

JAERI-Tech

2003-009



JP0350073



高温・高圧下におけるNSRR再照射燃料からの  
放射性物質放出挙動  
[VEGA-5実験のガンマ線計測結果]

2003年3月

日高 昭秀・工藤 保・中村 武彦・金沢 徹・木内 敏男・上塚 寛

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

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 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。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2003

編集兼発行 日本原子力研究所

高温・高圧下における NSRR 再照射燃料からの放射性物質放出挙動  
[VEGA-5 実験のガンマ線計測結果]

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター原子炉安全工学部  
日高 昭秀・工藤 保・中村 武彦・金沢 徹・木内 敏男・上塚 寛

(2003年1月24日受理)

原研では、原子炉のシビアアクシデント条件下における照射済燃料からの放射性物質の放出機構解明とソースターム予測精度向上を目的として VEGA 計画を進めている。その第 5 回目の VEGA-5 実験は、1.0MPa 条件の VEGA-2 実験で観測された圧力の効果に関する再現性を確認するとともに、短半減期放射性物質の放出挙動を調べることを目的とし、2002 年 1 月に行った。試験燃料は、事前に研究炉 (NSRR) で 8 時間、再照射した後、被覆管を取り除いた燃焼度 47GWd/tU (約 8.2 年冷却) の PWR 燃料ペレット 2 個 (約 10.9g) であり、1.0MPa、He 不活性雰囲気条件で約 2,900K まで昇温した。実験では、昇圧下におけるセシウム放出抑制現象を再確認するとともに、これまでの再照射無しの VEGA 実験では観測することができなかった Ru-103、Ba-140、Xe-133 等の短半減期核種の放出データを  $\gamma$  線計測により取得した。

Radionuclides Release from Re-irradiated Fuel under High Temperature and Pressure  
Conditions (Gamma-ray Measurements of VEGA-5 Test)

Akihide HIDAKA, Tamotsu KUDO, Takehiko NAKAMURA, Toru KANAZAWA,  
Toshio KIUCHI and Hiroshi UETSUKA

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

(Received January 24, 2003)

The VEGA (Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release) program is being performed at JAERI to clarify mechanisms of radionuclides release from irradiated fuel during severe accidents and to improve source term predictability. The fifth VEGA-5 test was conducted in January 2002 to confirm the reproducibility of decrease in cesium release under elevated pressure that was observed in the VEGA-2 test and to investigate the release behavior of short-life radionuclides. The PWR fuel of 47GWd/tU after about 8.2 years of cooling was re-irradiated at Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) for 8 hours before the heat-up test. After that, the two pellets of 10.9 g without cladding were heated up to about 2,900K at 1.0MPa under the inert He condition. The experiment reconfirmed the decrease in cesium release rate under the elevated pressure. The release data on short-life radionuclides such as Ru-103, Ba-140 and Xe-133 that have never been observed in the previous VEGA tests without re-irradiation was obtained using the  $\gamma$  ray measurement.

Keywords: Severe Accident, Radionuclide Release, VEGA Program, Source Term, High Pressure, High Temperature, VEGA-5 Test, Short-life Radionuclides, NSRR

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験手法 .....	1
2.1 実験装置 .....	1
2.2 計測 .....	2
2.3 NSRR 再照射 .....	3
2.4 昇温実験の条件 .....	4
3. 実験結果 .....	4
3.1 NSRR 再照射 .....	4
3.2 熱水力境界条件 .....	5
3.3 $\gamma$ 線計測 .....	6
3.4 核種別放出割合 .....	7
3.5 セシウム放出に関する拡散係数及び放出率速度係数 .....	8
3.6 ガス状 FP の放出挙動 .....	10
3.7 実験後加熱炉内 FP 分布 .....	11
3.8 質量計測 .....	12
4. まとめ .....	12
謝辞 .....	13
参考文献 .....	14

## Contents

1 . Introduction .....	1
2 . Experimental Methods .....	1
2 . 1 Experimental Facility .....	1
2 . 2 Measurements .....	2
2 . 3 Re-irradiation at NSRR .....	3
2 . 4 Conditions for Heating Test .....	4
3 . Experimental Results .....	4
3 . 1 Re-irradiation at NSRR .....	4
3 . 2 Thermohydraulic Boundary Conditions .....	5
3 . 3 $\gamma$ Ray Measurements .....	6
3 . 4 Release Fractions for Various Nuclides .....	7
3 . 5 Diffusion and Fractional Release Rate Coefficients for Cesium Release .....	8
3 . 6 Release of Gaseous Fission Products .....	10
3 . 7 Distribution of Fission Products in Furnace after Heating Test .....	11
3 . 8 Mass Measurements .....	12
4 . Summary .....	12
Acknowledgments .....	13
References .....	14

## 1. はじめに

日本原子力研究所（以下、原研）では、原子炉のシビアアクシデント条件下における照射済燃料からの放射性物質放出機構の解明とソースターム（環境中に放出される放射性物質の量及び化学形）の高精度評価を目的として VEGA（Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release）計画<sup>1),2)</sup>を進めている。同計画では、2001 年末までに 4 回の昇温実験を行ったが、それらの実験では、商用炉での照射から 6～8 年以上経過した燃料をそのまま使用したため、長半減期である Cs-134、Cs-137 及び Eu-154 を除き、その他の核種からのγ線計測はほとんど不可能であった。そこで、第 5 回目の VEGA-5 実験<sup>3)</sup>では、昇温実験の直前に試験燃料を原研の原子炉安全性研究炉（NSRR）で再照射し、短半減期核種を燃料内に生成させた後に昇温実験を行い、これまでの類似実験<sup>4)</sup>ではほとんど調べられていないそれらの放出挙動をγ線計測により調べることにした。また、2 回目の VEGA-2 実験<sup>5,6)</sup>で観測された高圧下のセシウム放出抑制現象を再確認するため、雰囲気を VEGA-2 実験と同様に 1.0MPa の He 不活性とした。

本報告書では、再照射した燃料を高圧条件下で約 2,900K まで昇温した VEGA-5 実験（2002 年 1 月 31 日実施）の結果のうち、比較的時間がかかる下流側配管の切断や酸洗液の分析、燃料のマイクロ組織観察等の詳細な実験後分析を除き、γ線計測を中心とした結果についてまとめた。実験後試験と分析の流れ及び今回の報告範囲を図 1.1 に示す。また、VEGA-5 実験の結果を、最高温度と雰囲気ガス種がほぼ同じ条件の VEGA-1 実験<sup>7)</sup>及び最高温度と雰囲気圧力、雰囲気ガス種がほぼ同じ条件の VEGA-2 実験と比較した結果についても報告する。

## 2. 実験手法

### 2. 1 実験装置

VEGA 実験装置の系統図を図 2.1 に示す。実験装置<sup>8)</sup>は、蒸気発生器、水素・He ガス供給系、高周波誘導加熱炉、試験燃料を設置する坩堝、3 系統の温度勾配管（TGT；Thermal Gradient Tubes）及びエアロゾルフィルタ、高温・高圧型のカスケードインパクト、4 台のオンラインγ線測定系（高純度 Ge 半導体検出器）、オンライン酸素・水素濃度計、コンデンサ、ドライヤ、活性炭を装填した希ガストラップ等から成る。そのうち、ガス供給系からエアロゾルフィルタ後段のバルブまでが 1.0MPa に加圧される。TGT 及びエアロゾルフィルタは 3 系統から構成され、通常は燃料温度が上昇するに従って順次切り替えて使用する。しかしながら、VEGA-5 実験では、TGT とエアロゾルフィルタ間に設置する集合配管との接合部分の製作に一部不具合があり、ガスを流せない系統があったため、系統の切り

替えを行わず、1系統のみを使用して実験を行った。

加熱炉内で実験中に高温になる坩堝等の構造材として、不活性雰囲気の場合はタングステン (W)、水蒸気雰囲気の場合はトリア ( $\text{ThO}_2$ )<sup>9)</sup>を使用する。Heを使用した VEGA-5 実験では、不活性雰囲気用のタングステン製加熱炉を用いた。その構造の模式図を図 2.2 に示す。高周波誘導加熱炉の性能は、周波数; 15~25 kHz、最大出力; 40 kW であり、外側の誘導コイルに高周波電流が流れるとタングステン製内管が直接加熱される。内管は、タンタル反射板やカーボンフェルト断熱材に囲まれており、系内を流れるプロセスガスと加熱炉の外側を流れるガスとの圧力境界を形成している。タンタル反射板は、カーボンフェルト断熱材の温度上昇を防ぎ黒鉛蒸気の発生を低減するために内管の外側に設置してある。坩堝中の試験燃料は内管からの輻射と熱伝導により加熱され、軸方向の温度分布は±50K 以内となる。試験燃料の温度は、坩堝の底を光高温計で測定する。加熱炉は、高周波誘導コイルを含む全体が圧力容器の中に格納されており、実験中は、内管の外側 (圧力容器内) 圧力が内側よりも 0.05MPa だけ高くなるように設定し、万が一、内管に漏れがあった場合でも、放射性物質が圧力容器内を汚染するのを防ぐ設計になっている。

装置は、下流に行くに従って温度を下げ、ガス状で放出された FP を凝縮させるとともに、微粒子 (エアロゾル) 化させて沈着させることにより、それらを順次、捕集する設計になっている。1,023K 以上の高温で凝縮またはエアロゾル化する中・低揮発性核種は加熱炉出口部分で捕集する。加熱炉出口部から TGT 入口部までは、CsI 等の揮発性 FP のガス凝縮やエアロゾル沈着を防ぐために 1,023K に加熱される。TGT 中では、温度が 1,023K から 473K にほぼ線形的に低下し、飽和蒸気圧の減少に伴って過飽和分の FP 蒸気が凝縮するとともに、揮発性 FP の大部分はエアロゾル化する。エアロゾル化した FP は、473K に設定したエアロゾルフィルタ (捕集効率; 98%<sup>1)</sup>) に捕集される。フィルタで捕集されなかったガス状 FP のうち、ガス状ヨウ素 ( $\text{I}_2$  及び有機ヨウ素等) は 273K に保ったコンデンサでキャリアガス中の水分とともに凝縮する。コンデンサにおいても捕集されなかった希ガスは、約 210K に冷却したドライヤを通過させて湿分を除去した後、やはり同温度に冷却した希ガストラップ内の活性炭に物理吸着させることにより捕集する。

## 2. 2 計測

昇温実験前の計測としては、加熱炉内の坩堝に設置した試験燃料に対するオフライン  $\gamma$  線スペクトル測定、及び TGT 内のライナー管 (15cm×4 本×3 系統)、エアロゾルフィルタ (1 個×3 系統)、カスケードインパクト内の各分級板 (8 枚) に対する質量測定を行った。実験中は、図 2.1 に示した 4 台のゲルマニウム (Ge) 半導体  $\gamma$  線検出器を用いて、試験燃料、エアロゾルフィルタ、コンデンサ及び希ガストラップ中の冷却活性炭に対して  $\gamma$  線ス



ベクトルをオンラインで測定した。ただし、Cs-137 については、半減期 30.2 年の $\beta$ -放射体で $\gamma$ 線を放出しないが、娘核種である Ba-137m は半減期 2.55 分で 662keV の $\gamma$ 線を放出して安定な Ba-137 になる。このため、Cs-137 そのものではなく Ba-137m からの $\gamma$ 線を測定した。また、セシウムの $\gamma$ 線強度は、Cs-134 と Cs-137 の揮発性にほとんど差がなく化学的な性質もほぼ同じと考えられることから、Cs-134 から放出される 570keV, 605keV, 796keV の $\gamma$ 線エネルギーと Cs-137 (Ba-137m) から放出される 662keV の $\gamma$ 線エネルギーの計数率を平均化したものを用いることとした。

実験中はさらに、装置各部の温度、圧力、ガス流量及びエアロゾルフィルタの後段におけるキャリアガス中の水素及び酸素濃度をオンラインで測定した。実験後は、まず、昇温試験中に発生し、一時的に貯蔵していた希ガスを燃料試験施設のスタックを介して排出するが、その際、放出する Kr-85 の全放射エネルギーを測定した。次に、エポキシ樹脂で固定した加熱炉中心部及び TGT ライナー管をオフラインで $\gamma$ 線測定した。TGT ライナー管及びエアロゾルフィルタについては、実験後にも質量を測定してそれらへの沈着量を評価した。

### 2. 3 NSRR 再照射

NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) は、原子炉の反応度事故時における燃料損傷挙動と破損影響を研究するため、1975 年 6 月に原研に設置された定出力・パルス両用の研究炉であり、TRIGA 炉の名で世界中に多数設置されているスイミングプール型炉の一つの改良型である<sup>10)</sup>。パルス運転時の瞬間最大出力は 23,000MW、定出力運転時の最高出力は 300kW である。U-ZrH を燃料とする円環炉心の中央に直径 20cm の実験孔があり、そこに試験燃料を封入したカプセルを装荷し、過出力照射や定常照射等を行うことにより、各種燃料の挙動解明のための実験を行うことができる。

NSRR を用いた再照射を検討するに当たっては、運用上、連続運転時間の最大は 8 時間であり、類似の VERCORS 実験<sup>11)</sup>のそれが 7 日間であるのと比べ、再照射時間が短すぎるという問題があった。しかしながら、NSRR を用いた反応度実験での照射技術を応用することにより、VEGA 実験燃料の再照射が容易であるという利点があった。再照射が可能な他の研究炉の候補として JRR-3 (Japan Research Reactor-3)<sup>12)</sup>があったが、VEGA 実験で使用する燃料には Pu が含まれ、U 重量も多いことから標準カプセルが使えず、非標準カプセルを独自に設計して新規に製作する必要があった。また、製作するカプセルの溶接部に対する非破壊検査が燃料試験施設では十分に行えないこと等、解決すべき問題点が多々あった。このため、VEGA-5 実験では NSRR で再照射を行い、短半減期核種放出に関する基礎データを取得するとともに、再照射についての技術的課題を明らかにすることとした。

VEGA-5 実験で使用した燃料は、商用 PWR（高浜 3 号炉）で照射後、約 8.2 年間冷却した燃焼度 47GWd/tU の  $UO_2$  燃料（被覆管無し、約 10.9g）であり、昇温実験の直前（2002 年 1 月 15 日）に NSRR において原子炉出力 300kW（線出力密度；1.1kW/m、熱中性子束  $\sim 10^{12}/m^2/s$ ）で約 8 時間再照射させた。再照射に当たっては、まず、燃料試験施設において試験燃料（被覆管付き燃料ペレット 2 個相当）をジルカロイ製の燃料ピン内に溶接密閉した後、NSRR に輸送した。燃料ピンの設計図を図 2.3 に示す。次に、燃料ピンを水温計とともに NSRR 照射専用の内カプセルの中子に取り付け、外カプセルに格納してから定常運転モードで再照射を行った。NSRR 照射用カプセルの構造図を図 2.4 に示す。再照射後、試験燃料を再び燃料試験施設に輸送し、被覆管を取り除いた後、燃料のみを VEGA 実験のタングステン加熱炉の坩堝内に設置した。VEGA-5 実験の燃料再照射及び昇温試験前後に行った  $\gamma$  線計測に関する日程を図 2.5 に示す。

