

# 革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への 挑戦とLIBSによる検証 (委託研究)

—令和5年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Challenge for Screening of Nuclear Fuel Debris by Innovative Spectral Imaging and  
Its Verification by LIBS Mapping  
(Contract Research)

– FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource  
Development Project –

福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター  
大阪大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,  
Fukushima Research and Engineering Institute  
The University of Osaka

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

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証  
(委託研究)

—令和 5 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 福島廃炉安全工学研究所  
廃炉環境国際共同研究センター

大阪大学

(2025 年 7 月 22 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 5 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 5 年度に採択された研究課題のうち、「革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証」の令和 5 年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究の目的は、ハイパースペクトルイメージング (HSI) とレーザー誘起ブレークダウン分光 (LIBS) を組み合わせ、炉内物質を俯瞰的に認識・特定する技術を開発することである。HSI は 100 色以上のスペクトル情報を解析し、様々な物質の分類に既に応用されているものの、材料組成を直接評価できない。そこで HSI と LIBS を組み合わせることにより、正確かつ広範囲の炉内物質可視化技術となりうると考えた。

本技術の実証のためには、適切な模擬炉内物質を準備し、そのトレーニングデータを取得・蓄積する必要がある。本研究では、標準物質の作製と HSI データ解析を国立大学法人大阪大学、ウラン含有物質の作製と HSI/LIBS 測定を日本核燃料開発株式会社 (NFD)、LIBS 開発を JAEA が担当する。英国側からは、ストラスクライド大学、英国国立原子力研究所 (NNL)、ランカスター大学が本プロジェクトに参画している。

標準試料の組成を過去の実験と熱力学計算結果から決定し、 $UO_2$ 複合試料やコンクリートなどいくつかの試料を作製した。HSI データを NFD に設置されたハイパースペクトルカメラを用いて取得し、スペクトル角マッパー (SAM)、線形判別分析 (LDA) 等によりある程度物質を分類できることを確かめた。LIBS については、遠隔操作技術開発の一環として焦点距離の自動最適化技術の開発等に取り組んだ。

---

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、大阪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

Challenge for Screening of Nuclear Fuel Debris by Innovative Spectral Imaging  
and Its Verification by LIBS Mapping  
(Contract Research)

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

The University of Osaka

(Received July 22, 2025)

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 FY2023.

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 FY2023, this report summarizes the research results of the “Challenge for screening of nuclear fuel debris by innovative spectral imaging and its verification by LIBS mapping” conducted in FY2023.

The present study aims to develop a remote-sensing technique to identify the in-reactor materials by a combination of Hyper Spectral Imaging (HSI) and Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS). HSI analyzes spectral information of more than 100 colors, and is being applied to classify various materials. On the other hand, material composition cannot be directly evaluated by HSI. Therefore, we thought that the combination of HSI and LIBS could be an accurate and wide-ranging visualization technique.

In order to demonstrate the HSI and LIBS, it is necessary to prepare standard materials that simulate in-reactor materials, and to acquire and accumulate training data on them. In this study, the University of Osaka is in charge of the preparation of standard materials and HSI data analysis, Nuclear Fuel Development (NFD) is in charge of the preparation of uranium bearing materials and HSI/LIBS measurements, and JAEA is in charge of LIBS development. On the UK side, the Univ. of Strathclyde, National Nuclear Laboratory (NNL), and Lancaster University participate in the joint research project.

The compositions of the standard samples were determined from past experiments and thermodynamic calculation results. Several samples such as UO<sub>2</sub> based composites and concrete were prepared. The HSI data were obtained using a hyperspectral camera installed in the NFD. For LIBS, we worked on the automatic optimization of focal distance as part of the development of remote operation technology.

Keywords: Hyperspectral Imaging, Laser Induced Breakdown Spectroscopy, Fuel Debris

---

This work was performed by the University of Osaka 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
7. 令和 5 年度 採択課題 .....	14
付録 成果報告書 .....	17

## 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
7. Accepted Proposal in FY2023 .....	14
Appendix Result Report .....	17

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）

## 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バイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壤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	斎藤 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 肇	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 2 課題、日露 2 課題）

研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

## 令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (～R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1～)	産業技術総合研究所

## 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島 2・3 号機ペデスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立 G E 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	慶應義塾大学

## 研究人材育成型廃炉研究プログラム

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

#### 令和 2 年度 採択課題一覧

##### 課題解決型廃炉研究プログラム

###### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍 (～R4. 7. 31) 村上 健太 (R4. 8. 1～)	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料研究機構

## 課題解決型廃炉研究プログラム

## 【一般研究】

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

## 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 匠樹	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
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 啓太朗	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

課題名	研究代表者	所属機関
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	淺間 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）

## 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 $\gamma$ 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
$\alpha$ 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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～)
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッセンジ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学
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

## 7. 令和 5 年度 採択課題

令和 5 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 5 年 3 月 1 日～令和 5 年 4 月 14 日（課題解決型）

令和 5 年 4 月 12 日～令和 5 年 6 月 15 日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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）・P0（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 5 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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的な $n \cdot \gamma$ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速 3 次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

## 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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和 5 年度分の研究成果について取りまとめたものである。

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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学

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 5 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

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦

と LIBS による検証

(契約番号 R05I120)

成果報告書

令和 6 年 3 月

国立大学法人大阪大学

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、大阪大学が実施した「革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証」の令和 5 年度分の研究成果を取りまとめたものである。

## 目次

概略 .....	viii
1. はじめに .....	1-1
2. 業務計画 .....	2-1
2.1 全体計画 .....	2-1
2.2 実施体制 .....	2-2
2.3 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法 .....	2-3
2.3.1 模擬燃料デブリの作製と分光画像データ解析に関する研究 .....	2-3
2.3.2 核燃料試料の作製及び分光画像解析データ取得に関する研究 .....	2-3
2.3.3 遠隔操作による元素マッピングと核燃料物質による実証に関する研究 .....	2-3
2.3.4 研究推進 .....	2-3
3. 実施内容及び成果 .....	3-1
3.1 模擬燃料デブリの作製と分光画像データ解析に関する研究（大阪大学）【令和5年度】 ..	3-1
3.1.1 模擬燃料デブリの作製【令和5年度】 .....	3-1
3.1.2 分光画像データ解析手法の構築【令和5年度】 .....	3-18
3.1.3 まとめ .....	3-22
3.2 核燃料試料の作製及び分光画像解析データ取得に関する研究（再委託先：NED）【令和5年度】 ..	3-23
3.2.1 核燃料試料の作製【令和5年度】 .....	3-23
3.2.2 元素分布分析の助勢及び分析試料の評価【令和5年度】 .....	3-63
3.2.3 まとめ .....	3-66
3.3 遠隔操作による元素マッピングと核燃料物質による実証に関する研究（連携先：JAEA） 【令和5年度】 .....	3-67
3.3.1 はじめに .....	3-67
3.3.2 酸化物試料等を対象とした遠隔操作による元素分布分析試験【令和5年度】 .....	3-67
3.3.3 まとめ .....	3-74
3.4 研究推進【令和5年度】 .....	3-75
4. 結言 .....	4-1
参考文献 .....	5-1

執筆者リスト

研究代表者

国立大学法人大阪大学 教授 牟田 浩明

再委託先

日本核燃料開発株式会社 主任研究員 坂本 寛  
坂口 知聰

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 グループリーダー 若井田 育夫

## 表一覧

表 3.1-1	福島産碎石の半定量元素分析結果	....	3-11
表 3.1-2	コンクリート溶融物の半定量元素分析結果	....	3-15
表 3.2-1	核燃料標準試料の成分表	....	3-23
表 3.2-2	核燃料試料の焼結条件	....	3-24
表 3.2-3	EDS の実施場所	....	3-24
表 3.2-4	核燃料試料の液浸密度	....	3-26
表 3.2-5	核燃料試料の結晶構造解析結果一覧	....	3-38
表 3.2-6	核燃料試料の半定量元素分析結果	....	3-62
表 3.2-7	エバ・ジャパン製ハイパースペクトルカメラの仕様	....	3-64
表 3.3-1	不均一混合試料の元素組成	....	3-69
表 3.3-2	各元素を特長付ける発光波長・X線の例	....	3-70

## 図一覧

図 1-1	ハイパースペクトルイメージング	1-2
図 1-2	英知事業における LIBS 研究と廃炉・汚染水・処理水対策事業への展開	1-2
図 1-3	提案する炉内物質可視化技術のイメージ	1-3
図 2. 1-1	年度別全体計画	2-1
図 2. 2-1	実施体制	2-2
図 3. 1-1	VULCANO test における組成と生成物外観	3-3
図 3. 1-2	熱力学計算による Fe-Cr-Ni 生成物の酸素濃度依存性	3-3
図 3. 1-3	ホウ化物を含む模擬炉内物質の溶解後生成物	3-4
図 3. 1-4	1F 炉内で採取されたサンプルの例	3-5
図 3. 1-5	1F 炉内で観察された金属光沢付着物	3-5
図 3. 1-6	鉄酸化物系試料の外観	3-7
図 3. 1-7	鉄酸化物系試料の X 線回折スペクトル	3-7
図 3. 1-8	鉄酸化物系試料の EDS マッピング像	3-9
図 3. 1-9	福島産碎石の外観	3-11
図 3. 1-10	福島産碎石の X 線回折スペクトル	3-12
図 3. 1-11	福島産碎石の EDS マッピング像 (1) Pebble1	3-13
	福島産碎石の EDS マッピング像 (2) Pebble2	3-14
図 3. 1-12	コンクリート試料の外観	3-15
図 3. 1-13	溶融コンクリートの EDS マッピング像 (1) 黒色ガラス箇所	3-16
	溶融コンクリートの EDS マッピング像 (2) 溶け残り箇所	3-17
図 3. 1-14	解析手法の概略 (1) SAM 解析 (2) 線形判別分析	3-18
図 3. 1-15	反射率 (1) コンクリート試料 (2) 鉄酸化物試料	3-20
図 3. 1-16	標準試料の RGB 画像	3-21
図 3. 1-17	標準試料の分光画像データ及び解析領域	3-21
図 3. 1-18	標準試料の分光画像データ解析結果	3-22
図 3. 2-1	核燃料試料の外観写真 (1) 酸化物系核燃料試料	3-25
	核燃料試料の外観写真 (2) 金属系核燃料試料	3-26
図 3. 2-2	核燃料試料の結晶構造解析結果(1) Z104F1SE01 (1%U <sub>2</sub> -49.5%ZrO <sub>2</sub> -49.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> )	3-28
	核燃料試料の結晶構造解析結果(2) Z104F1SE02 (5%U <sub>2</sub> -47.5%ZrO <sub>2</sub> -47.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> )	3-29
	核燃料試料の結晶構造解析結果(3) Z104F1SE03 (10%U <sub>2</sub> -45%ZrO <sub>2</sub> -45%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> )	3-30
	核燃料試料の結晶構造解析結果(4) Z104F1SE04 (50%U <sub>2</sub> -25%ZrO <sub>2</sub> -25%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> )	3-31
	核燃料試料の結晶構造解析結果(5) Z104F1SE05 (95%U <sub>2</sub> -5%Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	3-32
	核燃料試料の結晶構造解析結果(6) Z104F1SE06 (1%U <sub>2</sub> -99%コンクリート)	3-33
	核燃料試料の結晶構造解析結果(7) Z104F1SE07 (5%U <sub>2</sub> -95%コンクリート)	3-34
	核燃料試料の結晶構造解析結果(8) Z104F2SE01 (1%U <sub>2</sub> -49.5%Zr-49.5%SUS316L)	3-35
	核燃料試料の結晶構造解析結果(9) Z104F2SE02 (5%U <sub>2</sub> -47.5%Zr-47.5%SUS316L)	3-36
	核燃料試料の結晶構造解析結果(10) Z104F2SE03 (10%U <sub>2</sub> -45%Zr-45%SUS316L)	3-37

図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(1) Z104F1SE01 (1%UO <sub>2</sub> -49.5%ZrO <sub>2</sub> -49.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 35 倍) ....	3-40
核燃料試料の EDS マッピング像	
(1) Z104F1SE01 (1%UO <sub>2</sub> -49.5%ZrO <sub>2</sub> -49.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 200 倍) ....	3-41
核燃料試料の EDS マッピング像	
(2) Z104F1SE02 (5%UO <sub>2</sub> -47.5%ZrO <sub>2</sub> -47.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 35 倍) ....	3-42
核燃料試料の EDS マッピング像	
(2) Z104F1SE02 (5%UO <sub>2</sub> -47.5%ZrO <sub>2</sub> -47.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 200 倍) ....	3-43
核燃料試料の EDS マッピング像	
(3) Z104F1SE03 (10%UO <sub>2</sub> -45%ZrO <sub>2</sub> -45%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 35 倍) ....	3-44
核燃料試料の EDS マッピング像	
(3) Z104F1SE03 (10%UO <sub>2</sub> -45%ZrO <sub>2</sub> -45%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 200 倍) ....	3-45
核燃料試料の EDS マッピング像	
(4) Z104F1SE04 (50%UO <sub>2</sub> -25%ZrO <sub>2</sub> -25%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 35 倍) ....	3-46
核燃料試料の EDS マッピング像	
(4) Z104F1SE04 (50%UO <sub>2</sub> -25%ZrO <sub>2</sub> -25%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ) (倍率: 200 倍) ....	3-47
核燃料試料の EDS マッピング像	
(5) Z104F1SE05 (95%UO <sub>2</sub> -5%Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) (倍率: 35 倍) ....	3-48
核燃料試料の EDS マッピング像	
(5) Z104F1SE05 (95%UO <sub>2</sub> -5%Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) (倍率: 200 倍) ....	3-49
核燃料試料の EDS マッピング像	
(6) Z104F1SE06 (1%UO <sub>2</sub> -99%コンクリート) (倍率: 35 倍) ....	3-50
核燃料試料の EDS マッピング像	
(6) Z104F1SE06 (1%UO <sub>2</sub> -99%コンクリート) (倍率: 200 倍) ....	3-51
核燃料試料の EDS マッピング像	
(7) Z104F1SE07 (5%UO <sub>2</sub> -95%コンクリート) (倍率: 35 倍) ....	3-52
核燃料試料の EDS マッピング像	
(7) Z104F1SE07 (5%UO <sub>2</sub> -95%コンクリート) (倍率: 200 倍) ....	3-53
核燃料試料の EDS マッピング像	
(8) Z104F2SE01 (1%UO <sub>2</sub> -49.5%Zr-49.5%SUS316L) (倍率: 35 倍) ....	3-54
核燃料試料の EDS マッピング像	
(8) Z104F2SE01 (1%UO <sub>2</sub> -49.5%Zr-49.5%SUS316L) (倍率: 200 倍) ....	3-55
核燃料試料の EDS マッピング像	
(9) Z104F2SE02 (5%UO <sub>2</sub> -47.5%Zr-47.5%SUS316L) (倍率: 35 倍) ....	3-56
核燃料試料の EDS マッピング像	
(9) Z104F2SE02 (5%UO <sub>2</sub> -47.5%Zr-47.5%SUS316L) (倍率: 200 倍) ....	3-57
核燃料試料の EDS マッピング像	
(10) Z104F2SE03 (10%UO <sub>2</sub> -45%Zr-45%SUS316L) (倍率: 35 倍) ....	3-58
核燃料試料の EDS マッピング像	
(10) Z104F2SE03 (10%UO <sub>2</sub> -45%Zr-45%SUS316L) (倍率: 200 倍) ....	3-60
ハイパースペクトルカメラ装置構成	
図 3.2-4 ハイパースペクトルカメラ装置構成 ....	3-64
図 3.2-5 核燃料試料の RGB 画像 ....	3-65
図 3.2-6 核燃料試料の分光画像データ及び解析領域 ....	3-65
図 3.2-7 核燃料試料の分光画像データ解析結果 ....	3-66

図 3.3-1	従来の光ファイバーLIBS とマイクロチップレーザーLIBS の概念	....	3-67
図 3.3-2	マイクロチップレーザーLIBS プローブ部及び計測系の概要	....	3-69
図 3.3-3	作製した不均一酸化物試料の概要	....	3-69
図 3.3-4	不均一混合試料の全波長領域でのスペクトル取得例	....	3-70
図 3.3-5	LIBS、SEM-EDS による多元素不均一試料の相対元素マッピングの結果	....	3-71
図 3.3-6	音響波強度、スペクトル強度の Z 軸位置依存性計測の全体像	....	3-72
図 3.3-7	レーザー照射痕直径とスペクトル強度の Z 軸依存性	....	3-73
図 3.3-8	レーザー照射痕直径とレーザー誘起音響波強度の Z 軸依存性	....	3-73

## 略語一覧

CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	(国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
東電	: 東京電力ホールディングス株式会社	
1F	: 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所	
大阪大学	: 国立大学法人大阪大学	
NFD	: 日本核燃料開発株式会社	
EDS	: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy	(エネルギー分散型 X 線分光法)
HSI	: HyperSpectral Imaging	(ハイパースペクトルイメージング)
LIBS	: Laser Induced Breakdown Spectroscopy	(レーザー誘起ブレークダウン分光)
SEM	: Scanning Electron Microscope	(走査電子顕微鏡)
TEM	: Transmission Electron Microscope	(透過電子顕微鏡)
XRD	: X-Ray Diffraction analysis	(X 線回折測定)
IRID	: International Research Institute for nuclear Decommissioning	(国際廃炉研究開発機構)
高純度研	: 株式会社高純度化学研究所	
NNL	: National Nuclear Laboratory	(英国国立原子力研究所)
SAM	: Spectral Angle Mapper	(スペクトル角マッパー)
LDA	: Linear Discriminant Analysis	(線形判別分析)

## 概略

安全かつ効率的な燃料デブリの取り出しのためには、燃料デブリを含む炉内物質を事前に把握する必要がある。本事業では、ハイパースペクトルイメージング (HSI) とレーザー誘起ブレークダウン分光 (LIBS) を組み合わせ、新たな炉内物質可視化技術とすることを提案する。適切な標準データの測定と分析技術の検討及び装置開発を行い、提案技術の実現性を検証することを本事業の目的とする。

3カ年計画の1年目である令和5年度は、標準試料の検討、装置の導入・整備を中心に行った。炉内物質に関する文献等の調査より、作製対象とする標準試料組成を決定した。また、一部試料については試作した。ハイパースペクトルカメラを導入し、試作した試料について予備的な測定・分析を実施した。また、LIBSにおいては遠隔操作による自動マッピングのための部品の整備、予備評価を行った。

## 1. はじめに

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」と略す。）における燃料デブリ取り出し作業を安全かつ効率的に推進するには、まず炉内状況の事前調査、詳細分析のためのサンプリング点の確認、燃料デブリそのものの現場確認が必要となる。この炉内状況把握のため、遠隔操作水中ロボットの投入等によって内部堆積物・瓦礫の形状観察や線量の測定が進められている。これらの調査の結果、例えば1号機内部においては棚状・塊状といったさまざまな形状の堆積物、さまざまな色彩をもつペデスタル内壁への付着物などが確認されている<sup>[1-1]</sup>。しかし、これらが燃料デブリそのものであるかを含め、核燃料物質の分布、炉内物質の組成に関する情報はほとんど得られていない。堆積物の形成過程、溶融デブリ広がり状況など、事故進展挙動を明らかにするためにも、これら炉内物質を同定・把握する技術の開発が求められている。

炉内線量は非常に高く、炉内物質同定は分光学的技術など遠隔操作で行われることが望ましい。近年、分光学的画像診断技術として、HSIの発展が目覚ましい。これは可視近赤外領域を100色以上に分けた分光像を取得することで、物質や状態を画像として認識する技術である（図1-1）。HSIの駆使により、人工衛星からの植生分布や野菜の種類・作付け状態の確認、食肉の鮮度評価、プラスチックの分別、異物検知等、物質・状態の分別や特徴付けが可能となる<sup>[1-2]</sup>。この技術を炉内物質に応用できれば、燃料デブリ、汚染物、瓦礫等を分別し、炉内物質を俯瞰的な画像として認識・特定することが可能となる。

一方、HSIによる物質同定はあくまで推定であり、適切な測定・分析を行わないことで分類を誤る恐れがある。このため本事業では、HSIに加えて光ファイバーを活用したLIBS技術に着目した。LIBS技術は、レーザー照射によって発生するプラズマの分光分析から構成元素を同定する技術であり、図1-2に示すように、文部科学省原子力システム研究開発事業、廃炉加速化プログラム、英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（英知事業）により、燃料デブリの遠隔その場分析技術として、その基礎基盤技術が形成されてきた。さらに、この成果を活用することで、1F廃炉現場での適用に必要な技術開発が経済産業省廃炉・汚染水・処理水対策事業（エネ庁補助事業）で進められており、ウランを含む模擬物質の元素分析が可能なことが実証されている<sup>[1-3]</sup>。そこで、分析領域は限られるものの、構成元素の直接評価が可能なLIBS技術と適切な教師データ・実験条件の確立が必要ながら俯瞰的分類を可能とするHSIを組み合わせることで、これまでにない広範囲に及ぶ炉内物質の可視化・検証を可能とする新しい技術が成立する可能性のあることに着目した。本事業が提案するこの技術のイメージを図1-3に示す。本事業では、このHSI技術とLIBS技術とを組み合わせた炉内物質可視化技術について、それぞれの開発を進め、その実現性を検証することを目的とする。

HSI及びその原子力分野への適用については、英国ストラスクライド大学を中心としたグループが先端的な知見を有している<sup>[1-4]</sup>。また、LIBSによる炉内物質評価及び炉内物質の分析については、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。）、廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）が研究開発を先導してきた<sup>[1-3]</sup>。英国と日本が協同で研究を進めることで、本技術の開発促進及び高いシナジー効果が期待できる。また、その可能性が検証され、今後英知事業によるさらなる展開により確実な技術検証がなされれば、先行技術であるLIBSと組み合わせ、1F廃炉現場適用化に向けて廃炉・汚染水・処理水対策事業での技術開発に移行していくことも期待できる。

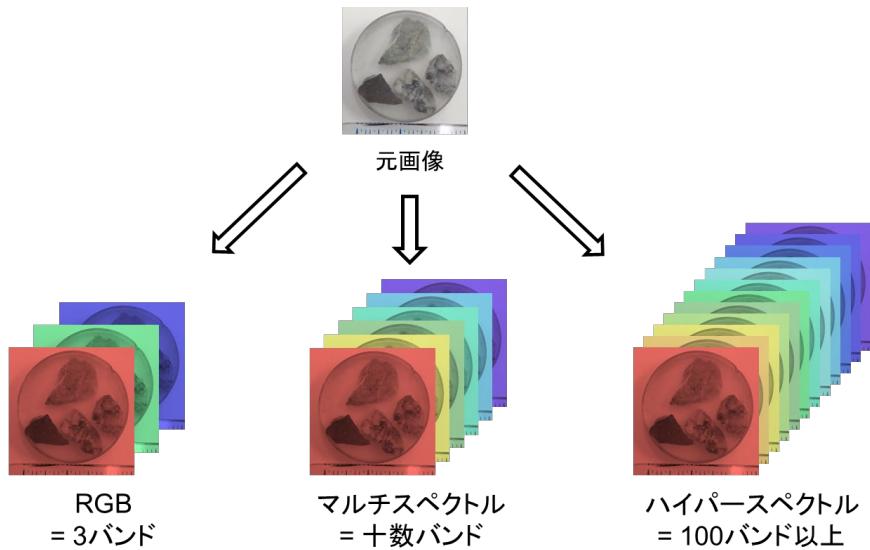


図 1-1 ハイパースペクトルイメージング

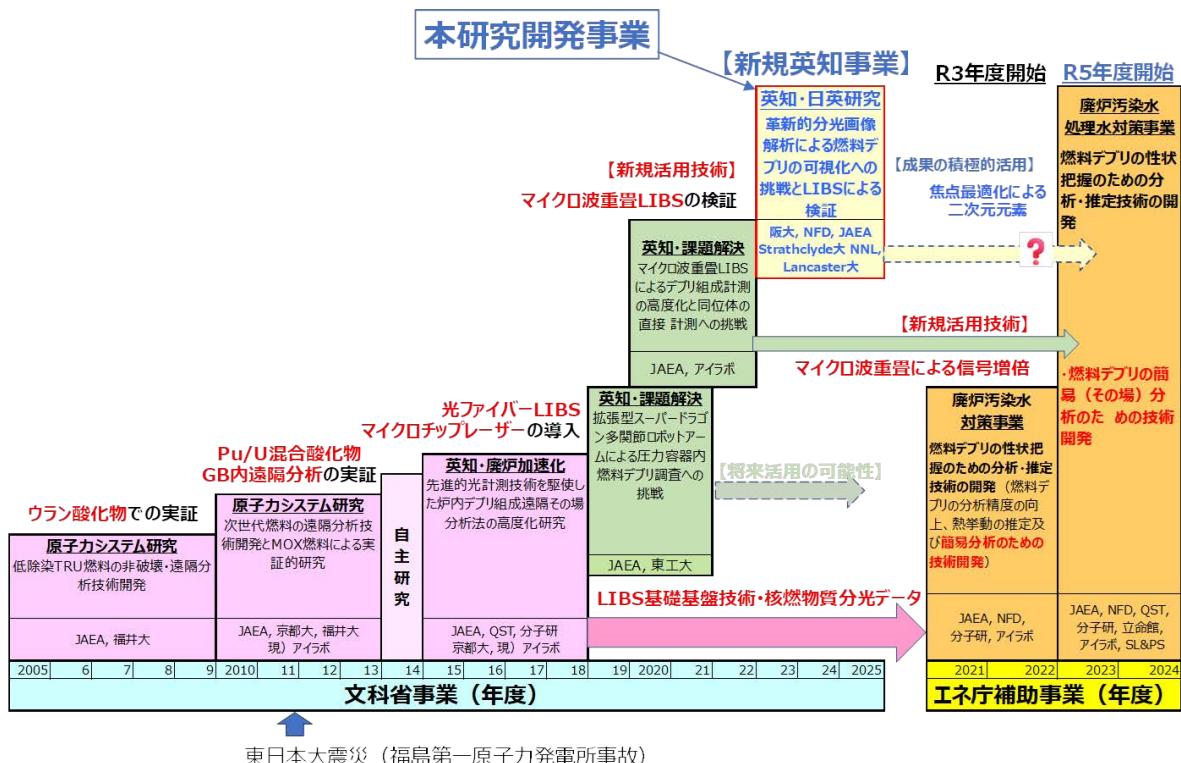


図 1-2 英知事業における LIBS 研究と廃炉・汚染水・処理水対策事業への展開

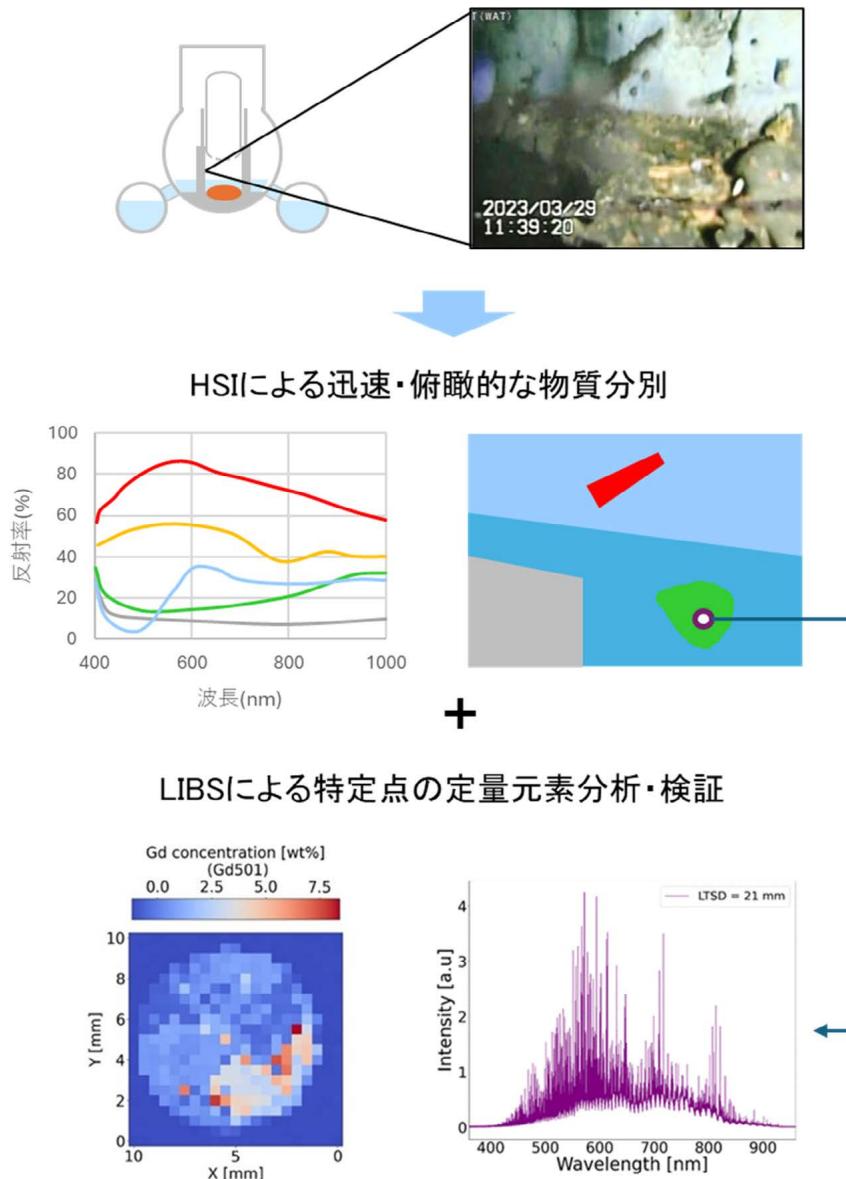


図 1-3 提案する炉内物質可視化技術のイメージ

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本業務の年度別全体計画を図 2.1-1 に示す。

項目(1)模擬燃料デブリの作製と分光画像データ解析に関する研究では、HSI 分析に必要となる教師データ・標準データ取得及び LIBS 測定に供する模擬燃料デブリ試料を作製する。また、項目(2)で得られた HSI データと組成情報を関連づける解析手法を構築する。

項目(2)核燃料試料の作製及び分光画像解析データ取得に関する研究では、HSI 分析及び LIBS 測定に供する核燃料試料を作製するほか、HSI データの取得、LIBS 測定の助勢、LIBS 測定前後の試料評価を実施する。

項目(3)遠隔操作による元素マッピングと核燃料物質による実証に関する研究では、酸化物試料を対象として、LIBS プローブ焦点方向計測の最適条件を見出し、元素の面分布情報を自動取得可能とする開発を実施する。

項目(4)研究推進においては、各研究項目間ならびに英国機関、CLADS 等との連携を密にして、研究を推進する。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

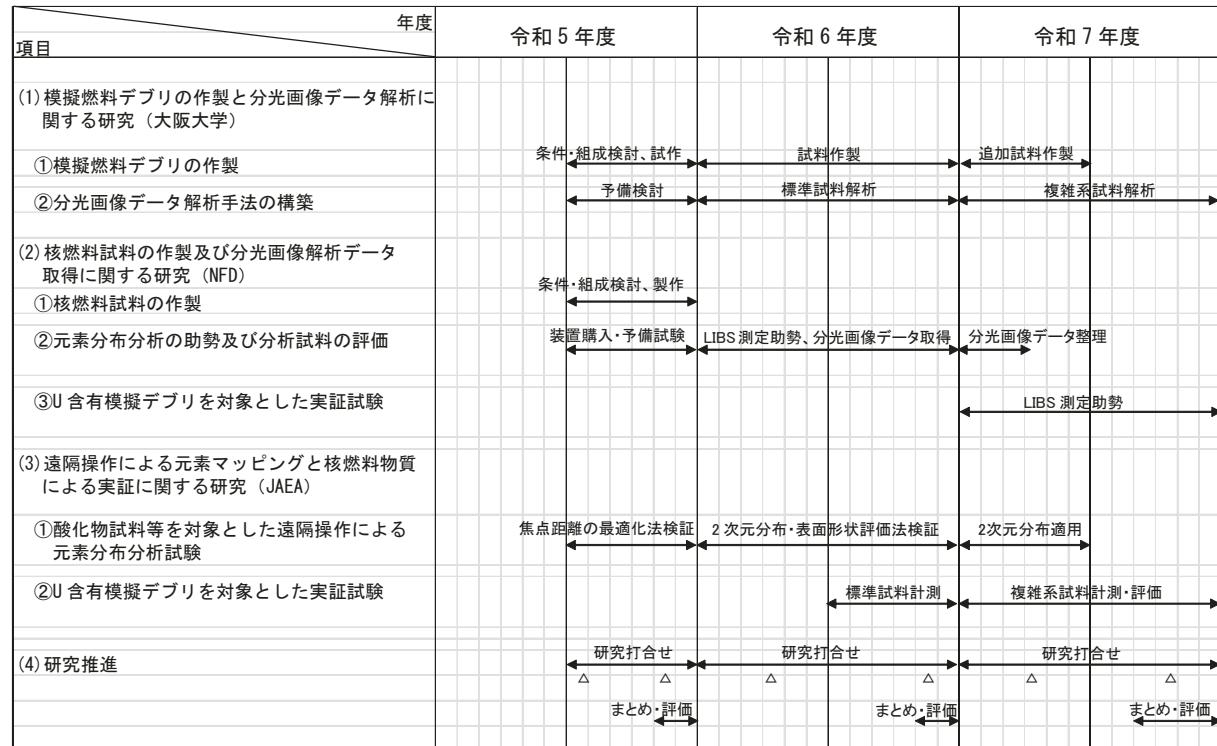


図 2.1-1 年度別全体計画

## 2.2 実施体制

実施体制を図 2.2-1 に示す。

日本側は代表機関の国立大学法人大阪大学（以下、「大阪大学」と略す。）、再委託機関の日本核燃料開発株式会社（以下、「NFD」と略す。）、連携機関の JAEA がそれぞれ研究項目(1)、(2)、(3)を担当する。それぞれの機関で 39 歳以下の若手研究者が参画している。英国側はストラスクラ Clyde 大学が代表機関となり、再委託先機関として英國國立原子力研究所（NNL）、ランカスター大学が参画する。ストラスクラ Clyde 大学が HSI 測定ならびに分析を、NNL が模擬燃料デブリ作製を、ランカスター大学がガンマ線及び中性子線測定を担当する。適宜オンラインで進捗状況を共有するとともに、令和 6 年度以降に共同実験・解析を進める。

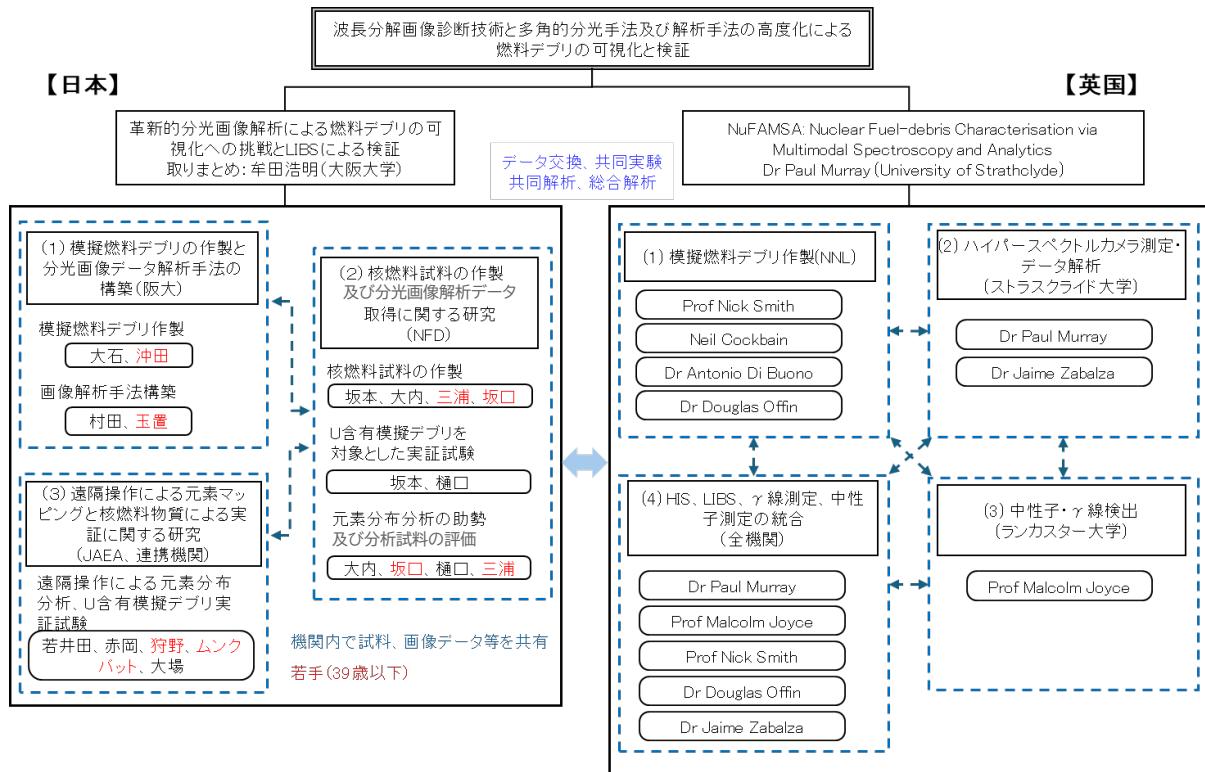


図 2.2-1 実施体制

## 2.3 令和 5 年度の成果の目標及び業務の実施方法

### 2.3.1 模擬燃料デブリの作製と分光画像データ解析に関する研究

#### (1) 模擬燃料デブリの作製

文献調査により分析対象とする物質を検討・決定する。分析対象としてウラン含有試料、酸化物、合金、ホウ化物等を検討する。一部試料について、固相反応法あるいはアーク溶解等により試作する。合成・粉碎後の焼結及び密度調整は放電プラズマ焼結によって行う。試作した試料について X 線回折測定 (X-Ray Diffraction analysis : XRD) による結晶構造解析、エネルギー分散型 X 線分光法 (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy : EDS) による半定量元素分析を実施する。

#### (2) 分光画像データ解析手法の構築

工業製品等で用いられている分光画像データの解析手法を調査し、予備検討を行う。

### 2.3.2 核燃料試料の作製及び分光画像解析データ取得に関する研究

#### (1) 核燃料試料の作製

核燃料試料の一部を焼結等により作製し、作製した試料の試験前評価を行う。試験前評価では外観観察、液浸法による密度測定、XRD による結晶構造解析、EDS による半定量元素分析を実施する。

#### (2) 元素分布分析の助勢及び分析試料の評価

ハイパースペクトルカメラを購入し、一部の核燃料試料を使用した予備試験を実施して、適用妥当性に資する分光画像データが取得できることを確認する。予備的な分光画像解析を実施して、令和 6 年度以降に適用する撮影条件案を検討する。ハイパースペクトルカメラの選定にあたっては英国側との整合も考慮する。

### 2.3.3 遠隔操作による元素マッピングと核燃料物質による実証に関する研究

#### (1) 酸化物試料等を対象とした遠隔操作による元素分布分析試験

XYZ 方向制御によるマイクロチップレーザーLIBS プローブを整備し、ステージを操作して二次元元素分布が取得できることを確認する。また、焦点方向の計測の最適条件をレーザー誘起超音波により評価し、音波計測によりスペクトル計測が可能であることを確認する。

### 2.3.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

### 3. 実施内容及び成果

#### 3.1 模擬燃料デブリの作製と分光画像データ解析に関する研究（大阪大学）【令和5年度】

##### 3.1.1 模擬燃料デブリの作製【令和5年度】

###### (1) 文献調査

HSI 分析及び LIBS 測定に供するべき標準試料物質及び組成を決定するため、炉内物質の反応試験あるいは熱力学計算による生成物質の評価を行った文献、また、国際廃炉研究開発機構（IRID）による 1F 内の調査結果をレビューした。以下の①～⑤において、報告されている生成物について検討した。

① Material characterization of the VULCANO corium concrete interaction test with concrete representative of Fukushima Daiichi Nuclear Plants <sup>[3.1-1]</sup>

本文献は、コンクリート製容器に Zr、ZrO<sub>2</sub>、UO<sub>2</sub>、Fe、CaO を混合した粉末を高周波炉で加熱溶融し、その反応物を観察した実験結果を報告している。図 3.1-1 に粉末の初期組成とコンクリート組成を示す<sup>[3.1-1]</sup>。上部に多孔質のクラスト、下部には鉄系合金を主とした合金の形成がみられたほか、溶融物とコンクリートとの反応、浸食が確認されている。観察された主な化合物は以下のとおりである。

- ・ウラン含有試料：(U, Zr)O<sub>2</sub> (U/Zr 比はさまざま、立方晶または正方晶構造)
- ・金属（合金）：Fe-Cr-Ni (SUS)、  
Fe-Ni (SUS 中の Cr は一部酸化、Fe-Ni 合金の Fe/Ni 比はおよそ 4)
- ・酸化物：(Fe, Cr)<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、(Mg, Fe, Cr)<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、(Mg, Fe, Cr, Al, Si, Mn)<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、FeO、…
- ・コンクリートとその反応物

② Thermodynamic evaluation of the solidification phase of molten core-concrete under estimated Fukushima Daiichi nuclear power plant accident conditions <sup>[3.1-2]</sup>

本論文は、1号機における溶融炉心一コンクリート反応 (MCCI) で形成される平衡状態での物質及びその重量割合を熱力学計算で求めた結果を報告している。冷却速度、酸素分圧等をパラメータとしたさまざまな条件での計算を実施している。図 3.1-2 に計算で用いた組成の例と形成される Fe-Cr-Ni 相の酸素分圧依存性を示す<sup>[3.1-2]</sup>。他の結果とあわせて、生成された化合物は以下が含まれる。必ずしも炉内を模擬しない条件での計算が含まれるため、多様な化合物が報告されている。

- ・ウラン含有試料：(U, Zr)O<sub>2</sub>、(Zr, U)SiO<sub>4</sub>、U<sub>4</sub>O<sub>9</sub>、U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>、UCaO<sub>4</sub>
- ・金属（合金）：Fe-Cr-Ni (SUS)、Fe-Ni、Fe
- ・酸化物：(Fe, Cr)<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (spine1)、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、(Fe, Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>
- ・コンクリートとその反応物：SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaSiO<sub>3</sub>、CaAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub>
- ・その他：FeSi、Cr-Si、ZrSi

③ Characterization of solidified melt among materials of UO<sub>2</sub> fuel and B<sub>4</sub>C control blade <sup>[3.1-3]</sup>

制御棒中に含まれるホウ素が形成する化合物についての報告は少ない。本論文は、ホウ素化合物を含む炉心材料の粉末をいくつかの割合で混合し、アーク溶解で溶融させたときに形成される化合物を実験的に評価している。図 3.1-3 に確認された化合物のリストを示す<sup>[3.1-3]</sup>。化合物には以下が含まれる。

- ・ウラン含有試料 :  $(U, Zr)O_2$
- ・金属 (合金) : Fe-Cr-Ni (SUS)、Zr、U、 $Fe_2Zr$
- ・酸化物 : 上記の  $(U, Zr)O_2$  のみ
- ・ホウ化物 :  $ZrB_2$ 、 $(Fe, Cr)_2B$ 、 $CrB$

④ 令和3年度開始 燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発 最終報告書 (IRID) <sup>[3.1-4]</sup>

本報告では、1F 炉内各所で採取されたサンプルについて、走査電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope : SEM)、透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope : TEM)、EDS 分析により組成と結晶構造を評価している。炉心構成物質に加え、海水成分やケーブル由来の元素など、さまざまなもののが報告されている。図 3.1-4 に一例を示す<sup>[3.1-4]</sup>。確認された化合物は以下が含まれる。

- ・ウラン含有試料 :  $(U, Zr)O_2$
- ・金属 (合金) : Fe-Cr-Ni (SUS)、Fe-Ni、…
- ・酸化物 :  $FeO$ 、 $Fe_3O_4$ 、 $(Fe, Cr)_3O_4$ 、…
- ・コンクリートとその反応物 :  $CaCO_3$ 、 $CaO$ 、…
- ・その他 : 海水成分、硫黄化合物、…

⑤ 1F 廃炉・事故調査に係る連絡・調整会議第 10 回会合資料 (IRID/TEPCO) <sup>[3.1-5]</sup>

本資料では、1F1 号機内部状況について遠隔操作水中ロボット等によって観察されたさまざまな堆積物や露出した鉄筋、付着物の外観が報告されている。元素分析は行われていないものの、ある程度の範囲にわたって金属光沢をもつ付着物が確認されており (図 3.1-5) <sup>[3.1-5]</sup>、周囲の状況から鉛と推定される。

- ・金属 (合金) : 鉛、Fe (鉄筋)

以上の文献等調査を踏まえ、本項目で模擬燃料デブリの標準物質として作製すべき試料を次のように決定した。

- ・ウラン含有試料 :  $(U, Zr)O_2$
- ・金属 (合金) : Fe-Cr-Ni (SUS)、 $Fe_{0.8}Ni_{0.2}$ 、 $Fe_2Zr$ 、Fe (鉄筋)、Pb
- ・酸化物 :  $FeO$ 、 $Fe_3O_4$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $(Fe, Cr)_3O_4$ 、 $ZrSiO_4$
- ・コンクリートとその反応物
- ・ホウ化物 :  $ZrB_2$ 、 $Fe_2B$

ウラン含有試料として  $U_3O_8$ 、 $(Zr, U)SiO_4$  などが②熱力学計算結果において報告されているが、いずれも炉内では観察されていないことを踏まえ、作製対象としなかった。また、Cs 化合物等の FP 関連物質や海水・ケーブル由来成分は、生成量が少ないと考えられるところから対象外とした。今後の 1F 内部状況調査の結果等により、必要があれば上記物質に加えて試料を作製する。

Initial corium and concrete composition- VF U1 test.

