

[H27-5]

燃料デブリ特性及び事故廃棄物に関する基礎基盤研究

Fundamental Research on Property of Fuel Debris and Waste from the Accident

岡本孝司^{#A)}, 長谷川秀一^{A)},
Koji Okamoto^{#A)}, Shuichi Hasegawa^{A)},
^{A)} Nuclear Professional School, The University of Tokyo.

Abstract

Melting and relocation phenomena caused by eutectic reaction of B4C and SS were visualized. For resonance ionization of strontium with high isotopic selectivity, we have developed an external cavity diode laser with a narrow bandwidth interference filter for the first-step intercombination transition.

Keyword: eutectic melting, boron carbide, stainless steel, strontium, resonance ionization, isotopic selectivity

1. はじめに

1.1 制御棒材料の共晶溶融

沸騰水型軽水炉（以下、BWR）における制御棒の溶融進展および溶融物落下挙動の評価は、BWR 安全性向上と福島第一原子力発電所の廃炉作業において非常に重要である。BWR に関する過酷事故研究は少なく、1F 事故の解明には至っていない。特に、ステンレス鋼（以下、SS）とボロンカーバイド（以下、B4C）の共晶溶融による制御棒の溶融落下は過酷事故の早期に生じると考えられており、その後の過酷事故進展を決定する大きな要因となりうるため、事故解明につながる重要な現象である。円滑で安全な廃炉作業のために炉内構造溶融物の分布を詳細に把握することが重要であるため、実験による現象理解が必須となる。しかし、SS と B4C の共晶溶融による溶融落下現象のリアルタイムな実験データはこれまで作成されてこなかった。

1.2 ストロンチウム 90 の迅速分析

東京電力福島第一原子力発電所事故で漏出した放射性核種の一つであるストロンチウム 90 (⁹⁰Sr) はカルシウムと同じアルカリ土類金属元素であるため摂取に伴う骨組織等の長期内部被曝が問題となる。一般的な放射化学的手法を用いた ⁹⁰Sr 分析では、放射平衡に達するまで 1-2 週間程度の長い時間を要するため、より迅速に多くの試料を分析できる手法が望まれている。特に、海洋試料等のストロンチウム安定同位体を多く含む試料については、高い同位体選択性を持つ分析手法が必要不可欠となる。本研究では、レーザーの狭線幅という特性を活かして、共鳴イオン化及びイオントラップを組み合わせた分析手法を開発し、同位体選択性及び検出感度に優れた ⁹⁰Sr 迅速分析法の構築を目指す。

2. SS と B4C の共晶溶融[1]

2.1 目的

本研究では、超高温環境下の共晶溶融可視化手法を開発し、制御棒材料の溶融落下現象を可視化することで、共晶溶融に関する現象の理解に資する。

2.2 試験体系

Fig. 2.1 は、試験体の概略図である。Table 2.1 に示したケースについて試験を行なった。Table 2.1 において、 D , t , Height, SS/B4C, Average Temperature および σ はそれぞれ SS 管外径、厚さ、高さ、B4C に対する SS の質量比、Period における平均温度および温度の標準偏差である。本実験において、粉末 B4C の充填率は約 43% であり、空隙は空気で満たされている。試験体温度は K タイプ熱電対で直接測定した。また、Fig. 2.2 は、実験装置の概要を表している。装置内をアルゴンガスで満たして、試験片の酸化を抑制するとともに、覗き窓からカメラで撮影することにより、溶融・崩落の様子を捉えるようにしている。

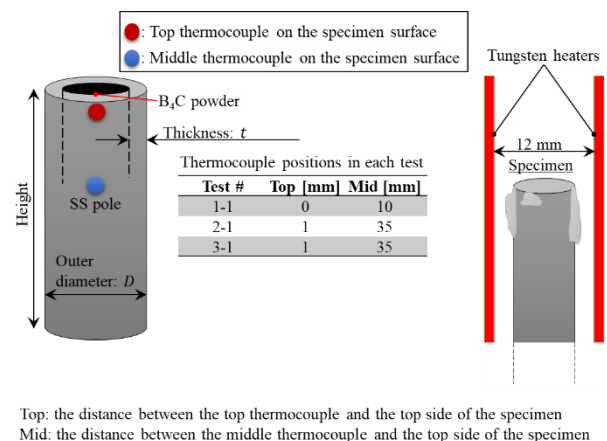


Fig. 2.1 Design of the specimen (All units are mm)

