

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

(再委託先) 大学共同研究法人自然科学研究機構分子科学研究所

(再委託先) 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

(研究期間) 平成27年度～30年度

1. 研究の背景とねらい

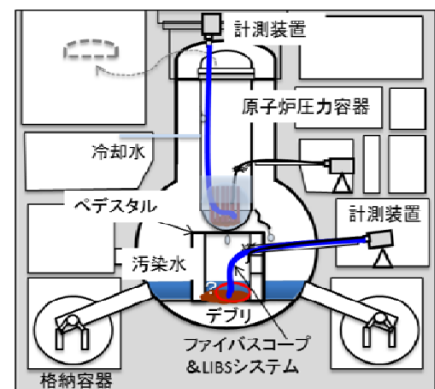
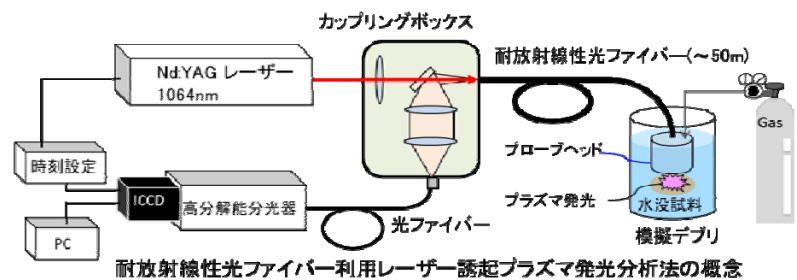
【研究の背景、課題、目的及び目標】

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やマイクロチップレーザーの活用及び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

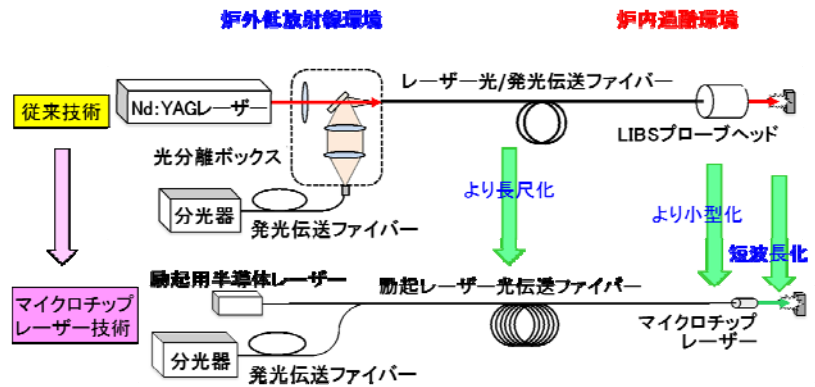
するため、京都大学の有するロングパルスレーザー技術を活用し、レーザー光の光ファイバーに与えるダメージを大幅に軽減して、通常 5 mJ/pulse であるエネルギーを 50 mJ/pulse に引き上げた高いエネルギー伝送を実現するとともに、イマジニアリング株式会社の有するマイクロ波プラズマ生成技術による原子発光強度の増大技術を組み合わせ、スペクトル強度を従来に比べ 10 倍以上増倍させて、炉内の高放射線場環境の気中、水中における LIBS 技術を高度化する。これにより、単なる固体焼結体のみならず、より高いエネルギーでのレーザー照射が求められると予想されるガラス化したデ



炉内検知の概略図

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。また、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。さらに、近年その開発が目ざましい極小レーザー光源であるマイクロチップレーザーに着目し、光ファイバーの長尺化に対応してレーザー光源そのものを炉内過酷環境に配し、レーザー発振源から光ファイバーを介さず直接集光照射が可能なマイクロチップレーザーLIBS 計測

系の成立性について評価する。以上の研究開発により、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基盤技術を確認し、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研究、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研究、分子科学研究所が実施するマイクロチップレーザー動作特性評価研究及び量子科学技術研究開発機構が担当する放射線環境下でのマイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究から構成される。

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、光ファイバーの耐放射線特性、マイクロ波を重畳した取得した LIBS 特性を取得し、その性能を総合的に評価する。

イマジニアリング株式会社においては、原子力機構で開発する LIBS プロー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し、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、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し、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。

量子科学技術研究開発機構では、マイクロチップレーザーLIBS と従来型の LIBS とを比較してその特性を把握するとともに、ガンマ線照射施設を活用して、ガンマ線照射環境下でのレーザー発振・LIBS 特性を取得し、マイクロチップレーザーLIBS の適用成立性について総合的に評価する。

