

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：
レーザを用いた超高感度分析技術による高速炉のプラント安全性向上に関する研究
 （独立行政法人日本原子力研究開発機構）

研究開発の実施者

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：青山卓史
機関名：国立大学法人名古屋大学	代表者氏名：井口哲夫
機関名：国立大学法人東京大学	代表者氏名：竹川暢之

研究期間及び予算額：平成17年度～平成 21年度（5年計画） 353,471千円

研究開発予算

平成 17年度	22,425千円
平成 18年度	101,992千円
平成 19年度	193,281千円
平成 20年度	16,868千円
平成 21年度	18,905千円

項目	内 容
1. 目的・目標	<p>化学的に活性であるナトリウム (Na) を冷却材に用いる高速炉の冷却材は低圧なため、配管等に亀裂が生じた場合、大規模な破断に至る前に Na の微小漏えいを早期の段階で検知できれば、速やかに原子炉を停止して対策を講じることが可能であり、軽水炉の緊急炉心冷却装置に相当する工学的安全施設を必要としない。日本原子力研究開発機構（原子力機構）が設計している高速増殖炉実証炉（JSFR: Japan Sodium-cooled Fast Reactor）では、プラントの大型化に伴って原子炉容器とガードベッセルの空間容積が増大するとともに、酸素濃度の低い窒素 (N₂) ガスで満たされるため、漏えいした Na が酸素等と反応して生成する Na エアロゾルの濃度が低下し、現行の Na 漏えい検出器の性能である 100 ppb より 3 桁の検出感度向上が要求されている。しかし、Na イオン化式検出器 (SID: Sodium Ionization Detector)、放射線イオン化式検出器 (RID: Radioactive Ionization Detector) 等の現行の Na 漏えい検出器は、原理的に Na エアロゾルを検出するため、高感度化が達成できても、1 次冷却系配管の間隙部等の N₂ ガス中に含まれる Na が漏えい検知の検出下限に影響を与える。そこで、高速炉の 1 次冷却材 Na の中性子核反応により生成した放射化 Na (²²Na) を高感度で検出する手法を開発する。これに加えて、安定同位体 (²³Na) を検出対象として、二重管構造となっている 1 次冷却系配管の間隙部の ²³Na 濃度を測定し、そのバックグラウンドレベルからの変動を監視することにより、Na 漏えいを検知する手法も提案する。</p> <p>レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS: Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry) は、微量元素の同位体分析に有望であり、RIMS を Na 漏えい検知に適用することにより、高速炉 1 次冷却系の放射化 Na やその安定同位体を高感度で検出する技術を開発し、現行の Na 漏えい検出器より検出感度を 3 桁高めるとともに、²²Na や ²³Na に対する RIMS の適用性を評価する。</p> <p>本研究では、RIMS を適用した微量 Na 分析装置を設計・製作し、²²Na 試料を用いて分析試験を行い、²³Na 及び ²²Na の検出性能を評価する。また、将来の実用化段階の高速炉プラントへの適用性を評価し、今後の課題を抽出する。</p> <p>なお、放射化 Na に対する RIMS の検出性能は、「常陽」1 次冷却系から採取</p>

