

JAERI-Tech

JP0450385

2004-033



## 照射済燃料ペレット内 F P ガス分析技術の開発

2004年3月

畠山 祐一・須藤 健次・金澤 浩之

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, Tokaimura, Naka-  
gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

## 照射済燃料ペレット内 F P ガス分析技術の開発

日本原子力研究所東海研究所ホット試験室

畠山 祐一・須藤 健次・金澤 浩之

(2004年1月30日受理)

照射済燃料ペレット内に生成する F P ガス (Kr, Xe) は、燃焼度とともに増加し、軽水炉燃料の熱的・機械的特性に大きな影響を与える。このため、軽水炉の高度化計画における燃料の健全性・安全性評価には、ペレットからの F P ガス放出に関する基礎的データを蓄積することが重要である。

日本原子力研究所の燃料試験施設では、F P ガス放出メカニズムの解明を目的とし、ペレット加熱時に放出される F P ガスを測定するアウトガス分析装置 (Out Gas Analyzer 以下; OGA) を開発した。OGA の最大の特長は、昇温中に放出される F P ガスを、四重極質量分析計でリアルタイムかつ高精度に測定可能であること、ならびに最大 2300°C まで段階的に昇温可能であることである。

本報は、OGA の概要、F P ガス測定手法及び照射済 UO<sub>2</sub> の加熱試験を含む特性試験結果について記述する。

Development of Fission Gas Measurement Technique in the Irradiated Fuel Pellet

Yuichi HATAKEYAMA, Kenji SUDOU and Hiroyuki KANAZAWA

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

(Received January 30, 2004)

The amount of fission gas (Kr,Xe) in irradiated fuel pellet increases with extending the burn up and that exerts a serious influence upon thermal and mechanical properties of light water reactor fuel. Therefore, the accumulation of the data on the release behavior of fission gas is important in the investigation program of safety and reliability for extended burn up fuel.

At the Reactor Fuel Examination Facility(RFEF) in JAERI, the Out Gas Analyzer (OGA) which can measure the released fission gas from the pellet with several heating conditions was developed to investigate the fission gas release mechanism. The benefits of OGA are to measure the released fission gas instantly with high accuracy by quadra-pole mass spectrometer and to heat up the UO<sub>2</sub> pellet stepwise up to 2300 °C.

This paper describes outline of the apparatus, fission gas measuring procedure and characteristic examination including the data of irradiated UO<sub>2</sub> pellets.

**Keywords:**LWR Fuel, Fission Gas, High Burn Up, Pellet, Hot Cell

## 目次

1. まえがき	1
2. アウトガス分析装置の概要	1
2.1 設計概念	1
2.2 装置構成	2
2.2.1 試料加熱系	2
2.2.2 F P ガス測定系	3
2.2.3 データ処理系	4
3. 測定方法の概要	4
3.1 F P ガス測定法	4
3.1.1 四重極質量分析計の校正	4
3.1.2 F P ガスサンプリング	4
3.1.3 定量分析	5
3.1.4 定性分析	6
4. 特性試験	6
4.1 加熱特性試験	6
4.1.1 2000 °C ステップ昇温	6
4.1.2 溫度急昇試験	7
4.2 系内真空度の影響	7
4.3 照射済 UO <sub>2</sub> 燃料ペレットを用いた特性試験	7
5. まとめ	8
謝辞	8
参考文献	9

**Contents**

1. Introduction . . . . .	1
2. Overview of Out Gas Analyzer . . . . .	1
2.1 Concept of the Design . . . . .	1
2.2 Composition of the Out Gas Analyzer . . . . .	2
2.2.1 Sample Heating Furnace Unit . . . . .	2
2.2.2 Fission Gas Mesurement Unit . . . . .	3
2.2.3 Data Processing Unit . . . . .	4
3. Outline of the Measuring Method . . . . .	4
3.1 Fission gas Measurement Method . . . . .	4
3.1.1 Calibration of Mass Spectrometer . . . . .	4
3.1.2 Fission Gas Sampling Procedure . . . . .	4
3.1.3 Quantitative Analysis . . . . .	5
3.1.4 Qualitative Analysis . . . . .	6
4. Performance Test . . . . .	6
4.1 Performance Test of the Heating . . . . .	6
4.1.1 Stepwise Heating Test to 2000 °C . . . . .	6
4.1.2 Rump Test . . . . .	7
4.2 Effect of the Vacuum Conditions . . . . .	7
4.3 Annealing Test of the Irradiated UO <sub>2</sub> Pellet . . . . .	7
5. Summary . . . . .	8
Acknowledgments . . . . .	8
References . . . . .	9

## 1. まえがき

軽水炉燃料の高度化、すなわち $\text{UO}_2$ 燃料の高燃焼度化や混合酸化物燃料（MOX燃料）の軽水炉利用にあたっては、通常運転時や事故時における燃料からのFPガス放出挙動を解明することが、軽水炉の安全性に関する重要なテーマの一つである。原子炉運転中の燃料ペレットからのFPガス放出は、燃料ペレット内でのFPガスの拡散が重要な支配因子の一つである。【1,2】

FPガス放出挙動を調べるためにには、照射済燃料ペレットをステップ状に加熱し、各温度における燃料ペレットからのFPガス放出量を精密に測定する試験方法（アニーリング試験）が有効である。【3】

原研の燃料試験施設では、このニーズに対応するため、ペレットを任意の温度条件で加熱し、そのとき放出されるFPガスを高精度で測定できるアウトガス分析装置を開発し、ホットセル内に整備した。本報では、アウトガス分析装置の概要及び性能を報告するとともに、照射済 $\text{UO}_2$ 燃料を用いた特性試験の結果について述べる。

## 2. アウトガス分析装置の概要

### 2.1 設計概念

OGAは燃料ペレットをセル内で目的温度まで加熱し、放出ガスをセル外のガス分析装置で同時に測定する装置である。装置の概略図をFig.1に示すとともに主な仕様をTable.1に示す。また本装置の基本設計概念を以下に記述する。

加熱炉はホットセル内に設置するため、高放射性試料の取り扱いに関する配慮、遠隔操作性及び保守作業の容易性を重視した構造とした。また、地震対策（水平震度 0.36）、停電対策、機器故障等によるインターロック等を考慮した安全設計とした。

加熱炉内に挿入される試料るつぼは、加熱時に照射済 $\text{UO}_2$ 燃料ペレットと反応相を形成しないこと、耐熱性を有していること及び照射済燃料ペレットから放出されるFPガスを吸着しない点を考慮し、タンクステンを選定した。また、照射済燃料ペレットを段階的に加熱し、FPガス放出挙動を調べるためにには、短時間に目的温度まで加熱する必要があるため高周波誘導加熱方式を用いた。試料加熱系は、加熱炉のみをホットセル内に設置し、高周波発振器、操作盤等をホットセル外に設置した。ホットセル内に設置する加熱炉は、ホットセル内スペースの有効利用及び遠隔操作性の向上を図るため、小型、軽量及び単純な構造のものとした。到達最高温度は照射済 $\text{UO}_2$ 燃料ペレット内のFPガスを最大1時間程度で全量放出させることを目標に 2300 °Cとした。

照射済燃料ペレットから放出されるFPガスをリアルタイムに測定が必要があるため、ガス分析計に、真空排気ラインに直接組み込んで連続測定が可能な四重極質量分析計を使用した。

また、ホットセル内に設置される炉体表面部は、閉ループ方式の水冷却とし、炉の表面温度を 80 °C以下とすることでホットセル内雰囲気の温度上昇を抑える設計とした。

四重極質量分析計を含むFPガス測定装置は、ホットセル外の専用負圧ボックス内に設置する

ことで真空ポンプ類、真空配管の保守性を向上させる構造とした。F P ガス測定装置のバルブ開閉、真空ポンプ類の起動・停止等はボックス外のタッチパネル上で容易に操作できるものとした。

温度測定には、十分な温度応答範囲と温度分解能を有する赤外線放射温度計(温度測定範囲：300 °C～2300 °C)を用いた。F P ガスの測定データや試料温度、真空中度等は全てデータ処理システムにより記録及び管理できる構造とした。

## 2.2 装置構成

装置は、試料加熱系、F P ガス測定系及びデータ処理系に大別される。

### 2.2.1 試料加熱系

試料加熱系は、加熱炉、高周波制御装置及び冷却装置より構成される。

#### (1) 加熱炉

加熱炉は、炉の中心から、試料るつぼ、サセプタ、ワークコイル、熱遮蔽板及びチャンバーの順に配置される。試料るつぼは、内径 18mm 及び深さ 29mm の円筒容器であり、サセプタは、内径 31mm 及び深さ 203mm の円筒管で、高周波電流を効率よく引き出し、試料るつぼの均温を得るためにものである。また、熱放射損失を極力少なくするために、多重層の熱遮蔽板をサセプタの上下に配置している。これらの構成部材は、2300 °Cまで耐える材料としてタンゲステン製とした。ワークコイルには銅製角パイプを使用し、パイプ内に冷却水を循環させている。また、チャンバーはステンレス鋼製とし、冷却系と一体型にすることで、ホットセル内のジョイント部を分離後ホットセル内クレーンによって吊り上げられ、加熱炉内への試料セットが容易に行える構造とした。チャンバーアー下部のフランジには赤外線式放射温度計によって試料るつぼ温度を計測するための石英窓を設けている。

加熱炉の概略図を Fig.2、加熱炉の外観写真を Fig.3 及び加熱炉の内部写真を Fig.4 に示す。

#### (2) 高周波制御装置

試料は、試料るつぼに入れた照射済燃料ペレットを高周波により間接的に誘導加熱する。本制御部では、ワークコイルの近傍に整合トランス（カレントトランス：CT）を置くことにより、ワークコイルと CTとのインピーダンスを均衡させ、効率よく高周波電流を引き出すことを可能とした。

