



JAEA-Review

2024-015

DOI:10.11484/jaea-review-2024-015

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—

Establishment of Characterization Method for Small Fuel Debris

Using the World's First Isotope Micro Imaging Apparatus

(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
工学院大学

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

September 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

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

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

工学院大学

(2024年3月19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、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}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4年度は、ホット試料の分析と併せて、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令和3年度に引き続き行った。具体的には、同位体マイクロイメージング内にホット試料を導入し、数十 μm 程度の粒子に対して複数回 FIB 断面加工を行い、粒子の表面から内部にかけて、成分イメージングを行った。その結果、 ^{90}Zr と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ が同じ分布で存在していることが確認された。また、C と Fe、U の分布がそれぞれ分離して存在していることが確認された。また、 ^{235}U 、 ^{238}U の同位体比についてもホット試料から粒子単位で測定することに世界で初めて成功した。

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、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)

— 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

Kogakuin University

(Received March 19, 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 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 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 FY2022.

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}Nd and U), abundance ratio of neutron poison Gd and neutron absorber B. The isotope micro-imaging apparatus 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 FY2022, in addition to hot sample analysis, improvements were made to improve the practicality of the isotope microimaging device. Specifically, a hot-particle was introduced into the isotope microimaging system, and FIB cross-section processing was performed multiple times on particles of approximately several tens of micrometers, and component imaging was performed from the surface to the inside of the particles. As a result, it was confirmed that ^{90}Zr and $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ were present in the same distribution. It was also confirmed that C, Fe, and U were distributed separately. Furthermore, for the first time in the world, we succeeded in measuring the isotopic ratio of ^{235}U and ^{238}U on a particle-by-particle basis from a hot-particle.

Keywords: Isotope Micro Imaging, Hot-particle, RIMS, SNMS, SIMS

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
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 康一郎	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
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4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

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 R04I029)

成果報告書

令和5年3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	vii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.1.1 令和4年度の目標及び業務の実施方法	2-2
2.2 実施体制	2-4
3. 実施内容及び成果	3-1
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
3.1.1 検出系の放射線シールド対策	3-1
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	3-1
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	3-3
3.1.4 放射性微粒子分析の人材育成	3-4
3.1.5 まとめ	3-5
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(令和3年度～令和4年度) (再委託先：名古屋大学)	3-6
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	3-6
3.2.2 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	3-10
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	3-16
3.2.4 まとめ	3-16
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：東電HD）	3-17
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）	3-21
3.4.1 装置整備	3-21
3.4.2 1F汚染サンプルの分析	3-32
3.4.3 まとめ	3-33
3.5 イオン化スキームの開発（連携先：JAEA）	3-40
3.6 研究推進	3-61
3.6.1 開発者会議	3-61
3.6.2 人材育成・技術移転のための相互訪問	3-61
3.6.3 学会発表等	3-61
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

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

チームリーダー

溝上暢人

アドバイザー

平井睦

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

次長

前田宏治

研究副主幹

岩田圭弘

特別専門職研究員

宮部昌文

表一覧

表 2.1-1	全体計画における研究開発年次スケジュール	2-1
表 3.3-1	1F 汚染物サンプルの例	3-18
表 3.5-1	波長 490-510 nm における Nd 原子の主な共鳴励起波長データベース	3-45
表 3.5-2	波長 490-510 nm における Gd 原子の主な共鳴励起波長データベース	3-46
表 3.5-3	波長 490-510 nm における Ne 原子の主な共鳴励起波長データベース	3-46
表 3.5-4	波長 419-434 nm における Gd 原子の主な共鳴励起波長データベース	3-47
表 3.5-5	波長 419-434 nm における Ne 原子の主な共鳴励起波長データベース	3-47
表 3.5-6	Nd の単色 2 光子電離遷移の解析結果	3-47
表 3.5-7	電離スペクトルを測定した 1 段目遷移と第 1 励起準位	3-48
表 3.5-8(a)	(a) $23,217\text{ cm}^{-1}(J=3)$ の第 1 励起状態から観測した電離遷移と電離準位	3-49
表 3.5-8(b)	(b) $22,677\text{ cm}^{-1}(J=4)$ の第 1 励起状態から観測した電離遷移と電離準位	3-50
表 3.5-8(c)	(c) $22,736\text{ cm}^{-1}(J=5)$ の第 1 励起状態から観測した電離遷移と電離準位	3-51

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	1-3
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	1-3
図 2. 1-1	研究体制	2-4
図 3. 1-1	工学院大学で開発した微粒子状試料固定方法と、飛散防止のための キャップ付き試料台	3-2
図 3. 1-2	試料導入部におけるキャップ付き試料台の操作（試料輸送機構）	3-2
図 3. 1-3	レーザー稼働状態のモニターシステムダイアグラム	3-3
図 3. 1-4	ポンプ YAG 及び 2 台の波長可変 Ti:Sa レーザーの状態モニタリング ソフト	3-4
図 3. 1-5	教育コンテンツの一部（レーザーの調整方法等の部分）	3-5
図 3. 2-1	レーザー共鳴イオン化 2 次中性粒子質量分析実験体系	3-6
図 3. 2-2	Al 金属板と引き込み電極に導入した図	3-7
図 3. 2-3	U, Th を含む標準溶液試料を Ta 箔に滴下したもの	3-7
図 3. 2-4	質量スペクトル	3-8
図 3. 2-5	イオン銃フォーカス電圧がイオン検出数に与える影響	3-8
図 3. 2-6	Al の 1 色イオン化スキーム	3-9
図 3. 2-7	質量時間スペクトル(イオンビームあり、Ti:Sa レーザーあり)	3-9
図 3. 2-8	レーザー発振タイミングによる Al 強度の変化	3-10
図 3. 2-9	構築した多元素迅速分析用 Ti:Sa レーザーの写真	3-11
図 3. 2-10	基本波/SHG 切り替え機構（ミラー駆動機構）の制御系の外観	3-11
図 3. 2-11	Ca, Sr, Yb の共鳴イオン化スキーム	3-12
図 3. 2-12	Ca の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、2 段目 の共鳴スペクトル(下)	3-13
図 3. 2-13	Sr の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、2 段目 の共鳴スペクトル(下)	3-14
図 3. 2-14	Yb の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、2 段目 の共鳴スペクトル(下)	3-15
図 3. 2-15	多元素迅速分析用 Ti:Sa レーザーの基本波/倍波切替時の出射方向	3-16
図 3. 3-1	マッピング像 (Al, Fe)	3-19
図 3. 3-2	マッピング像 (Zr, U)	3-19
図 3. 4-1	緊急停止用のスイッチ	3-21
図 3. 4-2	TOF-SIMS の検出原理	3-24
図 3. 4-3	設置した放射線シールド材の様子	3-24
図 3. 4-4	放射線シールド材による放射線の減衰イメージ	3-25
図 3. 4-5	使用した標準点線源	3-25
図 3. 4-6	標準点線源をポイントに設置している様子	3-26
図 3. 4-7	放射線由来のノイズ測定の結果	3-26
図 3. 4-8	試料ホルダーの外観	3-28
図 3. 4-9	試料固定部と蓋部の合体手順	3-28

図 3.4-10	試料輸送機構の構造図	3-29
図 3.4-11	試料輸送機構の外観	3-29
図 3.4-12	試料ホルダーを試料交換室へ導入する様子	3-30
図 3.4-13	試料ホルダーの蓋部着脱の様子(1)	3-30
図 3.4-14	試料ホルダーの蓋部着脱の様子(2)	3-31
図 3.4-15	評価に用いた 1F 汚染サンプル	3-31
図 3.4-16	試料からの線量当量測定に使用した GM 管式サーベイメーター	3-31
図 3.4-17	GM 管式サーベイメーターによる線量当量測定の様子	3-32
図 3.4-18	試料交換前後の線量測定値 (測定レンジは×10 で使用)	3-32
図 3.4-19	分析に用いた試料	3-34
図 3.4-20	U 含有粒子の SIM 像	3-34
図 3.4-21	同位体イメージング結果 (FIB 加工前)	3-35
図 3.4-22	同位体イメージング結果 (FIB 加工 1 回目)	3-35
図 3.4-23	同位体イメージング結果 (FIB 加工 2 回目)	3-36
図 3.4-24	同位体イメージング結果 (FIB 加工 3 回目)	3-36
図 3.4-25	同位体イメージング結果 (FIB 加工 4 回目)	3-37
図 3.4-26	同位体イメージング結果 (FIB 加工 5 回目)	3-37
図 3.4-27	同位体イメージング結果 (FIB 加工 6 回目)	3-38
図 3.4-28	同位体イメージング結果 (FIB 加工 7 回目)	3-38
図 3.4-29	U のマススペクトル	3-39
図 3.5-1	光ガルバノ分光セットアップの概念図	3-52
図 3.5-2	TOG 信号観測時のセットアップ写真	3-53
図 3.5-3	Nd ホロカソードランプを用いて観測された Nd 共鳴波長 492.590 nm の TOG 信号	3-54
図 3.5-4	Nd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 495.842 nm の TOG 信号	3-54
図 3.5-5	Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 共鳴波長 495.386 nm の TOG 信号	3-55
図 3.5-6	Gd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 495.842 nm の TOG 信号	3-55
図 3.5-7	Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 共鳴波長 430.755 nm の TOG 信号	3-56
図 3.5-8	Gd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 430.746 nm の TOG 信号	3-56
図 3.5-9	Nd のエネルギー準位図と 2 波長 2 段階電離スキーム	3-57
図 3.5-10	Nd 原子の共鳴イオン化分光装置の概要	3-57
図 3.5-11	構築した共鳴イオン化分光用真空チャンバーと周辺の様子	3-58
図 3.5-12	観測した Nd の単色 2 光子電離スペクトルの例	3-58
図 3.5-13	2 波長 2 段階電離スペクトル(上から J-3, 4, 5 の第 1 励起準位)の例	3-59
図 3.5-14	自動電離リドベルグ系列スペクトルの例	3-60
図 3.5-15	電離遷移のイオン量の飽和曲線の例	3-60
図 3.5-16	有望スキーム(第 1 励起準位 22241 cm^{-1} , J=5) の詳細な電離スペクトル	3-60

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 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	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
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	:	International 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 Probe	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	2 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
BBO 結晶	:	β -BaB ₂ O ₄ 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 α 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」という。) の微小試料について、国家プロジェクト (国プロ) で分析を進めているが、SEM-EDS や TEM-EDS では同位体識別や Pu, B の分析ができない。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}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 (工学院大学が開発) 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。さら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 4 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運転の確立

① 検出系の放射線シールド対策

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について、実際の環境下や高線量試料によるシールド対策の効果検証を行った。ノイズの発生源と放射線の到達経路を明らかにし、Pb 等の部材を適宜加工し、追加改良を進めた。

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

令和 3 年度に開発した試料固定法や輸送機構を用いて、JAEA 大洗研究所で実際の試料の輸送を行った。比較的線量の高い大きめの試料を用いて、線量をモニタリングしながら、開発した機構の評価を行った。さらなる改善点について、開発を継続した。

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

装置の自動化・遠隔化に関しては、想定できなかった実際の設置環境とのミスマッチ部分の改良等を進めた。一方で、できる限りエンドユーザーのオペレーションタスクを減らすために、JAEA の職員等の意見を参考にしながら、測定シーケンス等のソフトウェアの改良、エラーモニターやトラブルシューティング等の検討を行った。

④ 放射性微粒子分析の人材育成

基礎知識・技術を修得できるような教育コンテンツ及び装置オペレーション技術指導体系の整備を進めた。また、JAEA に大学院生を派遣して、技術研修を実施し、現地での分析等の活動を通じて育成を図った。

(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 (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

イオン銃を組み込んだ飛行時間型質量分析装置にてレーザー共鳴イオン化スキームの開発を行った。U または Th を含む標準溶液試料等を用いて実験した。

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

令和 3 年度に設計した多元素迅速分析用 Ti:Sa レーザーを構築し、特性を評価した。元素の迅速な切り替えのための制御系の構築を行い、2~3 の元素を順次切り替えて共鳴イオン化が実現できることを確認した。また、波長切り替えに伴うレーザー光軸・プロファイル等の補正法の開発に着手した。Ti:Sa レーザーの構築に関しては、工学院大学と協議して実施した。

③レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成

令和 3 年度に作成した教育コンテンツを用いて、関連する大学の大学院生や若手技術者への講義を実施した。また、JAEA 大洗研究所に大学院生を派遣し、レーザーのセットアップ等を通じた技術研修を実施した。

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

①1F 汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー

令和 3 年度に引き続き、JAEA 大洗研究所での 1F サンプル分析用にスミア等で採取したサンプルを、JAEA 大洗研究所に提供した。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試料は、U を含む可能性が高いなど適切な試料を選定し提供した。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 (連携先：JAEA)

①装置整備

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レーザー機構の改良を継続した。また、工学院大学で開発した耐放射線性や遠隔操作性等の向上のための機能を JAEA 大洗研究所の装置へ組み込んだ。

②1F 汚染サンプルの分析

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, Cs 等の分析データを蓄積した。

(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, Nd, B 等を含有する微粒子分析のため、2 波長 2 段階共鳴イオン化スキームを検討した。令和 3 年度に整備した波長可変の YAG レーザー励起色素レーザー光源等を用いて、光ガルバノ分光やイオンの直接計測等により共鳴イオン化信号を観測する体系を構築した。

(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て、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議を適宜開催した。

前年度までの成果報告書：

JAEA-Review 2024-005：令和3年度

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2024-005>

<令和3年度の実施結果概要>

少量燃料デブリ中のFP及び α 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。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}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。さら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、検出系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。あわせて、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さら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予定である。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な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予定である。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こととしている。

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ア試料など)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等の同位体情報、燃焼率指標情報(^{148}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、JAEA大洗研究所の照射燃料集合体試験施設(Fuel Monitoring Facility;以下「FMF」という。)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}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やTEM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、研究内容をわ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2次イオン質量分析法^[1](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、2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2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}Ba や ^{137}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）^[2]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の実現している^[3]（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附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、検出系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。あわせて、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。

これを踏まえて、令和 4 年度は、ホット試料の分析と並行してさらなるユーザーアビリティの向上を目的に改良を続け、装置の自動化を進めた。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、迅速な波長切り替えが可能な改良型のレーザーの開発を名古屋大学で進め、工学院大学ではレーザーの発振状態のモニタリングや 2 台のレーザーの発振タイミングの調整等を自動で行えるように改良した。共鳴イオン化スキームの開発においても、名古屋大学や JAEA・CLADS でスキーム探索のための装置整備が完了した。名古屋大学においては、スパッタされた中性原子に対する共鳴イオン化の信号を検出することに成功した。JAEA においては、ガス状原子試料を対象として、共鳴イオン化スキームを調査し、重要な元素について最適なスキームを提案することに成功した。今後は JAEA・CLADS や名古屋大学で開発された共鳴イオン化スキームを、JAEA 大洗研究所の装置にて活用し、要注目同位体の分析を行っていく予定である。JAEA 大洗研究所では、1F の実粒子から、 ^{235}U と ^{238}U の同位体ごとの検出及びイメージングに成功し、他の元素との分布を東電 HD を交えて、分析結果のレ

ビューを行った。今後は、サンプル数を増やし、濃縮度や中性子捕獲元素の有無等を調べ、性状や安全性について評価していく予定である。

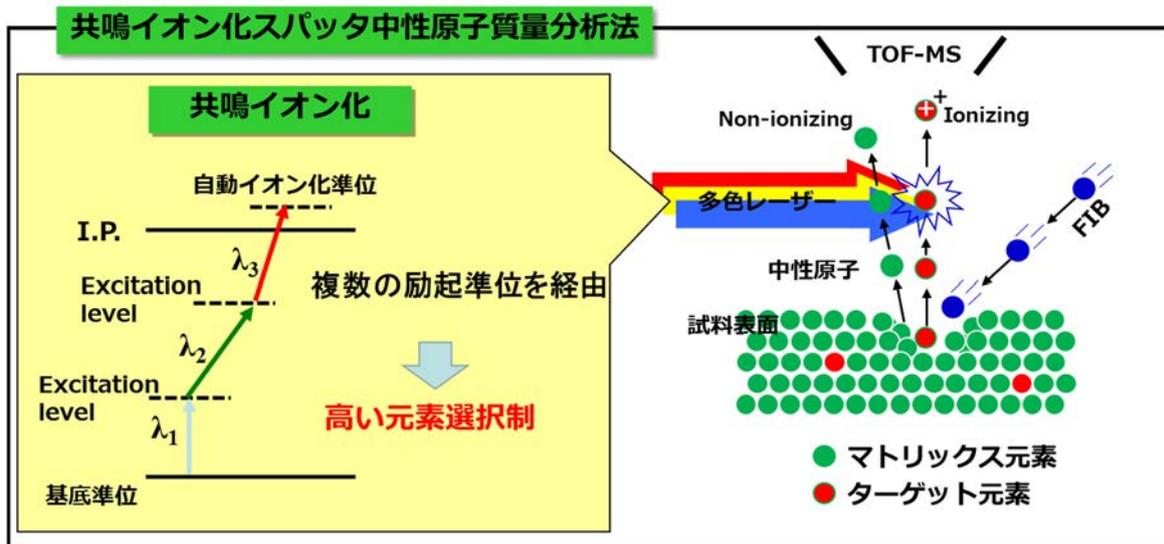


図 1.1-1 同位体マイクロイメージング装置の原理図

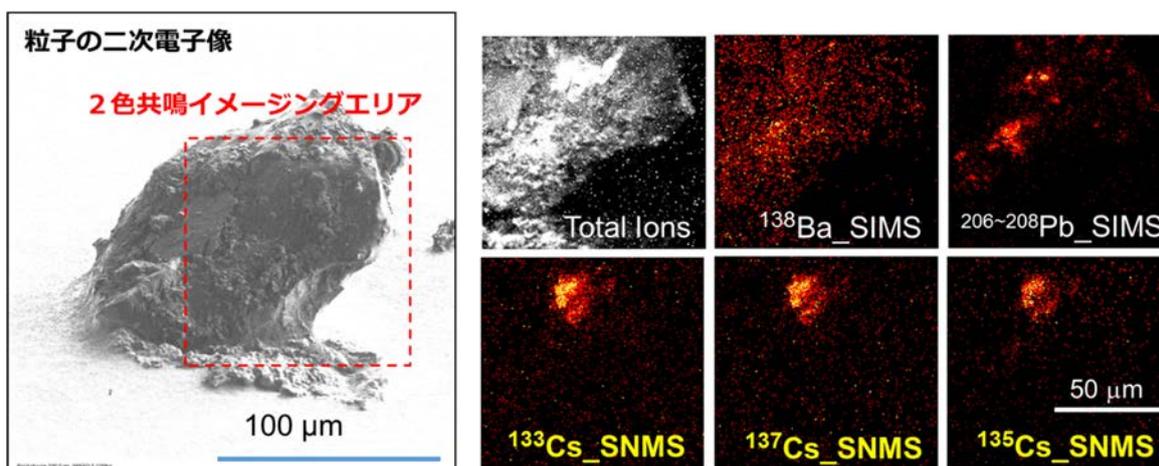


図 1.1-2 放射性セシウム含有粒子の同位体イメージング像

2. 業務計画

2.1 全体計画

表 2.1-1 に研究開発期間全体のスケジュールを示す。令和 4 年度は実施 2 年目であり、次頁に記す具体的な計画・目標に向けて当初の計画通り実行した。

表 2.1-1 全体計画における研究開発年次スケジュール

年度	令和 3 年度	令和 4 年度	令和 5 年度
(1) 同位体マイクロイメージング装置の実用運転の確立 (工学院大学)			
① 検出系の放射線シールド対策	検出系へのシールド対策		実試料分析・放射線シールドの改良
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	自動化・輸送機構・サンプルパーキング等の実用化確保		分析ニーズの情報収集・改良
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	自動化・遠隔化	自動化・遠隔化の改良及びソフトウェアの改良	ユーザビリティ向上及びマニュアル作成
④ 放射性微粒子分析の人材育成	技術指導及び教育コンテンツ作成	技術研修・現地での分析指導	見学会等の実施・現地技術研修・育成
(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 (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	質量分析装置真空チャンパーの改造設計・動作確認	イオン化スキームの開発	イオン化スキーム適用性の確認・最適化
② 多元素迅速分析を実現するための高線り返し率Ti:Saレーザーシステムの開発	改良型レーザーシステムの設計・開発	改良型レーザーシステムの特性評価・補正法開発着手	補正法開発・多元素分析の実証
③ レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成	教育コンテンツの準備・原子力機構見学又は講演等の実施	教育コンテンツによる講義・技術研修	若手技術者への講義の実施・基礎技術の修得・技術研修の実施
(3) 1F汚染サンプルの提供及び分析結果のレビュー (東電HD)	1Fサンプル分析結果レビュー	1Fサンプル分析結果レビュー	1Fサンプル分析結果レビュー
	データ解析	データ解析	データ解析
(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 (JAEA)			
① 装置整備	装置改良	許認可対応・試験	
② 1F汚染サンプルの分析	サンプル分析	サンプル分析及び評価まとめ	
(5) イオン化スキームの開発 (JAEA)	光源、計測装置整備	予備試験	ガルバノ分光実験
			原子イオン化試験、評価まとめ
(6) 研究推進	適宜会議を開催	適宜会議を開催	

2.1.1 令和4年度の目標及び業務の実施方法

(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

JAEA 大洗研究所に設置・稼働している同位体マイクロイメージング装置について、実際の環境下や高線量試料によるシールド対策の効果検証を行う。ノイズの発生源と放射線の到達経路を明らかにし、Pb等の部材を適宜加工して、追加改良を進める。

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

令和3年度に開発した試料固定法や輸送機構を用いて、JAEA 大洗研究所で実際の試料の輸送を行う。比較的線量の高い大きめの試料を用いて、線量をモニタリングしながら、開発した機構の評価を行い、改善点があれば、開発を継続する。

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

装置の自動化・遠隔化に関しては、想定できなかった実際の設置環境とのミスマッチ部分の改良等を進める。一方で、できる限りエンドユーザーのオペレーションタスクを減らすために、JAEAの職員等の意見を参考にしながら、測定シーケンス等のソフトウェアの改良、エラーモニターやトラブルシューティング等の検討も行う。

④ 放射性微粒子分析の人材育成

基礎知識・技術を修得できるような教育コンテンツ及び装置オペレーション技術指導体系の整備を進める。また、JAEA 大洗研究所に大学院生を派遣して、技術研修を実施し、現地での分析等の活動を通じて育成を図る。

(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

イオン銃を組み込んだ飛行時間型質量分析装置にてレーザー共鳴イオン化スキームの開発を行う。UまたはThを含む標準溶液試料等を用いて実験する。

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

令和3年度に設計した多元素迅速分析用Ti:Saレーザーを構築し、特性を評価する。元素の迅速な切り替えのための制御系の構築を行い、2~3の元素を順次切り替えて共鳴イオン化が実現できることを確認する。また、波長切り替えに伴うレーザー光軸・プロファイル等の補正法の開発に着手する。Ti:Saレーザーの構築に関しては、工学院大学と協議して実施する。

③ レーザーによる微量分析の素養を持った人材の育成

令和3年度に作成した教育コンテンツを用いて、関連する大学の大学院生や若手技術者への講義を実施する。また、JAEA 大洗研究所に大学院生を派遣し、レーザーのセットアップ等を通じた技術研修を実施する。

(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：東電 HD)

令和 3 年度に引き続き、JAEA 大洗研究所での 1F サンプル分析用にスミア等で採取したサンプルを、JAEA 大洗研究所に提供する。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試料は、U を含む可能性が高い等適切な試料を選定し、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

工学院大学と連携し、JAEA 大洗研究所に設置・稼働している同位体マイクロイメージング装置の共鳴レーザー機構の改良を継続する。また、工学院大学で開発した耐放射線性や遠隔操作性等の向上のための機能を JAEA 大洗研究所の装置へ組み込む。

②1F 汚染サンプルの分析

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, Cs 等の分析データを蓄積する。

(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, Nd, B 等を含有する微粒子分析のため、2 波長 2 段階共鳴イオン化スキームを検討する。令和 3 年度に整備した波長可変の YAG レーザー励起色素レーザー光源等を用いて、光ガルバノ分光やイオンの直接計測等により共鳴イオン化信号を観測する体系を構築する。

(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協同研究センター (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合せや会議を適宜開催する。

2.2 実施体制

以下の図 2.1-1 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電 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 JAEA・CLADS の岩田が連携機関の代表として参画している。

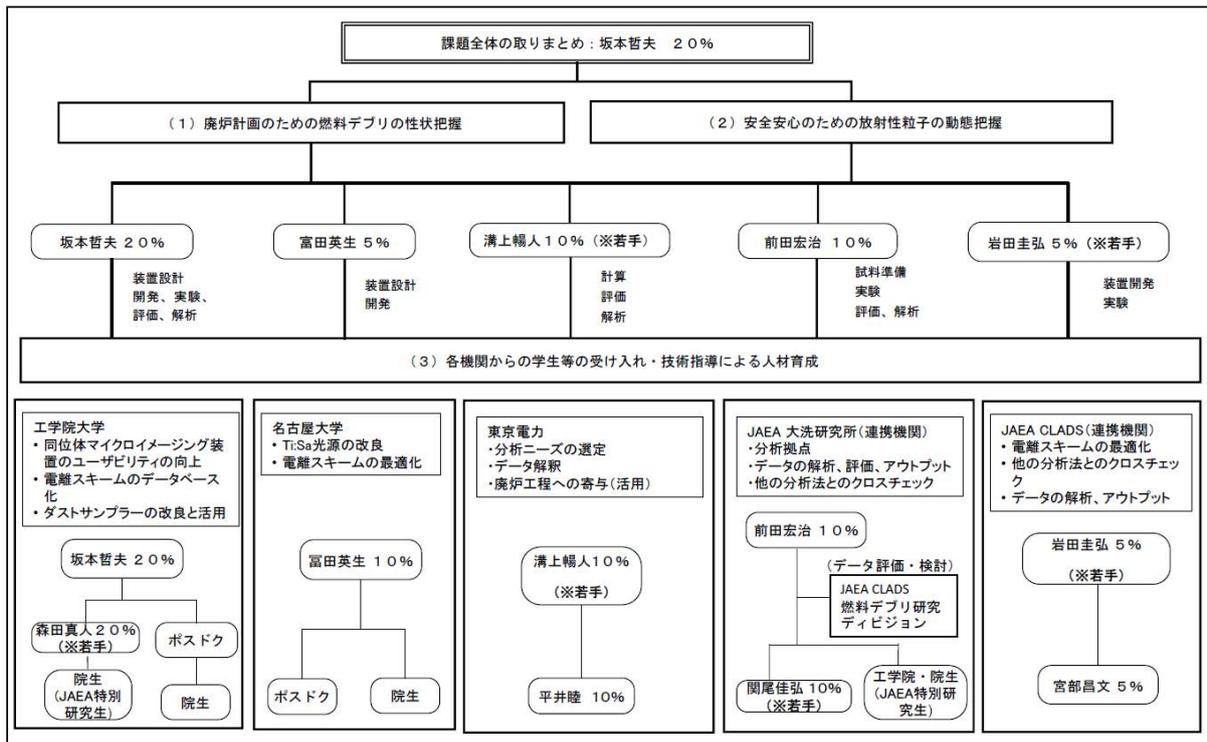


図 2.1-1 研究体制

3. 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

(1) 令和3年度までの概要

JAEA 大洗研究所・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。想定される最大線量試料 (37 MBq) に対して、検出器への放射線の到達量が分析に影響を与えないレベル (10 分積算時にスペクトルのバックグラウンドが 1 カウント以下) になるように鉛シールドを設計した。工学院大学の同位体マイクロイメージング装置を用いて、検出器の部分に製作した鉛シールドが設置できることを確認した。この状態で工学院大学が検証できる最大線量試料 (2 kBq) を用いて、測定に影響がないことを確認した。その後、JAEA 大洗研究所の同装置に開発した鉛シールドを輸送・設置した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

