



JAEA-Review

2024-005

DOI:10.11484/jaea-review-2024-005

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  
(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－

Establishment of Characterization Method for Small Fuel Debris

Using the World's First Isotope Micro Imaging Apparatus

(Contract Research)

-FY2021 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  
工学院大学

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

June 2024

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 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](mailto: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](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

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  
(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—

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

工学院大学

(2024年2月26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 (以下、「本事業」という。) を実施している。

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

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

本研究は、令和3年度に採択された研究課題のうち、「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」の令和3年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、少量燃料デブリの取り出し把握に必要な直接的なデータを世界で初めて取得して評価・検討を行っていくことを目的とする。SEM-EDS 等や TEM-EDS では同位体識別や Pu、B の分析ができない。一方、ICP-MS 等のバルク分析では微小視野での情報が欠落する。つまり、既存の方法では、燃焼率指標情報 ( $^{148}\text{Nd}$  と U の組成比)、中性子毒物 Gd や中性子吸収物質 B の存在比などの局所分析データを含めて燃料デブリ性状を把握するための分析手段がないことが大きな課題である。JAEA 大洗研究所に導入した同位体マイクロイメージング装置 (工学院大学開発) は放射性の微小試料に断面加工を行いながら同位体組成などの局所的な定量データが多量に得られ、燃料デブリの性状を正しくかつ迅速に把握できる。令和3年度は、同位体マイクロイメージング装置の実用性の向上のための改良を行った。具体的には、高線量試料への対応として、検出器の放射線シールドや安全な試料導入機構の開発を行った。また、分析スループットや実用性向上のため、手動で調整が必要だった機構の自動化・遠隔化を行い、併せて重要核種について、最適な共鳴イオン化スキームの開発を行った。

---

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、工学院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

Establishment of Characterization Method for Small Fuel Debris Using the World's First Isotope Micro  
Imaging Apparatus  
(Contract Research)

— FY2021 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

Kogakuin University

(Received February 26, 2024)

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 FY2021.

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 FY2021, this report summarizes the research results of the “Establishment of characterization method for small fuel debris using the world's first isotope micro imaging apparatus” conducted in FY2021.

The present study aims to obtain, for the first time in the world, the important data necessary for clarifying the retrieval of small amounts of fuel debris, and to evaluate and examine them. SEM-EDS and TEM-EDS cannot be used for isotopic identification and analysis of Pu and B. On the other hand, bulk analysis such as ICP-MS lacks the information in a micro region. The important issue is that there is no analytical method for understanding fuel debris properties, including local analysis data such as burn-up rate index (composition ratio of  $^{148}\text{Nd}$  and U), abundance ratio of neutron poison Gd and neutron absorber B. The isotope micro-imaging apparatus (developed by Kogakuin University) introduced at the JAEA FMF can obtain local quantitative data such as isotope composition while processing cross-sections of radioactive micro-samples, which can be used to determine the properties of fuel debris. In 2021, improvements were made to improve the practicality of the isotope micro-imaging apparatus. We developed a radiation shield for the detector and a safe sample introduction mechanism to handle high-dose samples. In addition, in order to improve the analytical throughput and practicality, we automated and remote-controlled the mechanism that required manual adjustment, and developed the optimum resonance ionization scheme for important nuclides.

**Keywords:** TOF-SIMS, R-SNMS, Isotope Imaging, Isotope Ratio, Fine Particle

---

This work was performed by Kogakuin University 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
付録 成果報告書 .....	13

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
Appendix Result Report .....	13

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
$\alpha$ / $\beta$ / $\gamma$ 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

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

本報告書は、以下の課題の令和3年度分の研究成果について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
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

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3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

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

(契約番号 R03I139-1)

成果報告書

令和5年2月

学校法人工学院大学

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、学校法人工学院大学が実施した「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」の令和3年度分の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	4
2.1 全体計画	4
2.2 実施体制	6
3. 令和3年度実施内容及び成果	7
3.1 同位体マイクロイメージング装置の実用運転の確立	7
3.1.1 検出系の放射線シールド対策	7
3.1.2 試料輸送機構と試料保管（サンプルパーキング）機構の開発	10
3.1.3 同位体マイクロイメージング装置の自動化及び遠隔化	15
3.1.4 放射性微粒子分析の人材育成	17
3.1.5 まとめ	18
3.2 共鳴イオン化スキームと多色イオン化レーザーシステムの開発（再委託先：名古屋大学）	19
3.2.1 イオンビームにて生成した2次中性原子を用いたイオン化スキームの開発	19
3.2.2 多元素迅速測定を実現するための高繰り返し率Ti:Saレーザーシステムの開発	20
3.2.3 レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成	21
3.2.4 まとめ	21
3.3 1F汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー（再委託先：東京電力HD）	22
3.4 同位体マイクロイメージング装置を用いた1F汚染サンプルの分析（連携先：JAEA）	24
3.4.1 装置整備	24
3.4.2 1F汚染サンプルの分析	27
3.4.3 まとめ	40
3.5 イオン化スキームの開発（連携先：JAEA）	41
3.6 研究推進	51
4. 結言	52
参考文献	53

執筆者リスト

事業代表者

学校法人工学院大学

教授 坂本哲夫

特任助教 森田真人

委託先

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学

准教授 富田英生

東京電力ホールディングス株式会社

溝上暢人

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

前田宏治

岩田圭弘



表一覧

表 3.1-1	装置各部位における放射線の減衰率.....	9
表 3.3-1	1F 汚染物サンプルの例 .....	22

図一覧

図 1. 1-1	同位体マイクロイメージング装置の原理図	2
図 1. 1-2	放射性セシウム含有粒子の同位体イメージング像	3
図 2. 2-1	研究体制	6
図 3. 1-1	同位体マイクロイメージング装置の装置断面図	8
図 3. 1-2	Pb シールド部材を検出器に取り付けた様子	9
図 3. 1-3	Pb シールド部材による質量スペクトルの比較	10
図 3. 1-4	着脱式のキャップ付き試料台	12
図 3. 1-5	キャップ付き試料台の試料交換室内での着脱の様子	12
図 3. 1-6	試料導入前後での In 基板と Pb 基板上の粒子の光学顕微鏡像	13
図 3. 1-7	サンプルパーキングの 3D-CAD イメージ	13
図 3. 1-8	同位体マイクロイメージング装置に取り付けたサンプルパーキング	14
図 3. 1-9	試料交換の様子	14
図 3. 1-10	開発したソフトウェア(上)と試料ステージの自動化の様子(下)	16
図 3. 1-11	開発した YAG レーザーのインターロックスイッチ	17
図 3. 1-12	技術指導の様子	17
図 3. 2-1	開発したイオン銃を搭載可能な真空チャンバの構造	19
図 3. 2-2	イオン銃を搭載した共鳴イオン化質量分析装置	19
図 3. 2-3	SIMION によるイオンの飛行計算の結果	20
図 3. 2-4	開発した Ti:Sa レーザーの模式図と電動ステージの構造	20
図 3. 2-5	SHG/基本波の切り替え時の出力の時間変化	21
図 3. 2-6	教育コンテンツの一部	21
図 3. 4-1	汚染拡大防止用グリーンハウスの設置イメージ	25
図 3. 4-2	汚染拡大防止用グリーンハウスの設置写真	25
図 3. 4-3	共鳴イオン化レーザー機構のレーザー光軸補正部	27
図 3. 4-4	試料調製及び分析の作業工程フロー	29
図 3. 4-5	B <sub>4</sub> C 試料の切断	30
図 3. 4-6	B <sub>4</sub> C 試料の粉砕	30
図 3. 4-7	SEM 兼同位体分析用試料マウント	31
図 3. 4-8	コールド模擬燃料デブリの SEM 観察結果	31
図 3. 4-9	断面加工前後の模擬デブリ粒子の様子	32
図 3. 4-10	模擬デブリの断面内の同位体イメージング	33
図 3. 4-11	U 含有粗大粒子の SEM-WDS 分析結果	35
図 3. 4-12	U 含有粗大粒子の TEM-EDS 分析結果(低倍率)	35
図 3. 4-13	U 含有粗大粒子の TEM-EDS 分析結果(高倍率)	36
図 3. 4-14	U 含有粗大粒子の U-Zr-O 相の電子回折図形	36
図 3. 4-15	U 含有粗大粒子の定性質量スペクトル	37
図 3. 4-16	Fe 同位体の質量スペクトル	37
図 3. 4-17	Zr 同位体の質量スペクトル	38
図 3. 4-18	ZrO の質量スペクトル	38
図 3. 4-19	<sup>238</sup> U、 <sup>238</sup> UO、 <sup>238</sup> UO <sub>2</sub> の質量スペクトル	39

図 3. 4-20	U 含有粗大粒子の同位体イメージング .....	39
図 3. 5-1	Nd:YAG レーザーの内部構成図 .....	44
図 3. 5-2	色素レーザーの内部構成図.....	45
図 3. 5-3	Nd:YAG レーザーを励起光源としたときの使用可能な色素及び波長可変域の 仕様 .....	46
図 3. 5-4	Nd:YAG レーザー励起色素レーザー光源の外観 .....	47
図 3. 5-5	典型的な光ガルバノ分光法のブロック図.....	48
図 3. 5-6	構築した光ガルバノ分光計測システム概念図.....	49
図 3. 5-7	ホロカソードランプ部分の写真.....	50

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
東京電力 HD	:	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	
工学院大学	:	学校法人工学院大学	
名古屋大学	:	国立大学法人東海国立大学機構	名古屋大学
FMF	:	Fuel Monitoring Facility	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構大洗研究所照射燃料集合体試験施設
SEM-EDS	:	Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive x-ray Spectroscopy	走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光法
SEM-WDS	:	Scanning Electron Microscopy-Wavelength Dispersive Spectrometry	走査電子顕微鏡-波長分散型分光法
TEM-EDS	:	Transmission Electron Microscope-Energy Dispersive x-ray Spectroscopy	透過電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光法
ICP-MS	:	Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry	誘導結合プラズマ質量分析法
IRID	:	Internationa Research Institute for Nuclear Decommissioning	技術研究組合国際廃炉研究開発機構
PCV	:	Primary Containment Vessel	原子炉格納容器
SGTS	:	Standby Gas Treatment System	非常用ガス処理系
CRD	:	Control Rod Drive	制御棒駆動系
TIP	:	Traversing In-core Prove	移動式炉心内計装システム
FIB	:	Focused Ion Beam	集束イオンビーム加工装置
SEM	:	Scanning Electron Microscope	走査型電子顕微鏡
TEM	:	Transmission Electron Microscope	透過電子顕微鏡
SIMS	:	Secondary Ion Mass Spectrometry	二次イオン質量分析法
R-SNMS	:	Resonance ionization Sputtered Neutral Mass Spectrometry	共鳴イオン化スパッタ中性粒子質量分析法
FP	:	Fission Product	核分裂生成物
RIMS	:	Resonance Ionization Mass Spectrometry	レーザー共鳴イオン化質量分析法
WDS	:	Wavelength Dispersive Spectroscopy	波長分散型分光器
MCP	:	Microchannel Plate	マイクロチャンネルプレート
DKDP 結晶	:	KD <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> Crystal	非線形光学結晶
BBO 結晶	:	β-BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Crystal	非線形光学結晶
SNMS	:	Sputtered Neutral Mass Spectrometry	スパッタ中性粒子質量分析法

## 概略

少量燃料デブリ中の核分裂生成物 (FP) 及び  $\alpha$  核種を含む微粒子の性状を把握することは、取り出し方法、冷却循環系、閉じ込め、臨界監視、被ばく評価、収納・移送・保管、処理・処分等の一連のシステム設計・手順の検討に不可欠である。既に東京電力 HD 福島第一原子力発電所 (以下、「1F」という。) の微小試料について、国家プロジェクトで分析を進めているが、走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光法 (以下、「SEM-EDS」という。) や透過電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光法 (以下、「TEM-EDS」という。) では同位体識別や Pu、B の分析ができない。一方、誘導結合プラズマ質量分析法 (以下、「ICP-MS」という。) 等のバルク分析では微小視野での情報が欠落する。つまり、既存の方法では、燃焼率指標情報 ( $^{148}\text{Nd}$  と U の組成比)、中性子毒物 Gd や中性子吸収物質 B の存在比等の局所分析データを含めて燃料デブリ性状を把握するための分析手段がないことが大きな課題である。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 (以下、「JAEA」という。) 大洗研究所に導入した同位体マイクロイメージング装置 (学校法人工学院大学 (以下、「工学院大学」という。) 開発) は放射性的の微小試料に断面加工を行いながら同位体組成等の局所的な定量データが多量に得られ、燃料デブリの性状を正しくかつ迅速に把握できる。更なる精度向上のために必要な R&D を本装置に加えることで、少量燃料デブリの取り出し把握に必要な直接的なデータを世界で初めて取得して評価・検討を行っていくことを目的とした。

以下に、令和 3 年度の成果の概略を述べる。

### (1) 同位体マイクロイメージング装置の実用化

#### ① 検出系の放射線シールド対策

JAEA 大洗研究所照射燃料集合体試験施設 (以下、「FMF」という。) に設置した同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行った。想定される高線量試料に対して、測定データのクオリティを下げないところまで、シールド対策を実施した。評価には、高線量試料とそれに組成の近い安定同位体の模擬試料とを比較して、質量スペクトルの比較を行った。

#### ② 試料輸送機構と試料保管 (サンプルパーキング) 機構の開発

可搬型のアイソレーションボックスの設計製作を行った。大気エアロゾル試料や粉末試料を用いて、製作したアイソレーションボックスについて、試料交換や試料輸送の過程で、粒子の紛失や異物混入がないことを確認した。微粒子試料の試料台への適切な固定方法についても検討し、従来法である In や Pb 等の柔らかい金属板を用いて、押し付けることで埋め込んで固定する方法との比較を行った。また、安全対策・分析スループットの向上のために、同位体マイクロイメージング装置内にサンプルパーキング機構を装着することで、一度に複数の試料を導入できるようにするため工学院大学で設計を行った。

設計したサンプルパーキング機構を製作し、工学院大学で動作チェックを行い、安全性や分析スループット向上の評価を行った後、JAEA 大洗研究所の装置に反映した。

#### ③ 同位体マイクロイメージング装置の自動化及び遠隔化

工学院大学にある同位体マイクロイメージング装置を用いて、JAEA 大洗研究所での使用方法を想定しながら、JAEA 大洗研究所の同位体マイクロイメージング装置に即座に技術反映ができるように自動化・遠隔化の開発を行った。試料導入機構は前述のアイソレーションボックスとの互換性が取れるように設計し、自動化・遠隔化を進めた。これらの機構も含め、通常の分析ルーチンの自動化 (PC 制御) を進め、ヒューマンエラーがない実用的な装置へと仕上げた。

## ④放射性微粒子分析の人材育成

JAEA の職員や工学院大学の学生に対して、現状の同位体マイクロイメージング装置の技術指導を行う機会を設けた。工学院大学において大学院生に指導を行い、その後、大学院生が JAEA 大洗研究所での技術指導を行った。その場を利用して JAEA と連携し、技術指導に関する教育コンテンツの作成に取り掛かった。必要に応じて、現地での技術指導を行った。

## (2) 共鳴イオン化スキームと多色イオン化レーザーシステムの開発

## ①イオンビームにて生成した 2 次中性原子を用いたイオン化スキームの開発

既設の Ar イオン銃を名古屋大学の大型飛行時間型質量分析装置に組み込むための質量分析装置真空チャンバ改造の設計を行い、イオン銃とイオン銃接続部品を設置し、基本動作を確認した。

## ②多元素迅速分析を実現するための高繰り返し率 Ti:Sa レーザーシステムの開発

Ti:Sa レーザーの基本波または第 2 高調波を切り替えて出力するために、Ti:Sa レーザーの共振器に切り替え用光学素子を配置するための再設計を行った。共振器内モードや熱・振動解析のシミュレーション計算を行い、テストベースにて出力・発振波長領域等の基本特性を明らかにした。

## ③レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成

難分析核種分析における放射能分析・質量分析・レーザー分析に関する基礎知識を取得できるような大学院生・若手技術者向けの教育コンテンツを準備した。本研究に参画するグループに所属の大学院生に対し、廃炉に求められる分析など現場の状況を理解させるために、講演等を JAEA のサポートを受け実施した。

## (3) 1F 汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー

様々な廃炉プロセスにおいて燃料デブリの性状把握が重要となるが、特に燃料デブリの再臨界性評価に重要な核種分析が行えるように、JAEA 大洗研究所での 1F サンプル分析に用いるサンプルは、U を含む可能性が高いなど適切なサンプルを選定し、JAEA 大洗研究所に提供した。JAEA 大洗研究所にて同位体分析されたデータを評価・検討し、再臨界可能性の評価やこれまでに検討・解析が進められている炉内状況把握の評価内容の検証に加え、取得されたデータの廃炉工程への反映可能性等を評価した。

## (4) 同位体マイクロイメージング装置を用いた 1F 汚染サンプルの分析

## ①装置整備

FMF の同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行うとともに、当該装置は共鳴イオン化可能元素が限定的であることから、多元素に対する共鳴イオン化を可能とするための共鳴レーザー機構の改良を行った。

## ②1F 汚染サンプルの分析

1F 汚染サンプルを用いたホット分析の事前確認試験として、コールド模擬試料を用いて試料調製から分析までの手法(受入れ試料のサイズ別の試料切断・加工方法など)を確立した。また、同位体マイクロイメージング装置を用いて、東京電力 HD から提供された 1F 汚染サンプルの組成や同位体情報に係る分析を実施した。

(5) イオン化スキームの開発

廃炉において組成情報が必要となるUやB等の核種を含有する微粒子分析のため、多色共鳴イオン化スキームを検討した。この実現のため、紫外域の波長可変光を発生させるYAGレーザー励起色素レーザー光源を整備した。さらにその光をUやB等のホロカソードランプに入射し、共鳴イオン化で生じるランプの放電抵抗の微弱変化を検出する光ガルバノ分光計測システムを構築した。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間並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て、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打ち合わせや会議を適宜開催した。

## 1. はじめに

本研究では、工学院大学の坂本哲夫らが世界で初めて開発した同位体マイクロイメージング装置を用い、1Fの少量燃料デブリの性状を把握する分析手法の確立を目指している。同位体マイクロイメージング装置を適用することにより、1F汚染サンプル（1F原子炉建屋内から採取したスミヤ試料など）の分析に係る既往研究においても取得されていないUやPu等の局所同位体情報、燃焼率指標情報（ $^{148}\text{Nd}$ とUの組成比）、中性子毒物Gdや中性子吸収物質Bの存在比などの貴重な分析データの取得が期待される。少量燃料デブリや1F汚染サンプルの同位体情報等の性状把握は、燃料デブリの取り出し方法、冷却循環系、閉じ込め、臨界監視、被ばく評価、収納・移送・保管、処理・処分などの一連のシステム設計・手順の検討に不可欠である。

以上のことから、本研究では、後述する同位体マイクロイメージング装置を用いて、FMFに受入済の1F汚染サンプルに対する同位体分析を実施し、少量燃料デブリの取り出し前に分析準備を完了させて、燃料デブリの性状把握に必要な直接的な同位体分析データを取得して評価検討し、炉内状況把握の検証及び廃炉工程の実実施計画に反映することを目的としている。

現在、1Fの廃炉に向けて、燃料デブリの臨界安全対策や放射性ダスト対策を含めた燃料デブリの取り出し工法の工程設計及び工程管理を行うために、1F各号機の内部調査や建屋内から採取されたサンプルの分析を通して有用な実データが蓄積されてきており、燃料デブリ取り出しに向けた準備が着実に進められている。今後は、少量燃料デブリの試験的取り出しを経て、燃料デブリの取り出し機構、冷却循環系、閉じ込め機能、臨界監視システム、被ばく評価、収納・移送・保管、処理・処分などのシステム設計・手順の検討に資する重要な性状分析データの取得が要求される。特に、少量燃料デブリの分析においては、1F事故後の時間的変化や冷却材等との接触による化学的変化、高放射線環境下による崩壊などを考慮しつつ、少量燃料デブリ中に閉じ込められている核分裂生成物（FP）粒子及びアルファ核種を含む微粒子を含めてその性状を把握することが極めて重要である。

一方、これまでの国プロによる1Fから採取された微小サンプルの分析に用いられてきたSEM-EDS、TEM-EDSでは同位体分析やPu、Bの分析ができず、さらに化学的前処理が必要なTIMSやICP-MS等の同位体分析法ではバルク分析であるためサンプル内の部位ごとの特徴の情報が失われ、燃料デブリの形成過程の検討や再臨界防止等の対策に必要な情報が不足していることが大きな課題として挙げられる。特に、燃料デブリの再臨界評価においては、UとPuの各同位体比、組成比、これらの比率情報を補完するための燃焼率指標情報（ $^{148}\text{Nd}$ とUの組成比）、中性子毒物Gdや中性子吸収物質Bの存在比、U・Pu・Gd・Bの分布状態等の情報の取得が不可欠であるが、SEM（Scanning Electron Microscope：走査型電子顕微鏡）やTEM（Transmission Electron Microscope：透過型電子顕微鏡）に付属しているEDS分析装置による局所的なサンプル分析から評価できず、代替手法がないことが課題である。

次に、研究内容を分かりやすくするために、同位体マイクロイメージング装置について説明する。同位体マイクロイメージング装置は、飛行時間型二次イオン質量分析法<sup>[1]</sup>（Time-of-flight Secondary Ion Mass Spectrometry：TOF-SIMS）とレーザー共鳴イオン化質量分析法（Resonance Ionization Mass Spectrometry：RIMS）を組み合わせた方法であり、工学院大学の坂本哲夫らによって開発された。質量分析は、原理的に同位体を区別して検出することができる方法であるため、同位体比測定や放射性核種の検出において伝統的に用いられてきた。特に、二次イオン質量分析法は、集束したイオンビームによって、固体局所をスパッタリングし、発生した二次イオンを検出するため、微小試料の測定や同位体の分布（イメージング）を調べる際に適している。しかしながら、質量分析では、同重体干渉の問題があり、正確に目的の同位体を検出できているのかが定かではなかった。このため、一部の質量分析装置では、質量分解能を向上させることで、近い質量の同位体を分離して検出する試みがなされている。しかしながら、質量分解能の向上は一般的に感度（質量分析器の透過率）を低下させるため、微量分析においては必ずしも有効な手段とは言えない。加えて、極めて高い質量分解能を持った装置でも、 $^{137}\text{Ba}$ や $^{137}\text{Cs}$ のような組み合わせでは、質量が極めて近いために分離することは困難である。



以上の理由から、微小試料から正しく目的の同位体を検出し、同位体比測定や同位体イメージングを行うためには、新しい原理に基づいた分析法の開発が要求されることとなる。図 1.1-1 に同位体マイクロイメージング装置の原理図を示す。同位体マイクロイメージング装置では、SIMSと同様に、イオンビームによって固体表面をスパッタリングし、発生した中性原子を、精密に波長制御されたレーザー（波長可変レーザー）<sup>[2]</sup>によって多段階の励起過程を経てイオン化する（この過程を共鳴イオン化と呼ぶ）。原子の励起準位は元素ごとに固有値を持つため、この過程を経たイオンには、目的の元素の同位体以外は含まれない。従って、質量分解能を向上させる必要がなく、イオン化の段階で元素選択性を持たせることで高い感度で微小領域の同位体比測定及び同位体イメージングを可能とした。本同位体マイクロイメージング装置では、世界で初めて 1F 由来の放射性セシウム含有微粒子について、1 粒子から Cs の同位体比測定及びイメージングを既に実現している<sup>[3]</sup>（図 1.1-2）。

将来的に同位体マイクロイメージング装置による同位体分析の技術を少量燃料デブリの分析に適用することを踏まえ、本研究の遂行にあたっては、FMF に設置した同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備、多元素分析を可能とするための同位体マイクロイメージング装置付属共鳴イオン化レーザー機構の改良、1F 汚染サンプル及び少量燃料デブリの試料調製から分析までの手法の確立を行うことが必要不可欠である。令和 3 年度は、同位体マイクロイメージング装置の実用化に向けて、検出器の放射線シールド対策、試料輸送機構及び試料保管機構（サンプルパーキング）の開発、分析に係る操作の自動化、迅速な波長切り替えのための波長可変レーザーの改良、JAEA 大洗研究所における同位体マイクロイメージング装置のホット分析仕様のための装置整備を行った。併せて、今後分析が必要となってくる重要な核種に対する共鳴イオン化スキームの開発に向けて、イオン化スキームの探索のための装置整備を行った。また、これらを通して、参画機関の大学院生や JAEA 大洗研究所の職員に対して、人材育成を行った。