高周波制御装置の主な仕様を Table.2 及びその外観写真を Fig.5 に示す。

本制御装置には温度調節器が取り付けられており、高周波誘導加熱炉内の試料るつぼ温度を監視・制御している。温度計には、赤外線放射温度計が用いられている。放射温度計本体は放射線ダメージを避けるため、ホットセル外（操作室）に配置し、壁貫通孔を介し、光ファイバーで接続した。なお、光ファイバーには、外部損傷を防ぐためステンレス製フレキシブル被覆を施した。

測定対象温度範囲が 300 °Cから 2300 °Cであるため、1300 °Cまでの低温側に単色温度計、1200 °Cからの高温側に二色温度計を使用して、高周波発振器の制御を精度良く行えるようにした。なお、単色温度計から二色温度計への切替を 1250 °Cに設定し、単色温度計がこの温度に達した

際、単色温度計による高周波発振器の出力を一旦保持した後、二色温度計に手動で切り替えられるようにした。

赤外線放射温度計の主な仕様を Table.3 に示す。

### (3) 冷却装置

冷却装置は、ホットセル内に設置した加熱炉、ワークコイル部及び操作室に設置した高周波発振器の冷却に使用する。加熱炉冷却系統は、冷却水が放射性物質で汚染された場合にホットセル外への汚染拡大を防止するため、操作室側に熱交換機を配置した 2 段階冷却方式とし、セル内へ導入する 1 次側冷却系統を閉ループ循環方式とした。また、操作室に設置されている高周波発振器を別系統とした。

冷却装置の外観写真を Fig. 6 に示す。

#### 2.2.2 F P ガス測定系

F P ガス測定系は F P ガス測定装置及び真空監視制御装置から構成される。

##### (1) F P ガス測定装置

F P ガス測定装置は真空ポンプ、四重極質量分析計、真空計、配管、各バルブ等で構成され、メンテナンス等を考慮して操作室に設置した。装置の外観写真を Fig.7 及び真空排気系統図を Fig.8 に示す。

真空排気は、ロータリーポンプとターボ分子ポンプを使用し、ロータリーポンプの排気側にはオイルミストトラップを取り付け、ホットセル内へのオイル飛散を防止している。ターボ分子ポンプは、並列に 2 台配置し、F P ガス分析装置と加熱炉を分岐して真空引きをすることが可能である。また、F P ガス放出量に応じて測定ラインを随時切り替えることで、系内真圧度を維持しながらの分析が可能なサンプリングラインを設けた。

系内には、ピラニー真空計及び電離真空計が備えられ、各部の真圧度を連続監視するとともに、真圧度が低下した場合に加熱炉を安全に停止するためのインターロック制御にも用いられている。

ガス分析は、四重極質量分析計を使用しており照射済燃料ペレットより放出された F P ガスの連続分析が可能である。四重極質量分析計は、イオン源部、フィルター部及び検出部から構成され、イオン源で生成されたイオンをフィルター部で質量ごとに分離し、検出部でそのイオン電流値を測定している。

##### (2) 真空監視制御装置

真空監視制御装置は、各真空ラインにおける真圧制御及び圧力変動状況の確認、四重極質量分析計の設定状況、配管のベーキング温度等を制御する。真空監視制御装置の外観写真を Fig.9 に示す。

### 2.2.3 データ処理系

データ処理系は、FPガスの測定データ、試料温度及び四重極質量分析計側の真圧度の記録を行う他に、別の処理系により高周波発振器からの電圧値、電流値、出力等の記録を行い、各機器の安全系統を集中監視する。

## 3. 測定方法の概要

### 3.1 FPガス測定法

四重極質量分析系の校正に用いる標準ガス（天然ガス）と試料から放出されるFPガスでは同位体存在比が異なるため、定性分析で得られたFPガスの存在比を使ってガス量の補正を行う必要がある。FPガスの定性及び定量分析は以下の方法により実施される。

#### 3.1.1 四重極質量分析計の校正

FPガス測定前に、装置に付属のHe,Kr及びXeの標準リーグを用い、<sup>4</sup>He,<sup>84</sup>Kr及び<sup>129</sup>Xeの代表核種について四重極質量分析計の測定電流値(A)とガス量(Pa・m<sup>3</sup>)の換算係数(K値)を求めが必要がある。換算係数は、下記式により求めることができる。

$$K = \frac{Q_{STD}}{\int I_{STD}} \quad (1)$$

ここで、Kは換算係数、Q<sub>STD</sub>はガス量(Pa・m<sup>3</sup>)及び $\int I_{STD}$ は測定電流積算値(A)である。

#### 3.1.2 FPガスサンプリング

照射済燃料ペレット中のFPガス放出量の温度依存性を調べるために、任意の燃料ペレット温度におけるFPガス放出量を連続的に測定することがこの装置の主題である。

FPガスを連続的に測定するためには、四重極質量分析計の測定可能真圧度を維持すること及び分析計内へのFPガス流入量を調整し、測定限界量を超えないようにする必要がある。このため加熱炉構造材にタンクステン、タンタル等の金属材料を用いることで構造材表面へのガス吸着を抑え、バックグラウンドガスの低減化を図ることで、ガス測定中の系内を高真圧度に保ち、さらに照射済燃料ペレットから放出されたガス量に応じて、ガス量の1/4を測定する「1/4 ライン」、1/500を測定する「1/500 ライン」及び全量測定する「全量ライン」の3つのサンプリングラインを隨時切替えて、測定することで連続測定を可能とした。通常、照射済燃料ペレットの測定時(試料重量約3g)は1/500ラインを使用し、微小な試料(数百mg)は全量ラインまたは1/4ラインで測定する。

#### (1) 測定条件

前述の様にFPガス測定ラインは3種類のサンプリング比を選択可能であるが、FPガスの定

量分析ではこのサンプリング比を詳細に求める必要がある。このため高精度の標準ガス（精度： $\pm 2\%$ 、組成比：Xe:Kr:He:Ar (Balance)=10%:10%:10%:70%）を用いてサンプリング比を決定した。各ラインの詳細な測定系統図をFig.10に示す。

測定は50ccと500ccのサンプリングボトルに同圧の標準ガスを溜め込み、500ccボトルは1/500ラインで、50ccボトルは全量ラインで測定し、その比を正確に求めた。

なお、1/4ラインにおいても同様の方法で測定を実施し、サンプリング比を求めた。

## (2) 測定結果

測定結果をTable.4に示す。測定の結果、各ガスのサンプリング比は1/4ライン及び1/500ラインとともに質量数によってサンプリング比に差が生じた。これは、分子流領域における分子量依存性により、質量の異なる混合ガスでは、分析管に到達する分子の数に差が出るためである。測定で導き出された各々のガスのサンプリング比は、1/4ライン及び1/500ラインとともに質量数に対する依存性が確認できた。質量数とサンプリング比の関係をFig.11に示す。

### 3.1.3 定量分析

#### (1) 概要

F Pガスの定量には、各温度条件で放出されたF Pガスを連続的に四重極質量分析計に導入し測定を行うリアルタイム測定法と、ボトルに溜め込んだ後に測定を行うスタティック測定法がある。

リアルタイム測定法では、対象試料の重量あるいは温度条件により、放出されるガス量が連続的に変化するため、四重極質量分析計の測定可能な真空度を維持できない場合がある。このため、可変型手動バルブにより、試料から放出されたF Pガスの四重極質量分析計への流入量を最大1/500まで減量し、測定を行うことが可能な配管構成とした。また、四重極質量分析計のSEM（二次電子増倍管）は、質量数ごとにイオン信号を電子に置き換えて $10^6 \sim 10^5$ 倍に増幅することができる。この四重極質量分析計の場合は-1kV～-3kVに可変することが可能であり、放出ガス量を推定してSEM電圧を可変し測定を行うことが可能である。

#### (2) F Pガス量の算出方法

F Pガスを四重極質量分析計に導入し、代表的な ${}^4\text{He}$ ,  ${}^{86}\text{Kr}$ 及び ${}^{136}\text{Xe}$ の電流値を測定する。その測定電流の積算値から、下記式により0°C・1気圧における照射済燃料ペレット1g当たりのF Pガス量を算出する。

$$Q_{FP} = \frac{\int I_{FP} dt \times S \times K \times (R_{STD}/R_{FP})}{W} \times \frac{273}{273+R.T} \quad (2)$$

ここで、 $Q_{FP}$ は0°C・1気圧における1g当たりのF Pガス量(Pa·m<sup>3</sup>/g)、 $\int I_{FP} dt$ は測定電流積算値(A)、Sはサンプリング比、Kは換算係数、 $R_{STD}$ は天然ガスの同位体存在比(%)

: ( $^{84}\text{Kr}$ ,  $^{129}\text{Xe}$  の存在比)、 $R_{FP}$  は F P ガスの同位体存在比 (%) : ( $^{86}\text{Kr}$ ,  $^{136}\text{Xe}$  の存在比)、W は試料重量 (g) 及び R.T は測定部の雰囲気温度 (°C) である。

### 3.1.4 定性分析

F P ガスの定性分析は、前記(2)で述べたリアルタイム測定法とスタティック測定法で測定することが可能である。前述の (1) 式では標準ガスの換算係数を実験により導いたが、Kr 及び Xe の場合照射済燃料ペレットから放出される F P ガスは同位体存在比が天然ガスとは異なる。このため四重極質量分析計の電流積算値からガス量を算出するには、同位体存在比補正が必要となる。F P ガスの同位体存在比を決定するため、定量分析を終えた試料を、再度試験最高温度まで昇温し、定性分析スペクトルを採取する。この測定によって各々の F P ガスの同位体存在比が求められる。その結果を Table.5 に示す。ここで得られた存在比は (2) 式の  $R_{FP}$  として用いられる。標準ガスと F P ガスの定性分析スペクトルを Fig.12 に示す。

## 4. 特性試験

本装置をホットセル内に設置後、主要部である高周波加熱炉の加熱性能を確認するために、空るつぼを使用した加熱特性試験を実施するとともに、標準ガス及び照射済  $\text{UO}_2$  燃料ペレットを用いた特性試験を実施した。標準ガスを用いた特性試験は、ガス分析精度確認データの採取を目的として行った。