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について、令和3年度に開発した鉛シールドの実際の環境下や高線量試料に対するシールド効果の検証を行った。ノイズの発生源と放射線の到達経路を明らかにし、Pb 等の部材を適宜加工して、追加改良を進めた。工学院大学では取り扱えなかった高線量試料 (1.1 MBq 程度) を用いて検出系へのシールドの効果が十分であることを確認した。実験で使用した高線量試料から予測し、装置への導入可能な最大線量試料 (37 MBq) を想定しても、分析に悪影響がないことが確認できた。従って、そもそもノイズが発生しなかったため、鉛シールド等について追加改良は不要であった。詳しくは 3.4.1 項の図 3.4-7 を参照されたい。

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

(1) 令和3年度までの概要

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。

可搬型アイソレーションボックスとして、キャップ付き試料台を提案した。キャップ付き試料台のキャップを、同位体マイクロイメージング装置の予備排気室内で開け閉めできるように改良を行った。また、平滑化した In 板に微粒子を押し込んで固定することにより、飛散防止及び測定中の帯電防止になり、最適な試料固定方法として確立できた。サンプルパーキングについては、現状 4 つ (今後の改良で最大 8 個) の試料を同時に真空内に導入でき、迅速に試料交換ができることを確認した。また、サンプルパーキング機構には冷却機能もついており、揮発性の高い試料も真空中で凍結保持が可能である。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

令和3年度に開発した試料固定法(図3.1-1)や輸送機構(図3.1-2)を用いて、JAEA大洗研究所で実際の試料の輸送を行った。比較的線量の高い大きめの試料を用いて、線量をモニタリングしながら、開発した機構の評価を行い、改善点があれば開発を継続した。令和3年度に改良したキャップ付き試料台の開閉機構をJAEA大洗研究所に技術移転し、同研究所に設置してある同位体マイクロイメージング装置においても、同様な機構を設計製作し、In板に固定した微粒子試料の装置内への導入を確認した(JAEA大洗研究所での実施の様子は3.4.1項・図3.4-8～18を参照)。

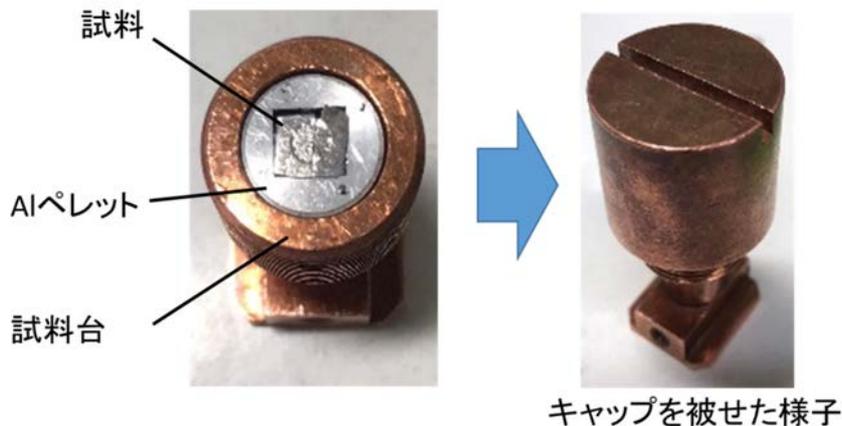


図3.1-1 工学院大学で開発した微粒子状試料固定方法と、飛散防止のためのキャップ付き試料台

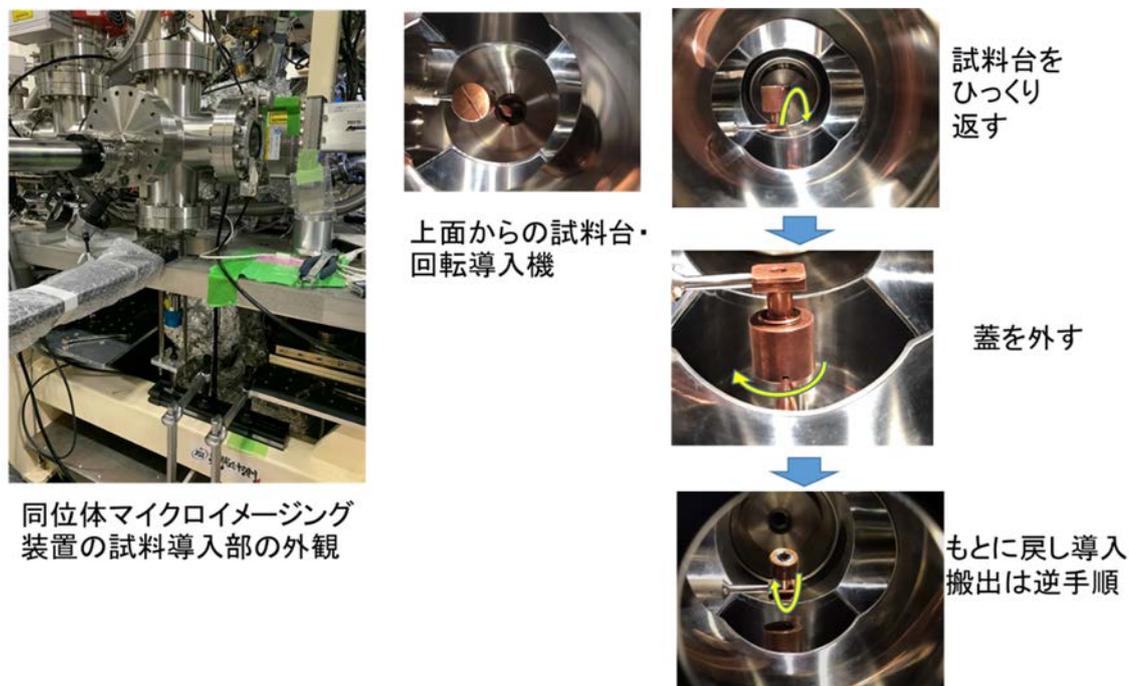


図3.1-2 試料導入部におけるキャップ付き試料台の操作(試料輸送機構)

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

(1) 令和3年度までの概要

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、JAEA 大洗研究所に設置した同装置での使用方法を想定しながら、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。同位体マイクロイメージング装置の TOF-SIMS として動作させる部分について、各ソフトウェアを統合して一連の操作が一括して行えるように改良した。装置内でのターゲット粒子の位置を複数個同時に記憶させ、ターゲット粒子を見失った場合でも、それぞれの位置に自動で戻って迅速に分析ができるようになった。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

装置の自動化・遠隔化に関しては、JAEA 大洗研究所における装置設置環境が高温多湿環境であったため、Ti:Sa 結晶や光学系への影響が危惧された。そのため、以下に記すようにレーザーの発振状態(タイミングとパワー)や共振器付近の温湿度の監視ができるように改良した。さらに、少しでも湿度の影響を軽減できるように共振器内に吸湿剤のホルダーを設置し、シリカゲルを用いて除湿を行っている。一方で、できる限りエンドユーザーのオペレーションタスクを減らすために、JAEA の職員等の意見を参考にしながら、測定シーケンス等のソフトウェアの改良、エラーモニターやトラブルシューティング等の検討も行った。

これまで、レーザーの調整は手動の部分が多く、エンドユーザーに対応できていなかった。そのため、レーザーの状態(設置環境、パワー、タイミング)の監視が客観的・リアルタイムにできるようにした(図 3.1-3、図 3.1-4)。また、パワーやタイミング等、分析データに影響を与える部分が手動での調整だったため、PC で制御できるように改良した。以上のことから、レーザーの状態(分析条件)の再現性が高まり、かつ簡単に制御できるようになったため、ユーザビリティの向上が達成できた。

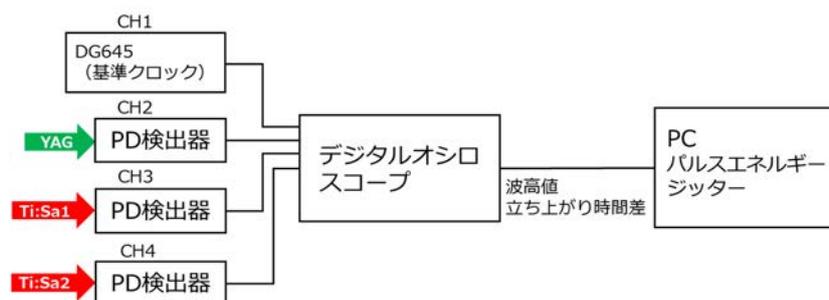


図 3.1-3 レーザー稼働状態のモニターシステムダイアグラム

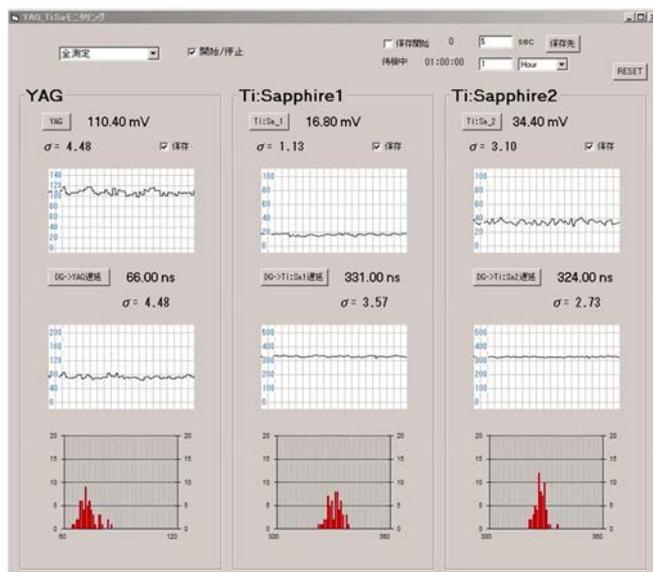


図 3.1-4 ポンプ YAG 及び 2 台の波長可変 Ti:Sa レーザーの状態モニタリングソフト

3.1.4 放射性微粒子分析の人材育成

(1) 令和 3 年度までの概要

JAEA 大洗研究所の職員や工学院大学の大学院生に対し、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。

一方、同位体マイクロイメージング装置に関する、原理や操作方法についてまとめたマニュアルを作成した。工学院大学の学生を引率して、JAEA 大洗研究所を訪問し、現地の見学及び JAEA 大洗研究所の職員と工学院大学の学生に対して、同位体マイクロイメージング装置の現地での分析の原理の解説やオペレーショントレーニングを行った。

(2) 令和 4 年度実施内容及び成果

令和 3 年度に引き続き、基礎知識・技術を修得できるような教育コンテンツ及び装置オペレーション技術指導體系の整備を進めた。また、JAEA 大洗研究所に大学院生を派遣し、技術研修を実施し、現地での分析等の活動を通じて育成を図った。

また、令和 3 年度に引き続き、教育コンテンツの拡充を進めた。3.1.2 項で述べたように、本装置の波長可変レーザーシステムはエンドユーザー向けにかなりの工夫を凝らしてあるが、それでも、ルーチンの分析を考えれば、教育ならびに教育に用いる資料の拡充が必須だったため、令和 3 年度版教育コンテンツに、レーザーのオペレーション部分を大幅に拡充し、オペレーショントレーニングと合わせ、JAEA 大洗研究所の研究者が単独で 1F 関連試料の同位体マイクロイメージングが行えるよう、心掛けた(図 3.1-5)。

また、JAEA 大洗研究所の職員を工学院大学に招き、同位体マイクロイメージング装置の機構やセットアップ、実際の測定手順等について技術研修を実施した(令和 4 年 7 月 19 日～29 日、工学院大学八王子キャンパスにて)。一方で、工学院大学からも大学院生とともに JAEA 大洗研究所を訪問し、現地職員及び工学院大学の学生に対して育成を行った(令和 4 年 12 月 26 日、27 日、令和 5 年 1 月 19 日、20 日、令和 5 年 3 月 27 日～29 日)。

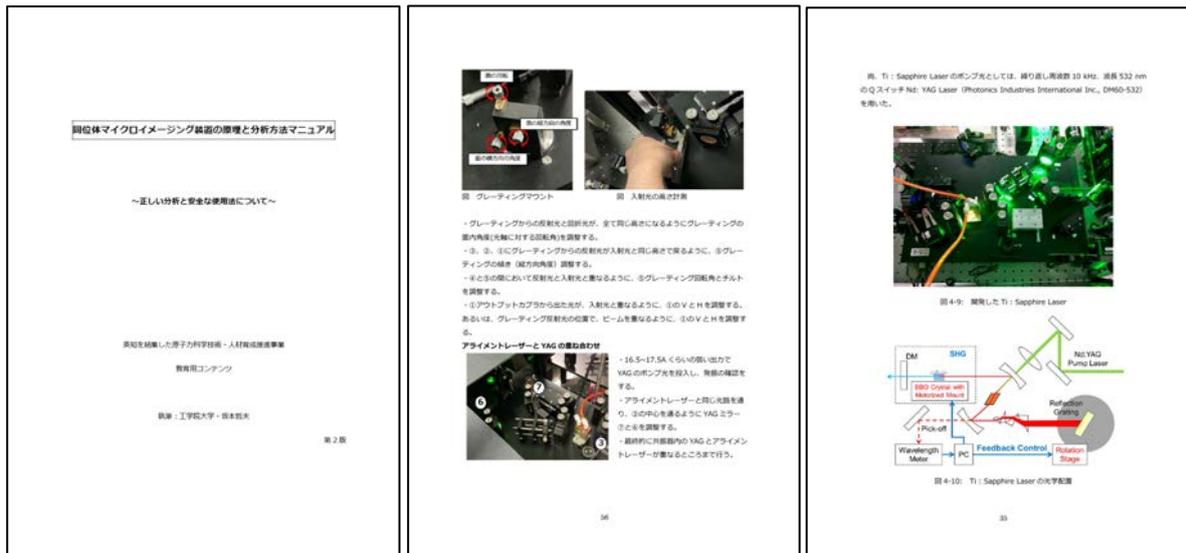


図 3.1-5 教育コンテンツの一部（レーザーの調整方法等の部分）

3.1.5 まとめ

令和4年度は同位体マイクロイメージングの実用化、実用分析を JAEA 大洗研究所で開始するべく、工学院大学においては JAEA 大洗研究所の装置に反映できる技術の基礎開発を行い、さらに、それらの技術移転ならびに同研究所での装置の条件出し、使い方の伝授等を進めた。その結果、後述のように、1F 関連サンプルから U を含む微粒子の成分別、内部構造イメージングに成功した。データの質（特に検出限界）は本来想定していたものとは程遠いが、本報告書を取りまとめている現段階でも、原因の特定と改善策を随時、JAEA 大洗研究所と議論し、解決に向けた努力をしている。

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

(令和3年度～令和4年度) (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

(1) 令和3年度までの概要

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ー改造の設計を行い、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。イオン光学シミュレーションソフトを用いて、Ar イオン銃によって発生した2次イオンを収集するための電極の設計を行った。名古屋大学に既設の質量分析装置に Ar イオン銃を取り付けるための部品を設計し、イオン銃を取り付け、イオン銃の基本動作に関して、正常に動作することを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

イオン銃を組み込んだ飛行時間型質量分析装置にてレーザー共鳴イオン化スキームの開発を行った。実験の体系を図3.2-1に示す。第1・第2電極に $V_1=+800$ V、 $V_2=+500$ Vを印加し、イオンビームによって生成されたイオンを2段加速させた。第3電極は0 Vとし、その後の2つの電極とあわせてイオンレンズとして動作させた(電圧 V_4)。水平・垂直偏向電極にはそれぞれ V_5 と V_6 を印加し、イオンを自由飛行領域に輸送した。イオンは約1.7m自由飛行したのち、イオン検出器であるMCP(浜松ホトニクス製「F13447-11」)で検出した。MCPには $-1,450$ Vを印加して使用した。MCPで得られた信号はプリアンプ(Ortec社製 VT120A)で増幅された。このパルス信号をマスターデータ収集ユニット(KEYENCE製「NR-X100」)に接続されたパルス計測器(KEYENCE製「NR-FV04」)で計数した。なお、このパルス計測器は、パルス幅 1.0 μs 以上のパルスを計数する仕様であったため、DELAY PULSE GENERATOR MODEL DPG002でパルス幅を 2.0 μs に広げた。各電極に電圧を印加し、イオン銃の照射領域を掃引した際のMCP計数を取得し、イオンビームが第2電極を通過し、第1電極(試料保持部)に到達していることを確認した(前年度とは異なり電圧を印加した状態で確認)。

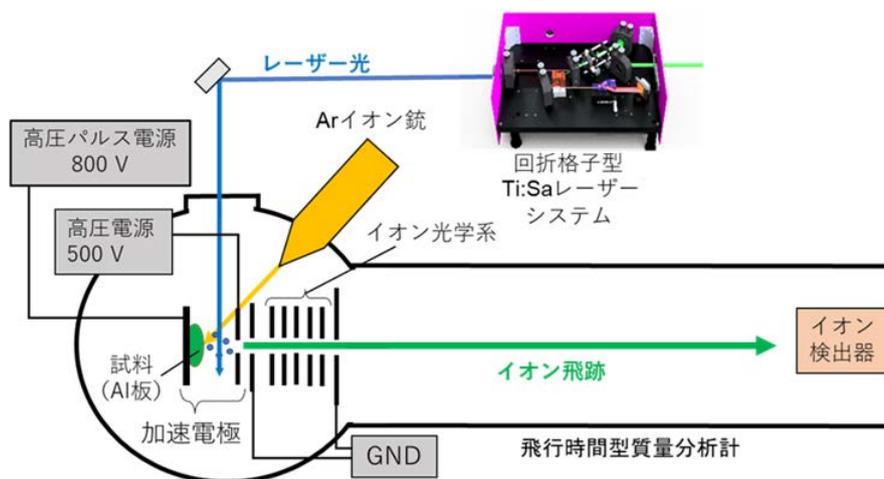


図 3.2-1 レーザー共鳴イオン化2次中性粒子質量分析実験体系

レーザーによる非共鳴/共鳴イオン化を行うためには、レーザー光と原子の空間的同期だけでなく、レーザーパルスと引き抜き用パルス電圧のタイミングの時間的同期も重要になる。イ

オン銃は連続的出力であるため、引き込み電極への印加パルス電圧と共鳴イオン化用レーザーの時間的同期を行った。ファンクションジェネレータ(Stanford Research Systems 製「DG535」)を用いて反転振幅の信号を取得し、フォトディテクター(Thorlabs 製「PDA8A2」)を用いてレーザーの出力タイミングを取得し、Ti:Sa レーザーと印加電圧の時間的同期を行った。

2 次イオン飛行時間型スペクトルを取得するにあたり、導入する試料として Al 金属板と U・Th を含む ICP 用標準溶液 (SPEX 社製 XSTC-13) を Ta 箔 (7×8 mm、厚さ 0.5 mm) に滴下したものをを用いて実験した。導入した Al 金属板と U, Th を含む標準溶液試料を Ta 箔に滴下したものを図 3.2-2 と図 3.2-3 にそれぞれ示す。

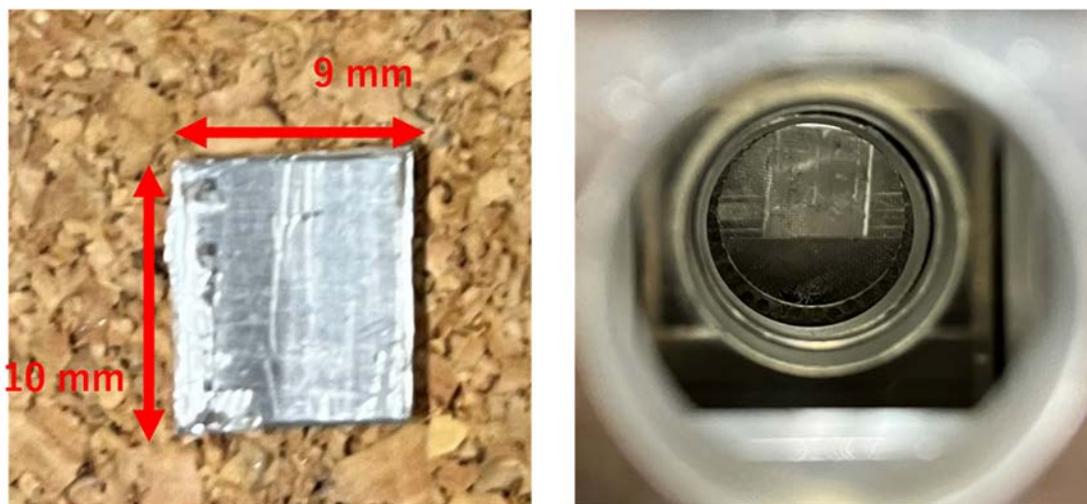


図 3.2-2 Al 金属板と引き込み電極に導入した図

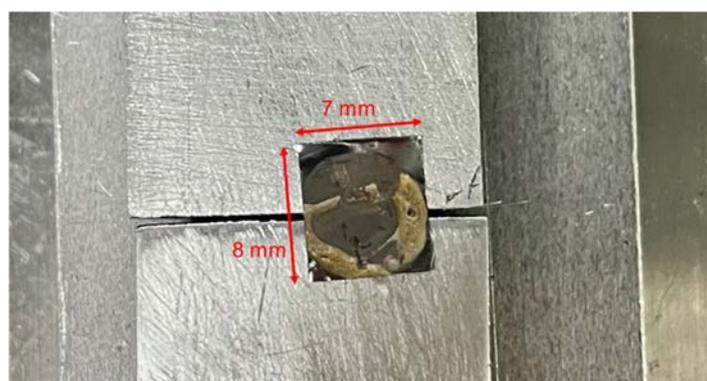


図 3.2-3 U, Th を含む標準溶液試料を Ta 箔に滴下したもの

レーザーにより非共鳴/共鳴イオン化されたイオンを効率よく計数するために、イオン輸送効率の検討を行った。ここでは、イオンビームの照射位置を固定し、偏向電極、イオンレンズに印加する電圧 V_4, V_5, V_6 を変化させ、スパッタされて放出された Al などの 2 次イオンを MCP で計数した。この結果より、効率よくイオンを検出するための水平・垂直偏向電極・レンズ電極に加える電圧値を得た。

レーザーによるイオン化の確認のためにまず、Nd:YAG レーザーの第 2 高調波 (532nm) を導入して非共鳴イオン化のテストを行った。図 3.2-4 に YAG レーザーありなしを比較した質量時間

スペクトルを示す。これより、 $m/z=67$ (ToF=35 μs) にレーザーありの時に観測され、レーザーなしでは観測されなかったピークがある。 $^{40}\text{Ar}^{27}\text{Al}$ の分子イオンと考えられ、Nd:YAG レーザーによる非共鳴イオン化に起因したイオンの検出を確認した。また、イオン計数とイオン銃のフォーカス電圧の関係を図 3.2-5 に示す。イオン銃のフォーカス電圧の最適化を行い、イオンビームにて生成した 2 次中性原子をイオン化したものを高効率に計数できる実験条件を求めた。

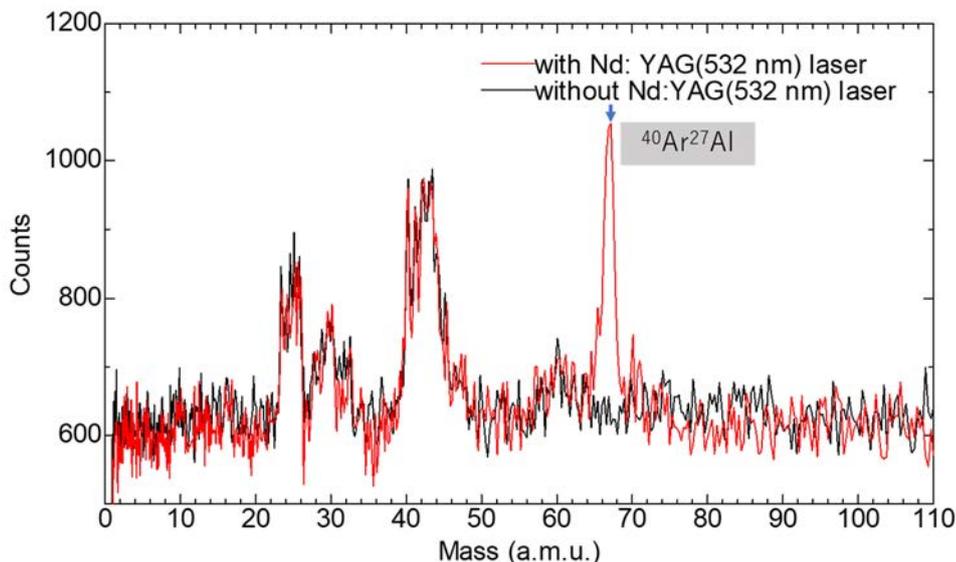


図 3.2-4 質量スペクトル

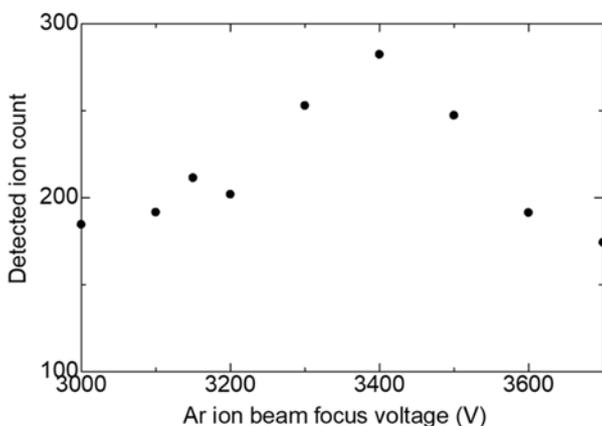


図 3.2-5 イオン銃フォーカス電圧がイオン検出数に与える影響

次に、Ti:Sa レーザーを用いて共鳴イオン化のテストを行った。共鳴イオン化用のイオン化スキームは NIST Atomic Spectra Database において、Ti:Sa レーザーの発振波長域が基本波、第 2 高調波がそれぞれ 670 nm~950 nm、335 nm~475 nm であるため、この波長域内で検索した。その結果、394.512 nm、396.264 nm の共鳴励起、非共鳴イオン化によるイオン化で元素選択的に Al をイオン化できると考え、これらの波長を選択した。図 3.2-6 にイオン化スキームを示す。

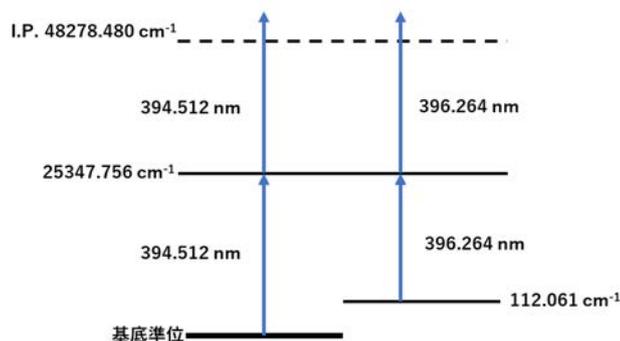


図 3.2-6 Al の 1 色イオン化スキーム

取得するスペクトルの S/N 比を高めるため、印加電圧のパルス幅は 5 μs として、飛行時間スペクトルを取得した。そこで見られた特徴的ないくつかのピークを基に ToF-Mass 校正を行った。これを用いて質量スペクトルに変換したものを図 3.2-7 に示す。

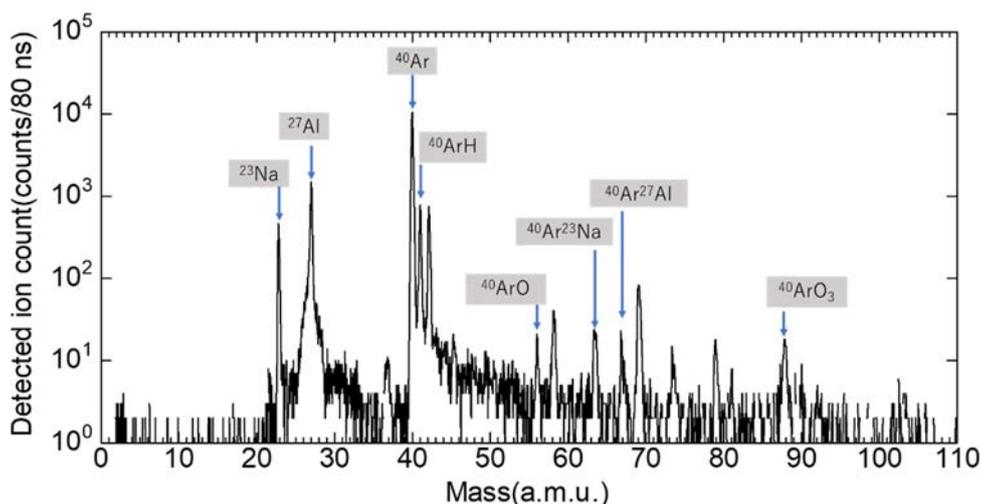


図 3.2-7 質量時間スペクトル(イオンビームあり、Ti:Sa レーザーあり)

