

RIMS を用いた高精度な燃料タグガス分析のためのレーザー光学系の開発

(受託者)独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者)岩田圭弘 大洗研究開発センター

(研究開発期間)平成22年度～23年度

1. 研究開発の背景とねらい

高速炉プラントの開発において安全対策は重要な課題の一つである。高速炉の運転中に燃料が破損した場合にFPガスによる被ばく及び冷却系汚染の拡大を防ぐため、破損燃料集合体の位置を正確かつ迅速に同定する破損燃料位置検出(FFDL)システムの確立が必要不可欠である。高速増殖原型炉「もんじゅ」では、クリプトン(Kr)及びキセノン(Xe)の同位体比を用いたタグging法が採用されている。タグガス Kr, Xe を同位体比 $^{78}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$, $^{82}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$, $^{126}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ の組み合わせが燃料集合体間で異なるよう燃料ピン内に封入し、破損燃料からアルゴン(Ar)カバーガスに放出されたタグガスの同位体比を測定することで、集合体約200体から破損燃料集合体を1体に同定する。Arカバーガス中に低濃度(pptレベル)含まれるKr, Xeの同位体比をレーザー共鳴イオン化質量分析法(RIMS)で分析することで、集合体同定までの時間短縮が期待されている。

RIMSを用いたKr, Xe同位体比分析では、波長217nm又は256nmのパルスレーザーでKr又はXeのみを選択的に共鳴イオン化することでS/N比を向上させ、飛行時間型質量分析計(TOF-MS)により同位体比を測定する。「もんじゅ」で設計されている封入同位体比をもとに、RIMSによるKr, Xe同位体比の分析誤差を数%以下に抑えることを目標とする。本研究では、Kr, Xeの共鳴イオン化効率向上を目的としてYAGレーザーの有効利用、及び共鳴波長であるレーザー光の往復利用に着目したレーザー光学系を開発する。

2. 研究開発成果

本研究では、タグging法FFDLへの適用にあたり数%以下の同位体比分析誤差を満たすRIMS分析装置を構築することを目的として、YAGレーザーの有効利用及びレーザー光の往復利用に着目したレーザー光学系を開発し、タグging法FFDLシステムへの適用性を評価した[1]。

(1) YAGレーザーの有効利用

Kr分析では波長217nmの紫外光が必要であり、波長355nm Nd:YAGレーザーの一部を励起光として光パラメトリック発振(OPO)により波長556nmのレーザー光を生成させ、光パラメトリック増幅(OPA)後、励起光の残りとの和周波発生(SFG)により光子エネルギーが足された波長217nmの紫外光を生成している。SFG過程の波長変換効率は入射ビーム品質に大きく影響されるため、励起光にOPA透過光でなく、図1のとおり上流側でビームスプリッター(X)により分離したビーム品質の良い励起光を利用した光学系に改良した。また、生成した紫外光を他波長のレーザー光から分離する過程で、紫外光透過率の低いプリズムの代わりにダイクロイックミラー(MA)を使用することで最終的に紫外光出力は約15mJ/pulseと5倍程度に改善した。

Xe分析では、OPO出力波長512nmの第2高調波(SHG)による波長256nmの紫外光を使用する。紫外光分離にダイクロイックミラーを使用し、紫外光出力約12mJ/pulseを得た。紫外光出力の増加により、共鳴イオン化効率をKrで約12倍、Xeで約1.5倍に改善した。