## 2. 4 昇温実験の条件

VEGA-5 実験の条件を表 2.1 に示す。昇温速度（=1K/s）と温度プラトーは、米国の ORNL 実験<sup>4)</sup>を参考にして設定した。燃料温度は、当初、燃料溶融時の放射性物質放出を調べた VEGA-3 実験<sup>13),14)</sup>と同様に 2 段階の温度プラトー（2,300K（20 分）2,773K（20 分））を経て、燃料の融点を超える 3,123K まで昇温した後、その温度を 20 分保持する予定であった。しかしながら、3.2 節に述べるように、約 2,900K に達した時点で加熱炉上部配管が溶融したため実験を中止することとした。キャリアガスは、体積流量が 5.2~6.0NL/分の He であり、雰囲気圧力を 1.0MPa とした。

## 3. 実験結果

### 3. 1 NSRR 再照射

NSRR 再照射中の原子炉出力及び NSRR 照射カプセルの内カプセル内の水温履歴を図 3.1 に示す。再照射中の原子炉出力はほぼ 300kW に保たれた。水温計は不具合のため途中で計測不能となったが、ほぼ 30°C に保たれたと考えられる。NSRR 再照射前後に測定した試験燃料からの  $\gamma$  線スペクトルを図 3.2 に示す。ただし、NSRR 再照射直前の  $\gamma$  線スペクトルは、同じ燃料棒から切り取った第 1 回目の VEGA-1 実験直前のそれとほぼ同じと考えられるため、そのスペクトルで代用することとした。再照射してから 7 日後（昇温実験前）の燃料に対する  $\gamma$  線測定では、それまでの再照射無しの VEGA 実験では得られていなかった Mo-99（半減期 2.75 日）、Ru-103（半減期 39.35 日）、I-131（半減期 8.04 日）、Ba-140（半減期 12.75 日）、Np-239（半減期 2.36 日）の短半減期核種のピークを確認した。ORIGEN-2 コード<sup>15)</sup>で計算された NSRR 再照射前と昇温実験前後における試験燃料内の核

種インベントリ、半減期、放出する $\gamma$ 線エネルギー及び強度等を表 3.1 に示す。

### 3. 2 熱水力境界条件

VEGA-5 実験で観測された燃料温度、雰囲気圧力、流量履歴を図 3.3 に示す。雰囲気圧力は、実験中ほぼ一定に保たれた。1,023K で実験条件を調整した後、1K/s で昇温を開始し、1,623K で光高温計を低温用から高温用に切り替えた。その後、2つの温度プラトーを経て約 2,900K に到達した直後、加熱炉上部に設置したインラインヒーターの下部配管（インコネル 600 製、融点；1,609K）が加熱炉で熱せられたキャリアガスからの伝熱により溶融した。このため、ほぼ流路が閉塞した状態となり、出口流量は一旦 0 近くなったが、その後 15%程度まで回復した。インラインヒーター下部配管の溶融と同時に溶融物が坩堝内に落下したことにより、燃料温度の指示値が瞬時に $\sim$ 1,000K 下降して約 1,900K になった。この時点で燃料温度制御が不可能になったと判断し、実験を終了した。なお、今回溶融した加熱炉インラインヒーターの下部配管は、次の実験以降、さらに短尺化して坩堝から遠ざけることにより、温度上昇を抑える構造とする予定である。

加熱炉昇温のために高周波誘導コイルに印可した電流を図 3.4 に示す。インラインヒーター配管の溶融直前までは、これまでに行った VEGA 実験とほぼ同様の電流で自動制御により昇温を行った。インラインヒーター配管の溶融直後は、自動制御にしておくと、温度が低下したことにより高周波電流急昇の可能性があったため、自動制御を解除して手動で電流をゼロにした。その後、電流を回復させて加熱炉温度が徐々に下がるように制御した。

オンラインで計測したキャリアガス中の酸素及び水素濃度を燃料温度とともに図 3.5 に示す。酸素濃度は実験中、非常に低く保たれ、装置内は不活性な雰囲気に保たれた。これに対して水素濃度は有意な値が観測された。測定された水素濃度は、燃料温度、すなわち加熱炉内の発熱部（サセプター）や坩堝として用いたタングステン構造物の温度と強い相関性が見られた。昇温中は水素濃度が上昇し、温度が一定の時は濃度が下降する傾向があることから、あり得る原因としては、タングステン構造物中に含まれている水素が拡散現象により構造物表面に移動し、キャリアガス中に放出された可能性がある。実際、使用したタングステン中に水素が若干含まれていること（5 $\mu$ g/g）を、サセプター等に加工する前の原材料に対して行った化学分析で確認した。参考のために、含まれる水素の全量が実験中にキャリアガス中に放出されると仮定して水素濃度を逆算すると、測定された濃度の時間積分量の 30%程度になった。試算結果と測定値の差をさらに詳細に検討するためには、タングステン中水素量の再測定や検出装置の詳細な校正のみならず、水素発生の原因となる構造物酸化を引き起こすキャリアガス中の湿分の測定が必要となろう。

VEGA-5 実験中の装置内温度分布の測定値を図 3.6 に示す。加熱炉出口以降の下流側配管・機器の温度は、加熱炉温度に関係なく一定に保たれる。装置内温度分布は、温度勾配管までが 1,023K、フィルタが 473K、コンデンサが 273K、希ガストラップが 210K というように、下流に行くに従って設定通りに単調減少し、高・中・低揮発性核種がそれぞれ所定の機器に捕集できる温度分布となった。

### 3.3 $\gamma$ 線計測

VEGA-5 実験の昇温実験前後における燃料からの $\gamma$ 線スペクトルの変化を図 3.7 に示す。昇温実験後に行った燃料に対する $\gamma$ 線測定では、Ru-103、Ba-140、Cs-134、Cs-137、Rh-106、Eu-154 は確認できたが、Mo-99、I-131、Te-132、Np-239 は $\gamma$ 線スペクトル測定までに要した時間が比較的長かったことによる放射性減衰、または昇温実験中の放出のためピークを確認できなかった。高揮発性の Cs-137 及び Cs-134 は、実験前に比べて実験後の $\gamma$ 線強度が大幅に減少したのに対し、低揮発性の Eu の $\gamma$ 線強度は、バックグラウンドの変化を考慮するとほとんど変化しなかった。

VEGA-5 実験中に観測された加熱炉内の燃料及びエアロゾルフィルタに対するセシウムからのオンライン $\gamma$ 線強度の変化、コンデンサに対するガス状 I-131 及び希ガストラップに対する Kr-85 からのオンライン $\gamma$ 線強度の変化を図 3.8 に示す。1,623K から昇温し始めた時点で、Cs-134 及び Cs-137 が支配的な燃料からの $\gamma$ 線強度は減少し始め、実験終了時には初期の約 20%程度まで低下した。他方、フィルタの $\gamma$ 線強度は、TGT 等の途中の配管に沈着したためにやや遅れて上昇を開始し、2,773K のプラトー中にほぼ一定値となった。約 210K に冷却した活性炭で捕集した Kr-85 の $\gamma$ 線強度はフィルタと類似の形で上昇した。

短半減期の I-131 については、CsI としてエアロゾルフィルタでの捕集が期待されたが、再照射による生成量が必ずしも十分でなかったため、エアロゾルフィルタに対する $\gamma$ 線測定では、I-131 のピークを観測することができなかった。また、ガス状の I-131 (化学形 I<sub>2</sub> または有機ヨウ素等) の測定を目的としてコンデンサに設置した $\gamma$ 線検出器におけるカウント数もほとんど上昇しなかった。放出されたヨウ素の化学形については、水蒸気雰囲気において 95%が CsI となり、残りの 4.85%が I<sub>2</sub> に、0.15%が有機ヨウ素になるという報告<sup>16)</sup>があり、雰囲気条件は異なるものの、測定を試みた I<sub>2</sub> は、本来、少量のため検出されないものである可能性がある。次回の実験からコンデンサのコリメータを外し、検出器の感度を上げて測定する予定である。

### 3. 4 核種別放出割合

燃料に対するオンライン $\gamma$ 線計測の結果は、高周波誘導電流の影響により Ge 半導体検出器の感度が一時的に劣化すること、及び実験前後で装置内の FP 分布が変化してバックグラウンドが変化するため、測定精度が必ずしも良くない。このため、放射性物質の最終的な放出割合は、実験前後に試験燃料に対して別途行ったオフライン $\gamma$ 線計測の結果から評価することにした。ただし、昇温実験後に行った樹脂固化等により形態が変化したため、両者を比較するためにはある核種の放出割合を基準にする必要があった。一方、測定できた核種のうち、Eu の放出は、実験前後の形態変化をほぼ無視できるホットセル内のオンライン $\gamma$ 線計測の結果からほぼゼロであることを確認した。このため、Eu を基準（放出をゼロと仮定）にして、幾つかのエネルギーの異なるピークに対して、実験前後の強度を比較してエネルギー依存の相対検出効率を評価し、他の核種の放出割合評価に用いた。

Eu の放出をゼロと仮定し、昇温実験の前後に行った燃料に対するオフライン $\gamma$ 線計測に基づいて評価した最終的な核種別の放出割合を表 3.2 に示す。燃料試料を NSRR で再照射することにより、これまでの再照射を行わなかった VEGA 実験では観測できなかった Ru-103、Ba-140 等の短半減期核種の放出挙動を評価できた。参考のため、表 3.2 に示したフランス原子力安全放射線防護研究所 (IRSN) が行った VERCORS6 実験<sup>11)</sup> (最高温度 2,620K、水蒸気雰囲気、再照射有り；線出力約 2.0kW/m、照射期間 7 日、照射後 40 時間内に昇温実験実施) の結果と比べると、VEGA-5 実験の結果は VERCORS6 実験の傾向とほぼ一致した。

短半減期核種の放出割合を定量化できたことから、燃料の再照射に係る技術的課題を明らかにし、短半減期核種放出に関する基礎データを取得するという VEGA-5 実験の所期の目的は達成することはできたと考えられる。しかしながら、NSRR 再照射の期間 (8 時間) は必ずしも十分とは言えず、Mo-99、I-131、I-132 (Te-132 の娘)、Np-239 等の短半減期核種を十分に蓄積できなかった。このため、今後は 2.3 節で述べた照射カプセル製作に関する問題を解決し、26 日間の連続照射が可能な JRR-3 を用いて再照射を行うとともに、再照射から $\gamma$ 線計測までの時間をさらに短縮して短半減期核種放出の評価を行う予定である。

再照射期間の影響を検討するため、再照射により生成される短半減期核種量を、再照射期間を変数として 1 年間連続照射した際に生成される量に対する比として試算した図を図 3.9 に示す。NSRR と JRR-3 再照射時の熱中性子束が同じであると仮定した場合、JRR-3 で再照射すると、興味の短半減期核種量の殆どが NSRR 再照射時の 10 倍以上となり、しかも 1 年間連続照射した場合の量と殆ど変わらなくなる (Ru-103 を除く)。I-131 の生成量については、JRR-3 再照射の場合、NSRR 再照射に比べて約 40 倍になり、VERCORS 実

験と比べても約2倍となることが特筆できる。

燃料に対するオンライン及びオフラインγ線強度の変化から求めた VEGA-5 実験のセシウム放出割合の履歴を図 3.10 に示す。特徴として、1,000～1,500K の低温域で従来の VEGA-1～4 実験に比べてセシウム放出が進んだことが挙げられる。その理由については、次節で議論する。また、燃料温度が 2,900K に達した際に坩堝直上のインラインヒーター配管が溶融して熔融金属が坩堝内に落下した。これにより燃料温度は瞬時に約 1,000K 下がったが、熔融物と燃料との共晶反応により燃料が液化したためセシウム放出は継続した。このように低温域と配管溶融後に放出促進があったため、VEGA-5 実験の最終的なセシウム放出割合は、高圧条件であったにもかかわらず、84%に達した。

### 3.5 セシウム放出に関する拡散係数及び放出率速度係数

既存の FP 放出モデル<sup>4),17),18)</sup>は、放出挙動を  $UO_2$  結晶粒内の固体中原子拡散に基づく拡散係数または放出率速度係数 (fractional release rate coefficient)<sup>19)</sup>を用いて半経験的に扱うことが多い。このため、VEGA-5 実験で観測されたセシウム放出挙動もそれらを用いて整理することとした。 $UO_2$  結晶粒内の拡散係数  $D$  は以下のアレニウス (Arrhenius) 式で与えられる。

$$D = D_0 \exp [-\theta/T] \quad (3.1)$$

ここで、 $D_0$  ; 指数関数前係数 ( $m^2/s$ )

$\theta$  ; 格子拡散に対する活性化温度 (K)

$T$  ; 絶対温度 (K)

実験データから拡散係数を求める際は、Booth モデル<sup>19)</sup>から誘導された以下の式を用いて計算される。まず興味のある測定点に対して次式<sup>4)</sup>を計算する。

$$Dt/a^2 = 2/\pi - F/3 - 2(1/\pi^2 - F/3/\pi)^{0.5} \quad (F < 0.85 \text{ の場合}) \quad (3.2)$$

$$Dt/a^2 = -1/\pi^2 \times \ln(\pi^2(1-F)/6) \quad (F \geq 0.85 \text{ の場合}) \quad (3.3)$$

ここで、 $a$  ; 結晶粒半径 (m)

$D$  ; 拡散係数 ( $m^2/s$ )

$F$  ; 初期量に対する放出割合 (-)

$t_0$  ; 計算開始時間 (s)

次に、任意のタイムステップ期間  $t_1 \sim t_2$  における拡散係数  $D$  を求める際には、(3.2) または (3.3) 式同士を引き算することにより次式で計算される。

$$D = a^2 / (t_2 - t_1) \times \{ - (F_2 - F_1) / 3 - 2 [(1/\pi^2 - F_2/3/\pi)^{0.5} - (1/\pi^2 - F_1/3/\pi)^{0.5}] \} \quad (F_2 < 0.85 \text{ の場合}) \quad (3.4)$$

$$D = a^2 / (t_2 - t_1) \times \{ -1/\pi^2 \times [\ln(\pi^2(1-F_2)/6) - \ln(\pi^2(1-F_1)/6)] \} \quad (F_1 \geq 0.85 \text{ の場合}) \quad (3.5)$$

ここで、 $F_1$  ; タイムステップ開始時の初期量に対する放出割合 (測定値) (-)

$F_2$  ; タイムステップ終了時の初期量に対する放出割合 (測定値) (-)

$t_1$  ; タイムステップ開始時刻 (s)

$t_2$  ; タイムステップ終了時刻 (s)

図 3.10 に示したセシウムの放出履歴から算出した見かけの結晶粒内拡散係数を VEGA-1、-2 実験の結果とともに図 3.11 に示す。VEGA-5 実験の拡散係数は、2,000K 以下でアレニウス式 (横軸を温度の逆数、縦軸を対数としたグラフ上で直線になる) よりも大きく、特に 1,500K 以下で同式から大きく逸脱することから、その温度領域では結晶粒内での拡散ではなく、結晶粒界に存在していたセシウムの放出が影響していると考えられる。

