

Planning Lecture | Technical division and Network : Radiation Science and Technology

📅 Thu. Sep 12, 2024 1:00 PM - 2:30 PM JST | Thu. Sep 12, 2024 4:00 AM - 5:30 AM UTC 🏢 Room A(Recture RoomsA 1FA101)

[2A_PL] Researches on analysis and control systems using lasers and their applications to nuclear engineering

Chair:Jun Kawarabayashi(TCU)

[2A_PL01]

Development of controllability of isotopic motional states with lasers

*Shuichi Hasegawa¹ (1. UTokyo)

[2A_PL02]

Development of a Laser Resonance Ionization Micro-Imaging Apparatus

*Tetsuo Sakamoto¹ (1. Kogakuin Univ.)

[2A_PL03]

Remote and in situ analysis under rough and severe radiation environments using laser induced breakdown spectroscopy

*Ikuo Wakaida¹ (1. JAEA)

[2A_PL04]

Trace isotope analysis with cavity enhanced laser absorption spectroscopy and its applications

*Hideki Tomita¹ (1. Nagoya Univ.)

放射線工学部会セッション

レーザーを活用した分析計測・制御システムの研究と原子力工学への展開
Researches on analysis and control systems using lasers and their applications to nuclear
engineering

レーザーによる同位体レベルでの運動制御による展開

Development of controllability of isotopic motional states with lasers

*長谷川 秀一¹¹ 東京大学

1. 背景

光と物質の相互作用において、光は2つの性質を持っている。1つ目はエネルギーであり、もう1つは運動量である。次の2式でそれぞれ表すことができる。

$$E = \frac{hc}{\lambda}, \quad p = \frac{h}{\lambda}$$

通常、相互作用において、光は物質にエネルギーを付与する形となる。レーザー分光の優れている点は、光のもつエネルギーをきわめて精密に制御することが可能であることを利用して、物質との相互作用をエネルギー選択的に「きれいに」誘起することで、その構造を高精度で明らかにできることである。これにより、原子・分子を同位体レベルの精度で選択的に励起することが可能であり、広くレーザー分光分析¹⁾として応用が進んでいる。

一方、光にはもう1つの性質として、運動量がある。放射線でのコンプトン効果など量子力学の発展においても、大きな役割を果たした。レーザー光の波長領域では、この運動量は極めて小さいことから、その利用については、原子ビーム偏向²⁾など提案としても限られていたが、レーザー冷却の実現により、今や原子・イオンだけでなく、分子へも広がりを見せている。ここでは、レーザー冷却を用いた同位体分析を中心に紹介する。

2. レーザー冷却を利用した同位体分析

同位体分析に用途を絞った場合、原子を対象にしたレーザー冷却の原理（磁気光学トラップ：Magneto-Optical Trap）を用いて、希ガスを対象にした ATTA（Atom Trap Trace Analysis）³⁾がすでに実用化の域に達している。近年ではさらに、⁴¹Ca を対象とした極微量同位体分析⁴⁾にも成功しており、その範囲を広げている。

これに対して、我々のグループではイオンを対象にしたレーザー冷却を検出部分に利用することで同様に極微量同位体分析への応用⁵⁾を目指している。中性原子と比較して、イオンの場合は電磁場による制御を利用できることから優位性があると考えているが、逆にイオンは外場に対して非常に敏感であることから、電磁場の設定が非常に重要である。

本講演では、我々の研究室で行っているイオンのレーザー冷却を用いた研究について紹介する。

参考文献：

- 1) 長谷川 秀一, レーザー共鳴励起を利用した同位体制御による極微量同位体分析手法の開発 RADIOISOTOPES **72**, 197 (2023)
- 2) Nellessen, J., et al., Large-angle beam deflection of a laser cooled sodium beam, J. Opt. Soc. Am., B **6**, 2149 (1989)
- 3) Chen, C. Y., et al., Ultrasensitive isotope trace analyses with magneto-optical trap, Science, **286**, 1139 (1999)
- 4) T.-Y. Xia, et al., Atom-trap trace analysis of ⁴¹Ca/Ca down to the 10⁻¹⁷ level, Nature Phys. **19**, 904 (2023)
- 5) Jung, K., et al., Laser cooling and imaging of individual radioactive ⁹⁰Sr⁺ ions, Phys. Rev. A, **96**, 043424 (2017)