Corium initial composition (kg)					
Zr 5.5	ZrO <sub>2</sub> 7.0425	UO <sub>2</sub> 27.3	steel		CaO 0.2625
Concrete initial composition (wt%)					
SiO <sub>2</sub> 66.9	CaO 11.8	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 11.9	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 5.8		H <sub>2</sub> O 3.3

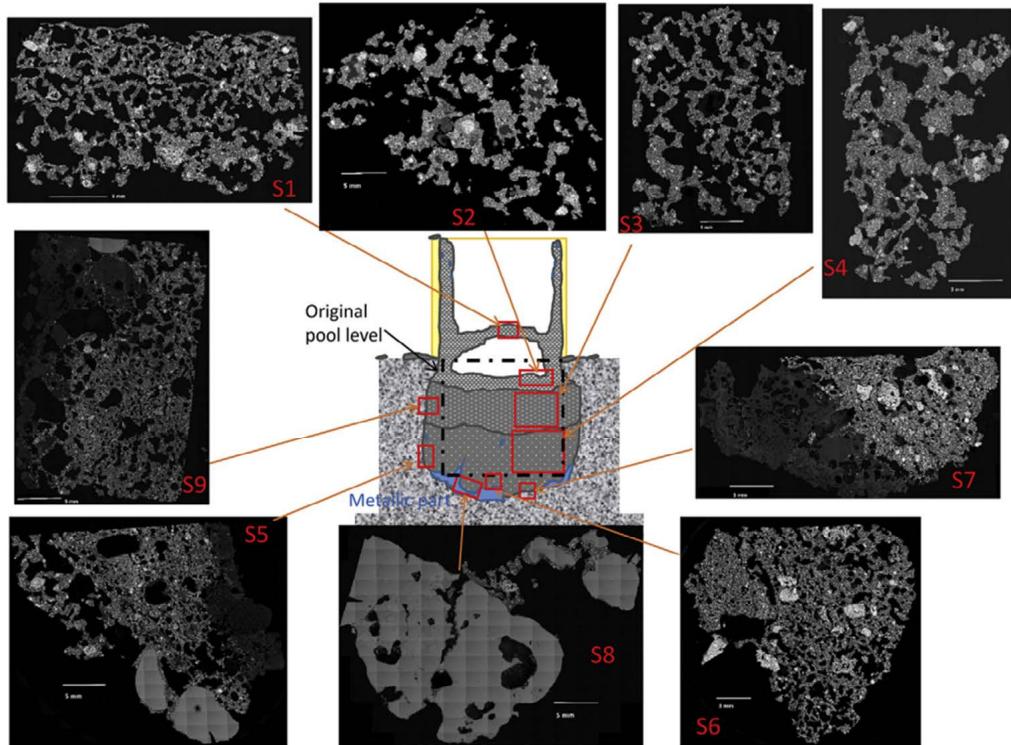


図 3.1-1 VULCANO test における組成と生成物外観 ([3.1-1]からの引用)

Case	Mass fractions [%]									Solidification condition
	UO <sub>2</sub>	Zr	ZrO <sub>2</sub>	SUS	Oxidized SUS	SiO <sub>2</sub>	CaO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
a	29.6	—	16.2	6.7	—	30.6	6.4	7.6	2.9	Equilibrium
b	35.6	—	19.5	8.0	—	23.8	5.0	5.7	2.3	Equilibrium
c	30.9	12.6	—	7.0	—	31.9	6.6	8.0	3.0	Equilibrium
d	28.8	—	15.8	—	0.093	29.7	6.2	7.4	2.8	Equilibrium
e	29.6	—	16.2	6.7	—	30.6	6.4	7.6	2.9	Scheil equation
f	29.6	—	16.2	6.7	—	30.6	6.4	7.6	2.9	Scheil equation without (Zr,U)SiO <sub>4</sub>

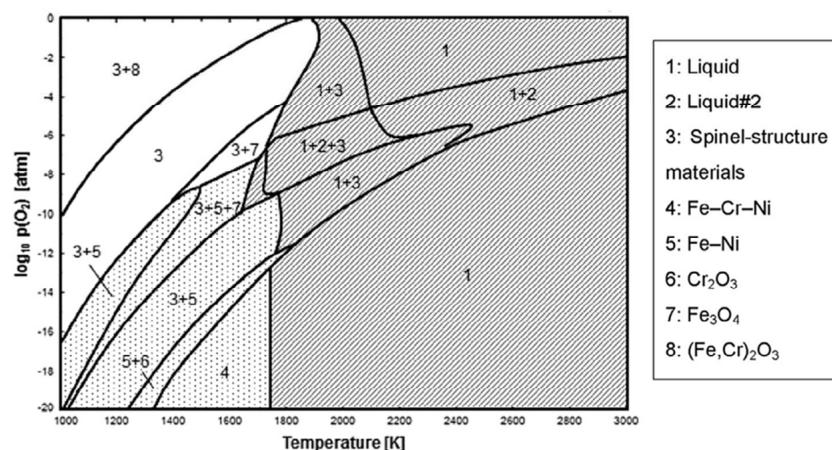


図 3.1-2 热力学計算による Fe-Cr-Ni 生成物の酸素濃度依存性 ([3.1-2]からの引用)

Sample No.	B <sub>4</sub> C	SS <sup>a</sup>	FeO	Zr	ZrO <sub>2</sub>	(U <sub>x</sub> Zr <sub>1-x</sub> )O <sub>2</sub>	B <sub>4</sub> C/(Fe + Cr + Zr <sup>b</sup> ) molar ratio	B/Zr <sup>b</sup> atomic ratio
0	—	—	—	50	—	50 (x = 1)	—	—
1	10	90	—	—	—	—	0.13	—
2	5	45	—	50	—	—	0.07	0.66
3	5	45	—	20	30	—	0.10	1.65
4	5	45	—	10	—	40 (x = 0.50)	0.11	3.30
5	4	36	5	15	—	40 (x = 0.75)	0.09	1.76

<sup>a</sup> Type-316L stainless steel <sup>b</sup> Metallic Zr

Sample No.	Preparation method	Phases detected by XRD <sup>a</sup>	Compositions determined by EDX analysis	
			x in (U <sub>x</sub> Zr <sub>1-x</sub> )O <sub>2±y</sub>	Borides, carbides, alloy phases (expressed in at%) <sup>c</sup>
0	Arc melting (Ar)	$\alpha$ -Zr(O), $\alpha$ -U, F-(U,Zr)O <sub>2</sub>	0.86	Zr(O), (U)
1	Arc melting (Ar)	Fe <sub>2</sub> B-type T, F-(Fe,Cr,Ni)	(No oxides)	(Fe <sub>0.75</sub> Cr <sub>0.17</sub> Ni <sub>0.08</sub> ) <sub>2</sub> B, (Fe <sub>0.47</sub> Cr <sub>0.51</sub> Ni <sub>0.02</sub> ) <sub>2</sub> B, 48Fe-2Cr-39Ni-11Si
2	Arc melting (Ar)	H-ZrB <sub>2</sub> , F-ZrC, Fe <sub>2</sub> Zr-type F and H	(No oxides)	ZrB <sub>2</sub> , ZrC, <u>48Fe-10Cr-9Ni-33Zr</u>
3	Arc melting (Ar)	ZrB <sub>2</sub> , M-ZrO <sub>2</sub>	0	ZrB <sub>2</sub> , 11Fe-23Ni-66Zr, 51Fe-2Cr-7Ni-40Zr,
4	Arc melting (Ar)	ZrB <sub>2</sub> , F-(U,Zr)O <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> Zr-type F	0.48 (major) ~0.4 (minor) ~0.9 (near alloy)	ZrB <sub>2</sub> , (Fe <sub>0.56</sub> Cr <sub>0.42</sub> Ni <sub>0.02</sub> ) <sub>2</sub> B, 80Fe-10Cr-10Ni, Fe-Cr-Ni-Zr-U (51/6/14/22/7, 50/7/16/16/11, 39/0/35/12/14, 58/13/13/7/8, 63/3/16/5/13, etc.)
5-1a	Arc melting (Ar)	ZrB <sub>2</sub> , F-(U,Zr)O <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> Zr-type F	0.51 (major) 0.3~0.4 (minor) 0.7~0.9 (near alloy)	ZrB <sub>2</sub> , 80Fe-12Cr-8Ni, Fe-Cr-Ni-Zr-U (50/2/20/11/17, <u>57/4/13/23/3</u> , <u>55/3/17/14/11</u> , 55/16/13/5/11, 53/8/17/7/15, 71/11/9/4/5, etc.)
5-1b	Annealing 5-1a (Ar, 1953 K)	ZrB <sub>2</sub> , F-(U,Zr)O <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> Zr-type F	0.51 (major) 0.2, 0.7 (minor) ~0.9 (near alloy)	ZrB <sub>2</sub> , 79Fe-13Cr-8Ni, Fe-Cr-Ni-Zr-U (50/2/19/21/8, <u>48/1/21/8/22</u> , <u>49/2/20/15/14</u> , etc.)
5-2a	Arc melting (Ar-0.1%O <sub>2</sub> )	ZrB <sub>2</sub> , F-(U,Zr)O <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> Zr-type F	0.51 (major) 0.3, 0.7 (minor) ~0.7 (near alloy)	ZrB <sub>2</sub> , 79Fe-13Cr-8Ni, Fe-Cr-Ni-Zr-U (52/5/9/29/4, <u>53/4/14/12/18</u> , <u>51/3/20/8/18</u> , 57/17/11/4/10, 52/11/15/7/14, etc.)
5-2b	Annealing 5-2a (Ar-0.1%O <sub>2</sub> , 1773 K)	ZrB <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> B-type T, (U,Zr)O <sub>2</sub> (F, T, M)	~0.1 (major) <sup>b</sup> 0.7~0.9 (minor) <sup>b</sup> 0.15, 0.9 (in alloy) <sup>b</sup>	ZrB <sub>2</sub> , (Fe <sub>0.75</sub> Cr <sub>0.20</sub> Ni <sub>0.05</sub> ) <sub>2</sub> B, Fe-Cr-Ni (73/2/25, 66/2/30, 56/0/44, etc.), Mo-Fe-Cr-Ni-Zr (50/32/15/1/1, 40/34/23/2/1, 11/22/4/5/58, etc.), 53Fe-28Ni-2Zr-17U, 34Fe-42Ni-8Si-15U

<sup>a</sup> F: face-centered cubic, T: tetragonal, M: monoclinic, H: hexagonal.<sup>b</sup> Oxide layer formed during annealing.<sup>c</sup> Underlined compositions correspond to the Fe<sub>2</sub>Zr-type intermetallic compound.

図 3. 1-3 ホウ化物を含む模擬炉内物質の溶解後生成物 ([3. 1-3] からの引用)

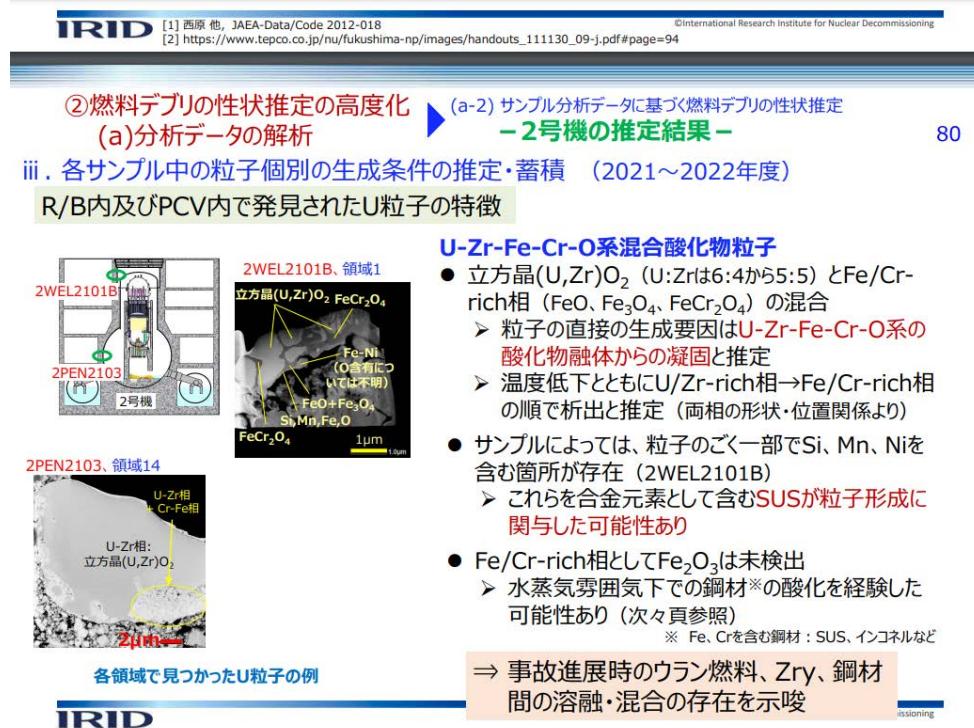


図 3.1-4 1F 炉内で採取されたサンプルの例 ([3.1-4]からの引用)

## 糸状堆積物

IRID  
TEPCO

- 構造物への付着が見られた箇所の下部に相当する場所で確認されることが多い
- 鉛毛マットのカバーに使用されているグラスファイバー等の糸状の素材の可能性
- 鉛等の溶融物が落下する際に途中で冷却されて糸状の物体に固化した可能性



図 3.1-5 1F 炉内で観察された金属光沢付着物 ([3.1-5]からの引用)

## (2) 試料作製

前述した試料のうち、令和5年度は燃料デブリを除く炉内物質の主成分と考えられる、鉄酸化物 ( $FeO$ 、 $Fe_3O_4$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $Fe_2CrO_4$ 、 $FeCr_2O_4$ ) 及びコンクリートの合成を試みた。

鉄酸化物系試料の合成においては、アーク溶解等の融解処理では酸素乖離をもたらすことから、固体粉末を混合・加熱し、原子拡散によって合成する固相反応法を選択した。出発物質として  $FeO$  粉末 (純度 99.5%、株式会社高純度化学研究所 (以下、「高純度研」と略す。))、 $Fe_3O_4$  粉末 (純度 99.5%、高純度研)、 $\alpha$ - $Fe_2O_3$  粉末 (純度 99.9%、高純度研)、 $Cr_2O_3$  粉末 (純度 99.5%、高純度研) を用いた。 $Fe_3O_4$ 、 $Fe_2O_3$  についてはこれら粉末を 200 MPa でコールドプレスした後、1000 °C で加熱し焼結体を得た。分離分解を防ぐため、 $Fe_3O_4$  は  $10^{-3}$  Pa

程度の真空中、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  は大気中で加熱した。 $\text{FeO}$  は 3% $\text{H}_2$ - $\text{Ar}$  気流中、真空中での加熱を行ったほか、黒鉛ダイス中に粉末を充填し、放電プラズマ焼結による固化を試みた。また、 $\text{Fe}_2\text{CrO}_4$ 、 $\text{FeCr}_2\text{O}_4$  については、 $\text{FeO}$  粉末と  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  粉末を化学量論比で秤量し、湿式ボールミルで 2 時間混合した後、コールドプレスし 3% $\text{H}_2$ - $\text{Ar}$  気流中で加熱する工程を 2 回繰り返した。

一部の鉄酸化物系試料の外観を図 3.1-6 に、また X 線回折スペクトルを図 3.1-7 に、EDS による元素マッピング像を図 3.1-8 に示す。 $\text{FeO}$  については雰囲気を調整した熱処理、また低温での放電プラズマ焼結を試みたが、高温熱処理では  $\alpha$ - $\text{Fe}$  と  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  への分解が起こり単相試料が得られず、また放電プラズマ焼結を含む低温での焼結では、測定に供するための強度が得られなかった。今後ダイス材質を変更し、より高圧での低温焼結を試みる。 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (Magnetite)、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (Hematite) については分解等もみられず、良好な焼結体が得られている。また  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  に Cr を固溶させた  $(\text{Fe}, \text{Cr})_3\text{O}_4$  については  $\text{Fe}_2\text{CrO}_4$  では単相かつ均質な試料が得られたものの、 $\text{FeCr}_2\text{O}_4$  では一部  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  不純物が確認されており、再度の混合・反応が必要である。単相かつ焼結体が得られた  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}_2\text{CrO}_4$  を HSI 測定に供した。

コンクリート試料は、福島県新田川の碎石、ポルトランドセメントを用いて作製した。碎石は一部を細かく碎き砂（細骨材）とし、一部はそのまま骨材として使用した。養生は行っていない。また得られたコンクリートについて加熱の影響を確かめるため、600 °C、1000 °C、1280 °C でそれぞれ 8 時間大気中にて加熱した。

用いた碎石の外観を図 3.1-9 に示す。碎石は一様ではなく、見た目が黒色のもの、白黒混合のもの、黄色みを帯びたものなどがみられた。見た目が異なる代表的な三つの碎石について、粉末 X 線回折測定を行った結果を図 3.1-10 に示す。Pebble1 が黒色、Pebble2 が黒色白黒混合、Pebble3 が黄色みを帯びた碎石のものである。回折ピークが多く断定が難しいものの、石英 (Quartz,  $\text{SiO}_2$ ) と長石 (Feldspar,  $(\text{Na}, \text{K})\text{AlSiO}_8$ ) が含まれるほか、輝石 (Augite,  $(\text{Ca}, \text{Mg}, \text{Fe})_2\text{Si}_2\text{O}_6$ )、黒雲母 (Biotite,  $\text{K}(\text{Mg}, \text{Fe})_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ )、白雲母 (Muscovite,  $\text{KAl}_2\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ ) などを含有しているものと推測される。石英はいずれの碎石にも含まれ、黒色のものは長石の含有量が少ない。Pebble2 と Pebble3 は見た目は異なるものの、X 線回折スペクトル上は違いがはつきりしない。このため、Pebble1 と Pebble2 に対して EDS による元素マッピングを行った。結果を図 3.1-11 に示す。また、いくつかの箇所の酸素を除く半定量元素分析結果を表 3.1-1 に示す。表中の番号は、それぞれの SEM 像に示した箇所に対応している。組成比から Pebble1 の③、Pebble2 の②が石英、Pebble 1 の②・③、Pebble2 の①が長石と考えられ、X 線回折スペクトルとも一致している。これらには Mg、Fe は含有されておらず、恐らく白色を呈すると思われる。Pebble1 の①、Pebble2 の③は Mg/Fe 比も近く、同種の鉱物と考えられ、輝石、黒雲母、白雲母などに相当すると考えられる。含まれる鉱石種は類似するものの、肉眼で確認できる見た目は大きく異なっている。

作製したコンクリート試料の外観を図 3.1-12 に示す。加熱によってセメント部分の色が変化している。また、1280 °C での加熱により部分的にコンクリートが溶融し、黒色のガラス状物質が形成された。この黒色ガラス状部と溶け残った箇所の EDS 元素マッピング像を図 3.1-13 に、また半定量元素分析結果を表 3.1-2 に示す。黒色ガラス状部は均質であり、Mg と Fe、Ca を含む碎石及びコンクリート構成元素が全て含まれている。一方、溶け残り箇所は組成から石英と長石と考えられる。大気中でコンクリートが加熱された際、セメント部及び Mg、Fe を含む鉱石（輝石、黒雲母等）が先に溶けだし、それは黒色を呈することがわかった。この溶融物を含む、コンクリート試料を HSI 測定に供した。

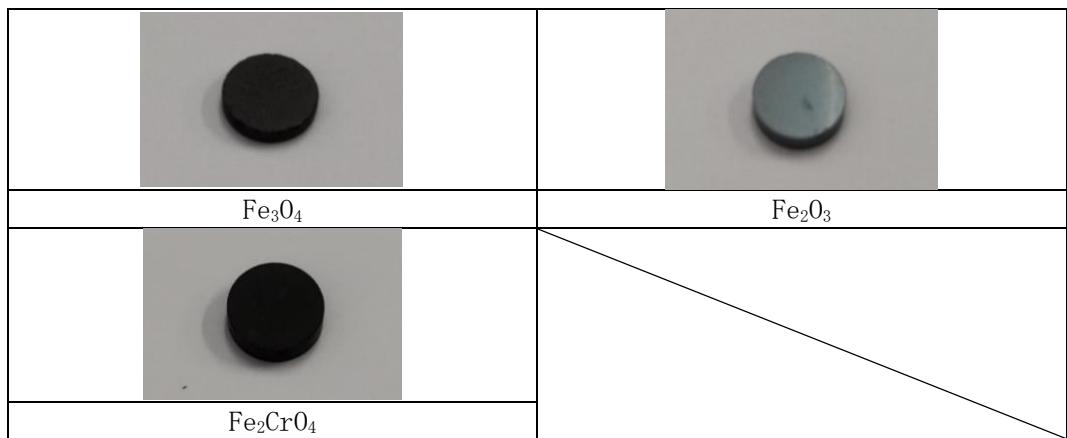


図 3.1-6 鉄酸化物系試料の外観

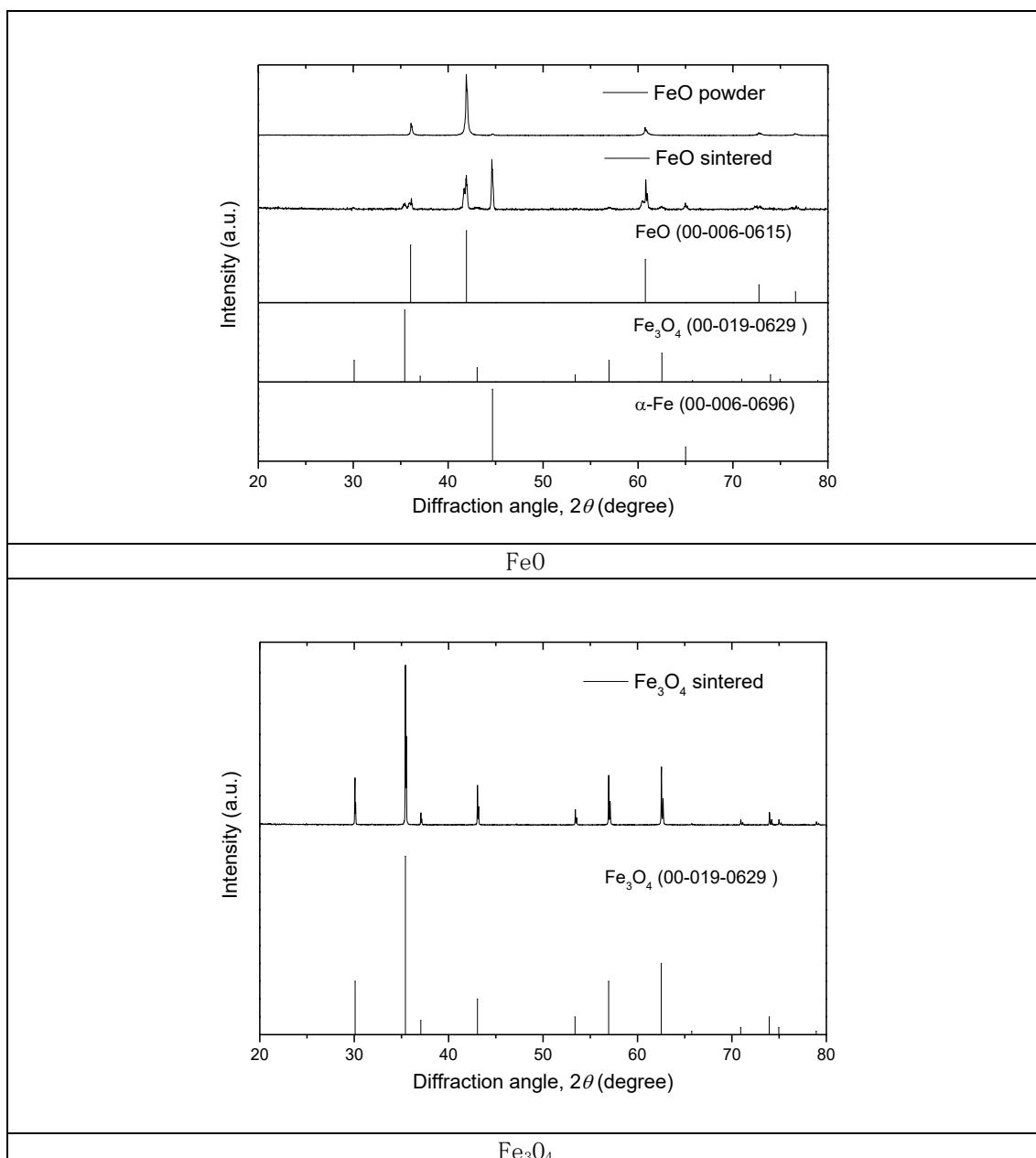


図 3.1-7 鉄酸化物系試料の X 線回折スペクトル(1/2)

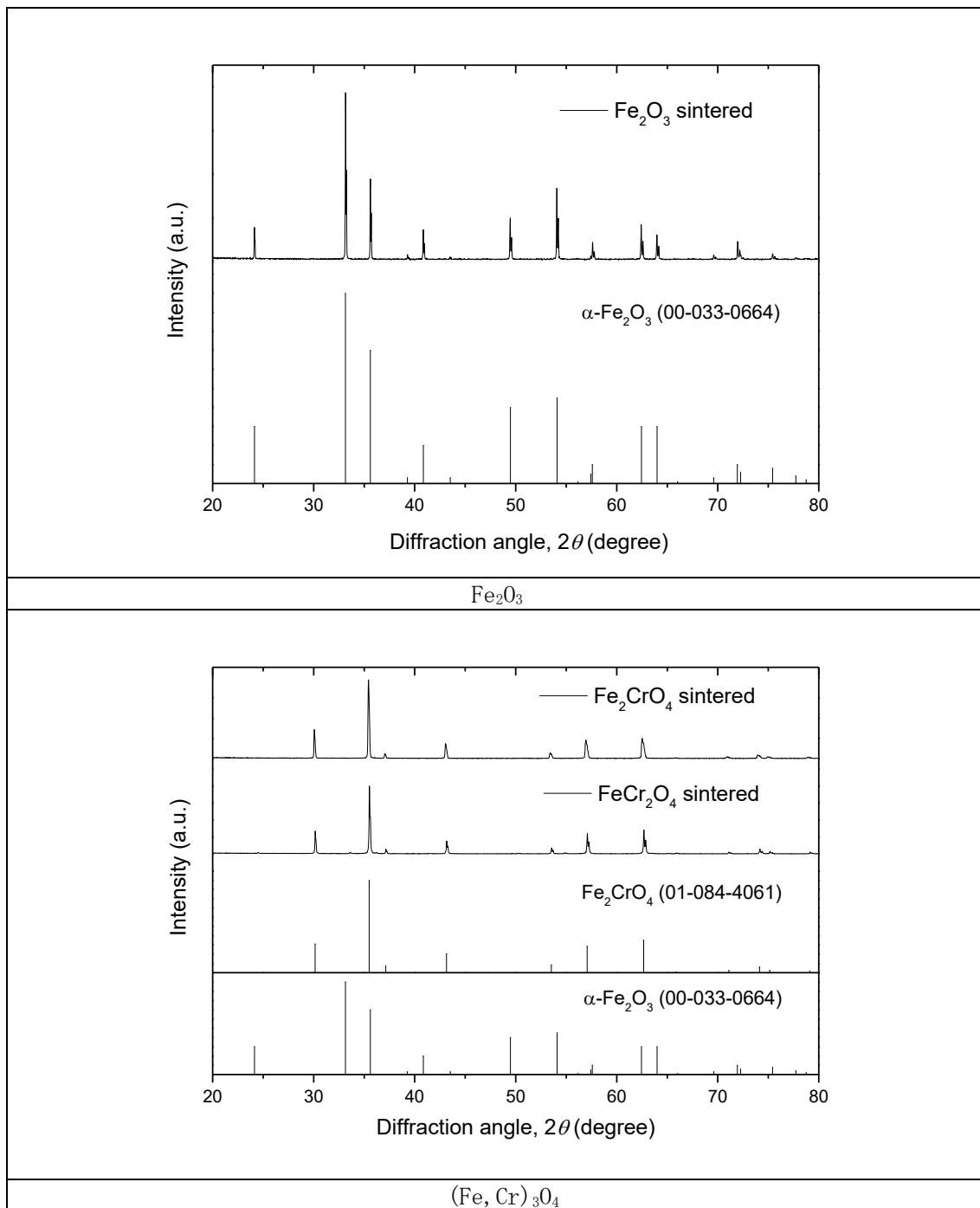


図 3.1-7 鉄酸化物系試料の X 線回折スペクトル (2/2)

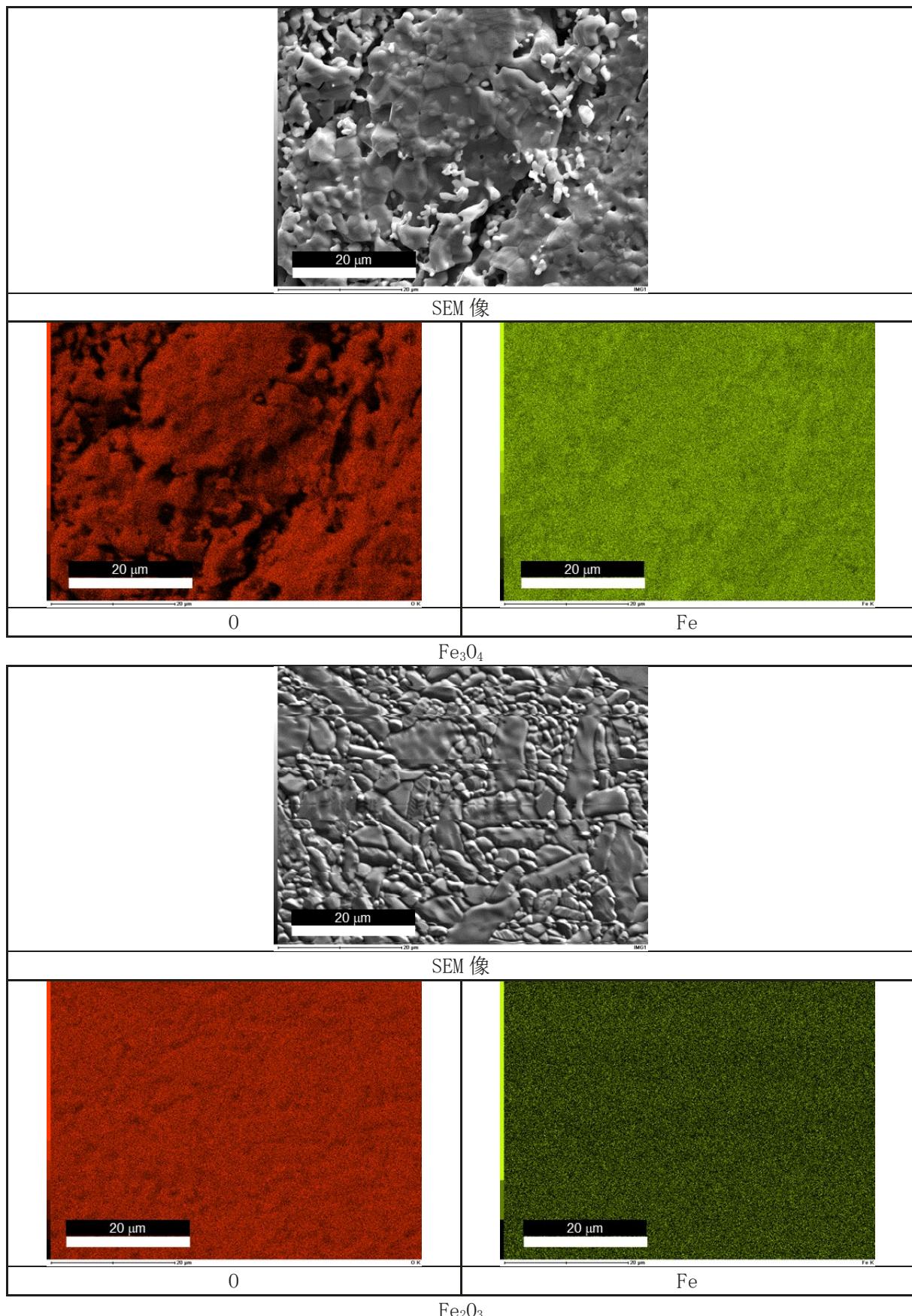


図 3.1-8 鉄酸化物系試料の EDS マッピング像 (1/2)

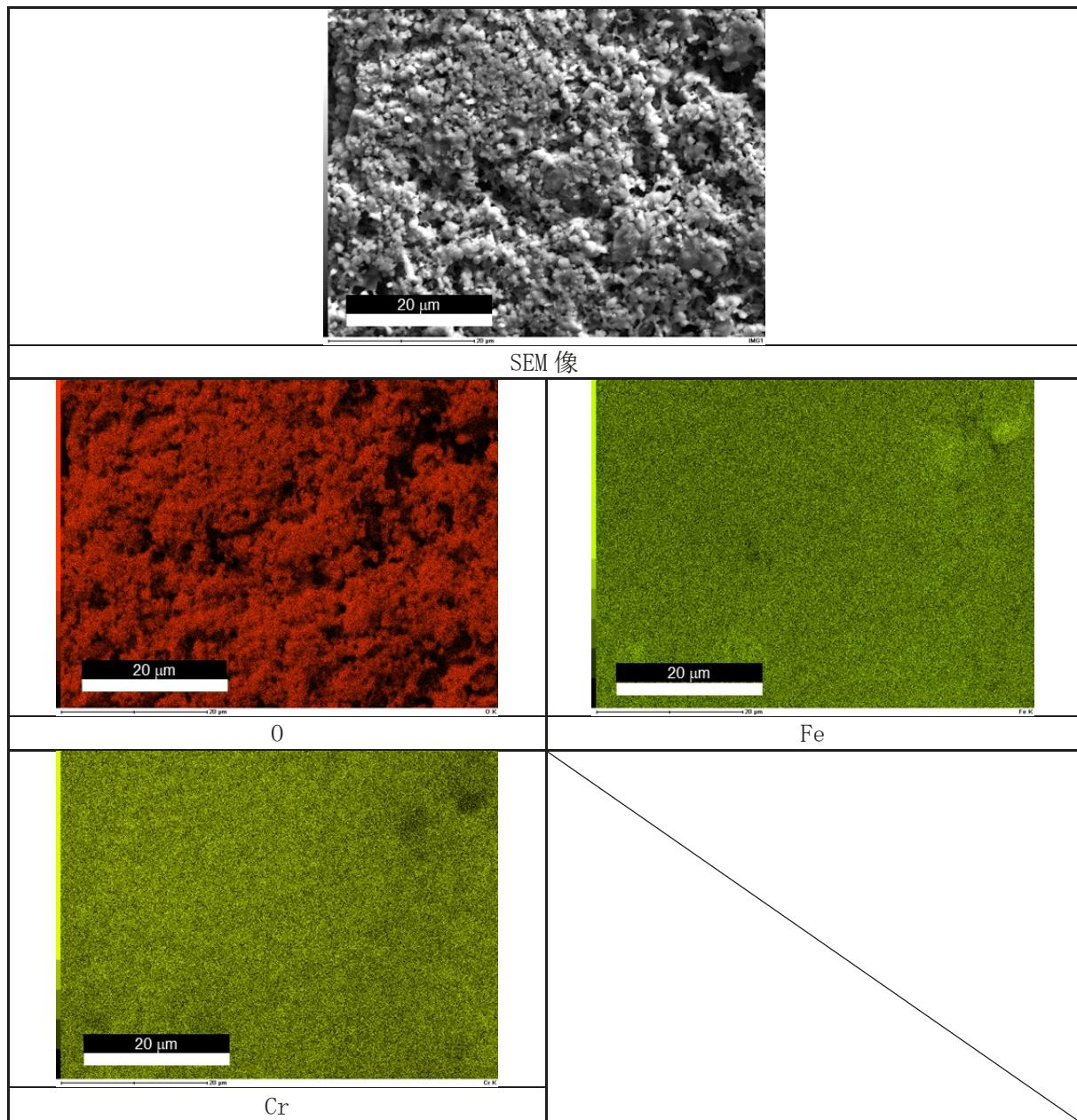


図 3.1-8 鉄酸化物系試料の EDS マッピング像(2/2)