試料に起因する Al、Ar⁺イオンビームに起因する Ar、イオン化されやすい Na、それらの分子イオンのピークが見られた。一方、波長を掃引した際にイオン計数に変化が見られるものの、計数の変動が大きく、共鳴ピークとは確認できなかった。

そこで、Ti:Sa レーザーを照射するタイミングを検討するために、レーザー発振タイミングをパルス電圧に対して遅らせ、イオン収量の変化を測定した。パルス電圧の条件、パルス幅 5 μs は固定し、レーザー発振タイミングを変化させた。遅れ時間に対する Al のイオンカウント数の関係を図 3.2-8 に示す。電極に印加する高圧電源の立ち上がり、立ち下りの約 0.2 μs の間は観測できないが、印加電圧のパルス幅内では観測できた。また、立ち上がりの近傍 (遅れ時間 = 1 μs) 付近で飛行時間スペクトル上の Al ピークにテールが確認された。これは、パルス電圧の立ち上がりにより、イオン位置のポテンシャルが増加したことによると考えられる。このことと飛行時間-質量の校正式も印加した電圧+800 V から想定される係数の値とほぼ一致してお

り、レーザーにより生成されたイオンを電場で引き抜く体系が構築できていることが確認できた。

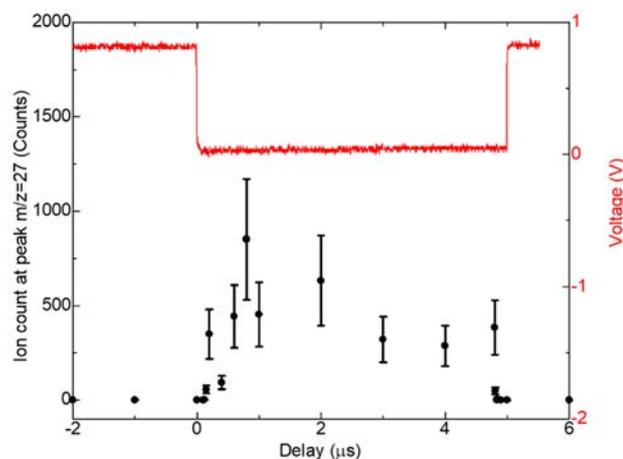


図3.2-8 レーザー発振タイミングによるAl強度の変化

3.2.2 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

(1) 令和3年度までの概要

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・発振波長領域などの基本特性を明らかにした。

従来の Ti:Sa レーザーでは、基本波と倍波の切り替えは、光学結晶やアウトプットカップラー（基本波の出射口）を手動で交換する必要があったため、迅速な波長切り替えが困難であった。そのため、光学結晶を自動ステージ上に載せて、基本波と倍波が自動で迅速に切り替え可能な機構を設計し、波長切り替えの検証を行った。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

単原子は元素固有の離散的なエネルギー準位を有しており、準位間のエネルギー差に相当する波長のレーザー光を照射することで、下準位にある原子が共鳴的に励起する。このような遷移を複数組み合わせる（共鳴イオン化スキーム）と、対象とする元素の原子のみを高効率かつ選択的にイオン化できる。

グレーティング型Ti:Saレーザーは波長可変で安定かつ高繰り返し率での動作が可能であり、共鳴イオン化に適した光源として知られている。対象となる元素の原子を高効率に共鳴イオン化するには、2台のTi:Saレーザーの基本波（波長 700～950 nm）と第2高調波（SHG、波長 350～475 nm）を組み合わせた共鳴イオン化スキームを用いることが不可欠である。そこで、レーザー共振器内の1つのミラー位置の切り替えで基本波とSHGの両者を瞬時に切り替えることが可能な高繰り返し率グレーティング型Ti:Saレーザーを開発した。共振器はブリュースターカットされたTi:Sa結晶を囲む2枚の凹面ミラーとグレーティング及び出力ミラーで構成される。グレーティングの角度を変化させることで発振波長をチューニングでき、共振器からの出力の一部を波長計に導入し、波長読み取り値を用いてグレーティングの角度にフィードバック制御することで、共鳴線幅以下の不確かさで波長制御が可能である。光共振器内に設置されたミラー位

置を切り替えるユニットにより基本波発振モードとSHGモードを瞬時に切り替えることができる。SHGモードにおいては、共振器内に設置された非線形光学結晶（BBO）によりSHGを生成できる。

令和3年度に設計した多元素迅速分析用Ti:Saレーザーを構築し、特性を評価した。図3.2-9に構築した多元素迅速分析用Ti:Saレーザーの写真を示す。

元素の迅速な切り替えのための制御系として、基本波/SHG切り替え機構（ミラー駆動機構）の制御系を構築した。外観を図3.2-10に示す。ボタン操作により、ミラーが移動し、基本波とSHG出力を切り替えることができた。

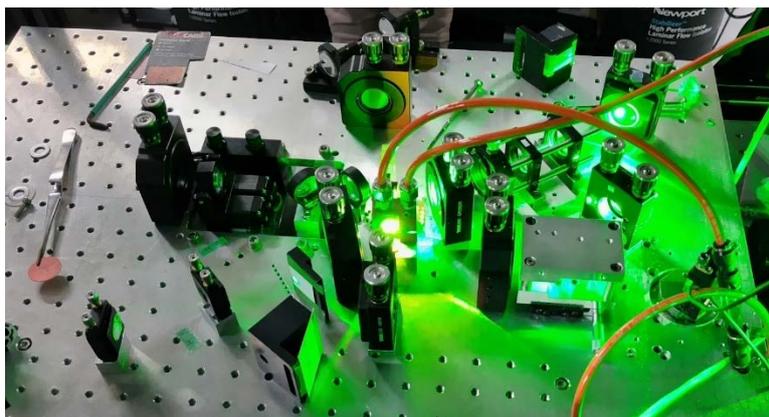


図3.2-9 構築した多元素迅速分析用Ti:Saレーザーの写真



図3.2-10 基本波/SHG切り替え機構（ミラー駆動機構）の制御系の外観

本レーザーを用いて、3種類元素（Ca, Sr, Yb）を含む混合溶液をTa箔に滴下・乾燥させ、グラファイトチューブを用いた抵抗加熱原子源により原子化させた。多元素迅速分析用Ti:Saレーザーと（既存の）グレーティング型Ti:Saレーザーの波長をCaの2色共鳴イオン化スキームの1段目と2段目にチューニングし、その後原子源を加熱しながら、Sr, Ybのスキームに切り替えて質量スペクトルと共鳴スペクトルを取得した。用いたCa, Sr, Ybの共鳴イオン化スキームを図3.2-11に示す。それぞれの質量スペクトル共鳴スペクトルの一例を図3.2-12～図3.2-14に示す。本レーザー光源にて共鳴イオン化スキームに対応した波長に順次切り替えることで、2～3の元素を順次切り替えて共鳴イオン化が実現できることを確認した。

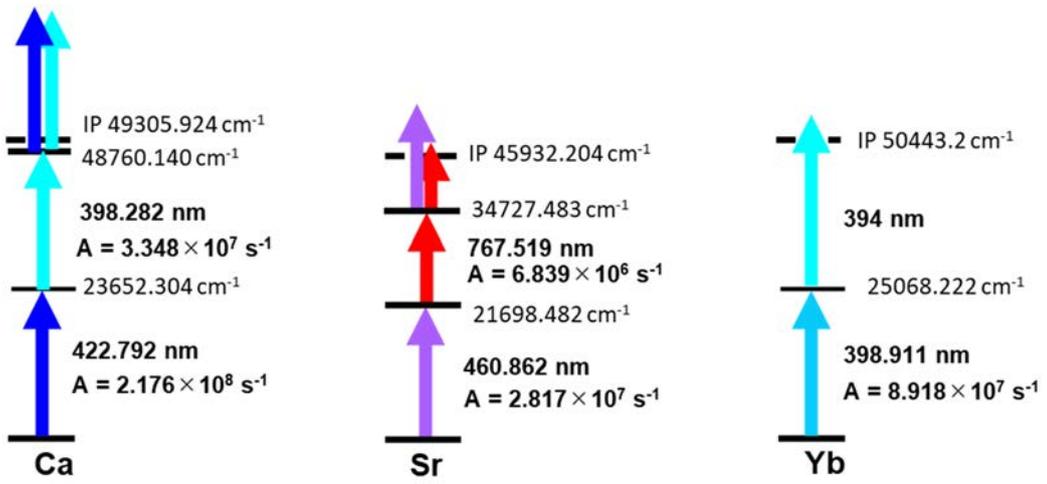


図 3.2-11 Ca, Sr, Yb の共鳴イオン化スキーム

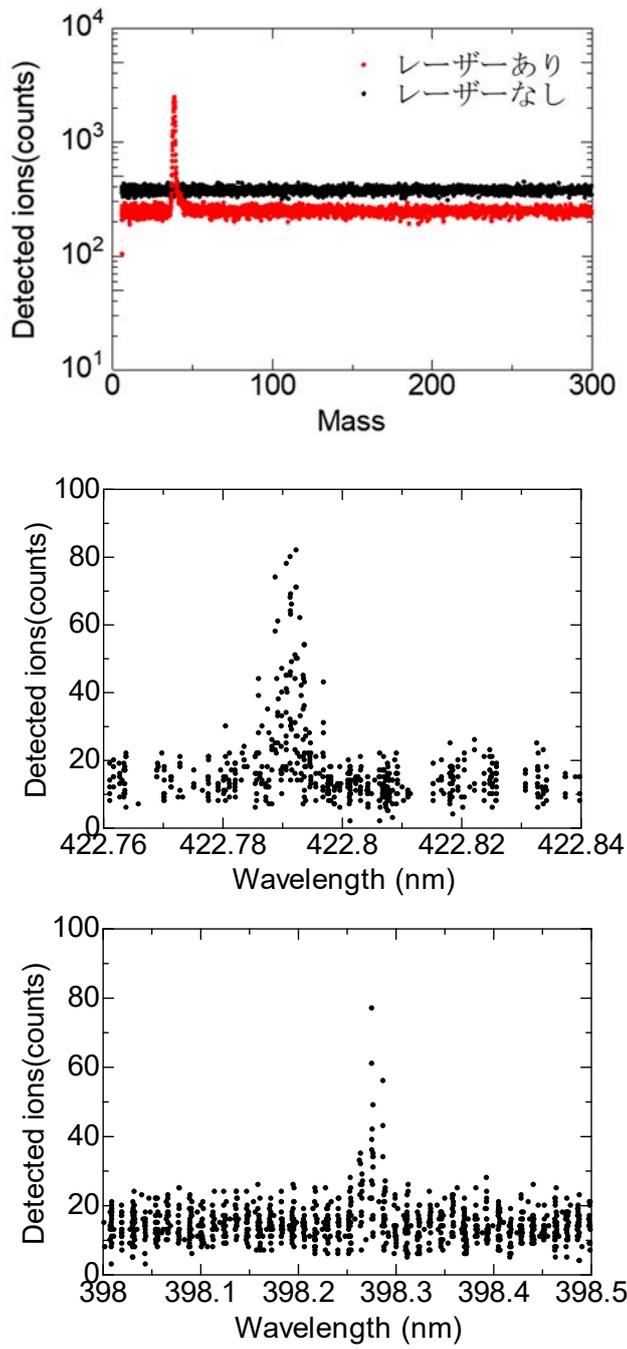


図 3.2-12 Ca の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、
2 段目の共鳴スペクトル(下)

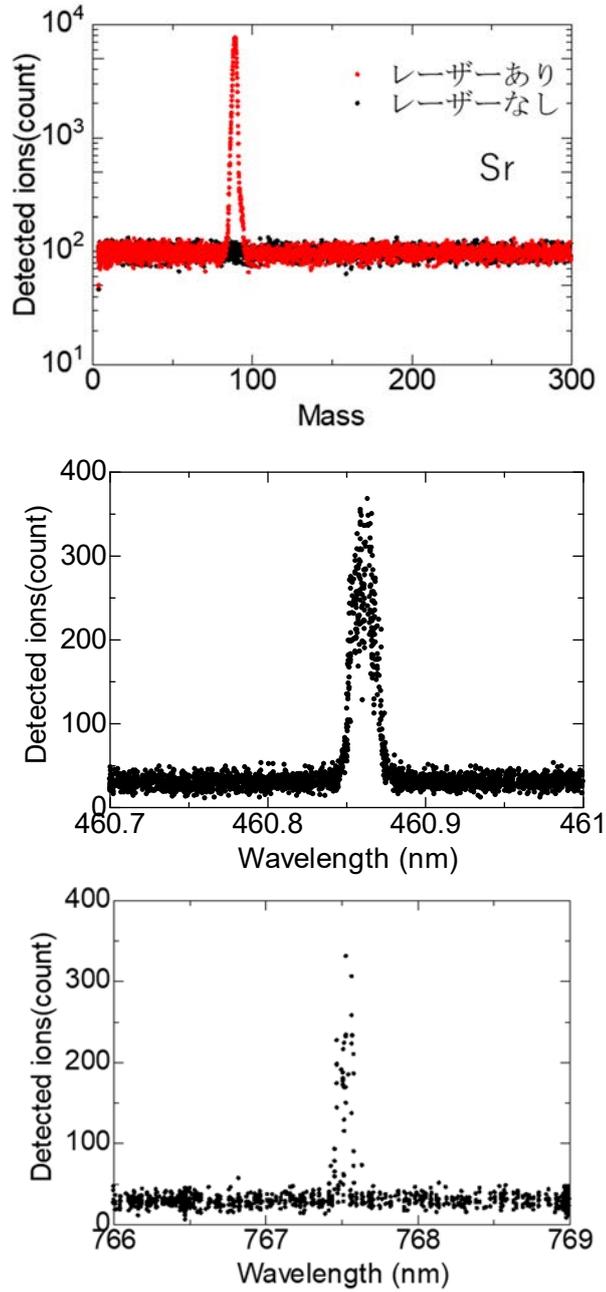


図 3.2-13 Sr の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、
2 段目の共鳴スペクトル(下)

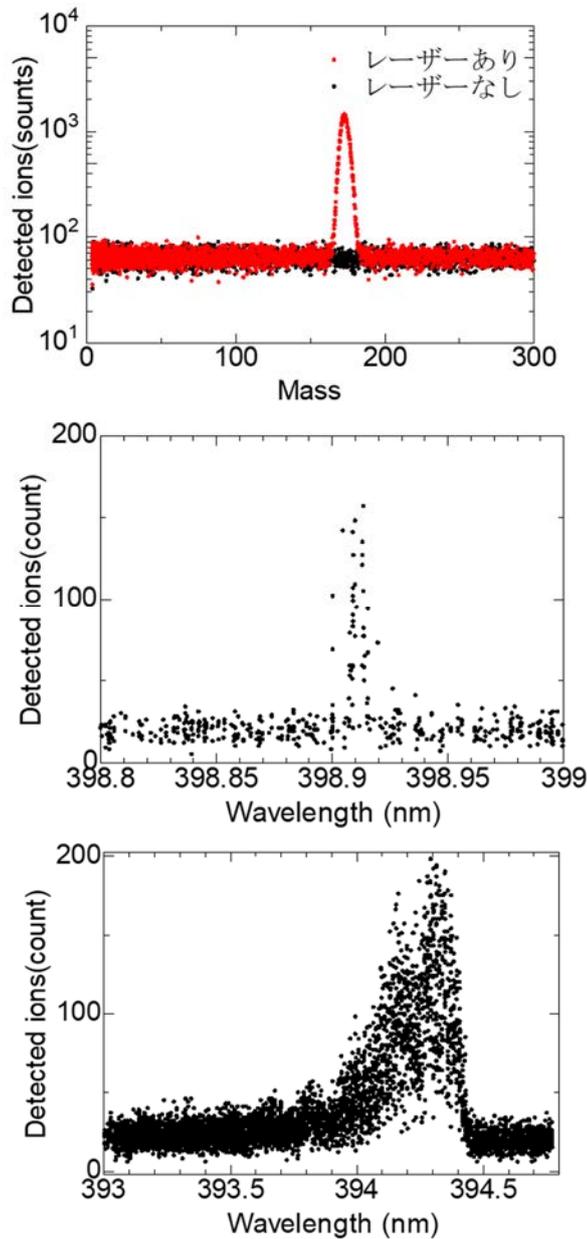


図 3.2-14 Yb の質量スペクトル(上)、1 段目の共鳴スペクトル(中)、2 段目の共鳴スペクトル(下)

また、波長切り替えに伴い、レーザー光軸・プロファイル等が変化する。そこで、その補正法の開発に着手した。このため、波長切り替えに伴う基本波・SHG の光軸を一致させることを容易にするために、SHG 出力を基本波出力の方向と同じとするようにした。図 3.2-15 に基本波／倍波切替時の出射方向を示す。なお、Ti:Sa レーザーの構築に関しては、名古屋大学は工学院大学と協議して実施した。

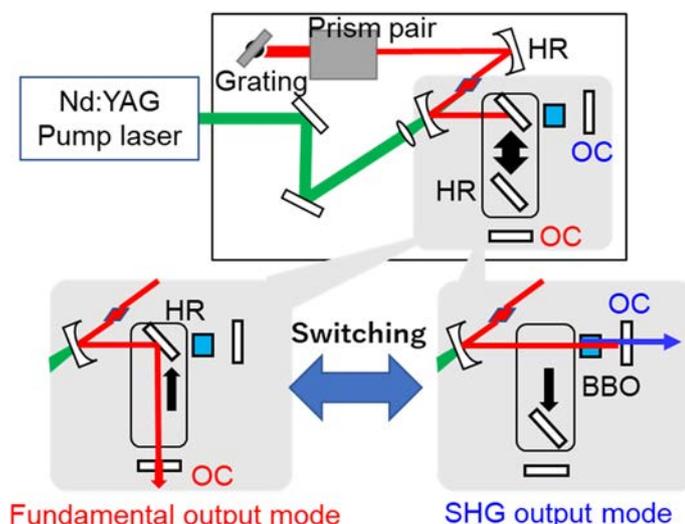


図 3.2-15 多元素迅速分析用 Ti:Sa レーザーの基本波/倍波切替時の出射方向

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

(1) 令和3年度の概要

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。本事業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 大洗研究所、JAEA・CLADS のサポートを受け実施した。

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教育コンテンツを作成した。令和4年3月1日に zoom によるオンライン講演会「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」を実施し、難分析核種を対象とした分析手法を発信する機会を設けた。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

令和3年度に作成した教育コンテンツを用いて、名古屋大学大学院工学研究科の大学院生や若手技術者への講義を実施した。また、令和5年3月 JAEA に名古屋大学大学院工学研究科修士課程学生を派遣し、レーザーのセットアップ等を通じた技術研修(2日間)を実施した。

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。イオンビームによって生成した中性原子に対して、質量スペクトルの取得に成功した。これを基に、同位体マイクロイメージング装置と同様に、イオンビームスパッタリング原子に対し、様々なイオン化スキームの開発を行っていく準備ができた。また、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2高調波の切り替え機構の開発に成功した。共鳴イオン化は同重体干渉を防ぐ意味で大変有用であるが、裏を返せば、同時には一つの元素種しかイメージングできない。今回の成果を用いれば、イメージング中にレーザーの波長を切り替え、実質的に複数の元素・同位体について同重体干渉を防いだ同位体イメージングが可能となると考えられる。

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：東電 HD）

(1) 令和 3 年度までの概要

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 1F・2 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。

JAEA 大洗研究所において実施した 1F 実機サンプル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。その結果、SEM、TEM、SIMS 分析間で試料が相互に融通できる仕組みが機能しており、実際に TEM、SIMS で同一視野での分析が実施できることを確認した。TEM による組成分析、結晶学的分析と SIMS の同位体分析の組み合わせることは、1F 実機サンプルの評価に非常に有効と考えられる。また、検出核種の観点からは、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}U のみ検出され ^{235}U は検出されなかった。これは質量スペクトルのバックグラウンドが高いという装置の問題によるものであり、 ^{238}U に対し、1 %程度と少量の含有であるが ^{235}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と評価した。

(2) 令和 4 年度実施内容及び成果

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、東電 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^[1,2,3,4,5]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、本課題の 1F 実機サンプル分析に適していると考えられるため、令和 3 年度に引き続き、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 4 年度は令和 3 年度に引き続き 1F・2 号機 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ア	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
1	SGTS 室床面スミア	2020年12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
2	PCV 貫通部 (X-6) 調査装置付着物	2020年12月
2	原子炉ウェル内調査試料	2021年4月
2	PCV 貫通部 (X-53) 付着物	2021年9～10月
2	オペレーティングフロアウェルプラグ穿孔内堆積物	2021年8月
2	オペレーティングフロア FHM 操作室調査試料	2022年8月
2	SGTS 室調査試料	2021年1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
3	RHR 熱交換器 (A) 残水	2021年12月

JAEA 大洗研究所において実施した 1F 実機サンプル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。1F・2号機 PCV 内部調査装置付着物 (CRD レール上堆積物) のサンプル上に見つかった 300 μm 程度の粒子について分析が実施された。分析は FIB で加工し断面を削りながら実施され、Al, Cr, Fe, Zr, U に着目したマッピング像が加工前、1回～7回加工後の計 8 回について取得されていることを確認した。

これまで 1F の放射性微粒子に着目した分析では、SEM-EDS/WDS で微粒子を探索し FIB で薄膜試料片を作成した上で TEM-EDS を用いた分析を行うことから 2 次元的な結果であったが、今回取得されたマッピング像は FIB 加工を進め断面を出した上での分析を行っていることから 3 次元的な情報が取得されている。図 3.3-1 に加工前、2 回加工後、4 回加工後の Al, Fe の分布を示す。加工前の像では粒子の外形に一致した形で Fe, Al が強く検出されている。一方、加工が進み粒子が削られた後に取得された像 (加工 2 回目～6 回目) では、Al が粒子外形の付近に強く検出されている。一方、Fe は粒子外形だけでなく FIB 加工で露出した粒子内部にも検出されている。このことから、Fe と Al が異なる経路をたどった可能性があり、例えば Al が粒子表面に蒸着されるような生成プロセスをたどった可能性がある。このように本手法に得られる 3 次元的な情報は、粒子の構造の理解に役立ち、粒子の生成プロセスを検討する際に有効であると考えられる。

また、燃料棒成分である U 及び Zr に着目すると両者はほぼ同じ位置で検出されている (図 3.3-2)。1F サンプル中の粒子で広く見られる U, Zr の酸化物を含む可能性が高いと考えられるが、U, Zr の組成比等についてより定量的に整理することができれば評価に役立つと考えられる。また、次年度は安全性に関わる要素として、唯一 SIMS で検出可能な B についても、JAEA 大洗研究所で分析を行い、レビューする予定である。

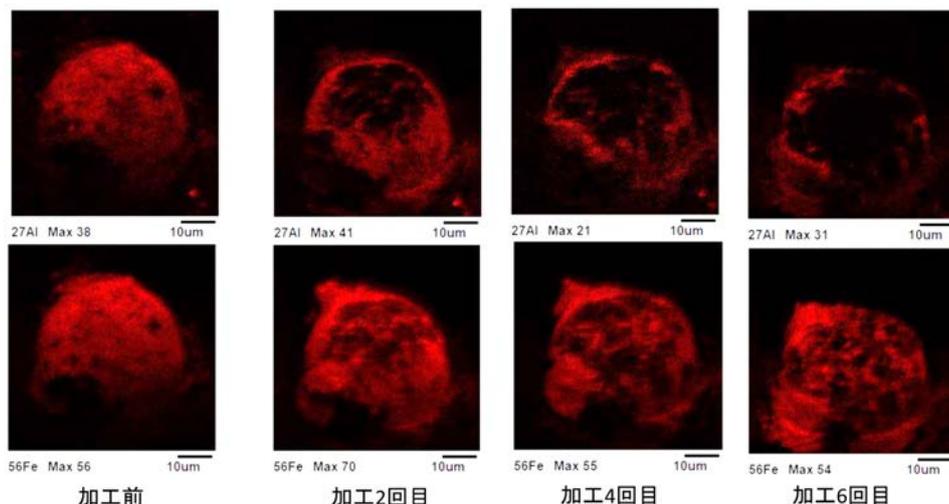


図 3.3-1 マッピング像 (Al, Fe)

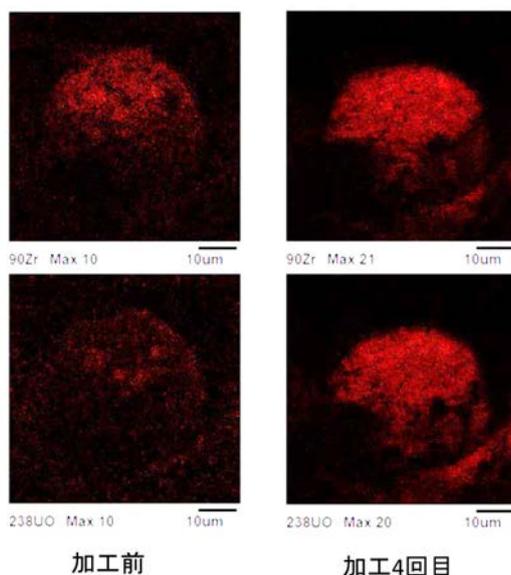


図 3.3-2 マッピング像 (Zr, U)

また、1F・2号機PCV内部調査装置付着物(CRDレーン上堆積物)上の局所U同位体測定結果から評価されたU濃縮度は2.498%($^{235}\text{U}/^{235}\text{U}+^{238}\text{U}$ 、測定3回の算術平均値)、標準偏差0.0007294であった。1箇所のデータであるものの、約2.5%の濃縮度は、BWR燃料には意図的に濃縮度の分布がつけられていることを踏まえると、事故当時の1F・2号機の炉内装荷燃料の濃縮度の平均値約2%と整合する値である。これまで1F実機サンプル分析で実施されているICP-MSによる ^{235}U 、 ^{238}U の濃度測定では、高精度であるもののスミア等で採取されたサンプルの一部を溶解して分析していることから、サンプル内での平均化した情報が得られる。本手法は粒子ごとの濃縮度、あるいは粒子内の濃縮度分布を知ることができる可能性があり、事故進展の過程でUの拡散がどの程度進んだか等の情報が取得できることが期待できる。またU濃縮度は、燃料由来のサンプルを評価する上で、臨界等の観点からも重要なパラメータの一つである。

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

昨年度に引き続き 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 1F・2 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

(1) 令和3年度までの概要

JAEA 大洗研究所・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。

また、少量燃料デブリ等の分析のための必要な許認可手続きを完了(FMF の核燃料物質使用変更許可申請、装置の使用前確認申請等)した。これにより当該装置を用いた 1F 汚染サンプル(核燃料物質で汚染されたもの)、少量燃料デブリ(核燃料物質)の同位体分析(ホット分析)が可能になった。ホット分析(核燃料物質等の使用)のための試料交換時に必要なグリーンハウスを整備することで、周辺環境への汚染拡大を防止できるようになった。名古屋大学と工学院大学で開発中の光軸自動調整機構を一時的に設置して、共鳴レーザー機構の改良に関する基本動作や今後の改良点に関する確認を行った。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

令和3年度に引き続き、JAEA 大洗研究所・FMF の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行った。また、同位体マイクロイメージング装置の耐放射線性や遠隔操作性等を向上させるため、工学院大学で開発した機能を当該装置に組み込み、機能評価を行った。

① 共鳴イオン化レーザー機構の改良

JAEA 大洗研究所に設置されている共鳴レーザー機構にインターロックシステムを組み込み、エンドユーザー向けの安全対策強化に係る改良を行った。具体的には、図 3.4-1 に示す緊急停止用のスイッチを共鳴レーザー機構に組み込み、万が一の緊急事象が発生した際に、即座にレーザーの発振を停止できるシステムを構築した。

