2018年春の年会

総合講演・報告４
レーザーの特長を利用した研究開発
Research developments using the excellent properties of lasers

（4）レーザーを利用した廃炉のための遠隔分光分析

(4) Laser remote analysis for decommissioning of damaged reactor core

*若井田 育夫[1]，赤岡 克昭[1]，大場 正規[1]，宮部 昌文[1]，大場 弘則[1,2]，田村 浩司[1,2]，
佐伯 盛久[1,2]，松本 歩[3]，作花 哲夫[4]，池田 裕二[5]，平等 拓範[6]
[1]原子力機構，[2]量研機構，[3]兵庫県大，[4]京大工，[5]イマジニアリング（株），[6]自然機構分子研

1. はじめに

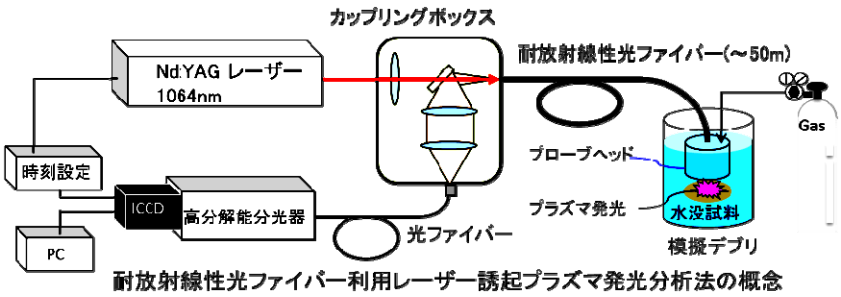
東京電力福島第一原子力発電所の廃炉においては、過酷事故炉内から溶融燃料デブリ等を取り出すという世界的に類例のない作業を安全かつ円滑、迅速に実行することが求められている。このためには、まず、圧力容器や格納容器内に存在する燃料デブリがどのような状態なのか、どんな組成構成となっているかを事前に知り、これを取り出し計画に反映させることが重要となる。また、中、長期的展望に立てば、取り出し作業時におけるデブリや構造材などの現場サーベランスとそれに基づく分別採取、作業自身のモニタリング、そして最終的には、炉内残存物のサーベランス等が不可欠であり、その場分析技術は廃炉工程において重要な役割を持つものと考えられる。これまでに、デブリ分析については、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。また、最近では、小型ロボット、カメラ等が炉内に入れられ、２号機や３号機においては、映像の観察から、デブリの生成や格納容器下部への溶融落下が示唆されている。これらの情報を基に、各種シミュレーションや事故進展挙動解析等の高度な解析法により、デブリの状態、分布等を判断評価する試みが進められており、これを基にデブリ取り出し工法の選定がなされている。

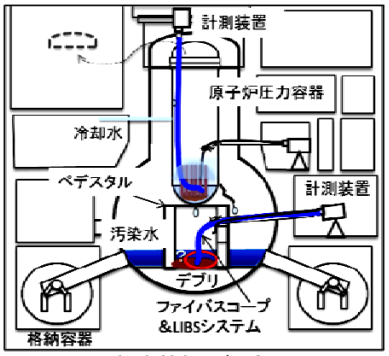
一方、映像で捕捉されたデブリ状物質の性状、分布は、実際には計測されておらず、現実的な廃炉計画の策定、内部状況評価、デブリ取り出し作業においては、実際の計測によりデブリの状況を分析・把握することも不可欠となってくる。しかし、その方法については、従来技術によるコアサンプルの詳細な分析や放射線計測以外は、具体的準備がなされていないのが現状である。コアサンプルについては、サンプルの精緻な分析は可能である一方、サンプル数が限られればその代表性が問題となる。また、放射線計測も、ガンマ線などの強度を考えれば、係数計測によるエネルギー分析が困難であり、デブリやその構成物質の同定は、容易ではないことが予想されている。

これに対して、損傷炉内外の環境は、高放射線、水中又は高湿度、狭隘という過酷な環境条件となっており、撮像素子をはじめとして集積回路を多用した精密電子機器は強い放射線により素子自体の変質、配線の破断等の影響から動作が困難である。そこで、日本原子力研究開発機構では、これまで、次世代核燃料サイクル用燃料である、低除染 TRU 含有 MOX 燃料の遠隔・迅速分析技術として開発してきた、レーザー誘起プラズマ発光分光法（Laser Induced Breakdown Spectroscopy : LIBS）を中心とした分析技術に着目し、廃炉措置における遠隔その場分析技術として応用する研究開発を開始した。この計測は、電気信号に代わってレーザーをプローブとした光分析手法であり、放射線の影響を受けにくい遠隔観察プローブとしての成立性が高い。

本報告では、LIBS を中心としたレーザーモニタリング分析手法開発の一連の取り組みと、最近の成果について報告する。

*Ikuo Wakaida[1]，Katsuaki Akaoka[1]，Masaki Oba[1]，Masabumi Miyabe[1]，Hironori Ohba[1,2], Koji Tamura[1,2], Morihisa Saeki1[1,2], Ayumu Matsumoto[3]，Tetsuo Sakka[4]，Yuji Ikeda[5]，Takunori Taira[6]
[1]JAEA-CLADS，[2]QST，[3]Univ. Hyogo，[4]Kyoto Univ.，[5]Imagineering Inc.，[6]NINS-IMR.





