平成 30 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

ロボット制御技術を用いた廃棄物中放射性核種分析の自動前処理システムの開発

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立研究開発法人　日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立研究開発法人　日本原子力研究開発機構が実施した平成 28 - 平成 30 年度「ロボット制御技術を用いた廃棄物中放射性核種分析の自動前処理システムの開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ iv

1. はじめに・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1

2. 業務計画

2.1 全体計画・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2

2.2 目標及び業務の実施方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4

3. 実施内容及び成果

3.1 自動アルカリ融解システムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6

3.1.1 開発の目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6

3.1.2 ハードウェアの設置・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6

3.1.3 ロボットハンド用ハンドルの設置・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 7

3.1.4 ロボットハンドの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 8

3.1.5 マッフル炉の温度制御プログラムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・ 9

3.1.6 自動アルカリ融解システムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 10

3.2 自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 14

3.2.1 開発の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 14

3.2.2 ハードウェアの設置・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・14

3.2.3 ロボットハンドの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 15

3.2.4 制御プログラムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 17

3.2.5 自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発・・・・・・・・・・・・・・・ 18

3.3 前処理残渣の物性研究（再委託先：東京工業大学）・・・・・・・・・・・・・・ 21

3.3.1 研究の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 21

3.3.2 試験方法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 21

3.3.3 結果及び考察・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 22

3.3.4 まとめ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 30

3.4 自動分解分離ロボットの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 32

3.4.1 開発の目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 32

3.4.2 多関節ロボットの基本制御プログラムの開発・・・・・・・・・・・・・・ 32

3.4.3 湿式分離システムの設計とロボットと連携動作可能な各種機器の開発・・・・・ 35

3.4.4 自動湿式分離プログラムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 40

3.5 自動廃液処理システムの開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45

3.6 研究推進・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 48

4. 結言・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 48

表一覧

表 3-1 コンクリート試料の特性・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 22
表 3-2 塩酸溶解液中の元素濃度・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 24

図一覧

図 2-1　廃棄物分析フローチャートと実施項目（上図）、実施項目（実施機関）と年次計画（下図）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
図 3-1 マッフル炉(ヤマト科学 FO710)と温度特性・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6
図 3-2 マッフル炉の外部温度制御システムの概念図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 7
図 3-3 マッフル炉の扉に取り付けられたロボットハンド用ハンドル・・・・・・・・・・・ 7
図 3-4 自動アルカリ融解におけるロボットの作業フロー図とニッケル坩堝・・・・・・・ 8
図 3-5 伸縮機能付き二本指電動ロボットハンド・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 9
図 3-6 マッフル炉温度制御プログラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 10
図 3-7 マッフル炉の扉を開く動作・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11
図 3-8 坩堝をマッフル炉へ入れる動作とアルカリ融解後のニッケル坩堝・・・・・・ 12
図 3-9 マッフル炉の扉を閉める動作・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 13
図 3-10 マイクロ波試料分解装置とコントロールユニット間の信号解析・・・・・・・ 14
図 3-11 マイクロ波試料分解装置に設置したドアハンドル・・・・・・・・・・・・・・・ 15
図 3-12 マイクロ波試料酸分解における動作フロー図と圧力ベッセル・・・・・・・・ 15
図 3-13 90 度回転機構付き三本指ロボットハンド・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 16
図 3-14 マイクロ波試料分解装置の外部制御プログラム・・・・・・・・・・・・・・・ 17
図 3-15 マイクロ波試料分解装置の扉を開ける動作・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 18
図 3-16 圧力ベッセルを開ける動作・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 19
図 3-17 マイクロ波試料分解装置の扉を閉める動作とセメント標準物質のマイクロ波試料分解の様子・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 20
図 3-18 電子顕微鏡で分析したコンクリート試料(a)、1M HCl 処理試料(b)、及び 6M HCl 処理試料(c)の BSE 像、EDS スペクトル及び元素マッピング・・・・・・・・・・・ 23
図 3-19 電子顕微鏡で分析した Cs 吸着コンクリート粉末試料の元素分布・・・・・・ 24
図 3-20 電子顕微鏡で分析したコンクリート試料(a)、1M HCl 処理試料(b)、及び 6M HCl 処理試料(c)の SEM 像及び EDS スペクトル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 25
図 3-21 Cs 吸着コンクリート粉末試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：16.1 keV）・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 26
図 3-22 Cs を吸着したコンクリート粉末試料の XANES スペクトル・・・・・・・・・・ 26
図 3-23 電子顕微鏡で分析した Sr 吸着コンクリート粉末試料の元素分布・・・・・・・ 27

図 3-24 電子顕微鏡で分析した Sr 吸着コンクリート粉末試料、1M HCl 処理試料、及び 6M HCl 処理試料の EDX スペクトル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28
図 3-25 Sr 吸着コンクリート粉末試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：16.1 keV）

・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29
図 3-26 Sr 吸着コンクリート粉末試料、1M HCl 処理試料、及び 6M HCl 処理試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：10.0 keV)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 29
図 3-27 Sr を吸着したコンクリート粉末試料の XANES スペクトル・・・・・・・・・・・ 30
図 3-28 敷設した走行軸と 2 台の多関節ロボットのレイアウト・・・・・・・・・・・・・ 32
図 3-29 多関節ロボットとサーボモータのハードウェア構成・・・・・・・・・・・・・・ 33
図 3-30 多関節ロボット制御プログラム メインスクリーン(上)とジョグモード(下) ・・ 34
図 3-31 走行軸制御プログラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 35
図 3-32 自動化する湿式分離分解のフローチャートと動作の分類・・・・・・・・・・・・ 36
図 3-33 ロボット用自動マイクロピペット・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 36
図 3-34 ロボット用自動マイクロピペットのハードウェア構成・・・・・・・・・・・・・ 37
図 3-35 マグネットホットスターラーと制御プログラム・・・・・・・・・・・・・・・・ 38
図 3-36 外部制御ホットプレートのハードウェア構成・・・・・・・・・・・・・・・・・ 38
図 3-37 自動真空ろ過装置と構成図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 39
図 3-38 自動真空ろ過装置制御プログラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 40
図 3-39 サブ VI のレイヤー構造・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 41
図 3-40 自動湿式分離プログラム・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 42
図 3-41 自動分注の動作・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 43
図 3-42 マシンビジョンを用いたビーカー位置検知機能・・・・・・・・・・・・・・・・ 44
図 3-43 自動廃液処理システムにおけるフローチャート・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
図 3-44 ロータリーエバポレータ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
図 3-45 ロータリーエバポレータの各種情報モニター・・・・・・・・・・・・・・・・・ 46
図 3-46 マシンビジョンによるロータリーエバポレータ監視システム・・・・・・・・・・ 47

略語一覧

EDS : Energy Dispersive X-ray spectroscopy（エネルギー分散型 X 線分析）

ICP-AES : Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry（誘導結合プラズマ発光分光分析法）

ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry（誘導結合プラズマ質量分析法）

JRR-3 : Japan Research Reactor No.3（3 号炉）

LSC : liquid Scintillation counter（液体シンチレーション・カウンター）

PID : Proportional-Integral-Differential

PIXE : Particle Induced X-Ray Emission（粒子線励起 X 線分析）

XAFS : X-ray absorption fine structure（X 線吸収微細構造）

XANES : X-ray Absorption Near Edge Structure（X 線吸収端近傍スペクトル）

VI : Virtual Instruments

概略

福島第一原子力発電所の廃炉に際しては多量の廃棄物が発生することが自明である。発生する廃棄物は通常の原子炉の場合と異なり、1～4 号機の全ての廃棄物が各種放射性核種によって汚染されている。よって、廃止措置に際して分析しなければならない試料量は膨大であり、少なくとも数百人体制の人員が必要であるが、それだけの人員の確保は極めて難しい。単純に分析技術を有した人員を数百人集めることが困難であるだけでなく、分析の前処理段階でかなりの被ばくが予測されるため、長期間の作業を行えば職業被ばく限度に達してしまう可能性が高い。よって人員一人あたりの作業時間が制限されてしまう。さらにはこのような過酷な作業を原発近傍で行う仕事を分析技能者が職業として選択しない可能性も高い。予算に関する問題も重大で、数百人もの人員を雇うためには人件費だけで年間 10 億円以上必要である。この問題を解決するために分析の簡略化、例えばこれまで液体シンチレーションカウンター（liquid Scintillation counter（LSC））を用いていた分析を誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）に置き換えることなどが検討されており、成功が期待されているが手法の確立には相当な困難が予測される。また、たとえ分析を簡素化できたとしても、試料を酸分解やアルカリ融解によって溶液化する作業は必須であり、湿式分離も依然として必要であるため、必要人員として少なくとも 200 人は必要である。

一方、研究代表者らは環境試料中の ^{90}Sr 分析における分離作業をロボット制御技術などを用いて自動化するシステムを開発してきた[1]。海産物や農作物に含まれる ^{90}Sr の分析には複雑な分離作業が必要であるが、これまで人間が行ってきた作業をロボット制御技術や画像認識などの各種制御技術を用いることによって自動化することに成功した。例えば、灰化した試料を酸化剤で煮込んで有機物を除去する作業では、これまで人間が常に試料を見張り、突沸させないように注意しながら酸化剤を加えていた。しかし我々はこの作業を画像認識を用いることでビーカー内の液面の状態を検知し、突沸を防ぎつつ適宜酸化剤を加えるように自動化した。さらに pH 調製、沈殿濾過、イオン交換といった複雑な過程をも自動化させることに成功した。

本研究では、これまでに開発した自動化技術をさらに発展・進化させることで、福島第一原子力発電所の廃止措置に伴って発生する大量の廃棄物の分析に応用することを目指す。これまでに開発した分離システムと本研究で取り組む廃棄物分析との大きな差は、まず試料の性質である。環境試料の分析では酸化剤を使って不要な有機物を分解除去するが、今回は無機物であるガレキ（コンクリート）の溶解分離が必要となる（本研究では金属は対象としない）。廃止措置で発生する廃棄物の大部分はコンクリートであるためである。本研究の課題は 2 つある。すなわち①コンクリート試料を分解する試料前処理の開発と、②酸分解から湿式分離までを全て一貫して自動化するシステムの技術開発、の 2 つである。

本研究では ^{79}Se などの揮発性の高い物質の分析に必要なアルカリ融解を用いる分離作業と、マイクロ波酸分解の自動化技術を新たに完成させる。これにより、燃焼ガス捕集の手順が必要となる 3 核種（^{3}H、^{14}C、^{129}I）以外の全ての核種を分離・分析することが可能な要素技術が揃うことになる。また我々がこれまでに開発したシステムでは、加熱酸分解・吸引濾過・イオン交換のそれぞれが独立したシステムとなっており、それらの連携は自動化されてはいない。例えば蒸発乾固させたビーカー試料は人間の手で次のステップへ移送するしかない。よって、完全な自動化を実現するためには各要素技術を連結して動作する技術を新たに開発する必要性がある。

本研究の実施範囲は、廃棄物の分析前処理のうち、粉末状になったコンクリート試料を放射性核種分析に供する試料として分離するまでの工程の自動化とする。よって大きなコンクリート片から粉末試料を回収する作業は含まれない。その理由は、現状でコンクリート片などの廃棄物から粉末試料を回収する方法が確定していないため、自動化のスキームを策定できないためである。また本研究で対象とする核種は ^{79}Se とする。その理由は、これまでに開発した自動 ^{90}Sr 分析システムで獲得した要素技術と、本研究で開発する自動化の要素技術とを組み合わせることで、燃焼・ガス捕集が必要な ^{3}H、 ^{14}C、 ^{129}I の 3 核種以外の核種の分析前処理に必要な要素技術が出揃うためである。

初年度にあたる平成 28 年度では提示した実施項目のうち、自動廃液処理システムの開発を除く実施項目を実施した。自動アルカリ融解システムの開発では、マッフル炉を設置して動作確認を行った。またロボットを使って坩堝を操作し、アルカリ融解を行うためのフローチャートを作成した。自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発ではマイクロ波加熱酸分解装置を導入し、高周波装置の申請、設置と動作確認を行った。前処理残渣の物性研究ではコンクリート試料の塩酸溶解不溶残渣を電子顕微鏡で観察し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得た。自動分解分離ロボットの開発では多関節ロボット 2 台と、それらを横に移動させる走行軸を既存のドラフト前に設置して動作確認を行った。

平成 29 年度では導入した各種機器を連動させて動作させるシステムの開発を進めた。また未着手である自動廃液処理システムの開発を開始した。自動アルカリ融解システム開発では、自動でアルカリ融解を行うためのマッフル炉の外部温度制御システムを設計・開発した。また二本指ロボットハンドの開発を行ない、制御プログラムを開発した。自動マイクロ波加熱酸分解システム開発では、マイクロ波加熱酸分解装置を外部制御可能とし、制御プログラムを開発した。また圧力ベッセルを操作できる三本指ロボットハンドを開発した。

前処理残渣の物性研究ではコンクリート試料を用いて、Cs 及び Sr を吸着させた試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得た。その結果から、電子顕微鏡及び放射光を用いた分析を組み合わせることにより、コンクリートに吸着した放射性核種の酸処理などの残渣試料の分析が可能であることを明らかにした。自動分解分離ロボットの開発では、設置した多関節ロボットの効率的なティーチングが可能なロボット制御プログラムと走行軸制御用基本プログラムを開発した。また湿式分離システムの開発を行い、これとロボットを連携動作させるためにホットプレートの外部制御を可能にした。自動廃液処理システムの開発ではロータリーエバポレータを設置して動作確認を行った後、自動化作業のフローチャートを作成した。次にロータリーエバポレータの各種情報、すなわち真空度、回転数、バス温度、蒸気温度を常時 PC 上でモニター可能とした。

最終年度に当たる平成 30 年度では ^{79}Se を完全自動分離するシステムの開発を進めた。自動アルカリ融解システムの開発では、多関節ロボットと走行軸を連動動作させる手法を開発し、これによってアルカリ融解の手順を全て自動化するシステムを完成させた。自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発においては、2 台の多関節ロボットと走行軸を連動させることで、圧力ベッセルのネジ式の上蓋を外す複雑な動作を実現することなどにより、システムを完成させた。これら 2 つのシステムは、続いて行われる複雑な湿式分離システムと統合された。自動マイクロピペッ

トや自動真空ろ過装置を開発し、これを多関節ロボットと組み合わせて動作させることにより、沈殿の生成とろ過を自動で行うことに成功した。

前処理残渣の物性研究では、引き続きコンクリート試料及びCsあるいはSrを吸着させたコンクリート粉末試料の酸分解残渣試料の研磨試料を作製し、これに対して詳細な物性情報を得るため、電子顕微鏡及びEDSによる観察と元素分析，及び放射光施設での分析を行った。コンクリート試料の直接分析及びコンクリート粉末試料を用いたCs及びSrの吸着試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得た。その結果、Cs を吸着したコンクリート試料の分析は、電子顕微鏡により充分行えることが分かった。さらに、骨材を含まないコンクリートペースト試料では、酸処理により吸着したCsのほとんどが溶出することを明らかにした。一方、Srの分析では、電子顕微鏡の加速電圧で Sr を検出することは不可能であるが、放射光において入射エネルギーを充分高くすることにより検出できること、及び Sr は吸着した化学状態と構造中に取り込まれた化学状態で存在することが分かった。これらの結果から、放射性Cs及び放射性Srで汚染されたコンクリート試料を分析するには、Csについては1M塩酸溶液などの酸処理により分析精度向上が可能である一方、Srについては、分析精度向上のためには放射性Srの直接測定が必要であることが明らかになった。

自動廃液処理システムの開発では、設置した2台のカメラとマシンビジョンによって、ロータリーエバポレータの温度や回転数などの各種パラメータを読み取り、さらにフラスコ内部の状態をカメラで常時観測することによって液面の状態を数値的に評価し、突沸現象を検知するシステムを開発した。

参考文献

[1] 野島健大、藤田博喜、永岡美佳、大澤崇人、横山裕也、小野洋伸（2016）環境試料中ストロンチウム-90分析用自動化システムの開発 Proceedings of the 16th Workshop on Environmental Radioactivity. 111-115.

1. はじめに

福島第一原子力発電所の廃止措置においては、通常の原子炉を廃炉にする場合とは比較にならないほど大量の放射性廃棄物が発生するため、廃棄物処理にあたっては極めて多数の試料の分析が必要となる。このような膨大な数の試料を分析するためには最低でも 200 人規模の分析技能者が必要であるが、それだけの人員を確保することは極めて困難である上、たとえ 200 人の人員を確保できたとしても分析に 10 年、場合によっては 25 年以上かかると考えられる。そこで我々はこれまで培ったロボット制御や画像認識の技術を駆使することで廃棄物分析の前処理を完全に自動化するシステムを開発する。

本研究の狙いは自動化技術によって、福島第一原子力発電所の廃止措置に伴って発生する多量の廃棄物の分析に貢献することである。環境試料や廃棄物分析などの各種放射性核種分析を効率化する研究開発は幾つかの研究グループによって行われているが、人間が行ってきた複雑な分離作業をロボットを用いてそのまま自動化する試みは我々の研究グループを除けば実行されていない。その理由は、複雑な分析プロセスを産業ロボット等を用いることで丸ごと自動化する技術を有している企業はなく、また、そのような知見と技量を有した研究グループも存在しないためである。

研究代表者はこれまでに自動即発γ線分析システムの開発と環境試料（海産物）中の自動 ^{90}Sr 分離システムの開発を行ってきた。前者は Japan Research Reactor No.3（JRR-3)ガイドホールに設置されている即発γ線分析装置に多関節ロボット等を新たに設置し、統合制御プログラムを開発することで自動試料交換と自動分析等を可能としたシステムである[1、2]。自動即発γ線分析システムは分析に必要なあらゆる機能を丸ごと自動化した初の成果であり、単純に自動分析を行うだけでなく、自動中性子モニター機能、自動ヘリウム流路・流量制御システム、画像認識を用いたフェールセーフ機能、自動メール送信機能など、様々な機能が一体として動作する。既設の大型装置を、その機能を全く損なうことなくロボット等の増設によって自動化した点においても特筆すべき成果である。そしてここで用いられた各種制御技術を複雑な湿式分離へと応用・発展させたものが自動 ^{90}Sr 分離システムである。

本研究ではこれまでの研究で培われた技術をさらに高度化することによって、福島第一原子力発電所の廃止措置に貢献する技術を確立する。本研究の方法論は他の研究グループが行っている様々な分析の簡素化や自動化の試みとも高い親和性を持っている。産業ロボットを用いた自動化技術はこれまでの研究成果が示しているように、既設の装置への増設という形で自動化を実現するものであり、大掛かりな専用設計のラインを必要とせず、専用設計のロボットも必要がない。本研究では複数の研究開発項目を掲げているが、これらを組み合わせることで、アルカリ融解を用いる分解フローと、マイクロ波酸分解を用いる分解フローとを開発する。これらの研究開発の成果を組み合わせることによって、廃棄物分析の前処理を自動化するシステムを開発する。

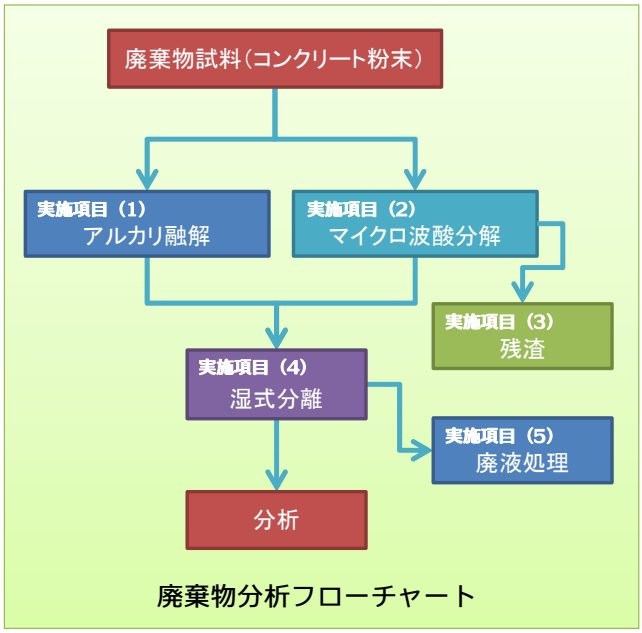
参考文献

[1] Osawa T. (2015) Development of an automatic prompt gamma-ray activation analysis system. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 303, 1141-1146. [2] Osawa T. (2016) Automatic prompt gamma-ray analysis system: Automation of an existing large-scale analytical device. In "Automation and Control Trends" EDS. by Pedro Ponce, Arturo Molina Gutiérrez, and Luis M. Ibarra. Pp.149-166, InTech, Croatia.

