

JAERI - M
85-208

NSRR実験における特殊燃料（破壊力測定, ガドリニア入り; ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料）の発熱量評価

1986年1月

柳原 敏・鈴木 敏夫

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。
入手の間合わせは、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, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 榎高野高速印刷

NSRR実験における特殊燃料（破壊力測定，ガドリニア入り，ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料）の発熱量評価

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

柳原 敏・鈴木敏夫⁺

（1985年12月18日受理）

NSRRで実施している破壊力測定実験，ガドリニア入り燃料実験，ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験の各実験シリーズについて，単位炉心積分出力当りの発熱量を評価するための実験を行い， γ 線スペクトロメトリーにより各実験で照射した燃料の核分裂数を求めた。各実験シリーズにおける単位炉心積分出力当りの核分裂数及び炉心積分出力から発熱量への変換係数は以下の通りである。

- | | | |
|------------------------|---|---|
| 1) 破壊力測定実験 | : | 6.29×10^{11} fissions/g \cdot UO ₂ /MWs |
| | | 4.25 cal/g \cdot UO ₂ /MWs |
| 2) ガドリニア入り燃料実験 | | |
| a. UO ₂ 燃料 | : | 8.83×10^{11} fissions/g \cdot UO ₂ /MWs |
| | | 5.96 cal/g \cdot UO ₂ /MWs |
| b. ガドリニア入り燃料 | : | 6.94×10^{11} fissions/g \cdot UO ₂ /MWs |
| | | 4.69 cal/g \cdot UO ₂ /MWs |
| 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験 | | |
| a. 1次燃料 | : | 3.77×10^{11} fissions/g \cdot UO ₂ /MWs |
| | | 2.55 cal/g \cdot UO ₂ /MWs |
| b. 2次燃料 | : | 3.51×10^{11} fissions/g \cdot UO ₂ /MWs |
| | | 2.37 cal/g \cdot UO ₂ /MWs |

又，各実験における試験燃料中の発熱履歴を考慮して，標準実験と比較可能な発熱量を評価した。これらの結果は，今後の実験結果を効率良くとりまとめるのに十分役立つものである。

+ 化学部

Evaluation of Energy Deposition in Various Test Fuels
in the NSRR Experiments

— Destructive energy measurement, Gd₂O₃-UO₂ and PuO₂-UO₂ test —

Satoshi YANAGIHARA and Toshio SUZUKI⁺

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received December 18, 1985)

New test series such as (i) destructive energy measurement, (ii) Gd₂O₃-UO₂ fuel and (iii) PuO₂-UO₂ fuel tests are in progress, and the conversion factors were evaluated by conducting the energy deposition calibration tests respectively. The fission numbers and energy deposition per core energy release determined through γ -ray spectrometry are as follows.

(1) Destructive energy measurement tests:	6.29×10 ¹¹ f/g·UO ₂ /MWs
	: 4.25 cal/g·UO ₂ /MWs
(2) Gd ₂ O ₃ -UO ₂ fuel tests	
a. UO ₂ fuel	: 8.83×10 ¹¹ f/g·UO ₂ /MWs
	: 5.96 cal/g·UO ₂ /MWs
b. Gd ₂ O ₃ -UO ₂ fuel	: 6.94×10 ¹¹ f/g·UO ₂ /MWs
	: 4.69 cal/g·UO ₂ /MWs
(3) PuO ₂ -UO ₂ fuel tests	
a. Phase 1	: 3.77×10 ¹¹ f/g·UO ₂ /MWs
	: 2.55 cal/g·UO ₂ /MWs
b. Phase 2	: 3.51×10 ¹¹ f/g·UO ₂ /MWs
	: 2.37 cal/g·UO ₂ /MWs

In addition, an energy deposition in each test was derived from calculating the core energy release history. The energy deposition determined is useful not only to know the threshold of fuel failure but also to make comparison with that of standard tests.

Keywords: NSRR Experiments, Energy Deposition, γ -ray Spectrometry, UO₂ Fuel, PuO₂-UO₂ Fuel, Gd₂O₃-UO₂ Fuel, Core Energy Release, Reactivity Initiated Accident.

⁺ Department of Chemistry

目 次

1. 序 言	1
2. 実験装置と実験方法	2
2.1 実験装置	2
2.2 実験方法	3
3. 測定結果	21
3.1 炉心積分出力の測定結果	21
3.2 試験燃料の γ 線スペクトル測定結果	21
4. 発熱量の評価	33
4.1 試験燃料の核分裂数の評価	33
4.1.1 破壊力測定及びガドリニア入り燃料実験における核分裂数の評価	33
4.1.2 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の核分裂数の評価	33
4.2 単位炉心積分出力当りの核分裂数の評価	34
4.3 試験燃料の発熱量評価	36
4.3.1 簡便な方法による発熱量評価	36
4.3.2 厳密な方法による発熱量評価	37
5. 結 言	39
謝 辞	51
参考文献	51
付録 1	52
付録 2	53

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Experimental apparatus and method	2
2.1 Experimental apparatus	2
2.2 Experimental method	3
3. Experimental results	21
3.1 Measurement of the reactor power	21
3.2 Measurement of the γ -ray spectrum in each sample	21
4. Discussion	33
4.1 Estimation of fission numbers in each fuel	33
4.1.1 The destructive energy measurement and the $Gd_2O_3-UO_2$ fuel rod tests	33
4.1.2 The PuO_2-UO_2 fuel rod tests	33
4.2 Evaluation of fission ratio per core energy release	34
4.3 Evaluation of energy deposition in each test	36
4.3.1 Conventional method	36
4.3.2 Precise method	37
5. Conclusions	39
Acknowledgements	51
References	51
Appendix 1	52
Appendix 2	53

Tables

- Table 1 : Characteristics of the NSRR
- Table 2 : Characteristics of the standard test fuel rod
- Table 3 : Characteristics of the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ test fuel rod
- Table 4 : Characteristics of the $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-UO}_2$ test fuel rod
- Table 5 : Test conditions of the energy deposition calibration tests
- Table 6 : Data for γ -ray spectrum measurements
- Table 7 : Ratio of nuclide contents in the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ fuels
- Table 8 : Measured activities of fission products in the solution sample of the Test No. 260-1
- Table 9 : Measured activities of fission products in the solution samples of the Test Nos. 510-1 and 511-1.
- Table 10 : Measured activities of fission products in the samples of the Test Nos. 701-3, -8, 702-1 and -2.
- Table 11 : Measured intensity and estimated penetration ratios of 413 keV γ -ray (Pu-239) in each sample
- Table 12 : Evaluated fission numbers in the Test Nos. 260-1, 510-1 and 511-1.
- Table 13 : Weight abundance and fission fraction of U-235, Pu-239 and Pu-241
- Table 14 : Evaluated fission numbers in the Test Nos. 701-3, -8, 702-1 and 702-2.
- Table 15 : Evaluated fission numbers per unit core energy release
- Table 16 : Evaluated energy depositions of the Test No. 260 series.
- Table 17 : Evaluated energy depositions of the Test Nos. 510, 511 and 512 series
- Table 18 : Evaluated energy depositions of the Test Nos. 701 and 702 series.

Figures

- Fig. 1 : Schematic diagram of the NSRR
- Fig. 2 : Transverse section of the NSRR core
- Fig. 3 : Standard test capsule
- Fig. 4 : Test capsule for the mixed oxide fuel tests
- Fig. 5 : Standard type test fuel rod
- Fig. 6 : $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ test fuel rod
- Fig. 7 : $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-UO}_2$ test fuel rod
- Fig. 8 : Procedure of γ -ray spectrometry for energy deposition calibration
- Fig. 9 : Schematics of γ -ray measuring system
- Fig. 10 : Measured core energy release up to 1 sec and the fitting curve showing the relation between the reactivity and the reactor power
- Fig. 11 : Typical γ -ray spectrum of the sample in Test No. 260-1 (71.3 days after the irradiation)
- Fig. 12 : Typical γ -ray spectrum of the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ sample irradiated in NSRR experiment. (165.9 days after the irradiation)
- Fig. 13 : Typical γ -ray spectrum of the non-irradiated $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ sample
- Fig. 14 : Deviation of fission numbers evaluated by various nuclides from the averaged values in the Test Nos. 260-1, 510-1 and 511-1
- Fig. 15 : Calculated and measured penetration ratio of γ -ray in the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ samples
- Fig. 16 : Deviation of fission numbers evaluated by various nuclides from the averaged values in the Test Nos. 701-3, -8, 702-1 and -2.
- Fig. 17 : Calculated histories of energy depositions in the standard, $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ and $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-UO}_2$ fuels.
- Fig. 18 : Relation between reactivity and energy deposition in the individual test series comparing with that of the standard test.

1. 序 言

原子炉の出力を制御する制御棒が炉心から異常に引き抜かれる等により、炉心に過度の反応度が投入され、出力が急上昇して燃料棒が破損する可能性のある事故を反応度事故といい、原子炉で想定される設計基準事故に数えられている。日本原子力研究所では、安全性研究炉 NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) により、反応度事故時における燃料棒の破損挙動を究明するための炉内実験を実施している。反応度事故においては、msec¹⁾～数10 msecのオーダーで燃料中にエネルギーが蓄積されることが大きな特徴であり、このため、実験においては試験燃料の損傷挙動を、単位 UO_2 重量中に蓄積されるエネルギー(以後“発熱量”(単位は $\text{cal/g}\cdot\text{UO}_2$)と呼ぶ)に基づいて整理している。発熱量は実験結果を整理する重要な因子であるため、各実験での値を正確に評価する必要がある。

UO_2 中のエネルギーの蓄積は、U-235の核分裂時の放出エネルギー及び炉心からの中性子と γ 線が UO_2 に吸収されて発熱するエネルギーによるが、その大部分はU-235の核分裂エネルギーである。このため、発熱量の評価は、 UO_2 中での核分裂数を求めることにより近似出来る。U-235の核分裂数は、いくつかの核分裂生成物を γ 線スペクトロメトリー等により定量し、その核分裂収率を用いて評価することが出来る。しかし、各々の実験において、逐一燃料棒を破壊して核分裂生成物の量を測定するには、多大の労力を必要とする。NSRR実験では、試験燃料棒及び実験カプセルの仕様が同一の実験体系の場合には、炉心積分出力と試験燃料中の核分裂数とは比例関係にある。そこでNSRR実験を開始した当初、PWR(14×14)型の試験燃料に5%、10%、20%濃縮ウランを用いたもの、及び標準型大気圧・水力カプセルの組合せを標準実験体系として、炉心積分出力に対する試験燃料の核分裂数を求める実験(以後、“標準実験”²⁾と称す)を行い、発熱量の換算係数を算出した。標準実験では、この結果を用いて、炉心積分出力の測定値から核分裂数を求め、この核分裂数より発熱量を評価している。しかし、実験体系や試験燃料の特性が異なる場合には、“単位炉心積分出力当りの核分裂数”が異なるため、新たに、この量を求める必要がある。

NSRR実験では、上述した標準実験を数多く実施している。一方、燃料棒の仕様が燃料損傷挙動に及ぼす影響を究明するための実験(BWR型燃料、SUS被覆燃料等)についても実験してきたが、さらに、近年、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料及びガドリニア入り燃料の実験が進められている。これら特殊燃料に対して発熱量を正確に評価しておく必要がある。

他方、NSRR実験の次期計画として、燃焼の進んだ燃料に関する実験があり、そのための準備を進めている。燃焼の進んだ燃料実験では、燃料中に蓄積されている核分裂生成物の外部への漏洩をより一層確実に防ぐため、二重構造のカプセルを用いることとしている。又、それは気体状の核分裂生成物を多く含んでいるため、燃料破損時により高い圧力波が生じる可能性が考えられ、使用カプセルの設計条件を新たに定める必要がある。そこで、上記特殊燃料実験の一環として二重構造のカプセルを用いて、試験燃料に高発熱量を投入し、圧力波等、破壊力測定実験も実施した。この実験においても単位炉心積分出力当りの核分裂数が標準燃料実験と異なるのでこの量を正確に評価する必要がある。そこで、上述した破壊力測定実験、ガドリニア入り燃料実験、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験における、“単位炉心積分出力当りの核分裂数”を求め、この値に基づいて発熱量を評価した。又、これらの実験シリーズから得られる、燃料棒の破損挙動や破壊力の発生挙動に関する結果をより

詳細に検討するためには、既に燃料損傷挙動が詳しく究明されている標準燃料実験と比較する必要がある。このためには、`単位炉心積分出力当りの核分裂数`の相違が、燃料の発熱過程にどのような影響を及ぼすのかについても十分な検討をしておくことが大切である。

本報告書は、上述した3つの実験シリーズの各実験について発熱量を求め、標準燃料実験との発熱過程の相違について検討した結果をまとめたものである。

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験装置

(1) NSRR

NSRRは米国GA社によって開発されたTRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor) を改造したパルス炉であり、炉心本体は、Fig.1に示すように原子炉プールの下部に設置されている。NSRRの特徴の一つは、炉心中央を貫通する内径約20 cmの実験孔を有していることであり、これに、実験用のカプセル等を挿入して照射実験を行っている。Fig.2に炉心の断面図を示す。本図から分かるように、炉心には原子炉出力を制御するための制御棒8本（調整棒6本、安全棒2本）とパルス出力を発生させるためのトランジェント棒3本が設けられている。パルス運転は、このトランジェント棒の急速引抜によって行うが、中性子エネルギースペクトルの硬化現象による大きな負の温度係数によって、安全にパルス出力を制御することが出来る。Table 1にNSRRの主要特性を示す。

(2) パルス運転

NSRRは、300 kWまでの定常運転及び4.7ドルまでのパルス運転が可能である。実験孔に入れた試験燃料に与えられる発熱量は、試験燃料の濃縮度、形状、寸法、被覆管の材質等、燃料の特性、又、冷却材密度（温度、圧力）ならびに実験カプセルの特性等、実験体系が変わらなければ、原子炉のパルス積分出力に比例する。又、パルス積分出力は、投入反応度と一対一の関係を持っており、従って、試験燃料の発熱量は投入反応度により決定される。この投入反応度はトランジェント棒の引抜き位置を変えて変化させることが出来る。

(3) 実験カプセル

実験は、試験燃料をカプセル内に収納してパルス照射することにより実施する。このカプセルは、試験燃料が破損しても、破損片や核分裂生成物が炉室等に放出されないよう実験の安全性を確保すると共に、試験燃料の冷却条件等の実験条件を設定するよう設計されている。このため、種々の実験条件を作り出せるよう、大気圧水カプセル、高温高圧カプセル、高温高圧ループ等の装置を開発してきた。Fig.3に大気圧水カプセルの概要を示す。又、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験においては、プルトニウムがカプセル外部へ放出されることを厳重に防止するため、二重カプセルを用いている。又、現在準備を進めている燃焼の進んだ燃料実験においても、核分裂生成物の外部への放出を防止するため、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験と同様に二重カプセルを用いる予定である。Fig.4にウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験における実験カプセルの概略図を示す。

(4) 試験燃料

NSRR実験では、試験燃料棒の仕様を変えて、燃料棒の仕様が破損挙動に及ぼす影響を調べるた

詳細に検討するためには、既に燃料損傷挙動が詳しく究明されている標準燃料実験と比較する必要がある。このためには、“単位炉心積分出力当りの核分裂数”の相違が、燃料の発熱過程にどのような影響を及ぼすのかについても十分な検討をしておくことが大切である。

本報告書は、上述した3つの実験シリーズの各実験について発熱量を求め、標準燃料実験との発熱過程の相違について検討した結果をまとめたものである。

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験装置

(1) NSRR

NSRRは米国GA社によって開発されたTRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor) を改造したパルス炉であり、炉心本体は、Fig.1に示すように原子炉プールの下部に設置されている。NSRRの特徴の一つは、炉心中央を貫通する内径約20 cmの実験孔を有していることであり、これに、実験用のカプセル等を挿入して照射実験を行っている。Fig.2に炉心の断面図を示す。本図から分かるように、炉心には原子炉出力を制御するための制御棒8本（調整棒6本、安全棒2本）とパルス出力を発生させるためのトランジェント棒3本が設けられている。パルス運転は、このトランジェント棒の急速引抜によって行うが、中性子エネルギースペクトルの硬化現象による大きな負の温度係数によって、安全にパルス出力を制御することが出来る。Table 1にNSRRの主要特性を示す。

(2) パルス運転

NSRRは、300 kWまでの定常運転及び4.7ドルまでのパルス運転が可能である。実験孔に入れた試験燃料に与えられる発熱量は、試験燃料の濃縮度、形状、寸法、被覆管の材質等、燃料の特性、又、冷却材密度（温度、圧力）ならびに実験カプセルの特性等、実験体系が変わらなければ、原子炉のパルス積分出力に比例する。又、パルス積分出力は、投入反応度と一対一の関係を持っており、従って、試験燃料の発熱量は投入反応度により決定される。この投入反応度はトランジェント棒の引抜き位置を変えて変化させることが出来る。

(3) 実験カプセル

実験は、試験燃料をカプセル内に収納してパルス照射することにより実施する。このカプセルは、試験燃料が破損しても、破損片や核分裂生成物が炉室等に放出されないよう実験の安全性を確保すると共に、試験燃料の冷却条件等の実験条件を設定するよう設計されている。このため、種々の実験条件を作り出せるよう、大気圧水カプセル、高温高圧カプセル、高温高圧ループ等の装置を開発してきた。Fig.3に大気圧水カプセルの概要を示す。又、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験においては、プルトニウムがカプセル外部へ放出されることを厳重に防止するため、二重カプセルを用いている。又、現在準備を進めている燃焼の進んだ燃料実験においても、核分裂生成物の外部への放出を防止するため、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験と同様に二重カプセルを用いる予定である。Fig.4にウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験における実験カプセルの概略図を示す。

(4) 試験燃料

NSRR実験では、試験燃料棒の仕様を変えて、燃料棒の仕様が破損挙動に及ぼす影響を調べるた

め、巾広いパラメータ実験を実施しているが、これらの実験に対し、燃料棒破損挙動について最も基本的なデータを得ることを目的として標準試験燃料棒を定めている。標準型燃料棒はPWR (14×14)型燃料棒の仕様に、NSRR実験に適するよう軸方向の寸法、構造等の変更を行ったものである。標準燃料棒の構造と仕様を各々Fig.5とTable 2に示す。これらに示したように、ペレット寸法や被覆管外径、肉厚等はPWR (14×14)型に等しいが、燃料の有効長は135mmと短尺である。燃料ペレットには、U-235 10w/o濃縮燃料を使用している。

この標準燃料棒実験に対して、BWR型燃料、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料、ガドリニア入り燃料等、特殊燃料の実験を実施してきた。このうち、今回発熱量校正試験を実施した、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料とガドリニア入り燃料の構造と仕様を各々Fig.6,7とTable 3,4に示す。なお、破壊力測定用燃料については、燃料スタックの両端に5%濃縮と天然のUO₂ペレットが入れていることを除けば、標準燃料棒とその仕様はほぼ同一である。

