

[H27-05]

## 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<sup>#A)</sup>, 長谷川秀一<sup>A)</sup>, 近藤雅裕<sup>A)</sup>,  
Koji Okamoto<sup>#A)</sup>, Shuuichi Hasegawa<sup>A)</sup>, Masahiro Kondo<sup>A)</sup>  
<sup>A)</sup> Nuclear Professional School, University of Tokyo,

#### Abstract

Melting phenomena caused by eutectic reaction of B4C and SS was visualized.

Keyword: guideline, layout, font

#### 1. はじめに

##### 1.1 制御棒材料の共晶溶融

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。沸騰水型原子炉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）の共晶反応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、ステンレス鋼とボロンカーバイドの共晶反応による溶融落下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。

本研究では、超高温環境下の共晶反応可視化手法を構築し、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。

##### 1.2 ストロンチウム同位体の迅速分析

福島第一原子力発電所事故で漏出した放射性核種のひとつであるストロンチウム 90 (<sup>90</sup>Sr) はβ崩壊核種であることから摂取に伴う骨組織等の長期内部被曝が問題となる。一般的に利用される放射化学的手法による<sup>90</sup>Srの分析は<sup>90</sup>Srとその娘核種イットリウム 90 (<sup>90</sup>Y)の放射平衡を作り出すのに2週間以上の時間を要し、より迅速に多くの試料を分析できる手法が望まれる。迅速な分析手法としては質量分析を利用する手法が期待されているが、<sup>90</sup>Yや天然に多く存在するジルコニウム 90 (<sup>90</sup>Zr)といった同重体を除去する必要があるほか、豊富に存在する同位体<sup>88</sup>Srを<sup>90</sup>Srから分離できる高い同位体選択性が求められる。

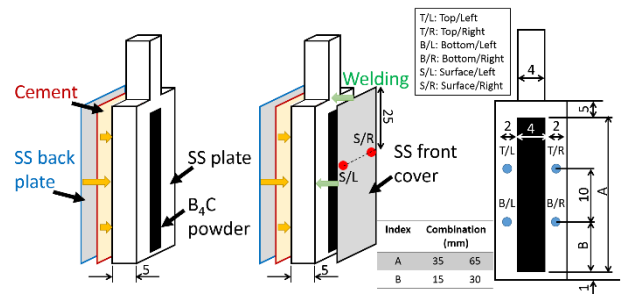
本研究では、レーザーの特性を活かして元素及び同位体の選択性に優れた<sup>90</sup>Sr迅速分析手法の開発を目指し、さらにレーザー冷却されたイオン群を単一

イオンレベルで可視化することにより高感度分析の実現を図る。

#### 2. SS と B4C の共晶溶融

##### 2.1 試験体系

Fig. 2.1 は、試験体の概略図である。本実験では、Front-uncovered specimen とこの板状試験体の正面に SS 薄板を取り付けた Front-covered specimen の 2 種類を用いて実験を行った。粉末 B4C の充填率は約 45% 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。Table 2.1 は、実験条件をしめしている。Case 1 では、Front-uncovered specimen を上下逆さまに設置し、上端が最高温度になり下方へ行くに従って温度が低くなるような温度勾配を生じさせた。試験体温度が 1200 °C に達した後は最高温度 1250 °C まで 0.08 °C/s で昇温した。Case 2 では、「(ア) 板状試験体を用いた可視化実験」と同様に試験体を配置した。また、実験中は試験体温度を 1200 °C で維持した。Case 2 において「(ア) 板状試験体を用いた可視化実験」と異なるのは、正面を SS 薄板で覆っている Front-covered specimen を用いている点と試験体の長さのみである。



(a) Front-uncovered specimen (b) Front-covered specimen (c) Front view of both specimen types

Fig. 2.1 Designs of two specimen types and positions of thermocouples (All units are mm) [1]

Table 2.1 Experimental conditions for specimens

[H27-05]

Name	Case 1	Case 2
Front condition	Uncovered	Covered
Specimen direction	Upside down	Normal
Temperature	1250 C	1220 C
Height	35 mm	65 mm