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2-1 に示す。



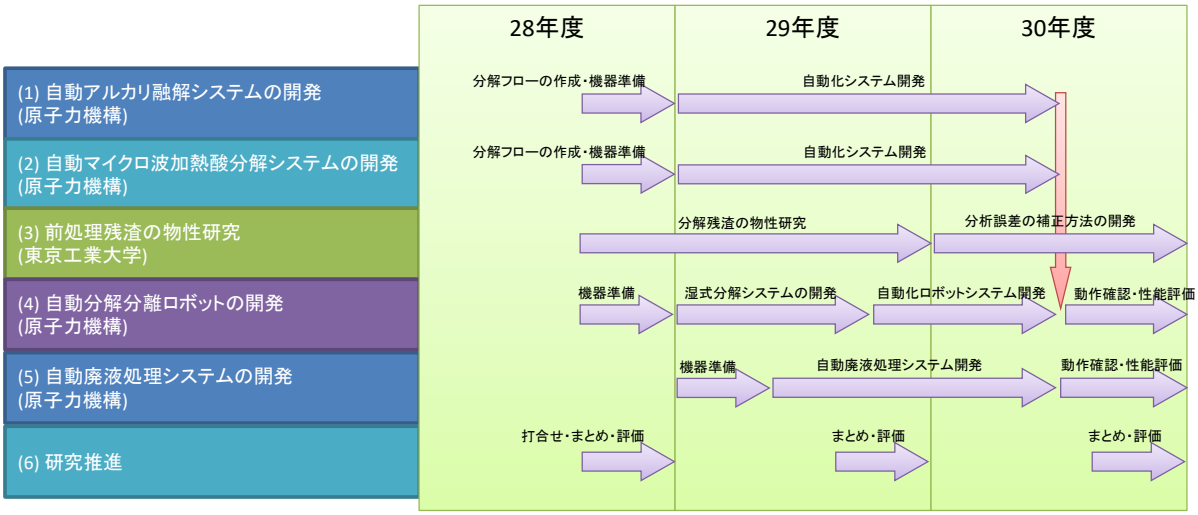


図 2-1　廃棄物分析フローチャートと実施項目（上図）、
実施項目（実施機関）と年次計画（下図）

(1) 自動アルカリ融解システムの開発

本項目では ^{79}Se や ^{99}Tc の分析で用いられるアルカリ融解の作業を自動化する。平成 28 年度は必要な機器の整備を行うと同時に自動化する一連の作業過程をまとめてフローチャートを作成し、これに従って装置全体の設計を行う。平成 29 年度には装置設計に従ってハードウェアの開発を行う。第二四半期以降はハードウェア開発と平行してソフトウェア開発を行う。平成 30 年度第三四半期には実施項目 (4) に移行する。

(2)自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発

廃棄物中の各種放射性核種の分析を行う場合の試料前処理としてマイクロ波加熱酸分解は広く利用される。本項目ではこのマイクロ波加熱酸分解の作業を自動化する。平成 28 年度は必要な機器の整備を行うと同時に自動化する一連の作業過程をまとめてフローチャートを作成し、これに従って装置全体の設計を行う。平成 29 年度には装置設計に従ってシステムの開発を行う。第二四半期以降はハードウェア開発と平行して中心となってソフトウェア開発を行う。平成 30 年度第三四半期には実施項目 (4) に移行する。

(3)前処理残渣の物性研究

廃棄物のマイクロ波加熱酸分解では溶けきらない不溶残渣が残る場合がある。こうした残渣の存在は分析の精確さを低下させる原因となるため、できる限り試料は全て溶かしたいが限界がある。そこで酸分解残渣に関する物性研究を行い、残渣の存在によって発生する分析誤差を補正する方法を提案する。本実施項目は東京工業大学が中心となって行う。平成 28 年度から 29 年度まで放射光 X-ray absorption fine structure (XAFS)や Particle Induced X-Ray Emission (PIXE)を用いた物性研究を行い、平成 30 年度は分析誤差の補正方法の提案を行う。

(4)自動分解分離ロボットの開発

本項目では自動湿式分離システムを作製し、これを実施項目 (1) と (2) で開発したシステムと統合させることで最終的に自動化ロボットシステムとして完成させる。平成 28 年度は必要な機器の整備を行うと同時に自動化する一連の湿式分離作業をまとめてフローチャートを作成し、これに従ってシステム全体の設計を行う。本研究では湿式分離の対象核種として ^{79}Se を対象としてレシピを組むが、プログラム的に分析対象核種に応じてレシピを簡単に選択可能な設計とする。平成 29 年度には装置設計に従ってシステム開発を行い、制御プログラムの開発を行うことで湿式分離システムを作製する。第三四半期以降は実施項目 (1) と (2) で開発したシステムと連動可能な自動化ロボットシステムの開発を開始する。平成 30 年度第三四半期に実施項目 (1) と (2) は本項目に合流する。開発した一連のシステムは動作確認と性能評価を行うことでシステムを完成させる。

(5)自動廃液処理システムの開発

本項目では廃液処理の作業を自動化する。開発は平成 29 年度から開始する。まず自動化する一連の作業過程をまとめてフローチャートを作成し、これに従ってシステム全体の設計を行う。平成 29 年度第二四半期より設計に従ってシステム開発を行い、ソフトウェアの開発も行う。平成 30 年度第三四半期以降、開発したシステムは動作確認と性能評価を行うことでシステムを完成させる。

(6)研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進める。

2.2 目標及び業務の実施方法

本事業においては5つの実施項目を設定し、それらを実行した。各実施項目の目標と実施方法を以下に示す。

(1)自動アルカリ融解システムの開発

コンクリートの粉末試料を水酸化ナトリウムと 550℃で反応させ、反応物を溶液化する作業を走行軸付き多関節ロボットや外部制御可能としたマッフル炉等を用いて自動化するシステムを開発する。まず、市販のマッフル炉は外部制御できないため、マッフル炉を外部制御できるように改造する。またマッフル炉の扉の取手をロボットハンドで開閉することが難しいため、ロボットハンドで掴みやすいハンドルを設置して、ロボットハンドで操作できるように改造する。ロボットハンドの開発を行なって多関節ロボットに装着し、マッフル炉の温度制御とロボット制御プログラムをLabVIEWで開発し、一連の操作を自動で行うシステムを開発する。その後、実施項目(4)へ合流する。

(2)自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発

自動でコンクリートの粉末試料をマイクロ波加熱酸分解するシステムを開発する。市販のマイクロ波試料分解装置は外部制御できるようになっていないため、制御プログラムを LabVIEWにて開発して外部制御可能にする。テフロン製の圧力ベッセルを把持するためのロボットハンドを開発し、これを多関節ロボットに装着する。ロボット制御プログラムをLabVIEWで開発し、一連の操作を自動で行うシステムを開発する。その後、実施項目(4)へ合流する。

(3)前処理残渣の物性研究（再委託先：東京工業大学）

廃棄物のマイクロ波加熱酸分解では溶けきらない不溶残渣が残る場合がある。こうした残渣の存在は分析の精確さを低下させる原因となるため、残渣物中の放射性核種濃度を算出する方法を確立する必要がある。そこで分解残渣に関する物性研究を行い、残渣物中放射性核種濃度を測定し、試料中全濃度を求める方法を確立する。

そのため、日本原子力研究開発機構から提供されたコンクリート試料を用いて、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡で観察し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得るとともに、Cs及びSrを吸着させた試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得る。

(4)自動分解分離ロボットの開発

コンクリートの粉末試料から ^{79}Se を分離する一連の複雑な操作を自動的に行うシステムを開発する。まず2台の多関節ロボットを走行軸上に設置する。設置した多関節ロボットと走行軸を制御するための基本プログラムをLabVIEWで開発し、ロボットの動きを記憶させるティーチングのアルゴリズムを確立する。また湿式分離システムの開発を行い、これとロボットを連携動作させるシステムを開発する。最終的には実施項目(1)で開発した自動アルカリ融解システム、及び実施項目(2)で開発した自動マイクロ波加熱酸分解システム、そして湿式分離システムが、走行軸付きロボットを介して連携動作するシステムを開発する。

(5)自動廃液処理システムの開発

放射性核種分析の前処理では必ず廃液が発生し、これの処理が現場の大きな負担となっているため、廃液処理の作業を自動化するシステムの開発を行う。自動化する一連の作業過程をまとめてフローチャートを作成し、これに従って廃液処理システム全体のハードウェア開発を行い、制御プログラムを LabVIEW で開発する。カメラを設置し、マシンビジョンによって液面の状態を確認できるプログラムを開発することで、突沸を防ぎつつ人間の操作を極力廃した廃液処理の自動化を実現する。

(6)研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進める。

3. 実施内容及び成果

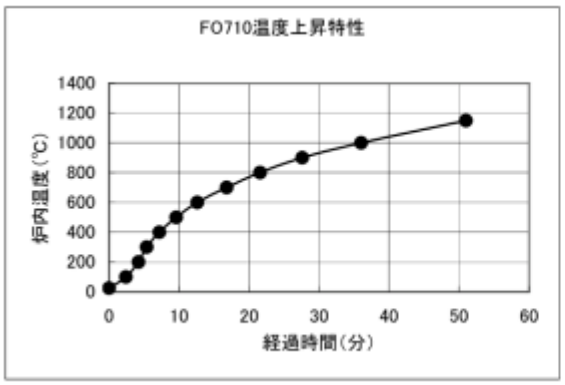
3.1 自動アルカリ融解システムの開発

3.1.1 開発の目的

廃棄物などに含まれる各種放射性核種分析において、アルカリ融解は ^{36}Cl、 ^{79}Se、 ^{99}Tc といった核種を分析する際の試料前処理法として利用されている。アルカリ溶融は試料を水酸化ナトリウムと共にニッケル容器に入れてマッフル炉中で 550℃で加熱を行うことで融成物を得ることがその主たる操作である。本開発項目ではこのアルカリ融解の前処理操作を、走行軸付き多関節ロボット等を使用することで自動化するシステムの開発を行う。

3.1.2 ハードウェアの設置

アルカリ融解は、ニッケル坩堝に入れた粉末試料を水酸化ナトリウムと共に 550℃で加熱する作業である。よって、その自動化にあたってはマッフル炉を外部から温度制御できなければならない。しかし外部制御可能なマッフル炉は製品としては存在しない。そこで、外部制御可能なマッフル炉のシステムを開発した。マッフル炉は熱容量が大きいため温度制御が困難であるが、正確な温度制御を行うため、オーバーシュートを含めて±2℃未満の精度の達成を目指して開発を進めた。動作確認を行ったマッフル炉を以下に示す。



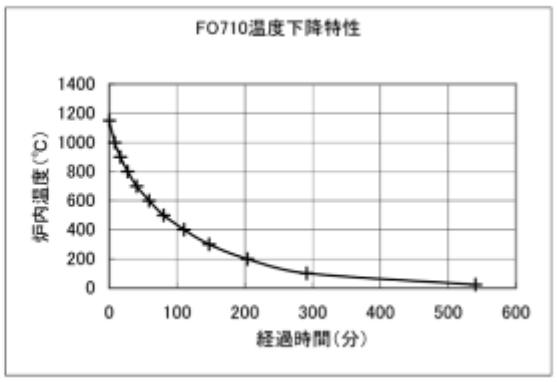


図 3-1　マッフル炉(ヤマト科学 FO710)と温度特性

まずマッフル炉の外部温度制御システムを設計した。マッフル炉に組み込まれている R 熱電対

の電圧から温度を読み取り、その情報を元にして、ソリッドステートリレーを動作させて交流200Vの ON/OFF を制御することで温度を制御する。ソリッドステートリレーはアナログ出力モジュールからバルス状に電圧を掛けることによって動作させる。温度の読み取りとソリッドステートリレーへの信号出力を LabVIEW で行うことで、既存のマッフル炉の外部制御が可能となった。温度制御プログラムは独自の Proportional-Integral-Differential (PID)アルゴリズムを組み込んだものを開発した(詳細は 3.1.5 に示す)。R 熱電対の起電力の読み取りとアナログ出力は NI CompactRIO から行う。

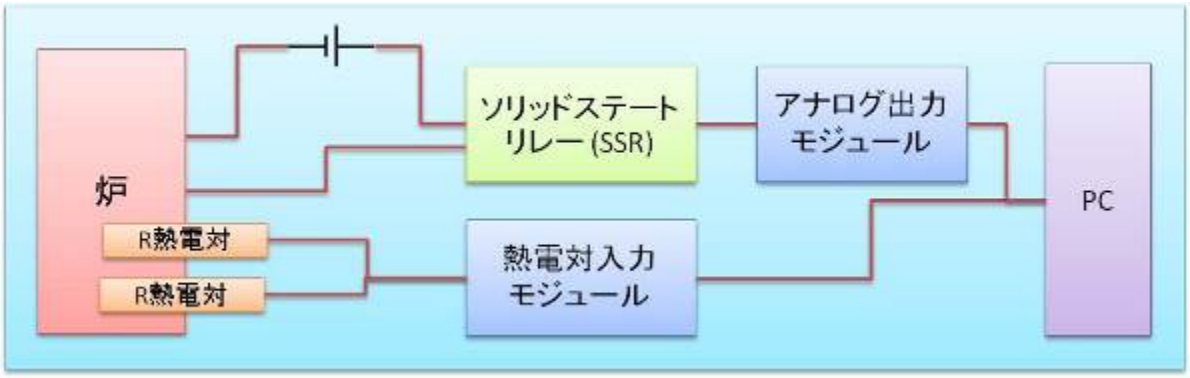


図 3-2　マッフル炉の外部温度制御システムの概念図

3.1.3 ロボットハンド用ハンドルの設置

図 3-3　マッフル炉の扉に取り付けられたロボットハンド用ハンドル

マッフル炉の扉は、初期状態では人間が手の親指でボタンを押してロックを解除して開く構造になっているが、このままではロボットハンドで操作することが難しい。親指でボタンを押す動作と、ボタンを押しながら扉を開く動作を連続して行う必要があるが、ロボットで確実に扉を開閉するためには、ロボットハンドが把持しやすい構造のハンドルを設置することが有効

である。そこで図 3-3 に示すように、扉のロボットハンド用のハンドルを設置した。また扉の固定のために磁石を設置して、扉が勝手に開かないようにした。

3.1.4 ロボットハンドの開発

アルカリ融解を自動で行うためには、ロボットでマッフル炉を開閉し、試料と水酸化ナトリウムを入れたニッケル坩堝に蓋を被せ、坩堝を掴んで炉内に導入し、反応後に扉を空け、坩堝を取り出すという一連の操作が必要である。これを実現するためのロボットハンドの開発を行った。以下にロボットの作業フロー工程を示す。

図 3-4　自動アルカリ融解におけるロボットの作業フロー図とニッケル坩堝

自動アルカリ融解にて使用するロボットハンドは二本指の電動ロボットハンドと伸縮性のあるシリンダーを組み合わせた構造を持つ（図 3-5）。この構造により、坩堝を適格に把持でき、伸縮機能によってマッフル炉の奥に容器を導入することが可能である。

ロボットハンドの設計と同時にニッケル坩堝の蓋にも改造を加えた。市販のニッケル坩堝には蓋が付属しているが、形が単なる円盤状であり、ロボットハンドで把持するのが難しい。そこでマイクロスポット溶接機を使用してニッケルの蓋にニッケルの取手を取り付けた（図 3-4）。これによってロボットハンドが簡単に坩堝の蓋をハンドリングできるようになった。

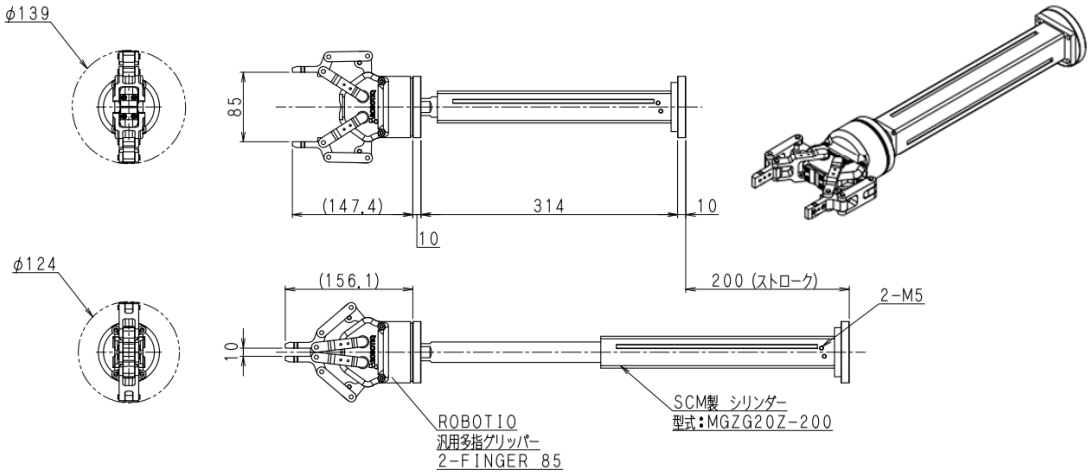


図 3-5　伸縮機能付き二本指電動ロボットハンド

3.1.5 マッフル炉の温度制御プログラムの開発

3.1.2 で設計した温度制御システムを動作させるためのプログラムを LabVIEW にて開発した。このプログラムは NI CompactRIO で読み取った炉の温度情報を用いて PID 制御(Proportional-Integral-Differential Controller)を行っている。PID の出力を SSR の ON/OFF の時間比率に換算して出力することで温度制御する。また温度上昇の際の設定温度をマッフル炉の温度上昇特性に合わせて最適化し、オーバーシュートができる限り生じないようにしている。この独自の PID プログラムによって、600℃加熱時に精度 2℃未満という高い精度での温度制御を実現した。

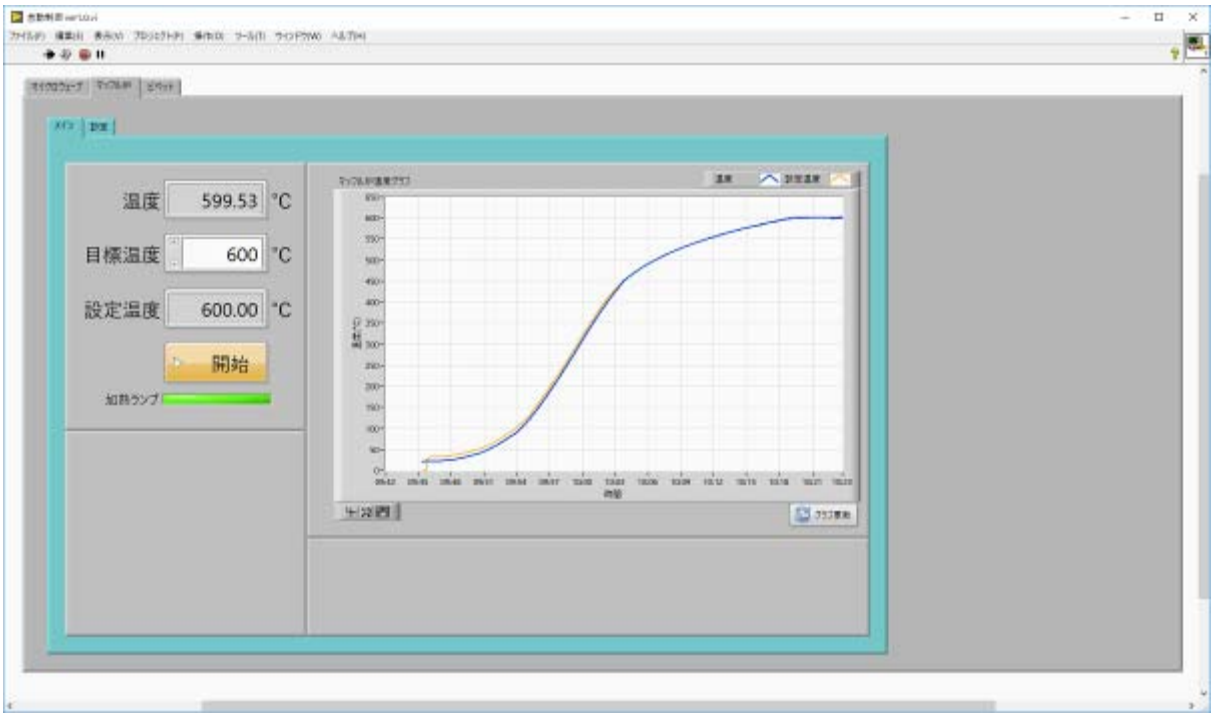


図 3-6　マッフル炉温度制御プログラム

図 3-6 に開発したマッフル炉温度制御プログラムの画面と加熱結果を示す。橙色の線が設定温度、青色の線が測定温度である。開発した温度制御プログラムでマッフル炉を 600℃に昇温させた時の温度プロファイルを示している。図に示すように、測定温度と目標温度に応じて設定温度をスムーズに変化させる独自のアルゴリズムによって、室温からの加熱時には 1℃未満のオーバーシュートの後、安定して定温を維持できた。マッフル炉に付属の温度コントローラでは、スペック上 1150℃において±2.0℃の精度を有しているが、低温ではオーバーシュートが極めて大きくなってしまい、600℃では 10℃以上の誤差が生じる。本プログラムでは 600℃で 2℃未満の精度を達成しているため、大幅に性能が向上している。

このプログラムによって炉の温度をモニターできることは自動化システムの構築において重要である。なぜならば、炉が高温の状態のままで扉を開閉することはロボットにとって危険であるからである。本プログラムによって炉の温度が管理できるようになったため、ロボットの安全を確保した上で扉の開閉ができるようになった。

3.1.6 自動アルカリ融解システムの開発

3.1.5 で開発した温度制御プログラムを、3.4 にて開発した多関節ロボットと走行軸制御プログラム（後述）と連動動作させることによって、一連のアルカリ融解の操作を自動的に行うシステムを開発した。自動で行う動作は以下である。

まず、コンクリートの粉末試料と Se 担体と水酸化ナトリウムを入れた坩堝を所定の位置に人間が置く。この操作を人間が行うことにした理由は、試料の状態を人間が一度は判定すべきであると考えられるためである。そこで、試料と Se 担体と水酸化ナトリウムを坩堝に入れた状態からスタートすることにした。制御プログラムの開始ボタンを押すと、多関節ロボットと走行軸が動作を開始して、マッフル炉の扉を開く（図 3-7）。次に多関節ロボットが坩堝を把

持してマッフル炉に導入する（図 3-8）。ロボットハンドの伸縮機能を使うことによって、マッフル炉の中まで坩堝を入れることが可能である。次にマッフル炉の扉を閉め（図 3-9）、マッフル炉の加熱を開始する。加熱が終了すると、ロボットが扉を少しだけ開けてマッフル炉を冷まし、少し冷えたことを確認した後に扉を完全に開け、55℃未満まで冷えた後に坩堝を取り出し、扉を閉める。