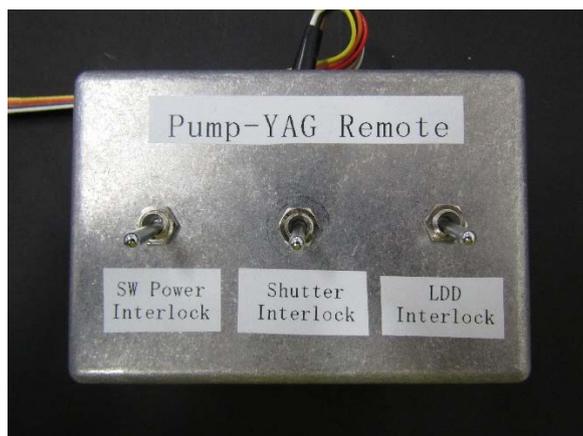


図 3.4-1 緊急停止用のスイッチ

② 検出器への耐放射線対策に係る装置整備

本研究で用いた同位体マイクロイメージング装置は TOF-SIMS である。TOF-SIMS では、装置の分析室に導入した試料に対して付属のイオン銃による 1 次イオンビームを照射し、試料から発生した 2 次イオンをフライトチューブ内で一定距離飛行させ、検出器に到達する時間を計測

する(図 3.4-2 参照)。当該装置の検出器にはマイクロチャンネルプレート(Micro-Channel Plate : MCP)を用いており、MCPへ到達した2次イオンが電子として増幅され、制御PCに内蔵されているアナログ/デジタル変換器(ADC)を介して信号として検出される。試料からの信号を検出するには、1次イオンビームを試料に照射させ、発生した2次イオンを検出器へ到達させるためにフライトチューブ内の電極に電圧を印加させる必要があることから、通常、分析室に試料を導入しただけでは検出器の電源を入れたとしても信号は検出されることはない。ただし、測定対象の試料が本研究で用いる1F汚染サンプル等の高線量の放射線を放出する場合、試料が分析室にあるだけの状態においても、検出器の電源を入れると信号が検出されることが考えられる。これは、試料から放出される放射線(主に飛程が長い γ 線)がフライトチューブを経由せず、分析室の真空チャンバー及びMCPを固定するフランジ(以下「MCPフランジ」という。)を透過して直接検出器へ到達するためである。ここで検出される放射線による信号は、ノイズとして取得するスペクトル上に現れることから、試料の分析における測定データの精度を低下させ、装置の検出限界に影響を及ぼすことが懸念される。そこで本年度は、高線量の試料を同位体マイクロイメージング装置で分析する際の検出器への耐放射線対策として、工学院大学で設計製作された放射線シールド材を装置の検出器周辺へ設置できることを確認し、放射線シールド材による検出器への放射線の遮蔽効果の評価を行った。

まず、工学院大学で設計製作された放射線シールド材をJAEA大洗研究所の同位体マイクロイメージング装置の検出器周辺に設置した。その様子を図3.4-3に示す。図3.4-3に示すように、放射線シールド材が既存のケーブルやフランジ等に干渉することなく装置へ設置可能であることが確認できた。放射線シールド材は鉛のブロックを60mmの厚さで加工したものであり、MCPフランジに対して2つ固定器具によって垂直に吊り下げる形で設置する構造となっている。放射線シールド材の設置箇所については、装置分析室の真空チャンバー(材質:SUS304、厚み:20mm)と放射線シールド材(材質:鉛、厚み:60mm)及び分析室内の試料台から検出器間の立体角(0.007 sr)による放射線の減衰率を考慮して設計された(図3.4-4)。なお、放射線の減衰率(I/I_0)は式(3.4-1)に基づいて算出し、SUS304及び鉛の質量減弱係数 μ をSUS304 : 0.073、鉛 : 0.11、 ^{137}Cs を主たる γ 線源(0.66 MeV)と仮定して計算した。ここで、 I は透過した線量、 I_0 は入射した線量、 p は密度、 x は厚みである。

$$I = I_0 e^{-\mu p x} \quad \text{式 (3.4-1)}$$

放射線シールド材の設置により、検出器上での総合的な放射線の減衰率は1/4,800,000程度になると想定される。これにより、許可上、JAEA大洗研究所の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最大放射エネルギーである37 MBqの試料を用いた場合においても、10分間の分析で検出される放射線由来のノイズが1カウント以下になると考えられる。

放射線シールド材の設置を確認した後、設置した放射線シールド材による放射線の遮蔽効果についての評価を行った。具体的には、線量が既知である標準点線源をMCPフランジの周辺に近づけ、その際に検出器によって検出された放射線由来のノイズの測定を行った。ここで、測定に用いた標準点線源は1970年に日本アイソトープ協会から購入した ^{137}Cs の標準ガンマ線源であり、測定時における放射能は約1.1 MBqである(図3.4-5参照)。また、今回の測定では、標準点線源をMCPフランジに近づけた際に得られた信号のカウント数とブランク測定によって得られた信号のカウント数(バックグラウンド値)の差を放射線由来のノイズのカウント数として取り扱っている。また、放射線由来のノイズ測定は、MCPフランジに放射線シールド材を取り付けていない状態と取り付けた状態の2通りにおいて実施した。

まず、放射線シールド材を MCP フランジに取り付けない状態での測定を行った。この測定においては、図 3.4-6 のように、MCP フランジ中央部の真下に一定の間隔(0 cm, 3 cm, 6.5 cm, 7.5 cm, 9 cm) でいくつかのポイントを設け、各ポイントに標準点線源を一定時間近づけた際に検出される放射線由来のノイズを測定し、標準点線源の設置位置と検出カウン트의相関を確認した。その結果を図 3.4-7 に示す。図 3.4-7 において、赤色の実線が放射線由来ノイズのカウント数であり、青色の実線がバックグラウンド値である。MCP フランジと標準点線源の距離が最も近い条件(距離: 0 cm) においてノイズのカウント数が最も多くなり、検出器からの標準点線源を遠ざけるにつれて、ノイズのカウント数が減衰していく傾向が確認できた。また、ノイズを測定したいずれのポイントにおいても、ノイズのカウント数がバックグラウンド値を上回ることを確認できた。今回測定に用いた標準点線源の放射エネルギーは約 1.1 MBq であるが、許可上、同位体マイクロイメージング装置で使用可能な最大放射エネルギーは 37 MBq である。そこで、今回取得した各測定ポイントにおける放射線由来のノイズカウント数を 37 倍することで、約 37.7 MBq の線源を使用したことに相当するノイズカウント数として評価を行った。図 3.4-7 に示す茶色の破線が、約 37.7 MBq の線源を使用した際に検出されると予想される放射線由来のノイズのカウント数に対して、放射線シールド材による放射線の減衰率(1/1000 倍)を考慮して表したものである。茶色の破線で示したノイズのカウント数は、ノイズを測定するいずれのポイントにおいてもバックグラウンド値を下回ることが確認できた。また、実際の分析時においては、分析試料(放射線源)が装置分析室内にあるため、分析室の真空チャンバーによる放射線の減衰及び分析室の試料と検出器の立体角による放射線の減衰を考慮すると、MCP で検出される放射線由来のノイズのカウント数はさらに低減すると考えられる。

次に、実際に MCP フランジに放射線シールド材を取り付けた状態で測定を行った。この測定では、MCP フランジに取り付けた放射線シールド材中央部の真下(放射線シールド材との距離: 0 cm, MCP フランジとの距離: 6.5 cm) に標準点線源を一定時間近づけた際に検出される放射線由来のノイズを測定した。その結果を図 3.4-7 の緑点で示す。図 3.4-7 の緑点におけるカウント数は 0 以下であることが確認できる。上記で述べたように、放射線由来のノイズのカウント数は標準点線源を MCP フランジに近づけた際に検出される信号と、バックグラウンド値の差として算出している。カウント数が 0 以下であるということは、MCP フランジに放射線シールド材を取り付けた状態での測定において、バックグラウンド値以外の信号が検出されなかったことを意味している。このことから、放射線シールド材に標準点線源を最も近づけた場合においても、放射線シールド材の遮蔽効果により、放射線由来のノイズは検出されないことが確認できた。

以上のことから、MCP フランジへの放射線シールド材の取り付け確認及び標準点線源を用いたノイズ評価を通して、1F 汚染サンプルや少量燃料デブリといった高線量試料を分析する際に問題となる、同位体マイクロイメージング装置の耐放射線性が向上したことを確認できた。

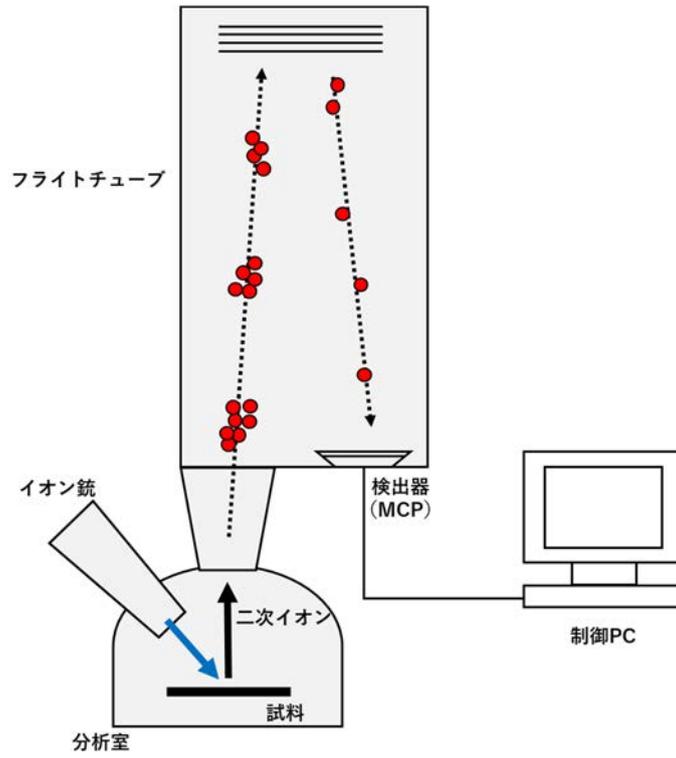


図 3.4-2 TOF-SIMS の検出原理



図 3.4-3 設置した放射線シールド材の様子

質量分析器 (TOF-MS)

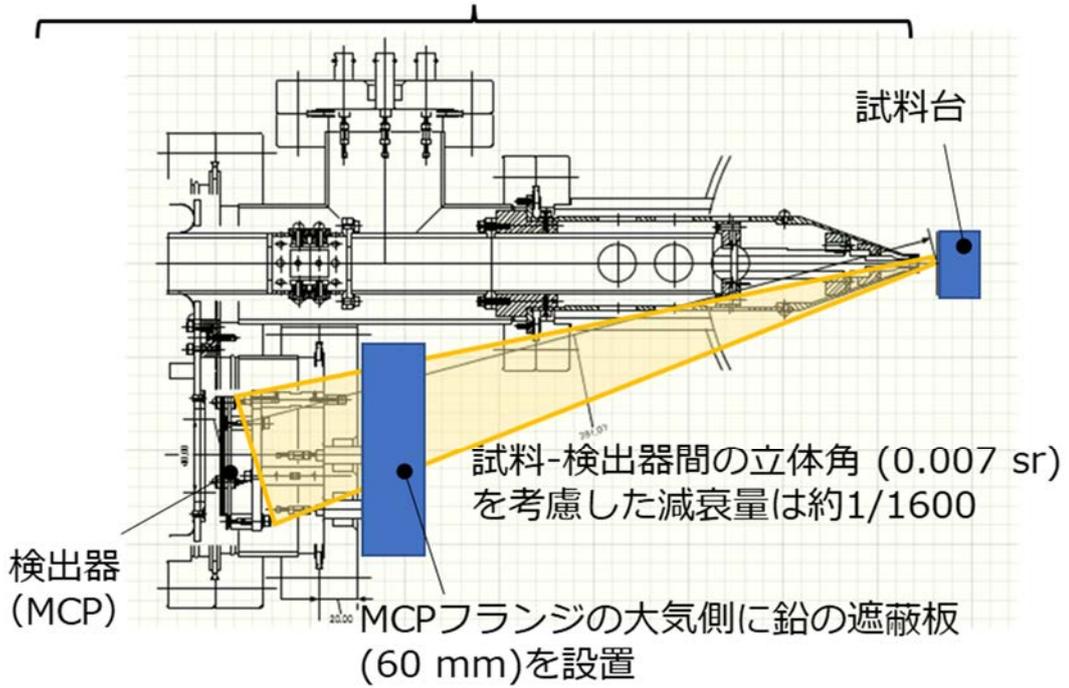


図 3.4-4 放射線シールド材による放射線の減衰イメージ



図 3.4-5 使用した標準点線源



図 3.4-6 標準点線源をポイントに設置している様子

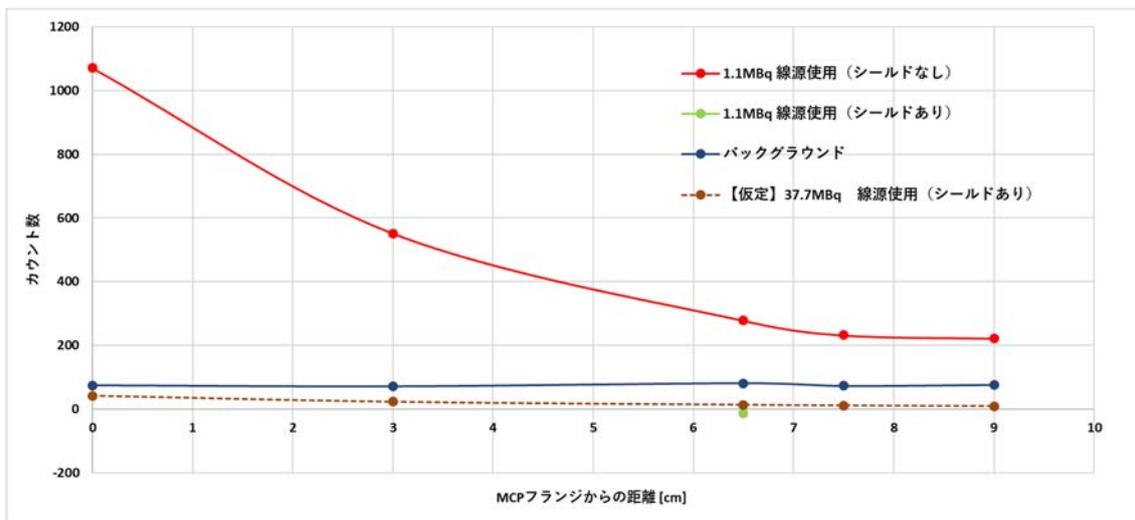


図 3.4-7 放射線由来のノイズ測定の結果

③ 試料交換時の遠隔操作性に係る装置整備

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（ホット分析）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。令和 3 年度は試料交換時における万が一の汚染拡大防護対策として、当該装置専用のグリーンハウスの製作と設置を行い、安全にホット分析が行える放射線防護対策を施した。また、令和 3 年度において工学院大学では、上記ホット分析における試料交換作業時の防護対策をより一層向上させるとともに、試料輸送の過程における万が一の試料紛失及び汚染拡大を最小限の範囲に抑えることが可能となる、

可搬型アイソレーションボックス(以下「試料ホルダー」という。)と試料輸送機構が設計製作された。そこで、令和4年度は工学院大学で設計製作された試料ホルダーと試料輸送機構を JAEA 大洗研究所の同位体マイクロイメージング装置に組み込みが可能であることの確認を行い、実際に一連の試料交換作業を通して、試料ホルダーと試料輸送機構の性能評価を行った。

まず、試料ホルダーの外観を図 3.4-8 に示す。試料ホルダーは、専用のアルミペレット上に調整した試料を固定する「試料固定部」と「蓋部」から構成される。また、蓋部の内側にはねじ切り加工が施されており、試料固定部のねじ溝に合わせて蓋部を回転させることで、試料固定部と蓋部を合体させることができる(図 3.4-9 参照)。試料ホルダーの合体により内部は密閉された状態となり、この状態のまま試料ホルダーを輸送及び装置の試料交換室へ導入作業を行うことで、万が一の試料紛失及び汚染を試料ホルダー内部に限定することが可能となる。

次に、同位体マイクロイメージング装置に組み込み確認を行った試料輸送機構の構造図と外観をそれぞれ図 3.4-10、図 3.4-11 に示す。試料輸送機構は同位体マイクロイメージング装置の試料交換室の真下に組み込みを行い、ターンバックルと成形ベローズの伸縮により回転導入機の先端部が上下に回転しながら動作する構造となっている。試料輸送機構は、合体した状態で試料交換室に導入された試料ホルダーの蓋部の着脱作業を、真空を引いた状態で大気側から遠隔で行うための機構である。

試料輸送機構を同位体マイクロイメージング装置に組み込みを行った後、試料交換室内での試料ホルダー蓋部着脱作業の動作確認を行った。その様子を図 3.4-12～図 3.4-14 に示す。まず、図 3.4-12 に示すように、合体した状態の試料ホルダーを試料交換室へ導入し、試料交換室の蓋を閉め、真空引きを行った。なお、今回の動作確認に用いた試料は非放射性物質の試料(コールド試料)であるが、ホット分析に使用する試料を用いる場合は、グリーンハウスを設置した状態で上記の交換作業を行う。次に図 3.4-13、図 3.4-14 に示すように、試料交換室内で試料ホルダーを90度回転させ、蓋部を試料輸送機構の回転導入機先端部側に向けた。この状態において、試料輸送機構のターンバックルと成形ベローズを伸縮させ、回転導入機先端部が試料ホルダーの蓋部に接触するように調整を行った。回転導入機先端部と試料ホルダー蓋部にはマイナス溝が掘られており、回転導入機先端部とピッタリ溝がハマる仕様となっている。蓋部のマイナス溝に回転導入機先端部がハマった状態において、回転導入機を蓋部のネジが外れる方向に回転させながら伸縮させることで、試料ホルダーの蓋部と試料固定部の分離が確認された。なお、試料ホルダーの蓋部と試料固定部を合体させるには、上記手順の逆を行えばよく、動作確認の結果、問題なく合体することが確認できた。

次に、実際に線量を持つ試料を用いて一連の試料交換作業を行い、試料ホルダーと試料輸送機構の性能評価を行った。性能評価の方法としては、試料交換作業の前後で試料からの線量当量を測定し、値を比較することで、試料の紛失と汚染拡大がないこと確認した。なお、今回の評価には1F由来の汚染サンプルを用い、カーボン接着テープにより同位体マイクロイメージング装置用の試料マウントに固定した(図 3.4-15 参照)。また、試料からの線量当量測定には、GM 管式サーベイメーター(型式: NSM-152)を用いた(図 3.4-16 参照)。

図 3.4-17 に示すように、GM 管式サーベイメーターを用いて、試料交換前後に試料からの線量当量の測定を行った。その結果、試料交換作業前の測定では試料からの線量が約 4 $\mu\text{Sv/h}$ であったのに対し、試料交換作業後の線量測定では同じく約 4 $\mu\text{Sv/h}$ であった(図 3.4-18 参照)。また、試料交換作業中には、作業者の身体をはじめ、試料交換室内やグリーンハウス内、交換作業に用いた全ての器具に対して都度汚染の確認を行ったが、今回の試料交換作業時には汚染が確認されなかった。このことから、試料交換作業の前後で試料の紛失や汚染拡大はなかったと考えられ、試料ホルダーと試料輸送機構の放射線防護機能が十分であることが確認できた。

以上のことから、試料ホルダーと試料輸送機構が同位体マイクロイメージング装置に組み込み可能であることが確認され、実際のホット分析の際の試料交換時にも、放射線防護対策として十分機能することが確認できた。



図 3.4-8 試料ホルダーの外観

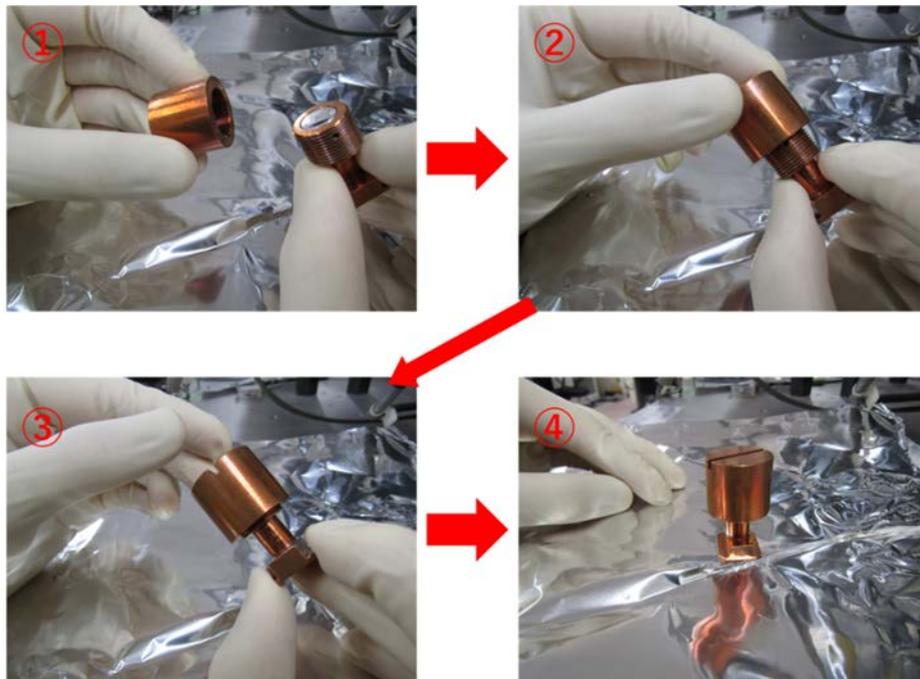


図 3.4-9 試料固定部と蓋部の合体手順

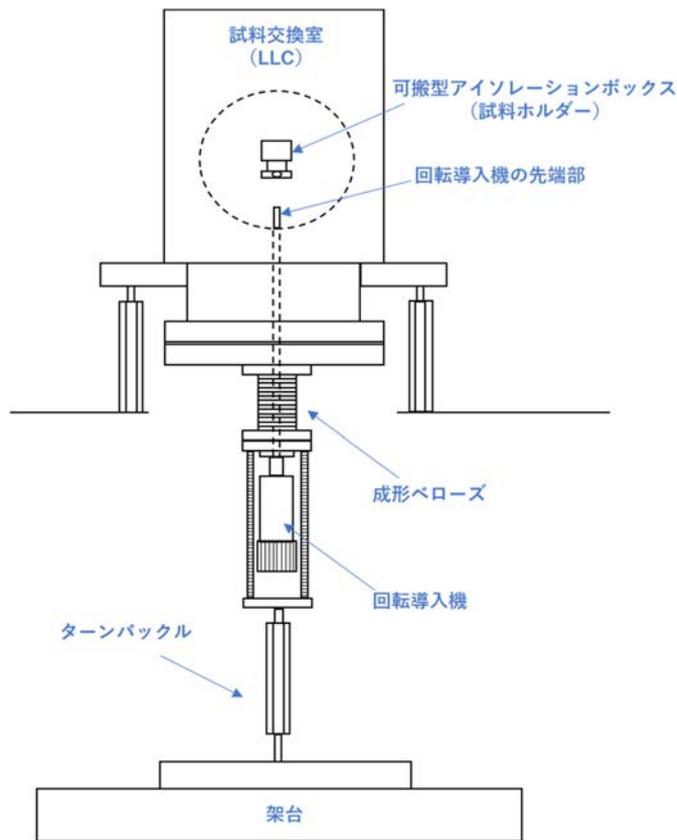


図 3. 4-10 試料輸送機構の構造図

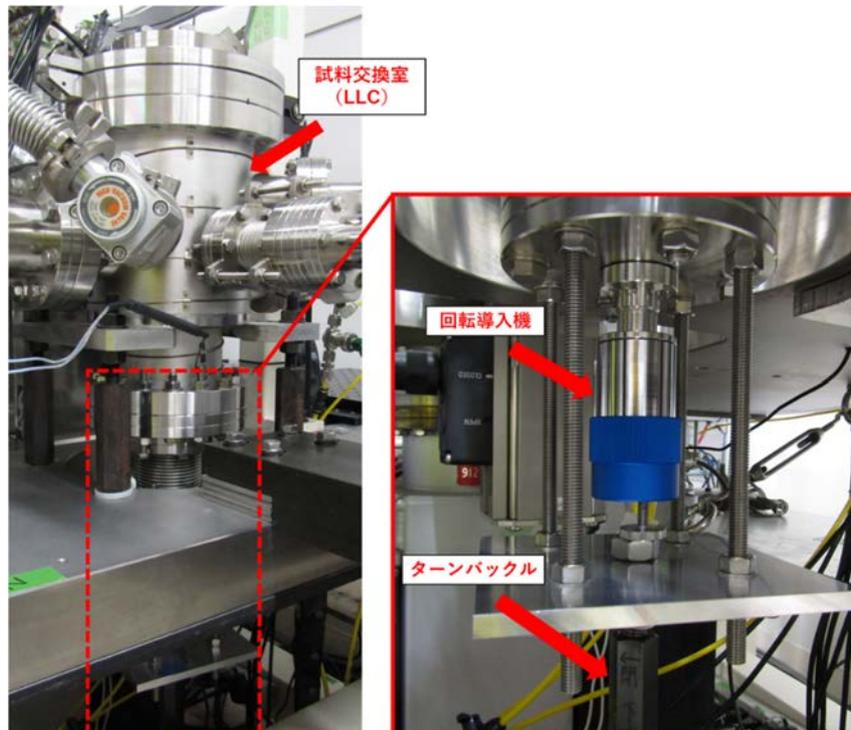


図 3. 4-11 試料輸送機構の外観

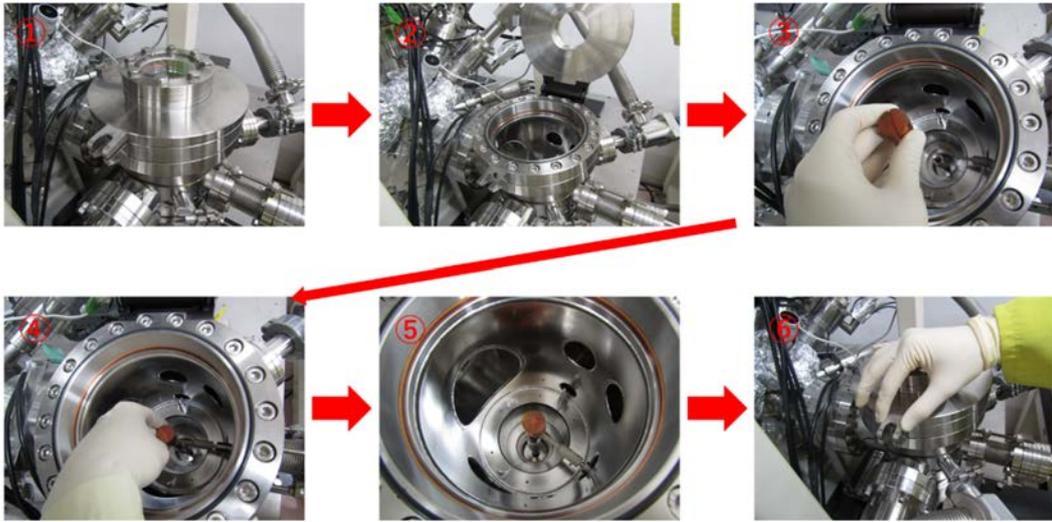


図 3.4-12 試料ホルダーを試料交換室へ導入する様子

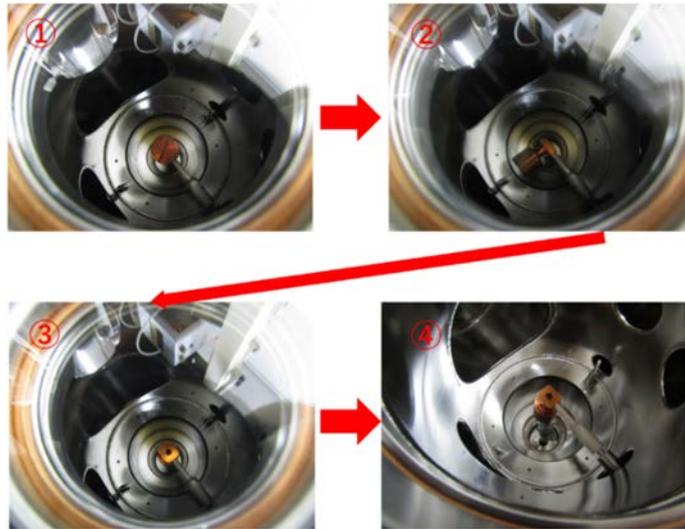


図 3.4-13 試料ホルダーの蓋部着脱の様子 (1)

