一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：501-1 基礎物性

2024年9月12日(木) 14:45 ~ 15:35 N会場(講義棟B棟2F B203)

[2N10-12] デブリ解析技術

座長:瀬川 智臣(JAEA)

14:45 ~ 15:00

[2N10]

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦とLIBSによる検証
(1) 模擬燃料デブリ試料の作製と評価

*坂口 知聡[1]、坂本 寛[1]、大内 敦[1]、牟田 浩明[2]、若井田 育夫[3]、Paul Murray[4] (1. NFD、2. 阪大、3. JAEA、4. ストラスクライド大学)

15:00 ~ 15:15

[2N11]

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦とLIBSによる検証
(2) 金属系試料の作製と評価

*牟田 浩明[1]、佐藤 亨哉[1]、大石 佑治[1]、沖田 隆文[1]、坂本 寛[2]、坂口 知聡[2]、若井田 育夫[3]、大場 弘則[3]、Paul Murray[4] (1. 阪大、2. NFD、3. JAEA、4. ストラスクライド大学)

15:15 ~ 15:30

[2N12]

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦とLIBSによる検証
(3) 遠隔操作LIBSによる元素マッピング

*大場 弘則[1]、Batsaikhan Munkhbat[1]、赤岡 克昭[1]、狩野 貴宏[1]、岩田 圭弘[1]、若井田 育夫[1]、坂口 知聡[2]、坂本 寛[2]、牟田 浩明[3] (1. 原子力機構、2. NFD、3. 大阪大学)

15:30 ~ 15:35

座長持ち時間

©日本原子力学会

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証
(1) 模擬燃料デブリ試料の作製と評価

Challenge for screening of nuclear fuel debris by innovative spectral imaging
and its verification by LIBS mapping
(1) Preparation and evaluation of simulated nuclear fuel debris

*坂口　知聡[1]，坂本　寛[1]，大内　敦[1]，牟田　浩明[2]，若井田　育夫[3]，Paul Murray[4]
[1]NFD，[2]阪大，[3]JAEA，[4]ストラスクライド大学

福島第一原子力発電所 1 号機（1F）の燃料デブリの分析手法として、ハイパースペクトルイメージング(HSI)とレーザー誘起ブレークダウン分光(LIBS)を組み合わせた手法を提案し、それぞれの技術の適用性を検証している。本発表では核燃料として UO_2 を含む模擬燃料デブリ試料を作製し、HSI 測定および解析を行った結果について報告する。

キーワード：ハイパースペクトルイメージング、燃料デブリ

1. 緒言

1F 内部状況の調査において、調査装置の付着物や格納容器内の堆積物等から得られた微粒子の分析[1]は進められているが、ペデスタル周辺で確認された塊状や棚状の堆積物等[2]においては、物質の組成や結晶構造に関する情報はほとんど得られていない。今後、大規模な燃料デブリの取り出しや分別作業を効率的に行うためには、燃料デブリの識別技術が不可欠である。そこで、近年、様々な分野に適用されつつある[3,4] HSI に着目した。HSI では物質の反射光から得た分光スペクトルを基に物質を識別するが、教師データを基に物質を判別するため組成の推定しかできない。よって、局所領域の組成を直接評価が可能な LIBS と組み合わせることで、正確かつ広範囲な模擬デブリの可視化が期待される。本発表では、核燃料として UO_2 を含む模擬燃料デブリ試料に対して HSI 測定した結果について報告する。

2. 試験方法

表 1 に示す組成で UO_2 粉末を金属や酸化物粉末と混合・焼結し、模擬燃料デブリ試料を作製した。各試料の結晶構造と元素分布を XRD 測定および SEM/EDX 観察により確認後、ハイパースペクトルカメラ(エバ・ジャパン製 NH-5H-1.7)で撮影し、波長 350 ~1100 nm までの分光スペクトルを得た。得られたスペクトルにスペクトル角マッパー(SAM)解析を適用し、試料組成に基づく試料の分類が可能か検証を行った。

表1　試料組成

試料番号	組成
Z104F1SE01	1%UO_2-49.5%ZrO_2-49.5%Fe_3O_4
Z104F1SE02	5%UO_2-47.5%ZrO_2-47.5%Fe_3O_4
Z104F1SE03	10%UO_2-45%ZrO_2-45%Fe_3O_4
Z104F1SE04	50%UO_2-25%ZrO_2-25%Fe_3O_4
Z104F1SE05	95%UO_2-5%Gd_2O_3
Z104F1SE06	1%UO_2-99%コンクリート
Z104F1SE07	5%UO_2-95%コンクリート
Z104F2SE01	1%UO_2-49.5%Zr-49.5%SUS316L
Z104F2SE02	5%UO_2-47.5%Zr-47.5%SUS316L
Z104F2SE03	10%UO_2-45%Zr-45%SUS316L

