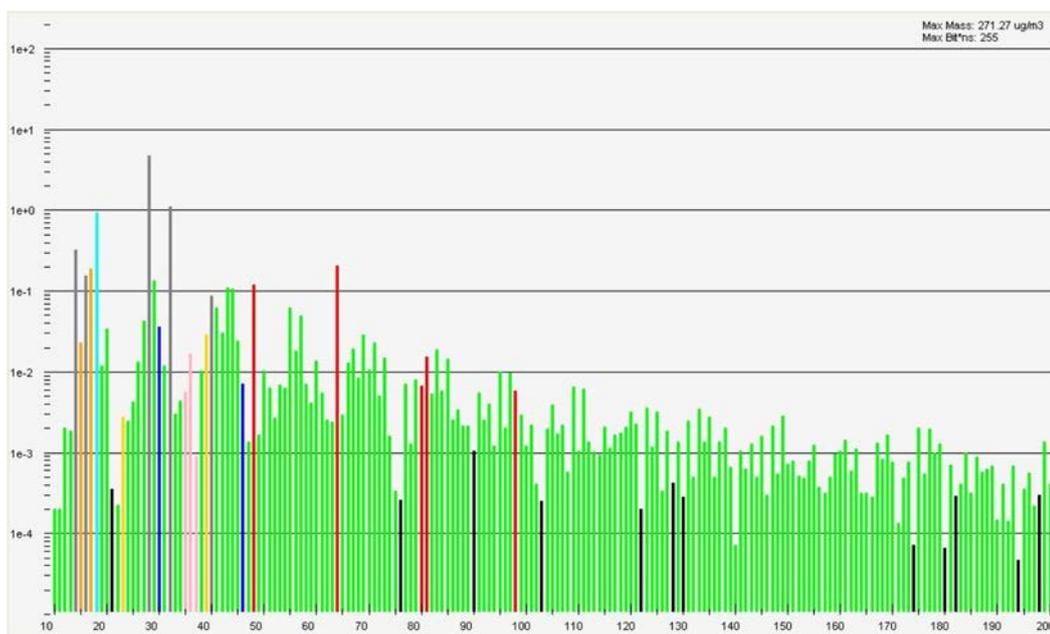


図 3.2.2-17 コンクリートの質量スペクトル

これらの実験結果を受けて、質量分析計により微粒子が検出できたガドリニアについて、微粒子捕集実験を行った微粒子捕集装置（エアロゾル質量分析計）のイオン化チェンバー内のイオン化部である抵抗加熱炉、タングステンフィラメント、引き出し電極等を取り外し、チタン多孔質体からなる集積板に交換した。空力学レンズを透過した微粒子ビームはこの集積板に照射され、微粒子が集積板に捕獲されることを狙う。改造後の装置の概念図を図 3.2.2-18 に、全景を図に、集積板を図 3.2.2-20 に示す。

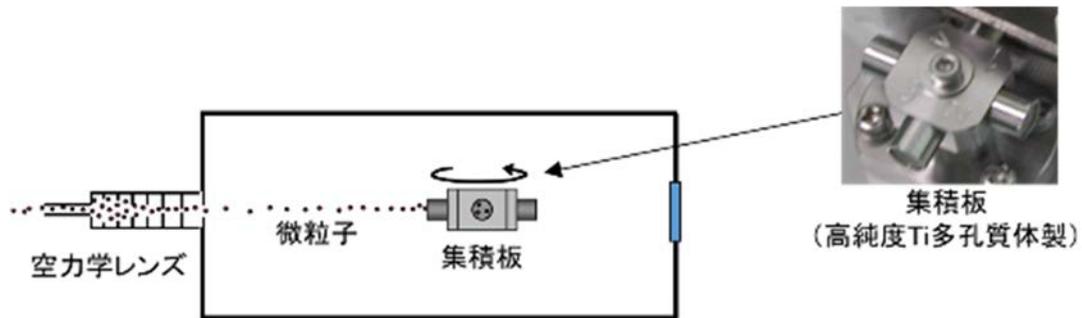
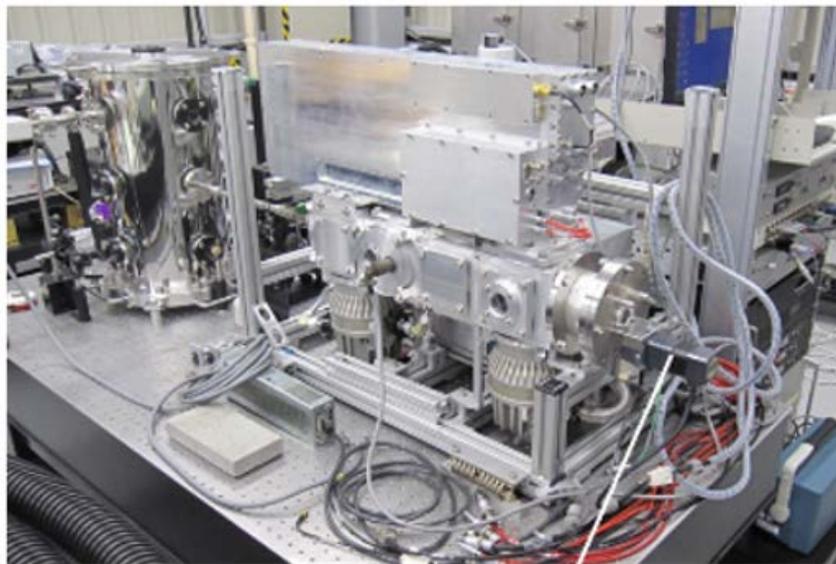


図 3.2.2-18 集積板による微粒子の捕集実験体系



集積板回転装置駆動部

図 3.2.2-19 改造後の捕集装置

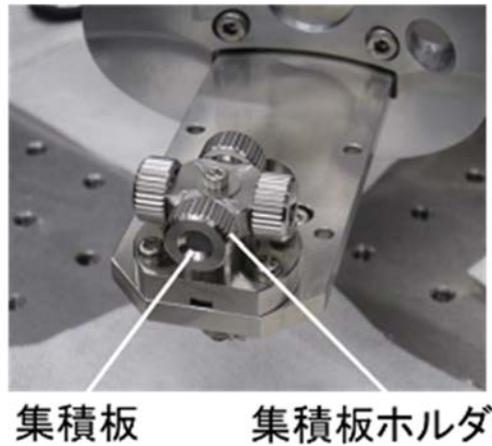


図 3.2.2-20 集積板

改造した捕集装置によりガドリニウムの微粒子の捕集実験を行った。フローで計測する質量分析とは異なり、微粒子を捕獲し、集積板に蓄積していくことから、微粒子の発生量を増大させるため、レーザー出力を 90 %まで上昇させ、10 ショット照射した後、微粒子ビームを集積板に 5 分間照射し、集積板での微粒子の蓄積を図った。

集積後、集積板を取り出し、SEM で集積状況を観察した。得られた SEM 画像を図 3.2.2-21 に示す。写真は微粒子ビームが照射されたエリアの境界を拡大したもので、右側半分の領域に微粒子が集積板上に集積し、明るく観察されている。この領域について EDX で元素分析した結果を図 3.2.2-22 に示す。主成分として Gd が検出され、Gd が捕集できたことが示された（令和 2 年度実施）。

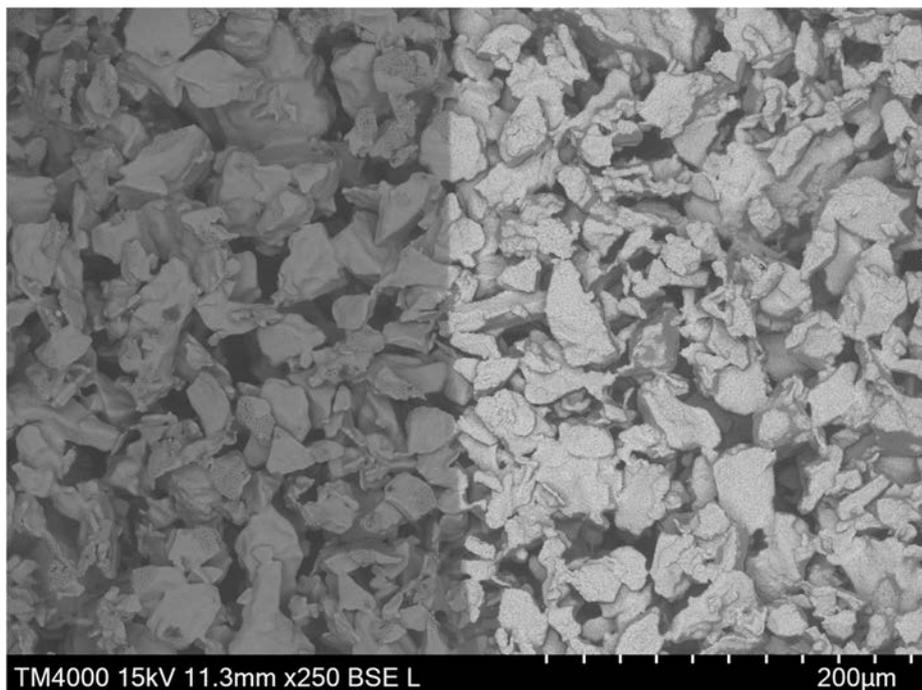


図 3.2.2-21 ガドリニア微粒子の集積実験後の集積板の SEM 画像

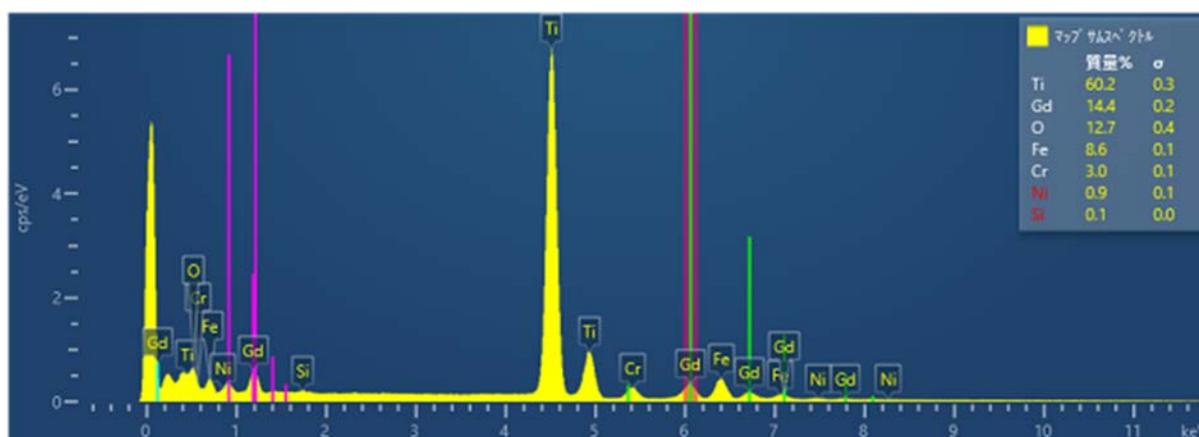


図 3.2.2-22 SEM-EDX によるガドリニア微粒子の集積実験後の集積板の元素分析結果

(3)微粒子捕集・計測装置の製作（令和元年度）

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

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

チョッパーからイオン化部までの飛行距離は数十 cm 程度であり、 $500\sim 600\text{ ms}^{-1}$  の超音速流では、 $700\sim 800\text{ ms}$  の飛行時間を要する。一方、矩形ビームの時間長は、概念的には  $1/(100\sim 150\text{ Hz}) \times 1\%$  であり、 $70\sim 100\text{ ms}$  となることから、矩形ビームの時間長を超えて飛行し、粒径に依存した（飛行時間差による）分布が形成されることが期待できる。ここで、質量分析は、V-ToF モードで  $20\text{ kHz}$ 、W-ToF モードでも  $12\text{ kHz}$  で  $m/z$ （統一原子質量単位で表したイオンの質量と電荷の比）を走査できるため、個々の微粒子のマススペクトルを分析することが可能であり、粒子速度と  $m/z$  の情報を得ることができる。

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

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

ここで、 $\rho_0$  は単位密度を表す。同じ体積透過粒径であっても密度が大きいほど真空中の空力学径は大きく、非球形であるほど小さくなる。

この手法を前述のエアロゾル捕集装置に導入し、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 3.2.2-23 に、粒径測定部の設計図を図 3.2.2-24 に示す。

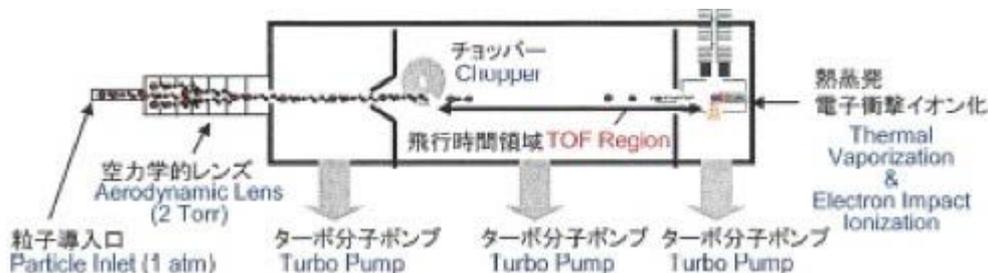


図 3.2.2-23 エアロゾル捕集・粒径測定部の概略図

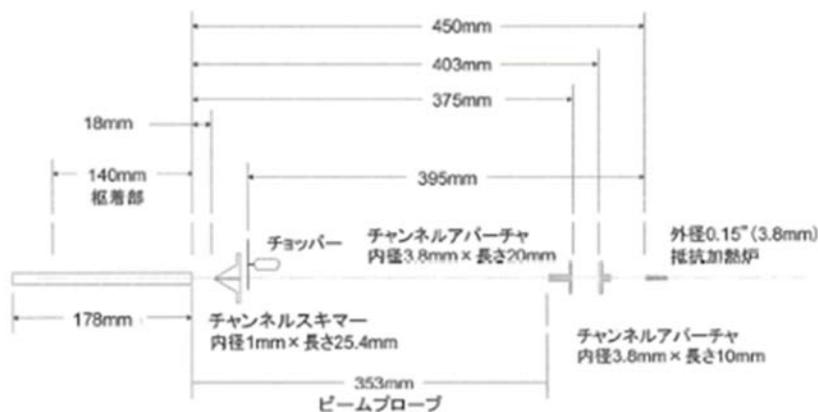


図 3.2.2-24 粒径測定部の設計図

既往研究では、ナトリウムエアロゾルの粒径分布計測はイメージング法（微粒子を集積板で捕集し、その集積板表面を電子顕微鏡で撮像して、得られた画像に撮影された粒子の粒径を個々に測定する方法）を用いたため[3.2-6]、チョッパーは使用しておらず、既往研究で当該装置導入後、チョッパーの操作は初めてとなる。

チョッパーの外観を図 3.2.2-25 に示す。目視観察上、有意な傷等は認められなかった。エアロゾル質量分析計の整備後、チョッパー駆動部の電源を投入し、チョッパーの回転数の調整、チョッパーの台座の平行移動（チョッパーを無効にする位置へずらすことができる。既往研究ではチョッパー無効位置で使用していた。）およびその位置の読み取りが正常に行えることを確認した。

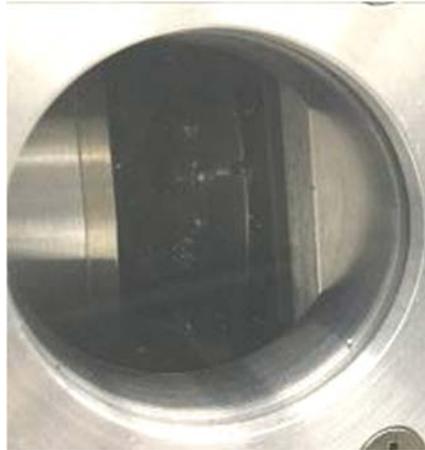


図 3.2.2-25 チョッパーの外観（窓の奥、スリットが手前側に見える）

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気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けたトリガー信号ケーブルを図 3.2.2-26 に示す。



図 3.2.2-26 トリガー信号ケーブル

なお、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作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作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 3.2.2-27 に示す。



図 3. 2. 2-27 ダイヤフラムポンプ

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」と略す。）を測定した。その測定結果の一例を図 3. 2. 2-28 に示す。

図 3. 2. 2-28 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。

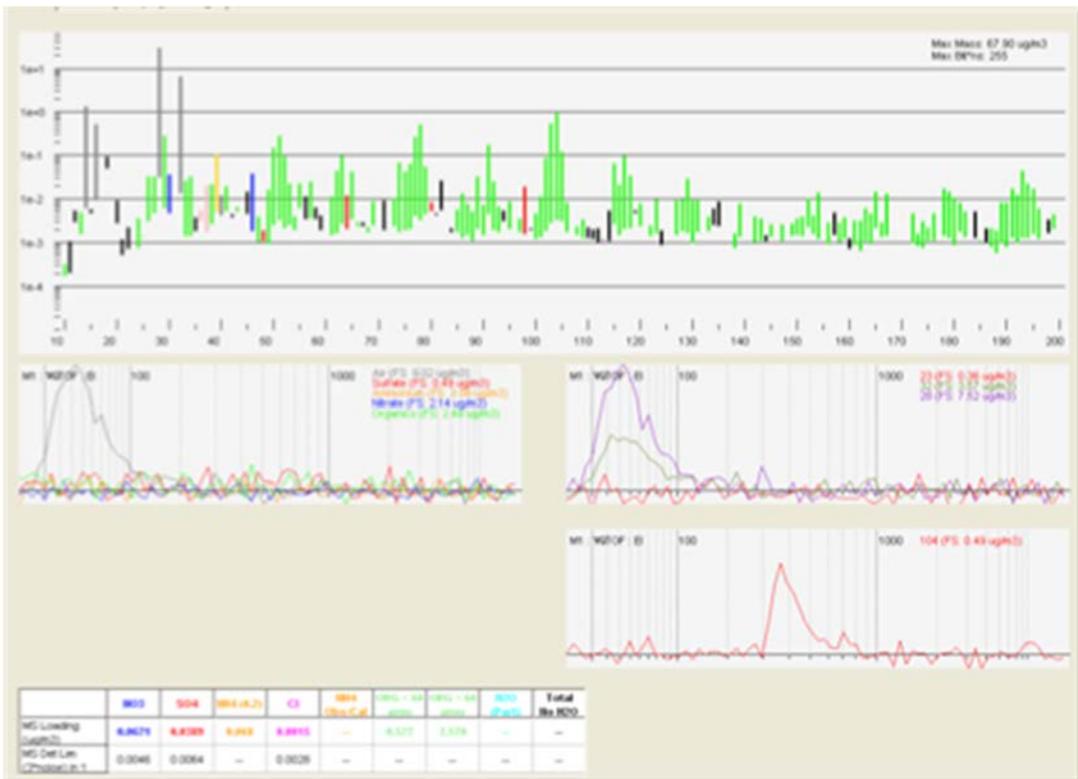


図 3.2.2-28 PSL 粒子の粒径測定結果

粒径（幾何学径）0.1 μm～0.8 μm 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 3.2.2-29～図 3.2.2-34 に示す。

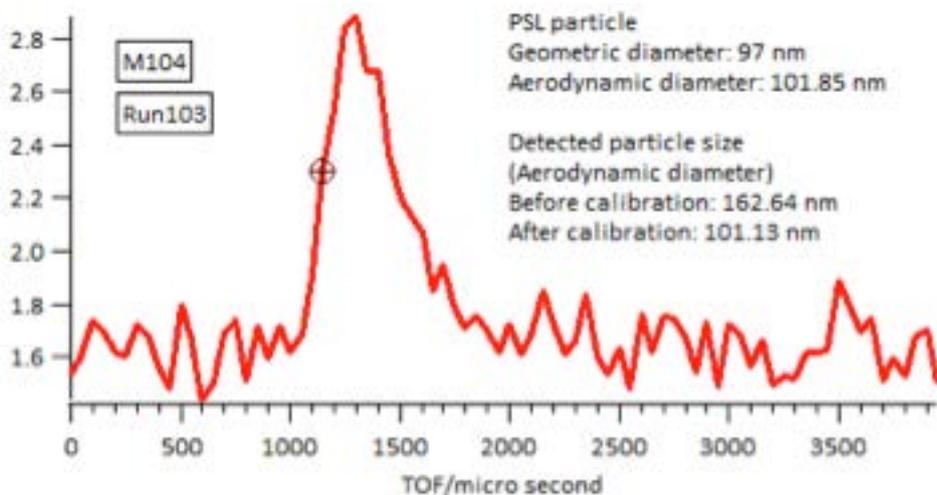


図 3.2.2-29 PSL 粒子（幾何学径 0.097 μm）の飛行時間スペクトル

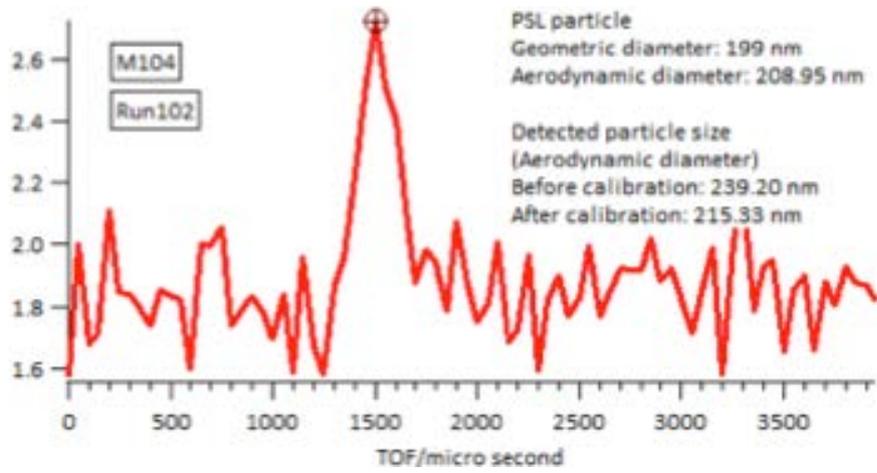


図 3. 2. 2-30 PSL 粒子（幾何学径 0.199  $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

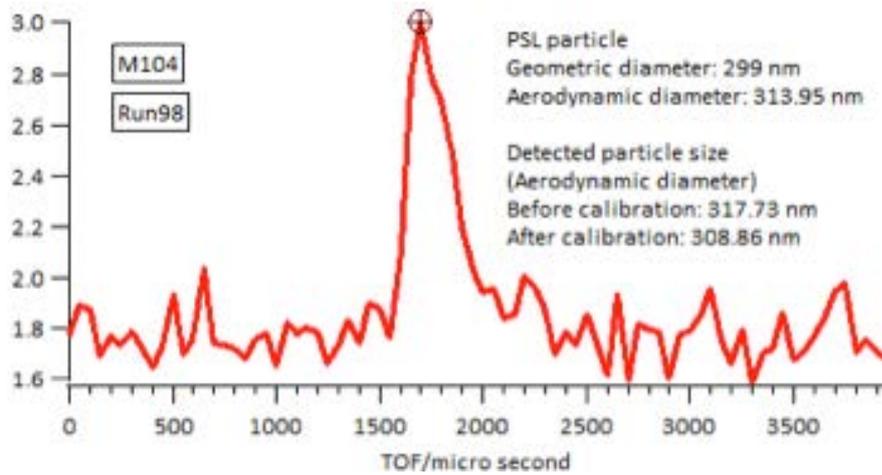


図 3. 2. 2-31 PSL 粒子（幾何学径 0.299  $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

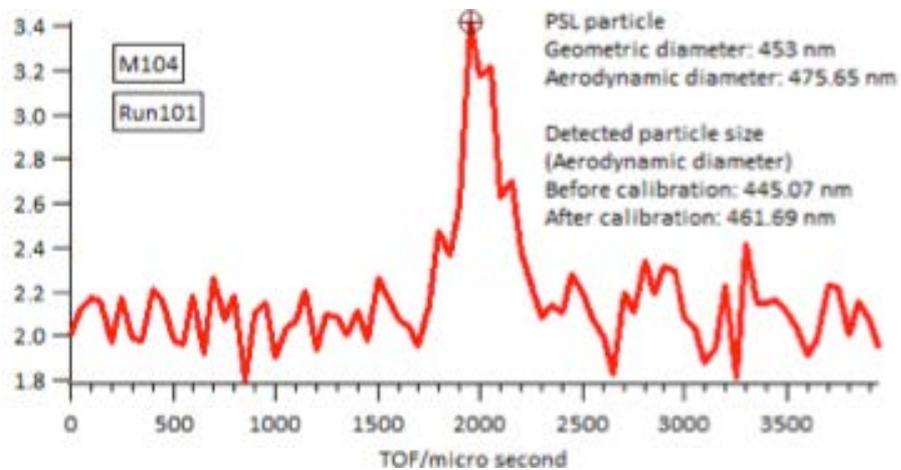


図 3. 2. 2-32 PSL 粒子（幾何学径 0.453  $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