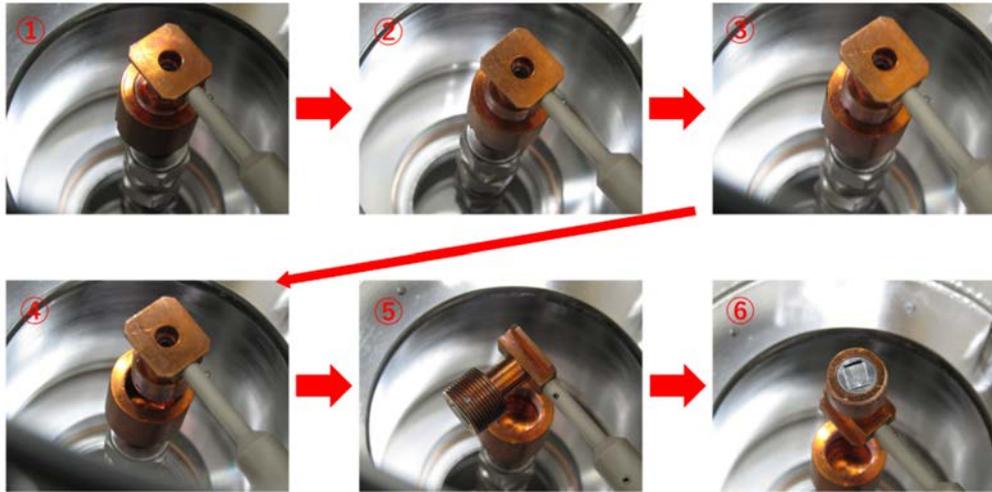


図 3.4-14 試料ホルダーの蓋部着脱の様子 (2)

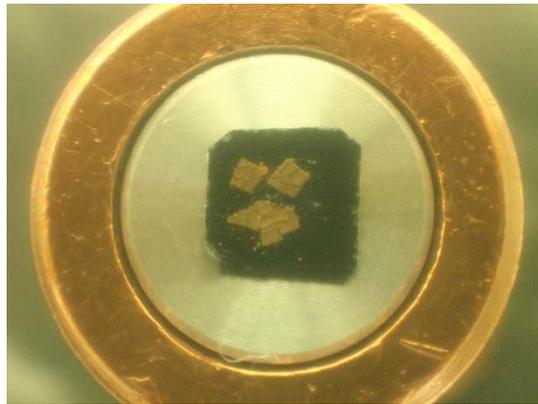


図 3.4-15 評価に用いた 1F 汚染サンプル



図 3.4-16 試料からの線量当量測定に使用した GM 管式サーベイメーター

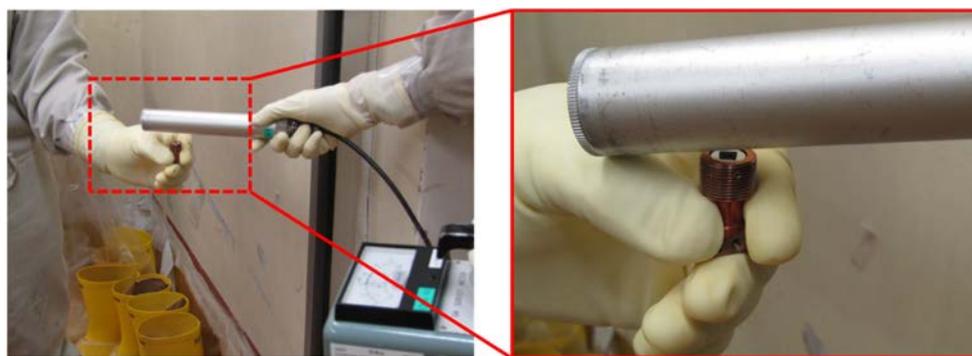
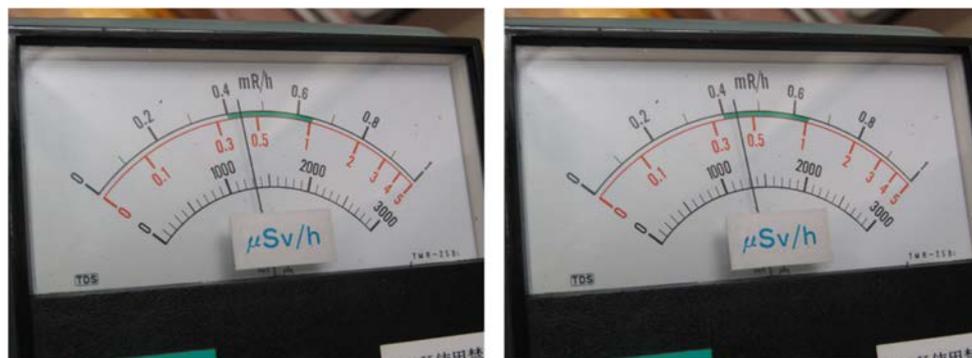


図 3.4-17 GM 管式サーベイメーターによる線量当量測定の様子



試料交換作業前の測定値

試料交換作業後の測定値

図 3.4-18 試料交換前後の線量測定値（測定レンジは×10 で使用）

3.4.2 1F 汚染サンプルの分析

(1) 令和 3 年度までの概要

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、東電 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。

模擬試料を作製 (CeO_2 系) し、模擬試料等を用いて、試料調製から分析までの手法を検討・確認した。SEM⇔SIMS 間の試料移動時の調製作業を省略するための試料ホルダーを製作した。模擬試料の一部は工学院大学へ郵送し、工学院大学の同位体マイクロイメージング装置によって分析を行い、TOF-SIMS モード、R-SNMS モードのそれぞれにおいて、微小視野で、Nd 等の重要核種を含めて同位体の分布が観察できることがわかった。

(2) 令和 4 年度実施内容及び成果

令和 3 年度に引き続き、東電 HD から提供された 1F 汚染サンプルの同位体分析を行った。本年度は装置付属の集束イオンビーム (FIB) による断面加工を行い、サンプル内部の U, Pu, Gd, B, Cs 等の核種組成に着目したデータを取得した。特に、燃料デブリの再臨界評価等に重要な U については、 ^{235}U と ^{238}U の同位体比を評価した。

①1F 汚染サンプルの同位体分析

令和3年度に引き続き、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[6, 7]であり、綿棒の先端にU粒子が付着したものである。綿棒先端を同位体マイクロイメージング装置用の試料マウントに貼り付けたインジウム金属板に押し付けたもの（図3.4-19参照）について、当該装置による同位体分析を実施した。

同位体マイクロイメージング装置によって得られたU含有粒子の2次電子像（SIM像）を図3.4-20に示す。粒子の粒径は約50 μm であり、インジウム金属板に半分ほど埋もれている状態で発見された。この粒子に対して同位体イメージングを行った結果を図3.4-21に示す。粒子表面は主に ^{27}Al と ^{56}Fe に覆われた組成となっていることが確認された。次に、この粒子に対して当該装置付属の集束イオンビーム（FIB）による断面加工を行い、粒子内部の核種組成の分析を行った。FIBによる断面加工は、粒子を輪切りにするようなイメージで7回行い、その都度、断面の同位体イメージングを行った。取得した同位体イメージング像を図3.4-22～図3.4-28に示す。図3.4-22～図3.4-28より、FIB加工前では確認できなかった ^{52}Cr 、 ^{90}Zr 、 $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ が粒子内部に存在することが確認された。また、FIB加工前に確認された ^{27}Al と ^{56}Fe について、 ^{27}Al は断面加工を進めても内部から現れることは確認されなかったが、 ^{56}Fe は内部にも存在することが確認された。加えて、検出核種ごとの色分けにより、粒子内部において、 ^{90}Zr と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ が同じ分布で存在していることが確認された。また、 ^{52}Cr と ^{56}Fe 、 ^{238}U の分布がそれぞれ分離して存在していることが確認された。

次に、7回目のFIB加工断面において取得した、Uのマススペクトルを図3.4-29に示す。図3.4-29より、U、UO、UO₂の信号が検出されることが確認された。また、検出感度については、高い順にUO、UO₂、Uとなっており、 ^{235}U の信号はバックグラウンドに埋もれ、検出されなかった。一方、UOの信号については、 $^{235}\text{U}^{16}\text{O}$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ の信号が検出されることが確認された。同位体マイクロイメージング装置において、 $^{235}\text{U}^{16}\text{O}$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ の検出感度は同等であると考えられるため、 $^{235}\text{U}^{16}\text{O}$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ の信号強度の比から ^{235}U の濃縮度（ $^{235}\text{U}^{16}\text{O} / (^{235}\text{U}^{16}\text{O} + ^{238}\text{U}^{16}\text{O})$ ）を算出することで、同位体比の評価が可能となったと考えられる。また、図3.4.1-28より、マススペクトル上に確認された、 $m/z = 255$ の信号については、 $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ に対して装置分析室に残留する水素が付加した $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+\text{H}$ の信号である可能性と $^{239}\text{Pu}^{16}\text{O}$ の信号である可能性の2通りが考えられた。この信号の正体については、今後、レーザー共鳴イオン化を利用することで解明して行く予定である。

3.4.3 まとめ

以上をまとめると、本年度の同位体マイクロイメージング装置による1F汚染サンプルの分析では、FIBによる断面加工により、粒子内部の同位体組成を評価できることが確認できた。また、Uに着目した分析では、U単体の信号と比較し、化合物であるUO、UO₂の信号が強く検出されることが確認できた。今後は複数のサンプルを測定し、 $^{235}\text{U}^{16}\text{O}$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}$ の信号強度の比から、 ^{235}U の濃縮度の評価を行っていく予定である。加えて、レーザー共鳴イオン化により、分析における同位体比精度を高めていく予定である。



図 3.4-19 分析に用いた試料

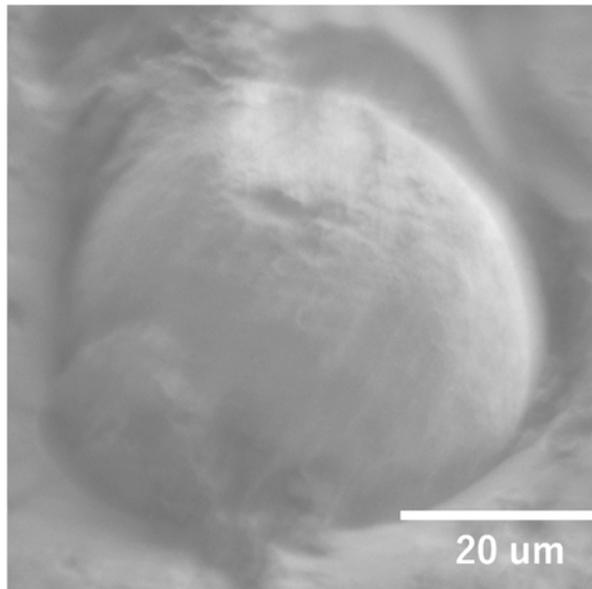


図 3.4-20 U含有粒子のSIM像

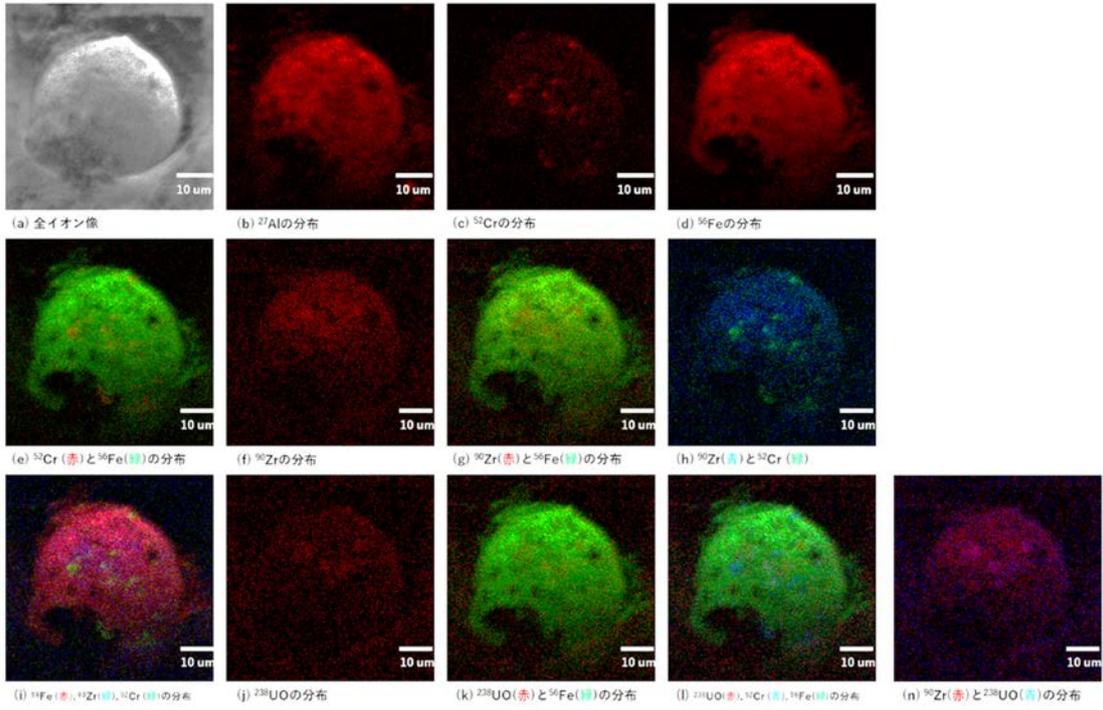


図 3.4-21 同位体イメージング結果 (FIB 加工前)

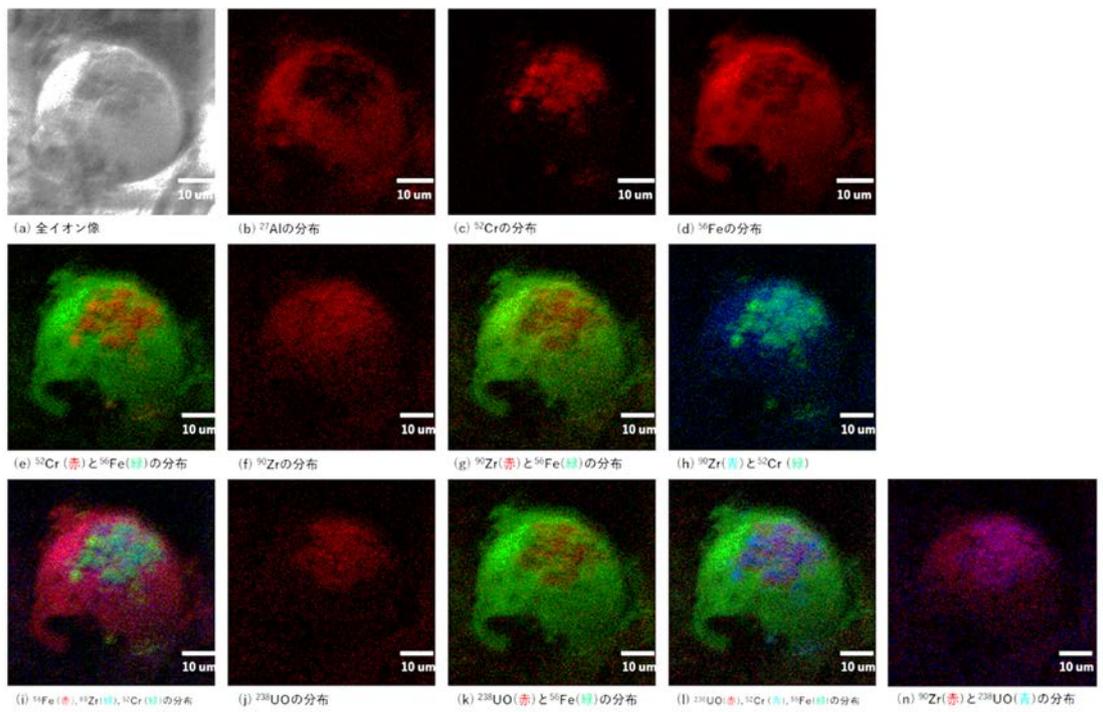


図 3.4-22 同位体イメージング結果 (FIB 加工 1 回目)

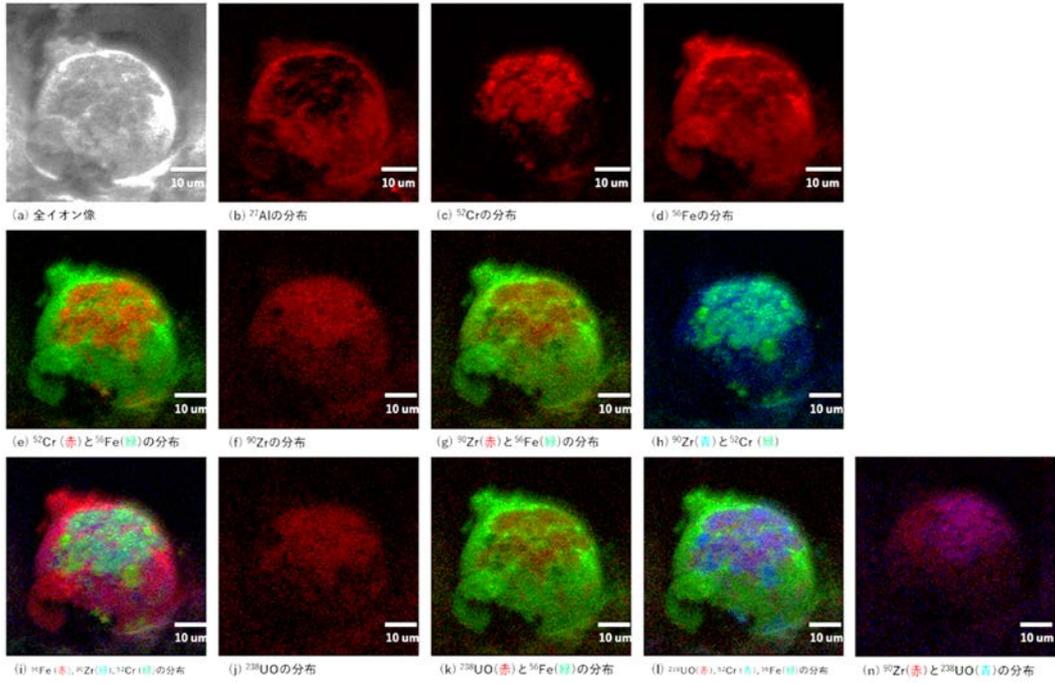


図 3.4-23 同位体イメージング結果 (FIB 加工 2 回目)

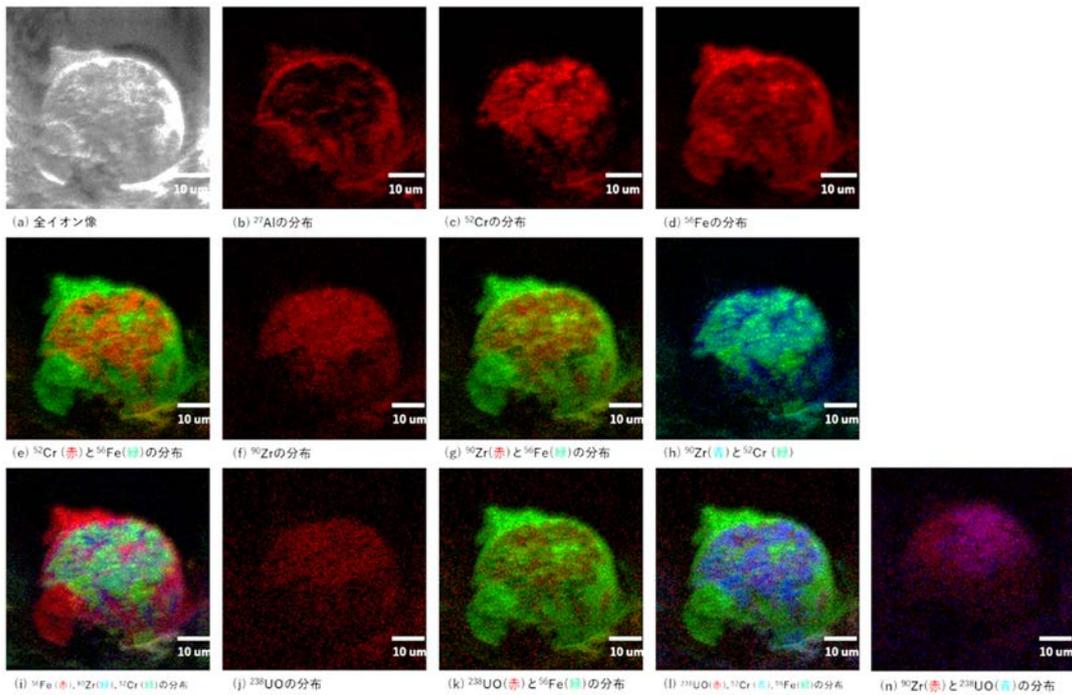


図 3.4-24 同位体イメージング結果 (FIB 加工 3 回目)

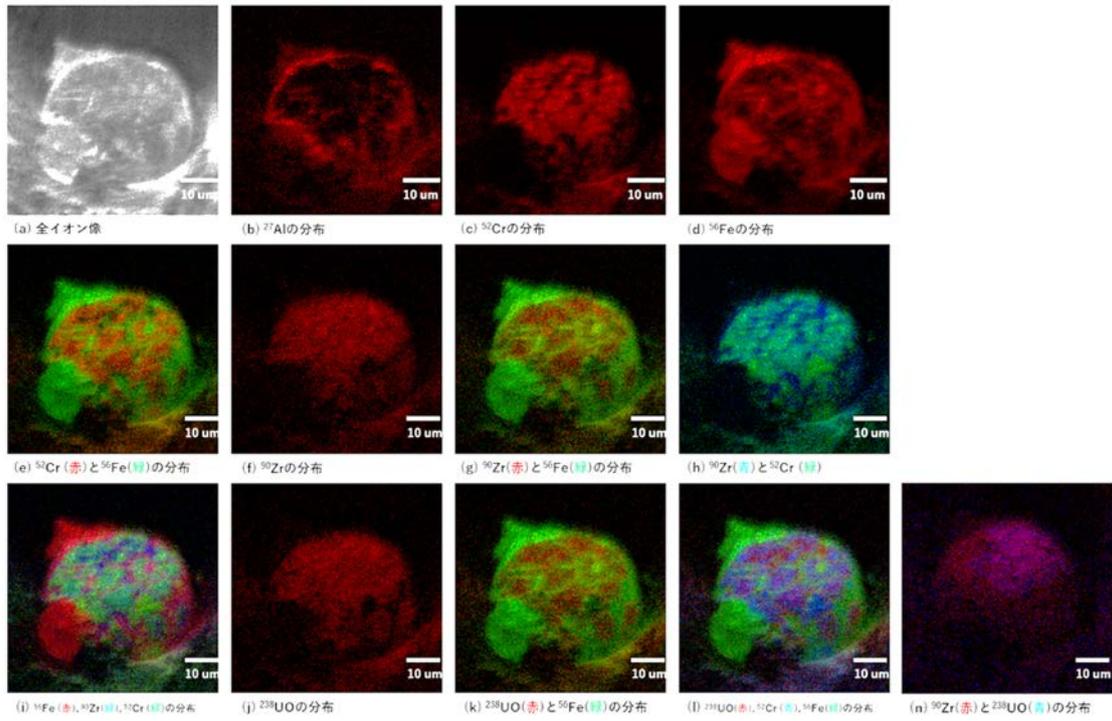


図 3.4-25 同位体イメージング結果 (FIB 加工 4 回目)

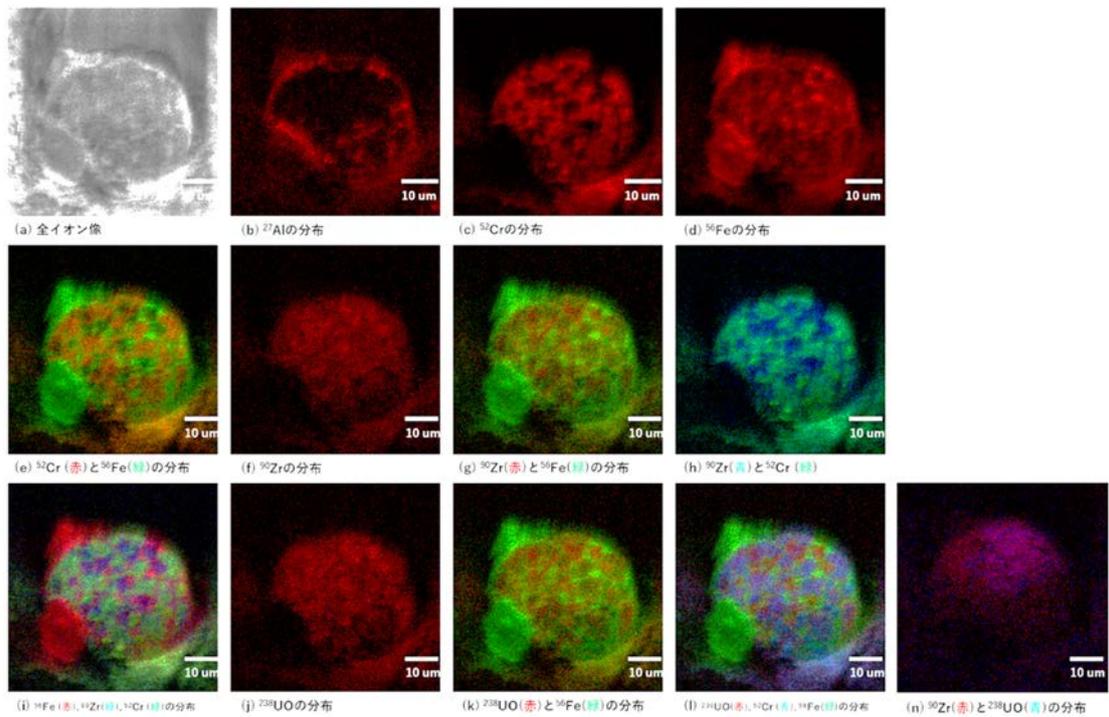


図 3.4-26 同位体イメージング結果 (FIB 加工 5 回目)

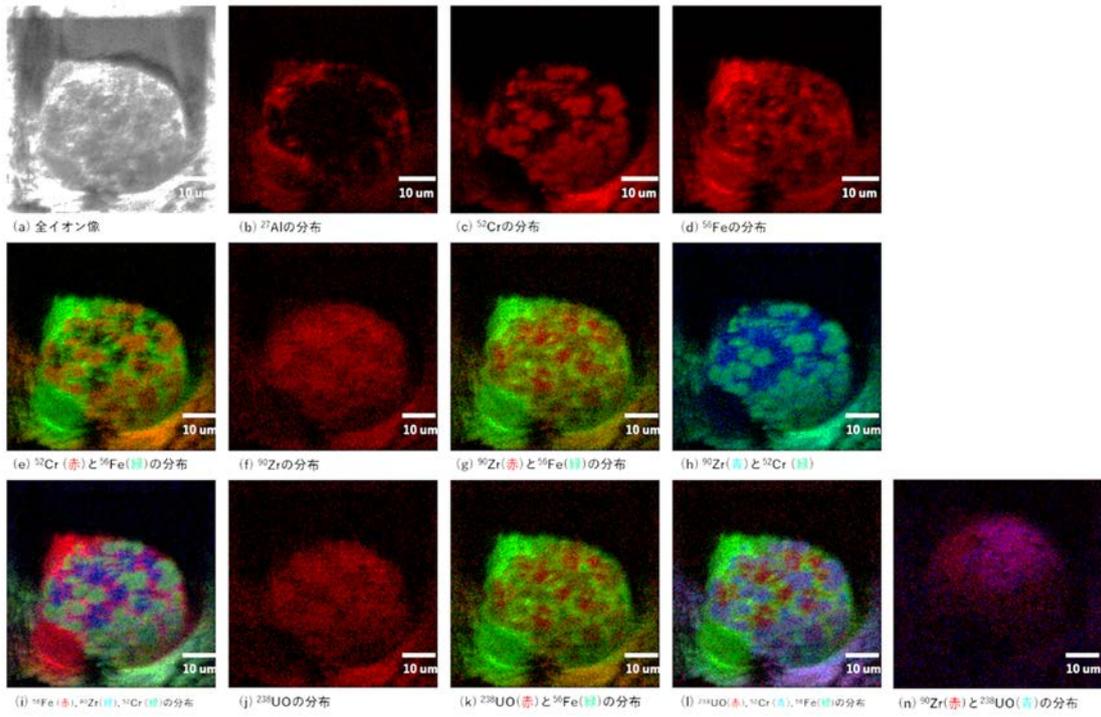


図 3.4-27 同位体イメージング結果 (FIB 加工 6 回目)

