

[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. We measured the DC Stark shift of $n_{\text{eff}} \sim 39$ Rydberg level converging to the $4d\ ^2D_{3/2}$ limit to evaluate the upper limit of the external electric field in real sample analysis using laser resonance ionization.

Keyword: eutectic melting, boron carbide, stainless steel, strontium, laser resonance ionization, Stark shift, 直接接触凝縮, チャギング, 頻度

1. はじめに

1.1 直接接触凝縮試験

福島第一原子力発電所事故においては、蒸気がサブプレッションチャンバーで凝縮し、その後のシビアアクシデントシナリオに大きく影響した。蒸気の凝縮とチャギングの分析は過去何年にもわたって行われてきましたが、データはほとんど定性的であった。本研究では、定量的な測定で現象を明らかにすることを試みた。

1.2 レーザー共鳴イオン化を用いたストロンチウム同位体分析

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、福島第一原子力発電所事故を受けて分析ニーズが高まっている放射性核種の一つである。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が、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と言われている。質量分析法として誘導結合プラズマ質量分析及び加速器質量分析が挙げられるが、同じ質量数の ^{90}Zr による同重体干渉に加えて、Sr 安定同位体濃度が高い試料では ^{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た Sr 原子の多段階共鳴励起・イオン化に着目し、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。レーザー3本で Sr 原子の Rydberg 準位に遷移させる共鳴イオン化スキームが有効であるが、主量子数 n の大きい Rydberg 準位は外部電場の影響を受けてエネルギーレベルが容易にシフトするため、分析への影響を考慮してイオン化領域における電場の最適化が重要となる。

2. 直接接触凝縮試験

2.1 目的

福島第一原子力発電所の事故においては、高温の蒸気がサブプレッションプールに流入する。直接接触凝縮 (DCC) で、蒸気を効率的に凝縮して、格納容器内の圧力上昇を低減する。この時、蒸気気泡の崩壊に関連するチャギングなど、さまざまな現象が発生し、事故進展にも影響をする。従来、チャギングは、定性的に研究されてきた。本研究では、チャギングに関する定量的なデータを収集し、そのメカニズムを評価する。

2.2 実験および分析

2.2.1 試験装置

実験装置の概要を図 1 に示す。東海キャンパスにおいて過去に活用されていた実験装置を元に、過熱状態など、さまざまな条件で実験を行うために拡張している。装置にはヒーターと温度調節器が設置されている。ヒーターは蒸気を約 400°C まで加熱することができる。

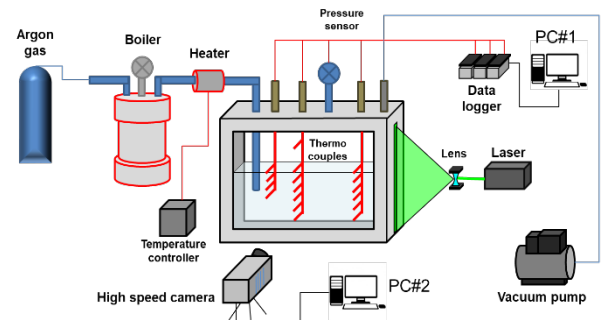


Fig. 1. Facility diagram at UTokyo Tokai campus

レーザーを用いた PIV を使用して凝縮気泡の周囲における、速度と加速度を調べた。過去の研究では、プール内水流のマクロな流量に重点を置いた分析と

[H30-6]

は異なる[1]。

さらに、実機プラント条件に外挿できる無次元の凝縮マップを作成することを目的として、より大きな圧力とより大きな直径を用いた、予備実験を実施した。以下に、予備的な結果と無次元凝縮図を示します。

2.2.2 PIV 計測

PIV は、ローダミン B で着色されたトレーサーを使用し実施した。ローダミン B は、532 nm の波長のレーザー光を吸収し、560nm の光を放出します。ローダミン B が発する波長のみを記録し、気泡、水位、インジェクターによって発生するすべての反射を除去するために、HOYA のロングパスフィルターが使用されている。

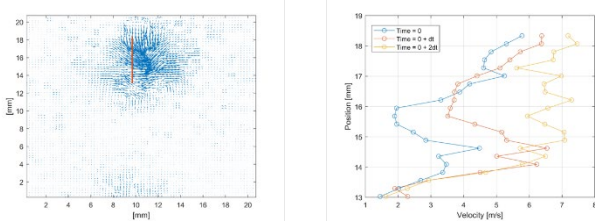


図 2. 気泡凝縮時の速度分布

予備的な結果を図 2 に示す。左側は凝縮時の速度ベクトル場で、右側は凝縮中の速度増加を示す 3 つの連続した瞬間の凝縮速度を示す。

2.2.3 無次元直接凝縮マップ

凝縮マップは直接接触凝縮研究で重要であり、可従来から様々なマップが提案されている。一方、これらの図は、システム設計に使用できる情報ではない。したがって、過熱および低圧条件を含むさまざまな条件での利用を考慮して、一般的なマップを作成するための努力がなされています。

