

JAERI-M
90-027

試験・研究炉用分散型燃料の高温時における
核分裂生成物の放出率測定試験

1990年2月

岩井 孝・清水 道雄・中川 哲也・相沢 静男
宮田 精一・川又 一夫・小向 文作・齊藤 順市
板橋 行夫・酒井 陽之・坂倉 敦

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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）で複写による実費領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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

試験・研究炉用分散型燃料の高温時における核分裂生成物の放出率測定試験

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

岩井 孝・清水 道雄・中川 哲也

相沢 静男・宮田 精一・川又 一夫

小向 文作・~~森田~~ 順市・板橋 行夫

酒井 陽之・坂倉 敦

(1990年1月31日受理)

日本原子力研究所の材料試験炉 (JMTR) 燃料の濃縮度低減化計画に際し、低濃縮ウラン (LEU) 高密度シリサイド燃料炉心の安全評価に資するため、高温時 (600°C から 1100°C) における核分裂生成物 (FP) の放出率測定装置を開発し本試験を行った。

試料は、JMTRにて1サイクル (燃焼度約22% ^{235}U) 照射した低濃縮ウラン (LEU, 濃縮度約20%, 4.8 gU/cc) の分散型シリサイド燃料 (U_3Si_2 90%, USi 10%, $-\text{Al}$ と U_3Si_2 50%, U_3Si 50% $-\text{Al}$) 2個と、中濃縮ウラン (MEU, 濃縮度約45%, 1.6 gU/cc) の分散型アルミナイド燃料 (UA1_3 70%, UA1_4 30% $-\text{Al}$) 1個で、今回の試験用に特別に製作したミニプレートより切り抜いたものである。試験は、照射終了後10日から90日の間に行い、試料を600°Cから1100°Cまで100°Cステップで加熱し、各温度において放出される ^{85}Kr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{103}Ru , $^{129\text{m}}\text{Te}$ 等のFPの放出量をキャリアガスに乾燥空気を使用して測定した。各試験ステップごとに試験装置の組立、分解、測定を繰返すことにより試料から放出されたFPをすべて捕集し測定することが出来た。

試験の結果、各試料において ^{85}Kr , ^{133}Xe , ^{131}I , $^{129\text{m}}\text{Te}$ はU-Al合金燃料についてG.W. Parker等の行った試験結果よりやや低い放出率を示した。しかし、1個のシリサイド燃料において ^{137}Cs , ^{103}Ru が、またアルミナイド燃料において ^{137}Cs がやや高い放出率を示した。

Release Behavior of Fission Products from Irradiated
Dispersion Fuels at High Temperatures

Takashi IWAI, Michio SHIMIZU, Tetsuya NAKAGAWA
Sizuo SOUZAWA, Seiichi MIYATA, Kazuo KAWAMATA
Bunsaku KOMUKAI, Jyun-ichi SAITOU, Yukio ITABASHI
Haruyuki SAKAI and Atsushi SAKAKURA

Department of JMTR Project
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received January 31, 1990)

As a framework of reduced enrichment fuel program of JMTR Project, the measurements of fission products release rates at high temperatures (600°C - 1100°C) were performed in order to take the data to use for safety evaluation of LEU fuel.

Three type miniplates of dispersion silicide and aluminide fuel, 20% enrichment LEU fuel with 4.8 gU/cc (U_3Si_2 90%, USi 10% and U_3Si_2 50%, U_3Si 50% dispersed in aluminium) and 45% enrichment MEU fuel with 1.6 gU/cc, were irradiated in JMTR. The burnups attained by one cycle (22 days) irradiation were within 21.6% - 22.5% of initial ^{235}U .

The specimens cut down from miniplates were measured on fission products release rates by means of new apparatus specially designed for this experiment. The specimens were heated up within 600°C - 1100°C in dry air. Then fission products such as ^{85}Kr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{103}Ru , ^{129m}Te were collected at each temperature and measured on release rates.

In the results of measurement, the release rates of ^{85}Kr , ^{133}Xe , ^{131}I , ^{129m}Te from all specimens were slightly less than that of G.W. Parker's data on U-Al alloy fuel. For ^{137}Cs and ^{103}Ru from a silicide specimen (U_3Si_2 90%, USi 10% dispersed in aluminium) and ^{137}Cs from an aluminide specimen, the release rates were slightly higher than that of G.W. Parker's.

Keywords: Release Rate, Fission Products, Dispersion Fuel, Heatup
Silicide, Aluminide, Reduced Enrichment

目 次

1. まえがき	1
2. 試 験	1
2.1 試験装置	1
2.2 試験試料	2
2.3 試験方法	3
2.3.1 試験雰囲気	3
2.3.2 試験温度	3
2.3.3 測定対象F P	3
2.3.4 F Pの捕集および測定方法	3
2.3.5 測 定 器	3
2.3.6 測定データのまとめ	3
2.4 試験手順	4
3. 試験結果および考察	4
3.1 試験試料の外観検査	4
3.2 試料ごとの試験結果	4
3.2.1 A試料の試験結果	4
3.2.2 B試料の試験結果	5
3.2.3 C試料の試験結果	5
3.3 核種ごとの放出率の比較	5
3.4 各F Pの捕集状況	6
3.5 試験後の試料の外観検査	6
4. ま と め	6
謝 辞	7
参考文献	7
付録 核分裂生成物放出率測定の手順	27

Contents

1. Introduction	1
2. Experiment	1
2.1 Apparatus	1
2.2 Specimens	2
2.3 Method	3
2.3.1 Atmosphere	3
2.3.2 Temperature	3
2.3.3 Objective nuclides of measurement	3
2.3.4 Collection and measurement	3
2.3.5 Measuring apparatus	3
2.3.6 Calculation of release rates	3
2.4 Procedure	4
3. Results and discussion	4
3.1 Visual inspection	4
3.2 Release rates of fission products at high temperature	4
3.2.1 A specimen	4
3.2.2 B specimen	5
3.2.3 C specimen	5
3.3 Discussion of release rates	5
3.4 Collection state of fission products	6
3.5 Specimen appearance after experiment	6
4. Conclusion	6
Acknowledgements	7
References	7
Appendix Detailed procedure of release rates measurement	27

1. ま え が き

日本原子力研究所の材料試験炉（JMTR）は、試験・研究炉用燃料の濃縮度低減化（RERTR）計画の第一段階として、1986年7月に高濃縮ウラン（HEU、濃縮度約93% ^{235}U ）燃料から中濃縮ウラン（MEU、濃縮度約45% ^{235}U ）燃料に転換を行い現在順調に運転中である。一方、JMTRはRERTRの最終目標である低濃縮ウラン（LEU、濃縮度約20% ^{235}U ）燃料への転換を1993年末までに行う計画であり、原子炉設置変更許可申請のための安全評価に必要なデータを得るため、各種の試験研究を関係課室で現在進めている。

材料試験炉部ではその一環として、原子炉の重大・仮想事故の評価に必要な破損燃料からのFP放出率に関するデータを得るため、ホットラボにおいて高温時FP放出率測定試験を進めている。試験・研究炉用アルミニウム分散型燃料からのFP放出率に関するデータは少なくいずれも700°C以下のデータである。それらのうちヨウ素の放出率に関するデータは、T. Shibata. et al.¹⁾の1例のみで、シリサイド燃料についてはJ. C. Posei.²⁾, W. Krug. et al.³⁾, H. Sakai. et al.⁴⁾の3例があるのみである。そのためMEU燃料の安全評価では、破損燃料からの水中へのFP移行率として、HEU燃料に使用したKr, Xe: 100%, I: 60%, Cs: 3.5%, Te: 0.14%, Ru: 0.02%等の値を使用している。これらの値は、燃焼度23.6% ^{235}U のU-Al合金燃料を700°Cに加熱し60分間保持した時に測定されたG. W. Parker. et al. の試験結果⁵⁾にもとづくものである。

しかし、LEU燃料の安全評価では、燃料の芯材成分がHEUおよびMEUとまったく異なるシリサイド燃料を使用するため高温時におけるFP放出率に関するデータが必要となり、JMTRホットラボにおいて高温時FP放出率測定試験を行うことになった。1988年試験試料の製作とともに試験装置を開発しセル内に設置した。

第一回目の試験は、JMTRにて1サイクル（燃焼度：約22% ^{235}U ）照射した試料により行い1989年7月に終了した。第二回目の試験は、JMTRにて4サイクル（燃焼度：約75% ^{235}U ）照射した試料により1990年1月に開始する予定である。

本報告は、これらの測定試験に係る試験装置、試料、照射、試験方法等と第一回目の試験結果をまとめたものである。

2. 試 験

2.1 試験装置

試験装置は、セル内設置部分とセル外設置部分に大別される。セル内部分は、試料加熱系、固体FP捕集系等よりなり、セル外部分は、希ガスFP捕集系、真空排気系、キャリアガス導入系、制御系等よりなる。試験のためにJMTRホットセルに設置した高温時FP放出率測定装置の概

1. ま え が き

日本原子力研究所の材料試験炉（JMTR）は、試験・研究炉用燃料の濃縮度低減化（RERTR）計画の第一段階として、1986年7月に高濃縮ウラン（HEU、濃縮度約93% ^{235}U ）燃料から中濃縮ウラン（MEU、濃縮度約45% ^{235}U ）燃料に転換を行い現在順調に運転中である。一方、JMTRはRERTRの最終目標である低濃縮ウラン（LEU、濃縮度約20% ^{235}U ）燃料への転換を1993年末までに行う計画であり、原子炉設置変更許可申請のための安全評価に必要なデータを得るため、各種の試験研究を関係課室で現在進めている。

材料試験炉部ではその一環として、原子炉の重大・仮想事故の評価に必要な破損燃料からのF P放出率に関するデータを得るため、ホットラボにおいて高温時F P放出率測定試験を進めている。試験・研究炉用アルミニウム分散型燃料からのF P放出率に関するデータは少なくいずれも700°C以下のデータである。それらのうちヨウ素の放出率に関するデータは、T. Shibata. et al.¹⁾の1例のみで、シリサイド燃料についてはJ. C. Posei.²⁾, W. Krug. et al.³⁾, H. Sakai. et al.⁴⁾の3例があるのみである。そのためMEU燃料の安全評価では、破損燃料からの水中へのF P移行率として、HEU燃料に使用したKr, Xe : 100%, I : 60%, Cs : 3.5%, Te : 0.14%, Ru : 0.02%等の値を使用している。これらの値は、燃焼度23.6% ^{235}U のU-Al合金燃料を700°Cに加熱し60分間保持した時に測定されたG. W. Parker. et al. の試験結果⁵⁾にもとづくものである。

しかし、LEU燃料の安全評価では、燃料の芯材成分がHEUおよびMEUとまったく異なるシリサイド燃料を使用するため高温時におけるF P放出率に関するデータが必要となり、JMTRホットラボにおいて高温時F P放出率測定試験を行うことになった。1988年試験試料の製作とともに試験装置を開発しセル内に設置した。

第一回目の試験は、JMTRにて1サイクル（燃焼度：約22% ^{235}U ）照射した試料により行い1989年7月に終了した。第二回目の試験は、JMTRにて4サイクル（燃焼度：約75% ^{235}U ）照射した試料により1990年1月に開始する予定である。

本報告は、これらの測定試験に係る試験装置、試料、照射、試験方法等と第一回目の試験結果をまとめたものである。

2. 試 験

2.1 試験装置

試験装置は、セル内設置部分とセル外設置部分に大別される。セル内部分は、試料加熱系、固体F P捕集系等よりなり、セル外部分は、希ガスF P捕集系、真空排気系、キャリアガス導入系、制御系等よりなる。試験のためにJMTRホットセルに設置した高温時F P放出率測定装置の概

要を Fig. 1 に示す。試料が放出する F P をすべて捕集し試験の精度を上げるため、セル内部分は加熱ステップごとに組立、分解、再組立を繰り返す構造とし、炉内管、沈着管、フィルターは、その都度新しい部品に交換し使用する方式とした。

試料の加熱には、赤外線ゴールドイメージ炉（4.8 kw、加熱長さ：170 mm）を使用し、試験温度の制御および測定には R 型（Pt-Pt. Rh）熱電対 1 本を使用した。試料皿は、試料の温度を正確に測定するため熱電対の上端で接触させるように設置し、放出した固体 F P を出来る限り試料の近くで一箇所に沈着させるため沈着管で試料を覆った。

加熱中の酸化、溶融と加熱終了後の沈着した F P の洗浄等を考慮し、炉心管は石英製、試料皿は白金製、また沈着管および試料ホルダーをセラミック製とした。

Ru, Te, I, Cs 等の固体 F P の捕集には、ガラスフィルター 1 段、ゼオライトフィルター 3 段、チャコールフィルター 2 段を使用した。フィルターの脱ガスとフィルターへの水分および希ガスの吸着を防ぐため恒温槽（500 W）を使用し、さらに試料加熱系と固体 F P 捕集系の接続管への固体 F P の沈着を出来る限り少なくするために特製ヒータ（200 W）を使用した。Kr, Xe 等の希ガス F P の捕集には、コールドトラップ 1 段とチャコールトラップ 3 段を使用し、さらに安全対策として大容量の予備トラップ 1 段を使用した。

各トラップは、加熱ステップごとに組立、分解、再組立を繰り返す構造とし、チャコールトラップは、試験の精度を上げるためその都度新しい部品に交換した。

トラップの脱ガスのため特製ヒータ（200 W）を使用し、冷却のためエチルアルコールとドライアイスを使用した。吸着 F P の放射線をしゃへいするため 1 および 2 段目のチャコールトラップは、鉛製容器（厚さ 3 mm）にて覆った。

フィルターおよびトラップは、測定時のジオメトリーを考慮し特別に製作した。その形状を Fig. 2 および Fig. 3 に示す。なお、チャコールフィルターおよびチャコールトラップには、有機ヨウ素の放出を考慮し添着活性炭を使用した。希ガス F P の放出開始と捕集終了を確認するためコールドトラップの直前にスミヤー用 GM サーベイメータを使用した。

各系内の脱ガスおよび密封性確認と、キャリアガスの流量調整および排気等を行うため、真空排気系には油回転ポンプ（100 ℓ/min）1 台、油拡散ポンプ（240 ℓ/sec）1 台、ピラニ真空計 2 台、バラトロン真空計 1 台等を使用した。キャリアガスは、露点 -60°C、水分 60 ppm の乾燥空気ボンベ（7 m³、150 kg/cm²）を使用し、流量調整のため系の入口と出口にそれぞれ流量計と流量調節バルブ各一個を使用した。

