

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：

低除染TRU燃料の非破壊・遠隔分析技術開発

（独立行政法人 日本原子力研究開発機構）

機関名：独立行政法人 日本原子力研究開発機構 代表者氏名：若井田育夫

機関名：国立大学法人 福井大学 代表者氏名：仁木秀明

研究期間及び予算額：平成17年度～平成21年度（5年計画） 428,698千円

平成17年度 27,662千円

平成18年度 298,075千円

平成19年度 45,773千円

平成20年度 30,850千円

平成21年度 26,338千円

項目	内容
1. 目的・目標	<p>未照射のウラン固体燃料を対象として、レーザー誘起ブレイクダウン発光分光分析法とレーザーアブレーション共鳴分光分析法を組み合わせることにより、核燃料物質中のFPやMAに相当する物質の元素組成、不純物及びウランの濃縮度を、直接・非接触・遠隔において同時期に、しかも簡便かつ迅速に分析できる基盤技術を開発する。</p> <p>【到達目標】</p> <p>(1) FP 模擬試料に対する分析感度として 100ppm 程度、MA 模擬元素の分析感度として 0.1%程度を実現すること。</p> <p>(2) ウラン濃縮度 1%～5%の分析を可能とすること。</p> <p>(3) 発光分光による組成・不純物分析と共鳴分光による同位体比分析を、1時間程度の操作時間で実現すること。</p> <p>【全体計画】</p> <p>1. 遠隔操作手法の開発 レーザー光遠隔伝送法、ブレイクダウン発光の遠隔伝送法を確立する。</p> <p>2. ウラン燃料を母材としたレーザーブレイクダウン発光分析法の開発</p> <p>2.1 基礎的発光特性の解明 研究課題の原理的な解明と効率的な技術開発のため、発光スペクトルの時間変化、発光領域の時間変化、発光特性の雰囲気ガス及びガス圧に対する依存性に関する研究を実施する。</p> <p>2.2 模擬試料によるレーザーブレイクダウン発光分析法の開発 未照射ウラン燃料の簡便、迅速、直接分析法を確立するため、発光分光データを蓄積するとともに、基礎的発光特性の解明によって得られた知見を基に発光分光特性を明らかにしてその最適化を図り、組成・不純物分析法を確立する。短パルスレーザーを用いた発光分光やレーザー二重照射法の最適化により高感度化・高分解能化を目指す。</p> <p>3. レーザーアブレーション共鳴分析法によるウラン濃縮度測定法の開発 共鳴分光専用光源を構築し、アブレーションによって生成される原子</p>

	<p>雲の特性評価から共鳴分光に求められる最適条件を見出す。高分解能な同位体スペクトルの観測を実現し、同位体比分析手法を確立する。発光分光による組成分析と組み合わせ、一連の操作で実施できることを確認する。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 成果 ・ 副次的な成果 ・ 論文、特許等 	<p>【1. 遠隔操作手法の開発】 複数のアクチュエータミラーとTVカメラにより直接視認不能な場所へのレーザー光伝送を実現した。レーザープラズマ発光や共鳴分光用精密レーザー光の伝送に光ファイバーを適用して遠隔精密計測を実現し、本事業での標準計測手段として活用した。</p> <p>【2. ウラン燃料を母材としたレーザーブレイクダウン発光分析法の開発】</p> <p>【2.1 基礎的発光特性の解明】 発光スペクトルの発現特性から減圧希ガス雰囲気、数μsの遅延時間での観測により、S/Nの高い計測が可能であることを示し、不純物分析や酸化ウランを用いた試験の進展に寄与した。特に、様々な条件における発光領域の動的観測を実現することにより、初期段階のアブレーションルームの膨張進展距離が、時間の2/5乗に比例するだけでなく、ガス種・ガス圧ではなくガス密度に依存し、かつ膨張伸展距離の時間変化がガス密度の1/5乗に比例することを示したことは、プラズマ膨張伸展挙動がブラスト波モデルの理論式に定量的に従うことを証明したもので、定性的な報告が多い中で学術的にも意義深い。発光分光、共鳴分光におけるガス環境の最適化にも大きく貢献した。</p> <p>【2.2 模擬試料によるレーザーブレイクダウン発光分析法の開発】 発光分光基礎データについては、全ランタノイドを含む約30元素のレーザープラズマ発光データを取得した。 組成・不純物分析では、減圧希ガス雰囲気での観測条件の最適化、励起準位を考慮した母材スペクトルとの強度比較、デコンボリューション法によるスペクトルの解析手法の確立等により、感度の直線性とウラン中の金属不純物で70ppm (σ相当で30ppm)、ランタノイドで500ppm (50回積算時の値 発光線により150ppm~500ppm)の検出下限を実現し、当初の目標(金属不純物:100ppm オーダー、ランタノイド:0.1%程度)を上回る性能を達成した。さらに、複数元素混在環境(ランタノイド6種)でも元素識別が可能であること、Puを模擬したランタノイドにおいて組成比50%近傍までの感度の直線性と、繰り返し測定精度$\pm 2\%$ (100回積算時の概算値)が達成できる可能性も示した。 大気雰囲気中での発光分光の高感度化を目指したレーザー二重照射法の最適化では、試料のアブレーションに短パルスレーザーを用い、その後ナノ秒レーザーにより空間プラズマを生成して再加熱する方法により、従来法に比べ発光強度を200倍増加できる条件を見出すことに成功した。</p> <p>【3. レーザーアブレーション共鳴分析法によるウラン濃縮度測定法の開発】 精密分光用光源開発については、発振幅が1時間平均で20MHz以内の単一波長性と周波数変動が1時間当たり88kHz未満の長時間波長安定</p>