*Shuichi Hasegawa¹¹Utokyo

放射線工学部会セッション

レーザーを活用した分析計測・制御システムの研究と原子力工学への展開

Researches on analysis and control systems using lasers
and their applications to nuclear engineering

レーザー共鳴イオン化質量顕微鏡の開発

Development of a Laser Resonance Ionization Micro-Imaging Apparatus

*坂本 哲夫¹

¹工学院大学

福島第一原発の廃炉において、建屋内のダストや燃料デブリの性状把握は喫緊の課題である。元素や同位体の分析には ICP-MS などのバルク分析が用いられることが多いが、マイクロメートルレベルの微小粒子や微小部位には適用できない。我々は PM2.5 を 1 粒子ずつ分析できる高い面分解能の飛行時間型二次イオン質量分析(TOF-SIMS)装置を開発した[1]。面分解能 40 nm は TOF-SIMS として世界記録であり、また、狙った粒子を断面加工し、内部分析もできることが特長である。

一方、廃炉工程に関連するダスト・デブリの分析は簡単ではない。一つの大きな問題は質量ピークが重なり、識別ができなくなる「同重体干渉」である。とくにダストやデブリは放射性同位元素や核分裂生成物が多種混在しており、同重体干渉の問題は避けては通れない。

そこで、我々は、TOF-SIMS 分析においてイオンビーム照射した際に同時に表面から放出されるスパッタ中性原子に着目し、特定の元素に固有の励起エネルギーに相当するレーザー光を照射し、イオン化させるレーザー共鳴イオン化法を TOF-SIMS 装置に組み込んだ。これをレーザー共鳴イオン化質量顕微鏡と呼んでいる。同重体干渉の例として、¹³⁷Cs と ¹³⁷Ba があり、それぞれ、質量は 136.9070895、136.9058274 であり、高い質量分解能の質量分析計を用いても分離が難しい。しかしながら、Cs と Ba はそれぞれ固有の内部励起準位を持っているため、Cs の励起準位に正確に波長を合わせたレーザーにより共鳴イオン化させれば Cs のみが検出されるため、同重体干渉が回避できる。実際に、原発敷地外で採取した放射性 Cs を含有する微粒子において、¹³³Cs, ¹³⁴Cs, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs それぞれを検出・イメージングすることに成功した[2]。同重体干渉がないため、それぞれの質量ピーク強度が同位体比を表しており、同位体比パターンはシミュレーション結果と一致した。

本手法には波長可変のレーザーが必要であるが、従来であれば色素レーザーが用いられるが、繰り返し率が低く、イメージング分析のためには 10 kHz が必要であり、また、劣化のない全固体レーザーが望ましい。そこで、名古屋大学と共同で波長可変 Ti:Sapphire レーザーを 2 台備えた共鳴イオン化イメージング用レーザーシステムを開発した。その技術があればこそ、前述の Cs イメージングができたと言える。

本装置は現在、建屋内ダストの元素・同位体イメージングに活用されているが、分析のスループット向上のためには、レーザーシステムの遠隔操作、自動調整機構が必要である。また、元素ごとに最適なイオン化スキーム（基底状態からイオン化に至るまで、2 台のレーザーの波長をどのように選定するのか）をデータベース化する必要もあり、現在もその開発を進めている。これらの詳細について当日報告する。

参考文献

[1] T. Sakamoto et al., Appl. Surf. Sci., 255(4), 1617-1620, (2008).

[2] T. Sakamoto et al., Anal. Sci., 34(11), 1265-1270, (2018).

謝辞 本研究は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA21P21465814 の助成を受けたものです。

*Tetsuo Sakamoto¹

¹Kogakuin Univ.

放射線工学部会セッション

レーザーを活用した分析計測・制御システムの研究と原子力工学への展開

Researches on analysis and control systems using lasers and their applications to nuclear engineering

レーザー誘起ブレイクダウン分光法を用いた過酷環境下における遠隔その場分析

Remote and in situ analysis under rough and severe radiation environments using laser induced breakdown spectroscopy

*若井田 育夫¹, 大場 弘則¹, 赤岡 克昭¹, 狩野 貴宏¹,坂本 寛², 中西 隆造³, 柏倉 俊介⁴, 平等 拓範⁵, 池田 裕二⁶, 出口 祥啓⁷¹JAEA, ²NFD, ³QST, ⁴立命館大, ⁵分子研, ⁶i-Lab. Inc., ⁷SL&PS Co.