加熱炉の温度制御には、PID プログラム制御を使用し、捕集した F P の測定には、HP-Ge 検出器付きのマルチチャンネル波高分析器（4096 ch MCA）を使用した。

また、スタックへの ¹³¹I の放出を考慮し、本試験の各作業を行うホットセルの各排気系には、チャコール（添着活性炭）フィルターを各 1 段装着使用した。

2.2 試験試料

試験試料は、高温時 F P 放出率測定試験用に特別に製作した小さなアルミニウム分散型の燃料芯材を二箇所埋込んだ 3 種類（A, B, C）のミニプレートから採取したものである。

タイプAはMEU化によりJMTRが現在使用中のアルミナイド燃料 (UAl_3 70%, UAl_4 30% -Al), タイプBはLEU化でJMTRが使用予定のシリサイド燃料 (U_3Si_2 90%, USi 10% -Al), またタイプCは比較試験用のシリサイド燃料 (U_3Si_2 50%, U_3Si 50% -Al) である。

各試料の内訳をTable 1に、圧延前および圧延後のミニプレートの形状をFig.4にそれぞれ示す。各ミニプレートは、キャプセルに組み込みJMTRの反射体領域(熱中性子束: $2.0 \sim 3.2 \times 10^{14}$ n/cm²·sec)で照射を行った。キャプセルには、各試料の照射量を正確に実測するため各燃料芯材の前後に相当する位置に8個のフルエンスモニタ(F/M)を配置した。照射キャプセル内の試料配置をFig.5に示す。

今回の試験試料は、JMTRで1サイクル照射した各ミニプレートより燃料芯材部分を各1個切り抜いたものである。各燃料は、燃料芯材部分の周囲に0.75mm以上の被覆層が残るよう約10.5mm×約6.5mmの大きさに切り抜いた。その形状をFig.6に示す。

F/Mより実測した各試料の照射結果をTable 2に、また照射実績にもとづきORIGENコードにより計算した各試料内の主なFP量(照射終了後31日の値)をそれぞれTable 3に示す。

2.3 試験方法

2.3.1 試験雰囲気

系内にキャリアガスとして乾燥空気を0.1ℓ/minの流量で流し、約710 Torrの乾燥空気雰囲気で行った。

2.3.2 試験温度

1°C/secの昇温速度で600°C, 700°C, 800°C, 900°C, 1000°C, 1100°Cの試験温度まで加熱し、100°Cステップの各試験温度にて60分間保持した。

2.3.3 測定対象FP

本試験で放出が予想されるFPのうち半減期および放出するガンマ線のエネルギー等を考慮し比較的測定容易な⁸⁵Kr, ¹³³Xe, ¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹⁰³Ru, ^{129m}Teを測定対象とした。

2.3.4 FPの捕集および測定方法

I, Cs, Ru, Teは、セル内で捕集し、フィルター等に沈着あるいは吸着したFPはフィルター等をセル内で直接ガンマ線測定した。また、炉内管および接続管等に沈着したFPは6Nの水酸化ナトリウム容液で洗浄し、その洗浄液の一部をセル外でガンマ線測定した。Kr, Xeは、セル外で捕集し、チャコールトラップに吸着したFPはセル外で直接ガンマ線測定した。

2.3.5 測定器

HP-Ge 検出器付マルチチャンネル波高分析器(4096 ch MCA)

2.3.6 測定データのまとめ

測定したFP量は、すべて照射終了後31日の値に補正し、各FPごとに各試験温度における放出率(%)を次式により求めた。

$$\text{放出率(\%)} = \frac{\text{測定したFP量}}{\text{試験試料中のFP量}} \times 100$$

ここにおいて試験試料中のFP量は、照射実績にもとずきORIGENコードにより計算した値(Table 3)を使用した。

2.4 試験手順

試験は、キャプセルの解体、ミニプレートの外観およびX線検査、試験試料の切り抜きおよび外観検査を行った後、試験装置の組立および試験準備、試料のセットと加熱およびFPの捕集、試験装置の分解、捕集したFPの測定等を繰り返す行い、1ステップ約2日間で合計80日を要した。試験の流れの概要をFig.7、また試験手順の詳細を付録に示す。

3. 試験結果および考察

本試験は、短半減期のFP(特に¹³¹I)を測定対象核種としているためすべての試験を試料の照射終了後10~90日の間に行った。

3.1 試験試料の外観検査

照射終了後10日でキャプセルを解体し外観検査およびX線検査を行った。その結果、ミニプレートには問題となるような変化は認められなかったが、外観検査において芯材部分が白く変色し芯材の存在位置がはっきりと認められた。さらに、照射終了後23日および24日で試験試料の切り抜きを行ったが切断作業中のFPの放出はなかった。

また、照射終了後23日から29日で試験試料内に生成したFP量の実測を試みたが¹⁴⁰La-¹⁴⁰Ba等の高エネルギーの放射線が強く、目的としたFP(¹³¹I, ¹³⁷Cs等)の測定は出来なかった。ミニプレートの外観写真をFig.8に示し、切り抜いた試験試料の外観写真をFig.9に示す。

3.2 試料ごとの試験結果

3.2.1 A試料の試験結果

600°C(冷却30日目)から900°C(冷却39日目)までの試験を連続で行い、1000°C(冷却59日目)と1100°C(冷却64日目)は、B試料の試験がすべて終了した後に行った。

試験結果をFig.10に示し、一例として600°Cの試験時における昇温グラフをFig.11に示す。

⁸⁵Krと¹³³Xeは、同じような挙動を示し600°Cで約94%が、また800°Cで約99%が放出されて

測定したFP量は、すべて照射終了後31日の値に補正し、各FPごとに各試験温度における放出率(%)を次式により求めた。

$$\text{放出率(\%)} = \frac{\text{測定したFP量}}{\text{試験試料中のFP量}} \times 100$$

ここにおいて試験試料中のFP量は、照射実績にもとずきORIGENコードにより計算した値(Table 3)を使用した。

2.4 試験手順

試験は、キャプセルの解体、ミニプレートの外観およびX線検査、試験試料の切り抜きおよび外観検査を行った後、試験装置の組立および試験準備、試料のセットと加熱およびFPの捕集、試験装置の分解、捕集したFPの測定等を繰返し行い、1ステップ約2日間で合計80日を要した。試験の流れの概要をFig.7、また試験手順の詳細を付録に示す。

3. 試験結果および考察

本試験は、短半減期のFP(特に¹³¹I)を測定対象核種としているためすべての試験を試料の照射終了後10~90日の間に行った。

3.1 試験試料の外観検査

照射終了後10日でキャプセルを解体し外観検査およびX線検査を行った。その結果、ミニプレートには問題となるような変化は認められなかったが、外観検査において芯材部分が白く変色し芯材の存在位置がはっきりと認められた。さらに、照射終了後23日および24日で試験試料の切り抜きを行ったが切断作業中のFPの放出はなかった。

また、照射終了後23日から29日で試験試料内に生成したFP量の実測を試みたが¹⁴⁰La-¹⁴⁰Ba等の高エネルギーの放射線が強く、目的としたFP(¹³¹I, ¹³⁷Cs等)の測定は出来なかった。ミニプレートの外観写真をFig.8に示し、切り抜いた試験試料の外観写真をFig.9に示す。

3.2 試料ごとの試験結果

3.2.1 A試料の試験結果

600°C(冷却30日目)から900°C(冷却39日目)までの試験を連続で行い、1000°C(冷却59日目)と1100°C(冷却64日目)は、B試料の試験がすべて終了した後に行った。

試験結果をFig.10に示し、一例として600°Cの試験時における昇温グラフをFig.11に示す。

⁸⁵Krと¹³³Xeは、同じような挙動を示し600°Cで約94%が、また800°Cで約99%が放出されて

いる。 ^{131}I は、600°Cで約2%、1100°Cで約60%の放出になっている。

^{137}Cs は、600°Cで検出感度以下であり700°Cで約0.04%、また1100°Cで約41%されている。 ^{103}Ru は、900°C以下で検出感度以下であり1000°Cで約0.02%、また1000°Cで約3%で約0.04%放出されている。 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、900°C以下で検出感度以下であり1000°Cで約3%、1100°Cで約4%の放出になっている。

3.2.2 B試料の試験結果

600°C（冷却44日目）から1100°C（冷却57日目）までの試験を連続で行った。

試験結果をFig.12に示し、一例として600°Cの試験時における昇温グラフをFig.13に示す。B試料についてのみミニプレート製作時のプリスター試験温度である480°Cで20分間、保持した後600°Cの試験を行ったが、希ガス（ ^{85}Kr 、 ^{133}Xe 等）の放出は検出されなかった。 ^{85}Kr と ^{133}Xe は、わずかに異なった挙動を示し ^{85}Kr は600°Cで約36%、1000°Cで約99%の放出になっている。一方、 ^{133}Xe は600°Cで約25%、1000°Cで約95%放出されている。 ^{131}I は、600°Cで約2.5%、1100°Cで約90%の放出になっている。

^{137}Cs は、600°Cで約3%、1100°Cで約55%の放出になっている。 ^{103}Ru は、800°C以下で検出感度以下であり900°Cで約0.01%、また1100°Cで約1.4%放出されている。

$^{129\text{m}}\text{Te}$ は、900°C以下で検出感度以下であり1000°Cで約9%、1100°Cで約43%の放出になっている。

3.2.3 C試料の試験結果

600°C（冷却66日目）から1100°C（冷却79日目）までの試験を連続で行った。

試験結果をFig.14に示し、一例として600°Cの試験時における昇温グラフをFig.15に示す。 ^{85}Kr と ^{133}Xe は、わずかに異なった挙動を示し ^{85}Kr は600°Cで約51%、1000°Cで約98%の放出になっている。一方、 ^{133}Xe は600°Cで約45%、1000°Cで約96%放出されている。 ^{131}I は、600°Cで約4.5%、1100°Cで約98%の放出になっている。

^{137}Cs は、600°Cで約0.02%、1100°Cで約21%の放出になっている。 ^{103}Ru は、800°C以下で検出感度以下であり900°Cで約0.01%、また1100°Cで約0.16%放出されている。

$^{129\text{m}}\text{Te}$ は、900°C以下で検出感度以下であり800°Cで約0.01%、1100°Cで約11%の放出になっている。

3.3 核種ごとの放出率の比較

今回の試験で得られた各試料の積算放出率とU-Al合金の積算放出率⁴⁾を各FPごとに比較すると、その結果はFig.16からFig.21に示すようになる。 ^{85}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{131}I 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、A、B、C、試料がU-Al合金より明らかに低い放出率を示している。しかし、 ^{103}Ru はB試料のみ、また ^{137}Cs はA、B試料がU-Al合金より明らかに高い放出率を示している。

各試料の各試験温度における放出率を各FPごとに比較した所、その結果はFig.22からFig.26に示すようになる。 ^{85}Kr は、A、B、C試料が600°C、そしてU-Al合金試料が700°Cで最

も大きい放出率を示している。 ^{135}Xe は、A、C試料が600℃、そしてU-Al合金、B試料が700℃で最も大きい。 ^{131}I は、U-Al合金、A試料が700℃、B試料が800℃、そしてC試料が1000℃で最も大きい。 ^{137}Cs は、A、B試料が1000℃、そしてU-Al合金、C試料が1100℃で最も大きい。 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、A試料が1000℃、そしてU-Al合金、B、C試料が1100℃で最も大きい。 ^{103}Ru は、各試料の放出率が低いため各試験温度による明らかな変化が認められなかった。なお、Parker, et al. の行ったU-Al合金試料については、600℃における放出率が測定されていないため ^{85}Kr 、 ^{133}Xe は、結果的に700℃で最も多く放出した形となっている。

3.4 各FPの捕集状況

^{85}Kr および ^{133}Xe は、試験温度に関係なく99.9%以上がセル外のチャコールトラップの1および2段目に吸着した。 ^{133}Xe は、99.9%以上が1段目に吸着し、 ^{85}Kr は、60から90%が2段目に吸着し常に1段目より多く吸着した。最初の加熱試験（A試料600℃、冷却30日目）において最も多くのFPが吸着し、1段目のチャコールトラップの表面線量当量率が12mSv/hになった。 ^{131}I は、試験温度によって異なり10%から60%がセル内のフィルターに吸着または沈着したが、40%から90%がフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。

^{137}Cs は、試験温度によって異なり1%から7%がセル内のフィルターに吸着または沈着し、93%から99%がフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。 ^{103}Ru および $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、試験温度に関係なく99.9%以上がセル内のフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。

3.5 試験後の試料の外観検査

各試料の加熱試験がすべて終了後（82日冷却）、各試料の外観検査および写真撮影を行った。

その結果、各試料は一部分球状に溶出していたが、全体的には切り抜き時の形状を保持していた。1100℃試験終了後の各試料の外観写真をFig.27に示す。

4. ま と め

試験・研究炉用燃料の高温時におけるFP放出率測定装置を開発し、JMTRにおいて1サイクル（燃焼度：約22% ^{235}U ）照射した分散型LEUシリサイド燃料（ U_3Si_2 90%、 USi 10% -Alと U_3Si_2 50%、 U_3Si_2 50% -Al）2個と分散型MEUアルミナイド燃料（ UAl_3 70%、 UAl_4 30% -Al）1個の高温時（600℃から1100℃）におけるFP放出率測定試験を行った。各試験ステップごとに試験装置の組立、分解、測定、新規部品による再組立を繰返すことにより試料から放出されたFPをすべて捕集し測定することが出来た。

試験の結果、各試料において ^{85}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{131}I 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、U-Al合金燃料についてG.W. Parker, et al. の行った試験結果⁵⁾よりやや低い放出率を示した。しかし、1個のシリサイド

も大きい放出率を示している。 ^{133}Xe は、A、C試料が600℃、そしてU-Al合金、B試料が700℃で最も大きい。 ^{131}I は、U-Al合金、A試料が700℃、B試料が800℃、そしてC試料が1000℃で最も大きい。 ^{137}Cs は、A、B試料が1000℃、そしてU-Al合金、C試料が1100℃で最も大きい。 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、A試料が1000℃、そしてU-Al合金、B、C試料が1100℃で最も大きい。 ^{103}Ru は、各試料の放出率が低いため各試験温度による明らかな変化が認められなかった。なお、Parker, et al. の行ったU-Al合金試料については、600℃における放出率が測定されていないため ^{85}Kr 、 ^{133}Xe は、結果的に700℃で最も多く放出した形となっている。