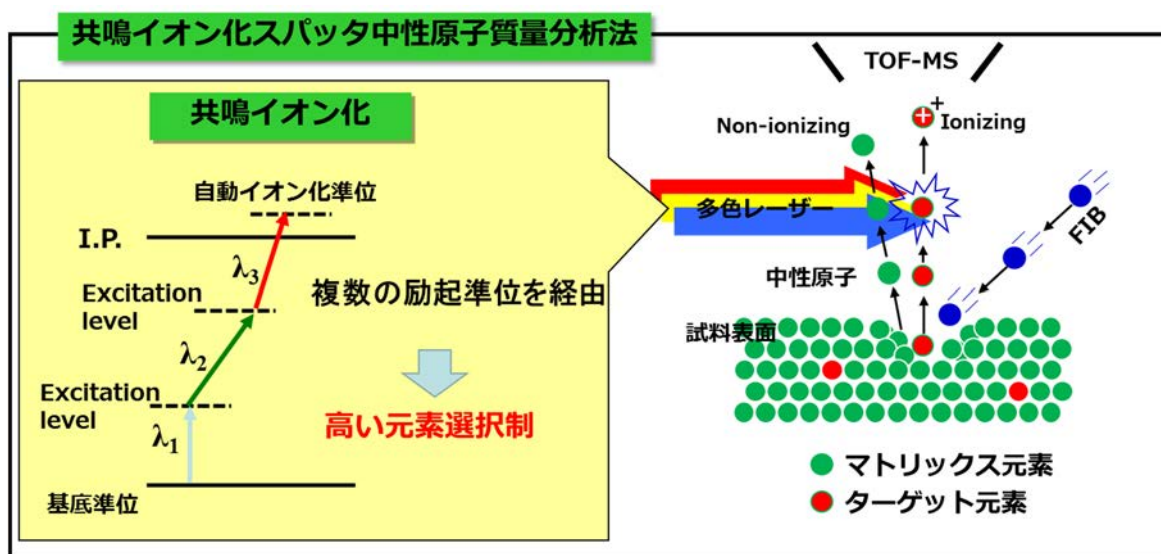


図 1.1-1 同位体マイクロイメージング装置の原理図

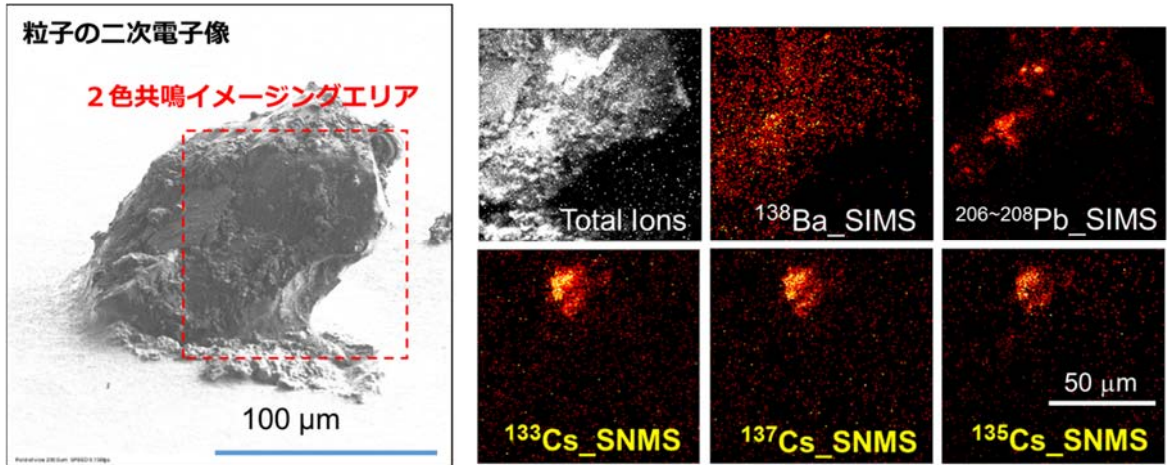


図 1.1-2 放射性セシウム含有粒子の同位体イメージング像<sup>[3]</sup>

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

#### (1) 同位体マイクロイメージング装置の実用運転の確立

##### ① 検出系の放射線シールド対策

FMF に設置した同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行う。想定される高線量試料に対して、測定データのクオリティを下げないところまで、シールド対策を実施する。評価には、高線量試料とそれに組成の近い安定同位体の模擬試料とを比較して、質量スペクトルの比較を行う。

##### ② 試料輸送機構と試料保管（サンプルパーキング）機構の開発

可搬型のアイソレーションボックスの設計製作を行う。大気エアロゾル試料や粉末試料を用いて、製作したアイソレーションボックスについて、試料交換や試料輸送の過程で、粒子の紛失や異物混入がないことを確認していく。微粒子試料の試料台への適切な固定方法についても検討し、従来法である In や Pb などの柔らかい金属板を用いて、押し付けることで埋め込んで固定する方法との比較を行う。また、安全対策・分析スルーットの向上のために、同位体マイクロイメージング装置内にサンプルパーキング機構を設計・装着することで、一度に複数の試料を導入できるようにする。工学院大学で設計・動作チェックを行い、安全性や分析スルーット向上の評価を行った後、JAEA 大洗研究所の装置に反映する。

##### ③ 同位体マイクロイメージング装置の自動化及び遠隔化

工学院大学にある同位体マイクロイメージング装置を用いて、JAEA 大洗研究所での使用方法を想定しながら、JAEA 大洗研究所の同位体マイクロイメージング装置に即座に技術反映ができるように自動化・遠隔化の開発を行っていく。試料導入機構は前述のアイソレーションボックスとの互換性が取れるように設計し、自動化・遠隔化を進める。これらの機構も含め、通常の分析ルーチンの自動化（PC 制御）を進め、ヒューマンエラーがない実用的な装置へと仕上げる。

##### ④ 放射性微粒子分析の人材育成

JAEA の職員や工学院大学の学生に対して、現状の同位体マイクロイメージング装置の技術指導を行う機会を設ける。工学院大学において大学院生に指導を行い、その後、大学院生が JAEA 大洗研究所での技術指導を行う。その場を利用して JAEA と連携し、技術指導に関する教育コンテンツの作成に取り掛かる。必要に応じて、現地もしくはオンラインでの技術指導を行う。

#### (2) 共鳴イオン化スキームと多色イオン化レーザーシステムの開発（再委託先：名古屋大学）

##### ① イオンビームにて生成した 2 次中性原子を用いたイオン化スキームの開発

既設の Ar イオン銃を名古屋大学の大型飛行時間型質量分析装置に組み込むための質量分析装置真空チャンバ改造の設計を行い、イオン銃とイオン銃接続部品を設置し、基本動作を確認する。

##### ② 多元素迅速分析を実現するための高繰り返し率 Ti:Sa レーザーシステムの開発

Ti:Sa レーザーの基本波または第 2 高調波を切り替えて出力するために、Ti:Sa レーザーの共振器に切り替え用光学素子を配置するための再設計を行う。共振器内モードや熱・振動解析のシミュレーション計算を行い、テストベースにて出力・発振波長領域などの基本特性を明らかにする。

③レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成

難分析核種分析における放射能分析・質量分析・レーザー分析に関する基礎知識を取得できるような大学院生・若手技術者向けの教育コンテンツを準備する。本研究に参画するグループに所属の大学院学生に対し、廃炉に求められる分析など現場の状況を理解させるために、講演等を JAEA のサポートを受け実施する。

(3) 1F 汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー（再委託先：東京電力 HD）

様々な廃炉プロセスにおいて燃料デブリの性状把握が重要となるが、特に燃料デブリの再臨界性評価に重要な核種分析が行えるように、JAEA 大洗研究所での 1F サンプル分析に用いるサンプルは、U を含む可能性が高いなど適切なサンプルを選定し、JAEA 大洗研究所に提供する。JAEA 大洗研究所にて同位体分析されたデータを評価・検討し、再臨界可能性の評価やこれまでに検討・解析が進められている炉内状況把握の評価内容の検証に加え、取得されたデータの廃炉工程への反映可能性等を評価する。

(4) 同位体マイクロイメージング装置を用いた 1F 汚染サンプルの分析（連携先：JAEA）

①装置整備

FMF の同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行うとともに、当該装置は共鳴イオン化可能元素が限定的であることから、多元素に対する共鳴イオン化を可能とするための共鳴レーザー機構の改良を行う。

②1F 汚染サンプルの分析

1F 汚染サンプルを用いたホット分析の事前確認試験として、コールド模擬試料を用いて試料調製から分析までの手法（受入れ試料のサイズ別の試料切断・加工方法など）を確立する。また、同位体マイクロイメージング装置を用いて、東京電力 HD から提供された 1F 汚染サンプルの組成や同位体情報に係る分析を実施する。

(5) イオン化スキームの開発（連携先：JAEA）

廃炉において組成情報が必要となる U や B 等の核種を含有する微粒子分析のため、多色共鳴イオン化スキームを検討する。この実現のため、紫外域の波長可変光を発生させる YAG レーザー励起色素レーザー光源を整備する。さらにその光をウランやホウ素等のホロカソードランプに入射し、共鳴イオン化で生じるランプの放電抵抗の微弱変化を検出する光ガルバノ分光計測システムを構築する。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間並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て、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打ち合わせや会議を適宜開催する。

## 2.2 実施体制

以下の図 2.2-1 に本研究の実施体制を示す。本研究は同位体マイクロイメージング装置の開発者である工学院大学の坂本を代表者とし、波長可変レーザーの開発者である名古屋大学の富田、分析ニーズの収集及びデータ解釈のために東京電力HDの溝上と協力して行う。また、ホット試料の分析拠点である JAEA 大洗研究所の前田、共鳴イオン化スキームの開発及びデータ解釈に CLADS の岩田が連携機関の代表として参画している。

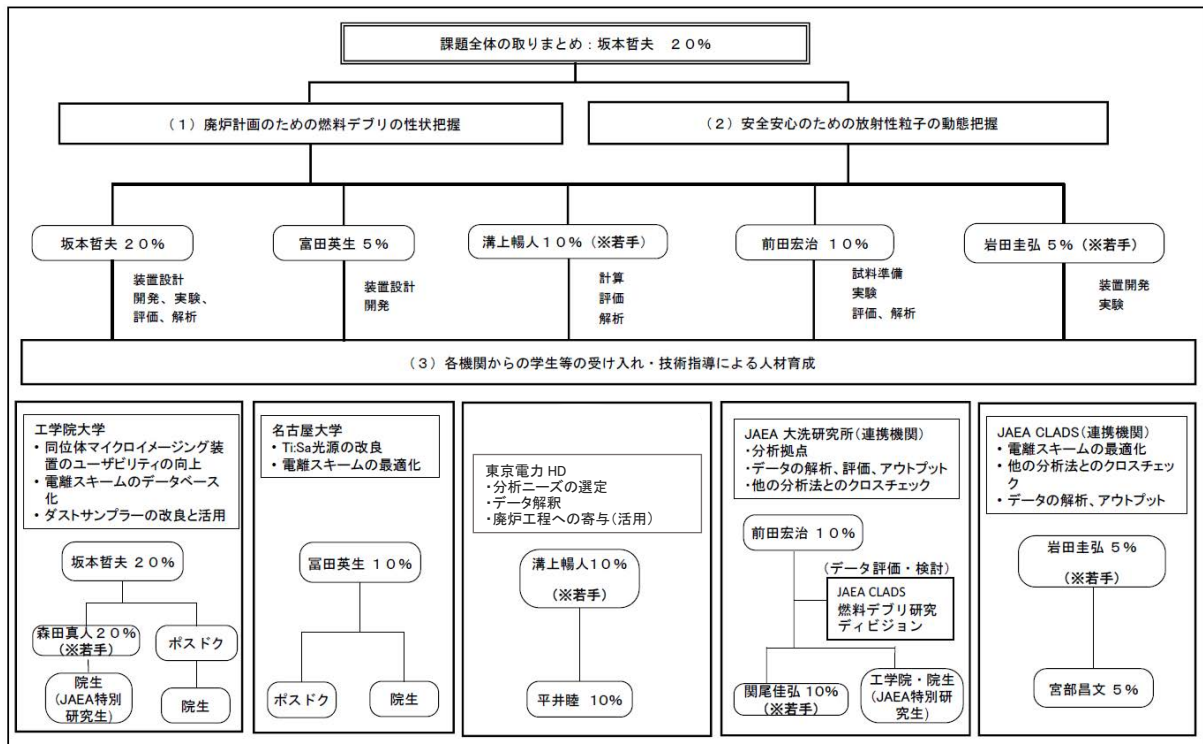


図 2.2-1 研究体制

### 3. 令和3年度実施内容及び成果

#### 3.1 同位体マイクロイメージング装置の実用運転の確立

##### 3.1.1 検出系の放射線シールド対策

同位体マイクロイメージング装置では、波長可変レーザーを用いてイオンビームによってスパッタされた中性原子に対して共鳴イオン化を行う。共鳴イオン化により生成した正イオンは、飛行時間型質量分析器によって質量電荷比ごとに分けて検出される。検出器には MCP (Microchannel Plate) によって増幅された電子をアノード電極で捕集し、TDC (Time-to-Digital Converter) を用いて検出している。MCP は入射した荷電粒子等を検出可能な電荷数まで増幅させる機能を持っているが、放射線にも反応するため試料から発生した放射線が MCP に照射され、本来の信号 (共鳴イオン化によって発生した正イオン) に対してノイズやバックグラウンドとして検出されてしまうことが懸念される。本同位体マイクロイメージング装置は、質量分析における同重体干渉の問題を解決し、固体局所の同位体分布や同位体比を取得できることが最大の特徴である。MCP における放射線ノイズは、本装置の性能を大きく左右する重要な課題であるため解決が必要である。

図 3.1-1 に同位体マイクロイメージング装置の試料台～検出器周辺の装置断面図を示す。試料台から装置までの直線距離は約 500 mm で MCP の有効径は 40 mm である。試料を頂点とした時の MCP に対する立体角は約 0.007 sr である。また、MCP は厚さ 10 mm のステンレス製の ICF フランジに固定されている。本研究では  $^{137}\text{Cs}$  の  $\gamma$  線を想定し、FMF に設置した同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行った。想定される高線量試料に対して、測定データのクオリティを下げない (検出限界を悪化させない) ところまで、シールド対策を実施した。

図 3.1-2 に開発した放射線シールドのための Pb 部材を同位体マイクロイメージング装置に取り付けた際の写真を示す。開発した Pb シールド部材は、厚さ 60 mm であり、MCP がマウントされている真空フランジ (ICF152) に設置して使用する。 $^{137}\text{Cs}$  を主たる  $\gamma$  線源 (0.06 MeV) と仮定し、質量減弱係数 ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ) を Pb:0.11, SUS304:0.073 として計算した。ここで SUS は真空フランジで使用しているステンレス部材に該当する。そのうえで、SUS による遮蔽の放射線減衰率は 1/3、試料から MCP に対する立体角の影響による照射量の減衰率は 1/1600、今回新規に設置する Pb シールド部材の減衰率は 1/1000 であるため、これらすべてを考慮した放射線の減衰率は 1/480 万となる (表 3.1-1)。同位体マイクロイメージング装置の典型的な測定時間はおおよそ 10 分であり、その間に MCP に到達した放射線はランダムな質量電荷比として積算され検出される。同位体マイクロイメージング装置で用いている飛行時間型質量分析器では、2 ns の時間分解能で 64  $\mu\text{s}$  までのイオンの飛行時間を計測しており、想定される最大線量試料 37 MBq を考慮した場合でも、10 分間の計測では、減衰率から予測される質量スペクトルのノイズは全ての飛行時間において 1 count 以下である。

図 3.1-3 に工学院大学において放射性セシウム含有粒子 (2 kBq) を用いて測定した質量スペクトルを示す。このスペクトルは、イオンビームを照射せずに (本来検出すべき信号が存在しない状態)、30 分間測定したバックグラウンドを表している。放射性セシウム含有粒子の場合と安定同位体だけの硝酸セシウム試薬試料を比較した際、両者のスペクトルに変化はなかった。つまり、2 kBq 程度の試料においては、完全に試料由来の放射線を遮蔽できていることがわかった。図 3.1-3 で検出されているバックグラウンドは、放射線由来ではなく、装置に潜在的に残る電氣的なノイズや、真空計や真空ポンプから僅かに発生する荷電粒子に由来すると

考えられる。30 分間積算した場合で、バックグラウンドノイズの総カウント数は両者の条件で 3000 程度であり、試料の違いによる影響は観察されなかった。これ以上の高線量試料については、工学院大学では検証ができないため、完成した Pb シールド部材を、JAEA 大洗研究所の装置に移設した。今後は、JAEA 大洗研究所において高線量試料を用いて、遮蔽の具合を検証していく。

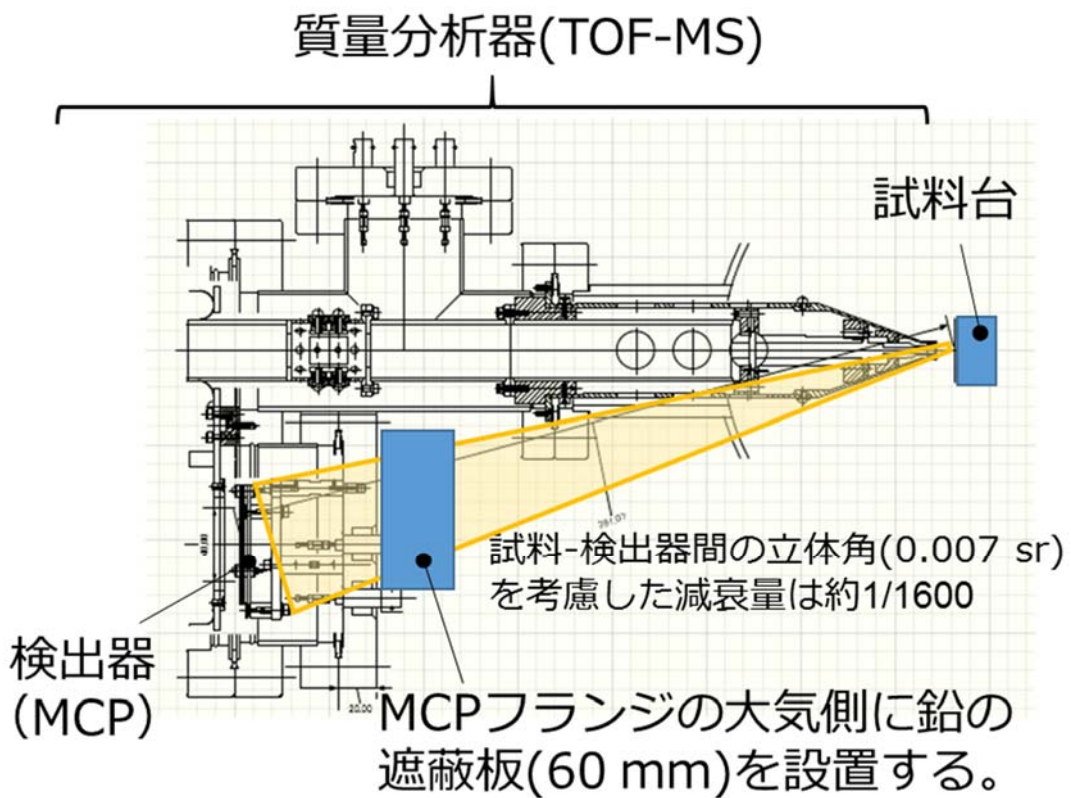


図 3.1-1 同位体マイクロイメージング装置の装置断面図

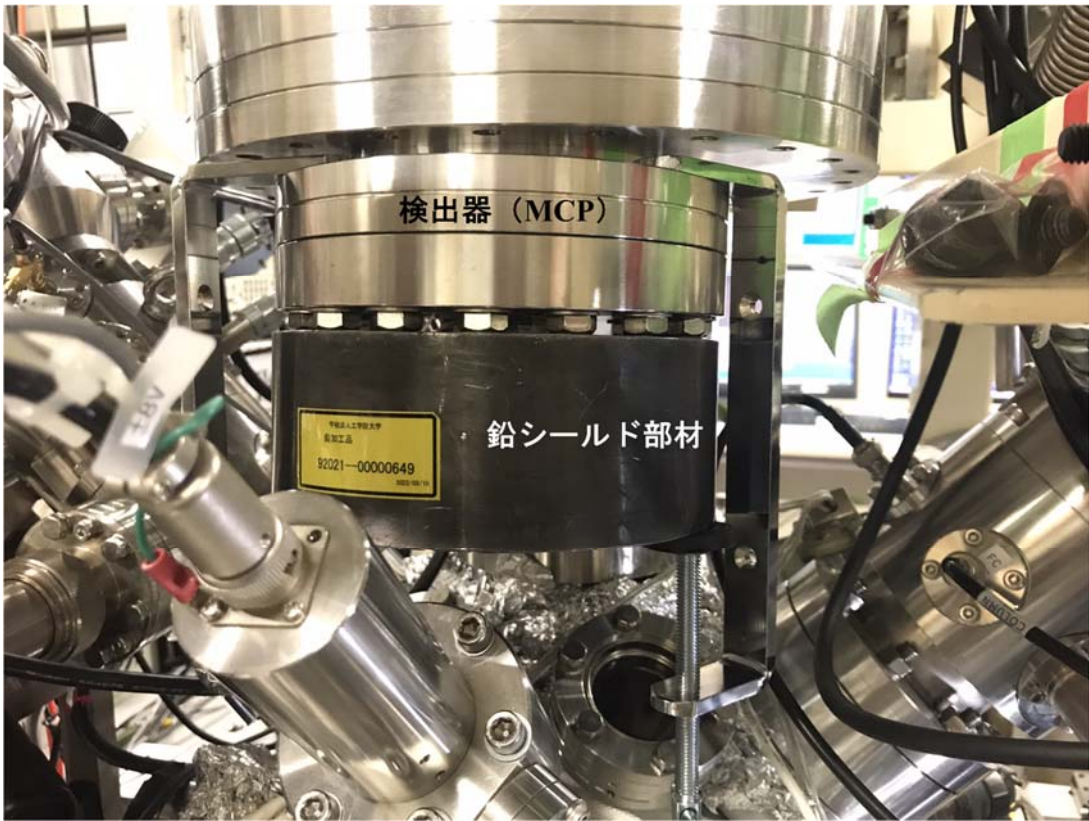


図 3.1-2 Pb シールド部材を検出器に取り付けた様子

表 3.1-1 装置各部位における放射線の減衰率

$$I = I_0 e^{-\mu p x}$$

I:透過した線量、 $I_0$ :入射した線量  
 $\mu$ :質量減弱係数、x:厚み p:密度

	材質	厚み (mm)	減衰率 ( $I/I_0$ )
既存部分	SUS304	20	1/3
追加部分	Pb	60	1/1000
検出器の立体角による減衰			1/1600
合計			1/480万



