

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

—令和 4 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

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

-FY2022 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター
アイラボ

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

May 2024

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

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

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

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

—令和 4 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

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

アイラボ

(2023 年 10 月 11 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 4 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 (以下、「本事業」という。) を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等をはじめとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、令和 2 年度に採択された研究課題のうち、「マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦」の令和 2 年度から令和 4 年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、MW (マイクロ波) 重畳により LIBS (レーザーブレイクダウン分光) の発光強度を上げ、ウラン同位体計測に適用することを目的としている。

令和 4 年度では、半導体マイクロ発振器をさらに小型化するために冷却方式の見直しや必須としない機能の削減を行い、さらにマイクロ波アンテナにおいてはシミュレーションで得た最適化条件を LIBS 実験に適用することにより良好な結果が得られた。

同位体計測について、スペクトル調査を行い、同位体をもつウランとスペクトルが似ているジルコニウムで LIBS 測定最適化を行い、100 倍以上の増倍率が得られた。

さらに、テーブルトップ LIBS 光学系、小型化された LIBS センサー部、マイクロ波アンテナの統合とシステムの評価を行い、ステンレス (Cr 含有)・Pb・Al 等を用いて計測性の向上効果を検討したところ、材料によらずマイクロ波重畳によるシグナル強度の増大効果・SN 比向上の効果が出ることが分かった。MW 重畳有り/無しの LIBS スペクトルの差異を検討し、スペクトラムの差異、データ処理の仕様を決定し、ビーム検出精度を向上するパラメータ抽出が可能となった。ピーク検出と背景光のデータ解析ソフトウェアの構築を開始した。

最終年度である本年の最後に、目的とするウランの同位体計測を行った。マイクロ波による増強効果が得られ、マイクロ波重畳 LIBS の計測は成功した。

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

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

Challenge to Advancement of Debris Composition and Direct Isotope Measurement
by Microwave-enhanced LIBS
(Contract Research)
— FY2022 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

i-Lab., Inc.

(Received October 11, 2023)

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 FY2022.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2020, this report summarizes the research results of the “Challenge to advancement of debris composition and direct isotope measurement by microwave-enhanced LIBS” conducted from FY2020 to FY2022.

The present study aims to increase the emission intensity of LIBS (laser-induced breakdown spectroscopy) by superimposing MW (microwave) and apply it to uranium isotope measurement.

In FY2022, we improved the cooling method and reduce unnecessary functions in of the semiconductor microwave oscillator, and apply the optimized conditions obtained from simulations to the LIBS experiment for the microwave antenna gave better results.

Regarding isotope measurement, spectral investigation was conducted, and LIBS measurement was optimized for zirconium, which has a similar spectrum to uranium, which has isotopes, and a multiplication factor of 100 times or more was obtained.

Furthermore, we integrated the tabletop LIBS system, the miniaturized LIBS sensor, and the microwave antenna, and evaluated the system, We found that microwave superimposition has the effect of increasing the signal intensity and improving the SN ratio regardless of the materials, using stainless(included Cr),lead and aluminum. We investigated the difference in LIBS spectra with and without MW superimposition, determined the difference in spectrum and the specifications of data processing, and extracted parameters to improve beam detection accuracy. We started building software for peak detection and background light data analysis.

At the final year of the project, the isotope measurement of uranium was carried out. The enhancement effect by microwave was obtained, and the measurement of Microwave-enhanced LIBS was successful.

Keywords: LIBS, Microwave-enhanced, Antenna, Nuclear Fuel Debris, Isotope Measurement

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

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要	1
2. 平成 30 年度 採択課題	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
5. 令和 3 年度 採択課題	10
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
5. Accepted Proposal in FY2021.....	10
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report	15

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

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

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

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

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

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

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

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 (~R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1~)	産業技術総合 研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペダスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立GE ニュークリ ア・エナジー
アパタイトセラミックスによるALPS沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とティアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (~R2. 3. 31) 竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

4. 令和2年度 採択課題

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

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

課題数：10 課題

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

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 (～R4. 7. 31) 村上 健太 (R4. 8. 1～)	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料 研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

5. 令和3年度 採択課題

令和3年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和3年3月16日～令和3年5月17日（課題解決型）
 令和3年4月13日～令和3年7月1日（国際協力型 日英共同研究）
 令和3年7月12日～令和3年8月18日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）、2 課題（日露）

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・日露共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和3年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太郎	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (~R4. 1. 31) 三輪 修一郎 (R4. 2. 1~)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	浅間 一	東京大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

6. 令和4年度 採択課題

令和4年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和4年3月1日～令和4年5月6日（課題解決型）

令和4年4月7日～令和4年6月16日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：8 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 6 課題

国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）

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・日露共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和4年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニタの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の探求	塚原 剛彦	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和 2 年度から令和 4 年度分の研究成果を取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

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

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録
成果報告書

This is a blank page.

令和 4 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

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

(契約番号 R04I023)

成果報告書

公開版

令和 5 年 3 月

アイラボ株式会社

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、アイラボ株式会社が実施した「マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦」の令和 2 年度から令和 4 年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	viii
1. はじめに	1-1
1.1 研究開発の必要性及び研究開発目標	1-1
1.2 研究内容の革新性、独創性、新規性	1-3
1.3 研究効果及び研究の有効性、発展性、相乗効果	1-4
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.2 実施体制	2-3
2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-4
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策	3-1
3.1.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）	3-1
3.1.2 令和4年度の実施内容及び成果：評価機での試験	3-1
3.1.3 令和4年度の実施内容及び成果：小型化	3-2
3.1.4 まとめ	3-3
3.2 マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究	3-6
3.2.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）	3-6
3.2.2 令和4年度の実施内容及び成果：設計最適化のための電磁界シミュレーション	3-6
3.2.3 令和4年度の実施内容及び成果：アンテナの試作、評価	3-10
3.2.4 まとめ	3-12
3.3 SN比向上、測定精度改善に関する研究	3-13
3.3.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）	3-13
3.3.2 令和4年度の実施内容及び成果：マイクロ波発振条件の最適化	3-13
3.3.3 令和4年度の実施内容及び成果：同位体計測パラメータの抽出	3-18
3.3.4 まとめ	3-22
3.4 全体システム構築に関する研究	3-23
3.4.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）	3-23
3.4.2 令和4年度の実施内容及び成果：ハードウェア構築	3-23
3.4.3 令和4年度の実施内容及び成果：データ解析ソフトウェアの構築	3-25
3.4.4 まとめ	3-27
3.5 LIBSプローブ実装による評価研究（連携先：JAEA）	3-28
3.5.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）	3-28
3.5.2 令和4年度の実施内容及び成果	3-28
3.5.3 まとめと今後	3-37
3.6 研究推進	3-37

4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

事業代表者	アイラボ株式会社	ディレクター	池田 裕二
連携機関	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター	嘱託職員	若井田 育夫

表一覧

表 2.1-1	全体計画 (1/2)	2-1
表 2.1-1	全体計画 (2/2)	2-2
表 3.1-1	半導体マイクロ波発振装置の比較	3-2
表 3.1-2	減衰量測定結果	3-5
表 3.1-3	ケーブル長換算での伝送電力	3-5
表 3.1-4	先端形状による電界強度の違い	3-7
表 3.1-5	コイルアンテナの形状変更による電界強度の違い	3-8
表 3.1-6	とぐろアンテナと基準アンテナの比較 (1/2)	3-9
表 3.1-6	とぐろアンテナと基準アンテナの比較 (2/2)	3-10
表 3.5.2-1	「マイクロ波重畳 LIBS 実証試験の支援業務」実施工程	3-32
表 3.5.2-2	未照射 UO ₂ 焼結試料の濃縮度一覧	3-34
表 3.5.2-3	機器設定条件	3-34
表 3.5.2-4	濃縮度の評価結果	3-37

図一覧

図 1-1	炉内及び炉外での計測系の切り分け	...	1-1
図 1-2	レーザープラズマとマイクロ波重畳レーザープラズマ	...	1-2
図 1-3	マイクロ波システムの小型化	...	1-2
図 2-1	実施体制図	...	2-3
図 3. 1-1	LIBS と MW-LIBS でのアルミナ試料における代表的な測定結果	...	3-1
図 3. 1-2	令和 4 年度版の内部構造	...	3-3
図 3. 1-3	MW 増強係数と SNR のレーザー入射位置に対するアンテナ放射角度依存性	...	3-4
図 3. 1-4	ケーブル計測図	...	3-5
図 3. 1-5	コイルアンテナ電界分布	...	3-6
図 3. 2-1	2 次試作したアンテナ及び金属同軸	...	3-10
図 3. 2-2	材質の異なるコイルアンテナ	...	3-11
図 3. 2-3	LIBS センサーとアンテナ	...	3-11
図 3. 2-4	コイルアンテナと平面型アンテナ (Capacitor-like antenna) のマイクロ波増強係数 IEF のマイクロ波パルス幅依存性	...	3-12
図 3. 3-1	(a)高速カメラ撮影によるプラズマ像 (b) Zr メタルとアルミナ板の近似プラズマ体積	...	3-14
図 3. 3-2	Zr メタルのアブレーション時の高速カメラ撮影像	...	3-15
図 3. 3-3	標準 LIBS 条件と MW 増強 LIBS 条件の Zr メタルの LIBS スペクトルの比較	...	3-16
図 3. 3-4	Zr イオンの a)各スペクトル強度と b)増強率 IEF のゲート遅延時間	...	3-17
図 3. 3-5	ゲート遅延時間 5 μ s における Zr イオンと Zr 原子の LIBS 増強率 (IEF) と SNR のマイクロ波出力依存性	...	3-18
図 3. 3-6	a)Zr メタルと b)ZrO ₂ 板の通常 LIBS と MW 増強 LIBS スペクトル強度比較 (波長 445~620 nm)	...	3-19
図 3. 3-7	(a)Zr メタル (b)ZrO ₂ 板の通常 LIBS と MW 増強 LIBS スペクトル比較 (波長 449~451 nm)	...	3-20
図 3. 3-8	(a)Zr メタルと (b)ZrO ₂ タブレットにおける Zr I 原子 (460 nm) Zr II イオン (449 nm) の SNR 測定	...	3-21
図 3. 3-9	MW-LIBS における Zr メタルと ZrO ₂ 板の (a)MW 増強率 IEF と (b)SNR 測定値	...	3-21
図 3. 4-1	マイクロ波有り/無し (a)Al 板 (b)ステンレス板 (c)Pb 板の LIBS スペクトル	...	3-24
図 3. 4-2	Al・Pb・Cr (ステンレス板) の LIBS 強度改善結果	...	3-25
図 3. 4-3	エクセルマクロ作成画面	...	3-26
図 3. 4-4	エクセルマクロで取り込んだ LIBS スペクトルからの各パラメータ依存性グラフ	...	3-26
図 3. 5. 1-1	測定システム構成図	...	3-28
図 3. 5. 1-2	MCL 及び試験時セットアップの外観	...	3-29

図 3.5.1-3	パルスエネルギー1.0 mJ 波長 1064 nm のレーザー、出力 1.0 kW のマイクロ波を使った Zr メタル・ZrO ₂ 板の LIBS	...	3-30
図 3.5.1-4	パルスエネルギー1.0 mJ 波長 1064 nm のレーザー、出力 1.0 kW のマイクロ波を使った Zr メタル・ZrO ₂ 板の ZrI (450.71 nm) ZrII (449.69 nm) の IEF と SNR	...	3-31
図 3.5.2-1	一体化した機器の様子、核燃料物質等使用施設内で養生した機器の様子	...	3-33
図 3.5.2-2	濃縮度の異なるウラン試料に対するスペクトル取得例	...	3-34
図 3.5.2-3	ウランのスペクトルと Voigt フィッティング例 (マイクロ波有り)	...	3-36
図 3.5.2-4	実際の濃縮度と測定結果から評価した濃縮度の比較	...	3-36

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)
東電	:	東京電力ホールディングス株式会社	
1F	:	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	
MW	:	Microwave	(マイクロ波)
MW-LIBS	:	Microwave-enhanced LIBS	(マイクロ波重畳 LIBS)
MCL	:	Micro Chip Laser	(マイクロチップレーザー)
OES	:	Optical Emission Spectrometer	
アイラボ	:	アイラボ株式会社	
LIBS	:	Laser-induced Breakdown Spectroscopy	(レーザーブレイクダウン分光)

概略

福島第一原子力発電所の廃炉を進めるにはデブリの組成計測が必須である。デブリの遠隔組成計測にレーザーブレイクダウン分光 (Laser-induced Breakdown Spectroscopy: LIBS) が想定されている。しかし、放射線等の影響で光ファイバーでの損失、レーザー伝送出力の低下、デブリの性状の影響などにより、想定外の信号強度の低下が予想される。また、一般的には同位体計測にはそぐわない。そこで本業務では、マイクロ波を LIBS の測定点にアンテナを用いて重畳することで、信号強度の大幅な増倍と SN 比の改善を狙うと同時に、従来困難であった超高分解能分光器による同位体計測に挑戦するものであり、令和 2 年度より開始し、令和 4 年度は 3 年目にあたる。

今回の成果は次のとおりである：

(1) 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策

令和 2 年度は設計、試作した半導体マイクロ波発振装置の電気的特性評価及び LIBS 測定に適用開始した。令和 3 年度では各種評価実験に適用し実稼働して問題は発生しておらず、本小型品で十分実用化できる目途が立った。また、外部ノイズ発生器による評価にて誤動作は発生していないこと及びマイクロ波発振装置の漏洩電界を評価した結果、漏洩がないことが分かった。令和 4 年度ではさらに小型化をするために冷却方式の見直し、本応用で必須とされない機能の削減を実施した。

(2) マイクロ波アンテナの設計最適化

令和 2 年度では、電界強度分布の高い部位を形成する条件抽出を電磁界シミュレーションで実施した。できるだけアンテナから距離が取れる条件を探した。さらに、空間的に広域で形成されるように設計パラメータの最適化を実施した。従来の平面型、平面型及びコイル型アンテナについて電界評価を実施し、近電界強度値の最大値については平面型が最も小さく、平面型に比べ平面型は、3.0～4.3倍最大電界値が大きく、コイル型は11.6～68.8倍大きいことが判明した。令和 3 年度では、新規設計したアンテナ形状を金属同軸と共にシミュレーションし最大電界強度が得られるものを検討した。その中でコイル型の最大強度が大きいことが分かった。最適化を図るため先端直線部分の長さの先端電界強度依存性を評価した結果、コイルピッチ 5 mm、ターン数約 5 回で電界強度が最大となることが判明した。また反射板による特性改善にも取り組み、6 cm×3 cm の十字型でシミュレーションにより最大の電界強度を取ることが確認できた。令和 4 年度では、シミュレーションで得た最適化条件を LIBS 実験に適用することにより良好な結果が得られた。セラミックアンテナによる最適化を実施した。

(3) SN 比向上、測定精度改善に関する研究

令和 2 年度では標的サンプルに A1 を用いて基本システムであるレンズ光学系のみでマイクロ波を重畳した LIBS 測定システムのパラメータを変化させて、SN 比に与える基本条件の評価を行い、光学パラメータの仕様を検討した。A1 で 8 倍、Mo で 7 倍のスペクトル増強を確認した。

また、標的サンプルとして同様に A1 を用いて、ファイバー光学系での評価実験を行った。レーザースポットサイズ、エネルギー密度を変化させ、散乱光強度、SN 比に与えるパラメータを検討した。令和 3 年度では昨年度に未達成であったレンズ光学系で得られた従来データの再現に取り組んだ。光学系仕様の見直し、測定パラメータ (パルス幅、パルス高さ、デュティ比、反射波等) の最適化及びアンテナの最適化を実施することにより、従来データ

と同等な数百倍のスペクトラム増強を確認することができ、各種パラメータによる実験結果が得られた。さらに浜松ホトニクス製の半導体レーザー及びBeamtech製DAWA固体レーザーの測定比較を実施し最適条件を調べた。その結果、1 ms/1 kWのMW印加により2 mJでスペクトラム増倍率最大の約500が得られた。

令和4年度では、同位体計測についてスペクトル調査を行い、分光器の仕様を確定させた。また、同位体を持つウランとスペクトルが似ているジルコニウムでLIBS測定の最適化を行い100倍以上のMW-LIBS効果が得られた。ウランの同位体計測を成功させた。

(4) 全体システム構築に関する研究

①ハードウェア構築：

令和2年度ではテーブルトップLIBS光学系の構築を行い、光学系等の精度向上のためのシステムのバージョンアップを検討した。構築したLIBSによるPb、Al等による基礎評価を行い、計測性の向上効果と全体システムの評価を行った。600 μm の光ファイバーを用いた小型化システムを試作した。令和3年度では、Pb、Al等による基礎評価及び計測性の向上効果と全体システムの評価を行った。さらに、集光プロセスの自動化において、アンテナとプラズマ部の最適位置調整に用いるため、光ファイバーセンサー部移動用のトラバースを検討した。

LIBS で得られるスペクトラムとマイクロ波重畳で得られるスペクトラムとの差異を検討し、ピーク検出と背景光のデータ処理の仕様を検討した。マイクロ波の発振パターン、レーザーの発振状況、分光器データ、アンテナの位置情報及び積算回数でのデータの平均化等のデータ解析を行い、データ解析ソフトウェアの仕様を検討し、ソフトウェアの構築を開始した。

スペクトラムの差異、データ処理の仕様を決定し、ビーム検出精度を向上するパラメータ抽出ができた。

(5) LIBSプローブ実装による評価研究（連携先：日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。））

①LIBS基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験

令和2年度では、LIBSプローブヘッドの幾何学的形状等に関して、アイラボ株式会社（以下、「アイラボ」と略す。）と情報を共有し、マイクロ波重畳評価試験専用のファイバーLIBSプローブを構築した。構築したLIBSプローブ系と、波長分解能1/50,000の分光器を組み合わせ、模擬試料による試験を実施することで、マイクロ波を重畳しない従来法の基本性能を確認した。LIBS基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験を実施した。またCe（ウラン模擬試料）、Zr、Gdの混合酸化物試料に適用して元素由来のスペクトルが取得できることを確認した。

令和3年度では令和2年度に開発したマイクロ波重畳評価試験専用のファイバーLIBSプローブ（MCL）を用い各種試料（ Al_2O_3 、アルミ金属板、銅金属板、白金薄膜板、Ce、Fe、Zr 酸化物混合焼成試料）にマイクロ波を重畳した計測を行い、測定可能であることが示せた。令和4年度ではさらに模擬デブリを含めた各種試料の実証試験を行った。

令和4年度では、ウランの同位体計測を実施した。マイクロ波による増強効果が得られ、計測は成功した。

前年度までの成果報告書：

JAEA-Review 2021-027

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

令和2年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-027>

JAEA-Review 2022-042

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

令和3年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-042>

1. はじめに

1.1 研究開発の必要性及び研究開発目標

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す。）の廃炉にはメルトダウンによって形成された核燃料デブリを安全に取り出し、輸送し、現場を回復することが必要である。デブリの安全な取り出しのためにはデブリのその場組成計測が必須である。しかし、対象が核燃料物質である場合は、そのスペクトルの複雑性から、市販ベースの装置は使えないのが実情である。

LIBS は個体の物質表面の組成を計測するシステムとしてほぼ確立している。LIBS は火星探査計画でも用いられている物質組成分光システムである。オークリッジ国立研究所では原子力研究に応用する技術開発もなされている。またレーザーの小型化、分光器の小型化等によりコンパクトなシステムとして市場に出回っている。例えば、株式会社日立ハイテク社製ハンドヘルドLIBS分析装置Vulcanシリーズが挙げられる (<https://www.hitachi-hightech.com/jp/ja/products/analytical-systems/handheld/libs/vulcan.html>)。

