

JAERI - M
85-199

照射済み UO_2 ペレットの加熱による
炉外FP放出実験

1985年12月

石渡 名澄・永井 齊

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 印刷 いばらき印刷(株)

照射済み UO_2 ペレットの加熱による
炉外 FP 放出実験

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

石渡 名澄・永井 齊

(1985年11月14日受理)

軽水型原子力発電所の原子炉の燃料損傷事故条件下における燃料からのFP放出割合については、NUREG-0772において具体的な数値データが提出された。上述の数値データを評価するため、相対的に小規模の実験装置を用いる測定方法を開発した。1500℃以上の温度範囲において、燃料からのFPのCsの放出割合は相対的に大きいので、高周波誘導加熱炉を含む実験装置を用いて、照射済み UO_2 ペレットからの ^{137}Cs の放出割合を測定した。照射済み UO_2 ペレットはNSRR及びJMTR-RABBITを用いて製作した。実験における加熱条件の下で、 ^{137}Cs の放出割合は、NSRR照射のペレットでは0.51(雰囲気Ar, 加熱時間12.2分, 加熱温度範囲1500~2080℃), RABBIT照射のペレットでは0.63, 0.59, 0.81及び0.78(a) 雰囲気Ar, 加熱時間10.7分, 加熱温度範囲1500~1740℃; b) 同Ar, 同32.8分, 同1500~2255℃; c) 同Ar+蒸気, 同22.0分, 同1500~2230℃; d) 同Ar+蒸気+ H_2 , 同14.0分, 同1500~2030℃)であった。Ba, RuそしてCeの放出割合も測定した。これらの放出割合から見かけ平均放出速度を算出した。

Out-pile FP release experiment by heating of irradiated
UO₂ pellet

Nasumi ISHIWATARI and Hitoshi NAGAI
Department of Fuel Safety Research
Toaki Research Establishment, JAERI

(Received November 14, 1985)

Several fission product (FP) release fraction rates under conditions of severe fuel damage accident at LWR have been proposed in NUREG-0772.

To evaluate the accuracy of the release fraction rates as described above, an experimental method for the use of the apparatus in relatively small scale was developed.

For the reason of relatively great release fraction rate of ¹³⁷Cs at the temperature higher than 1500°C, those rates from the irradiated UO₂ pellets were measured by using of the apparatus containing a high frequency induction pile.

The irradiated UO₂ pellets were produced at NSRR and JMTR-RABBIT. Under heating conditions of UO₂ pellet in experiments, the release fractions of ¹³⁷Cs were 0.51 (irradiated at NSRR^a, heated at temperature range from 1500°C to 2080°C^b for 12.2 minutes^c in Ar atmosphere^d), 0.63 (a; JMTR-RABBIT, b; 1500~1740°C, c; 10.7 min., d; Ar), 0.59 (a; RABBIT, b; 1500~2255°C, c; 32.8 min., d; Ar), 0.81 (a; RABBIT, b; 1500~2230°C, c; 22.0 min., d; Ar+steam) and 0.78 (a; RABBIT, b; 1500~2030°C, c; 14.0 min., d; Ar+steam+100 ml of H₂), respectively.

By using the fractions as above, the apparent release fraction rates of ¹³⁷Cs (in average) were calculated. Those rates of Ba, Ru and Ce were measured, too.

Keywords: Fission Product, Fission Product Release, Severe Fuel Damage Accident, Severe Core Damage Accident, Nuclear Reactor Safety, Light Water Reactor, Uranium Dioxide Pellet, Irradiated Uranium Dioxide Pellet, Cesium-137, Release Fraction Rate

目 次

1. はしがき	1
2. 実 験	1
2.1 実験装置	1
2.2 燃料試料	2
2.3 加熱実験	2
2.4 測定用試料溶液の調製	3
2.5 試料の γ 線測定	4
2.6 測定結果	4
3. 討 論	4
4. む す び	6
付 記	7
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Experimental apparatus	1
2.2 Irradiations of fuel rods	2
2.3 Heating of UO ₂ pellets after irradiations	2
2.4 Samples for gamma ray spectrometry	3
2.5 Gamma ray spectrometric analysis	4
2.6 Results of measurements	4
3. Discussion	4
4. Conclusion	6
Acknowledgement	7
References	7

1. は し が き

1979年3月末にTMI-2原子炉の事故が発生したが、上述の事故は軽水型原子力発電所(LWR)の原子炉重大事故に対する社会一般の関心と注目を呼び起こした。代表的なLWR炉心損傷(Severe Core Damage; SCD)事故モデルの1例としては、冷却材喪失事故により損傷炉心が崩壊落下して、原子炉压力容器の破損を経由して、原子炉容器から融体が離脱するまでの事故進行の過程を含み、炉心内燃料が崩壊を開始する時にFP放出が始まると仮定する例をあげる⁽¹⁾ことができる。

LWR炉心の燃料損傷事故時の核分裂生成物(FP)放出割合については、すでにNUREG-0772において、具体的な数値データが提出されている⁽²⁾。日本原子力研究所(原研)においても、国際協力関係を主軸とする原子炉の炉心損傷挙動の研究が進展しつつあるが、筆者は、原子力安全性研究展開の基盤を構築する過程において相対的に基礎的な作業の一つとして、燃料損傷事故条件下のFP放出割合を測定する方法を確立することが必要であると考えに至った。

可能な限り簡易な実験手法によりSCD事故条件下の燃料からのFP放出割合の測定方法を確立するため、次にあげるような考え方を基に、予備的先行実験^(*1)の結果を踏まえて以下に報告する実験を遂行した：①パルス状中性子または短時間中性子照射により照射済みUO₂ペレットを製作する、②高周波誘導方式(グラファイトルツボ使用)によりペレット試料を加熱する、③測定実験により得られたFP放出量と同実験条件下のNUREG-0772提示のFP放出分率速度に依拠して換算した放出量を基に比較検討する。

2. 実 験

2.1 実験装置

照射済みUO₂ペレットを加熱して温度を上昇させるため、鉄製円筒(外径250mm×奥行250mm、前面に開閉扉がある)タンクの中央部分の位置に試料加熱用ルツボ(内径18mm×深さ20mm)があり、タンク内雰囲気は排気系に設けた水-活性炭の各トラップを経由して外気と連結する状態において、試料温度を約2400℃まで上昇し得る高周波誘導方式加熱装置を製作した。Fig. 1に同装置のタンク部分の概略を、Fig. 2に試料加熱用ルツボを含む熱遮蔽体の軸方向中心部断面を、そしてFig. 3に同装置系の担体ガス流路概要を示す。

* 1 日本原子力学会秋の分科会(昭和57年10月神戸商船大)講演番号K2, 及び同学会秋の分科会(昭和58年9月北大)講演番号J18

1. は し が き

1979年3月末にTMI-2原子炉の事故が発生したが、上述の事故は軽水型原子力発電所(LWR)の原子炉重大事故に対する社会一般の関心と注目を呼び起こした。代表的なLWR炉心損傷(Severe Core Damage; SCD)事故モデルの1例としては、冷却材喪失事故により損傷炉心が崩壊落下して、原子炉圧力容器の破損を経由して、原子炉容器から融体が離脱するまでの事故進行の過程を含み、炉心内燃料が崩壊を開始する時にFP放出が始まると仮定する例をあげる⁽¹⁾ことができる。

LWR炉心の燃料損傷事故時の核分裂生成物(FP)放出割合については、すでにNUREG-0772において、具体的な数値データが提出されている⁽²⁾。日本原子力研究所(原研)においても、国際協力関係を主軸とする原子炉の炉心損傷挙動の研究が進展しつつあるが、筆者は、原子力安全性研究展開の基盤を構築する過程において相対的に基礎的な作業の一つとして、燃料損傷事故条件下のFP放出割合を測定する方法を確立することが必要であると考えに至った。