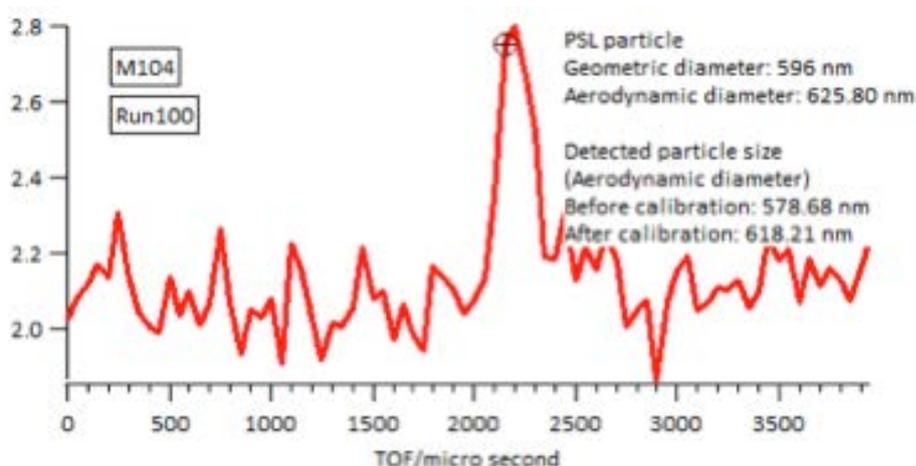


図 3.2.2-33 PSL 粒子（幾何学径 0.596  $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

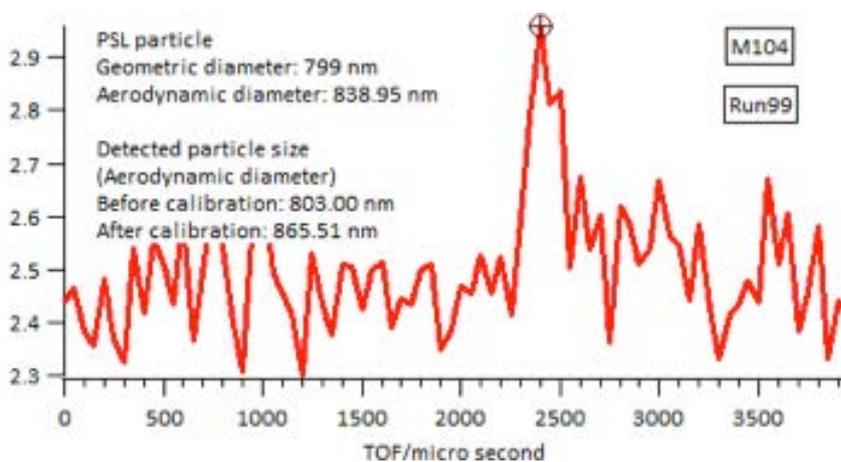


図 3.2.2-34 PSL 粒子（幾何学径 0.799  $\mu\text{m}$ ）の飛行時間スペクトル

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・計測する装置の製作が完了した（令和元年度実施）。

(4) 微粒子の粒径分布計測（令和 2 年度）

製作が完了した微粒子を捕集・計測する装置を用いて空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の粒子の速度分布を測定して前述の校正により粒径分布として示した。

粒径分布の測定は、微粒子捕集実験に先立つ予備実験として実施した質量スペクトルの測定と同一条件とし、JAEA 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  $\mu\text{m}$  の QCW ファイバーレーザーを試験体に照射し、発生したプラズマ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に合わせ

て、金属、セラミックス（金属酸化物）、コンクリートを選定し、金属はステンレス鋼（SUS304）、セラミックスはアルミナ、ジルコニア、ガドリニアを対象とした。

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。

金属、セラミックス、コンクリートの実験に先立ち、バックグラウンドとなる空気成分について粒径分布計測の操作を行って得られた結果を図 3.2.2-35 に示す。空気の主成分である窒素  $N_2$  ( $m/z=28$ )、酸素  $O_2$  ( $m/z=32$ ) について、粒径  $0.02 \mu\text{m} \sim 0.04 \mu\text{m}$  にピークが検出された。

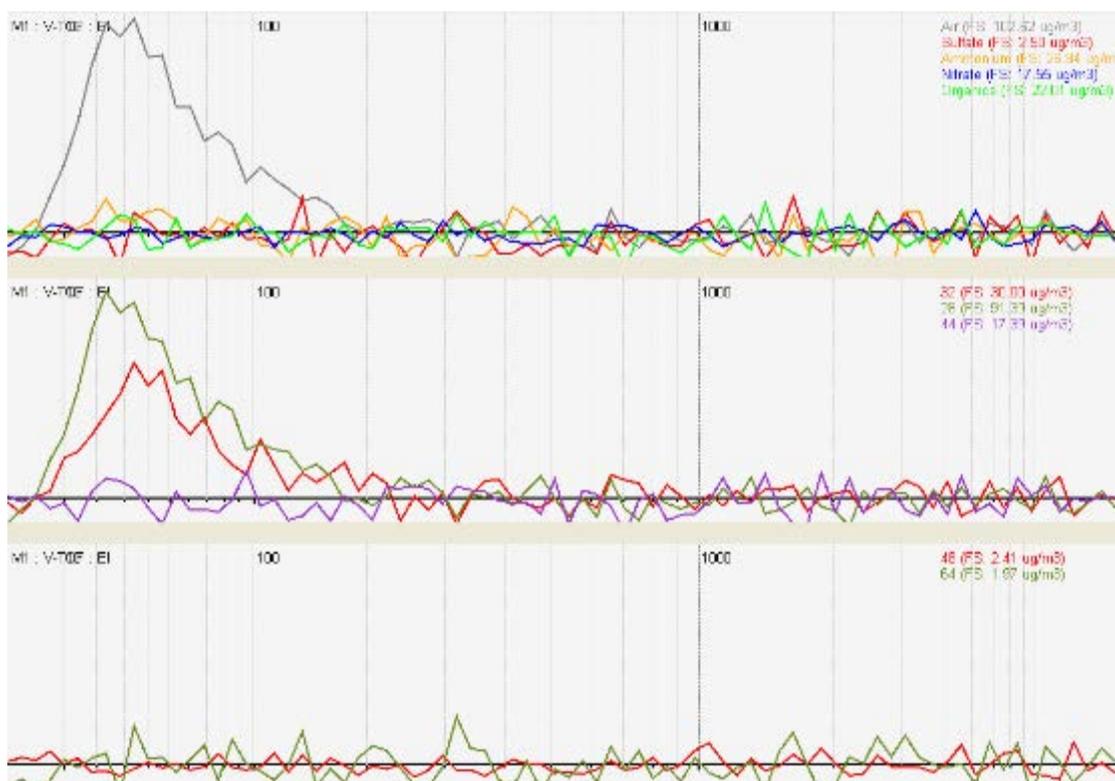


図 3.2.2-35 バックグラウンド（空気成分）の粒径スペクトル

ステンレス鋼について粒径分布を測定した結果を図 3.2.2-36 に示す。結果は、バックグラウンド成分と有意な違いは見られず、窒素  $N_2$  ( $m/z=28$ )、酸素  $O_2$  ( $m/z=32$ ) について、粒径  $0.02 \mu\text{m} \sim 0.04 \mu\text{m}$  にピークが検出された。これは、質量スペクトルと同様の傾向であり、どちらもイオンの検出は質量分析計の MCP（マルチチャンネルプレート）で行われていることから当然の結果と言え、電気抵抗加熱炉により約  $600 \text{ }^\circ\text{C}$  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ほとんど蒸気化されず、イオン化されなかったと考えられる。

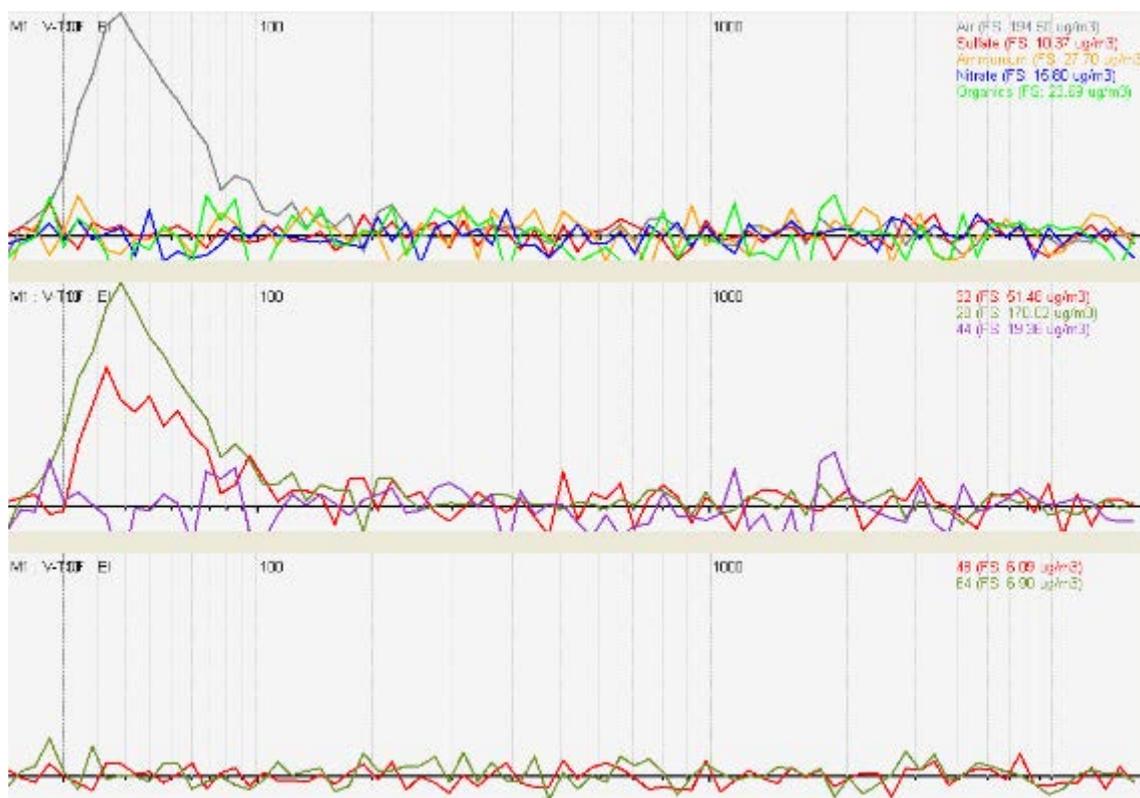


図 3.2.2-36 ステンレス鋼の粒径スペクトル

セラミックス（金属酸化物）であるアルミナ、ジルコニア、ガドリニアの各サンプルにレーザー照射して発生した微粒子の粒径分布を測定した結果を図 3.2.2-37～図 3.2.2-39 に示す。

アルミナとジルコニアについては、空気成分のみが検出されており、バックグラウンドの測定と有意な差が見られなかった。Al や Zr に起因するピークが検出されなかったのは質量スペクトルの測定結果と同様であり、ステンレス鋼と同様に、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ほとんど蒸気化されず、イオン化されなかったと考えられる。

一方、ガドリニアについては、空気成分の他、炭化水素系のクラスターに起因すると思われるピークが 0.4  $\mu\text{m}$  付近に検出された。ただし、 $m/z=15, 17, 28, 44$  を指標とした測定結果であり、質量数 154～160 に分布する Gd を内包する粒子のピークではない。そのため、質量スペクトル測定で検出された  $m/z=155, 156, 157, 158, 160$  について、速度分布測定データを抽出して粒径分布を再構成した。その結果を図 3.2.2-40 に示す。信号強度が小さいため、ばらつきが大きいスペクトルではあるが、粒径 0.4～0.5  $\mu\text{m}$  付近の信号強度が若干大きく見え、統計量を蓄積できればピークが検出できると考えられる。

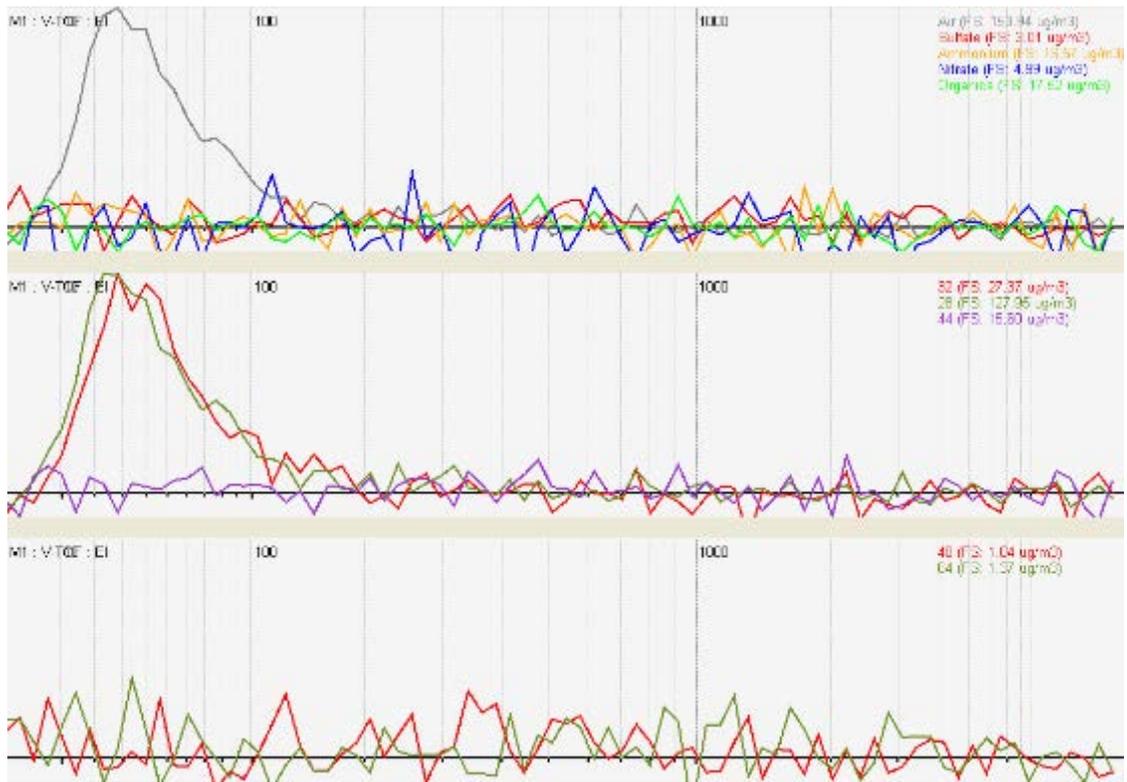


図 3.2.2-37 アルミナの粒径スペクトル

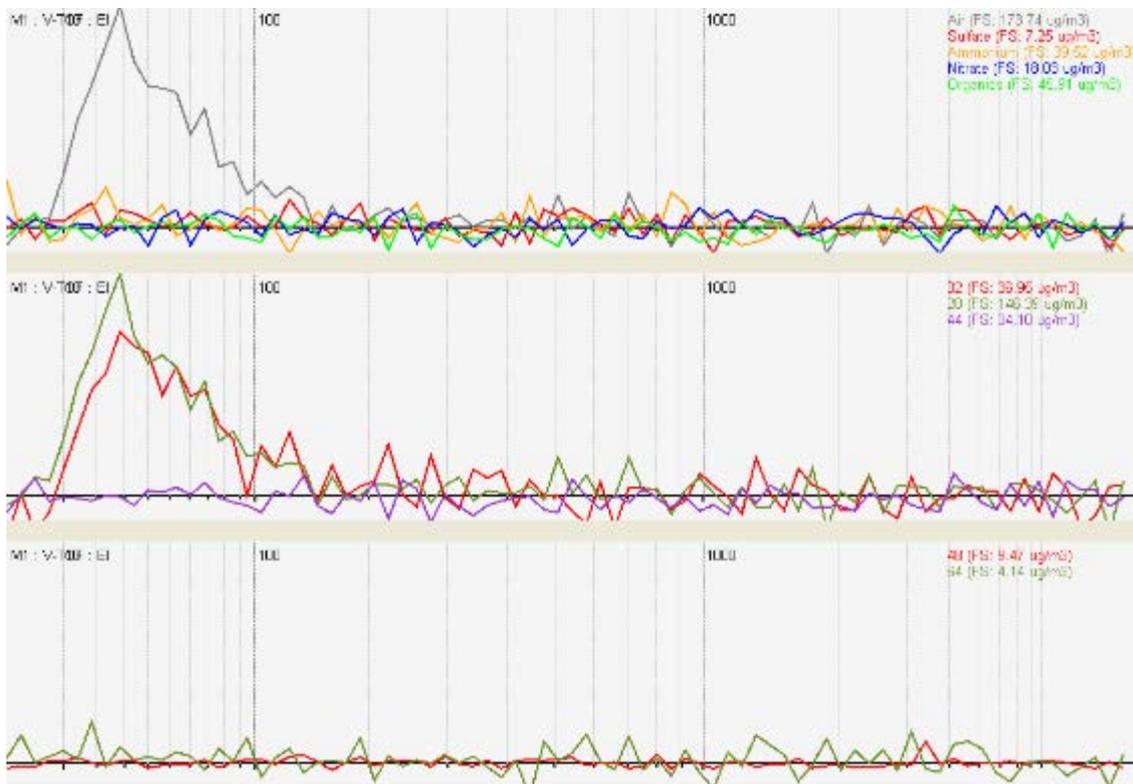


図 3.2.2-38 ジルコニアの粒径スペクトル

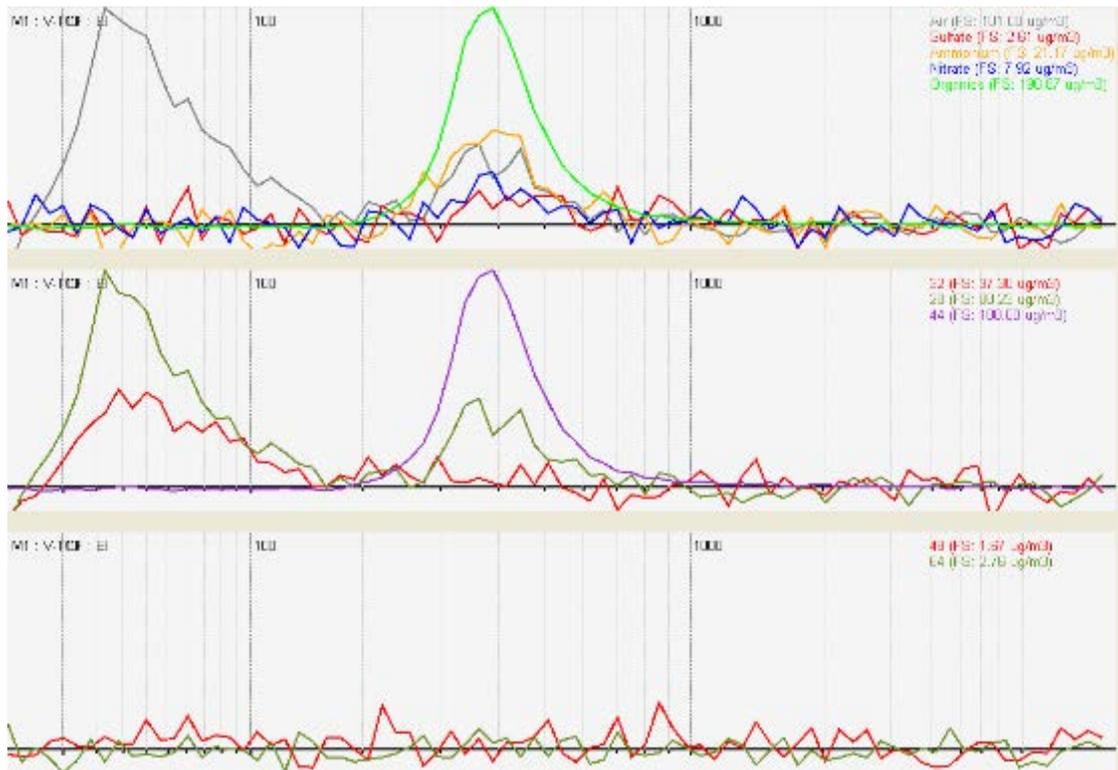


図 3.2.2-39 ガドリニアの粒径スペクトル

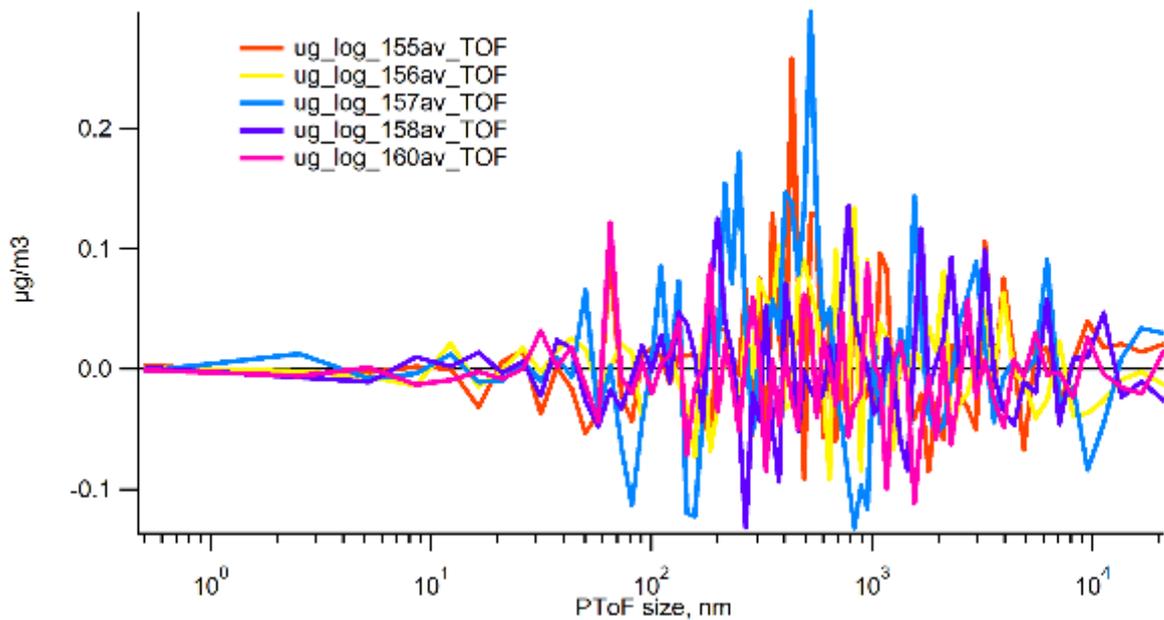


図 3.2.2-40 ガドリニアの測定による m/z=155、156、157、158、160 の粒径スペクトル

コンクリートのサンプルにレーザー照射して発生した微粒子の粒径分布を測定した結果を図 3.2.2-41 に示す。コンクリート中の硫酸塩のフラグメント成分  $\text{SO}$  ( $m/z=48$ ) および  $\text{SO}_2$  ( $m/z=64$ ) について、粒径  $0.2 \mu\text{m}$  付近にピークが検出されたが、金属やセラミックスと同様に、空力学レンズにより捕集された微粒子のうちケイ素等の主成分はほとんど蒸気化されず、イオン化されなかったと考えられる。