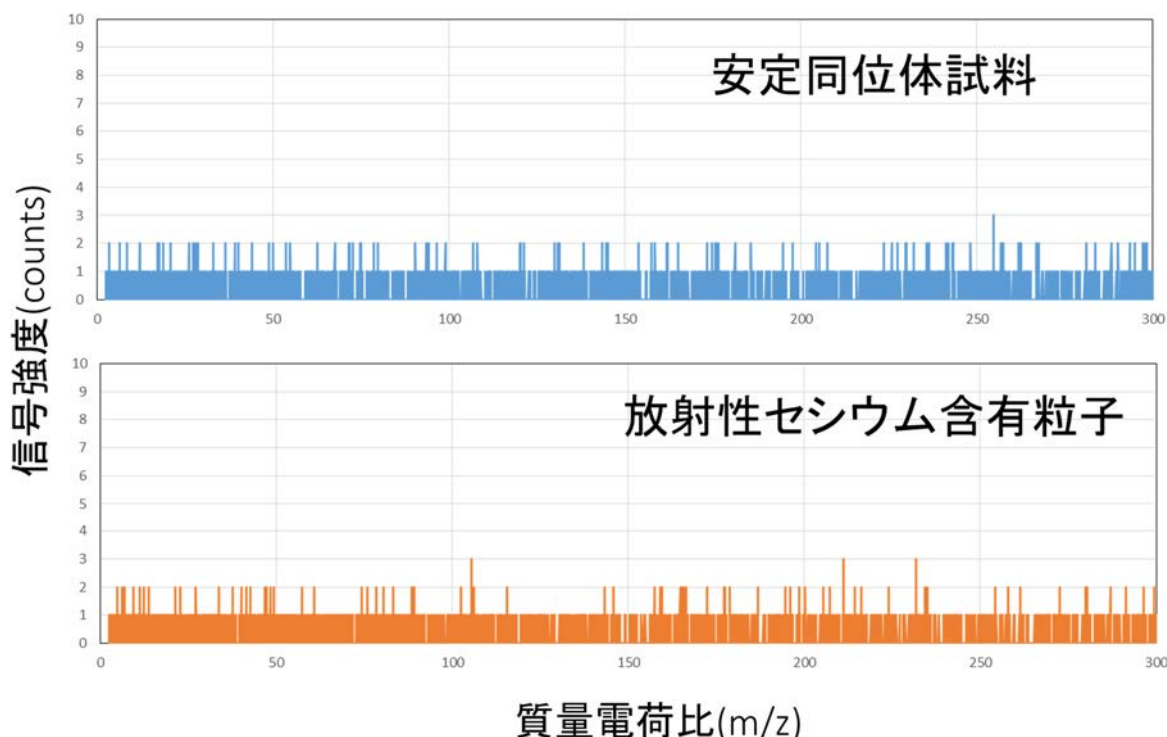


図 3. 1-3 Pb シールド部材による質量スペクトルの比較

### 3. 1. 2 試料輸送機構と試料保管（サンプルパーキング）機構の開発

可搬型のアイソレーションボックスは、サンプルの紛失を防ぐうえで重要である。そのため、従来の試料台に着脱可能なキャップを取り付け、更に同位体マイクロイメージング装置の試料交換室内でキャップの着脱が行えるように改良した。図 3. 1-4 に着脱式のキャップ付き試料台の写真を示す。このキャップは回転させることによって着脱が可能であり、キャップを閉めることによって、試料部が密閉され、大気暴露やサンプルの紛失を抑制する。試料交換室内で真空を引いた状態で、キャップの着脱が必要なため、試料交換室内に回転機構を設置し、回転機構の先端がキャップの上部の溝に嵌まることでキャップの取り外し及び分析中のキャップの保持ができるように改良した。これにより分析後のサンプルも、キャップを閉めたまま、大気中に取り出せるようになったため、表面の汚染や放射性粒子の紛失を抑制できるようになった。図 3. 1-5 に試料交換室内でのキャップの着脱過程の一連の様子を示す。

上記と併せて、微粒子試料の固定方法についても検討を行った。一般的には大気中の微粒子の捕集には繊維質のフィルターを用いることが多い。しかしながら、同位体マイクロイメージング装置では、照射ビームや検出種にイオンを用いているため、帯電や歪な形状の電界が生じないように、理想的には導電性が高く、かつ、平滑な試料が求められる（微小粒子であれば絶縁物でも可能）。フィルターの多くが、高分子やガラス繊維等の絶縁物を使用しており、表面の凹凸も烈しい。特に、繊維の奥で捕集された粒子の観察は困難であり、多くの場合、表面近傍の測りやすい粒子に絞って分析が行われていると推察される。原子力の分野で頻りに利用されるスマヤろ紙もこれに該当する。一方で、高線量試料の紛失は万に一つも起こってはならない。

そのために、しっかりと固定でき、かつ同位体マイクロイメージングに適した微粒子の固定方法が要求される。In（インジウム）は柔らかく成形しやすい、また導電性も高いため、本研究では平滑化した In 基板に粒子を押し付けて固定する方法を提案した。In は極めて柔らかいため、押し付ける際に微粒子自身が割れる等の試料の状態に影響を与える懸念もない。In ほどではないが Pb も比較的柔らかい金属であるため、In と Pb の基板の両方で、実際に微粒子を固定し、キャップ付き試料台を用いて同位体マイクロイメージング装置における一連の操作を行い、前後で試料の状態を比較した。図 3.1-6 に試料導入前後での In 基板と Pb 基板上の粒子の光学顕微鏡像を示す。両方の基板において試料導入前後で、粒子位置の移動や粒子の紛失が無いことが明らかとなった。どちらの基板でも固定できることがわかったが、In 基板の方が、成形が容易なため、基本的には In 基板を利用していくこととした。また、Pb は格納容器等の重要なマーカー元素であるため、基板として In を用いることが適していると結論付けた。キャップ付き試料台も含めて、開発したノウハウを JAEA 大洗研究所の装置でも利用できるように情報共有し、今後は JAEA 大洗研究所と連携をとりながら、現地装置への反映及び改良を進めて行く。

続いてサンプルパーキングの開発について報告する。今後同位体マイクロイメージング装置では多くのホット試料を分析していくことになるが、その際に、その都度試料を交換すると、試料の紛失のリスクが高まることや、分析のスループットに影響を与える。そのため、試料交換室付近に試料を複数個保管できる機構（サンプルパーキング）の開発を行った。今回開発したサンプルパーキングでは、キャップ付き試料台を複数個保管できること、試料交換室と同程度の真空度を維持できること、揮発性試料の分析に向けた試料の凍結保持機構を有することを要件とした。図 3.1-7 に開発したサンプルパーキングの 3D-CAD 図面を示す。サンプルパーキングは試料交換室にゲートバルブを介して接続され、パーキング内の真空はパーキング上部に設置したイオンポンプによって保持される。パーキングは液体窒素タンクと一体になっており、タンクに液体窒素を満たせば $-130^{\circ}\text{C}$ 程度の温度で試料を保持することができる。規定の温度に達した後、タンクを液体窒素で再充填すれば、半日程度は温度が保持される。これにより、揮発性の高い物質（Cs や  $^{129}\text{I}$ ）を含んだ試料に対しても、真空中で凍結保持することが可能となった。（同位体マイクロイメージング装置の分析室内での試料の凍結保持機構は本研究よりも前に既に開発済である。）保管している試料を分析室に移動させる際には、パーキングと試料交換室の間のゲートバルブを開けて、パーキングを試料交換室内に回転導入機によって移動させ、試料交換室にあるトランスファーロードに目的の試料を受け渡す。続いて、パーキングを元の位置に退避させ、試料交換室-分析室間のゲートバルブを開け、トランスファーロードを用いて試料導入を行う。今回開発したパーキングは 4 つのキャップ付き試料台を保管することができるが、将来的には改良を加えてサンプル数を増やしていく。図 3.1-8 に開発したサンプルパーキングを同位体マイクロイメージング装置へ設置した際の写真を、試料交換の様子を図 3.1-9 に示す。開発した方法を用いて試料交換を行った結果、1 つの試料の交換が 2 分以内で行えるようになった（※試料交換室を真空に保持した条件において）。サンプルパーキングを設置する前の従来の手順では、試料の交換に 15 分以上を有していたため、分析のスループットが向上したことを確認できた。本作業は工学院大学の同位体マイクロイメージング装置で行ったが、実際にホット試料を想定した場合には、3.4.1 で後述するグリーンハウス内での操作や、交換後のグリーンハウスの汚染状況の確認作業などを含むため、試料交換に掛かる手間は更に大きくなる。そのため、同時に複数の試料を導入でき、測定後の試料もパーキング内で保管できることは、前述した時間以上の効果を持つ。今後は JAEA 大洗研究所の装置や作業を

想定し、工学院大学において開発したサンプルパーキングを将来的に技術移転できるように、実績や改良点等のデータを積み上げていく。

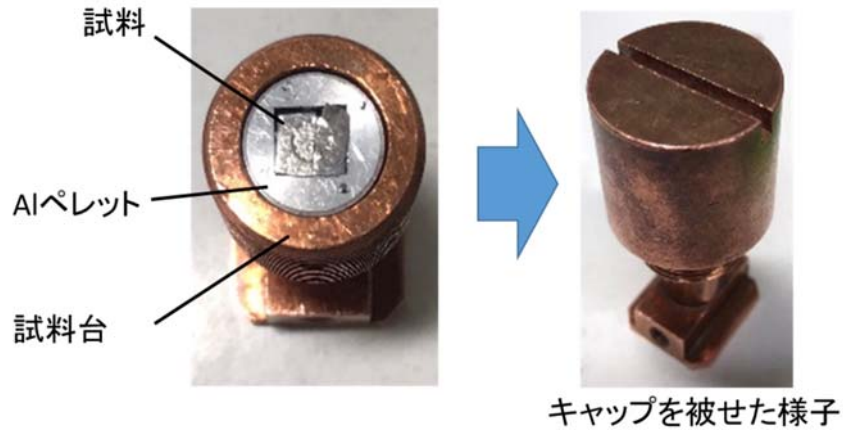


図 3.1-4 着脱式のキャップ付き試料台

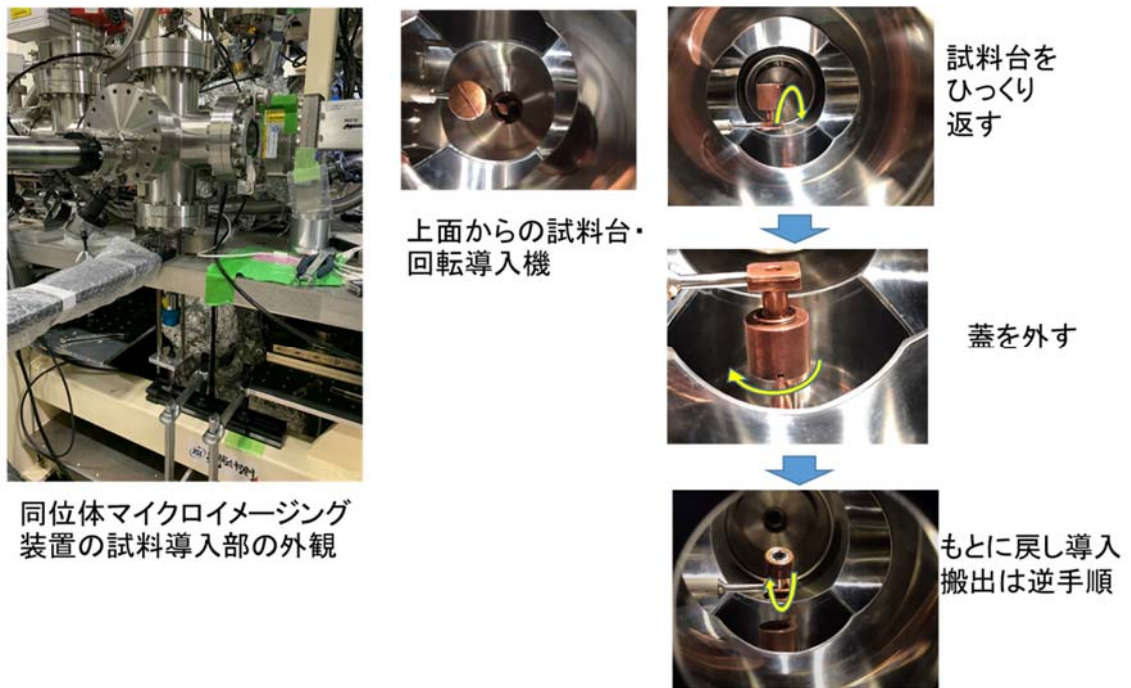


図 3.1-5 キャップ付き試料台の試料交換室内での着脱の様子

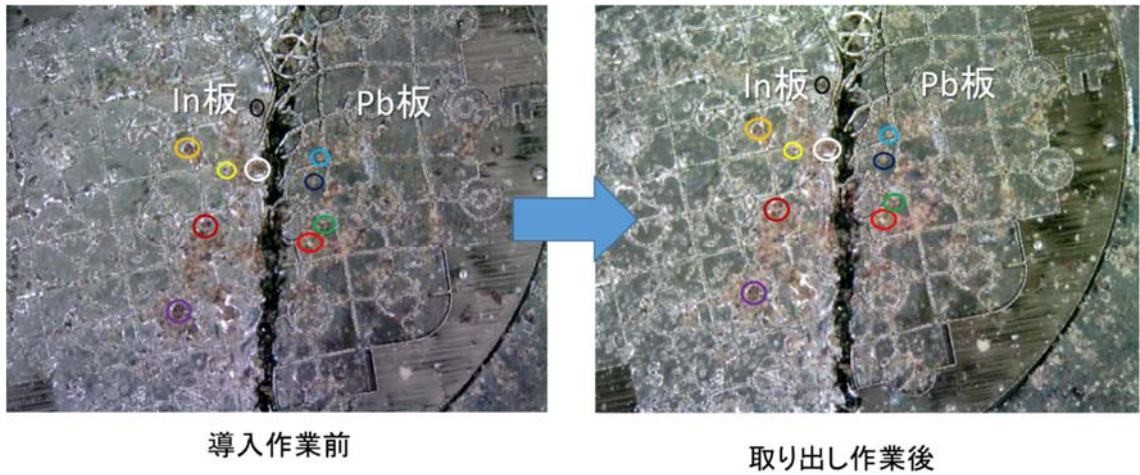


図 3.1-6 試料導入前後での In 基板と Pb 基板上的粒子の光学顕微鏡像（視野幅：約 1.4 mm）

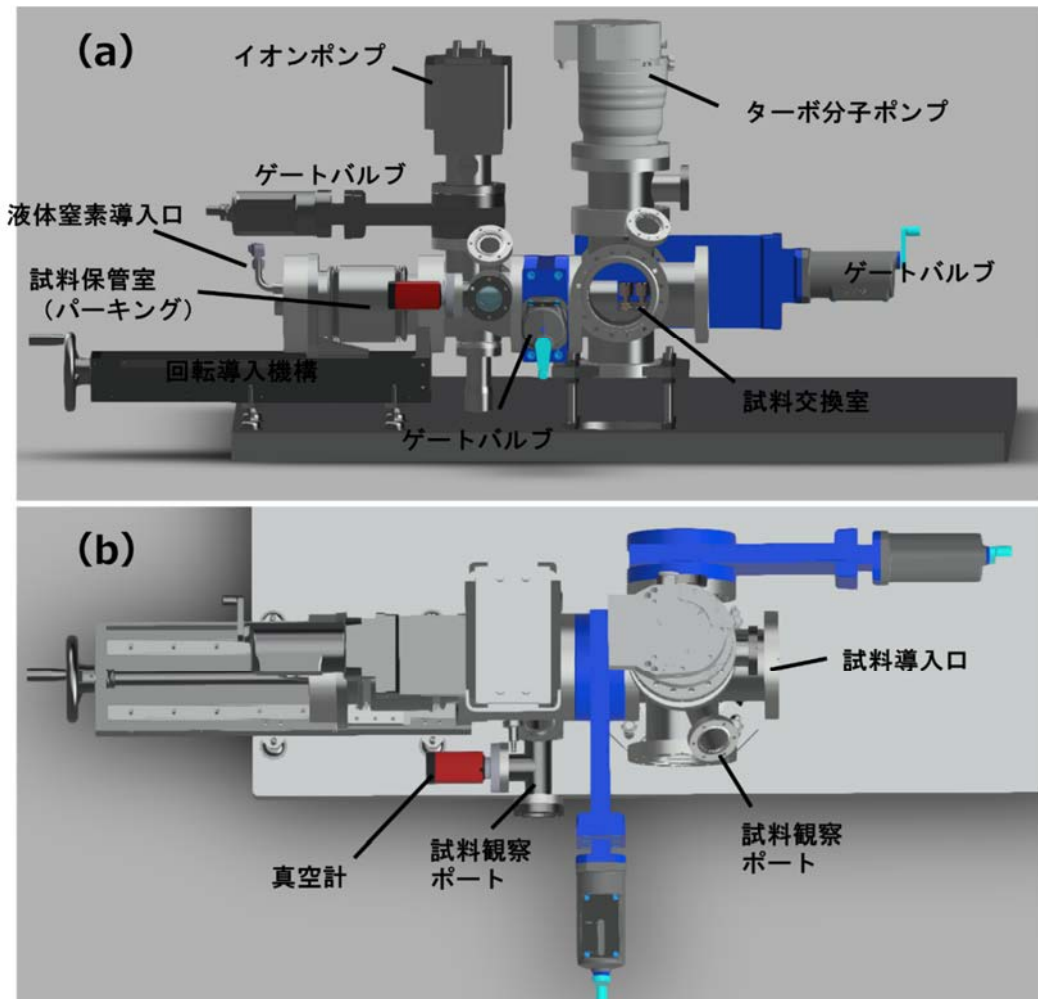


図 3.1-7 サンプルパーキングの 3D-CAD イメージ  
(a) 側面図（トランスファーロッド側から）、(b) 上面図

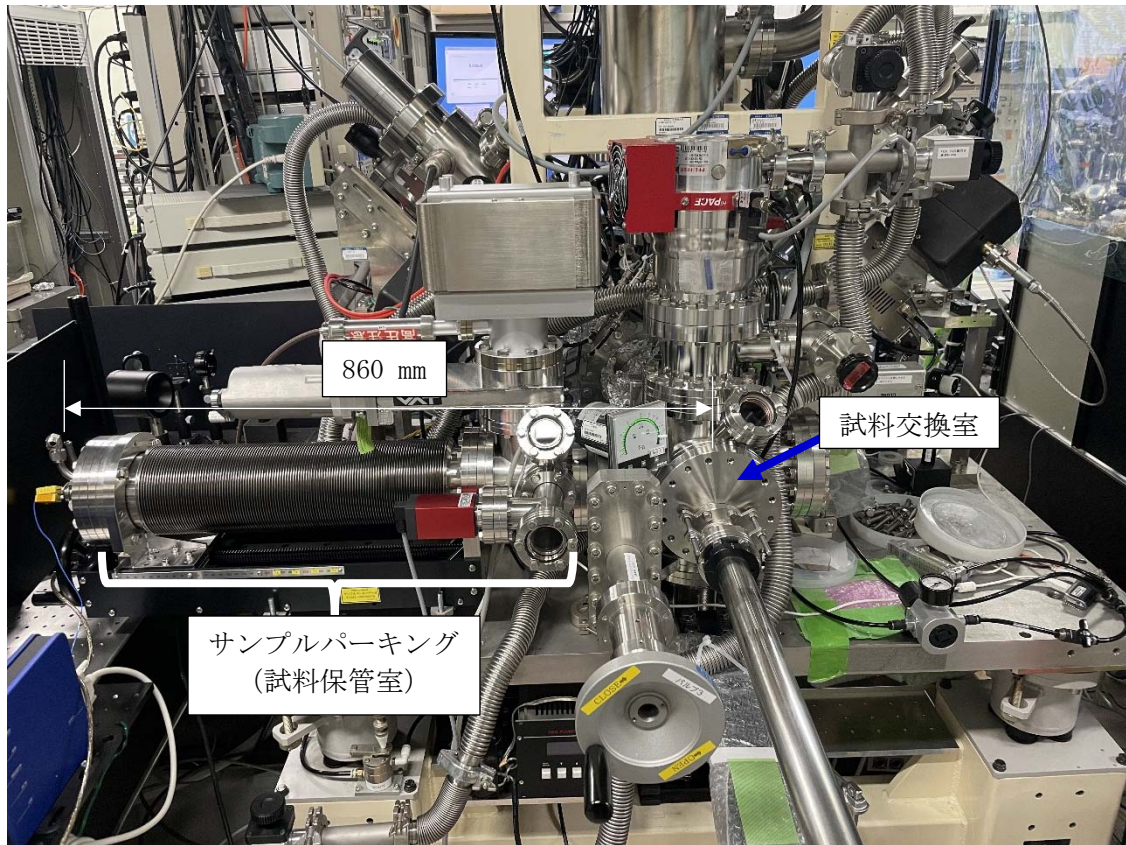


図 3.1-8 同位体マイクロメージング装置に取り付けたサンプルパーキング

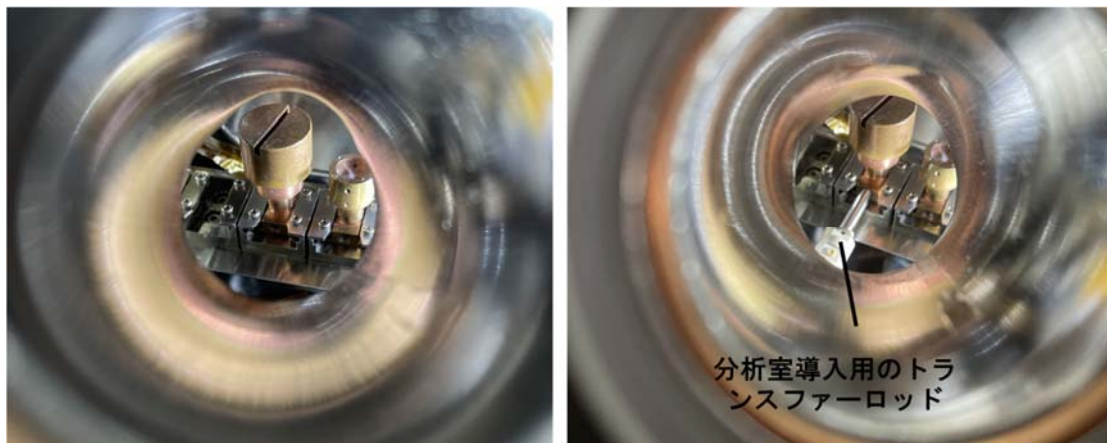


図 3.1-9 試料交換の様子

### 3.1.3 同位体マイクロイメージング装置の自動化及び遠隔化

工学院大学にある同位体マイクロイメージング装置を用いて、JAEA 大洗研究所での使用方法を想定しながら、JAEA 大洗研究所の同位体マイクロイメージング装置に即座に技術反映ができるように自動化・遠隔化の開発を行った。

自動化に関しては、ソフトウェアの改良により、粒子位置を記録し試料ステージが自動で移動する機構を開発した。同位体マイクロイメージング装置では、イオンビーム照射によって発生した2次電子像を検出することで、走査電子顕微鏡に近い観察方法が可能である（Scanning Ion Microscope：SIM）。SIMでは組成情報は得られないが、高速で形状観察が可能であるため、基板上の粒子の探索や分析位置を決定する際に用いられる。その後、TOF-SIMSや共鳴イオン化スパッタ中性粒子質量分析法（Resonance ionization Sputtered Neutral Mass Spectrometry：R-SNMS）測定によって元素分布や同位体分布を調べていく。しかしながら、分析モードの切り替えや、分析位置まで試料ステージを移動させることは、分析のスループットに影響を与える。従って、SIM観察において一度に複数の分析位置を決定し、その座標をソフトウェア内に登録することで、登録した座標を自動で順番に測定できるように改良した。これにより、観察対象の探し直しも含めて、分析のスループットが著しく向上した。図 3.1-10 に開発したソフトウェアと自動で元の粒子の位置に試料ステージが移動する様子を示す。画面左上はSIMによって観察された像で、視野内に注目粒子があった場合、その座標を記録することができる。一度記録してしまえば、すぐにその座標に戻ることが可能である。今後は JAEA 大洗研究所での分析を想定し、より実用性が高くなるように必要な自動化の機能を増やしていく予定である。

次に、遠隔化に関しては波長可変レーザーを励起するための YAG レーザーを安全性の向上のために遠隔制御で緊急停止できるように対応を行った。使用している YAG レーザーは出力が強く、危険であるため、安全対策を十分に行わなければならない。これまで YAG レーザーはコントローラのフロントパネルから制御を行っていたが、シリアル通信によって、ソフトウェアを介してリモートで制御できるようにした。しかしながら、振動・衝撃による意図せぬ光軸の変化や通信不良等の方が一の可能性も考慮し、コントローラの I/O 制御ピンを延長して、オペレータの付近に緊急停止のためのインターロックスイッチを設けた。図 3.1-11 に開発したインターロックスイッチを示す。これにより、瞬時に物理的にレーザーをシャットダウンすることが可能となり、有事の際の安全性の確保ができるようになった。今後は JAEA 大洗研究所の装置においても同様の安全対策を行っていく。

