

LIBS とアブレーション共鳴吸収分光を組み合わせた 核燃料物質の遠隔分析技術開発

Development of laser remote analysis by combination of LIBS and Ablation Initiated Resonance Absorption Spectroscopy for Nuclear Fuel Materials

若井田育夫¹、赤岡克昭¹、宮部昌文¹、大場正規¹、丸山庸一郎¹、音部治幹¹、仁木秀明²
I. Wakaida¹, K. Akaoka¹, M. Miyabe¹, M. Oba¹, Y. Maruyama¹, H. Otobe¹ and H. NIKI²

¹ 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工研究部門、² 福井大学大学院 工学研究科

¹ Nuclear Science and Energy Directorate, Japan Atomic Energy Agency

² Graduate School of Engineering, University of Fukui

Abstract

Basic study on remote analysis by combination of LIBS and Ablation Initiated Resonance Absorption Spectroscopy (AIRAS) were performed to apply for a rapid and on-site analysis of next generation nuclear fuel materials contained with Minor Actinides. For the impurity measurement, detection linearity to % order and the sensitivity of order 100ppm were obtained by LIBS in the sample of the matrix of Lanthanide or Uranium oxide. For the isotope analysis, the laser system specialized for the resonance spectroscopy by frequency stabilized semiconductor tunable lasers had been developed, and ²³⁵U in natural uranium was clearly detected. These results suggest that the combination of LIBS and AIRAS will be one of the alternative techniques applicable to the safeguards analysis for next generation fuels without using of ³He gas neutron detector.

1. はじめに

原子力の平和利用及び核不拡散の観点から、Pu の量は国際的に信頼性のある計量管理が求められているが、現在の燃料では、放射性核分裂生成物 (FP) の除去率が高い高除染燃料であることから、ウラン・プルトニウム混合酸化物 (MOX) 燃料においては Pu からの自発核分裂による中性子計測と γ 線分析により重量及び同位体組成が非破壊で検認されている (NDA)。一方、次世代炉燃料として、FP の除去率が低い低除染のマイナーアクチノイド (MA) 含有ウラン・プルトニウム混合酸化物 (MOX) 燃料の利用が検討されているが、FP の除去率が低い上に、Np、Am、Cm といった MA を含んでおり、特に Cm の中性子発生量は Pu の 10⁴ 倍と高いことから、NDA による効率的な Pu の検認が困難となる。このため、安全で経済的かつ公正な低除染燃料の利用推進を図るためには、中性子計測に依らない、迅速で遠隔に直接しかもその場で実施できる分析手法の確立が強く求められる。そこで我々は、多元素同時分析が可能な LIBS と、着目した同位体の分析が可能な AIRAS とを組み合わせ、核燃料物質中の組成、不純物分析と濃縮度評価をほぼ同時に実施可能な手法の開発を進めている。

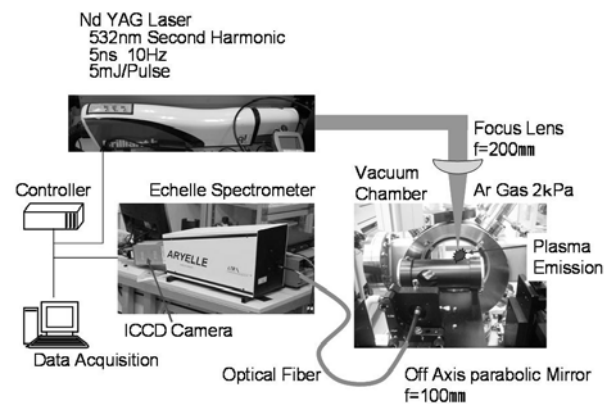


Fig.1 Schematic view of LIBS experiment

2. レーザー誘起プラズマ発光分光分析 (LIBS)

実験装置の概要を図 1 に示す。単純なスペルトル構造で、スペルトルの重なり合わない金属元素及びその合金の発光スペルトルでは、一般的には高感度・高分解能の計測が実現する (検出感度 < ppm)。しかし、ウラン等アクチノイドでは、その発光スペルトルは極めて複雑で連続状態に近くなり、母材のスペルトルに混入した着目元素のスペルトルを見出すことは、特に低濃度においては困難となる。そこでスペルトル計測結果をスペルトル成分に分解するデコンボリューション法により母材と不純物との発光強度成分を導出し、不純物成分の発光強度評価を行った。減圧希ガス環境下

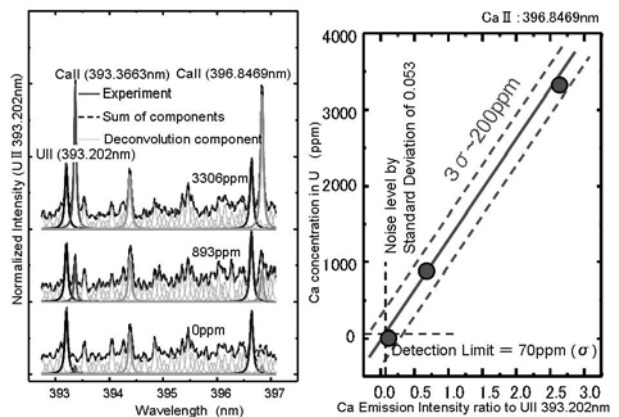


Fig.2 Spectrum deconvolution (left) and calibration curve (right) of Ca in U matrix.

