730. NSRR のパルス中性子照射による UO₂ ペレットからの Xe-137 と I-137 の放出

石渡名澄*, 永井 斉*

(1981年 4月6日 受理)

(1981年 7月2日 再受理)

Release of Xenon-137 and Iodine-137 from UO₂ Pellet by Pulse Neutron Irradiation at NSRR

By Nasumi ISHIWATARI and Hitoshi NAGAI

A radiochemical procedure was established to estimate the amount of volatile fission products nuclides released from UO₂ pellet by the pulse neutron irradiation at the NSRR.

The ¹³⁷Cs amounts in the fuel rods after irradiation at the NSRR were measured to clarify release behavior of fission products (¹³⁷Xe and ¹³⁷I) from oxide fuel under the reactivity initiated accident condition. The amounts of ¹³⁷Xe and ¹³⁷I released from the UO₂ pellet were estimated from the measurement of ¹³⁷Cs. All UO₂ pellets before irradiation at the NSRR were fresh.

The nuclides of ¹³⁷Xe and ¹³⁷I generated in UO₂ pellet of fuel rod by irradiation at the NSRR were released from the pellet in relation with the vaporization phenomenon after melting of UO₂ pellet. At the deposition energy higher than 340~350 cal./g UO₂, about 60% of ¹³⁷Xe and ¹³⁷I were released from the pellet of fuel rod, at maximum. At the deposition energy lower than 340~350 cal./g UO₂, ¹³⁷Xe and ¹³⁷I in the UO₂ pellet of fuel rod were scarcely released out.

KEYWORDS: fission reaction, fission products, xenon 137, iodine 137, cesium 137, reactivity, pulse neutrons, energy deposition, light water reactors, uranium dioxide, leaks, fuel pellets, fuel rods, NSRR reactor, irradiation

I. は し が き

発電用軽水型原子炉においては、原子炉の実効増倍率または反応度を変化させるための機能の大半を制御棒に負担させている。それゆえに、一つの可能性として原子炉制御棒が異常な作動状態に至ったために炉心に急激な反応度投入が発生した事態を想定し、反応度事故の安全性を確かめる必要が生じた。特に急激な反応度投入が発生したときは、短時間内に燃料内に大量の熱が発生することになるので、原子炉安全性の面から反応度事故条件下における燃料体挙動については強い関心が払われていた⁽¹⁾。

日本原子力研究所の安全性試験研究炉(The Nuclear Safety Research Reactor, NSRR)においては、反応度事故条件下における燃料体挙動を究明するため、燃料

の照射試験時に燃料照射用カプセル(冷却水を収容して密封することができる)を使用する。そしてパルス状中性子を照射したときに燃料棒被覆管が損傷または破壊した場合においては、燃料から放出された核分裂生成物(FP)がカプセル内冷却水中に残存している。

反応度投入により燃料中に FP が生成して熱が発生するが、上述のような試料系内の FP について適当な核種を選定し、系内におけるこれら核種の分布を測定するならば、主に発熱後の温度上昇に伴って移行するであろう FP について有用なデータを得ることができるようにも思われた。特に原子量 137 の FP 系列については、¹³⁷Cs の親核種である ¹³⁷Xe およびその親核種である ¹³⁷I が、ともに半減期は ¹³⁷Cs に比べて小さく、直接収率は大きい。一方、¹³⁷Cs の直接収率は小さい