	<p>したNa試料を用いて評価する計画であったが、²²Naと²³Naを識別できる同位体比は最小で10⁴分の1のオーダーであり、その同位体比が10¹⁰分の1となる「常陽」1次冷却系Na中の²²Naの検出は困難との結論を得たため、当初計画を変更して、²²Na線源を用いて放射化Naの検出性能を評価することとした。</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>【研究開発項目 (1) 検出感度向上】 [得られた成果]</p> <p>イオントラップは、電場を利用して特定の質量電荷比をもつイオンを選択的に捕獲・蓄積する装置である。先行研究実績から希ガスをを用いた分析試験を行い、イオントラップの基本動作である、①イオン引き込み、②イオン蓄積、③イオン引き抜き、において、パラメータ（印加電圧、イオン蓄積時間、イオン引き抜き時間及び各構成要素間の動作タイミング等）が検出性能に及ぼす影響を評価した。Na原子は、紫外・可視波長域でのレーザ共鳴励起による自動電離レベルがなく、共鳴励起のみで効率的にイオン化できないため、研究開発項目(2)に示すように、1光子励起とパルス電場を適用したイオン化機構の方が、パルス電場を適用しないイオン化機構よりも、感度が約10倍高く、また、イオン化のためには数kV/cmの強電場が必要となる。パルス電場を採用した場合、電場の影響によりイオンが加速され、イオントラップによるイオン捕獲率が著しく低下するため、このイオン化機構とイオントラップは併用できないことが分かった。研究当初想定したイオントラップによる感度向上は数倍程度であり、両者を比較した結果、イオントラップなしでパルス電場を適用したイオン化機構の方が高い検出感度が得られるとの結論を得た。</p> <p>上記の結果より、Naの検出に対するイオントラップの適用性は低いと判断し、当初計画を変更して試験装置にはイオントラップを採用しないこととした。なお、試験装置全体で目標感度を得るとの考え方から、当初、イオントラップで見込んでいた感度向上は、エアロゾル濃縮効率の高いエアロダイナミックレンズを新規に採用することで達成した。</p> <p>【研究開発項目 (2) ; ナトリウム分析基礎技術開発】 [得られた成果]</p> <p>エアロゾル状のNa化合物を単原子化する蒸気化法として、付与するエネルギーが高いレーザアブレーション（LA: Laser Ablation）法を選定し、Na分析用イオン化チャンバを製作し、名古屋大学所有のRIMSシステムを用いて蒸気化法に関する基礎データの実験パラメータに対する依存性を調べ、最適値を決定した。母材に含まれる不純物Naの影響を、高沸点のタンダステン（W）試料及び高純度のチタン（Ti）試料について調べた結果、LA出力が低い場合はWからの不純物Naの放出がわずかに少ないが、LA出力が高い場合は両者の差は小さいことが分かった。蒸気の拡散速度及び拡散方向分布を調べた結果、速度分布は3000 KのMaxwell-Boltzmann則に従い、拡散方向分布は、n=20の余弦分布に従うことが示された。</p> <p>Na₂O試薬を用いて、蒸気化したNa原子の励起・イオン化機構として、(2+1)光子イオン化機構及び1光子励起とパルス電場を適用したイオン化機構に関する基礎データを取得した。その結果から、遷移断面積、イオン化に対する飽和レーザ出力及びパルス電場イオン化に必要な印加電場強度を評価した。また、同位体の選択的イオン化機構を採用した場合、質量分析計に要求される分解能を2~3桁下げられる可能性があったが、線幅の短いレーザの開発やドップラー拡がりに対する対策等の課題が明らかになり、同位体の選択的イオン化を用いずに質量分析によりNaの同位体比を分析することとした。</p> <p>質量分析器の出力信号に対するLA用パルスレーザのエネルギー密度依存性を調べた結果、Nd:YAGレーザの第2高調波（532 nm）を用いてアブレ</p>

ーションを行う場合には、 0.25 J/cm^2 付近で検出感度が飽和し、このエネルギー密度を超えるとW試料に含まれる不純物Naの影響が大きくなることが分かった。

W板試料を用いて、これに含まれる不純物Naを分析し、Naイオン収量の電場強度、LA出力等の実験パラメータに対する依存性を調べた結果、シュタルク効果による共鳴励起波長の変位を抑制するためには、共鳴イオン化用レーザ照射時の電場強度を 0.5 kV/cm 以下とする必要があるとの結論を得た。また、蒸気拡散速度分布は、アブレーション用レーザのパルスエネルギー密度にほとんど依存せず、 3000 K の Maxwell-Boltzmann 則に従うことを確認した。