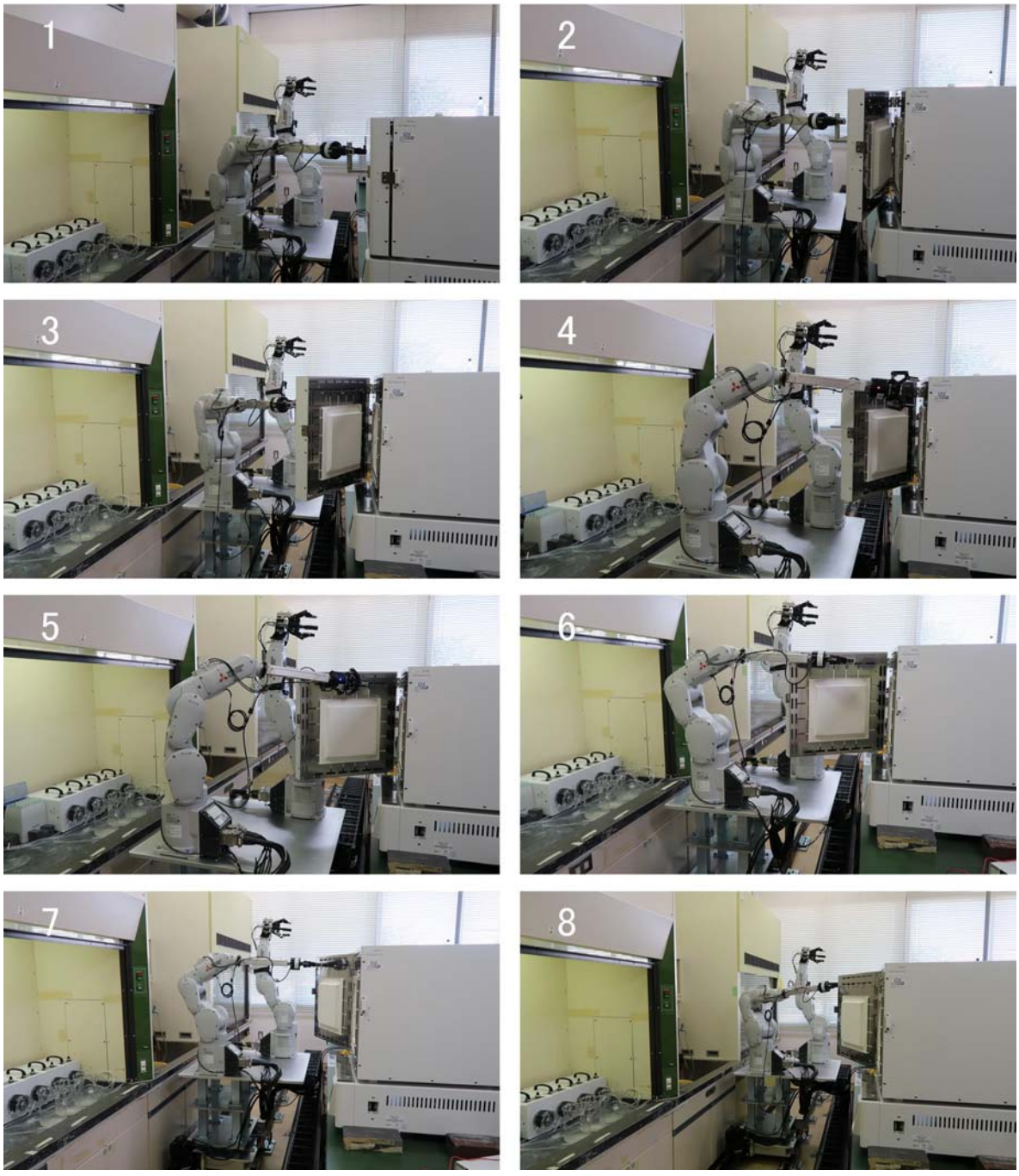


図 3-7　マッフル炉の扉を開く動作

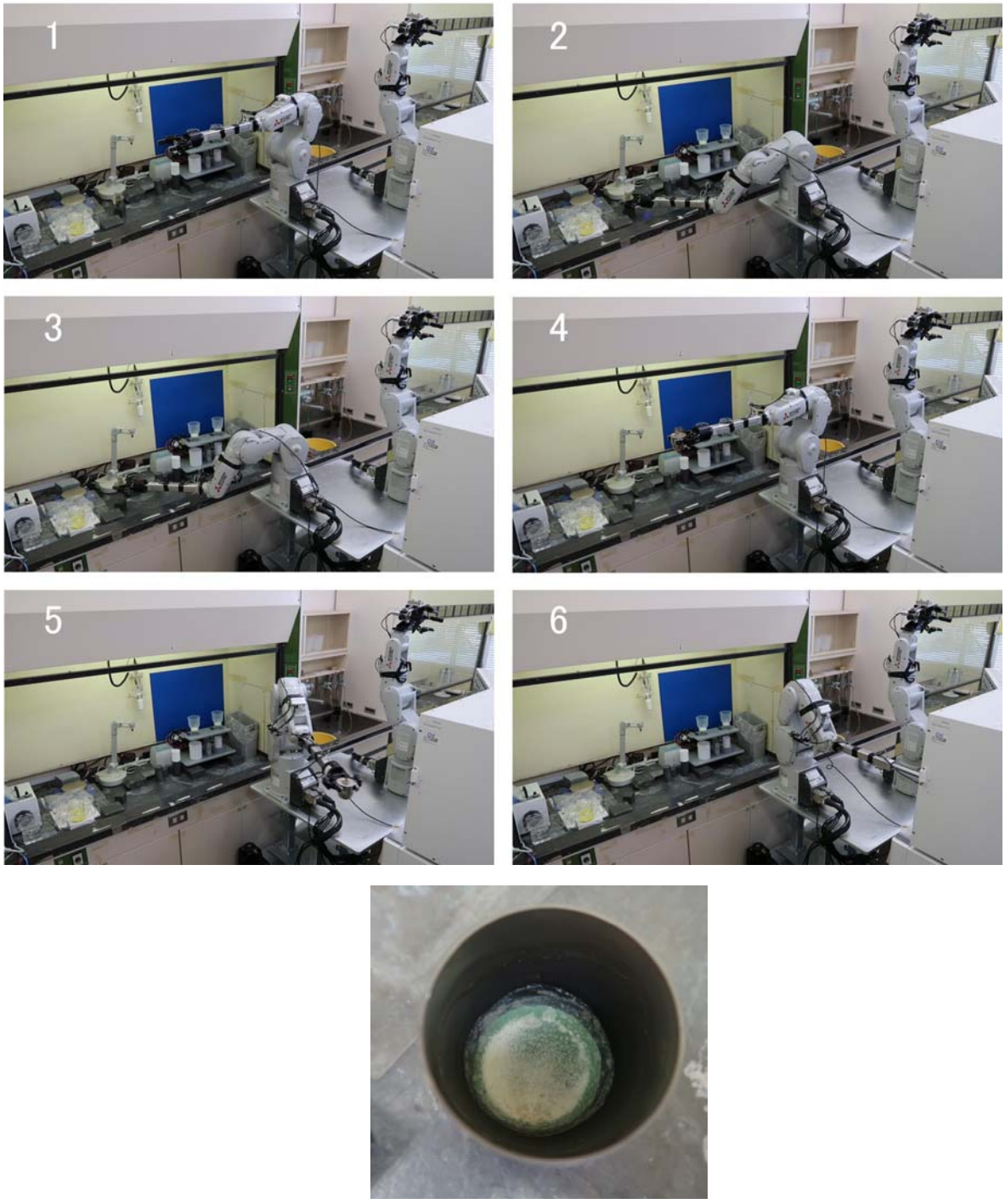


図 3-8　坩堝をマッフル炉へ入れる動作とアルカリ融解後のニッケル坩堝

化学分析用セメント標準物質 211S を用い、本システムを用いたアルカリ融解の実験を行った。アルカリ融解後のニッケル坩堝の内部の様子を図 3-8 に示す。システムは異常なく動作し、セメント標準物質は水酸化ナトリウムによって溶融した後に冷えて固化した状態でマッフル炉から多関節ロボットにより取り出された。ロボットハンドの伸縮速度を細かく調整したことで、坩堝の内容物が坩堝の蓋から溢れることもなく、人間の操作と同等の動作を安全に実行することが可能となった。

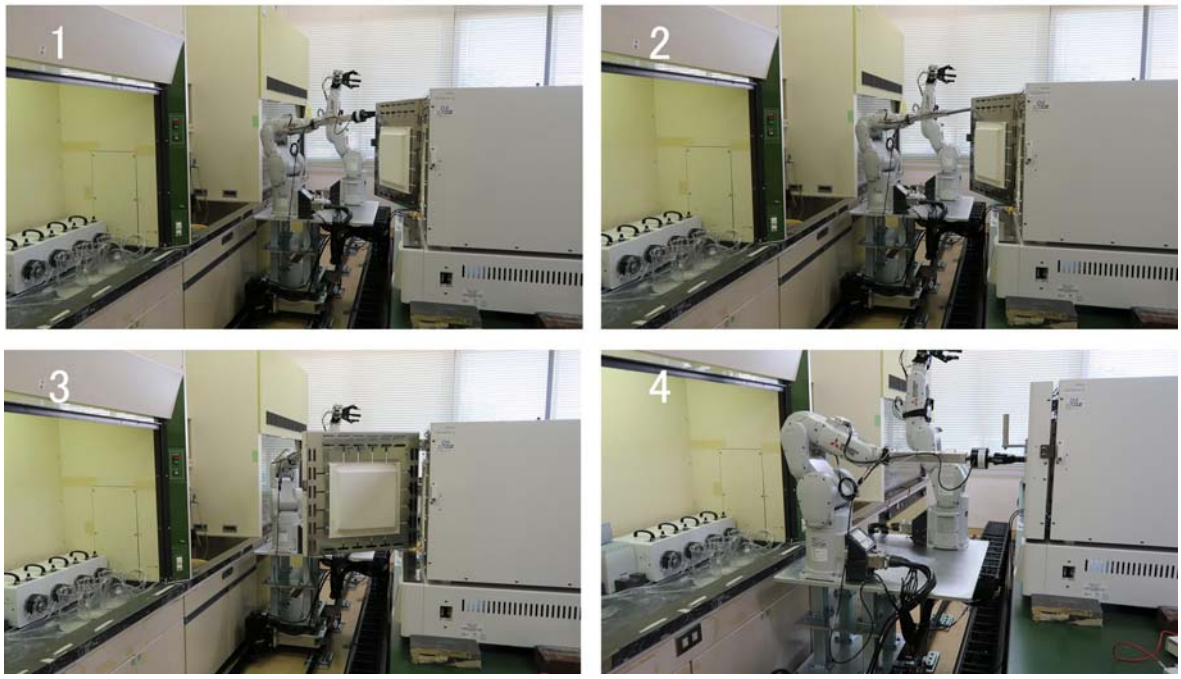


図 3-9　マッフル炉の扉を閉める動作

これらの開発により、コンクリート試料を水酸化ナトリウムと 550℃で反応させて反応物を溶液化する作業を、多関節ロボットや外部制御可能としたマッフル炉等を用いることで自動アルカリ融解システムを完成させた。

3.2 自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発

3.2.1 開発の目的

廃棄物などに含まれる各種放射性核種分析において、マイクロ波酸分解は試料を分解する時間を短縮するために有効な手段として広く利用されている。マイクロ波試料分解装置は試料にマイクロ波を照射して加熱する装置であり、試料は酸と共に専用のテフロン容器に封入する。容器内が高温高圧となるため、短時間で酸分解が進む。本開発では、瓦礫試料の酸性溶液下で揮発しにくい ^{60}Co、^{63}Ni、^{90}Sr、^{94}Nb、^{152}Eu、^{154}Eu、^{238}Pu、^{239}Pu、^{240}Pu、^{241}Am、^{244}Cm といった核種の分析前処理手法として利用されるマイクロ波試料酸分解操作の自動化システムを開発する。

3.2.2 ハードウェアの設置

マイクロ波試料分解装置として前年度に Analytikjena 社製マイクロウェーブ試料分解装置 TOPwave を設置し、動作確認を行った。マイクロ波加熱酸分解は、テフロン容器に入れた粉末試料を塩酸・硝酸と共に加熱して分解させる作業である。よって、その自動化にあたってはマイクロ波試料分解装置を外部から制御できなければならない。しかしコントロールユニットとの通信で使用される RS232C のコマンドは非公開である。そこで RS232C のコマンドを解析し、コマンドリストを作成した。分岐させた信号線を製作し、マイクロ波試料分解装置とコントロールユニット間の信号線をバイパスさせて PC に接続することで信号を解析した。正しいボーレート、パリティ、デリミタを解読した後、コントロールユニットからのコマンドを解析した。次に信号線を逆転させて Reply 信号も解析して完全なコマンドリストを製作し完成させた。これにより NI CompactRIO から直接マイクロ波試料分解装置が制御可能になったためコントロールユニットは不要となった。

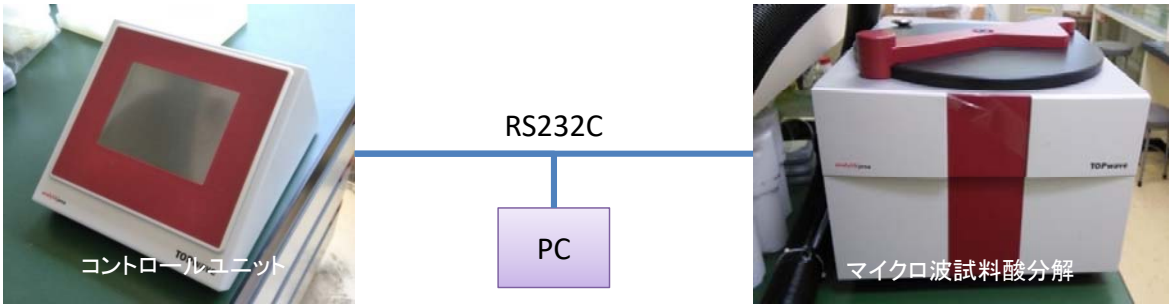


図 3-10　マイクロ波試料分解装置とコントロールユニット間の信号解析

TOPwave の扉の構造は、トップローディング式のスライドドアであるが、ロボットハンドが把持できるような突起がない。そこでロボットハンドで把持できるハンドルを扉に設置した。これによって多関節ロボットによる扉の開閉が可能になった。

図 3-11　マイクロ波試料分解装置に設置したドアハンドル

3.2.3 ロボットハンドの開発

マイクロ波試料酸分解を自動で行うためには、ロボットで TOPwave の扉を開閉し、試料と酸を入れたテフロン製ベッセルに内蓋を被せた後に外蓋を封じ、ベッセルを掴んで TOPwave に導入し、酸分解反応後に扉を空け、ベッセルを取り出すという一連の操作が必要である。そこでこれらの動作を実現するためのロボットハンドの設計を行った。図 3-12 にロボットの作業工程をまとめたものを示す。

	走行軸動作	ロボッド左	ロボット右
TOPwaveの扉を開く	○	×	○
圧力ベッセル導入	○	×	○
TOPwaveの扉を閉じる	○	×	○
マイクロ波試料酸分解	×	×	×
TOPwaveの扉を開く	○	×	○
圧力ベッセル取出	○	×	○
外蓋・内蓋を外す	×	○	○
TOPwaveの扉を閉じる	○	×	○

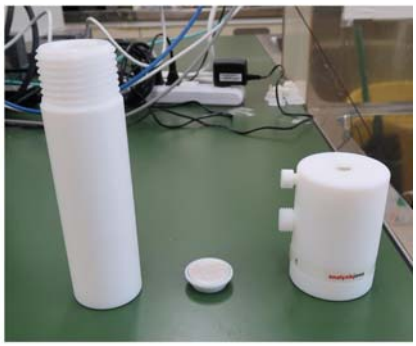


図 3-12　マイクロ波試料酸分解における動作フロー図と圧力ベッセル

ここで開発するロボットハンドは、2 台のロボットのうち右側のもの（ロボット右）に設置するものである。一連の作業を行うためには圧力ベッセルを上方から把持する機構を有したロボットハンドが必要であるため、3 本指のロボットハンドを設計した。駆動には圧縮空気を使用している。このロボットハンドには 2 台のアクチュエータが設けられており、ロボットハンドの開閉だけでなく、ロボットハンド自体を垂直に曲げることができる。この機構によって、

ロボットハンドが直線方向の時にはロボットの第 6 軸を使って圧力ベッセルの蓋を回転させることができる。またロボットハンドを垂直方向に曲げれば、ロボットハンドで把持できる範囲を広げることができる。このように、ロボットハンド自体に第 7 軸とも呼べる機構を導入することで、より複雑な動きが可能となった。

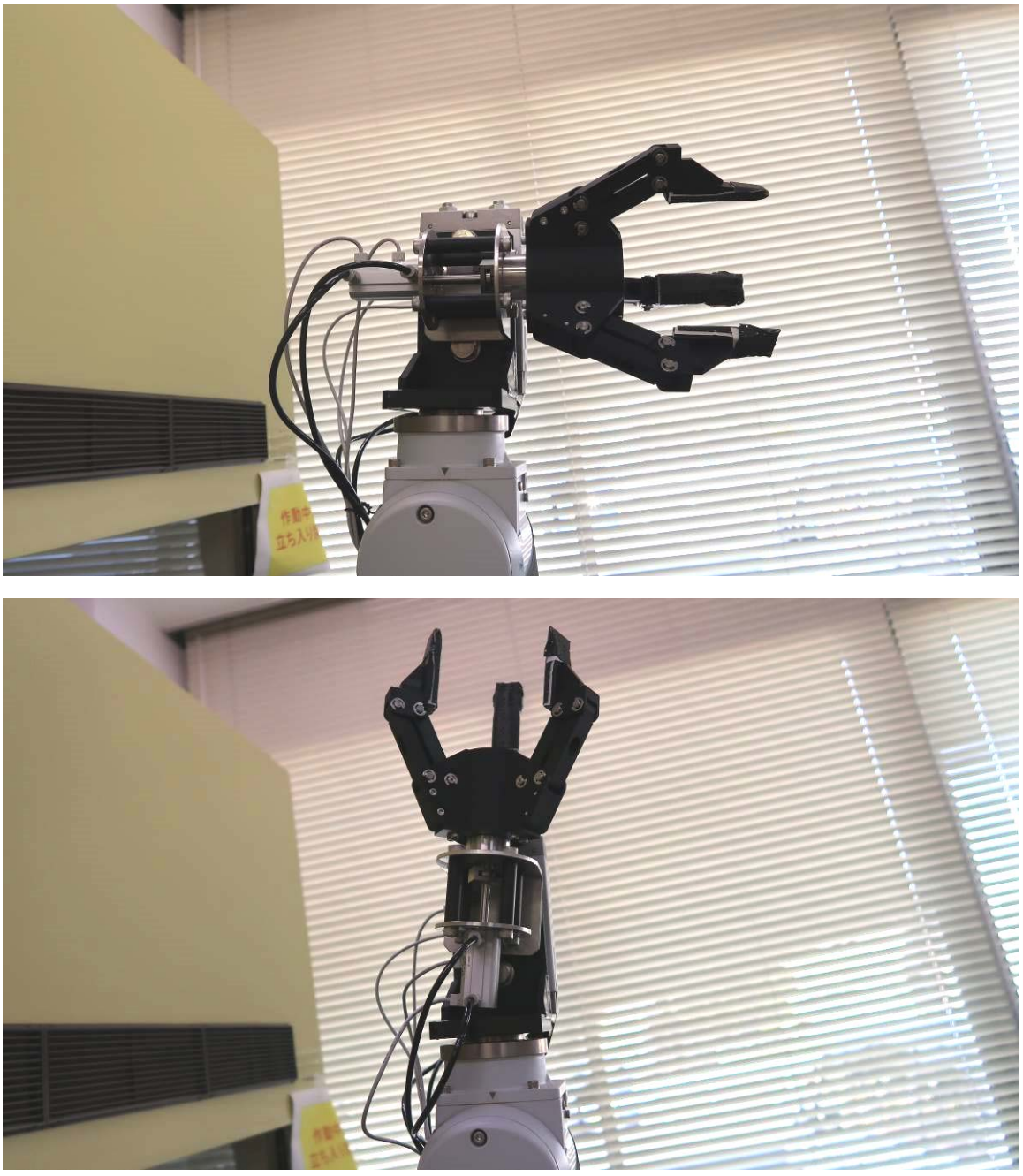


図 3-13　90 度回転機構付き三本指ロボットハンド

3.2.4 制御プログラムの開発

マイクロ波試料分解装置を LabVIEW から制御する必要があるため、外部制御プログラムを開発した。解析した RS232C のコマンドにより、既設のコントロールボックスの機能を LabVIEW で代替させて外部制御を可能にした。以下に開発した制御プログラムの画面を示す。

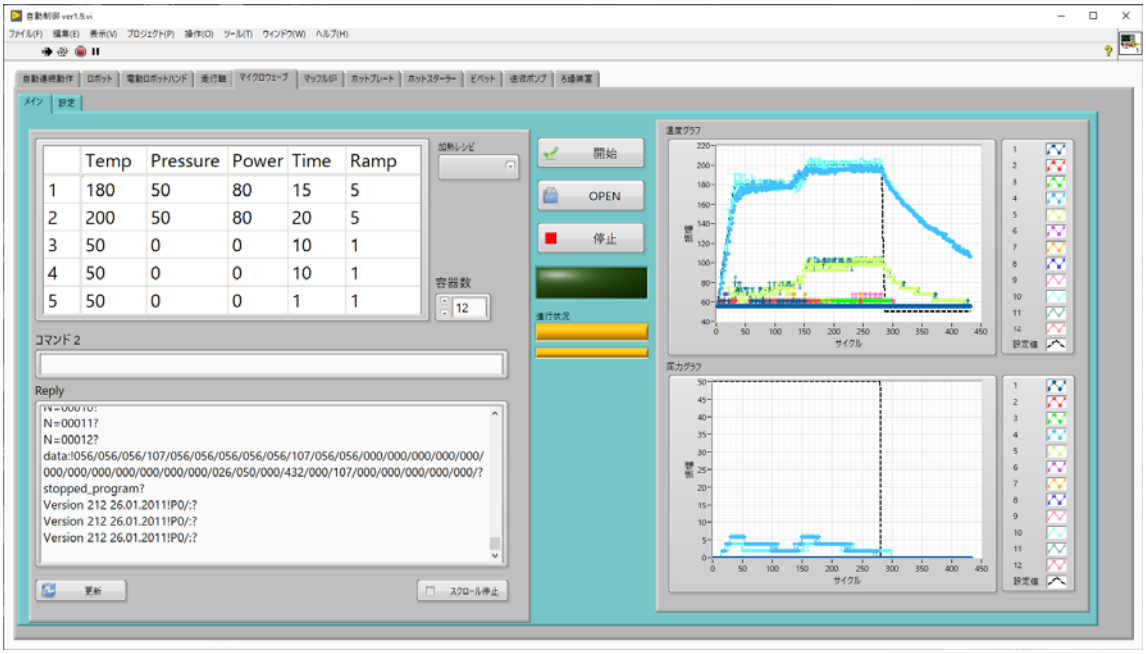


図 3-14　マイクロ波試料分解装置の外部制御プログラム

外部からの扉のロック解除、任意の加熱レシピの指定を実現することにより、マイクロ波試料分解装置と多関節ロボットの動作とを連動させることが可能になった。本研究ではコンクリートのみを分析対象としているが、プログラムの加熱レシピは様々な試料に対応可能とした。加熱分解中のベッセル内部の温度と圧力はグラフ表示可能であり、加熱分解の進捗状況及びターンテーブルの回転状況はバーチャートで表示することができる。本プログラムでは測定データの確認や抽出が容易であり、進捗度の表示も視認性が高く、レシピのカスタマイズも自在であり、既設のコントロールボックスを大幅に上回る操作性と機能を実装している。