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

が、その半減期は大きく、 γ 線スペクトル($^{137}\text{Cs} \rightarrow ^{137\text{m}}\text{Ba}$, 0.6616 MeV)⁽²⁾の測定も比較的容易であり、測定対象核種として ^{137}Cs を選定する手法が有利であることが示唆された。BeyerとHannは、 UO_2 ペレットから放出されたFP希ガスに関する報告文献を選定して検討を加え、 UO_2 ペレット燃料から放出される核分裂ガス量を予測するためのモデルを提出した⁽³⁾。彼らのモデルの適用範囲は、ほぼ定常燃焼状態下において、燃料体積の20%以上が熔融することがない燃料温度、理論密度の91.3~98.0%の燃料密度、そして400~18,300 MWd/MTMの燃焼度に限定されている。その後、LWR燃料の燃焼度範囲において核分裂ガス放出の高燃焼度($\geq 20,000$ MWd/MTM)依存性が認められるようになったため、高燃焼度における核分裂ガス放出を対象にしない既存モデルを補正する方法が提案された⁽⁴⁾。筆者の経験的推察によれば、微燃焼度(300~900 MWd/MTM)の $\text{UO}_2(1.5\%^{235}\text{U})$ ペレット-金属製被覆管型燃料棒がほぼ一定の燃焼条件下にあるとき、線出力密度約400 W/cm付近において燃料棒中の UO_2 ペレットからペレット外に放出されるFPヨウ素は、FP希ガスとほぼ同様な放出割合を示すと考えてよい⁽⁵⁾。筆者が知る限りにおいて、未照射の $\text{UO}_2(5\sim 20\%^{235}\text{U})$ ペレット-金属製被覆管型燃料棒がパルス状中性子照射を受けたときの UO_2 ペレットから放出されたFPに関する文献は見当らなかった。最近、OsetekらがPBF(Power Burst Facility)におけるPCM(Power Cooling Mismatch)およびRIA(Reactivity Initiated Accident)の過渡条件下の破損LWR燃料棒からのFP放出について報告した⁽⁶⁾。彼らの実験はこの報告の実験と比べて、主に照射条件および測定対象核種に関して異なっているので、FP放出の実験データを直接に比較することは困難である。

軽水炉燃料用の UO_2 ペレットにパルス状中性子を照射することにより、短時間内にはば集中的に核分裂反応を発生させることができるが、ほぼ同時に大量の熱が発生する(核分裂生成核および中性子などの運動エネルギーが熱エネルギーに変換する)。ペレット内においては発熱量に相応した温度上昇を生じるが、同時に伝熱現象により、系内各部分に相応の熱履歴を持ち込みながら熱はペレット外に移行する。上述のような過程において、ペレットからペレット外に ^{137}Xe と ^{137}I が移行する有様を明らかにするため、NSRRにおいて照射された各種燃料系の関連試料について、試料中の ^{137}Cs の測定実験を行なった。測定実験の結果を基に、NSRRの照射条件において、 $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の放出

割合と燃料発熱量との間に成立する関係について考察と検討を試みた。

II. 実験(I)

1. NSRRの概要

NSRRはミリ秒(ms)オーダーの短時間内に相対的に多量の熱中性子を照射し得るように設計されている。NSRRの特性試験の結果によれば、投入反応度が最も大きいときのNSRRピーク出力と積分出力は、それぞれ21,100 MW および117 MW・sであった⁽⁷⁾。NSRRにおいては、水プール(縦3.6m, 横4.5m, 深さ9m)の底に、肉厚管を輪切りにしたような類の管状の原子炉炉心が固定されている。この炉心は円筒状燃料(20%濃縮U-水素化ジルコニウム)-SUS 304被覆管型の燃料棒集合体から構成される。直立した管状炉心の中心部に、垂直装填管またはオフセット装填管を經由して被照射試験体が装荷されるが、試験対象の燃料棒はカプセルに収納して装荷された。反応度投入用の制御棒を操作して、炉心にパルス状出力を発生させる仕組みになっている。

2. 試験燃料照射用カプセル

各種の形状の燃料体を照射試験するためのカプセルであり、ステンレス鋼材を用いて製作された(Fig. 1)⁽⁷⁾。カプセル内部には、試験用燃料体とともに必要に応じて各種検出器(圧力、温度、変位、水位など)が装着され、常温・常圧で冷却水が密封された。

3. 照射試験用標準型燃料棒

NSRR照射試験用の標準の形状の燃料棒*(標準型燃料棒とする)の概要と仕様をそれぞれFig. 2とTable 1に示す⁽⁷⁾。 UO_2 ペレットのパラメータとしては、 ^{235}U 濃縮度(5, 10, 20%)と直径(9.29, 9.09 mm)が採用され、被覆管材としてジルカロイ-4合金が用いられている。なお、 UO_2 ペレットはすべて中性子照射歴がないものを使用した。

4. 測定用試料の採取と処理

NSRRにおいて照射済みの試験燃料(試料No. 1~6)および燃料を照射試験したカプセル冷却水(試料No. 7~26)から、測定用の試料を採取した(照射終了後少なくとも2週間経過してから採取)。

No. 1~3試料はすべての UO_2 ペレットが破碎していた。ピーカーに UO_2 ペレット碎片を移して約500 mlの蒸留水で1回洗浄したのち、200 mlのエタノールで