(5) 実験の手順

NSRRでは、各実験シリーズの実実施計画を作成し、試験燃料や計装機器を用意してから各実験のための組立準備を始める。一回の実験は、試験燃料や実験カプセル内への計測器の取付け及び試験燃料の実験カプセルへの固定等から、照射実験を実施した後、放射能強度の冷却を待って照射後燃料検査が可能になるまで約1ヶ月を要する。照射実験は、カプセルを実験孔内に装荷した後、出力を15W臨界の定常状態にしてから実施する。照射後、実験孔よりカプセルを取り出して貯留用ピットに一時的に保管し、カプセルの放射線強度が減衰するのを待ってから、カプセルを解体して試験燃料を取り出す。その後、試験燃料棒の外観検査や写真撮影及び寸法検査等を行う。さらに必要に応じて、X線写真の撮影、プロファイルメータによる燃料棒直径の測定、金相検査等を実施する。また、照射実験中では、被覆管表面温度、燃料中心温度、燃料棒内圧、カプセル内圧等のデータが得られる。

2.2 実験方法

(1) 照射実験

実験が標準体系以外の時は、予め発熱量校正用の実験が必要である。このため、破壊力測定、ガドリニア入り燃料、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の各実験シリーズにおいても、発熱量校正用の実験を実施した。Table 5に各実験シリーズにおける主な実験の特徴と、発熱量校正用実験の照射条件を記す。発熱量校正は、照射した燃料棒を切断して燃料ペレットを取出し、この中の核分裂生成物の量を測定して行う。照射実験としては、核分裂生成物が移動したり燃料ペレット外へ放出しないよう出来る限り低出力での照射が望ましいが、炉心積分出力の測定誤差との関係で、140~200 cal/g・UO₂の範囲が妥当である。本照射実験においてもこの範囲で照射実験を実施した。破壊力測定実験とガドリニア入り燃料実験においては、照射実験後約3週間の冷却期間を経て、試験燃料棒の一部を切断して、UO₂ペレットを取出し、硝酸に溶解してγ線スペクトロメリー用の試料を作成した。また、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料については、NSRRにはプルトニウムを取り扱うことが出来る施設がないため、試験燃料を内カプセルへ装填したまま、動力炉・核燃料開発事業団(動燃)へ輸送し、動燃でペレットを粉末にし、約1gをポリスチレン製の容器に密封してγ線スペクトロメリー用の試料を作成した。動燃で作成した試料は全部で12ヶある。これらの試料を再び原研に輸送して密封容器のままγ線スペクトル測定を実施した。

(2) γ 線スペクトロメトリー

γ 線スペクトロメトリーでは、試料の取出し、重量測定、溶解等の作業が必要であり、この作業の良否が測定精度に影響を及ぼす。以下に試料の作成及び γ 線スペクトルの測定手順を記す。

今回実施した γ 線スペクトル測定に関して、破壊力測定実験とガドリニア入り燃料実験における発熱量校正では、 UO_2 ペレットを溶解して試料を作成したのに対して、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験における発熱量校正では、燃料を粉碎して約1 gを試料とした。これは、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料では、燃料の溶解等の処理が困難であったことによるものである。

a) 破壊力測定及びガドリニア入り燃料実験

破壊力測定実験及びガドリニア入り燃料実験については、1つの試料を作成するために、 UO_2 ペレット1ヶ分(約7 g)に相当する UO_2 燃料片を燃料棒のほぼ中央部より取り出した。この UO_2 燃料片の重量を測定した後、セシウム担体を数mg加えて、6 M硝酸溶液の中に数時間放置して、 UO_2 燃料片を溶解した。溶解に要した硝酸溶液は約50 ccである。 UO_2 燃料片が溶解しない場合は、さらに硝酸を追加した。 UO_2 燃料片が完全に溶解した後は、蒸留水を加えて全体で約100 ccの硝酸ウラニル溶液とし、この一部(4 ml)を採って秤量して試料にした。試料溶液は直径10 mm、高さ約40 mmの円筒型ポリエチレン製容器に入れ密封した後、鉄遮蔽を施した低バックグラウンド筐体内の所定位置(検出器表面より20 cm)に設置し、試料溶液の γ 線スペクトルをGe(Li)検出器及び波高分析器で測定した。

b) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験

ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料については、前述したように、粉碎した燃料約1 gをポリスチレン製容器(直径10 mm、高さ20 mm)に入れ試料とした。このポリスチレン製容器はGe(Li)検出器の上方所定の場所に設置し、主に底面から放出される γ 線の測定を行った。ポリスチレン製円筒型容器内における試料の厚さは3 mm以下である。本試料では γ 線自己吸収が認められ、この補正については4章で述べる。

上述した試料の作成、 γ 線測定の手順をFig.8に、又、測定系の概要をFig.9に示す。又、 γ 線スペクトロメトリーを実施するために作成した試料について、重量、測定日時等をTable6に記す。本表に示すように、同一の試料について日を変えて数回の測定を行った。なお、本表に示したガドリニア入り燃料実験のうち、Test No.511-1は UO_2 のみの燃料であり、燃料寸法がガドリニア入り燃料に等しい。Test No.510-1はガドリニア入り燃料である。又、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料についてみると、Test Nos.701-3, -8とTest Nos.702-1, -2ではプルトニウムの量が異なる。Test Nos.701-3, -8については以前に実施した発熱量校正試験の結果を再び検討する必要があるために、今回も実施するものである。サンプルNo.84C05, 84C06は未照射の試料であり、プルトニウム量はTest Nos.702-1, -2の試料と同等である。試料中におけるウラン、プルトニウムの含有量をTable7に記す。

測定結果は一旦テープに収めた後、原研大型計算機(富士通製M380)にて処理し、 γ 線スペクトル解析を実施した。

(3) 測定データの処理方法

上述した原研大型計算機によるデータ処理には、⁽³⁾⁽⁴⁾ "BOB"コードを使用した。又、本データ処理では、Eu-152とCs-137の標準線源を用いて、エネルギー校正及び検出効率の評価を行った。⁽³⁾⁽⁴⁾ "BOB"コードでは、測定した試料中に含まれる核分裂生成物から放出される γ 線の光子数が各エ

エネルギーについて求められる。この結果及び各 γ 線の放出率 (P_γ) より、測定時における核分裂生成物の生成量を計算した。評価に使用した核データを付録1に示す。又、半減期の補正は、下記の(1)式により行った。なお、Nb-95とLa-140は核分裂により直接生成される割合は少なく、各々Zr-95とBa-140より β 崩壊により生成される。このため、Nb-95とLa-140の存在量より各々Zr-95とBa-140の核分裂による生成量を求めることが出来る。これらについては(2)式により評価した。

$$N_{0i} = N_i e^{\lambda_i t} \quad \dots\dots\dots (1)$$

N_{0i} : 核種 i の照射後の生成量
 N_i : 核種 i の t 時間後の測定値
 λ_i : 核種 i の崩壊定数
 t : 照射時から測定時までの時間

$$N_{01} = N_2 e^{\lambda_1 t} \times \left\{ \frac{1}{\frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t})} \right\} \quad \dots\dots\dots (2)$$

N_{01} : Ba-140又はZr-95の生成量
 N_2 : La-140又はNb-95の測定値
 λ_1 : Ba-140又はZr-95の崩壊定数
 λ_2 : La-140又はZr-95の崩壊定数
 t : 照射時から測定時までの時間

照射直後の生成量は、同一試料について時間(t)を変えて何回か測定を行い、(1)又は(2)式を用いて補正を行なうことにより評価した。さらに、それらの生成量の算術平均及び標準偏差を求めた。これらの結果については次章 (Table 8, 9及び10) で述べる。

Table 1 Characteristics of NSRR

<u>Reactor Type;</u>	Modified TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor)
<u>Reactor Vessel;</u>	3.6 ^m (wide) × 4.5 ^m (long) × 9 ^m (deep) open pool
<u>Fuel;</u>	
Fuel type	12 wt% U-ZrH fuel
Fuel enrichment	20 wt% U-235
Clad material	Stainless steel
Fuel diameter	3.56 cm
Clad diameter	3.76 cm O.D.
Length of fuel section	38 cm
Number of fuel rods	157
Equivalent core diameter	62 cm
<u>Control Rods;</u>	
Number	8 (including 2 safety rods)
Type	Fuel followered type
Poison material	Natural B ₄ C
Rod drive	Rack and pinion drive
<u>Transient Rods;</u>	
Number	2 fast transient rods and 1 adjustable transient rod
Type	Air followered type
Poison material	92 % enriched B ₄ C
Rod drive	Fast : Pneumatic Adjustable: Rack and pinion & pneumatic
<u>Core Performance;</u>	
a) Steady state operation	
Steady state power	300 kW
b) Pulse operation	
Max. peak power	21,100 MW
Max. burst energy	117 MW-sec
Max. reactivity insertion	3.43 % Δk (β4.67)
Min. period	1.12 msec
Pulse width	4.4 msec (1/2 peak power)
Neutron life time	30 μsec
<u>Experiment Tube;</u>	
Inside diameter	22 cm

Table 2 Characteristics of the standard test fuel rod.

UO₂ Pellets

Diameter	9.29 mm
Length	10 mm
Density	95% T.D.
Enrichment	10%
Shape	Chamfered

Cladding

Material	Zircaloy-4
Outer diameter	10.72 mm
Wall thickness	0.62 mm

Fuel Rod

Pellet-cladding gap	0.095 mm
Overall length	265 mm
Fuel length	135 mm
Weight of fuel pellets	94g
Number of pellets	14-15
Plenum gas	He 1 ata.

Table 3 Characteristics of the PuO₂-UO₂ test fuel rod

<u>PuO₂-UO₂ pellets</u>	<u>Phase 1</u>	<u>Phase 2</u>
Diameter	9.31 mm	12.40 mm
Length	9.88 mm	13.00 mm
Density	95.4% T.D.	95.0% T.D.
Enrichment	*6.33% PuO ₂ -93.67% UO ₂	*10% PuO ₂ -90% UO ₂
Shape	Chamfered	Dished with Chamfer
<u>Cladding</u>		
Material	Zircaloy-4	Zircaloy-2
Outer diameter	10.72 mm	14.50 mm
Wall thickness	0.62 mm	0.9 mm
<u>Fuel Rod</u>		
Pellet-cladding gap	0.085 mm	0.15 mm
Overall length	230 mm	212 mm
Fuel length	132 mm	137 mm
Weight of fuel pellets	85.88 g	114.65 g
Number of pellets	PuO ₂ -UO ₂ :10, UO ₂ :2	PuO ₂ -UO ₂ :9, UO ₂ :2
Plenum gas	He 1 ata.	He 1 ata.

* Contents of fissile nuclides are shown in Table 7

Table 4 Characteristics of the $Gd_2O_3-UO_2$ test fuel rod

<u>Fuel Pellets</u>	<u>UO_2 fuel</u>	<u>$Gd_2O_3-UO_2$ fuel</u>
Diameter	8.19 mm	8.19 mm
Length	13.5 mm	13.5 mm
Enrichment	2 %	20 %
Shape	Dished	Dished
Gd_2O_3 content	0	~6 %
Gd-160 enrichment	—	98.6 %
<u>Cladding</u>		
Material	Zircaloy-4	Zircaloy-4
Outer diameter	9.50 mm	9.50 mm
Wall thickness	0.572 mm	0.572 mm
<u>Fuel Rods</u>		
Pellet-cladding gap	0.083 mm	0.083 mm
Fuel length	108 mm	108 mm
Number of pellets	20% UO_2 :6, 3.2% UO_2 :2	$Gd_2O_3-UO_2$:6, 3.2% UO_2 :2
Plenum gas	He lata	He lata

Table 5 Test conditions of the energy deposition calibration tests

NO	Test No.	Test fuel	Test Capsule	Reactivity (\$)	Rod Position			Date of Irradiation	Measured Reactor Power (MW-sec)	Test Series
					TA	TB	TC			
1	260-1	PWR (14 × 14) 20% enriched U	Double Capsule	1.87	630	DW	UP	59/10/8 16:43	27.6	Destructive energy measurement
2	510-1	PWR (17 × 17) 20% enriched U	STD	2.18	525	DW	UP	59/2/3 16:12	36.6	Gd ₂ O ₃ -UO ₂ fuel
3	511-1	PWR (17 × 17) Gd ₂ O ₃ -UO ₂ 20% enriched U	STD	2.44	435	DW	UP	59/8/22 15:46	43.0	ditto
4	702-1	PuO ₂ -UO ₂	Double Capsule	3.26	735	DW	DW	59/2/3 11:53	63.7	PuO ₂ -UO ₂ fuel
5	702-2	PuO ₂ -UO ₂	Double Capsule	2.65	340	DW	UP	59/3/1 16:05	47.7	ditto
6	701-3	PuO ₂ -UO ₂	Double Capsule	3.80	585	DW	DW	57/1/8 15:46	82.4	ditto
7	701-8	PuO ₂ -UO ₂	Double Capsule	2.80	200	DW	UP	57/10/21 15:59	52.0	ditto

Table 6 Data for γ -ray spectrum measurements

(A)

No	Sample No.	Sample Weight (g)	Irradiation Date	Measured Date and the Data Number measured in 1984				Test No.
1	84C01	1.01	57. 1. 8 (15:46)	QL01* 6.12(15:05)	QL24 7.11(10:22)	QL38 7.30(10:20)	701-3	
2	84C02	1.03	57. 1. 8 (15:46)	QL02 6.13(10:15)	QL25 7.12(9:45)	QL39 7.31(9:50)	701-3	
3	84C03	1.01	57.10.21 (15:59)	QL03 6.14(10:00)	QL26 7.13(9:40)	QL40 8.1 (9:40)	701-8	
4	84C04	1.04	57.10.21 (15:59)	QL04 6.19(16:20)	QL27 7.14(9:42)	QL41 8.2 (9:40)	701-8	
5	84C07	1.00	59. 2. 3 (12:00)	QL07 6.23(9:40)	QL15 7.2 (9:48)	QL30 7.18(9:45)	702-1	
6	84C08	1.00	59. 2. 3 (12:00)	QL08 6.24(13:40)	QL16 7.3 (13:40)	QL31 7.19(9:42)	702-1	
7	84C09	1.01	59. 2. 3 (12:00)	QL09 6.25(9:40)	QL17 7.4 (9:58)	QL32 7.20(9:43)	702-1	
8	84C010	1.01	59. 3. 1 (16:00)	QL11 6.27(14:29)	QL18 7.5 (9:46)	QL33 7.23(9:40)	702-2	
9	84C011	1.00	59. 3. 1 (16:00)	QL12 6.28(9:49)	QL34 7.24(9:45)	QL48 8.11(9:40)	702-2	
10	84C012	1.00	59. 3. 1 (16:00)	QL13 6.29(9:54)	QL35 7.25(9:44)	QL49 8.21(9:45)	702-2	

Reference

11	84C05	1.00	QL05 6.20 (9:45)	QL19 7.6 (9:50)	QL28 7.16(9:40)	QL36 7.25(9:36)	QL42 8.3 (10:10)
12	84C06	1.01	QL06 6.21 (9:50)	QL14 6.30(9:45)	QL20 7.9 (14:25)	QL29 7.17(10:00)	QL37 7.27(9:52)

(B)

No	Sample No.	Sample Weight (g·UO ₂)	Irradiation Date	Measured Date and the Data Number measured in 1984				Test No.
1	84D01	0.2898	84.10. 8 (16:43)	HN02 12.19(17:00)	HN09 12.21(16:10)	HN11 12.24(11:55)	260-1	
2	84D02	0.2176	84. 8.22 (15:46)	HN05 12.20(16:58)	HN10 12.22(10:48)	HN12 12:25(10:35)	511-1	
3	84D03	0.0888	84. 2. 3 (16:12)	HN01 4. 6(15:12)			510-1	
4	84D04	0.1094	84. 2. 3 (16:12)	BN02 4. 9(9:12)			510-1	

* QL01: No of the measurement, 6.12: Date of the measurement (June, 12), (15:46): Time of the measurement

Table 7 Nuclides contents in the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ fuels

Item		Phase 1	Phase 2
PuO ₂ /UO ₂ ratio		6.33 / 93.67	10 / 90
U-235 enrichment		0.71 %	10.0 %
Pu, Am contents*	Pu-238	0.8 %	0.4 %
	Pu-239	65.0 %	73.3 %
	Pu-240	21.7 %	18.4 %
	Pu-241	7.3 %	6.3 %
	Pu-242	3.0 %	1.7 %
	Am-241	2.2 %	3.1 %
U, Pu contents in a fuel	U	82.6 %	79.3 %
	Pu	6.6 %	8.8 %
Fissiles contents in a fuel	U-235	0.59 %	7.93 %
	Pu-239	3.63 %	6.47 %
	Pu-241	0.41 %	0.55 %
U-235, Pu-239 Pu-241 ratio	U-235	12.68 %	53.06 %
	Pu-239	78.51 %	43.25 %
	Pu-241	8.82 %	3.69 %

