

JAERI - M
91-202

PWR型高燃焼度燃料棒に関するFPガス
放出率の非破壊測定に関する研究

1991年11月

柳澤 和章・宮西 秀至・喜多川 勇
飯田 省三・伊藤 忠春・天野 英俊

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, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

PWR型高燃焼度燃料棒に関するFPガス放出率
の非破壊測定に関する研究

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

柳澤 和章・宮西 秀至⁺・喜多川 勇⁺・飯田 省三⁺

伊藤 忠春⁺・天野 英俊⁺

(1991年10月23日受理)

PWR型燃料棒のガスプレナム部に蓄積された⁸⁵Kr (半減期10.76y)のガンマ線放射能強度を測定することにより、非破壊的に、Xe+Kr FPガスの放出率(FGR)を推定する方法を実験的に研究した。

実験結果によれば、Xe+Krの放出率FGR(%)は、⁸⁵Krに関する測定γ線放射能強度をC (counts/h)、燃料棒プレナム容積をV_r (ml)とすれば、

$$FGR (\%) = 0.28 C / V_r \quad (\text{counts/h} \cdot \text{ml})$$

$$\text{又は } FGR (\%) = 0.07 C \quad (\text{counts/h})$$

で与えられる。

本実験は、NSRRでパルス照射した燃焼度42MWd/kgUまでのPWR型短尺燃料棒を用いて行ったものであり、その過渡変化による放出率は0.6%から12%までであった。また、⁸⁵Krを用いたFGRの推定精度は、±30%以内である。

Study of Development of Non-destructive Method for Determining FGR
from High Burned PWR Type Fuel Rod

Kazuaki YANAGISAWA, Hideyuki MIYANISHI⁺, Isamu KITAGAWA⁺
Shozo IIDA⁺, Tadaharu ITO⁺ and Hidetoshi AMANO⁺

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 23, 1991)

Experimental study was made to evaluate the FGR (Fission Product Gas Release) from high burned PWR type fuel rods by means of non-destructive method through measurement of the gamma activity of ⁸⁵Kr isotope which was accumulated in the fuel top plenum. Experimental result shows that it is possible to know the amounts of FGR at fuel plenum by the equations given in the followings.

$$\text{FGR} = 0.28C/V_f$$

or

$$\text{FGR} = 0.07C$$

where, FGR (%) is the amounts of Xe and Kr released from UO₂ fuel, C (counts/h) the radioactivity of ⁸⁵Kr at plenum of the tested fuel rod and V_f (ml) the plenum volume of the tested fuel rod, respectively.

The present study was made by using 14×14 PWR type fuel rods pre-irradiated up to the burn-up of 42.1 MWd/kgU, followed by the pulse irradiation at Nuclear Safety Research Reactor of Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). The FGR of the tested segmented fuel rods were measured by puncturing and found to range from 0.6% to 12% according to the magnitude of the deposited energy given by pulse.

Estimated experimental error bands against the above equations were within plus minus 30%.

Keywords: ⁸⁵Kr, FGR, High Burn-up, PWR Fuel Rod, Fuel Plenum

⁺ Department of Hot Laboratories

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	3
2.1 予備照射済燃料棒のガスパンクチュアリング	3
2.2 セグメント燃料棒の作製	5
2.3 NSRRパルス照射	5
2.4 ^{85}Kr の放射能強度の測定	7
3. 実験結果及び考察	9
3.1 ^{85}Kr 放射能強度	9
3.2 ^{85}Kr によるFGR 評価式	10
3.3 FGR メカニズム	10
3.4 燃料棒内圧とFGR	11
4. 結 言	11
謝 辞	13
参考文献	13

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method	3
2.1 Gas Puncturing of the Pre-irradiated Fuel Rod	3
2.2 Fabrication of the Segmented Fuel Rod	5
2.3 Pulse Irradiation	5
2.4 Radioactivity Measurement of ^{85}Kr	7
3. Results and Discussion	9
3.1 Radioactivity of ^{85}Kr	9
3.2 Relationship between FGR and ^{85}Kr Radioactivity	10
3.3 FGR Mechanism	10
3.4 Relationship between Rod FGR and Internal Pressure	11
4. Conclusions	11
Acknowledgment	13
References	13

1. 緒 言

発電用軽水型原子炉（以下、軽水炉）で使用されている棒状燃料棒には、加圧型炉（PWR）用のものと沸騰水型炉（BWR）用のものがある。これら燃料棒の炉内使用時の健全性を考慮するうえで、最も重要なことの1つに核分裂生成物（Fission Products, 以下FP）の燃料棒内への封じ込めがある。このため、どの型の燃料棒についても、3.6~3.8mの有効発熱部分（低濃縮UO₂ペレットで構成される部分）の頂部に、空間（プレナム）部が設けられ、FPガスが燃料ペレットから放出されても、このプレナム部にて保持される様になっている。このプレナム部には、燃料ペレットの長手方向の移動を抑制するため、燃料棒製造時にステンレス製、又はインコネル製のばねが封入されている。プレナム長は通常約18cm程度であり、その容積は約15ml程度である。

炉内照射が終了すると、燃料棒のうち何本かはその健全性を確認するため、照射後試験（Post-Irradiation Examination, 以下PIE）に供試されることがある。このPIEでは、燃料プレナム中に保持されている放出FPガスの量や組成、そのガス圧力等を正確に秤量するため、これまでは、破壊的試験方法（Destructive Examination Method）—すなわち燃料棒のプレナム部を穿孔し、そこからFPガスを抜き出して、化学分析を行う方法がとられて来た。本報では、この方法を総称してガスパンクチュアリング（Gas Puncturing）という。このガスパンクチュアリングは、燃料棒内に保持されていたFPガスの量と組成、燃料棒の最終内圧や最終空隙量を測定するのに極めて便利であり、精度も良く、現在ではその技術が殆ど確立されているといえる。反対に、この方法を用いた場合のFPガス研究上の欠点として以下の2点が挙げられる。

第1点目は、破壊的方法であるためやり直しが利かないことである。商用炉で供使用された燃料棒に於ては、再使用を前提としていないので、この破壊的方法是有効である。が、一方、試験炉等で燃料棒を再び照射するといった再照射を前提とした様な実験では、この方法は有効的でない。

第2点目は、ホットセル内での作業を前提としている割には装置が大型化し、作業時間も1本の燃料棒につき平均2週間程度を要することである。特に、最近のように高燃焼度まで照射した燃料棒のガスパンクチュアリングでは、燃料ペレットのリロケーションやスウェリングまたはボンディングのため、ガスギャップが閉鎖に近い状態にあることが多く、燃料棒中の全ガスを測定系中に引き出すのに相当の時間を要することが知られつつある。

商用炉で使用した燃料の健全性試験の観点に立てば、第2番目の欠点は最近特に現場の作業者を悩ませつつある様であるが、燃料棒の健全性及び安全性研究に従事するものにとっての最大の悩みは、逆に、第1番目の点である。この悩みを解決すべく研究されて来たのが、非破壊的に、すなわち燃料プレナム部を穿孔せずに保持されているFPガスを秤量しようという試みである。

この非破壊的測定というのは、具体的にいうと、燃料プレナム中に存在している準安定核種の⁸⁵Kr（半減期 10.76年）の放射能強度をガンマ線スペクトル測定によって知ることである。多数本の燃料棒群に対し、1本1本そのKrによるプレナ

ムガンマ線強度測定を行っておく。続いてそのうちの1本だけ実際に手間のかかるガスパンクチュアリングを行って、存在するFPガス量、又はFPガス放出率（FP Gas Release Rate, 以下FGR）を求める。そうすれば、残りの燃料棒のFGRは、チューニング用に測定した燃料棒の ^{85}Kr 強度との相関から次々と推定できるという仕組みである。すなわち、

$$I(\text{FGR}) = \frac{I(^{85}\text{Kr})}{P(^{85}\text{Kr})} \cdot P(\text{FGR}) \quad \text{----- (1)}$$

となる。ここに $P(^{85}\text{Kr})$ は、チューニング用にガスパンクチュアリングを行った燃料棒に関する燃料棒プレナム部の ^{85}Kr 放射能強度（単位時間当りのカウント数、C/h）であり、 $I(^{85}\text{Kr})$ は非破壊的にFGRが知りたい燃料棒のプレナム部の ^{85}Kr 放射能強度（C/h）である。また、 $P(\text{FGR})$ は、ガスパンクチュアリングを実施した燃料棒から得られたFPガス量、又はFGR量（圧力でもよい）である。この式から標的とする燃料棒のFPガス放出量 $I(\text{FGR})$ が次々と求められることになる。

測定原理は極めて単純かつ簡単であるため、既に10年近く前から世界的にこの方面の研究がなされている。ここでその研究の概要を紹介すると共に、現在まで未解決の問題等についても触れてみる。

この ^{85}Kr による非破壊的FGRの推定は、過去に於ては主にBWR燃料を中心に推進されて来たといっても過言ではない。その理由は簡単である。すなわち、PWR燃料に比較するとBWRのHeガス加圧量は小さい（過去に於ては0.1MPaの大気圧置換が多く、最近でも0.6MPaまでの加圧量。この値はPWRの3.2MPaに比較すると約1/5である）。またPWRに比較して相対的ではあるが炉内使用中にFGRが燃焼度の進行と共に大きくなりやすい点も、BWR燃料に於てこの種の研究が進んだ大きな理由の1つである。FGRが大きければ、その中に含まれる ^{85}Kr 量も多く、より精度良くガンマ線スペクトル測定にて ^{85}Kr の放射能強度を検出する事ができる訳である。

一方、PWR燃料は照射末期、例えば40MWd/kgUであってもFGRが0.5%以下の事が多い。ここでいうFGRとは、例えば、燃料ペレット中に生成されたと推定されるKrとXeの総量2457m μ に対し、ガスパンクチュアリングにより燃料棒プレナム中に蓄積されたKrとXeの総量11.78m μ の比（ $11.78/2457 \times 100 \approx 0.5\%$ ）という意味で使用している。この程度のFGR値を持ったPWR型燃料棒に対してガンマ線スペクトル測定を行っても、 ^{85}Kr を精度良く秤量するのは相当難しい。

公開文献によれば、まずデンマークのリソ研究所が、BWR型の燃料棒に対し、 ^{85}Kr を用いたFGRの非破壊測定に成功したことが報告されている⁽¹⁻²⁾。供試燃料棒は、リソ研がノルウェーのハルデン炉（HBWR）を用いて長い間照射して来たBWR型長尺燃料である。この測定技術は、出力過渡時のFGR追加放出実験に応用されたものである。用いられたBWR型燃料棒の外径は14.00mm、被覆管内圧は0.5~0.6MPaであった。供試された燃料棒のプレナム容積当りの放出Xe+Kr量は5~21m μ /m μ であったとされている。

我が国のBWR型燃料棒（燃焼度は4~30MWd/kgU、FGRは0.05~21%の範囲）についても、 ^{85}Kr を用いて33本の燃料棒につき非破壊的にFGRの測定を行った旨の報告があるが⁽³⁾、データに関する詳細な記述はみられない。さらに我が国のFBR炉であ

る常陽燃料棒についても、 ^{85}Kr を用いた非破壊的内圧測定の例（約25データ）の報告が動燃事業団よりなされている⁽⁴⁾。ここでは、パンクチュアリングによる実測燃料棒内圧2000～8000Torr（STP状態：0.1MPaは760Torrに相当）に対して $\pm 20\%$ の範囲で、 ^{85}Kr による内圧の非破壊的測定に成功したと報告されている。

しかしながら、我が国のPWR型燃料棒に関するこの種の成果報告例はまだ見られていない。

さて、原研燃料安全工学部に於ては、商用炉で予備照射を行ったPWR型燃料棒（燃焼度約39～42MWd/kgU、有効発熱長約3.6m）を切断し、純ヘリウムを充填した再計装セグメント燃料棒（有効発熱長約0.12m、プレナム容積約1.5ml）を製作し、原子炉安全性研究炉（NSRR）にてパルス照射（再照射）を行う実験を1989年より実施中である。この過渡実験では数秒で燃料棒に高温の温度過渡が生じ、主として燃料割れメカニズムに基づくFPガス追加放出がおこることが、最近の研究から知られている。

著者らは、この様な過渡変化を受けたPWRセグメント燃料棒5本に関して、 ^{85}Kr に対する放射能強度測定を行ったのち、さらに同燃料棒をガスパンクチュアリングして、 ^{85}Kr による非破壊的なFGR推定が可能であるか否かの技術的検討を加える研究を行った。この様な事が必要となったのは、燃料に与えられた発熱量を知るのに化学分離の必要な半減期12.75dの ^{140}Ba を用いるからである。すなわち、できる限りすみやかに必要なPIEの非破壊及び破壊試験を終了して、燃料の切断に入らないと、 ^{140}Ba のベレット中の放射能強度が減衰し、発熱量評価が極めて精度の悪いものとなる。これを防ぐには、時間のかかるガスパンクチュアリングのかわりに、何らかの非破壊方法でFGRが求まれば、一番良い。

14×14PWR型燃料棒で42MWd/kgUまでベース（予備）照射されていること、予備照射中に放出されたガスを追い出し、純Heを再加圧したセグメント燃料棒であること、反応度事故（Reactivity Initiated Accident, 以下RIA）を模擬した極めて早い出力過渡を受けた燃料棒であること、等、これまでに全く報告されたことのない燃料棒に関する研究であるので、以下にその研究結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 予備照射済燃料棒のガスパンクチュアリング

実験に用いた予備照射済燃料棒（有効長約3.8m）は2種類ある。

第1番目のものは、美浜2号機にて4サイクル照射されたG08集合体（集合体平均燃焼度約32MWd/kgU）から取り出された燃料棒であり、この燃料棒はその名をK4燃料棒と称した。燃料棒平均燃焼度は39MWd/kgUであった。ここでいう予備照射というのは、パルス実験を行う側からみて総称した言葉であり、実際には商用炉で発電に供されている。予備照射時の冷却材の入口及び出口温度は289℃及び300℃であり、冷却材圧力の平均値は15.82MPaであった。燃料棒は14×14PWR型であり、 UO_2 燃料ベレットの初期濃縮度は2.6w/o²³⁵U、外径9.29mm（L/D=1.64）である。ま

る常陽燃料棒についても、 ^{85}Kr を用いた非破壊的内圧測定の例（約25データ）の報告が動燃事業団よりなされている⁽⁴⁾。ここでは、パンクチュアリングによる実測燃料棒内圧2000~8000Torr（STP状態：0.1MPaは760Torrに相当）に対して $\pm 20\%$ の範囲で、 ^{85}Kr による内圧の非破壊的測定に成功したと報告されている。