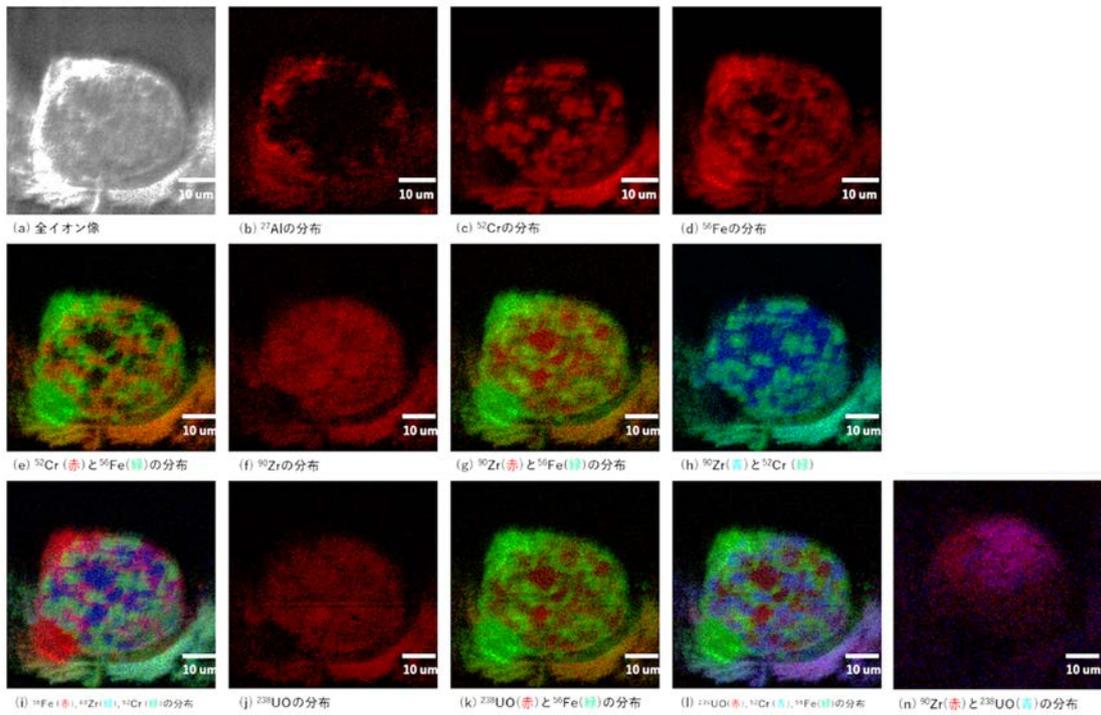


図 3.4-28 同位体イメージング結果 (FIB 加工 7 回目)

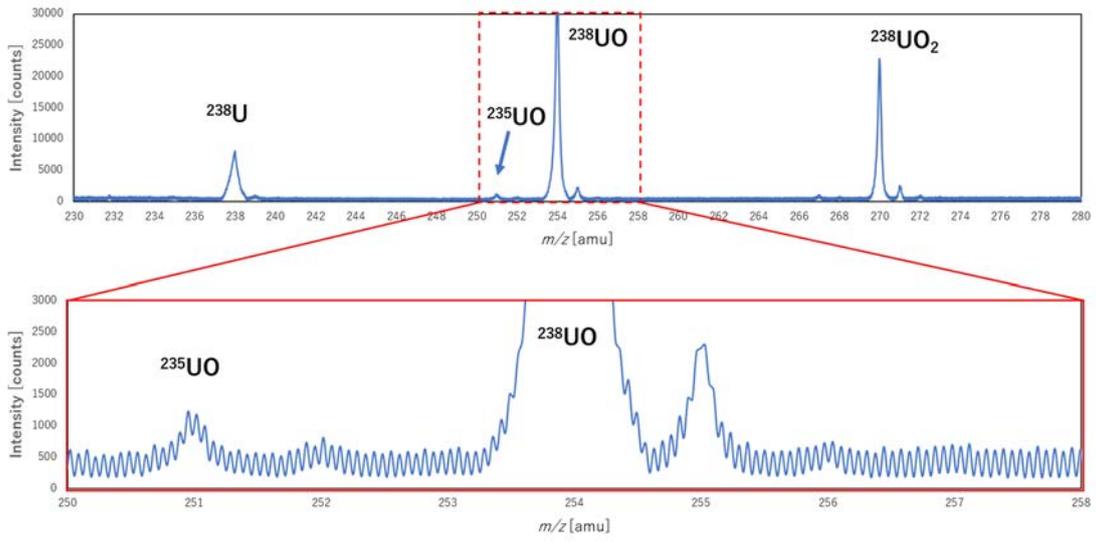


図 3.4-29 U のマススペクトル

3.5 イオン化スキームの開発（連携先：JAEA）

(1) 令和3年度までの概要

廃炉において組成情報が必要となるウランやホウ素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した。YAG レーザー励起色素レーザー光源を整備した結果、波長 245～255 nm の範囲でレーザー出力約 5 mJ/pulse が得られており、光ガルバノ分光計測システムの構築に必要な仕様を満たしていることを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

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4年度は、Nd や Gd 等の 2 波長 2 段階共鳴イオン化スキームを検討するため光ガルバノ分光及びイオンの直接計測の 2 通りの手法により共鳴イオン化信号を観測する体系を構築した。

① ホロカソードランプを用いた光ガルバノ分光

光ガルバノ(OG: Optogalvanic) 分光の原理は、主に分析対象元素を含むホロカソードランプを使用し、放電プラズマ中の対象原子がレーザー光を共鳴吸収した際の原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現象を利用した分光手法である。図 3.5-1 に光ガルバノ分光セットアップの概念図を示す。波長可変のパルス色素レーザーを照射して対象原子が共鳴励起された際の Thermal 成分(TOG 信号)または共鳴イオン化された際の Photoionization 成分(PIOG 信号)をオシロスコープ等で観測する。TOG 信号はタイムスケールがマイクロ秒程度の遅い成分であり、PIOG 信号はナノ秒程度の速い成分となる。本研究では、ネオン(Ne) ガスが封入された Nd 及び Gd のホロカソードランプ(浜松ホトニクス製 L233-60NB 及び Photron 製 P818)を準備し、Nd, Gd 及び封入されている Ne 原子の共鳴励起に伴う TOG 信号を観測した。

図 3.5-2 に TOG 信号観測時のセットアップ写真を示す。予め波長及び出力を調整した色素レーザーをアパーチャーでビーム径数 mm 程度に制限し、ホロカソードランプ(Nd または Gd) に平行光で照射してオシロスコープ波形(256 回の繰り返し測定)の平均を記録した。レーザー波長が共鳴励起波長及び ± 0.05 nm ずらした場合の計 3 通りについてオシロスコープ波形を比較した。

まず、波長 480-540 nm の光を生成するクマリン 307 色素[8]を用いて、波長 490～510 nm の範囲で TOG 信号を探索した。表 3.5-1、表 3.5-2、表 3.5-3 に当該波長域における Nd, Gd, Ne 原子の主な共鳴励起波長に関するデータベースを示す[16][17]。共鳴励起波長として、表に赤四角で表示した波長 492.590 nm (Nd), 495.386 nm (Gd), 495.842 nm (Ne)を選択した(波長は真空中での値、以下同様)。Nd ホロカソードランプを用いて観測された Nd 及び Ne 共鳴波長付

近のオシロスコープ波形を図 3.5-3 及び図 3.5-4 に示す。また、Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 及び Ne 共鳴波長付近のオシロスコープ波形を図 3.5-5 及び図 3.5-6 に示す。いずれも Nd、Gd、Ne 共鳴励起波長において有意な TOG 信号が観測された。

次に、2 波長 2 段階共鳴イオン化における 1 段目の共鳴励起波長の候補が波長 420-430 nm 近辺であることを考慮し、波長 419-434 nm のレーザー光を生成するスチルベン 3 色素[15]を用いて、当該波長の範囲で Gd 及び Ne の TOG 信号を探索した。表 3.5-4 及び表 3.5-5 に Gd 及び Ne 原子の主な共鳴励起波長に関するデータベースを示す[16][17]。共鳴励起波長として、表に赤四角で表示した波長 430.755 nm (Gd) 及び 430.746 nm (Ne) を選択した。Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 及び Ne 共鳴波長付近のオシロスコープ波形を図 3.5-7 及び図 3.5-8 に示す。図 3.5-5 と比較すると明白ではないが、図 3.5-7 に示したオシロスコープ波形は Gd 共鳴励起波長においてピーク時間が長い側にずれており、これは Gd の TOG 信号を表していると考えられる。一方で、赤及び青線で表示した非共鳴波長(共鳴励起波長から ± 0.05 nm ずらした波長)における信号が大きくなっており、短波長のレーザーを照射したことで光電効果に起因したバックグラウンドが増加したことを意味している。共鳴イオン化による PIOG 信号の観測においても光電効果によるバックグラウンドが予想されるため、共鳴イオン化信号の観測方法としてイオンの直接計測についても検討することとした。

② 原子ビームを用いた共鳴イオン化分光

Nd や Gd 等のランタノイド元素の可視領域の光学スペクトルは、4f 電子軌道のエネルギーが 6s、6p、5d 電子軌道のエネルギーと近いために、非常に多くの遷移が存在することが知られている。Gd については 1990 年代にレーザー同位体分離のために共鳴イオン化スキームの開発が行われており、関連するエネルギー準位や遷移のデータが報告されている。レーザー同位体分離では処理効率が求められたため、当時の高繰り返しパルスレーザーである銅蒸気レーザーを用いた励起光源の発振波長範囲を念頭に、イオン化までに 3 段階のレーザー励起を繰り返す 3 段階共鳴イオン化スキームが主に研究されていた。一方、本研究では装置構成や分析操作の簡便性等から 2 台の Ti:Sa レーザーを用いる 2 段階共鳴イオン化スキームの利用を想定しており、2 段階共鳴イオン化スキームに係る原子分光データは Nd、Gd ともに新たな分光測定が求められる状況である。特に、Nd の 2 段階共鳴イオン化のための原子分光データは数編の論文で断片的に報告されているのみであり、より系統的な分光研究が求められる。

そこで令和 4 年度は Nd の 2 波長 2 段階イオン化スキームを選定するため、真空チャンバーにクヌッセンセルを設置して Nd 金属を加熱・蒸発させ、コリメーションされた原子ビームに 2 台の色素レーザー光を照射して、生じた共鳴イオンをチャンネルトロン検出器で計数するという共鳴イオン化分光装置を新たに構築し、系統的な測定を実施した。

基底状態の Nd 原子が共鳴吸収する 20 個以上の 1 段目遷移にレーザーを同調し、2 段目用レーザーの波長をスキャンすることで、電離スペクトルを繰り返し測定し、複数の強い電離遷移を見出した。これらの遷移については、さらに、レーザーパワーを変化させることで得られるイオン信号の飽和から最も効率の高い遷移を決定した。これらの結果を基に、分析に使用する Ti:Sa レーザーの発振出力の波長依存性を考慮して、Nd の共鳴イオン化分析に最も適した電離スキームを決定した。以下、多段階電離スキームとイオン化効率の分光学的評価について、令和 4 年度の成果を述べる。

1) Nd の原子構造の特徴と 2 波長 2 段階共鳴電離スキームの研究背景

Nd の簡単な原子構造を図 3.5-9 に示す。基底状態の電子配置は $4f^4 6s^2$ (6I_4) であり、 $44,562\text{ cm}^{-1}$ [9] のイオン化極限までの間に 10 個程度の電子配置がこれまでに同定されている [10, 11]。このうち、2 段階共鳴イオン化スキームの第 1 励起準位として利用できるエネルギー範囲 ($21,700\text{--}23,500\text{ cm}^{-1}$) には $f^4 sp$ や $f^4 dp$ の電子配置の奇パリティ準位が多いと考えられるが、配置間相互作用による混じり合いのため電子配置が決定されている準位は極めて少ない。基底項には基底準位 ($J=4$) の他に、 $1,128.056\text{ cm}^{-1}$ ($J=5$)、 $2,366.597\text{ cm}^{-1}$ ($J=6$)、 $3,681.696\text{ cm}^{-1}$ ($J=7$)、 $5,048.602\text{ cm}^{-1}$ ($J=8$) の 4 つの偶準位が存在し、準安定準位を構成している。一方、Nd の 1 価イオンの基底項にはイオン化極限に対応する 0 cm^{-1} ($f^4 s$ ($^6I_{7/2}$)) の他、 513.33 cm^{-1} ($^6I_{9/2}$)、 $1,470.105\text{ cm}^{-1}$ ($^6I_{11/2}$)、 $1,650.205\text{ cm}^{-1}$ ($^4I_{9/2}$)、 $2,585.46\text{ cm}^{-1}$ ($^6I_{13/2}$) などがあり、自動電離準位のエネルギーがこれらのイオン準位のエネルギーを超えるごとに、その励起イオンを生成する自動イオン化のチャンネルが開く。

図 3.5-9 で本研究の対象となる電離スキームは、青色の矢印で示すように、基底状態にある Nd 原子を、1 段目 ($425\text{--}460\text{ nm}$) の光で $21,700\text{--}23,500\text{ cm}^{-1}$ の奇パリティ準位 (第 1 励起準位) に励起し、さらに緑色の矢印で示す 2 段目 ($425\text{--}460\text{ nm}$) の光でイオン化ポテンシャル ($44,562\text{ cm}^{-1}$ [9]) より上の、偶パリティ自動電離準位へ励起するものである。基底状態からの遷移の分光特性は古くから調べられており、第 1 励起準位の準位エネルギーや J 値は正確な文献値が存在する [10, 11]。またこれらの準位の多くは、遷移強度の目安となる輻射寿命や振動子強度の相対値も報告されている [12-15]。さらにこうした分光データを基に、 400 nm 近傍の光を 1 段目遷移として利用する Nd の 2 段階共鳴イオン化スキームが、1980 年代に米国アルゴンヌ研究所の Young らによって初めて検討された。具体的な電離スキームとしては JAEA の柴田らのグループによる 442 nm ($22,605\text{ cm}^{-1}$) を利用するスキームや、米国アルゴンヌ研究所の Savina らによる 434.5 nm ($23,016\text{ cm}^{-1}$) を用いるスキームが報告されているものの、これらのスキームを選定した根拠データは殆ど報告されていない。

2) 共鳴イオン化分光装置

図 3.5-10 に使用した分光実験装置の模式図を、図 3.5-11 に真空チャンバーと周辺の様子 (写真) を示す。装置は 2 段階励起のための 2 台の波長可変レーザーシステムと、原子蒸気を発生させるクヌーセンセル (エイコーエンジニアリング製 MB-3000) やイオンを検出するためのチャンネルトロン検出器 (村田製作所製) を備えた真空チャンバー、信号処理系から構成される。

2 台の Nd:YAG レーザー (Lotis TII 製 LS-2137N/2、繰返周波数 10 Hz 、パルス長 10 ns) の 3 倍高調波光 (355 nm) で励起される 2 台の色素レーザー (LIOP 製 LiopStar-VN) を用いて、2 つの異なる波長の光を発生させた。それぞれの色素には、中心波長 425 nm の Stilbene 3 (Exciton 社製、溶媒エタノール) と中心波長 450 nm の Coumarin 450 (Coumarin 2, Exciton 社製、溶媒エタノール) を用いた。それぞれのレーザーの発振波長は PC で制御し、実際の波長は精密波長計 (HighFinesse 社製 WS-7) を用いて逐次モニターしながら調整した。また 2 つのレーザーパルスの時間重なりはバイプラナ光電管 (浜松ホトニクス製 R1328U-05) とオシロスコープでモニターし、2 台の Nd:YAG レーザーを駆動する外部トリガー用の 8 チャンネル遅延パルス発生器 (Stanford Research Systems 社製 DG645) を用いてタイミングを変化させて調整した。また色素レーザーのパルスエネルギーはパワーメーター (OPHIR 製 12A-P) でモニターし、Nd:YAG レーザーの出力を変化させることで調整した。

2 つの光は D 型ミラー (Thorlabs 社製 PFD05-03-AG) を用いてほぼ同軸上に重ねたのち、レンズ (焦点距離: 2 m) を用いてクヌーセンセルとイオン検出器間の軸上で焦点を結ぶように真空

容器に導入した。クヌーセンサーは定電流電源（菊水社製 PAD 55-35L, 55 V, 35 A）を用いてヒーターに通電し、るつぼに装填した金属 Nd チップ（レアメタリック社製 Nd-02-74-0042、純度 99.9 %）を約 1,300 °C で加熱した。イオン信号は高電圧電源（Stanford Research Systems 社製 PS350/5000 V-25 W）を用いてチャンネルトロンに -3 kV の高電圧を印加して検出した後、1 GHz 帯域の前増幅器（ORTEC 製、model 9306）で増幅し、4 チャンネルオシロスコープ（Tektronix 製 TDL2014C、帯域 100 MHz）で観測した。また同じ信号は、2 チャンネルゲートドフォトカウンタ（Stanford Research Systems 製 SR400）にも導き、単位時間当たりのイベント回数に応じた電圧信号を、パワーメーターのモニター信号や波長計の波長データとともに、マルチファンクション USB デバイス（NI 製、USB-6212）を介してコンピューターに記録させた。

3) 単色 2 光子イオン化遷移の確認

Nd のイオン化ポテンシャル ($44,562 \text{ cm}^{-1}$) の半分のエネルギーに相当する光の波長は 448.812 nm であり、波長スキャンするレーザーの波長がこれより短い場合は、基底状態の Nd 原子がそのレーザーだけを 2 光子吸収することでイオン化することが可能となり、2 段階共鳴イオン化分光の誤差や測定エラーの原因となりうる。そこで、1 段目と 2 段目の光を両方吸収して生じるピークを確認する前に、このような単色 2 光子イオン化遷移を同定する実験を行った。448 nm より長波長では基底状態からの 2 光子イオン化は起こらないはずであるが、そのような波長域での単色多光子イオン化の程度についても確認した。

この測定では 1 段目のレーザー光をブロックし、2 段目のレーザー光のみを照射して（照射強度 0.1~0.2 mJ）その波長を連続的にスキャンすることで 2 光子イオンスペクトルを測定した。その結果の一例を図 3.5-12 に示す。また、図中の主要な 10 本のピークについて、Nd のエネルギー準位文献値 [16] [17] を用いてその帰属を同定した結果を表 3.5-6 にまとめた。ここで、波長は真空の波長測定値、Upper, Lower は遷移の上下準位エネルギー、 J_U , J_L はそれぞれの準位の全角運動量、 Δ は測定波長と準位文献値から計算した波数のずれを示す。

表に示す通り全てのピークが Nd 原子の基底状態や他の 5I_J の準安定状態からの遷移と同定された。この波長範囲では基底状態からの 2 光子イオン化は起こらないはずであるが、3 本の遷移が基底状態起源と同定され、3 光子イオン化による信号と思われる。図 3.5-12 のスペクトルの発生イオン量は後述する 2 色 2 段階遷移の発生イオン量と比べて 5 分の 1 から数十分の 1 と弱い、その中では $1,128.056 \text{ cm}^{-1}$ を始状態とする no. 6 の遷移が最も強く、レーザーの光軸調整などでイオンを簡易的に発生させる場合に利用できることがわかった。

4) 2 波長 2 段階共鳴イオン化遷移の自動電離準位の同定

次に 2 波長 2 段階のイオン化スキームで生じる電離遷移を探索するため、1 段目と 2 段目のレーザーをともに照射し、2 段目の波長をイオン化極限付近の波長から短波長側で、色素レーザーで発振可能な波長範囲をスキャンし、電離スペクトルを繰り返し測定した。表 3.5-7 に測定に用いた 20 個以上の 1 段目遷移と第 1 励起状態の準位エネルギー、その準位からイオン化極限を超えるのに必要な波長をまとめて示す。

得られた電離スペクトルのうち、エネルギー範囲が $1,000 \text{ cm}^{-1}$ （波長 20 nm 程度）の広範囲のスペクトルで、第 1 励起状態の J 値が 3、4、5 の例として $23,217 \text{ cm}^{-1}$ (no. 23)、 $22,677 \text{ cm}^{-1}$ (no. 18)、 $22,736 \text{ cm}^{-1}$ (no. 19) のスペクトルを図 3.5-13 (a)-(c) に示す。また、各スペクトル中の主要な電離ピークの解析結果を表 3.5-8 (a)-(c) に示す。図 3.5-13 の中で主要なピークに付されている数値はこの表の電離遷移の識別番号に対応している。

前にも触れた通り 1 段目の波長が 448 nm より短波長の光では、基底状態からでも非共鳴 2 光子イオン化が起こる可能性があり共鳴イオン化分析には不利である。ただし、自動電離準位の識別やその J 値を選択則で決めるには多くの分光データが必要であることや、非共鳴イオン化が少なく電離効率の高いスキームがあれば、分析利用も可能なことから、本研究では、電離スペクトルの測定は 448 nm の条件に限定せず、色素レーザーで発振可能な表 3.5-7 の遷移全てで実施した。また、準位縮重度が上準位ほど大きくなるスキームの方が電離効率の点で有利であるが、J 値選択則から電離準位を推定するにはなるべく多くの異なる J 値のデータを比較する必要があるため、第 1 励起状態の J 値が基底状態より小さい J=3 の状態でもいくつかの準位で測定を行った。

観測した電離スペクトルのうち、前節で測定した単色多光子イオン化に伴うピークを除外した後、波長計で測定した空気中の波長と 1 段目準位のエネルギー報告値から自動電離状態の準位エネルギーを求めた。得られた準位エネルギーの誤差は $\pm 1\text{cm}^{-1}$ 程度と評価される。また表中の“Height”はイオン信号の相対強度を表すが、照射レーザー強度の波長依存性や実験条件の違いなどは考慮しておらず、波長の大きく異なる遷移同士の比較や、異なる第 1 励起状態間の比較には適さないことに注意が必要である。

電離スペクトルには多くの電離遷移が現れているが、例えば図 3.5-13(b)のスペクトルのように自動電離リドベルグ系列が強く現れるスペクトルでは、観測される遷移の数が特に多くなる。リドベルグ系列が観測されやすい第 1 励起状態は、リドベルグ軌道に遷移しやすい電子配置を持つと考えられるが、電子配置がわかっている Nd の準位が少ないため確かなことはわからない。このようなリドベルグ系列の例として図 3.5-14 に図 3.5-13(b)の ${}^6\text{I}_{9/2}$ イオン準位付近を拡大したスペクトルを示す。リドベルグ系列準位は 1 つの軌道電子だけが低い励起エネルギーを持つ原子状態であり、電気感受率が高く、弱い外部電場でも壊れやすいという特徴がある。このため、光反応領域で電場が発生する環境での利用には不向きである。

また自動電離準位のエネルギーが高くなり、基底状態以外の低励起状態のイオンが生成されるチャンネルが開くようになると、自動電離速度が速くなることから、そのイオン準位を境にして高エネルギー側で線幅の広いピークが増える場合がある。図 3.5-14 で ${}^6\text{I}_{9/2}$ 極限付近を境にピークの線幅が異なるのも、このような自動電離チャンネルの違いによるものと思われる。電離遷移の場合、遷移の振動子強度は電離ピークの面積に対応しており、それには上限がある。

一方、電離断面積はピークの高さであり、線幅とは逆比例の関係にある。このため、線幅の狭い電離遷移ほど、その線幅に合ったレーザー線幅の光を使えば、高い電離効率が得られる。このため、様々な自動電離チャンネルが開き、線幅が広がる高いエネルギーの自動電離準位よりも、イオンの基底状態のみが生成されるイオン化極限直上にある自動電離準位の方が、電離効率の高い遷移を見つけやすいと言える。

これらの観測により、線幅が狭く、発生イオン量の相対的に多い電離スキームを幾つか選出した。選出したスキームについては、さらに、電離効率の高い遷移を決めるため、2 段目のレーザーのパルスエネルギーを変化させてイオン信号の飽和の様子を観測した。得られた飽和曲線から表 3.5-7 の no10 の第 1 励起状態から観測された 428.633 nm (air) の電離遷移が最も低いパワーで飽和が起こり、電離効率が高いことがわかった。この飽和曲線を図 3.5-15 に示す。あわせて、この遷移の周辺の詳細な電離スペクトルを図 3.5-16 に示す。飽和曲線を測定した遷移はこの図の no. 4 のピークである。本研究で得られた範囲ではこの 2 段階共鳴イオン化スキームが、Ti:Sa レーザーの波長範囲にも適合しており、かつ、1 段目の波長が 449 nm で、448 nm よ

り僅かではあるが長いため、基底状態からの非共鳴 2 光子イオン化も生じないことから、最も有望なスキームであると考えられる。

以上のようにして、2 台の色素レーザーを用いた Nd の 2 波長 2 段階共鳴イオン化分光により、基底状態の Nd 原子を効率よく共鳴イオン化するための 2 波長 2 段階電離スキームを決定することができた。

(3) まとめ

Nd 及び Gd の 2 波長 2 段階共鳴イオン化スキームを検討するため、ホロカソードランプを用いた光ガルバノ分光及びチャンネルトロンを用いたイオンの直接計測に着目し、各々の手法について共鳴イオン化信号を観測する体系を構築した。

光ガルバノ分光では、Nd、Gd、Ne 原子の共鳴励起に伴う TOG 信号を観測した。クマリン 307 色素を用いて波長 490-510 nm のレーザー光を生成し、波長 492.590 nm (Nd)、495.386 nm (Gd)、495.842 nm (Ne) の各遷移について有意な TOG 信号が観測された。次に、スチルベン 3 色素を用いて波長 419-434 nm のレーザー光を生成し、波長 430.755 nm (Gd) 及び 430.746 nm (Ne) の各遷移に着目して同様な測定を行った。波長 430.755 nm の遷移についても Gd の TOG 信号と思われるオシロスコープ波形の有意な差を観測したが、短波長のレーザー照射による光電効果バックグラウンドの増加が確認された。共鳴イオン化による PIOG 信号の観測においてもバックグラウンド源になると予想されるため、共鳴イオン化信号の観測方法としてイオンの直接計測についても検討することとした。

共鳴イオン化分光では原子蒸発源やイオン検出器を備えた真空チャンバーを整備し、これを用いて Nd の 2 波長 2 段階イオン化スキーム開発のための分光実験を行った。基底状態の Nd 原子が共鳴吸収する 20 個以上の第 1 励起状態から、最大 1,000 cm⁻¹ (20 nm) の広い範囲に渡って電離スペクトルを測定し、電離効率の高い電離遷移を探索した。電離スペクトルの測定で選出されたいくつかの強い遷移については、イオン信号の飽和を観測し、最も効率の高い遷移を決定した。その結果、電離効率が高いことはもとより、多光子イオン化による非共鳴イオン化信号が少なく、Ti:Sa レーザーの発振波長域に適合する 2 波長 2 段階イオン化スキームとして、1 段目波長が 449.477 nm (air) (第 1 励起準位: 22,241.91 cm⁻¹)、電離波長が 428.633 nm (air) のスキームが最も有望であることを見出した。

令和 5 年度は、主にイオンの直接計測セットアップを用いて Gd 等の主要元素について共鳴イオン化スキームの探索及びイオン化特性の評価を行う予定である。

表 3.5-1 波長 490-510 nm における Nd 原子の主な共鳴励起波長データベース [16]