* 標準型燃料棒のほかに、JPDR-II型燃料棒の試料(Table 2, Fuel No. 4)も含まれているが、その仕様も併せて表示した(Table 1)。

① Conax seal, ② Top cover, ③ Purge valve, ④ Closure flange, ⑤ Level sensor, ⑥ Cladding and fuel displacement sensor, ⑦ Test fuel, ⑧ Capsule body, ⑨ Fuel pressure sensor, ⑩ Capsule pressure sensor, ⑪ Grip flange

Fig. 1 Standard water capsule

Table 1 Fuel rod design summary

	Standard type	JPDR-II type
UO ₂ pellet		
Diameter (mm)	9.29 or 9.09	10.66
Length (mm)	10	15
Density (% T.D.†)	95	95
Enrichment (%)	5, 10 or 20	2.6
Shape	Chamfered	Flat
Cladding		
Material	Zircaloy-4	Zircaloy-2
Wall thickness (mm)	0.62	0.70
Pin		
Diameter (mm)	10.72	12.23
Pellet-cladding gap (mm)	0.095	0.085
Element		
Overall length (mm)	265	265
Fueled length (mm)	135	126
Weight of fuel pellets (g)	95.5	117
Number of pellets	14~15	8
Plenum gas (atm)	1(He)	1(He)

† Theoretical density

洗浄し、さらに 200 ml のアセトンで洗浄したのち 1 夜放置した。洗浄済みの UO₂ ペレット碎片はデシケータ (乾燥剤, シリカゲル) 中に入れて 1 昼夜放置した。No. 1 と 2 の試料の UO₂ ペレット碎片は秤量してから、おのおの濃硝酸約 500 ml を加えて溶解した。No. 1 試料は加熱しなくても約 3 h はどで完全に溶解した。しかし No. 2 試料は延べ約 20 h 加熱したが、全部を溶解することができなかった。不溶残分の UO₂ ペレット碎片は、濃硝酸 100 ml を用いて洗浄する操作を 2 回繰り返したのち水約 50 ml を加えて洗浄した。洗浄に用いた後の硝酸と水は試料溶液に併合した。洗浄済みの UO₂ ペレット碎片は、乾いた汚紙上に置いたまま 1 夜放置

① Top end fitting, ② Spring, ③ Spring adaptor, ④ Magnetic iron core, ⑤ Disk, ⑥ Fuel pellets, ⑦ Cladding, ⑧ Disk, ⑨ Spacer, ⑩ Bottom end fitting

Fig. 2 Standard type test fuel element

したのちデシケータ(乾燥剤, シリカゲル)中に入れて1昼夜放置した。それから秤量して, 溶解しなかった UO_2 ペレットの量を求めた。No. 3 試料については, UO_2 ペレット碎片全体の中から碎片の一部分を任意に取り出し, No. 1 と 2 の試料の溶解前洗浄の操作と同様に操作したのち碎片試料を秤量した。濃硝酸約 70 ml を加えて加熱溶解し, 不溶残分の UO_2 ペレット碎片は, 濃硝酸約 5 ml を用いて洗浄する操作を2回繰り返したのち水約 10 ml を用いて洗浄した。洗浄に用いた後の硝酸と水は試料溶液に併合した。以下, No. 2 試料と同様な処理操作を施して試料溶液を調製した。No. 4~6 の各試料の UO_2 ペレットはほぼ原形を保持していたが, 被覆管内から取り出す際に碎片化した。各燃料試料の UO_2 ペレット碎片はそれぞれ秤量したのち濃硝酸に溶解した。上述のような処理操作を施すことにより, **Table 2** に示すような試料溶液を調製して ^{137}Cs の測定に供用した。

Table 2 Taken amount of UO_2 pellet

Fuel No.	Total amount (g)	Taken amount (g)	UO_2 solution (ml)
1†	84.8887	84.8887	1,000
2	85.8486	65.1207	1,000
3	94.7	0.2973	100
4††	116.6210	116.6210	1,000
5	93.2685 ₅	93.2685 ₅	1,000
6	93.5063 ₅	93.5063 ₅	1,000

† Water was contained in the fuel rod.