3.4 各FPの捕集状況

^{85}Kr および ^{133}Xe は、試験温度に関係なく99.9%以上がセル外のチャコールトラップの1および2段目に吸着した。 ^{133}Xe は、99.9%以上が1段目に吸着し、 ^{85}Kr は、60から90%が2段目に吸着し常に1段目より多く吸着した。最初の加熱試験（A試料600℃、冷却30日目）において最も多くのFPが吸着し、1段目のチャコールトラップの表面線量当量率が12mSv/hになった。 ^{131}I は、試験温度によって異なり10%から60%がセル内のフィルターに吸着または沈着したが、40%から90%がフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。

^{137}Cs は、試験温度によって異なり1%から7%がセル内のフィルターに吸着または沈着し、93%から99%がフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。 ^{103}Ru および $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、試験温度に関係なく99.9%以上がセル内のフィルターに到達する前に沈着管、炉内管、接続管等に沈着していた。

3.5 試験後の試料の外観検査

各試料の加熱試験がすべて終了後（82日冷却）、各試料の外観検査および写真撮影を行った。

その結果、各試料は一部分球状に溶出していたが、全体的には切り抜き時の形状を保持していた。1100℃試験終了後の各試料の外観写真をFig.27に示す。

4. ま と め

試験・研究炉用燃料の高温時におけるFP放出率測定装置を開発し、JMTRにおいて1サイクル（燃焼度：約22% ^{235}U ）照射した分散型LEUシリサイド燃料（ U_3Si_2 90%、 USi 10% -Alと U_3Si_2 50%、 U_3Si_2 50% -Al）2個と分散型MEUアルミナイド燃料（ UAl_3 70%、 UAl_4 30% -Al）1個の高温時（600℃から1100℃）におけるFP放出率測定試験を行った。各試験ステップごとに試験装置の組立、分解、測定、新規部品による再組立を繰返すことにより試料から放出されたFPをすべて捕集し測定することが出来た。

試験の結果、各試料において ^{85}Kr 、 ^{133}Xe 、 ^{131}I 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ は、U-Al合金燃料についてG.W. Parker, et al. の行った試験結果⁵⁾よりやや低い放出率を示した。しかし、1個のシリサイド

燃料 (U_3Si_2 90%, USi 10% -Al) において ^{137}Cs , ^{103}Ru が, またアルミナイド燃料において ^{137}Cs が, やや高い放出率を示した。

本試験に引き続いて JMTR では, 同一構成のキャプセル 1 体を 4 サイクル (燃焼度: 約 75% ^{235}U) 照射を行っており, 同様の照射後試験により本試験結果を補完する計画である。

謝 辞

本試験の計画および遂行に対して二村嘉明材料試験炉部部长, 齊藤実材料試験炉部次長, 核物理管理センター小山田六郎氏 (元計画課長), 中田宏勝計画課長, 新保利定原子炉第一課長, 山本克宗原子炉第一課長代理, 京都大学原子炉実験所玉井忠治助教授, 実験装置の設計において柴田科学器械工業 K.K 宮林厚氏, 日本無機 K.K 木谷進氏, 分析センター鈴木敏夫氏, 試験の実施においてホットラボ課試験第一係, 放射線管理課第二係等本試験には, 多くの方々にご指導および御協力を戴いた。深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Shibata, et al., "Release of Fission Products from Irradiated Aluminide Fuel at High Temperatures", Nucl. Sci. Eng., Vol. 87, pp. 405-417, 1984
- 2) J.C. Posei., "Release of Fission Products from Miniature Fuel Plates at Elevated Temperature", Proceeding of International Meeting on Research and Test Reactor Core Conversions from ATU to LEU Fuels at ANL, 1982.
- 3) W. Krug, et al., "Final Results of Test-Irradiations with LEU-plates at KFA Jülich", RERTR-Meeting, 1988
- 4) H. Sakai, et al., "Post-Irradiation Examination of LEU Miniplates in the JMTR", RERTR-Meeting, 1986.
- 5) G.W. Parker, et al., "Release of Fission Products on Out-of-Pile Melting of Reactor Fuel", ORNL-3483, 1963

燃料 (U_3Si_2 90%, USi 10% -Al) において ^{137}Cs , ^{103}Ru が, またアルミナイド燃料において ^{137}Cs が, やや高い放出率を示した。

本試験に引き続いて JMTR では, 同一構成のキャプセル 1 体を 4 サイクル (燃焼度: 約 75% ^{235}U) 照射を行っており, 同様の照射後試験により本試験結果を補完する計画である。

謝 辞

本試験の計画および遂行に対して二村嘉明材料試験炉部部长, 齊藤実材料試験炉部次長, 核物理管理センター小山田六郎氏 (元計画課長), 中田宏勝計画課長, 新保利定原子炉第一課長, 山本克宗原子炉第一課長代理, 京都大学原子炉実験所玉井忠治助教授, 実験装置の設計において柴田科学器械工業 K.K 宮林厚氏, 日本無機 K.K 木谷進氏, 分析センター鈴木敏夫氏, 試験の実施においてホットラボ課試験第一係, 放射線管理課第二係等本試験には, 多くの方々に御指導および御協力を戴いた。深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Shibata, et al., "Release of Fission Products from Irradiated Aluminide Fuel at High Temperatures", Nucl. Sci. Eng., Vol. 87, pp. 405-417, 1984
- 2) J.C. Posei., "Release of Fission Products from Miniature Fuel Plates at Elevated Temperature", Proceeding of International Meeting on Research and Test Reactor Core Conversions from ATU to LEU Fuels at ANL, 1982.
- 3) W. Krug, et al., "Final Results of Test-Irradiations with LEU-plates at KFA Jülich", RERTR-Meeting, 1988
- 4) H. Sakai, et al., "Post-Irradiation Examination of LEU Miniplates in the JMTR", RERTR-Meeting, 1986.
- 5) G.W. Parker, et al., "Release of Fission Products on Out-of-Pile Melting of Reactor Fuel", ORNL-3483, 1963

燃料 (U_3Si_2 90%, USi 10% -Al) において ^{137}Cs , ^{103}Ru が, またアルミナイド燃料において ^{137}Cs が, やや高い放出率を示した。

本試験に引き続いて JMTR では, 同一構成のキャプセル 1 体を 4 サイクル (燃焼度: 約 75% ^{235}U) 照射を行っており, 同様の照射後試験により本試験結果を補完する計画である。

謝 辞

本試験の計画および遂行に対して二村嘉明材料試験炉部部长, 齊藤実材料試験炉部次長, 核物理管理センター小山田六郎氏 (元計画課長), 中田宏勝計画課長, 新保利定原子炉第一課長, 山本克宗原子炉第一課長代理, 京都大学原子炉実験所玉井忠治助教授, 実験装置の設計において柴田科学器械工業 K.K 宮林厚氏, 日本無機 K.K 木谷進氏, 分析センター鈴木敏夫氏, 試験の実施においてホットラボ課試験第一係, 放射線管理課第二係等本試験には, 多くの方々に御指導および御協力を戴いた。深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) T. Shibata, et al., "Release of Fission Products from Irradiated Aluminide Fuel at High Temperatures", Nucl. Sci. Eng., Vol. 87, pp. 405-417, 1984
- 2) J.C. Posei., "Release of Fission Products from Miniature Fuel Plates at Elevated Temperature", Proceeding of International Meeting on Research and Test Reactor Core Conversions from ATU to LEU Fuels at ANL, 1982.
- 3) W. Krug, et al., "Final Results of Test-Irradiations with LEU-plates at KFA Jülich", RERTR-Meeting, 1988
- 4) H. Sakai, et al., "Post-Irradiation Examination of LEU Miniplates in the JMTR", RERTR-Meeting, 1986.
- 5) G.W. Parker, et al., "Release of Fission Products on Out-of-Pile Melting of Reactor Fuel", ORNL-3483, 1963

Table 1 Characteristics of Irradiated Miniplates

Type	Dispersed Phase	Enrichment (²³⁵ U %)	Uranium Density (g/cc)
A	UAl ₃ (70%) UAl ₄ (30%) } Al	44.99	1.6
B	U ₃ Si ₂ (90%) USi (10%) } Al	19.80	4.8
C	U ₃ Si ₂ (50%) U ₃ Si (50%) } Al	19.76	4.8

Table 2 Irradiation Results of Specimens

Specimen No.	²³⁵ U Quantity (mg)	* Neutron Flux (n/cm ² .sec)	Irradiation Period (days)	Burnup	
				(%)	(fiss./cc)
A - 12 (24)	8.16	2.66×10^{14}	22.1	22.1	0.35×10^{21}
B - 11 (25)	8.96	2.62×10^{14}		21.6	0.44×10^{21}
C - 05 (9)	8.89	2.75×10^{14}		22.5	0.47×10^{21}

* from the measurement data of fluence monitor

Table 3 Amount (Bq) of Fission Products in Specimens at 31st Day
from End of Irradiation by ORIGEN Code

Specimen No. Nuclide	A-12 (24)	B-11 (25)	C-05 (9)
^{85}Kr	2.67×10^7	2.85×10^7	2.95×10^7
^{133}Xe	2.18×10^9	2.33×10^9	2.41×10^9
^{131}I	3.25×10^9	3.47×10^9	3.58×10^9
^{103}Ru	1.10×10^{10}	1.17×10^{10}	1.21×10^{10}
$^{129\text{m}}\text{Te}$	6.05×10^8	6.45×10^8	6.68×10^8
^{137}Cs	1.74×10^8	1.85×10^8	1.92×10^8