### 4.1 加熱特性試験

#### 4.1.1 2000 °Cステップ昇温

照射済燃料ペレットからの F P ガス放出挙動を確認する試験では、試料をステップ状に昇温し、各温度条件における放出 F P ガス量を把握する必要がある。本装置におけるステップ昇温特性を確認するために、2000 °Cまでのプログラム自動昇温試験を行った。

##### (1) 測定条件

加熱炉内に空るつぼをセットし、真空雰囲気中で ( $1.0 \times 10^3 \text{ Pa}$  以下 [測定開始時]、試験温度 400 °C から 2000 °C までの 17 ステップについて、昇温速度 7 °C/sec で昇温を行った。各温度の保持時間は 400 °C から 1900 °C までの各ステップでは 10 分間、2000 °C については 30 分間とした。

設定条件を Table.6 に示す。

##### (2) 測定結果

加熱特性試験を行った温度曲線を Fig.13 に示す。横軸は時間で、縦軸は温度である。加熱試験の結果、昇温速度はほぼ設定どおりの昇温曲線が得られた。また、目的温度での温度安定性は、昇温過程から温度保持状態に入る際に若干のオーバーシュートが見られたが、全ての温度について安定した温度制御が行えることが確認された。

#### 4.1.2 温度急昇試験

照射済燃料ペレット内の生成 FP ガス全量を求める試験では、目的温度まで 1 ステップで昇温し、同温度で最大時間保持する必要がある。<sup>【4】</sup>本試験では 2000 °C で約 90 分間の保持を実施した。

##### (1) 測定条件

加熱炉内に空るつぼをセットし、真空雰囲気中で ( $1.0 \times 10^{-3}$  Pa 以下 [測定開始時]、試験温度 2000 °C、昇温速度 7 °C/sec) で昇温を行った。保持時間は 90 分である。

設定条件を Table.7 に示す。

なお、本装置は先に述べたとおり、低温側及び高温側 2 つの温度計を使用しており、温度計切替点を 1250 °C として設けている。そのため、温度計切替点で一度保持した後に、試験温度まで昇温を実施した。

##### (2) 測定結果

加熱特性試験を行った温度曲線を Fig.14 に示す。横軸は時間で、縦軸は温度である。加熱試験の結果、昇温速度及び温度安定性は、設定通り安定した温度制御であることが確認された。

#### 4.2 系内真圧度の影響

FP ガス測定ラインには FP ガス放出量に対応して 3 つのラインを切り替えて測定可能な構造となっているが、各々のラインでは系内真圧度レベルに差が生じてくる。よって、系内真圧度が測定精度に与える影響を確認しておくために、標準ガスを用いた確認試験を実施した。

##### (1) 測定条件

標準ガス (Xe:Kr:He:Ar (Balance)=10%:10%:10%:70%) を一定量サンプリングボトルに採取し、高真圧条件 ( $10^4$  Pa) 及び低真圧条件 ( $10^3$  Pa) で各々測定を実施した。

##### (2) 測定結果

低真圧度及び高真圧度条件下において、各々サンプリングした標準ガスの測定を行った結果を Table.8 に示す。この結果、真圧度の差による Kr,Xe の測定値誤差は 2 % 以下であり、今回設定した真圧度の範囲では測定値への影響はほとんど無いことが明らかになった。

#### 4.3 照射済 UO<sub>2</sub>燃料ペレットを用いた特性試験

##### (1) 試験条件

本試験では、燃焼度 42,000MWd/t の照射済 UO<sub>2</sub>燃料ペレットを 1.84g 用いて、1/500 ラインでリアルタイム測定を実施した。昇温条件は、400 °C から 2000 °Cまでの 12 ステップについて、昇温速度 7 °C/sec、保持時間は 400 °C から 1700 °C で 20 分間、2000 °C で 60 分の条件で実施した。詳細な温度条件については Table.9 に示す。

## (2) 試験結果

特性試験を行った「時間一放出量曲線」を Fig.15 に示す。また、温度履歴を Fig.16 及び真空度履歴を Fig.17 に示す。この結果、温度上昇と同時にガス放出が見られた。特に 1500 °C付近において放出量が増大していることが判明した。この放出は、結晶粒内からの F P ガス拡散によるものと考えられる。

1 g 当たりの F P ガス放出量は、He :  $1.14 \times 10^{-3}$ (Pa·m<sup>3</sup>/g)、Kr :  $2.46 \times 10^{-3}$ (Pa·m<sup>3</sup>/g)及び Xe :  $2.00 \times 10^{-2}$ (Pa·m<sup>3</sup>/g)であり、全ガス量は  $2.36 \times 10^{-2}$ (Pa·m<sup>3</sup>/g)で、この際の Xe/Kr 比は 8.1 であった。各温度毎の F P ガス放出量を Table.10 に示す。

## 5. まとめ

アウトガス分析装置の開発により、照射済UO<sub>2</sub>燃料ペレットをステップ状に加熱し、各温度条件での放出ガス量を連続的に測定することが可能となった。本装置の特性試験では、加熱炉の昇温特性及び系内真空度のデータへの影響を確認したところ、いずれも目的仕様を十分に満足する結果であった。また、照射済UO<sub>2</sub>燃料ペレットを用いた昇温試験の結果、F P ガスを精度良く測定可能であることが判った。さらに本装置は、照射済燃料から採取された微小試料のアニーリング試験も可能であり、照射済燃料ペレット半径方向からいくつかの試料を採取することで、より詳細な F P ガス放出挙動試験にも対応できる。今後、照射済燃料の安全性研究に関する試験装置として、所内・外において有効に活用されるものと期待される。

## 謝辞

本稿をまとめるにあたり多くのご助言を与え、ご指導してくださった新藤ホット試験室長、天野ホット試験次長、関田実用燃料試験課長を始め、関係者諸氏に対して深く感謝の意を表します。

### 参考文献

- 1) H. Sasajima, "Fission gas release from 50MWd/kgU PWR fuels (Out-of-pile annealing test)", the 24<sup>th</sup> NSRR Technical Review Meeting, 2000
- 2) H. Kanazawa and K. Yanagisawa, "Study of out-of-pile fission gas release from 14x14 PWR Fuel pre-irradiated to 39 MWd/kgU", JAERI-04-348, 1993
- 3) K.Une and S.Kashibe, "Fission Gas Release during Post Irradiation Annealing of BWR fuels" Journal of Nuclear Science and Tec, November 1990
- 4) H. Kanazawa et al., "Fission gas release from high burn up PWR fuels under transient conditions", IAEA-TECDOC-697, 1993

Table.1 本装置の主な仕様

高周波加熱炉	加熱方法	高周波誘導加熱（間接加熱）
	最高温度	2300 °C
高周波電源	定格出力	30kW
	発振周波数	21.5kHz
放射温度計	測定範囲	300 °C ~ 1300 °C (単色)
		1200 °C ~ 2300 °C (二色)
四重極質量分析計	測定質量数	1 ~ 400
	測定限界電流値	$1 \times 10^{-5}$ A
	測定可能真空度	$1 \times 10^{-2}$ Pa

Table.2 高周波制御装置の主な仕様

電源入力	3相 200V 最大 37.5kVA
高周波出力	最大定格 30kW
発振周波数	15 ~ 25kHz

Table.3 赤外線放射温度計の主な仕様

測定温度範囲	①	300 °C ~ 1300 °C (単色)
	②	1200 °C ~ 2500 °C (二色)
測定精度	①	800 °C未満 : ± 4 °C 800 °C以上 : 測定値の ±0.5 % (但し、放射率比 ≈ 1.0 の場合)
	②	1500 °C未満 : 測定値の ±0.5 % 1500 °C ~ 2000 °C : 測定値の ±1.0 % 2000 °C以上 : 測定値の ±2.0 % (但し、放射率比 ≈ 1.0 の場合)
	①	0.5 °C
	②	1.0 °C
応答時間	①	0.02 秒
	②	0.5 秒

Table.4 質量数とサンプリング比の関係

質量数	サンプリング比	
	1/4 ライン	1/500 ライン
4	3.65	385
84	3.85	490
129	3.90	505

Table.5 定性分析結果

K r				X e			
天然ガス		F P ガス		天然ガス		F P ガス	
質量数	存在比(%)	質量数	存在比(%)	質量数	存在比(%)	質量数	存在比(%)
82	11.3	83	11.3	129	26.4	131	6.8
83	11.4	84	34.0	131	21.2	132	22.0
84	56.2	85	3.3	132	26.9	134	28.1
86	16.9	86	50.8	134	10.2	136	42.8

Table.6 2000 °Cステップ昇温 設定条件  
(昇温条件)

温度 (°C)	昇温速度 (°C/sec)	保持時間 (min)
400	7	10
500	7	10
600	7	10
700	7	10
800	7	10
950	7	10
1100	7	10
1200	7	10
1300	7	10
1500	7	10
1700	7	10
2000	7	30

Table.7 溫度急昇試験 設定条件  
(昇温条件)

温度 (°C)	昇温速度 (°C/sec)	保持時間 (min)
2000	7	90

Table.8 低真空度と高真空度での測定値比較

	高真空度側電流値(A)	低真空度側電流値(A)
Kr	$1.08 \times 10^{-3}$	$1.10 \times 10^{-3}$
Xe	$1.01 \times 10^{-3}$	$1.02 \times 10^{-3}$

Table.9 照射済 UO<sub>2</sub>燃料ペレットを用いた特性試験 設定条件  
(昇温条件)

温度 (°C)	昇温速度 (°C/sec)	保持時間 (min)
400	7	20
500	7	20
600	7	20
700	7	20
800	7	20
950	7	20
1100	7	20
1200	7	20
1300	7	20
1500	7	20
1700	7	20
2000	7	60

