

令和 5 年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業 (燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発)

1. 燃料デブリ性状把握のための分析・推定技術の開発
2. 燃料デブリの簡易（その場）分析のための技術開発
3. RPV損傷状況及び燃料デブリのPCV内移行挙動等の推定のための技術開発

－令和 6 年度最終報告－

2025年 10月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

2. 燃料デブリの簡易（その場）分析のための技術開発

2.1 事業の背景・目的

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

2.3 事業の技術課題

2.4 技術開発の目標（事業終了時の目標指針）

2.5 事業の全体像と担当（実施体制）

2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

2.7 実施内容

2.7.1 分析手法の確立

- a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化
- b) 放射能汚染環境での利用対応
- c) ガンマ線環境下での性能評価
- d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

2.7.2 核燃料物質による性能評価

- a) 標準試料の製作と試験
- b) 複雑系試料の製作と試験
- c) 使用済燃料等の試料準備と試験
- d) 未照射濃縮ウラン試料の製作と試験

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発
- b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発
- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2.8 まとめ

2.9 LIBS基本方式の性能・課題・適用性比較

参考：略称一覧

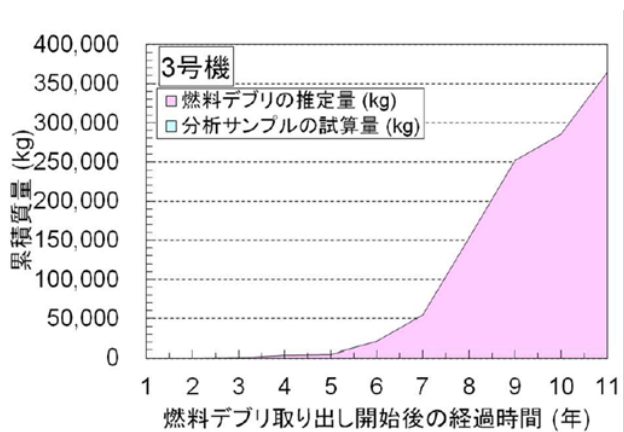
2.1 事業の背景・目的

2.1.1 事業の背景 <公募要領より抜粋>

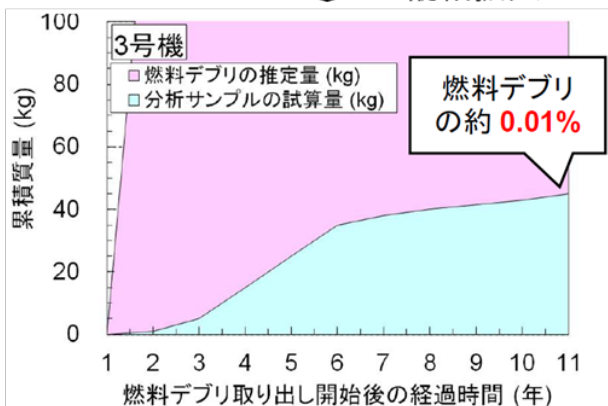
- ・福島第一原子力発電所の廃止措置において、原子炉内に存在する燃料デブリの性状を把握し、燃料デブリ取り出し・収納・保管、その後の処理・処分等の検討に資するため、原子炉格納容器内部で採取された燃料デブリ及び堆積物等に関するデータ・情報を取得することが必要である。
- ・多くの元素を含み、性状が不明な福島第一原子力発電所の燃料デブリの分析に際し、燃料デブリの分析能力を十分に有し、燃料デブリの性状を評価できる技術・体制を構築する必要がある。そのためには、複数の機関から得られたデータ・情報の適正な統合が可能となるような情報の質の明確化が必要である。また、海外の分析施設で得られたデータ・情報の質についてもレビューするとともに、海外の研究機関が有する分析技術に係る有用な知見を福島第一原子力発電所の燃料デブリの分析にも取り入れ、分析技術をさらに高度化していくことが必要である。
- ・また、分析は燃料デブリ取り出し作業と並行して行うことから、作業現場（その場）、または作業現場近傍で簡易的かつ迅速に燃料成分を検出する分析技術を開発することは、燃料デブリ取り出し作業を効率化、省力化する上で有効である。さらに、上記の分析結果やこれまでの調査結果を基に、シミュレーション解析、模擬試験等を行い、事故時に発生した現象を検証し、炉内の損傷状況の推定を行うことは、廃止措置工程の検討において重要なものとなる。

2.1 事業の背景・目的

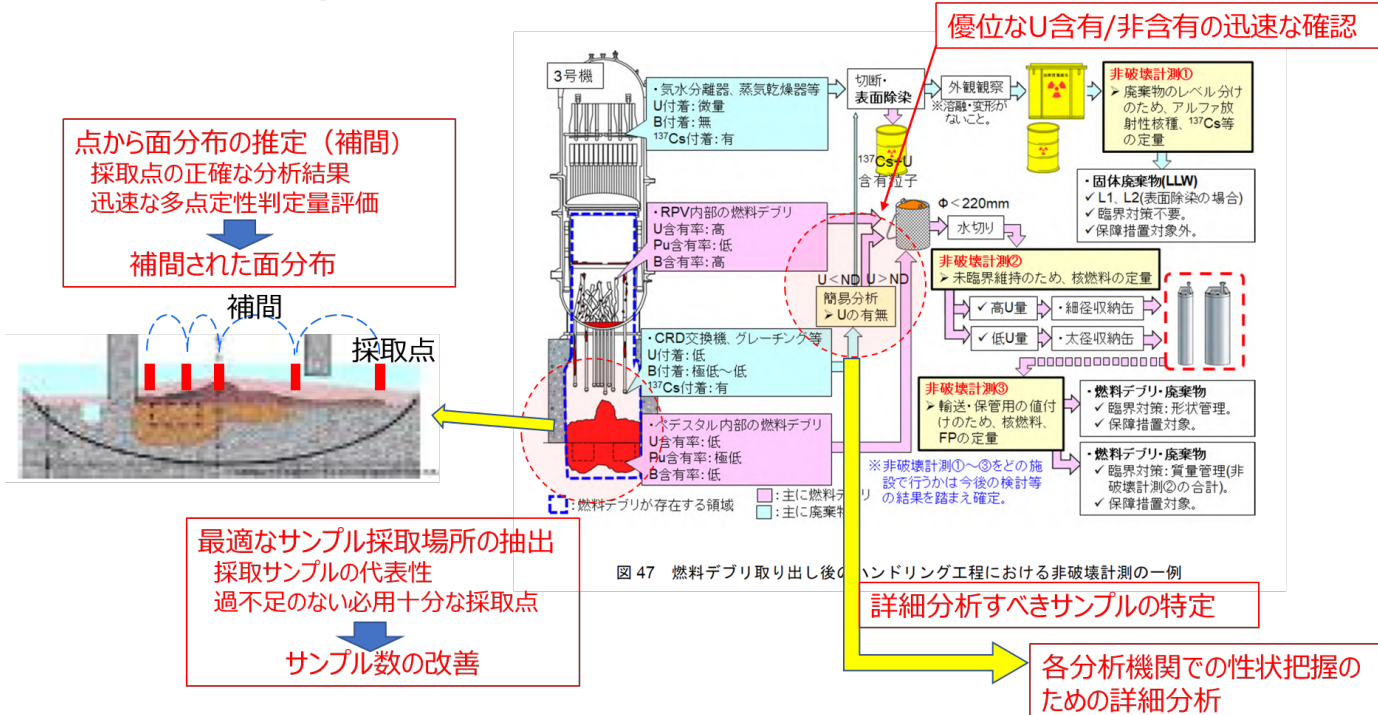
2.1.2 分析サンプル量とその場分析



縦軸拡大



燃料デブリ及び分析サンプルの推定量の比較



燃料デブリ取り出し工程における簡易分析の適用

- その場分析による
- * 作業現場での多くの部位の迅速計測
 - * ウランの有無の判断
 - * 燃料デブリと廃棄物とのスクリーニング (仕分け)

燃料デブリ取り出し作業の
効率化、省力化

- * 分析サンプル量が燃料デブリ総量に比べ圧倒的に少ない
- * 燃料デブリは不均質であり、分析量が少ない場合、分析結果との乖離が懸念
- * サンプル分析以外の方法での補足が重要

2.1 事業の背景・目的

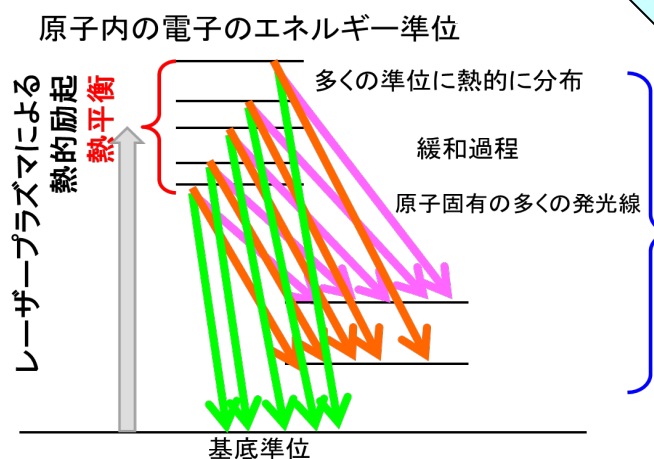
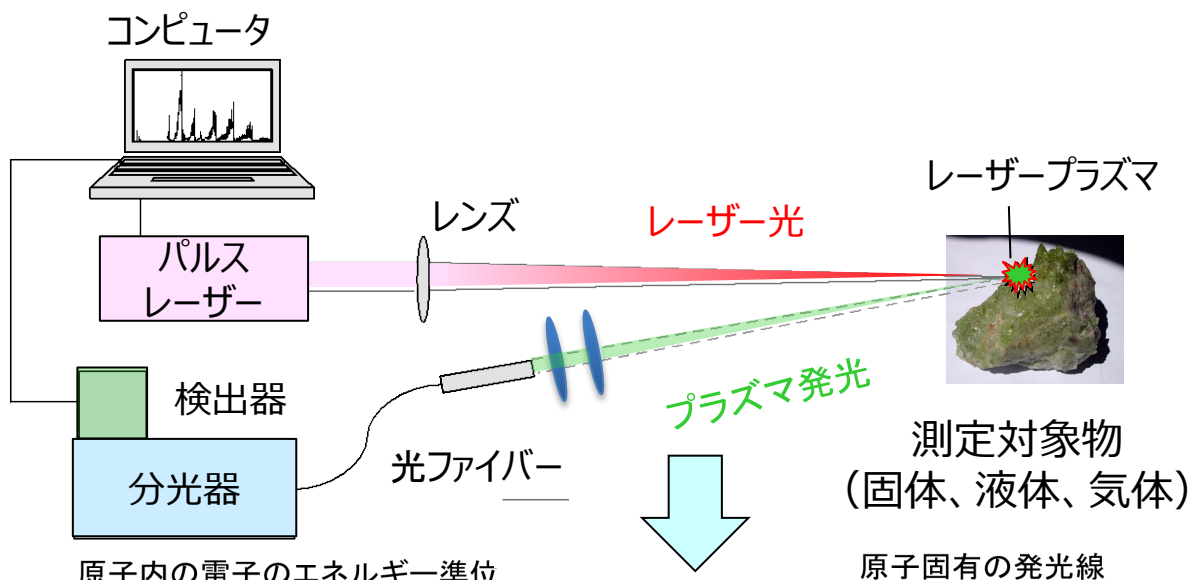
2.1.3 事業の目的 <公募要領より抜粋>

燃料デブリの簡易（その場）分析のための技術開発

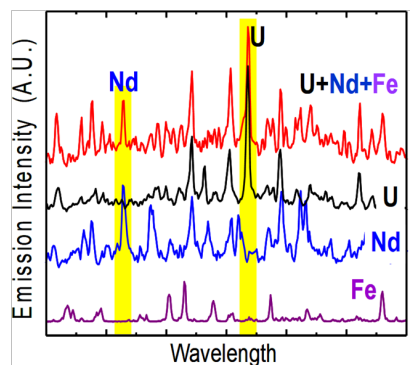
燃料デブリの取り出し時に、グレーチングや支柱等の内部の構造物の付着物中の燃料の含有量が極めて微量、または検出下限値未満であれば、臨界となることがない。臨界にならないければ、臨界対策として形状管理を取り入れた収納容器へ入れる必要はなくなる。付着物中のウランあるいは核燃料の有無を作業現場（その場）、または作業現場近傍で簡易的かつ迅速に検出する分析技術を開発することで、切断回数を削減し、燃料デブリ等の取り出し作業のスループット向上が可能となる。しかしながら、新規の分析手法の開発には、長期の時間と多大なリソースを必要とすることから、ある程度の基礎・基盤技術が確立している分析技術を対象に福島第一原子力発電所への現場適用を目指す。

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

2.2.1 LIBSの基本原理と特長



原子固有の発光線



【特 長】

- ・簡便な装置構成
- ・比較的高感度
- ・前処理不要
- ・非接触
- ・迅速
- ・多元素同時分析
- ・遠隔、その場分析
- ・オンライン分析

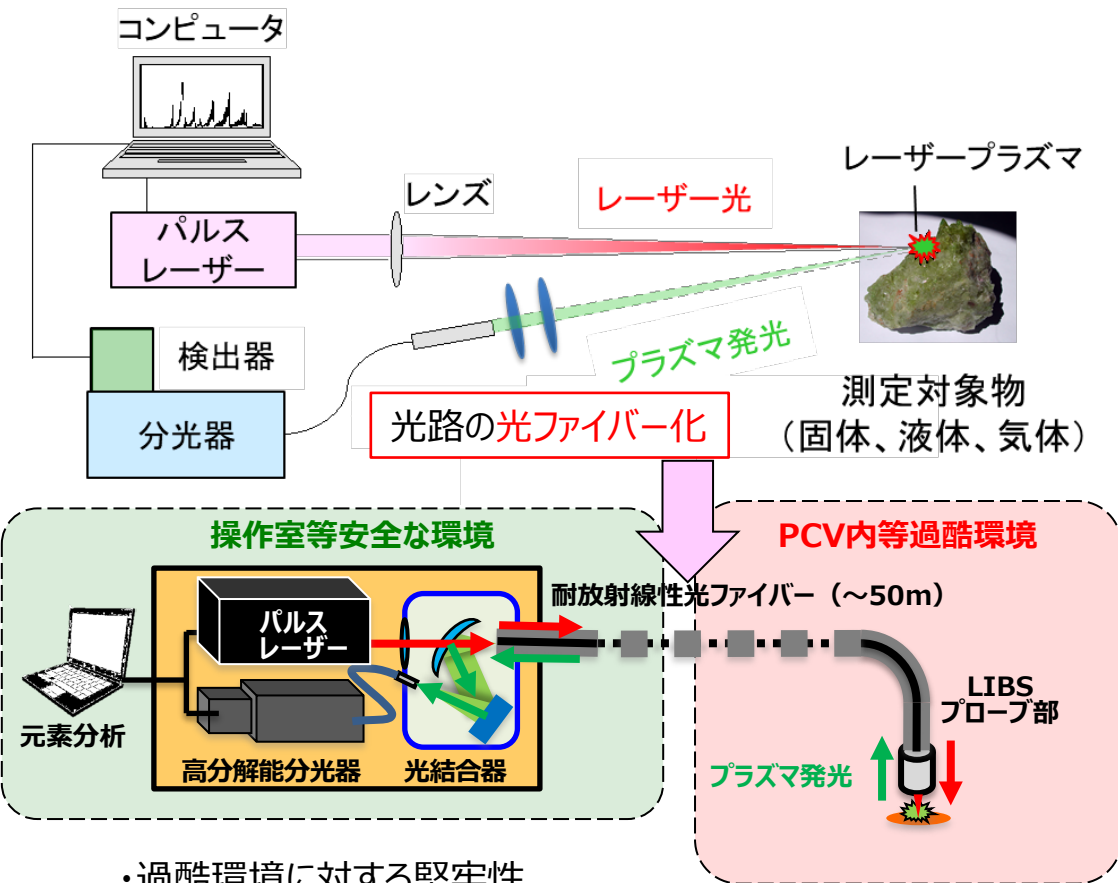
【極限環境等での適用研究例】

- ・月、惑星着陸探査用元素分析
- ・海底熱水鉱床、資源量評価
- ・溶鋼中炭素濃度・溶融合金濃度評価
- ・リサイクル時のオンライン分別

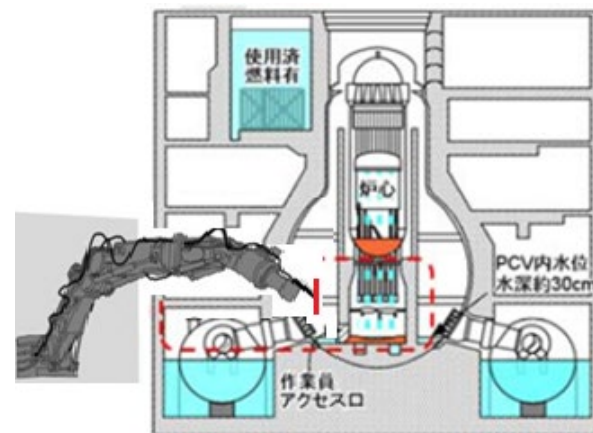
LIBS（Laser-Induced Breakdown Spectroscopy、略称一覧参照）：気体、液体、固体等の測定対象物にパルスレーザー光を直接集光照射してプラズマを発生させ、生成プラズマの発光を分光してその場で迅速に元素組成を計測する手法。

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

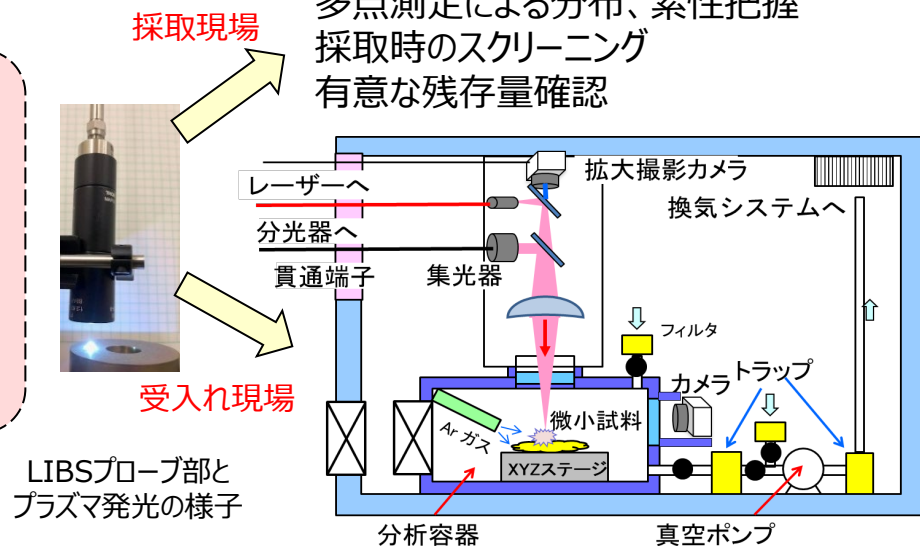
2.2.2 光ファイバーを活用した遠隔LIBS技術



- ・過酷環境に対する堅牢性
- ・光ファイバーによるレーザー光の搬送
- ・光ファイバーによる遠隔操作性
- ・気中でも水中でも使用可能
- ・LIBSによる非接触・その場・迅速元素分析の実現



ロボットアームへの装着
多点測定による分布、素性把握
採取時のスクリーニング
有意な残存量確認



LIBSプローブ部と
プラズマ発光の様子

受入れ時スクリーニング
元素（同位体）組成
疑似三次元分布（表面汚染の区別）

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

2.2.3-1 これまでの事業概要と成果（R3・R4年度補助事業）

空間的（その場）・時間的（迅速性）観点から、簡易（その場）分析手法として光ファイバーを利用したレーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）による遠隔その場分析法（光ファイバーLIBS）を選定し、技術開発を行うとともに、簡易分析手法である蛍光X線分析法（XRF）について、核燃料物質や使用済燃料による動作確認を行った。技術開発の全体像を図1に、事業終了時の目標指針に対する成果と評価を表1に示す。このうち、使用済燃料を用いた測定では、XRFは少量試料に限られることが確認された（図2）。一方、LIBSでは高線量率な使用済燃料含有試料でも影響を受けないことが示された（図3）。また、機器供給の試行では、実機試作機として壁貫通回転光コネクタ等を実装した可搬型光ファイバーLIBS装置を完成させた（図4）。

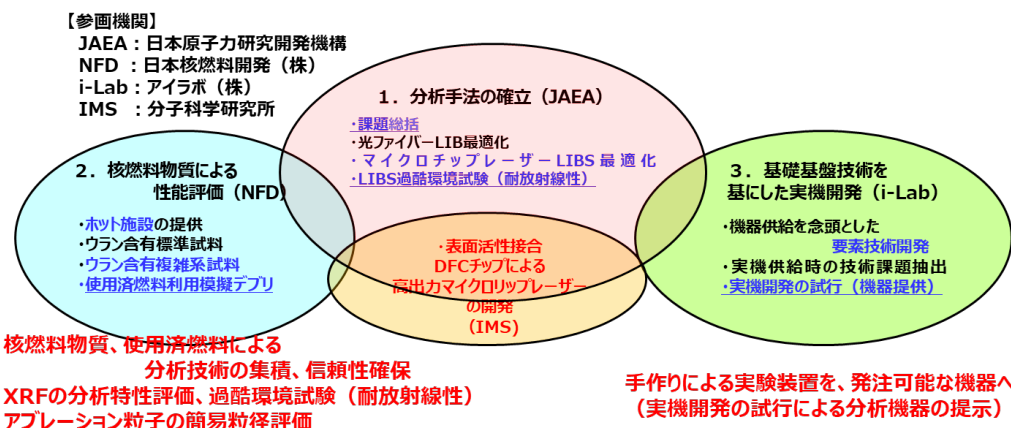
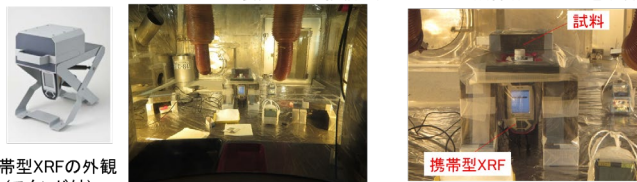


図1 技術開発の全体像

携帯型XRFの使用済燃料での動作試験

- ・15mSv/hから0.9Sv/hまでの線量率の異なる照射済み燃料試料を準備。
- ・試料作製・使用セルを準備。ホッセル内に設置し、遠隔操作するための試験を実施。（セル外のPCからセル内のXRF装置にUSB接続し、PCからの遠隔操作でデータを取得）



携帯型XRFの外観（スタンド付）

ホッセル内機観

試料と携帯型XRFの拡大

線量率 (Sv/h)	混合重量 (g) / 重量 (%)			
	UO ₂	ZrO ₂	Fe ₃ O ₄	合計
0.0148	0.03/1.0	1.49/49.5	1.49/49.5	3.00 g

計測可能であった使用済燃料混合模擬試料の組成

結果 測定可能使用済燃料：0.03g相当（15mSv/h）以下（エネルギーシフト・通信不良等、不安定性の発現）

少量であっても利用条件に制限

図2 使用済燃料でのXRF動作制限状況

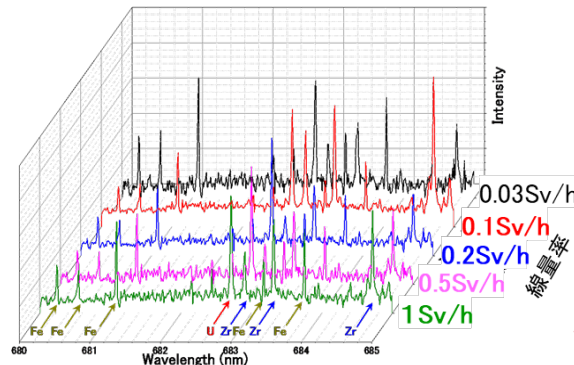


図3 使用済燃料含有試料のLIBSスペクトル
線量率に依存しないスペクトルの取得が可能

表1 事業終了時の目標指針に対する成果と評価		
当初目標指針	成果	評価
1) 遠隔かつ過酷環境でも分析特性が得られること。 ・模擬試料に対し、線量率>kGy/h 累積線量>MGyの実証。 ・50m以上（100m級）の超遠隔分析の実現。	マイクロチップレーザーLIBSプローブにおいて、ガンマ線環境の有無による検量線を評価した結果、5kGy/hでも変化がないことを確認した。マイクロチップレーザーの耐放射線性がMGyを超えることを確認した。マイクロチップレーザーLIBSプローブを活用した100mの超遠隔分析でも検量線に変化はなく、定量性が維持されることを実証した。	達成
2) ウランの有無の判定並びに定性的な組成比が求められること。 ・検量線等からウラン含有比（組成比）を定性評価。 ・ウランの検出下限として推定されている組成比1%の確認。 ・使用済燃料等での分析実績。	標準試料による検量線から不均一複雑系試料での組成比を評価し、SEM/EDXと良い一致を得た。定量分析が可能であることが示された。Uの検出下限として、酸化物系試料、金属系試料、コンクリートに対しそれぞれ約0.5%、1000ppm、1000ppmを確認した。使用済燃料によるUの分析については、XRFでは、15mSv/hを超える計測が不可能であったのに対し、LIBSでは、1Sv/hの線量率でも定量性を維持した分析が可能であることを実証した。	達成
3) 機器供給を試行し、実機を念頭とした機器が提供できること。 ・機器開発から提供までを試行し、実機試作機を提示。	レーザー光の収束性能とプラズマ発光集光性能の両立を図り集光効率を向上させたLIBSプローブや、隔壁貫通型回転光ファイバーコネクタ等の要素開発を含む実機試作機を完成させた。	達成

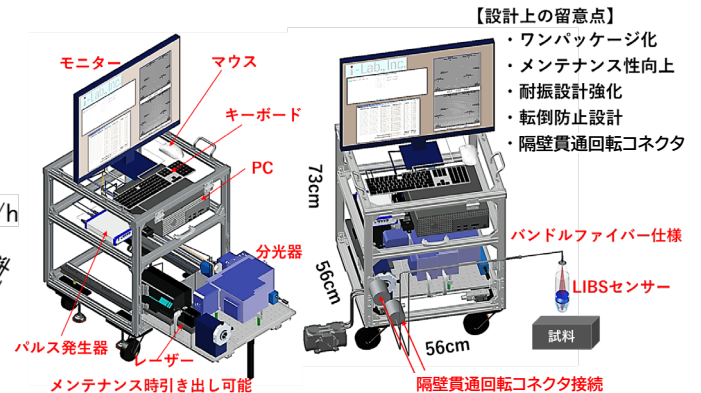


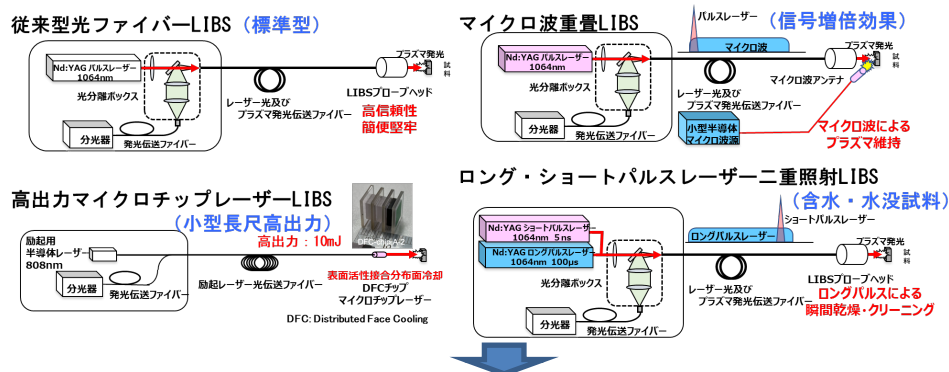
図4 基礎基盤技術を基にした実機開発

2.2.3-2 R5・6 年度事業概要と成果ハイライト

(2) 燃料デブリの簡易（その場）分析のための技術開発

燃料デブリや構造物に付着した物質の分析を、燃料デブリ取り出し作業と並行して実施できれば、作業の安全性と効率化・省力化に有効である。そこで、光ファイバーを活用したレーザー誘起ブレイクダウン分析法（光ファイバーLIBS）を活用し、線量率が極めて高い作業現場（その場）または作業現場近傍で簡易かつ迅速に燃料成分を検出可能な遠隔分析技術を開発する。

活用する各種光ファイバーLIBSの手法と実施内容の全体像



核燃料物質、使用済燃料による分析実績の集積、信頼性確保

2. 核燃料物質による性能評価

- ・ホット施設の提供
- ・ウラン含有標準試料
- ・ウラン含有複雑系試料
- ・使用済燃料ペレット断面分布

1. 分析手法の確立

・課題総括

- ・光ファイバーLIBS最適化
- ・マイクロチップレーザーLIBS構築と最適化
- ・核燃料物質（使用済燃料）による性能評価
- ・放射能汚染環境対応機器開発

利用環境を考慮した試作機の提示

3. 基礎基盤技術を基にした実機開発

- ・DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発（超長尺高出力化）
- ・可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発（信号強度増倍、高分解能化）
- ・耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発（粉塵・温度変化対応、含水試料高感度化）

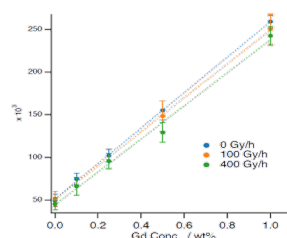
利用環境に対応した試作機の提示

燃料デブリの簡易（その場）分析への適用を前提とした分析実績の集積

代表的な実施内容とその成果（1）

【マイクロチップレーザーLIBSの耐放射線性】

分析特性の放射線耐性を調べるため、高線量率ガンマ線照射環境で検量線を取得した。その結果、高線量率環境においても検量線が変わらないことが示された。これにより、放射線の有無に関係なく分析が可能な耐放射線性を有していることが実証された。



ガンマ線照射環境で取得した検量線

代表的な実施内容とその成果（2）

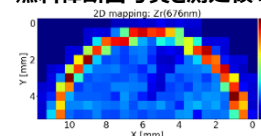
【使用済燃料棒断面分布測定】

使用済燃料による分析実績の蓄積のため、高線量率環境のホットセル内で使用済燃料を対象とした遠隔分析試験を実施した。

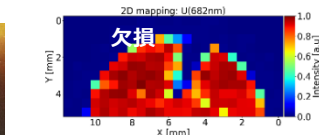
使用済燃料棒の断面において、レーザー照射位置をマトリクス状に多点照射した計測の結果から、U、Zr、Cs等の二次元元素分布計測が可能であることが実証された。Sr、Mo、Ba、La等の存在も確認された。



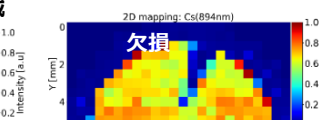
燃料棒断面写真と測定領域



Zrの分布（被覆管部を明示）



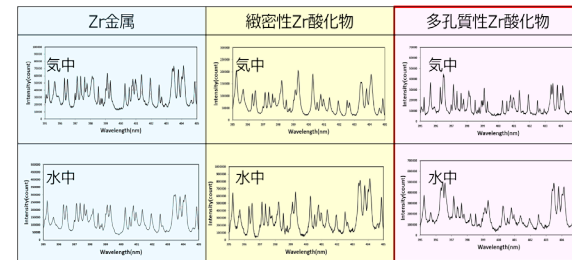
Uの分布（燃料ペレット部を明示）



Csの分布（外周部での高濃度領域を明示）

【ロング・ショートパルス二重照射LIBSによる水没環境での分光特性】

PCV内燃料デブリのその場分析への適合性を確認するため、空气中・水中等の環境や、金属・酸化物・多孔質酸化物等の状態の違いが、観測結果に及ぼす影響について調べた。本計測手法では観測結果に差異は認められず、適合性を有することが示された。

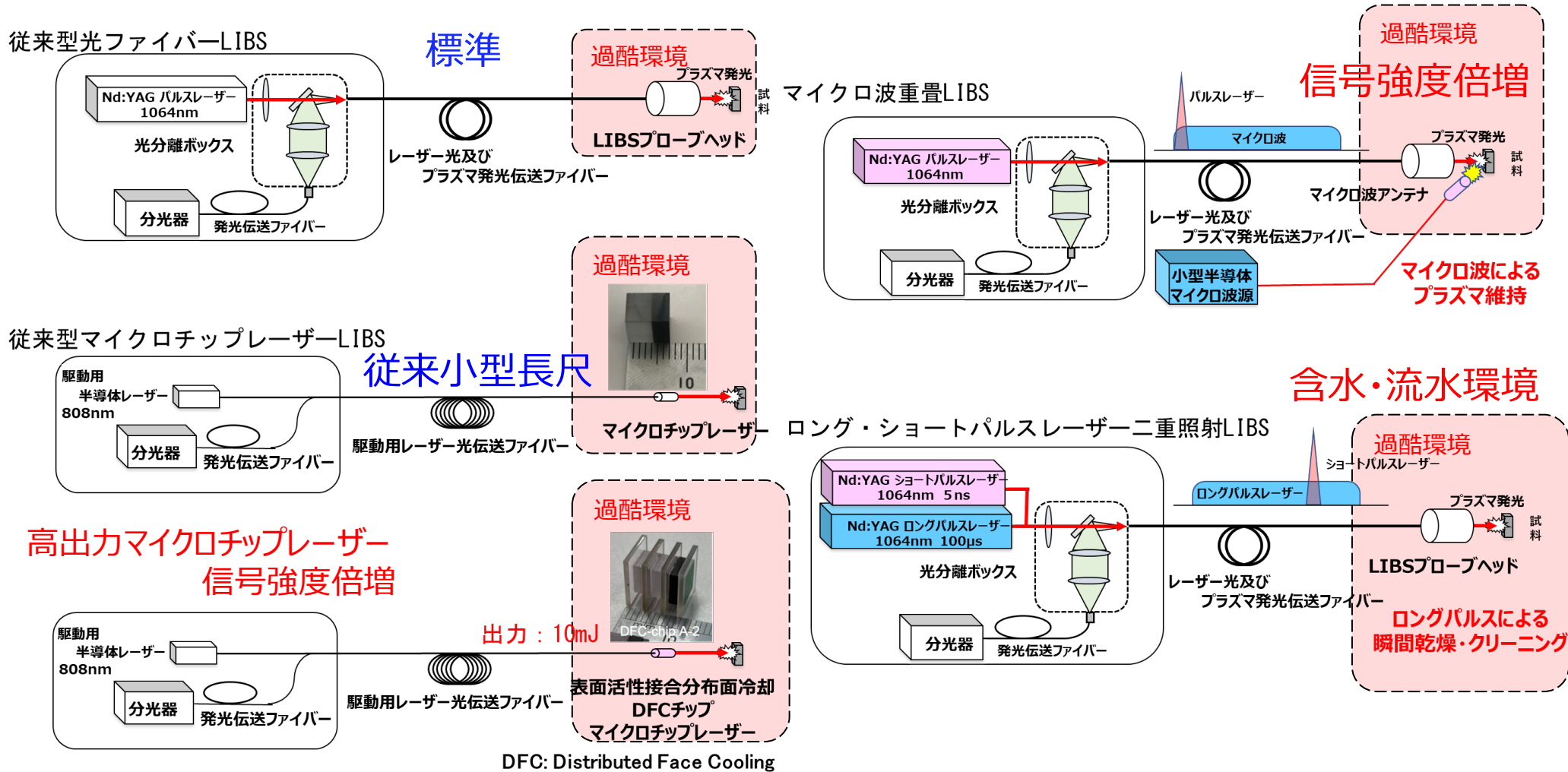


空气中・水中でのZr金属、Zr緻密性酸化物及び多孔質性酸化物の発光スペクトル観測例（観測結果に差異が認められない）

- ・機械学習による迅速確認手法について、その適用性を確認する。
- ・温度変化や粉塵環境、湿潤・水没環境に配慮した可搬型LIBS装置を完成させ、実機への適用性を確認する。

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

2.2.4 本事業で活用する光ファイバーLIBS技術



本技術開発で活用するLIBSシステムの概要

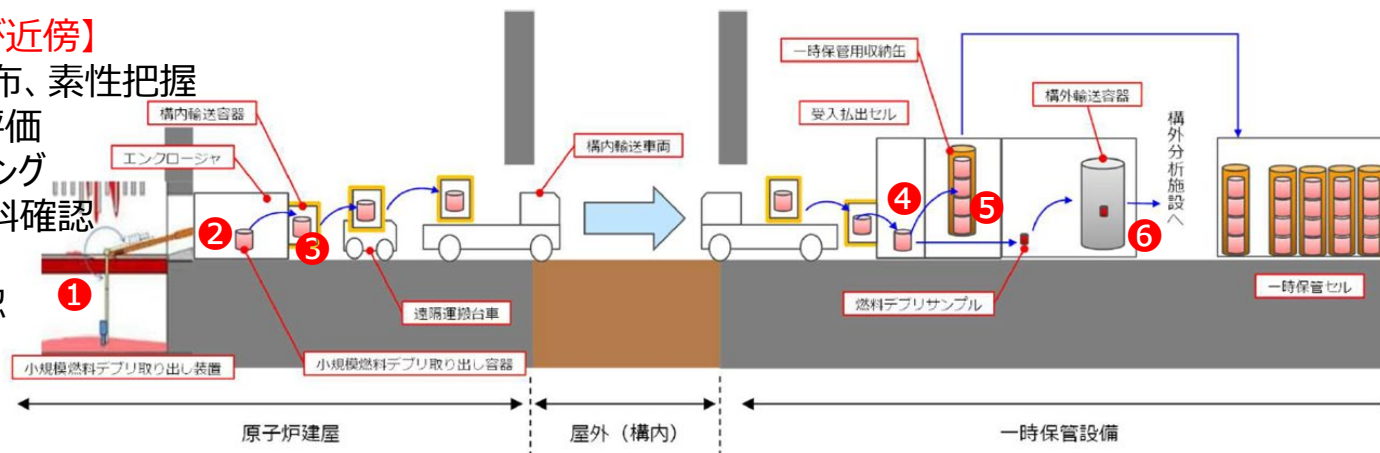
基本構成を大きく変えることなく、条件に応じて柔軟に組み合わせる概念

2.2 簡易（その場）分析技術としてのLIBS技術の提案

2.2.5 本事業で活用する光ファイバーLIBS技術：適用場面の一例

【炉内・建屋内及び近傍】

多点測定による分布、素性把握
試料採取場所の評価
採取時のスクリーニング
エンクロージャ内試料確認
輸送前確認
有意な残存量確認



【セル・GB内及び近傍】

受入れ時スクリーニング
払出し時スクリーニング
分析試料の選定
元素（同位体）
簡易評価
二次元分布
（表面汚染の区別）

【作業現場等】

⑦ 不明物の作業現場
でのその場確認

燃料デブリ取り出しから一時保管までのイメージ（段階的な取り出し規模の拡大）

※廃炉のための技術戦略プラン2022 (https://www.ndf.go.jp/oshirase/sonota_20221011_2.html)

適用先	LIBS要素技術	適用先	LIBS要素技術
① ② ③ ④ ⑤ ⑥ ⑦	ロング・ショート二重照射LIBS（水没含水試料～50m）	① ④ ⑤ ⑥	マイクロチップレーザーLIBS（超長尺＞100m）
① ② ③ ④ ⑤ ⑥ ⑦	従来型光ファイバーLIBS（手軽単純・可搬～50m）	④ ⑥	マイクロ波重畳LIBS（高感度）

2.3 事業の技術課題＜公募要領より抜粋・要約＞

- ・測定対象物の中に含まれるウランの有無（定性分析）の確認を重点とする。
- ・ウラン含有量が低濃度の模擬試料により、ウランの検出下限値の明確化を図る。
- ・低ウラン含有率を想定し、検出効率を向上させる手法について検討する。
- ・ウラン含有模擬試料として、ジルコニウム、鉄の検出についても検討する。
- ・高い放射線環境での測定を行い、有効性を検証する。
- ・可能であれば、使用済燃料、または燃料デブリ等を用いて検証する。
- ・測定部と操作部をつなぐ有線機構の接続手法、信号の増幅手法を検討する。
- ・表面が水で濡れている、あるいは内部の気孔に水が含まれている場合の対策を検討する。
- ・放射性物質が付着しにくい、あるいは付着しても除染しやすい構造、かつ素材を検討する。
- ・放射線を除く環境因子が測定に及ぼす影響を低減し、安定した測定を行う方策を検討する。

2.4 技術開発の目標（事業終了時の目標指針）

事業終了時の目標指針

A 分析手法の**高度化**が図られること。

- ・**従来に比べ > 10倍の信号強度**が実現できること。

（従来技術及び基礎データを基に、新規マイクロチップレーザー、マイクロ波技術等を組み合わせ、**性能向上を図る応用研究**：TRL3）

- ・**含水及び表面流水環境**でも分析が可能であること。

（レーザー二重照射法を従来光ファイバーLIBS技術と融合させ、**有効性を検証する応用研究**：TRL3）

- ・**放射性物質を含有した試料、空気汚染環境**で遠隔分析を可能とすること

（廃炉作業現場環境での使用を前提とした試料取扱・機器防護部を**構築する実用化研究**：TRL4）

B 核燃料物質を含んだ試料に対する**分析実績を拡充**すること。

- ・未照射ウラン及びジルコニウム、鉄等を含有した試料による**分析実績を拡充し、検出下限値**が評価できること

（従来技術又は新規要素の組み合わせによる**性能評価及びデータベースを構築する応用研究**：TRL3）

- ・照射済燃料を含有した模擬試料を**高線量率環境で分析できる**こと

（従来技術又は動作確実な組み合わせ手法をホットセル分析で**試行・検証する実用化研究**：TRL4）

- ・**照射済燃料ペレット**の直接分析が可能であること

（従来技術又は動作確実な組み合わせ手法をホットセル分析で**試行・検証する実用化研究**：TRL4）

C 実機を念頭とした**試作機が提供される**こと。

- ・マイクロ波重畳光ファイバー**LIBS装置が提供される**こと。

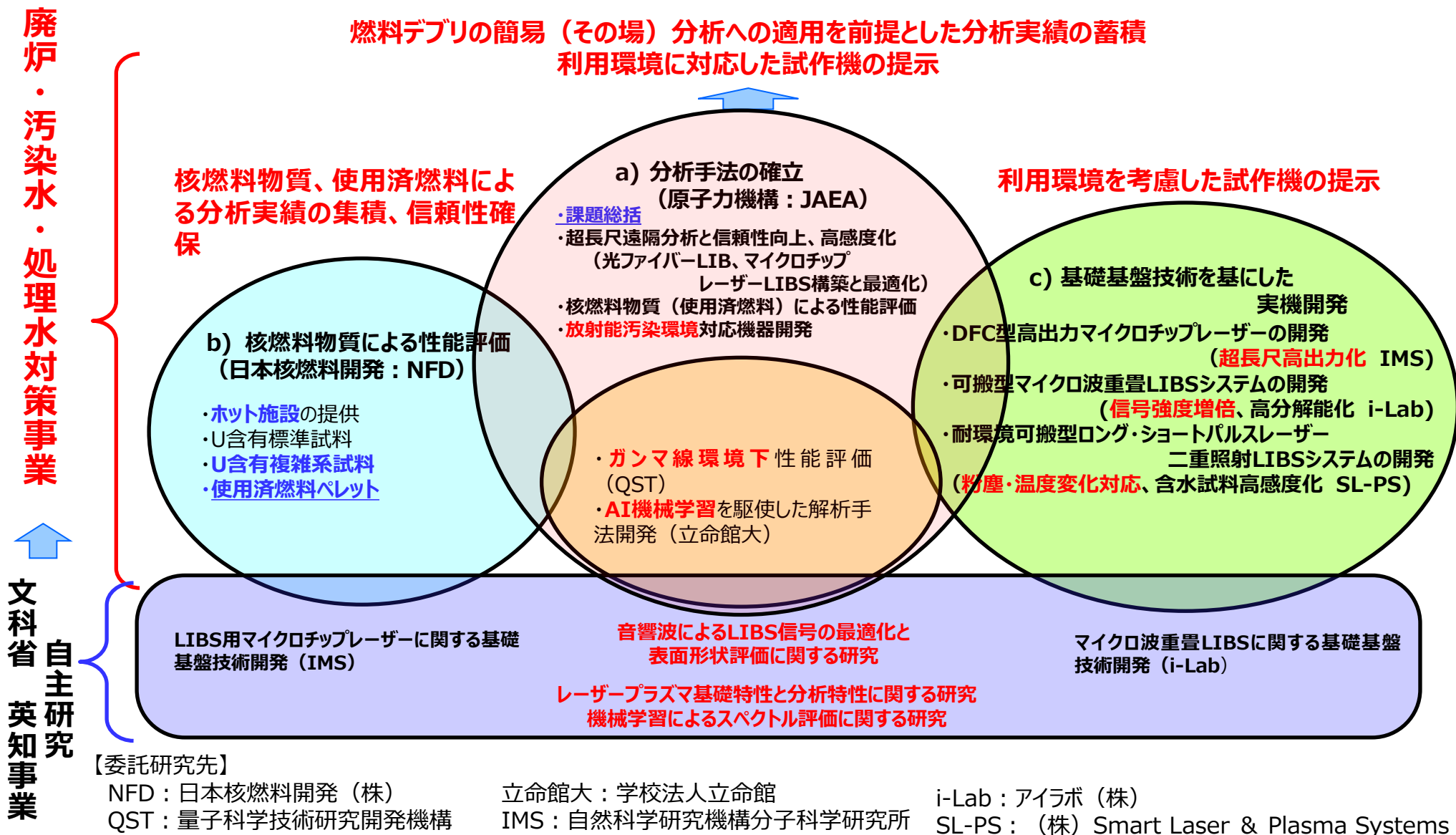
- ・ロング・ショートパルスレーザー二重照射型ファイバー**LIBS装置が提供される**こと。

- ・**一般環境（粉塵、温度変化）**に対応した試作機が提供されること。

（マイクロ波重畳機能、二重照射機能を有する装置、耐環境コンテナを**試作する実用化研究**：TRL4）

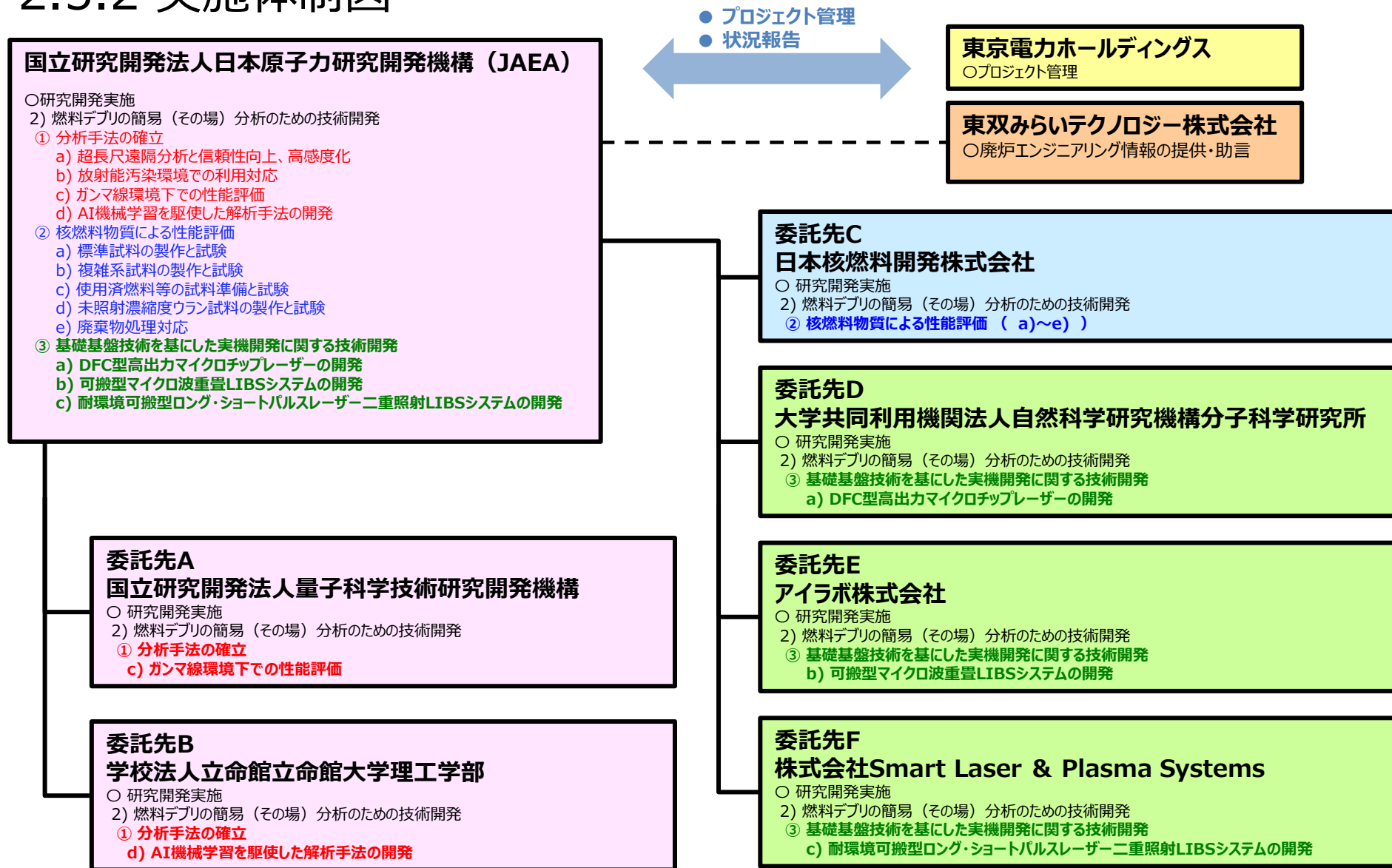
2.5 事業の全体像と担当（実施体制）

2.5.1 実施テーマの全体像（相互関係）



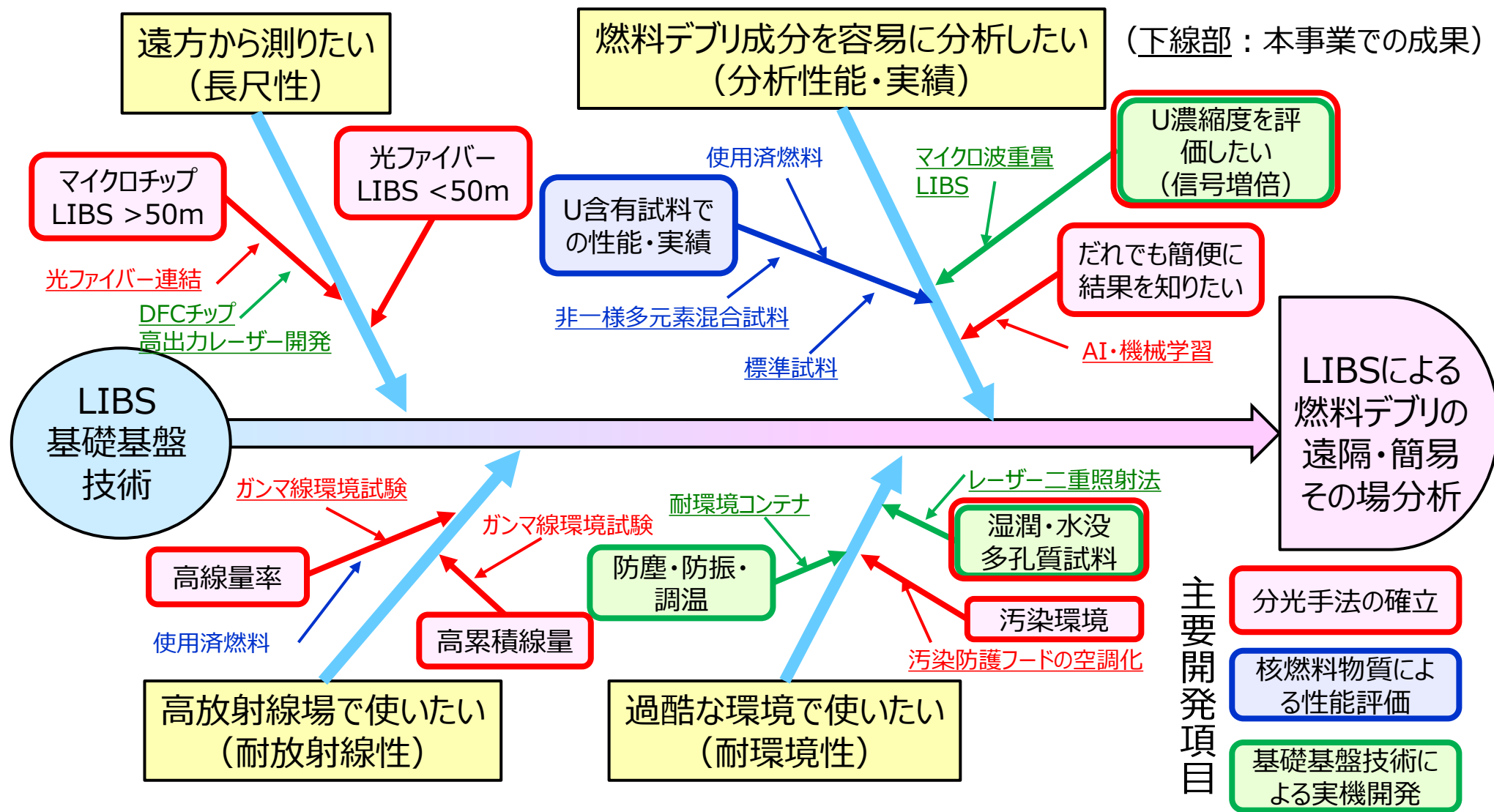
2.5 事業の全体像と担当（実施体制）

2.5.2 実施体制図



2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

遠隔・簡易・その場分析へ求められる要求を実現するために



2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

- 感度向上手法の検討、検出下限の明確化、超長尺遠隔分析手法の検討、含水多孔質性の酸化物試料への適用、放射能汚染環境での活用に対する対策の強化を図る。

1) 分析手法の確立（手法の検討・高度化）

- ジルコニウム、鉄、ガドリニウム、カルシウム等が混在した未照射ウラン標準試料による性能確認、使用済燃料ペレット及び使用済燃料を用いた模擬デブリの分析への適用を図る。

2) 核燃料物質による性能評価（核燃料物質での実績の拡充）

- 可搬型LIBS分析装置を試作するとともに、光ファイバー等の接続利便性、ガンマ線環境下、温度変化・粉塵に対応した耐環境性を図る。

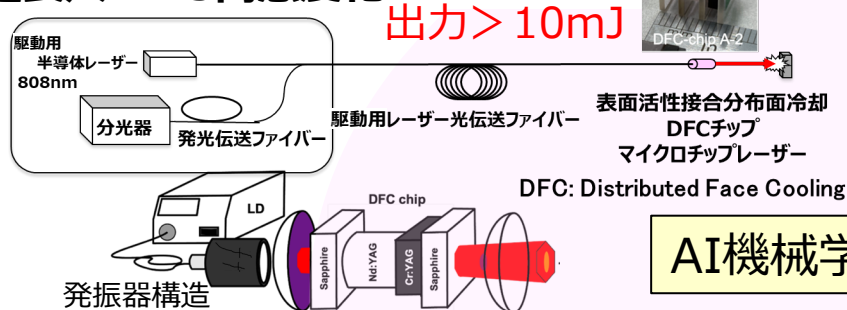
3) 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発（機器開発）

2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

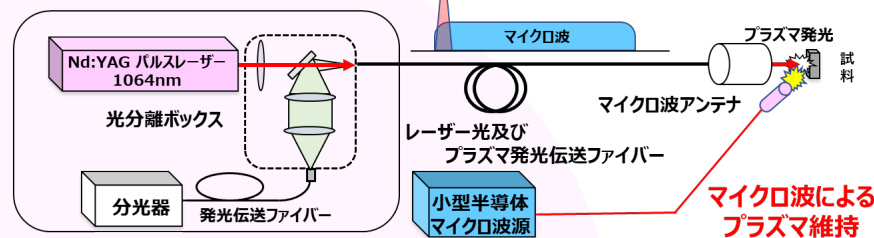
2.6.1 分析手法の確立（手法の検討・高度化）

- ・検出下限値明確化とジルコニウム・鉄等の混在下における少量ウラン確認に必要な信号の増幅手法の検討、検出効率の向上手法の検討（スペクトル分別、S/N向上への効果を、従来比10倍の信号強度の実現、超長尺分析特性評価により確認）。