## 2.2 可視化試験の結果

Fig.2.2 は Case 1 の可視化結果であり、Fig. 14 では、最初に試験体上部で共晶反応が生じていることがわかる。これは、試験体に上端から徐々に温度が低くなるような温度勾配が生じたことで、温度が最も高い部分で最も B4C から SS への拡散したことによる。490 s において、共晶溶融物が B4C 領域に侵入しており (Fig. 2.2 内(1))、1090 s においてさらに多くの共晶溶融物が粉末 B4C に吸収され混合している (Fig. 3 内(2))。690 s から確認される白く光っている部分はハレーションである。(Fig. 2.2 内(3))。これは、共晶反応によって生じた溶融物が表面張力によって丸みを帯びタングステンからより多くの光を反射するようになったためだと考えられる。また、690 s 後からは、共晶溶融物が下部へ移行していく挙動を観察することができた (Fig. 2.2 内(4))。これは、リロケーション挙動の一端を観察することができたと考えられる。「(ア) 板状試験体を用いた可視化実験」との主な違いは試験体に生じた温度勾配である。「(ア) 板状試験体を用いた可視化実験」では、高温の中心部から低温の両上下端へと温度勾配が生じていたが、本追加実験では、高温の上部から低温の下部への温度勾配が生じた。つまり、本追加実験と同様な温度勾配下の方が流動を伴うリロケーションが生じやすいと考えられる。

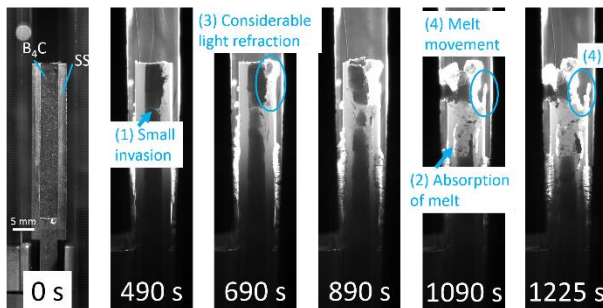


Fig. 2.2 Time-resolved images in front-uncovered case [1]

Fig. 2.3 は Case 2 の可視化結果である。正面の SS 薄板右に取り付けられた熱電対 (Surface/Right) は途中で試験体から外れてしまったため、他の熱電対と異なる挙動を示しており、信頼性が低いと考えられる。Fig. 2.3 では、最初に試験体の中心部から溶融が生じていることがわかる。これは、試験体の温度勾配が

中心部から両端へ向かって温度が低くなるような勾配であるためである。加えて、タングステンヒーターで試験体の両端から輻射加熱しているため水平方向の温度勾配は中心部から両端へ向かって温度が高くなるような勾配であるため、試験体の中心部でも特に SS 薄板の B4C と接している範囲内の最も外側から溶融が開始している (Fig. 2.3、600 s、(1))。800 s には、試験体内の B4C が Ar 雰囲気へ露出し始める (Fig. 2.3、(3))。この時、共晶反応によって溶融した SS 薄板は中心部から試験体の右端へと移動する挙動を示した。900 s では、右端へ移動した溶融物は試験体に沿って下方へ移動し液滴を形成した (Fig. 2.3、(4))。900-1100 s にかけて、この液滴に溶融物が流れていくことで液滴の大きさは大きくなっていった。Case 2 では Case 1 で確認された溶融物の B4C 領域への侵入・吸収は確認されなかった。むしろ、Case 2 では、溶融物は粉末 B4C にはじかれていた。

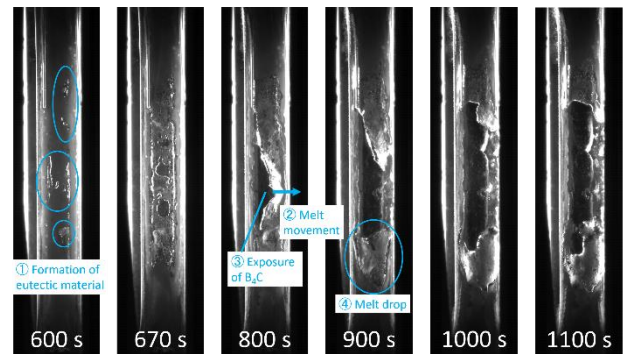


Fig. 2.3 Time-resolved images in front-covered case (600–1100 s) [1]

## 3. Sr 同位体イオンの個別観測

### 3.1 試験体系

Fig. 3.1 は実験系の全体図である。イオン源並びに質量分析部として誘導結合プラズマ質量分析装置 ICP-MS (Perkin Elmer, Elan DRC II) を使用した。ICP-MS は RF コイルにより発生させたアルゴンの誘導結合プラズマ (ICP) 中に液体試料を導入することで試料をイオン化し、四重極質量分析器 (Q-mass) によって質量分析を行う装置である。通常の ICP-MS では Q-mass の後段に検出器が置かれ、質量選別されたイオンの検出が行われるが、本装置においてはこの検出器が取り外され、イオントラップ装置が取り付けられている。質量選別されたイオンの捕獲を行う四重極イオントラップは 7 つのセグメントに分かれており、それぞれに異なる DC オフセットを印加することで特定のセグメントに捕獲イオンを集積することが可能である。捕獲されたイオンはトラップ内部に照射されたレーザーによって元素・同位体選択的に冷却され、極低温のイオン結晶が生じる。ここでは 422 nm と 1092 nm の 2 本のレーザーを使用す