†† JPDR-II type

No. 7~26 の燃料試料については, 試験燃料照射用カプセルを解体したときに, 吸引ポンプを用いてカプセルからポリエチレン製容器にカプセル内冷却水に移した。それからメスシリンダーを用いて一定量(500, 1,000または1,500 ml)のカプセル内冷却水を採取し, ミリポアフィルタ HA(最多数分布の穴径 $0.45 \mu\text{m}$)を用いて減圧ろ過した。 ^{137}Cs の分離・測定用試料として, ろ過処理済みのカプセル内冷却水を供用した。

5. ^{137}Cs の分離・測定

(1) 使用機器

- (1) 日立 400 チャンネル γ 線波高分析器, RAH-403, ORTEC NaI(3" ϕ $\times$ 3") ウェル型検出器, 東亜電波 HM-20B ガラス電極 pH 計。
- (2) ORTEC 4096 チャンネル γ 線波高分析器, ORTEC Ge 半導体検出器 8001-1521 型(縦型, 同軸型 $48.6 \phi \times 56.2 \text{ mm L}$, 有感情積 91.7 cm^3)。

(2) 試薬

Cs 担体溶液(Cs 10 mg/ml, CsCl)。Ce(NO_3)₄ 溶液(Ce 1 mg/ml), FeCl_3 溶液(Fe 1 mg/ml), $\text{Zr}(\text{SO}_4)_2$ 溶液(Zr 1 mg/ml), 塩化白金酸 5% 溶液, (1+1)塩酸, NaOH(1N), HCl(1N)。

(3) ^{137}Cs 比較線源の調製

ビーカーにCs 担体溶液 2.0 ml および既知量の ^{137}Cs を含む溶液約 20 ml を移し取り, 塩化白金酸溶液 2 ml を加えた。NaOH 溶液を用いて溶液の pH を約 8 に調節した。溶液を十分にかき混ぜたのち約 30 min 間放置した。沈殿物は秤量済みの沓紙(Whatman No. 540 相当)を用いて沓別したのち水 10 ml, 次にエタノール 10 ml を用いて洗浄した。赤外線ランプを用いて沈殿物を沓紙とともに乾燥したのち秤量し, その化学収率を決定した。粘着テープを用いて沈殿物を密封した。 $6.49 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ の線源を調製して使用した。

(4) 操作 I (No. 1~6 試料)

ホールピペットを用いて, 試料溶液 1.0 または 2.0 ml 分量をビーカーに移した。Cs 担体溶液 2.0 ml を加えてから加熱して水分の大部分を蒸発したのち, 水約 20 ml と FeCl_3 溶液, $\text{Zr}(\text{SO}_4)_2$ 溶液および Ce(NO_3)₄ 溶液をそれぞれ 1 ml 加えた。以下, Fe, Zr および Ce の沈殿物の生成と沓過の操作を繰り返した。沓液に塩化白金酸 2 ml を加えて十分にかき混ぜたのち約 30 min 間放置した。以下, (3) と同様に操作して沈殿物を密封したのち密封試料の γ 線スペクトルを測定した。同じ条件において ^{137}Cs 比較線源の γ 線スペクトルを測定し, 各 γ 線スペクトルの 0.662 MeV の net ピーク面積を比較する方法により, 測定試料の ^{137}Cs 量(μCi)を求めた。

(5) 操作 II (No. 7~26 試料)

第II-4 節に記したように処理した試料水を用いて, すでに報告した方法に準じて操作した⁽⁶⁾。

III. 実 験 (II)

1. 燃料試料の製作

Table 3 と 4 に示すように, 照射試験燃料の平均発熱量と, $^{137}\text{Xe} + ^{137}\text{I}$ の放出割合 R との関係は, $340 \sim 350 \text{ cal./g } \text{UO}_2$ を境界として異なった傾向を示した。上述のような傾向を実験的に確かめるため, UO_2 ペレットの相応部分が融解(そして気化)しても破損しないと考えられた被覆管を用いて, 特別仕様の燃料棒(特製燃料とする)を製作した(Fig. 3)。特製燃料に収納した UO_2 ペレットの重量は 6.93 g であった。

2. 測定試料の採取と処理

約 $400 \text{ cal./g } \text{UO}_2$ 程度の発熱量を付与することを目

① Plug (SUS 304), ② Clad (SUS 304), ③ Plug (SUS 304), ④ Spring (Inconel), ⑤ Crucible (graphite), ⑥ Stopper (graphite), ⑦ Spring (Inconel), ⑧ Crucible (tungsten), ⑨ Stopper (tungsten), ⑩ Spring (Inconel), ⑪ Pellet (20% ^{235}U , Enr., UO_2)

Fig. 3 Simplified specification and dimension of specially designed fuel rod for NSRR irradiation (plenum was filled with He)

