

JAERI-M

7092

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

1977年5月

石 渡 名 澄

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

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

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

石 渡 名 澄

(1977年4月27日受理)

BWRプラントの主蒸気管破断の事故解析に寄与するため、破損燃料よりのFPよう素の追加放出現象の解明を試みた。破損燃料を模擬した人工欠陥燃料試料を製作し、この燃料試料をJMTR・OWL-1(水冷却型インパイルループ)の炉内管において照射し、ループ冷却水中に放出されたFPを測定した。実験のパラメータとして、ループ冷却水の圧力降下および温度降下、そして燃料試料被覆管欠陥穴の直径と位置を選定した。

測定実験の結果から、照射条件とFP放出率の関係、そしてFP放出と欠陥穴より出入りするループ冷却水の関連性に検討を加えた。さらに、燃料試料内部の自由空間部分のFP蓄積量を推定し、実用BWRプラントの燃料と関連づけを試みた。

Release of Fission Products from a Fuel Rod with an Artificial
Hole through Cladding Irradiated in an In-Pile Water Loop

Nasumi ISHIWATARI

Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received April 27, 1977)

Iodine spiking from a defective fuel rod into the primary coolant was measured, concerning main steam pipe breakage of a BWR plant.

The fuel rod with an artificial pin hole was irradiated in the in-pile test section of water loop JMTR-OWL-1. Experimental conditions are depressurization and temperature drop of the primary loop coolant and diameter and position of the pin hole.

The effect of coolant water flow through the pin hole on the fission products release was examined. The extrapolation of the results to BWR is made by way of the amount of fission products in free space of the fuel rod.

目 次

1. はじめに	1
2. O WL - 1 による人工欠陥燃料試料の照射	2
2-1 O WL - 1 の概要	2
2-2 O WL - 1 の運転	2
2-3 人工欠陥燃料試料の概要	3
3. ループ冷却水中のよう素 131 とセシウム 137 の測定	3
3-1 試料水の採取	3
3-2 よう素 131 の測定	3
3-3 セシウム 137 の測定	4
3-4 測定結果	4
4. 実験結果の討論	4
4-1 よう素 131 とセシウム 137 の見かけ平均放出率	4
4-2 よう素 131 とセシウム 137 のループ冷却水内放出量	5
4-3 よう素 131 とセシウム 137 の被覆管内放出率	6
4-4 被覆管内自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 の挙動	7
5. むすび	7
附録 1. 模擬燃料試料よりの放射性ヨウ素の放出	25
附録 2. 水ループ冷却系内における FP の放出挙動 - ^{131}I と ^{137}Cs の測定	26
附録 3. 水ループによる人工欠陥燃料試料の照射実験	27

Contents

1. Introduction	1
2. Irradiation of Fuel Rod with Artificially Made Hole through Clad at In-Pile Water Loop	2
2-1 Description of OWL-1	2
2-2 Operation of OWL-1	2
2-3 Description of Fuel Rod with Artificially Made Hole through Clad	3
3. Measurements of Fission Products in Primary Loop Coolant	3
3-1 Sampling of Coolant Water	3
3-2 Measurement of Radioiodine 131	3
3-3 Measurement of Radiocesium 137	4
3-4 Results of Measurements	4
4. Results and Discussion	4
4-1 Apparent Release Rates of Radioiodine 131 and Radiocesium 137 from Pin-Hole through Clad of Fuel Rod into Coolant Water	4
4-2 Released Amounts of Radioiodine 131 and Radiocesium 137 from Pin-Hole through Clad of Fuel Rod into Coolant Water ..	5
4-3 Presumptive Release Rates of Radioiodine 131 and Radiocesium 137 from Fuel Pellets into Free Space inside Fuel Rod	6
4-4 Behavior of Radioiodine 131 and Radiocesium 137 in Free Space inside Fuel Rod	7
5. Conclusion	7
 Acknowledgement	 9
 References	 9
Appendix 1	25
Appendix 2	26
Appendix 3	27

1. はじめに

軽水型動力炉の原子力プラントにおいて原子炉の炉心に燃料破損が発生した場合、および炉心に破損燃料を装荷した状態で原子炉の運転を行なった場合、原子炉一次冷却材中に核分裂生成物（FP）の放出現象が認められる。特に平常運転時のFP追加放出の現象については、現在までに多くの事例が知られている。^(1~4)

沸騰水型軽水炉BWRの想定事故の一つとして、主蒸気管破断が考えられている。我が国の場合、主蒸気管破断の事故解析においては、主蒸気管隔離弁が閉じるまでの時間は破断口から一次冷却水が流出し、隔離弁が閉じた後は一次冷却水が一定の割合で隔離弁から漏れることを想定している。⁽⁵⁾

上述のような場合、一次冷却水中に既に存在していたFPの他に、一次冷却水圧力の急減にもなると、破損燃料棒から一次冷却水に追加放出されたFPも原子炉系外に放出されることになる。FP追加放出現象を究明するためには、原子炉の炉心内または原子炉内水ループ中に人工欠陥燃料を装荷して照射実験を行ない、冷却材中に存在するFPの量と、冷却材条件の変動により燃料欠陥から追加放出されるFPの量の相関関係を明らかにする必要がある。一次冷却水の諸条件（圧力、温度、流量など）の変動が破損燃料よりのFP追加放出挙動に与える影響について、パラメトリックな実験研究により定量的に把握する必要がある。

この報告書に記した実験を行なうまでに、原子炉内水ループ（JMTR・OWL-1）において、合計3体の人工欠陥燃料試料を照射し、予備的にFP放出実験を行なってきた（Table 1参照）。筆者らの測定結果によれば、表中の実験1において、FP放出実験時の定常的放出率レベルを示すようなよう素131の見かけ平均放出率として約 $6\sim 7\ \mu\text{Ci}/\text{sec}$ を得、実験2では燃焼度約1.4%（推定）附近において、プレナム部分中のよう線131存在量とペレット部分中のよう素131存在量の比として 5×10^{-2} （推定）を得た（附録1, 2参照）。そして実験3^{***}において、①冷却水圧力のみを5~10分間で $10\text{kg}/\text{cm}^2$ 低減させた時、冷却水圧力低下の直前と直後と比較した場合、見かけ平均放出率は、よう素131について1.6倍に、セシウム137について2.6倍に増大し、②冷却水温度のみを約110分間で 75°C 降下させ、約155分間 175°C を持続し、それから約71分間で 75°C 昇温させた時、冷却水温度降下の直前と低温状態時と比較した場合、見かけの平均放出率は、よう素131について1.4倍に、セシウム137について100倍に、それぞれ増大する、ことを明らかにした（附録3）。

+ 軽水型動力炉において、その炉心に破損燃料が存在する場合、平常運転時の外乱付与（原子炉停止、出力変動、原子炉起動など）時に、一時的に多量のFPが原子炉一次冷却材中に放出される現象。

* 原子炉出力32MW、ループ冷却水圧力 $71\text{kg}/\text{cm}^2$ 、ループ冷却水温度 286°C 、Bモード（沸騰水型運転方式）運転。核分裂反応率 $= 14.2\times 10^{13}\text{fis}/\text{sec}$ 、照射時間 $= 1.82\times 10^6\text{sec. (total)}$ 。

、* 原子炉出力50MW、ループ冷却水圧力 $71\text{kg}/\text{cm}^2$ 、ループ冷却水温度 250°C 、Pモード運転（加圧水型運転方式）運転。熱中性子束密度 $= 5\times 10^{13}\text{n}/\text{sec}\cdot\text{cm}^2$ （推定）を燃焼度およびよう素131生成量の計算に使用した。

第1回の実験(70L-7A)[†]においては、燃料試料の照射にともなってループ一次冷却系に放出されるFPの定常的レベル(FP濃度、FP放出率)を確定し、FP放出実験の実施に対するループ性能の限界を検知し、これらのデータ資料を基礎に、以後のFP放出実験に備えた。第2回の実験(69LF-4P)[†]においては、実用炉における外乱付与時のFP放出挙動の模擬を目的とし、燃料試料によるFP放出実験において、FP追加放出現象を模擬し得る程度・範囲を追求した。第3回の実験(72LF-19P)[†]においては、燃料試料によるFP放出実験において、ループ冷却水圧力およびループ冷却水温度の因子がFPの追加放出に与える影響の様相、および冷却水中FP濃度とFP追加放出量の相関性の程度の追究を試みると共に、熱電対による燃料ペレット中心近傍温度の測定の可能性を試験した。この報告の実験においては、先ず第3回の実験と、同一径の欠陥穴の位置を変えた燃料試料(73LF-21A)[†]によりループ冷却水圧力およびループ冷却水温度の低減変動の付与がFP追加放出に及ぼす影響の様相を追究し、次いで、さらに欠陥穴径のみを変えて同様な実験を行なった(75LF-25A)[†]。今回の実験の詳細を以下に記した。

2. OWL-1による人工欠陥燃料試料の照射

2-1 OWL-1の概要

簡単なOWL-1流れ図をFig.1に示す。炉内管照射部分(In-Pile Test Section, 番号①)に燃料試料を装着した。ループ冷却水圧力約71kg/cm²、ループ冷却水温度約250°C、ループ冷却水流量約45kg/minの加圧水型運転条件の下で、人工欠陥燃料試料の照射を行なった。Fig.1において、定格運転時の主冷却水流路順は、In-Pile Test Section①→Separator②→Cooler⑤→Main Pump⑦→In-Pile Test Section①であり、主冷却水の一部はイオン交換樹脂脱塩器系統⑥を2~3kgの流量で通過している。炉内管照射部分を沸騰水型運転条件の下に置いた場合、ループ冷却水圧力約71kg/cm²、ループ冷却水温度約286°C、ループ冷却水流量約25kg/minそして蒸気含有率約8%であり、In-Pile Test Section①→Separator②の部分の冷却水は気・液二相流となり、気水分離器②において蒸気流(Separator②とCondenser③)と液相流(Separator②→Cooler⑤)に分流する。ループ冷却水中のFPを測定するため、冷却水試料は炉内管照射部分の冷却水入口側部から採取した。

2-2 OWL-1の運転

1976年2月17日から3月13日の期間(照射期間Aとする)および同年5月24日から6

* OWL-1(JMTR炉内水ループの名称、Oarai Water Loop No1)原子炉炉心内に試料の照射部を備えている。試料の照射部の有効空間は円筒状であり、その容積は約40mm(内径)×750mm(高さ)である。試料の照射部を貫流する冷却材は蒸気含有率を変えることにより、B mode(沸騰水型運転モード)またはP mode(加圧水型運転モード)の条件を付与することができる(Table 2参照)。

† 試料の名称番号

第1回の実験(70L-7A)[†]においては、燃料試料の照射にともなってループ一次冷却系に放出されるFPの定常的レベル(FP濃度、FP放出率)を確定し、FP放出実験の実施に対するループ性能の限界を検知し、これらのデータ資料を基礎に、以後のFP放出実験に備えた。第2回の実験(69LF-4P)[†]においては、実用炉における外乱付与時のFP放出挙動の模擬を目的とし、燃料試料によるFP放出実験において、FP追加放出現象を模擬し得る程度・範囲を追求した。第3回の実験(72LF-19P)[†]においては、燃料試料によるFP放出実験において、ループ冷却水圧力およびループ冷却水温度の因子がFPの追加放出に与える影響の様相、および冷却水中FP濃度とFP追加放出量の相関性の程度の追究を試みると共に、熱電対による燃料ペレット中心近傍温度の測定の可能性を試験した。この報告の実験においては、先ず第3回の実験と、同一径の欠陥穴の位置を変えた燃料試料(73LF-21A)[†]によりループ冷却水圧力およびループ冷却水温度の低減変動の付与がFP追加放出に及ぼす影響の様相を追究し、次いで、さらに欠陥穴径のみを変えて同様な実験を行なった(75LF-25A)[†]。今回の実験の詳細を以下に記した。

2. OWL-1による人工欠陥燃料試料の照射

2-1 OWL-1の概要

簡単なOWL-1流れ図をFig.1に示す。炉内管照射部分(In-Pile Test Section, 番号①)に燃料試料を装着した。ループ冷却水圧力約71kg/cm²、ループ冷却水温度約250°C、ループ冷却水流量約45kg/minの加圧水型運転条件の下で、人工欠陥燃料試料の照射を行なった。Fig.1において、定格運転時の主冷却水流路順は、In-Pile Test Section①→Separator②→Cooler⑤→Main Pump⑦→In-Pile Test Section①であり、主冷却水の一部はイオン交換樹脂脱塩器系統⑥を2~3kgの流量で通過している。炉内管照射部分を沸騰水型運転条件の下に置いた場合、ループ冷却水圧力約71kg/cm²、ループ冷却水温度約286°C、ループ冷却水流量約25kg/minそして蒸気含有率約8%であり、In-Pile Test Section①→Separator②の部分の冷却水は気・液二相流となり、気水分離器②において蒸気流(Separator②とCondenser③)と液相流(Separator②→Cooler⑤)に分流する。ループ冷却水中のFPを測定するため、冷却水試料は炉内管照射部分の冷却水入口側部から採取した。

2-2 OWL-1の運転

1976年2月17日から3月13日の期間(照射期間Aとする)および同年5月24日から6

* OWL-1(JMTR炉内水ループの名称、Oarai Water Loop No.1)原子炉炉心内に試料の照射部を備えている。試料の照射部の有効空間は円筒状であり、その容積は約40mm(内径)×750mm(高さ)である。試料の照射部を貫流する冷却材は蒸気含有率を変えることにより、B mode(沸騰水型運転モード)またはP mode(加圧水型運転モード)の条件を付与することができる(Table 2参照)。