可能な限り簡易な実験手法によりSCD事故条件下の燃料からのFP放出割合の測定方法を確立するため、次にあげるような考え方を基に、予備的先行実験^(*1)の結果を踏まえて以下に報告する実験を遂行した：①パルス状中性子または短時間中性子照射により照射済みUO₂ペレットを製作する、②高周波誘導方式(グラファイトルツボ使用)によりペレット試料を加熱する、③測定実験により得られたFP放出量と同実験条件下のNUREG-0772提示のFP放出分率速度に依拠して換算した放出量を基に比較検討する。

2. 実 験

2.1 実験装置

照射済みUO₂ペレットを加熱して温度を上昇させるため、鉄製円筒(外径250mm×奥行250mm、前面に開閉扉がある)タンクの中央部分の位置に試料加熱用ルツボ(内径18mm×深さ20mm)があり、タンク内雰囲気は排気系に設けた水-活性炭の各トラップを経由して外気と連結する状態において、試料温度を約2400℃まで上昇し得る高周波誘導方式加熱装置を製作した。Fig. 1に同装置のタンク部分の概略を、Fig. 2に試料加熱用ルツボを含む熱遮蔽体の軸方向中心部断面を、そしてFig. 3に同装置系の担体ガス流路概要を示す。

* 1 日本原子力学会秋の分科会(昭和57年10月神戸商船大)講演番号K2, 及び同学会秋の分科会(昭和58年9月北大)講演番号J18

2.2 燃料試料

炉外FP放出実験用の照射済み UO_2 ペレットは、原研の該当照射施設において照射技術上受入れ可能な状態の燃料棒試料を製作して、1個はNSRR^(*)2)において、他の4個はJMTR-RABB-IT^(*)3)において照射する方法により作成した。Table 1に、各燃料棒試料に使用した照射前 UO_2 ペレットの仕様を示す。Photo. 1に、組立前のラビットカプセル構成部品及び中性子照射前のラビットカプセル完成品を示す（なおラビット照射用燃料棒には UO_2 ペレット2個を装填し、計2本の燃料棒に対してそれぞれラビット照射用カプセルを製作した）。各照射済み UO_2 ペレットの ^{137}Cs 生成量（測定値）から換算する方法により、各試料の燃焼度としてNSRR照射に対して $1 \times 10^{-5} \%$ 、RABBIT照射に対して $3.2 \times 10^{-4} \%$ ^(*)4)及び $4.6 \times 10^{-4} \%$ ^(*)4)を算出した。

2.3 加熱実験

予備的実験を行って実験装置の性能を確認するとともに、模擬試料を用いて多数回に及ぶ予備実験を遂行したのち、加熱実験の操作手順を確立した^(*)1)。確立済みの操作手順に従って、以下に記すような加熱実験を行った。

各加熱実験において、Fig. 1～3に示すようなルツボの部分に照射済み UO_2 ペレットを納め、タンク内の雰囲気空気を空気からアルゴンに置換したのち、アルゴンを流しつつ加熱した（アルゴン流量、約 $1 \ell/\text{分}$ ）。

NSRRにおいて照射した UO_2 ペレットは、照射済み燃料棒試料から取り出す時にほぼ等体積の分塊30個に割れたので、分塊すべてをルツボに納め、Fig. 4の加熱時間—ペレット試料温度のグラフに示すような加熱実験を行った^(*)5)。

第1番目及び第2番目のRABBIT照射の UO_2 ペレットについても、NSRR照射試料と同様に加熱実験を行った（Fig. 5, Fig. 6）。第3番目のRABBIT照射の UO_2 ペレットについては、加熱を開始してから16分後にタンク内に蒸気流を流し入れた（アルゴン流量、約 $0.3 \ell/\text{分}$ 。蒸気流量^(†1)、水として約 4 g 相当/分、Fig. 7^(*)5)）。第4番目のRABBIT照射の UO_2 ペレットに対しては、加熱を開始してから14分後にタンク内に蒸気流を流し入れ、19.5分後に担体ガス流に水素ガス 100 m^3 （室温、 1 atm ）を添加した（アルゴン及び蒸気の流量は第3番目のペレット加熱時と同じにした。Fig. 8^(*)5)）。

* 2 Nuclear Safety Research Reactor

* 3 Japan Material Testing Reactor

* 4 2個の測定値の平均

* 5 装置附属の温度制御部が室温から 1500°C までの温度範囲を記録計に表示し得ない方式であるので、グラフにおいては点線で示した。

† 1 蒸気の $1/7$ はルツボ加熱部分のShielding pipe (Fig. 2, No. 6) の底部から入り、同Shielding cap (Fig. 2, No. 2) から出るように流れ、蒸気の $6/7$ は、タンク下部から一様にタンク内部空間 (Fig. 3, No. 15) に流れ込むように導入した。

RABBIT 照射試料については、照射してから冷却した後の燃料棒試料の X 線写真を撮影したところ、2本の燃料棒ともに、内部の UO_2 ペレットの1部分に破砕が認められたので、ペレットを取り出す時に全体破砕が生じるのを避けるため、照射済み燃料棒試料の被覆管を切断する前にペレット-被覆管間隙に樹脂を充填して固化したのち、被覆管付きのペレット試料を採取してルツボに移した。また第4番目の RABBIT 照射の UO_2 ペレットは、被覆管切断位置に誤差を生じたためと推定し得る原因により、ペレット高さが約 0.2 ~ 0.3 mm (推定) 不足し、ペレット底部に厚みが約 0.2 ~ 0.3 mm (推定) のアルミナ円板が固着した。ルツボにペレット試料を移す前に、アルミナの大部分を削り除いた。測定実験の誤差に対する UO_2 減損の誤差の影響は無視し得ると推定し得たので、試料の γ 線測定結果に対する補正は考慮しなかった。

ルツボを加熱することによりペレット試料の温度が上昇する過程において、樹脂の揮発生成物及び分解生成物を放出することを予想し得たので、RABBIT 試料に対しては石英ガラスカバー (Fig. 2, No. 1) を使用しないで加熱実験を行った。そしてタンク内表面等附着物のふき取りに際しては、アセトンを含む湿ったティッシュ紙を用いた。

2.4 測定用試料溶液の調製

各照射済み UO_2 ペレット試料について、それぞれ加熱実験を終了する毎に、次のような測定用試料の回収操作を行った。実験装置系は試料を含めて密封状態を保持しながら1夜から3昼夜程度放置して冷却した。それから同装置系内を分解した。そしてペレット、装置系内の放出 FP 附着の物体、及びタンク内側表面のふき取り紙を回収した。回収後の各採取物に対して次のような処理を行った； UO_2 ペレット (Fig. 2, No. 4), 濃硝酸を加えて加熱溶解した。放冷後、水を加えて正しく 1 ℓ にした。 ZrO_2 製外筒 (Fig. 2, No. 6), 2 N 硝酸に浸して2時間加熱した。放冷後、外筒を除いて加熱し、溶液をほとんど蒸発した。No. 5 A 濾紙を用いて溶液を濾過した。濾過液に水を加えて正しく 100 ml にした。内筒 (ZrO_2 製, Fig. 2, No. 3), 内筒蓋 (ZrO_2 製, Fig. 2, No. 2) 及び粒状筒間充填材 (ZrO_2 製, Fig. 2, No. 8), ZrO_2 製外筒と同様に処理した。電極コイル (外筒の周囲に在り、環状銅製), 0.1 M クエン酸溶液約 300 ml 中に浸して沸騰するまで加熱した。溶液を放冷したのち、電極を取り出してから再度溶液を加熱し、溶液の体積を 100 ml よりも小さくした。放冷後、水を加えて正しく 100 ml にした。ルツボ (原子炉級グラファイト製, Fig. 2, No. 5), 1 : 1 硝酸に浸して2時間加熱した。ルツボを取り出してから溶液を加熱してほとんど蒸発した。溶液に約 30 ml の水を加えてから No. 5 A 濾紙で濾過した。濾過液に水を加えて正しく 100 ml にした。タンク内側表面附着物 (Fig. 1 ; Fig. 3, No. 15^(*6)), アセトンを含む湿ったティッシュ紙でタンク内側表面をふき取り、白金ルツボ中で同ティッシュ紙を灰化した。濃硝酸を加えて灰化物を溶解し、少量の水を加えてから No. 5 A 濾紙を用いて濾過した。

