

平成 30 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業  
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

先進的光計測技術を駆使した  
炉内デブリ組成遠隔その場分析法の高度化研究

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 27-30 年度「先進的光計測技術を駆使した炉内デブリ組成遠隔その場分析法の高度化研究」の成果を取りまとめたものです。

本報告書における研究機関等の組織名称の表記について

本事業の参加機関について、本報告書では以下の略称を用いることとする。

- |                            |            |
|----------------------------|------------|
| 1) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構     | : 原子力機構    |
| 2) 国立大学法人京都大学              | : 京都大学     |
| 3) イマジニアリング株式会社            | : イマジニアリング |
| 4) 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構    | : 量研機構     |
| 5) 大学共同研究法人自然科学研究機構分子科学研究所 | : 自然科学研究機構 |

## 目次

概略	概-1
I はじめに	
1. 研究開発の必要性及び研究開発目標	1-1
2. 革新性、独創性、新規性	1-2
3. 研究効果、発展性（発展性、廃炉への貢献、波及効果、実用化に至る課題）	1-5
II 業務計画	
1. 全体計画	
1.1 その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）	2-1
1.2 マイクロ波による原子発光増倍特性（イマジニアリング）	2-1
1.3 ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（京都大学）	2-2
1.4 マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究（量研機構）	2.2
1.5 LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（自然科学研究機構）	2-2
1.6 研究開発の推進とまとめ（原子力機構）	2-3
2. 各年度計画（成果の目標及び業務の実施方法）	2-5
III 業務の実施内容及び成果	
1. その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）	3.1-1
1.1 目的・概要	3.1-1
1.2 平成27年から平成29年度の成果	3.1-1
1.2.1 ロングパルスレーザーによる発光特性	3.1-1
1.2.2 光ファイバーの耐放射線性	3.1-4
1.2.3 スペクトル解析手法の検討	3.1-5
1.2.4 マイクロ波重畳LIBS法	3.1-6

1.2.5	利用するレーザーの特徴と廃炉現場への適用性	3.1-7
1.3	平成 30 年度の成果	3.1-9
1.3.1	耐放射線性光ファイバーの透過特性	3.1-9
1.3.2	遠隔その場元素分析技術へのマイクロチップレーザーLIBS 適用可能性評価	3.1-19
2.	マイクロ波による原子発光増倍特性（再委託先：イマジニアリング）	3.2-1
2.1	目的・概要	3.2-1
2.2	平成 27 年から 29 年度の成果	3.2-1
3.	ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（再委託先：京都大学）	3.3-1
3.1	目的・概要	3.3-1
3.2	平成 27 年から 29 年度の成果	3.3-1
4.	マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究（再委託先：量研機構）	3.4-1
4.1	目的・概要	3.4-1
4.2	平成 28、29 年度の成果	3.4-1
4.3	平成 30 年度の成果	3.4-3
4.3.1	高線量放射線環境下におけるレーザー結晶の評価	3.4-3
4.3.2	マイクロチップレーザーLIBS 装置性能の総合的評価	3.4-27
5.	LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究 （再委託先：自然科学研究機構）	3.5-1
5.1	目的概要	3.5-1
5.2	平成 28、29 年度の成果	3.5-1
5.3	平成 30 年度の成果	3.5-3
5.3.1	非線形光学結晶へのガンマ線照射影響調査	3.5-3
5.3.2	レーザー媒質へのガンマ線照射影響調査	3.5-4
5.3.3	ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：基本波	3.5-5
5.3.4	ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：第二高調波	3.5-6
5.3.5	LIBS プロブの試作と評価	3.5-9
5.3.6	まとめ	3.5-11
6.	研究推進	3.6-1
IV 研究開発のまとめ		
1.	その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）	4.1
2.	マイクロ波による原子発光増倍特性（イマジニアリング）	4-3



3. ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（京都大学）	4-4
4. マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究（量研機構）	4-4
5. LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（自然科学研究機構）	4-5
6. 研究推進	4-6
7. 今後の展望、見通し	4-7

## 表一覧

表 II-1	事業全体計画	2-4
表 II-2	平成 30 年度の事業実施計画	2-9
表 1.3.1-1	光ファイバーアセンブル品仕様	3.1-9
表 1.3.2-1	模擬デブリ中の各元素の重量濃度	3.1-19
表 1.3.2-2	Ce と Gd の波長データ	3.1-23
表 4.3.1-1	放射線照射環境下のレーザー発振特性	3.4-14
表 4.3.1-2	発振特性シミュレーションのパラメーターと数値	3.4-15
表 4.3.1-3	MCL コンポーネンツに対する放射線の影響	3.4-25
表 4.3.2-1	814nm 近傍での信号強度比の比較	3.4-29
表 5.3-1	LIBS プローブの緒言	3.5-11

## 図一覧

図 1.3.1-1	分光透過特性の測定系(リファレンス測定)	3.1-10
図 1.3.1-2	分光透過特性測定系写真(リファレンス測定)	3.1-10
図 1.3.1-3	分光透過特性測定系	3.1-10
図 1.3.1-4	分光透過特性測定写真	3.1-11
図 1.3.1-5	ガンマ線照射後の伝送特性(P1/P0)【紫外～可視】	3.1-11
図 1.3.1-6	ガンマ線照射後の伝送特性(P1/P0)【可視～近赤】	3.1-12
図 1.3.1-7	高耐放射線化処理後の伝送特性(P1/P0)【紫外～可視】	3.1-12
図 1.3.1-8	高耐放射線化処理後の伝送特性(P1/P0)【可視～近赤】	3.1-13
図 1.3.1-9	高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性【紫外～可視】	3.1-13
図 1.3.1-10	高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性【可視～近赤】	3.1-14
図 1.3.1-11	回復処理後の照射時透過時間変化測定体系	3.1-14
図 1.3.1-12	ファイバー透過後の光源スペクトルの変化	3.1-15
図 1.3.1-13	フッ素ドープファイバーの自発光の影響	3.1-16
図 1.3.1-14	主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化	3.1-16
図 1.3.1-15	主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 A	3.1-17
図 1.3.1-16	主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 B	3.1-17
図 1.3.1-17	主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 C	3.1-18
図 1.3.2-1	マイクロチップレーザーLIBS プローブの外観	3.1-19
図 1.3.2-2	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 濃度の異なる発光スペクトルの観測例	3.1-20

図 1.3.2-3	模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd の発光線強度	3.1-21
図 1.3.2-4	模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd/Ce の発光線強度比(マイクロチップ LIBS)	3.1-22
図 1.3.2-5	模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd/Ce の発光線強度比(従来型ファイバー LIBS)	3.1-22
図 4.3-1	試験時のガンマ線線量率分布	3.4-3
図 4.3.1-1	レーザービームプロファイル測定時の配置図	3.4-4
図 4.3.1-2	レーザービームの 2 次元プロファイルの時間変化 ( 5 kGy/h )	3.4-5
図 4.3.1-3	3 次元プロファイルの時間変化 ( 5 kGy/h )	3.4-5
図 4.3.1-4	レーザービームの 2 次元プロファイルの時間変化 ( 10 kGy/h )	3.4-6
図 4.3.1-5	3 次元プロファイルの時間変化 ( 10 kGy/h )	3.4-6
図 4.3.1-6	レーザービーム強度分布の比較	3.4-7
図 4.3.1-7	レーザービーム半値幅の時間変化 ( 10 kGy/h )	3.4-8
図 4.3.1-8	半値幅に関わる相対値の線量率依存性	3.4-8
図 4.3.1-9	レーザーパルス時間波形の比較	3.4-9
図 4.3.1-10	レーザーパルス時間波形の線量率依存性	3.4-10
図 4.3.1-11	レーザーパルス挙動試験配置及び発振例	3.4-11
図 4.3.1-12	放射線照射時の第一パルス立ち上がり時間 (BUT) の経時変化	3.4-11
図 4.3.1-13	最大線量率での BUT の経時変化	3.4-12
図 4.3.1-14	5 kGy/h でのレーザーパワーの経時変化	3.4-13
図 4.3.1-15	10 kGy/h でのレーザーパワーの経時変化	3.4-13
図 4.3.1-16	レーザー媒質 a)、および可飽和吸収体 b) のエネルギーダイアグラム	3.4-15
図 4.3.1-17	レーザーパルス a)、利得の各準位ポピュレーション b)、 および可飽和吸収体のポピュレーション c) の計算結果	3.4-16
図 4.3.1-18	レーザーパルス列の実験(a)と計算(b)の比較	3.4-17
図 4.3.1-19	放射線照射時の損失の過程を示す概念図	3.4-17
図 4.3.1-20	ポンプ光損失(a)およびレーザー光損失(b)による BUT 変化の比較	3.4-19
図 4.3.1-21	ポンプ光損失およびレーザー光損失における BUT 増加量と推定される吸収係数の関係	3.4-19
図 4.3.1-22	各マイクロチップレーザーコンポーネントへの放射線影響測定系概略	3.4-20
図 4.3.1-23	YAG セラミックス温度の経時変化	3.4-21
図 4.3.1-24	ファイバー出口での LD 光出力経時変化	3.4-21
図 4.3.1-25	ファイバーおよびレンズ透過後の LD 光出力の経時変化	3.4-22
図 4.3.1-26	結晶透過後の LD 光出力の経時変化	3.4-23
図 4.3.1-27	Nd:YAG 結晶透過後の 1064nm 光出力の経時変化	3.4-24
図 4.3.1-28	Cr:YAG 結晶透過後の 1064nm 光出力の経時変化	3.4-24
図 4.3.1-29	レーザー発振特性パラメーターの相対的变化量と線量率の関係 ( 1 )	3.4-26

図 4.3.1-30	レーザー発振特性パラメーターの相対的变化量と線量率の関係 (2)	3.4-26
図 4.3.2-1	放射線環境下マイクロチップレーザーLIBS 試験配置	3.4-28
図 4.3.2-2	Zr 金属を対象としたマイクロチップレーザーLIBS 測定例	3.4-29
図 4.3.2-3	ガンマ線照射環境下での Zr の 紫外波長域(a)、近赤外波長域(b)LIBS 測定例	3.4-30
図 4.3.2-4	混合酸化物を対象とした LIBS 測定例の比較	3.4-31
図 4.3.2-5	混合酸化物を対象とした LIBS 測定における雰囲気ガスの影響の比較	3.4-32
図 4.3.2-6	放射線環境下での混合酸化物 LIBS 測定例 (0.5kGy/h)	3.4-33
図 4.3.2-7	放射線環境下での混合酸化物 LIBS 測定例 (10kGy/h)	3.4-33
図 5.3-1	非線形光学結晶サンプルのガンマ線照射実験	3.5-3
図 5.3-2	ガンマ線照射後の YCOB 外観. 照射による着色	3.5-3
図 5.3-3	ガンマ線照射後の非線形光学結晶透過率の波長依存性	3.5-4
図 5.3-4	ガンマ線照射後の各種レーザー材料透過率の波長依存性	3.5-5
図 5.3-5	ガンマ線照射後の各種レーザー材料における 吸収係数増加分の波長依存性	3.5-5
図 5.3-6	ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価: 基本波	3.5-6
図 5.3-7	ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価: 第二高調波	3.5-7
図 5.3-8	ガンマ線照射下のレーザー発振ダイナミクス: 第二高調波	3.5-7
図 5.3-9	ガンマ線照射下のレーザー発振における基本波/SHG ダイナミクス比較	3.5-8
図 5.3-10	ガンマ線照射下のレーザー発振における基本波/SHG 特性比較	3.5-8
図 5.3-11	ガンマ線照射下のレーザー発振における変換効率経時変化	3.5-9
図 5.3-12	観察した LIBS 信号	3.5-10
図 5.3-13	試作した LIBS プローブの構成	3.5-10
図 5.3-14	マイクロチップレーザーによる小型で簡便な LIBS プローブ外観	3.5-11
図 7-1	提案しているセル内サーベランス技術の概要	4-8

## 略語一覧

- ・ ICCD  
Image Intensified Charge Coupled Device  
像強度増倍型個体撮像素子
- ・ IRID  
International Research Institute for Nuclear Decommissioning  
国際廃炉研究開発機構
- ・ LIBS  
Laser Induced Breakdown Spectroscopy  
レーザー誘起（破壊）発光分光法
- ・ MW  
Microwave  
マイクロ波（本報告では、周波数 2.45GHz 近傍の電磁波）
- ・ NDF  
Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation  
原子力損害賠償・廃炉等支援機構
- ・ 東京電力  
東京電力ホールディングス株式会社
- ・ MCL  
Micro-Chip Laser  
マイクロチップレーザー

# 概 略

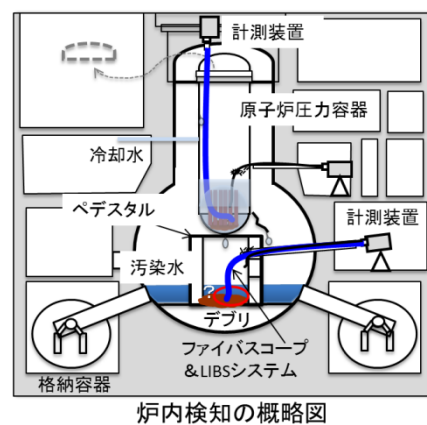
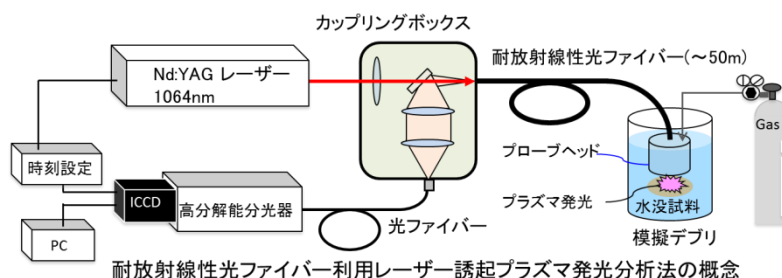
## 【研究の背景、課題、目的及び目標】

本研究開発の目標は、耐放射線性光ファイバーによりレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法 (Laser Induced Breakdown Spectroscopy:LIBS) によりデブリの組成を遠隔その場で分析する技術を基に、ロングパルスレーザーの活用やマイクロ波の技術に加え、極小レーザー光発振器そのものを過酷環境下に導入するマイクロチップレーザー技術等を駆使した先進的光分析技術を活用することで、高線量環境である炉内固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術に求められる基盤技術を確立し、炉内状況調査、廃炉計画、デブリ取り出し作業及び取り出し後の残存確認などで不可欠となる、分析技術基盤の確立を目指すものである。

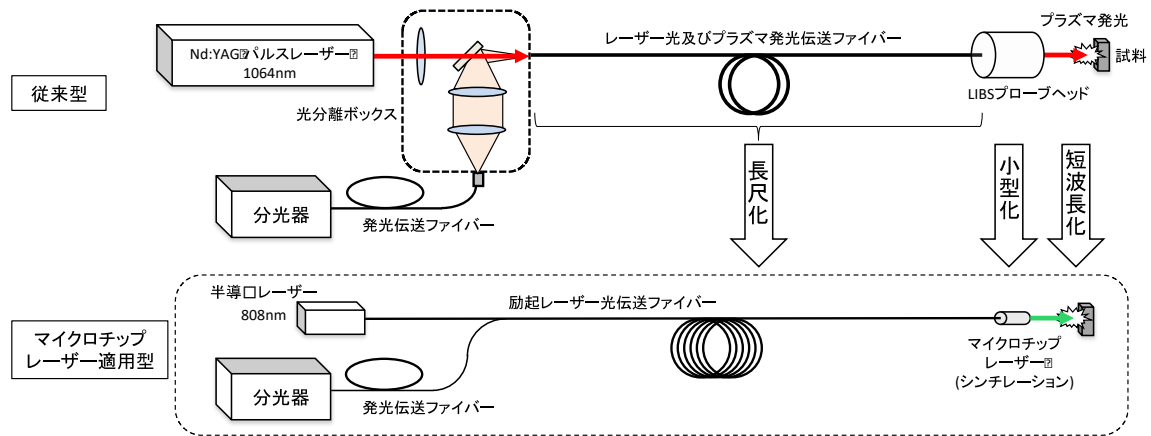
東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、事故炉内からの溶融燃料デブリ等を取り出すという世界的に類例のない作業を安全かつ円滑に実行することが求められている。現時点においては、宇宙線による核燃料物質等の位置確認が試行されており、燃料集合体の溶融落下が示唆されているが、燃料デブリの圧力容器や格納容器内の状況、性状、分布については、実際に確認されていないばかりか、その方法についても具体的準備がなされていないのが現状である。

そこで本研究開発では、原子力機構が自主的に開発している耐放射線性光ファイバーを利用した LIBS 法を中心に、本手法をより高感度、高分解能化し、現実の適用に十分な性能で対応できるようにする

ため、京都大学の有するロングパルスレーザー技術を活用し、レーザー光の光ファイバーに与えるダメージを大幅に軽減して、通常 5 mJ/pulse であるエネルギーを 50 mJ/pulse に引き上げた高いエネルギー伝送を実現するとともに、イマジニアリングの有するマイクロ波プラズマ生成技術による原子発光強度の増大技術を組み合わせ、スペクトル強度を従来に比べ 10 倍以上増倍させて、炉内の高放射線量環境の気中、水中における LIBS 技術を高度化する。これにより、単なる固体焼結体のみならず、より高いエネルギーでのレーザー照射が求められると予想されるガラス化したデブリやコリウム等にも対応可能とし、従来以上の高感度化と物質分別性能の高分解能化を図る。また、ロングパルスレーザーを利用することで、溶融固化したデブリだけでなく、冷却水への落下による急冷で発生していると考えられる微粒子化したデブリ (冷却水懸濁微粒子状デブリ) の冷却水中その場直接分析法についても検討し、その可能性を評価する。さらに、発想を転換し、自然科学研究機構の有するマイクロチップレーザー技術を LIBS 用レーザー光源に適用してこれを極小化し、量研機



構において光源そのものを高線量環境下に導入して LIBS 計測を試みるマイクロチップレーザー LIBS の成立性に関する評価を加える等、先進的光計測技術を駆使することにより様々な状況に適用可能な基盤技術の拡充を図る。



### マイクロチップレーザーを利用したファイバーLIBS

以上の研究開発を実施することにより、炉内調査、デブリ取り出し、取り出し後の炉内確認等、過酷環境下における遠隔直接分析の着実な実現に必要な基盤技術を確立し、廃炉加速に資する。

#### 【研究実施内容】

本研究開発は、原子力機構が実施するその場分析法の高度化実証研究を中心に、イマジニアリングの実施するマイクロ波による原子発光増倍特性、京都大学が実施するロングパルスレーザーによる水中懸濁粒子の分光分析特性、量研機構が担当するマイクロチップレーザーLIBS 特性評価及び自然科学研究機構が実施する LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究から構成する。

原子力機構においては、レーザー光パルス時間幅が 100 ns のロングパルスレーザーを光ファイバーLIBS 装置に導入し、従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光・分光特性を取得して最適な元素スペクトル観測条件を見出すとともに、マイクロ波を重畳したファイバーLIBS プローブについて、その性能を総合的に評価する。

イマジニアリングにおいては、原子力機構で開発する LIBS プローブ集光ヘッド部への効率的なマイクロ波伝送を実現するために、電磁界解析等により効率的なアンテナ構造・条件を検討してアンテナを試作し、マイクロ波伝送の基礎特性を評価するとともに、マイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめる。

京都大学においては、水中の模擬懸濁粒子にパルス幅が 100 ns に及ぶロングパルスレーザーを集光照射することで得られる溶液中プラズマ発光から、粒子の組成、粒子密度に関するデータが取得できる可能性について検討する。このため、レーザー照射条件がスペクトル形状に及ぼす影響、粒子数密度や粒径がレーザープラズマの発生状況や発光スペクトルに及ぼす影響について調べ、粒子数の定量分析手法としての可能性を評価することで、懸濁微粒子の計測手法としての

可能性について検討する。

量研機構においては、原子力機構と協力し、自然科学研究機構の指導の下にマイクロチップレーザーを適用したファイバーLIBS 分析システムを構築し、従来型のファイバーLIBS と比較しながらプラズマ発光特性把握する。また、ガンマ線照射施設を利用して、高線量率ガンマ線照射環境下でのレーザー発振及び LIBS 特性試験を行い、マイクロチップレーザーLIBS システムの過酷環境における適用成立性を評価する。

自然科学研究機構においては、原子力機構、量研機構と協力し、LIBS 計測に使用可能なマイクロチップレーザーシステムを構築するとともに、ガンマ線照射済レーザー部品を用いた動作特性試験、マイクロチップレーザーのガンマ線照射環境下での発振試験を行い、過酷環境下での動作特性を評価する。また、高調波である波長 532nm のレーザー光の発振の可能性についても検討する。

## 【本研究の成果】

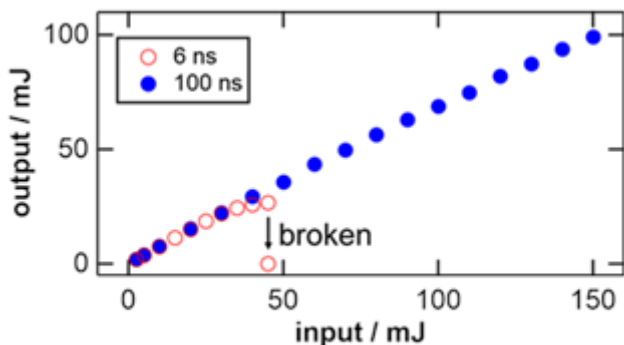
### ①その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）

#### 【平成 27 年から 29 年度の成果】

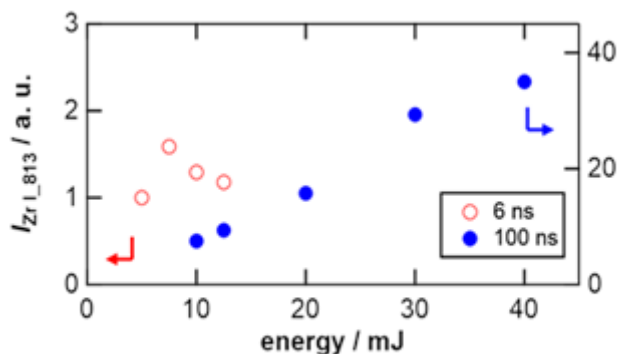
レーザー光パルス時間幅が 100 ns のロングパルスレーザーを光ファイバーLIBS 装置に導入し、従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光・分光特性を取得して最適な元素スペクトル観測条件を見出した。水没模擬デブリを用いた実証試験に適用した。水没試料の分析特性を評価することで、ロングパルスレーザー利用ファイバーLIBS 法の適用性について検討した。

従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。

ファイバー伝送 LIBS 装置の新たなレーザー光源としてロングパルスレーザー（100 ns）を導入した。Zr ターゲットを用いて、従来のノーマルパルスレーザー（6 ns）と発光スペクトル特性を比較した。その結果、ロングパルスを用いると、イオンの発光線強度が減少し、原子の発光線強度が増加することがわかった。原子の発光線は放射線照射下でも光ファイバーの透過特性が劣化しない近赤外域で観測されることから、炉内デブリの分析において検出感度の向上が期待される。また、ロングパルスの場合、光ファイバーが損傷するエネルギー閾値が上昇し、従来より



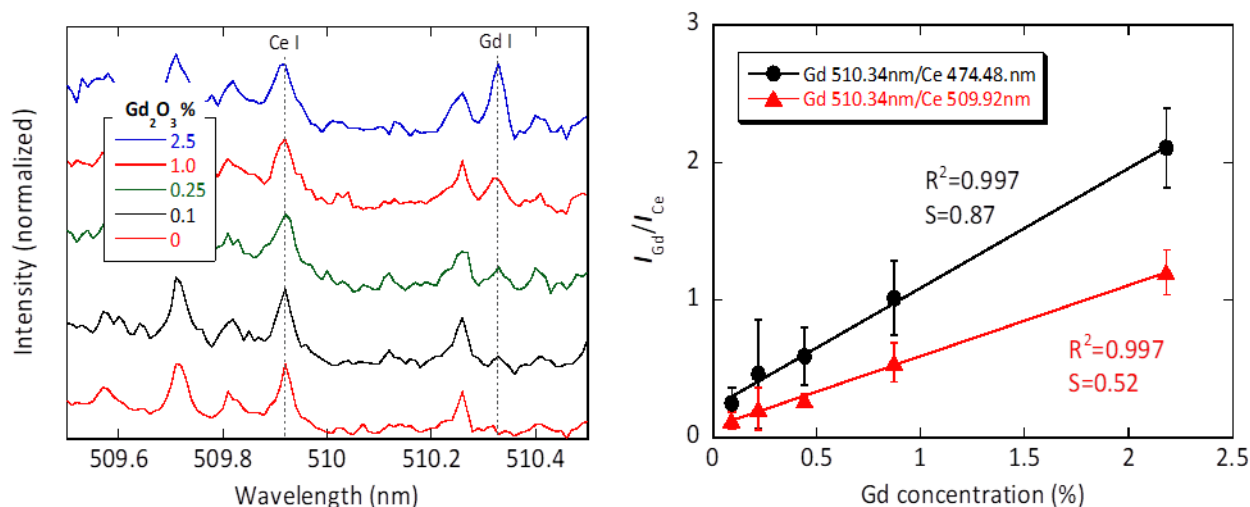
ファイバーへのレーザーエネルギー入出力特性



発光強度のレーザー入射エネルギー依存性



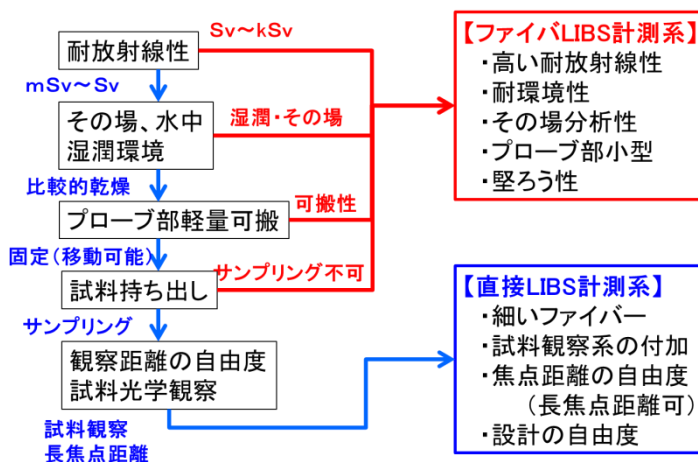
も高いエネルギーのレーザー光を伝送できることがわかった。このとき、レーザーの照射エネルギーとともに Zr の発光線強度も増加し、金属ターゲットにおいて従来の 10 倍以上の信号強度を得ることに成功した。次に、CeO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を主成分とする模擬デブリに 0.1~2.5% の Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加し、ロングパルス LIBS による Gd の検出を試みた。その結果、大気中および水中の試料から、Gd の発光線を独立して観測することに成功した。このとき、試料中の濃度に比例して Gd の発光線強度が増加した。また、Ce の発光線を内部標準とすることで、精度の高い検量線が得られた。これらの結果から、ロングパルスレーザーを導入すると、光ファイバーによる高いエネルギー伝送が実現し、信号強度の増大に伴って検出感度が向上すると考えられる。一方で、ロングパルスを用いると、広い波長範囲で出現する分子の発光が増大するとともに、共鳴線の自己吸収が顕著になることがわかった。定量分析を行う際は、解析するピークを適切に選択する必要がある。



模擬デブリ中の濃度に対する Gd の発光線強度の変化

従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。

レーザー光源からの光を直接搬送し LIBS 計測に適用する方法、光ファイバーで搬送する方法並びに従来レーザー光源を用いた LIBS 計測とロングパルスレーザー、マイクロチップレーザーを用いた LIBS 法について、その特徴を評価した。光源による比較の結果、ロングパルスレーザーは、高強度光伝送や時間分解分光に適するものの、光源のより高度な安定性が必要であること、マイクロチップレーザーは、より長距離な光伝送やレーザー光の集光性に優れ、発光分光も可能なことが確認された。用途、使用条件に合わせた選定が重要となる。



LIBS 計測手法の適用選択チャート例

### 利用するレーザーの特徴とその適用性

光源 評価項目	従来レーザー (10 ns)	ロングパルスレーザー (100 ns)	マイクロチップレーザー (>1 ns)
手法の適用性 (直接 LIBS、ファイバー-LIBS)	直接 LIBS、ファイバー-LIBS に活用可。比較的万能。	直接 LIBS、ファイバー-LIBS に活用可。	光ファイバーを介さないため遠隔でも集光特性を失わず、直接 LIBS の特性が得られる。
耐放射線性	高い耐放射線性 10kGy/h、>MGy	高い耐放射線性 10kGy/h、>MGy	炉内の高線量環境下では問題あり。 Gy/h、kGy程度の耐放射線性有り。
光ファイバー-LIBS での光ファイバー条件	伝送エネルギーに制限。 ファイバー直径は比較的太い。 柔軟性に欠ける。 50m 程度	高強度エネルギー伝送が可能。 ファイバー直径を若干細くできる。 多少柔軟。 50m 程度	細く柔軟なファイバーの利用可能 超長距離伝送が可能
発光特性	レーザー光強度に対して LIBS 信号が飽和傾向。	レーザー強度に対して LIBS 信号が飽和しにくく、プラズマ発光強度が高い。 自己吸収が観測され易い。 増倍効果あり	従来レーザーとほぼ同じ。 バーストモードで強度増倍あり
レーザーの安定性 取り扱い性	出力安定性、取り扱いの安定性は高い。	開発品で、出力安定性、取り扱い安定性に難がある。	小型化可能。二倍高調波の利用が可能。 パルス幅が短くエネルギーの時間密度が高いため、試料の穿孔性が強い。厳密な制御がしにくい。

#### 【平成 30 年度の成果】

光ファイバー-LIBS 法に着目し、可視光域の透過特性を改善した新規光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得し、ファイバー-LIBS による遠隔分析手法への適用性を検討した。

また、量研機構等で開発したマイクロチップレーザー-LIBS プローブを模擬デブリに適用し、遠隔その場元素分析技術への適用の可能性を評価した。

新規の耐放射線性光ファイバーの特性評価は、以下に示すように、放射線照射劣化とその回復処理により高耐放射線性耐久化を図り、ガンマ線照射後及び照射中での放射線体制について評価した。

- (1) 放射線耐性を有するフッ素ドープ石英光ファイバーを用いて、これにガンマ線照射と照射による特性劣化の回復処理を施すことで、高放射線耐久化を図る。
- (2) 耐放射線性光ファイバーの LIBS への適用評価に供するため、回復処理を施した供試体の放射線照射中透過率の経時変化を測定、てその健全性を確認する。

回復処理は以下の工程で行なった。なお、(1)の放射線照射条件は、累積線量 2 MGy (線量率 約 10 kGy/h) とした。

- ① 光ファイバーにガンマ線照射を行うことで光ファイバー中の不完全結合部を切断し、光の吸収帯を持つ欠陥を生成する。
- ② ガンマ線照射後の光ファイバーに、光吸収欠陥の修復処理を施す。
- ③ 修復処理により、放射線照射によって生じた光吸収損失を消滅させ、かつ放射線照射による吸収欠陥の生成を抑制し、光ファイバーの耐放射線性を高める。

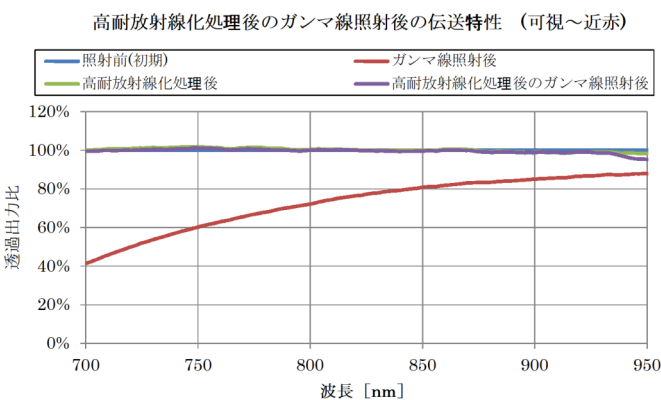
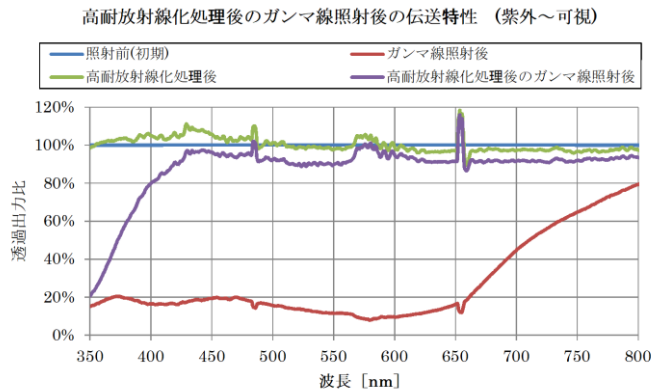
高耐放射線化処理を施した光ファイバーの伝送特性を図に示す。放射線照射条件は、累積線量

1.18 MGy (線量率 9.34 kGy/h) である。高耐放射線化処理を施したことにより、ガンマ線照射後も波長 450 nm 以降において、伝送特性の回復効果が十分維持されていることを確認した。また、高耐放射線化処理を施した光ファイバーにおいても 1 MGy を超えるガンマ線照射によって紫外域に吸収欠陥が生じ、波長 450 nm 以下の短波長域では透過出力の低下が生じることも確認した。

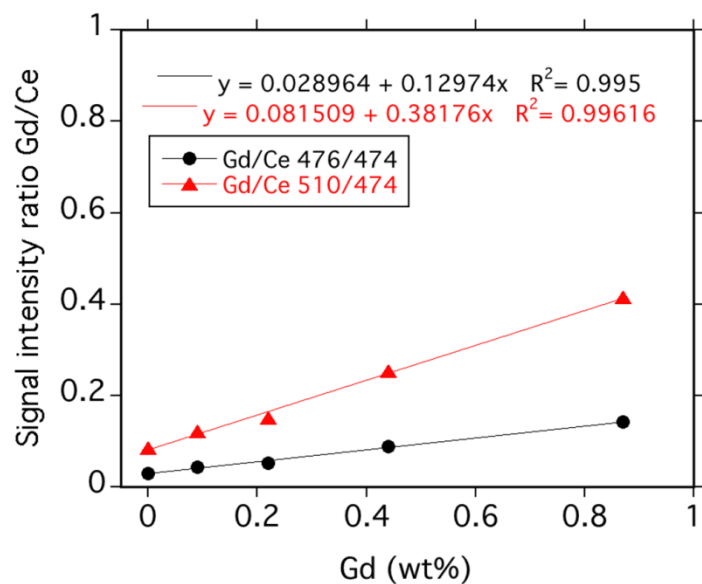
線量率が 9.34 kGy/h での放射線照射中透過率の経時変化では、回復処理後もガンマ照射中は特定波長で透過の減少が観測されること、ガンマ線照射により可視域で比較的強い自発光が観測されることがわかった。しかしこの自発光は時間的に連続して発生したものを時間積分して観測していることから、LIBS 計測で必要となる時間ゲート幅 (数  $\mu s$  から数十  $\mu s$ ) での発光強度に換算すると、発光分光には大きな影響を与えるものではないことも確認している。

以上により、従来使用してきた耐放射線性光ファイバーでは、近赤外領域でのプラズマ発光線のみを対象とを考えてきたが、新規光ファイバーでは、強いプラズマ発光線強度が得られ、計測効率も良い可視域での観測を可能とするもので、その活用が期待できる。

量研機構等で開発したマイクロチップレーザー-LIBS プローブを模擬デブリへの適用を試みた。模擬デブリは、典型的な組成として核燃料が 60%、構造材が 35%、制御棒 5%として、酸化ウラン：ジルコニウム：鉄の割合を 61%:29%:10%に設定した。なお、ウランの代わりにセリウムを用い、さらに臨界管理上重要な役割を担う、可燃性毒物である酸化ガドリニウムの添加を考慮した混合焼結酸化物とした。酸化ガドリニウムは 0~2.5%添加して試料を調製し、ガドリニウムの検知を想定した LIBS 特性試験を実施した。ウランやセリウムは複雑な電子構造を持つために多くの発光線が出現する。また、鉄やジルコニウムの遷移元素についても多くの発光線が存在する。そ



### 新規光ファイバーの高耐放射線化処理後の伝送特性



模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd/Ce の発光線強度比

の中で、ガドリニウム発光線が他の元素と干渉なく観測されたのは数本であった。非放射線環境下において、セリウムの発光線（474.5 nm）の強度に対するガドリニウムの発光線（476.7, 510.3 nm）強度比と、ガドリニウムの濃度との関係には、優れた直線性が認められ、定量性のある分析が可能であることが示された。この時、ガドリニウムの検出下限は約 0.1% であり、従来型のファイバーLIBS 技術で得た値とほぼ同じ分析性能であることが確認された。

## ②マイクロ波による原子発光増倍特性（再委託先：イマジニアリング）

### 【平成 27 年から 29 年度の成果】

原子力機構で開発するファイバーLIBS のプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行なった。

最適化したマイクロ波アンテナを用い、レーザーブレイクダウン位置とアンテナ位置の関係、マイクロ波の入射条件（連続発振とパルス発振、パワー、印加時間）を最適化することで、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価した。

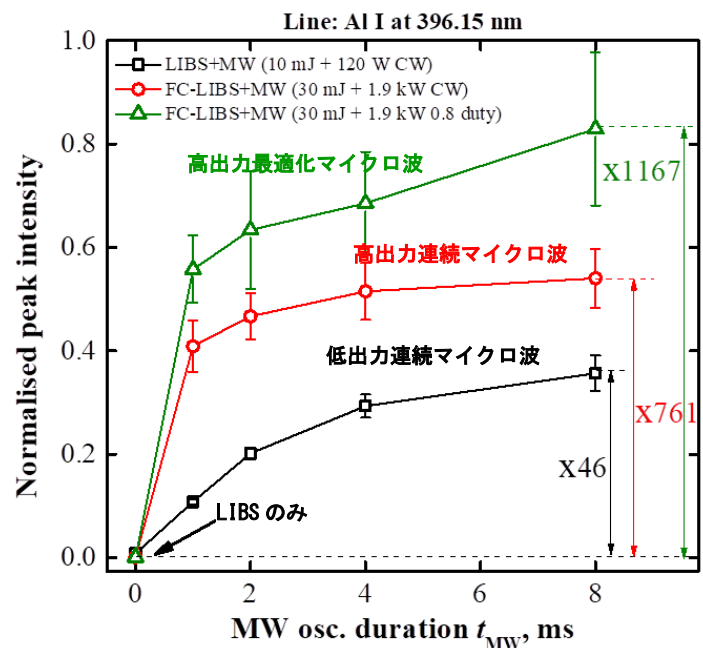
これまでの成果、知見を整理し、LIBS 発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめた。

マイクロ波重畳 LIBS における信号増倍条件

設定条件	評価結果
アンテナ形状	コンデンサ型
アンテナ位置	サンプルより 1 mm 程度
アンテナ角度	10 度程度
MW 波発振条件	パルス MW、ON 時間 100 $\mu$ s 程度 Duty 80 %程度、
MW パワー	1.6 kW 以上
MW 印加時間	8 ms 程度

原子力機構で適用性を検討している光ファイバーLIBS への適用を念頭に、通常の直接 LIBS、光ファイバーLIBS、マイクロ波重畳 LIBS について、スペクトル増倍効果をまとめた。

マイクロ波入射条件を最適化した場合、レーザー集光条件が厳しく、信号強度が低くなりがちなファイバーLIBS と比較すると、1000 倍以上の信号増大効果が得られる可能性のあることが示され、マイクロ波長重畳手法の有効性が確認できた。

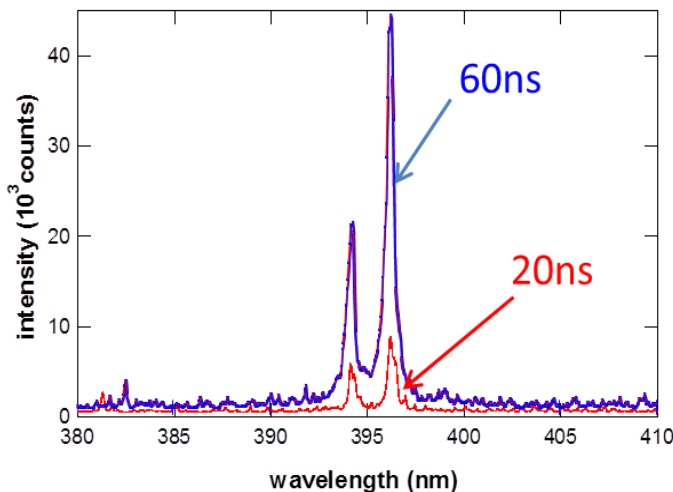


LIBS、ファイバーLIBS でのマイクロ波重畳効果の比較

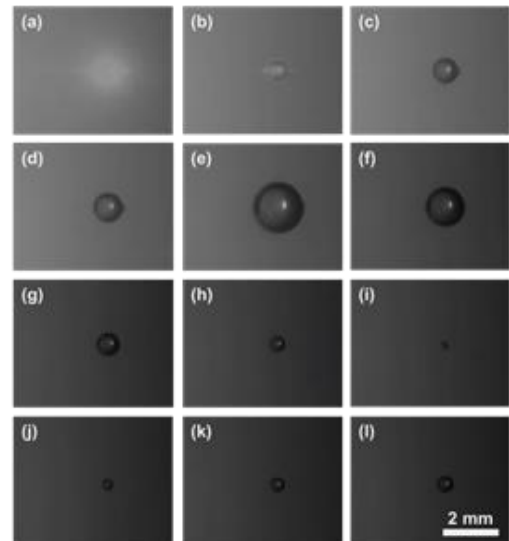
### ③ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（再委託先：京都大学）

水中の懸濁微粒子を、ロングパルスレーザーを用いた水中 LIBS によって分析することを念頭に、粒子由来元素の発光および発光強度特性の評価、微粒子懸濁液において生成する気泡の性質の評価、さらに測定効率向上のための懸濁微粒子のレーザートラップ特性の評価を行い、懸濁微粒子の LIBS 測定の分光分析特性を明らかにした。

水中の懸濁微粒子を、ロングパルスレーザーを用いた水中 LIBS 測定によって分析する可能性を検討した結果、ショートパルスレーザーを用いた場合と比較して、粒子由来の元素のスペクトル線の出現頻度は相対的に高く、ロングパルスレーザー照射の優位性が示された。



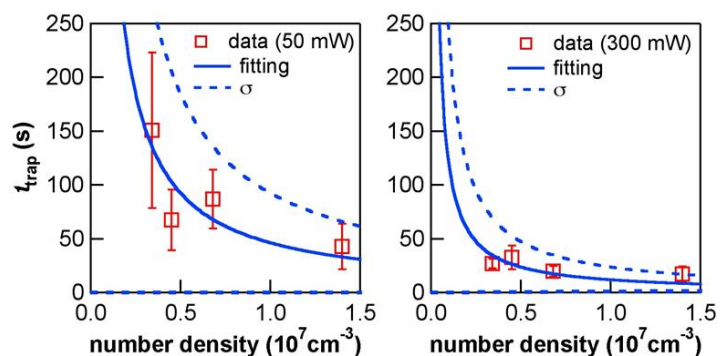
アルミナ懸濁微粒子からのアルミニウム発光線



安定生成される気泡成長の連続撮影

懸濁液にロングパルスレーザーを照射したときに生成する気泡の特性として、膨張と収縮を繰り返すこと、スペクトルがパルスごとに大きく変動するのに対して、気泡の成長は比較的安定して同じような膨張挙動を示すことから、初期に気泡に与えられるエネルギーはパルスごとに大きく変わらず、プラズマを励起しているエネルギーと強く相関していないこと、等を明らかにした。

分散粒子の数密度を定量することを念頭に、原子スペクトル線の出現頻度の向上を目指して、レーザートラップによる微粒子の補足を試みた。レーザートラップにより、分散粒子の数密度とトラップ時間との関係を調べた結果、トラップ時間は必然的に大きな分散を持つが、複数回の計測による平均値は粒子密度と相関することを明らかにした。



トラップ時間と懸濁粒子密度との相関

以上により、ロングパルス LIBS により、各粒子の元素分析だけでなく、粒子数密度の計測の可能性も確認することに成功し、レーザートラップを併用したロングパルス LIBS は懸濁微粒子の定量分析法としての可能性を有することが示された。

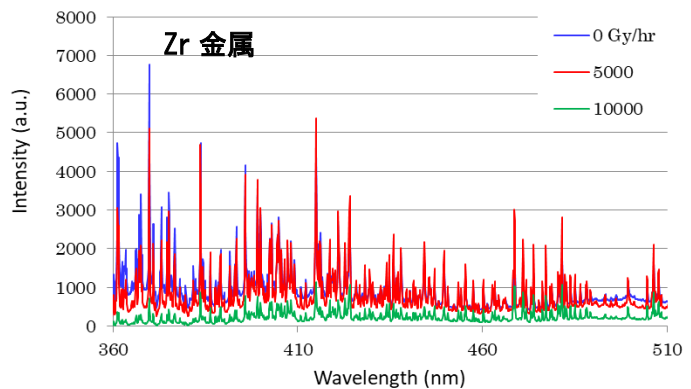


#### ④マイクロチップレーザー-LIBS 特性評価に関する研究（再委託先：量研機構）

##### 【平成 28 年度、29 年度の成果】

マイクロチップレーザーを整備してファイバー-LIBS 計測系を構築し、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認するとともに、ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討した。

構築した計測系により、酸化ジルコニウム試料にレーザー光を集光照射してプラズマを発生させて、同軸方向でプラズマ発光を観測し、分光器でジルコニウムのスペクトルが同定できることを確認した。さらに、ガンマ線照射環境下でのマイクロチップ動作特性並びに LIBS 特性を取得した結果、放射線照射環境下では、マイクロチップレーザー発振のための LD 電流しきい値が上昇するとともに出力が低下することが確認された。しかし、出力は低下するものの、10 kGy/h のガンマ線照射環境下においても LIBS 発光スペクトルが得られることを実証できた。なお、電流しきい値の上昇や出力の低下については、1 kGy 程度の累積ガンマ線照射線量では回復して正常値に戻ることがわかった。

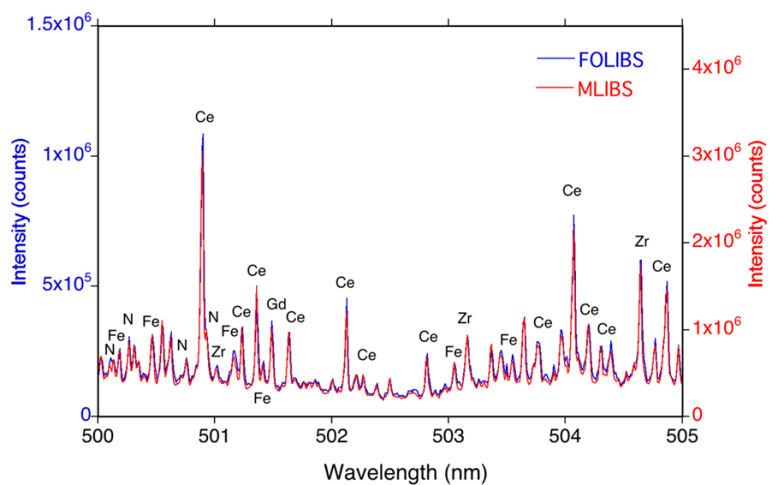


放射線環境下での LIBS スペクトル観測例

レーザー結晶はガンマ線照射によってシンチレーション発光が生じるが、その強度は LD 励起光に比べて極めて小さく、レーザー光発振には影響を与えないことがわかった。この蛍光を利用することにより、LD 励起光を入れない場合、シンチレーション光強度は線量率に対して線形増加するので、放射線モニターとしての適用が可能であることが示された。

##### 【平成 30 年度の成果】

まず、これまで原子力機構で開発してきたファイバー-LIBS とマイクロチップレーザー-LIBS とで、発光特性の違いを比較した。その結果、得られる発光スペクトルの構造はよく一致し、レーザー光源に強く依存しないことを確認した。ただし、マイクロチップレーザーを使用した場合は、集光特性が良いことから、信号強度は従来のファイバー-LIBS に比較して 4 倍程度発光信号が大きいことが確認でき（ただし、



混合酸化物を対象とした LIBS 測定例の比較

青線は従来型のファイバー-LIBS

赤線はマイクロチップレーザー-LIBS

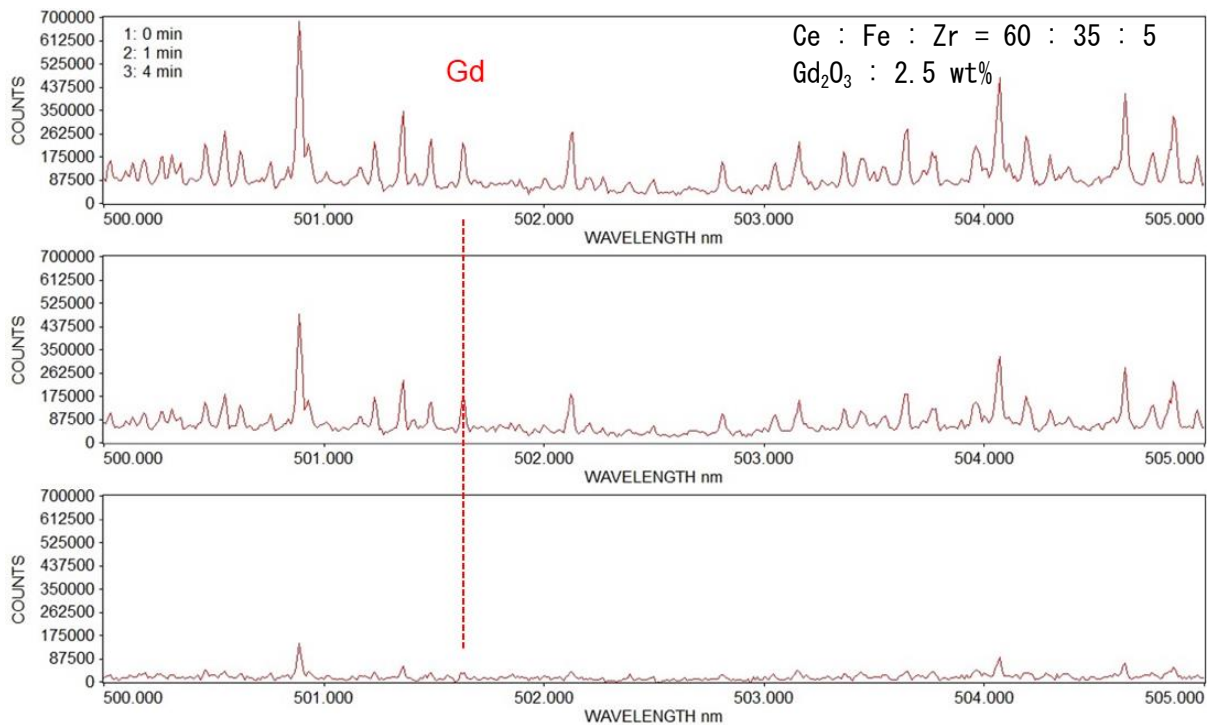
マイクロチップレーザー利用の場合の方がレーザー照射痕の体積が大きい)、感度向上に寄与する可能性があることが示された。

次に、これまでに整備したマイクロチップレーザーを活用して次の2つを実施した。

- (1) 高線量放射線環境下におけるレーザー結晶の評価
- (2) マイクロチップレーザーLIBS 装置性能の総合的評価

(1) では、レーザー発振特性として、照射セル内においてレーザー出力を測定するエネルギーメーター、およびレーザービーム品質を測定するためのビームプロファイラを整備した。また、レーザーパルス形状は光ファイバーで照射セル外にレーザー光を導いて高速度光検出器で測定した。その結果、0~10 kGy/h の高線量率放射線環境下において、レーザーパルス形状にはほぼ変化がなく、パルス幅はサブナノ秒が保持されることを確認した。一方、レーザー出力は最大線量率時で 30%程度まで低下すること、レーザービーム品質は初期のガウシアン分布を維持するものの、若干ビームの広がり観測された。レーザー出力の低下の主な原因としては、放射線照射により Nd:YAG 結晶中に吸収欠陥が生成した結果、励起用半導体レーザー光 (808 nm) の吸収損失による励起エネルギーの低下、及び発振レーザー光 (1064 nm) の吸収損失による発振出力の低下が考えられることを明らかにした。