3. 試験結果及びまとめ

図 1 に示す様に、一部を除き組成に応じて強度の異なるスペクトルが得られ、図 2 に示す様にある程度試料を分類することができた。しかし、Z104F1SE01 と Z104F1SE05 のように組成が大きく異なる試料においてもほぼ同じスペクトルが得られていた他、参照試料として加えた ZrO_2 と白板の区別できておらず、分類が正確にできていない試料も存在した。これは、試料組成に固有の明確なピークや落ち込み等は確認できなかったためであると考えられる。今後、より精度よく試料の分類するためには、SAM 解析におけるパラメータの調整やその他の解析手法により、スペクトルから試料組成に固有の特徴量を評価する必要がある。

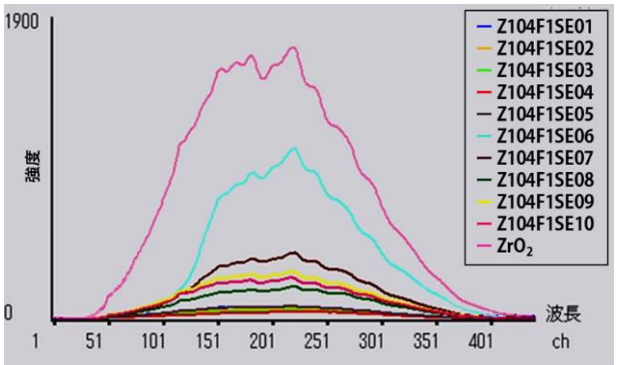

図 1　各試料の分光スペクトルグラフ

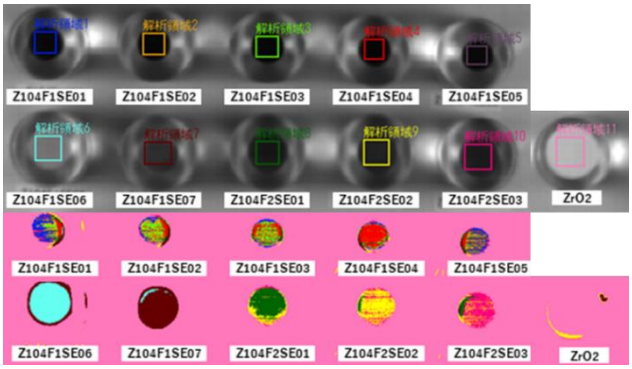

図 2　分光スペクトルの SAM 解析結果

4. 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 JPJA23F23830470 の助成を受けた。

参考文献

[1] 仲吉彬, 三次岳志, 佐々木新治, 前田宏治. 平成 29, 30 年度福島第一原子力発電所の炉内付着物の分析; 平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」(燃料デブリの性状把握・分析技術の開発), JAEA-Data/Code 2021-011, 日本原子力研究開発機構, 2022.
[2] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第 113 回, 2023/4/27) 資料 3-3,「1 号機 PCV 内部調査(後半)について」
[3] M. J. Kahn *et al.*, IEEE Access, **6** (2018) 14118.
[4] J. Zabalza, P. Murray *et al.*, IEEE Sensors Journal, **23** (2023) 25607.

*Chisato Sakaguchi[1], Kan Sakamoto[1], Atsushi Ohuchi[1], Hiroaki Muta[2], Ikuo Wakaida[3], Paul Murray[4]
[1]NFD, [2]Osaka Univ., [3]JAEA, [4]Univ. of Strathclyde

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証
(2) 金属系試料の作製と評価

Challenge for screening of nuclear fuel debris by innovative spectral imaging
and its verification by LIBS mapping
(2) Preparation and evaluation of metallic debris simulants

*牟田 浩明[1]，佐藤 亨哉[1]，大石 佑治[1]，沖田 隆文[1]，坂本 寛[2]，坂口 知聡[2]，若井田 育夫[3]，
大場 弘則[3]，Paul Murray[4]
[1]大阪大学，[2]NFD，[3]原子力機構，[4]Univ. of Strathclyde