以上の結果より、NaエアロゾルをLA法で原子化し、1光子励起+パルス電場によりイオン化する高効率のNaエアロゾルイオン化法を開発した。

【研究開発項目 (3) ; ナトリウムエアロゾル採取技術開発】

[得られた成果]

東京大学の実験室において、微分型モビリティ分級器により粒径を選別した標準粒子を発生させ、標準型エアロダイナミックレンズを有するエアロゾル質量分析計で測定し、エアロダイナミックレンズの粒子透過特性を評価した。標準粒子には、硝酸アンモニウム、硝酸Na及び硝酸カリウムを用い、粒子透過率の粒径に対する依存性を評価した結果、真空中の空力学径が $300 \sim 1000 \text{ nm}$ の範囲において、実験値は流体力学モデルに基づく解析値よりも高い透過率を示した。この結果から、Naエアロゾル用に新たに設計したエアロダイナミックレンズに対しても、解析予測値 (Naエアロゾルの粒径範囲で $0.2 \sim 1.0 \mu\text{m}$) より高い透過率が得られ、検出感度を向上できることが分かった。

上記の評価結果に基づいて、エアロダイナミックレンズを改良し、大粒径側のNaエアロゾルの透過効率を向上させた。これにより、Na漏えい検知に適したエアロゾル採取技術を開発した。

【研究開発項目 (4) ; 試験装置の検討・設計・製作、及びそれを用いた検証試験・性能評価】

[得られた成果]

文献調査によりNa分析に係るデータベースを整備し、これに理論的考察を加え、RIMSによるNa漏えい検知の過程について検討した。その結果、エアロダイナミックレンズによるNaエアロゾルの捕集、LA法によるエアロゾルの蒸気化及び1波長共鳴励起とパルス電場を適用したイオン化機構を選択した。研究開発項目(1)の検討結果に基づきエアロダイナミックレンズを採用し、Naエアロゾルを捕集する金属製集積板 (エアロゾル集積板) の材質及び表面形状を検討してTi多孔質体を選定した。それらを踏まえて、試験装置を設計・製作した。

Naエアロゾル供給装置を製作し、発生したエアロゾルをマイクロフィルタで濾過し、捕集したNaを定量分析した結果、試験に必要な濃度範囲 $10^{-13} \sim 10^{-10} \text{ g/cc}$ ($100 \text{ ppt} \sim 100 \text{ ppb}$ に相当) のNaエアロゾルを発生できることを確認した。Na蒸気化装置及びエアロゾル質量分析装置を製作し、原子力機構が所有するレーザシステムを整備することにより、Na漏えい検出用RIMSを構築した。

RIMSの検出性能に影響を与えるパラメータの最適化を図り、バックグラウンド信号の 3σ で定義した ^{23}Na の検出下限値として目標を3桁上回る 0.1 ppt を達成するとともに、 ^{22}Na の質量分解能に影響を及ぼす ^{23}Na イオンによる $m/z=22$ 領域 (^{22}Na) のバックグラウンドを低減させた。 ^{22}Na を含むNaCl溶液から ^{23}Na 濃度を一定として ^{22}Na と ^{23}Na の含有比率を変えたNaCl含浸

試料を作製し、RIMS による ^{22}Na の検出性能を評価した結果、 ^{22}Na と ^{23}Na の含有比率が約 $1:10^4$ で ^{22}Na 信号のピーク高さが $m/z=22$ 領域のバックグラウンドと同程度になった。 ^{23}Na より濃度が約 10 桁低い「常陽」1 次冷却系 Na 中の ^{22}Na を検出するためには、①飛行時間型質量分析計 (Time of Flight Mass Spectrometer : TOFMS) へのマスゲート追加、②TOFMS のイオン飛行距離の増加、③ ^{23}Na イオンの速度や軌道のばらつきの抑制による同位体選択性の向上、④エアロダイナミックレンズの大口径化や複数本化による検出感度向上、等の課題を解決する必要があることが分かった。