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

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

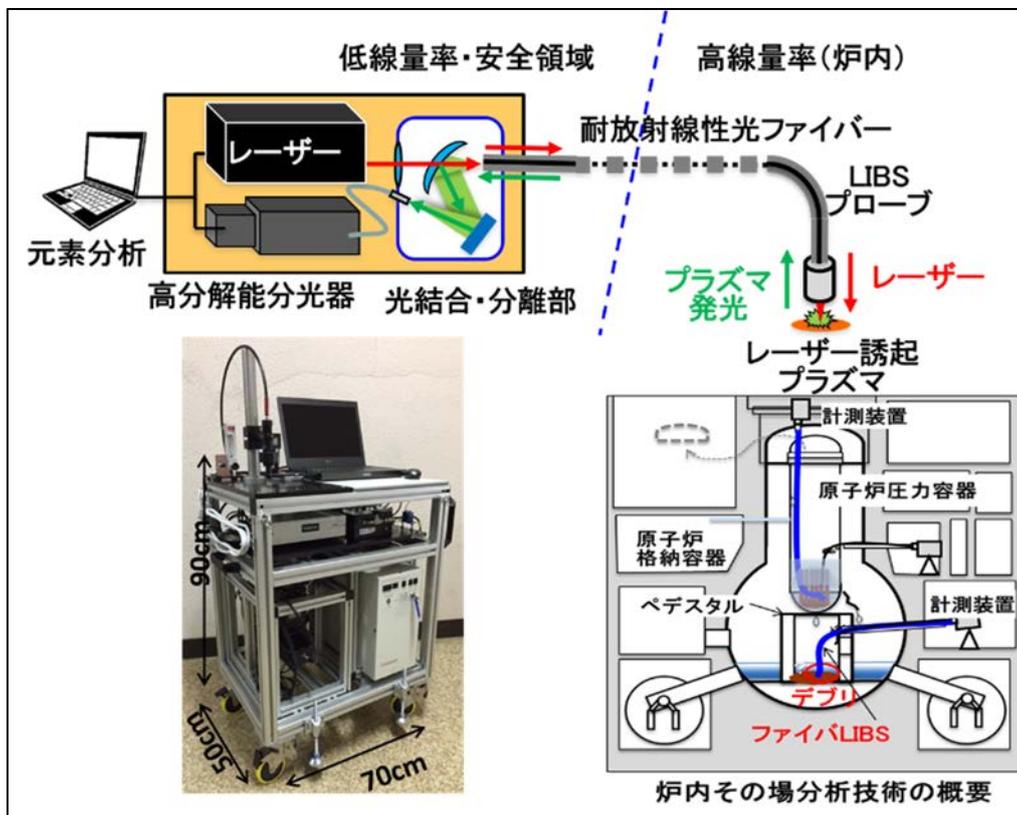
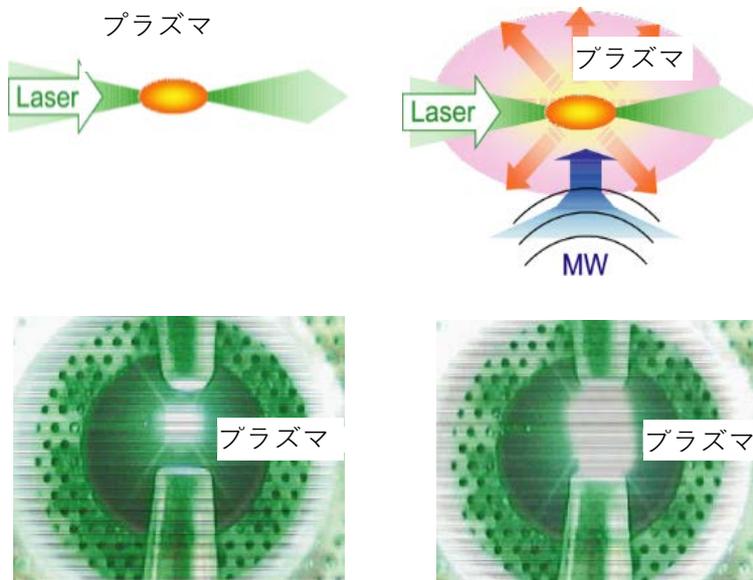


図 1-1 炉内及び炉外での計測系の切り分け

これらを克服する手段として、ブレークダウンされたプラズマにマイクロ波を重畳させ、レーザー生成プラズマを種として低密度非平衡プラズマを長時間持続（準定常）させることにより、プラズマ発光の安定性と分光強度の拡大を図ってきた（図 1-2）。金属としては Pb, Al, Cu そして O ラジカル, OH ラジカル等の分子の計測も可能としてきた。マイクロ波の重畳により、測定精度は約 1,000 倍の信号レベルの向上が図られている [2] [3] [4] [5] [6]。



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

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

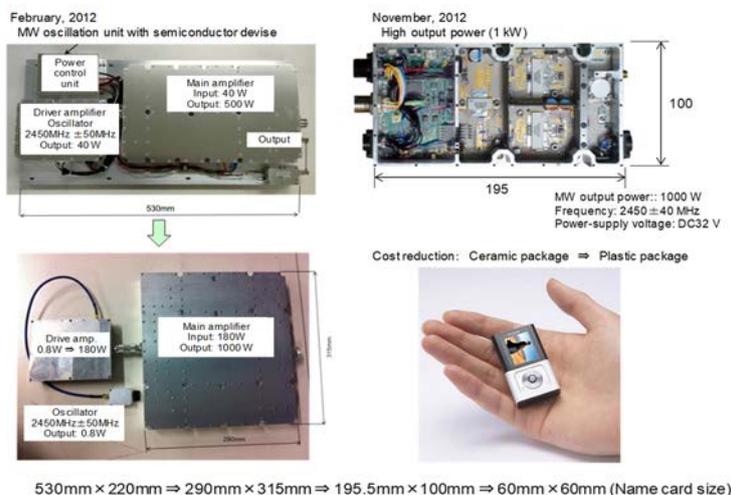


図 1-3 マイクロ波システムの小型化

さらに、マイクロ波を放射するアンテナも数 cm 程度に小型化する。高放射能環境下でノイズの増大と SN 比の低下対策にとって、本システムは大変有用である。これにより、遠隔計測においても、発振源を現場近くに配置して伝送ロスを軽減し着実な LIBS 信号取得が可能となる。信号強度の増倍と SN 比の向上を図ることにより、デブリの組成その場計測における、ウランなどの核物質の計測に貢献できるとともに 1%未満の計測も視野に入る。さらに、LIBS 発光強度の向上で今まで実現が困難だったウランの同位体のその場計測の実現性についても検証する。

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

1.2 研究内容の革新性、独創性、新規性

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

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

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

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

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

システムの被曝防御にコストをかけるよりも、使い捨て構造とし、量産体制も検討して、数百万円/台とする計画である。システムの大きさも片手に乗る程度であるため、必要に応じて適時、随時使用が可能である。多量のデブリ詳細計測の必要性が出た場合にも、人員、ソフトウェア、装置としても即時対応が可能である。

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

1.3 研究効果及び研究の有効性、発展性、相乗効果

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

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

2. 業務計画

2.1 全体計画

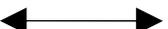
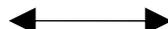
本業務は、令和2年度（10月～3月）、令和3年度（4月～3月）、令和4年度（4月～3月）にわたる2年半の業務である。その目標は、従来のLIBSシステムにマイクロ波発振装置からの電波を、アンテナを用いて重畳し、プラズマの拡大化、持続時間の延長、信号レベルの向上を実現し、核燃料デブリを測定できる装置を開発することである。

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

表 2.1-1 全体計画（1/2）

	令和2年度	令和3年度	令和4年度
期待される主な成果	マイクロ波発振部の小型化、ノイズ対策。	アンテナの設計最適化、小型化。	1,000～10,000倍の信号強度改善。 システム小型化（コスト：数百万円）。 JAEAで模擬U実測、同位体の計測。
(1) 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策	基本設計・排熱処理・モニタ回路 	制御システム 	3次試作・バッテリー駆動
(2) マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究	最適化のための解析 	試験、評価 	
(3) SN比向上、測定精度改善に関する研究	仕様検討 	評価用発振器による評価 	小型発振器の試作・評価
(4) 全体システム構築に関する研究	基本光学系の構築 	ファイバー光学系構築 ソフトウェア仕様検討 制作 	全体システム統合、評価・改良

表 2.1-1 全体計画 (2/2)

(5) LIBS プ ロープ実 装による 評価研究 (JAEA)	LIBS 計測系整備 	マイクロ波実装  模擬試料評価 	模擬デブリ実証  耐放射線試験  同位体試験準備 
(6) 研究推進	打合せや会議の 開催  まとめ	打合せや会議の開催  まとめ	打合せや会議の開催  まとめ

2.2 実施体制

実施体制図を、図 2-1 に示す。

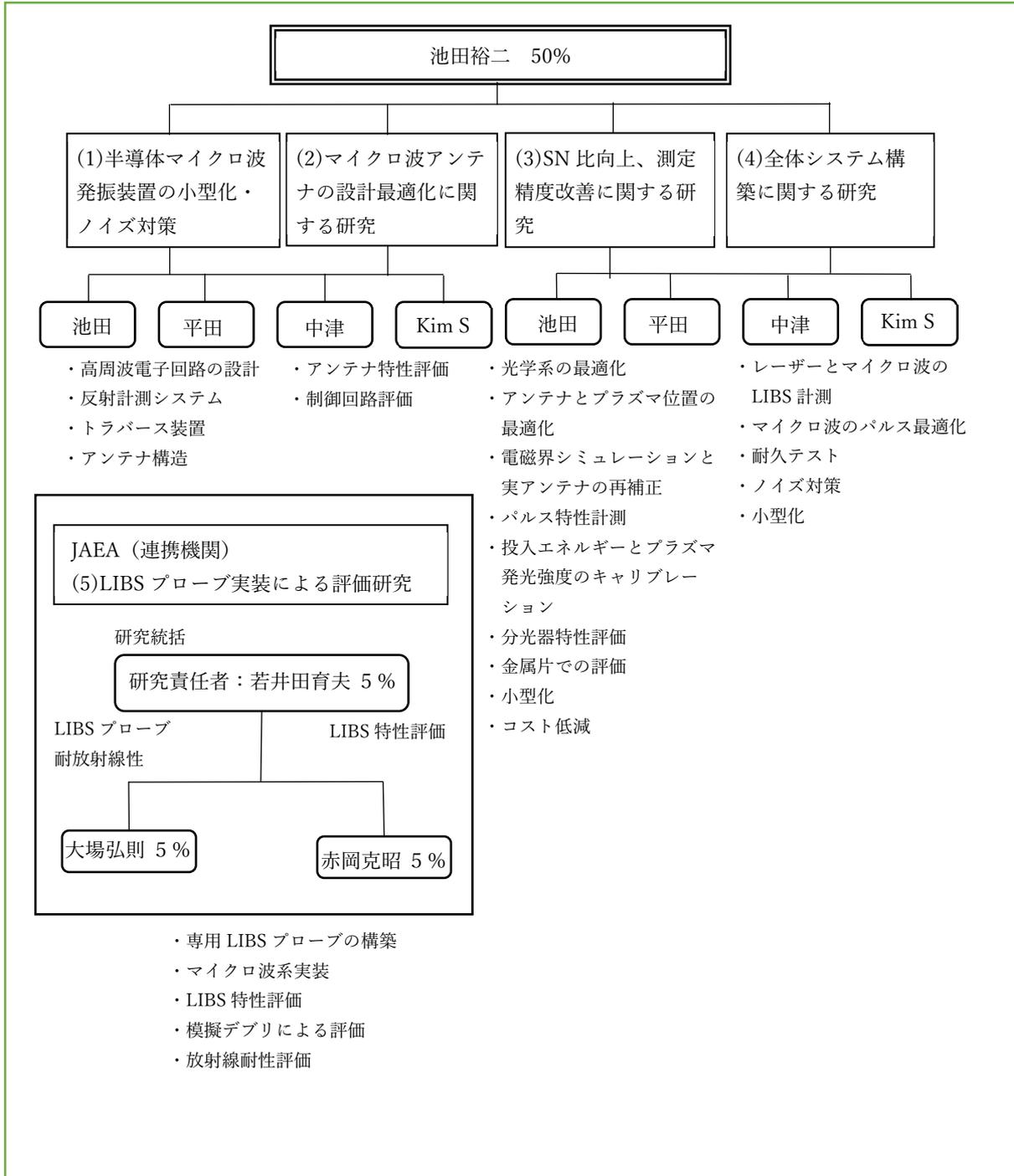


図 2-1 実施体制図

2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

(1) 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策

①評価機での試験

前年度に引き続き、試作したマイクロ波発振器（評価機）のマイクロ波発振パターン
の試験を標準状態の空気を用いて行う。評価機、レーザー、分光器及びトリガ信号を外部から制御するシステムを検討して、評価機で試験する。外部からのノイズによる誤動作、マイクロ波のリーク等を実測する。発振の制御をFPGA（制御用IC）で行う上での改善点（操作性）を検討して、解決策を探る。また、マイクロ波重畳システムとして、繰り返し特性、測定位置移動に伴う組成変化を加味した3次試作を行う。

②小型化

前年度に引き続き、小型化するため、小型コネクタ、同軸ケーブル、マイクロ波発振器、方向性結合器及びチューナーを検討し、各パーツの仕様検討、基本設計の後、2次試作をして一次試作モデルとの比較で、性能評価実験を行う。また、テーブルトップLIBSシステムのセンサー部の小型化を検討する。

(2) マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究

①設計最適化のための電磁界シミュレーション

前年度に引き続き、電界強度分布の高い部位を形成する条件抽出（マイクロ波アンテナの先端形状、LIBS焦点との位置関係等）を電磁界シミュレーションで行う。試作する50 mのアンテナシステムに対応する電界強度を増大させるため、反射鏡を採用した高出力・高効率アンテナを考案し、最適化設計を行う。

②アンテナの試作、評価

前年度に引き続き、シミュレーションで得られた結果を用いて、アンテナの試作を行う。材料も数種類検討する。1/4波長の長さを基本として、アンテナの長さ、形状を変化させ、投入エネルギーの反射を低減し、電界強度の最適値が得られる条件を見出す。コイルアンテナ・平面アンテナの設計最適化を行い、実用化を目指す。50 mのケーブル+アンテナを試作する。

(3) SN比向上、測定精度改善に関する研究

①マイクロ波発振条件の最適化

前年度に引き続き、LIBS光学系のパラメータ（パルス幅、パルス高さ、デューティ比、反射波等）の評価を行い、光学系仕様を再検討する。次に、ファイバー光学系での評価実験を行う。プラズマ位置へのアンテナの位置、形状及び発振パターン等のパラメータを最適化して、SN比の向上を図る。LIBSの繰り返し周波数に同期したマイクロ波重畳タイミング、発進パターンの条件を検討して、SN比が向上する可能性のあるパラメータを検討する。

②同位体計測パラメータの抽出

前年度に引き続き、マイクロ波導入で向上した信号を用いて、背景光の影響、マイクロ波の有無、マイクロ波の条件変化での信号強度の最適値検討を行う。さらに、近接した波長の分光データから同位体計測に必要なスペクトルを探し、同位体計測の準備を行う。マイクロ波重畳で得られるスペクトラムの強度改善効果を検討する。マイクロ波発振パターンで得られるスペクトラム比を抽出する。

(4) 全体システム構築に関する研究

①ハードウェア構築

前年度に引き続き、光ファイバーLIBS 光学系の精度向上のため、システムのバージョンアップを検討し、Pb、Al 等による基礎評価及び計測性の向上効果と全体システムの評価を行う。さらに、集光プロセスの自動化において、アンテナとプラズマ部の最適位置調整に用いるため、光ファイバーセンサー部の移動用のトラバースを検討する。テーブルトップ LIBS 光学系、小型化された LIBS センサー部、マイクロ波アンテナの統合とシステムの評価を行う。具体的なサンプルでの評価実験を行う。精度向上のための改良を行う。

②データ解析ソフトウェアの構築

LIBS で得られるスペクトラムとマイクロ波重畳で得られるスペクトラムとの差異を検討し、ピーク検出と背景光のデータ処理の仕様を検討する。マイクロ波の発振パターン、レーザーの発振状況、分光器データ、アンテナの位置情報及び積算回数でのデータの平均化等のデータ解析を行い、データ解析ソフトウェアの仕様を検討し、ソフトウェアの構築を進める。サンプルを用いた実験によるシステム評価を行う。精度向上のための改良を行う

(5) LIBSプローブ実装による評価研究（連携先：JAEA）

①LIBS 基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験

アイラボから提供を受けたマイクロ波システムとその照射条件を活用し、酸化物試料を対象に、高分解能分光器による分光特性を評価する。

評価結果を基に、マイクロ波重畳LIBS法を未照射核燃料物質の高分解能分光試験に適用し、その性能を評価する。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（CLADS）等との連携を密にし、1F現場に実機適用すべく、現場との意見/情報交換を行いながら、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

3. 実施内容及び成果

3.1 半導体マイクロ波発振装置の小型化・ノイズ対策

3.1.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）

2.45 GHz の通信用半導体素子を用いたアンプ回路を設計、試作した結果、自由な波形パターン設定と PC による入力波形作成が可能となった。内蔵のパラメータモニタシステムの正常動作を確認した。小型化の手段として方向性結合器、チューナーをシステムに組み込み、基本設計、一次試作、評価実験を実施した。PC アプリソフトウェアを含めマイクロ波発振装置内部の方向性結合器、チューナーは問題なく動作することを確認し、LIBS スペクトルの増倍を確認した。

3.1.2 令和4年度の実施内容及び成果：評価機での試験

開発した半導体マイクロ波発振装置の基本特性を確認終了後、LIBS 測定に適用した。LIBS と MW-LIBS でのアルミナ試料におけるマイクロ波パターン試験を標準状態の空気を用いて実施した。測定結果を図 3.1-1 に示す。

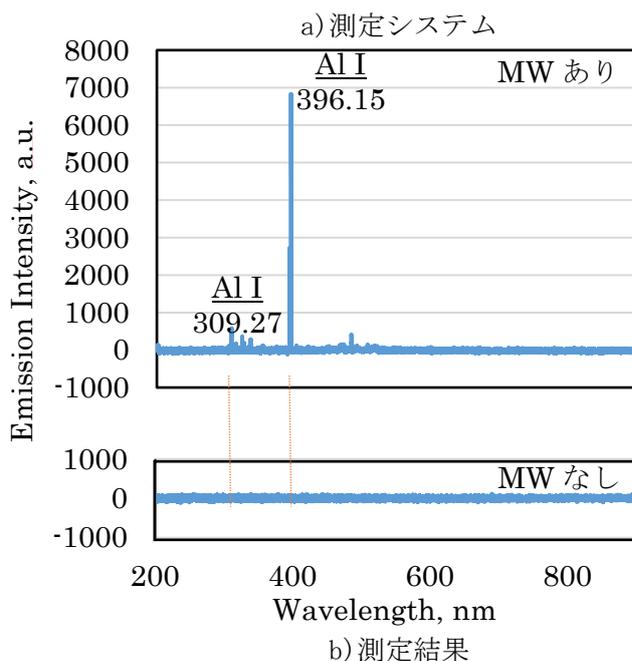
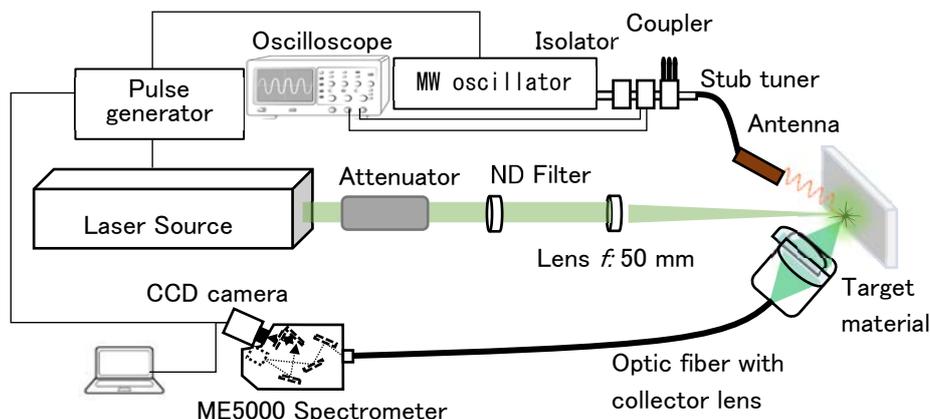


図 3.1-1 LIBS と MW-LIBS でのアルミナ試料における代表的な測定結果

A1 I (309.27 nm) 及び A1 I (396.15 nm) スペクトル線においてマイクロ波による増倍率 100 倍以上となり、当初の目標をクリアし、各種試料の測定を進めた。

3.1.3 令和4年度の実施内容及び成果：小型化

小型化するため、小型コネクタ、同軸ケーブル、マイクロ波発振器、方向性結合器及びチューナーを検討し、各パーツの仕様検討、基本設計の後、2 次試作を行い、性能評価実験を行った（図 3.1-2）。また、テーブルトップ LIBS システムのセンサー部の小型化を検討した（3.2.3 項参照）。さらに、電源、冷却方式を見直しさらなる小型化（3 次試作）を実施した。特に大型だったコンデンサを小型化し、内蔵させることに成功した（表 3.1-2 右図）。