1F 炉内物質を遠隔分析する手法として、ハイパースペクトルカメラによる画像解析（HSI）とレーザー誘起ブレークダウン分光（LIBS）を組み合わせることに着目した共同研究を英国と実施している。本研究では金属系炉内模擬物質として SUS、Fe-Ni 合金、鉛等の試料を作製し、HSI による評価を試みた。

キーワード：ハイパースペクトルイメージング，金属デブリ

1. 緒言

1F 炉内では溶融炉心がコンクリート等と反応し、多様な物質が形成されている。HSI による炉内物質識別のためには、適切な標準物質の作製とそのデータ取得が必要となる。これまでの模擬溶融試験[1]および熱力学計算[2]では、構成材である Fe-Cr-Ni 合金（SUS）を主として、SUS のうち Cr が優先的に酸化されることによる Fe-Ni 合金、被覆管由来の Zr 化合物が金属系炉内物質として報告されている。また ROV による炉内調査では、鉛毛マット由来と思われる金属光沢を示す付着物が確認されている[3]。このため本研究では金属系標準物質として SUS、Fe-Ni 合金、鉛、Fe-Zr 合金を作製し画像データを取得した。

2. 試験方法

SUS、鉛は購入した板材を用いた。Fe-Ni 合金はアーク溶解により作製したインゴットを真空封入し、1273 K で 72 時間熱処理を施した。Fe-Zr 試料はアーク溶解後のインゴットを粉砕し、放電プラズマ焼結を施すことで固化した。これら試料について NFD に設置されたエバ・ジャパン製ハイパースペクトルカメラ NH-5H-1.7 を用いて、350 nm から 1100 nm までの画像データを取得した。

3. 結果とまとめ

図 1 に SUS、$Fe_{0.8}Ni_{0.2}$ 合金、鉛および昨年度作製した鉄酸化物試料に対して線形判別分析を用いた分類結果を示す。肉眼ではこれら金属試料はいずれも銀白色であり判別は難しいが、HSI によってよく分類できているといえる。スペクトルの違い等については当日報告する。

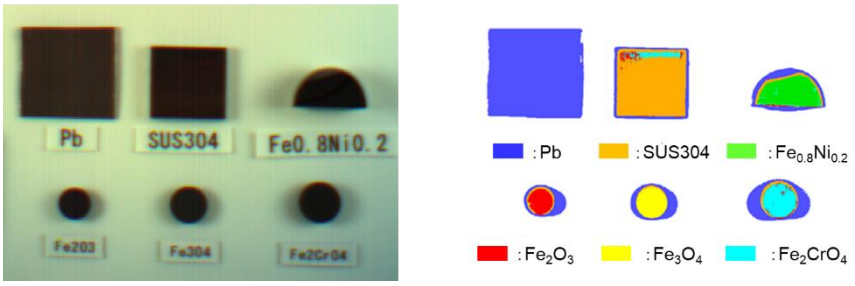

図 1　作製試料の（左）RGB 画像と（右）線形判別分析による分類結果

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 JPJA23F23830470 の助成を受けたものです。

参考文献

[1] L. Brissonneau et al., *J. Nucl. Mater*., **528** (2020) 151860., M. Takano et al., *J. Nucl. Sci. Technol*., **51** (2014) 859.など
[2] T. Kitagaki et al., *J. Nucl. Mater.*, **486** (2017) 206.など
[3] 福島第一原子力発電所廃炉・事故調査に係る連絡・調整会議第会合資料など

---

*Hiroaki Muta[1], Yukiya Sato[1], Yuji Ohishi[1], Takafumi Okita[1], Kan Sakamoto[2], Chisato Sakaguchi[2], Ikuo Wakaida[3], Hironori Ohba[3], Paul Murray[4]
[1]Osaka Univ., [2]NFD, [3]JAEA, [4]Univ. of Strathclyde

革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証
（3）遠隔操作 LIBS による元素マッピング

Challenge for screening of nuclear fuel debris by innovative spectral imaging
and its verification by LIBS mapping
(3) Elemental mapping by remotely operated LIBS

*大場 弘則[1]，Batsaikhan Munkhbat[1]，赤岡 克昭[1]，狩野 貴宏[1]，岩田 圭弘[1]，若井田 育夫[1]，
坂口 知聡[2]，坂本 寛[2]，牟田 浩明[3]
[1]原子力機構（JAEA），[2]NFD, [3]大阪大学