Wl_vac / nm	Wl_air / nm	log_gf	Elem. (Code)	Element (Name)	E_lower_lev. / cm ⁻¹ (-1)	J lower	E_upper_lev. / cm ⁻¹ (-1)	J upper	Ref.
491.1429	491.0058	-0.514	60.00	Nd I	0.000	4.0	20360.673	4.0	GKO
492.5896	492.4521	0.556	60.00	Nd I	0.000	4.0	20300.875	5.0	GKO
495.6160	495.4777	0.068	60.00	Nd I	0.000	4.0	20176.912	5.0	GKO
505.8295	505.6885	-0.583	60.00	Nd I	0.000	4.0	19769.507	4.0	GKO
507.5922	507.4507	-0.900	60.00	Nd I	0.000	4.0	19700.856	5.0	GKO

表 3.5-2 波長 490-510 nm における Gd 原子の主な共鳴励起波長データベース[16]

Wl_vac / nm	Wl_air / nm	log_gf	Elem. (Code)	Element (Name)	E_lower_lev. / cm ⁻¹	J lower	E_upper_lev. / cm ⁻¹	J upper	Ref.
491.1497	491.0126	-0.639	64.00	Gd I	6976.508	5.0	27336.898	6.0	MC
491.7203	491.5831	-1.007	64.00	Gd I	7234.910	4.0	27571.672	5.0	MC
495.3863	495.2481	-1.127	64.00	Gd I	1719.087	6.0	21905.353	5.0	MC
497.4001	497.2613	-0.789	64.00	Gd I	6976.508	5.0	27081.048	6.0	MC
501.6448	501.5049	0.523	64.00	Gd I	8498.434	8.0	28432.859	9.0	MC
502.1773	502.0373	-1.037	64.00	Gd I	7562.457	2.0	27475.740	3.0	MC

表 3.5-3 波長 490-510 nm における Ne 原子の主な共鳴励起波長データベース[17]

Observed Wavelength Vac (nm)	Unc. (nm)	Ritz Wavelength Vac (nm)	Unc. (nm)	Rel. Int. (%)	A _{ki} (s ⁻¹)	Acc.	E _i (cm ⁻¹)	E _k (cm ⁻¹)	Lower Level Conf., Term, J	Upper Level Conf., Term, J		
495.84169	0.00004	495.84157	0.00004	10000	1.06e+06	C+	150 121.5922	- 170 289.3243	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [³ / ₂] 1	2s ² 2p ⁵ (² P° _{1/2})5d	² [⁵ / ₂]° 2
500.85548	0.00004	500.85543	0.00004	5000	4.37e+05	C+	150 315.8612	- 170 289.6782	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [³ / ₂] 2	2s ² 2p ⁵ (² P° _{1/2})5d	² [⁵ / ₂]° 3
503.27515	0.00010	503.27512	0.00004	2500	1.34e+06	C+	149 657.0392	- 169 526.8869	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [⁵ / ₂] 3	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})5d	² [⁵ / ₂]° 3
503.91560	0.00004	503.91552	0.00004	5000	4.44e+06	C+	149 657.0392	- 169 501.6353	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [⁵ / ₂] 3	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})5d	² [¹ / ₂]° 4
507.56152	0.00004	507.56141	0.00004	350	1.42e+06	C+	149 824.2215	- 169 526.2708	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [⁵ / ₂] 2	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})5d	² [⁵ / ₂]° 2
508.17992	0.00010	508.17997	0.00004	1500	3.39e+06	C+	149 824.2215	- 169 502.2893	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})3p	² [⁵ / ₂] 2	2s ² 2p ⁵ (² P° _{3/2})5d	² [¹ / ₂]° 3

表 3.5-4 波長 419-434 nm における Gd 原子の主な共鳴励起波長データベース[16]

Wl_vac / nm	Wl_air / nm	log_gf	Elem. (Code)	Element (Name)	E_lower Lev. / cm ⁻¹	J lower	E_upper Lev. / cm ⁻¹	J upper	Ref.
427.5371	427.4168	-0.824	64.00	Gd I	0.000	2.0	23389.782	3.0	GKO
430.7554	430.6343	-0.328	64.00	Gd I	0.000	2.0	23215.028	2.0	GKO
432.8319	432.7102	-0.362	64.00	Gd I	0.000	2.0	23103.660	1.0	GKO

表 3.5-5 波長 419-434 nm における Ne 原子の主な共鳴励起波長データベース[17]

Observed Wavelength Vac (nm)	Unc. (nm)	Ritz Wavelength Vac (nm)	Unc. (nm)	Rel. Int. (%)	A _{ki} (s ⁻¹)	Acc.	E _i (cm ⁻¹)	E _k (cm ⁻¹)	Lower Level Conf., Term, J	Upper Level Conf., Term, J	Type	TP Ref.	Line Ref.
419.92846	0.00020	419.92812	0.00012	700			148 257.7898	- 172 071.389	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})8s 2[3/2] ^o 2			L4498
426.92098	0.00020	426.92062	0.00011	700			148 257.7898	- 171 681.348	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})7d 2[3/2] ^o 2			L4498
427.09240	0.00020	427.09238	0.00020	700			148 257.7898	- 171 671.928	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})7d 2[1/2] ^o 1			L4498
427.14270	0.00020	427.14266	0.00020	500			148 257.7898	- 171 669.172	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})7d 2[1/2] ^o 0			L4498
427.58647	0.00020	427.58629	0.00006	500			148 257.7898	- 171 644.882	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{1/2})6d 2[3/2] ^o 1			L4498
427.67622	0.00020	427.67604	0.00003	700			148 257.7898	- 171 639.9741	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{1/2})6d 2[3/2] ^o 2			L4498
430.74621	0.00020	430.74631	0.00008	700			148 257.7898	- 171 473.311	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})8s 2[3/2] ^o 2			L4498
433.53453	0.00004	433.53439	0.00003	700			148 257.7898	- 171 324.0107	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{1/2})7s 2[1/2] ^o 1			L3451
433.74459	0.00020	433.74442	0.00003	500			148 257.7898	- 171 312.8413	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{3/2})3p ^o 2[1/2] 1	2s ² 2p ⁵ (² p ^o _{1/2})7s 2[1/2] ^o 0			L4498

表3.5-6 Ndの単色2光子電離遷移の解析結果

no.	Wavelength vac (nm)	Upper (cm ⁻¹)	J _U	Lower (cm ⁻¹)	J _L	Δ (cm ⁻¹)	remark
1	455.363	23088.680	4	1128.056	5	-0.14	
2	455.544	21951.870	3	0	4	-0.10	3-photon
3	456.064	21926.903	4	0	4	-0.18	3-photon
4	456.095	24291.930	5	2366.597	6	-0.06	
5	456.172	23049.760	5	1128.056	5	-0.15	
6	456.361	23040.538	6	1128.056	5	0.00	
7	456.861	23016.512	4	1128.056	5	0.04	
8	458.247	25503.978	7	3681.696	7	0.00	
9	458.790	25478.135	6	3681.696	7	0.04	
10	459.598	21758.278	4	0	4	-0.15	3-photon

表 3.5-7 電離スペクトルを測定した1段目遷移と第1励起準位

no.	λ rep	lower (cm^{-1})	upper (cm^{-1})	J_u	gf	E>IP vac (nm)
	air(nm)					
1	460.133	0	21726.771	5		437.92
2	459.466	0	21758.278	4		438.52
3	455.933	0	21926.903	4		441.79
4	455.414	0	21951.870	3		442.28
5	454.205	0	22010.340	4		443.43
6	452.840	0	22076.640	4		444.73
7	451.777	0	22128.600	5		445.76
8	450.480	0	22192.297	5		447.03
9	449.737	0	22229.000	3		447.77
10	449.476	0	22241.911	5		448.03
11	449.194	0	22255.855	5		448.31
12	446.956	0	22367.268	5		450.56
13	446.173	0	22406.550	5		451.36
14	444.889	0	22471.210	4		452.68
15	444.498	0	22490.970	3		453.08
16	443.721	0	22530.372	5		453.89
17	442.243	0	22605.665	5		455.45
18	440.836	0	22677.810	4		456.95
19	439.694	0	22736.693	5		458.18
20	438.187	0	22814.888	5		459.83
21	434.349	0	23016.512	4	0.16	464.13
22	433.722	0	23049.760	5		464.85
23	430.581	0	23217.930	3		468.51
24	426.614	0	23433.840	5		473.30
25	426.530	0	23438.440	4		473.41
26	425.647	0	23487.080	3	0.16	474.50
27	424.279	0	23562.766	4		476.21

表 3.5-8 (a) 23,217 cm^{-1} ($J=3$) の第 1 励起状態から観測した電離遷移と電離準位

no.	λ_{air} (nm)	Energy (cm^{-1})	Height	Remarks
1	459.1087	44993.2	8.1	
2	458.8220	45006.8	9.5	
3	458.1057	45040.9	5.6	
4	455.4303	45169.1	9.0	
5	455.0933	45185.4	10.0	
6	454.4985	45214.1	9.6	
7	451.7243	45349.2	8.1	
8	451.6251	45354.1	8.4	
9	451.4657	45361.9	9.7	
10	451.3025	45369.9	9.0	
11	451.2790	45371.0	8.9	
12	450.3305	45417.7	8.6	
13	450.0873	45429.7	9.6	
14	449.5295	45457.2	9.4	
15	447.5486	45555.7	9.3	
16	446.9391	45586.1	9.2	
17	446.9234	45586.9	8.5	
18	445.9408	45636.2	8.5	
19	445.8865	45639.0	9.2	
20	443.8376	45742.5	9.7	
21	443.3754	45765.9	9.1	
22	442.4744	45811.9	9.4	
23	442.3848	45816.4	8.5	
24	442.2410	45823.8	8.3	
25	441.9616	45838.1	9.2	

表 3.5-8 (b) 22,677 cm⁻¹($J=4$)の第1励起状態から観測した電離遷移と電離準位

no.	λ_{air} (nm)	Energy (cm ⁻¹)	Height	Remarks
1	456.5280	44576.2	9.8	
2	456.3224	44586.1	8.6	
3	456.2255	44590.7	9.5	
4	456.0783	44597.8	9.6	
5	455.9156	44605.6	8.7	
6	455.7003	44616.0	9.4	
7	455.5472	44623.4	9.6	
8	455.1596	44642.0	8.9	
9	455.0936	44645.2	8.5	
10	454.7827	44660.2	8.7	
11	454.7071	44663.9	9.2	
12	454.5651	44670.8	9.6	
13	454.0170	44697.3	9.6	
14	453.9159	44702.2	8.9	
15	453.6086	44717.1	8.3	
16	453.1655	44738.7	8.8	
17	452.6562	44763.5	9.5	
18	452.4228	44774.9	9.8	
19	452.0379	44793.7	8.4	
20	451.9098	44800.0	9.6	
21	451.8318	44803.8	8.1	
22	451.5831	44816.0	8.0	
23	450.8717	44850.9	8.0	
24	450.7588	44856.5	9.1	
25	450.5333	44867.6	9.9	
26	450.4439	44872.0	8.2	
27	450.1488	44886.5	8.6	
28	449.5992	44913.7	9.0	
29	449.5485	44916.2	8.4	
30	448.9694	44944.9	7.4	
31	448.8526	44950.7	9.8	
32	448.7673	44954.9	9.2	
33	448.4697	44969.7	9.8	
34	448.3668	44974.8	9.8	
35	448.3278	44976.7	8.8	
36	448.1529	44985.4	8.5	
37	447.1535	45035.3	8.3	
38	447.0371	45041.1	8.4	
39	446.5764	45064.2	9.7	
40	446.0572	45090.3	7.7	
41	446.0341	45091.4	8.4	
42	445.3497	45125.9	8.4	
43	444.6742	45160.0	8.1	
44	444.4989	45168.8	8.7	
45	444.0511	45191.5	9.5	
46	442.6570	45262.4	9.6	
47	442.3142	45279.9	8.0	
48	442.1895	45286.3	8.1	
49	442.1545	45288.1	8.0	
50	442.0768	45292.1	9.3	
51	441.7106	45310.8	9.8	
52	441.5043	45321.4	9.9	
53	441.2314	45335.4	8.9	
54	440.9784	45348.4	8.9	
55	440.4625	45374.9	8.5	
56	440.3826	45379.0	8.9	

表 3.5-8 (c) $22,736 \text{ cm}^{-1} (J=5)$ の第 1 励起状態から観測した電離遷移と電離準位

no.	λ_{air} (nm)	Energy (cm^{-1})	Height	Remarks
1	456.2239	44649.7	7.5	
2	453.1073	44800.4	9.8	
3	452.9751	44806.8	6.5	
4	452.6949	44820.5	8.2	
5	452.1191	44848.6	6.2	
6	451.8352	44862.5	6.4	
7	451.6405	44872.1	6.2	
8	450.3992	44933.1	9.0	
9	450.1775	44944.0	7.0	
10	448.6929	45017.5	6.6	
11	448.5839	45022.9	7.7	
12	448.4828	45027.9	6.7	
13	448.3193	45036.0	6.9	
14	448.2183	45041.1	8.0	
15	448.0897	45047.5	6.9	
16	447.4088	45081.4	7.5	
17	444.4905	45228.1	6.3	
18	443.3812	45284.4	6.2	
19	442.8633	45310.8	6.3	
20	442.6611	45321.1	9.5	
21	442.5053	45329.0	6.7	
22	442.2406	45342.6	6.5	
23	441.9370	45358.1	7.1	
24	441.0261	45404.8	6.1	
25	440.5044	45431.7	7.6	
26	440.4850	45432.7	6.3	

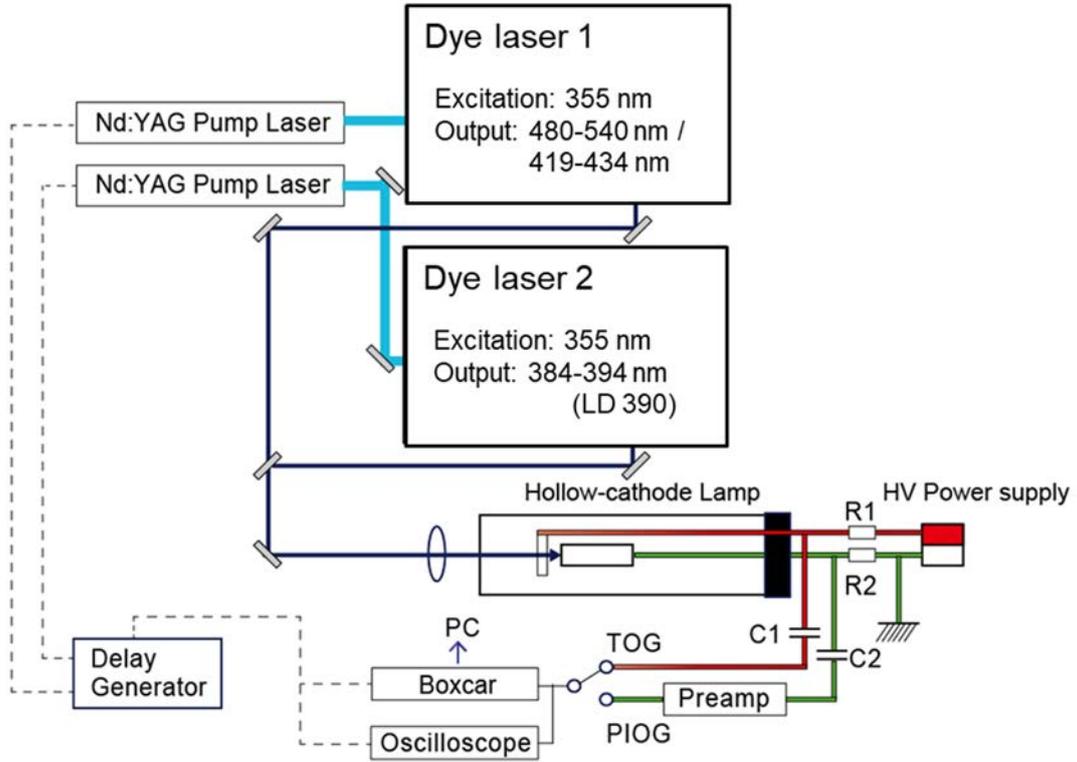


図 3.5-1 光ガルバノ分光セットアップの概念図

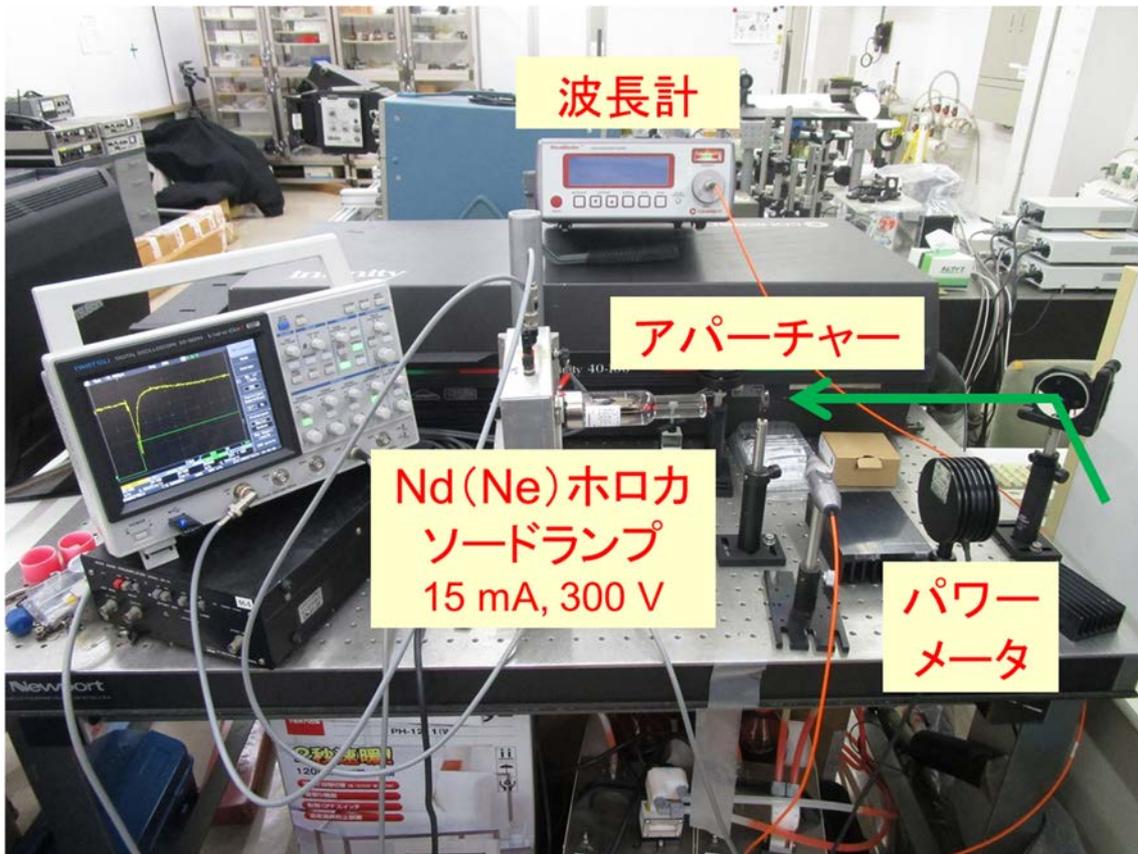


図 3.5-2 TOG 信号観測時のセットアップ写真

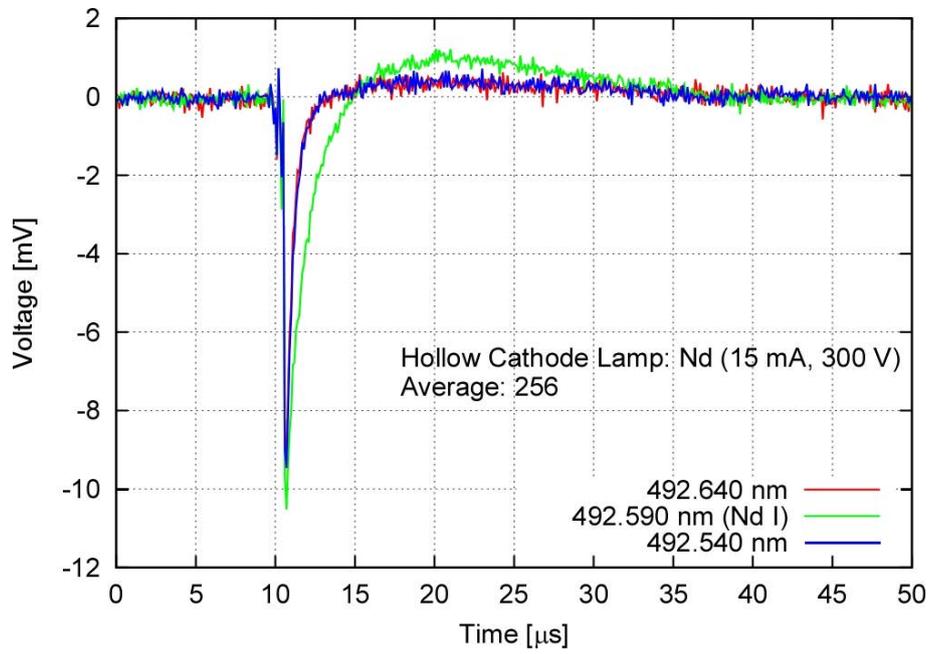


図 3.5-3 Nd ホロカソードランプを用いて観測された Nd 共鳴波長 492.590 nm の TOG 信号

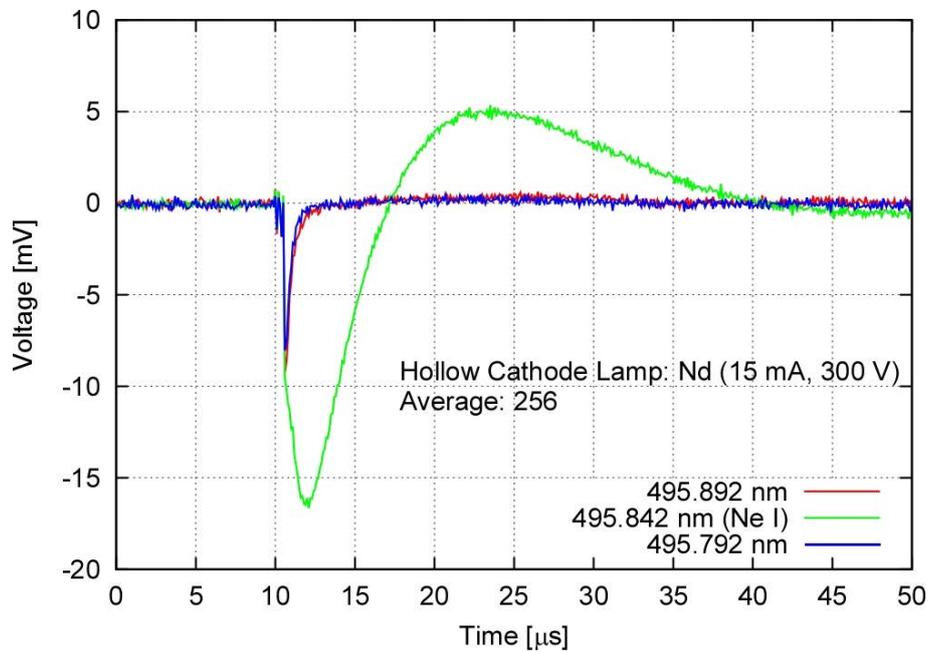


図 3.5-4 Nd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 495.842 nm の TOG 信号

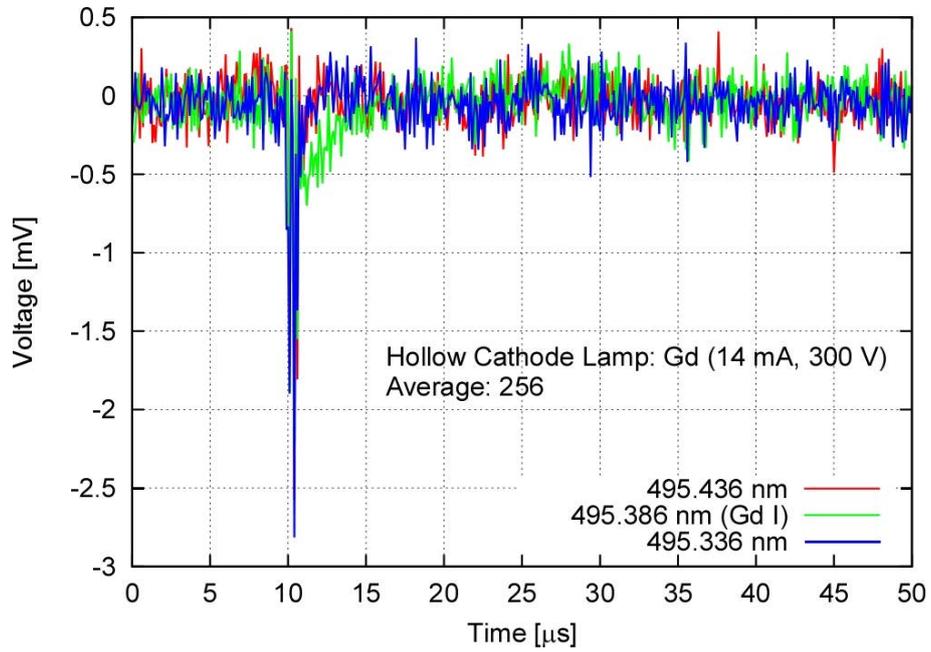


図 3.5-5 Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 共鳴波長 495.386 nm の TOG 信号

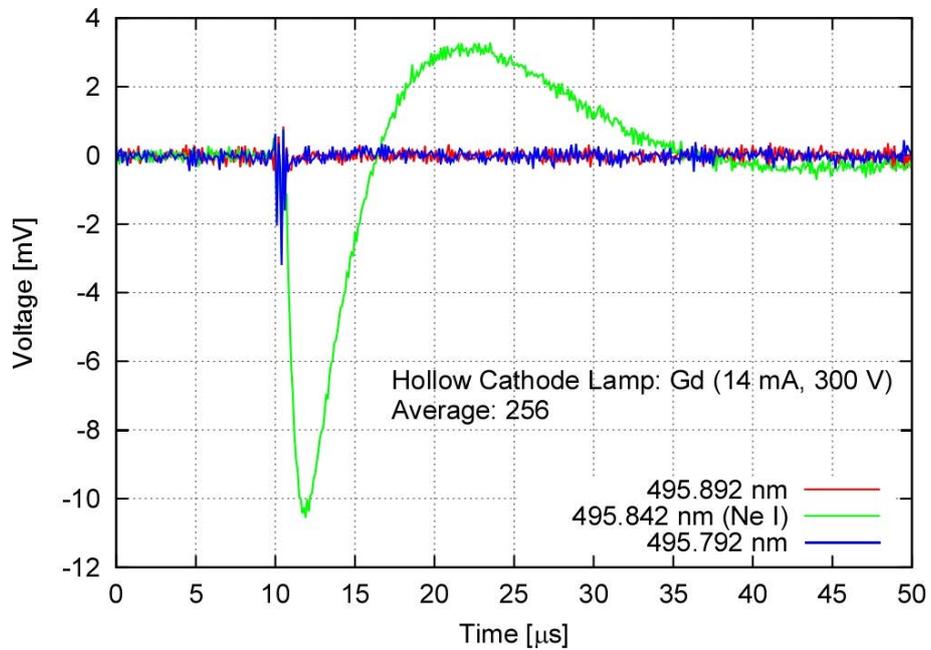


図 3.5-6 Gd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 495.842 nm の TOG 信号