分子科学研究所では、ガンマ線照射済みのレーザー構成備品を用いた動作特性試験、ガンマ線照射環境下での発振試験を行うとともに、レーザーの短波長化を図り、励起レーザー光を長尺光ファイバーで伝送した LIBS 用マイクロチップレーザーシステムを開発する。

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

ロングパルスレーザー専用の光結合・集光系を試作し、ファイバーLIBSによるスペクトル特性試験を実施した。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取得した。レーザーのエネルギーを変化させて発光スペクトルを測定し、発光線強度のレーザーエネルギー依存性を調べた。代表的な結果を図1に示す。ノーマルパルスではエネルギーを高くしても発光線強度が飽和するのに対し、ロングパルスでは照射レーザー光のエネルギー増大とともに発光線強度が増加することがわかった。ロングパルスを用いてファイバー伝送エネルギーを向上させれば、信号強度が増大すると考えられる。これらの試験結果から、ロングパルスレーザーを用いた本ファイバーLIBS装置における最適な観測条件を得た。

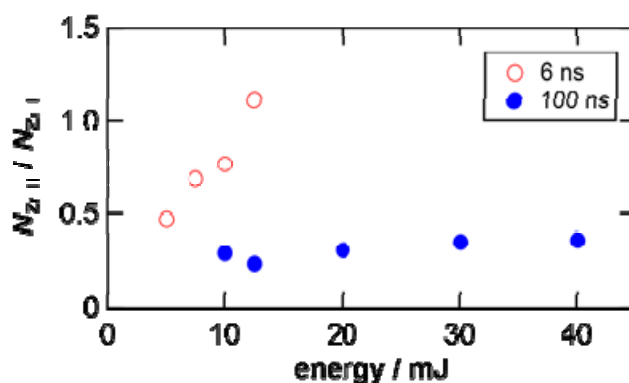


図1 発光線強度のレーザーエネルギー依存性

②マイクロ波による原子発光増倍特性

アンテナ先端の形状として、電極間にギャップを有したコンデンサ型とコイル型について比較した結果、コンデンサ型が優れた特性を有することから、コンデンサ型アンテナの形状最適化のためのシミュレーションを進めた。代表的結果を図2に示す。シミュレーション結果から代表的な3つのコンデンサ型アンテナに対して発光増倍試験を行い、その差を検証してLIBS用の増倍アンテナの設計指針について検討した。

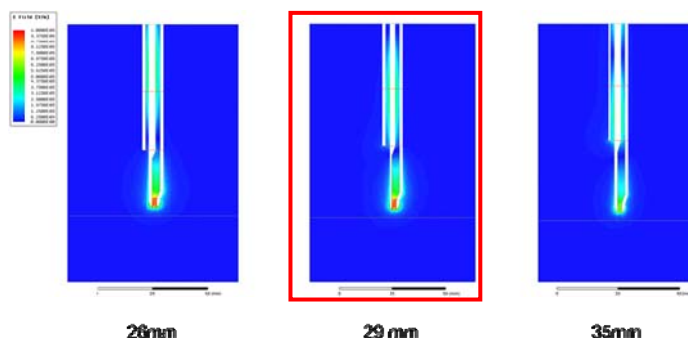


図2 コンデンサ型アンテナ形状と解析結果

③ロングパルスによる水中懸濁粒子の分光分析特性

懸濁液中の気泡の成長過程を高速カメラで観察した結果、粒子数密度によらず気泡は比較的安定して発生する一方、スペクトルの出現率は粒子密度が高い場合でも数パーセントと非常に低く、観測されるスペクトル強度も大きくばらついた。本結果から、分析のためには微小なレーザー照射体積に粒子を安定して存在させる必要があることが判明した。そこで、光トラップ法により粒子を捕捉させた場合の分析特性について検討している。

④マイクロチップレーザーLIBS 特性評価に関する研究

Co-60 ガンマ線照射施設を活用し、マイクロチップレーザーの主構成部品であるモノリシックNd:YAG/Cr:YAGセラミックス結晶を対象に、最大線量率12.1kGy/hで、累積線量0.7MGyとなるガンマ線照射を行い、レーザー発振しきい値評価試験等に応じた。照射試験体系を図3に示す

⑤LIBS用マイクロチップレーザー動作特性評価に関する研究

マイクロチップレーザーの構成素子をガンマ線照射し（累積線量 0.7MGy）、これを用いてガンマ線照射前と同様の条件下でレーザー発振を確認した。照射前後の性能を比較した結果を図 4 に示す。発振しきい値エネルギー若干増大する傾向を示したが、出力パルスエネルギーは 3.4mJ (80Hz)、パルス幅は 0.5ns (80Hz) とレーザー特性には変化が見られなかった。ガンマ線照射によって効率が若干劣化したものの（しきい値が約 17%増大）、出力特性には変化は無く、安定動作も検証された。