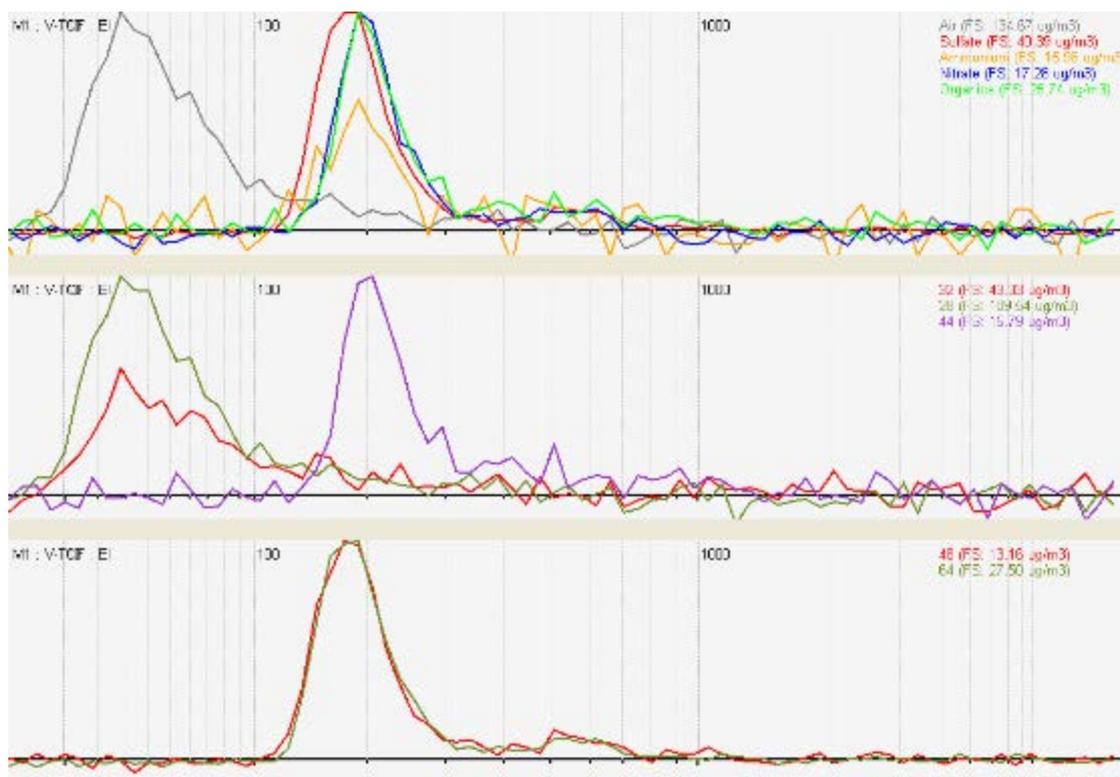


図 3.2.2-41 コンクリートの粒径スペクトル

上記までの微粒子の測定結果に基づき、微粒子の捕集及び粒径分布を評価した結果、金属酸化物等の難揮発成分のイオン化率は小さかったと推定されるが、原子量が大きく炭化水素系のクラスターに埋没しにくかったガドリニウムが検出できたことから、ガドリニアを対象として、当該計測技術へフィードバックを図った。これにより、レーザー照射による微粒子発生におけるガドリニアへのエネルギー付与について知見を得て（同積分量でも、パルスの回数が多い方が、発生量が多い。ただし、1パルスあたりのエネルギーには閾値があると見られる。）、効率的な捕集・粒径分布計測に反映された他、測定装置の各パラメータ（主に、測定時間、イオン源、引き出し電極、飛行時間型質量分析部、イオン検出部の各電圧等）の調整が行われた（図 3.2.2-15、図 3.2.2-16、図 3.2.2-39、図 3.2.2-40 のガドリニアの測定データは、最適化調整後に取得されたものである）。

また、集積板は、図 3.2.2-20 に示すように、回転装置に  $90^\circ$  ずつ向きを変えて 4 つの集積板が設置された機構とした。これに加えてイオン化チェンバーの 3 方向にレーザー光が透過できる窓を設置し、空力学レンズを透過した微粒子を集積板に集積させたら、回転装置により

180° 回転させ、微粒子が集積した集積板にイオン化チェンバーの外から原子化用レーザー光と分光用レーザー光を照射することにより、空力学レンズで捕集した微粒子を直ちにレーザー計測することが可能になり、レーザー加工の現場で捕集・計測（核種分析まで）が期待できる。

一方で、検出効率を向上させるためには、捕集した微粒子の原子化・イオン化効率の向上が要求され、イオン源をプラズマやレーザーアブレーションへ変更することが考えられるが（3.2.1(1)）、レーザーアブレーションであれば、イオン化チェンバーの外からレーザー光を照射することにより可能であり、さらには、微粒子ビームに直接相互作用させる方法を採用し、検出方法もレーザー分光と組み合わせることにより、原理的には微粒子の検出（元素、同位体分析）と微粒子の粒径計測が同時に行えることになる。実際には、微粒子の捕集効率、原子化効率、イオン化効率、チョッパーとの同期等を解決していく必要があり、今後の開発テーマとなる（令和2年度実施）。

## 参考文献

- [3.2-1] 日本原子力研究開発機構，レーザを用いた超高感度分析技術による高速炉のプラント安全性向上に関する研究 成果報告書：平成 21 年度文部科学省原子力システム研究開発事業，2010，133p.
- [3.2-2] Kenneth T. W., The Physical Characteristics of Sulfur Aerosols, Sulfur in the Atmosphere, Proceedings of the International Symposium Held in Dubrovnik, Yugoslavia, 7-14 September 1977, 1978, pp.135-159.
- [3.2-3] Aoyama, T., Okazaki, K., Ito, C., Harano, H., Watanabe, K. and Iguchi, T., Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry - Design and Functional Test Using Prototype Sodium Detection System -, Proceedings of ICAPP '09 Tokyo, Japan, 10-14 May 2009, 2009, Paper 9112.
- [3.2-4] Ito, C., Araki, Y., Naito, H., Iwata, Y., Aoyama, T., Development of High Sensitive and Reliable FFD and Sodium Leak Detection Technique for Fast Reactor Using RIMS, Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Challenges and Opportunities (FR09), Proceedings of International Conference held in Kyoto, Japan, 7-11 December 2009, 2012, 02-04.
- [3.2-5] Zhang, X., Smith, K. A., Worsnop, D. R., Jimenez, J. L., Jayne, J. T. and Kolb, C. E., A Numerical Characterization of Particle Beam Collimation by an Aerodynamic Lens-Nozzle System: Part I. An Individual Lens or Nozzle, Aerosol Science and Technology, Vol.36, No.5, 2002, pp.617-631.
- [3.2-6] 日本原子力研究開発機構，レーザを用いた超高感度分析技術による高速炉のプラント安全性向上に関する研究 成果報告書：平成 20 年度文部科学省原子力システム研究開発事業，2009，163p.

### 3.3 微粒子原子化・核種同定【平成 30～令和 2 年度】

#### 3.3.1 核種同定手法の開発

固体試料の遠隔・非接触分析ではレーザー誘起ブレイクダウン分光法（以下、「LIBS」と略す。）が、測定の容易さから近年広く研究されている。この方法では、強いパルスレーザー光を固体表面に照射して、試料の一部を蒸発・プラズマ化（アブレーション）し、原子・イオン種から生じる発光線強度を測定することで元素組成を決定する。しかし、強い発光を得るための実験条件では、プラズマ中の励起原子やイオンが大きな運動エネルギーを獲得するほか、荷電粒子の増加で電場も強くなることから、発光スペクトルの線幅は広がる。このため、LIBSで核種を識別することは一般的ではない。一方、アブレーションプラズマにプローブとなる共鳴レーザー光を透過させ、基底状態等の原子を共鳴励起し、レーザー光の吸収や蛍光の発生を観測する共鳴分光法は、LIBSに比べて原子種の運動エネルギーや荷電粒子の影響が小さいことから、同位体スペクトルの観測に適した方法である。そこで本研究では、グロー放電中性原子蒸気源を用いて、ガドリニウム原子の発光・吸収スペクトルを取得した。また、ガドリニウムの圧縮ペレットを用いて、レーザーアブレーションプラズマの発生条件や観測条件を変え、プラズマ中ガドリニウム原子の同位体分解吸収スペクトルを測定し、分析性能の評価を行なった。

#### (1) グロー放電中性原子蒸気源を用いたガドリニウム原子の発光・吸収スペクトル取得実験 (平成 30～令和元年度)

図 3.3.1-1 に実験体系の概要を示す。装置は外部共振器型半導体レーザー（External Cavity Diode Laser、以下、「ECDL」と略す。）、グロー放電中性原子蒸気源、発光観測用の分光器、および吸収取得用の透過光強度検出器から構成されている。

半導体レーザーから発振されるレーザー光を外部共振器で波長選択し、その線幅の狭帯域化を図ったレーザー光源を ECDL と呼ぶ。外部共振器には様々な光学素子が用いられるが、特に回折格子による波長選択を利用したものが一般的であり、中でも Littrow 型は、半導体からのレーザー光を回折格子に入射し、その回折光を直接レーザーに戻すことで、外部共振器を構築でき、簡易な光学系で構成が可能である。

今回、ガドリニウム原子の吸収測定のため波長 405 nm で発振する Littrow 型 ECDL を自作した（平成 30 年度成果）。駆動には電流コントローラー（Thorlabs 製 LDC201CU）・温度コントローラー（Thorlabs 製 TED200C）・ピエゾコントローラー（Thorlabs 製 MDT694B）を使用した。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た。光源から出た光は、戻り光防止のためアイソレータを通過したのち、波長制御のためエタロンと 30 MHz の精度で波長較正可能な波長計（HighFinesse 社製 WS-U30）に入射させた。

ガドリニウム原子源として、グロー放電中性原子蒸気源を用いた。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により蒸気化し、その発光を Czerny-Trener 型分光器（Ocean Optics 社製 Flame-S）により、吸収を透過光取得用光検出器により取得した。

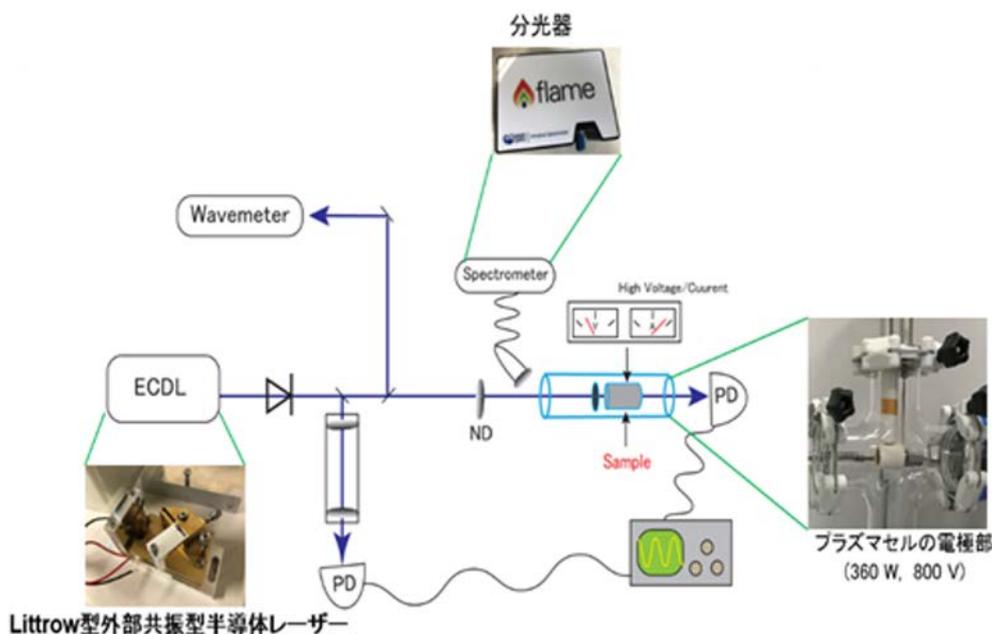


図 3.3.1-1 グロー放電中性原子蒸気源を用いたガドリニウム原子分光実験体系

ガドリニウム原子の発光スペクトル（令和元年度成果）

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、干渉となるバッファガス由来のバックグラウンド発光を排除するために、バッファガスとして Ar および Ne 用い、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 3.3.1-2）。

- ① 434.64 nm       $(4f^7 \text{ } ^8S_0)5d6s^2 \text{ } ^9D_0 (J=5) \leftarrow (4f^7 \text{ } ^8S_0)5d6s6p \text{ } (^1P_0) (J=5)$
- ② 442.24 nm       $(4f^7 \text{ } ^8S_0)5d6s^2 \text{ } ^9D_0 (J=3) \leftarrow (4f^7 \text{ } ^8S_0)5d \text{ } (^7D_0)6s6p \text{ } (^3P_0) \text{ } ^9D (J=4)$
- ③ 443.06 nm       $(4f^7 \text{ } ^8S_0)5d6s^2 \text{ } ^9D_0 (J=2) \leftarrow (4f^7 \text{ } ^8S_0)5d \text{ } (^7D_0)6s6p \text{ } (^3P_0) \text{ } ^9D (J=4)$

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。

ガドリニウム原子の吸収スペクトル（令和元年度成果）

次に、共鳴周波数 739.1575 THz (405.5867 nm) の遷移について、グロー放電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 3.3.1-3）。この時の実験条件は、Ar ガスで 270 Pa、電極間電圧 301 V、電流 190 mA である。これによりグロー放電中性原子蒸気源-吸収分光を用いて、ガドリニウム原子の 739.1575 THz (405.5867 nm) 吸収を確認した。

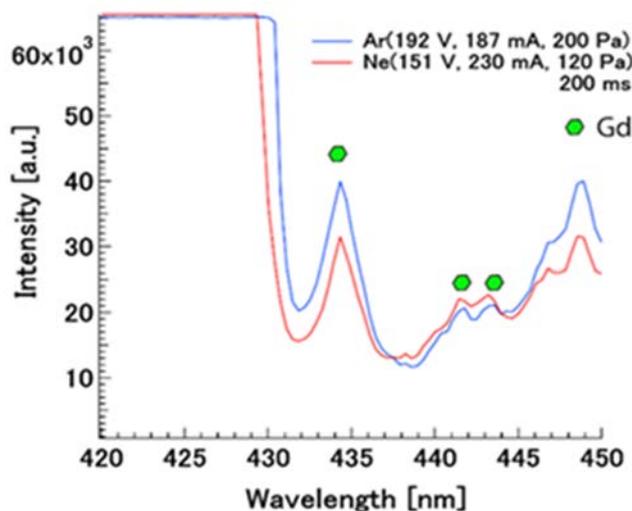


図 3.3.1-2 ガドリニウム原子発光スペクトル

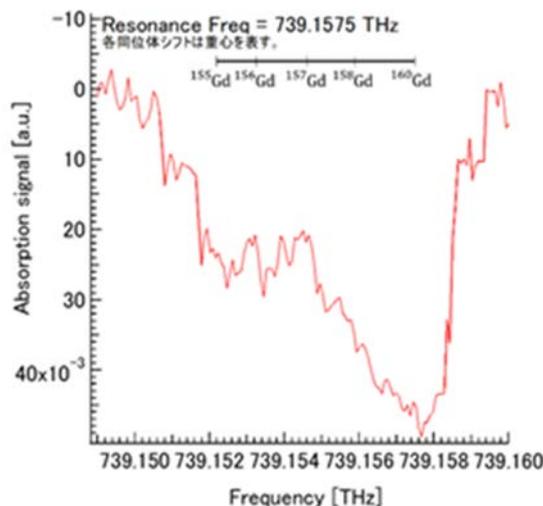


図 3.3.1-3 ガドリニウム原子吸収スペクトル (405 nm 帯)

(2) プルーム中ガドリニウム原子の同位体分解吸収スペクトル測定 (令和 2 年度実施)

実験装置の概要を図 3.3.1-4 に示す。装置は外部共振器半導体レーザーとその波長制御系、Nd:YAG レーザーと伝送光学系、試料チェンバーと真空排気系、半導体レーザーの透過光強度検出器と信号処理系から構成されている。使用した外部共振器半導体レーザーは CW レーザーダイオードと回折格子で Littrow 共振器を構成した自作品 ((1) で使用した物と同型) であり、駆動電流や温度はコントローラー (Thorlabs 社製 LDC202C、TED200C) で制御し、波長はピエゾコントローラー (Thorlabs 社製 MDT694B) で回折格子の角度を変えるピエゾ素子の電圧を変化させて制御した。ビームスプリッターで反射させた半導体レーザー光の一部は、偏光素子を使って波長安定化 HeNe レーザー (Thorlabs 社製 HRS015B: 出力 1.2 mW) の光と重ね、走査型ファブリペロエタロン干渉計 (FSR: 300 MHz、フィネス: 200) に入射した。その透過光は偏光素子

で再び分離し、それぞれの干渉縞を2個のフォトダイオードで同時に観測した。干渉縞の相互間隔を一定に保つフリンジオフセットロック法を用いて、半導体レーザーと波長安定化 HeNe レーザーの相対周波数を安定化し制御した。また piezo 素子の電圧に比例して半導体レーザーの駆動電流を変化させるフィードフォワード制御を行い、広い波長範囲をスキャンしてもモードホップが起こらないようにした。また半導体レーザーの波長はフィゾー干渉型絶対波長計 (HighFinesse 社製 WS-7) で常時モニターした。

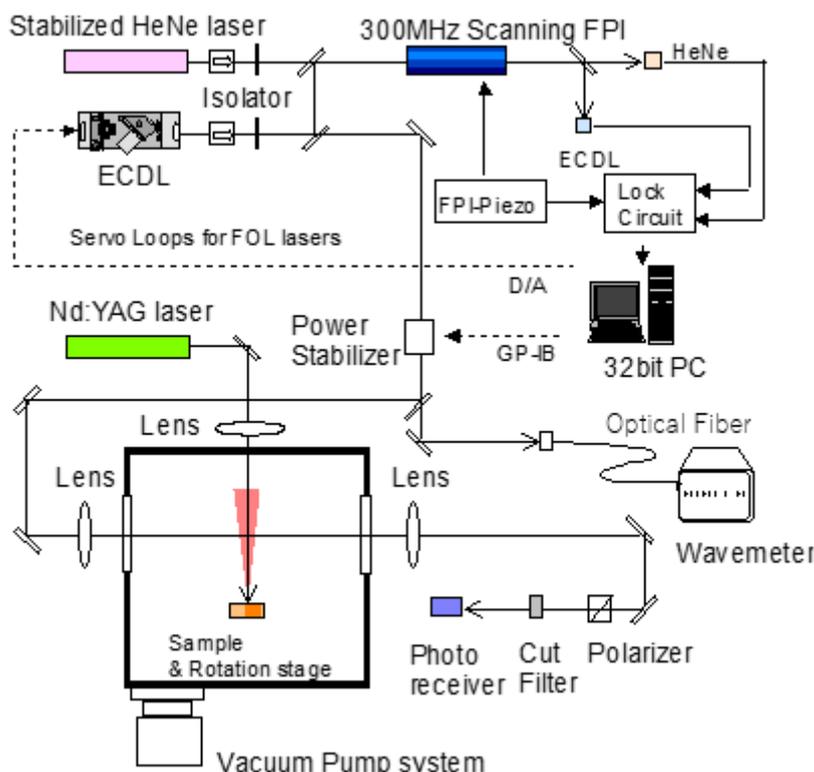


図 3.3.1-4 アブレーション共鳴分光装置の模式図

Nd:YAG レーザー (Continuum 社製 Surelite I-10、最大出力 600 mJ、パルス長 5 ns) の 2 倍高調波 (532 nm) のパルス光は、10:1 ビームスプリッターおよび半波長板と偏光ビームスプリッターキューブからなる可変アッテネーターを用いて約 1000 分の 1 に減衰させて真空容器上部まで伝送し、焦点距離 20 cm の両凸レンズを介して、熔融石英窓から容器内に導入した。導入した光は回転・並進ステージに固定した試料の表面近くで焦点を結ぶよう集光し、垂直に照射した。試料表面の Nd:YAG レーザーのビーム径は約 200  $\mu\text{m}$  と評価された。また Nd:YAG レーザーのパルスエネルギーは半波長板の角度を変化させることで変化させ、その強度は入射窓直前にパイロジュールメーター (Ophir 社製 PE-25) を挿入して確認した。なお、分解能の光強度依存性以外のスペクトル測定は、後述する理由からエネルギーを 0.15 mJ に固定して行った。

試料には酸化ガドリニウム粉末の圧縮ペレットを用いた。また真空容器の真空度や雰囲気ガス圧力は、電離真空計、ピラニーゲージ、キャパシタンスマンオメーター (MKS Instruments 社製 Baratron) を用いて測定し、ガス導入用ニードルバルブを用いて調整した。雰囲気ガスには減圧空気やアルゴンを用いた。

発生したアブレーションプルームは試料表面から約 5 mm 直上までの範囲で半導体レーザービームと交差させた。半導体レーザーの光軸は固定し、Nd:YAG レーザーの光軸だけを入射ミラーで変化させて、吸収信号が最大になるように調整した。またプローブの位置分解能を向上させるため、プローブ光も焦点距離 20 cm の両凸レンズで集光し、プルーム中心で焦点を結ばせた。プルーム透過光は、焦点距離 10 cm の両凸レンズを介して再び並行ビームに戻し、約 3 m 伝送させた。その後、プローブ光の直線偏光成分のみを偏光 BS キューブで反射させるとともに、反射光を 400 nm $\pm$ 20 nm だけを透過させる干渉フィルターを介して、高速フォトレシーバー (FEMTO Messtechnik GmbH 社製 HCA-S-200M-SI 帯域:200 MHz、ゲイン: $2\times 10^4$  V/A) で検出した。これによりプローブビームに混入する Nd:YAG レーザーの反射光やプルーム発光の成分を高い消光比で取り除いた。試料表面からプローブまでの高さは、試料ステージの高さを並進機構によって 0~5 mm の範囲を 0.5 mm 刻みで変化させて調整した。

プローブ光は波長がガドリニウム原子の共鳴波長に同調された場合に吸収される。すると、プルームがプローブビームを横切る瞬間だけ、透過光強度がパルス的に減衰する。この変化波形をデジタルオシロスコープ (岩崎通信機株式会社製 DS-5424A 帯域 200 MHz) で積算して観測した。また複数のボックスカー積分器 (Stanford Research Systems 社製 SR250) を用いて任意に設定したゲート位置 (経過時間) における信号強度を平均化してコンピュータに記録した。プローブ波長をスキャンして波長と信号強度の相関を調べることで、経過時間の異なる吸収スペクトルを同時に測定した。

吸収スペクトルの測定にはグロー放電原子源を用いた吸収分光においても観測された、ガドリニウム原子の基底状態を始状態とする波長 405.5867 nm (真空中) の遷移を用いた。この遷移は gf 値、同位体シフトがともに大きく、同位体分析に適している [3.3-1][3.3-2]。ガドリニウムには 7 つの天然同位体が存在し、その同位体比は表 3.3.1-1 に示す通りである。

表3.3.1-1 ガドリニウム同位体の天然存在比

m	abundance(%)
160	21.86
158	24.84
157	15.65
156	20.47
155	14.80
154	2.18
152	0.20

アブレーションレーザーのパルスエネルギーが強いと、プルーム中の原子種は強い逆制動放射によって大きな運動エネルギーを獲得しドップラー効果が大きくなると同時に、プルームの電離度が増してシュタルク効果も大きくなる。したがって同位体識別のためにはアブレーション光は弱い方が良いが、アブレーションの起こるパルスエネルギーにはしきい値が存在する。そこで、はじめに酸化ガドリニウムのアブレーションしきい値を評価した。

図 3.3.1-5 は真空中で試料表面付近にプローブ光を通して、原子による吸収パルスを、YAG レーザーのパルスエネルギーを変えながら測定した結果である。図 3.3.1-6 はこの吸収ピークの透過率から原子密度の相対値を求め、パルスエネルギーとの関係をプロットした図である。低エネルギーの測定点を直線で外挿近似することで、しきい値強度として 0.03~0.04 mJ を得た。

酸化ガドリニウムのアブレーションしきい値はこれまで報告されていないが、金属ガドリニウムを窒素レーザー（337 nm）で照射した場合に、基底状態の原子がアブレーションされるしきい値フルエンスが  $0.15 \text{ J/cm}^2$  と報告されており [3. 3-3]、これをスポット径  $200 \mu\text{m}$  のパルスエネルギーに換算すると約  $0.05 \text{ mJ}$  となる。よって測定条件は異なるものの、本研究で得られた値は報告値と一致することが確かめられた。

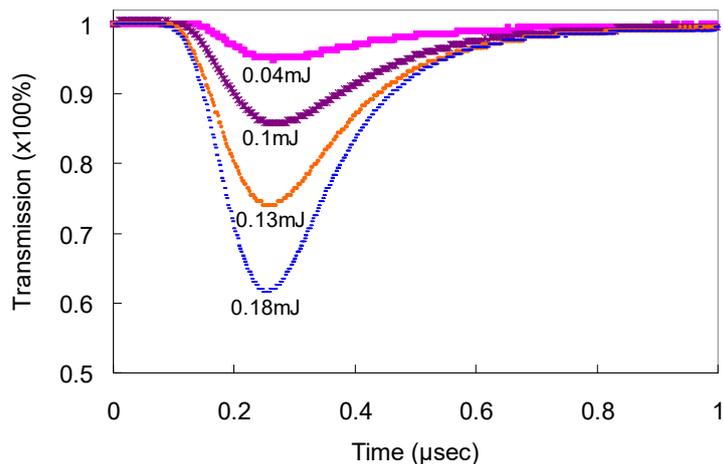


図 3. 3. 1-5 吸収波形のアブレーション光強度依存性

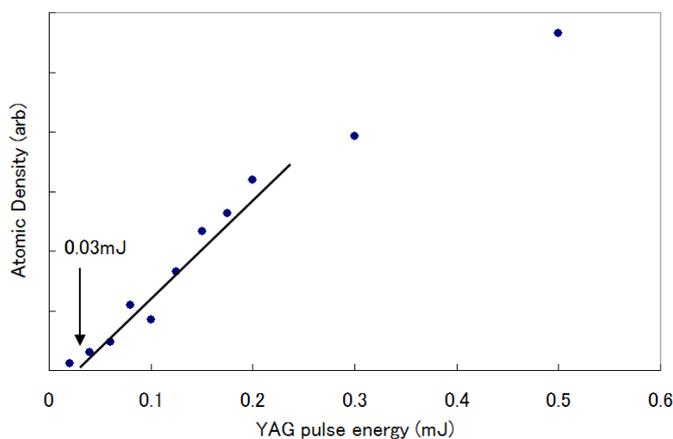


図 3. 3. 1-6 アブレーション原子密度とパルスエネルギーの関係

次に YAG レーザーのパルスエネルギーを変化させて吸収スペクトルの線幅の変化を調べた。図 3. 3. 1-7 は  $^{160}\text{Gd}$  の吸収ピークの半値幅を様々なパルスエネルギーで測定して、両者の相関をプロットした図である。線幅は光が弱くなるほど狭くなるが、 $0.2 \text{ mJ}$  以下の幅の変化は僅かである。これに対して、図 3. 3. 1-8 に示すように吸収量は  $0.2 \text{ mJ}$  以下で急激に減少する（透過率は急激に上昇する）。この結果から、感度と分解能を両立させるのに適したパルスエネルギーは  $0.2 \text{ mJ}$  程度である事が分かった。また、この強度は、試料表面のダメージ（穴掘り効果）を抑える上でも効果的であることが分かった。