1F 炉内物質の分析手法として、ハイパースペクトルイメージング（HSI）とレーザー誘起ブレークダウン分光（LIBS）を組み合わせることを提案し，それぞれの技術の適用性を検証している。今回はマイクロチップ LIBS 測定系を整備して模擬燃料デブリ試料の 2 次元元素分布計測を試みた結果を報告する。
キーワード：燃料デブリ，LIBS，2 次元元素分布，レーザー誘起音響波，形状認識

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉措置における燃料デブリ取出しに向けた位置・性状把握のための手段の一つとして，ファイバーLIBS による遠隔その場分析が期待されている[1]．しかしながら、LIBS 技術において、対象物試料の元素分析を正しく行うためには、試料に対してパルスレーザー光を複数回照射して、プラズマ発光したときの信号強度を確認しながらレーザー光の焦点位置を調整する必要がある。そのため、焦点位置の調整の度に試料の表面が破壊されることや、本測定に至るまでの時間を要することなどが懸念される。今回、レーザー誘起音響波を利用して LIBS 焦点位置の最適化を行い、同時に試料の 2 次元元素分布測定を試みた結果を報告する。

LIBS 測定ではマイクロチップを適用したファイバー伝送方式とした[2]。測定体系の概略図を図 1 に示す。測定系は、発光分光分析が可能なマイクロチップ LIBS プローブ（L）、音響波センサ（M）から構成される。L から出射されたレーザー光が XYZ ステージ上の試料に照射され、レーザー照射により生じた音響波をコンデンサ型マイクロフォンにより取得し、オシロスコープ上に波形信号を表示させた。集光レンズから試料までの距離（LTSD）に対して波形振幅およびプラズマ発光強度の関係を調べることにより、焦点位置合わせを行う。分析に係る焦点位置合わせが完了した後に、パルスレーザーを試料に再照射し、生じたプラズマ発光を L 内でレーザー光と分離して分光分析することで、当該試料の元素組成が分析可能となる。なお、XY ステージにより試料を移動することで２次元元素分布が取得できる。

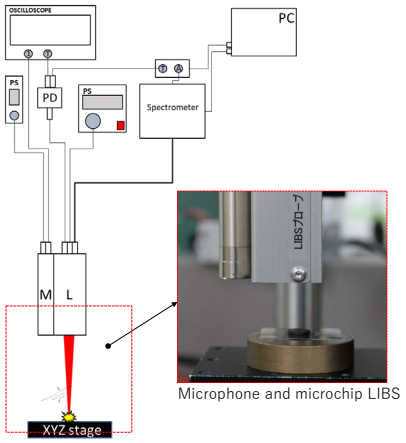

図1 測定体系の概略

図２は試料に Al を使用し、縦軸左に M で取得した時間に対する音響波形（振幅）を、縦軸右に波長（Al(I):394 nm）に対する発光スペクトル強度を示している。それぞれに対して LTSD で表現した。M の音波振幅値は LTSD：20mm または 21mm において、LIBS 強度もまた LTSD：20mm または 21mm において値が高いという関係性にあり、分析に最適な LTSD がこの間にあることを指している。この結果に基づいて２次元元素分布測定を行った。講演では、模擬燃料デブリとして調製した Ce-Zr-Fe-Gd の多元素混合酸化物試料の測定結果や音響波を利用した表面形状認識について議論する。

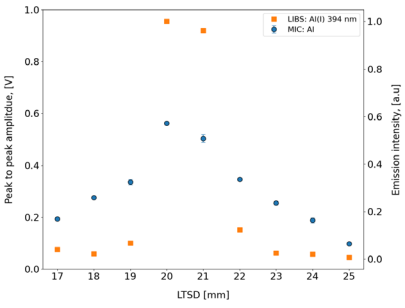

図2 音波振幅強度及び LIBS 強度と LTSD の関係

参考文献

[1] M. Saeki, *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **51** (2014) 930,
[2] 大場ら，日本原子力学会2023 年秋の大会，1B14
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 JPJA23F23830470 の成果の一部です。

*Hironori Ohba[1], Batsaikhan Munkhbat[1], Katsuaki Akaoka[1], Takahiro Karino[1], Yoshihiro Iwata[1], Ikuo Wakaida[1], Chisato Sakaguchi[2], Kan Sakamoto[2], Hiroaki Muta[3], [1]Japan Atomic Energy Agency (JAEA), [2]NFD, [3]Osaka Univ.