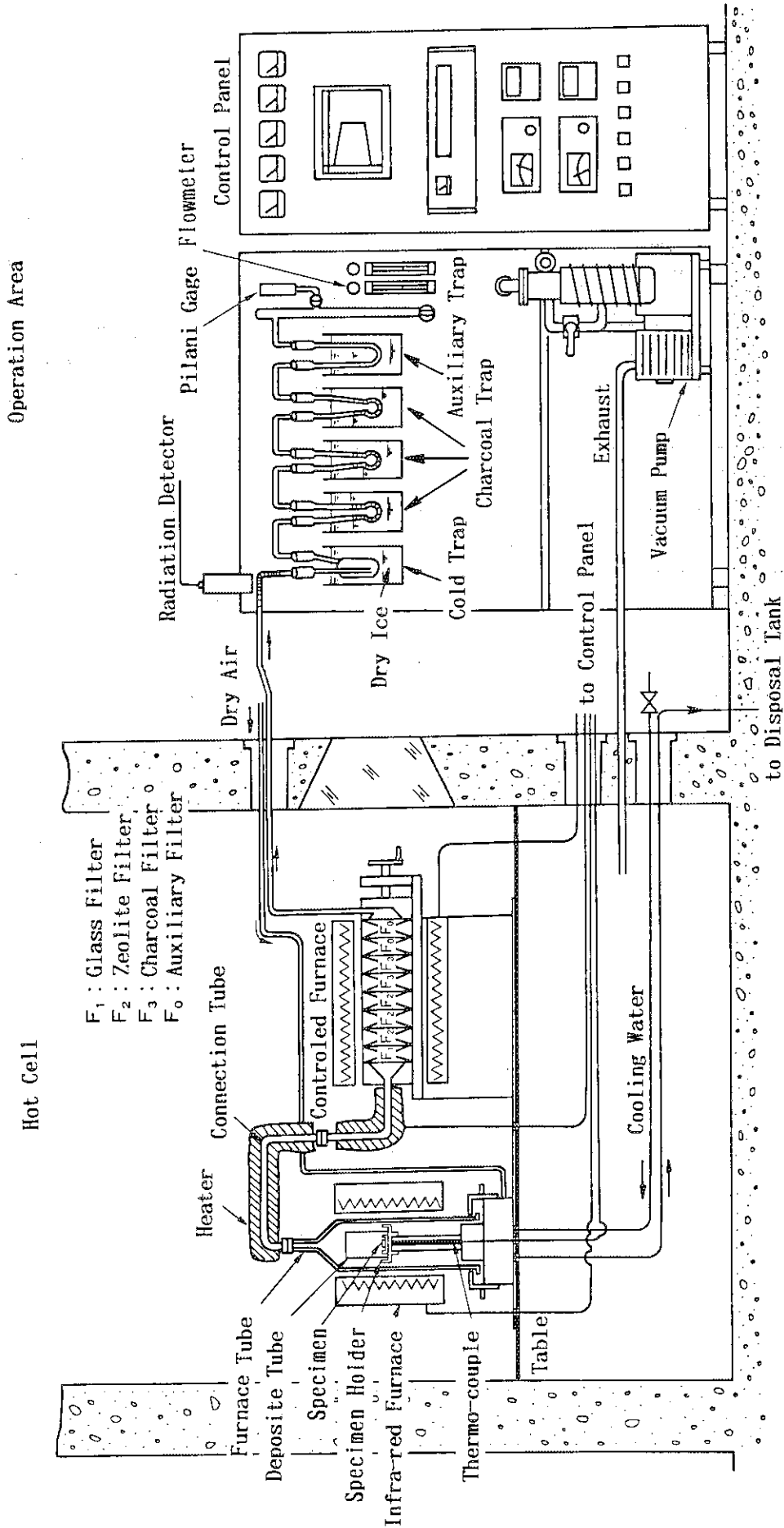


Fig. 1 Equipments for Fission Products Release and Collection System

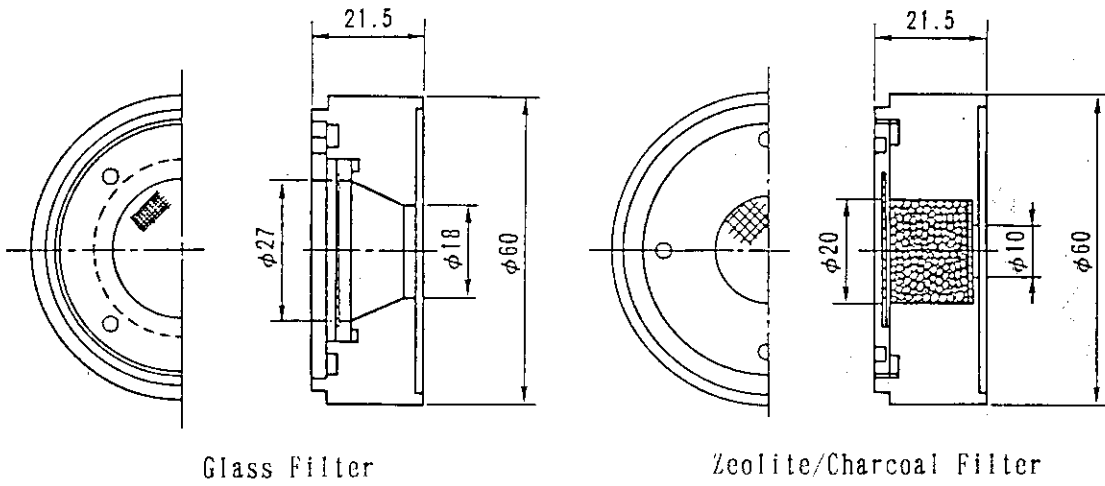


Fig. 2 Shape of Filter

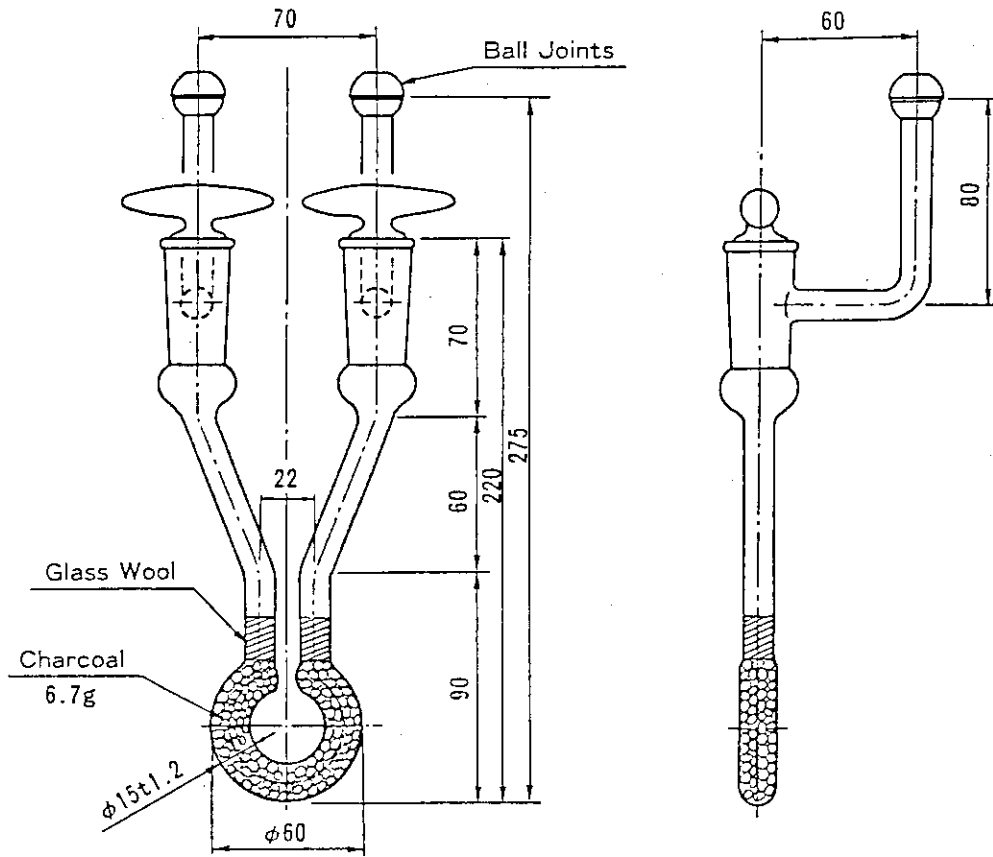


Fig. 3 Shape of Charcoal Trap

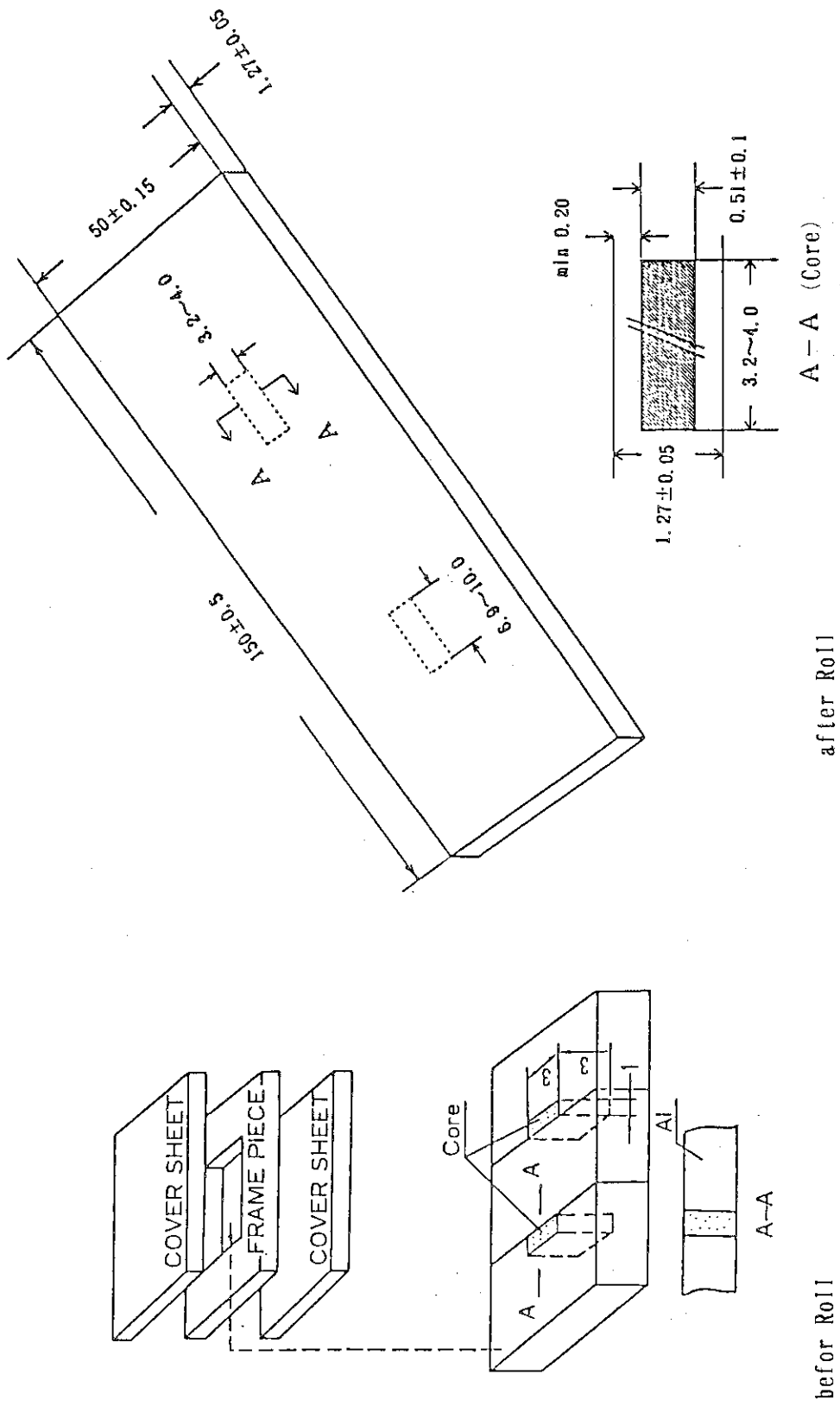


Fig. 4 Shape of Miniplate

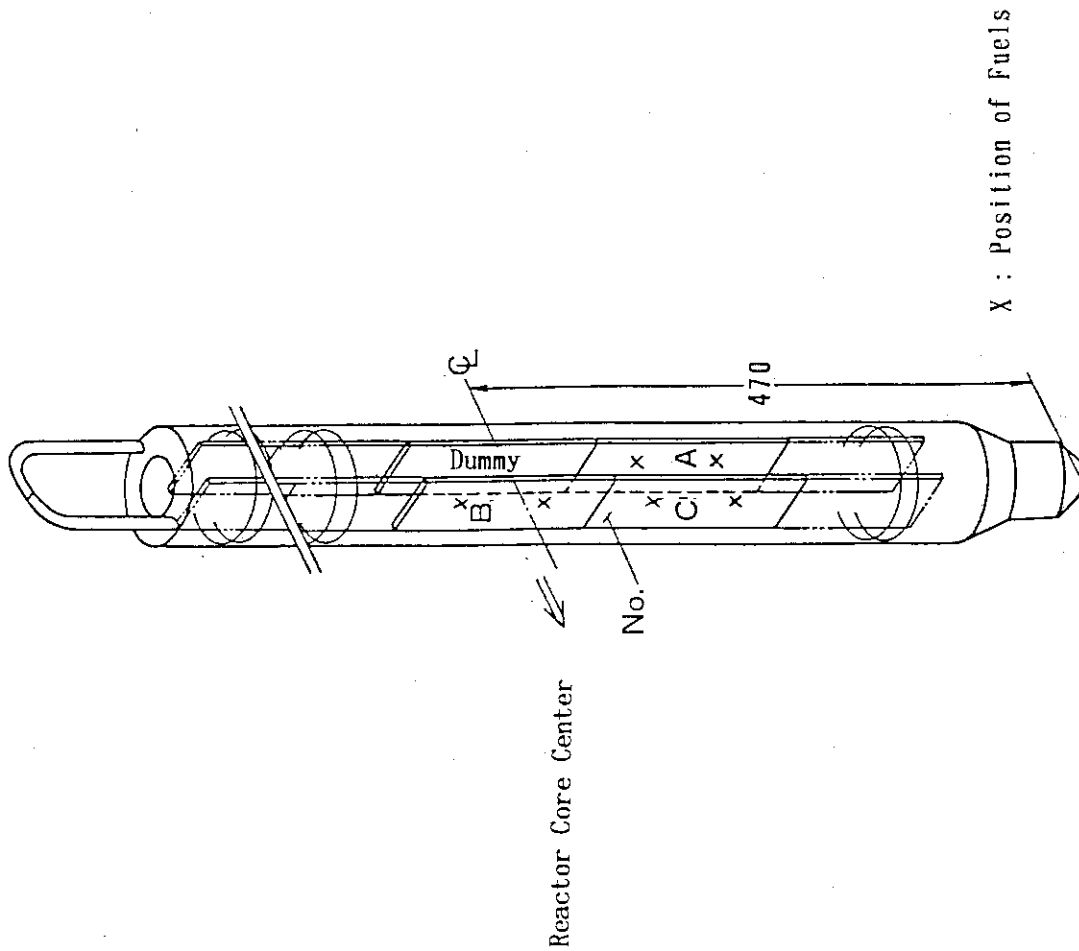


Fig. 5 Arrangement of Irradiation Capsule

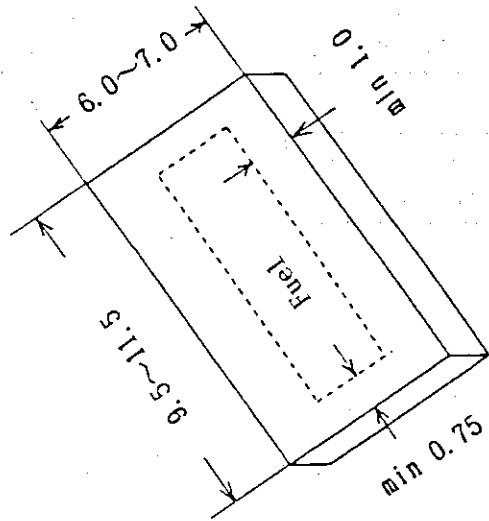


Fig. 6 Shape of Measuring Specimen after Cutting Down from Miniplate

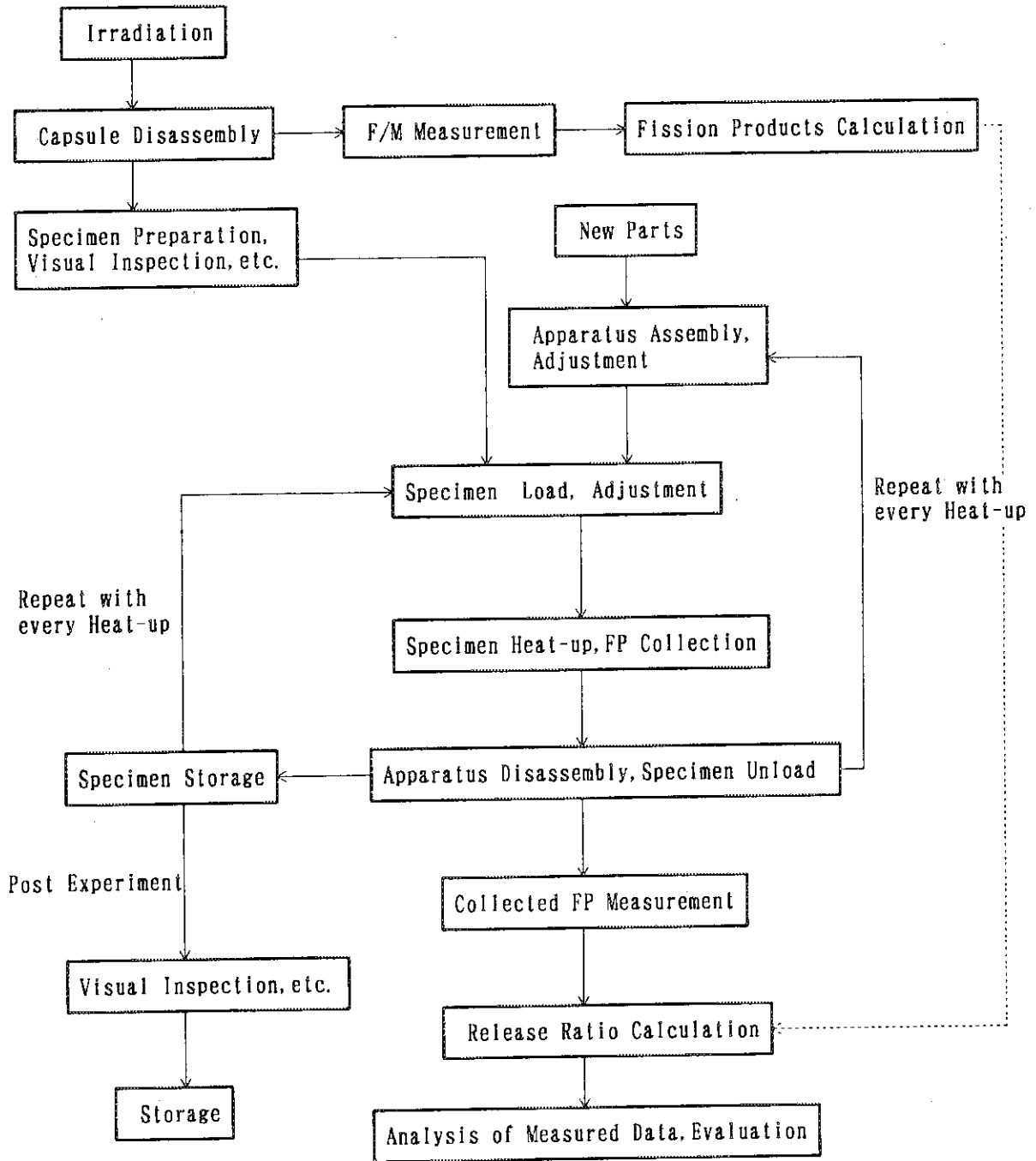