Table.10 各温度毎の FP ガス放出量

温度 (°C)	1g 当たりの FP ガス放出量(Pa・m <sup>3</sup> /g)				Xe/Kr 比
	He	Kr	Xe	TOTAL	
400	$3.36 \times 10^{-5}$	$1.72 \times 10^{-5}$	$1.93 \times 10^{-4}$	$2.44 \times 10^{-4}$	
500	$1.44 \times 10^{-6}$	$3.30 \times 10^{-6}$	$2.88 \times 10^{-6}$	$7.62 \times 10^{-6}$	
600	$5.76 \times 10^{-6}$	$3.15 \times 10^{-6}$	$2.77 \times 10^{-6}$	$1.17 \times 10^{-5}$	
700	$2.78 \times 10^{-5}$	$3.30 \times 10^{-6}$	$5.40 \times 10^{-6}$	$3.65 \times 10^{-5}$	
800	$2.87 \times 10^{-5}$	$3.16 \times 10^{-6}$	$5.14 \times 10^{-6}$	$3.70 \times 10^{-5}$	
900	$6.76 \times 10^{-5}$	$3.85 \times 10^{-6}$	$1.36 \times 10^{-5}$	$8.51 \times 10^{-5}$	
1100	$3.76 \times 10^{-5}$	$3.23 \times 10^{-6}$	$1.28 \times 10^{-5}$	$5.36 \times 10^{-5}$	
1200	$3.23 \times 10^{-6}$	$3.34 \times 10^{-6}$	$1.66 \times 10^{-5}$	$5.22 \times 10^{-5}$	
1300	$3.92 \times 10^{-5}$	$5.27 \times 10^{-6}$	$3.82 \times 10^{-5}$	$8.27 \times 10^{-5}$	
1500	$6.57 \times 10^{-4}$	$1.93 \times 10^{-4}$	$1.60 \times 10^{-3}$	$2.45 \times 10^{-3}$	
1700	$1.52 \times 10^{-4}$	$5.89 \times 10^{-4}$	$4.92 \times 10^{-3}$	$5.66 \times 10^{-3}$	
2000	$5.43 \times 10^{-5}$	$1.63 \times 10^{-3}$	$1.32 \times 10^{-2}$	$1.49 \times 10^{-2}$	
TOTAL	$1.14 \times 10^{-3}$	$2.46 \times 10^{-3}$	$2.00 \times 10^{-2}$	$2.36 \times 10^{-2}$	8.1