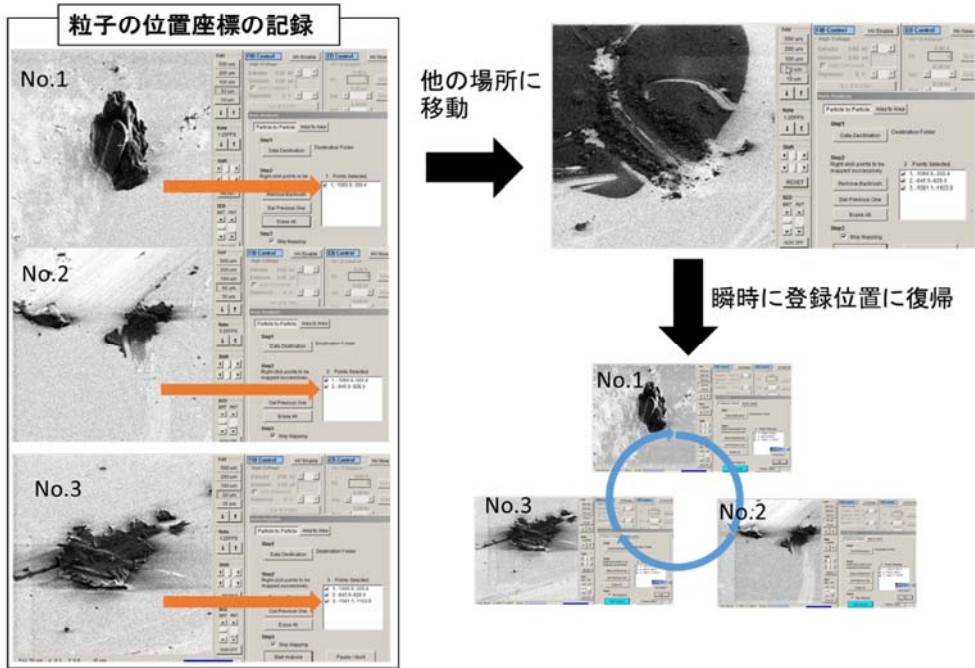
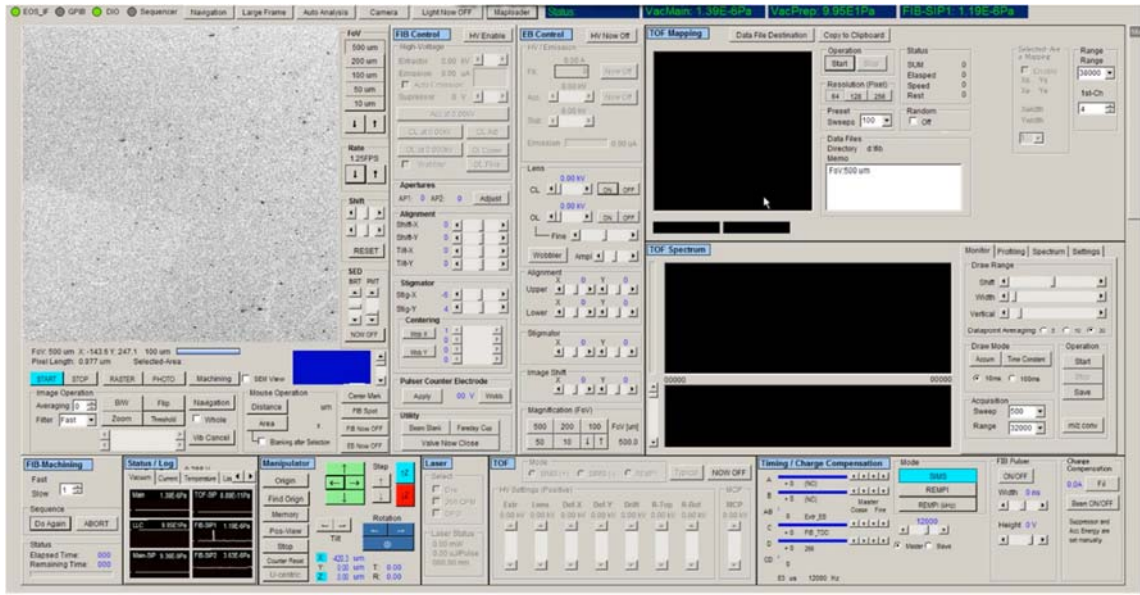


図 3.1-10 開発したソフトウェア（上）と試料ステージの自動化の様子（下）

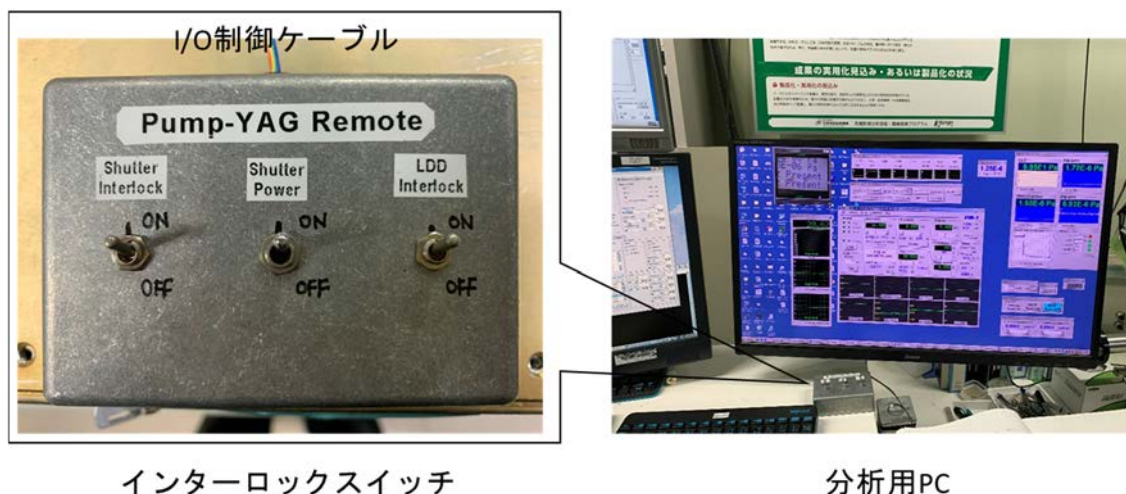


図 3.1-11 開発した YAG レーザーのインターロックスイッチ

### 3.1.4 放射性微粒子分析の人材育成

JAEA の職員や工学院大学の学生に対して、現状の同位体マイクロイメージング装置の技術指導を行う機会を設けた。具体的には、2022 年 3 月 14 日に FMF に工学院大学の坂本、森田の他に学生 2 名を連れて訪問した。この際に、FMF の見学と併せて、同位体マイクロイメージング装置の視察も行い、現地職員 2 名に対して技術指導を行った。図 3.1-12 に 3 月 14 に JAEA 大洗研究所を訪問した際の、技術指導の様子を示す。また、工学院大学の大学院生 2 名を中心に、同位体マイクロイメージング装置で使用するレーザーのセットアップと R-SNMS 測定について、令和 3 年度を通して教育を行った。これらの指導の機会を利用して JAEA と連携し、技術指導に関する教育コンテンツの作成に取り掛かった。教育コンテンツの中身としては、同位体マイクロイメージング装置の原理と応用についてまとめ、操作手順をマニュアル化したものを作成した。



図 3.1-12 技術指導の様子



### 3.1.5 まとめ

同位体マイクロイメージング装置の実用化のために令和3年度に計画していた実施項目は全て達成できた。しかしながら、実際に分析を重ねていくことで、新たに必要となる機能が発覚する可能性もあり、安全性やユーザビリティについても更に高めていく必要がある。今後もJAEA 大洗研究所と連携を密にし、ホット試料の分析の現場で本当に役に立つ実用的な装置へと改良を進めて行く。

3.2 共鳴イオン化スキームと多色イオン化レーザーシステムの開発 (再委託先:名古屋大学)

3.2.1 イオンビームにて生成した2次中性原子を用いたイオン化スキームの開発

名古屋大学では主に真空中で試料を加熱し、熱脱離によって生じた中性原子に対して共鳴イオン化質量分析を行っていた。しかしながら、イオンビームによってスパッタされた中性原子の中には、元素によってはイオンビームのエネルギーによって既に励起している元素が存在する可能性がある。同位体マイクロイメージング装置と条件を併せるために、令和3年度はイオンビームによって生じた中性原子に対して共鳴イオン化が行えるように装置の改良を行った。既設の Ar イオン銃を名古屋大学の大型飛行時間型質量分析装置に組み込むための質量分析装置真空チャンバ改造の設計を行い、イオン銃とイオン銃接続部品を設置し、基本動作を確認した。図 3.2-1 に開発した真空チャンバの構造を示す。図 3.2-2 に実際にイオン銃を搭載した共鳴イオン化質量分析装置の写真を示す。イオン光学シミュレーター (SIMION) を用いて、各電極に印加する電圧等の最適化を図った。計算した結果の一例を図 3.2-3 に示す。イオンが飛行時間型質量分析計に輸送されていることが確認できた。今後は開発した装置を用いて、イオンビームによって生成した中性粒子に対して、最適な共鳴イオン化スキームの開発を目指す。

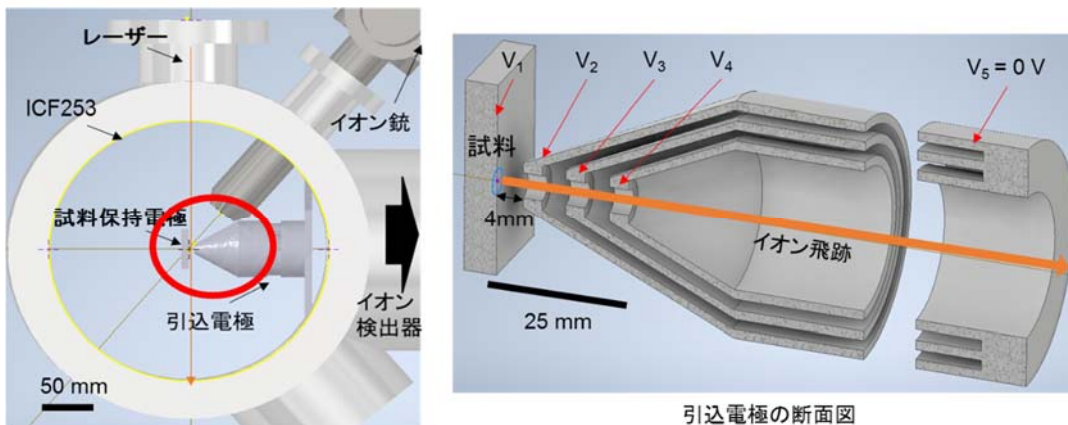


図 3.2-1 開発したイオン銃を搭載可能な真空チャンバの構造

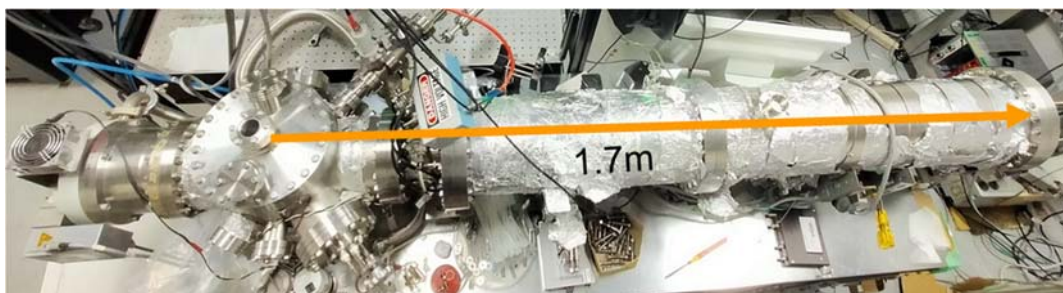


図 3.2-2 イオン銃を搭載した共鳴イオン化質量分析装置

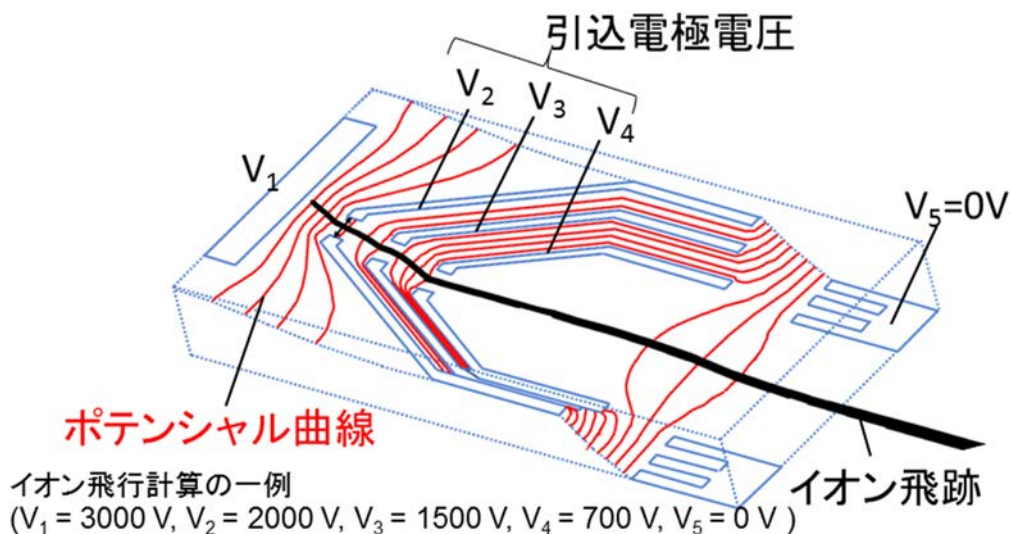


図 3.2-3 SIMION によるイオンの飛行計算の結果

3.2.2 多元素迅速測定を実現するための高繰り返し率 Ti:Sa レーザーシステムの開発

Ti:Sa レーザーの基本波または第2高調波 (SHG) を切り替えて出力するために、Ti:Sa レーザーの共振器に切り替え用光学素子を配置するための再設計を行った。従来の Ti:Sa レーザーでは基本波と第2高調波の切り替えには、非線形光学結晶 (BBO) の脱挿入及びアウトプットカップラの交換を手動で行っており、迅速に波長を切り替えることができなかった。そのため、光学素子の一部を電動のリニアステージ上に設置し、自動で迅速に基本波と第2高調波の切り替えを実現した。図 3.2-4 に開発した新しい Ti:Sa レーザーの模式図と波長切り替えのための電動ステージの構造を示す。続いて、共振器内モードや熱・振動解析のシミュレーション計算を行い、テストベースにて出力・発振波長領域等の基本特性を明らかにした。図 3.2-5 に開発した Ti:Sa レーザーを用いて波長切り替えを実際に行った際の基本波と第2高調波の出力と切り替えに要する時間を示す。基本波と第2高調波が 10 秒以内で切り替わっていることが分かる。

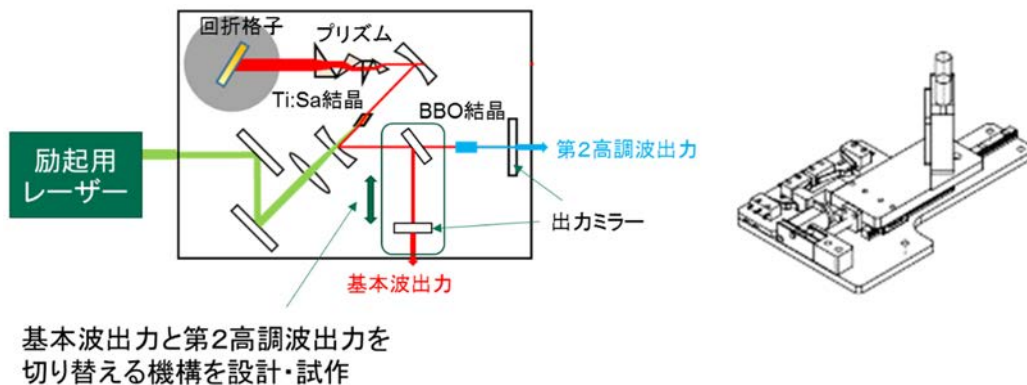


図 3.2-4 開発した Ti:Sa レーザーの模式図と電動ステージの構造

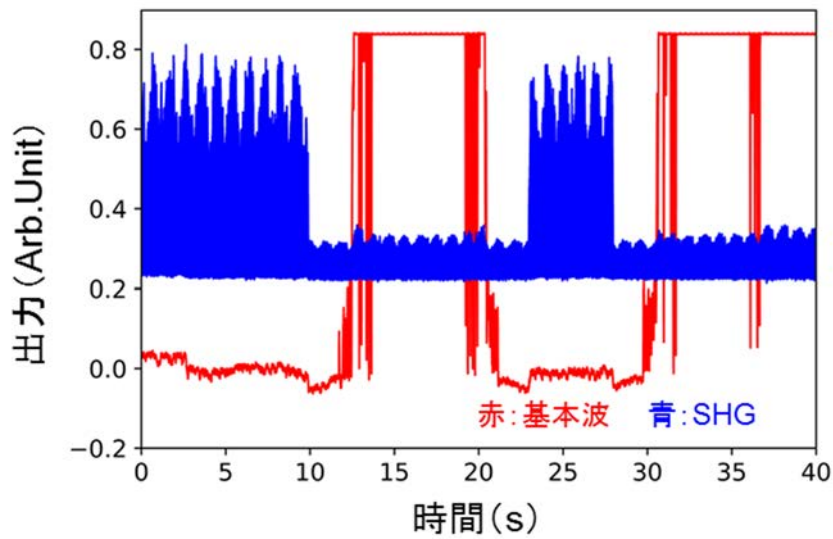


図 3.2-5 SHG/基本波の切り替え時の出力の時間変化

3.2.3 レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成

難分析核種分析における放射能分析・質量分析・レーザー分析に関する基礎知識を取得できるような大学院生・若手技術者向けの教育コンテンツを準備した(図 3.2-6)。本研究に参画するグループに所属の大学院生に対し、廃炉に求められる分析など現場の状況を理解させるために、講演等を JAEA のサポートを受け実施した。具体的には、2022 年 3 月 1 日に Zoom による講演会「福島廃炉に向けたレーザー(分光)技術に基づく手法の開発と取り組み」を開催した。

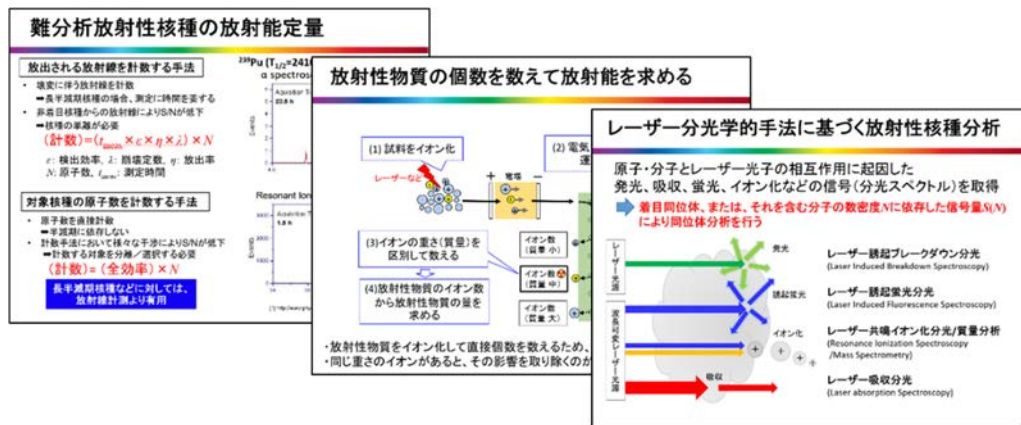


図 3.2-6 教育コンテンツの一部

3.2.4 まとめ

今後必要となってくる重要核種の最適なイオン化スキームの開発のために、装置整備を行った。今後はイオンビームによって生成した中性原子に対して、スキームの開発を行っていく。従来迅速かつ自動で切り替えが困難であった基本波または第二高調波の切り替え機構の開発に成功した。これにより更に実用性が高い装置となった。今後は工学院大学や JAEA 大洗研究所に技術移転ができるように、テストベースから得た情報を元に改良を進めて行く。

### 3.3 1F 汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー（再委託先：東京電力 HD）

#### (1) 1F 汚染サンプルの提供

1F では廃炉作業の進捗とともに比較的線量の高い試料が採取されるようになってきており、東京電力 HD ではこれまで IRID/JAEA と協働して燃料デブリの性状把握や事故進展への理解深化に活用するための 1F 汚染物サンプル分析<sup>[4], [5], [6], [7]</sup>を進めている。これらの分析に用いた試料の一部が JAEA 大洗研究所に保管されている。分析結果から U 等の放射性微粒子を含有していることが明らかになっており、本研究の 1F 実機サンプル分析に適していると考えられるため、これらを本研究で分析するサンプルとして活用することとした。これまでに JAEA 大洗研究所で分析しており利用できる可能性があるサンプルの例を表 3.3-1 に示す。令和 3 年度は PCV 内部調査装置付着物（CRD レール上堆積物）を提供した。

表 3.3-1 1F 汚染物サンプルの例

号機	名称	採取時期
1	PCV 底部堆積物	2017 年 4 月
1	PCV 貫通部 (X-2) 内堆積物	2019 年 6 月
1	オペレーティングフロアウェルプラグスミア	2019 年 7 月～8 月
1/2	SGTS 配管内部ふき取りスミヤ	2020 年 5 月
1	PCV 内部調査アクセスルート構築関連サンプル(AWJ 装置)	2020 年 3 月
1	PCV 内部調査アクセスルート構築関連サンプル(ガス管理設備)	2019 年 6 月
2	PCV 内部調査装置付着物(CRD レール上堆積物)	2017 年 4 月
2	原子炉建屋オペレーティングフロア養生シート	2014 年 3 月
2	TIP 配管内閉塞物	2013 年 7 月
2	PCV 内部調査装置付着物(カメラ部付着物)	2018 年 1 月
2	トーラス室滞留水ろ過物	2019 年 5 月
3	PCV 内部調査装置付着物(水中ロボット)	2017 年 7 月
3	トーラス室滞留水ろ過物	2019 年 5 月

#### (2) 分析結果のレビュー

JAEA 大洗研究所において実施した 1F 実機サンプル（1F2 号機 PCV 内部調査装置付着物（CRD レール上堆積物））の分析結果について再臨界、炉内状況把握その他廃炉の観点からレビューを行った。

令和 3 年度の分析は SEM → FIB → TEM → SIMS の流れで実施された。マウントは SEM、TEM、SIMS 間でのサンプル融通に配慮したものが用いられ、TEM での組織観察後に同位体分析が必要と判断された場合に SIMS を用いる、あるいは SIMS で特徴的な箇所を検出して TEM 分析にかけるといったことが可能になった。分析データの詳細については 3.4.2 で後述するが、TEM と SIMS で取得したマッピング像を比較すると両者で同一視野を分析するということが達成できている。このことは TEM による組成分析、結晶学的分析及び SIMS の同位体分析を組み合わせることが可能となったことを意味しており、1F 実機サンプルの評価に非常に有効と考えられる。具体的には、TEM-EDS 分析において得られる元素情報だけでは天然由来か FP 由来かがはっきりしない場合や、特性 X 線の干渉（例えば U による強い特性 X 線が Cs と干渉する場合）に、SIMS の質量分析により確認することができるようになれば、燃料デブリや放射性微粒子の生成プロセスの理解や、FP 分布の推定に活用できると考えられる。また、今回取得された SIMS マッピング像は TEM 像と比較してやや粗い像となっている。微粒子を対象とした分析では、よりマッピング解像

度を上げる、あるいはある点分析の測定スポットを小さくすることができると効果的な分析、評価ができるとようになると考えられる。

検出核種の観点からは、3.4.2 で後述するように、今回の分析では U、Zr、Fe 等が検出されている。このうち U については、 $^{238}\text{U}$  が検出され  $^{235}\text{U}$  は検出されなかった。 $^{238}\text{U}$  の 1 %程度と少量の含有であるが  $^{235}\text{U}$  の含有量は燃料成分の基本的パラメータであり臨界性とも関連することから測定を目指す必要があると考えられる。この他の微量核種についても優先度をつけて分析精度を高めていくことが、炉内状況把握、事故進展理解の高度化に役立つ情報を取得する観点で重要である。例えば、FP の性状を評価する上では、運転中にペレットに蓄積した FP 核種がどの程度放出されたかということが重要な情報となる。燃焼の進み具合に比例して生成されかつ不揮発性の Nd 等を指標とすることで、ある燃料片からどの程度 FP が放出したかを評価できる可能性がある。