表 3.1-1 半導体マイクロ波発振装置の比較

	旧版	令和2年度版	令和4年度版(3次試作)
			
本体形状	本体寸法、重量： 42×28×8.8 cm ³ 、12 kg ただし4回路入り	本体寸法、重量： 20×14×7.4 cm ³ 、1 kg 外部 Fan 有り	本体寸法、重量： 23.2×15.3×5.2 cm ³ 、1 kg (容積 15%減) 外部に Fan なし
主要仕様	<ul style="list-style-type: none"> 内部 Fan 及び水冷式 LCD 表示あり 10～36 V 電源単一 (2 kW 出力パルス幅～10 ms 対応) 	<ul style="list-style-type: none"> 外部 Fan、空冷式 LCD 表示あり 32 V 電源単一 (1.2 kW 出力パルス幅～4 ms 対応) 	<ul style="list-style-type: none"> ○Fan 内蔵、伝導冷却採用 △LCD 表示無し、ソフトでカバー ○電源 12 V～32 V 対応
外部電源	<ul style="list-style-type: none"> 外部電源大(松定プレジジョン製 PRKJ36-22: 39.4×21.2×4.3 cm³、4 kg) 電源性能により外付け大容量静電容量(60,000 μF 級) 必要 	<ul style="list-style-type: none"> 外部電源大(松定プレジジョン製 PRKJ36-22: 39.4×21.2×4.3 cm³、4 kg) 外付け大容量静電容量(60,000 μF 級) 必要 	<ul style="list-style-type: none"> ○電源アダプター(コーセル製 PLA150F-36: 4.1×9.7×12.9 cm³、0.6 kg) で駆動可。総重量の低減 ○内蔵静電容量の強化で外付け大容量静電容量(60,000 μF 級) 不要
ソフトウェア	<ul style="list-style-type: none"> ・アイラボ開発アプリソフト及び telnet 制御 	<ul style="list-style-type: none"> ・アプリケーションソフト、telnet 制御 ・内部状態は LCD 表示で確認 	<ul style="list-style-type: none"> ・アプリケーションソフト、telnet 制御 ・PC コマンドにて内部状態監視可能
システムサイズ比較	16,924 cm ³ 30 kg	5,663 cm ³ 5 kg	2,358 cm ³ (58%減) 1.6 kg (68%減)

なお、さらなる小型版半導体マイクロ波発振装置の電気的特性の仕様は以下のとおりである。

- ・さらなる本体小型軽量化
- ・外部電源の小型化
- ・内部モニタ機能による S11 等のパラメータ取得
- ・出力周波数 f の変更： $f = 2.40\text{--}2.5\text{ GHz}$ 、分解能 10 Hz
- ・出力電力可変：47 dBm (50 W) -61 dBm (1.2 kW)
- ・パルス立ち上がり時間/立ち下り時間：35 ns 標準
- ・周波数設定時間：1 μs
- ・パルスパターンの変更
- ・PC からのリモート制御（アプリソフトウェア使用）
- ・アイソレータ内蔵

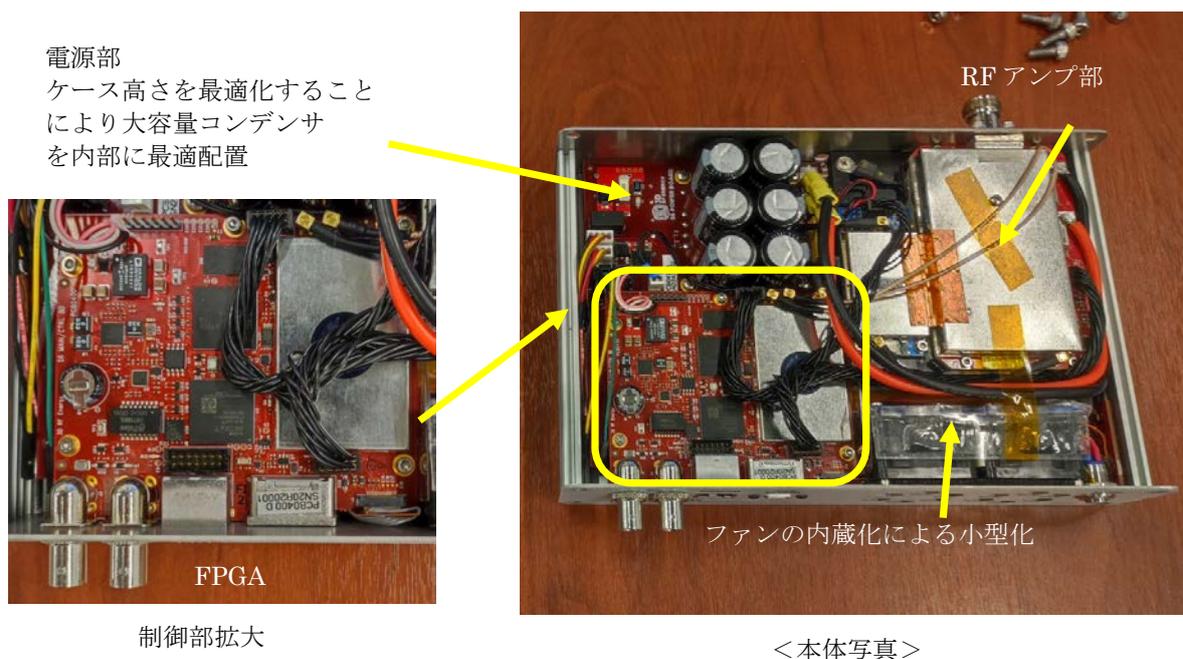


図 3.1-2 令和 4 年度版の内部構造

3.1.4 まとめ

(1) 評価機での試験

試作したマイクロ波発振器（評価機）のマイクロ波発振パターンの試験を標準状態の空気をを用いて行った。評価機、レーザー、分光器及びトリガ信号を外部から制御するシステムを検討して、評価機で試験を行った。外部からのノイズによる誤動作、マイクロ波のリーク等を実測した。発振の制御を FPGA（制御用 IC）で行う上での改善点（耐放射線性、操

作性) を検討して、解決策を探った。ノイズを SN 比で評価し図 3.1-3 に併記する。SN 比を向上させるためアンテナの角度等の検討を行った。

マイクロ波重畳システムとして、繰り返し特性・測定位置移動に伴う組成変化を評価した。測定面の凹凸や傾きは、測定結果や発光強度の精度に大きな影響を与える。したがって、増強係数に対するアンテナの向きの角度の影響を調べた。図 3.1-3 にアンテナ角度 60 度・70 度・80 度のアンテナ角度変化に対する実験結果を示す。Al I (396 nm) の強度増強係数に対する MW パルス幅の効果が、アンテナ角度によって異なる傾向があることが確認できた。アンテナ角度 80 度の場合では、増強係数・信号対雑音比 (SNR) の大幅な改善はなかった。一方、角度 70 度ではほぼ一定の増強効果が得られた。最適な角度は 60 度であり、他の角度と比較して高い増強係数と SNR が得られた。

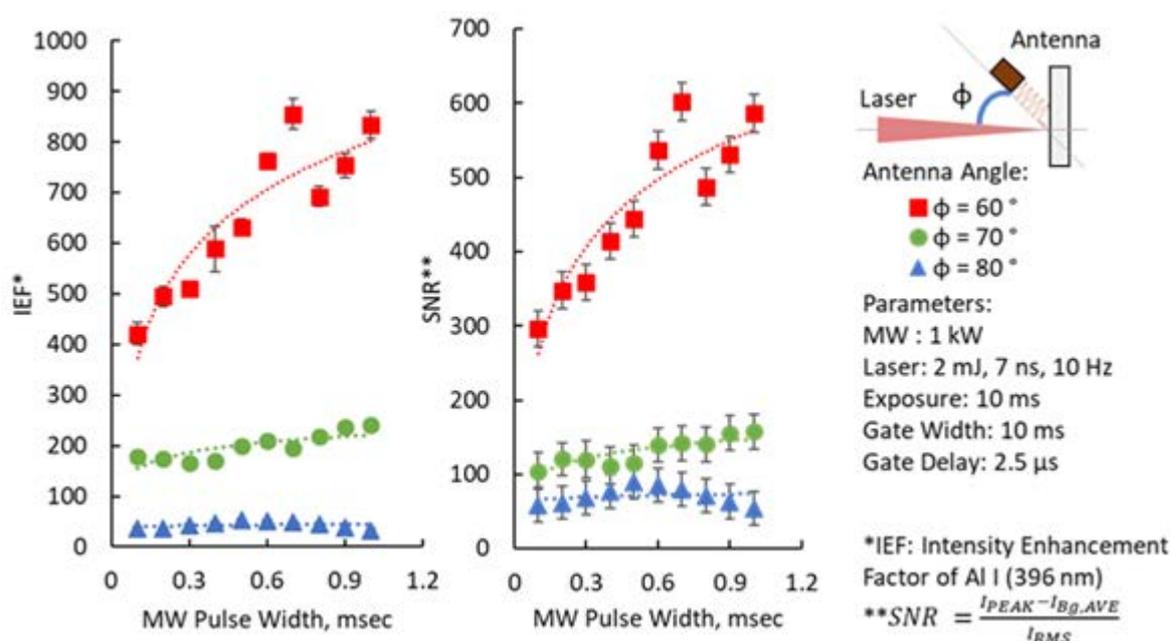


図 3.1-3 MW 増強係数と SNR のレーザー入射位置に対するアンテナ放射角度依存性
 発振の制御を FPGA (制御 IC) で行う上での改善点 (操作性) を検討して、小型化を図った (表 3.1-2)。評価機の試験を行い、問題ないことを確認した。マイクロ波漏洩電界はほぼなかった。

(2) 小型化

小型化するため、小型コネクタ、同軸ケーブル、マイクロ波発振器、方向性結合器及びチューナーを検討し、各パーツの仕様検討、基本設計の後、性能評価実験を行った。

電源、冷却方式を見直しさらなる小型化を実施した。試作品の評価を行い、評価を完了した。また、内蔵方向性結合器が利用可能であること見出した。

電源を含めた実使用上に必要な小型化、軽量化及び電気特性的には問題ない。耐放射線性設置位置とアンテナまでの距離によるケーブル減衰問題等に対処する必要があり、同軸ケーブル減衰特性を測定した。

四国電線製 10D-FB (100 m) (図 3.1-4) についてケーブル巻状態及び伸ばした状態での減衰率の測定結果を示す (表 3.1-2)。

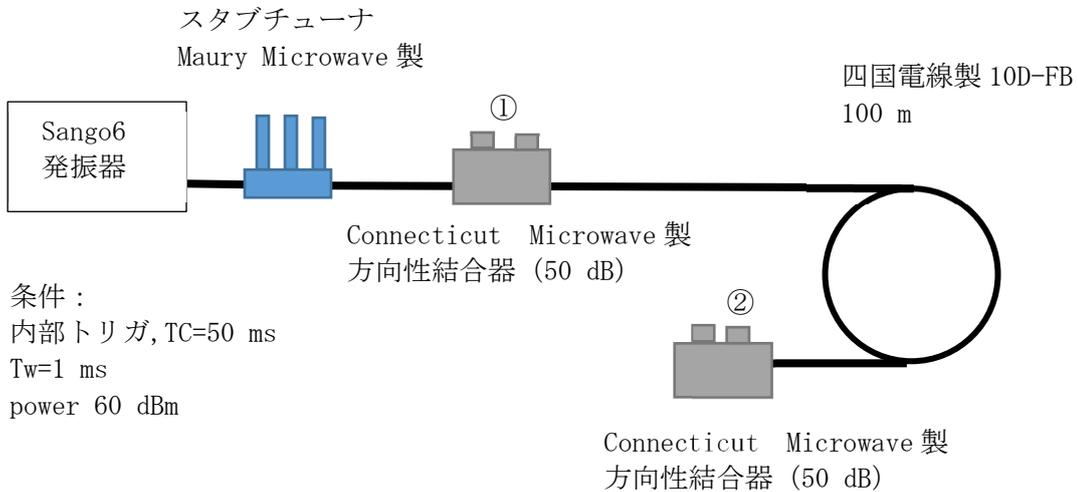


図 3.1-4 ケーブル計測図

表 3.1-2 減衰量測定結果

	ピークパワー①	ピークパワー②	減衰量 (100 m)
1) ケーブル巻状態	9.7 dB	-9.9 dB	-19.6 dB
2) ケーブル伸ばし状態	9.8 dB	-9.8 dB	-19.6 dB

ケーブル長換算での伝送電力 (計算値) を表 3.1-3 にまとめる。ケーブルによる減衰があるため、長さに応じた対策が必要である。

表 3.1-3 ケーブル長換算での伝送電力

ケーブル長	減衰量	伝送電力 @発振器出力 1kW
10 m	-1.96 dB	640 W
20 m	-3.92 dB	406 W
25 m	-4.9 dB	324 W
50 m	-9.8 dB	105 W
100 m	-19.6 dB	11 W

3.2 マイクロ波アンテナの設計最適化に関する研究

3.2.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）

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

3.2.2 令和4年度の実施内容及び成果：設計最適化のための電磁界シミュレーション

コイルアンテナについて、さらなる改良ができないか電磁界シミュレーションにより検証した。特に前項の表 3.1-3 の結果より、ケーブル長 50 m での減衰量が大きいため、できるだけアンテナ側でゲインを稼ぐ必要が出ており、ゲインの最大化を図った。

① コイルアンテナ先端部の形状の検討

現状では端面は平面としているが、電界の集中等を考えた場合、球型または円錐型の方が電界集中する可能性があるため電磁界シミュレーションにて調査した。

通常のコイルアンテナの先端部の形状を変更した。

図 3.1-5 にシミュレーションの方法を示す。コイルアンテナの先端部の電界強度を色で示す。

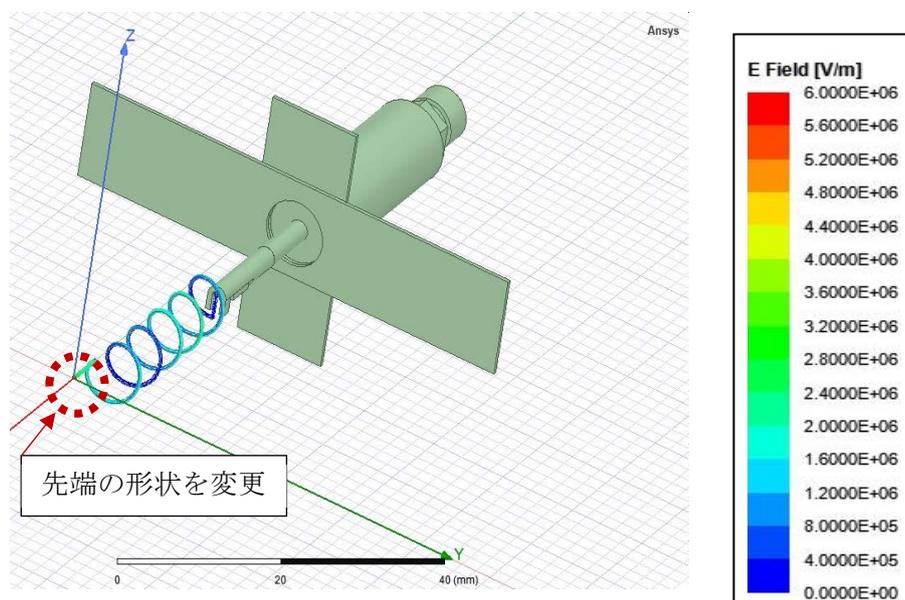
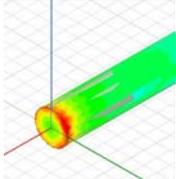
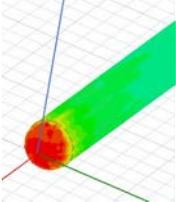
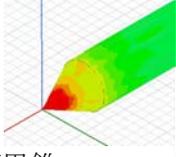
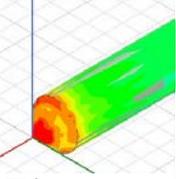


図 3.1-5 コイルアンテナ電界分布

アンテナ形状、特に先端形状について電磁界シミュレーションの結果を表 3.1-4 に示す。先端形状はできるだけ小さい方が良いことが分かった。ただし、摩擦に関しては要検討である。

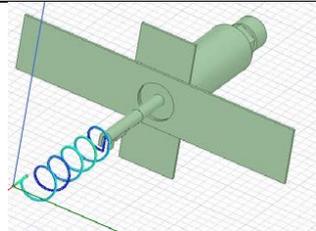
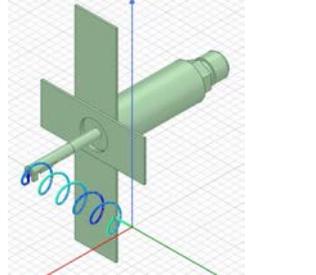
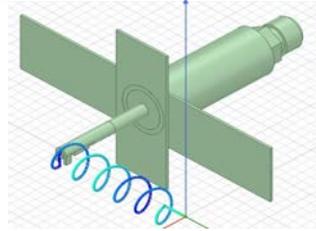
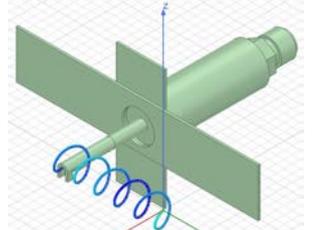
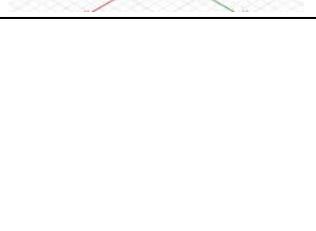
表 3.1-4 先端形状による電界強度の違い

先端形状	電界強度	
	先端より 1 mm	先端より 10 mm
 端面平面 (標準)	464.7 kV/m	21.9 kV/m
 端面球面	401.4 kV/m	22.0 kV/m
 端面円錐 H=0.5 mm	326.3 kV/m	20.9 kV/m
 端面円錐 H=0.25 mm	381.9 kV/m	21.6 kV/m

標準のものが最大電界を得た。アンテナ上の電界分布は球面において最も高い電界エリアが広いことが分かる。1 mm 地点での電界値は劣るが高い電界部分の面積が大きい可能性があり、さらに詳細な検討が必要である。

アンテナの組み込み形式について検討し、直交及び交差の電磁界シミュレーションを行った（表 3.1-5）。

表 3.1-5 コイルアンテナの形状変更による電界強度の違い

形状		電界強度	
		先端より 1 mm	先端より 10 mm
基準アンテナ		464.7 kV/m	21.9 kV/m
直角曲げ 1		401.4 kV/m	22.0 kV/m
直角曲げ 2		422.3 kV/m	23.9 kV/m
直角曲げ、先端 コイル		326.3 kV/m	20.9 kV/m

次にとぐろアンテナの電磁界シミュレーションを行いさらなる電界強度の向上を図った(表 3.1-6)。反射鏡の最適化を図り電界強度の向上を得た。

表 3.1-6 とぐろアンテナと基準アンテナの比較 (1/2)