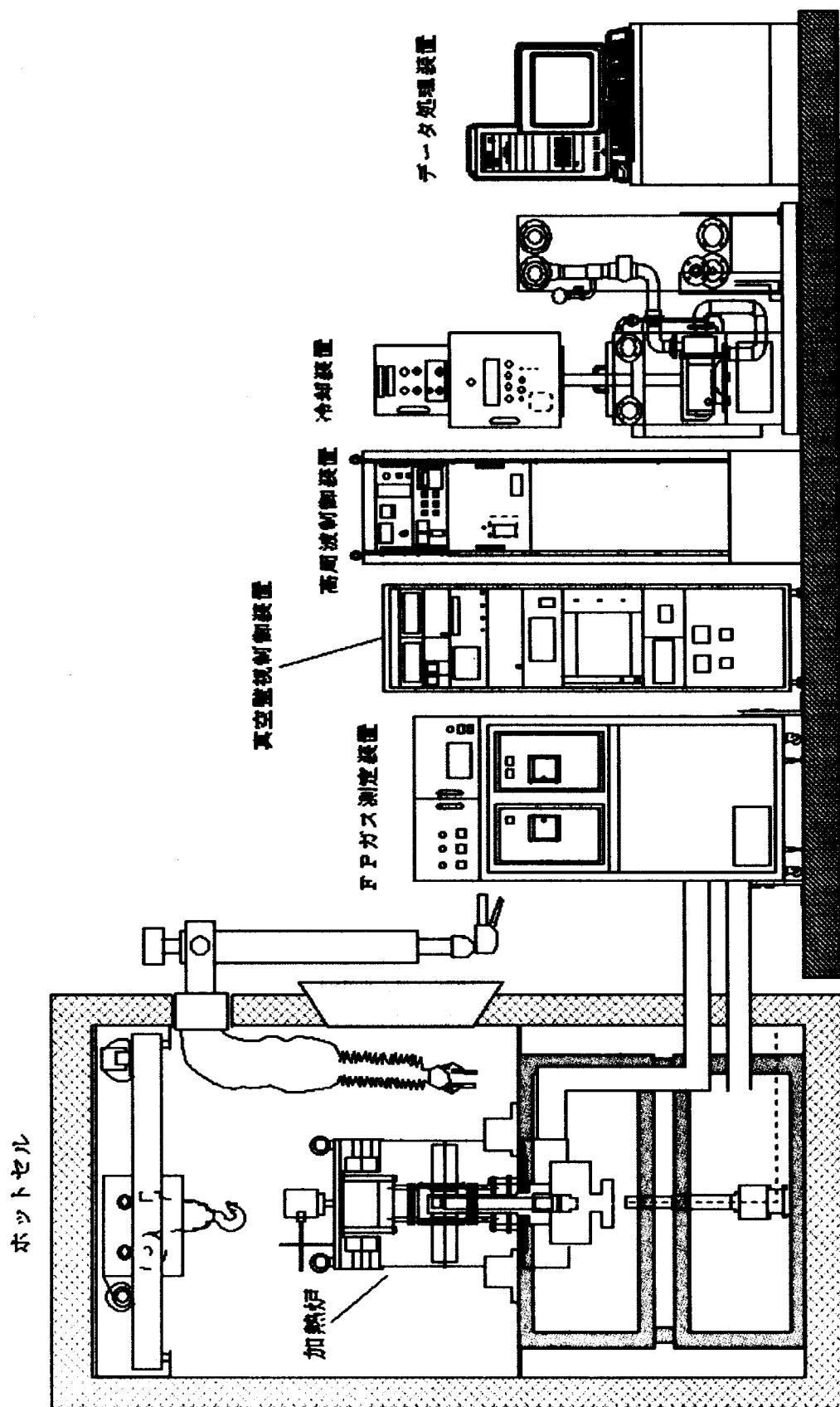


Fig.1 アウトガス分析装置 全体概略図

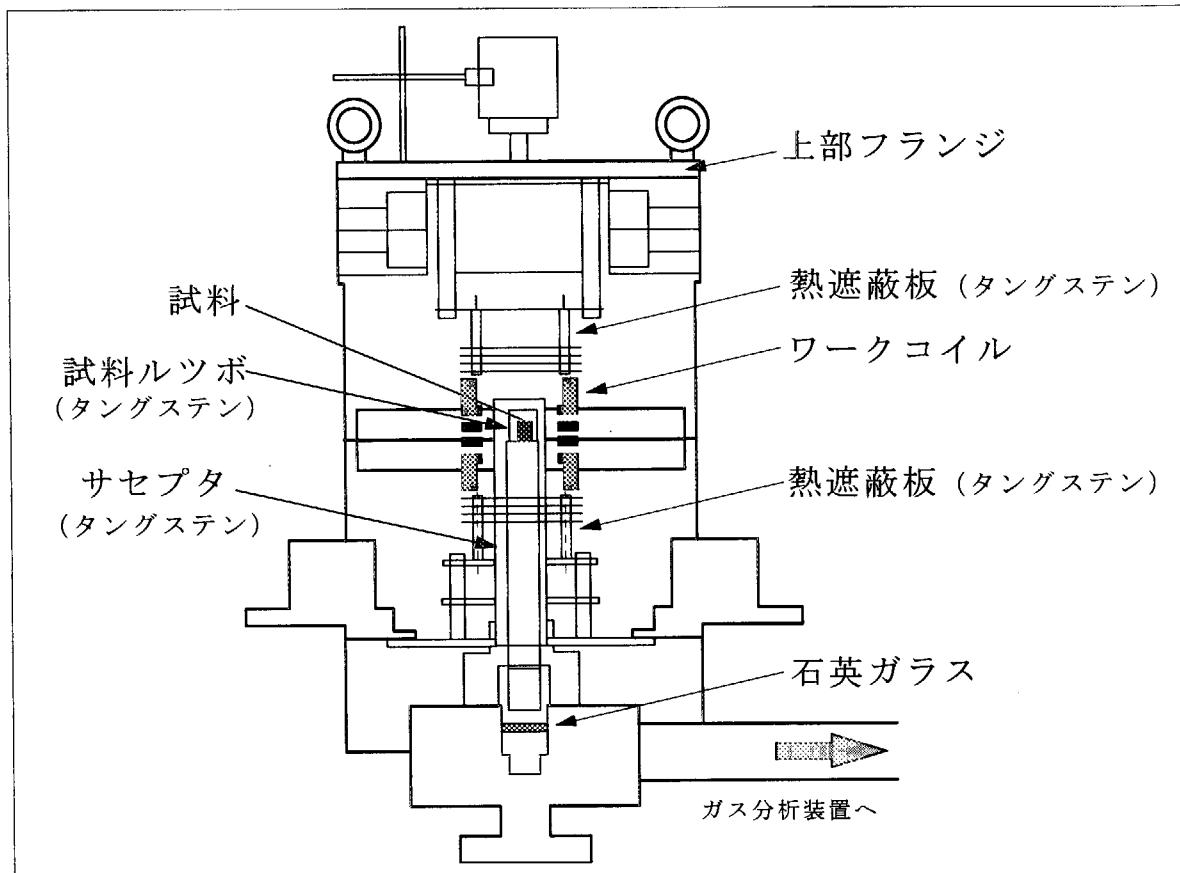


Fig.2 加熱炉概略図

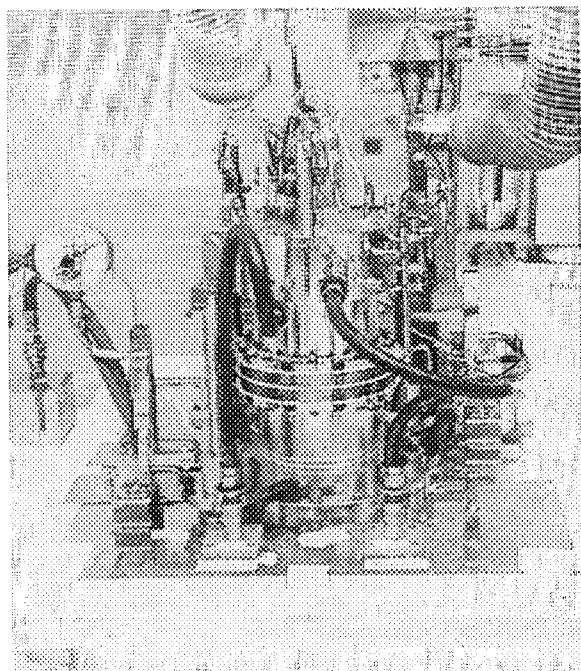


Fig.3 加熱炉外観写真

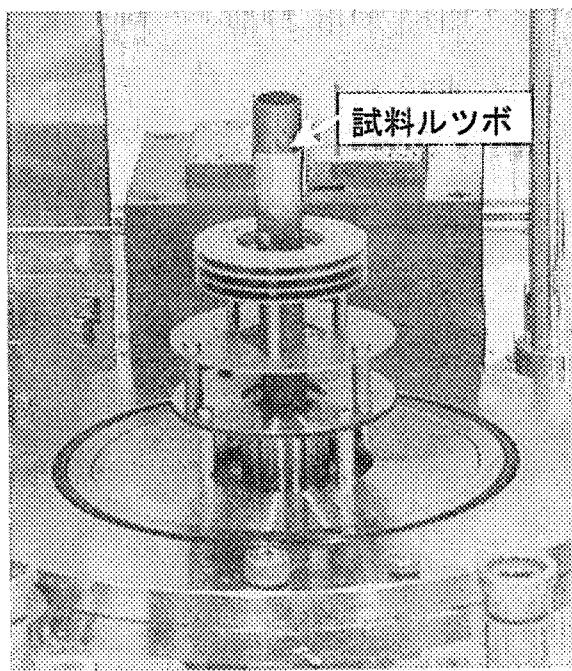


Fig.4 加熱炉内部写真

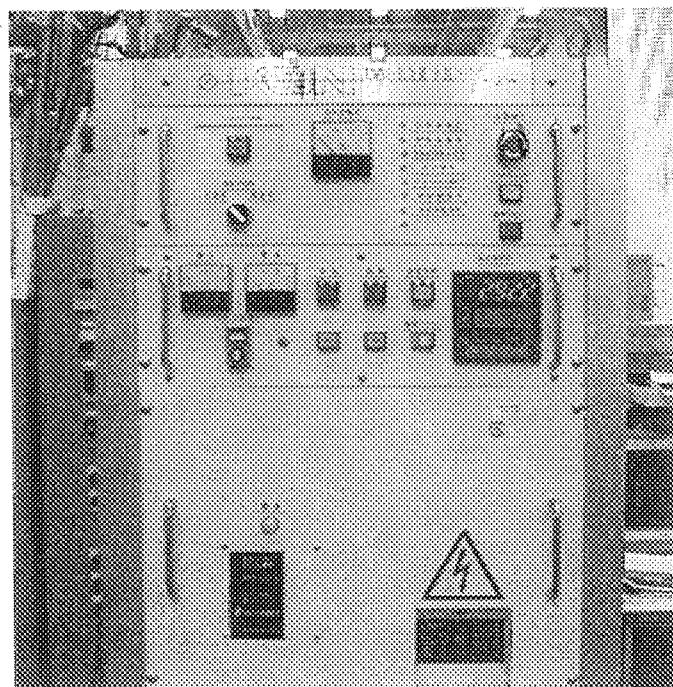


Fig.5 高周波制御装置