### (3) まとめ

様々な廃炉プロセスにおいて燃料デブリの性状把握が重要となることが明白であり、特に燃料デブリの再臨界性評価等に重要な固体核種分析技術の確立は極めて重要と考えられる。このため、同技術確立のために JAEA 大洗研究所で行われる分析に適切な試料を供給すべく、令和 3 年度は U 等を含有する放射性微粒子を含む可能性が高いサンプルとして 1F2 号機の PCV 内部調査装置付着物 (CRD レール上堆積物) を選定し、JAEA 大洗研究所に提供した。JAEA 大洗研究所にて分析された局所の組成・結晶構造・同位体データを評価・検討し、臨界可能性の評価や炉内状況把握における同技術の有効性と今後の課題についてユーザーの観点からまとめることにより、取得されたデータの廃炉工程への反映可能性等を評価した。

### 3.4 同位体マイクロイメージング装置を用いた 1F 汚染サンプルの分析（連携先：JAEA）

#### 3.4.1 装置整備

FMF の同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備を行うとともに、同位体マイクロイメージング装置は共鳴イオン化可能元素が限定的であることから、多元素に対する共鳴イオン化を可能とするための共鳴イオン化レーザー機構の改良を行った。

##### (1) 許認可取得に係る装置整備

同位体マイクロイメージング装置を用いた同位体分析を将来的に少量燃料デブリの分析に適用することを踏まえると、少量燃料デブリや 1F 汚染サンプルの両方の試料の取扱いが可能な施設で、同位体分析に係る分析技術開発を行う必要がある。FMF は、1F 汚染サンプルに加え、将来的に燃料デブリの受入れ・取扱いが可能な許認可の取得を既に完了しており、本研究で新たに燃料デブリ分析等に適用を検討している同位体分析の実施に適した施設である。

FMF では、工学院大学で所有する同位体マイクロイメージング装置と同型の装置を既に導入しているが、少量燃料デブリや 1F 汚染サンプルに対する分析を行うためには、新たに同位体マイクロイメージング装置における核燃料物質の取扱いの許認可取得を行う必要がある。そのため、令和 3 年度は、同位体マイクロイメージング装置における核燃料物質の取扱いを可能とするための許認可取得手続きを行った。具体的には、核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律第 55 条の 2 第 3 項の規定に基づき、FMF に導入済の同位体マイクロイメージング装置について、火災対策、閉じ込め対策及び遮蔽対策に係る原子力規制委員会による確認を受けるための使用前確認申請の作成・検討を行い、JAEA 内の安全審査等を経て、令和 3 年 10 月に提出した。令和 4 年 1 月に原子力規制委員会による現地検査等が行われ、同月に使用前確認証を受領した。これにより、FMF の同位体マイクロイメージング装置を用いた 1F 汚染サンプル及び少量燃料デブリの同位体分析（ホット分析）が可能となり、FMF では既に使用可能な装置を含めて、燃料デブリ分析への適用が期待されている X 線 CT 装置や SEM、TEM 等による一連の固体分析が可能な試験フィールドを構築することができた。

##### ① 放射線防護対策に係る装置整備

同位体マイクロイメージング装置を用いて少量燃料デブリや 1F 汚染サンプルの分析を安全に行うためには、放射線防護対策を確実に実施する必要がある。特に、同位体マイクロイメージング装置の試料交換時には、閉じ込めの対策を施しながら行うことになるが、万が一の汚染拡大防止に備えることが重要となる。同位体マイクロイメージング装置で使用可能な核燃料物質の放射エネルギーは許可上 37 MBq 未満に設定されており、これは重量換算で数 mg オーダーに相当する（ここでは、 $^{235}\text{U}$  の主要な核分裂生成物として  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  で換算している。仮に試料粒子が全て  $^{137}\text{Cs}$  だった場合は 11.55  $\mu\text{g}$  また、 $^{90}\text{Sr}$  だった場合は、7.26  $\mu\text{g}$  が 37 MBq に相当する）。取扱量は少量であるが、少量燃料デブリや 1F 汚染サンプルは  $\alpha$  核種を含む可能性があることから、内部被ばくに注意を向ける必要がある。そこで、FMF においてこれまでに製作・使用実績がある汚染拡大防止用のグリーンハウスを設置することとし、令和 3 年度は、同位体マイクロイメージング装置構造を考慮して、当該装置専用の汚染拡大防止用グリーンハウスの製作を行った（図 3.4-1 参照）。製作後、設置した汚染拡大防止用グリーンハウスの写真を図 3.4-2 に示す。図 3.4-1 及び図 3.4-2 で示すとおり、汚染拡大防止用グリーンハウスは、同位体マイクロイメージング装置の試料交換チャンバ部を覆う構造となっている。汚染拡大防止用グリーンハウスは 2 室構造であり、試料交換チャンバ部を覆う 1 室目の部屋と他の 2 室目の部屋は、チャックにより開閉できる構造となっている。基本的に、1 室目の部屋で作業者が試料交換を行い、万が一汚染が確認された場合は 1 室目の除染を行うが、除染が不完全であった場合、装置設置室周辺への汚染拡大の恐れがある。そのため、2 室目の部屋を設置することで、確実に汚染を閉じ込めることができる仕様としている。また、汚染拡大防止用グリーンハウスのフレーム（骨組み）はアルミ製（50 mm 角

柱) で床にアンカー固定を行う仕様としており、万が一汚染拡大防止用グリーンハウス内で作業員が転倒した場合でも、汚染拡大防止用グリーンハウス全体が転倒もしくは損傷することはない。また、グリーンハウスの素材は、0.5 mm 厚さの塩化ビニル樹脂製(難燃性)であり、上記同様、作業員が転倒した場合でも、グリーンハウス素材そのものが損傷することはない。万が一周辺で火災が生じた場合でも延焼を抑える仕様としている。以上のことから、同位体マイクロイメージング装置用の汚染拡大防止用グリーンハウスの製作及び設置を終了し、安全に 1F 汚染サンプル及び少量燃料デブリの同位体分析(ホット分析)が行える放射線防護対策(安全対策)を施すことができた。

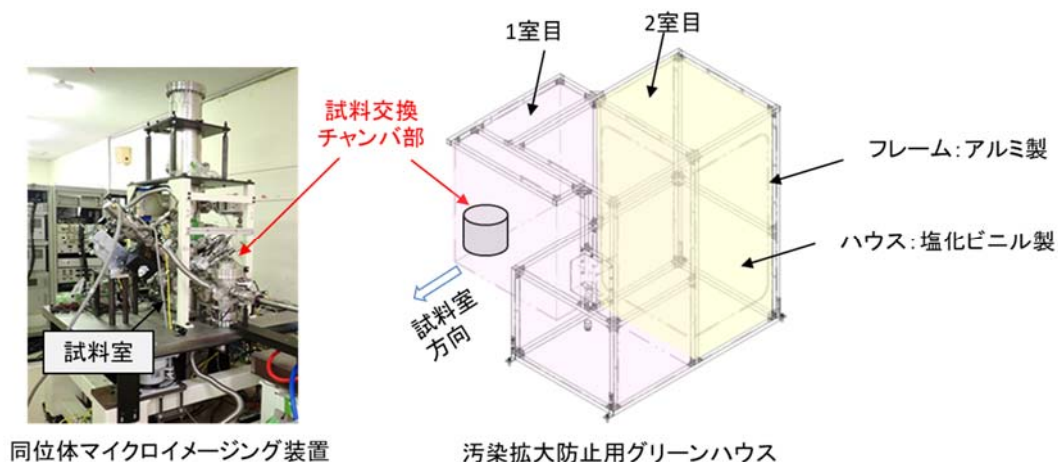


図 3. 4-1 汚染拡大防止用グリーンハウスの設置イメージ



図 3. 4-2 汚染拡大防止用グリーンハウスの設置写真



## ② 共鳴イオン化レーザー機構の改良

同位体マイクロイメージング装置は、レーザー共鳴イオン化技術を組み合わせることにより同重体干渉を防止した測定により高精度でデータが得られることが最大の利点であるが、FMF の同位体マイクロイメージング装置は共鳴イオン化可能元素が限定的であることから、工学院大学で所有する装置と同仕様の共鳴イオン化レーザー機構（多元素に対する共鳴イオン化が可能）とする必要がある。

具体的に、工学院大学で所有する同位体マイクロイメージング装置は、対象とする元素のみを選択的にイオン化させるために、Nd:YAG レーザーをポンピング光源とする 2 台の Ti:Sa レーザーから構成される共鳴イオン化レーザー機構が備え付けられている。この共鳴イオン化レーザー機構の Ti:Sa レーザーは、発振波長選択素子として PC で回転制御可能な回折格子（グレーティング）を用いており、広範囲の発振波長領域（基本波：700～940 nm、第二次高調波発生（SHG）：350～470 nm）を実現している。共鳴イオン化には目的元素ごとに存在する最適なイオン化スキームに合わせて 2 台の Ti:Sa レーザーの発振波長を調整する必要があり、かつ、発振波長調整によってズレが生じた 2 本のレーザー光軸を同位体マイクロイメージング装置試料室内のイオンビーム照射スポット近傍の 1 mm 以下の領域に導入し、オーバーラップさせる必要がある。工学院大学で所有する同位体マイクロイメージング装置には、この発振波長変更に伴うレーザー光軸・プロファイル等を補正するレーザーシステムが導入されており、フォトダイオードとピエゾアジャスター付きのミラーマウントを活用し、レーザー光軸やプロファイル等を自動調整する機能を有する。これにより、多元素に対する共鳴イオン化を精度良く行うことが可能な装置となっている。

FMF の同位体マイクロイメージング装置は、2 台の Ti:Sa レーザーから構成される共鳴イオン化レーザー機構が備え付けられているものの、広範囲の発振波長領域（基本波：700～940 nm、第二次高調波発生（SHG）：350～470 nm）の切り替えが連続的に行えない仕様となっていたことから、令和 3 年度は工学院大学の装置と同様、PC 制御可能な回折格子（グレーティング）を組み込む改良を行うとともに、2 本のレーザー発振波長の調整に伴い生じるレーザー光軸等を自動補正するためのフォトダイオードとピエゾアジャスター付きのミラーマウントを組み込む改良を行った（図 3.4-3 参照）。共鳴イオン化レーザー機構の改良後、動作確認を実施した結果、問題なくこれらが PC 操作できることが確認され、多元素の共鳴イオン化を行うための改良を完了した。共鳴レーザー機構の改善に関する基本動作や今後の改善点に関して、特に 2 つの Ti:Sa レーザーの光軸を自動調整するための機構（光軸自動調整機構）の改善点の取得を行った。具体的には、光軸自動調整機構の設置場所や制御アルゴリズム（光軸のズレに対するピエゾミラーへのフィードバック機構）の最適化に必要な情報を得た。今後は、実際に 1F 汚染サンプルを用いて定性分析を行い、分析結果から試料中に含まれると想定される元素種を特定するとともに、他機関で調査・検討されているイオン化スキームを適用し、同重体干渉の影響がない同位体分析データ取得を実施していく予定である。

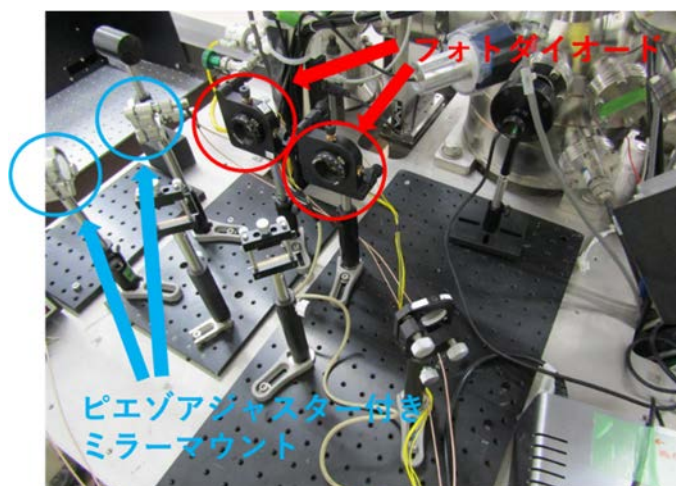


図 3.4-3 共鳴イオン化レーザー機構のレーザー光軸補正部

### 3.4.2 1F 汚染サンプルの分析

1F 汚染サンプルを用いたホット分析の事前確認試験として、コールド模擬試料を用いて試料調製から分析までの手法（受入れ試料のサイズ別の試料切断・加工方法など）を確立した。また、同位体マイクロイメージング装置を用いて、東京電力 HD から提供された 1F 汚染サンプルの組成や同位体情報に係る分析を実施した。

#### (1) 試料調製・分析の手法確立

1F 汚染サンプルを用いたホット分析の実施にあたっては、分析対象とする物質（U 粒子）が様々な試料形態で存在することを考慮する必要がある。FMF での既往研究における受入れ試料の形態を考慮すると、汚染検査用スミヤに鉄系粒子とともに U 粒子が付着している場合や、ろ過物試料のようにろ紙上に鉄系粉末と U 粒子が混在している場合などがある。また、将来的に少量燃料デブリを分析する場合を想定すると、試料形態は大別して数 mm 程度のバルク材及び粉末であることが想定される。これらを踏まえると、粒子が付着したスミヤ試料等、粉末試料、バルク試料の 3 種類のサイズの試料について、同位体マイクロイメージング装置による同位体分析を行える試料調製及び分析の手法を確立しておく必要がある。以上のことから、1F 汚染サンプルを用いたホット分析のための事前確認試験として、コールド模擬試料を用いて試料調製から分析までの手法（受入れ試料のサイズ別の試料切断・加工方法など）について検討を行った。

1F 汚染サンプルや少量燃料デブリの性状分析を行うためには、同位体マイクロイメージング装置による同位体分析だけでなく、組成評価を行うための SEM-EDS/WDS 分析及び化学形評価を行うための TEM-EDS 分析の実施が不可欠である。これらの分析の実施を加味したうえで、試料サイズ別の作業工程を検討した。検討した作業工程フローを図 3.4-4 に示す。この作業工程フローは、これまでの FMF での 1F 廃炉研究や高速炉研究での実績をベースに検討・抽出したものである。はじめに、粒子（数十  $\mu\text{m}$  径程度）が付着したスミヤ試料等については、スミヤ試料等の一部をハサミ等で切りとり、SEM 用マウントに導電テープで貼り付け、蒸着処理を行うことで SEM 観察が行える。SEM 観察が可能な試料は基本的に同位体マイクロイメージング装置での同位体分析が可能であることから、特に支障なく試料調製から分析までが行える。但し、FMF に設置している同位体マイクロイメージング装置、集束イオンビーム加工装置（FIB）及び TEM においては、核燃料物質使用に関する許可の制約上、試料の全放射エネルギーが 37 MBq 未満であることが要求される。この 37 MBq は、1F 燃料デブリの場合、数 mg で数  $\text{mm}^3$  未満に相当することから、粒子が付着したスミヤ試料等や粉末試料を取り扱う場合は、可能な限り、少量の試料採取を行うことが望ましい。

数 mm 径程度のバルク試料について同位体分析等を行う場合は、作業工程フロー後方の放射能量制限のある工程の同位体分析等を踏まえると、可能な限り事前に精密切断機等で試料を小片化していく必要がある。ここで、図 3.4-4 で示した「確認項目 1」として、精密切断機による試料切断の実現性について確認した。切断対象の試料は、制御棒材である  $B_4C$  (コールド模擬試料、 $\phi 13.3$  mm の焼結試料) を用いた。 $B_4C$  選定の理由は、燃料デブリに含まれる可能性がある化合物のなかでも特に硬い材料であるためである。切断刃はダイヤモンド刃を使用した。 $B_4C$  の切断中の写真を図 3.4-5 に示す。切断確認作業の結果、問題なく切断が可能であることが確認されたが、 $\phi 13.3$  mm の断面切断に約 50 時間を要した。 $B_4C$  は極めて硬い材料であることから当然の結果ではあるが、将来的に少量燃料デブリ等の分析工程を検討するうえでは、 $B_4C$  等の相が存在する場合には切断作業に時間を要することを考慮する必要がある。次に、バルク試料から小片化したものについては、SEM 用マウントに導電テープ等で貼り付け、蒸着処理を行うことで SEM 分析や同位体分析が行える。しかしながら、FMF における同位体分析では放射能量制限があるため、SEM 分析後に再度試料切断を行い、更なる小片化を行った後、再度マウントへの貼り付け、SEM 分析、同位体分析、TEM 分析を実施していくフローが考えられる。この再調製を行うことで問題なくこれらの分析は可能になるが、もとのバルク試料を小片化した後に粉末化することで、事前に放射能量制限を満足する少量の粉末試料を採取し、SEM 分析、同位体分析、TEM 分析を実施していくフローも考えられる。また、図 3.4-4 の作業工程フローには ICP-MS 分析については記載していないものの、燃料デブリの ICP-MS 分析を行う場合を考慮しても小片化した試料を粉末化するニーズは存在する。そのため、図 3.4-4 で示した「確認項目 2」として、メノウ鉢等による試料粉碎の実現性について確認した。粉碎対象の試料は上記と同様の理由で、小片化した  $B_4C$  を用いた。市販のメノウ鉢を用いて 60 分間磨り潰したものを図 3.4-6 に示す。粉碎確認作業の結果、 $B_4C$  は硬い材料であるものの、問題なく人力で粉碎できることが確認された。

粒子が付着したスミヤ試料等、粉末試料、バルク試料の 3 種類の試料調製については、上述の手法で問題なく行えることを確認した。次に、分析のフローについて検討した。図 3.4-4 に示すとおり、SEM 観察→同位体分析→TEM 分析の順で分析を行うパターン 1 と SEM 分析→TEM 分析→同位体分析の順で分析を行うパターン 2 が考えられる。前者は、試料表面の組成評価後に同位体評価を行い、試料内部の化学形を評価していく流れを示している。後者は、試料表面の組成分析後に試料内部の化学形を評価した後、試料内部の同位体評価及び組成評価を行う流れを示している。分析ニーズによってこれらの分析フローは変化することが考えられるが、同位体分析では内蔵の FIB 機能により試料を切削しながら組成の評価が行えるため、試料内部の同位体分析を行いながら TEM 分析に供する結晶相を確認することが可能であることから、パターン 1 が主流の分析フローになることが想定される。この場合、SEM 分析→同位体分析のフローにおいて、同一の試料に対する分析が必要であることから、装置間での試料調製を不要にする必要がある。そのため、図 3.4-4 で示した「確認項目 3」として、SEM 分析用の試料マウントと同位体分析用の試料マウントが共用可能となるように試料マウントの設計・検討を行った。具体的には、同位体分析用の試料マウントは  $\phi 10$  mm の円柱形状であり、一方で SEM 分析用の試料マウントは  $\phi 20$  mm の円柱形状であることから、 $\phi 20$  mm の SEM 分析用の試料マウントに  $\phi 10$  mm の同位体分析用の試料マウントを組み込む設計とした。図 3.4-7 に製作した共用試料マウントを示す。SEM 分析用本体及び蓋、同位体分析用試料マウントで構成し、同位体分析用試料マウントを SEM 分析用本体及び蓋で締め込む構造とした。蓋については、FMF の SEM は核燃料物質を閉じ込めるセルと連結しており、試料導入はセル内で遠隔操作により実施することから、オペレータによる遠隔操作での試料マウントの取扱いが容易となるように、ローレット加工を施した。蓋の開け閉め及び同位体分析用試料マウントの取付け・取外しの動作についても、オペレータを用いて確認し、問題なく遠隔で取り扱えることを確認することができた。

次に、図 3.4-4 で示した「確認項目 4」及び「確認項目 5」として、コールドの模擬燃料デブリ試料に対する SEM 分析と同位体分析の可否等について確認した。具体的には、粉末状のコールドの模擬燃料デブリ試料を作製し、蒸着処理後に SEM 観察を行った。ここで、コールドの模擬燃料デブリ試料は、市販の  $CeO_2$  ( $UO_2$  の代替材)、 $Nd_2O_3$ 、 $Gd_2O_3$ 、 $CsI$ 、 $B_4C$ 、Zircaloy-2、SUS304

の粉末状試料等を、事故後約10年経過した1F2号機の燃料組成評価に基づく各元素の含有比<sup>[8]</sup>、<sup>[9]</sup>で混合させ、圧縮成型後に環状電気炉を用いて加熱（1 L/min Ar フロー、1650 °C、3 時間）を行ったものである。この模擬燃料デブリは1650 °Cによる焼結を行っているものの、CsIの加熱による蒸発等の影響で、加熱処理後は脆く粉末状の形態となった。なお、今回は、実際の1F事故で想定される炉心溶融のイベントを考慮せず（生成される化学形を考慮せず）、SEM分析や同位体分析において像観察の可否及び燃料デブリに含有し得る元素の検出の可否を確認するために、上記の粉末混合試料を作製した。模擬燃料デブリのSEM観察の結果を図3.4-8に示す。図3.4-8から、100 μm未満の粒子が分布している様子が確認され、鮮明な像を取得できることを確認できた。同位体分析については、工学院大学で所有する同位体マイクロイメージング装置を用いて実施され、主要元素（Ce、Zr、Fe、B）に限らず、微量元素（Nd、Gd、Cs、I）を精度良く検出することができ、鮮明な同位体イメージング像を取得できたことから、問題なく同位体分析が行えることを確認できた。図3.4-9に工学院大学で分析した模擬デブリの断面加工前後の様子を、図3.4-10に同位体イメージングを示す。中性子捕獲において重要な<sup>10</sup>Bも観察され、ZrやGdにおいて相補的に分布していることがわかった。これらの結果は、模擬デブリではあるが、実試料においては、<sup>10</sup>Bが<sup>235</sup>Uとどのような位置関係にあるのか、<sup>10</sup>Bと<sup>11</sup>Bの比、さらには、Zr、Gd等が他の元素とどのように分離または固溶しているのかといった情報を与えるものと考えられる。

以上のことから、試料調製から分析までの一連の作業工程フローを策定するとともに、コード模擬試料を用いた確認試験を通して、1F汚染サンプルや少量燃料デブリの性状把握に不可欠なSEM分析、同位体分析、TEM分析の一連の分析が問題なく行える手法を確立することができた。