高出力マイクロチップレーザーによる超長尺LIBS高感度化

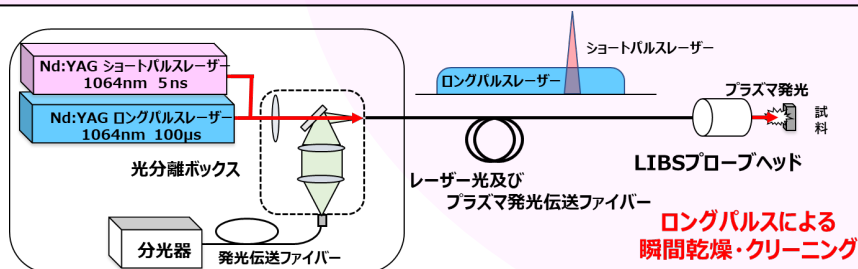


マイクロ波重畳LIBSによる信号増倍



AI機械学習によるデータ解析

- ・表面が水で濡れている、あるいは内部の気孔に水が含まれている試料に対する対策。



ロングパルスレーザーによる瞬間乾燥・クリーニング後に通常LIBS計測を実施する、レーザー二重照射法

- ・放射線環境における有効性を⁶⁰Co照射施設による長時間照射により検証。
- ・測定機器に対し、放射性物質が付着しにくい、汚染防護フードを検討。



2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

2.6.2 核燃料物質による性能評価（核燃料物質での実績の拡充）

- ・**ウラン**を含む模擬試料における**有効性の検証**。
- ・ウランを用いた模擬試料による**ウランの検出下限値**（現状：組成比 1%～0.5%）の**明確化**、ジルコニウム、鉄の検出。
- ・**使用済燃料**、**TMI-2 燃料デブリ**等での検証。

分析手法の確立（手法の検討・高度化・実績拡充）

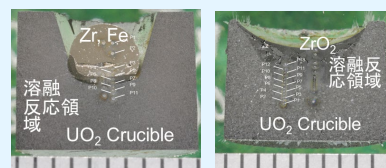
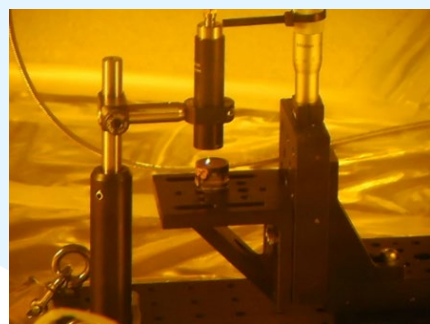


ホットセル

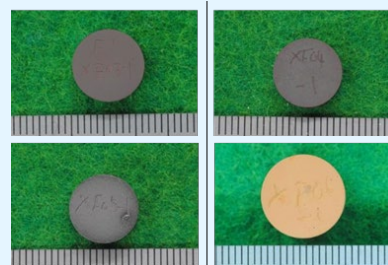


ホットセル

セル内実験の様子（使用済燃料）



複雑系試料



標準酸化物試料
(U、Zr、Fe)



フード内実験の様子
(未照射酸化物等)

2.6 技術課題解決に向けた研究開発戦略

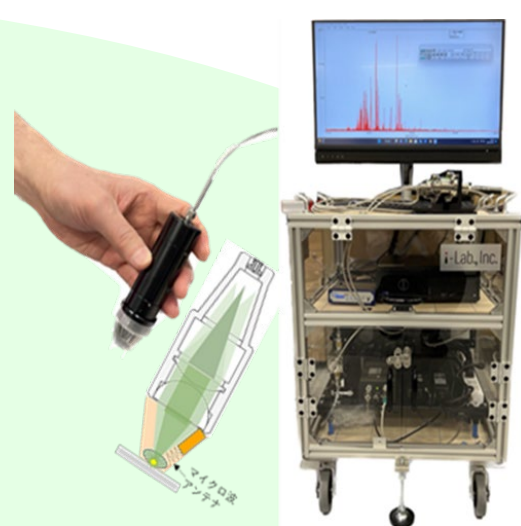
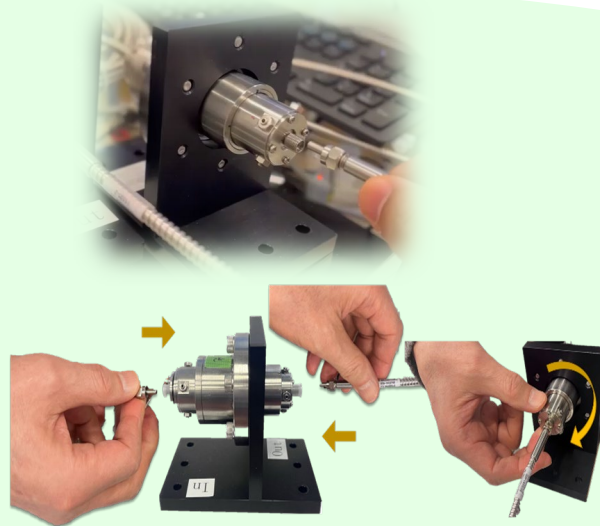
2.6.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発（機器開発）

- ・可搬型マイクロ波重畳光ファイバーLIBS装置を試作。
- ・可搬型ロング・ショートパルスレーザー光ファイバーLIBS装置を試作。
- ・測定部と操作部をつなぐ有線機構の接続手法（隔壁貫通型光ファイバーコネクタ）の検討。
- ・放射線を除く環境因子が測定に及ぼす影響の低減、長期間、安定して測定可能な方策を検討。

分析手法の確立（手法の検討・高度化）情報の共有



耐環境（防塵・防湿・恒温）収納コンテナのイメージ



2.7 実施内容

2.7.1 分析手法の確立

- a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化
- b) 放射能汚染環境での利用対応
- c) ガンマ線環境下での性能評価
- d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

2.7.2 核燃料物質による性能評価

- a) 標準試料の製作と試験
- b) 複雑系試料の製作と試験
- c) 使用済燃料試料の準備
- d) 未照射濃縮ウラン試料の製作と試験

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発
- b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発
- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2.7 実施内容

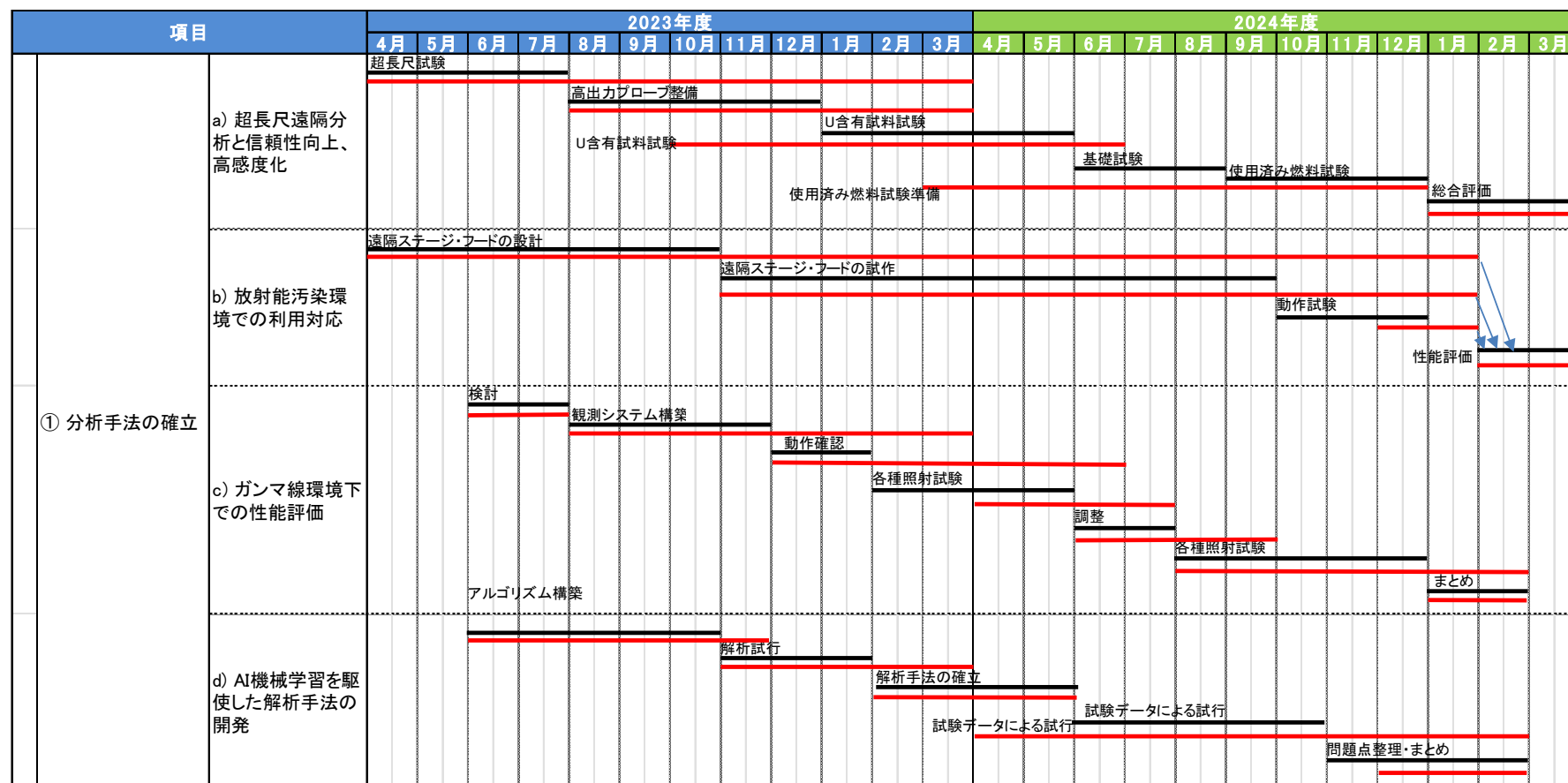
実施項目	事業終了時の目標指針
① 分析手法の確立	・従来に比べ10倍の信号強度が実現できること。 ・含水及び表面流水環境でも分析が可能であること。 ・放射性物質を含有した試料、空気汚染環境で遠隔分析を可能とすること。
② 核燃料物質による性能評価	・未照射ウラン及びジルコニウム、鉄等を含有した試料による分析実績を拡充し、検出下限値が評価できること。 ・照射済燃料を含有した模擬試料を高線量率環境で分析できること。 ・照射済燃料ペレットやTMI-2燃料デブリ（入手可能な場合）の直接分析が可能であること。
③ 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発	・マイクロ波重畳光ファイバーLIBSが提供されること。 ・ロング・ショートパルスレーザー二重照射型ファイバーLIBSが提供されること。

2.7.1 分析手法の確立

- a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化
- b) 放射能汚染環境での利用対応
- c) ガンマ線環境下での性能評価
- d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

【実績工程表】

黒線：計画線、赤線：実績線



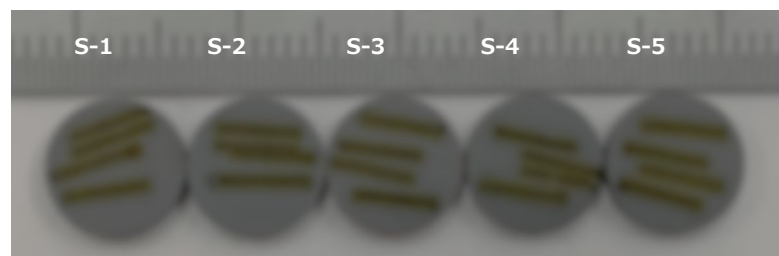
2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

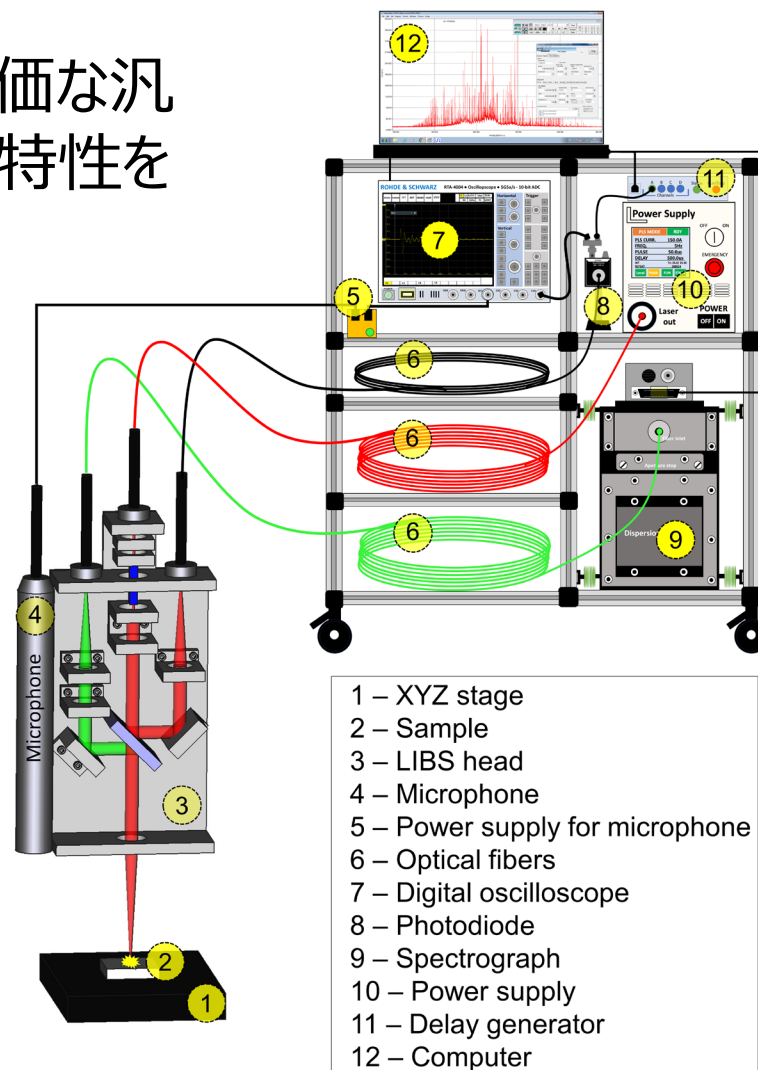
①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性

入手しやすい長さ100mのファイバーを安価な汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性を取得した。

測定試料（酸化物混合焼結体）



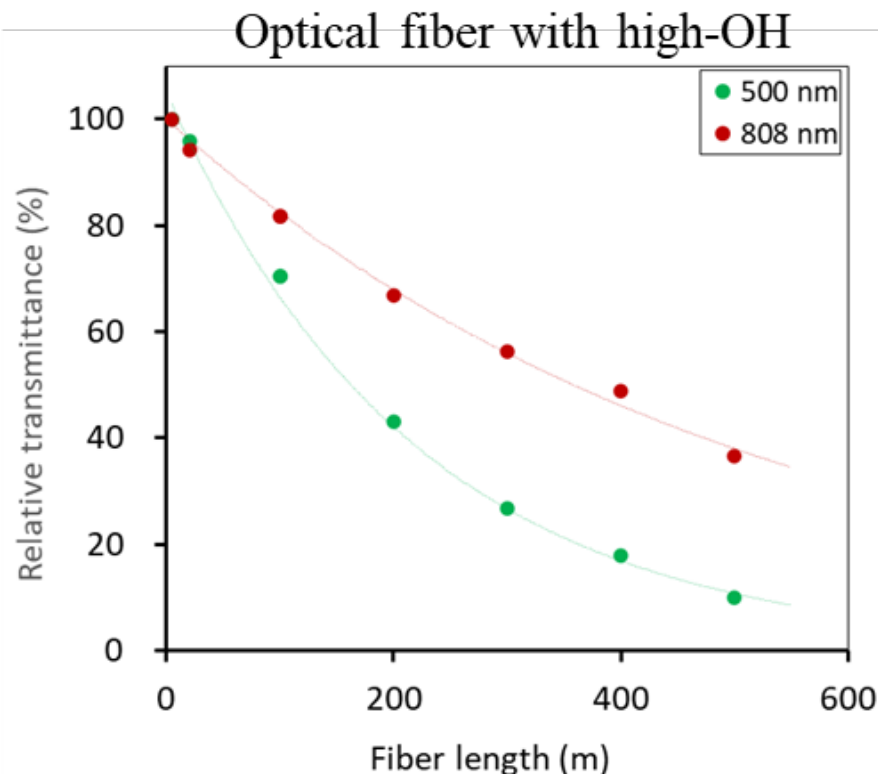
Samples	Elements [wt%]			
	Gd	Ce	Zr	Fe
S-1	0.0	58.1	31.2	10.7
S-2	0.1	58.0	31.2	10.7
S-3	0.3	57.9	31.1	10.7
S-4	0.6	57.7	31.0	10.7
S-5	1.1	57.4	30.9	10.6



2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性



光ファイバー透過率の長さ依存性

- 500 nm
スペクトル観測で利用される波長帯域の代表波長
- 808 nm
マイクロチップレーザー駆動用レーザーの波長

【評価例：808 nm（赤）】

波長808 nmの減衰率	約 2 dB/km
長さ400 mでの透過率	約 83%
コネクタの接続効率	約 85%
コネクタ3個の接続効率	約 61%
総合透過率	約 51%

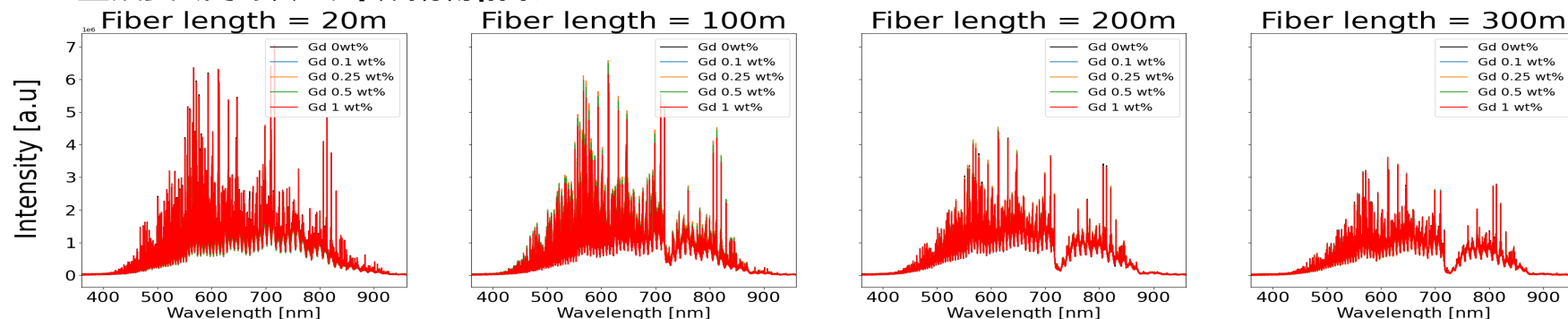
➤ 汎用コネクタによる接続では、コネクタ接続による損失が支配的である。

2.7.1 分析手法の確立

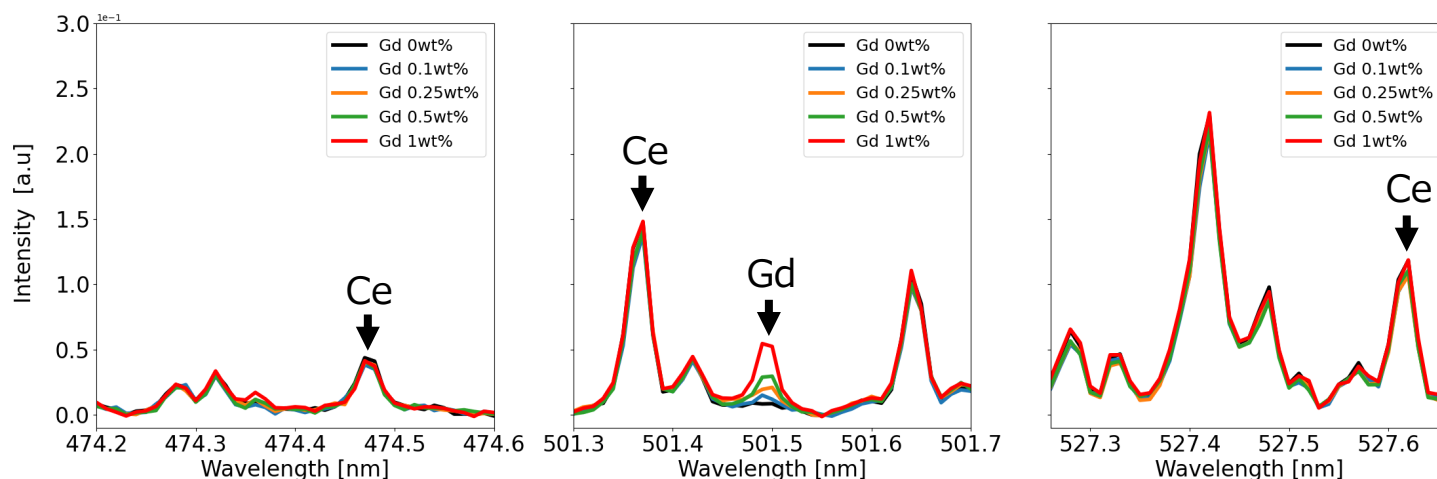
a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性

■ 全波長域でのスペクトル観測結果



■ 選択波長のGd濃度依存性（ファイバー長20m、501.37nmで規格化）



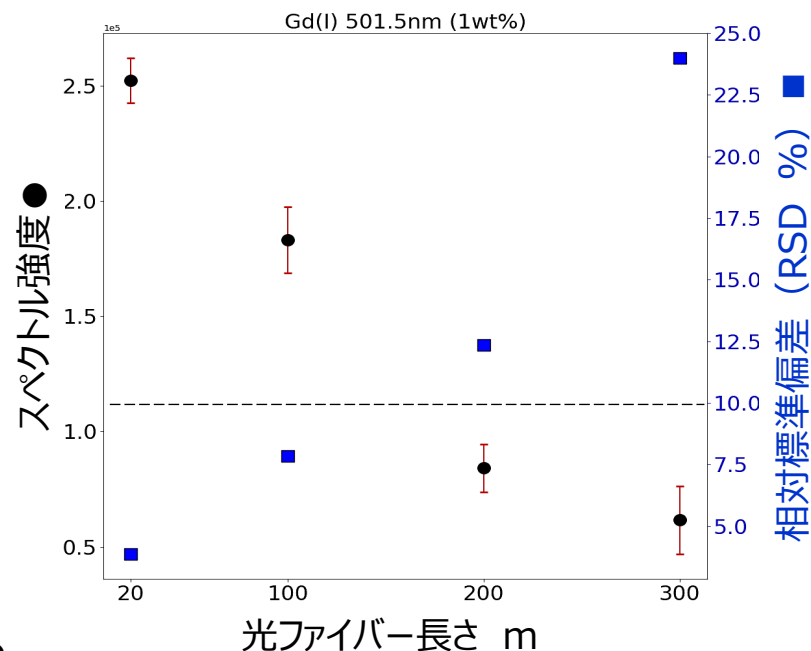
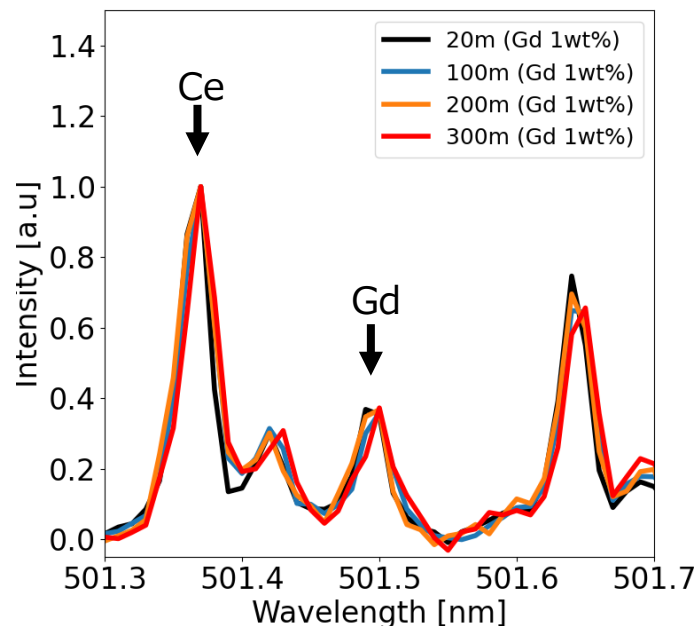
- 簡易的なファイバー中継アダプタを使用することでLIBS測定が可能である。
- ファイバー長さ300mの場合でもスペクトルの取得は可能であるが、ピーク強度は減衰する。
- 高分解能分光器を使用することで元素識別は可能であり、定量性を確認した。

2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性

■ スペクトル形状、スペクトル強度及び強度の偏差（RSD:相対標準偏差）に対する光ファイバー長さの影響



Ceで規格化することでGdの定量が可能である。

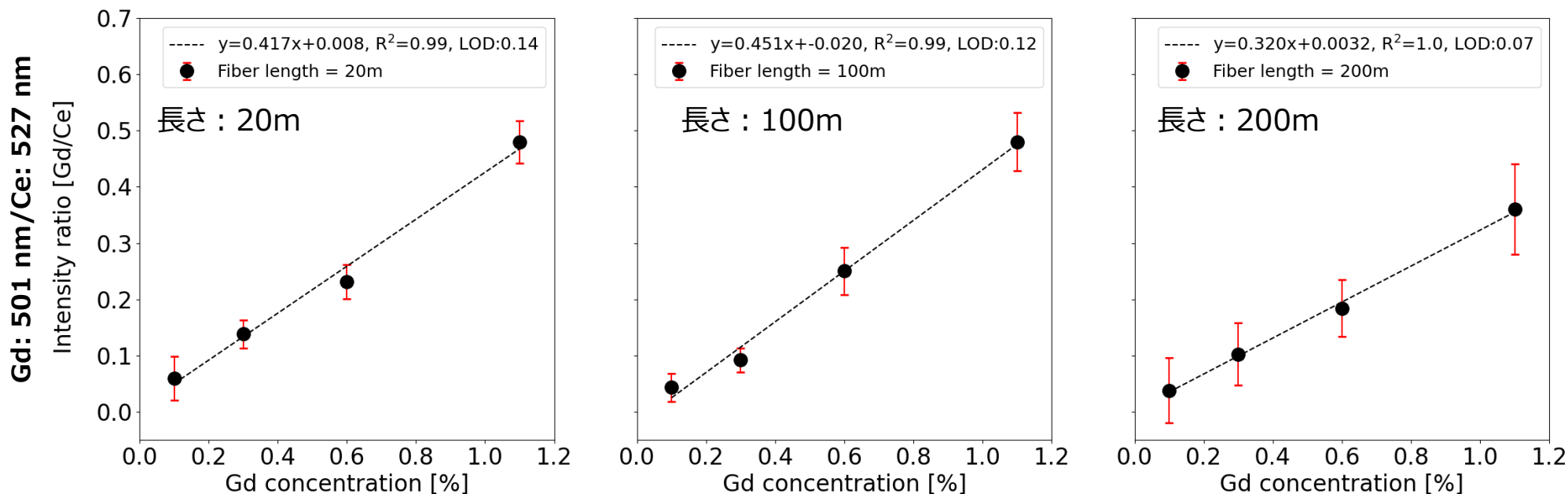
- ファイバー長さ300mでも1%のGdを検知可能であるが、低濃度ではノイズとの識別が困難である。
- 長さ200mを超えると、S/N比が低下し相対標準偏差（RSD）が大きくなる。
- 定量性評価（RSD<10%）にはファイバー長さ<100mが必要となるが、定性分析（RSD>10%）であればファイバー長さ300 m以上でも可能である。

2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性

■ ファイバー長さによる検量線への影響



LOD (Limit of Detection) : 検出限界

- ファイバーを長くしても、LODは強度比で~0.1（濃度換算~0.2%）でほぼ変わらない。
- ファイバーを延長した場合でも、検量線において優れた相関関係を維持している。

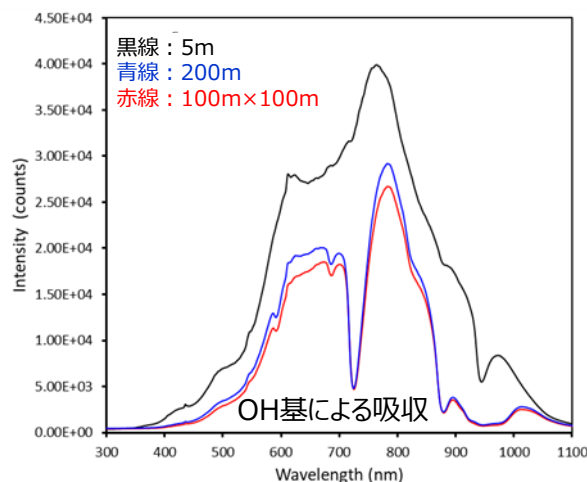
2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

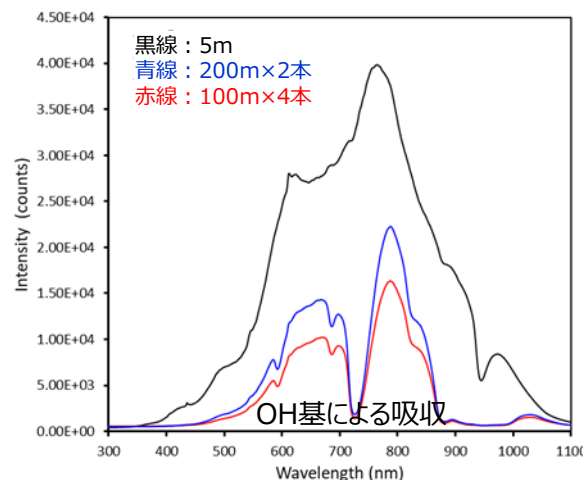
①長尺光ファイバーを汎用コネクタで接続した場合の超長尺分光特性

■ 長さ 200mの光ファイバー（特注品）を使用した場合の効果

ハロゲン光透過スペクトルの比較

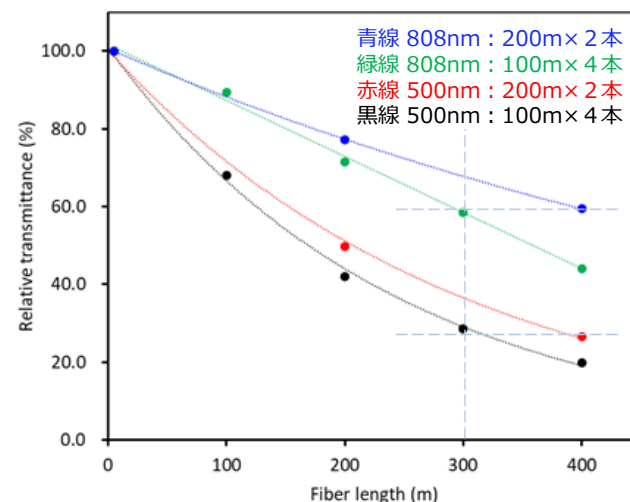


200m（青）では接続アダプタが無い
ため100m+100m（赤）に比べて透過損失小



400mでは透過損失への接続アダプタ
の影響が顕著となる

相対透過率と接続ファイバー長さの関係



808nmと500nmとの比較では可視500nm
の方が透過損失が大きい。
接続アダプタの増加は透過率の低下を招く。

- 可能な限りファイバー 1 本あたりの長さを長くして汎用コネクタ数を減らすことで、より長距離のファイバー伝送マイクロチップLIBSが可能であることが確認できた。

2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

②信頼性向上への挑戦

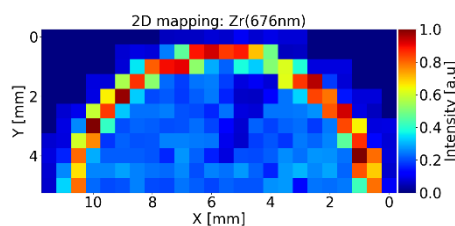
未照射ウラン含有試料による検出下限値の評価

検量線	濃度領域		マイクロチップLIBS LOD/R ²	従来型光ファイバーLIBS LOD/R ²
発光強度 を使用	U	~100 wt%-U	0.70% / 0.99	0.38% / 0.98
		<60 wt%-U	0.80% / >0.99	0.37% / 0.99
発光強度比 を利用	U/Zr	Zr≒Fe	0.25~0.55% / >0.99	0.29~0.48% / >0.99
	U/Fe	Zr≒Fe	0.27~0.58 %/ >0.99	0.33~0.58% / >0.99

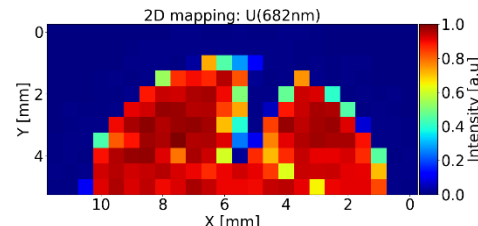
照射済燃料の断面分布測定への適用



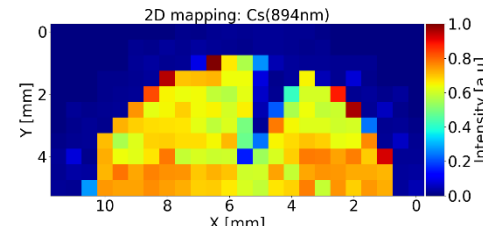
照射済燃料の断面写真



Zrの分布測定結果



Uの分布測定結果



Csの分布測定結果

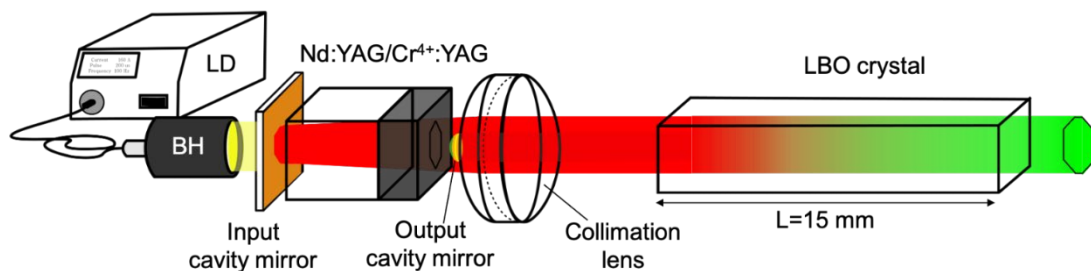
- ウランの**検出下限量を明確**に示した。
- 高線量率環境で**使用済燃料の断面組成分布評価が可能**であることを実証した。

詳細は、「2.7.2 核燃料物質による性能評価」を参照。

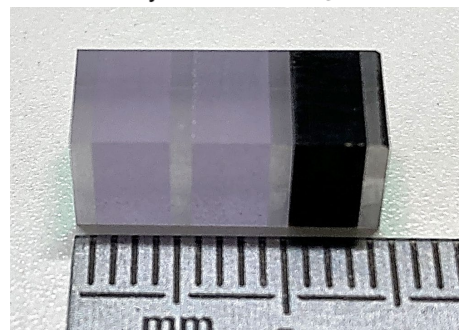
2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

③高感度化への挑戦：高出力マイクロチップレーザーによるLIBS信号



信号強度とバックグラウンド比のまとめ



DFCチップ

励起レーザー光源	エネルギー (mJ/pulse)	信号強度 (a.u.)	SBR
従来型 1064 nm	2.0	3165	0.39
DFC型1064 nm	7.0	7281	0.61
DFC型 532 nm	2.7	2049	0.42

- 高強度レーザー光照射や短波長化は、他の方法では実現できない。
- 高強度レーザーにより2倍以上の信号強度改善が図られる一方、バックグラウンドも増大し、現状ではスペクトル解析性能を改善できるほどの効果は得られなかった。

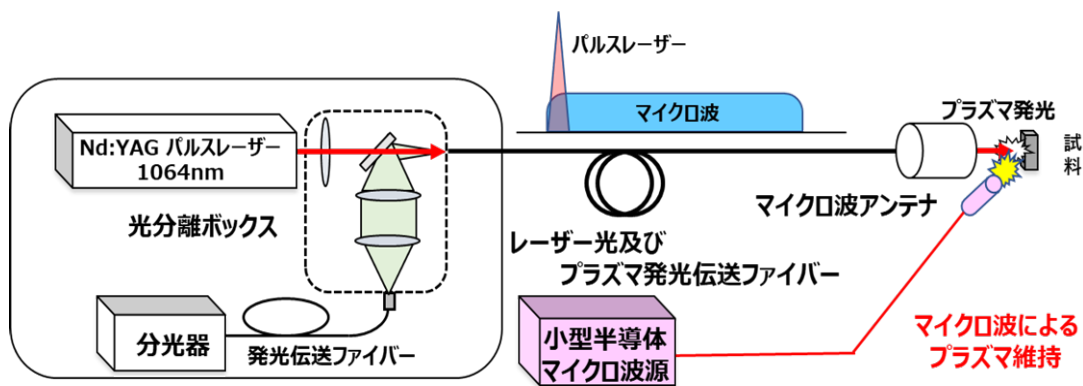
詳細は、「2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発」を参照。

【参考文献】・H. H. Lim and T. Taira, Opt. Express, vol. 30, no. 4, pp. 5151-5158 (2022).
・平等 拓範, スマートプロセス学会誌. 13 巻 (2024) 2 号 pp. 38-45.

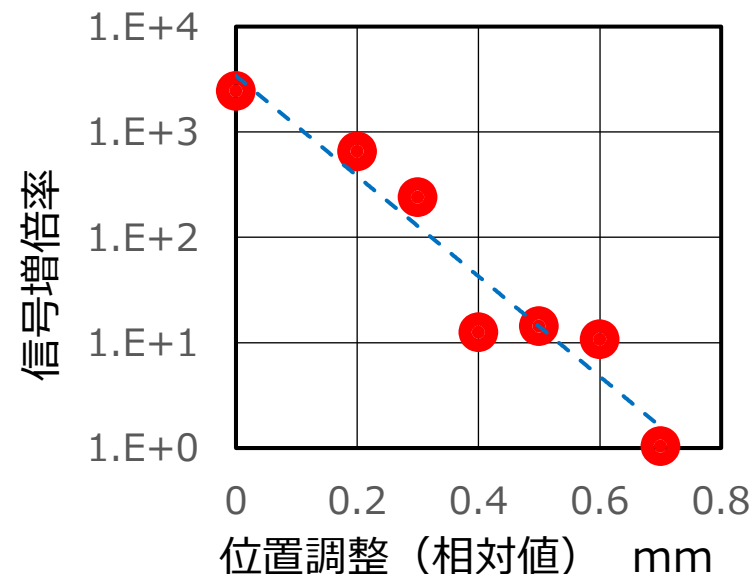
2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

③高感度化への挑戦：マイクロ波重畳LIBSによるLIBS信号



マイクロ波重畳 LIBS システムの構成概要



- 内部固定アンテナの開発により、**10倍以上の信号強度を得ることに成功**した。
- 試料に対する焦点位置（プラズマ生成位置）、プラズマの大きさ、アンテナ位置等の相互位置関係の調整を要し、マイクロ波プラズマの生成が不安定で増倍率も定まりにくい。
- 金属・酸化物で信号増倍効果が異なり、小出力レーザーでは酸化物での効果的な信号増倍を得る条件が現状では見いだせなかった。

詳細は、「2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 b)可搬型マイクロ波重畳LIBS システムの開発」を参照。

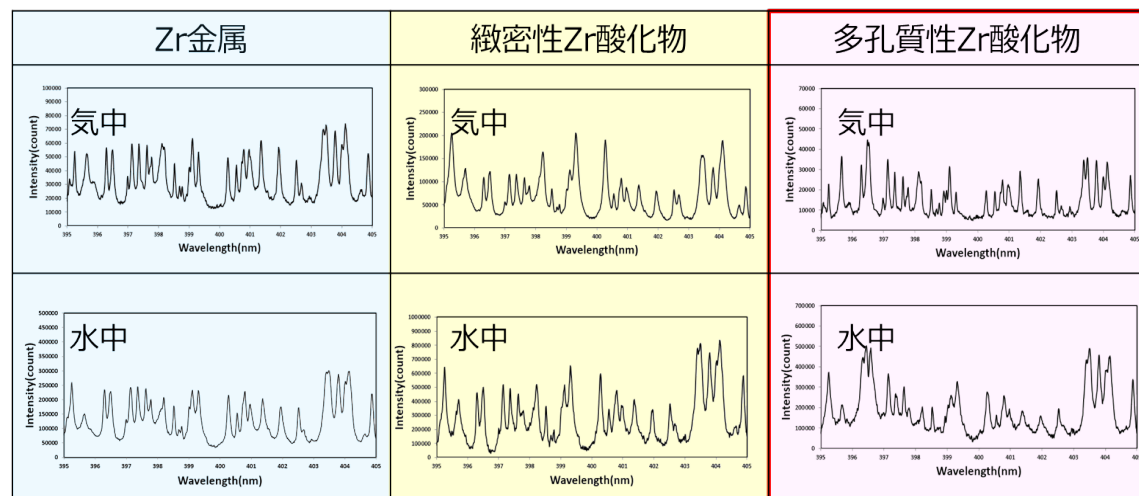
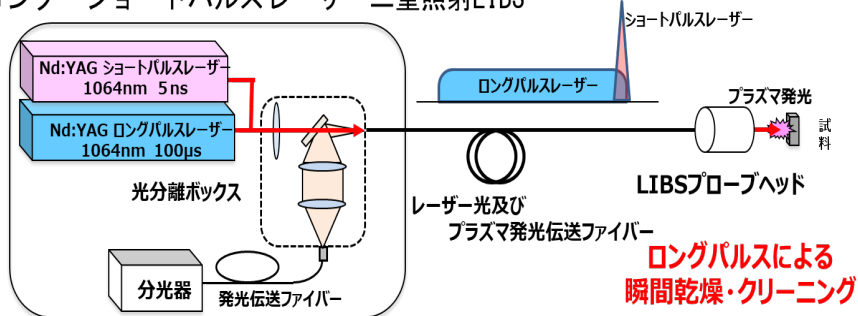
2.7.1 分析手法の確立

a) 超長尺遠隔分析と信頼性向上、高感度化

④水没・流水環境中での挑戦：

ロング・ショートパルスレーザー二重照射法の活用

ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBS



- 気中でも水中でも、金属でも酸化物でも、ほぼ同様なスペクトルが取得可能。
- 通常のLIBSでは測定しにくかった水没多孔質性酸化物でも測定できる。

詳細は、「2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発」を参照。

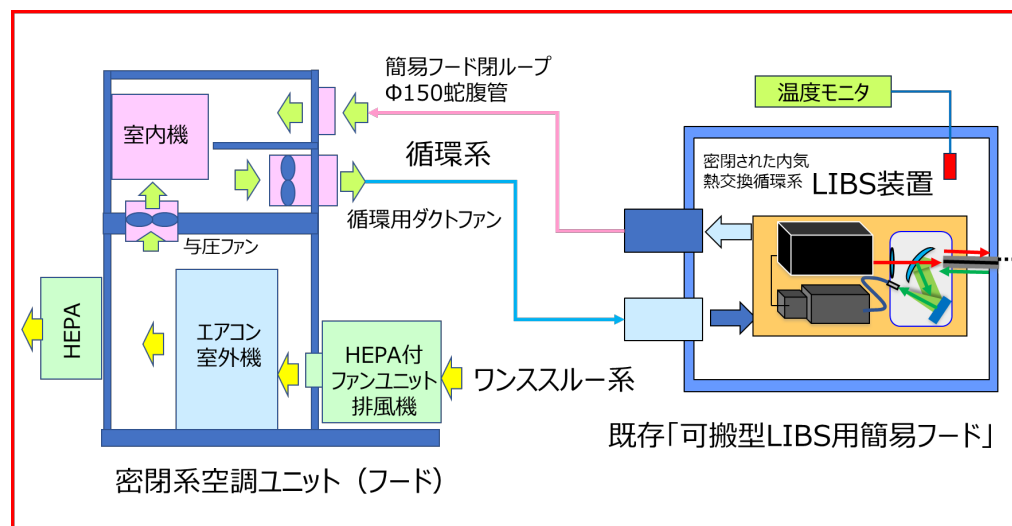
2.7.1 分析手法の確立

b) 放射能汚染環境での利用対応

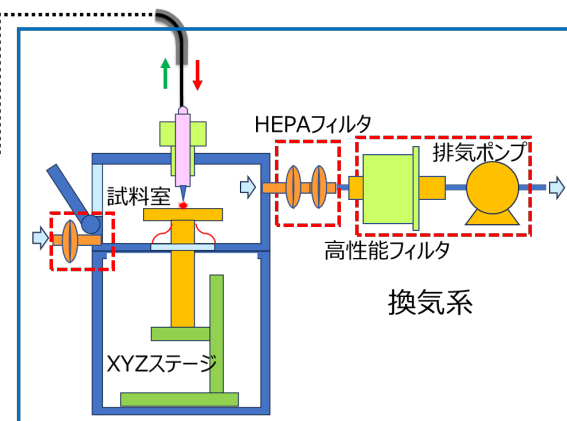
達成指標：放射性物質を含有した試料に対する空気汚染環境での遠隔分析を可能とする。

【具体的実施内容】

メンテナンス性、ヒューム除去を考慮した「放射性試料対応遠隔操作試料ステージ」、従来型ファイバーLIBSを放射能汚染から防護する「放射能環境対応LIBS用簡易フード」の構築を想定し、操作性・動作特性に求められる性能を評価することでシステム構築の実現性を明示した。



放射能環境対応LIBS用簡易フード



放射性試料対応遠隔操作試料ステージ

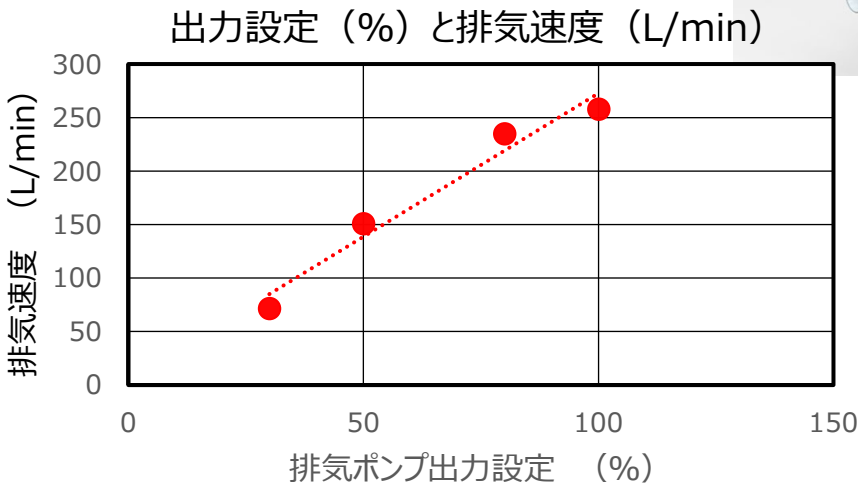
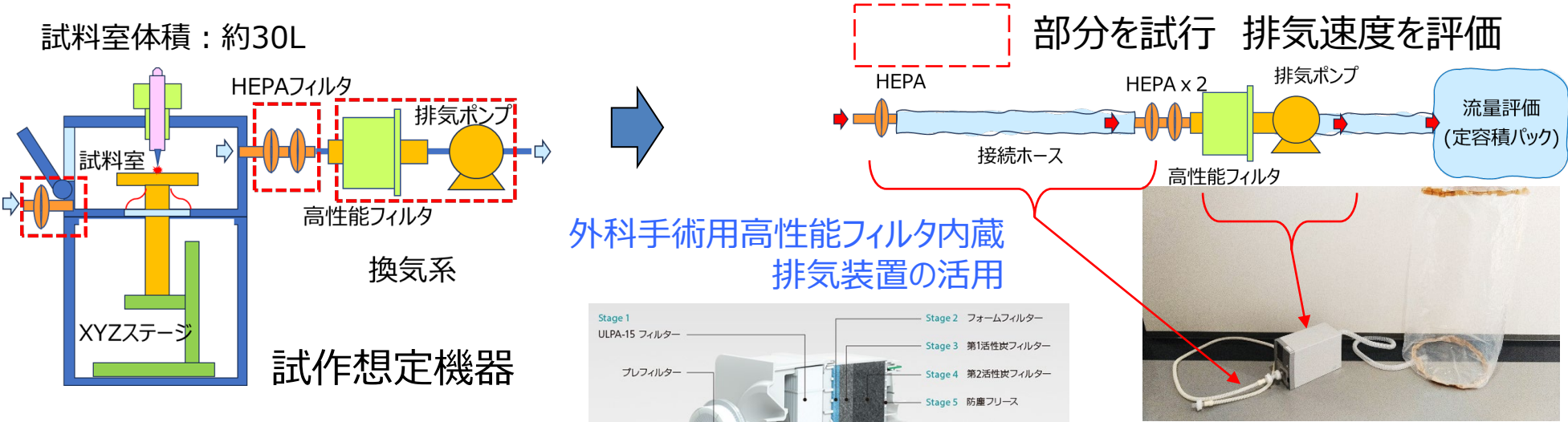
③ 温度制御が可能な密封系の「耐環境コンテナ」の排熱特性から、高温環境でLIBSを設置するフード内に熱源があった場合（外部環境からの流入熱と装置の発生熱）に必要な冷却能力と換気風量を評価した。

- ① 高性能フィルタ等を介して試料室の十分な雰囲気置換を短時間で可能とする排気流量を要素試験により評価した。
- ② 5m離れた遠隔でステージの位置に合わせを可能とする動作を、同等なXYZステージの動作から確認した。

2.7.1 分析手法の確立

b) 放射能汚染環境での利用対応

① 試料室の十分な雰囲気置換を短時間で可能とする排気流量の評価



設定出力 (%)	置換回数5回※ 時間 (秒)	置換回数7回※ 時間 (秒)
30	125	176
50	60	84
80	39	54
100	35	49

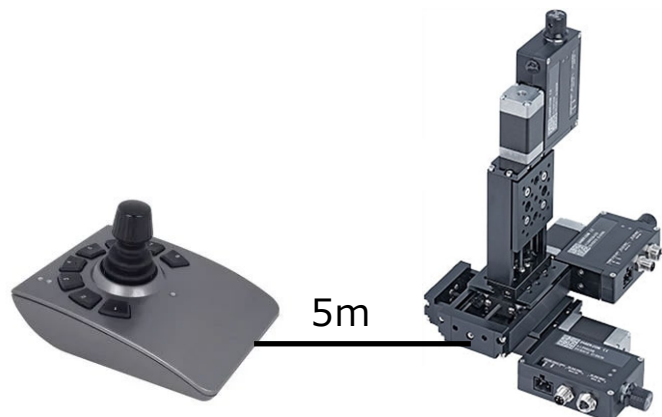
要素試験体系での排気速度評価 (HEPA・高性能フィルター付き) → 排気ポンプ能力から評価した置換回数 → **短時間で十分な換気回数**が得られる。

※：置換回数5回：残存成分が $\sim 10^{-2}$ 、7回：残存成分が $\sim 10^{-3}$ となる換気回数

2.7.1 分析手法の確立

b) 放射能汚染環境での利用対応

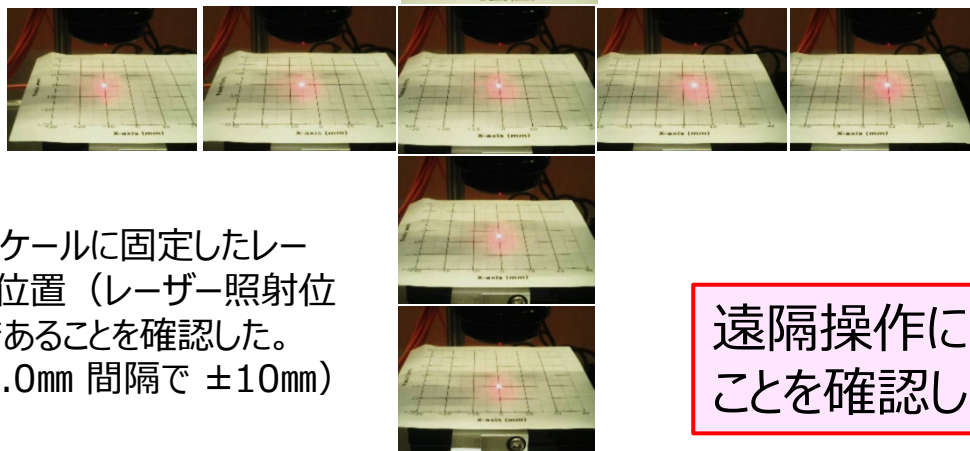
② 5 m離れた遠隔での位置合わせを、同等なXYZステージの動作から確認



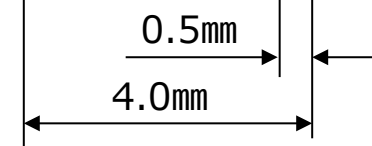
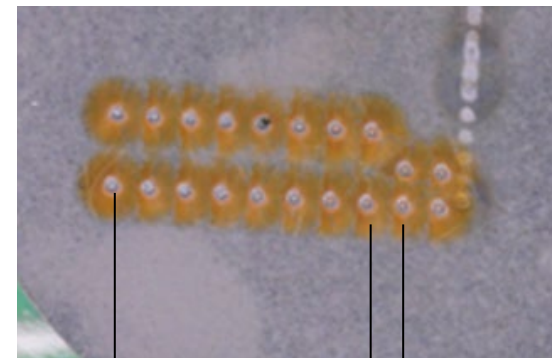
ジョイスティックキー

XYZ3軸ステージ

試験に使用したXYZ 3 軸ステージ



ステージに固定した方眼スケールに固定したレーザーポインタを照射。照射位置（レーザー照射位置に相当）を設定可能であることを確認した。
(XY範囲：5.0mm 間隔で ±10mm)



レーザー照射痕の拡大図

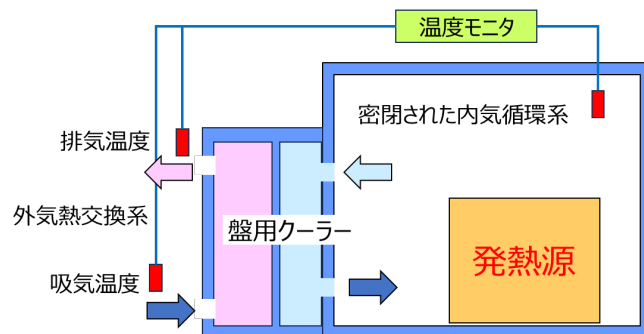
(0.5mm 間隔で設定できることを確認した。)

遠隔操作による位置制御が可能であることを確認した。

2.7.1 分析手法の確立

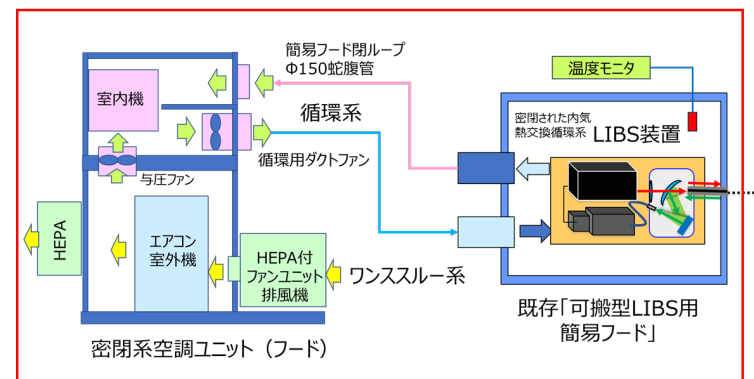
b) 放射能汚染環境での利用対応

③「耐環境コンテナ」の排熱特性から評価した想定熱負荷時の除熱能力と排気風量評価



実測特性から想定熱負荷時の性能を評価

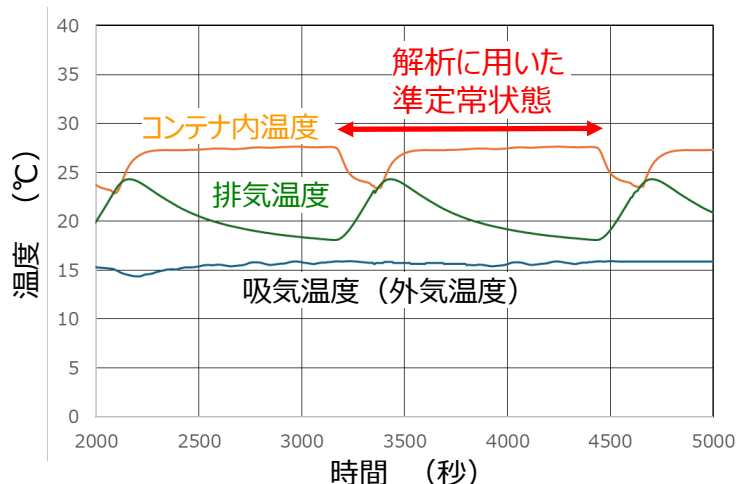
温度制御に必要な冷却能力・排気風量を導出する



評価する空調ユニット付き簡易フード 表面積：6.6 m²

で囲んだ部分：耐環境コンテナの構成要素

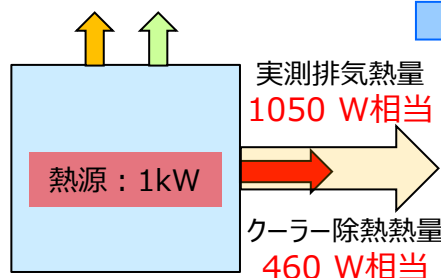
耐環境コンテナを利用した要素試験系 表面積：6 m²



「耐環境コンテナ」に
1 kW発熱源を内蔵した条件での温度特性

外気温：15℃、内気温：27℃
境界壁材：SUS板

放射除熱・対流除熱
540 W相当



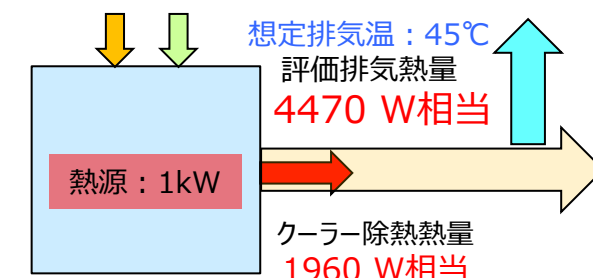
簡略化モデル

対流熱 = $\Delta T \cdot \text{対流熱伝導率} \cdot \text{面積}$
放射熱 = $\Delta T^4 \cdot \delta \cdot \text{面積} \cdot \text{放射率}$
 δ : Stefan-Boltzmann 定数

