

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

原子力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。高速炉で燃料が破損した場合、破損位置を正確かつ迅速に同定してFPガスによる被ばく及び冷却系汚染の拡がりを防ぐ必要がある。高速増殖原型炉「もんじゅ」で採用しているタギング法破損燃料位置検出(FFDL)システムでは、予め燃料集合体毎に異なる同位体比を持つクリプトン(Kr)及びキセノン(Xe)をタグガスとして燃料ピン内に封入しておき、燃料破損時にアルゴン(Ar)カバーガス中のKr, Xe 同位体比を測定して破損燃料集合体を同定する。濃度 ppt (10^{-12}) レベルの Kr, Xe を分析するため、深冷吸着による濃縮・ヘリウム(He)置換・二重収束型質量分析計による測定と複雑なシステム構成であり、同定に10-20時間程度要する難点がある。そこで、S/N比の高い同位体比分析手法として波長217 nm又は256 nmのパルスレーザーでKr又はXeを選択的に共鳴イオン化するレーザー共鳴イオン化質量分析法(RIMS)が提案された。

タギング法FFDLの有効性を議論する上で、同位体比分析に係る誤差要因として(a) タグガスの製造誤差、(b) 高速炉の運転中におけるタグガス核種の燃焼及びFP生成による組成変化、(c) Arカバーガス中に元々含まれる天然組成のKr, Xe濃度の変動、及び(d) RIMSによる同位体比の分析誤差の4点を考慮して、燃料集合体間の封入同位体比の違いを識別する必要がある。燃料集合体198体を有する「もんじゅ」の設計では $^{78}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$ 及び $^{126}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ の封入比率として25%の違いを持たせており、RIMSの分析誤差は数%以下が望まれる。これまでの開発実績[1]と比較して共鳴イオン化効率をKrで2桁、Xeで1桁改善する必要があり、本研究では光パラメトリック発振(OPO)パルスレーザーシステムのエネルギー源であるYAGレーザーの有効利用、及びKr又はXeの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、タギング法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、Kr, Xe共鳴イオン化効率の改善度合いを評価した。

(1) YAGレーザーの有効利用

Kr分析では波長217 nmと特に短波長のレーザー光が必要であり、図1のとおり波長355 nmのYAGレーザー光をエネルギー源として波長557 nmの光パラメトリック発振(OPO)レーザー光を生成し、光パラメトリック増幅(OPA)させた後、YAGレーザー光との和周波発生(SFG)により光子エネルギーの保存則に従って波長217 nmの紫外光を生成している。図1上部に示した従来の光学系ではOPA結晶を透過したYAGレーザー光のパターンが均一でなくSFG結晶の波長変換効率が低いと考えられるため、図1下部のとおり上流側でビームスプリッターを用いてパターンの均一なYAGレーザー光の一部を分割し、直接SFG結晶に導入する構成とした。さらに紫外光を質量分析計に

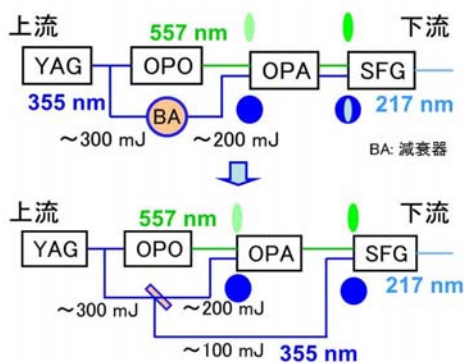


図1 SFG過程の光学系改良

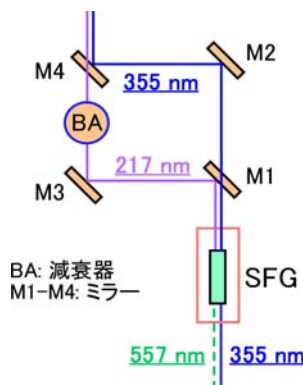


図2 Krイオン化にYAGレーザー光を利用した光学系

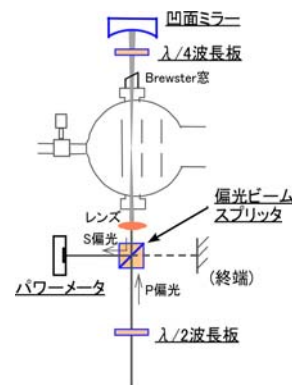


図3 紫外レーザー光の往復利用

導入する過程でプリズムからミラーのみの構成に改良した結果、波長 217 nm の紫外光出力を約 5 倍の 10-15 mJ/pulse 程度と Xe 分析で用いる波長 256 nm の紫外光出力と同程度まで改善し、Kr の共鳴イオン化効率が 1 桁改善した。次に、Kr, Xe の共鳴イオン化において、励起状態からのイオン化が共鳴反応では無い点に着目し、図2のとおり共鳴イオン化にYAGレーザー光(波長 355 nm)を合わせて利用した光学系を構成した。Xe 分析においても同様に光学系を構成した。Kr, Xe 各々に対して紫外光出力を変化させて共鳴イオン化効率の改善度合いを評価し、Kr 分析では 0.2-1 mJ/pulse の範囲で約 3-1.2 倍、Xe 分析では 0.2-3 mJ/pulse の範囲で約 5-1.2 倍と得られた。紫外光出力の増加とともに改善度合いは低下したが、レーザーシステムの調子が悪く想定通りの紫外光出力が得られなかった場合に共鳴イオン化効率の低下を抑制する点で役立つと考えられる。

(2) レーザー光の往復利用

真空中に導入する紫外光のうち Kr, Xe の共鳴イオン化に使用されず捨てられた部分に着目し、図3のとおり出口側に凹面ミラーを配置して紫外光を反射させ、共鳴イオン化に再利用した光学系を構成した。反射光がOPOレーザーシステムに戻りダメージを与えることを防ぐため、偏光ビームスプリッター及びλ/4波長板を用いて、入射P偏光は真空中に導入され、反射S偏光を偏光ビームスプリッターで反射させてパワーメータで終端させる設計とした。Kr, Xe 分析ともに往復利用で共鳴イオン化効率が約 1.5 倍に改善した一方で、反射光によりバックグラウンド Ar イオンの信号量が大幅に増加したことから、入口・出口 2 箇所レーザー導入窓として減反射コーティングを施した Brewster 窓への改良を検討している。

3. 今後の展望

今後は、上記の光学系改良をベースに光学部品の透過による紫外光出力の低下を抑えたコンパクトな光学系を構成し、目標とする共鳴イオン化効率の改善を目指す。また、背景で述べた誤差要因の中で高速炉の設計に依存する(a)-(c)について「もんじゅ」を想定し、集合体識別の信頼度と RIMS 分析誤差の関係を数値計算から予測することで、FFDL システムへの適用性を評価する。

4. 参考文献

[1] Yoshihiro Iwata et al., Int. J. Mass Spectrom. 296 (2010) 15-20.