続いて(2) では、元素分析特性測定において、レーザー出力の低下を考慮し、レーザーアブレーションプラズマ発光増大効果を得ることができるアルゴンガスフローによる LIBS 分析系を構築した。本分析系では、模擬燃料デブリとして、セリウム、ジルコニウム、鉄の混合焼結酸化物に微量のガドリニウムを添加した試料を調製し、高波長分解能エシエル型分光器を用いて LIBS 特性試験を実施した。約 9 kGy/h のガンマ線環境下での 2.5 %Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加した試料のスペクトル取得例を図に示す。



混合酸化物の放射線環境下でのマイクロチップレーザーLIBS 測定例 (10kGy/h)

Gd 中性原子の発光波長の1つである 501.50 nm に着目すると、放射線照射直後は強い発光が観測できるが、時間経過とともに放射線照射の影響が現れてレーザー出力が低下して、観測条件が同じ場合ではスペクトル強度は弱くなっている。検出系の感度調整無しで 2.2%濃度の Gd (2.5%Gd203) は十分に検出できることから、高線量率においても LIBS を用いることによって、元素組成の検知だけでなく、定量分析の可能性も示された。

**⑤LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（再委託先：自然科学研究機構）**

**【平成 28 年度、29 年度の成果】**

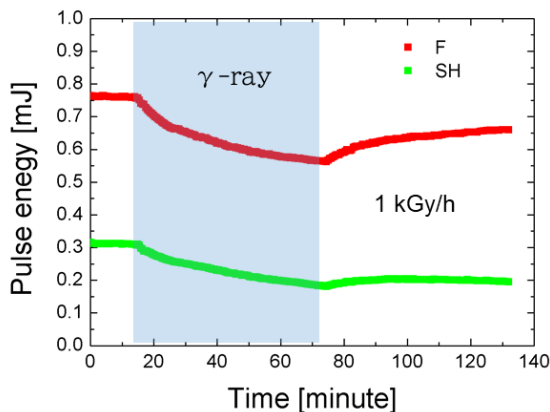
LIBS 計測用にマイクロチップレーザーヘッドを製作し、その構成部品であるレーザー素子等をガンマ線照射した。照射後のレーザー素子を用いてレーザー発振特性を取得し、照射線量に対するレーザー発振特性を取得することで、マイクロチップレーザー素子の耐放射線特性を調べた。その結果、照射後も良好なレーザー発振特性を検証できた。さらに、マイクロチップレーザーのシステム全体にガンマ線を照射し、照射中に Q スイッチ動作が正常に行われ良好なジャイアントパルスが望めるレーザー発振が可能である事を検証できた。



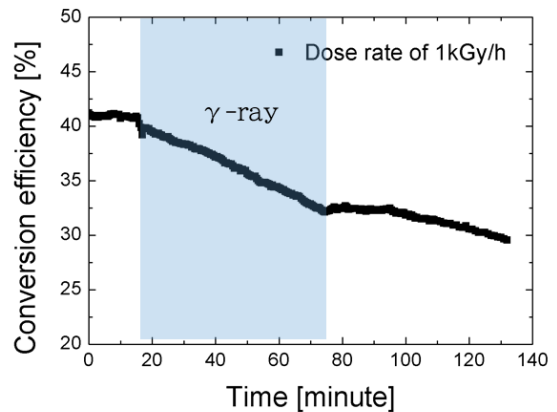
**放射線照射後の良好な発振**

**【平成 30 年度の成果】**

これまでに整備した第二高調波発生マイクロチップレーザーヘッドを活用し、放射線環境下におけるマイクロチップレーザーの非線形光学波長変換による短波長化特性を調査した。非線形光学結晶 LBO が放射線耐性が高い事を確認し、マイクロチップレーザーの波長変換に適用した。高線量放射線被曝(>1,000Gy/h)でも効率の高い波長変換が可能である事を確認した。小型マイクロチップレーザーLIBS プロブの試作にも成功し、小型マイクロチップレーザーLIBS の実効性を検証した。



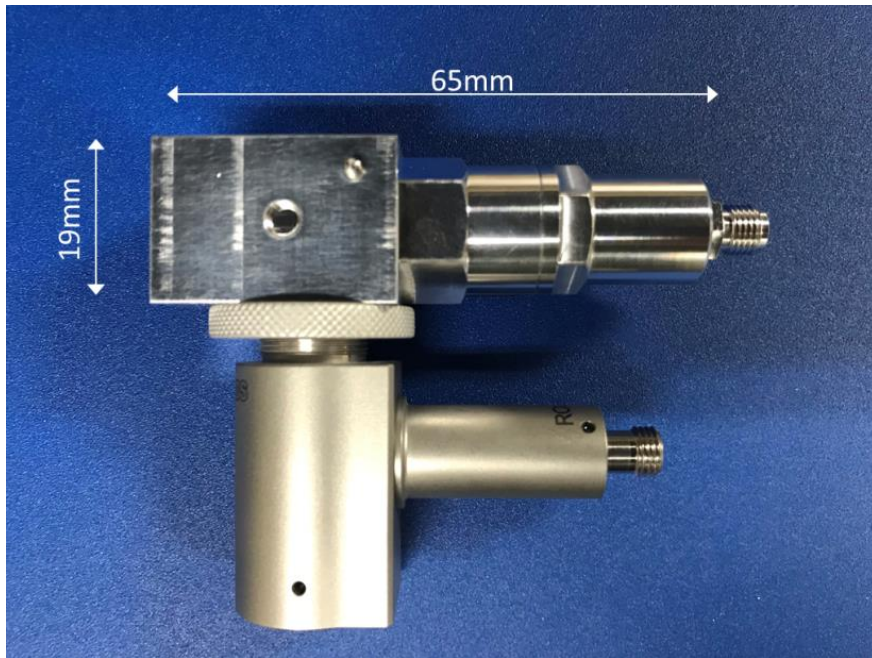
**基本波/SHG ダイナミクス比較**



**変換効率比較**

**ガンマ線照射下のレーザー発振における基本波/SHG ダイナミクス比較**





試作した小型マイクロチップLIBSプローブ

#### ⑥研究開発の推進とまとめ（原子力機構）

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究成果の共有とその展開を協議するため合同研究会を開催した。

原子力機構廃炉国際共同研究センターにおける原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）、東京電力ホールディング株式会社、廃炉担当の関連企業及び IRID 等との情報交換の場を活用し、隔その場分析技術の実現性を紹介するとともに、求められる技術内容に関して協議した結果を当該研究の推進に反映させた。また、NDF 主催の「福島第一廃炉国際フォーラム」の技術ポスターセッションにおいて（第2回、第3回で発表）、本研究の成果を積極的に発信してきた。

事業参加者による合同研究会は、年1回実施し、計画の背景、目的、実施内容、福島第一原子力発電所廃炉の現状及、福島廃炉からのニーズ、今後の廃炉センターの運営等について情報及び認識の共有化を図った。また、参加団体で実施している研究の状況、本研究開発における各担当の研究成果は無論のこと、本研究開発に関連するトピックスについても議論を深めた。実施実績を以下に示す。

- ・第1回 : 平成28年2月3日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第2回 : 平成29年3月24日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第3回 : 平成30年3月20日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第4回 : 平成31年3月14日 分子科学研究所会議室

## 【今後の展望、見通し】

近年、2号機では、格納容器底部に吊り下げ状の腕をアクセスし、事故後、初めて格納容器底部に存在するデブリ状物質に触れることに成功した。今後の計画では、

○2019年：多関節アームの導入によって1g程度の微量のデブリを採取（最大10mGy/h）

○2021年：100g程度のデブリ採取（最大1G/h）

このデブリ採取計画では、採取したデブリを、茨城地区のホットセルに運搬し、詳細な分析をする必要があることから、「中間受け入れセル」を準備し、採取したデブリの撮影、乾燥、重量測定をするとともに、おおよそどんな組成であるかをサーベランスすることにより、分類、選別した上で詳細分析施設に運搬することとなる。また、採取した試料に一時保管におけるラベリング情報も不可欠である。ここで、このサーベランスが可能な技術に関して、1g程度の微量サンプルでは、放射線線量率も低いことから、XRFの活用が非接触分析法として有力視されている。一方

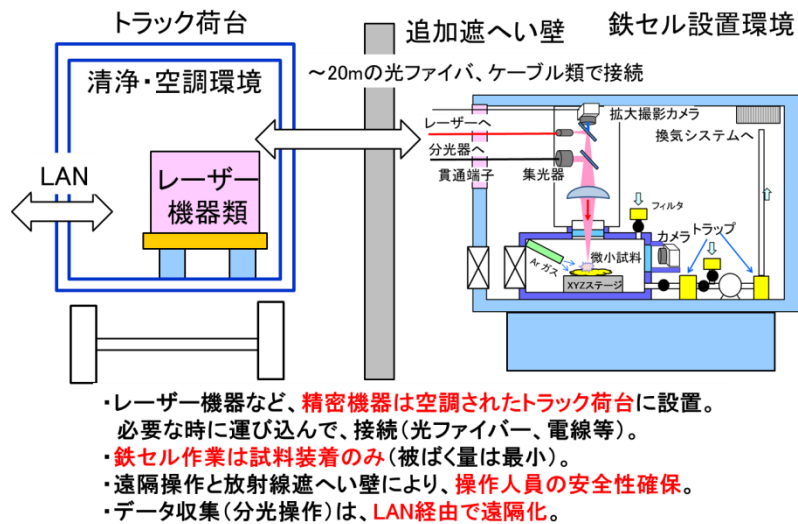
、  
100g程度の試料では、最大1Sv/hの線量率となることから、組成分析技術として、放射線環境に強く、簡便迅速なサーベランスが可能なLIBS技術の適用が選択肢として考えられる。

具体的には、鉄セル中LIBSを中心とした計測系を準備するものを念頭にしている。試料観察カメラを同一光学系で結合することにより、試料の拡大表示、分析位置の決定、レーザー光のフォーカス状況の確認（照射したい対象物画像の焦点を一致させることが、レーザー集光条件と一致）が可能なシステムである。

損傷炉内への適用ではないが、鉄セル等、少量採取デブリの受け入れセルの設置環境は必ずしも精密機器を据え付けられる環境ではない可能性が高い。そこで、レーザーや分光器等を車載型とし、必要な時にセル近傍に持ち込み、数十メートルの光ファイバーで結合して利用することを考えている。放射線環境としては、最大で1Gy/h程度であることから、光ファイバーLIBSのみならず、マイクロチップレーザーLIBSについても利用できる可能性が高い。また、マイクロ波による信号増倍法も、小型半導体マイクロ波源をセル近傍（セル内）に設置できることから、近い将来、その活用の可能性も高いと判断される。まずは、基本的なファイバーLIBS等の導入を図るが、本研究で培った技術の組み合わせにより、より着実で高感度な分析が実現するものと考えられる。

## 【今後の具体的計画】

現在、NDFの協力の下、2021年開始の少量採取デブリのサーベランスへの適用を念頭に、LIBS



## 提案しているセル内サーベランス技術の概要

技術による元素分析並びにレーザーアブレーション共鳴吸収分析技術による同位体分析技術を一時受け入れセルに導入し、サーベランス技術とする方向で、東電との具体的な協議が進展している。本事業で開発された技術が、福島現場で実用化されるもので、研究開発の意義は極めて高い。

2021年、デブリ取り出し開始時のサーベランス手法として稼働できるよう、手法の最適化を図ると同時に、機器の提供も視野に入れ、実用化研究に軸足を移していくこととする。

さらに、本サーベランスの実現を足掛かりとして、多関節アーム型ロボットの先端に LIBS プローブを装着して、損傷炉内で迅速なサーベランスを実現し、デブリ等の二次元分布を取得することでコア採取サンプルの取得場所の評価（代表性の確保）や、デブリ取り出しに必要な組成データの事前提供に適用していくことを計画していく。

今後、廃炉作業の具体的進展により、遠隔その場分析技術の必要性はより高くなると考えらる。本事業で取得した技術を活用し、それに応え得る分析技術としていくことが強く望まれる。

# I はじめに

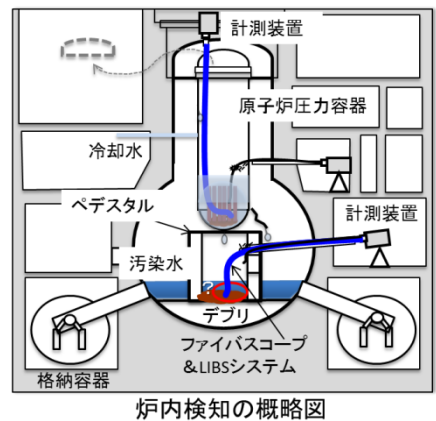
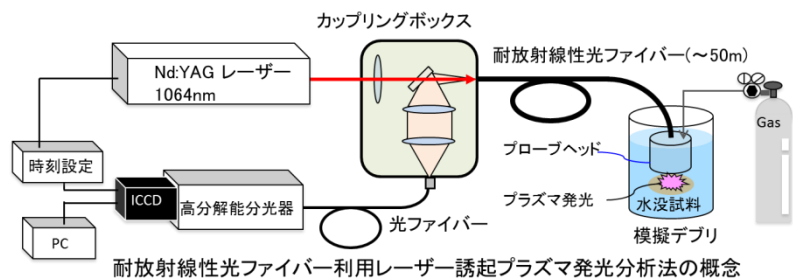
## 1. 研究開発の必要性及び研究開発目標

本研究開発の目標は、耐放射線性光ファイバーによりレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法 (Laser Induced Breakdown Spectroscopy:LIBS) によりデブリの組成を遠隔その場で分析する技術を基に、ロングパルスレーザーの活用やマイクロ波の技術、さらには発想を転換して、極小レーザー発振器であるマイクロチップレーザーに着目し、レーザー発振器そのものを炉内に配置するマイクロチップレーザーLIBS 技術等を駆使した先進的光分析技術を活用することで、高線量環境である炉内固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術に求められる基盤技術を確立し、炉内状況調査、廃炉計画、デブリ取り出し作業及び取り出し後の残存確認などで不可欠となる、分析技術基盤の確立を目指すものである。

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、事故炉内からの溶融燃料デブリ等を取り出すという世界的に類例のない作業を安全かつ円滑に実行することが求められている。現時点においては、宇宙線による核燃料物質等の位置確認が試行されており、燃料集合体の溶融落下が示唆されているが、燃料デブリの圧力容器や格納容器内の状況、性状、分布については、実際に確認されていないのが現状である。

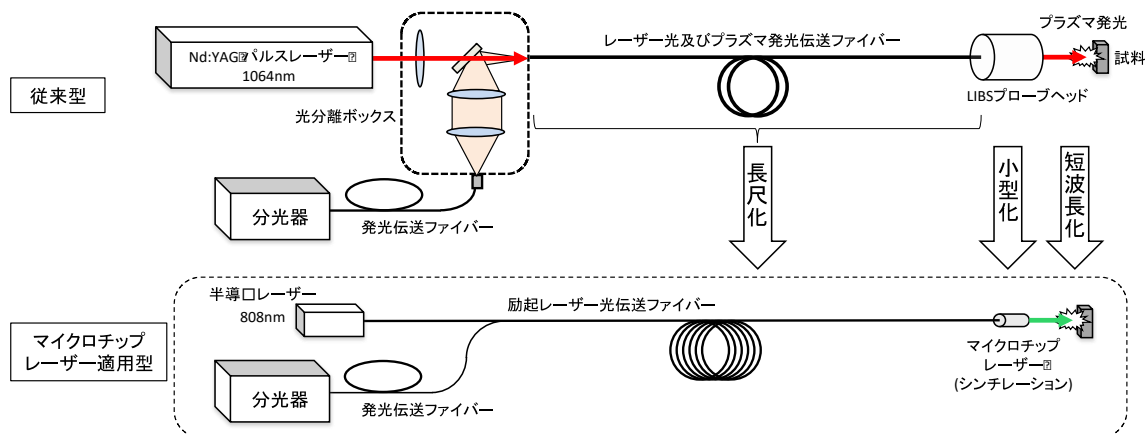
これに対し、IRID等の技術開発により、格納容器内の状況を小型ロボットによる映像として取得する試みがなされ、一部有用な情報も得られつつある。また、最近では、格納容器内の放射線線量率についても、光ファイバーを活用した小型シンチレータにより評価する計画も出されている。これらの情報を基に、各種シミュレーションや事故進展挙動解析といった高度な解析法により、デブリの状態、分布を中心とした炉内の状況を判断評価する試みがなされており、NDFにおいては、これらの結果から、デブリ取り出し工法の選定を進めつつある。このような評価は、廃炉計画上重要な知見を与えるものではあるが、炉内デブリの現実の状態をそのまま示すものではない。実際のデブリの状況を分析・把握することは、現実的な廃炉計画の策定、内部状況評価、事故進展解析はもとより、デブリ取り出し作業及び取り出し後の炉内確認など、広範囲に不可欠である。

そこで本研究開発では、原子力機構が自主的に開発している耐放射線性光ファイバーを利用したLIBS法を中心に、本手法をより高感度、高分解能化し、現実の適用に十分な性能で対応できるようにするため、京都大学の有するロングパルスレーザー技術を活用し、レーザー光の光ファイバーに与えるダメージを大幅に軽減して、通常5 mJ/pulseであるエネルギーを50 mJ/pulseに引き上げ



た高いエネルギー伝送を実現するとともに、イマジニアリングの有するマイクロ波プラズマ生成技術による原子発光強度の増大技術を組み合わせ、スペクトル強度を従来に比べ10倍以上増倍させて、炉内の高放射線場環境の気中、水中におけるLIBS技術を高度化する。これにより、単なる固体焼結体のみならず、より高いエネルギーでのレーザー照射が求められると予想されるガラス化したデブリやコリウム等にも対応可能とし、従来以上の高感度化と物質分別性能の高分解能化を図る。さらに、ロングパルスレーザーを利用することで、熔融固化したデブリだけでなく、冷却水への落下による急冷で発生していると考えられる微粒子化したデブリ（冷却水懸濁微粒子状デブリ）の冷却水中その場直接分析法の可能性についても評価する。

さらに、発想を転換し、自然科学研究機構の有するマイクロチップレーザー技術をLIBS用レーザー光源に適用してこれを極小化し、量研機構において光源そのものを高線量環境下に導入してLIBS計測を試みるマイクロチップレーザーLIBSの成立性に関する評価を加える等、先進的光計測技術を駆使することにより様々な状況に適用可能な基盤技術の拡充を図る。



### マイクロチップレーザーを利用したファイバーLIBS

以上の研究開発を実施することにより、炉内調査、デブリ取り出し、取り出し後の炉内確認等、過酷環境下における遠隔直接分析の着実な実現に必要な基盤技術を確立し、廃炉加速に資する。

## 2. 革新性、独創性、新規性

原子力機構が開発してきたLIBS技術を活用した核燃料物質の分析基盤技術（原子力システム研究開発事業「次世代燃料の遠隔分析技術開発とMOX燃料による実証的研究」H22～H25）と耐放射線性光ファイバーを活用したLIBS分析技術は、高放射線環境下における遠隔分析を可能とした革新的技術の一つである。気中における模擬デブリ（U、Zr 酸化物焼結体）は無論のこと、水中においてはレーザー照射部にガスドームを形成することにより液体を排除し、気中同様の計測環境を整えることで、水没させた模擬デブリの組成分析も可能とし、U、Zrの識別観測、組成比の定量分析を実現している。また、これまでに、耐放射線環境性として、線量率10 kGy/h、全線量で数MGyでの環境における計測を確認している。

一方、燃料デブリについては、熔融再固化のみならず、構造材やコンクリート反応で生成されるガラス化物や様々なコリウムの形成も念頭に置くと、組成分析に必要なプラズマ発光を得るた



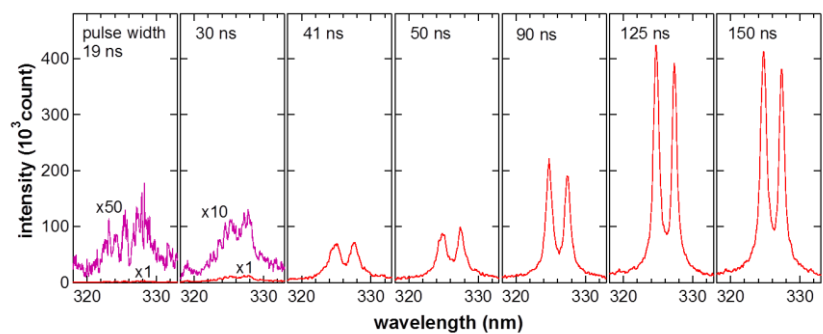
めには、よりエネルギー強度の高いレーザー照射が求められる可能性が高い。しかしながら本手法は、光ファイバーを使用することから投入可能なパルスレーザーエネルギーには制限がある弱点があり、これらの多様な生成物の有効な分析には十分な原子発光量が得られない可能性もある。LIBS での発光量を増加させる技術としては、レーザーの二重照射法が開発されているが、同軸状に同程度のエネルギーのレーザー光を用いた二重照射法では、特に対象が化合物・酸化物の場合は、分光分析に適した発光量が得られないばかりか、光ファイバーへの負担が重すぎる。

この問題を解決する革新的な技術として、本研究開発では、海底資源探査のために開発された基盤技術の一つで、京都大学の独自研究であるロングパルスレーザーの導入を図る。このレーザーは、通常のレーザー光が、5~7 ns 間の発光時間幅であるのに対し、約 10 倍の 100 ns である。このため、同一注入エネルギーであれば、単位時間当たりのエネルギーは 1/10 以下となり、光ファイバーの損傷しきい値

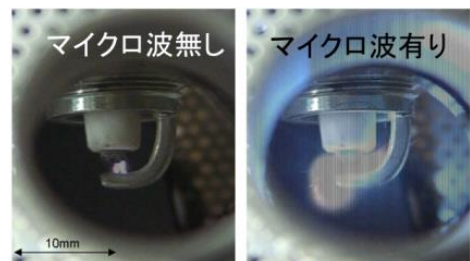
に対して 10 倍以上の余裕を持つことになるため、結果的に約 10 倍の光エネルギーを搬送することが可能となる。また、長時間のレーザー照射により、発光量の多いプラズマ形成が見られ、水中においてもそのプラズマ発光が持続すること

が見出されていることから、デブリ分析への応用が期待される。

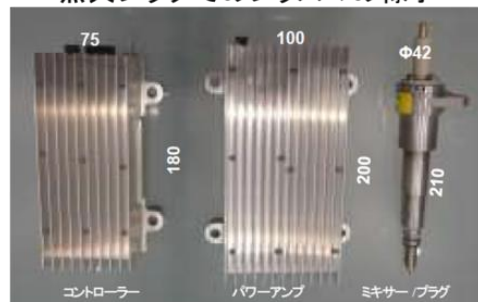
また、イマジニアリング株式会社においては、自動車エンジンにおける燃料の効率的かつ安定な燃焼を実現するため、シリンダ内にマイクロ波を導入する、マイクロ波燃焼エンジン、マイクロ波点火プラグに関する独自の技術を開発しており、シリンダ内の燃料の燃焼状況を把握する計測技術として、LIBS 計測技術も展開している。この一連の研究開発過程において、電気火花で生成されたプラズマをマイクロ波により安定に増強し、原子発光も増倍される効果を見出した。原子力機構では、この技術を基本としてイマジニアリングとの共同研究により（原子力システム研究開発事業「次世代燃料の遠隔分析技術開発と MOX 燃料による実証的研究」H22~H24）LIBS 計測との組み合わせることで、酸化物固体試料であっても従来に比べ数十倍の発光量の増大が得られることを実証した。加えて、エンジン燃焼の効率化のために開発し車載を可能とした小型化マイクロ波発振源や、シリンダへのマイクロ波の導入技術を活用し、これを光ファイバー利用燃料デブリのその場分析における発光強度の増倍技術に最適化して導入を図ることで、高感度で物質識別性の高い遠隔その場分析に必要となる技術基盤を形成する。



水中銅板からの発光スペクトルのレーザーパルス幅依存性  
(ロングパルスレーザー活用の効果)

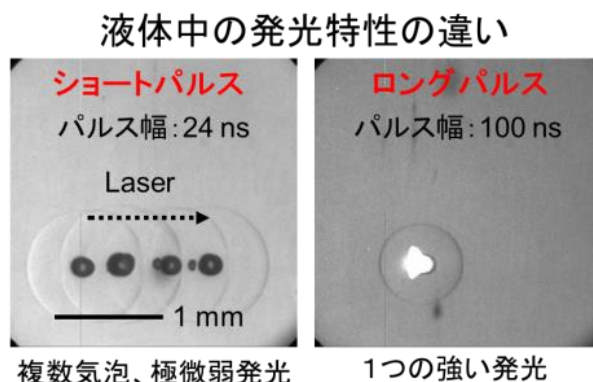


点火プラグでのプラズマの様子



マイクロ波発振器、アンテナ付プラグ

以上は、気中、水中における固体デブリ等の組成分析に関する技術開発であるが、本研究開発では、これに加えて、前述したように、水中における溶融デブリの急冷により微小粒子化し、炉内滞留冷却水とともにこれに懸濁した微粒子の直接分析技術についても、その可能性を評価する。水没している固体デブリの分析においては、ガスドーム形成により水を排除した手法で LIBS 分析を実現するため、懸濁微粒子の分析には適用できない。そこで、海底資源の探査にロングパルスレーザー利用



している京都大学の技術を活用する。これは、レーザー光を溶液中で集光し、集光した体積中に存在する微粒子を水中で直接プラズマ化し、発光分光分析するもので、通常は水中では維持できないプラズマ発光を、ロングパルスレーザーにより維持し、スペクトルを計測する。得られるスペクトルから懸濁微粒子の組成が、またスペクトルの強度や観測される頻度から粒子数に関する情報が得られる可能性があり、この分析手法について検討する。この方法は、水中の固体デブリ分析においてロングパルスレーザーを活用しつつ、ガスドーム形成をすることなく水中にレーザー光を集光照射するもので、従来の LIBS プローブの構造や分析手法を変えることなく、プローブ先端近傍付近の懸濁微粒子情報が所得できる可能性がある。

これらの技術に加え、LIBS 用レーザーを光ファイバーで伝送する発想を転換し、自然科学研究機構で開発され、近年その活用が注目される極小レーザー発振器（マイクロチップレーザー）を LIBS 用として開発することで、レーザー発振器そのものを炉内に配し、レーザー光を平行光線として搬送して光学系のコンパクト化や設計の自由度を向上させる。さらに、量研機構において、同機構の持つ高線量率ガンマ線照射施設を活用し、レーザー発振器を炉内に配置するマイクロチップレーザーLIBS の特性や高線量率環境下における成立性評価を行う。



マイクロチップレーザーと気中生成プラズマ

本提案で活用する技術は、

- ・耐放射線性光ファイバーを活用した高放射線場での遠隔 LIBS 技術
- ・ロングパルスレーザーを活用した高強度レーザー光の光ファイバー伝送、プラズマ発光強度の増加及び水中微粒子のその場分析性
- ・マイクロ波エネルギーを活用したプラズマ原子発光の倍増特性
- ・マイクロチップレーザーの LIBS への適用性

等であり、それぞれが革新的かつ独創的な技術である。本研究開発は、さらに、これらを組み合わせることで、従来にない基本分析特性を確保し、これまで類例のない炉内デブリの遠隔その場分析技術の確立を目指すもので、廃炉でのデブリ分析を目指した原子力技術と、大学における基

礎基盤技術、さらには産業界を代表する自動車業界におけるエンジン燃焼の効率化技術そして革新的研究開発推進プログラムの実用化という、異業種における独自技術を、福島廃炉のために集結・融合し、分析技術の高度化に挑戦する新規性の高い提案である。

### 3. 研究効果、発展性

#### 【発展性、廃炉への貢献】

本手法は、炉内その場分析に適用すれば、まず炉内デブリの性状把握を可能とし、具体的かつ現実的な廃炉計画の策定に貢献できる。さらに、デブリ取り出し作業においても、デブリ構成物質の組成が判断できることから、長期保管・管理面から要請されるデブリの分別、仕分けを炉内の取り出し作業現場で判断できる分析方法としても活用可能である。これはまた、同様に、廃棄物の表面汚染評価や組成評価による分別にも活用できる。大型デブリについては、現場での切断なども考えられているが、切断面の分析もその場で実施できれば、より精度の高い内容量の把握も可能となる。さらに、廃炉工程が進んで、デブリ等の取り出しが終了すれば、炉内に残存した核燃料物質を把握する手段としても十分活用可能と考えられる。

また、本手法は、炉内だけでなく、ホットセル内での詳細分析における迅速事前分析法としても利用価値が高い。この場合は炉内と異なり、測定環境も整えられるため、より高い測定精度（相対誤差 5 %未満）も実現可能である。従来の化学分析法との組み合わせにより、分析時間の短縮に貢献できると判断される。

マイクロ波によるスペクトル強度増倍法では、比較的安定な発光が確保され、スペクトル線幅の拡張による分解能の大幅な低下も観測されていない。そこで、十分な発光強度を補償し、より高分解能（波長の 15 万分の 1 以上）の分光器が活用できれば、濃縮度が 5 %未満の核燃料物質の同位体（例えば  $^{235}\text{U}$ ）を迅速に評価できる可能性がある。廃炉工程における核セキュリティ上の検認への適用も視野に入る。

さらに、パルスレーザーに替えて波長幅の狭い連続レーザーとの組み合わせにより、高分解能分光器はそのまま使用することで、光の吸収体に対しては困難が予想されるものの、遠隔ラマン散乱分光もできる可能性がある。元素組成だけでなく、対象の化学結合、状態観測がその場でできる可能性があり、デブリ等取り出しに対するより広範囲な知見を与えることが可能となる。

以上のように、本技術開発は、遠隔分析技術という基盤的な技術に関わるものである。本手法の継続的な研究開発により、事前の炉内調査だけでなく、廃炉全行程に関わる迅速分析技術として有用性の高い技術となり得るものであり、廃炉工程の加速に不可欠な研究開発の一つであると判断される。

#### 【波及効果】

近年、日本においても、燃焼（自動車産業）、鉄鋼業界、石炭火力・新エネルギー等の広い分野で LIBS 計測が重視されつつある。これにともない、国内の大学、研究所、産業界から構成される LIBS 研究グループが結成され、研究交流がなされている。この中で、原子力分野での応用は、研究規模、要求性能等でこのグループでの一つの大きな技術革新上のけん引役となりつつある。核燃料サイクルや、本提案のような廃炉技術への応用研究により、原子力分野での応用は当然として、分析基盤技術としての LIBS 計測自体のポテンシャルアップに貢献できる。こ



これは、大学から産業界に至る広範囲な人材育成と LIBS 計測技術の向上に大きく寄与するもので、その波及効果は高いと判断される。

### 【実用化に至る課題】

炉内への適用に関する課題としては、多種多様なデブリ等に関する発光データベースの整理、現実的な光ファイバーの長さ、光ファイバープローブ自体を現場に搬送する手段の開発、プローブ先端操作部の目視確認技術の付加等が上げられる。

分光データベースについては、本課題でもいくつかについてはデータを取得する予定であるが、継続して取得する必要がある。光ファイバーの長さについては、現状では 50 m 程度を考えているが、安全な遮蔽やレーザー・分光機器の安全な配置を考慮するとそれ以上の長さが必要となる可能性がある。この場合の長尺光ファイバーの取り扱いと、光伝送特性試験を要する。プローブ先端部の目視確認については、原子力機構の有する耐放射線性光ファイバー束によるファイバースコープ技術の活用が現実的であるが、画素数が多い場合は高価であり、予算の制約上、導入試験が困難である。また、長さも、30 m 程度が現実的であることから、比較的線量率の低い部分では、通常の光ファイバーを利用して連結するなど、いくつかの技術課題の解決を要する。また、ファイバー束は曲げ半径に制限があること、プローブ先端の大きさの制限など、幾何学的な配置の工夫が必要である。計測器のシステム化に関しては、イメージリングの有するネットワークを利用した国内計測器企業との連携、さらには、革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の実用化成果の活用による大学・研究所・企業との有機的連携も視野に入れていく。

そして、最大の課題は、プローブ先端の搬送手段である。これについては、搬送手段の独自開発は無意味であり、廃炉カンパニー等、実際に廃炉を担当する企業との連携が重要である。原子力機構廃炉国際共同研究センターの持つ対外連携ポテンシャルを最大限に活用して、実用化上の問題を解決していくことが求められる。

## Ⅱ 業務計画

### 1. 全体計画

耐放射線性光ファイバーを用いてレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法（LIBS）によりデブリの組成を遠隔その場で分析する技術を基に、光源にロングパルスレーザーを導入することで光ファイバーに与える損傷を大幅に軽減し、高いエネルギー伝送を実現するとともに、マイクロ波プラズマ原子発光技術による原子発光強度の増大技術を活用する等、先進的光分析技術を駆使することで、より高感度でかつ物質判別性能を高め、ガラス化したデブリやコリウム等、様々な形態のデブリへの適用に必要な性能を確保する。併せて、ロングパルスレーザー照射による水中懸濁微粒子組成の直接分析の可能性評価並びに極小レーザー光源そのものを炉内過酷環境に配し、レーザー発振源から光ファイバーを介さず直接集光照射が可能なマイクロチップレーザーLIBS 計測系の成立性について評価することで、気中・水中の固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術を確立し、炉内状況調査、デブリ取り出し作業及び取り出し後の残存確認等で不可欠となる、遠隔分析技術基盤の確立を目指す。

本研究開発は、原子力機構が実施するその場分析法の高度化実証研究を中心に、イマジニアリングの実施するマイクロ波による原子発光増倍特性、京都大学が実施するロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性、量研機構が担当するマイクロチップレーザーLIBS の特性評価に関する研究及び自然科学研究機構が実施する LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究から構成される。全体計画を表Ⅱ-1 に、各研究開発項目の実施内容を以下に示す。

#### 1.1 その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）

京都大学の指導の下、パルス幅が 100 ns のロングパルスレーザーを光ファイバーLIBS 装置に導入し、従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光・分光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を見出す。水没させた模擬デブリによる実証試験を実施し、Zr、U 等の発光スペクトル測定から、元素識別性、安定性、検出下限等の分析特性を評価する。

ファイバーLIBS 装置にマイクロ波アンテナを付加し、マイクロ波の重畳効果を確認するとともに、イマジニアリングの試験結果を反映させたアンテナを活用することで、マイクロ波を重畳した場合のスペクトル増倍特性を評価する。

ガラス化した試料、コリウムを想定した試料など、様々な複雑系模擬試料について、スペクトルデータを蓄積し、複雑系におけるスペクトル解析手法を確立する。

ロングパルスレーザーの利用、マイクロ波を重畳したファイバーLIBS プローブについて、その性能を総合的に評価し、廃炉作業への適用方法について具体的に検討する。

#### 1.2 マイクロ波による原子発光増倍特性（イマジニアリング）

原子力機構で開発する LIBS プローブ集光ヘッド部への効率的なマイクロ波伝送を実現するために、プローブヘッド筐体に対するアンテナ等の形状について電磁界解析により評価し、効率的な構造・条件を検討してアンテナ候補を見出す。これまでのノウハウと解析に基づいた結果から

アンテナを試作し、アンテナ単体におけるマイクロ波伝送の基礎特性を評価する。これをプローブヘッド管体に取り付け、レーザー誘起プラズマを起源としてマイクロ波を重畳した分光計測を実施することにより、アンテナ及びマイクロ波の入射条件を最適化し、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価する。

これらの成果、知見を整理し、LIBS 発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめる。

### 1.3 ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性(京都大学)

水中の模擬懸濁粒子にパルス幅が 100 ns に及ぶロングパルスレーザーを集光照射することで得られる溶液中プラズマ発光から、粒子の組成、粒子密度に関するデータが取得できる可能性について検討する。

模擬微粒子懸濁水溶液にロングパルスレーザーを集光照射することによりプラズマ発光を観測し、スペクトル形状が、レーザー照射条件（パルス幅、パルスエネルギー、照射における集光条件）によってどのように影響されるかを調べる。

計測におけるパルスごとの揺らぎの効果を排除するため、プラズマの画像計測と発光スペクトルの同時観測を実現し、計測上現われる揺らぎの抑制効果を評価する。

粒子数密度が、レーザープラズマの発生状況や発光スペクトルに及ぼす効果について調べることで、粒子数の定量分析手法としての可能性を評価するとともに、粒子サイズや粒子の吸光度など粒子の性状による影響を検討する。低粒子密度計測の際の感度向上手法についてはその実現性を検討する。

これらの成果を総合的にまとめ、懸濁微粒子の計測手法としての可能性について検討、評価する。

### 1.4 マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究(量研機構)

自然科学研究機構の指導の下にマイクロチップレーザーを適用したファイバーLIBS 分析システムを構築し、従来型のファイバーLIBS と比較しながらプラズマ発光特性把握するとともに、ガンマ線照射施設を利用して、ガンマ線照射環境下での LIBS 特性試験を行い、マイクロチップレーザーLIBS システムの適用成立性の総合評価を行う。

この評価を実施するため、マイクロチップレーザーを LIBS に適用してマイクロチップレーザー利用ファイバーLIBS システムにおける酸化物のプラズマ発光・分光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を見出す一方、レーザー部品（コーティング済マイクロチップレーザー結晶、LD 光伝送ファイバー、光学レンズ、非線型結晶）を供試体として、 $^{60}\text{Co}$  線源を用いて高線量率で高累積線量線量のガンマ線照射を行い、自然科学研究機構に持ち込んでその影響を調べるとともに、 $^{60}\text{Co}$  線源からの距離を変えることによって線量率を変化させて、LIBS 特性に及ぼす放射線の影響を評価する。

### 1.5 LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究(自然科学研究機構)

LIBS 用マイクロチップレーザーシステムを構築し、ガンマ線照射済レーザー部品を用いたマイクロチップレーザー動作特性試験、マイクロチップレーザーのガンマ線照射環境下での発振試

験を行い、その動作特性を評価する。併せて、波長 532nm のレーザー光（第二高調波）の発振の可能性について検討する。

これらの評価、検討を行うため、LIBS 用マイクロチップレーザーを整備して発振を確認し、当該レーザー部品をガンマ線照射供試体とする。量研機構でのガンマ線照射後、レーザーシステムを再構成して発振確認を行い、レーザー発振エネルギーのしきい値とガンマ線照射線量の関係調べて特性を評価する。また、波長 1064nm 発振のマイクロチップレーザーにおいて、<sup>60</sup>Co 線源からの距離を変えることによって線量率を変化させて、レーザー動作試験を行い、レーザー発振特性に及ぼす放射線の影響を評価する。さらに、波長 532nm 短波長化では、第二高調波結晶の放射線耐性、温度許容特性を評価することで、安定な発振の可能性を検討する。

## 1.6 研究開発の推進とまとめ（原子力機構）

原子力機構における博士研究員制度等を積極的に活用し、人材育成とともに研究開発の推進を図る。各再委託先との連携を強める目的で内部研究会を開催し、問題意識の共通化を図るとともにそれぞれの成果を原子力機構での実証研究に結び付け、現場で活用できる基盤的知見として成果をまとめる。また、国内 LIBS 研究グループへの参加、原子力機構における大学公開特別講座等の諸制度を活用し、大学、産業界等での情報発信を積極的に行う。

## 2. 各年度計画（成果の目標及び業務の実施方法）

放射線量率が高く過酷な炉内環境において、燃料デブリ等の組成その場分析が可能な技術の一つに、耐放射線性光ファイバーを用いてレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法（LIBS）により組成を遠隔で分析する技術がある。本事業では、これを基本技術とし、様々な形態の燃料デブリ分析を着実に可能とするため、光源にロングパルスレーザーを導入することで高いエネルギーのレーザー光伝送を実現して発光強度を向上させるとともに、外部エネルギーとしてマイクロ波を導入し、プラズマ原子発光量を増大させて、デブリ分析性能の高度化を図る。併せて、ロングパルスレーザー照射による水中懸濁微粒子組成の直接分析の可能性評価並びに極小レーザー光源そのものを炉内過酷環境に配し、レーザー発振源から光ファイバーを介さず直接集光照射が可能なマイクロチップレーザーLIBS計測系の成立性について評価することで、気中・水中の固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術を確立することを目的とする。

本事業の全体実施計画期間は平成27年度からの4ヶ年であり、平成30年度は最終年度で、実施期間は、平成30年4月から平成31年3月末までである。各年度の研究実施計画を表Ⅱ-1に、平成30年度の実施日程を表Ⅱ-2に示す。

### (1) その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）

#### 【平成27年度】

発振時間幅が7ns程度のレーザー光源等、既存機器を活用して光ファイバーを利用したファイバーLIBS装置を整備し、酸化物個体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認する。

パルス幅が100nsのロングパルスレーザー光源を整備し、ファイバーLIBS装置の光源として組み込んで、光ファイバーのレーザー光伝送特性を取得する。

ロングパルスレーザーを酸化物試料に集光照射し、元素スペクトルが得られることを確認する。

#### 【平成28年度】

平成27年度に整備したロングパルスレーザー専用の光結合・集光系を試作し、ファイバーLIBSによるスペクトル特性試験を実施する。従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を取得する。

量研機構のガンマ線照射施設を利用して、放射線環境下でのLIBS分析への適用を前提に既存光ファイバーの放射線照射特性を調べる。

また、計測対象として考えられる複雑系模擬試料の解析に必要な基礎分光データを取得し、解析方法について検討する。

既存装置を活用してLIBS計測系にマイクロ波アンテナを設置し、希ガス雰囲気でのマイクロ波照射効果を確認するとともに、スペクトル強度の増倍特性を取得する。

#### 【平成29年度】

ロングパルスレーザーに発振時刻の同期制御系と、水中でも使用可能なLIBSプローブヘッドを整備して組み合わせ、水没模擬デブリを用いた実証試験に適用する。水没試料の分析特性を評

価することで、ロングパルスレーザー利用ファイバーLIBS法の適用性について検討する。

ファイバーLIBS法について、光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得するとともに、従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価する。

大気中、希ガス中におけるマイクロ波重畳LIBS法の発光増倍性能を総括するとともに、組成成分の分析特性を評価することで、マイクロ波重畳LIBSの適用性を検討する。

#### 【平成30年度】

ファイバーLIBS法について、可視光域の透過特性を改善した新規光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得し、ファイバーLIBSによる遠隔分析手法への適用性を検討する。また、量研機構等で開発したマイクロチップレーザーLIBSプローブを模擬デブリに適用し、遠隔その場元素分析技術への適用の可能性を評価する。

### (2) マイクロ波による原子発光増倍特性（再委託先：イマジニアリング）

#### 【平成27年度】

既存機器を用いて、レーザーを励起源としたマイクロ波支援発光分光システムを整備する。

整備した機器を用いてプラズマ発光を確認するとともに、マイクロ波重畳の有無によるスペクトル強度を比較し、その効果を評価する。

原子力機構で開発するLIBSプローブヘッド部への適用を前提に、マイクロ波を効率的に伝送するアンテナ形状について、電磁界解析による予備解析を実施する。

#### 【平成28年度】

原子力機構で開発するファイバーLIBSのプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行う。

平成27年度に開始した電磁界解析によるアンテナ形状解析を継続するとともに、主な解析結果を反映したアンテナを試作し、マイクロ波照射実験を実施した。試験結果と解析結果との整合性を確認するとともに、試験結果を解析へフィードバックし、発光効率の良いアンテナ形状を検討する。

酸化物個体試料に対してマイクロ波を照射した分光計測試験を実施し、大気雰囲気でのスペクトル強度の増倍効果について調べる。

#### 【平成29年度】

原子力機構で開発するファイバーLIBSのプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行う。

平成28年度で最適化したマイクロ波アンテナを用い、レーザーブレイクダウン位置とアンテナ位置の関係、マイクロ波の入射条件（連続発振とパルス発振、パワー、印加時間）を最適化することで、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価する。

平成28年度からの成果、知見を整理し、LIBS発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめる。

### **(3) ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（再委託先：京都大学）**

#### **【平成 27 年度】**

粒子が分散している懸濁液にロングパルスレーザーを照射し、生成されるプラズマの発現性を調べるため、プラズマの発光画像を観測する。

スペクトル測定からレーザー光のパルス幅がスペクトルの形状におよぼす効果を調べ、ロングパルスによる照射の優位性を確認するとともに、粒子を構成する元素の発光スペクトルを観測する。

#### **【平成 28 年度】**

粒子が分散している懸濁液にロングパルスレーザーを照射し、生成する気泡の高速ビデオ撮影を実現することで、プラズマ性状のパルスごとの揺らぎと気泡生成との関係を明らかにする。

スペクトル計測におけるパルスごとの揺らぎに対する気泡成長の影響を検討し、スペクトルのパルスごとの揺らぎを抑制する可能性を検討する。

粒子数密度が、レーザープラズマと気泡の発生状況や発光スペクトルに及ぼす効果について調べる。

#### **【平成 29 年度】**

懸濁液に分散している微粒子をロングパルスレーザー照射によって元素分析（ロングパルス LIBS）する際の検出効率を向上させるため、光トラップで粒子を固定し、レーザー光が確実に粒子を照射するような配置を検討する。まず、トラップ用レーザー光の照射方法の最適化を行う。また、トラップ効率を多様な粒子について調べる。さらに、トラップされた粒子をロングパルス LIBS で元素分析するときの定量性を検討する。

以上より、ロングパルス LIBS の懸濁微粒子の計測手法としての可能性について検討、評価する。

### **(4) マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究（再委託先：量研機構）**

#### **【平成 28 年度】**

既存機器を活用してマイクロチップレーザーファイバーLIBS を想定した時間分解発光分光装置を整備する。

従来型パルスレーザーを用いてエアブレイクダウンが発生するエネルギーしきい値を確認するとともに、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認する。

また、マイクロチップレーザー構成部品である光学素子等への高線量率および高累積線量のガンマ線照射を行い、自然科学研究機構でのレーザー動作特性試験用サンプルとして供与する。

#### **【平成 29 年度】**

マイクロチップレーザーを整備してファイバーLIBS 計測系を構築し、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認する。

ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討する。

#### 【平成 30 年度】

平成 29 年度に整備したマイクロチップレーザーを活用することにより、高線量放射線環境下においてレーザー結晶を評価するとともに適用可能なマイクロチップレーザーLIBS 分析系を構築し、元素分析特性を取得してその性能を総合的に評価する。

#### (5) LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（再委託先：自然科学研究機構）

##### 【平成 28 年度】

LIBS 用マイクロチップレーザーを整備して発振特性を取得した後、光学素子等レーザー部品をガンマ線照射用サンプルとして供与する。

ガンマ線照射済みレーザー構成部品を用いた動作特性として、レーザー発振しきい値を取得し、ガンマ線照射の影響を調べる。

##### 【平成 29 年度】

平成 28 年度に引き続きマイクロチップレーザーヘッドを製作し、その構成部品であるレーザー素子等をガンマ線照射する。照射後のレーザー素子を用いてレーザー発振特性を取得し、照射線量に対するレーザー発振特性を取得することで、マイクロチップレーザー素子の耐放射線特性を調べる。

マイクロチップレーザーの短波長化のため、レーザーヘッドに非線形結晶を取り付け、第二高調波の発生特性を取得する。

##### 【平成 30 年度】

平成 29 年度に整備した第二高調波発生マイクロチップレーザーヘッドを活用し、放射線環境下におけるマイクロチップレーザーの短波長化特性を調べ、放射線環境下での短波長レーザーの活用の可能性を検討する。また、マイクロチップレーザーヘッドに小型プラズマ発光集光系を付加し、小型マイクロチップレーザーLIBSプローブを試作し、利用の可能性を評価する。

#### (6) 研究推進（原子力機構）

##### 【平成 27 年度から平成 30 年度】

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究成果の共有とその展開を協議するため合同研究会を開催する。



表Ⅱ-1 事業全体計画（予定）

年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度
項目				
(1) その場分析法の高度化実証研究	既存機器整備 ロングパルス レーザー整備	ロングパルスレーザーによる 分光特性 分光基礎データ取得 マイクロ波効果の確認 ファイバー照射特性	専用光カップリング部等の整備 模擬デブリによる実証試験 性能総合評価 ファイバーLIBS性能比較	マイクロチップレーザーLIBS模擬 デブリ分析実証試験 総合評価
(2) マイクロ波による原子発光増倍 特性（イマジニアリング）	既存機器整備 アンテナ検討	マイクロ波アンテナ試作と動 作確認 マイクロ波重畳効果	アンテナ、マイクロ波入射条 件の最適化 性能総合評価	
(3) ロングパルスによる水中懸濁粒 子の分光分析特性（京都大学）	プラズマ観測用カメ ラ整備 粒子スペクトル確認	気泡観測用高速ビデオカメラ の整備 プラズマ・気泡生成とスペク トル	高感度化の検討 性能総合評価	
(4) マイクロチップレーザーLIBS特 性評価に関する研究（量研機構）		時間分解計測系整備 光学系ガンマ線照射	マイクロチップレーザー分光分析 特性 放射環境下発振特性評価	マイクロチップレーザーLIBS照射・ 環境下分析総合評価
(5) LIBS用マイクロチップレーザー 動作特性評価に関する研究 （自然科学研究機構）		マイクロチップレーザー整備	マイクロチップレーザー構成部品 ガンマ線照射及び発振特性	短波長マイクロチップ動作特性 レーザー性能総合評価
(6) 研究推進	合同研究会開催 まとめ	合同研究会開催 まとめ	合同研究会開催 まとめ	合同研究会開催 まとめ・評価



### Ⅲ 業務の実施内容及び成果

#### 1. その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）

##### 1.1 目的・概要

ロングパルスレーザーに発振時刻の同期制御系と、水中でも使用可能な LIBS プロブヘッドを整備して組み合わせ、水没模擬デブリを用いた実証試験に適用した。水没試料の分析特性を評価することで、ロングパルスレーザー利用ファイバーLIBS法の適用性について検討した。

ファイバーLIBS法について、従来の光ファイバーのガンマ線照射耐性、可視光域の透過特性を改善した新規光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得し、従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。

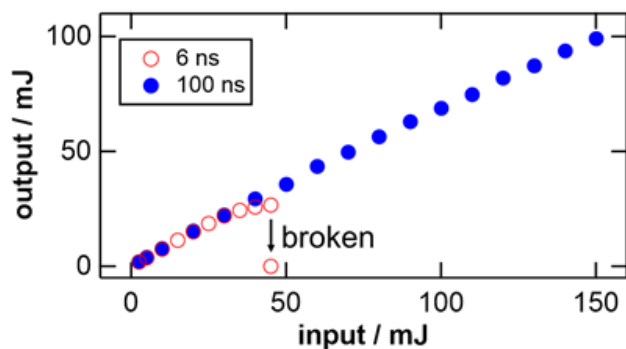
大気中、希ガス中におけるマイクロ波重畳 LIBS法の発光増倍性能を総括するとともに、組成成分の分析特性を評価することで、マイクロ波重畳 LIBS法の適用性を検討した。

##### 1.2 平成27年から29年度の成果

###### 1.2.1 ロングパルスレーザーによる発光特性

発振時間幅が7ns程度のレーザー光源等、既存機器を活用して光ファイバーを利用したファイバーLIBS装置を整備し、酸化物個体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認した。パルス幅が100 nsのロングパルスレーザー光源を整備し、ファイバーLIBS装置の光源として組み込んで、光ファイバーのレーザー光伝送特性を取得した。ロングパルスレーザーを酸化物試料に集光照射し、元素スペクトルが得られることを確認した。

パルス幅が100 nsのロングパルスレーザー光源を整備し、ファイバーLIBS装置の光源として組み込んで、光ファイバーのレーザー光伝送特性を取得した。その結果、これまで使用してきた従来型のNd:YAGレーザー（発振時間幅7ns程度）では、清浄な環境で光学調整を厳密に行った場合でも容易に実現しない値である40 mJ/pulseを得た。減圧環境の清浄な条件では、通常のLIBS計測には使用しない高エネルギー条件である100mJ/pulseの入射エネルギーを超える条件でも光ファイバーに入射できることに成功するとともに、Ce/Zr/Fe混合酸化物焼結試料等に集光照射し、各元素スペクトルが得られることを確認した。