表 3.1-1 福島産碎石の半定量元素分析結果  
(1) Pebble1 (白黒混合碎石)

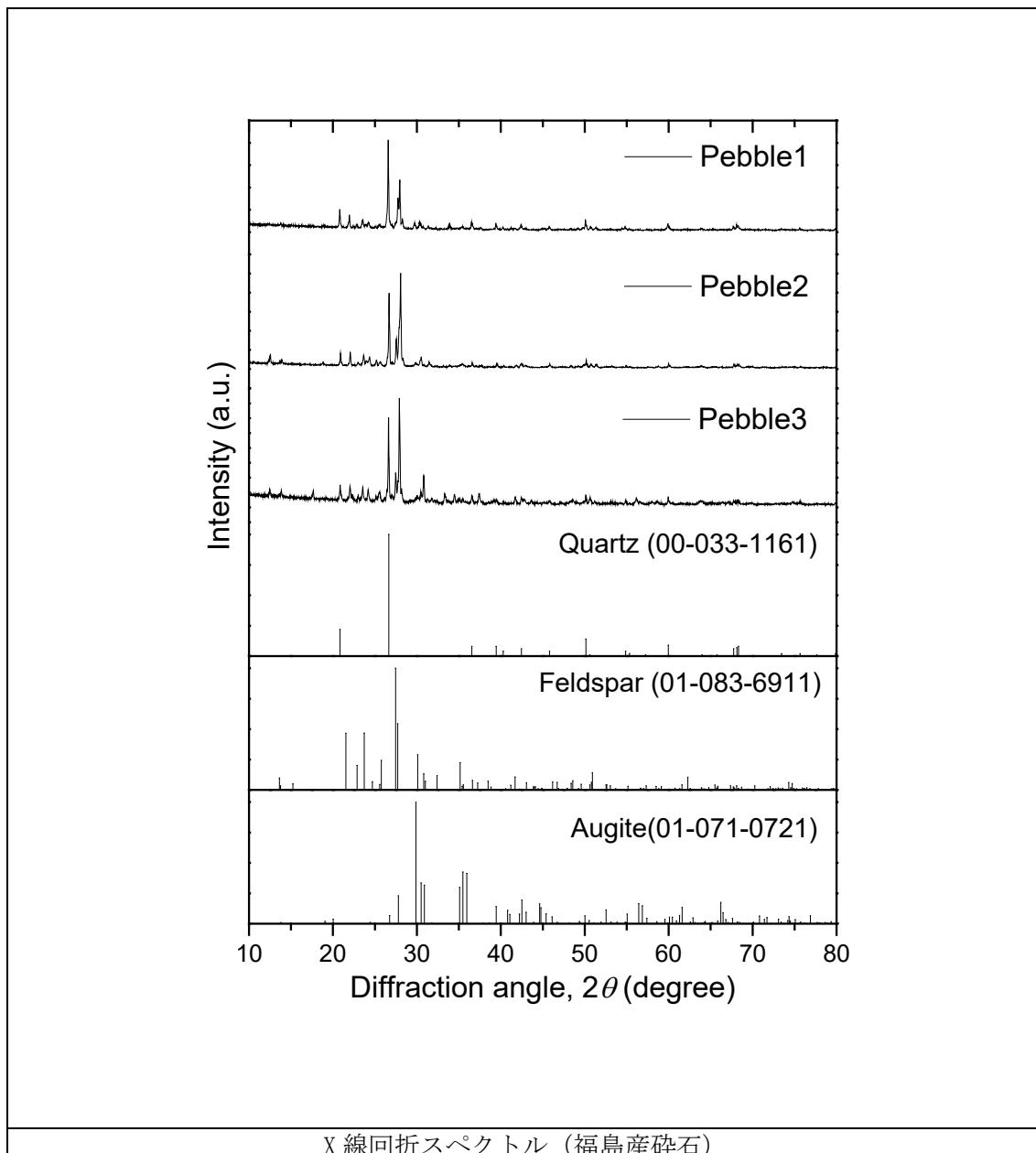
	① (at%)	② (at%)	③ (at%)	④ (at%)
Na	—	8.0	—	0.9
Mg	24.0	—	—	—
Al	11.6	17.1	—	12.6
Si	43.9	65.7	99.4	75.6
K	3.2	0.5	—	10.5
Ca	5.7	7.9	0.1	—
Fe	10.8	0.2	—	—

(2) Pebble2 (黒色碎石)

	① (at%)	② (at%)	③ (at%)
Na	6.0	0.7	—
Mg	—	1.8	16.5
Al	19.2	2.9	12.0
Si	62.1	91.0	52.0
K	0.1	1.0	5.0
Ca	11.9	1.0	1.4
Fe	0.1	1.0	10.0



図 3.1-9 福島産碎石の外観



X線回折スペクトル（福島産碎石）  
図 3.1-10 福島産碎石のX線回折スペクトル

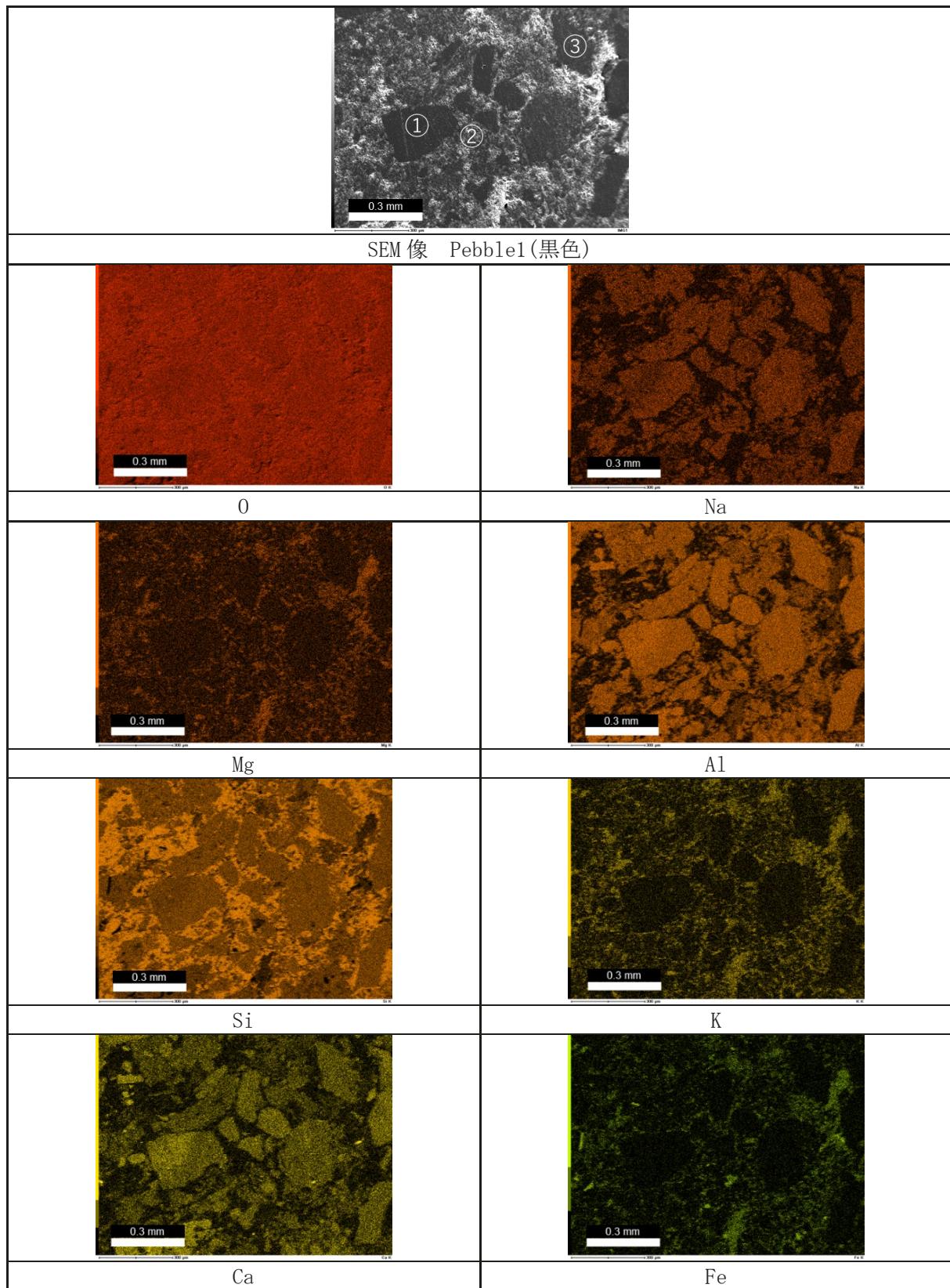


図 3.1-11 福島産碎石のEDSマッピング像 (1) Pebble1

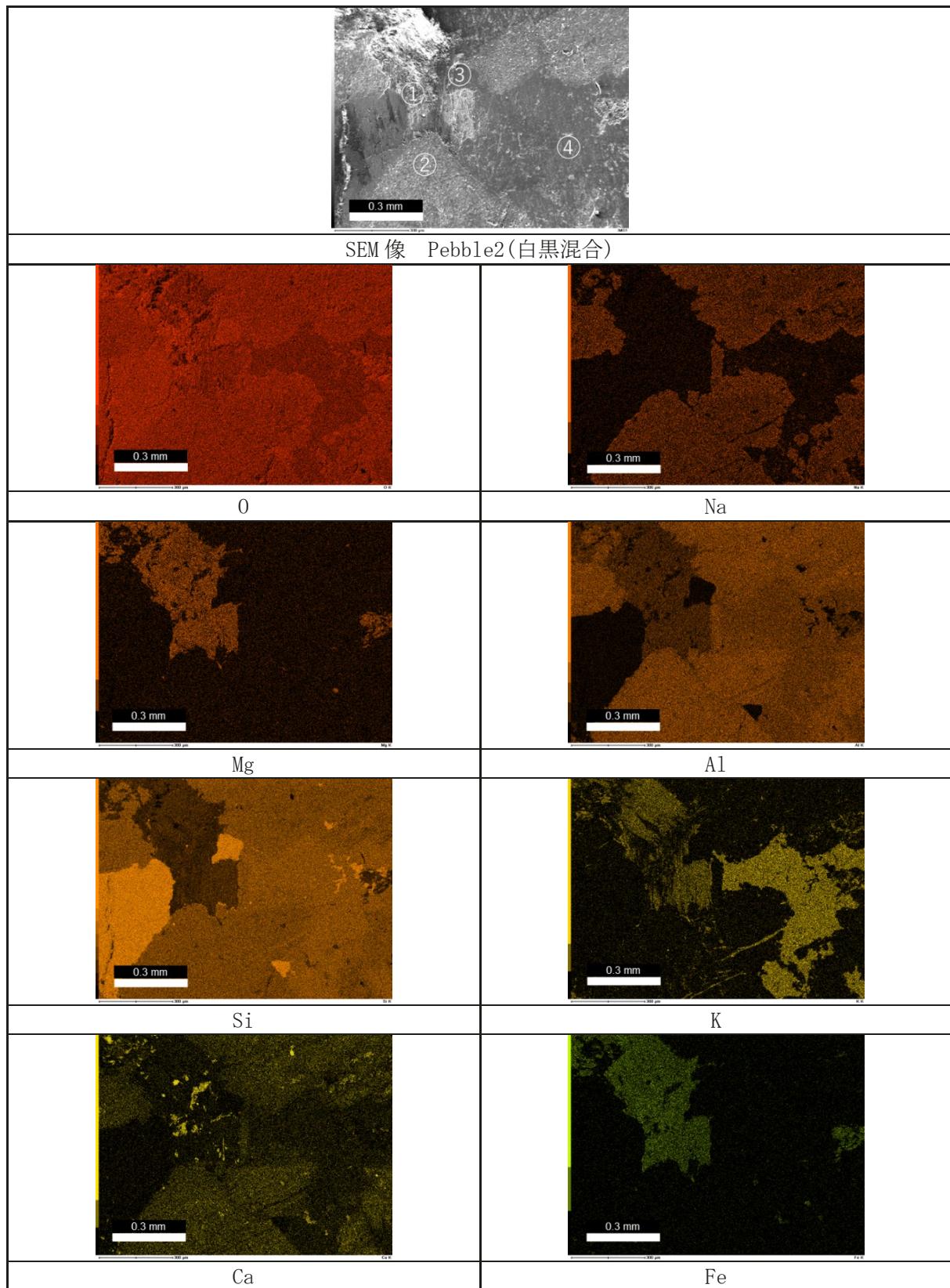


図 3.1-11 福島産碎石のEDSマッピング像 (2) Pebble2

表 3.1-2 コンクリート溶融物の半定量元素分析結果

(1) 黒色ガラス状部

	全体 (at%)
Na	2.5
Mg	2.6
Al	8.4
Si	58.5
K	1.2
Ca	21.8
Fe	5.0

(2) 溶け残り箇所

	① (at%)	② (at%)
Na	-	6.2
Mg	-	-
Al	0.6	12.3
Si	99.1	75.6
K	0.1	4.4
Ca	0.1	1.5
Fe	-	-

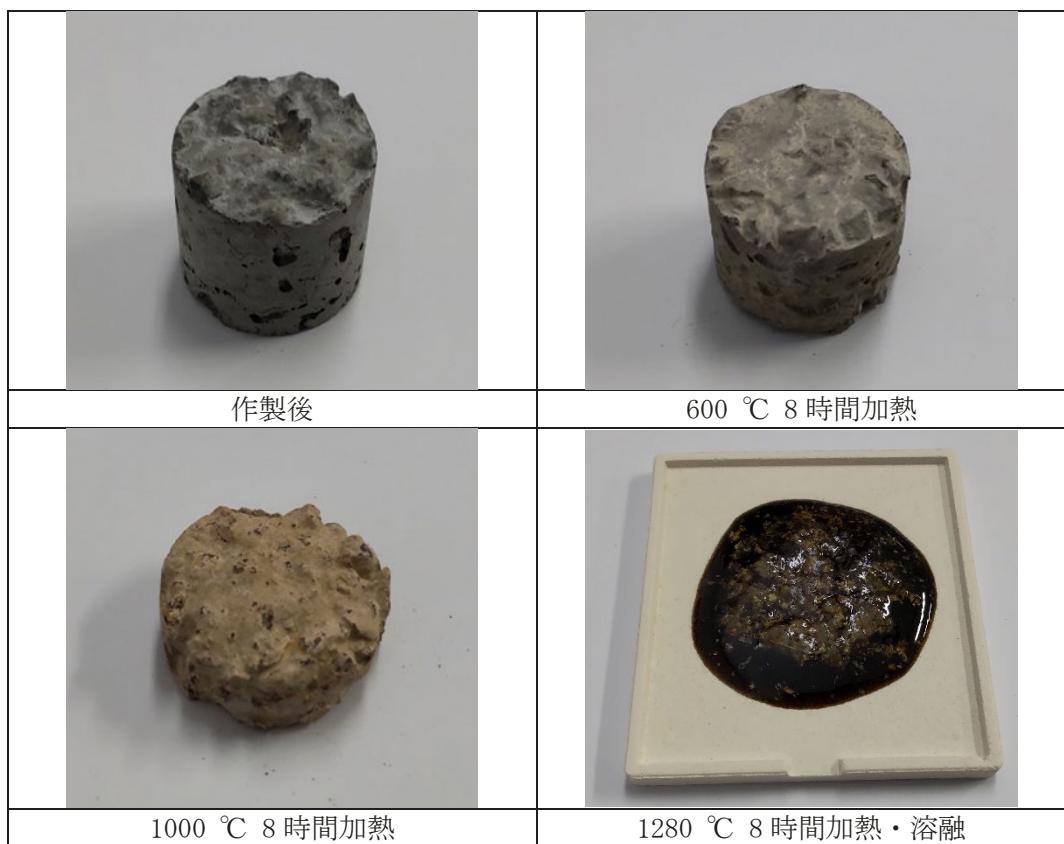


図 3.1-12 コンクリート試料の外観

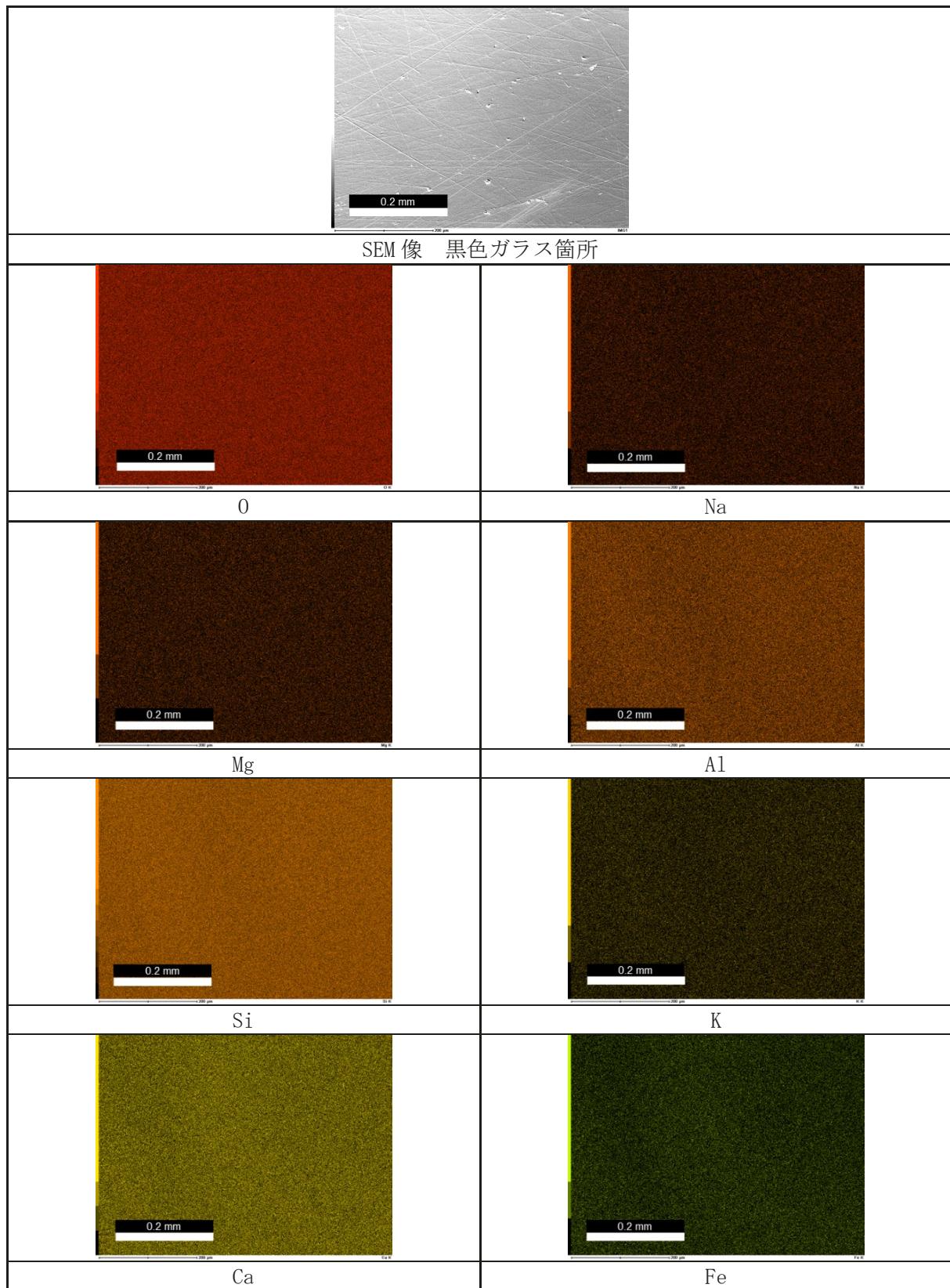


図 3.1-13 溶融コンクリートのEDSマッピング像 (1) 黒色ガラス箇所

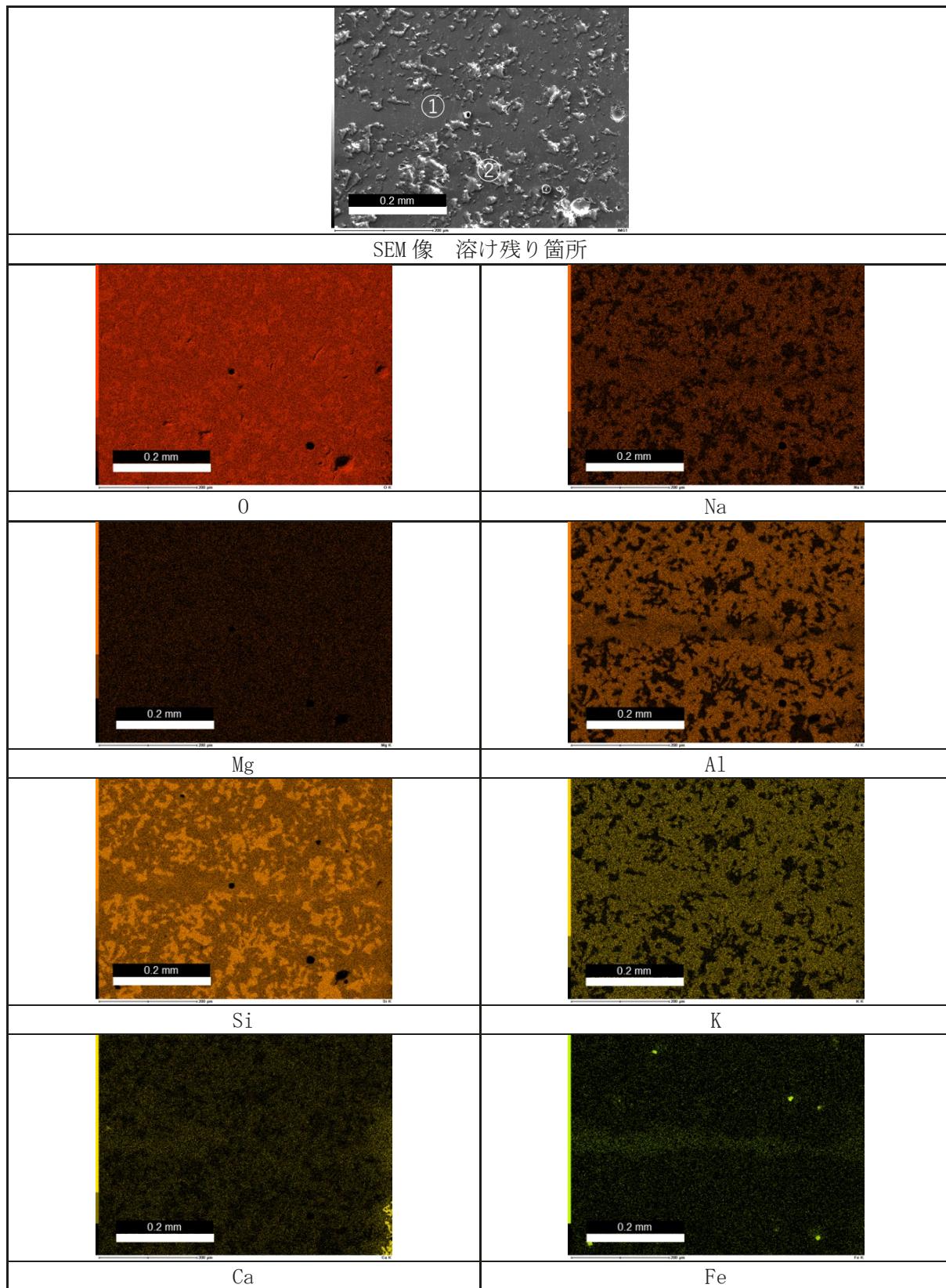


図 3.1-13 溶融コンクリートの EDS マッピング像 (2) 溶け残り箇所

### 3.1.2 分光画像データ解析手法の構築【令和5年度】

#### (1) 解析手法の調査

HSIにおける物体の分類アルゴリズムにはさまざまなものがあり、現在も開発が進められている。HSIデータは、それぞれに位置する画素(XY)ごとに100色以上の情報をもつ多次元スペクトルデータとなっている。この画素ごとの多次元情報をそれぞれ物質(クラス)に割り当てる(ラベル付け)ことで、物質の分布を画像として認識・可視化することができる。本事業では、標準物質を作製してそのスペクトルデータを取得し、これをラベル付き訓練データ・教師データとする。その後、測定データを画素ごとに解析し、いずれかの標準物質(クラス)に分類していく。

工業製品等で用いられているよく知られた古典的な解析手法として、スペクトル角マッパー(Spectral Angle Mapper: SAM)解析がある。これは画素ごとのスペクトルをベクトルで表し、教師データにおけるベクトルとの間の距離をスペクトル角として計算し、最も近い教師データの物質(クラス)に分類する。イメージ図を図3.1-14(1)に示す。ある二つの教師データ群(赤、青)があり、それぞれにベクトルが定義される。測定点のベクトルとのスペクトル角 $\theta$ が小さいとき、イメージとして図中水色の三角形内にある点が教師データ青と分類される。一方で、二つの教師データ群(赤、青)が図3.1-14(2)のような関係にあり、スペクトル角の差が小さいとき、SAM解析では分類を誤りやすい。こうしたとき、それぞれの教師データ群を統計的に解析し、データ群の間の分散が最大に、同じデータ群内の分散が最少になるような判別関数を求ることで、より正しく分類できる。この手法が線形判別分析である。

このほか、データ群内の中心からの距離で判別する手法や、選択した波長範囲における平均スペクトルの強弱、またスペクトルの傾きに着目する手法など、さまざまな分類アルゴリズムがある。高精度の分類のためには教師・測定データ群の差が大きくなる手法をとるべきだが、これは分類したい物質の組み合わせ、測定波長範囲、さらに光源等の条件などによって異なると考えられる。本事業での炉内物質分類に適したアルゴリズムの選択、解析手法の構築のためには、表面状態も含めた適切な模擬物質教師データ(特に判別したい核燃料試料)の蓄積、光源などの測定条件の検討等、多くの点の考慮と実機条件を模擬する適切な仮定が必要と考えられる。

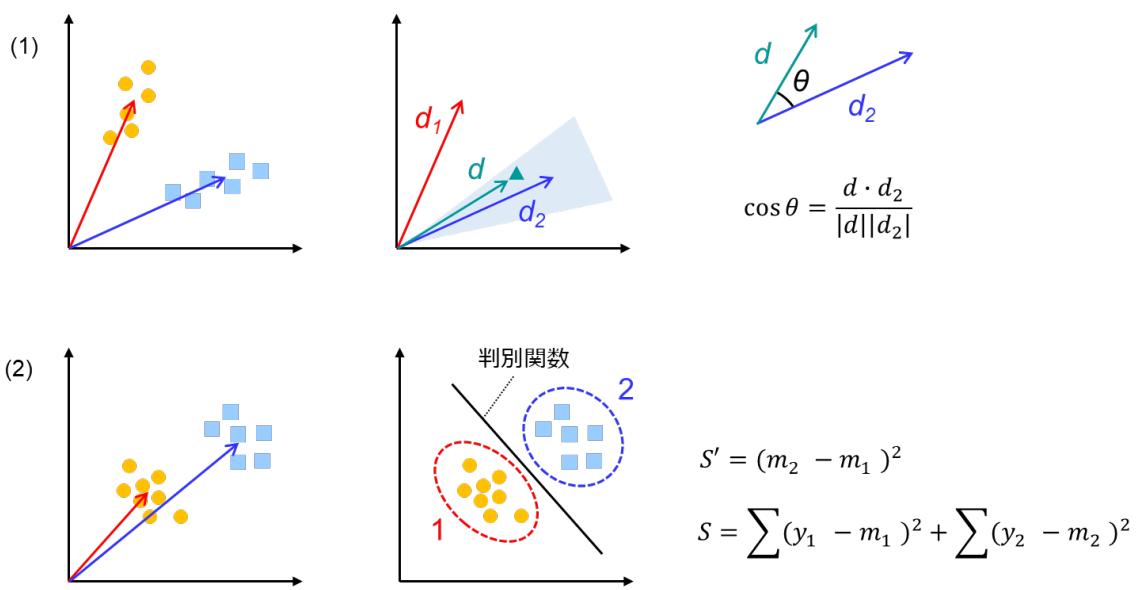


図3.1-14 解析手法の概略 (1) SAM解析 (2) 線形判別分析

## (2) 予備解析

後述するハイパースペクトルカメラを用いて、作製した標準試料を一つずつ観察した。標準試料は白色の紙の上に置いている。この紙部分を部分白板として補正を行い、反射率に換算した例を図 3.1-15 に示す。いずれも短波長側及び長波長側の反射率が 100% 近い値となっているが、これは紙を白板として補正したためと考えられ、正確な反射率の評価のためには補正手法について検討が必要である。コンクリート試料については、肉眼でも加熱による色の違いがみられる、反射率の違いが確認できる。一方で、三つの鉄酸化物試料の反射率においてはいずれも傾き、値ともほとんど同じであり、測定波長範囲でほとんど違いはみられなかった。肉眼でも同じ黒色で判別できないものとなっている。

続いて、作製した標準試料を全て並べ、分類ができるかを確かめた。実際の炉内観察では白板補正ができないことが想定されるため、ここでは補正は行っていない。このときの RGB 画像を図 3.1-16 に示す。教師データとして、福島産碎石 3 種、コンクリート試料のセメント部 3 種及び黒色ガラス部、鉄酸化物試料 3 種の一部分を用いた。教師データとして用いた解析領域（画素範囲）を枠線で示している。区別のため、溶融コンクリートを載せた素焼きの板及び背景の紙部分も教師データとした。解析領域とそれぞれの分光データを図 3.1-17 に示す。これら教師データを用いて、画像全体を SAM 解析及び線形判別分析 (LDA) によって分類した結果を図 3.1-18 に示す。それぞれの分類アルゴリズムにしたがって各点を物質（クラス）に分類し、クラスごとに任意に色分けしている。両方の解析において、コンクリート試料セメント部は良好に分類できている。一方、コンクリート内の骨材部分を碎石と分類できたところは部分的であった。また、 $Fe_3O_4$  と  $Fe_2CrO_4$  の取り違えがみられており、線形判別分析では SAM 解析よりはよく分類できている。コンクリート溶融試料について、中心部付近には溶け残りの骨材つまり碎石が分布している。SAM 解析ではこれをセメント部としてしまっているが、線形判別分析では碎石と判定しており、正しく分類できている。概して、今回のケースでは線形判別分析がより高精度に分類できているといえる。一方、いずれも紙の上の影をセメントなどと誤って分類しており、現状では精度が足りない。今後、実機に近い観察条件の模擬、ウラン系試料のデータ蓄積、他の解析との比較検討が必要である。

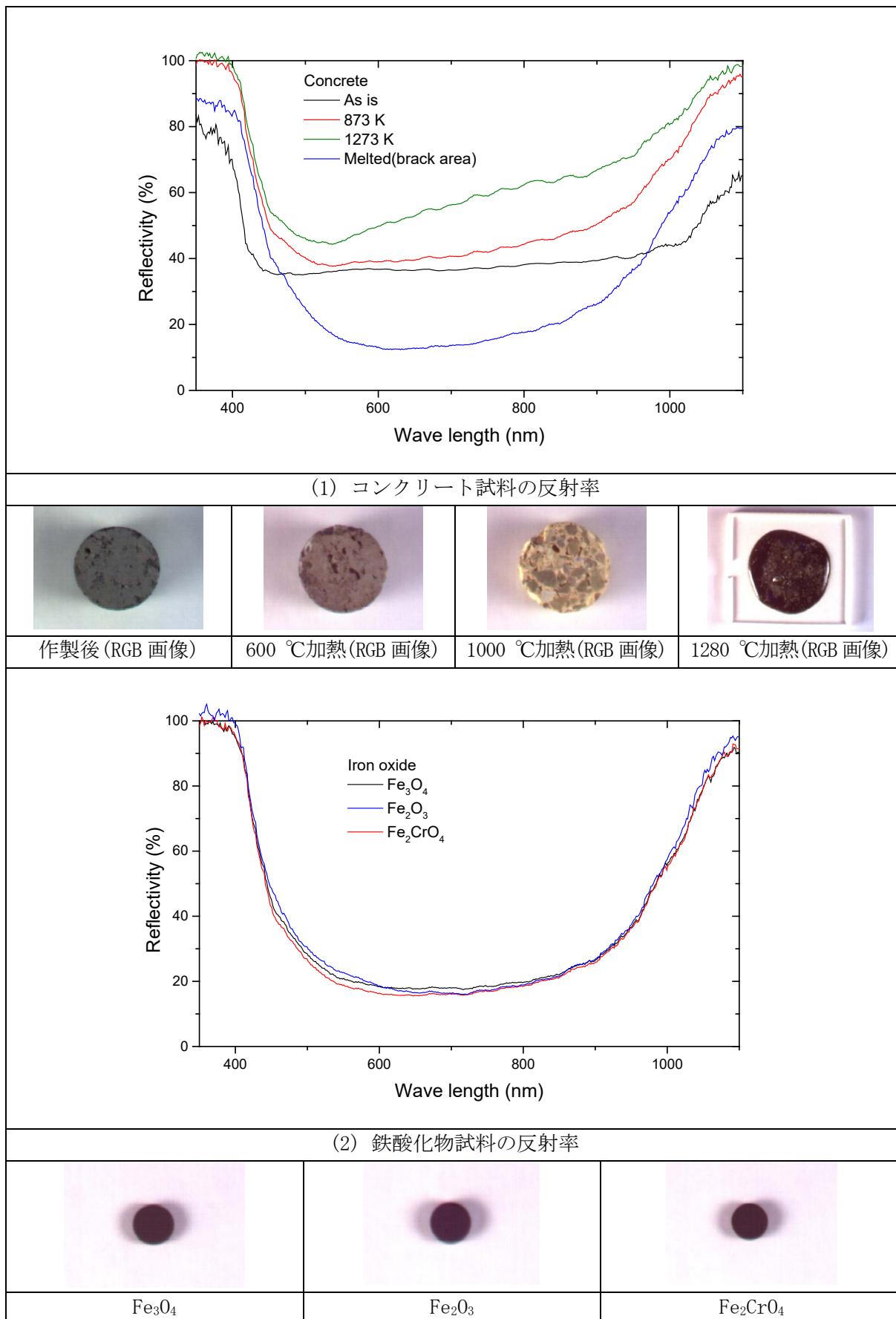


図 3.1-15 反射率 (1)コンクリート試料 (2) 鉄酸化物試料

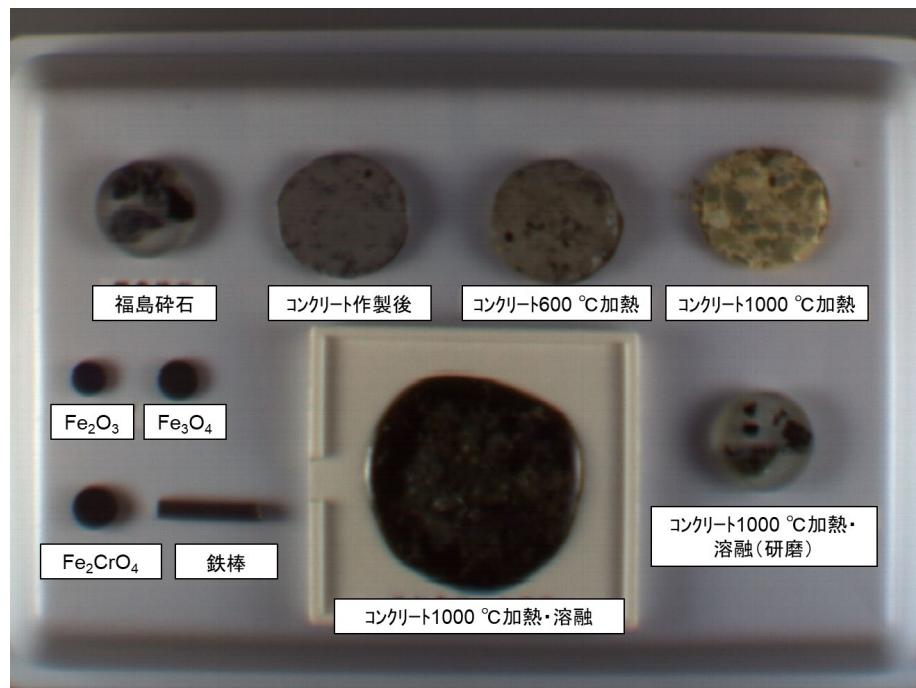


図 3.1-16 標準試料の RGB 画像

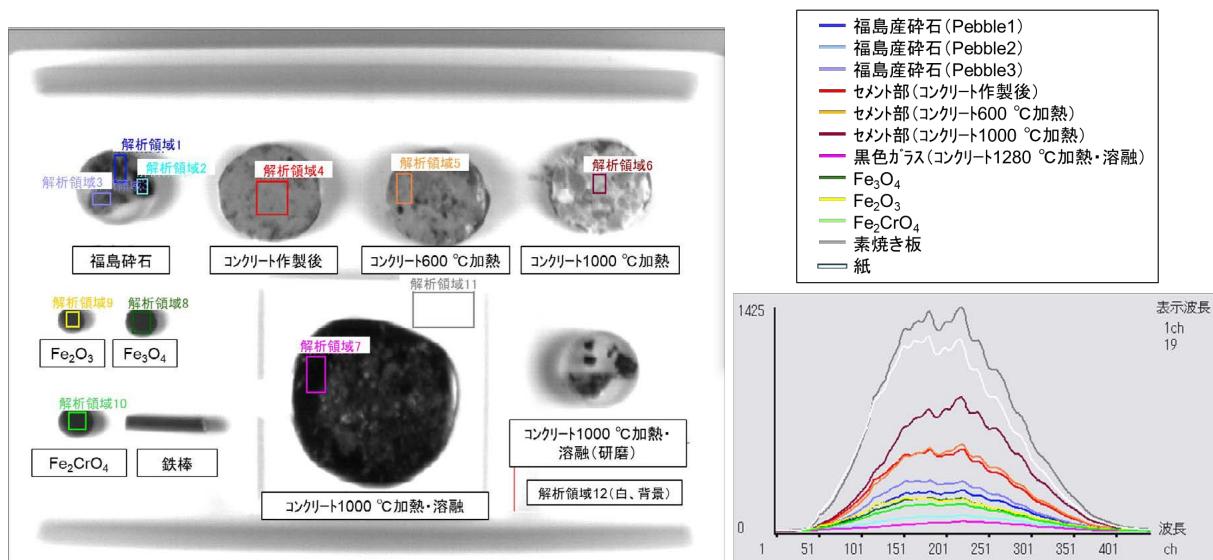


図 3.1-17 標準試料の分光画像データ及び解析領域

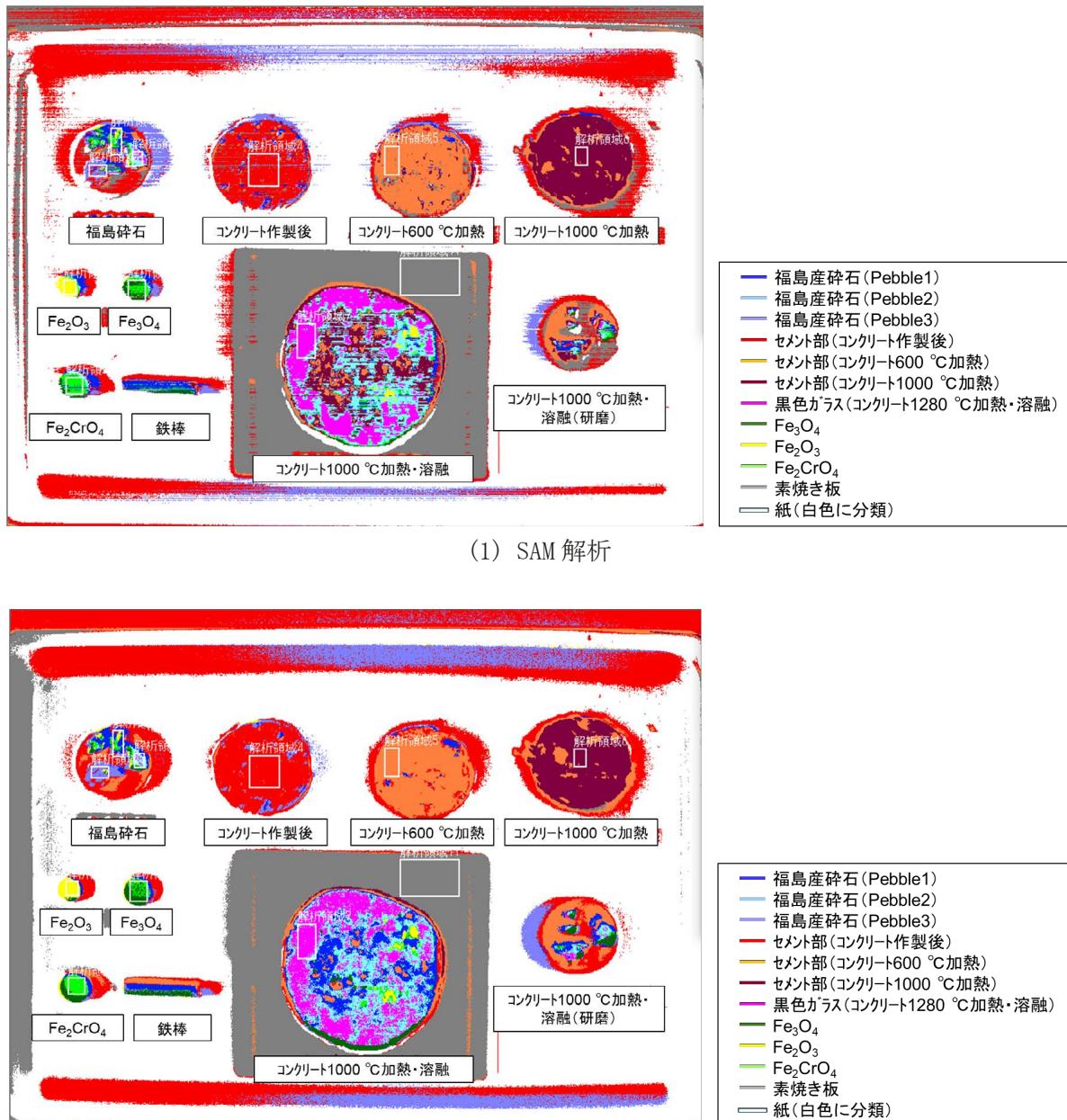


図 3.1-18 標準試料の分光画像データ解析結果

### 3.1.3 まとめ

本節では、文献調査による HSI、LIBS 測定に供するべき標準試料物質の決定、決定した物質のうちいくつかの試料の試作、また、HSI 解析手法の調査と令和 5 年度に取得された HSI データの予備解析を行った。