想定外気温：35℃、想定内気温：25℃
境界壁材：アクリル板

放射加熱・対流加熱
960 W相当

必要な排気風量
24 m³/min相当

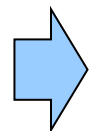


実測に基づき、要求仕様を評価した：
エアコン能力：2 kW
排気風量：24 m³/min

2.7.1 分析手法の確立

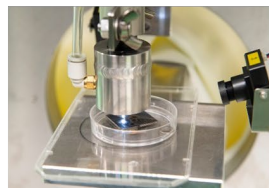
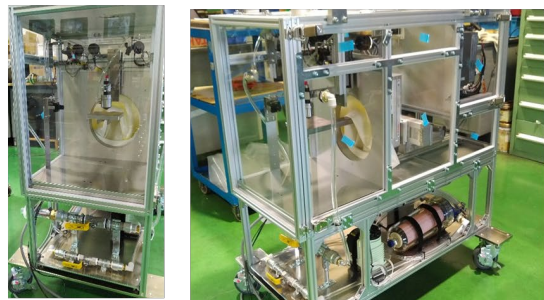
b) 放射能汚染環境での利用対応

【基盤技術】(浜通り企業の協力による 1 F現場投入初期試作機)



1 F現場での広範な現場での
適用性向上に寄与

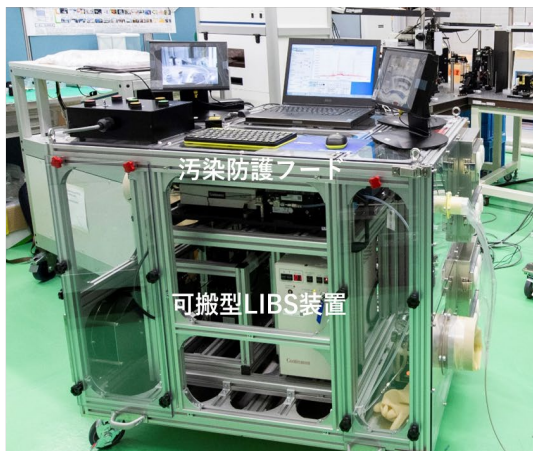
XYZ遠隔操作試料ステージ



遠隔操作試料ステージ部

- ・医療用サージカルスモークフィルタを活用した試料室換気による安全性の確保
- ・遠隔ステージの確実な操作

放射性物質汚染防護付きLIBSシステム



- ・汚染環境でも内部を汚染環境から隔離可能な防護措置
- ・過酷な作業環境である35℃の外気温であっても運転可能な環境の維持

(1 Fでの熱中症対策基準：WBGT値31℃以上で原則作業中止)



汚染・高温（低温）環境でも装置本体を汚染させることなく利用できる環境の実現

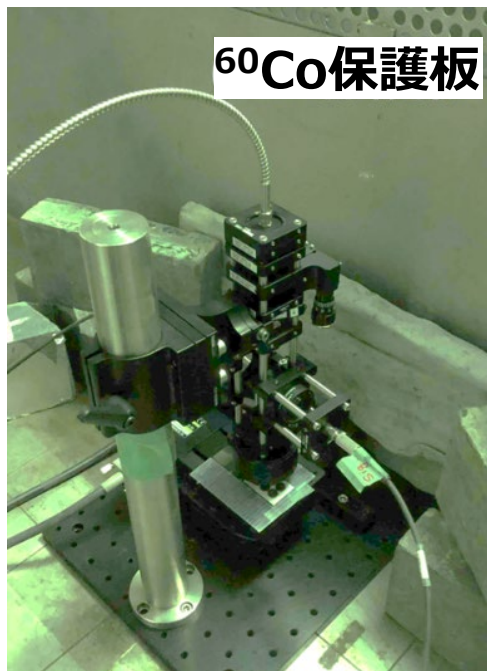


- 汚染防護フード：外気熱交換による空調機器を備えた密閉系フードの具体的仕様を明示した。
- 遠隔操作試料ステージ：外科手術用サージカルスモーク換気系による試料室の確実・安全な排気を実現した。
- 遠隔操作試料ステージの確実な操作を確認した。

2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価 高強度放射線耐性試験

【基盤技術】



60Co保護板

- (1) 長時間照射観察システムの整備
位置合わせ、レーザー出力の遠隔連続モニタリング
- (2) マイクロチップレーザーLIBSプローブの動作試験
ガンマ線照射環境中での分析特性取得

高線量率照射試験の様子

QST高崎研究所での

高線量率・長時間連続照射試験の拡充：機器及び分析特性の耐放射線性の確認

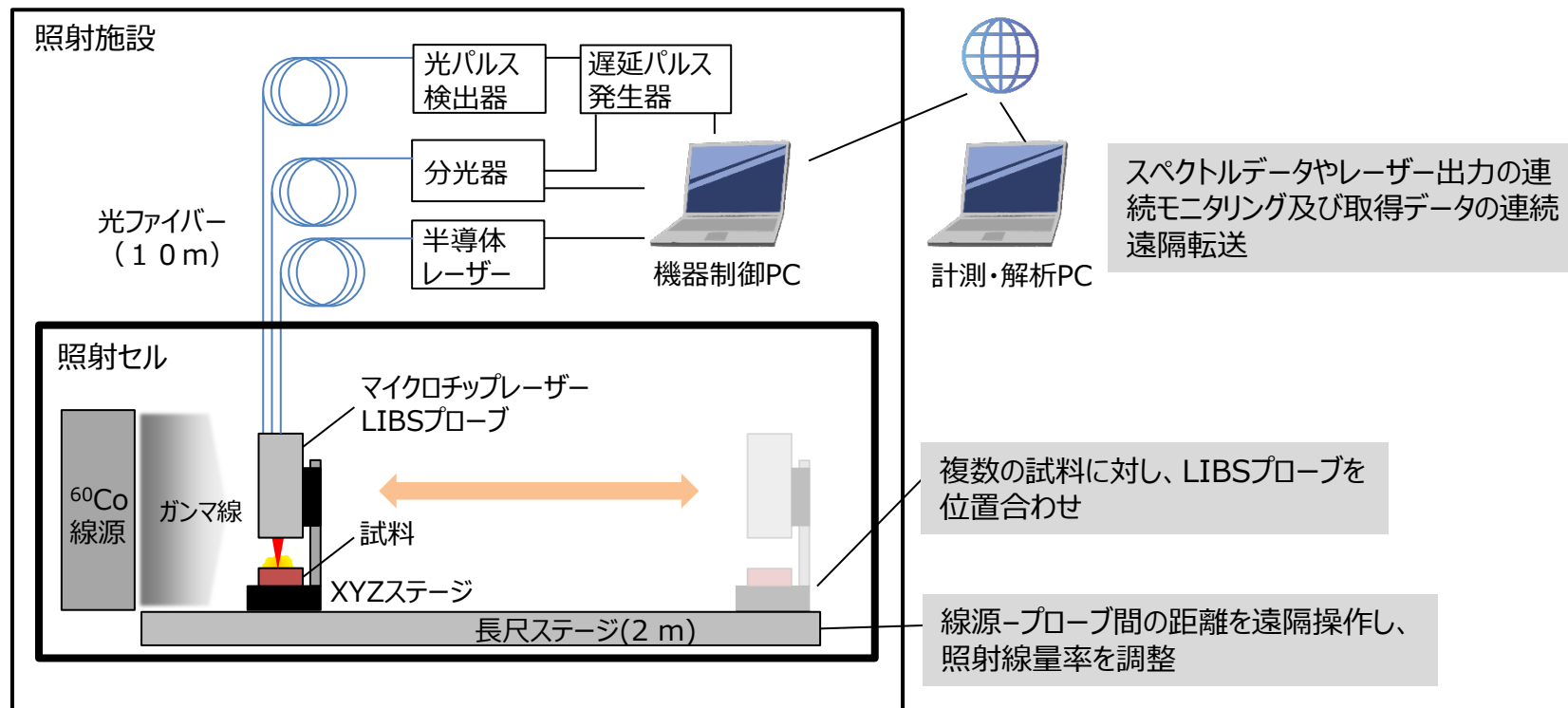
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

システム構成



QST高崎研
ガンマ線照射施設

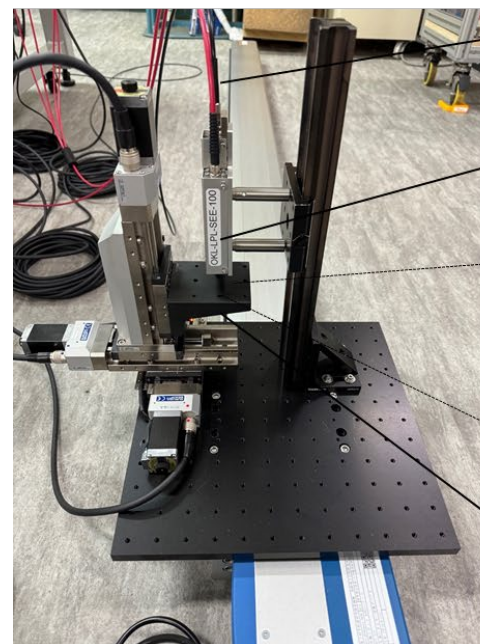
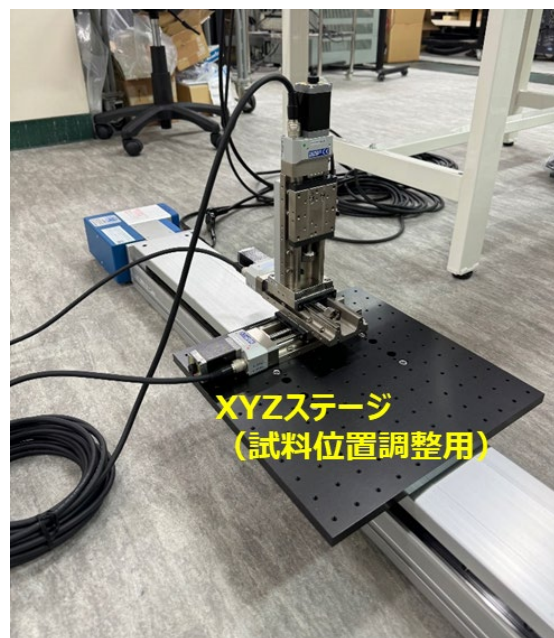


照射施設内に立ち入ることなく、観察装置の制御とデータ計測が長時間可能である。

2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

ステージシステム・観測システムの構築



光ファイバー
(光源・分光器へ)

LIBSプローブ
(単結晶Nd:YAG
マイクロチップ内蔵)

試料台



マイクロチップ励起用
半導体レーザー



4ch分光器



発光プラズマ

長尺ステージとXYZステージを組み合わせたステージシステムを構築した。

LIBSプローブ、試料台を組み合わせて観測システムを構築した。

励起光源、分光器を接続し、発光プラズマの生成・分光計測が可能であることを確認した。

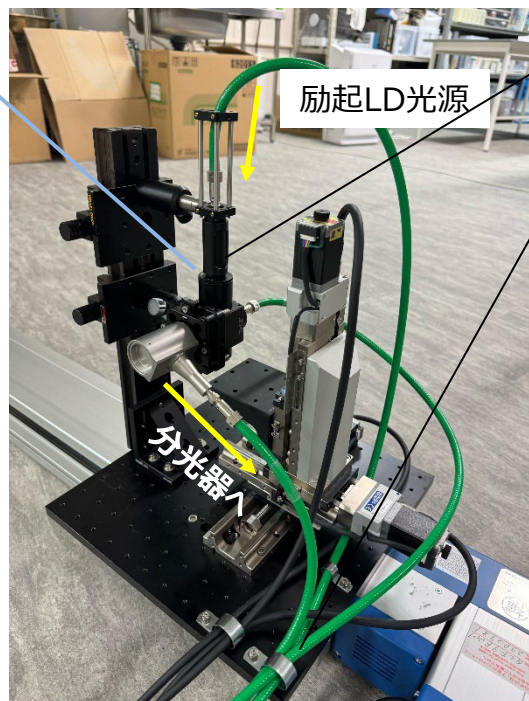
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

観測システムの整備

プローブ光学系の調整・最適化（光ファイバーの設置）

LIBSプローブ
(単結晶Nd:YAG
マイクロチップ内蔵)



励起LD光源

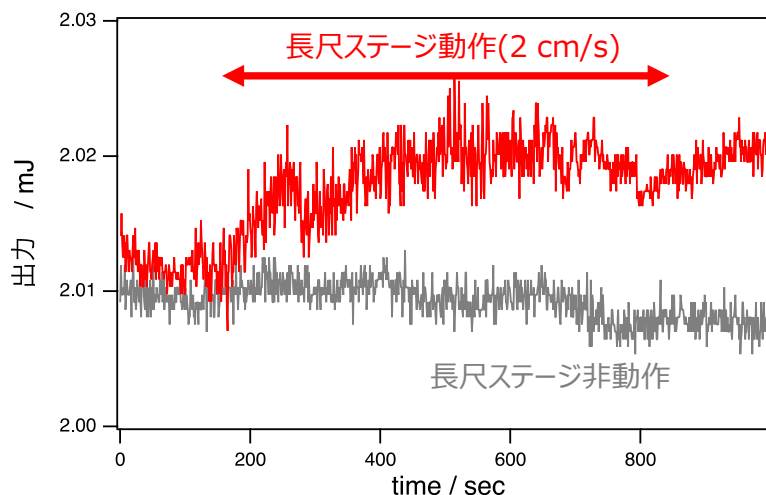
分光器

レンズチューブ筐体の採用で光軸合わせ

光ファイバー(10m)の揺動の影響を受けにくい取り回し・固定



マイクロチップレーザー出力(～2mJ、5Hz)の安定性



光ファイバーのたわみによる
出力変動を安定化
(～0.5%)

➤ 光ファイバーを使用した場合でも、長尺ステージ動作時のレーザー出力変動を～0.5%に抑制できる。

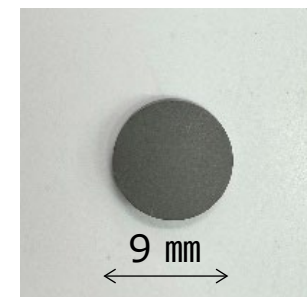
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

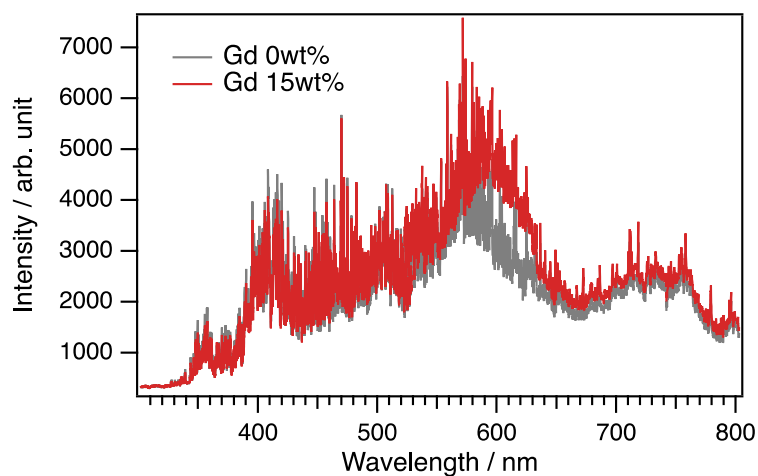
非照射環境での模擬試験

Gd含有混合酸化物試料($\text{Gd}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/\text{ZrO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$)の作製

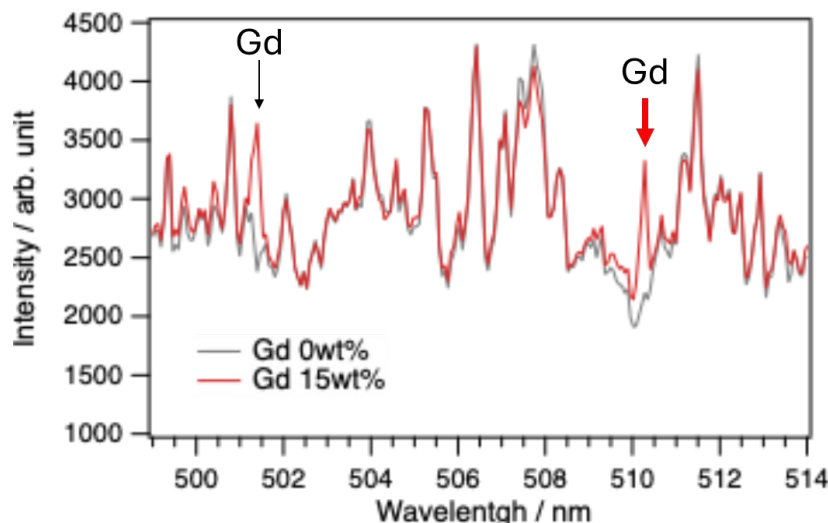
Gd含有混合酸化物試料のLIBS測定



Gd混合酸化物試料



スペクトル全体



着目スペクトル
Gd : 510.3nm

ファイバーマルチチャンネル分光器による注目スペクトルの取得

波長範囲 : 220–829 nm

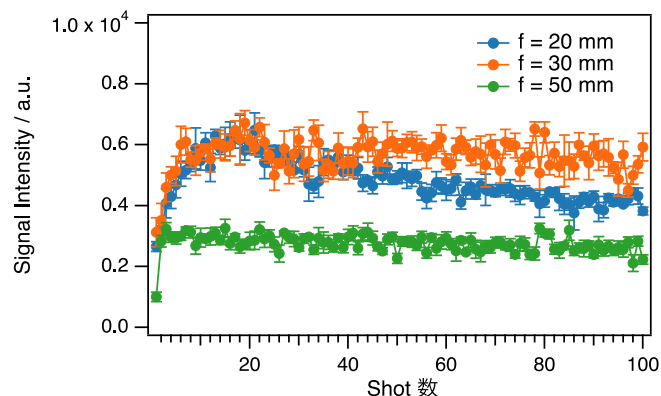
分解能 : <0.2 nm(220–525 nm), <0.3 nm(523 nm–829 nm)

- 整備したLIBSプローブと簡易分光計を用いて、照射試験と同様の測定手順で標的元素のGdを検出できることを確認し、分光分析性能評価条件を決定した。

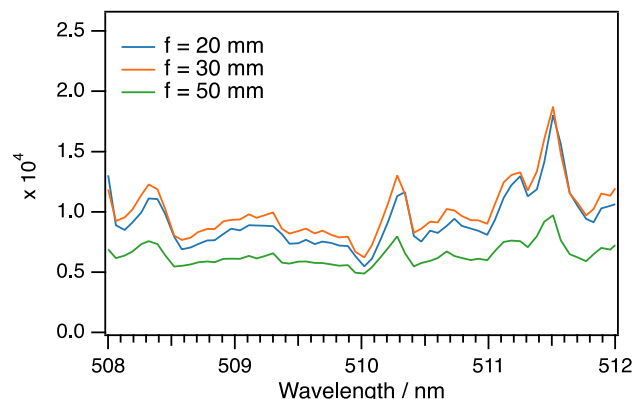
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

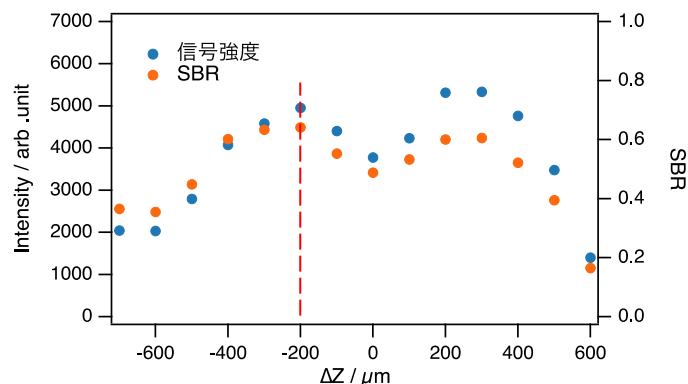
観測システムの整備：プローブ光学系の調整・最適化（集光特性）



①信号強度安定性のレンズ焦点距離依存



②スペクトル強度のレンズ焦点距離依存



③スペクトル強度・バックグラウンド比のレンズ焦点位置依存

①及び②から、利用するレンズ焦点を決定
 $f = 30\text{mm}$

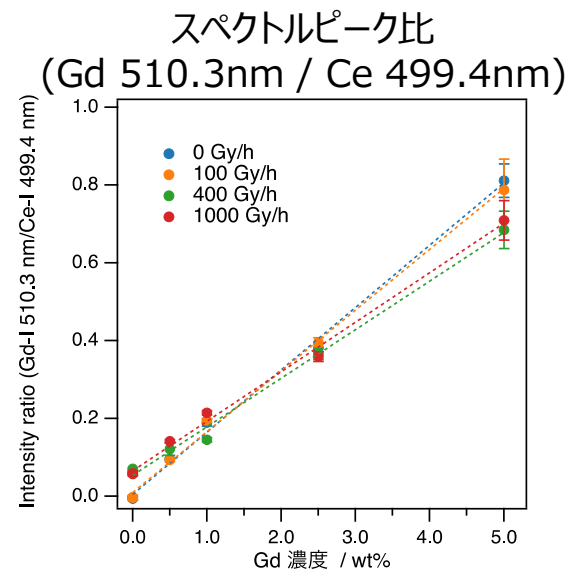
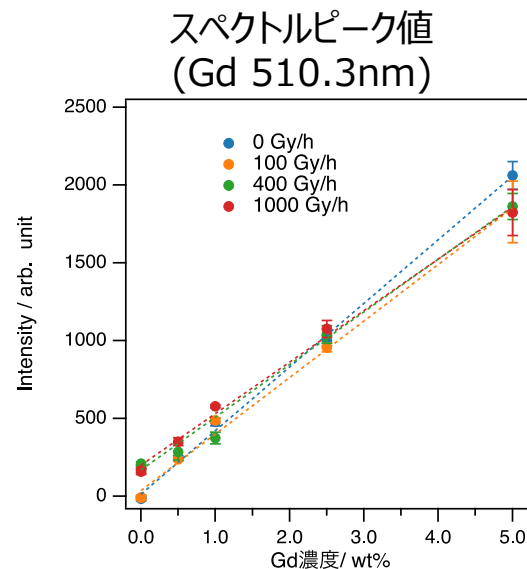
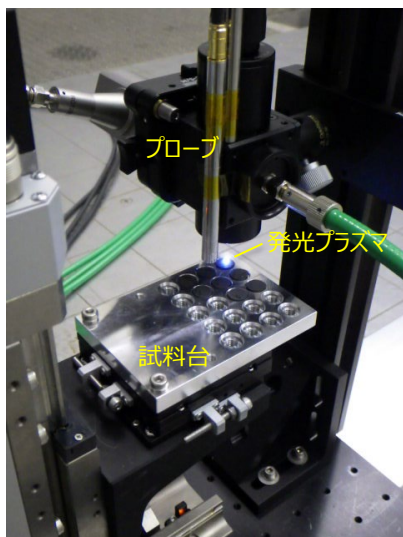
③から、スペクトル取得焦点位置を決定
レンズ焦点位置から $-200\mu\text{m}$ （試料内部）の位置

➤ 照射試験で実際に使用する光ファイバー、ケーブル類を接続した状況で、LIBS測定に十分なレーザー出力・安定性をもつプローブを構築し、照射焦点位置条件を決定した。

2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

従来型マイクロチップレーザーLIBSプローブのガンマ線環境下での検量線測定 (0-1kGy/h)
ファイバーマルチチャンネル分光器を使用



線量率 (kGy/h)	Gd (510.3nm)		Gd (510.3nm)/Ce(499.4nm)	
	LOD (wt%)	R ²	LOD (wt%)	R ²
0	0.10	0.998	0.09	0.997
0.1	0.12	0.995	0.10	0.997
0.4	0.10	0.997	0.11	0.995
1.0	0.15	0.997	0.14	0.995

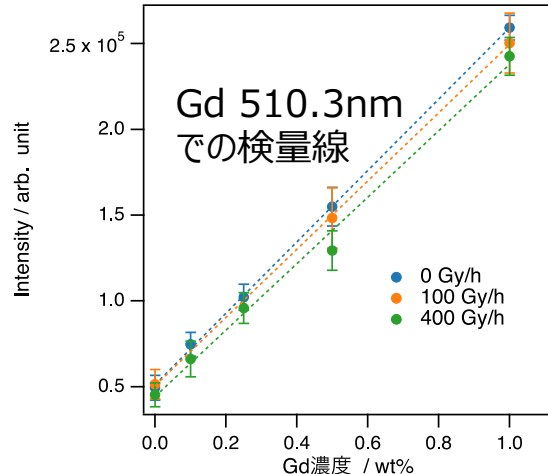
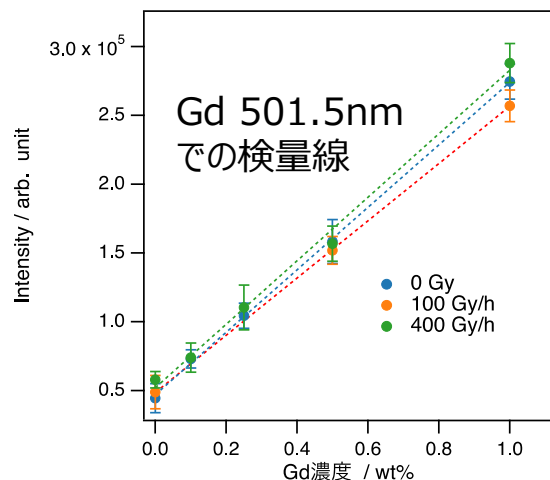
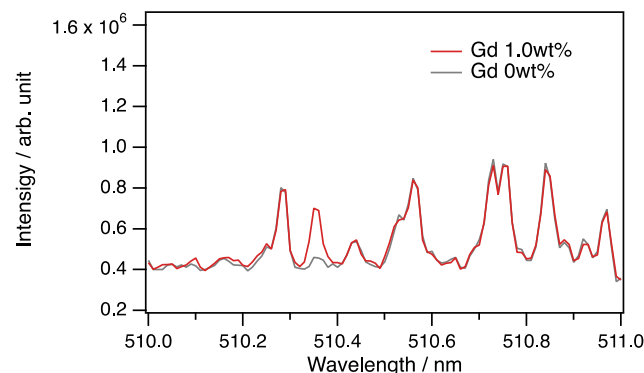
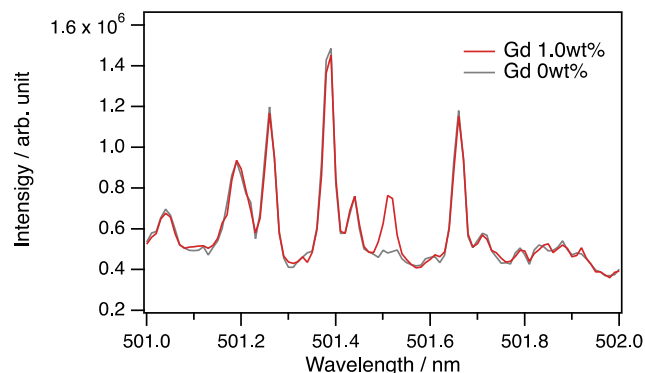
検量線は線量率に大きく依存しないことを確認し、Uを模擬したCe中のGd検出下限~0.1%を得た。

2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

従来型マイクロチップレーザーLIBSプローブのガンマ線環境下での検量線測定 (0-1kGy/h)

高分解能エシエル分光器を使用した場合



線量率 (kGy/h)	Gd (501.5 nm)		Gd (510.3 nm)	
	LOD (wt%)	R ²	LOD (wt%)	R ²
0	0.14	0.999	0.10	0.999
0.1	0.13	0.999	0.13	0.999
0.4	0.08	0.995	0.11	0.995

スペクトル分離特性が良いことから直線性と
若干の検出下限値の向上が見られる

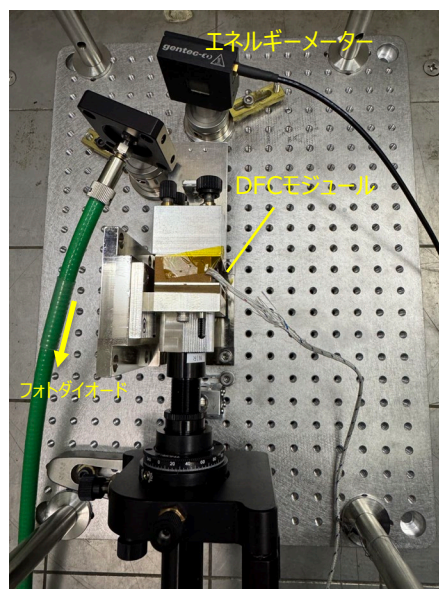
※1kGy/hでの計測時に、ステージが損傷しデータが得られなかった

- 高分解能エシエル分光器を使用した場合でも、検量線は線量率に大きく依存しないことを確認し、Uを模擬したCe中のGd検出下限~0.1%を得た。

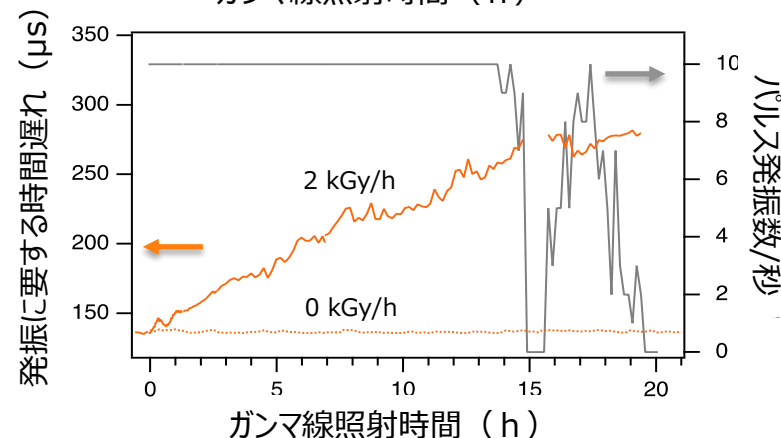
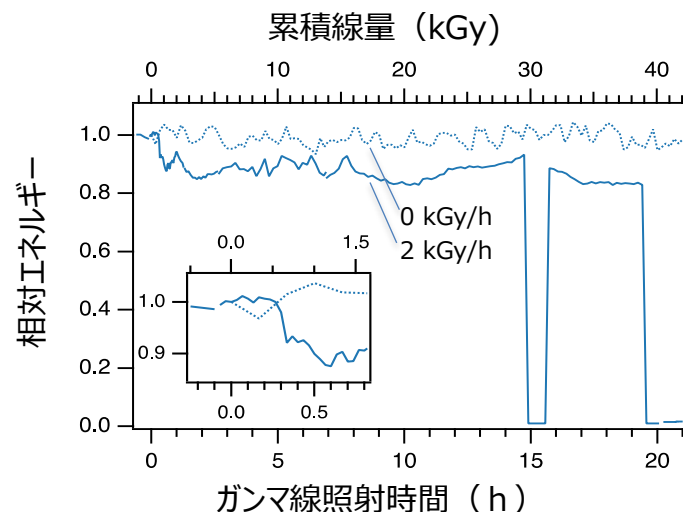
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

高出力マイクロチップレーザーのガンマ線照射環境での連続動作確認 (2kGy/h)



高出力マイクロチップレーザー
動作試験セットアップ



- ・累積線量の増加に伴い、励起時間を長く調整しても発振に要する時間遅れが増加した。
- ・累積線量が約28kGyから発振が不安定になり、10Hzで励起しても出力が間引きされる状況が発生した。
- ・累積線量が約30kGyで出力が完全に消失した。

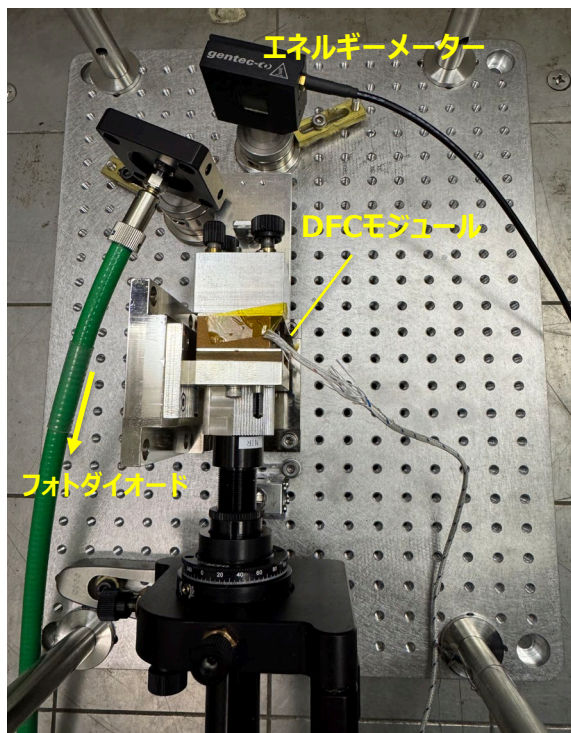
- ↓
- ・励起光学系にエネルギーロスが生じた（カラーセンターの発生）？
 - ・DFCチップ接合面等でエネルギーロスの原因は発生した？
- ↓

➤ 高線量率環境での使用に向けて、原因を特定して対処する必要がある。

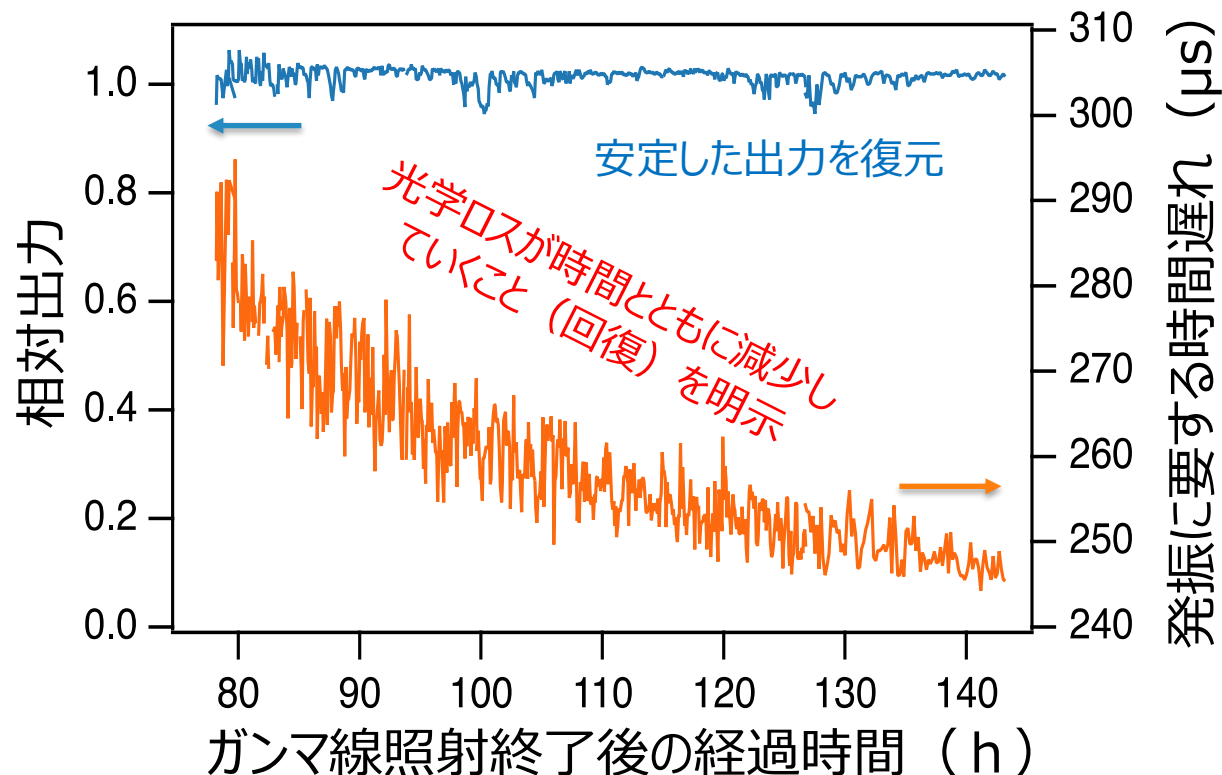
2.7.1 分析手法の確立

c) ガンマ線環境下での性能評価

高出力マイクロチップレーザーのガンマ線照射終了後の性能回復状況
78時間経過後に出力が復元されていた (9mJ/pulse)



高出力マイクロチップレーザー
動作試験セットアップ

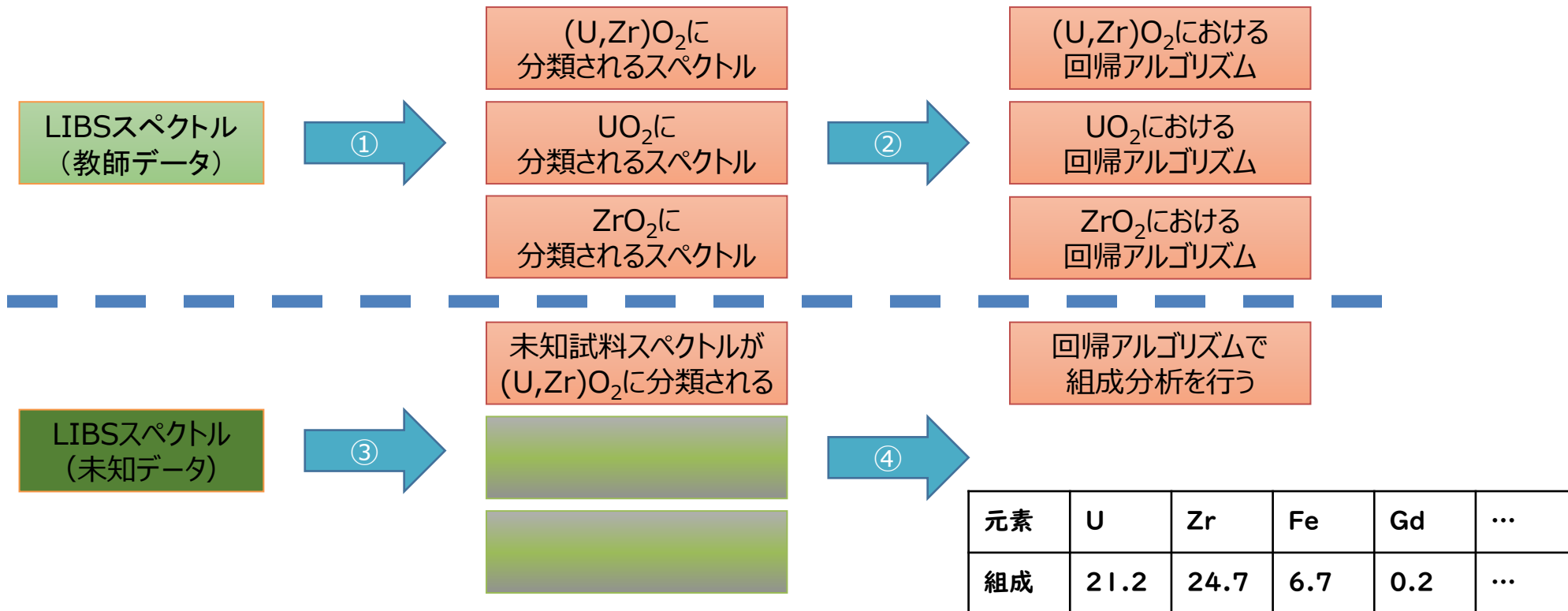


- DFCチップなどに、回復が困難な致命的な損傷はなかった可能性が示唆された。
- 耐放射線性を確保するためには、今後本事象の原因解明が必要である。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

機械学習による定量分析フロー（計画）

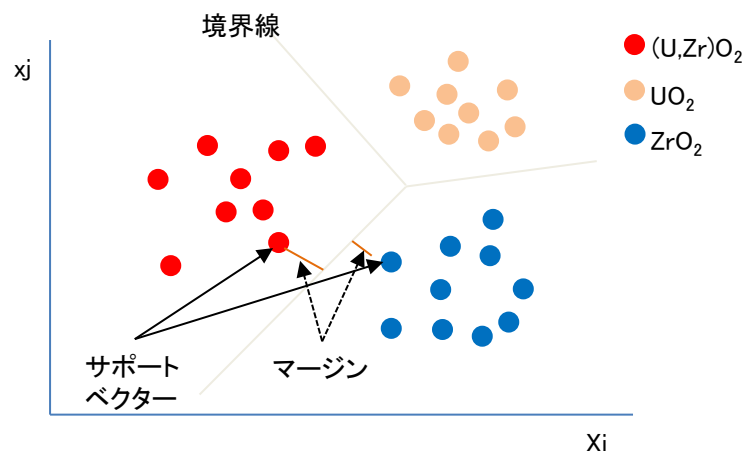


- ① 教師スペクトルをマトリックスごと(U,Zr)O₂、UO₂、ZrO₂に分類する分類アルゴリズムの開発
- ② 分類後のそれぞれのスペクトルに対して、組成分析を行うための回帰アルゴリズムの開発
- ③ 未知データをアルゴリズムに投入すると、分類アルゴリズムによりマトリックス毎の分類が行われる
- ④ 分類先の回帰アルゴリズムが参照され、未知のスペクトルに対して化学組成が返される

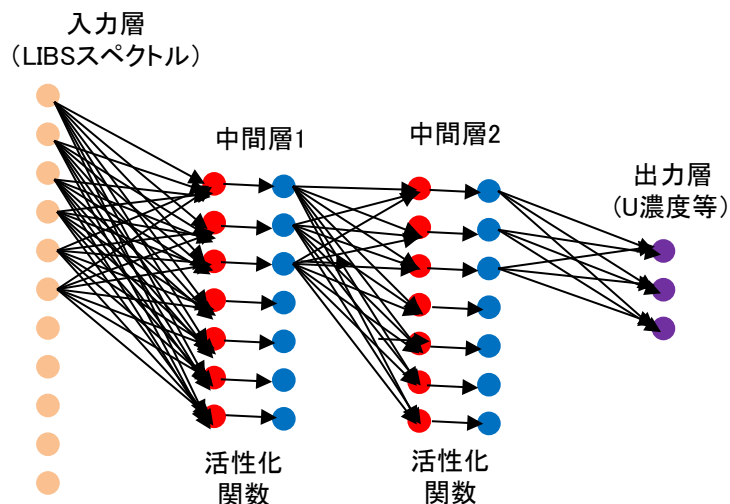
2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

機械学習アルゴリズム -分類と回帰-



サポートベクターマシンによる分類の概念図



ニューラルネットワークによる回帰の概念図

・分類:

LIBSスペクトルから得られる特徴量とマトリックス相のラベルを関連付ける作業。マトリックス相毎に分類することにより後段の回帰アルゴリズムにおける定量性能を向上させる。

・サポートベクターマシン

それぞれのタグの中で境界線に一番近い点（サポートベクター）と境界線との距離（マージン）を最大化するアルゴリズム。

・他にも判別分析、並列学習の複数決定木による予測の多数決・平均評価（ランダムフォレスト）などによるモデル作成を試行する。

・回帰:

LIBSスペクトルの強度と濃度の関係式を導出し、未知試料のスペクトル強度から定量分析を行う手法。従来の検量線法など。

・ニューラルネットワークによる回帰

活性化関数による非線形変換処理を可能とし、従来のケモメトリクスによる部分最小二乗(PLS)回帰などと定量性能の比較を行う。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

機械学習アルゴリズムに関する事前検討・留意点（SUSの分類から）

- ・複雑さが予測される核物質のLIBSスペクトルの分類及び回帰を想定し、鉄系化合物を含む金属スクラップの分類分析を試行。
- ・教師データ内においてはほぼ100%に近い分類性能を示す一方で、未知データの分類能力は60%以下に留まった。
- ・鉄系化合物のLIBSスペクトルは発光ピークの数が多いため、本来捉えるべき特徴ではない差異（pulse-to-pulseによるLIBSスペクトルの同一ピークでの強度変化など）をも分類する過剰な性能を持つモデルを構築した可能性が高い（過剰適合）。
- ・核燃料物質によるスペクトルデータの導入に着手（入力データセットの整合性確認）。

金属スクラップの相互分類における混同行列
(サポートベクターマシン)

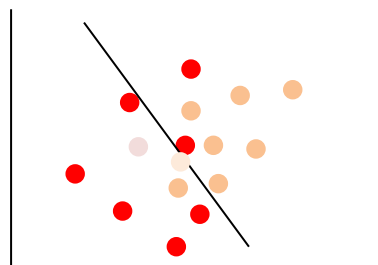
対象個数：300個

Actual class

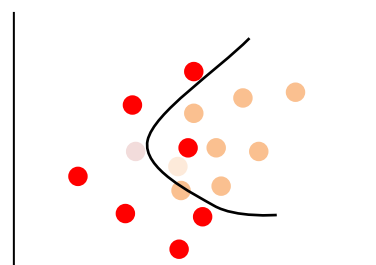
SubDA	SUS304	SUS310	SUS316	SUS430	AL6063	
AL1050	0	0	0	0	0	55
AL1100	0	0	0	0	0	52
AL2017	0	0	0	0	0	0
AL2024	0	0	0	0	0	0
AL3003	0	0	0	0	0	35
AL5052	0	0	0	0	0	14
AL5083	0	0	0	0	0	0
AL6061	0	0	0	0	0	144
AL7N01	0	0	0	0	0	0
AL7075	0	0	0	0	0	0
Brass	0	0	0	0	0	0
Constantan	0	0	0	0	0	0
Copper	0	0	0	0	0	0
Hastelloy	0	0	0	0	0	0
Inconel	0	0	0	0	0	0
SK85	0	0	0	0	0	0
SPCC	0	0	0	0	0	0
4NSteel	0	0	0	0	0	0
SUS301	0	0	0	0	0	0
SUS302	0	0	0	0	0	0
SUS304	107	236	0	0	0	0
SUS310	0	0	0	0	0	0
SUS316	10	0	300	0	0	0
SUS321	0	0	0	0	0	0
SUS347	183	64	0	0	0	0
SUS420	0	0	0	0	0	0
SUS430	0	0	0	300	0	0

混同行列：横軸の試料（分類は既知）のスペクトルをアルゴリズムに通したときに予測されるクラスの個数を行列にしたもの

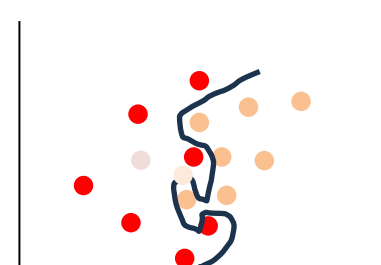
例えばSUS316とSUS430は300個すべて正しいクラスであると予測できたが、SUS310は236個がSUS304に、64個がSUS347に誤認された。



学習不足



適切



過剰適合

過剰適合の概念図

(濃い色のプロットは教師データを、薄い色のプロットは未知データを表す)

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

評価方法

実際に測定して得られたウラン含有試料のLIBSスペクトル（平均化済み）
60,001行（波長）× 750列（標準試料15種類 × 各50本）

ピーク領域切り取り（60,001行 → 9,501行）

モデル作成用・モデル評価用（標準試料15種類×各45本）

外部評価用スペクトル
（標準試料15種類×各5本）

モデル作成

モデル作成用（標準試料15種類×各44本）

内部評価用スペクトル
（標準試料15種類×各1本）

モデル作成用（標準試料15種類×各44本）

⋮

モデル作成用（標準試料15種類×各44本）

RMSE
最小化
モデル

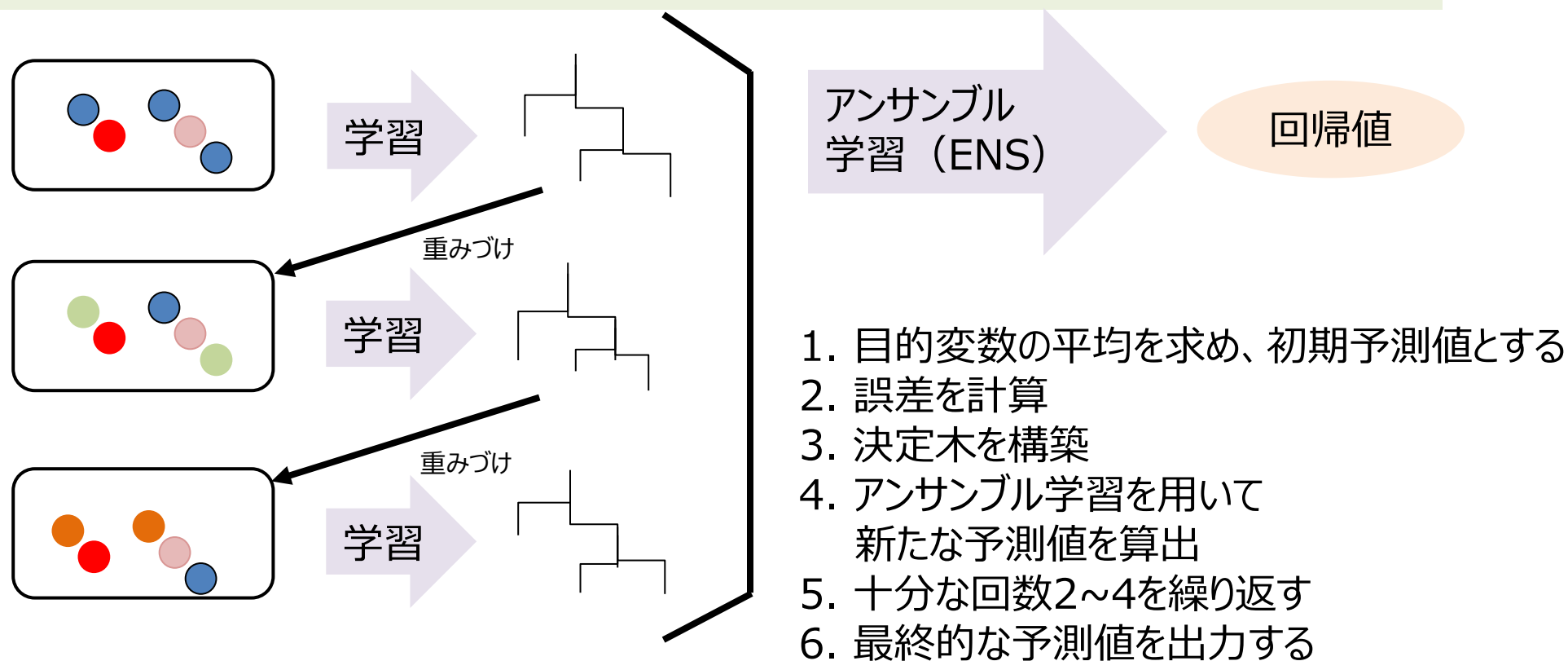
定量値

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

ランダムフォレスト（バギング＋アンサンブル学習）による回帰モデルの作成

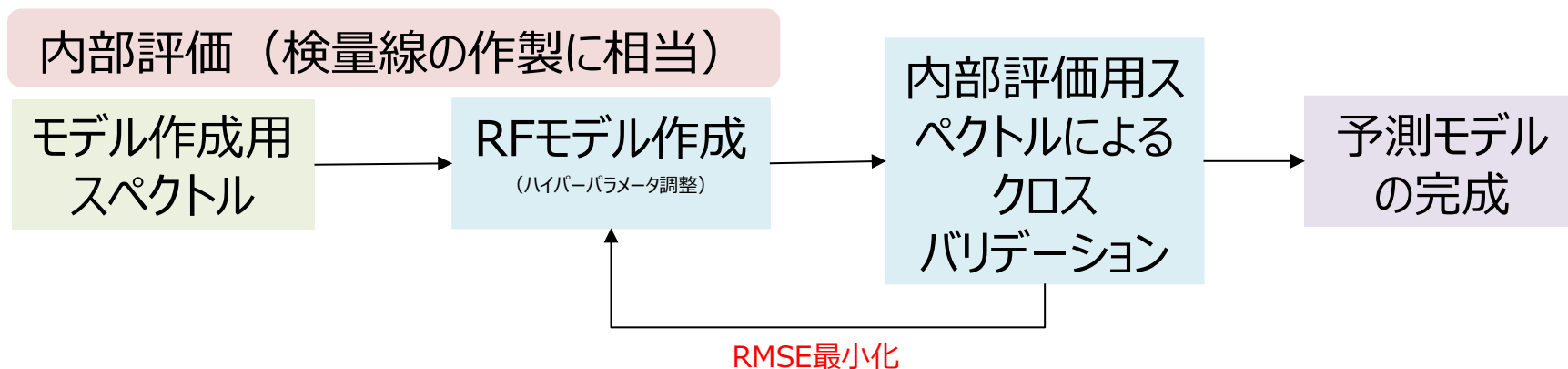
ランダムフォレスト回帰
(ブースティング + 決定木によるアンサンブル学習 (ENS))



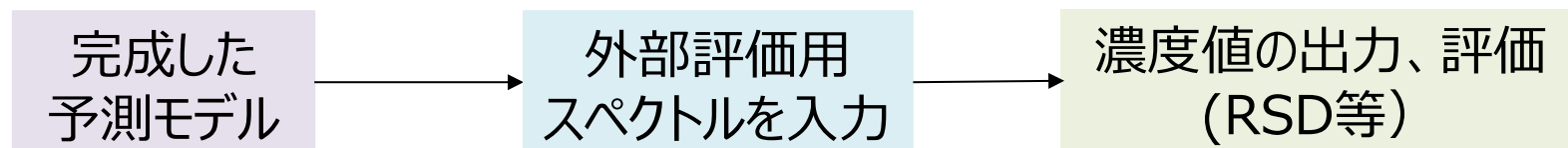
2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

予測モデルの構築（内部評価）と、モデルによる予測知の導出（外部評価）



外部評価（検量線からの濃度値の出力に相当）



（未知スペクトルの入力に相当）

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

標準試料の化学組成 ($\text{UO}_2 - \text{ZrO}_2 - \text{Fe}_3\text{O}_4$ 系、wt%)

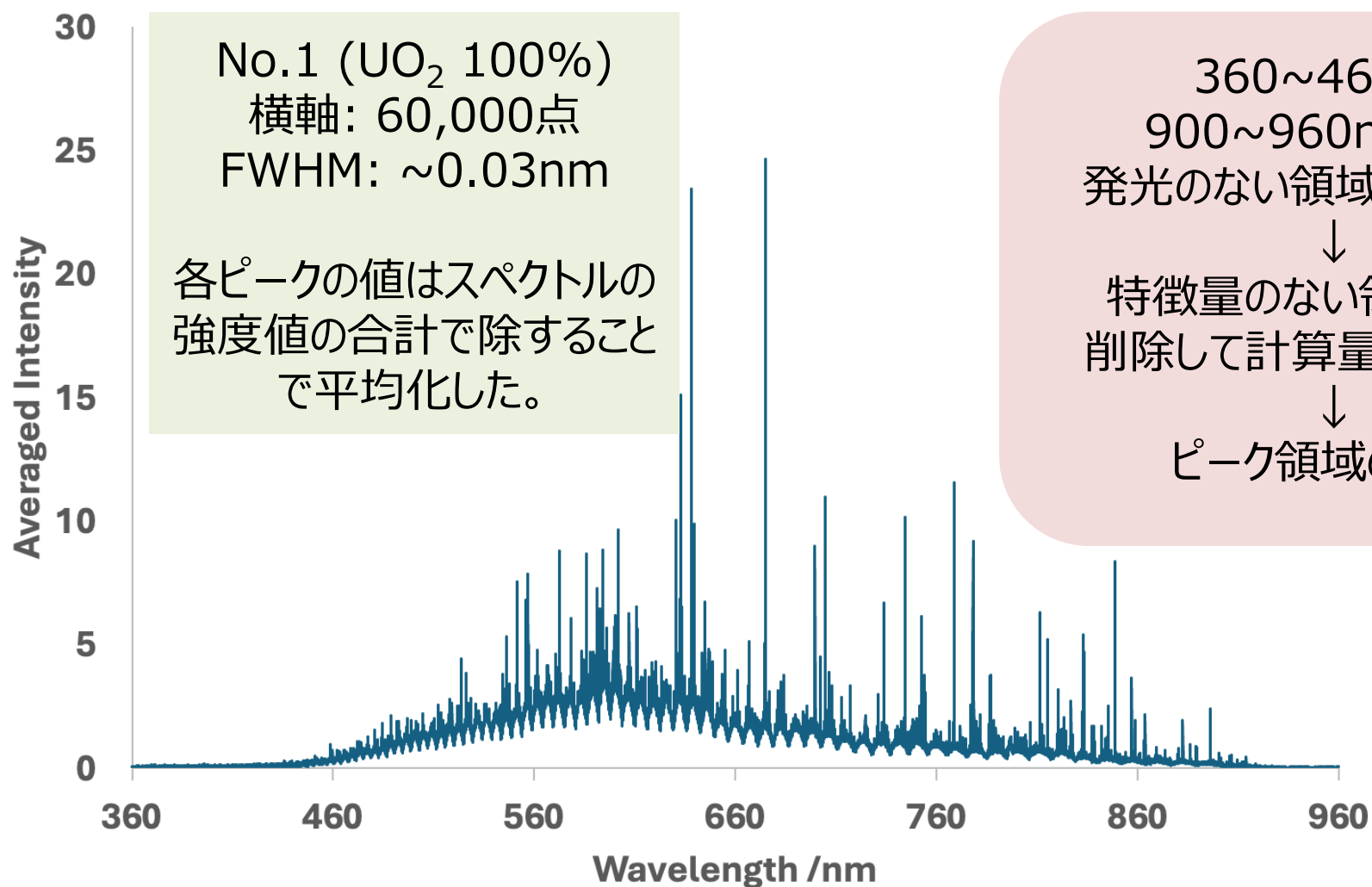
No.	UO_2	ZrO_2	Fe_3O_4
1	100	0	0
2	70	10	20
3	50	25	25
4	35	5	60
5	10	45	45
6	5	47.5	47.5
7	1	10	89
8	1	49.5	49.5