しかしながら、我が国のPWR型燃料棒に関するこの種の成果報告例はまだ見られていない。

さて、原研燃料安全工学部に於ては、商用炉で予備照射を行ったPWR型燃料棒（燃焼度約39~42MWd/kgU、有効発熱長約3.6m）を切断し、純ヘリウムを充填した再計装セグメント燃料棒（有効発熱長約0.12m、プレナム容積約1.5ml）を製作し、原子炉安全性研究炉（NSRR）にてパルス照射（再照射）を行う実験を1989年より実施中である。この過渡実験では数秒で燃料棒に高温の温度過渡が生じ、主として燃料割れメカニズムに基づくFPガス追加放出がおこることが、最近の研究から知られている。

著者らは、この様な過渡変化を受けたPWRセグメント燃料棒5本に関して、 ^{85}Kr に対する放射能強度測定を行ったのち、さらに同燃料棒をガスパンクチュアリングして、 ^{85}Kr による非破壊的なFGR推定が可能であるか否かの技術的検討を加える研究を行った。この様な事が必要となったのは、燃料に与えられた発熱量を知るのに化学分離の必要な半減期12.75dの ^{140}Ba を用いるからである。すなわち、できる限りすみやかに必要なPIEの非破壊及び破壊試験を終了して、燃料の切断に入らないと、 ^{140}Ba のペレット中の放射能強度が減衰し、発熱量評価が極めて精度の悪いものとなる。これを防ぐには、時間のかかるガスパンクチュアリングのかわりに、何らかの非破壊方法でFGRが求まれば、一番良い。

14×14PWR型燃料棒で42MWd/kgUまでベース（予備）照射されていること、予備照射中に放出されたガスを追い出し、純Heを再加圧したセグメント燃料棒であること、反応度事故（Reactivity Initiated Accident, 以下RIA）を模擬した極めて早い出力過渡を受けた燃料棒であること、等、これまでに全く報告されたことのない燃料棒に関する研究であるので、以下にその研究結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 予備照射済燃料棒のガスパンクチュアリング

実験に用いた予備照射済燃料棒（有効長約3.8m）は2種類ある。

第1番目のものは、美浜2号機にて4サイクル照射されたG08集合体（集合体平均燃焼度約32MWd/kgU）から取り出された燃料棒であり、この燃料棒はその名をK4燃料棒と称した。燃料棒平均燃焼度は39MWd/kgUであった。ここでいう予備照射というのは、パルス実験を行う側からみて総称した言葉であり、実際には商用炉で発電に供されている。予備照射時の冷却材の入口及び出口温度は289°C及び300°Cであり、冷却材圧力の平均値は15.82MPaであった。燃料棒は14×14PWR型であり、 UO_2 燃料ペレットの初期濃縮度は2.6w/o²³⁵U、外径9.29mm（L/D=1.64）である。ま

た、応力除去ジルカロイ-4被覆管の外径は10.72mm、内径9.48mm、直径ギャップは0.19mmであった。なお、初期充填加圧圧力は3.24MPa、有効発熱長3.6m、プレナム容積は12.6m³（計算値）であった。

第2番目のものは、玄海1号機にて3サイクル照射されたC33集合体（集合体平均燃焼度約36MWd/kgU）から取り出された燃料棒であり、この燃料棒はその名をF10燃料棒と称した。燃料棒平均燃焼度は42.1MWd/kgUであった。予備照射時の冷却材の入口及び出口温度は288°C及び323°Cであり、冷却材圧力の平均値は15.7MPaであった。燃料棒は14×14PWR型であり、UO₂燃焼ペレットの初期濃縮度は3.4% ²³⁵U、外径9.29mm（L/D=1.64）である。また、応力除去ジルカロイ-4被覆管の外径は10.72mm、内径9.48mm、直径ギャップは0.19mmであった。なお、初期充填加圧圧力は3.24MPa、有効発熱長3.6m、プレナム容積は12.6cm³（計算値）であった。

2本の燃料棒は商用炉から原研に移送されたのち、原研・東海ホット試験室にて外観、寸法等の測定がなされたのち、ガスパンクチュアリングに供された。その結果をTable 2.1に示す。この表から分かる様に予備照射済美浜燃料棒K4のXe+Krの生成量は約2.39ℓ、放出量は4.2mℓで、放出率（FGR）は約0.20%である。燃料棒内の最終ガス圧力は、4.66MPaとなっており、初期充填圧力3.24MPaに対して約1.4倍の値となっていた。燃料棒内の空隙量は寿命末期（End-of-life、以下EOL）で、約15mℓとなっており、寿命初期（Beginning-of-life、以下BOL）の燃料棒内空隙量12.6mℓと比較して増加していた（UO₂の焼きしまりが原因と思われる）。

予備照射済玄海燃料棒F10のXe+Krの生成量は約2.46ℓ、Xe+Kr放出量は11.8mℓで、放出率（FGR）は約0.48%である。燃料棒内の最終ガス圧力は4.34MPaとなっており、初期充填圧力3.24MPaに対して約1.3倍の値となっていた。燃料棒内の空隙量はEOLで約17mℓとなっており、BOLのそれである12.6mℓと比較して増加していた（これもUO₂の焼きしまりが原因と思われる）。

ガスパンクチュアリングから得られた放出FPガスに関する質量分析の結果によれば、殆どがHe等の希ガスである。このうち、Krは、K4燃料棒で全体の0.053%（0.36mℓ）、またF10燃料棒で全体の0.14%（0.99mℓ）となっていた。さらに、この中の⁸⁵Krの存在比は前者が4%（0.014mℓ）、後者が3.5%（0.035mℓ）となっていた。しかし、その放射能強度の測定を行ってみると、Fig.2.1に示すように、⁸⁵Krγ線強度はノイズレベルにあり、40MWd/kgU近くまで燃焼したPWR型燃料棒に対して⁸⁵Krを用いた非破壊的な測定は、現在のままでは依然として難しい状況にあることが分かる。

Bagger⁽²⁾は、長期照射した燃料に関するγ線スペクトル測定に於て、⁸⁵Krと同じエネルギー上にピークを持ってあらわれるのは、⁵⁸Ni(n,p)⁵⁸Coの様な核反応でプレナムスプリングから生成した⁵⁸Coと報告している。しかし、我々の測定結果によれば、⁸⁵Krのエネルギー位置にあらわれるのは、高次エネルギーのγ核種（正体は今のところ不明）からの消滅放射線（Annihilated radiation）であろうと推定されている。

商用炉燃料に関するガスパンクチュアリング終了後、NSRRでパルス照射を行い、それによって生じたFPガスの過渡的な追加放出量を測定する実験に供試するため、

上記2本の燃料棒は切断に供された。これ以後、切断前の長尺燃料棒（有効発熱長3.6m）とそこから切断されて新たに作製された短尺燃料棒（有効発熱長0.12m）を区別して記述する必要があるので、前者をOTFR（Original Test Fuel Rod）、また後者をSTFR（Segmented Test Fuel Rod）と称すことにした。

2.2 セグメント燃料棒の作製

燃料棒切断では、OTFRスペーサグリッド部での中性子吸収による効果を排除するため、この部分の燃料はセグメント燃料棒作製に際しては使わないこととした。また、燃焼度分布は1本のSTFR中でなるべく平坦なものとするため、制御棒等の影響を大きく受ける燃料頂部側及び燃料底部側の燃料についても、セグメント化する際に使わないこととした。この結果、Fig.2.2に概要を示すSTFRは、極めて燃焼度分布が長手方向に均一なSTFRとなった。図中、短尺化後の燃料棒の外径が細くなっている様に見えるが、実際は変わらない。この短尺化加工に際して、未照射ジルカロイ-4管を用いた燃料棒の上部プレナム部を新たに作製した。このプレナム部には、SUS304で作ったプレナムスプリングを封入した。また燃料棒下部にも未照射ジルカロイ-4管よりなる圧力センサーをとりつけ、燃料棒の内圧変化が測定できる様にした。

このSTFRに充填するガスは純ヘリウムガスとした。その理由は、2つある。1つは、Table 2.1から分かる様にOTFRから得た放出FPガスの成分が99.3%He+0.053%Kr+0.56%Xe（K4棒）又は96.9%He+0.14%Kr+1.52%Xe（F10棒）の様に、極めてKrとXeの量が少なかったこと、すなわち純ヘリウム加圧に近い状態であったことである。もう1つの理由は、パルス照射中にFPガスの追加放出があった場合、初期充填加圧ガスをHeとしておけば、追加放出されたXeやKrは、極めて簡単にしかも精度良く評価できると考えられたからである。

この様にして作製したSTFRに関する主要な製造特性をTable 2.2に示す。表から分かるようにOTFRに対して、有効発熱長が短くなったこと、短尺化に伴ってプレナム容積が小さくなったこと、OTFRのEOLにおける燃料棒内圧値に比較してHe充填ガス圧力値に多少のバラツキがあること、等を除けば、模擬性はほぼ満足されている。なお、切断は乾式にて実施し、燃料棒内に水分を持ち込む事を避けた。OTFRの短尺化は原研ホット試験室で行ったが、この短尺化技術に係る詳細については、別報⁽⁵⁾で報告済みである。

2.3 NSRRパルス照射

2.3.1 出力分布

前出 Table 2.2から分かる様に、燃焼度38.9MWd/kgUのK4燃料棒から4本の、そして燃焼度42.1MWd/kgUのF10燃料棒から1本の、合計5本のSTFRを作製し、実験に供した。これら燃料棒は、いずれも実験毎に1本ずつ、Fig.2.3に示す様な照射用

二重カプセル中に装荷され、NSRR炉心中にてパルス照射に供された。パルス照射は通称トランジェント棒と呼ばれている制御棒を急速に引き抜いてNSRRドライバー燃料（U-ZrH燃料）に発生する中性子を利用する仕組みで、これにより供試燃料棒に出力過渡が与えられる。

Fig.2.4は、MH-1実験に関するパルス照射前後の、燃料棒長手方向出力分布を示している。これより、比較的平坦な出力分布が燃料棒に与えられたことがよく分かる。すなわち、燃料端等で出力ピークの発生する様なことはなかった。また、この状態は全ての実験について同じであった。

2.3.2 発熱量評価

供試燃料棒に与えられたエネルギーを表すのに、NSRRでは、単位燃料重量当りに与えられた総エネルギー（cal）を用いて来ており、従来から慣行的に[cal/g·fuel]という単位が使われている。これは、断熱的に燃料棒に与えられるエンタルピーと考えられる。この単位は、過渡変化の様に、極めて出力変化が早い事象については、便利な単位である。

軽水炉燃料棒ふるまいの分野では、線出力密度（kW/m）や百分率出力密度（% power）が良く用いられるが、NSRR実験の様に主として反応度事故を模擬した実験を行う様なところでは、それらのエネルギー単位はなじまない。

この燃料棒に与えられた発熱量を求めるため、発熱量評価を行っている。従来NSRRでパルス照射に供されて来たのは未照射UO₂燃料であったため、核分裂による放射能はウランとその娘核種だけであった。従って、生成放射能の測定については便宜的に溶解分離したUO₂試料を用いて来たが、化学分析までは必要としなかった。

しかし、予備照射済燃料であるSTFRには、半減期の長いFPが照射終了後何年も残存する。従って、これら残存放射能の影響をなるべく受けずに、なおかつ、NSRRで新たに加わったパルス照射による放射エネルギーを精度良く評価できる核種が必要であった。このために選ばれたのは¹⁴⁰Baである。この¹⁴⁰Baは、通常行われている（U、Pu、Nd）による化学的な燃焼率評価スキームの途上に¹⁴⁰Baの537keVのγ線を測定し、その核分裂収率から単位燃料重量当りの核分裂数を得るものである。なお、ここでは1cal=1.48×10¹¹ fissionを用いた。

Table 2.3は、NSRRでパルス照射したSTFRに関する発熱量評価の結果である。実験に供試されたSTFRのうち、この発熱量評価が実際に行われたのはMH-2、MH-4、及びGK-1燃料棒である。MH-2は、MH-1とMH-3を代表するいわゆる単一パルス（Single pulse）を受けた燃料棒として発熱量を評価したものである。MH-4は、台形型（Trapezoid）のゆっくりとした過渡（Slow Transient）を模擬した実験であった為、発熱量評価に供したものである。また、GK-1は、MH型のSTFRの初期濃縮度が2.6w/o²³⁵Uだったのに対し、初期濃縮度が3.4w/o²³⁵Uとなっており、また予備照射中の燃焼度がMH棒と異なったため、燃焼度評価を行ったものである。

以後、STFRの燃料棒に関する燃焼度や発熱量に関しては、この表の値を参照に

して記述するものとする。

また、本実験供試燃料棒の発熱評価に関しては、鈴木らが詳細な報告を行っている⁽⁶⁾。

2.4 ^{85}Kr の放射能強度の測定

2.4.1 測定系

NSRRでのパルス照射終了後、ただちにSTFRは原研東海研究所内にあるホット試験室ホットラボ施設に移送された。続いて、Fig.2.5に示す様にプレナム長21mmの中間点においてガンマ線スペクトル測定を行った。測定系は、Fig.2.6に示す様にSTFR、鉛コリメータと遮蔽体及びゲルマニウム(Ge)検出器より構成されている。コリメータの窓は矩形であり、0.3mm×23mmとなっている。また、STFRとコリメータ間の距離 ℓ は、MH-1で713mm、それ以外は798mmであった。短尺燃料棒HM-1だけは、他の測定系よりも燃料棒に近づき過ぎていた為、 ^{85}Kr 放射能強度の相互比較を行う場合、補正を行う必要が生じた。

定点ガンマ線スペクトル測定の測定条件等は、Table 2.4にまとめた。この表から分かる様に、1回の測定に於て、 $14 \times 10^4 \text{sec} \sim 60 \times 10^4 \text{sec}$ の時間をかけている。また測定条件はほぼ同一条件となる様に努めた。

2.4.2 ^{85}Kr の放射能強度

NSRRパルス照射によって放出された ^{85}Kr が、パルス照射後 t (h)において、定点スペクトル測定にかけられたとすれば、その放射能強度は

$$\begin{aligned} N &= N_0 \cdot \exp(-\lambda t) \\ &= N_0 \cdot \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right) \quad \text{----- (2)} \end{aligned}$$