文献調査の結果、ウラン含有試料、金属（合金）、酸化物、コンクリートとその反応物、ホウ化物を標準物質として作製・評価対象とした。このうち鉄酸化物の一部、コンクリート試料を試作して HSI 測定に供した。HSI 解析手法については、文献調査から主に分類に用いられている手法として SAM 解析、線形判別分析に着目し、測定試料に適用した。線形判別分析がより高い精度を示したが、核燃料試料を含む実機条件でどの手法が適するか、今後多くの検討が必要である。

## 3.2 核燃料試料の作製及び分光画像解析データ取得に関する研究（再委託先：NFD）【令和5年度】

## 3.2.1 核燃料試料の作製【令和5年度】

表3.2-1に示すように、核燃料としてUO<sub>2</sub>を含む種々の組成の粉末を調整し、表3.2-2に示す条件で焼結して酸化物系核燃料試料を7種類、金属系核燃料試料を3種類作製した。なお、酸化物系核燃料試料において使用した核燃料以外の酸化物粉末はZrO<sub>2</sub>、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、コンクリート成分粉末であり、UO<sub>2</sub>粉末に対して単体あるいは複合的に混合したものである。ただし、コンクリート成分粉末はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>を重量%で16.0%、13.2%、6.2%、64.6%の割合で混合したものであり、実際に水和反応によって固化したコンクリートを粉末にしたものではない。一方、金属系核燃料試料において金属粉末はZrとSUS316Lであり、いずれの試料においても同じ比率で混合した。

作製した試料の試験前評価として、外観観察、液浸法による密度測定、XRDによる結晶構造解析、EDSによる半定量元素分析を実施した。なお、XRDによる結晶構造解析ではバルク試料に対して測定を実施している。また、EDSによる半定量元素分析では、表3.2-3に示すように試料中心部において元素マッピングを行い、その後、画面全体での半定量元素分析を行った。

表3.2-1 核燃料標準試料の成分表

(1) 酸化物系核燃料試料(wt%)

試料番号	UO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	コンクリート <sup>1</sup>
Z104F1SE01	1	49.5	49.5	0	0
Z104F1SE02	5	47.5	47.5	0	0
Z104F1SE03	10	45	45	0	0
Z104F1SE04	50	25	25	0	0
Z104F1SE05	95	0	0	5	0
Z104F1SE06	1	0	0	0	99
Z104F1SE07	5	0	0	0	95

\*1:コンクリートはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>を重量%で16.0%、13.2%、6.2%、64.6%で混合したもの

(2) 金属系核燃料試料(wt%)

試料番号	UO <sub>2</sub>	Zr	SUS316L
Z104F2SE01	1	49.5	49.5
Z104F2SE02	5	47.5	47.5
Z104F2SE03	10	45	45

表 3.2-2 核燃料試料の焼結条件

## (1) 酸化物系核燃料試料

試料番号	焼結条件 (昇温速度, 焼結温度×時間, 霧囲気ガス, ガス乾湿・露点)
Z104F1SE01	6 °C/min, 1100 °C×1 h, He, Dry
Z104F1SE02	6 °C/min, 1150 °C×3 h, He, Dry
Z104F1SE03	6 °C/min, 1150 °C×3 h, He, Dry
Z104F1SE04	6 °C/min, 1150 °C×3 h, He, Dry
Z104F1SE05	6 °C/min, 1730 °C×3 h, 13%H <sub>2</sub> -N <sub>2</sub> , D.P 10 °C
Z104F1SE06	6 °C/min, 950 °C×3 h, He, Dry
Z104F1SE07	6 °C/min, 950 °C×3 h, He, Dry
Z104F2SE01	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry
Z104F2SE02	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry
Z104F2SE03	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry

## (2) 金属系核燃料試料

試料番号	焼結条件 (昇温速度, 焼結温度×時間, 霧囲気ガス, ガス乾湿・露点)
Z104F2SE01	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry
Z104F2SE02	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry
Z104F2SE03	6 °C/min, 900 °C×2 h, He, Dry

表 3.2-3 EDS の実施場所

分析方法	倍率	分析場所
元素マッピング	35 倍	試料中心部
	200 倍	
半定量元素分析	35 倍	

作製した核燃料試料の試験前評価結果を下記に示す。

## (1) 外観観察

図 3.2-1 に作製した試料の外観写真を示す。なお、試料は作製後にアクリル系熱間樹脂に埋め込み、端面を研磨後に洗浄した。酸化物系核燃料試料においては、Z104F1SE01～05 までは色調に違いがあるものの概ね黒色を呈し、Z104F1SE06 及び Z104F1SE07 は薄い橙色を呈したが、Z104F1SE07 は色味が均一ではなく、中央部は周辺部に比べて黒味がかった。一方、金属系核燃料試料においては、色合いに大きな変化はみられずいずれも銀白色を呈していた。

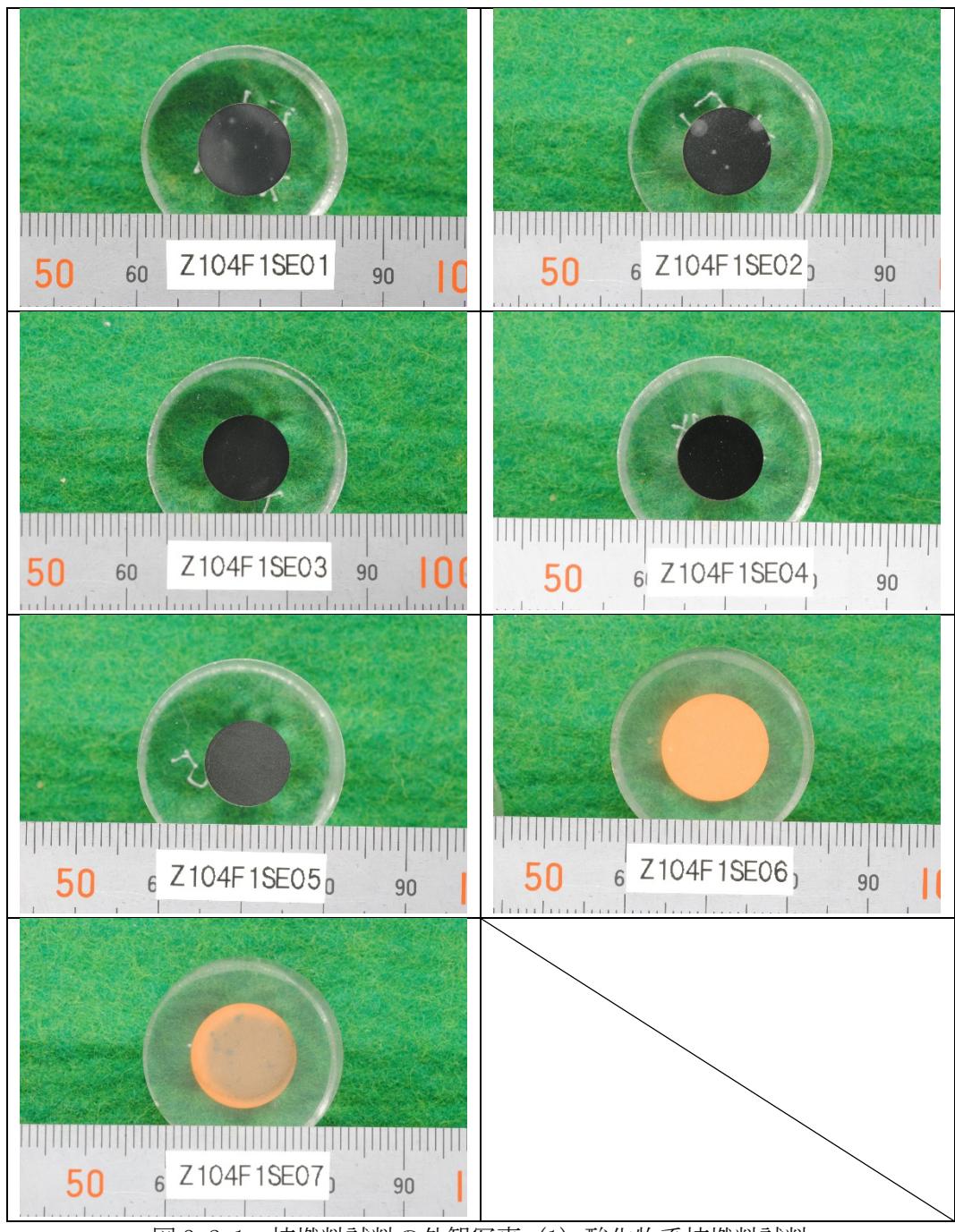


図 3.2-1 核燃料試料の外観写真 (1) 酸化物系核燃料試料

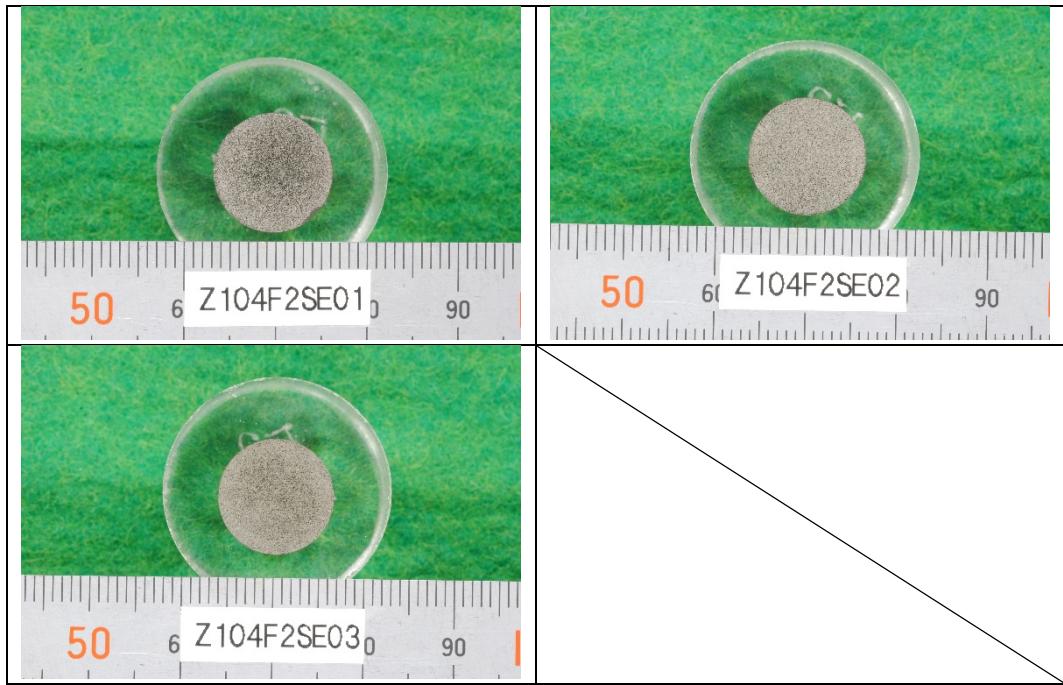


図 3.2-1 核燃料試料の外観写真 (2) 金属系核燃料試料

## (2) 液浸密度測定

試料の液浸密度の測定結果を表 3.2-4 に示す。なお、液浸密度はアクリル系熱間樹脂埋め込み前の焼結体試料を使用して、次の手順で評価した。

1. 乾燥状態の試料の重量である乾燥質量  $W_1$  を測定する。
2. m-キシレンに試料を 30 分以上浸漬し、m-キシレン中での試料重量である液中質量  $W_2$  を測定する。
3. 試料を m-キシレンから取り出し、表面の m-キシレンを拭き取った状態での試料重量である飽液質量  $W_3$  を測定する。
4. m-キシレンの密度  $\rho$  を用いて液浸密度  $W_1 \rho / (W_3 - W_1)$  を計算する。

なお、表には  $(W_3 - W_1) / (W_3 - W_2)$  で計算した開気孔率の評価結果も併記した。

表 3.2-4 核燃料試料の液浸密度

### (1) 酸化物系核燃料試料

試料番号	液浸密度 (g/cm <sup>3</sup> )	開気孔率 (%)
Z104F1SE01	4.46	18.2
Z104F1SE02	5.27	1.2
Z104F1SE03	5.40	0.7
Z104F1SE04	7.27	0.0
Z104F1SE05	10.18	0.0
Z104F1SE06	1.63	41.9
Z104F1SE07	1.68	42.3

### (2) 金属系核燃料試料

試料番号	液浸密度 (g/cm <sup>3</sup> )	開気孔率 (%)
Z104F2SE01	4.78	32.0
Z104F2SE02	5.20	27.7
Z104F2SE03	5.53	25.5

### (3) XRD による結晶構造解析

各試料に対して XRD 測定を実施し、X 線回折スペクトルを得た後、バックグラウンドの指定及び減算や  $K\alpha_2$  線の分離を実施せずに定性解析を行い、相の同定を行った。図 3.2-2 に各試料の XRD による結晶構造解析結果を示す。なお、定性解析結果のグラフ内の凡例は、順にリフアレンスナンバー (Inorganic Crystal Structure Database : ICSD) または (International Centre for Diffraction Data : ICDD) のデータベース、同定した相、結晶系を示している。

今回、いずれの試料もバルクの状態で測定に供したために、結晶粒の配向によって特定の回折ピーク強度が大きくなる可能性があるが、試料は粉末を焼結して作製されていることから著しい配向はないと考えられる。

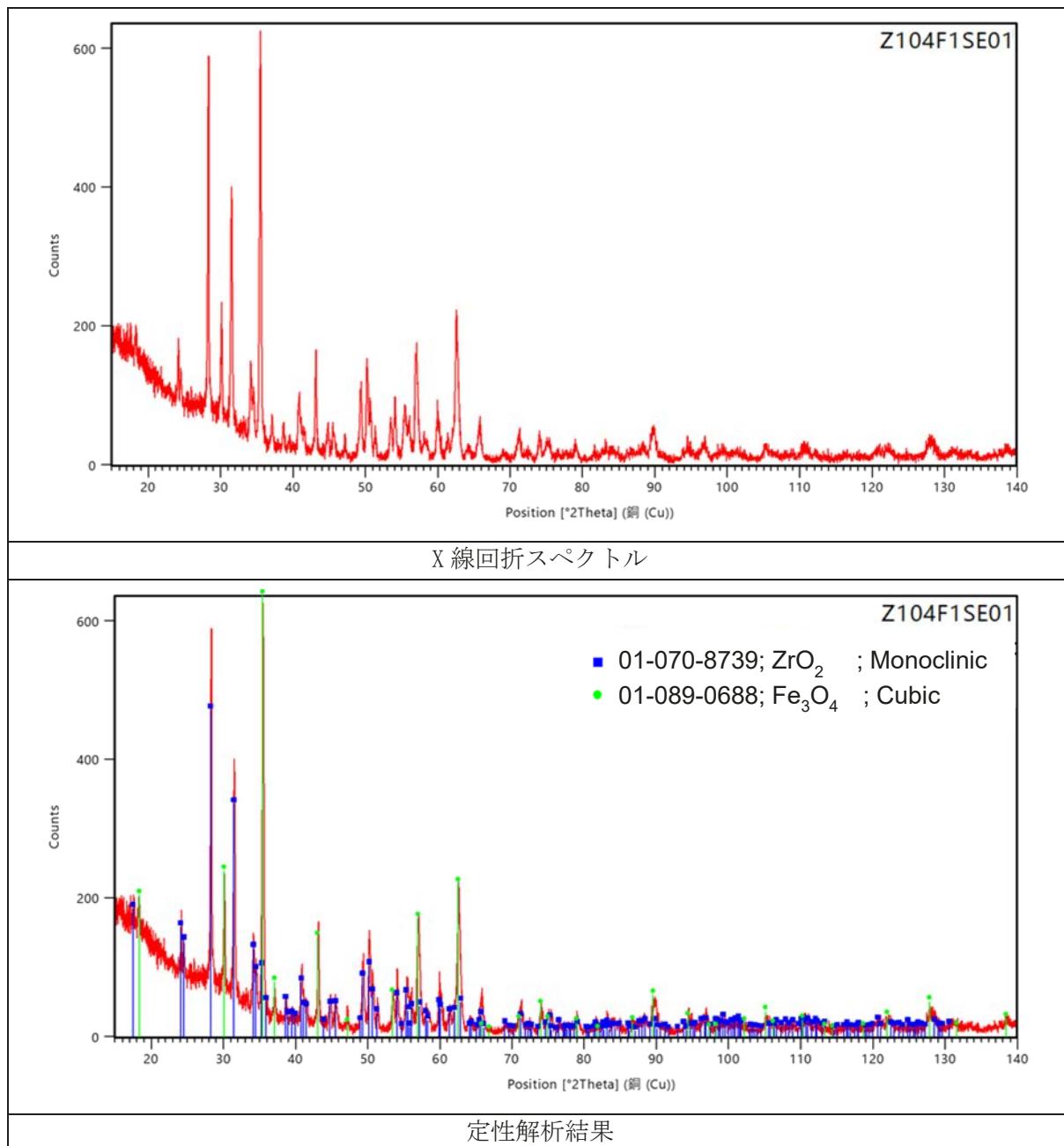
表 3.2-5 に定性解析結果の一覧を示す。Z104F1SE01～03 では原料粉末に  $UO_2$  を含むものの、回折スペクトルには  $UO_2$  や U を含む相のピークが観察されず、単斜晶の  $ZrO_2$  と立方晶  $Fe_3O_4$  の 2 相が確認された。これは試料組成における  $UO_2$  の比率が小さいために回折ピークの強度が低く、バックグラウンドに埋もれて明瞭なピークが確認できなかったことが原因と考えられる。

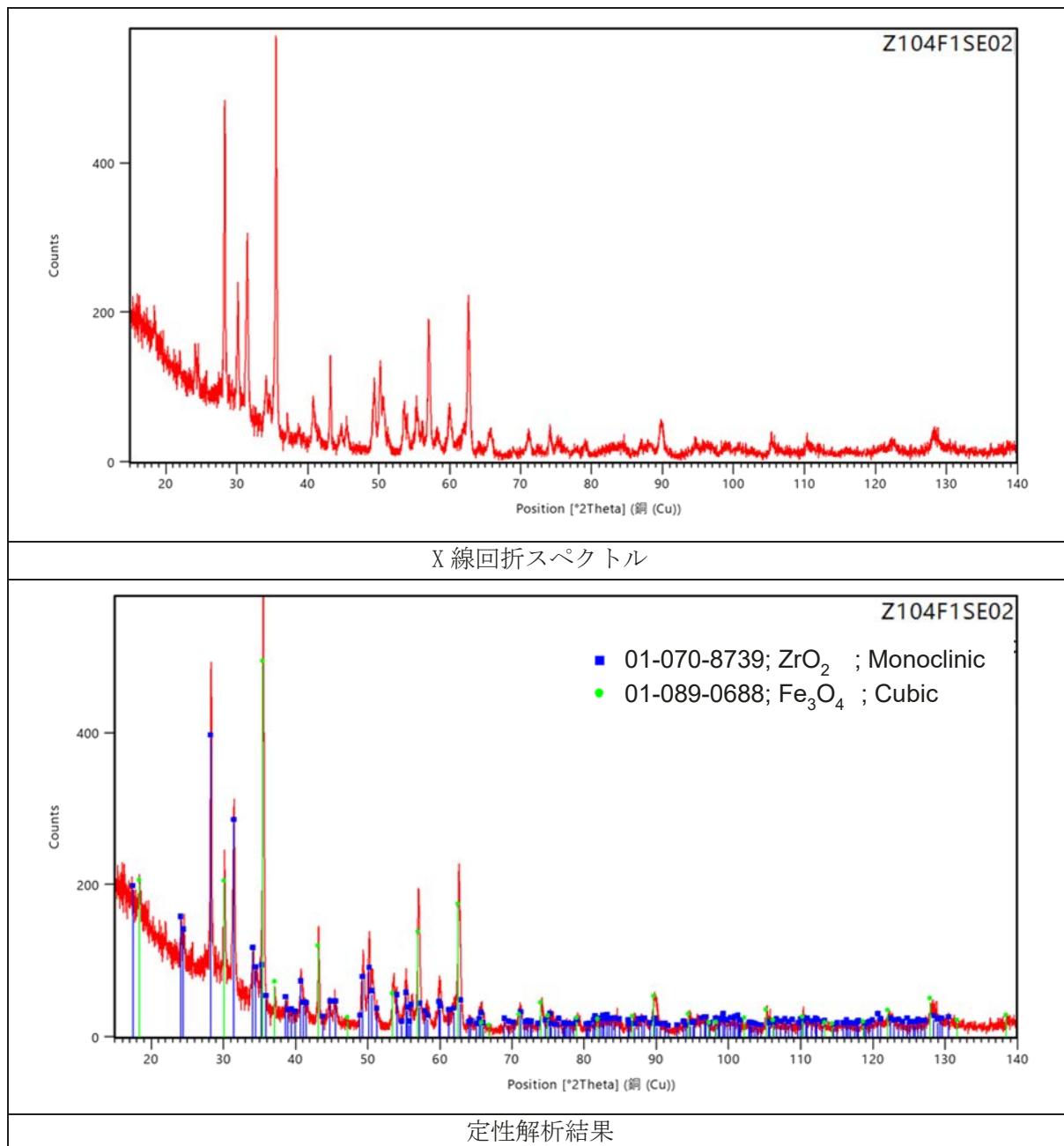
Z104F1SE04 においては、立方晶の  $UO_2$ 、 $U_{0.7}Zr_{0.3}O_2$ 、 $Fe_3O_4$  と正方晶の  $ZrO_2$  の計 4 相の回折ピークが観察された。本試料の組成は  $UO_2$  の比率が 50% となっているため、回折強度が高く、明瞭な  $UO_2$  の明瞭なピークが観察されたと推察される。また、立方晶  $U_{0.7}Zr_{0.3}O_2$  のピークが観察されているが、これは  $UO_2$  が  $ZrO_2$  と反応し、立方晶の  $UO_2$  結晶構造中の U が一部 Zr に置換してできた相であると考えられる。さらに、Z104F1SE01～03 では単斜晶の  $ZrO_2$  のピークが観察されていたが、Z104F1SE04 では正方晶の  $ZrO_2$  のピークが観察された。一般に、平衡状態において  $ZrO_2$  は高温で正方晶相、低温で単斜晶相が安定であることが知られている。そのため原因は定かではないが、冷却速度や他の相との反応などの何らかの理由で高温相が保持された可能性がある。

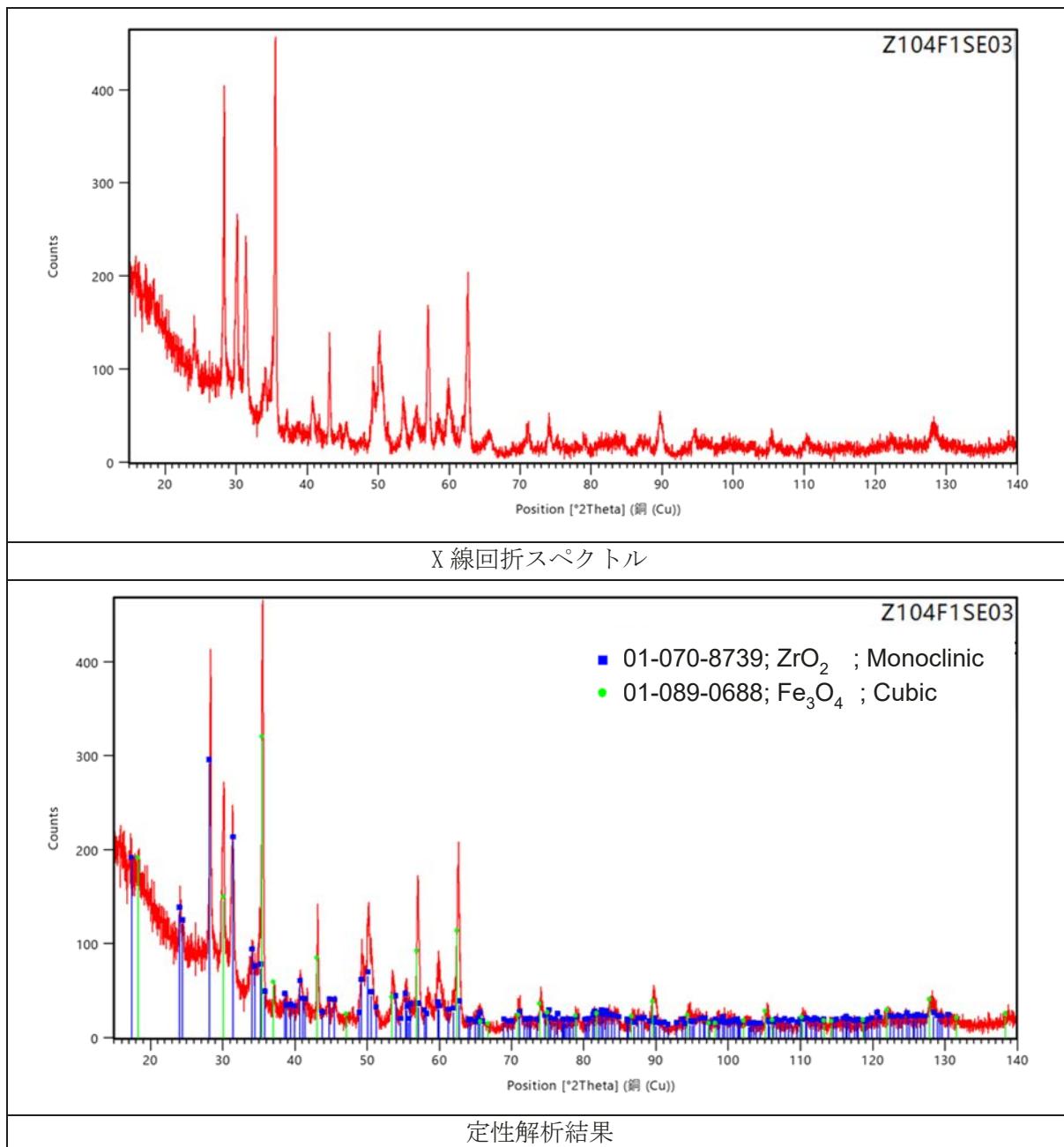
Z104F1SE05 においては、原料粉末の組成に対応した立方晶の  $UO_2$  と  $Gd_2O_3$  の 2 相の回折ピークが観察された。

Z104F1SE06～07 においては、立方晶の  $U_{0.234}$ 、菱面体晶の  $Al_2O_3$ 、 $CaCO_3$ 、 $Fe_2O_3$ 、六方晶の  $SiO_2$  の計 5 相の回折ピークが観察された。立方晶の  $U_{0.234}$  は、原料粉末中の  $UO_2$  が他の原料粉末から酸素を取り込み酸化した結果できた相であると考えられる。コンクリート成分においては  $CaO$  の回折ピークが観察されず、 $CaCO_3$  の回折ピークが観察された。通常、高温では  $CaCO_3 \rightarrow CaO + CO_2$  となる熱分解反応を起こすことが知られているため、試料焼結直後に XRD 測定を行った場合  $CaCO_3$  ではなくむしろ  $CaO$  の回折ピークは観察されるはずである。しかし、今回は試料を大気中でしばらく保管後に XRD 測定を実施したため、大気中の  $H_2O$  と  $CO_2$  と反応し、 $CaCO_3$  が生成した可能性が考えられる。それ以外のコンクリート成分においては、原料粉末と同じ相が観察された。

Z104F2SE01～03 においては、いずれも立方晶の  $UO_2$ 、Fe、 $FeZr_2$ 、 $Fe_2Zr$ 、直方晶（斜方晶）の  $FeZr_3$ 、六方晶の  $Zr_3O$ 、 $ZrCr_2$ 、正方晶の  $NiZr_2$  の計 8 相の回折ピークが観察された。特に、Zr と SUS316L 中の Fe、Cr、Ni が反応することにより形成したと考えられる複数種類の金属間化合物の回折ピークが確認された。また、Fe の回折ピークが観察されているが、これは面心立方晶の  $\gamma$ -Fe 相のピークであり、オーステナイト系ステンレス鋼である SUS316L の内、Zr と未反応の部分が存在していることを示唆している。さらに、 $Zr_3O$  は Zr が他の原料粉末から酸素を得て酸化したことで形成した相であると考えられる。

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(1) Z104F1SE01 (1% $\text{UO}_2$ -49.5% $\text{ZrO}_2$ -49.5% $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果 (2) Z104F1SE02 (5% $\text{UO}_2$ -47.5% $\text{ZrO}_2$ -47.5% $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(3) Z104F1SE03 (10% $\text{UO}_2$ -45% $\text{ZrO}_2$ -45% $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