No.	UO_2	ZrO_2	Fe_3O_4
9	0.5	5	94.5
10	0.5	70	29.5
11	0.3	40	59.7
12	0.3	90	9.7
13	0	0	100
14	0	50	50
15	0	100	0

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

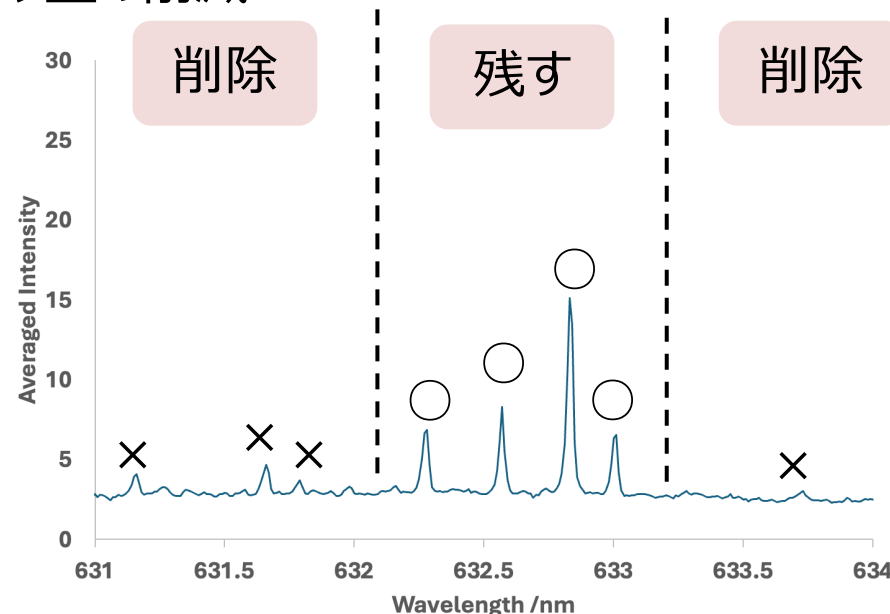
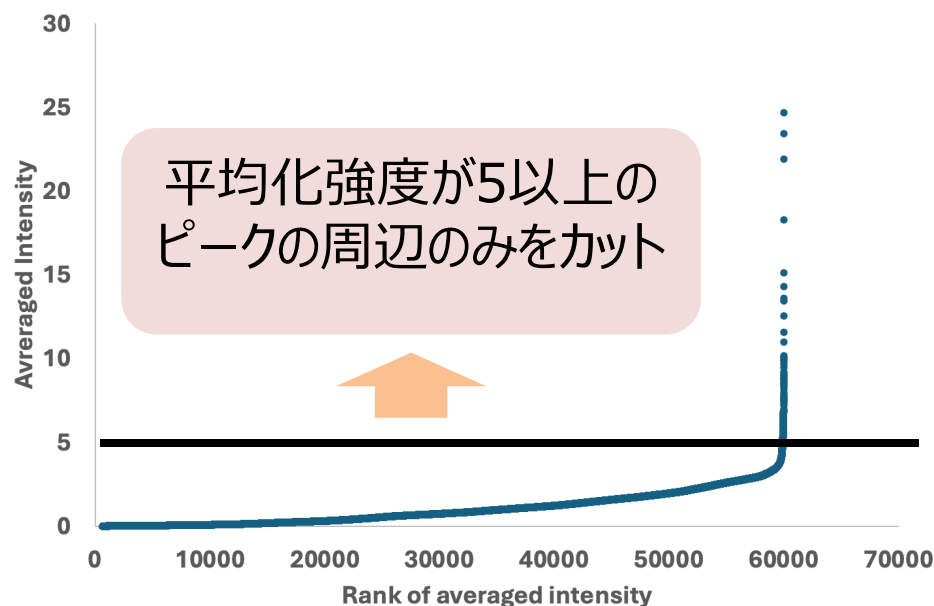
LIBSスペクトルの生データ例



2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

学習の効率化：LIBSスペクトルのデータ量の削減

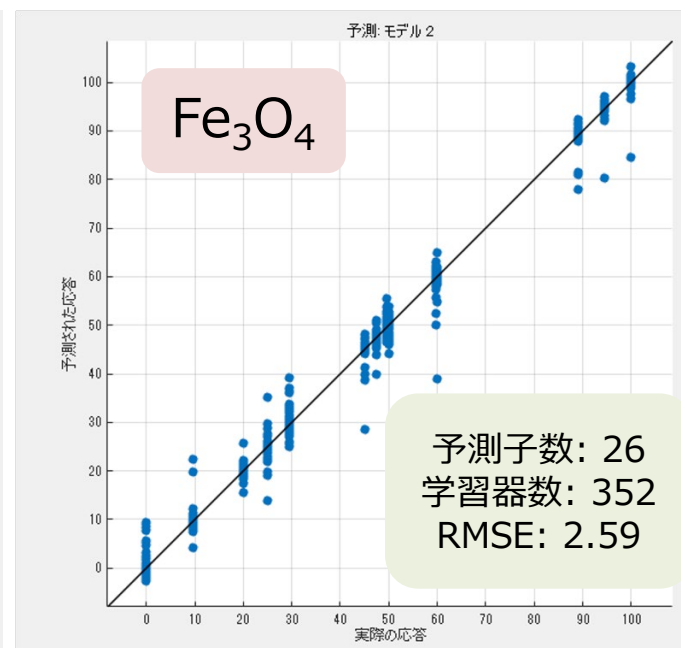
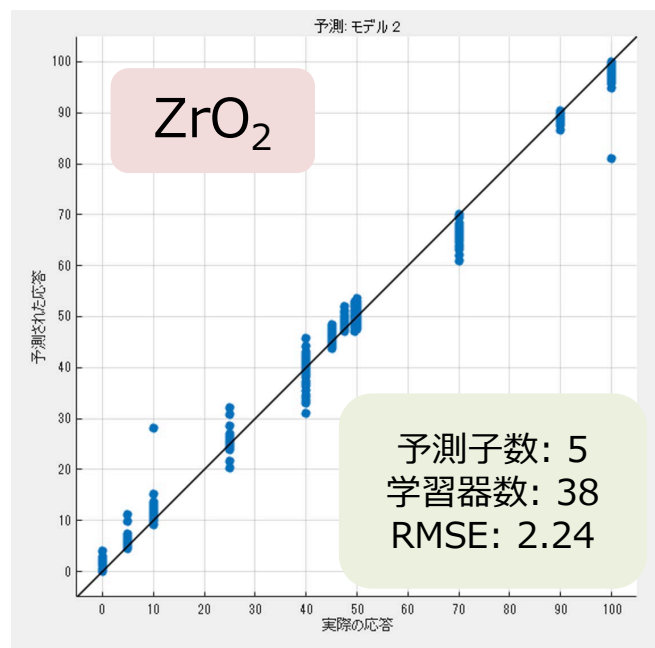
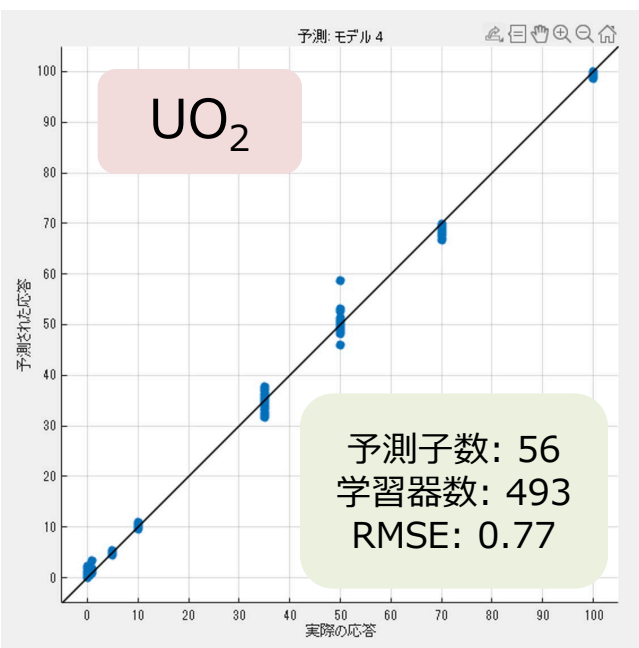


- ・0.5 nm幅を最小単位として、ピークがある領域を切り出した。
- ・切り出し範囲は485.0nm - 485.5nm、487.8nm - 488.3nm、491.65nm - 492.15nm、495.5nm - 496.0nm、… 869.4nm - 869.9nm
- ・合計で90箇所を切り出して繋ぎ直し、横軸を60001点から9501点に削減した。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

内部評価（クロスバリデーション）によるRMSE最小化モデル

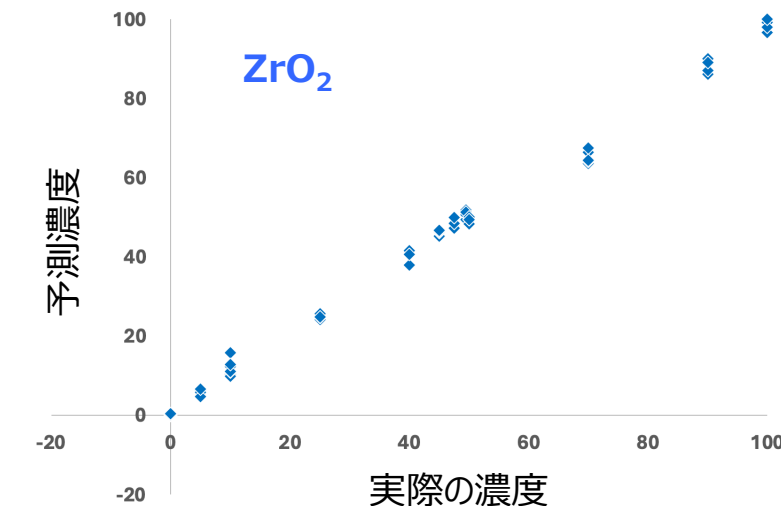
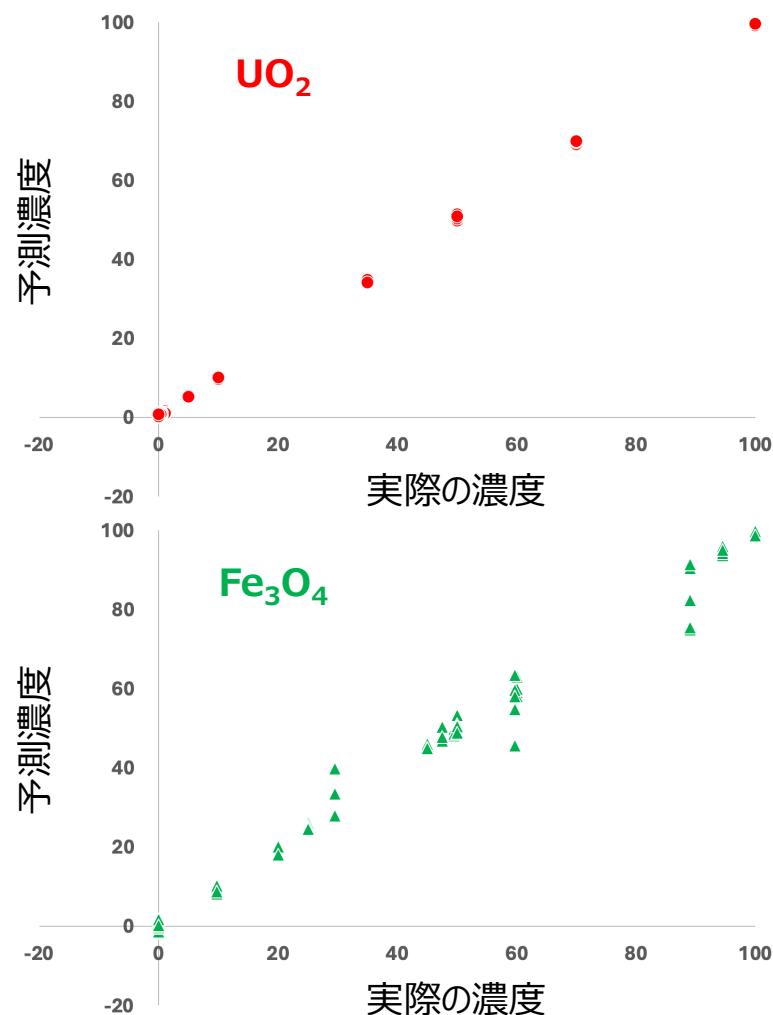


- ・ランダムフォレストによる回帰モデルを作成した。
- ・予測子数と学習器数の最適化（=RMSEの最小化）を行った。
- ・最適化に要した計算時間は2-3時間程度となった。
（全データを用いた場合は3-4日程度であり、大幅な計算時間の削減に成功した。）

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

外部評価用データを用いた濃度値出力結果

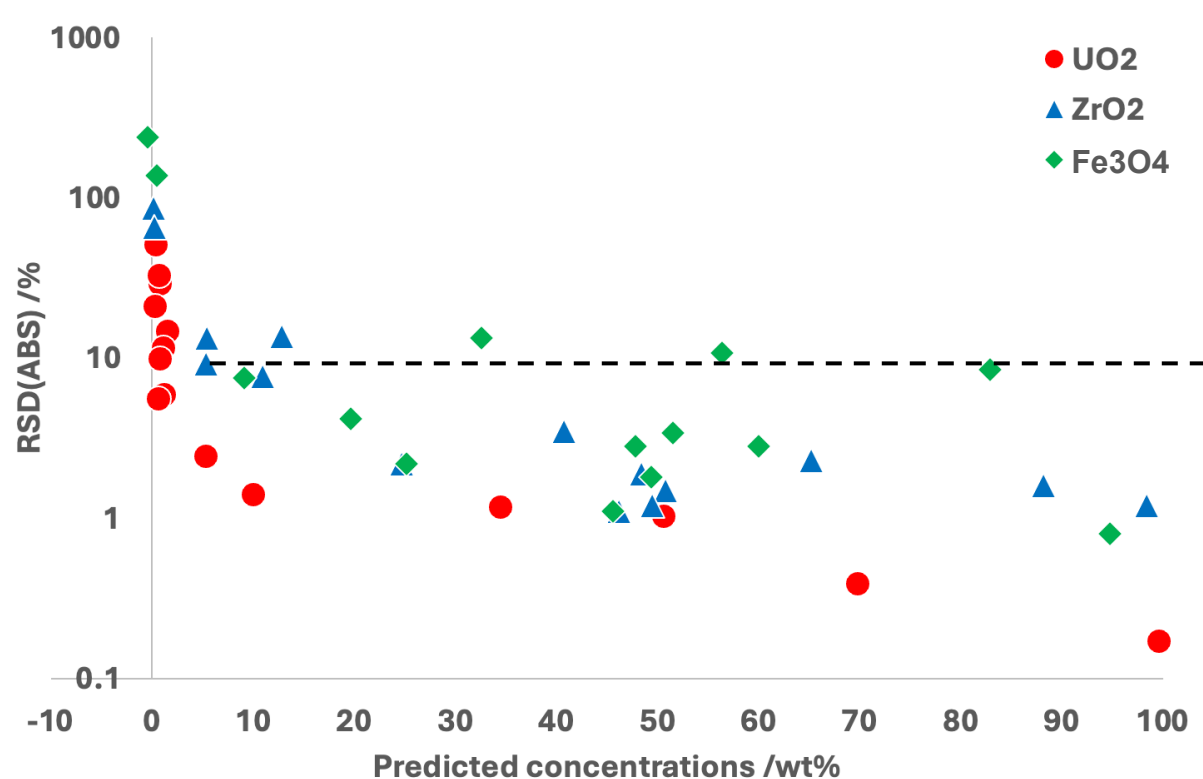


特に、UO₂とZrO₂においては
良好な濃度出力結果が得られた。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

外部評価用データの濃度出力結果に対する相対標準偏差



RSDが10%までを定量評価の境界値とした場合、UO₂については1wt%弱程度、ZrO₂、Fe₃O₄については5wt%前後の定量評価が可能であることが示された。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

UO₂-ZrO₂-Fe₃O₄の定量結果

No.	Actual				Predicted			
	UO ₂	ZrO ₂	Fe ₃ O ₄	Total	UO ₂	ZrO ₂	Fe ₃ O ₄	Total
SE01	100	0	0	100	99.6	0	0.11	99.7
SE02	70	10	20	100	69.8	10.9	19.7	100.4
SE03	50	25	25	100	50.6	25.2	24.7	100.5
SE04	35	5	60	100	34.5	5.32	60.0	99.8
SE05	10	45	45	100	9.99	46.2	45.6	101.8
SE06	5	47.5	47.5	100	5.35	48.4	47.8	101.6
SE07	1	10	89	100	1.55	12.8	82.9	97.3
SE08	1	49.5	49.5	100	1.20	50.8	49.4	101.4
SE09	0.5	5	94.5	100	1.09	5.44	94.8	101.3
SE10	0.5	70	29.5	100	0.77	65.2	32.6	98.6
SE11	0.3	40	59.7	100	0.62	40.7	56.4	97.7
SE12	0.3	90	9.7	100	0.78	88.2	9.1	98.1
SE13	0	0	100	100	0.69	0.25	100.5	101.4
SE14	0	50	50	100	0.33	49.5	51.5	101.3
SE15	0	100	0	100	0.42	98.4	0.48	99.3

理論値100%に対して
個別の定量結果の合計
97.3% ~ 101.8%



十分な定量能力が
得られたと考えられる。

U、Zr、Feの三成分が混合された未知の試料のLIBSスペクトルに対し、1秒未満の解析時間でRSD10%の定量解析が可能なモデルが構築できた。

2.7.1 分析手法の確立

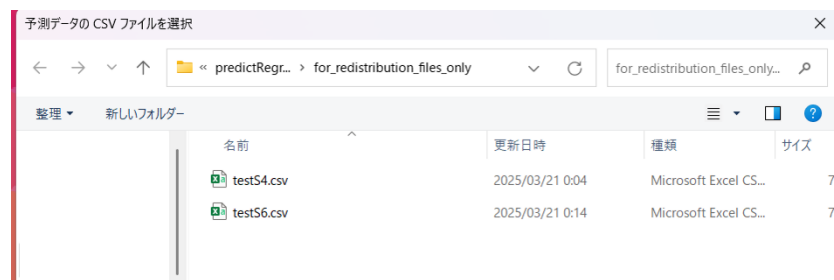
d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

参考：試験現場での回帰評価アプリケーションを目指して、
学習済みの実行アプリケーション（学習反映はない）を作成した。

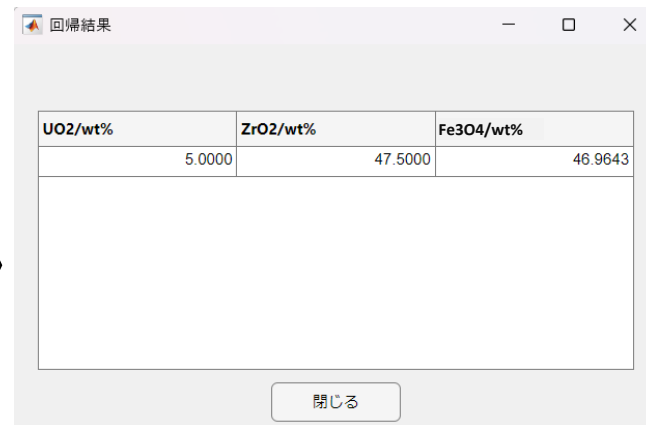
1. 前処理済みのスペクトルを、 UO_2 、 ZrO_2 、 Fe_3O_4 の順に3行に並べ（3行×200列の行列）.csvにて保存
2. predictRegressionModel.exe（実行ファイル）が.csvを読み込む
3. モデルの中で各行ごとに回帰結果を計算し、ウィンドウで出力する



1. アプリケーションの立ち上げ



2. データセットの選択



3. 回帰結果の表示
（組成比の表示）

汎用のノートPC（性能に依存）で
4～10秒程度で結果が表示される。

2.7.1 分析手法の確立

d) AI機械学習を駆使した解析手法の開発

まとめと課題点の抽出

1. JAEAより提供を頂いた標準スペクトルに対し、サポートベクターマシンによる分類分析によって燃料デブリとコンクリート片に分類した。
2. 規格化、移動平均処理、降順ソートにより、200個の特徴量を抽出した。
3. バギング + アンサンブル学習（ランダムフォレスト）により、十分な定量能力が得られた。
4. 最適化処理に要する時間を数時間から2-3分にまで短縮できた。

<今後の課題点>

1. 十分な数のLIBSスペクトルを用いた機械学習による回帰
2. 純物質から遠い組成(ex. UO_2 :0%、 ZrO_2 :50%、 Fe_3O_4 :50%)に対する定量能力の改善

2.7.1 分析手法の確立

まとめ

事業終了時の目標指針

①分析手法の確立

- ・従来に比べ10倍の信号強度が実現できること。
- ・含水及び表面流水環境でも分析が可能であること。
- ・放射性物質を含有した試料、空気汚染環境で遠隔分析を可能とすること。

実施結果の概要

マイクロチップレーザーLIBSでは、汎用コネクタ接続による300m以上の超長尺分析の可能性を示した。

外気温が35℃程度の高温空気汚染環境で安定に動作する空調コンテナの除熱容量・除熱排風量を評価し、遠隔分析を可能とする仕様を決定した。

高放射線環境下でのマイクロチップレーザーLIBS分析特性を検量線から評価し、1kGy/hの高線量率環境でも変わらないことを実証した。

DFC高出力マイクロチップレーザーの耐放射線性はおよそ30kGy程度であったが、照射後時間とともに性能を回復したことから、今後原因を確認する必要がある。

AI・機械学習による解析では、ランダムフォレスト法を基本とした解析アルゴリズムと、データ特徴量の抽出法の工夫により学習効率が高く組成比の偏差の少ない解析法を提示した。

アンテナ内蔵型マイクロ波重畳LIBSにより、数倍から数百倍以上の信号強度を実現した。再現性・安定性、対象による不安定性に課題があり、実用化には課題を残した。

光ファイバーLIBS化したロング・ショートパルスレーザー二重照射法を、水没・含水試料に適用した結果、金属・緻密性酸化物、多孔質酸化物でほぼ同様のスペクトルが取得できることを実証した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

- a) 標準試料の製作と試験
- b) 複雑系試料の製作と試験
- c) 使用済燃料等の試料準備と試験
- d) 未照射濃縮ウラン試料の製作と試験

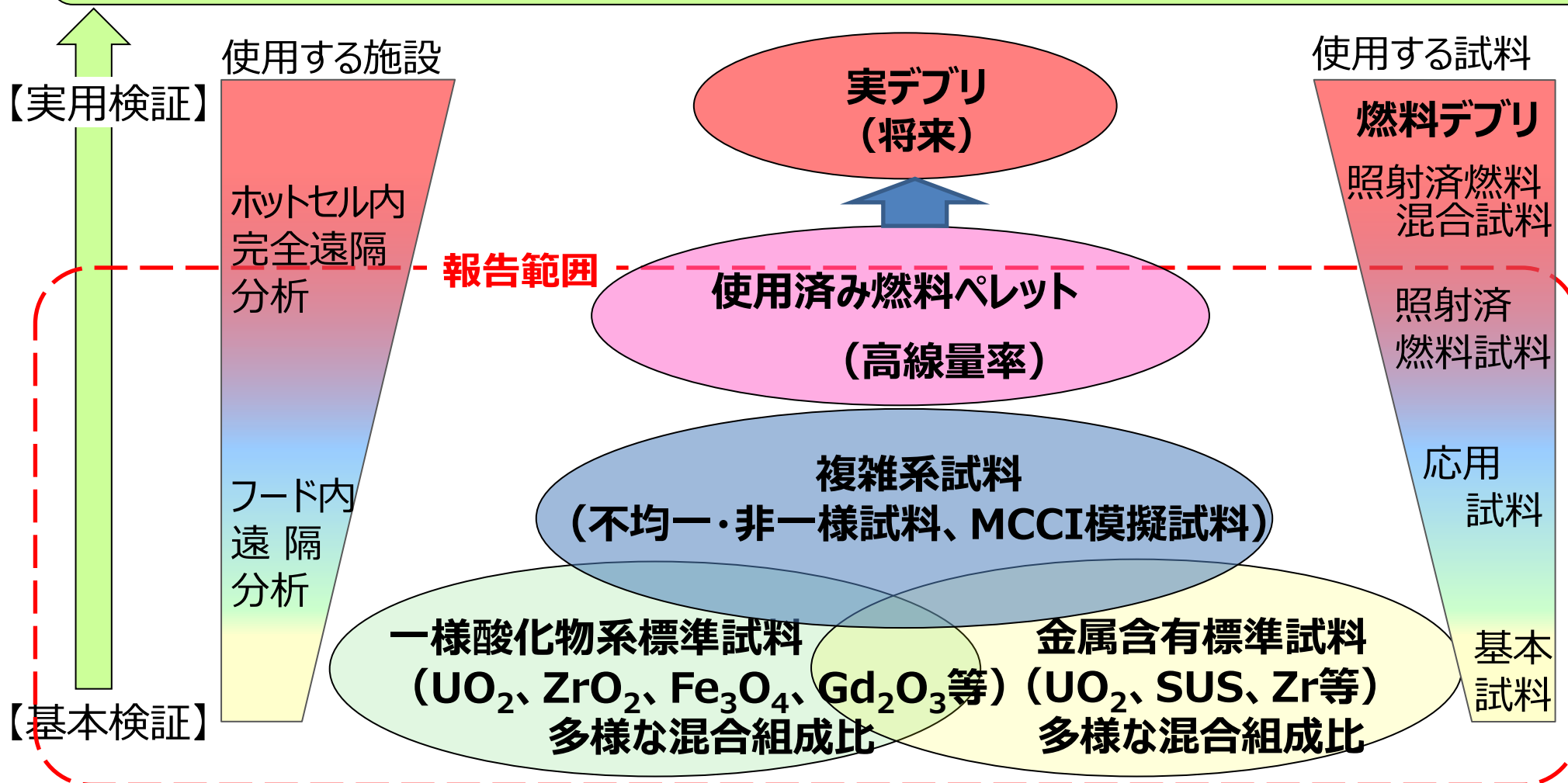
【実績工程表】

黒線：計画線、赤線：実績線

項目			2023年度												2024年度											
			4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
② 核燃料物質による性能評価	a) 標準試料の製作と試験	検討・準備・調製																								
		各種分析試験対応																								
	b) 複雑系試料の製作と試験	検討・準備・調製																								
		各種分析試験対応																								
	c) 使用済み燃料等の試料準備と試験	利用準備																								
d) 未照射濃縮ウラン試料の製作と試験	試料調製・セル準備																									
e) 廃棄物処理対応	準備・試験・整理																									
	検討・準備・調製																									
	準備・試験・整理																									
	処理作業																									
	処理作業																									

2.7.2 核燃料物質による性能評価

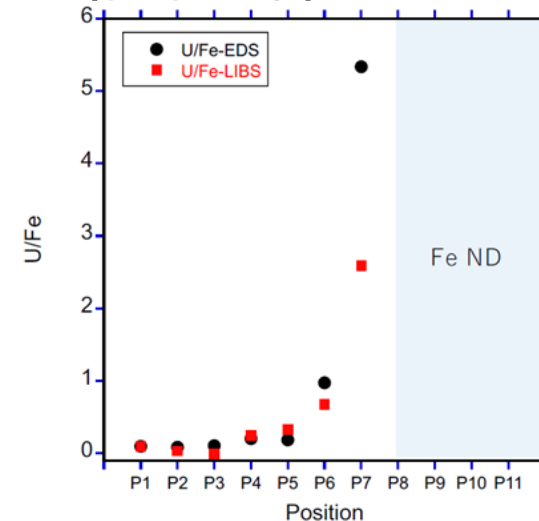
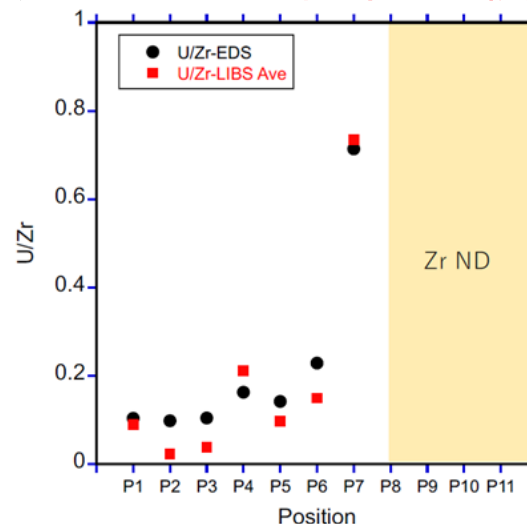
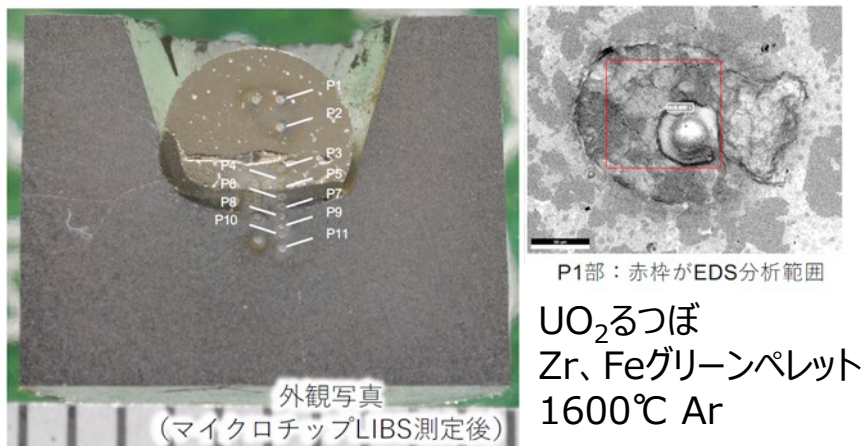
分析実績の蓄積と信頼性確保
(検証用試料の提供と分析実証による実績の蓄積)



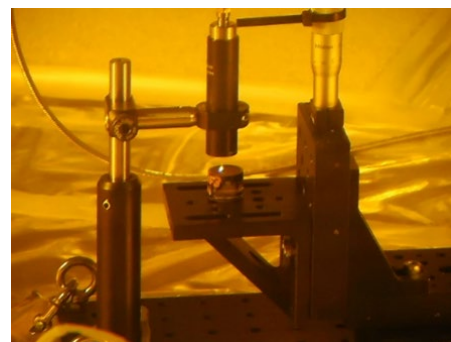
2.7.2 核燃料物質による性能評価

非均一複雑系試料の分析：レーザー照射痕のSEM-EDS結果と比較例

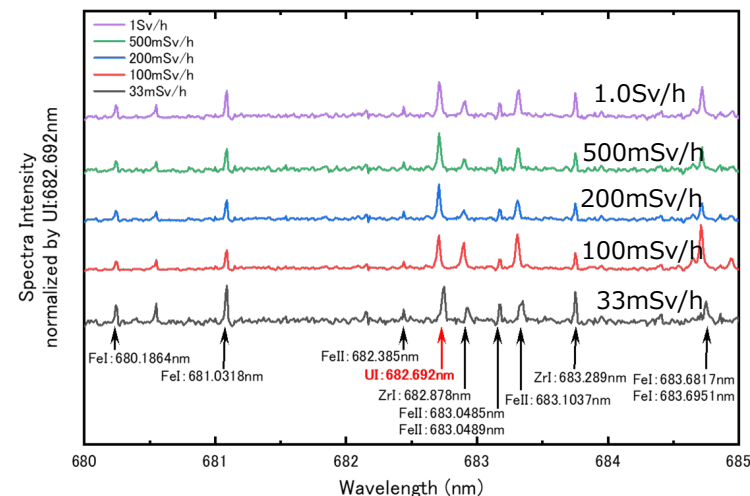
(従来成果)



ホットセル内における使用済燃料含有 Zr・Fe酸化物の分析例 (従来成果)



ホットセル内でのレーザー照射



線量率に依らないU、Zr、Feの分析例

2.7.2 核燃料物質による性能評価

a) 標準試料の製作と試験

準備した試料マトリクス (単位: wt%)

酸化物標準試料

Fe ₃ O ₄ (%)		UO ₂ (%)									
		0	0.3	0.5	1	5	10	35	50	70	100
ZrO ₂ (%)	0	100									0
	5			94.5				60			
	10				89					20	
	25								25		
	40		59.7								
	45						45				
	47.5					47.5					
	49.5				49.5						
	50	50									
	70			29.5							
	90		9.7								
	100	0									

金属含有標準試料

SUS316L (%)		UO ₂ (%)		
		1	5	10
ZrO ₂ (%)	45			45
	47.5		47.5	
	49.5	49.5		

その他のウラン含有確認試料として、コンクリート成分含有試料を準備した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

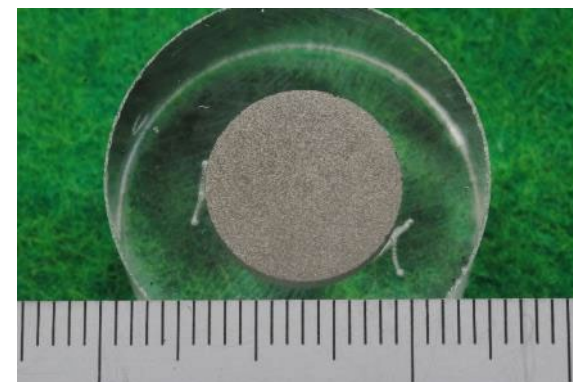
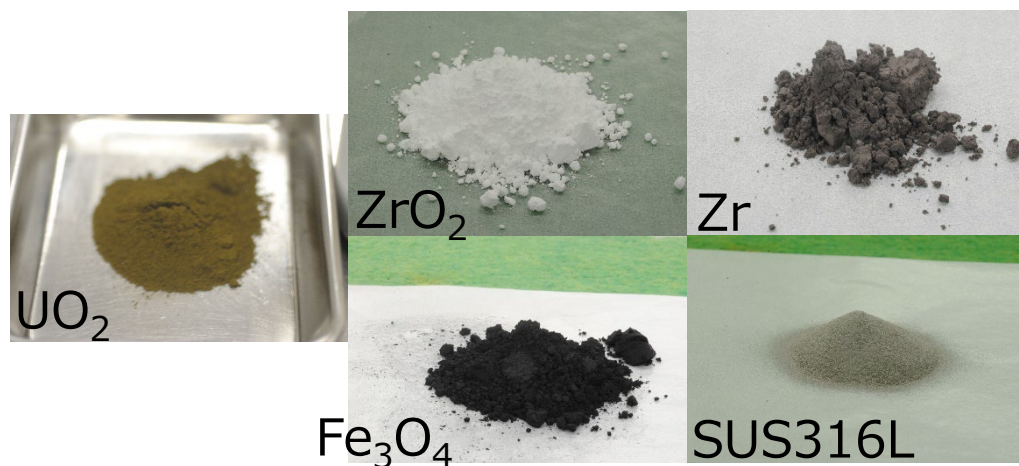
a) 標準試料の製作と試験

実施内容

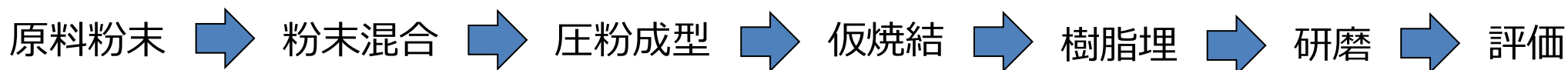
- ・標準試料の製作

検討内容

- ・標準試料及び複雑系試料のマトリックスと製作方法



既存酸化物標準試料の例
(研磨後)

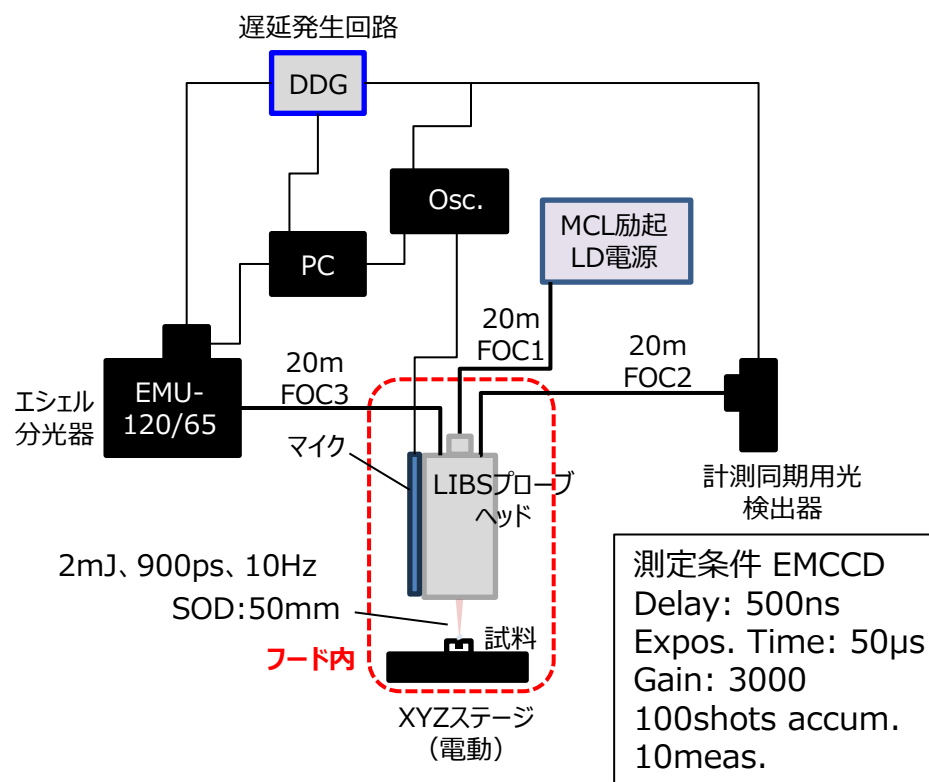


2.7.2 核燃料物質による性能評価

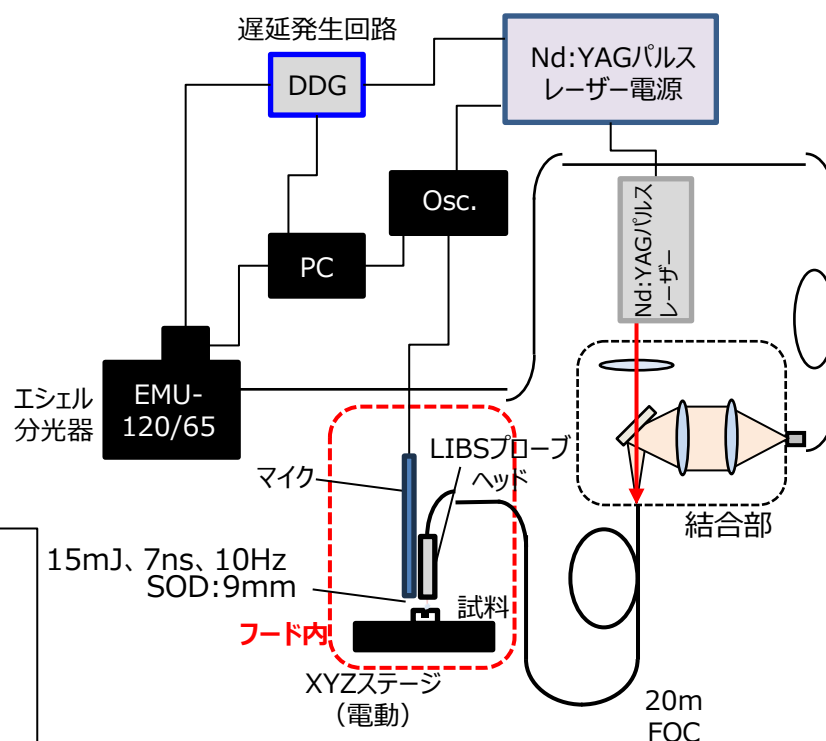
a) 標準試料の製作と試験

核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）
光ファイバーマイクロチップLIBS、従来型光ファイバーLIBSを
準備し、各々について線形性、下限値を確認した。

(1) 光ファイバー伝送マイクロチップLIBS



(2) 従来型光ファイバー伝送LIBS

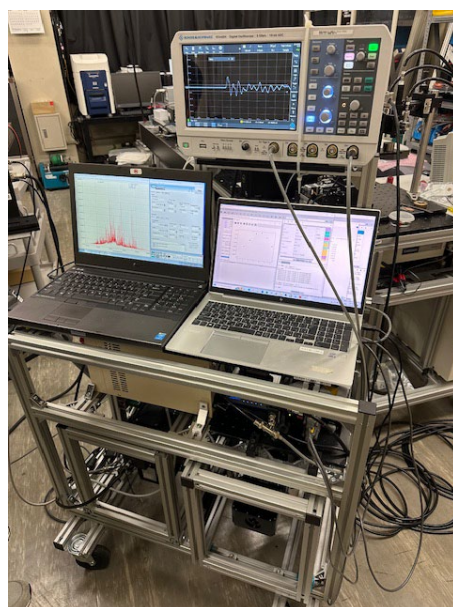


2.7.2 核燃料物質による性能評価

a) 標準試料の製作と試験

核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）

核燃料物質を用いた信頼性向上試験の様子



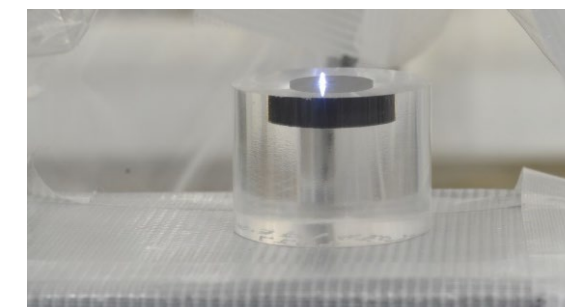
遠隔分析用
光ファイバーLIBS装置



核燃料物質取り扱いフード



フード内のXYZステージの様子

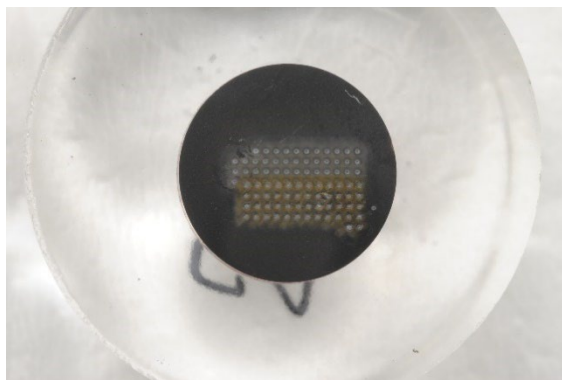


レーザープラズマ発光の様子

2.7.2 核燃料物質による性能評価

a) 標準試料の製作と試験

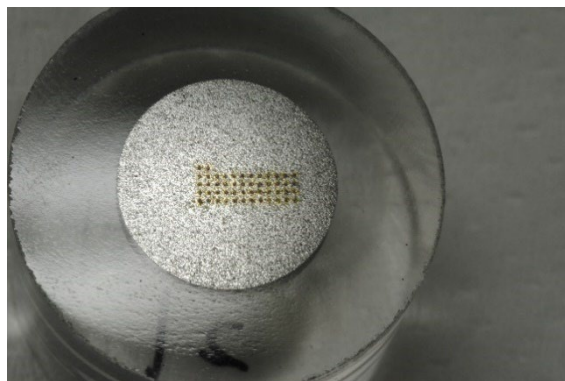
核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）



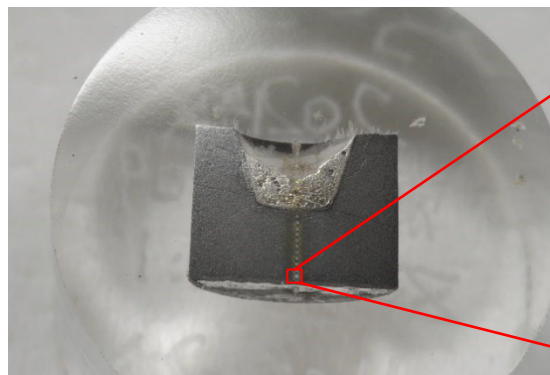
50 % UO_2 -25 % ZrO_2 -25 % Fe_3O_4



100 % ZrO_2

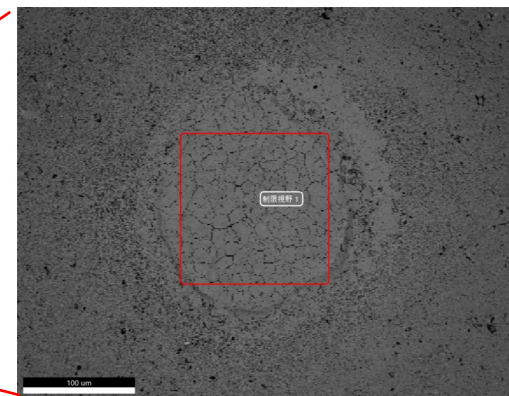


10 % UO_2 -45 %Zr-45 %SUS316L



UO_2/ZrO_2 高温反応

安定した照射痕が観測された



照射痕のSEM像

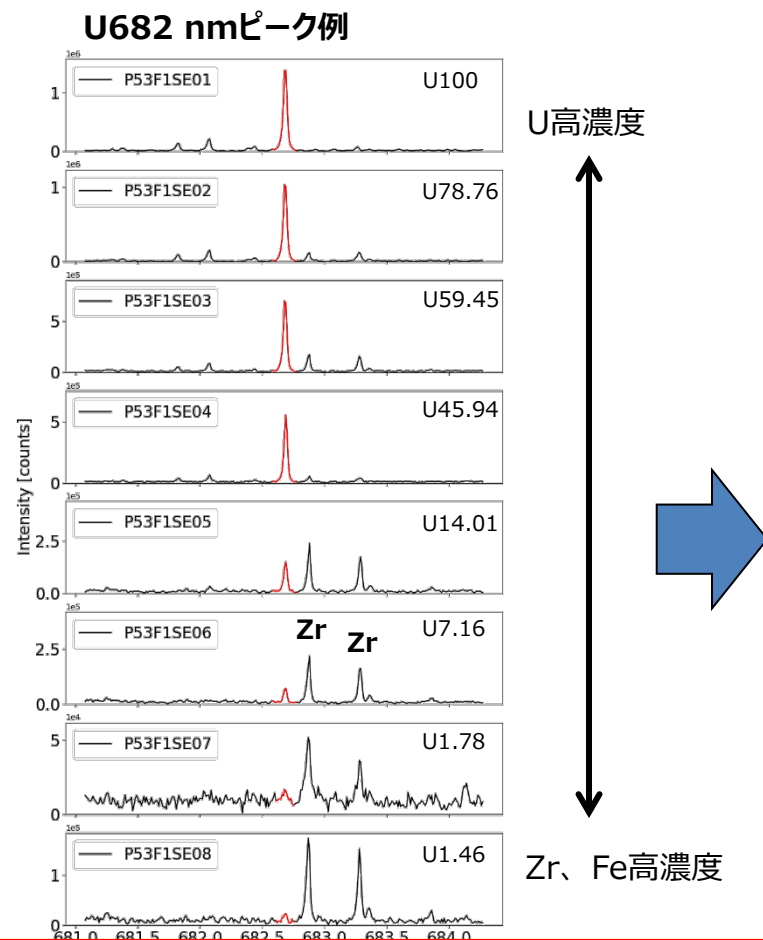
XYステージによりレーザー照射位置を制御し、スペクトル安定性を確保した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

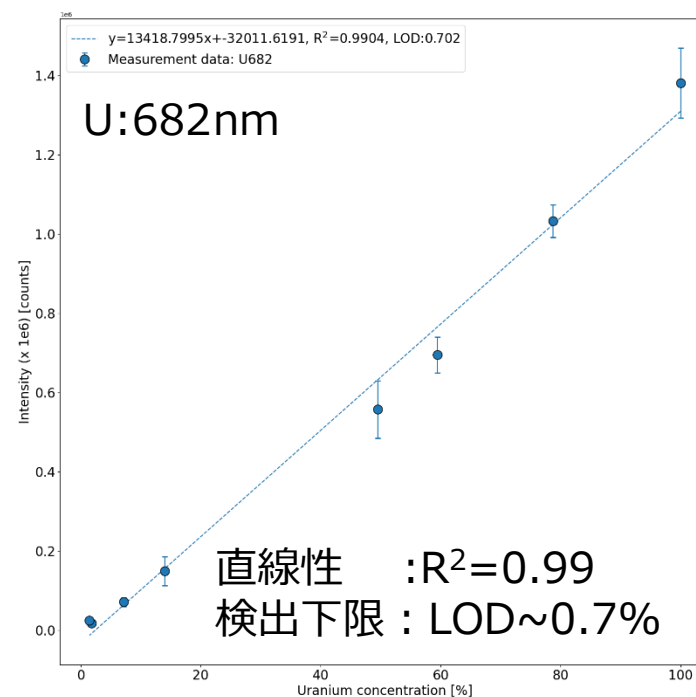
a) 標準試料の製作と試験

核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）

光ファイバーマイクロチップLIBSの特性（ウランの検量線）



U682nmピーク強度とU濃度の関係（検量線）



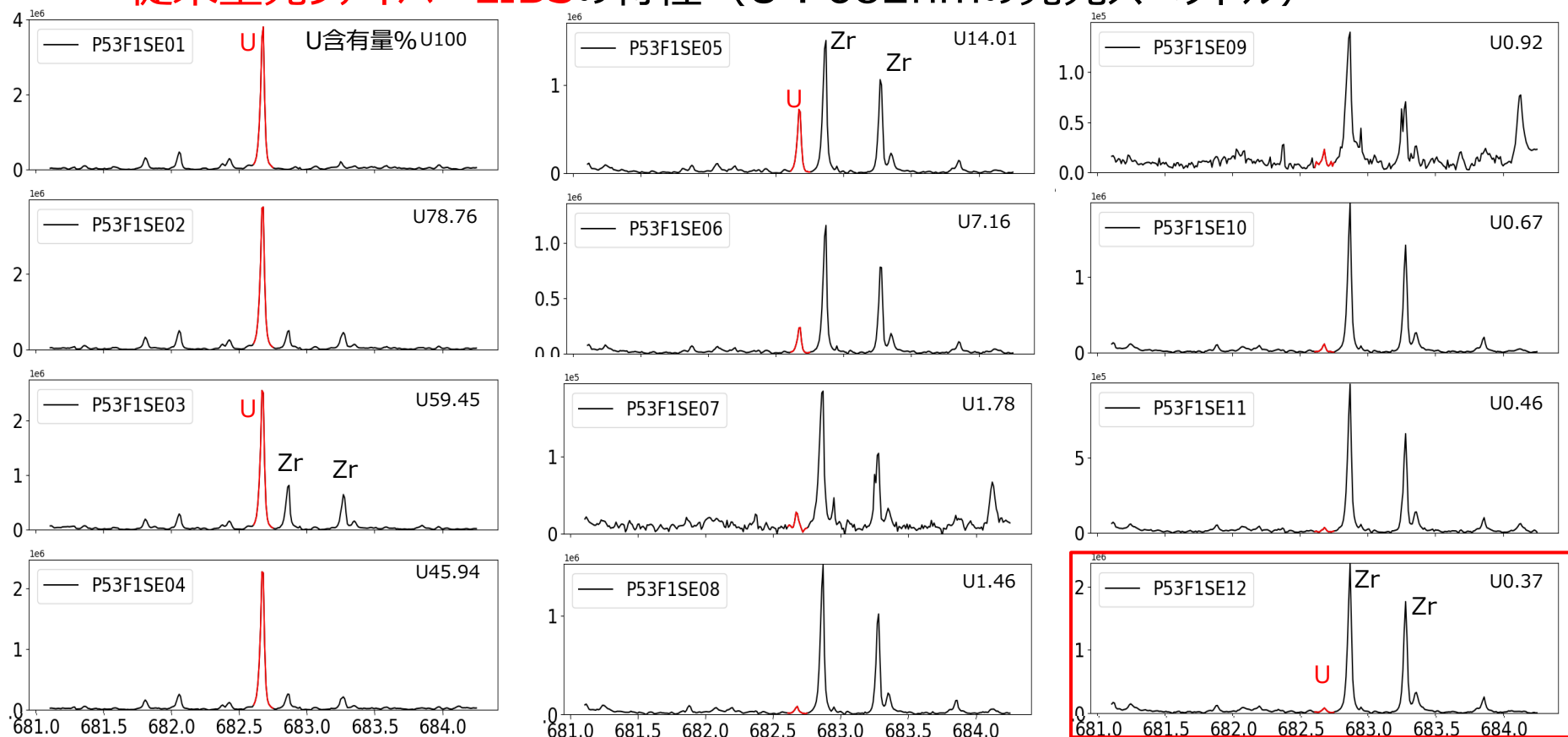
➤ U:682nmのピークから検量線を作成した → 一定の定量性を確認し、検出下限値~0.7%を得た。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

a) 標準試料の製作と試験

核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）

従来型光ファイバーLIBSの特性（U：682nmの発光スペクトル）



➤ 上記スペクトルから検量線を作成し、従来型光ファイバーLIBSによるウラン検出下限：
0.37% と評価された → 低濃度(0.37 wt%UO₂)のウランも検知されている。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

a) 標準試料の製作と試験

核燃料物質を用いた信頼性向上試験（定量性、検出下限）

光ファイバーマイクロチップLIBS（マイクロチップLIBS）と従来型光ファイバーLIBSの特性比較
ウラン参照波長：682nm

検量線	濃度領域		マイクロチップLIBS LOD/R ²	従来型光ファイバーLIBS LOD/R ²
発光強度 を使用	U	~100 wt%-U	0.70% / 0.99	0.38% / 0.98
		<60 wt%-U	0.80% / >0.99	0.37% / 0.99
発光強度比 を利用	U/Zr	Zr≐Fe	0.25~0.55% / >0.99	0.29~0.48% / >0.99
	U/Fe	Zr≐Fe	0.27~0.58 %/ >0.99	0.33~0.58% / >0.99

Zr発光線:588、613、614、676、690、806、813、815、820、821、830、841、846、901 nm

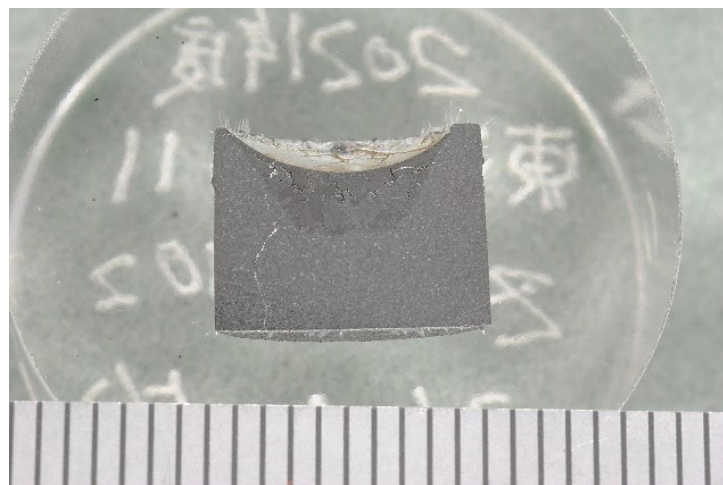
Fe発光線:492、516、519、526、543、544、868 nm

- 代表的なウラン発光線として682nmを選定し、分析特性を評価した。
- 従来型も光ファイバーマイクロチップLIBSも、同等の分析性能を確認した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