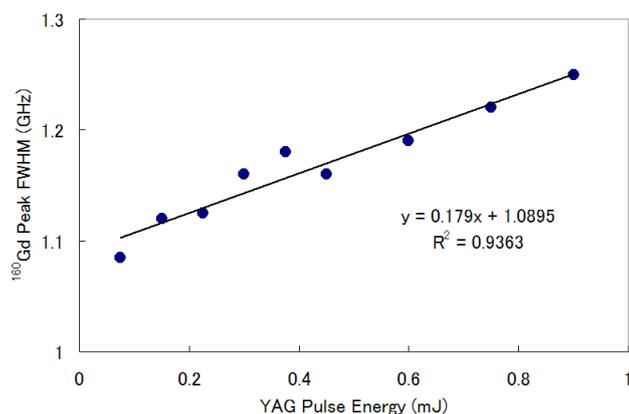


図 3.3.1-7 吸収ピーク幅とアブレーション強度の関係

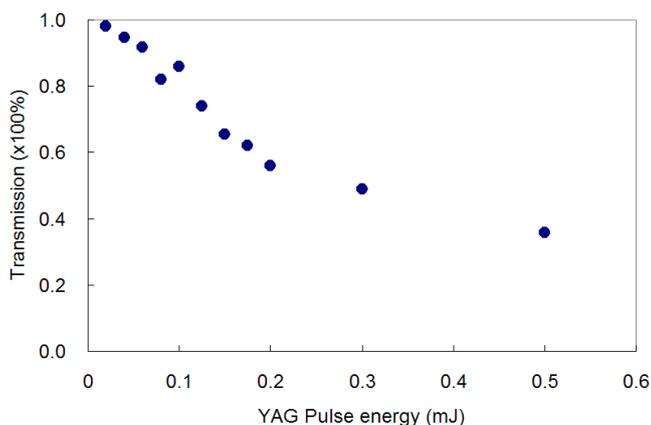


図 3.3.1-8 透過率とアブレーション強度の関係

次に減圧ガス雰囲気中のアブレーション吸収スペクトルの特徴を調べた。一般に、アブレーションのカバーガスには、i) プルームの原子と衝突させてその運動エネルギーを奪いドップラー効果を減らす役割と、ii) イオンと電子の再結合や、励起原子の励起エネルギーの移乗を促進して、基底状態や準安定状態の中性原子を増やす役割がある。図 3.3.1-9 はアブレーションからの経過時間が 0.6→2→30 μs の吸収スペクトルを 3 台のボックスカー積分器で一回の波長スキャンで記録したものである。明らかに観測時刻が遅くなるほど線幅は狭くなる。遅延時間 30 μs におけるスペクトルの各ピークは、左から順に質量数 160、158、157+156、155 の同位体によるピークであり、右端には存在比 2.18 % の <sup>154</sup>Gd のピークまで確認できている。これに対し、0.6 μs のスペクトルは、同位体の構造が全く識別できないほど幅が広がっている。

吸収スペクトルではプローブ光の強度が強すぎると、スペクトルに飽和広がりが生じて分解能が低下する。そこで使用した半導体レーザーの出力範囲でその影響を確認した。図 3.3.1-10 のうち、上が 0.2 mW、下が 1.0 mW の光強度で測定した観測時刻 30 μs のスペクトルであるが、0.2 mW～1 mW の範囲ではパワーの変化は線幅に殆ど影響しないことが分かった。

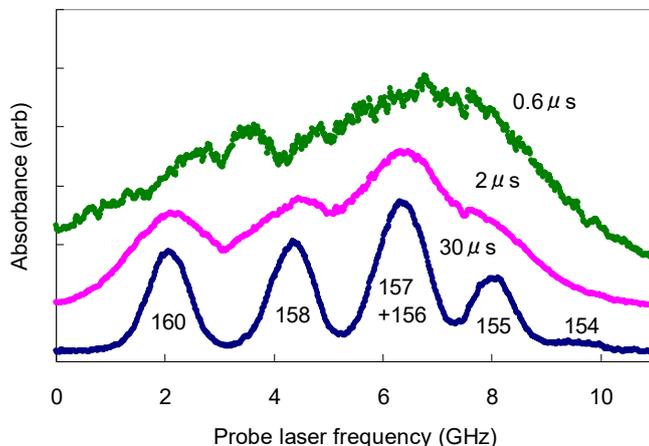


図 3.3.1-9 吸収スペクトルの観測時刻による変化

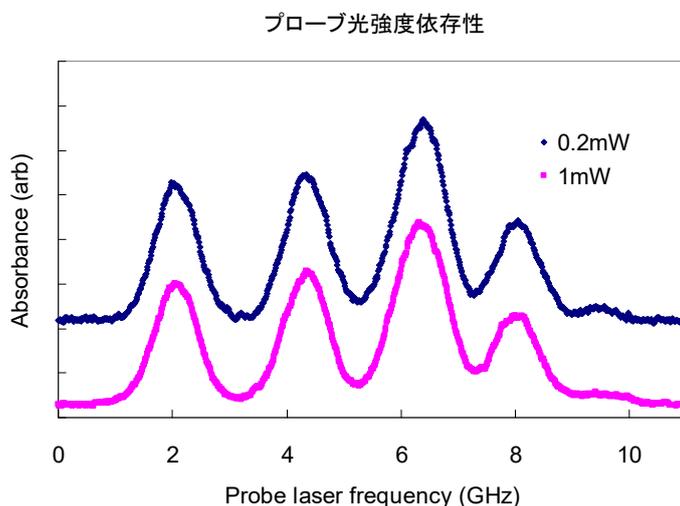


図 3.3.1-10 吸収スペクトルのプローブレザーパワー依存性

吸収スペクトルではバッファガスの条件も大きく影響する。そこでガスの圧力や観測時刻を変えて吸収スペクトルを測定し、観測に適した圧力と観測時刻を調べた。図 3.3.1-11 に測定したスペクトルの一例を示す。圧力が増えると吸収スペクトルの線幅は有意に広がるのが分かる。特に、白丸で囲んだように、640 Pa の  $^{155}\text{Gd}$  のピークと隣接するピークの重なりが顕著になっている。これはガス分子と Gd 原子が衝突することにより、真空の場合よりも励起状態の寿命が短くなる効果（圧力広がり）によるものと考えられる。逆に 100 Pa 以下に減圧すると、線幅の変化に比べて吸収量の減少が著しくなるため、分解能と感度を両立させるのに適した圧力は 100 Pa 程度と評価された。また観測時刻は 4、10、16  $\mu\text{s}$  と遅くなるほど狭くなる事が分かった。16  $\mu\text{s}$  以降では吸収量も減少するので、観測時刻はアブレーション後 16  $\mu\text{s}$  程度が適当と考えられる。

プルーム内の原子が感じる周辺環境はプルームの膨張に伴って時々刻々変化する。そこで吸収スペクトルの線幅が観測する高さによってどのように変化するかを調べた。図 3.3.1-12 に

その結果を示す。同じ観測時刻では高さを変えても線幅に有意な差は見られないことがわかった。このことからバッファガスとの衝突で減速されたプルーム中では、並進温度はほぼ一緒になっていると思われる。また、観測する高さを変えて吸収量を測定することで、プルームの上端の高さは2~2.5 mm 程度、原子密度が最大になる高さは1.5 mm 程度であることが分かった。

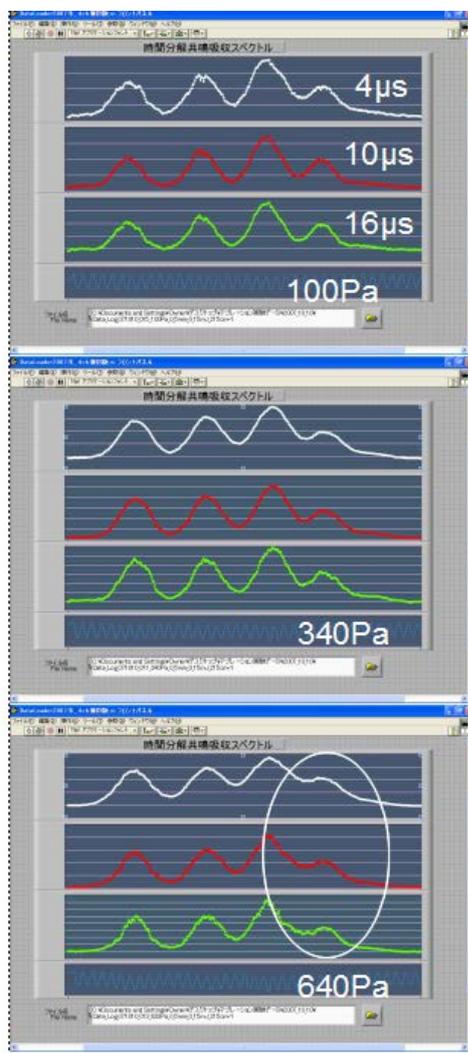


図 3.3.1-11 吸収スペクトルのガス圧力と観測時刻による変化

最後に共鳴吸収信号による分析性能を評価するため、純粋なガドリニウム粉末のほか、同じ希土類元素のセリウム粉末と、異なる混合比で混合した 6 種類の圧縮ペレット試料を作製し、これまでの実験で得られた測定に適した実験条件の下で、各試料の Gd 原子の吸収量を測定した。この吸収量から吸光度を求め、混合比から求めた Gd の組成比と相関をプロットした結果を図 3.3.1-13 に示す。両者には良好な比例関係が確認された。また、吸収信号のバックグラウンドの  $3\sigma$  に相当する吸光度と検量線の交点から、検出限界 (LOD) の組成比は約 0.2 % と評価された。

以上の結果から、アブレーション共鳴吸収分光法により、アブレーションプルーム中のガドリニウム原子の吸収スペクトルを様々な環境条件、観測条件で測定し、同位体選択性が高く、

強い共鳴信号が得られる実験条件等を明らかにした。これにより、本方法が、存在比 0.2 %程度までのガドリニウム同位体の分析が可能な分析感度を有していることを確認した。

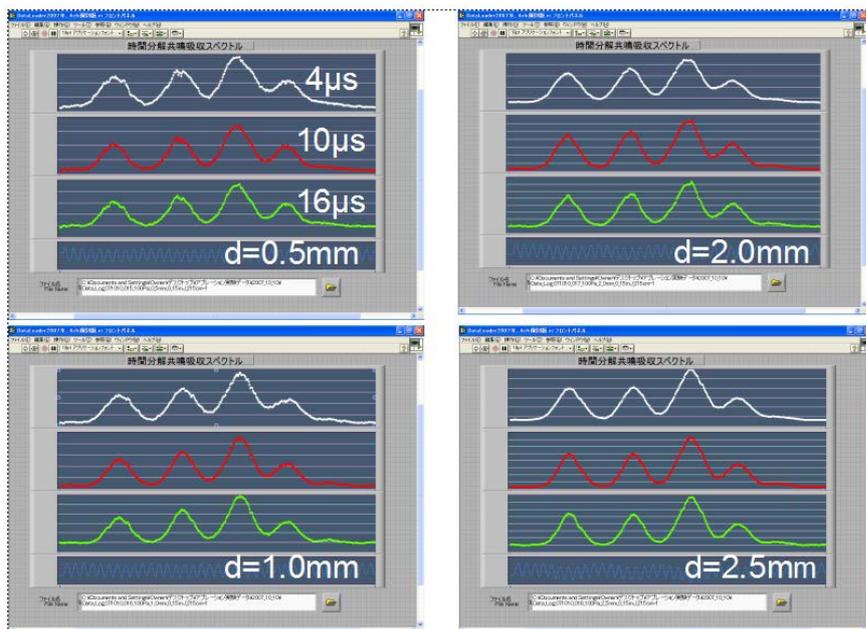


図 3.3.1-12 吸収スペクトルの観測高さによる比較

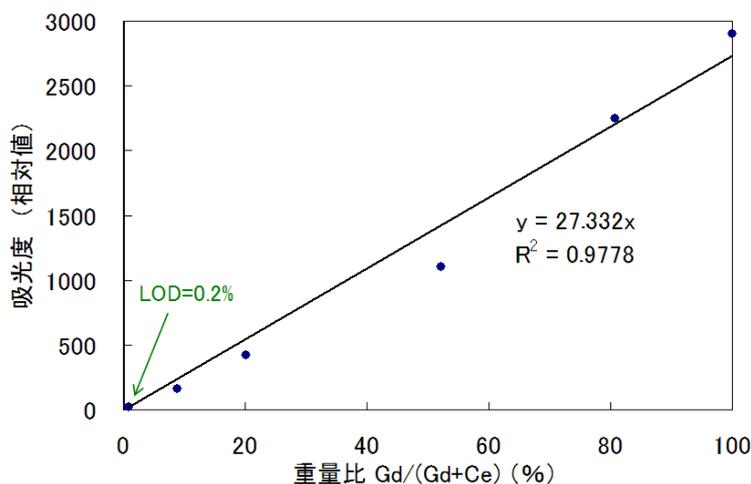


図 3.3.1-13 検量線の直線性と LOD の評価

### 3.3.2 原子化手法の開発 (連携先: JAEA)

#### (1) アブレーションルーム中の微粒子の再原子化 (平成 30 年～令和元年度)

アブレーションルーム中の中性原子は、雰囲気ガスとの反応によって、数十 μs から数 ms の間に、分子やナノクラスターへと変化し、さらに会合を繰り返して微粒子へと成長する (以下、分子、クラスターも含めて「微粒子」と略す)。このため、アブレーションルーム中の原子の吸収信号はアブレーション直後に極大となった後は急激に減衰する。この減衰は、ルームの膨張に伴う原子密度の低下だけではなく、原子の微粒子化の影響が大きい。そこでこの

微粒子の結合を解いて、再び原子に戻せば、アブレーション直後とは異なる環境で分光が行えるため、分析性能等が向上する可能性もある。

原子化には幾つかの方法が考えられるが、例えば、①強いパルスレーザー光によって分子結合を強制的に切断するフラグメンテーションや、②分子の光吸収による内部励起を利用して、特定の化学結合を切断する光解離過程、③放電プラズマやレーザープラズマ中の高速粒子との衝突過程、④集積板に捕集した微粒子の再アブレーション過程等は、比較的容易に微粒子を原子化できる方法である。しかし、それぞれのプロセスは複雑であり、分析に利用できる十分な量の原子を、安定的に生成できる手法やプロセス条件等は、これまでのところよく知られていない。そこで本研究ではフラグメンテーションによりアブレーションルーム中の微粒子から、分析に利用できる量の原子を安定的に生成する条件を調べた。

### ①実験装置の構築

アブレーション起源の微粒子の原子化は、これまでほとんど報告例がないことから、基礎プロセスを解明することが必要である。そこで、JAEA 原子力科学研究所内に既に設置されている複数台の波長可変パルスレーザーや半導体レーザーから成る光源システムと真空チャンバー等を再構成して、原子化手法の研究開発のための基礎実験装置を新たに構築した。

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

原子のプローブ光としては、外部共振器半導体レーザーを使用した。本研究では Ca の基底状態からの非常に強い遷移である 422.7918 nm が発振可能な LD 素子 (Roithner Lasertechnik GmbH 社製 RLT425-50CMG) を使用した。その光と、波長安定化ヘリウムネオンレーザー (Thorlabs 社製 HRS015) による周波数基準光を、走査型エタロン干渉計 (CVI Laser Optics 社製 FSR:300MHz、フィネス 100-200) に重ねて入射し、それぞれの光の干渉縞を常時モニターした。干渉縞の位置と縞間隔をデジタル回路によって 2 つの TTL パルスに変換し、各パルスの時間幅をカウンターボード (National Instruments 社製 PCI-6602) を介して PC で計測することにより、レーザーの周波数変動を検知した。PC では TTL パルス長をコントロールするためのソフトを C++ で動作させ、変動した発振波長を必要波長に戻すための電圧変化を計算して、DA コンバーター (Contec, Inc. 社製) を介して DC 信号として出力させ、半導体レーザーの波長を制御

する piezo素子の電圧コントローラー (Thorlabs 社製 MDT694B) にフィードバックした[3. 3-4]。この様にして得られたプローブ光の一部は、ビームスプリッタで連続発振光用精密波長計 (HighFinesse 社製 WS-7) へと導き、設定通りの発振波長であることを常時モニターした。

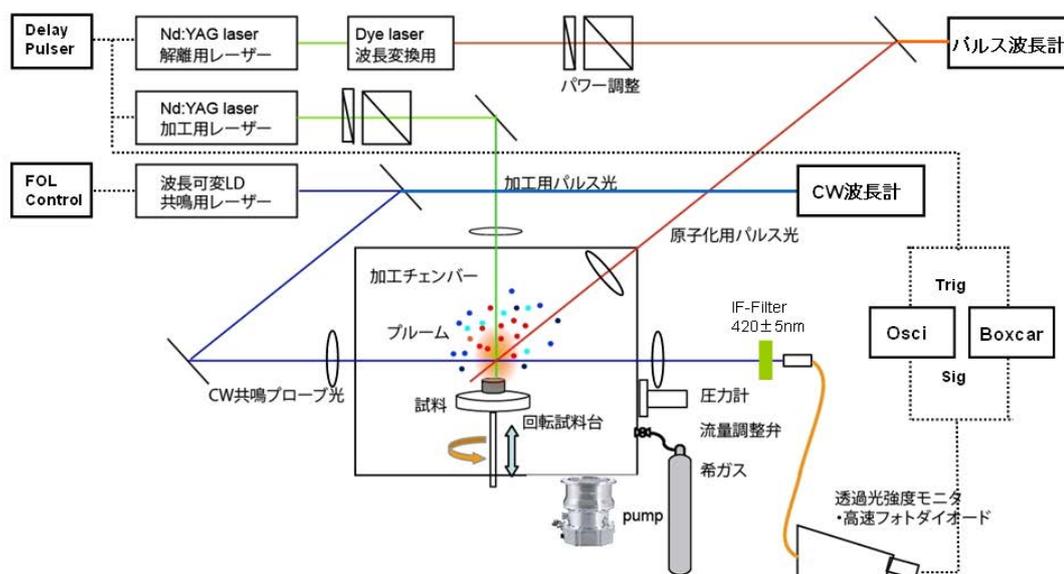


図 3. 3. 2-1 構築した微粒子の原子化実験装置の構成

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

試料にはセメント粉約 1 g を直径 10 mm  $\phi$ 、高さ 7 mm に圧縮成型したペレットを使用した。その試料を真空容器内にある回転ステージ上に乗せ、ステッピングモーターにより約 1 rpm の速度で回転させることにより、表面のクレーター効果を抑えた。真空容器は直径 300 mm、高さ 200 mm のステンレス容器で、O リングシールで蓋を取り外せるようにした。大気開放状態で、アブレーション光、フラグメンテーション光およびプローブ光の 3 つのレーザービームが、試料表面直上約 2 mm の位置で交差するように、各光学系を調整した。調整後に真空容器をロータリーポンプで粗排気した後、ポンプで排気しながら He ガスを導入し、ガス圧力が 1.3 kPa 程度で安定するよう、バリアブルリークバルブ (キャノンアネルバ株式会社製) を微調整した。容器内のガス圧力は真空マンオメーター (MKS Instruments 社製) やクリスタルゲージ (キャノンアネルバ株式会社製 M-320XG) で常時モニターした。

## ②原子化実験の結果と考察

強いパルスレーザー光により分子結合を強制的に切断するフラグメンテーション原子化法について調べた。図 3.3.2-2 にアブレーション光とフラグメンテーション光の時間差を 50 ms に設定して測定した 422.7918 nm の光の透過強度の時間変化を示す。縦軸は透過光強度、横軸は経過時間である。アブレーション光を照射した直後に生じている深い窪み（左側の強い吸収）は、基底状態の Ca 中性原子を多く含んだアブレーションプラームが、プローブ光を横切っているために生じている。この光吸収が 10 ms 程度で消滅しているのは、プラーム中の基底状態原子が、粒子衝突・会合などの過程を経て微粒子へと変化してしまうためである。50 ms 後にフラグメンテーション用のレーザーパルスを同じ位置に照射すると、その位置に留まっている微粒子が分解されて基底状態の中性原子が再び生じるため、透過光の吸収が現れている（右側の吸収）。この吸収が、フラグメンテーション光が試料にあたりアブレーションが起きたためでないことは、アブレーション光をブロックし、フラグメンテーション光だけを照射した場合に、この吸収が完全に消えることから確認した。

図 3.3.2-3 にアブレーション光とフラグメンテーション光の時間差を 10、50、90 ms に変化させて測定した 422 nm 光の透過光強度の時間変化を示す。フラグメンテーション用のレーザーパルスのタイミングが変わっても、共鳴吸収パルスの強さは殆ど変化がないことが分かった。このことは、今回の実験条件では、膨張の停止したプラーム中の微粒子が殆ど同じ位置に留まり続け、10 Hz で発振するアブレーション光の次のパルスが照射される時点においても存在していること、また時間とともに微粒子サイズが成長しても、フラグメンテーションではほぼ同量の原子が生じることを示していると考えられる。この結果はレーザー加工に伴って発生し、その場に漂うヒュームを計測する手法として、ショット毎だけでなく、ショット積算値の計測も行える可能性を示している点で興味深い。