[H27-05]

ることで閉じた冷却サイクルを構築している。冷却されたイオンから放出される 422 nm のレーザー誘起蛍光 (LIF) を EMCCD カメラ及び光電子増倍管 (PMT) によって計測する。

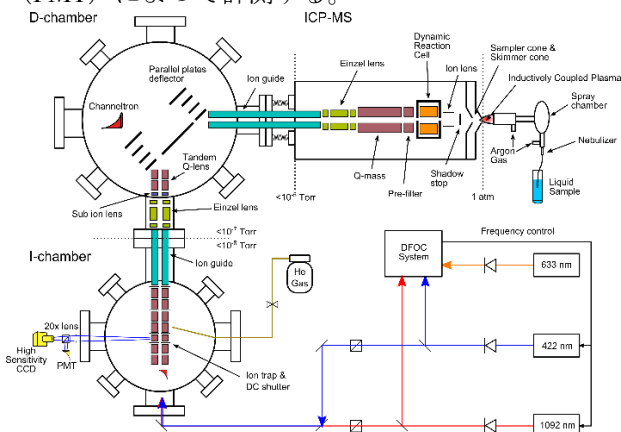


Fig. 3.1 Experimental setup of ICP-MS and Ion Trap.

レーザー冷却において高い冷却効率と同位体選択性を実現するためにはレーザー周波数の安定性が重要である。今回使用する外部共振器型半導体レーザーは発振周波数が可変であるという利点がある一方で周波数が外乱の影響によって変化しやすい。そこで本研究室で構築されたレーザー周波数安定化システム(DFOC)[2]を適用した。DFOC のシステム構成を Fig. 3.2 に示す。633 nm 安定化 HeNe レーザーを基準とし、ファブリペロー干渉計により得られる各レーザーのフリンジ信号からエラー信号が作成され、フィードバック制御が行われる。

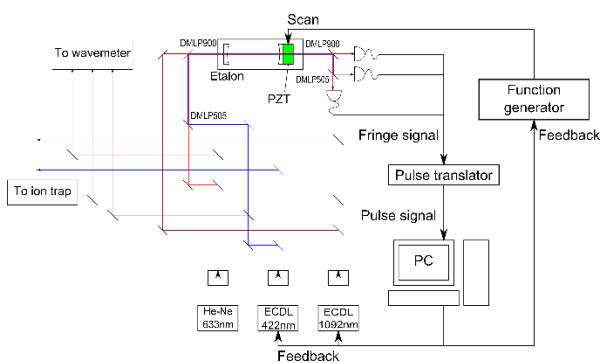


Fig. 3.2 Structure of laser frequency control system.

以上のような装置を用いて  $^{88}\text{Sr}^+$  個別イオンの可視化を試みた後には、 $^{90}\text{Sr}$  を観測するための新たな装置を構築する。新たな装置においては、試料からイオンを得るために共鳴イオン化を利用する。共鳴イオン化は原子の励起にレーザー共鳴を利用するため、同位体選択的なイオン化が可能な手法である。共鳴イオン化されたイオンは Q-mass によって質量分離され、イオンレンズを経てイオントラップに捕獲され、レーザー冷却される。イオントラップ電極は Fig. 3.1 の装置のようなセグメントではなく、電極間に挿

入された勾配付きの補助電極によって軸方向の電位勾配を形成し、捕獲されたイオンを特定の位置に集積する。レーザー冷却光源及び制御システムはこれまでと共通である。装置の構成を Fig. 3.3 に示す。

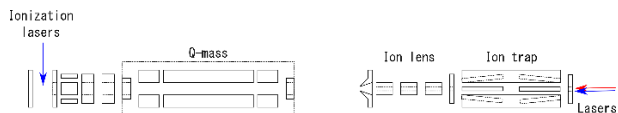


Fig. 3.3 Experimental setup of RIMS and Ion Trap.