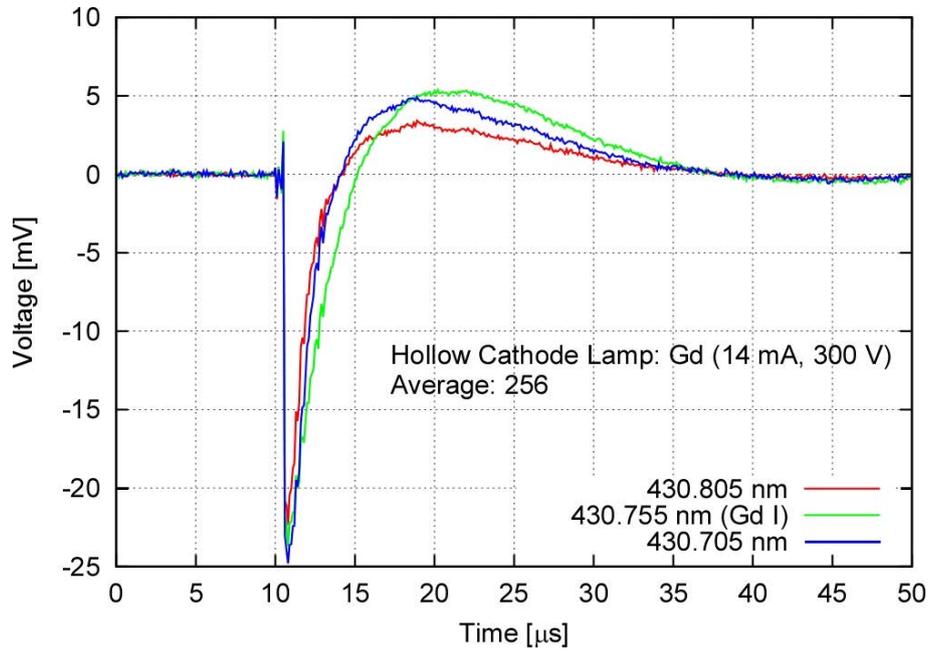


図 3.5-7 Gd ホロカソードランプを用いて観測された Gd 共鳴波長 430.755 nm の TOG 信号

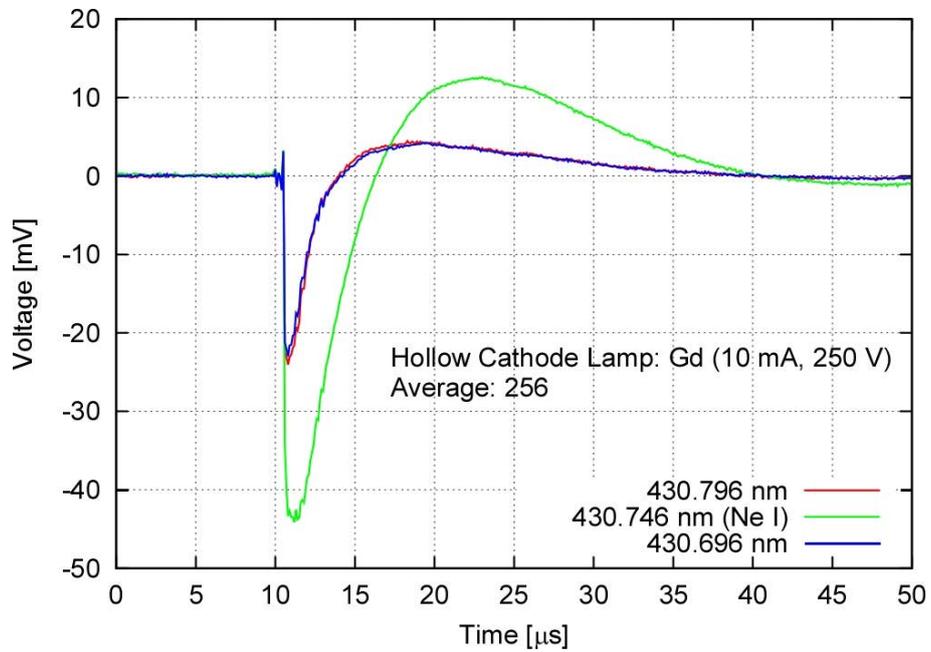


図 3.5-8 Gd ホロカソードランプを用いて観測された Ne 共鳴波長 430.746 nm の TOG 信号

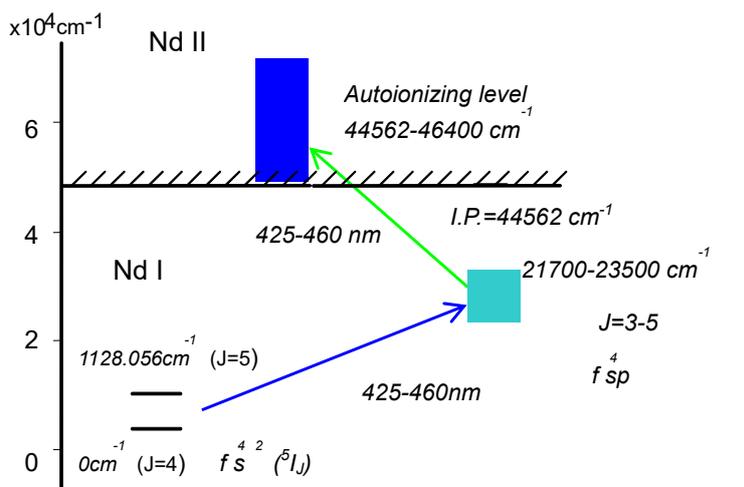


図 3.5-9 Nd のエネルギー準位図と 2 波長 2 段階電離スキーム

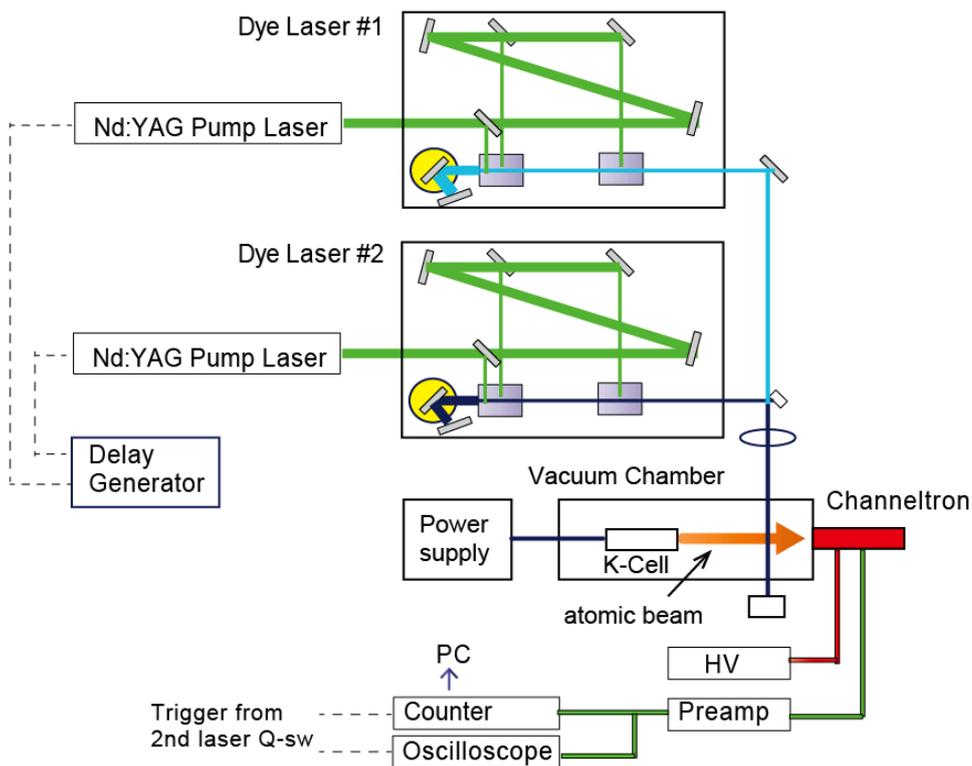


図 3.5-10 Nd 原子の共鳴イオン化分光装置の概要

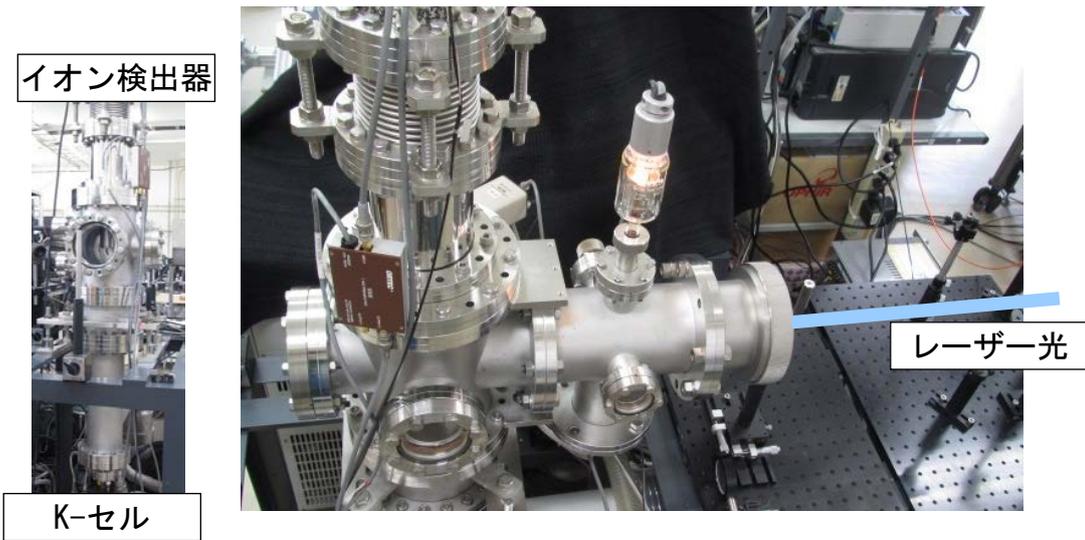


図 3.5-11 構築した共鳴イオン化分光用真空チャンバーと周辺の様子

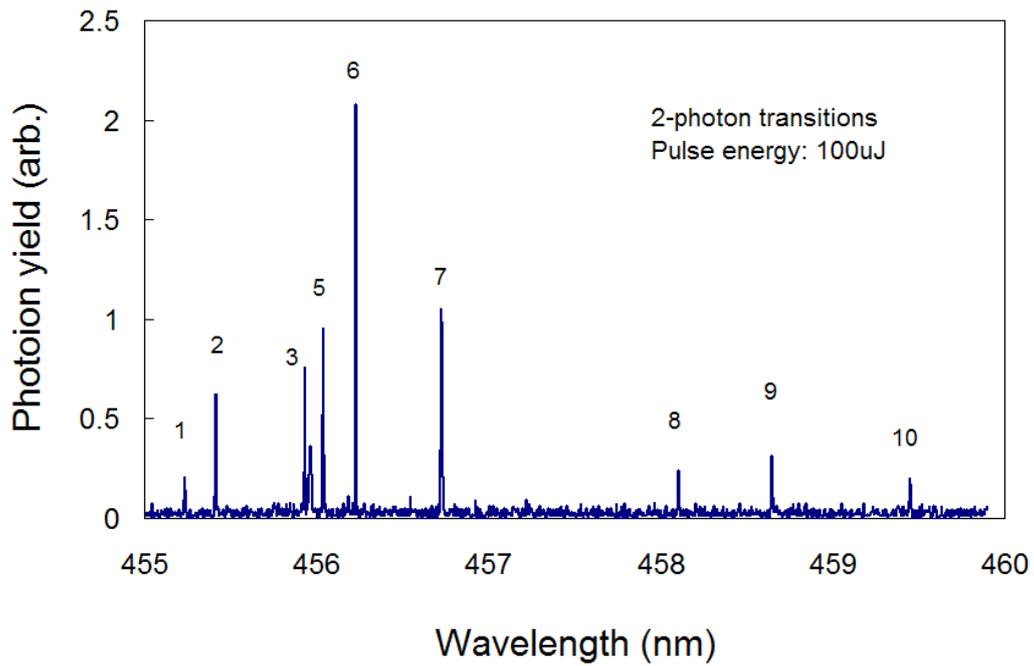
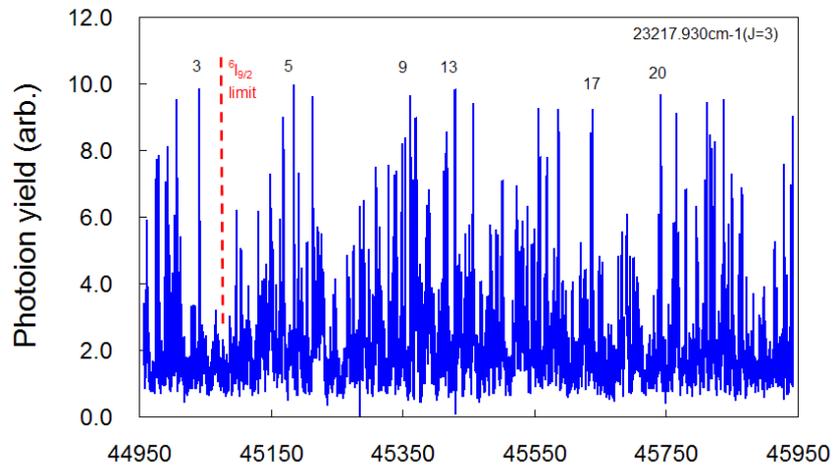
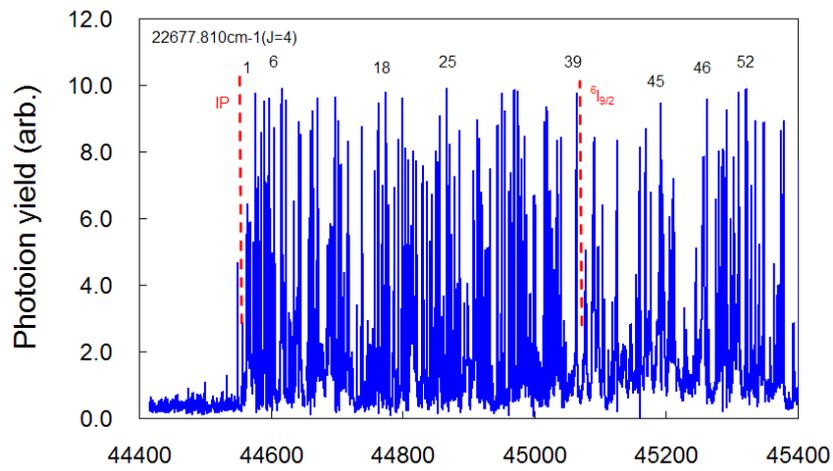


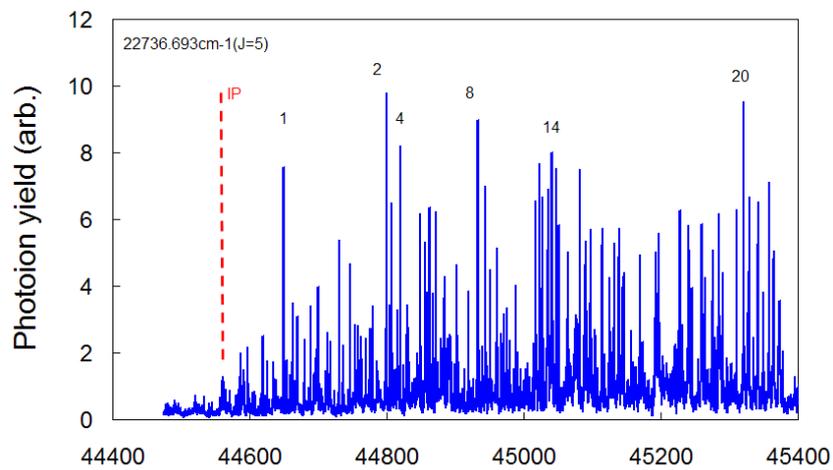
図 3.5-12 観測した Nd の単色 2 光子電離スペクトルの例



(a) Level Energy (cm^{-1})



(b) Level Energy (cm^{-1})



(c) Level Energy (cm^{-1})

図 3.5-13 2 波長 2 段階電離スペクトル(上から J-3, 4, 5 の第 1 励起準位) の例

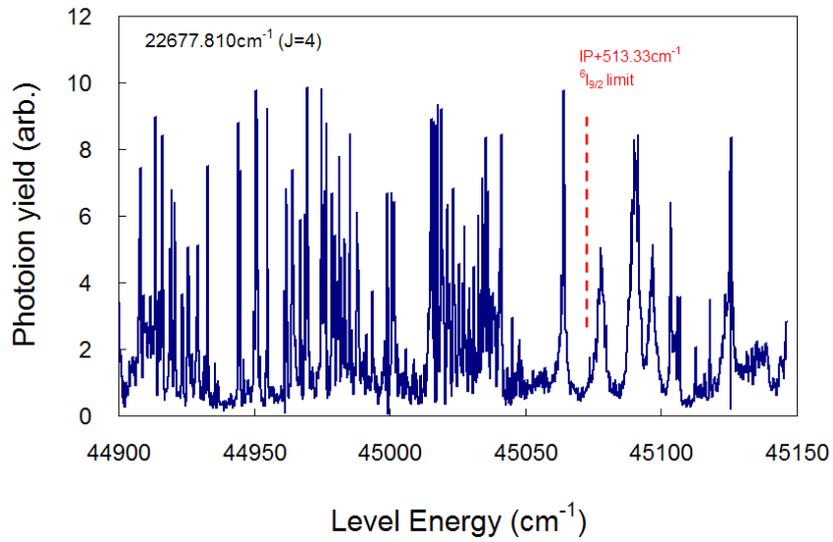


図 3.5-14 自動電離リドベルグ系列スペクトルの例

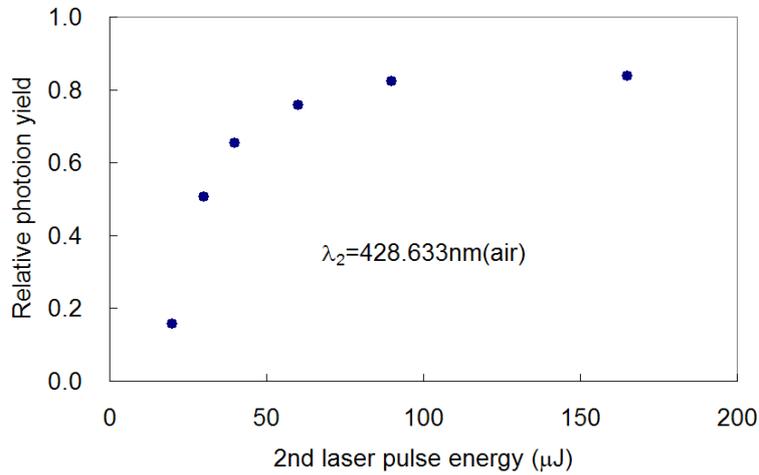


図 3.5-15 電離遷移のイオン量の飽和曲線の例

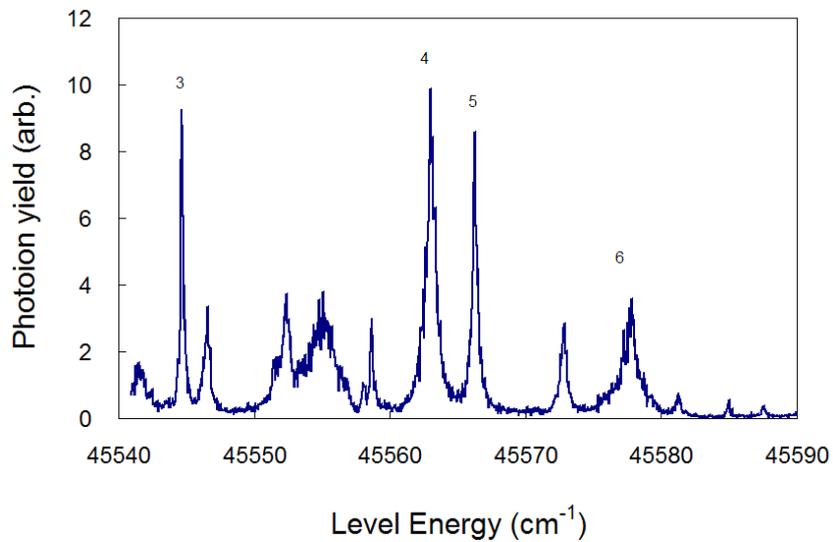


図 3.5-16 有望スキーム(第1励起準位 22241 cm^{-1} , $J=5$) の詳細な電離スペクトル

3.6 研究推進

研究代表者の下で再委託先である名古屋大学、東電 HD、連携機関の JAEA 大洗研究所、JAEA・CLADS 等との連携を密にして研究を進めた。

3.6.1 開発者会議

- [1] R4 年度第 1 回開発者会議(オンライン)、令和 4 年 5 月 11 日、13:30~16:00.
- [2] R4 年度第 2 回開発者会議(オンライン)、令和 4 年 7 月 25 日、10:00~12:00.
- [3] R4 年度第 3 回開発者会議(オンライン)、令和 4 年 11 月 8 日、14:00~17:00.

3.6.2 人材育成・技術移転のための相互訪問

- [1] JAEA 大洗研究所研究者に対するレーザー光源のオペレーショントレーニング、工学院大学にて、令和 4 年 7 月 19 日~29 日.
- [2] 代表者(工学院大学)らが大学院生とともに JAEA 大洗研究所を訪問し、技術指導ならびに大学院生の人材育成のための見学、令和 4 年 12 月 26~27 日.
- [3] 代表者(工学院大学)らが大学院生とともに JAEA 大洗研究所を訪問し、技術指導ならびに大学院生の人材育成のための見学、令和 5 年 1 月 19~20 日.
- [4] 代表者(工学院大学)らが大学院生とともに JAEA 大洗研究所を訪問し、技術指導ならびに大学院生の人材育成のための見学、令和 5 年 3 月 27~29 日.
- [5] 名古屋大学の大学院生が JAEA 大洗研究所にてレーザーの技術研修、令和 5 年 3 月 29~30 日.

3.6.3 学会発表等

- [1] Tetsuo Sakamoto, Two color resonant laser SNMS for isotope micro imaging of nuclear fuel debris (invited), 14th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '22 (ALC'22), 2022 年 10 月 18 日.
- [2] Hideki Tomita, Volker Sonnenschein, Gyo Itsubo, Klaus Wendt, Development of a direct diode pumped continuous-wave Ti:Sapphire laser for resonance ionization mass spectrometry (invited), 14th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices (ALC22), 2022 年 10 月 18 日.
- [3] Shoki Yoshimura, Tomoki Goto, Takumi Umedate, Masato Morita, Tetsuo Sakamoto, Hideki Tomita, Hiroki Miura, Yoshihiro Iwata, Masabumi Miyabe, Ikuo Wakaida, Yoshihiro Sekio, Koji Maeda, Masato Mizokami, Development of Isotope Micro-Imaging Apparatus and Application for Debris of FDNPP (FDR2022-1079), International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research 2022 (FDR2022), 2022 年 10 月 16 日.
- [4] Hideki Tomita, Hiroki Miura, Volker Sonnenschein, Shoki Yoshimura, Takumi Umedate, Masato Morita, Tetsuo Sakamoto, Masabumi Miyabe, Ikuo Wakaida, Timing synchronization and position stabilization of laser pulses in resonance ionization mass spectrometry for multi-element/isotope analysis (FDR2022-1078), International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research 2022 (FDR2022), 2022 年 10 月 15 日.
- [5] 三浦裕玖, 松本尚樹, 井坪暁, 吉村昌稀, 森田真人, 坂本哲夫, 富田英生, 共鳴イオン化 2 次中性粒子質量分析による多元素・同位体分析のための波長可変レーザーシステムの開発 (16p-D519-12), 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, 2023 年 3 月 16 日.

- [6] 三浦裕玖, 松本尚樹, 井坪暁, 富田英生, 森田真人, 坂本哲夫, レーザー共鳴イオン化-2次中性粒子質量分析による多元素の迅速同位体分析に向けた基礎検討(Poster22), 次世代放射線シンポジウム 2022, 2022年8月18日.

4. 結言

少量燃料デブリ中の FP 及び α 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。東電 HD・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}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。さら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進めている。

令和 4 年度は研究計画 2 年目となり、1 年目に設計・試行した機構やアイデアを実証しつつ、各参画機関の実施項目を計画通りに進めてきた。懸念の一つであった、高線量試料における 2 次電子像や 2 次イオン検出器へのノイズの混入は目標とする最大ベクレル数 37 MBq での実証ではなかったものの、1.1 MBq での結果から外挿すれば最大ベクレル数においても、放射線による質量スペクトルへの影響はないものとわかり、実用分析に向けて課題を 1 つ解決した。また、同位体マイクロイメージング装置は TOF-SIMS 装置と(共鳴イオン化のための)波長可変 Ti:Sa レーザーシステムの融合であるが、レーザーの安定動作や操作性、調整のしやすさは実用性に直結する。この点においては、レーザーの稼働状態のリアルタイムモニタリングシステムを開発し、状況把握が可能となる一方、室温や湿度によってレーザーの発振状態が変化することを踏まえれば、将来的にはレーザー設置環境とレーザー出力やパルスタイミングの相関関係を把握し、一定以上の条件下に環境を整備する、もしくは、レーザーパラメーターにフィードバックし、環境変化に強いレーザーシステムに発展させることも可能である。また、レーザーのタイミングや光軸合わせについては、名古屋大学において基礎開発、工学院大学において実証実験を進めており、多くは令和 4 年度に実現の目途が立った。このことは必ずしもレーザーの原理に精通していないエンドユーザーが本装置を多数の試料の分析に使う上で重要な点であり、現状においては必ずしも十分とは言えず、人材育成の面では数日から 1 週間ほどトレーニングを積み重ねれば定型的オペレーションが可能なが令和 4 年度の人材育成活動により明らかとなった。

東電 HD から提供されたスミア試料の JAEA 大洗研究所での分析は SEM-EDX や TEM-EELS とは別角度からの情報、特に微粒子内部の成分分布が可視化できた点では予定通り、一步前進といえる。しかしながら、原因が特定できていない質量スペクトルのバックグラウンドの高さから、TOF-SIMS 特有の微量元素・同位体分析能力が十分に発揮できているとは言えず、令和 5 年度も引き続きバックグラウンド問題に取り組み、本来の性能を実現するべく、装置各所を丁寧に点検・改善していく予定である。

参考文献

- [1] 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), pp. 15-30,
https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2018/images2/d180726_08-j.pdf#page=15 (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [2] 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), pp. 3-20,
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2019/d190530_07-j.pdf#page=3 (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [3] 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), pp. 25-50,
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2020/d201126_08-j.pdf#page=25 (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [4] 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), pp. 42-69,
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2022/d220427_08-j.pdf#page=42 (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [5] JAEA, 東京電力 HD, debrisWiki (分析データ), <https://fdada-plus.info/wiki/> (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [6] 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://warp.da.ndl.go.jp/collections/content/info:ndljp/pid/12315900/www.nsr.go.jp/data/000242115.pdf> (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [7] 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 (参照: 2023 年 3 月 21 日) .
- [8] N. P. Penkin, V. A. Komarovski, “Relative values of oscillator strengths of Nd I spectral lines”, *Opt. Spectrosc*, vol.35, no.1, pp.4-5, (1973).
- [9] E. A. Den Hartog, A. J. Fittante, J. E. Lawler, “Radiative lifetimes of neutral neodymium”, *J. Phys. B*, 44, 225001 (2011).
- [10] Yu M. Smirnov, “Supplement to the classification of Nd I line terminating in the $4f^46s^2\ ^5I$ state”, *Spectrochim. Acta B*, vol.50, pp.1179-1186 (1995).
- [11] E. Biemont, P. Quinet, S. Svanberg, H. L. Xu, “Experimental lifetime determination in neutral praseodymium (Pr I) and neodymium (Nd I)”, *J. Phys. B*, 37, pp.1381-1389 (2004).
- [12] J. P. Young, D. L. Donohue, D. H. Smith, “Application of resonance ionization mass spectrometry to the lanthanide elements in the wavelength region of 430-455 nm”, *Spectrochim. Acta B*, vol.44, no.2, pp.147-153 (1989).
- [13] 相島幸則, 池畑隆, 真瀬寛, 小倉浩一, 柴田猛順, レーザー共鳴イオン化生成プラズマの磁場を横切る流れ, *JAERI-Research 95-021* (1995).
- [14] H. Adachi, K. Tamura, K. Ogura, T. Shibata, “Ion collection from photoionized plasma with a wire electrode in a weak magnetic field”, *Jpn., J. Appl. Phys.*, vol. 38, pp.6887-6889 (1999).

- [15] N. Liu, M. R. Savina, A. M. Davis, I. Shkrob, T. Marin, M. Pellin, D. G. Willingham, “Development of resonance ionization method for isotopic analysis of neodymium at trace level in presolar grains” , 43rd Lunar and planetary science conference, 2401 (2012).
- [16] P. L. Smith, C. Heise, J. R. Esmond, R. L. Kurucz, Atomic spectral line database from CD-ROM 23 of R. L. Kurucz,
<https://lweb.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html>
(参照 : 2022 年 8 月 4 日) .
- [17] NIST Atomic Spectra Database, <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
(参照 : 2022 年 8 月 4 日) .

This is a blank page.