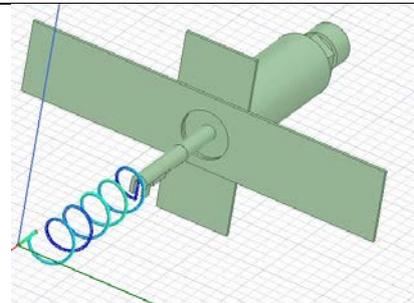
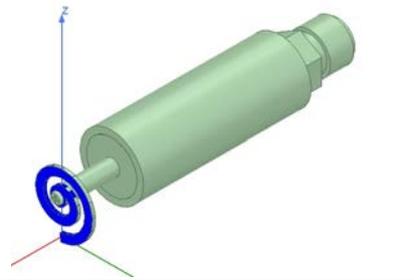
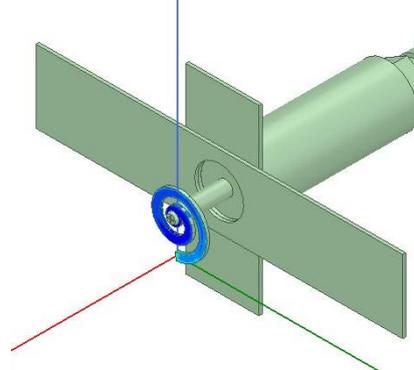
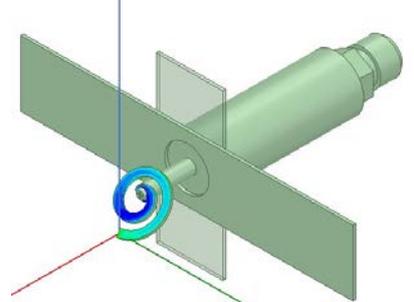
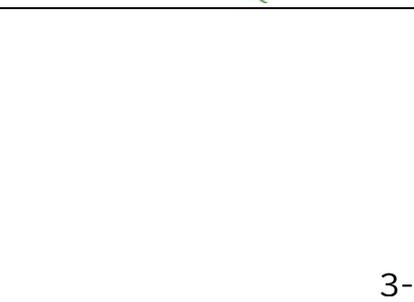
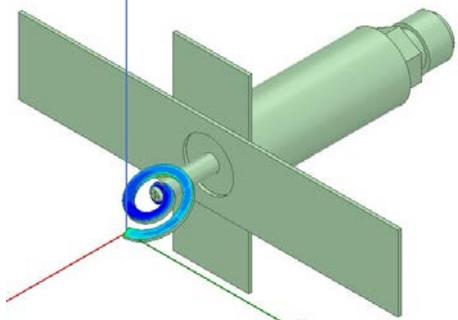
形状		電界強度	
		先端より 1 mm	先端より 10 mm
基準アンテナ		464.7 kV/m	21.9 kV/m
とぐろアンテナ		308.7 kV/m	29.9 kV/m
とぐろアンテナ 反射鏡あり		469.6 kV/m	38.4 kV/m
とぐろアンテナ 傾き 45 度 反射鏡あり		662.6 kV/m	45.60 kV/m

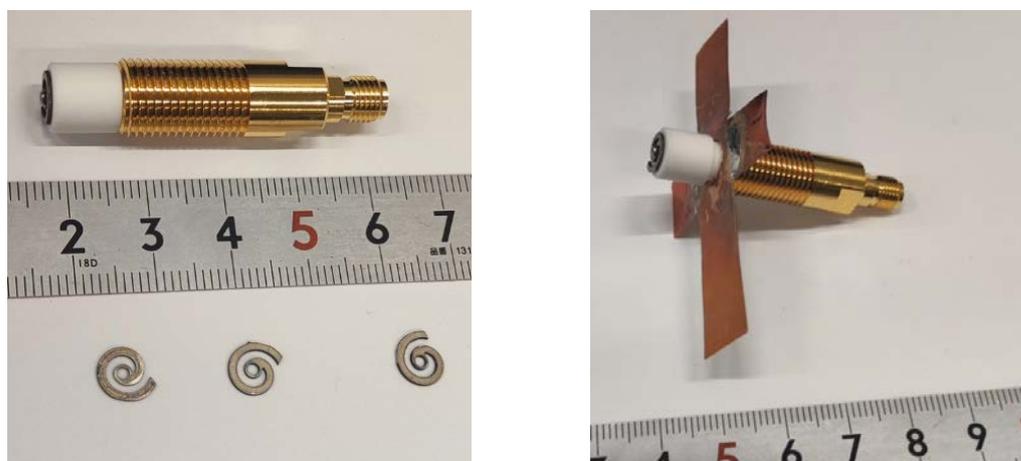
表 3.1-6 とぐろアンテナと基準アンテナの比較 (2/2)

とぐろアンテナ 傾き 30 度 反射鏡あり		727.6 kV/m	47.8 kV/m
-----------------------------	-----------------------------------------------------------------------------------	------------	-----------

3.2.3 令和 4 年度の実施内容及び成果：アンテナの試作、評価

MW-LIBS 用アンテナ及び金属同軸を 2 次試作した。とぐろアンテナと金属同軸を組み立てた状態の写真を図 3.2-1 に示す。

2.45 GHz におけるコイルアンテナ基本特性はアンテナ単独で VSWR 測定値 1.7、反射板付きで VSWR 測定値 2.5 であり電気特性的に問題はなかった。なお、VSWR 測定は Agilent Technologies 製 E5071C Network Analyzer を使用した。



a) とぐろアンテナ、金属同軸

b) とぐろアンテナ反射板付き

図 3.2-1 2 次試作したアンテナ及び金属同軸

また、コイルアンテナについて従来の銅製に対し、ステンレス製及び高耐熱であるインコネル製にて同様に 1/4 波長の長さを基本としたコイルアンテナを試作した (図 3.2-2)。

周波数特性の計測は Agilent Technologies 製ネットワークアナライザ E5071C にて周波数対 s11/VSWR 特性を観測することにより、投入エネルギーの反射を最小とし、2.45 GHz で最適の電界強度が得られる形状に調整した。それらを MW-LIBS 計測に適用した結果、ほぼ同等の結果であった。また、図 3.1-3 で使用したケーブルを 50 m でコネクタ接続し、アンテナを用いることにより、MW-LIBS システムが実用化構築できた。

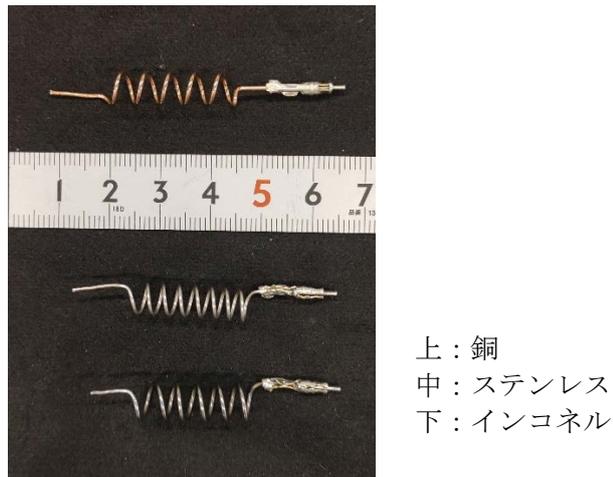


図 3.2-2 材質の異なるコイルアンテナ

最終的なアンテナ及び集光系をまとめ図 3.2-3 の LIBS センサーとアンテナの構成で実験に使用した。

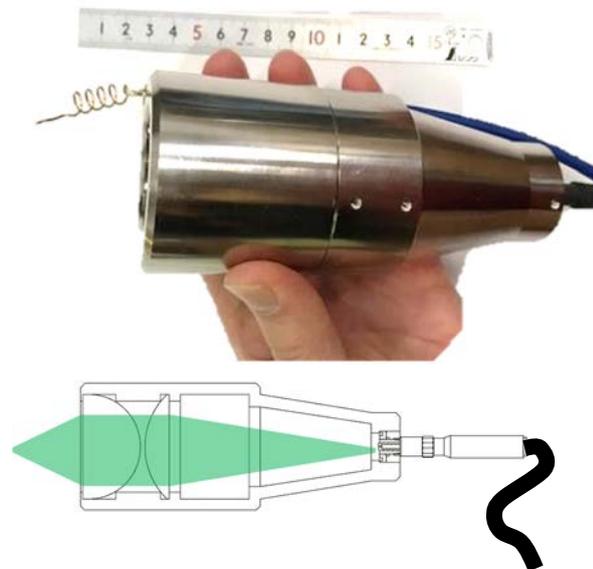


図 3.2-3 LIBS センサーとアンテナ

次に、LIBS センサー部小型化のためのアンテナ縮小化検討について述べる。従来の平面型アンテナ (Capacitor-like Antenna) と今回のコイルアンテナを使って、マイクロ波重畳による増大係数 (IEF) を測定・比較した。平面型アンテナは電極の長さ 30 mm、同軸コネクタを含む全長は 230 mm もあるが、コイルアンテナ (SMA コネクタを含む) は全長 90 mm と小型化している。平面型アンテナでは大きな MW 電力とパルス幅が可能だが、コイルアンテナは、高い局所電場に対してより少ない電力とパルス幅によって、レーザーブレイクダウンプラズマへのマイクロ波結合効率を改善することができた。重畳したマイクロ波エネルギーは、平

面型アンテナの 1/30 に削減することができた。コイルアンテナではマイクロ波のパルス幅を 1 ms まで短くしても、増強係数 100 以上が得られる。

図 3.2-4 に今回のコイルアンテナと従来の平面型アンテナによるマイクロ波増強係数 IEF のマイクロ波パルス幅依存性を示す。コイルアンテナでは、1 ms より短いマイクロ波パルス幅でも高い増強係数 IEF が得られていることが分かる。

アンテナの形状、反射波の最小化、反射鏡有無を最適化し、投入エネルギーを変化させた実験結果は図 3.1-3 と図 3.2-1 に示している。

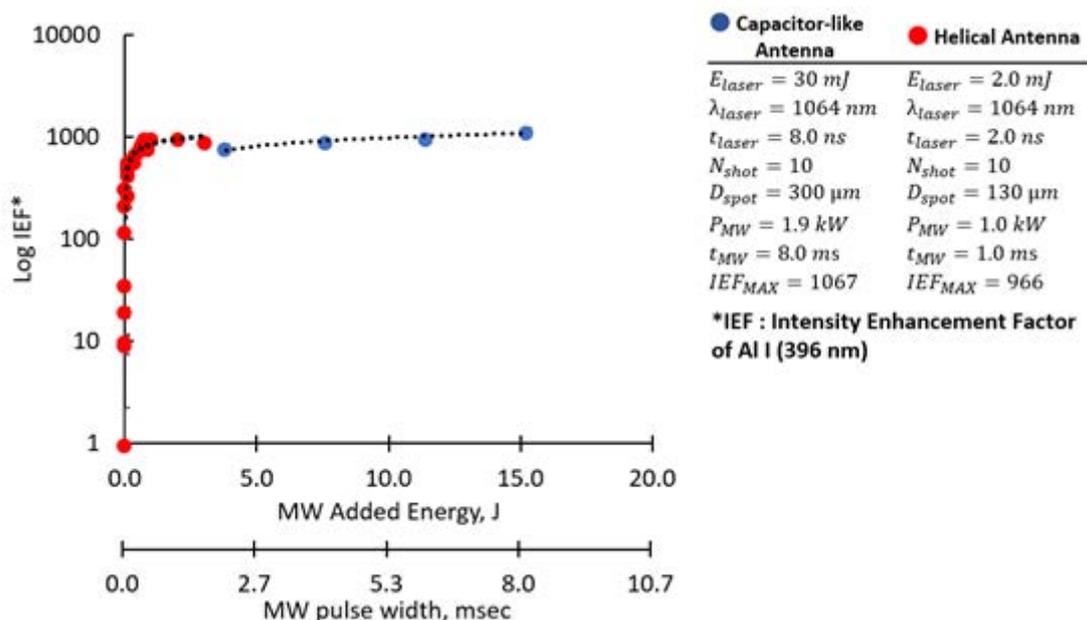


図 3.2-4 コイルアンテナと平面型アンテナ (Capacitor-like Antenna) のマイクロ波増強係数 IEF のマイクロ波パルス幅依存性

3.2.4 まとめ

コイルアンテナ・平面アンテナの設計最適化を行うことにより、MW-LIBSの増倍効果が増し、MW印加条件が緩和できるようになり、50 mの長距離伝送対策や耐放射線対策にマージンができた。LIBSセンサーとの位置関係など改善が必要な項目が出ているが、さらに最適化を進めていきたい。

3.3 SN比向上、測定精度改善に関する研究

3.3.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）

標的サンプルにAlとMoを用いて基本システムであるレンズ光学系のみでマイクロ波を重畳したLIBS測定システムのパラメータを変化させて、SN比に与える基本条件の評価を行い、光学パラメータの仕様を検討した。Alで8倍、Moで7倍のスペクトル増強を確認した。標的サンプルとして同様にAlとMoを用いて、ファイバー光学系での評価実験を行った。レーザースポットサイズ、エネルギー密度を変化させ、散乱光強度、SN比に与えるパラメータを検討した。

3.3.2 令和4年度の実施内容及び成果：マイクロ波発振条件の最適化

令和3年度に引き続き、LIBS光学系のパラメータ（パルス幅、パルス高さ、デューティ比、反射波等）の評価を行い、光学系仕様を再検討した[18]。ファイバー光学系での評価実験を行った。また、プラズマ位置へのアンテナの位置、形状及び発振パターン等のパラメータを最適化して、SN比の向上を図った。LIBSの繰り返し周波数に同期したマイクロ波重畳タイミング、発振パターンの条件を検討して、SN比が向上する可能性のあるパラメータを検討した[17]。

まず、Zrメタルを試料として、マイクロチップレーザー（パルスエネルギー1.0 mJ、パルス幅0.8 ns、発振波長1,064 nm、スポット径32 μm ）を使って、マイクロ波の出力1.0kW パルス幅1.0 msをアブレーションプラズマに照射し、プラズマ体積がどのように変化するか調べた。比較対象としては、アルミナ板を用いた[18]（測定条件パルスエネルギー2.0 mJパルス幅7.0 ns、波長1,064 nm、スポット径240 μm ）。その結果を図3.3-1に示す。アルミナ基板同様のプラズマ形状の時間変化が得られた。形状は、3つのセグメントに分けられ、レーザー照射後初期0～100 μs ではZrの膨張速度は74 $\mu\text{m}/\mu\text{s}$ となり、アルミナ板の67 $\mu\text{m}/\mu\text{s}$ より速い。この時間内では、レーザーのブレイクダウンによって形成されたプラズマがマイクロ波の伝播をブロックしたため、マイクロ波の吸収は最小限になったとみられる。これはプラズマが持つ高い電子密度によるもので、アルミナ板上で反射電力が増大して([17])、電磁場とプラズマ結合を妨げるものであった。マイクロ波増強LIBSでは、結合したマイクロ波放射は、プラズマの低電子密度領域で発生する。これは次に起こるプラズマ形成で観察される。

次の100～1,000 μs でマイクロ波吸収が最大になると、両方のプラズマの膨張率が減少する。膨張率はZrメタルとアルミナ板で $v_{\text{Zr}}=0.6 \mu\text{m}/\mu\text{s}$ と $v_{\text{Al}}=6 \mu\text{m}/\mu\text{s}$ であった。その後1.0 ms以降では、収縮速度はアルミナ板の方が遅くなったが、テーリングプラズマはZrプラズマよりも長く続いた。最大体積はZrメタル/アルミナ板でそれぞれ34 $\text{mm}^3/62 \text{mm}^3$ となった。

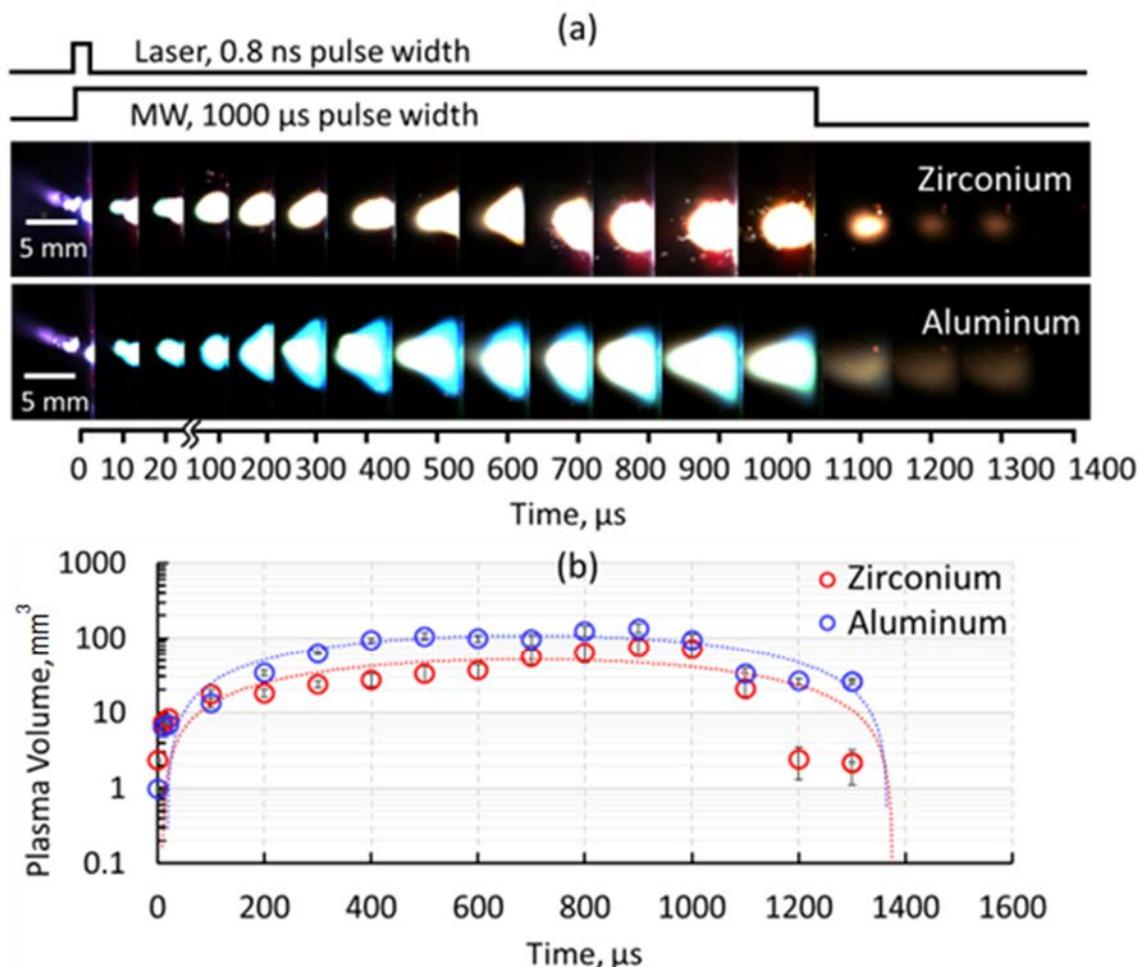


図 3.3-1 (a) 高速カメラ撮影によるプラズマ像 (b) Zr メタルとアルミナ板の近似プラズマ体積 (エラーバーは、プラズマ像のエッジ部分の不確実性による)

図 3.3-2 で標準 LIBS と MW-LIBS での色々な条件下における Zr メタルのプラズマ形成の概略と時間の様子を示す。Zr メタルにレーザーエネルギー1.0 mJ を照射すると、図 3.3-2(a) に示すように、アブレーションした。20 μs 後にはアブレーションが観察された。MW-LIBS では、図 3.3-2(b) に示すように、コイル アンテナを使用してアブレーションされたプラズマが拡大し、マイクロ波が照射される間、維持することができた。マイクロ波によって空気中に保持されたマイクロ波プラズマは、文献[15]で計測されたように、回転温度と振動温度が等しくない非平衡プラズマとみられる。

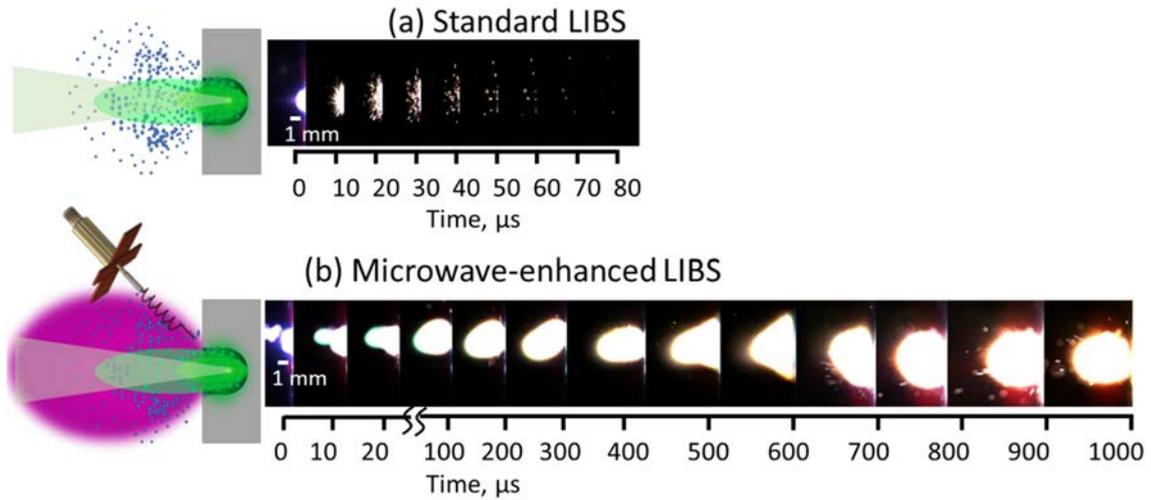


図 3.3-2 Zr メタルのアブレーション時の高速カメラ撮影像
 a) 通常 LIBS 条件 b) マイクロ波増強 LIBS 条件

1) Zr イオンの MW-LIBS による増大効果

図 3.3-3 は、標準及びマイクロ波強化 LIBS を使用して 445~635 nm で測定された Zr スペクトルを示す。使用した分光器は、 $\lambda/50,000$ 及び $\lambda/5,000$ の分解能である。Zr イオンには多くの発光ラインがあり、発光線の幅は、 $\lambda/50,000$ の分光器の場合狭くなる。レーザーのパルスエネルギー 1.0 mJ を使う標準的な LIBS では、Zr イオンの放出は弱く、イオンの LIBS 強度を観察することはほとんど不可能であったが、今回、Zr イオンの LIBS 強度はマイクロ波強度 1.0 kW による MW-LIBS で増大できることが確認できた。両方の分光器で、マイクロ波増強効果が $1 \sim 25 \times 10^4$ の大きさの範囲で同様に観察された。ただし分解能が低い分光器では、マイクロ波の追加によりゼロベースでの放射と連続放射も増加し、SNR の低下につながる可能性もある。