炉内検知の概略図

図１　基本コンセプト(上)と適用概念図(右)

2. レーザー利用遠隔分光分析手法の開発

2-1. 光ファイバーを活用した LIBS 計測プローブの基本特性

放射線線量率が高く過酷な炉内環境において、燃料デブリ等の組成その場分析を可能とする技術の一つとして耐放射線性光ファイバーを活用し、レーザー光及びプラズマ発光を同一のファイバーで搬送する簡便な LIBS 分析機構を構築した（図１）。耐放射線性光ファイバーの光透過特性については、図２に示すように線量率 10kGy/h、積算線量 数 MGｙの環境で、レーザー波長（Nd:YAG 基本波）及びスペクトル観測可能領域として近赤外領域が利用可能であることが確認されている。また、水中では、集光レンズと被分析物質との間にガスバブルを形成し、バブル中でレーザーを照射することでプラズマ発光実現した。これによって水没試料に対してもガス中計測同様に LIBS 計測が可能であることを U、Zr 酸化物試料で確認した。水没試料によるスペクトル測定例を図３に示す。さらに、強い放射線環境下での計測の実現性を確認するために 10kGy/h を上回る強いガンマ線環境下においてプラズマ発光試験を実施した。スペクトル測定例を図４に示す。イオンの発光線について、若干変化が見られるものの、計測結果を左右する大きな差異は見いだせないことから、強い放射線環境下においても、放射線がない場合と同様に計測可能であることを明らかにした。

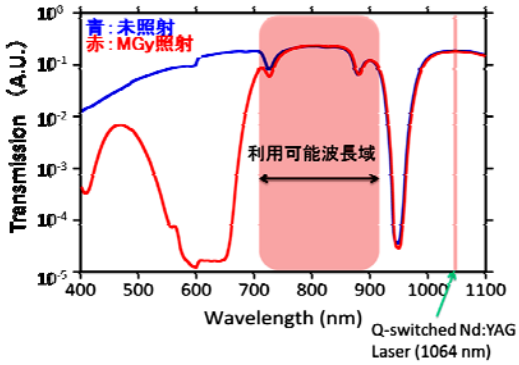


図２　耐放射線性光ファイバーの透過率例

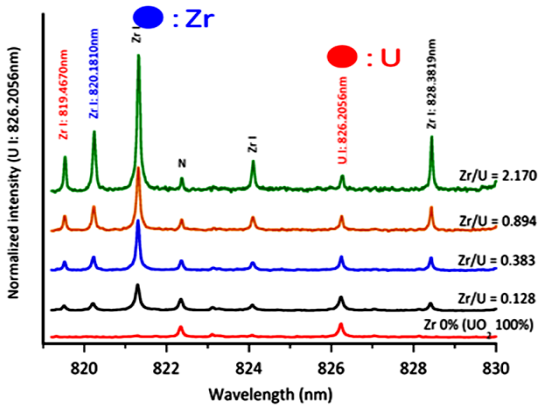


図３ 水没模擬デブリのスペクトル例

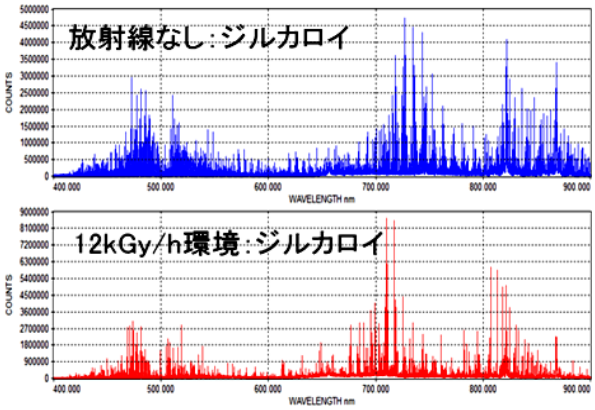


図４　強い放射線環境でのスペクトル例

2-2. ロングパルスレーザーを活用した LIBS 特性

より強いレーザー生成プラズマ発光強度が必要な場合や観察対象・環境によっては、より強いレーザー照射エネルギーを要する場合がある。この場合、発振時間幅が従来の 6 ns 程度のレーザー光源では、レーザーエネルギーの上昇により、光ファイバー端面が損傷してしまう。そこでパルス幅が 100 ns のロングパルスを有した Nd:YAG レーザー光源をファイバーLIBS 装置の光源として組み込み、光ファイバーのレーザー光伝送特性を従来型の Nd:YAG レーザーと比較した（図５）。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）が伝送エネルギ