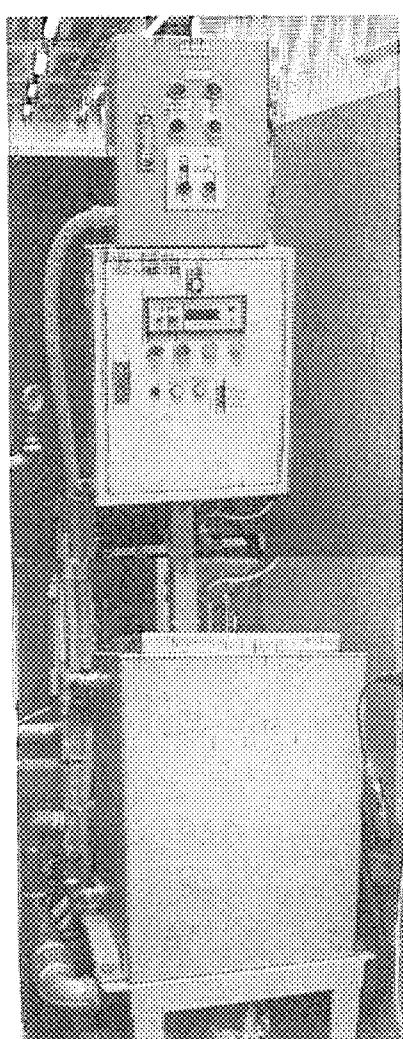


Fig.6 冷却装置

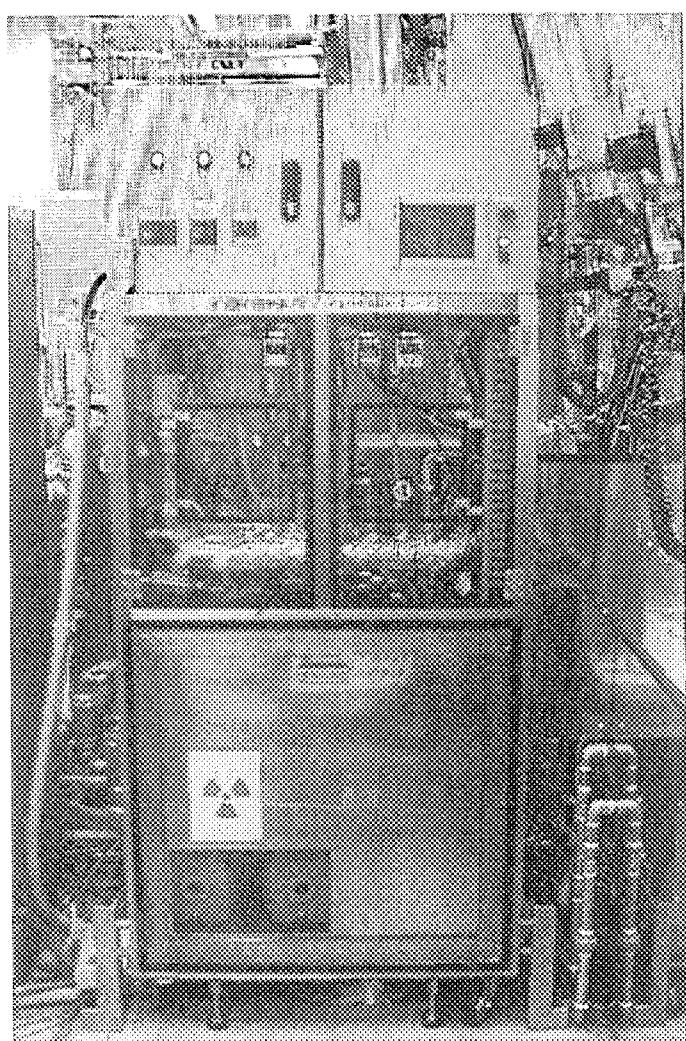


Fig.7 F P ガス測定装置

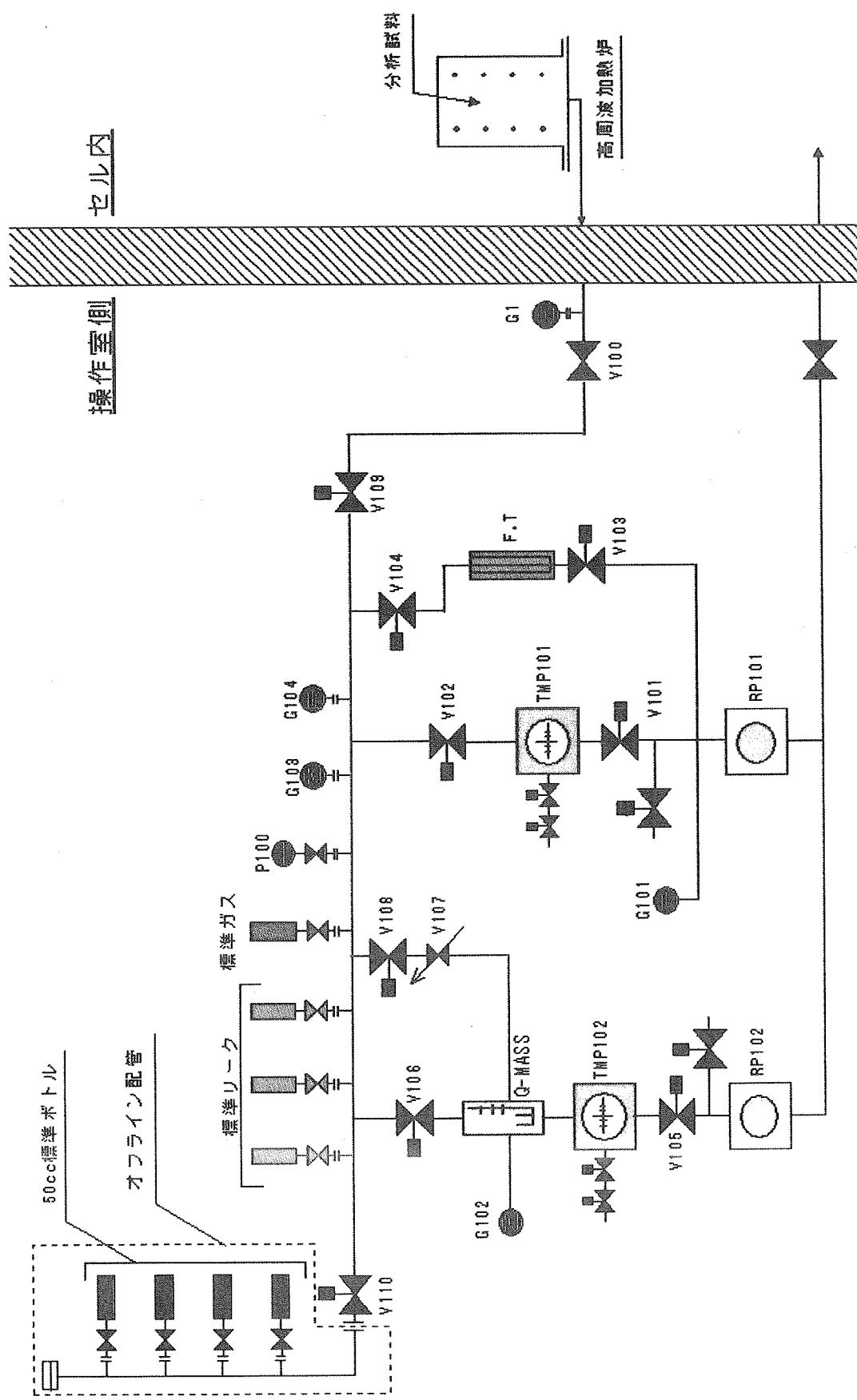


Fig.8 真空排気系統図

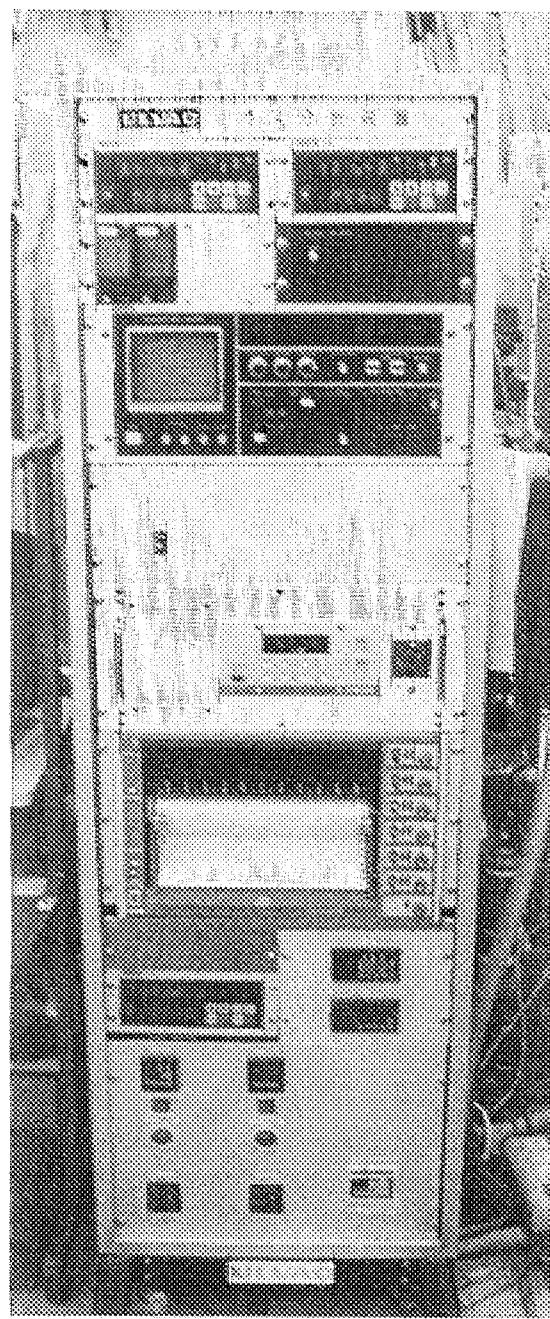


Fig.9 真空監視制御装置の外観写真

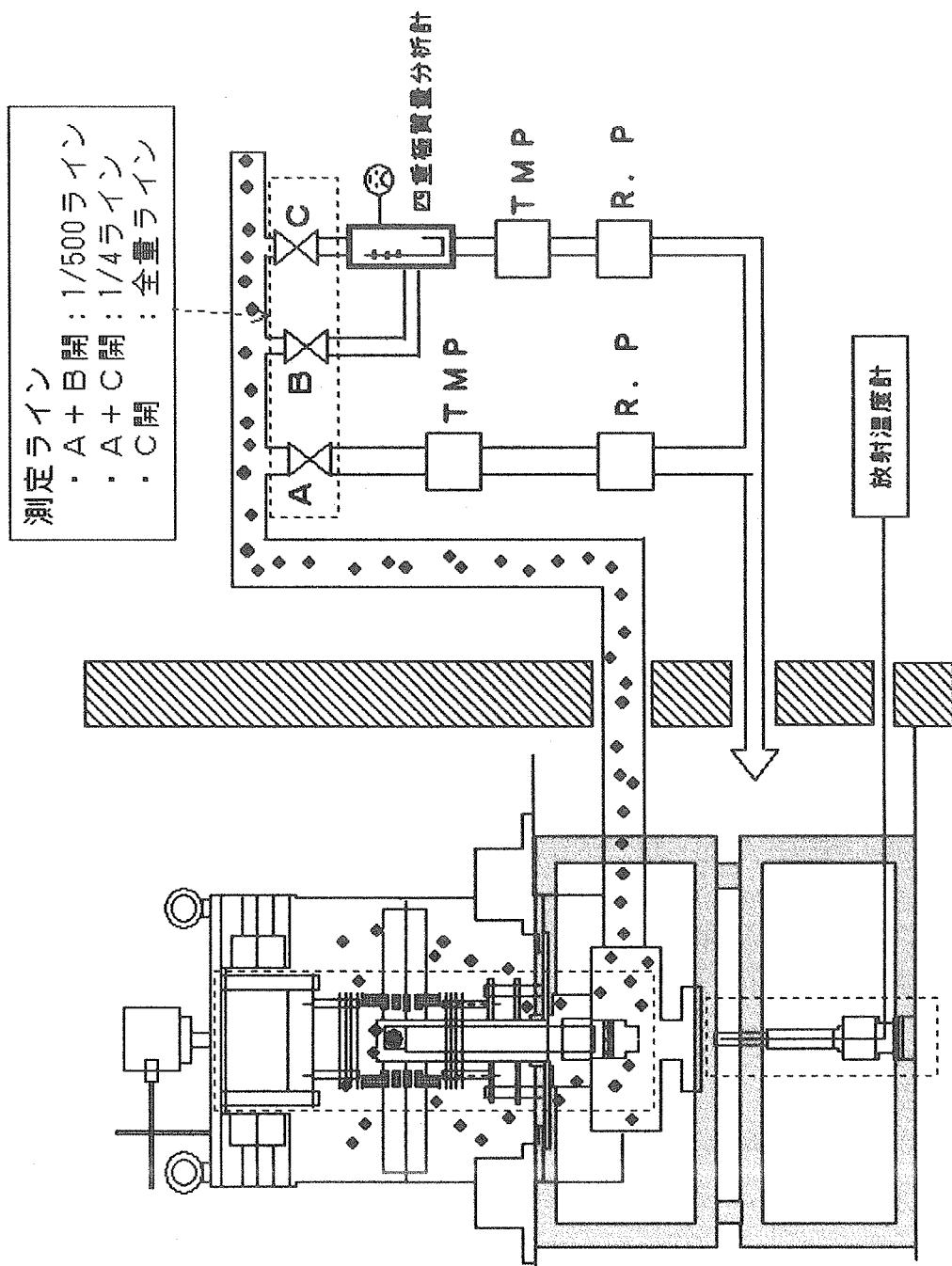


Fig.10 サンプリングライン系統図