Fig. 7 Experiment Flow

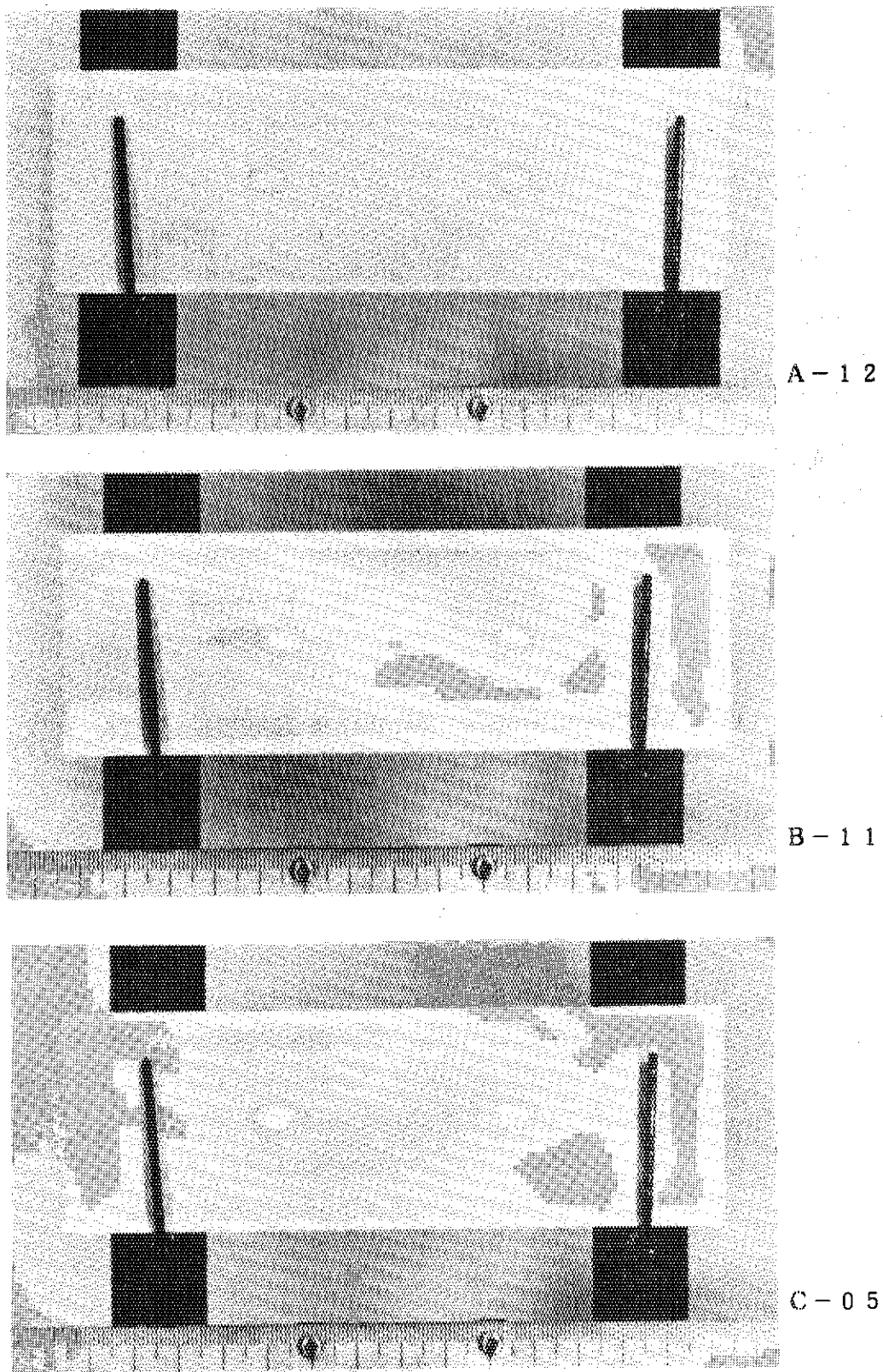


Fig. 8 Photographs of Miniplate

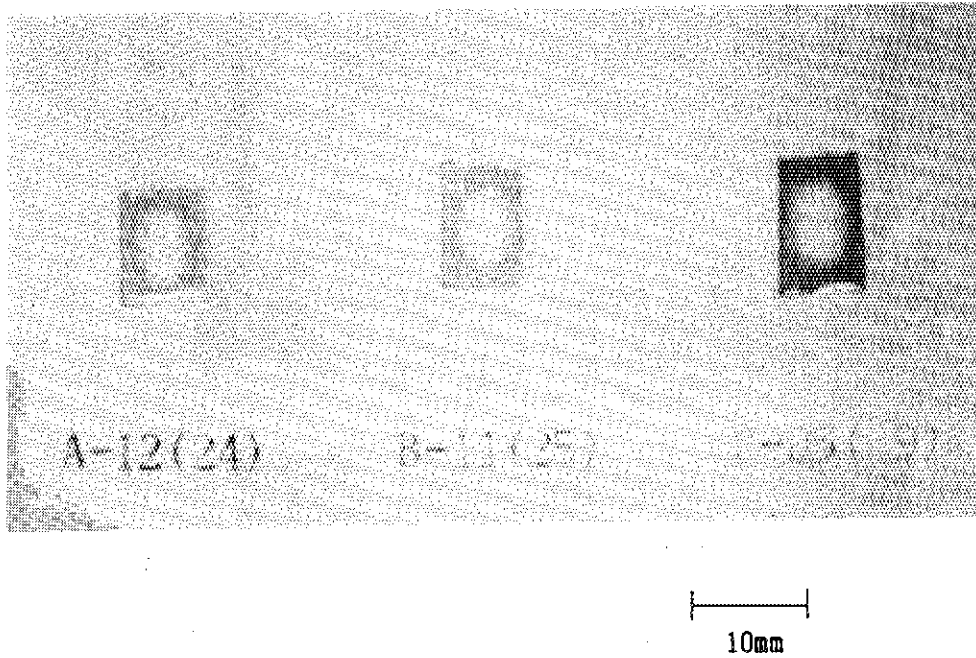


Fig. 9 Photographs of Measuring Specimen after Cutting Down from Miniplate

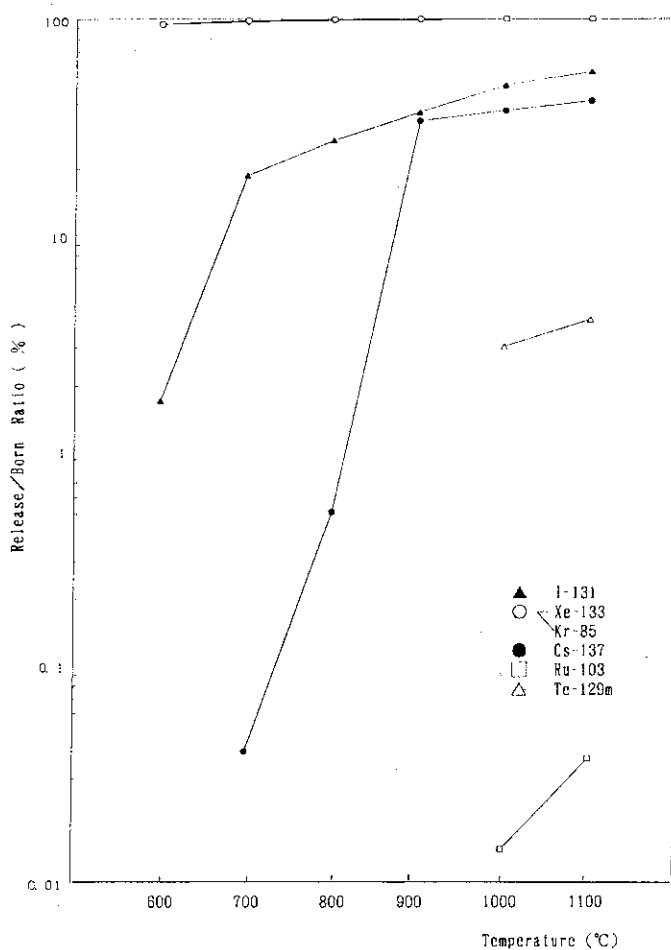


Fig. 10 Cumulative Amounts of Nuclides Released from Specimen A-12 (24)

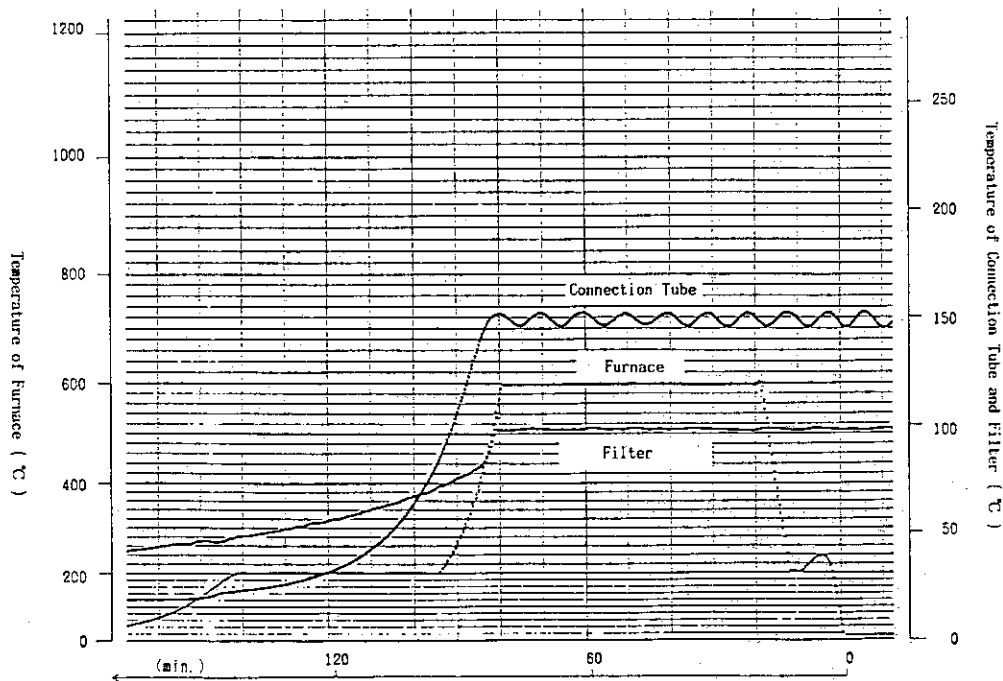


Fig. 11 Heating Chart (600°C) of Specimen A-12 (24)

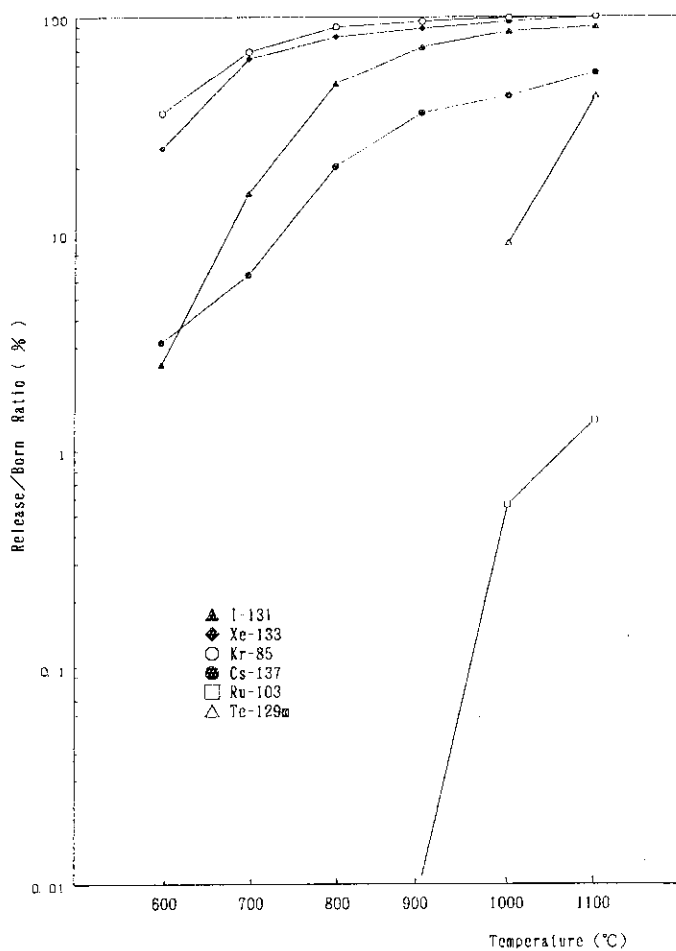


Fig. 12 Cumulative Amounts of Nuclides Released from Specimen B-11 (25)