測定に使用した試料の例



高温反応試料

UO₂ 芯棒に Zr:Fe=2:1 (mol比) の混合金属粉末
グリーンペレットを入れて 1600℃ x 20 分間加熱
試験体組成 : UO₂-2Zr1Fe

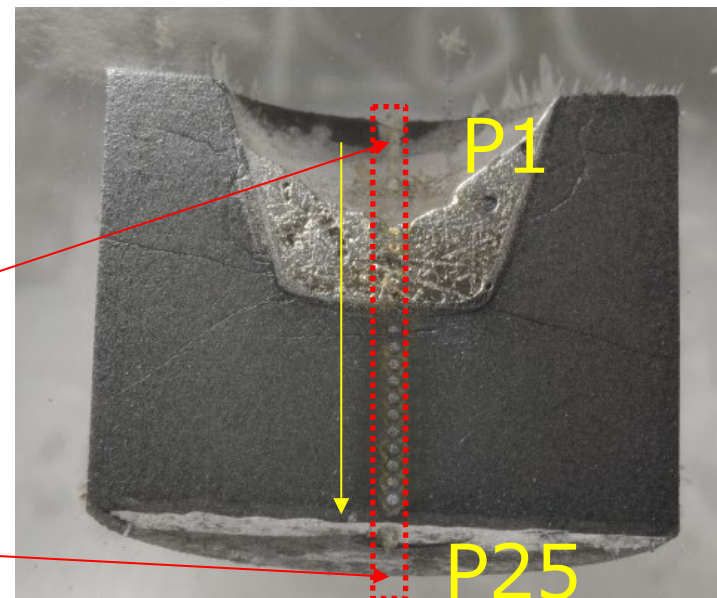
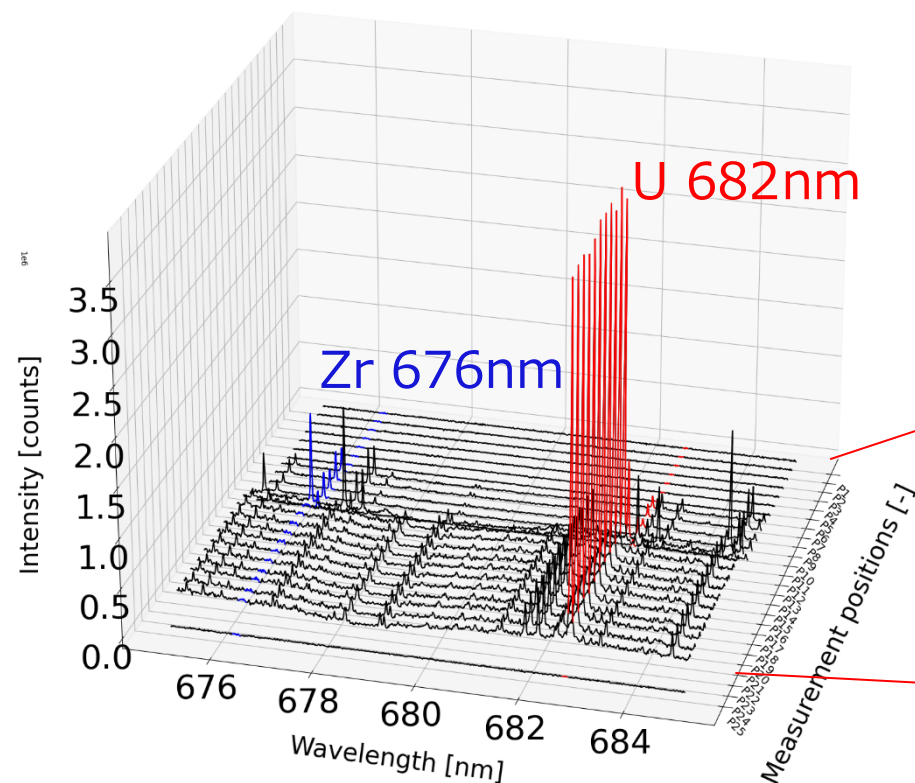


UO₂、Zr、Fe など非均一混在

2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料での線分布計測例 (1)

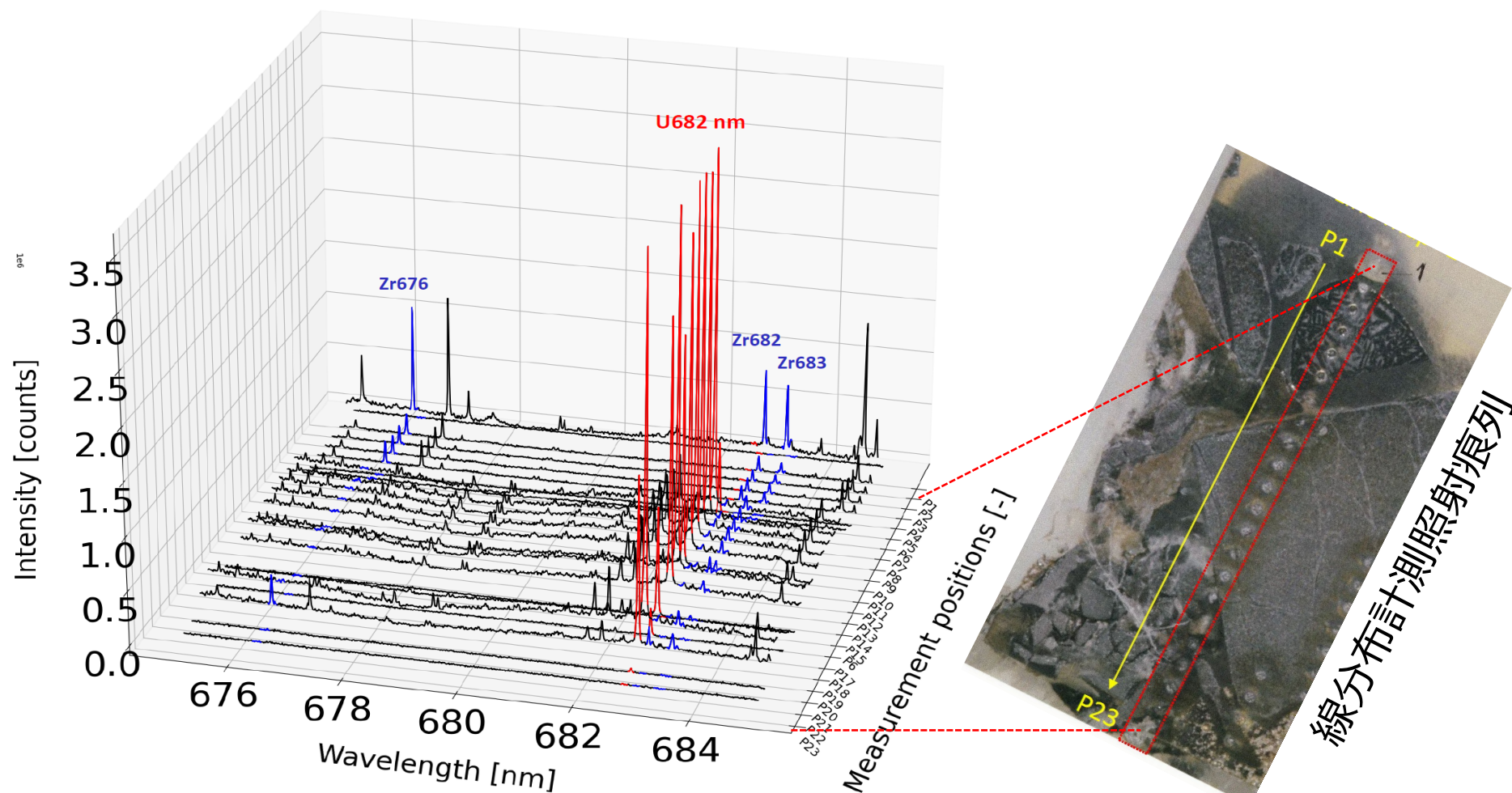


➤ 複雑系試料において線分布計測が可能であることが明示できた。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料での線分布計測例 (2)



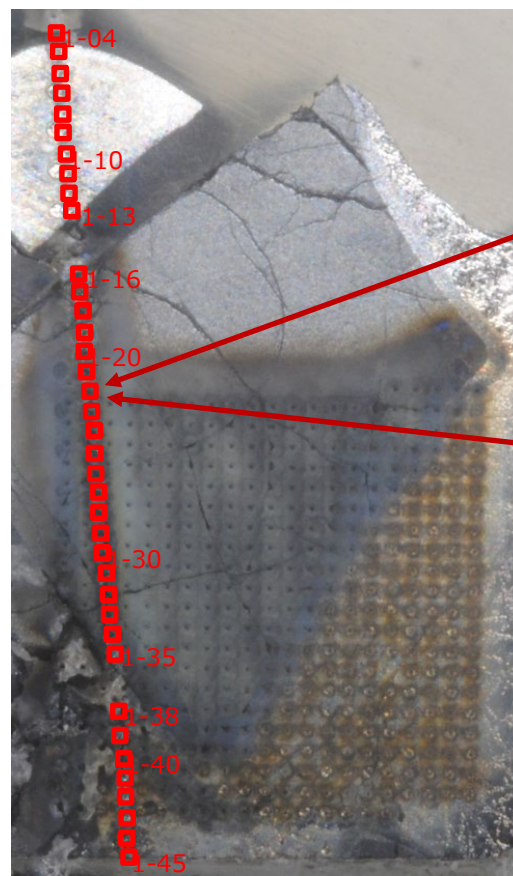
➤ 複雑系試料において線分布計測が可能であることが明示できた。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料を用いた線分布（マイクロチップLIBS）及びSEM-EDSとの比較

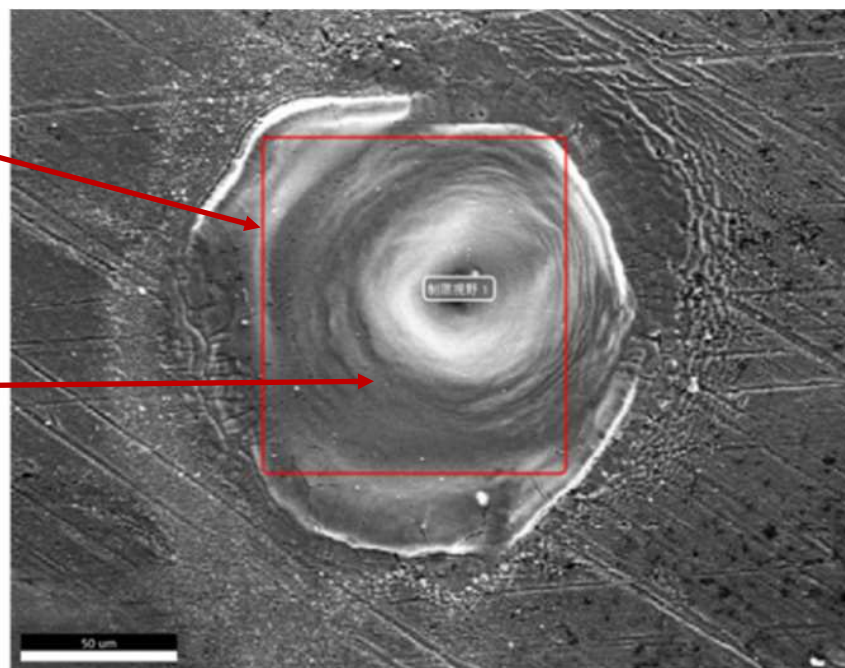
LIBS照射痕に対するSEM-EDS分析領域 (EDS : エネルギー分散型X線分光法)



1mm

SEM-EDS
分析領域

LIBS照射痕



50µm

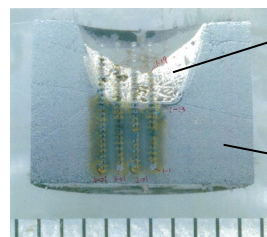
UO₂、Zr、Feなどの混合物

2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料を用いた線分布(マイクロチップLIBS)及びSEM-EDSとの比較

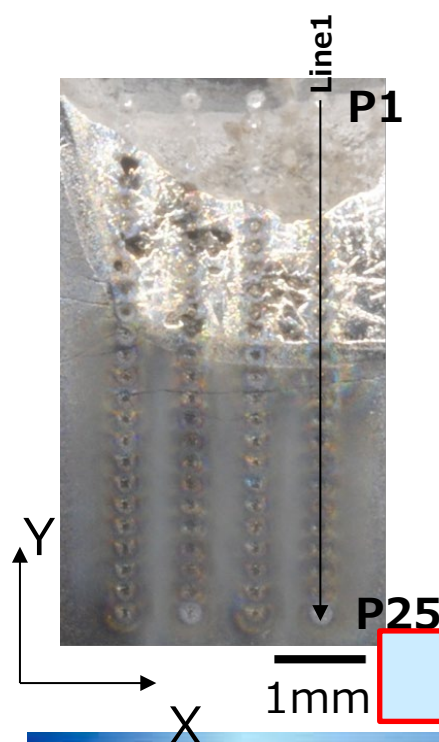
複雑試料外観



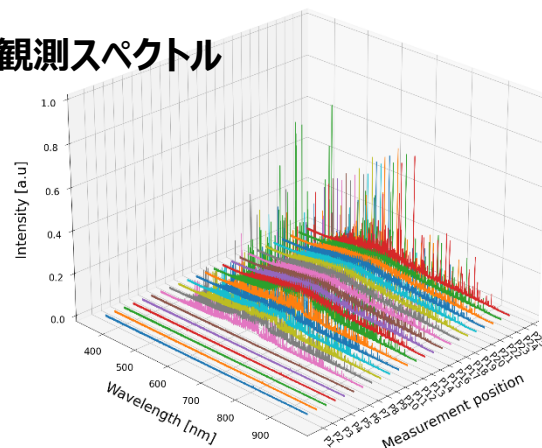
Zr-Fe合金

UO₂

UO₂ 芯部にZr:Fe=2:1 (mol比) の混合金属粉末グリーンペレットを入れて1600℃ x 20分間加熱
試験体組成: UO₂-2Zr1Fe



観測スペクトル



Spatial resolution:

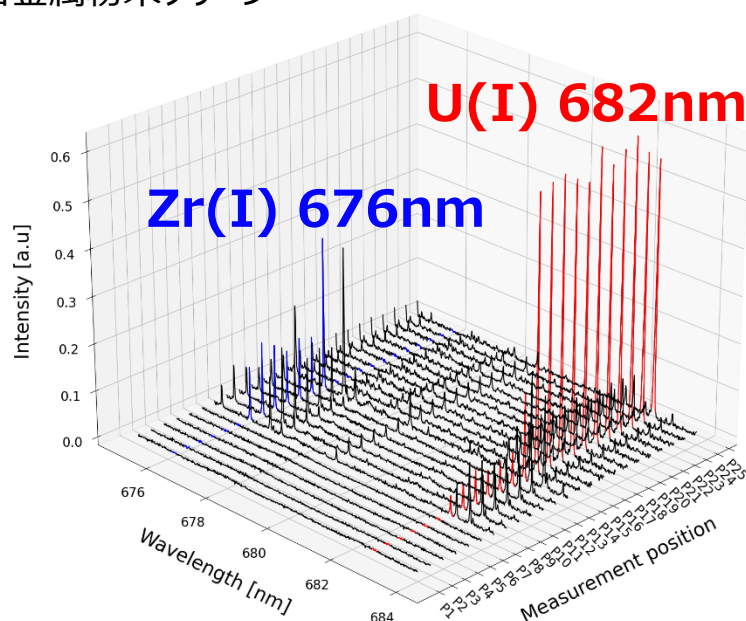
X = 0.5mm

Y = 0.25mm

- 境界では混合相となっているためスポット位置で濃度が異なる。
- 特にZrではその影響が大きいと思われる (スポット径: <100μm)。



拡大

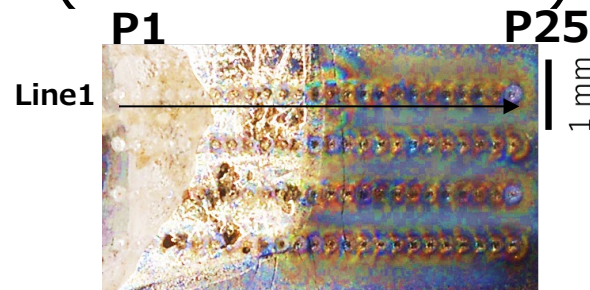


➤空間分解能 >100μm 程度の線分布でSEM-EDSと比較した。

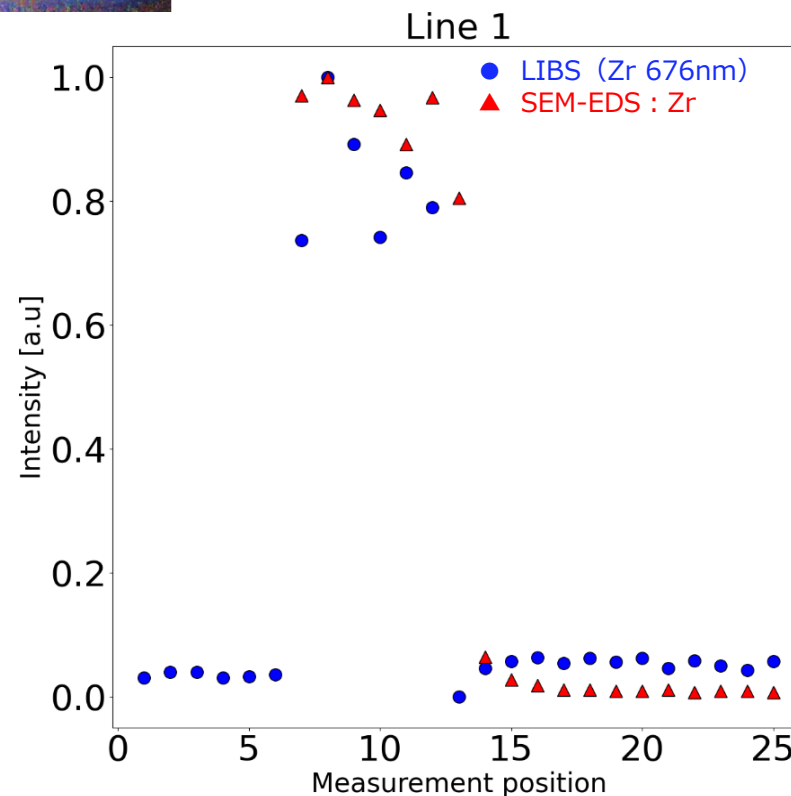
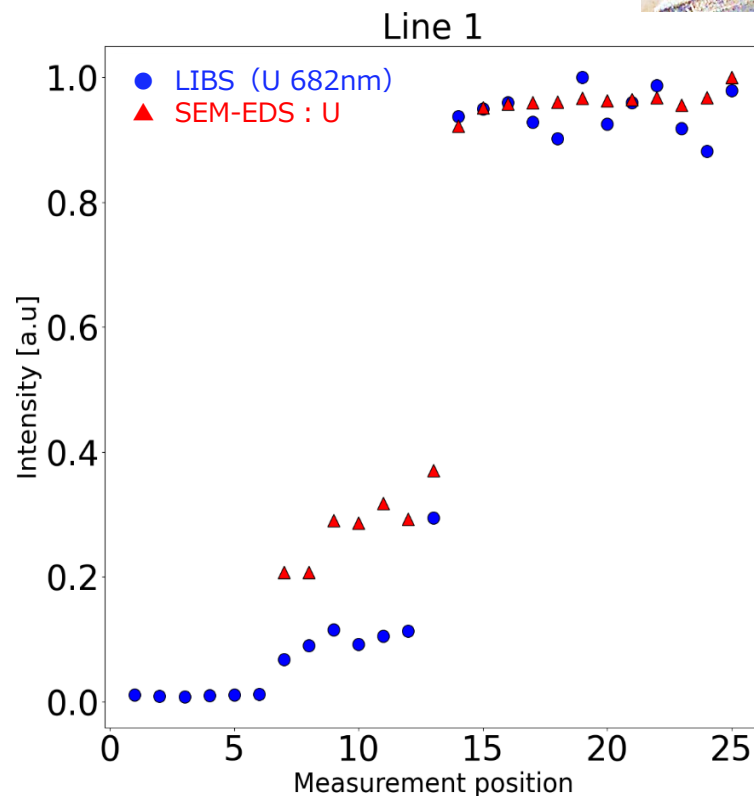
2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料を用いた線分布(マイクロチップLIBS)及びSEM-EDSとの比較(1)



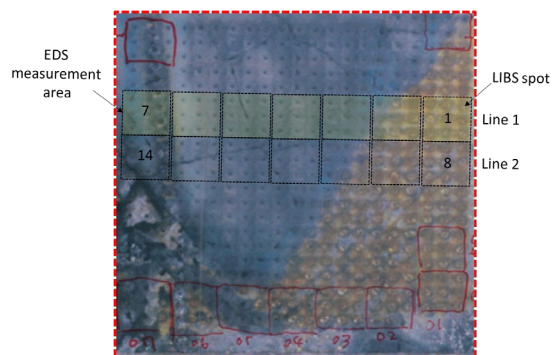
各元素の相対線分布



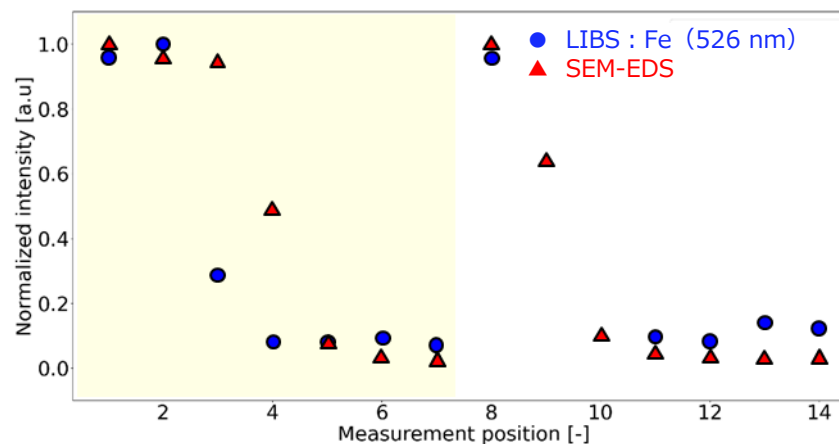
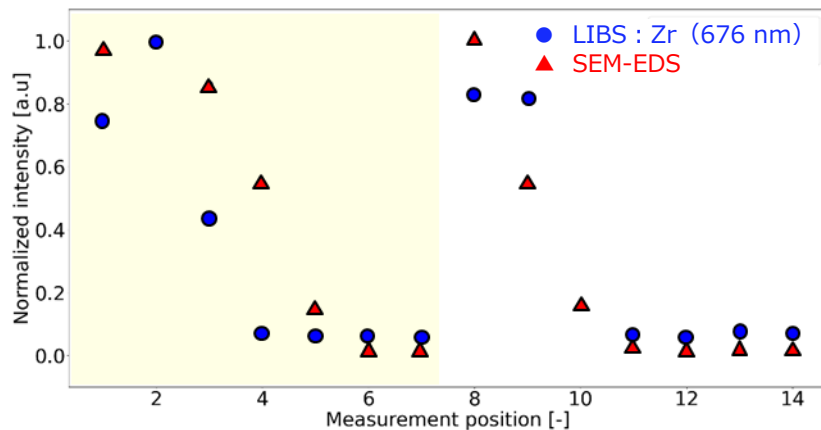
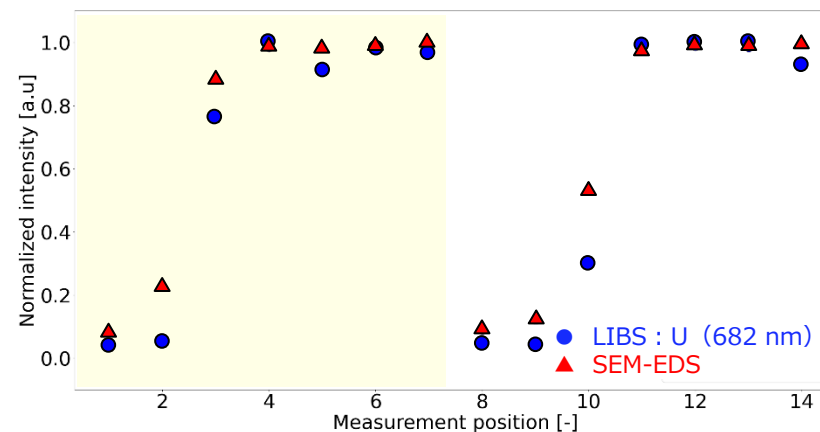
2.7.2 核燃料物質による性能評価

b) 複雑系試料の製作と試験

複雑系試料を用いた線分布(マイクロチップLIBS)及びSEM-EDSとの比較(2)



SEM-EDS測定値：LIBS測定9点の測定領域の平均値

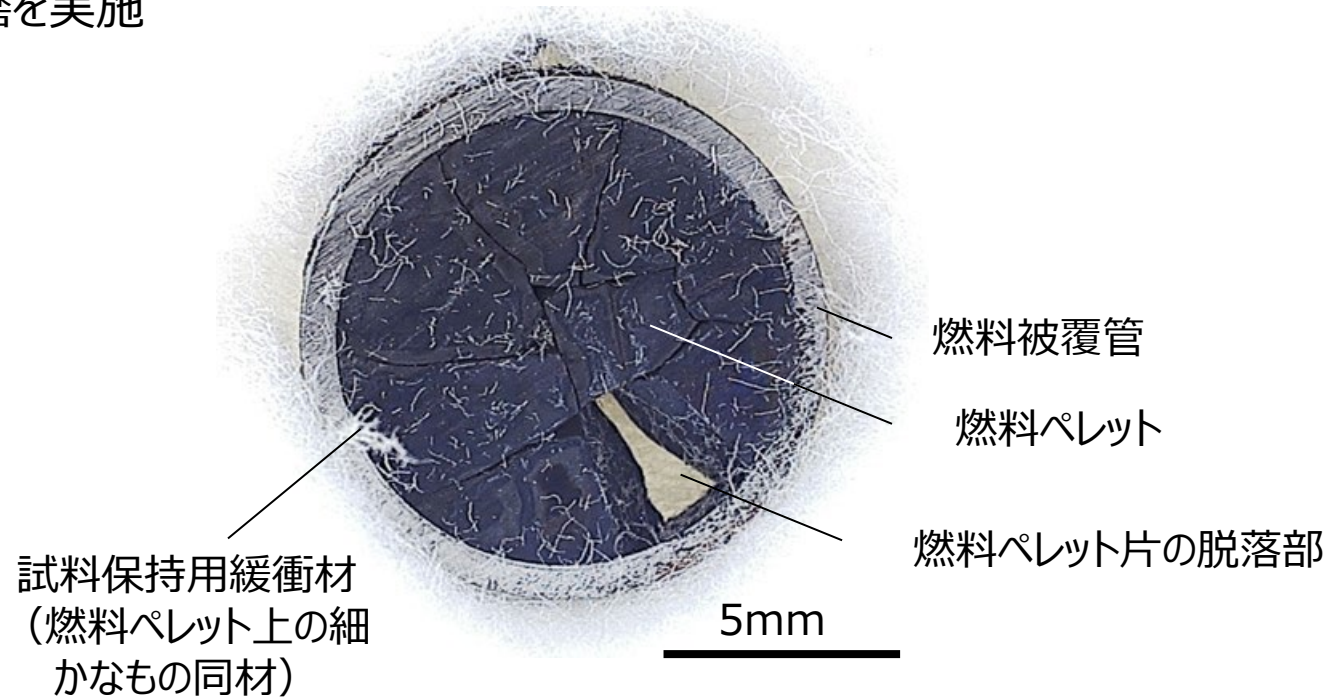


➤ 相対濃度の線分布評価結果から、SEM-EDSでの分析結果と良く一致する傾向が得られた。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

- 使用済燃料棒の高燃焼度位置を活用
(燃料要素平均燃焼度： 56.9GWd/tHM (燃料集合体平均燃焼度： 53.0GWd/tHM))
- 使用済燃料棒から被覆管と燃料ペレットを含んだ2mm厚スライスを切断作業により採取
- 切断作業は乾式で行い、Cs等の水溶性元素の散逸がないように注意
- 樹脂埋め、研磨を実施

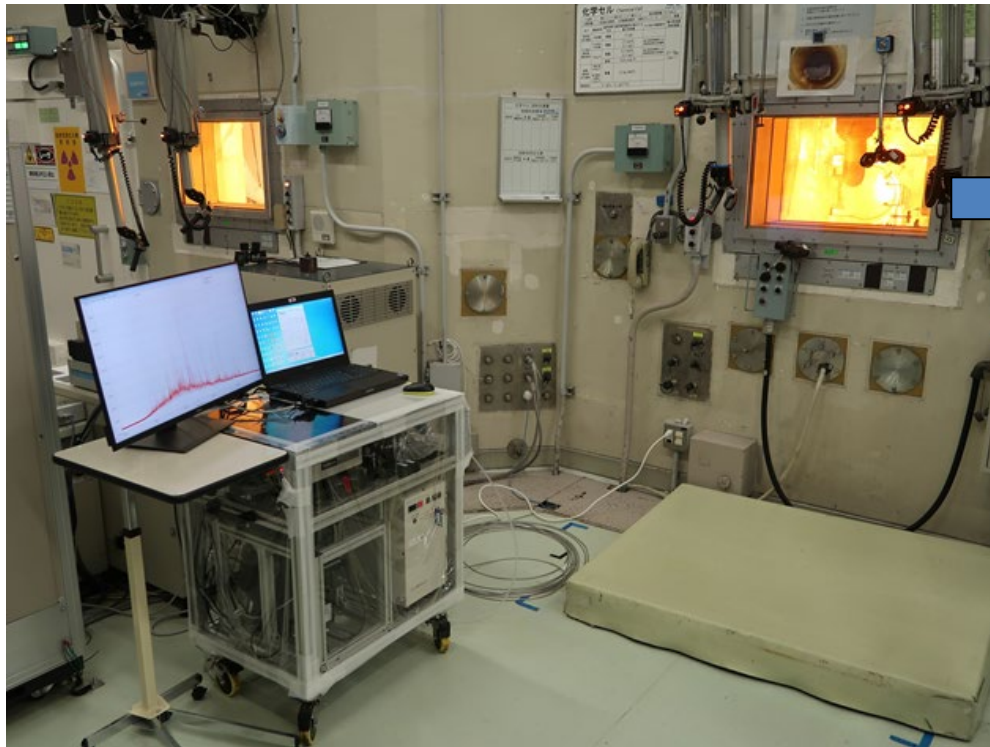


使用済燃料試料断面の外観観察結果

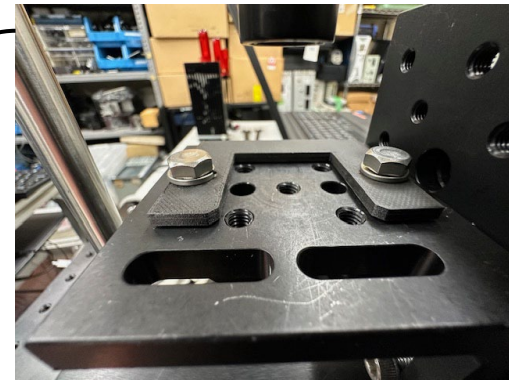
2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

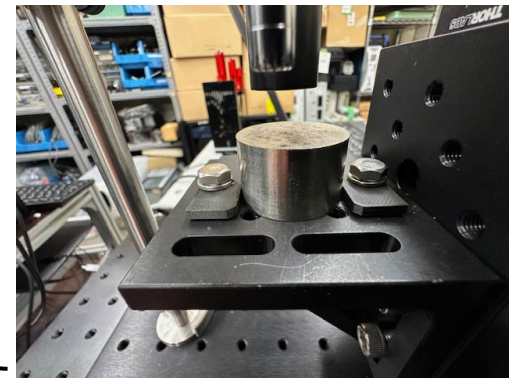
ホットセル施設での準備状況



可搬型光ファイバーLIBS装置の準備
(ホットセルコントロールルーム)



サンプルホルダーを取付けた
XYZステージ



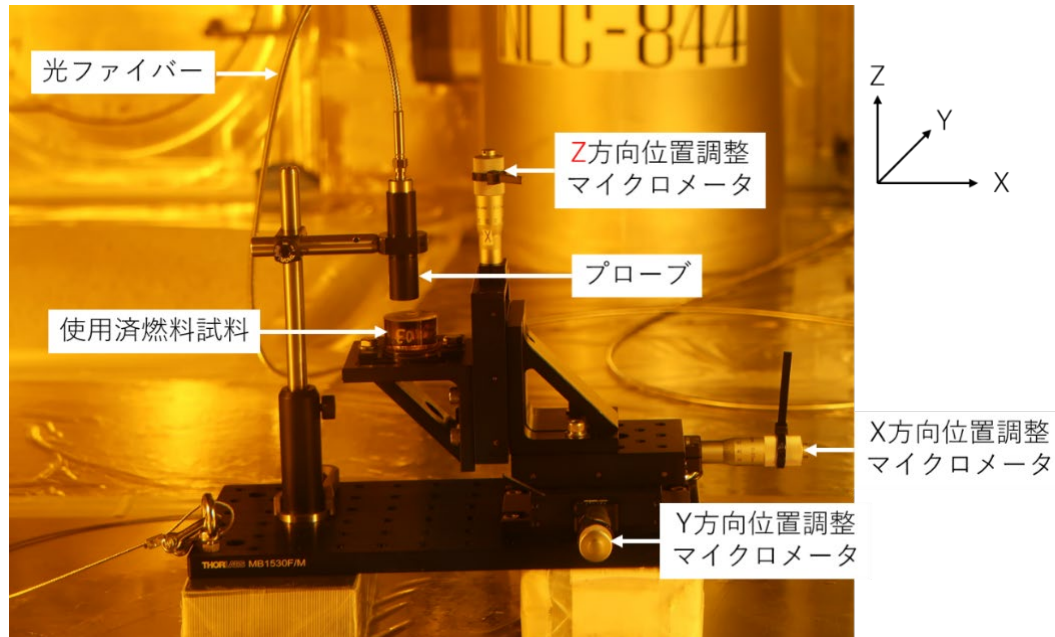
サンプルホルダーセットしたところ

試料ステージの位置合わせ治具の準備

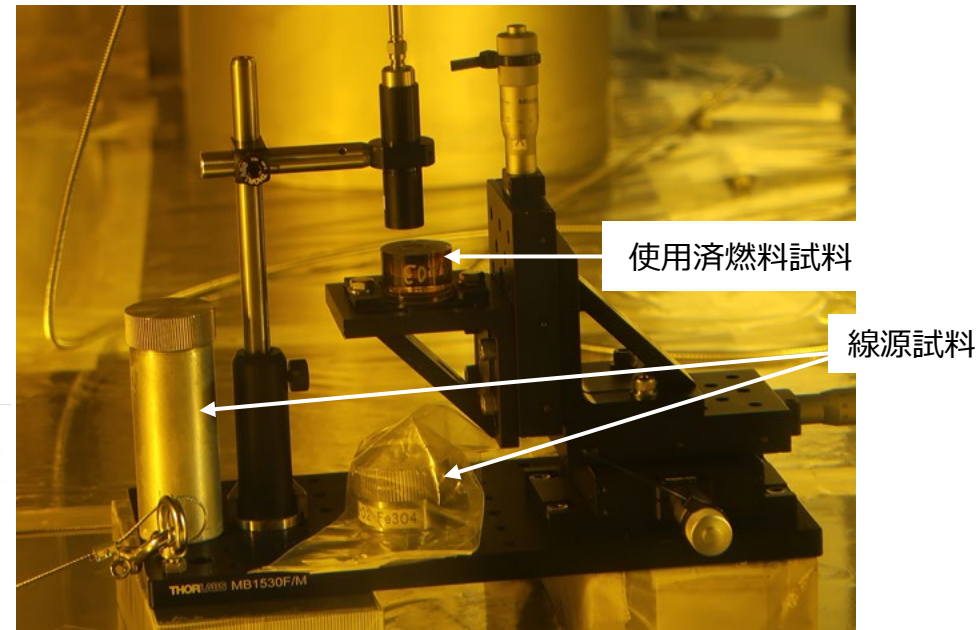
2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

ホットセル施設での準備状況



ホットセル内での試料ステージの準備



高線量率での試料ステージ
(線源試料※により最大線量率：1Sv/h)

※線源試料：照射済燃料粉末

2.7.2 核燃料物質による性能評価

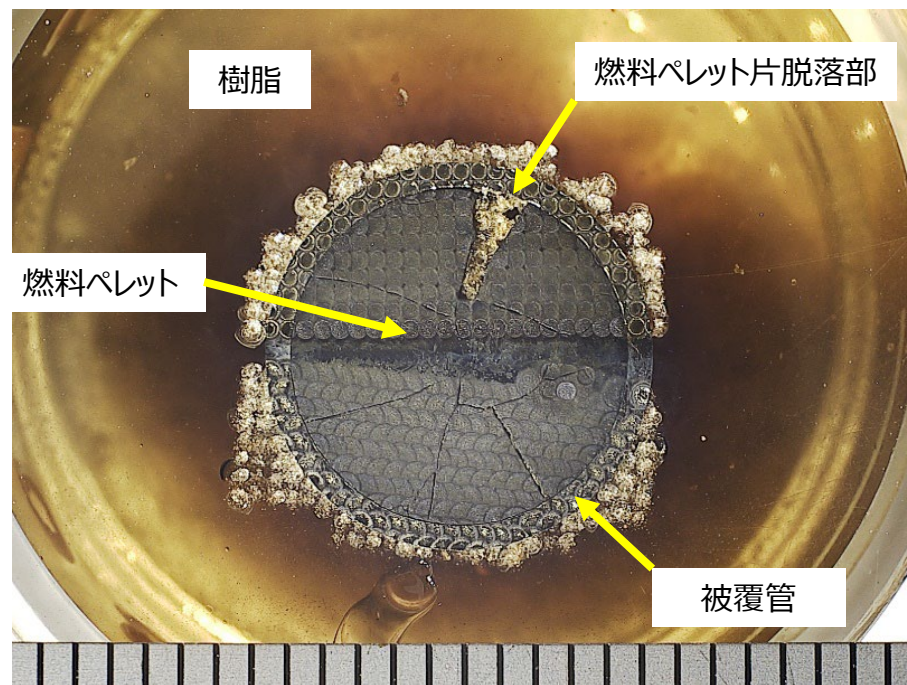
c) 使用済燃料等の試料準備と試験

- ・使用済燃料による高線量率環境でのスペクトル測定
- ・燃料ペレットの断面組成二次元分布評価

XY方向 0.5mm間隔でレーザーを照射し、二次元分布を評価した。



燃料ペレットの断面写真（測定前）



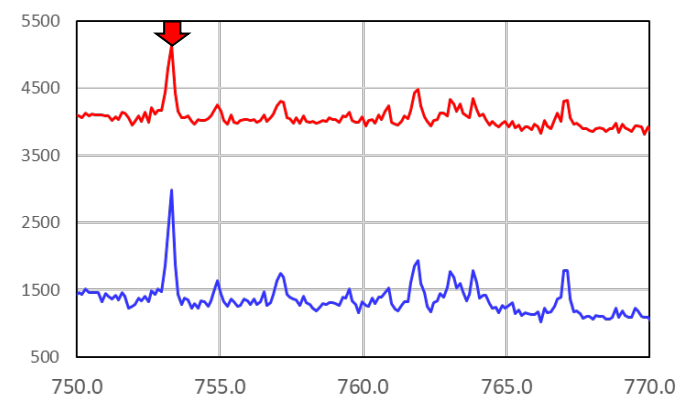
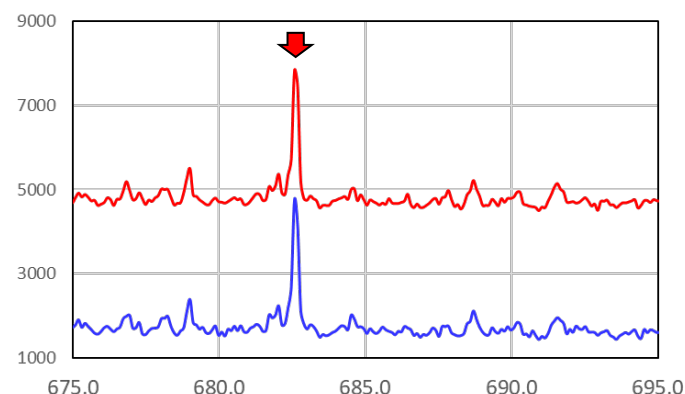
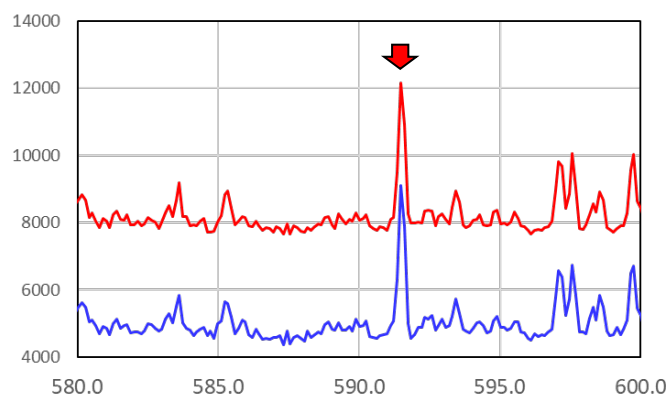
燃料ペレットの断面写真（測定後）

2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

使用済燃料による高線量率環境でのスペクトル測定

線量率の異なる環境での主要なウランのスペクトルを観察



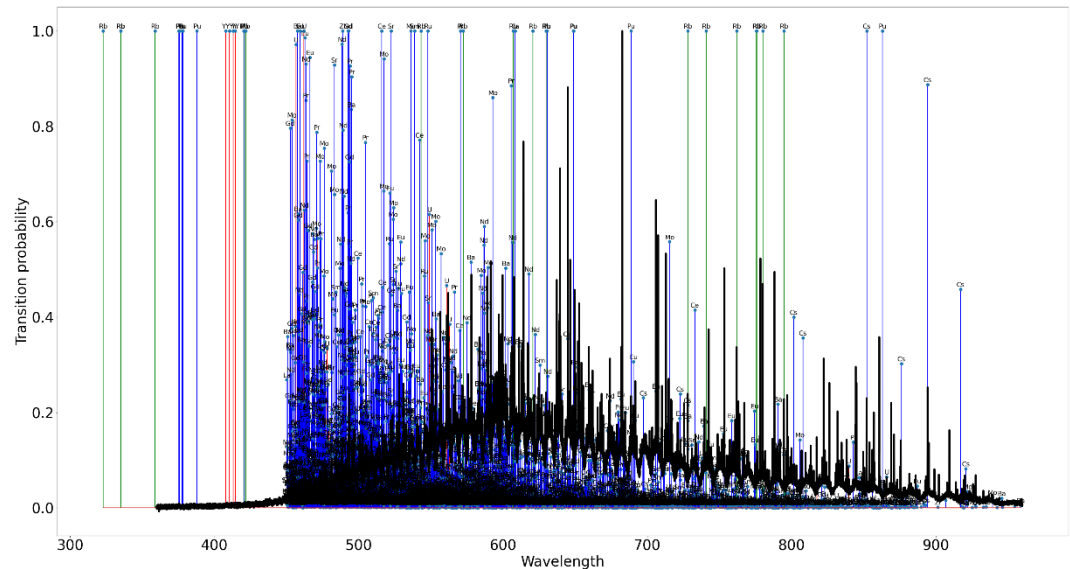
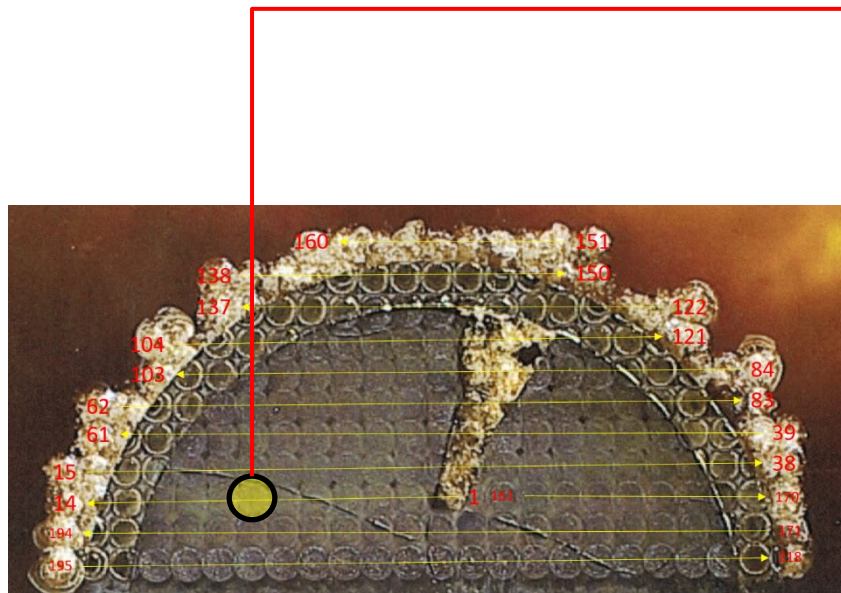
赤線 : 1.0Sv/h (使用済燃料粉末による線源試料を配置した場合)
青線 : 250mSv/h (断面サンプルのみの場合)

➤ 高線量率環境 (1.0Sv/h) でも、使用済燃料からのスペクトル取得に影響は及ばないことを明示した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

燃料ペレットの断面組成二次元分布評価



スペクトルによる元素同定例
(測定点毎に解析)

ジルコニウム、ウラン、セシウム 以外に ストロンチウム、モリブデン、バリウム、ランタン等も確認された。

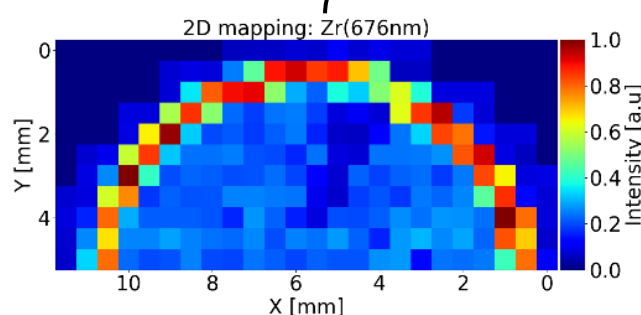
2.7.2 核燃料物質による性能評価

c) 使用済燃料等の試料準備と試験

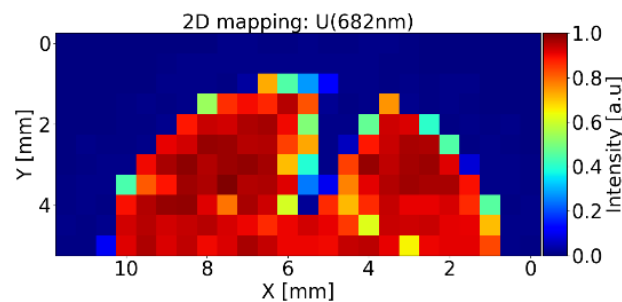
燃料ペレットの断面組成二次元分布評価結果



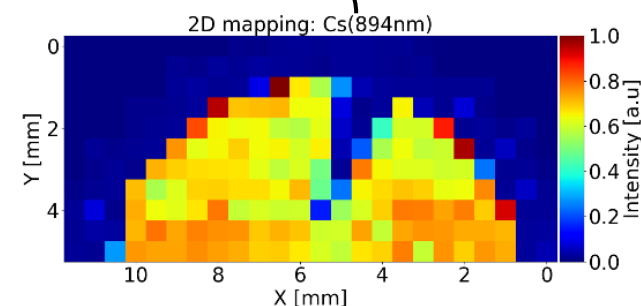
照射済燃料の断面写真



ジルコニウムの分布測定結果



ウランの分布測定結果

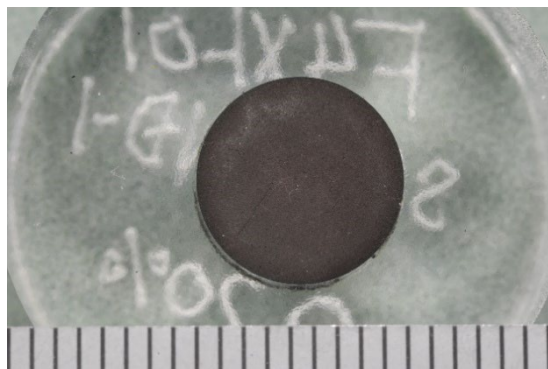


セシウムの分布測定結果

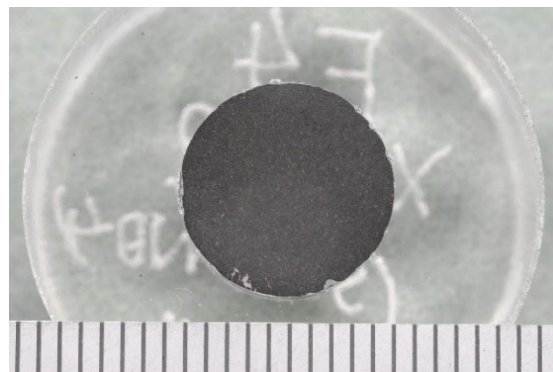
➤ 高線量率環境で、使用済燃料の断面組成分布評価が可能であることを実証した。

2.7.2 核燃料物質による性能評価

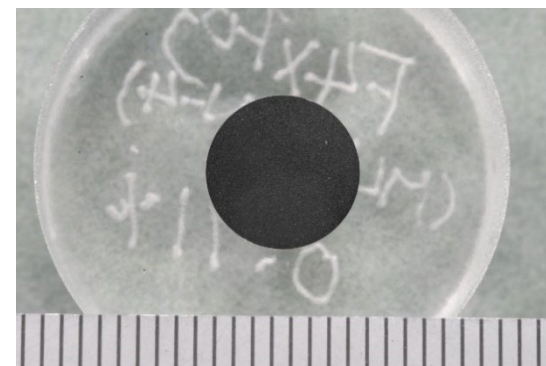
d) 未照射濃縮ウラン試料の製作と試験 製作した未照射濃縮ウラン試料



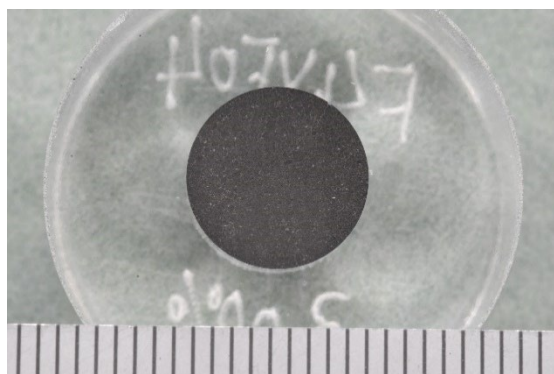
濃縮度0.22%



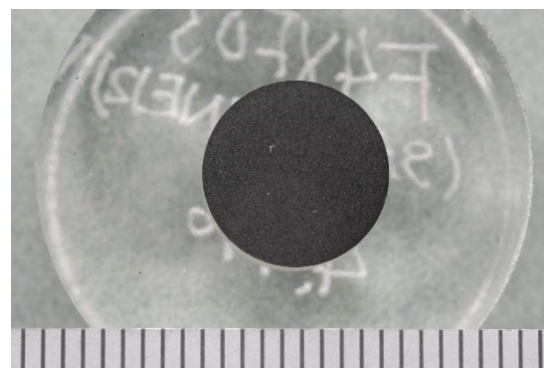
濃縮度0.59%



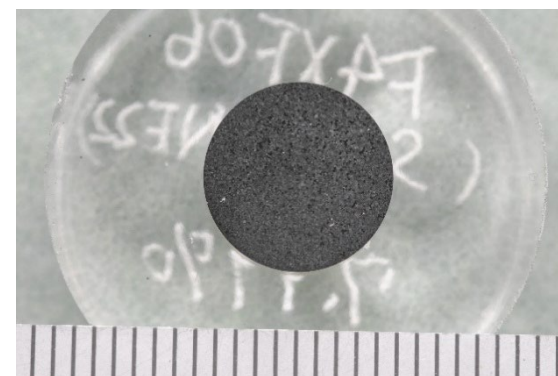
濃縮度0.71%



濃縮度3.26%



濃縮度4.39%



濃縮度7.99%

試験については、「2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発」を参照

2.7.2 核燃料物質による性能評価

まとめ

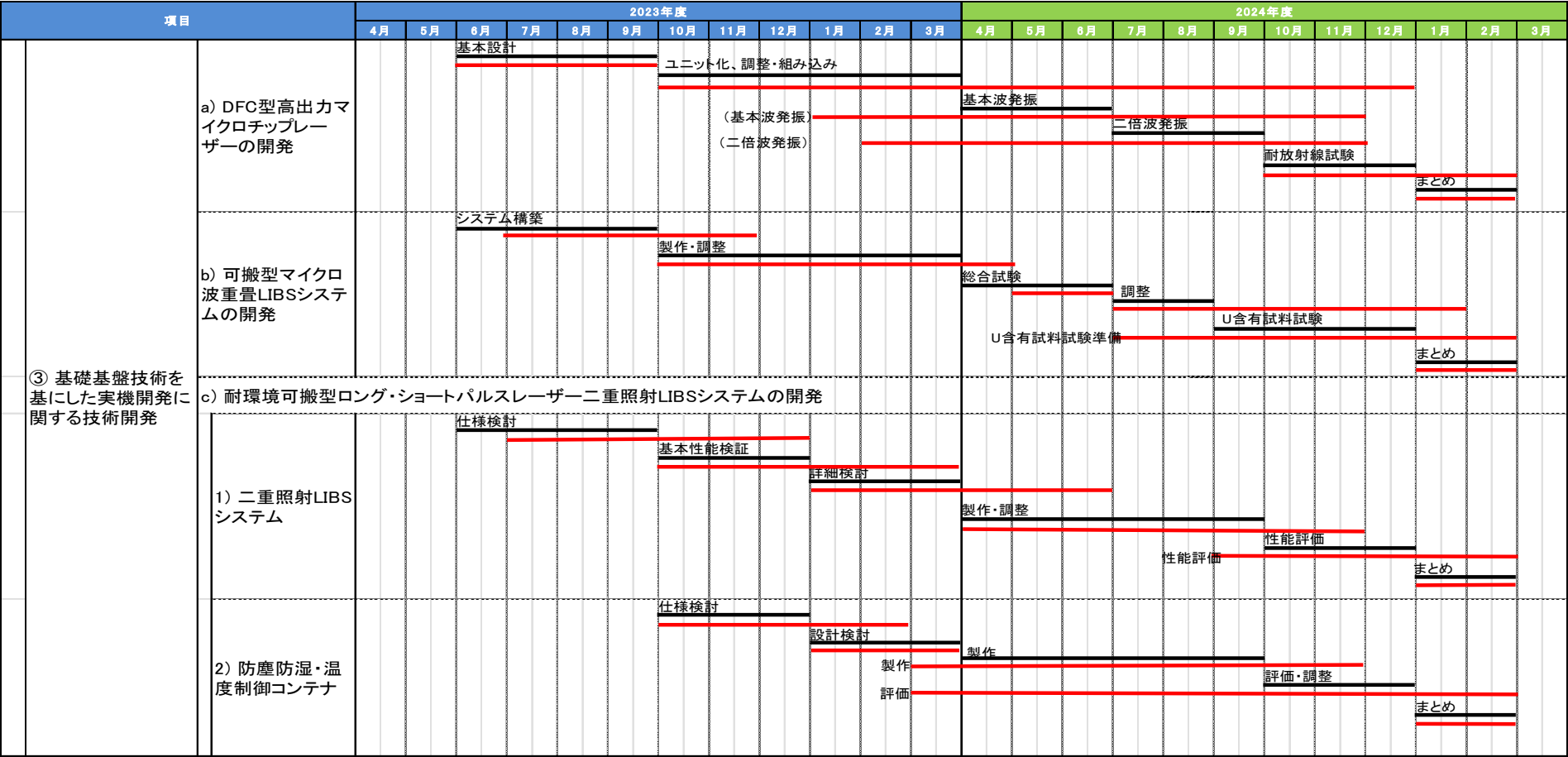
事業終了時の目標指針	実施結果の概要
② 核燃料物質による性能評価 ・未照射ウラン及びジルコニウム、鉄等を含有した試料による分析実績を拡充し、検出下限値が評価できること。 ・照射済燃料を含有した模擬試料を高線量率環境で分析できること。 ・照射済燃料ペレットやTMI-2燃料デブリ（入手可能な場合）の直接分析が可能であること。	U含有率の異なるZr、Fe等の混合標準酸化物試料を活用した検量線から、従来型光ファイバーLIBS、マイクロチップレーザーLIBSの検出下限値が1%弱程度であることを再確認することができた。 組成が一様でない複雑系試料の線分布測定結果をSEM-EDSの測定結果と比較した結果、良い一致が得られ、定性評価に加え組成分布の概評評価ができることを実証した。 使用済燃料粉末を活用して作り出した高線量率雰囲気下（1 Sv/h）でも使用済燃料の分析が可能であることを示すとともに、使用済燃料断面をXY方向に、マトリックス状に多点分析することで、使用済燃料断面の二次元組成分布測定に成功し、燃料デブリの面分布情報を得ることが可能であることを実証した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発
- b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発
- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