[H27-5]

Table 2.1 Experimental Tests

Test #	D, t [mm]	Height [mm]	SS/B ₄ C (mass)	Average temp. [K] (Period [s])	σ [K]
1-1	4.20, 0.28	25 (70)*	2.45	Top: 1528.5 (247–521) Mid: 1394.3 (247–1000)**	12.2 5.1
2-1	6.00, 1.00	70	8.46	Top: 1498.0 (500–773) Mid: 1002.5 (500–760)	4.0 5.3
3-1	5.00, 0.50	70	3.64	Top: 1499.5 (600–1169) Mid: 1152.7 (600–1075)	13.1 24.2

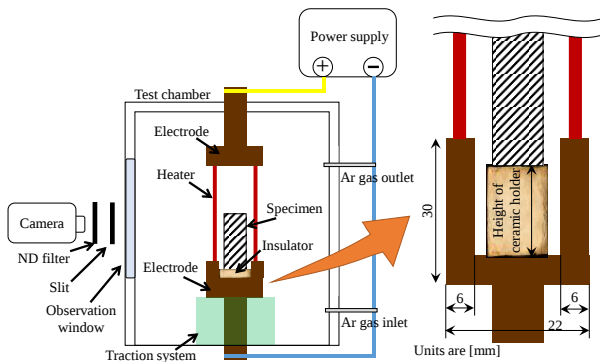


Fig 2.2 Schematic of experimental apparatus

2.2 可視化試験の結果

Fig. 2.3、Fig. 2.4 および Fig. 2.5 は、それぞれ Test 1-1、Test2-1 および Test3-1 における共晶熔融移行の様子である。それぞれのケースで異なる熔融移行挙動が確認された。Test1-1 では、共晶融液が未熔融の B₄C の表面に薄く液膜として付着した。以下、この熔融移行モードを Film Formation と呼ぶ。Test2-2 では、共晶融液が大きな液滴を形成し、試験体全体が崩落した。以下、この熔融移行モードを Droplet Formation with Collapse と呼ぶ。Test3-1 では、Film Formation と Droplet Formation with Collapse の中間的な挙動が観察された。具体的には、共晶融液が未熔融の B₄C の表面に薄く液膜として付着し、大きな液滴も形成した。試験体全体は崩落しなかった。以下、この熔融移行モードを Droplet Formation without Collapse と呼ぶ。熔融移行モードには、SS 管の厚さが大きく影響されていると考えられる。メカニズムとしては、まず試験体温度が SS-B₄C 共晶熔融温度に到達し、SS と B₄C の界面に微量の共晶融液が生じる。共晶融液は粉末 B₄C の空隙へ吸収され徐々に B₄C を溶かす。同時に、B₄C 濃度が共晶点よりも高くなった融液が残りの固相 SS を共晶熔融する。このようにして、共晶熔融は B₄C 方向と SS 方向へ進展していく。ここで、本実験条件においては B₄C に対する SS の質量比が共晶点よりも小さいため、形成される融液の厚さは SS 厚さに支配される。薄い融液は B₄C の深部までは吸収されず、厚い融液は B₄C の深部まで吸収され試験体の崩落を引き起こすと考えられる。さ