† 試料の名称番号

月18日の期間（照射期間Bとする）に、仕様の異なる人工欠陥燃料試料を1体ずつ照射し、冷却中に放出されたFP（よう素131，セシウム137）の濃度（ $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ）を測定した。照射期間中、JMTR燃料交換のため、それぞれ1回ずつ照射を中断した。照射期間AおよびBにおける炉内管照射部分のループ冷却水温度、同圧力および同 γ 線レベル（count/秒）そしてJMTR出力の状態をFig. 2とFig. 3に示す。照射期間Aにおいては、ループ冷却水温度変動付与実験を合計7回、そしてループ冷却水圧力変動付与実験を1回それぞれ行なった。照射期間Bにおいては、ループ冷却水温度変動付与実験1回、ループ冷却水圧力変動付与実験1回および運転モード変更（加圧水型冷却水条件→沸騰水型冷却水条件）実験1回を行なった。

2-3 人工欠陥燃料試料の概要

照射期間AおよびBにおいて照射に供用した人工欠陥燃料試料（以下、燃料試料とする）の仕様の要点をFig. 4およびFig. 5に示す。二酸化ウランペレット（ウラン濃縮度1.5%，直径13.4 ϕ ，高さ18.0mm）2個をSUS 316製被覆管（外径15.0 ϕ ，厚み0.6mm，端栓を含む全長135mm）に封入し、ペレット対面部分の被覆管中央に欠陥穴（期間A；穴径約100 μm ，期間B；穴径約50 μm ）を1個付けた。照射実験におけるFP放出源として上記の燃料試料を使用した。

3. ループ冷却水中のよう素131とセシウム137の測定

照射期間中、原子炉出力上昇時、ループ冷却水圧力の変動付与時、ループ冷却水温度の変動付与時、およびループ冷却水降温に引続く原子炉停止時を主な対象に、ループ冷却水試料（以下試料とする）を採取し、試料中のよう素131とセシウム137を測定した。

3-1 試料の採取

ループ炉内管照射部を貫流する冷却水の入口側から、ポリエチレン製容器（栓付，250ml，500mlまたは1 ℓ ）に試料を採取した。

3-2 よう素131の測定

試料20mlをガラス製容器（栓付バイアルびん，容量約20ml）に移し、ゲルマニウム半導体検出器（ORTEC製，同軸型60cc）-1024チャンネル波高分析器（CANBERRA製，8100型）により、試料の γ 線スペクトルを計測し、0.364MeVのピーク面積をよう素131標準線源と比較してよう素131の濃度（ $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ）を測定した*。なお、照射運転開始以前および最初の原子炉起動時に採取した試料の場合、よう素担体（よう化カリウム8.964mg，よう素酸カリウム0.856mg）を加えて四塩化炭素相に分離する操作を採用した。

* 測定用試料容器と半導体検出器の間の距離は、試料ホルダーの位置を調節して固定する事ができる。試料の放射能強度により、0~20cmの間で、試料容器-検出器間の距離を変えた。

月18日の期間（照射期間Bとする）に、仕様の異なる人工欠陥燃料試料を1体ずつ照射し、冷却材中に放出されたFP（よう素131、セシウム137）の濃度（ $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ）を測定した。照射期間中、JMTR燃料交換のため、それぞれ1回ずつ照射を中断した。照射期間AおよびBにおける炉内管照射部分のループ冷却水温度、同圧力および同 γ 線レベル（count/秒）そしてJMTR出力の状態をFig. 2とFig. 3に示す。照射期間Aにおいては、ループ冷却水温度変動付与実験を合計7回、そしてループ冷却水圧力変動付与実験を1回それぞれ行なった。照射期間Bにおいては、ループ冷却水温度変動付与実験1回、ループ冷却水圧力変動付与実験1回および運転モード変更（加圧水型冷却水条件→沸騰水型冷却水条件）実験1回を行なった。

2-3 人工欠陥燃料試料の概要

照射期間AおよびBにおいて照射に供用した人工欠陥燃料試料（以下、燃料試料とする）の仕様の要点をFig. 4およびFig. 5に示す。二酸化ウランペレット（ウラン濃縮度1.5%、直径13.4 ϕ 、高さ18.0mm）2個をSUS316製被覆管（外径15.0 ϕ 、厚み0.6mm、端栓を含む全長135mm）に封入し、ペレット対面部分の被覆管中央に欠陥穴（期間A；穴径約100 μm 、期間B；穴径約50 μm ）を1個付けた。照射実験におけるFP放出源として上記の燃料試料を使用した。

3. ループ冷却水中のよう素131とセシウム137の測定

照射期間中、原子炉出力上昇時、ループ冷却水圧力の変動付与時、ループ冷却水温度の変動付与時、およびループ冷却水降温に引続く原子炉停止時を主な対象に、ループ冷却水試料（以下試料とする）を採取し、試料中のよう素131とセシウム137を測定した。

3-1 試料の採取

ループ炉内管照射部を貫流する冷却水の入口側から、ポリエチレン製容器（栓付、250ml、500mlまたは1l）に試料を採取した。

3-2 よう素131の測定

試料20mlをガラス製容器（栓付バイアルびん、容量約20ml）に移し、ゲルマニウム半導体検出器（ORTEC製、同軸型60cc）-1024チャンネル波高分析器（CANBERRA製、8100型）により、試料の γ 線スペクトルを計測し、0.364MeVのピーク面積をよう素131標準線源と比較してよう素131の濃度（ $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ）を測定した。^{*}なお、照射運転開始以前および最初の原子炉起動時に採取した試料の場合、よう素担体（よう化カリウム8.964mg、よう素酸カリウム0.856mg）を加えて四塩化炭素相に分離する操作を採用した。

* 測定用試料容器と半導体検出器の間の距離は、試料ホルダーの位置を調節して固定することができる。試料の放射能強度により、0~20cmの間で、試料容器-検出器間の距離を変えた。

3-3 セシウム137の測定

試料(50~200ml)^{*}を採取し、セシウム担体(塩化セシウム溶液)20mgおよび6N塩酸2mlを加えてから加熱し、試料溶液の体積を20~30mlに縮小した。試料溶液に鉄担体溶液(1mg Fe/ml)、セリウム担体溶液(1mg Ce/ml)およびジルコニウム担体溶液(1mg Zr/ml)を各々1mlずつに加え、十分に混ぜてから水酸化ナトリウム溶液(0.5~1M)を滴加しつつ、ガラス電極-pH計により溶液のpHを約10に調節し、これらの金属の水酸化物を沈殿した。溶液が沸騰するまで加熱し、放冷した後に濾過して沈殿を除いた。濾液に塩化白金酸(約4w/o)溶液2.0mlを加え、水酸化ナトリウム溶液を用いて溶液のpHを約10に調節した。十分に混ぜた後30分間放置し、塩化白金酸セシウムの沈殿を熟成した。沈殿は秤量済みの濾紙(What man No 540相当)を用いて濾過した後、水10mlついでエタノール10mlで洗浄した。赤外線ランプを用いて沈殿を濾紙とともに乾燥した後秤量し、その化学収率(平均80~90%)を決定した。Ge(Li)検出器(ORTEC製、同軸型60cc)-1024チャンネル波高分析器(CANBERRA製、8100型)またはWell型NaI(Tl)検出器(日本無線製、1³/₄"φ×2")-400チャンネル波高分析器(日立RAH-403)により測定用試料のγ線スペクトルを測定し、0.662MeVのピーク面積を標準線源と比較することにより、セシウム137の放射能濃度をμCi/ml単位で計算した。

3-4 測定結果

Fig. 6~8に、照射期間Aにおけるループ冷却水中のよう素131の測定値を示す。Fig. 9~11に、同様にセシウム137の測定値を示す。Fig. 12~15に、照射期間Bにおけるループ冷却水中のよう素131とセシウム137の測定値を示す。

4. 実験結果の討論

ループ一次冷却水の温度・圧力の変動を付与した場合、燃料試料の欠陥穴から放出されるFPの放出率(μCi/sec)が変化する様相を知るため、測定対象核種の見かけ平均放出率Rを求めた。さらに、照射期間中のペレットよりの測定対象核種の平均放出率R'の推定を試みた。

4-1 よう素131とセシウム137の見かけ平均放出率

3-4に示した測定結果とループ運転条件を対応させて計算を行なうことにより、よう素131とセシウム137の各々について、各種条件下の見かけ平均放出率(以下Rとする)を求めた。照射期間Aにおいては、ループ冷却水温度低下状態時、ループ冷却水圧力低減状態時およびループ冷却水降温操作時等を、照射期間Bにおいては、ループ冷却水温度低下状態時、ループ冷却水圧力低減状態時、ループ冷却水降温操作時およびループ運転モード変換(加圧水型冷却水雰囲気

* よう素131の測定に用いた後に残った試料故、その体積は50~200mlの範囲に広く分散し、一つの試料について計量する必要があった。

3-3 セシウム137の測定

試料(50~200ml)^{*}を採取し、セシウム担体(塩化セシウム溶液)20mgおよび6N塩酸2mlを加えてから加熱し、試料溶液の体積を20~30mlに縮小した。試料溶液に鉄担体溶液(1mg Fe/ml)、セリウム担体溶液(1mg Ce/ml)およびジルコニウム担体溶液(1mg Zr/ml)を各々1mlずつ加え、十分に混ぜてから水酸化ナトリウム溶液(0.5~1M)を滴加しつつ、ガラス電極-pH計により溶液のpHを約10に調節し、これらの金属の水酸化物を沈殿した。溶液が沸騰するまで加熱し、放冷した後に濾過して沈殿を除いた。濾液に塩化白金酸(約4w/o)溶液2.0mlを加え、水酸化ナトリウム溶液を用いて溶液のpHを約10に調節した。十分に混ぜた後30分間放置し、塩化白金酸セシウムの沈殿を熟成した。沈殿は秤量済みの濾紙(What man No 540相当)を用いて濾過した後、水10mlついでエタノール10mlで洗浄した。赤外線ランプを用いて沈殿を濾紙とともに乾燥した後秤量し、その化学収率(平均80~90%)を決定した。Ge(Li)検出器(ORTEC製、同軸型60cc)-1024チャンネル波高分析器(CANBERRA製、8100型)またはWell型NaI(Tl)検出器(日本無線製、1³/₄" ϕ ×2")-400チャンネル波高分析器(日立RAH-403)により測定用試料の γ 線スペクトルを測定し、0.662MeVのピーク面積を標準線源と比較することにより、セシウム137の放射能濃度を $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 単位で計算した。

3-4 測定結果

Fig. 6~8に、照射期間Aにおけるループ冷却水中のよう素131の測定値を示す。Fig. 9~11に、同様にセシウム137の測定値を示す。Fig. 12~15に、照射期間Bにおけるループ冷却水中のよう素131とセシウム137の測定値を示す。

4. 実験結果の討論

ループ一次冷却水の温度・圧力の変動を付与した場合、燃料試料の欠陥穴から放出されるFPの放出率($\mu\text{Ci}/\text{sec}$)が変化する様相を知るため、測定対象核種の見かけ平均放出率Rを求めた。さらに、照射期間中のペレットよりの測定対象核種の平均放出率R'の推定を試みた。

4-1 よう素131とセシウム137の見かけ平均放出率

3-4に示した測定結果とループ運転条件を対応させて計算を行なうことにより、よう素131とセシウム137の各々について、各種条件下の見かけ平均放出率(以下Rとする)を求めた。照射期間Aにおいては、ループ冷却水温度低下状態時、ループ冷却水圧力低減状態時およびループ冷却水降温操作時等を、照射期間Bにおいては、ループ冷却水温度低下状態時、ループ冷却水圧力低減状態時、ループ冷却水降温操作時およびループ運転モード変換(加圧水型冷却水霧困気

* よう素131の測定に用いた後に残った試料故、その体積は50~200mlの範囲に広く分散し、一つの試料について計量する必要があった。

→沸騰水型冷却水雰囲気)時等を,それぞれRを求める計算の対象にした。Rは次式により求めた。

$$V(dx/dt) = R - \lambda \cdot V \cdot x - F_c \cdot x \quad (1)$$

ただし, V = ループ冷却水の量, 7.5×10^5 g

x = ループ冷却水単位重量中の測定対象核種の量, $\text{Atom} \cdot \text{g}^{-1}$

dx/dt = 照射実験期間中の任意の時間区域内の単位時間内におけるループ冷却水単位重量中の測定対象核種の変化量, $\text{Atom} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1}$

λ = 測定対象核種の壊変定数, sec^{-1}

F_c = ループ冷却水浄化脱塩器系統の運転流量

$40 \text{g} \cdot \text{sec}^{-1}$ (照射期間A), $45 \text{g} \cdot \text{sec}^{-1}$ (照射期間B)

照射期間Aにおける計算結果をTable 3, 4に示す。照射期間Bにおける計算結果をTable 5に示す。これらの計算において,次に記すような前提を仮定した;①式(1)において,核種の系内付着やキャリーオーバー等の影響を無視し得る。② F_c は一定であり,その変動の影響を無視し得る。③ V は一定であり,ループ冷却水の系外漏出の影響を無視し得る。表示のRの計算結果については,次に上げるような特色が認められた;①両核種ともにRが負の値を示す時間区域が存在した(これらは $R=0$ として取扱うことができるものと仮定した)^{***},②Table 4の $\Delta T=150^\circ\text{C}$ とcool downの実験項目のセシウム137およびTable 5の $\Delta T=150^\circ\text{C}$ の実験項目のセシウム137を除けば,各核種の放出率の(最大値/平均値)は2~7の範囲に分布した,③各核種ともに,ループ冷却水温度低下幅と平均放出率の関係は正の相関性を示した。