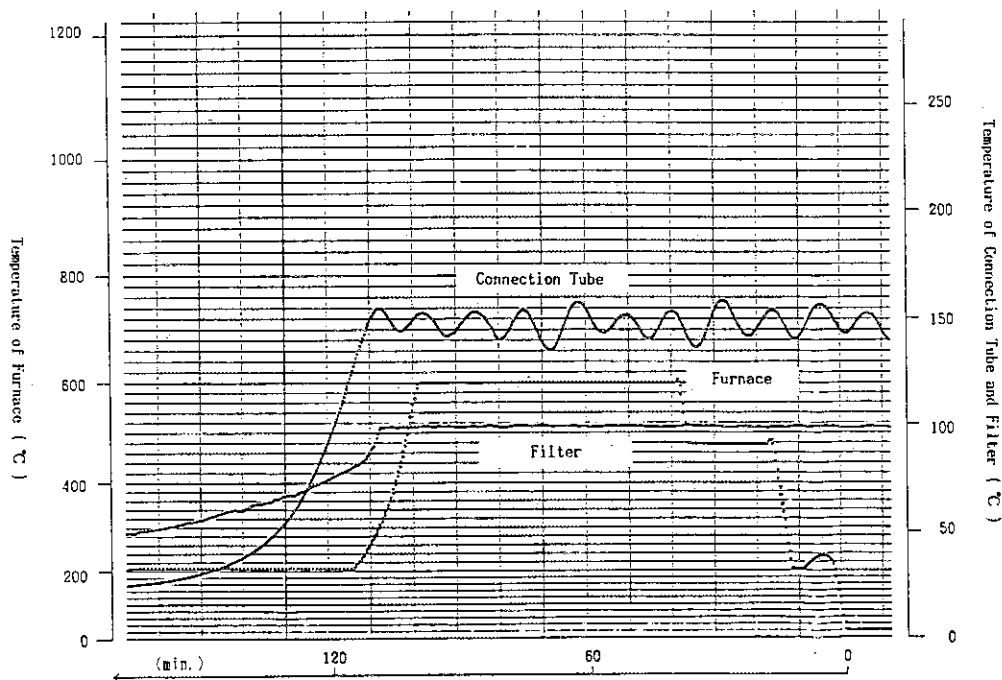


Fig. 13 Heating Chart (600°C) of Specimen B-11 (25)

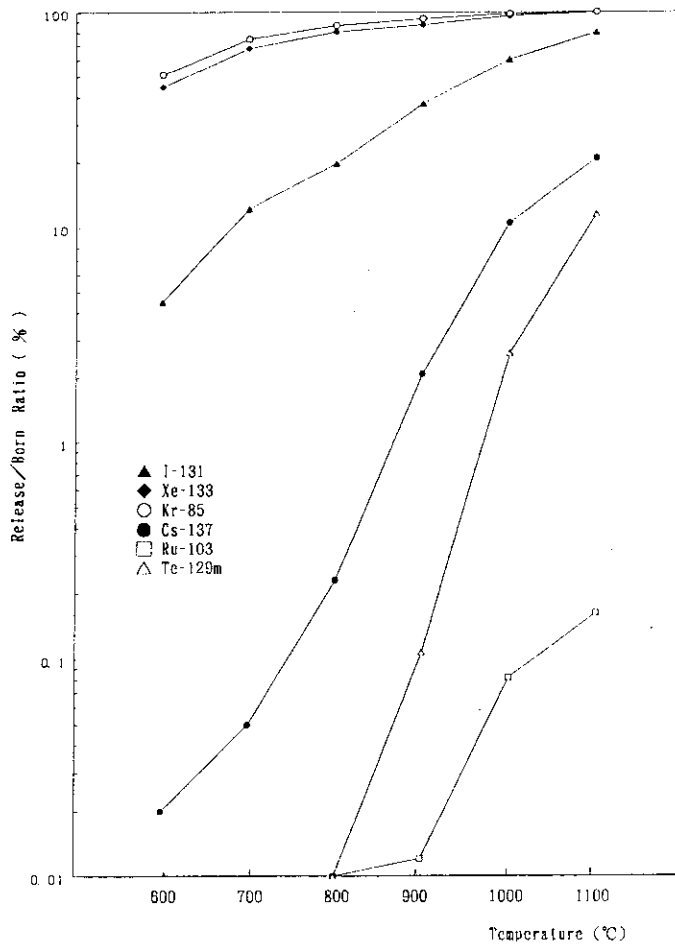


Fig. 14 Cumulative Amounts of Nuclides Released from Specimen C-05 (09)

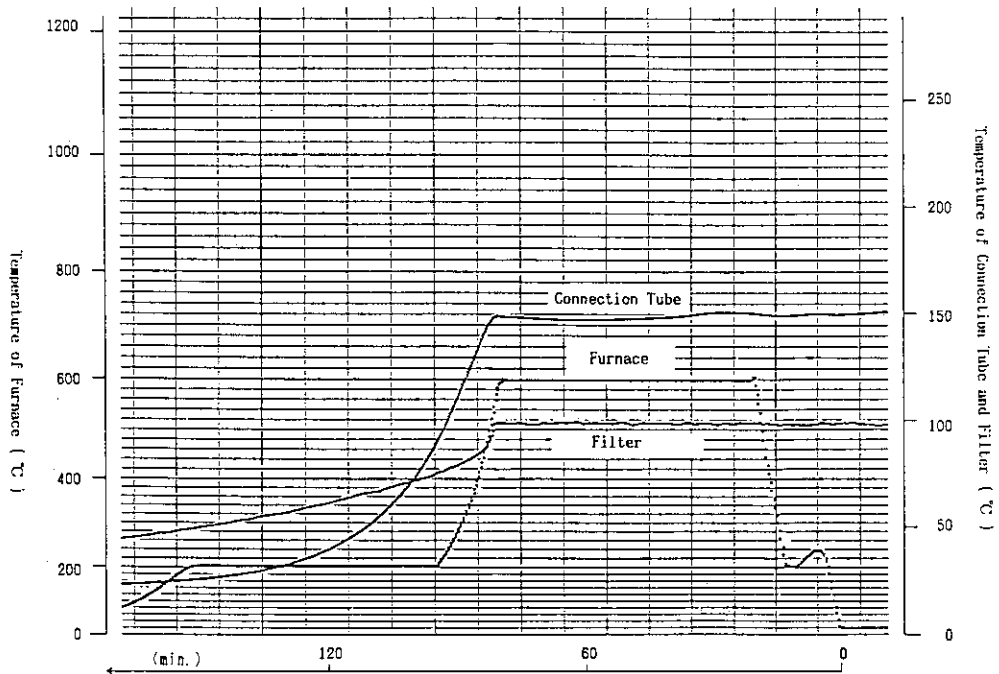


Fig. 15 Heating Chart (600°C) of Specimen C-05 (09)

