

[H30-06]

燃料デブリ特性及び事故廃棄物処理処分にに関する基礎基盤研究

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

長谷川秀一 ^{#A)}, 岡本孝司 ^{A)}

Shuichi Hasegawa ^{#A)}, Koji Okamoto ^{A)}

^{A)} Nuclear Professional School, The University of Tokyo.

Abstract

Melting and relocation phenomena caused by eutectic reaction of B4C and SS were visualized. A three-step resonance ionization scheme of Sr with isotopic selectivity of 10^6 – 10^{10} was developed using two types of external cavity diode lasers.

Keyword: eutectic melting, boron carbide, stainless steel, strontium, resonance ionization, external cavity diode lasers, 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

ストロンチウム 90 (^{90}Sr , 半減期 28.8 年) は、東京電力福島第一原子力発電所の事故で環境中に放出された主要な放射性核種の一つである。一般的な放射線計測法では、 ^{90}Sr - ^{90}Y 放射平衡に数週間程度要するため迅速分析は困難である。誘導結合プラズマ質量分析等の質量分析法では同重体干渉が検出感度に影響を与えるほか、特に海洋試料等の Sr 安定同位体濃度が高い試料については主要な安定同位体 ^{88}Sr 由来のスペクトル干渉が問題となるため、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、レーザーの持つ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、元素及び同位体選択性に優れた高感度な ^{90}Sr 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 実験および分析

本年度は、再現実験を行い、これまでに得られた溶融物の分析実験を行った。これまでに確認されている Film Formation、Droplet Formation with Collapse および Droplet Formation without Collapse といった 3 つの共晶溶融移行モードについて再現性を確認した。さらに、SS 管の厚さが制御棒材料の溶融移行挙動において重要なパラメータであるため、SS 管の厚さについて、従来の統合試験と比較した。Fig. 1 は、SS 管厚さについて整理した結果である。CORA-16 試験[2]、DF-4 試験[3]、Phebus 試験[4]、および福島第一原子力発電所で用いられた制御棒もしくは制御棒ブレードの SS 部の厚さと本研究の試験条件をまとめた。本研究で得られた、SS 管厚さと溶融移行モードの関係は、過去の試験で考察されている溶融移行挙動を支持した。過酷事故時の炉内雰囲気は異なるが、得られた知見を福島第一原子力発電所事故の溶融移行挙動について適用すると、制御棒が十字型の SS シースと接する位置では Droplet Formation with Collapse が生じ、それ以外の場所では Droplet Formation without Collapse が生じた可能性が示唆された。また、溶融物の組成を走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) によって分析した。Fig. 2 は、元素マッピングの結果である。実験の狙い通り、溶融物の酸化が抑えられていることが確認され、それぞれの溶融移行モードが共晶溶融とその後の流動によって生じたことを支持する結果となった。

[H30-06]

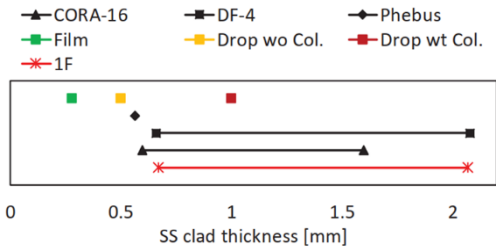


Fig. 1 SS thickness utilized in the past integral tests and the current study with respect to the relocation modes

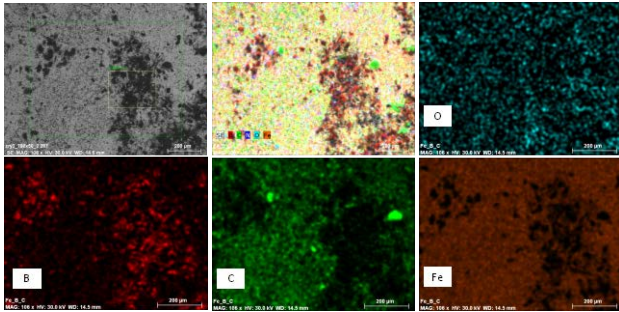


Fig. 2 SEM-EDX images of the surface and the corresponding maps obtained for the O, B, C, and Fe elements.