4-2 よう素131, セシウム137のループ冷却水内放出量

燃料試料からループ冷却水中に放出されたよう素131またはセシウム137の量は,次のようにして計算した。各種実験項目の対象期間においては,平均放出率を時間積分し,放出量を求めた。各実験項目の対象期間外の場合においては,照射期間中の各暦日毎に測定点の相加平均値(時間の重み付)を求め,測定点が得られなかった暦日については,照射期間内の時間分割をなるべく1日以内の単位量に統一するため,その前日の最終測定点と該当暦日の翌日の始発測定点の単純相加平均を求めた。そして(1)式の質量平衡($dx/dt=0$ とする)が成立しているものと仮定して各暦日毎の平均放出率を求め,平均放出率と対応時間区域内の時間から放出量を求め,これらの値が各暦日毎のループ冷却水内放出量であるとした。

照射期間AおよびBにおいて,ループ冷却水浄化用イオン交換樹脂脱塩器系統の機能停止,ループ冷却水圧力の低減変動付与($71 \text{kg}/\text{cm}^2 \rightarrow 61 \text{kg}/\text{cm}^2 \rightarrow 71 \text{kg}/\text{cm}^2$),ループ冷却水温

* よう素131に対して $9.964 \times 10^{-7} \text{sec}^{-1}$,セシウム137に対して $7.325 \times 10^{-10} \text{sec}^{-1}$ 。

** 浄化脱塩器の脱塩効率は,ほぼ100%である。

*** ^{131}I の場合,3月11日11時30分~12時00分 $-2.13 \mu\text{Ci}/\text{sec}$ (max)

^{137}CS の場合,3月11日15時30分~16時30分 $-1.03 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{sec}$ (max)

度の低下変動付与、ループ冷却水降温操作に続く原子炉停止、ループ運転モード変更時の蒸気質変化にともなうループ冷却水の昇温変動、などの各実験対象項目においては、各実験対象項目の該当期間毎にそれぞれのような素131とセシウム137の放出量の総和を求め、他は各暦日毎に区切って各核種の放出量を求めた。各種実験項目毎または各暦日毎の各核種のループ冷却水内放出量の計算において、各時間区域内における各核種の系外逃散による誤差は無視し得るものと仮定した。Table 6, 7に、よう素131とセシウム137のループ冷却水内放出量の計算結果を示す。

4-3 よう素131とセシウム137の被覆管内放出率

Fig. 6~11に示した測定結果を基にして、照射時の燃料試料ペレットよりのよう素131とセシウム137の被覆管内放出率について算出を試みた。この報告の実験に使用した燃料試料は、相対的に大きな欠陥穴径(100 μ m)と大きな(プレナム/ペレット)体積比を備えている。上記のような構造的特徴は、相対的に大きな燃料試料被覆管内自由空間部分に、ペレット表面温度とループ冷却水温度の間の温度分布を与えている。被覆管内自由空間部分では、被覆管欠陥穴よりのループ冷却水の出入りにともなう、水蒸気が絶えず生じており、それ故に発生する圧力変動は、燃料試料よりループ冷却水中に放出されるFPの挙動に対し、大きな役割を果たしていると考えられる。そして上記の圧力変動は、熱中性子束密度、冷却水温度そして冷却水圧力などの因子に対する外乱付加によって増大する場合が多いと考えられる。照射期間Aのループ冷却水温度低下付与実験におけるFP放出率の変化の様相、および照射期間A, Bのループ冷却水圧力低減付与実験における圧力低減付与前後のFP放出率の変動幅変化の様相は、上記の推定を裏付けているように見受けられる。一方、ループ冷却水の放射性よう素濃度(μ Ci/ml)比($^{135}\text{I}/^{131}\text{I}$)は、照射期間Bの測定例に依れば、ほとんど1~3の範囲に分布する⁽⁶⁾。この測定結果は、照射時のペレットから放出されたFPが燃料試料被覆管内に滞留する時間は相対的に小さい、事実を示唆するものと思われる。

上記の理由により、照射実験期間中の燃料試料ペレットよりペレット外に放出されたよう素131とセシウム137は、そのよう素131の変換割合をほぼ無視し得るような時間範囲内に、被覆管欠陥穴よりループ冷却水中に放出されると仮定し、燃料試料ペレットよりこれら核種放出率の平均値 R' を計算した。原子炉停止状態時には、ペレットよりのFP放出率は零であると仮定した。照射期間中の区切られた時間範囲内に燃料試料被覆管欠陥穴よりループ冷却水中に放出されるFPの量は、該当時間範囲の最終点時刻における値で示されているものと仮定し、該当の時刻より経過した時間のFPの放出量の計算において、放射性壊変による減衰を補正した。(2)式により、ペレットよりのよう素131の R' を求めた。そして3)式により、ペレットよりのセシウム137の R' を求めた。

$$R' = (\lambda A) / (1 - e^{-\lambda t}) \quad (2)$$

($t = 0$ の時、 $R' = 0$, $A = 0$ とする)

$$R' = A/t \quad (3)$$

($t = 0$ の時, $R' = 0$, $A = 0$ とする)

ただし R' = 放出率の平均値 (Atom/sec), A = 放出量 (Atom), λ = 放出放射性核種の壊変定数 (sec^{-1}), t = 全出力等価換算の原子炉出力運転時間 (sec)。

よう素 131 の場合, $R' = 4.2 \mu\text{Ci} / \text{sec}$, セシウム 137 の場合, $R' = 6.7 \times 10^{-4} \mu\text{Ci} / \text{sec}$ であった。[†]

4-4 被覆管内自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 の挙動

4-2 において, 区切られた時間範囲内に, 燃料試料被覆管欠陥穴からループ冷却水中に放出されたよう素 131 とセシウム 137 の量を, そして 4-3 において, 燃料試料のペレットからその被覆管内自由空間部分に, 単位時間当りの放出されたよう素 131 とセシウム 137 の量の平均値を, それぞれ算出した。これらの算出値を基に, 被覆管内側自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 が区切られた時間範囲内に被覆管欠陥穴を経由してループ冷却水中に放出される割合を計算した。照射期間 A, B に依っては, ペレットよりのよう素 131 とセシウム 137 の放出率は変わらないと仮定した。2-3 において記したように, 燃料試料の仕様は, 欠陥穴径以外は照射期間 A, B とともにほぼ同一である。しかし, 照射時の被覆管内側面一ペレット間のギャップ幅については簡単に確定できないので, これらの試料においては同一であると仮定した。計算の結果を Table 8 に示す。

被覆管内自由空間部分に浸入したループ冷却水の量的状態については情報が得られないので, 表示 (Table 8) の数値を用いることにより, 被覆管内自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 が被覆管欠陥穴からループ冷却水中に放出される様相を定量的に表現することは不可能であるように思われる。ループ冷却水圧力の低減変動およびループ冷却水温度の低減変動 (低減幅 150°C) の場合を比較した限りでは, 照射期間 A と B の間のよう素 131 とセシウム 137 の放出比値 (Table 8 参照) は, 被覆管欠陥穴径の差異に依存しているように見受けられる。

5. むすび

1976年2月17日から3月13日まで, および同年5月24日から6月18日までの期間に, JMTR・OWL-1 においてそれぞれの期間に1体ずつ, 燃料試料2体を照射し, 照射にともなって被覆管欠陥穴よりループ冷却水中に放出されたよう素 131 とセシウム 137 の測定実験を行なった。これらの測定実験の結果から, 次に記すような結論を得た。

- ① 燃料試料の照射中, 実験上任意に区切られた時間範囲内におけるよう素 131 とセシウム

* Atom \rightarrow λ . Atom = dps \rightarrow μCi

Atom \rightarrow $\lambda \cdot$ Atom = dps \rightarrow μCi

† 5.0②のkを求める場合, $t = 1.9 \times 10^6$ sec において, $N \cdot \phi \cdot \sigma = 4.32 \times 10^{13}$ を使用した。

$$R' = A/t \quad (3)$$

($t = 0$ の時, $R' = 0$, $A = 0$ とする)

ただし R' = 放出率の平均値 (Atom/sec), A = 放出量 (Atom), λ = 放出放射性核種の壊変定数 (sec^{-1}), t = 全出力等価換算の原子炉出力運転時間 (sec)。

よう素 131 の場合, $R' = 4.2 \mu\text{Ci} / \text{sec}$, セシウム 137 の場合, $R' = 6.7 \times 10^{-4} \mu\text{Ci} / \text{sec}$ であった。[†]

4-4 被覆管内自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 の挙動

4-2において, 区切られた時間範囲内に, 燃料試料被覆管欠陥穴からループ冷却水中に放出されたよう素 131 とセシウム 137 の量を, そして 4-3において, 燃料試料のペレットからその被覆管内自由空間部分に, 単位時間当りの放出されたよう素 131 とセシウム 137 の量の平均値を, それぞれ算出した。これらの算出値を基に, 被覆管内側自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 が区切られた時間範囲内に被覆管欠陥穴を経由してループ冷却水中に放出される割合を計算した。照射期間 A, B に依っては, ペレットよりのよう素 131 とセシウム 137 の放出率は変わらないと仮定した。2-3において記したように, 燃料試料の仕様は, 欠陥穴径以外は照射期間 A, B とともにほぼ同一である。しかし, 照射時の被覆管内側面一ペレット間のギャップ幅については簡単に確定できないので, これらの試料においては同一であると仮定した。計算の結果を Table 8 に示す。

被覆管内自由空間部分に浸入したループ冷却水の量的状態については情報が得られないので, 表示 (Table 8) の数値を用いることにより, 被覆管内自由空間部分のよう素 131 とセシウム 137 が被覆管欠陥穴からループ冷却水中に放出される様相を定量的に表現することは不可能であるように思われる。ループ冷却水圧力の低減変動およびループ冷却水温度の低減変動 (低減幅 150°C) の場合を比較した限りでは, 照射期間 A と B の間のよう素 131 とセシウム 137 の放出比値 (Table 8 参照) は, 被覆管欠陥穴径の差異に依存しているように見受けられる。

5. むすび

1976年2月17日から3月13日まで, および同年5月24日から6月18日までの期間に, JMTR・OWL-1 においてそれぞれの期間に1体ずつ, 燃料試料2体を照射し, 照射にともなって被覆管欠陥穴よりループ冷却水中に放出されたよう素 131 とセシウム 137 の測定実験を行なった。これらの測定実験の結果から, 次に記すような結論を得た。

- ① 燃料試料の照射中, 実験上任意に区切られた時間範囲内におけるよう素 131 とセシウム

* Atom $\rightarrow \lambda$. Atom = dps $\rightarrow \mu\text{Ci}$

Atom $\rightarrow \lambda \cdot \text{Atom} = \text{dps} \rightarrow \mu\text{Ci}$

† 5.0②のkを求める場合, $t = 1.9 \times 10^6 \text{ sec}$ において, $N \cdot \phi \cdot \sigma = 4.32 \times 10^{13}$ を使用した。

137の見かけ平均放出率は、この報告の実験条件の場合、ループ冷却水圧力の低減変動付与の前後においてほとんど変わらない。しかし、実験上任意に区切られた時間範囲内において、ループ冷却水圧力低減変動付与後の測定点間の見かけ平均放出率の変動幅は、ループ冷却水圧力低減変動付与前の見かけ平均放出率の変動幅と比較した時、増大する。すなわち、ループ冷却水圧力変動付与後の見かけ平均放出率の最大値と平均値の比は、よう素131の場合5であり、セシウム137の場合約3を示す。^{*}そして、ループ冷却水温度の低下変動付与の前後を比較した時、その低減変動幅が40℃以上の場合、実験上任意に区切られた時間範囲内におけるよう素131とセシウム137の見かけ平均放出率は、低減変動付与後に明らかに増大する。また、ループ冷却水温度の低下変動幅の大きさとよう素131およびセシウム137の見かけ平均放出率の大きさの間には、正の相関性が認められる。

② この報告の実験条件下において、よう素131とセシウム137のペレットよりの放出率の平均値は、近似的に次のように表わされる。 $R' = k \cdot N \cdot \phi \cdot \sigma$ ただし、 R' = よう素131またはセシウム137の放出率 (dps/sec)^{**}、 N = 燃料ペレット中のウラン235原子数 (個)、 ϕ = 燃料ペレットにおける平均中性子束密度 (個/sec \cdot cm²)、 σ = 実効核分裂断面積 (cm²)、 k = 変換定数、よう素131について 3.6×10^{-9} ^{***}、セシウム137について 5.7×10^{-13} とする。また燃料ペレットより燃料試料内自由空間に放出されるよう素131そしてセシウム137の量と燃料試料の被覆管欠陥穴よりループ冷却水中に放出されるよう素131そしてセシウム137の量の比は、欠陥穴径に依存する傾向を示す。ただし、上記の関係は次のような仮定^{****}の下に成立する。被覆管の欠陥穴径が100 μ mの燃料試料の場合、欠陥穴より浸入するループ冷却水により燃料試料内自由空間中のよう素131とセシウム137の大部分が、よう素の壊変割合が無視し得る時間範囲内にループ冷却水中に放出されるので、ループ冷却水中のこれら両核種を測定することにより、ペレットから被覆管内自由空間に放出された両核種の量を近似的に求めることができる。