NSRR 再照射中の試験燃料の温度に関して、試験燃料から内カプセル内の水までの径方向について、それぞれの表面温度を一次元定常計算により求めると、図 3.12 に示すような温度分布となる。ただし、評価に当たっては、軸 (鉛直) 方向が断熱、内カプセル内の水温は 30°C 一定 (図 3.1 参照)、試験燃料 (2cm) の線出力密度は 1.1kW/m、試験燃料ペレット内の発熱密度は一様、ペレット-被覆管ギャップ (He) でのギャップコンダクタンスは 5,000 W/m<sup>2</sup>K、被覆管-照射容器ギャップ (He) では熱伝導のみ、照射容器 (燃料ピン) 表面での伝熱は層流自然対流熱伝達を仮定した。計算の結果、燃料の中心温度は高々 300°C であることから、再照射中に UO<sub>2</sub> 結晶粒内からの拡散によってセシウムが粒界に蓄積したとは考えがたい。再照射は、被覆管付きではあるが、大気圧・軸方向非拘束条件下で行われたため、再照射中に燃料の内部から燃料表面に繋がる新たなパスが形成された可能性がある。その場合、再照射前に結晶粒界に存在していたセシウムが形成されたパスを通して比較的低温でも放出されると考えられる。

圧力の影響については、VEGA-2 実験より大きくはないが、約 2,200K 以上の温度領域においては 1.0MPa の VEGA-5 実験でも常圧の VEGA-1 実験に比べてセシウムの放出が抑制されること、また、その拡散係数はアレニウス式に従うことから、VEGA-2 実験と同様に、

高圧下においても結晶粒内拡散が律速過程であることを再確認した。

一方、放出率速度係数(1/分)は、その定義(ある時点で燃料中に残っているFP量のうち、1分あたりに放出される割合)に基づいて、次式を用いて算出することができる。

$$k = -\ln(1 - (F_2 - F_1) / (1 - F_1)) / (t_2 - t_1) \quad (3.6)$$

オンライン $\gamma$ 線計測結果から算出したセシウム放出に関する放出率速度係数を図 3.13 に示す。放出率速度係数の温度依存性は、拡散係数の場合とほぼ同様となった。

### 3.6 ガス状FPの放出挙動

希ガストラップに対するオンライン $\gamma$ 線測定で得られた Kr-85 と Xe-133 (半減期; 5.25 日) の強度変化を図 3.14 に示す。なお、Xe-133 が放出する $\gamma$ 線は低エネルギー (81keV) であるため、燃料に対する $\gamma$ 線測定では十分に観測できなかった。グラフから、Kr-85 と Xe-133 の放出挙動はほぼ同様であったと考えられる。同じく希ガストラップに捕獲された I-131、Cs-137、I-132 の $\gamma$ 線強度変化を図 3.15 に示す。Cs-137 と I-132 は観測できなかったが、コンデンサで捕獲しきれなかったガス状と考えられる I-131 が僅かに測定できた。

希ガス (Kr-85) は 514keV の $\gamma$ 線を放出するが、その強度は低いため、昇温実験前後に行った燃料に対する $\gamma$ 線計測ではそのピークを観測できなかった (図 3.6 参照)。しかしながら、最終的な放出割合はセシウムとほぼ同じと考えられることから、希ガストラップに対する $\gamma$ 線計測結果をその仮定の元に加工し、セシウム放出挙動との比較を試みた。希ガスとセシウム放出挙動の比較を図 3.16 に示す。ただし、フィルタ $\gamma$ 線から得た Cs-137 の放出割合は、実験中止により最終的なカウント数の上昇に関する情報が得られなかったため、参考値という位置づけである。希ガスの放出割合増加のタイミングはセシウムに比べて明らかに遅れた。以下の理由から、VEGA-5 実験で観測された 1,600K 以下の低温域でのセシウム放出は、粒界に蓄積されたものからの寄与である可能性が高い。

- 1) 開気孔中に放出された希ガスは速やかに燃料ペレット外へ放出されるので、観測された希ガス放出は閉気孔中に存在していたもの、または結晶粒内拡散によるものと考えられる。
- 2) 再照射中に何らかの原因で新たな開気孔パスが形成されたとすると、希ガスは再照射中に放出されてしまうが、燃料温度は高々 300°C であるため、セシウムの大部分は開気孔パス (粒界) 中に留まり、VEGA 実験の昇温時に放出されると考えられる。
- 3) 希ガスとセシウムの結晶粒内拡散挙動には殆ど差が無いと考えられる。



4) セシウムは配管の途中に沈着しフィルタでの検出が遅れるが、希ガスは途中で捕獲されないため、希ガストラップでの検出が遅れることは無いと考えられる。参考のため、VEGA-3 実験において燃料 $\gamma$ 線とフィルタ $\gamma$ 線から得られた Cs 放出履歴を図 3.17 に示す。フィルタ $\gamma$ 線から得られた Cs 放出履歴は、燃料 $\gamma$ 線から求めたものに比べ、配管途中への沈着のために放出割合増加が遅れている。なお、図 3.17 中のフィルタ $\gamma$ 線から得た Cs 放出は 140 分過ぎに 100%になる。

高周波誘導コイルに電流が流れると、発生する電磁場の影響により燃料からの $\gamma$ 線を測定する Ge 半導体検出器の測定カウント数が 10%程度低下することが経験的に明らかになっている。このことは、評価手法上の理由から、放出割合を過大評価することに繋がる。高周波電流は、VEGA-3 実験に比べて VEGA-5 実験の方が若干、大きかった(図 3.16~3.17 参照)。このため、VEGA-5 実験で希ガス放出のタイミングが燃料からの $\gamma$ 線で評価したセシウムのそれに比べて遅れて測定される理由として、燃料を測定する Ge 半導体検出器に対する高周波の影響を完全には否定できない。今後、他の VEGA 実験で得られた $\gamma$ 線測定結果も含めて詳細に分析する予定である。

次に、燃料試験施設では、スタックから放出する Kr-85 の全放射能の積分量を測定できることから、昇温実験後に行う希ガス放出作業時の全放出量(測定値)と ORIGEN-2 コードで計算した初期インベントリとの比較を参考計算として行った。希ガスの放出作業時に施設のスタックモニタで計測された Kr-85 の放出量のうち、VEGA 実験装置からの放出と考えられる量は、約  $6.0 \times 10^8 \text{Bq}$  (測定された生データから希ガス放出作業が無いと仮定した場合のバックグラウンド値を差し引いたもの)であった。一方、ORIGEN-2 コードを用いたインベントリ計算では、燃料からの 100%放出を仮定した場合でも  $1.5 \times 10^7 \text{Bq}$  (表 3.1 参照)であり、1 桁以上の差が認められた。スタックモニタでの計測値は、施設全体の膨大な排気ガス量と計測誤差を含むサンプリング排気ガス中の Kr-85 濃度から安全側の参考値を与えるものであり、定量評価には適さないことが明らかになった。

### 3.7 実験後加熱炉内 F P 分布

実験後に坩堝を含む加熱炉中心部をエポキシ樹脂で固定し、加熱炉内管の軸方向に対して行った残留 FP の $\gamma$ 線分布に関する測定値を図 3.18 に示す。坩堝底部に残留した FP として、Cs-137、Cs-134、Eu-154、Ru-103、Ba-140 の $\gamma$ 線が検出された。また、Cs-137 については、内管の上下部にもピークが見られた。385mm の内管の底から 370mm 前後(内管上部)においてセシウムの $\gamma$ 線強度が増加するのは、内管温度の低下により沈着したためである。内管底からの高さ 30mm 前後(内管下部)においてセシウムの $\gamma$ 線強度が増加するのは、インラインヒーター配管の溶融により流路が閉塞気味となった際に、セシウム

の一部が低温の内管下部に凝縮または沈着したためと考えられる。また、この位置に Eu-154 が観測されないことから、垢の健全性は実験中保持され、垢からの溶融物落下は無かったと考えられる。実験中、高温に保たれた垢上部とインラインヒーター間（180～350mm）の内壁への FP 沈着は観測されなかった。

温度勾配管（TGT）内におけるセシウムからの $\gamma$ 線強度及び温度分布を図 3.19 に示す。TGT の入口から約 200mm までの比較的温度が高い（1,023～750K）部分にセシウムが多く付着した。800K 前後に多く付着する現象は VEGA-1 実験でも観測されており、VEGA-1 実験<sup>4)</sup>と同様に CsI の凝縮による寄与が大きいと考えられる。

### 3. 8 質量計測

VEGA-5 実験の前後に測定した TGT ライナー管、エアロゾルフィルタの質量及び質量差を表 3.3 に示す。ただし、温度勾配管（TGT）と集合配管との接合部の製作において、今回のみ不具合があったため、実験中に使用してきた TGT とエアロゾルフィルタは 1 系統のみであった。なお、実験中は、TGT の C 系統を流れたキャリアガスは B 系統のフィルタに流れ込んだ。TGT ライナー管の質量測定から、温度が高い加熱炉側の方が低温側よりも FP エアロゾルの沈着量が多くなった。この傾向は、先に述べたセシウムからの $\gamma$ 線強度分布（図 3.19 参照）と一致するものである。エアロゾル粒径測定用のカスケードインパクトについては、3,123K の温度プラトーで使用を予定していたが、その温度に達する前の 2,900K で実験を中止したため、有意な結果が得られなかった。

## 4. まとめ

原子炉シビアアクシデント時の照射済燃料からの放射性物質放出挙動を調べる VEGA 計画の第 5 回目実験として VEGA-5 を 2001 年 1 月に実施した。同実験では、VEGA-2 実験で観測された高圧下でのセシウム放出抑制現象を再確認するとともに、短半減期核種の放出挙動を調べることを目的とし、事前に NSRR で再照射した PWR 燃料（被覆管無し、約 10.9g）を、1.0MPa、He 雰囲気下で 2,900K まで昇温して放射性物質の放出挙動を調べた。実験後分析に時間がかからない $\gamma$ 線計測を中心とした結果から以下の点が明らかになった。

- ・ 燃料試料を NSRR で 8 時間再照射することにより、これまでの再照射無しの VEGA 実験では観測できなかった Ru-103、Ba-140、Xe-133 等の短半減期核種の放出挙動を $\gamma$ 線計測により評価できた。これにより、今後、短半減期核種の放出挙動を $\gamma$ 線計測によって測定するために必要な燃料再照射時間や核種生成・蓄積量に関する目安を得た。

- ・ データ取得を期待した I-131 に関しては、再照射による生成量の不足、または再照射終了から昇温実験後に行う  $\gamma$  線計測までに要した時間が比較的長かったことによる放射性減衰のため、データを取得できなかった。
- ・ 観測されたセシウム放出挙動を  $\text{UO}_2$  結晶粒内に関する拡散係数でまとめた結果、2,000K 以上の温度域での拡散係数はほぼアレニウス式に従ったが、1,600K 以下ではアレニウス式より大きくなった。この放出の増加は、結晶粒内の拡散によるものではなく、再照射中に何らかの原因で燃料表面へのパスが形成された結果、結晶粒界から放出されたものと考えられる。
- ・ 1.0MPa の VEGA-5 実験においても、粒内拡散が支配的な 2,000K を超える温度領域において、セシウム放出が 0.1MPa の場合よりも抑制されることを再確認した。

今後は、VEGA-5 実験の下流側配管を切断し、酸洗を行って各部分の沈着量を測定することによりマスバランスを評価する。また、誘導結合プラズマ分析装置を用いて  $\gamma$  線を放出しない核種の放出割合を定量化するとともに、燃料部分のマイクロ組織観察を行う。短半減期核種の放出については、原研の JRR-3 で 26 日間、連続再照射を行って短半減期核種の生成量を増加させるとともに、再照射から昇温実験及び  $\gamma$  線計測までの時間をさらに短縮して再評価を行う予定である。

#### 謝辞

原研、ホット試験室、実用燃料試験課の金井塚文雄次長、関田憲昭氏、高橋五志生氏、大和田功氏、串田輝雄氏、二瓶康夫氏、市瀬健一氏、小野勝人氏には、燃料の脱ミート、燃料ピンの溶接、NSRR 照射後カプセルの解体、 $\gamma$  線計測を実施していただくとともに、放射線管理に関して技術的な支援及び有用なコメントをいただいた。また、NSRR 管理室の寺門義文室長、谷内茂康氏、大沼和良氏、宮崎修氏、鈴木寿之氏、太田和則氏、村松靖之氏、村尾裕之氏には、NSRR での燃料再照射に関して、照射カプセルへの燃料ピン取り付け、NSRR の運転、データ整理等をしていただいた。さらに、アトックス（株）の安蔵雅彦氏、及び原研、燃料安全研究室の中村勉氏、大友隆氏、会沢啓一氏には、VEGA-5 実験装置の組立て・分解等の準備、実験装置運転、試験後分析等の一連の作業を精力的に実施していただいた。ここに、深く感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 日高昭秀、他、「VEGA 実験計画の概要及び CsI を用いた装置の性能確認実験」JAERI-Research 99-066 (1999).
- 2) 日高昭秀、他、「照射済燃料からの放射性物質放出挙動実験 (VEGA) 計画について」日本工業出版プロダクション「原子力 eye」Vol.46, No.3, pp.79-83 (2000).
- 3) 工藤保、他、「高温・高圧下における再照射燃料からの放射性物質放出 (VEGA-5 実験の結果)」、日本原子力学会 2002 年秋の大会要旨集、K36 (2002).
- 4) R. A. Lorenz, et al., "A Summary of ORNL Fission Product Release Tests with Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients," NUREG/CR-6261 (1995).
- 5) 日高昭秀、他、「シビアアクシデント条件下の照射済燃料からの放射性物質放出挙動 [VEGA-1 実験の結果]」JAERI-Research 2001-055 (2001).
- 6) T.Kudo, et al., "Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2773K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.38, No.10, pp.910-911 (2001).
- 7) A.Hidaka, et al., "Decrease of Cesium Release from Irradiated Fuel in Helium Atmosphere under Elevated Pressure of 1.0MPa at Temperature up to 2,773K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.7, pp.759-770 (2002).
- 8) 林田烈、他「照射済燃料からの放射性物質放出 (VEGA) 実験装置の運転・保守要領書」JAERI-Tech 2001-029 (2001).
- 9) 中村武彦、他、「トリア管の試作試験」JAERI-M 93-222 (1993).
- 10) S. Saito, et al., "Measurement and Evaluation on Pulsing Characteristics and Experimental Capability of NSRR," J. Nucl. Sci. Technol., Vol.14(3), pp.226-238 (1977).
- 11) G. Ducros, et al., "Fission Product Release Under Severe Accidental Conditions: General Presentation of the Program and Synthesis of VERCORS 1 To 6 Results," Proc. of the Twenty-Seventh Water Reactor Safety Information Meeting, NUREG/CP-0169, pp.505-518 (1999).
- 12) JRR-3 管理課、研究炉利用課、「JRR-3M シリサイド燃料炉心の特性試験」JAERI-Tech 2000-027 (2000).
- 13) 工藤保、他「VEGA-1 実験の最終結果と VEGA-3 実験速報」日本原子力学会 2001 年春の年会, J32 (2001).
- 14) A. Hidaka, et al., "Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.3, pp.273-275 (2002).
- 15) A. G. Croff, et al., "ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Composition and Characteristics of Nuclear Materials," Nucl. Technol. Vol.62(3), pp.335-352 (1983).