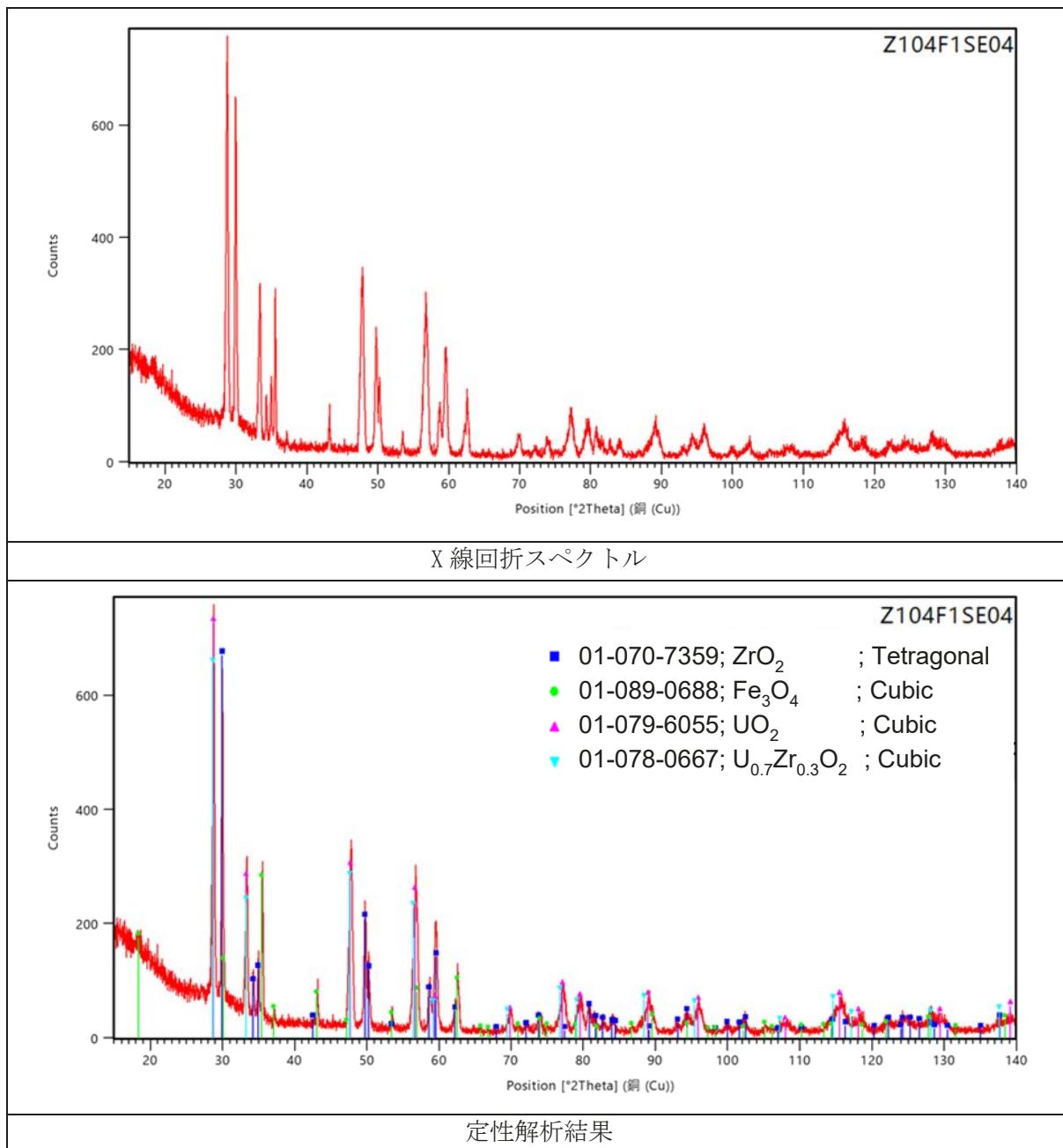
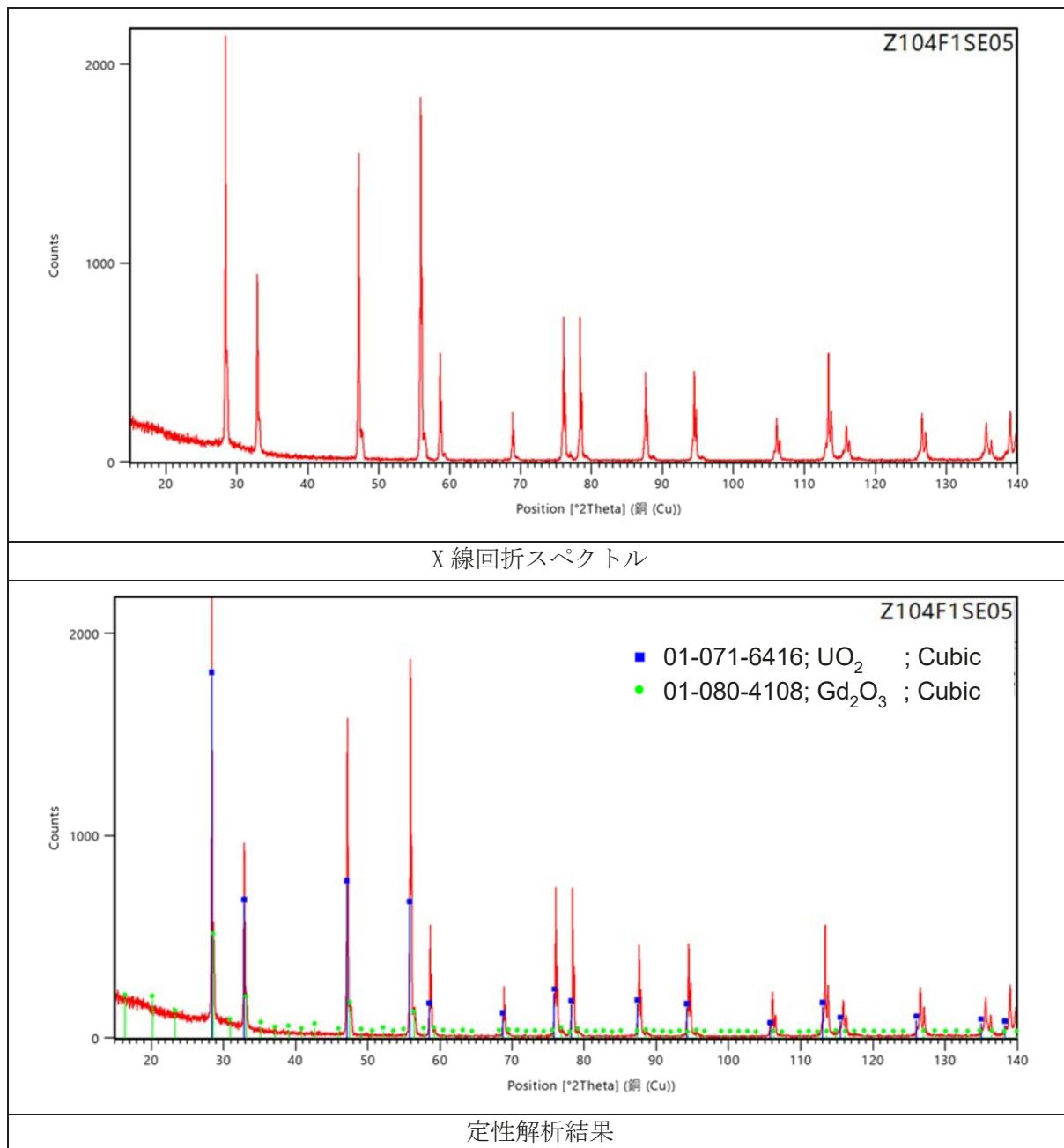
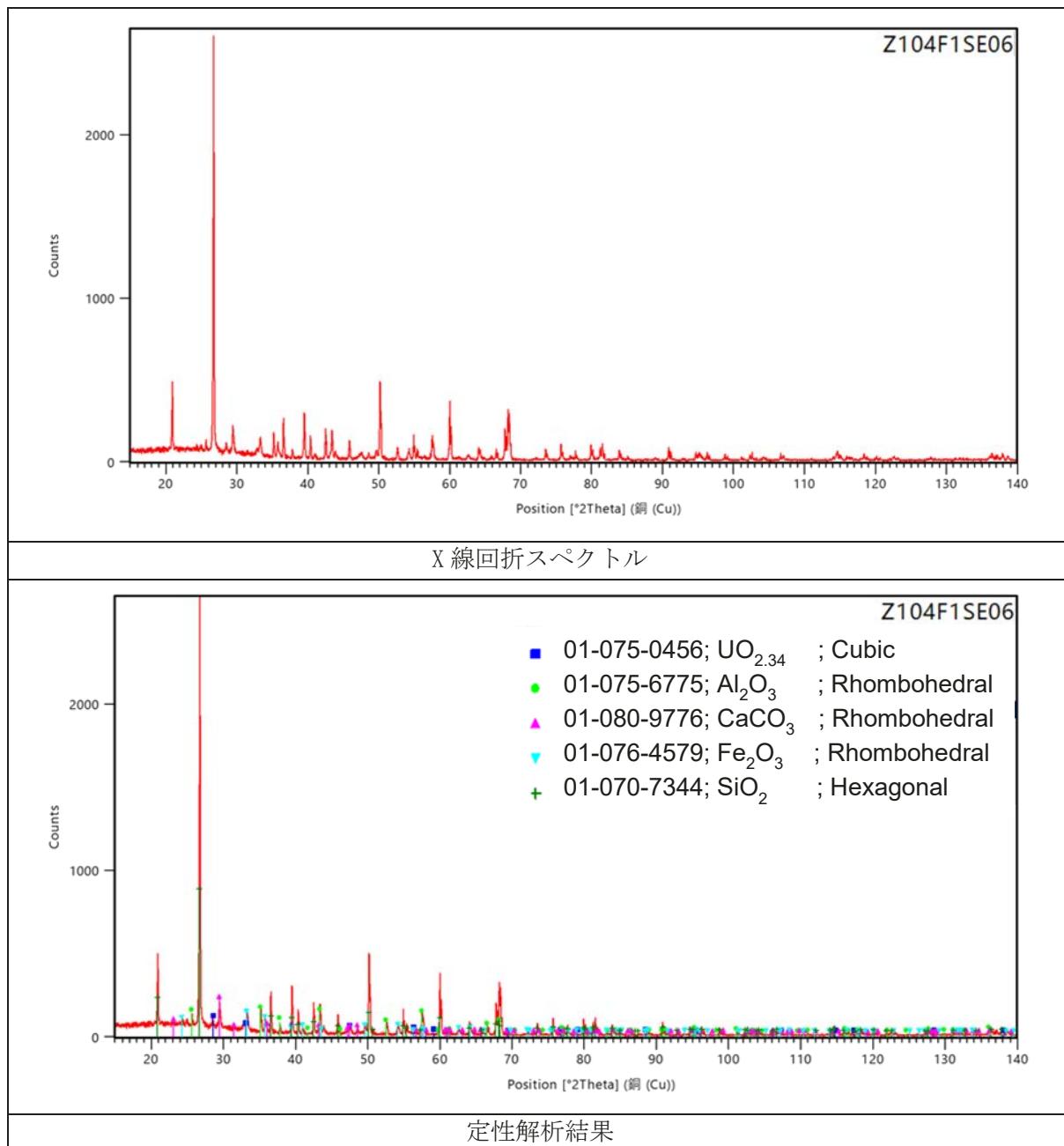
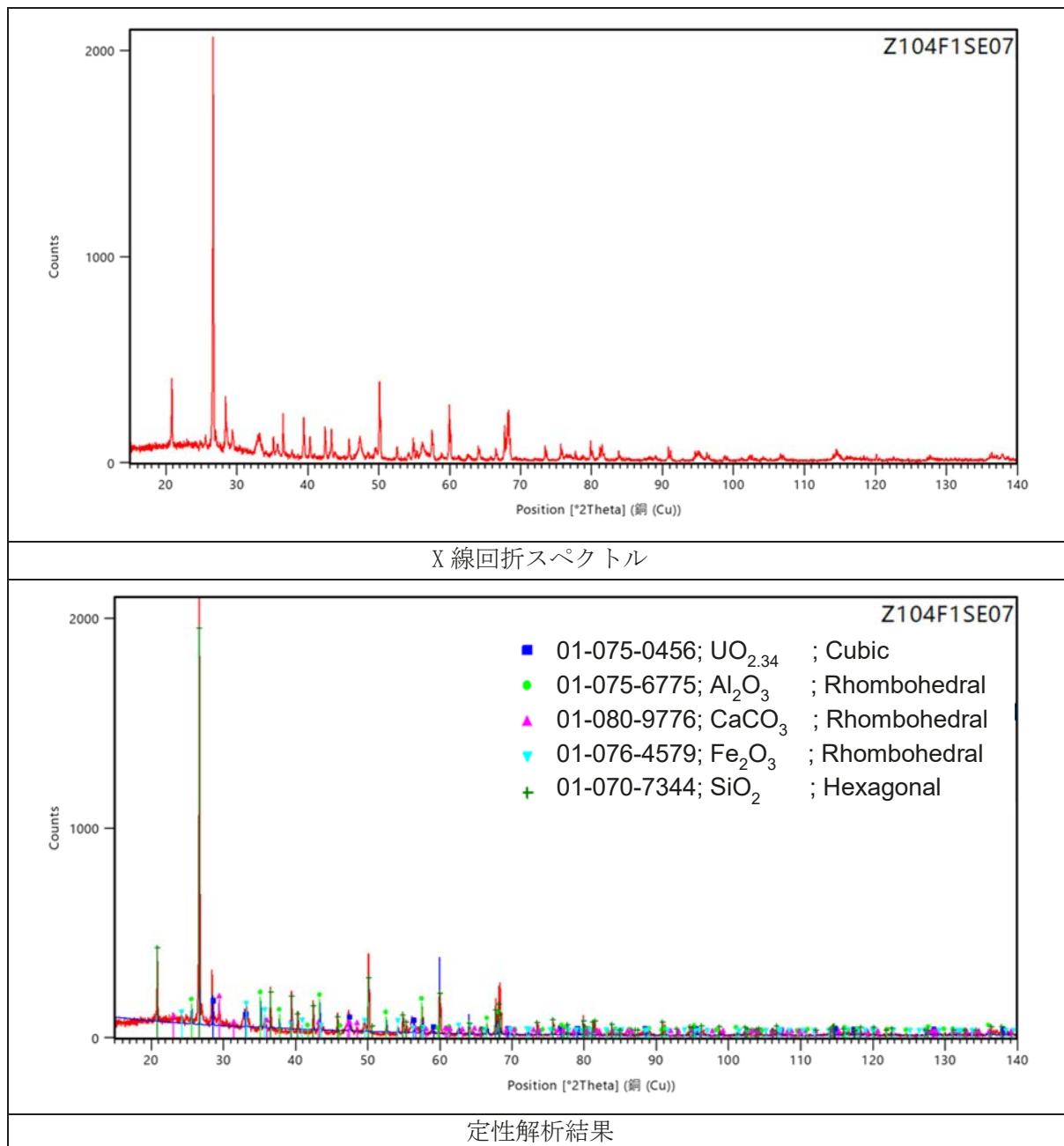
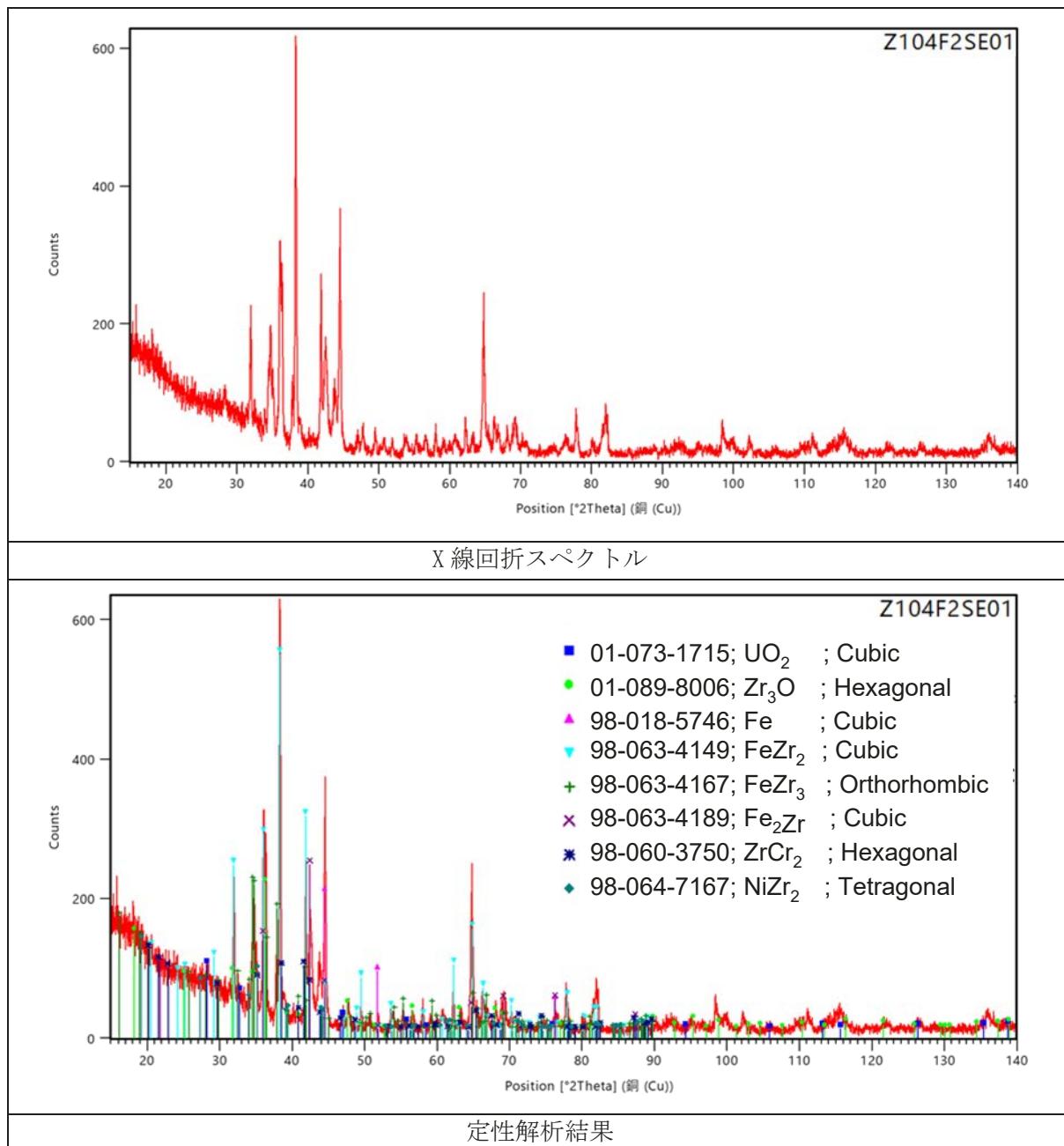


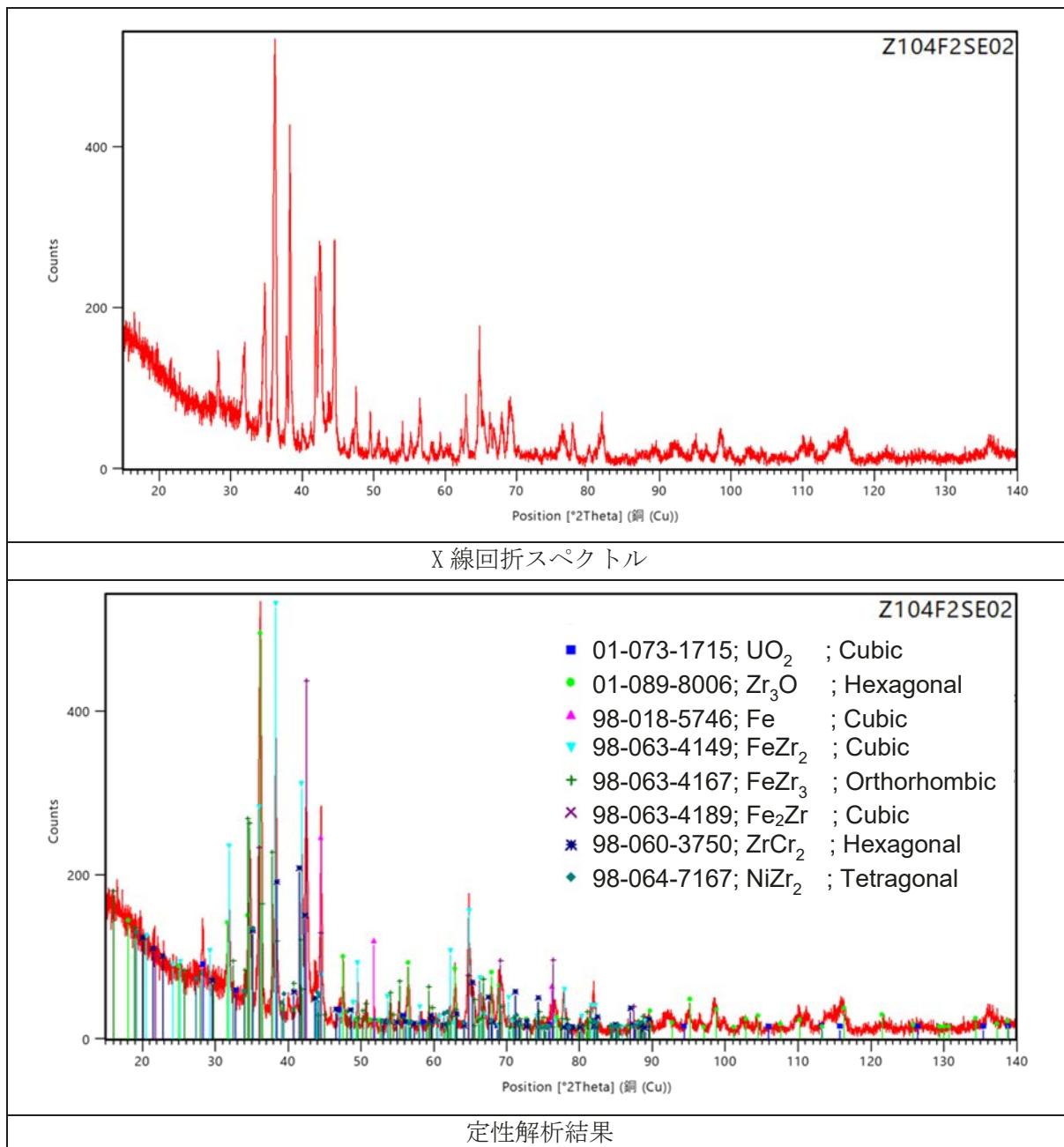
図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(4) Z104F1SE04 (50% $\text{UO}_2$ -25% $\text{ZrO}_2$ -25% $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(5) Z104F1SE05 (95% $\text{UO}_2$ -5% $\text{Gd}_2\text{O}_3$ )

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(6) Z104F1SE06(1% $\text{UO}_2$ -99%コンクリート)

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(7) Z104F1SE07(5% $\text{UO}_2$ -95%コンクリート)

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果(8) Z104F2SE01 (1% $\text{UO}_2$ -49.5%Zr-49.5%SUS316L)

図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果 (9) Z104F2SE02 (5% $\text{UO}_2$ -47.5%Zr-47.5%SUS316L)

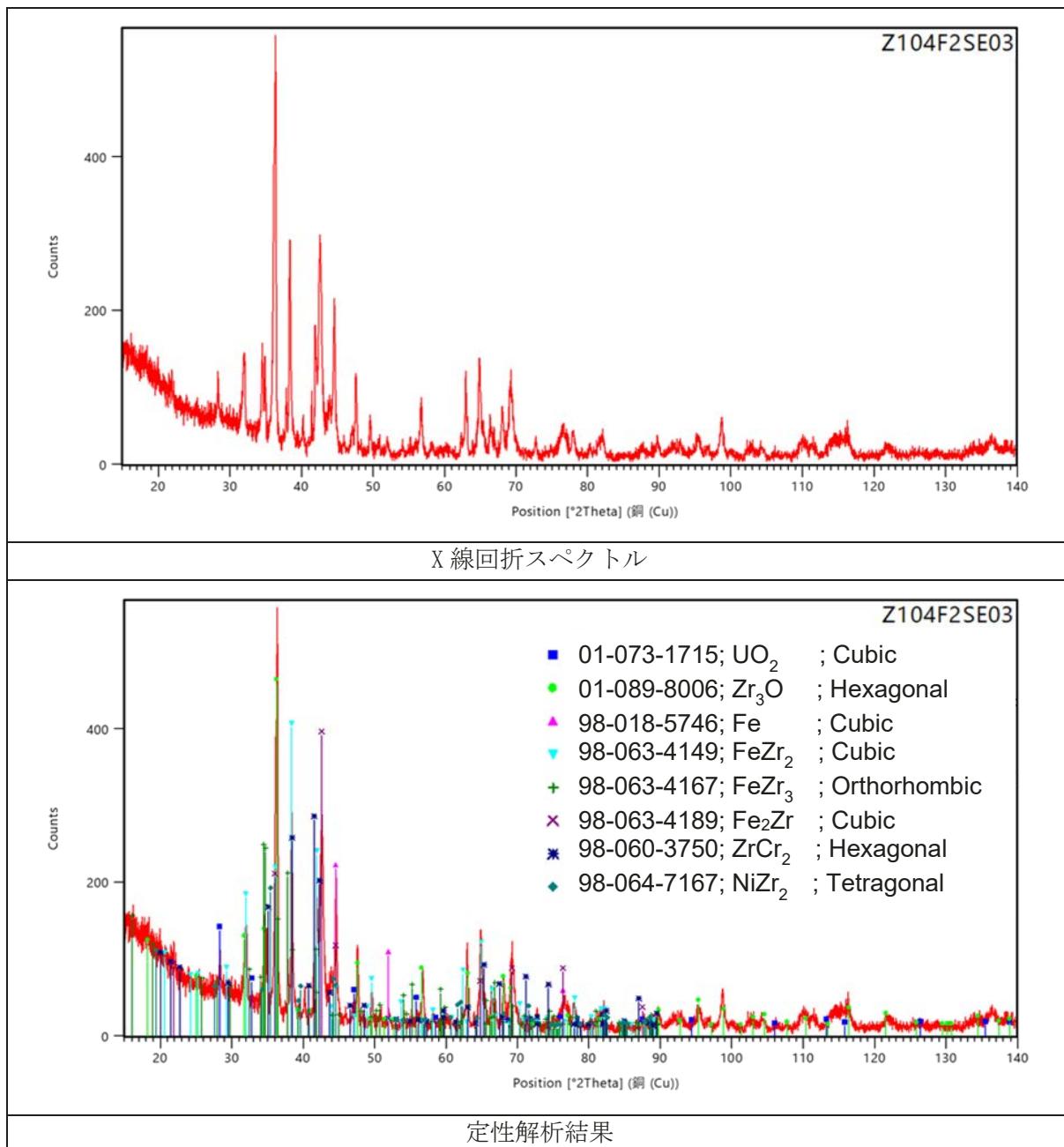
図 3.2-2 核燃料試料の結晶構造解析結果 (10) Z104F2SE03 (10% $\text{UO}_2$ -45%Zr-45%SUS316L)

表 3.2-5 核燃料試料の結晶構造解析結果一覧  
(1) 酸化物系核燃料試料

試料番号	組成	同定相(結晶系*)
Z104F1SE01	1%UO <sub>2</sub> -49.5%ZrO <sub>2</sub> -49.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	ZrO <sub>2</sub> (m), Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (c)
Z104F1SE02	5%UO <sub>2</sub> -47.5%ZrO <sub>2</sub> -47.5%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	
Z104F1SE03	10%UO <sub>2</sub> -45%ZrO <sub>2</sub> -45%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	
Z104F1SE04	50%UO <sub>2</sub> -25%ZrO <sub>2</sub> -25%Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	ZrO <sub>2</sub> (t), Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (c), UO <sub>2</sub> (c), U <sub>0.7</sub> Zr <sub>0.3</sub> O <sub>2</sub> (c)
Z104F1SE05	95%UO <sub>2</sub> -5%Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	UO <sub>2</sub> (c), Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (c)
Z104F1SE06	1%UO <sub>2</sub> -99%コンクリート	UO <sub>2.34</sub> (c), Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (r), CaCO <sub>3</sub> (r), Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (r), SiO <sub>2</sub> (h)
Z104F1SE07	5%UO <sub>2</sub> -95%コンクリート	

(2) 金属系核燃料試料

試料番号	組成	同定相(結晶系*)
Z104F2SE01	1%UO <sub>2</sub> -49.5%Zr-49.5%SUS316L	UO <sub>2</sub> (c), Zr <sub>3</sub> O (h), Fe (c), FeZr <sub>2</sub> (c), FeZr <sub>3</sub> (o), Fe <sub>2</sub> Zr (c), ZrCr <sub>2</sub> (h), NiZr <sub>2</sub> (t)
Z104F2SE02	5%UO <sub>2</sub> -47.5%Zr-47.5%SUS316L	
Z104F2SE03	10%UO <sub>2</sub> -45%Zr-45%SUS316L	

\* c : 立方晶、h : 六方晶、m : 单斜晶、o : 直方晶(斜方晶)、r : 菱面体晶、t : 正方晶

#### (4) EDS による半定量元素分析

図 3.2-3 に EDS による元素マッピング結果、表 3.2-6 に半定量元素分析結果を示す。Z104F1SE01～03 においては、U に関しては比較的大きな粒子状の U リッチ相が存在するものの、全体的に O、U、Zr、Fe が均一に分散していることから、均質な組織となっていることがわかる。なお、XRD では  $UO_2$  や U を含む相の回折ピークは確認できなかつたが、EDS マッピング像及び判定量解析の結果から U の存在が確認された。

Z104F1SE04 においては、大きく分けて U リッチ相、Zr リッチ相、Fe 及び O リッチ相の 3 種類の相が確認できる。XRD の定性解析結果では立方晶の  $UO_2$ 、 $U_{0.7}Zr_{0.3}O_2$ 、 $Fe_3O_4$  と正方晶の  $ZrO_2$  の計 4 相を同定していたが、 $UO_2$ 、 $U_{0.7}Zr_{0.3}O_2$  の 2 相が U リッチ相であるとすれば、元素マッピング結果と十分に整合する。

Z104F1SE05 においては、U、Gd、O が均一に分散している様子が確認された。XRD の定性解析結果を考慮すると原料粉末の  $UO_2$  と  $Gd_2O_3$  の 2 相からなる均質な組織を有していることがわかる。

Z104F1SE06～07 においては、Al、Si、U、Ca、Fe の各リッチ相の領域が O の分布領域と概ね重なり合っている様子が観察された。本結果から各元素の酸化物相が存在していることが推察され、これは XRD 定性解析結果において  $UO_{2.34}$ 、 $Al_2O_3$ 、 $CaCO_3$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $SiO_2$  の計 5 相の回折ピークが観察されたことと整合する。ただし、C は分析対象に含めていなかつたため、 $CaCO_3$  相が存在しうるか判断できなかつた。

Z104F2SE01～03 においては Fe、Cr、Ni がそれぞれリッチな領域が重っている様子が観察されており、これは SUS316L 由来の  $\gamma$ -Fe 相に対応すると考えられる。また、この相ほどリッチではないが、周辺にも Fe、Cr、Ni が分布しており、Zr リッチな領域と重なっていることがわかる。XRD の定性解析結果を考慮に入れると Fe、Cr、Ni と Zr からなる  $FeZr_2$ 、 $Fe_2Zr$ 、 $FeZr_3$ 、 $ZrCr_2$ 、 $NiZr_2$  等の金属間化合物の相に対応すると推察される。さらに、O は全体的に分布しており、U と重なっている領域が  $UO_2$ 、Zr と重なっている領域が  $Zr_3O$  に対応すると解釈できる。なお、Mg、Si、Mn がわずかに定量されている場合がある。これは、SUS316L の成分元素である可能性もあるが、元素マッピングをみるとそれぞれリッチな領域が O リッチな領域と重なつておらず、BSE 像において穴のような黒い領域に対応して分布している。したがつて、Z104F2SE01～03 の開気孔率は比較的高いため、試料表面の開気孔に残留していた研磨紙や懸濁液由来の砥粒成分が検出された可能性も考えられる。

以上により、分光画像データ取得や LIBS 測定において均質とみなせる試料が作製できていることを確認した。

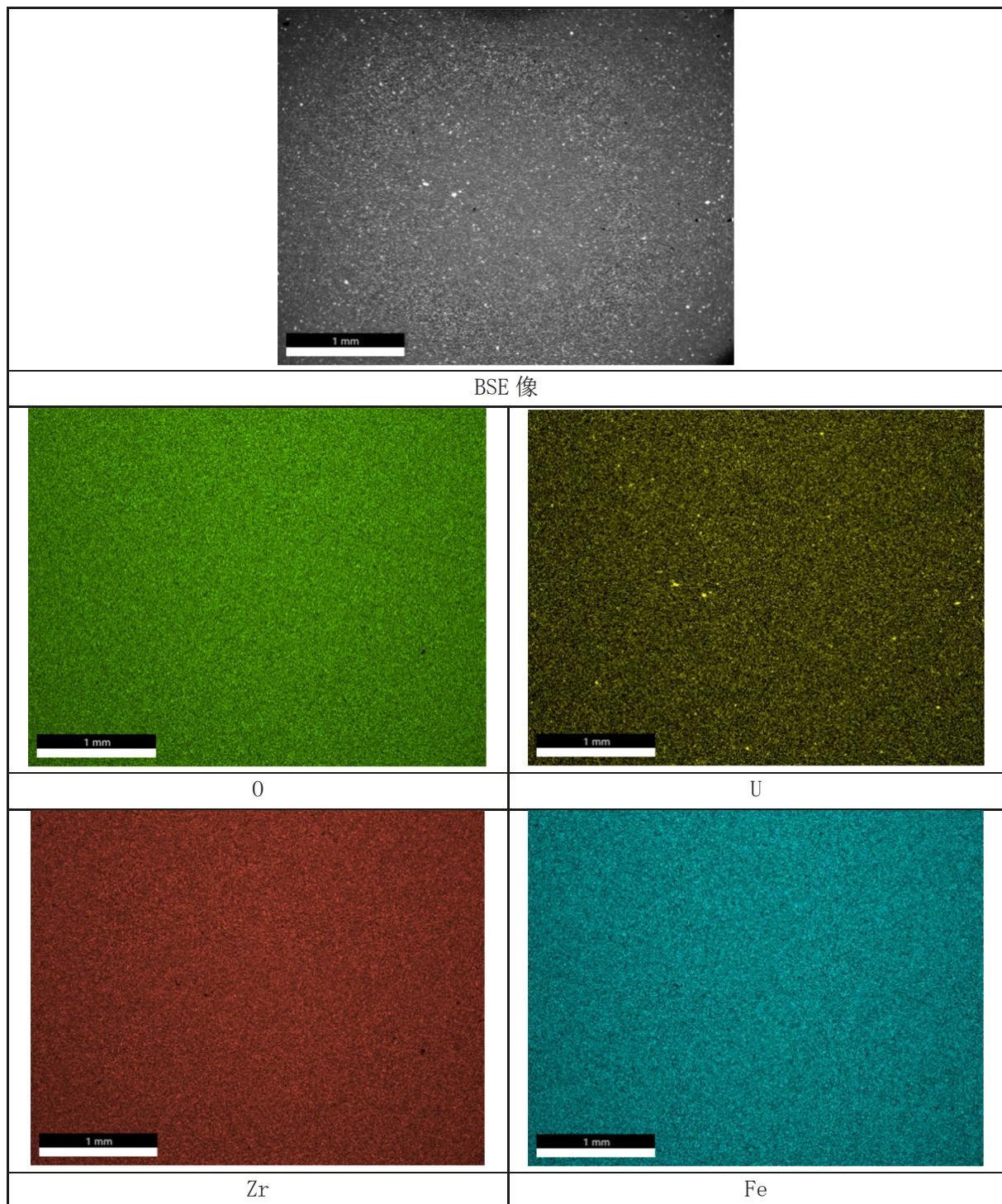


図 3.2-3 核燃料試料のEDSマッピング像

(1) Z104F1SE01 (1%UO<sub>2</sub>-49.5%ZrO<sub>2</sub>-49.5%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 35倍)

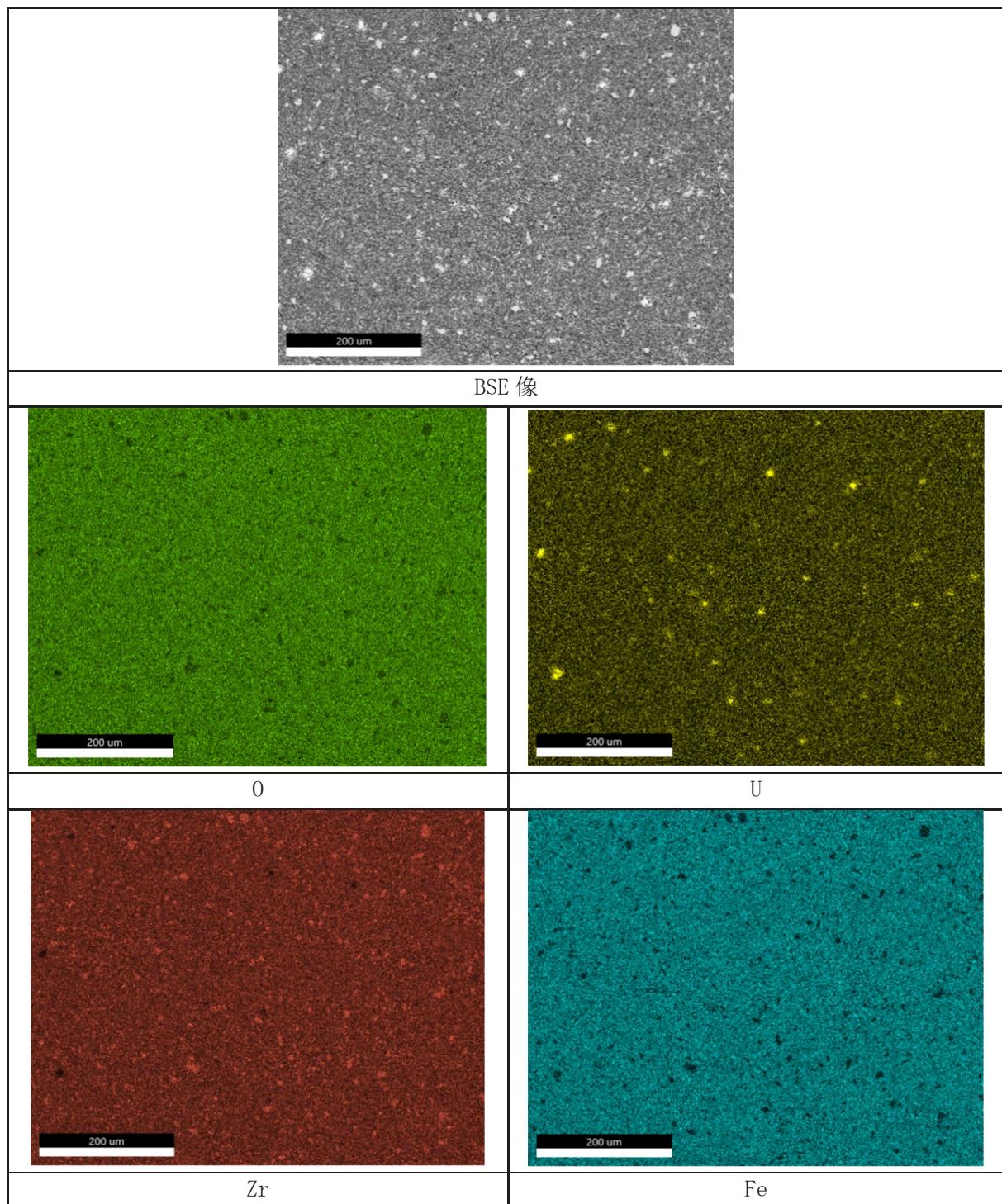


図 3.2-3 核燃料試料のEDSマッピング像

(1) Z104F1SE01 (1%UO<sub>2</sub>-49.5%ZrO<sub>2</sub>-49.5%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 200 倍)

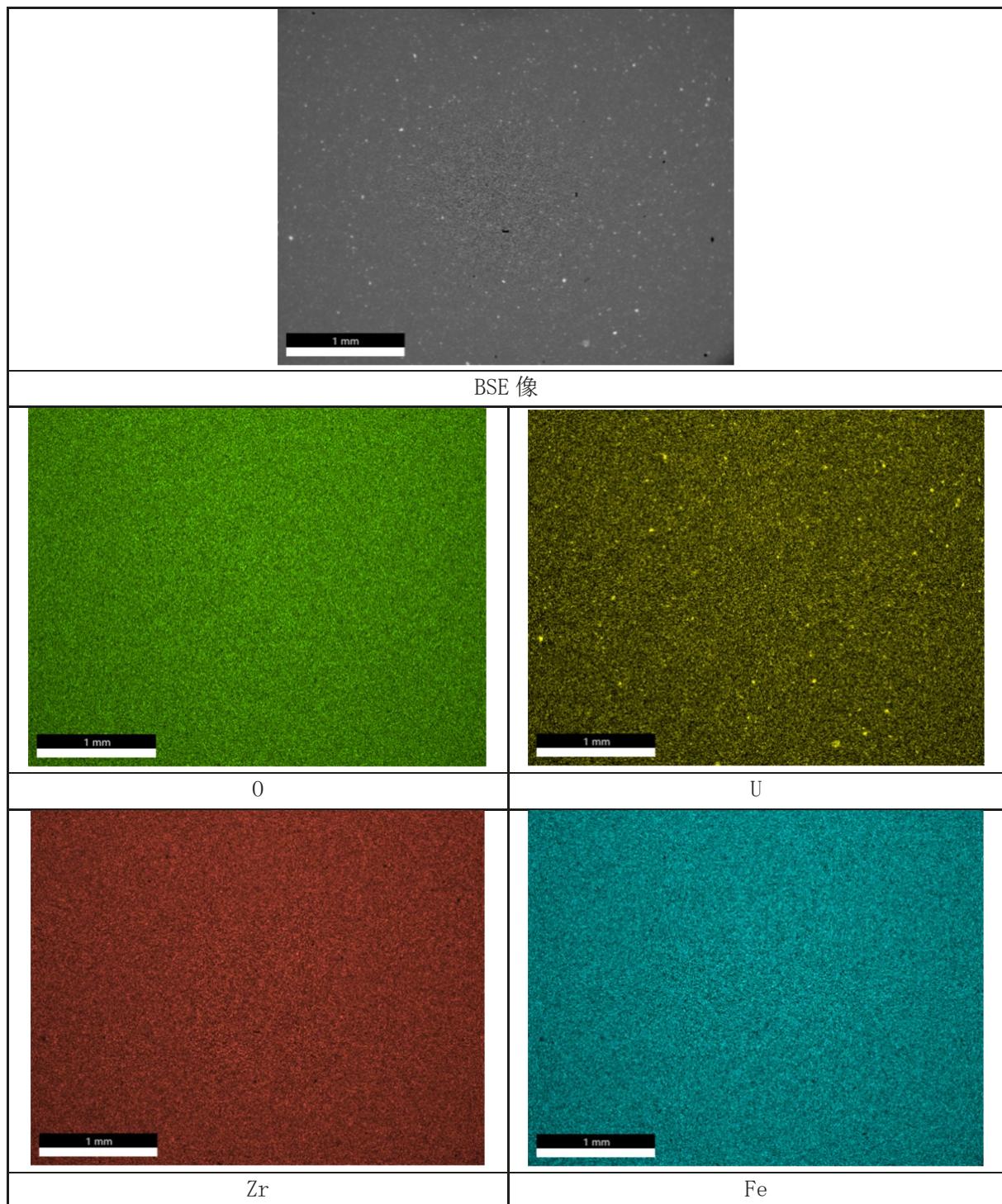


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(2) Z104F1SE02 (5%UO<sub>2</sub>-47.5%ZrO<sub>2</sub>-47.5%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 35 倍)

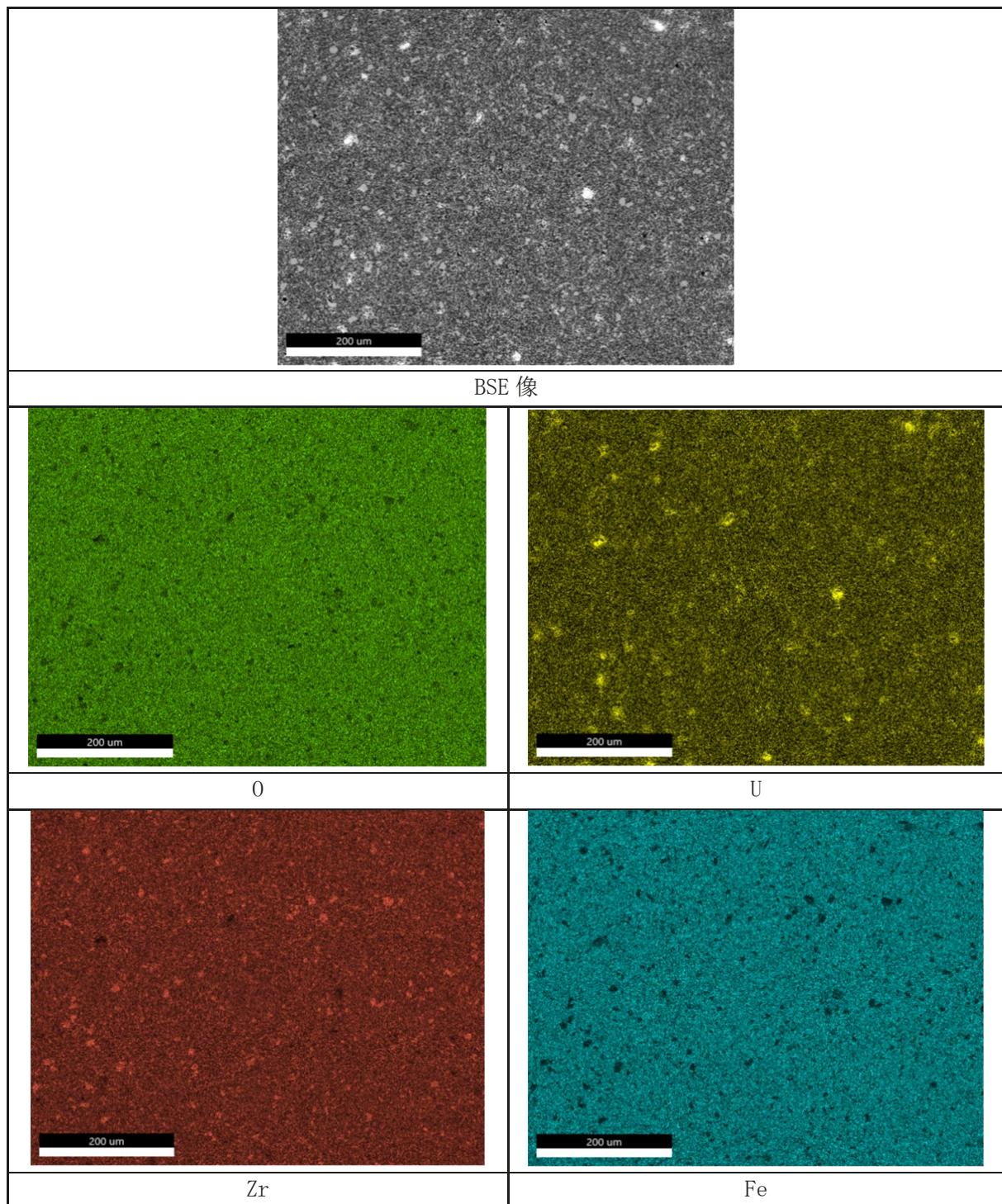


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(2) Z104F1SE02 (5%UO<sub>2</sub>-47.5%ZrO<sub>2</sub>-47.5%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 200 倍)