③ 現有の軽水型動力炉の炉心に装荷されている燃料の二酸化ウランペレットとこの報告書の実験に使用した燃料試料の二酸化ウランペレットの間には、ペレット自体 (直径、高さ/直径、密度、濃縮度、形状加工)、燃料被覆管 (材料、厚み、プレナム体積/ペレット体積、被覆管内側面-ペレット間々隙幅)、被覆管欠陥部 (形状、大きさ、位置) およびその他の照射条件 (燃焼度、燃料ペレットスタック長さ、炉心中性子束分布、水/燃料体積比、冷却水流量分布など) において相異が存在する。これらの条件の相異にもかかわらず、線出力密度 (12kW/ft 近傍、推定) と燃料ペレット中心温度 (1300~1400℃ 附近、推定) の類似性を根拠に、この報告書の実験結果を代表的な軽水型動力炉燃料のFP放出挙動に関係づけることができると仮定するならば、例えば300日間定格出力運転を行なった軽水型動力炉の炉心燃料においては、平均的

* ループ冷却水圧力変動付与直前^{*}の見かけ平均放出率の最大値と平均値の比は、よう素131、セシウム137ともに約1である。

** dps = disintegration per second

*** 壊変系列においてほぼ平衡状態が成立している場合

**** $R' = k \cdot N \cdot \phi \cdot \sigma$ および FP (被覆管内自由空間 \rightarrow 冷却系, μ Ci/day) / FP (ペレット \rightarrow 被覆管内自由空間, μ Ci/day) と欠陥穴径の関係。

な（プレナムF P 量／ペレット中F P 量）がよう素131に対して約0.1₂，セシウム137 に対して約0.01₃に達するものと推定される。軽水型動力炉プラントの主蒸気管破断事故時のF P 追加放出を評価する場合，これらの数値は相応の有意性を示すものと期待される。

謝 辞

原子炉安全性研究の中の燃料安全性研究の一環として，炉内水ループを利用した人工欠陥燃料試料照射によるF P 放出実験を遂行しつつあるが，この実験研究の推進において，本研究所東海研究所安全性試験研究センター安全工学部 村主進氏ならびに能沢正雄氏の支援と配慮を得た。

照射期間Aの照射運転モード選定に関する検討において，東京大学工学部原子力工学科 都甲泰正氏を主席とするF P 研究会会員諸氏の討論を得た。

試料水の採取およびよう素131の測定において，本研究所大洗研究所材料試験炉部照射第3課 山本克宗氏，岡川誠吾氏および横内猪一郎氏の協力を得た。

試料水の採取およびセシウム137の測定において，本研究所東海研究所安全性試験研究センター安全工学部燃料安全第2研究室 永井斎氏の協力を得，照射期間Bの試料水採取の一部分において，同研究室の武田常夫氏の参加を得た。

付記して感謝の意を表します。

文 献

- (1) Ishiwatari N. ; " Water Chemistry of JPDR " JAERI -1135 Aug. 1967
- (2) Brutschy F.J. et al ; " Behavior of Iodine in Reactor Water during Plant Shut down and Start up " NEDO-10585 Aug. 1972
- (3) Eickelpasch N. et al ; " Fission Product Release after Reactor Shut down " IAEA-SM-178/19, Experience from Operating and Fuelling Nuclear Power Plants, IAEA Vienna 1974
- (4) Lutz R.J.Jr. ; " Iodine Behavior under Transient Conditions in the Pressurized Water Reactor " WCAP-8637 Nov. 1975
- (5) 例えば，中部電力株式会社；浜岡原子力発電所原子炉設置変更許可申請書（1975）
- (6) 山本克宗氏私信資料

Table 1 Irradiation Examination Program (Performed)

Exam. No.		1	2	3
Period	From	Aug.13 1971	Jun.25 1972	May 29 1975
	To	Sept.3 1971	Jul.22 1972	Jun.17 1975
UO ₂ pellet	Number	1	1	2
	²³⁵ U (w/o)	2.7	1.5	1.5
	Dia. ϕ	10.6	13.4	13.4
	Height(mm)	14.7	18.0	18.0 \times 2
Clad	Material	Zry-2	SUS 316	SUS 316
	Out Dia. ϕ	12.2	15.0	15.0
	Thickness (mm)	0.7	0.6	0.6
Hole	Faced to	plenum	plenum	plenum
	Dia. (μ m)	20, 200	200	100
	Number	2	1	1

Table 2 Representative coolant conditions at steady state of OWL-1

	B-mode	P-mode
Pressure at the inlet of the test section (kg/cm ² G)	71	71
Temperature at the inlet of the test section (°C)	285	250
Steam content (%)	8	0
Flow rate at the inlet of the test section (kg/min)	25	40 ~ 50
Flow rate at the clean-up system (kg/min)	2 ~ 3	2 ~ 3

Table 3 Behavior of radioiodine

Experimental Item	Experimental Time		Release Rate ($\mu\text{Ci}/\text{sec}$)		
	From	To	Average	Maximum	Minimum
$\Delta T = 10^\circ\text{C}$	20 Feb. 9:30	20 Feb. 13:52	0.35	0.53	0.17
$\Delta T = 20^\circ\text{C}$	23 Feb. 9:30	23 Feb. 13:55	1.2 ₂	2.5 ₂	0.57
$\Delta T = 40^\circ\text{C}$	24 Feb. 9:23	24 Feb. 14:48	12.2	30.8	0
$\Delta T = 80^\circ\text{C}$	25 Feb. 10:01	25 Feb. 17:32	10.0	24.9	0
$\Delta T' = 10^\circ\text{C}$	26 Feb. 9:30	26 Feb. 13:57	4.3 ₆	14.2	0
$\Delta T = 150^\circ\text{C}$	11 Mar. 9:29	11 Mar. 16:35	20.5	121	0
$\Delta T' = 150^\circ\text{C}$	11 Mar. 19:40	12 Mar. 12:27	6.8 ₇	34	0
cool down*	27 Feb. 14:05	28 Feb. 1:02	4.9 ₉	28.5	0
$\Delta p = 10 \text{ kg}/\text{cm}^2$	6 Mar. 10:07	7 Mar. 10:10	2.7 ₅	14.7	0

ΔT (and $\Delta T'$) = temperature depression

Δp = pressure depression

* The loop coolant temperature was brought back to the temperature less than 100°C from 250°C .

Table 4 Behavior of radiocesium

Experimental Item	Experimental Time		Release Rate ($\mu\text{Ci}/\text{sec}$)		
	From	To	Average	Maximum	Minimum
$\Delta T = 10^\circ\text{C}$	20 Feb. 9:30	20 Feb. 13:52	$9.1_3 \times 10^{-5}$	$4.2_2 \times 10^{-4}$	0
$\Delta T = 20^\circ\text{C}$	23 Feb. 9:30	23 Feb. 13:55	$1.2_2 \times 10^{-4}$	$4.9_9 \times 10^{-4}$	0
$\Delta T = 40^\circ\text{C}$	24 Feb. 9:23	24 Feb. 14:48	$5.7_6 \times 10^{-4}$	$2.6_9 \times 10^{-3}$	0
$\Delta T = 80^\circ\text{C}$	25 Feb. 10:01	25 Feb. 17:32	7.0×10^{-4}	$2.5_8 \times 10^{-3}$	0
$\Delta T' = 10^\circ\text{C}$	26 Feb. 9:30	26 Feb. 13:57	$3.6_1 \times 10^{-4}$	$1.5_7 \times 10^{-3}$	0
$\Delta T = 150^\circ\text{C}$	11 Mar. 9:29	11 Mar. 16:35	$5.9_8 \times 10^{-3}$	$1.8_6 \times 10^{-2}$	0
$\Delta T' = 150^\circ\text{C}$	11 Mar. 19:40	12 Mar. 12:27	$8.8_1 \times 10^{-4}$	$9.1_5 \times 10^{-3}$	0
cool down*	27 Feb. 14:05	28 Feb. 1:02	$6.8_4 \times 10^{-4}$	$8.5_7 \times 10^{-3}$	0
$\Delta P = 10 \text{ kg}/\text{cm}^2$	6 Mar. 10:07	7 Mar. 10:10	$7.9_2 \times 10^{-5}$	$2.4_5 \times 10^{-4}$	0

ΔT (and $\Delta T'$) = temperature depression.

ΔP = pressure depression.

* The loop coolant temperature was brought back to the temperature less than 100°C from 250°C .

Table 5 Behavior of radioiodine (and radiocesium)

Experimental Item	Experimental Time		Release Rate ($\mu\text{Ci}/\text{sec}$)		
	From	To	Average	Maximum	Minimum
$\Delta P = 10 \text{ kg}/\text{cm}^2$	1 June 10:10	2 June 10:20	0.9 ₀	3.2 ₀	0
			($2.4_2 \times 10^{-5}$)	($1.5_5 \times 10^{-4}$)	(0)
cool down*	4 June 14:00	5 June 0:45	28.6	165	0
$\Delta T = 150^\circ\text{C}$	11 June 9:30	11 June 16:30	13.3	32.8	0
			($3.3_3 \times 10^{-4}$)	($2.8_0 \times 10^{-3}$)	(0)
Mode change (P \rightarrow B)	14 June 10:30	14 June 13:15	14.4	49.0	2.5 ₀

ΔP = pressure depression , () = Release rate of ^{137}Cs .

ΔT = temperature depression

* The loop coolant temperature was brought back to the temperature less than 100°C from 250°C .

Table 6 Release of ^{131}I and ^{137}Cs in Period A

Period (1976)		Released Amount (μCi)	
From;	To;	^{131}I	^{137}Cs
17Feb. 11:00 ⁺	17Feb. 24:00	761	0.78
18Feb. 0:00	18Feb. 24:00	8610	3.77
19Feb. 0:00	19Feb. 24:00	35500	4.26
20Feb. 0:00	20Feb. 24:00	32800	2.86
*20Feb. 9:30	20Feb. 13:52	5460	1.44
21Feb. 0:00	21Feb. 24:00	54200	2.83
22Feb. 0:00	22Feb. 24:00	67500	2.08
23Feb. 0:00	23Feb. 24:00	57100	3.38
*23Feb. 9:30	23Feb. 13:55	19200	1.94
24Feb. 0:00	24Feb. 24:00	177000	11.8
*24Feb. 9:32	24Feb. 14:48	230000	10.9
25Feb. 0:00	25Feb. 24:00	244000	17.3
*25Feb. 10:00	25Feb. 17:32	269000	19.0
26Feb. 0:00	26Feb. 24:00	246000	17.7
*26Feb. 9:30	26Feb. 13:57	69300	5.78
27Feb. 0:00	27Feb. 24:00	313000	42.5
28Feb. 0:00	28Feb. 14:30	83900	6.42
1Mar. 9:10 ⁺⁺	1Mar. 24:00	142000	49.7
2Mar. 0:00	2Mar. 24:00	191000	9.50
3Mar. 0:00	3Mar. 24:00	230000	7.22
4Mar. 0:00	4Mar. 10:00	106000	3.92
* 4Mar. 10:00	5Mar. 10:00	209000	8.07
5Mar. 10:00	5Mar. 24:00	261000	7.66
6Mar. 0:00	6Mar. 10:07	110000	3.10
* 6Mar. 10:07	7Mar. 10:10	228000	6.86
7Mar. 10:10	7Mar. 24:00	165000	3.43
8Mar. 0:00	8Mar. 24:00	314000	6.91
9Mar. 0:00	9Mar. 24:00	341000	6.36
10Mar. 0:00	10Mar. 24:00	301000	4.04
11Mar. 0:00	11Mar. 19:40	238000	16.3
*11Mar. 9:29	11Mar. 16:35	518000	153
*11Mar. 19:40	12Mar. 12:27	403000	53.2
12Mar. 12:27	12Mar. 24:00	271000	8.44
13Mar. 0:00	13Mar. 17:30	264000	800

* Period of Experimental Item

+ 9:30 (Sampling for measurement of ^{137}Cs)

++ 9:33(")

Table 7 Release of Radioiodine 131 in Period B

Period (1976)		Amount of Released ^{131}I , (μCi)
From;	To;	
24May, 9:30	24May, 24:00	58
25May, 0:00	25May, 24:00	3950
26May, 0:00	26May, 24:00	5770
27May, 0:00	27May, 24:00	4590
28May, 0:00	28May, 24:00	10400
29May, 0:00	29May, 24:00	15100
30May, 0:00	30May, 24:00	16100
31May, 0:00	31May, 24:00	18400
1June, 0:00	1June, 10:10	10200
* 1June, 10:10	2June, 10:20	75200
2June, 10:20	2June, 24:00	32700
3June, 0:00	3June, 24:00	65500
4June, 0:00	4June, 14:00	49700
4June, 14:00	5June, 0:45	108000
5June, 0:45	5June, 11:38	155000
6June, 0:00	6June, 24:00	64400
7June, 9:30	7June, 24:00	115000
8June, 0:00	8June, 24:00	100000
9June, 0:00	9June, 24:00	124000
10June, 0:00	10June, 24:00	114000
11June, 0:00	11June, 24:00	124000
*11June, 9:30	12June, 16:30	331000
12June, 0:00	12June, 24:00	53600
13June, 0:00	13June, 24:00	71200
14June, 0:00	14June, 24:00	124000
*14June, 10:30	14June, 13:15	142000
15June, 0:00	15June, 24:00	99200
16June, 0:00	16June, 24:00	117000
17June, 0:00	17June, 24:00	33400
18June, 0:00	18June, 18:00	38600