- 16) U. S. Nuclear Regulatory Commission, "Accident Source Terms for light-Water Nuclear Power Plants," NUREG-1465 (1995).
- 17) U. S. Nuclear Regulatory Commission, "Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents," NUREG-0772 (1981).
- 18) M. R. Kuhlman, et al., "CORSOR User's Manual," NUREG/CR-4173 (1985).
- 19) A. H. Booth, et al., "A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO<sub>2</sub> Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test," Chalk River Report CRDC-721 (1957).

表2.1 VEGA-1, -2, -5実験の条件

	VEGA-1	VEGA-2	VEGA-5
燃料	PWR, 47GWd/tU, 約10g, 被覆管無し		
再照射	無し		有り
最高温度	2773K		2900K
プラトー	2000K(20分)		2300K(20分)
	2300K(20分)		2773K(20分)
	2773K(10分)	2773K(20分)	
昇温速度	1K/s		
雰囲気ガス	ヘリウム		
圧力	0.1MPa	1.0MPa	

表3.1 ORIGEN-2コードで計算されたVEGA-5実験燃料の核種インベントリ  
(PWR燃料、8.2年冷却、47GWd/tU、10.9g)

核種	半減期 日	エネルギー keV	γ線強度[Bq]		
			再照射前	7日後	24日後
Kr-85	3916	514.0	1.50E+07	1.49E+07	1.49E+07
Mo-99	2.75	739.5	0.00E+00	8.90E+07	1.23E+06
Ru-103	39.35	497.1	0.00E+00	2.31E+08	1.71E+08
Ru-106 (Rh-106)	368 (0.00035)	511.2	2.05E+08	2.06E+08	1.99E+08
		622.2	1.06E+08	1.06E+08	1.03E+08
Sb-125	1011	427.9	3.32E+08	3.30E+08	3.26E+08
I-131	8.04	364.5	0.00E+00	3.78E+08	8.79E+07
Te-132 (I-132)	3.26 (0.10)	667.7	0.00E+00	6.38E+08	1.71E+07
		772.6	0.00E+00	4.92E+08	1.32E+07
Xe-133	5.25	81.0	0.00E+00	4.34E+08	4.71E+07
Cs-134	753	604.7	8.32E+09	8.27E+09	8.15E+09
		795.9	7.28E+09	7.24E+09	7.13E+09
Cs-137	10950	661.7	4.80E+10	4.80E+10	4.79E+10
Ba-140	12.75	537.3	0.00E+00	1.41E+08	5.61E+07
Eu-154	3139	723.3	8.00E+08	7.99E+08	7.96E+08
		1274.5	1.44E+09	1.44E+09	1.43E+09
Np-238	2.12	984.5	1.51E+04	5.78E+07	2.36E+05
Np-239	2.36	277.6	2.53E+06	1.05E+09	9.55E+06

実験前のγ線スペクトル測定でこれら全ての核種を検出

：実験後のγスペクトル測定で検出された核種

7日後：昇温実験前γ線測定

24日後：昇温実験後γ線測定

表3.2 放出割合の評価結果

核種	半減期 [日]	$\gamma$ - Energy [keV]	VEGA-1 He,2773K 0.1MPa		VEGA-2 He,2773K 1.0MPa		VEGA-5 He,2900K 1.0MPa		VERCORS6 H <sub>2</sub> O+H <sub>2</sub> ,2620K 0.1MPa
			放出割合 [%]	誤差 [%]	放出割合 [%]	誤差 [%]	放出割合 [%]	誤差 [%]	放出割合 [%]
Cs-134	753	605	85	0.7	62	0.7	82	1.2	97
		796	85	0.8	61	0.8	85	1.0	
Cs-137	10950	662	86	0.4	61	0.4	84	0.4	
Sb-125	1011	428	89	18.5	68	22.8	67	34.2	96
Ba-140	12.75	537	-	-	-	-	7	14.8	29
Ru-103	39.35	497	-	-	-	-	0	8.3	
Ru-106	368	512	5	4.3	0	4.9	0	8.8	0.6

表3.3 VEGA-5実験のTGTライナー管、フィルタの秤量結果

		実験前質量 (g)	実験後質量 (g)	差(g)	備考
TGT ライナ ー管	C-1	26.54531	26.5549	0.00959	加熱炉側
	C-2	26.63062	26.6335	0.00288	↑
	C-3	26.62313	26.6233	0.00017	↓
	C-4	25.57214	25.5726	0.00046	フィルタ側
フィルタ	B	690.08	690.118	0.038	2300~2773K

\* 温度勾配管(TGT)と集合配管との接合部製作に不具合があったため 1 系統のみ使用可能であったが、TGT の C 系統を流れたガスは B 系統のフィルタに流れ込んだ。