* 6 タンク内側表面を上, 中, 下の各部分に分割して試料採取を行ったが、測定結果を整理した際に一括して表示した。また、NSRR 試料及び RABBIT 試料 (第1番目と第2番目 UO_2 ペレット) では、トラップ水の γ 放射能が無視し得る程度であったので、タンク内側表面附着物試料と一括して測定に供用した。

濾過液に水を加えて正しく 100 ml にした。トラップ水 (Fig. 3, No. 22), 1 : 1 硝酸 20 ml を加えてから水を加えて正しく 100 ml にした。石英ガラスカバー (Fig. 2, No. 1, NSRR 試料に対してのみ使用), 1 : 1 硝酸に浸して加熱した。石英ガラスカバーを除いてから溶液を加熱して溶液の体積を 100 ml よりも小さくした。水を加えて正しく 100 ml にした。活性炭 (粒状, Fig. 3, No. 22), 新活性炭を加えて約 100 ml (見かけ体積) にしてから, 100 ml のポリエチレン製容器 (蓋付) に密封した。十分に混合したのちに測定に供用した。

2.5 試料の γ 線測定

活性炭以外の試料溶液については, 100 ml のポリエチレン製容器 (蓋付) に試料溶液を正しく 100 ml 移してから密封した。 γ 線スペクトロメトリーにより, 試料に含まれる放射性核種を測定した。なお本実験において測定対象とした核種は, $^{103,106}\text{Ru}$, ^{137}Cs , ^{140}Ba 及び $^{141,144}\text{Ce}$ であった。

γ 線測定には, TRACOR NORTHERN 社製 4096 ch. 波高分析器, EG&G, ORTEC 社製. 片端解放同軸型 Ge 半導体検出器 (有効体積 150 cm^3 , 検出効率 36.6%, 分解能 1.8 KeV) を用いた。測定データの処理には, OKITAC 50 / 40, ミニ・コンピュータ装置を用い, データ処理プログラムは, 原研計算センターの BOB' 73 を改造して用いた。

2.6 測定結果

各測定対象核種について, それぞれ各回収試料の測定値から算出した存在量の和と左記の和の値から UO_2 ペレット中の存在量を差し引いた数値の比を求めた。Table 2 に, 各加熱実験から得られた各測定対象核種の放出割合^(*7)を示す。

3. 討 論

すでに筆者らは, 模擬ペレット試料を加熱する実験の結果から, 高温度 (約 2000°C) における加熱時間として約 10 分程度の範囲を選択し得る事実を確認した。^(*1) 上述の経験から, 本報告の実験においては, $1500 \sim 2200^\circ\text{C}$ の温度範囲における加熱時間として 10 ~ 30 分程度を選定した。実験装置の性能上の制約により, 断熱的に瞬時にペレット試料温度を約 2000°C に至らせることが不可能であるので, 10 分よりも小さい加熱時間におけるペレットからの気体状 FP の放出速度を正しく測定することは困難であった。しかし, UO_2 ペレット試料が断熱的に瞬時に 2200°C の平衡温度に至った時にペレット中の気体状 FP の存在量 (温度, 燃焼度及び共存物質化学種とその量

* 7 測定対象核種の放出割合 = $B / (A + B)$ とする。ただし,

A ; 測定対象核種の加熱実験後の UO_2 ペレット中の残存量, 原子数。

B ; 同じく加熱実験により UO_2 ペレットからペレット外に放出された量, 原子数。

過液に水を加えて正しく 100 ml にした。トラップ水 (Fig. 3, No. 22), 1 : 1 硝酸 20 ml を加えてから水を加えて正しく 100 ml にした。石英ガラスカバー (Fig. 2, No. 1, NSRR 試料に対してのみ使用), 1 : 1 硝酸に浸して加熱した。石英ガラスカバーを除いてから溶液を加熱して溶液の体積を 100 ml よりも小さくした。水を加えて正しく 100 ml にした。活性炭 (粒状, Fig. 3, No. 22), 新活性炭を加えて約 100 ml (見かけ体積) にしてから, 100 ml のポリエチレン製容器 (蓋付) に密封した。十分に混合したのちに測定に供用した。

2.5 試料の γ 線測定

活性炭以外の試料溶液については, 100 ml のポリエチレン製容器 (蓋付) に試料溶液を正しく 100 ml 移してから密封した。 γ 線スペクトロメトリーにより, 試料に含まれる放射性核種を測定した。なお本実験において測定対象とした核種は, $^{103,106}\text{Ru}$, ^{137}Cs , ^{140}Ba 及び $^{141,144}\text{Ce}$ であった。

γ 線測定には, TRACOR NORTHERN 社製 4096 ch. 波高分析器, EG&G, ORTEC 社製. 片端解放同軸型 Ge 半導体検出器 (有効体積 150 cm³, 検出効率 36.6 %, 分解能 1.8 KeV) を用いた。測定データの処理には, OKITAC 50 / 40, ミニ・コンピュータ装置を用い, データ処理プログラムは, 原研計算センターの BOB' 73 を改造して用いた。

2.6 測定結果

各測定対象核種について, それぞれ各回収試料の測定値から算出した存在量の和と左記の和の値から UO₂ ペレット中の存在量を差し引いた数値の比を求めた。Table 2 に, 各加熱実験から得られた各測定対象核種の放出割合^(*7)を示す。

3. 討 論

すでに筆者らは, 模擬ペレット試料を加熱する実験の結果から, 高温度 (約 2000 °C) における加熱時間として約 10 分程度の範囲を選択し得る事実を確認した。^(*1) 上述の経験から, 本報告の実験においては, 1500 ~ 2200 °C の温度範囲における加熱時間として 10 ~ 30 分程度を選定した。実験装置の性能上の制約により, 断熱的に瞬時にペレット試料温度を約 2000 °C に至らせることが不可能であるので, 10 分よりも小さい加熱時間におけるペレットからの気体状 FP の放出速度を正しく測定することは困難であった。しかし, UO₂ ペレット試料が断熱的に瞬時に 2200 °C の平衡温度に至った時にペレット中の気体状 FP の存在量 (温度, 燃焼度及び共存物質化学種とその量

* 7 測定対象核種の放出割合 = $B / (A + B)$ とする。ただし,

A ; 測定対象核種の加熱実験後の UO₂ ペレット中の残存量, 原子数。

B ; 同じく加熱実験により UO₂ ペレットからペレット外に放出された量, 原子数。

の関数であると考えられる)が指数関数的に減少するようにFP放出が生じるモデルを仮定することにより、実験データからFPの平均放出速度を算出した。^(†2) また、 ^{137}Cs 等の放出速度の算出において、加熱時間の指数関数を一次関数で近似する操作による誤差は、装置の加熱性能上の制約及び加熱実験後のFP回収操作における誤差等の和に較べて、相対的に小さいと推定した。本報告の実験においては、 UO_2 ペレット試料の燃焼度は十分に小さく、加熱温度も相対的に低いので、加熱時に主にペレット内共存物質が気化する結果による圧力が增大することにより結晶破壊(微粉末化)が発生し、共存物質の大部分が瞬時に放出されるような現象は起り得ないと思われた。事実、加熱実験後のペレット表面に部分的融着(グラファイト、及びジルコニウム)や部分的崩壊は認められたが、ペレットはほぼ原形を保持しており、全体的な崩壊や微粉末化が生じた例は無かった。