本研究では、安定した熱成層が生成されるポイントであるチャギングと振動凝縮の間の遷移ポイントで関係を評価した。

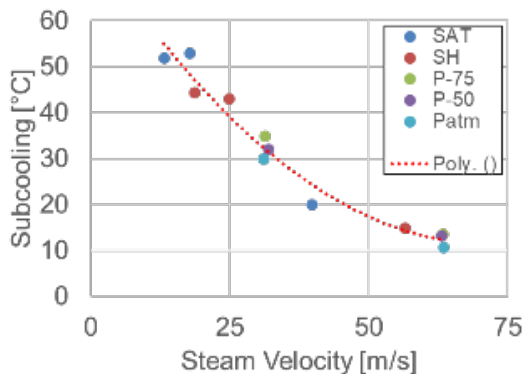


図 3. 予備的な凝縮マップの一般化

結果の一例を図 3 に示す。チャギング発生と非発生の境界を示している。ここに示すように、蒸気速度とサブクール度がパラメータとして整理できることができる。一定のノズル直径の場合、蒸気速度は生成される気泡の大きさを示し、サブクール度は凝縮の可能性を表す。

3. Sr 原子のレーザー共鳴イオン化における DC シュタルクシフトの影響評価[6]

3.1 共鳴イオン化スキーム及び実験セットアップ

レーザー共鳴イオン化の原理は、原子の電子状態のエネルギー準位差に対応した波長のレーザーを用いて特定の元素・同位体のみを選択的に励起・イオン化するというものである。本研究で使用する Sr 原子の共鳴イオン化スキームを Fig. 4 の右側に示す。波長 460.9 nm, 655.2 nm, $\lambda_3 = 426.3$ nm の 3 本の外部共振器半導体レーザーにより、Sr 原子を $4d^2D_{3/2}$ Rydberg 系列 (Sr^+ イオンの $4d^2D_{3/2}$ 準位に収束する Sr 原子の Rydberg 準位) の有効主量子数 $n_{eff} \sim 39$ 準位に遷移させて自動電離させる。

実験セットアップを図 5 に示す。Sr 標準溶液を塗布したチタンフォイルを炭素のつぼに入れて、真空中で加熱することで Sr 原子蒸気を発生させた。レーザー 3 本は、いずれも Fabry-Perot エタロンを用いて周波数制御した状態で[3]、3 段目のみ反対側から導入して集光照射することで Sr 原子を共鳴イオン化した。Sr⁺イオンを四重極質量分離フィルターで質量選別し、マイクロチャネルプレート (MCP) で検出した。本研究では、主要な安定同位体である ⁸⁸Sr のイオン信号量を測定した。

3.2 DC シュタルクシフトの観測

Sr 原子の Rydberg 準位は、イオン化領域における

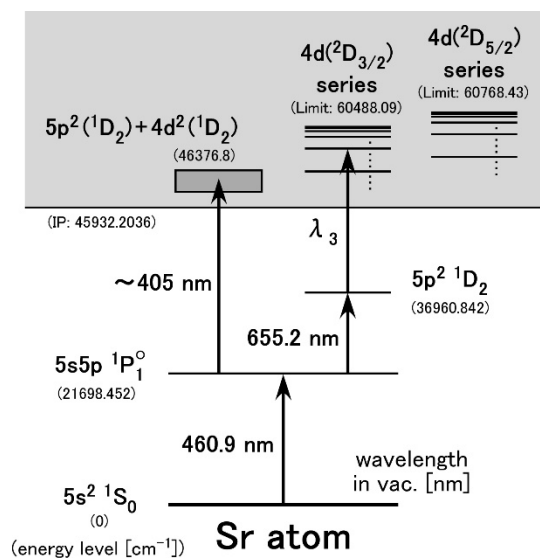


Fig. 4 Resonance ionization scheme of Sr atom [2].

[H30-6]

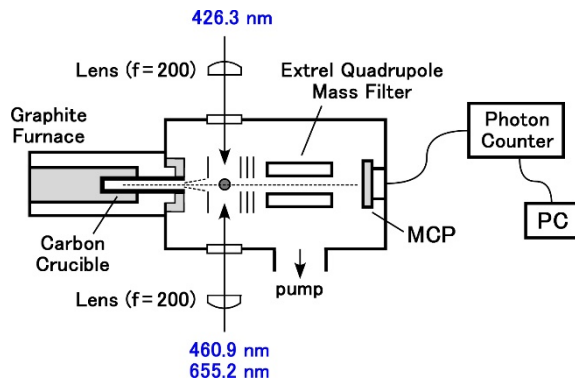
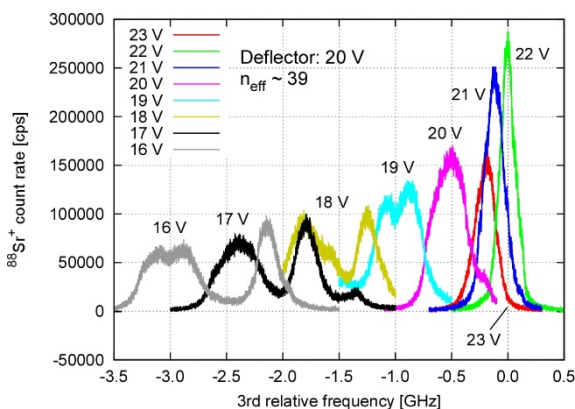


Fig. 5 Experimental setup in this study.