ーの上限であったのに対し、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。さらに、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６）。こ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こと、レーザーエネルギーの増大に伴い得られる発光強度も増大すること等、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）と一致することも考慮すれば、線量率の高い炉内観測に対しては、特に有利な特長となる可能性が高い。今後、小型で安定性の高いレーザー発振器の開発が求められる。

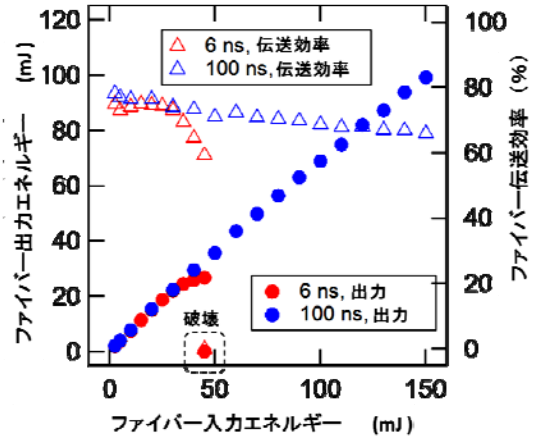


図５ 光ファイバーの伝送エネルギー

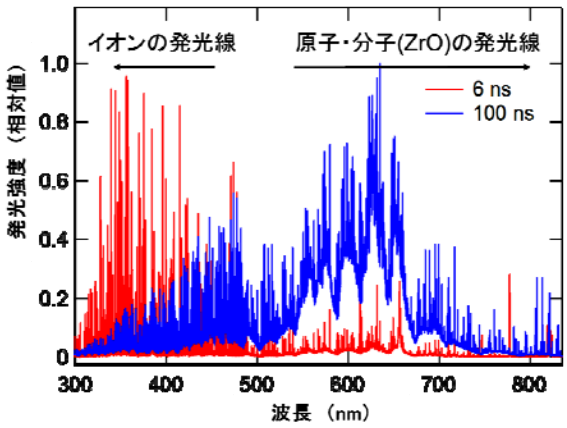


図６ 発光スペクトルの比較（Zr）

2-3. マイクロ波支援 LIBS による信号増倍の可能性

核燃料物質を明確に分離検出するためには、波長分解能が 1/50,000 以上の高分解能分光器が必要となり、検出効率の低下が問題となる。また、さらに同位体の信号を分解しようとすれば、1/150,000 程度の分解能が必要となる。そこで、近年、エンジン点火用に開発が進む車載型コンパクト高出力の半導体マイクロ波技術を導入し、レーザー入射に加えて高出力のマイクロ波エネルギーによりプラズマ発光を維持し、発光信号の増強を図る、マイクロ波支援 LIBS 法に着目した。マイクロ波支援 LIBS 法による信号増倍の様子を図７に示す。図では、レーザーのみの信号は小さく、ゼロレベルで表示されている。マイクロ波の入射により数十倍の発光強度倍増が容易に得られることが分かる。これによりマイクロ波の遠隔伝送が可能な範囲で本手法の有効性が示された。本手法は、炉内ではなく、廃炉現場での不明物サーベランスやホットセル内での簡易同位体分析に適用できる可能性がある。

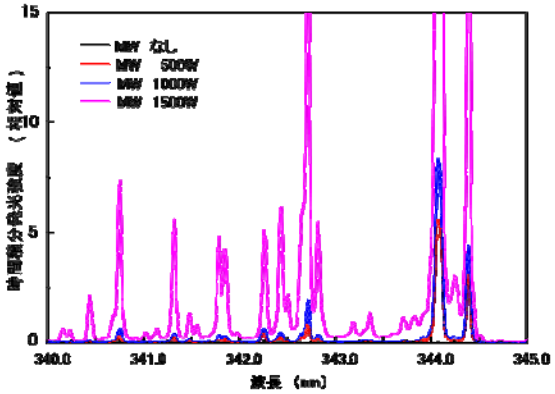


図７ マイクロ波支援 LIBS スペクトル測定例

2-4. マイクロチップレーザー利用 LIBS プローブ

これまで研究開発を進めてきた LIBS プローブは、レーザー発振器、分光機器を手元に置き、ブレークダウンレーザー光を光フィバで伝送する手法で開発を進め、光ファイバーの長さとして 50m まで利用可能であることを検証してきた。しかし、廃炉現場からは、原子炉上部から挿入する場合などを仮定すると、生体遮へい壁も含めれば、それ以上長い光ファイバーの要求も出てきている。そこで、これまでと大きく発想を転換し、プラズマ生成レーザー光を光ファイバーで伝送させるのではなく、レーザー光源そのものを小型化し、プローブの先端に取り付けることに着目した。これに最適なレーザー光源として、近年開発が目覚ましく、理化学分野だけでなく、レーザー点火エンジンをはじめとした産業利用等への適用研究が進んでいる、マイクロチップレーザーを活用することとした（図８）。

