

# 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 —Pu 燃料分光の実証をめざして—

研究代表者 若井田 育夫 独立行政法人日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門  
参画機関 独立行政法人日本原子力研究開発機構、イマジニアリング株式会社、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～25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、照射挙動等进行分析・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、 $\gamma$  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  $\gamma$  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、 $^{235}\text{U}$  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、本研究課題の最終目標である U、Pu 混合酸化物試料を用いた非接触・遠隔・迅速分光分析の実証試験に焦点を当て、その実施に必要な設備の整備状況について報告するとともに、Pu 酸化物を用いた初めての実証試験の結果について報告する。

## 2. 研究開発成果

### 2.1 グローブボックス内への MOX 遠隔分光分析システムの構築

#### 1) システム構築の流れ

本課題においては、マクロ量の MOX 焼結試料を用いた直接分析の実証が基本コンセプトであるため、グローブボックス (GB) を分光試験用に改良して課題を実施するよう計画した。このため、核燃料物質の使用の許可の変更申請、BG の改良と GB 内への機器の据え付けを経て、GB の施設検査及び核燃料物質の使用量に関わる保安規定変更の認可等の一連の手続を実施した。平成 22 年から準備を開始したが、東日本大震災により、施設の被災、行政官庁の移行及び機器及び実験操作上の耐震に対する考え方の再考・対処のため、当初計画から 1 年以上の遅れが生じた。変更申請の許可は平成 24 年 7 月に、施設検査合格証は平成 25 年 6 月に発行され、GB は同年 9 月以降、継続的な負圧管理に移行した。10 月末に MOX 試料を搬入し、現在、実証試験を実施しているところである。システム構築に時間を要したことから、模擬物質での事前試験により遠隔操作で分光試験ができることを確認しておき、MOX 試料の装荷と同時に分光データが出るよう準備した。

#### 2) MOX 遠隔分光分析システムの特長

GB 内に設置し、直接視認できない環境でグローブを介した操作では、精密な光学調整は不可能であること、レーザー光の導入や光信号の導入・導出が必要であること、GB 内の換気回数が多いことから、空気振動による光学系への影響が無視できないこと、等の多数の問題がある。そこで、本システム構築では以下を実現した。

- ・光学調整は、絶対位置情報を基に電動アクチュエーターにより遠隔操作で行う。
- ・視認性を高めるため、要所要所に多数の TV モニタを設置する。
- ・レーザー光の光軸を常時モニタし、自動的に一定に保持するシステムを導入する。
- ・ブレイクダウン・アブレーションレーザー光は専用窓から、半導体レーザー、蛍光信号は光ファイバーにより伝送する。
- ・制御信号線 (百本に及ぶ)、光ファイバー等をすべて気密構造で GB に導入する。

構築したシステムの外観を図 1 に示す。

#### 3) Pu 試料の製作

今回利用した酸化 Pu は、97%が  $^{239}\text{Pu}$ 、3%が  $^{240}\text{Pu}$  で、Am その他が 1000ppm 程度の純度の高いものである。Pu 試料の製作は、原子力機構 NUCEF 施設内の鉄セル (TRU-HITEC) 内で製作した。酸

化Uと酸化Puの粉末を混合してペレット状に圧縮成型し、酸化還元反応測定装置（シリコニット炉）を用いて、4% $H_2/He$  雰囲気下で、炉内温度約1400°Cで16時間焼結したものである。準備した試料は、Pu、Pu30%/U、Pu10%/U、Uの4種類とした。試料の大きさは、直径約5mm、厚さ約1mm、1個当りの重量は150mg～300mgである。図2は代表的な試料の写真である。