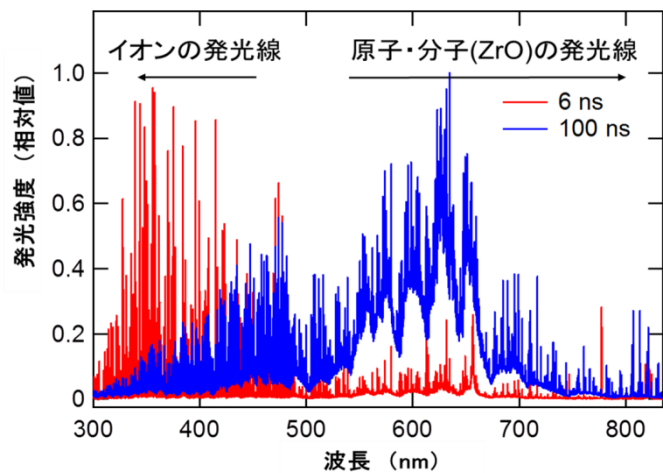


ファイバーへのレーザーエネルギー入出力特性

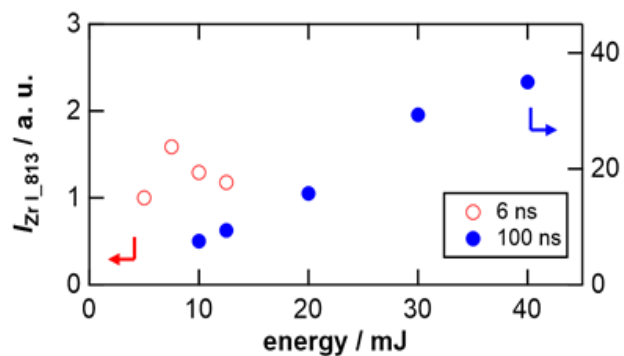
ロングパルスレーザー専用の光結合・集光系を試作し、ファイバーLIBSによるスペクトル特性試験を実施した。従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を取得した。

ファイバー-LIBS において、レーザーパルスを送信ファイバーに入射するとともに、プラズマの発光を検出ファイバーに集光するためのファイバーカップリングボックスと、レーザーパルスをターゲット表面に照射するための集光プローブ（対応波長：500～1064 nm、集光倍率：1/3、作動距離：12 mm）を試作し、ロングパルスレーザー専用の LIBS セットアップとして組み立て、ロングパルスレーザー（発振時間幅：100ns）によるファイバー-LIBS 計測が実施できることを確認した。

従来から使用している結合光学系並びに試作した光学系を活用し、空気中のジルコニウム金属をターゲットとして、従来のノーマルパルスレーザー（発振時間幅：6ns）とロングパルスレーザーを照射して得られるプラズマ発光特性を比較した。まず、照射エネルギーを同一とした場合には、ロングパルスの場合、ノーマルパルスの場合と比べて近紫外領域のイオンの発光が減少する一方で、近赤外領域の原子、分子の発光が増大することがわかった。原子の発光は、ファイバー透過特性が劣化しない近赤外域で観測されるため、放射線環境における検出感度の向上に寄与することが期待される。次に、レーザーのエネルギーを変化させて発光スペクトルを測定し、発光線強度のレーザー光エネルギー依存性を調べた。その結果、ノーマルパルスではエネルギーを高くしても発光線強度が飽和するのに対し、ロングパルスでは照射レーザー光のエネルギー増大とともに発光線強度が増加することがわかった。

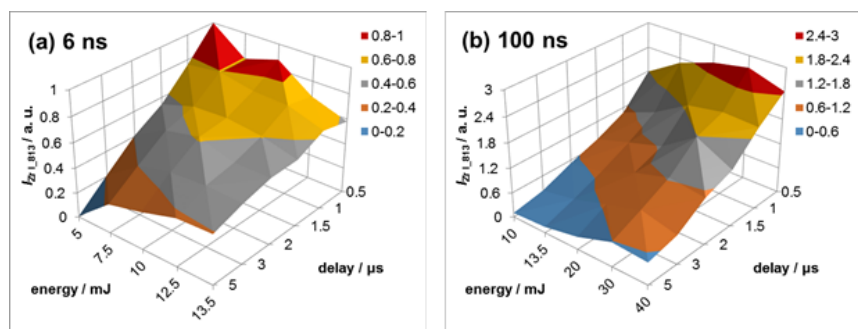


発光スペクトル出現特性の違い



発光強度のレーザー入射エネルギー依存性

ロングパルスを用いてファイバー伝送エネルギーを向上させれば、信号強度が増大すると思われる。これらの試験結果から、ロングパルスレーザーを用いた本ファイバー-LIBS 装置における最適な観測条件として、レーザーの照射エネルギーとして 30～40 mJ、スペクトル測定の遅延時間として 1～2  $\mu$ s を得た。

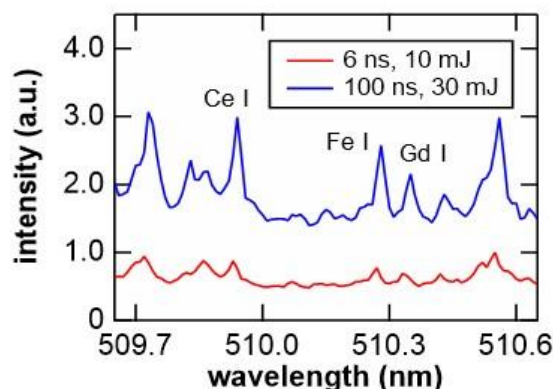


最適観測条件の探査

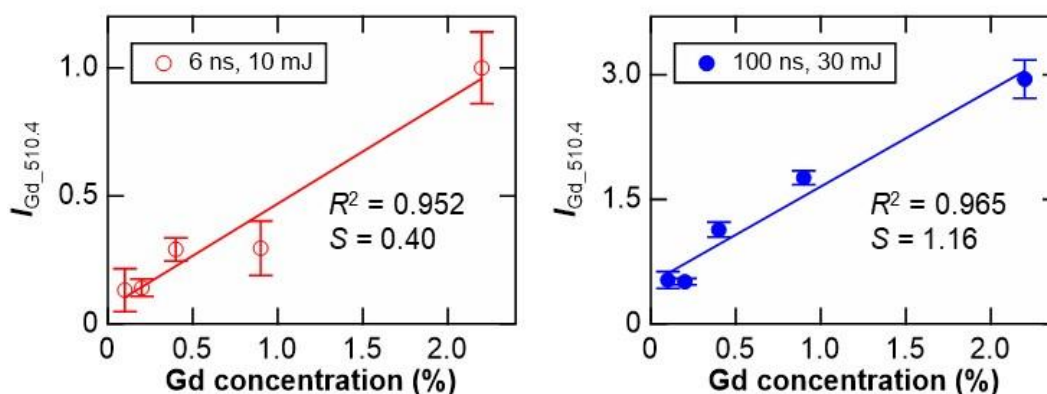
ロングパルスレーザーに発振時刻の同期制御系と、水中でも使用可能な LIBS プロブヘッドを整備して組み合わせ、水没模擬デブリを用いた実証試験に適用した。水没試料の分析特性を評価することで、ロングパルスレーザー利用ファイバーLIBS法の適用性について検討した。

ロングパルスレーザーの励起用レーザーダイオードと Q スイッチに外部トリガ機構を導入し、ロングパルス発振時刻の精密な制御を可能にした。また、ガスフローシステムや防水機構を備えた水中でも使用可能なプロブヘッドを作製し、ファイバー伝送ロングパルス LIBS 装置を整備した。

CeO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を主成分とする模擬デブリに 0.1~2.5% の Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を添加し、ロングパルス LIBS (100 ns, 30 mJ) による Gd の分析を試みた。その結果、Gd の発光線を独立して観測することに成功した。このとき、従来のノーマルパルス LIBS における最適条件 (6 ns, 10 mJ) と比べて強い発光線が得られることがわかった。ロングパルスを用いると、伝送可能エネルギーが向上するだけでなく、照射エネルギーとともに発光線強度が増大するため、デブリ中の元素の検出感度が向上すると考えられる。また、デブリ中の濃度に対して Gd の発光線強度をプロットすると、直線的な検量線を得ることができた。このとき、ノーマルパルス LIBS と比べて、検量線の傾きが約 3 倍に増加するとともに、相対誤差が減少することがわかった。さらに、デブリの主成分かつ U の模擬材料である Ce の発光線を内部標準とすることで、決定係数が向上した ( $R^2 = 0.994$ )。これらのことから、ロングパルスを用いて伝送エネルギーを向上させることで、定量分析の精度が向上すると考えられる。

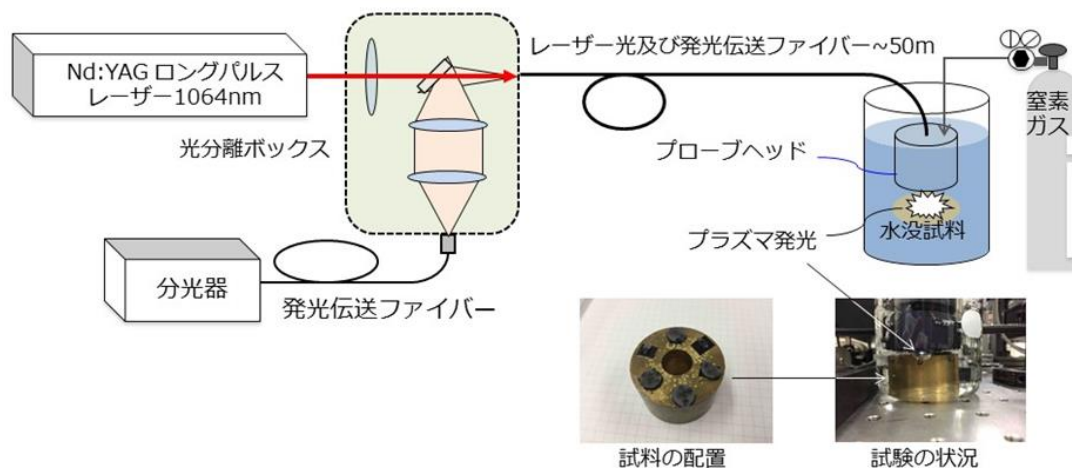


模擬デブリの発光スペクトル (Gd: 0.4%)

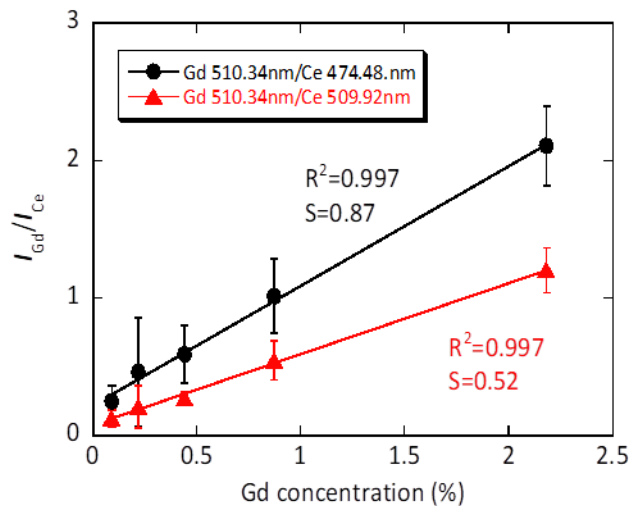
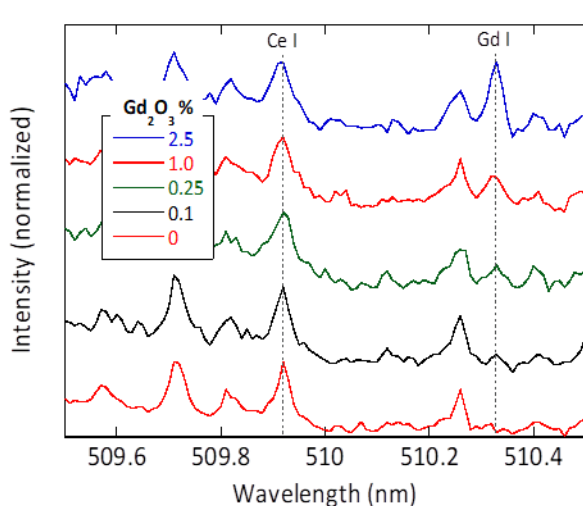


模擬デブリ中の濃度に対する Gd の発光線強度の変化

ロングパルスレーザーの LIBS 適用可能性について、水没模擬デブリ試料を用いて分析した。空気中で試験した条件 (100ns、30mJ) で窒素ガスフローにより試料と集光レンズ間に気相形成させることで、相関係数が 1 に近い検量線が作成できた。これにより、ロングパルスレーザー LIBS 分析における定量性評価の可能性が実証された。



水没試料を対象とした実験装置の概要



ロングパルスレーザーによる水没模擬デブリの発光スペクトルと Ce 中 Gd に対する検量線

### 1.2.2 光ファイバーの耐放射線性

量研機構のガンマ線照射施設を利用して、放射線環境下での LIBS 分析への適用を前提に既存光ファイバーの放射線照射特性を調べた。

線量率 15kGy/h の強い放射線環境が得られる 60Co ガンマ線照射施設を利用した。長さ 20m の一般的な石英コアの光ファイバー (OH 除去) と石英に 1000ppm の OH 基を含有させた耐放射線性光ファイバーの光の透過特性を比較した結果、一般的な光ファイバーは 15kGy (1 時間) で透過特性が著しく劣化した。これに対し、耐放射線性光ファイバーでは、950nm 近傍に強い OH の吸収が見られるものの、750nm から 900nm、1000 以上の近赤外領域においては、透過特性が変化しないことが確かめられた。

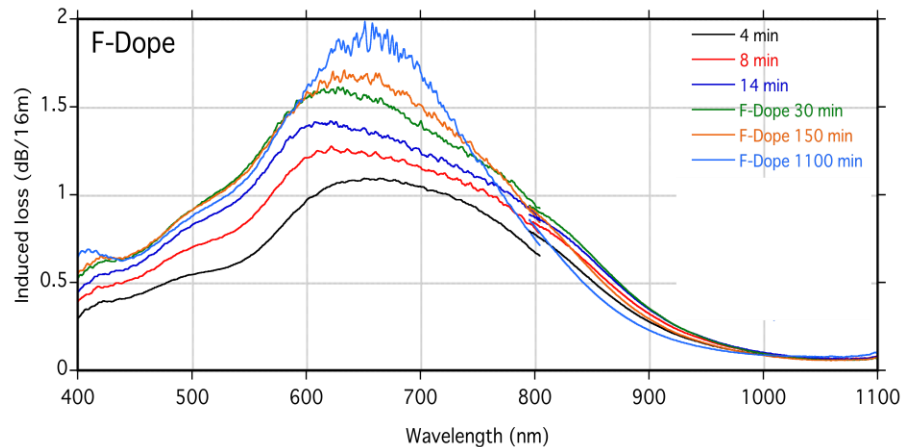
耐放射線性の改善策として開発された水酸基 (OH) に加えて、フッ素 (F) を光ファイバー内に拡散させた試験体を用いて、ファイバーLIBS を想定してガンマ線照射による透過特性を調べ、これまでの報告例と比較した。



コア径 1 mm、長さ 30 m の光ファイバーの約 16 m を直径 500 mm の 10 ターン巻きにして  $^{60}\text{Co}$  線源近傍に設置し、ガンマ線照射セル外において白色光の透過光スペクトルを測定した。ガンマ線の線量率は 12 kGy/h とし、ガンマ線照射および回復時のスペクトル形状変化からフ

ァイバー伝送損失を求めた。なお、累積照射時間は 18.3 hr とした。

F-Dope 型耐放射線性光ファイバーについて、ガンマ線照射時の伝送損失の波長依存を調べた。18 時間経過した Nd:YAG レーザー基本波長である 1064 nm の損失増はわずかであった。時間変化については、ガンマ線照射で直ちに損失が増加して、特に非架橋酸素正孔中心起因の吸収 (630 nm) 付近を中心とした伝送損失が急激に進行した。このことから今回試験に供した F-Dope 型光ファイバーについては、高線量率ガンマ線環境下での使用には適していないと思われる。しかしながら、これまでに報告されている試験結果では、F-dope ファイバーが、損失が極めて小さく押さえられているため、過酷環境下での保守用の第一候補となっている。今回試験に供したサンプルはコア径や NA が異なるものの同一メーカー製品である。仕様の違いが照射特性の違いを引き起こしている可能性があると考えられる。



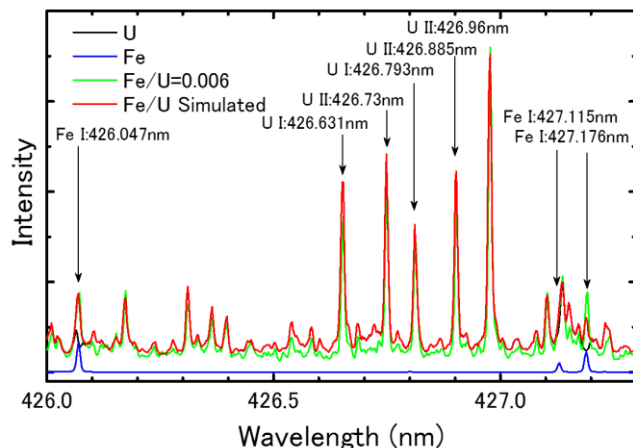
ガンマ線照射による伝送損失透過波長依存性の経時変化

### 1.2.3 スペクトル解析手法の検討

計測対象として考えられる複雑系模擬試料の解析に必要な基礎分光データを取得し、解析方法について検討した。

複雑系試料の解析に必要な分光データの取得については、炉内状況調査等における測定対象である炉内燃料デブリを想定し、基本的な元素として核燃料物質であるウラン (U)、被覆管材料であるジルコニウム (Zr) 及び構造材として主に鉄 (Fe) を取り上げた。また、これらの混合物として、Fe/Zr、U/Zr、Fe/U の混合系元素のスペクトルを LIBS により測定した。

多元素が混合された試料の複雑なスペクトルから元素組成を評価するためには、元素に特有なスペクトルの同定やその強度比解析等に専門性が求められるが、よ



多元素スペクトルの解析値と実測値の比較

り簡便な評価手法として、スペクトル全体を関数として近似し、個々のスペクトルの同定を必要としない「最小二乗法を用いたスペクトルの解析法」を検討した。この手法を、これまでに取得している Pu/U 混合物に適用した結果、従来と同様、Pu 存在量の評価が可能であることが示された。更に、Zr/Fe と Zr/U の混合物スペクトルを本手法により評価し、Fe/U 混合物スペクトルを推定した結果、実測したスペクトルと良く一致することが確認できた。これらの結果から、専門的知見を必要とせずに、存在量の評価や未知の混合物のスペクトルが簡便に推定できる可能性のあることが示された。

### 1.2.4 マイクロ波重畳 LIBS 法

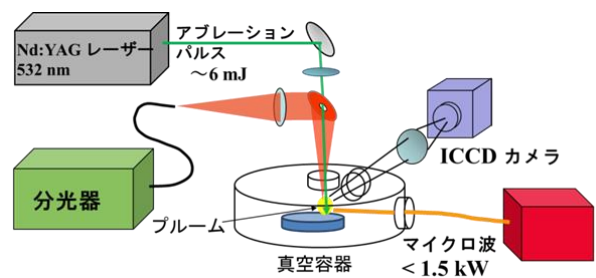
既存装置を活用して LIBS 計測系にマイクロ波アンテナを設置し、希ガス雰囲気でのマイクロ波照射効果を確認するとともに、スペクトル強度の増倍特性を取得した。

従来レーザーを用いた LIBS 系にコイル型とギャップ型の 2 種類のアンテナを設置し、ピーク出力 1500W のパルスマイクロ波を重畳してその

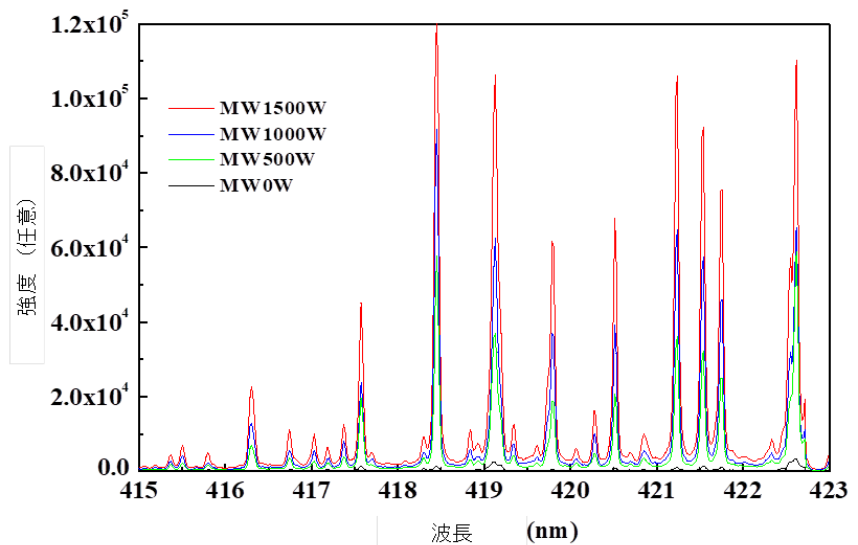
効果を調べたところ、ギャップ型が効果的であった。そこで、ギャップ型アンテナで大気中のガドリニウム酸化物のスペクトルを観測したところ、特にイオンの発光線において顕著な増倍効果が認められ、レーザーのみの場合に比べ、数十倍以上の増倍効果があることが示された。アルゴン雰囲気ではより高輝度なプラズマ生成が確認されたが、アンテナ付近の放電が観測され、対策が必要であることがわかった。

大気中、希ガス中におけるマイクロ波重畳 LIBS 法の発光増倍性能を総括するとともに、組成成分の分析特性を評価することで、マイクロ波重畳 LIBS の適用性を検討した。

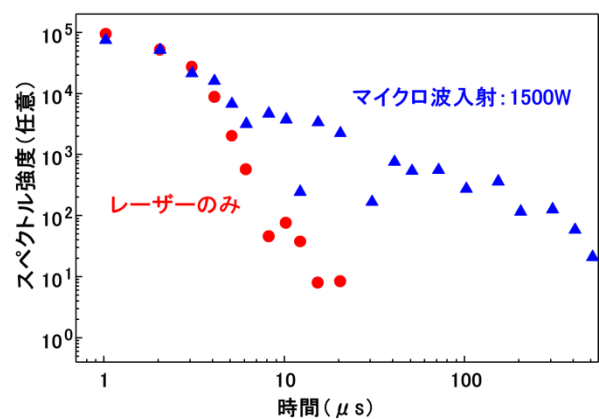
大気雰囲気、希ガス雰囲気では増倍効果を確認した結果、大気雰囲気では増倍率は約 60 倍で、



マイクロ波重畳実験装置



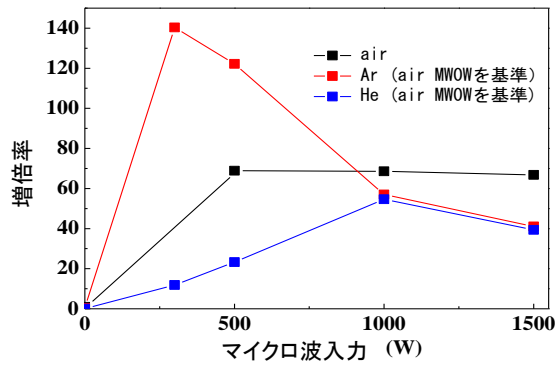
マイクロ波重畳による発光スペクトル増倍例



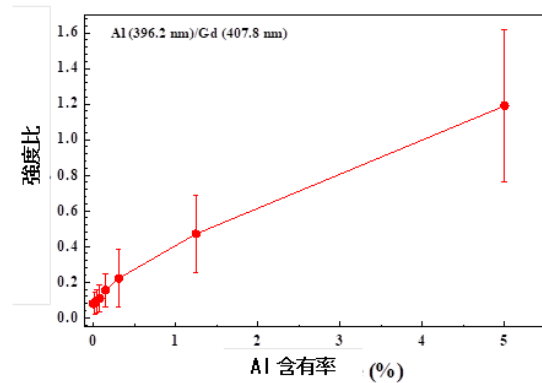
マイクロ波による発光時間の延長効果



500 Wではほぼ飽和し、1500 Wまでほとんど変化がなかった。Ar ガス雰囲気では、低い入力 300 Wで 140 倍と大きな増倍率が得られるが、それ以上の入力では増倍率が減少し、1500 Wでは増倍率が約 40 倍で大気雰囲気よりも低くなり、入力が大きすぎると逆効果になることが分かった。He ガス雰囲気では、大気雰囲気よりむしろ増倍率が下がり、マイクロ波入力 1000 Wで約 50 倍となった。



各ガス雰囲気での増倍率のMW入力依存性



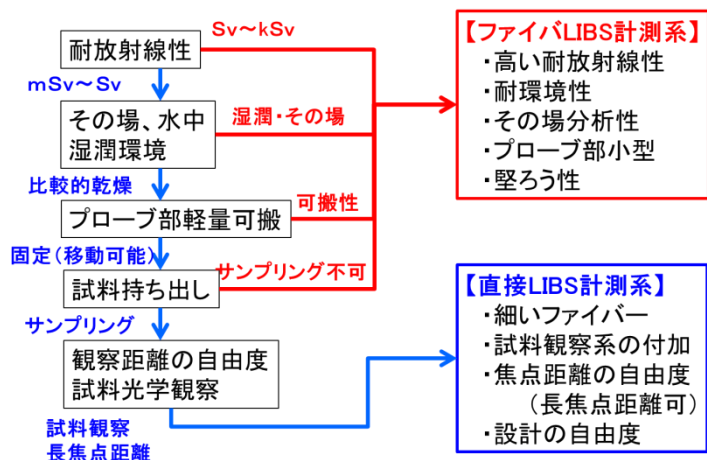
MW 支援時の Gd 中に含有させた Al の検量線

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に様々な濃度で Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を含有させた試料を用い、検量線を得た。マイクロ波の効果により 1 ショットでも感度が高くなるが、標準偏差が大きく、精度を上げるためには数 10 ショット～100 ショット程度の積算が必要となる。十分な積算により、100 ppm 程度の検出下限が得られる可能性があることが分かった。

### 1.2.5 利用するレーザーの特徴と廃炉現場への適用性

従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。

レーザー光源からの光を直接搬送し LIBS 計測に適用する方法、光ファイバーで搬送する方法並びに従来レーザー光源を用いた LIBS 計測とロングパルスレーザー、マイクロチップレーザーを用いた LIBS 法について、その特徴を評価した。光源による比較の結果、ロングパルスレーザーは、高強度光伝送や時間分解分光に適するものの、光源のより高度な安定性が必要であること、マイクロチップレーザーは、より長距離な光伝送やレーザー光の集光性に優れ、発光分光も可能なことが確認された。用途、使用条件に合



LIBS 計測手法の適用選択チャート例

わせた選定が重要となる。

### 利用するレーザーの特徴とその適用性

光源 評価項目	従来レーザー (10 ns)	ロングパルスレーザー (100 ns)	マイクロチップレーザー (>1 ns)
手法の適用性 (直接 LIBS、ファイバーLIBS)	直接 LIBS、ファイバーLIBS に活用可。比較的万能。	直接 LIBS、ファイバーLIBS に活用可。	光ファイバーを介さないため遠隔でも集光特性を失わず、直接 LIBS の特性が得られる。
耐放射線性	高い耐放射線性 10kGy/h, >MGy	高い耐放射線性 10kGy/h, >MGy	炉内の高線量環境課では問題あり。 Gy/h、kGy程度の耐放射線性有り。
光ファイバーLIBS での光ファイバー条件	伝送エネルギーに制限。 ファイバー直径は比較的太い。 柔軟性に欠ける。 50m 程度	高強度エネルギー伝送が可能。 ファイバー直径を若干細くできる。 多少柔軟。 50m 程度	細く柔軟なファイバーの利用可能 超長距離伝送が可能
発光特性	レーザー光強度に対して LIBS 信号が飽和傾向。	レーザー強度に対して LIBS 信号が飽和しにくく、プラズマ発光強度が高い。 自己吸収が観測され易い。 増倍効果あり	従来レーザーとほぼ同じ。 バーストモードで強度増倍あり
レーザーの安定性 取り扱い性	出力安定性、取り扱いの安定性は高い。	開発品で、出力安定性、取り扱い安定性に難がある。	小型化可能。二倍高調波の利用が可能。 パルス幅が短くエネルギーの時間密度が高いため、試料の穿孔性が強い。厳密な制御がしにくい。

### 1.3 平成 30 年度の成果

#### 1.3.1 耐放射線性光ファイバーの透過特性

放射線環境下での光ファイバーの挙動として、着色による光吸収が伝送損失を増大させることが知られている。放射線により生じる光吸収の主な要因は、光ファイバー製造時に導入されたガラス (SiO<sub>2</sub>) の不完全構造の多寡によるものである。耐放射線性の改善策としては SiO<sub>2</sub> の初期欠陥や照射欠陥を他の分子やイオンの結合で埋めて電荷捕獲を抑制する方法が採られる。例えば、水酸基 (OH) や水素分子 (H) を光ファイバー内で拡散させる、またフッ素 (F) を光ファイバー内に拡散させるといった処理が行われ、これまでにロシアや日本の製品が試験されており、日本製の光ファイバーが良好な結果を示すことが報告されている。今年度は、高線量率 Co-60 照射下の耐放射線性ファイバーの透過特性として、放射線耐性を有するフッ素ドープ石英光ファイバーアSEMBル品[1]を用いて、これにガンマ線照射と照射による特性劣化の回復処理を施すことで、高放射線耐久化を図り、各工程の伝送特性を測定評価するとともに、耐放射線性光ファイバーケーブルの LIBS への適用評価に供するため、回復処理を施した供試体の放射線照射中透過率の経時変化を測定してその健全性を調べた。

#### 1) 高耐放射線化処理

回復処理は以下の工程で行なった。

- 1) 光ファイバーアSEMBル品にガンマ線照射を行うことで光ファイバー中の不完全結合部を切断し、光の吸収帯を持つ欠陥を生成させる。
- 2) ガンマ線照射後の光ファイバーに、メーカー固有技術による光ファイバー中の光吸収欠陥の修復処理を施す。
- 3) 修復処理により、放射線照射によって生じた光吸収損失を消滅させ、かつ放射線照射による吸収欠陥の生成を抑制し、光ファイバーの耐放射線性を高める。

光ファイバーアSEMBル品の仕様を表 1.3.1-1 に示す。なお、ガンマ線照射条件は以下の通り。

1 回目(劣化処理用)：累積線量 2 MGy (線量率 約 10 kGy/h)

2 回目(耐放射線性評価用)：累積線量 1.18MGy (線量率 9.34 kGy/h)

表 1.3.1-1 光ファイバーアSEMBル品仕様 (両端 SMA コネクタ処理)

メーカー名	材質	コア径	クラッド径	NA	長さ
フジクラ	フッ素ドープ石英	800 μm	880 μm	0.12	15 m

#### 2) 評価方法

初期、ガンマ線照射後、高耐放射線化処理後、高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の分光透過特性を波長域 350nm~950nm で測定した。また、ガンマ線照射前後と高耐放射線化処理後、高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の光出力特性を比較することでガンマ線照射による伝送特性の劣化とその回復度合いを評価した。光ファイバーアSEMBル品の透過分光特性を評価する測定系を図 1.3.1-1~図 1.3.1-4 に示す。使用機器分光器は、1) ミニ分光器 C10082MD (浜松ホトニクス (株) 製) (波長：350-800 nm)、2) ミニ分光器 C9405MC (浜松ホトニクス (株) 製) (波

長：700-950 nm)、光源は、高出力紫外-可視ファイバー光源 L10290 (浜松ホトニクス (株) 製) を用いた。

### 3) 測定・評価結果

初期の伝送特性に対するガンマ線照射後、高耐放射線化処理後、高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の特性変動を各々評価した。

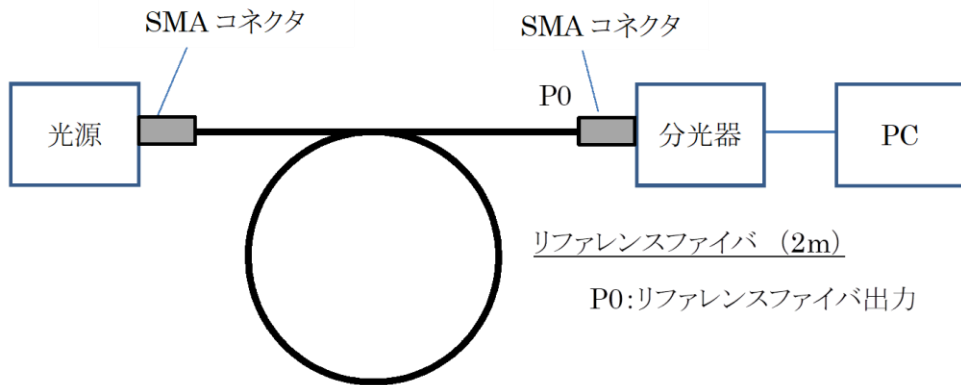


図 1. 3. 1-1 分光透過特性の測定系(リファレンス測定)

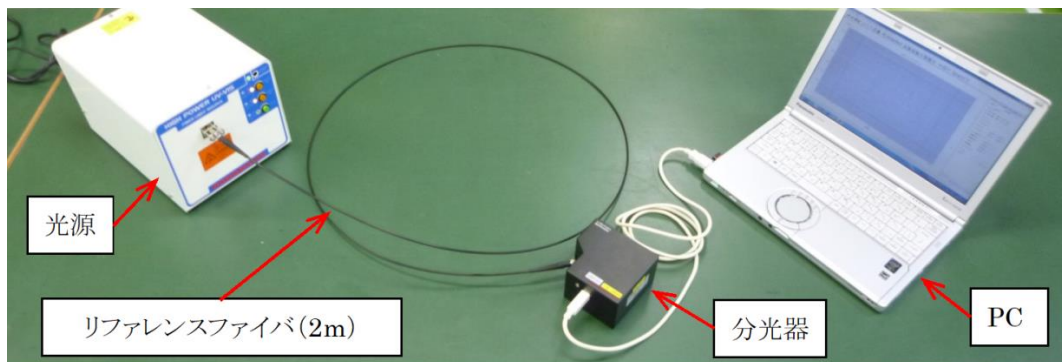


図 1. 3. 1-2 分光透過特性測定系写真(リファレンス測定)

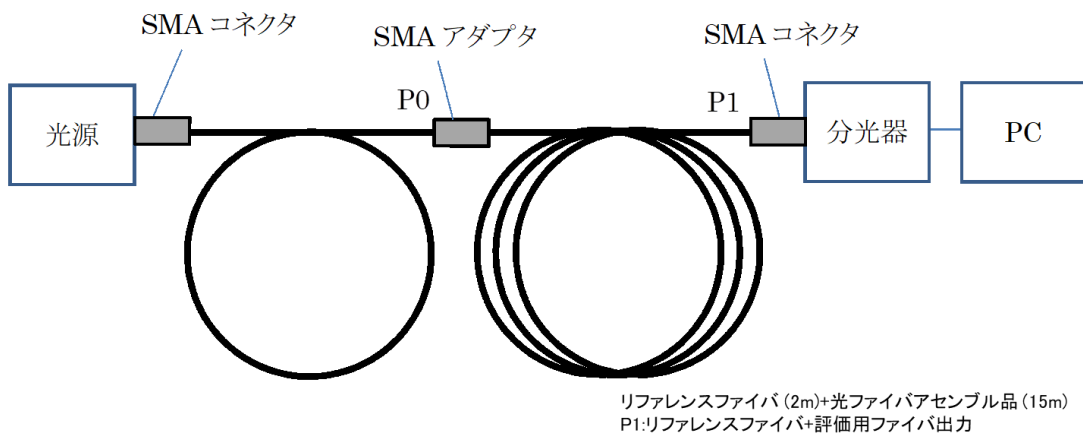


図 1. 3. 1-3 分光透過特性測定系

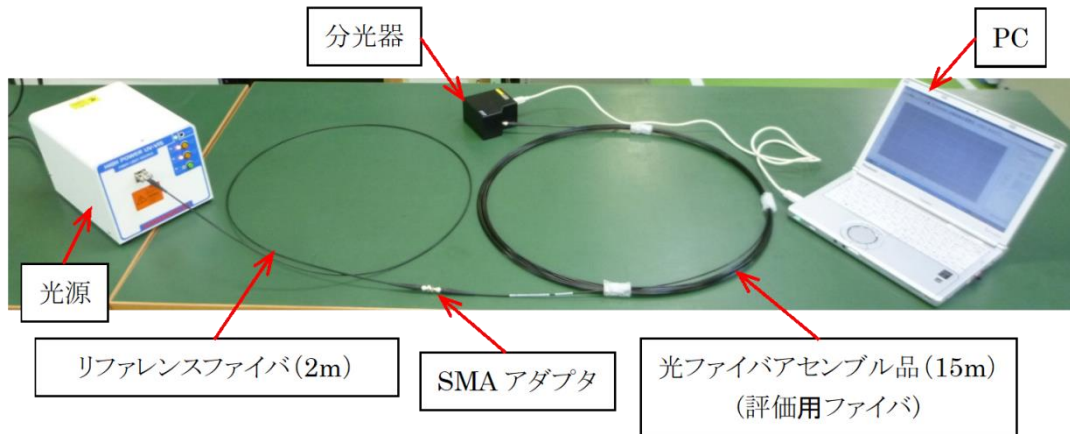


図 1. 3. 1-4 分光透過特性測定系写真

### ①ガンマ線照射後の特性

ガンマ線照射処理後の評価用光ファイバアSEMBル品の伝送特性を図 1. 3. 1-5、図 1. 3. 1-6 に示す。光ファイバアSEMBル品の初期の透過出力 (P0) を 100% とし、照射後の透過出力 (P1) を初期との比率で表したものである。ガンマ線照射後の波長 650 nm 以下は光がほとんど通らないところまで劣化して測定不能となった。ガンマ線照射後で光ファイバアSEMBル品の透過効率が大幅に低下していることから、放射線エネルギーにより光ファイバ中に吸収欠陥が十分に生成されたことを確認した。

ガンマ線照射後の伝送特性 (紫外～可視)

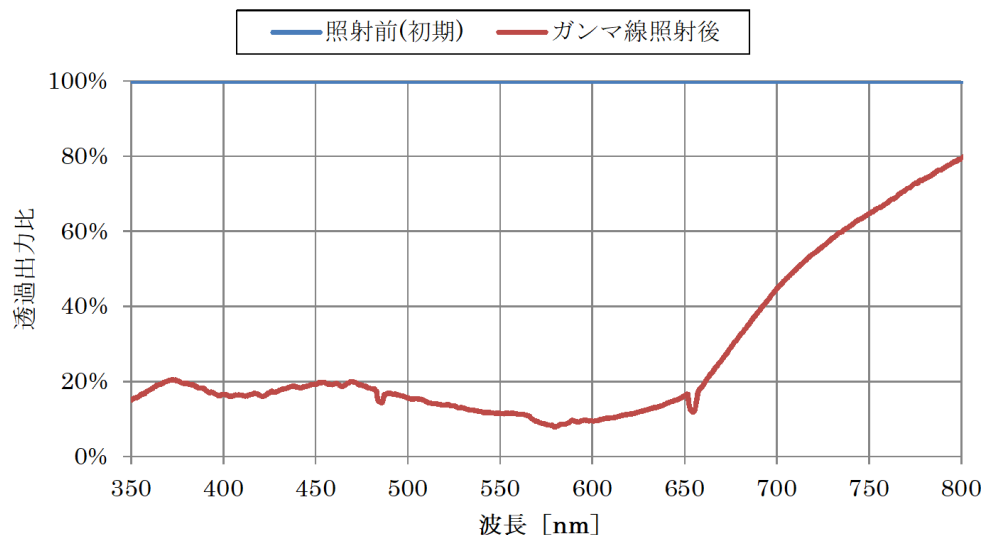


図 1. 3. 1-5 ガンマ線照射後の伝送特性 (P1/P0) 【紫外～可視】

ガンマ線照射後の伝送特性（可視～近赤）

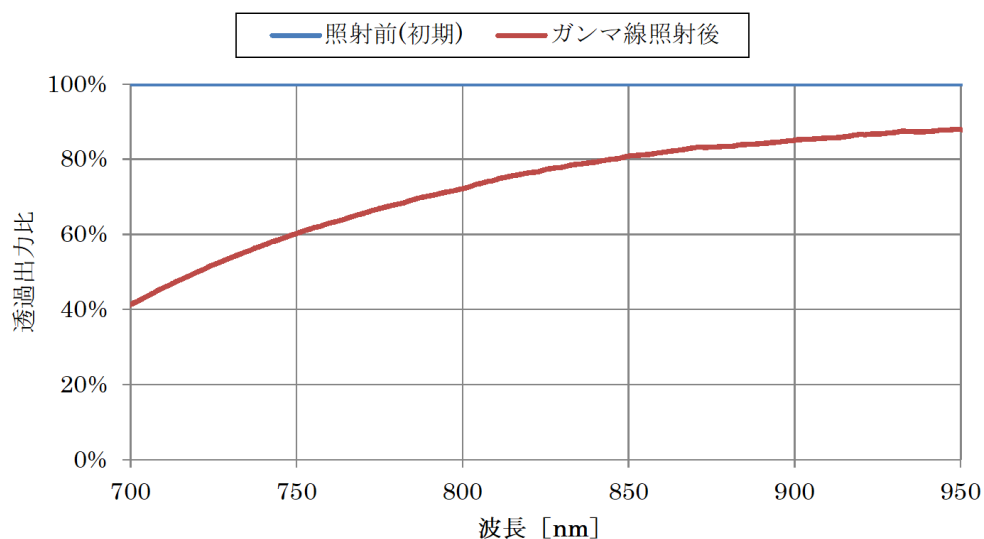


図 1.3.1-6 ガンマ線照射後の伝送特性 (P1/P0) 【可視～近赤】

②高耐放射線化処理後

当該光ファイバーアSEMBル品に高耐放射線化処理を施した。処理後に伝送特性を再度測定し、ガンマ線照射後の伝送特性劣化の回復状態を評価した。結果を図 1.3.1-7、図 1.3.1-8 に示す。光ファイバーアSEMBル品の初期の透過出力 (P0) を 100%とし、照射後の透過出力、高放射線処理後の出力 (P1) を初期との比率でしたものである。高耐放射線化処理により、波長 350-950 nm において伝送特性がほぼ初期状態まで回復したことを確認した。

高耐放射線化処理後の伝送特性（紫外～可視）

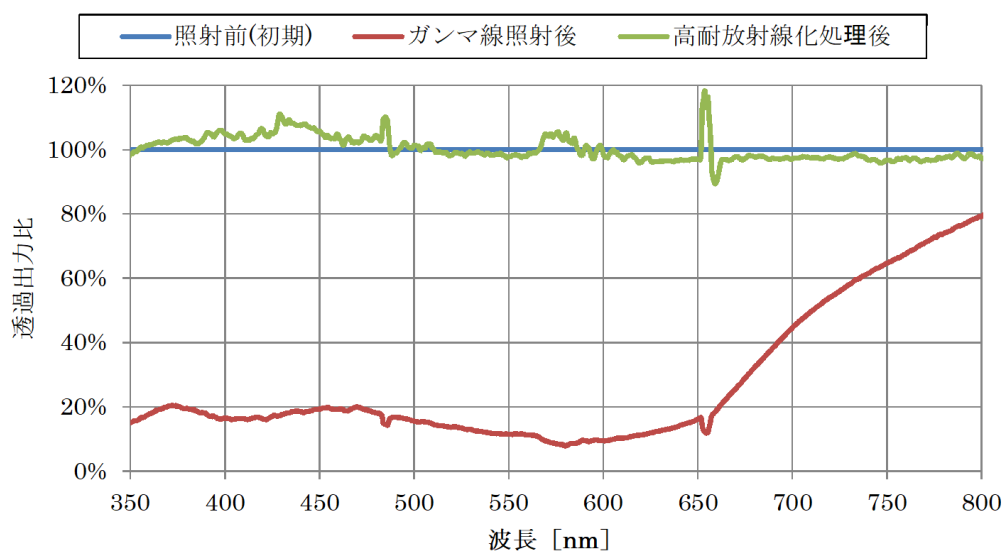


図 1.3.1-7 高耐放射線化処理後の伝送特性 (P1/P0) 【紫外～可視】

高耐放射線化処理後の伝送特性（可視～近赤）

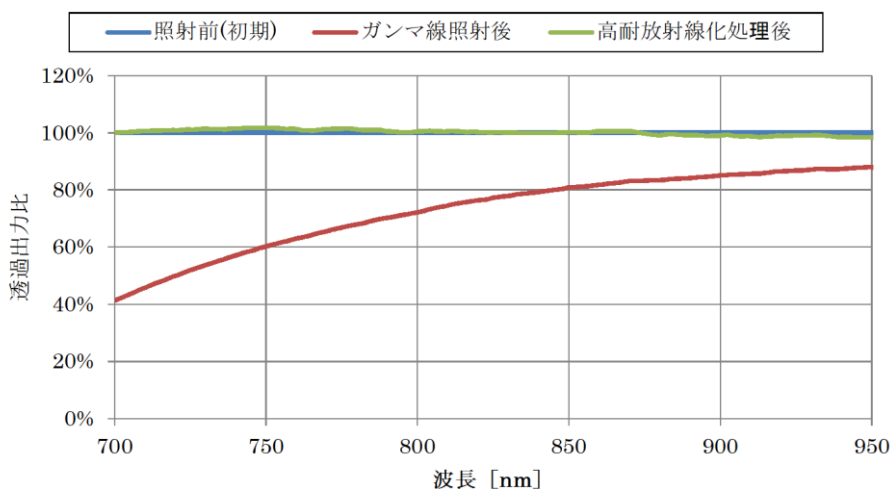


図 1.3.1-8 高耐放射線化処理後の伝送特性 (P1/P0) 【可視～近赤】

### ③高耐放射線化処理後のガンマ線照射後

高耐放射線化処理を施した光ファイバーアSEMBル品に再度ガンマ線照射を行い、処理後に伝送特性を再度測定し、伝送特性の状態を評価した。結果を図 1.3.1-9、図 1.3.1-10 に示す。光ファイバーアSEMBル品の初期の透過出力 (P0) を 100% とし、照射後の透過出力、高放射線処理後の出力、高放射線処理後の照射後出力 (P1) を初期との比率で表したものである。高耐放射線化処理を施したことにより、ガンマ線照射後でも波長 450 nm 以降において、伝送特性の回復効果が十分維持されていることを確認した。高耐放射線化処理を施した光ファイバーにおいても 1 MGy を超えるガンマ線照射によって紫外域に吸収欠陥が生じ、波長 450 nm 以下の短波長域では透過出力の低下が生じることを確認した。

高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性（紫外～可視）

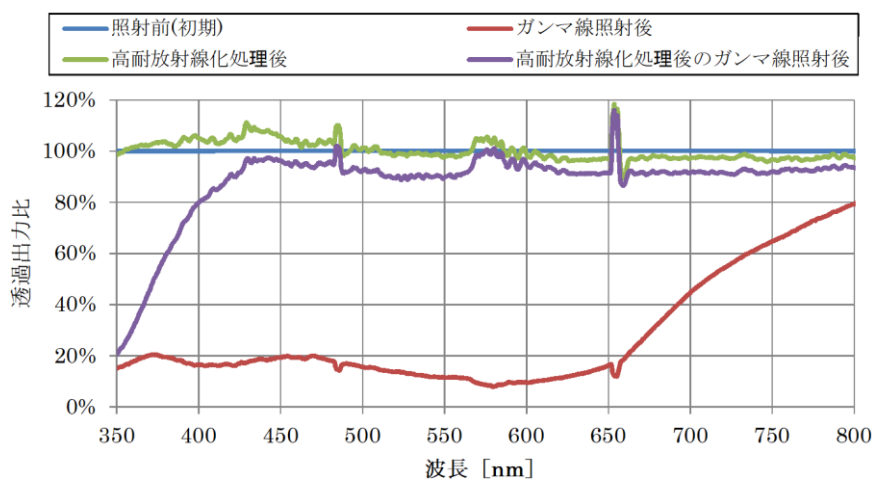


図 1.3.1-9 高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性 (P1/P0) 【紫外～可視】

高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性（可視～近赤）

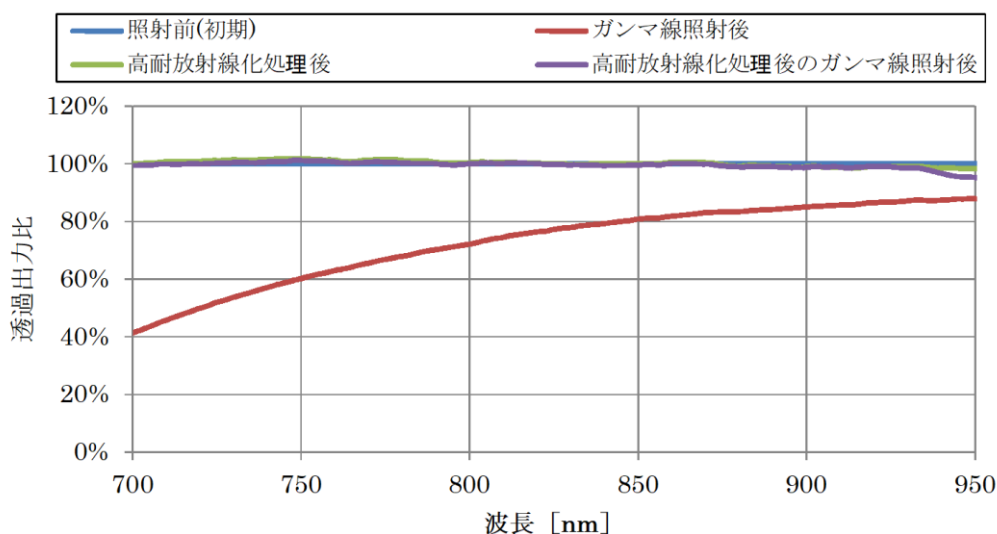


図 1.3.1-10 高耐放射線化処理後のガンマ線照射後の伝送特性(P1/P0)【可視～近赤】

#### ④回復処理後の照射時透過時間変化

測定体系を図 1.3.1-11 に示す。光ファイバーアセンブル品は長さ 15m であるため、放射線の影響を受けない箇所については透過特性の良い市販の光ファイバーケーブル（Thorlabs 製 FG910LEC、NA0.22、L=5 m、Low-OH タイプ）を接続して延長させた。中心付近を直径 420 mm で 3 巻（長さ約 1.3 m）しガンマ線線源保護板に密着させた。このときの線量率は 9.34 kGy/h である。光源に重水素・ハロゲンランプ（Avantes 社製標準重水素・ハロゲン光源 AvaLight-DH-S）を用いて光ファイバーに導入して透過光を分光器（StellarNet 社製ファイバマルチチャンネル分光器 Silver-Nova、波長分解能 1 nm、波長域 190～1110 nm）で光源スペクトルの変化を測定した。測定積算は 900 ms 露光、5 回平均とした。