次に図 3-12 に示す一連の動作をロボット制御プログラムに記憶させるために必要なロボット制御プログラムを開発した。本ロボット制御プログラムを含めたロボットシステムの詳細は 3.4 にて詳しく述べる。マイクロ波加熱酸分解装置の外部制御プログラムとロボット制御プログラムは LabVIEW 上の 1 つの VI(Virtual Instruments の略で、プログラムのこと)の中に統合実装されているため、連動動作が可能である。この統合プログラムは効率的なロボットティーチングを行うための各種機能を備えている。

3.2.5 自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発

3.2.4 で開発したマイクロ波試料分解装置制御プログラムを、3.4 にて開発した多関節ロボットと走行軸制御プログラム（後述）と連動動作させることによって、図 3-12 で示した一連のマイクロ波試料分解の操作を自動的に行うシステムを開発した。扉を開ける動作、圧力ベッセルを取り出す動作、そして扉を閉める動作についてそれぞれ説明する。

扉を開ける動作においては、まず多関節ロボット（ロボット右）が所定の位置まで移動して待機する。ロボットハンドを閉じた状態にし、ロボットハンドをドアハンドルに近接させた位置とする。次に制御プログラムが扉のロック解除信号を装置に送ると扉のロックが外れるため、間髪入れずにロボットハンドの開放信号を送ってロボットハンドを開くことによりドアハンドルを押し、扉をロック位置からずらす。扉がロック位置にあると、再度ロックされてしまうからである。ロボットハンドを開いたままの状態でロボットハンドの側面を使ってドアハンドルを押して、60 度ほどの角度まで開く。次に走行軸を移動させて多関節ロボットの位置を移動させ、ドアハンドルを 3 本指ロボットハンドで把持し、円弧運動によってドアを完全に開放する。

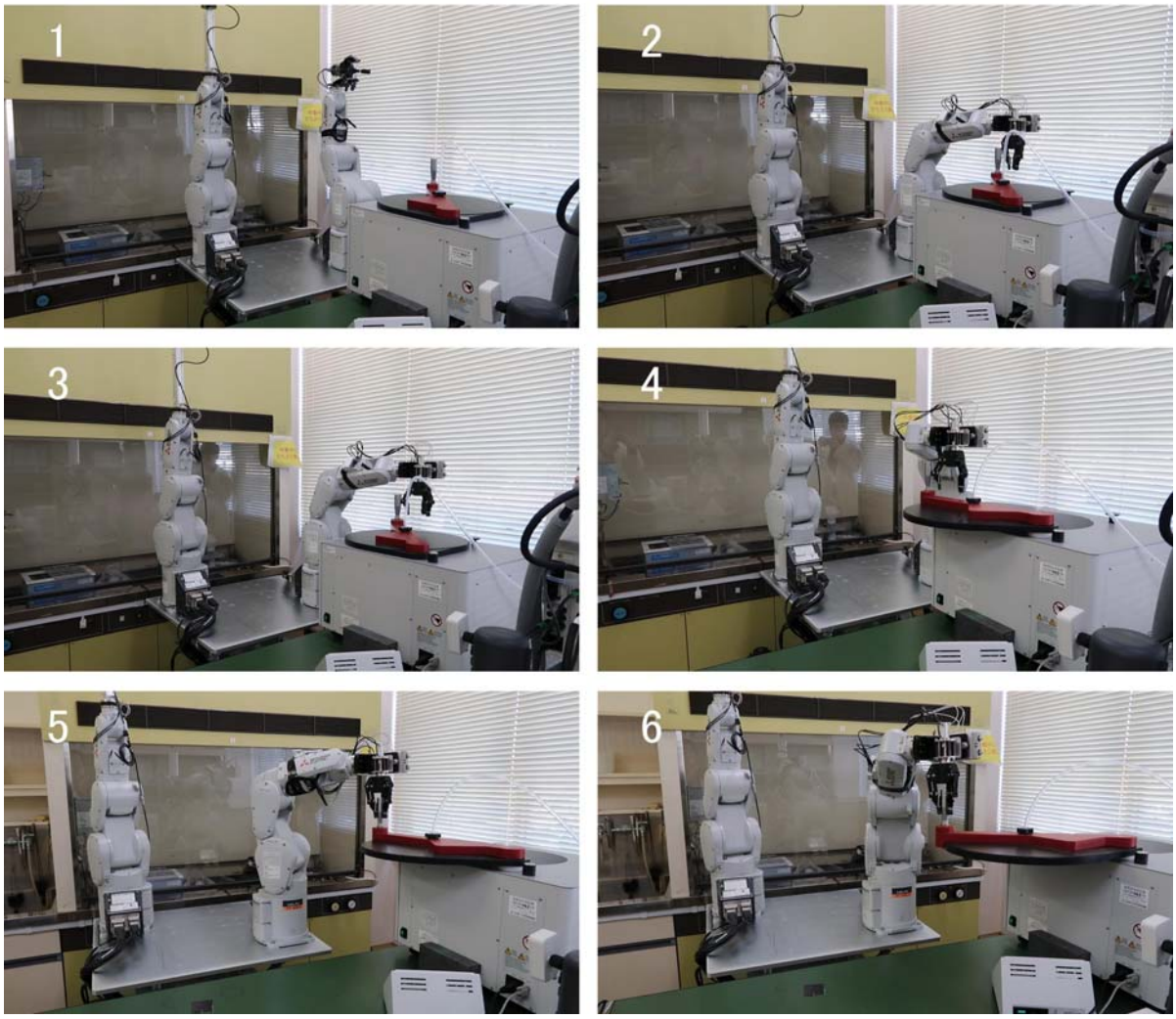


図 3-15　マイクロ波試料分解装置の扉を開ける動作

マイクロ波試料分解装置から圧力ベッセルを取り出して上蓋と中蓋を外す動作では、2 台の

多関節ロボットを連動動作させる。ロボット右で装置から圧力ベッセルを取り出した後、圧力ベッセル下部をロボット左が把持する。ロボット右の 3 本指ロボットハンドを垂直方向から直線方向へ回転させてから圧力ベッセルの上蓋を把持し直す。この状態でロボット右の第 6 軸を回転させて、少しずつ上蓋を回していく。4 回ほどこの回転動作を繰り返すと上蓋が外れるので、上蓋を置いた後に中蓋を把持してこれを外す。

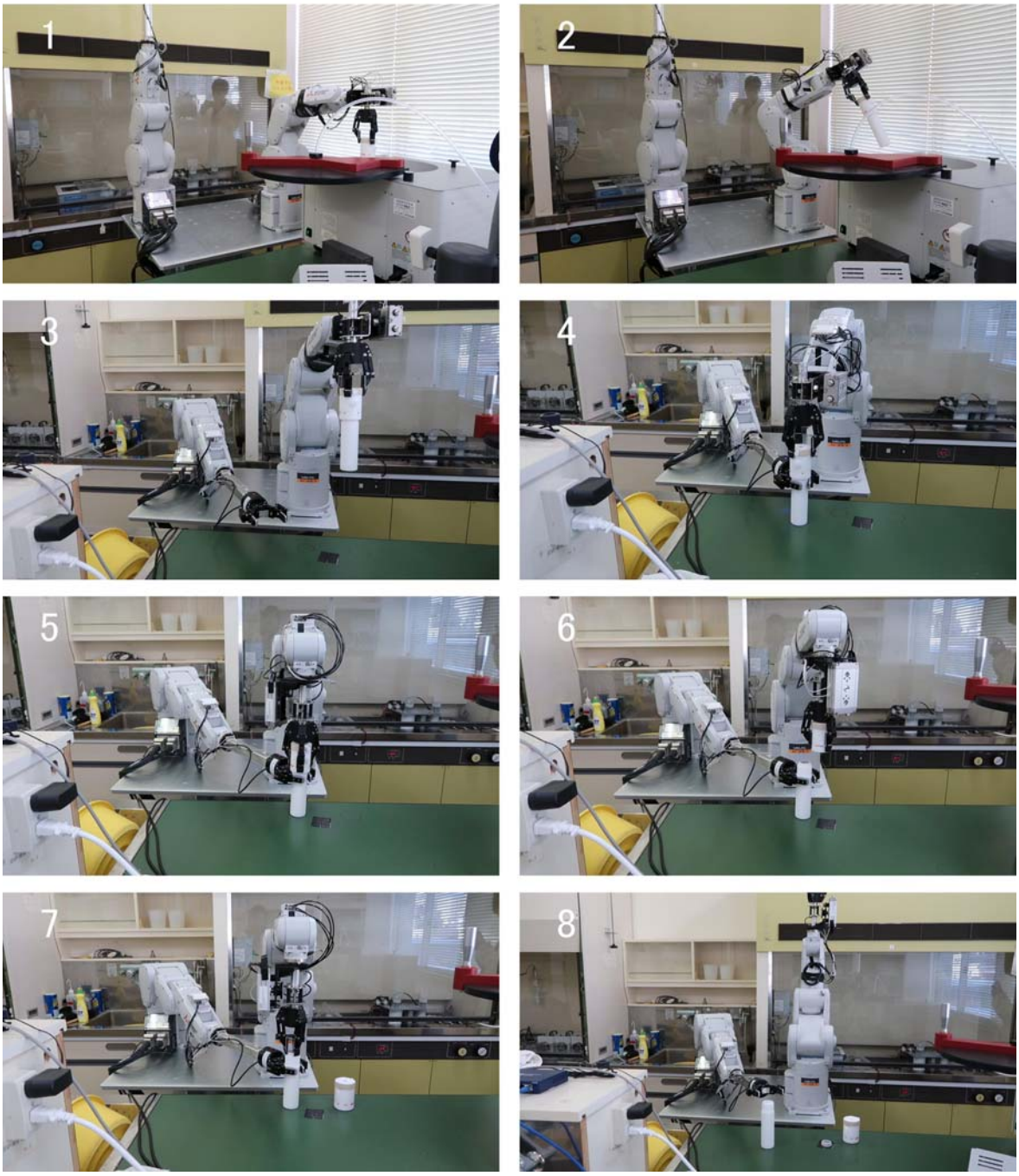


図 3-16　圧力ベッセルを開ける動作

マイクロ波試料分解装置の扉を閉める動作は開ける動作と少し異なっている。ドアハンドルを把持して円弧運動する動作は開ける動作の逆である。しかしこの後ロボットハンドを開き、

指の一本をドアハンドルの横まで少し動かした後、走行軸を使ってドアハンドルを押してあげると、扉は勝手にスライドして閉まることになる。

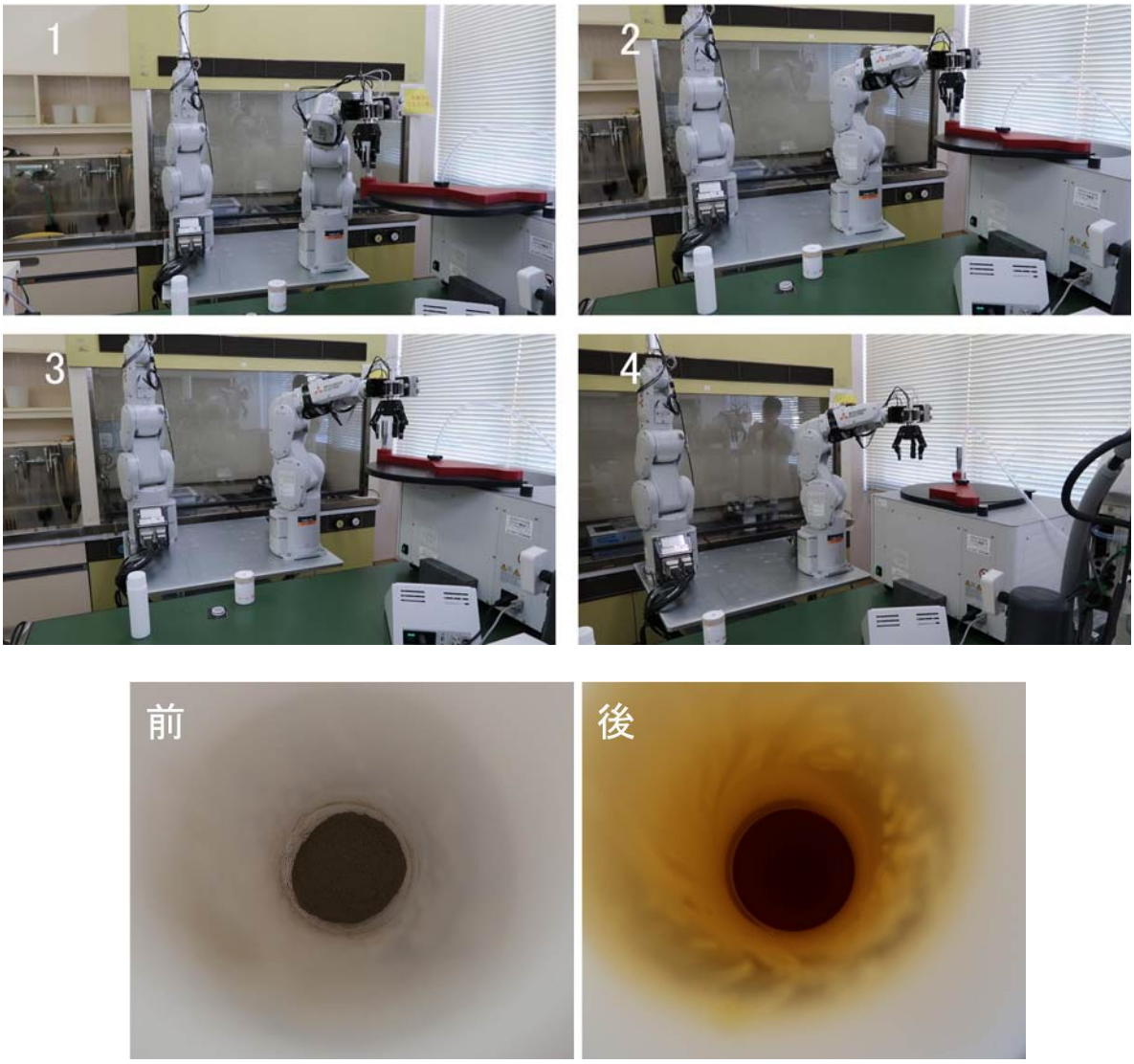


図 3-17　マイクロ波試料分解装置の扉を閉める動作と
セメント標準物質のマイクロ波試料分解の様子

本システムを用いてセメント標準物質 211S を王水で分解する行程を行った。150℃で 15 分、200℃で 20 分の加熱を行った。温度プロファイルを図 3-14 の右上のグラフに、圧力プロファイルを図 3-14 の右下のグラフに示す。圧力ベッセルは温度が 50℃未満まで十分に冷えた後に安全に取り出された。セメント標準物質のマイクロ波試料分解前後の様子を図 3-18 に示す。標準物質は酸によって溶かされて黄褐色の液体となった。本システムによって、人間が行うのと同等のマイクロ波試料分解が可能となった。

これらの開発により、コンクリート試料を酸とマイクロ波加熱によって反応させ、反応物を取り出す作業を多関節ロボットや外部制御可能とした自動マイクロ波加熱酸分解システムを完成させた。

3.3 前処理残渣の物性研究（再委託先：東京工業大学）

3.3.1 研究の目的

廃棄物のマイクロ波加熱酸分解では溶けきらない不溶残渣が残る場合がある。こうした残渣の存在は分析の精確さを低下させる原因となるため、残渣物中の放射性核種濃度を算出する方法を確立する必要がある。そこで分解残渣に関する物性研究を行い、残渣物中放射性核種濃度を測定し、試料中全濃度を求める方法を確立する。

そのため、日本原子力研究開発機構から提供されたコンクリート試料を用いて、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡で観察し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得るとともに、Cs 及び Sr を吸着させた試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得る。

3.3.2 試験方法

コンクリート試料は日本原子力研究開発機構から供されたコンクリート粉末試料（以下、コンクリート粉末試料、とする）及び骨材を含むコンクリート試料（コンクリート試料、とする）である。コンクリート粉末試料は、普通ポルトランドセメントを水セメント比 0.60 で混練して締固めたセメントペースト(HCP)を粉砕したものである。一方、コンクリート試料は、コンクリート粉末試料に骨材を添加したものである。

塩酸による溶解残渣試料を得るため、コンクリート試料を粉砕し、それぞれの試料 0.02 g を分取して、1M HCl 及び 6M HCl 溶液 1 mL に常温で 1 時間浸漬した。残渣試料を回収し、イオン交換水で洗浄した後、試料の一部を研磨薄片化した。比較のため、塩酸による処理を行っていない試料についても研磨薄片を作製した。これらの試料を電子顕微鏡により分析するとともに、1M HCl 及び 6M HCl 溶液中の元素分析を行った。

Sr 及び Cs を吸着させた試料の作製では、pH 緩衝液を溶媒とした Sr 及び Cs 濃度が 300 ppm となるように調製した溶液にコンクリート粉末試料を浸漬する実験を行った。吸着実験では、固相と液相の比を 1:200 とし、吸着時間は 1 日とした。

研磨薄片試料の電子顕微鏡による分析では、走査透過型電子顕微鏡、Phenom ProX を用いた。形状観察での加速電圧は 10 kV である。内蔵型エネルギー分散型 X 線分析（EDS)装置を用いて元素点分析とスタンダードレス半定量分析を行った。EDS 分析における加速電圧は 15kV である。平成 30 年度は、吸着試料及び酸溶液処理試料の分析をさらに進めるとともに、酸溶液中の元素を誘導結合プラズマ発光分析（ICP-AES）により分析した。

放射光施設における分析では、コンクリート粉末試料を対象として放射光 X 線を用いた蛍光 X 線分析及び吸収端微細構造解析（XANES）を行った。測定は、高エネルギー加速器機構の放射光施設、ビームライン 9A、12C で行った。入射 X 線のエネルギーを 10 keV あるいは 16.1 keV とした。これらのエネルギーは、Sr の K 吸収端エネルギー(16.1 keV)よりも高い場合及び低い場合である。吸着コンクリート粉末試料の測定では、粉末試料を 1 cm × 1 cm のポリビニル製の袋に封入した。蛍光 X 線スペクトルの測定は、蛍光法で行った。平成 30 年度は、Sr 及び Cs を吸着したコンクリート粉末試料の XANES 分析を行った。さらに、Cs 吸着試料については酸溶解試料についても XANES 分析を行った。

3.3.3 結果及び考察

コンクリート試料の分析では、3 種類の試料（N、FB 及び FC）を用いた。3 種類の試料の特性を表 3-1 に示す。N、FB 及び FC 試料の塩酸処理前の試料及び酸処理後の試料の電子顕微鏡による分析を行った結果から、コンクリート試料に含まれる粒子のサイズは 200 μm 以下であり、Si、Al、Mg、Na、Ca、S、K 及び Fe を含んでいることが分かった。試料 N について、塩酸処理前の試料及び酸処理後の試料の BSE 像、EDS スペクトル及び元素マッピングを図 3-18a,b,c に示す。各元素のマッピングから、全ての元素が均質に分布しているのでは無く、偏在していることが分かった。試料全体に分布している元素は、Si 及び Ca であり、Al、K、Fe は偏在していた。

表3-1 コンクリート試料の特性

試料名	粗骨材最大寸法 (mm)	スランプ (cm)	空気量 (%)	水セメント比 (%)	フライアッシュ置換率 (%)	細骨材率	細骨材表面水率 (%)
N	20	10	4.5	63.5	0	50	0.16
FB	20	10	4.5	58.5	15	48	0.21
FC	20	10	4.5	49.5	30	46	0.22

コンクリート試料を 1M 塩酸溶液で処理した残渣試料の BSE 像、X 線スペクトル及び元素マッピングから、粒径が 100 μm 以上の粒子が残っていること、及び数十 μm 程度の粒子も存在することが分かる。粒径が 100 μm 以上の粒子 BSE 像は未処理の試料に比べて表面の凹凸の程度が激しい。このことは、粒子の一部が溶解していることを示している。X 線スペクトルから Si、Al、Mg、Na、Ca、S、K 及び Fe を含んでいることが分かる。元素マッピングから、Si と Al の分布がほぼ同じこと、K と Ca の分布がほぼ一致していること、及び Fe が Si 及び Al の存在する場所に存在することが分かった。このことは、アルミノシリケート鉱物のようなものであることが推察される。

コンクリート試料を 6M 塩酸溶液で処理した残渣試料の BSE 像、X 線スペクトル及び元素マッピングから、残渣中には、粒径が 100 μm 以上の粒子が残っていること、及びこの粒子は数～数十 μm 程度の粒子の凝集体である可能性が高いことが分かる。凝集体の X 線スペクトルから、Si、Al、Mg、Na、Ca、S、K 及び Fe を含んでいることが分かる。さらに、Ti も検出されていることから、主たる元素である Si 等の一部が溶解して難溶性の Ti 酸化物等が残っている可能性がある。元素マッピングから、Si が主成分であり、Al、Ca 及び Fe が Si と共に存在することが分かる。これらの結果から、アルミノシリケート鉱物が残渣の主たる鉱物であると考えられる。