性、100GHz の広帯域波長掃引性の実現及び絶対波長での波長設定、任意波長への波長切り替え性能を有した共鳴分光用光源の構築に成功し、共鳴分光分析試験に供した。

アブレーションプルームの挙動解析では、共鳴吸収量の時間・空間測定から状態密度分布の時間変化を導出し、プルーム挙動を可視化する評価法を確立した。これにより、状態密度分布の膨張がドラッグモデル的な振る舞いをする事、状態密度の濃い部分はシェル状に膨張・減速し、停止・滞留した後、減衰していく様子を観測することに成功した。

共鳴分光の最適化では、プルームが停止・滞留する場合に高感度・高分解能が両立できることを確かめ、これから希ガス減圧条件、観測位置、観測時刻を決定することにより、ほぼ室温のドップラー幅での測定分解能（750MHz）を達成した。光学遷移の選定、計測法の最適化により、存在率 0.05%の検出下限を実現して天然ウラン中の ^{235}U （0.72%）の測定に成功し、当初の目標（1～5%の識別性能）を十分に上回る分析性能を達成した。さらに、35 核種以上の複数元素・同位体が同量程度混在した複雑な環境下でも、同位体の識別が可能であることを実証するとともに、10%台の高濃度においては概算値として±5%以内の繰り返し測定精度が得られる可能性も示した。

発光分光と共鳴分光を組み合わせた総合試験では、発光分光を実施し、直後に雰囲気ガスを交換して共鳴分光を行う方法を採用することにより、一連の分析操作に要する時間が15分程度（精度を上げた場合で25分程度）となることを示し、目標（1時間程度）より十分短時間で測定が完了できることを実証した。

【事業全体】を通して

組成・不純物分析感度、同位体組成分析感度及びこれらの測定に要する時間について目標を上回る性能を達成するとともに、精度に関してもある程度評価することができ、遠隔分析に必要となる基本的な技術基盤を形成することができた。本成果により、MOX 中のウラン、プルトニウムの遠隔分析に関する基礎研究を開始できる確信が得られたことは、最大の成果である。

以上に加え、アブレーションプルームの運動挙動が理論モデルに従うことを半定量的に証明したこと、アブレーション量が最大となるのはレーザー焦点位置が試料表面からずれた位置であることを発見し、これがレーザー二重照射法で発光強度の飛躍的な増大の要因の一つである可能性を示したこと、アブレーションプルーム中の状態密度分布の可視化により真空中とガス中の膨張過程の違いや、高い密度分布がシェル状に広がり停滞・停止し、緩和していく様子を明らかにできたこと、それにより酸化物分子のかい離、イオン・原子の緩和過程を示唆する様子が観測されたこと等は、単なる技術開発に留まらず、アブレーション過程の学術的解釈に大きく寄与するものである。

【1. 論文発表など】

- ・レーザー誘起ブレークダウン分光法（LIBS）による銅プラズマの発光特性、丸山庸一郎 他、JAEA-Technology 2008-051(2008)
- ・アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光（1）Gdを用いた同位体識別のための最適条件の確立、宮部昌文 他、JAEA-Research 2008-056(2008)