* Period of Experimental Item

Table 8 Ratio of Released Fission Products

Experimental Item	Ratio of Released FP*, %	Irradiation Period
$\Delta T = 10^\circ\text{C}$	0.6(^{131}I), 0.8(^{137}Cs)	A
$\Delta T = 20^\circ\text{C}$	1.2(^{131}I), 0.6(^{137}Cs)	A
$\Delta T = 40^\circ\text{C}$	15(^{131}I), 2.8(^{137}Cs)	A
$\Delta T = 80^\circ\text{C}$	20(^{131}I), 4.5(^{137}Cs)	A
$\Delta T' = 10^\circ\text{C}$	6.3(^{131}I), 1.3(^{137}Cs)	A
$\Delta P = 10 \text{ kg/cm}^2$	20(^{131}I), 0.9(^{137}Cs)	A
$\Delta P = 10 \text{ kg/cm}^2$	3.5(^{131}I)	B
$\Delta T = 150^\circ\text{C}$	67(^{131}I), 16(^{137}Cs)	A
$\Delta T' = 150^\circ\text{C}$	83(^{131}I), 6.5(^{137}Cs)	A
$\Delta T = 150^\circ\text{C}$	23(^{131}I)	B

* (Amount of FP released into loop coolant) \times 100

(Amount of FP released into free space in fuel rod)

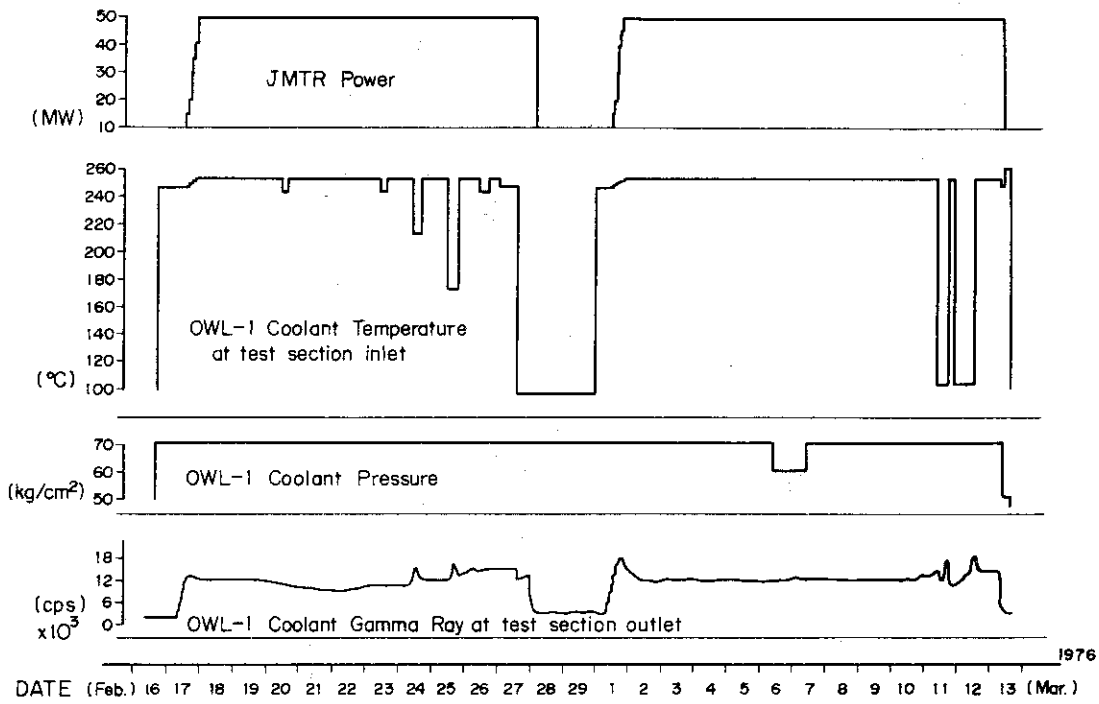


Fig. 2 Simplified JMTR Power Run and Temperature, Pressure and γ ray of OWL-1 Coolant

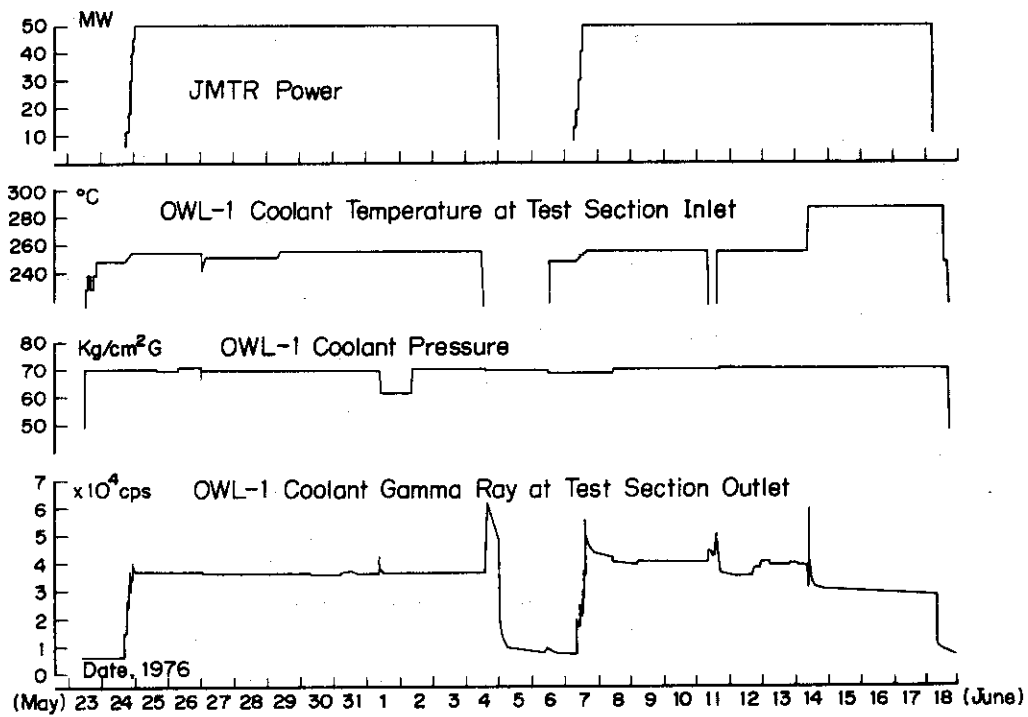


Fig. 3 Simplified JMTR Power Run and Temperature, Pressure and γ ray of OWL-1 Coolant

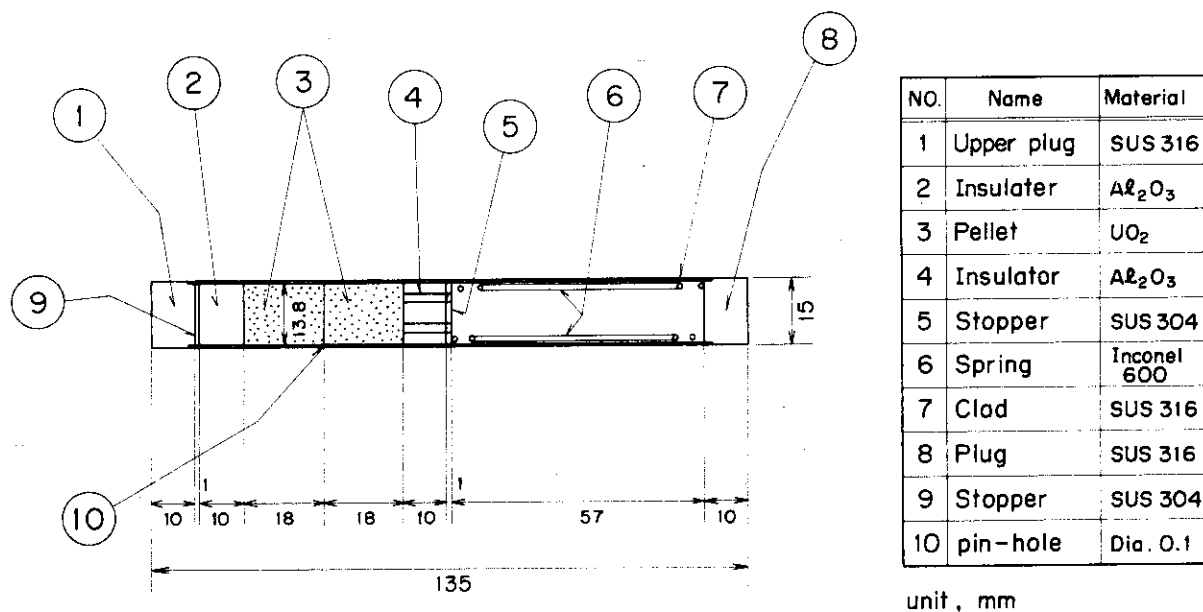


Fig. 4 Dimensions and specification of an artificially pin-holed fuel

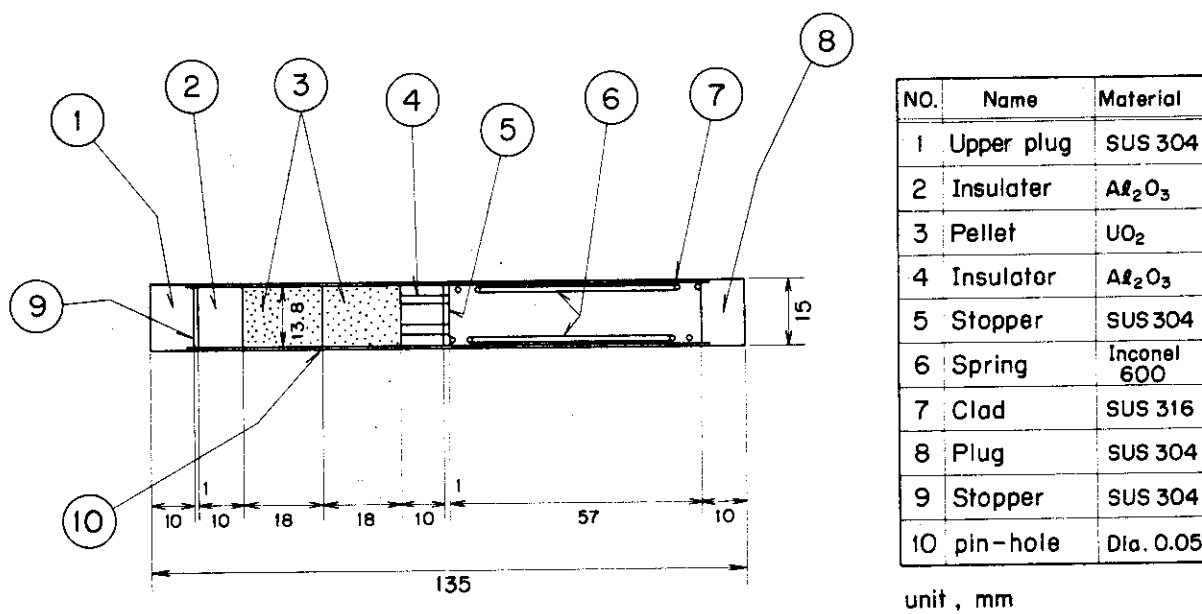


Fig. 5 Dimensions and specification of an artificially pin-holed fuel

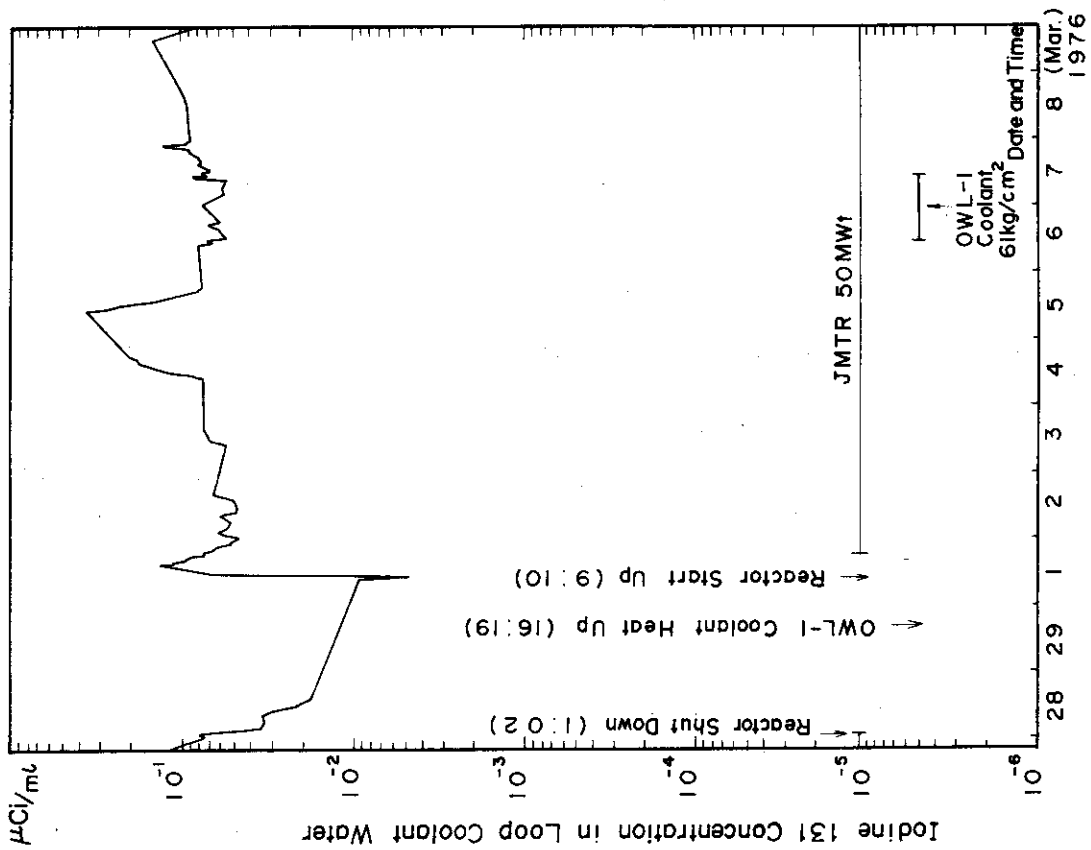


Fig. 7 ¹³¹I in OWL-1 Primary Coolant (2)

