

Pu/U のレーザー遠隔分析技術開発と福島廃炉におけるその場分析への応用

若井田 育夫

日本原子力研究開発機構 廃炉国際共同研究センター 燃料デブリ分析グループ

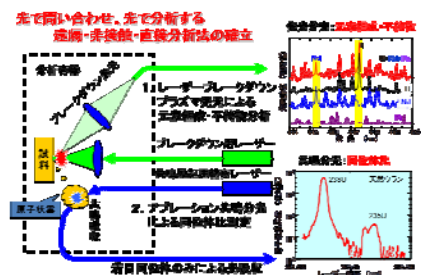
【概要】

次世代の核燃料サイクル燃料として、低除染（核分裂生成物の除去率が低い）で、Pu、Np、Am、Cm 等マイナーアクチノイド（MA）を含有させた Pu/U 混合燃料の活用が有望視されているが、放射線量が高く、迅速管理分析が困難なことから、迅速・遠隔・非接触・比分離のその場分析手法の開発が不可欠となった。

一方、福島第一原子力発電所事故炉の廃止措置においては、炉内の溶融デブリの簡易分析により炉内状況把握が強く求められており、高線量、狭隘、といった過酷環境における核燃料物質混合体の遠隔、迅速その場分析技術の適用が強く求められている。そこで、次世代燃料分析のために開発したレーザー遠隔分析法を活用し、炉内観察プローブの開発を開始した。

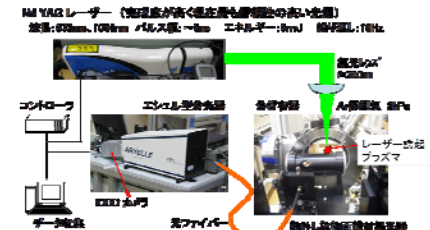
1. Pu/U のレーザー遠隔分析技術

持続可能なエネルギー源で、超長期に及ぶ放射性物質の管理の必要性を抑制することを目的とした次世代の核燃料サイクル燃料には、低除染で、MA を含有し、MA の消滅処理を同時に進めることが可能な Pu/U 燃料の活用が有望視されている。しかし、放射線量が高く、従来の迅速管理分析が困難なことから、新たな分析法の開発が不可欠となった。そこで、光をプローブとし、光で分析する遠隔・迅速・非接触・非分離のその場分析手法として、Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) 法に依る元素分析と、Laser Ablation Resonance Absorption Spectroscopy による U、Pu の同位体分析手法を開発した。

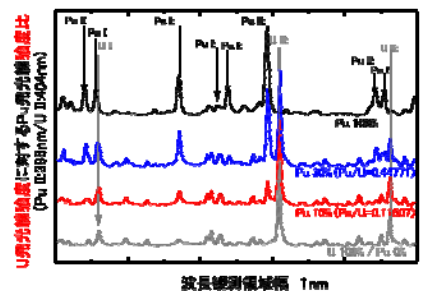


① Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) による元素分析

パルスレーザー光を試料表面に集光照射し、発生したプラズマ発光を分光することにより、元素組成を同定する手法である。装置は極めて簡便だが、U、Pu は、自由電子が多いことからエネルギー状態密度が高く、高密度な発光線を放出する。このため、分光器には分解能： $\lambda/50,000$ の高分解能で、かつ広帯域な

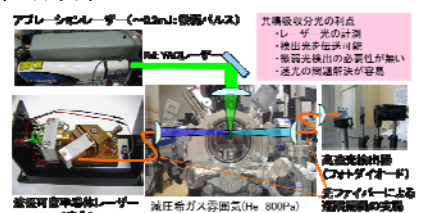


分光器を必要とする。MOX 試料を使った試験を実現するために、グローブボックスをレーザー分光試験用に改造し、分光装置を組み込んだ分光システムを完成させ、MOX 燃料の非接触・直接・遠隔分析試験を実現した。MOX 燃料の発光スペクトルから、それぞれが干渉しない発光線を参照し、その発光強度の相対値から元素組成を見出した結果、Pu 含有量 30% 相当で、相対誤差 2.9%、検出下限値 2500ppm を 5 分間の計測時間で定量分析できることを実証した。



② Laser Ablation Resonance Absorption Spectroscopy による同位体分光

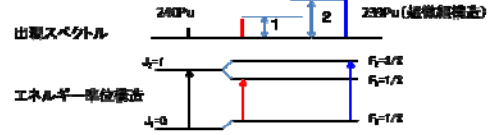
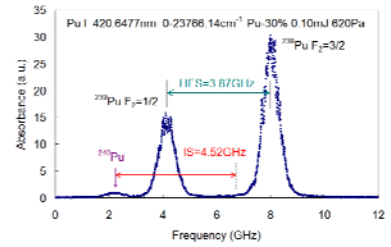
微弱レーザー光を試料表面に集光照射すると、酸化物試料がアブレーションし、生成された微弱なプラズマ中で原子化されたブルームとなる。基底準位に分布した原子に、波長を高精度で安定化・調整した波長可変半導体レーザー光を入射すると、レーザー光は共鳴吸収を受ける。この吸収量を計測することで、同位体の情報を得るのが、本手法である。装置は一見簡単であるが、半導体レーザーの波長を波長幅程度に安定化しつつ掃引することが求められること、共鳴吸収に最適なブルーム条件を見出すことが重要となる。そこで、予め模擬試料による模擬試料によるアブレーションブルームの運動を可視化して最適条件を