* measured date Phase 1: 1979, May
 Phase 2: 1979, July

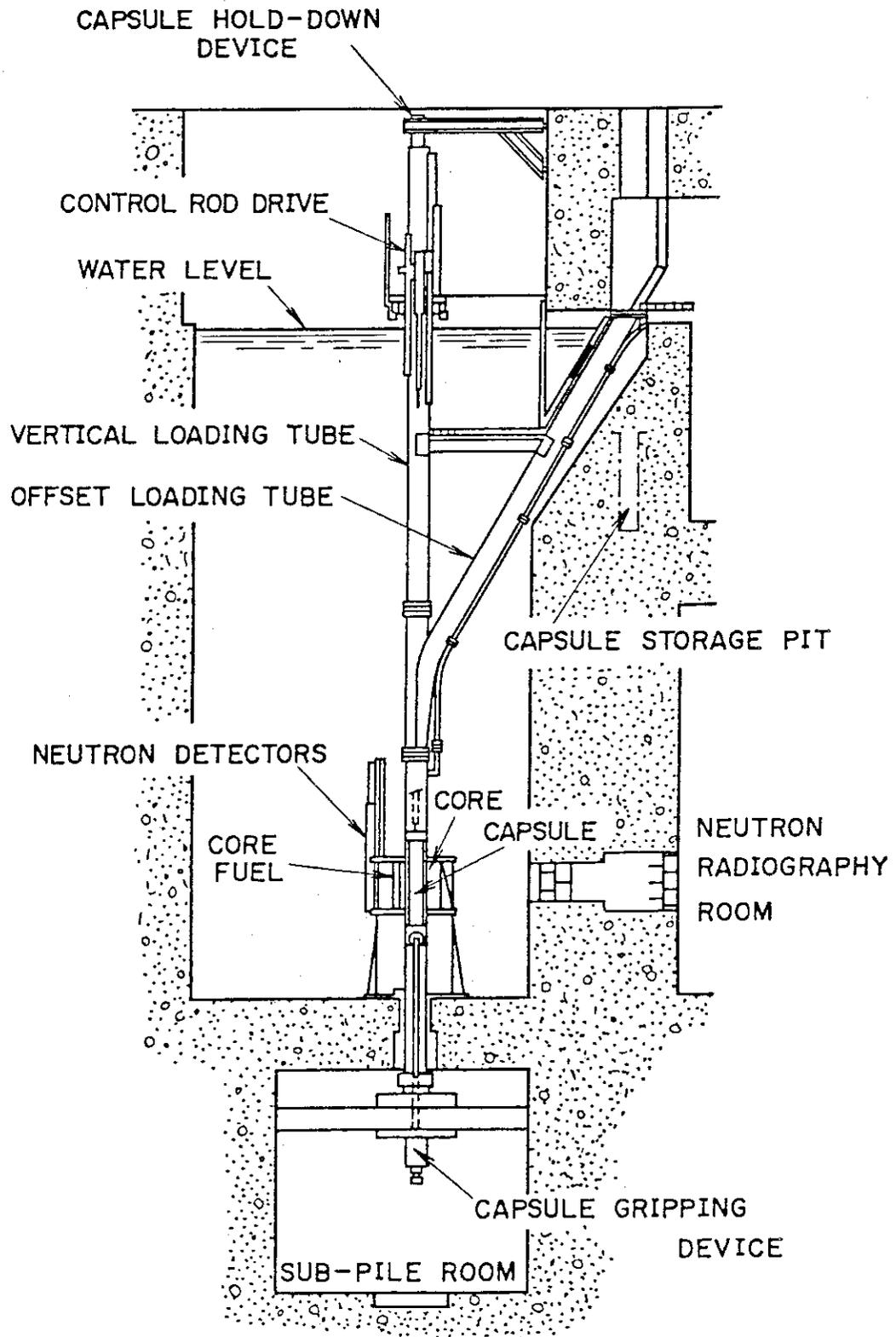


Fig. 1 Schematic diagram of the NSRR

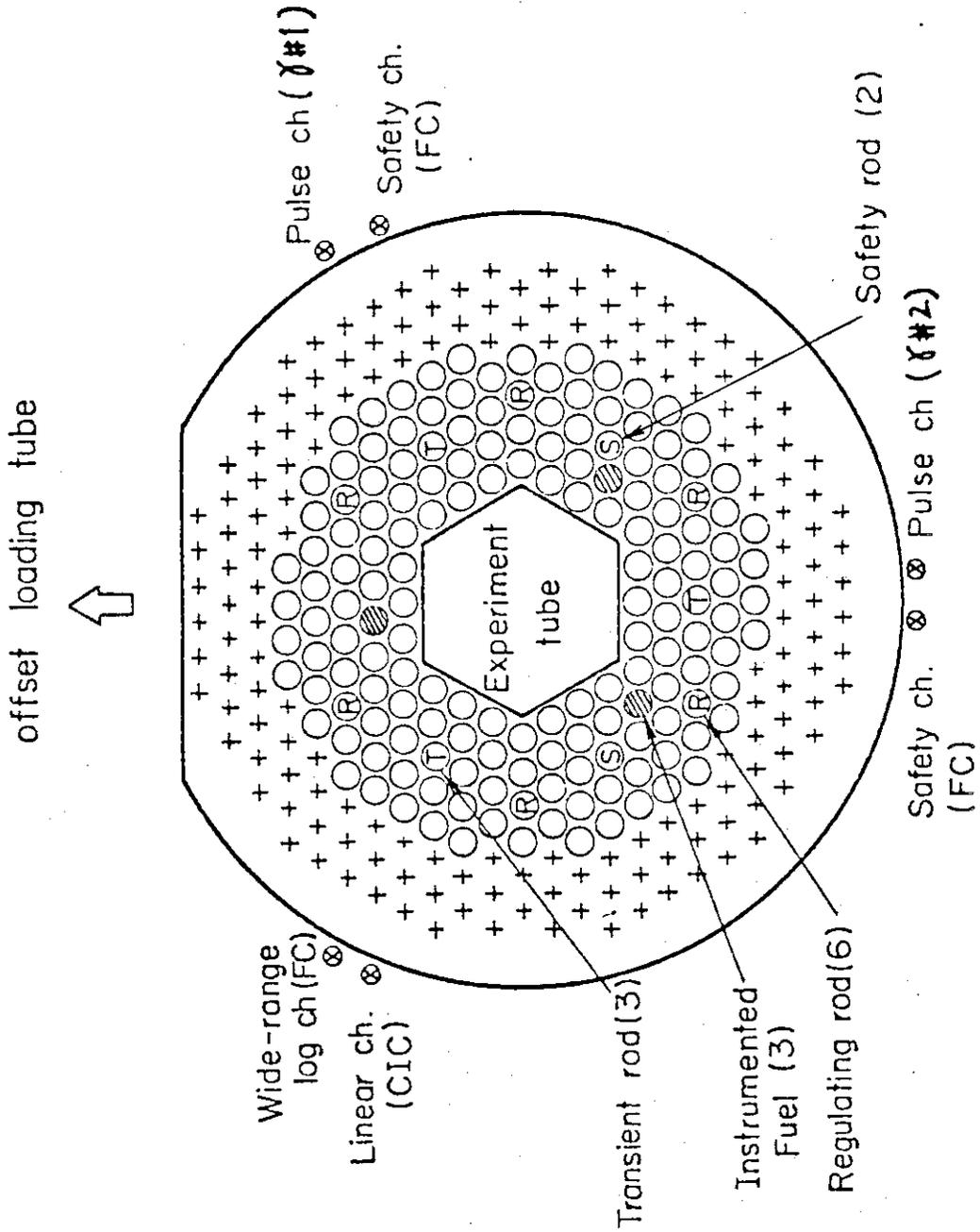


Fig. 2 Transverse section of the NSRR core

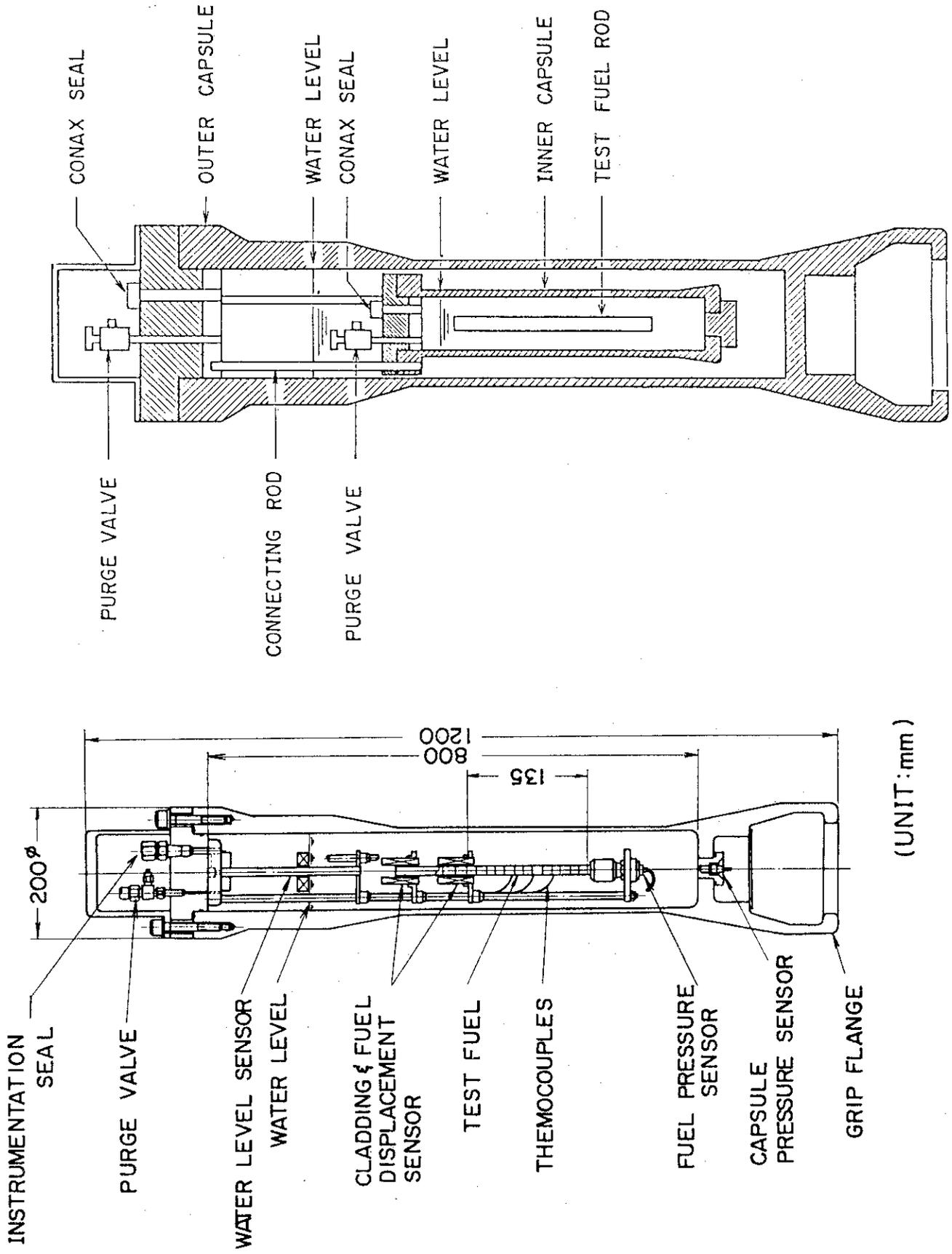


Fig. 3 Standard test capsule

Fig. 4 Test capsule for the mixed oxide fuel tests

(UNIT: mm)