Fig. 4～8に示すような加熱実験データ(加熱時間-試料温度グラフ)について、NUREG-0772の記載データを対照にして、FP元素(Cs, Ba, Ru)の見かけ平均放出速度(min^{-1})を算出した。^(†3)そして上述のNUREG-0772の記載データに依拠する算出値とTable 2に示す実験データから誘導した算出値を比較した。なお本報告の実験データにおいては、試料温度が 1500°C よりも低い時の検討対象FPの放出は無視し得ると仮定した。また、原子番号が同一の核種は UO_2 ペレット試料からの放出において、同一の挙動を示すと仮定した。

本報告の実験条件下において、Csの見かけ平均放出速度 R_{Cs} (min^{-1})については、実験結果とNUREG-0772に依拠する換算値 R'_{Cs} はほぼ一致を見、アルゴン雰囲気と同雰囲気蒸気添加(及び水素添加)のような雰囲気条件の相違の影響についても、有意の差は認められなかった。実験結果から導出した R_{Cs} は 7.3×10^{-2} (5個の平均値^(†4)最大誤差+63%)、同じくNUREG-0772に依拠する換算値 R'_{Cs} は 8.4×10^{-2} (5個の平均値^(†4)最大誤差-83%)であった(Table 3)。同じくRuとBaの見かけ平均放出速度(min^{-1}) R_{Ru} , R'_{Ru} 及び R_{Ba} , R'_{Ba} につい

†2 本報告の実験においては、次式で表わすFPガス放出モデルを仮定した。 $C = C_0 e^{-\alpha t}$ 。

ここで C_0 = 定温・定圧下における考慮対象化学種の放出開始時点でのペレット内存在量。

C = 定温・定圧下における考慮対象化学種の放出開始以後 t 時間経過した時点におけるペレット内存在量。 α = 考慮対象化学種の単位時間当りの放出割合(各化学種毎に個有の α をもつと仮定した)。

t = 放出開始以後の経過時間。

†3 計算手順 ① 加熱実験曲線(時間-温度)を適当な温度間隔で分割する。 1500°C 以上の加熱開始時点を含む範囲を第1範囲、以下時間の経過順に従って、第2範囲、第3範囲…とする。② ①の各範囲における平均温度及び時間幅を求める。NUREG-0772のデータから、各範囲の平均温度に対する単位時間当りの放出割合(α とする)を読みとる。③ ②の時間幅及び α を用い、FPガス放出モデルに従って、先ず第1範囲の考慮対象核種の放出割合を算出する。次に全体から第1範囲放出割合を差しひいた分について、上の操作を繰り返し、第2範囲における放出割合を算出する。さらに全体から第1範囲及び第2範囲の放出割合を差しひいた分について、上の操作を繰り返し、第3範囲における放出割合を算出する。以下、同様の考え方で計算を進める。④ 考慮対象範囲全部について、得られた放出割合の和を求める。放出割合の和と全加熱時間を用い、本報告のFPガス放出モデルに従って、見かけ平均放出速度(min^{-1})を求める。

†4 R_{Cs} と R'_{Cs} の比較においてのみ、各実験条件における見かけ平均温度の差異を無視し得ると仮定して、平均値を求めた。

では、アルゴン雰囲気において $R_{Ru} > R'_{Ru}$ 、 $R_{Ba} > R'_{Ba}$ であり、 R_{Ru} のバラツキが大きく、アルゴン雰囲気に蒸気添加（及び水素添加）の条件においても $R_{Ru} > R'_{Ru}$ の傾向を示した。そして蒸気添加により R_{Ru} がより大きくなる傾向が認められた（Table 3）。上述の差異及び傾向が生じた理由としては、測定実験に供用した試料の製造条件、照射条件、燃焼度、照射後の冷却時間、雰囲気効果の相違、実験誤差^(†5)などを推定した。なおCeについては、NUREG-0772にデータの報告がないので、比較し得なかった。 $R_{Ce}(\text{min}^{-1})$ については、アルゴン雰囲気ではバラツキが比較的大きく、蒸気添加によって明らかに増大の傾向を示した。 R_{Ce} のバラツキの原因としては、測定実験に供用した試料の燃焼度及び照射後の冷却時間の相違、実験誤差^(†5)などを推定した。また蒸気添加によって R_{Ce} がより増大する傾向を示した理由としては、 UO_2 ペレット表面部分近傍に存在するFPCeの化学形の変化に対し、蒸気が関与したことによると推定した。

本報告の実験作業の結果から、今後必要ならば、 UO_2 ペレット加熱実験装置系において高温領域（ $\geq 1500^\circ\text{C}$ ）の温度制御性に改良を加えるとともに、試料加熱炉構成部品の性能向上と簡単化を実現することにより、高精度・高確度の実験データを収集し得る可能性を確認することができた。

4. む す び

原研において今後LWR原子炉の炉心損傷挙動の研究を進める過程で、燃料損傷条件下の燃料からのFP放出割合のデータを収集する必要性及び同データ報告値の検証・評価を行う必要性が生じる時に備え、上述のFP放出割合の測定方法に関する基本的骨格を作成する目的は、本報告の実験により、ほぼ達成することができたと考える。

†5 主に温度であり、その他回収、溶解、分別、分割等の化学処理操作及び測定時の誤差が含まれる。

では、アルゴン雰囲気において $R_{Ru} > R'_{Ru}$, $R_{Ba} > R'_{Ba}$ であり、 R_{Ru} のバラツキが大きく、アルゴン雰囲気に蒸気添加（及び水素添加）の条件においても $R_{Ru} > R'_{Ru}$ の傾向を示した。そして蒸気添加により R_{Ru} がより大きくなる傾向が認められた（Table 3）。上述の差異及び傾向が生じた理由としては、測定実験に供用した試料の製造条件、照射条件、燃焼度、照射後の冷却時間、雰囲気効果の相違、実験誤差^(†5)などを推定した。なおCeについては、NUREG-0772にデータの報告がないので、比較し得なかった。 $R_{Ce}(\text{min}^{-1})$ については、アルゴン雰囲気ではバラツキが比較的大きく、蒸気添加によって明らかに増大の傾向を示した。 R_{Ce} のバラツキの原因としては、測定実験に供用した試料の燃焼度及び照射後の冷却時間の相違、実験誤差^(†5)などを推定した。また蒸気添加によって R_{Ce} がより増大する傾向を示した理由としては、 UO_2 ペレット表面部分近傍に存在するFPCeの化学形の変化に対し、蒸気が関与したことによると推定した。

本報告の実験作業の結果から、今後必要ならば、 UO_2 ペレット加熱実験装置系において高温領域（ $\geq 1500^\circ\text{C}$ ）の温度制御性に改良を加えるとともに、試料加熱炉構成部品の性能向上と簡単化を実現することにより、高精度・高確度の実験データを収集し得る可能性を確認することができた。

4. む す び

原研において今後LWR原子炉の炉心損傷挙動の研究を進める過程で、燃料損傷条件下の燃料からのFP放出割合のデータを収集する必要性及び同データ報告値の検証・評価を行う必要性が生じる時に備え、上述のFP放出割合の測定方法に関する基本的骨格を作成する目的は、本報告の実験により、ほぼ達成することができたと考える。

†5 主に温度であり、その他回収、溶解、分別、分割等の化学処理操作及び測定時の誤差が含まれる。

付 記

NSRR照射用及びRABBIT照射用(第1号品)燃料棒試料の製作は、原研東海研究所技術部
工作課に、RABBIT照射用(第2号品)燃料棒試料の製作は、原子燃料工業株式会社東海製造
所に、それぞれ依頼した。燃料棒試料の照射は、原研東海研究所安全性試験研究センター燃料安
全工学部の反応度安全研究室及びNSRR管理室、そして同大洗研究所材料試験炉部に依頼した。
RABBIT燃料棒試料の照射後試験は、同じく材料試験炉部ホットラボ課に依頼した。調製済み
測定用溶液試料の放射線測定は、同東海研究所保健物理部に依頼した。照射後試験を終了した
RABBIT燃料棒試料の輸送容器(大洗研究所→東海研究所)の借用そして同試料の一時保管に
関しては、同アイソトープ部及び同研究炉管理部ホットラボ管理室からそれぞれ便宜を受けた。
関係者の方々に謝意を表します。