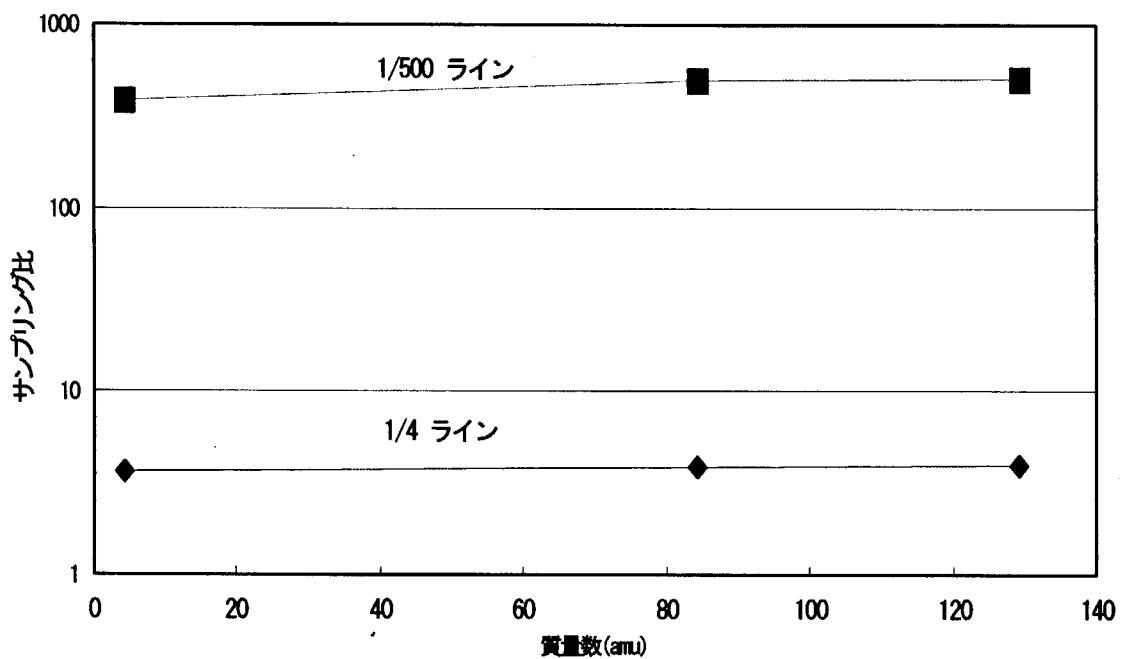


Fig.11 質量数とサンプリング比の関係

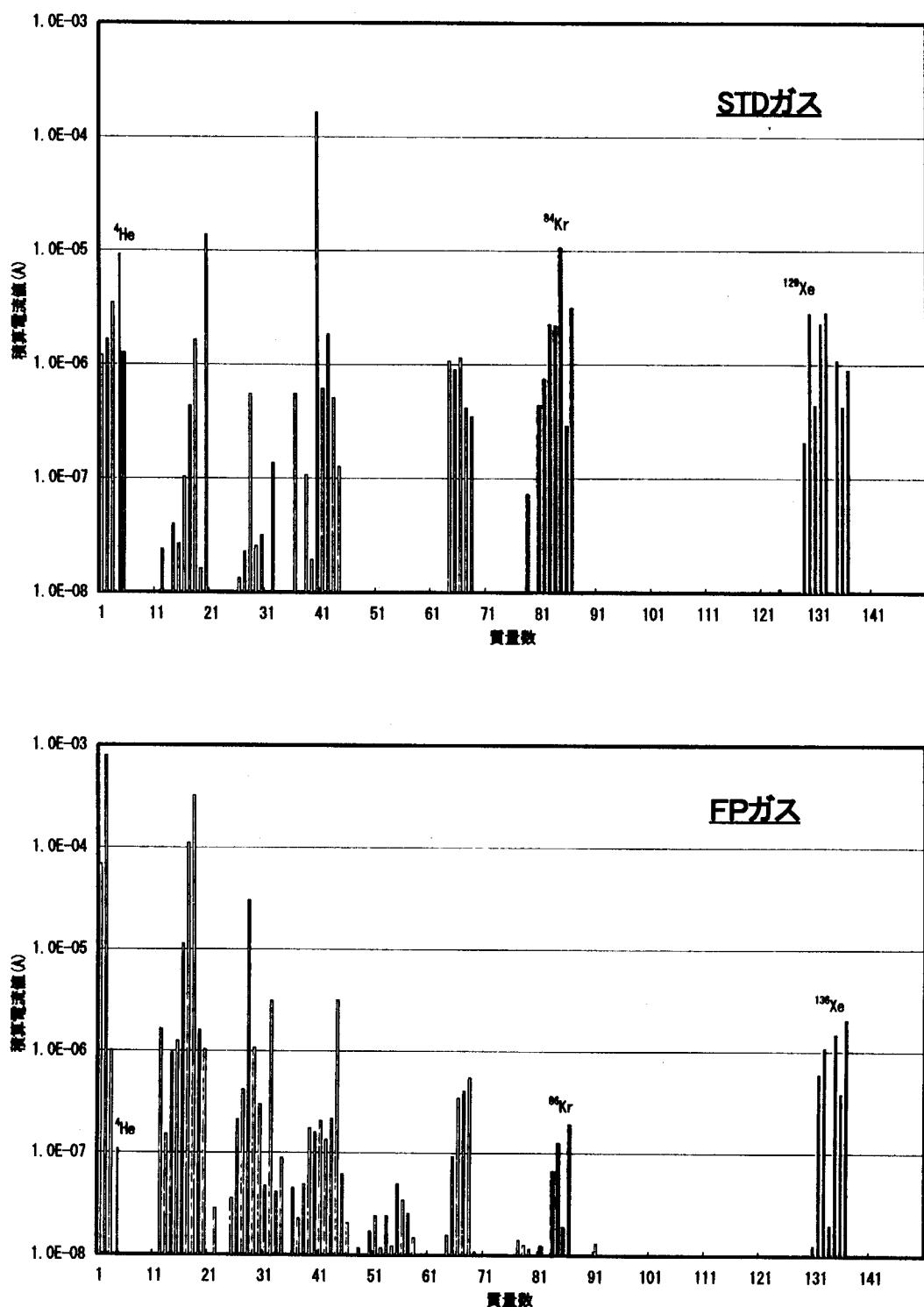


Fig.12 定性分析スペクトル

This is a blank page.

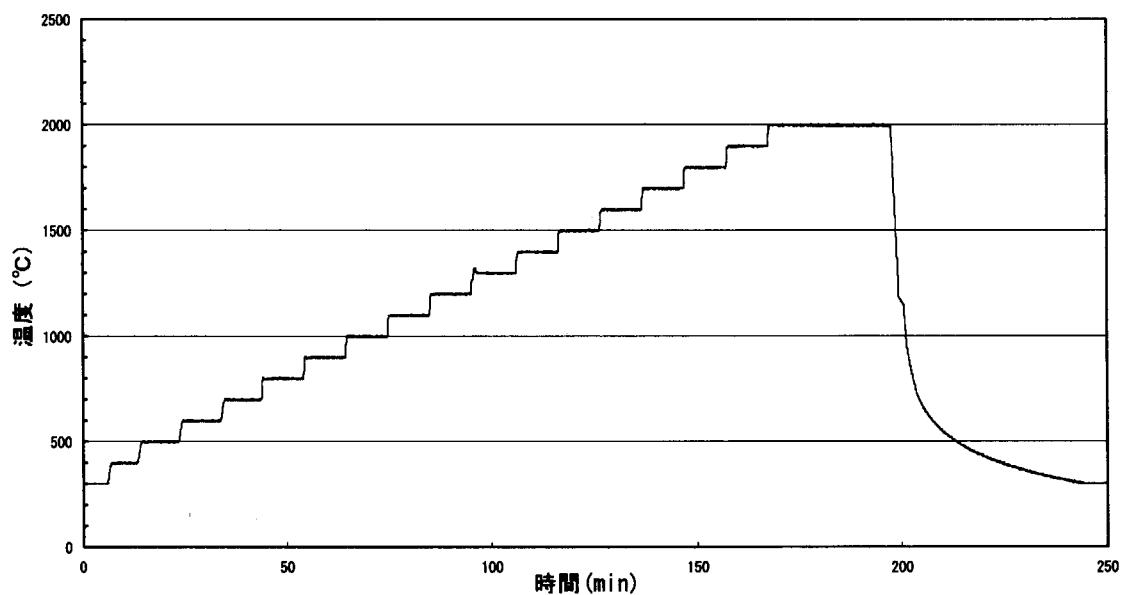


Fig.13 2000°Cステップ昇温結果

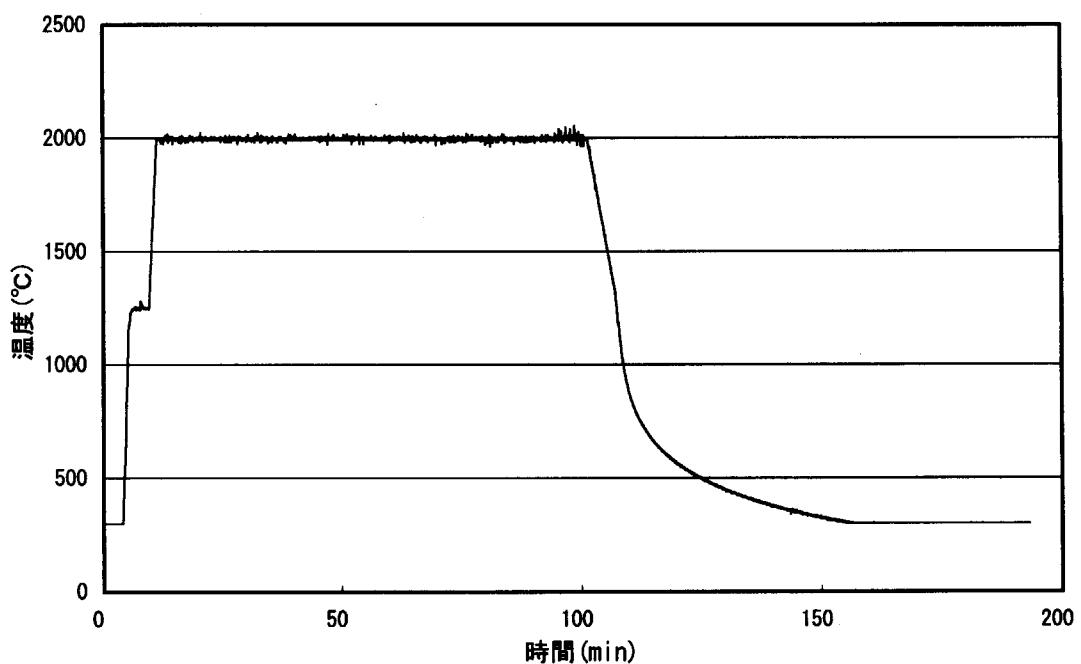


Fig.14 溫度急昇試験結果

This is a blank page.