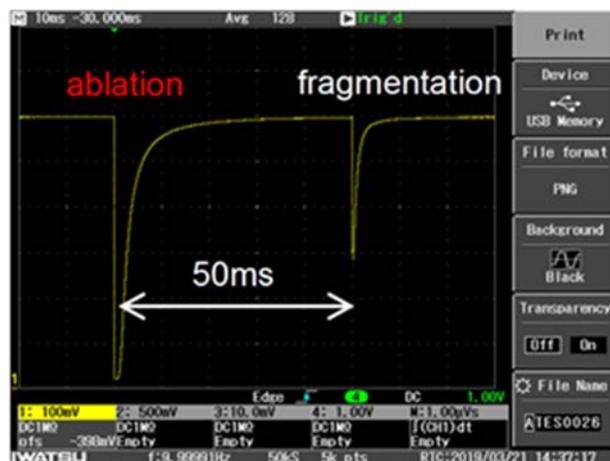


図 3.3.2-2 原子化による透過光の吸収の代表例

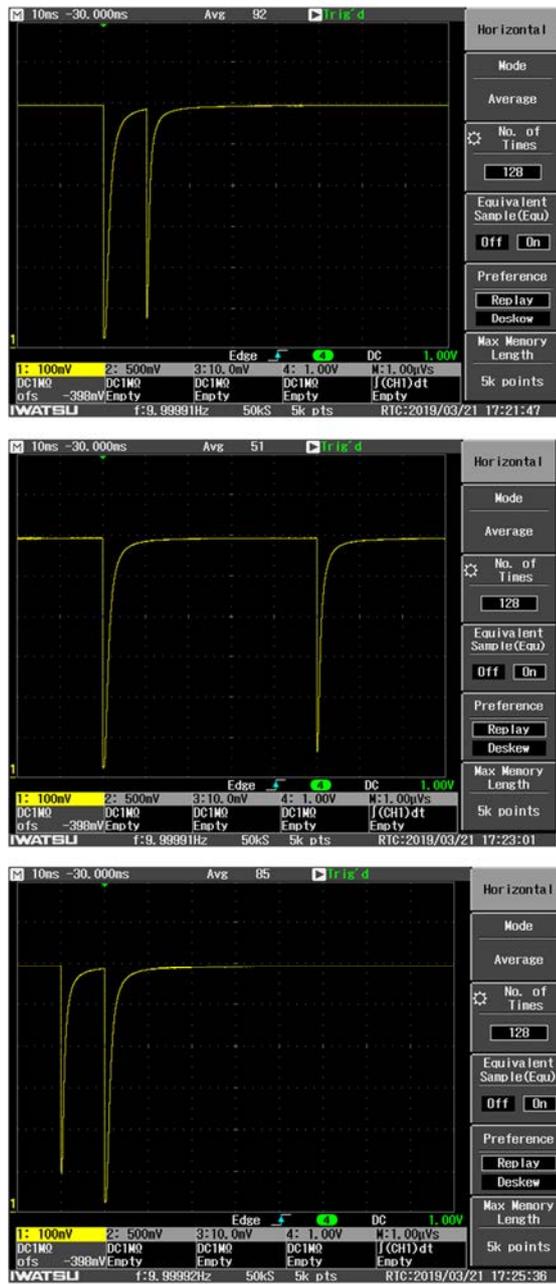


図 3.3.2-3 原子化レーザーのタイミングによる吸収パルスの変化  
上からアブレーション後 10、50、90 ms

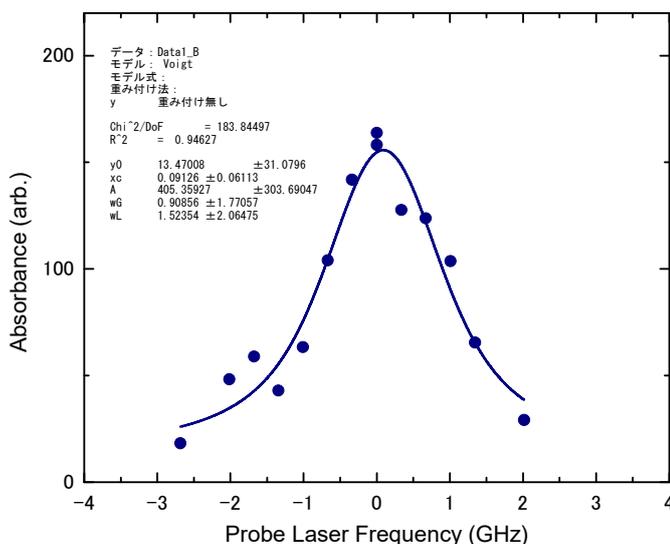


図 3.3.2-4 フラグメンテーションで生じた Ca 原子の吸収スペクトル

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

$$Abs = -const * \log_{10} \left( \frac{I}{I_0} \right) \tag{1}$$

(1)の式を用いて (但し比例定数=100) 求めた吸光度  $Abs$  (任意単位) であり、横軸は共鳴周波数からのレーザーのずれ (GHz) を表している。また実線は測定値をフォークトプロファイル関数で最小自乗近似した結果である。このスペクトルの半値幅は約 2 GHz と評価される。これまでに JAEA で実施した Pu の LAAS 分光[3.3-5]では、波長 400 nm 付近の吸収スペクトルの半値幅は 700 MHz 程度と測定され、この幅からプラーム中の原子の並進温度はほぼ室温の 360 K と評価している。この半値幅が全てドップラー効果によるものとし、カルシウム原子も同じように室温程度の並進温度になっていると仮定すると、ドップラー幅が(2)式で表されることから、

$$\Delta\nu = \sqrt{\frac{8kT \ln 2}{mc^2}} \times \nu \tag{2}$$

但し、k: ボルツマン定数、T: 並進温度、m: 原子質量、c: 光速、 $\nu$ : 光周波数

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

図 3.3.2-5 に、遅延時間 50 ms 後にフラグメンテーション光を、パルスエネルギーを変化させながら照射して測定した吸光度とパルスエネルギーの関係を示す。吸光度はエネルギーに対

してほぼ直線的に増加しており、信号が飽和するレベルまでは達していないことが分かった。したがって、十分な量の微粒子をフラグメンテーションで安定的に原子化するためには、最低でも 60 mJ 以上のパルスエネルギーが必要と考えられる。

以上により、JAEA 原子力科学研究所に設置されているパルス色素レーザーや半導体レーザー、真空チャンバーなどを組み合わせて、元素・核種分析のための基礎実験装置を構築した。この装置を用いて、セメントの圧縮成型ペレットをアブレーションさせて生じる微粒子をフラグメンテーションによって再原子化し、生じた基底状態のカルシウム原子による共鳴吸収信号を観測することに成功した。観測された信号強度やスペクトル分解能から、フラグメンテーションによる原子化の特徴や実験条件について考察した。

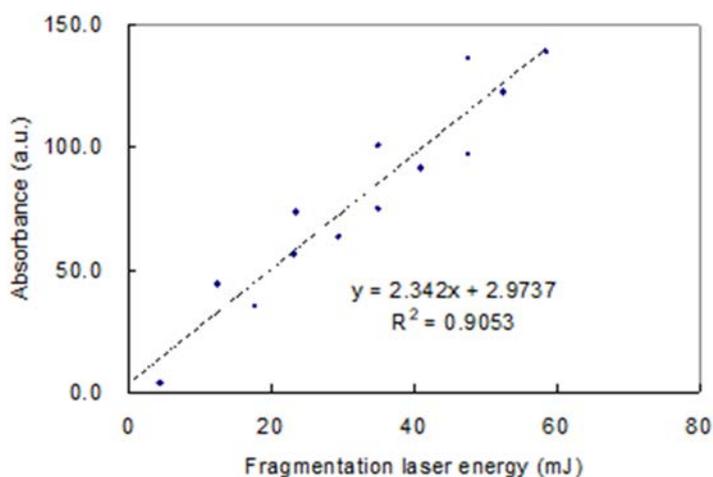


図 3.3.2-5 フラグメンテーション光 (627 nm) のパルスエネルギーに対する吸光度の変化

#### (2) ファイバーレーザーで生じるヒューム中の原子による共鳴吸収分光試験 (令和元年～令和 2 年度)

レーザーアブレーションで生じるプルームの性状は、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百  $\mu\text{s}$  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 QCW のファイバーレーザーのように、数十 ms 以上の長い光照射時間で生じるアブレーションプルームで、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、レーザー加工で利用されることの多い QCW レーザー光を様々な物質の試料に照射した場合のアブレーションプルーム (ヒューム) に対して共鳴吸収分光実験を実施した。

##### ① 共鳴吸収分光装置の構築

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ないことから、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ことが重要である。そこで、JAEA 檜

葉遠隔技術開発センターに設置した加工チャンバーとファイバーレーザーに、JAEA 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実験装置を構築した。

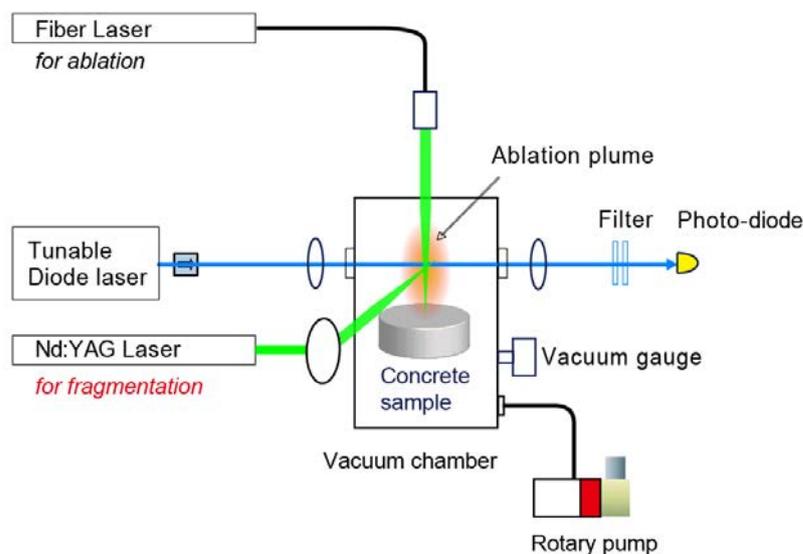


図 3.3.2-6 構築した微粒子原子化・核種同定用実験装置の模式図

装置の全体構成を図 3.3.2-6 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 Corporation 社製 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ラームにはさらに、外部共振器半導体レーザーによるプローブ光 (Ca の場合、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 Laser Optics 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 420nm)、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 (岩崎通信機株式会社製 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:850 mJ、繰り返し:10 Hz) を使用した。この光 (基本波 1064 nm または 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ないように、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 4 mm (減圧空气中) または 1 mm (大気圧空气中) の高さで、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 Inc. 製 WaveMaster) によって常時モニターした。減圧空气中の測定では、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 (キヤノンアネルバ株式会社製 M-320XG) でチャンバー内の圧力が 500 Pa になるよう調整した。

②コンクリート試料を用いた共鳴吸収分光試験

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。1 ショットを照射する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、加工チャンバーを開放して、穴の開いていない位置に試料位置を変更した。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ーに用い、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。

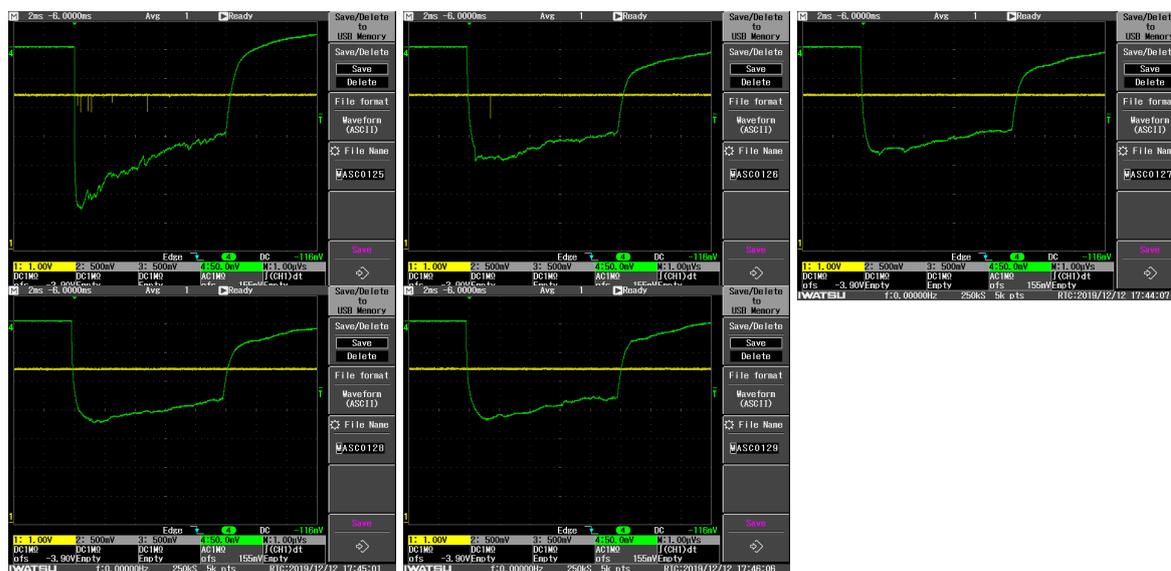


図 3.3.2-7 非共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 (5 ショット) 500 Pa-Air

図 3.3.2-7 に 500 Pa の減圧空气中で観測した、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分かる。

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 3.3.2-8 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分かる。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。

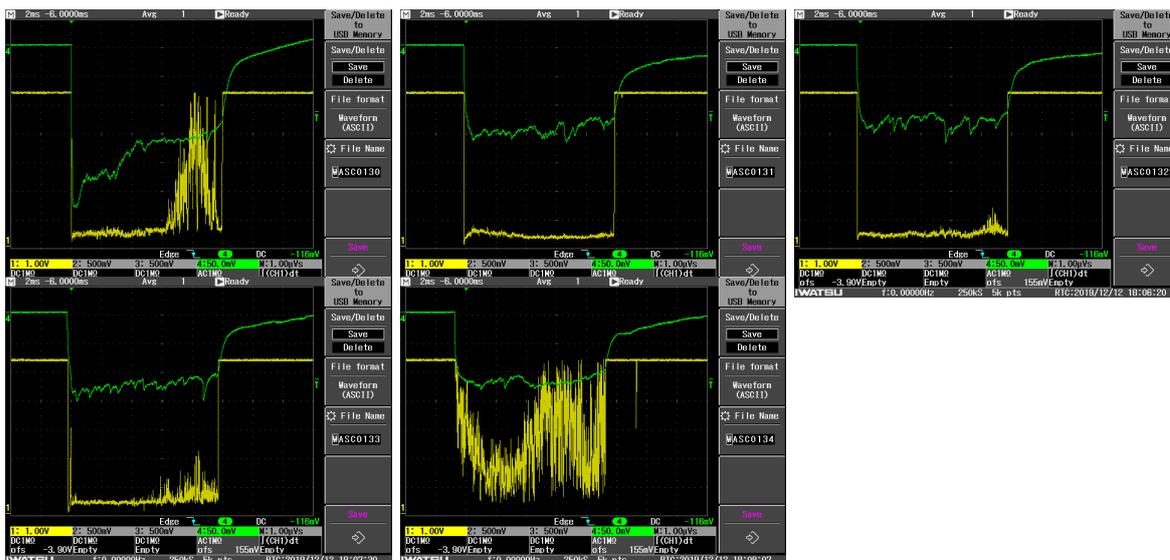


図 3.3.2-8 共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 (5 ショット) 500 Pa の減圧空気中の場合

これまでの研究で、パルス長 10 ns 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アブレーションルームは 500 Pa 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。一方、パルス長 10 ms、1 kW 程度のファイバーレーザー照射の場合のルームはこれよりもずっと広く膨張することが予想される。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 3.3.2-9 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。加工チャンバーの光学窓の上端近く (試料表面から 12~13 mm) にプローブレーザー光を通して、吸光度はほぼ一定であり、減圧空気中では中性原子は広い範囲に存在することが分かった。

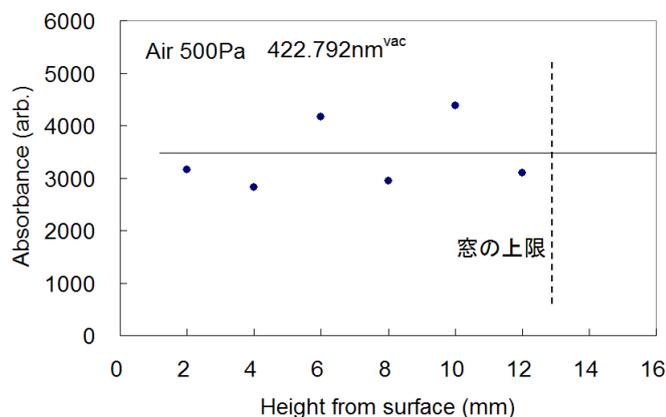


図 3.3.2-9 ファイバーレーザーアブレーション時の吸収の高さ分布 500 Pa-Air

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で行える方が望ましい。前述の実験で分かったように、減圧環境中では非常に大きいプ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 3.3.2-10 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分かった。これが微粒子等における乱反射によるものではなく、原子による共鳴吸収によるものであることは、プローブレーザーの波長を非共鳴にすると、吸収が図 3.3.2-7 と同様に完全に消えることから確認した。

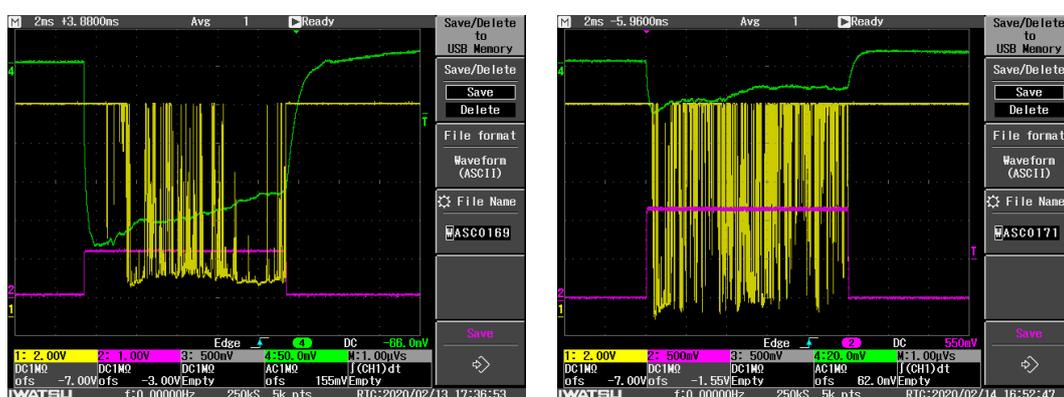


図 3.3.2-10 共鳴プローブ光に対するファイバーレーザーアブレーション時の透過強度の変化 大気圧空気中の場合

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、アブレーションプ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 3.3.2-11 (上) 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、減圧空気中で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 3.3.2-11 (下) 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分かった ( $^{238}\text{U}$ – $^{235}\text{U}$  は 15 GHz 程度の遷移が幾つかある)。

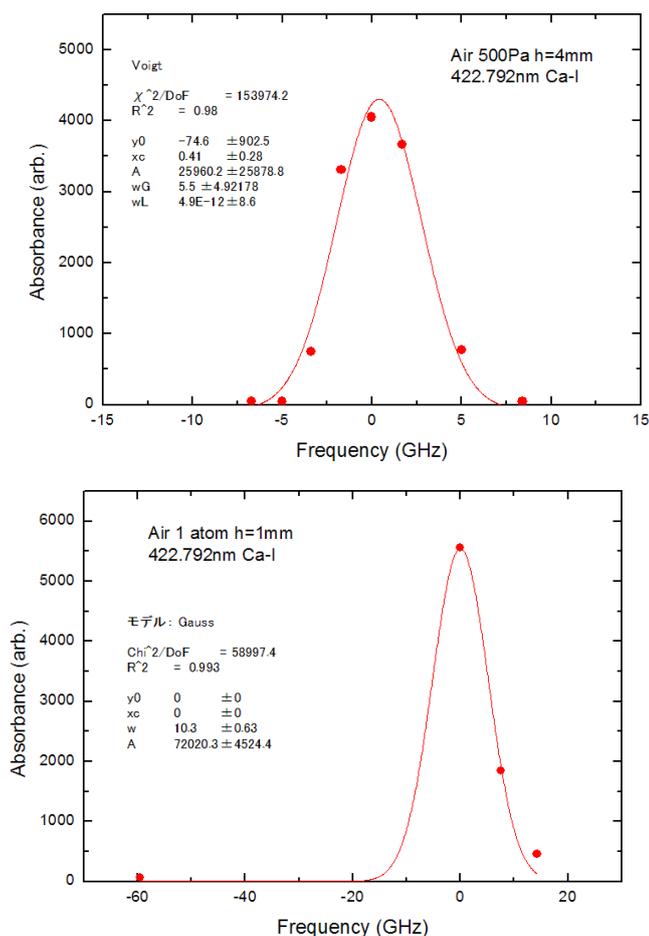


図 3.3.2-11 ファイバーレーザーアブレーション時のカルシウム原子の吸収線幅の評価  
 (上) 500 Pa-Air (下) 1 atom-Air

これまで示したように、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ヒューム中にはカルシウム原子が存在し、共鳴吸収分光が可能であることが実証された。このことはヒューム中の微粒子を再原子化する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組成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が求められる場合もありうることから、コンクリート試料を QCW レーザーで照射した場合のヒューム中の微粒子を再原子化する実験も試みた。

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、YAG レーザーで生成したブルームを用いて実施したのと同様に、共鳴吸収が消えたタイミングで YAG レーザー光 (1064 nm または 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 3.3.2-12 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ブ光の減衰は観測されなかった。また図 3.3.2-12 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、コンクリートをファイバーレーザーでアブレーションした場合に生じる微粒子は、YAG レーザー光ではフラグメンテーションしにくい性質があることが分かった。

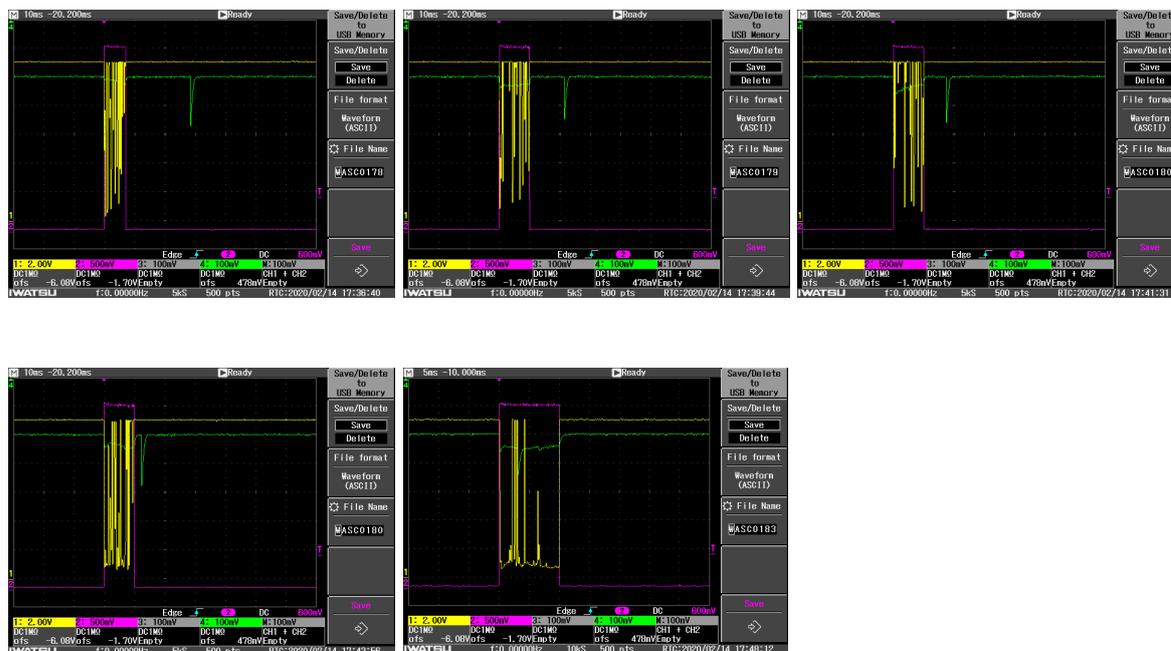


図 3.3-2-12 ファイバーレーザーアブレーション微粒子の YAG レーザーによる分解実験  
大気圧空気中 再原子化レーザーの照射タイミングを、左上から、ファイバーレーザー光  
の照射終了から 20、12、7、2、-7 ms 後に変えた場合の様子

### ③コンクリート以外の試料を用いた共鳴吸収分光試験 (令和 2 年度実施)

これまでの研究から、レーザー加工でよく利用される QCW ファイバーレーザーの数十 ms のパルスをコンクリート試料に照射した場合には、発生するヒュームの中にカルシウム原子が多く存在し、共鳴レーザー光の吸収が観測できることが初めて実証された。そこで、次に同じ方法を廃炉で取り扱うことが多いステンレス試料や、ウラン酸化物の模擬材料としてのガドリニア試料にも適用し、それぞれの物質に含まれるクロム原子 (SUS 中の重量比 19 %) やガドリニウム原子の共鳴吸収信号の観測から、ヒューム中の単原子や微粒子の存在状態を、時間、空間的により詳しく調べる実験を実施した。また、吸収スペクトルの観測から、波長分解能などの分析性能を評価し、分析に適した条件等について考察を行った。

実験方法は同様で、最大 10 Hz で動作するファイバーレーザーを 1 Hz で動作させ、ステンレスやガドリニアの試料に 1 ショットだけ照射し、10 ms の光持続時間中の吸収信号の時間変化をオシロスコープで観測した。レーザーの出力は最大出力の約 40 % (約 1200 W) に設定したが、照射痕の目視確認ではステンレスに比べてガドリニアの方が明らかに深い穴が生じた。

図 3.3.2-13 に 170 Pa の減圧空气中で観測した、ステンレス試料直上 2 mm の高さを通る共鳴レーザー光に対する、プローブレーザーの透過強度波形の一例を示す。緑のトレースは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いる。この時の半導体レーザーの波長は、クロム原子の基底状態から第 1 励起状態 ( $23498.8156 \text{ cm}^{-1}$ ) への遷移波長 425.5550 nm (真空中) に同調させている。ヒューム中の単原子が多く、照射中は共鳴レーザー光がほぼ 100 % 吸収されていることが分かる。

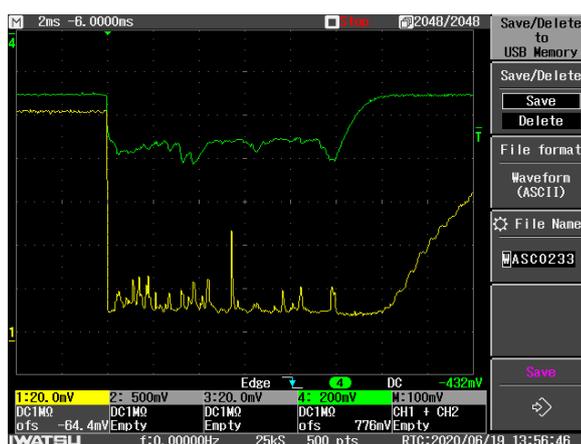


図 3.3.2-13 ファイバーレーザー照射時の共鳴プローブ光の透過強度の変化

図 3.3.2-14 にこのようなシングルショットの吸収信号を共鳴レーザーの波長を変化させながら繰り返し測定し、吸収スペクトルを描いた結果を示す。ステンレス試料のアブレーションで生じたクロム原子の照射中の線幅はカルシウムとほぼ同じ 6 GHz 程度であることが分かった。表面からの高さが 2 mm の場合より 20 mm の方がスペクトル幅は僅かに狭く、それぞれの幅は 6.6 GHz と 6 GHz であった。また照射中よりもファイバーレーザーパルスが消えた後、約 6ms 後の方が狭いことが分かった。このことから波長分解能の高い分析のためには、観測位置を試料表面から高さ 20 mm 程度とし、レーザー照射終了から約 6 ms 後に観測するのが良いことが分かった。