【実績工程表】

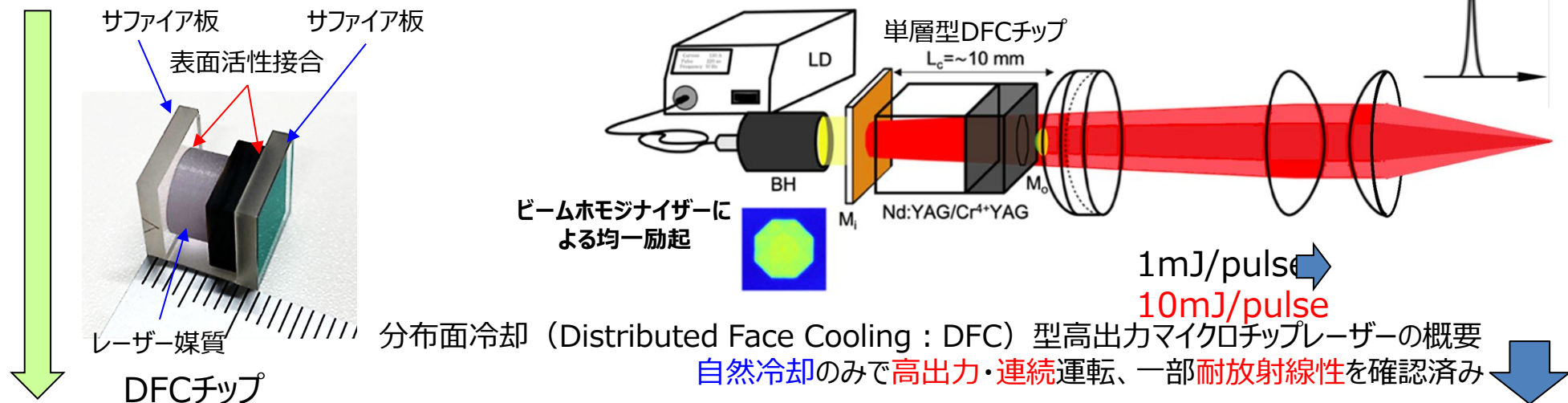
黒線：計画線、赤線：実績線



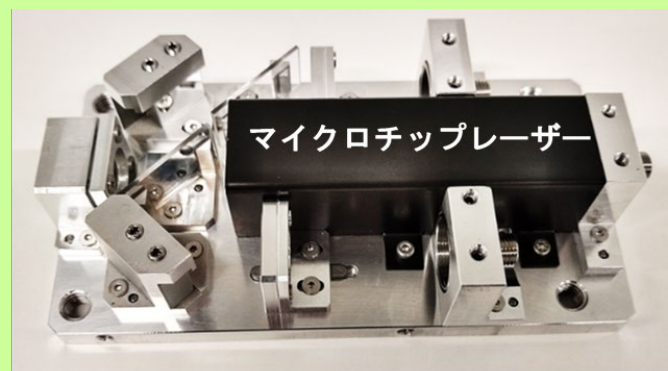
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

【基盤要素】



- ・超長尺 (遠隔) 化
- ・高感度化
- ・二倍高調波による
スペクトル発現性改善
- ・耐放射線性の更なる確認



マイクロチップレーザーを内蔵した
従来型 LIBS プロブ部例 (6 cm × 12 cm)



小型モジュール化
(小出力従来型の例)

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

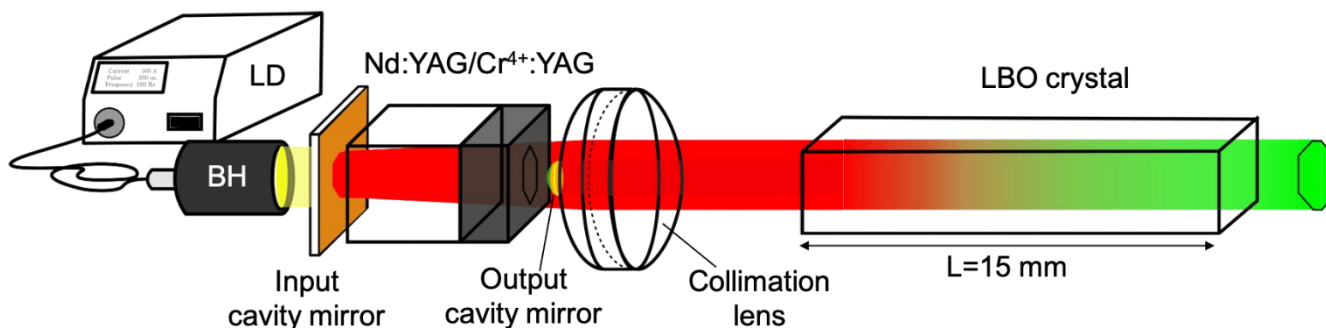
【目標と対応】

- 1) 高線量の放射線環境で高強度のLIBS信号を可能にする、**10mJ**以上のパルスエネルギーを持つ高出力小型レーザーの開発 ▶ **不安定共振器**

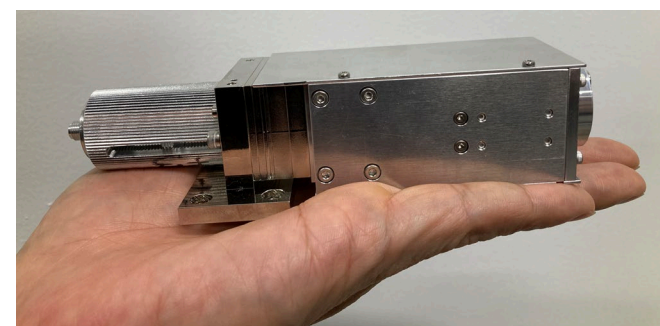
本事業での成果

- 2) 実用的な応用を考慮した自然冷却型レーザーの開発 ▶ **DFCチップ**
- 3) 高線量の放射線環境に耐える第二高調波発生レーザー・モジュールの開発 ▶ **LBO結晶**

LBO (LiB_3O_5) : 三ホウ酸リチウム



第二高調波発生妥当性検証実験



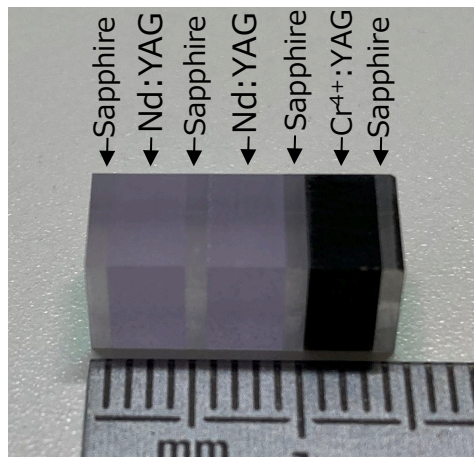
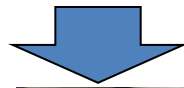
第二高調波発生
プロトタイプモジュール

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

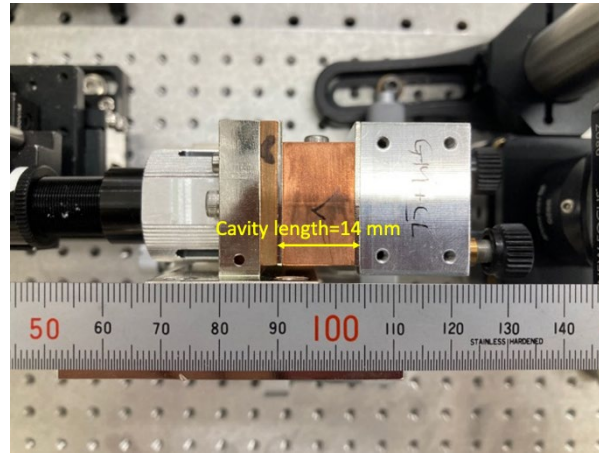
a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

DFCチップ試作および不安定共振器・第二高調波出力の評価

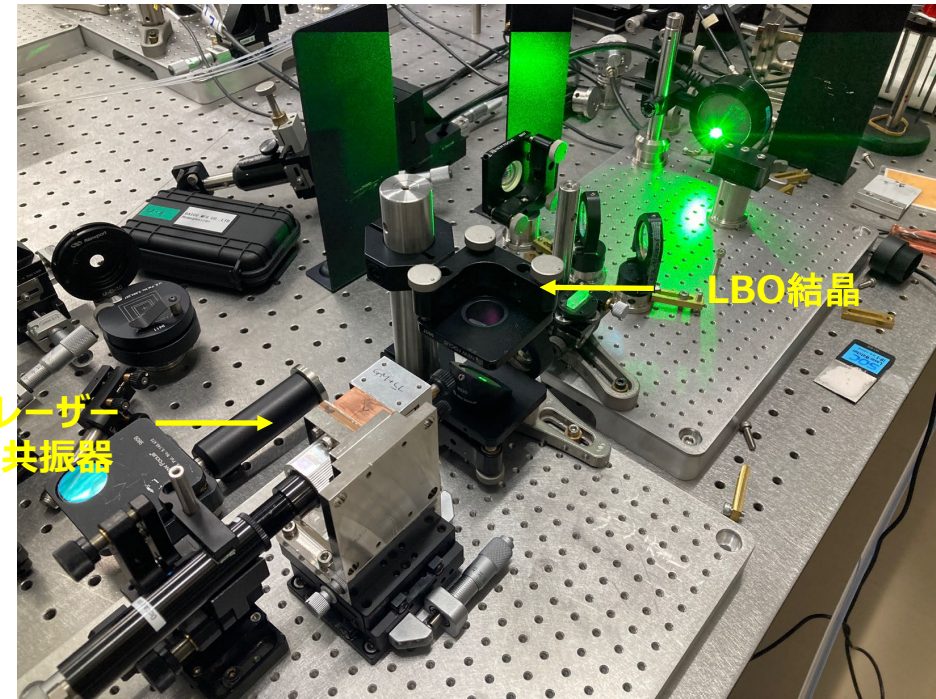
高品位レーザーの出力による不安定性改善
(主にチップ固有の性能)



新規DFCチップ



不安定共振器部

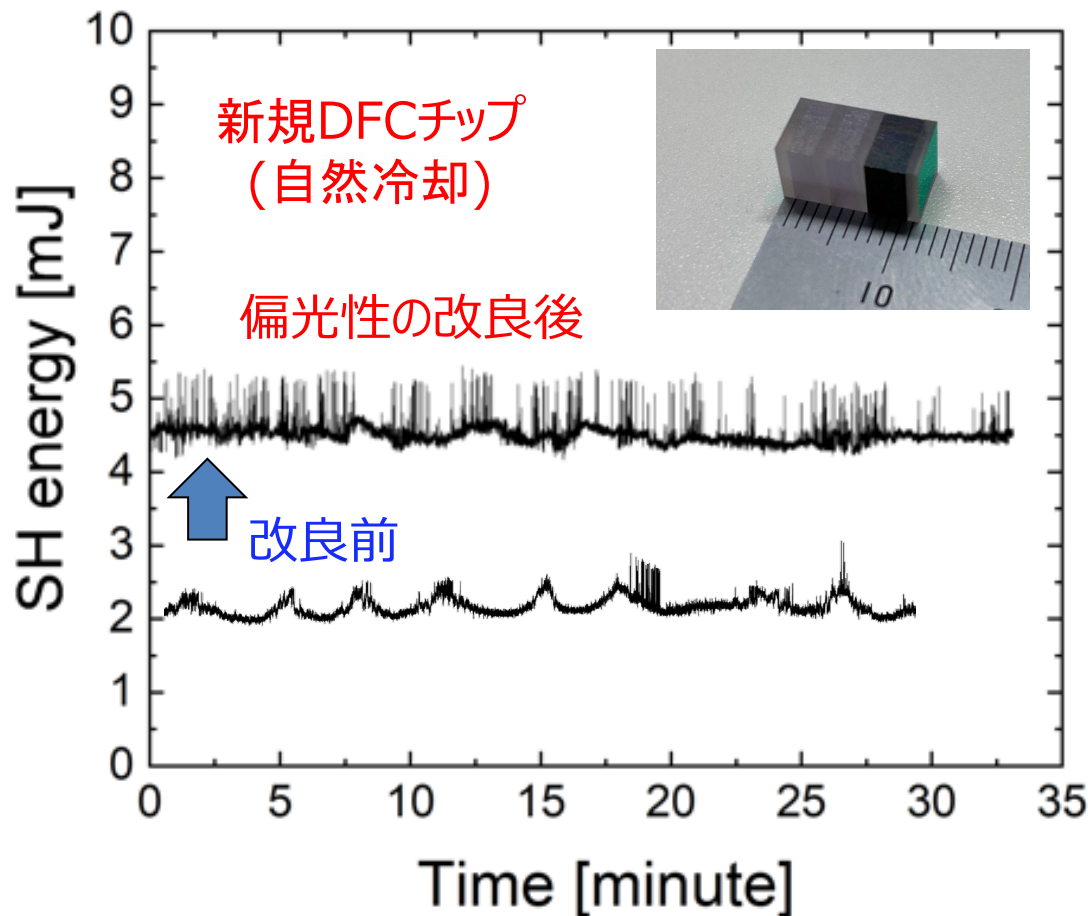


第二高調波発生検証実験構成

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

第二高調波変換効率の改善



偏光性改良後 (前改良前)

第二高調波特性

- エネルギー: **4.5mJ** (**2mJ**)
- パルス幅: 0.65ns
- $M^2 \approx 4$
- 繰り返し: 10Hz
- 環境: 自然冷却
- 変換効率: **34%** 集光無 (**20%**)

基本波特性

- エネルギー: **13.4mJ** (**10mJ**)
- パルス幅: 0.7ns
- 繰り返し: 10Hz
- 環境: 自然冷却
- 偏光比: >90%
- $M^2 < 3$

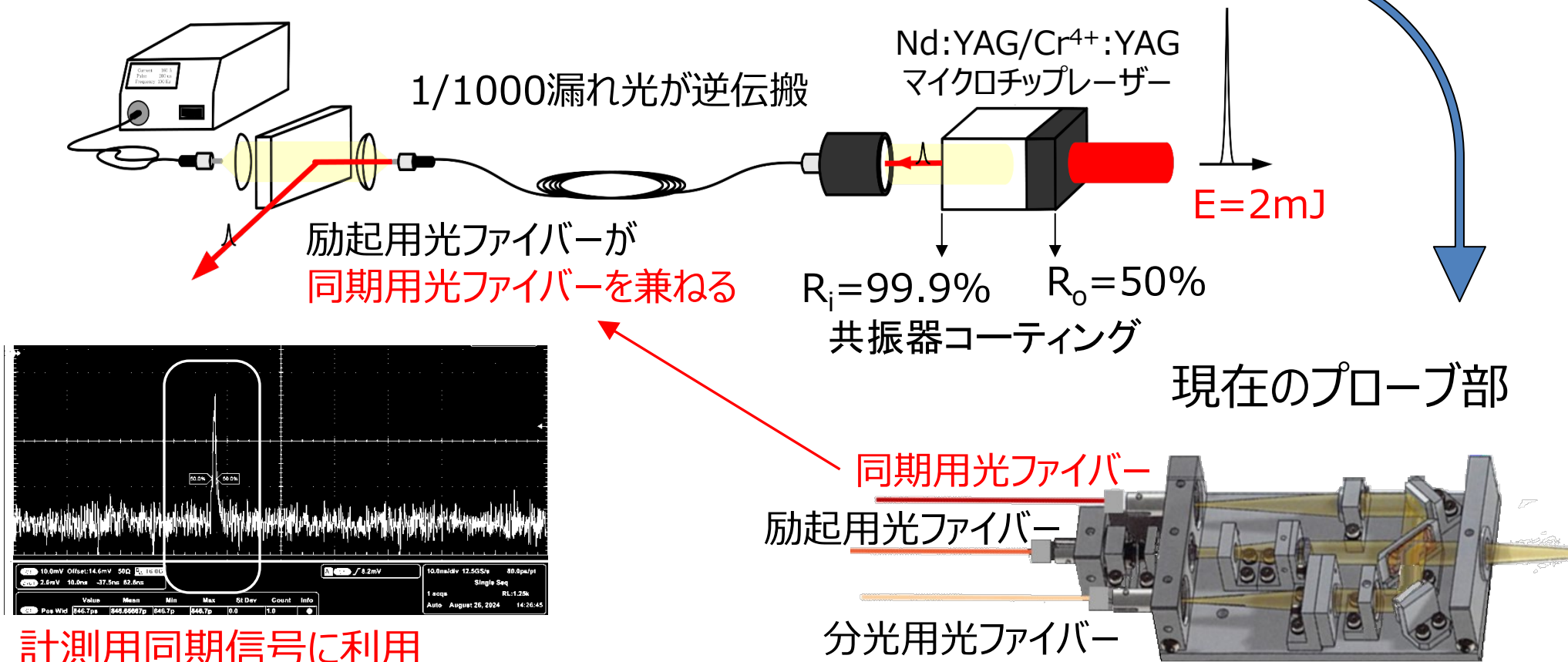
➤ 高出力化と直線偏光の安定化により、第二高調波出力および変換効率の向上に成功した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

光源モジュール化のための同期信号の取得検討

現在、励起用・分光用・同期用の3本の光ファイバーが必要

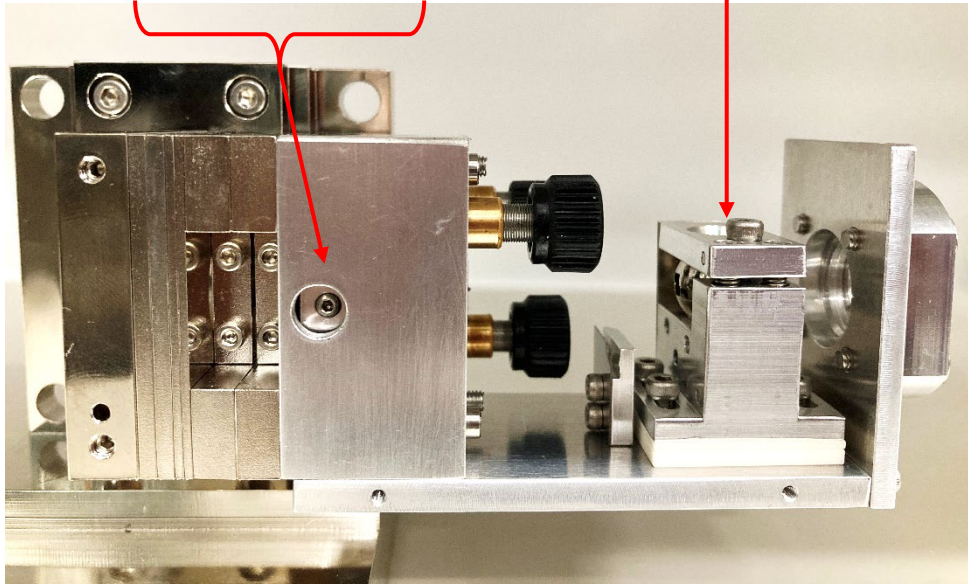
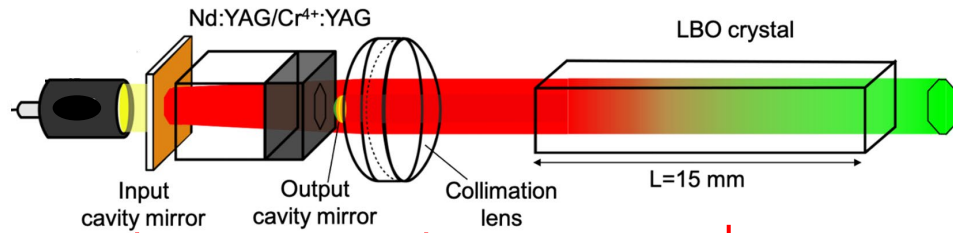


➤ レーザー漏れ光パルスによる同期信号を取得し、光ファイバーを3本から2本に削減した。

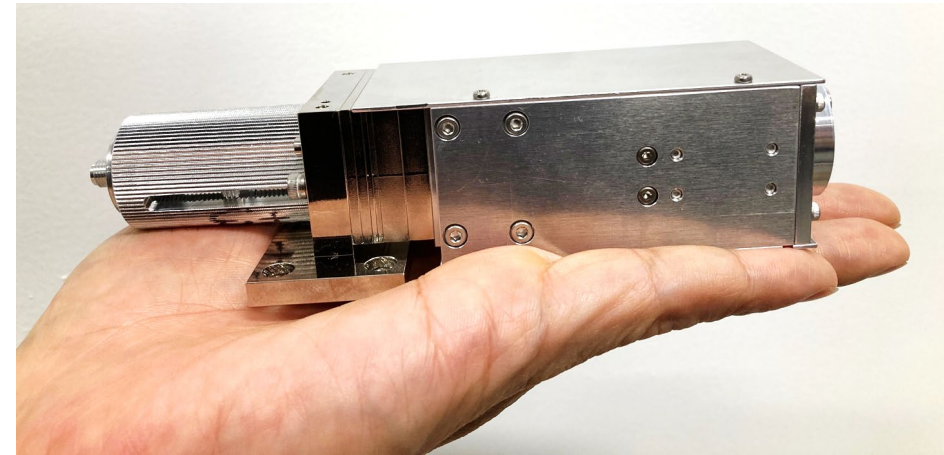
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

DFCチップベースの第二高調波発生レーザー・モジュールの開発



内部構造の概要



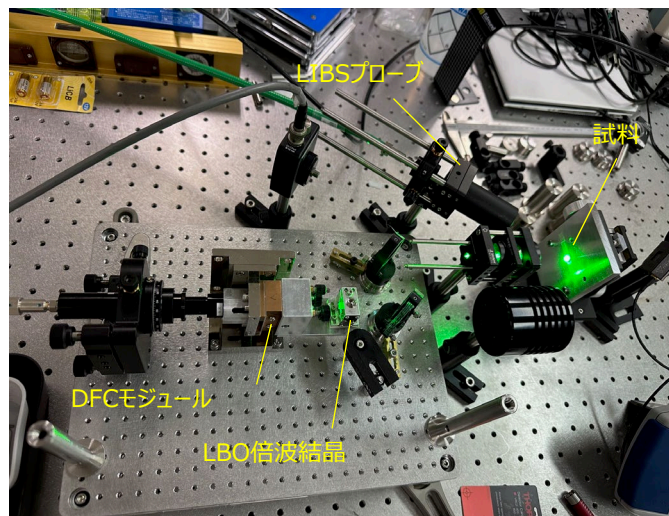
外観

➤ レーザー光源をモジュール化し、耐放射線試験・分光試験に供した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

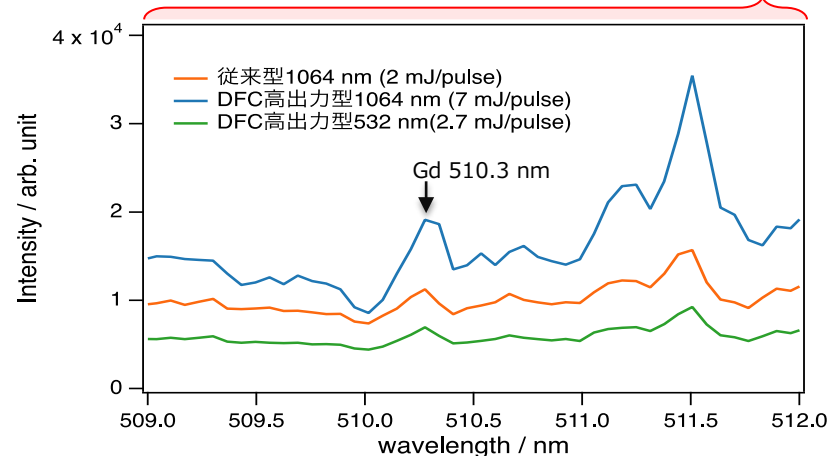
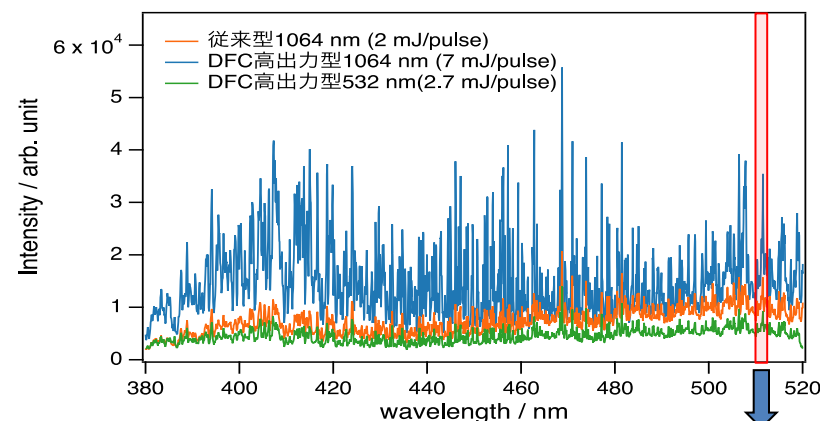
a) DFC型高出力マイクロチップレーザーの開発

高出力マイクロチップレーザーによるLIBS信号 (Gd含有Ce酸化物中のGd信号)



信号強度とバックグラウンド比のまとめ

励起レーザー光源	エネルギー (mJ/pulse)	信号強度 (a.u.)	SBR
従来型 1064 nm	2.0	3165	0.39
DFC型1064 nm	7.0	7281	0.61
DFC型 532 nm	2.7	2049	0.42

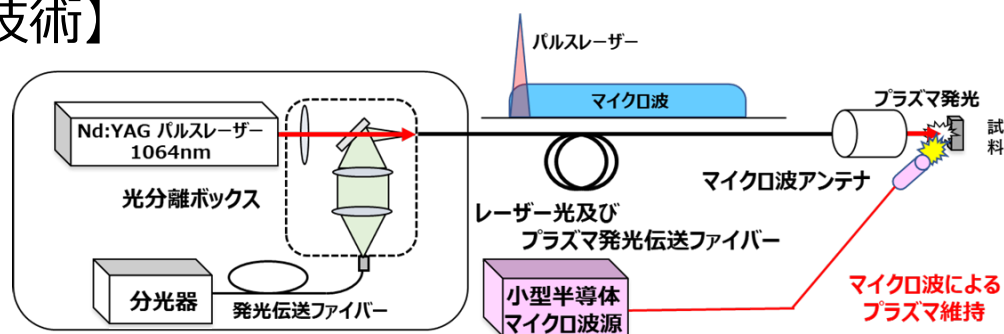


- 高強度レーザー光照射や短波長化は、他の方法では実現できない。
- 高強度レーザーにより2倍以上の信号強度改善が図られる一方、バックグラウンドも増大し、現状ではスペクトル解析性能を改善できるほどの効果は得られなかった。

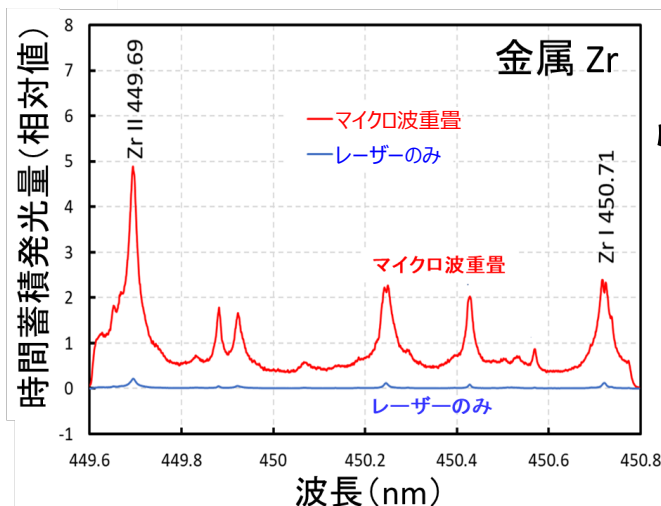
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発 (英知事業の成果活用)

【基盤技術】



マイクロ波重畳 LIBS システムの構成概要



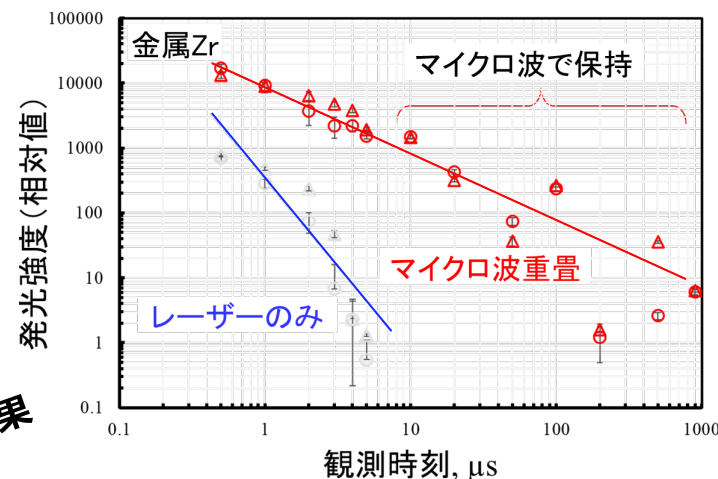
時間蓄積によるマイクロ波重畳スペクトル例
(超高分解能分光器)

信号の時間蓄積による増倍効果

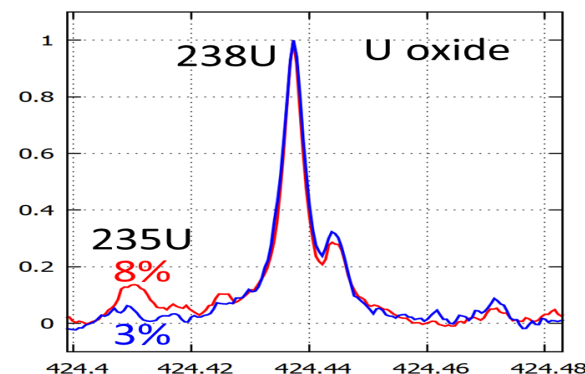
濃縮ウラン酸化物への適用



超高分解能分光器
 $\lambda/150,000$
 $\delta\lambda: \sim 3\text{pm}$



観測時刻, μs
マイクロ波エネルギーの重畳により、
プラズマ発光を保持



濃縮度の試験的な計測例

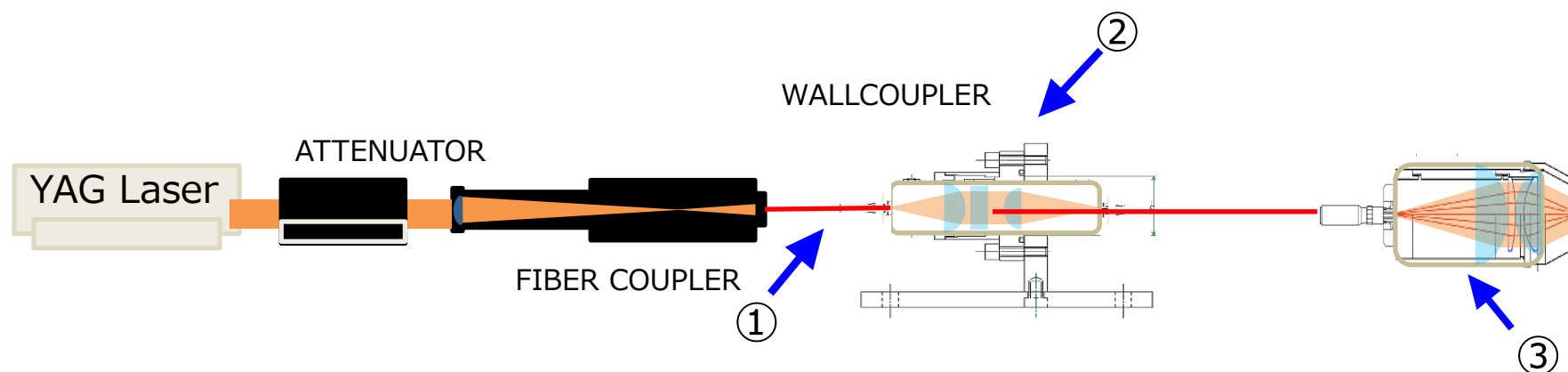
信号強度 > 10倍、超高波長分解能化によるウラン同位体簡易分析の実現

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

構成コンポーネントの整備

(光ファイバー結合部・壁貫通光学系、センサー光学系)



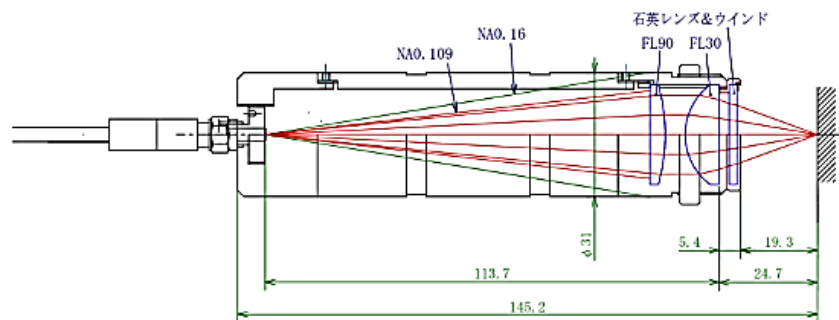
	Component	Condition	試作No. J2302D05 (% Transmission)	試作No. J2302D08 (% Transmission)
①	Fiber Coupling	Without fiber	100	100
		With Fiber	91	91
②	Partition Wall Fiber Connector	Without fiber	81	81
		With fiber	68	68
③	LIBS sensor	Sensor 1	46	48
		Sensor 2	46	49
		Sensor 3	46	55
Average Transmission:			45.6	50.8

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

構成コンポーネントの整備：LIBSセンサ部のNAと透過効率の最適化

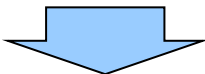
NA (Numerical Aperture)：開口数



NA = 0.18

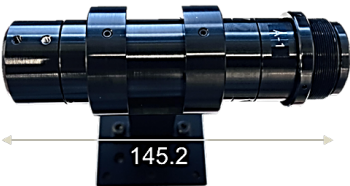
光の収束性から
実効的な開口数を確認

透過率を基にLIBSセンサ部 C型：NA=0.18（高NA）を採択

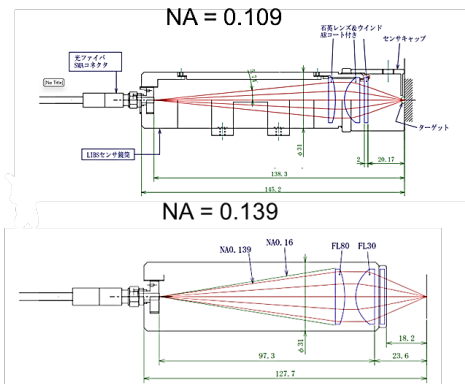


試作したNAの異なるLIBSセンサ部

A型（低NA）



B型（中NA）



C型LIBSセンサ部の光軸調整による透過効率評価

B型LIBSセンサ 光軸調整個体番号	連続レーザー光 による評価	パルスレーザー光 による評価
	設計NA=0.18	設計NA=0.18
C-1	77.60%	70.98%
C-2	79.00%	71.00%
C-3	79.50%	81.27%

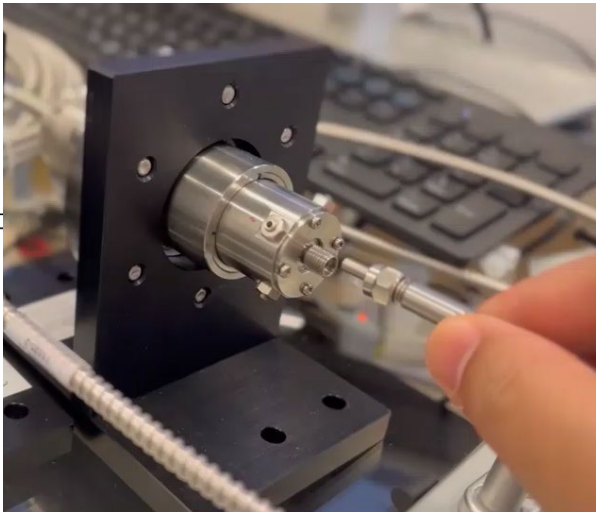
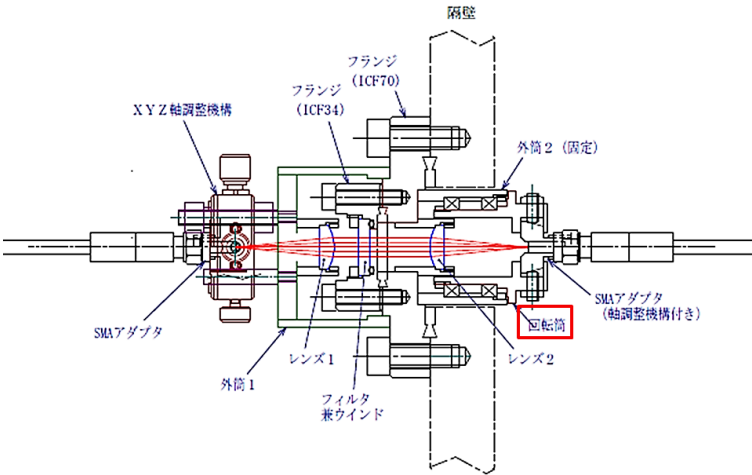
同一設計でも光軸調整により性能が若干異なる

最大透過効率：81 %

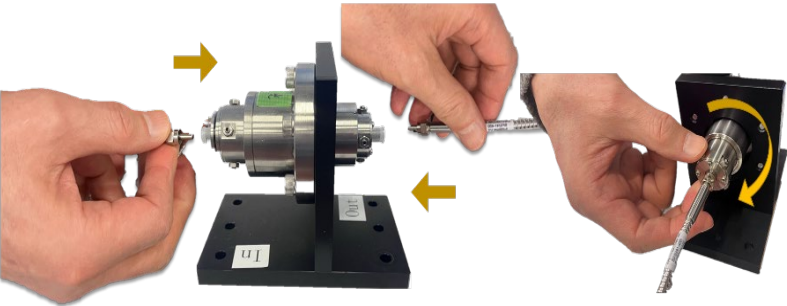
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

特長的要素技術開発成果：隔壁貫通（密封）型回転光ファイバーコネクタ



隔壁部分は
メタルガasketフランジで封止



光学仕様

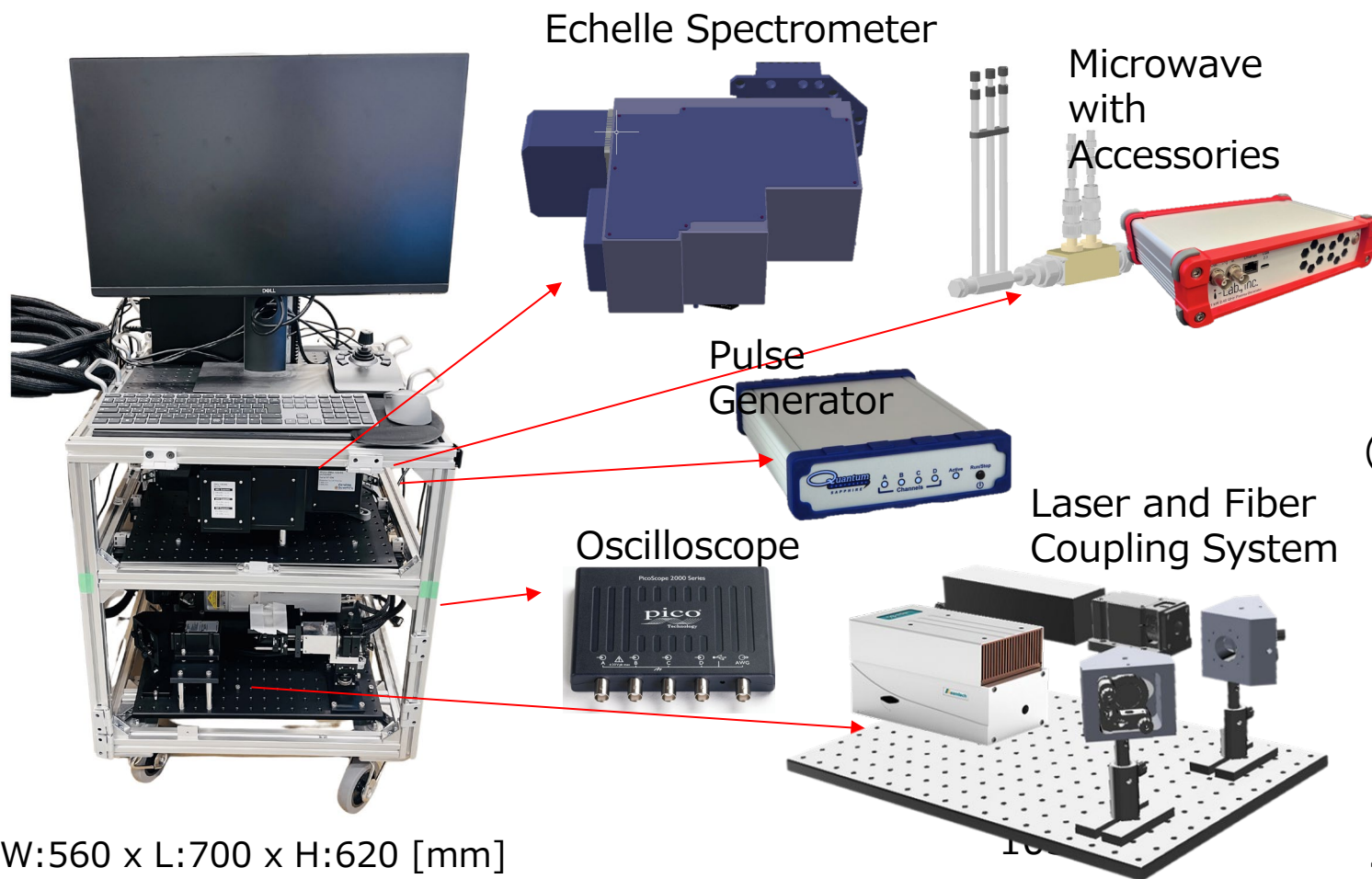
回転筒 回転角	入射パワー	出射パワー	通光効率	
			コネクタ×受 光ファイバ	コネクタ単独
度	mW	mW	%	%
0	19.52	17.61	90.2%	
90		17.58	90.1%	
180		17.60	90.2%	
270		17.68	90.6%	
平均	19.52	17.62	90.3%	92.7%

利用上の利便性向上として画期的な要素技術の活用

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

システム架台（筐体）への組み込み



1) MW機能を付加して従来型と同等の容積
700x560x620 [mm]
(従来品660x560x700 [mm])

2) 分光器/光学部の耐震対策は足部にばね付きボールプランジャを使用し、XY方向についてはバネを付けた構造

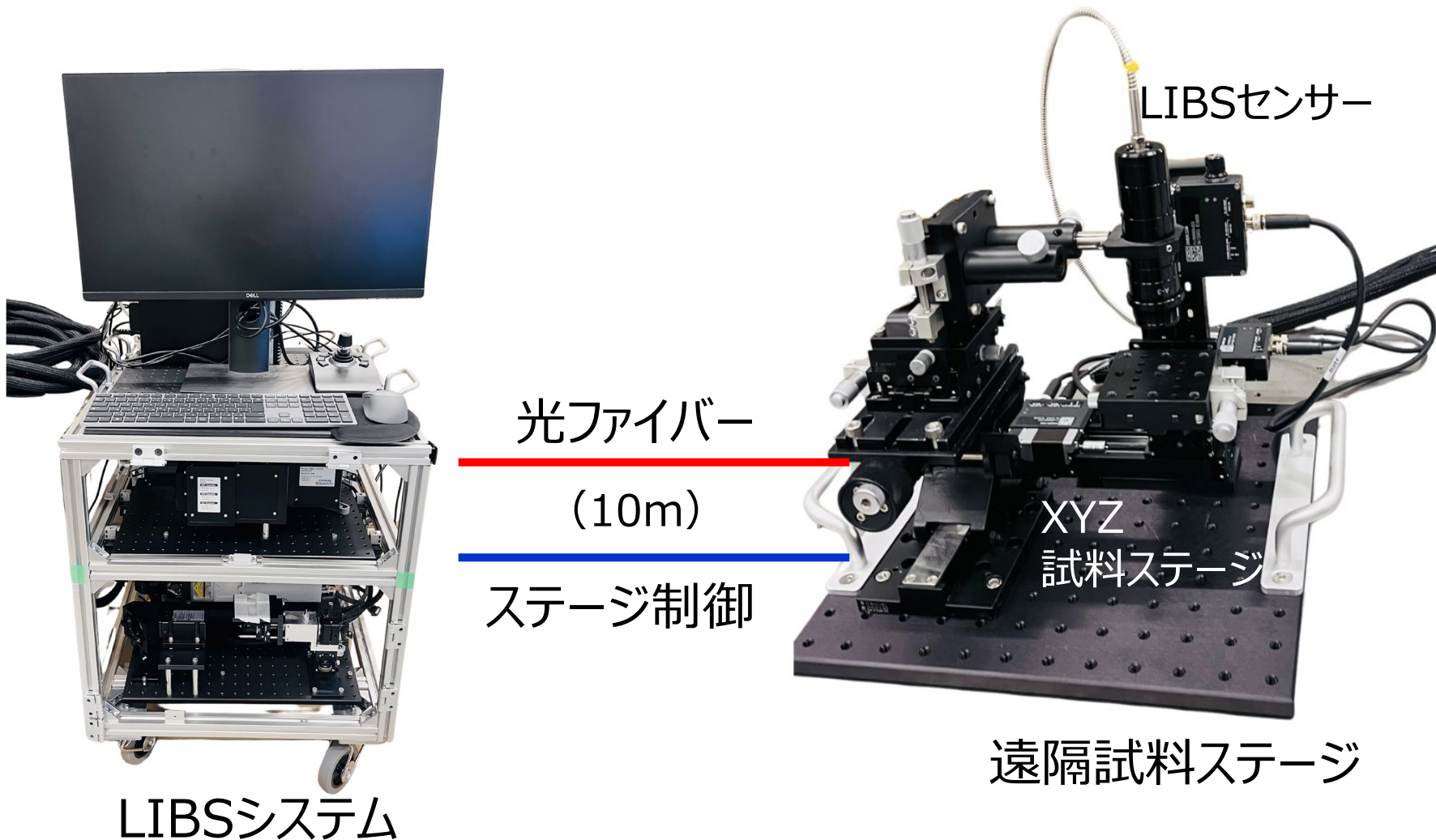
3) モニタは軽量モニターアームで取り付け

4) 外壁はアクリル板

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

LIBSシステムと遠隔試料ステージの構成

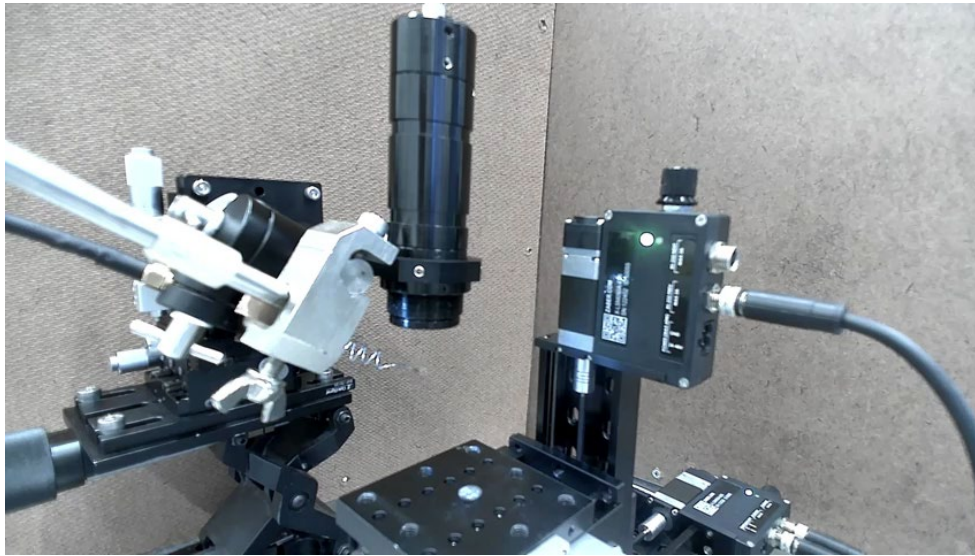


2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

LIBSシステムと遠隔試料ステージの動き

アンテナ外付け型の場合

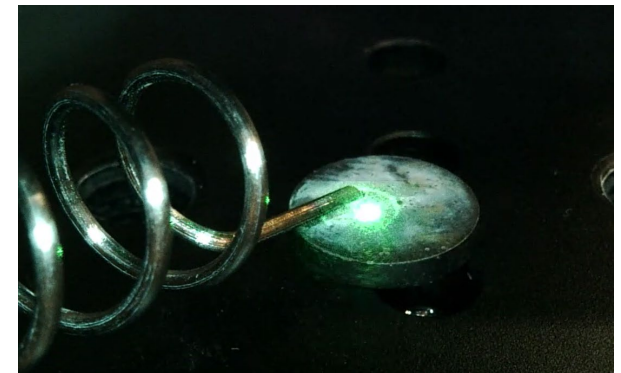


遠隔試料ステージの動作

外付け型では、試料に対して焦点位置、アンテナの位置の調整を要し、最適位置を見出す条件が複雑である。



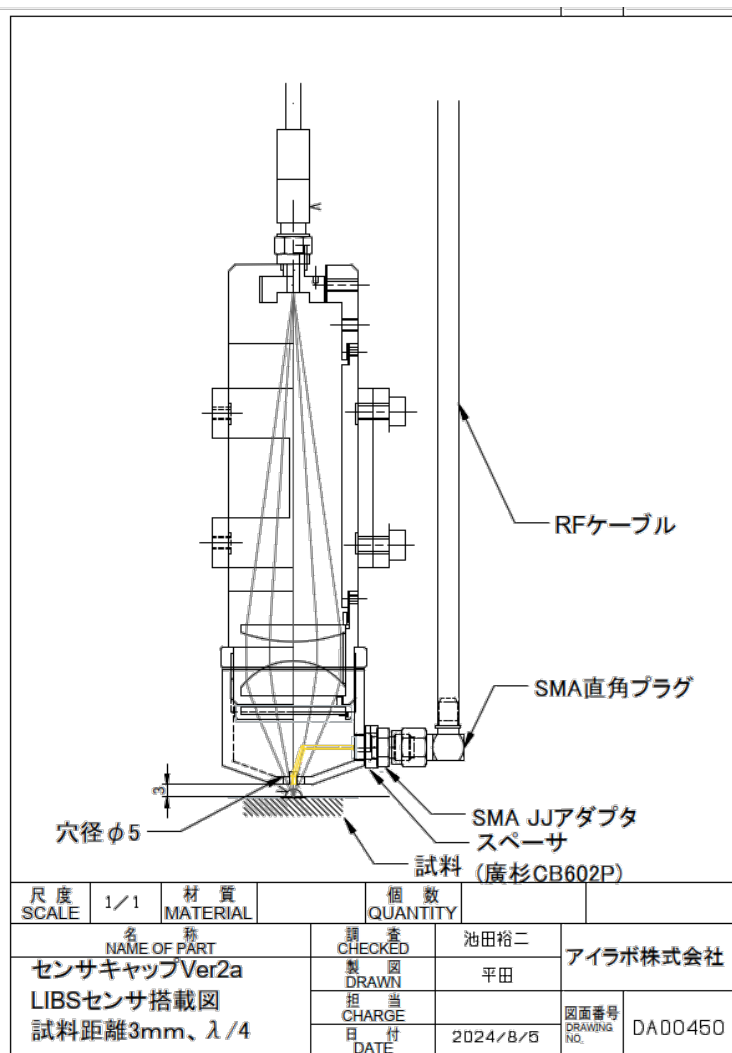
マイクロ波による発光状況



2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

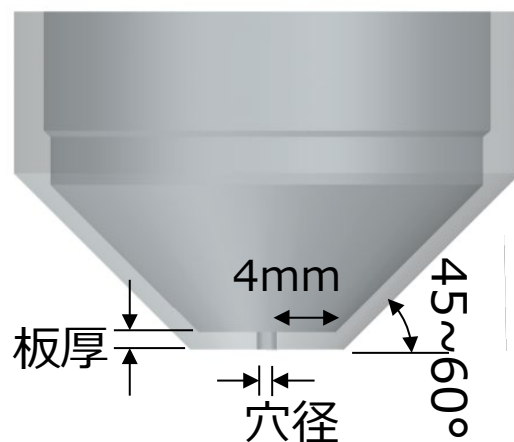
b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

プローブヘッドカバーと内蔵固定アンテナの設計（より簡便な活用のために）

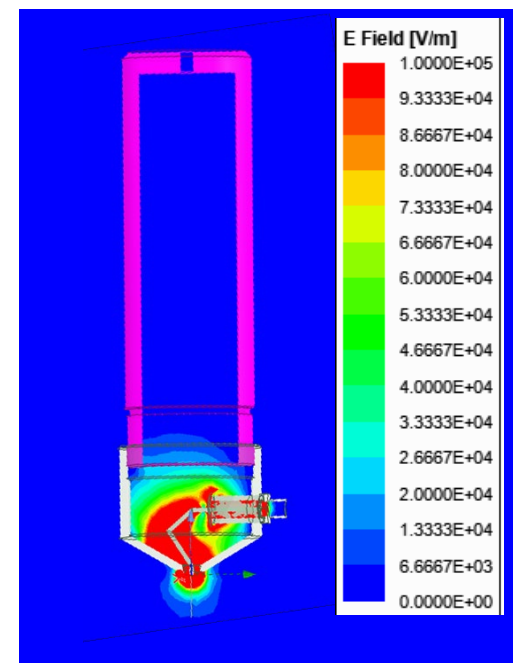


LIBS ヘッドカバーの新規設計方針

- 1) 先端角度 45°～60°
- 2) 先端穴径は漏洩電界が最大となる
最小径：1.3mm
- 3) 先端部板厚：1.2mm
- 4) アンテナ構造
先端形状は円筒、尖らす、楕円球構造
各種材料
- 5) 耐熱対策としてパンチング板構造を
検討。LIBSセンサへ影響しない



電場強度計算

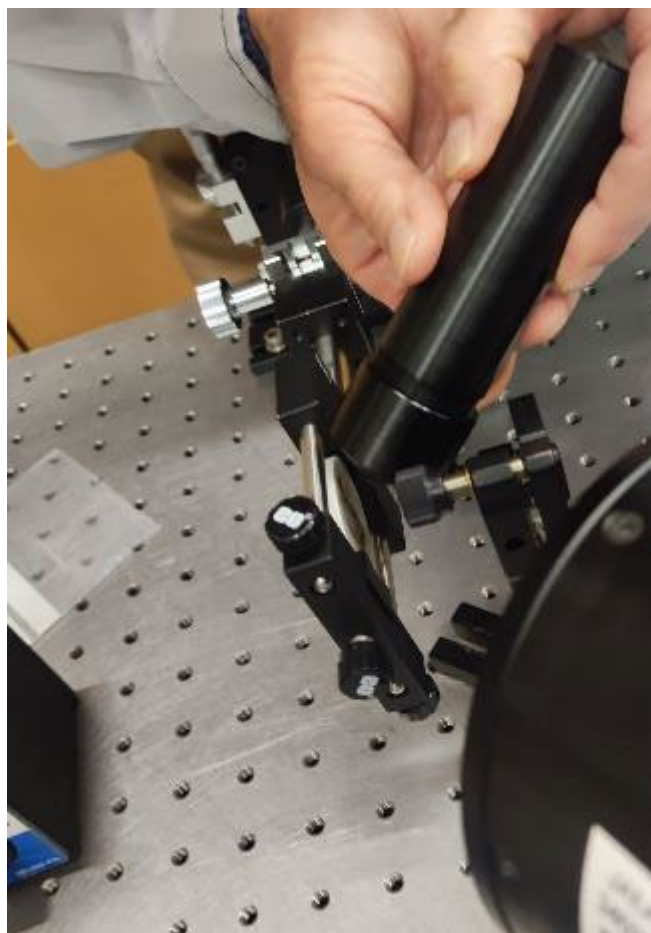


試作して形状を選定した。

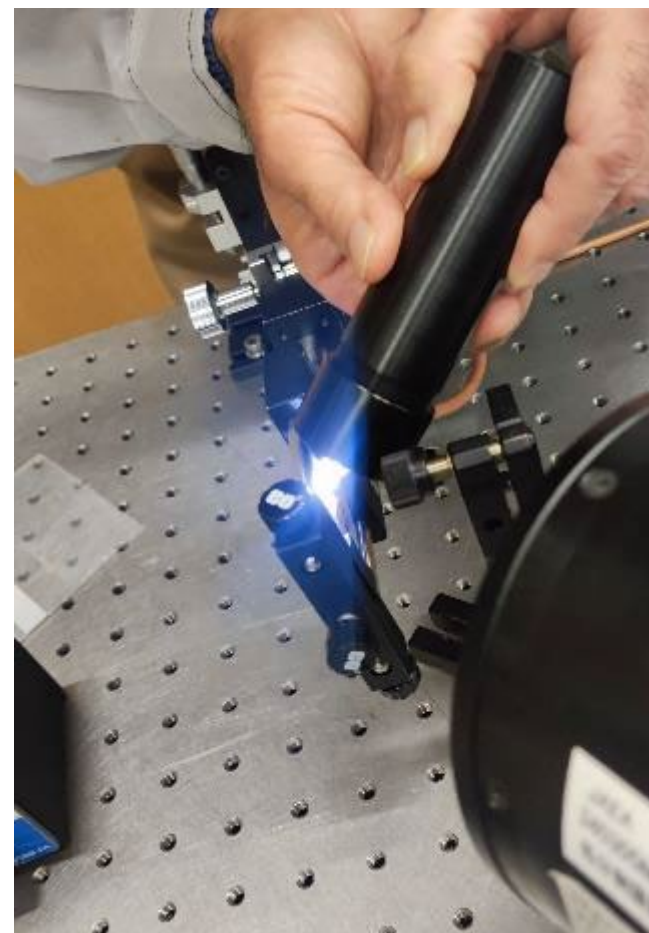
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

