

[H30-6]

燃料デブリ特性及び事故廃棄物処理処分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. The effect of coexisting elements on the atomization of strontium in laser resonance ionization was evaluated.

Keyword: eutectic melting, boron carbide, stainless steel, strontium, laser resonance ionization, coexisting elements

1. はじめに

1.1 スプレーによるエアロゾル除去

福島第一原子力発電所の廃炉に向けて、様々な廃棄物が生成される。特に、レーザー切断などによって、燃料デブリを切断することを想定すると、大量のマイクロ粒子がヒュームとして生成される。これらのエアロゾルを適切に回収し廃棄物として処理処分することが重要である。放射性エアロゾルは回収が困難であり、内部被ばくの大きな要因ともなる。このため、スプレーによるエアロゾル除去を調査し、放射性エアロゾルのリスクを低減するための効率的な新しい方法を開発する。

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、ウラン・プルトニウムの主要な核分裂生成物であり、カルシウムと同族元素であるため体内摂取に伴う内部被ばくの問題が指摘されている。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の時間が必要で迅速分析は困難である。質量分析法については ^{90}Zr による同重体干渉のほか、測定試料中の Sr 安定同位体濃度が高い場合は ^{88}Sr 由来のスペクトル干渉が問題となる。

本研究では、狭線幅の外部共振器半導体レーザーを用い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。また、実試料の分析に向けて共存元素の影響を評価し、既存の質量分析法と比較して簡略化した試料の前処理過程を確立する。

2 スプレーによるエアロゾル除去

損傷した福島第一原子力発電所原子炉からの燃料デブリの回収において、固化した燃料デブリを細かく切断する必要がある。この際、サブミクロンの放射性エアロゾル粒子が生成され、切断プロセス中に一次格納容器の雰囲気中に分散される。従来のスプレーでは、気体中に浮かぶ直径 $0.1\sim 1\mu\text{m}$ の範囲のエア

ロゾル粒子を効果的に取り除くことができない事が分かっている。このため、水噴霧を使用してエアロゾルを除去する前にエアロゾルの粒子サイズを大きくする前処理として、ウォーターミストを使用する新しいエアロゾル凝集法が提案されている。まず、エアロゾル粒子が分散している容器にウォーターミストが注入する。短い待機時間の後、スプレー注入によりエアロゾル粒子がより効果的に除去されることがわかった[1]。Fig. 1 は、ミスト濃度が増加している 4 つのケースの除去効率を示しています。ミストは、電気泳動効果によってエアロゾル粒子と合体することにより、大きな凝集ミストエアロゾル粒子を形成する。この大きな凝集ミストエアロゾル粒子をスプレーによって除去することで、除去効率の改善がみられている。これは、慣性衝突と表面親水性を改善することによるもので、水スプレーによって高効率で除去できることがわかった。

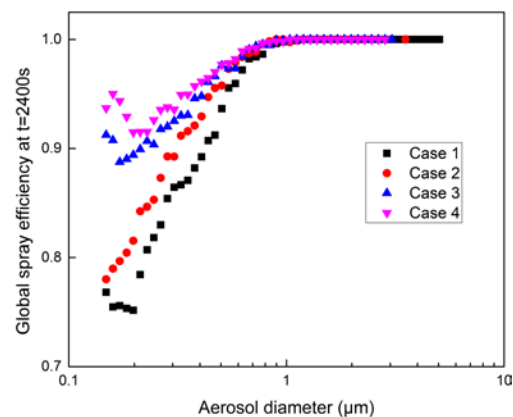


Fig. 1. Variation of scavenging efficiencies with respect to increasing mist concentration [1].

[H30-6]

3. ⁹⁰Sr 原子のレーザー共鳴イオン化における共存元素の影響評価[2]

3.1 共鳴イオン化スキーム

レーザー共鳴イオン化では、原子の電子状態のエネルギー準位差に相当する波長の外部共振器半導体レーザーを用いて ⁹⁰Sr 原子のみを元素かつ同位体選択的にイオン化する。本研究で使用する Sr 原子の共鳴イオン化スキームを Fig. 2 に示す。矢印の横に記載した数値は、真空中でのレーザー波長である。⁹⁰Sr の分析に使用するスキームとして、遷移効率の高い 460.9 nm-655.2 nm-426.3 nm 及び同位体選択性の高い 689.4 nm-487.4 nm-393.8 nm の 2 つのスキームを中心に検討を進めている。共存元素の影響評価には、460.9 nm-405 nm の 2 段階起スキームを使用した。

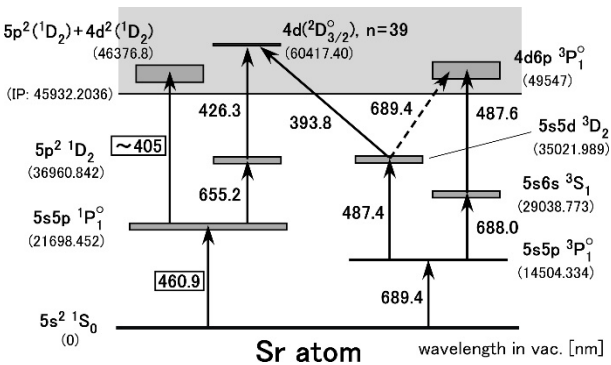


Fig. 2 Resonance ionization schemes of Sr atom.