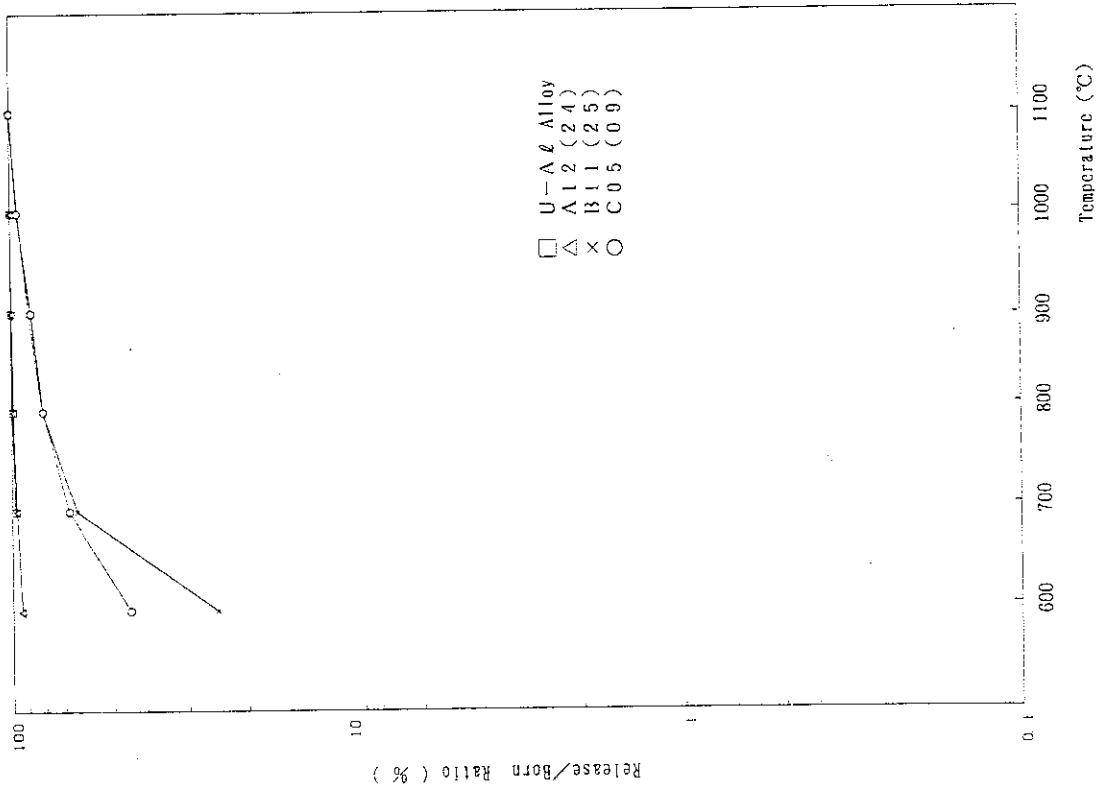


Fig. 17 Cumulative Amount of ¹³³Xe Released from Silicide and Aluminide Fuels

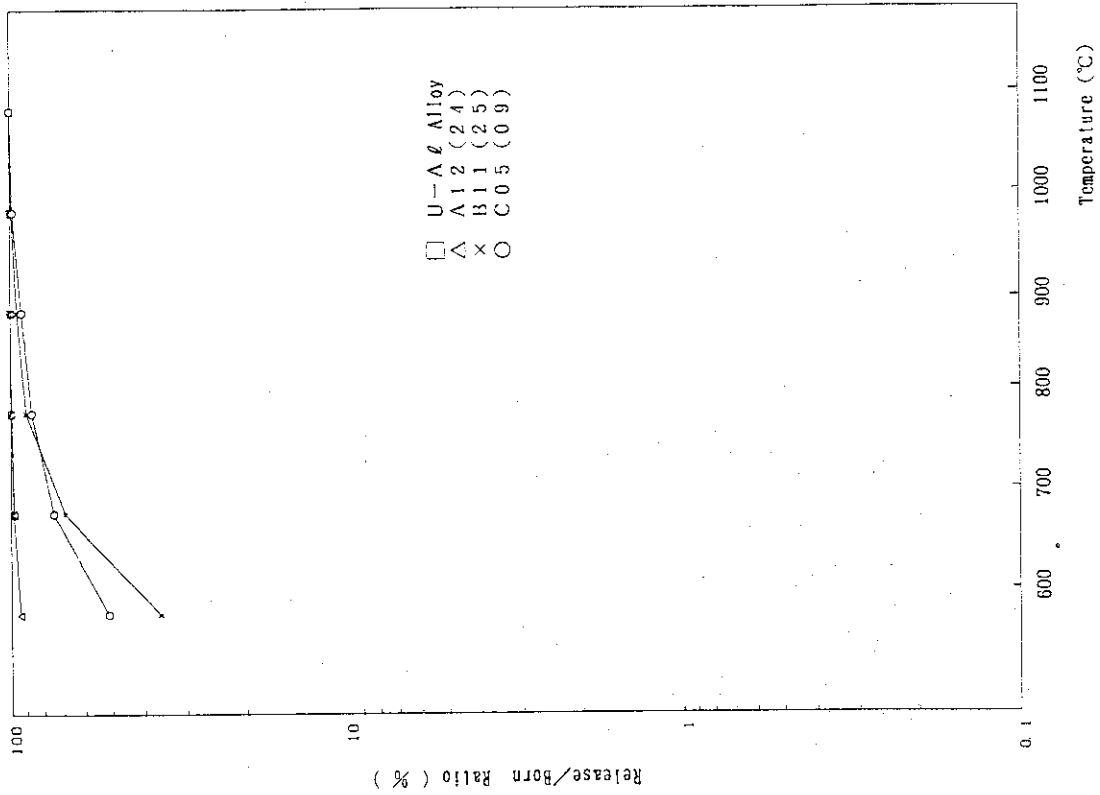


Fig. 16 Cumulative Amount of ⁸⁵Kr Released from Silicide and Aluminide Fuels

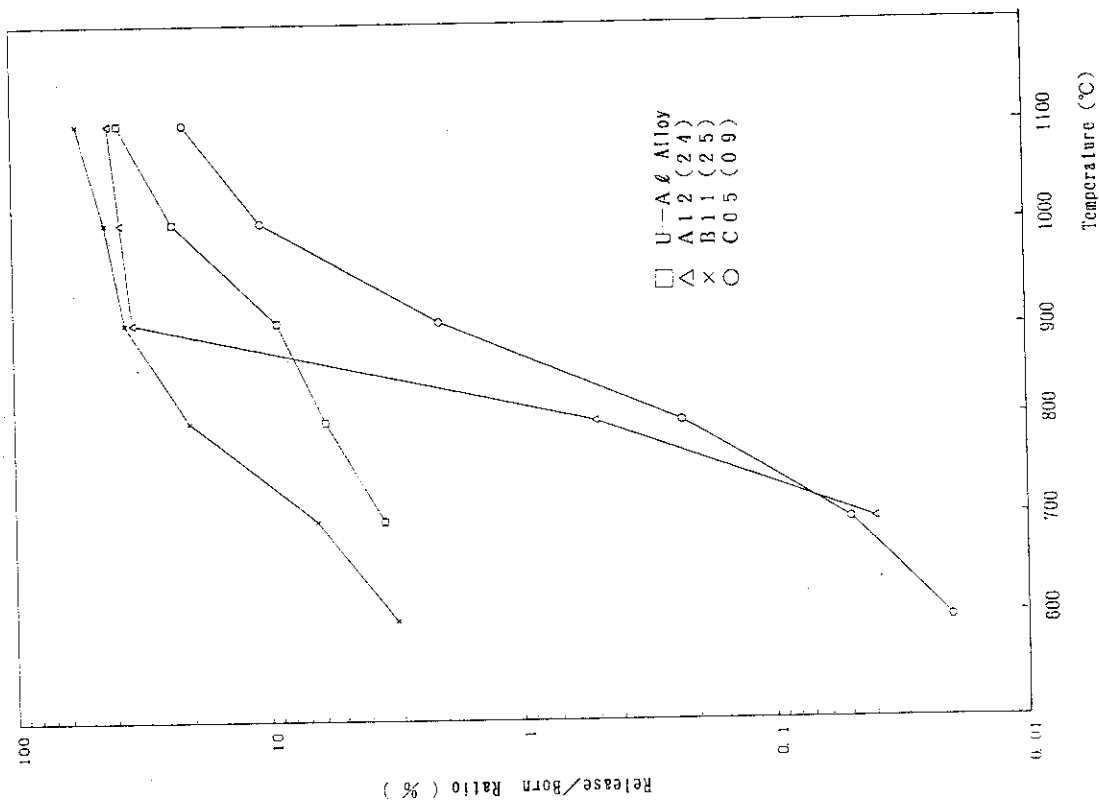


Fig. 19 Cumulative Amount of ¹³⁷Cs Released from Silicide and Aluminide Fuels

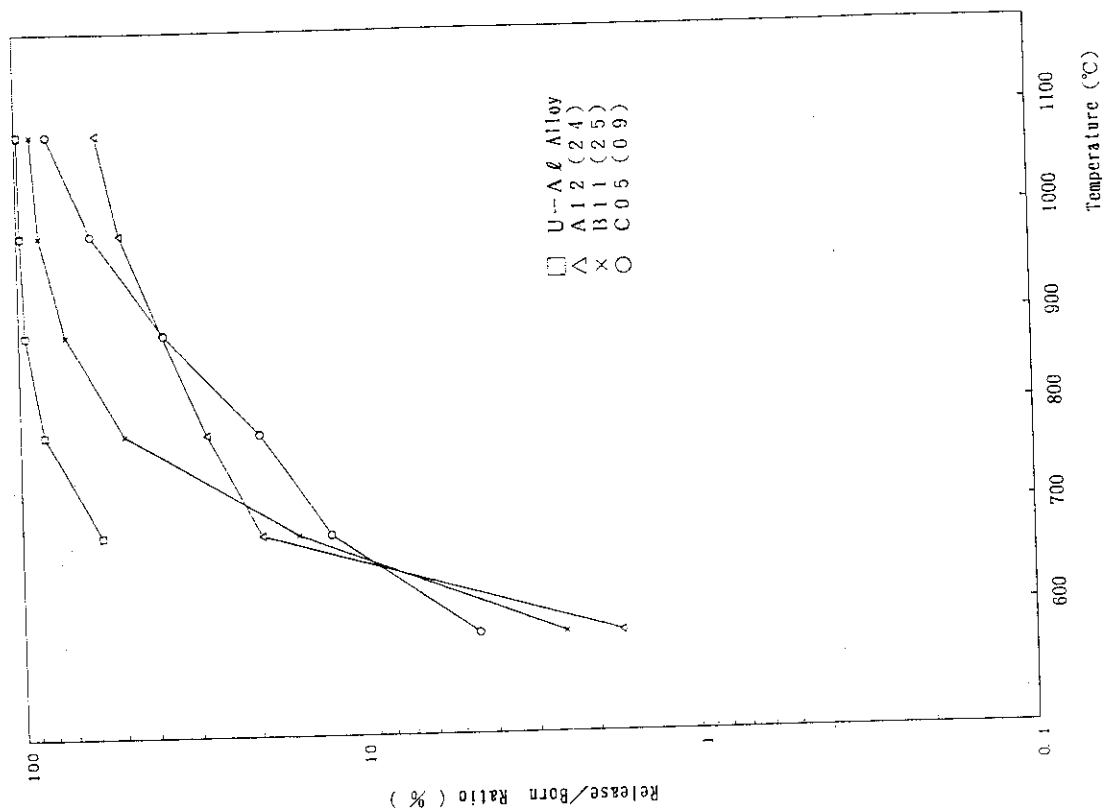


Fig. 18 Cumulative Amount of ¹³¹I Released from Silicide and Aluminide Fuels

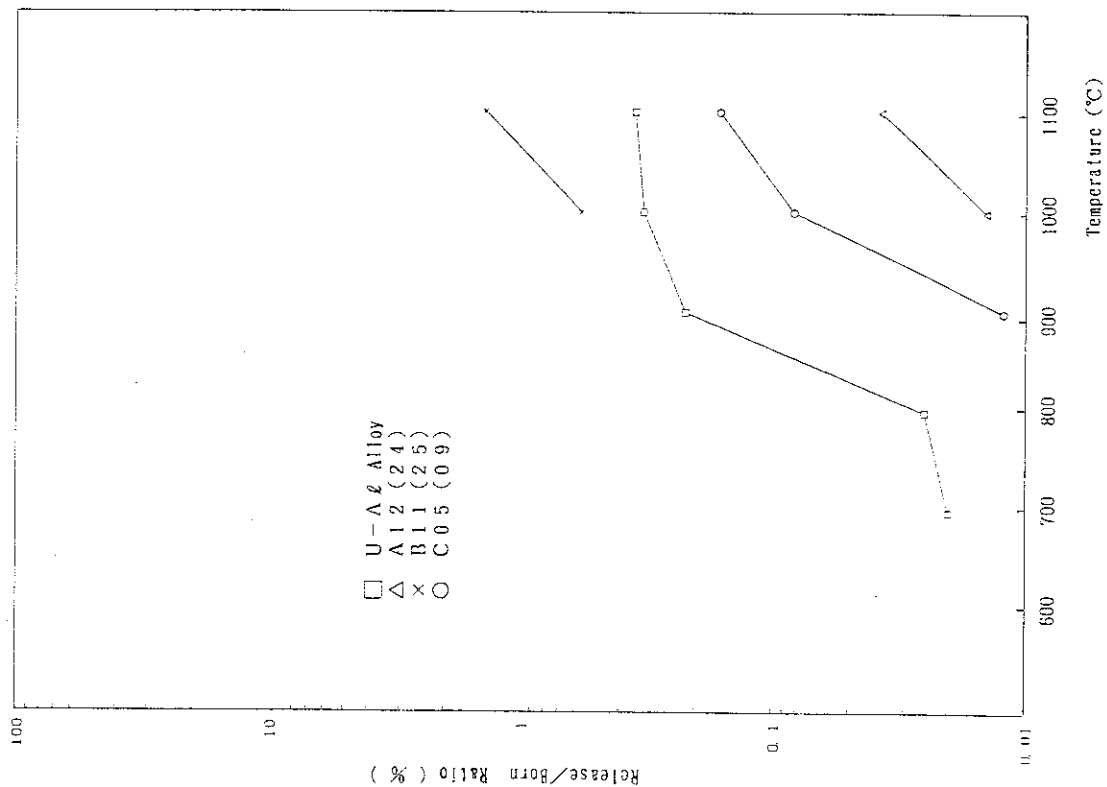


Fig. 21 Cumulative Amount of ¹⁰³Ru Released from Silicide and Aluminide Fuels

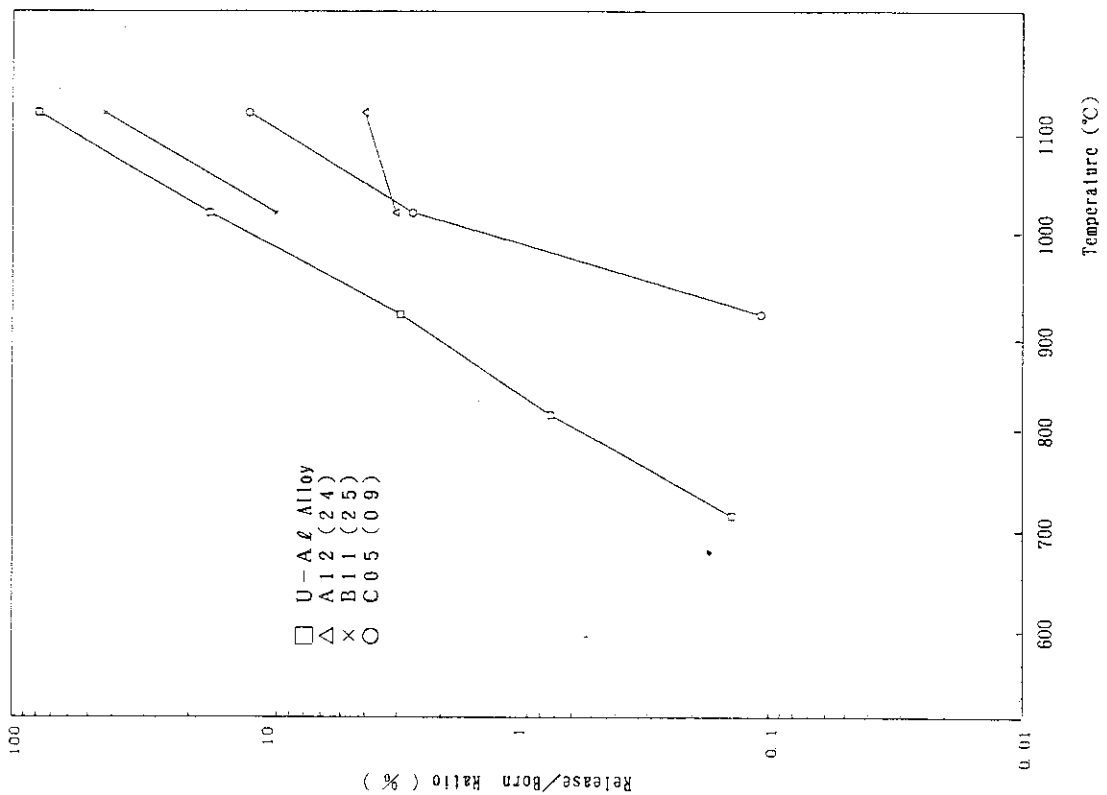


Fig. 20 Cumulative Amount of ^{129m}Te Released from Silicide and Aluminide Fuels

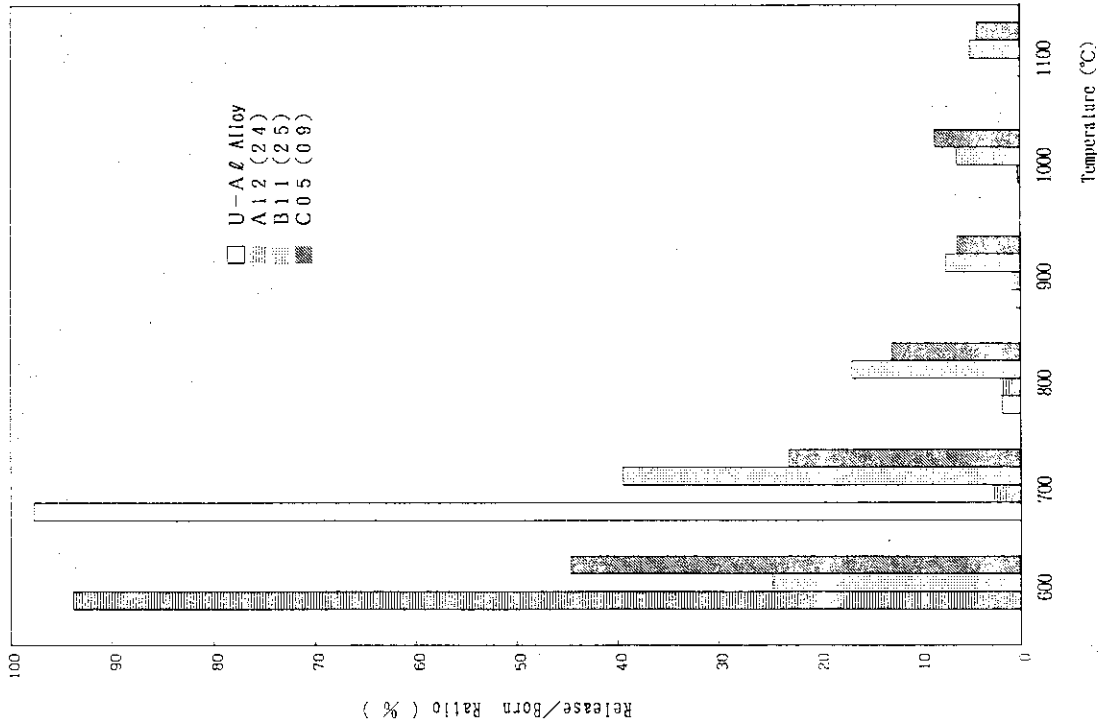


Fig. 23 Release/Born Ratio of ^{133}Xe at Temperature $600^\circ\text{C} \sim 1100^\circ\text{C}$

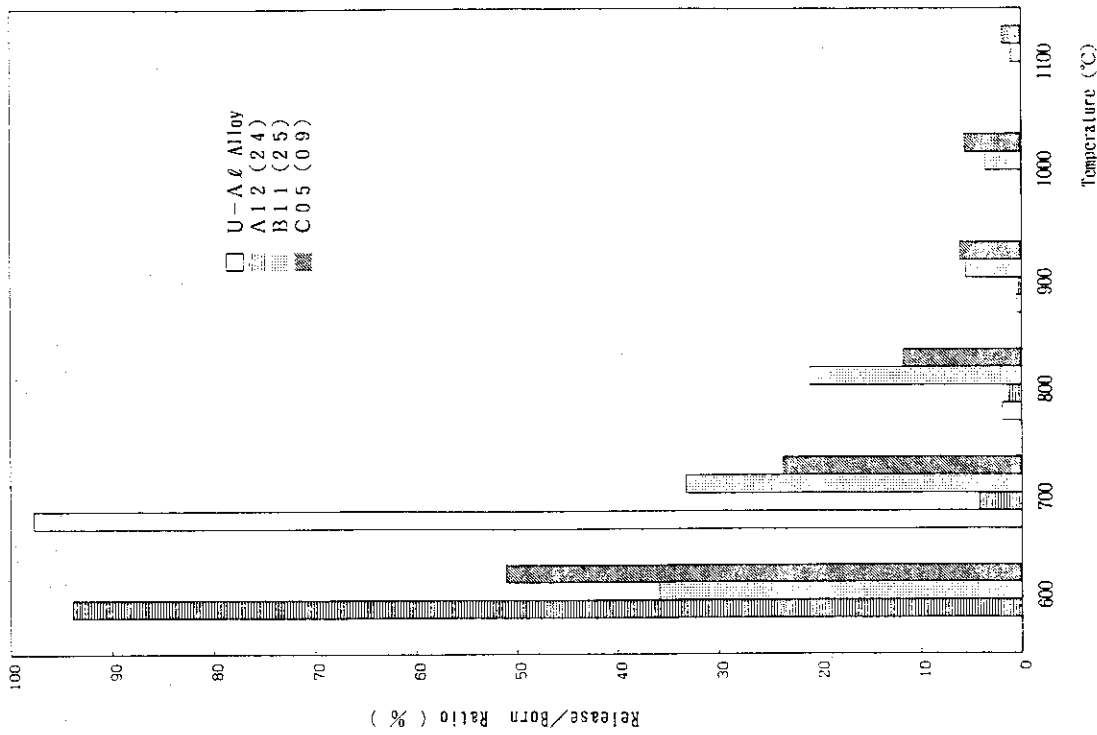


Fig. 22 Release/Born Ratio of ^{85}Kr at Temperature $600^\circ\text{C} \sim 1100^\circ\text{C}$