で表わされる。ここに N_0 及び N はパルス照射時及びパルス照射後時間 t における ^{85}Kr の放射能強度 [counts]、 $T_{1/2}$ は ^{85}Kr の半減期で10.76年(94258h)である。

この(2)式から、逆にパルス照射時の ^{85}Kr 放射能強度は

$$N_0 = N \cdot \exp\left(\frac{7.3522}{10^6} t\right) \quad \text{----- (3)}$$

として求められる。

さて、この(3)式における N を正確に求めることが重要であるが、ここに1つ難しい問題がある。というのは、Fig.2.7にその例を示す様に、定点ガンマ線スペクトル測定を行ってみると、 ^{85}Kr の γ 線エネルギー領域約514keVのすぐ近傍510~512keVの範囲に高次エネルギー領域から来る消滅放射線のピーク(Annihilated radiation peaking)が必ず発生し、それが ^{85}Kr のエネルギー領域と重畳するからである。従って、真の N を求めるためには、この消滅放射線のエネルギー及びバックグラウンドからの γ 線エネルギー寄与分を ^{85}Kr のエネルギー領域から排除することが必要

である。これには図に示す様に、 ^{85}Kr のエネルギーの真の面積を外挿し、それらを正確に求めるプログラムを測定系中に組んで評価を行った。

このNが求められると、定点ガンマ線スペクトル測定時間 t_p を用いて

$$C = \frac{N}{t_p}$$

$$= \frac{N_0}{t_p} \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t\right) \quad \text{----- (4)}$$

より計数率C (counts/h) が求められる。

この計数率Cは、プレナム容積の大きさにも影響されると思われたので、ガスパンクチュアリングから、プレナム容積Vfが判明した場合には、プレナム容積当りの計数率

$$C/V_f = \frac{N_0}{t_p \cdot V_f} \cdot \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t\right) \quad \text{----- (5)}$$

を用いて評価を行ってみることとした。

MH-1実験で使用したSTFRでは、プレナム部とGe検出器のスリットとの距離が、他のものは $\varnothing b=798\text{mm}$ (横断面: $\frac{\pi}{4} (76)^2 \text{mm}^2$)であったのに対し、 $\varnothing a=713\text{mm}$

(横断面: $\frac{\pi}{4} (66)^2 \text{mm}^2$)で測定していた。このため、C/Vfの値のかわりにそ

の位置で断面積の比 $\left(\frac{66}{76}\right)^2$ を補正し、 $\left(\frac{66}{76}\right)^2 C/V_f$ の値をMH-1 STFRについては使用した。

2.4.3 FPガス放出率

STFRに関するXe+Krの生成量B(mg)に関しては、それらの核分裂収率 η (mg/MWd)を用いて

$$B = \eta \cdot \text{Burn-up} \cdot W_f \cdot \xi \quad \text{----- (6)}$$

にて評価した。

ここにBurn-upは、用いたK4またはF10の平均燃焼度 (MWd/kgU)であり、WfはOTFRの有効発熱量に相当する燃料重量 (kgU)、 ξ は短尺化率 (OTFRの有効発熱長に対するSTFRの有効発熱長の比)である。

放出量は、ホット試験室ホットラボのガスパンクチュアリングより得たKr放出量とXe放出量の和の値R (mg of Xe+Kr)をそのまま用いた。このとき、STFRのFPガス放出率FGR (%)は、

$$FGR = \frac{R}{B} \quad \text{----- (7)}$$

により評価される。

^{85}Kr を用いた非破壊的なFGR測定データについては、(5)式で評価されるC/Vf値と(7)式で評価されるFGR値の相関がうまく出ることが最大の関心事である。後者の場合、Xe+Krの放出量総和でFGRを決めているので、精度上一番望ましいのは ^{85}Kr の存在比(アバundance:Abundance)が他の同位体と比較して常に一定にあることである。Table 2.5は、この観点に立ってガスパンクチュアリングされたKrの同位体の存在比(容積%)を比較したものである。パルス後の放置時間はほぼ同じであるので、本来なら同一アバundanceで存在するべきKr同位体は、実際には少しずつ、その存在比が異なっている。このデータから読み取れる ^{85}Kr に関する測定精度は26.7%である。量的に多く存在する同位体は測定精度が高くなっている(^{85}Kr の誤差は、例えば2.0%また ^{84}Kr の誤差は2.5%)。しかし元来Krの放出量が全ガス量に対して<1%と少なく(本実験では最大でも約1ml)、しかもそのうちで ^{85}Kr 同位体は2~4vol%程度しか存在していない事を考慮すれば、この程度の測定誤差となるのはやむを得ないのかも知れない。当然の事ながら、BWR燃料のようにFGR値が大きくなればその誤差も少なくなると思われる。ちなみに、XeはKrの約10倍程度量が多く放出されるため、同表から分かる様に、その中でも存在比の小さい ^{131}Xe が誤差が最も大きく11.9%となっている。従って、Kr+Xeの放出量で放出率FGRを評価した本実験の場合、FGR値は最大で26.7%の誤差があると考えられる。この誤差を考慮して、ガスパンクチュアリングから得たKr+XeのFGR及び ^{85}Kr から推定されたFGRデータの最大測定誤差は±30%とした。3章では、この誤差を考慮したデータプロットを行っている。

3. 実験結果及び考察

3.1 ^{85}Kr 放射能強度

NSRRでパルス照射したSTFRを用い、そのプレナム部に関して行った ^{85}Kr 放射能強度測定データをFig.3.1~Fig.3.5に示す。これらは順にMH-1、MH-2、MH-3、MH-4、及びGK-1に関するものである。各図から分かる様に、 ^{85}Kr のピークは約514keVのエネルギー位置に出現する。一方、消滅放射線によるエネルギーピークが510~512keV付近に出現して、 ^{85}Kr のエネルギー分布と重畳する傾向にある。

前章で記述した評価手法に従って、これらの図から ^{85}Kr の放射能強度C(counts/h)及びプレナム容積当りの放射能強度C/Vf(counts/h·ml)に関する測定データをまとめたのが、Table 3.1である。この表中(9)は、MH-3に関する ^{85}Kr 放射能強度C=60.78(counts/h)と同燃料棒に関するガスパンクチュアリングから得たFGR=4.26±1.14(%)をチューニングデータとし、その他の燃料棒に関するFGRを推定している。

Table 3.2は、パルス照射したSTFRのうち、MH-2燃料棒を除く4本のSTFRを、破壊的にガスパンクチュアリングした結果から得られたデータである。表中(9)は、このガスパンクチュアリングから得られたFGR値であり、記述されている実験誤差は前章で説明した ^{85}Kr 存在比からの実験誤差±30%である。

^{85}Kr を用いた非破壊的なFGR測定データについては、(5)式で評価されるC/Vf値と(7)式で評価されるFGR値の相関がうまく出ることが最大の関心事である。後者の場合、Xe+Krの放出量総和でFGRを決めているので、精度上一番望ましいのは ^{85}Kr の存在比(アバundance:Abundance)が他の同位体と比較して常に一定にあることである。Table 2.5は、この観点に立ってガスパンクチュアリングされたKrの同位体の存在比(容積%)を比較したものである。パルス後の放置時間はほぼ同じであるので、本来なら同一アバundanceで存在するべきKr同位体は、実際には少しずつ、その存在比が異なっている。このデータから読み取れる ^{85}Kr に関する測定精度は26.7%である。量的に多く存在する同位体は測定精度が高くなっている(^{85}Kr の誤差は、例えば2.0%また ^{84}Kr の誤差は2.5%)。しかし元来Krの放出量が全ガス量に対して<1%と少なく(本実験では最大でも約1ml)、しかもそのうちで ^{85}Kr 同位体は2~4vol%程度しか存在していない事を考慮すれば、この程度の測定誤差となるのはやむを得ないのかも知れない。当然の事ながら、BWR燃料のようにFGR値が大きくなればその誤差も少なくなると思われる。ちなみに、XeはKrの約10倍程度量が多く放出されるため、同表から分かる様に、その中でも存在比の小さい ^{131}Xe が誤差が最も大きく11.9%となっている。従って、Kr+Xeの放出量で放出率FGRを評価した本実験の場合、FGR値は最大で26.7%の誤差があると考えられる。この誤差を考慮して、ガスパンクチュアリングから得たKr+XeのFGR及び ^{85}Kr から推定されたFGRデータの最大測定誤差は±30%とした。3章では、この誤差を考慮したデータプロットを行っている。

3. 実験結果及び考察

3.1 ^{85}Kr 放射能強度

NSRRでパルス照射したSTFRを用い、そのプレナム部に関して行った ^{85}Kr 放射能強度測定データをFig.3.1~Fig.3.5に示す。これらは順にMH-1、MH-2、MH-3、MH-4、及びGK-1に関するものである。各図から分かる様に、 ^{85}Kr のピークは約514keVのエネルギー位置に出現する。一方、消滅放射線によるエネルギーピークが510~512keV付近に出現して、 ^{85}Kr のエネルギー分布と重畳する傾向にある。

前章で記述した評価手法に従って、これらの図から ^{85}Kr の放射能強度C(counts/h)及びプレナム容積当りの放射能強度C/Vf(counts/h·ml)に関する測定データをまとめたのが、Table 3.1である。この表中(9)は、MH-3に関する ^{85}Kr 放射能強度C=60.78(counts/h)と同燃料棒に関するガスパンクチュアリングから得たFGR=4.26±1.14(%)をチューニングデータとし、その他の燃料棒に関するFGRを推定している。

Table 3.2は、パルス照射したSTFRのうち、MH-2燃料棒を除く4本のSTFRを、破壊的にガスパンクチュアリングした結果から得られたデータである。表中(9)は、このガスパンクチュアリングから得られたFGR値であり、記述されている実験誤差は前章で説明した ^{85}Kr 存在比からの実験誤差±30%である。

これら2つの表を用いて、以下、 ^{85}Kr を用いた過渡燃料棒のFGR評価式について考察する。

3.2 ^{85}Kr によるFGR評価式

Fig.3.6は、Table 3.1に示した様にMH-3によってチューニングされた ^{85}Kr の予測FGRと、Table 3.2から得られたPIEガスパンクチュアリング値を直接プロットしたものである。これより、 ^{85}Kr を用いた非破壊検査から得たFGR予測値は、±20%程度の誤差でガスパンクチュアリングから得たFGR値と一致する事が分かる。図中、GK-1に対する予測値がガスパンクチュアリング値よりも低目(-20%)になっているが、これは、燃料の製造履歴や照射履歴の異なる美浜K4燃料棒データと比較しているためかも知れない。また、このGK-1からのFGRは、他のものに比較してかなり大きいことから、FGRメカニズムが少し異なっているかも知れない。

Fig.3.7は、 ^{85}Kr の単位プレナム容積当りの放射能強度(C/V_f)の値と、ガスパンクチュアリングから得たFGR(%)を比較したものである。この図から分かるように、両変数の間には、比較的良い線形相関がみられる。これを式化すると、

$$\text{FGR}(\%) = 0.28 \left(\frac{C}{V_f} \right) \text{ (counts/h} \cdot \text{ml)} \quad \text{-----} \quad (8)$$

となる。ここにFGRはXe+Krの放出率(%）、 C は ^{85}Kr の非破壊試験から得られた計数率(counts/h)、 V_f はガスパンクチュアリングした燃料棒のプレナム容積である。

実験的には、プレナム容積 V_f の値が得られない場合が多いと思われる。このときのFGRと ^{85}Kr の計数率の関係はFig.3.8の様になる。すなわち、

$$\text{FGR}(\%) = 0.07C \text{ (counts/h)} \quad \text{-----} \quad (9)$$

図中には $(0.07 \pm 0.02)C$ としてFGR式が示されているが、±0.02はプロットしたデータの0.07に対する最大及び最小の変動幅であるので、評価式としては(9)式のように設定した。

3.3 FGRメカニズム

Fig.3.9は、STFRの発熱量と ^{85}Kr 放射能強度との関係を示したものである。この図から以下の様なことが分かる。

- (1) 発熱量の増加と共に、 ^{85}Kr 放射能強度は増加する傾向にあるが、MH型のSTFRとGK型のSTFRでは、後者の放射能強度は明らかに前者よりは大きい。前者(MH-1、-2、3)のFGR放出メカニズムは、金相試験によると燃料外周のマイクロヘアークラックの発生によるものと考えられている。これに対して後者はマイクロヘアークラックの発生の他に燃料リム部からのFGRがあったと思われる。
- (2) MH-4、STFRは発熱量は比較的大きいが ^{85}Kr の放射能強度は明らかに他のものより小さい。これは、このSTFRが他のものよりゆっくりした過渡を受けた為であり、昇温速度が明らかに遅かったことが理由であると考えられる。

Photograph 3.1は、GK-1、STFRの燃料棒輪切り横断面写真である。上記(1)で説明したように、パルス照射前には殆ど存在していなかった外周端のマイクロヘアークラックがパルス照射後に多数発生しているのが分かる。

3.4 燃料棒内圧とFGR

燃料棒内に放出されたFGRが±30%の誤差範囲内で推定可能であれば、燃料設計上の重要な因子である燃料棒の内圧も推定可能であろうか？この問題について考えるため、パンクチュアリングした燃料棒内圧とパンクチュアリングしたFPガス(Xe+Kr)の関係を実験データよりプロットしてみた。その結果がFig.3.10である。この図から以下のことが分かる。

すなわち、パルス後の燃料棒内圧は、パルス照射前の値よりも、いずれの実験に於ても低下している。この主たる原因は、燃料棒内のボイド容積の増加(容積1.5mlのものがパルス後は3.5~4.2mlに増加)であろう。

本来FPガス放出があれば、燃料棒の内圧は上昇すると考えるのが妥当なところであろうが、本実験条件下では、内圧の著しい上昇が生じる様なFPガスは放出されていないと考えられる。これは、例えば、パルス後のガスパンクチュアリングに於て、燃料棒から得られた全ガス容積に占めるFGRの容積割合を求めてみれば、明らかとなろう。最も大きいFGRが得られたGK-1、STFRに於ても、全ガス容積143mlに対して、Xe+Krガスの占める容積%は8.1%、その量は11.7mlである。すなわち、圧力上昇に対するFGRの寄与は、小さかった。

燃料棒の内圧変化に大きく影響するのは、むしろペレット-被覆管の機械的相互作用やふくれに基づく燃料棒の変形及びそれに影響を受けた燃料棒内部のボイド容積の増加であると考えられる。