次に QCW ファイバーレーザーでステンレス試料を照射した場合のヒューム中のクロム原子の時間・空間分布を調べるために、ファイバーレーザーの光軸上に共鳴レーザービームを交差させた場合と、光軸から 10 mm 離して共鳴レーザービームを透過させた「軸外し」の場合の、吸収信号を比較した (図 3.3.2-15)。その結果を試料表面からの高さに対する吸光度としてプロットしたのが図 3.3.2-16 (上) と (下) である。同軸上では試料表面に近い高さ 2 mm で最も密度が高く、上方ほど密度が下がるものの、10-20 mm では密度はほぼ一定であることが分かった。一方、軸外しの場合、試料表面付近には原子はほとんど存在せず、高さ 7-8 mm より上方で、同軸上とほぼ同じ密度まで増加することが分かった。この結果から、粒子密度のショット毎の変動を抑え、安定な信号を得るには観測位置を高さ 10-20 mm に設定するのが良いことが分かった。

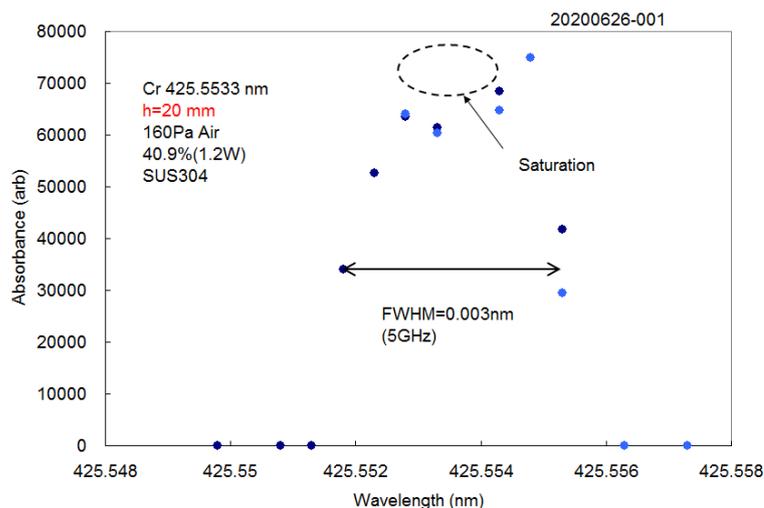


図 3.3.2-14 ファイバーレーザーアブレーション時のクロム原子の吸収線幅の評価

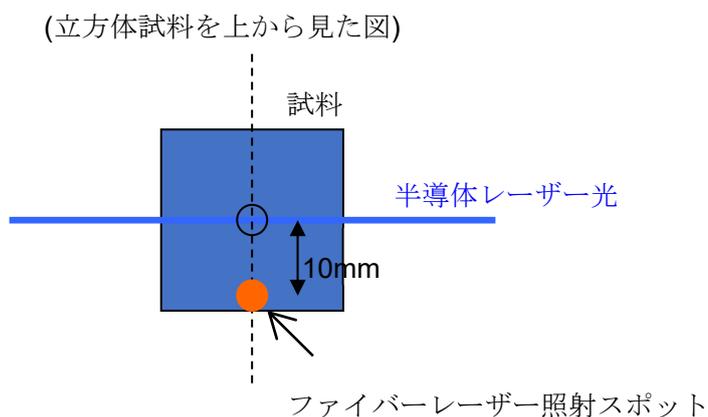


図 3.3.2-15 ファイバーレーザー照射スポットと共鳴レーザービームの位置関係

ここまでの結果はクロム原子で得られたものだが、ミリ秒の光反応時間では原子の化学反応性の違いによって生じる気相化学反応を考慮する必要がある。そこで、同様の測定を酸化し易いガドリニウム原子でも行った。図 3.3.2-17 は共鳴レーザーの波長を  $0 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 24655.639 \text{ cm}^{-1}$  の遷移に対応する  $405.4722 \text{ nm}$  (真空中) に同調して測定したファイバーレーザー光軸と同軸上の高さ分布を示す。クロムに比べて上方での吸収量の減衰が大きいことが分かる。このことは、ガドリニウム原子がファイバーレーザー光の照射中にも、減圧空気中の酸素と結合して酸化ガドリニウム分子へと変化し、単原子の密度が減少することを示唆している。

また、ガドリニウム原子の吸収では、10 ms のレーザー照射のうち、後になるほど透過レーザー光強度の変動が大きくなる傾向が認められた。この原因を調べるため、レーザーの波長を非共鳴波長に変え、観測する試料からの高さを変えて、透過光強度を測定した (図 3.3.2-18)。この結果、10 ms パルス照射の前半部に比べて後半部に透過光強度の変動が大きく、瞬間的に

は入射強度よりも強くなることが分かった。高速度カメラによる、ガドリニアのアブレーションの観測では、照射部分の穴が深くなるにつれて、熔融池から大型の微粒子が飛び出す現象が観測されており、この大きな微粒子にレーザー光が乱反射されて、このような現象が生じると思われる。こうした現象はコンクリート試料やステンレス試料では観測されず、ガドリニアに特有である。このため、ガドリニウム吸収分光ではこうした効果も考慮して、10 ms の光照射の前半部でスペクトルを測定する方が、分析精度の点で望ましいことが分かった。

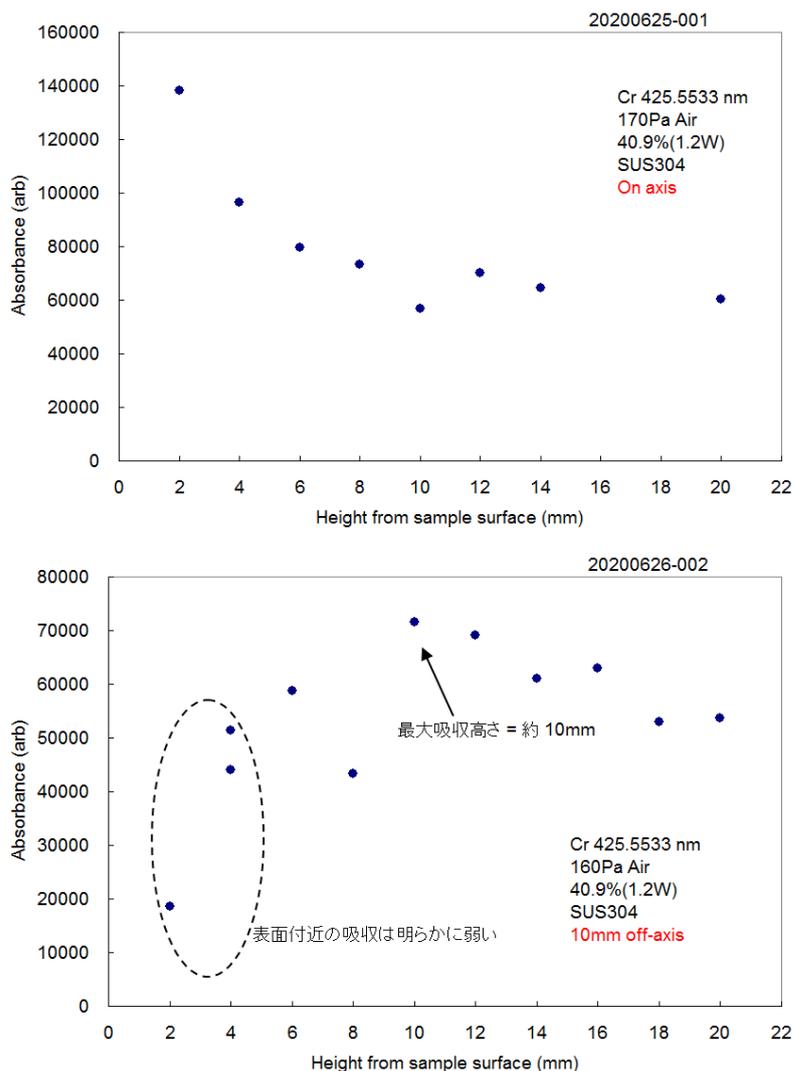


図 3.3.2-16 クロム原子による吸収量の高さ分布 180 Pa-Air  
(上) 同軸上 (下) 軸はずし

以上の結果から、QCW ファイバーレーザーの 10 ms 以上の光照射で生じるアブレーションプラームでも中性原子は存在しており、微粒子を原子化させることなく、共鳴吸収分光が可能であることが分かった。ただし、元素による化学反応性の違いから、酸化の起こり易いガドリニ

ウムでは、観測タイミングが早い方が有利であること、クロムやカルシウムでは、高い波長分解能を得るためには 10 ms の光照射後が有利であることが分かった。観測する試料からの高さは、高さによる密度変化の少ない 10-20 mm が安定な信号を得るには適しているが、高い感度を求める場合は、試料表面付近が適していることが分かった。さらに、微粒子の再原子化については、YAG レーザーで生成されたプルーム中の微粒子では、強いパルスレーザーによるフラグメンテーションで微粒子を原子化させることができ、分解能や感度の悪化もなく共鳴吸収スペクトルが測定可能であることが分かった。一方、ファイバーレーザーによるヒューム中の微粒子では、再原子化の信号が認められず、照射パルス長によって生じる微粒子に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。

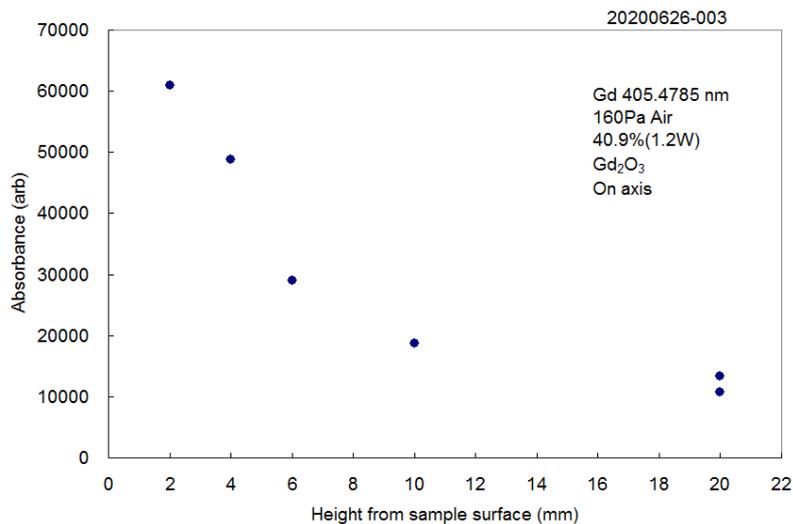


図 3.3.2-17 ガドリニウム原子による吸収量の高さ分布 180 Pa-Air 同軸上

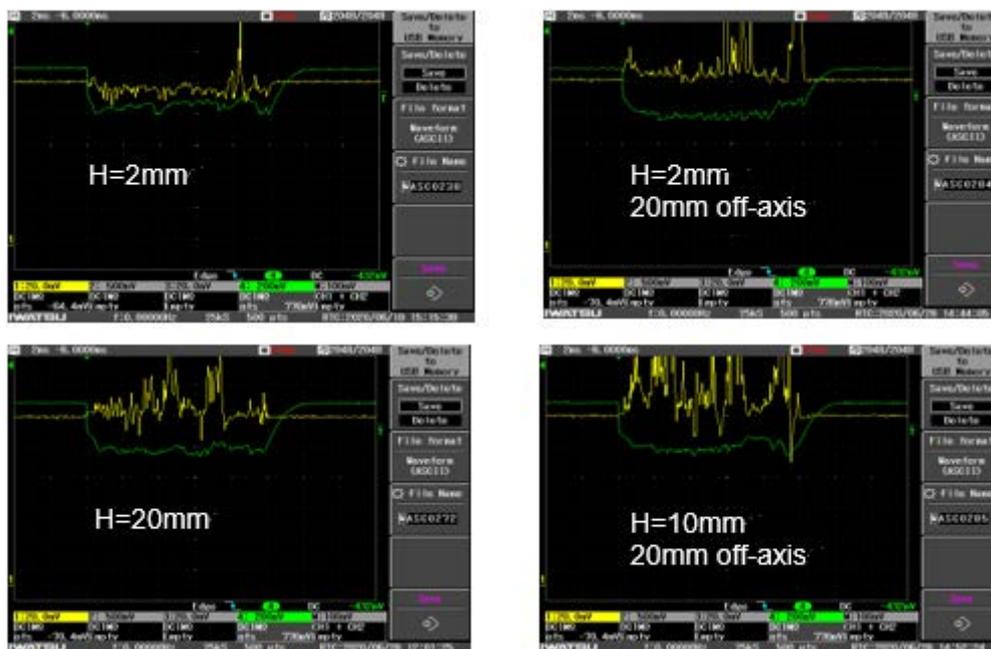


図 3.3.2-18 非共鳴プローブ光の微粒子による光散乱

以上のように、3.3節においては、3.3.1核種同定手法の開発、および、3.3.2原子化手法の開発を通して、アブレーション共鳴吸収分光を、YAGレーザー光やファイバーレーザー光の照射で生じたアブレーションルーム中の原子に対して適用するとともに、ルーム中の微粒子を光フラグメンテーションして再原子化したものにも適用し、同位体選択性の指標となるスペクトル線幅や吸収信号強度から、良好な同位体選択性や感度の得られる実験条件を明らかにした。また、検出下限などの分析性能の評価を通じて、その核種分析への適用性を評価した。さらに、吸収量の高さ方向分布などから、これまで、殆ど知られていなかった、空気中のアブレーションルーム内部の中性原子分布の知見が得られ、原子から微粒子への成長プロセスを考察する上で重要な基礎データが得られた。

今後は、レーザー加工で実際に生じるヒュームに本分析法を適用し、レーザー加工環境下でも吸収分光が可能かどうか、特に、滞留するヒュームや溶融池から飛び散る大径微粒子による乱反射等でノイズ等が発生しないかどうかの確認が必要である。また、光フラグメンテーションの起こり易さに粒径依存性や元素依存性が無いかどうかを調べることも必要となる。

#### 参考文献

- [3.3-1] Kurucz, R. L. and Bell, B., Atomic Line Data, Kurucz CD-ROM, No.23, 1995, Smithsonian Astrophysical Observatory.
- [3.3-2] National Institute of Standards and Technology, NIST Atomic Spectra Database Lines Form, [https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines\\_form.html](https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html) (参照:2021年9月30日)。
- [3.3-3] Maul, J., Karpuk, S. and Huber, G., Bimodal Velocity Distribution of Atoms Released from Nanosecond Ultraviolet Laser Ablation, Phys. Rev. B, Vol.71, 2005, 045428, pp.1-5.
- [3.3-4] 宮部昌文, 大場正規, 加藤政明, 若井田育夫, 渡部和男, 難分析長寿命核種分析のための波長安定化レーザーの開発(3) コンピューターによる波長安定化システムの制御, JAERI-Tech 2005-043, 2005, 27p.
- [3.3-5] Miyabe, M., Oba, M., Jung, K., Iimura, H., Akaoka, K., Kato, M., Otobe, H., Khumaeni, A. and Wakaida, I., Laser Ablation Absorption Spectroscopy for Isotopic Analysis of Plutonium: Spectroscopic Properties and Analytical Performance, Spectrochim. Acta B, Vol.134, 2017, pp.42-51.

## 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【平成30～令和2年度】

## 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）

はじめに

令和元年度に開発した微粒子等の影絵を得るレーザー照明法を採用し、金属、セラミックス、コンクリートのQCWファイバーレーザー照射部およびその周辺から噴出した微粒子およびそれぞれの物質の照射痕の画像データを観察・記録し、相互作用に関する評価、解析をまとめ、それぞれの物質の特徴を明らかにし[3.4-1]、総合評価を行った（令和2年度実施）。

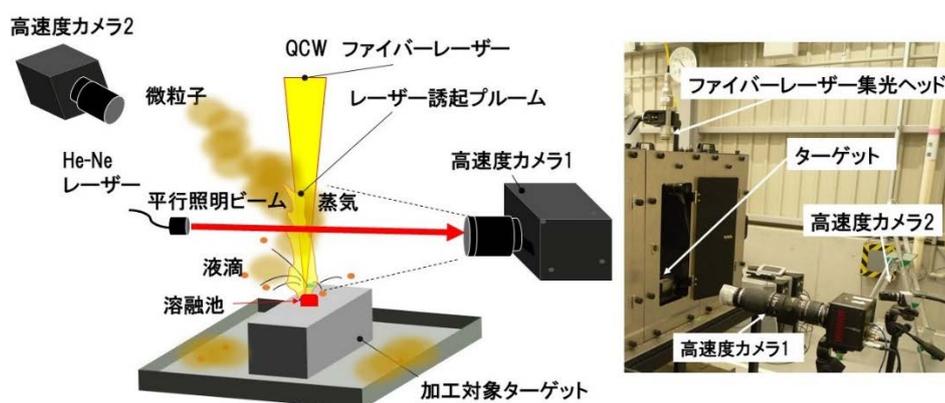


図 3.4.1-1 QCW レーザー照射実験配置（左）写真（右）

## 実験配置

JAEA 楢葉遠隔技術開発センターに設置されている高出力 QCW ファイバーレーザー光（IPG Photonics Corporation 社製 波長 1.07  $\mu\text{m}$ 、YLR-300/3000-QCW-MM-AC）を各種サンプルに集光照射した。図 3.4.1-1 にレーザーをターゲットに照射したときの様子と相互作用のダイナミクス観察するための 2 台の高速度カメラの配置と高速度カメラを配置した実験の写真を示す。高速度カメラ 1、2 には迷光を防ぎ、画質の向上を図るため中心波長 633 nm、それぞれ波長幅 10 nm と 6 nm のバンドパスフィルターが取り付けられた。図 3.4.1-2 にレーザー照射部とその周辺から飛散する微粒子を捕集するためのカスケードインパクターと捕集カバーの配置を示す。捕集カバーの内面に捕集用シートを取り付け、微粒子を捕集し顕微鏡観察に供する。レーザー照射金属ターゲットとしてステンレス鋼（SUS304）、セラミックターゲットとしてアルミナ、ジルコニア、酸化ガドリニウム、さらに混合物ターゲットとしてコンクリートを用いた。図 3.4.1-3 にターゲットの写真を示す。ステンレス鋼は金属光沢をしており、レーザーが表面で自由電子と相互作用して反射および吸収を受ける。セラミックスは白色または白色に近い色をしており、特定の可視光スペクトルに強い吸収がなく、可視光が透過しつつそのスペクトル全域にわたりほぼ一様に反射、散乱を受けていることが分かる。また厚さ 15 mm のターゲットを可視光に透かすと、わずかに透過・散乱した光が見える。したがって可視光に近い波長（波長 1.07  $\mu\text{m}$ ）であるファイバーレーザーは部分的にターゲット内部に集光したまま侵入してエネルギーを比較的長い領域に与え、そこで加熱が起こると考えられる。以上の問題意識の下、相互作用を観察する実験に際しては、同センターに設置されている高速度カメラ（株式会

社フォトン製)を2台使い、図3.4.1-1に示す実験配置で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。

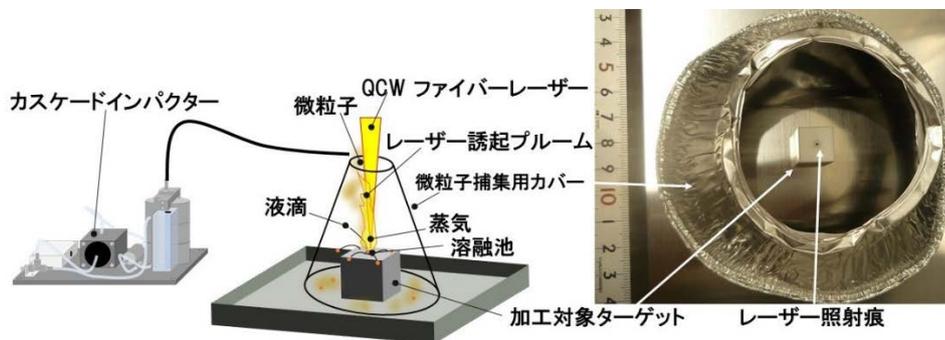


図3.4.1-2 微粒子捕集用カスケードインパクターおよびレーザー照射部を囲むように配置された円錐台形状の微粒子捕集用カバー（黒枠で表示）（左）実験配置写真（右）

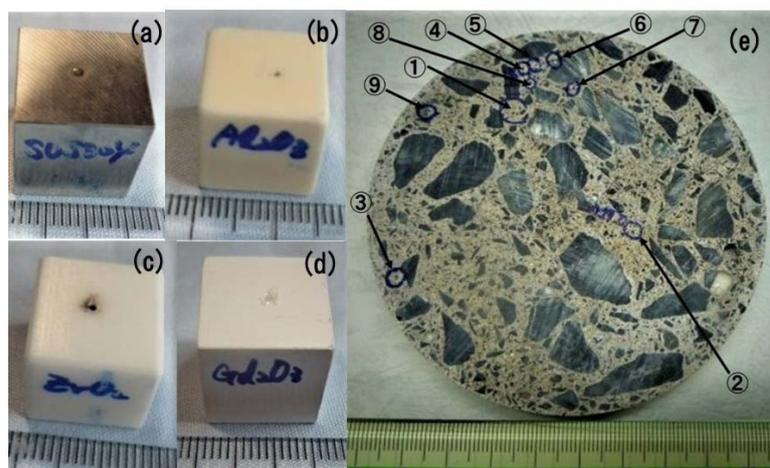


図3.4.1-3 実験に用いたターゲット

(a)ステンレス鋼、(b)アルミナ、(c)ジルコニア、(d)酸化ガドリニウム、  
(a)～(d)までは一辺15 mmの立方体、(e)コンクリート 直径100 mm、厚さ20 mm

#### 飛散粒子の観察（令和2年度実施）

図3.4.1-1に示すように、波長633 nm スペクトル幅 $10^{-3}$  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。また高速度カメラの絞り値(F値)は最大に設定し、He-Neレーザー照明光による影絵が支配的になるようにした。ステンレス鋼、アルミナ、コンクリートターゲットへ向けレーザー照射中の影絵動画の典型的なスナップショットを図3.4.1-4、図3.4.1-7、図3.4.1-10に示す。QCWファイバーレーザーは各種ターゲットに向けて図中上から下に向けて照射される。レーザーパワーは2.7 kW、パルス照射時間は10 msである。図3.4.1-4(a)～(d)のステンレス鋼の像(黒色部分)では、黒色の盛り上がった部分や、それが破れて塊(Ejected Particle)になって飛散しているところが写っている。この溶融部の周囲に黒線で

囲んだ微粒子の集団が煙状に写っている。これらは溶融部の塊がレーザー照射部から外れたときや、レーザー照射直後の冷却時に発生していると考えられる。飛散する微粒子等の影絵に対応した飛散する微粒子等の発光（プルーム）の同時撮影の結果を図 3. 4. 1-4(e)～(h)に示す。図 3. 4. 1-4(d)と(h)は QCW ファイバーレーザー照射終了後 1 ms (11 ms) の画像である。

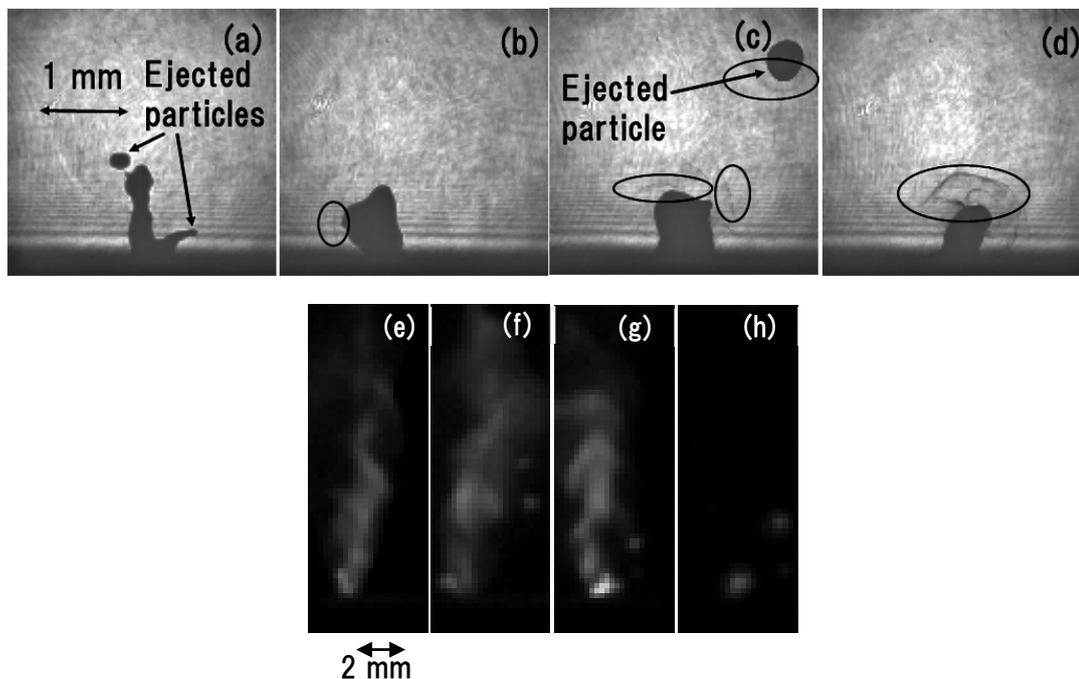


図 3. 4. 1-4 高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のステンレスターゲットのスナップショット。ファイバーレーザー照射開始後、  
 (a) 1 ms、(b) 5 ms、(c) 10 ms、(d) 11 ms  
 (e)～(h)は(a)～(d)と同時刻の自発光像[3. 4-1]

