

# 先進的光計測技術を駆使した 炉内デブリ組成遠隔その場分析法の高度化研究

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 若井田育夫 廃炉国際共同研究センター

(再委託先) イマジニアリング株式会社

(再委託先) 国立大学法人京都大学

(研究期間) 平成27年度～29年度

## 1. 研究の背景とねらい

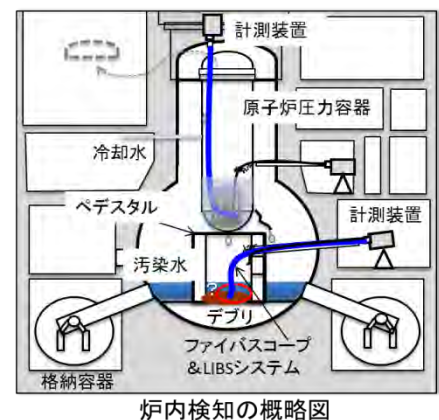
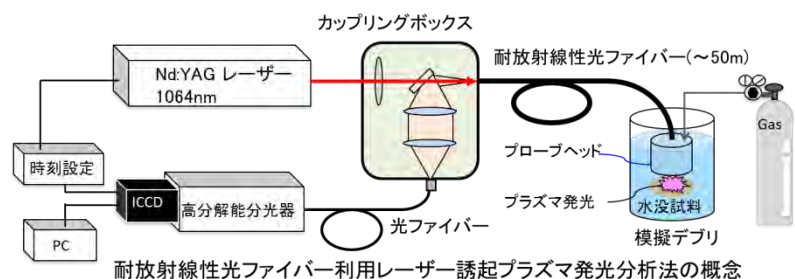
### 【研究の背景、課題、目的及び目標】

本研究開発の目標は、耐放射線性光ファイバーによりレーザー光を遠隔搬送し、レーザー誘起プラズマ発光分光法 (LIBS) によりデブリの組成を遠隔その場で分析する技術を基に、ロングパルスレーザーの活用やマイクロ波の技術を駆使した先進的光分析技術を活用することで、高線量環境である 炉内固体デブリ、冷却水懸濁微粒子状デブリの遠隔その場分析技術に求められる基盤技術を確立し、炉内状況調査、廃炉計画、デブリ取り出し作業及び取り出し後の残存確認などで不可欠となる、分析技術基盤の確立を目指すものである。

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、事故炉内からの溶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、燃料集合体の溶融落下が示唆されているが、燃料デブリの圧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。

そこで本研究開発では、日本原子力研究開発機構が自主的に開発している耐放射線性光ファイバーを利用した LIBS 法を中心に、本手法をより高感度、高分解能化し、現実の適用に十分な性能で対応できるように

するため、京都大学の有するロングパルスレーザー技術を活用し、レーザー光の光ファイバーに与えるダメージを大幅に軽減して、通常 5 mJ/pulse であるエネルギーを 50 mJ/pulse に引き上げた高いエネルギー伝送を実現するとともに、イマジニアリング株式会社の有する マイクロ波プラズマ生成技術による原子発光強度の増大技術を組み合わせ、スペクトル強度を従来に比べ 10 倍以上増倍させて、炉内の高放射線環境の気中、水中における LIBS 技術を高度化する。これにより、単なる固体焼結体のみならず、より高いエネルギーでのレーザー照射が求められると予想されるガラス化したデブリやコリウム等にも対応可能とし、従来以上の高感度化と物質分別性能の高分解能化を図る。さらに、ロングパルスレーザーを利用することで、溶融固化したデブリだけでなく、冷却水への



落下による急冷で発生していると考えられる 微粒子化したデブリ（冷却水懸濁微粒子状デブリ）の冷却水中その場直接分析法についても検討し、その可能性を評価する。以上の研究開発を実施することにより、炉内調査、デブリ取り出し、取り出し後の炉内確認等、過酷環境下における遠隔直接分析の着実な実現に必要なとなる基盤技術を確立し、廃炉加速に資する。

### 【研究実施内容】

本研究開発は、日本原子力研究開発機構が実施するその場分析法の高度化実証研究を中心に、イマジニアリング株式会社の実施するマイクロ波による原子発光増倍特性、京都大学が実施するロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性から構成される。