### 報告範囲

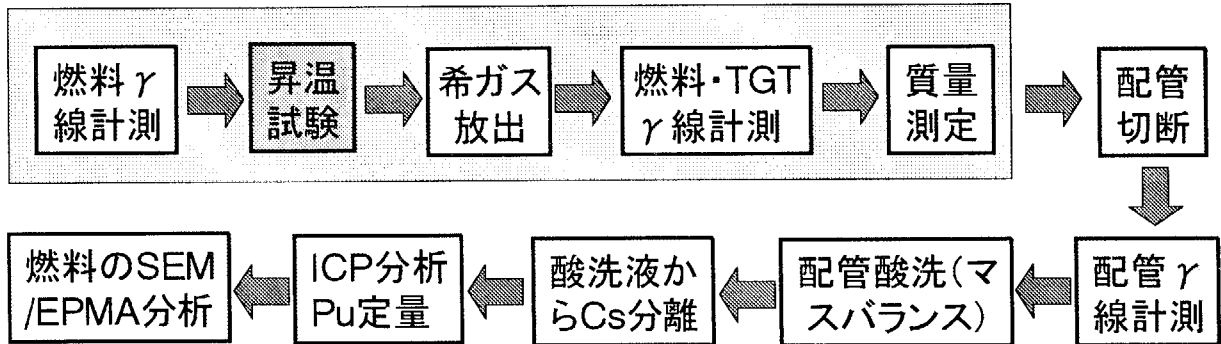


図1.1 試験・分析の流れと今回の報告範囲

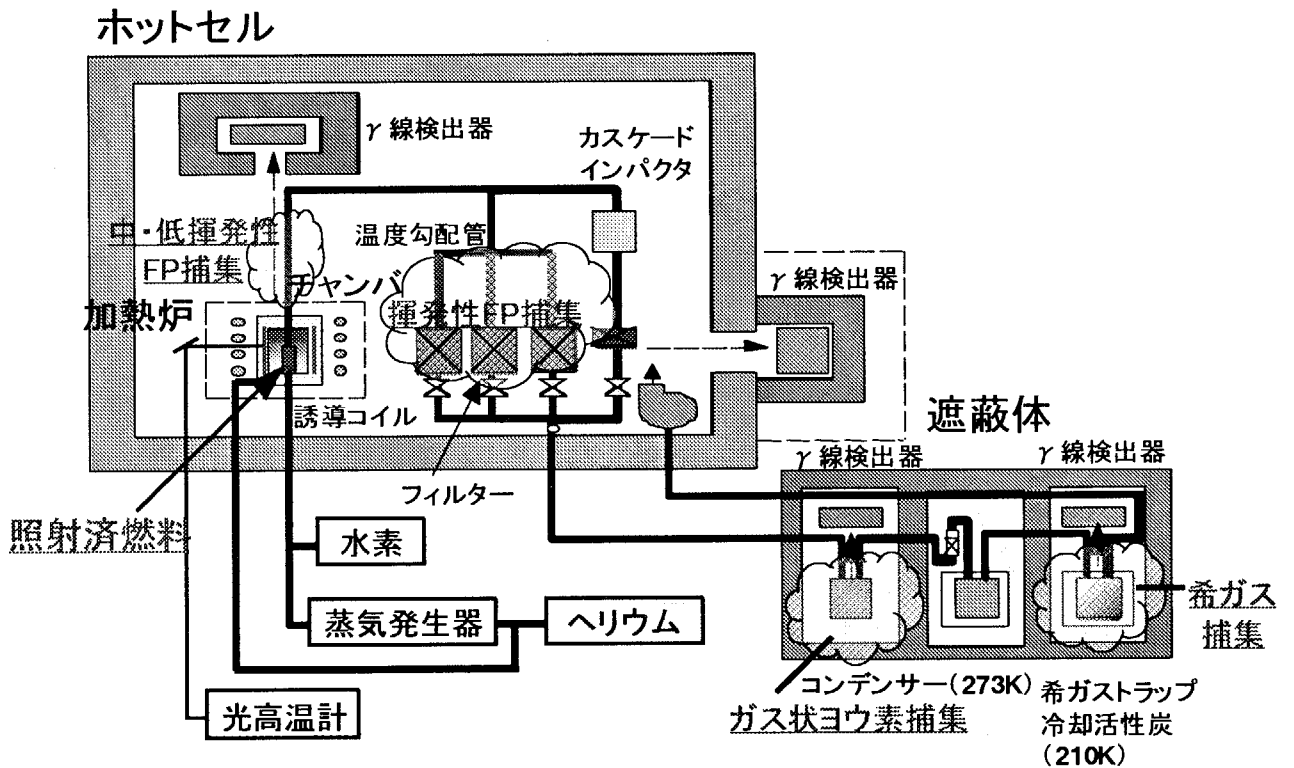


図2.1 VEGA実験装置の系統図



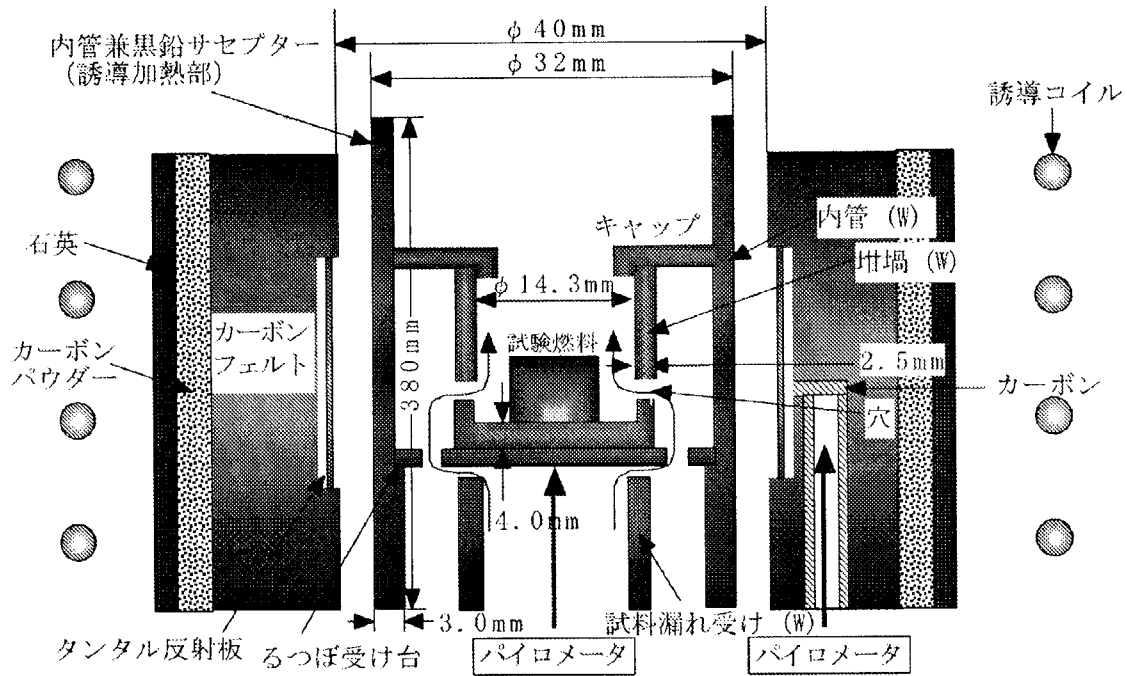


図2.2 VEGA-1実験で使用したタングステン製加熱炉

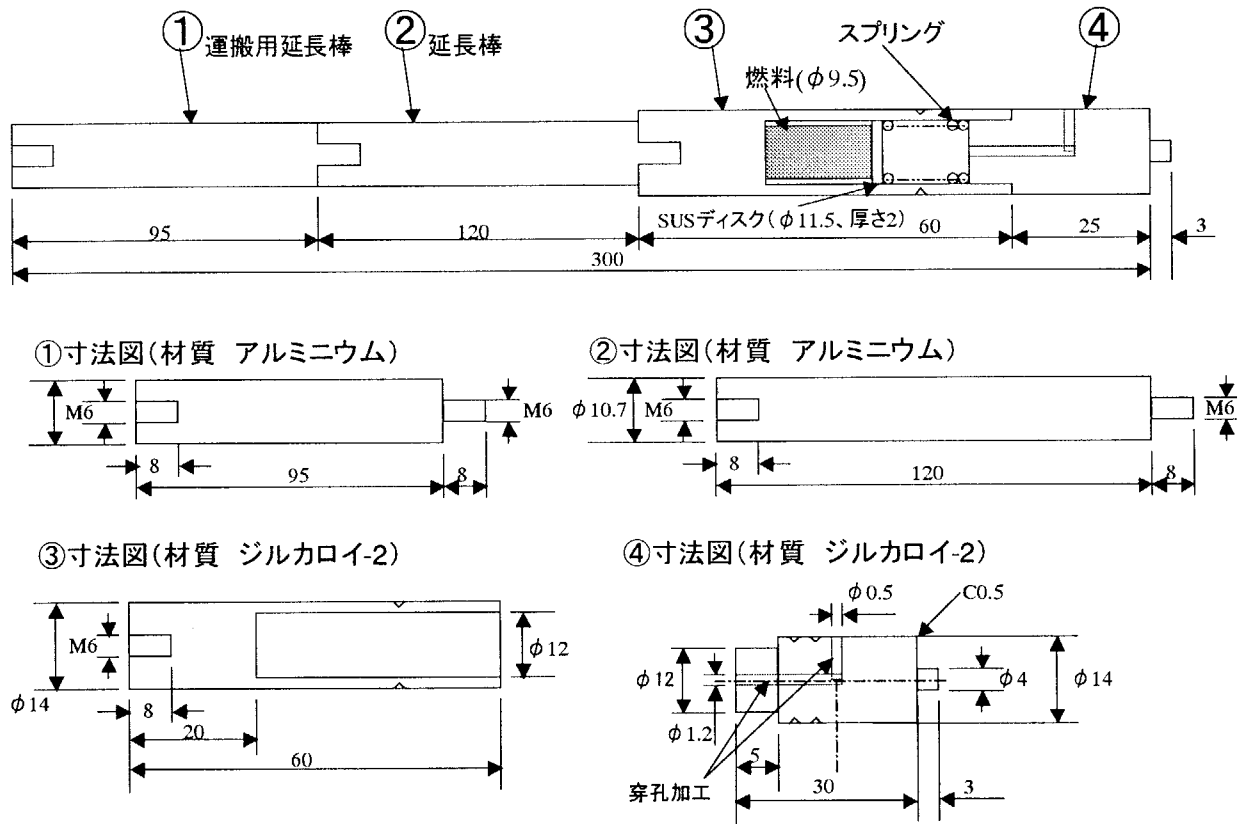


図2.3 燃料ピンの設計図

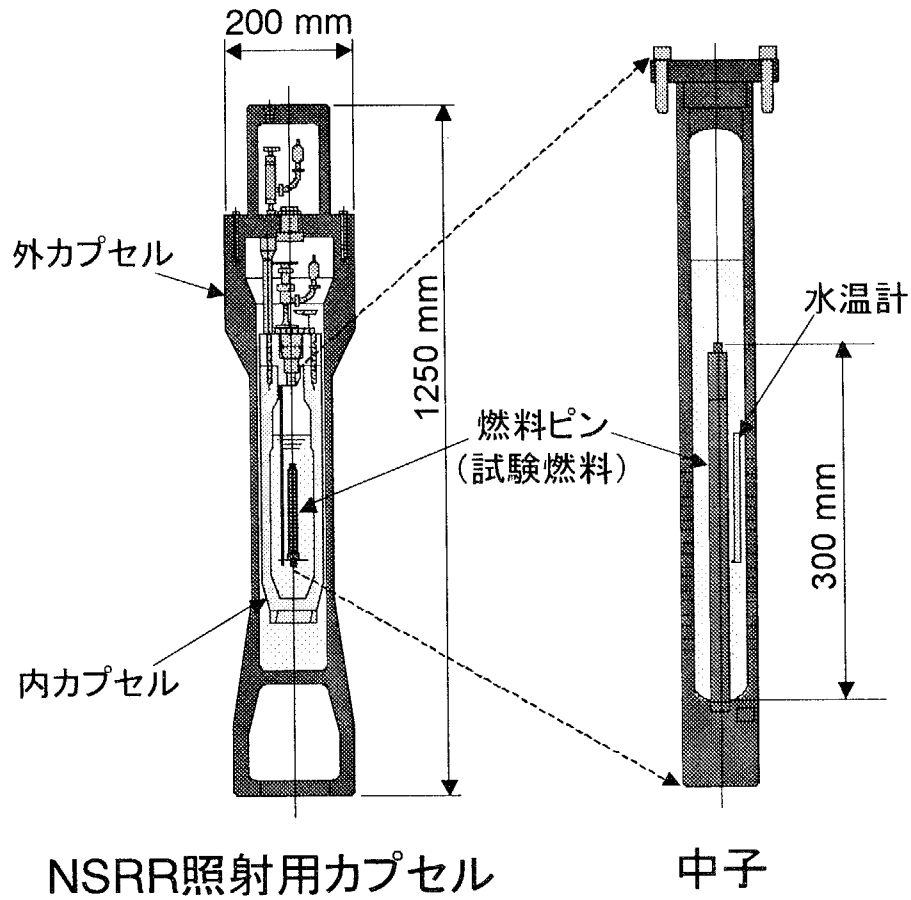


図2.4 NSRR照射用カプセルの構造図

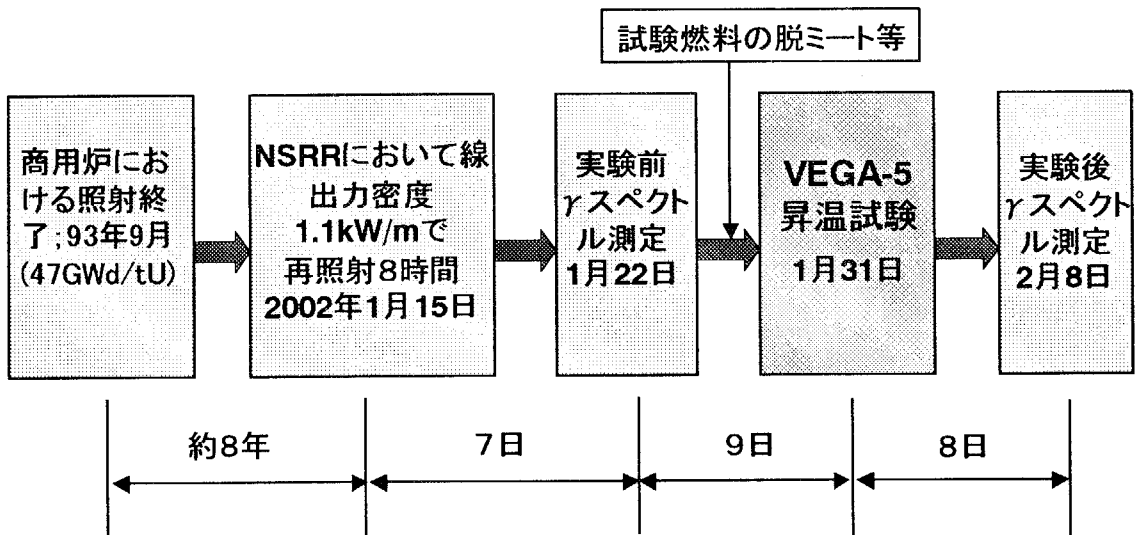


図2.5 VEGA-5実験の燃料再照射及び昇温試験前後の日程

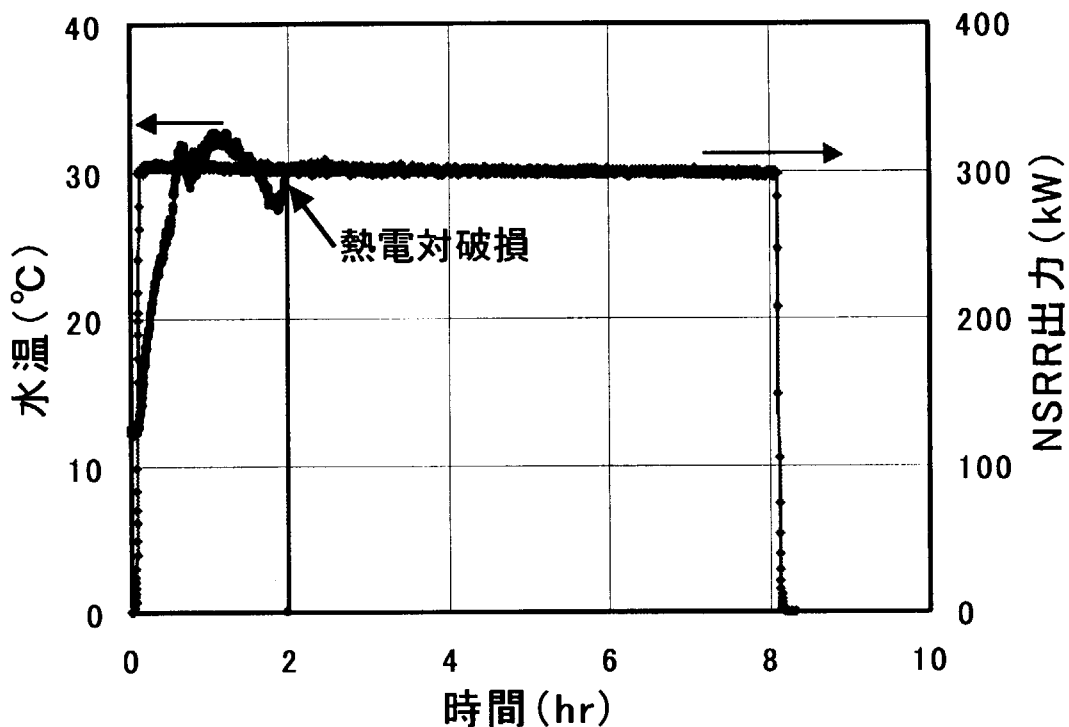