- ・ガドリニウムに添加した銅のレーザーブレイクダウン発光分光分析、赤岡克昭 他、JAEA-Research 2008-081(2008)
- ・ Ablation-initiated Isotope-selective Atomic Absorption Spectroscopy of Lanthanide Elements、宮部昌文 他、AIP Conference Proceedings Volume 1104, pp.30-35 (2009)
- ・アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光 (2)酸化セリウムから生成されたプルームの膨脹ダイナミクス、宮部昌文 他、JAEA-Research 2009-052(2009)
- ・レーザーブレイクダウン発光分光法によるウランスpekトルの測定、赤岡克昭 他、JAEA-Research 2009-029(2009)
- ・カルシウムを添加したウランのレーザーブレイクダウン発光分光 - 時間分解分光 -, 赤岡克昭 他、JAEA-Research 2010-004(2010)
- ・Spectroscopy of laser-produced cerium plasma for remote isotope analysis of nuclear fuel、宮部昌文 他、(Applied Physics A, in press)
- ・Double Pulse LIBS of Gadolinium Oxide Ablated by Femto- and Nanosecond Laser Pulses、大場正規 他、(Applied Physics A, in press)

【2. 口頭発表など】

- ・レーザー光を用いた核燃料物質の非接触分析技術開発、(日本原子力学会 2008 年春の年会 平成 20 年 3 月)
 - (1) ブレイクダウン分光とアブレーション共鳴分光 (研究開発の目的と概要)、若井田育夫 他
 - (2) ブレイクダウン発光特性とレーザー二重照射の効果、大場正規 他
 - (3) ガドリニウムに添加した不純物のブレイクダウン発光分光分析、赤岡克昭 他
 - (4) アブレーション共鳴吸収分光によるガドリニウム同位体の識別、宮部昌文 他
- ・レーザーブレイクダウン分光及びアブレーション共鳴分光を用いた核燃料物質の迅速・遠隔分析技術開発、若井田育夫 他、(日本分析化学会第 69 回分析化学討論会 口頭発表 平成 20 年 5 月)
- ・Spatial and temporal characteristics of plasma emission in double-pulse laser induced breakdown spectroscopy with femto- and nanosecond laser pulse、丸山庸一郎 他、(LIBS2008 国際会議 平成 20 年 9 月)
- ・Characteristics of femtosecond laser induced plasma emission in various gas condition、大場正規 他、(LIBS2008 国際会議 平成 20 年 9 月)
- ・酸化ウランに添加した不純物のブレイクダウン発光分光分析、赤岡克昭 他、(日本原子力学 2008 年秋の大会 平成 20 年 9 月)
- ・レーザーによる非接触・遠隔分析技術開発、(日本分析化学会第 57 年会 平成 20 年 9 月)
 - (1) レーザーブレイクダウン発光分光特性、若井田育夫 他
 - (2) アブレーションされた原子・イオン種の同位体分析、宮部昌文 他
- ・Development of Remote Analysis for Nuclear Fuel Materials by Combination of LIBS and Ablation Initiated Resonance Absorption