3.2 共存元素の影響評価

レーザー共鳴イオン化過程は元素・同位体選択性を持つため、試料に Sr 以外の元素が含まれている場合でも影響はほぼ無視できる。一方で、チタンフォイルに塗布した試料を加熱して酸化還元反応により Sr 原子蒸気を生成する過程では、共存する他元素が Sr⁺イオン信号量の低下という形で影響を与える可能性がある。

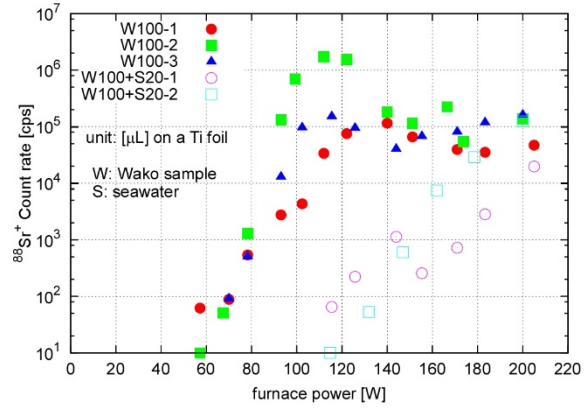
共存元素として海水及びその主成分である Na, Mg, Ca, K に着目し、チタンフォイルに塗布する試料溶液として下記(1)-(6)の 6 種類を作製して ⁸⁸Sr⁺イオン信号量を比較した。標準液の濃度はどの元素についても 1,000 ppm であり、海水 20 μl 中の Na 重量と Na 標準液 200 μl 中の Na 重量がほぼ同じ値となる。

- (1) Sr 標準液 100 μl
- (2) Sr 標準液 100 μl + 海水 20 μl
- (3) Sr 標準液 100 μl + Na 標準液 200 μl
- (4) Sr 標準液 100 μl + Mg 標準液 200 μl
- (5) Sr 標準液 100 μl + Ca 標準液 200 μl
- (6) Sr 標準液 100 μl + K 標準液 200 μl

(1)と(2)及び(1)と(3)の比較結果を Fig. 3(a)及び(b)に

示す。W は Sr 標準液、S は海水、Na は Na 標準液で数値は塗布量[μl]を表す。横軸は、ファーネス電力で加熱温度に対応する。

(a) Influence of seawater



(b) Influence of sodium (Na)

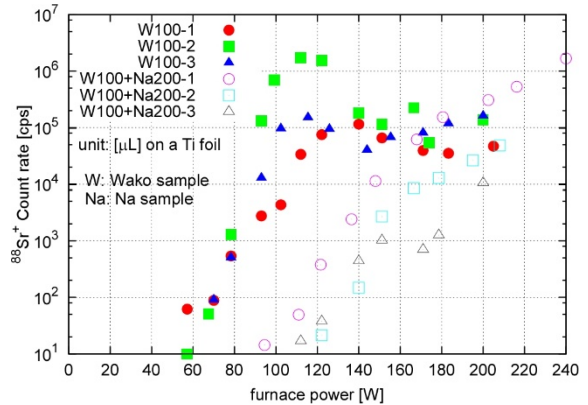


Fig. 3 Influence of seawater and sodium on the atomization of Sr.

Fig. 3(a), (b)ともに海水又は Na の共存下で、⁸⁸Sr⁺イオン信号量が観測され始めるファーネス電力閾値の増加が観測された。これは、低温下で海水及び Na が Sr 原子化に干渉していることを意味する。一方で、加熱温度が十分に高い場合は ⁸⁸Sr⁺イオン信号量に大きな変化は観測されず、共存元素の影響は小さいと考えられる。他の元素については、Na と同じアルカリ金属元素の K について同様な現象が確認された一方で、Mg 及び Ca についてはファーネス電力閾値の有意な増加は観測されず共存元素の影響は小さいと考えられる。共存元素の中で特に Na が Sr 原子化に影響を与える理由として、標準電極電位の大小で表されるイオン化傾向が Sr より小さく、蒸気圧が Sr より大きい点が挙げられる[3,4]。

[H30-6]

4. おわりに

4.1 スプレーによるエアロゾル除去

福島第一原子力発電所廃炉において生じる様々な放射性廃棄物のうち、特に微小な放射性エアロゾルを除去するための実験を継続している。ミストによる効果的な除去が確認されたが、より除去効率を高くするための研究を進める。

4.2 ストロンチウム 90 の迅速分析

実試料中の ^{90}Sr 分析に向けて、Sr 原子化過程に対する共存元素の影響評価を行った。共存元素として海水及びその主成分である Na, Mg, Ca, K に着目して $^{88}\text{Sr}^+$ イオン信号量を比較した結果、海水及びアルカリ金属元素の Na, K については低温下で Sr 原子化に影響を与える可能性があることがわかった。その他の元素については Sr 原子化に干渉する可能性は低く、試料の前処理過程の簡略化が見込まれる。

参考文献

- [1] Hui Liang, Qian Zhou, Nejdet Erkan, Shunichi Suzuki, "Improvement of Aerosol Spray Scavenging Efficiency with Water Mist," The International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 27), May 19-24, 2019, Tsukuba, Japan.
- [2] Yoshihiro Iwata, Donguk Cheon, Masabumi Miyabe, Shuichi Hasegawa, "Spectroscopic analysis of radioactive strontium with low isotopic abundance using laser resonance ionization," *Hyperfine Interactions* 241 (2020) 29 (8 pages).
- [3] 電気化学会「電気化学便覧第5版」、丸善 (2000).
- [4] "VAPOR PRESSURE OF THE METALLIC ELEMENTS", in CRC Handbook of Chemistry and Physics, Internet Version 2005, David R. Lide, ed., <<http://www.hbcpnetbase.com>>, CRC Press, Boca Raton, FL, 2005.