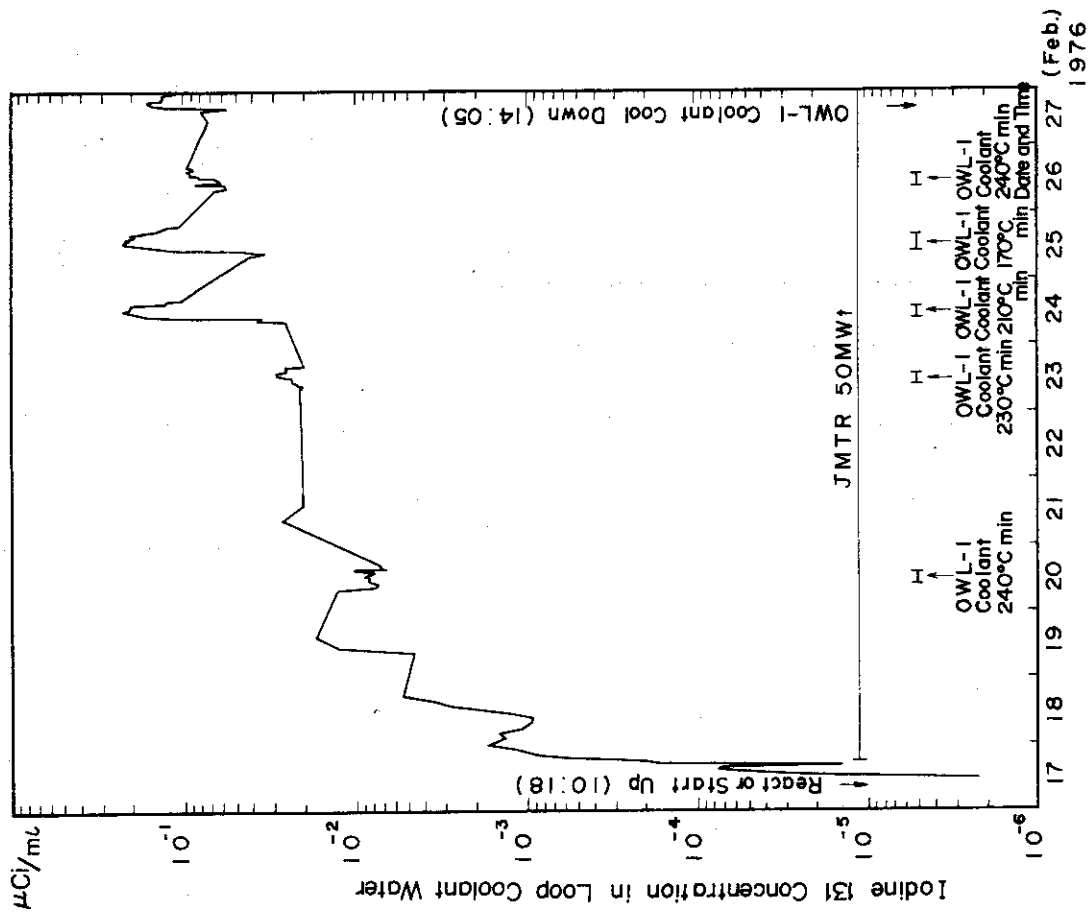


Fig. 6 ¹³¹I in OWL-1 Primary Coolant (1)

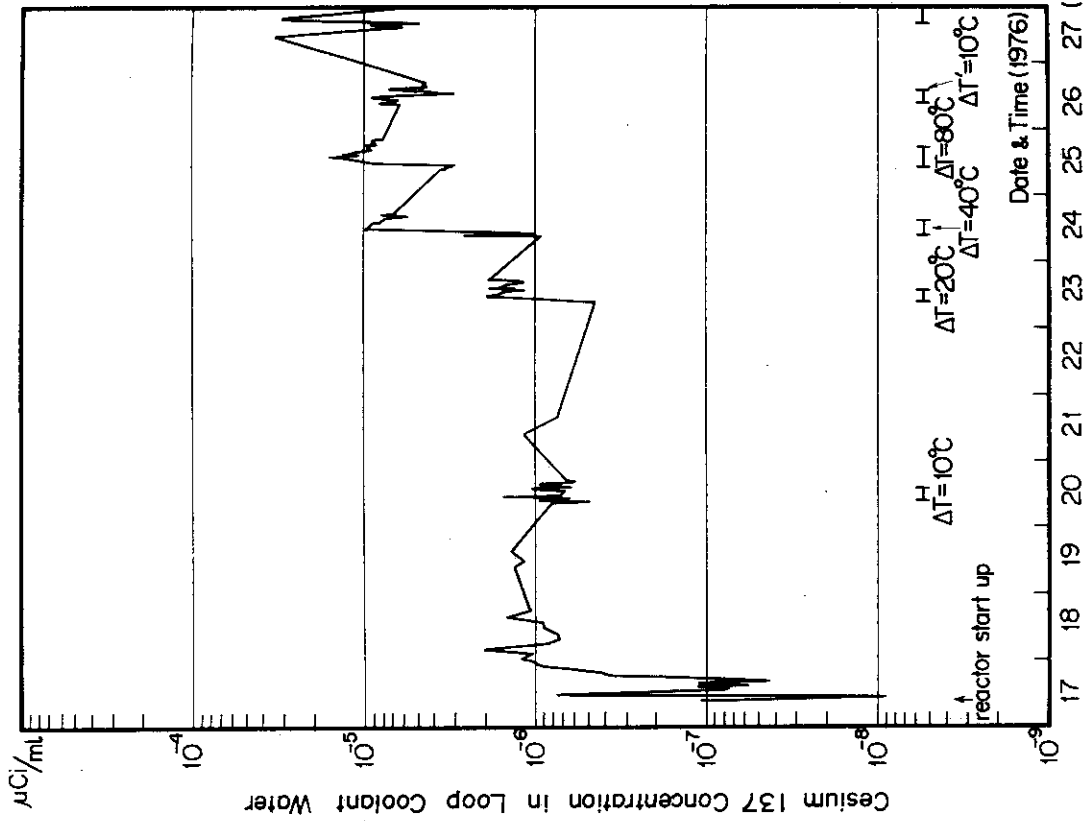


Fig. 9 ¹³⁷Cs in OWL-1 Primary Coolant (1)

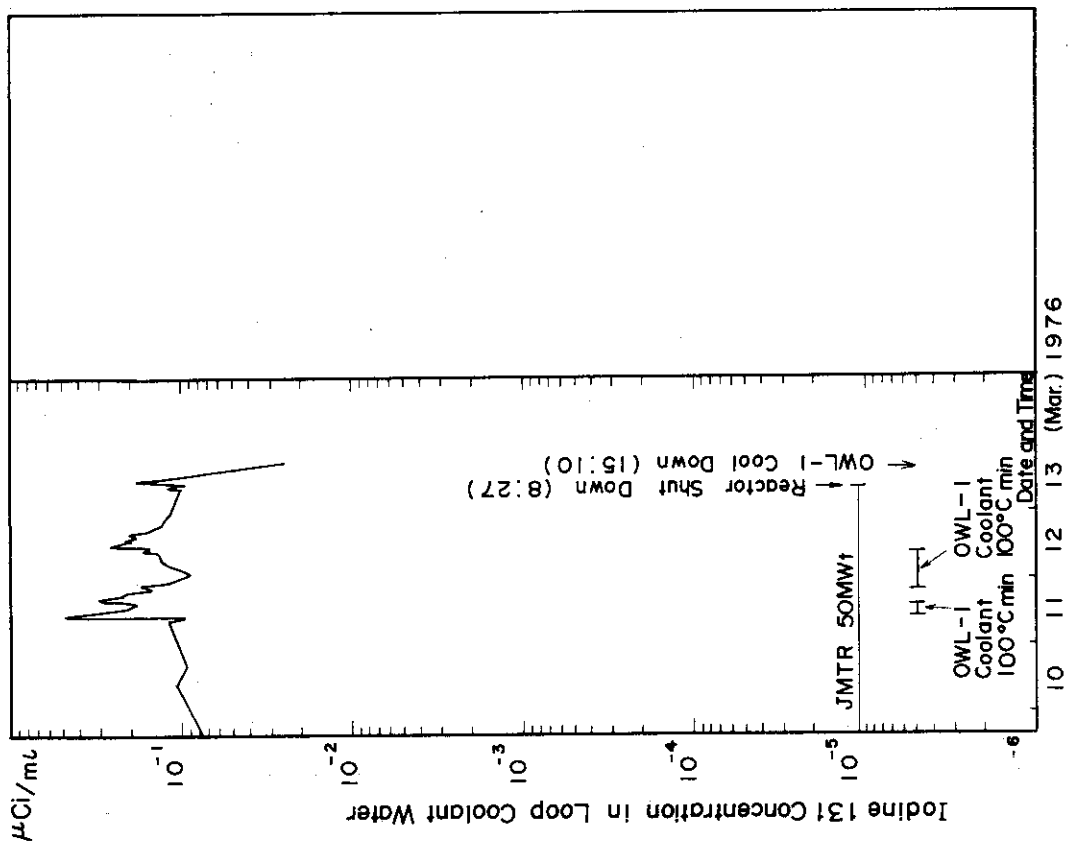


Fig. 8 ¹³¹I in OWL-1 Primary Coolant (3)

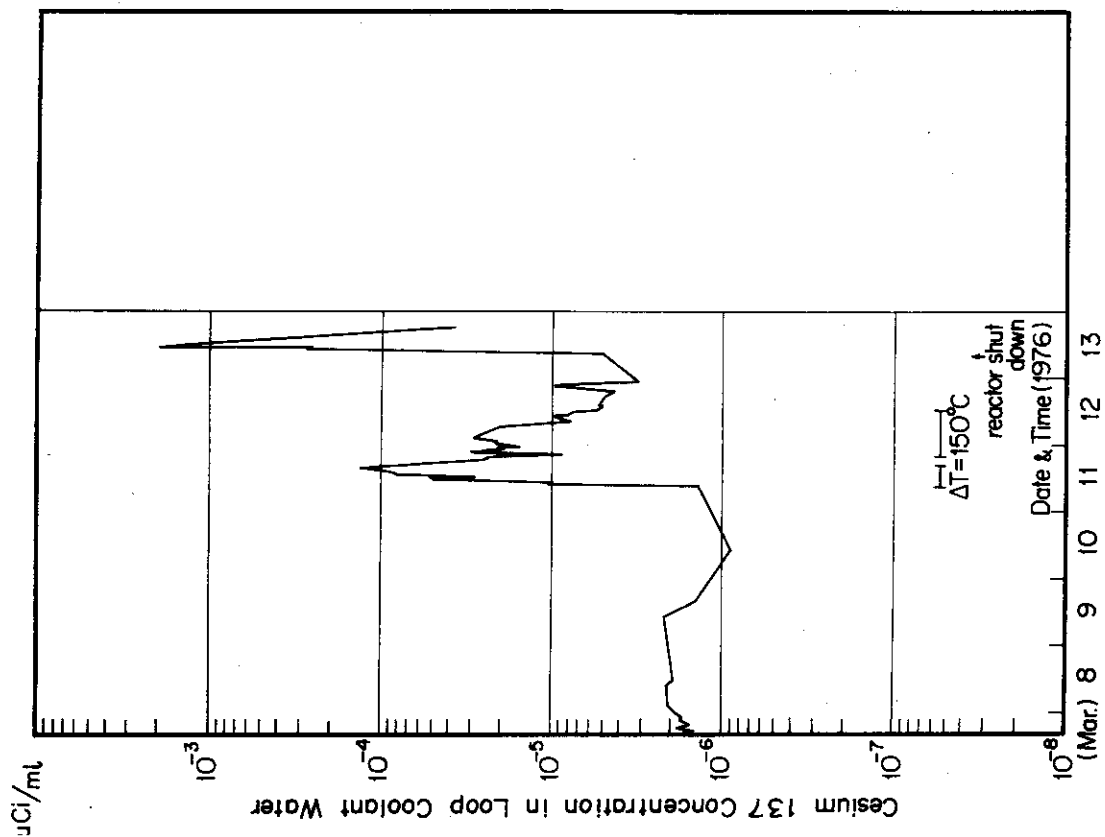


Fig. 11 ¹³⁷Cs in OWL-1 Primary Coolant (3)