なお、RABBIT燃料棒試料製作用のジルカロイ2被覆管の入手に際して、早速に御手配下さ
った原子燃料工業株式会社東海製造所製造部の金子光信次長に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) Haskin F.E. et al. : NUREG/CR-1988 (1981) など
- (2) US. NRC : NUREG-0772 (1981)
- (3) Osborne M.F. et al. : Proceedings of International Meeting on LWR
Accidents Evaluation, (Aug. 28 ~ Sept. 1, 1983), Cambridge,
Massachusetts. (USA)

付 記

NSRR照射用及びRABBIT照射用（第1号品）燃料棒試料の製作は、原研東海研究所技術部工作課に、RABBIT照射用（第2号品）燃料棒試料の製作は、原子燃料工業株式会社東海製造所に、それぞれ依頼した。燃料棒試料の照射は、原研東海研究所安全性試験研究センター燃料安全工学部の反応度安全研究室及びNSRR管理室、そして同大洗研究所材料試験炉部に依頼した。RABBIT燃料棒試料の照射後試験は、同じく材料試験炉部ホットラボ課に依頼した。調製済み測定用溶液試料の放射線測定は、同東海研究所保健物理部に依頼した。照射後試験を終了したRABBIT燃料棒試料の輸送容器（大洗研究所→東海研究所）の借用そして同試料の一時保管に関しては、同アイソトープ部及び同研究炉管理部ホットラボ管理室からそれぞれ便宜を受けた。関係者の方々に謝意を表します。

なお、RABBIT燃料棒試料製作用のジルカロイ2被覆管の入手に際して、早速に御手配下さった原子燃料工業株式会社東海製造所製造部の金子光信次長に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) Haskin F.E. et al. : NUREG/CR-1988 (1981) など
- (2) US. NRC : NUREG-0772 (1981)
- (3) Osborne M.F. et al. : Proceedings of International Meeting on LWR Accidents Evaluation, (Aug. 28 ~ Sept. 1, 1983), Cambridge, Massachusetts. (USA)

Table 1 Specification of UO₂ pellets used for fuel rods for irradiation

Facility Used	NSRR	JMTR, RABBIT
Diameter, mm	10.8	13.4
Height, mm	12.1	18.0
Enriched, % (nominal value)	5.8	1.5
Weight, g	11.22	(1) 26.48, (2) 26.25
		(3) 26.34, (4) 26.35

Table 3 Release fraction rate (min^{-1}) of FP from irradiated UO_2 pellet by heating										
(under experimental conditions)										
Facility Used	Temperature Range ($^{\circ}\text{C}$)	Heating Time (min)	Atmospheric Gas	^{137}Cs	^{103}Ru	^{106}Ru	^{140}Ba	^{141}Ce	^{144}Ce	
NSRR	1500~2080	12.2	Ar	5.8×10^{-2}	1.2×10^{-3}	—	2.8×10^{-2}	9.8×10^{-5}	9.0×10^{-4}	
RABBIT (1)	1500~1740	10.7	Ar	9.0×10^{-2}	5.1×10^{-5}	4.0×10^{-4}	—	4.4×10^{-5}	1.6×10^{-4}	
RABBIT (2)	1500~2255	32.8	Ar	2.7×10^{-2}	4.6×10^{-6}	8.2×10^{-6}	—	—	7.3×10^{-6}	
RABBIT (3)	1500~2230	22.0	Ar + Steam	7.5×10^{-2}	2.3×10^{-3}	1.9×10^{-3}	—	2.2×10^{-3}	2.3×10^{-3}	
RABBIT (4)	1500~2030	14.0	Ar + Steam*	1.1×10^{-1}	6.6×10^{-4}	5.5×10^{-4}	—	1.0×10^{-3}	1.1×10^{-3}	

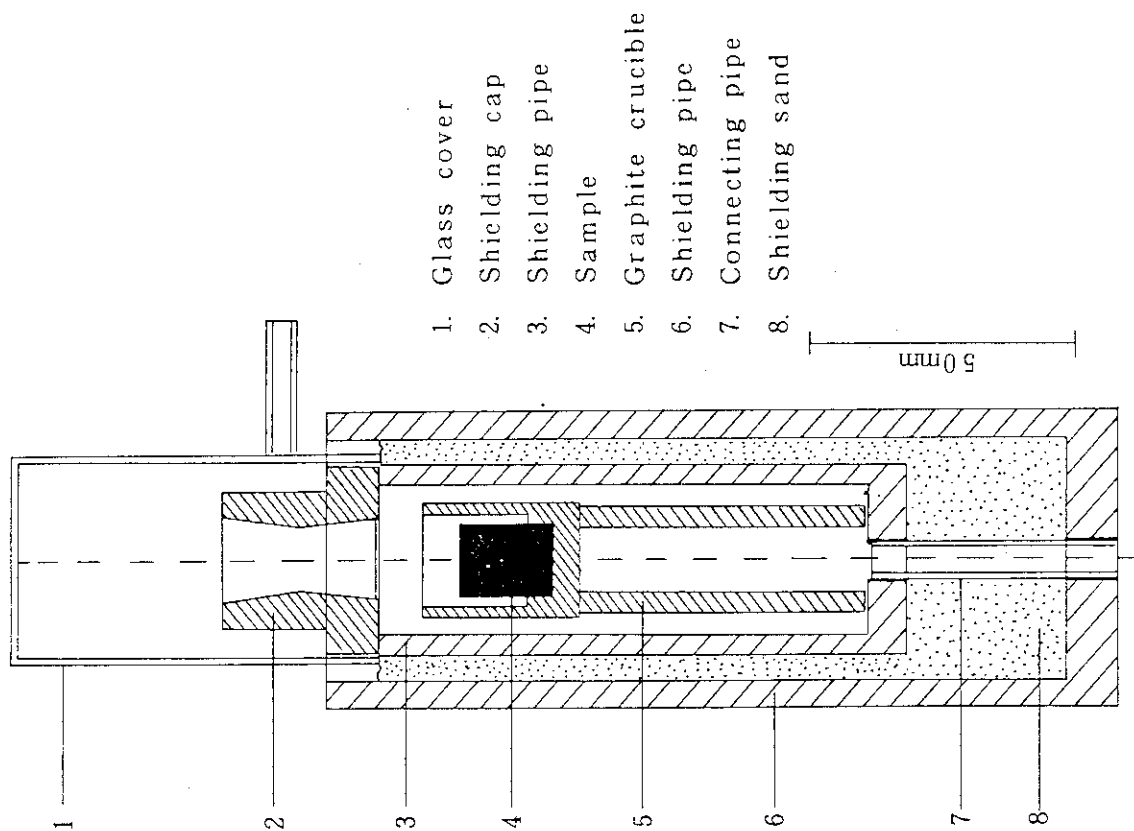
* One hundred ml. of H_2 gas added at 1 atm, room temperature.