一方、 ^{23}Na の検出による Na 漏えい検知の実現性について検討し、二重配管である高速実験炉「常陽」1 次冷却系配管の間隙部の N_2 ガスをフィルタに通気させて N_2 ガス中の微粒子を捕集し、フィルタに付着した ^{23}Na を化学分析で定量した結果、バックグラウンドの ^{23}Na 濃度として 9 ppt 以下の測定値を得た。この結果から、 ^{23}Na 検出下限値が 0.1ppt である RIMS を用いて ^{23}Na 濃度の推移を監視することにより、その変動を考慮しても数十 ppt の Na 漏えいは検知可能であり、目標に設定した 100 ppt の Na エアロゾル検出は十分達成できることが示された。

本研究により開発した RIMS システムによる Na 漏えい検知について、高速炉プラント用の装置概念を検討した。JSFR の Na 漏えい検出技術として開発が行われているレーザ励起ブレイクダウン分光法 (LIBS: Laser Induced Breakdown Spectroscopy) と比較すると、RIMS は検出感度で、LIBS は長期安定性、運転・保守性の観点で優位である。それぞれの特徴を活かして、LIBS で Na エアロゾルを常時監視し、Na 信号の変化が検出された後、RIMS でその信号推移を監視することで、Na 漏えいの前兆、バックグラウンドの変動、誤信号のいずれかを確認し、より早期のプラント対応が可能となり、高速炉プラントの安全性確保に対する有効性が確認できた。

【事業全体】を通して

Na エアロゾルの検出下限値として目標を 3 桁上回る ^{23}Na 濃度 0.1 ppt を達成し、RIMS により高速炉プラント冷却系からの極微量のナトリウム漏えいを迅速かつ高感度で検出できる有効な検知技術を開発できた。なお、放射化 Na に対する RIMS の検出性能については、 ^{22}Na と ^{23}Na を識別できる同位体比は最小で 10^4 分の 1 のオーダーであり、 ^{22}Na による Na 漏えい検知は達成できなかったが、RIMS の検出下限値は目標を 3 桁上回り、目標に設定した 100 ppt の Na エアロゾル検出が十分達成できることのみならず、約 10 ppt のバックグラウンドの推移を監視できることを示し、計画を見直すことにより想定通りの成果を得た。

【論文、特許等】

- (1) 東北大学大学院工学研究科夏期集中講義 (公開講座) (口頭発表)、平成 18 年 8 月、「高速実験炉「常陽」を用いた研究開発」
- (2) 日本原子力学会 2006 年秋の年会 (口頭発表)、平成 18 年 9 月 27 日、「レーザ共鳴イオン化質量分析法によるナトリウム漏えい検知技術の開発」
- (3) 15th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE15) (口頭発表)、平成 19 年 4 月 25 日、「Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry」
- (4) 国内特許、登録番号：第 4552053 号、出願日：平成 18 年 10 月 5 日、登録日：平成 22 年 7 月 23 日、発明の名称：ナトリウム漏えい検知方法及び装置
- (5) 日本原子力学会九州支部第 136 回講演会 (口頭発表)、平成 19 年 7 月