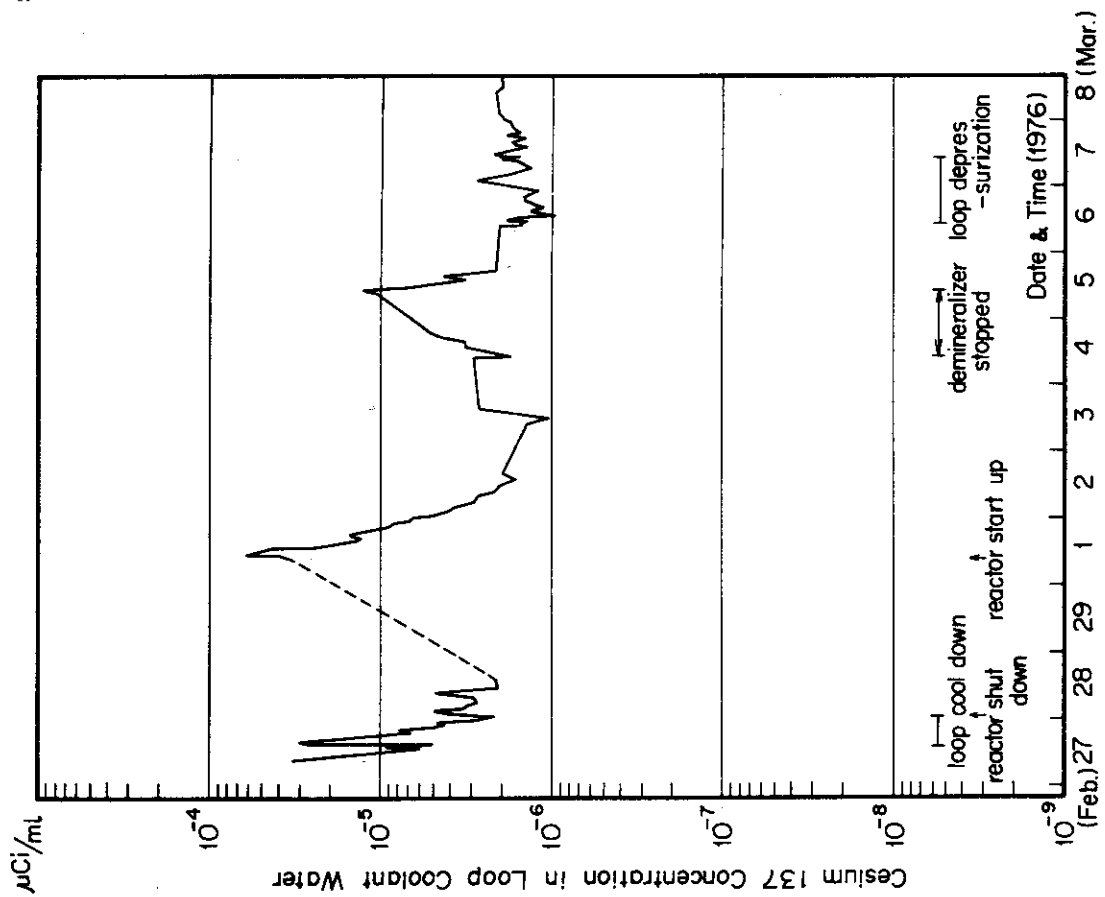


Fig. 10 ¹³⁷Cs in OWL-1 Primary Coolant (2)

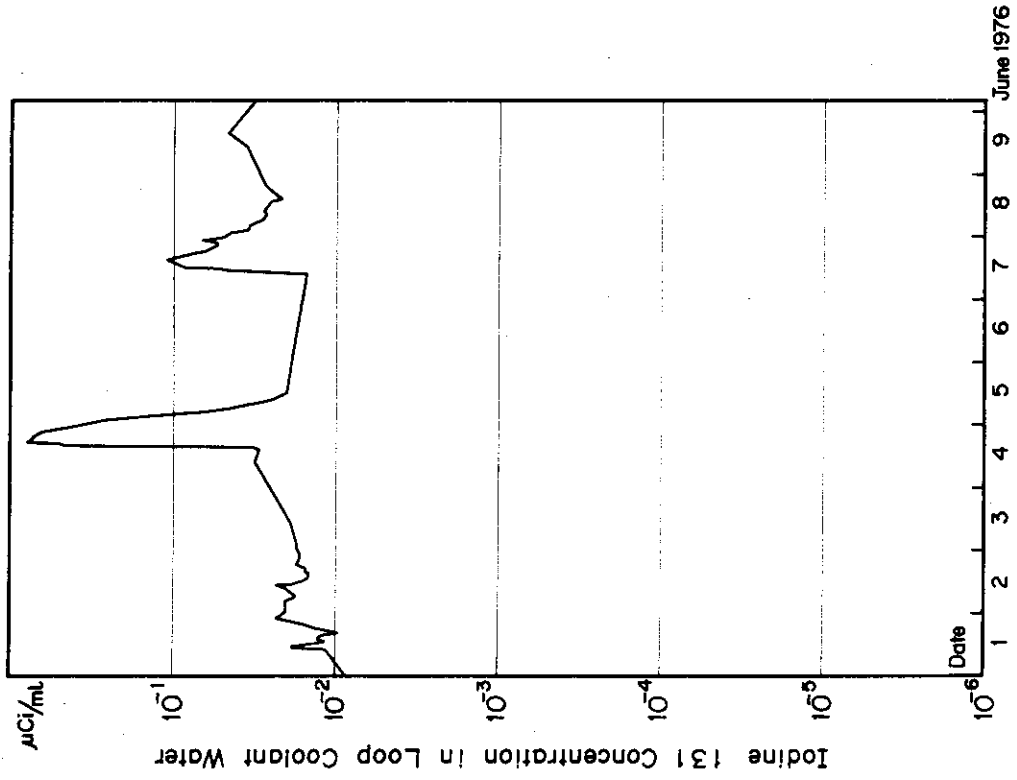


Fig. 13 Iodine 131 in Primary Coolant of OWL-1 (2)

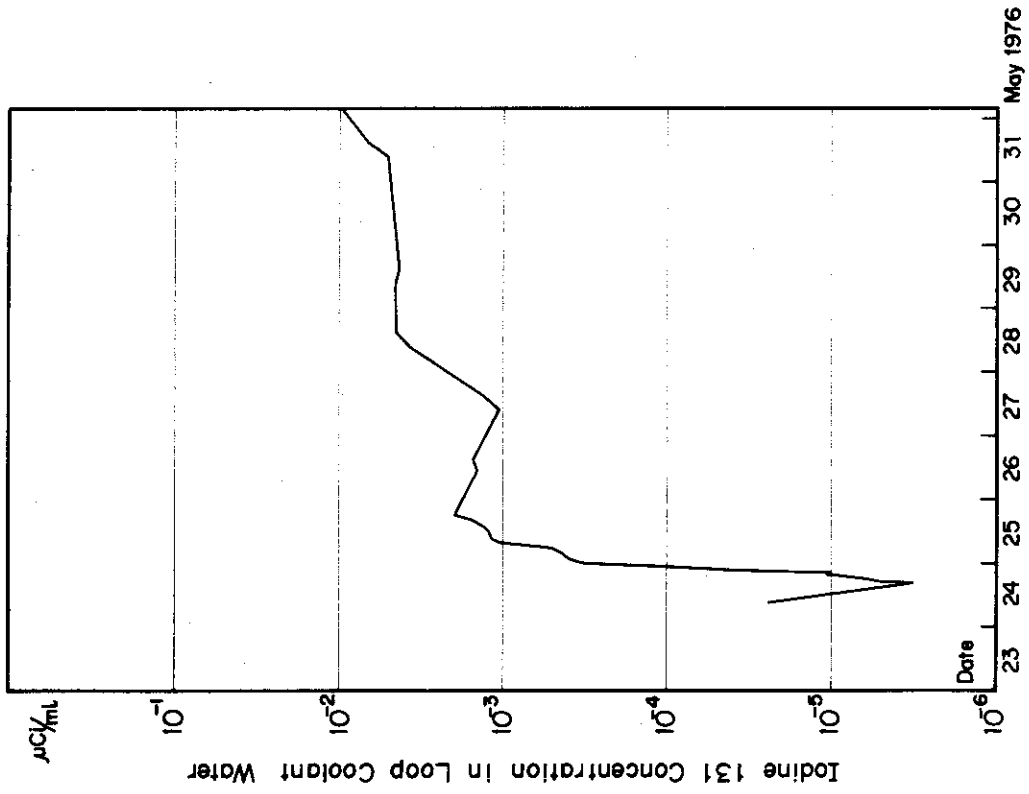


Fig. 12 Iodine 131 in Primary Coolant of OWL-1 (1)

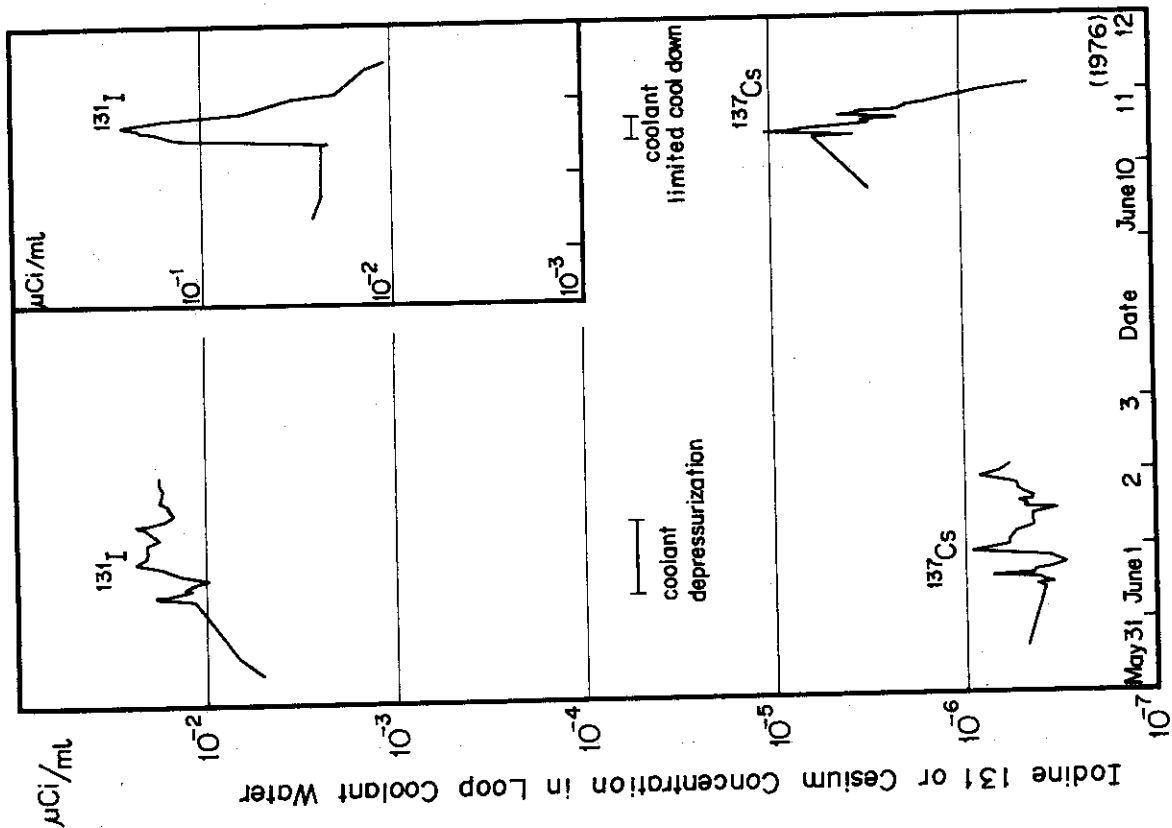


Fig. 15 Iodine 131 & Cesium 137 in Primary Coolant of OWL-1

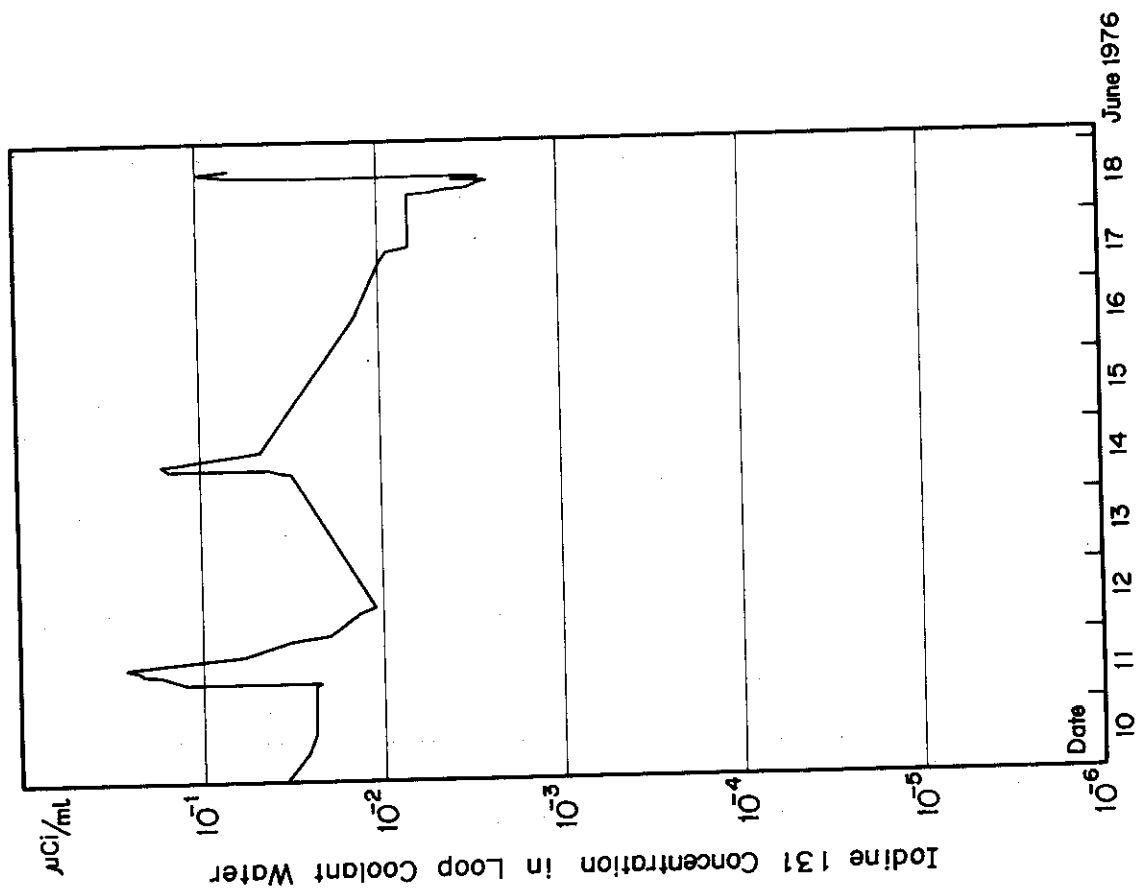


Fig. 14 Iodine 131 in Primary Coolant of OWL-1 (3)