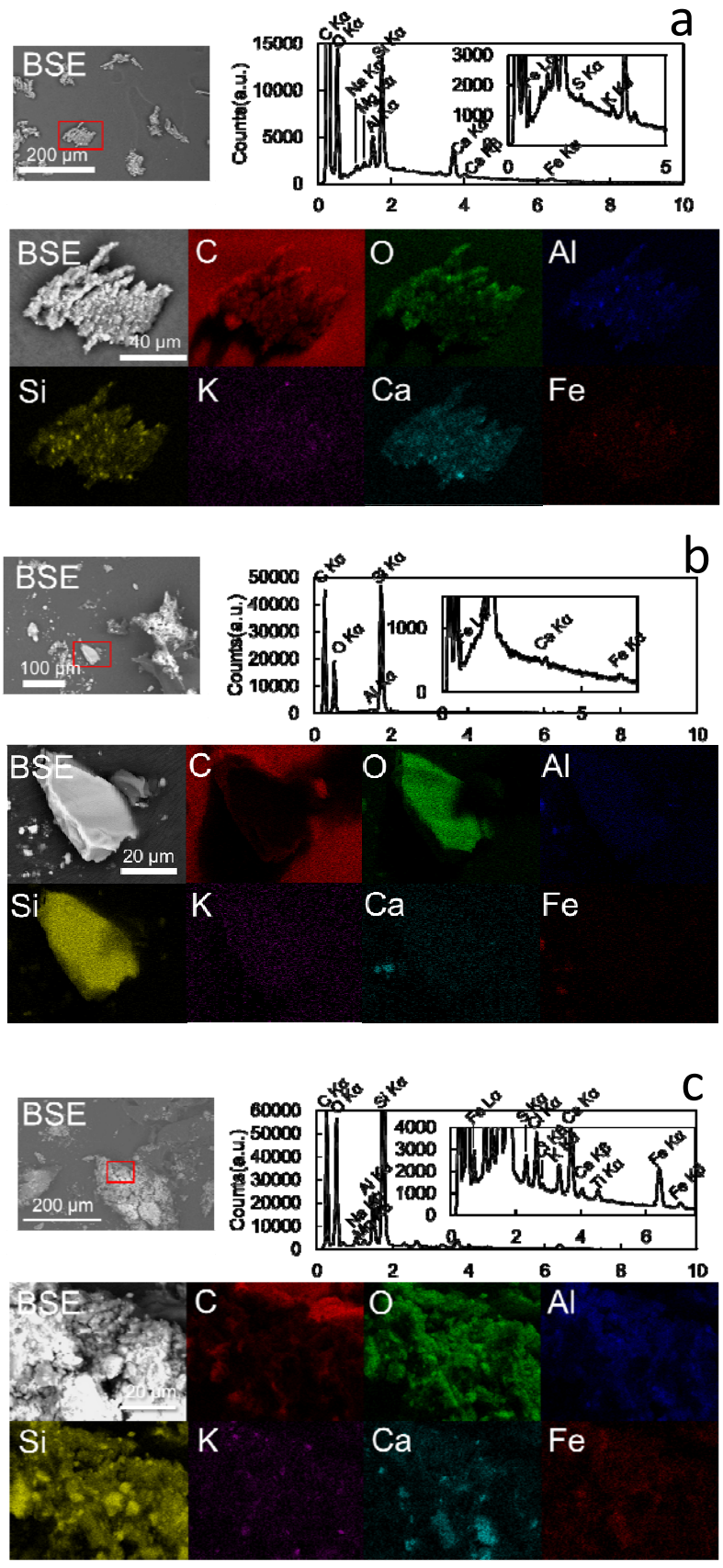


図 3-18　電子顕微鏡で分析したコンクリート試料(a)、1M HCl 処理試料(b)、及び 6M HCl 処理試料(c)の BSE 像、EDS スペクトル及び元素マッピング

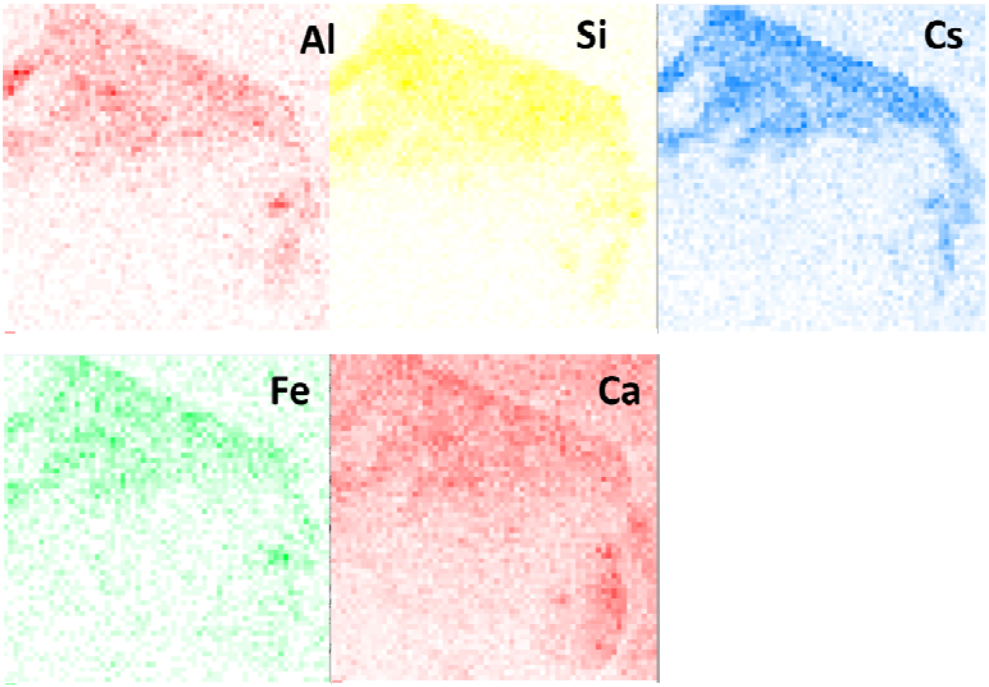


図 3-19　電子顕微鏡で分析した Cs 吸着コンクリート粉末試料の元素分布

平成 30 年度に実施した、酸溶解液中の元素濃度を表 3-2 に示す。表から、コンクリートの主成分である Ca が最も多く溶けること、Al 及び Fe が 1M 塩酸及び 6M 塩酸により溶解することがわかる。一方、Si の多くは 1 M 塩酸により溶解し、一部が 6M 塩酸により溶解する。さらに、Sr は 1 M 塩酸及び 6M 塩酸溶液により溶解する。Sr/Ca を求めると 0.003±0.0005 であることから、Sr はコンクリート試料中に Ca と共に存在する可能性が高いことが分かった。

表3-2　塩酸溶解液中の元素濃度

濃度 (mg/L)						
試料	FC		FB		N	
塩酸濃度	1M	6M	1M	6M	1M	6M
Al	285.8	296.9	251.0	280.3	200.0	304.5
B	2.3	4.9	5.4	4.6	8.5	3.5
Ba	4.0	4.0	4.2	4.5	4.6	4.5
Ca	934.3	863.6	1131.2	944.4	1358.5	1247.4
Co	2.4	2.5	1.3	1.3	1.7	1.6
Cr	0.3	0.5	0.4	0.5	0.4	0.5
Fe	166.7	250.0	207.1	251.0	199.5	268.7
K	22.2	22.2	20.5	22.2	20.5	21.6
Mg	78.9	104.0	83.2	113.0	79.3	107.0
Mn	4.9	6.2	5.2	6.8	4.9	6.1
Na	18.7	22.3	18.1	16.8	19.8	15.9
Si	245.4	5.7	167.2	5.9	121.7	5.8
Sr	3.04	3.09	3.12	3.16	3.34	3.15
Zn	2.31	2.56	1.9	2	2.13	2.13

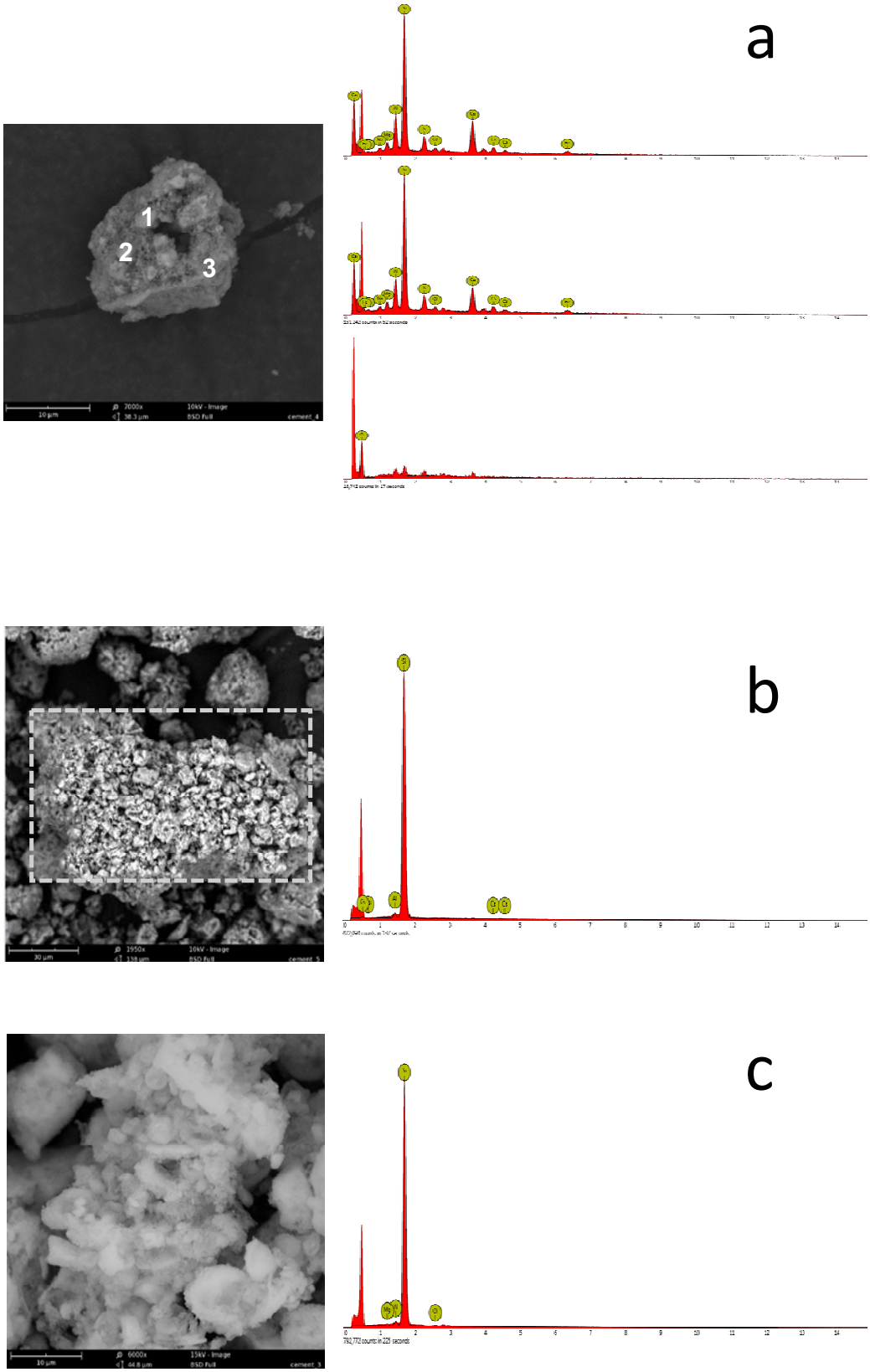


図 3-20　電子顕微鏡で分析したコンクリート試料(a)、1M HCl 処理試料(b)、及び 6M HCl 処理試料(c)の SEM 像及び EDS スペクトル

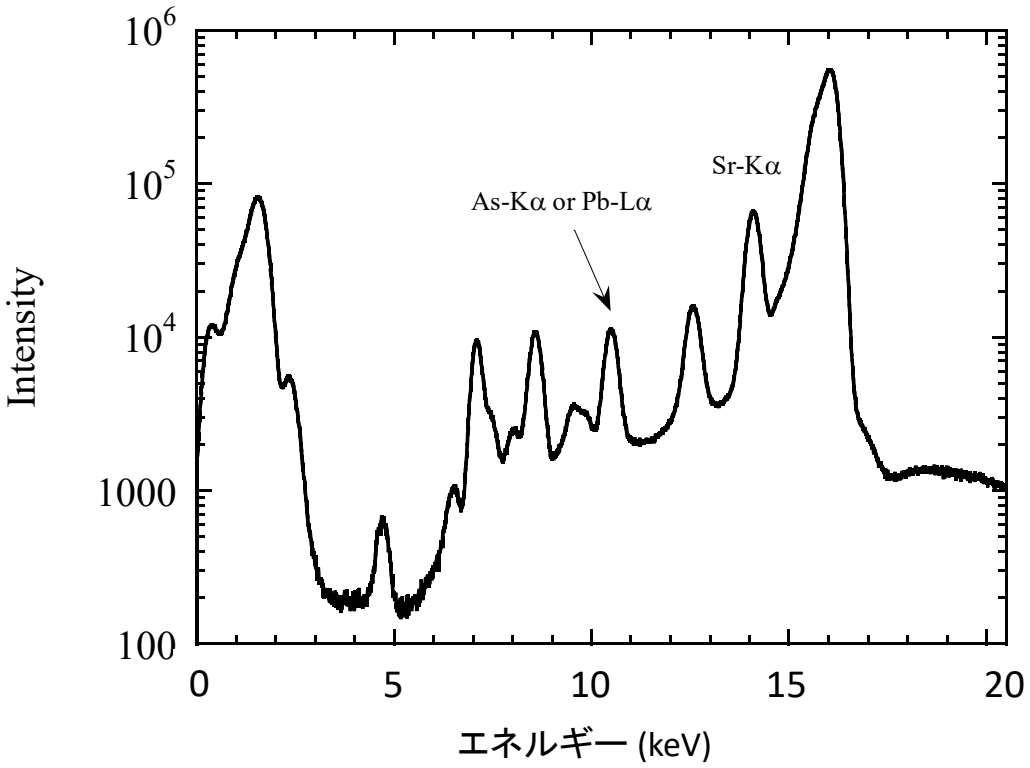


図 3-21　Cs 吸着コンクリート粉末試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：16.1 keV）

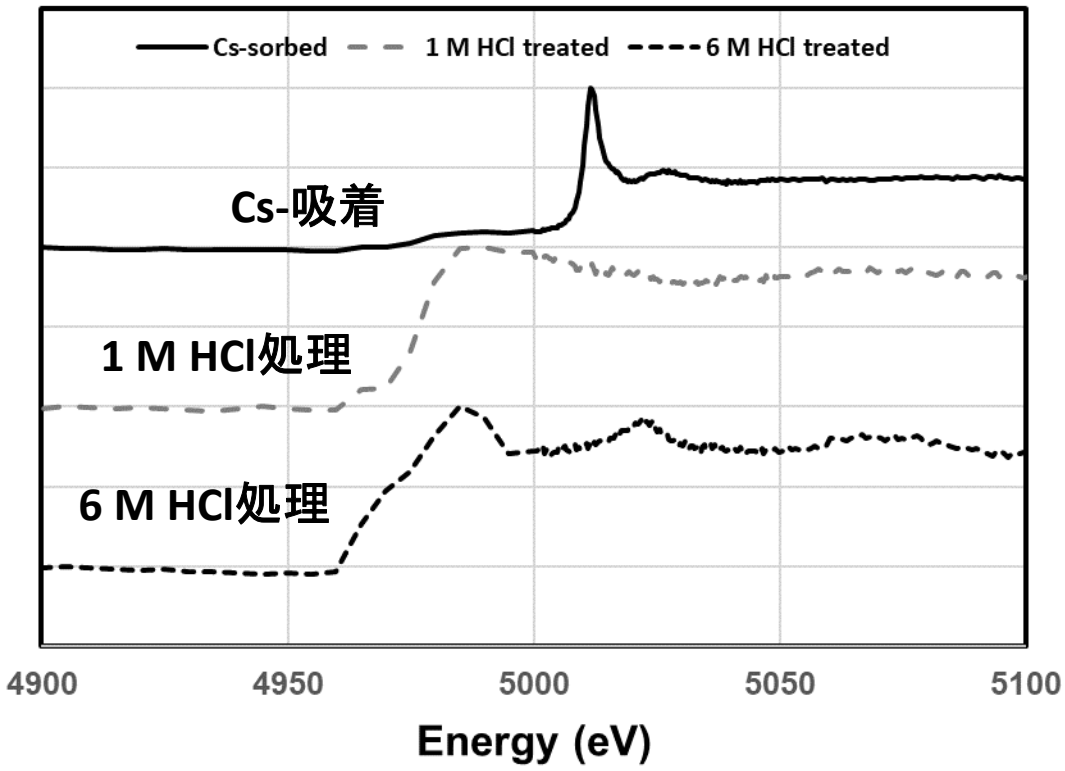


図 3-22　Cs を吸着したコンクリート粉末試料の XANES スペクトル

コンクリート粉末試料に Cs を吸着させた試料の電子顕微鏡で分析した主要元素やマイナー元素と Cs のマッピングを図 3-19 に示す。図から、Cs は主要な元素とほぼ同じ分布をしている。このことから、Cs はコンクリート粉末試料に一様に吸着していると考えられる。平成 30 年度に行った電子顕微鏡による分析結果から、Cs 吸着試料では EDS スペクトルに Cs が検出できる場所（図 3-20a:1 及び 2）と検出できない場所（図 3-20a:3）があることが分かった。Cs 吸着試料を 1M 及び 6M 塩酸溶液で処理した結果（図 3-20b 及び図 3-20c）から、EDS スペクトルには Cs が検出されないことは、平成 29 年までの結果と同一である。

図 3-21 には、Cs を吸着した試料の、入射光エネルギーを 16.1keV とした場合の蛍光 X 線スペクトルである。図から、スペクトルでは、幾つかのピークは観察されるものの、Cs のピーク（Lα が 4.2 keV）エネルギー付近では明確なピークは検出できていない。

30 年度には、Cs の XANES スペクトルを測定した(図 3-22)。図から、Cs を吸着した試料では、Cs の吸収端エネルギー付近で明確なピーク(white line)が検出できたものの、1M 及び 6M 塩酸処理された試料では、検出されない。この結果は、電子顕微鏡解析による結果と同じである。放射光における分析の下限値(数百 ppm 程度)が電子顕微鏡(1%程度)よりも小さいことから、コンクリート粉末試料に吸着した Cs は１M 塩酸処理により回収できることが明らかとなった。以上の結果から、コンクリート試料に吸着した Cs は１M 塩酸溶液により処理を行うことで全量を見積もれることが明らかとなった。

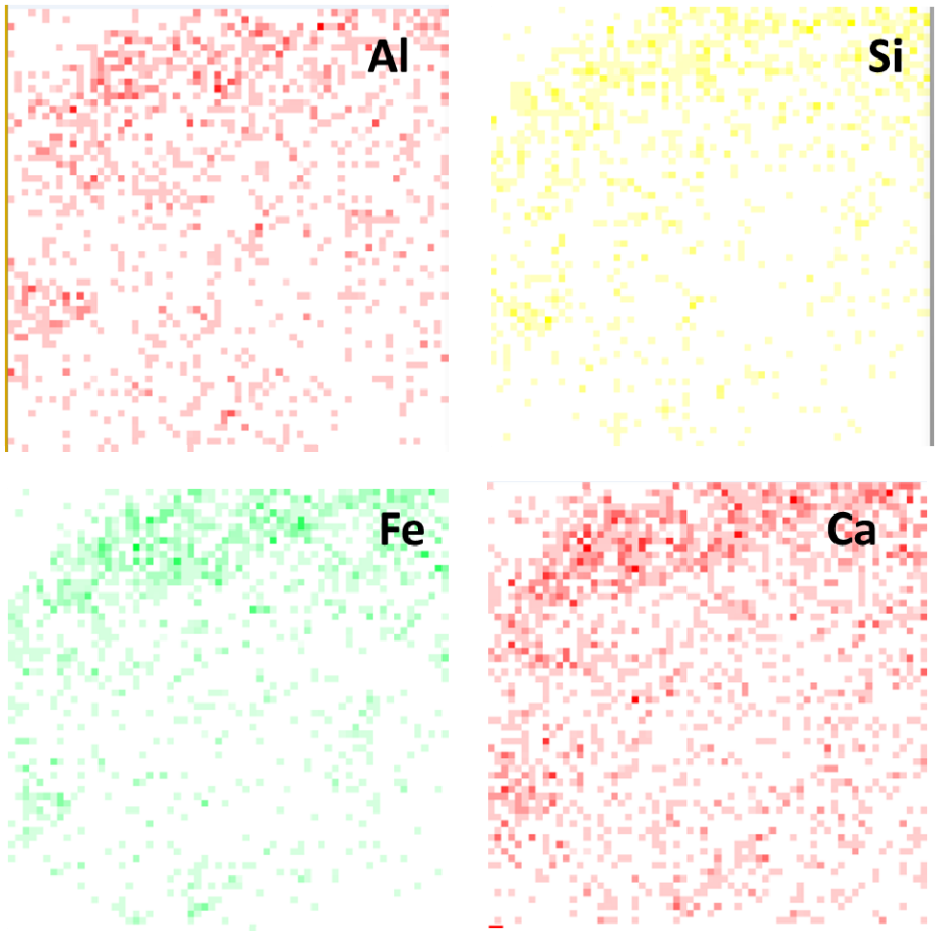


図 3-23　電子顕微鏡で分析した Sr 吸着コンクリート粉末試料の元素分布

図 3-23 には、Sr を吸着したコンクリート粉末試料の主要元素マッピングを示す。さらに、Sr を吸着したコンクリート試料の EDS スペクトルを図 3-24 に示す。EDS スペクトルから、主成分である Si、Ca、S のピークや、Fe、Al 等のピークが検出されるものの、Sr のピークが検出されていない。Sr の蛍光 X 線のピークエネルギーは、Kα が 14.1 keV、Lα が 1.8 keV である。Kα はエネルギーが高いために、電子顕微鏡の加速電圧では励起できず、Lα は Al、Si 等の成分のエネルギーに近いために検出できていないと考えられる。