外部電場の影響を受けてエネルギーレベルが容易にシフトする。本研究のセットアップにおけるイオン化領域は、メッシュ電極 (Deflector) と丸孔電極の2枚の平行平板電極で構成されており、メッシュ電極の印加電圧を 20 V に固定した状態で丸孔電極の印加電圧を変えて外部電場の影響を調べた。

丸孔電極の印加電圧を 16-23 V の範囲で変えた時の3段目の周波数スペクトルの変化を Fig. 6 に示す。印加電圧 22 V で共鳴周波数及びピーク信号量が最も高くなった。この時のイオン化領域における電場がほぼゼロであると考えられ、これは SIMION ソフトウェア[4]を用いた電場計算の結果と一致している。印加電圧を 22 V から低くする、すなわちイオン化領域の電場を高くするにつれて共鳴周波数が低い側にシフトしており、これは $n_{\text{eff}} \sim 39$ Rydberg 準位の分極率 $\alpha > 0$ を表している。電場とともにスペクトル幅が広がりピーク信号量の減少が確認された。印加電圧 19 V あたりからスペクトルの分裂が観測され、これは Rydberg 準位の縮退が解けていることを表してい

Fig. 6 Observed frequency spectra under various electric field conditions ($n_{\text{eff}} \sim 39$).

ると考えられる。Fig. 6 からは、電場にほぼ比例してピーク周波数がシフトしている様子が観測されたが、電場ゼロ付近すなわち印加電圧 22 V 付近で詳細に電場とピーク周波数の関係を調べた結果、電場の 2 乗に比例してピーク周波数がシフトしている様子が観測された。これは、縮退が解けていない時の理論式と一致しており、比例定数に相当する分極率 α は

$\alpha \sim 7 \times 10^{-29} [\text{C}^2 \cdot \text{m}^2 \cdot \text{J}^{-1}]$ と得られた。また、DC シュタルクシフトによる分析への影響がほぼ無視できるイオン化領域の電場上限値は、0.1 V/cm 程度と評価した。

4. おわりに

4.1 直接触凝縮試験

予備実験によって、気泡崩壊を引き起こす不安定性の種類を検討するための気泡爆縮の PIV 測定及び、凝縮マップの一般化を実施した。チャギングの速度は継続的に増加していることがわかっており、レイリー・テイラー不安定性の可能性を示している。さらなる実験と分析を進める必要があるが、凝縮マップの一般化により、気泡のサイズとサブクール度がわかれば、凝縮様式を特定できるという予備的な仮説を確認した。

4.2 レーザー共鳴イオン化を用いたストロンチウム同位体分析

Sr 原子の Rydberg 準位を用いたレーザー共鳴イオン化による ^{90}Sr 同位体分析の検討を進めている。Rydberg 準位として $4d^2D_{3/2}$ Rydberg 系列の有効主量子数 $n_{\text{eff}} \sim 39$ 準位に着目し、イオン化領域の電場を変えて3段目 (波長 426.3 nm) の周波数スペクトルを観測した。電場の増加とともにピーク周波数が低い側にシフトし、ピーク信号量の低下が観測された。スペクトル形状については、幅が広がり一定の電場以上で縮退が解けたことに伴う分裂が確認された。微小電場付近におけるピーク周波数の電場依存性から、 $n_{\text{eff}} \sim 39$ Rydberg 準位の分極率 α は $\alpha \sim 7 \times 10^{-29} [\text{C}^2 \cdot \text{m}^2 \cdot \text{J}^{-1}]$ と得られた。また、DC シュタルクシフトによる分析への影響がほぼ無視できるイオン化領域の電場上限値は、0.1 V/cm 程度と評価した。

参考文献

- [1] D. Song, N. Erkan, B. Jo, K. Okamoto, Relationship between thermal stratification and flow patterns in steam-quenching suppression pool, International Journal of Heat and Fluid Flow Volume 56, December 2015, Pages 209-217
- [2] Y. Iwata et al., "Investigation on the DC Stark shifts of strontium autoionization states for isotope-selective resonance ionization," Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 265 (2021) 107549 (7 pages).
- [3] M. Miyabe et al., "Determination of Ionization Potential of Calcium by High-Resolution Resonance Ionization Spectroscopy," Journal of the Physical Society of Japan 75 (2006) 034302 (10 pages).
- [4] SIMION, The field and particle trajectory simulator: <https://simion.com/>.