(2kPa, Ar) でウラン酸化物に混入させた酸化カルシウムの分光を行い、ウラン中の不純物分析特性を評価した結果の一例を図 2 左に示す。また、これから評価された Ca 成分強度と実際の濃度から、酸化ウラン中のカルシウム濃度に関する検量線を求めた結果を図 2 右に示す。検量点が少ないため直線に関する信頼性に欠けるが、様々な濃度の不純物に対して別途実施した模擬試料による確認から、直線性は担保されていると考えられる。標準偏差から評価した検出下限値 (σ) は 70ppm となり、不確定性を 3σ とすれば、約 200ppm の検出下限を持つ可能性のあることが示された。この他、試料損傷の抑制及び高感度化を目指し、試料アブレーションとプラズマ加熱を独立したレーザーで行うダブルパルス法も試みており、100fs レーザーによる試料アブレーション後にナノ秒レーザー入射で再加熱する方法により、大気中における酸化物試料の発光強度が従来法の 100 倍を超える条件を見出している。

3. アブレーション共鳴吸収分光分析 (AIRAS)

本法は、パルスレーザーでアブレーションされたプラズマに対して線幅の狭い波長可変の連続プローブレーザー光を入射し、原子・イオンによる共鳴吸収信号から同位体組成を測定するものである。実験装置の概要を図 3 に示す。プローブ光源には外部共振器付 LD を自作し、波長を絶対値で安定化させた分光用システムを構築した。発振波長幅 20MHz 以下の単一波長性能で周波数ドリフトが 0.1MHz/時以下の安定性と、連続波長掃引幅 100GHz、周波数同調誤差 ± 0.5 MHz 以下の広帯域精密掃引性能とを同時に実現している。

Ce 濃縮同位体試料を用いて様々な同位体組成の酸化物固相試料を作製し、減圧希ガス環境 (400Pa, He) で同位体スペクトルを取得した結果を図 4 左図に、またこの結果から同位体比に対する感度曲線を取得した例を図 4 右図に示す。感度の直線性とノイズレベルと比較した検出下限として約 0.05atom% を得た。

本法を天然ウラン酸化物試料に適用し、存在量が 0.72% の ^{235}U の測定を試みた結果、図 5 に示ように広範囲に及ぶ測定範囲で十分な感度と分解能で ^{235}U の観測に成功した。ただし、吸収量の多い ^{238}U の信号には飽和傾向が観測され、同位体比が大きく異なる測定では、吸収率の異なる遷移を用いて比較する二遷移吸収比較法を採用する必要のあることも判明した。現在、この方法による分析特性を取得している。

4. まとめ

LIBS と AIRAS をウラン酸化物試料に適用し、不純物・元素組成や同位体組成に対する感度の直線性と検出下限を評価した。その結果、非接触で直接かつ短時間で元素組成や同位体組成の分析が可能であり、 ^3He ガスを用いた中性子検出に依らない迅速分析法の一つとして有用な計測手段と成りうる可能性のあることが示唆された。今後は、分析精度の評価や粉体、液相に対する計測の実現性を確認するとともに、MOX 燃料中の U、Pu の識別分析の可能性を実証していく計画である。

5. 謝辞

保障措置分析について、専門家の立場から具体的なご教示を頂いた原子力機構、核不拡散科学技術研究センターの瀬谷氏、勝村氏に感謝します。

本報告は、特別会計に関する法律 (エネルギー対策特別会計) に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究開発機構が実施した平成 20、21 年度「低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発」の成果です。

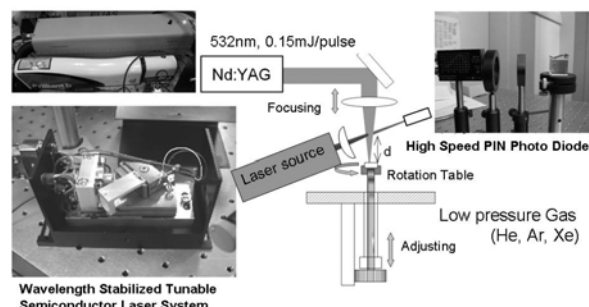


Fig.3 Schematic view of AIRAS setup

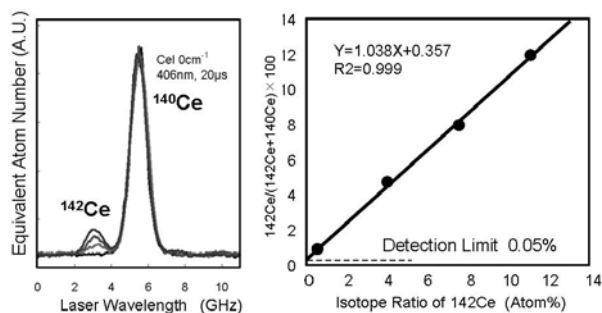


Fig.4. Calibration curve of Ce isotope

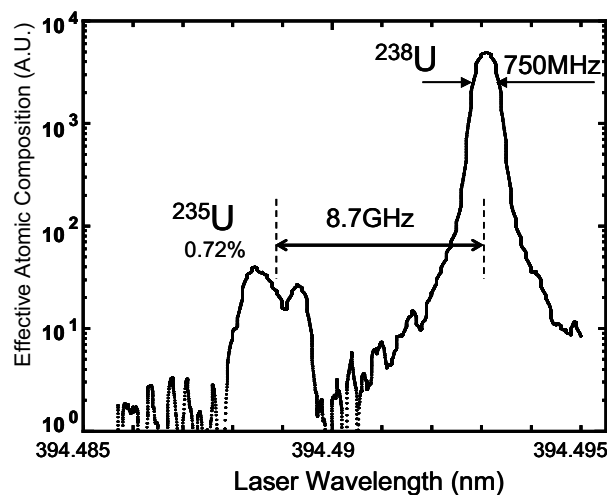


Fig.5. Spectrum of natural uranium