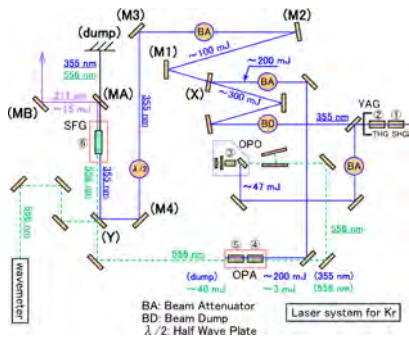


図1 Kr分析用の光学系

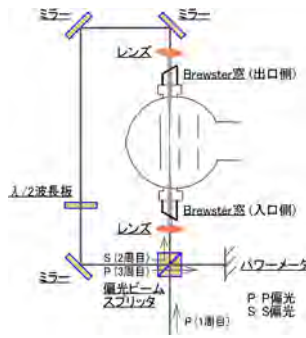


図2 紫外光の2周利用に着目した光学系

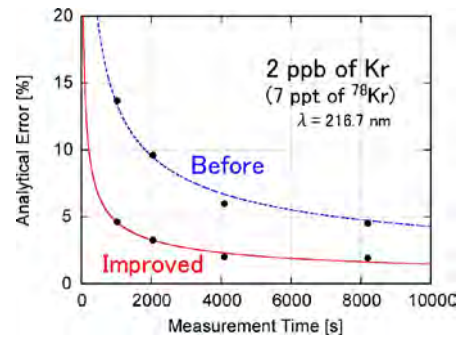


図3 光学系の改良前後における⁷⁸Kr/⁸⁰Kr分析誤差の比較

(2) レーザー光の往復利用

紫外光を質量分析計に導入する過程で、図2のとおり質量分析計を透過した紫外光をミラーで反射し、 $\lambda/2$ 波長板及び偏光ビームスプリッタを用いて再度導入した光学系を構成した。また、分析対象ガスの主成分であるArの光電子イオン化事象を抑制するため、紫外光導入窓をBrewster窓に改良した。紫外光の2周利用により共鳴イオン化効率をKr, Xeともに約1.4倍に改善した。Kr分析では長時間の使用でキューブ型偏光ビームスプリッタに損傷が観測されたため、厚さの薄いプレート型を使用することで紫外光透過による損傷を抑制できると考えられる。

(3) FFDLシステムへの適用性評価

タギング法FFDLでは、Kr, Xe同位体比の測定値から破損燃料集合体を正しく同定する確率、すなわち信頼度を評価することが重要である。「もんじゅ」の設計を想定して燃焼方程式を数値的に解くことで、3種類の同位体比⁷⁸Kr/⁸⁰Kr, ⁸²Kr/⁸⁰Kr, ¹²⁶Xe/¹²⁹Xeを用いた破損燃料集合体の識別における信頼度を評価した。各同位体比に対して 3σ レベルの信頼度が得られた場合、最終的に破損燃料集合体を約99%の確率で1体に正しく同定できる計算になる。これをもとに、⁷⁸Kr, ¹²⁶Xeの最小濃度7 ppt、及び測定時間の短縮を考慮してRIMSの要求性能を以下のとおり設定した。

RIMSの要求性能: Ar中に濃度7 ppt含まれる核種⁷⁸Kr, ¹²⁶Xeを含む同位体比⁷⁸Kr/⁸⁰Kr, ¹²⁶Xe/¹²⁹Xeを各1時間測定する条件で、統計誤差(1σ)3%以下及び系統誤差1%以下

一定濃度のKr, Xeを含むAr標準ガスを用いて同位体比⁷⁸Kr/⁸⁰Kr及び¹²⁶Xe/¹²⁹Xeを測定し、光学系の改良前後で分析誤差を比較した。図3に⁷⁸Kr/⁸⁰Krの結果を示す。Kr分析では同位体シフト由来の系統誤差を補正し、統計誤差3%を満たす測定時間を約40分、紫外光の2周利用により約30分とおおよそ1桁短縮可能な結果を得た。Xe分析においても測定時間は同程度と評価した。

3. 今後の展望

タギング法FFDLシステムではKr, Xe同位体比を短時間で精度良く測定することが重要であり、本研究によりRIMSの有効性を実証した。今後は、実機に適用する上で紫外光出力・波長の安定化及び操作性向上を念頭に置いて光学系を改良し、高速炉の安全性向上に貢献していく。

4. 参考文献

[1] Yoshihiro Iwata et al., AIP Conference Proceedings **1412** (2011) 295-302.