

次世代燃料の遠隔分析技術開発と MOX 燃料による実証的研究

—MOX 分光に向けた研究と計測の新しい展開—

(受託者)独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者)若井田育夫 原子力基礎工学研究部門

(再委託先) 株式会社イマジニアリング、国立大学法人福井大学、国立大学法人京都大学

(研究開発期間)平成22年度～24年度

1. 研究開発の背景とねらい

資源の有効利用、環境負荷低減、核拡散抵抗性、サイクルコストの低減等の観点から、次世代の高速炉では、炉心燃料として低除染のマイナーアクチノイド含有 MOX 燃料（低除染 MA 含有 MOX 燃料）の利用が検討されている。燃料の製造や諸物性、照射挙動等を分析・評価する上で、燃料組成に関するデータは基本的情報であり、欠かすことができない。また、核燃料物質の平和利用の観点から保障措置上もより一層の透明性が要求され、炉心及び燃料に関する技術的な研究と並行して保障措置対応に係る基盤技術の確立が不可欠となっている。このため、低除染 MA 含有 MOX 燃料を構成する不純物やマイナーアクチノイド (MA) の組成、ウラン (U) やプルトニウム (Pu) の総量及び同位体組成を迅速に分析・評価することが求められている。この実現には、現状技術では、複雑な化学分離操作を経た上で各種機器分析を行う必要がある。しかし、分析作業に伴う被ばく線量が高くなること、放射性の分析廃棄物が発生すること、分離操作、分析測定操作に長期間を必要とし、人的・経済的負担が大きいこと、対象となる試料の形態が多様化することが予想され、分析操作が複雑な従来法では対応しきれない可能性があること、実時間で工程管理分析を行うことは不可能であること、といった多くの問題点が存在する。一方、保障措置分析においては、現状の非破壊分析技術が Pu の自発核分裂に起因する中性子検出技術が基本となっているため、MA からの中性子による妨害を受けてプルトニウム量の検認が不可能となる問題点や、 γ 線分析により Pu 同位体を評価しているため、低除染燃料を対象とした場合には燃料からの強力な γ 線が測定の障害となるといった致命的な問題を抱えることが明らかとなっており、保障措置上、MA 含有 MOX 燃料そのものの導入が阻害される恐れも危惧されている。このため、試料の物理的、化学的形態に依存することなく、かつ高度な化学操作を要しない、非接触な直接分析をその場で迅速にしかも遠隔で行える分析技術の開発が求められている。

以上の分析を実現する一つの方法として、我々は、レーザーブレイクダウン発光分析法とレーザーアブレーション共鳴分析法を組み合わせ、光で問い合わせて光で分析する「レーザー遠隔分光分析法」を提案し、未照射のウラン固体燃料を対象としてその分析特性を取得してきた。

レーザーブレイクダウン発光分析法は、レーザー照射により非接触で固体表面から試料を気化させるとともにプラズマ化し、その発光分光から固体の元素組成を分析する方法で、一度に複数の元素を同定できる特長を有する。一方、レーザーアブレーション共鳴分析法は、レーザー照射により固体表面から離脱した原子（イオン）雲に別途波長可変のプロブレーザーを入射し、得られる蛍光やプロブ光の吸収から固体の同位体組成比を分析する方法で、非接触で特定の同位体のみを測定できる特長を持つ。これまでの研究開発から、U 酸化物中の微量成分については、ランタノイドの元素同定と 100ppm オーダーの検出下限が、同位体の分析については、 ^{235}U の識別と存在量 300ppm の検出下限が得られることを示し、次世代燃料の遠隔分析技術としての適用の可能性を示した。

本研究では、レーザー利用遠隔分析技術を、未照射 MOX 試料を対象とした U、Pu の分光分析に適用し、遠隔分析が可能であることを実証する。このため、グローブボックスを用いた遠隔分析システムを構築し、遠隔操作にて MOX 中の U、Pu の分光試験を実現する。さらに、レーザーとマイクロ波の組み合わせによる新しい遠隔分光法の適用の可能性、粉体分析への適用性及び再処理過程における直接適用を視野に、溶液系における溶存元素組成分析への適用の可能性について評価することを目的とした。

本報告では、U、Pu 混合試料を対象とした分光に向けた高分解能化、高感度化、同位体の同時分光に向けた成果をまとめるとともに、新しい計測方法の展開としてマイクロ波を併用したレーザー発光分光の現状及び液相における溶存元素分析の可能性について報告する。