これより、 ^{85}Kr を用いてプレナム内のFGRを測定するのに成功しても、燃料棒の内圧変化を ^{85}Kr データから推定するのは、本実験条件範囲内では、あまり適当とは言えないと思われる。この意味で、実験では燃料棒の内圧をon powerで測定することのできる圧力センサーが燃料棒下部に取り付けられている。

4. 結 言

PWR型商用炉で予備照射(~40MWd/kgU)した燃料棒を切断し、100%Heを再充填加圧した短尺燃料棒(STFR、有効発熱長約0.12m)を用いてパルス照射試験を行った。パルス後、STFRのプレナム長(約21mm)の中間点にて、パルス照射によって新たに放出された ^{85}Kr のガンマ線放射能強度を測定した。この ^{85}Kr のガンマ線放射能強度と、燃料棒内に放出されたFPガス(Xe+Kr)の放出率との相関を求める研究を行った。得られた結果は以下の通りである。

(1) 従来、FPガス放出率(FGR)が小さくて難しいとされてきたPWR燃料棒に対する、 ^{85}Kr を用いた非破壊的FGR評価方法が見い出された。本実験の様に、温度過渡によって燃料ペレットから放出されるXe+Krに対しても、単位プレナム容積当りの

Photograph 3.1は、GK-1、STFRの燃料棒輪切り横断面写真である。上記(1)で説明したように、パルス照射前には殆ど存在していなかった外周端のマイクロヘアークラックがパルス照射後に多数発生しているのが分かる。

3.4 燃料棒内圧とFGR

燃料棒内に放出されたFGRが±30%の誤差範囲内で推定可能であれば、燃料設計上の重要な因子である燃料棒の内圧も推定可能であろうか？この問題について考えるため、パンクチュアリングした燃料棒内圧とパンクチュアリングしたFPガス(Xe+Kr)の関係を実験データよりプロットしてみた。その結果がFig.3.10である。この図から以下のことが分かる。

すなわち、パルス後の燃料棒内圧は、パルス照射前の値よりも、いずれの実験に於ても低下している。この主たる原因は、燃料棒内のボイド容積の増加(容積1.5mlのものがパルス後は3.5~4.2mlに増加)であろう。

本来FPガス放出があれば、燃料棒の内圧は上昇すると考えるのが妥当なところであろうが、本実験条件下では、内圧の著しい上昇が生じる様なFPガスは放出されていないと考えられる。これは、例えば、パルス後のガスパンクチュアリングに於て、燃料棒から得られた全ガス容積に占めるFGRの容積割合を求めてみれば、明らかとなろう。最も大きいFGRが得られたGK-1、STFRに於ても、全ガス容積143mlに対して、Xe+Krガスの占める容積%は8.1%、その量は11.7mlである。すなわち、圧力上昇に対するFGRの寄与は、小さかった。

燃料棒の内圧変化に大きく影響するのは、むしろペレット-被覆管の機械的相互作用やふくれに基づく燃料棒の変形及びそれに影響を受けた燃料棒内部のボイド容積の増加であると考えられる。

これより、 ^{85}Kr を用いてプレナム内のFGRを測定するのに成功しても、燃料棒の内圧変化を ^{85}Kr データから推定するのは、本実験条件範囲内では、あまり適当とは言えないと思われる。この意味で、実験では燃料棒の内圧をon powerで測定することのできる圧力センサーが燃料棒下部に取り付けられている。

4. 結 言

PWR型商用炉で予備照射(~40MWd/kgU)した燃料棒を切断し、100%Heを再充填加圧した短尺燃料棒(STFR、有効発熱長約0.12m)を用いてパルス照射試験を行った。パルス後、STFRのプレナム長(約21mm)の中間点にて、パルス照射によって新たに放出された ^{85}Kr のガンマ線放射能強度を測定した。この ^{85}Kr のガンマ線放射能強度と、燃料棒内に放出されたFPガス(Xe+Kr)の放出率との相関を求める研究を行った。得られた結果は以下の通りである。

(1) 従来、FPガス放出率(FGR)が小さくて難しいとされてきたPWR燃料棒に対する、 ^{85}Kr を用いた非破壊的FGR評価方法が見い出された。本実験の様に、温度過渡によって燃料ペレットから放出されるXe+Krに対しても、単位プレナム容積当りの

^{85}Kr 放射能強度 (counts/h·m³) と燃料棒内に放出されたKr+XeのFGRとの間には、±30%の誤差範囲内で以下の評価式が成立することが判明した。

すなわち、Xe+Krの放出率をFGR(%)とし、 ^{85}Kr に関する燃料棒プレナム容積をV_f(m³)、放射能強度をC(counts/h)とすれば、評価式は、

$$\text{FGR}(\%) = 0.28 \cdot \frac{C}{V_f} \text{ (counts/h} \cdot \text{m}^3\text{)}$$

または、

$$\text{FGR}(\%) = 0.07C \text{ (counts/h)}$$

で与えられる。

謝 辞

^{86}Kr を用いた我が国の研究活動状況については、日本核燃料開発(株)の大内淳弘主幹研究員及び動燃事業団大洗工学センター燃料材料開発部の鶴飼重治副主任研究員に御助言を賜った。照射後試験については、原研ホット試験室伊丹宏治室長、実用燃料試験課山原武課長及びホットラボ課菊地輝男課長他の皆様に御協力を戴いた。論文内容については、原研東海燃料安全工学部反応度安全研究室室長の藤城俊夫氏に有益なコメントを戴いた。ここに御礼申し上げる。

参 考 文 献

- (1) Bagger, C., "Computer Based Recording and Handling of Non-destructive PIE data at Risø", British Nucl. Energy Society, London, England(1981)
- (2) Bagger, C., "Non-destructive Assessment of Fission Gases Released in Water Reactor Fuel Rods", Proc. IAEA Specialists' Mtg. on Examination of Fuel Assembly for Water Cooled Power Reactors, Tokyo, Japan, IWGFPT/22, p.292 (1981)
- (3) Ohuchi, A., Nomata, T., Koizumi, S., Aoki, T., : "Behavior of Gaseous and Volatile Fission Products in BWR Fuel Rods", IWGFPT/22, p.230 (1985)
- (4) Koizumi, A., Nishinoiri, K., Nagamine, T., Matsushima, H., "Technique of Test Rig Continuous Irradiation for Joyo(II)-Interim Examination", Annual Mtg. of the Atomic Energy Soc. Japan, Tokyo, G02 (1990)
- (5) 柳澤ら、"技術報告:PWR型燃料棒の短尺化"、JAERI-M 90-091(1990)
- (6) 鈴木ら、"照射済燃料のNSRRパルス実験-(VI) Ba-140の測定による発熱量評価"、日本原子力学会「1990秋の大会」予稿集, H17, p.457 (1990)

謝 辞

^{86}Kr を用いた我が国の研究活動状況については、日本核燃料開発(株)の大内淳弘主幹研究員及び動燃事業団大洗工学センター燃料材料開発部の鶴飼重治副主任研究員に御助言を賜った。照射後試験については、原研ホット試験室伊丹宏治室長、実用燃料試験課山原武課長及びホットラボ課菊地輝男課長他の皆様に御協力を戴いた。論文内容については、原研東海燃料安全工学部反応度安全研究室室長の藤城俊夫氏に有益なコメントを戴いた。ここに御礼申し上げる。

参 考 文 献

- (1) Bagger, C., "Computer Based Recording and Handling of Non-destructive PIE data at Risø", British Nucl. Energy Society, London, England(1981)
- (2) Bagger, C., "Non-destructive Assessment of Fission Gases Released in Water Reactor Fuel Rods", Proc. IAEA Specialists' Mtg. on Examination of Fuel Assembly for Water Cooled Power Reactors, Tokyo, Japan, IWGFPT/22, p.292 (1981)
- (3) Ohuchi, A., Nomata, T., Koizumi, S., Aoki, T., : "Behavior of Gaseous and Volatile Fission Products in BWR Fuel Rods", IWGFPT/22, p.230 (1985)
- (4) Koizumi, A., Nishinoiri, K., Nagamine, T., Matsushima, H., "Technique of Test Rig Continuous Irradiation for Joyo(II)-Interim Examination", Annual Mtg. of the Atomic Energy Soc. Japan, Tokyo, G02 (1990)
- (5) 柳澤ら、"技術報告:PWR型燃料棒の短尺化"、JAERI-M 90-091(1990)
- (6) 鈴木ら、"照射済燃料のNSRRパルス実験-(VI) Ba-140の測定による発熱量評価"、日本原子力学会「1990秋の大会」予稿集, H17, p.457 (1990)

Table 2.1 Result of gas puncturing performed on pre-irradiated K4 (Mihama) and F10 (Genkai) original test fuel rod

Reactor	Mihama	Genkai
Rod type	14×14 PWR	14×14 PWR
Fuel rod	K4	F10
Loading date	April 23, 1978	Feb., 1975
Unloading date	Aug., 20, 1983	Feb., 1979
Rod Burn-up (MWd/kgU)	38.9	42.1
Gas puncturing date	May 17, 1989	May 23, 1989
Rod Burn-up (MWd/kgU)	38.9	42.1
LHGR (kW/m)	18	20
Total gas generated (mℓ)	2388	2457
Released amounts of Kr+Xe (mℓ)	4.2	11.8
FGR (%)	0.20	0.48
Composition of punctured gas (vol %)		
H ₂	<0.1	<0.1
He	99.3	96.9
N ₂	<0.1	<0.1
O ₂	<0.1	<0.1
Ar	0.44	1.52
Kr	0.053	0.14
Xe	0.56	1.52
Isotope of released Kr and Xe (vol %)		
⁸³ Kr	11.0	11.1
⁸⁴ Kr	32.0	32.6
⁸⁶ Kr	4.0	3.5
⁸⁶ Kr	53.0	52.8
¹³¹ Xe	7.9	6.9
¹³² Xe	21.1	21.8
¹³⁴ Xe	27.6	28.6
¹³⁶ Xe	43.5	42.7
Initial void volume (mℓ)	12.6	12.6
Void volume at end-of-life (mℓ)	15.0	16.9
Active fuel column length (m)	3.6	3.6
Initial pressurization (MPa)	3.24 He+Ar	3.24 He+Ar
Rod pressure at end-of-life (MPa, STP)	4.66	4.34

Table 2.2 Characteristics of STFR provided for NSRR pulse irradiation

OTFR	K4				F10
STFR	MH-1	MH-2	MH-3	MH-4	GK-1
Attained burn-up (MWd/kgU)	38.9	38.9	38.9	38.9	42.1
Active column length (m)	0.122	0.121	0.122	0.123	0.121
Fill gas pressure at 0°C (MPa)	4.23	4.23	4.63	3.47	3.93
Plenum volume (m ³)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
Average grain size (μm)	6.4	6.4	6.4	6.4	7.5
Density (Mg/m ³)	10.41				
Pellet O.D. (mm)	9.29				
Pellet length (mm)	15.2				
Cladding condition	Zircaloy-4, Stress relieved				
Cladding O.D. (mm)	10.72				
Wall thickness (mm)	0.62				

Table 2.3 Result of burn-up analysis

OTFR	K4 ⁽¹⁾				F10 ⁽²⁾
	MH-1	MH-2	MH-3	MH-4	
STFR					GK-1
Pulse mode	Single	Single	Single	Trapezoid	Single
Pulsing date	28. Nov., 1989	8. March, 1990	31. Oct., 1990	23. Jan., 1991	12. March, 1991
Inserted dollars (\$)	3.50	3.85	4.45	— ⁽⁴⁾	4.48
Integrated reactor power (MWs)	68.8	78.4	95.0	78.0	97.9
Deposited energy (cal/g·fuel)	60±3 ⁽³⁾	68±3	83±4 ⁽³⁾	105±19	112±6
Energy conversion ratio (cal/g·fuel per MWs)	0.87	0.87	0.87	0.74	1.14
Burn-up					
% FIMA			4.056		4.391
MWD/kgU			38.9		42.1

Note : (1) Initial enrichment was 2.6w/o ²³⁵U

(2) Initial enrichment was 3.4w/o ²³⁵U

(3) Estimated from burn-up analysis on MH-2 fuel

(4) Reactor power was planned to increase from 0 MW to 9 MW per 10 seconds. Resultant integrated power was 78MWs

Table 2.4 System used for measurement of ^{85}Kr gamma activity from pulse irradiated STFR rod

STFR	MH-1	MH-2	MH-3	MH-4	GK-1
Deposited energy (cal/g·fuel)	60	68	83	105	112
Detector	Ge Semiconductor, ORTEC Model No. GEM-25185-P				
Bias supply	2000 Volts				
Amplifier	20	50	50	50	50
Coarse gain (dB)	0.792	0.792	0.792	0.792	0.792
Fine gain (dB)	3	3	3	3	3
Shaping time (μs)					
Multi-wave spectrometry	CANNERRA Series-40, 4096 ch MCA				
Ratemeter	Range : 1×10^4 cps				
Collimator	0.3mm (slit) \times 23mm (height)				
Callibration source	Eu-152				
Distance from STFR (mm)	713	798	798	798	798
Date of measurement	Dec., 20, 1989 Apr., 9, 1989 Nov., 26, 1990 Feb., 26, 1989 Apr., 6, 1991				
Collect live time (s)	14×10^4	40×10^4	60×10^4	60×10^4	60×10^4

Table 2.5 Measured abundance of Kr and Xe isotopes

Nuclides	Natural Abundance	STFR punctured				Remarks	
		(1) MH-1	(2) MH-3	(3) MH-4	(4) GK-1	Average (1)~(4)	Accuracy (%)
⁷⁸ Kr	0.354		0.0				
⁸⁰ Kr	2.27		0.0				
⁸² Kr	11.56		0.0				
⁸³ Kr	11.55	9.2	10.71	10.52	10.87	10.325±0.76	7.4
⁸⁴ Kr	56.90	34.9	33.39	33.76	32.90	33.74±0.85	2.5
⁸⁵ Kr	-	2.4	4.22	4.48	3.22	3.58±0.96	26.7
⁸⁶ Kr	17.37	53.5	51.67	51.24	53.01	53.36±1.07	2.0
¹²⁴ Xe	0.096		0.0				
¹²⁶ Xe	0.090		0.0				
¹²⁸ Xe	1.92		0.0		0.05		
¹²⁹ Xe	26.9		0.0				
¹³⁰ Xe	4.1		0.22		0.16		
¹³¹ Xe	21.2	5.4	7.02	7.02	6.80	6.56±0.78	11.9
¹³² Xe	27.0	21.8	22.27	22.35	21.97	22.10±0.26	1.2
¹³⁴ Xe	10.4	27.5	27.42	27.50	28.35	27.69±0.43	1.6
¹³⁶ Xe	8.9	45.3	43.07	43.13	42.66	43.54±1.19	2.7
Amounts of total Kr in punctured gas (%)		0.16	0.20	0.04	0.73		
Kr/Xe ratio		10.5	10.05	7.5	10.19		
Measured Kr (μg)		0.26	0.31	0.059	1.04		