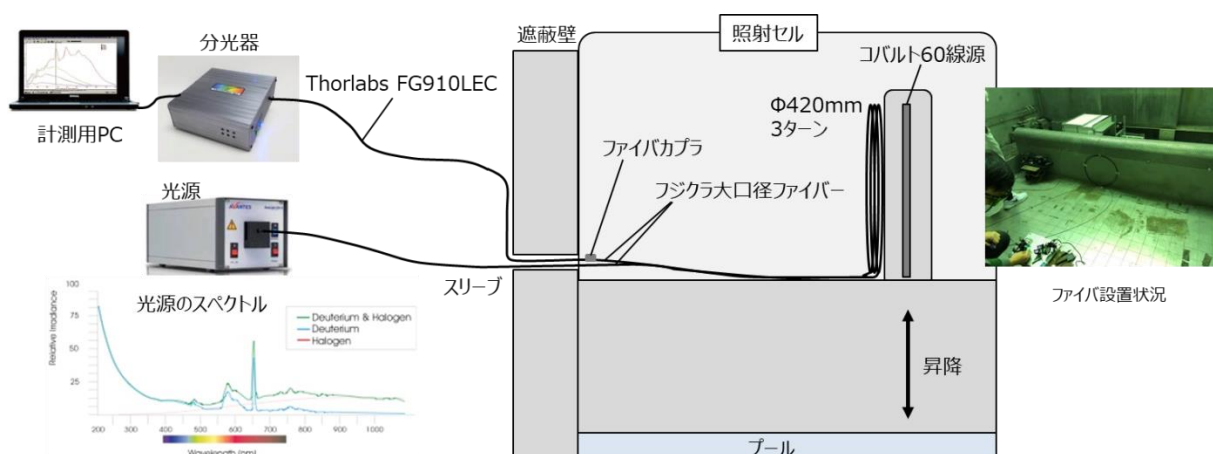


図 1.3.1-11 回復処理後の照射時透過時間変化測定体系

図 1.3.1-12 は、上記 1.3.1 3) ②の処理後においてガンマ線照射開始からの透過スペクトルの変化を示したものである。600 nm 付近で若干変化をみられるものの、可視波長域以降は放射



線の影響を受けないことが確認できた。一方、500 nm より短い紫外可視波長域の透過率は、ガンマ線照射直後から低下することがわかった。上記 1.3.1. 3) ③の処理後に再度ガンマ線照射中の透過スペクトル変化を測定した。図 1.3.1-13 はその結果で、光源からの光を導入せずにガンマ線を照射した場合（図中の黒線）、500 nm を中心としたフッ素ドープ石英ファイバーからの自発光が観測された。この発光は目視でも確認可能であった。図中青線はガンマ線照射無しの場合であり、ガンマ線照射で赤線のように、500 nm 付近では自発光部の下駄を履いていることがわかる。これまで、高 OH 濃度石英ファイバーを用いて観測した実績がある。しかし、フッ素ドープの場合は発光強度が高く、光源からの光透過スペクトル測定時は注意が必要となる。

主要波長におけるガンマ線照射時にファイバー透過出力の経時変化を図 1.3.1-14 に示す。縦軸は、ガンマ線照射前のファイバー透過出力を 100%として相対評価した値である。ガンマ線の照射有無 (On, Off) は黒線で示した。図 1.3.1-15~1.3.1-17 の A、B、C は時間を拡大したものである。近赤外波長以降はほとんど変化しないが、紫外可視波長域での変化が大きい。なお、530 nm での出力については石英ファイバーの自発光成分が含まれているため、見かけ上は増加しているように見える。A では、ガンマ線照射開始とともに、紫外波長域の透過が急激に低下して数分で低下が収まり、照射を止めると直ちに回復する様子がわかる。また、395 nm は長時間経過であっても透過出力が 30%程度の低下にとどまった。この透過出力は緩やかに回復する。このことは、図 1.3.1-9 の紫外波長域の伝送特性からも確認できる。照射後の可視波長域の透過は、照射前の状態まで回復し、回復速度は照射時間によることがわかった。

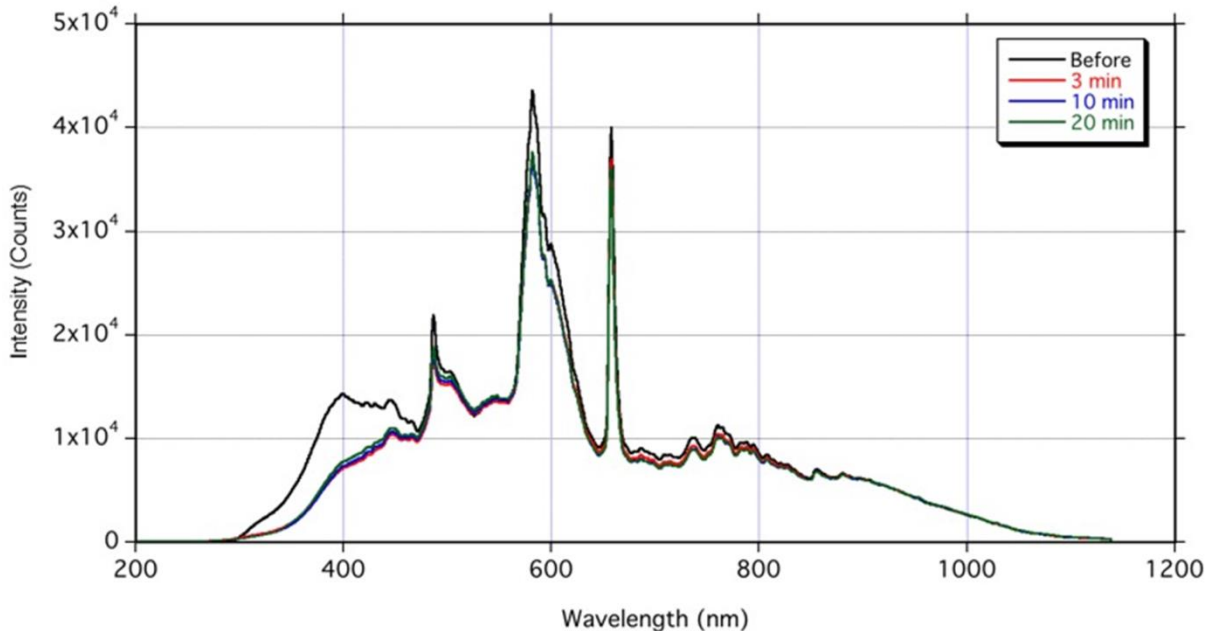


図 1.3.1-12 ファイバー透過後の光源スペクトルの変化

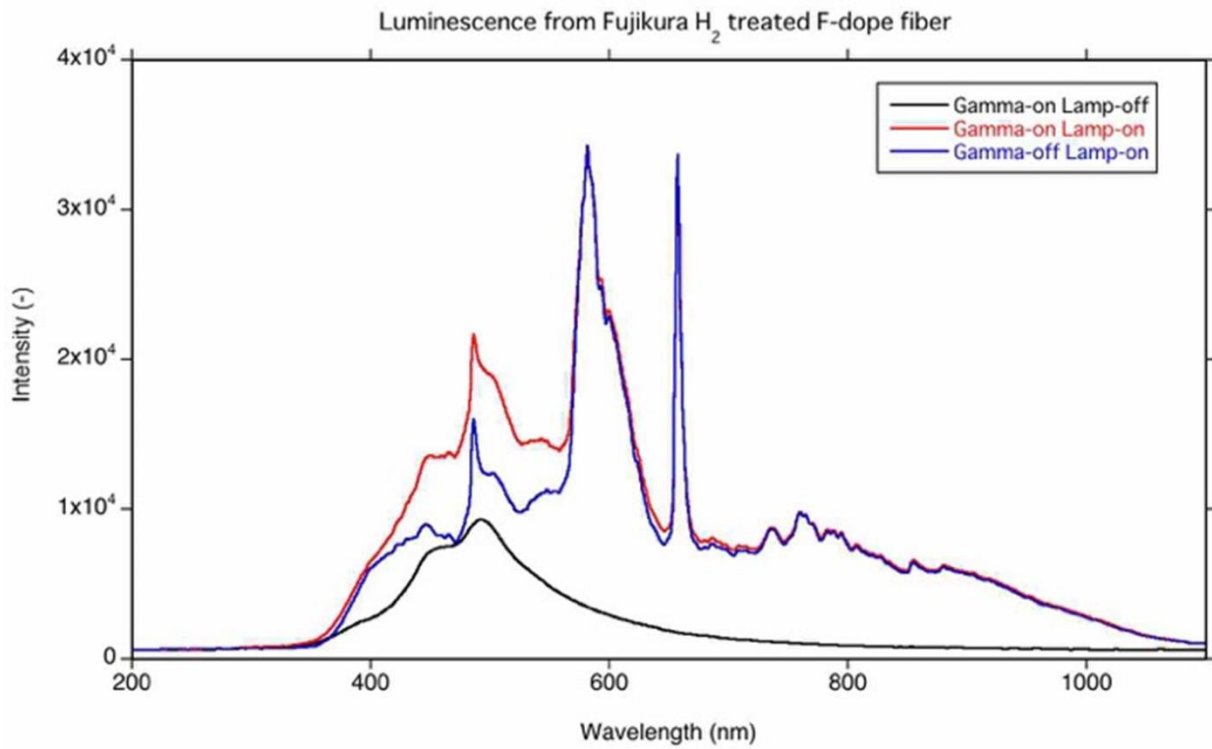


図 1.3.1-13 フッ素ドープファイバーの自発光の影響

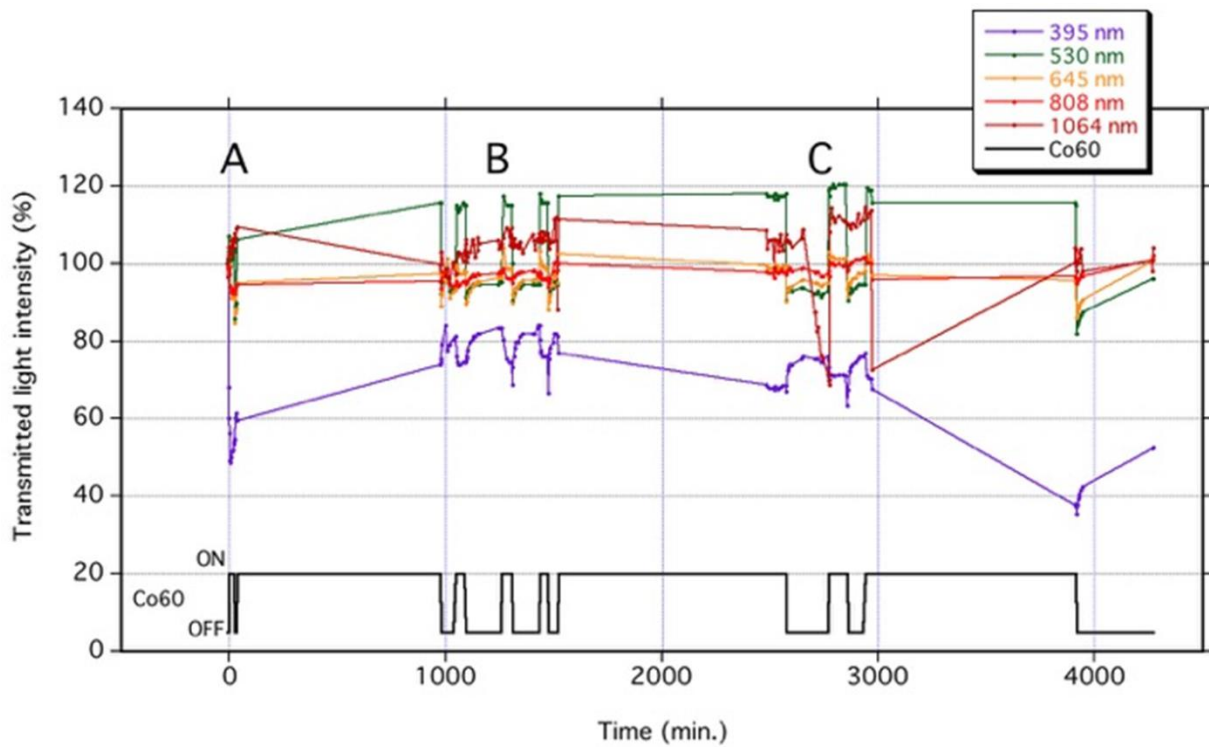


図 1.3.1-14 主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化

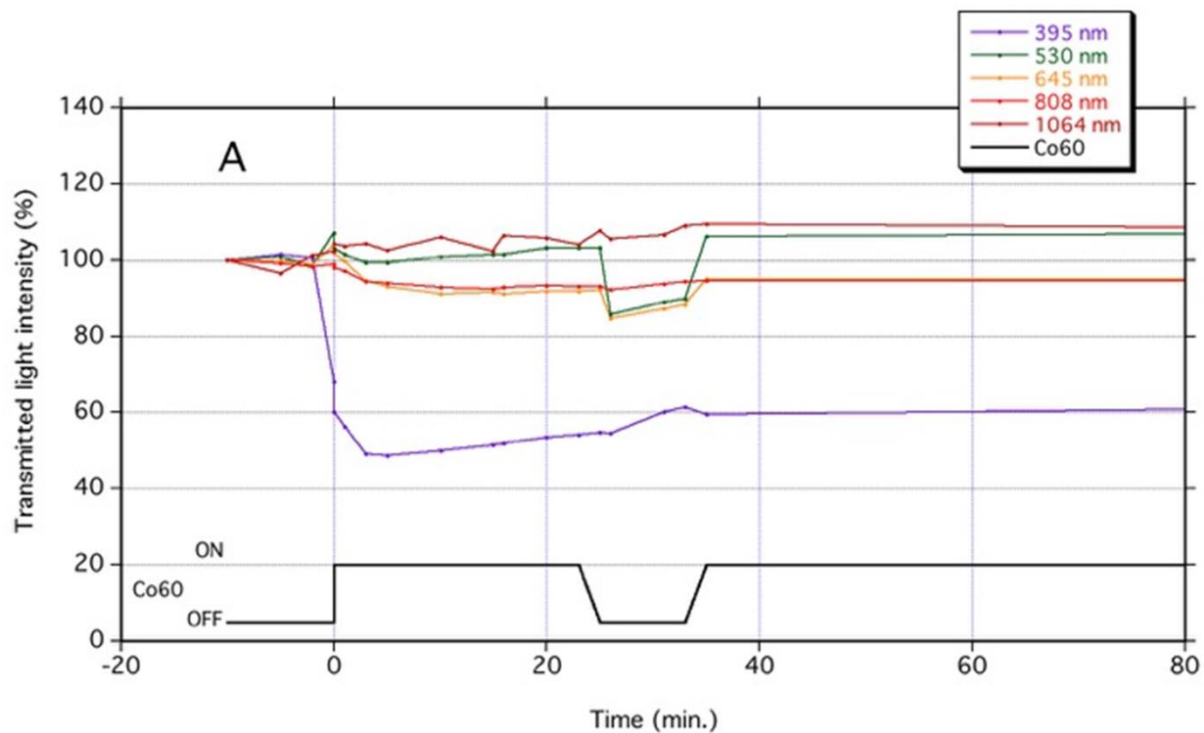


図 1.3.1-15 主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 A

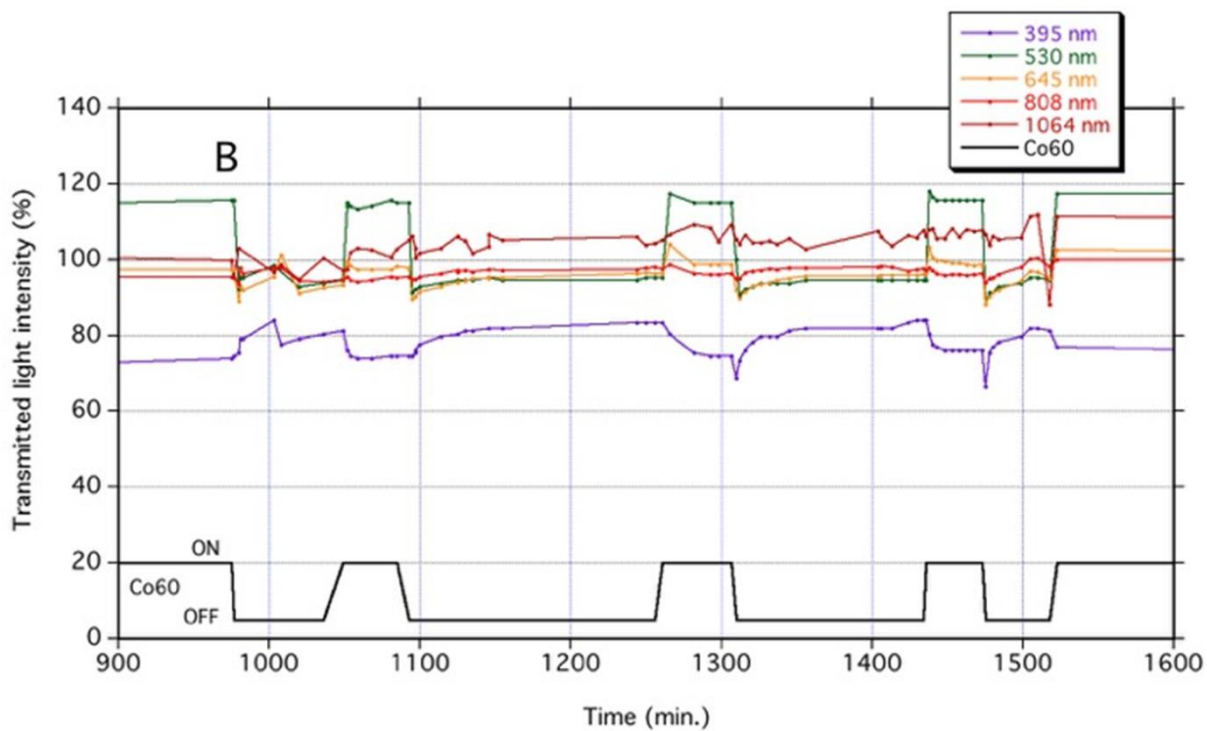


図 1.3.1-16 主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 B

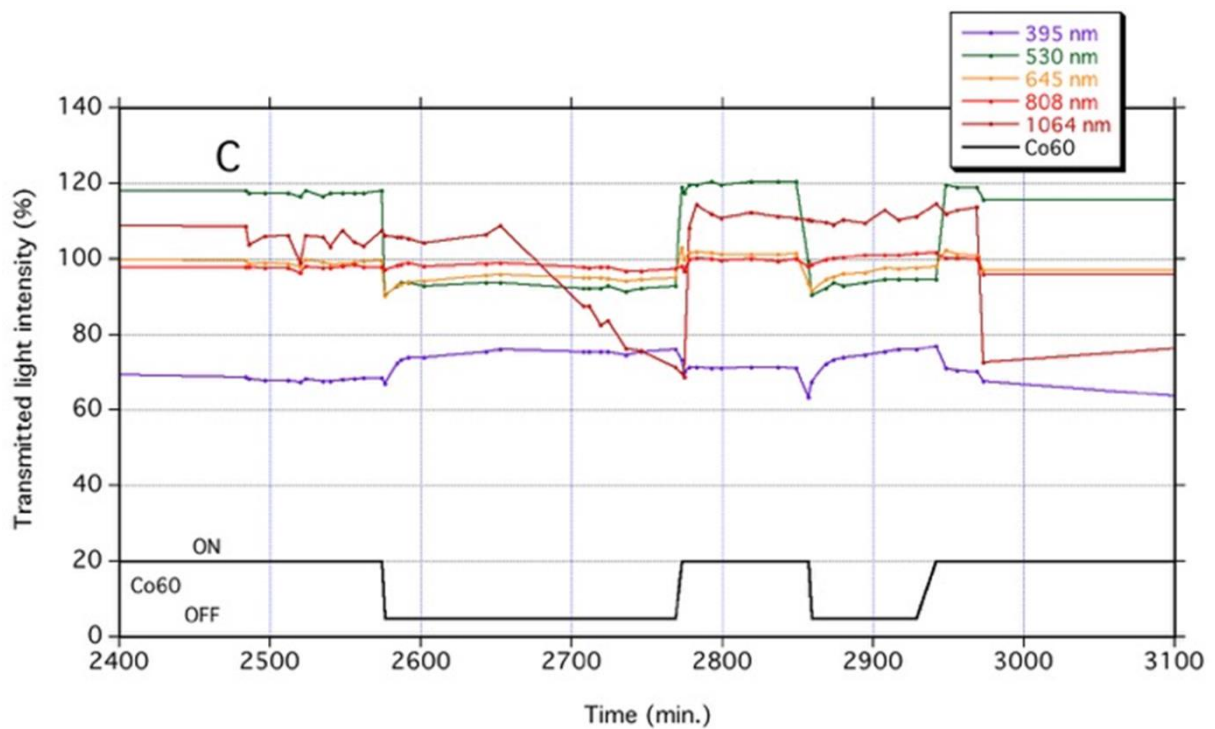


図 1. 3. 1-17 主要波長におけるファイバー透過出力の経時変化 C

#### 4) まとめ

耐放射線性光ファイバーアセンブリを用いたガンマ線照射による透過特性を調べ、以下の知見を得た。

- ・高耐放射線化処理を行うことでほぼ初期の伝送特性レベルまで回復した。
- ・高耐放射線化処理後のガンマ線照射後でも波長 450 nm 以降において、伝送特性の回復効果が十分維持されていた。
- ・回復処理後でもガンマ照射中は特定波長で透過の減少が観測された。
- ・フッ素ドープ光ファイバーは、ガンマ線照射により可視域で自発光する。

なお、自発光強度は約 1 秒の露光時間で観測されたものであり、レーザープラズマ発光に比べて弱い。またレーザープラズマは 2 マイクロ秒程度で時間分解観測するため、自発光由来のベースラインの上昇は LIBS 測定には影響が無いと思われる。

#### 参考文献

- [1] 公開特許公報 特開 2017-32972

### 1.3.2 遠隔その場元素分析技術へのマイクロチップレーザーLIBS 適用可能性評価

量研機構等で開発したマイクロチップレーザーLIBSプローブを  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を主成分とする模擬デブリへの適用を試みた。 $\text{CeO}_2$  は核燃料である  $\text{UO}_2$  の模擬、Zr は燃料被覆管、Fe は構造材の主成分である。また、中性子吸収材として燃料棒の一部に含有されている  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  を添加し、模擬デブリ中の Gd を検出することを目的とした。模擬デブリ中の Gd は、臨界管理を行う上で重要な指標になると考えられる。はじめに、酸化物試料 ( $\text{CeO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ) を混合してボールミルに投入し、粉末試料を作製した。 $\text{Gd}_2\text{O}_3$  の重量濃度は、0.1, 0.25, 0.5, 1.0, 2.5% とした。このとき、Ce, Zr, Fe の重量比が一定となるよう、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$  を混合した。表 1.3.2-1 に模擬デブリ中の各元素の重量濃度を示す。次に、粉末試料を 0.5 g 取り出し、10 kN で錠剤成型した。その後、1350°C で5時間の焼成を行い、模擬デブリとした。

表 1.3.2-1 模擬デブリ中の各元素の重量濃度 (%)

$\text{Gd}_2\text{O}_3$	Ce	Zr	Fe	Gd
0.1	45.0	24.2	8.3	0.1
0.25	44.9	24.2	8.3	0.2
0.5	44.8	24.1	8.3	0.4
1.0	44.6	24.0	8.3	0.9
2.5	43.9	23.6	8.1	2.2

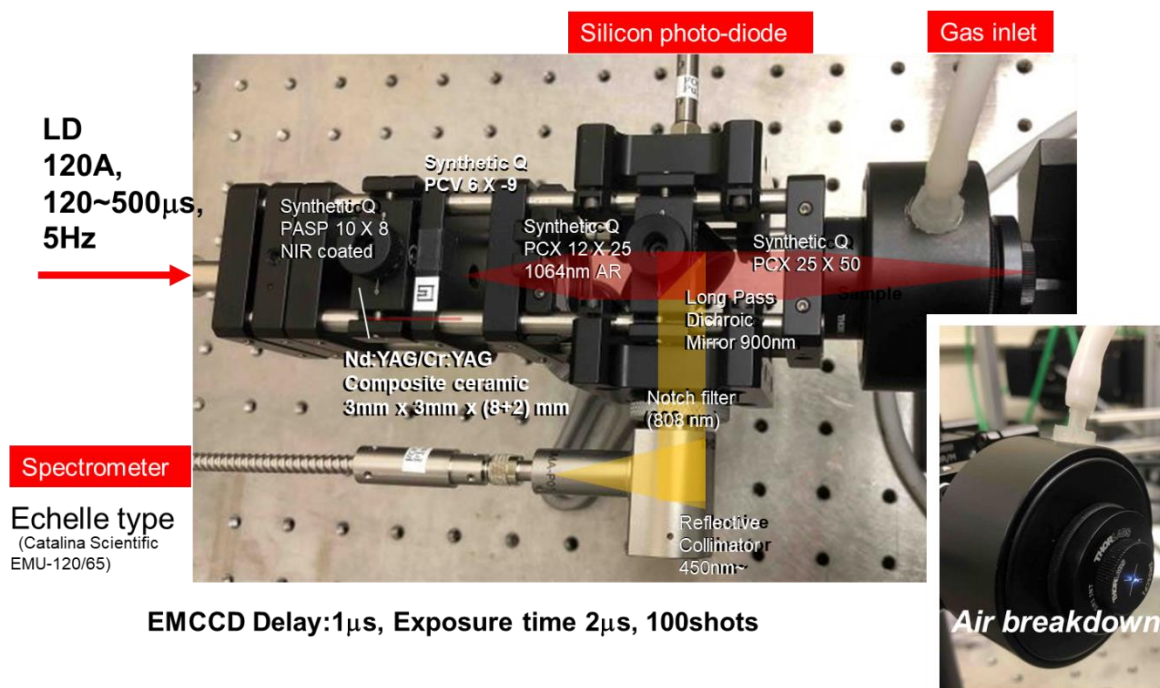


図 1.3.2-1 マイクロチップレーザーLIBS プローブの外観



## 1) 実験装置

マイクロチップレーザーLIBSプローブの外観を図 1.3.2-1 に示す。コントローラ（ユニタック製、PLWB168）付き LD（JENOPTIK 製、JOLD-120-QPXF-2P iTEC）からの 808 nm の励起レーザー光をコア径 600  $\mu\text{m}$ 、NA0.22、長さ 5 m の光ファイバーで伝送して複合セラミックレーザー媒質（Baikowski Japan 製、1.1%Nd<sup>3+</sup>:YAG/Cr<sup>4+</sup>:YAG 接合体、T=30%、3 mm×3 mm×10 mm）に照射して、パルス幅～900 ps の 1064 nm レーザー光を発振させた。その後  $f=50\text{mm}$  のレンズで集光して試料に照射しプラズマを生成させた。試料と集光レンズ間はガス雰囲気での観測ができるようにパージボックスを備えており、先端部を試料に接触させることで最適なプラズマ発光ができるように調整している。試料表面でのレーザーエネルギーは 0.6 mJ/pulse である。なお、本測定ではアルゴンガスを 2 l/min の流量でフローさせた。計測トリガーはレーザーヘッド内から発振光を取り出してシリコンフォトダイオード（Thorlabs 製、DET08C/M）で検出することにより LIBS 計測を行った。発光プラズマはレーザーヘッド内でダイクロイックミラー（Thorlabs 製、DMLP900）を用いてレーザー光と分離して分光器に導いた。分光計測は、多元素で且つ発光線が干渉するため、EMCCD 付き高波長分解能エシエル型分光器（Catalina Scientific 製、EMU120/65）を用いてレーザー照射から 1.0  $\mu\text{s}$  後の 2.0  $\mu\text{s}$  間露光し、100 回積算した。

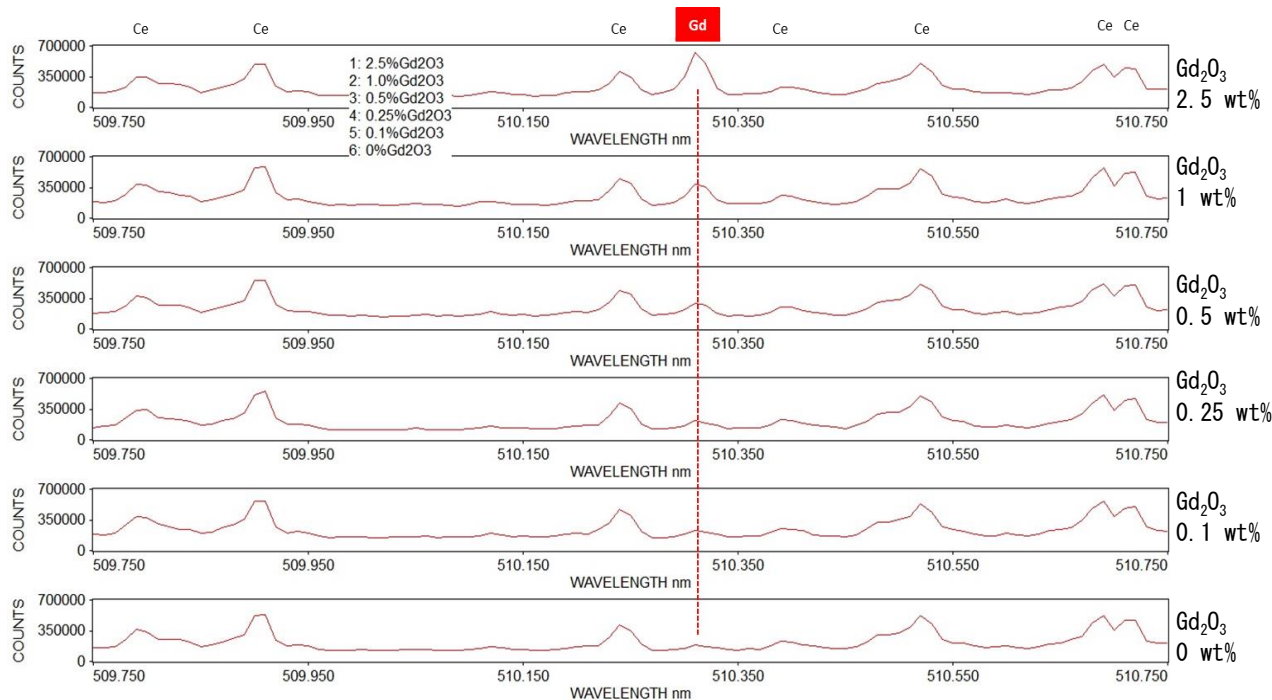


図 1.3.2-2  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  濃度の異なる発光スペクトルの観測例

Ce : Fe : Zr = 60 : 35 : 5、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$  : 0～2.5 wt%

## 2) 発光スペクトルの取得と評価

ウランやセリウムは複雑な電子構造を持つために多くの発光線が出現する。また、鉄やジルコニウムの遷移元素についても多くの発光線が存在する。図 1.3.2-2 は  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  濃度の異なる発光スペクトルの観測例で、下図から濃度 0～2.5% で表示した。波長 510.34 nm（図中破線）の Gd I ピーク高さは濃度とともに変化し、0.1%でも検出できることを示している。なお、検知された Gd のピークは 430～540 nm の波長域に複数観測されるものの、690 nm よりも長波長では確認で

きなかった。その中で、本実験条件の混合系試料において他元素 (Fe, Zr, Ce(U)) との干渉がなく識別が可能な波長として、476.72、501.50、510.34 nm のピークが定性分析に有望であると確認された。

定量分析の可能性を検討するために、模擬デブリ中の濃度に対して Gd の発光線強度をプロットし、検量線を作成した (図 1.3.2-3)。ここでは、縦軸の値として Gd の非共鳴線 (下準位≠基底準位) (476.72、510.34 nm) のピーク強度を使用した。選択波長によりばらつきはあるものの、燃料デブリ中の濃度に比例して Gd の発光線強度が増加した。相関係数はそれぞれ、 $R^2 = 0.971$ ,  $0.997$  であった。傾きと Gd 濃度が 0% 時の標準偏差から検出下限を見積ると約 0.1% であった。

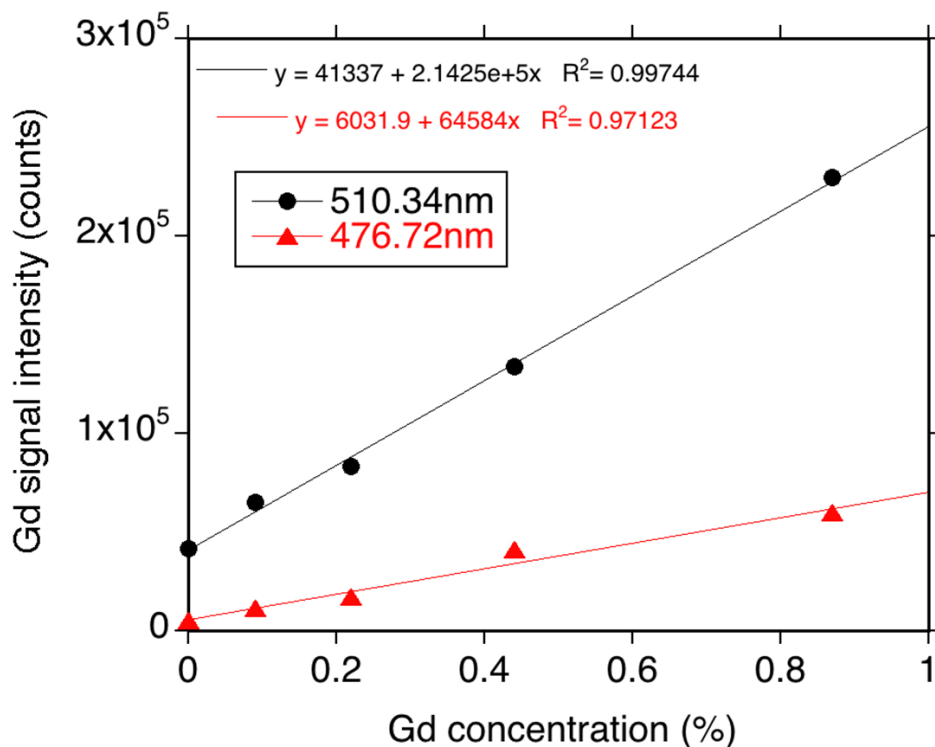


図 1.3.2-3 模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd の発光線強度

続いて、燃料デブリの主成分かつ U の代替材料である Ce を内部標準として、Gd の検量線の作成を試みた。このとき、観測波長及び上準位のエネルギーができるだけ近くなるような発光線を選択した (表 1.3.2-2)。Ce に対する Gd の発光線強度の比 ( $I_{Gd476}/I_{Ce474}$ ,  $I_{Gd510}/I_{Ce474}$ ) をプロットした検量線を図 1.3.2-4 に示す。どちらの強度比を用いても、相関係数が良好であることが確認された。発光線強度の比をとることで、プラズマのパラメータのばらつきによる発光線強度の変化が相殺されたと考えられる。参考のために、従来型のファイバー伝送 LIBS で測定した同試料の検量線を図 1.3.2-5 に示す。レーザー出力は 10 mJ/pulse である。相関や傾きは双方とも一致することがわかり、分析性能は同等であることが確認された。

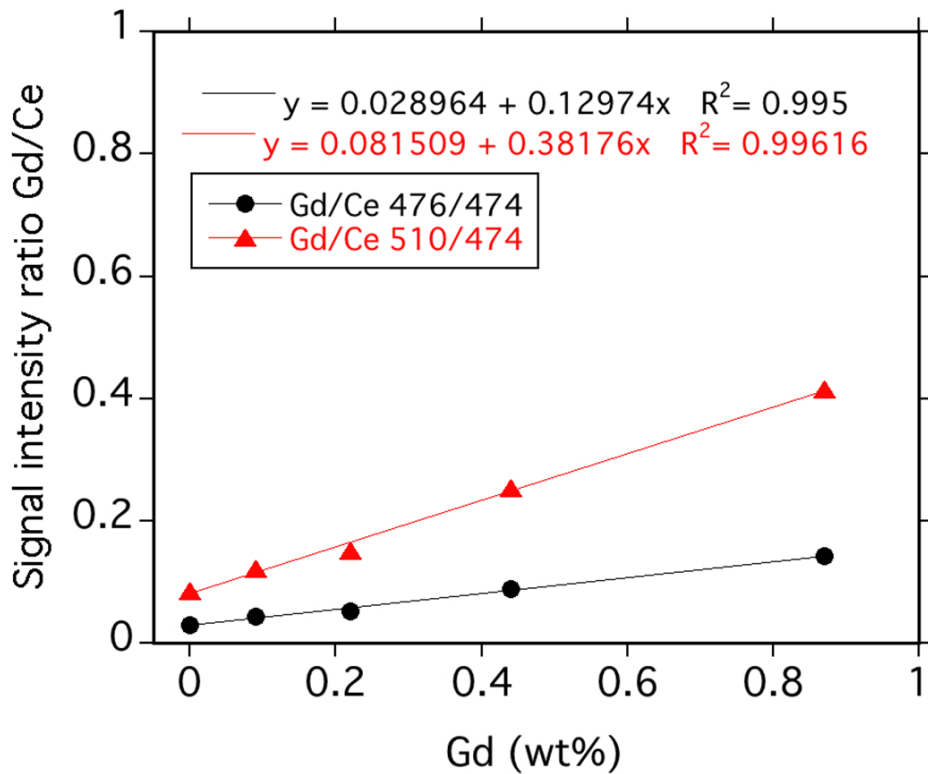


図 1.3.2-4 模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd/Ce の発光線強度比(マイクロチップ LIBS)

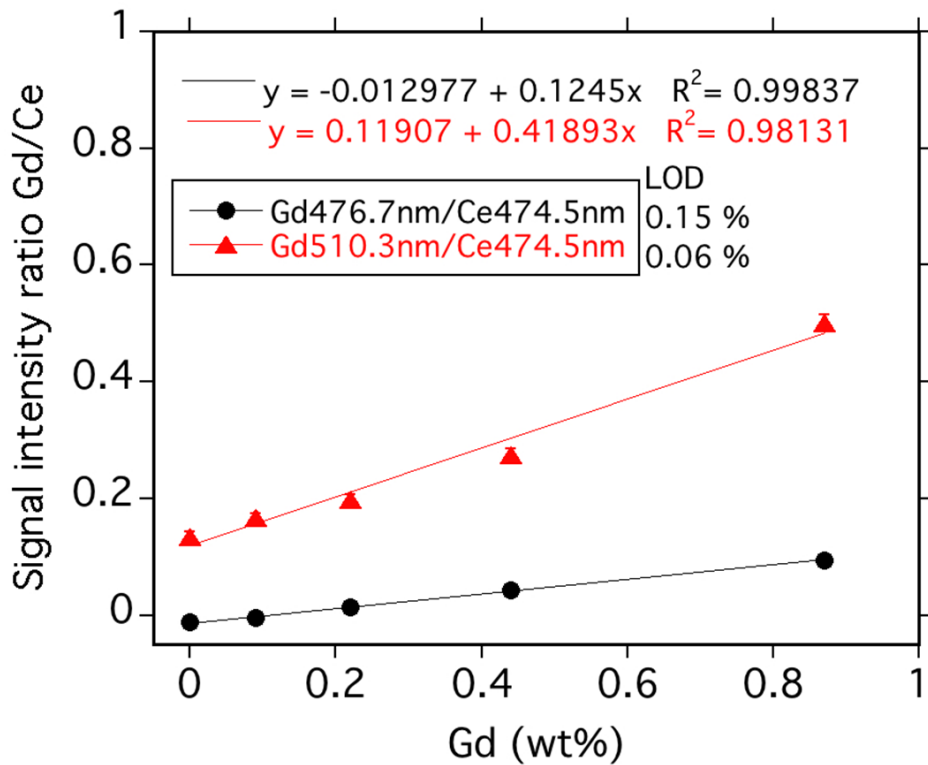


図 1.3.2-5 模擬デブリ中の Gd 濃度に対する Gd/Ce の発光線強度比(従来型ファイバー LIBS)



表 1.3.2-2 Ce と Gd の波長データ

$\lambda$ (nm)	Element	$A$ ( $s^{-1}$ )	$E_l$ ( $cm^{-1}$ )	$g_l$	$E_u$ ( $cm^{-1}$ )	$g_u$
474.48	Ce I	$3.74 \times 10^7$	7780	13	28850	11
476.72	Gd I	$4.81 \times 10^7$	7480	13	28450	11
510.34	Gd I	$4.97 \times 10^7$	7947	15	27536	17

### 3) まとめ

ファイバー伝送マイクロチップレーザーLIBS計測装置を開発し、 $CeO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $Fe_2O_3$ を主成分とする模擬燃料デブリへの適用を試みた。模擬燃料デブリに少量の  $Gd_2O_3$  を添加し、濃度と発光強度の関係（検量線）を調べ、優れた相関が得られた。分析性能は従来型のファイバー伝送 LIBS 計測装置と同等であり、本研究開発においても定量性評価への適用可能性が実証された。

## 2. マイクロ波による原子発光増倍特性（再委託先：イマジニアリング）

### 2.1 目的・概要

原子力機構で開発する LIBS プローブ集光ヘッド部への効率的なマイクロ波伝送を実現するために、プローブヘッド筐体に対するアンテナ等の形状について電磁界解析により評価し、効率的な構造・条件を検討してアンテナ候補を見出す。これまでのノウハウと解析に基づいた結果からアンテナを試作し、アンテナ単体におけるマイクロ波伝送の基礎特性を評価する。これをプローブヘッド筐体に取り付け、レーザー誘起プラズマを起源としてマイクロ波を重畳した分光計測を実施することにより、アンテナ及びマイクロ波の入射条件を最適化し、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価する。

これらの成果、知見を整理し、LIBS 発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめる。

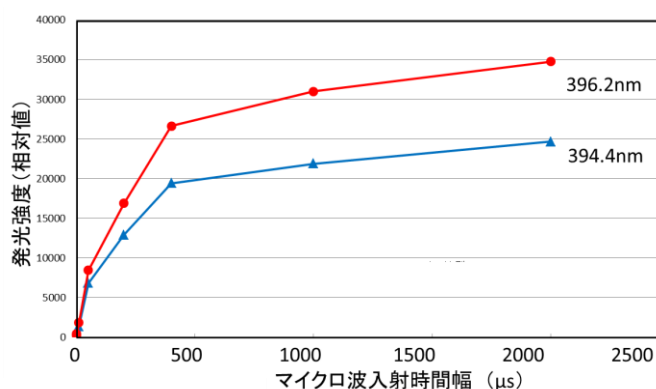
### 2.2 平成 27 年から 29 年度の成果

レーザーを励起源としたマイクロ波支援発光分光システムを整備し、プラズマ発光を確認するとともに、マイクロ波重畳の有無によるスペクトル強度を比較、その効果を評価した。マイクロ波を効率的に伝送するアンテナ形状について、電磁界解析による予備解析を実施した。

コンデンサ型アンテナとコイル型アンテナの2種類のアンテナを試作し、酸化アルミニウム（アルミナ）を試料としてマイクロ波重畳によるアルミニウム元素のスペクトルを測定した。その結果、マイクロ波入射時間の増加に伴い発光強度の増倍を確認した。マイクロ波入射時間のアンテナの電磁界解析では、コンデンサ型では、電極間で高い電界強度分布となり、コイル型では、コイル間でのみ電界強度が大きくなる結果となった。



レーザー照射光学系とマイクロ波アンテナ

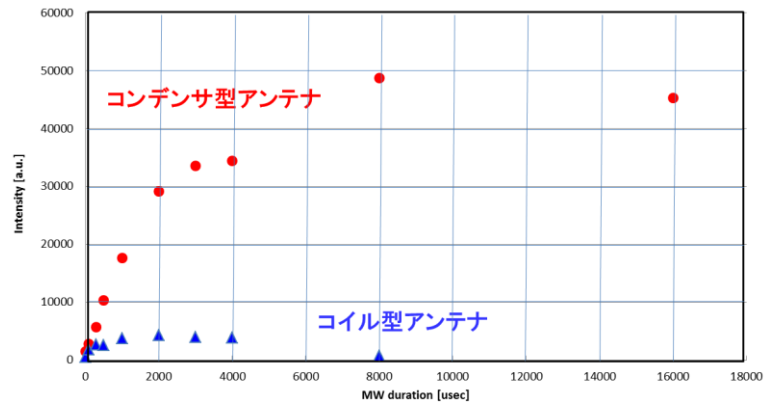


マイクロ波入射時間の増加に伴う発光強度の増倍

原子力機構で開発するファイバー-LIBS のプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行った。電磁界解析によるアンテナ形状解析を継続するとともに、主な解析結果を反映したアンテナを試作し、マイクロ波照射実験を実施した。試験結果と解析結果との整合性を確認するとともに、試験結果を解析へフィードバックし、発光効率の良いアンテナ形状を検討した。酸化物固体試料に対してマイクロ波を照射した分光計測試験を実施し、大気雰囲気でのスペクトル強度の増倍効果について調べた。

電磁界シミュレーションにおいては、アンテナ先端のレーザーブレイクダウン位置付近の電界は、コンデンサ型の方が均一で強く、逆に、コイル型では、コイルのターン間で電界が強く、その中央では電界が弱い結果となった。そこで、コイル型アンテナで、マイクロ波の照射条件を変えて発光スペクトルの増加を測定した。その結果、マイクロ波の発振時間を 1ms 以上持続しても、発光増倍には寄与しないことが判明した。これに対して、コンデンサ型アンテナでも同様な試験を行ったところ、発振時間の持続により、8ms まで発光増倍効果が観測され、時間積分した発光強度は、約 10 倍となった。

この結果を基に、コンデンサ型アンテナの形状最適化のためのシミュレーションを進めた。シミュレーション結果から代表的な三つのコンデンサ型アンテナに対して発光増倍試験を行い、その差を検証して LIBS 用の増倍アンテナの設計指針について検討した。



アンテナによる増倍効果の違い

原子力機構で開発するファイバーLIBS のプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行なった。

最適化したマイクロ波アンテナを用い、レーザーブレイクダウン位置とアンテナ位置の関係、マイクロ波の入射条件（連続発振とパルス発振、パワー、印加時間）を最適化することで、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価した。

これまでの成果、知見を整理し、LIBS 発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめた。

レーザーブレイクダウン位置とアンテナの位置（距離、角度）、また、マイクロ波の入射条件（連続発振とパルス発振、パワー）を変化させ、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価した。その結果、アンテナの位置はサンプルから 1 mm 程度、アンテナ角度は 10 度程度、また、マイクロ波の入射条件では、MW の ON 時間が 100  $\mu$ s で、Duty 80 % のパルス発振条件において最も発光強度が強い結果となった。MW のパワーに関しては、発光強度に、大きな違いは見られなかった。ただし、MW によるプラズマが生成するためある程度の MW パワーは必要である。いずれの条件においても、マイクロ波の印加時間（duration）による発光強度の増加は、8 msec 程度まで確認できた。

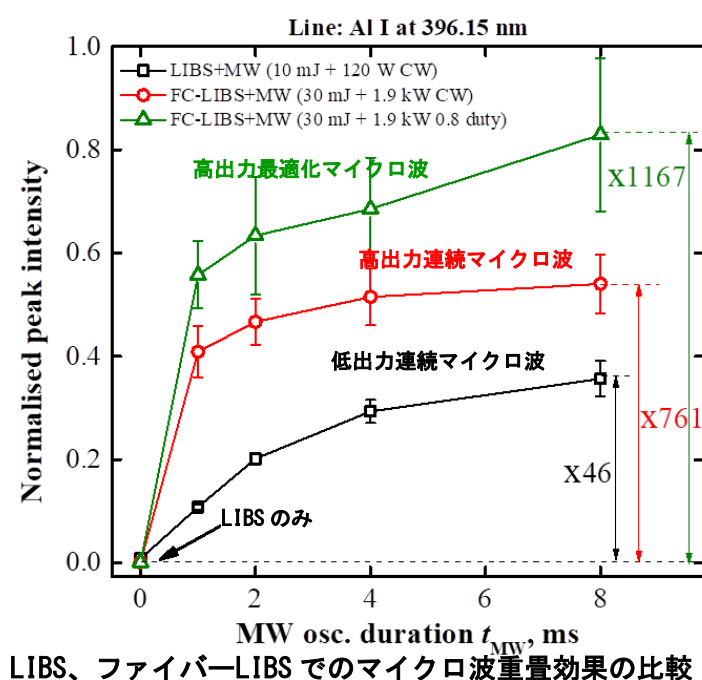
これまでの成果から、LIBS 発光へのマイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件として以下を得た。

### マイクロ波重畳 LIBS における信号増倍条件

設定条件	評価結果
アンテナ形状	コンデンサ型
アンテナ位置	サンプルより 1 mm 程度
アンテナ角度	10 度程度
MW 波発振条件	パルス MW、ON 時間 100 $\mu$ s 程度 Duty 80 %程度、
MW パワー	1.6 kW 以上
MW 印加時間	8 ms 程度

これまでの試験結果を総括し、原子力機構で適用性を検討している光ファイバーLIBS への適用を念頭に、通常の直接 LIBS、光ファイバーLIBS、マイクロ波重畳 LIBS について、スペクトル増倍効果をまとめた。

マイクロ波入射条件を最適化した場合、レーザー集光条件が厳しく、信号強度が低くなりがちなファイバーLIBS と比較すると、1000 倍以上の信号増大効果が得られる可能性のあることが示され、マイクロ波長重畳手法の有効性が確認できた。



### 3. ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（再委託先：京都大学）

#### 3.1 目的・概要

水中の模擬懸濁粒子にパルス幅が 100 ns に及ぶロングパルスレーザーを集光照射することで得られる溶液中プラズマ発光から、粒子の組成、粒子密度に関するデータが取得できる可能性について検討する。

模擬微粒子懸濁水溶液にロングパルスレーザーを集光照射することによりプラズマ発光を観測し、スペクトル形状が、レーザー照射条件（パルス幅、パルスエネルギー、照射における集光条件）によってどのように影響されるかを調べる。

計測におけるパルスごとの揺らぎの効果を排除するため、プラズマの画像計測と発光スペクトルの同時観測を実現し、計測上現われる揺らぎの抑制効果を評価する。

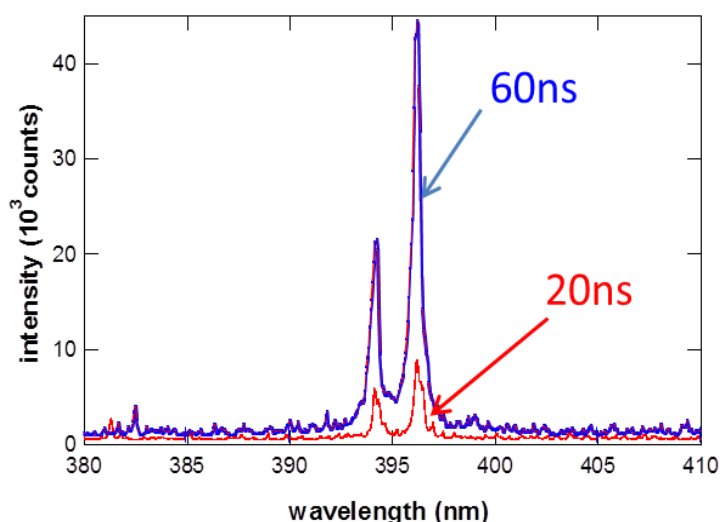
粒子数密度が、レーザープラズマの発生状況や発光スペクトルに及ぼす効果について調べることで、粒子数の定量分析手法としての可能性を評価するとともに、粒子サイズや粒子の吸光度など粒子の性状による影響を検討する。低粒子密度計測の際の感度向上手法についてはその実現性を検討する。

これらの成果を総合的にまとめ、懸濁微粒子の計測手法としての可能性について検討、評価する。

#### 3.2 平成 27 年から 29 年度の成果

粒子が分散している懸濁液にロングパルスレーザーを照射し、生成されるプラズマの発現性を調べるため、プラズマの発光画像を観測した。スペクトル測定からレーザー光のパルス幅がスペクトルの形状におよぼす効果を調べ、ロングパルスによる照射の優位性を確認するとともに、粒子を構成する元素の発光スペクトルを観測した。

アルミナ微粒子分散溶液中の発光画像を、レーザー光パルス幅が 20 ns、40 ns、及び 60 ns の場合について調べたところ、パルス幅の増大に伴ってプラズマの形がより明瞭となり、発光がより強くなることが明らかになった。一方、アルミナからのアルミニウム発光スペクトルの出現頻度は、パルス幅が 20 ns の場合はほぼ毎回観測されたが、パルス幅が 40 ns の場合はその割合が減少し、60 ns の場合にはプラズマ発光がほとんど観測されなかった。しかし、プラズマが生成された場合のみについて発光スペクトルが得られる確率を調べると、パルス幅が長い方が高いことが分かった。