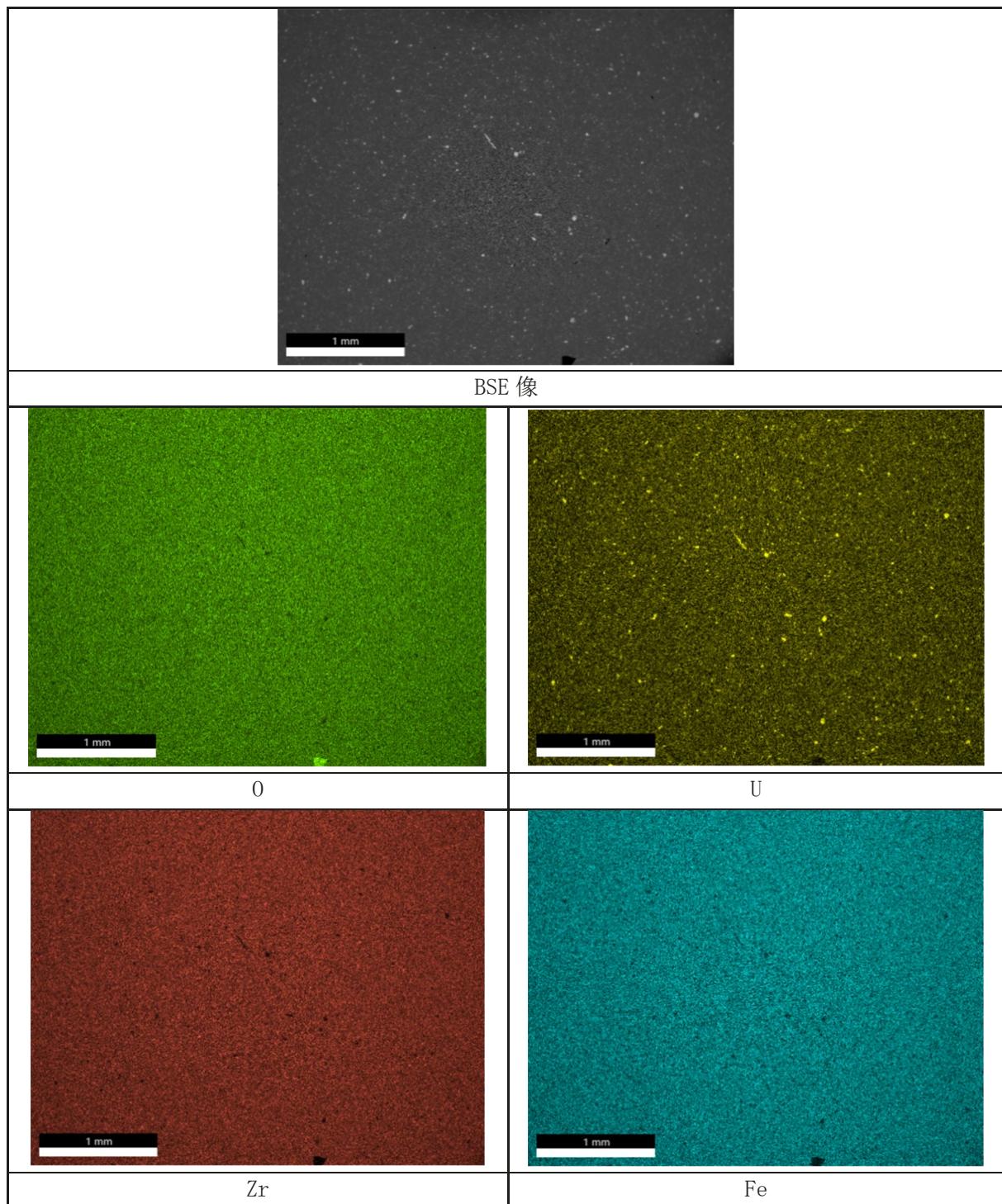


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(3) Z104F1SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%ZrO<sub>2</sub>-45%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 35 倍)

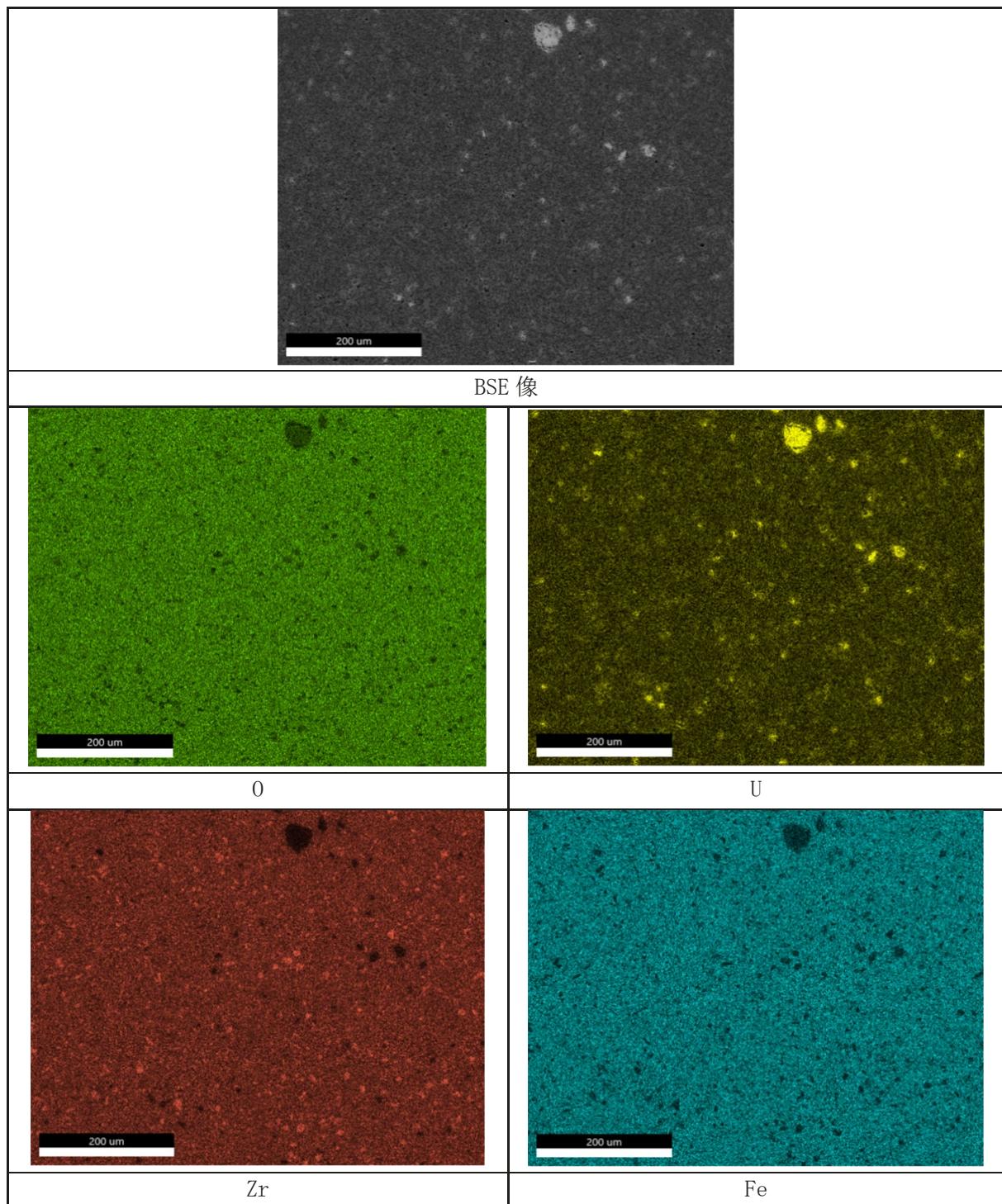


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(3) Z104F1SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%ZrO<sub>2</sub>-45%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 200 倍)

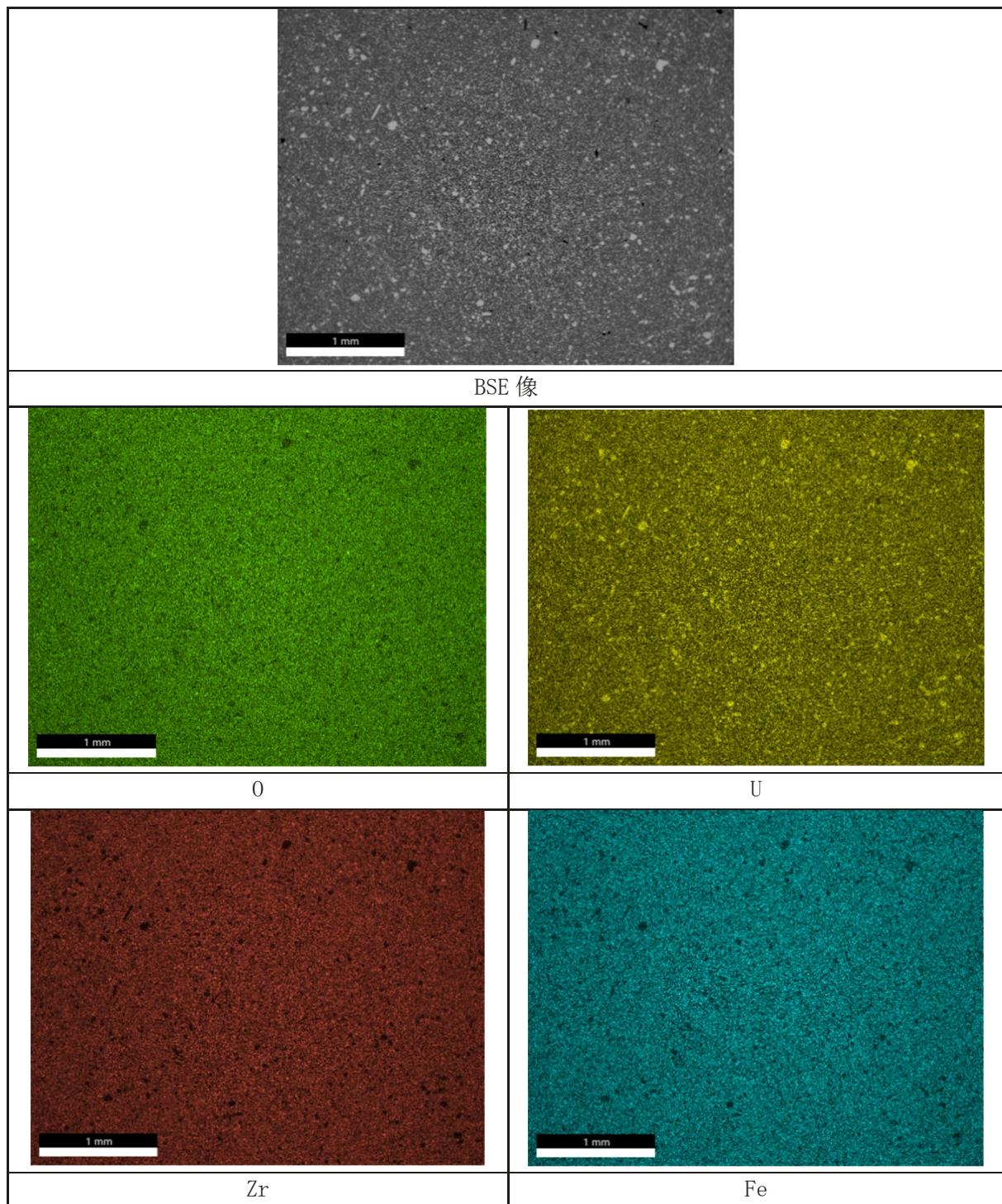


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(4) Z104F1SE04 (50%UO<sub>2</sub>-25%ZrO<sub>2</sub>-25%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 35 倍)

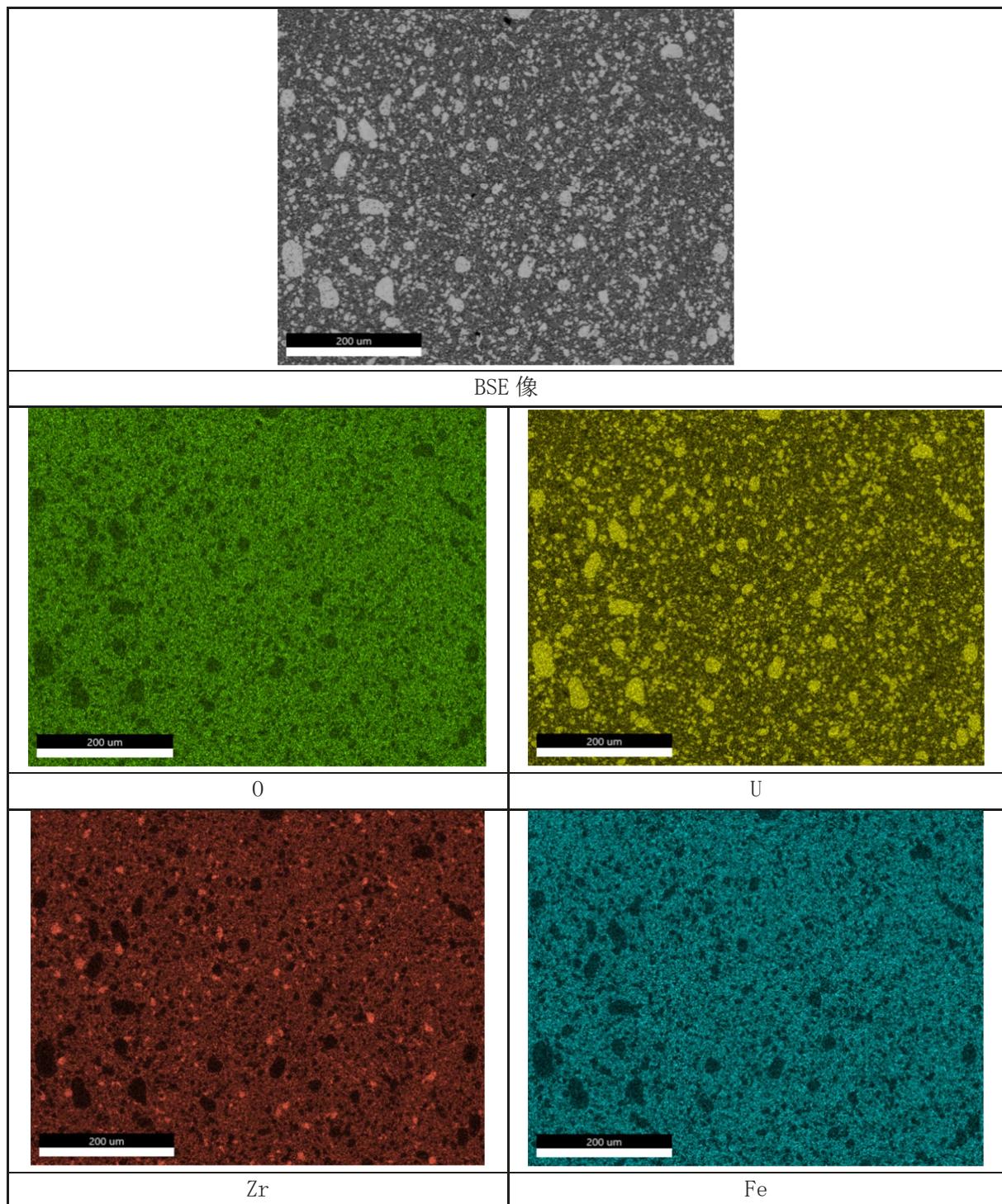


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(4) Z104F1SE04 (50%UO<sub>2</sub>-25%ZrO<sub>2</sub>-25%Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) (倍率: 200 倍)

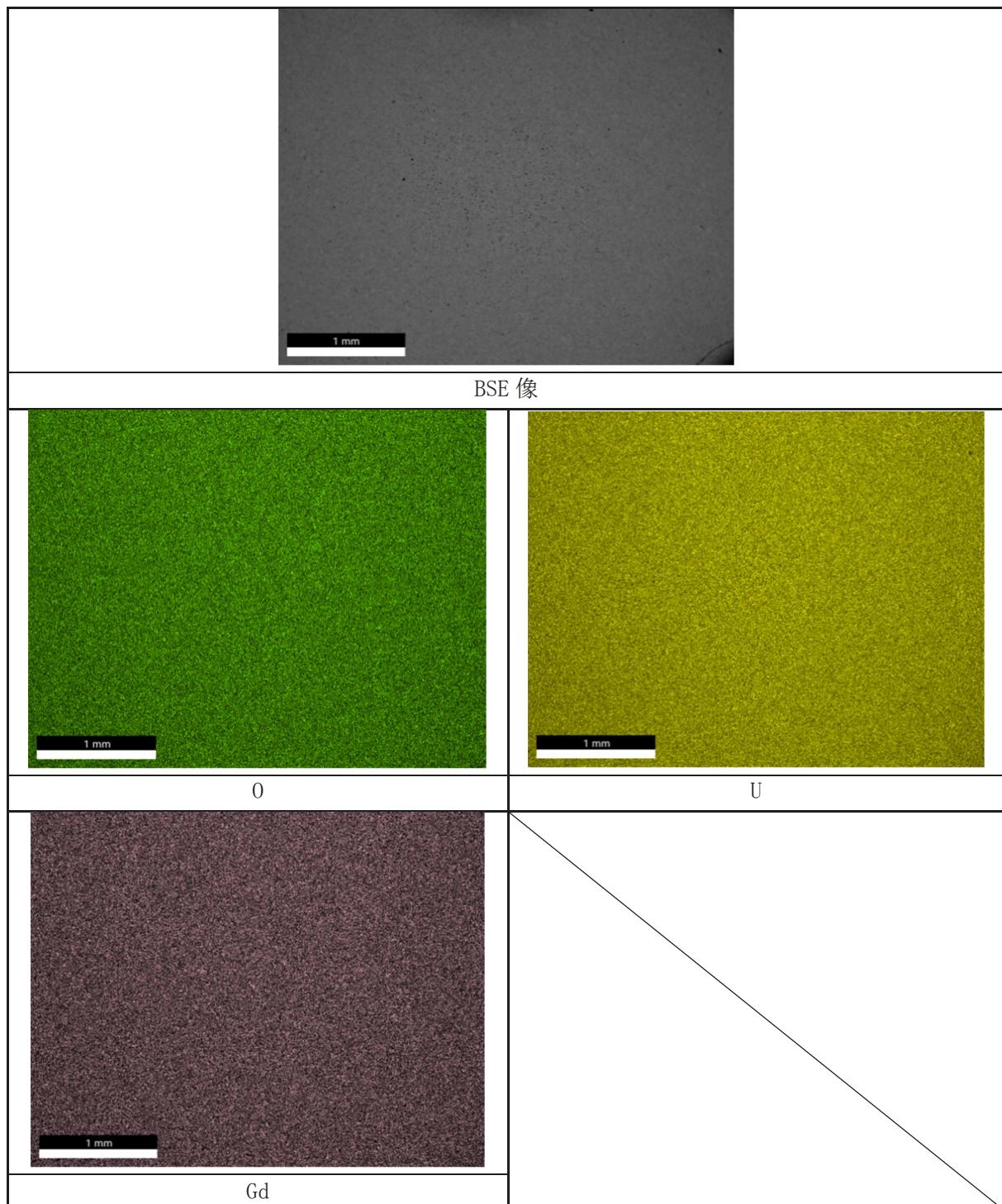


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(5) Z104F1SE05 (95%UO<sub>2</sub>-5%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) (倍率: 35 倍)

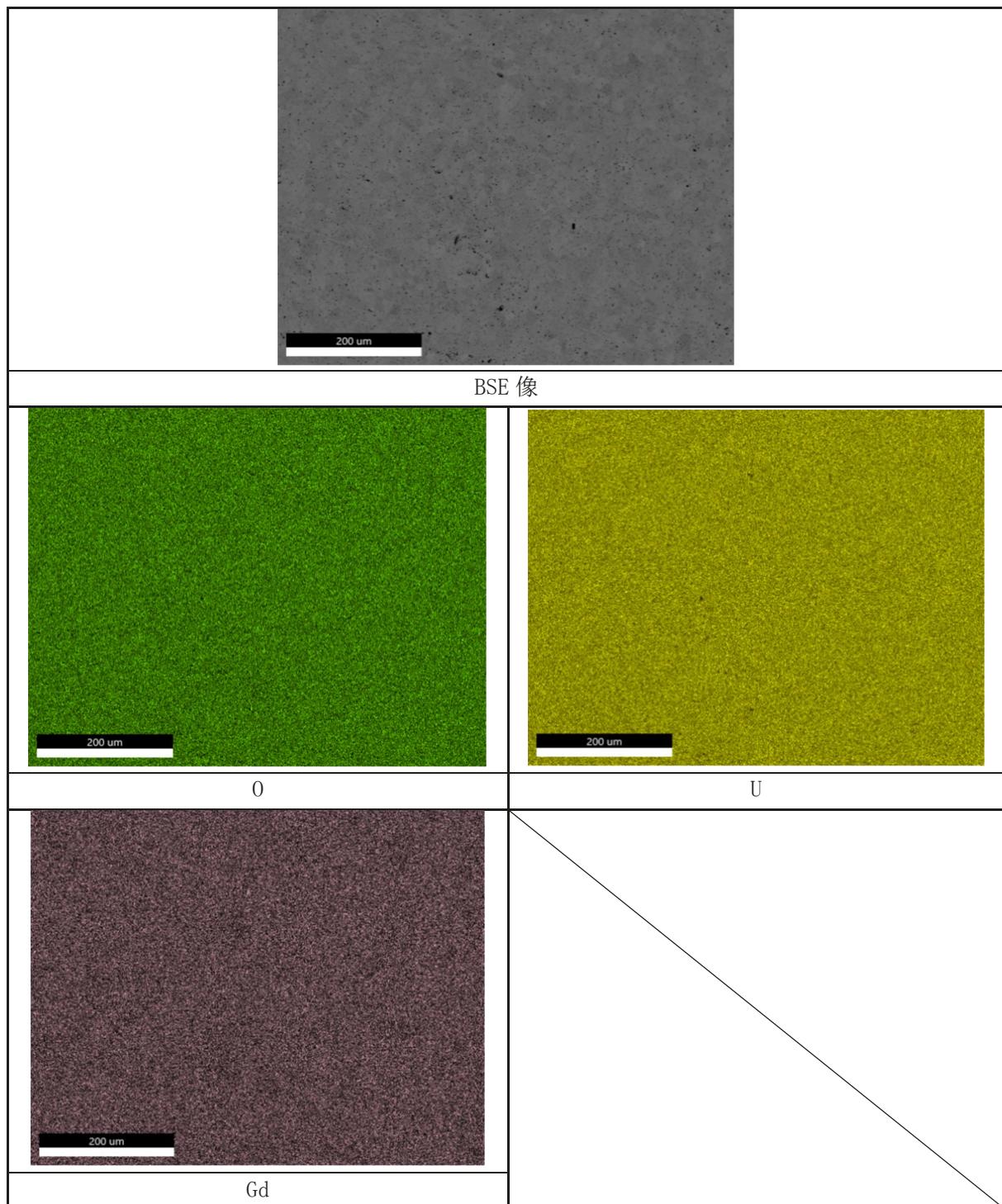


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(5) Z104F1SE05 (95%UO<sub>2</sub>-5%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) (倍率: 200 倍)

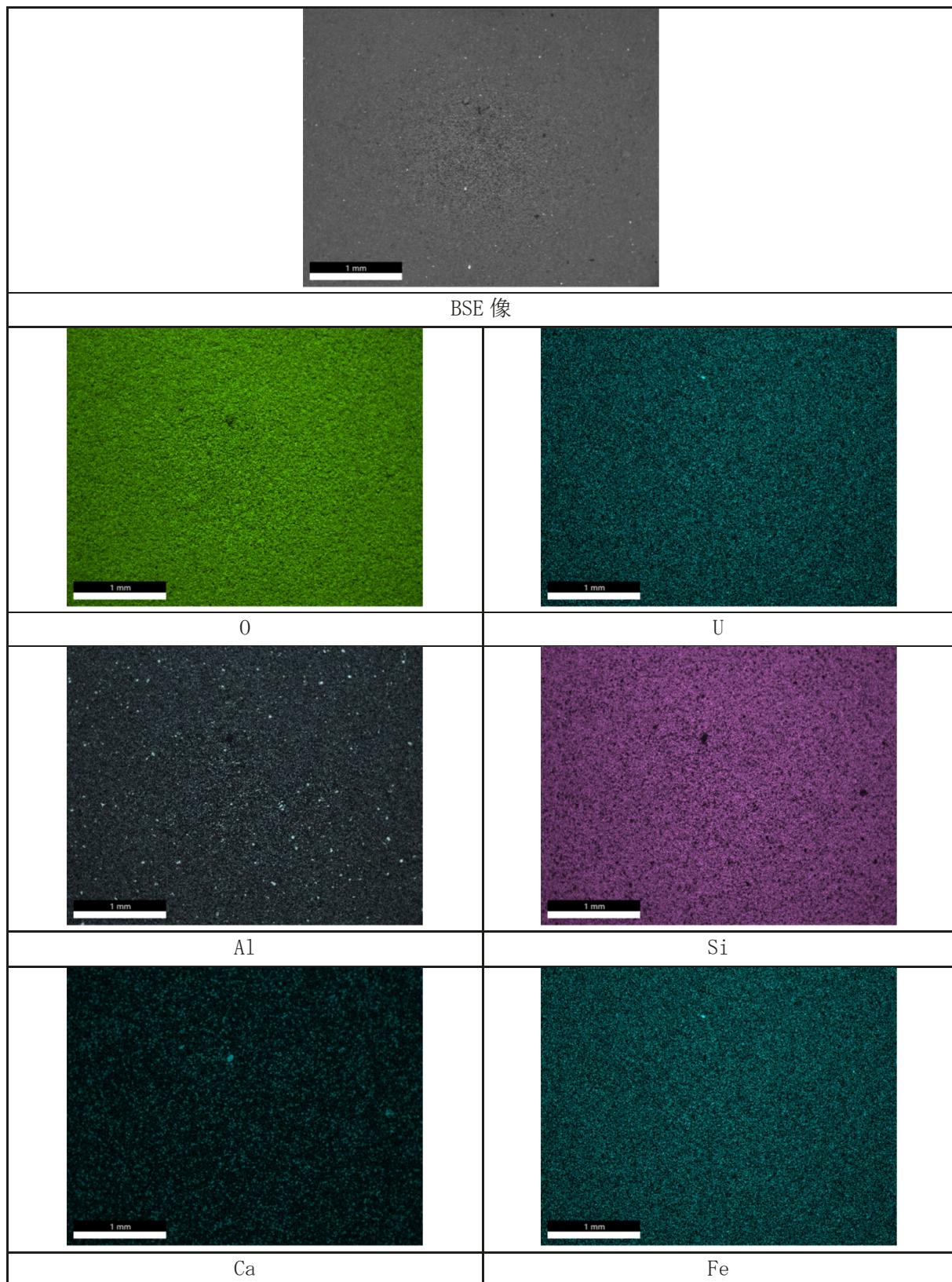


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(6) Z104F1SE06 (1%UO<sub>2</sub>-99%コンクリート) (倍率: 35 倍)

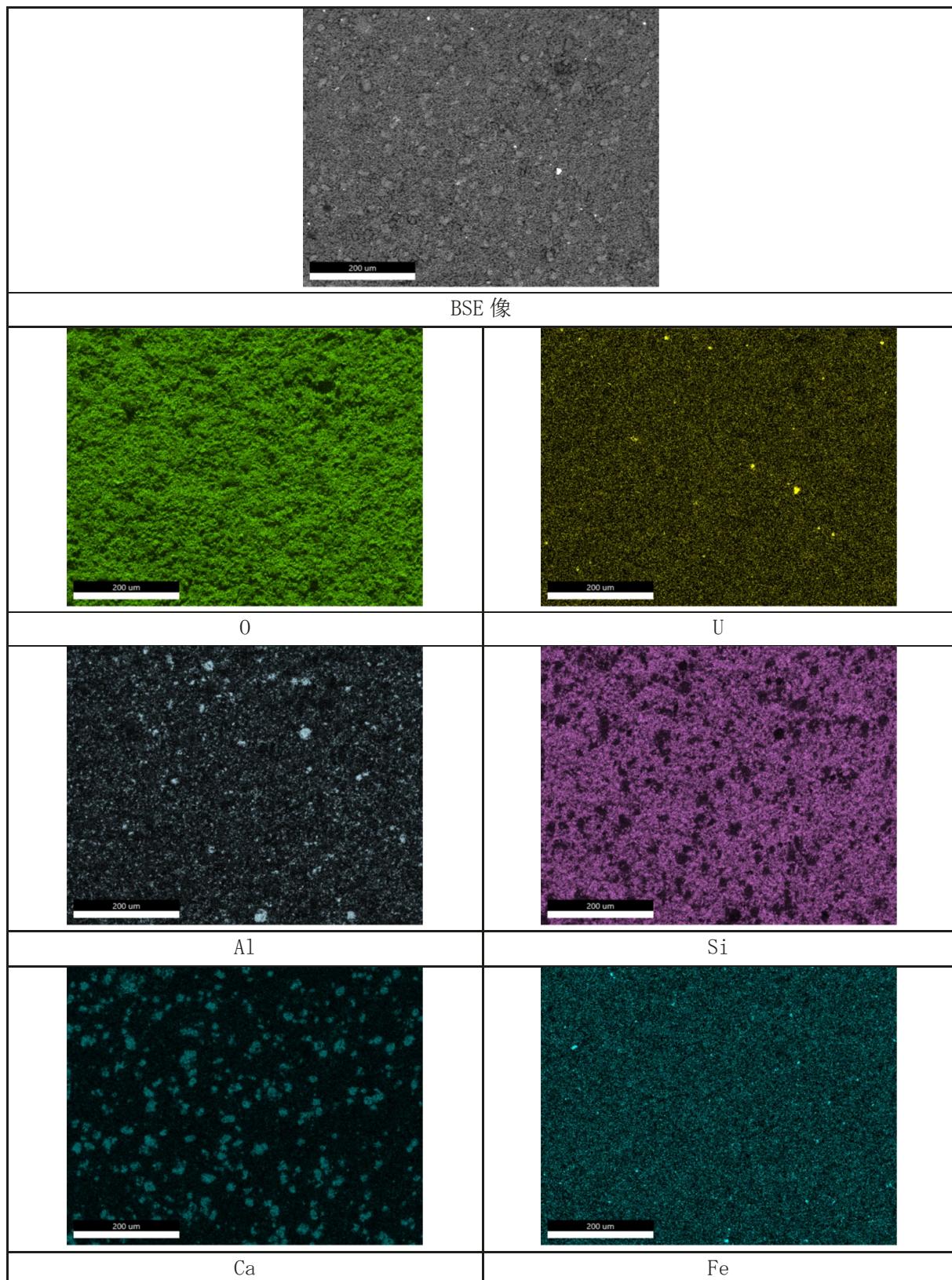


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(6) Z104F1SE06 (1%UO<sub>2</sub>-99%コンクリート) (倍率: 200 倍)

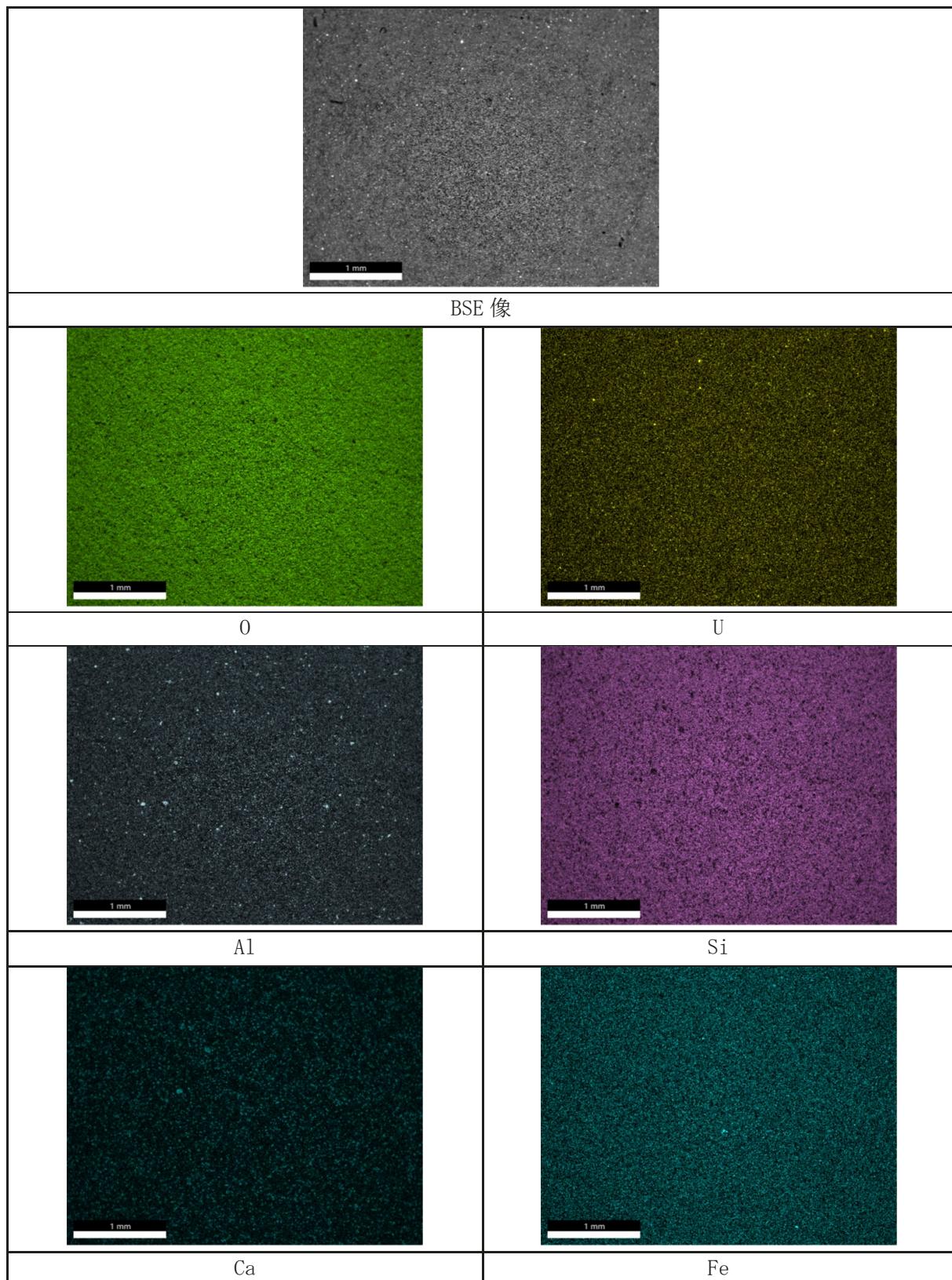


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(7) Z104F1SE07 (5%UO<sub>2</sub>-95%コンクリート) (倍率: 35 倍)

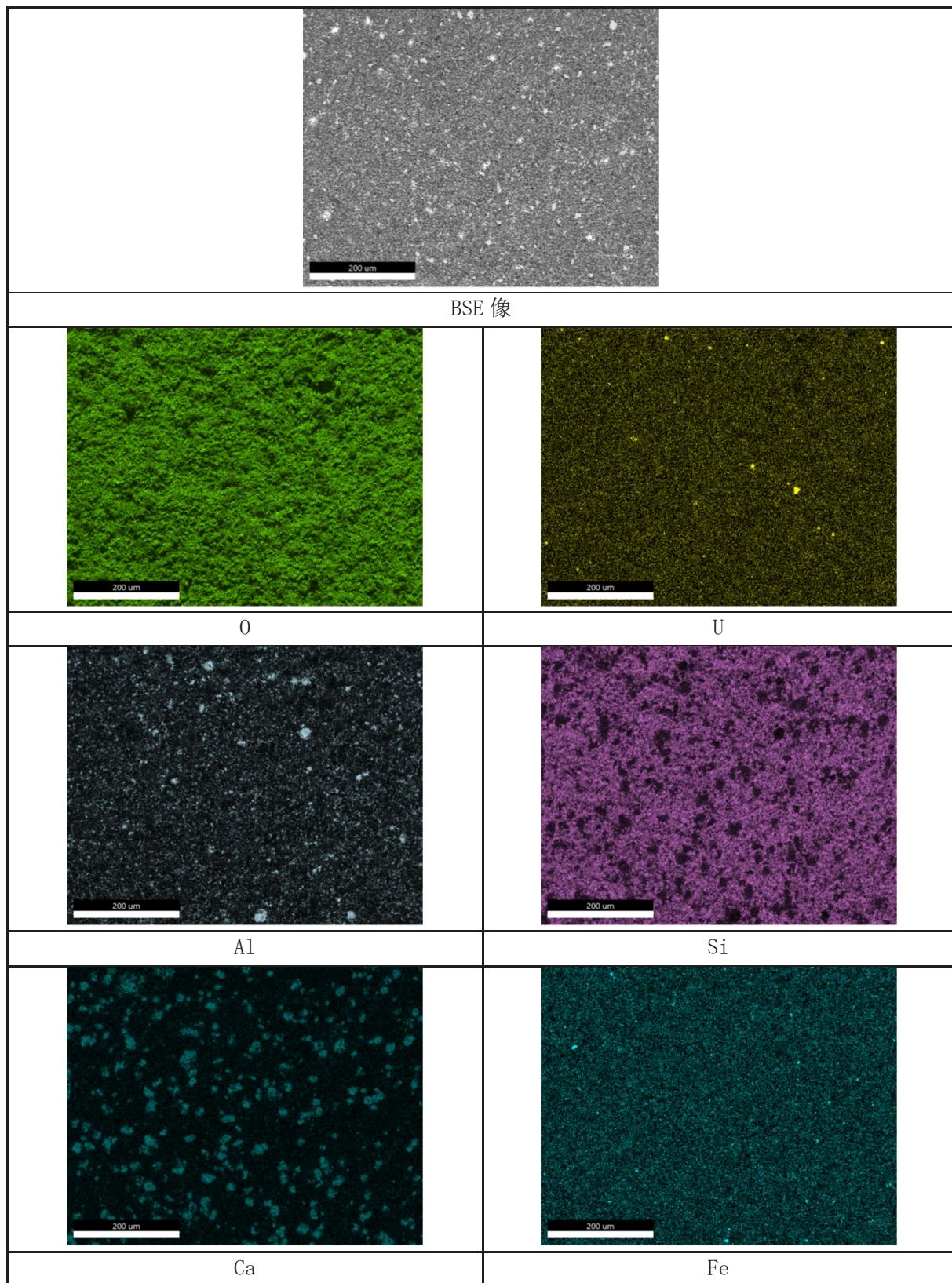


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(7) Z104F1SE07 (5%UO<sub>2</sub>-95%コンクリート) (倍率: 200 倍)