3. 同位体選択性の高い ^{90}Sr 原子のレーザー共鳴イオン化[6],[7]

3.1 共鳴イオン化スキーム

原子の電子状態のエネルギー準位は元素により大きく異なるほか、同位体間でも質量の違い等に起因する僅かなずれ（同位体シフト）が生じるため、線幅の狭いレーザーを用いて ^{90}Sr 原子のみを元素かつ同位体選択的にイオン化することが可能である。本研究で使用する半導体レーザーの発振波長域及び遷移断面積を考慮した Sr 原子の共鳴イオン化スキームの候補を Fig. 3 に示す。矢印の横に記載した数値は、真空中でのレーザー共鳴波長を表す。この中で、波長 689.4 nm の遷移は自然幅が約 7.5 kHz と狭く高い同位体選択性が期待される点に着目し、3 段階起スキーム：689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm による ^{90}Sr の同位体選択性を評価した。

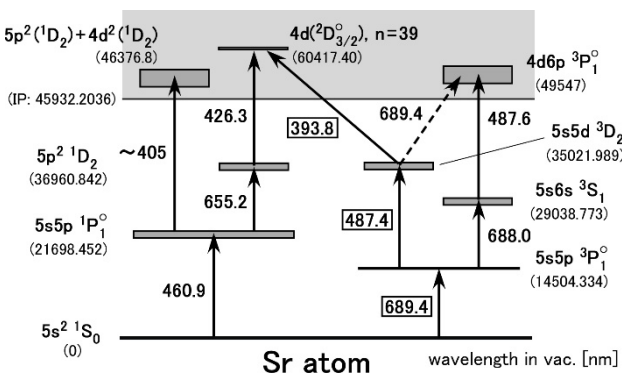
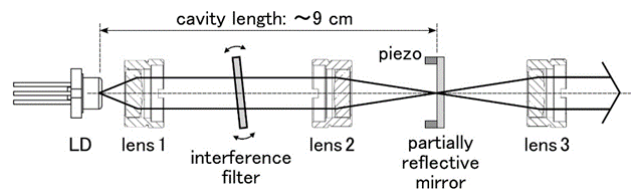


Fig. 3 Resonance ionization schemes of Sr atom.

3.2 干渉フィルター型及び回折格子型外部共振器半導体レーザーの製作

3 段階起に使用するレーザーとして、1 段階目の波長 689.4 nm については角度ずれに対する安定性が高い干渉フィルター型外部共振器半導体レーザーを使用した。当該レーザーの設計・製作は昨年度に実施した。2,3 段階目の波長 487.4 nm 及び 393.8 nm については自然幅が広いことから、構造がよりシンプルな回折格子型外部共振器半導体レーザーを新たに設計・製作した。Fig. 4 に干渉フィルター型及び回折格子型外部共振器半導体レーザーの構造を示す。

(a) Interference filter-type



(b) Diffraction grating-type (Littrow configuration)

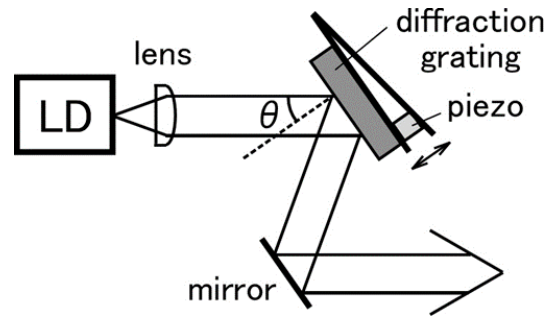


Fig. 4 Schematic of the external cavity diode lasers.

3.3 同位体選択性の評価

^{84}Sr が濃縮された Sr 安定同位体試料をチタンフォイルに塗布し、真空中で加熱により発生した Sr 原子蒸気に前項の外部共振器半導体レーザー 3 本を照射した。レーザー共鳴イオン化された Sr^+ イオンの信号量を市販の四重極質量分析計で計測し、1,2,3 段階目のレーザー周波数をスキャンして各遷移における安定同位体 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr の周波数スペクトルを測定した。各遷移で、同位体間におけるピーク周波数のずれが同位体シフトである。 ^{88}Sr を基準とした ^{84}Sr 及び ^{86}Sr の同位体シフトを測定し、波長 293.3 nm 遷移の文献値を用いて King plot と呼ばれる解析手法により各遷移における ^{90}Sr の同位体シフトを算出した。次に、各遷移で得られた ^{88}Sr の周波数スペクトルを Voigt 関数でフィッティングし、上記の同位体シフト測定値・算出値から当該遷移における ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr に対する ^{90}Sr の同位体選択性を求めた。1,2,3 段階目の遷移について積をとり、689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm スキームにおける ^{90}Sr の同位体選択性を評価し、安