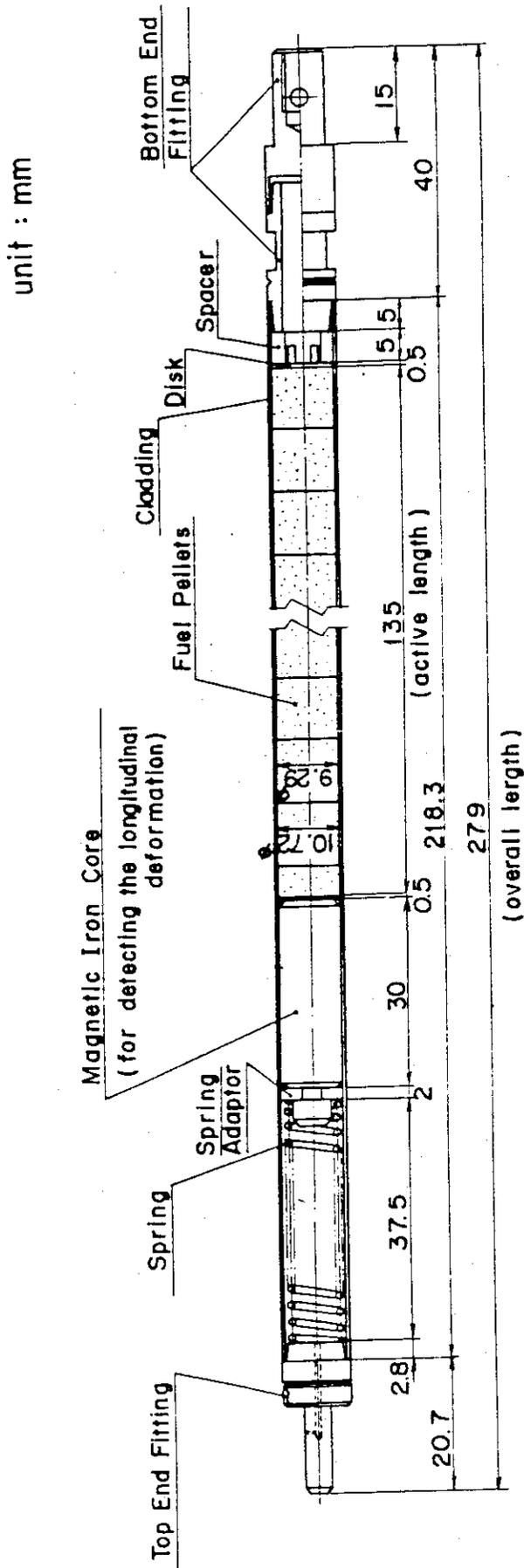


Fig. 5 Standard Type Test Fuel Rod

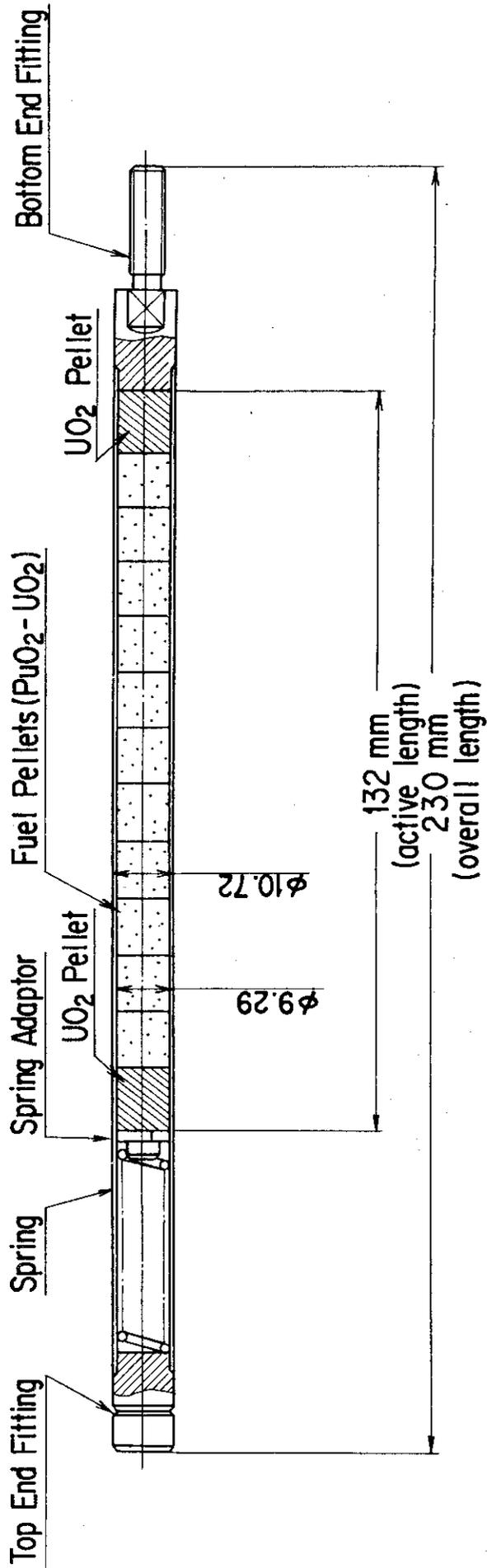


Fig.6 PuO₂ - UO₂ Fuel rod

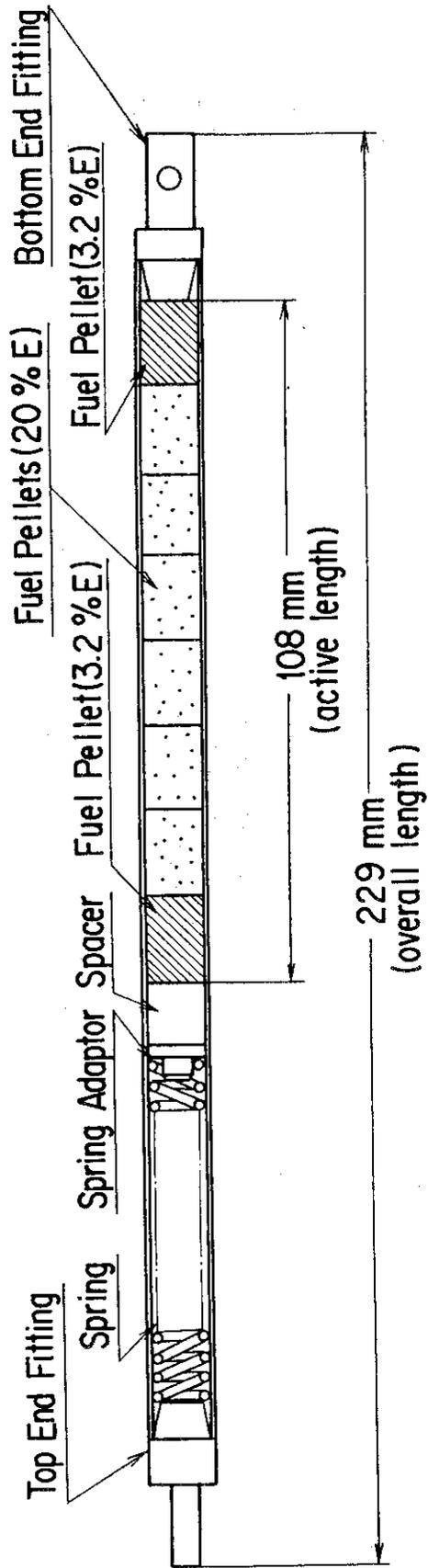


Fig.7 Gd₂O₃ - UO₂ Fuel rod

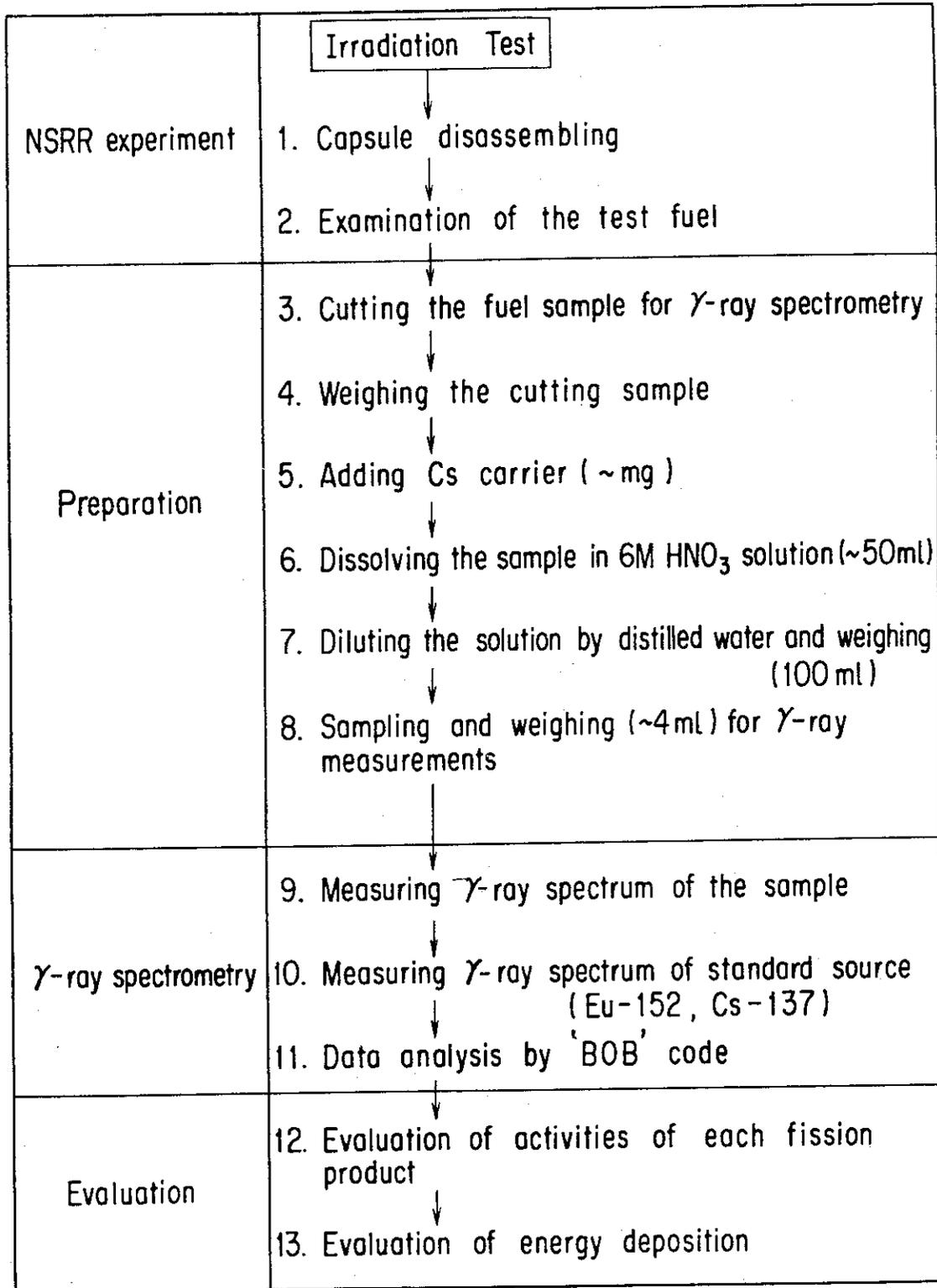


Fig. 8 Procedure of γ -ray spectrometry for energy deposition calibration

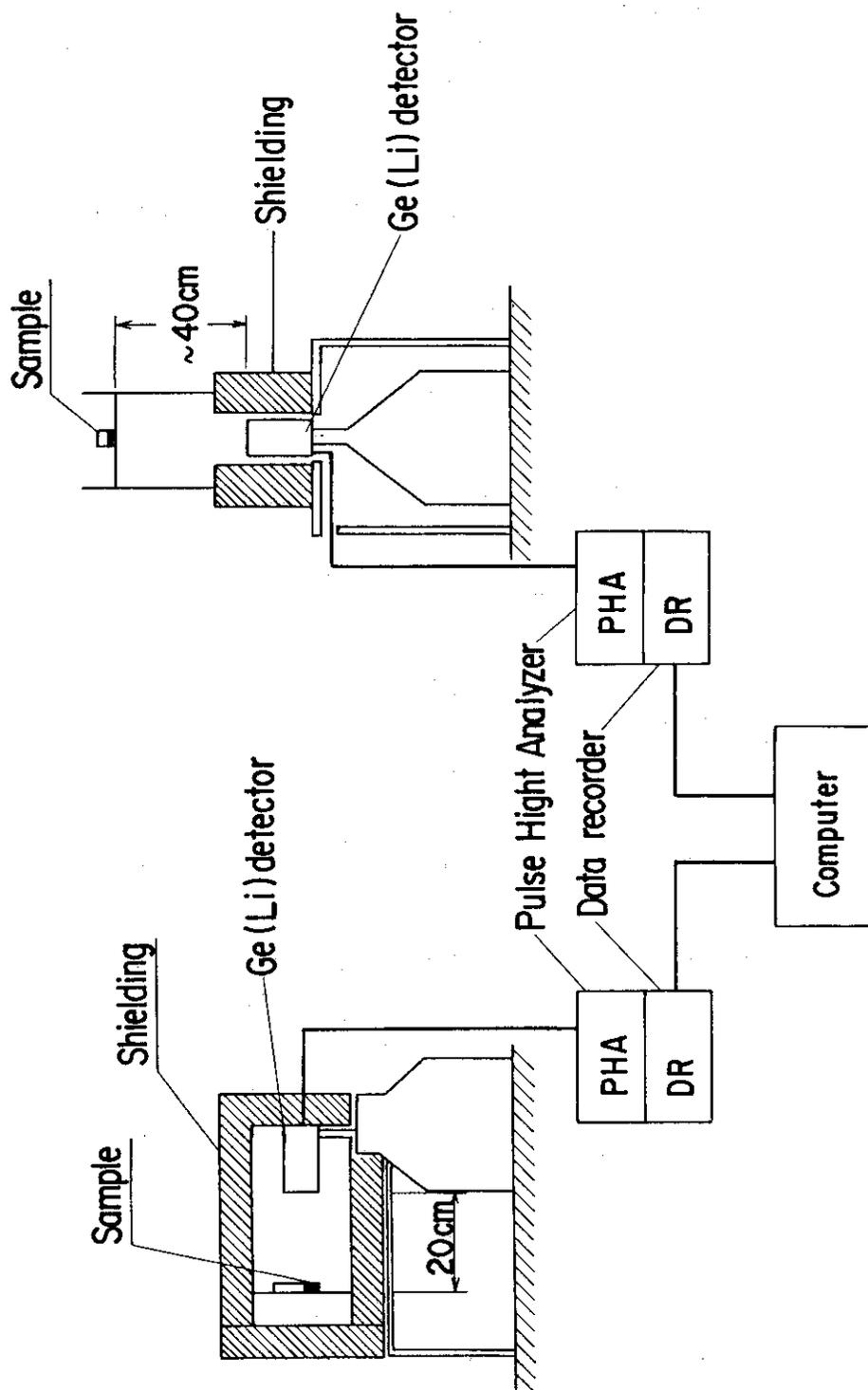


Fig. 9 Schematics of γ -ray measuring system

3. 測定結果

3.1 炉心積分出力の測定結果

NSRR実験では、炉心積分出力は投入する反応度と1対1の関係があり、投入反応度はトランジェント棒の引抜き位置を変えることにより任意に変化させることが出来る。このため、炉心積分出力と投入反応度、及び、投入反応度とトランジェント棒の引抜き位置の関係が予め評価されており、この評価曲線により、炉心積分出力を決定する。しかし、原子炉プールの水温の変化や、実験孔への装荷物の相違により中性子スペクトルが影響を受けるため、各実験において必ずしも予定した炉心積分出力が全く誤差なく得られるとは限らない。このため、 γ -チェンバーにより炉心積分出力を各実験毎に測定しており、この炉心積分出力と、予め求めておいた“炉心積分出力に対する発熱量の換算係数”より各実験の発熱量を評価している。

今回、発熱量の較正試験を実施した、破壊力測定実験 (Test No.260-1)、ガドリニア入り燃料実験 (Test Nos.510-1, 511-1)、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験 (Test Nos. 701-3, -8, 702-1, -2) の合計7回の実験について、 γ -チェンバーにより測定した炉心積分出力をTable 5に示す。又、投入反応度と炉心積分出力の測定値の関係をFig.10に○印にて示す。図には、予定した炉心積分出力を得るための投入反応度を決定する“炉心積分出力 v.s. 投入反応度曲線”も参考のために示した。本曲線は既に得られている実験結果より最小二乗法で求めた近似曲線であり、以下の多項式より計算してある。

$$y = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3 + a_4 x^4 \quad \dots\dots\dots (3)$$

y : 炉心積分出力 (MW・s)

x : 投入反応度 (Δk)

a_0 : -0.1451560×10^2

a_1 : 0.1454160×10^2

a_2 : 0.7026137×10^1

a_3 : -0.1706625×10

a_4 : 0.1596625

Fig.10に示したように、炉心積分出力の測定結果は、(3)式による“炉心積分出力 v.s. 投入反応度曲線”によく一致していることが分る。

3.2 γ 線スペクトル測定結果

(1) 破壊力測定実験シリーズ

本実験 (Test No.260-1) においては、 γ 線スペクトロメトリ用試料を1個作成し、期間をおいて3回の測定を行った。測定した核種はCs-137, Zr-95, (Nb-95)^{*1)}, Y-91, Ru-103, Ru-106, Ce-141, Ce-144, Nd-147, Ba-140, (La-140)^{*2)}である。 γ 線スペクト

*1) Nb-95よりZr-95の存在量を評価した。

*2) La-140よりBa-140の存在量を評価した。

ルの測定例をFig.11に示す。又、本測定により求めた各核種の崩壊数 (Bq) をTable 8に示す。なお、表に示した崩壊数 (Bq) は、半減期を考慮して照射直後の値に補正したものである。

(2) ガドリニア入り燃料実験シリーズ

NSRR実験における標準燃料棒が、PWR14×14型であるのに対して、ガドリニア入り燃料実験シリーズではPWR17×17型の燃料を使用し、燃料サイズが異なる。ゆえに、本実験シリーズでは、実験結果をNSRR標準燃料棒の試験結果と比較する必要があることから、ガドリニアを入れない UO_2 ペレットを用い、燃料棒径が異なる試験燃料による試験と、ガドリニア入り UO_2 ペレットを用いた試験燃料による2種類の燃料について実験を実施している。このため、発熱量の較正試験も上述した2種類の試験燃料棒について実施した。これらの試験のうち、ガドリニアを入れていない UO_2 ペレットを用いた試験燃料棒の試験 (Test No510-1) では、燃料棒の2ヶ所より試料を作成して γ 線スペクトルを測定した。又、 $Gd_2O_3-UO_2$ ペレットを用いた試験燃料による実験 (Test No511-1) では、燃料棒より1つの試料を作成して γ 線測定を実施した。測定した核種は、Test No260-1の試料と同様である。Table 9に結果を示す。

(3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験シリーズ

ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験シリーズについては、4本の試験燃料棒より取り出した合計10ヶの試料と、Pu-239, Am-241等からの放射線量を評価するための未照射試料2ヶの合計12試料について測定を行った。このうち、試料No.84CO1~04については、第1次燃料 (Phase 1) の試験燃料から取り出したものであり、試料No.84CO7~12については第2次燃料 (Phase 2) の試料燃料から取り出したものである。なお、未照射燃料 (試料No.84CO5, 84CO6) の組成は、第2次燃料と同じである。Figs.12, 13にウラン-プルトニウム混合酸化物燃料から測定した γ 線スペクトルの代表例を示す。Fig.12は試料No.84CO8の測定結果でありこれは、第2次燃料を3.26ドルの反応度により照射実験したものである。また、Fig.13は未照射燃料である試料No.84CO5の測定結果である。従って、FPからの γ 線のピークはなく、観測されるスペクトルのピーク値はPu-239, -240, -241, U-237 (Pu-241の娘核種), Am-241 (Pu-241の娘核種) 等からのものである。NSRR実験で照射した燃料から取り出した試料の γ 線スペクトロメトリーに関しては、Cs-137, Zr-95, Nb-95, Ru-103, Ru-106, Ce-141, Ce-144, Ba-140, La-140等について放射能強度の評価を実施したが、Cs-137 (661.7 keV), Ru-106 (511.8 keV)については各々Am-241, Pu-239からの γ 線の補正を行って評価した。さらに、Ce-144 (696.5 keV)についてはTe-129mからの放射能強度の補正を行った。Table 10に評価した各核分裂生成物からの崩壊数 (Bq) を示す。

本試験は粉末化した燃料粒子片を容器に入れて測定しているため燃料自身による γ 線の自己吸収量を評価する必要がある。そこで、Pu-239の存在量を用いて計算により求めた413 keVの γ 線強度と測定値を比較することにより、試料中の γ 線自己吸収量を評価した。Table 11は、各試料の γ 線スペクトルより、413 keVのエネルギーにおける単位重量当りの光子数の測定値と計算値に対する比を示したものである。本表に示されているように、413 keVにおける γ 線透過割合は0.803である。又、光子数の測定値は各試料についてほぼ等しく、その標準偏差 (σ) は $\pm 0.9\%$ であった。即ち、測定精度が非常に良いことが分る。

Table 8 Measured activities of fission products in the solution sample of the Test No. 260-1

NO	Nuclide	Sample 260-1-(1)		Sample 260-1-(2)		Sample 260-1-(3)		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)						
1	Cs-137	9.855×10^2	3.6	9.838×10^2	3.3	9.513×10^2	2.7	9.735×10^2	2.0
2	Zr-95	1.702×10^5	1.0	1.693×10^5	1.0	1.689×10^5	1.1	1.695×10^5	0.4
3	Nb-95 (as Zr-95)	(1.569×10^5)	1.0	(1.571×10^5)	1.0	(1.575×10^5)	1.0	(1.572×10^5)	0.2
4	Y-91	1.557×10^5	8.4	1.278×10^5	9.7	1.323×10^5	8.3	1.387×10^5	10.8
5	Ru-103	1.294×10^5	1.0	1.289×10^5	1.0	1.293×10^5	1.0	1.292×10^5	0.2
6	Ru-106	3.201×10^3	7.0	3.072×10^3	6.6	2.964×10^3	6.3	3.078×10^3	3.9
7	Ce-141	2.745×10^5	0.9	2.752×10^5	0.9	2.755×10^5	0.9	2.750×10^5	0.2
8	Ce-144	3.330×10^4	5.6	3.395×10^4	5.1	3.061×10^4	5.0	3.261×10^4	5.4
9	Nd-147	3.589×10^5	4.0	3.520×10^5	4.1			3.555×10^5	1.5
10	Ba-140	7.636×10^5	1.7	7.688×10^5	1.7	7.398×10^5	1.5	7.574×10^5	2.0
11	Lq-140 (as Ba-140)	(7.795×10^5)	2.5	(7.743×10^5)	1.0	(7.778×10^5)	1.0	(7.771×10^5)	0.3

* Activities at just after the irradiation.

* Cooling time: (1) 71.3 day, (2) 73.3 day, (3) 76.2 day

** Standard deviation

Table 9 Measured activities of fission products in the solution samples of the Test Nos. 501-1 and 511-1

a) Test No. 510-1

NO	Nuclide	Sample 510-1-1		Sample 510-1-2		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err** (%)
1	Cs-137	1.678×10^3	8.0	1.645×10^3	7.1	1.662×10^3	1.4
2	Zr-95	3.113×10^5	1.0	3.065×10^5	1.0	3.089×10^5	1.1
3	I-131	1.043×10^6	2.0	1.006×10^6	2.1	1.025×10^6	2.6
4	Y-91	2.489×10^5	11.8	1.956×10^5	12.8	2.223×10^5	17.0
5	Ru-103	2.416×10^5	1.7	2.357×10^5	1.6	2.386×10^5	1.7
6	Ru-106	7.072×10^3	6.8	5.356×10^3	6.2	6.214×10^3	19.5
7	Ce-141	5.012×10^5	1.0	4.962×10^5	1.0	4.987×10^5	0.7
8	Ce-144	6.505×10^4	1.0	6.084×10^4	1.0	6.295×10^4	4.7
9	Nd-147	6.568×10^5	5.2	6.342×10^5	5.2	6.455×10^5	2.5
10	Ba-140	1.476×10^6	6.7	1.464×10^6	6.2	1.470×10^6	0.6

* Activities at just after the irradiation.

* Cooling time: (1) 63.0 day, (2) 65.7 day

** Standard deviation

b) Test No. 511-1

NO	Nuclide	Sample 511-1-(1)		Sample 511-1-(2)		Sample 511-1-(3)		Arithmetic average	
		Ba/g·UO ₂	Err (%)						
1	Cs-137	1.568×10^3	2.5	1.589×10^3	2.0	1.608×10^3	1.9	1.585×10^3	1.0
2	Zr-95	2.876×10^5	1.0	2.857×10^5	1.0	2.860×10^5	1.0	2.864×10^5	0.4
3	Nb-95 (as Zr-95)	(2.720×10^5)	1.0			(2.711×10^5)	1.0	(2.716×10^5)	0.2
4	Y-91	2.483×10^5	6.2	2.247×10^5	5.3	2.027×10^5	6.0	2.252×10^5	10.1
5	Ru-103	2.158×10^4	1.0	2.176×10^5	1.0	2.137×10^4	1.0	2.157×10^4	0.9
6	Ru-106	3.824×10^3	7.8	3.658×10^3	1.9	3.483×10^3	1.6	3.655×10^3	4.7
7	Ce-141	4.798×10^5	1.0	4.848×10^5	1.0	4.816×10^5	1.0	4.821×10^5	0.5
8	Ce-144	5.142×10^4	4.7	5.037×10^4	3.7	5.198×10^4	3.9	5.124×10^4	1.6
9	Ba-140	1.244×10^6	9.5	1.293×10^6	7.5	1.109×10^6	10.7	1.213×10^6	7.8
10	La-140 (as Ba-140)	(1.298×10^6)	1.3	(1.306×10^6)	2.4	(1.294×10^6)	4.4	(1.299×10^6)	0.5

* Activities at just after the irradiation.