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所（1F）の廃炉においては、過酷事故炉内から熔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、迅速に実行することが求められている。このためには、まず、压力容器や格納容器内に存在する燃料デブリがどのような状態なのか、どんな組成構成となっているかを事前に知り、これを取り出し計画に反映させることが重要となる。また、中、長期的展望に立てば、取り出し作業時におけるデブリや構造物などの現場スクリーニングとそれに基づく分別採取、作業自身のモニタリング、そして最終的には、燃料デブリ等の取り出し完了確認のための炉内残存核燃料物質等のサーベランス等が不可欠であり、遠隔でのその場分析技術は、廃炉工程において重要な役割を持つものと考えられる。

レーザー誘起ブレイクダウン分光法（LIBS）は、非接触・その場・迅速分析が可能な手法の一つであり、光ファイバーによる伝送を組み合わせることで（図1）、遠隔その場分析を可能とする技術として耐放射線性等を含む基礎的な性能実証を重ね、実機適用に向けた技術開発に発展させてきた。本報告では、LIBS によるレーザーモニタリング分析手法開発の一連の取り組みと、1F への適用を目指した技術開発の現状について紹介する。

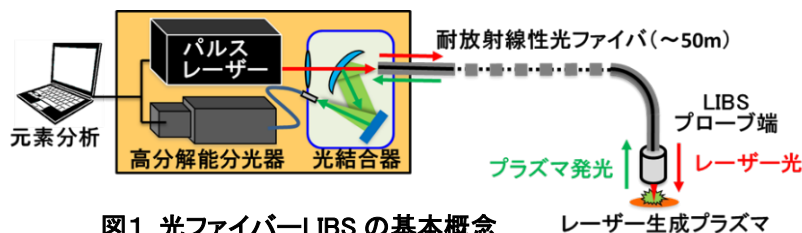


図1 光ファイバーLIBS の基本概念

レーザー生成プラズマ

2. 技術開発の現状

2.1 光ファイバーLIBS の特性

高線量率環境での利用を前提に、耐放射線性光ファイバーを利用した可搬型 LIBS 装置を開発し^[1] 光ファイバー長さ 50 m、線量率 10 kG/h、積算線量数 2 MGy の耐放射線性を有すること、図2に示すように、線量率 0 ～ 10 kGy/h の環境でも、検量線に変化がなく、原理的に LIBS 法自体が放射線の影響を受けにくいことを実証した^[2]。なお、水没試料に対しても、プローブ部からのガスによるバブリングにより、明瞭なスペクトル取得と気中同様の検量線が取得でき、定性・定量分析が可能であることも確認されている。

さらに、より現実的な燃料デブリへの適用性を実証するために、LIBS プローブのみをホットセルに導入し、使用済み燃料を含有した模擬燃料デブリを対象とした実証試験を行った。試験の様子を図3に、取得されたスペクトル例を図4に示す。使用済み燃料と Zr、Fe の