[H30-06]

定同位体 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr に対して各々 10^{10} , 10^6 , 10^8 と得られた。

3 段目の遷移における周波数スペクトルでは、 $689.4\text{ nm}-487.4\text{ nm}-689.4\text{ nm}$ イオン化 (Fig. 2.1 の破線) が観測されたが、これは 3 本のレーザーが空間的に重なっているためである。1 段目の励起準位の寿命が約 $21\text{ }\mu\text{s}$ と長いことから、波長 689.4 nm レーザーを空間的に 5 mm 程度ずらすことにより Sr^+ イオン信号量は殆ど低下せず同位体選択性を 2 桁程度改善できると考えられる。

4. おわりに

4.1 制御棒材料の共晶熔融

SS/B4C 共晶熔融に関する現象の理解に資することを目的として、実験データの拡充とこれまでに得られた熔融物の分析実験を行った。本研究で得られた、SS 管厚さと熔融移行モードの関係は、従来の実験で考察されている熔融移行挙動を支持した。SEM-EDX による分析では、実験の狙い通りに熔融物の酸化が抑えられていることが確認され、それぞれの熔融移行モードが共晶熔融とその後の流動によって生じた可能性を支持した。

4.2 ストロニウム 90 の迅速分析

海洋試料中の ^{90}Sr 分析に向けて、同位体選択性の高い 3 段励起スキーム： $689.4\text{ nm}-487.4\text{ nm}-393.8\text{ nm}$ を開発した。干渉フィルター型及び回折格子型外部共振器半導体レーザーを用いた Sr 安定同位体試料のレーザー共鳴イオン化測定により、 ^{90}Sr の同位体選択性を 10^6-10^{10} と評価した。1 段目の波長 689.4 nm レーザー照射位置を調整することで、さらに 2 桁程度の改善が見込まれる。

参考文献

- [1] S. Ueda, et al., “Initial relocation behavior of control rod materials in boiling water reactors studied via time-resolved visualization”, *Nuclear Engineering and Design* **333**, pp 99-114 (2018).
- [2] P. Hofmann, et al., “Reaction behavior of B4C absorber material with stainless steel and zircaloy in severe light water reactor accidents”, *Nuclear Technology*, 90(2), pp. 226-244(1990).
- [3] R. Gauntt, et al., “The DF-4 fuel damage experiment in ACRR with a BWR control blade and channel box”, Washington, DC: Division of Systems Research, Office of Nuclear Regulatory Research, U.S. Nuclear Regulatory Commission; SAND86-1443, NUREG/CR-4671(1989).
- [4] L. Sepold, et al., Behavior of BWR-type fuel elements with B4C/steel absorber tested under severe fuel damage conditions in the CORA facility. *Wissenschaftliche Berichte FZKA*, 7447(2009).
- [5] 植田翔多, 「B4C 制御棒の共晶熔融とその後の再配置過程に関する研究」, 東京大学工学系研究科, 2019 年 3 月(2019).

- [6] Donguk Cheon, Yoshihiro Iwata, Masabumi Miyabe, Ikuo Wakaida, Shuichi Hasegawa, “Investigation of optical ionization of strontium via $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_1^o \rightarrow 5s5d\ ^3D_2 \rightarrow 4dnp$ (or $4dnf$, $n=39$) for isotope selectivity enhancement,” *Journal of Spectroscopy* **2018** (2018) 5612360 (6 pages).
- [7] Donguk Cheon, Yoshihiro Iwata, Masabumi Miyabe, Shuichi Hasegawa, “Development of Bandpass Filtered External Cavity Diode Laser System for RIMS of Radioactive Strontium Isotopes,” *JPS Conference Proceedings* **24** (2019) 011032 (6 pages).