図3.1 NSRR再照射時の原子炉出力及び水温

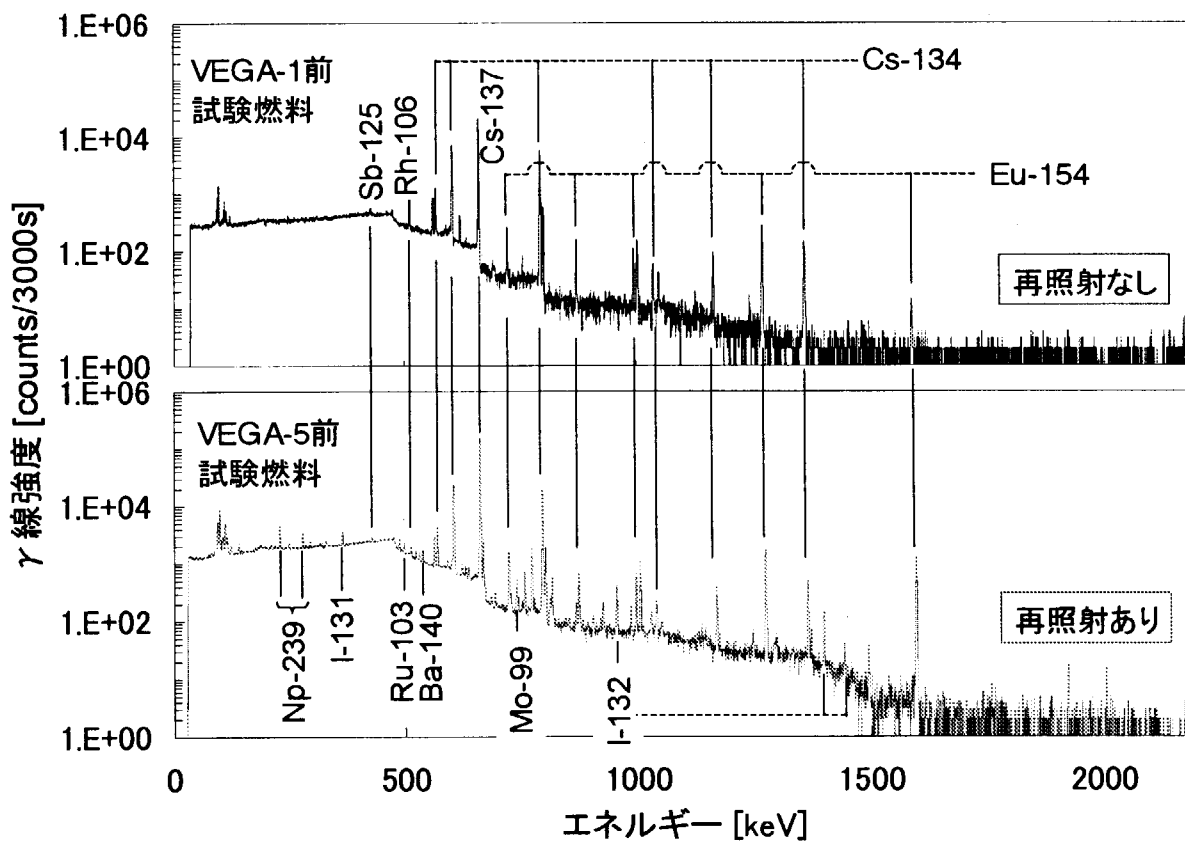


図3.2 NSRR再照射前後のγ線スペクトルの変化

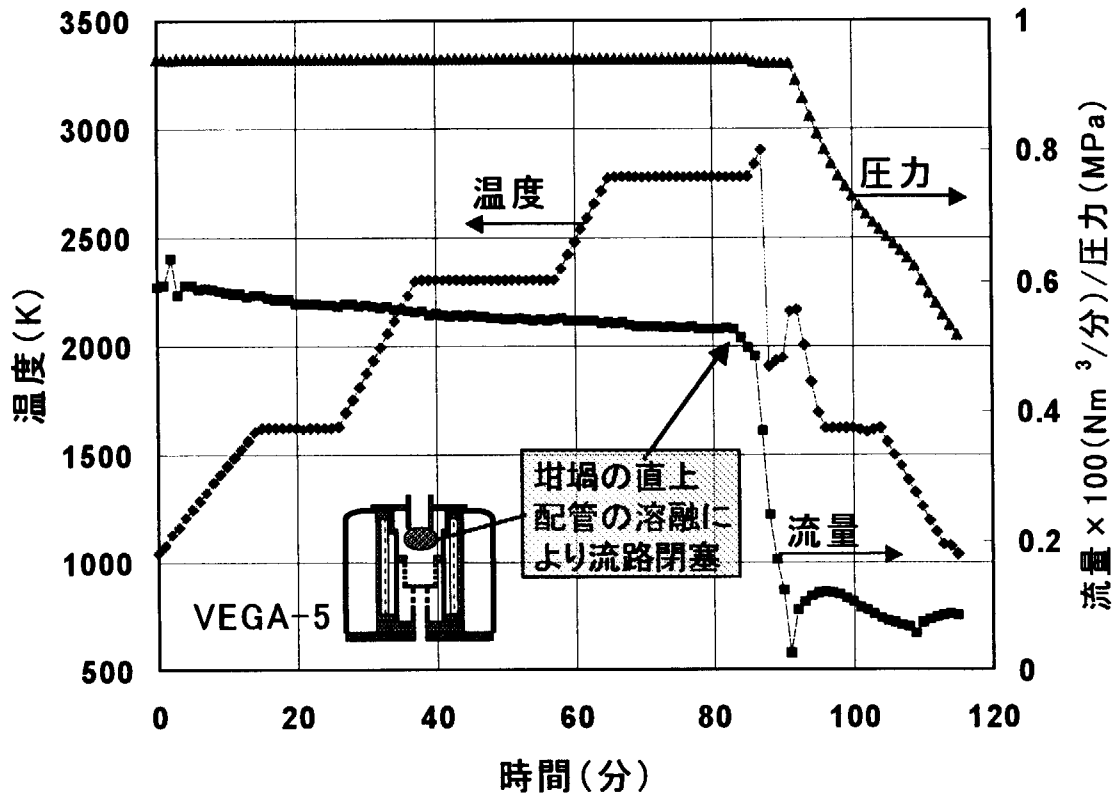


図3.3 VEGA-5実験の温度、圧力、流量履歴

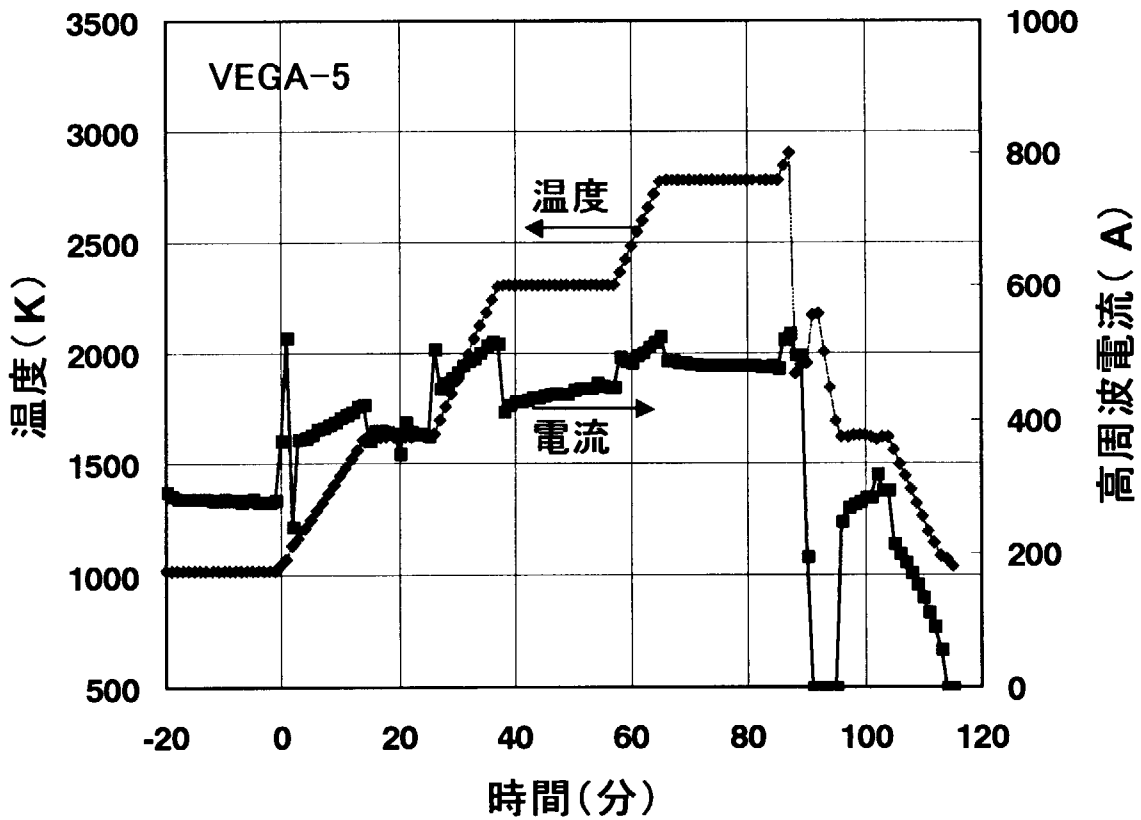


図3.4 VEGA-5実験の高周波誘導電流

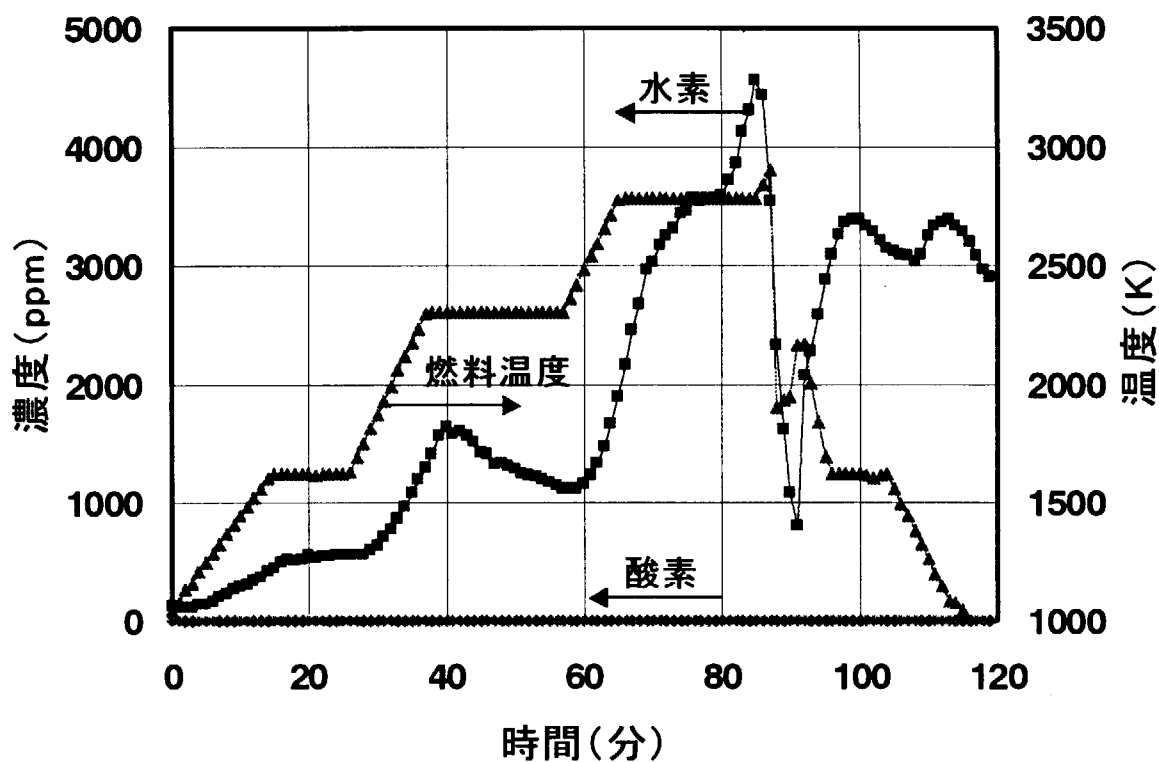


図3.5 VEGA-5実験のキャリアガス中の酸素及び水素濃度

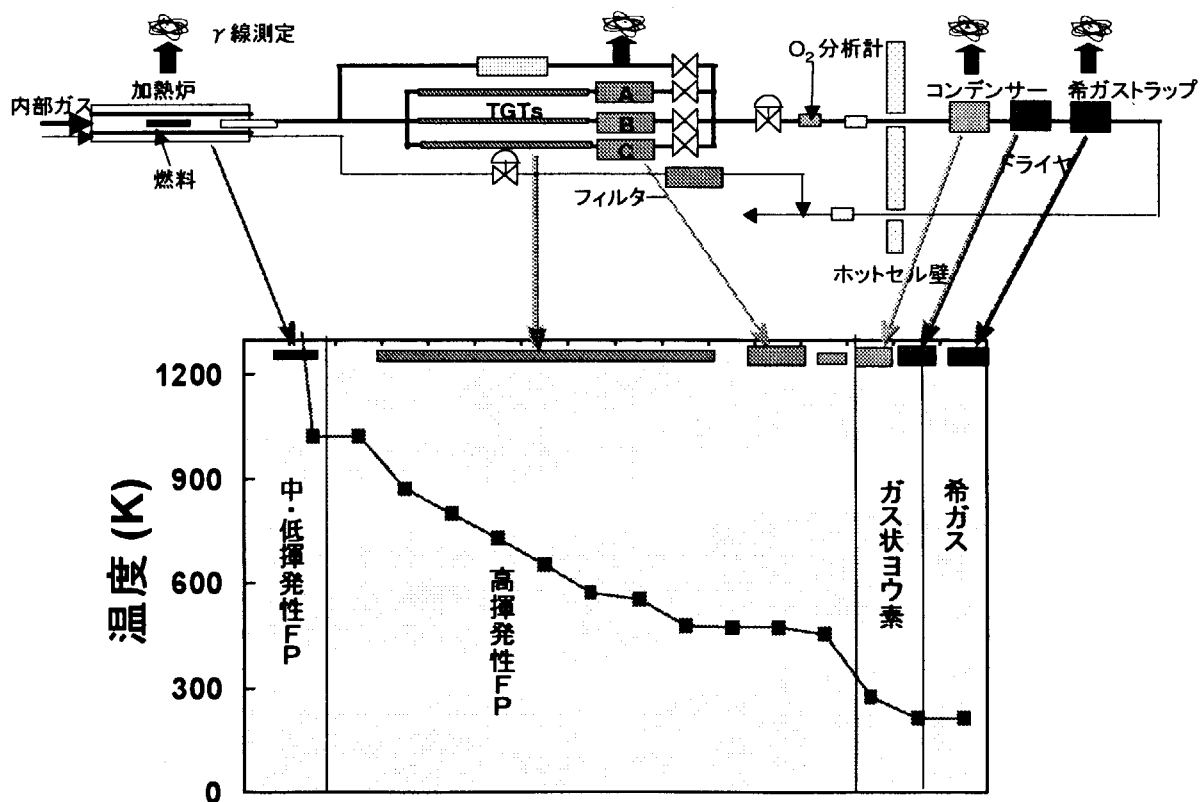


図3.6 VEGA実験装置の概要及び装置内温度分布

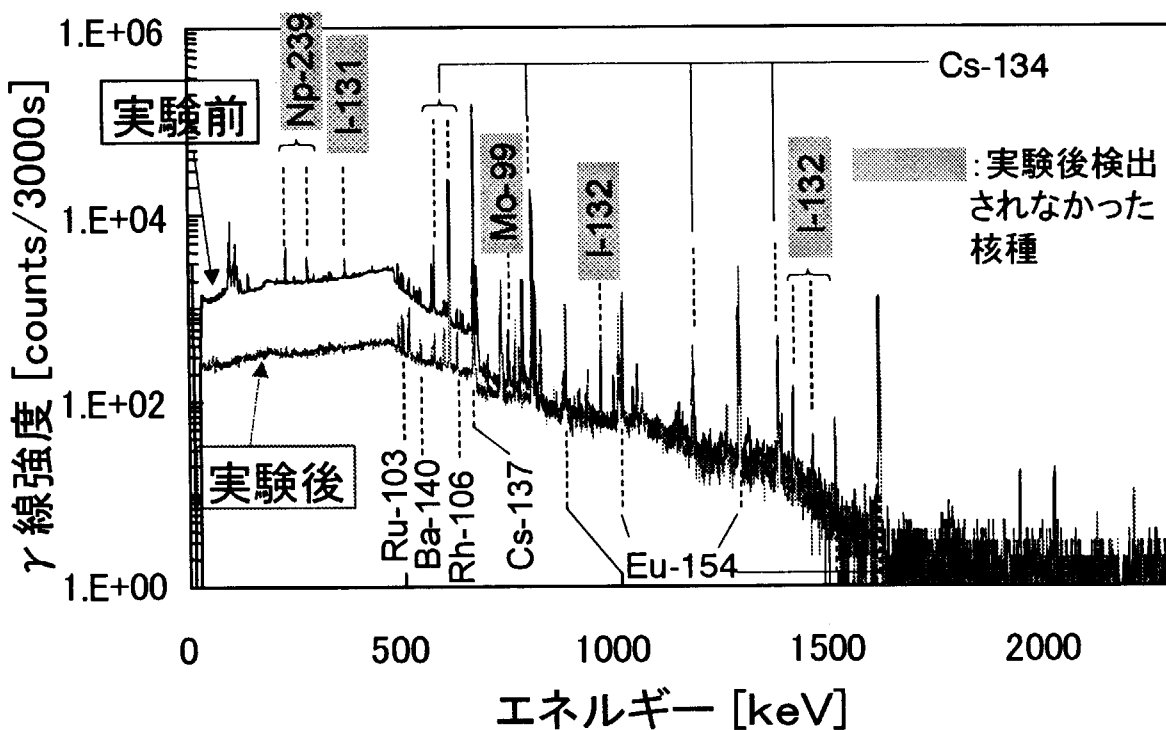


図3.7 VEGA-5実験前後における試験燃料のγ線スペクトルの変化