Table 2 Apparent release fraction of FP from irradiated UO₂ pellet

Experimental data (and derived from NUREG-0772)										
Facility	Temperature Range (°C)	Heating Time (min)	Atmospheric Gas	¹³⁷ Cs	¹⁰³ Ru	¹⁰⁶ Ru	¹⁴⁰ Ba	¹⁴¹ Ce	¹⁴⁴ Ce	
NSRR	1500~2080	12.2	Ar	5.1×10 ⁻¹	1.4×10 ⁻²	—	3.4×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻³	1.1×10 ⁻²	
				(5.8×10 ⁻¹)	(3.9×10 ⁻⁴)	(1.9×10 ⁻²)	—	—		
RABBIT (1)	1500~1740	10.7	Ar	6.2×10 ⁻¹	5.4×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻³	—	4.7×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻³	
				(1.5×10 ⁻¹)	(5.0×10 ⁻⁵)	(3.7×10 ⁻³)	—	—		
RABBIT (2)	1500~2255	32.8	Ar	5.9×10 ⁻¹	1.5×10 ⁻⁴	2.7×10 ⁻⁴	—	—	2.4×10 ⁻⁴	
				(9.9×10 ⁻¹)	(2.5×10 ⁻³)	(8.9×10 ⁻²)	—	—		
RABBIT (3)	1500~2230	22.0	Ar + Steam	8.1×10 ⁻¹	5.1×10 ⁻²	4.2×10 ⁻²	—	4.9×10 ⁻²	5.0×10 ⁻²	
				(9.4×10 ⁻¹)	(1.1×10 ⁻³)	(3.9×10 ⁻²)	—	—		
RABBIT (4)	1500~2030	14.0	Ar + Steam*	7.8×10 ⁻¹	9.2×10 ⁻³	7.7×10 ⁻³	—	1.4×10 ⁻²	1.5×10 ⁻²	
				(5.9×10 ⁻¹)	(3.6×10 ⁻⁴)	(1.9×10 ⁻²)	—	—		

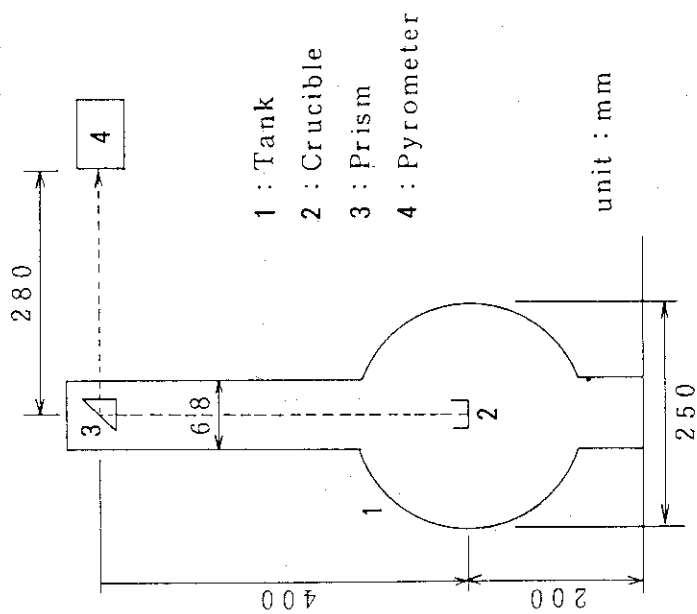
* H₂ gas added.

The cooling time of each sample from irradiation to measurement ; NSRR, 106 days. RABBIT (1), 306 days. RABBIT (2), 320 days. RABBIT (3) & (4), 196 days.



- 1. Glass cover
- 2. Shielding cap
- 3. Shielding pipe
- 4. Sample
- 5. Graphite crucible
- 6. Shielding pipe
- 7. Connecting pipe
- 8. Shielding sand

50mm



- 1 : Tank
- 2 : Crucible
- 3 : Prism
- 4 : Pyrometer

unit : mm

Fig.1 Structure of tank

Fig.2 Cross-section of center of pile cut axially

1. Ar bomb
2. Three way cock
3. Stop valve
4. Buffer
5. Three way cock
6. Steam generator
7. Stop cock
8. H₂ bomb
9. Stop cock
10. Heater
11. Stop valve
12. Graphite crucible
13. Thermal shielding
14. High frequency induced heater electrode
15. Tank
16. Prism
17. Pyrometer
18. Pressure gauge
19. Stop valve
20. Vacuum pump
21. Water trap
22. Charcoal trap
23. Exhaust system

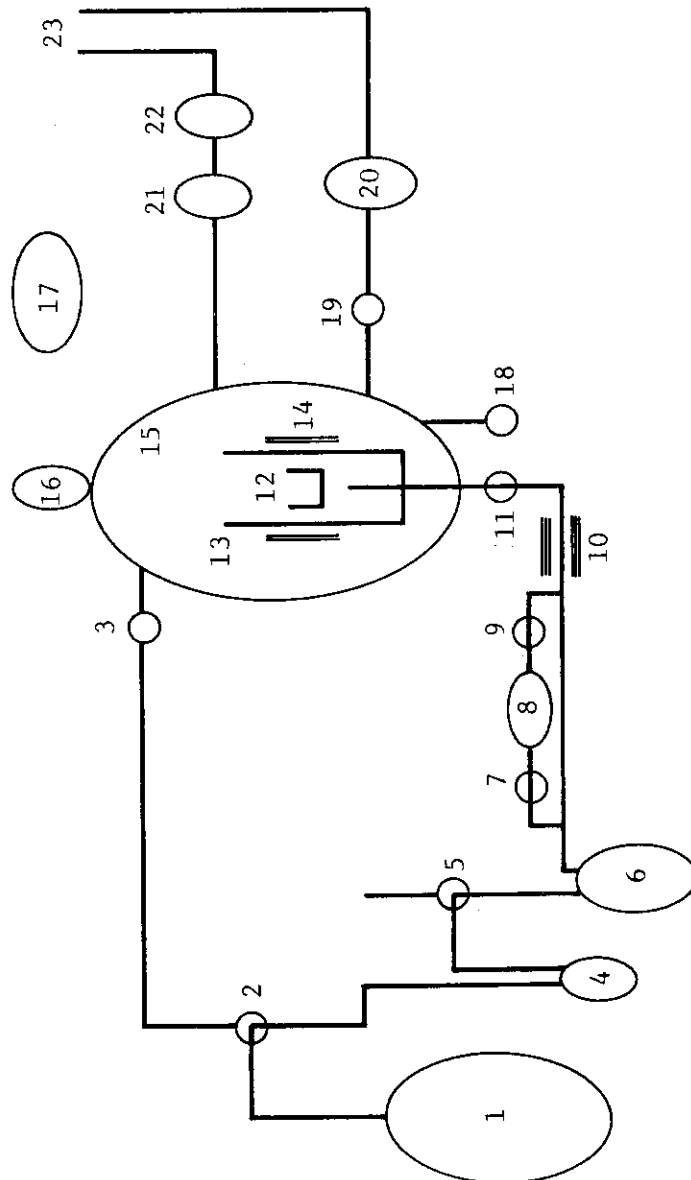


Fig. 3 Simplified flowdiagram of experimental apparatus.