原子力機構においては、パルス幅が 100 ns のロングパルスレーザーを光ファイバーLIBS 装置に導入し、従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光・分光特性を取得して最適な元素スペクトル観測条件を見出すとともに、マイクロ波を重ねたファイバーLIBS プロブについて、その性能を総合的に評価する。

イマジニアリングにおいては、原子力機構で開発する LIBS プロブ集光ヘッド部への効率的なマイクロ波伝送を実現するために、電磁界解析等により効率的なアンテナ構造・条件を検討してアンテナを試作し、マイクロ波伝送の基礎特性を評価するとともに、マイクロ波によるレーザー誘起プラズマ発光量の増幅による分光分析の検出感度を向上させる手法、条件をまとめる。

京都大学においては、水中の模擬懸濁粒子にパルス幅が 100 ns に及ぶロングパルスレーザーを集光照射することで得られる溶液中プラズマ発光から、粒子の組成、粒子密度に関するデータが取得できる可能性について検討する。このため、レーザー照射条件がスペクトル形状に及ぼす影響、粒子数密度や粒径がレーザープラズマの発生状況や発光スペクトルに及ぼす影響について調べ、粒子数の定量分析手法としての可能性を評価することで、懸濁微粒子の計測手法としての可能性について検討する。

## 2. これまでの研究成果

### ①その場分析法の高度化実証研究

発振時間幅が 6 ns 程度のレーザー光源等、既存機器を活用して光ファイバーを利用したファイバーLIBS 装置を整備し、酸化物個体試料からの発光スペクトルが取得できることを確認した。

パルス幅が 100 ns のロングパルスレーザー光源を整備し、ファイバーLIBS 装置の光源

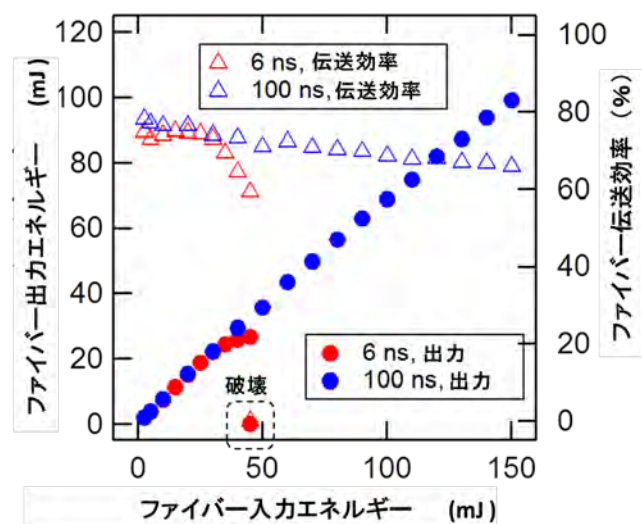


図1 光ファイバーの伝送エネルギー計測

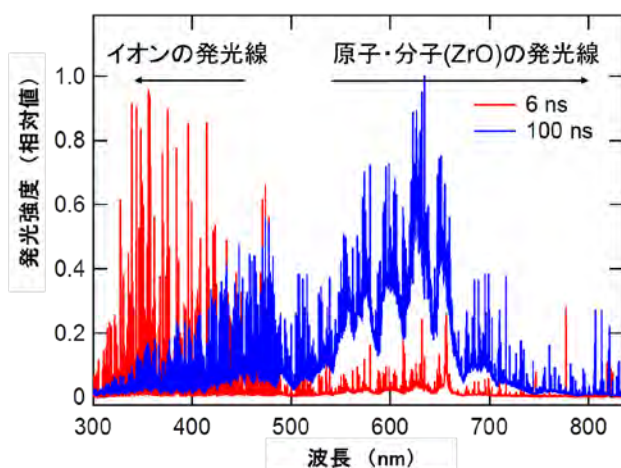


図2 Zr 試料による発光スペクトルの比較

として組み込んで、光ファイバーのレーザー光伝送特性を従来型の Nd:YAG レーザー（発振時間幅 6ns 程度）と比較した（図 1）。その結果、これまで使用してきた従来型の Nd:YAG レーザーでは、最大で 30mJ/pulse（ファイバー端面破壊エネルギー：45mJ/pulse）の伝送エネルギーであったのに対し、ロングパルスレーザーでは、著しく伝送強度が増加し、150mJ/pulse を超えても伝送が可能であることが確認された。