標にして、NSRRにおいて特製燃料の中性子照射を行なった。照射後に被覆管を切断して特製燃料内部から収容物を取り出した。Table 4に示すように、収容物を分類して測定用試料に供用した。 UO_2 ペレット碎片は、大碎片(径 最大約5~10mm)、中碎片(径 最大1~3 mm)および粉末の3群に分類し、各群別に濃硝酸10 mlに溶解した。溶解後それぞれ水を加えて正しく100 mlに薄めた。1 l ビーカーに被覆管、グラファイト残材、タングステン残材およびスプリングを移し取り、1 N 塩酸500 mlを加えて90~100°Cに加熱して、被覆管内表面および各種材料表面に付着していると思われた ^{137}Cs を溶出した。約30 min間加熱したのち放冷した。塩酸溶液およびビーカー洗液を1 l メスフラスコに移し取り、標線まで水を加えた。

3. ^{137}Cs の分離・測定

(1) 使用機器と試薬

TBP-クロロホルム(3:2)溶液、クロロホルムおよびベンゼン以外は、第II-5(1),(2)項と同じであった。 ^{137}Cs 比較線源は、第II-5(3)項と同様にして $6.41 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ の線源を調製して使用した。

(2) 操作

ホールビペットを用いて、ビーカーに測定用試料の

硝酸溶液10 ml(または測定用試料の塩酸溶液20 ml)を移し取り、Cs担体溶液2.0 mlを加えてから加熱して水分を蒸発させた。以下、既報⁽⁸⁾に準じて操作し、測定用試料中の ^{137}Cs 含有量(μCi)を求めた。

4. ウランの定量

使用機器：日立ダブルビーム分光光度計200-20型、10 mm ガラスセル、東亜電波工業製HM-20B ガラス電極 pH 計。

以下、試薬、検量線の作成と分析操作は既報に準じて行なった⁽⁹⁾。

IV. 結果と討論

Table 3(a), (b)に、 ^{137}Cs の測定結果および $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の放出割合を示す。パルス状中性子照射後の各燃料試料中の ^{137}Cs を測定した結果から、(照射時に残存した ^{137}Xe と ^{137}I から生成した ^{137}Cs 原子数)/(照射時に生成した ^{137}Xe と ^{137}I から生じた ^{137}Cs 原子数)=(照射時に残存した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$)/(照射時に生成した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$)の関係を使用して $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の放出割合を求めた。一方、燃料の照射試験後のカプセル内冷却水中の ^{137}Cs 量の測定結果から、破損燃料から冷却水中に放出された $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ 量を求めてその放出割合を求めた。

Table 3 Amounts of ($^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$) released from fuel rod into capsule coolant at NSRR irradiation

(a) ^{137}Cs in UO_2 pellet			
Fuel No.	Deposition energy (cal./g UO_2)†	^{137}Cs in UO_2 pellet (μCi)††	Fractional release of $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ (%)
1	236	4.2 ₃	~ 0
2	364	2.7 ₄	58
3	485	4.7 ₉	44
4	204	4.3 ₂	(3)
5	254	4.2 ₁	(4)
6	252	4.1 ₀	(7)

(b) ^{137}Cs in capsule coolant			
Fuel No.	Deposition energy (cal./g UO_2)†	^{137}Cs in capsule coolant (μCi)††	Fractional release of $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ (%)
7	205	0.00 ₃	0.1
8	215	0.23 ₂	6.6
9	234	0.03 ₃	0.9
10	388	1.9 ₁	30
11	441	3.1 ₃	44
12	322	0.46 ₄	8.9
13	260	0.27 ₄	6.5
14	270	0.20 ₃	4.7
15	270	0.19 ₃	4.5
16	304	0.15 ₉	3.2
17	266	0.41 ₃	9.6
18	183	0.01 ₄	0.5
19	154	0.13 ₃	5.3
20	158	0.06 ₁	2.4
21	152	0.01 ₃	0.5
22	152	0.23 ₂	9.4
23	151	0.15 ₀	6.1
24	155	0.01 ₃	0.5
25	123	0.06 ₄	3.2
26	505	2.2 ₄	27

† Evaluated value, †† Measured value
 ††† Measurement value (averaged)