アルミナ懸濁微粒子からのアルミニウム発光スペクトル

粒子が分散している懸濁液にロングパルスレーザーを照射し、生成する気泡の高速ビデオ撮影

を実現することで、プラズマ性状のパルスごとの揺らぎと気泡生成との関係を明らかにした。

スペクトル計測におけるパルスごとの揺らぎに対する気泡成長の影響を検討し、スペクトルのパルスごとの揺らぎを抑制する可能性を検討した。

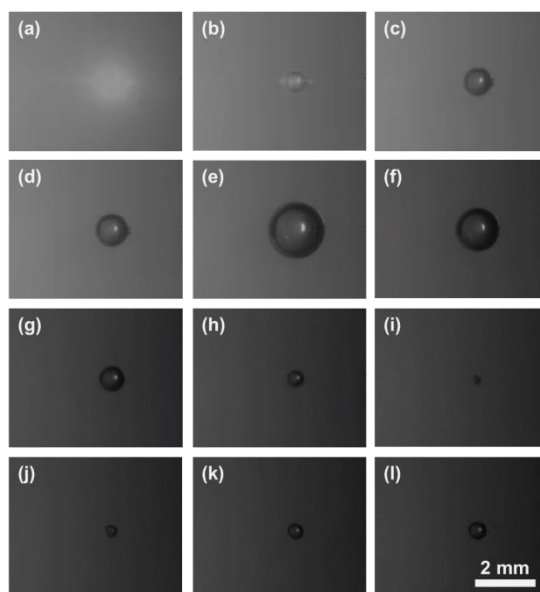
粒子数密度が、レーザープラズマと気泡の発生状況や発光スペクトルに及ぼす効果について調べた。

懸濁液にロングパルスレーザーを照射したときに生成する気泡は膨張と収縮を繰り返すことが確認された。最初（一回目）の膨張によって生成する気泡はほぼ球状に見えるが、それが収縮したあとの二回目の膨張ではレーザービームの前方と後方に大きく偏った異方的な膨張が観測された。これは、レーザー照射時に生成したプラズマがビームと垂直方向に扁平な形状を有しており、生成する気泡もわずかながら扁平になるため、最大径に達したあとの収縮によりこの方向で先に気泡が崩壊し、レーザーのビーム方向に押し出される形で二回目の膨張が始まることで説明され、レーザー照射によって生成するプラズマの形状とその後の気泡の膨張収縮の挙動が密接に関連していることを明らかにした。

スペクトルがパルスごとに大きく変動するのに対して、気泡の成長は比較的安定して同じような膨張挙動を示した。このことから、初期に気泡に与えられるエネルギーはパルスごとに大きく変わらず、プラズマを励起しているエネルギーと強く相関していないことが明らかになった。

粒子数密度を変えて気泡の成長過程を高速カメラで観察した結果、粒子数密度によらず気泡は比較的安定して発生することを明らかにした。スペクトルの出現率は約  $1 \times 10^{11}$  個/mL の粒子数密度でも数パーセントと非常に低く、粒子を構成する元素に由来するピークが観測されたときのスペクトル強度も大きくばらついた。

スペクトルの安定化のために、プラズマ生成領域に粒子が存在することを確実にする方法として、粒子の光トラップを検討した。トラップ用レーザーの焦点（トラップ位置）に横方向からパルスレーザーを照射して LIBS 用プラズマを生成させるためには、トラップ用レーザーは、開口数を犠牲にしても十分に長い作動距離を有する必要がある。この条件を満たす作動距離 1.5 mm の対物レンズを用いて、分散液中のポリスチレン粒子のトラップが可能であることを確認した。



安定生成される気泡成長の連続撮影

懸濁液に分散している微粒子をロングパルスレーザー照射によって元素分析（ロングパルス LIBS）する際の検出効率を向上させるため、光トラップで粒子を固定し、レーザー光が確実に粒子を照射するような配置を検討した。まず、トラップ用レーザー光の照射方法の最適化を行った。また、トラップ効率を多様な粒子について調べた。さらに、トラップされた粒子をロングパルス LIBS で元素分析するときの定量性を検討した。

以上より、ロングパルス LIBS の懸濁微粒子の計測手法としての可能性について検討、評価し

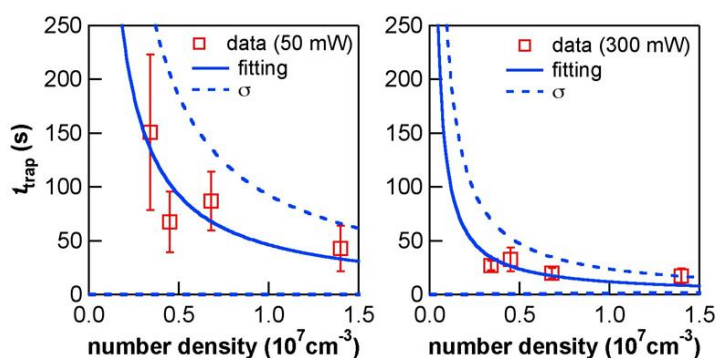


た。

レーザー光の照射方法の中でも最も重要なパラメータであるトラップ用レーザー光のパワーと、レーザー光が懸濁微粒子をトラップする効率との関係を測定した。トラップの効率は、浮遊している粒子が集光レーザー光の焦点にトラップされるまでの時間（トラップ時間）によって評価することを提案した。レーザー光の強度とともにトラップ時間は徐々に減少したが、実験した粒子数密度の範囲ではゼロに漸近することはなかった。

これまでに主として懸濁微粒子のモデル物質として用いてきたポリスチレン以外の材質の粒子として、アルミナ微粒子のトラップを試みた。トラップの可否は粒子の形状とサイズに依存した。本研究の実験条件では、粒子が大きい場合に重力がトラップ力に勝り、トラップされないことがわかった。また、重力が十分に小さい粒子サイズの場合でも形状によってはトラップできないことがわかった。

レーザートラップにより、分散粒子の数密度を定量することを念頭に、分散粒子の数密度とトラップ時間の関係を調べた。トラップ時間は必然的に大きな分散を持つが、複数回の計測による平均値は粒子密度と相関することを明らかにした。ロングパルス LIBS により、各粒子の元素分析だけでなく、粒子数密度の計測の可能性も確認した。



トラップ時間と懸濁粒子密度との相関

以上、水中の懸濁微粒子を、ロングパルスレーザーを用いた水中 LIBS 測定によって分析する可能性を検討した結果、ショートパルスレーザーを用いた場合と比較して、粒子由来の元素のスペクトル線の出現頻度は相対的に高く、ロングパルスレーザー照射の優位性が示された。原子スペクトル線の出現頻度の向上を目指して、レーザートラップによる微粒子の補足を試みたところ、粒子のサイズや形状にもよるが、レーザートラップを併用したロングパルス LIBS は懸濁微粒子の定量分析法としての可能性を有することが示された。



## 4. マイクロチップレーザー-LIBS 特性評価に関する研究（再委託先：量研機構）

### 4.1 目的・概要

自然科学研究機構の指導の下にマイクロチップレーザーを適用したファイバー-LIBS 分析システムを構築し、従来型のファイバー-LIBS と比較しながらプラズマ発光特性把握するとともに、ガンマ線照射施設を利用して、ガンマ線照射環境下での LIBS 特性試験を行い、マイクロチップレーザー-LIBS システムの適用成立性の総合評価を行う。

この評価を実施するため、マイクロチップレーザーを LIBS に適用してマイクロチップレーザー利用ファイバー-LIBS システムにおける酸化物のプラズマ発光・分光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を見出す一方、レーザー部品（コーティング済マイクロチップレーザー結晶、LD 光伝送ファイバー、光学レンズ、非線型結晶）を供試体として、 $^{60}\text{Co}$  線源を用いて高線量率で高累積線量線量のガンマ線照射を行い、自然科学研究機構に持ち込んでその影響を調べるとともに、 $^{60}\text{Co}$  線源からの距離を変えることによって線量率を変化させて、LIBS 特性に及ぼす放射線の影響を評価する。

### 4.2 平成 28、29 年度の成果

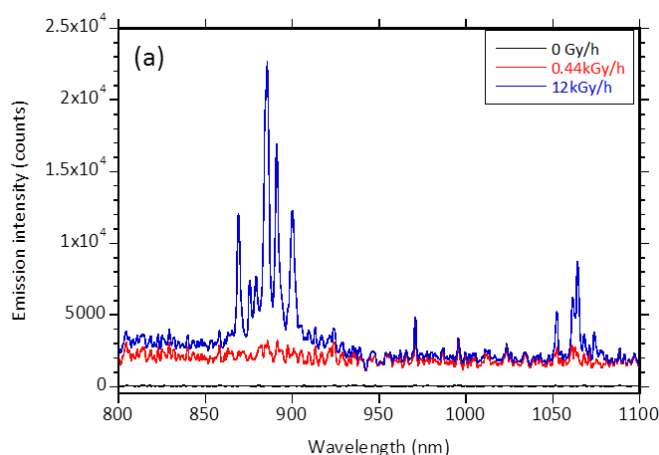
既存機器を活用してマイクロチップレーザーファイバー-LIBS を想定した時間分解発光分光装置を整備した。従来型パルスレーザーを用いてエアブレイクダウンが発生するエネルギーしきい値を確認するとともに、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認した。

また、マイクロチップレーザー構成部品である光学素子等への高線量率及び高累積線量のガンマ線照射を行い、自然科学研究機構でのレーザー動作特性試験用サンプルとして供与した。

マイクロチップレーザー-LIBS 測定を想定し、既存レーザー（532nm、25mJ/pulse、4ns）光源を活用し、照射光学系及び集光光学系の整備を行って時間分解発光分光装置を整備した。

レーザー光を焦点距離 10mm のレンズで集光し、集光レンズとレーザー出射口間距離を変え放電率（10 ショット当たりの放電割合と定義）を測定することによりエアブレイクダウンの発生しきい値を評価した結果、パワー密度  $6.1 \times 10^6 \text{ J/cm}^2$  を得た。また、酸化ジルコニウムを用いてジルコニウムに特有な発光線が観測できることを確認した。

$^{60}\text{Co}$  ガンマ線照射施設を活用し、マイクロチップレーザーの主構成部品で、自然科学研究機構から支給を受けたモノリシック Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスを対象に、最大線量率 12.1kGy/h で、累積線量 0.7MGy となるガンマ線照射を行った。遮光されたアルミニウムケース内に結晶を取り付けて、コア径 0.6mm、NA0.2、長さ 20m の光ファイバーケーブルを接続し、ガンマ線照射中におけるレーザー結晶からの発光スペクトルを分光器で観測した。その結果、



ガンマ線照射によるレーザー媒質からの蛍光

0.44kGy/h 以下の線量率においてもガンマ線照射の影響を受けて結晶中の Nd イオンが励起され、波長 885nm 及びレーザー発振波長である 1064nm 近傍に複数の蛍光線が観測された。照射後の Nd:YAG/Cr:YAG セラミックス結晶を、自然科学研究機構に送り、レーザー発振しきい値評価試験等に供した。

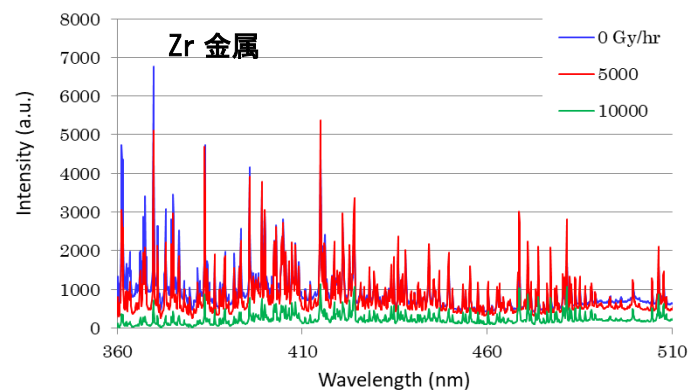
マイクロチップレーザーを整備してファイバー-LIBS 計測系を構築し、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認した。

ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討した。

マイクロチップレーザー-LIBS 計測系の構築では、マイクロチップレーザーを整備し発振特性の把握を行うとともにファイバー-LIBS 計測系を構築した。構築した計測系により、酸化ジルコニウム試料にレーザー光を集光照射してプラズマを発生させて、同軸方向でプラズマ発光を観測し、分光器でジルコニウムのスペクトルが同定できることを確認した。

ガンマ線照射環境下でのマイクロチップ動作特性並びに LIBS 特性取得では、作製したマイクロチップレーザーヘッドをガンマ線照射環境下で動作させ、発振特性と LIBS 試験を実施した。

放射線照射環境下では、マイクロチップレーザー発振のための LD 電流しきい値が上昇するとともに出力が低下することが確認された。しかし、出力は低下するものの、10 kGy/h のガンマ線照射環境下においても LIBS 発光スペクトルが得られることを実証できた。なお、電流しきい値の上昇や出力の低下については、1 kGy 程度の累積ガンマ線照射線量では回復して正常値に戻ることがわかった。レーザー結晶はガンマ線照射によってシンチレーション発光が生じるが、その強度は LD 励起光に比べて極めて小さく、レーザー光発振には影響を与えないことがわかった。この蛍光を利用することにより、LD 励起光を入れない場合、シンチレーション光強度は線量率に対して線形増加するので、放射線モニターとしての適用が可能であることが示された。



放射線環境下での LIBS スペクトル観測例

### 4.3 平成 30 年度の成果

本研究開発課題では、原子炉内等高放射線量率環境下におけるレーザー誘起プラズマ発光分光法 (LIBS) により組成を遠隔で分析する技術開発の高度化研究を進めている。これまでにレーザー結晶の放射線照射の影響は報告があるものの、放射線照射の前後での特性の変化を調べたものはほとんどない[1, 2]。そこで本研究では、マイクロチップレーザー (MCL) を用いたファイバーLIBS の原子炉内等高放射線量率環境下での適用可能性を評価するために、放射線照射中でのレーザー発振特性等を調べる。今年度は次の2つを実施した。

- (1) 高線量放射線環境下におけるレーザー結晶の評価
- (2) マイクロチップレーザーLIBS 装置性能の総合的評価

先ず(1)では、レーザー発振特性として、ガンマ線照射セル内においてレーザービーム品質を測定するためのビームプロファイラ、およびレーザー出力を測定するエネルギーメーターを整備した。また、レーザーパルス形状は光ファイバーで照射セル外にレーザー光を導いて高速度光検出器で測定し、レーザー発振出力の低下について議論した。

続いて(2)では、元素分析特性測定において、レーザー出力の低下を考慮し、レーザーアブレーションプラズマ発光増大効果を得ることができるアルゴンガスフローによる LIBS 分析系を構築し、高線量率においても LIBS を用いることによって、元素組成の検知だけでなく、定量性評価が可能なことを確認した。なお、放射線環境下での試験は、量研機構高崎量子応用研究所コバルト試験棟にて実施した。試験時の線量率分布は図 4.3-1 に示すように、最大で 10 kGy/h、最小で 0.1 kGy/h である。

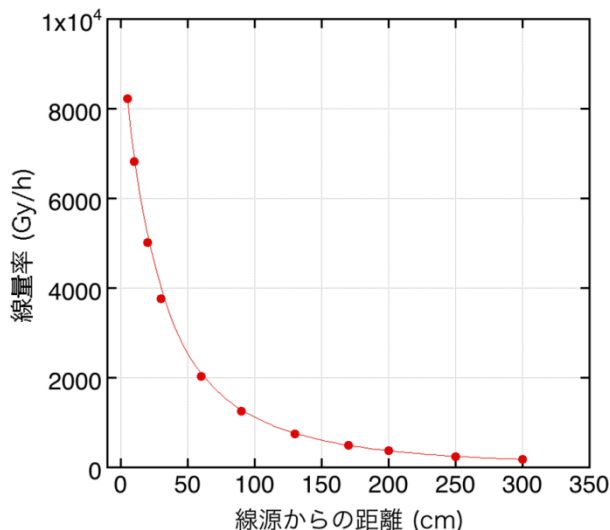


図 4.3-1 試験時のガンマ線線量率分布

#### 4.3.1 高線量放射線環境下におけるレーザー結晶の評価

##### 1) レーザービームプロファイル

ビーム品質は、レーザー光の集光性や LIBS 発光スペクトルに影響を及ぼすと思われる。今年度は、ガンマ線照射環境下でのその場測定が可能な試験体系を検討し高線量率下での評価を行なった。試験当初は、線源からの放射線が直接当たらない位置に CMOS カメラタイプのビームプロファイラ (Gentec-E0 製、Beamage-4M、センサーサイズ 11.3 × 11.3 mm) を設置し、鉛シー

ト、鉛ブロック等で遮蔽した後測定を試みた。しかし、1.4 kGy/h を超える環境ではカメラ素子にノイズが発生して観測不可となった。そこで、図 4.3.1-1 に示すように、ビームプロファイラーを囲むように鉛ブロックを組み上げることで十分な遮蔽を行う試験配置を変更して、レーザー光を直接プロファイラーに入射させた。これにより、最大線量率は本配置の最接近距離とし、9 kGy/h@15 cm とした。レーザー光路を斜めにするによって、YAG セラミックス結晶への照射線量率を高め、ビームプロファイラーをできるだけ線源から遠ざけた配置とした。

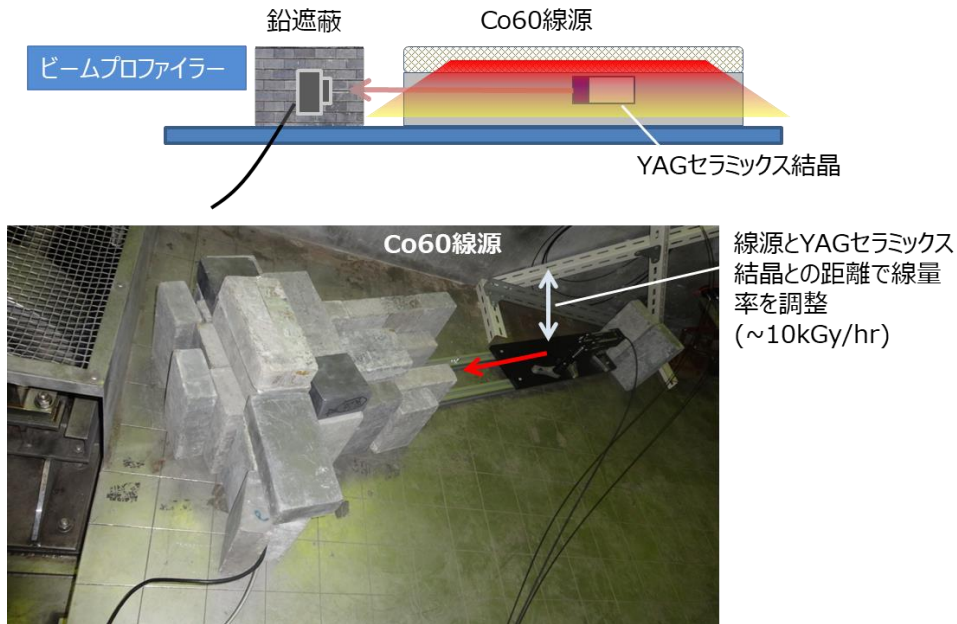


図 4.3.1-1 レーザービームプロファイル測定時の配置図

図 4.3.1-2 は、線量率 5 kGy/h でのガンマ線照射前から照射中（経過時間）、そして照射停止後にわたるレーザービームの 2 次元プロファイルの変化を示す。マイクロチップレーザーはマルチパルス発振が可能であるが、レーザー条件はマイクロチップレーザー励起用半導体レーザー（LD）電流を 70 A 固定とし、シングルパルス発振となるようにパルス幅を調整した。図 4.3.1-3 は同様の条件での 3 次元画像である。ガンマ線照射前ではノイズはないが、照射を続けるとノイズがスポット状に現れてくる。ノイズが混じっているが、プロファイル、強度分布とも観察が可能であり、この遮蔽によって最大線量率でも測定観測可能とわかる。9 kGy/h での 2 次元画像を図 4.3.1-4 に、3 次元画像を図 4.3.1-5 に示す。傾向は 5 kGy/h と同じであった。LD の電流は同じく 70A だが、LD パルス幅は、照射で損失が増えると発振が止まるので、必要に応じて 100～170 μs まで増やしている。これにより、常に 1 本のパルスがプロファイラーに入射している。照射時間が経過するに連れて、強度が徐々に減少している。照射を止めた時点（64 分）で、元に戻るわけではないが変化は凍結している。このことから、影響はセラミックスに内在していることがわかる。すなわち、放射線の存在は変化の原因であるが、放射線が直接引き起こしたプロファイルの変化ではないことを示している。



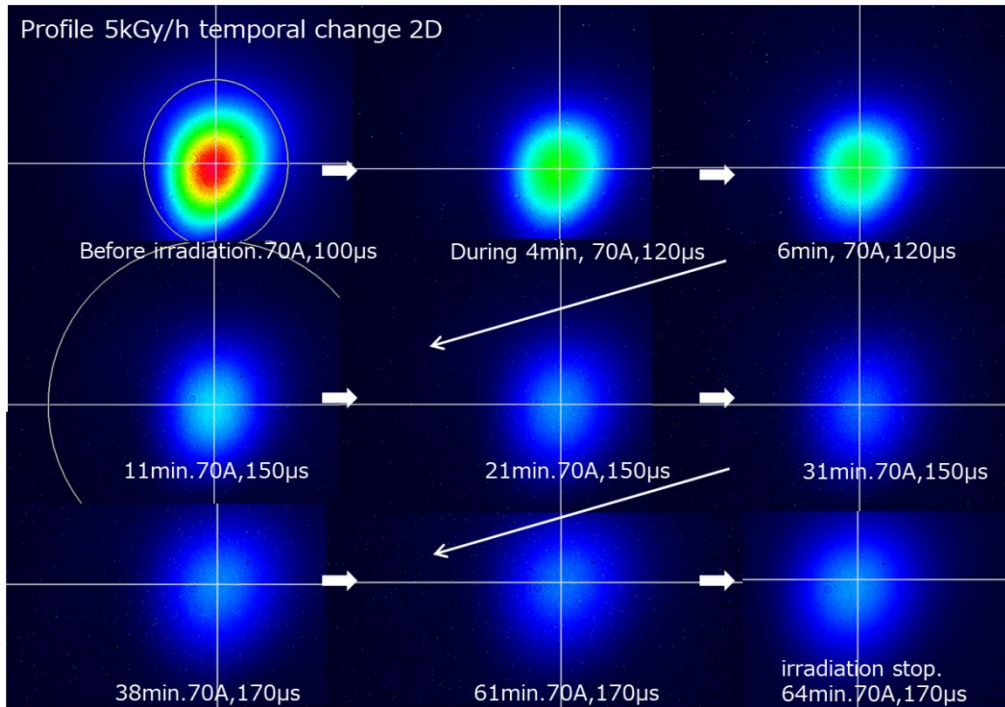


図 4.3.1-2 レーザービームの2次元プロファイルの時間変化 ( 5 kGy/h )

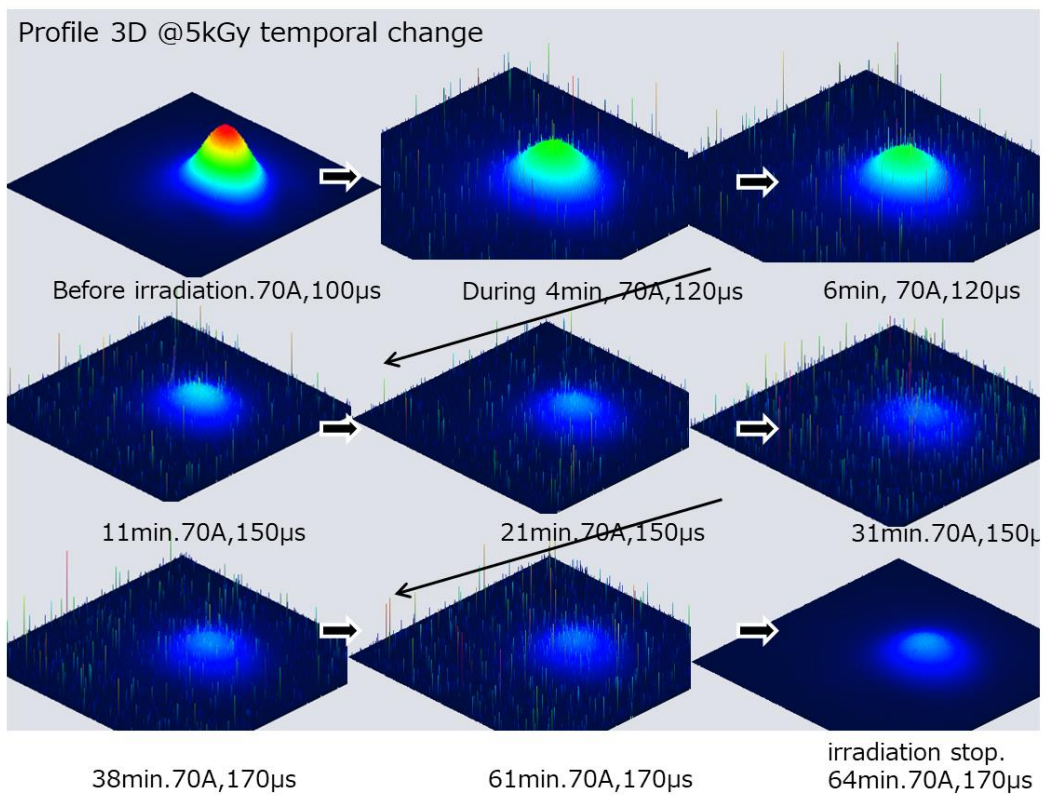


図 4.3.1-3 3次元プロファイルの時間変化 ( 5 kGy/h )

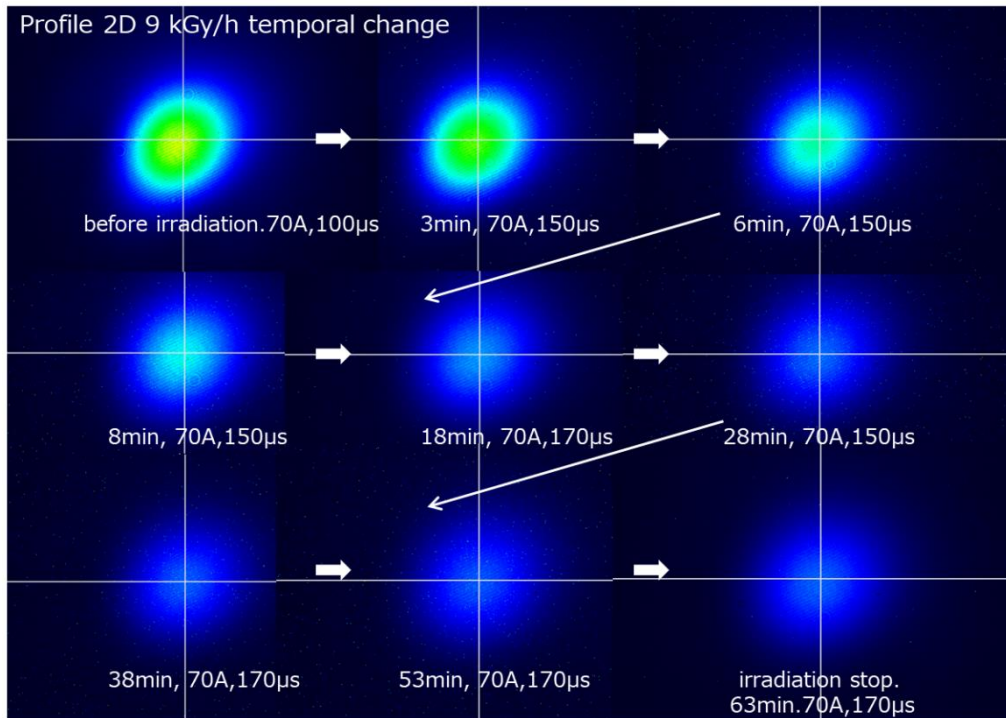


図 4.3.1-4 レーザービームの2次元プロファイルの時間変化 ( 10 kGy/h )

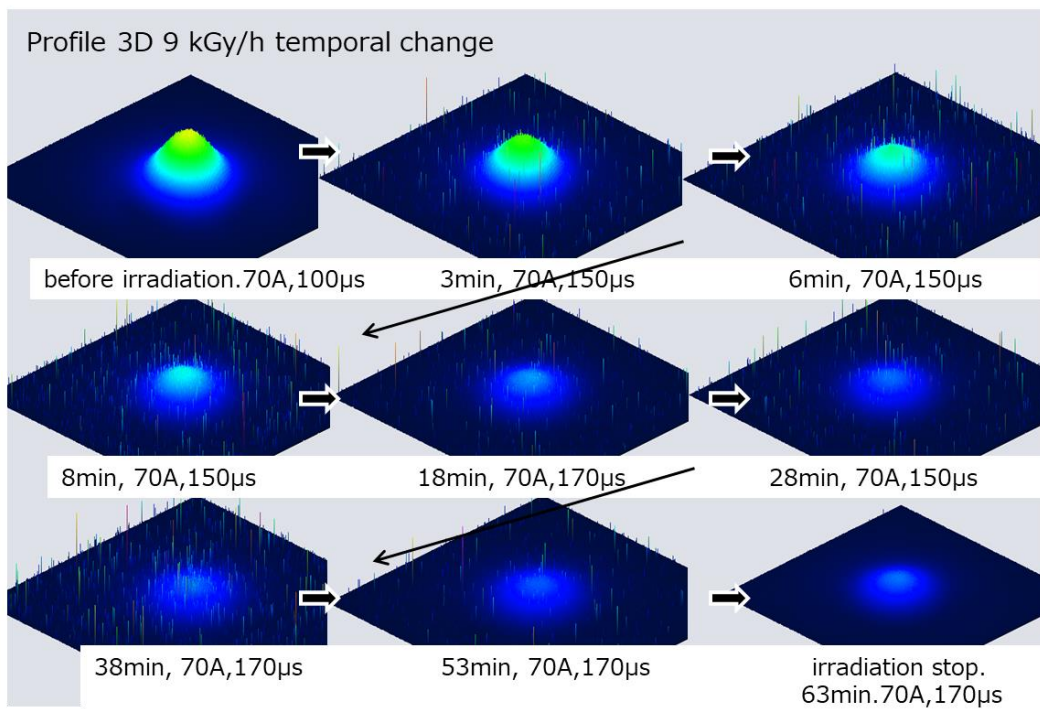


図 4.3.1-5 3次元プロファイルの時間変化 (10 kGy/h )

レーザービーム強度分布の比較を図 4.3.1-6 に示す。図中の青印はガンマ線照射前、赤印が照射中で 53 分経過、黒印が照射停止直後である。分布はいずれもほぼガウシアン（実線フィット）に近い。図 4.3.1-7 は、ビーム半値幅の照射時間に対する変化を示している。ガンマ線照射時間を継続して行くと幅はわずかに増加する。ガンマ線照射を停止すると幅が減少（回復）していることが観察された。プロファイルの変化の評価として最大変化時間で半値幅（青）のガンマ線照射線量率依存の比較したものを図 4.3.1-8 に示す。放射線が無い時（0 kGy/h）を 1 として、そこからの変化を測定している。5 kGy/h と 9 kGy/h の値でプロットした。この検出器位置（＝線量率）での測定ビーム系（半値幅）を用いて、LIBS への影響の観点から検討し、幅の変化から、ビーム面積の変化（グレー）、及びその逆数（オレンジ～信号低下の指標）の相対変化量を求めた。これにより、ガンマ線照射の影響によりスポットがわずかに増加し、信号低下につながる、と考えられる。ここで比較したものは、レーザーから出て、直接検出器に入ったビームのプロファイル半値直径であるが、この変化量がそのまま集光した場合の集光径の増加に相当すると、仮定している。本来は  $M^2$  を用いて集光したウエストを見積もるのが正しい。しかしながら、そのためには距離を変えたプロファイル測定を繰り返す必要があり、その間の経時変化が無視できない。よってこの手法による評価のみに留めることとした。

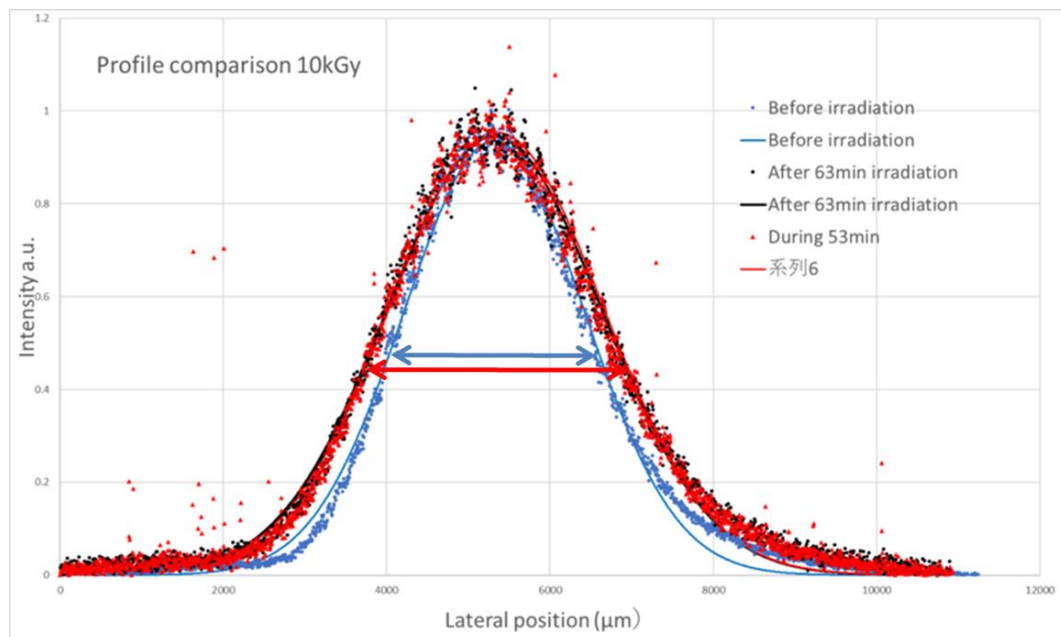


図 4.3.1-6 レーザービーム強度分布の比較



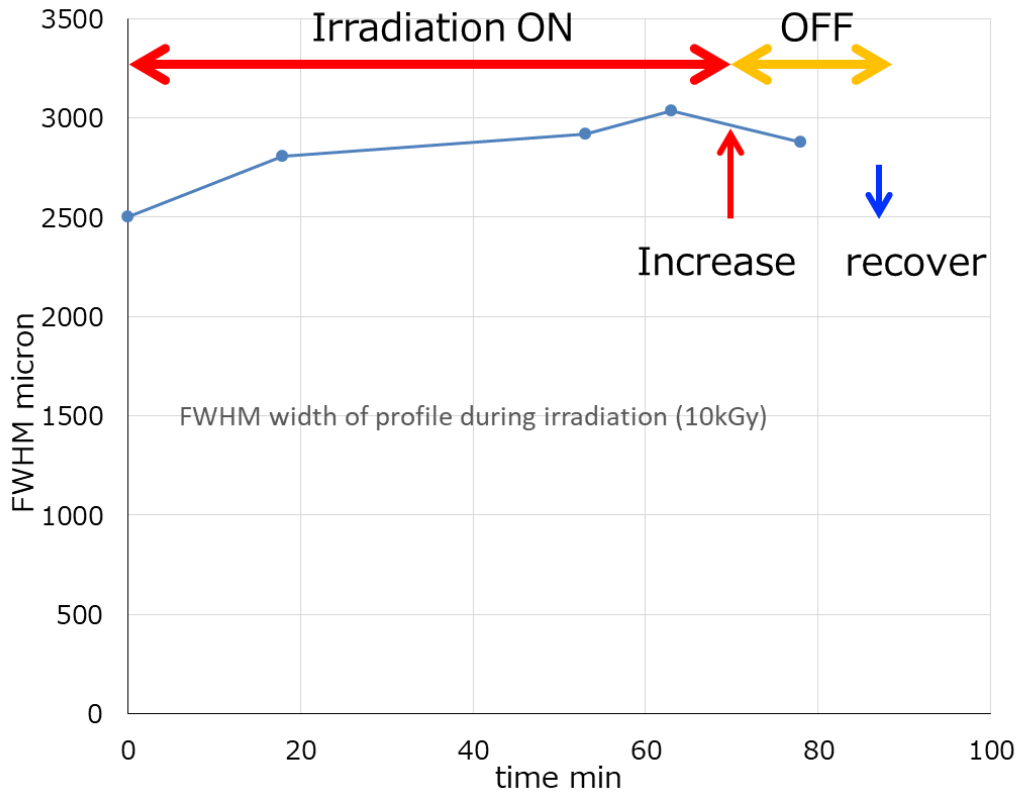


図 4.3.1-7 レーザービーム半値幅の時間変化 (10 kGy/h)

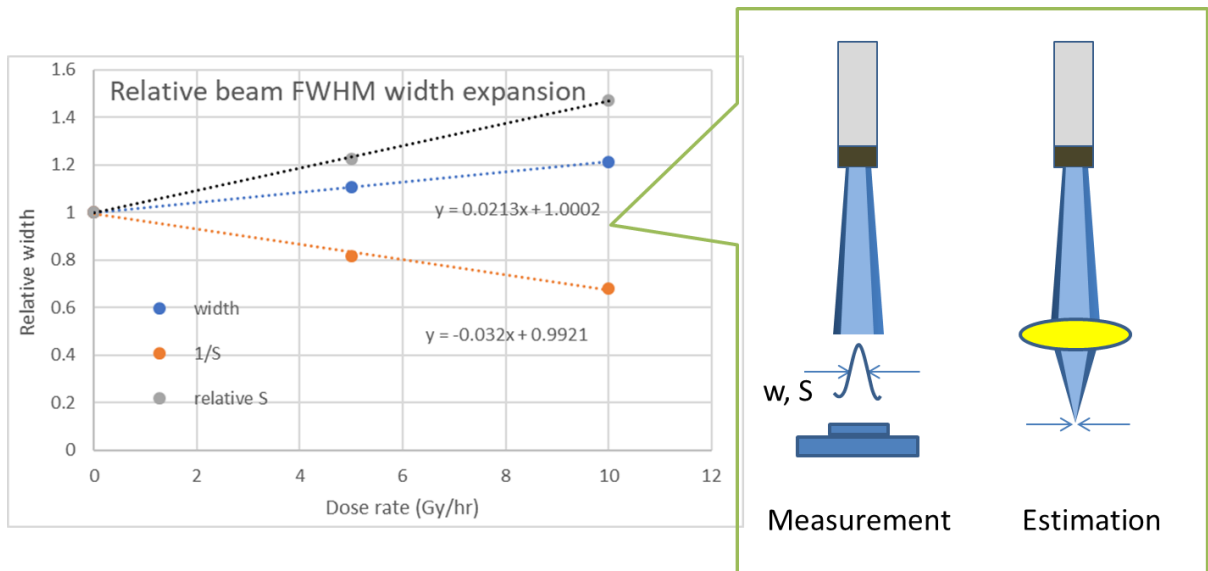


図 4.3.1-8 半値幅に関わる相対値の線量率依存性

## 2) レーザーパルス時間波形

レーザー出力波形をファイバーで導いて測定した、パルス時間波形の比較を図 4.3.1-9 に示す。このときの最大線量率は 10 kGy/h である。検出器 PD およびオシロはそれぞれ EOT 製 ET-3500、Teledyne LeCroy 製 WaveSurfer 510 を用いた。図 4.3.1-10 に示すように照射線量率を変えて比較したが、時間波形の変化はほとんど観測されなかった。時間半値幅を照射線量により比較すると、いずれもサブナノ秒領域で、わずかに増加する傾向が見られた。波形の比較は昨年度も実施したが、パルス波形は照射条件等に影響される横モードによって変化する、それに影響されてサテライトピークが出現するか否かといった議論となった。しかし、明確な結論が導けなかった。このため今回は、TEM00 のみの単一横モードに揃えた測定条件にし、サテライトピークの影響が出ないようにして、時間波形自体を比較できる条件とした。その結果、以前見られたサテライトピークの変化は、直接的な放射線影響による波形自体の変化ではなく、共振器の照射損失変化による発振条件の変化による横モード数変化に起因していることが明らかとなった。

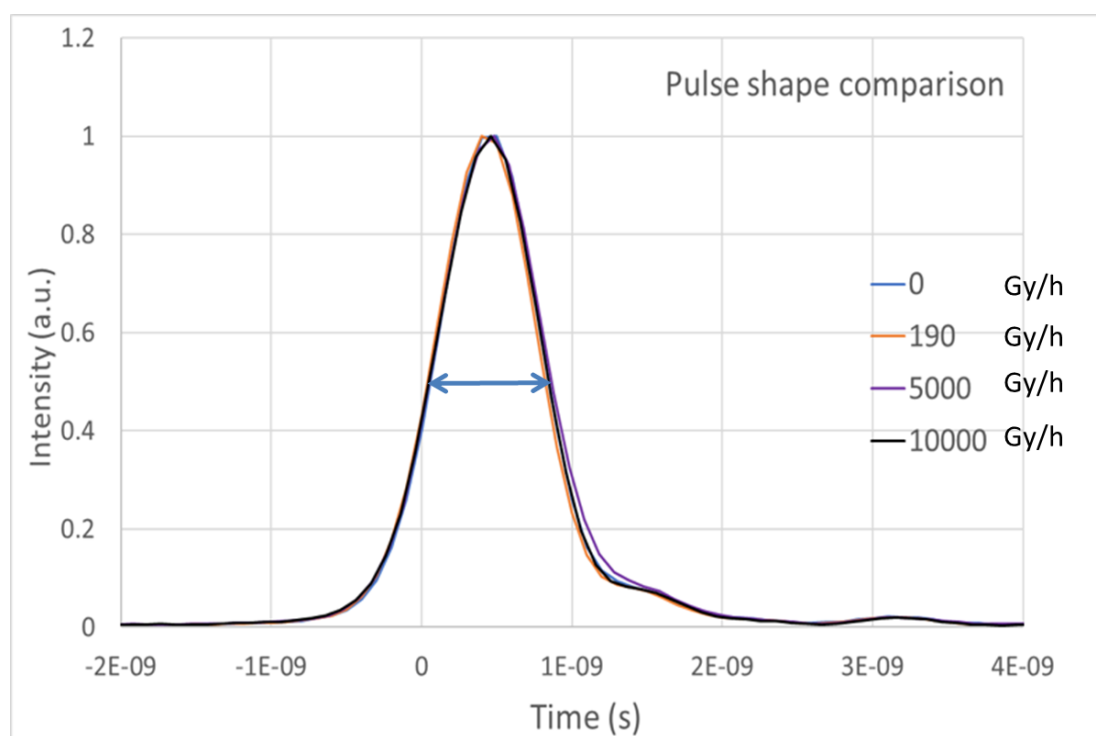


図 4.3.1-9 レーザーパルス時間波形の比較

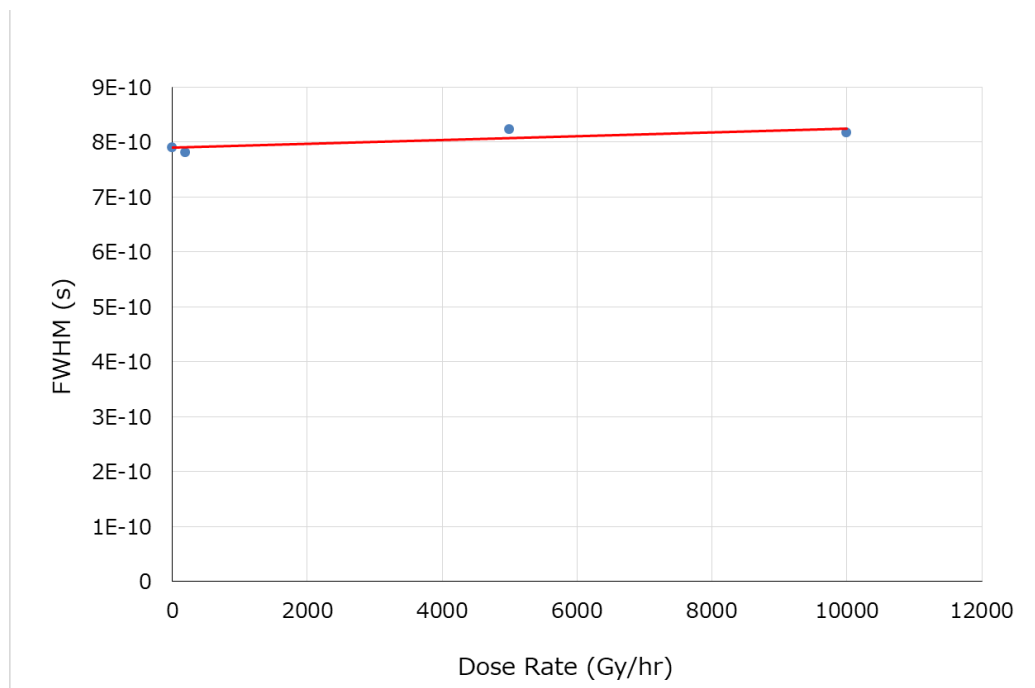


図 4.3.1-10 レーザーパルス時間波形の線量率依存性

### 3) レーザーパルス発振挙動

平成 29 年度から主に、照射線量率依存性について検討してきたが、線量率が高い条件、特に 10 kGy/h 相当では、時間による影響の変化も見られる。そこで、今年度は時間依存性を比較した。

ガンマ線照射時間の影響として、レーザーパワーの経時変化を測定した。この場合、レーザーパルス列が出現し、その総和のパワーを対象とした。パワーメーター(Gentic-E0 製、QE12LP-S-MB)で直接受けて評価した。また、パワーメーター表面での反射をファイバーで外の PD に導いて、その強度変化についても評価した。この様子を図 4.3.1-11 に示した。

LD 電流 30A に固定し、照射時間の影響として LD のトリガーからパルス列の最初の 1 本目が立ち上がる時間 (Build up time: BUT) を照射時の経時変化で観測した。その様子を図 4.3.1-12 および図 4.3.1-13 に示す。照射開始により BUT が増加し、オシロスコープ表示画面の右手に移動した。この現象は、照射を止めると再び戻ってくる。放射線照射によって、レーザー発振に要する BUT が少しずつ増加してくることを示している。照射を止めても、発振特性への影響はセラミックス内に残存していることが予想される。放射線照射は、この効果の原因ではあるが、放射線が直接的に引き起こしている効果ではないことがわかる。なお、昨年度報告したガンマ線誘起による YAG セラミックスのシンチレーションは直接的な放射線影響であるが、その影響は LD 励起光に比べて遥かに小さいものである。

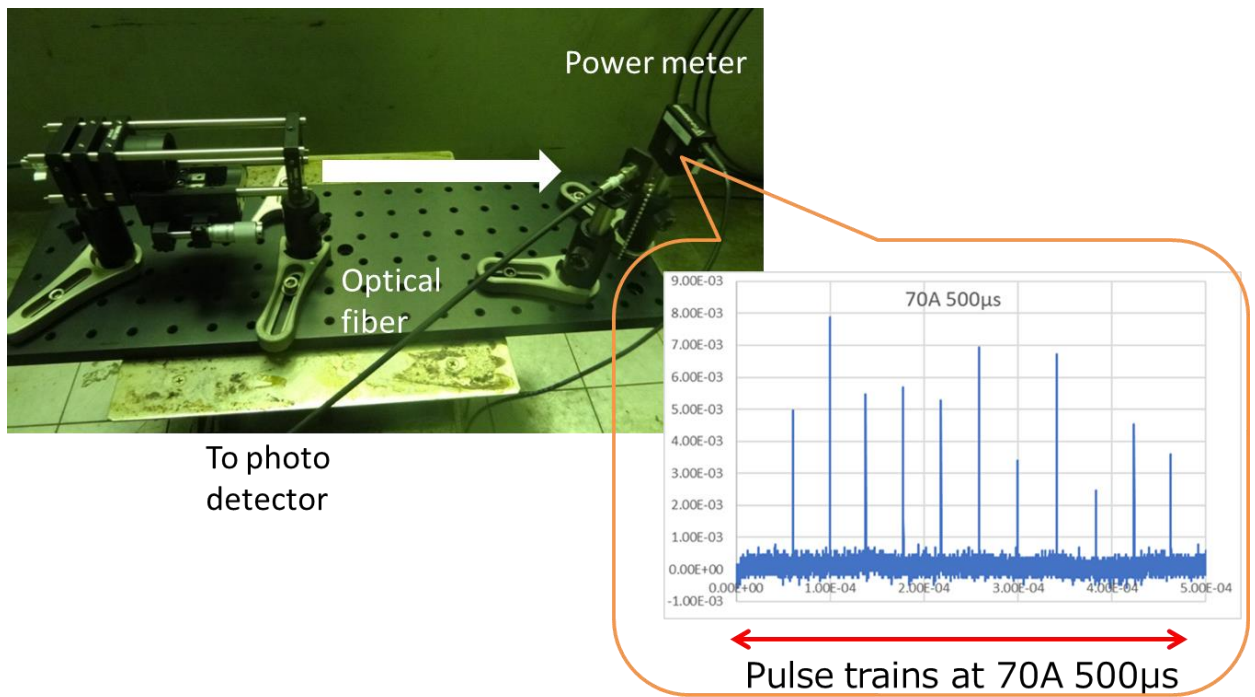


図 4.3.1-11 レーザーパルス挙動試験配置及び発振例

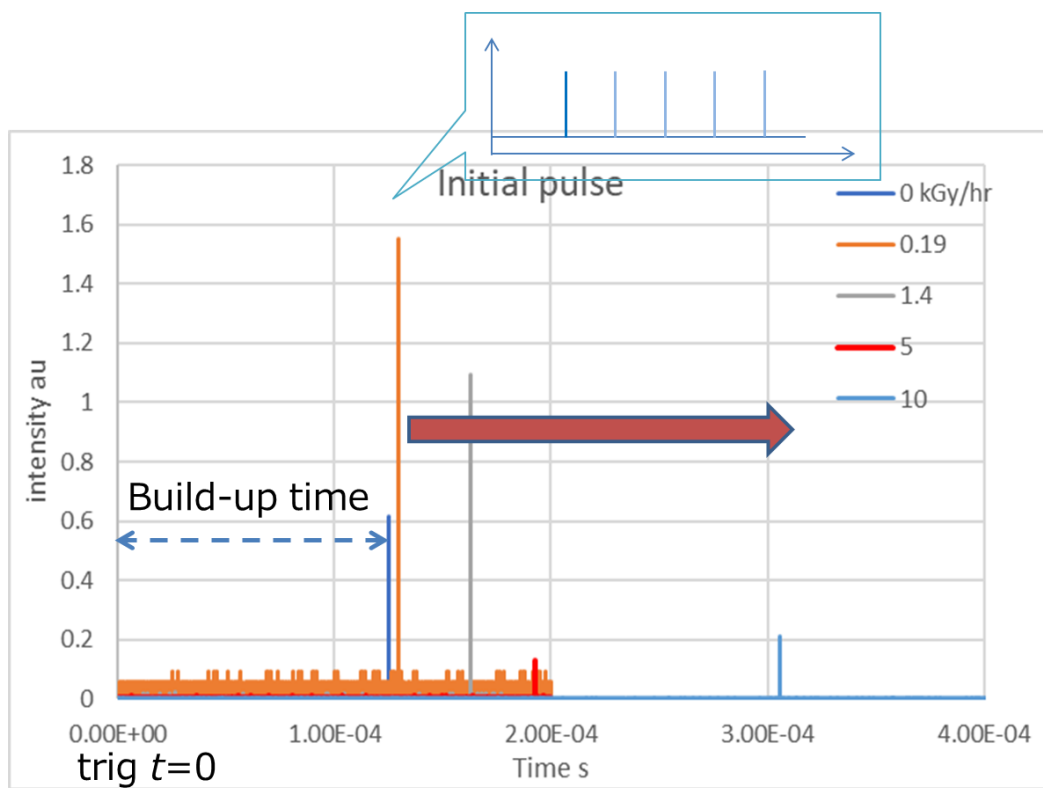


図 4.3.1-12 放射線照射時の第一パルス立ち上がり時間（BUT）の経時変化

5 kGy/h でのレーザーパワーの変化を図 4.3.1-14 に示す。照射を開始すると階段状に低下するが、照射を止めると回復が見られる。下図は、その時に対応した、LD 励起時間内の発振パルス数を示しており、励起時間内のパルス列の数が 9 本—8 本—7 本と減少してきている。パルスはオシロスコープ表示画面内で右に移動してフレームアウトしてゆく。照射を止めるとパルス列の数が回復し、それに対応してレーザーパワーも回復していることがわかる。図 4.3.1-15 は 10 kGy/h の結果である。照射開始によりパワーは階段状に減少し、照射を止めると階段状に回復している。下図にあるパルス列の数の減少、増加はそれに対応している。照射をそのまま、もう 1 サイクル繰り返した (図右手)。減少の様子と、回復の様子は、1 回目とそれほど顕著な違いは見られなかった。一般に、石英光ファイバーでは放射線による照射履歴が見られることが知られている [3]。YAG セラミックスに関しては、この観察から履歴影響があるようには見えないが、照射時間、回復観測時間が統一されていないため、はっきりとは言えない。