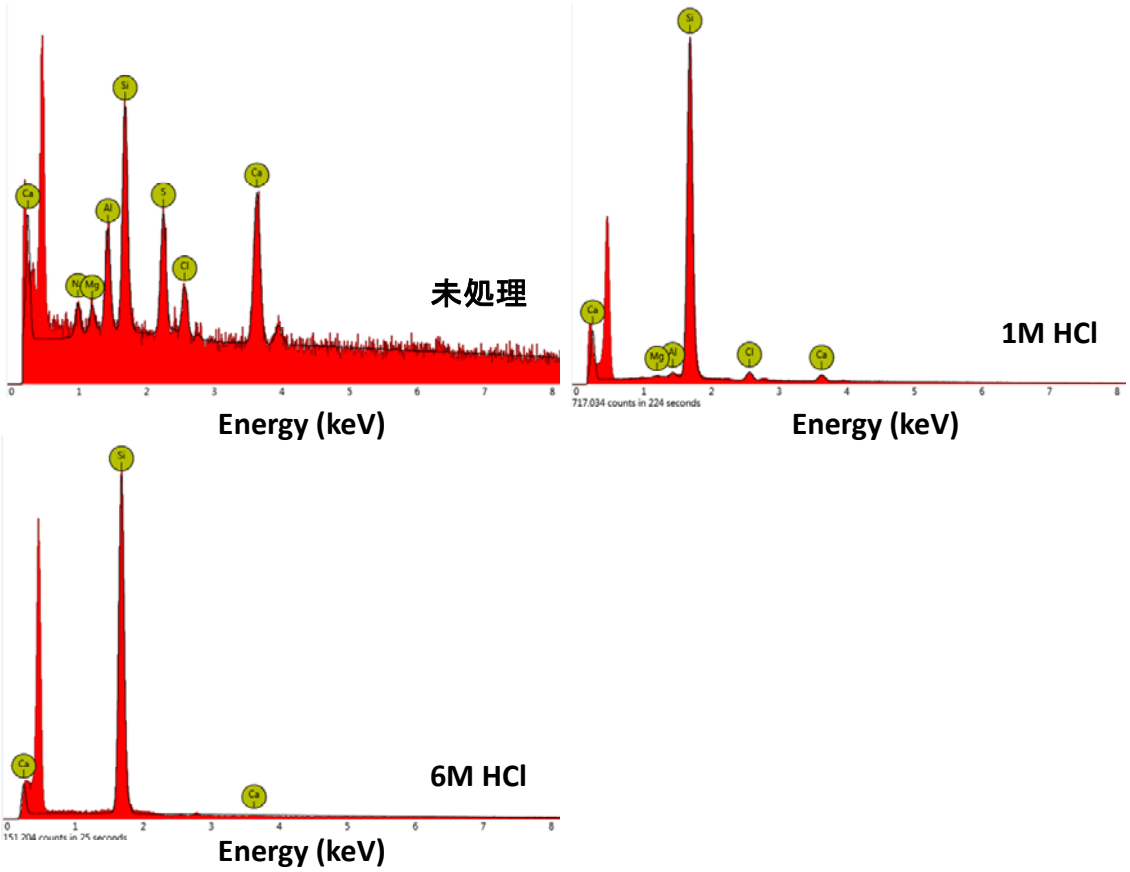


図 3-24　電子顕微鏡で分析した Sr 吸着コンクリート粉末試料、1M HCl 処理試料、及び 6M HCl 処理試料の EDX スペクトル

図 3-25 は、放射光において入射光エネルギーを 16.1 keV とした場合の、Sr 吸着試料の蛍光 X 線スペクトルである。図から、Sr の Kα のピークが認められることから、放射光においては吸着した Sr の分析が可能であることが分かった。さらに、試料を 1 M HCl 溶液及び 6 MHCl 溶液で処理した場合の蛍光 X 線スペクトル（図 3-26）から、5 keV から 8 keV のエネルギー範囲に、幾つかのピークが検出される。このスペクトルと電子顕微鏡で得られたスペクトル図 3-18 を比較することから、図 3-18 には明確に現れていないピークが検出されている。この結果は、放射光の強度が強いために、電子顕微鏡ではできていないマイナーな元素を検出できている可能性、あるいは測定器周辺の物品の構成物質を検出している可能性がある。

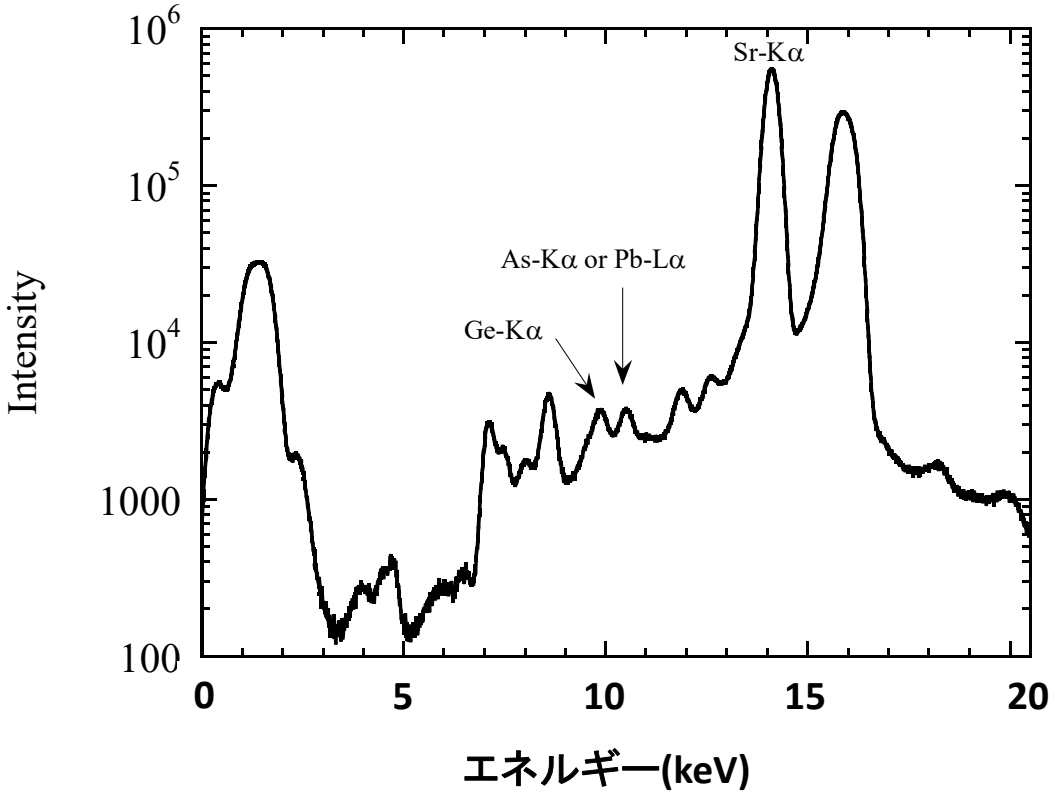


図 3-25　Sr 吸着コンクリート粉末試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：16.1 keV）

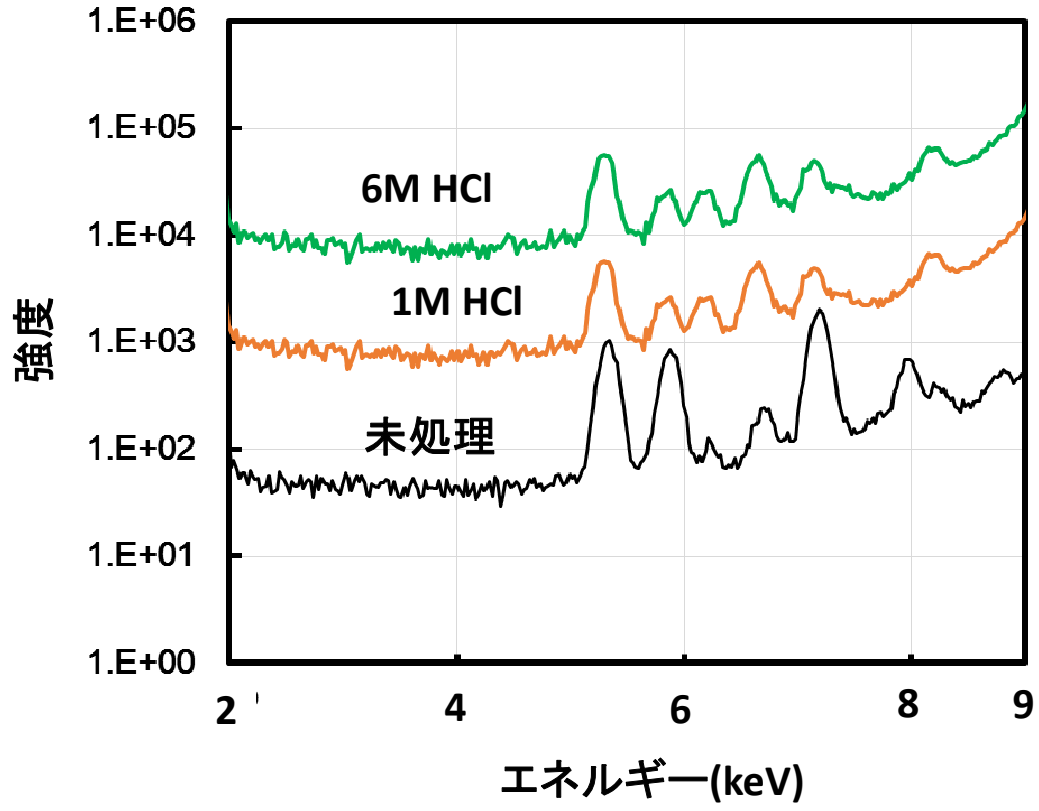


図 3-26　Sr 吸着コンクリート粉末試料、1M HCl 処理試料、及び 6M HCl 処理試料の蛍光 X 線スペクトル（入射エネルギー：10.0 keV）

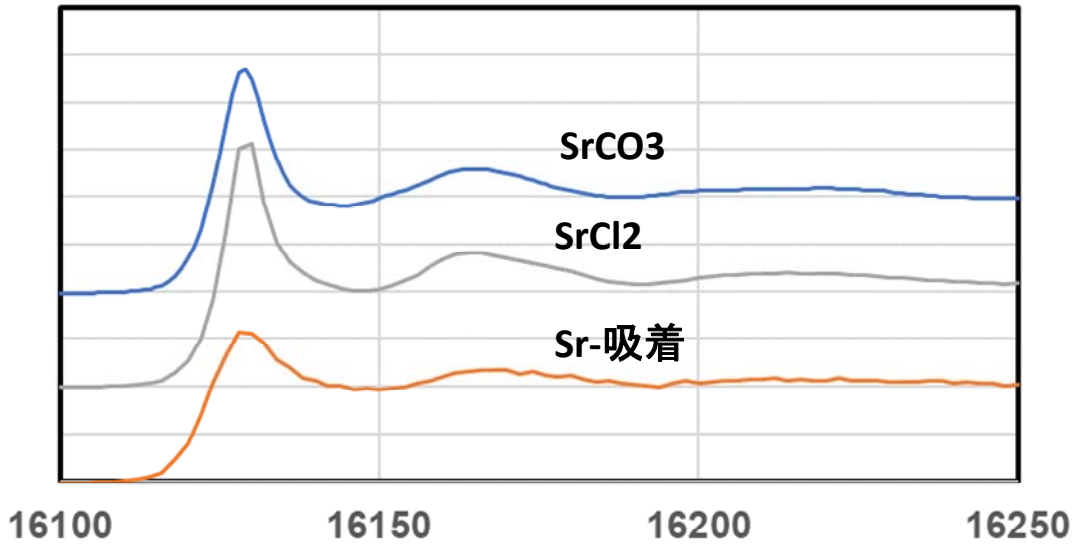


図 3-27　Sr を吸着したコンクリート粉末試料の XANES スペクトル

平成 30 年度には、Sr の XANES スペクトルを測定した。結果を図 3-27 に示す。図から、Sr のスペクトルは溶液中に溶解した状態である $SrCl_2$ のスペクトルと一致していない。さらに、炭酸塩鉱物である $SrCO_3$ のスペクトルとも一致しない。この結果から、コンクリート粉末試料中の Sr は陽イオンと同じような化学状態ではないことが推察される。White line のピークの広がりが $SrCl_2$ の広がりよりも大きく、ピーク強度が小さいことから、配位環境が複雑であることを示唆している。この結果と、コンクリート試料の溶解溶液中の元素組成の結果から、Sr はコンクリートに吸着されているものと、Ca が存在する構造中に取り込まれているものが共存していることが明らかとなった。

これらの結果から、放射性 Sr で汚染されたコンクリート試料中の放射性 Sr は Ca との同位体交換を行っている可能性も否定できない。特に、福島第一原子力発電所事故から時間が経過した試料では、同位体交換が生じる可能性が高くなると考えられる。したがって、放射性 Sr の分析には、放射性 Sr を直接分析する必要があることが明らかとなった。

3.3.4　まとめ

コンクリート試料及び Cs あるいは Sr を吸着させたコンクリート粉末試料の酸分解残渣試料の研磨試料を作製し、これに対して詳細な物性情報を得るため、電子顕微鏡及び EDS による観察と元素分析，及び放射光施設での分析を行った。具体的には、日本原子力研究開発機構から提供されたコンクリート試料の直接分析及びコンクリート粉末試料を用いた Cs 及び Sr の吸着試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得た。その結果、Cs を吸着したコンクリート試料の分析は、電子顕微鏡により充分行えることが分かった。さらに、骨材を含まないコンクリートペースト試料では、酸処理により吸着した Cs のほとんどが溶出することを明らかにした。一方、Sr の分析では、電子顕微鏡の加速電圧では Sr を検出することは不可能であること、放射光に

おいて入射エネルギーを充分高くすることにより検出できること、及び Sr は吸着した化学状態と構造中に取り込まれた化学状態で存在することが分かった。これらの結果から、放射性 Cs 及び放射性 Sr で汚染されたコンクリート試料を分析するには、Cs については 1M 塩酸溶液などの酸処理により分析精度向上が可能であることを明らかにした。一方 Sr については、コンクリート材料の塩酸による溶解により安定 Sr の溶出が確認され、分析精度向上のためには放射性 Sr の直接測定が必要であることを明らかにした。

3.4 自動分解分離ロボットの開発

3.4.1 開発の目的

廃棄物中放射性核種分析の自動前処理システムの開発にあたっては、多関節ロボットは最も主要なコンポーネントであり、自動化技術に必須な装置である。分析前処理の複雑な操作は多関節ロボットなしに実現することは難しいため、ロボットの適切な設置とティーチングは自動化システムの最も主要な開発要素である。本開発では既設の 2 台のドラフトに合わせてロボットと走行軸を設置し、これを用いて試料容器等をハンドリングしてコンクリート試料を自動で分解分離できるシステムの開発を行う。

このシステムでは最終的に、実施項目 3.1 で開発した自動アルカリ融解システムと、実施項目 3.2 で開発した自動マイクロ波加熱酸分解システムと合流して、一連の複雑な操作の全てを自動化する。

3.4.2 多関節ロボットの基本制御プログラムの開発

ドラフトと実験台の間に容器の運搬を可能とする走行軸を敷設し、走行軸上を自在に移動可能な 2 台の垂直多関節ロボットを設置した。これによって、ロボットの可動範囲は格段に拡大され、各種装置間で連携した操作が可能となる。敷設した走行軸付きロボットと装置のレイアウトの概略を図 3-28 に示す。

図 3-28　敷設した走行軸と 2 台の多関節ロボットのレイアウト

本システムでは 2 つのドラフト間を多関節ロボット（三菱 RV-4FM）が自由に移動することによって湿式分解と沈殿濾過の操作をシームレスに行うことができる構造となっている。よって自動分解分離ロボットを開発するためには、まず走行軸とロボットを連動させて動作させる手法を確立しなければならない。そこで、走行軸を動かすために取り付けられたサーボモータを動作させるサーボアンプを RS422 で制御し、多関節ロボットは DigiMetrix 製の LabVIEW 用ライブラリを利用することで、LAN 経由で直接制御を可能にした。これらのハードウェア構成を図 3-29 に示す。サーボアンプとロボットコントローラは CompactRIO によって一元的に制御できる構成となっている。これにより 1 つのプログラム上で走行軸とロボットを連動動作させ

ることが可能になった。

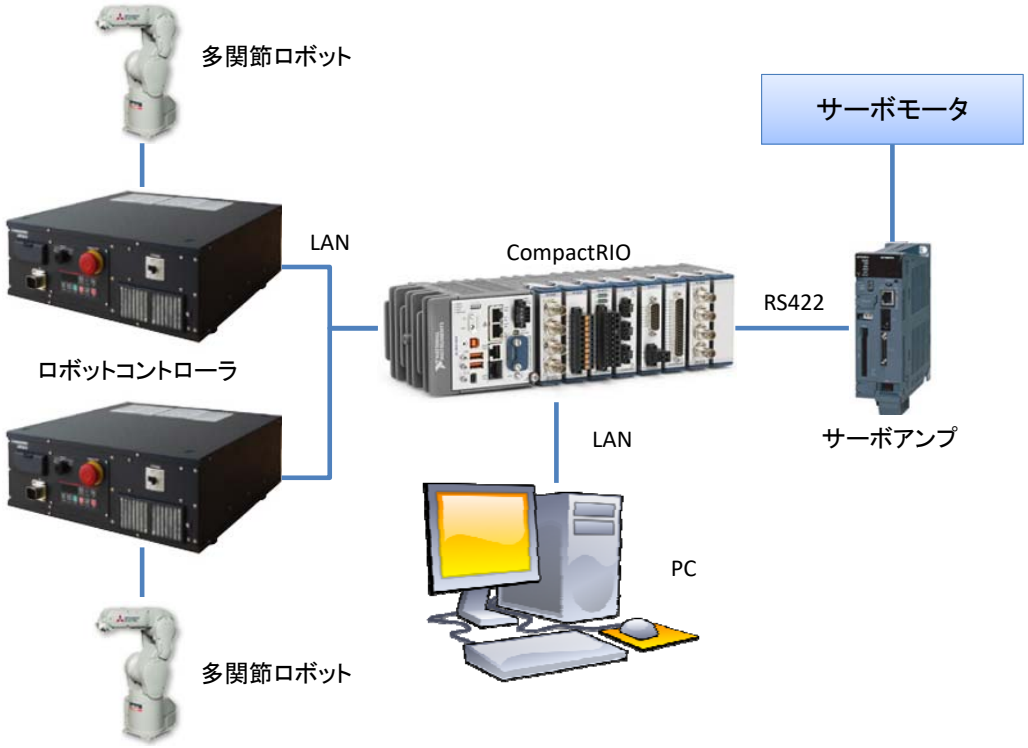


図 3-29　多関節ロボットとサーボモータのハードウェア構成

次に多関節ロボット制御用の基本プログラムを開発した。画面写真を図 3-30 に示す。このプログラムからサーボの ON/OFF、ロボットのスタート/ストップ、現在位置の読み出しといった基本操作が行える。また本プログラムはロボットの基本制御を行う他にティーチング機能を実装しており、ポジションを選んで記憶ボタンを押すだけで簡単に姿勢位置を記憶可能とした。ロボットの姿勢位置情報はテキストファイルで保存され、必要十分な 150 点の位置が記録できる仕様とした。姿勢位置の読み出しの際は、読み出すポジションを選んで書き込みボタンを押す。

ロボットの移動は、通常の Point To Point（PTP）制御の他に、直線運動、XYZ 運動、円弧運動を実装した。円弧運動では始点、終点、経由点の 3 つをセットすることで円弧運動を実現できる。

ジョグ移動モードではボタンを押すだけで任意の速度でロボットを簡単に動かすことができるため、ティーチングの効率が大きく向上する（図 3-30）。XYZ の 3 次元の空間座標の移動と回転、6 つの軸をそれぞれジョグ移動モードのボタンを押すことで動作させることができる。

図 3-30　多関節ロボット制御プログラム　メインスクリーン(上)とジョグモード(下)

次に走行軸の制御プログラムを開発した。画面写真を図 3-31 に示す。ロボットを指定された目標地点にまで移動させることができる機能だけでなく、ジョグ移動モードも実装しており、ティーチングの際はこの機能を使って任意の速度でロボットを移動させることができる。また指定した距離だけ走行軸を左右に移動させることもできる。

図 3-31　走行軸制御プログラム

3.4.3　湿式分離システムの設計とロボットと連携動作可能な各種機器の開発

自動分解分離ロボットのシステム開発において必要な自動化すべき湿式分離分解のフローチャートと動作の分類を図 3-32 に示す。

送液ポンプは 1 台で 1 種類の溶液しか送ることができないため、全ての種類の溶液を全て送液ポンプを使って送った場合、高額な送液ポンプが 10 台以上必要になるため実験室の空間を圧迫するだけでなく、チューブの数が増えすぎてシステムが複雑になりすぎてしまう。また正確な量を分注することができない。これでは経済的に不利であるだけでなく、分析の正確性も欠くことになる。送液ポンプの数を減らしてシステムをコンパクトに設計するためには、外部制御可能で、かつ多関節ロボットが取り扱えるマイクロピペットが必要だが、そのようなピペットは存在しない。そこで 10 ml までの溶液を扱うことのできるロボット用自動マイクロピペットを開発した（図 3-33）。これにより、小量の溶液は全てロボット用マイクロピペット 1 本で取り扱えるようになった。結果として塩酸ヒドロキシルアミン以外の溶液を全て自動マイクロピペットで分注することが可能となり、システムの大幅な小型化に成功した。