2. 研究開発成果

2.1 レーザーブレイクダウン発光分光の高分解能化

母材が U である場合、極めて多数で複雑な発光スペクトルを持つため、不純物のスペクトルが母材のスペクトルに混入し、発光強度の単純な比較が困難となる。従来は不十分な分解能を補償するため、スペクトル全体を構成するスペクトルピーク成分を考え、その成分の総和が観測されたスペクトルに一致するようスペクトル成分の強度を決定する、デコンボリューションの手法を導入し、評価を行ってきた。しかし、解析に時間を要すること、結果がスペクトル成分の仮定に依存する可能性があることから、より正確な評価には問題があった。さらに、Pu は U と同様に複雑なスペクトルを有するため、その評価には、それぞれのスペクトルが分離観測可能なより高度の分解能が要求される。一方、減圧希ガス雰囲気において観測条件を最適化すると、スペクトル幅を十分狭く抑えられる条件があることが判明し、分光器の分解能が分解能向上の支配的要因の一つであることも確認されている。そこで、分解能を従来比で約 7 倍向上させた（波長 λ に対し $\lambda/50000$ の分解能）分光器を導入し、高分解能分光の実現を試みた。U 酸化物の発光分光に適用した観測例を図 1 に示す。従来はデコンボリューション法によるスペクトル解析が必要であったが、多くのスペクトルが単独スペクトルとして直接計測できることが確認できた。さらに、U にネオジム (Nd) を含有させた試料による分析特性を評価した結果、U のスペクトルに混在した Nd のスペクトルを独立して観測可能であることも確かめた。

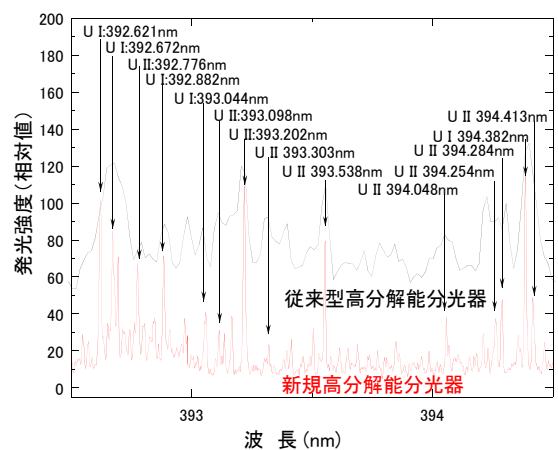


図 1 ウランの高分解能スペクトル測定例

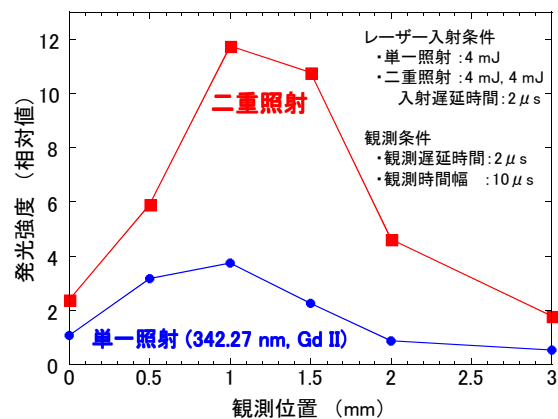


図 2 二重照射法と従来法の発光強度比

2.2 レーザーブレイクダウン発光分光の高感度化

分光系の波長分解能の向上に伴う検出感度の低下を補うため、試料損耗を抑制しながら、発光強度の増大を図ることを目的として、レーザー二重照射特性を取得した。特に今回は、光学系の

単純化のため、二つのレーザーを入射時刻をずらして同軸上に入射する同軸型二重照射法に着目し、従来の単一照射法と比較した。Gd を試料とした場合の代表結果を図 2 に示す。レーザー入射時間差と観測位置の最適化により、従来法に比べ、3~5 倍の信号強度が得られる条件を見出した。