Table 3.1 Results of non-destructive FGR measurement made by ^{85}Kr activity of pulse irradiated STFRs

	STFR				
	MH-1	MH-2	MH-3	MH-4	GK-1
Burn-up (MWd/kg U)	38.9	38.9	38.9	38.9	42.1
Pulse mode	S(3)	S	S	T(4)	S
Deposited energy (cal/g-fuel)	60±3	68±3	83±4	105±19	112±6
Pulsing date	Nov.28, 1989	March.8, 1991	Oct.31, 1990	Jan.23, 1991	March.12, 1991
^{85}Kr activity measuring date	Dec.20, 1989	April.4, 1990	Nov.26, 1990	Feb.26, 1991	April.6, 1991
(1) Elapsed time t (h)	530.55	649.23	624.65	811.03	569.40
(2) Net area No (counts)	2992	6668	10083	2691	23069
(3) ^{85}Kr measurement tp(h)	38.89	111.11	166.67	166.67	166.67
(4) Count rate C (counts/h)	77.23	60.30	60.78	16.25	139.00
(5) Distance coefficient	0.754	1.0	1.0	1.0	1.0
(6) Modified count rate C (counts/h)	58.23	60.30	60.78	16.25	139.00
(7) Void volume Vf (ml)	4.22	3.89(1)	3.79	3.48	3.89
(8) ^{85}Kr activity, C/Vf (counts/h·ml)	13.80	15.50	16.04	4.67	35.73
(9) Estimated FGR(%) tuned by MH-3 rod	4.08±1.09	4.23±1.13	Used for tuning(2)	1.14±0.30	9.74±2.61

Note : (1) Estimated from other four data (MH-1, MH-3, MH-4, GK-1)

(2) Punctured FGR of MH-3 was 4.26±1.14% of Kr+Xe

(3) Single shape

(4) Trapezoid shape

Table 3.2 Result of gas puncturing performed on pulse irradiated STFRs

	STFR				
	MH-1	MH-2	MH-3	MH-4	GK-1
(1) Attained burn-up (MWd/kgU)	38.9	38.9	38.9	38.9	42.1
(2) Total gas released (ml)	159.85	— (1)	153.96	147.08	142.57
(3) Pressure (STP)(MPa)	4.19		4.06	4.22	3.66
(4) Void volume (ml)	4.22		3.79	3.48	3.89
(5) Total Kr amounts (ml)	0.26		0.31	0.059	1.04
(6) Total ⁸⁵ Kr amounts (ml)	0.00624		0.0131	0.00264	0.0335
(7) Total Xe amounts (ml)	2.69		3.09	0.441	10.61
(8) Birth of Kr+Xe (ml)	79.74		79.74	79.74	95.63
(9) Punctured FGR (%)	3.70 ± 0.99		4.26 ± 1.14	0.63 ± 0.17	12.18 ± 3.25

Note : (1) No gas puncturing

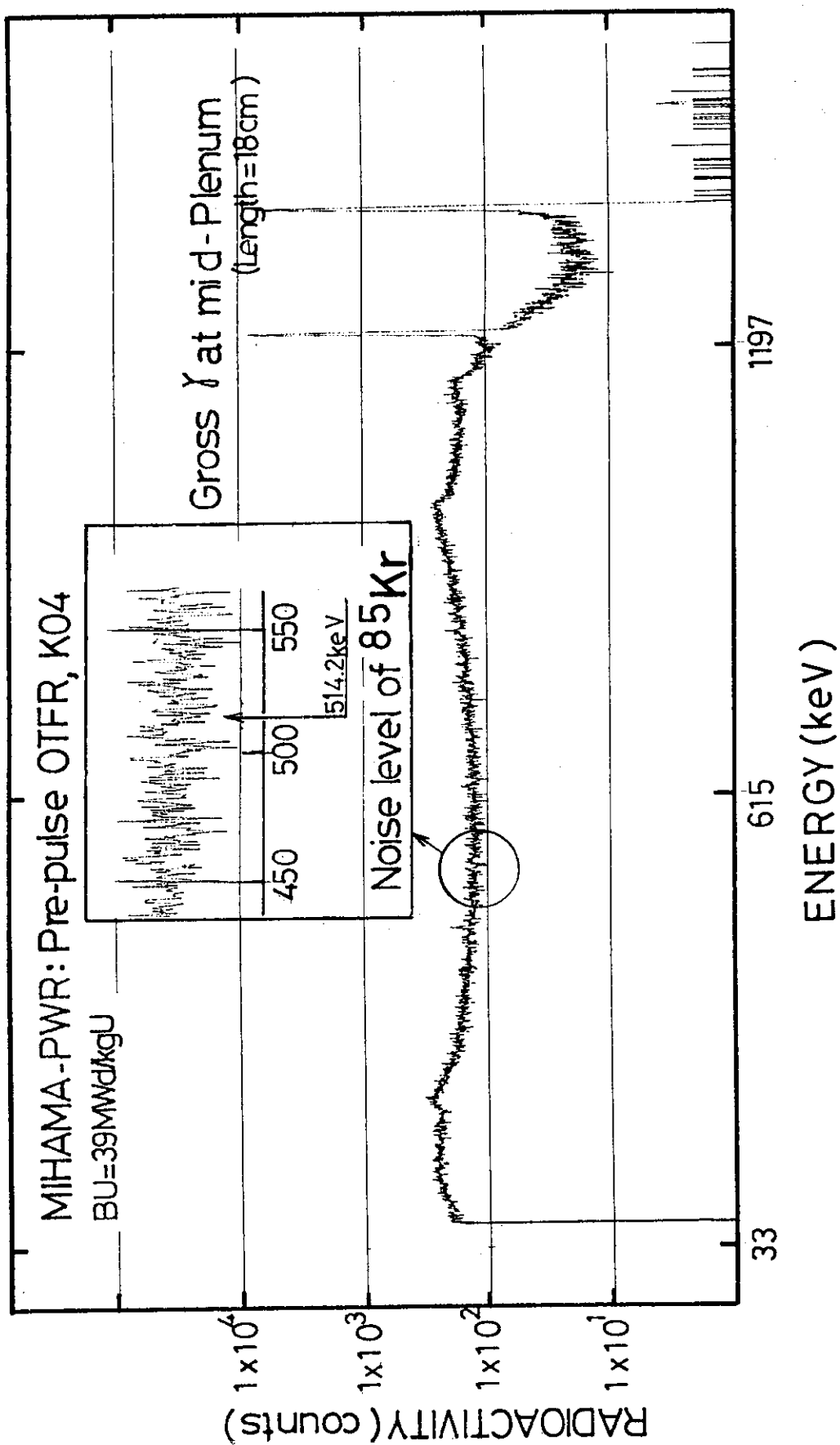


Fig. 2.1 γ -ray spectrometry measured by K4 fuel rod before gas puncturing

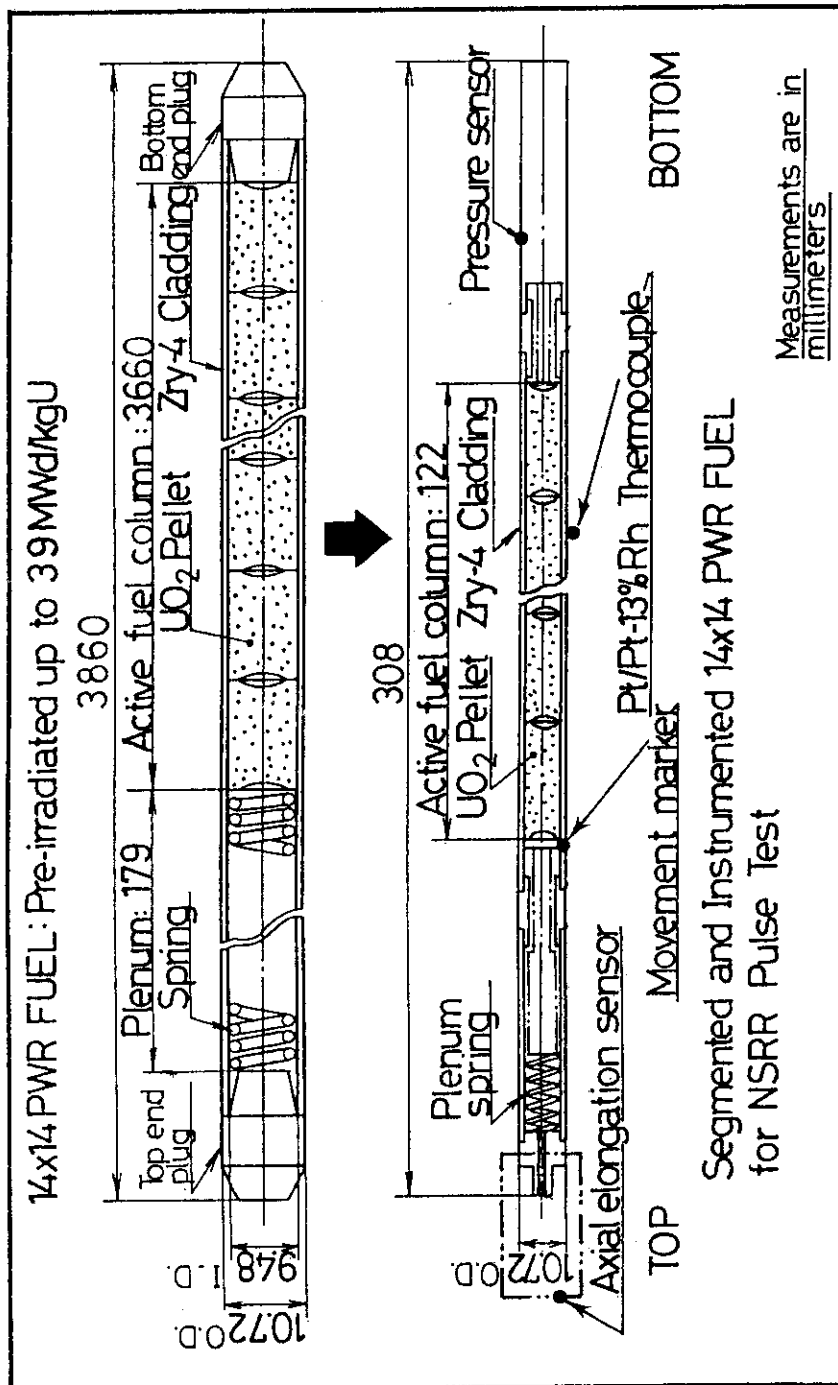


Fig. 2.2 Longitudinal section of the original test fuel rod OFR (top) and segmented test fuel rod SFR (bottom)

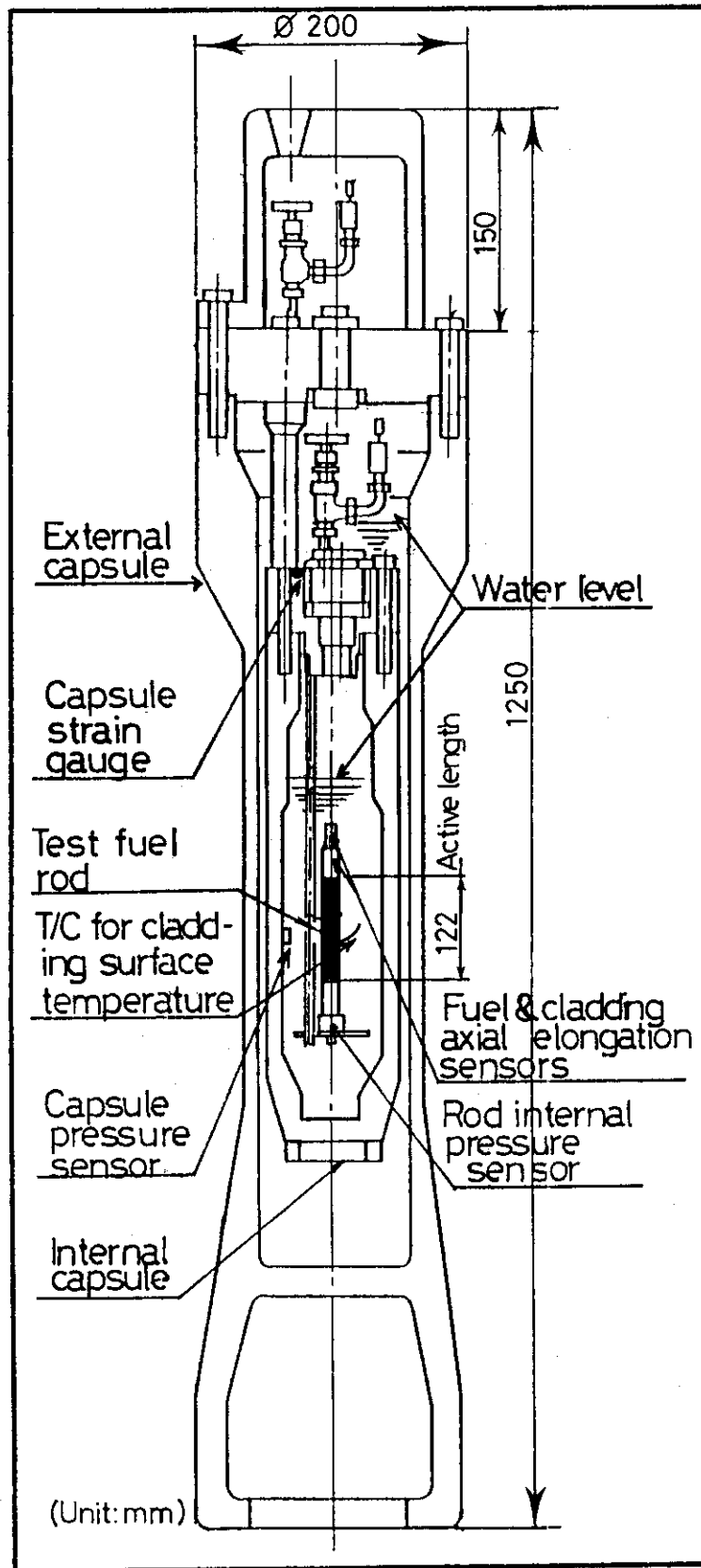


Fig. 2.3 Schematic representation of the double capsule used for NSRR pulse irradiation of pre-irradiated MH and GK STFR rods