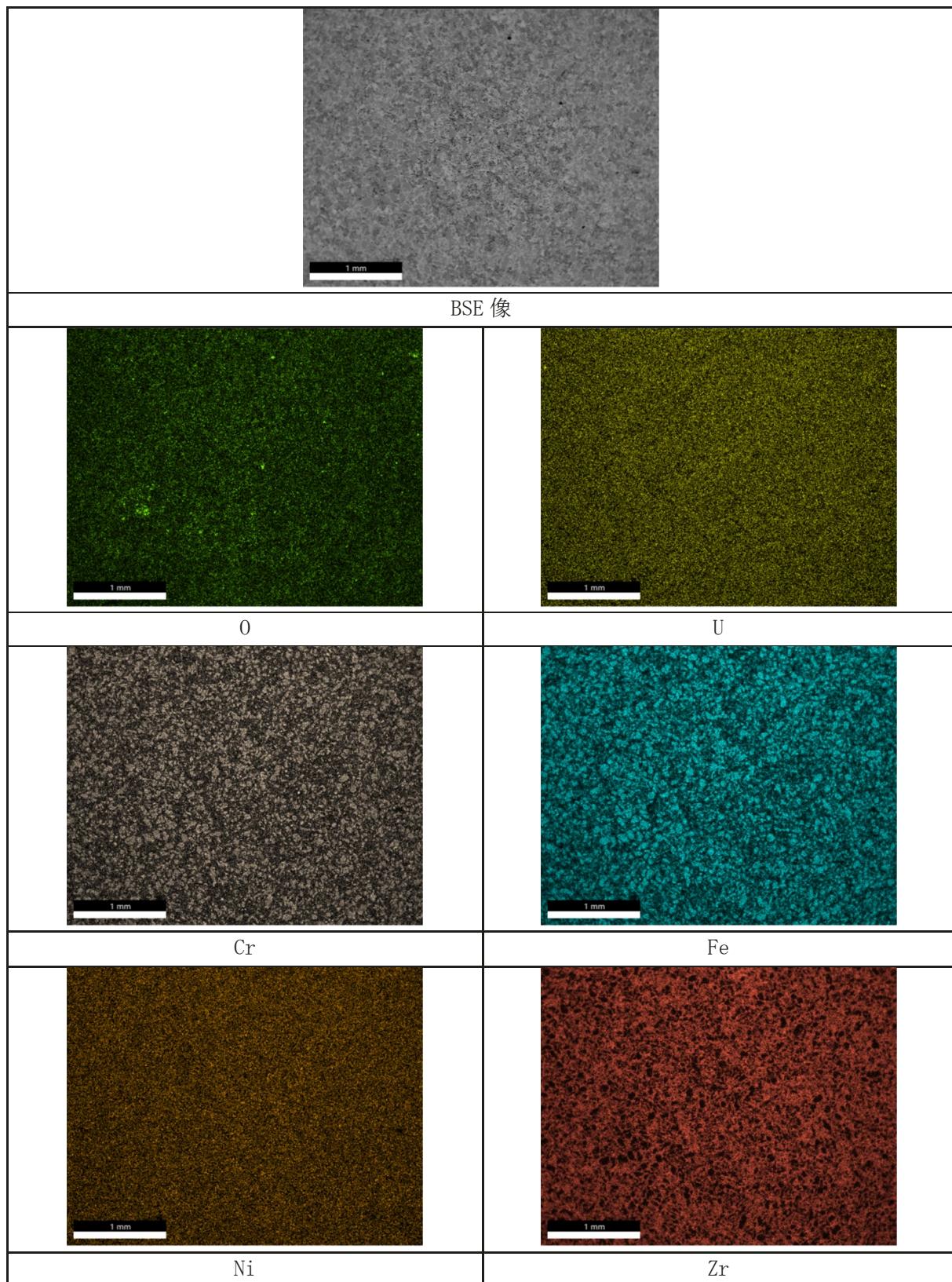


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(8) Z104F2SE01 (1%UO<sub>2</sub>-49.5%Zr-49.5%SUS316L) (倍率: 35 倍)

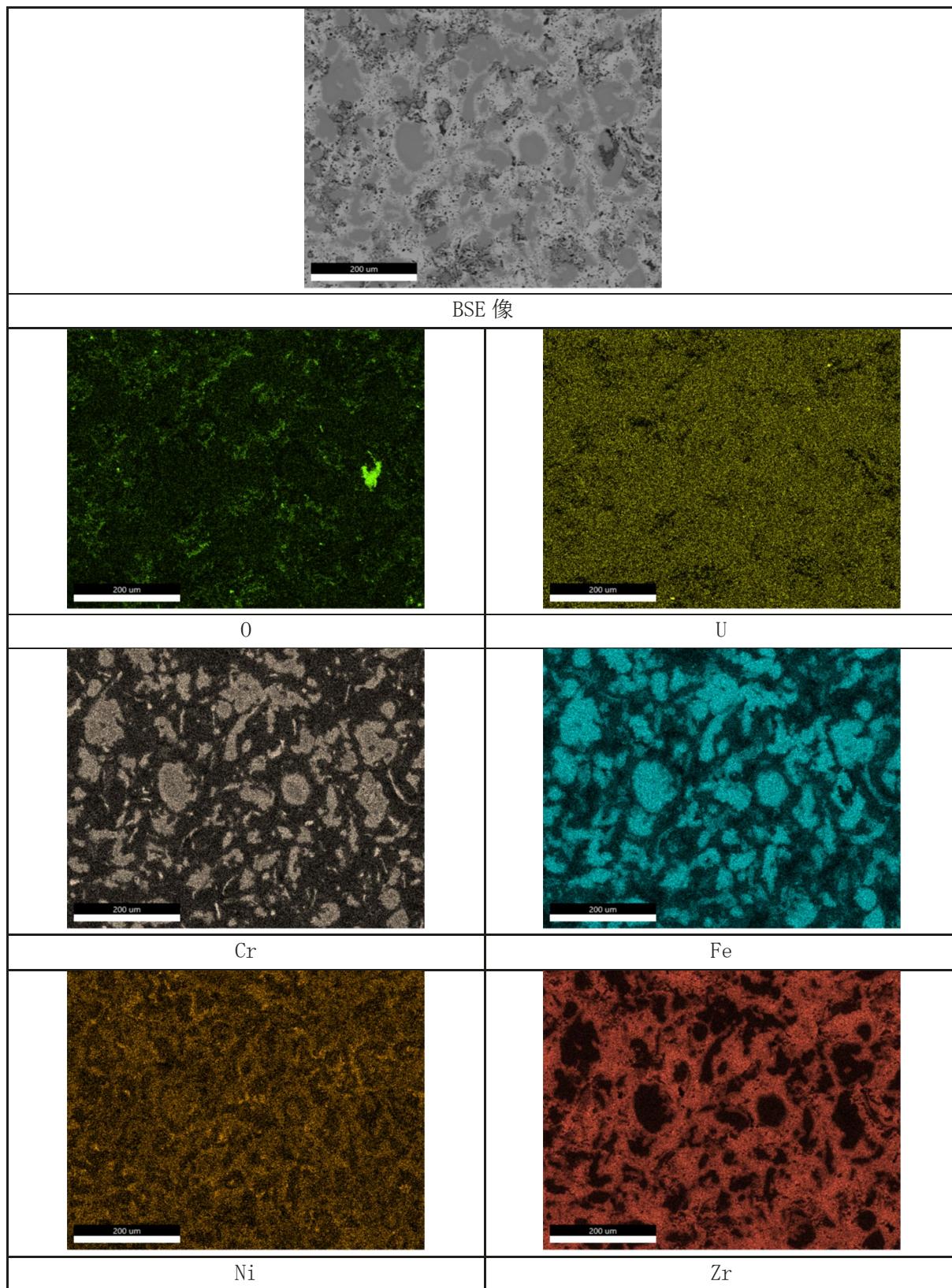


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(8) Z104F2SE01 (1%UO<sub>2</sub>-49.5%Zr-49.5%SUS316L) (倍率: 200 倍)

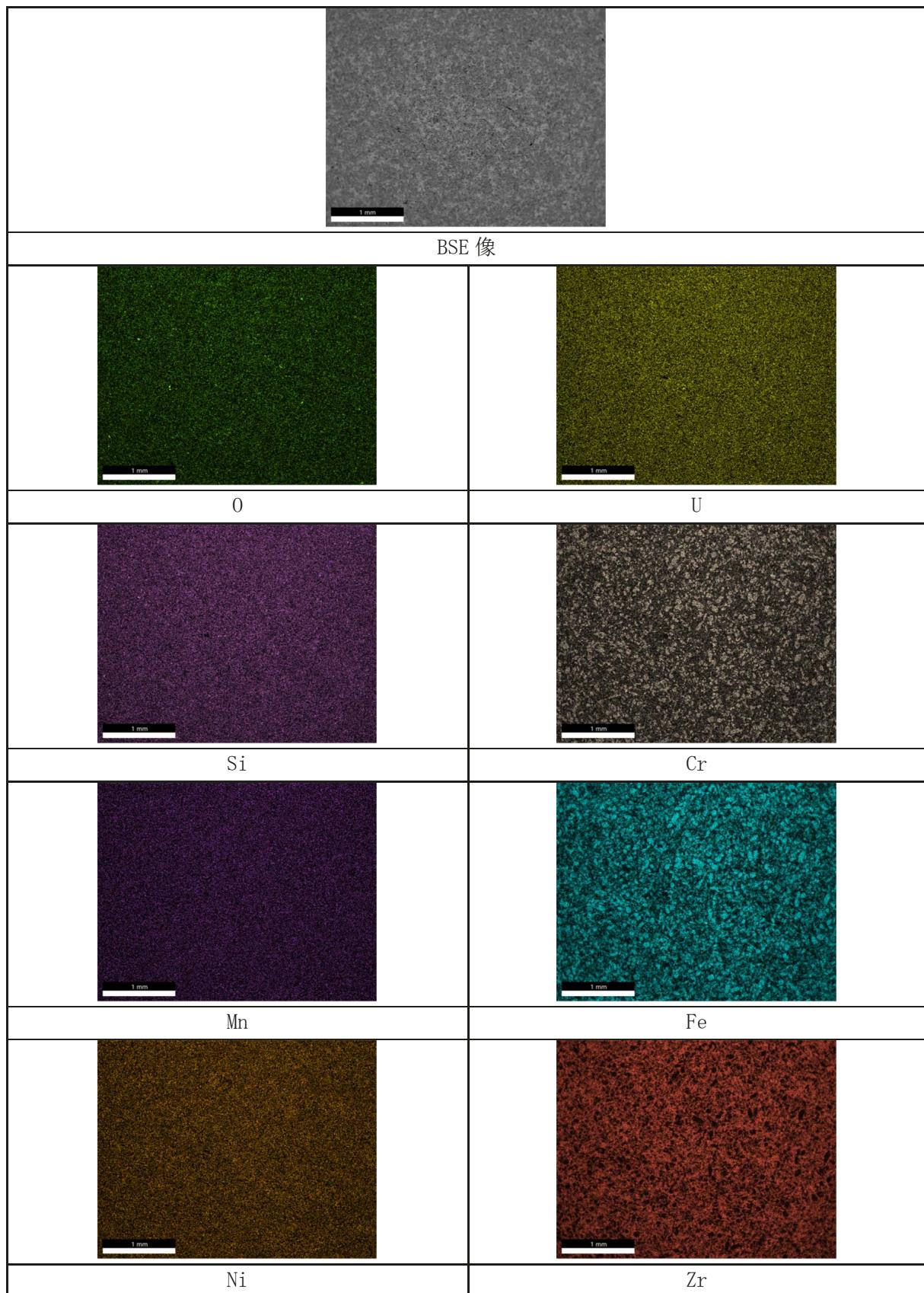


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(9) Z104F2SE02 (5%UO<sub>2</sub>-47.5%Zr-47.5%SUS316L) (倍率: 35 倍)

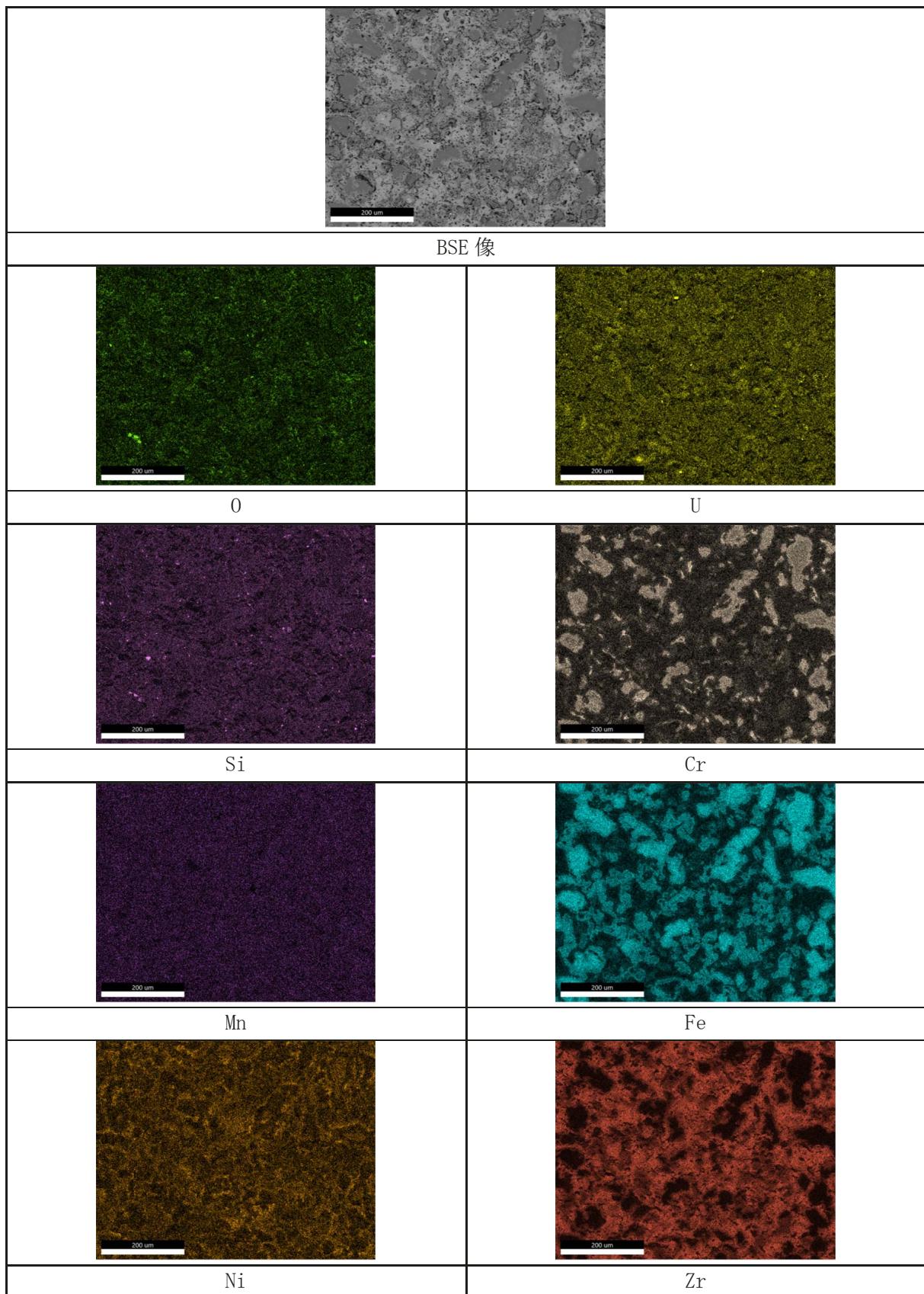


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(9) Z104F2SE02 (5%UO<sub>2</sub>-47.5%Zr-47.5%SUS316L) (倍率 : 200 倍)

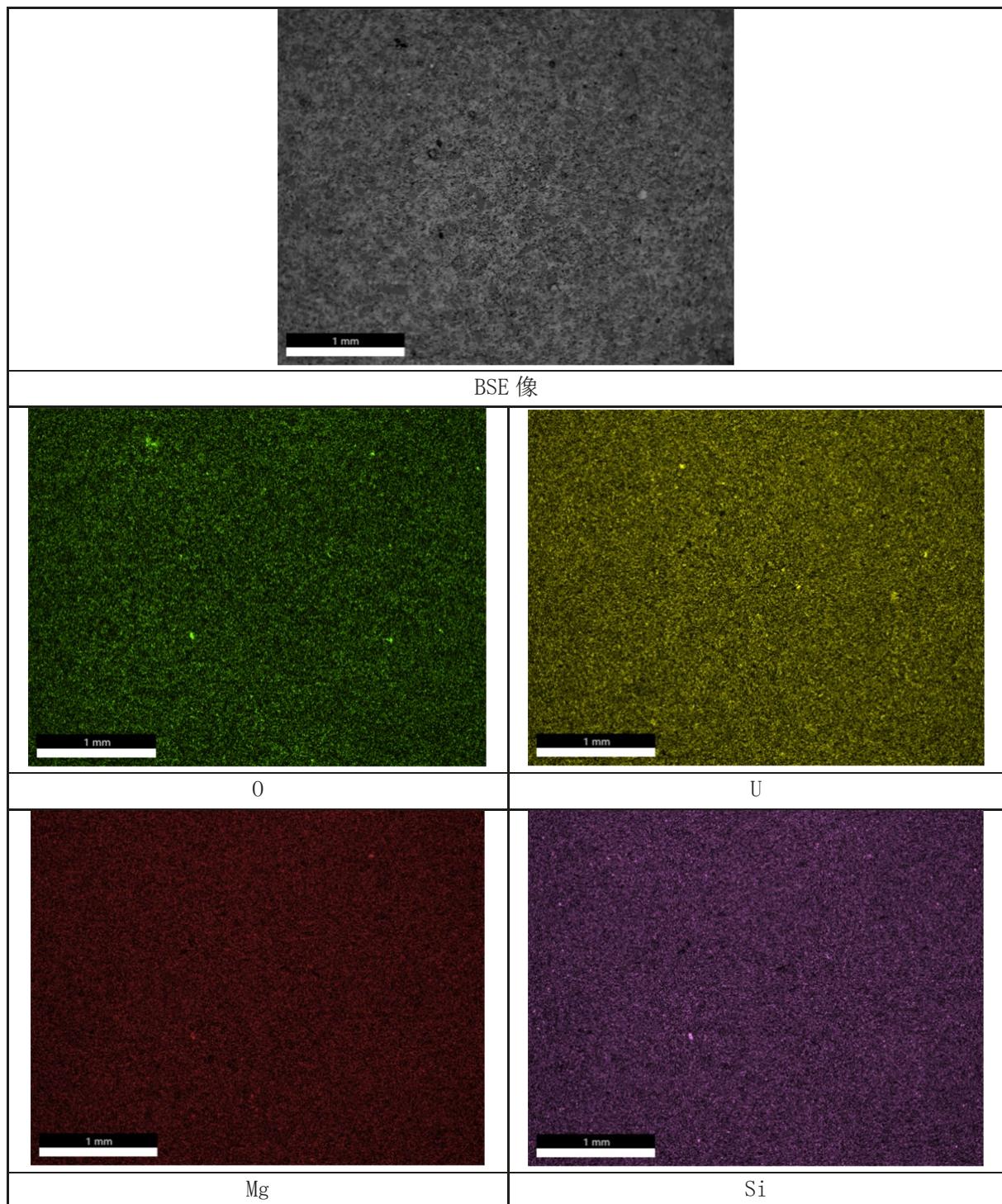


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(10) Z104F2SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%Zr-45%SUS316L) (倍率: 35 倍) (1/2)

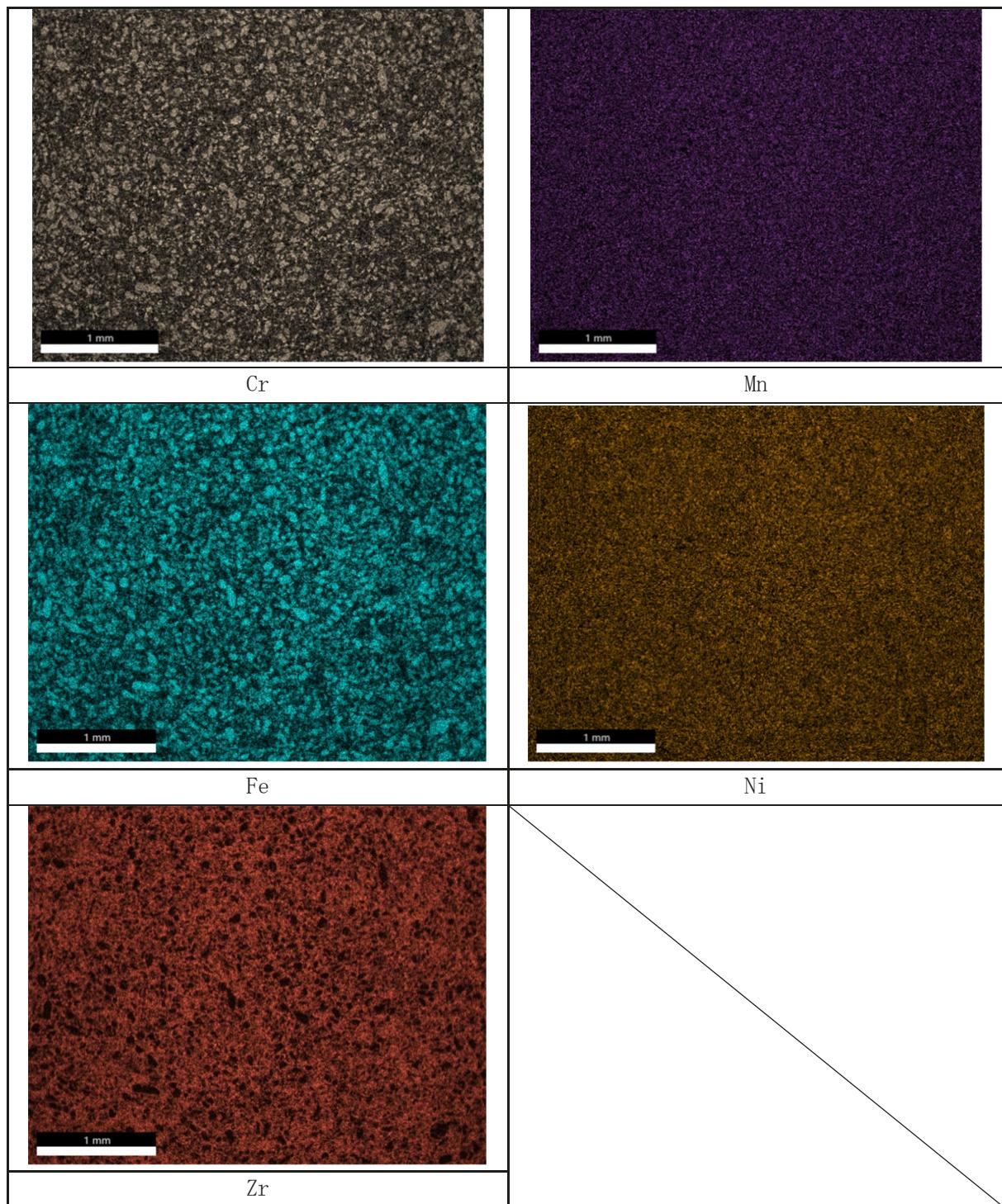


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(10) Z104F2SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%Zr-45%SUS316L) (倍率 : 35 倍) (2/2)

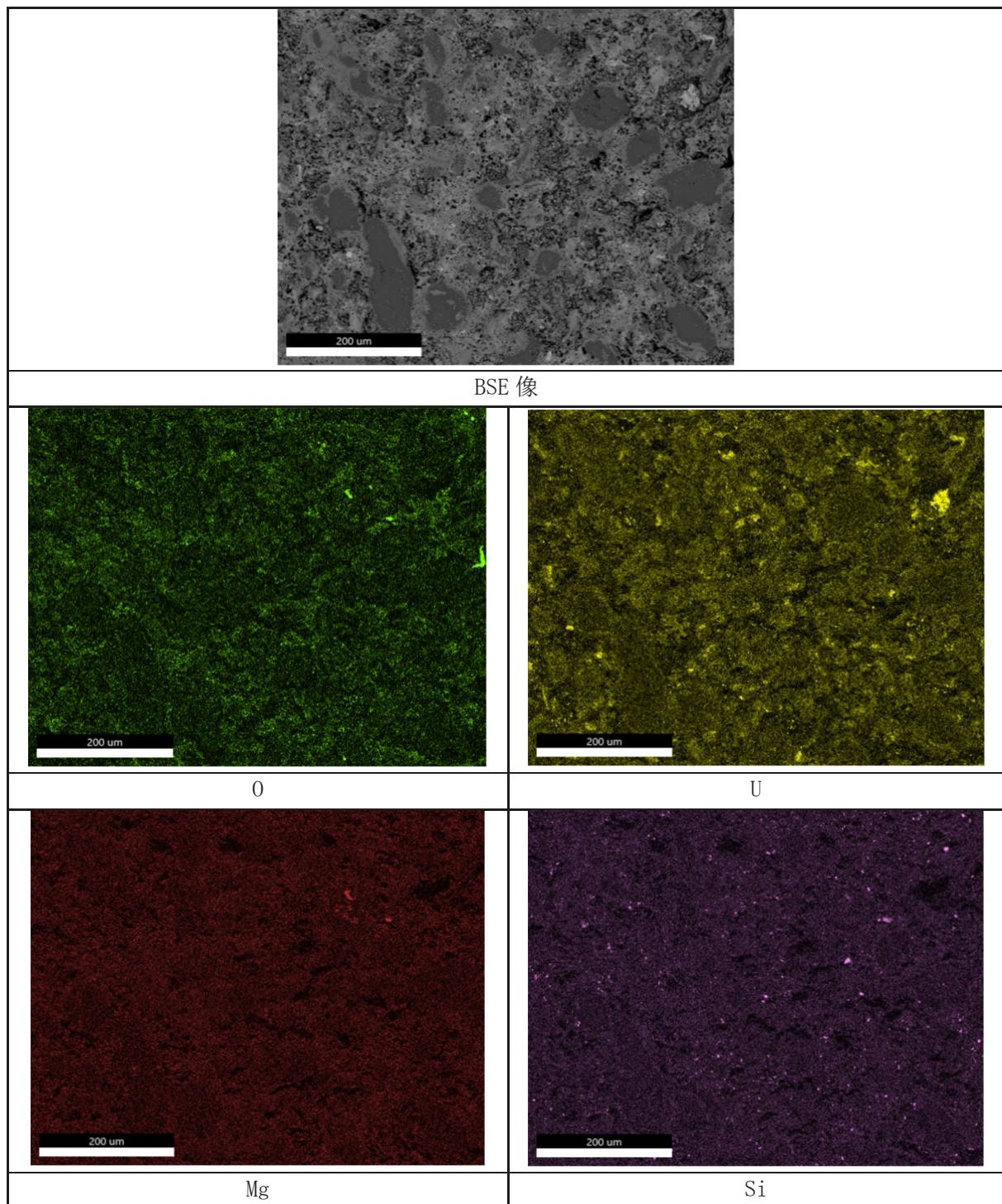


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像

(10) Z104F2SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%Zr-45%SUS316L) (倍率 : 200 倍) (1/2)

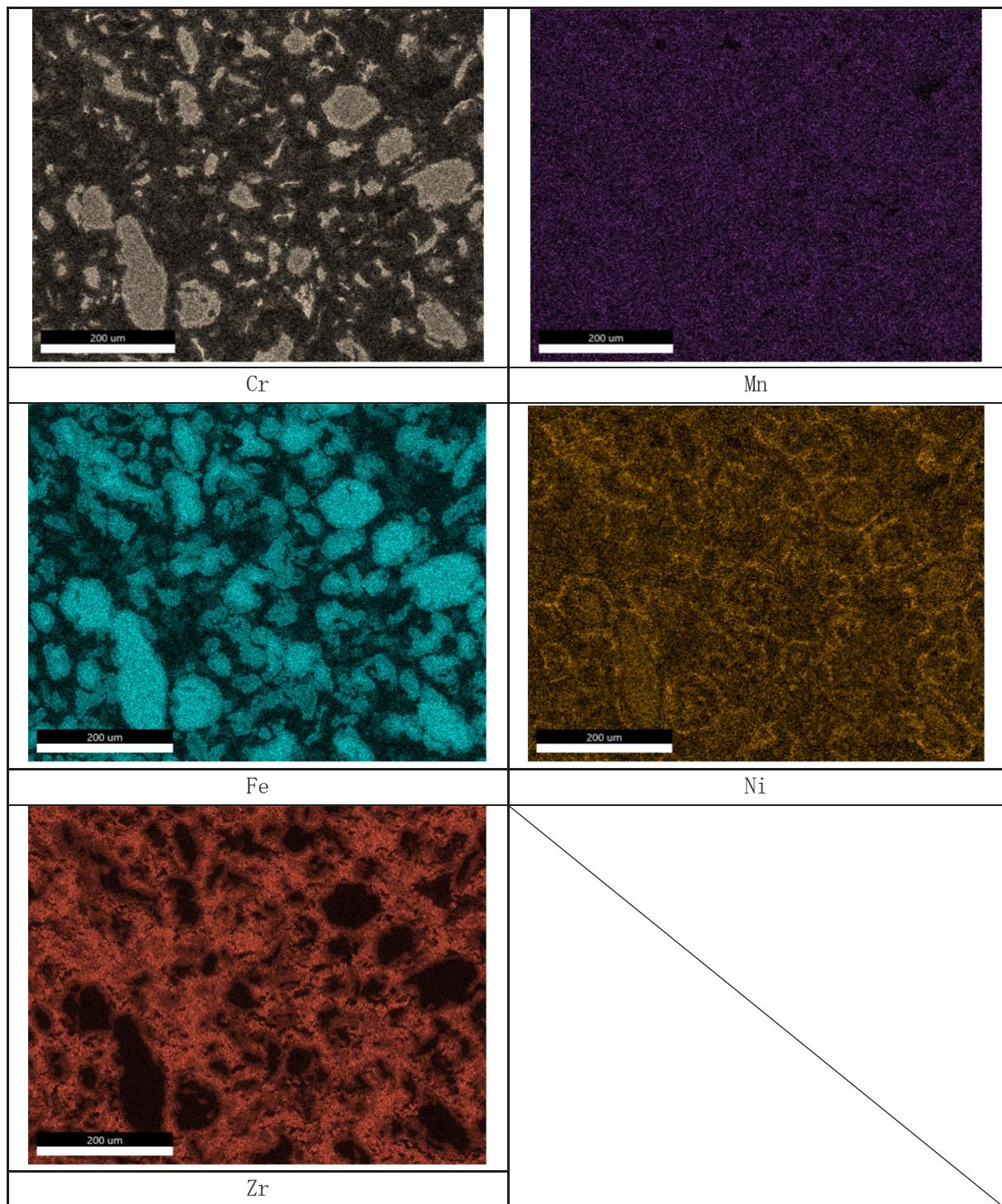


図 3.2-3 核燃料試料の EDS マッピング像  
(10) Z104F2SE03 (10%UO<sub>2</sub>-45%Zr-45%SUS316L) (倍率: 200 倍) (2/2)

表 3.2-6 核燃料試料の半定量元素分析結果<sup>\*1\*2</sup> (wt%)  
(1) 酸化物系核燃料試料

試料名	O	Al	Si	Ca	Fe	Zr	Gd	U
Z104F1SE01	28.4	—	—	—	38.2	32.7	—	0.7
Z104F1SE02	28.7	—	—	—	37.0	31.1	—	3.2
Z104F1SE03	28.4	—	—	—	35.3	29.8	—	6.6
Z104F1SE04	25.1	—	—	—	23.3	18.6	—	33.0
Z104F1SE05	17.9	—	—	—	—	—	4.8	77.3
Z104F1SE06	47.4	8.6	29.7	7.7	6.1	—	—	0.5
Z104F1SE07	46.7	8.3	28.9	7.7	5.9	—	—	2.6

(2) 金属系核燃料試料

試料名	O	Mg	Si	Cr	Mn	Fe	Ni	Zr	U
Z104F2SE01	4.8	—	—	9.8	—	36.2	6.9	41.6	0.7
Z104F2SE02	3.5	—	1.6	9.1	0.3	34.7	6.7	41.0	3.1
Z104F2SE03	4.7	0.7	1.7	8.7	0.3	32.4	6.2	39.6	5.8

\*1: 斜線は判定量分析対象元素でないこと意味し、横線は分析対象元素であったが未検出  
(検出下限値以下) であったことを意味する。

\*2: 金属系核燃料試料において Mg、Si、Mn に関しては、わずかにピークがみられたので、  
判定量分析の対象候補として加えた。

### 3.2.2 元素分布分析の助勢及び分析試料の評価【令和5年度】

本項目は次の方針で実施した。まず、予備試験では購入するハイパースペクトルカメラを用いて、前項で作製する7種類の酸化物系核燃料試料と3種類の金属系核燃料試料を用いるが、必要に応じて大阪大学が依頼する試料も含めるものとした。予備試験で取得した分光画像データを用いて予備的な分光画像解析を実施し、適用妥当性に資する分光画像データが取得できたことを確認した。取得した分光画像データは大阪大学に提出した。本格的な分光画像解析は大阪大学で実施するため、令和6年度以降に適用する撮影条件案を検討する際には、大阪大学の解析結果も考慮することとした。

ハイパースペクトルカメラの選定においては、英国側との整合性を考慮した。英国機関は幅広い波長に対応する複数のカメラを有しているが、いずれも試料あるいはカメラを定速で移動させるステージを必要とする。1F内にこの機構を持ち込むことは難しいと考えられ、また、今後の開発を考慮すると国内企業製であることが望ましい。以上から、移動ステージを要さない自己スキャニング機能をもち、国内企業であるエバ・ジャパン製のハイパースペクトルカメラ NH-5H-1.7を選定して購入した。作製した試料を同カメラにて撮影し、試料の分光画像データを取得した。なお、装置の仕様は表3.2-7に示すとおりである。機器の構成は図3.2-4に示すようであり、カメラスタンドの台座に試料を設置し、両側から照明拡散ボックスを通して2台のハロゲンライトを照射した状態で撮影を行った。

取得した分光画像データを付属ソフト「Hyperspectral Image Analyzer」で予備的に解析し、適用妥当性に資する分光画像データが取得できることを確認した。

次に、令和6年度以降に適用する撮影条件等の検討を行った。

全試料を白板の上に置き、ピントを合わせて同一視野に収めた分光画像データ（ハイパースペクトルデータ）を取得した。分光画像データ取得後、図3.2-5に示すように、R:700 nm、G:545 nm、B:480 nmの3波長を合成してRGB画像を作成し、極端なピントのズレや反射ムラ等がないことを確認した。撮影条件はスキャンレート:100 Line/s、ゲイン:50、露光時間:9.98 msとし、撮影時の周辺環境由来の光によるスペクトルを補正するために、黒レベル補正及び白板補正を行った。なお、黒レベル補正は暗時のノイズデータである黒レベルデータを読み込み、分光画像データからダークノイズを減算する補正方法であり、付属のレンズキャップをカメラレンズに被せた状態を暗時の基準として補正を実施した。

図3.2-6に分光画像データ及び解析領域を示す。各試料に加え、参照用にZrO<sub>2</sub>の焼結ペレット試料もあわせて撮影した。樹脂部分を除いて各試料部分のみを解析領域としたほか、部分白板補正のために、試料の下に敷いた白板の一部を解析領域12とした。その後、解析領域12の反射率データを使用して部分白板補正を行い、SAM解析を実施した。

図3.2-7に分光画像データの解析結果としてSAM解析画像と各試料（解析領域）のスペクトルグラフを示す。なお、スペクトルグラフに示した測定波長範囲はチャンネル数で表記しているが、1~442chはサンプリングピッチを1.7 nmとして350~1100 nmに対応している（波長350 nmを始点として1ch増加ごとに1.7 nmずつ波長が長くなる）。各試料のスペクトルは試料組成に応じて強度に違いがみられており、本手法によってある程度試料を分類することができた。しかしながら、中にはZ104F1SE01とZ104F1SE05のように組成が大きく異なる試料においても、ほとんど同じスペクトルが得られていたほか、参照試料として加えたZrO<sub>2</sub>白板と区別できおらず、分類が正確にできていない試料も存在した。これは、得られたスペクトルに試料固有の明瞭なピークや落ち込みが確認できなかったことが原因であると考えられる。今後、より精度よく試料を分類するためには、SAM解析におけるパラメータの調整やその他の解析手法により、スペクトルから試料組成に固有の特徴量を評価する必要がある。

表 3.2-7 エバ・ジャパン製ハイパースペクトルカメラの仕様

型式名	NH-5H-1.7
分光方式	透過型分散素子
撮影方式	内蔵分光ステージスキャン方式 (最大 442 ch 同時測定可能)
測定波長範囲	350～1100 nm
波長分解能	5 nm
サンプリングピッチ	1.7 nm
画像解像度	1024×768 ピクセル (78.6 万画素)
データビット数	10 bit
センサ	CMOS