	<p>27日、「高速実験炉「常陽」における研究開発の成果と将来展望」</p> <p>(6) 3rd International Symposium on Isotope Science and Engineering from Basics to Applications (ISE2007) (口頭発表)、平成19年9月18日、「Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry」</p> <p>(7) 日本原子力学会2007年秋の年会(口頭発表)、平成19年9月27日、「レーザ共鳴イオン化質量分析法によるナトリウム漏えい検知技術の開発(その2)(1)ナトリウム検出試験システムの設計検討、(2)ナトリウム検出基礎特性の評価」(2件シリーズ)</p> <p>(8) 日本機械学会第13回動力・エネルギー技術シンポジウム(口頭発表)、平成20年6月20日、「レーザを用いた高速炉プラントの高感度ナトリウム漏えい検知技術の開発 -Naの原子化及び共鳴イオン化試験とNa検出システムの設計-」</p> <p>(9) 日本原子力学会九州支部第140回講演会(口頭発表)、平成20年7月30日、「レーザを用いた高速炉プラントの高感度ナトリウム漏えい検知技術の開発」</p> <p>(10) 日本原子力学会2008年秋の大会(口頭発表)、平成20年9月6日、「レーザ共鳴イオン化質量分析法によるナトリウム漏えい検知技術の開発(その3)(1)全体計画と進捗状況、(2)微量ナトリウム分析装置の設計・製作と性能予測、(3)ナトリウムエアロゾル検出試験」(3件シリーズ)</p> <p>(11) Journal of Nuclear Science and Technology (論文発表)、平成20年9月、「Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry」</p> <p>(12) 東北大学大学院特別講義(口頭発表)、平成21年1月16日、「高速実験炉「常陽」の研究開発」</p> <p>(13) 日本機械学会論文集(B編)(論文発表)、平成21年3月25日、「レーザを用いた高速炉プラントの高感度ナトリウム漏えい検知技術の開発(Naの原子化及び共鳴イオン化試験とNa検出システムの設計)」</p> <p>(14) 2009 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP'09)(口頭発表)、平成21年5月13日、「Development of Sodium Leak Detection Technology Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry - Design and Functional Test Using Prototype Sodium Detection System -」</p> <p>(15) 日本原子力学会2009年秋の大会(口頭発表)、平成21年9月17日、「レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いたNa漏えい検知技術開発(その4)(1)多孔質体製集積板のエアロゾル捕集効率、(2)安定同位体Naを対象としたNaエアロゾルの検出感度、(3)放射性Naの検出による微量Na漏えい検知」(3件シリーズ)</p> <p>(16) 原子力機構広報誌「未来を拓く原子力 原子力機構の研究開発成果2009」(記事掲載)、平成21年10月、「大気中の塩分より希薄なナトリウムを検出する -レーザ質量分析を用いた超高感度ナトリウム漏えい検出器-」</p> <p>(17) International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR09)(口頭発表)、2009年12月7日、「Development of high sensitive and reliable FFD and sodium leak detection technique for fast reactor using RIMS」</p> <p>(18) 原子力機構英文広報誌「JAEA R&D Review 2009」(記事掲載)、平成22年3月、「Detecting Small Amount of Sodium Less than Salinity in Atmosphere - Sodium Leak Detector Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry -」</p>
--	---

	<p>(19) 日本原子力学会 2010 年秋の大会 (口頭発表) 平成 22 年 9 月 17 日、「レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた Na 漏えい検知技術開発 (その 5) (1)Na エアロゾルの検出性能、(2) 高速炉プラントへの適用性」(2 件シリーズ)</p>
<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】 計画は十分に的を射たものであった。当初予定していた、「常陽」一次系放射化ナトリウムに対するレーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) の検出性能確認法や、イオントラップによる捕集率向上法は、途中で実施が困難なことがわかり、中間評価時のコメント等を参考にして柔軟な軌道修正を行い、目的を達成している。</p> <p>【研究開発の成果】 本研究は、現状適用されている物理的手法を洗練化させることにより、高い感度でナトリウムを検出するシステムの開発にめどを立てたものと評価できる。 本研究で開発したエアロゾルの高感度分析技術は原子力分野に限らず他方面への応用が期待できる。</p> <p>【ブレイクスルー】 検出感度は目標値を大きく上回る値を達成したが、実用化のためには、ナトリウム冷却高速増殖炉 (FBR) の安全性、信頼性や経済性に寄与する技術であることを確証する取り組みが必要である。また、長期安定性や運転・保守性についての確認も必要となる。</p>
<p>4. その他</p>	