ロングパルスレーザーを大気雰囲気中において Zr 試料に照射し、得られた発光スペクトルを従来レーザーで得られたものと比較した（図 2）。その結果、イオンの発光線に比べ、近赤外領域の原子や分子（ZrO）の発光線の発光強度が倍増される等、ロングパルスレーザー特有の発光挙動が存在することが分かった。これは、耐放射線性光ファイバーの波長透過領域（近赤外領域）と一致することから、線量率の高い炉内観測に対しては、特に有利な性質である可能性がある。

次に、ロングパルスレーザーを大気雰囲気中において Ce/Zr/Fe 混合酸化物焼結試料に集光照射し、発光スペクトルを観測した（図 3）。その結果、混合酸化物試料であっても各構成元素のスペクトルが取得できることが確認された。

## ②マイクロ波による原子発光増倍特性

空間ギャップ型アンテナとコイル型アンテナの 2 種類のアンテナを試作し、酸化 Gd を試料としてマイクロ波重畳による Gd 元素のスペクトルを測定した。空間ギャップ型アンテナを使用し、大気雰囲気中で減圧から大気圧に至る条件で、Gd の発光強度の時間変化を観測した結果、レーザーのみの場合は、10  $\mu$ s 程度で減衰してしまうのに対し、強度の高いマイクロ波を入射すると、発光強度の減衰は抑制され、マイクロ波が入射している時間、維持される傾向が観測された（図 4）。

そこで、マイクロ波を入射している時間について、時間積分した発光スペクトルを観測した（図 5）。この結果、大気圧雰囲気であっても、時間積分により観測されたスペクトルは、著しく（数十倍以上）強度が増強されることが確かめられた。