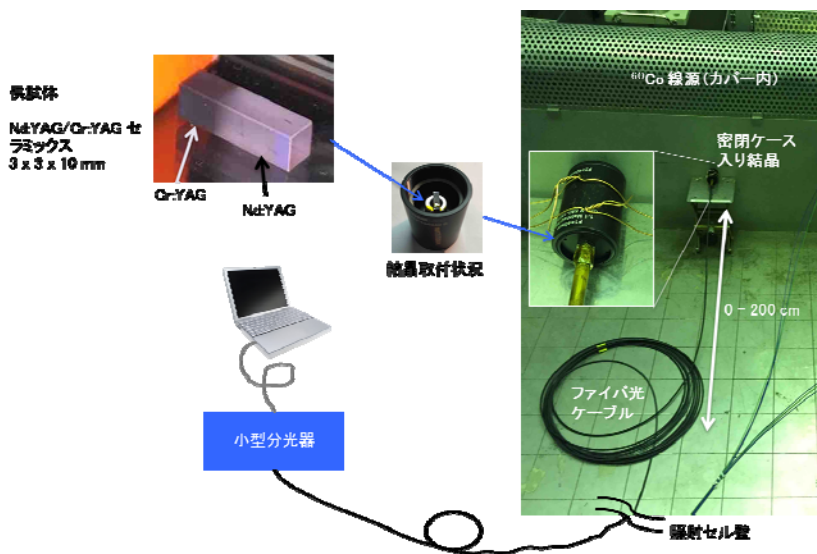


図 3 マイクロチップレーザー結晶のガンマ線照射試験体系

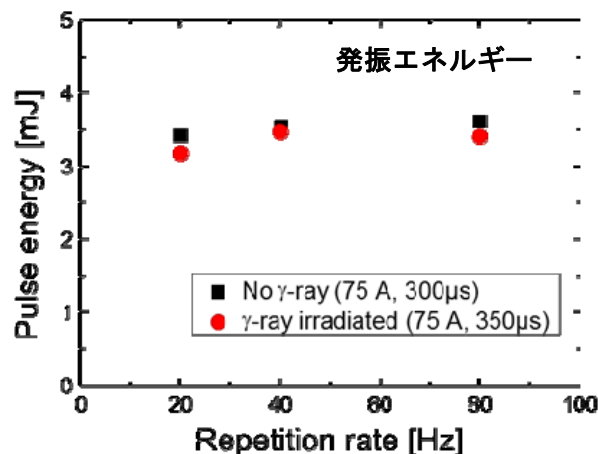
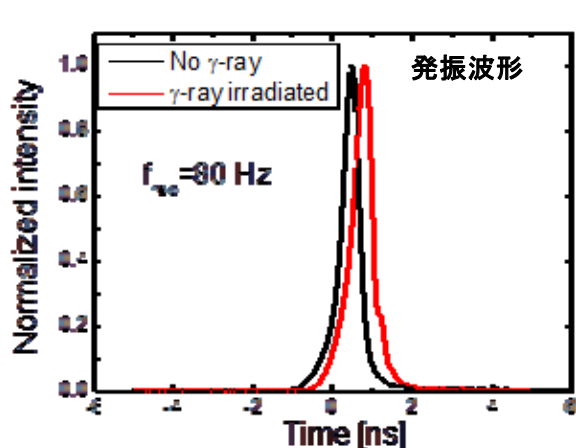


図 4 ガンマ線照射前後のマイクロチップレーザー発振特性

3. 今後の研究（展望？）

今後は、特にレーザー発振器そのものを炉内に挿入する長尺光ファイバー利用マイクロチップレーザーLIBS 法に着目し、ファイバーLIBS 法の高度化に資する。

ファイバーLIBS 法については、光ファイバーのガンマ線照射耐性について性能を取得するとともに、従来レーザーを用いた場合、ロングパルスレーザーを用いた場合、マイクロチップレーザーを用いた場合について得られた性能を比較し、廃炉への適用性について総合的に評価する。マイクロチップレーザーLIBS については、まず、マイクロチップレーザー素子の耐放射線特性を調べ、第二高調波の発生特性を取得してマイクロチップレーザーの短波長化特性を取得する。さらに、ガンマ線照射環境下でのマイクロチップレーザー動作特性並びに LIBS 特性を取得することにより、過酷環境下でのその場元素分析技術への適用について検討する。耐放射線性が確認できれば、実際のプローブデザインを検討し、福島第一原子力発電所への導入について計画していく。