2.3 レーザーアブレーション共鳴吸収分光法による同位体分析の最適化及び迅速化

共鳴吸収分光法で最も注意を要するのは、同位体の存在比が高くなった場合の共鳴吸収信号の飽和と存在量の小さな同位体における吸収信号の微弱化である。この両者を解決し、同位体比を迅速に測定する手法として、存在比の大きな同位体には共鳴吸収量の小さな遷移（波長）を、存在比の小さな同位体には共鳴吸収量の大きな遷移を用い、共鳴中心での吸収量の比から同位体比を直接評価する、2 波長 2 遷移法を開発し、その同位体比感度特性を取得した。図 3 に示すように、吸収信号の比は、時間とともに変化するが、その最大値を用いて検量線を得た結果、良好な直線性が確認できた。現在、垂直、水平偏波の 2 波長のレーザーを 1 本の偏光面保持ファイバーで同時に搬送し、検出時に 2 つの同位体の共鳴吸収を偏光特性により分離観測することで、短時間で同位体比を評価する基礎試験を実施している。

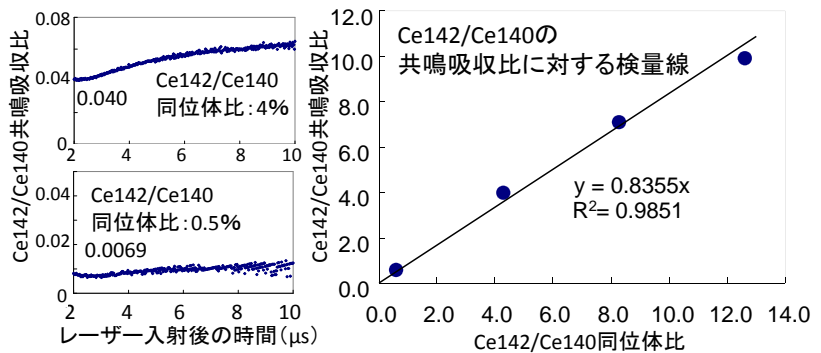


図 3 2 波長 2 遷移法による同位体比分析特性例

2.4 MOX 試料の分光試験に向けて

MOX 試料を取り扱うことから、上記のような計測手法の高度化とともに、グローブボックス内に遠隔分光システムを設置するために必要な各計測要素を構築している。ボックス内のシステム構成の概要を図 4 に示す。本システムの最大の特長は、レーザー光導入窓、光ファイバー、遠隔操作による各種光学ステージの制御ケーブル等がボックスを貫通する構造となることである。現在、これを踏まえた使用の許可の変更申請手続きを進めている。

2.5 新しい計測法の展開

2.5.1 マイクロ波を併用した発光分光

従来のレーザーブレイクダウン発光分光では、レーザー集光点における局所分析となること、アブレーションした試料を効率よく発光させることができない可能性があること、比較的短寿命のプラズマ発光を取り扱うことから不安定性を内在すること、といった問題点がある。これを打開する方法の一つとして、レー

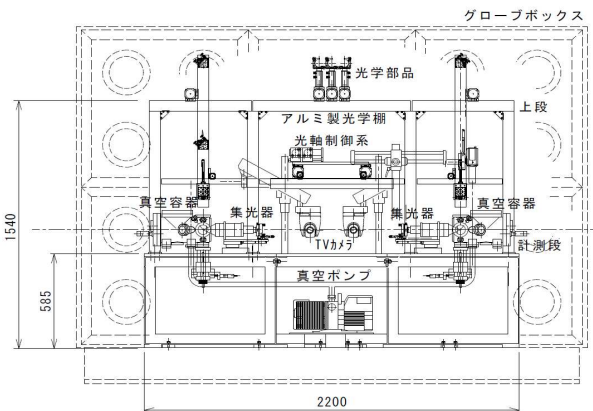


図 4 グローブボックス内機器配置概要

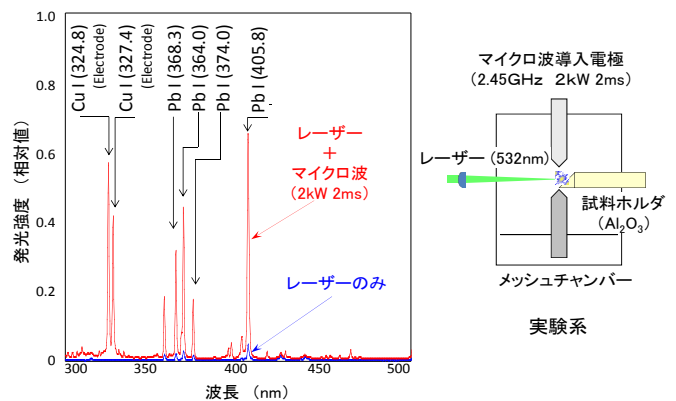
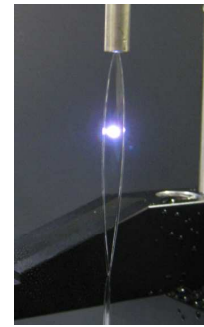