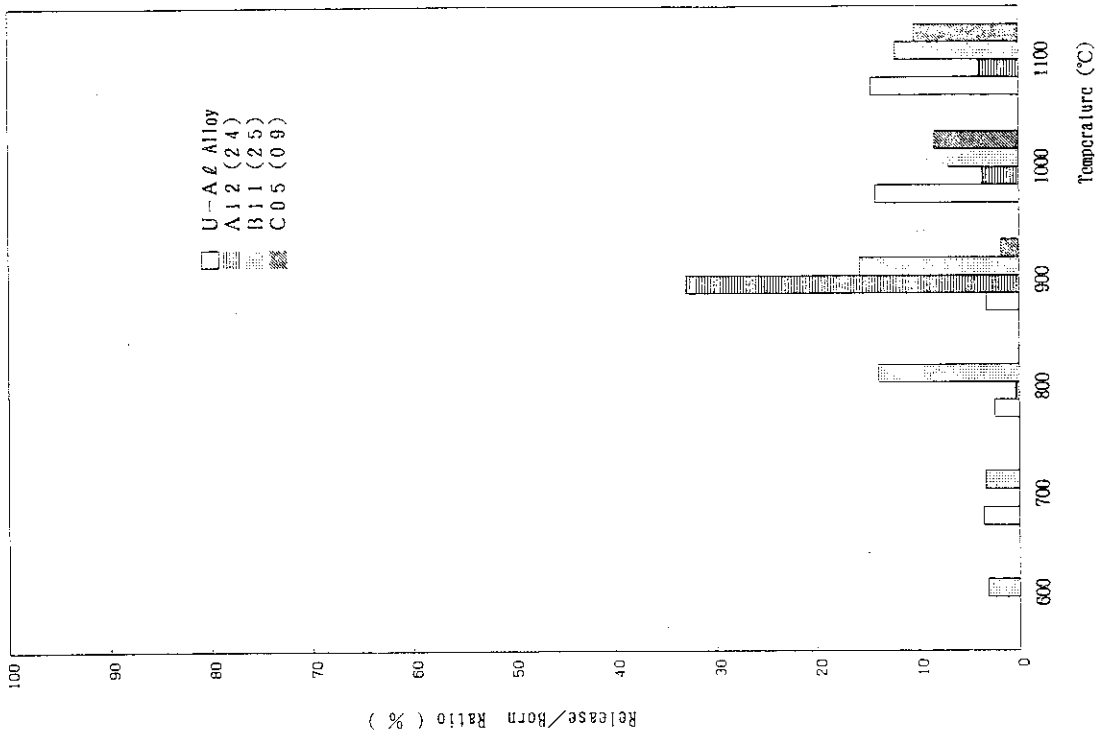


Fig. 25 Release/Born Ratio of ¹³⁷Cs at Temperature 600°C ~ 1100°C

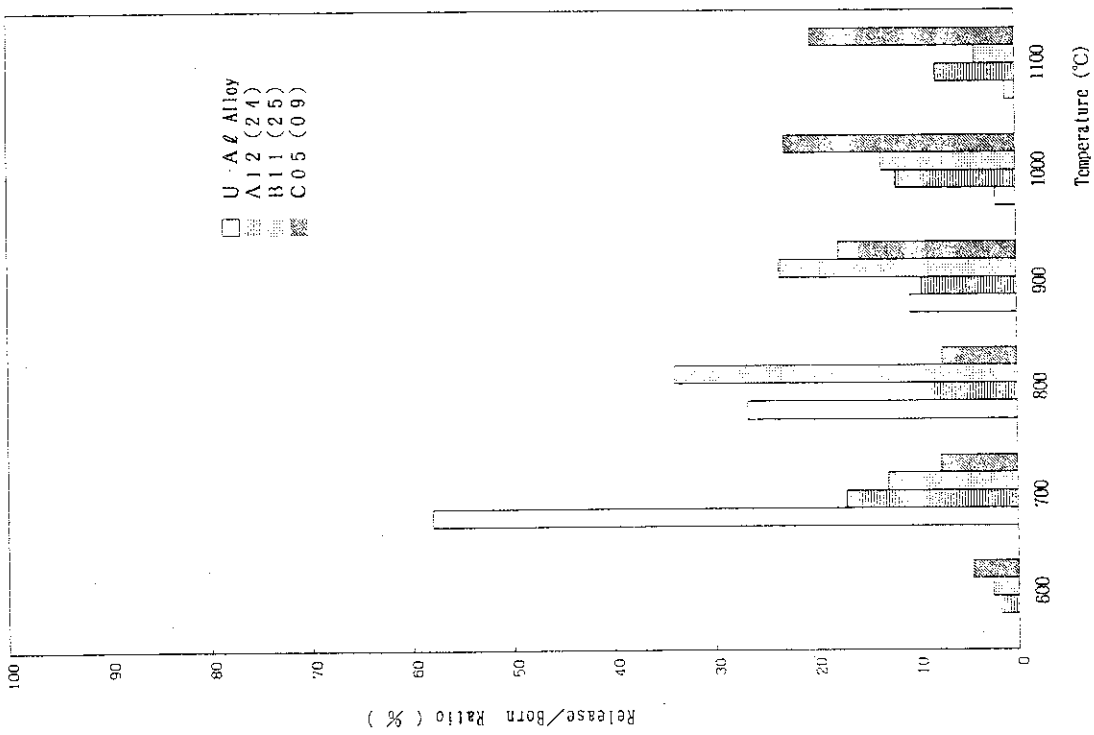


Fig. 24 Release/Born Ratio of ¹³¹I at Temperature 600°C ~ 1100°C

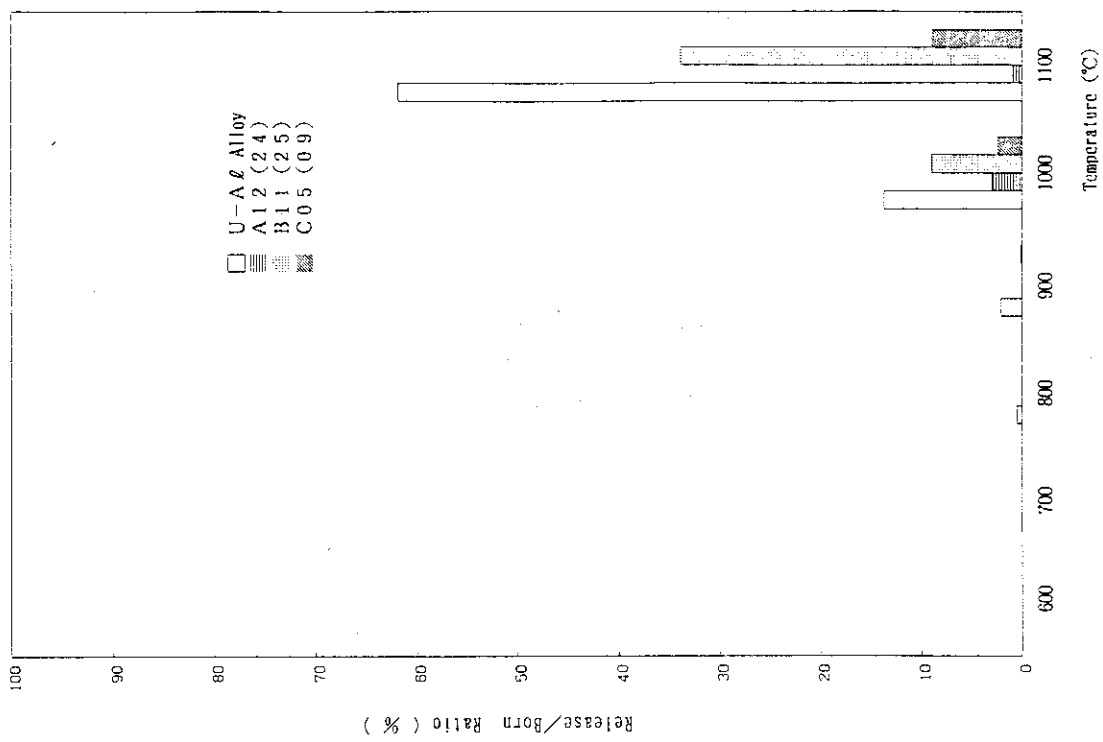
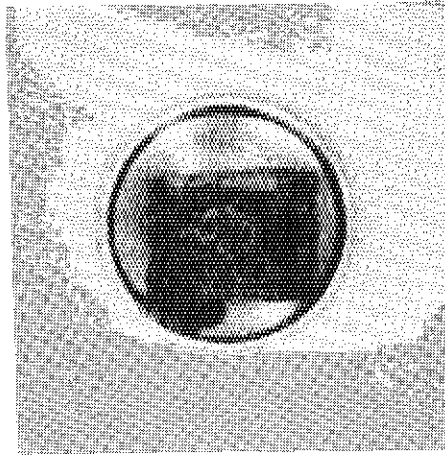
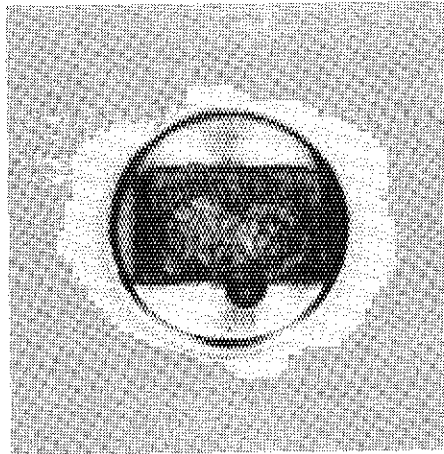


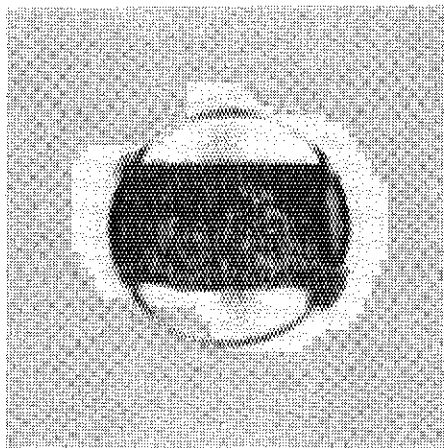
Fig. 26 Release/Born Ratio of ¹³⁷mTc at Temperature 600°C ~ 1100°C



A-12 (24)



B-11 (25)



C-05 (09)

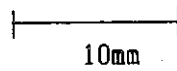


Fig. 27 Photographs of Specimens after Heating at 1,100°C

付 録 核分裂生成物放出率測定の実験手順

1. 試験試料の調製

- * キャプセルの解体、ミニプレートとF/Mの取出し
- * ミニプレートの外観検査および外観写真撮影およびX線検査
- * 各ミニプレートより燃料芯材部分の各1個切り抜き、F/P放出率測定試験用試料を作成
- * 切り抜いた各試料の試験前外観写真撮影
- * F/Mの搬出、測定（測定は計画課にて実施）

2. 試験装置の組立と試験準備

- * 試料加熱系の炉内管、試料ホルダー、沈着管等のセット
- * 固体F/P捕集系のガラスフィルター、ゼオライトフィルター、チャコールフィルター等のセット
- * 試料加熱系と固体F/P捕集系の接続管による接続
- * 固体F/P捕集系に恒温槽のセット
- * 接続管にヒータのセット
- * 希ガスF/P捕集系のコールドトラップ、チャコールトラップ、予備トラップ等のセット
- * チャコールトラップと予備トラップにヒータのセット
- * リーク検査および脱ガスのため試験装置全系の真空排気
- * 脱ガスのため固体F/P捕集系を100℃、接続管を150℃、チャコールトラップと予備トラップを130℃に加熱
- * 上記脱ガス状態にて試験装置全系を約20時間連続で真空排気
- * 真空計が 2×10^{-2} Torr（約 2.6 Pa）以下であることを確認

3. 試料のセットと加熱およびF/P捕集

- * キャリアガス用乾燥空気にて試験装置全系を常圧に保持
- * 炉内管と沈着管を取り外し試料皿と試料を試料ホルダーにセット
- * 再度炉内管と沈着管をセットし試験装置全系を3～5時間真空排気
- * 真空計が 2×10^{-2} Torr（約 2.6 Pa）以下であることを確認
- * チャコールトラップと予備トラップのヒータをOFFにし取り外す
- * チャコールトラップの1および2段目にしゃへい容器をセット
- * コールドトラップ、チャコールトラップ、予備トラップをエチルアルコールとドライアイスにて冷却

- * キャリアガスにて試験装置全系を約710 Torr (約 9.5×10^4 Torr) までリーク
- * 上記圧力を保持しながらキャリアガスを 0.1ℓ/min の流量で流す
- * 炉内管に加熱炉をセット
- * 加熱炉をONにし 1℃/sec の速度で昇温
- * 200℃で10分間保持後試験温度まで昇温し60分間保持
- * 試料を加熱中は、常にGMサーベイメータ等にてFPの放出および捕集終了を確認

4. 試験装置の分解とFP量の測定

- * 試験温度にて60分間保持後加熱炉を200℃まで降温
- * 接続管のヒータと固体FP捕集系の恒温槽をOFF
- * 上記ヒータと恒温槽が50℃以下になるまで加熱炉を200℃に保持
- * 加熱炉をOFFにし炉内管より外す
- * 接続管のヒータと固体FP捕集系の恒温槽が50℃以下になった後、キャリアガスにてセル内装置全系を常圧に復起
- * セル内の試料加熱系および固体FP捕集系等を分解
- * 試料皿および試料を取出し保管容器内に保管
- * フィルターすべてをMCAにて測定
- * 炉内管、試料ホルダー、沈着管、接続管等をすべて6Nの水酸化ナトリウム溶液で洗浄
- * 上記洗浄液を0.1～0.5 ml分取し1,000～20,000倍に希釈後100mlをMCAにて測定
- * セル外の希ガスFP捕集系のみ約50Torr (約 6.7×10^3 Pa) まで真空排気
- * コールドトラップ、チャコールトラップ、予備トラップの各コックをOFFにした後、しゃへい容器、エチルアルコールとドライアイスを取外し室温に復起
- * 各トラップを取外しGMサーベイメータ等で表面線量当量率を測定後、保管容器に保管し後日MCAにて測定

5. 試験の繰返し

各試料の各試験温度ごとに上記手順2.4.2 から 2.4.4を繰返し、各試験ごとの放出FP量を測定

6. 測定値の補正とまとめ

測定値は、すべて照射終了後31日の値に補正し、各試料内に生成したFP量(第3表)に対する割合(放出率)としてまとめる。

7. 試験終了後の試料の外観検査

すべての加熱試験が終了後、各試料の外観検査および写真撮影を行う。