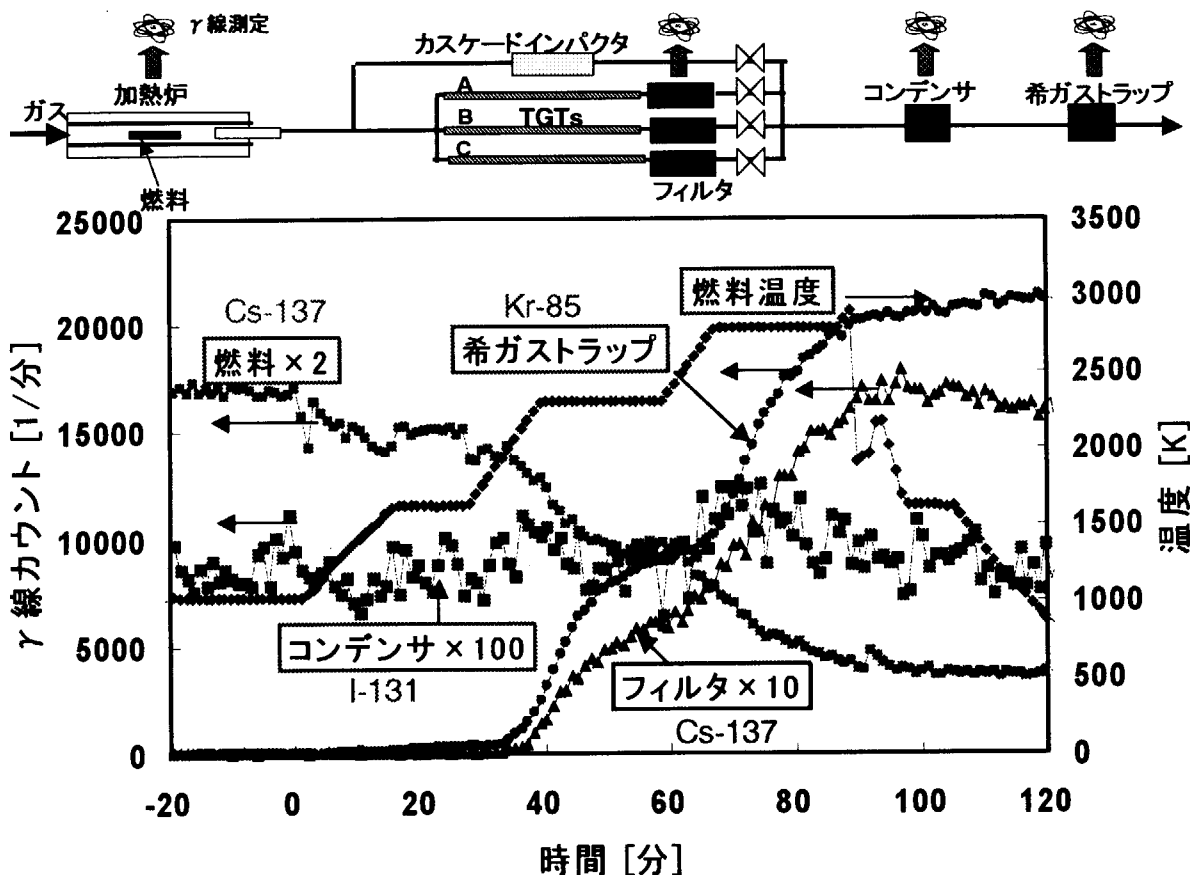


図3.8 VEGA-5実験各部のオンラインγ線強度の変化

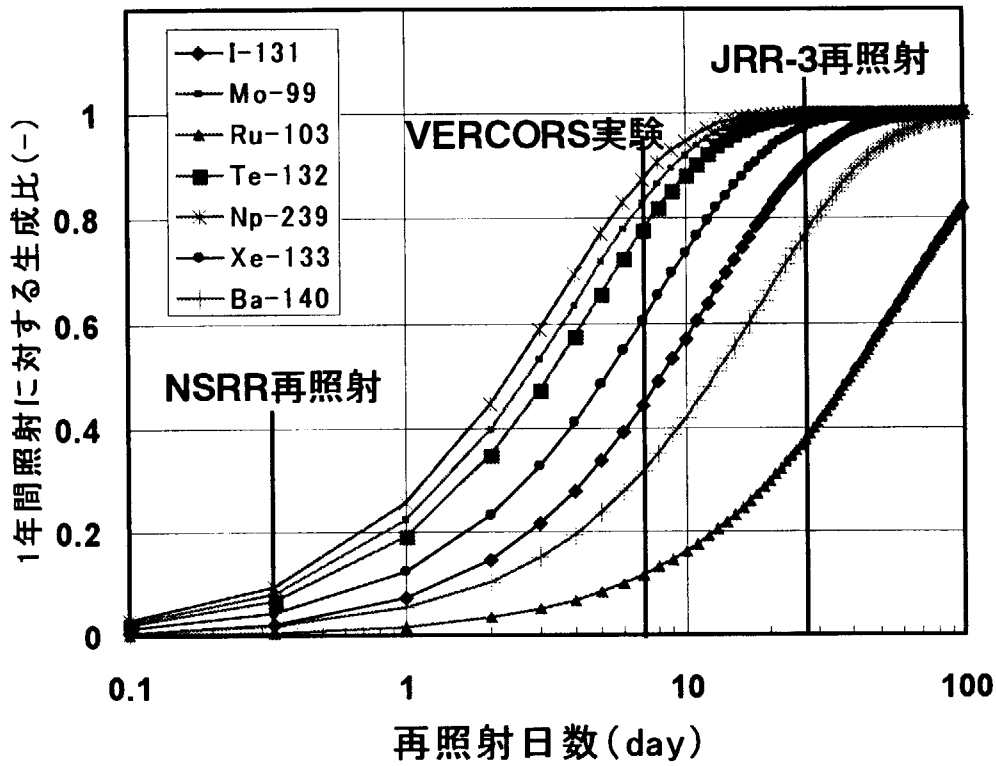


図3.9 再照射期間と短半減期核種の生成量

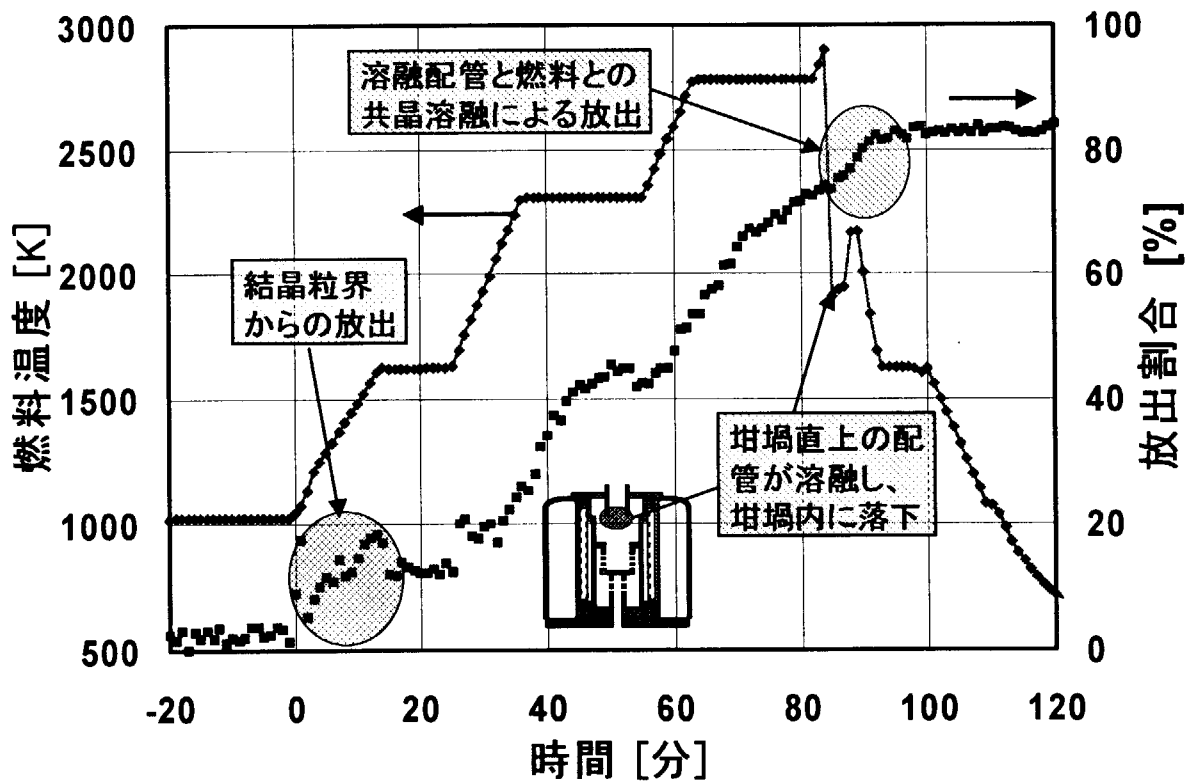


図3.10 VEGA-5実験におけるセシウム放出割合の履歴

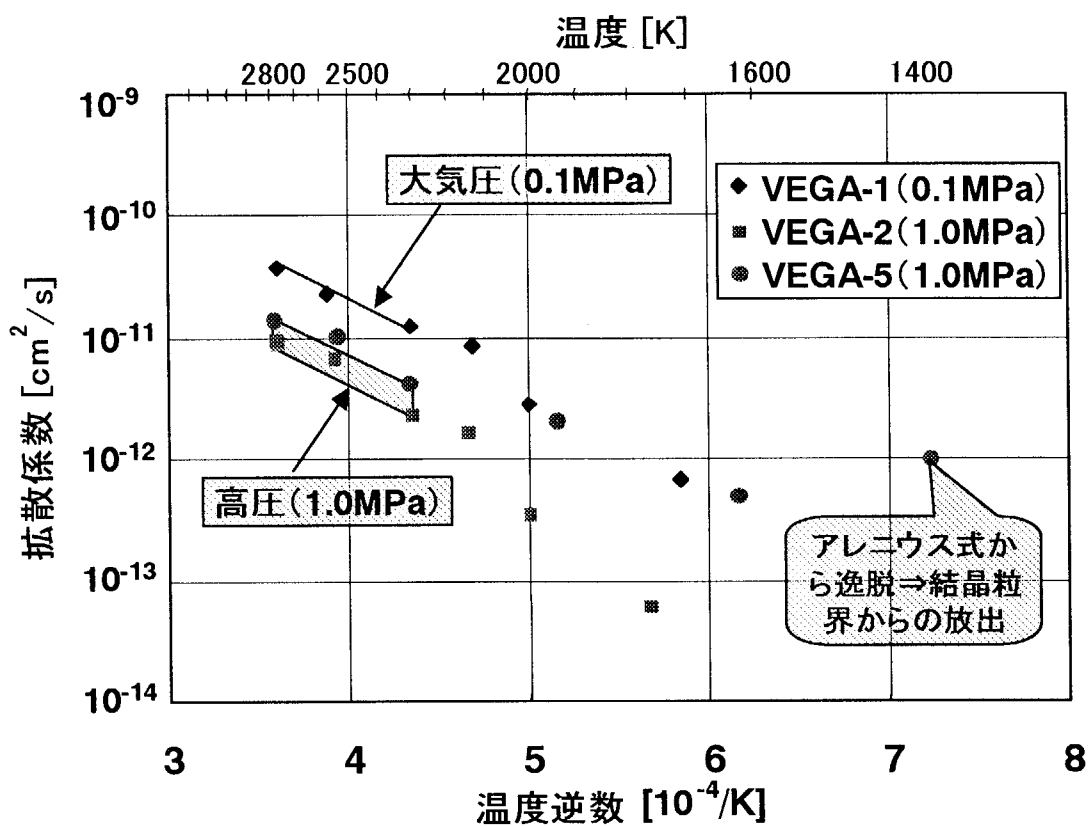


図3.11 セシウム拡散係数の比較

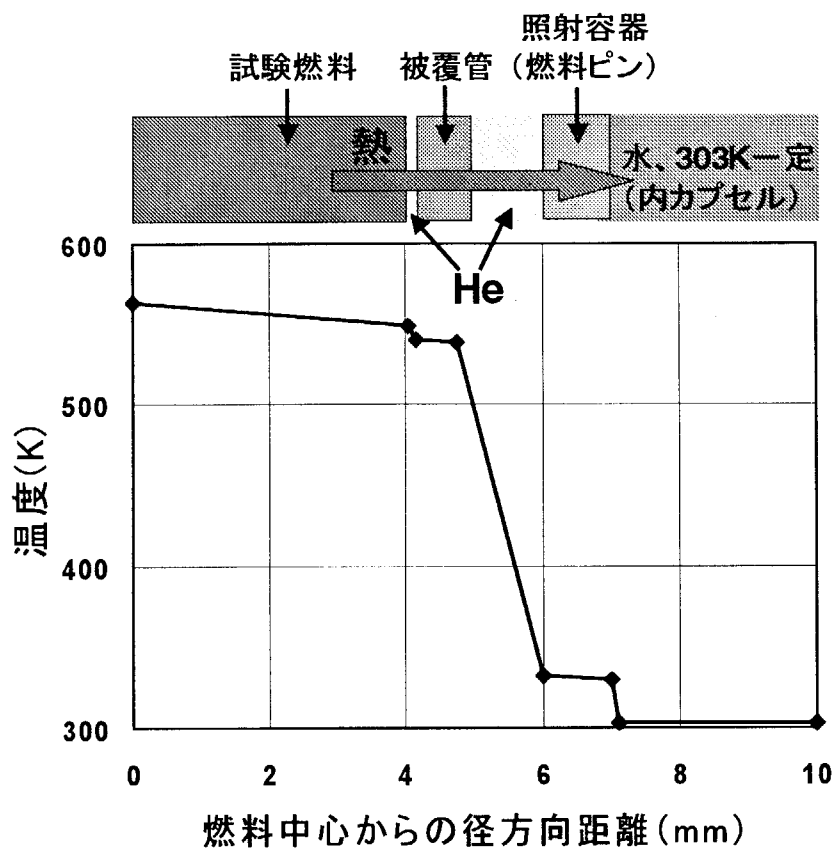


図3.12 NSRR再照射中の燃料近傍の径方向温度分布



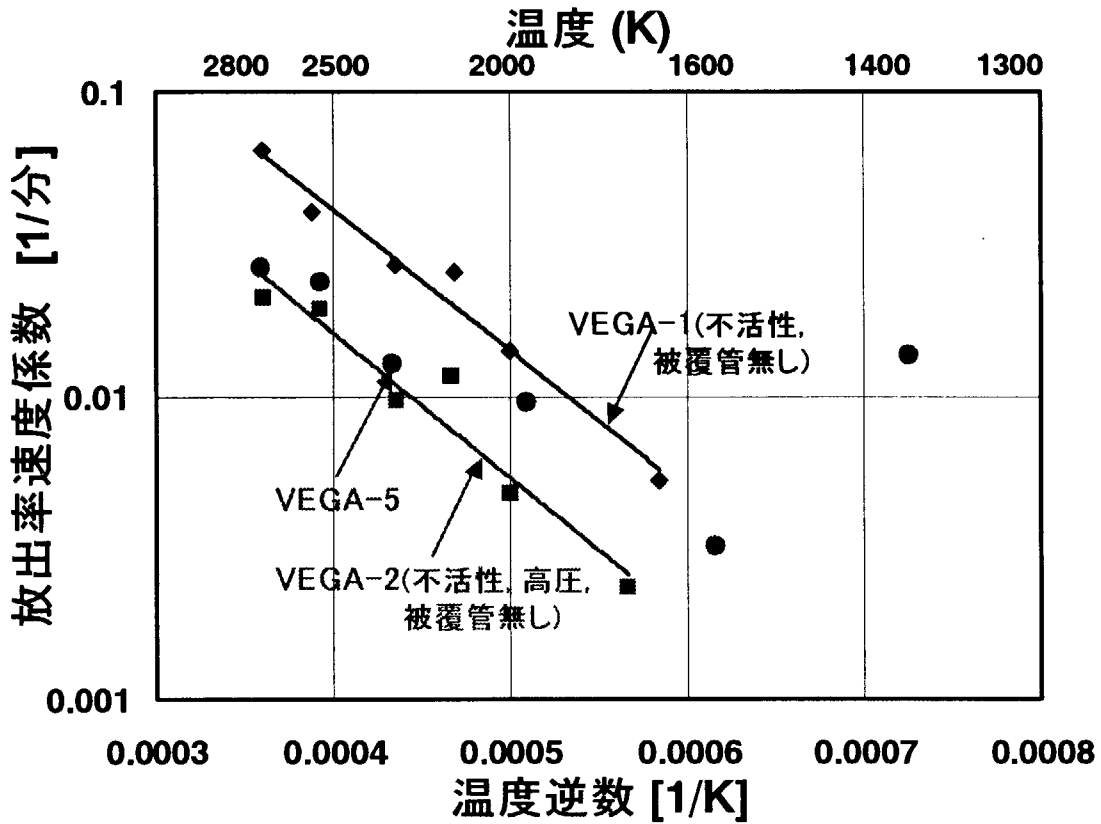


図3.13 セシウム放出率速度係数の比較

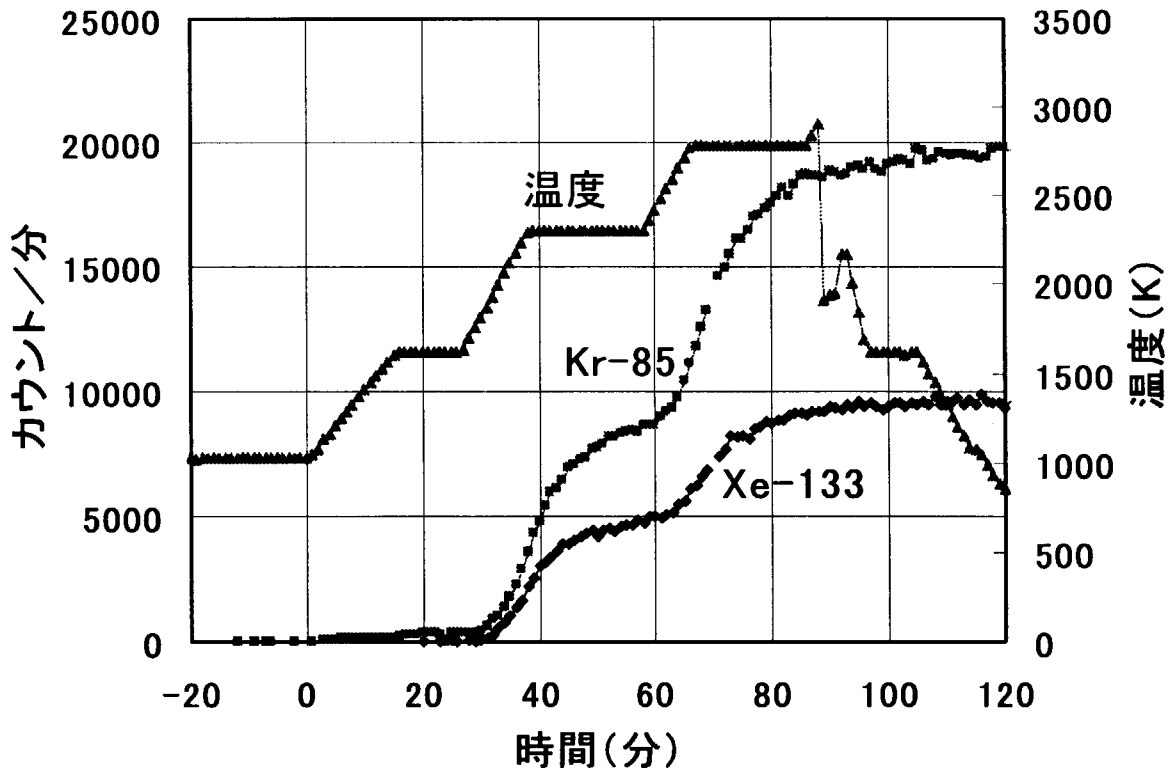


図3.14 希ガストラップにおけるγ線強度の変化(1)