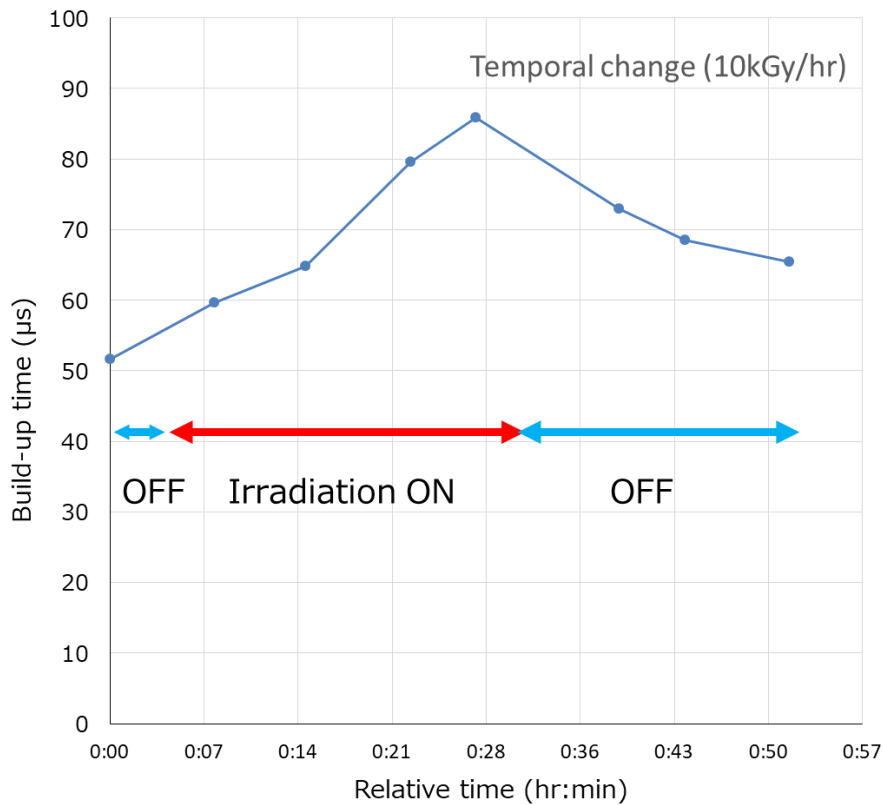


図 4.3.1-13 最大線量率での BUT の経時変化

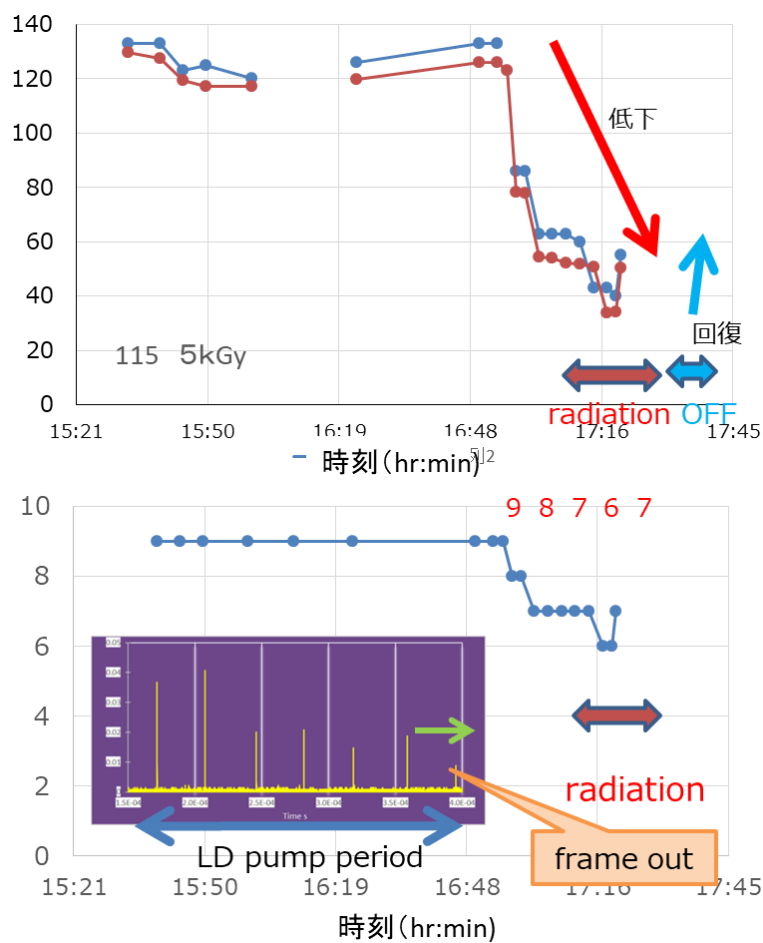


図 4.3.1-14 5 kGy/h でのレーザーパワーの経時変化

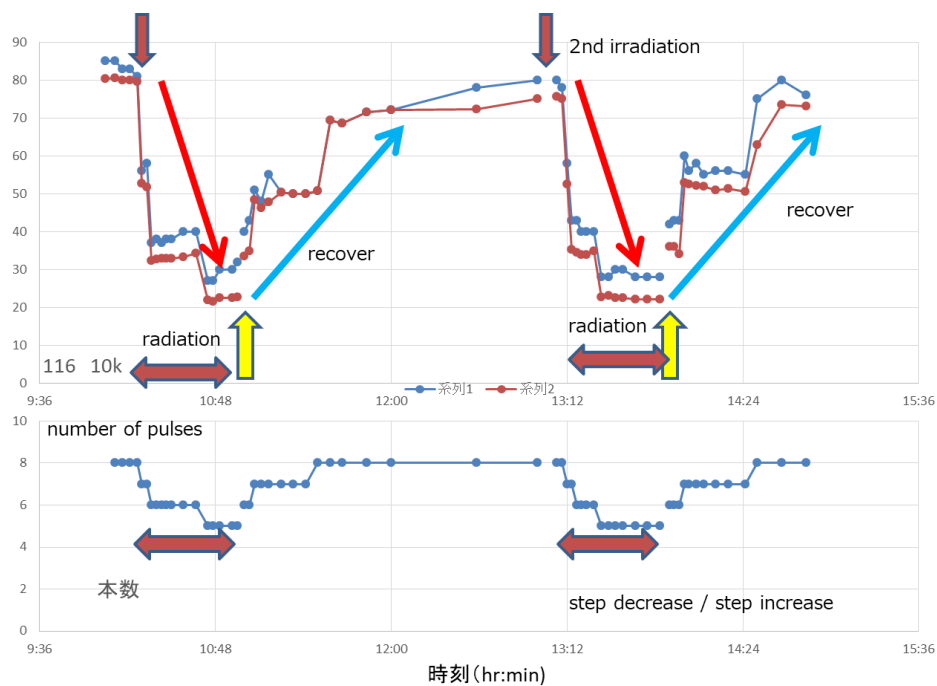


図 4.3.1-15 10 kGy/h でのレーザーパワーの経時変化

平成 29 年度、平成 30 年度に得られた出現したレーザー発振特性を、照射線量率の観点でまとめた結果を表 4.3.1-1 に示す。

表 4.3.1-1 放射線照射環境下のレーザー発振特性

測定項目	放射線照射による変化
シングルパルスエネルギー(E)	減少
パルス幅(D)	増加
ビームサイズ(S)	増加
発振パルス数(N)	減少

線量率増加につれて、1 本のパルスエネルギーは減少傾向を示す。時間幅は増加傾向にある。ビームサイズは増加し、パルス数は減少する。なお、ここでは時間的变化については厳密に考慮していない。高線量率では、照射後どの時間タイミングで測定したかが多少影響するが、それは厳密に条件統一にした比較はしていない。

観測されたレーザー発振特性における放射線影響について、レート方程式を用いて検討する。Nd:YAG の利得領域は、図 4.3.1-16 のエネルギーダイアグラムに示したように  $n_0$ 、 $n_1$ 、 $n_2$  の 3 準

[ a) Gain]

$$\begin{aligned} \frac{dn_0}{dt} &= -W_p n_0 + \frac{n_1}{\tau_{10}} + \frac{n_2}{\tau_{20}} \\ \frac{dn_1}{dt} &= -\frac{n_1}{\tau_{10}} + \frac{n_2}{\tau_{21}} + \gamma_g c \sigma \phi (n_2 - n_1) \\ \frac{dn_2}{dt} &= W_p n_0 - \gamma_g c \sigma \phi (n_2 - n_1) - \frac{n_2}{\tau_{21}} \quad \frac{1}{\tau_f} = \frac{1}{\tau_{20}} + \frac{1}{\tau_{21}} \end{aligned}$$

位で考え、各準位のポピュレーションを以下の式で表現した。

一方、Cr:YAG の可飽和吸収体は、 $n_{s0}$ 、 $n_{s1}$ 、 $n_{s2}$  の 3 準位でポピュレーションを次の式で表現する。

[ b) Saturable absorber]

$$\begin{aligned} \frac{dn_{s0}}{dt} &= -\frac{A}{A_s} \gamma_{gs} n_{s0} c \sigma_{gs} \phi + \frac{n_{s1}}{\tau_{gs}} \\ \frac{dn_{s1}}{dt} &= \frac{A}{A_s} \gamma_{gs} n_{s0} c \sigma_{gs} \phi - \frac{n_{s1}}{\tau_{gs}} - \frac{A}{A_s} \gamma_{es} (n_{s1} - n_{s3}) c \sigma_{es} \phi + \frac{n_{s3}}{\tau_{es}} \\ \frac{dn_{s3}}{dt} &= \frac{A}{A_s} \gamma_{es} (n_{s1} - n_{s3}) c \sigma_{es} \phi - \frac{n_{s3}}{\tau_{es}} \end{aligned}$$

また、可飽和吸収体での光子密度の収支は以下の式で表した。



[Photon]

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{\phi}{t_r} \left[ 2\sigma(n_2 - n_1)l_g - 2\sigma_{gs}n_{s0}l_s - 2\sigma_{es}(n_{s1} - n_{s3})l_s - \left( \ln\left(\frac{1}{R}\right) + L \right) \right]$$

$$W_p = P/h\nu/T_w/V_p \cdot \sigma_{ab}(1 - e^{-\alpha l_g})$$

$$c_{g,s} = c_0/n_{g,s} \quad c = c_0(l_s + l_g)/(l_s n_s + l_g n_g)$$

Assumptions:  $s=2, s_2=s_1$

ここで、仮定として、 $n_{s1} \doteq n_{s2}$  としている。計算に用いたパラメーター項目と、値の例を表 4. 3. 1-2 にまとめた。

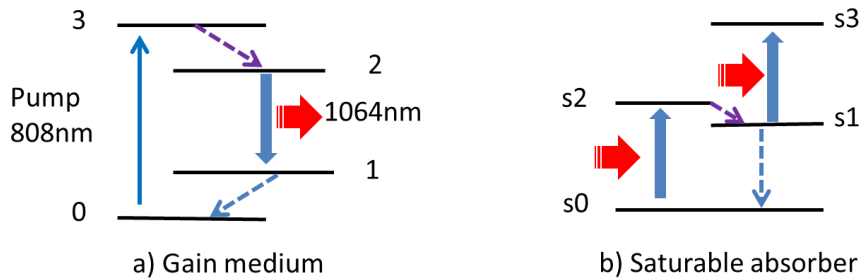


図 4. 3. 1-16 レーザー媒質 a)、および可飽和吸収体 b) のエネルギーダイアグラム

表 4. 3. 1-2 発振特性シミュレーションのパラメーターと数値例

Parameters

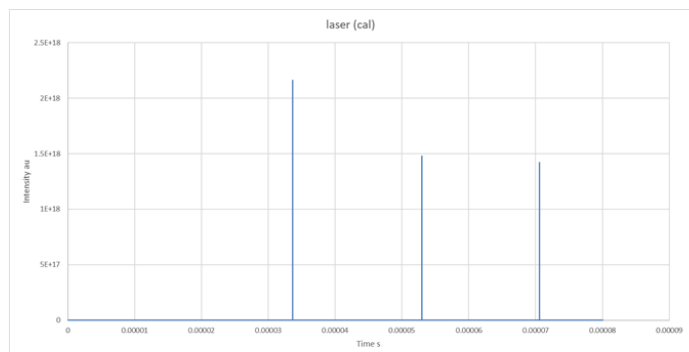
$A, A_s$ ; mode area in gain and saturable absorber  
 $c_0$ : speed of light in vacuum  
 $V_{g,gs,es}$ ; thermal population reduction factor for gain  
 $h$ ; Planck's constant  
 $L$ ; loss in the crystal  
 $l_g$ ; length of gain medium  
 $l_s$ ; length of saturable absorber  
 $n_g$ ; refractive index in gain medium  
 $n_s$ ; refractive index in saturable absorber  
 $n_{0,1,2}$ ; Population density in gain for the state no,n  
 $n_{s0,s1,s3}$ ; Population density in saturable absorber for the state  $n_{s0}, n_{s1}, n_{s3}$   
 $\Phi$ ; photon number  
 $P$ ; pump energy  
 $R$ ; mirror reflection of output coupler  
 $\sigma$ ; gain cross section  
 $\sigma_{ab}$ ; absorption cross section for pump  
 $\sigma_{es,gs}$ ; cross section for saturable absorber  
 $\tau_f$ ; fluorescent life time  
 $\tau_{10,20,21,es,ge}$ ; life time for each state  
 $t_r$ ; round trip time  
 $T_w$ ; LD duration  
 $V_p$ ; volume of irradiated zone  
 $W_p$ ; pump rate

An example of parameters (tentative)

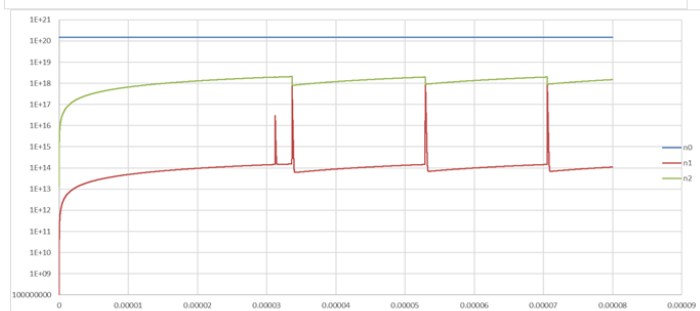
n00	1.50E+20
n10	0.00E+00
n20	0
ns00	3.50E+17
ns10	0
ns30	0
wp	1.13E+04
$\sigma$	6.50E-19
$\tau_{10}$	3.00E-08
$\tau_{20}$	5.30E-04
$\tau_{21}$	1.60E-04
$\tau_f$	2.30E-04
$\sigma_{es}$	2.00E-18
$\sigma_{gs}$	7.00E-18
$\tau_{es}$	1.00E-07
$\tau_{gs}$	4.10E-06
abs	3.10E-20
$l_g$	8.00E-01
$l_s$	2.00E-01
$l$	1.00E+00
$t_r$	6.05E-11
A/As	1

計算結果の例を図 4.3.1-17 に示す。(a)は光子密度の時間依存 $\Phi(t)$ で、出力鏡から出る光子数、すなわちレーザー出力に対応する。パルス的に発振している様子が再現できている。また、(b)は利得の各準位ポピュレーション $n$ で、Nd:YAG からの発振の様子を示しており増減が再現している。(c)は可飽和吸収体のポピュレーション $n_s$ で、Cr:YAG からの発振に相当するが、その変化の様子がわかる。実験で得られたレーザー出力例図 4.3.1-18(a)と計算結果図 4.3.1-18(b)を比較した。パラメーターフィッティングにより実験に良く一致した挙動が得られることがわかった。

(a) Laser pulses  $\Phi(t)$



(b) Population of gain  $n_0, n_1, n_2(t)$



(c) Population of saturable absorber  $ns_0, ns_1, ns_3(t)$

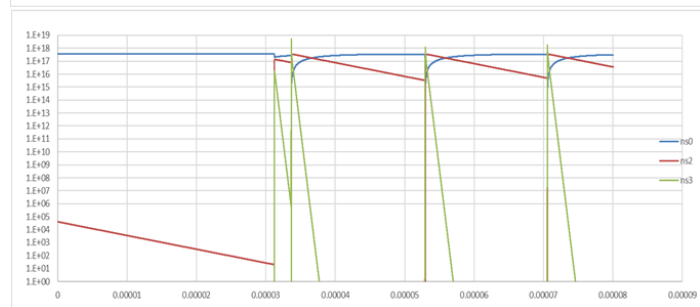
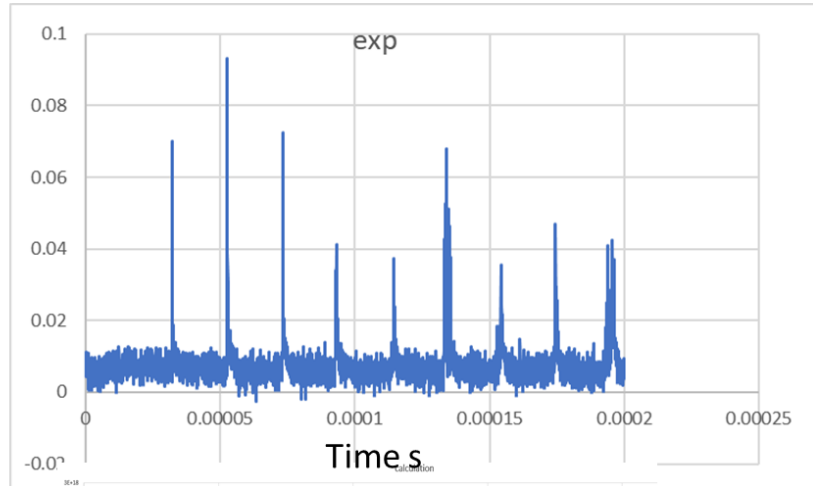


図 4.3.1-17 レーザーパルス a)、利得の各準位ポピュレーション b)、および可飽和吸収体のポピュレーション c)の計算結果

(a) Laser pulse trains  
(Experiment 70A)



(b) Laser pulse trains  
(Calculation)

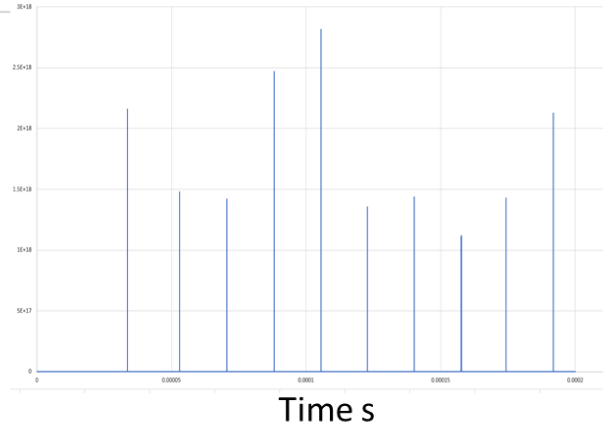
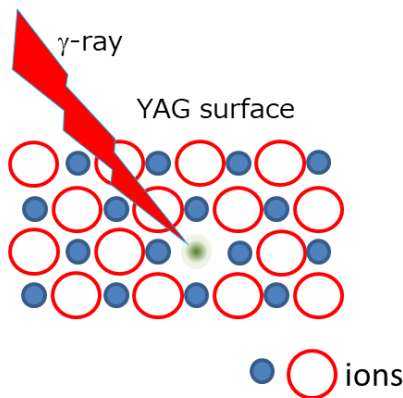
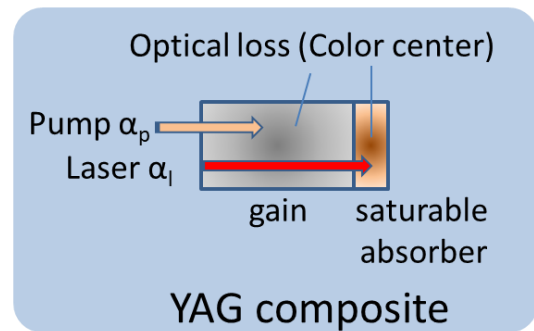


図 4.3.1-18 レーザーパルス列の実験(a)と計算(b)の比較



Schematics of radiation effect to ionic crystal  
Radiation may induces vacancies in ionic crystal  
⇒Additional energy levels  
⇒Additional absorption/(emission) band



Assume two type of absorption loss;  
1) Pump laser absorption loss  $\langle_p$   
2) Laser absorption/scattering loss  $\langle_l$

図 4.3.1-19 放射線照射時の損失の過程を示す概念図

YAG セラミックス結晶内では放射線誘起空孔が生成すると考えられる。その結果、結晶内のエネルギーレベルや吸収帯／発光帯が新たに形成され、それが欠陥として吸収損失に現れると想定してみる。図 4.3.1-19 は損失の過程を示すもので、励起光の吸収損失  $\alpha_p$  とレーザー光の吸収／散乱損失  $\alpha_l$  を考慮する。この 2 つのタイプを次式で表す。

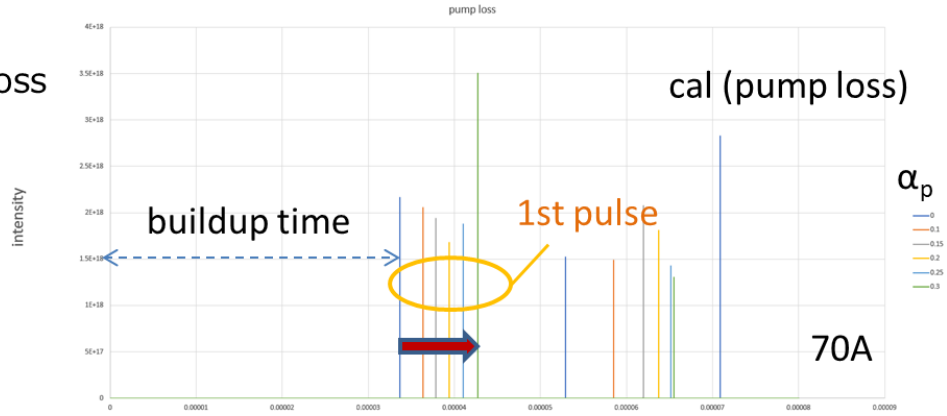
[Absorption loss]

$$W_p = W'_p e^{-\alpha_p l_g}$$

$$L = \alpha_l (l_g + l_s)$$

この計算をもとに、放射線影響がみられた BUT への影響を検討した。計算上、ポンプ光の損失パラメーター  $\alpha_p$  を変えていくと、図 4.3.1-20 (a) のように最初のパルスの BUT が変わっていく。また、図 4.3.1-20 (b) はレーザー光の損失のパラメーター  $\alpha_l$  を変えた例であり、やはり BUT が変化していくのがわかる。このように、吸収の増加による BUT の増加が再現された。図 4.3.1-21 は BUT 増加量と推定した吸収係数である。縦軸は BUT の増加量を示しており、矢印は最大 10 kGy/h において実験的に観測された量である。横軸は 2 通りの損失係数（ポンプ光損失とレーザー光損失）で、オレンジと青はそれぞれの計算で得られた BUT の増加量を示している。実験で観測された増加量は、それぞれの損失で考えると矢印の損失の増加、 $0.3 \sim 0.5 \text{ cm}^{-1}$  程度に相当する。ポンプ光損失とレーザー光損失の影響割合は吸収スペクトルの変化から決定され、その割合はおおよそ定まっているが、トータルで実験相当になるような値をとる。ここでは、その比は評価していないが、吸収スペクトルで評価できると考えられる。観測された影響は以上であるが、いずれもポンプ光損失とレーザー光損失で BUT と同様に計算を用いて説明できるであろう。回復の機構に関しては今後の課題とする。

(a) Pump loss



(b) Laser loss

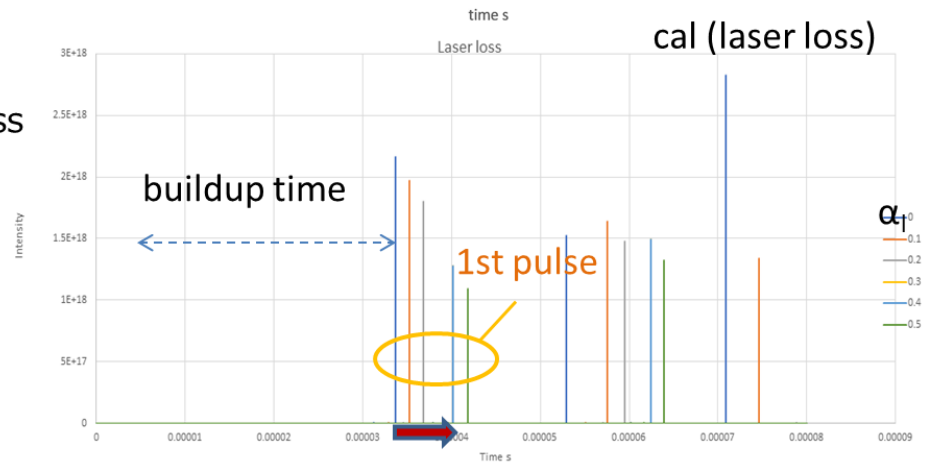


図 4.3.1-20 ポンプ光損失(a)およびレーザー光損失(b)による BUT 変化の比較

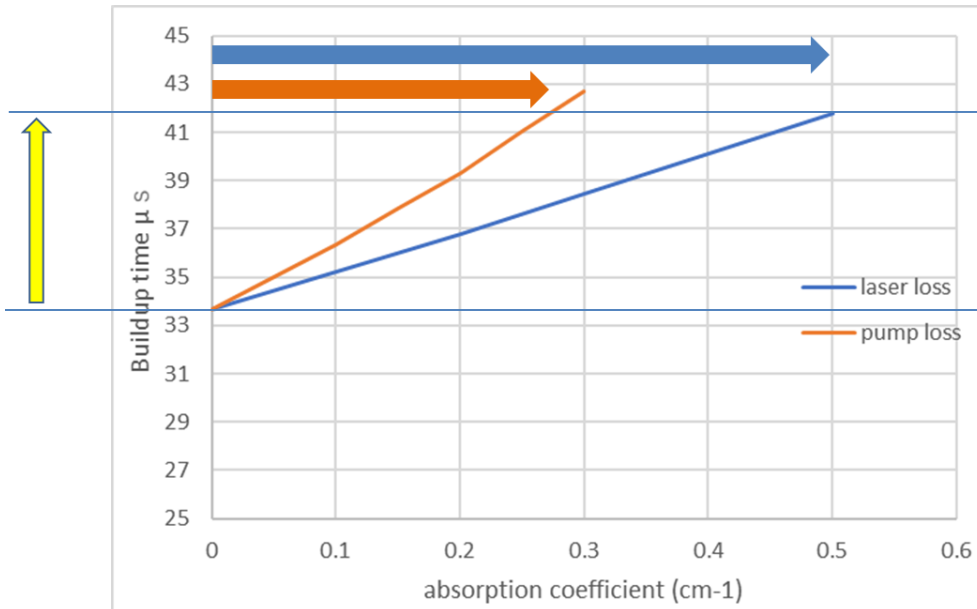


図 4.3.1-21 ポンプ光損失およびレーザー光損失における BUT 増加量と推定される吸収係数の関係

以上をまとめると、マイクロチップレーザーへの放射線の影響は、ガンマ線照射により生じた YAG セラミックス結晶内のカラーセンターによる吸収損失が主なものであり、これが原因で Nd:YAG 部分でのポンプ光とレーザー発振光の損失となっている。その結果、発振特性変化としてレーザーパワー減少、しきい値増加等が生じたと考えられる。上記のことは、次に述べる LIBS スペクトル強度減少につながることである。発振特性への影響 (BUT など) は、レート方程式を用いた計算により同様の傾向が得られており、この観点からもサポートされる。

#### 4) マイクロチップレーザーコンポーネントに対する放射線の影響

放射線照射で見られた現象の原因を検討するために、図 4.3.1-22 に示すように、レーザーコンポーネント YAG セラミックスの温度、YAG セラミックスへの入射パワー、YAG セラミックス透過率など、影響を与えそうなファクターを検討した。

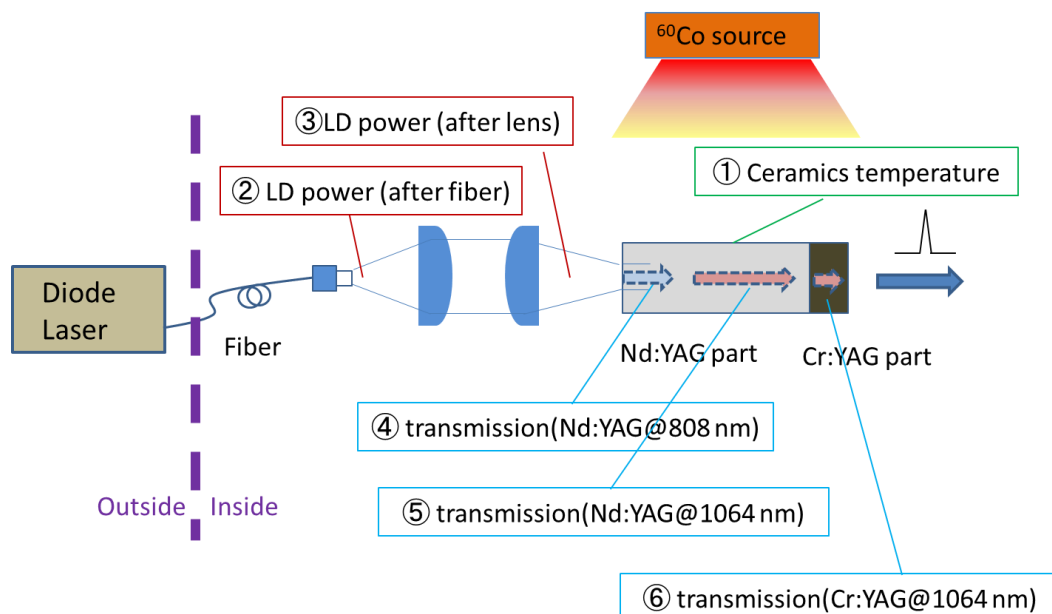


図 4.3.1-22 各マイクロチップレーザーコンポーネントへの放射線影響測定系概略

##### ① YAG セラミックスの温度

セラミックスの温度が照射時に大きく変わっているならば、発振特性に影響を与える可能性がある。このため、照射中の YAG セラミックスの温度を直接熱電対で測定した。その結果、図 4.3.1-23 に示すように温度変化は主として室温のドリフトが支配的であることがわかった。ガンマ照射時は温度が 20 分間で 1 度程度上昇した。しかし、これは、室温ドリフトの範囲に比べて非常に小さい。室温の変化程度では、レーザー特性は変わらないので、この程度の温度上昇は無視できると考えられる。また、温度上昇も、YAG セラミックスの温度上昇というよりはむしろ、締め切った照射セルの室温の上昇の影響が大きいと考えられる。

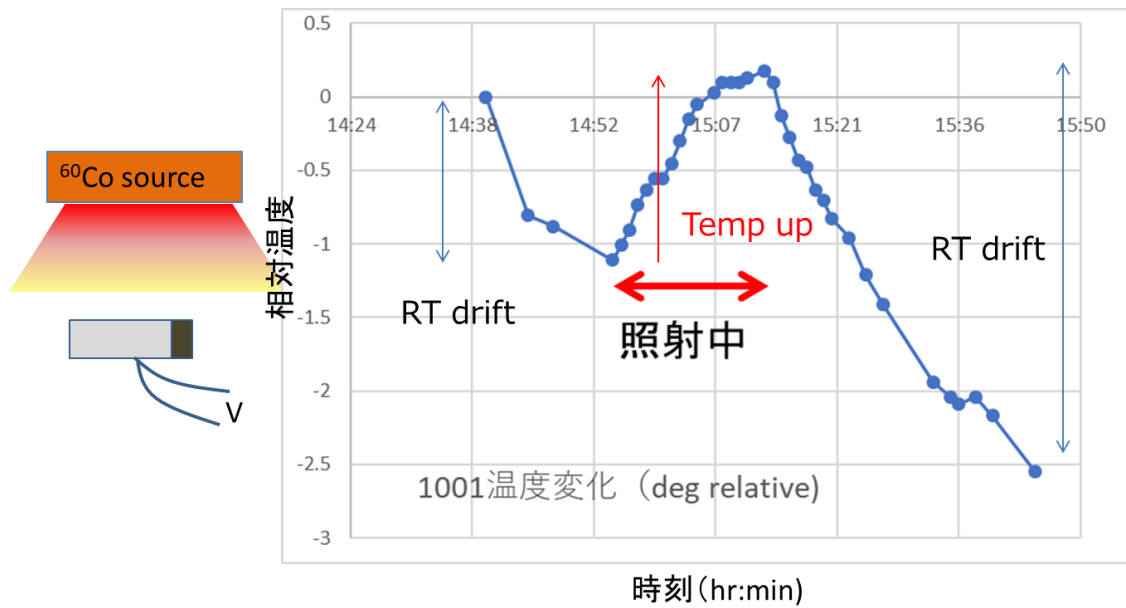


図 4.3.1-23 YAG セラミックス温度の経時変化

② ファイバー出口における LD 光出力

LD 励起光の伝送ファイバーは市販の高 OH 濃度タイプであり、高線量率環境下では、紫外可視波長域での透過損失が大きいことが知られている。ガンマ線照射時に LD 励起光の強度が低下しているならば、レーザー特性変化は似たような挙動を示すと考えられる。そのため、図 2.1.24 に示す配置でファイバー出口の LD 強度の変化を 10 kGy/h で測定した。その結果、レーザーパワーはガンマ線照射に殆ど影響を受けていないことが確認された。

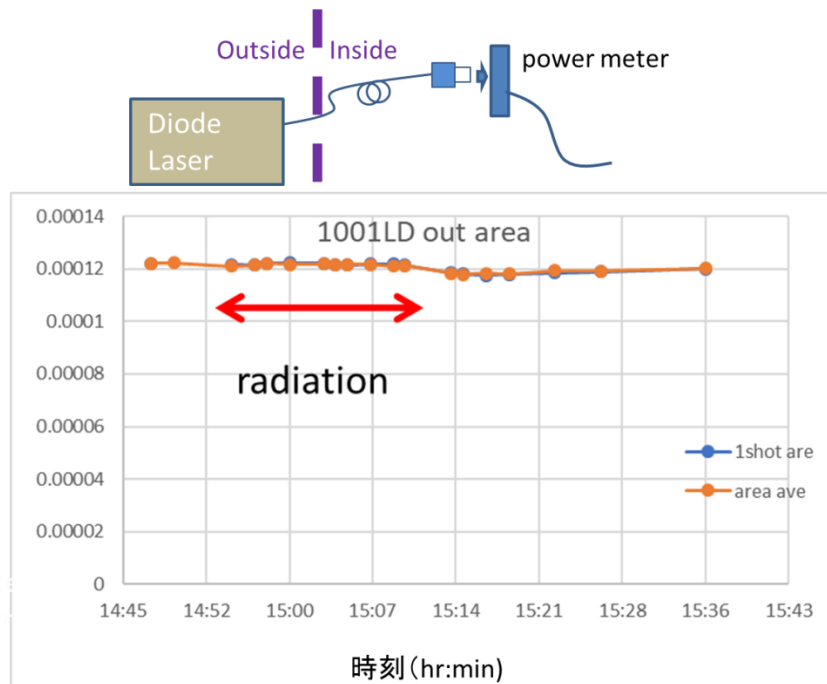


図 4.3.1-24 ファイバー出口での LD 光出力経時変化



### ③ レンズ透過後の LD 光出力

②と同様に、励起用レンズの透過率が放射線で劣化すると LD 強度が低下して、放射線照射効果と区別がつかない。そのため、LD 伝送光ファイバー、励起レンズの後、即ち YAG セラミックス入射直前のレーザーパワーを測定した。その結果、図 4.3.1-25 に示すように②と同様にガンマ線照射時にほとんど影響を受けていないことがわかった。②③より、励起 LD 光は放射線の影響を受けていないと結論した。よって、YAG セラミックス内の影響と絞り込むことができる。

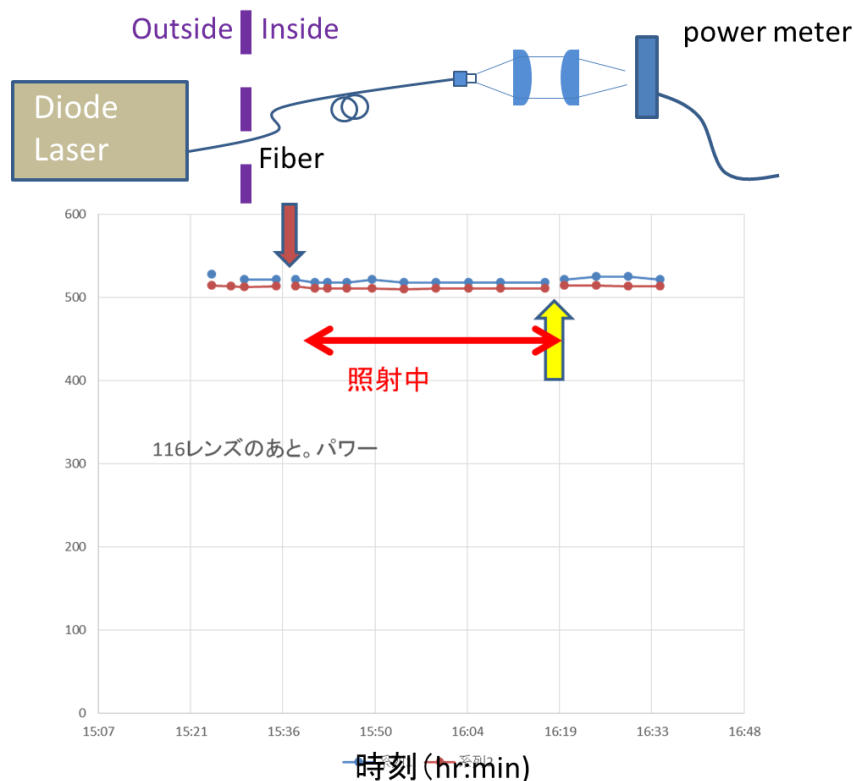


図 4.3.1-25 ファイバーおよびレンズ透過後の LD 光出力の経時変化

### ④ 結晶透過後の LD 光出力

YAG セラミックス内の影響として、透過率の変化を図 4.3.1-26 に示す配置で測定した。励起 LD 光 808 nm を Cr:YAG は含まない Nd:YAG 単体 (Baikowski, 1.1%Nd, 3 mm×3 mm×6mm, コート付) に通して、抜けた LD パワーを測定する。ここで、入射光強度は時間的に安定しているため、直接透過した強度のみを評価している。図 4.3.1-26 (a), (b)は透過した 808 nm 光の出力電圧の経時変化を示している。上図が 5 kGy/h、下図は 10 kGy/h の線量率条件である。ガンマ線照射開始で透過した LD 光強度は減衰している。照射を止めると回復して増えてくる。照射開始—照射停止サイクルが同じではないので厳密ではないが、強度低下の程度を比較すると、減衰は 10 kGy/h のほうが早く、回復時間にはあまり差が見られない様子であった。本結果は、808 nm の吸収損失が放射線照射で増加したことを示している。また、10 kGy/h では 2 回引き続いて照射しているが、2 回目の照射直後回復待ちの時に、一時的に LD 光を止めてみている (通常それ以外の条件では、LD 光は流し続けており、レーザーは発振し続けている)。回復の様子を比

較したところ、照射していた場合と挙動に違いは見られなかった。LD 及びマイクロチップ出力光が結晶内を通過していることによる熱、電磁波等の、回復挙動（回復促進効果）への影響はないことを示している。このことから、YAG セラミックス自体が室温の環境下で損傷回復をしていることがわかった。

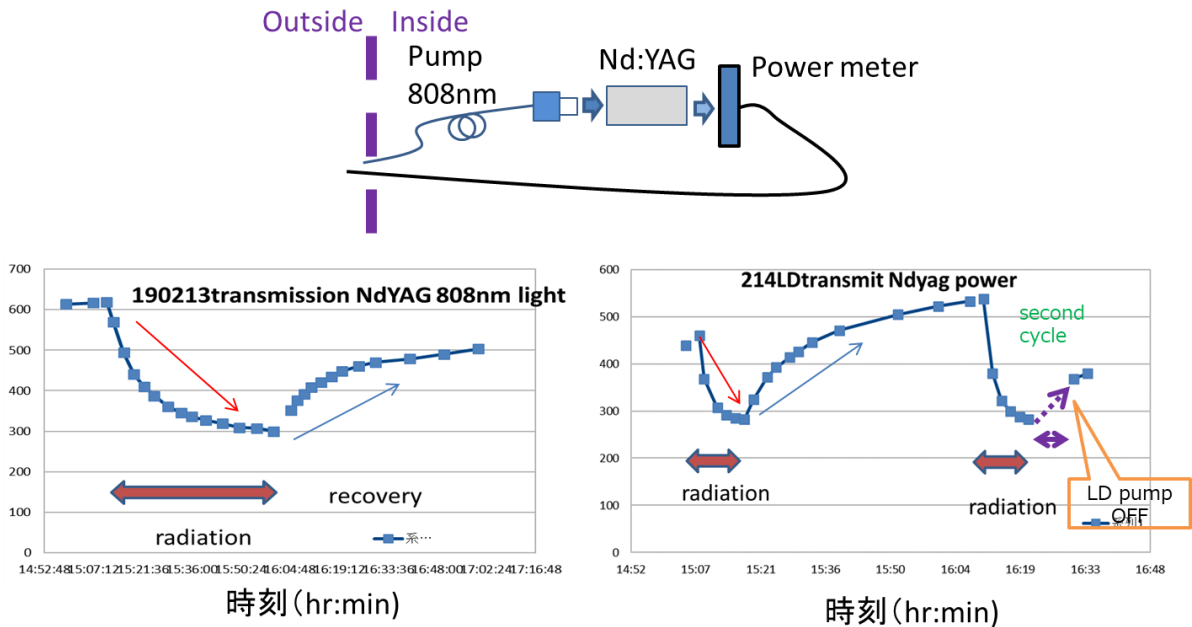


図 4.3.1-26 結晶透過後の LD 光出力の経時変化

### ⑤ 1064 nm 光の結晶透過後出力

Nd:YAG の 1064 nm の透過率の時間変化を図 4.3.1-27(a)に示す配置で測定 (5 kGy/h) した。なお、Nd:YAG の反射コーティングは除去して無垢の YAG セラミックスとした。照射セル外にマイクロチップレーザーをセットして出力光をファイバーに導入し、照射前の出力との相対強度を時間でプロットした。図 4.3.1-27(b)は 5 kGy/h での結果である。減少量が少ないため、ばらつきは大きく見えるが、照射により強度が減少し (赤矢印)、停止により回復 (緑矢印) している。2 サイクル確認している。Nd:YAG の透過率の減衰速度は 808 nm の方が 1064 nm よりも大きい。同じ条件で比較していないが、減少・回復の時定数は 1064 nm の方が長いように見える。Rose 等は、に示すように Nd:YAG は、kGy/h 相当の放射線照射で、カラーセンターに起因する吸収が増加することを報告している [1]。変化量 (下図) を比較すると、短い波長 (808 nm) の方が、長波長 (1064 nm) よりも吸収が大きいことがわかる。これは透過率の測定変化量の傾向と一致している。また、Compton 等は、ポンプ光に対する Nd:YAG 発振出力が照射で減少し、停止後 24 時間で回復していることを報告している [2]。詳細な機構は記されていないが、ガンマ線照射による減少と回復の挙動における我々の結果はこの論文と整合している。一方で、Cr:YAG 透過率についても Cr:YAG 結晶単体 (Baikowski, 3 mm×3 mm×3mm, T=30%, コート付) を用いて検討した。ここで、808 nm の LD 励起光は飽和吸収過程には関係しないので、1064 nm 光のみ調べた。図 4.3.1-28 に測定系と透過光出力の時間変化を示す。照射によって透過光強度には有意な変化は見られない。このことから、Cr:YAG 部分への影響は考えなくても良いと結論された。

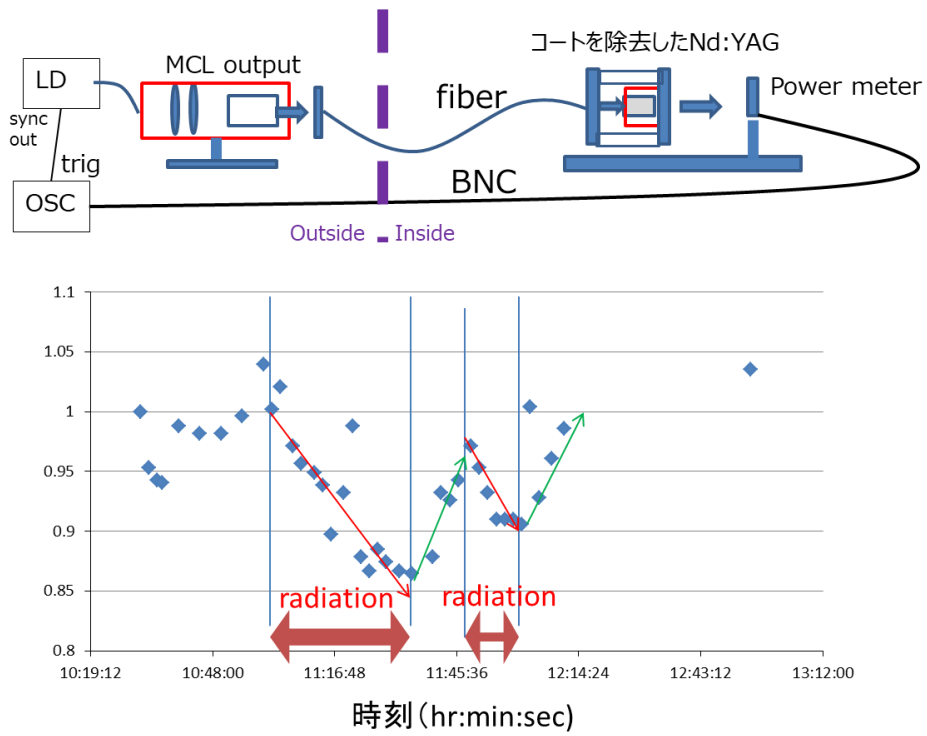


図 4. 3. 1-27 Nd:YAG 結晶透過後の 1064nm 光出力の経時変化

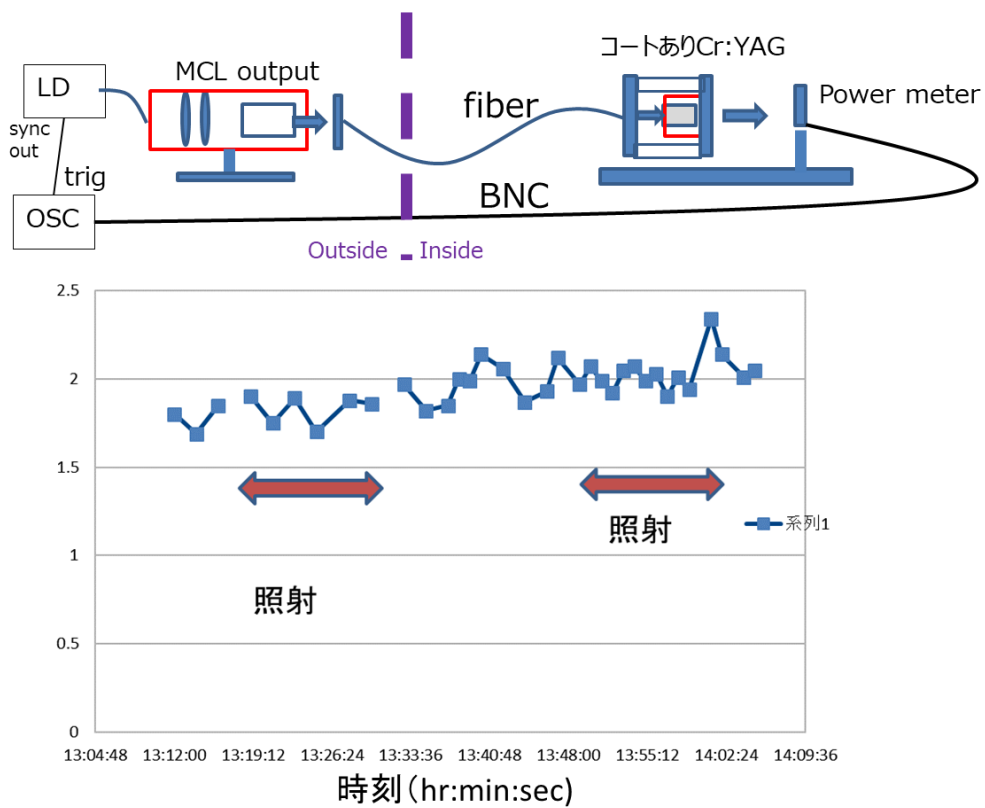


図 4. 3. 1-28 Cr:YAG 結晶透過後の 1064 nm 光出力の経時変化

上記の①～⑤の結果を表 4.3.1-3 にまとめた。これらのことから、出力低下の要因は Nd:YAG セラミックス内の損失が主なものであり、それは照射後室温のもとでそれ自体が回復する、と結論付けられる。

表 4.3.1-3 MCL コンポーネンツに対する放射線の影響

測定項目	放射線照射による変化
YAG セラミックス温度	変化なし
光ファイバー透過後 LD 光出力	変化なし
レンズ透過後 LD 光出力	変化なし
YAG セラミックス透過後 LD 光出力	減少
Nd:YAG の 1064 nm 光の透過	減少
Cr:YAG の 1064 nm 光の透過	変化なし

### 5) LIBS への影響の考察

これまでの測定の範囲で、LIBS 信号への影響に関してまとめた。図 4.3.1-29 はレーザー発振特性パラメーターの相対的変化量を示している。

青印は、パルス 1 本あたりのエネルギー（シングルパルスエネルギー） $E(J)$ 、（主に昨年度評価）で照射線量率の増加に対して減少する。赤印は、レーザーパルス幅、 $D(s)$  で、僅かに増加する。緑印のレーザービームサイズ、 $S(cm^2)$  は、増加した。これらの結果から評価した、ピークパワー、 $E/D(W)$ （紫印）は減少する。また、レーザー強度、 $E/D/S(W/cm^2)$ （水色）は集光点における強度に相当するため、プラズマ放出強度や、シングルパルス照射による LIBS 信号強度に影響すると考えられる。これらは、相対値で評価すると、0 kGy/h から線量率が増加するしたがって減少している。時間あたりのパルス列の数を  $N$  とすれば、パルスを繰り返し測定してその積算値を求める場合（Burst-mode）では、この積で見積ることが妥当であり、その値  $E/D/S*N$  は、橙印で表示した。いずれの場合も、相対値は 3 割程度に減少している。以上のことから、LIBS 信号強度は 3 割程度に減少すると予想される。この評価から、LIBS 信号の低下は、主にレーザーの特性によると考えられる。しかし、信号生成部分の放射線影響を否定するものではない。

LIBS の観点から、発光強度に依存するようなプロットで比較したものを図 4.3.1-30 に示した。シングルパルスエネルギー、 $E$ 、レーザースポットサイズの逆数、 $1/S$ 、パルス数、 $N$ 、パルス幅の逆数、 $1/D$  で検討した。この比較により、どのファクターがより放射線の影響を受けて直接的に LIBS に効いているかがわかる。この図より、LIBS 信号の減少に最も影響を与えるのは  $E$  であることがわかった。このことから、信号強度を回復するにはパルスエネルギーを減らさないこと、即ち共振器内の基本波長のロス（ポンプ光損失は発振タイミングに主に影響する）を減らす必要があり、放射線耐性のある結晶の開発が望まれる。しかしながら、現状の装置では、例えば、LD の Burst-mode の利用や試料へのアルゴンガスフローによるプラズマ発光増強などを施して予め発光信号強度を大きくしておくことで、LIBS 分析が十分実施できることが想定できる。