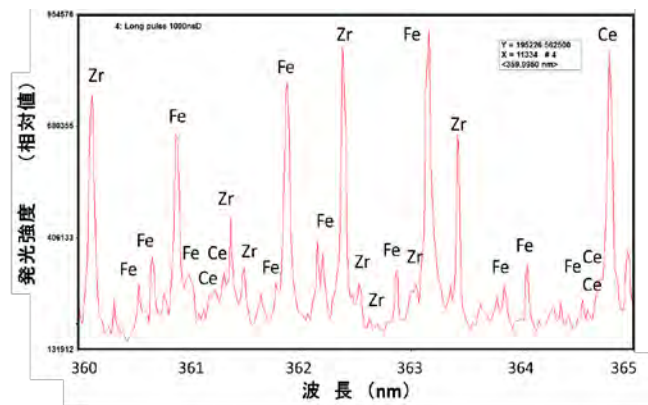


図 3 混合酸化物の発光スペクトル観測例

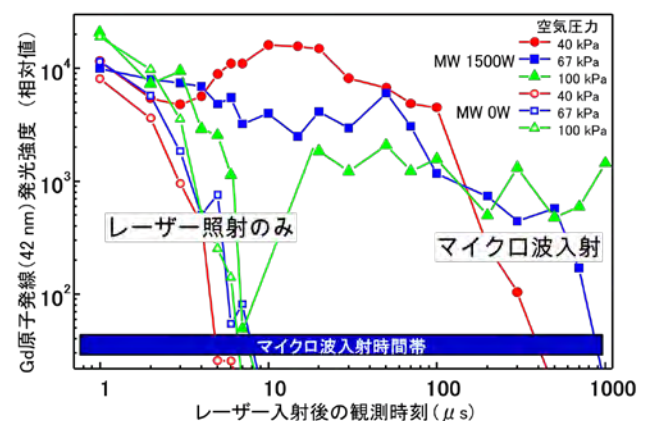


図 4 マイクロ波入射による発光強度の時間

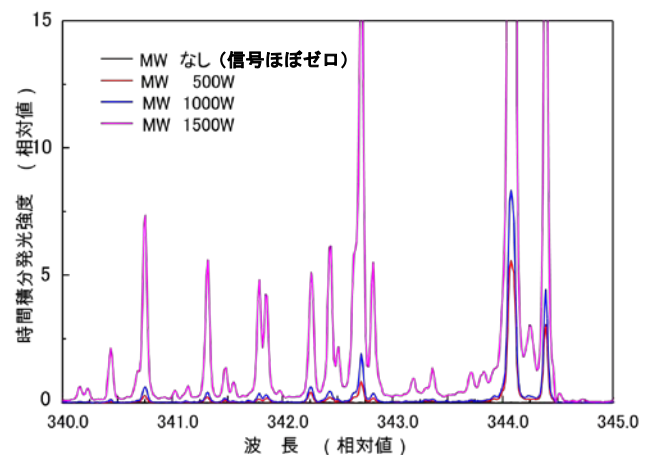


図 5 マイクロ波入射による時間積分スペクトル



マイクロ波入射時間のアンテナの電磁界解析では、空間ギャップ型では、電極間で高い電界強度分布が得られ、コイル型では、コイル間でのみ電界強度が大きくなる結果となり、ギャップ型が有利な可能性が示唆された。

### ③ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性

アルミナ微粒子分散溶液中の発光画像を、レーザー光パルス幅が 20 ns、40 ns、及び 60 ns の場合について調べたところ、パルス幅の増大にともなってプラズマの形がより明瞭となり、アルミニウムの発光スペクトルがより強くなることが明らかになった（図 6）。

一方、プラズマ発光の観測される頻度に着目すると、パルス幅が 20 ns の場合は、ほぼ毎回観測されたが、パルス幅が 40 ns の場合はその割合が減少し、60 ns の場合にはプラズマ発光がほとんど観測されなかった。しかし、アルミニウムの発光スペクトルが観測される頻度を調べると、パルス幅が長い方が、出現率が高いことが分かった。これは、パルス幅が短い場合は溶液のプラズマが生成されるのに対し、パルス幅が長い場合は、レーザー集光体積中に微粒子が含まれた場合にプラズマが生成されやすく、構成元素の発光スペクトルが観測されたことを示唆したものと考えられる。

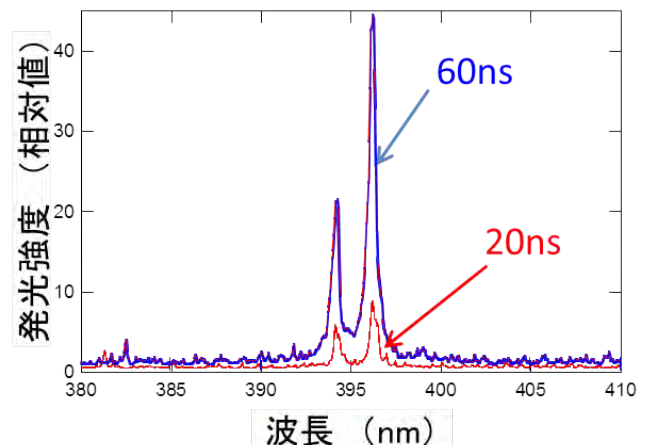


図 6 アルミナ懸濁微粒子からのアルミニウムの発光スペクトル

## 3. 今後の展望

### ①その場分析法の高度化実証研究

従来のレーザーによるプラズマ発光特性と比較しながら、ロングパルスレーザーによるプラズマ発光特性を取得し、最適な元素スペクトル観測条件を見出していく。また、計測対象として考えられる複雑系模擬試料の解析に必要な基礎分光データを取得し、解析方法について検討する。LIBS 計測系にマイクロ波アンテナを設置し、希ガス雰囲気でのマイクロ波照射効果を確認するとともに、スペクトル強度の増倍特性を把握し、応用の可能性を検討する。

### ②マイクロ波による原子発光増倍特性

電磁界解析によるアンテナ形状解析を継続するとともに、主な解析結果を反映したアンテナを試作し、マイクロ波照射実験を実施する。試験結果と解析結果との整合性を確認して実験結果を解析へフィードバックし、発光効率の良いアンテナ形状を検討する。酸化物個体試料に対してマイクロ波を照射した分光計測試験を実施し、大気雰囲気でのスペクトル強度の増倍効果について調べ、光ファイバーを利用した LIBS プローブへの適用の可能性を検討していく。

### ③ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性

プラズマ性状のパルスごとの揺らぎと気泡生成との関係を明らかにすることでスペクトルのパルスごとの揺らぎを抑制する可能性を検討する。粒子数密度が、レーザープラズマと気泡の発生状況や発光スペクトルに及ぼす効果について調べ、懸濁微粒子分析の可能性を検討していく。