新規内蔵固定アンテナの開発（動作試験）



マイクロ波（MW）のみでは発光しない



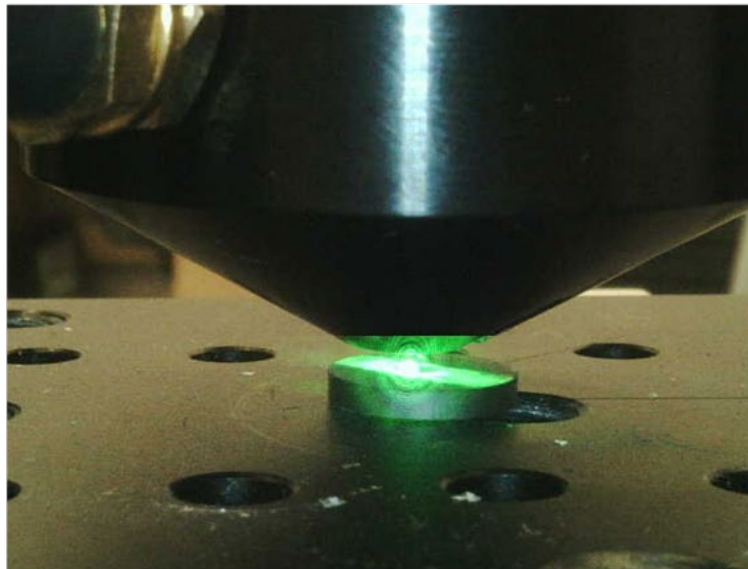
MW-LIBSで発光量の増大が確認できる

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

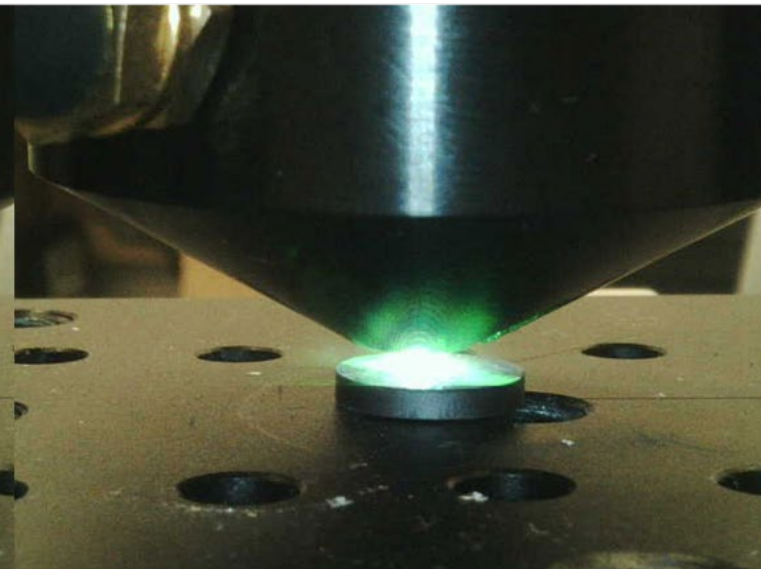
b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

内蔵固定アンテナの開発（動作試験）

Without MW



With MW



Antenna Material: Cu

Laser: 1 mJ, 532 nm, 10 Hz

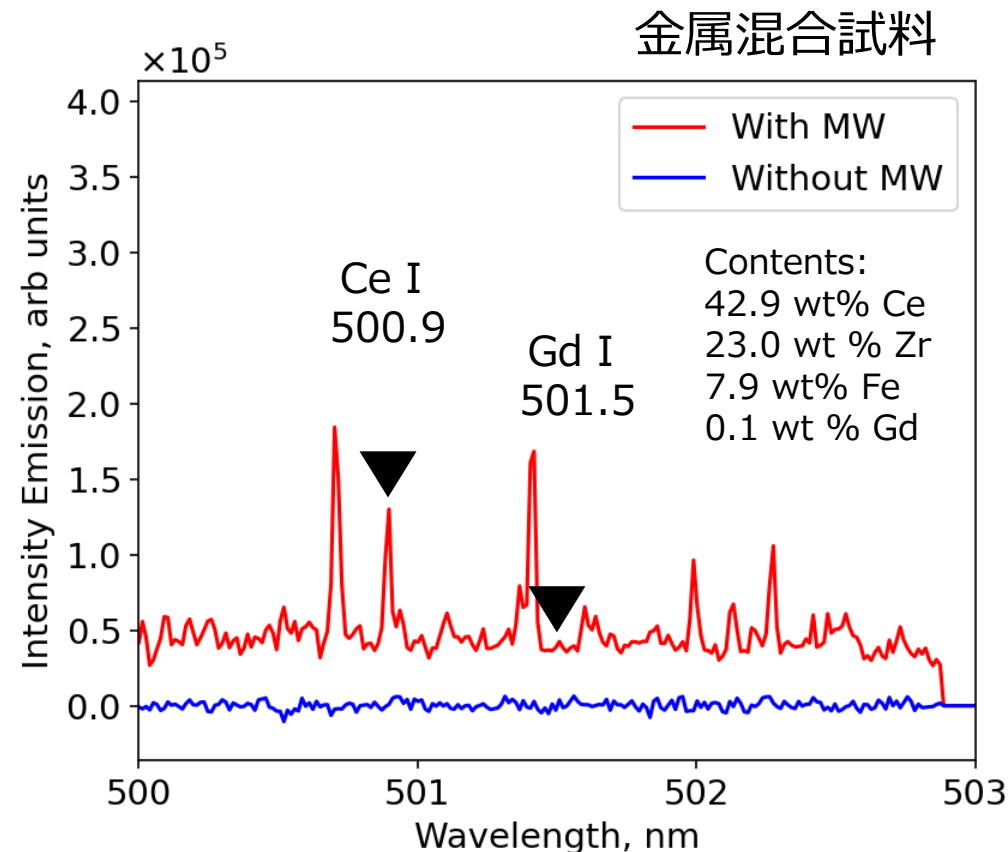
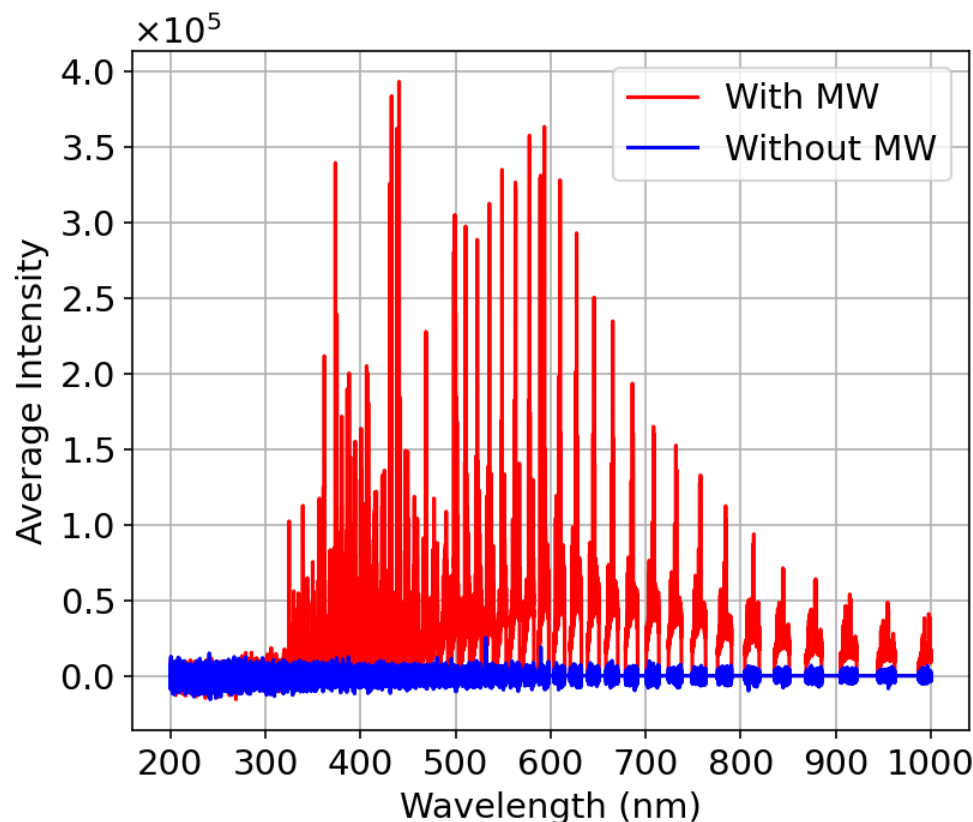
MW: 1 kW, 1ms

マイクロ波により発光体積の増大が
確認できる

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

マイクロ波重畳による増倍効果



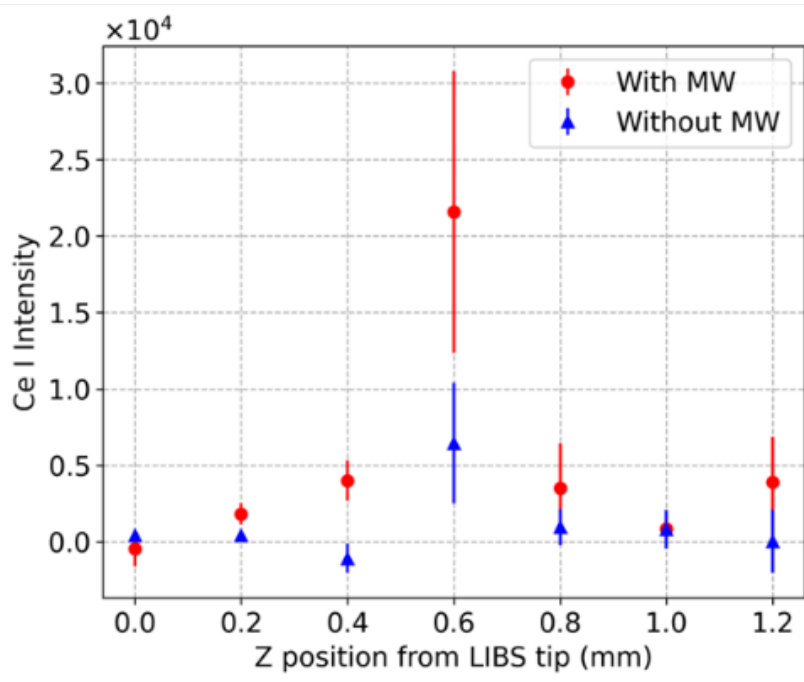
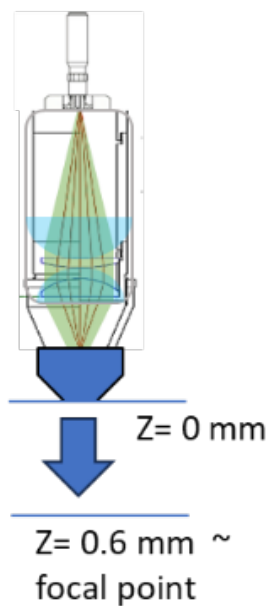
微弱レーザー光照射エネルギー : 0.2mJ/pulse at 532 nm

マイクロ波入射エネルギー : 1kW、1ms

の条件で、金属混合試料についてマイクロ波による信号増倍効果を観測した。

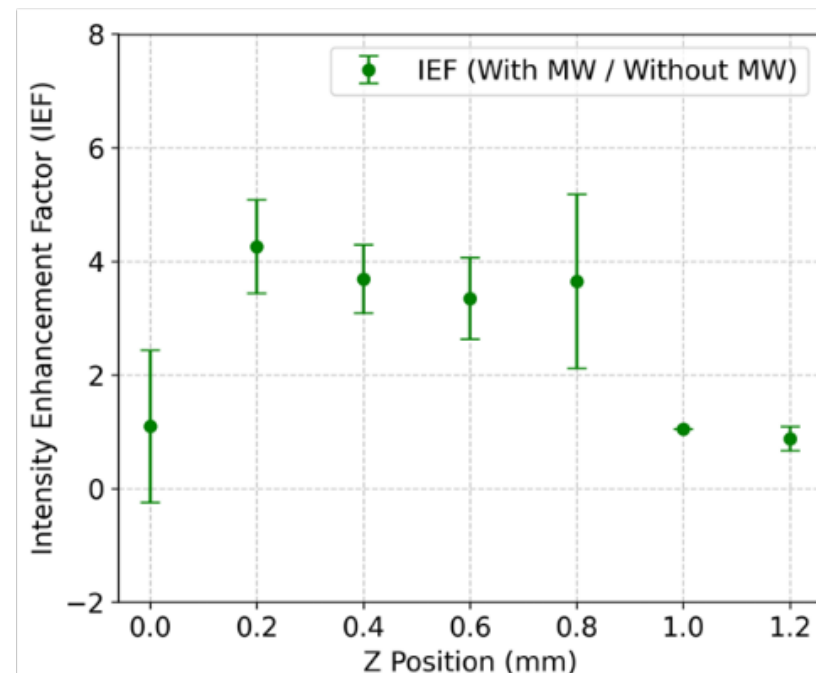
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発 マイクロ波重畳による増倍効果



レーザー出力: 1mJ/pulse

スペクトル強度の焦点位置依存性



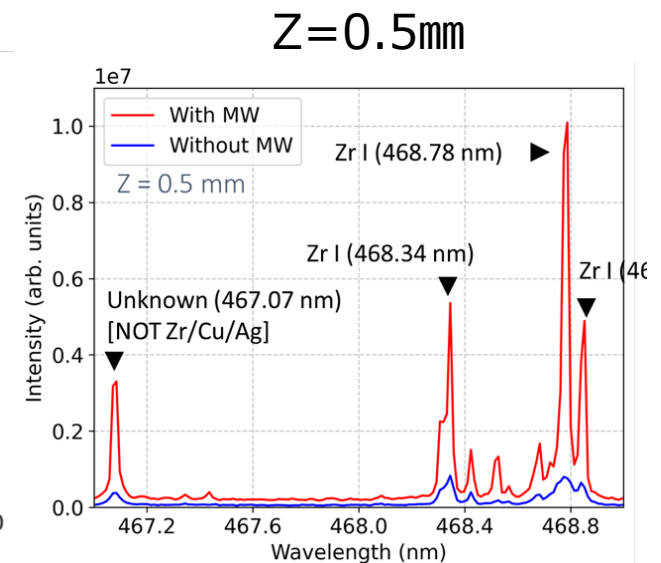
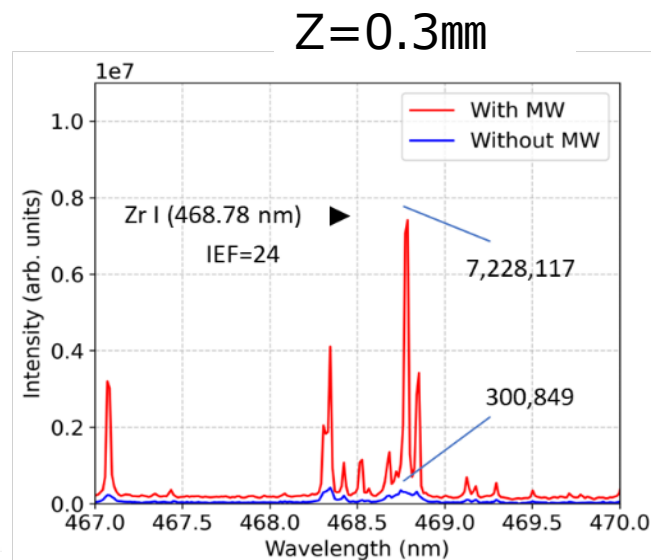
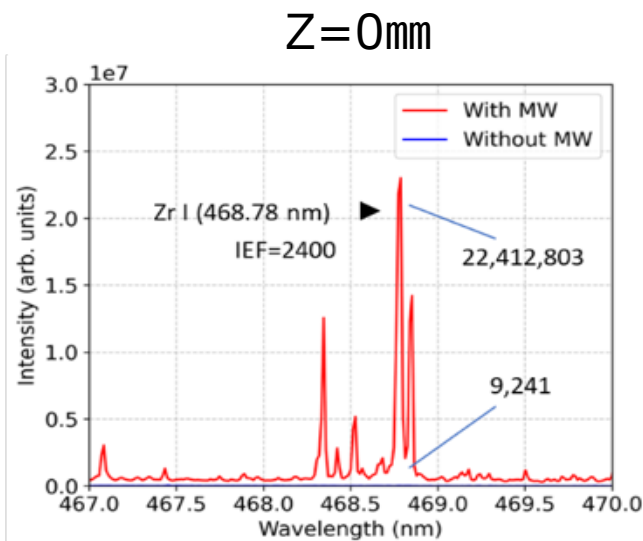
増倍率の焦点位置依存性

セリウム(Ce)酸化物を試料とした場合の増倍効果の焦点位置依存性の例

- スペクトル強度を最大とする焦点位置と増倍率が最大となる焦点位置は必ずしも一致しない。
- セリウム酸化物の場合、増倍率は数倍にとどまり、10倍を超える条件は、現状では見いだせなかった。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発 マイクロ波重畳による増倍効果

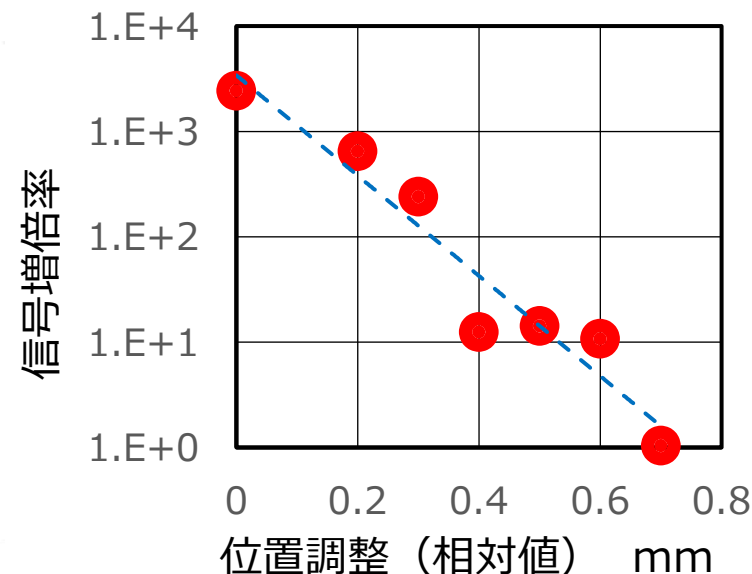
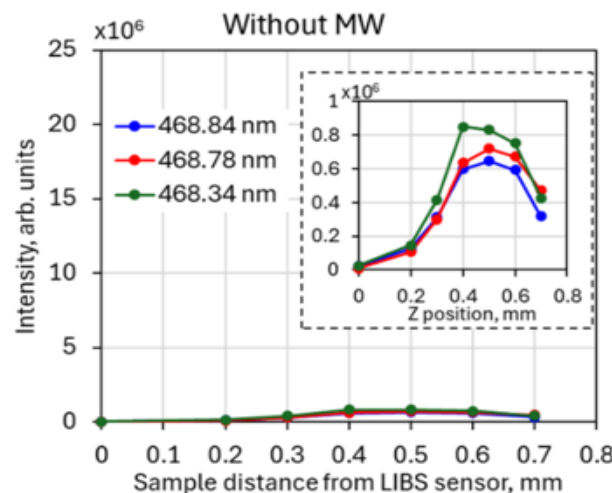
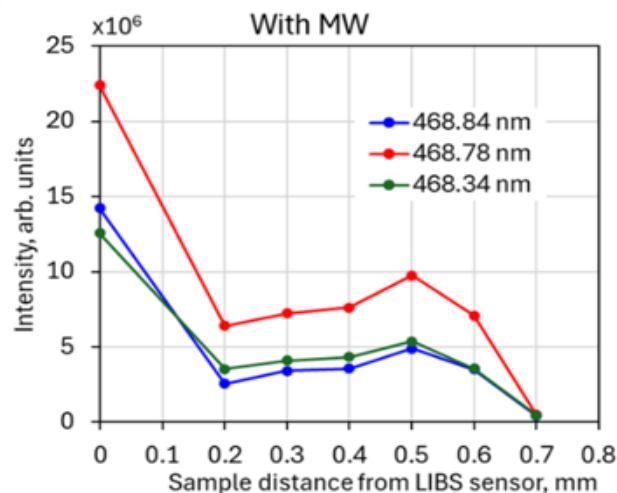


レーザー出力 : 1mJ/pulse

ジルコニウム(Zr)を試料とした場合の増倍効果の焦点位置依存性の例

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発 マイクロ波重畳による増倍効果

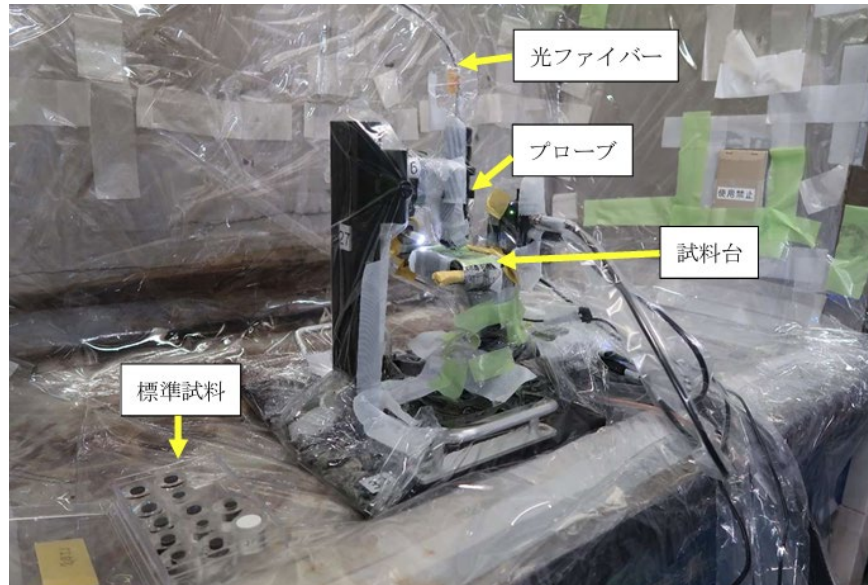


Zrを試料とした場合の増倍効果の焦点位置依存性の例

- 内蔵固定アンテナの開発により、Zr試料について10倍以上の信号強度を得ることに成功した。
- 一方で、試料に対する焦点位置（プラズマ生成位置）、プラズマの大きさ、アンテナ位置等の相互位置関係の調整を要し、マイクロ波プラズマの生成が不安定で増倍率も定まりにくい。
- 金属と酸化物の試料でマイクロ波による信号増倍効果が異なり、小出力のレーザー条件では酸化物試料で10倍以上の有効な信号増倍条件を見いだせなかった。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発 ウラン含有酸化物試料での分光試験



フード内に設置したアンテナ内蔵
LIBSプローブの様子

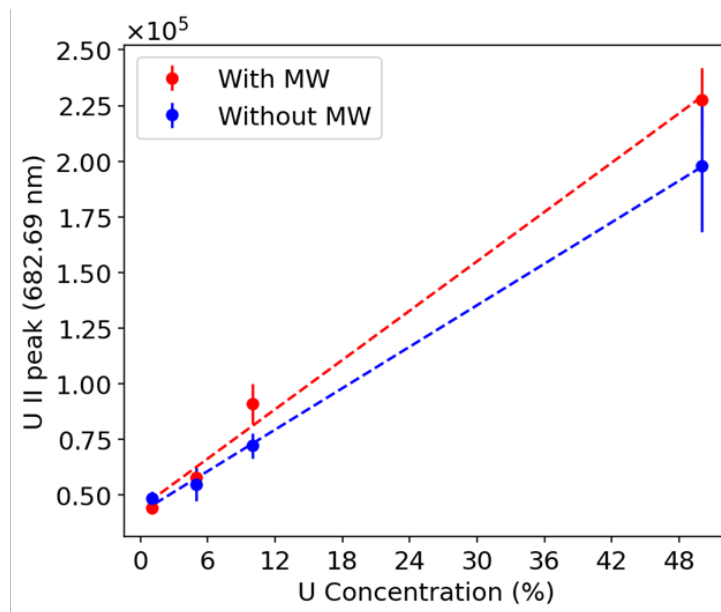
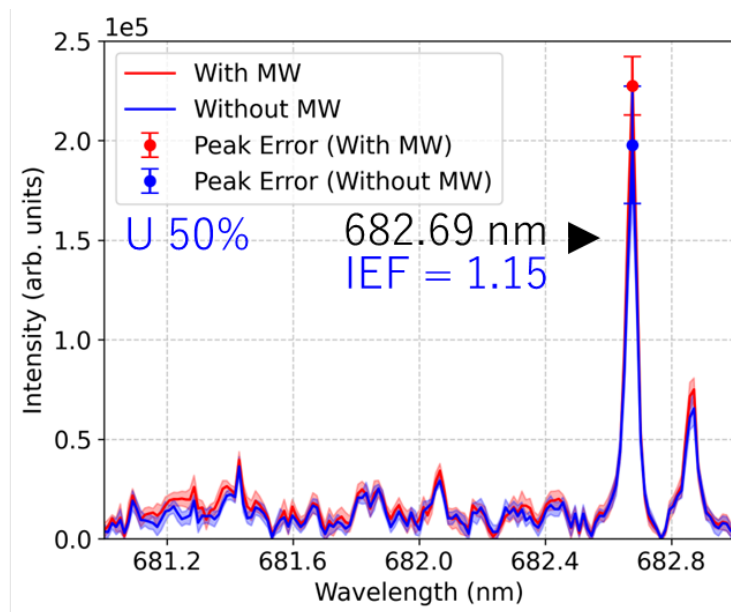


フード横に設置した可搬型マイクロ波
重畳LIBSシステム

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

ウラン含有酸化物試料での分光試験



Antenna Material: **Copper, INSIDE CAP antenna**
Lapa 80 Laser: **1.2 mJ**, 532 nm, 10 Hz
MW: 1 kW, 1ms
Catalina Spectrometer (λ / 33,000 resolution):
500 μ s exposure time, 1 μ s gate delay, 3000 gain, **500**
laser shots x 10 locations (averaged)

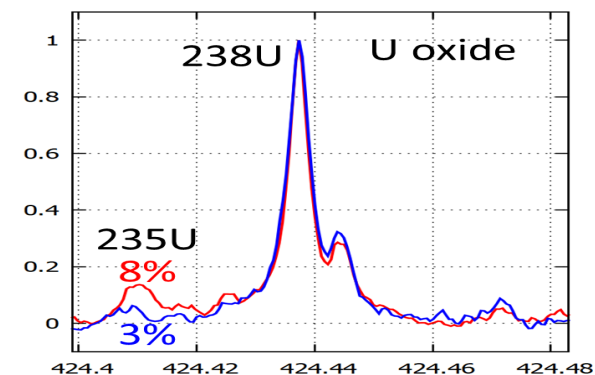
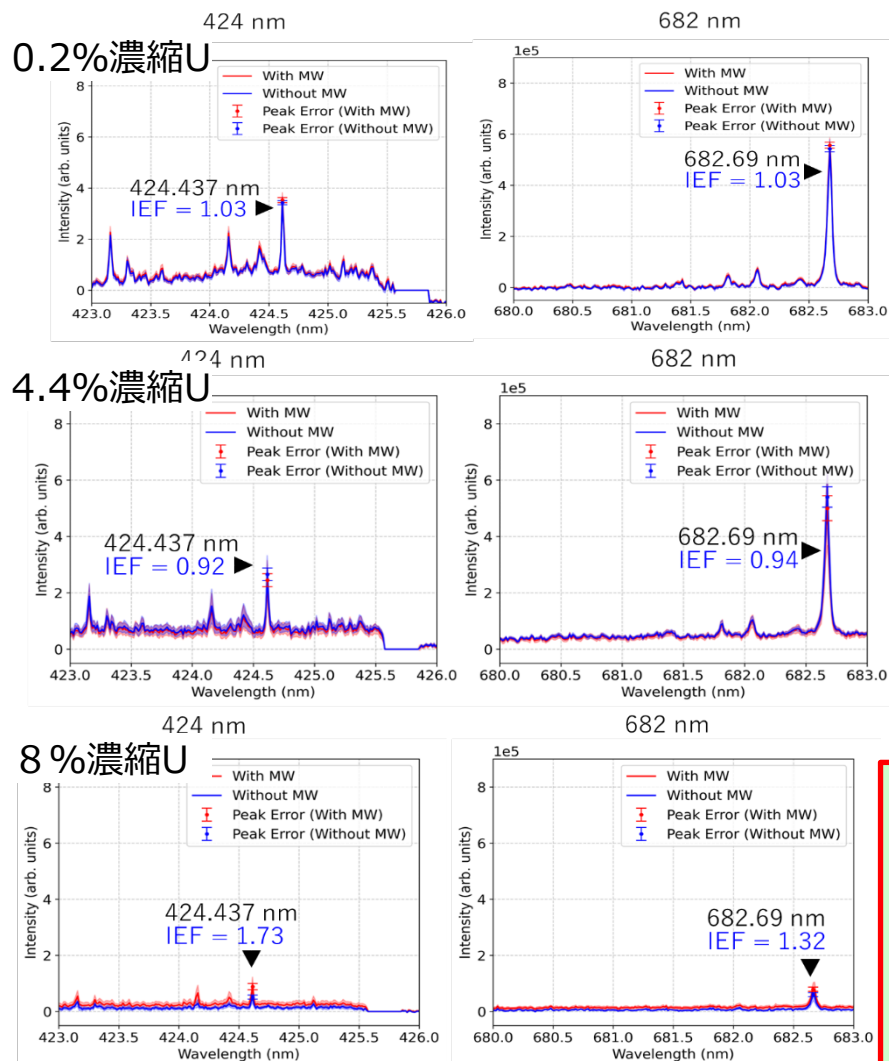
	Slope	Std	LOD
With MW	3690	2953	2.39
Without MW	3103	2983	2.88

- ウラン酸化物を対象とした試験では、内蔵固定アンテナによるマイクロ波効果を確認することはできなかった。
- 現状では、基本的な光ファイバーLIBSの性能を超える感度は実現できなかった。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

b) 可搬型マイクロ波重畳LIBSシステムの開発

ウラン含有酸化物試料での分光試験（濃縮ウラン）



2022年に外部アンテナで取得した
マイクロ波重畳LIBSによる同位体の
観測例
(超高分解能分光器を使用)

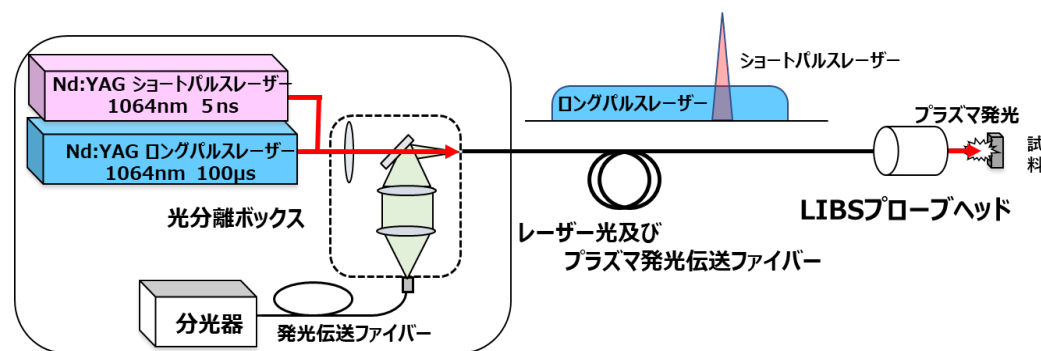
- 濃縮ウランを対象とした試験（左図）では、内蔵固定アンテナによるマイクロ波効果を確認することはできなかった。
- 外部マイクロ波アンテナによる過去の観測例（右図）を再現することはできなかった。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

二重照射LIBSシステム

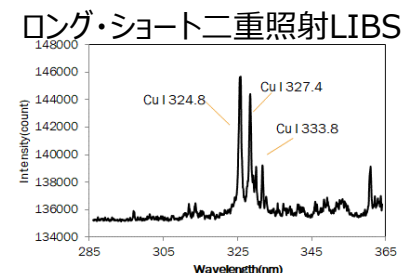
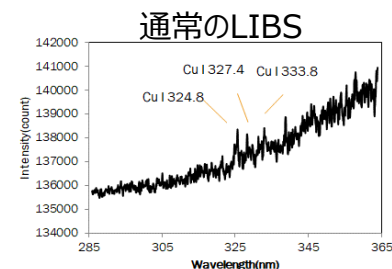
【基盤技術】 試料**表面の瞬間乾燥・表面洗浄**（**ロングパルスレーザー**）直後に
従来型のレーザープラズマ生成レーザー（**ショートパルスレーザー**）を入射



ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSの概要



流水中試料への適用



ガスバブリングによる**水没試料**対応に加え

流水中試料に対するロング・ショート二重照射法の効果例

含水多孔質性試料・表面流水環境中の試料におけるLIBS感度の確保

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

防塵防湿・温度制御コンテナ

【基盤技術】

微粉末粉塵の多い
製鉄所製鋼現場（転炉）で
の溶融粗鋼のその場分析への
導入経験
（一般過酷環境耐性）

- ・粉塵・湿度等環境対策
- ・温度変化対策



粉塵環境対応防塵収納コンテナへの設置例

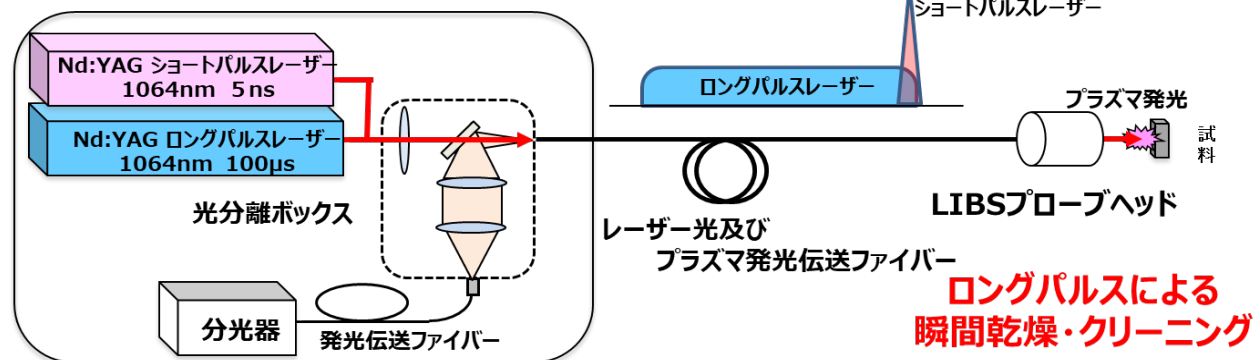
LIBSシステムが収納できる、防塵防湿・温度制御可能な収納コンテナを試作機として提示

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

実施項目

ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBS



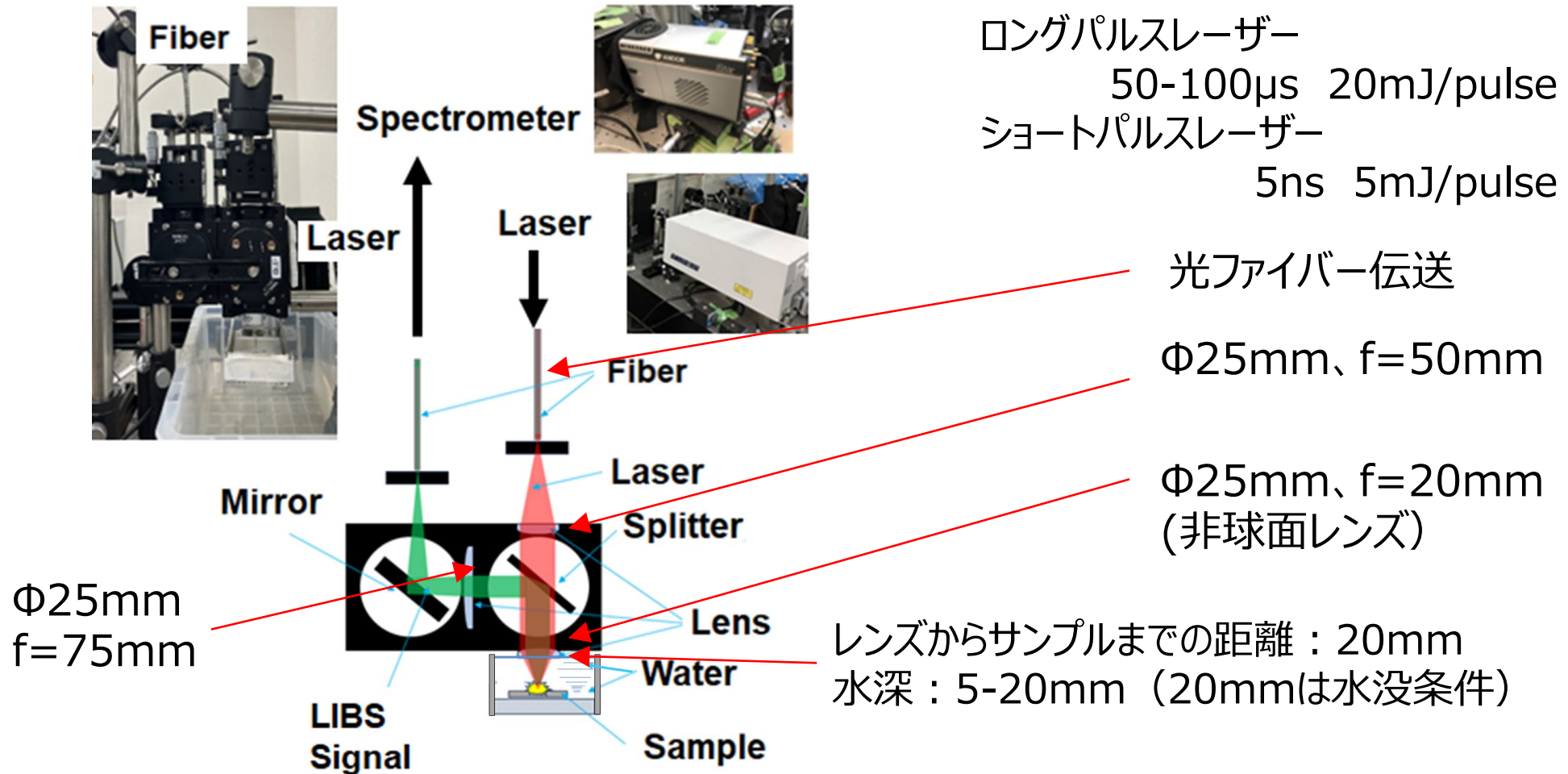
- 1) 可搬型光ファイバーLIBS化のための基礎試験
- 2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発
- 3) LIBSシステムの性能評価
- 4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

1) 可搬型光ファイバーLIBS化のための基礎試験

ロング・ショートパルス二重照射光ファイバーLIBSの基礎特性試験体系



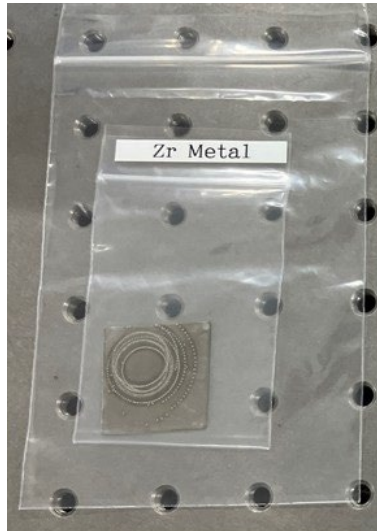
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

1) 可搬型光ファイバーLIBS化のための基礎試験

- Zr (Zr : 金属、 ZrO_2 : 緻密質、一般的に含水環境で計測が難しい多孔質) を計測
- 0-20 mmの水没条件下で、良好なLIBS信号が得られることを確認
- LIBS信号の安定性、スペクトル性能向上 (線幅の狭帯域化) のため、ロング・ショートパルスレーザーの照射タイミングを最適化

【使用した試験試料】



金属Zr板



緻密質 ZrO_2 板



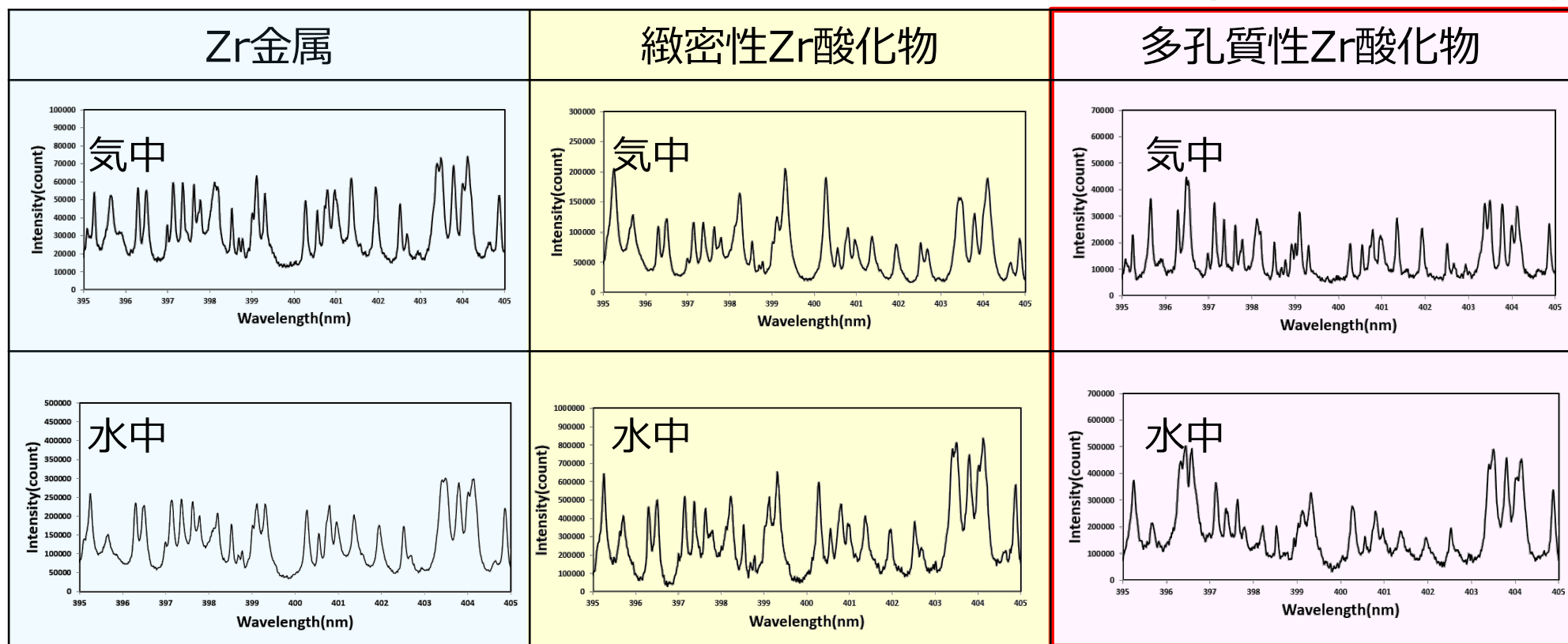
多孔質 ZrO_2 板

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

1) 可搬型光ファイバーLIBS化のための基礎試験

ロング・ショートパルス二重照射光ファイバーLIBS分光性能（気中・水中比較）



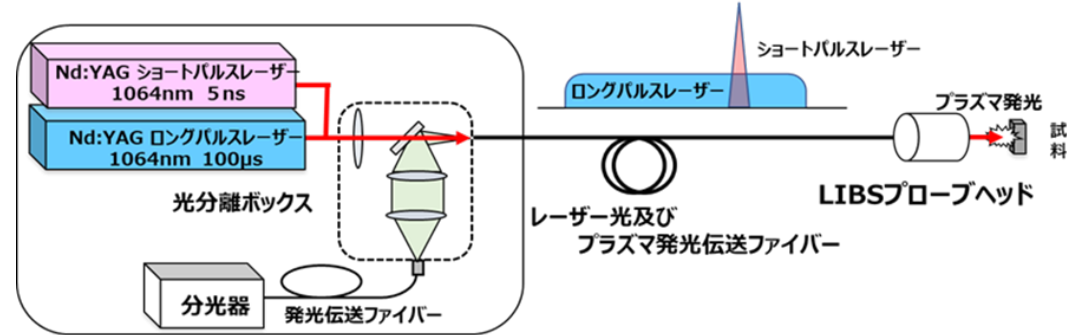
- 気中/水中環境、金属/酸化物試料で、ほぼ同様なスペクトルが得られた。
- 通常のLIBSでは測定が難しい水没多孔質性酸化物でも測定できる。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・システム概要



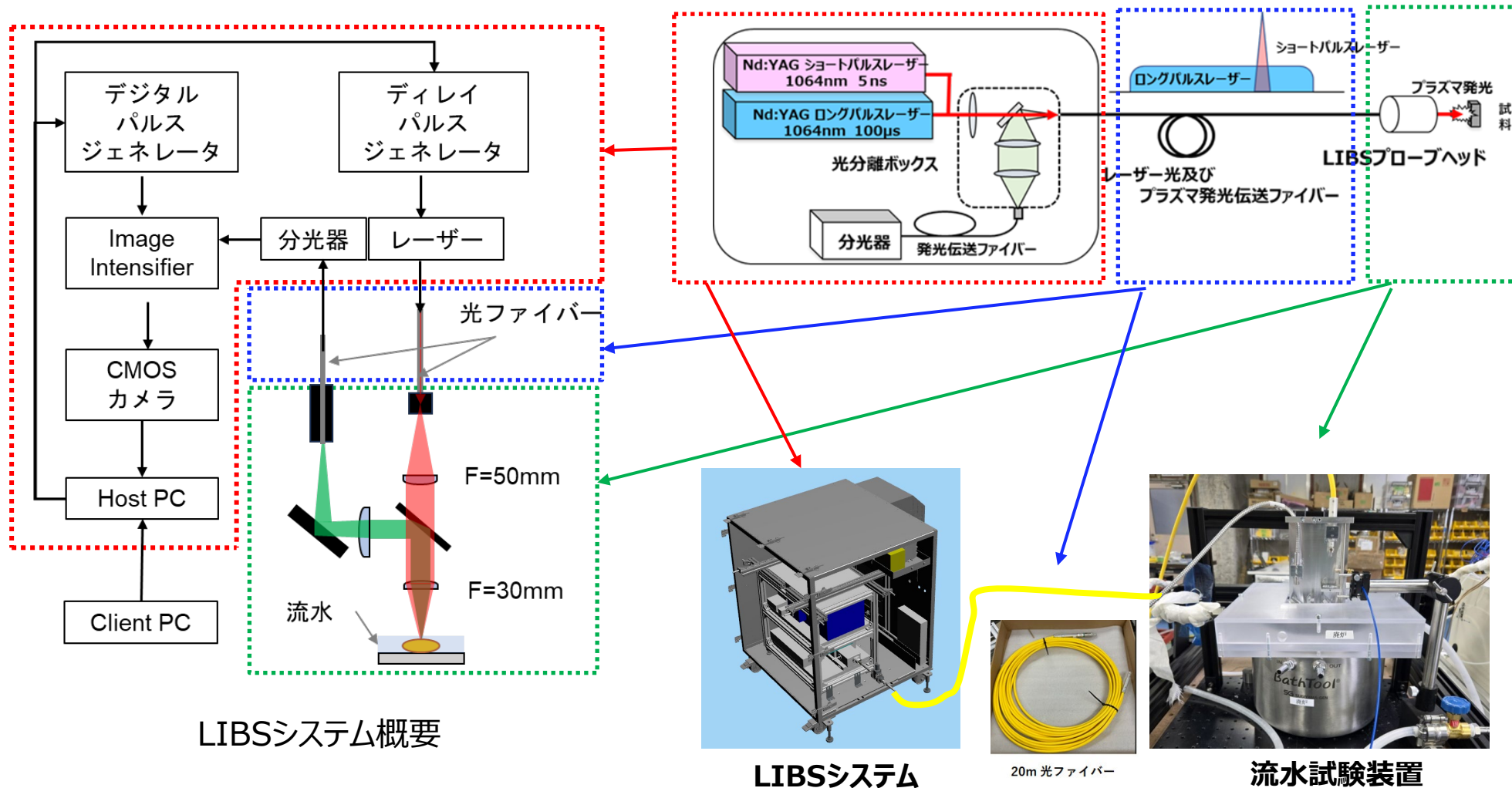
- レーザー装置：ロングショートダブルパルスレーザー
ロングパルスレーザー：35-40mJ/pulse、ショートパルスレーザー：20-25mJ/pulse
- 光ファイバー長：20m
- LIBSプローブ部：本体は、コンパクト化を図った。
本体（システム架台）：W800mm、D600mm、H800mm
LIBSプローブ部：W105mm、D70mm、H165mm
- レーザー光源、分光器、遅延パルス発生器、制御系を一つのコンテナに収める構造を採用。
- システム架台：キャスター等を設けることで移動可能。また、運搬時の振動対策として、レーザー光源、分光器に除振構造を付加。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・システム概要

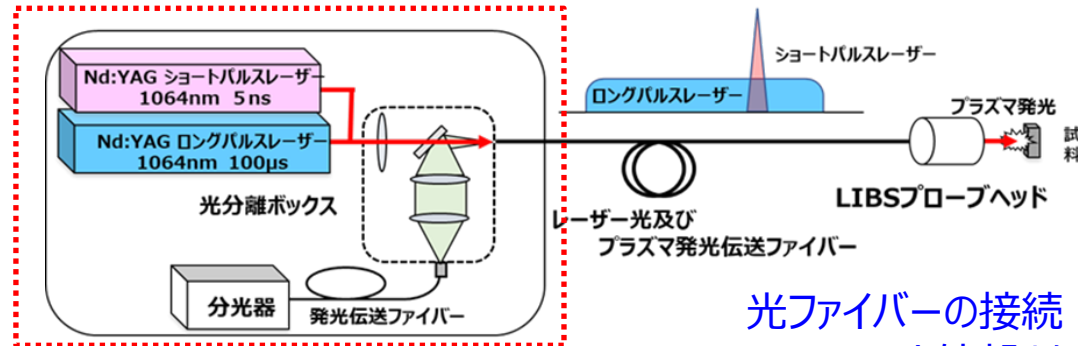


2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

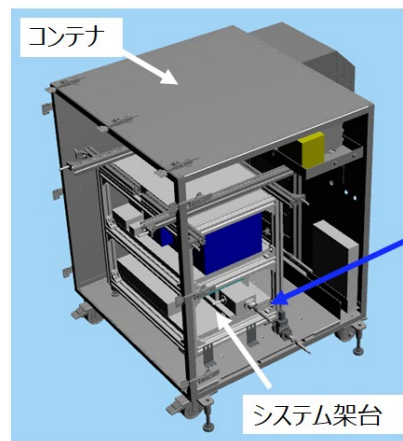
2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・システム概要

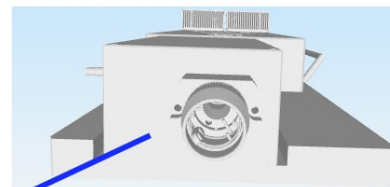


光ファイバーの接続

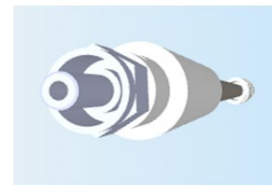
- コンテナ外部より光ファイバーを脱着可能
- 光ファイバーの接続はゲートバルブを介して実施
(コンテナ内外を分離)



ファイバ装着コネクタ

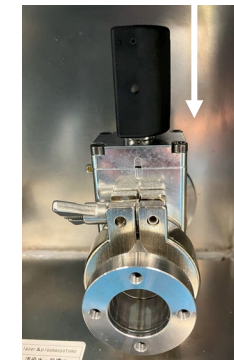


レーザー側



ファイバー側

コンテナ壁 (外部)



ゲートバルブ



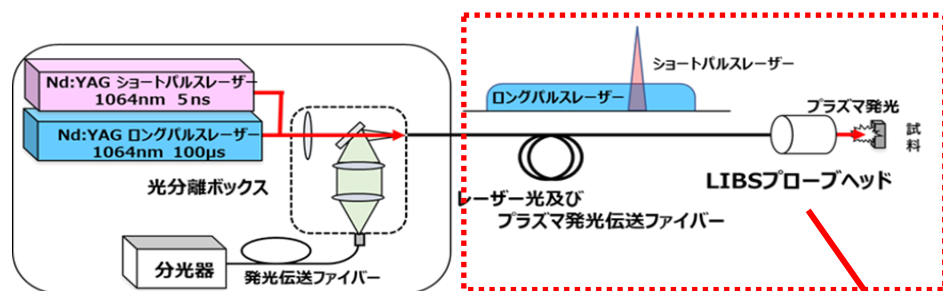
光ファイバー

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・システム概要



- レーザー光の伝送に長さ20mの光ファイバーを使用
- 窓部加熱用レーザーを組み込み、高湿度下での窓部曇りを防止
- 加熱用レーザー（2台）：940nm、10W
- レーザー加熱時の窓部温度：105℃



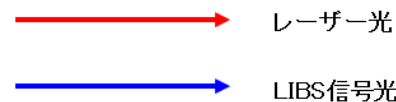
20m 光ファイバー

窓部加熱用レーザー
(光ファイバー伝送)

LIBS用レーザー
(光ファイバー)

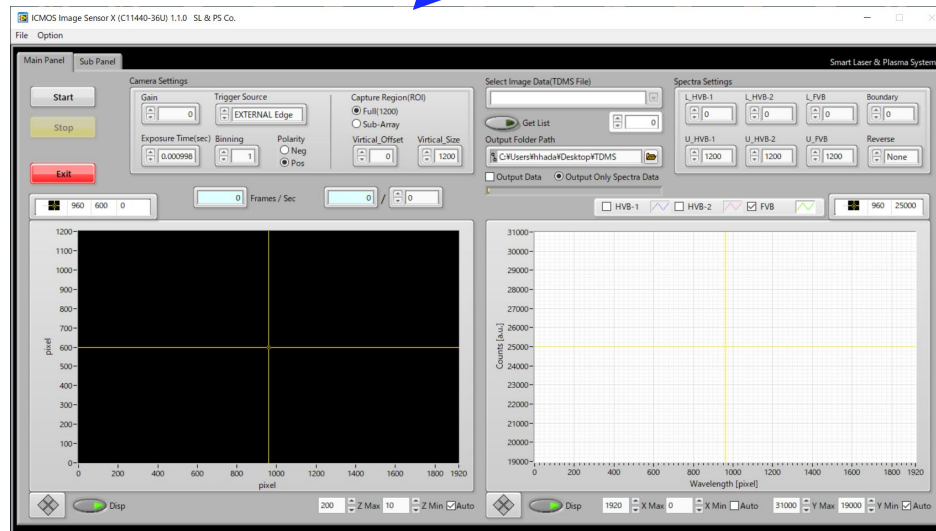
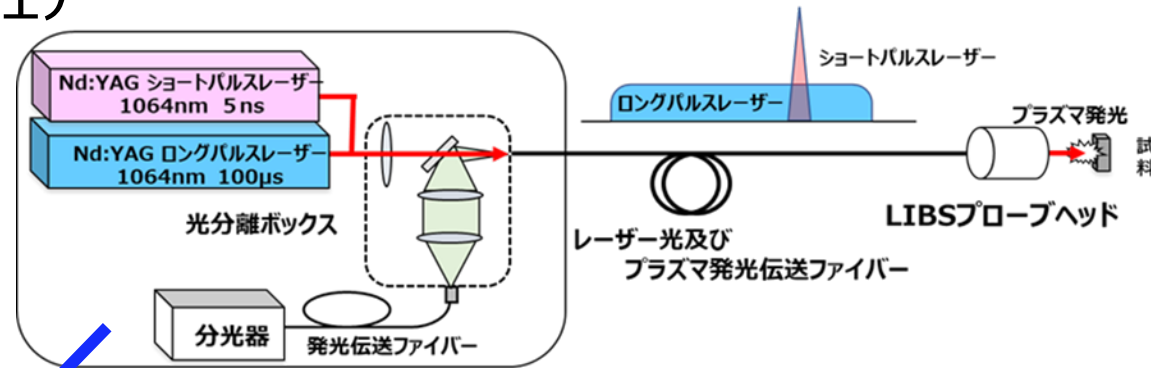
保護管

プローブヘッド



2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発
- 2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発
- ・システムソフトウェア



機器制御用システムソフトウェア統合画面

- 遠隔操作
- データ自動集録
- 環境条件表示、記録（温度、湿度）
- 各機器制御
 - ・レーザー制御
 - ・インテンシファイア制御
 - ・LIBS計測タイミング制御
 - ・分光器（計測波長、計測元素）制御