図 3. 4. 1-5 に図 3. 4. 1-2 の配置で捕集したステンレス鋼微粒子等の SEM 写真（SEM 像）を示す。図 3. 4. 1-5(a)は粒径数  $\mu\text{m}$ ～数十  $\mu\text{m}$  の粒子、図 3. 4. 1-5(b)は粒径  $\ll 1 \mu\text{m}$  の微粒子を示す。図 3. 4. 1-6(a)に分析した場所の SEM 像、(b)、(c)は EDX による捕集した粒子の元素分析結果を示す。

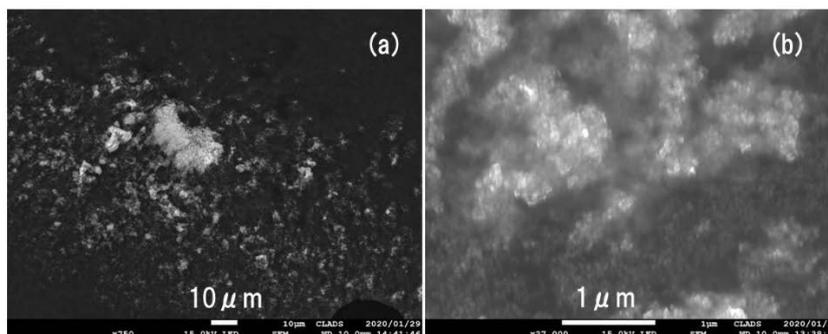


図 3. 4. 1-5 SEM で観察したステンレス鋼の微粒子[3. 4-1]

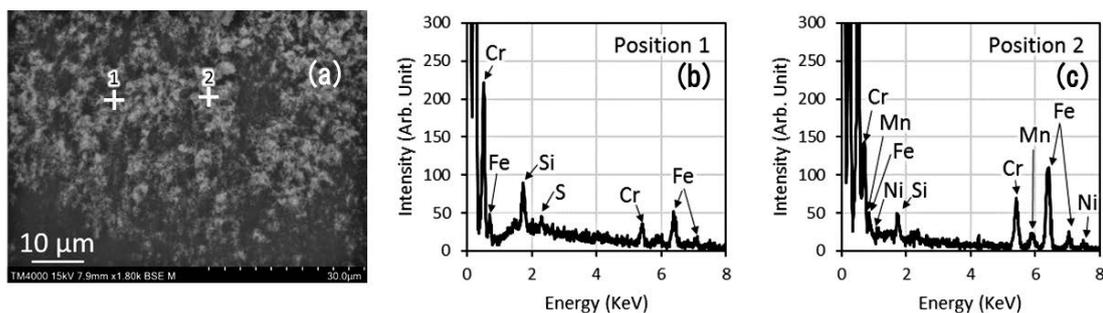


図 3. 4. 1-6 EDX による元素分析の結果[3. 4-1]

図 3. 4. 1-7(a)～(d)のアルミナの影絵では溶融部の噴出、および黒く写っている多くの破片の噴出が観察された。この溶融部の周囲に微粒子の集団が煙状に写っている。これらはステンレス鋼と同様に溶融部の塊が冷却時に発生していると考えられる。影絵に対応した微粒子等の発光（ブルーム）の同時撮影の結果を図 3. 4. 1-7(e)～(h)に示す。

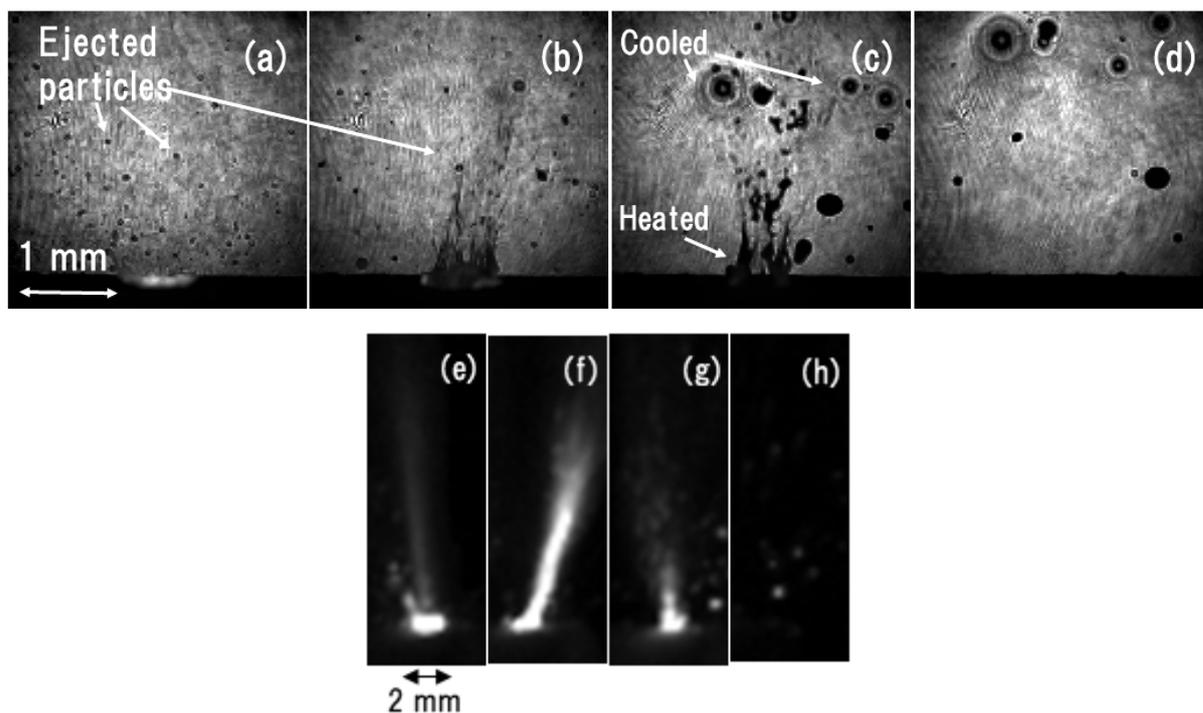


図 3. 4. 1-7 高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のアルミナターゲットのスナップショット  
ファイバーレーザー照射開始後  
(a) 1 ms、(b) 5 ms、(c) 10 ms、(d) 11 ms、  
(e)～(h)は(a)～(d)と同時刻の自発光像[3. 4-1]

図 3.4.1-8 に図 3.4.1-2 の配置で捕集したアルミナ微粒子等の SEM 像を示す。図 3.4.1-8(a) は粒径数十  $\mu\text{m}$  ～数 mm の粒子、図 3.4.1-8(b) は粒径数  $\mu\text{m}$  の微粒子。図 3.4.1-9(a) は分析した場所の SEM 像、(b)、(c) は EDX による捕集した粒子の元素分析結果を示す。

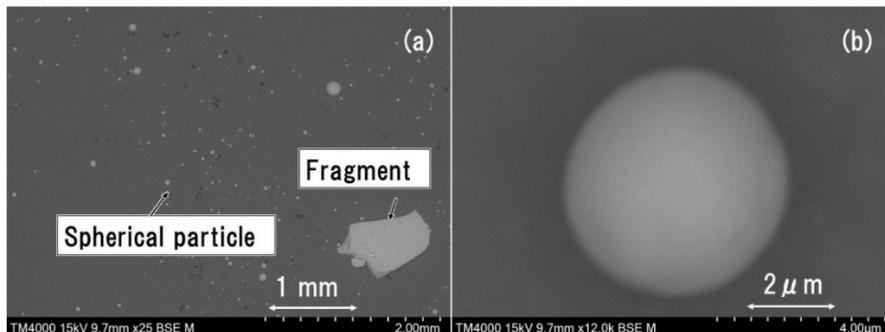


図 3.4.1-8 電子顕微鏡で観察したアルミナの微粒子  
 (a) 粒径数十  $\mu\text{m}$  ～数 mm の粒子、  
 (b) 粒径数  $\mu\text{m}$  の微粒子[3.4-1]

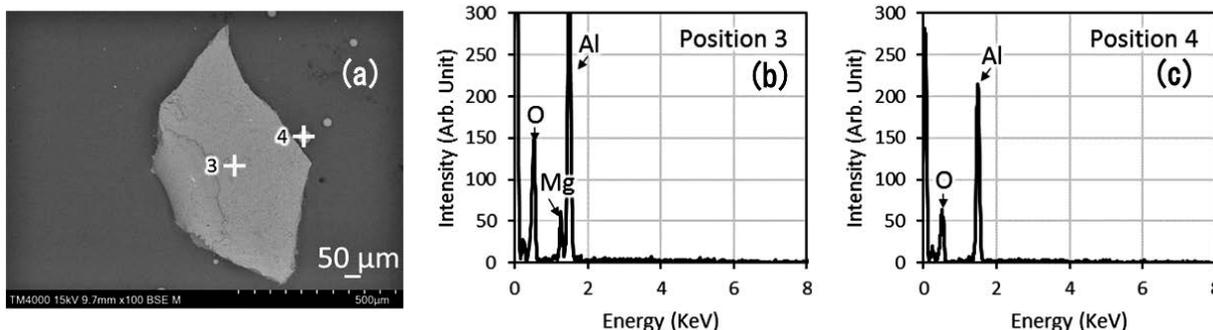


図 3.4.1-9 EDX による飛散した粒子の元素分析[3.4-1]

図 3.4.1-10(a)～(d) のコンクリートの影絵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。この溶融部の周囲に微粒子の集団が煙状に写っている。これらは溶融部の塊がレーザー照射部から外れたときや、レーザー照射直後の冷却時に発生していると考えられる。飛散する微粒子等の影絵に対応した飛散する微粒子等の発光（プルーム）の同時撮影の結果を図 3.4.1-10(e)～(h) に示す。コンクリートはセメントペースト、混和剤、細骨材、粗骨材、水分等の混合物であり、各物質は異なった熱的、機械的性質を有する。また熱による分解、気化等が起こり相互作用は複雑になる。まず数百 $^{\circ}\text{C}$ で水が蒸発し、500  $^{\circ}\text{C}$ を超えると分解などが起こり[3.4-2][3.4-3]、機械的性質も大きく変化する。高温の蒸気に加え、溶融物や破片が飛散していることが観察された。

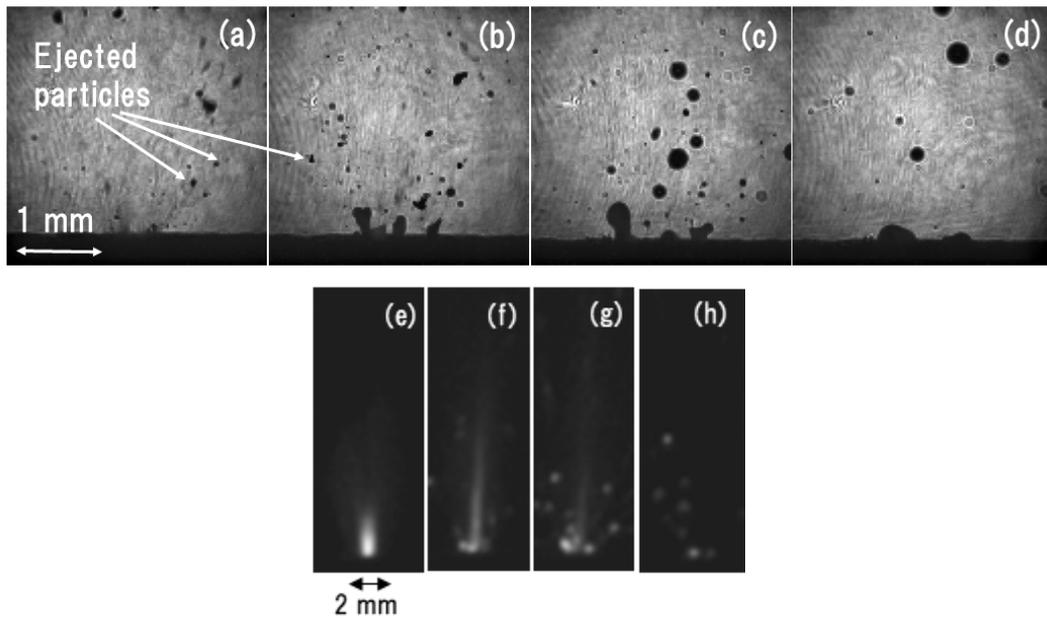


図 3.4.1-10 高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のコンクリートターゲットのスナップショット  
 ファイバーレーザー照射開始後  
 (a) 1 ms、(b) 5 ms、(c) 10 ms、(d) 11 ms、  
 (e) ~ (h) は (a) ~ (d) と同じ時刻の自発光像  
 QCW レーザーのパワー 2.7 kW、パルス幅 10 ms [3.4-1]

図 3.4.1-11 に図 3.4.1-2 の配置で捕集したコンクリートの微粒子等の SEM 像を示す。図 3.4.1-11 (a) は粒径数  $\mu\text{m}$  ~ 数十  $\mu\text{m}$  の粒子、図 3.4.1-11 (b) は粒径数十  $\mu\text{m}$  の回転楕円体形状の微粒子を示す。図 3.4.1-12 (a) に分析した場所の SEM 像、(b)、(c) は EDX による捕集した粒子の元素分析結果を示す。

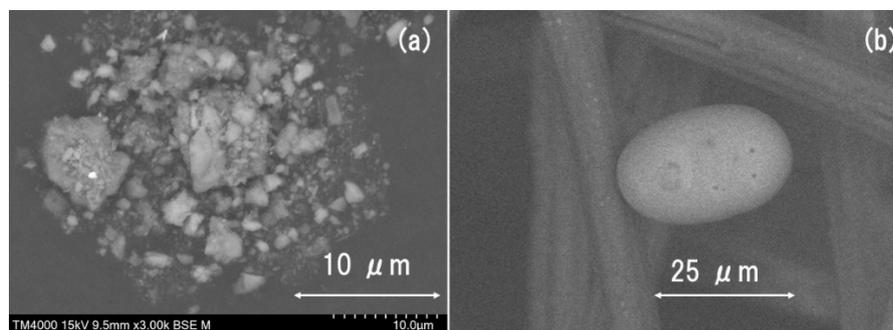


図 3.4.1-11 電子顕微鏡で観察したコンクリートの微粒子  
 (a) 粒径数  $\mu\text{m}$  ~ 数十  $\mu\text{m}$  の粒子、  
 (b) 粒径数十  $\mu\text{m}$  の微粒子 [3.4-1]

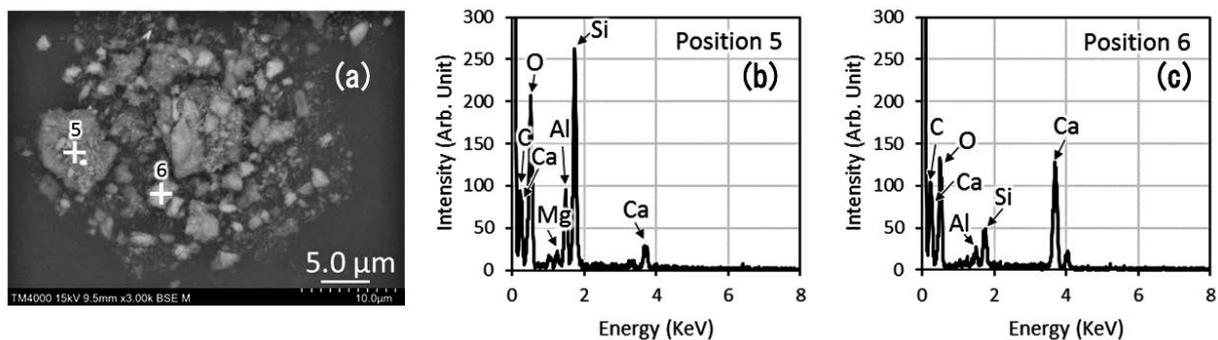


図 3. 4. 1-12 EDX による飛散した粒子の元素分析結果[3. 4-1]

図 3. 4. 1-13(a)、(b)はそれぞれジルコニアと酸化ガドリニウムターゲットに向け QCW ファイバーレーザー照射開始後 2~3 ms の時のスナップショットである。図 3. 4. 1-13(a)のジルコニアでは、レーザー照射開始後 3~4 ms までは図中上下の帯状に写っている白色の発光と黒色に写っている照射部付近の溶融物と破砕片の影絵が観察された。レーザー照射の後半では白い帯状の発光が消え、溶融物の飛散を示す影絵が観察された。図 3. 4. 1-13(b)の酸化ガドリニウムではジルコニアと同様なダイナミクスが観察された。また図 3. 4. 1-14 に図 3. 4. 1-2 に示した捕集装置で得た粒子の SEM 画像を示す。ここでは直径数  $\mu\text{m}$  数百  $\mu\text{m}$  の球状の粒子が捕集されていることが分かった。これは溶融部が蒸気の反動圧力により細かく分離し、飛散する間に表面エネルギーを最小化するように球状になっていると考えられる。レーザー照射部を覆うように取り付けられた捕集用カバーに一樣に捕集されている。一方、大きさ 1  $\mu\text{m}$  以下の成分はこのカバーでは見つけるのが困難であったが、カスケードインパクトを用いた捕集板で観察されている。レーザー照射痕の噴出質量および照射痕の穴径測定、穴の深さの測定により酸化ガドリニウムではジルコニアの数倍の質量が噴出していることが分かった。

照射部やプルームの温度の評価により電離度温度約 5000  $^{\circ}\text{C}$ 、電離はほとんどしておらず中性原子が支配的であるとの結果が得られた[3. 4-1]。

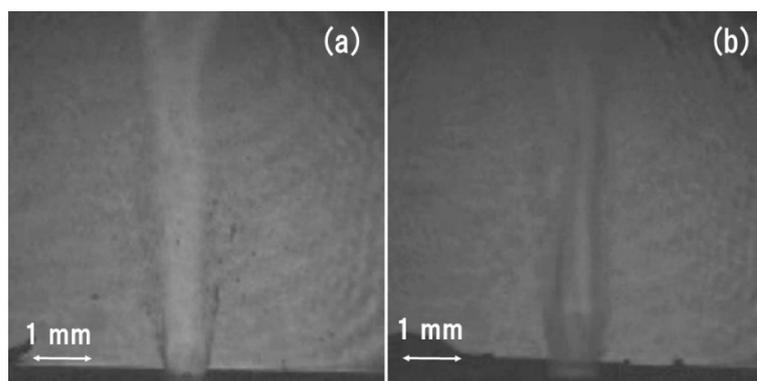


図 3. 4. 1-13 高速度カメラで撮影した波長 633 nm の単色照明影絵のレーザー照射中のスナップショット  
(a)ジルコニア、(b)酸化ガドリニウム、  
QCW レーザーのパワー 2.7 kW、パルス幅 10 ms

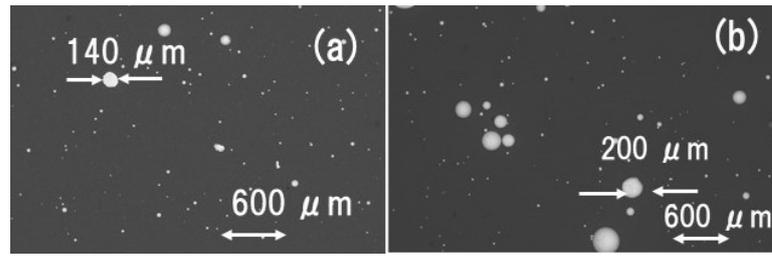


図 3.4.1-14 (a)ジルコニア、  
(b)酸化ガドリニウムターゲットから飛散した球状粒子の SEM 像

照射痕の観察（令和 2 年度実施）

レーザー相互作用と飛散粒子の関係を調べるため、ここではファイバーレーザー照射の結果生じる、照射部の穴の直径、深さ、形状、質量の測定法について紹介する。図 3.4.1-15 に照射痕の断面形状が非破壊で行えるデジタルマイクロスコープを示す。結果の一例を図 3.4.1-16 に示す。図中(b)、(d)は上に凸の断面図になっており、穴でなく表面が盛り上がった状態で固化したことを示している。



図 3.4.1-15 デジタルマイクロスコープ（株式会社キーエンス製 VHX-5000）  
による照射痕、断面形状の測定

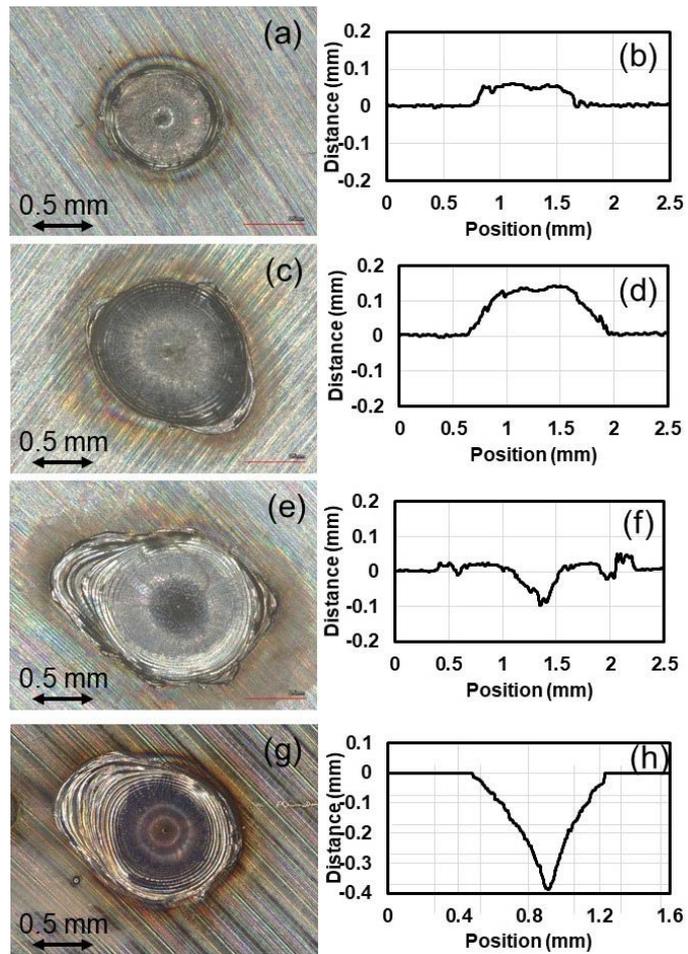


図 3.4.1-16 デジタルマイクروسコープにより観察したステンレス鋼の照射痕  
 (a)、(b)QCW ファイバーレーザーパワー0.9 kW、(c)、(d)1.8 kW、  
 (e)、(f)2.7 kW、(g)、(h)2.7 kW[3.4-1]



図 3.4.1-17 (a)USB 顕微鏡、(b)デプスゲージ、(c)電子天秤

実験後すぐに照射痕の穴径や穴周辺の様子をその場で観察するため図 3.4.1-17(a)に示すパソコンと USB 接続で動作する光学顕微鏡を導入した。図中のディスプレイ上に直径 1 mm の穴が写っている。また図 3.4.1-17(b)に示す照射痕の深さを確認するために導入したデップスゲージを示す。画面下の一边 15 mm の白いターゲットの照射痕の深さを測定するため、測定針が照射痕（穴）に入った状態である。深さが画面に表示される。図 3.4.1-17(c)にレーザー照射前後の質量測定のための電子天秤を示す。

レーザーパワー2.7 kWにおける各種ターゲット質量の損失値、照射痕の穴径と穴の深さを表 3.4.1-1 に示す。

表 3.4.1-1 各種ターゲットの照射痕

	ステンレス鋼 (SUS304)	アルミナ	ジルコニア	酸化ガドリニウム	コンクリート
質量の減少(mg)	1	0.7-0.9	2-4	7-10	
照射痕:穴の直径(mm)	1	1	1-2	1-1.5	1
照射痕:穴の深さ(mm)	0.1-0.4	1	2-3	4-6	0.5
体積から求めた質量(mg)	0.1-0.5	1-2	3-5	10	1