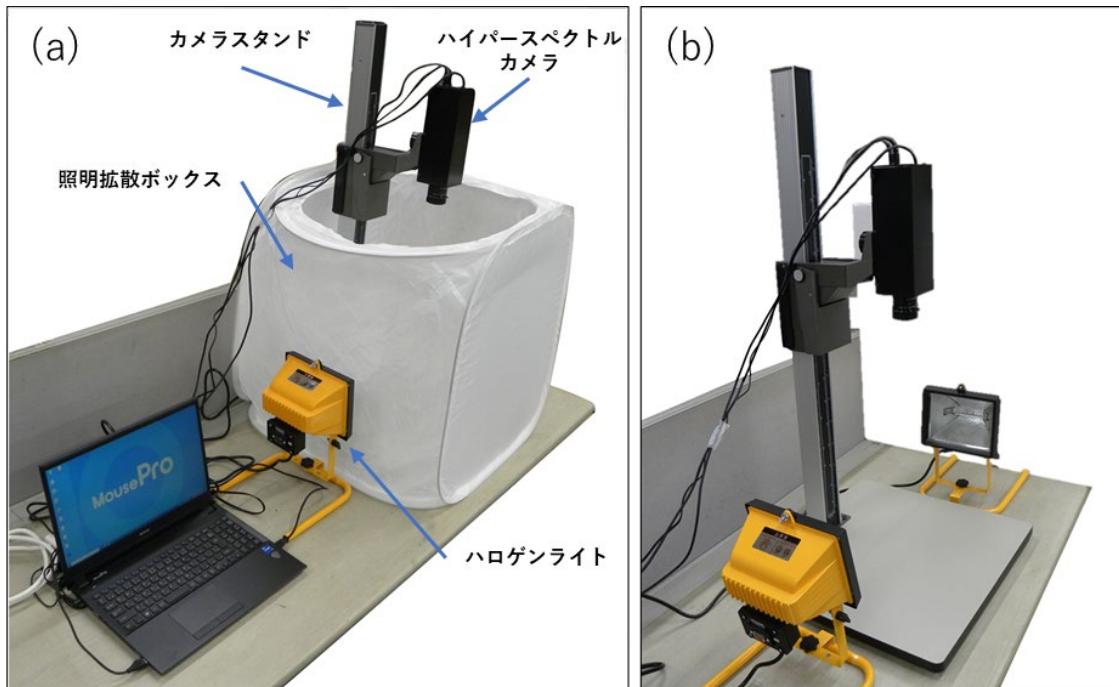


図 3.2-4 ハイパースペクトルカメラ装置構成

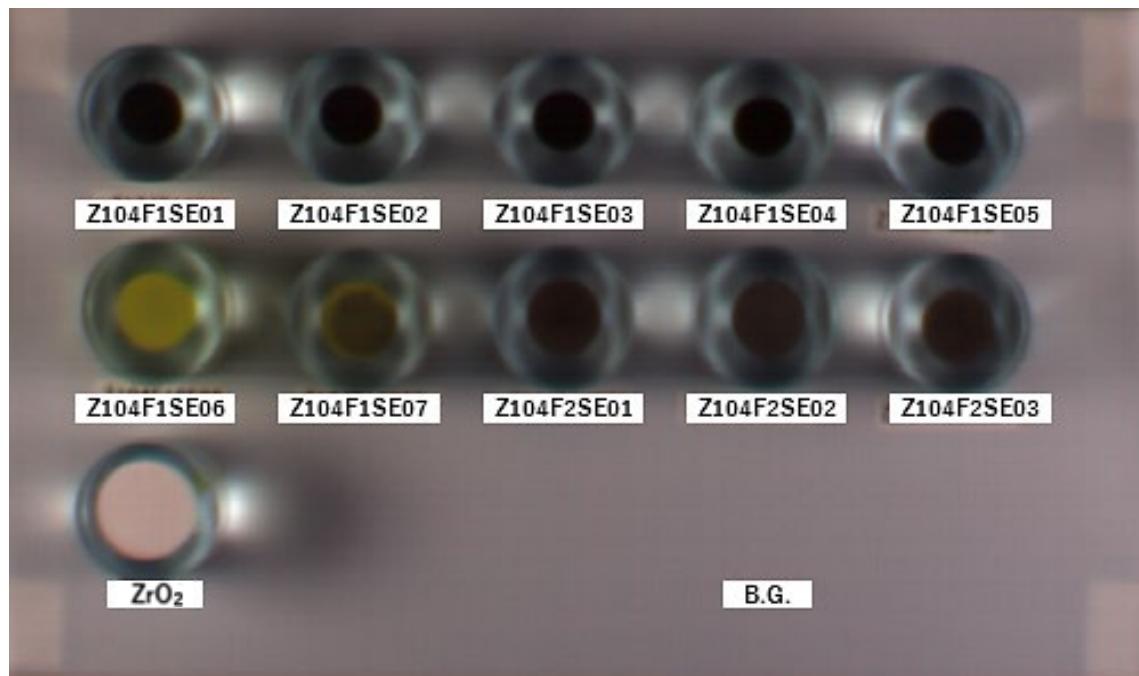


図 3.2-5 核燃料試料の RGB 画像

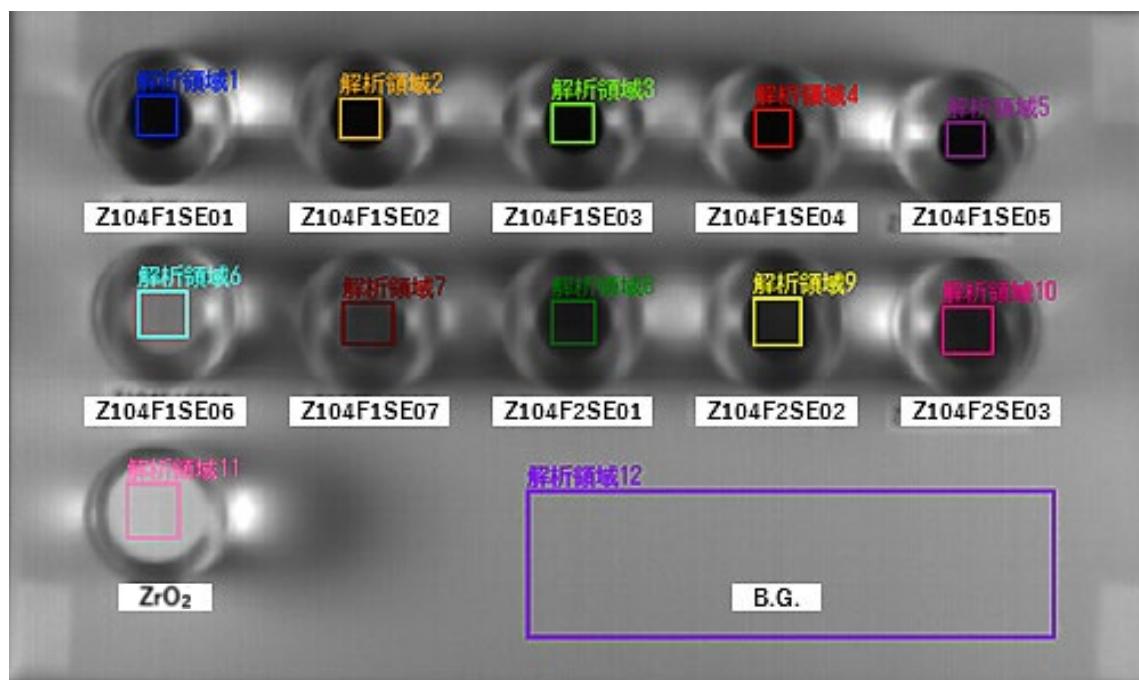


図 3.2-6 核燃料試料の分光画像データ及び解析領域

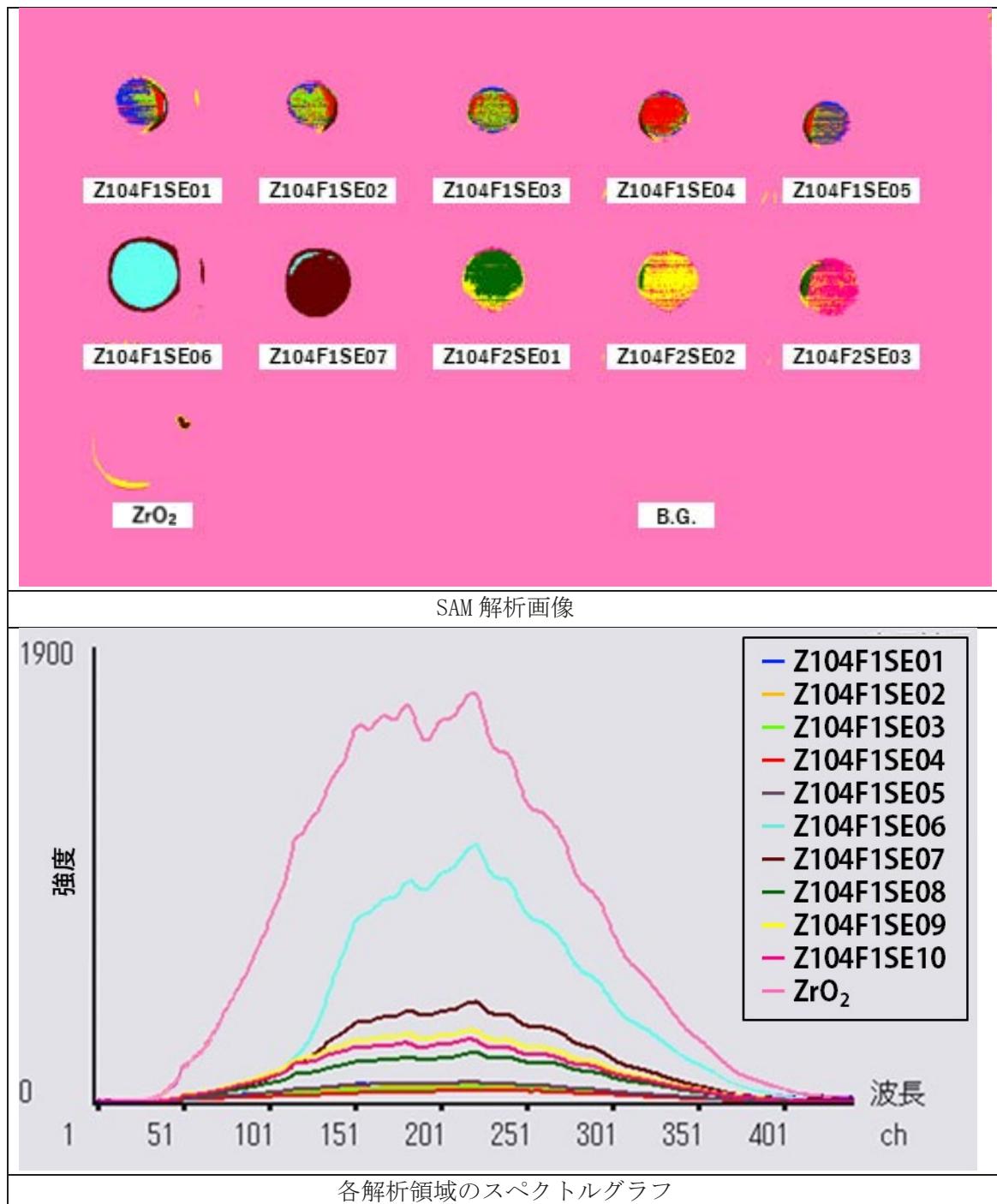


図 3.2-7 核燃料試料の分光画像データ解析結果  
(解析領域 12 の反射率データを使用して部分白板補正し、SAM 解析を実施)

### 3.2.3 まとめ

核燃料として UO<sub>2</sub> を含み、異なる組成を有する 10 種類の試料を作製した。作製した試料をハイパースペクトルカメラで撮影し、取得した分光画像データに対し SAM 解析を実施した。その結果、一部を除き組成に応じて強度の異なるスペクトルが得られた。しかしながら、いずれの試料においても、組成に固有の明確なピークや落ち込み等は確認できなかつたため、今後、より精度よく試料の分類するためには、SAM 解析におけるパラメータの調整やその他の解析手法により、スペクトルから試料組成に固有の特徴量を評価する必要がある。

### 3.3 遠隔操作による元素マッピングと核燃料物質による実証に関する研究(連携先:JAEA)【令和5年度】

#### 3.3.1 はじめに

本研究では、LIBS プローブによる焦点方向計測の最適条件を見出し、元素の面分布情報を取得可能とすることを目標とし、この結果からハイパースペクトルカメラによる評価結果を検証する。このため、新たにレーザー誘起音響波の計測による最適化法を導入し、音響波強度変化とスペクトル強度変化の相関からスペクトル計測の最適条件を見出す。さらに、試料もしくは LIBS プローブを XY スキャンすることで、2 次元元素分布測定を可能とする。本手法を不均一多元素混合複雑系試料に適用し、遠隔操作にて元素の分布を取得し、ハイパースペクトルカメラ画像による評価結果を検証する。

この実現のため「酸化物試料等を対象とした遠隔操作による元素分布分析試験」により、レーザー誘起音響波の計測によるレーザー光焦点位置の最適化を遠隔操作で行い、試料表面の 3 次元形状と元素分布の評価を可能とするとともに、この手法を「U 含有模擬デブリを対象とした実証試験」に適用して核燃料物質を含有する試料の評価を可能とする。

令和 5 年度は、このうち「酸化物試料等を対象とした遠隔操作による元素分布分析試験」を開始し、LIBS プローブの整備及びレーザー誘起音響波計測によるスペクトル計測の可能性を確認した。

#### 3.3.2 酸化物試料等を対象とした遠隔操作による元素分布分析試験【令和 5 年度】

- (1) XYZ 方向制御によるマイクロチップレーザーLIBS プローブを整備し、ステージを操作して 2 次元元素分布が取得できることを確認する。
- (2) 焦点方向の計測の最適条件をレーザー誘起超音波により評価し、音波計測によりスペクトル計測が可能であることを確認する。

##### ① マイクロチップレーザーLIBS プローブの整備

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

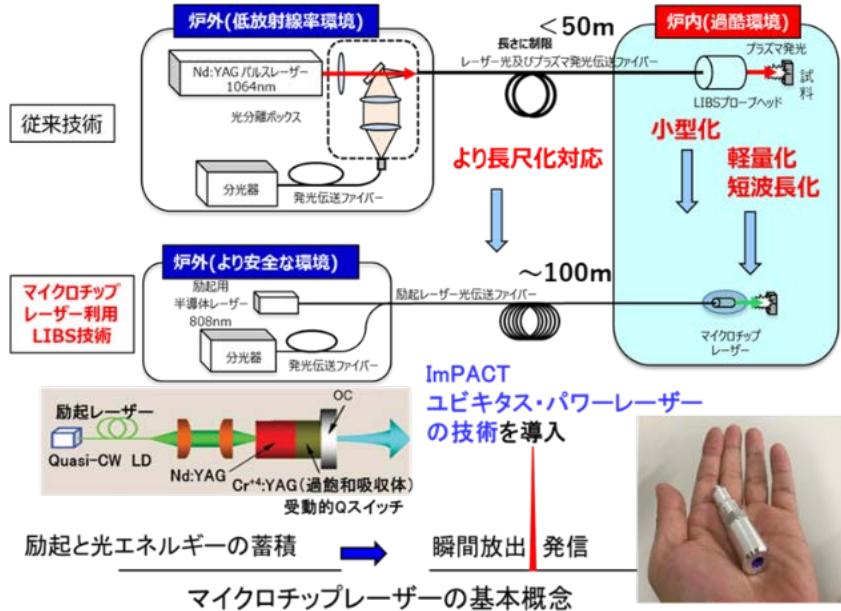


図 3.3-1 従来の光ファイバー-LIBS とマイクロチップレーザー-LIBS の概念 [3.3-1] (JAEA-Review 2021-027)

光を生成して集光照射することでプラズマ発光を得る。これら二つの手法の概念を図 3.3-1 に示す。

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

マイクロチップレーザーの概念は、図 3.3-1 に示すとおりであるが、従来のレーザー発振器との本質的な違いは、受動素子による Q スイッチ発振である。従来のレーザー発振器では、ポックセルスセルによる能動的 Q スイッチ発振で、外部からの電気信号で発振タイミングが決定される。これに対して、マイクロチップレーザーの Q スイッチ発振は、 $\text{Cr}^{+4}:\text{YAG}$  の可飽和吸収体による受動的 Q スイッチ動作による発振である。可飽和吸収体は、入射光量が一定量以下の場合は比較的高い吸収効果を維持し、この間、レーザー媒質である  $\text{Nd}^{+3}:\text{YAG}$  内に利得エネルギーが蓄積される。しかし、入射光量が一定量を超えると透明化し、レーザー媒質に蓄積されたエネルギーが短時間で放出されレーザー発振に至る。このタイミングは、励起エネルギーの蓄積時間に依存することから、一定範囲内に制御できるものの、そのタイミングを外部から制御することは困難である。LIBS では、レーザー照射直後の高温プラズマ生成からマイクロ秒遅延後の緩和過程における分光が求められる時間分解分光が必要となる。このため、レーザー発振タイミングを観測するため、発振したレーザー光の一部を光ファイバーで分光器まで伝送し、スペクトル観測に必要な同期信号を得ることとした。

一方、集光照射により生成されたプラズマ発光については、従来同様、集光系のレンズはレーザー光の集光系と共有するものの、レーザー媒質が障害となるため、可視・近赤外領域の波長帯域をダイクロイックミラーにより分岐し、別途専用の光ファイバーで分光器まで搬送することとした。この結果、マイクロチップレーザーLIBS プローブには、励起レーザー用光ファイバー、発振タイミング伝送用光ファイバー、分光信号伝送用光ファイバーの 3 本の光ファイバーを用いることとなる。時間分解分光に必要なタイミングは、マイクロチップレーザーの一部をモニタリングする光ファイバーからのレーザー光を、逆バイアスさせたピンフォトダイオードで検出し、これを基本トリガとして時刻を定め、遅延パルス発振器により分光器の検出器である IMCCD（増感型 CCD）カメラを駆動した。

本技術で新規に取り入れた、レーザー励起音響波を受信するための検出器には、小型マイクロフォンを筐体に取り付けている。試料ステージには、XYZ-3 軸の 5 極パルスモーター駆動のリニアステージを利用し、レーザー照射位置に対して 3 軸制御を可能とした。

マイクロチップレーザーLIBS プローブ部及び計測系の概要を図 3.3-2 に示す。

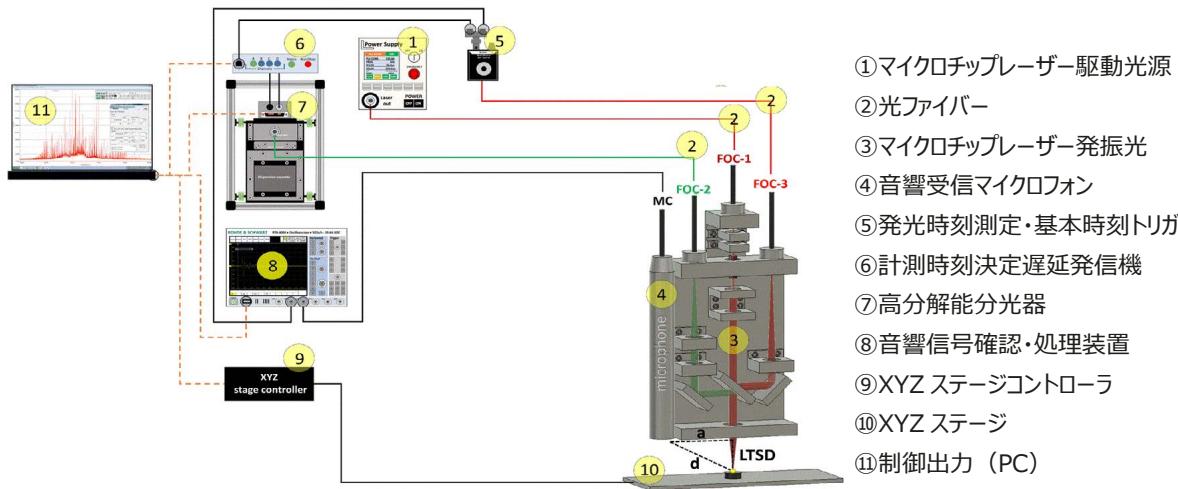


図 3.3-2 マイクロチップレーザーLIBS プローブ部及び計測系の概要

## ② 2 次元元素分布の測定

### 1. 分布計測用試料の作製

2 次元分布測定の実現性を評価するためには、元素組成に分布がある試料の作製が必要となる。複数種類の元素組成分布の計測の可能性について確認したいこと、これまで計測の実績がある元素で確認したいこと、そして燃料デブリ等での分析においても注目される元素であること等を考慮し、元素として被覆材の Zr、構造材の Fe、中性子毒として注目される Gd 及び U の代替え物質として Ce を選定した。原料粉末は、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CeO<sub>2</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZrO<sub>2</sub> の各酸化物粉末試料を用いた。混合試料の元素組成を表 3.3-1 に示す。

表 3.3-1 不均一混合試料の元素組成

元素	Gd [wt%]	Ce [wt%]	Fe [wt%]	Zr [wt%]
組成率	4.4	42.9	7.9	23

LIBS 試験に用いる試料は、粉末混合、錠剤成型、焼結（仮焼結）プロセスを経て作製した。

通常、混合試料については、ボールミルを用いて 1 週間程度混合し、均一試料とするが、本試験では、不均一性が必要であることから、あえて均一混合しないよう努めた。この不均一粉末を、10 kN で加圧成型し 1375 ℃で 5 時間、大気雰囲気で焼結した。試料の概要を図 3.3-3 に示す。



図 3.3-3 作製した不均一酸化物試料の概要

## 2. 2次元元素分布測定の可能性評価

作製した不均一試料（図 3.3-3）を、図 3.3-2 に示すマイクロチップレーザーLIBS プローブ部の XYZ テーブルに装荷した。まず、Z 軸を調整して焦点距離を最適化し LIBS スペクトルを取得した。集光スポット径は約 30  $\mu\text{m}$  である。次に、XY ステージを動作させ、X 方向 10 mm、Y 方向 10 mm を 0.5 mm 間隔で、1 点あたりレーザー 100 ショットを積算平均化した LIBS スペクトルを取得した。全波長領域でのスペクトル取得例を図 3.3-4 に示す。

このうち、これまでの経験から、各元素に特長的で発光強度が高く、他の元素とのスペクトル混合がほぼみられない発光線を表 3.3-2 上段に示すように選定し、各元素の発光線強度（ピーク値の相対値）の XY マッピングにより、どのような元素がどこにどの程度存在するかを表現した。結果を図 3.3-5(a) に示す。

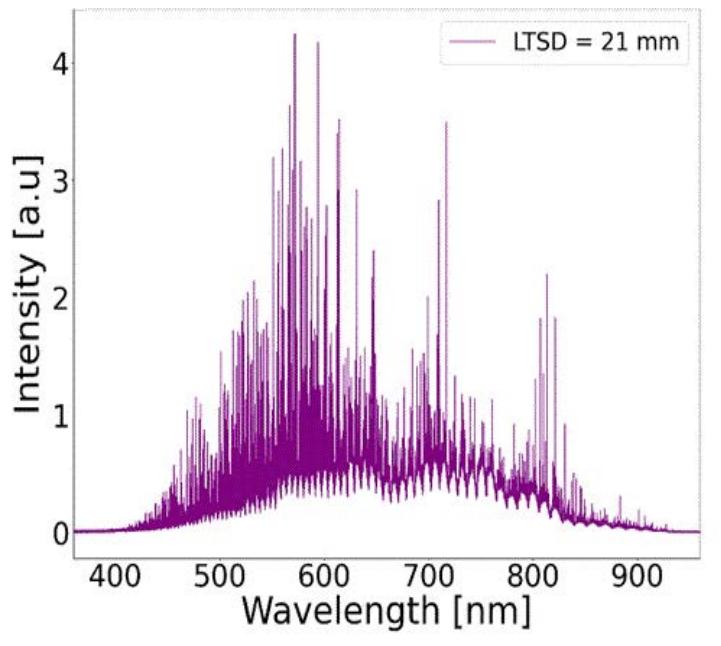


図 3.3-4 不均一混合試料の全波長領域でのスペクトル取得例

表 3.3-2 各元素を特長付ける発光波長・X 線の例

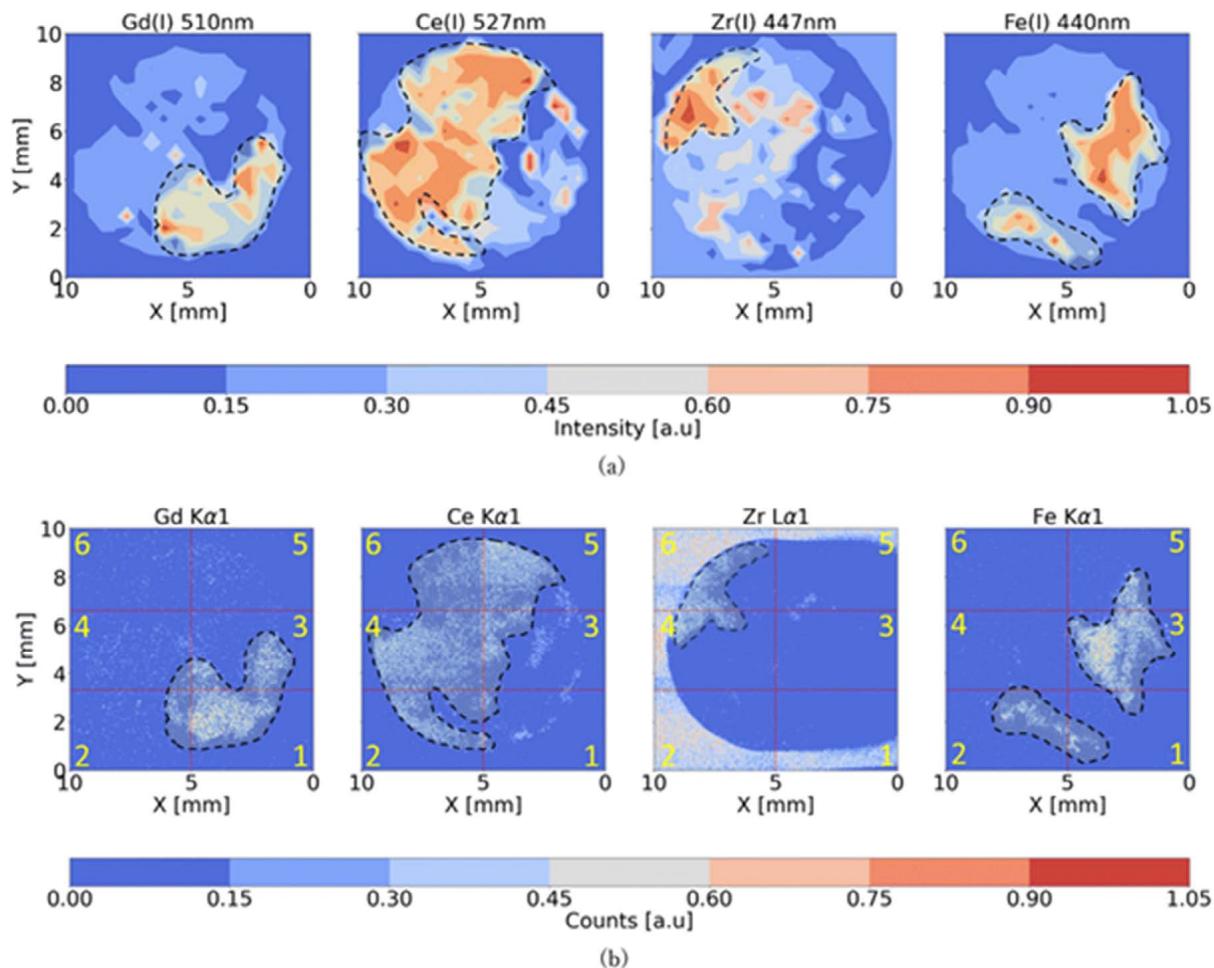
元素	Gd	Ce	Fe	Zr
波長	510 nm	527 nm	440 nm	447 nm
X 線	$\text{K}_\alpha$ 6.06 keV	$\text{K}_\alpha$ 4.84 keV	$\text{K}_\alpha$ 6.40 keV	$\text{L}_\alpha$ 2.04 keV

発光線強度は元素の存在率とほぼ比例関係にあることから、各元素の発光線強度分布は、相対的にその元素の存在分布とみなすことができる。図から各元素が局在して存在することは明らかとなった。

一方、この不均一混合試料は均一な標準酸化物試料とは異なり、どこにどの程度何が局在しているかについては回答がない。そこで、元素分布を定性的に取得できる一般的な手法として、15 keV の電子線エネルギーによる SEM-EDS 測定により、元素の相対的分布を計測した。各元素の着目した X 線を表 3.3-2 下段に示す。これら各元素の X 線エネルギーのスペクトル強度分布を取得した結果を図 3.3-5(b) に示す。この結果は、一般的には一定の信頼性のある元素マップを示していると考えられる。

図 3.3-5 で示すとおり、LIBS による元素組成分布測定結果と SEM-EDS による測定結果とはよく一致することがわかる。この結果から LIBS は元素分布計測についても一定の適合性があるものと判断される。

なお、LIBS における発光線強度は直ちに定量的な存在量を示すものではない。標準試料を用いた検量線を取得し、発光強度の定量性に変換し、元素組成比として評価する必要があることに留意が必要である。今後、検量線を取得し、元素組成比に変換することで定性的な表示から、ある程度定量的な 2 次元マッピングができるよう開発を進める予定である。



上段(a) LIBS によるマッピング

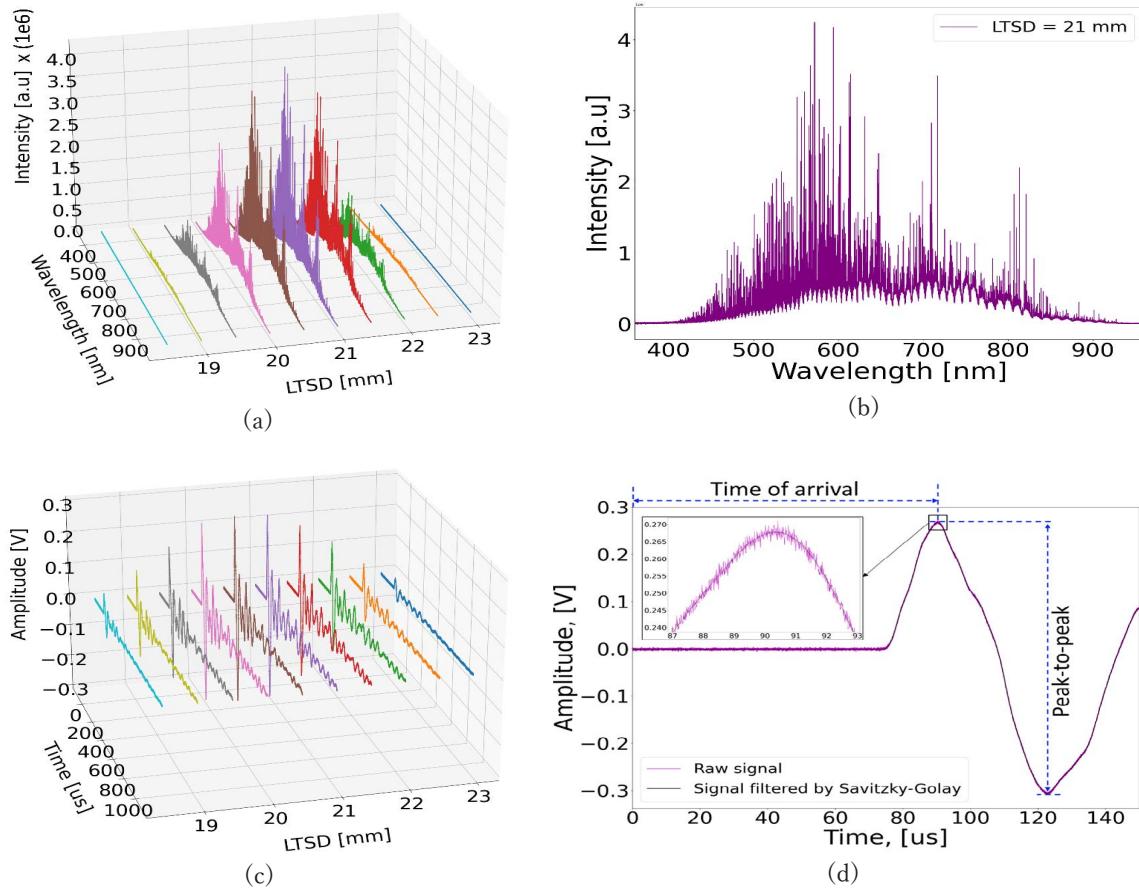
下段(b) SEM-EDS によるマッピング

図 3.3-5 LIBS、SEM-EDS による多元素不均一試料の相対元素マッピングの結果

### ③ レーザー誘起光音響波による LIBS 信号最適化

本手法では、図 3.3-2 に示すように、新たにレーザー誘起音響波を計測するシステムを導入している。これにより、レーザー照射による音響波の強度と発光スペクトル強度の焦点距離依存性を取得し、音響波測定によるスペクトル取得条件の最適化が図れる可能性について調べた。

図 3.3-6 に音響波強度、スペクトル強度の Z 軸位置依存性計測の全体像を示す。図中 LTSD は Z 軸位置を表したものである。(a) は取得されるスペクトルの Z 軸位置依存性で、(b) はそのとき取得される代表的スペクトルである。(d) では、レーザー誘起音響波の代表的波形を示しており、時間的に最初に出現する波形の最大と最小の振幅を音響波強度と定義した。(c) では、(d) で定義した音響波強度の Z 軸依存性を示している。



- (a) スペクトルの Z 軸位置依存性
- (b) 代表的スペクトル全体
- (c) (d) で定義した音響波強度の Z 軸依存性
- (d) レーザー誘起音響波の代表的波形と音響波強度の定義

図 3.3-6 音響波強度、スペクトル強度の Z 軸位置依存性計測の全体像  
(LTSD : Z 軸位置)

レーザー光の焦点位置を定義するため、レーザー照射により試料表面に生成された照射痕の直径を計測し、これが最も小さくなる Z 軸位置を焦点位置と定義した。図 3.3-7 に、レーザー照射痕直径とスペクトル強度との依存性を示す。この特性からスペクトル強度の最大値は、レーザー照射痕直径が最小となる位置（レーザー焦点位置）にほぼ一致することがわかる。

一方、同様の計測をレーザー誘起音響波強度に対して取得した結果を図 3.3-8 に示す。この結果から音響波強度が最大となる位置は、照射痕直径が最小となる位置とわずかに異なる位置となっている。レーザー照射痕直径の位置は、レーザー照射系で決定づけられた不変量であることから、この径で試験する場合は、レーザー誘起音響波の最大値が得られる位置よりも 0.5 mm 程度試料から離れた位置での測定が最大のスペクトル取得位置となることを間接的に示したことになる。

以上から、音響波を測定することで、焦点位置を最適化できる可能性が高いことがわかった。なお、本手法は、高度な検出器を使用することがなく、マイクロフォンについては、電子回路を全く使用しない光ファイバー音響波検出器等もあり、放射線の高い環境においても影響のないレーザー焦点位置検出方法としても有望である。

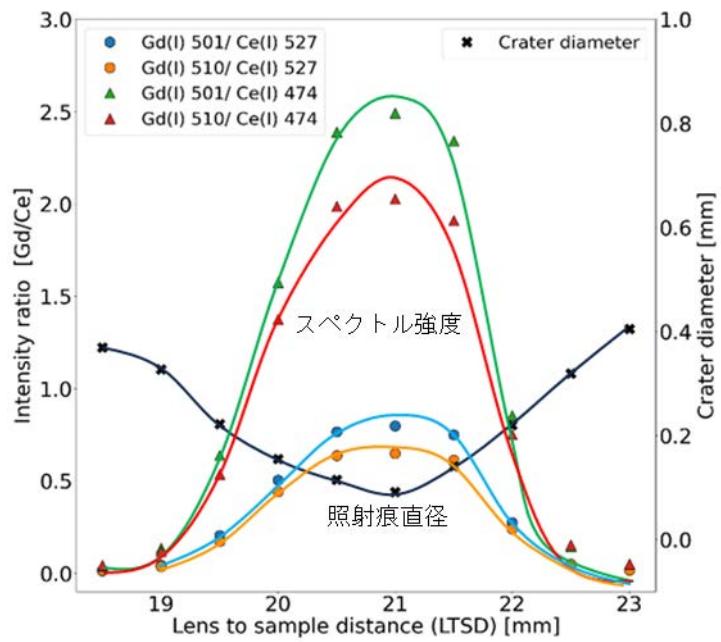


図 3.3.7 レーザー照射痕直径とスペクトル強度の Z 軸依存性  
(LTSD : Z 軸位置)

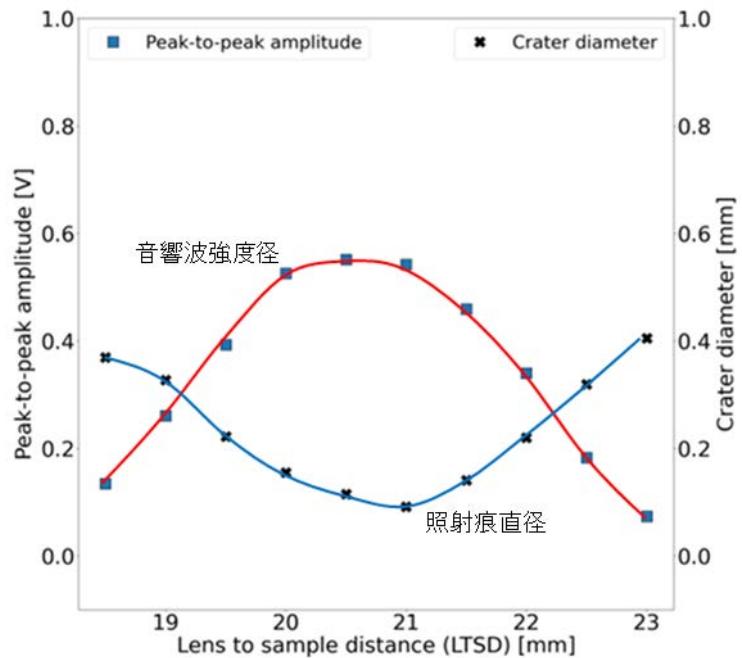


図 3.3.8 レーザー照射痕直径とレーザー誘起音響波強度の Z 軸依存性  
(LTSD : Z 軸位置)

### 3.3.3 まとめ

XYZ 方向制御によるマイクロチップレーザーLIBS プローブを整備し、ステージを操作して 2 次元元素分布が取得できることを確認した。また、焦点方向の計測の最適条件をレーザー誘起超音波により評価し、音波計測によりスペクトル計測が可能であることを確認した。

既存のマイクロチップレーザーLIBS プローブヘッドに光ファイバーと XYZ 電動ステージ及び音響波検知用マイクロフォンを組み合わせ、遠隔操作が可能な LIBS プローブを整備した。XY ステージの操作と LIBS スペクトル強度比から、元素分布の相対値が得られることを確認した。

レーザー誘起音響波強度の焦点距離依存性から、LIBS スペクトル取得の最適条件が評価できることを見出し、音響波計測によりスペクトル計測が可能であることを確認した。

### 3.4 研究推進【令和 5 年度】

各研究項目間ならびに英国機関、CLADS との連携のため下記の打合せを実施し、また、ワークショッピングに参加した。

- ・国内打合せ（令和 5 年 11 月 21 日、大阪大学）
- ・福島英知事業ワークショッピング参加（令和 5 年 12 月 5 日、福島）
- ・英国との Web ミーティング（令和 6 年 1 月 11 日、オンライン）
- ・国内打合せ（令和 6 年 3 月 8 日、NFD）

また、以下の研究会及び学会にて進捗状況を報告した。

- ・低温工学・超電導学会第 4 回材料研究会（令和 6 年 3 月 16 日、福島）  
発表演題：燃料デブリを可視化する 一英知事業 大阪大学-英国共同研究の取り組みー
- ・令和 6 年日本原子力学会春の年会（令和 6 年 3 月 27 日、大阪）  
発表演題：革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証

#### 4. 結言

本事業は、HSI と LIBS を組み合わせた炉内可視化技術の実現性を検証することを目的としている。検証のためには HSI と LIBS それぞれで以下の研究開発を行い、その統合が必要と考えられる。なお、HSI の遠隔操作技術開発、耐放射線装置開発は事業対象外である。

##### HSI

- ・教師データの取得・蓄積
- ・測定・解析技術の確立
- ・核燃料物質を含む模擬物質での実証
- ・遠隔操作技術の確立
- ・耐放射線装置の開発

##### LIBS

- ・遠隔操作技術の確立
- ・核燃料物質を含む模擬物質での実証

HSI に関して令和 5 年度は、教師データ対象とすべき炉内物質の検討のため文献調査を行い、ウラン含有試料を含む作製対象物質を決定した。また、対象物質のうち鉄酸化物、コンクリート、ウラン含有試料の一部を作製した。また、測定・解析技術の確立に向けてハイパースペクトルカメラを導入し、予備解析を実施した。精度よく物質を分類するための実験条件、解析方法の構築には多くの検討が必要であり、これが大きな課題である。

LIBS に関して令和 5 年度は、遠隔操作のための基盤技術として、Z 軸の自動調整及び XY 面マッピング手法の開発を進めた。

英国側では、ストラスクリード大学、NNL、ランカスター大学間で打合せを複数回実施し、連携の進め方及び標準試料の組成等について検討した。この結果に基づき、NNL において非核燃試料の試作を行った。

以上、3 カ年計画の 1 年目である令和 5 年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

## 参考文献

- [1-1] 東京電力ホールディングス, 廃炉プロジェクト, <https://www.tepco.co.jp/decommission/> (参照: 2024年4月17日).
- [1-2] Manolakis, D. et al., Detection algorithms for hyperspectral imaging applications, IEEE Signal Processing Magazine, Vol. 19, 2002, pp. 29-43. DOI:10.1109/79.974724
- [1-3] 日本原子力研究開発機構, 令和3年度開始「廃炉・汚染水対策事業」に関する補助事業 (第二次公募、燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発 (燃料デブリの分析精度の向上、熱挙動の推定及び簡易分析のための技術開発)) の成果の概要, [https://dccc-program.jp/wp-content/uploads/20231117\\_JAEA.pdf](https://dccc-program.jp/wp-content/uploads/20231117_JAEA.pdf) (参照: 2024年3月31日).
- [1-4] Zabalza, J., Murray, P. et al., Hyperspectral Imaging Based Corrosion Detection in Nuclear Packages, IEEE Sensors Journal, Vol. 23, 2023, pp. 25607-25617. DOI:10.1109/JSEN.2023.3312938
- [3. 1-1] Brissonneau, L. et al., Material characterization of the VULCANO corium concrete interaction test with concrete representative of Fukushima Daiichi Nuclear Plants, J. Nucl. Mater., Vol. 528, 2020, 151860. DOI:10.1016/j.jnucmat.2019.151860
- [3. 1-2] Kitagaki, T. et al., Thermodynamic evaluation of the solidification phase of molten core-concrete under estimated Fukushima Daiichi nuclear power plant accident conditions, J. Nucl. Mater., Vol. 486, 2017, pp. 206-215. DOI:10.1016/j.jnucmat.2017.01.032
- [3. 1-3] Takano, M. et al., Characterization of solidified melt among materials of UO<sub>2</sub> fuel and B<sub>4</sub>C control blade, J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 51, 2014, pp. 859-875. DOI:10.1080/00223131.2014.912567
- [3. 1-4] 国際廃炉研究開発機構, 廃炉・汚染水対策事業費補助金に係る補助事業 (燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発) 2022年度最終報告, 2023年6月, <https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2023/06/2022001seijyouhaaku202306F.pdf> (参照: 2024年3月31日).
- [3. 1-5] 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・事故調査に係る連絡・調整会議第10回会合資料, 2022年12月8日, <https://www.nra.go.jp/data/000413057.pdf> (参照: 2024年3月31日).
- [3. 3-1] 廃炉環境国際共同研究センター, アイラボ, マイクロ波重畠 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦(委託研究)ー令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー, JAEA-Review 2021-027, 2021, 62p.

This is a blank page.