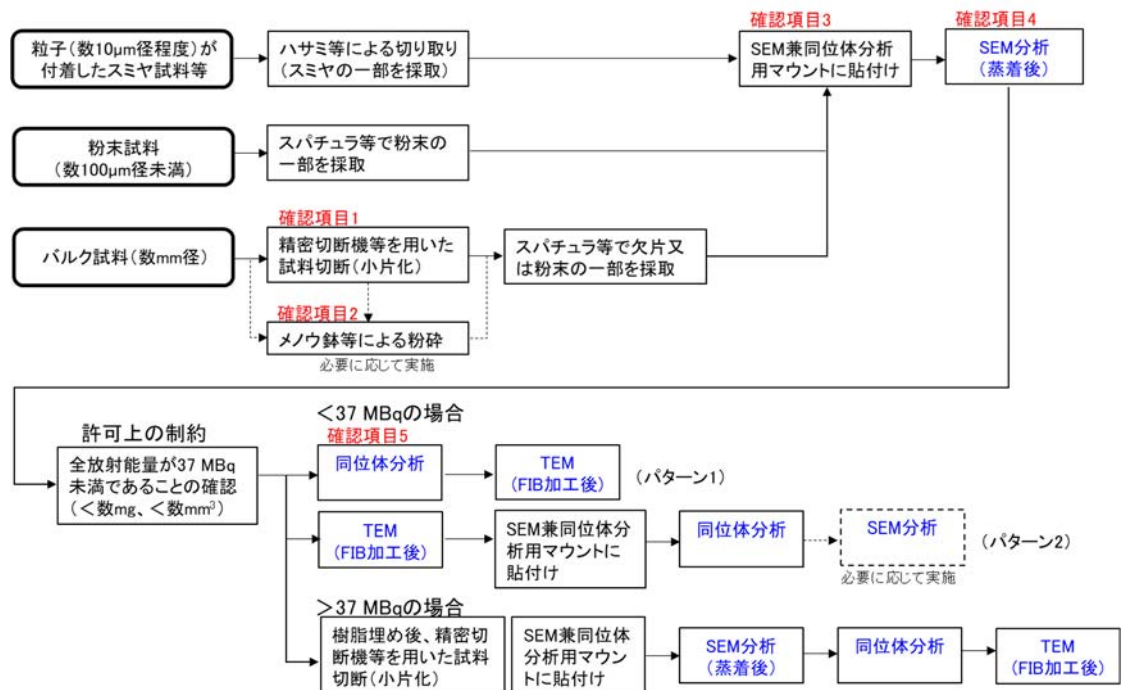


図 3. 4-4 試料調製及び分析の作業工程フロー

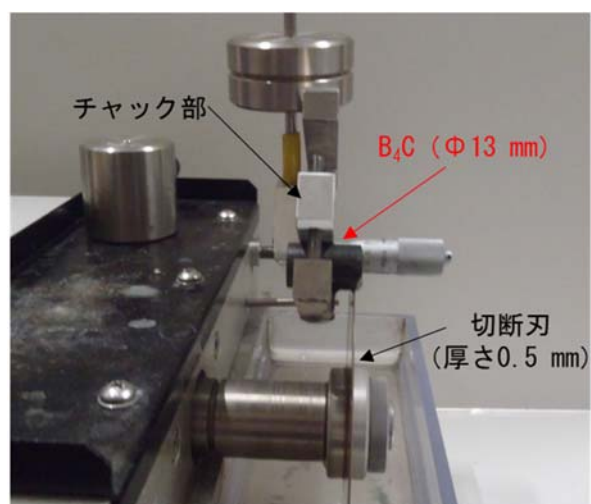


図 3.4-5 B<sub>4</sub>C 試料の切断



図 3.4-6 B<sub>4</sub>C 試料の粉碎

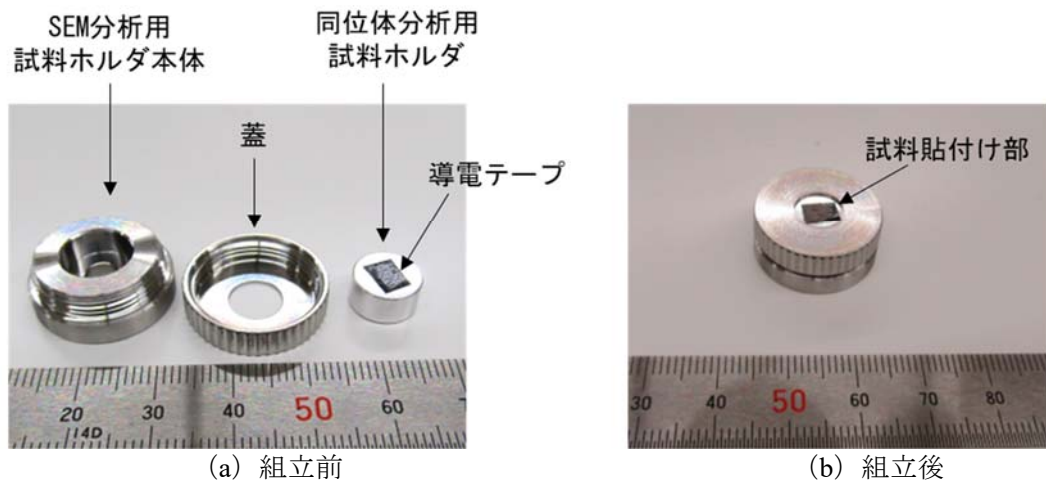


図 3.4-7 SEM 兼同位体分析用試料マウント

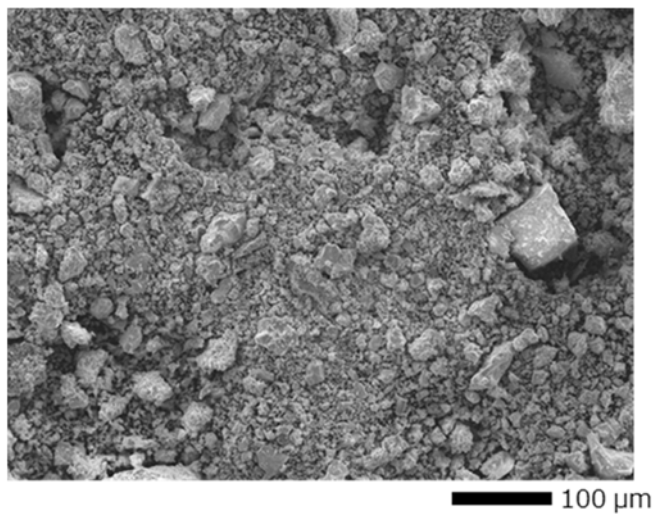
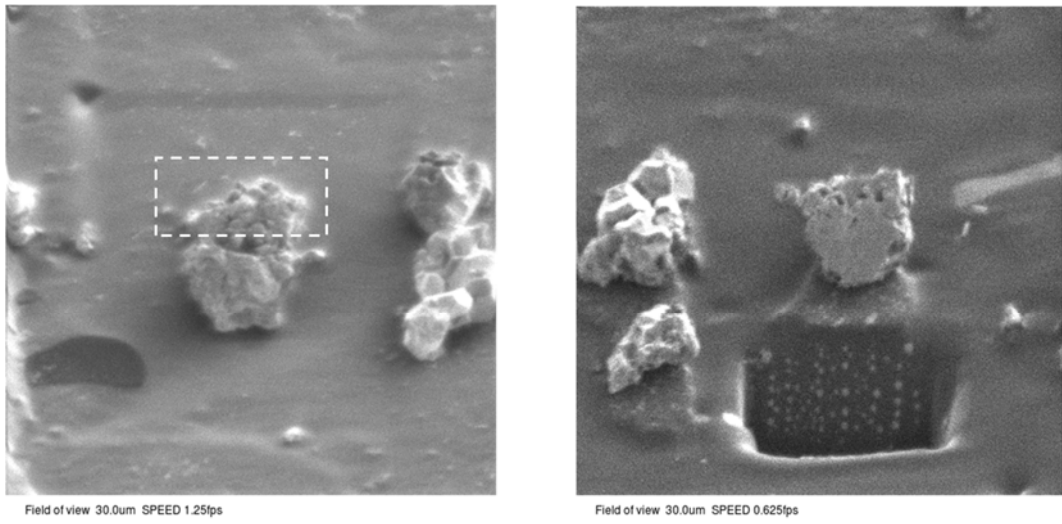


図 3.4-8 コールド模擬燃料デブリのSEM 観察結果



枠内を断面加工 → 試料ステージを180°回転させ、断面を正面から観察

図 3.4-9 断面加工前後の模擬デブリ粒子の様子

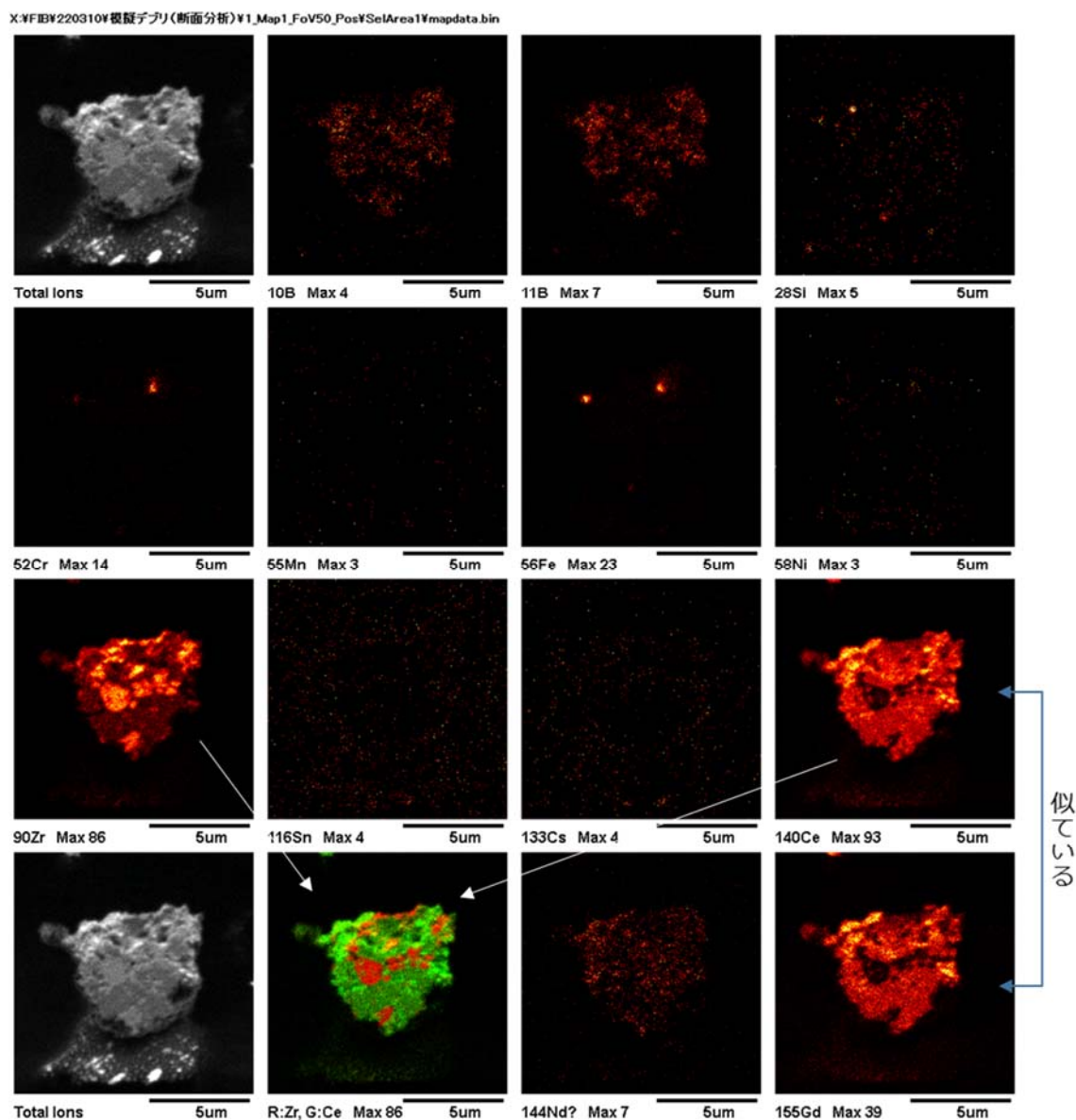


図 3.4-10 模擬デブリの断面内の同位体イメージング

(2) 1F 汚染サンプルの分析

本研究では、FMF に設置されている同位体マイクロイメージング装置を用いて、東京電力 HD から提供された 1F 汚染サンプルの組成や同位体情報に係る分析を実施する計画としている。分析フローは、3.4.2(1)及び図 3.4-4 で示したとおり、通常はパターン 1 で SEM 分析→同位体分析→TEM 分析の流れで実施することが想定されるが、令和 3 年度は、パターン 2 の TEM 分析→同位体分析の流れにおいて、TEM 用試料は極めて小さい試料（約 10 μm×10 μm×0.1 μm）となることから、TEM 用試料に対する同位体分析が行えることを確認すること及び SIMS モード（レーザー共鳴イオン化なし）の条件で同重体干渉の可能性のある核種の有無を確認することを念頭に、1F 汚染サンプルを用いた同位体分析を行った。

分析に使用した試料は、1F の 2 号機格納容器内部調査（X-6 ペネ貫通孔）の際に使用した堆積物除去装置の付着物を綿棒で採取したもの<sup>[10], [11]</sup>であり、綿棒の先端に U 粒子が付着したも



のである。綿棒先端を SEM 用試料マウントに貼り付けた導電テープに押し付け、導電テープに貼り付けられた U 粒子について蒸着後に SEM 分析が行われた。SEM-WDS マッピングの結果を図 3.4-11 に示す。図 3.4-11 から、試料は約 30  $\mu\text{m}$  の粗大粒子であり、試料表面には局所的な U 分布が確認された。この U 粒子から FIB 加工により粗大粒子の断面試料を採取し、TEM 用メッシュに貼り付けた後、TEM 分析が行われた。TEM-EDS マッピングの結果を図 3.4-12 及び図 3.4-13 に示す。図 3.4-12 及び図 3.4-13 から、約 30  $\mu\text{m}$  粗大粒子中に U-Zr-O 相、Fe-O 相及び Fe-Cr-O 相の存在が確認された。さらに、各相に対する TEM-EDS スポット分析や各相に対する電子回折図形を取得し、化学形評価等を行った結果、 $c\text{-(U}_{1-x}\text{, Zr}_x\text{)O}_2$  ( $x \sim 0.6$ )、 $c\text{-Fe}_3\text{O}_4$  及び  $c\text{-(Fe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{)}_3\text{O}_4$  を持つ粒子が U 含有粗大粒子を構成していることが確認された (U-Zr-O 相の電子回折図形については図 3.4-14 参照)。

この TEM 分析を終了した U 含有粗大粒子について、FMF の同位体マイクロイメージング装置を用いた同位体分析を実施した。TEM 分析において使用した TEM 用メッシュ (粗大粒子の断面試料が貼り付けられたもの) を、同位体分析用試料マウントに導電テープで貼り付け、同位体分析に供した。この分析により得た質量スペクトルを図 3.4-15 から図 3.4-19 に示す。TEM-EDS 分析においても確認された Fe や Zr の 2 次イオン信号が検出されたほか、ZrO の分子イオンの信号が検出できた。U については  $^{238}\text{U}$ 、 $^{238}\text{UO}$ 、 $^{238}\text{UO}_2$  の信号を検出することに成功した。また、今回の分析では  $^{235}\text{U}$  や Pu、その他微量元素の信号は確認されなかった。これは現状の質量スペクトルのバックグラウンドレベルが高い影響により、 $^{235}\text{U}$  や Pu 等の信号がバックグラウンドに埋もれてしまうことで検出がされなかった可能性が考えられる。なお、今回の試料に  $^{235}\text{U}$  が含まれていた場合、本測定によって検出された  $^{238}\text{U}$ 、 $^{238}\text{UO}$ 、 $^{238}\text{UO}_2$  の中で最も検出強度が高い  $^{238}\text{UO}$  ( $m/z = 254$ ) の信号のピークトップの値を 1 とした場合、信号が検出されていない  $m/z = 240$  から  $m/z = 252$  までのバックグラウンドの平均検出カウント数の割合が 0.083 であったことから、 $^{235}\text{U}$  の存在比が 8.3 % 以上であれば、 $m/z = 251$  ( $^{235}\text{UO}$ ) に明らかなピークとして検出されることが予想される。より詳細に解析すると、 $m/z = 240$  から  $m/z = 252$  のカウント数のバラつき (分散) は、約 43 ( $2\sigma$ ) であり、スペクトルのピークの定義  $S/N=3$  からすると、ノイズ  $N$  をこの分散と考慮し、シグナル  $S$  は 129 となる。 $^{238}\text{UO}$  ( $m/z = 254$ ) の信号のピークトップの値が 1380 counts でここからバックグラウンドの平均値を引いた値は 1265 counts であり、先ほどのシグナルとして検出できる強度 129 counts と比較すると、割合は 0.102 である。従って、今回のスペクトルにおいて、10 % 程度の濃縮度で  $^{235}\text{U}$  が存在している場合、 $m/z = 251$  ( $^{235}\text{UO}$ ) にピークとして定義できる強度で検出されることが予想される。今回測定した試料では、 $^{235}\text{U}$  が 10 % 以下の濃縮度であったため検出できなかったと判断した。今回の分析では、微量の元素を含めた全核種の信号を検出できなかったため、同重体干渉の有無の評価が不十分であることから、今後はバックグラウンド低減対策を施し、測定精度を向上させることで、微量元素を含めた全核種の検出を行い、同重体干渉の影響の有無等について評価していく予定である。

次に、TEM 用メッシュに貼り付けた粗大粒子のイメージング結果 (視野幅 20  $\mu\text{m}$ ) を図 3.4-20 に示す。図 3.4-20 (b) の全イオン像の結果からは、TEM 分析でも見られた空隙や粒径数  $\mu\text{m}$  の粒子の存在を確認できた。図 3.4-20 (c) においては  $^{90}\text{Zr}$  を赤、 $^{238}\text{U}$  を青で色分けしており、 $^{90}\text{Zr}$  と  $^{238}\text{U}$  が同じ分布で存在していることが分かる。図 3.4-20 (d) においては  $^{56}\text{Fe}$  を緑、 $^{238}\text{U}$  を青で色分けしており、 $^{56}\text{Fe}$  と  $^{238}\text{U}$  の分布が分離して存在していることが分かる。この分布の結果は TEM 分析の結果と良く一致しており、妥当な同位体マイクロイメージング像の取得が可能であることを確認することができた。

今後は、上記のバックグラウンドの低減対策とともに、同位体マイクロイメージング装置内蔵の FIB の光軸を最適化することにより面分解能向上 (イメージング像の画質向上) を図り、今回の U 含有粗大粒子を含めてさまざまな 1F 汚染サンプルについて同位体分析を実施していく予定である。

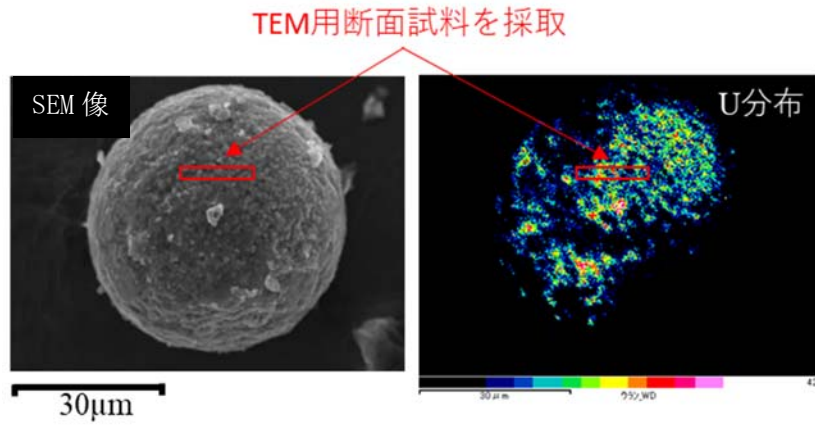


図 3. 4-11 U 含有粗大粒子の SEM-WDS 分析結果

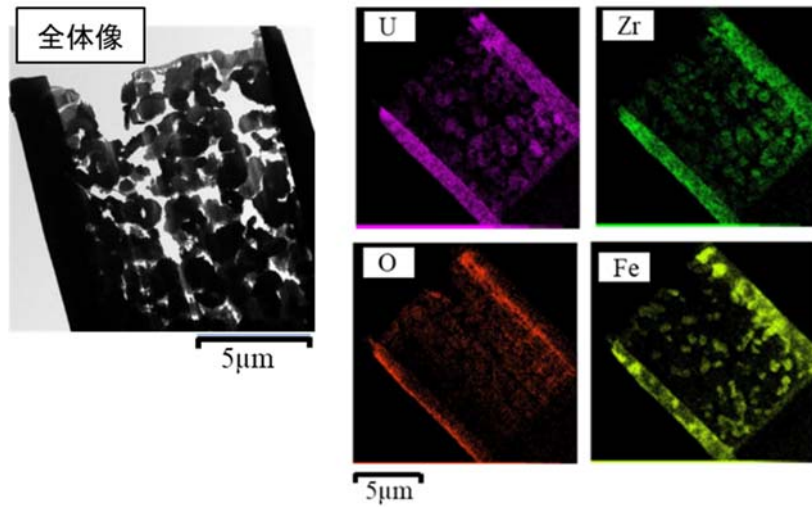


図 3. 4-12 U 含有粗大粒子の TEM-EDS 分析結果（低倍率）

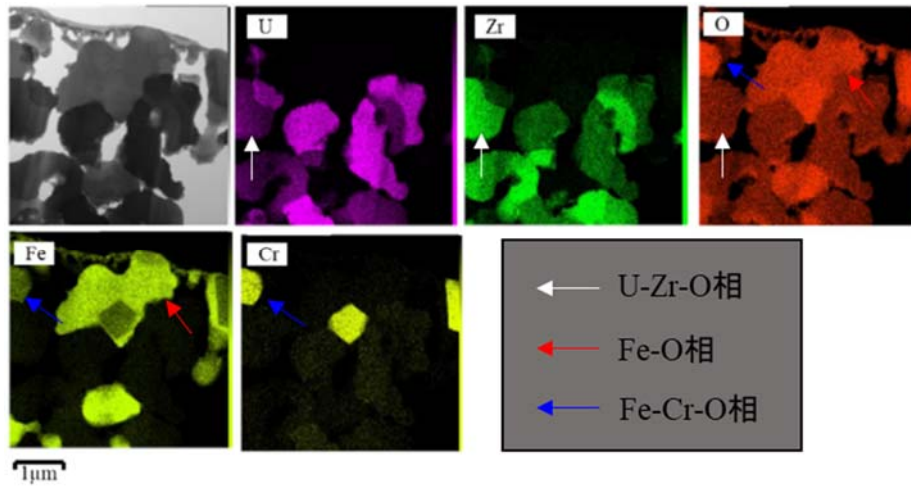
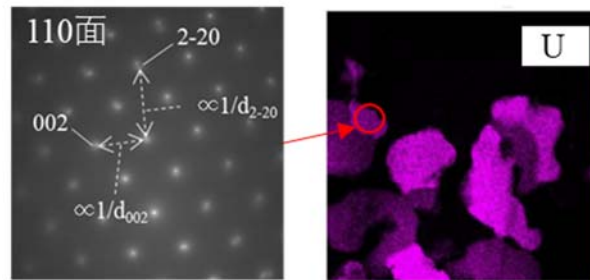