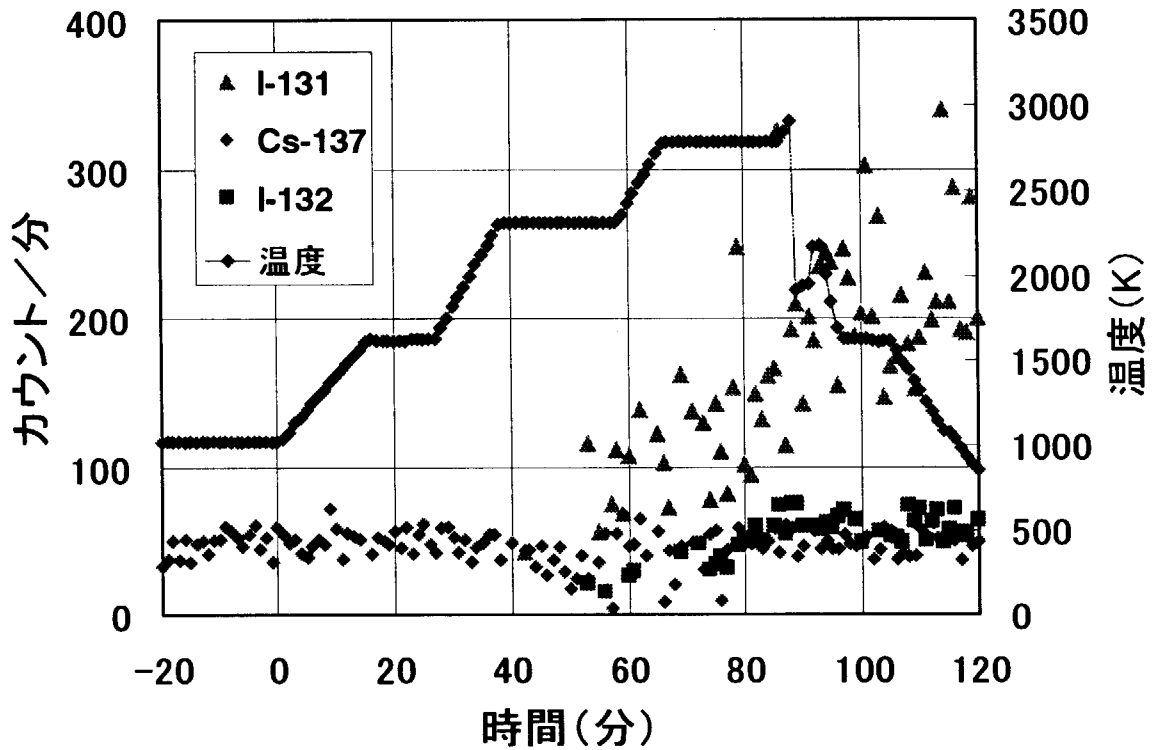


図3.15 希ガストラップにおける $\gamma$ 線強度の変化(2)

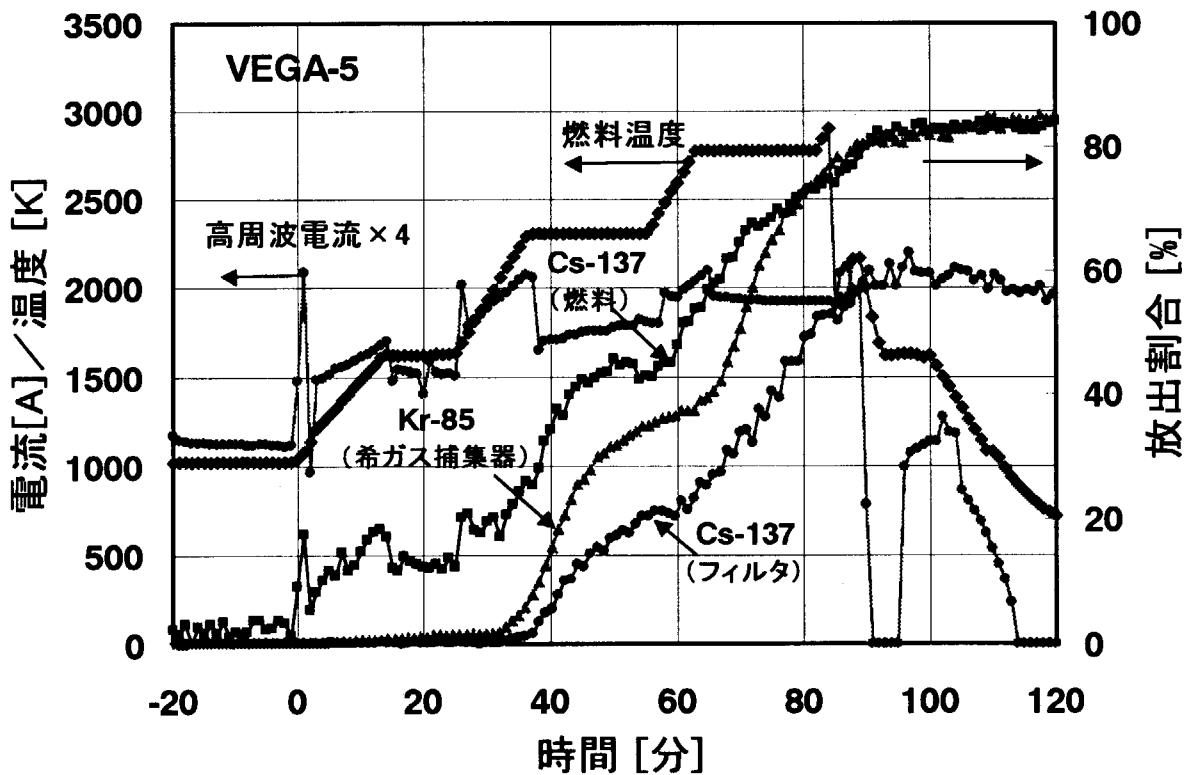


図3.16 希ガスとセシウム放出挙動の比較

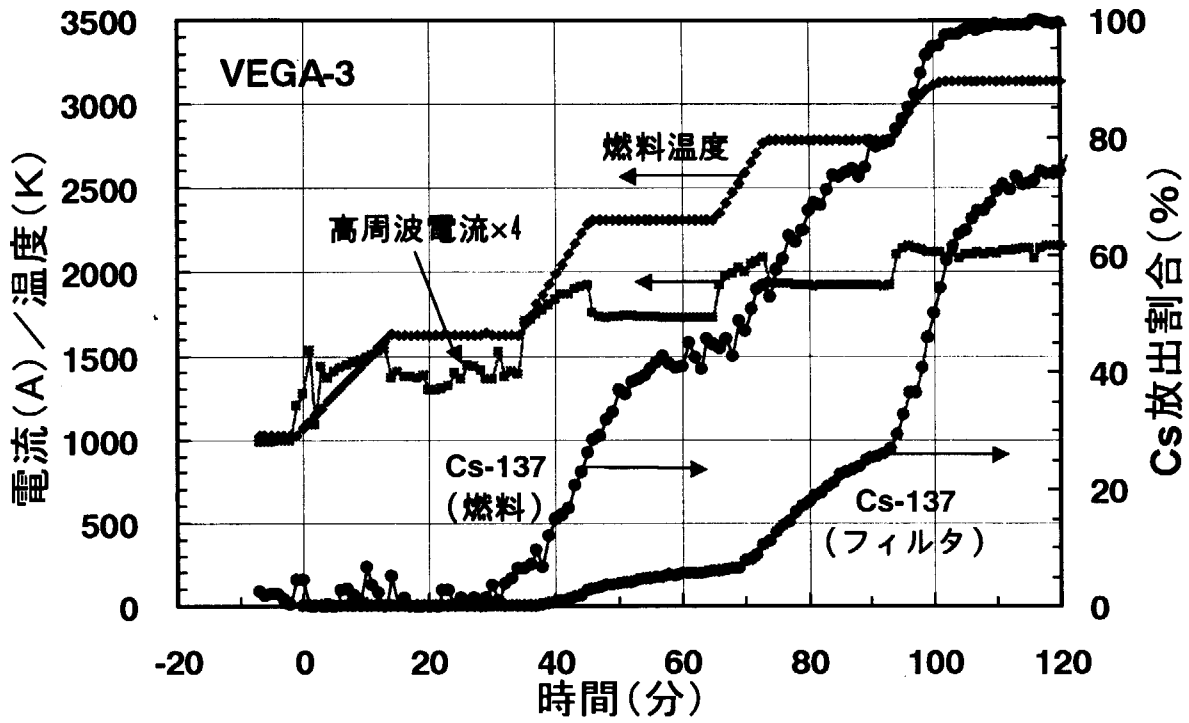


図3.17 VEGA-3実験におけるセシウム放出と高周波誘導電流

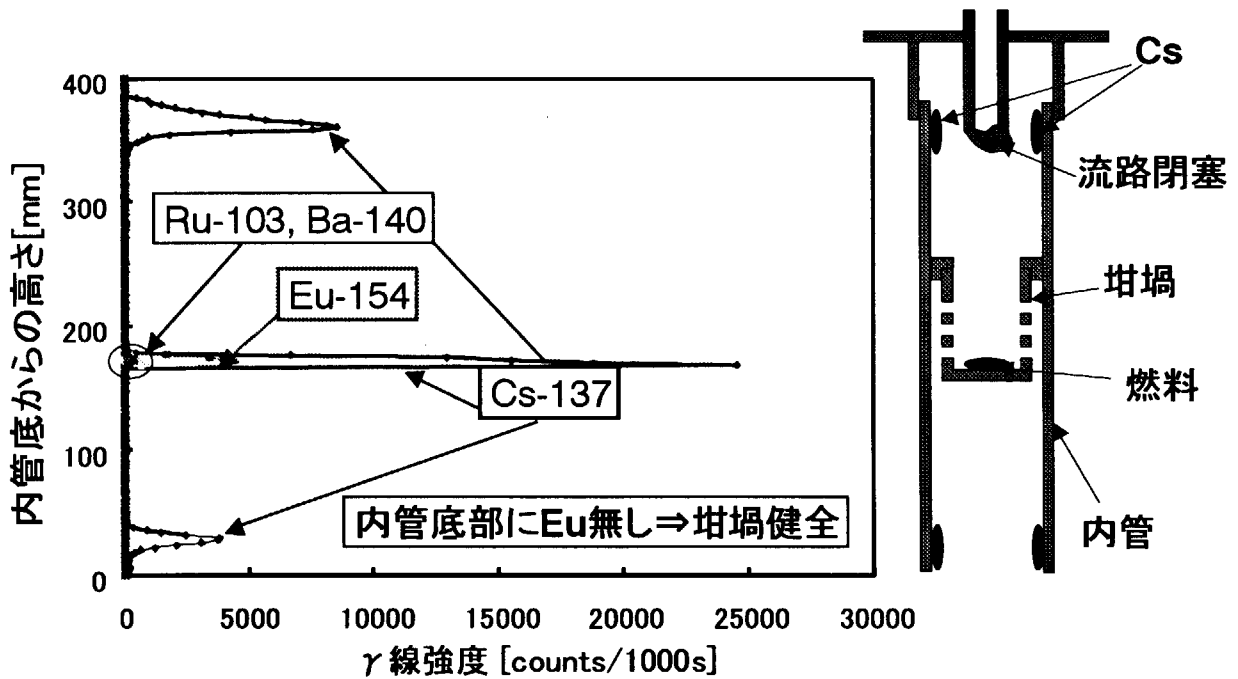


図3.18 VEGA-5実験後内管の軸方向 $\gamma$ 線ステップスキャン

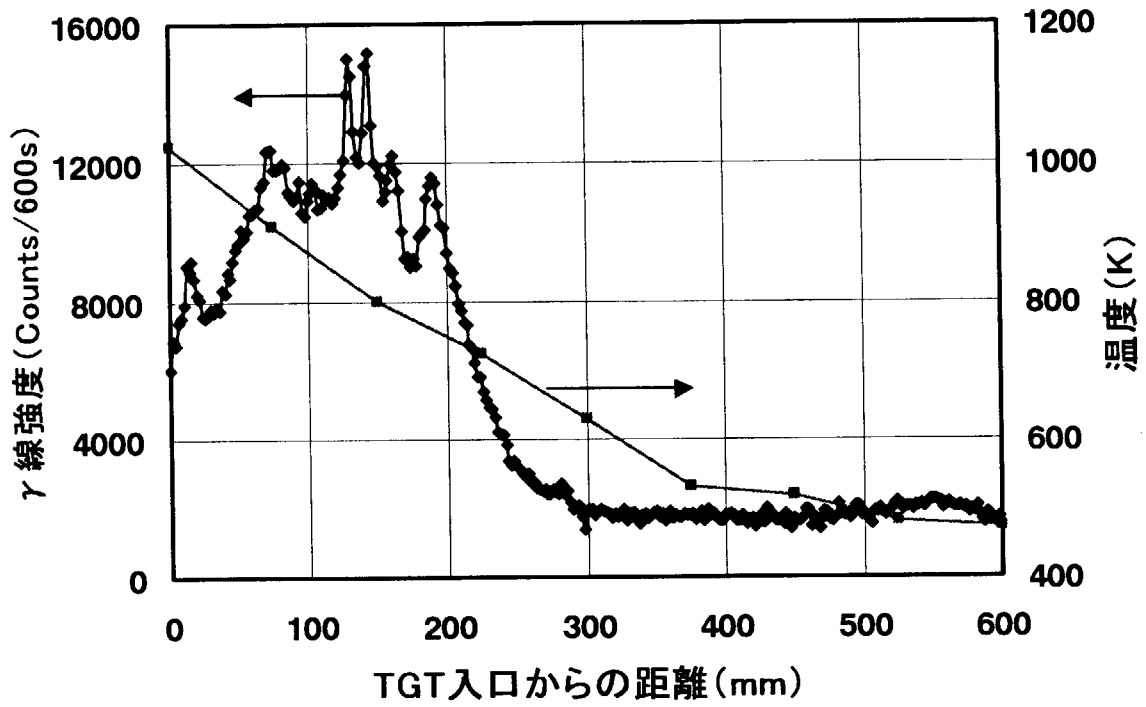


図3.19 温度勾配管内におけるセシウムからのγ線強度及び温度分布

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束密度	ウェーバ	Wb	V·s
インダクタンス	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
セルシウス温度	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光強度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射線エネルギー	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換 算 表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘 度 1 Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 <sup>1</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 <sup>-4</sup>	1.35951×10 <sup>-3</sup>	1.31579×10 <sup>-3</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
	6.89476×10 <sup>-3</sup>	7.03070×10 <sup>-2</sup>	6.80460×10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>3</sup>	1	8.59999×10 <sup>3</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>-19</sup>	1.63377×10 <sup>-20</sup>	4.45050×10 <sup>-26</sup>	3.82743×10 <sup>-20</sup>	1.51857×10 <sup>-22</sup>	1.18171×10 <sup>-19</sup>	1

1 cal= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 Ps(仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

高温・高圧下におけるNSRR再照射燃料からの放射性物質放出挙動「VEGA-5実験のガンマ線計測結果」