* Cooling time: (1) 120.1 day, (2) 121.8 day, (3) 124.8 day

** Standard deviation

Table 10 Measured activities of fission products in the samples of the Test Nos. 701-3, -8, 702-1 and -2

a) Test No. 702-1

NO	Nuclide	Sample 702-1-7		Sample 702-1-8		Sample 702-1-9		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err** (%)
1	Cs-137	1.368 × 10 ³	2.1	1.139 × 10 ³	3.0	1.032 × 10 ³	4.5	1.180 × 10 ³	14.6
2	Zr-95	2.048 × 10 ⁵	1.0	1.710 × 10 ⁵	1.4	1.705 × 10 ⁵	1.1	1.821 × 10 ⁵	10.8
3	Ru-103	3.313 × 10 ⁵	1.0	2.758 × 10 ⁵	1.4	2.749 × 10 ⁵	1.5	2.940 × 10 ⁵	11.0
4	Ru-106	1.825 × 10 ⁴	1.1	1.498 × 10 ⁴	1.0	1.513 × 10 ⁴	1.5	1.612 × 10 ⁴	11.5
5	Ce-144	4.162 × 10 ⁴	14.8	3.296 × 10 ⁴	12.4	3.400 × 10 ⁴	11.2	3.620 × 10 ⁴	13.1
6	Ba-140								

b) Test No. 702-2

NO	Nuclide	Sample 702-2-10		Sample 702-2-11		Sample 702-2-12		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err** (%)
1	Cs-137	9.862 × 10 ²	1.9	9.726 × 10 ²	1.0	8.561 × 10 ²	8.4	9.383 × 10 ²	7.6
2	Zr-95	1.412 × 10 ⁵	1.0	1.397 × 10 ⁵	1.0	1.223 × 10 ⁵	12.1	1.344 × 10 ⁵	7.8
3	Ru-103	2.290 × 10 ⁵	1.3	2.235 × 10 ⁵	1.0	1.964 × 10 ⁵	1.0	2.163 × 10 ⁵	8.1
4	Ru-106	1.241 × 10 ⁴	1.0	1.234 × 10 ⁴	1.3	1.061 × 10 ⁴	1.0	1.179 × 10 ⁴	8.7
5	Ce-144	2.695 × 10 ⁴	20.1	2.887 × 10 ⁴	12.2	2.450 × 10 ⁴	17.7	2.677 × 10 ⁴	8.2
6	Ba-140	8.091 × 10 ⁵	5.3	7.713 × 10 ⁵	13.3	6.916 × 10 ⁵	14.5	7.573 × 10 ⁵	7.9

c) Test No. 701-3

NO	Nuclide	Sample 701-3-1		Sample 701-3-2		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err** (%)
1	Cs-137	1.612×10^3	1.0	1.584×10^3	2.9	1.598×10^3	1.2
2	Ru-106	3.176×10^4	10.2	3.238×10^4	7.5	3.207×10^3	1.4
3	Ce-144	4.840×10^4	42.4	4.510×10^4	82.4	4.675×10^4	5.0

d) Test No. 701-8

NO	Nuclide	Sample 701-8-1		Sample 701-8-2		Arithmetic average	
		Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err (%)	Bq/g·UO ₂	Err** (%)
1	Cs-137	1.118×10^3	2.3	1.166×10^3	4.1	1.142×10^3	3.0
2	Ru-106	2.129×10^4	5.1	2.207×10^4	2.3	2.168×10^4	2.5
3	Ce-144	3.090×10^4	38.1	2.830×10^4	23.8	2.960×10^4	6.2

* Activities at just after the irradiation

** Standard deviation

Table 11 Measured intensity and estimated penetration ratio of 413 KeV γ -ray (Pu-239) in each sample

Sample No.	Measured γ -ray intensity at 413 KeV (γ /sec/g)	Ratio of measured to calculated	Test No.
1	1.0162×10^3	0.818	701-3
2	1.0014×10^3	0.807	
3	9.919×10^2	0.799	701-8
4	9.977×10^2	0.804	
5	1.7887×10^3	0.808	Reference
6	1.7890×10^3	0.810	
7	1.7726×10^3	0.802	702-1
8	1.7803×10^3	0.805	
9	1.7543×10^3	0.794	
10	1.7517×10^3	0.793	702-2
11	1.7636×10^3	0.798	
12	1.7696×10^3	0.801	
average		0.803 ($\pm 0.9\%$)	

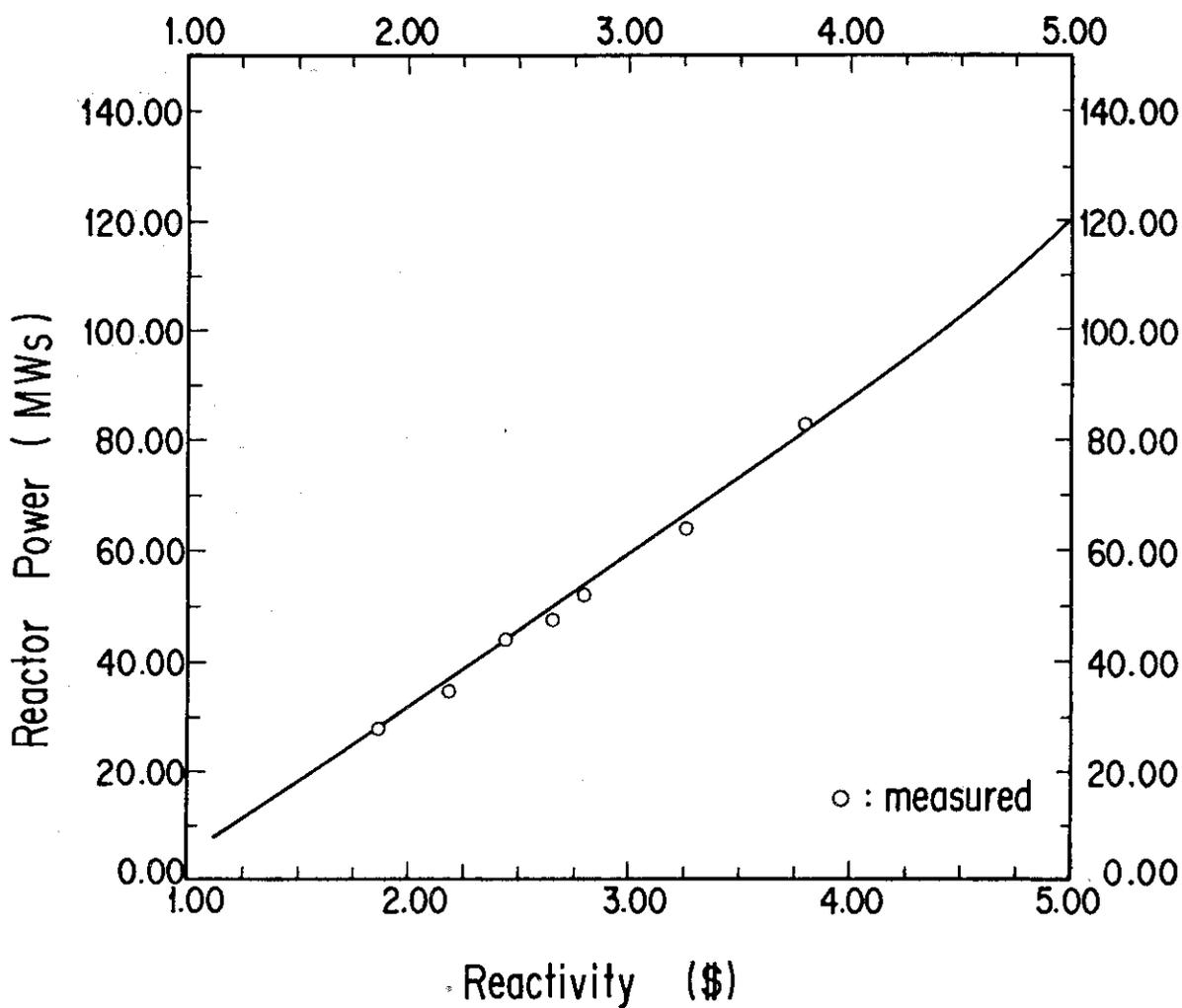


Fig. 10 Measured core energy release up to 1 sec and the fitting curve showing the relation between the reactivity and the reactor power

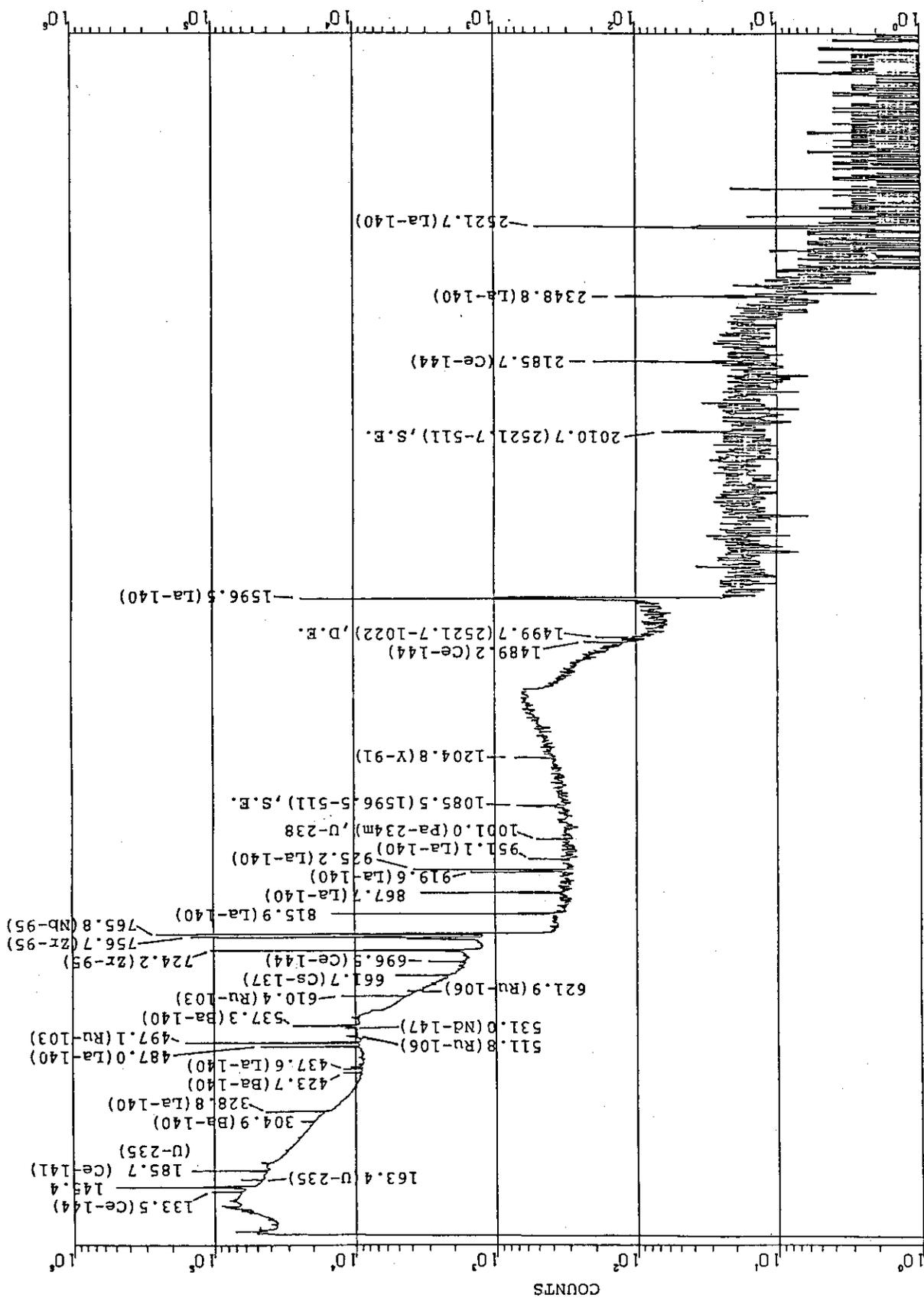


Fig. 11 Typical γ -ray spectrum of the sample in Test No.260-1 (71.3 day after the irradiation)

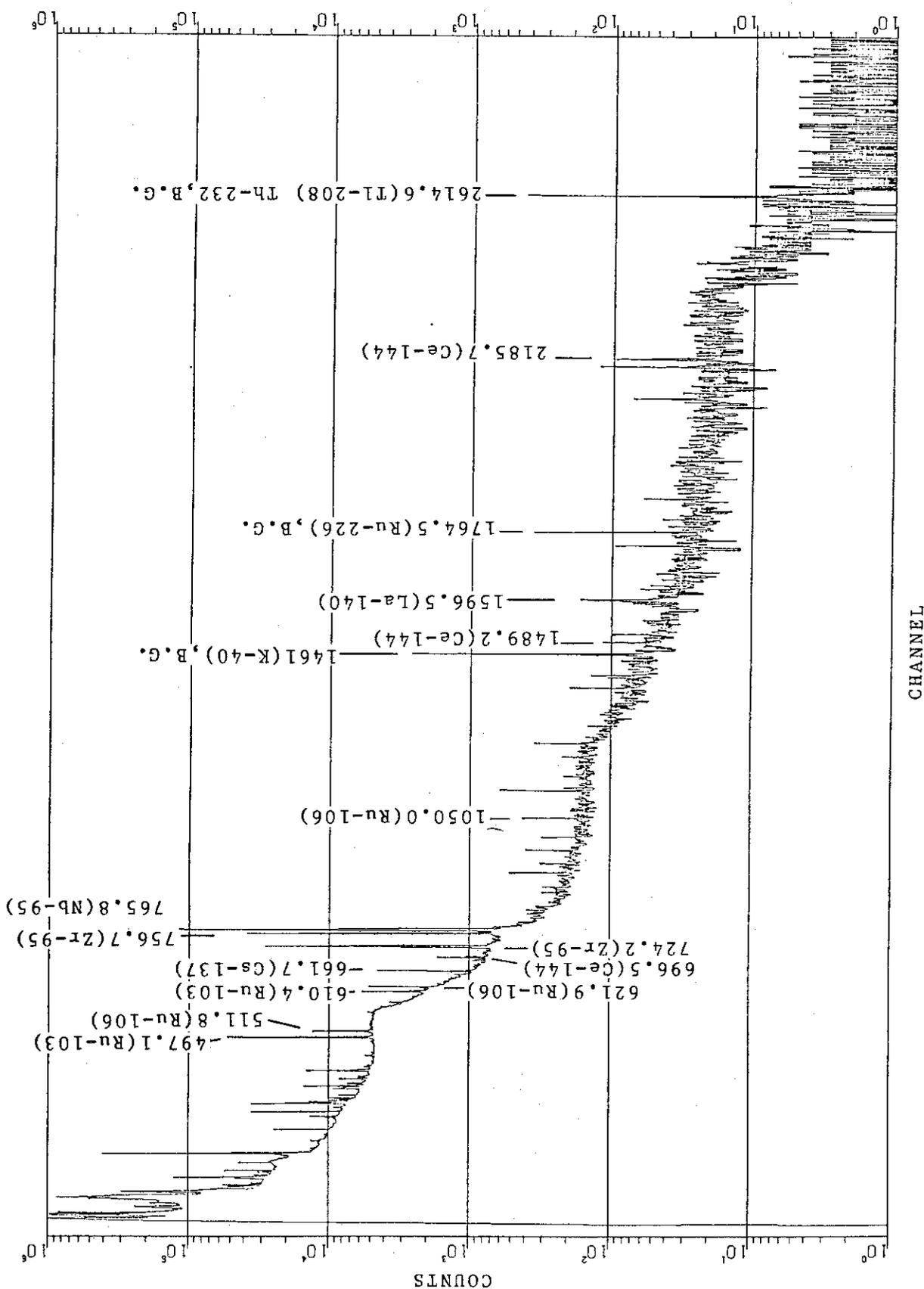


Fig. 12 Typical γ -ray spectrum of the $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ sample irradiated in NSRR experiment
(165.9 days after the irradiation)

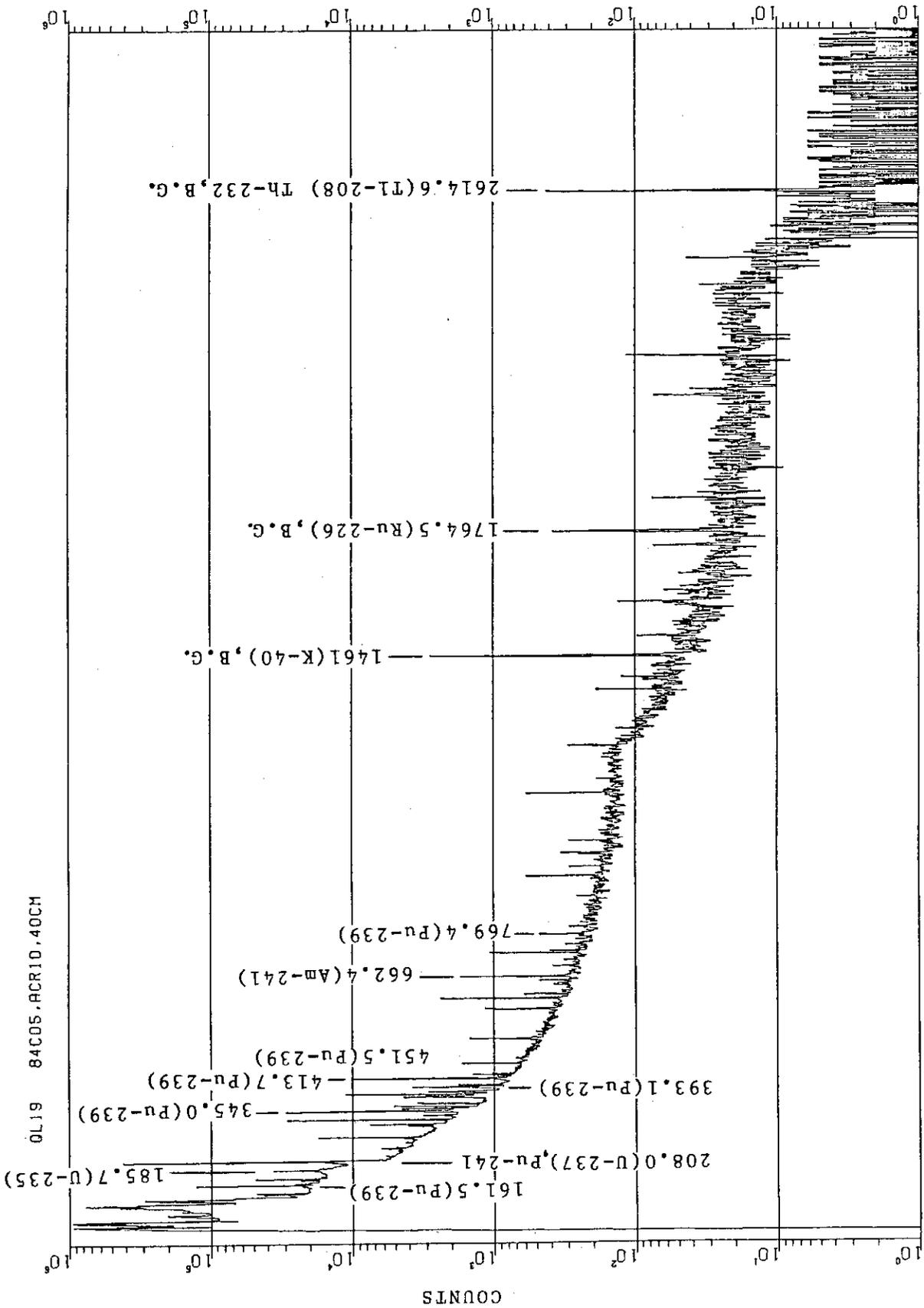


Fig. 13 Typical γ -ray spectrum of the non-irradiated $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ sample