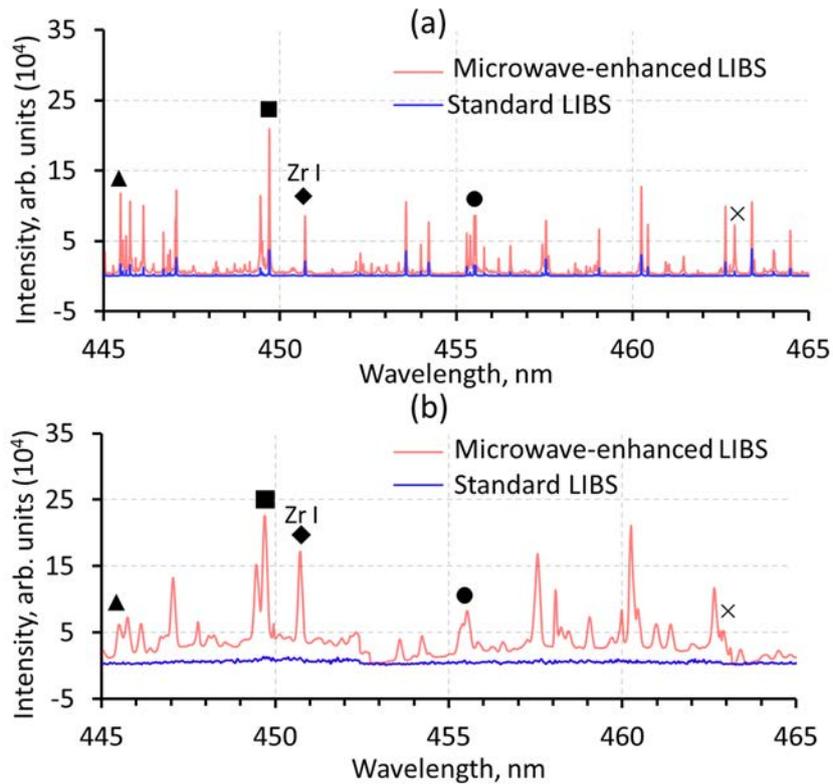


図 3.3-3 標準 LIBS 条件と MW 増強 LIBS 条件の Zr メタルの LIBS スペクトルの比較
 (a) λ 分解能 $\lambda/50,000$ 分光器 (b) λ 分解能 $\lambda/5,000$ 分光器

▲: Zr II at 445.47 nm, ■: Zr II at 449.70 nm, ●: Zr II at 455.39 nm, and
 ×: Zr II at 462.90 nm, and ◆: Zr I at 450.71 nm

$\lambda/5,000$ の分光器のゲート遅延を変更して、Zr イオン放出に対するマイクロ波の持続的な影響を調べた。図 3.3-4(a) は、明らかにマイクロ波によって維持されている 445.47 nm、449.70 nm、455.39 nm、及び 462.90 nm での Zr イオンの発光強度を示している。450.71 nm の中性原子 IEF と比較して、イオン IEF はより高い値を示した。これは、マイクロ波で増強された LIBS シグナルが Zr のイオン化を促進していることを示している可能性がある。

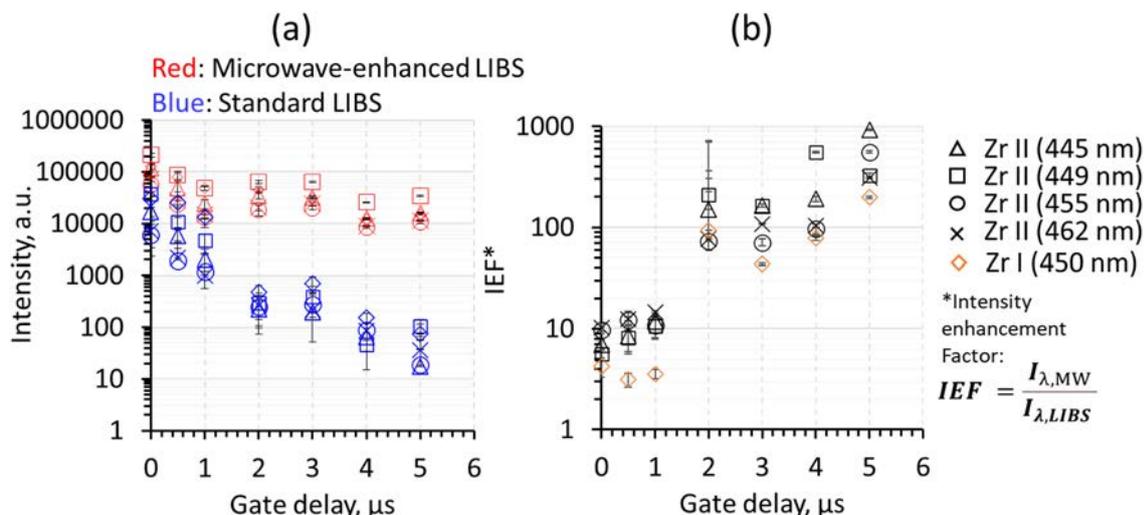


図 3.3-4 Zr イオンの a)各スペクトル強度と b)増強率 IEF のゲート遅延時間依存性赤：MW 増強 LIBS 青：通常 LIBS (Zr メタル試料の 10 点の位置で 100 個のスペクトルを測定してエラーバーを算出)

SNR の測定結果においては、図 3.3-5 に示すように、マイクロ波出力 300~1,000 W で 1,000 倍以上の SNR 値が得られた。マイクロ波は、IEF と SNR の両方を指数関数的に増加できることを示した。これは、アルミナ板、Pb、ステンレス鋼 [16] などの他の材料で観察されたものと同様であった。マイクロ波出力の増加は、マイクロ波吸収の増加につながっている。800 W から 1,000 W までの IEF と SNR の変動は、スペクトルのバックグラウンドの変動が原因である可能性がある。

次にマイクロ波入力に対して IEF と SNR に飽和効果があることが分かった。外部共鳴電磁放射のパワーの増加に伴うスペクトル線（吸収線または輝線）の強度が減少する。これは、材料が放出している光を吸収するときが発生する自己吸収と同じではない。飽和効果は、それを引き起こすエネルギーの力が増加するにつれて、発光の明るさが減少するときが発生する。これは、エネルギーが非常に強くなり、光の放出を抑制し、強度が低下した場合に発生する。つまり、エネルギーが強くなると、光が逃げにくくなり、見えにくくなる。もう 1 つの要因は、アンテナの位置に対してマイクロ波結合効率が、過度に敏感である可能性がある。この現象はまだ調査中である。さまざまな MW パワーと一致して、449.69 nm での Zr II と 450.71 nm での Zr I の SNR が最高値を示すことができた。

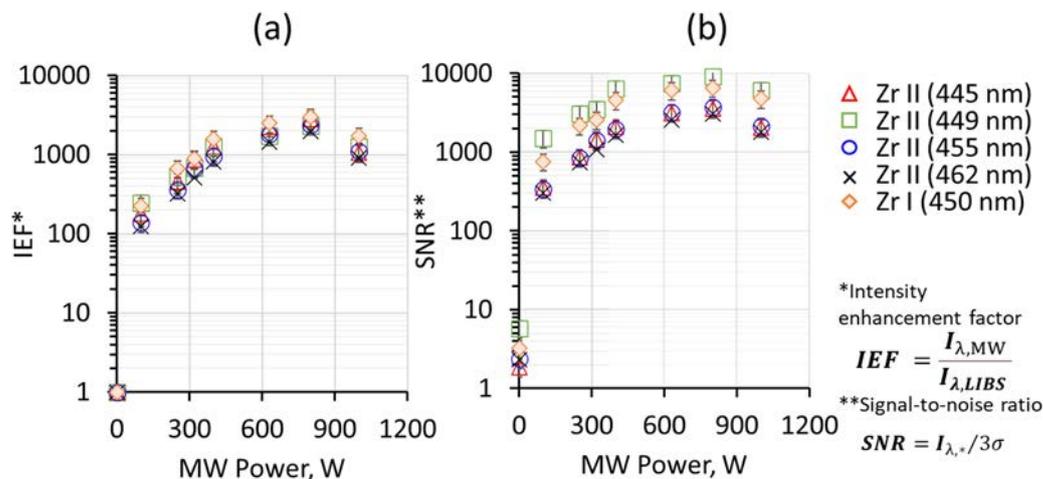


図 3.3-5 ゲート遅延時間 5 μ s における Zr イオンと Zr 原子の LIBS 増強率 (IEF) と SNR のマイクロ波出力依存性

標準条件は MW 出力 0W、MW 増強 LIBS は MW 出力 100~1,000 W に相当する。(Zr メタル試料の 10 点の位置で 100 個のスペクトルを測定してエラーバーを算出)

3.3.3 令和4年度の実施内容及び成果：同位体計測パラメータの抽出

令和3年度に引き続き、マイクロ波導入で向上した信号を用いて、背景光の影響、マイクロ波の有無、マイクロ波の条件変化での信号強度の最適値検討を行った。また、近接した波長の分光データから同位体計測に必要なスペクトルを探し、同位体計測の準備を行った。マイクロ波重畳で得られるスペクトラムの強度改善効果を検討した。マイクロ波発振パターンで得られるスペクトラム比を抽出した。

JAEAの高分解能分光器を用い、マイクロ波重畳LIBS測定を行った。模擬デブリ材料に適用し、マイクロ波重畳によるLIBSシグナルの増強効果を確認した(3.5.2項参照)。

a) Zr 金属と Zr 酸化物のプラズマ発光試験結果

図3.3-6は、マイクロレーザーとアリエル分光器(分解能 $\lambda/50,000$)を用いて波長範囲 445 ~ 620 nm で測定した Zr 金属と Zr 酸化物圧縮粉末のスペクトルを示す。これより前に、低解像度の分光器 ($\lambda/5,000$) で測定したように、この波長範囲では連続発光が高いため、特に興味深い。まず、材料の種類に関係なく、連続体の発光強度が少ないことが注目される。さらに、マイクロ波照射により、連続発光が大幅に増加したが、National Institute of Standards and Technology (NIST) データベースから特定された Zr 線の発光強度が著しく増加した。材料間では、金属の強度増加率は、酸化物粉末の 278 倍と比べて 571 倍と高かった。この LIBS 強度の増加率は、波長 473.9 nm の Zr I について観察された。発光強度は、ゲート遅延 5 μ s のために、原子の中性放出ごとに異なり、マイクロ波なしでは目に見える放出はなかった。これは、より低いエネルギー準位遷移による原子放出の増強にもつながっている。

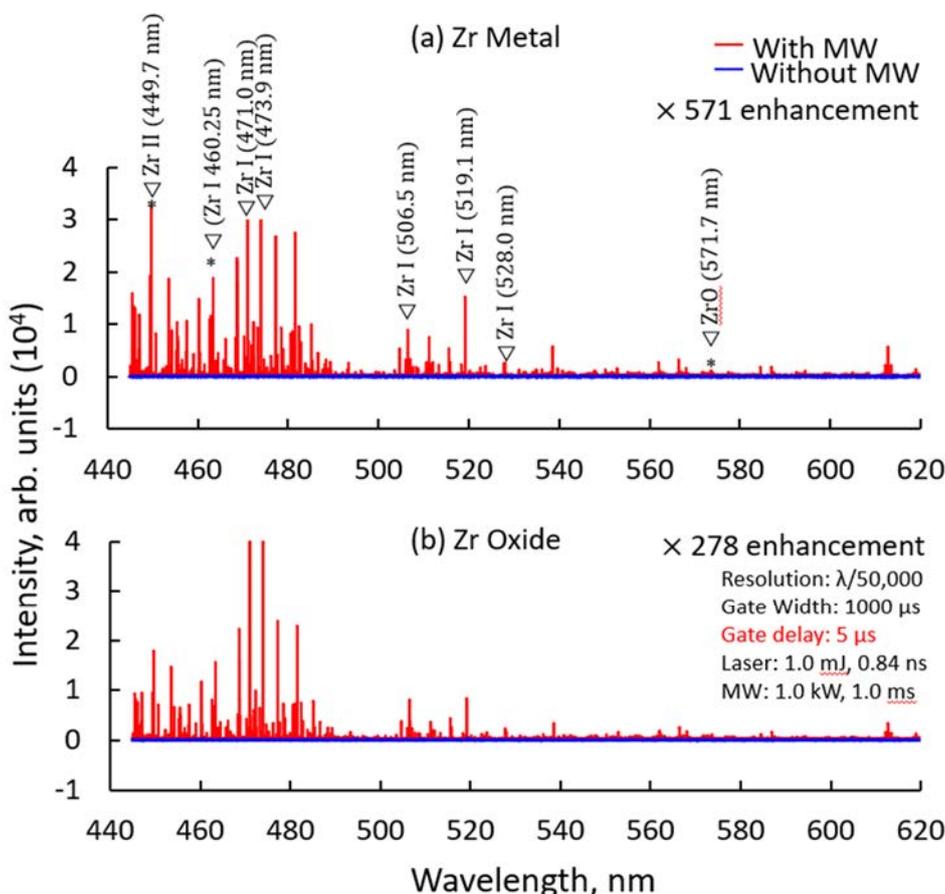


図 3.3-6 a) Zr メタルと b) ZrO₂ 板の通常 LIBS と MW 増強 LIBS スペクトル強度比較 (波長 445~620 nm)

図 3.3-7 は、図 3.3-6 の波長 449~451 nm におけるスペクトルの拡大図を示す。原子放出 Zr I (450.7 nm)、Zr II (449.4 nm)、及び Zr II (449.7 nm) も図示しており、マイクロ波増強下での酸化物と金属の違いが分かる。LIBS プラズマの寿命が 5 μs 未満だったため、マイクロ波がないと輝線 (背景光) はみられない。ただし、イオン放出 Zr II (449.7 nm) のマイクロ波増強は、酸化物粉末の 2 倍であった。これは、アンテナに対する低電位電極として機能するため、金属表面でのマイクロ波誘起アブレーションとイオン化の可能性があると考えられる。電極として機能する金属とは異なり、酸化物粉末は、マイクロ波誘起イオン化の影響を与えない誘電体バリアとして機能する可能性がある。

この領域内では、遷移エネルギー 3.29 eV の Zr I で最も低いにもかかわらず、イオン放出は原子中性放出よりも大きくなっている。5 μs でアブレーションプラズマへのレーザーエネルギーの寄与がなくなり、マイクロ波エネルギーのみがプラズマ発光の再励起と再イオン化を維持するとみられる。レーザー発射後の、このゲート時間帯での高いイオン放出は、Zr 金属及び酸化物のマイクロ波誘起イオン化を示している。イオン対原子比 (Zr II/Zr I) は、金属の融点が低く、金属が低電位電極として機能しており、金属では 2 倍になると考えられる。

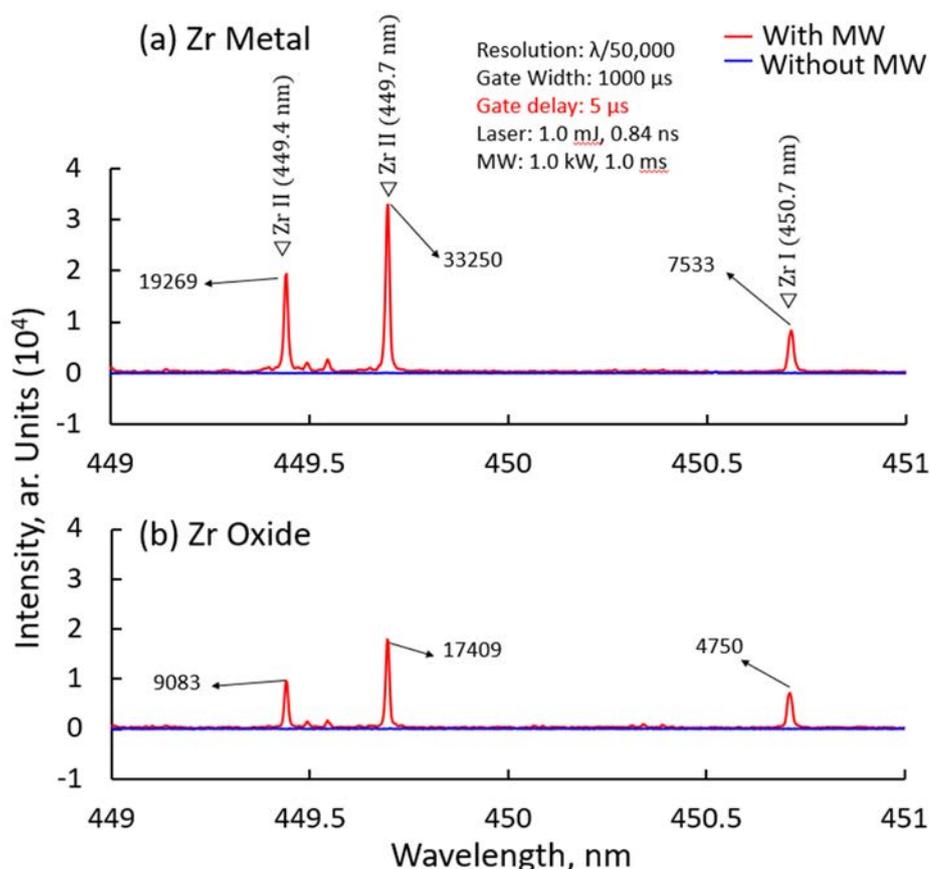


図 3.3-7 (a)Zr メタル (b)ZrO₂ 板の通常 LIBS と MW 増強 LIBS スペクトル比較 (波長 449~451 nm)

b) IEF と SNR

原子、イオン及び分子の放出の IEF 及び SNR を、金属及び酸化物ターゲット全体のゲート遅延の関数として評価した。

LIBS に対するマイクロ波の影響は、式 (1) で表される IEF で表すことができる。この係数は、特定の波長 (λ) でマイクロ波強化 LIBS で測定された発光強度 $I(\lambda, MW)$ を、マイクロ波なしの標準 LIBS 発光強度 $I(\lambda, LIBS)$ で割ることによって計算される。

$$IEF = I_{\lambda, MW} / I_{\lambda, LIBS} \tag{1}$$

マイクロ波は、バックグラウンド信号の標準偏差に対する発光強度の比として計算する。SNR によっても影響を受ける。SNR は信号 H (ピーク強度から平均バックグラウンド信号を差し引いたもの) をバックグラウンドノイズの標準偏差 (σ) で割った値で表される (式 (1)を参照)。

$$SNR = H / 3\sigma \tag{2}$$

図 3.3-8 は、原子とイオンの放出の SNR 測定値を示す。ゲート遅延を長くしてバックグラウンド連続体ノイズを減らした場合でも、SNR はマイクロ波なしで急速に低下した。マイクロ波は、金属と酸化物の両方で長期間維持される高い SNR 値をもたらす。最適な SNR は 5 ~10 μs の範囲内であった。イオン放出と原子放出の間で SNR の優先的な増加はなかった。ただし、一般的には酸素からより高い光放出があるため、酸化物は一般に SNR が低くなると考えられる。