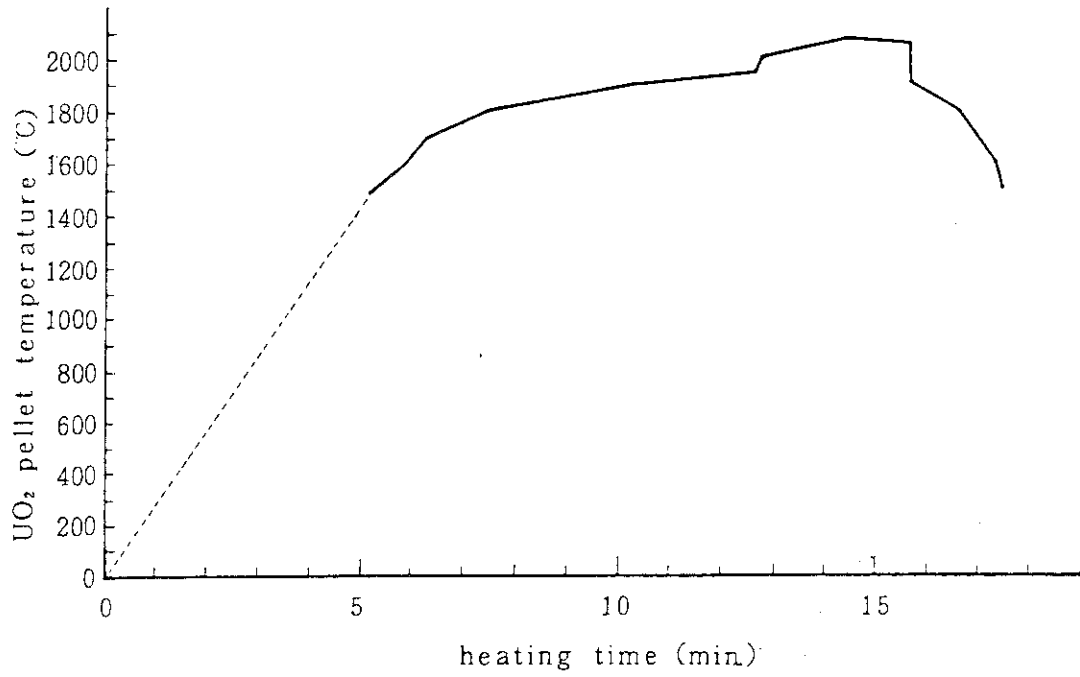


Fig.4 Heating of UO₂ pellet after irradiation at NSRR.

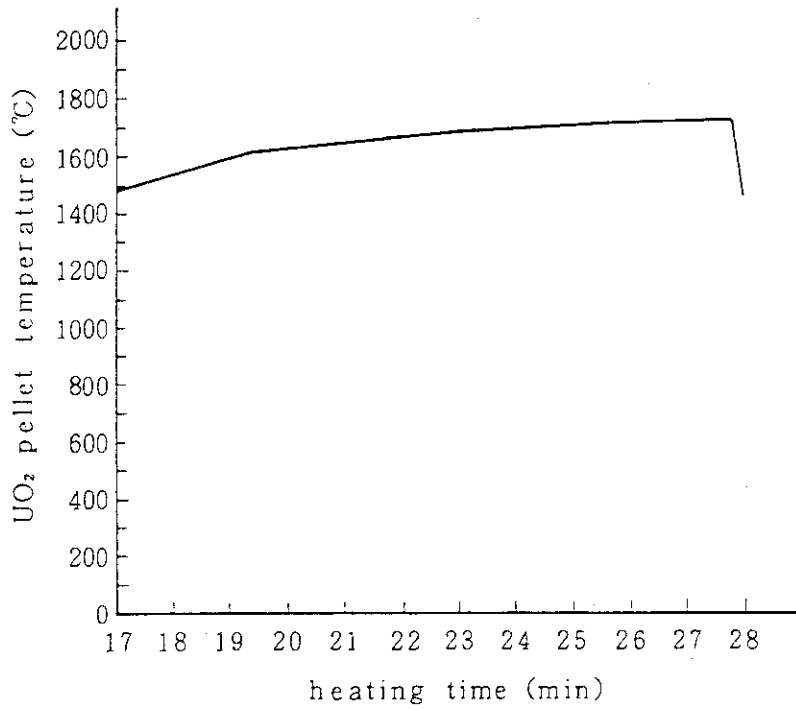


Fig.5 Heating of UO₂ pellet after irradiation at JMTR-RABBIT (No 1)

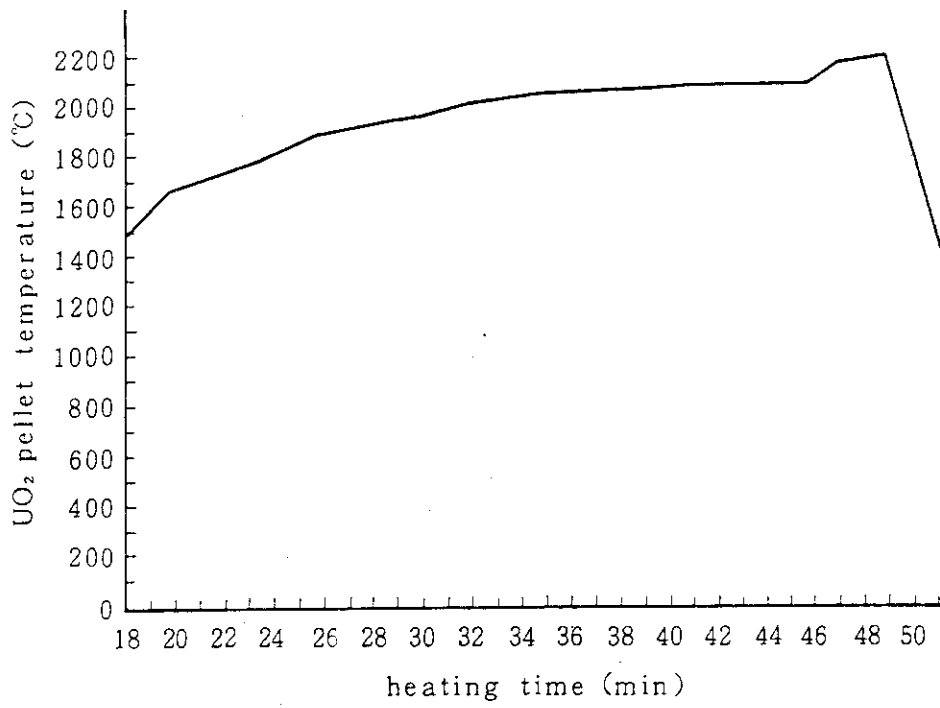


Fig.6 Heating of UO₂ pellet after irradiation at JMTR-RABBIT(Na2)

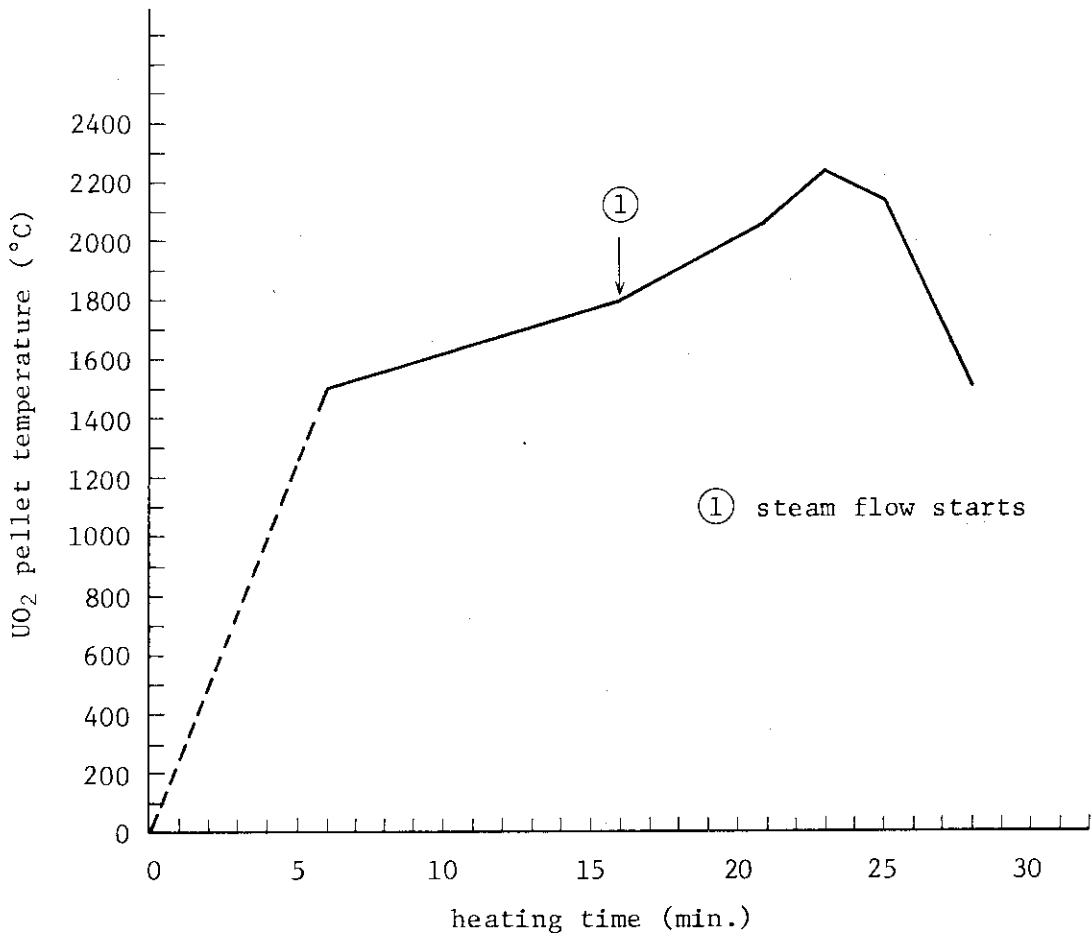


Fig. 7 Heating of UO₂ pellet after irradiation at JMTR-RABBIT (No.3).