4. 発熱量の評価

4.1 試験燃料の核分裂数の評価

試験燃料の発熱量を評価するための基本データは、照射実験中に生じた核分裂の数である。又、 γ 線スペクトロメトリーにおいて求めた各核種の生成量より、核分裂収率を用いて核分裂数が得られる。この核分裂収率は、核分裂核種や、中性子のエネルギーにより異なる。破壊力測定実験とガドリニア入り燃料実験においては、U-235の熱中性子における核分裂収率を用いて核分裂数を評価することが可能である。これに対して、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験では、核分裂性核種として、U-235, Pu-239, Pu-241 を考えなくてはならない。さらに、Pu-239は熱エネルギーよりやや高い領域に大きな共鳴吸収領域があるため、Pu-239の核分裂を評価する場合、これらの断面積を考慮する必要がある、U-235のみの核分裂数を評価する場合に対して、より詳細な検討を必要とする⁽⁵⁾。以下に、プルトニウムを含まない、破壊力測定及びガドリニア入り燃料実験とウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験の各々について、各FP核種の生成量より、核分裂数を求めた評価結果を示す。なお、核分裂収率はB.F. Riderの数値を用いた⁽⁶⁾。

4.1.1 破壊力測定及びガドリニア入り燃料実験における核分裂数の評価

NSRR実験においては、照射実験の実施から、 γ 線スペクトルの測定が可能になるまでの期間として、約2ヶ月を要する。この間に短半減期のFP核種は減衰してしまうため、2ヶ月以上経てから測定出来る核種は限られる。今回の γ 線スペクトル測定によりその存在量を求めたFP核種はTable 8及び9に示した11核種である。しかし、これらの核種についても、 γ 線強度が弱いために十分な計数を得られない場合や、Nb-95のように硝酸溶液からガラス容器に吸着し易いもの、I-131のように溶解時に放出されやすいもの等があり、総てについて十分に正確な存在量を評価できる訳ではなく、核種を選定する必要がある。本実験においてはCs-137, Zr-95, Ru-103を選びこれらの平均値から核分裂数を求めた。Fig.14は、これらの3核種の平均値に対して、各FP核種から求めた核分裂数の偏差を評価した結果である。なお、Y-91とPu-106については特に計数率が少く統計誤差が大きかったために、核分裂数評価の対象から除いた。さらに、Fig.14に示した核種のうち、I-131, Ce-141, Ce-144, Nd-147, Ba-140は統計誤差が大きいか、又は、全体の平均に対して大きく異なる値を示しているため、これらを除いた。Cs-137, Zr-95, Ru-103の3核種より評価した核分裂数をTable 12に示す。

なお、照射後2～6ヶ月で測定出来る核分裂生成核種について、核分裂数の評価における主な特性を付録2に記す。

4.1.2 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の核分裂数の評価

前章で述べたように、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料については、自己吸収の補正が必要であった。Pu-239からの413 keVの γ 線についてはその透過割合が80%であったため、この評価値に基づいて各FP核種からの γ 線の自己吸収の補正を行った。一般に、 γ 線の吸収は次式により表わされる。

$$I = I_0 e^{-\mu d} \quad \dots\dots (4)$$

$$\mu = \frac{\ln 2}{d_{1/2}} d$$

d : 物質の厚さ×密度 (g/cm²)

$d_{1/2}$: r 線が1/2になる物質の厚さ×密度 (g/cm²)

I_0 : 初期 r 線強度

I : 透過 r 線強度

ここで、 μ は物質、エネルギーに依存する量である。試料の大部分(約80%)はウランであるのでウランの吸収係数について413keVの値を求めると、2.6 g/cm⁽⁷⁾である。Pu-239の413keVからの r 線が80%となる d を求め、この値により各エネルギーにおける r 線の減衰率を評価した。150~1500keVにおける減衰率の評価結果をFig.15に示す。本図には、Pu-239(161.5, 345.0, 393.1, 413.7, 451.5keV), U-235(185.0keV), Am-241(662.4keV), Pu-241-U-237(208.0keV)からの r 線測定結果と、計算により求めた光子数より、 r 線減衰率を評価した結果についても示してある。本図においては、 r 線減衰率の評価曲線は測定結果と大きく異なることが分る。本評価曲線により各エネルギーでの自己吸収率の補正を行った。

ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の主な特徴として、核分裂物質としてU-235, Pu-239, Pu-241の核種が含まれることが挙げられる。このため、これらの核種の重量比と核分裂断面積より各核種の核分裂への寄与率を評価しなければならない。各核種の断面積は中性子のエネルギーに依るが、Pu-239は大きな共鳴吸収領域を持つため、中性子束の硬化に対する影響を受け易くこの影響を特に考慮する必要がある。本実験では、各核種の重量と熱中性子断面積及びCs-137, Ru-103, Ru-106等の生成量とから核分裂数を算出した後、Pu-239の寄与率を増加させて、各FP核種から算出した核分裂数の偏りが最小になるようなPu-239の寄与率を求めた。さらに、求めた寄与率に基づいてU-235, Pu-239, Pu-241の核分裂比率⁽⁵⁾を評価した。結果をTable 13に示す。なお、本表に示した結果は拡散計算による試験燃料内の平均中性子束と各核分裂性核種の縮約断面積の計算により求めたU-235, Pu-239, Pu-241の寄与率と良く一致した。本結果より各FP核種の実効核分裂収率を計算し、第1次燃料(Phase 1)については、Cs-137とPu-106、第2次燃料(Phase 2)についてはCs-137, Zr-95, Ru-103, Ru-106の各核種から核分裂数を求めた。結果をTable 14に示す。又、各核種から評価した核分裂数の平均値からの偏差をFig.16に示す。本図に示されているように、各試料間では評価値にある程度の相違が認められるものの、同一試料においては各核種間における相違は少ないことが分る。又、Test No.702-1では、No.7の試料の核分裂数の評価結果が平均値に対して比較的大きな値を示している。しかし、Table 11に見られるPu-239の413keVの r 線測定結果からも分るように、Test No.702-1のNo.7の試料における測定値も平均値に非常に近く、試料重量、測定条件等の相違からNo.7の試料についてのみ核分裂数の評価値が高くなったとは考えられない。この原因については今後検討を要する。

4.2 単位炉心積分出力当りの核分裂数の評価

NSRR実験においては、試験燃料の発熱量をパラメータにして実験結果を整理しているが、この

発熱量は、換算係数を用いて炉心積分出力から決定する。そこで、実験の体系や、試験燃料の仕様等が異なる各々の実験シリーズにおいては、単位炉心積分出力当りの発熱量を求める必要がある。しかし、試験燃料中での発熱はその大部分が核分裂によるものであり、前述の方法で直接測定されるのは核分裂数である。そこで、前章において求めた、各試験での核分裂数をその試験における炉心積分出力で除すれば、単位炉心積分出力当りの核分裂数を求めることが出来る。しかし、NSRR実験では、通常炉心積分出力はパルス投入時より1秒までしか測定していないため、原子炉が完全に停止するまでの炉心積分出力は測定結果より求めることは出来ない。NSRRでは、パルスの反応度を投入した場合、原子炉の出力は即発出力とラン・アウト出力に分けることが出来、即発出力の積分値は全炉心積分出力に対しておよそ80~90%を占める。1秒までの炉心積分出力は全炉心積分出力に対してさらに大きな割合を占めるが、数%は1秒以後の出力が占めるため、単位積分出力当りの核分裂数を評価する場合、炉心積分出力の測定値を使うことは出来ない。原子炉が停止するまでの炉心積分出力については、特別に1秒以降の炉心積分出力を測定した測定結果と、動特性コード`EUREKA`⁽⁸⁾の計算結果との比較がなされており、測定値と計算値が良く一致していることが示されている。また、EUREKAによる計算結果を基に、全ての投入反応度に対して、各時刻での炉心積分出力を計算するルーチンが、反応度事故時の燃料挙動を評価する計算コード`NSR-77`⁽⁹⁾に組み込まれているため、本評価においては、NSR-77のルーチンを用いて各試験における無限時間の炉心積分出力を計算し、この値により、単位炉心積分出力当りの核分裂数を求めた。Table 15に、各試験により求めた核分裂数、炉心積分出力の1秒までの測定値、炉心積分出力の1秒及び無限時間までの計算値、そしてこれらにより求めた、単位炉心積分出力当りの核分裂数を実験条件とともに示す。本表に記したように、単位炉心積分出力当りの核分裂数は、

- i. 破壊力測定実験 : 6.29×10^{11} fissions/g·UO₂/MW·S
- ii. ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO₂燃料 : 8.83×10^{11} "
 - b. ガドリニア入り燃料 : 6.94×10^{11} "
- iii. ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : 3.77×10^{11} "
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : 3.51×10^{11} "

となる。これらの結果についてみると、破壊力測定実験の単位炉心積分出力当りの核分裂数は標準カプセル実験における20%濃縮燃料の単位炉心積分出力当りの核分裂数 8.19×10^{11} f/g·UO₂/MWsに対して約23%低く、2重カプセルにした影響が現われている。また、ガドリニア入り燃料実験では、ガドリニアが6%入ることにより、約21%の核分裂数の減少が生じている。ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料実験においては、2次燃料 (Phase 2) のペレット直径が1.23mmと1次燃料 (Phase 1) に対して3.06mm大きいため (1次燃料 (Phase 1) のペレット直径は9.24mm) この効果が強く影響して、2次燃料の単位炉心積分出力当りの核分裂数が減少している。なお、1次燃料 (Phase 1) についてはTest Nos.701-1, 701-2に対して既に実施してある核分裂数の評価結果 (Test No.701-1 : 3.638×10^{11} f/g·UO₂/MWs^{*1)}, Test No.701-2 : 3.575×10^{11} f/g·UO₂/MWs^{*2)}) と良好一致を示している。

*1) Test No.701-1 : 1.728×10^{13} f/g·UO₂, 47.5MWs

*2) Test No.701-2 : 2.706×10^{13} f/g·UO₂, 75.7MWs

Table 15には、炉心積分出力の1秒までの測定値に基づいて評価した¹⁾ 単位炉心積分出力当りの核分裂数²⁾を比較のために示したが、無限時間における炉心積分出力を使用する場合と比較して10-20%大きな値となった。

4.3 試験燃料の発熱量評価

4.3.1 簡便な方法による発熱量評価

前節で求めた単位炉心積分出力当りの核分裂数より、各々の実験シリーズでの個々の実験における発熱量を求めることが出来る。この発熱量の導出に関しては、単位核分裂当りのエネルギーの放出量⁽¹⁾⁽³⁾を評価しておく必要がある。単位核分裂当りに放出されるエネルギーは、一般にkeepin⁽¹⁾⁽³⁾の報告が用いられており、本実験においても、以下に示す値に基づいて放出エネルギーを算出した。

1核分裂当りの放出エネルギー (MeV)

項 目	即 発 分	1 秒 まで	全エネルギー
*核分裂片	168.2	168.2	168.2
*中性子	0.04	0.04	0.04
*即発ガンマ線	2.5	2.5	2.5
*遅発ガンマ線	—	0.2	2.2
*ベータ線	—	0.8	7.8
*捕獲ガンマ線	0.4	0.4	0.4
*炉心燃料からの寄与分	4.14	4.15	5.24
合 計	175.3	176.4	186.4

この放出エネルギーの算出方法は即⁽²⁾⁽⁸⁾に文献で詳細に議論されているためここでは省略する。

上記した単位核分裂当りの放出エネルギーと、単位炉心積分出力当りの核分裂数を用いて、炉心積分出力の測定値より UO_2 燃料中での発熱量を評価出来る。従来、NSRRでは発熱量の評価方法として、¹⁾ 単位炉心積分出力当りの発熱量²⁾を予め評価して、炉心積分出力の測定結果より直接発熱量を求める簡便な方法を用いてきた。これは、炉心積分出力が瞬時に発生すると仮定し、これに対して、遅発 r 、 β 線によるエネルギー放出を評価したものである。そこで、1秒までの発熱量を求める場合には、単位炉心積分出力当りの核分裂数に1秒までの単位核分裂当りの放出エネルギーを乗じて、炉心積分出力から発熱量への換算係数を得ることが出来る。各実験シリーズに対し、1秒までの発熱量を得るための換算係数は以下の通りである。

- 1) 破壊力測定実験 : $4.25 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2 / \text{MWs}$
- 2) ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO_2 燃料 : $5.96 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2 / \text{MWs}$
 - b. ガドリニア入り燃料 : $4.69 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2 / \text{MWs}$
- 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : $2.55 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2 / \text{MWs}$
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : $2.37 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2 / \text{MWs}$

4.3.2 厳密な方法による発熱量評価

一般に、核分裂エネルギーは、核分裂片、中性子、即発ガンマ線による即発エネルギーと、遅発ガンマ、ベータ線による遅発エネルギーとに分けられる。このため、NSRR実験における試験燃料中での発熱量の評価については、厳密には、発熱量が単にパルス出力の積分値に比例するのではなく、以下に示すような計算が必要となる。

$$E_i(t) = A_0 \times \left[\int_0^t e_p P_i(t) dt + \int_0^t \int_0^{t'} P_i(t') \lambda (t-t') dt' dt \right] \quad \dots\dots (5)$$

ここで、

- A_0 : 単位炉心積分出力当りの核分裂数
 e_p : 単位核分裂当りの即発エネルギー
 $P(t-t')$: 単位核分裂当りの時刻 t' における遅発エネルギー
 $P_i(t)$: 試験 i における原子炉出力

ただし、上式において、どの時刻までの値を用いて発熱量を評価するかについては十分な検討を要する。何故なら、燃料棒の破損挙動を発熱量を基準にして評価する場合、燃料棒の破損に必要な発熱量を的確に求めなければならないからである。前節で述べたように、これまでのNSRR実験では、1秒までに測定された炉心積分出力に基づいて発熱量を評価している。つまり、1秒までの炉心積分出力が瞬時に投入されたと仮定し、これに対して、単位核分裂当りの即発エネルギーと1秒までの遅発エネルギーを考慮した値(176.4MeV/fission)により、発熱量を評価している。上記手法は、簡便な方法であるため、炉心積分出力の測定値を用いて直ちに発熱量を評価出来る利点はあるが、必ずしも厳密な発熱量ではない。このため、特に実験体系や燃料仕様の相違から、単位炉心出力当りの核分裂数²が異なる実験シリーズについて発熱量を基本にして燃料挙動の比較を試みる場合には(5)式により厳密に定義した発熱量を求める必要がある。そこで、本実験により求めた、単位炉心積分出力当りの核分裂数と、(5)式により、破壊力測定実験、ガドリニア入り燃料実験、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の各実験シリーズにおいて実施した実験の発熱量の評価を試みた。(5)式による発熱量の評価では、パルス出力投入後、何秒までの値を発熱量とするかが問題となる。これは、実験結果の解析をする上で最も合理的な値を採用する必要があるが、今後詳細な検討に基づいて決められるべきであるが、ここでは、1秒と3秒までについて評価した。3秒までの値を評価した理由は以下の通りである。つまり、簡便な方法により求めた値を(5)式により再定義し直すことが出来、標準燃料実験において簡便な方法で求めた発熱量が(5)式では何秒までの積分値に相当しているかについてみると、投反応度により多少の相違はあるが、約3秒までの積分値に相当する。そこで、これまで評価してきた標準燃料試験の発熱量を厳密に評価するとパルス出力投入から3秒間の発熱量の積分値であることから、この標準燃料試験の結果を基本にして、燃料仕様等のパラメータの影響を評価する場合、各実験においては3秒までの発熱量を求めることが最も現実的となる。計算結果を従来の簡便な評価方法による値とともにTable 16~18に記す。本表に示されている様に、従来の評価方法により求めた値は(5)式による3秒までの積分値に対して10~20%高く発熱量を評価している。

これは、上述したように、発熱量の簡便な評価方法と(5)式による厳密な評価方法との相違から生じるものであるが、その原因をまとめると、

- (i) 従来の評価方法では、単位炉心積分出力当りの核分裂数²を求める場合、無限時間までの炉

心積分出力より10～20%少い1秒までの積分値を用いていること^{*}

(ii) ラン・アウト出力の時間依存性を考慮せずに、瞬時に1秒までの出力が発生するとして、遅発放射線エネルギーを炉出力とは無関係に1秒まで積分して、核分裂に対する発熱密度を評価していること、

(iii) 炉心積分出力の全積分値に対する1秒までの積分値の割合が投入反応度により異なること、である。さらに、(5)式を1秒までと3秒まで積分して求めた発熱量にも有為な差が認められる。これは、炉心出力の積分値が1秒までと3秒までの値に差が在ることを示している。つまり、発熱量を評価する場合に、どの時刻までの値を持って発熱量と定義するかによりその値が異なる。本表では、3秒までの積分値を発熱量と定めたが、この定義についてはさらに十分な検討が必要である。

他方、各実験シリーズにおいては単位炉心積分出力当りの核分裂数が異なるため同一の発熱量を得る場合にも、原子炉出力のパルス波形が異なる。このため、 UO_2 ペレット中での発熱過程が各実験シリーズにより異なる。Fig.17は、本実験により求めた単位積分出力当りの核分裂数を用いて、3秒までの発熱量が約250 cal/g・ UO_2 になる場合における発熱過程を示したものである。本図には、10%濃縮標準燃料の発熱履歴も参考のために示したが、同一の発熱量を得る場合でも投入反応度の相違により、発熱履歴が異なることが分る。

以上は、NSRR実験の発熱量を厳密に評価する場合に問題となる主な点について議論したものであり、従来の評価方法を否定するものではない。しかし、今後、実験体系や試験燃料の仕様が異なる実験シリーズについて、より詳細な燃料挙動の究明が求められる場合、上述した問題に関して十分な検討が必要と思われる。

又、Fig.18は、今回、発熱量の校正試験を実施した、破壊力測定実験、ガドリニア入り燃料実験、及びウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験について、投入反応度と3秒までの発熱量の関係をまとめて図示したものである。本図には、NSRR実験における基本的データが蓄積されている標準燃料実験についても参考のために上述した関係を示してある。破壊力測定実験シリーズについてみると、本実験では二重カプセルを使用しているため、試験燃料が置かれている領域の熱中性子束は標準燃料実験と比較して少いが、破壊力測定実験(260シリーズ)では20%濃縮のウランを用いているため、同一の投入反応度に対して10%濃縮ウランを用いている標準燃料実験とほぼ等しい発熱量が得られる。ガドリニア入り燃料(Test No.511シリーズ)では、ガドリニアを含まない UO_2 燃料で燃料寸法の等しい実験(Test No.510シリーズ)と比較すると、ガドリニアの存在の影響が認められる。これに対して標準燃料実験と比べると、20%濃縮ウランを使用していること、燃料ペレットの外径が小さいこと等により、投入反応度に対する発熱量は高くなっていることが分る。ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料についてみると、1次燃料(Phase 1)の場合、核分裂性物質の存在量が約5%であること及び二重カプセルを使用していること等により、標準燃料実験と比較して、投入反応度に対する発熱量はかなり低い。つまり、標準燃料では400 cal/g・ UO_2 の発熱量が得られる投入反応度に対して1次燃料(Phase 1)では約250 cal/g・ UO_2 の発熱量が得られるにすぎない。又、2次燃料(Phase 2)についてみると、核分裂性物質の存在量は約20%であるが、燃料ペレットの外径が1.45 mmと大きいため、単位重量当りの核分裂数は1次燃料(Phase 1)と比較して少なくな