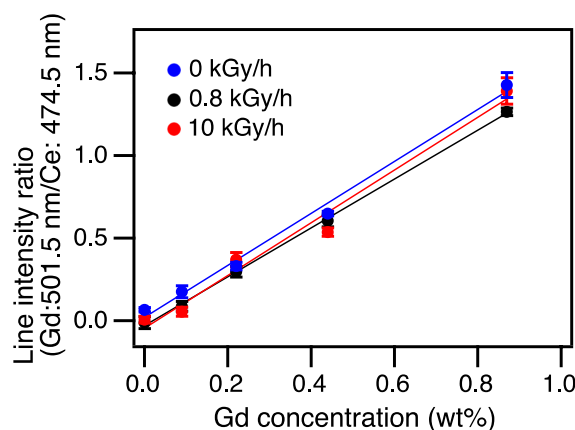


図2 ガンマ線照射下でのCe酸化物中のGd濃度に対する発光強度比 (Gd/Ce) の検量線例

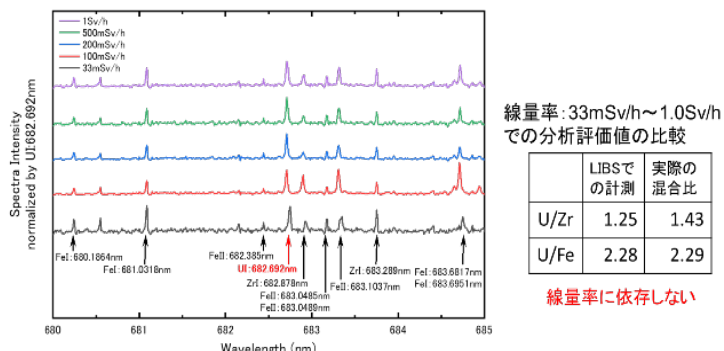
*Ikuro Wakaida¹, Hironori Ohba¹, Katsuaki Akaoka¹, Takahiro Karino¹, Kan Sakamoto², Ryuzo Nakanishi³, Shunsuke Kashiwakura⁴, Takunori Taira⁵, Yuji Ikuda⁶, Yoshihiro Deguchi⁷

¹JAEA, ²NFD, ³QST, ⁴Ritsumeikan Univ., ⁵IMS, ⁶i-Lab., Inc., ⁷SL&PS Co.

酸化物混合試料に対し、雰囲気線の線量率を 33 mSv/h～1.0 Sv/h に変化させた。その結果、スペクトル形状も、評価される混合比も、線量率に依らず計測・評価が可能であった。この結果は、実際の燃料デブリにおいても分析できる可能性が高いことを示している。なお、簡易分析手法として比較される携帯型 XRF では、15 mSv/h を超える試料に対して計測が困難となっており、光ファイバーLIBS の有用性が示されている^[3]。



図3 使用済み燃料での試験^[3]



典型的なU、Fe、Zrスペクトル(U:682.692nmで規格化)

2-2. マイクロチップレーザーの導入

光ファイバーLIBS では、パルスレーザー光を光ファイバーに入射することから、光ファイバーの長さとして 50 m 程度の制限がある。一方、1Fでの適用を考えると、100 m 級の超遠隔分析も求められてくる。そこで、発想を転換し、近年、その開発が目覚ましい手のひらサイズのマイクロチップレーザーを利用し、レーザー光源そのものを光ファイバーの先端に位置するマイクロチップレーザーLIBS の導入を図った。分析性能はファイバーLIBS とほぼ同様以上であり、耐放射線性も 1 kGy/h、1 MGy と十分であること、光ファイバー長さ 100 m であっても、問題なくスペクトルが取得できることが確認され、超遠隔分析の実現性が示された。実機適用に向け、より過酷な環境での利用実現を図る。

図4 Zr、Fe、酸化物混合使用済み燃料での計測例^[3]

光ファイバーLIBS（基本性能の実証済み）

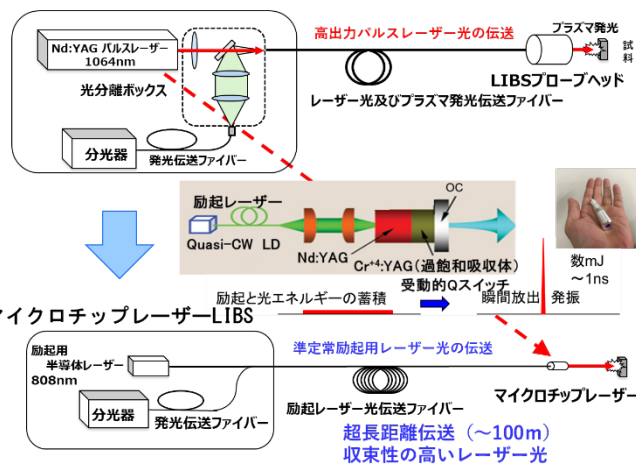


図5 マイクロチップレーザーLIBS の導入

3-3 LIBS システムの拡張

光ファイバーLIBS、マイクロチップレーザーLIBS を基本とし、可搬型で使いやすい従来システム、超長尺対応のマイクロチップレーザーLIBS、プラズマ寿命の延長に伴う信号強度の増倍を図るマイクロ波重量LIBS、そして水没試料、含水試料対応のレーザー二重照射 LIBS 等、適用場面に応じたシステムの拡張を図る計画である。