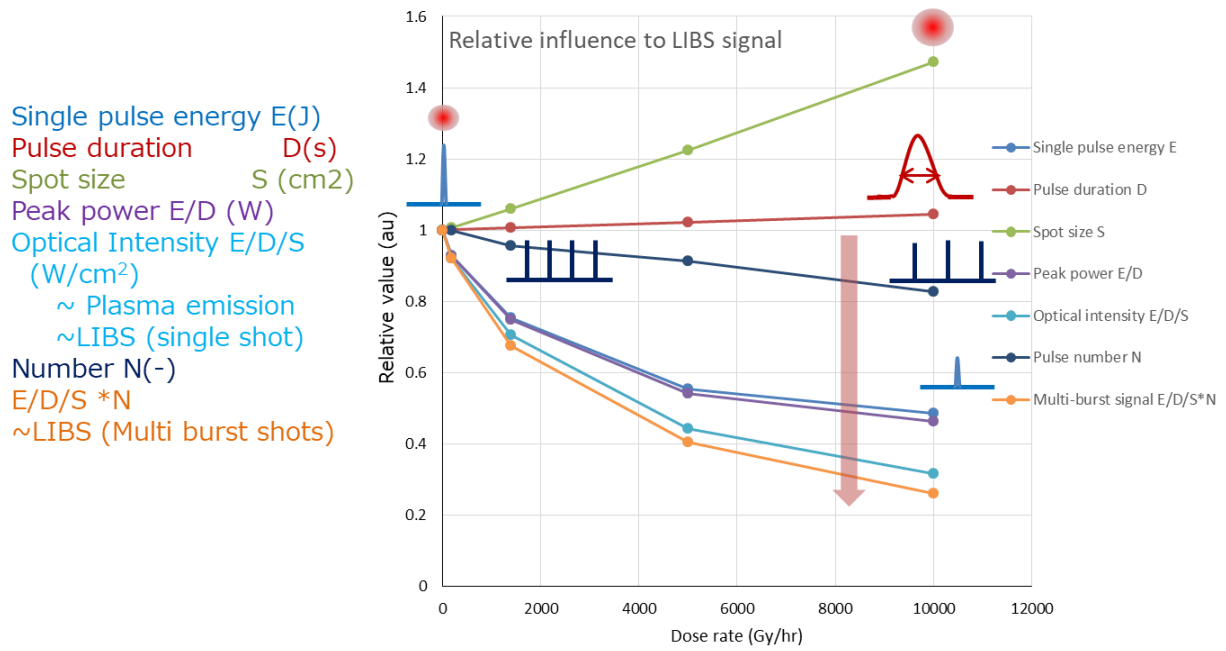
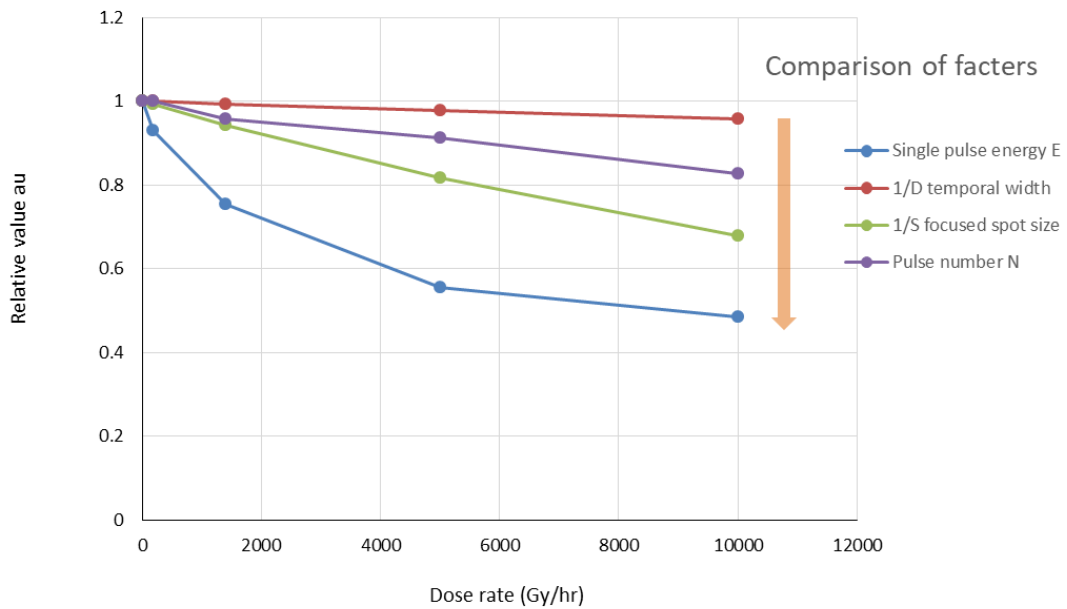


図 4.3.1-29 レーザー発振特性パラメータの相対的変化量と線量率の関係 (1)



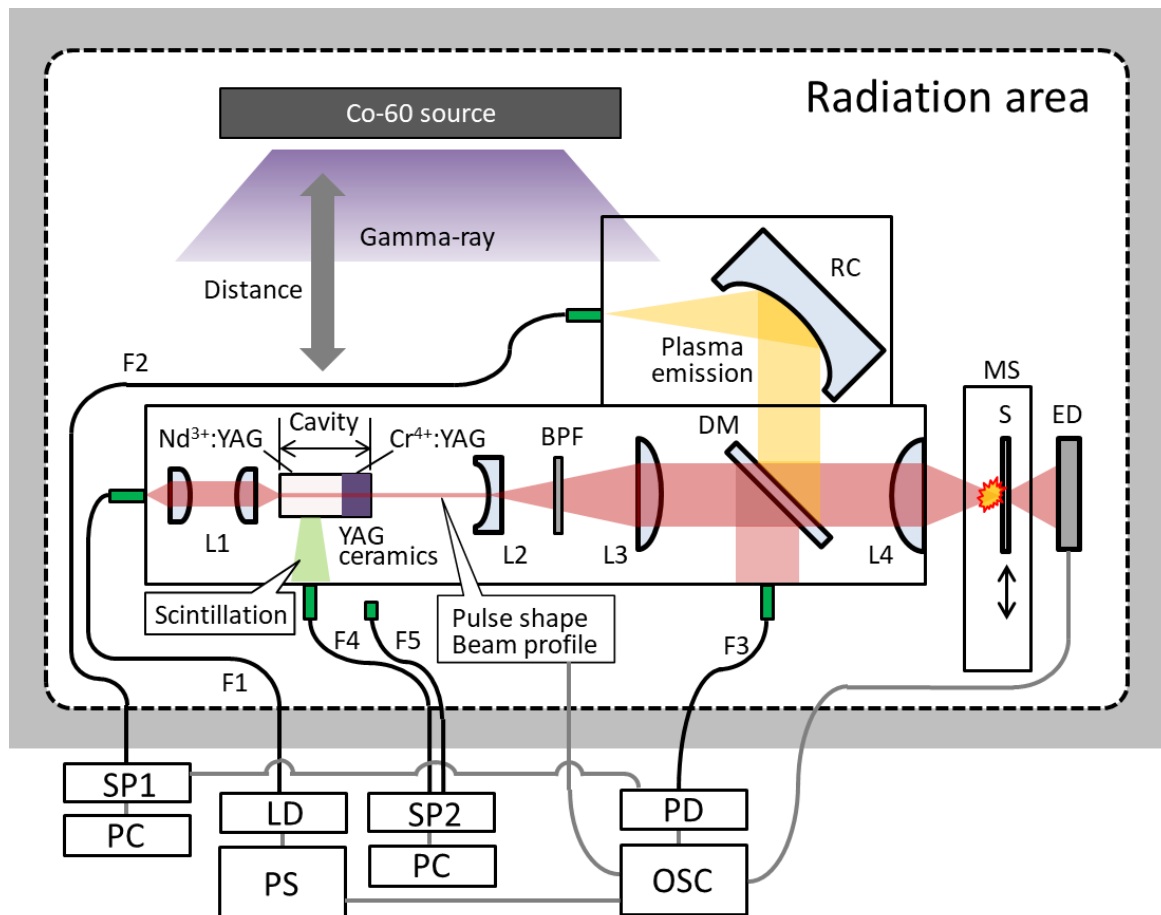
信号強度の減少：シングルパルスエネルギー > スポット径 > パルス数 > パルス幅

図 4.3.1-30 レーザー発振特性パラメータの相対的変化量と線量率の関係 (2)

#### 4.3.2 マイクロチップレーザーLIBS 装置性能の総合的評価

放射線照射環境下での MCL-LIBS 特性を調べるために、図 4.3.2-1 に示すような測定体系を整備した。コントローラ（ユニタック製、PLWB168）付き LD（JENOPTIK 製、JOLD-120-QPXF-2P iTEC）からの 808 nm の励起レーザー光をコア径 600  $\mu\text{m}$ 、NA0.22、長さ 5 m の光ファイバーで伝送して複合セラミックレーザー媒質（Baikowski Japan 製、1.1 %Nd<sup>3+</sup>:YAG/Cr<sup>4+</sup>:YAG 接合体、T=30%、3 mm×3 mm×10 mm）に照射して、パルス幅～900 ps の 1064 nm レーザー光を発振させた。その後レンズで集光して試料に照射しプラズマを生成させた。計測トリガーはレーザーヘッド内から発振光を取り出してフォトダイオード PD（Thorlabs 製、DET08C/M）で検出することにより LIBS 計測を行った。

LIBS 試料としてジルコニウム金属（ニラコ製 Zr metal sheet、ZR-493401）、模擬燃料デブリなどを用いた。模擬燃料デブリ試料の調製では、構成元素割合を、Ce（U 模擬）：Fe：Zr = 60 %：35 %：5 %とし[4]、これら酸化物粉末に Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末を 2.5 wt%混合させて圧縮成形後、1375 °Cで5時間焼成した。なお、試料表面でのレーザーエネルギーは 0.6 mJ/pulse である。発光プラズマはレーザーヘッド内でダイクロイックミラーDM（Thorlabs 製、DMLP900）を用いてレーザー光と分離して分光器に導いた。分光計測 SP1 は、ジルコニウム金属は簡易 CCD 分光器（Avantes 製、AvaSpec-ULS2048CL-EV0）を使用した。また、模擬燃料デブリ試料では多元素で且つ発光線が干渉するため、EMCCD 付き高波長分解能エシエル型分光器（Catalina Scientific 製、EMU120/65）を用いてレーザー照射から 1.0  $\mu\text{s}$  後の 2.0  $\mu\text{s}$  間露光し、100 回積算した。



- |                               |                     |
|-------------------------------|---------------------|
| F1: 結晶励起用半導体レーザー光伝送光ファイバーケーブル | S: 測定試料             |
| F2: プラズマ発光伝送用光ファイバーケーブル       | MS: 移動ステージ          |
| F3: 分光器計測トリガピックアップ用光ファイバーケーブル | ED: レーザーエネルギーディテクター |
| F4: 放射線発光測定用光ファイバーケーブル        | DM: ダイクロイックミラー      |
| F5: 参照用ブランク光ファイバーケーブル         | RC: 反射集光鏡           |
| L1: 集光レンズペア                   | SP1: LIBS用分光器       |
| L2: レーザー光拡大用平凹レンズ             | SP2: 放射線発光測定用分光器    |
| BPF: バンドパスフィルター(1064nm)       | LD: 結晶励起用半導体レーザー    |
| L3: レーザー光平行化平凸レンズ             | PS: LD用制御電源         |
| L4: レーザー光集光用平凸レンズ             | PC: 計測用パソコン         |
|                               | OSC: オシロスコープ        |

図 4.3.2-1 放射線環境下マイクロチップレーザーLIBS 試験配置

### 1) ジルコニウム金属を用いた LIBS 特性

Zr金属を試料としたMCL-LIBS特性として、LD発振モードの違いによる発光スペクトル出現について簡易CCD分光器を使用して調べた。図4.3.2-2にレーザー条件として0.6 mJ/pulse、繰り返し1 Hz、200回照射平均、露光時間1 msでの近赤外波長域での発光スペクトル観測例を示す。なお、LIBS測定は非放射線環境下で実施した。ここで、LD発振モードとして、LD電流を最大値(120A)に設定してLDパルス幅を20  $\mu$ sとすることでシングルパルスを発振させた場合をHモード、LDパルス幅を最大の500  $\mu$ sに設定して、LD電流をシングルパルス発振の最小値(21.1A)に設定した



Lモード、そしてLD電流、LDパルス幅ともにを最大値（120A、500  $\mu$ s）とすることによりマルチパルスレーザーが発振するBurst-modeであるMモードとした。一見してMモードが桁違いに発光強度が大きい印象を持つが、ベースラインも高くなっている。そこで、発光スペクトルの813 nm近傍のピークおよびベースラインを用いて強度比として、信号強度とバックグラウンド強度の比（SBR）および信号強度とノイズの比（SNR）を検討した。表4.3.2-1に結果をまとめた。S/Bでは、H、L、Mいずれの照射方法でも変わらないが、SNRでみると、Mモード（マルチパルス）が10倍高いことがわかる。このことから、放射線照射によってレーザー出力低下が予想される状況では、Mモード発振が有効であることが示された。

表4.3.2-1 814nm近傍での信号強度比の比較

Method	M	H	L
SBR	1.8	2.4	1.8
SNR	81.6	8.9	8.6

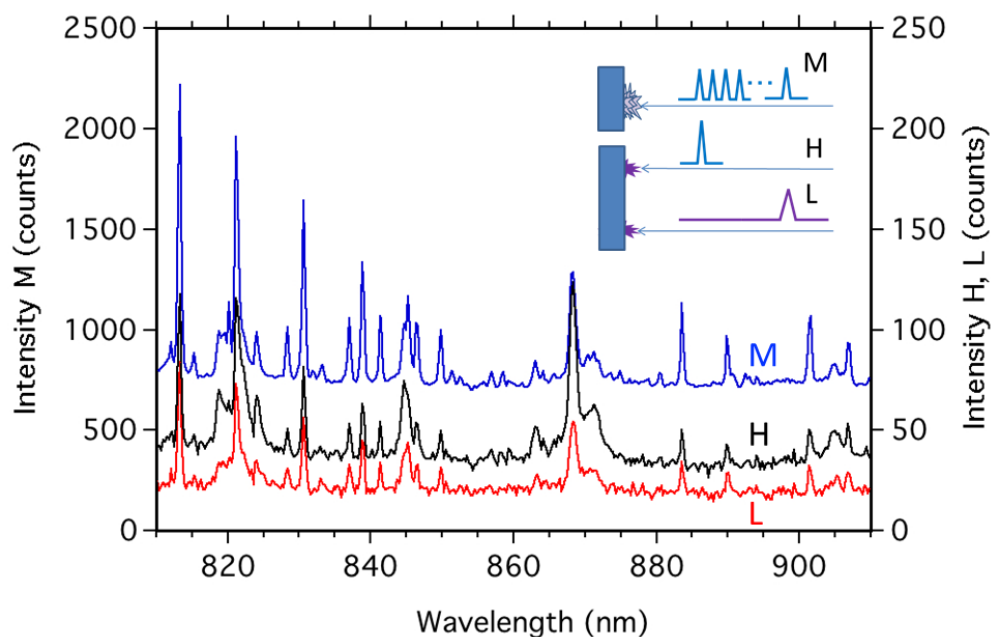


図 4.3.2-2 Zr 金属を対象としたマイクロチップレーザーLIBS 測定例

放射線照射環境下での LIBS 測定結果の一例を図 4.3.2-3 に示す。ガンマ線照射開始前（0 kGy/h）と 10 kGy/h を照射して 2 時間経過後（累積線量 20 kGy）に測定したスペクトルで、図 4.3.2-3 (a)は紫外波長域、図 4.3.2-3 (b)は近赤外波長域のジルコニウムの発光である。なお、LD は L モードで発振させて繰り返し 5 Hz、観測条件は 100 回照射平均、露光時間 10 ms とした。紫外波長域では、中性原子よりもイオンの発光が顕著に観測されたが、近赤外波長域ではほとんどが中性原子の発光であった。高線量率環境下では、紫外波長域の発光スペクトル強度はレーザー出力の低下だけでなく、光ファイバーの透過率劣化の影響により大幅に低下している。これに

対して、近赤外波長域でのその低下は半分程度であった。近赤外波長域では光ファイバーの透過率がほとんど変化しないことが知られている[5]ので、本結果は、レーザー出力のみが放射線の影響を受けていることを示している。前説において、放射線照射による発振特性の低下で、LIBS信号強度の低下が予想されたが、本結果は、MCL-LIBS を用いて高線量率環境下でも組成分析が可能であることを実証した。

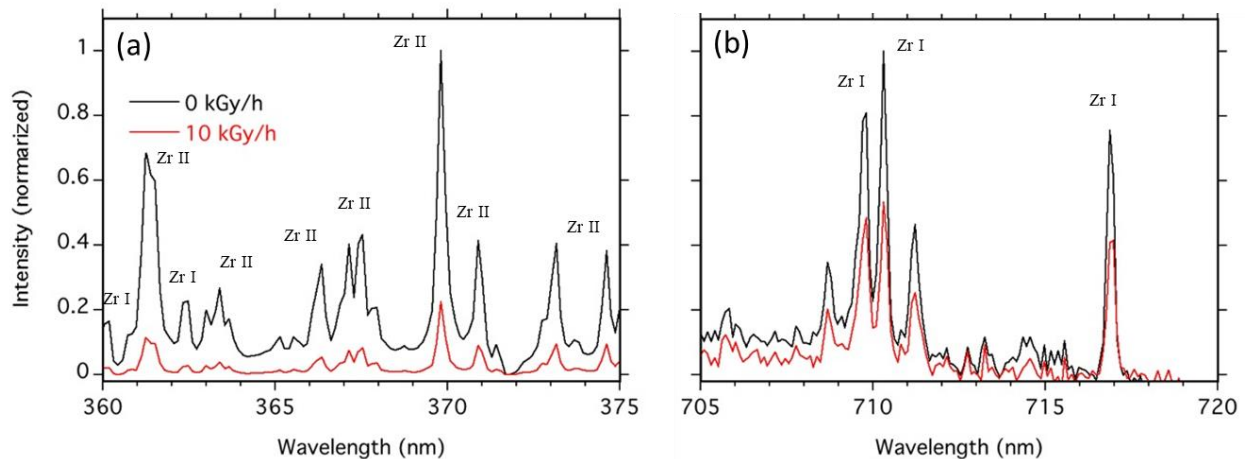


図 4.3.2-3 ガンマ線照射環境下での Zr の紫外波長域 (a)、近赤外波長域 (b) LIBS 測定例

## 2) 酸化物混合体を用いた LIBS 特性

模擬燃料デブリ試料からの空气中 LIBS 発光スペクトル観測例を図 4.3.2-4 示す。図中の赤い線が MCL-LIBS のスペクトルで、青い線は比較のためにこれまでに適用していた従来型ファイバー伝送 LIBS (パルス幅 8 ns、ファイバー長さ 5m、コア径 1000  $\mu\text{m}$ 、NA0.12) でプローブでの出力が 10 mJ/pulse とした場合を示した。スペクトル出現状況として、信号強度は大幅に異なるものの特定ピークの増大や環境雰囲気ガスからの励起発光は観測されず、スペクトル形状は一致した。従来適用型ファイバー-LIBS の場合は、スポット径がファイバーコア径や N.A. で制限されて縮小光学系によって集光スポットが決まる。例えば今回使用した条件ではスポット径 350  $\mu\text{m}$  である。これに対して MCL では高輝度、高品質のレーザー光を発振できる[6]ので集光レンズ調整によっては 10  $\mu\text{m}$  のスポット径も可能であり、エネルギー密度にすれば従来適用型に比べて極めて大きくできる。図 4.3.2-4 の信号強度増大の結果はエネルギー密度の影響によるもの大きいと思われる。また、スペクトル形状が一致、即ち SBR が同じであることを意味している。また、スペクトルピーク形状や強度比がほとんど変わらないので、プラズマ特性に大きな差は無いと考えられる。ピークパワーについては、スポット径とパルス幅の違いにより、MCL の方が大きく、MW 級である。今後、レーザー照射痕を観察比較してパルス当りのアブレーション量等についても考察する必要がある。

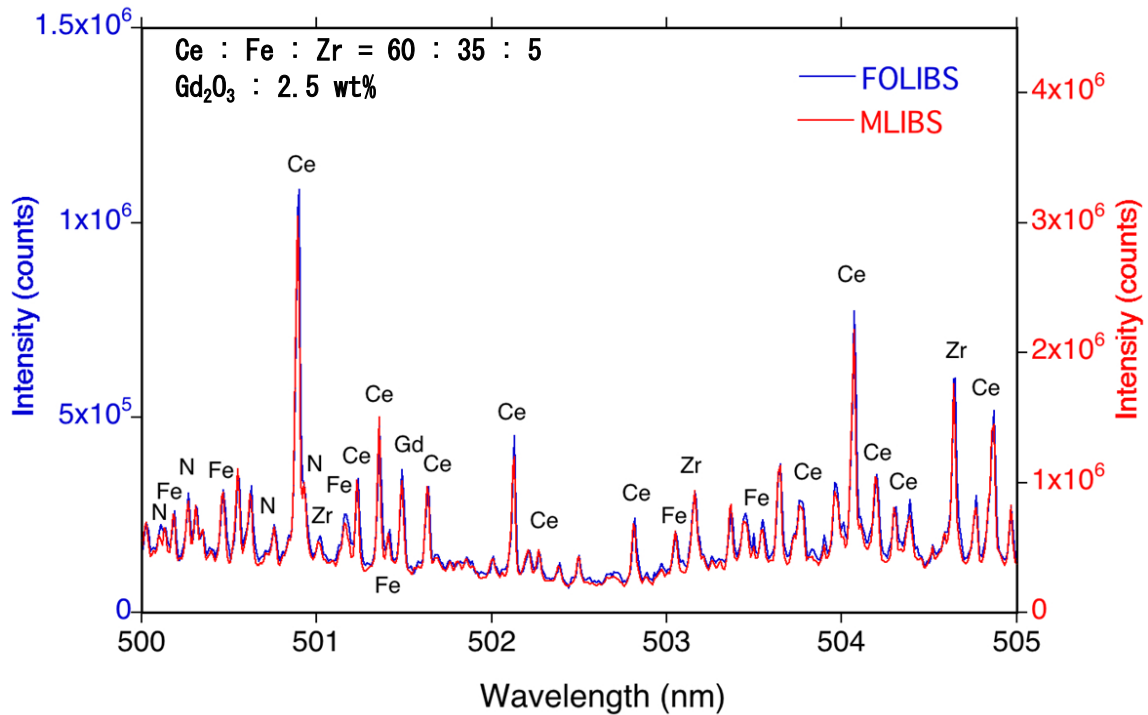


図 4.3.2-4 混合酸化物を対象とした LIBS 測定例の比較

青線は従来型のファイバーLIBS

赤線はマイクロチップレーザーLIBS

図 4.3.2-5 は、環境雰囲気ガスの影響を調べた結果で、図 4.3.2-5(a)が空气中、図 4.3.2-5(b)が窒素ガスフロー、図 4.3.2-5(c)がアルゴンガスフローを使用した例である。環境雰囲気ガスはレーザー生成プラズマと相互作用して、発光スペクトル出現に影響を及ぼす。510～520 nm でのセリウム原子の最大ピークで規格化して比較すると、窒素では空气中での 1.3 倍であったが、アルゴンガスでは 2.3 倍となった。窒素ガスの場合は分子の解離にレーザーアブレーションプラズマの励起エネルギーが消費されてしまう。これに対して、アルゴン原子は容易に励起されるので、プラズマ内での衝突過程により効果的なプラズマ発光増大を得ることができる。これにより、放射線照射時のレーザー出力低下が起きても LIBS 信号は観測されることが期待される。

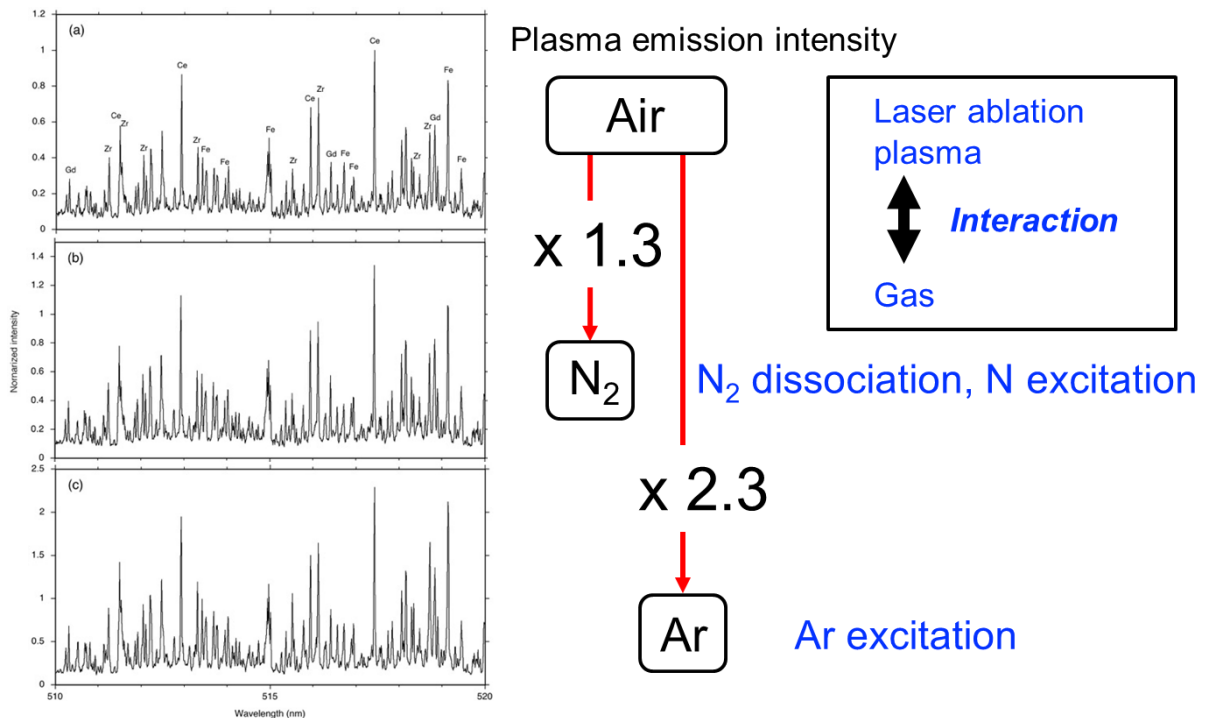


図 4.3.2-5 混合酸化物を対象とした LIBS 測定における雰囲気ガスの影響の比較

アルゴンガス (2 L/min) を流しながら、放射線環境下での LIBS を実施した。図 4.3.2-6 は線量率が 0.5 kGy/h での混合酸化物からの発光スペクトル測定例で、500~505 nm の狭い波長範囲を示した。501.5 nm にガドリニウム原子の発光ピークが明瞭に確認できる。0.5 kGy/h では、ピーク強度の僅かな減少がみられたが定性分析には問題ないことが確認できた。最大線量率での測定例を図 4.3.2-7 に示す。数分で、レーザー出力は 0.7 mJ から 0.4 mJ へと低下し、それに伴ってスペクトルピーク強度も減少した。LD の電流値は最大の 120 A に固定し、発振が不安定となった場合にはパルス幅を増加させ、約 23 分間であるが 0.4 mJ の出力が維持できることがわかった。0.4 mJ においても発光スペクトルが観測されることが確認され、高線量放射線環境下での MCL が適用可能であることが示された。今後は、耐用使用時間 (寿命) を定量的に評価する必要があると考えられる。

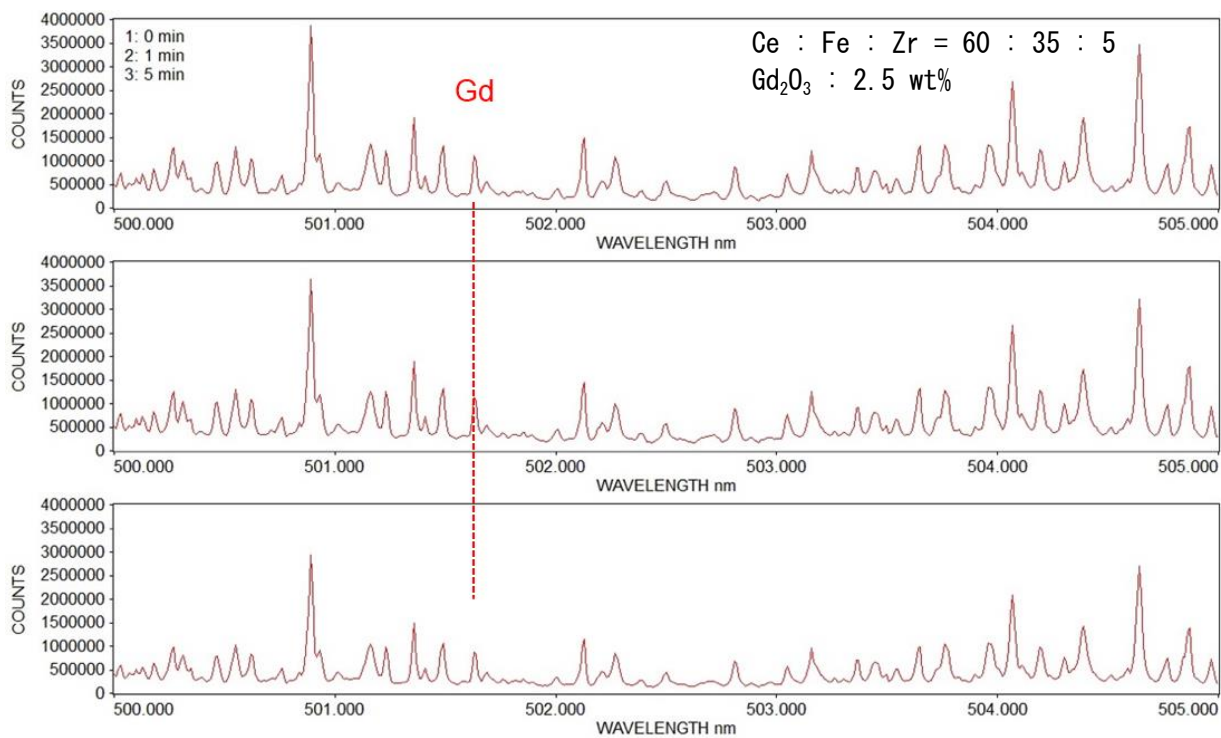


図 4.3.2-6 放射線環境下での混合酸化物 LIBS 測定例 (0.5kGy/h)

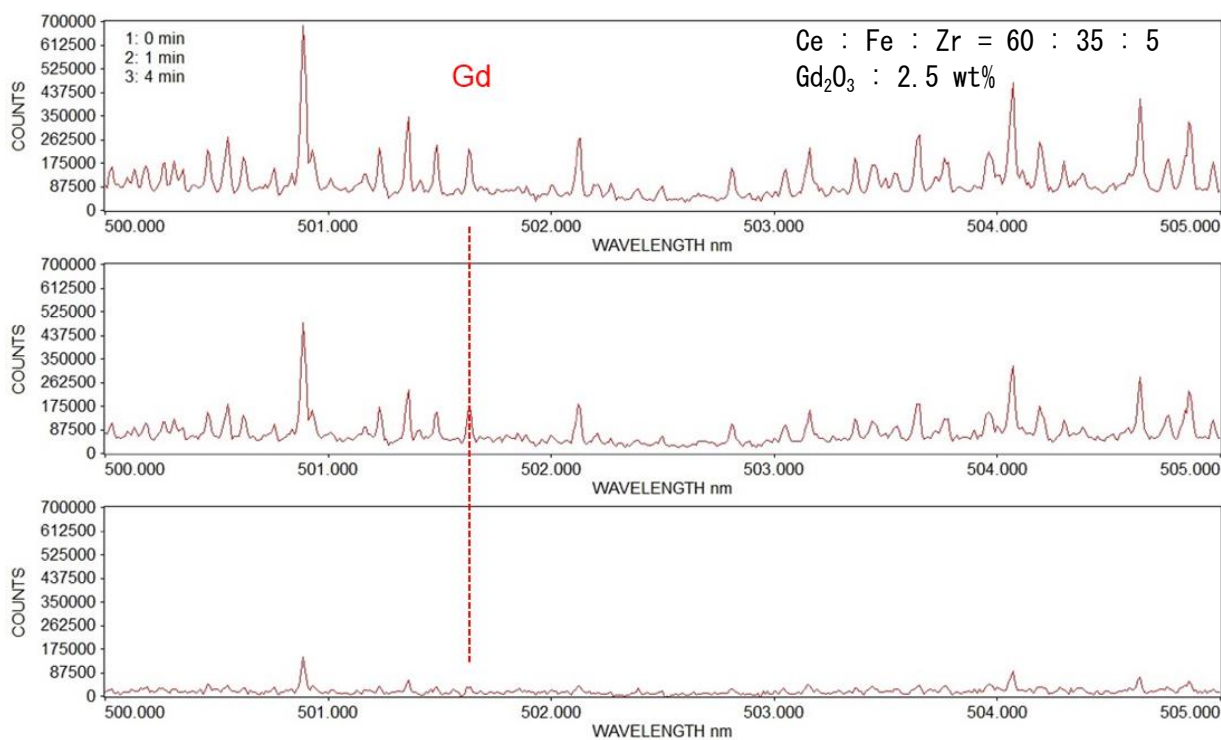


図 4.3.2-7 放射線環境下での混合酸化物 LIBS 測定例 (10kGy/h)

## 【参考文献】

- [1] T. S. Rose, M. S. Hopkins, and R. A. Fields, “Characterization and control of gamma and proton radiation effects on the performance of Nd:YAG and Nd:YLF lasers”, IEEE J. Quant. Electron., 31, 1593-1602(1995).
- [2] D. M. J. Compton and R. A. Cesena, “Mechanisms of radiation effects on lasers”, IEEE Transac. nucl. sci. NS-14, 55-61 (1967).
- [3] A. L. Tomashuk and K. M. Golant. “Radiation-resistant and radiation-sensitive silica optical fibers”, SPIE 4083,188-201(2000).
- [4] T. Nagatani, et al., INMM57, (2016).
- [5] M. Saeki, A. Iwanade, C. Ito, I. Wakaida, B. Thornton, T. Sakka, H. Ohba, “Development of a fiber-coupled laser-induced breakdown spectroscopy instrument for analysis of underwater debris in a nuclear reactor core”, J. Nucl. Sci. Technol. 51, 930-938 (2014).
- [6] H. Sakai, H. Kan and T. Taira, “>1 MW peak power single-mode high-brightness passively Q-switched Nd<sup>3+</sup>:YAG microchip laser”, Opt. Express 16, 198



## 5. LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（再委託先：自然科学研究機構）

### 5.1 目的・概要

LIBS 用マイクロチップレーザーシステムを構築し、ガンマ線照射済レーザー部品を用いたマイクロチップレーザー動作特性試験、マイクロチップレーザーのガンマ線照射環境下での発振試験を行い、その動作特性を評価する。併せて、波長 532 nm のレーザー光（第二高調波）の発振の可能性について検討する。

これらの評価、検討を行うため、LIBS 用マイクロチップレーザーを整備して発振を確認し、当該レーザー部品をガンマ線照射供試体とする。量研機構でのガンマ線照射後、レーザーシステムを再構成して発振確認を行い、レーザー発振エネルギーのしきい値とガンマ線照射線量の関係を調べて特性を評価する。また、波長 1064 nm 発振のマイクロチップレーザーにおいて、<sup>60</sup>Co 線源からの距離を変えることによって線量率を変化させて、レーザー動作試験を行い、レーザー発振特性に及ぼす放射線の影響を評価する。さらに、波長 532 nm 短波長化では、第二高調波結晶の放射線耐性、温度許容特性を評価することで、安定な発振の可能性を検討する。

### 5.2 平成 28、29 年度の成果

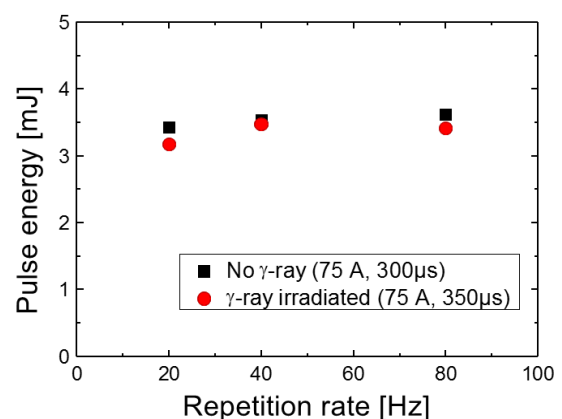
LIBS 用マイクロチップレーザーを整備して発振特性を取得し、光学素子等レーザー部品をガンマ線照射用サンプルとして供与した。

ガンマ線照射済レーザー構成部品を用いた動作特性として、レーザー発振しきい値を取得し、ガンマ線照射の影響を調べた。

LIBS 用マイクロチップ Q スイッチレーザー（マイクロチップレーザー）は、波長 808 nm、準連続出力 110 W の励起用ファイバー出力半導体レーザー、光ファイバー、集光光学系、レーザー発振素子としてモノリシック Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスとそのホルダー及び温度調節装置により構成した。

マイクロチップレーザーの耐放射線性を調べるため、レーザー発振素子である Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスをガンマ線照射し、照射の前後でレーザー発振特性を比較評価した。照射前のマイクロチップレーザーの性能として、繰り返し周波数 20-80 Hz の条件で、レーザー発振に必要な励起レーザー光のしきい値エネルギー 33 mJ、出力エネルギー 3.6 mJ(80 Hz)、パルス幅 0.5 ns(80 Hz)を確認し、この Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスを、ガンマ線照射用サンプルとして量研機構に供与した。

量研機構における累積線量 714 kGy のガンマ線照射後にマイクロチップを回収し、ガンマ線照射前と同様の条件下でレーザー発振を確認した。その結果、発振しきい値エネルギーは 38.5mJ で 17%増大したが、出力パルスエネルギーは 3.4 mJ(80 Hz)、パルス幅は 0.5 ns(80 Hz)とレーザー特性には変化が見られなかった。ガンマ線照射によって効率が若



ガンマ線照射前後でのレーザー発振特性



干劣化したものの（しきい値が 17 % 増大）、出力特性には変化はなく、安定動作も検証された。今後、Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスの個体差やガンマ線照射線量依存性等の評価が必要であると考えられる。

マイクロチップレーザーを整備してファイバーLIBS 計測系を構築し、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認した。

ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討した。

マイクロチップレーザーヘッドを製作し、その構成部品であるレーザー素子等をガンマ線照射した。照射後のレーザー素子を用いてレーザー発振特性を取得し、照射線量に対するレーザー発振特性を取得することで、マイクロチップレーザー素子の耐放射線特性を調べた。その結果、照射後も良好なレーザー発振特性を検証できた。さらに、マイクロチップレーザーのシステム全体にガンマ線を照射し、Q スイッチ動作が正常に行われるかを検証した。その結果、ファイバーやレンズなど一部のガラス部品に劣化があったが材質を変えれば問題が無いこと、さらにレーザー材料に至っては問題なく良好なジャイアントパルスが望めるレーザー発振が可能である事を検証できた。

マイクロチップレーザーの短波長化のため、レーザーヘッドに非線形結晶を取り付け、基本特性を測定した。サブナノ秒で出力 0.98 mJ の第二高調波を発生させることに成功した。



**放射線照射後の良好な発振**

### 5.3 平成 30 年度の成果

#### 5.3.1 非線形光学結晶へのガンマ線照射影響調査

LIBS 用マイクロチップレーザーの短波長化に必要な第二高調波発生用の非線形光学素子 LBO 及び YCOB のガンマ線照射特性を調べた (図 5.3-1、図 5.3-2)。Co-60 放射線チャンバー内に線源から距離を変化させて配置して照射線量率を変化させた。照射時間は 85 分とした。

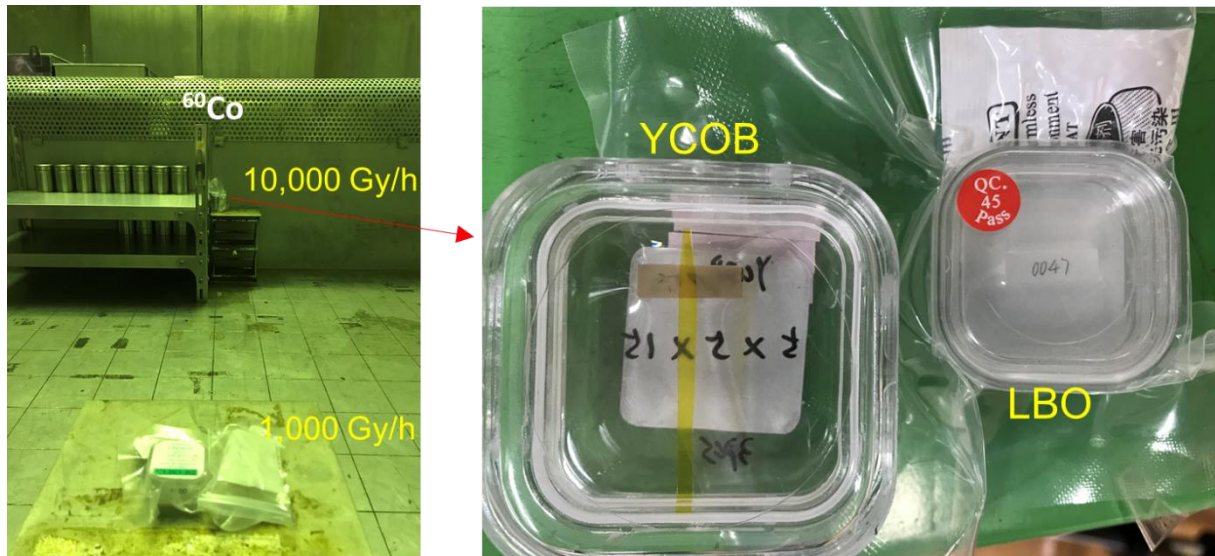


図 5.3-1 非線形光学結晶サンプルのガンマ線照射実験

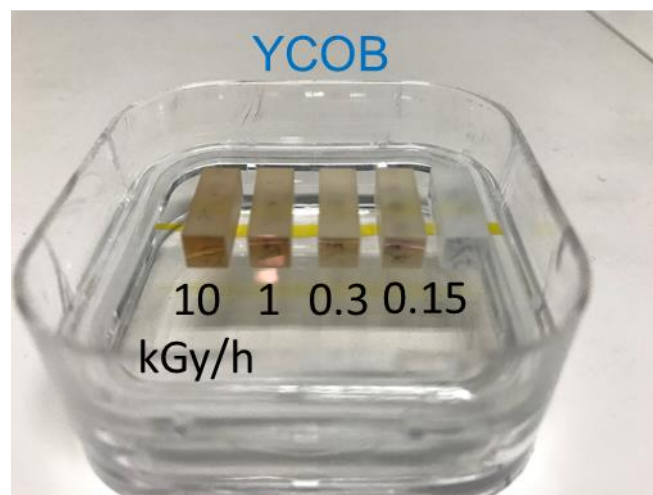


図 5.3-2 ガンマ線照射後の YCOB 外観. 照射による着色

ガンマ線量率を最大 10 kGy/h まで変化させたサンプルの透過率波長依存特性を U-3500（日立）により測定した（図 5.3-3）。LBO は測定範囲内ではほぼ変化は無かったものの、YCOB は着色が著しく第二高調波の 532 nm を中心とした可視領域で透過率を落とした。この結果を踏まえ、以降の第二高調波発生では LBO を選択し、実験に用いた。

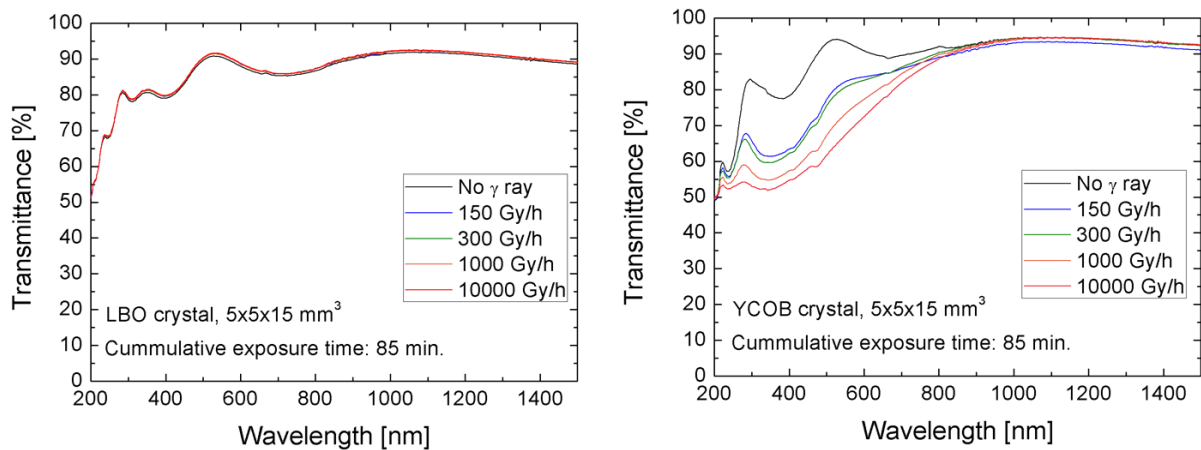


図 5.3-3 ガンマ線照射後の非線形光学結晶透過率の波長依存性

### 5.3.2 レーザー媒質へのガンマ線照射影響調査

非線形光学結晶と同様の構成にて、レーザー材料として Nd:YAG セラミックス、Nd:YAG 単結晶、さらに耐放射線に優れているとされる Ce,Nd:YAG セラミックスの三種類にガンマ線照射実験を行った。各種材料の長さによる差を規格化するため吸収係数増加分の波長依存性を評価した（図 5.3-4、図 5.3-5）。その結果、Nd:YAG 単結晶、Ce,Nd:YAG セラミックス、Nd:YAG セラミックスと、この順で耐放射線に優れているものの、レーザー発振波長である 1064 nm では、Ce 添加による影響は小さい。むしろ単結晶の Nd:YAG の方が優れているとの結果が得られた。しかし、セラミック YAG は焼結法による接合で Nd:YAG/Cr:YAG の複合構造が望める単結晶には無い特長を有する。

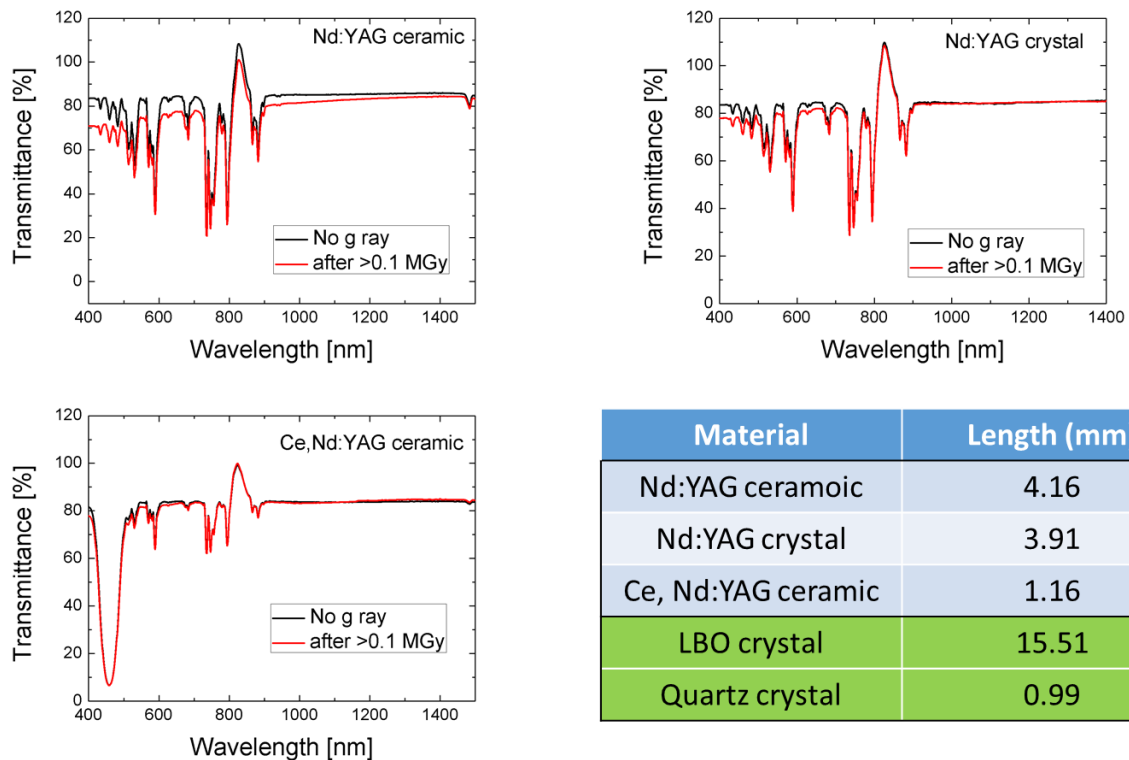


図 5. 3-4 ガンマ線照射後の各種レーザー材料透過率の波長依存性

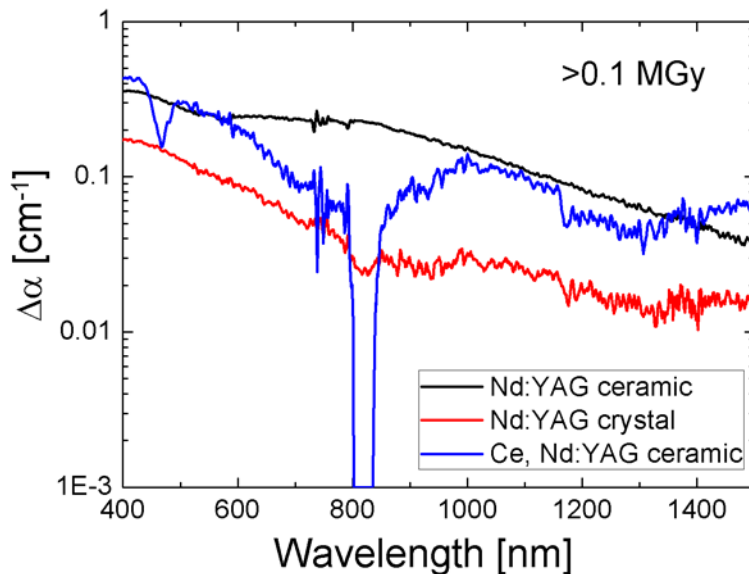


図 5. 3-5 ガンマ線照射後の各種レーザー材料における吸収係数増加分の波長依存性

### 5. 3. 3 ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：基本波

平成 29 年度までは、Nd:YAG/Cr:YAG セラミックス素子のガンマ線耐性を評価し、良好な結果を得てきた。平成 30 年度は、ガンマ線照射下においてもマイクロチップレーザー（MCL）にお

る受動 Q スイッチ動作が可能か否かの評価を行った (図 5.3-6)。そこでは、照射により受動 Q スイッチ動作に必要な励起エネルギーは増加するが、レーザー出力エネルギーはほぼ同程度であり、LIBS には大きな影響は無いとの結果であった。これに対し図 5.3-6 にある構成で評価したところ、同図結果にあるように、ガンマ線照射量増加に伴い、レーザー出力エネルギーが低下するとの結果を得た。この事は、1) ガンマ線照射により Cr:YAG 初期透過率が実効的に小さくなった、2) Nd:YAG 上準位分布の減少速度が速くなった、などの影響があったと考えられる。