パルス状中性子照射後の特製燃料から測定用試料溶液を調製したが、Table 4 に各試料溶液中の ^{137}Cs 量およびウラン量の測定結果を示す。

第 I 章で述べたように原子量 137 の FP 系列を利用する方法により、燃料ペレットおよびカプセル内冷却水の中の ^{137}Cs を測定した結果から、 UO_2 ペレットに生成した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ がペレット外に放出される割合と

Table 4 Determination of U and ^{137}Cs in specially designed fuel rod after NSRR irradiation

State of recovered sample	as UO_2 (g)	^{137}Cs (μCi)
Three pieces of spalls of UO_2 pellet	4.3503	0.19 ₃
Powdered spall of UO_2 pellet	1.3062 ₃	0.058 ₈
Powdered UO_2 pellet	0.5560	0.033 ₇
UO_2 and FP liquated out from crucibles, springs, plugs and clad	0.0027	0.11 ₂
Sub total	6.2152 ₃	0.40 ₀
Lost powdered UO_2 pellet	(0.715)†	(0.043 ₃)†
Corrected total	(6.93)	(0.44 ₃)

† On the assumption that the value (μCi , ^{137}Cs /g UO_2) of lost powdered UO_2 pellet is equal to that of recovered powder of UO_2 pellet.

UO_2 ペレットの発熱量との間に、比較的単純な相関関係を見出すことができた。すなわち、(UO_2 ペレット外に放出された $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の量)/(UO_2 ペレットに生成した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の量)= R と置いたとき、340~350 cal./g UO_2 以下の発熱量において $0 \leq R \leq 0.1$ であり、340~350 cal./g UO_2 以上の発熱量において $0.1 \leq R \leq 0.6$ であった。それぞれの測定対象試料中の ^{137}Cs の測定結果から得られた R の誤差は、Table 5 のように推定した。

Table 3 の試料 No. 2 と 3 の測定結果は、それぞれの UO_2 ペレットの一部分を採取した試料から得られた。部分的な UO_2 ペレットの試料採取により生じる(主に FP の偏析から由来する)誤差は、次に記す理由により Table 5 の誤差評価の中に含まれるものと考えられる。①燃料棒の平均発熱量に対し、発熱量分布の変動幅は $\pm 9\%$ 以内である¹⁰。②発熱量が 340~350 cal./g UO_2 以上の燃料棒においては、発熱後に昇温してから燃料破砕(そして急冷)に至る経過時間が相対的に短いため、昇温によって起る FP の移動は、反跳、ノックアウトおよび UO_2 ペレットの融解に伴う気化により生じる以外は、ほとんど無視し得るものと思われる。

標準型燃料棒にパルス状中性子を照射する方法により、燃料の UO_2 ペレットに 340~350 cal./g UO_2 以上の発熱量を付与したとき、 UO_2 ペレットから相当量の $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の放出が生じた。上述のような FP 放出の現象は、主に UO_2 ペレットの相応部分が融解したことにより気化した過程に相関していると考えられた。それゆえに、特製燃料を製作してパルス状中性子の照射

Table 5 Estimation of accuracy for measured and calculated data for ($^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$) release ratio

Factor	Error(%)
UO ₂ pellet	
^{235}U amount	$\leq \pm 3$
Homogeneity of products density by fission reaction	$\leq \pm 2$
Chemical separation process(dissolution, aliquot, precipitate)	$\leq \pm 7$
γ -ray counting process	$\leq \pm 3$
Deposition energy	$\leq \pm 4$
Treatment of fission yields	$\leq \pm 3$
Capsule coolant	
^{235}U amount	$\leq \pm 3$
Homogeneity of products density by fission reaction	$\leq \pm 2$
Chemical separation process (aliquot, precipitate)	$\leq \pm 4$
Evaluation of total weight of coolant	$\leq \pm 17$
γ -ray counting process	$\leq \pm 3$
Deposition energy	$\leq \pm 4$

The conversion factor, 173 MeV/fission was adopted from JAERI-M 7539. And the effective yields of ^{137}Xe and ^{137}I , 6.23 for pellet sample and 5.67 for capsule coolant were estimated in unit of %.