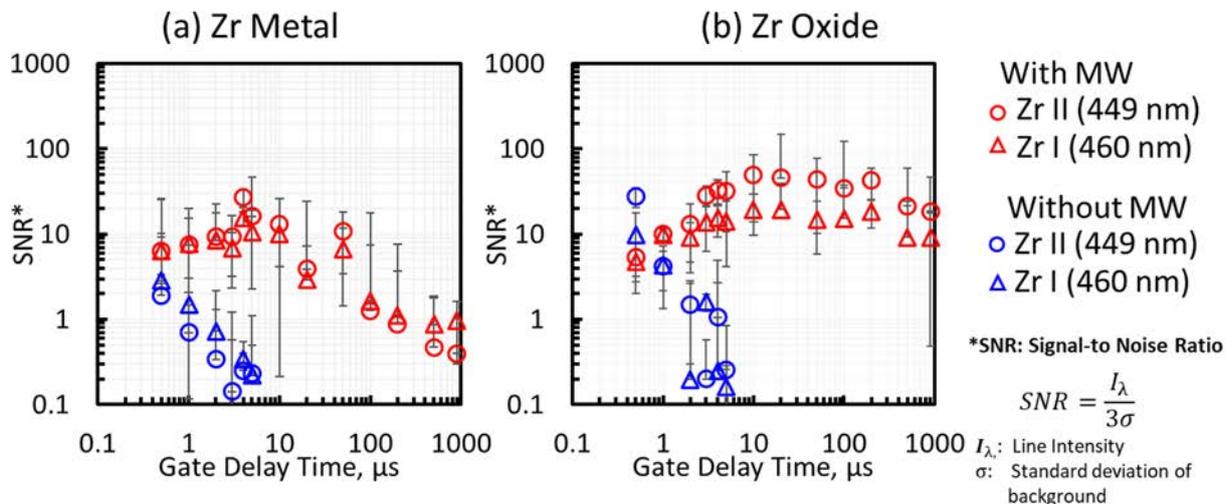


図 3.3-8 (a)Zr メタルと (b)ZrO₂ タブレットにおける Zr I 原子 (460 nm) Zr II イオン (449 nm) の SNR 測定 (エラーバーは 10 回表面を研磨してリフレッシュした後の測定値で計算)

図 3.3-9 では、Zr 金属と酸化物のマイクロ波強化 LIBS の IEF と SNR に対するマイクロ波の影響を 5 μs 内で比較した。一般に、金属の IEF は酸化物よりも原子とイオンの両方で高いため、SNR は材料の種類に関係なく同じになる。また、原子の SNR とイオンの SNR の間に有意差がないことも注目されるべきことである。これは、核デブリのターゲット アプリケーションに不可欠となる。マイクロ波が選択的な強度の増強を示し、より低い上部エネルギーレベルでの遷移となるため、重要な結果である。これは、ウランが Gd、Zr、Fe などの元素と結合している場合、同位体測定に悪影響を及ぼすことになる。ただし、マイクロ波による SNR の向上は、さまざまな上限エネルギーレベルでほぼ同じである。マイクロ波強度の増強は金属に有利に働いたが、SNR は材料の種類の影響を受けず、マイクロ波によって 10 倍以上増加した。

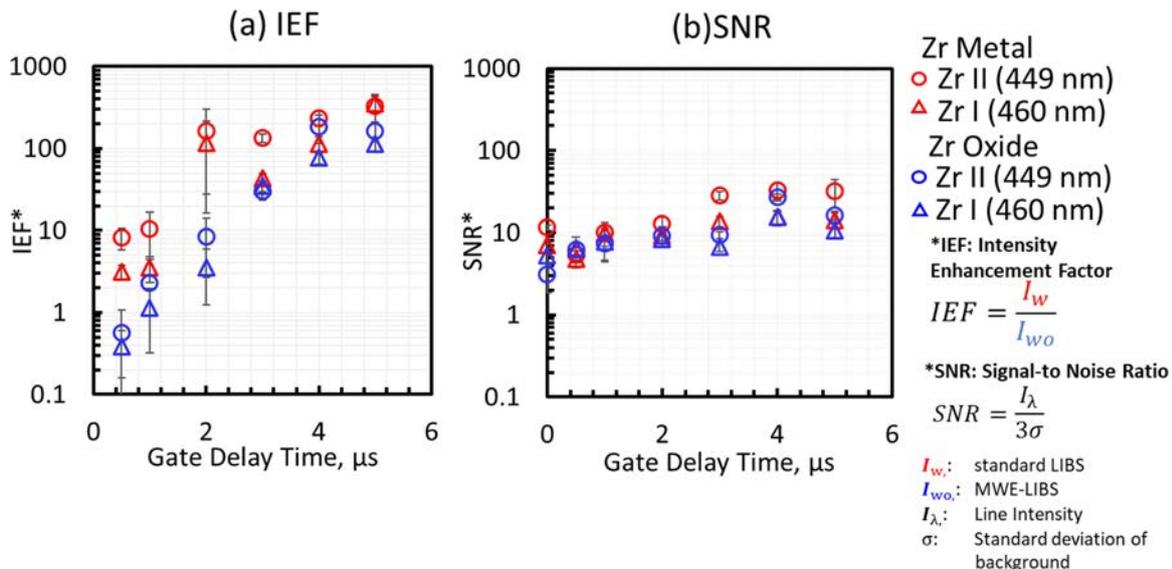


図 3.3-9 MW-LIBS における Zr メタルと ZrO₂ 板の (a)MW 増強率 IEF と (b)SNR 測定値 (エラーバーは 10 回表面を研磨してリフレッシュした後の測定値で計算)

3.3.4 まとめ

Zr 金属と酸化 Zr を用いたマイクロ波増強 LIBS により、SN 比は 100 倍以上に改善できた。マイクロ波の重畳エネルギーは 0.1 J 以上で飽和傾向になり、0.2 J 以上で SN 比は安定して 100 倍以上が得られた。高速カメラでプラズマ体積を測定し、マイクロ波の重畳エネルギーを上げるとプラズマ体積が大きくなることを見出した。

同位体計測を目的とした Zr の 2 つの異なるスペクトル比がマイクロ波の条件によらず、大きな変動を起こさないことが分かった[4]。

JAEA の高分解能分光器を用い、Zr 金属と酸化 Zr を用いたマイクロ波重畳 LIBS 実験を詳細に行うことによって、各パラメータの最適化を図ることができた。これによって同位体計測の準備ができた。

3.4 全体システム構築に関する研究

3.4.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）

光ファイバーLIBS光学系の精度向上のため、システムのバージョンアップを検討し、Pb、Al等による基礎評価及び計測性の向上効果と全体システムの評価を行った。さらに、集光プロセスの自動化において、アンテナとプラズマ部の最適位置調整に用いるため、光ファイバーセンサー部の移動用のトラバースを検討した。テーブルトップ LIBS 光学系、小型化された LIBS センサー部、マイクロ波アンテナの統合とシステムの評価を行った。また、具体的なサンプルでの評価実験を行った。精度向上のための改良を行った。

3.4.2 令和4年度の実施内容及び成果：ハードウェア構築

図 3.2-3 のハードウェアを用いてステンレス (Cr 含有)・Pb・Al 等を用いて計測性の向上効果を検討したところ、材料によらずマイクロ波重畳によるシグナル強度の増大効果・SN 比向上の効果が出ることを示した。

アンテナとLIBSセンサーの位置関係を微小に調整するトラバースを検討したが、マニュアル調整で対応がついた。

鉛 (Pb) 及びステンレス鋼 (SUS304) での MW 増強の結果

MW がどのようにアルミナターゲットのスペクトル発光強度を増加させ、バックグラウンドノイズの減少により SNR を改善するかを調べた。ここでは、同じ MW 付加エネルギーを持つ Al 以外の物質の SNR の影響を調べた。

図 3.4-1 は、MW 増強の有無にかかわらず、アルミナ、ステンレス鋼及び Pb プレートの発光スペクトルを示す。3 つのケースすべてにおいて、信号レベルは MW 入力によって改善され、バックグラウンドノイズは影響を受けていない。最大強度は、ステンレス鋼と Pb でそれぞれ 520.84 nm となった。520.84 nm の発光は Cr I 発光として、405.78 nm の発光は Pb I としてアサイメントされる。これらの発光強度に基づく IEF と SNR の結果は、MW の追加エネルギーの増加に伴って大幅に増加することができた。Cr I では 49 の IEF が得られ、Pb I ではより大きな 1,292 の IEF 値が得られた。Cr I と Pb I の値の最大 SNR は、それぞれ 68 と 2,522 となった。IEF と SNR の違いは、Cr (2180 K) と比較して Pb (327 K) の融点が低いことに対応している。

ステンレス (Cr 含有)・Pb・Al 等を用いて計測性の向上効果を検討したところ、材料によらずマイクロ波重畳によるシグナル強度の増大効果・SN 比向上の効果が出ることを示した (図 3.4-2)。

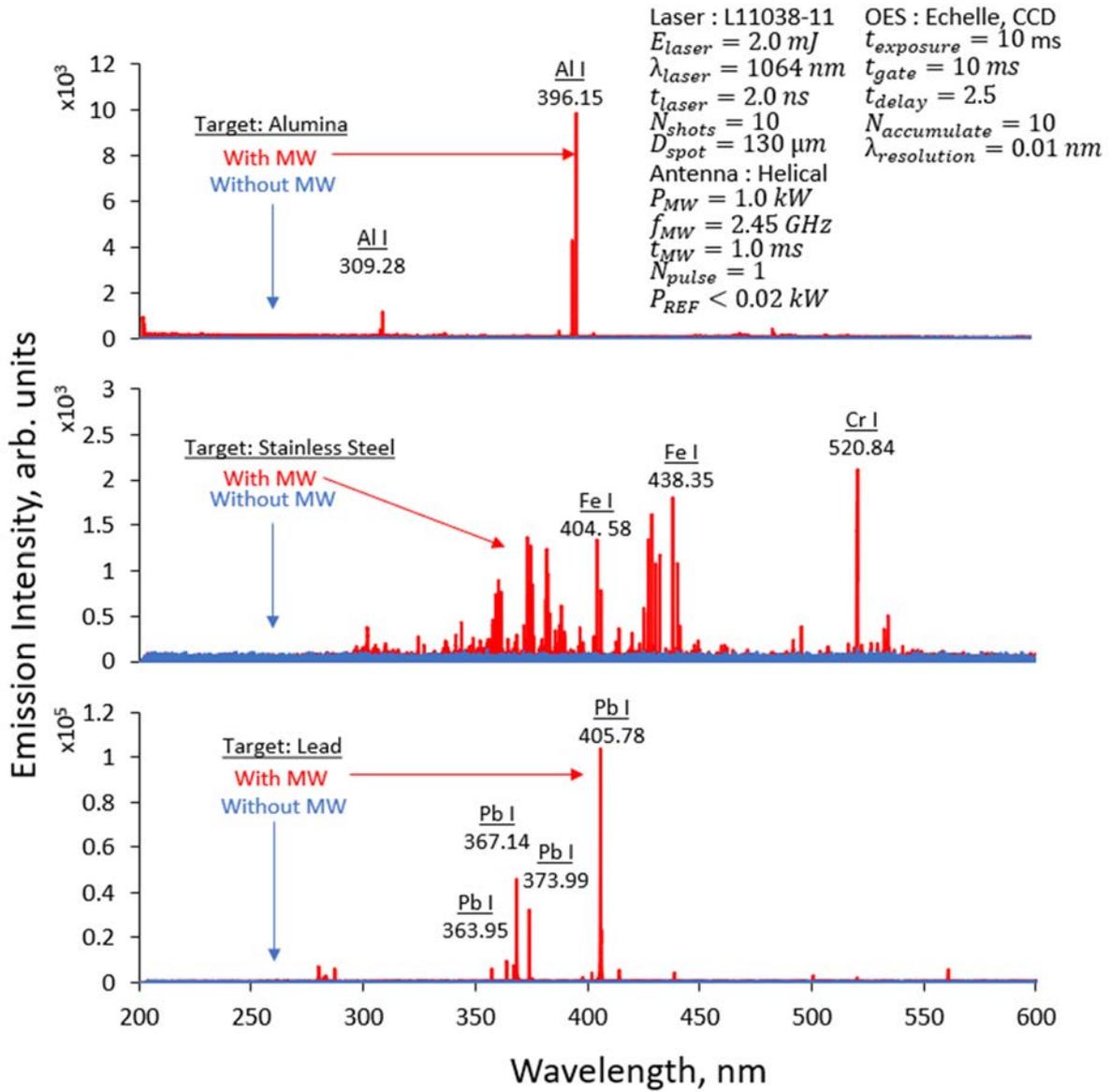


図 3. 4-1 マイクロ波有り/無しの(a)Al 板 (b)ステンレス板 (c)Pb 板の LIBS スペクトル

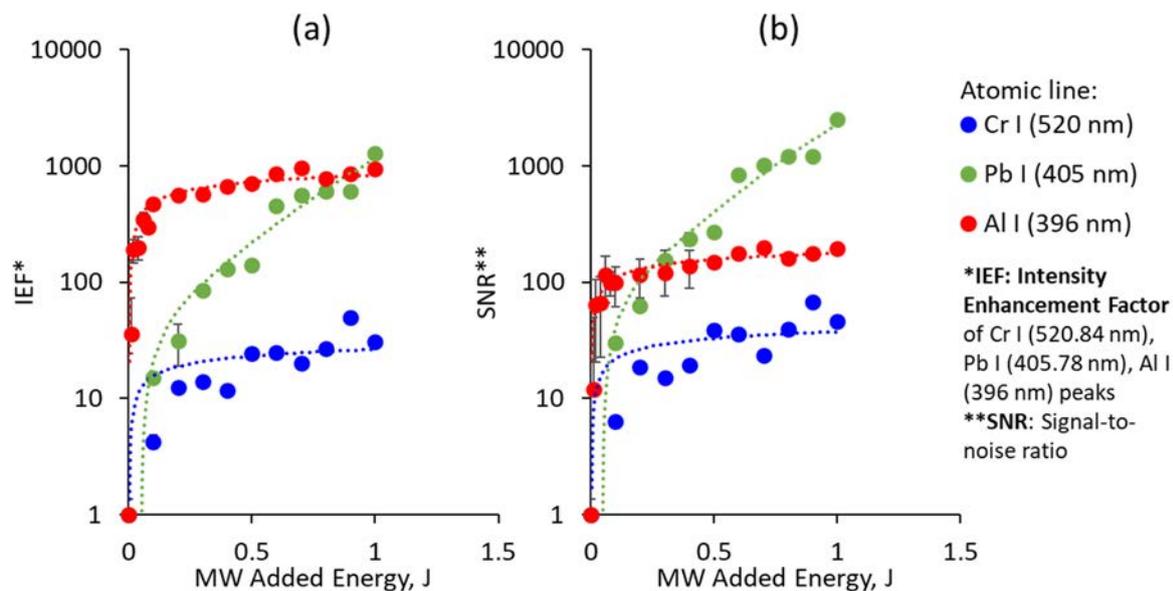


図 3-4-2 Al・Pb・Cr（ステンレス板）の LIBS 強度改善結果
 (a)LIBS 強度 (b)SNR の MW 出力依存性

3.4.3 令和4年度の実施内容及び成果：データ解析ソフトウェアの構築

LIBS で得られるスペクトラムとマイクロ波重畳で得られるスペクトラムとの差異を検討し、ピーク検出と背景光のデータ処理の仕様を検討した。マイクロ波の発振パターン、レーザーの発振状況、分光器データ、アンテナの位置情報及び積算回数でのデータの平均化等のデータ解析を行い、データ解析ソフトウェアの仕様を検討し、ソフトウェアの構築を進めた。サンプルを用いた実験によるシステム評価を行った。精度向上のための改良を行った。

マイクロ波重畳時の各パラメータを決定し、LIBS 強度・SN 比に対する依存性を計算する解析ソフトの作成を行った。基本は、スペクトルの CSV 形式のデータをエクセルで取り込み、マクロで処理する手法で解析ソフトを構築した。

図 3.4-3 は、分光器制御用 PC から取り込まれた CSV ファイルを、エクセルのマクロを使ってデータ解析するためのエクセル画面である。

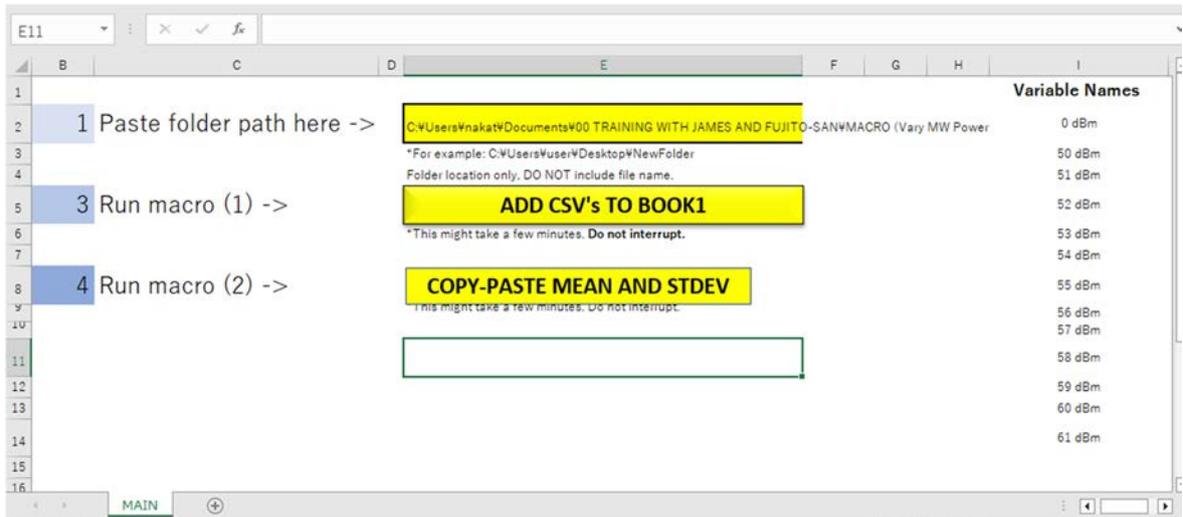


図 3. 4-3 エクセルマクロ作成画面

このマクロを使って、マイクロ波による LIBS スペクトルの増強率 IEF、SNR、それぞれの平均値と標準偏差をエクセル上で計算することができるようになった。また、マイクロ波照射時の各パラメータ（マイクロ波出力、照射時間、レーザーとの遅延時間）の依存性をグラフ化し、可視化することによって、迅速に測定条件の最適化を図ることが可能になった（図 3. 4-4）。

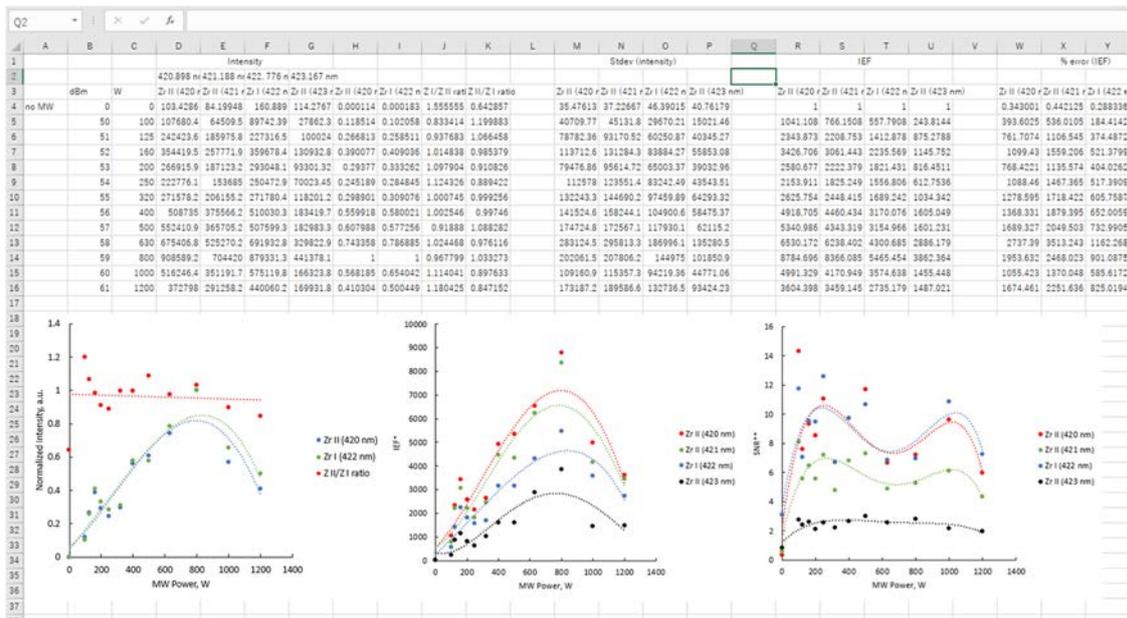


図 3. 4-4 エクセルマクロで取り込んだ LIBS スペクトルからの各パラメータ依存性グラフ

今後は多様な LIBS スペクトルに対応するため、スペクトル線幅のフィッティング手法、スペクトルのバックグラウンドの差分削除についても、迅速に解析できるよう自動化を進めたいと考えている。