図 3. 4-13 U 含有粗大粒子の TEM-EDS 分析結果 (高倍率)



$$d_{200} = 2.71\text{\AA} \quad (\text{UO}_2\text{理論値} : 2.74\text{\AA})$$

$$d_{2-20} = 1.93\text{\AA} \quad (\text{UO}_2\text{理論値} : 1.93\text{\AA})$$

図 3. 4-14 U 含有粗大粒子の U-Zr-O 相の電子回折図形

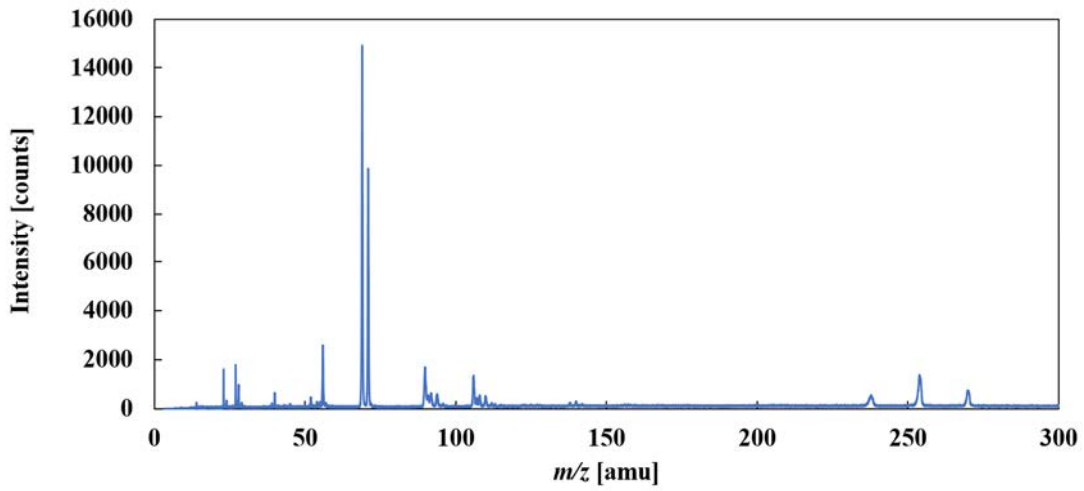


図 3.4-15 U 含有粗大粒子の定性質量スペクトル

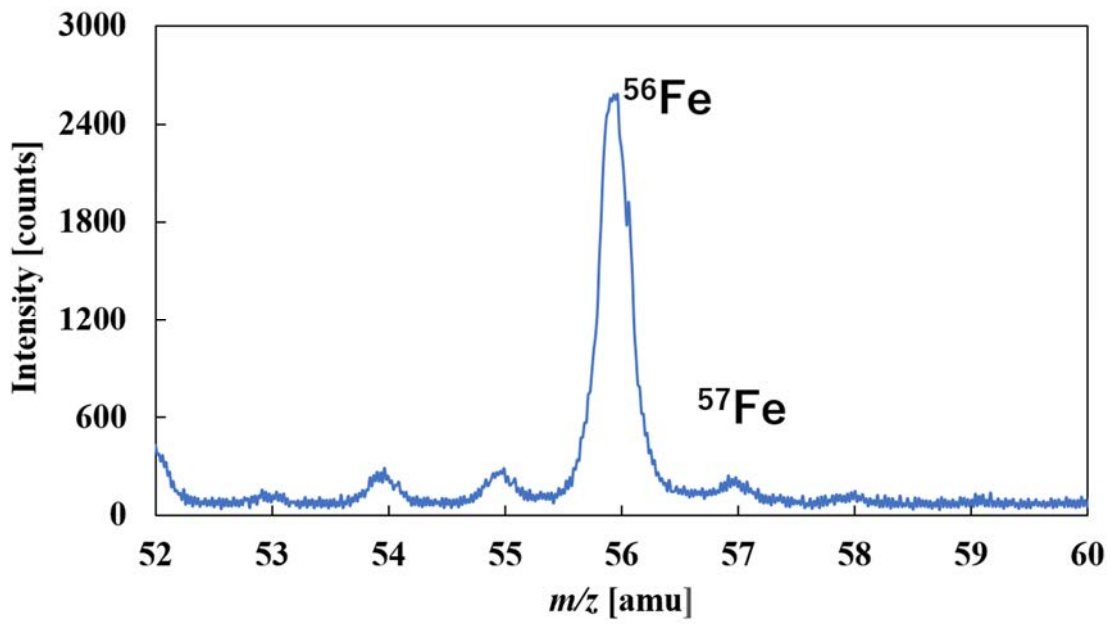


図 3.4-16 Fe 同位体の質量スペクトル

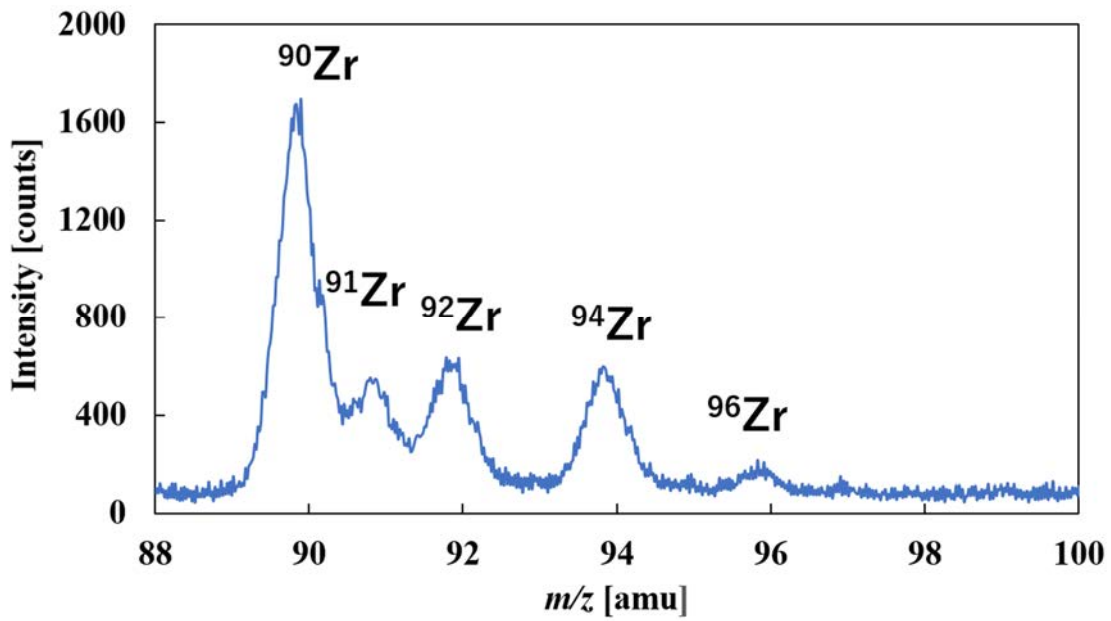


図 3.4-17 Zr 同位体の質量スペクトル

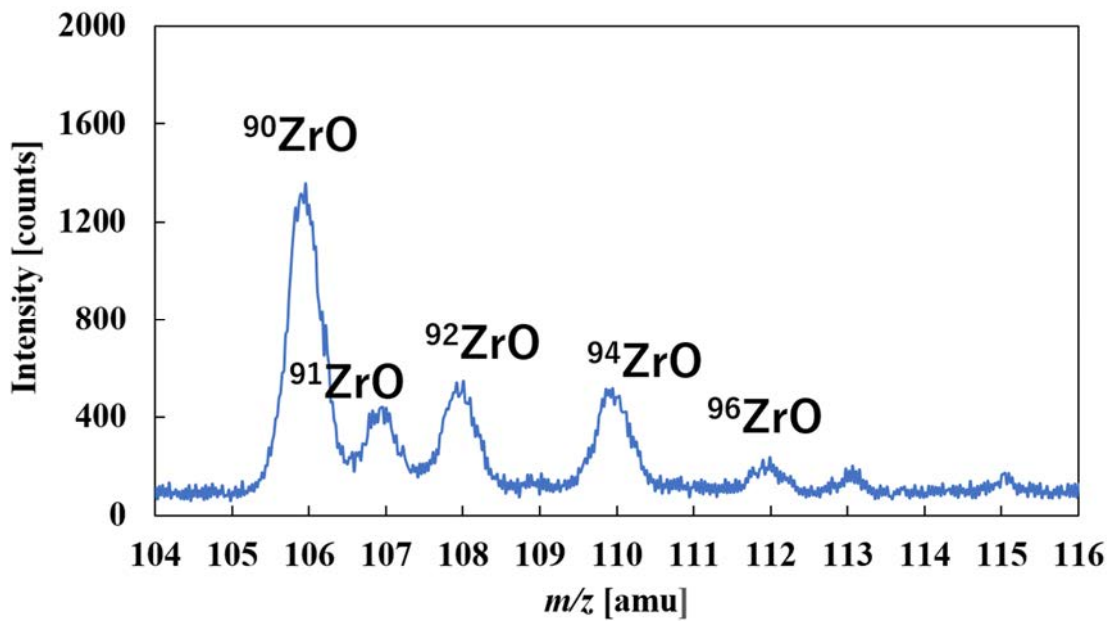


図 3.4-18 ZrO の質量スペクトル

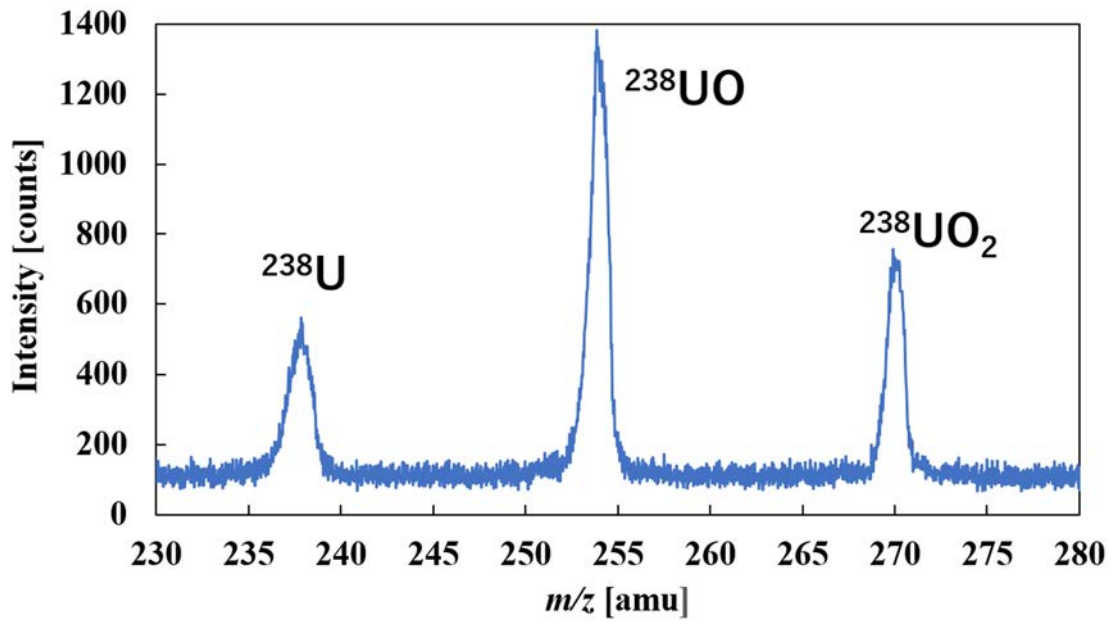


図 3.4-19  $^{238}\text{U}$ 、 $^{238}\text{UO}$ 、 $^{238}\text{UO}_2$ の質量スペクトル

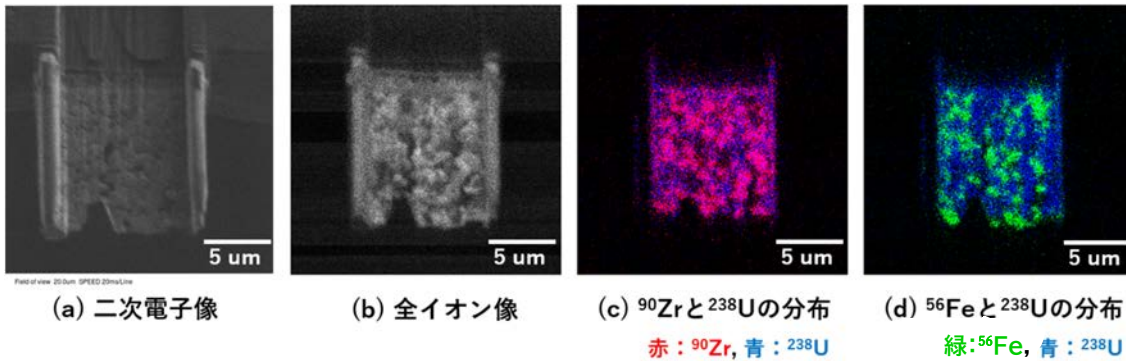


図 3.4-20 U含有粗大粒子の同位体イメージング

### 3.4.3 まとめ

#### (1) 装置整備

FMF の同位体マイクロイメージング装置をホット分析仕様とするための装置整備（少量燃料デブリ等を当該装置で取り扱うための許認可取得及び放射線防護対策）を実施し、これらの対応を完了した。また、FMF の同位体マイクロイメージング装置について、多元素に対する共鳴イオン化を可能とするための共鳴イオン化レーザー機構の改良を行い、改良後の作動性に問題がないことを確認した。

令和4年度は、工学院大学と連携し、JAEA 大洗研究所に設置している同位体マイクロイメージング装置の共鳴イオン化レーザー機構の改良を継続するとともに、工学院大学で開発した耐放射線性及び耐遠隔操作性の向上のための機能を JAEA 大洗研究所の装置へ組み込む計画である。

#### (2) 1F 汚染サンプルの分析

1F 汚染サンプルを用いたホット分析の事前確認試験として、少量燃料デブリに対する分析を考慮した作業工程フローを検討し、コールド模擬試料を用いて試料調製から分析までの手法（受入れ試料のサイズ別の試料切断・加工方法及び試料調製後の分析データの取得可否の確認を含む）を確立した。また、同位体マイクロイメージング装置を用いて、東京電力 HD から提供された 1F 汚染サンプルの組成や同位体情報に係る分析を実施した。

令和4年度は、バックグラウンドの低減対策及び面分解能向上対策を施し、1F サンプルの同位体分析（組成、同位体情報）を継続し、U、Pu、Gd、B 等の分析データを蓄積する。

### 3.5 イオン化スキームの開発（連携先：JAEA）

廃炉において組成情報が必要となる U や B 等の核種を含有する微粒子分析のため、多色共鳴イオン化スキームを検討する。この実現のため、紫外域の波長可変光を発生させる YAG レーザー励起色素レーザー光源を整備する。さらにその光をウランやホウ素等のホロカソードランプに入射し、共鳴イオン化で生じるランプの放電抵抗の微弱変化を検出する光ガルバノ分光計測システムを構築する。

1F の廃炉作業において、炉内の燃料デブリ取り出しは重要な工程の一つである。令和 4 年度以降に少量燃料デブリの試験的取り出しが計画されており、燃料デブリの再臨界評価において、特にウラン (U)・プルトニウム (Pu)・ネオジウム (Nd)・ガドリニウム (Gd)・ホウ素 (B) 等の組成に関する情報が必要不可欠である。

レーザー共鳴イオン化は、特定元素を同重体干渉なくイオン化する有効な手法であるが、燃料デブリの組成分析に活用するにあたり、元素ごとに最適な共鳴イオン化スキームを確立する必要がある。令和 3 年度は、共鳴イオン化スキームの開発に必要な色素レーザー光源の整備及びイオン化信号を観測するための光ガルバノ分光計測システムの構築を行った。

#### (1) 色素レーザー光源の整備

共鳴イオン化スキームの開発に用いる波長可変のパルスレーザー光源として、本研究では Nd:YAG レーザー励起色素レーザーを使用することとした。Nd:YAG レーザーは、LOTIS TII 社製 LS-2137N であり、内部構成図は図 3.5-1 のとおりである<sup>[12]</sup>。フラッシュランプ (番号 24) により 2 本の Nd:YAG ロッド (番号 7 及び 12) を励起し、上側の Nd:YAG ロッド (番号 7) については 2 枚のミラー (番号 1 及び 8) で構成される共振器内で反転分布を形成した状態でポッケルスセル (番号 3) の Q スイッチ操作を行うことにより、ナノ秒パルスの波長 1064 nm レーザー光が共振器外に出力される。このレーザー光は下側の Nd:YAG ロッド (番号 12) により増幅され、KTP 結晶 (番号 13) に入射することで第 2 高調波 (波長 532 nm) のレーザー光が生成される。

既存の Nd:YAG レーザーの出力波長は 1064 nm 及び 532 nm の 2 種類であったが、本研究では色素レーザーを出力波長 500 nm 以下で使用するため、励起光源である Nd:YAG レーザーを第 3 高調波 (波長 355 nm) が生成されるよう改良した。具体的には、新規に購入した DKDP 結晶 (番号 21) を配置して波長 1064 nm 及び 532 nm の和周波を生成し、最終的に約 140 mJ/pulse, パルス幅 16-18 ns (仕様), 繰り返し 10 Hz の波長 355 nm レーザー光を得た。

次に、波長 355 nm レーザー光を励起光源として色素レーザーの調整を行った。色素レーザーは、LIOP-TEC 社製 LiopStar-VN であり、内部構成図は図 3.5-2 のとおりである<sup>[13]</sup>。波長 355 nm レーザー光は 2 枚のビームスプリッター (番号 BS1 及び BS2) により 3 本のレーザー光に分けられ、各々オシレータ・プリアンプ・メインアンプとして色素を充填した 2 種類のセル (番号 K1 及び K2) に照射される。K1 がオシレータ及びプリアンプ用であり、K2 がメインアンプ用である。色素については、B 原子の基底準位からの共鳴励起波長が 250 nm 近辺であることを考慮し<sup>[14]</sup>、波長 500 nm 近辺のレーザー光を出力するクマリン 307 を使用し、新規に購入した 2 台のサーキュレータを用いて 2 種類のセル各々に充填した色素を循環させた。Nd:YAG レーザーを励起光源としたときの使用可能な色素及び波長可変域の仕様を図 3.5-3 に示す<sup>[13]</sup>。色素レーザー光を新規に購入した BBO 結晶に照射し、色素レーザーの第 2 高調波である波長 250 nm 紫外レーザー光を生成した。最終的に、出力 140 mJ/pulse の波長 355 nm



励起光に対して、出力約 24 mJ/pulse (変換効率約 17 %) の波長 500 nm 色素レーザー光及びその第 2 高調波として出力約 5 mJ/pulse の波長 250 nm 紫外レーザー光を得た。また、回折格子 (番号 G1 及び G2/M) の角度を PC 画面上で制御し、色素レーザー波長 490-510 nm (第 2 高調波で 245-255 nm) の範囲で波長のチューニングが行えることを確認した。一連の作業後の装置外観を図 3.5-4 に示す。

## (2) 光ガルバノ分光計測システムの構築

次に、レーザー共鳴イオン化信号を観測するための光ガルバノ分光計測システムの構築を行った。光ガルバノ効果とは、放電プラズマ中の原子・分子に共鳴するレーザー光を照射した際にレーザー光の吸収による原子・分子の占有準位の変化が放電電流の僅かな変化として現れる効果のことであり、これを利用した原子・分子の分光法が光ガルバノ分光法である<sup>[15]</sup>。図 3.5-5 に典型的な光ガルバノ分光法のブロック図を示す。気体原子・分子を直流放電した状態で、チョップ等により強度変調を施したレーザー光を照射する。放電電流の変化を電圧信号の変化として取り出し、ロックインアンプを用いて変調周波数で位相検波を行うものである。この方法では、通常マイクロ秒スケールのパルス幅を持った出力信号が観測される<sup>[16]</sup>。

一方で、放電プラズマ中の原子がレーザー光で直接イオン化される場合は、生成される電子が速やかに電極に集められるため、上記の典型的な光ガルバノ分光法と比較して時間スケールの短いイオン化信号が観測される。文献[17]では、カソード電極に U が塗布されネオン (Ne) ガスが封入されたホロカソードランプにパルス幅 6 ns の Nd:YAG レーザー励起色素レーザーを照射し、U の共鳴イオン化信号がナノ秒スケールのパルス幅で観測されている。この高速イオン化信号は光電子の生成量に比例することから、レーザーの波長を U の共鳴波長付近でスキャンすることにより、レーザー共鳴イオン化質量分析で測定される共鳴イオン化スペクトルと同様なスペクトルが得られ、U 原子の分光データ取得に利用できると考えられる。

実際に、本研究の開始以前に国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) の先端計測分析技術・機器開発プログラム「難分析核種の高感度分析のための多色イオン化光源の開発」(平成 28 年度採択、チームリーダー：坂本哲夫 (工学院大学)) において、Photron 社製の U ホロカソードランプに繰り返し 10 kHz の Nd:YAG レーザー励起 Ti:Sa レーザーを照射して得られた U の共鳴イオン化信号をもとに U 原子の 2 色 2 光子共鳴イオン化スキームの検討を行った実績があり<sup>[18]</sup>、本研究では同様な光学系を構成して光ガルバノ分光計測システムを構築することとした。但し、レーザー光源は 3.5(1) で述べた繰り返し 10 Hz の Nd:YAG レーザー励起色素レーザーである。

構築した光ガルバノ分光計測システムの概念図を図 3.5-6 に示す。但し、励起光源である Nd:YAG レーザー 2 台のうち波長 355 nm 仕様は 1 台であり、残り 1 台については分析対象元素に対応した色素レーザー波長を考慮し、令和 4 年度に現状の波長 532 nm 仕様から波長 355 nm 仕様に改良するか検討する。光ガルバノ分光計測システムの中でホロカソードランプ部分の写真を図 3.5-7 に示す。この写真では、Photron 社製の Gd ホロカソードランプが設置されているが、燃料デブリの組成分析における主要元素 U・Pu・Nd・Gd・B のうち U と Gd は Photron 社製のホロカソードランプを、Nd と B は浜松ホトニクス社製のホロカソードランプを用意しており、Pu 以外の 4 元素についてホロカソードランプ及び 2 台の色素レーザー波長を切り替えることにより光ガルバノ分光による共鳴イオン化信号を観測できるようになっている。

令和 4 年度は、特に分析ニーズの高い Nd 及び Gd の 2 元素を中心に共鳴イオン化スキームの探索を行う予定である。

## (3) まとめ

燃料デブリの組成分析に必要となる主要元素の共鳴イオン化スキームを開発するため、波長可変のパルスレーザー光源としてNd:YAGレーザー励起色素レーザー光源を整備した。B原子の共鳴励起波長250 nm近辺の波長可変光を生成するため、色素にクマリン307を使用し、出力140 mJ/pulseの波長355 nm励起光に対して、出力約24 mJ/pulse（変換効率約17%）の波長500 nm色素レーザー光及びその第2高調波として出力約5 mJ/pulseの波長250 nm紫外レーザー光を得た。回折格子の角度を調整し、色素レーザー波長490-510 nm（第2高調波で245-255 nm）の範囲で波長のチューニングが行えることを確認した。

次に、JST先端計測分析技術・機器開発プログラムで開発した光学系を参考にして、燃料デブリの組成分析における主要4元素U・Nd・Gd・Bについてホロカソードランプを用いた2色2光子共鳴イオン化による光ガルバノ分光計測システムを構築した。

令和4年度は、特に分析ニーズの高いNd及びGdの2元素を中心に共鳴イオン化スキームの探索を行う予定である。FMFのマイクロイメージング装置ではTi:Saレーザーを用いるため、色素レーザーとは波長可変範囲が異なる（Ti:Saレーザーでは基本波700~900 nm、2倍波で350~450 nm）ため、色素レーザーを用いた検討はTi:Saレーザーの発振可能な波長範囲にて行う予定である。

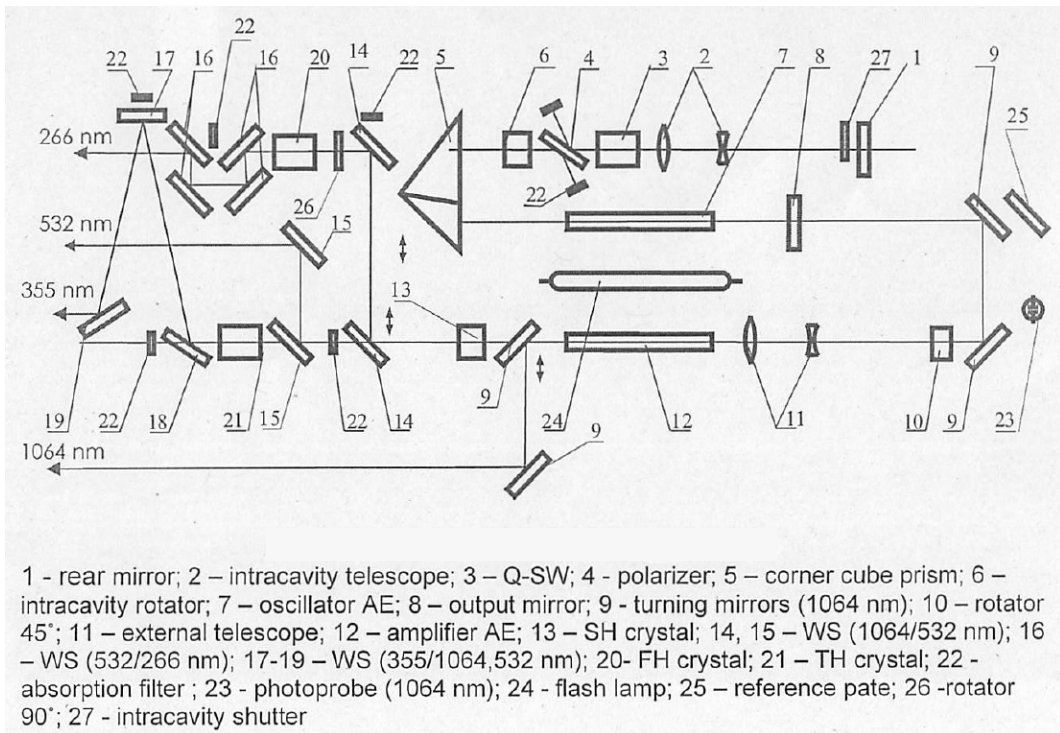


図 3. 5-1 Nd:YAG レーザーの内部構成図[12]

(既存の装置の出力波長は 1064 nm 及び 532 nm であり、本研究で 355 nm が生成されるよう改良した。266 nm はオプションであり、本装置では出力しない。)