らに、融液の流下速度は融液の厚さに依存するため、SS が薄い場合には液膜を形成し SS が厚い場合には液滴を形成したと考えられる。

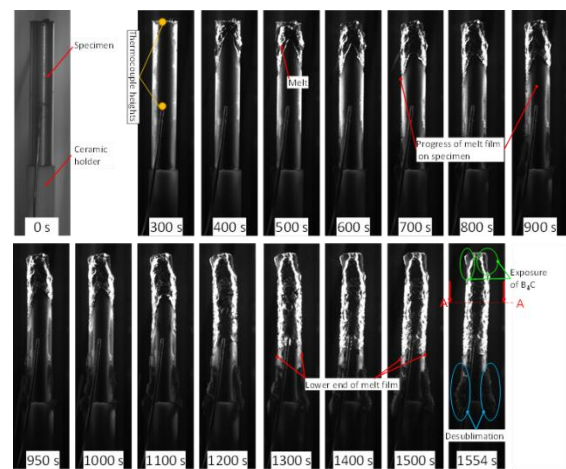


Fig. 2.3 Observed relocation in Test 1-1

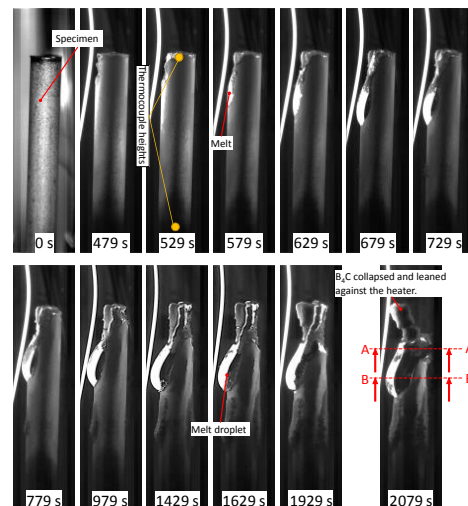


Fig 2.4 Observed relocation in Test 2-1

[H27-5]

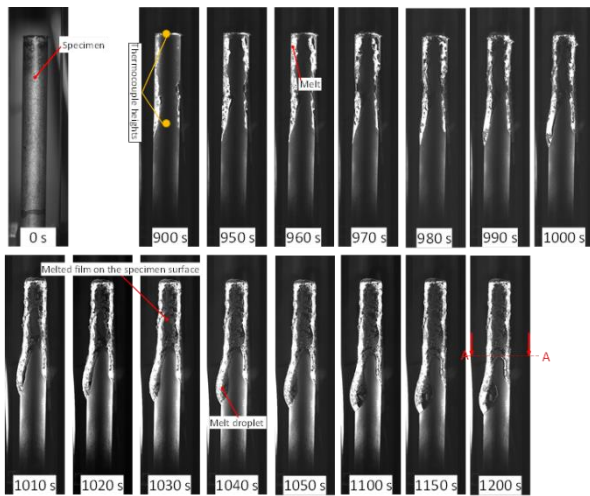


Fig 2.5 Observed relocation in Test 3-1

3. 同位体選択性の高い Sr 原子の共鳴イオン化

3.1 共鳴イオン化スキーム

Sr 原子のエネルギー準位は同位体間で僅かに異なっており、線幅の狭いレーザーを用いて特定の同位体のみを選択的に多段階共鳴励起させてイオン化させることが可能である。Fig. 3.1 に代表的な共鳴イオン化スキームを示す。1 段目に波長 460.9 nm の遷移を利用したスキーム(i), (ii)は、1 段目の励起準位の寿命が短いため小さいレーザー出力で高い遷移効率が期待できるが、エネルギー不確定性が大きい同位体選択性は低下する。そこで、本研究では 1 段目に励起準位の寿命が 3-4 桁長い波長 689.4 nm の遷移を利用したスキーム(iii), (iv)に着目した。この遷移は自然幅が 7.5 kHz と狭いため、使用するレーザーについても狭線幅かつ高い波長安定性が要求されるが、スキーム(iv)による 3 段階共鳴イオン化スキームにより 10^6 - 10^7 程度の高い光学的同位体選択性が期待される[2]。

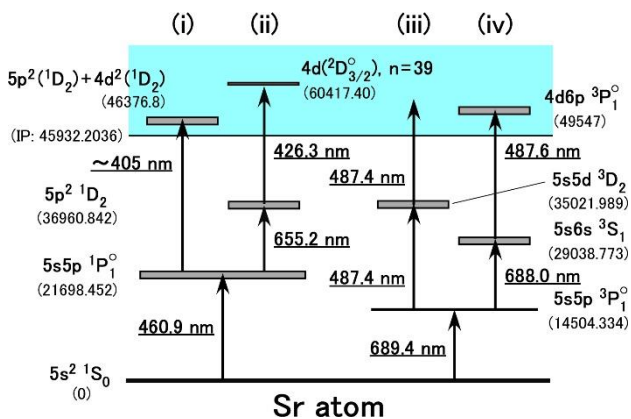


Fig. 3.1 Resonance ionization schemes of strontium.