共振吸収分光の利点
・レーザー光の計測
・検出精度が高い
・検出下限値が低い
・検出の迅速解決が容易

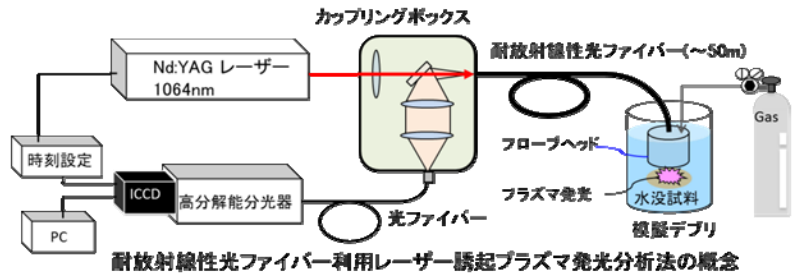
高速発光検出器 (CMOSダイオード)
ファイバーによる遠隔検出の実現

見出し、MOX 試料に適用した。その結果、Pu 同位体の識別分析と、含有量の検出下限値 30~100ppm、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の同位体比の測定を相対誤差 1%未満相当、計測時間各 5 分程度で定量分析できることを実証した。また、 ^{239}Pu の共鳴吸収スペクトルを詳細に調べることによって、 ^{239}Pu の超微細構造定数を、従来に比べ一桁以上正確に求めることにも成功した。

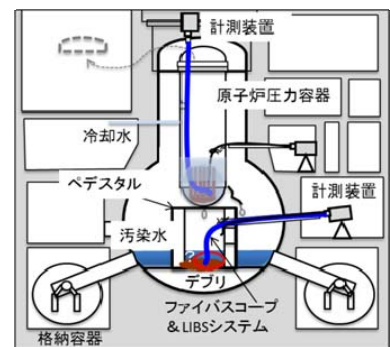


2. 光ファイバーLIBSによるオンサイト・その場分析 (廃炉措置への挑戦)

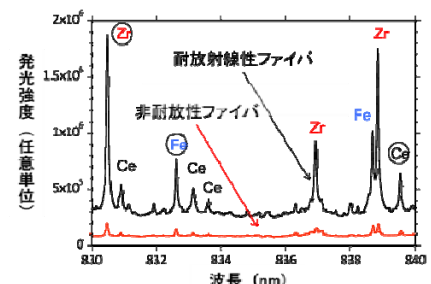
東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、事故炉内からの熔融燃料デブリ等を取り出すという世界的に類例のない作業を安全かつ円滑に実行することが求められている。現時点においては、宇宙線による核燃料物質等の位置確認が試行されており、燃料集合体の熔融落下が示唆されているが、燃料デブリの压力容器や格納容器内での状況、性状、分布については、実際に確認されていないばかりか、その方法についても具体的準備がなされていないのが現状である。燃料デブリの位置や状況を把握するためには、高放射線、水中又は高湿度、狭隘という過酷な環境下における遠隔その場観察技術が要求される。高い放射線環境下では、IC を多用した精密電子機器は使用不能であることから、上記 1. で開発した非接触直接迅速分析手法を基に、レーザー光を耐放射線性光ファイバーで伝送する、ファイバーLIBS 法を導入し、その実現の可能性を図っている。



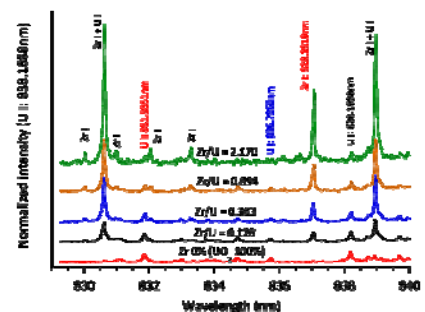
光ファイバーは放射線を受けると、ガラス中に生成された欠陥に特定の波長の光が吸収されることから、透過光量が低下する。これを補償するため、純粋石英コアにヒドロキシ基 (OH 基) を 1000ppm 含有させることにより耐放射線性を持たせファイバーを用いた。10kGy/h の高放射線場にファイバプローブと Zr、Fe、Ce 混合酸化物試料を静置し、組成分析を試みた結果、耐放射線性ファイバーを利用することで、累積線量 1MGy であっても、近赤外領域における元素特有の発光線が確認できた。一方、紫外・可視域については性能劣化が激しく、利用不可となっているが、可視域の透過率を改善するため、フッ素を含有させた耐放射線性ファイバーも出てきており、今後性能評価により利用の可能性を確認する必要がある。



炉内検知の概略図



放射線環境下でのレーザー分析試験



水中での Zr/U 酸化物からのスペクトル

水没した熔融デブリの分析特性を把握するため、U、Zr 混合酸化物焼結試料を模擬デブリとして水中に静置し、窒素ガスをブローしながら発光スペクトルを観測した。ガスフローにより集光レンズと試料の間は気泡で覆われるため、水中であっても大気中とほぼ同じ環境での計測が実現した。U と Zr の発光線を明確に分離観測できること、Zr/U 比を変えた試料による観測から、Zr 濃度に比例した発光線強度が得られることから、デブリ組成分析の可能性が示唆された。今後、より高分解能で広帯域な計測を実現し、詳細な分光特性を取得すると共に、実際のデブリに適用するために、様々な組成・形態の複雑系模擬試料による基礎データを蓄積していくことが重要となる。