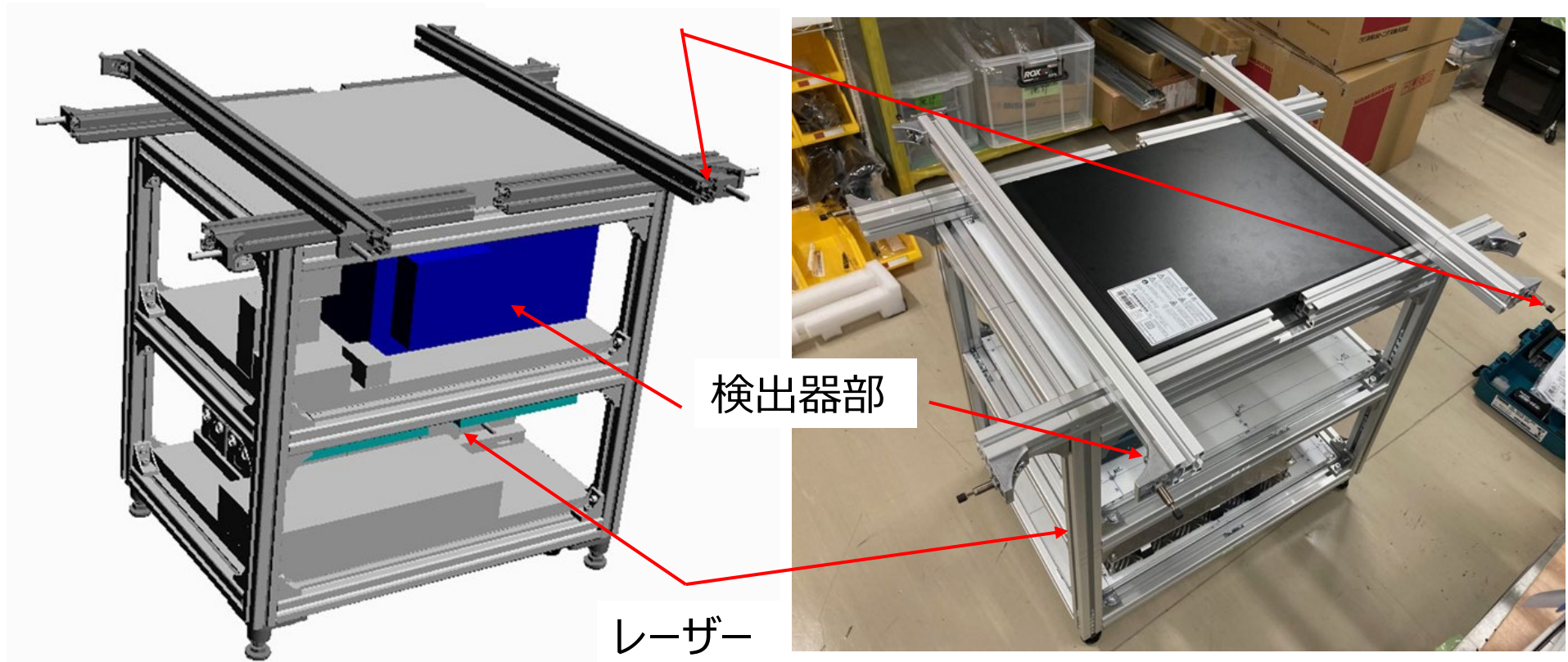
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・二重照射LIBSシステム架台

防振機構（横方向、ショックアブソーバ、8点）



二重照射LIBSシステム架台CAD図

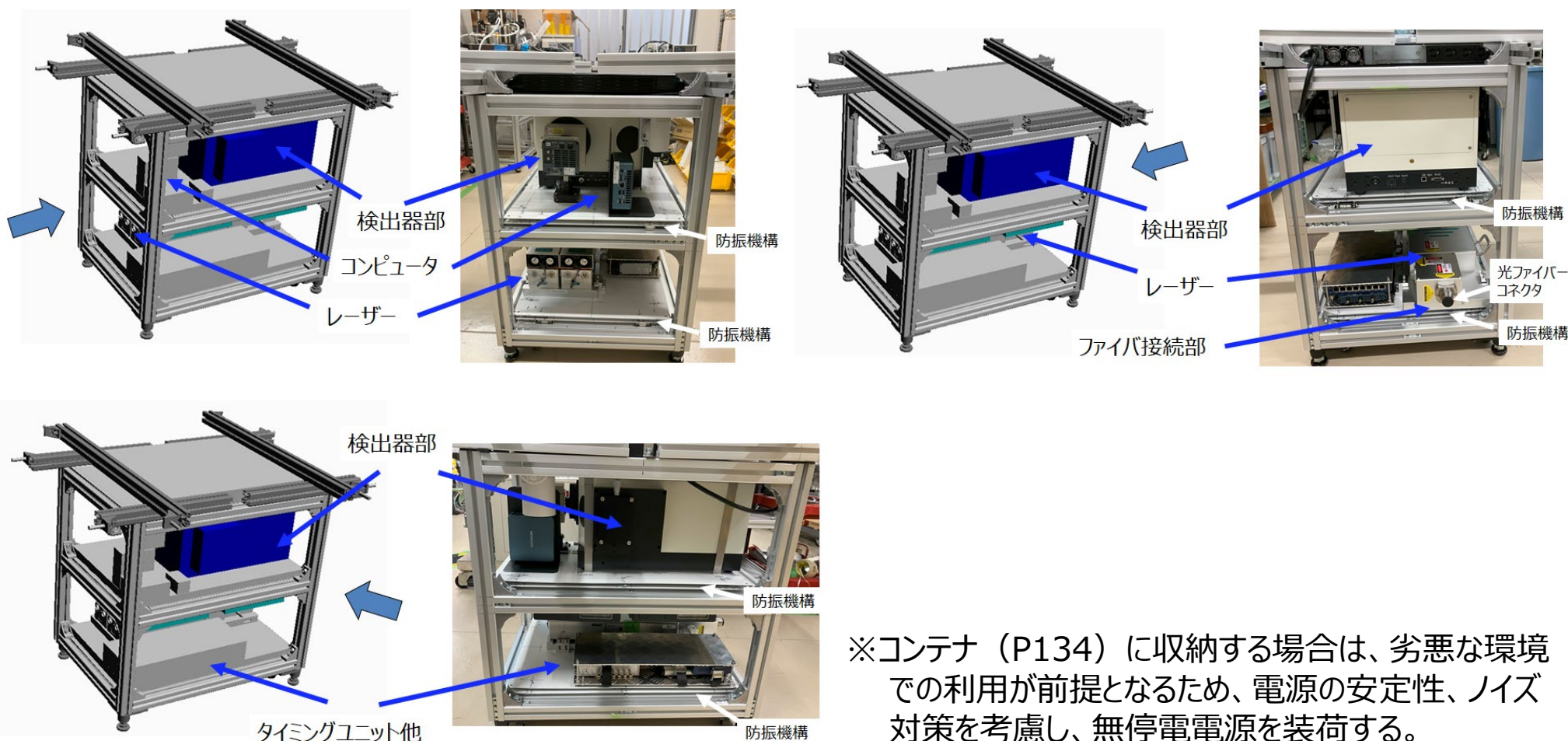
二重照射LIBSシステム架台

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

2) 二重照射法による可搬型光ファイバーLIBSシステムの開発

・二重照射LIBSシステム架台



2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

3) LIBSシステムの性能評価

・流水試験装置

- 流水試験装置、雰囲気ガス制御ユニットにより、試料環境を薄い流水環境（流水高さ：5mm）、水没環境（20mm）、高湿度環境に設定可能



流水試験装置



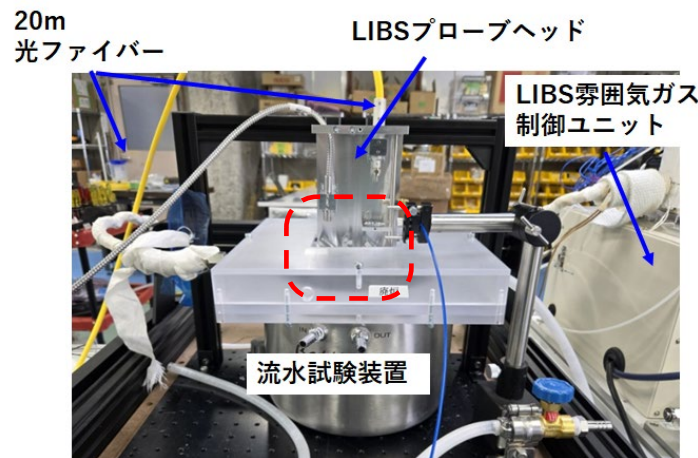
雰囲気ガス制御ユニット

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

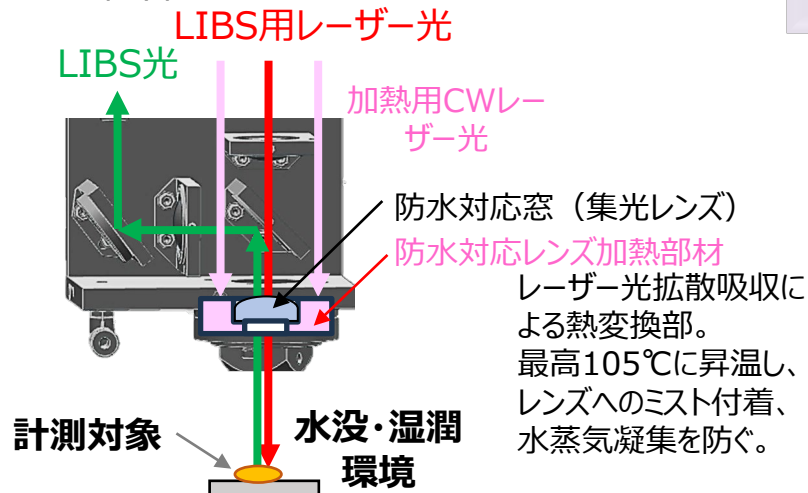
c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

3) LIBSシステムの性能評価

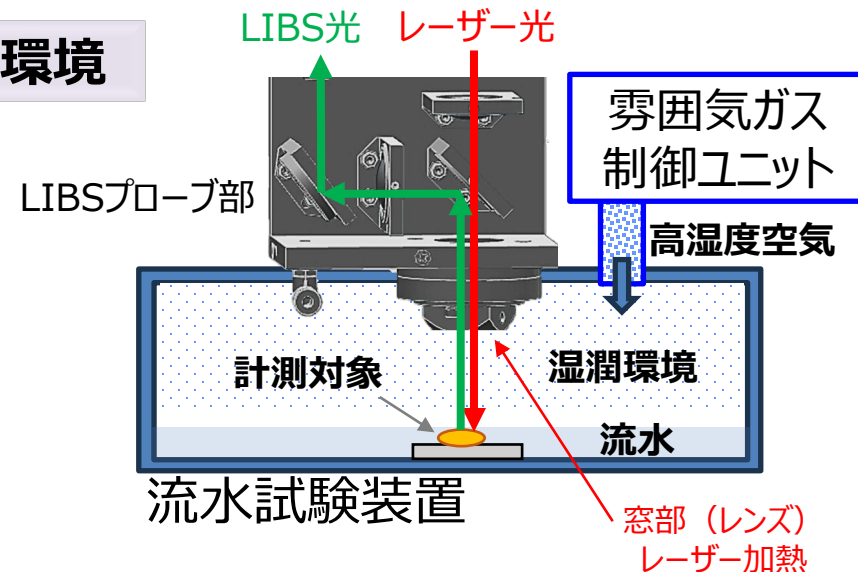
・水没・湿潤試験の概要



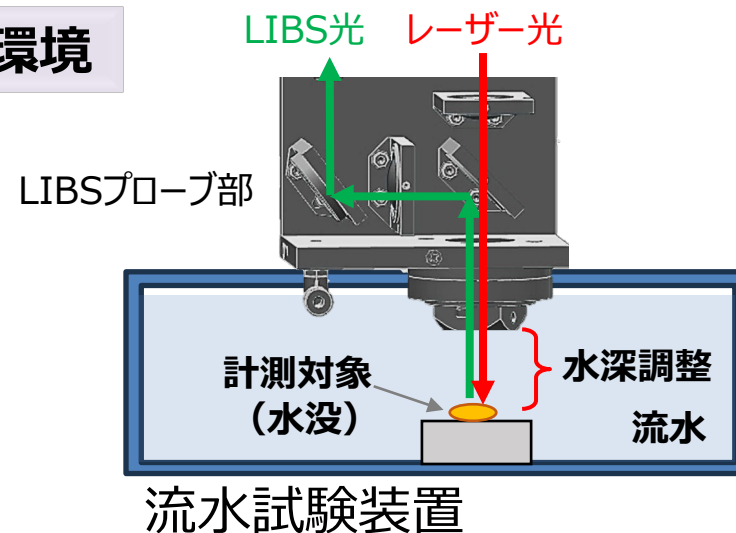
LIBSプローブ部詳細



湿潤環境



水没環境



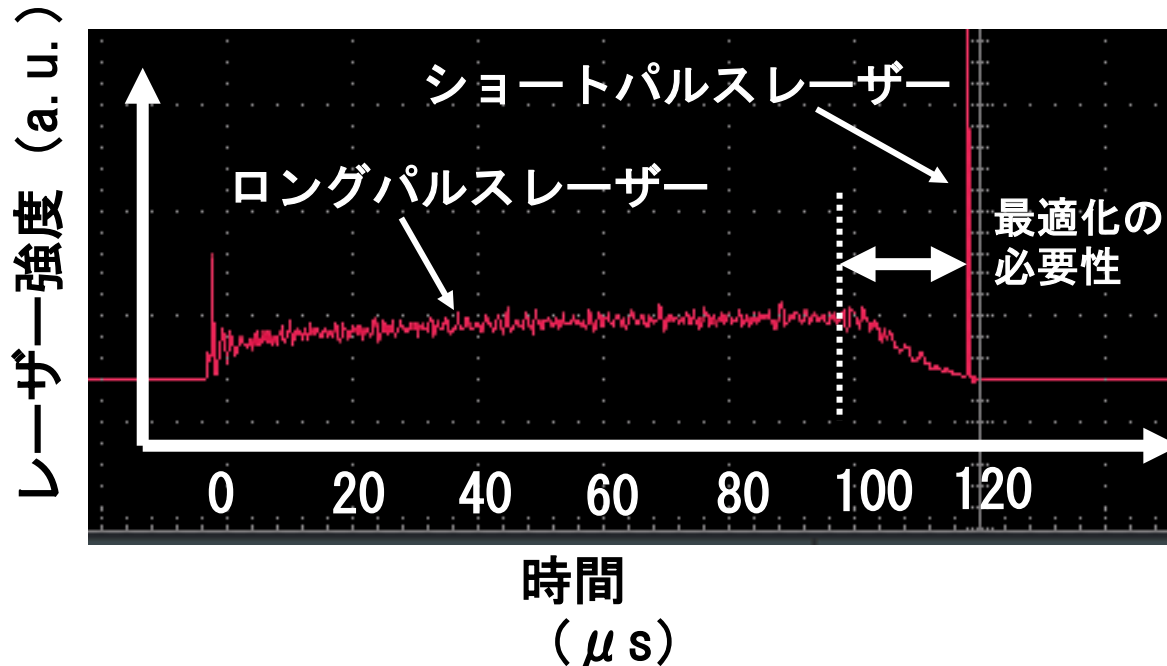
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

3) LIBSシステムの性能評価

・流水、水没試験結果

- LIBSシグナル安定性、スペクトル性能向上（線幅の狭帯域化）のため、ロング・ショートパルスレーザーの照射タイミングを最適化



- ロングパルスレーザーの照射中にショートパルスレーザーを入射した場合、生成されたプラズマにエネルギー注入が継続することとなり、スペクトルの広がりが顕著となって分析に適さない。
- ロングパルスレーザー照射後にショートパルスレーザーを照射すると、プラズマが消滅する過程で分析に適したスペクトルが取得できるタイミングが存在する。
- ショートパルスレーザーの入射タイミングが遅すぎると、ロングパルスレーザーの照射効果が低下し、スペクトルは消滅する。

- ロングパルスレーザーとショートパルスレーザーの照射時間差を最適化することにより、分析に適したスペクトルの取得を可能とした。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

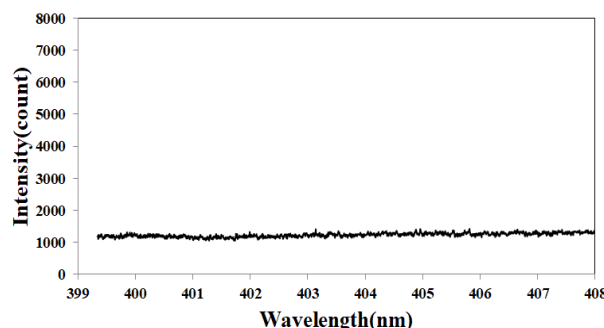
c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

3) LIBSシステムの性能評価

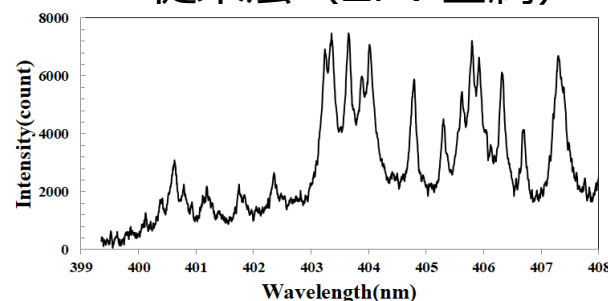
・流水、水没試験結果

Zr (Zr : 金属、 ZrO_2 : 緻密質、多孔質) を流水、水没条件下にて計測

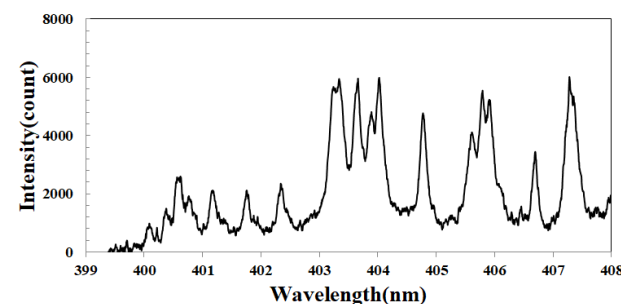
LIBSスペクトル強度の安定性、スペクトル性能向上 (線幅の狭帯域化) のため、ロング・ショートパルスレーザーの照射タイミングを最適化



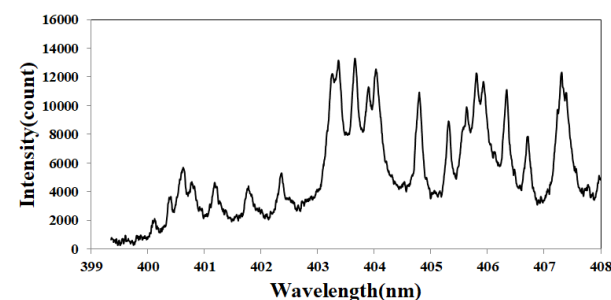
従来法 (Zr : 金属)



二重照射 (ZrO_2 : 多孔質)



二重照射 (Zr : 金属)



二重照射 (ZrO_2 : 緻密質)

➤ 二重照射とすることで、流水・水没条件下で良好なLIBS信号が得られることを確認した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

3) LIBSシステムの性能評価

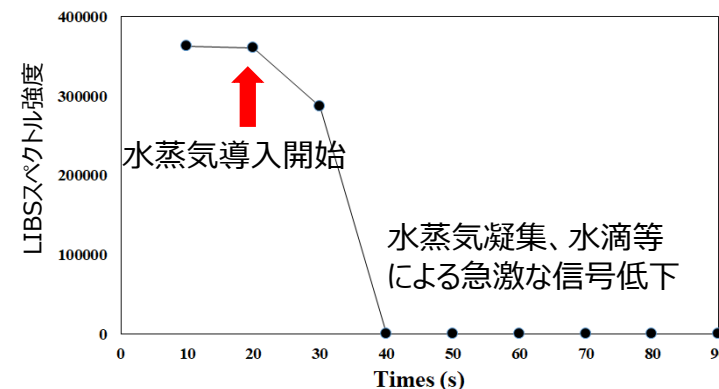
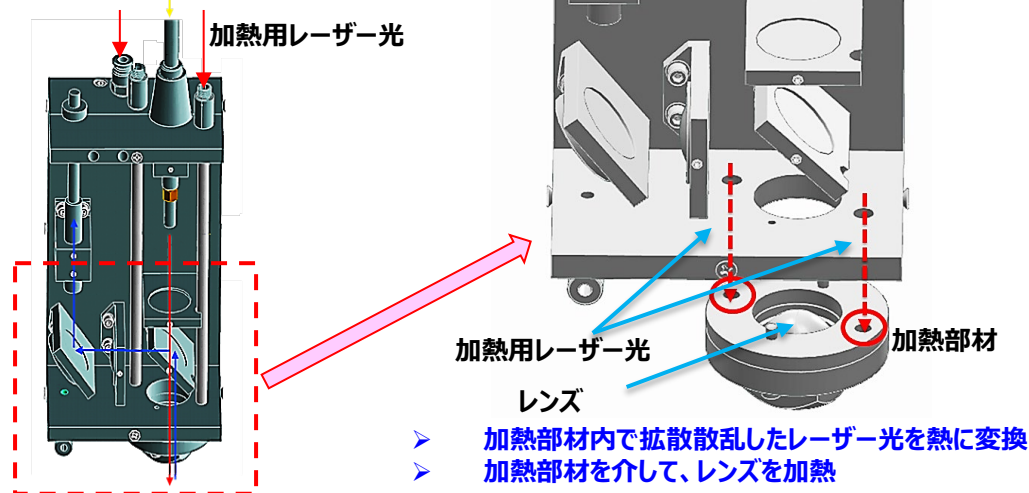
・高湿度（湿潤）環境下での課題（防水以外）

- LIBSプローブヘッド窓部への**ミスト付着**、水蒸気**凝集**によりレーザー光が散乱し、アブレーションが阻害され信号が出なくなる。
- **水滴**付着によるレンズ効果で焦点を結ばず、信号が出なくなる。

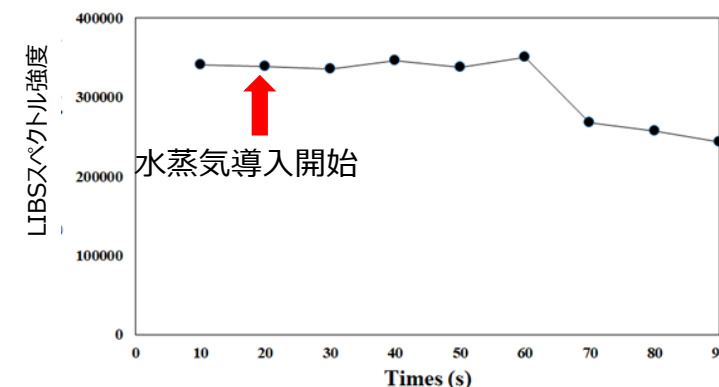
・レーザー加熱機構の導入による解決

LIBSプローブヘッド部の窓部（レンズ部）をレーザー加熱により最高105℃に加熱することで、**ミスト付着**、**水蒸気凝集**・**水滴**を防止する。

LIBSプローブヘッド部



窓部レーザー加熱無し

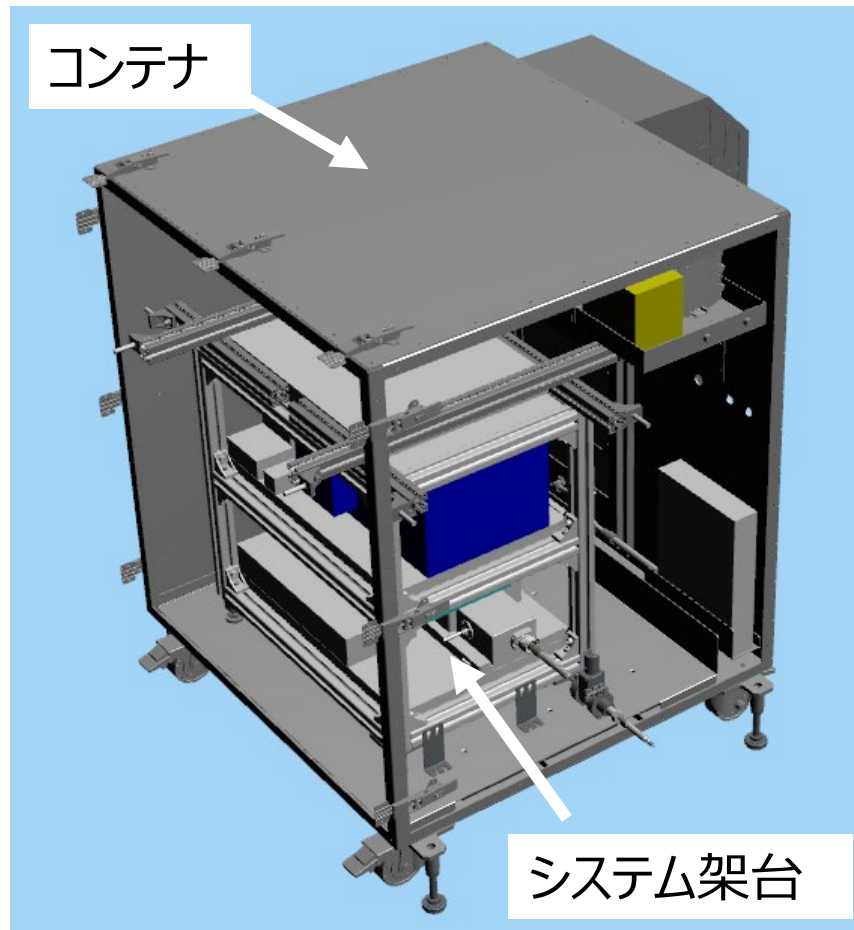


窓部レーザー加熱有り

- LIBSプローブヘッド部の窓部をレーザー加熱することで、湿り蒸気の導入後も、計測できる。LIBSシグナル強度に顕著な低下は生じず、安定してLIBS計測が可能であることを確認した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発
- 4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価
 - ・防塵防湿・温度制御コンテナ



全体CAD図

寸法：

W1000mm x D1005mm x H1280mm

機能：防塵、防水、防振、温調

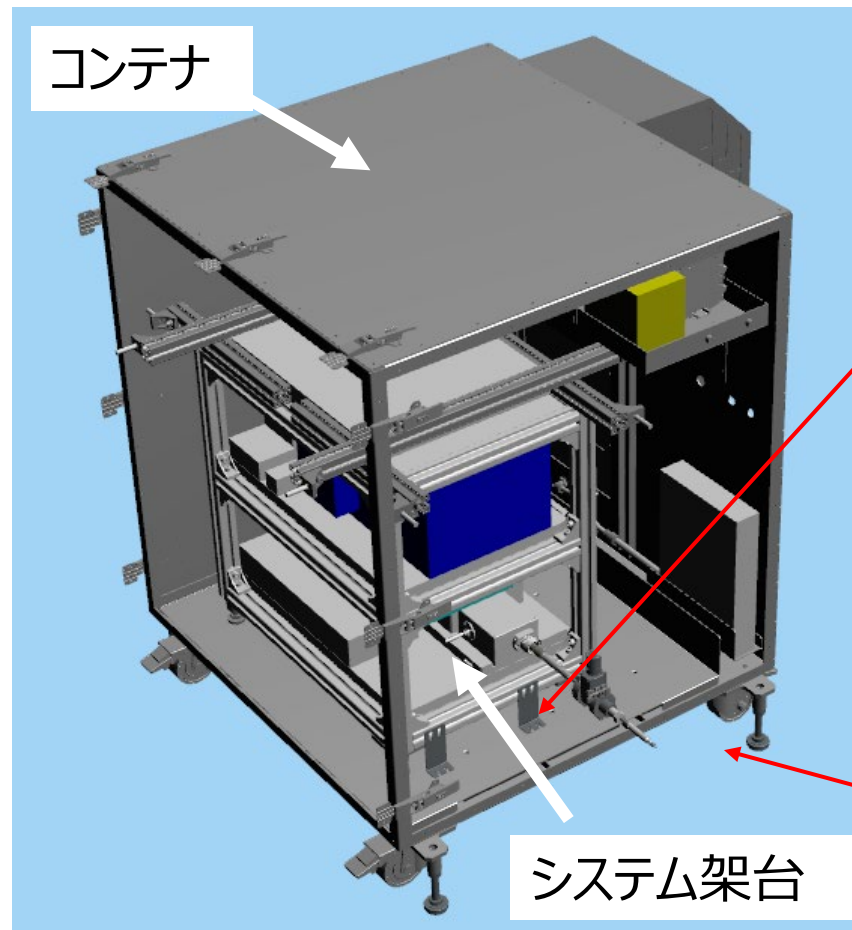
機能試験

防塵、防水試験：防塵・防水保護
（IP55相当）等級（国際規格：
IEC 60529）に基づいた試験

防振試験：段差のある屋内、屋外通路を装置付属のキャスターにて移動させ、移動前後で計測特性が変化しないことを確認

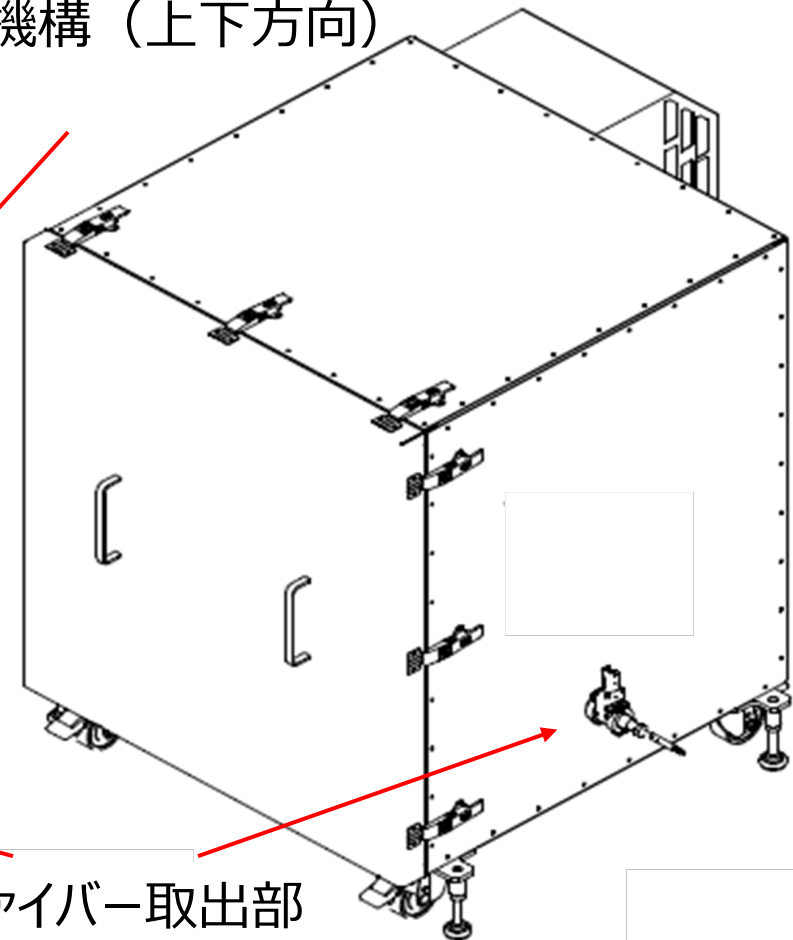
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発
- 4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価
 - ・防塵防湿・温度制御コンテナ



全体CAD図

防振機構（上下方向）



光ファイバー取出部

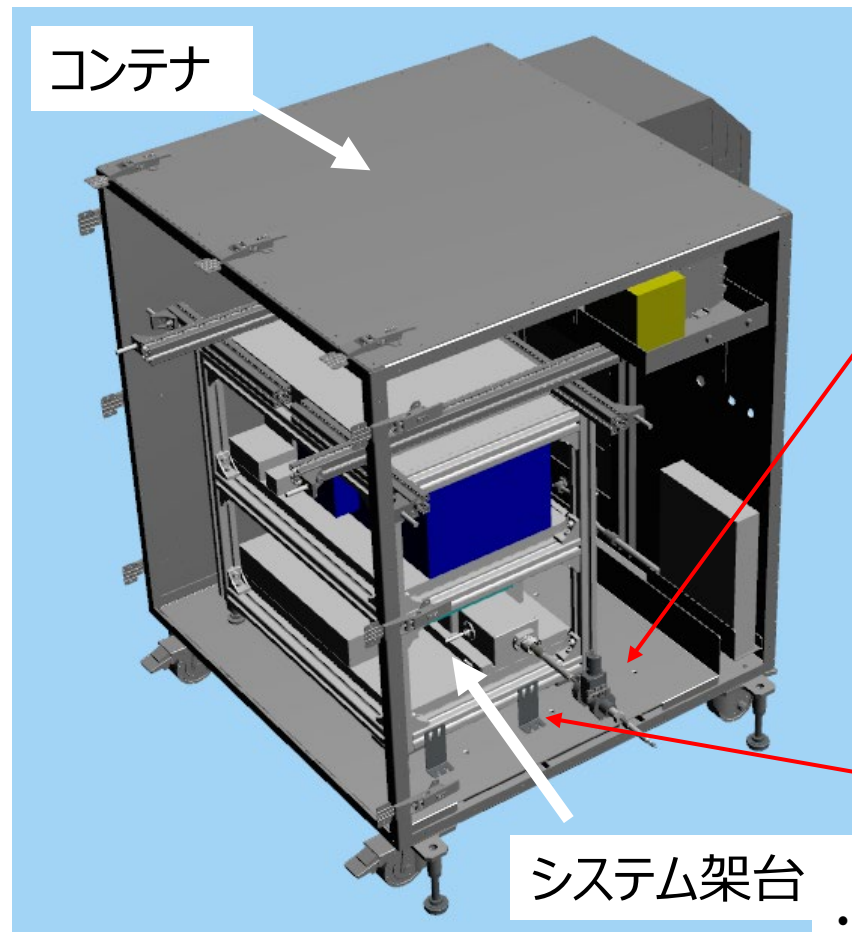
防塵防湿・温度制御コンテナ図面

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

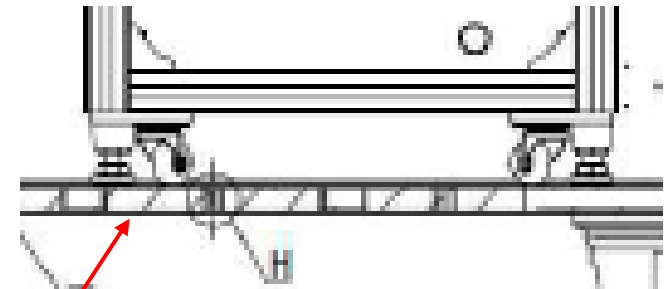
4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

・防塵防湿・温度制御コンテナ

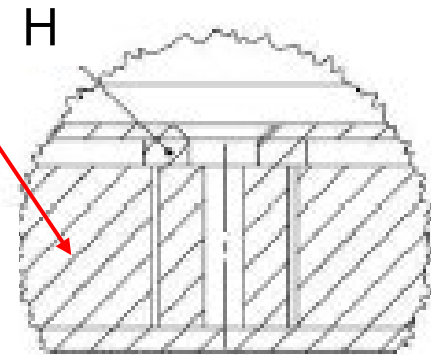


全体CAD図

防振機構（上下方向）



防振ゴム

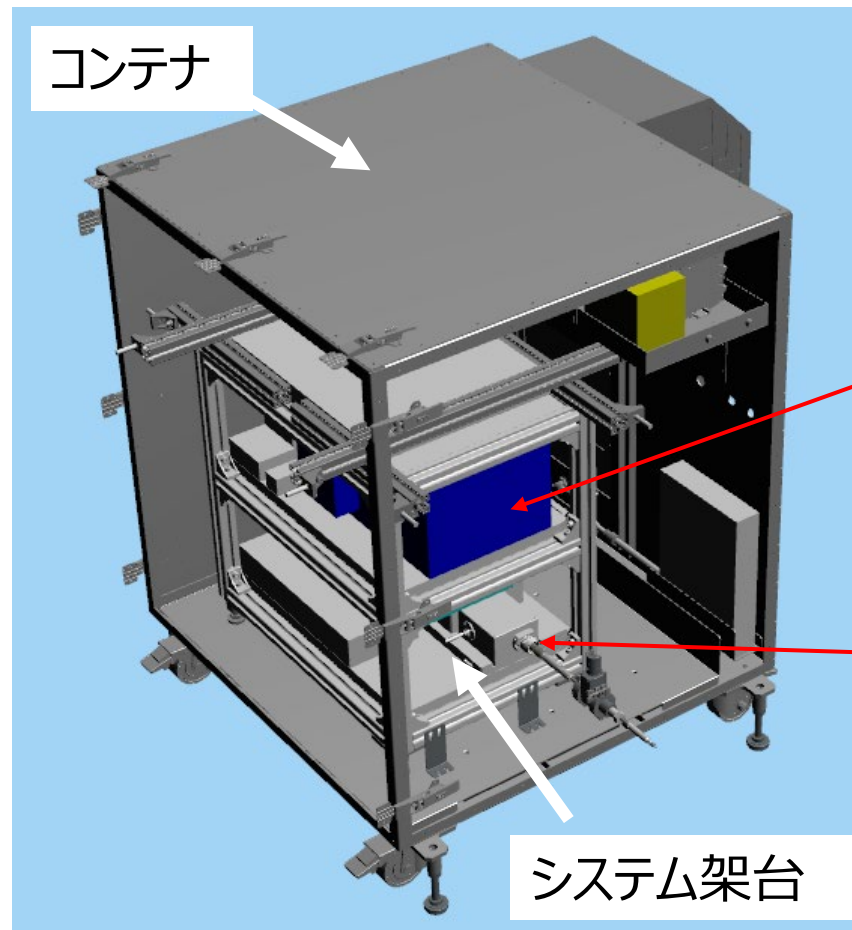


固定
（ガイド）

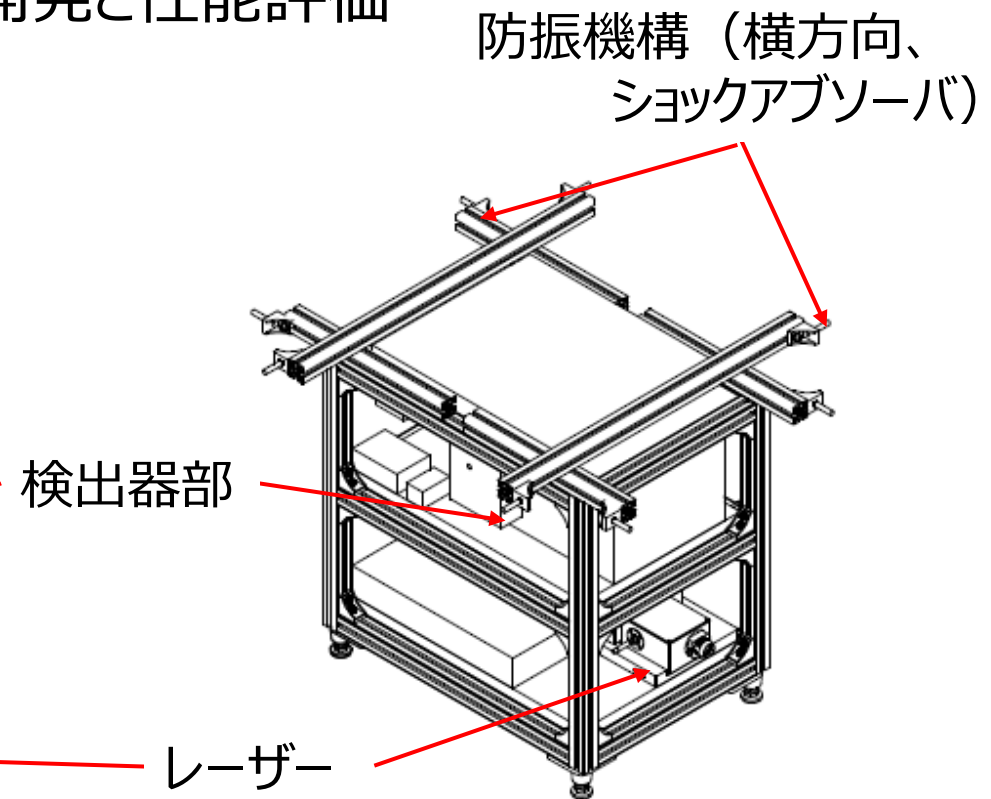
- ・外部スロープを用いてシステム架台をコンテナに挿入
- ・コンテナ内にガイドを設置し、システム架台を移動・固定

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

- c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発
4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価
・防塵防湿・温度制御コンテナ



全体CAD図



二重照射LIBSシステム架台図面

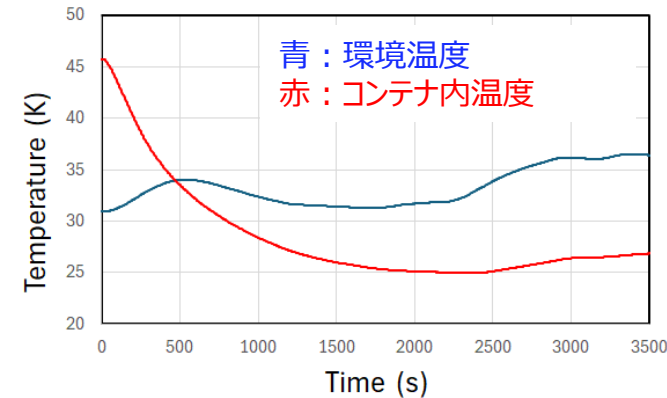
※コンテナにシステム架台を収納する場合は、劣悪な環境での利用が前提となるため、電源の安定性、ノイズ対策を考慮し、無停電電源を装荷する。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

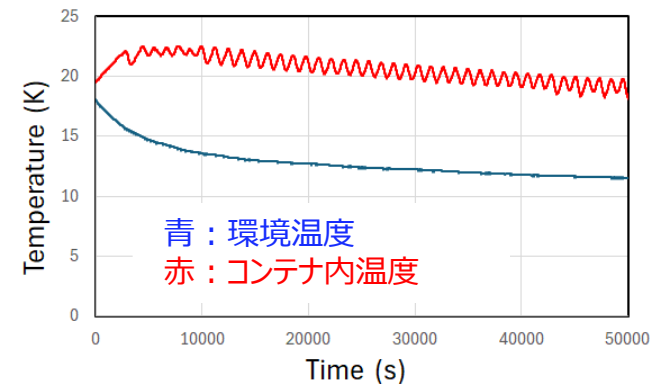
c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

・温度試験結果



環境が高温の場合



環境が低温の場合

➤ 外部温度12-35℃の環境で、コンテナ内温度を20-25℃に保持できることを確認した。

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

・湿度試験と結果

湿度試験では、コンテナ全体を恒温恒湿槽に収納し、外部温度15-35℃、外部湿度95%において、コンテナ内湿度の保持機能を確認した。



湿度試験の様子

コンテナ外部 温度、湿度設定	コンテナ内部湿度
15℃、95%	28.1%
20℃、95%	29.6%
25℃、95%	30.3%
30℃、95%	32.3%
35℃、95%	36.3%

➤ 外界が高湿度環境であっても、コンテナ内を一定湿度に保持する性能が確認できた。

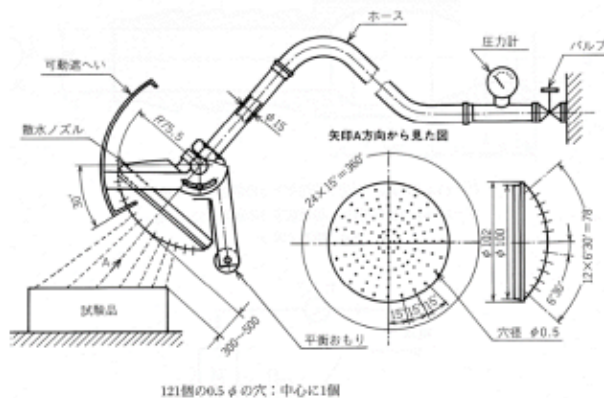
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

・防水試験と結果

放水ノズル試験装置を使って全方向から規定の放水実施（国際規格：IEC 60529）



放水ノズル試験装置



放水ノズル試験装置



放水後の内部写真
（水の侵入なし）

➤ 放水後、コンテナ内部には水の侵入がないことを確認した（IPX5相当）。

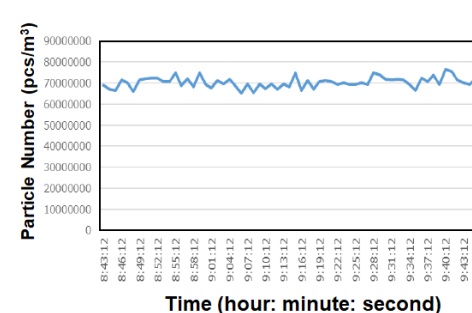
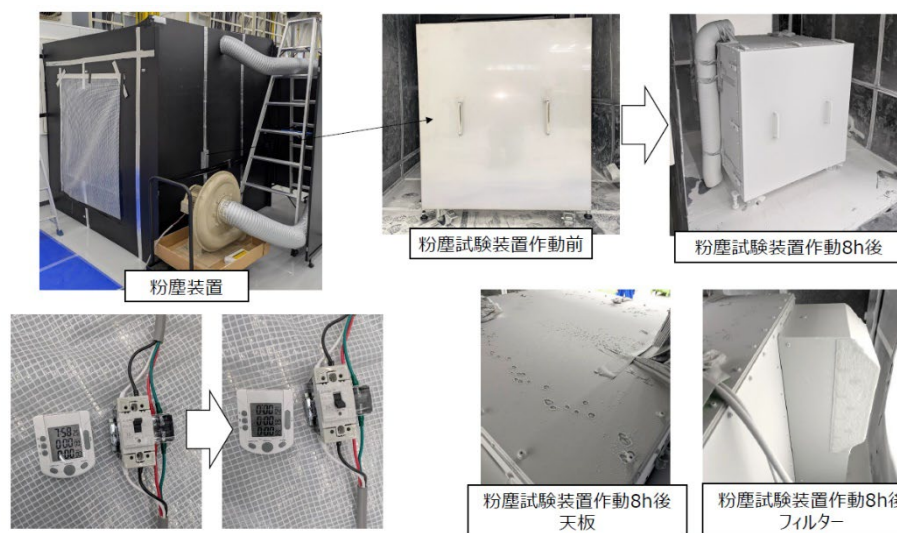
2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発

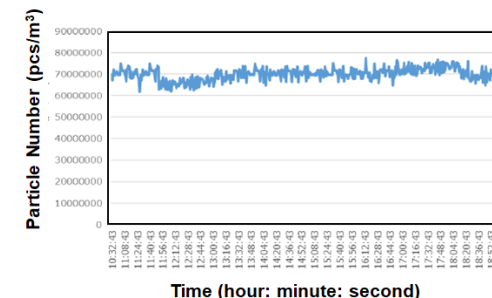
4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

・防塵試験と結果

国際規格 IEC 60529:2001 及び JIS C 0920 : 2003 塵埃に対する保護の
検証用装置を用いて防塵試験を実施した。(1m³辺り2kgの75μm以下の粉塵)



防塵試験前 (1時間)



防塵試験中 (8時間)

粒子計測機によるコンテナ内の粉じん量変化
(時系列)

防塵試験装置及び試験後のコンテナ外観図

- コンテナ外壁にタルク粉が堆積するが、コンテナ内部へのタルク粉の混入は認められなかった。
- 防塵試験前、防塵試験中に粒子計測機によるコンテナ内部の粉塵量は有意に変化しておらず、所定の粉塵環境下においてコンテナ内部への粉塵侵入は認められなかった (IP5X相当)。

c) 耐環境可搬型ロング・ショートパルスレーザー二重照射LIBSシステムの開発
4) 防塵防湿・温度制御コンテナの開発と性能評価

JQA

JQA 〒174-0247 東京都八王子市
JQA 〒174-0247 東京都八王子市

4. 試験結果

1) 試験①(ケース①) : 市販保冷剤と氷袋を用いた試験

【 Phase 】

温度センサーの針が動いていないことを確認した。

市販保冷剤 設定条件 -15℃, 95%RH, 1時間

市販保冷剤 設定条件 -20℃, 95%RH, 1時間

市販保冷剤 設定条件 -25℃, 95%RH, 1時間

市販保冷剤 設定条件 -30℃, 95%RH, 1時間

市販保冷剤 設定条件 -35℃, 95%RH, 1時間

—— 経 ——

試験方法書 JQA-1103

JAPAN QUALITY ASSURANCE ORGANIZATION

JQA

①(保冷剤)
JQA 〒174-0247 東京都八王子市

2) 試験①(ケース②) : 市販保冷剤と氷袋を用いた試験

【 Phase 】

温度センサーの針が動いていることを確認した。

市販保冷剤 設定条件 0℃(温度設定なし), 2時間

市販保冷剤 設定条件 -35℃, 95%RH, 2時間

—— 経 ——

温度、湿度試験

- 
- Collaborative Laboratories for Advanced Decision-making Science

2.7.3 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発

まとめ

事業終了時の目標指針	実施結果の概要
③ 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 ・マイクロ波重畳光ファイバーLIBSが提供されること。 ・ロング・ショートパルスレーザー二重照射型ファイバーLIBSが提供されること。	DFC型高出力マイクロチップレーザーにより、基本波13 mJ、二倍高調波4 mJを実現した。 アンテナ内蔵型の可搬型マイクロ波重畳光ファイバーLIBS装置を完成させ、増倍特性を取得するとともに、核燃料物質等使用施設内に持ち込み、ウラン含有試験での性能評価を実施することができた。 外界と遮断した環境でLIBS機器が使用できる耐環境コンテナ（国際規格：IP55相当）を有した可搬型のロング・ショートパルスレーザー二重照射型ファイバーLIBSが提供されるとともに、水没した金属、緻密質酸化物、多孔質酸化物に対し、気中同様のスペクトルが取得できる性能が実証された。

2.8 まとめ

事業終了時の目標指針	実施結果の概要
① 分析手法の確立 ・従来に比べ10倍の信号強度が実現できること。 ・含水及び表面流水環境でも分析が可能であること。 ・放射性物質を含有した試料、空気汚染環境で遠隔分析を可能とすること。	マイクロチップレーザ-LIBSで300m以上の超長尺分析の可能性を示すとともに、1kGy/hの高線量率環境でも性能が変わらないことを実証した。 AI・機械学習による解析では、ランダムフォレスト法を基本とした解析アルゴリズムにより偏差の少ない解析法を提示した。 アンテナ内蔵型マイクロ波重畳LIBSにより、数倍から数百倍以上の信号強度を実現したが、実用化には課題を残した。 光ファイバーLIBS化したロング・ショートパルスレーザ二重照射法は、水没・含水試料でも、気中と同様なスペクトルが取得できることを実証した。 空調コンテナの除熱容量・除熱排風量を評価し、遠隔分析を可能とする仕様を決定した。
② 核燃料物質による性能評価 ・未照射ウラン及びジルコニウム、鉄等を含有した試料による分析実績を拡充し、検出下限値が評価できること。 ・照射済燃料を含有した模擬試料を高線量率環境で分析できること。 ・照射済燃料ペレットやTMI-2燃料デブリ（入手可能な場合）の直接分析が可能であること。	LIBSの検出下限値が1%弱程度であることを再確認することができた。 複雑系試料の線分布測定結果をSEM-EDSの測定結果と比較した結果、良い一致が得られることを実証した。 高線量率雰囲気下（1Sv/h）でも使用済燃料の分析が可能であることを示すとともに、使用済燃料断面の多点分析により、使用済燃料断面の二次元組成分布測定が可能であることを実証した。
③ 基礎基盤技術を基にした実機開発に関する技術開発 ・マイクロ波重畳光ファイバーLIBSが提供されること。 ・ロング・ショートパルスレーザ二重照射型ファイバーLIBSが提供されること。	アンテナ内蔵型の可搬型マイクロ波重畳光ファイバーLIBS装置を完成させ、増倍特性を取得するとともに、核燃料物質等使用施設内でウラン含有試料での性能評価を実施することができた。 外界と遮断した耐環境コンテナ（国際規格：IP55相当）を有した可搬型のロング・ショートパルスレーザ二重照射型ファイバーLIBSが提供され、水没・含水試料でも気中同様のスペクトルを確認した。

2.9 LIBS基本方式の性能・課題・適用性比較 (これまでに得られている性能、蓄積された知見からの推察)

LIBS 基本方式	基本的な方法	遠隔分析性	プローブの物理的性能			分析性能				主たる特長 予想される 主な適用先
		長尺性 光ファイバー長	プローブ部の大き さ	堅牢性	耐放射線性	U/Zr/Fe 混合系での U 検出下限値	湿潤・水没試料 対応	波長分解能 元素分離性	空間分解能	
光ファイバー LIBS	レーザー光を外部から 光ファイバーで伝送 し、集光照射	≦50m 【実証済】 ~80m が上限？	Φ：19mm L：90mm	堅牢	10kGy/h ~2 MGy 【実証済】 ⁶⁰ Co 照射室環境	~0.4 W% 【実証済】	ガスバブリングで 水没試料に対 応 【実証済】	λ/50,000 元素分解可	200~300μm 元素 2 次元分布	小型可搬 PCV、RPV 内 ロボットアームエンクロー ジャ 受け入れセル 作業現場
ロング・ショート 二重パルス光フ ァイバーLIBS	従来の光ファイバー LIBS に 100μs のロ ングパルスレーザーを 重畳	基本的に 同上 マイクロチップレーザ ー化で>100m の実現 性	基本的に 同上	基本的に 同上	基本的に 同上	U 含有試料で要実証 より向上する可能性大 (次期計画)	レーザー照射の みで流水、含 水、水没試料に 対応 【実証済】	λ/50,000 元素分解可	基本的に 同上	同上 湿潤・水没環境
光ファイバーマイ クロチップ LIBS	光ファイバーの先端に マイクロチップ光源を 配置して直接集光照 射	~300m 【実証済】 より長尺でも利用可	W:60mm L:120mm H:25mm 小型化、円筒化 の余地あり	落下・強い連続 振動に対して若 干の留意	10kGy/h ~2MGy 【実証済】 ⁶⁰ Co 照射室環境	~0.7 W% 【実証済】 DFC チップによる高出力 化で向上する可能性あ り	光ファイバー LIBS 同様、ガス バブリングで要実 証	λ/50,000 元素分解可	10~50μm 高空間分解能元 素 2 次元分布	小型可搬 100m>超遠隔分析 PCV,RPV 内
マイクロ波重畳 LIBS	上記手法のレーザー 生成プラズマにマイク ロ波を照射し、信号 の増倍を図る。 ※上記手法と組み合 わせる手法	マイクロ波発振器とプ ローブ部アンテナは数 m 以内	プローブ先端アン テナ内蔵キャップ Φ25, L:25mm アンテナ外装時 Φ6, L=25mm	落下・強い連続 振動に対して若 干の留意	プ ロ ー ブ 近 傍 (2m) でのマイク ロ波発振源の耐放 射線性試験が必要	U 含有試料で取得予定 U 濃縮度評価を予定 Gd, Fe, Zr, Ce 酸化物 混合系で Gd に対し 0.1W%を確認	2.45GHz であり 基本的に困難	λ/50,000 元素分解可 及び λ/150,000 濃縮度評価	より少ないレーザー 照射エネルギー (1<1mJ/pulse) で信号が取得で きる 高分解能化の可能 性	小型可搬 受け入れセル、グローブ ボックス 濃縮度分析

参考：略称一覧

略称	名称	意味
1F	Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant	福島第一原子力発電所
AI	Artificial Intelligence	人工知能
DDG	Digital Delay Generator	デジタル遅延発生器
DFC	Distributed Face Cooling	分布面冷却
EDS	Energy Dispersive X-ray Spectroscopy	エネルギー分散型X線分光法
ENS	Ensemble Learning	アンサンブル学習
FOC	Fiber Optic Cable	光ファイバーケーブル
FWHM	Full Width at Half Maximum	半値全幅
GB	Glove Box	グローブボックス
HEPA	High Efficiency Particulate Air	高効率微粒子空気フィルター
IEF	Intensity Enhancement Factor	強度増強係数
LBO	Lithium Triborate	非線形光学結晶
LD	Laser Diode	レーザーダイオード
LIBS	Laser-Induced Breakdown Spectroscopy	レーザー誘起ブレイクダウン分光法
LOD	Limit of Detection	検出限界
M2	Beam Quality	レーザービーム品質因子
MCCI	Molten Core-Concrete Interaction	溶融炉心コンクリート反応
MCL	Micro Chip Laser	マイクロチップレーザー
MW	Microwave	マイクロ波
NA	Numerical Aperture	開口数
ND	Non-Detect	検出せず
Osc.	Oscilloscope	オシロスコープ
PCV	Primary Containment Vessel	一次格納容器
R2	Coefficient of Determination	決定係数
RFケーブル	Radio Frequency Cable	高周波ケーブル
RFモデル	Random Forest Model	ランダムフォレスト(Random Forest)モデル
RMSE	Root Mean Square Error	二乗平均平方根誤差
RPV	Reactor Pressure Vessel	原子炉圧力容器
RSD	Relative Standard Deviation	相対標準偏差
S/N	Signal-to-Noise Ratio	信号対雑音比
SBR	Signal to Background Ratio	信号背景ノイズ比
SEM	Scanning Electron Microscope	走査型電子顕微鏡
SMA	SubMiniature version A	SMAコネクタ
SOD	Source to Object Distance	対象物距離
SUS	Stainless Steel	ステンレス鋼
TMI-2	Three Mile Island-2	スリー・マイル・アイランド原子力発電所第2号炉
XRF	X-ray Fluorescence	蛍光X線分析法