を行う方法により、被覆管内にUO₂ペレットを密封した状態を保ちながら344 cal./g UO₂の発熱量を付与した。Fig. 3において、UO₂ペレットとタングステンルツボの蓋の間のスプリングは完全に気化して飛散し、UO₂ペレットは破碎して原形をほぼ消失していた。Table 4に示したように、照射後の特製燃料から回収した試料の分析結果は、UO₂ペレット外に放出される $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ の割合(約0.3)が、UO₂ペレットの融解に伴う気化に依存する傾向が強い事実を示唆した。

NSRRにおいて標準型燃料棒に240 cal./g UO₂の発熱量を付与するようにパルス状中性子を照射した例をとりあげ、UO₂ペレット内の温度分布の経時変化を追求する計算を試みた。計算結果によれば、発熱初期にまずUO₂ペレット軸方向の表面近傍が昇温し、それから時間の経過とともに最高温度部分が中心軸に移行する傾向を示した。実際の燃料試料の例においては、340 cal/g UO₂以上の発熱量を付与したとき、および燃料棒内空隙部分にその体積の2.0%の水を封入した燃料棒に236 cal./g UO₂の発熱量を付与したとき、燃料棒自体が破壊されて被覆管表面に接着した温度測定端子

も破損したため、被覆管表面の温度推移を追跡し得なかった(Table 6)。

Table 6 Fuel rod clad temperature at NSRR irradiation

Fuel No.	Energy deposition (cal./g UO ₂)	Clad temperature (°C(max.)) (Measured)	Pellet periphery temperature $^{\dagger 1}$ (°C)
1	236	Clad fractured	2,851(1,840) $^{\dagger 2}$
2	364	Clad fractured	3,360
3	485	Clad fractured	>b.p. (>b.p.) $^{\dagger 2}$
4	204	1,330	2,520 $^{\dagger 4}$
5	254	1,470, 1,330 $^{\dagger 3}$ 1,500, 1,430	2,851
6	252	1,600	2,851

$^{\dagger 1}$ Radius of pellet=4.66 mm, $^{\dagger 2}$ Temperature at fragmentation, $^{\dagger 3}$ Measured at four points on clad, $^{\dagger 4}$ Radius of pellet=5.33 mm (b.p.: boiling point)

V. 結 論

UO₂ペレット-金属製被覆管型燃料棒にパルス状中性子を照射したとき、ペレットからペレット外に移行するFPの割合を明らかにするため、原子量137系列のFPに着目して照射済み燃料系試料中の ^{137}Cs を測定した。

パルス状中性子照射によりUO₂ペレット中に生成した ^{137}Xe と ^{137}I は、ペレットの融解に伴う気化と相関性を示しながらペレット外に放出された。NSRRにおいて、以前に照射を受けていないUO₂ペレットを用いて製作した標準型燃料棒を照射したとき、340~350 cal./g UO₂以上の発熱量を付与することにより、UO₂ペレット中に生成した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ 量と、ペレット外に放出された $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ 量との比は、平均0.3、最大0.6であった。

一方、NSRRにおいて、燃料棒内空隙部分にその体積の97%(Table 4, Fuel No. 20), 80%(Fuel No. 21), 30%(Fuel No. 23), 2.0%(Table 3, Fuel No. 1)量の水を封入した各燃料棒を照射し、それぞれ158, 152, 151, 236 cal./g UO₂の発熱量を付与したとき、各燃料棒はすべて破壊された。NSRR照射により標準型燃料棒のUO₂ペレット中に生成した $^{137}\text{Xe}+^{137}\text{I}$ は、付与した発熱量が340~350 cal./g UO₂より小さいとき、ペレット外にほとんど放出されなかった($\leq 10\%$)。

本報の実験の有用性に関しては、原子力工学試験センター原子炉安全解析所長村主 進氏から、日本原子

力研究所安全工学部長在任時に示唆・督励を頂戴した。NSRR 照射済み燃料試料類の採取に関しては、当研究所安全性試験研究センター安全工学部次長石川迪夫氏および反応度安全研究室長 星 蔦雄氏を初めとする反応度安全研究室、同じく NSRR 管理室のご協力を得ることができた。また、反応度安全研究室の斎藤伸三氏から燃料温度計算データのご提供を受けた。ここに、記して謝意を表します。

— 参考文献 —

- (1) 都甲泰正, 石川迪夫, 斯波正誼(編): "軽水型原子力発電所・想定事故時安全対策資料集", (1977), I.S.U.
- (2) RIDER, B.F., MEEK, M.E.: Compilation of fission product yields, Vallecitos Nuclear Center, NEDO-12154-2(D), (1977).
- (3) BEYER, C.E., HANN, C.R.: Prediction of fission gas

release from UO_2 fuel, BNWL-1875, (1974).