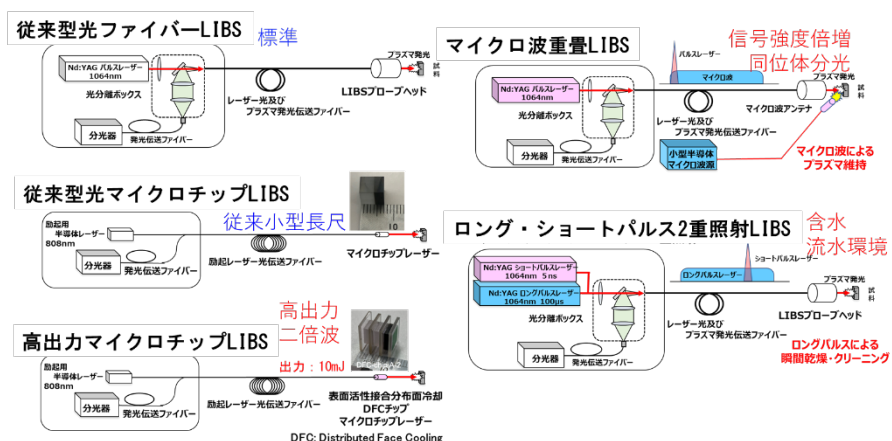


図6 拡張していく各種光ファイバーLIBS システムの概要^[3]

- [1] Morihisa Saeki, et.al, J. Nucl. Sci. Technol. 2014, 51, 930–938
 [2] Ryuzo Nakanishi, et. al., Appl. Sci. 2020, 10, 8985
 [3] https://dccc-program.jp/wp-content/uploads/20231117_JAEA.pdf

本報告には、経済産業省資源エネルギー庁「令和3年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの分析精度の向上、熱挙動の推定及び簡易分析のための技術開発）」^[3] および文部科学省英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業JPJA20P20337946 の成果の一部が含まれます。

放射線工学部会セッション

レーザーを活用した分析計測・制御システムの研究と原子力工学への展開

Researches on analysis and control systems using lasers
and their applications to nuclear engineering

共振器増強レーザー吸収分光による微量同位体分析とその応用

Trace isotope analysis with cavity enhanced laser absorption spectroscopy and its applications

*富田 英生¹

¹名古屋大学

トリチウムと放射性炭素同位体 (^{14}C) は共に β 壊変核種であり、かつ、放出される β 粒子のエネルギーが低いため、液体シンチレーションカウンティングなどの放射線計測に基づく定量分析が広く行われている。一方、極めて高いアバNdダンス感度が必要とされる ^{14}C 分析においては、加速器質量分析を用いるのが一般的である。トリチウムや ^{14}C の生体・環境トレーサーとしての応用や放射性廃棄物分析などにおける分析においては、前処理が簡便で、測定による有機廃棄物が生じない迅速・簡便かつ高感度な分析システムが求められている。

近年、迅速かつ高感度な ^{14}C 分析法として、レーザー吸収分光に基づく手法が開発され^[1]、注目が集まっている。本手法は、分子のエネルギー準位がその分子を構成する同位体により異なることを利用し、炭素を含む試料を燃焼酸化して CO_2 ガスを発生させ、 ^{14}C を含む CO_2 分子の光吸収量を狭帯域なレーザーにより選択的に測定することで、 ^{14}C を定量するものである。 ^{14}C 同位体比が低くごくわずかにしか $^{14}\text{CO}_2$ 分子が存在しない試料の分析には、 CO_2 の基本音吸収のある中赤外領域と光共振器で増強したレーザー吸収分光（キャビティリングダウン分光：CRDS）を用いる必要がある。

これまでに、講演者らは ^{14}C を含む CO_2 を ppt レベルで分析する装置の開発と薬物動態分析などへの応用などを進めてきた^[2]。また、本手法のトリチウム分析への適用に向けた開発にも着手している^[3]。本講演では、共振器増強レーザー吸収分光による ^{14}C およびトリチウム分析法の開発状況について説明するとともに、カーボンニュートラル社会の実現に向けた有機資源分析・環境計測への応用などへの展望についても紹介する予定である。

参考文献

- [1] I. Galli *et al.* : Phys. Rev. Lett., 107, 270802 (2011).
- [2] R. Terabayashi *et al.* : J. Appl. Phys., **132**, 083102 (2022).
- [3] K. Iwamoto *et al.* : Jpn. J. Appl. Phys., **62** 036001 (2023).

謝辞 本研究の一部は、JST さきがけ「量子生体」JPMJPR19G7、CREST JPMJCR2104、JSPS 科研費・学術変革領域研究 B 22H05021 の支援を受けて行われたものです。

*Hideki Tomita

¹Nagoya Univ.