3.4.4 まとめ

Cr 含有のステンレス・鉛・アルミニウムを用いて全体システムの計測性の向上を図った。材料によらずマイクロ波重畳による LIBS シグナル強度の増大効果・SN 比の向上効果が得られることが示された。

マイクロ波重畳時の各パラメータを決定し、LIBS 強度・SN 比に対する依存性を計算する解析ソフトを、エクセルのマクロを使って作成した。

3.5 LIBSプローブ実装による評価研究（連携先：JAEA）

3.5.1 令和2年度～令和3年度までの実施内容及び成果（概要）

① LIBS基本特性評価試験と模擬デブリによる実証試験

アイラボから提供を受けたマイクロ波システムを実装し、模擬試料により、発光強度、波長分解能に及ぼす影響、SN比等に関する評価を実施した。

マイクロ波との組み合わせは、アンテナとの干渉の観点から、長焦点距離対応が可能なマイクロチップレーザーLIBSプローブを利用することが良いとの判断となった。また、マイクロ波のカップリングなどを考慮し、専門家を有するアイラボにマイクロチップレーザー内蔵LIBSプローブを持ち込んで共同実験を実施し、性能を評価した。

3.5.2 令和4年度の実施内容及び成果

アイラボから提供を受けたマイクロ波システムとその照射条件を活用し、酸化物試料を対象に、高分解能分光器による分光特性を評価した。

評価結果を基に、マイクロ波重畳LIBS法を未照射核燃料物質の高分解能分光試験に適用し、その性能を評価した。

① Zrを試料とした超高分解能分光試験

令和2年度に開発したマイクロ波重畳評価試験専用のマイクロチップレーザー内蔵ファイバーLIBSプローブ（MCL）を用い、アイラボの協力を得て各種試料にマイクロ波を重畳した計測を行った。測定システムを図3.5.1-1に、MCL及び試験時セットアップの外観（MCLとアンテナ及び試料、超高分解能分光器の外観）を図3.5.1-2に示す。

使用しているマイクロチップレーザーは、受動Qスイッチを用いているため、発振時刻の制御が困難である。そこで、システムのタイムシーケンスを定めるために、まず外部パルス発生器によりレーザー電源を動作させてマイクロチップレーザーを発振させ、発振したレーザー光を光検出器で検出し、これを基準に同期用パルス発生器を作動させることで同期信号を発生させた。これにより、レーザー光、分光器による時間分解分光及びMW発振器のタイムシーケンスを定めた。

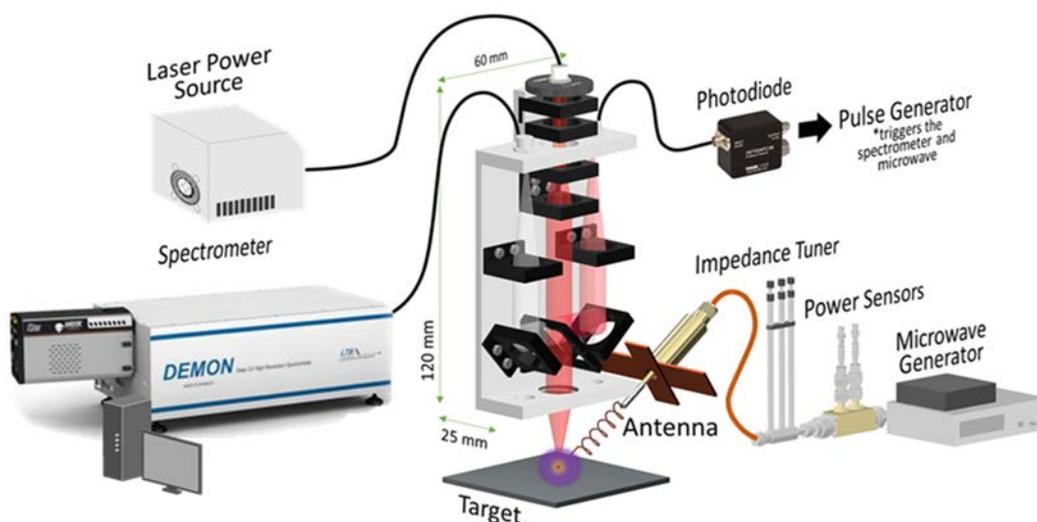
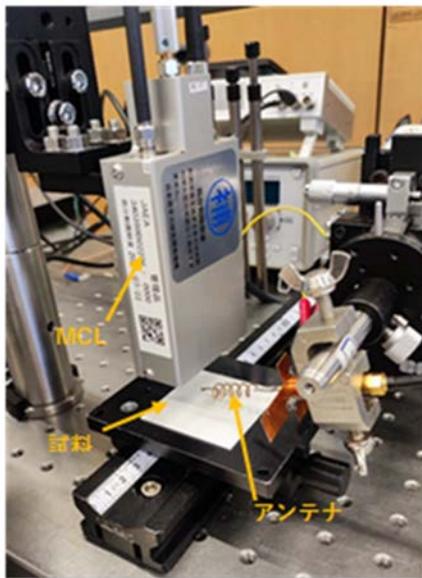


図 3.5.1-1 測定システム構成図

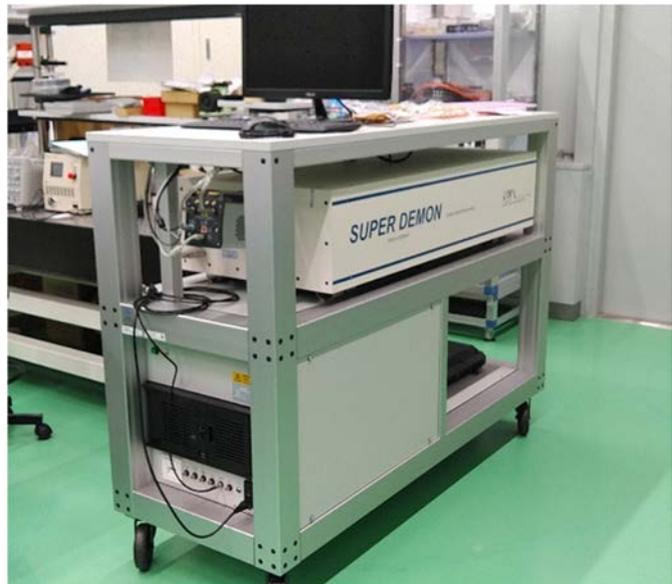


a) MCL 外観 1
(光出射側)

b) MCL 外観 2
(外部コネクタ側)



c) MCL とアンテナ及び試料の外観



d) 超高分解能分光器の外観 (波長分解能 $\lambda / 150,000$)

図 3.5.1-2 MCL 及び試験時セットアップの外観

a) Zr 金属・Zr 酸化物による試験結果:高分解能分光器による MW-LIBS 測定

Zr イオン及び原子の発光強度は、正確な絶対強度値と最小限のゼロベース変動を備えた高解像度分光器 ($\lambda/150,000$) を使用して測定した。図は、Zr 金属及び酸化物の 1.0 mJ 標準 LIBS、1.0 kW マイクロ波増強 LIBS を使用した Zr I (450.71 nm)、Zr II (449.69 nm) 発光を示しています。マイクロ波は、Zr I と Zr II の放出、及び金属の連続体の放出を増加したが、酸化物では増加しなかった (図 3.5.1-3)。連続体の放出は、周囲の空気との相互作用の増加と関連しているとみられる。

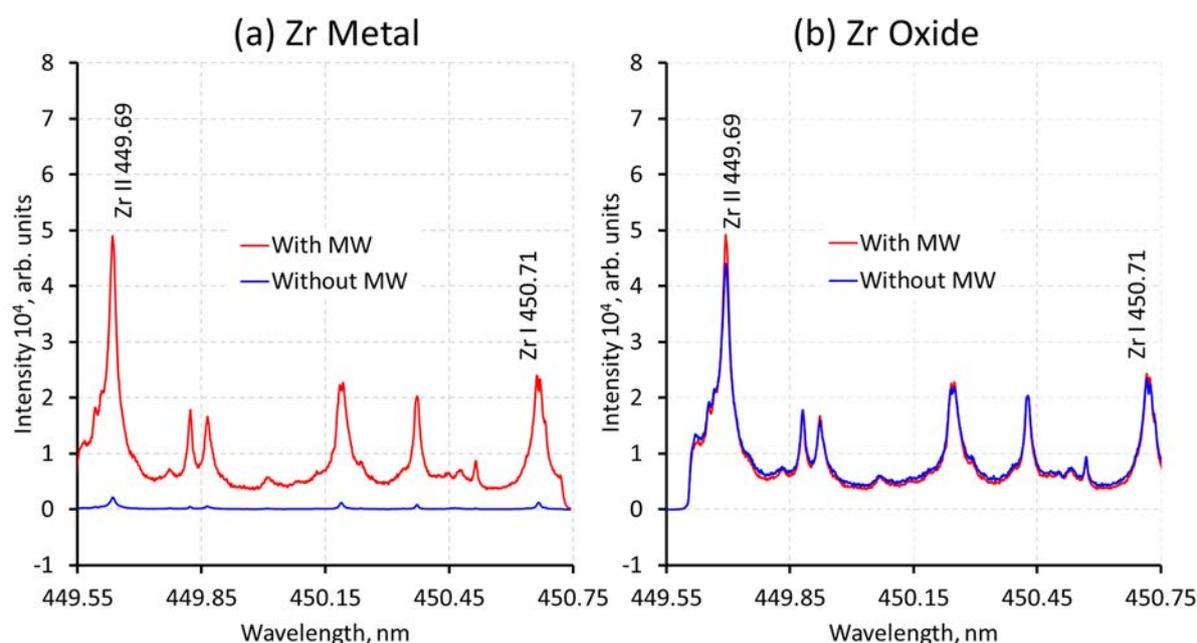


図 3.5.1-3 パルスエネルギー1.0 mJ 波長 1064 nm のレーザー、出力 1.0 kW のマイクロ波を使った Zr 金属・ZrO₂ 板の LIBS

図 3.5.1-4 に示すように、マイクロ波によってバックグラウンドが増加しても、IEF と SNR も増加した。Zr I (450.71 nm) と Zr II (449.69 nm) の IEF と SNR は、分光器のゲート遅延によって強化できた。マイクロ波は Zr I 及び Zr II 放射を維持し、IEF が 1000 を超えて増加した。標準 LIBS では SNR の減少があったが、マイクロ波は 100 を超える SNR を維持できた。低解像度の分光器と同様に、マイクロ波による増強効果は、Zr I と Zr II で同じであった。

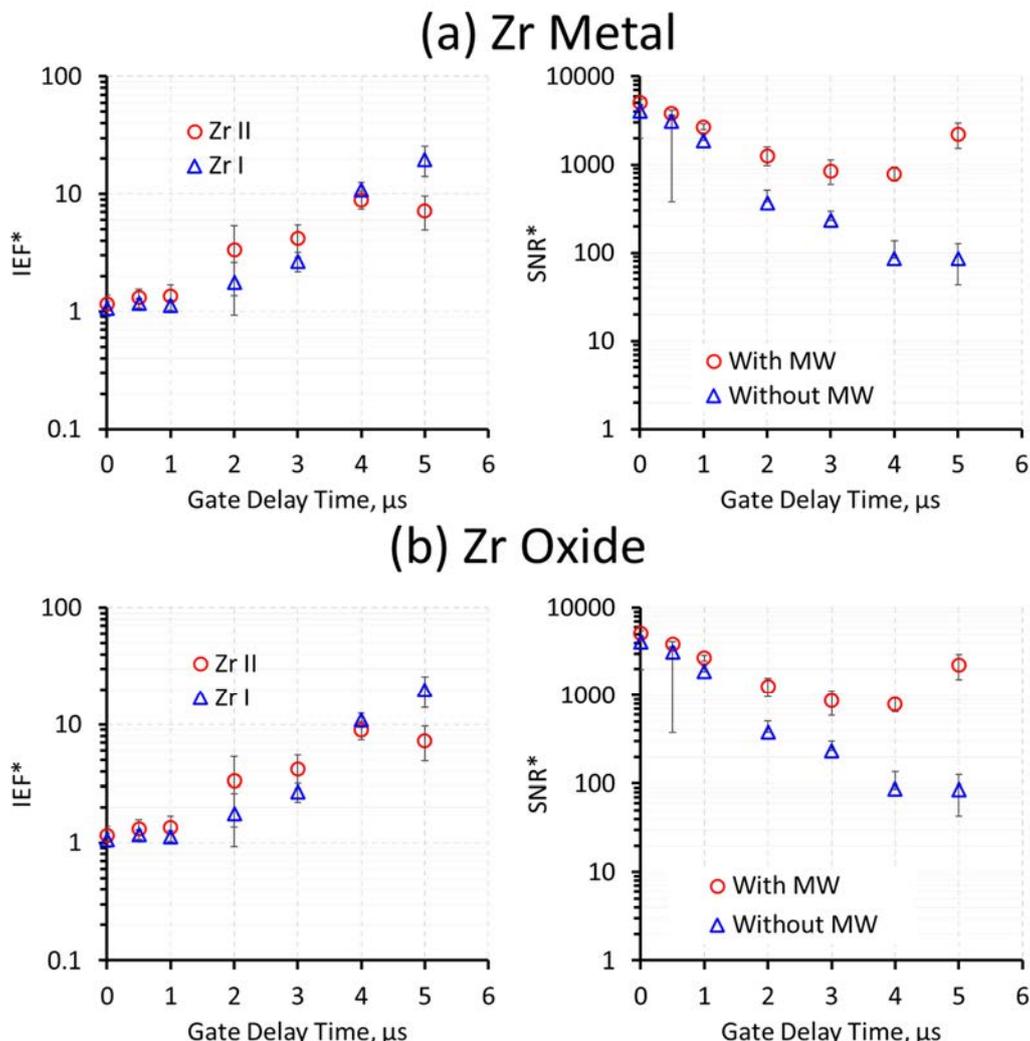


図 3.5.1-4 パルスエネルギー1.0mJ 波長 1064nm のレーザー、出力 1.0kW のマイクロ波を使った Zr メタル・ZrO₂ 板の ZrI (450.71 nm) ZrII (449.69 nm) の IEF と SNR

②未照射濃縮ウランを試料とした超高分解能分光試験

a)試験方法

本試験の実施においては、JAEA が「マイクロ波重畳 LIBS 実証試験の支援業務」として、日本核燃料開発株式会社と作業実施契約を締結し、契約先の有する核燃料物質等使用施設を利用して実施した。支援業務内容を以下に、工程を表 3.5.2-1 に示す。

- ① 作業者の受入れ手続き
- ② 作業施設・設備（フード等）の確保、利用
- ③ 既存核燃料物質試料の準備
- ④ 機器設置・撤去作業の補助
- ⑤ 試験補助作業
- ⑥ 安全管理（放射線管理を含む）
- ⑦ 設備の原状復帰（廃棄物処理を含む）

表 3.5.2-1 「マイクロ波重畳 LIBS 実証試験の支援業務」実施工程

日程	作業内容		担当
1 日目	搬入	JAEA から送付する可搬型光ファイバーLIBS 装置及び超高分解能分光器を作業施設内に受け入れる。	運送業者 JAEA 職員 契約先職員
	機器設置	指定位置に機器を設置する。 (機器の養生等を含む)	JAEA 職員 契約先職員
	動作確認	機器を組み立てて基本動作を確認する。	JAEA 職員
2 日目 3 日目	試料準備 1	事前協議で決定した焼結試料を準備しフード内の試料ステージに装着する。	契約先職員
	分光試験 1	マイクロ波重畳 LIBS 装置にて分光試験を実施。必要に応じて汚染確認、除染を実施。	JAEA 職員 契約先職員 (補助)
	試料準備 2	試料準備 1 と同様。必要に応じて除染。	契約先職員
	分光試験 2	分光試験 1 と同様。	試験 1 と同様
	試料準備 3	試料準備 1 と同様。	準備 1 と同様
	分光試験 3	分光試験 1 と同様。	試験 1 と同様
	試料準備 4	試料準備 1 と同様。	準備 1 と同様
	分光試験 4	分光試験 1 と同様。	試験 1 と同様
	試料準備 5	試料準備 1 と同様。	準備 1 と同様
	分光試験 5	分光試験 1 と同様。	試験 1 と同様
	設備の原状復帰	使用した設備について、除染、汚染確認により原状復帰する。	契約先職員 JAEA 職員 (補助)
	廃棄物処分	発生した廃棄物を処分する。	契約先職員
4 日目	機器撤収	機器の汚染検査を実施する。 機器を整理し、運搬可能な状況とする。	契約先職員 JAEA 職員
	搬出	機器を搬出し、JAEA に運搬する。	JAEA 職員 契約先職員 運搬業者

本試験で使用する超高分解能分光器やマイクロ波重畳 LIBS 試験装置については、運搬契約による作業により、福島県富岡町の CLADS 国際共同研究棟から、茨城県東茨城郡大洗町の日本核燃料開発株式会社に運搬した。この運搬業務では、機器積み込みでの安全性確保・振動抑制や運搬途中の振動を極力抑制する目的から、精密機器運搬用のパワーゲート付きエアサスペンション車両を選定する等、細心の注意を払った。

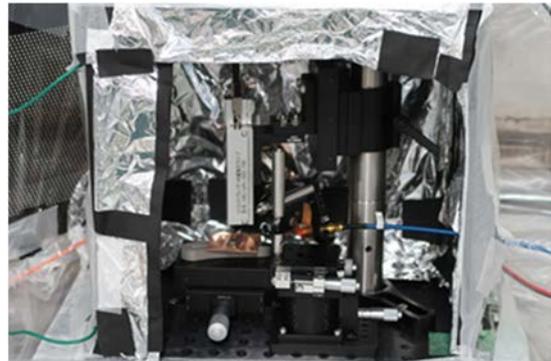
未照射濃縮ウラン試料を用いた試験を実施するためには、装置一式を核燃料物質等使用施設に持ち込んで試験を実行する必要がある。施設内では、非密封の試料が扱えることから、核燃料物質等の使用に伴い、空気汚染が発生する可能性がある。このため、装置自体は、実験室内の雰囲気と直接触れることのないよう、ビニールなどで表面を養生することが求められる。

そこで、このような利用を前提に、事前に実験機器を一つの可搬型ラックに組み込んだ。また、マイクロプラズマ生成時に、異常放電が発生する可能性があることから、設置した静電シールドボックスを設け、LIBS プローブ部分をその中に設置し、ノイズに弱い電子機器 (火災報知器など) に対する保護も考慮した。

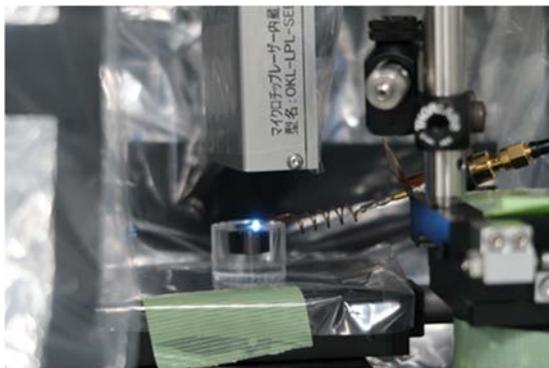
装置を一体化した様子、核燃料物質等使用施設内で養生した機器の様子を図 3.5.2-1 に示す。



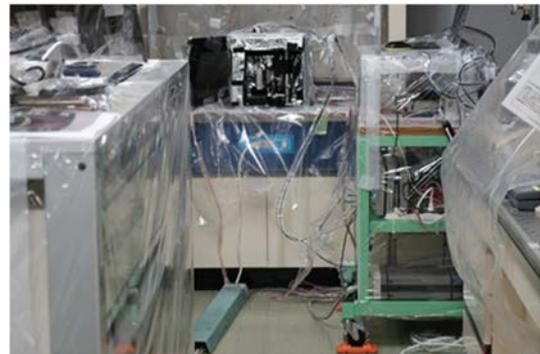
a) 一体化した装置の様子



b) 静電シールド内に設置したプローブ部



c) 使用施設フード内での試験の様子



d) 養生後、使用施設内に設置した様子 (1)



e) 養生後、使用施設内に設置した様子 (2)



f) 使用施設内に設置した超高分解能分光器

図 3.5.2-1 一体化した機器の様子、核燃料物質等使用施設内で養生した機器の様子

試験で使用した試料情報を表 3.5.2-2 に、実験条件を表 3.5.2-3 に示す。試料については、劣化ウランから約8%までの濃縮ウラン酸化物焼結試料を準備した。実験条件は、事前に Zr 酸化物を用いた試験 (①Zr を試料とした超高分解能分光試験) での条件とした。