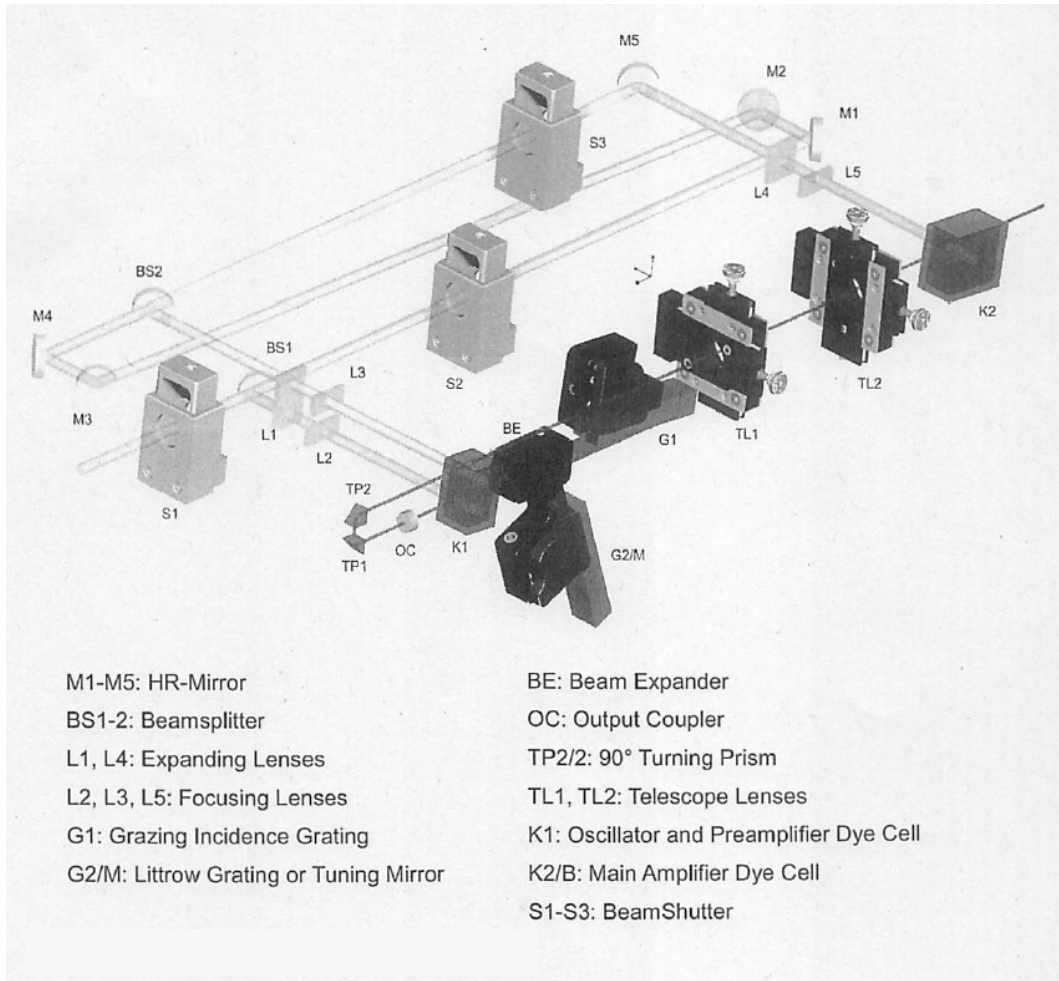


図 3.5-2 色素レーザーの内部構成図[13]

<i>Dye</i>	<i>Peak</i>	<i>Tuning Range</i>	<i>Solvent</i>	<i>Conc [g/l] Oscillator</i>	<i>Effic.</i>	<i>Pump Wavelength</i>
Exalite 428	427	420 - 434	p-Dioxane	0,15	16	355
Stilbene 3	425	419 - 434	Ethanol	0,22	15	355
Coumarin 120	441	429 - 453	Ethanol	0,25	14	355
Coumarin 2	448	434 - 463	Ethanol	0,2	15	355
Coumarin 47	460	442 - 478	Ethanol	0,25	14	355
Coumarin 102	473	452 - 490	Ethanol	0,4	15	355
Coumarin 307	500	480 - 540	Ethanol	0,4	14	355
Coumarin 153	535	517 - 570	Ethanol	1,5	15	355
Coumarin 152	525	510 - 565	Ethanol	0,3	15	355
Coumarin 153	535	517 - 570	Ethanol	1,6	15	355
Fluorescein 27	550	540 - 570	EtOH basic	0,4	27	532
Rhodamine 6G <sup>4</sup>	565	555 - 580	Ethanol	0,09	28	532
Rhodamine B <sup>4</sup>	594	590 - 605	Ethanol	0,2	26	532
Rh B + Rh 101	614	599 - 628	Ethanol	0,17/0,04	26	532
Sulforhodamine B	590	585 - 600	Ethanol	0,2	27	532
Rhodamine 101	624	614 - 650	Ethanol	0,25	25	532
DCM	635	607—663	Ethanol	0,34	28	532
DCM	651	628 - 680	DMSO	0,34	28	532
Pyridine 1	693	667—720	Ethanol	0,25	20	532
Pyridine 2	720	695—745	Ethanol	0,25	20	532
Styryl 7	720	701—749	Ethanol	0,12	18	532
Styryl 8	745	715—777	Ethanol	0,15	15	532
Styryl 9	816	790—839	Ethanol	0,13	10	532
LDS 867	866	835—900	Ethanol	0,15	10	532
LDS 925	960	870—1040	Ethanol	0,8 - 1,2	11	532

図 3.5-3 Nd:YAG レーザーを励起光源としたときの使用可能な色素及び波長可変域の仕様[13]

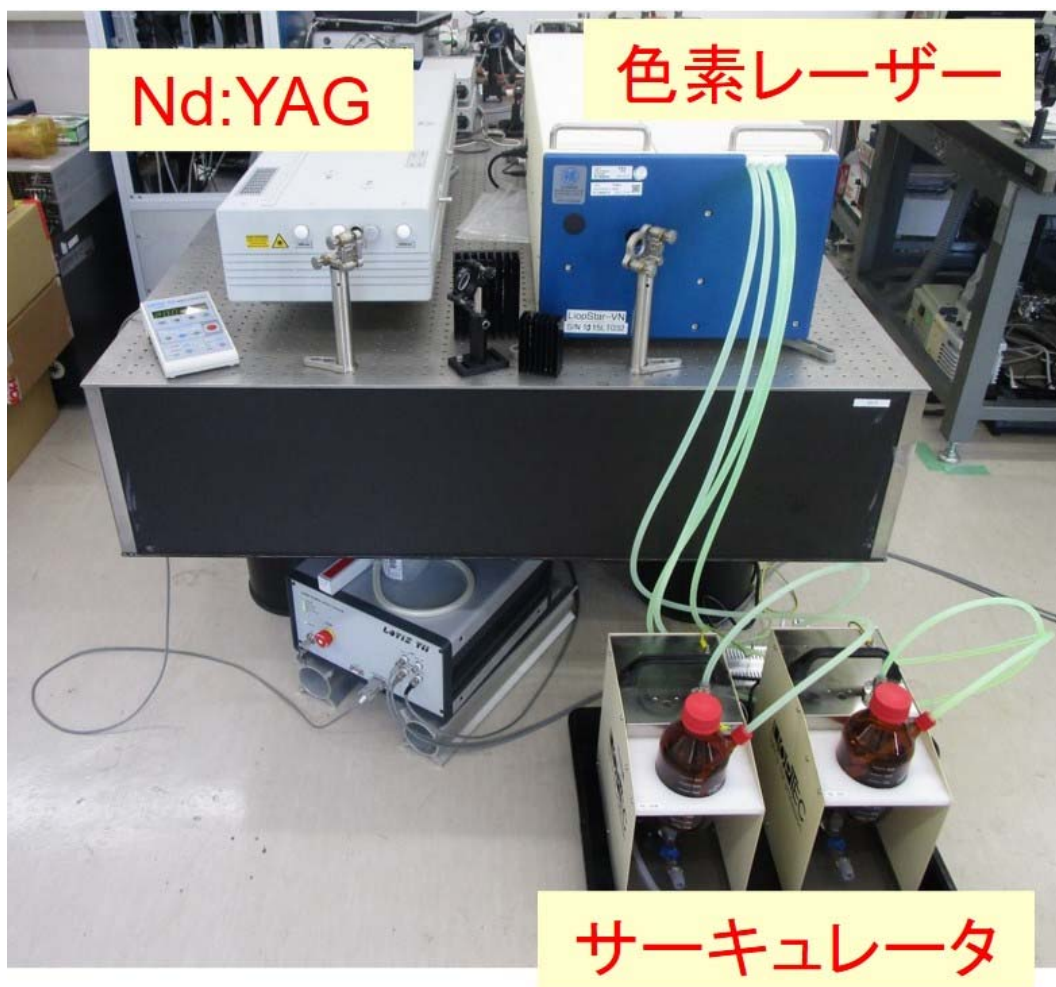


図 3.5-4 Nd:YAG レーザー励起色素レーザー光源の外観

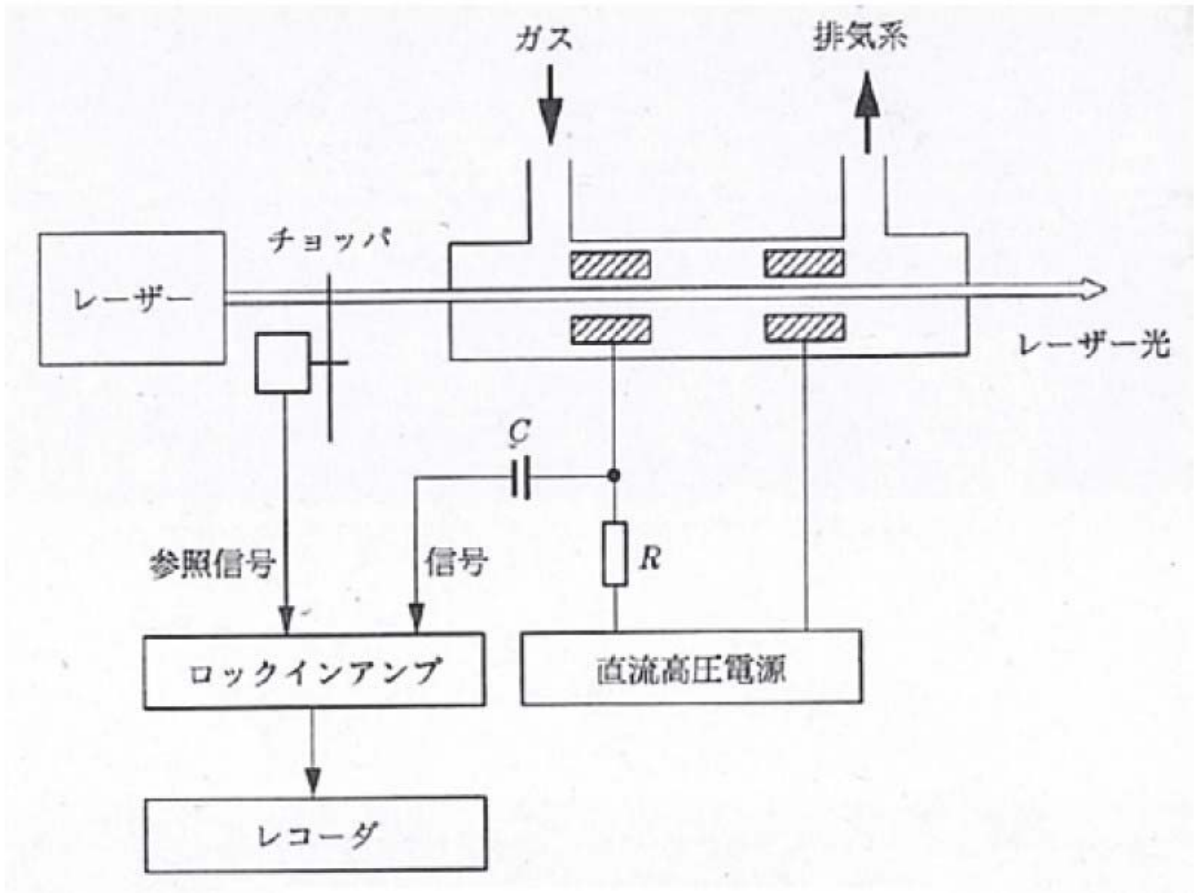


図 3.5-5 典型的な光ガルバノ分光法のブロック図[15]

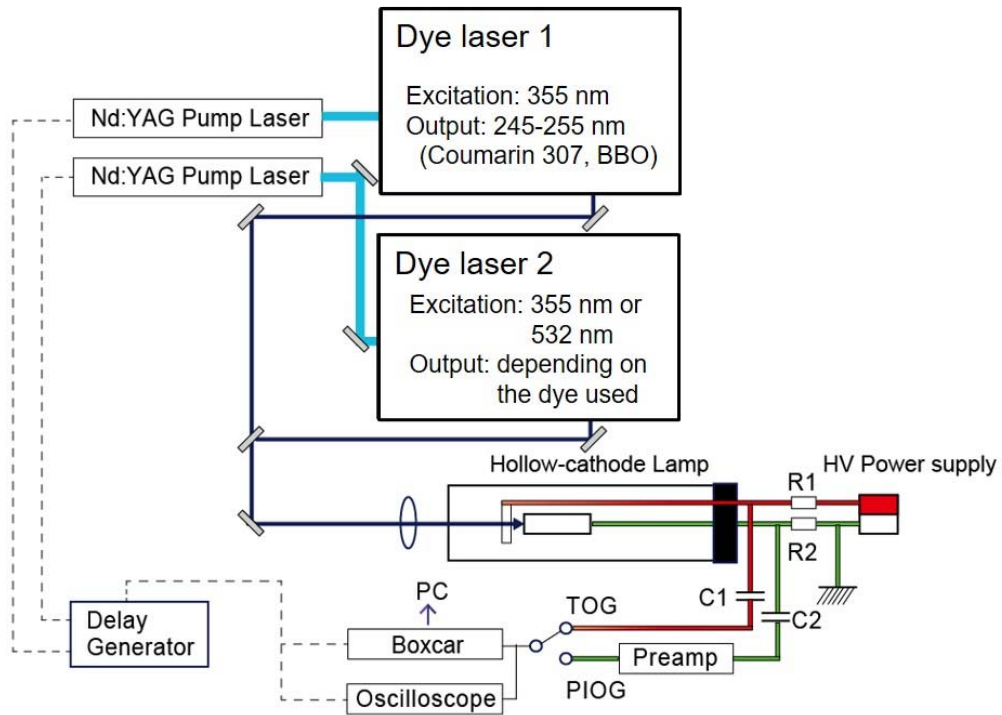


図 3.5-6 構築した光ガルバノ分光計測システムの概念図



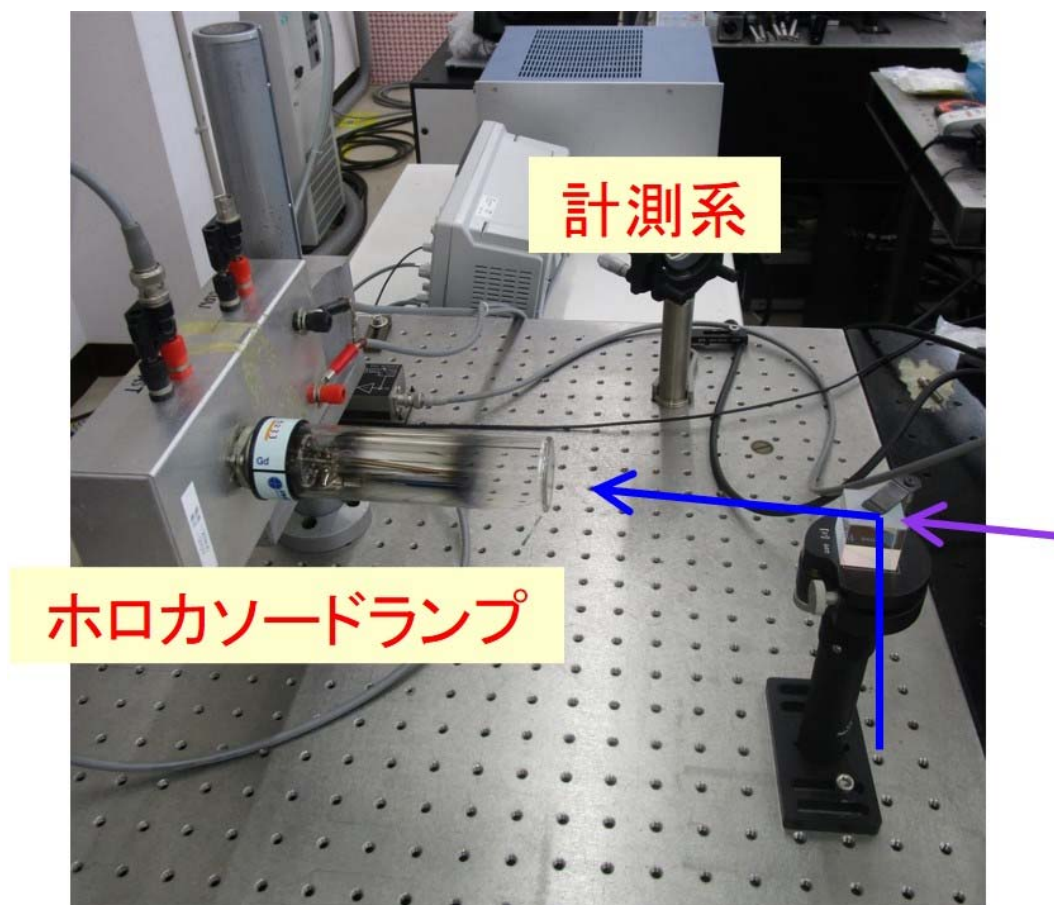


図 3.5-7 ホロカソードランプ部分の写真

(写真は Photron 社製の Gd ホロカソードランプであり、この他に Photron 社製の U ホロカソードランプ及び浜松ホトニクス社製の Nd, B ホロカソードランプを用意しており、分析元素に合わせて切り替えて使用する。)

### 3.6 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間並びに参画機関である東京電力HDやCLADS等との連携を密にして研究を進めた。また、打ち合わせについては、キックオフ会議（令和3年10月）と併せて開発者会議（進捗報告会）を開催することで、研究代表者が、全体の進捗の把握及び調整ができるように進めた。特に開発の拠点となるJAEA大洗研究所には、代表者も度々訪問し、打ち合わせや進捗状況の確認を行った。

#### 4. 結言

少量燃料デブリ中の FP 及び  $\alpha$  核種を含む微粒子の性状を把握することは、取り出し方法、冷却循環系、閉じ込め、臨界監視、被曝評価、収納・移送・保管、処理・処分等の一連のシステム設計・手順の検討に不可欠である。1F 由来の微小試料について、国プロで分析が行われているが、SEM-EDS や TEM-EDS では同位体識別や Pu、B の分析ができない問題が残る。一方、ICP-MS 等のバルク分析では微小視野での情報が欠落する。つまり、既存の方法では、燃焼率指標情報 ( $^{148}\text{Nd}$  と U の組成比)、中性子毒物 Gd や中性子吸収物質 B の存在比等の局所分析データを含めて燃料デブリ性状を把握するための分析手段がないことが大きな課題である。JAEA 大洗研究所に導入した同位体マイクロイメージング装置は放射性の微小試料に断面加工を行いながら同位体組成等の局所的な定量データが多量に得られ、燃料デブリの性状を正しくかつ迅速に把握できることが期待される。更なる精度向上のために必要な R&D を本装置に加えることで、少量燃料デブリの取り出し把握に必要な直接的なデータを世界で初めて取得して評価・検討を行っていくことを目的として研究を行った。

令和 3 年度は、同位体マイクロイメージング装置の実用化に向けて、検出器の放射線シールド対策、試料輸送機構及び試料保管機構（サンプルパーキング）の開発、分析に係る操作の自動化、迅速な波長切り替えのための波長可変レーザーの改良、JAEA 大洗研究所における同位体マイクロイメージング装置のホット分析仕様のための装置整備を行った。併せて、今後分析が必要となってくる重要な核種に対する共鳴イオン化スキームの開発に向けて、イオン化スキームの探索のための装置整備を行った。また、これらを通して、参画機関の大学院生や JAEA 大洗研究所の職員に対して、人材育成を行った。

同位体マイクロイメージング装置の実用化に関しては、令和 3 年度に計画していたことは達成され、JAEA 大洗研究所に設置した装置に対しても、ホット分析のための仕様が満たされ、許認可を得ることができた。当初の計画通り、令和 4 年度以降も、ホット試料の分析と並行して更なるユーザーアビリティの向上を目的に改良を続け、実用的な装置へと仕上げていく。特に波長可変レーザーのセットアップは極めて高い精度・技術を要求される作業であるため、名古屋大学で開発を進めている迅速波長切り替えが可能な改良型のレーザーの工学院大学や JAEA 大洗研究所の装置への適用を進め、それ以外の部分についても、通常の実験ルーチンの中で、ユーザーが調整する必要がないように改良を加えていく。共鳴イオン化スキームの開発においても、名古屋大学や CLADS でスキーム探索のための装置整備が完了したため、今後は重要な核種について、最適なイオン化スキームの開発を目指す。

参考文献

- [1] T. Sakamoto, M. Koizumi, J. Kawasaki, J. Yamaguchi, Development of a high lateral resolution TOF-SIMS apparatus for single particle analysis, *Appl. Surf. Sci.*, 255, pp.1617-1620 (2008).
- [2] H. Tomita, A. Nakamura, D. Matsui, R. Ohtake, V. Sonnenschein, K. Saito, K. Kato, M. Ohashi, V. Degner, K. Wendt, M. Morita, T. Sakamoto, T. Kawai, T. Okumura, I. Moore, T. Iguchi, Development of two-color resonance ionization scheme for Th using an automated wide-range tunable Ti:sapphire laser system, *Progress in Nuclear Science and Technology*, 5, pp.97-99 (2018).
- [3] T. Sakamoto, M. Morita, K. Kanenari, H. Tomita, V. Sonnenschein, K. Saito, M. Ohashi, K. Kato, T. Iguchi, T. Kawai, T. Okumura, Y. Satou, I. Wakaida, Isotope-selective Microscale Imaging of Radioactive Cs without Isobaric Interferences using Sputtered Neutral Mass Spectrometry with Two-step Resonant Ionization using newly-developed Ti:Sapphire Lasers, *Anal. Sci.*, 34(11), pp.1265-1270 (2018).
- [4] 東京電力HD, 1~3号機原子炉格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果 (2018年7月26日),  
[https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2018/images2/d180726\\_08-j.pdf](https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2018/images2/d180726_08-j.pdf) (参照:2022年3月21日) .
- [5] 東京電力HD, 福島第一原子力発電所の原子炉格納容器内等で採取された試料の分析 (2019年5月30日),  
[https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap\\_progress/pdf/2019/d190530\\_07-j.pdf#page=3](https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2019/d190530_07-j.pdf#page=3) (参照:2022年3月21日) .
- [6] 東京電力HD, 1~3号機格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果 (2020年11月26日),  
[https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap\\_progress/pdf/2020/d201126\\_08-j.pdf#page=25](https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2020/d201126_08-j.pdf#page=25) (参照:2022年3月21日) .
- [7] 東京電力HD, 福島第一原子力発電所にて取得した試料の分析 (2022年4月27日),  
[https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap\\_progress/pdf/2022/d220427\\_08-j.pdf#page=42](https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2022/d220427_08-j.pdf#page=42) (参照:2022年3月21日) .
- [8] 西原健司, 岩本大樹, 須山賢也, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, *JAEA-Data/Code 2012-018*, 2012, pp.17-21.
- [9] 奥村啓介 他, 東京電力福島第一原子力発電所の全炉心3次元核種インベントリ計算, *日本原子力学会2021年春の年会*, 3B01, 3B02, 2021.
- [10] 東京電力ホールディングス株式会社, 1~3号機原子炉格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果 (2018年8月10日),  
[https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images2/handouts\\_180810\\_04-j.pdf](https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images2/handouts_180810_04-j.pdf) (参照:2022年3月21日) .
- [11] 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で採取した試料の構外での分析について (2017年11月17日),  
[https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts\\_171117\\_01-j.pdf](https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2017/images2/handouts_171117_01-j.pdf) (参照:2022年3月21日) .

- [12] LOTIS TII, Nd:YAG LASER SYSTEM LS-2137N User's Manual.
- [13] LIOP-TEC, LiopStar User Manual.
- [14] E.B. Saloman, "A resonance ionization spectroscopy/resonance ionization mass spectrometry data service. I-Data sheets for As, B, Cd, C, Ge, Au, Fe, Pb, Si and Zn", Spectrochim. Acta B, 45(1-2), 1990, pp.37-83.
- [15] レーザー学会, レーザーハンドブック第2版, 2005, pp. 653-654.
- [16] 関根重幸, 光ガルバノ分光法, 真空, 35(1), 1992, pp.1-7.
- [17] M. Broglia et al., Galvanic detection of laser photoionization in hollow-cathode discharges: Experimental and theoretical study. Phys.Rev. A, 36(2), 1987, pp.705-714.
- [18] 坂本哲夫, 科学技術振興機構 研究成果展開事業 先端計測分析技術・機器開発プログラム(要素技術開発)「難分析核種の高感度分析のための多色イオン化光源の開発」, 再委託研究「電離スキームの分光学的評価と福島第一原子力発電所周辺環境試料の提供」令和元年度成果報告書, 2020年6月30日.

This is a blank page.