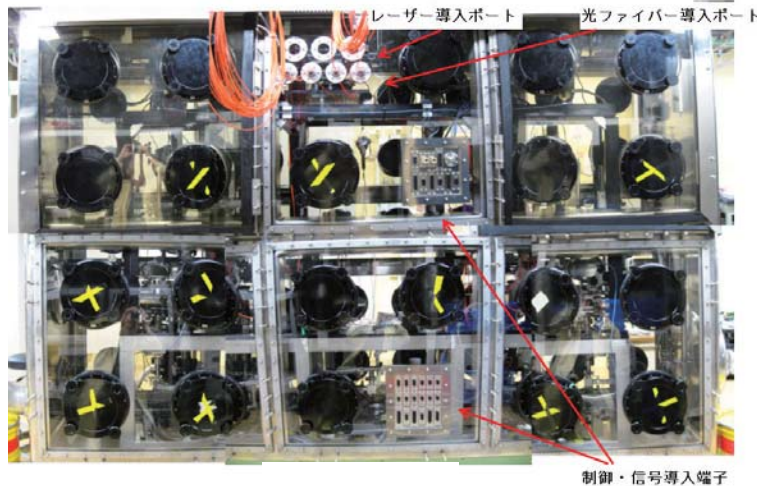


図1 遠隔分光分析システム外観（GB外観）

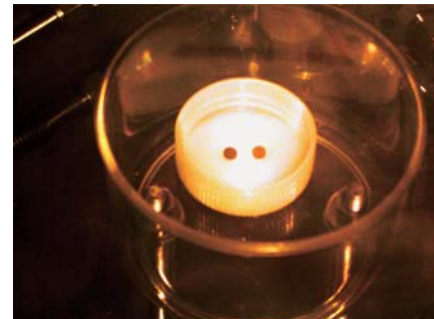


図2 MOX試料の外観（GB内）

## 2.2 Pu 酸化物試料による分光結果

### 1) レーザー誘起ブレイクダウン発光分光試験

Pu 酸化焼結試料を用いて2kPaのアルゴン（Ar）ガス雰囲気中で時間分解分光を行った。350～470nmの範囲で測定したスペクトル観測結果の拡大表示例を図3に示す。観測遅延時間は $5\mu s$ 、観測時間幅は $10\mu s$ 、積算したレーザー照射回数は100ショット、計測に要した時間は10秒間である。本スペクトルを解析し、既知のPu発光線と比較した結果、図中に矢印に示すように、300本以上をPuスペクトルとして同定することができた。

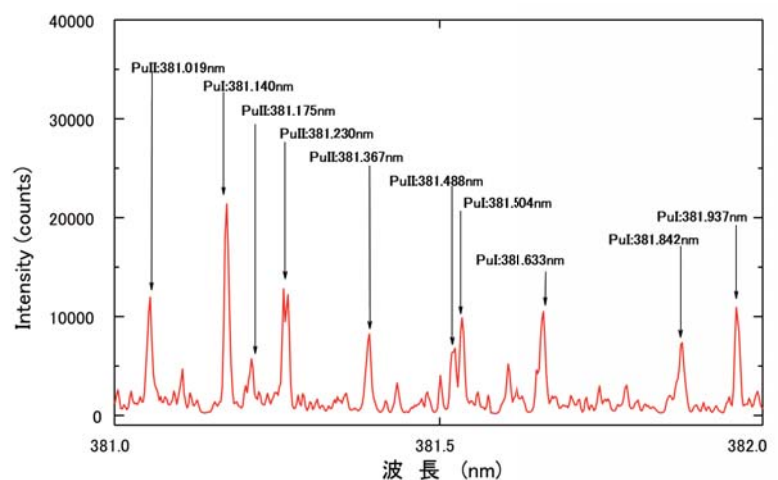


図3 Puの発光スペクトル測定例と同定線

ができた。本手法による高分解能スペクトルとして世界的にも貴重なデータである。今後は、U中のPu分析に適した発光線を見出して、定量分析性能について評価する予定である。

### 2) レーザーアブレーション共鳴吸収分光試験

Heガス圧0.8-1.3kPa、観測時間 $5\mu sec$ 以降、観測高さ約2.5mmの条件で半導体レーザーの波長を3GHzの範囲で掃引した。得られた共鳴吸収スペクトルを図4に示す。縦軸は吸収量（ $A=-\log(I/I_0)$ ）である。今回利用した光学遷移では吸収線幅（900MHz）に比べて同位体シフトが小さく（文献値：180MHz）、また $^{239}Pu$ の超微細構造分裂も小さいため、単一ピークとして観測され