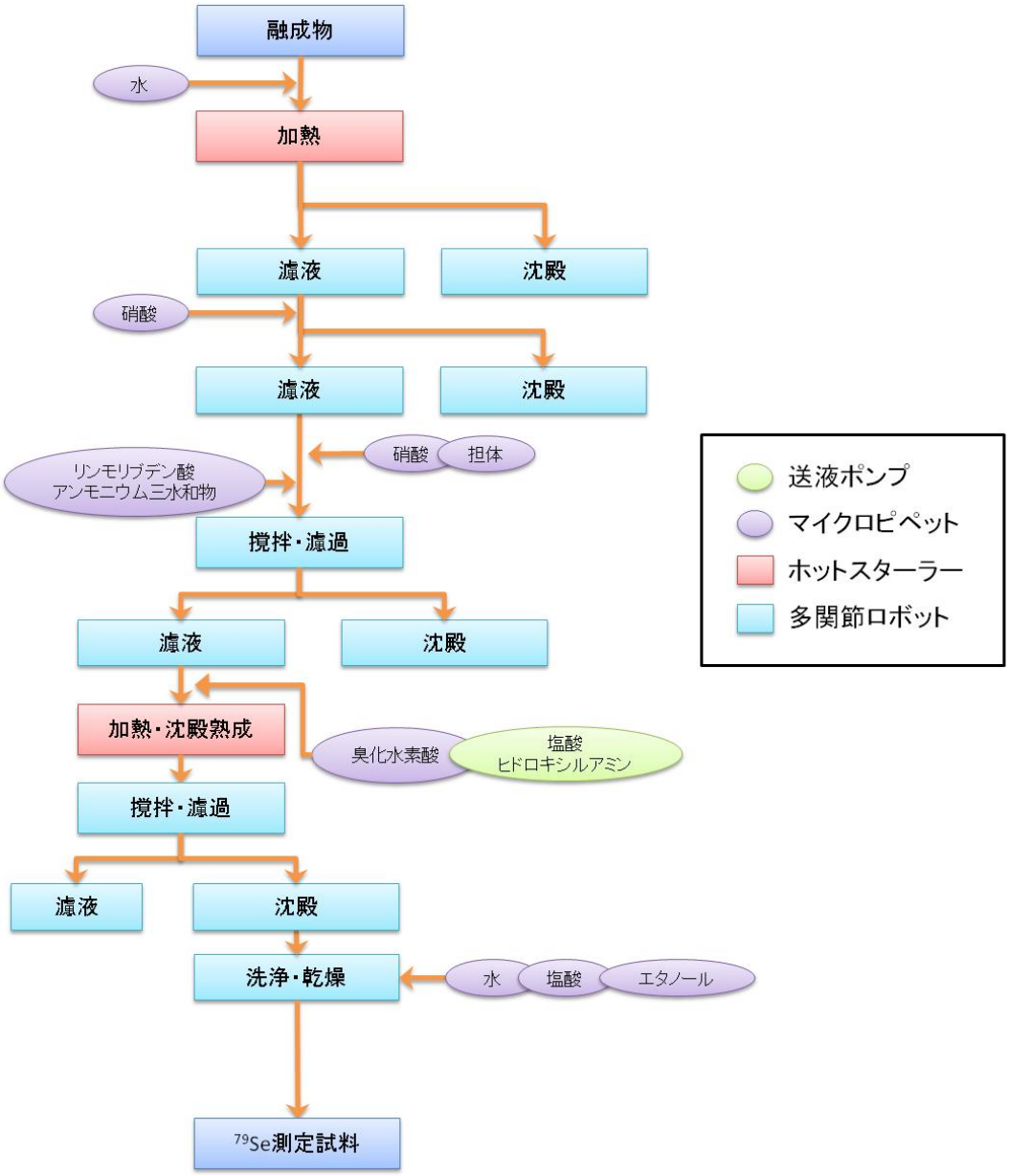
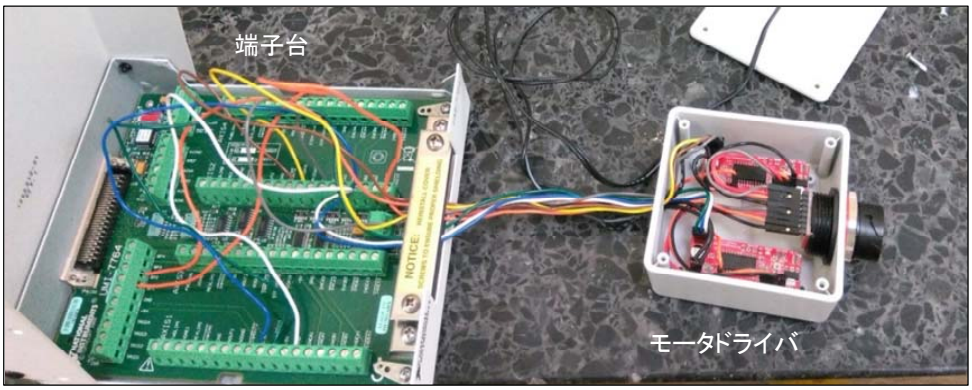


図 3-32　自動化する湿式分離分解のフローチャートと動作の分類

図 3-33　ロボット用自動マイクロピペット

自動マイクロピペットには 2 つのステッピングモーターが備えられており、1 つは分注用、1 つはチップの排出を受け持っている。ステッピングモーターはモータドライバで駆動し、ピペットとモータドライバ間はイーサネットケーブルで接続できるようになっている。これは 2 つのステッピングモーターを駆動させるために、イーサネットケーブルと同じ 8 本の導線が必要であり、しかもイーサネットケーブルが非常に安価で優れたより線であるために採用した。自動マイクロピペットには RJ45 コネクタが備えられており、ここにカールコードを接続することにより、多関節ロボットがピペットを持った状態で広範囲に稼働できる。

本ピペットの性能としては、10 ml の溶液を約 4000 ステップで制御可能であるため、原理上で最高 2.5μl もの高い精度を有している。



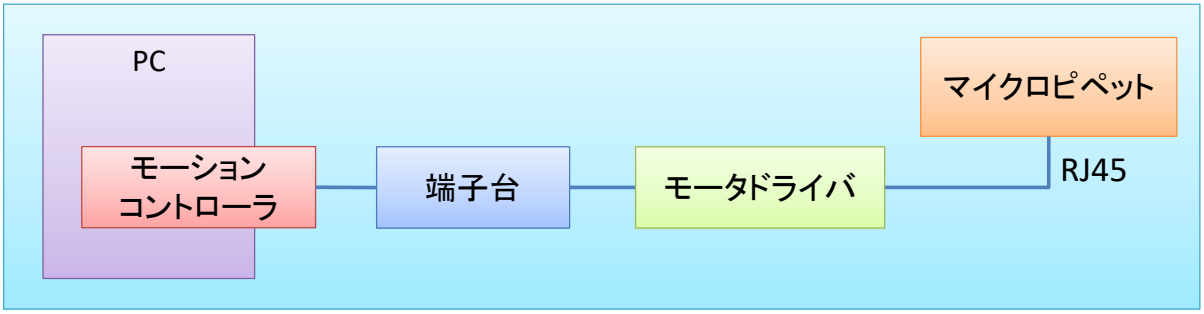


図 3-34　ロボット用自動マイクロピペットのハードウェア構成

図 3-32 のフローチャートに示したように、加熱・沈殿熟成と加熱と撹拌のプロセスではマグネットホットスターラーを用いて溶液を暖めながら撹拌する必要がある。そこで外部から制御可能な IKA 製のマグネットホットスターラーを導入し、LabVIEW で制御プログラムを開発した（図 3-35）。接続は USB であり、CompactRIO と直接接続する。このプログラムによって、加熱温度制御と撹拌子の回転数制御が行える。また重量と pH の測定機能を実装しているが、これらの機能は今回の自動化システムでは使用していない。

図 3-35　マグネットホットスターラーと制御プログラム

一方、溶液を撹拌する必要のない試料の加熱のために、別途ホットプレートを準備した。ホットプレートはロボットと連携動作させる必要があるが、外部制御できるホットプレートが既成品として手に入らなかったため、既成品を改造することでこれを実現した。DigiPREP はキーパットコントローラから操作する仕様のホットプレートであるが、これを図 3-36 のように構成を変更した。このキーパットコントローラは、サーミスタで温度を読み取りトライアックで単相電力制御を行う仕掛けとなっていたが、サーミスタの抵抗値(すなわち温度)を CompactRIO にて読み取り、サイリスタを使って単相電力制御を行う構成に変更した。この変更によってホットプレートを LabVIEW から直接外部制御することが可能となり、ロボットとの連携も動作も可能になった。

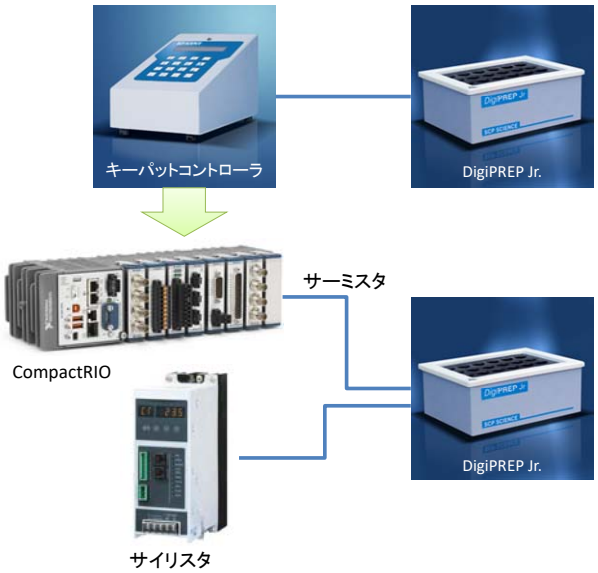


図 3-36　外部制御ホットプレートのハードウェア構成

湿式分離の工程においては 4 回もの真空ろ過の操作が存在する。真空ろ過は多関節ロボットにとってかなり複雑な操作を要求されるだけでなく、既存のガラス製の真空ろ過装置を用いる

ことには様々な問題がある。まず第一に、ガラス製品は割れる可能性を排除できないこと。次に、ガラスは重量が重い上体積が大きく、システムをコンパクトに設計できないこと。さらに操作が複雑化してしまう問題などが挙げられる。よって、既存のガラス製の真空ろ過機器を用いて自動化を達成することは可能ではあるが、合理的とは言い難い。そこで多関節ロボットとの連携が容易な自動真空ろ過装置を新たに開発した。装置の写真と構成図を図 3-37 に示す。

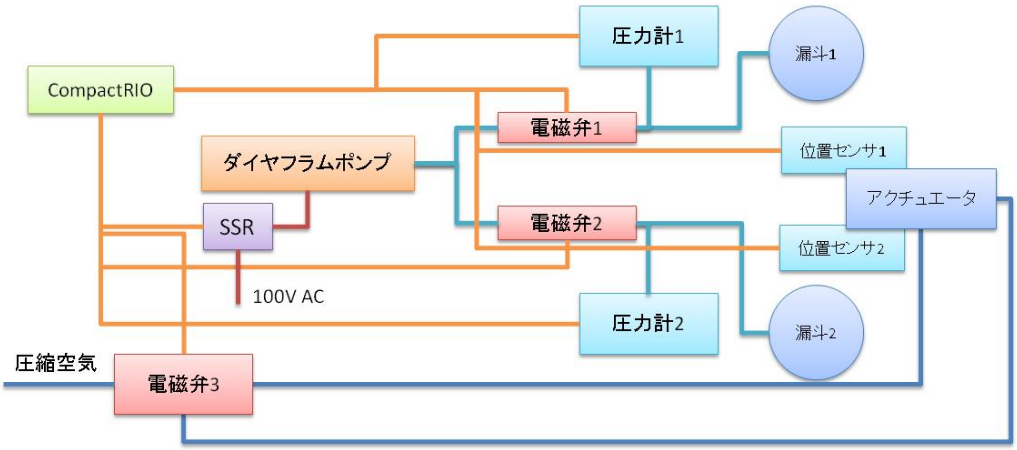


図 3-37　自動真空ろ過装置と構成図

装置の骨格は塩化ビニールで製作されている。この装置では左右 2 個のディスポーザブルのフィルター付き漏斗をセットできるようになっており、その下にそれぞれビーカーをセットして使用する。漏斗とビーカーは多関節ロボットによって操作できる。ビーカー上部には塩化ビニールの水平の板があり、これが圧縮空気で駆動するアクチュエータによって上下する。アクチュエータには 2 つのセンサーが取り付けられており、伸縮状態を確認できる。ビーカーとの接触部にはシリコンゴムが備えられており、ビーカーと密着する構造である。左右の漏斗は 2 つの電磁弁の開閉によって、それぞれ独立して真空引きが可能である。電磁弁はダイヤフラムポンプと接続され、ダイヤフラムポンプはソリッドステートリレー（SSR）によって ON/OFF が制御できる。漏斗と電磁弁の間の真空度は圧力計によってモニターできる。

次に、自動真空ろ過装置の制御プログラムを LabVIEW で開発した(図 3-38)。ポンプの ON/OFF、左右の漏斗の真空引き、アクチュエータの上下を制御できる。また左右それぞれの真空度と、アクチュエータの伸縮状態を確認する機能を持つ。このプログラムを多関節ロボット等の制御プログラムと連携動作させることによって、複雑なろ過工程を自動化した。

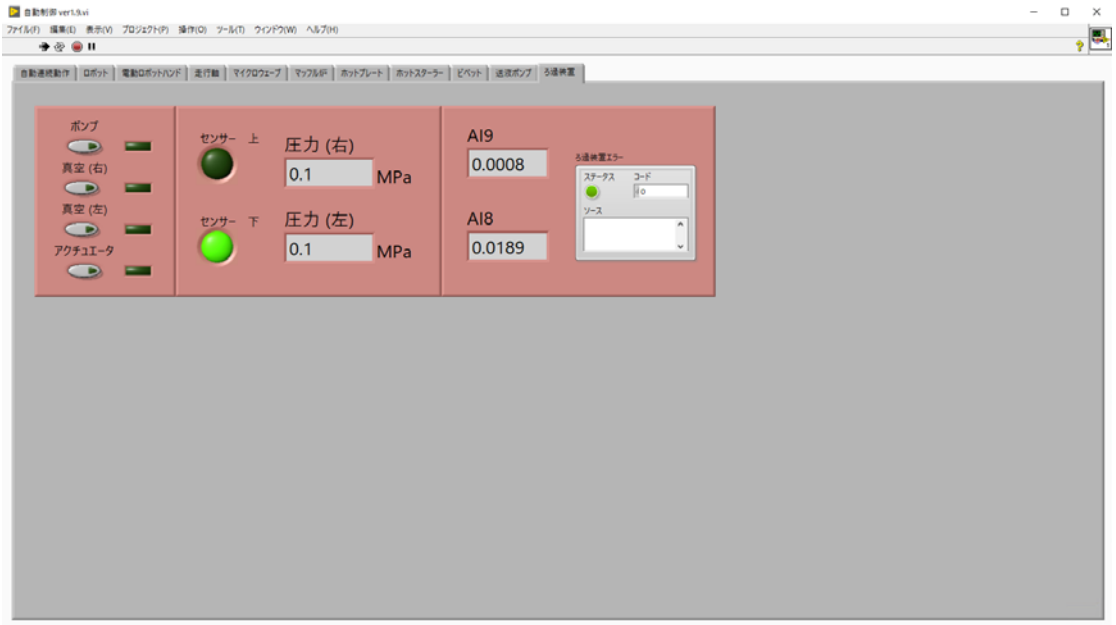


図 3-38　自動真空ろ過装置制御プログラム

3.4.4　自動湿式分離プログラムの開発

LabVIEW によって一元的にシステムを制御し、一連の湿式分離工程を自動化するために、3 つのレイヤーからなるサブ VI 群を整備することで、自動化システムを完成させた(図 3-39)。3 つのレイヤーは、基本動作レイヤー、共通動作レイヤー、複合動作レイヤーの 3 つから構成される。基本動作レイヤーは、多関節ロボットや走行軸の動作を制御する上で最も基本となる VI で、以下の 11 種類がある。

① ロボット左 VI：ロボット左を動作させるサブ VI で、ロードする位置、移動速度、移動コマンドの 3 つを入力することでロボットを動作させることができる。

② ロボットハンド左　伸縮 VI：ロボット左のロボットハンドを伸縮させるための VI

③ ロボットハンド左　電動ハンド VI：ロボット左に装着された 2 本指電動ロボットハンドを動作させる VI。位置、速度、力、動作コマンドの 4 つを入力できる。

④ ロボット右 VI：ロボット右を動作させるサブ VI で、ロボット左と同等の機能を持つ。

⑤ ロボット右　円弧 VI：ロボット右を円弧動作させるための専用サブ VI。始点、中継点、終点の位置と移動速度の 4 つを入力する。

⑥ ロボットハンド右　開閉 VI：ロボット右に装着された 3 本指ロボットハンドの開閉を制御する。

⑦ ロボットハンド右　直線・垂直 VI：ロボット右に装着された 3 本指ロボットハンドを 90 度回転させる機能を持つ。

⑧ 走行軸 VI：走行軸を制御する VI で、目標位置とモーターの回転速度を入力する。

⑨ 警告表示 VI：3 種類があり、チップが存在しない時、フィルタ付き漏斗がセットされていない時、ビーカーの位置が不正の時に警告を出す。

⑩ チップパレット VI：自動マイクロピペットが使用するチップの番号を入力すると、その座標を出力する VI。

⑪　溶液パレット VI：各種溶液に割り振られた番号を入力すると、該当するビーカーの位置の座標を出力する VI。

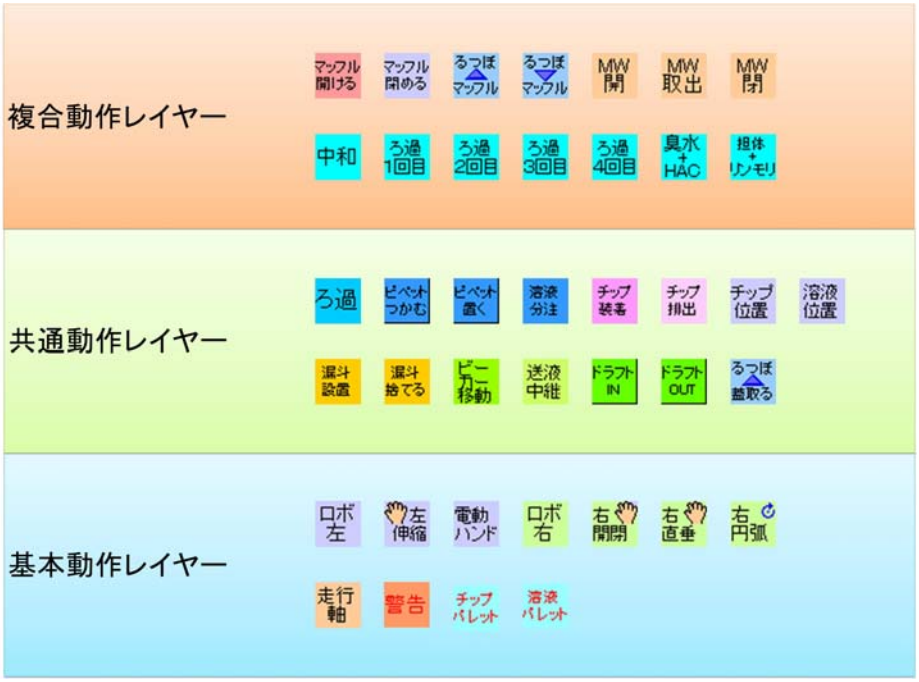


図 3-39　サブ VI のレイヤー構造

共通動作レイヤーに分類される各種 VI は、複雑な分離操作の中で共通して用いられている操作を VI としてユニット化したものであり、基本動作レイヤーの VI を組み合わせることで構築されている。共通動作レイヤーは以下の 15 種類がある。

①　ピペットつかむ VI：2 本指電動ロボットハンドをつかって自動マイクロピペットを把持し、基準位置に戻るのまで動作を行う。

②　ピペット置く VI：自動マイクロピペットを壁面に設置されたホルダーに置いて基準位置に戻るのまで動作を行う。

③　ロボット左　チップ位置移動 VI: ピペットを把持しているロボットが目標のチップの位置へ移動する VI。チップ番号、移動速度、チップ位置の上か下かを入力する。チップ位置の下が装着する位置で、上が持ち上げた位置に相当する。

④　チップ装着 VI：ピペットを把持しているロボットが、チップを装着して基準位置に戻るまでの動作を行う。「ロボット左　チップ位置移動 VI」を利用する。

⑤　チップ排出 VI：チップを装着したピペットを把持しているロボットが、チップをゴミ箱に排出して基準位置に戻るのまで動作を行う。

⑥　ロボット左　溶液位置移動 VI：ピペットを把持しているロボットが目標の溶液の入ったビーカーの位置へ移動する VI。溶液番号、移動速度、溶液位置の上か下かを入力する。

⑦　溶液分注 VI：ピペットを把持しているロボットが目標の溶液を分注する VI。ロボット左溶液位置移動 VI を利用する。溶液番号、分注先、溶液量を入力する。

⑧　ドラフト IN VI：ドラフトの外にあるロボット左がドラフトに腕を入れて基準位置まで移動する動作を行う。

⑨　ドラフト OUT VI：基準位置にあるロボット左がドラフトの外に退避する動作を行う。

⑩　ディスポ漏斗　新規設置 VI：ディスポーザブルのフィルター付き漏斗を自動真空ろ過装置に設置する動作を行う。

⑪　ディスポ漏斗　捨てる VI：ディスポーザブルのフィルター付き漏斗を自動真空ろ過装置から外してゴミ箱に捨てる動作を行う。

⑫　ビーカー移動 VI：ビーカーを移動させるための VI で、ビーカーを取る位置と置く位置を指定する。

⑬　ビーカー移動 送液ポンプ中継 VI：単にビーカーを移動させるだけでなく、移動の途中でビーカーを送液ポンプで溶液を追加できる位置に運び、溶液をビーカーに入れることができる。ビーカーを取る位置と置く位置だけでなく送液量を入力する。