マイクロチップレーザーは、マイクロチップ化したレーザー素子に光ファイバーを介して外部からアルス幅の長い励起レーザー光を連続的に注入し、マイクロチップ素子を励起してエネルギーを蓄積したのち、外部からのトリガ信号なしに受動 Q スイッチ素子で高出力のパルスレーザー発振を可能としたものである。レーザー発振に電気信号を用いないことから、単純で小型化が可能である。また、利用する光ファイバーは径が細いものでもダメージを受けることはなく、また、伝送する長さを長くした場合でも、注入するレーザー光エネルギーの若干の損失にはなるものの、従来のブレークダウンレーザー光そのものの伝送に比べれば、レーザー特性に大きな影響を与える可能性は低いものと考えられる。また、発散成分のないレーザー光そのものを集光できる点、二倍高調波の活用も可能である点等、本質的に光ファイバー伝送レーザー光を用いない場合の LIBS 法での光源と同様な特性を持つ。さらに、集光光学系も含め、本体の大きさは、直径 20 ㎜、長さ 100 ㎜程度とすることが可能である。

図８ マイクロチップレーザー

以上の特長を考慮し、マイクロチップレーザーを利用した光ファイバーLIBS 計測系を従来の光ファイバーLIBS と比較した概念図を図９に示す。

これまでに、約 1MGy のガンマ線を照射したマイクロチップレーザーの構成部品によりレーザー発振特性を取得しており、発振特性に大きな影響が及んでいないことが確認されている。また、強い放射線環境下でのレーザー発振試験も実施しており、放射線の無い環境とほぼ同様にレーザー発振が可能であることも確認されている。今後、プラズマ発光集光系も備えることで、一体型の LIBS 装置としての性能試験や、放射線環境下での二倍高調波発振特性なども取得し、遠隔その場分析プローブとして適用性を検証していく予定である。

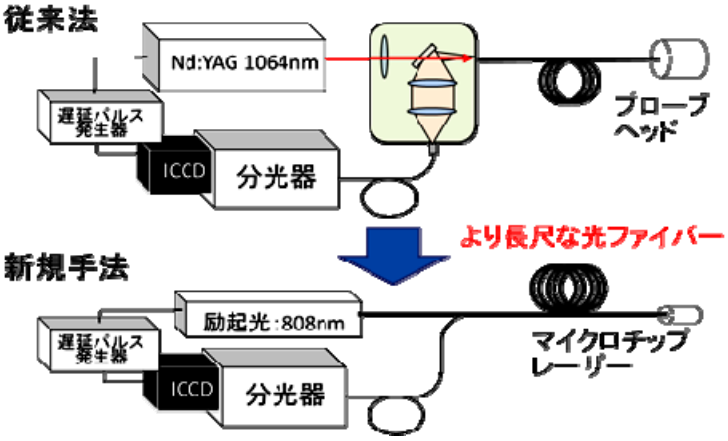


図９ マイクロチップレーザーLIBS の概要

３．おわりに

燃料溶融により炉心が損傷した複数の事故炉の完全廃炉は、世界的にも類例がない。廃炉計画、廃炉手法の検討、廃炉の作業及び作業後の確認など、分析技術は共通基盤技術として必要不可欠なものである。特に、強い放射線環境で、遠隔分析を可能とするには、光を媒体とした非接触型の分析手法、特にレーザーを活用したアクティブな分光分析技術は、その適用の可能性が高い技術といえる。

ここに紹介した手法は、まず、組成や組成分布のサーベランスとして有用な方法の一つであるが、今後、、精密な同位体分析も重要となる。これについては、LIBS の高分解能だけでなく、ホットセル内において、アブレーション共鳴吸収分光法などを活用した迅速精密分析法の導入を考えていく必要もある。

今後も、レーザーを活用した分光分析手法を廃炉現場で活用できるよう、基礎基盤研究を継続すると同時に、廃炉現場のニーズを把握した実用化技術開発が重要となると考えられる。

本報告には、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務「低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発」及び「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」並びに英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務「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」の成果が含まれます。