たが、Puについては、世界で初めての観測結果である。観測線幅もランタノイド元素やウランで観測された幅(850MHz)とほぼ同じである。Uに対するPuの組成比が異なる試料によりPu元素組成と吸収量の関係を調べた結果、図5に示すような良好な検量線が得られた。この事実は、本手法において存在量の定量的観測が可能であることを示唆している。今後、同位体シフト量が大きく、同位体観測に適合した遷移を探索し、同位体比の定量分析を実証する予定である。

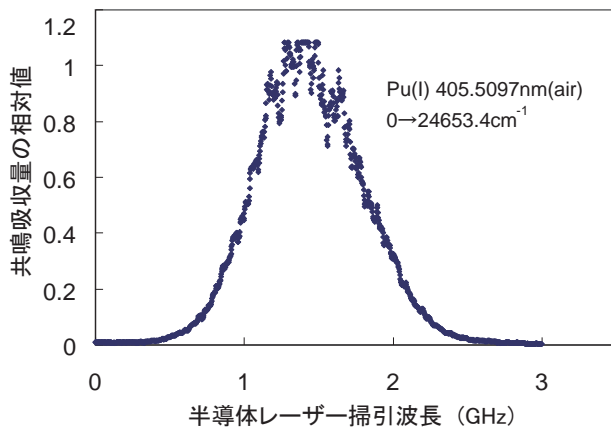


図4 Puの共鳴吸収スペクトル取得例

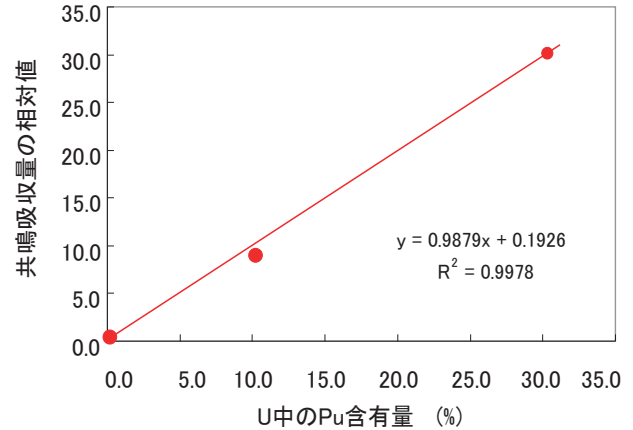


図5 共鳴吸収法によるU中Pu量の検量線例

### 3. 今後の展望

本研究のもっとも重要な成果であるU、Pu混合固体系を対象としたレーザー遠隔分析の適用性に関する実証データが得られてきており、当初の目標とした原理的実証の可能性は極めて高い。液体への適用については、薄膜液体の活用により、感度、分解能の両者において当初の予想を上回る性能が確認でき、十分活用できる可能性を見出した。今後、MOX 溶液や再処理廃液等での実証が必要となる。一方で問題点も明らかになった。すなわち、分光における観測波長の高分解能化の必要性とそれに伴う感度の劣化対策と、スペクトルを解釈するに足る基本的な分光データベースの拡充である。前者については、本技術開発によりマイクロ波利用効果の有望性を見出し、その基本的知見を得たが、溶液分光同様MOXでの実証が必要である。後者については、本法の幅広い展開、高精度化といった視点から極めて重要なもので、世界的に見ても十分なデータは皆無に等しい。本手法の活用の上で不可欠なものであり、継続的で地道なデータ取得が求められる。

今後重要となるのは、機器の耐放射線化、放射線環境場における遠隔操作技術の確立である。使用済み燃料取り扱い環境下における機器開発と実証試験が最適な課題となる。これは、再処理工程管理やガラス固化処理における白金族検知も視野に入れた研究開発となり、その活用性も高い。同時に、開発された機器によりTRU核種の分光データ取得も可能となり、基礎科学的にも、重要かつ必要不可欠となり得る。一方、除染された燃料に関する応用では、着目点は、その適用方法となる。連続分析による定常性の証明と非定常性の検出という新しい考え方に基づいて物質移行監視や未申告活動の検知を可能とするもので、従来の保障措置概念を変える可能性のある主要ツールとして期待できる。

本手法は、廃炉措置での適用、特に福島原子力発電所の廃炉措置においても、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熔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応用できる可能性がある。早期における炉内モニタリングや廃炉時に避けて通れない計量管理への適用など、本研究で開発された手法が有用となる可能性も高い。