図 5 マイクロ波を併用した発光スペクトル

レーザープラズマを起源としてマイクロ波により生成・維持したプラズマを発光光源とした分光手法を開発し、その基礎特性を取得した。鉛を試料とした代表的な結果を図5に示す。大気中でレーザー照射後、マイクロ波を2ms入射してプラズマを維持し、時間積分計測を行ったところ、レーザーのみの場合に比べ著しい発光強度の増大が認められた。電気火花を起源としても同様な発光強度が得られることから、レーザーを要しない表面バルク分析法としての利用も考えられる。発光メカニズムを解明し照射条件の最適化を図れば、分光用プローブとしての発展が期待できる。

2.5.2 レーザーブレークダウン発光分光の溶存元素分析への適用

再処理過程での工程分析等も念頭に、本研究では新たに液体溶存元素に対するレーザー遠隔分析法の可能性を調べた。液面、液柱、液滴へのレーザー直接入射では、液面の不安定性や飛沫発生の問題があることから、本研究では厚さ10 μ m以下の液体薄膜を利用した発光分光に着目した。特殊なノズルにより安定した薄膜を形成し、パルスレーザーを集光照射して得られるプラズマ発光を評価した結果、固体試料と同様に、溶存元素由来のライン幅の狭い原子発光が観測できることが確認できた。さらに、NaやSr溶液を試料として、純水中の濃度を変化させて得られる基礎特性から、単一元素のみの検出下限として5~10ppbの高感度の実現に成功した。そこで



液体薄膜発光の様子

本手法を茨城県大洗海岸で採取した天然海水中のSrの分析に適用し、その有用性を確かめた。分析例を図6に示す。天然海水中であるにもかかわらず干渉のないスペクトルが取得でき、別途求めた検量線から海水中の天然Srの含有量(8ppm)評価に成功した。今後、重元素溶液や混合溶液での分析特性を取得し、溶存元素分析への適用性を評価する予定である。

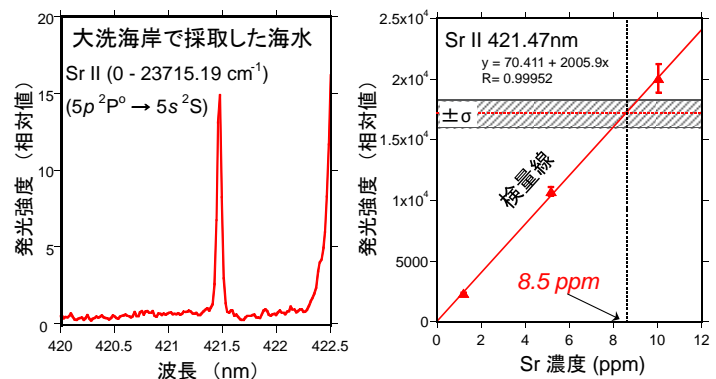


図6 液体薄膜を利用した溶存元素分析例

3. 今後の展望

次世代核燃料サイクルへの適用として、本研究の目標であるU、Pu混合固体系を対象にレーザー遠隔分析の適用性を実証する。固体・粉体・液体の迅速なその場分析技術として確立すれば、連続分析による定常性の証明と非定常性の検出が可能となり、品質管理のみならず新しい保障措置形態の提案につながるものと期待される。また、使用済み燃料ペレットの3次元遠隔分析、環境試料による未申告活動の検知等への応用では、燃焼度確認、核セキュリティー・ホームグラウンドセキュリティーへの応用も現実的となる。さらに、遠隔性とレーザープラズマの高密度高温性から、ガラス化した難溶解性溶融核燃料物質の遠隔性状判断、組成の遠隔スクリーニング等への適用性が示せば、福島原子力発電所事故の収束に向けた遠隔計測技術の一つとして有望となる。

原子力以外の一般産業分野においては、レアアース含有リサイクル資源の高品位回収や、希少有用資源鉱山開発等におけるスクリーニング技術等、迅速その場分析が要求される分野での幅広い適用が展望される。