3.2 干渉フィルター型外部共振器半導体レーザーの製作

自然幅の狭い波長 689.4 nm の遷移に使用するレーザーとして、角度ずれに対して安定性の高い干渉フィルター型外部共振器半導体レーザーを設計・製作した。Fig. 3.2 に概念図を示す。レーザーダイオードからの光をレンズ 1 で平行光にし、半値幅 0.3 nm の干渉フィルターを用いて入射角を調整することで粗く波長選択を行う。干渉フィルターの透過光をピエゾ素子に取り付けられた部分反射ミラー（反射率 20%）の表面に集光させ、ピエゾ素子に印加する電圧により共振器長を変えることで波長を微調整する。Fig. 3.2 の構造は、広く使用されている回折格子型外部共振器半導体レーザーと比較して、角度方向のアライメントに要求される精度が緩いため長期の安定性に優れている。

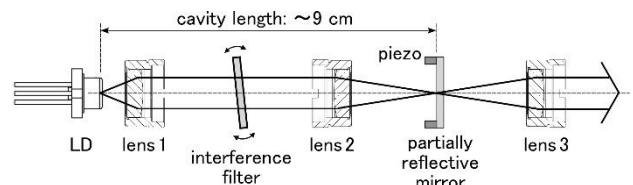


Fig. 3.2 Schematic of the external cavity diode laser with a narrow bandwidth interference filter

3.3 共鳴イオン化スペクトルの測定

波長 689.4 nm 及び 688.0 nm の干渉フィルター型外部共振器半導体レーザー並びに波長 487.6 nm の回折格子型外部共振器半導体レーザーを製作し、Fig. 3.1 に示したスキーム(iv)による Sr 安定同位体の共鳴イオン化スペクトルを測定した。1 段目 (689.4 nm) 及び 2 段目 (688.0 nm) のレーザー周波数を 500 MHz の範囲でスキャンして得られたスペクトルを比較した結果、1 段目については自然幅由来のローレンツ成分が小さく、高い同位体選択性が期待される遷移であることが確認された。

4. おわりに

4.1 制御棒材料の共晶熔融

超高温環境下の共晶熔融可視化手法を改良し、制棒材料の熔融落下現象を可視化した。具体的には、B4C/SS 共晶熔融可視化のための実験システムを改良し、管状試験体を用いて熔融移行挙動を可視化した。その結果、Film Formation、Droplet Formation with Collapse および Droplet Formation without Collapse といった 3 つの共晶熔融移行モードが観察された。SS 管の厚さが制御棒材料の熔融移行挙動に影響を及ぼす可能性が示唆された。

4.2 ストロンチウム 90 の迅速分析

同位体選択性の高い Sr 原子の共鳴イオン化スキームとして、1 段目に自然幅の狭い波長 689.4 nm

[H27-5]

の遷移を利用したスキームに着目した。当該波長のレーザーとして、角度ずれに対して安定性の高い干渉フィルター型外部共振器半導体レーザーを設計・製作した。1 段目の周波数スキャンにより得られた共鳴イオン化スペクトルは自然幅由来のローレンツ成分が小さく、高い同位体選択性が期待される遷移であることが確認された。

参考文献

- [1] Shota UEDA, Byeongnam JO, Masahiro KONDO, Nejdet ERKAN, Takeshi YAJIMA, Koji OKAMOTO, “Initial Relocation Behavior of Control Rod Materials in Boiling Water Reactors Studied via Time-resolved Visualization”, Nuclear Engineering and Design (In press).
- [2] B.A. Bushaw and B.D. Cannon, Spectrochimica Acta B 52 (1997) 1839–1854.