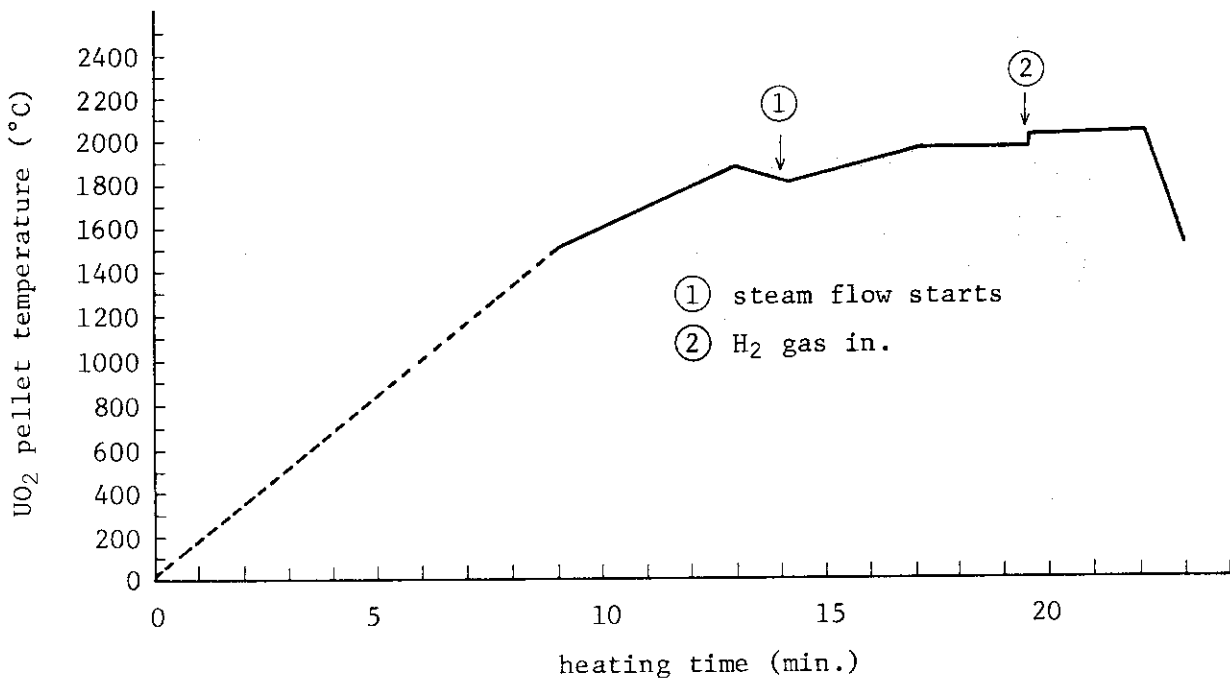
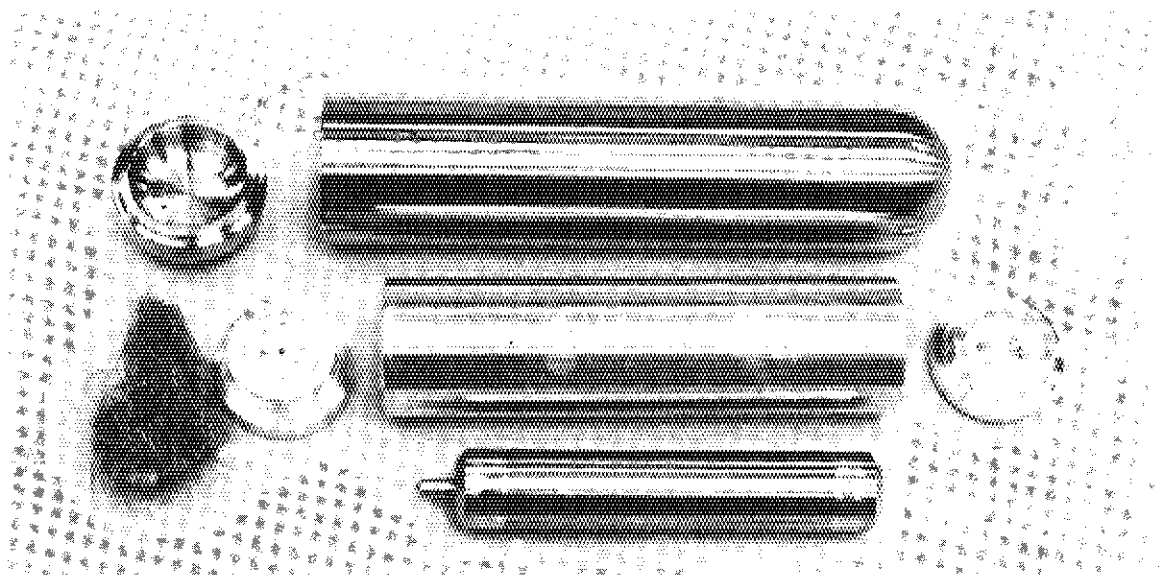
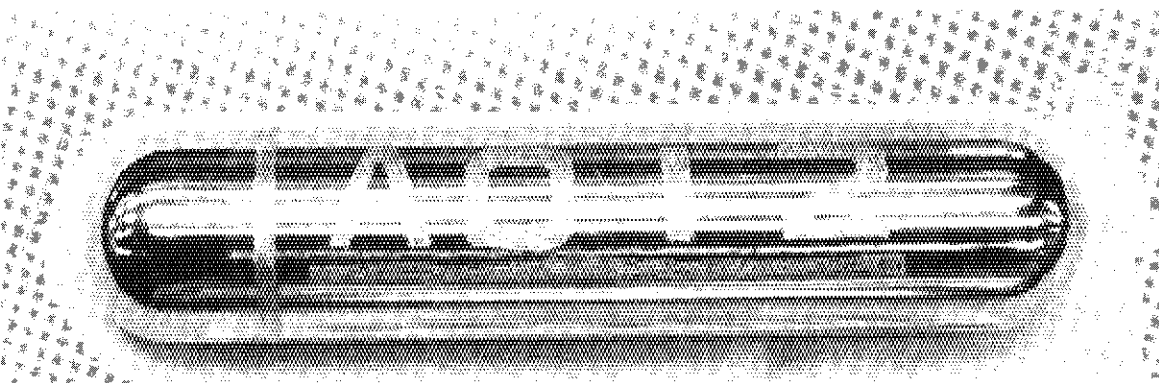


Fig. 8 Heating of UO₂ pellet after irradiation at JMTR-RABBIT (No.4).



(Set of RABBIT capsule ; capsule, thermal conductor and buffer,
(and fuel rod, from up to down, respectively)



(RABBIT capsule)

Photo. 1 RABBIT capsule before irradiation