⑭　坩堝の蓋を取る VI：ニッケル坩堝の蓋を取り、所定の位置に置く動作をする。

⑮　ろ過 VI：容器を取り、ディスポーザブルのフィルター付き漏斗に内容物を移し、容器を置く動作を行う。

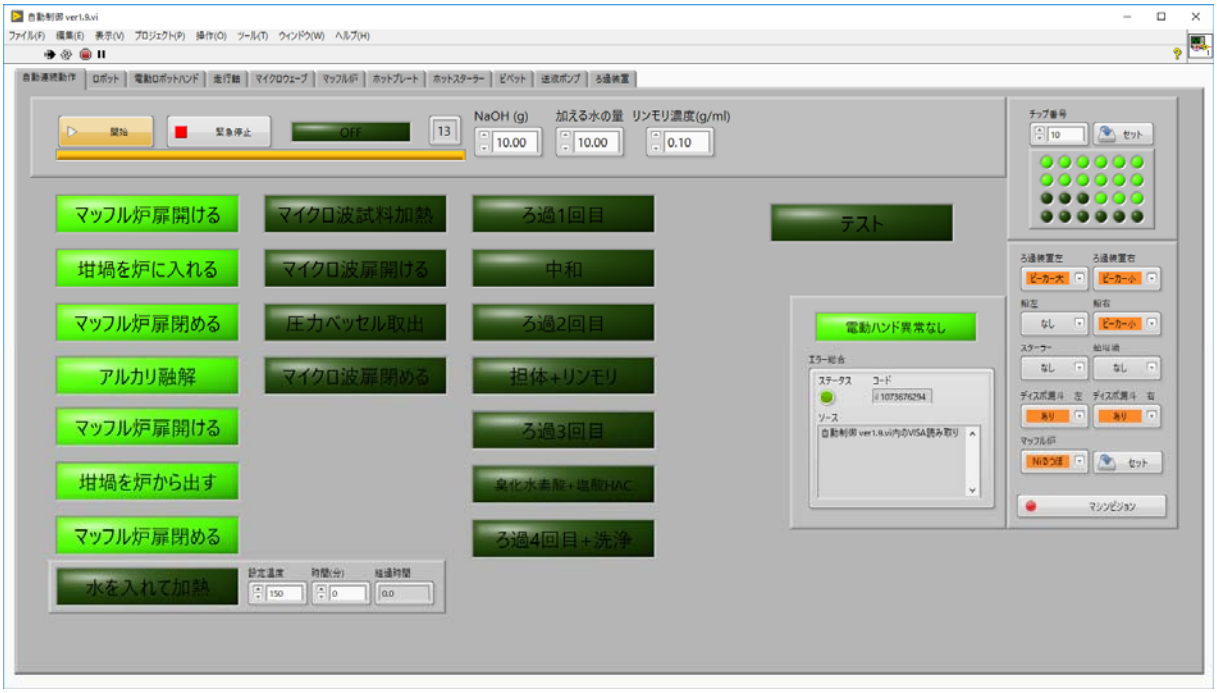


図 3-40　自動湿式分離プログラム

最終的に実行したい一連の分離操作は、幾つかの動作ユニットに分割して、それぞれ個別のサブ VI としてパッケージ化した。これが複合動作レイヤーに分類される 14 個の VI であり、共通動作レイヤーの VI の組み合わせによって構築されている。それぞれの VI は統合制御プログラムである自動制御 VI の自動連続動作タブから呼び出される。スクリーンショットを図 3-40 に示す。実行する動作をクリックして有効化した後に開始ボタンを押せば、全て自動的に湿式分離の操作が行われる。進捗状況は進捗バーによって表示され、現在実行中の操作が点滅表示される。図 3-41 に操作時の動作の一例を示す。ロボット左が自動マイクロピペットを把持し、チップを装着して分注した後、チップを排出して自動マイクロピペットをスタンドに置く

までの動作である。

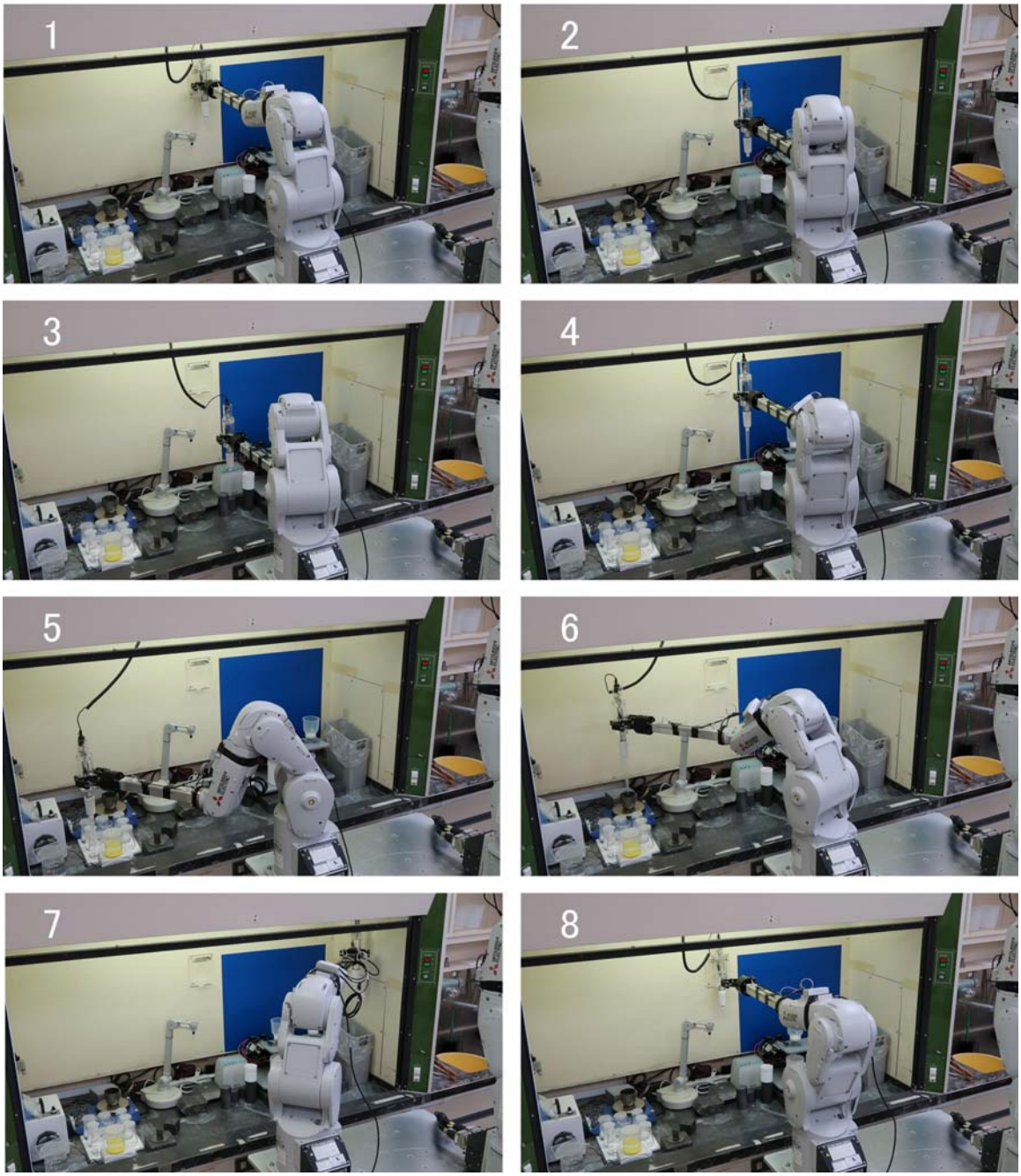


図 3-41　自動分注の動作

こうした操作を完全自動で実現するために必要な 2 つの機能が、自動制御 VI には 2 つ実装されている。1 つはチップのボックスにセットされているチップ数を把握する機能と、ビーカーの位置を把握するための機能である。自動連続動作タブの右上に表示されているのが現在のチップの状態であり、ロボットがチップを 1 つずつ順番に消費していくことを確認している。チップボックスが空になると警告が表示される。

もうひとつの機能であるビーカー位置検知機能はマシンビジョン（画像認識）によって実現されている。自動連続動作タブの右下のマシンビジョンボタンを押すと別ウィンドウが起動し

て、カメラから取得されたドラフト内部の映像から、ビーカーの位置とディスポーザブル漏斗の有無を検知する（図 3-42）。最初に「開く」ボタンを押すと、予め撮影しておいたビーカーやディスポーザブル漏斗など 12 枚の画像をロードする。次に「マッチング」ボタンを押すと、これらの画像と、カメラで撮影中の映像とを比較して、それぞれの位置にビーカーがあるのかどうかを判別する。各画像とのマッチングスコアが規定値より高くなると、その位置に容器があると判定され、画面上に赤い四角が表示される。10 回連続で同じ判定結果が得られるとマッチングのアルゴリズムは終了する。

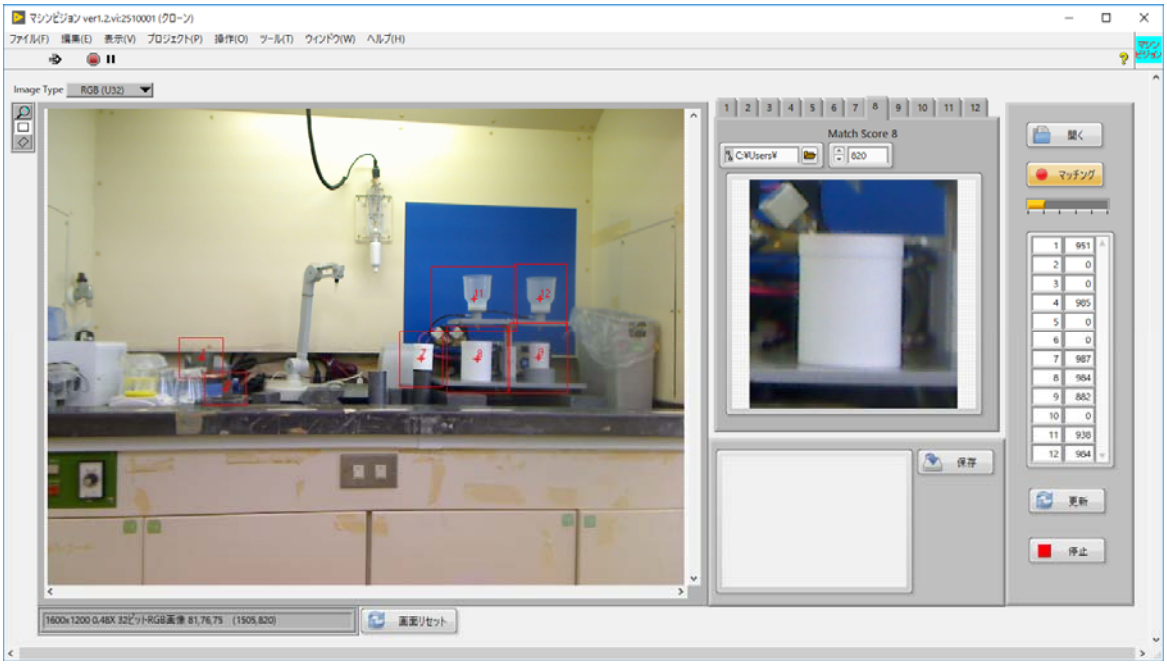


図 3-42　マシンビジョンを用いたビーカー位置検知機能

得られた判別結果は自動連続動作タブの右下に表示され（図 3-40）、この情報を元に多関節ロボットの操作が行われる。操作すべき位置にビーカーが存在しない場合や、ビーカーを置くべき位置に既に容器が置かれている場合には警告が表示されて多関節ロボットの動作が停止する。

これらの開発により、実施項目(1)で開発した自動アルカリ融解システム、及び実施項目(2)で開発した自動マイクロ波加熱酸分解システム、そして湿式分離システムが、走行軸付きロボットを介して連携動作するシステムの開発を完了した。

3.5　自動廃液処理システムの開発

平成 29 年度から開始された本実施項目では、廃液処理の作業を自動化するシステムの開発を目指して開発を進めた。図 3-43 に自動化にあたっての作業フローチャートを示す。

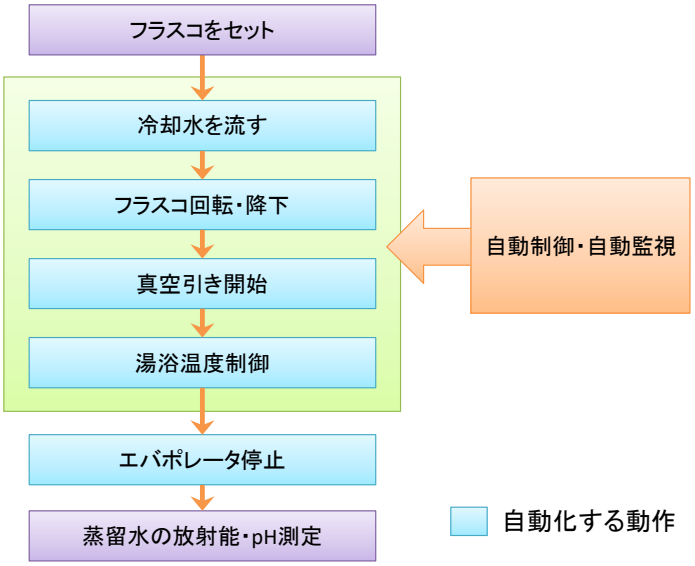


図 3-43　自動廃液処理システムにおけるフローチャート

図 3-44　ロータリーエバポレータ

Buchi 製ロータリーエバポレータ R-300 を低温循環水槽（SIBATA 製 C-331）に接続した(図 3-44)。ロータリーエバポレータの真空度、回転数、バス温度、蒸気温度は常時モニターされ、それらのデータはクラウドサーバ上にアップロードでされ、どこからでもタブレット PC やスマートフォンから閲覧可能である(図 3-45)。

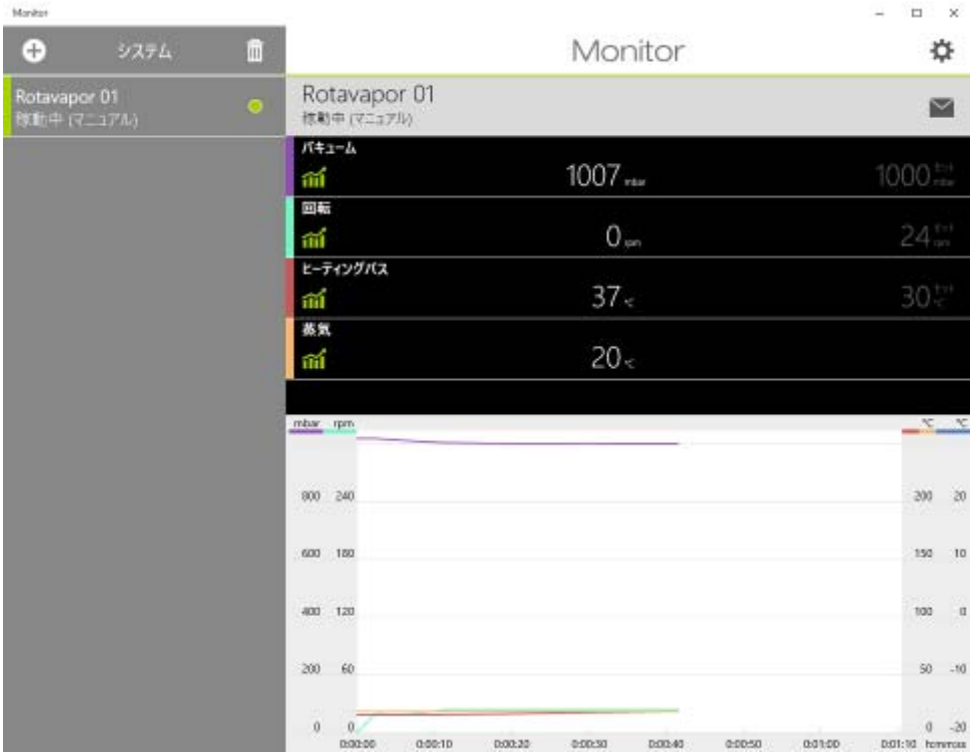


図 3-45　ロータリーエバポレータの各種情報モニター

このクラウドシステムは世界中どこからでもロータリーエバポレータの情報が閲覧できるという点で優れているが、ローカルユーザーには恩恵が少なく、またフラスコ内の廃液の状態に関する詳細な情報は得られない。そこでマシンビジョンを用いた、より高度な装置監視システムを開発した。まず 2 台のカメラをロータリーエバポレータの正面に設置した。1 台のカメラでロータリーエバポレータのコントローラの液晶表示画面を光学的文字認識（OCR）によって読み取って LabVIEW に取り込むことで、温度や圧力などの測定値をデジタルデータとして取得する一方、もう一台のカメラでフラスコ内の廃液を動画として常時監視する(図 3-46)。

液面監視システムでは、フラスコ内の液面に ROI（Region Of Interest＝関心領域）を設定し、動画の微分値を取得して液面の細かな揺らぎを数値化した。微分値を画像として画面右上に表示し、微分値の合計値を 10^9 で割った値が画面右下のグラフに表示される。この値が 10 を下回っている間は突沸の可能性がないと判断して画面下に状況が表示される。一方この値が 10 を超えた場合には警告が表示される。一方、OCR による読取プログラムでは、7 か所の ROI を同時に設定して 7 つの情報を同時に読み取ることができる。すなわち、真空度の現在値と設定値、フラスコの回転数の現在値と設定値、ヒーティングバス温度の現在値と設定値、そして蒸気圧である。4 つの測定値は右下のグラフにリアルタイム表示することができる。

これらの開発により、減圧下で廃液を減容するロータリーエバポレータの温度、圧力、液の状態などを 2 台のカメラを用いて常時監視しながら自動で廃液を減容するシステムを完成させた。

図 3-46　マシンビジョンによるロータリーエバポレータ監視システム

3.6 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めた。月に一回の定期的な会合を開き、研究者間で情報と意見を交換することで研究推進を行った。主要出席者は大澤、藤田、島田、永岡、大貫、川原である。

4. 結言

本研究では、5つの実施項目を実施して当初の目的を達成した。

- (1)自動アルカリ融解システムの開発では、マッフル炉を外部制御するための外部温度制御システムを設計・開発した。またマッフル炉の扉を開閉し、アルカリ融解に使用するニッケル坩堝を掴んで中に導入することが可能な、伸縮機能付き 2 本指ロボットハンドを設計し開発した。マッフル炉の扉にはハンドルを設置し、磁石で扉が閉まるように改造した。ニッケル坩堝の蓋にはニッケルの取手を取り付けることでロボットハンドで容易に把持できるようにした。さらにマッフル炉を外部制御するプログラムとロボット制御プログラムを LabVIEW で開発した。独自の PID アルゴリズムを持つマッフル炉制御プログラムは 600℃で 2℃未満の精度を達成しており、付属の温度コントローラと比較して大幅に性能が向上した。多関節ロボットと走行軸の制御とマッフル炉の制御を連動させることにより、アルカリ融解の操作を完全に自動化し、当初の目的を達成した。
- (2)自動マイクロ波加熱酸分解システムの開発では、マイクロ波加熱酸分解装置を RS232C で外部制御するシステムを開発し、LabVIEW で制御プログラムを開発することで既設のコントロールユニットを大幅に超える操作性と機能を実現した。またマイクロ波加熱酸分解装置の扉を開閉し、圧力ベッセルを掴んで装置に導入することが可能な、90 度回転機構付き 3 本指ロボットハンドを開発した。装置の扉には 3 本指ロボットハンドで操作可能なハンドルを設置した。2 台の多関節ロボットと走行軸の制御を、マイクロ波加熱酸分解装置の制御と連動させることにより、マイクロ波加熱酸分解の操作を完全に自動化し、当初の目的を達成した。
- (3)前処理残渣の物性研究では、日本原子力研究開発機構から提供されたコンクリート試料、及び Cs あるいは Sr を吸着させたコンクリート粉末試料の酸分解残渣試料の研磨試料を作製し、これに対して詳細な物性情報を得るため、電子顕微鏡及び EDS による観察と元素分析，及び放射光施設での分析を行った。コンクリート試料の直接分析及びコンクリート粉末試料を用いた Cs 及び Sr の吸着試料を作製し、塩酸溶液による不溶残渣を電子顕微鏡及び放射光施設で分析し、残渣鉱物や元素組成を調べて基本的な物性情報を得た。その結果、Cs を吸着したコンクリート試料の分析は、電子顕微鏡により充分行えることが分かった。さらに、骨材を含まないコンクリートペースト試料では、酸処理により吸着した Cs のほとんどが溶出することを明らかにした。一方、Sr の分析では、電子顕微鏡の加速電圧では Sr を検出することは不可能であること、放射光において入射エネルギーを充分高くすることにより検出できること、及び Sr は吸着した化学状態と構造中に取り込まれた化学状態で存在することが分かった。これらの結果から、放射性 Cs 及び放射性 Sr で汚染されたコンクリート試料を分析するには、Cs については 1M 塩酸溶液

などの酸処理により分析精度向上が可能であることを明らかにした。一方 Sr については、コンクリート材料の塩酸による溶解により安定 Sr の溶出が確認され、分析精度向上のためには放射性 Sr の直接測定が必要であることを明らかにし、当初の目的を達成した。

- (4)自動分解分離ロボットの開発では、自動湿式分離システムを開発し、これを実施項目（1）と（2）で開発したシステムと統合させることで最終的に自動化ロボットシステムとして完成させた。LabVIEW によって一元的にシステムを制御し、一連の湿式分離工程を自動化するために、3 つのレイヤーからなるサブ VI 群を整備した。3 つのレイヤーは、基本動作レイヤー、共通動作レイヤー、複合動作レイヤーの 3 つから構成され、最も基本となる 11 種類の基本動作レイヤーVI を組み合わせることで 15 種類の共通動作レイヤーを開発した。さらにこれらの VI を組み合わせることにより、複合動作レイヤーに分類される複雑な動作をパッケージ化した 14 種類のサブ VI を開発した。これを統合制御プログラムである自動制御 VI の自動連続動作タブから呼び出すことにより、^{79}Se を対象とした一連の湿式分離の操作を完全に自動化した。
- (5)自動廃液処理システムの開発では、自動化する一連の操作過程をまとめたフローチャートを作成し、ロータリーエバポレータの各種情報をモニターしながら自動的に廃液を減容するシステムを開発した。カメラ 2 台を設置し、1 台のカメラでロータリーエバポレータの液晶表示画面を読み取りつつ、もう 1 台のカメラでフラスコ内の液面の状況をマシンビジョンで解析し、突沸の可能性を検知するシステムを開発した。これにより廃液処理の操作を完全に自動化し、当初の目的を達成した。

これらの結果・成果により、最終的な自動化システムを完成させ、当初の目的を達成した。