### 3.2 試験結果

DFOC システムを適用した場合のレーザー周波数の揺らぎを評価したところ、実験時間に概ね相当する 1 時間の中で、本研究室の有する波長計 (HighFinesse, WS7) の分解能である 10 MHz を下回る値であることが確認された。これは  $\text{Sr}^+$  冷却遷移の自然線幅 21.5 MHz に対しても十分小さな値であり、レーザー周波数が本実験で求められる精度で安定化されていると言える。続いて前項で示した装置を使用して  $\text{Sr}^+$  捕獲観測実験を行った。試料には 10 ppm の Sr 溶液を使用した。結果として Fig. 3.4 に示すようなイオン結晶画像並びにイオン結晶のスペクトルが得られた。画像は EMCCD によって得られたものであり、スペクトルはイオンが捕獲された状態で 422 nm 冷却レーザーの周波数を掃引し、その際の LIF 変化を PMT によって測定したものである。このスペクトルは冷却スペクトルと呼ばれ、非対称な形状を有する点が特徴的である。これは冷却レーザーの周波数が対象イオンの共鳴周波数を越えた時にレーザーによる冷却が起らなくなるためである。

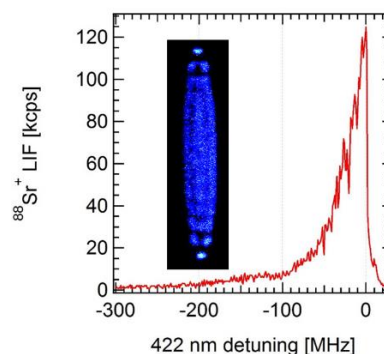


Fig. 3.4  $\text{Sr}^+$  ion crystal and cooling spectrum.

また、冷却レーザーの周波数を共鳴より高い値に合わせてレーザー加熱することにより、捕獲イオン数を減らす操作を行うことができる。このような操作により Fig. 3.5 に示すようなストリング状のイオン結晶が得られる。この画像においてはイオン 4 個が等間隔で並んだ構造が示されている。以上のようにイオントラップ・レーザー冷却により単一イオンレベルにおける  $\text{Sr}^+$  の観測に成功した。

[H27-05]

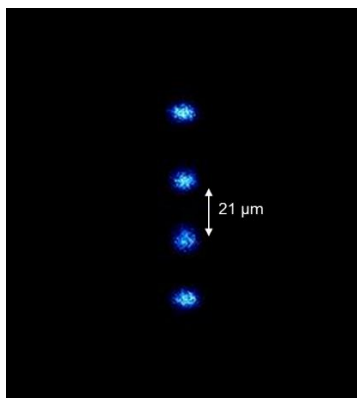


Fig. 3.5 String crystal of trapped and cooled  $\text{Sr}^+$  ions.

続いて、共鳴イオン化質量分析とイオントラップ・レーザー冷却を利用した新たな装置を構築し、この装置において  $\text{Sr}^+$  の捕獲観測を行った。その結果、Fig. 3.6 のように  $\text{Sr}^+$  が発する LIF が観測され、 $\text{Sr}^+$  の捕獲が確認された。

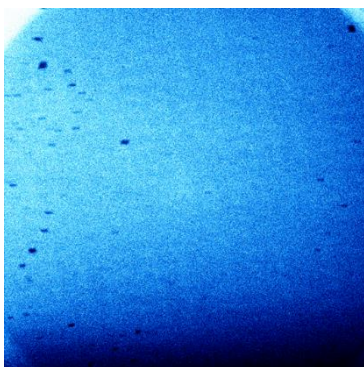


Fig. 3.6 LIF obtained from trapped  $\text{Sr}^+$  ions.

## 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反応可視化手法を構築し、制棒材料の熔融落下現象を可視化した。具体的には、B4C/SS 共晶反応可視化のための実験システムを構築し、板状試験体を用いて熔融挙動を可視化した。

### 4.2 ストロチウム同位体の迅速分析

レーザーを用いた個別イオン観測システムにより  $\text{Sr}^+$  イオンの可視化を行った。具体的には ICP-MS とイオントラップ・レーザー冷却により  $\text{Sr}^+$  イオン結晶を形成し、LIF 観測による単一イオンレベルにおける可視化を実施した。

## 参考文献

- [1] Shota Ueda, Hiroshi Madokoro, Byeongnam Jo, Masahiro Kondo, Nejdet Erkan and Koji Okamoto, Time-resolved visualization technique for eutectic reaction between boron

carbide and stainless steel at high temperatures, Mechanical Engineering Letters 2 (2016), 15-00056.

- [2] Kyunghun Jung, Yuta Yamamoto and Shuichi Hasegawa, Development of multiple laser frequency control system for  $\text{Ca}^+$  isotope ion cooling, Hyperfine Interactions 236 (2015), 39-51.