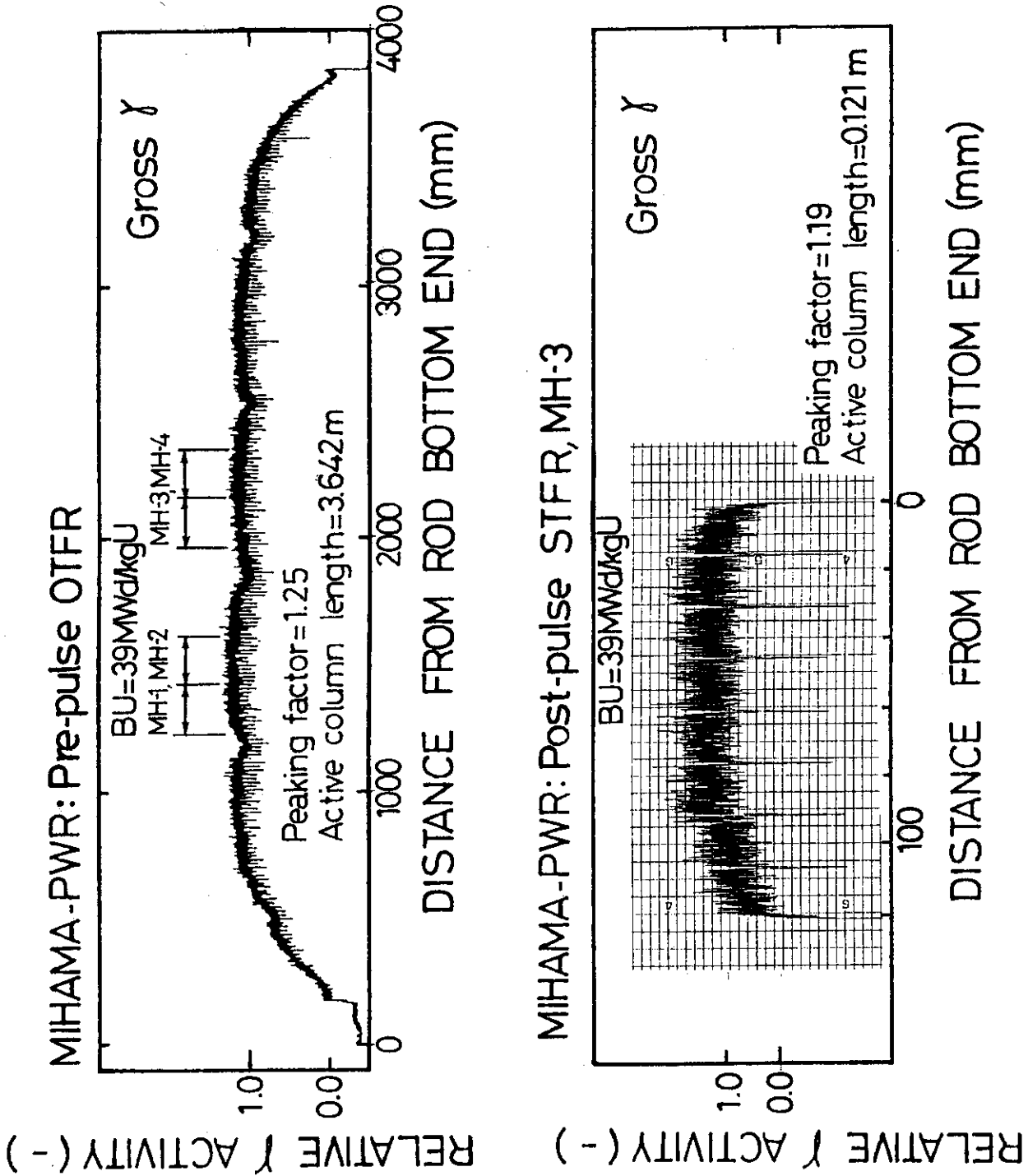


Fig. 2.4 Axial flux distribution of OTFR before NSRR pulse irradiation (top) and that of STFR after NSRR pulse irradiation (bottom)

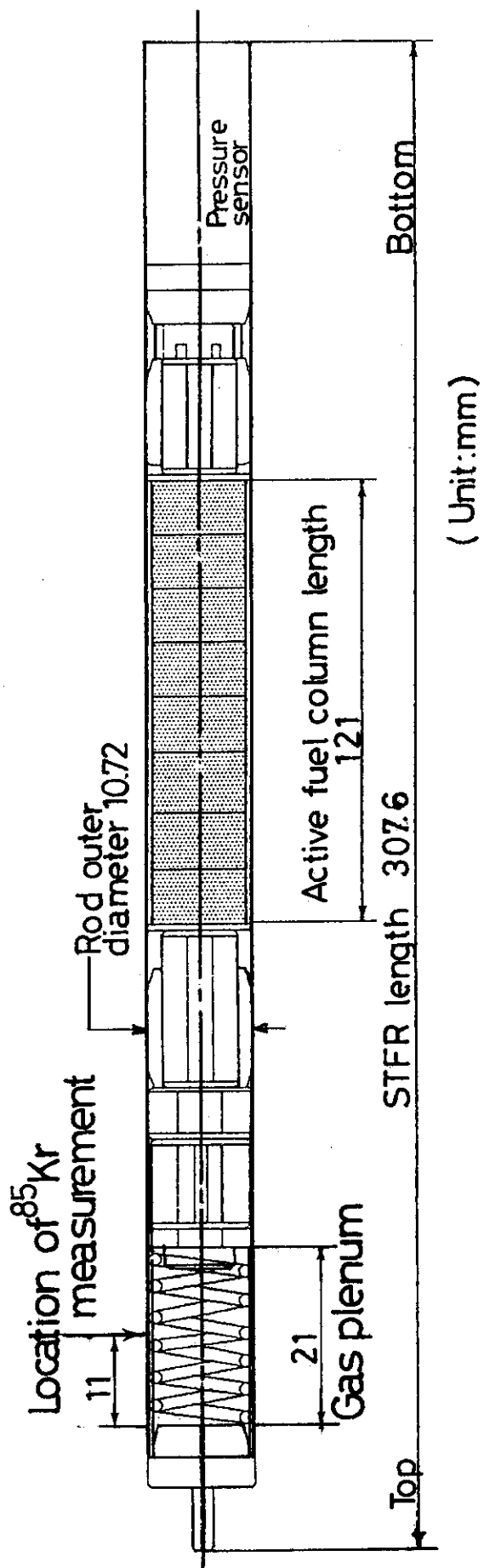


Fig. 2.5 Longitudinal section of pulse irradiated STFR provided for stationary gamma ray spector measurement at mid-plenum

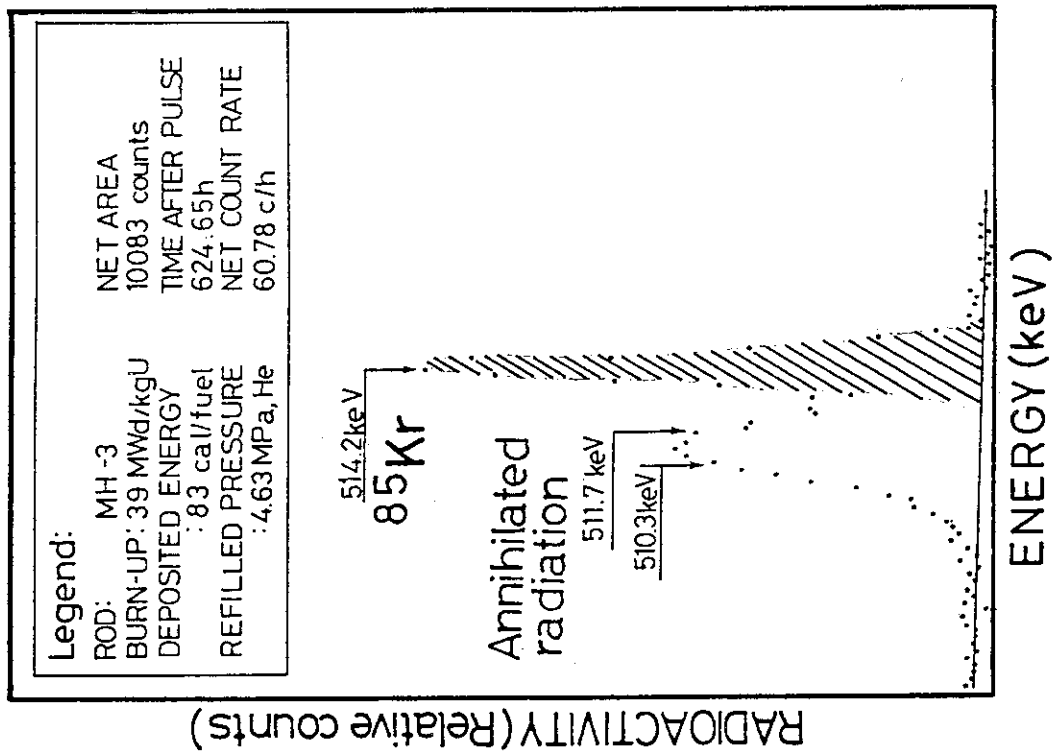


Fig. 2.7 Typical example of data obtained from plenum gamma activity measurement, in which annihilated X-ray peak at energy 510 ~ 512 keV was appeared in the vicinity of ^{85}Kr peak at energy 514 keV

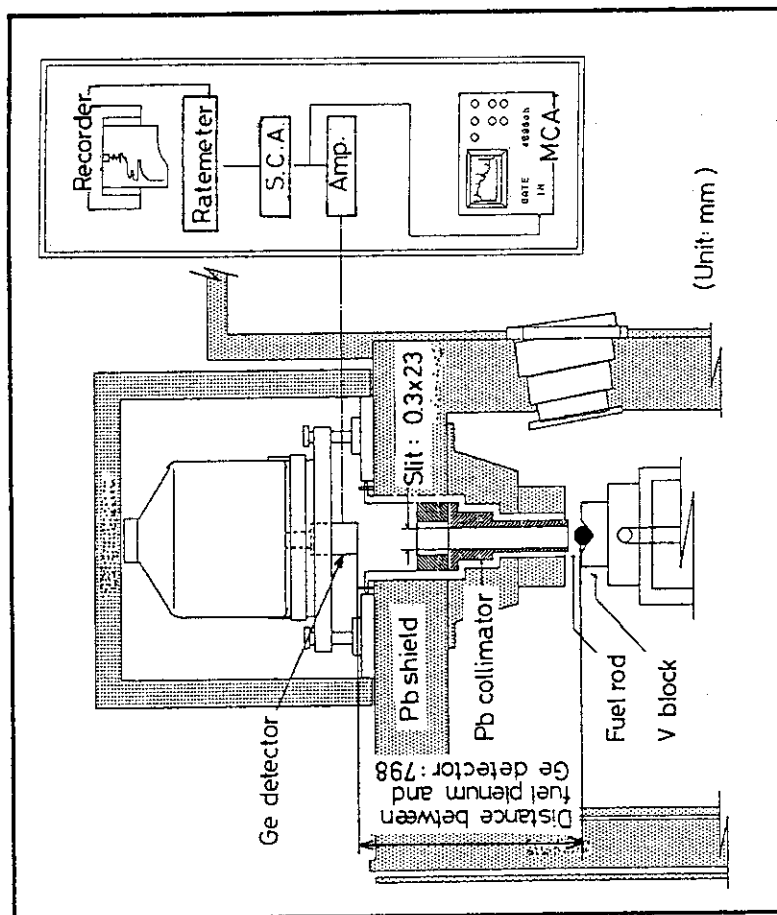


Fig. 2.6 System used for ^{85}Kr non-destructive radioactivity measurement

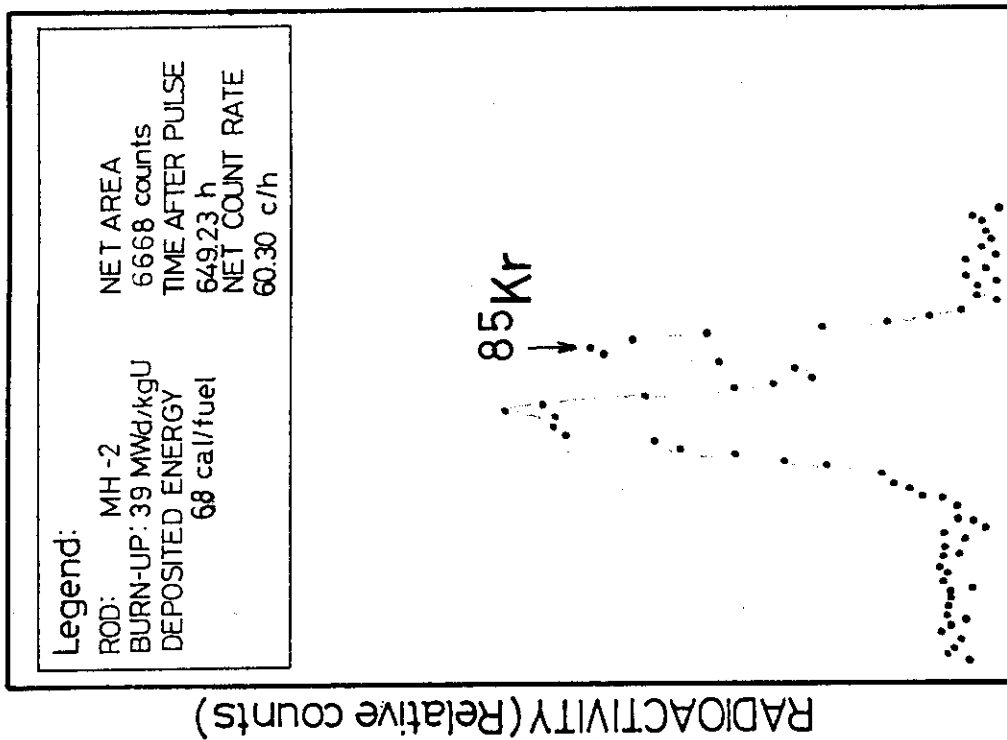


Fig. 3.1 Radioactivity of ⁸⁵Kr measured from pulse irradiated MH-1, STFR by 60 cal/g·fuel at burn-up of 38.9 MWd/kgU, where single pulse mode was used