表 3.5.2-2 未照射 UO₂ 焼結試料の濃縮度一覧

試料番号	濃縮度 Mass %
U-sample-01 (U1)	0.20
U-sample-02 (U2)	0.59
U-sample-03 (U3)	0.71 (天然)
U-sample-04 (U4)	3.00
U-sample-05 (U5)	4.40
U-sample-06 (U6)	7.99

表 3.5.2-3 機器設定条件

レーザーエネルギー	1.0 mJ/pulse
計測積算回数 積算回数 測定回数	200 shots 5回
計測ゲート 遅延時間 観測時間幅	0.5 μs 1.0 ms
マイクロ波 遅延時間 出力 パルス幅	0.0 μs 1,000 W 1.0 ms

b) 試験結果と評価

【試験結果】

本実験では波長が 424.4373 nm のウランイオンのスペクトルに注目してスペクトル測定を行い、マイクロ波の有無による効果を評価した。濃縮度の異なる試料 U1~U6 に対し、通常の LIBS スペクトルとマイクロ波重畳 LIBS によるスペクトルを取得した結果を図 3.5.2-2 に示す。

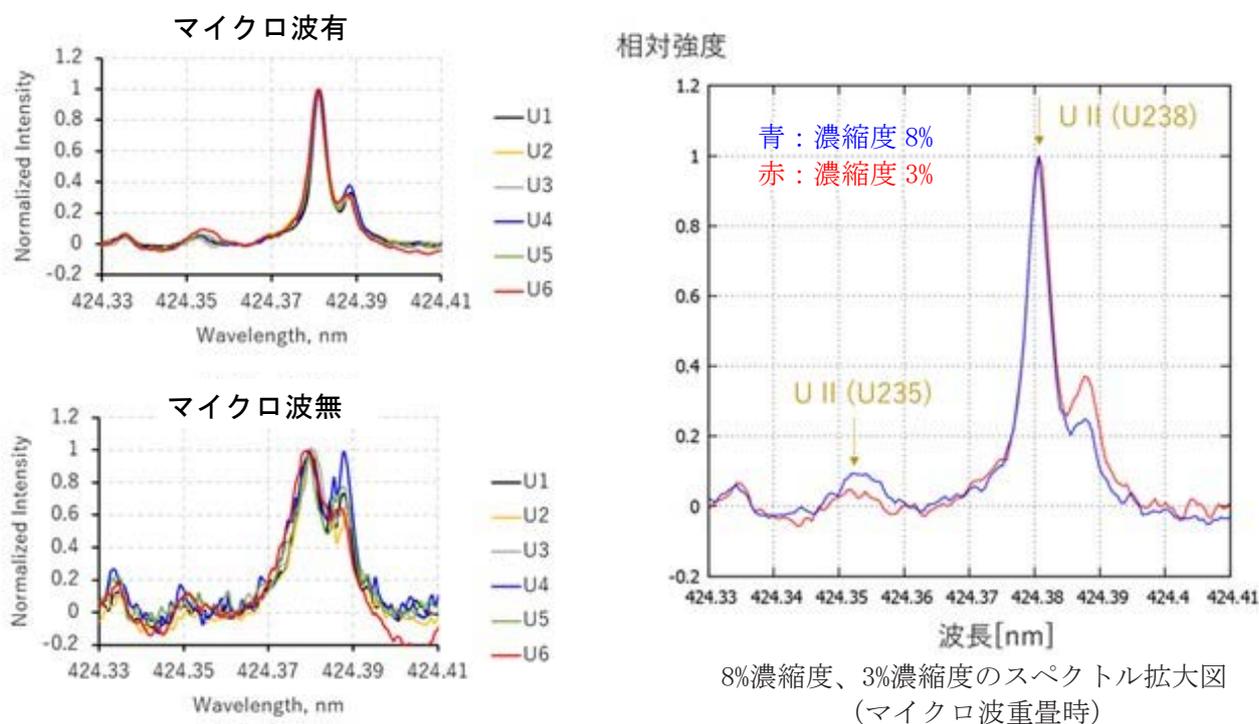


図 3.5.2-2 濃縮度の異なるウラン試料に対するスペクトル取得例

この実験では、得られるスペクトル強度は、マイクロ波がある場合、マイクロ波を入れない場合に比べ、平均で約 9.6 倍に増強された。

【濃縮度の評価】

実験結果から明らかのように、濃縮度を評価する際、 ^{235}U のスペクトルは ^{238}U のスペクトルの裾の部分の影響を受ける可能性がある。そこでスペクトル形状を、ローレンツ分布で表されるスペクトルの自然広がり と熱振動等によるガウス分布に従う広がり の両者を畳みこんだ Voigt 関数により近似し、評価することとした。Voigt 関数によるスペクトルの分析は、形状をよく近似できることから、一般に広く使用されている。

Voigt 関数は以下のようにガウス分布とローレンツ分布の畳み込み積分で、以下のよう に定義される。

$$V(x; \sigma, \gamma) = \int_{-\infty}^{\infty} G(x'; \sigma) L(x - x'; \gamma) dx'$$

$$G(x; \sigma) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right)$$

$$L(x; \gamma) = \frac{\gamma}{\pi(x^2 + \gamma^2)}$$

ここで、 σ はガウス分布の標準偏差（熱広がり）を表し、 γ はローレンツ分布の尺度母数（自然広がり）を表す。

Voigt 関数による実験結果のフィッティングには最小二乗法を用いた。 σ 、 γ 、スペクトルの中心波長 λ_0 及びスペクトルの大きさ I_0 をパラメータとし、以下の式における J が最小となるパラメータを反復法により求めた。

$$J = \sum_{n=1}^N (I_n - I_0 V(\lambda_n - \lambda_0; \sigma, \gamma))^2$$

ここで、 I_n は波長 λ_n におけるスペクトル強度の測定値を表す。

試料 U5（濃縮度 4.4 %）のスペクトルに対するフィッティング結果例を図 3.5.2-3 に示す。黒点線が ^{238}U 及び ^{235}U のフィッティング結果を表す。

この例では、 ^{238}U のスペクトルについて、 σ は 7.00×10^{-5} 、 γ は 2.36×10^{-3} の場合が最良の結果が得られ、近似曲線の決定係数 R^2 は 0.930 となり、よく一致していることが評価できる。このようなフィッティングにより、さまざまな濃縮度の試料に対し、 ^{238}U のスペクトル、 ^{235}U のスペクトルを定義した。

濃縮度の評価は、フィッティングにより定義したスペクトルから、 ^{235}U と ^{238}U のスペクトルの面積比により評価した。積分範囲は、今回は、

$$^{238}\text{U} : 424.396 \text{ nm} \sim 424.466 \text{ nm}$$

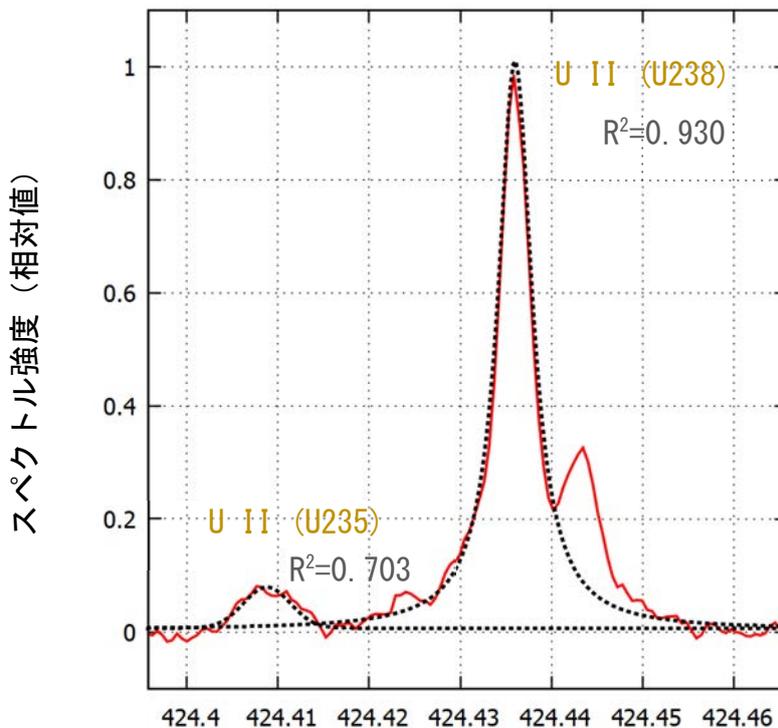
$$^{235}\text{U} : 424.396 \text{ nm} \sim 424.421 \text{ nm}$$

とした。

各濃縮度に対しスペクトルフィッティングにより得られた濃縮度の評価結果（濃縮度に対する検量線）を図 3.5.2-4 及び表 3.5.2-4 に示す。図 3.5.2-4 a) はマイクロ波を使用した場合の結果であり、図 3.5.2-4 b) はレーザーの照射のみでの結果である。マイクロ波を使用した場合、マイクロ波を用いない場合に比べ、相関が強く、真値とよく一致することが分かった。これらの結果から、ウラン濃縮度評価には、マイクロ波の重畳が不可欠であることが分かった。

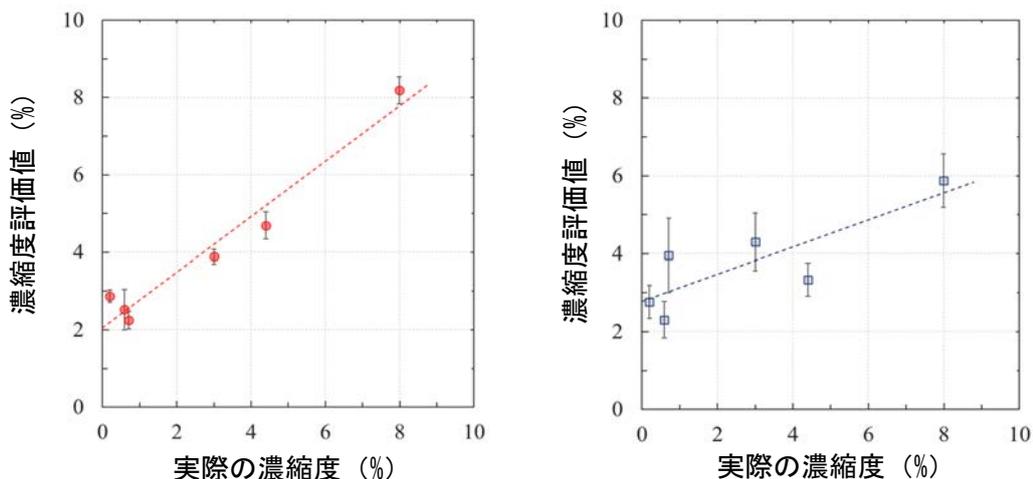
なお、今回の評価では、 ^{238}U 及び ^{235}U の 2 成分のみを考えたが、他の不純物元素の存在も考慮し、より多成分での評価も必要となる可能性がある。特に、濃縮度が 1% 未満では、測定値及び評価値のばらつきが大きく、真値との一致がみられなかった。これは、バックグラウンドの評価方法に強く依存し、その方法が十分定められなかったこと（多成分重畳の効果の有無）、0.2% 以下の不純物の有無についても、十分調査が必要であること、計測条件の最適化（特にマイクロ波重畳効果が、アンテナとレーザープラズマとの

位置合わせに強く依存すること) が不十分で、取得データのばらつきが大きかったことが考えられる。今後、濃縮度のその場迅速評価に向けて、これらを改善することが不可欠である。



黒点線：Voigt 関数によるフィッティング結果

図 3.5.2-3 ウランのスペクトルと Voigt フィッティング例 (マイクロ波有り)



a) マイクロ波を使用した場合

b) マイクロ波を使用しない場合

図 3.5.2-4 実際の濃縮度と測定結果から評価した濃縮度の比較

表 3.5.2-4 濃縮度の評価結果

Actual Mass(%)	With Microwave		Without Microwave	
	Calculated Mass (%)	St Dev	Calculated Mass (%)	St Dev
0.20	2.87	0.351	2.76	0.943
0.59	2.53	1.17	2.31	1.05
0.71	2.26	0.504	3.96	2.12
3.00	3.89	0.433	4.30	1.66
4.40	4.69	0.778	3.33	0.948
7.99	8.19	0.783	5.88	1.54

3.5.3 まとめと今後

アイラボから提供を受けたマイクロ波システムとその照射条件を活用し、酸化物試料を対象に、高分解能分光器による分光特性を評価した。その結果、マイクロ波重畳による光量の増加により、超高分解能分光器を利用した高波長分解能分光が実施可能であること、その波長分解能でウラン同位体の識別の可能性があることを確認した。

評価結果を基に、マイクロ波重畳 LIBS 法を未照射核燃料物質の高分解能分光試験に適用した結果、低濃縮度においてスペクトルの広がり、バックグラウンドの評価等による影響の補正が必要であるものの、ウラン同位体の直接識別計測に成功し、その有効性が確認された。一方、マイクロ波重畳効果にばらつきがみられ、計測条件の最適化が重要であることも認識させられた。

今後、アンテナの最適化や遠隔操作により、マイクロ波増倍性を確実化すること、解析式を確立することで、元素分析は当然として、ウラン濃縮度の迅速な簡易評価が可能になるものと考えられる。

3.6 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、1F 現場に実機を適用すべく、現場との意見/情報交換を行いながら、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を開催した。

アイラボ・JAEA のメンバーが相互に出張し、実験・打ち合わせを行うとともに、マイクロ波重畳 LIBS による同位体計測のため、日本核燃料開発株式会社に出張して実験の確認・打ち合わせを行った。

- ・アイラボメンバー⇒CLADS：出張 2 回 延べ日数 6 日
- ・JAEA メンバー⇒アイラボ：出張 1 回
- ・アイラボメンバー⇒日本核燃料開発株式会社 出張 1 回 延べ日数 4 日
- ・連携先の JAEA との打ち合わせ・会議：メール、オンライン会議、電話で実施した（約 5 回程度/月）。
- ・社内や外注先との打合せや会議：メールやオンライン会議、電話でタイムリーに実施した。
- 外注先（アンテナ製作）梅桃企画社：メール 24 件

4. 結言

従来の LIBS システムに、マイクロ波発振装置からのマイクロ波を発生プラズマに重畳することによって、プラズマの拡大・持続時間の延長・信号レベルの向上を行い、核燃料デブリを迅速に測定できる手法を開発することを目標に、マイクロ波発振装置の小型化、マイクロ波アンテナの設計最適化、SN 比向上/測定精度改善、全体システム構築、LIBS プローブ実装による評価研究の5つにおいて検討を進め、最終年度計画を達成することができた。

デブリ計測への適用を図るため、小型化したシステムを用いたマイクロ波重畳 LIBS プローブの開発を行い、最終的にはウラン同位体の検出計測に挑戦すべく、マイクロ波増強 LIBS と JAEA の超高分解能分光器を組み合わせ、共同でウラン同位体計測実験を行った。その結果、ウラン同位体計測においてもマイクロ波増強効果が得られることが分かった。特に、ウランの濃縮度の評価においてマイクロ波増強 LIBS が顕著な効果があることが示された。

以上、3 カ年計画の3 年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

参考文献

- [1] 大場弘則, 若井田育夫, 平等拓範, 過酷環境下での遠隔レーザー分析技術, 日本原子力学会誌 ATOMOS, vol.62, no.5, 2020, pp.263-267.
- [2] Ikeda Y., Ofosu J. A., Wakaida I., Development of Microwave-enhanced Fibre-Coupled Laser-induced Breakdown Spectroscopy for Nuclear Fuel Debris Screening at Fukushima, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol.171, 2020, 105933.
- [3] Ikeda Y., Tsuruoka R., Characteristics of Microwave Plasma Induced by Lasers and Sparks, Applied Optics, vol.51, no.7, 2011, pp.B183-B191.
- [4] Ikeda Y., Moon A., Kaneko M., Development of Microwave-enhanced Spark-induced Breakdown Spectroscopy, Applied Optics, 2010 vol.49, no.13, 2010, pp.C95-C100.
- [5] Ofosu J. A. and Ikeda Y., A 2.45 GHz Microwave-Enhanced Fiber-Coupled Laser-Induced Breakdown Spectroscopic System for Debris Detection and Radiation Measurement, International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research, Fukushima, Japan. Conference Proceedings, 2019, FDR2019-1095.
- [6] Ofosu J. A. and Ikeda Y., Elemental Analysis and Mixture Ratio Determination in Fine Powder Metals Using Microwave-sustained Plasma Ball Spectroscopy, Spectrochimica Acta Part B, vol.160, 2019, 105693.
- [7] Oba M., Miyabe M., Akaoka K. and Wakaida I., Development of Microwave-assisted, Laser-induced Breakdown Spectroscopy without a Microwave Cavity or Waveguide, Japanese Journal of Applied Physics, vol.59, no.6, 062001, 2020.
- [8] Miyabe M., Oba M., Akaoka K., Kato M., Hasegawa S., Wakaida I., Development of Laser Ablation Absorption Spectroscopy for Nuclear Fuel Materials: Plume Expansion Behavior for Refractory Metals Observed by Laser-induced Fluorescence Imaging Spectroscopy, Applied Physics A: Materials Science & Processing, vol.126, 213, DOI: 10.1007/s00339-020-3368-0, 2020.
- [9] 若井田育夫, 大場弘則, 宮部昌文, 赤岡克昭, 大場正規, 田村浩司, 佐伯盛久, 核燃料サイクル及び福島第一原子力発電所廃炉への適用を念頭としたレーザー誘起ブレイクダウン分光と関連分光技術, 光学, vol.48, no.1, 2019, pp.13-20.
- [10] Matsumoto A., Ohba H., Toshimitsu M., Akaoka K., Ruas A., Wakaida I., Sakka T., Yae S., Enhancement of Molecular Formation in Fiber-optic Laser Ablation with a Long Nanosecond Pulsed Laser, Spectrochim Acta B, vol.155, 2019, pp.56-60.
- [11] Matsumoto A., Ohba H., Toshimitsu M., Akaoka K., Ruas A., Sakka T., Wakaida I., Fiber-optic Laser-induced Breakdown Spectroscopy of Zirconium Metal in Air: Special Features of the Plasma Produced by a Long-pulse Laser, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol.142, 2018, pp.37-49.
- [12] Miyabe M., Oba M., Jung K., Iimura H., Akaoka K., Kato M., Otobe H., Khumaeni A., Wakaida I., Laser Ablation Absorption Spectroscopy for Isotopic Analysis of Plutonium: Spectroscopic Properties and Analytical Performance, Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, vol.134, 2017, pp.42-51.

- [13] Oba M., Miyabe M., Akaoka K. and Wakaida I., Effect of Defocusing on Laser Ablation Plume Observed by Laser-induced Fluorescence Imaging Spectroscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.55, no.2, 2016, pp.022401_1-022401_4.
- [14] 赤岡克昭、宮部昌文、音部治幹、若井田育夫, レーザー誘起ブレイクダウン分光の核燃料物質分析への適用, *レーザー研究*, vol.42, no.12, 2014, pp.918-922.
- [15] Ikeda Y. and Soriano J. K., Microwave-enhanced laser-induced air plasma at atmospheric pressure, *Optics Express*, vol.30, no.19,2022, *Optics Express*, pp.33756-33766.
- [16] Ikeda Y., Soriano J. K. and Wakaida I., Signal-to-noise ratio improvements in microwave-assisted laser-induced breakdown spectroscopy, *Talanta Open*, vol.6, 2022, pp.100138-100149.
- [17] Ikeda Y., Soriano J. K., and Wakaida I., The interactions of microwaves with alumina surface in microwave-enhanced laser-induced breakdown spectroscopy, *Optics & Laser Technology*, vol.159, 2023, pp.108982-108990.
- [18] Ikeda Y., Soriano J. K., Kawahara N. and Wakaida I., Spatially and temporally resolved plasma formation on alumina target in microwave-enhanced laser-induced breakdown spectroscopy, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol.197, 2022, pp.106533-106542.

This is a blank page.