	<p>Spectroscopy (AIRAS)、若井田育夫 他、(LAP2008 国際会議 平成 20 年 10 月)</p> <ul style="list-style-type: none"> • Abrasion-initiated Isotope-selective Atomic Absorption Spectroscopy of Lanthanoid Elements、宮部昌文 他、(LAP2008 国際会議 平成 20 年 10 月) • ブレークダウン発光分光法とアブレーション共鳴分光法を組み合わせた核燃料物質の比接触遠隔分析技術開発、若井田育夫 他、(東北大学金属材料研究所ワークショップ「素材産業に関する新しい分析・解析技術」 平成 20 年 12 月) • ダブルパルス LIBS 法による金属及び酸化物のレーザープラズマ発光特性、大場正規 他、(東北大学金属材料研究所ワークショップ「素材産業に関する新しい分析・解析技術」 平成 20 年 12 月) • LIBS によるウラン酸化物中の不純物測定法の開発、赤岡克昭 他、(東北大学金属材料研究所ワークショップ「素材産業に関する新しい分析・解析技術」 平成 20 年 12 月) • アブレーション共鳴吸収分光によるウランおよびランタノイド元素の同位体分析、宮部昌文 他、(日本原子力学会 2009 年春の年会 平成 21 年 3 月) • ダブルパルス LIBS 法により金属及び酸化物のレーザープラズマ発光特性、大場正規 他、(日本原子力学会 2009 年春の年会 平成 21 年 3 月) • レーザーによる非接触遠隔分析技術開発、(日本分析化学会第 70 回分析討論会 平成 21 年 5 月) <ul style="list-style-type: none"> (1) レーザーブレークダウン発光分光特性 (2)、赤岡克昭 他 (2) アブレーションされた原子・イオン種の同位体分析、宮部昌文 他 • ダブルパルス法におけるレーザーブレークダウン発光のアブレーションパルス集光特性、大場正規 他、(日本原子力学会 2009 年秋の大会 平成 21 年 9 月) • レーザーによる非接触・遠隔分析技術開発、(日本分析化学会第 58 回年会 平成 21 年 9 月) <ul style="list-style-type: none"> (1) レーザーブレークダウン発光分光特性 (3)、赤岡克昭 他、 (2) アブレーションされた原子・イオン種の同位体分析 (3)、宮部昌文 他 • レーザー誘起プラズマ発光分光法とアブレーション共鳴吸収分光法を組み合わせた次世代燃料の遠隔分析技術に関する基礎研究、若井田育夫 他、(第 30 回核物質管理学会日本支部年次大会発表及び論文集 平成 21 年 11 月) • DOUBLE PULSE LIBS OF GADOLINIUM OXIDE ABLATED BY FEMTO- AND NANOSECOND LASER PULSES、大場正規 他、(COLA2009 国際会議 平成 21 年 11 月) • SPECTROSCOPY OF LASER-PRODUCED CERIUM PLASMA FOR REMOTE ISOTOPE ANALYSIS OF NUCLEAR FUEL、宮部昌文 他、(COLA2009 国際会議 平成 21 年 11 月) • レーザー遠隔分析法を用いた次世代核燃料物質の迅速分析法の開発 (不純物分析性能、同位体分析性能のまとめ)、若井田育夫 他、(東北大学金属材料研究所ワークショップ「新素材開発と工程制御・品質管理に向けた分析・解析技術」 平成 21 年 12 月) • レーザーブレークダウン発光の自己吸収特性、赤岡克昭、(東北大学
--	--

	<p>金属材料研究所ワークショップ「新素材開発と工程制御・品質管理に向けた分析・解析技術」平成21年12月)</p> <ul style="list-style-type: none"> Basic Study on Remote Analysis for Next Generation Fuel by Combination of Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) and Ablation Initiated Resonance Absorption Spectroscopy (AIRAS)、若井田育夫、瀬谷道夫 他、(核不拡散・保障措置及び核セキュリティ分野の日米協力に関する専門家会合 (JSGO/JAEA-CDOE/NNSA・LANL) 平成22年2月) <p>【3. その他】</p> <ul style="list-style-type: none"> 低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発、若井田育夫 他、(JST 原子力システム研究開発成果報告会口頭発表 (推薦) 平成19年1月) レーザー誘起発光分光法、レーザー共鳴分光法による元素組成・同位体分析の分光学的研究、若井田育夫 他、(原子力機構大学公開特別講座 (名古屋大学) 平成21年8月) 低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発、若井田育夫 他、(JST 原子力システム研究開発成果報告会ポスター発表 (推薦) 平成22年1月) レーザーを用いた次世代燃料中の不純物、組成、同位体の非接触・遠隔分析、若井田育夫 他、(原子力機構拡大金曜セミナー 平成22年1月)
<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> 研究開発の進捗 研究開発の成果 ブレイクスルー 	<p>【研究開発の進捗】</p> <ul style="list-style-type: none"> 計画は全体として、また個別項目ごとにも計画通り遂行された。 <p>【研究開発の成果】</p> <ul style="list-style-type: none"> 低除染 TRU 燃料の不純物濃度、同位体組成、濃縮度を所要の時間内に非破壊で分析できる目処を得るとともに、目標レベルの測定精度を達成しており、発光基礎特性、最適条件の設定など基盤技術開発として優れた成果を上げた。 低除染 TRU 燃料の分析への実用化が期待できるだけでなく、燃料サイクル保障措置分析の汎用技術として発展する可能性も示した。 <p>【ブレイクスルー】</p> <ul style="list-style-type: none"> 保障措置分析手法としての基盤技術 (ポテンシャル) において、世界水準に到達したと評価できる。 非破壊検査による元素濃度測定法と同位体測定法の確立は、安全性・経済性の向上、核拡散抵抗性の向上に大きく寄与することが期待される。
<p>4. その他</p>	<ul style="list-style-type: none"> 平成22年度から創成型研究開発として計画している U-Pu 酸化物燃料を用いた試験によりプルトニウムを含む試料の分析を実証し、実用化を確かなものにしてもらいたい。 世界の中で日本が先行している技術として、日本が国際的な基準作り等に貢献出来るよう取り組んでももらいたい。