附録 I. 日本化学会昭 47 春季年会講演予稿集 (II) (1972)

模擬燃料試料よりの放射性ヨウ素の放出

(原研東海)

石渡名澄

1. 核分裂生成物の希ガスとハロゲンを放出するに至った燃料を装荷した状態で通常運転を行なう確率は、現実の軽水炉プラントにおいて比較的大きいと予測され、このような運転時に、そしてその際の炉内条件の変動時に、燃料棒より放射性ヨウ素が放出される時に示す挙動を確かめておくことは、環境に対する放射性ヨウ素の放出過程の解明およびその放出挙動の予測のために重要な一つの段階であると考えられる。現存の軽水炉炉心にはほぼ類似した範囲にある熱的、核的条件を設定し、放射性ヨウ素の平均放出率をまず求めた。

2. 模擬燃料試料 (以下、試料とする) は、外径 12.3mm、長さ 84.95mm のジルカロイ合金製円筒中に、外径 10.63mm、長さ 14.66mm の UO_2 ペレット (235 濃縮度 2.7%) を入れ、筒の上端に 20μ および 200μ の孔を 1 個ずつ付けたものである。試料は、JMTR の OWL-1 において 1971 年 8 月 13 日から 9 月 3 日の期間照射したが、目標照射条件は、沸騰水型雰囲気、圧力 71kg/cm^2 、温度 288°C 、冷却水流量 25kg/min そして熱中性子束約 $3 \times 10^{13}\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ であった。照射期間中および照射終了時に、ループ冷却水を採取し、試水中の放射性ヨウ素を四塩化炭素抽出-ヨウ化銀沈殿法により分離し、 γ 線スペクトロメトリーにより ^{131}I (および ^{133}I) を測定した。一方、試水の pH、電気伝導度、溶性ケイ酸なども測定した。放射性ヨウ素の測定結果から設定時間範囲内における平均放出率を計算した。

3. 照射実験施設内の試水採取点から、試料の照射期間中および照射終了時に、ループ冷却水をそれぞれ 112 点および 21 点採取し、放射性ヨウ素などの測定を行なった。採取した試水について測定した限りでは、水質状態は、 $0.71 \leq \text{電気伝導度} \leq 1.30$ ($\mu\Omega/\text{cm}$)、 $6.4 \leq \text{pH} \leq 8.3$ 、 $0.37 \leq \text{溶性ケイ酸} \leq 0.92$ (ppm) であり、蒸気分中の溶性ケイ酸は $0.02 \sim 0.03$ ppm、放射性ヨウ素の気相と液相間の濃度比は、最大 0.72%、最小 0.29%、平均 0.45% (5 測定値) であった。照射開始後 14 日目と 20 日目に約 2.8% の圧力減小を与える実験を 8 回 (4 回/日) 行なったが、4 回の実験において測定した ^{131}I 濃度の変化が有意の差を示し、圧力減小とともに ^{131}I 濃度が増大する例は 2 回、そして ^{131}I 濃度が減小する例も 2 回であった。照射期間中、目標照射条件下における ^{131}I の平均放出率の最大値は、照射開始後 20 日目の $0.7\mu\text{Ci/sec}$ であり、加圧水型雰囲気に変換したのちは照射最終日において $9.0\mu\text{Ci/sec}$ であった。圧力変化付与とともに ^{131}I 濃度変化時のその平均放出率の最大値は約 $11\mu\text{Ci/sec}$ であった。照射終了直後、冷却水中の ^{131}I の濃度増大は約 30% であり、その時の ^{131}I の平均放出率は $32\mu\text{Ci/sec}$ に達した。

水質条件、放射性ヨウ素の気相・液相間の濃度比および照射終了直後の放射性ヨウ素の放出挙動は、JPDR において確認した現象とはほぼ一致する傾向を示した。ループの性能上の制約により圧力変動の付与は約 3% が限界であり、圧力変化量が小さかったため、圧力変動にともなう ^{131}I の放出挙動は明らかにできなかった。

附録2 日本化学会昭49春季年会講演予稿集(Ⅱ)(1974)

水ループ冷却系内におけるFPの放出挙動- ^{131}I と ^{137}Cs の測定

(原研 東海) 石渡名澄

1. 軽水型動力炉において原子炉内に破損燃料を装荷している場合、その運転様式に対応して、原子炉起動時の出力上昇時および原子炉停止時に、核分裂生成物(FP)の放出率が急激に増大する場合がある。先述のような場合のFPの測定例については、すでに2・3報告済である*。この講演においては、日本原子力研究所材料試験炉の水ループ(JMTR・OWL-1)において、軽水型動力炉々心と類似した温度・圧力条件の下で、人工欠陥孔付被覆管を用いた燃料試料を照射している際に、ループ一次冷却水の降温時とそれに続く原子炉停止時に冷却水を採取し、試水中中の ^{131}I と ^{137}Cs を測定し、これらの核種の放出挙動について調べた結果を報告する。

2. 昭和47年7月7日から8日の間の表示の時刻に、ループ一次冷却水を約2ℓずつ14点採取した。これらの試水をJPDR化学実験室に搬入し、次に記すような方法で ^{131}I と ^{137}Cs を測定した。先ずミリポア濾紙HA(孔径0.45 μ)により試水2ℓを減圧濾過した。濾紙上残分試料(CRUD)はそのまま密封して ^{131}I などの測定に使用した。濾液側試料(Filtrate)は、10~100mlの範囲においてその ^{131}I ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)量に応じて一定量を計り取り、次の分離操作を施こした。計りとった試水を分液漏斗に移し、I担体(KIとして)を加え、酸化処理してから CCl_4 に抽出分離し、次に還元処理して水相に逆抽出した。硝酸銀を加えてAgIとして沈殿させた。担体Iの化学収率を定めてから γ 線スペクトロメトリー(GS)により ^{131}I を測定し

採取時刻 月日時分	^{131}I	^{137}Cs
7 7 2000	0.23 ₆	0.068 $\times 10^{-4}$
7 7 2040	0.18 ₁	0.12 ₃ $\times 10^{-4}$
7 7 2115	0.20 ₁	0.34 ₄ $\times 10^{-4}$
7 7 2210	0.28 ₈	0.61 ₄ $\times 10^{-4}$
7 7 2240	0.32 ₉	0.70 ₄ $\times 10^{-4}$
7 7 2310	0.29 ₃	0.63 ₃ $\times 10^{-4}$
7 8 100	0.35 ₈	0.55 ₄ $\times 10^{-4}$
7 8 120	0.42 ₁	0.55 ₇ $\times 10^{-4}$
7 8 140	0.42 ₃	0.53 ₀ $\times 10^{-4}$
7 8 200	0.41 ₃	0.46 ₇ $\times 10^{-4}$
7 8 305	0.39 ₄	0.42 ₃ $\times 10^{-4}$
7 8 400	0.28 ₈	0.38 ₂ $\times 10^{-4}$
7 8 445	0.057 ₄	0.32 ₄ $\times 10^{-4}$
7 7 2145	0.27 ₂	0.53 ₈ $\times 10^{-4}$

(単位: $\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

た。試水採取後約1年間冷却したFiltrate 1ℓ(1+1塩酸100ml添加処理済)にCs担体(CsClとして)を加え、加熱により蒸発させて試料溶液の体積を約20~30mlに縮小した。Fe, Ce, Zrの水酸化物によりスカベンジングしたのちの試料溶液に塩化白金酸を加え、NaOH溶液を用いてpHを約10に調節し、 Cs_2PtCl_6 の沈殿を生成させた。担体Csの化学収率を定めてからGSにより ^{137}Cs を測定した。

3. ループ一次冷却水中の ^{131}I と ^{137}Cs の測定結果を上表に示す。燃料試料から冷却水中に放出される時の ^{131}I の挙動と ^{137}Cs のそれを比較した場合、ループ一次冷却水の降温時には原子炉停止時に比較して、見かけ上十分大きな割合で ^{137}Cs の放出が行なわれていることを示している。 ^{131}I の放出挙動は、相対的に複雑である。冷却水降温; 7日19:00, 原子炉停止; 1:00。

なお、 ^{137}Cs の分離と測定は、主として本研究所安全工学部燃料安全第2研究室の永井斎氏の協力を得、 ^{137}Cs の測定結果の整理は、主として同所の武田常夫氏の協力を得た。

* (1) JAERI-1135(1967), (2)日本化学会第26春季年会2K24等

附録3. 日本原子力学会昭51秋季分科会, (化学, 化学工学, 保健物理) 要旨集(1976)

水ループによる人工欠陥燃料試料の照射実験

原研東海, *原研大洗 石渡名澄, 山本克宗, 永井斎, 岡川誠吾, 横内猪一郎

BWRの主蒸気管破断事故時には, 原子炉冷却水の圧力が低減し, 破損燃料棒から原子炉冷却水中にFPが追加放出される。FP追加放出の様相を究明するため, JMTR水ループにおいて一連の人工欠陥燃料試料を照射しているが, 今回はループ一次冷却水圧力を低減させ, およびループ一次冷却水温度を降下させる条件を付与し, FPの放出挙動を測定した。圧力および温度の変動が欠陥穴から放出されるFPの挙動に及ぼす影響を検討した。

二酸化ウランペレット(ウラン235濃縮度1.5%, 直径13.45mm, 高さ18.0mm)2個をステンレス・スチール製被覆管(外径15.0mm, 厚み0.6mm, 全長約130mm)に密封し, プレナム部被覆管中央に欠陥穴(穴径約100 μ m)1個を付けた試料を, FP放出源として使用した。JMTR・OWL-1において, 加圧水型運転条件(冷却水圧力71kg/cm², 冷却水温度250 $^{\circ}$ C, 冷却水流量40kg/min)で上記の人工欠陥燃料試料を照射した。測定を行った期間は, 50年5月29日から6月17日であるが, 期間中に2回の照射中断(6月6日~7日, および6月10日~14日)が発生した。圧力変動(71 \rightarrow 61kg/cm², 61kg/cm²を約24時間持続後, 61 \rightarrow 71kg/cm²)付与実験は6月2~3日に行った。6月16日には温度変動(冷却水温度250 $^{\circ}$ C \rightarrow 175 $^{\circ}$ C \rightarrow 250 $^{\circ}$ C)付与実験を行った。圧力および温度変動付与の前後の冷却水中のよう素131(μ Ci/ml)およびセシウム137(μ Ci/ml)を測定した。

よう素131およびセシウム137の測定結果から, それぞれの全放出量および見かけの平均放出率を求めた。例えば, a. 圧力変動直前(30分間)の平均放出率=1.1, μ Ci ¹³¹I/sec, b. 圧力変動直後(4hr)の平均放出率=1.8, μ Ci ¹³¹I/sec, c. 61kg/cm²冷却水圧力時の全放出量=7.8 \times 10⁻² Ci ¹³¹I, d. 61kg/cm²冷却水圧力時の平均放出率0.9 μ Ci ¹³¹I/sec, e. 温度変動直前の平均放出率=0.5, μ Ci ¹³¹I/sec, f. 温度変動状態時の平均放出率=6.9 μ Ci ¹³¹I/sec, g. 冷却水温度復帰後の平均放出率=1.8 μ Ci ¹³¹I/sec, など。

- ① 冷却材の圧力低減により, ¹³¹Iの放出率は1.6倍に増大した。
- ② ¹³¹Iと¹³⁷Csの放出挙動において, 傾向が類似する点と相異なる点が認められた。
- ③ 水ループによる人工欠陥燃料試料照射の場合, 被覆管に微小穴が存在するプレナム中の雰囲気は, 主として水蒸気状態の変化をとともなう相変化が常時生じており, この変化の程度は熱中性子束密度, 冷却水温度, 冷却水圧力などの因子に対する外乱付加時に大きいと考えられる。軽水型動力炉の平常運転条件の範囲においては, 破損燃料棒プレナム中の水分が燃料外部の冷却水中に移行する駆動力は, 主として, 外乱付加時の温度(燃料ペレット, 冷却水)および圧力(冷却水)の変化にとともなうプレナム中の相平衡の移動によるプレナム内圧力の変化に依るものと推定された。