- (4) MEYER, R.O., BEYER, C.E., VOGLEWEDE, J.C.: Fission gas release from fuel at high burn up, *Nucl. Safety*, 19(6), 699 (1978).
- (5) 石渡名澄: 炉内水ループを利用した人工欠陥燃料試料照射によるFP放出実験(その2), *JAERI-M* 7983, (1978).
- (6) OSETEK, D.J., KING, J.J.: Fission product release from LWR fuel failed during PCM and RIA transients, *NUREG/CR-1674*, EGG-2058, (1980).
- (7) NSRR 実験プログレス・レポート 8, *JAERI-M* 8779, (1980).
- (8) 石渡名澄: 塩化白金酸を用いる放射性セシウムの分離法(主としてBWR プラントの破損燃料検出に適用するための検討), *JAERI-M* 5440, (1973).
- (9) 本島健次, 山本忠史, 加藤義春: オキシソ抽出分離—アルセナゾⅢ光度法による微量ウランの定量, *分析化学*, 18 [2], 208 (1969).
- (10) 大西信秋, 丹沢貞光, 丹沢富雄, 他: NSRR 実験における試験燃料の発熱量の評価, *JAERI-M* 7539, (1978).

○原研RI・原子炉研修所○ 研修生募集

○第12回原子力教養講座

目 的 原子力を専門としない一般の方に、新聞等に出てくる原子力分野に関する事柄が理解できる程度の基礎知識を、講義、実験を通して短期間に習得させる。

期 間 2月1日(月)～13日(水)

受講料 35,000円(定員 24名), 締切 12月27日

授業レベル 普通高校程度の一般知識があれば充分理解できるようになっている。したがって難しい数学、物理、化学などは一切含まれていないが、できれば新聞に出てくる程度の用語の意味を知っていると一層理解は容易である。

原子力関連職場で事務的な仕事をしている方、原子力施設のある地方自治体職員、小中学校教員、その他の方で、教養として原子力の知識を身につけようとする方、従来の類似短期講座よりも少し奥深く勉強したい方などに好適である。

申込先 (〒319-11) 茨城県東海村 (Tel. 02928-2-5667)

原研RI・原子炉研修所(原子炉研修部門)

○「日本流体力学会」が発足○

1982年1月1日、「流体力学懇談会」は「日本流体力学会」と改称し、学会としての活動を開始する。和文論文誌を年4回発行し、講演会・シンポジウム等を充実する。

会費は年額5,000円、入会金は1,000円で、流体力学に関心のある大学学部卒業生ならば誰でも入会できる。

連絡先 (〒223) 横浜市港北区日吉4-1-1 慶応大学物理教室内
日本流体力学会事務局 (Tel. 044-63-1111, 内 299)

東北支部(第5回)研究発表会

会 期 12月15日(火) 13:00～17:00

会 場 東北大学選鉱製錬研究所講堂
(仙台市片平2-1-1)

○プログラム○

1. TOF中性子回折スペクトルのプロファイルフィッティング。(東北大・工)○杉崎康昭, 藤野 豊, 山口貞衛
2. イオンビームによるFe-Mo-Cアモルファス合金の不動態被膜の解析。(東北大・工)○金子尚史, 藤野 豊, 山口貞衛, (東北大・金研)平林 真
3. 高溶融点金属の固相純化。(東北大・金研)○吉成 修, 小岩昌宏
4. BWR用燃料チャンネル製造および管理技術の開発。(神戸製鋼)梶谷和郎, ○角間 孜, 安部勝洋, (東北電力)高橋 実
5. オンライン炉心性能計算のバックアップ簡易計算手法。(東北電力)岸 昭正, 津幡 俊, 丁塚輝雄, ○小沢都夫
6. 女川原子力発電所の計算機システムの開発。(東北電力)○角田良平, 佐々木俊三, 梅田建夫
7. 準静的手法による高速炉動特性解析コードQUASAR。(東北大・工)○及川弘秀, 平川直弘
8. 大容量角柱型NE213液体シンチレーション検出器の特性。(東北大・工)内田 博, 斯波宇司, 田村 仁, 中田耕太郎, ○岩崎 信, 相山一典
(特別講演) ウラン濃縮パイロット・プラント
(動燃)村瀬武男

問合せ先(〒980)仙台市荒巻字青葉 (Tel. 0222-22-1800, 内4689)
東北大工学部原子核工学科 長尾重夫(渡辺博茂)