* 但し、総発熱量を求める際は、1秒までの積分出力を掛けているので、総発熱量の評価に関しては、従来の方法による評価値は厳密な評価方法による値と比較してそれほど相違ない。

る。このため投入反応度に対する発熱量は1次燃料と比較して低い値を示していることが分る。

5. 結 言

実験燃料棒の仕様や実験体系が異なる3つの実験シリーズ、即ち破壊力測定実験、ガドリニア入り燃料実験、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験について、FPからの γ 線スペクトル分析を実施し、各実験の発熱量を評価した結果以下の事が明らかになった。

- (1) NSRR実験の実施後2~4ヶ月を経た UO_2 燃料について、 γ 線スペクトロメトリーにより、主にCs-137, Zr-95, Ru-103の核種から核分裂数を評価することが出来た。又、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料については、粉末状の試料を用い、主にCs-137, Zr-95, Ru-103, Ru-106の核種から核分裂数を評価することが出来た。
- (2) 各実験シリーズにおける単位炉心積分出力当りの核分裂数を評価した結果は以下の通りである。
 - 1) 破壊力測定実験 : 6.29×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - 2) ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO₂燃料 : 8.83×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - b. ガドリニア入り燃料 : 6.94×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : 3.77×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : 3.51×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
- (3) 炉心積分出力の測定値より、簡便に1秒までの燃料の発熱量を求める場合の換算係数の評価結果は以下の通りである。
 - 1) 破壊力測定実験 : 4.25 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - 2) ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO₂燃料 : 5.96 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - b. ガドリニア入り燃料 : 4.69 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : 2.55 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : 2.37 cal/g \cdot UO₂/MWs
- (4) 1秒までの炉心積分出力の測定値に基づく試験燃料の発熱量は、体系の異なる実験を比較する基準としては必ずしも適当でない場合がある。従って、標準燃料実験体系に対して、燃料濃縮度やカプセル構成が大きく異なる場合に、詳細な実験結果の比較を行う際は、炉心出力を考慮した試験燃料中の発熱履歴に基づき発熱量を求める必要がある。

る。このため投入反応度に対する発熱量は1次燃料と比較して低い値を示していることが分る。

5. 結 言

実験燃料棒の仕様や実験体系が異なる3つの実験シリーズ、即ち破壊力測定実験、ガドリニア入り燃料実験、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験について、FPからの γ 線スペクトル分析を実施し、各実験の発熱量を評価した結果以下の事が明らかになった。

- (1) NSRR実験の実施後2~4ヶ月を経た UO_2 燃料について、 γ 線スペクトロメトリーにより、主にCs-137, Zr-95, Ru-103の核種から核分裂数を評価することが出来た。又、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料については、粉末状の試料を用い、主にCs-137, Zr-95, Ru-103, Ru-106の核種から核分裂数を評価することが出来た。
- (2) 各実験シリーズにおける単位炉心積分出力当りの核分裂数を評価した結果は以下の通りである。
 - 1) 破壊力測定実験 : 6.29×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - 2) ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO₂燃料 : 8.83×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - b. ガドリニア入り燃料 : 6.94×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : 3.77×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : 3.51×10^{11} fissions/g \cdot UO₂/MWs
- (3) 炉心積分出力の測定値より、簡便に1秒までの燃料の発熱量を求める場合の換算係数の評価結果は以下の通りである。
 - 1) 破壊力測定実験 : 4.25 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - 2) ガドリニア入り燃料実験
 - a. UO₂燃料 : 5.96 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - b. ガドリニア入り燃料 : 4.69 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - 3) ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料実験
 - a. 1次燃料 (Phase 1) : 2.55 cal/g \cdot UO₂/MWs
 - b. 2次燃料 (Phase 2) : 2.37 cal/g \cdot UO₂/MWs
- (4) 1秒までの炉心積分出力の測定値に基づく試験燃料の発熱量は、体系の異なる実験を比較する基準としては必ずしも適当でない場合がある。従って、標準燃料実験体系に対して、燃料濃縮度やカプセル構成が大きく異なる場合に、詳細な実験結果の比較を行う際は、炉心出力を考慮した試験燃料中の発熱履歴に基づき発熱量を求める必要がある。

Table 12 Evaluated fission number in the
Test Nos. 260-1, 510-1 and 511-1

NO	Test No	Nuclides	Bq/g·UO ₂	Fission Number/g·UO ₂	
				Each Nuclide	Average
1	260-1	Cs-137	9.735×10^2	2.160×10^{13}	2.107×10^{13} (±2.18%)
		Zr-95	1.695×10^5	2.075×10^{13}	
		Ru-103	1.292×10^5	2.087×10^{13}	
2	510-1	Cs-137	1.662×10^3	3.687×10^{13}	3.770×10^{13} (±2.22%)
		Zr-95	3.089×10^5	3.769×10^{13}	
		Ru-103	2.386×10^5	3.855×10^{13}	
3	511-1	Cs-137	1.585×10^3	3.517×10^{13}	3.502×10^{13} (±0.48%)
		Zr-95	2.864×10^5	3.506×10^{13}	
		Ru-103	2.157×10^5	3.484×10^{13}	

Table 13 Weight and fission fraction
U-235, Pu-239 and Pu-241

a) Fission fraction evaluated by
measurements

Test No.	Sample No.	U-235	Pu-239	Pu-241
701-3	1, 2	0.075	0.800	0.125
701-8	3, 4	0.102	0.777	0.121
702-1	7, 8, 9	0.430	0.521	0.049
702-2	10,11,12	0.448	0.504	0.048

b) Weight fraction of fissile nuclides
at the time of the irradiation

701-3	1, 2	0.130	0.792	0.078
701-8	3, 4	0.130	0.794	0.076
702-1	7, 8, 9	0.561	0.411	0.028
702-2	10,11,12	0.561	0.411	0.028

Table 14 Evaluated fission numbers in the Test
Nos. 701-3, -8, 702-1, and -2

NO	Test No.	Nuclide	Bq/g·UO ₂	Fission Numbers/g·UO ₂	
				Each Nuclide	Average
1	701-3	Cs-137	1.598×10^3	3.286×10^{13}	3.400×10^{13} (±4.7%)
		Ru-106	3.207×10^4	3.513×10^{13}	
2	701-8	Cs-137	1.142×10^3	2.338×10^{13}	2.362×10^{13} (±1.4%)
		Ru-106	2.168×10^4	2.385×10^{13}	
3	702-1	Cs-137	1.180×10^3	2.496×10^{13}	2.648×10^{13} (±4.5%)
		Zr-95	1.821×10^5	2.612×10^{13}	
		Ru-103	2.940×10^5	2.737×10^{13}	
		Ru-106	1.612×10^4	2.748×10^{13}	
4	702-2	Cs-137	9.383×10^2	1.984×10^{13}	1.984×10^{13} (±2.0%)
		Zr-95	1.344×10^5	1.928×10^{13}	
		Ru-103	2.163×10^5	2.014×10^{13}	
		Ru-106	1.179×10^4	2.011×10^{13}	

Table 15 Evaluated fission numbers per unit core energy release

No.	Test No.	Reactivity (\$)	Core Energy Release (MWs)			Fission Numbers g·UO ₂	Fission Numbers		Fission Numbers Measured MWs (1s) ·g·UO ₂
			measured until 1sec	calculated until 1sec	calculated total		Total MWs g·UO ₂ each test	average	
1	260-1	1.87	27.6	27.0	33.5	2.11×10 ¹³	6.29×10 ¹¹	7.64×10 ¹¹	
2	510-1	2.18	36.6	35.3	42.7	3.77×10 ¹³	8.83×10 ¹¹	1.03×10 ¹²	
3	511-1	2.44	43.0	42.4	50.5	3.50×10 ¹³	6.94×10 ¹¹	8.14×10 ¹¹	
4	702-1	3.26	63.7	65.3	75.1	2.65×10 ¹³	3.53×10 ¹¹	4.16×10 ¹¹	
5	702-2	2.65	47.7	48.2	56.8	1.98×10 ¹³	3.49×10 ¹¹	4.15×10 ¹¹	
6	701-3	3.80	82.4	81.2	92.2	3.40×10 ¹³	3.69×10 ¹¹	4.13×10 ¹¹	
7	701-8	2.80	52.0	52.5	61.3	2.36×10 ¹³	3.85×10 ¹¹	4.54×10 ¹¹	

Table 16 Evaluated energy depositions of the Test No. 260 series

No.	Test No.	Reactivity (\$)	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)			Reactor Power (MWs)		Energy Deposition evaluated by measured MWs (cal/g·UO ₂) ^(B)	Comparison between (A) and (B) $\left(\frac{(B)}{(A)} - 1\right) \times 100$	Fuels
			until 1 sec	until 3 sec	until 1 sec	total				
1	260-1	1.87	114	130	27.0	33.5	148	13.9	20% enriched	
2	260-2	3.53	310	332	73.1	93.3	363	9.3	ditto	
3	260-3	4.20	395	419	93.1	105.1	454	18.4	ditto	
4	260-4	4.40	421	446	99.2	111.8	499	11.9	ditto	
5	260-5	4.10	382	407	90.2	102.0	456	12.0	ditto	
6	260-6	4.40	421	446	99.2	111.8	493	11.1	ditto	
7	260-7	3.70	331	354	78.2	89.0	402	13.6	ditto	
8	260-8	3.70	331	354	78.2	89.0	404	14.1	ditto	
9	260-10	3.70	331	354	78.2	89.0	388	9.6	ditto	
10	261-1	2.75	216	235	51.0	59.7	279	18.7	ditto	
11	261-2	3.70	331	354	78.2	89.0	428	20.2	ditto	
12	260-9	4.45	318	338	100.9	113.5	414	22.5	10% enriched	

Table 17 Evaluated energy depositions of the Test No. 510, 511 and 512 series

No.	Test No.	Reactivity (%)	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)			Reactor Power (MWs)		Energy Deposition evaluated by measured MWs (cal/g·UO ₂) (B)	Comparison between (A) and (B) $(\frac{B}{A} - 1) \times 100$	Fuels
			until 1 sec	until 3 sec	until 1 sec	total				
1	510-1	2.18	210	234	35.3	42.7	252	7.7	PWR, UO ₂ (17 × 17)	
2	510-2	2.32	233	257	39.1	46.9	276	7.4		
3	510-3	2.25	221	245	37.2	44.8	264	7.8		
4	511-1	2.44	198	218	42.4	50.5	232	6.4	PWR Gd ₂ O ₃ -UO ₂ (17 × 17)	
5	511-2	2.83	250	271	53.3	62.3	293	8.1		
6	511-3	2.66	227	248	48.5	57.1	265	6.9		
7	511-4	2.73	236	257	50.4	59.2	275	7.0	PWR, UO ₂ (14 × 14)	
8	511-5	3.81	281	407	81.5	92.5	443	8.9		
9	511-6	3.45	331	355	70.8	81.1	386	8.7		
10	511-7	3.16	292	315	62.4	72.0	351	11.1	PWR, UO ₂ (14 × 14)	
11	512-1	2.53	247	271	44.8	53.1	246	-9.2		
12	512-2	2.32	215	239	39.1	46.9	217	-9.2		
13	512-3	2.42	231	255	41.9	49.9	232	-9.0		

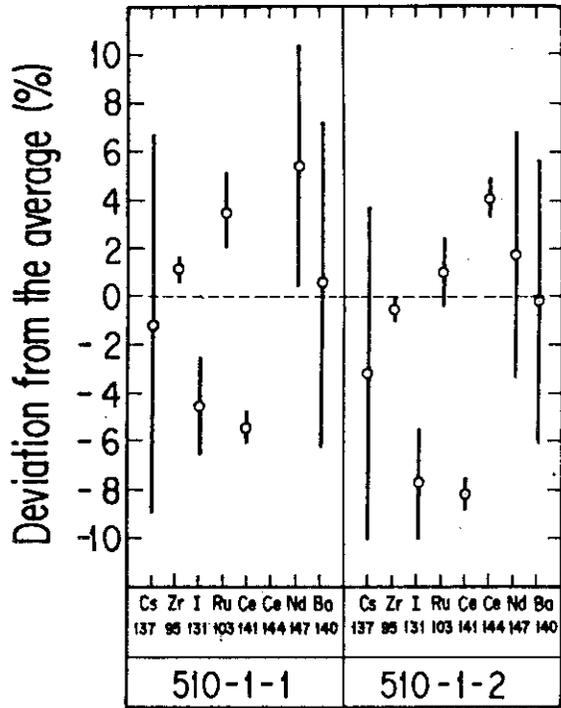
Table 18 Evaluated energy depositions of Test Nos. 701 and 702 series

No.	Test No.	Reactivity (\$)	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)		Reactor Power (MWs)		Energy Deposition evaluated by measured MWs (cal/g·UO ₂) ^(B)	Comparison between (A) and (B) $\left(\frac{B}{A} - 1\right) \times 100$	Fuels
			until 1 sec	until 3 sec ^(A)	until 1 sec	total			
1	701-1	2.35	103	115	40.0	47.8	115	0.0	Phase 1
2	701-2	3.28	172	184	65.9	75.8	186	1.1	ditto
3	701-3	3.80	210	225	81.2	92.2	229	1.8	ditto
4	701-4	4.00	226	241	87.2	98.7	249	3.3	ditto
5	701-5	4.19	241	256	92.8	104.7	263	2.7	ditto
6	701-6	4.10	234	249	90.2	102.0	256	2.8	ditto
7	701-7	4.05	231	245	88.8	100.4	250	2.0	ditto
8	701-8	2.80	136	148	52.5	61.3	145	-2.0	ditto
9	701-9	2.51	115	126	44.3	52.6	123	-2.4	ditto
10	701-10	4.40	257	274	99.2	111.8	284	3.7	ditto

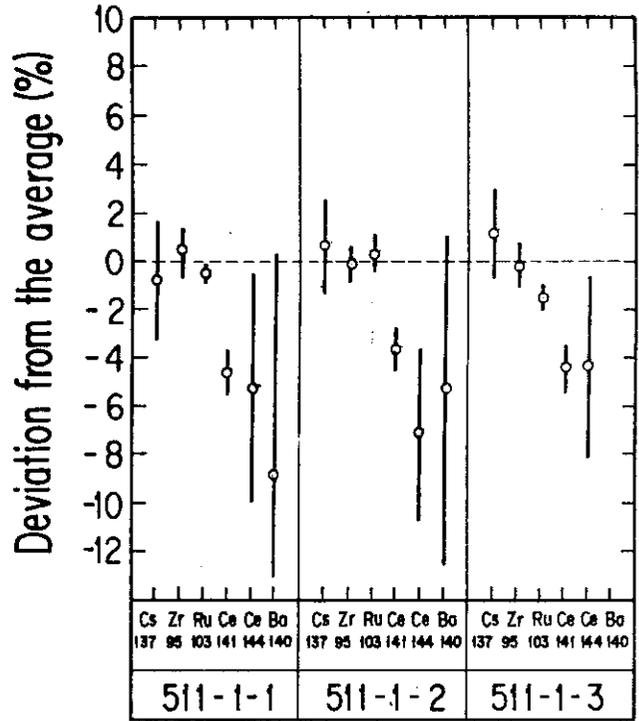
a) Test No. 701

b) Test No. 702

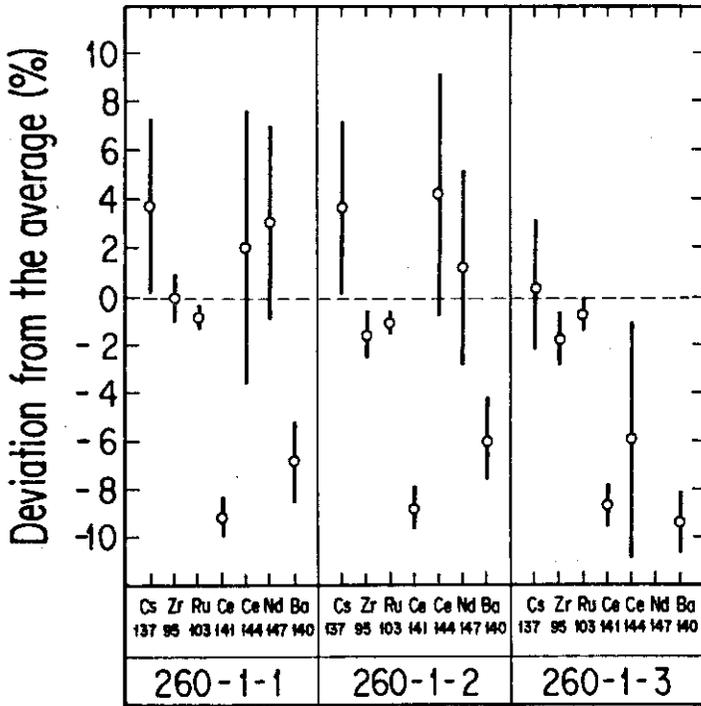
No.	Test No.	Reactivity (\$)	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)		Reactor Power (MWs)		Energy Deposition evaluated by measured MWs (cal/g·UO ₂) ^(B)	comparison between (A) and (B) $\left(\frac{B}{A} - 1\right) \times 100$	Fuels
			until 1 sec	until 3 sec ^(A)	until 1 sec	total			
1	702-1	3.26	158	170	65.3	75.1	175	2.9	Phase 2
2	702-2	2.65	117	127	48.2	56.8	129	1.6	ditto
3	702-3	4.00	211	225	87.2	98.7	233	3.6	ditto
4	702-4	3.71	189	203	78.5	89.3	210	3.5	ditto
5	702-5	3.42	169	181	69.9	80.1	187	3.3	ditto
6	702-6	3.42	169	181	69.9	80.1	187	3.3	ditto
7	702-7	3.71	189	203	78.5	89.3	210	3.5	ditto
8	702-8	4.00	211	225	87.2	98.7	233	3.6	ditto
9	702-9	3.71	189	181	78.5	89.3	210	16.0	ditto
10	702-10	3.26	158	170	65.3	75.1	175	2.9	ditto
11	702-11	3.42	169	181	69.9	80.1	187	3.3	ditto



b) Test No.510-1



c) Test No.511-1



a) Test No.260-1

Fig. 14 Deviation of fission numbers evaluated by various nuclides from the averaged values in the Test Nos. 260-1, 510-1 and 511-1