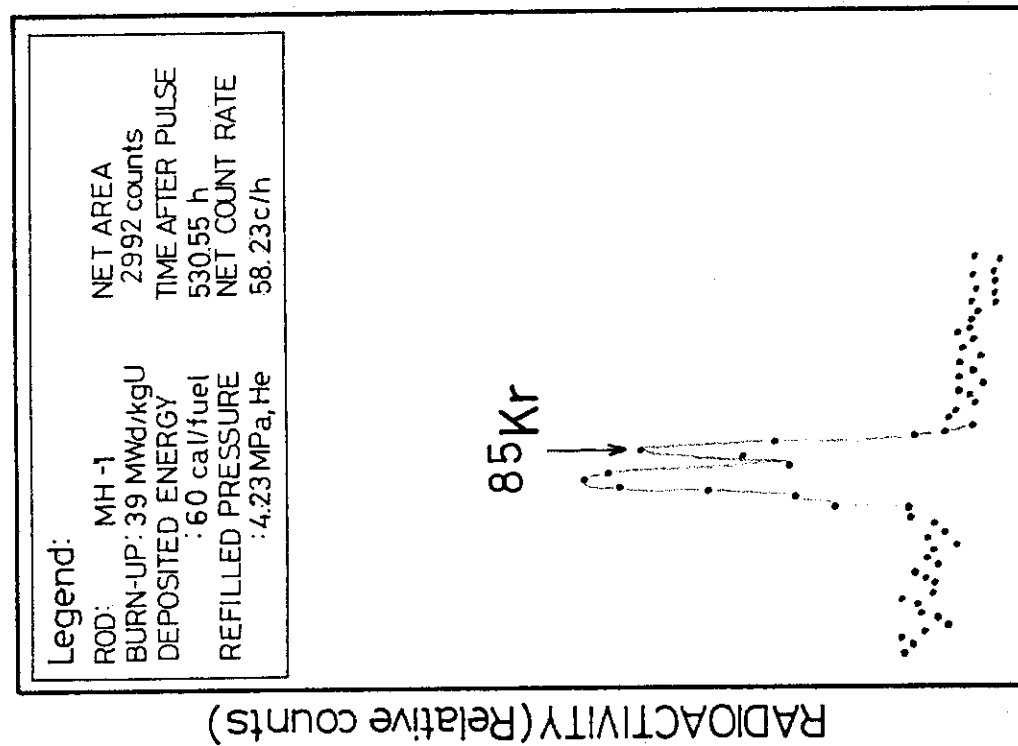


Fig. 3.2 Radioactivity of ⁸⁵Kr measured from pulse irradiated MH-2, STFR by 68 cal/g·fuel at burn-up of 38.9 MWd/kgU, where single pulse mode was used

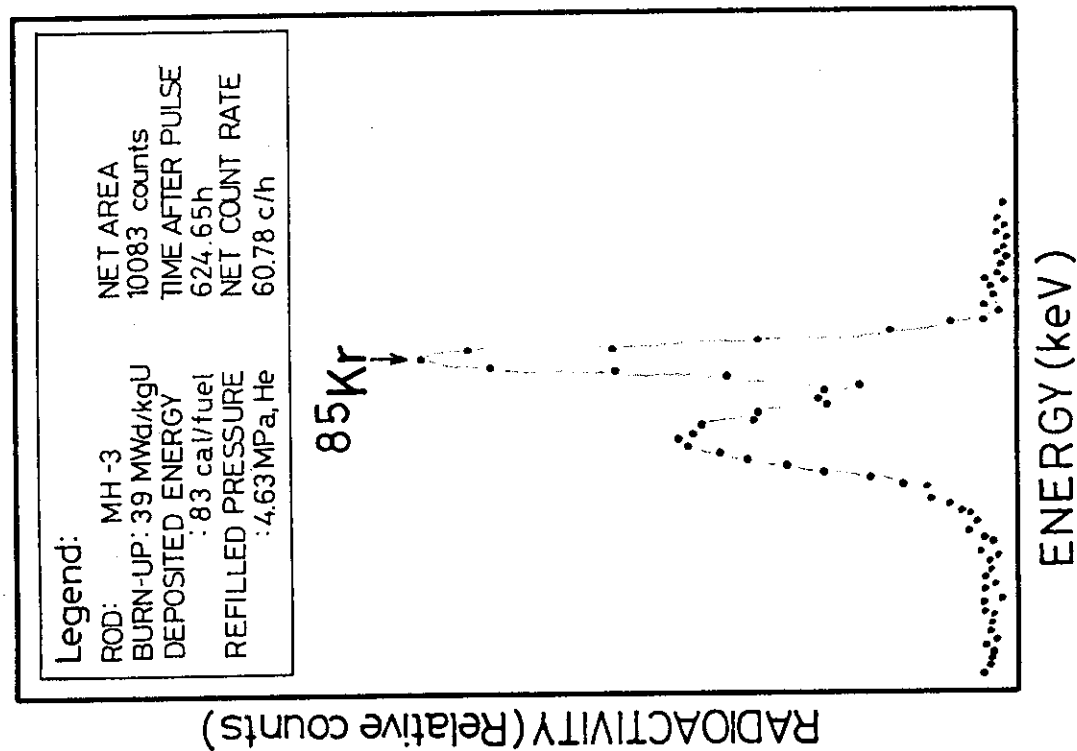


Fig. 3.3 Radioactivity of ^{85}Kr measured from pulse irradiated MH-3, STFR by 83 cal/g·fuel at burn-up of 38.9 MWd/kgU, where single pulse mode was used

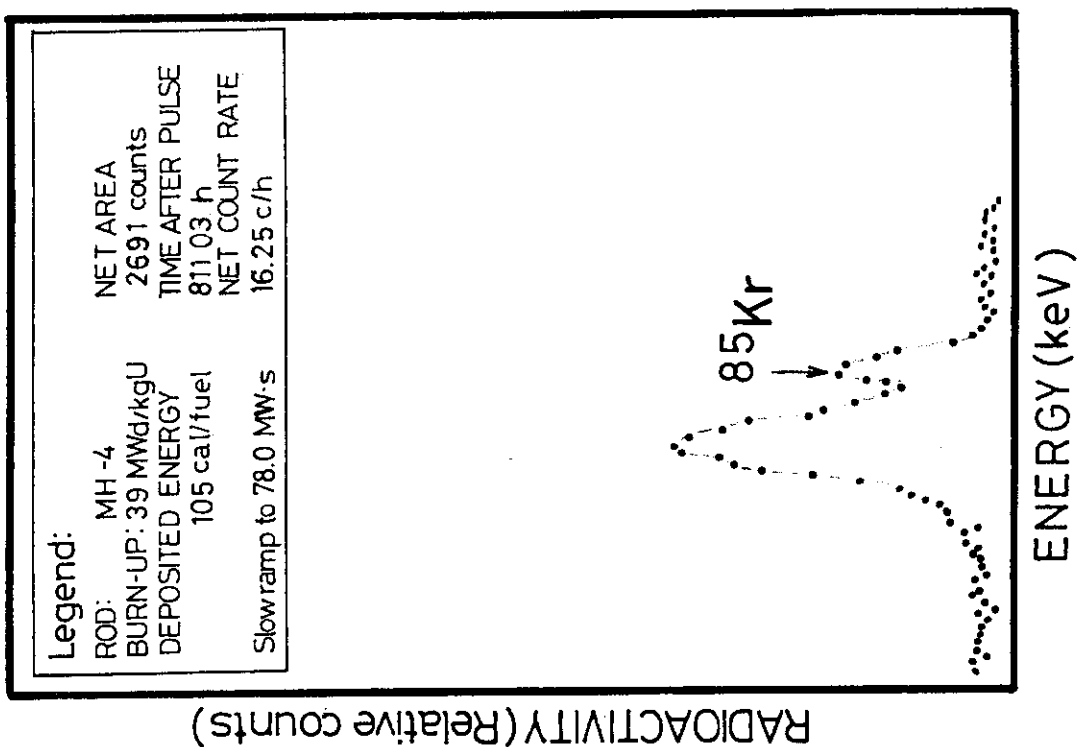


Fig. 3.4 Radioactivity of ^{85}Kr measured from pulse irradiated MH-4, STFR by 105 cal/g·fuel at burn-up of 38.9 MWd/kgU, where trapezoid pulse (78 MWs) was used

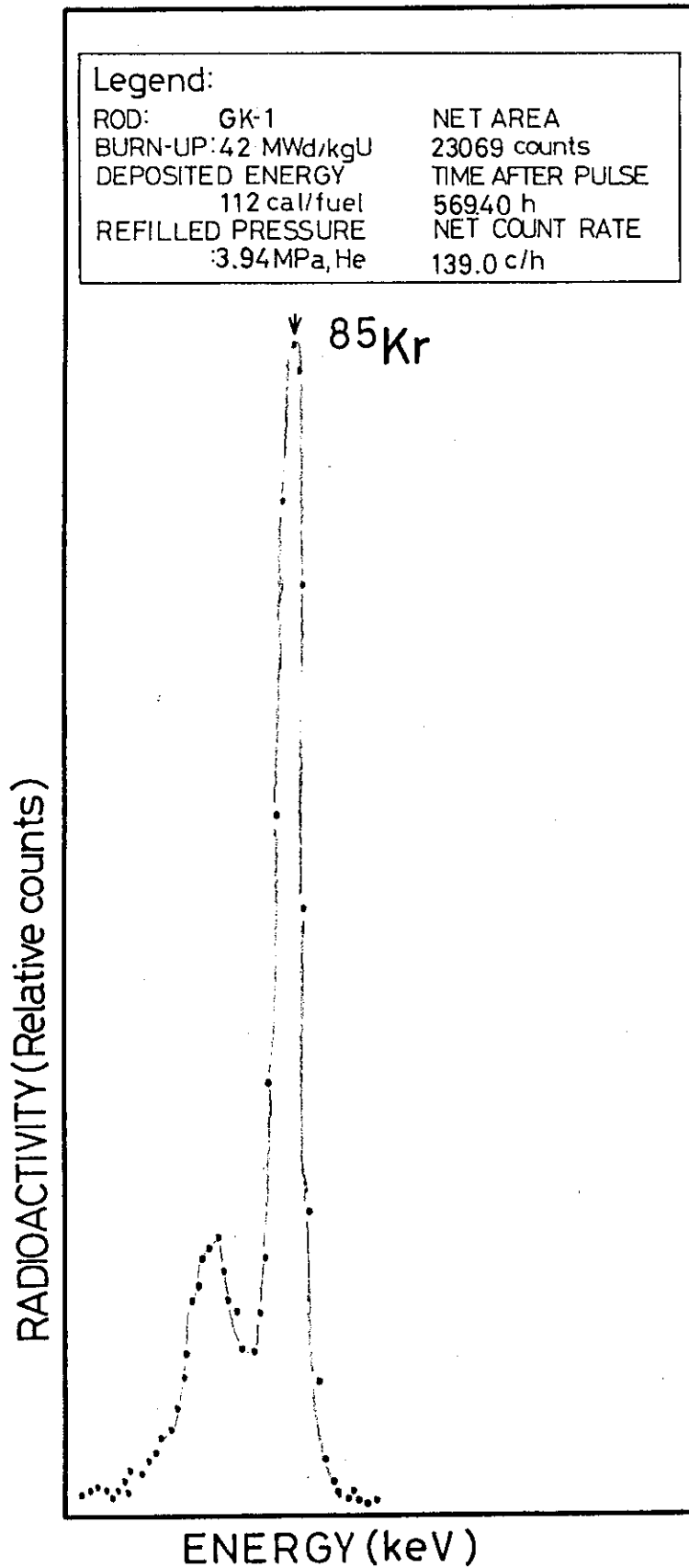


Fig. 3.5 Radioactivity of ^{85}Kr measured from pulse irradiated GK-1, STFR by 112 cal/g·fuel at burn-up of 42.1 MWd/kgU, where single pulse mode was used

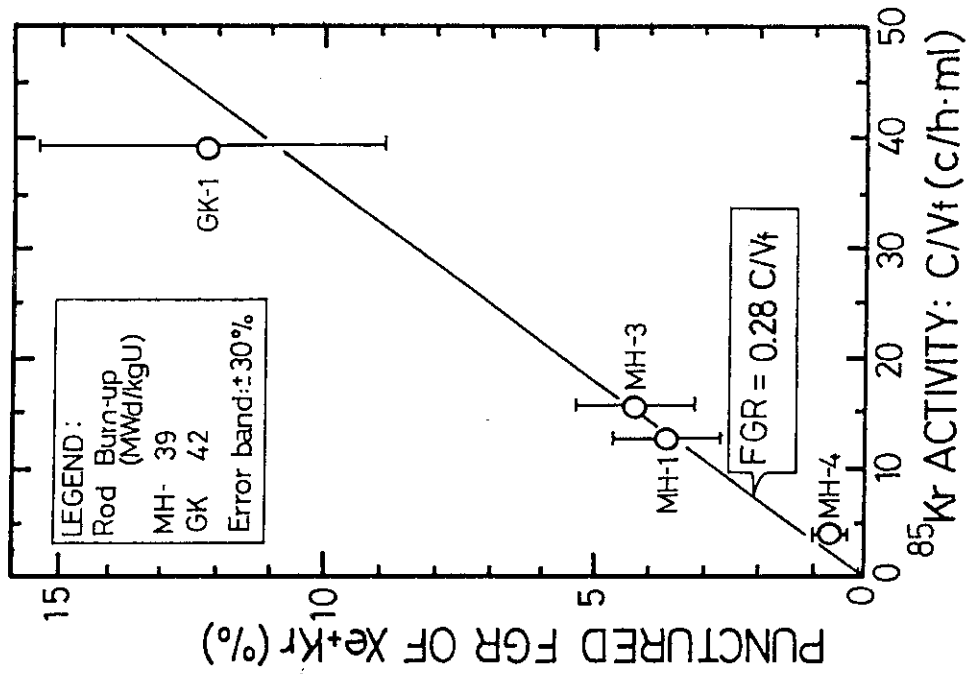


Fig. 3.7 FGR of Xe+Kr obtained from gas puncturing as a function of non-destructively measured ⁸⁵Kr radioactivity per plenum volume