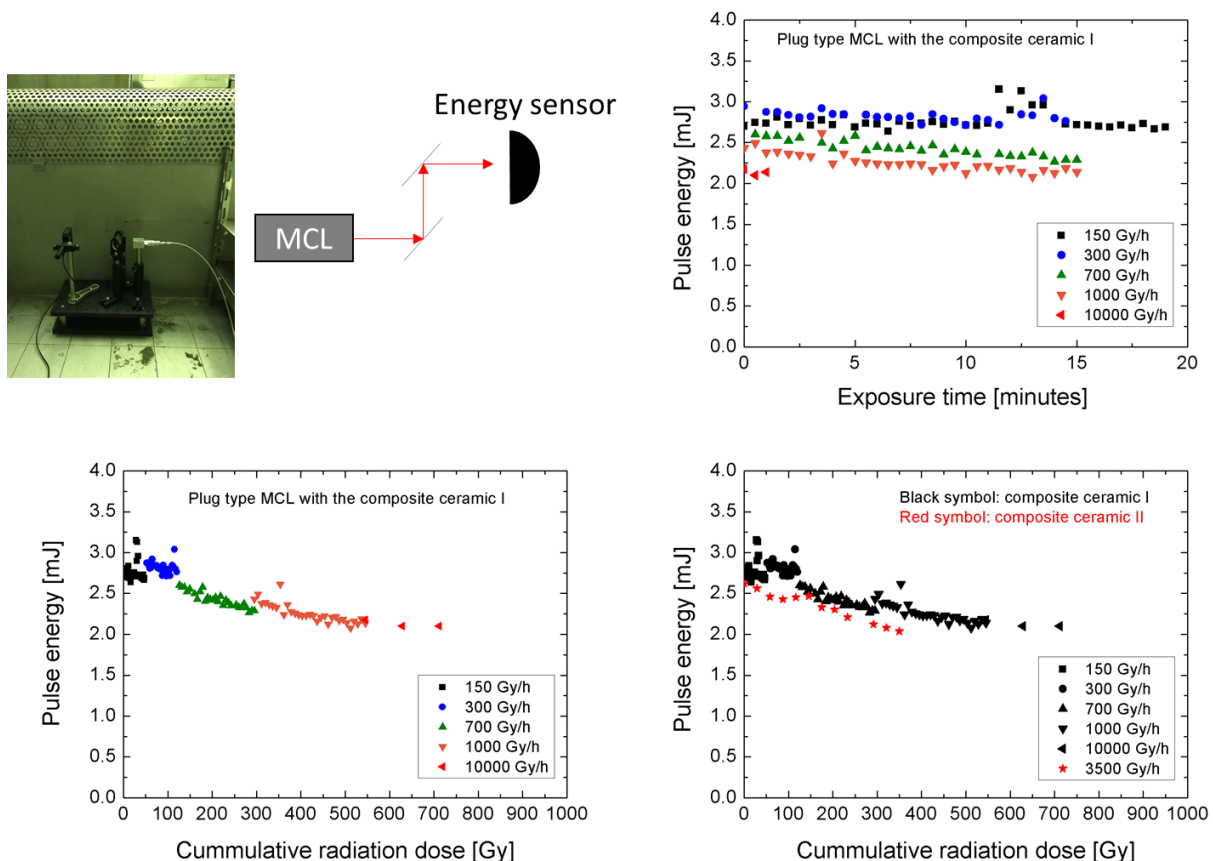


図 5.3-6 ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：基本波

#### 5.3.4 ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：第二高調波

Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスによる受動 Q スイッチマイクロチップレーザー (MCL) に、第二高調波発生として LBO 結晶を組み合わせた装置にガンマ線を照射しその影響を調べた (図 5.3-7)。第二高調波発生は入射基本波強度の自乗に比例するため基本波で得られた依存性よりも大きな変動を予測したが、そのダイナミクスは軽微であり、確かに第二高調波発生そのものは低下するものの基本波出力のドロップを考慮するなら第二高調波の減少は少ない (図 5.3-8)。そこで、基本波と第二高調波特性の同時測定を行ったところ変換行効率はむしろ増大していた。(図 5.3-9, 図 5.3-10, 図 5.3-11)。



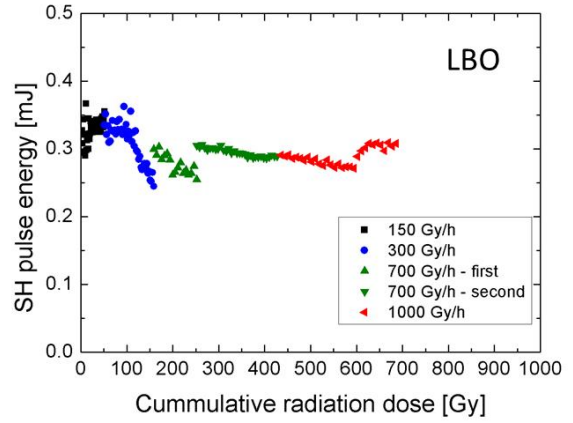
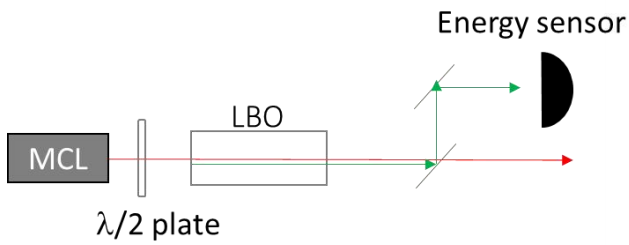
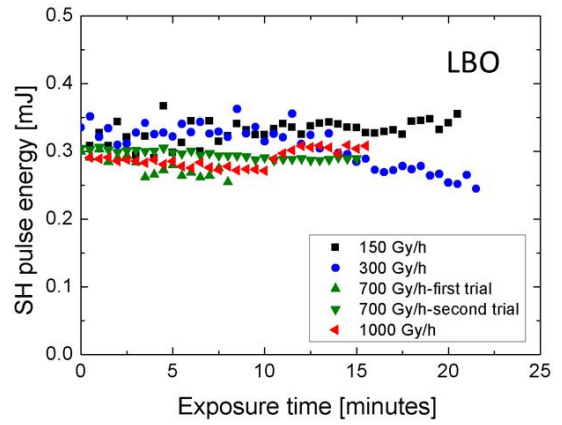
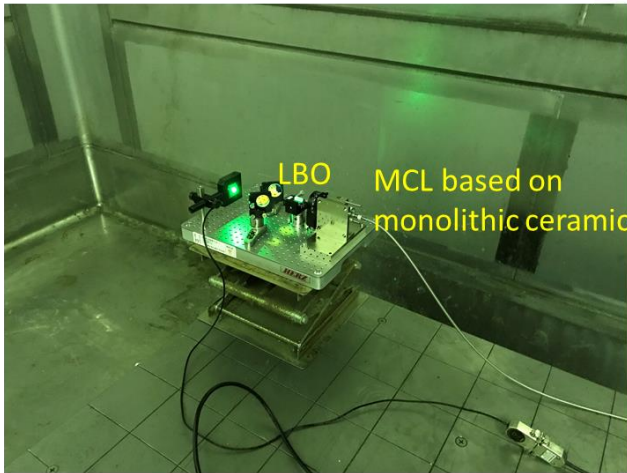


図 5.3-7 ガンマ線照射下のレーザー発振特性評価：第二高調波

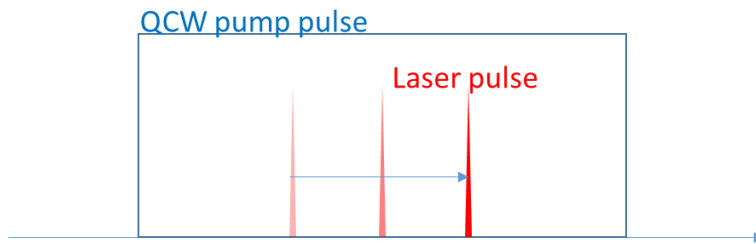
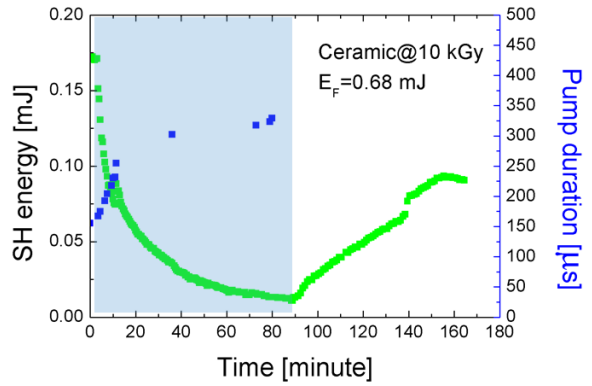
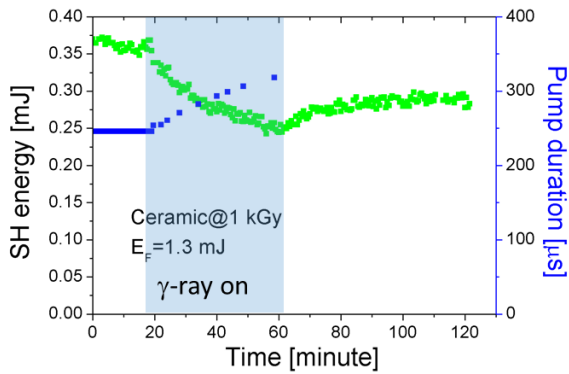
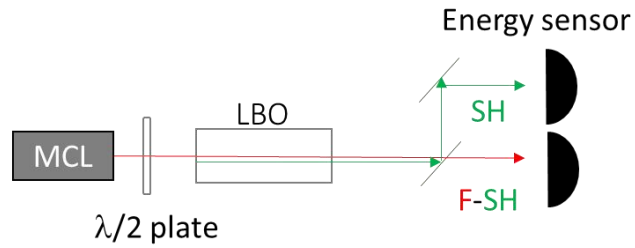
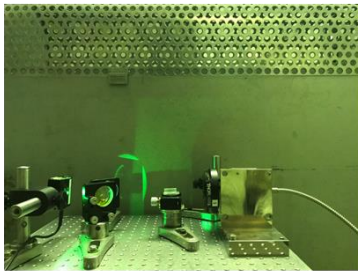


図 5.3-8 ガンマ線照射下のレーザー発振ダイナミクス：第二高調波



Conversion efficiency

$$\eta = \frac{E_{SH}}{E_F}$$

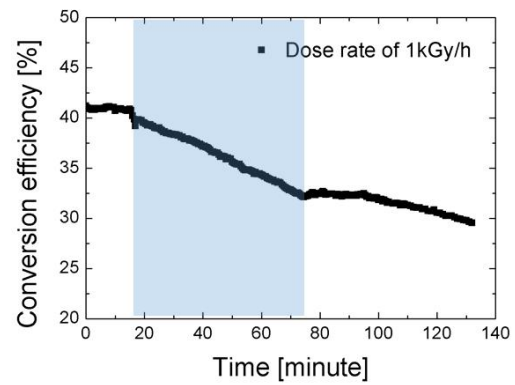
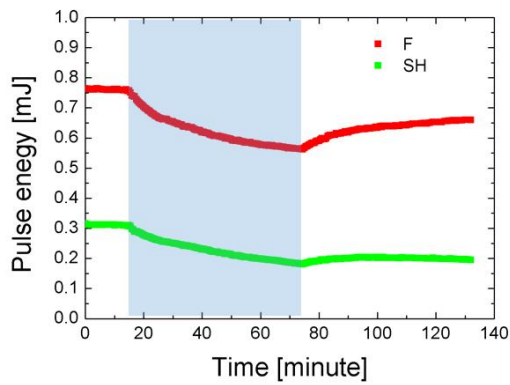


図 5.3-9 ガンマ線照射下のレーザー発振における基本波/SHG ダイナミクス比較

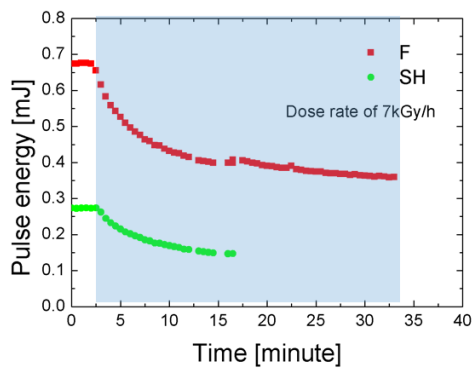
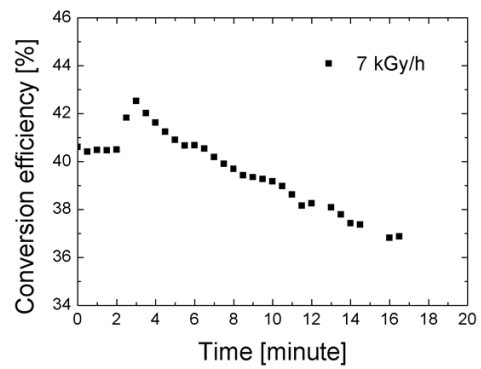
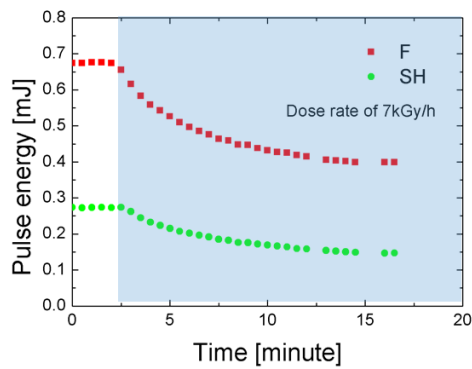


図 5.3-10 ガンマ線照射下のレーザー発振における基本波/SHG 特性比較



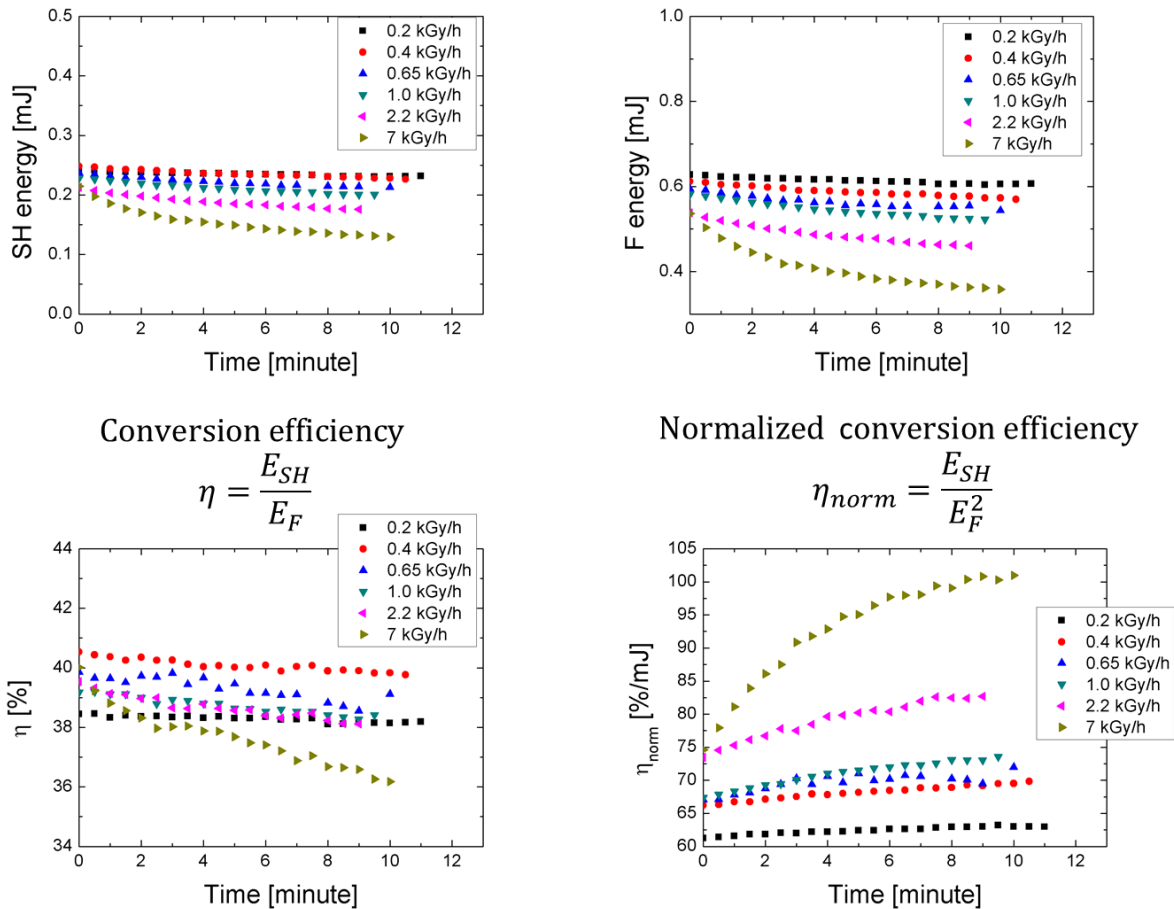


図 5.3-11 ガンマ線照射下のレーザー発振における変換効率経時変化

### 5.3.5 LIBS プロブの試作と評価

まず、開発した Nd:YAG/Cr:YAG セラミックスによる受動 Q スイッチマイクロチップレーザー (MCL) にて図 5.3-12 のような LIBS 信号を得た。しかし通常の LIBS では、集光光学系が別途必要となるため装置が大がかりになる。そこで、マイクロチップレーザーに集光光学系を組み込んだ図 5.3-13 の LIBS プロブを試作した (表 5.3-1)。なお、図 5.3-14 にその外観のみを示す。この場合

- ・レーザー送信、ターゲットへの集光光学系と同一の系を利用するため小型化が可能
- ・送信と受光が同軸光学系となるためにミスアライメントが起きず高効率

などの利点が挙げられる。なお、レーザー光と LIBS 光の分離に穴あきミラーを用いるなら、

- ・観察位置、領域を受光ファイバー位置調整により選択可能ともなる。

今後、気密性を高めることで湿潤環境での対応も可能となる。

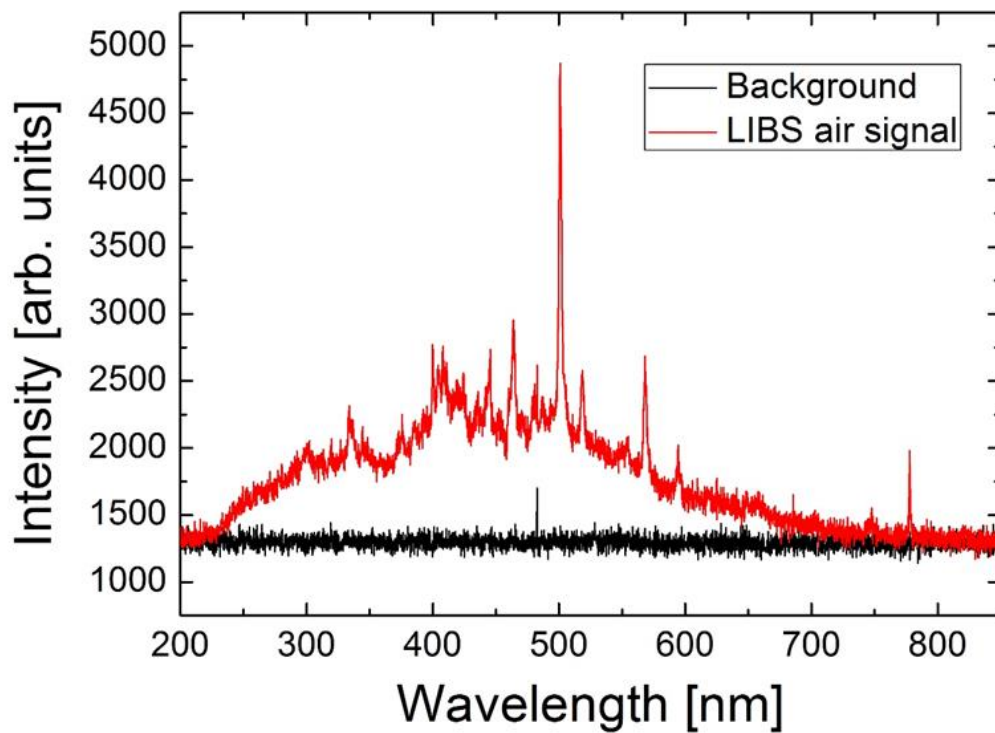


図 5.3-12 観察した LIBS 信号

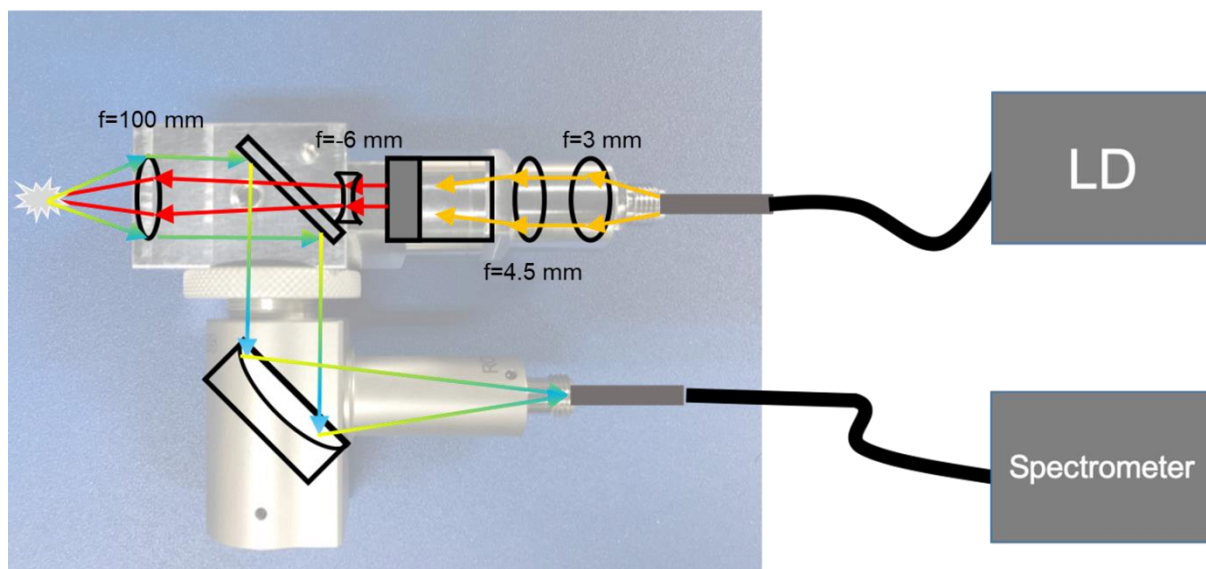
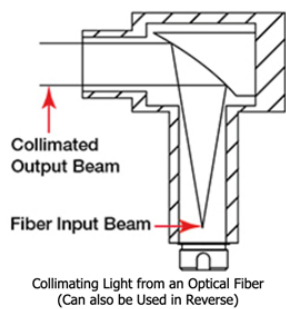


図 5.3-13 試作した LIBS プロブの構成

表 5.3-1 LIBS プローブの緒言



Collimated Beam (0.13 NA Fiber)	Ø8.5 mm
Numerical Aperture (NA)	0.167
Reflected Focal Length (RFL)	33 mm
External Threading of Housing	SM05
Clear Aperture	Ø11 mm
Reflectance (Avg.)	> 97.5 % (450 nm - 2 µm) > 96 % (2 - 20 µm)

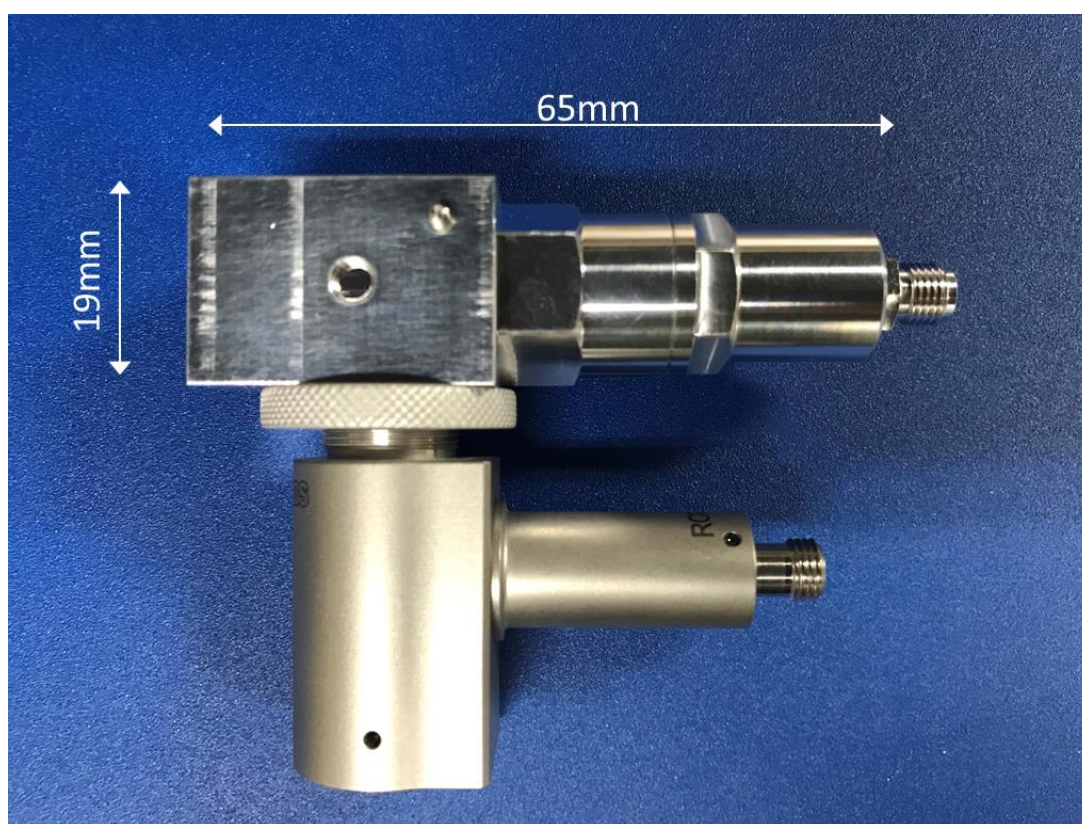


図 5.3-14 マイクロチップレーザーによる小型で簡便な LIBS プローブ外観

### 5.3.6 まとめ

高性能 LIBS 用マイクロチップレーザーの過酷環境下の評価として、第二高調波発生を含む発振特性のガンマ線照射の影響を調べた。その結果、最大 10kGy/h に至る高い放射線量率の照射にも第二高調波発生特性 LIBS そのものには深刻な影響を与えない事を確認した。LIBS が可能な事を確認したマイクロチップレーザーに LIBS 光を受けるための受光系を組み込み図 5.3-14 に示す簡便な LIBS プローブを試作した (図 5.3-12)。

## 6. 研究推進（平成 27 年度から平成 30 年度）

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究成果の共有とその展開を協議するため合同研究会を開催した。

原子力機構廃炉国際共同研究センターにおける原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）、東京電力ホールディング株式会社、廃炉担当の関連企業及び IRID 等との情報交換の場を活用し、隔その場分析技術の実現性を紹介するとともに、求められる技術内容に関して協議した結果を当該研究の推進に反映させた。また、NDF 主催の「福島第一廃炉国際フォーラム」の技術ポスターセッションにおいて（第 2 回、第 3 回で発表）、本研究の成果を積極的に発信してきた。

事業参加者による合同研究会は、年 1 回実施し、計画の背景、目的、実施内容、福島第一原子力発電所廃炉の現状及、福島廃炉からのニーズ、今後の廃炉センターの運営等について情報及び認識の共有化を図った。また、参加団体で実施している研究の状況、本研究開発における各担当の研究成果は無論のこと、本研究開発に関連するトピックスについても議論を深めた。実施実績を以下に示す。

- ・第 1 回 : 平成 28 年 2 月 3 日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第 2 回 : 平成 29 年 3 月 24 日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第 3 回 : 平成 30 年 3 月 20 日 イマジニアリング株式会社会議室
- ・第 4 回 : 平成 31 年 3 月 14 日 分子科学研究所会議室

平成 30 年度に開催した、第 4 回 合同研究会の内容は以下の通り。

文部科省 原子力科学人材育成・廃炉加速化プログラム  
「先進的光計測技術を駆使した炉内デブリ組成遠隔その場分析法の高度化研究」  
合同研究会

平成 31 年 3 月 14 日 13 時から  
分子科学研究所 研究棟 201 号室

1. 研究代表から  
福島廃炉の現状、遠隔分析ニーズ、CLADS 補助金について
2. 高線量率 Co60 照射下の耐放射線性ファイバ透過特性
3. マイクロチップレーザーの放射線照射特性
4. マイクロチップレーザー適用ファイバ LIBS 特性評価
5. レーザー照射プルームの時間分解 XAFS 解析
6. 放射線グラフト吸着剤を用いた溶存元素の迅速分析
7. マイクロチップレーザーの耐放射線特性
8. 最近のマイクロチップレーザー開発とその応用研究について
9. 研究室見学

## IV 研究開発のまとめ

本業務では、耐放射線性光ファイバーを用いてレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法（LIBS）によりデブリの組成を遠隔その場で分析する技術を基に、光源にロングパルスレーザーを導入することで光ファイバーに与える損傷を大幅に軽減し、高いエネルギー伝送を実現するとともに、マイクロ波プラズマ原子発光技術による原子発光強度の増大技術を活用する等、先進的光分析技術を駆使することで、より高感度でかつ物質判別性能を高め、ガラス化したデブリやコリウム等、様々な形態のデブリへの適用に必要な性能を確保する。併せて、ロングパルスレーザー照射による水中懸濁微粒子組成の直接分析の可能性評価並びに極小レーザー光源そのものを炉内過酷環境に配し、レーザー発振源から光ファイバーを介さず直接集光照射が可能なマイクロチップレーザーLIBS 計測系の成立性について評価することで、気中・水中の固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術を確立し、炉内状況調査、デブリ取り出し作業及び取り出し後の残存確認等で不可欠となる、遠隔分析技術基盤の確立を目指す。

### 1. その場分析法の高度化実証研究（原子力機構）

【平成 27 年から 29 年度の成果】

レーザー光パルス時間幅が 100 ns のロングパルスレーザーを光ファイバーLIBS 装置に導入し、従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光・分光特性を取得して最適な元素スペクトル観測条件を見出した。水没模擬デブリを用いた実証試験に適用した。水没試料の分析特性を評価することで、ロングパルスレーザー利用ファイバーLIBS 法の適用性について検討した。

従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。

ファイバー伝送 LIBS 装置の新たなレーザー光源としてロングパルスレーザー（100 ns）を導入した。Zr ターゲットを用いて、従来のノーマルパルスレーザー（6 ns）と発光スペクトル特性を比較した。その結果、ロングパルスを用いると、イオンの発光線強度が減少し、原子の発光線強度が増加することがわかった。原子の発光線は放射線照射下でも光ファイバーの透過特性が劣化しない近赤外域で観測されることから、炉内デブリの分析において検出感度の向上が期待される。また、ロングパルスの場合、光ファイバーが損傷するエネルギー閾値が上昇し、従来よりも高いエネルギーのレーザー光を伝送できることがわかった。このとき、レーザーの照射エネルギーとともに Zr の発光線強度も増加し、金属ターゲットにおいて従来の 10 倍以上の信号強度を得ることに成功した。次に、 $CeO_2$ 、 $ZrO_2$ 、 $Fe_2O_3$  を主成分とする模擬デブリに 0.1~2.5%の  $Gd_2O_3$  を添加し、ロングパルス LIBS による Gd の検出を試みた。その結果、大気中および水中の試料から、Gd の発光線を独立して観測することに成功した。このとき、試料中の濃度に比例して Gd の発光線強度が増加した。また、Ce の発光線を内部標準とすることで、精度の高い検量線が得られた。これらの結果から、ロングパルスレーザーを導入すると、光ファイバーによる高いエネルギー伝送が実現し、信号強度の増大に伴って検出感度が向上すると考えられる。一方で、ロングパルス

を用いると、広い波長範囲で出現する分子の発光が増大するとともに、共鳴線の自己吸収が顕著になることがわかった。定量分析を行う際は、解析するピークを適切に選択する必要がある。

従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価した。レーザー光源からの光を直接搬送し LIBS 計測に適用する方法、光ファイバーで搬送する方法並びに従来レーザー光源を用いた LIBS 計測とロングパルスレーザー、マイクロチップレーザーを用いた LIBS 法について、その特徴を評価した。光源による比較の結果、ロングパルスレーザーは、高強度光伝送や時間分解分光に適するものの、光源のより高度な安定性が必要であること、マイクロチップレーザーは、より長距離な光伝送やレーザー光の集光性に優れ、発光分光も可能なことが確認された。用途、使用条件に合わせた選定が重要となる。

#### 【平成 30 年度の成果】

光ファイバーLIBS 法に着目し、可視光域の透過特性を改善した新規光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得し、ファイバーLIBS による遠隔分析手法への適用性を検討した。また、量研機構等で開発したマイクロチップレーザーLIBS プローブを模擬デブリに適用し、遠隔その場元素分析技術への適用の可能性を評価した。

新規の耐放射線性光ファイバーの特性評価は、以下に示すように、放射線照射劣化とその回復処理により高耐放射線性耐久化を図り、ガンマ線照射後及び照射中での放射線体制について評価した。

- (1) 放射線耐性を有するフッ素ドープ石英光ファイバーを用いて、これにガンマ線照射と照射による特性劣化の回復処理を施すことで、高放射線耐久化を図る。
- (2) 耐放射線性光ファイバーの LIBS への適用評価に供するため、回復処理を施した供試体の放射線照射中透過率の経時変化を測定、てその健全性を確認する。

回復処理は以下の工程で行なった。なお、(1)の放射線照射条件は、累積線量 2 MGy (線量率約 10 kGy/h) とした。

- ①光ファイバーにガンマ線照射を行うことで光ファイバー中の不完全結合部を切断し、光の吸収帯を持つ欠陥を生成する。
- ②ガンマ線照射後の光ファイバーに、光吸収欠陥の修復処理を施す。
- ③修復処理により、放射線照射によって生じた光吸収損失を消滅させ、かつ放射線照射による吸収欠陥の生成を抑制し、光ファイバーの耐放射線性を高める。

高耐放射線化処理を施したことにより、ガンマ線照射後でも波長 450 nm 以降において、伝送特性の回復効果が十分維持されていることを確認した。また、高耐放射線化処理を施した光ファイバーにおいても 1 MGy を超えるガンマ線照射によって紫外域に吸収欠陥が生じ、波長 450 nm 以下の短波長域では透過出力の低下が生じることも確認した。

線量率が 9.34 kGy/h での放射線照射中透過率の経時変化では、回復処理後でもガンマ照射中は特定波長で透過の減少が観測されること、ガンマ線照射により可視域で比較的強い自発光が観測されることがわかった。しかしこの自発光は時間的に連続して発生したものを時間積分して観測していることから、LIBS 計測で必要となる時間ゲート幅 (数  $\mu$ s から数十  $\mu$ s) での発光強度



に換算すると、発光分光には大きな影響を与えるものではないことも確認している。

以上により、従来使用してきた耐放射線性光ファイバーでは、近赤外領域でのプラズマ発光線のみを対象と考えてきたが、新規光ファイバーでは、強いプラズマ発光線強度が得られ、計測効率も良い可視域での観測を可能とするもので、その活用が期待できる。

量研機構等で開発したマイクロチップレーザーLIBSプローブを模擬デブリへの適用を試みた。模擬デブリは、典型的な組成として核燃料が60%、構造材が35%、制御棒5%として、酸化ウラン：ジルコニウム：鉄の割合を61%：29%：10%に設定した。なお、ウランの代わりにセリウムを用い、さらに臨界管理上重要な役割を担う、可燃性毒物である酸化ガドリニウムの添加を考慮した混合焼結酸化物とした。酸化ガドリニウムは0～2.5%添加して試料を調製し、ガドリニウムの検知を想定したLIBS特性試験を実施した。ウランやセリウムは複雑な電子構造を持つために多くの発光線が出現する。また、鉄やジルコニウムの遷移元素についても多くの発光線が存在する。その中で、ガドリニウム発光線が他の元素と干渉なく観測されたのは数本であった。非放射線環境下において、セリウムの発光線(474.5 nm)の強度に対するガドリニウムの発光線(476.7, 510.3 nm)強度比と、ガドリニウムの濃度との関係には、優れた直線性が認められ、定量性のある分析が可能であることが示された。この時、ガドリニウムの検出下限は約0.1%であり、従来型のファイバーLIBS技術で得た値とほぼ同じ分析性能であることが確認された。

## 2. マイクロ波による原子発光増倍特性（再委託先：イマジニアリング）

【平成27年から29年度の成果】

原子力機構で開発するファイバーLIBSのプローブヘッド部への適用を前提に、大気雰囲気でのマイクロ波重畳による発光増倍実験を行なった。

マイクロ波重畳LIBSにおける信号増倍条件は以下のとおりである。

設定条件	評価結果
アンテナ形状	コンデンサ型
アンテナ位置	サンプルより1 mm程度
アンテナ角度	10度程度
MW発振条件	パルスMW、ON時間100 μs程度
Duty	80%程度、
MWパワー	1.6 kW以上
MW印加時間	8 ms程度

最適化したマイクロ波アンテナを用い、レーザーブレイクダウン位置とアンテナ位置の関係、マイクロ波の入射条件（連続発振とパルス発振、パワー、印加時間）を最適化することで、発光強度の増倍率、スペクトル強度の安定性といったマイクロ波重畳効果を評価した。

原子力機構で適用性を検討している光ファイバーLIBSへの適用を念頭に、通常の直接LIBS、光ファイバーLIBS、マイクロ波重畳LIBSについて、スペクトル増倍効果をまとめた。マイクロ波入射条件を最適化した場合、レーザー集光条件が厳しく、信号強度が低くなりがちなファイバーLIBSと比較すると、1000倍以上の信号増大効果が得られる可能性のあることが示され、マイクロ波長重畳手法の有効性が確認できた。



### 3. ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性（再委託先：京都大学）

水中の懸濁微粒子を、ロングパルスレーザーを用いた水中 LIBS によって分析することを念頭に、粒子由来元素の発光および発光強度特性の評価、微粒子懸濁液において生成する気泡の性質の評価、さらに測定効率向上のための懸濁微粒子のレーザートラップ特性の評価を行い、懸濁微粒子の LIBS 測定の分光分析特性を明らかにした。

水中の懸濁微粒子を、ロングパルスレーザーを用いた水中 LIBS 測定によって分析する可能性を検討した結果、ショートパルスレーザーを用いた場合と比較して、粒子由来の元素のスペクトル線の出現頻度は相対的に高く、ロングパルスレーザー照射の優位性が示された。

懸濁液にロングパルスレーザーを照射したときに生成する気泡の特性として、膨張と収縮を繰り返すこと、スペクトルがパルスごとに大きく変動するのに対して、気泡の成長は比較的安定して同じような膨張挙動を示すことから、初期に気泡に与えられるエネルギーはパルスごとに大きく変わらず、プラズマを励起しているエネルギーと強く相関していないこと、等を明らかにした。

分散粒子の数密度を定量することを念頭に、原子スペクトル線の出現頻度の向上を目指して、レーザートラップによる微粒子の補足を試みた。レーザートラップにより、分散粒子の数密度とトラップ時間との関係を調べた結果、トラップ時間は必然的に大きな分散を持つが、複数回の計測による平均値は粒子密度と相関することを明らかにした。

以上により、ロングパルス LIBS により、各粒子の元素分析だけでなく、粒子数密度の計測の可能性も確認することに成功し、レーザートラップを併用したロングパルス LIBS は懸濁微粒子の定量分析法としての可能性を有することが示された。

### 4. マイクロチップレーザー-LIBS 特性評価に関する研究（再委託先：量研機構）

【平成 28 年度、29 年度の成果】

マイクロチップレーザーを整備してファイバー-LIBS 計測系を構築し、酸化物固体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認するとともに、ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討した。

構築した計測系により、酸化ジルコニウム試料にレーザー光を集光照射してプラズマを発生させて、同軸方向でプラズマ発光を観測し、分光器でジルコニウムのスペクトルが同定できることを確認した。さらに、ガンマ線照射環境下でのマイクロチップ動作特性並びに LIBS 特性を取得した結果、放射線照射環境下では、マイクロチップレーザー発振のための LD 電流しきい値が上昇するとともに出力が低下することが確認された。しかし、出力は低下するものの、10 kGy/h のガンマ線照射環境下においても LIBS 発光スペクトルが得られることを実証できた。なお、電流しきい値の上昇や出力の低下については、1 kGy 程度の累積ガンマ線照射線量では回復して正常値に戻ることがわかった。レーザー結晶はガンマ線照射によってシンチレーション発光が生じるが、その強度は LD 励起光に比べて極めて小さく、レーザー光発振には影響を与えないことがわかった。この蛍光を利用することにより、LD 励起光を入れない場合、シンチレーション光強度は線量率に対して線形増加するので、放射線モニターとしての適用が可能であることが示され

た。

#### 【平成 30 年度の成果】

まず、これまで原子力機構で開発してきたファイバーLIBS とマイクロチップレーザーLIBS とで、発光特性の違いを確認した。その結果、得られる発光スペクトルの構造はよく一致し、レーザー光源に強く依存しないことを確認した。ただし、マイクロチップレーザーを使用した場合は、集光特性が良いことから、信号強度は従来のファイバーLIBS に比較して 4 倍程度発光信号が大きいことが確認でき（ただし、マイクロチップレーザー利用の場合の方がレーザー照射痕の体積が大きい）、感度向上に寄与する可能性があることが示された。

次に、これまでに整備したマイクロチップレーザーを活用して次の 2 つを実施した。

- (1) 高線量放射線環境下におけるレーザー結晶の評価
- (2) マイクロチップレーザーLIBS 装置性能の総合的評価

(1) では、レーザー発振特性として、照射セル内においてレーザー出力を測定するエネルギーメーター、およびレーザービーム品質を測定するためのビームプロファイラを整備した。また、レーザーパルス形状は光ファイバーで照射セル外にレーザー光を導いて高速度光検出器で測定した。その結果、0~10 kGy/h の高線量率放射線環境下において、レーザーパルス形状にはほぼ変化がなく、パルス幅はサブナノ秒が保持されることを確認した。一方、レーザー出力は最大線量率時で 30 %程度まで低下すること、レーザービーム品質は初期のガウシアン分布を維持するものの、若干ビームの広がりが観測された。レーザー出力の低下の主な原因としては、放射線照射により Nd:YAG 結晶中に吸収欠陥が生成した結果、励起用半導体レーザー光 (808 nm) の吸収損失による励起エネルギーの低下、及び発振レーザー光 (1064 nm) の吸収損失による発振出力の低下が考えられることを明らかにした。

続いて (2) では、元素分析特性測定において、レーザー出力の低下を考慮し、レーザーアブレーションプラズマ発光増大効果を得ることができるアルゴンガスフローによる LIBS 分析系を構築した。本分析系では、模擬燃料デブリとして、セリウム、ジルコニウム、鉄の混合焼結酸化物に微量のガドリニウムを添加した試料を調製し、約 9 kGy/h のガンマ線環境下で高波長分解能エシエル型分光器を用いて LIBS 特性試験を実施した。

Gd 中性原子の発光波長に着目すると、放射線照射直後は強い発光が観測できるが、時間経過とともに放射線照射の影響が現れてレーザー出力が低下して、観測条件が同じ場合ではスペクトル強度は弱くなっている。検出系の感度調整無しで 2.5 %濃度の Gd は十分に検出できることから、高線量率においても LIBS を用いることによって、元素組成の検知だけでなく、定量分析の可能性も示された。

### 5. LIBS 用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究（再委託先：自然科学研究機構）

#### 【平成 28 年度、29 年度の成果】

LIBS 計測用にマイクロチップレーザーヘッドを製作し、その構成部品であるレーザー素子等をガンマ線照射した。照射後のレーザー素子を用いてレーザー発振特性を取得し、照射線量に対するレーザー発振特性を取得することで、マイクロチップレーザー素子の耐放射線特性を調べた。その結果、照射後も良好なレーザー発振特性を検証できた。さらに、マイクロチップレーザーの

システム全体にガンマ線を照射し、照射中に Q スイッチ動作が正常に行われ良好なジャイアントパルスが望めるレーザー発振が可能である事を検証できた。

#### 【平成 30 年度の成果】

これまでに整備した第二高調波発生マイクロチップレーザーヘッドを活用し、放射線環境下におけるマイクロチップレーザーの非線形光学波長変換による短波長化特性を調査した。非線形光学結晶 LBO が放射線耐性が高い事を確認し、マイクロチップレーザーの波長変換に適用した。高線量放射線被曝 (>1,000 Gy/h) でも効率の高い波長変換が可能である事を確認した。小型マイクロチップレーザーLIBS プローブの試作にも成功し、小型マイクロチップレーザーLIBS の実効性を検証した。

### 6. 研究開発の推進とまとめ（原子力機構）

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究成果の共有とその展開を協議するため合同研究会を開催した。

原子力機構廃炉国際共同研究センターにおける原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）、東京電力ホールディング株式会社、廃炉担当の関連企業及び IRID 等との情報交換の場を活用し、隔その場分析技術の実現性を紹介するとともに、求められる技術内容に関して協議した結果を当該研究の推進に反映させた。また、NDF 主催の「福島第一廃炉国際フォーラム」の技術ポスターセッションにおいて（第 2 回、第 3 回で発表）、本研究の成果を積極的に発信してきた。

事業参加者による合同研究会は、年 1 回実施し、計画の背景、目的、実施内容、福島第一原子力発電所廃炉の現状及、福島廃炉からのニーズ、今後の廃炉センターの運営等について情報及び認識の共有化を図った。また、参加団体で実施している研究の状況、本研究開発における各担当の研究成果は無論のこと、本研究開発に関連するトピックスについても議論を深めた。実施実績を以下に示す。

- ・第 1 回 : 平成 28 年 2 月 3 日 イマジニアリング株式会社社会議室
- ・第 2 回 : 平成 29 年 3 月 24 日 イマジニアリング株式会社社会議室
- ・第 3 回 : 平成 30 年 3 月 20 日 イマジニアリング株式会社社会議室
- ・第 4 回 : 平成 31 年 3 月 14 日 分子科学研究所会議室

## 7. 今後の展望、見通し

本研究開発は、事故炉内のデブリの組成分布を直接快速可能である技術に着目し、原子力機構の有する光ファイバーLIBS 技術を中心として、予期せぬ様々な状況に直面した際においても着実にデブリ組成に関する情報が得られるよう、次のような基礎基盤技術の拡張を図った。

- レーザーの種類や使用方法の拡張（従来ナノ秒レーザー、ロングパルスレーザー、マイクロチップレーザー）
- 信号強度の確保に向けた手法の開発（ロングパルスレーザー、マイクロ波重畳法）、
- 活用可能な耐放射線性光ファイバーの選定と放射線環境下性能実証
- 分析プローブとしての耐放射線性評価。

ここでは、現在計画されている、微量・少量デブリ採取計画に着目し、採取試料のサーベランスへの適用を念頭に、提案できる技術とその具体性について言及する。

### 【デブリ採取計画と試料サーベランス】

近年、2号機では、格納容器底部に吊り下げ状の腕をアクセスし、事故後、初めて格納容器底部に存在するデブリ状物質に触れることに成功した。今後の計画では、

- 2019年：多関節アームの導入によって1 g程度の微量のデブリを採取（最大10 mGy/h）
- 2021年：100 g程度のデブリ採取（最大1 G/h）

このデブリ採取計画では、採取したデブリを、茨城地区のホットセルに運搬し、詳細な分析をする必要があることから、「中間受け入れセル」を準備し、採取したデブリの撮影、乾燥、重量測定をするとともに、おおよそどんな組成であるかをサーベランスすることにより、分類、選別した上で詳細分析施設に運搬することとなる。また、採取した試料に一時保管におけるラベリング情報も不可欠である。ここで、このサーベランスが可能な技術に関して、1g程度の微量サンプルでは、放射線線量率も低いことから、XRFの活用が非接触分析法として有力視されている。一方、100g程度の試料では、最大1 Sv/hの線量率となることから、組成分析技術として、放射線環境に強く、簡便迅速なサーベランスが可能なLIBS技術の適用が選択肢として考えられる。

### 【提案できる技術】

現在、東電等に提案しているサーベランス技術は、鉄セル中LIBSを中心とした計測系を準備するものを念頭にしている（図7-1）。試料観察カメラを同一光学系で結合することにより、試料の拡大表示、分析位置の決定、レーザー光のフォーカス状況の確認（照射したい対象物画像の焦点を一致させることが、レーザー集光条件と一致）が可能なシステムである。

損傷炉内への適用ではないが、鉄セル等、少量採取デブリの受け入れセルの設置環境は必ずしも精密機器を据え付けられる環境ではない可能性が高い。そこで、レーザーや分光器等を車載型とし、必要な時にセル近傍に持ち込み、数十メートルの光ファイバーで結合して利用することを考えている。放射線環境としては、最大で1 Gy/h程度であることから、光ファイバーLIBSのみならず、マイクロチップレーザーLIBSについても利用できる可能性が高い。また、マイクロ波による信号増倍法も、小型半導体マイクロ波源をセル近傍（セル内）に設置できることから、近い将来、その活用の可能性も高いと判断される。まずは、基本的なファイバーLIBS等の導入を図るが、本研究で培った技術の組み合わせにより、より着実で高感度な分析が実現するものと考

えられる。

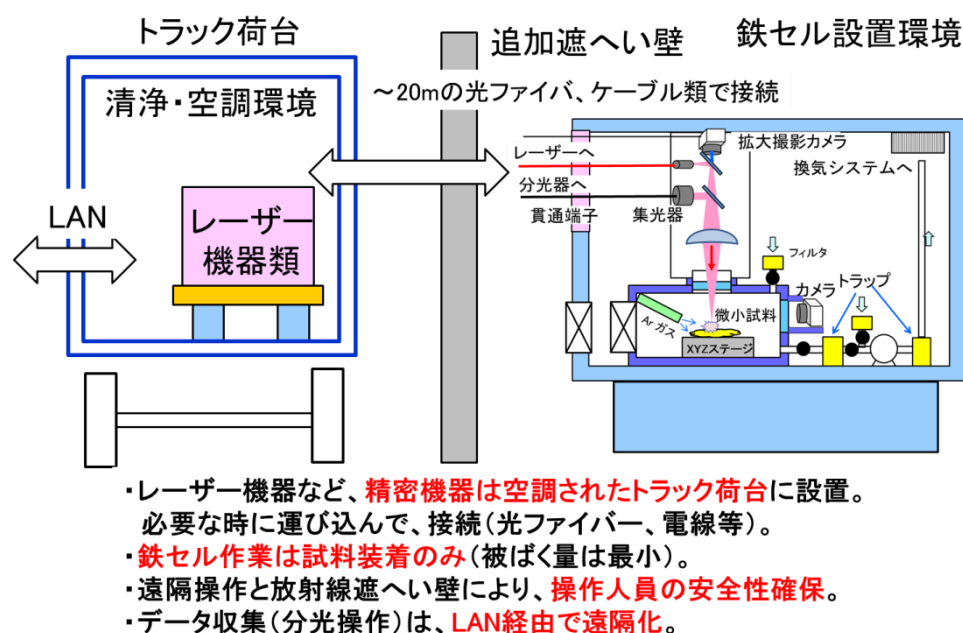


図 7-1 提案しているセル内サーベランス技術の概要

### 【今後の計画】

現在、NDF の協力の下、2021 年開始の少量採取デブリのサーベランスへの適用を念頭に、LIBS 技術による元素分析並びにレーザーアブレーション共鳴吸収分析技術による同位体分析技術を一時受け入れセルに導入し、サーベランス技術とする方向で、東電との具体的な協議が進展している。本事業で開発された技術が、福島現場で実用化されるもので、研究開発の意義は極めて高い。

2021 年、デブリ取り出し開始時のサーベランス手法として稼働できるように、手法の最適化を図ると同時に、機器の提供も視野に入れ、実用化研究に軸足を移していくこととする。

さらに、本サーベランスの実現を足掛かりとして、多関節アーム型ロボットの先端に LIBS プローブを装着して、損傷炉内で迅速なサーベランスを実現し、デブリ等の二次元分布を取得することでコア採取サンプルの取得場所の評価(代表性の確保)や、デブリ取り出しに必要な組成データの事前提供に適用していくことを計画していく。

今後、廃炉作業の具体的な進展により、遠隔その場分析技術の必要性はより高くなると考えられる。本事業で取得した技術を活用し、それに応え得る分析技術としていくことが強く望まれる。