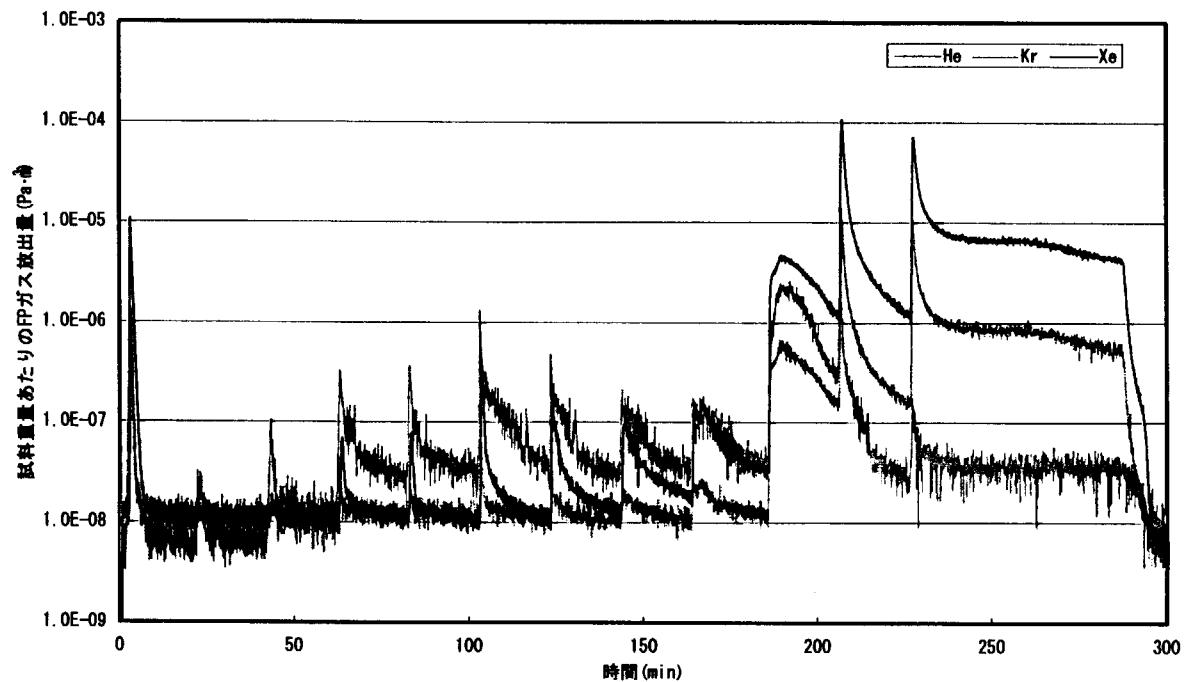


Fig.15 時間一放出量曲線

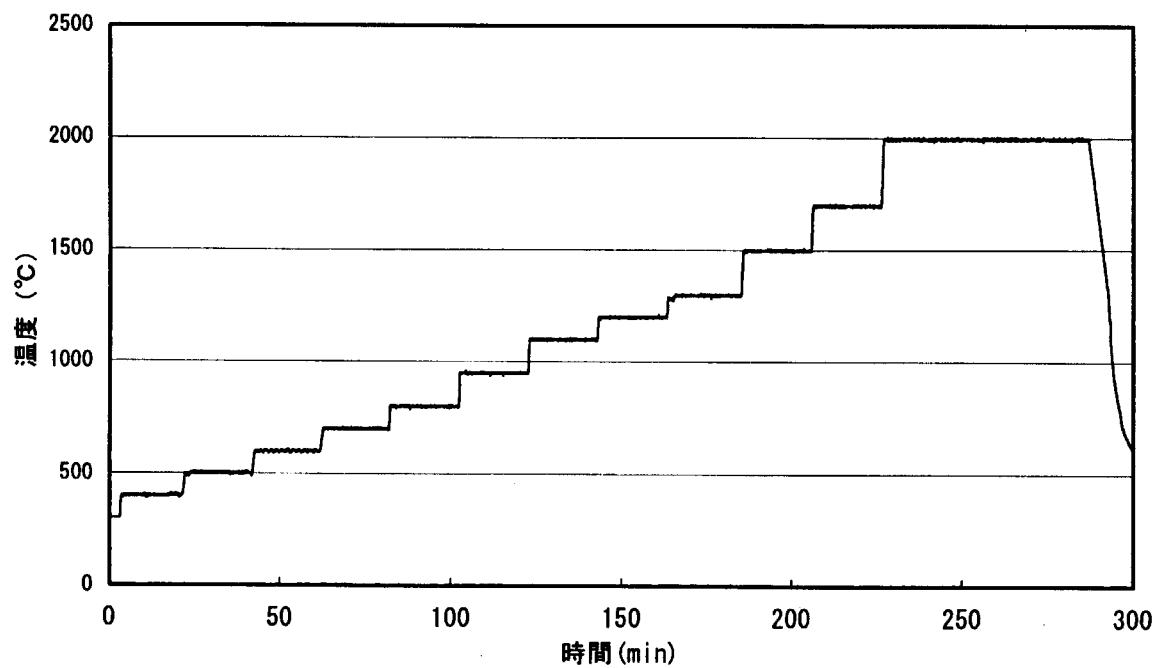


Fig.16 温度履歴

This is a blank page.

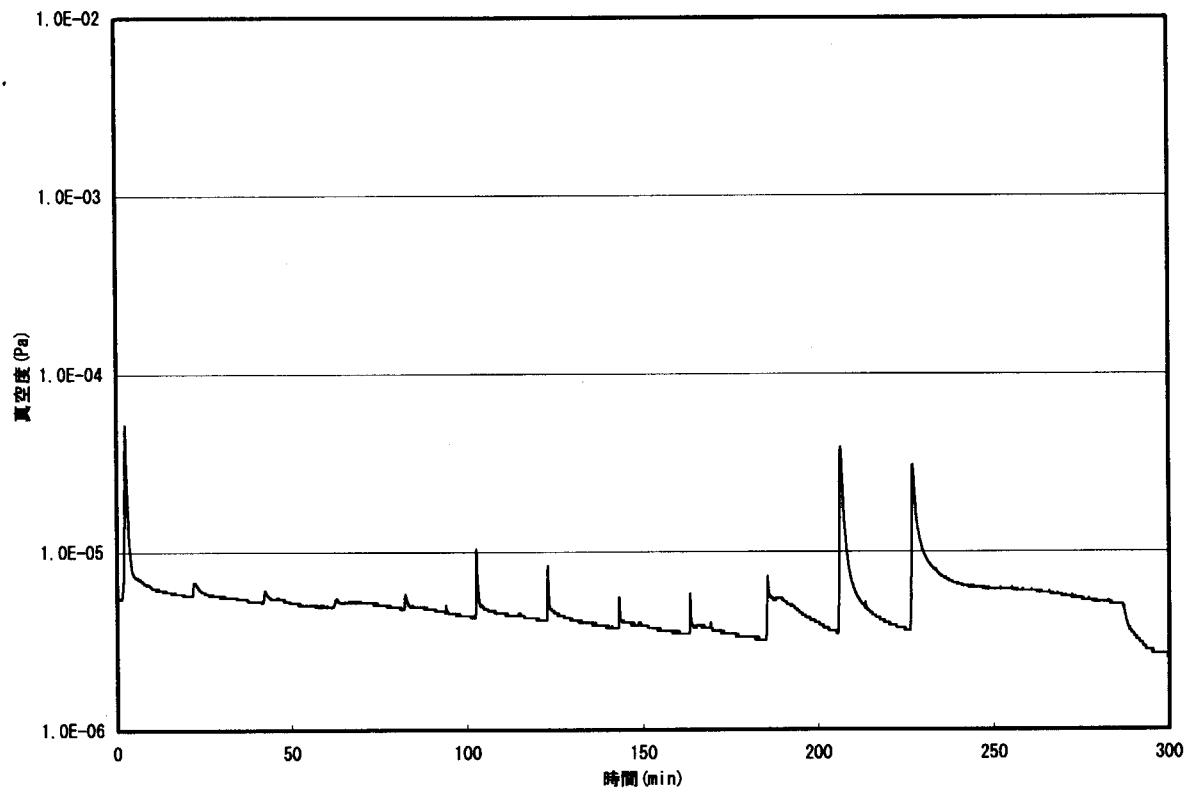


Fig.17 真空度履歴

**This is a blank page.**

# 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
物質量	モル	mol
光强度	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
功率、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	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	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

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

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
ペーゼン	b
ペール	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

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

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(N\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
0.0980665	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
0.101325	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	$1.33322 \times 10^{-4}$	$1.35951 \times 10^{-3}$	$1.31579 \times 10^{-3}$	1	$1.93368 \times 10^{-2}$
	$6.89476 \times 10^{-3}$	$7.03070 \times 10^{-2}$	$6.80460 \times 10^{-2}$	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 cal = 4.18605 J(計量法)
1	0.101972	$2.77778 \times 10^{-7}$	0.238889	$9.47813 \times 10^{-4}$	0.737562	$6.24150 \times 10^{18}$	$= 4.184 \text{ J (熱化学)}$	
9.80665	1	$2.72407 \times 10^{-6}$	2.34270	$9.29487 \times 10^{-3}$	7.23301	$6.12082 \times 10^{19}$	$= 4.1855 \text{ J (15 }^{\circ}\text{C)}$	
$3.6 \times 10^6$	$3.67098 \times 10^5$	1	$8.59999 \times 10^5$	3412.13	$2.65522 \times 10^6$	$2.24694 \times 10^{25}$	$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$	
4.18605	0.426858	$1.16279 \times 10^{-6}$	1	$3.96759 \times 10^{-3}$	3.08747	$2.61272 \times 10^{19}$	仕事率 1 PS(仏馬力)	
1055.06	107.586	$2.93072 \times 10^{-4}$	252.042	1	778.172	$6.58515 \times 10^{21}$	$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$	
1.35582	0.138255	$3.76616 \times 10^{-7}$	0.323890	$1.28506 \times 10^{-3}$	1	$8.46233 \times 10^{18}$	$= 735.499 \text{ W}$	
$1.60218 \times 10^{-19}$	$1.63377 \times 10^{-20}$	$4.45050 \times 10^{-26}$	$3.82743 \times 10^{-20}$	$1.51857 \times 10^{-22}$	$1.18171 \times 10^{-19}$	1		

放射能	Bq	Ci
1	$2.70270 \times 10^{-11}$	
$3.7 \times 10^{10}$	1	

吸収線量	Gy	rad
1	100	
0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	3876	
$2.58 \times 10^{-4}$	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

照射済燃料ペレット内FPガス分析技術の開発

R100  
古紙配合率100%  
白色度70%の再生紙を使用しています