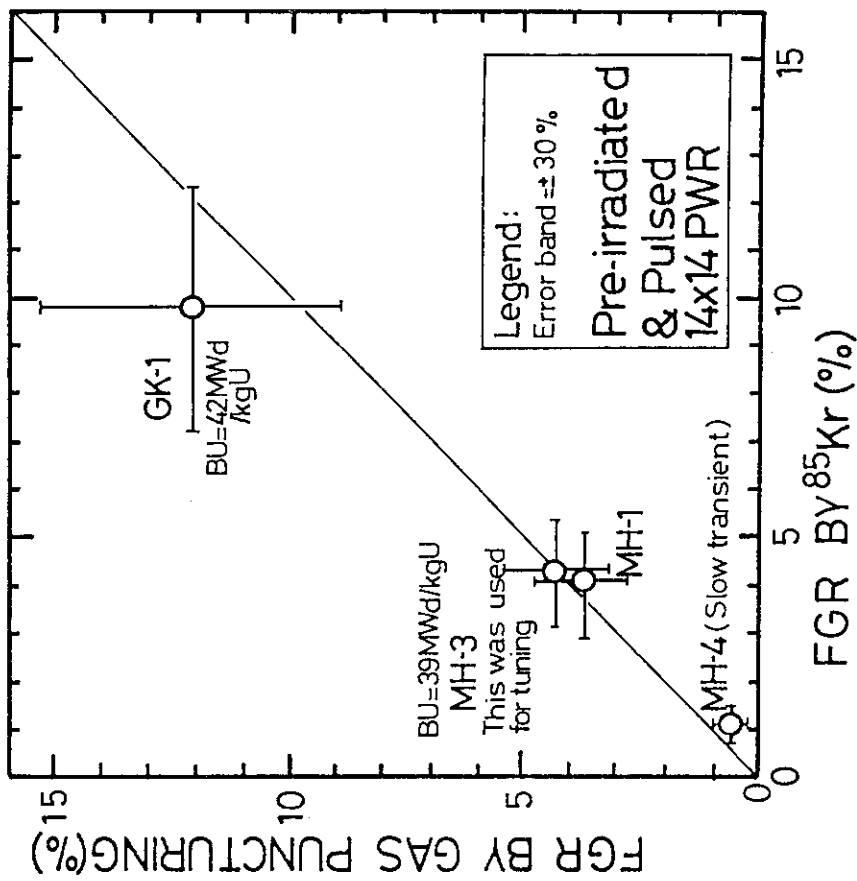


Fig. 3.6 FGR of Xe+Kr estimated by the ⁸⁵Kr radioactivity and that measured by the gas puncturing at post-pulse irradiation examination. Here, ⁸⁵Kr radioactivity data were tuned into FGR of Xe+Kr by using MH-3 puncturing data

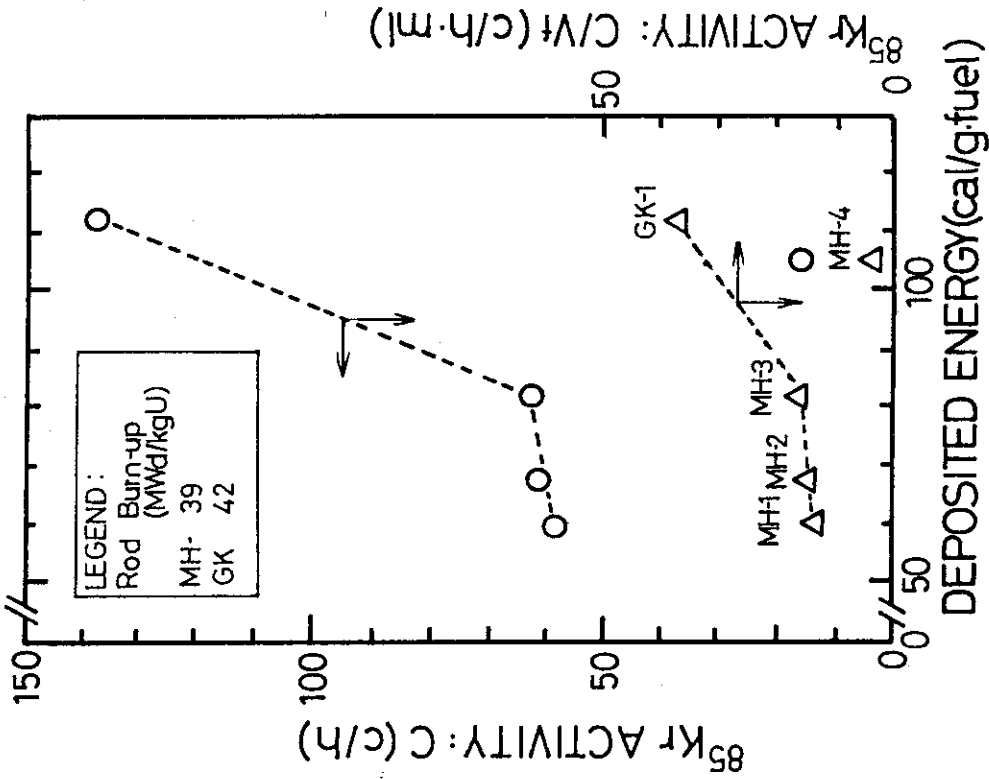


Fig. 3.9 ^{85}Kr activity as a function of deposited energy

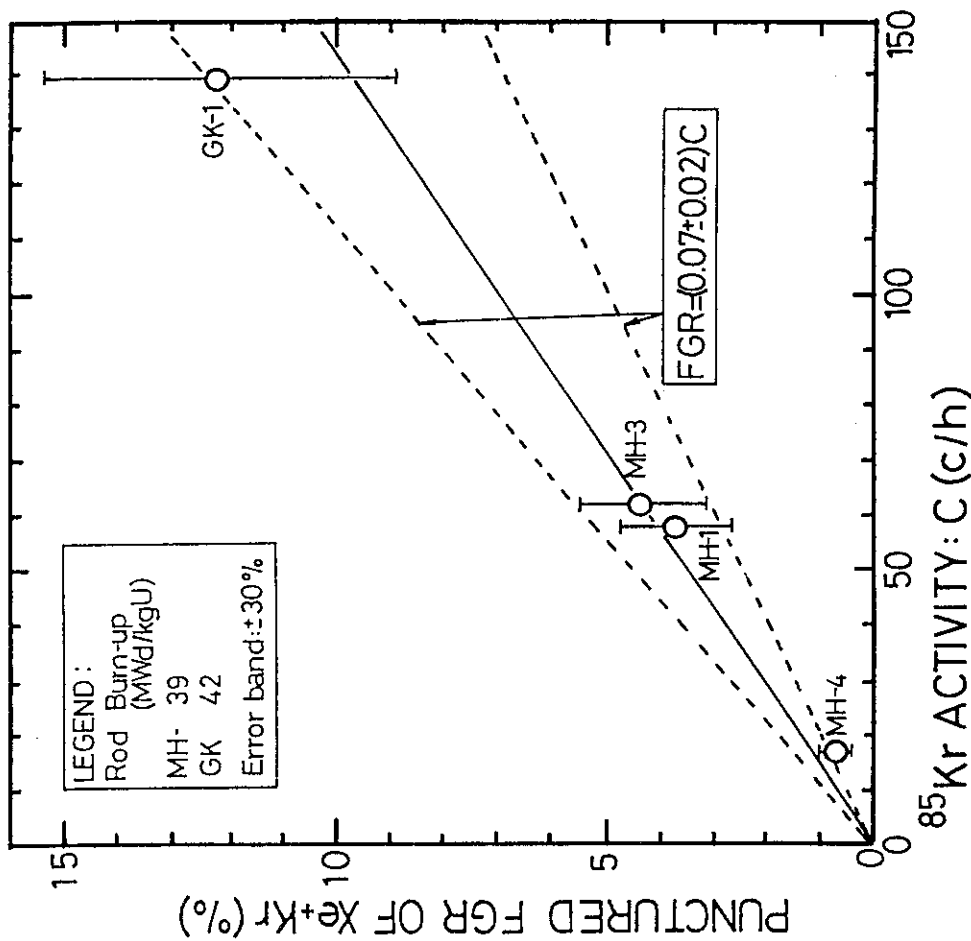


Fig. 3.8 FGR of Xe+Kr obtained from gas puncturing as a function of non-destructively measured ^{85}Kr radioactivity

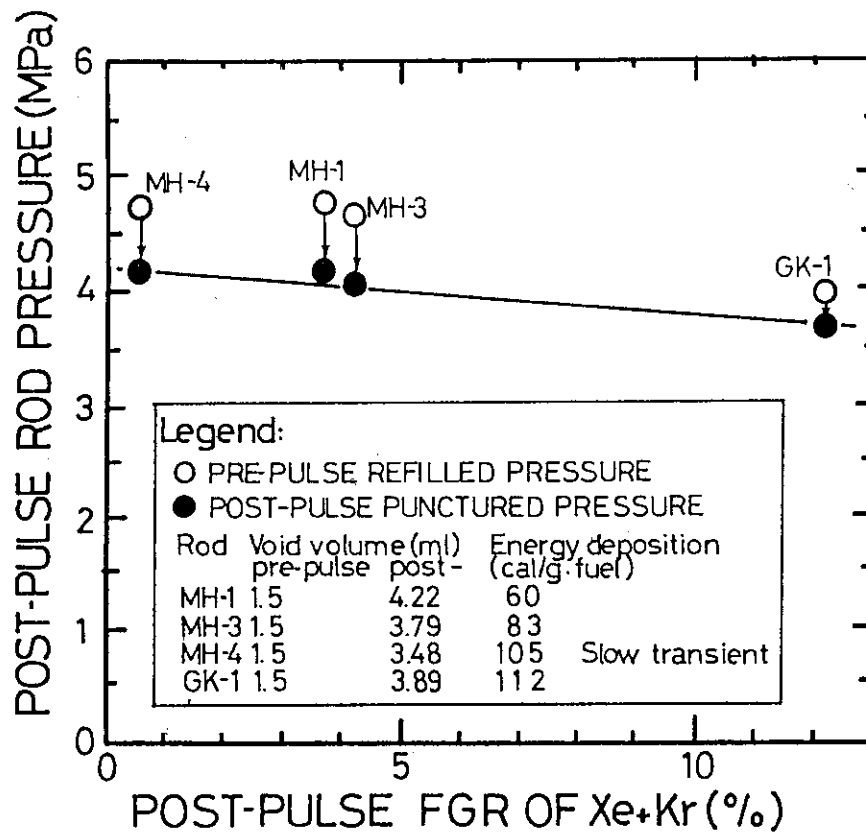
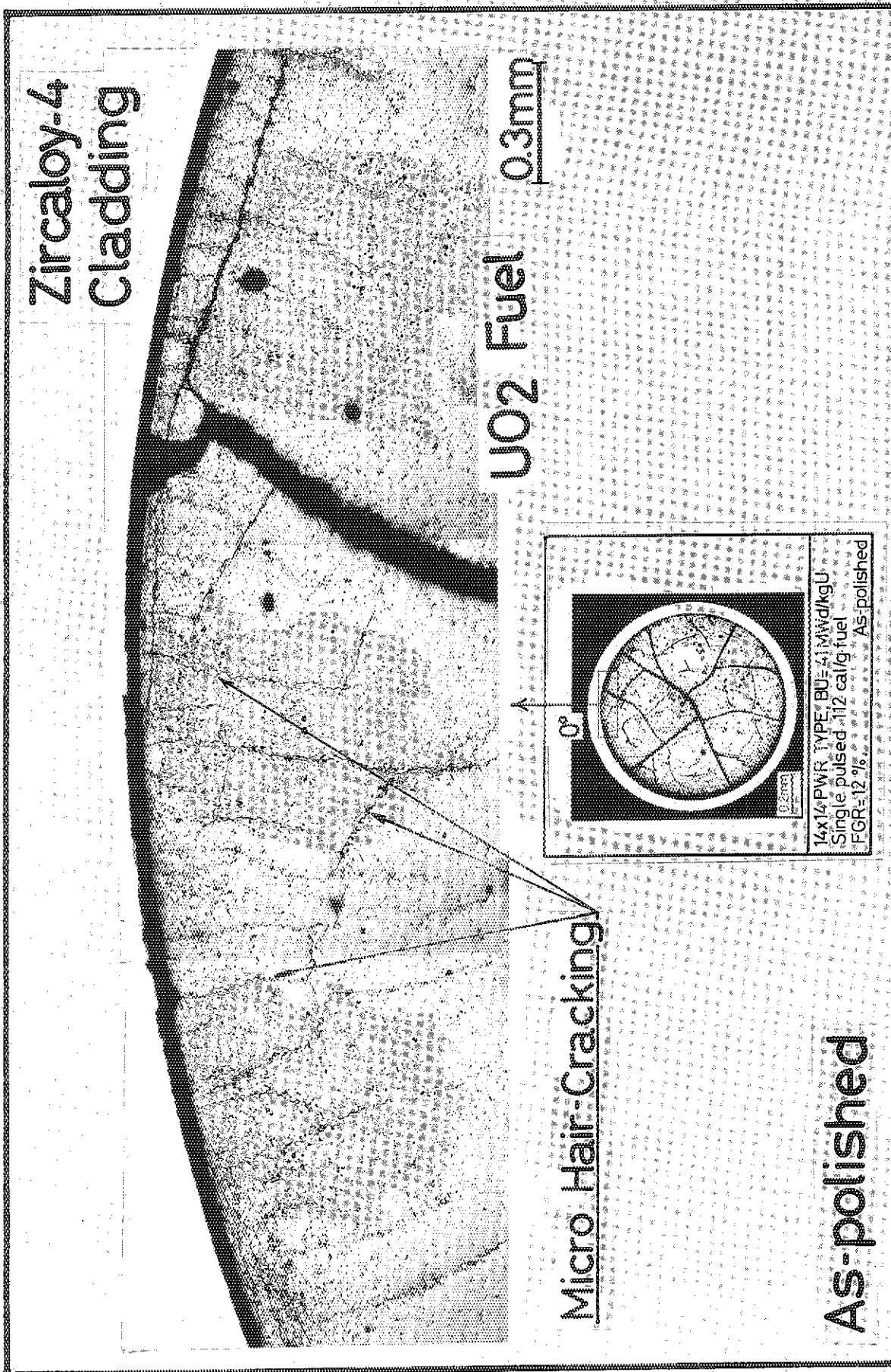


Fig. 3.10 Punctured rod internal pressure as a function of punctured FGR of Xe+Kr



Photograph 3.1 As-polished UO₂ fuel surface of GK-1, STFR pulse irradiated at 112 cal/g·fuel at burn-up of 42.1 MWd/kgU, where many hair crackings at fuel periphery regions occurred after pulse irradiation