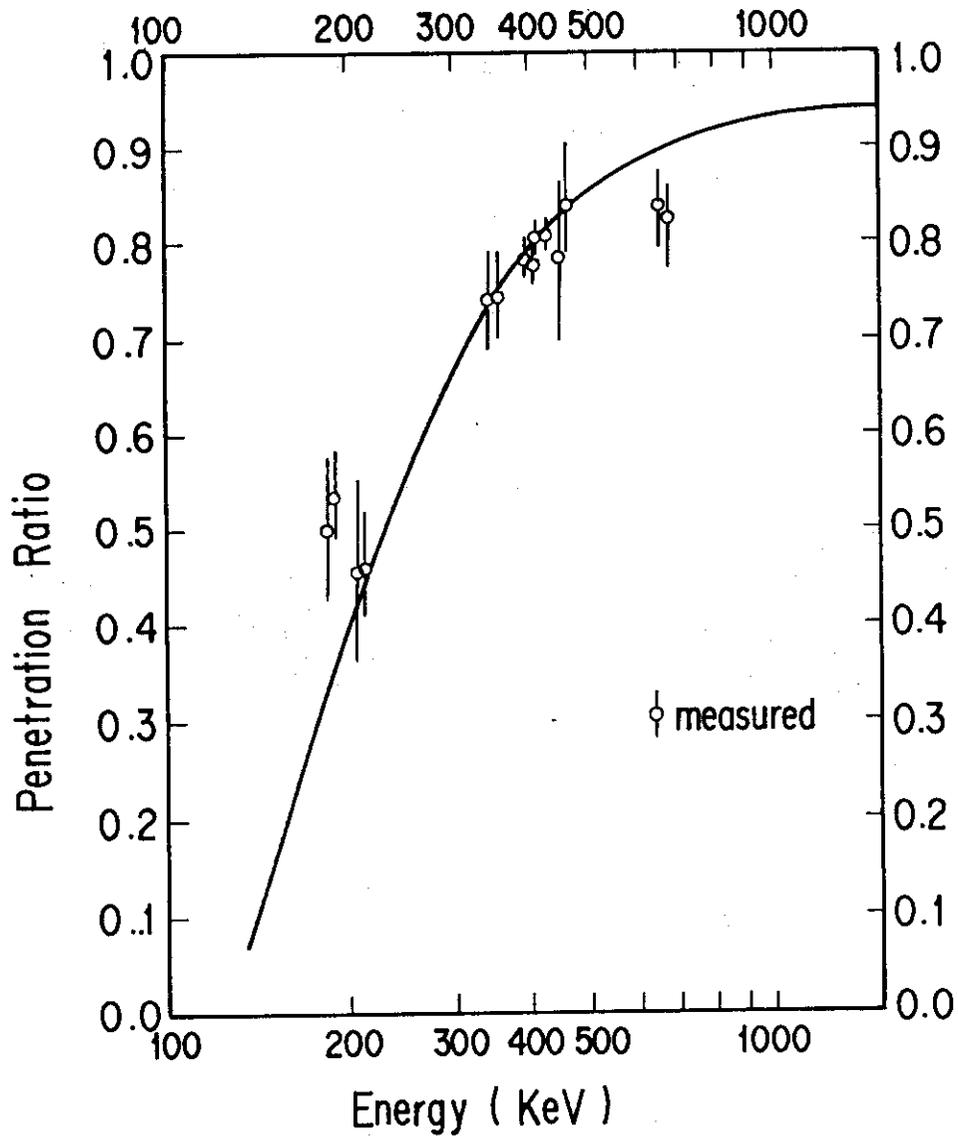
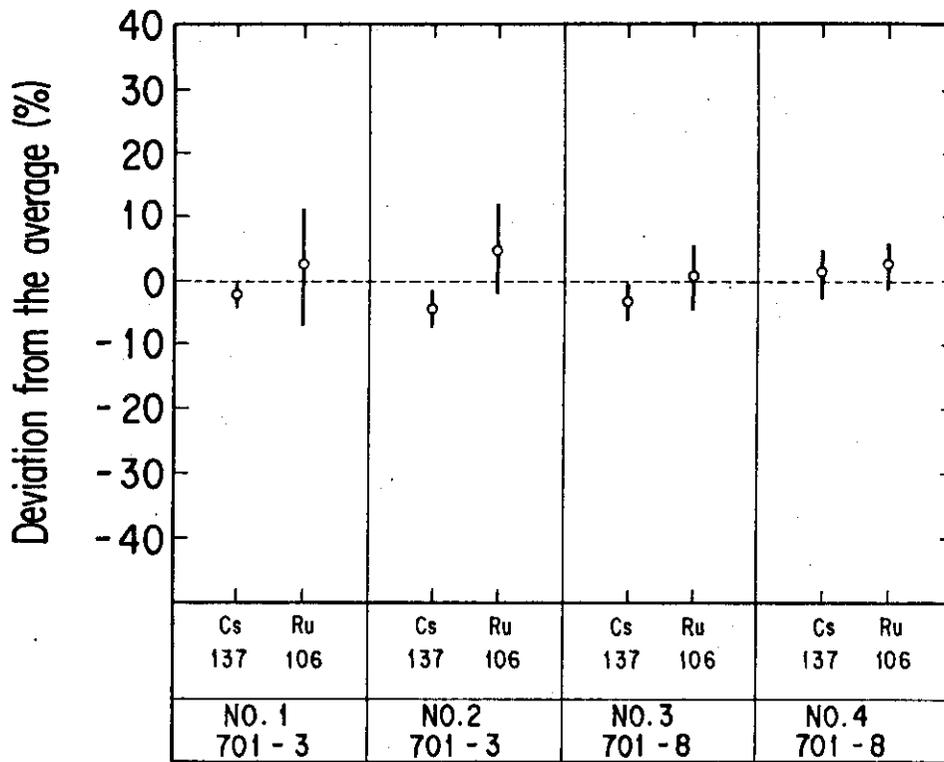
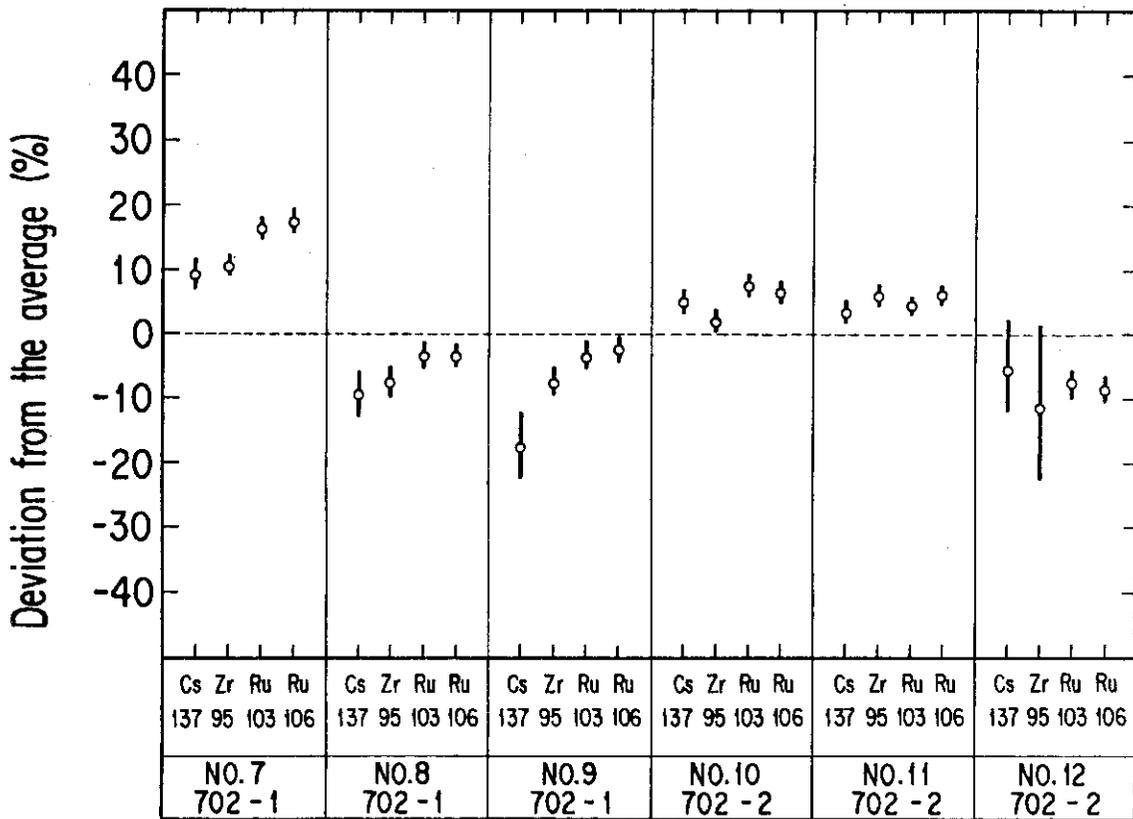


Fig.15 Calculated and measured penetration ratio of γ -ray in the PuO_2 - UO_2 samples



a) Test NO. 701



b) Test NO. 702

Fig. 16 Deviation of fission numbers evaluated by various nuclides from the averaged values in the Test Nos. 701-3,-8, 702-1 and -2

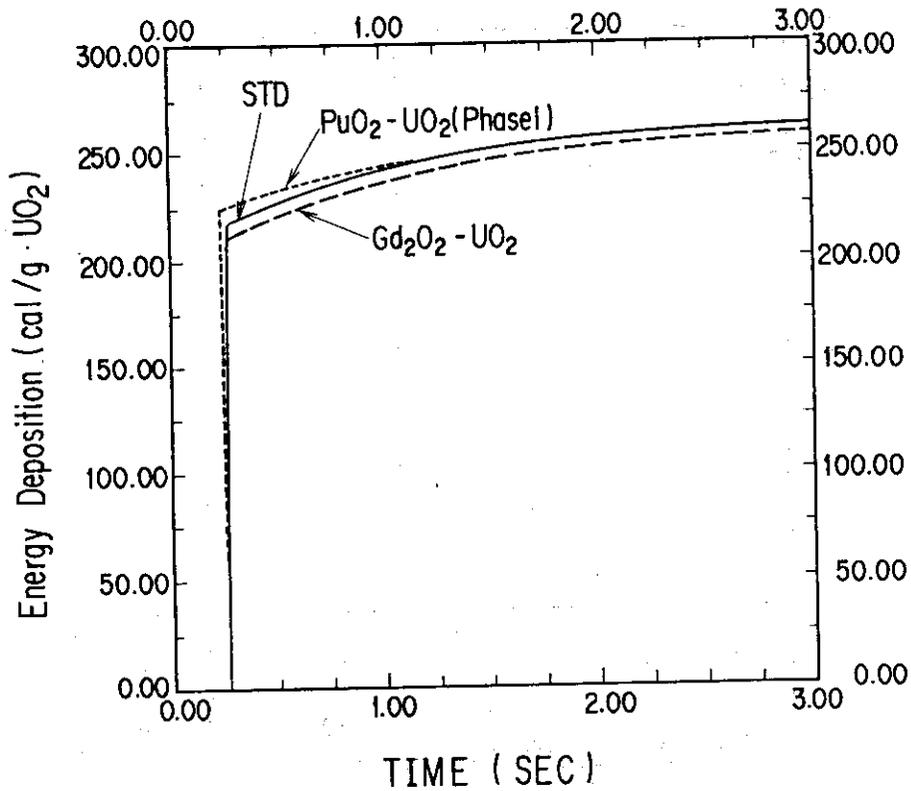


Fig. 17 Calculated histories of energy depositions in the standard, PuO₂ - UO₂ and Gd₂O₃ - UO₂ fuels

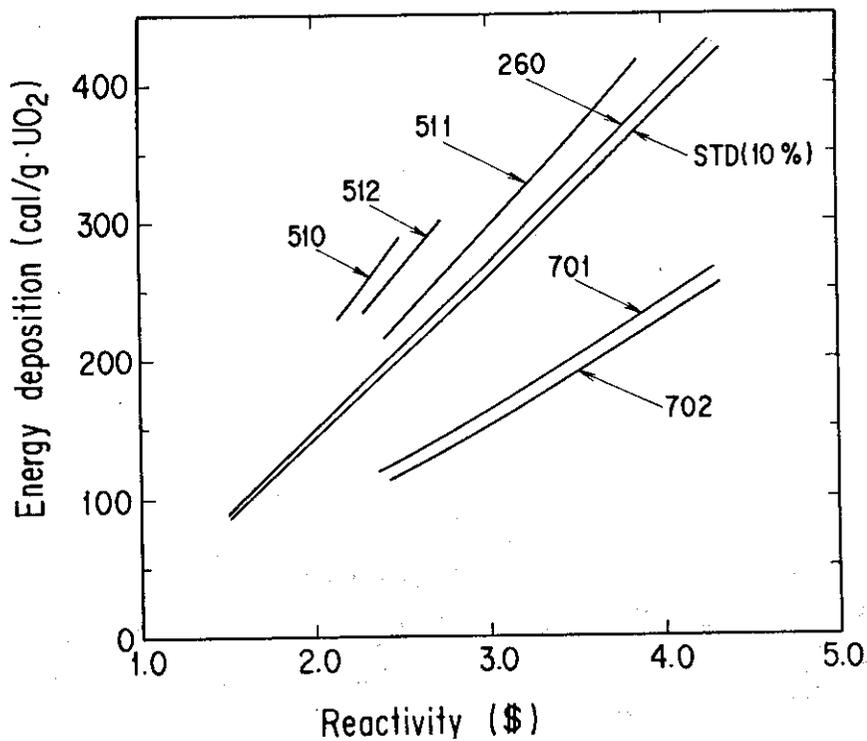


Fig. 18 Relation between reactivity and energy deposition in the individual test series comparing with that of the standard test

謝 辞

本報告書をまとめるに当り、御指導を賜った燃料安全工学部・反応度安全研究室・斎藤伸三室長及び化学部・燃焼率測定開発室・岡下宏室長に深く感謝の意を表します。また、実験の遂行、 r 線スペクトルの測定に関しては、反応度安全研究室、NSRR管理室、燃焼率測定開発室の皆様にも多大な御協力を仰ぎました。謹んでここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

1. NSRR実験プログレス・レポート(1)~(14), JAERI-M 6635 (1976), 6790 (1976), 7051 (1977), 7304 (1977), 7554 (1978), 7977 (1978), 8259 (1979), 8799 (1980), 9011 (1980), 9319 (1981), 9755 (1981), 82-012 (1982), 83-193 (1983), 84-046 (1984), 84-168 (1984).
2. 大西, 他: "NSRR実験における試験試料の発熱量の評価", JAERI-M 7359 (1978).
3. Hiroshi BABA: "Usage of the BOB7-Series Programs for the Analysis of Ge (Li) Gamma-ray Spectra", JAERI-M 7017 (1977).
4. Hiroshi BABA et al, JAERI report, JAERI-1227 (1973).
5. 柳原, 他 To be published.
6. B.F.Bider, "Compilation of Fission Product Yields", NEDO-12154-3 (C), 1981.
7. C.M. Lederer et. al. "Table of Isotopes" 7th edition JOHN WILEY & SONS, INC., New York (1978).
8. N. OHNISHI and T. INABE, J. Nucl. Sci. Technol, 19[7] 528, 1982.
9. N. OHNISHI et al, Nucl. Sci. Eng., 88, 331 (1984).
10. Keepin, G.R.: "Physics of Nuclear Kinetics", Addison-Wesley Publ.

謝 辞

本報告書をまとめるに当り、御指導を賜った燃料安全工学部・反応度安全研究室・斎藤伸三室長及び化学部・燃焼率測定開発室・岡下宏室長に深く感謝の意を表します。また、実験の遂行、 γ 線スペクトルの測定に関しては、反応度安全研究室、NSRR管理室、燃焼率測定開発室の皆様にも多大な御協力を仰ぎました。謹んでここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

1. NSRR実験プログレス・レポート(1)~(14), JAERI-M 6635 (1976), 6790 (1976), 7051 (1977), 7304 (1977), 7554 (1978), 7977 (1978), 8259 (1979), 8799 (1980), 9011 (1980), 9319 (1981), 9755 (1981), 82-012 (1982), 83-193 (1983), 84-046 (1984), 84-168 (1984).
2. 大西, 他: "NSRR実験における試験試料の発熱量の評価", JAERI-M 7359 (1978).
3. Hiroshi BABA: "Usage of the BOB7-Series Programs for the Analysis of Ge(Li) Gamma-ray Spectra", JAERI-M 7017 (1977).
4. Hiroshi BABA et al, JAERI report, JAERI-1227 (1973).
5. 柳原, 他 To be published.
6. B.F.Bider, "Compilation of Fission Product Yields", NEDO-12154-3 (C), 1981.
7. C.M.Lederer et. al. "Table of Isotopes" 7th edition JOHN WILEY & SONS, INC., New York (1978).
8. N.OHNISHI and T.INABE, J.Nucl. Sci. Technol, 19[7] 528, 1982.
9. N.OHNISHI et al, Nucl. Sci. Eng., 88, 331 (1984).
10. Keepin, G.R.: "Physics of Nuclear Kinetics", Addison-Wesley Publ.

Appendix 1 Data for γ -ray spectrometry

Nuclide	T 1/2	E _γ (KeV)	I _r	Fission Yield		
				U-235(T)	Pu-239(T)	Pu-241(T)
Cs-137	30.17y	661.7	.851	6.186166 B	6.714680 B	6.706940 E
Zr-95	64.0d	724.2	.443	6.516631 E	4.945945 F	3.966618 G
		756.7	.544			
Nb-95	(34.98d)	765.8	.998	0.065191 E		
Y-91	58.51d	1204.8	.003	5.930637 E		
I-131	8.02d	284.3	.0606	2893736 D		
		364.5	.812			
Ru-103	39.35d	497.1	.894	3.036612 E		
		610.4	.0572			
Ru-106	371.6d	511.8	.205	0.401422 E	4.302381 G	6.125420 F
		621.9	.0995			
		1050.0	.015			
Ce-141	32.5d	145.4	.484	5.815638 D	5.214131 F	4.887117 F
Ce-144	284.6d	133.5	.111	5.495171 D	3.739426 D	4.214204 E
		696.5	.0134			
		2185.7	.0070			
Nd-147	10.98d	531.0	.13	2.261681 E	2.019276 G	2.282985 H
Ba-140	12.76d	304.9	.043	6.190863 D	5.394911 F	5.687279 G
		423.7	.0312			
		437.6	.0193			
		537.3	.244			
La-140	(40.28h)	328.8	.207			
		487.0	.459			
		751.8	.0441			
		815.9	.2363			
		867.7	.0559			
		925.2	.0705			
1596.5	.9535					
Te-129 m	(33.6d)	695.9	.029	0.125364 I	0.251967 K	0.137272 D

* Error stored in %

A	0.35	F	2.00
B	0.50	G	2.80
C	0.70	H	4.00
D	1.00	I	6.00
E	1.40	J	8.00