質量の減少はレーザー照射前後のターゲットの質量を測定して求めた値である。照射痕はその断面が図 3.4.1-16 のように円錐形、円錐台の形状をしており、穴の直径、穴の深さで特徴を表すことができる。さて、ステンレス鋼では図 3.4.1-16 に示すように QCW ファイバーレーザーパワーの低い時には図 3.4.1-16(a)～(d)に示すように溶融物の多くが照射部に留まり、内部のガスにより膨らむことがある。レーザー光強度が 2.7 kW では発生した蒸気の反動圧力により図 3.4.1-16(h)に示すように溶融物が飛散して穴があく。表 3.4.1-1 に 2 列目から 4 列目に示すセラミックターゲットはステンレスとは異なった相互作用をする。さらにセラミックスの中でもそれぞれ特徴がある。アルミナはレーザー吸収による溶融等が起こる相互作用の閾値がレーザーパワー1 kW 以上とこの中では最も高い。この閾値は酸化ガドリニウムが最も低く、数百 W である。レーザー照射前後で比較した質量の減少は閾値が低いものが最も大きく、閾値の高いものが最も低くなっている。照射痕の穴の直径と穴の深さから穴の体積を大まかに評価し、それにその物質の質量密度を乗じて質量を算出した。この値と電子天秤により測定した質量は数十%の範囲で一致するが、個々には数倍異なる場合もある。いずれにしても相互作用による質量がここで述べた様々な微粒子等として噴出する。今回の研究ではそれぞれの成分を観察し、解析を行った。次のステップとしては、これらを粒径等に分けてその量を測定することが求められる。コンクリートは混合物として特徴ある照射痕となる。減少質量の評価は水分、分解生成物などの効果があり、難しいことが分かった。照射痕は溶融、爆裂、破砕などが起こり形状はまちまちとなる。

考察（令和2年度実施）

レーザー加工により発生する微粒子は、レーザー照射ターゲットからの蒸気に由来するもの、溶融物の飛散に由来するものが知られている。これらはそれぞれクラスター生成や流体不安定性の物理に関係している。さらにセラミックターゲットでは物質内部の応力破砕に由来する粒径の大きな破砕片が観察されている。これは応力による脆性物質の破壊に関係していると考えている。実験では、これらの微粒子等が混在する結果となった。

図 3.4.1-18(a)、(b)に本研究におけるレーザーと金属、セラミックスとの相互作用の概念図を示す。レーザーエネルギーの吸収、その加熱域からの熱伝導の温度特性の違い、すなわち金属では高温で熱伝導係数は大きくなるが、セラミックスではそれが低下または一定であること、内部応力の発生とセラミックスの場合は脆性による破砕のしやすさの違いが、飛散する粒子等の違いに現れているものと考えている。照射痕の観察により、図 3.4.1-18(a)の金属ではレーザーエネルギーの吸収が表面で起こり、溶融部は一部照射部が盛り上がり、切断されて塊となって飛散する。またその一部は照射部に留まる。一方、図 3.4.1-18(b)のセラミックスではレーザーがターゲット内部に入り込み吸収が起こると考えられる。この吸収機構により、溶融や破砕した成分はレーザー吸収部から飛散し、金属に比べ深い穴が形成されることを定性的に示している。

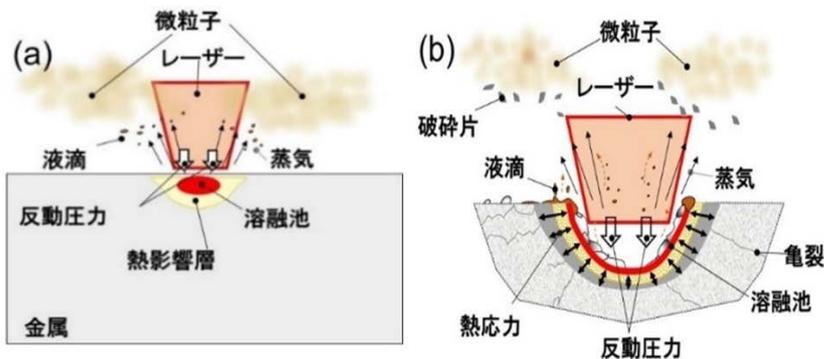


図 3.4.1-18 (a)レーザーと金属との相互作用、(b)レーザーとセラミックスの相互作用

図 3.4.1-19 のコンクリートでは分解、ガス発生、融点、沸点の異なる構成要素の混合体であり、各成分で融点、沸点、熱伝導係数、線膨張係数等が異なる。分解、蒸気生成、溶融、爆裂、破砕片の飛散などのプロセスで微粒子、溶融物（球状）、大きな破砕片も飛散する。相互作用としては複雑であり、適切なモデリングによる計算機シミュレーションを目指した研究が期待される。

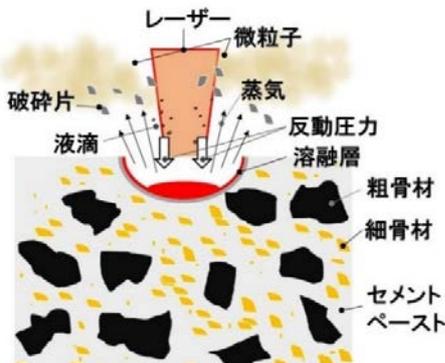


図 3.4.1-19 レーザーとコンクリートとの相互作用

## まとめ

以上、令和元年度に開発したレーザーと物質との相互作用観察手法を用い金属、セラミックス、コンクリートのQCWファイバーレーザー照射部およびその周辺から噴出した微粒子およびそれぞれの物質の照射痕の画像データを観察・記録し、相互作用に関する評価、解析をまとめ、それぞれの物質の特徴を明らかにし[3.4-1]、相互作用に関する総合評価を行った（令和2年度）。

レーザー加工を用いると照射部に高いパワーを小さい領域に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。一方で高いエネルギー集中度は照射部の温度を高め、蒸発、沸騰により大量の蒸気を生じる。ここで述べてきたように、この蒸気からナノメートルのサイズの微粒子が発生する[3.4-4]。このような微粒子の捕集に用いられるHEPAフィルターによる捕集を考えると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、数十  $\mu\text{m}$ ～数  $\text{mm}$ に及ぶ比較的大きいサイズの粒子の飛散制御も安全で効率のよい回収に向けた研究課題である。今回の研究ではそれぞれの大きさの成分を観察し、解析を行ったが、次のステップとしては、これらを粒径等に分けてそれぞれの量を測定することが求められる。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し、まとめることは、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技術へ資することに留まらず、産業用レーザー加工技術やレーザー相互作用に関する物理の高度化にも資する課題である。

## 参考文献

- [3.4-1] Daido, H., Yamada, T., Ito, C., Miyabe, M., Shibata, T., Furukawa, H. and Hasegawa, S., Generation of Particles and Fragments by Quasicontinuous Wave Fiber Laser Irradiation of Stainless Steel, Alumina, and Concrete Materials, *J. Laser Appl.*, Vol.33, 2021, 012001, pp.1-16.
- [3.4-2] Yamada, T., Daido H. and Shibata, T., Development of a Laser-driven Ultrasonic Technology for Characterizations of Heated and Aged Concrete Samples, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.59, 2022, pp.614-628.  
<https://doi.org/10.1080/00223131.2021.1996295>.
- [3.4-3] Long, N. P., Daido, H., Yamada, T., Nishimura, A., Hasegawa, N. and Kawachi, T., Experimental Characterization of Concrete Removal by High-power Quasicontinuous Wave Fiber Laser Irradiation, *J. Laser Appl.*, Vol.29, 2017, 041501, pp.1-11.
- [3.4-4] 高橋幹二著, 日本エアロゾル学会編, エアロゾル学の基礎, 森北出版, 2003, 240p.

### 3.5 研究推進【平成30～令和2年度】

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

平成30年度

#### ●成果発表

- ・長谷川秀一（座長）、企画セッション|総合講演・報告|総合講演・報告1 東京大学弥生研究会  
—原子・分子の分光分析技術とその応用— レーザーの特長を利用した研究開発Ⅲ  
藤井隆、レーザー誘起ブレイクダウン分光を用いた電力設備診断技術、古河裕之、レーザー  
加工時に発生するエアロゾルに関する理論的解析  
富田英生、レーザー共鳴イオン化および吸収分光と用いた微量放射性核種分析法の開発  
日本原子力学会2019年春の年会、2019年3月

#### ●全体会議

【期間】2019年1月15日～2019年1月18日

【場所】JAEA 檜葉遠隔技術開発センター

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

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

【期間】2019年1月28日

【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
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：伊藤主税、山田知典

【用務内容・成果】

英知事業の進捗および今後の研究計画に関して関係者と打合せを行った。進捗としては、平成30年度は研究計画通り進めることができ、問題ないことが確認できた。また、今後の研究計画としては、2月、3月に予定している実験日程や機器移設および調整作業の日程を確認するとともに、令和3年度以降の研究計画について確認を行った。

【期間】2019年2月7日

【場所】JAEA 大洗研究所

【出席者】

- ・JAEA：伊藤主税、山田知典

**【用務内容・成果】**

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

**【期間】** 2019年2月8日

**【場所】** JAEA 大洗研究所

**【出席者】**

- ・ JAEA：伊藤主税、山田知典

**【用務内容・成果】**

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

**【期間】** 2019年2月18日～2019年2月22日

**【場所】** JAEA 大洗研究所、JAEA 檜葉遠隔技術開発センター

**【出席者】**

- ・ 東京大学：長谷川秀一
- ・ レーザー総研：大道博行
- ・ JAEA：伊藤主税、山田知典

**【用務内容・成果】**

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

**【期間】** 2019年3月4日～2019年3月8日

**【場所】** JAEA 檜葉遠隔技術開発センター

**【出席者】**

- ・ 東京大学：長谷川秀一
- ・ レーザー総研：大道博行
- ・ JAEA：伊藤主税、山田知典

**【用務内容・成果】**

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

**【期間】** 2019年3月22日

**【場所】** 東京大学原子力専攻（東海村）

**【出席者】**

- ・ 東京大学：長谷川秀一
- ・ レーザー総研：大道博行
- ・ JAEA：宮部昌文、伊藤主税、山田知典

## 【用務内容・成果】

英知事業において、平成 30 年度のまとめとして各テーマの進捗と令和 3 年度以降の計画について打合せを行った。進捗状況については問題がなく計画通り進めることができていることから、成果報告書にまとめて提出することとし、令和 3 年度以降も研究計画の通り進めることとした。

### 令和元年度

#### ●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) 全体計画および分光分析法の検討、日本原子力学会 2019 年秋の大会、2019 年 9 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、2019 年 9 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、2019 年 9 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、2019 年 9 月
- ・長谷川秀一 (座長)、企画セッション|総合講演・報告|総合講演・報告 1 東京大学弥生研究会—原子・分子の分光分析技術とその応用— レーザーの特長を利用した研究開発Ⅳ  
藤田和久、kW 級 CW レーザーを用いた表面クリーニング技術の開発と除染適用の試み  
大場弘則、過酷環境下での遠隔レーザー分析技術  
田村浩司、レーザー法による原子炉厚板鋼材切断技術の開発  
日本原子力学会 2019 年秋の大会、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
- ・長谷川秀一 (座長)、企画セッション|総合講演・報告|総合講演・報告 4 「東京大学弥生研究会」—原子・分子の分光分析技術とその応用— レーザーの特長を利用した研究開発Ⅴ  
山田知典、レーザー誘起超音波によるコンクリート構造物の健全性評価  
佐野雄二、超小型パルスレーザーの開発とインフラ予防保全への展開  
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

【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
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：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ないことが確認でき、JAEA 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

**【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
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：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、研究の進捗に問題な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

**【場所】** JAEA 檜葉遠隔技術開発センター

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：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

**【場所】** TV会議 (Skype)

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：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。

令和2年度

●成果発表

- Daido, H., Yamada, T., Ito, T., Miyabe, M., Shibata, T., Furukawa, H. and Hasegawa, S., Production of Fine Particles and Fragments Emitted from Laser Ceramic and Concrete Interactions, Laser Solution for Space and the Earth 2020, 2020年4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 (3) (1) レーザー照射により発生する微粒子の飛散挙動の評価、日本原子力学会 2020年秋の大会、2020年9月
- 大道博行、山田知典、伊藤主税、宮部昌文、柴田卓弥、古川裕之、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 (3) (2) 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 の考察、日本原子力学会 2020年秋の大会、2020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、Stephen Wells、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) (1) レーザー照射ジルコニアにおける微粒子発生過程大、日本原子力学会 2021年春の年会、2021年3月
- 宮部昌文、山田知典、柴田卓弥、伊藤主税、大道博行、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) (2) 高分解能遠隔核種分析法の開発、日本原子力学会 2021年春の年会、2021年3月
- 丸山友輔、ウェルズ スティーブズ、渡辺悠介、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 (4) (3) 微粒子核種分析のための分光分析システムにおける試料導入部の開発、日本原子力学会 2021年春の年会、2021年3月
- Wells, S. R., Maruyama, Y., Watanabe, Y., Daido, H., Yamada, T., Ito, T., Miyabe, M., Shibata, T. and Hasegawa, S., Analysis of Particles Generated by Laser Processing and Development of their Nuclide Identification Methodology (4) (4) Progress in a Spectroscopic Technique of Laser Based Analysis and Nuclide Identification of Fine Particle Debris, 日本原子力学会 2021年春の年会、2021年3月
- Daido, H., Yamada, T., Ito, T., Miyabe, M., Shibata, T., Furukawa, H., Wells, S. R. and Hasegawa, S., High Power Laser Generated Fine Particles in a Laser Processing, Laser Solution for Space and the Earth 2021, 2021年4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、井上薫、寺林稜平、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 (5) (1) 金属、セラミックス、コンクリートにおける微粒子発生の特徴、日本原子力学会 2021年秋の大会、2021年9月
- 丸山友輔、寺林稜平、井上薫、宮部昌文、大道博行、山田知典、伊藤主税、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 (5) (2) グロー放電を利用した微粒子試料の分光分析システムの開発、日本原子力学会 2021年秋の大会、2021年9月

●全体会議

【期間】 2020年5月28日

【場所】 オンライン

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、伊藤主税
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

【用務内容・成果】

令和2年度の研究計画について各担当の確認を行った。また、新型コロナウイルス対策を含む安全対策についても同時に確認することとした。

【期間】 2020年7月15日

【場所】 オンライン

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、伊藤主税、柴田卓弥
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

【用務内容・成果】

7月16日の公益財団法人原子力安全研究協会検査（9:45～12:00）については、提出した整合性確認表を基に長谷川が説明を行うことを確認した。JAEA 檜葉遠隔技術開発センターの実験の時期について確認を行った。レーザー吸収実験についての進捗の報告があった。

【期間】 2020年11月18日

【場所】 オンライン

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一、Wells, Stephen Robert
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、伊藤主税
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

【用務内容・成果】

JAEA 檜葉遠隔技術開発センターでの実験報告が行われた。公益財団法人原子力安全研究協会への提出書類について確認が行われた。JAEA 檜葉遠隔技術開発センターの質量分析装置の状況について議論した。日本原子力学会での発表について議論があった。

【期間】 2020年12月16日

【場所】 オンライン

【出席者】

- ・東京大学：長谷川秀一、Wells, Stephen Robert
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：伊藤主税 ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

JAEA 櫛葉遠隔技術開発センター実験の状況について報告・確認が行われた。各担当者からの状況報告が行われた。日本原子力学会発表について登録者の確認を行った。

**【期間】** 2021年1月13日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、井上薫
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文

**【用務内容・成果】**

JAEA 櫛葉遠隔技術開発センター実験について状況報告があった。レーザー機器の使用状況について報告があった。国際会議招待講演の内容について議論された。

**【期間】** 2021年2月8日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、Wells, Stephen Robert、井上薫
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、伊藤主税
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

新型コロナウイルスによる延長可能性について議論した。手続きについてもあわせて確認を行うこととした。JAEA 櫛葉遠隔技術開発センター受け入れの状況について報告があった。JAEA 櫛葉遠隔技術開発センターでの実験報告がなされ、2、3月の各所の実験予定スケジュールについても議論された。プログラムオフィサー（PO）中間フォローについてのスケジュールを確認した。

**【期間】** 2021年3月12日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、井上薫
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、柴田卓弥
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

中間フォローについて報告がなされた。今後の実験スケジュールと課題について詳細に議論された。

**【期間】** 2021年5月14日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、井上薫、寺林稜平
- ・レーザー総研：大道博行・JAEA：宮部昌文、伊藤主税
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

JAEA 檜葉遠隔技術開発センター・JAEA CLADS 富岡での実験状況について報告された。これと対応した JAEA での実験について議論した。

**【期間】** 2021 年 6 月 30 日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、井上薫、寺林稜平
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文、伊藤主税
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

JAEA 檜葉遠隔技術開発センター実験状況について報告があった。JAEA・東大でのレーザー実験について報告があった。JAEA 敦賀総合研究開発センターでの実験準備について報告があった。

**【期間】** 2021 年 7 月 29 日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、寺林稜平
- ・レーザー総研：大道博行
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

JAEA 敦賀総合研究開発センター実験結果について報告があり、議論された。JAEA での実験結果について報告があり、議論された。

**【期間】** 2021 年 9 月 28 日

**【場所】** オンライン

**【出席者】**

- ・東京大学：長谷川秀一、井上薫、寺林稜平
- ・レーザー総研：大道博行
- ・JAEA：宮部昌文
- ・若狭湾エネルギー研究センター：山田知典

**【用務内容・成果】**

JAEA 敦賀総合研究開発センター実験結果を踏まえて、その成果の報告がなされ、議論された。各所の結果について報告があり、議論された。

#### 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。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

令和元年度の結果を踏まえ、微粒子粒径分布に対するレーザー加工パラメータ依存性を実験により検討した。レーザー出力に着目して依存性を検討した結果、レーザー出力が増加すると微粒子の個数が急激に増加することが確認できた。さらに、レーザー出力により粒径分布が異なっていることが確認できた。微粒子粒径分布がレーザー加工パラメータに依存して変化するという結果は、微粒子を回収し易い大きさに制御できる可能性があることを示唆している。以上は、燃料デブリ切断時に発生する $\alpha$ ダストの回収方法や対策の考案に資するものである。

###### ② 照射試験および微粒子発生挙動評価（連携先：JAEA）

令和元年度の結果を踏まえ、デブリ模擬体（金属、セラミックス）、コンクリートを用いてレーザー照射パラメータと微粒子の発生挙動との関係の評価を行った。レーザー照射パラメータとしてレーザー出力に着目してレーザー照射を行い、その様子を高速度カメラと照明を用いて影絵撮影することで、レーザー誘起プラズマ等の発光を除外してレーザー照射部を中心に飛散する微粒子の挙動を鮮明に捉えることに成功した。その結果、レーザー照射パラメータが同じであっても対象物により微粒子発生挙動に違いがあることを確認した。以上は、NDFの6課題のうち廃炉工程で発生する放射性飛散微粒子の解明に資するものである。

###### ③ 相互作用の評価・解析（再委託先：レーザー総研）

令和元年度の結果を踏まえ、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を基礎に立ち返って明らかにするため高速度カメラの画像および捕捉した微粒子等を記録し、評価および考察を行った。その結果、本研究の主要課題として挙げた粒径が $1\ \mu\text{m}$ 以下の微粒子はレーザー照射部の蒸気の凝集によるものが主であることがわかった。さらに粒径の大きいものの発生機構、レーザー照射による飛散質量についても調べた。以上はNDFの6課題のうち廃炉工程で発生する放射性飛散微粒子挙動の解明に資するものである。今後のステップとしては、金属相、セラミックス相が入り混じった混合物に相互作用の対象を広げて行くことが求められる。それぞれの相が、どのような大きさ、質量比、体積比等々になるかによって、加工現象が異なると考えられるので、実験およびデータ解析に機械学習技術などを援用しシステムチックに行うことが求められている。

##### (2) 微粒子捕集・計測

###### ① 微粒子捕集の分布評価

空力学レンズによる微粒子の粒子線への収束性能について検討した。また、レーザー加工により発生する微粒子の粒径分布の評価を行った。その結果、レーザー切断時に発生する微粒子の粒径は、蒸気の核形成から凝集を経て生成された $10^{-1}\ \mu\text{m}$ オーダーであることが強く示唆され、これは、既往研究や本研究（前述の(1)③相互作用の評価・解析）を支持する結果である。

この領域の微粒子について、空力学レンズによりビーム状に濃縮され、集積板の狭い（直径 5 mm 未満の）領域に捕集できることが実証され、狭い領域に働きかけるレーザー光を利用した元素・同位体組成の分光計測との組み合わせへの可能性を示すことができた。

#### ②微粒子捕集および微粒子の粒径分布計測（連携先：JAEA）

令和元年度に製作した微粒子を捕集・計測する装置を用いてレーザー切断時に発生する微粒子の捕集実験を行い、効率的に微粒子が粒子線に収束できるエアロゾルの導入条件や空力学レンズの最適化を行う。また、空力学レンズで生成された微粒子ビーム中の粒子の速度分布を計測し、微粒子の粒径分布評価に基づき、微粒子計測技術の最適化へフィードバックさせた。その結果、レーザー加工により発生し、大気環境に拡散された微粒子を高真空状態へ導入し、空力学レンズにより微粒子ビームを生成するプロセスを実験的に示すことができた。これより、拡散しやすく、吸引して吸着等により捕集する手法が困難な粒径領域と考えられてきたレーザー切断時に発生する微粒子を捕集する手段として、空力学レンズを用いて微粒子の濃縮ビームを生成する技術の原理が実証された。今後は、レーザー照射により生成された上記の核形成の段階まで分析するため、空力学レンズの粒径  $10^{-2}$   $\mu\text{m}$  の透過率向上について検討するとともに、レーザー分光による元素・同位体組成の分光計測との連結による微粒子捕集と核種同定のオンライン化の最適化による工学的な実証を進めていくことが重要である。

### (3)微粒子原子化・核種同定

#### ①核種同定手法の開発

レーザー加工により発生する原子に対して吸収分光を行い、核種同定手法の性能を評価した。これによりアブレーションルーム内の原子を共鳴吸収分光することで、その構成核種を同定するためのスペクトル分解能や検出感度が得られることを実証することができた。

#### ②原子化手法の開発（連携先：JAEA）

令和元年度の成果に基づき、レーザー加工時に発生する原子や微粒子を、共鳴レーザー光を照射して得られる共鳴信号により観測して、分析性能を評価するとともに、レーザー加工時の核種同定手法の適用性について評価した。これにより、レーザーアブレーションで生じる微粒子を光フラグメンテーションによって原子化できることを実証した。また疑似連続光を用いたレーザー加工で生じるヒューム中に中性原子が存在することを明らかにし、その共鳴吸収分光に適した実験条件を明らかにした。これらの結果から、レーザー切断時に発生する原子や微粒子を含むヒュームに対して共鳴吸収分光を適用することで、その構成核種が同定できることを実証した。また、本研究により得られた吸収量の時間・空間分布などの知見は、原子から微粒子への凝集過程の解明に資するものである。今後は、より実際に近いレーザー加工環境に本分析法を適用することで、共鳴吸収分光への影響を調べることが重要である。

### (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）

令和元年度に開発した微粒子等の影絵を得るレーザー照明法を採用し、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、レーザーと物質の相互作用に関する評価・解析をまとめ、その総合評価を行った。レーザーの高いエネルギー集中性は照射部の温度を高め、蒸発、沸騰により大量の蒸気を生じる。この蒸気からナノメートルのサイズの微粒子が発

生ずる。この過程を高速度カメラによる観察と捕集した微粒子の電子顕微鏡観察により示した。作業環境の安全性の観点から、粒径 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、移送の制御は、本研究の当初からの課題である。一方、数十  $\mu\text{m}$ ～数 mm に及ぶ比較的大きいサイズの粒子の飛散制御も安全で効率のよい回収に向けた研究課題である。以上は NDF の 6 課題のうち廃炉工程で発生する放射性飛散微粒子挙動の解明に資するものである。今回の研究ではそれぞれの大きさの成分を観察し、解析を行ったが、次のステップとしては、これらを粒径等に分けてそれぞれの量を測定することが求められる。

#### (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。

以上により、本研究で目的としていた、微粒子の発生メカニズムに直結する粒径分布などの基礎データを取得するとともに、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として、加工用レーザーで生じた微粒子を含むヒュームを空力学レンズに取り込み、粒子線に収束させて集積板に集積・捕集し、集積板やヒュームによるアブレーション共鳴吸収分光により核種分析するための装置の各要素について、その成立性を確認することができた。本研究の成果を、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に適用するためには、本研究において検証することができなかった、粒径に応じた微粒子除去技術の検討や、核種分析のための各要素をつなげた総合試験を通じて、計測装置としての性能評価や改良を図ることが必要である。

以上のように、平成 30 年度～令和 2 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.



