

レーザ共鳴イオン化質量分析法による
高速炉被覆管材料の炉内クリープ破断試料
同定法の開発
(研究報告)

2004年2月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2004

レーザ共鳴イオン化質量分析法による
高速炉被覆管材料の炉内クリープ破断試料同定法の開発
(研究報告)

伊藤主税^{*1}、野瀬正一^{*1}、原野英樹^{*1}、有馬聰宏^{*2}

要 旨

燃料破損検出技術の高度化を目的として、レーザ共鳴イオン化質量分析法（RIMS）を用いた高速炉用破損燃料位置検出システムの開発を進めている。

本研究では、高速炉燃料被覆管材料の炉内クリープ破断試験において、破断試料の同定手段として RIMS が適用できるかどうかを評価した。「常陽」 MK-II 炉心第 29 サイクルから第 32 サイクルにおいて、温度制御型材料照射装置（MARICO）を用いた炉内クリープ破断試験が実施された。MARICO に装荷された照射試料には、試料毎に同位体組成比を変えた Kr、Xe の混合ガス（タグガス）が封入されており、照射試料の破断により放出されたタグガスは炉内カバーガス空間に移行し、Kr の核種濃度で 3～150ppb に希釈される。1 次系カバーガスの γ 線スペクトロメトリーにより試料の破断を検知した後、カバーガスをサンプリングして放出されたタグガスを RIMS 装置にて分析し、放出されたタグガスの種類を推定した。

その結果、試料の破断により放出されたタグガスを 1 種類に絞り込むことができ、試料ごとの目標破断時間と組み合わせることにより、破断試料を同定することができた。この結果は、破断試料からの気泡による MARICO に設置された熱電対の温度信号の揺らぎから同定した結果と一致した。

これらより、RIMS 装置を用いてカバーガス中に含まれる極微量のタグガスを分析することにより、炉内クリープ破断試験における破断試料の同定手段に適用できることを明らかにした。

*1 大洗工学センター照射施設運転管理センター実験炉部技術課

*2 検査開発株式会社

Development of Cladding Material Creep Rupture Detection System
Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry for the Fast Reactor
(Research Document)

Chikara Ito^{*1}, Shoichi Nose^{*1}, Hideki Harano^{*1} and Toshihiro Arima^{*2}

Abstract

The failed fuel detection and location system by means of laser resonance ionization mass spectrometry (RIMS) is being developed to upgrade fuel failure detection system for fast reactor.

In this study, the RIMS system was applied for the in-pile creep irradiation test to evaluate creep strength characteristic of fast reactor fuel cladding material. The irradiation samples which enclosed the tagging gas of stable krypton and xenon with different isotopic ratio were irradiated in the JOYO MK-II core from 29th to 32nd duty operational cycle using the Material Testing Rig with Temperature Control (MARICO). The MARICO was designed and used to measure creep rupture time under the irradiation. Tagging gas which was released by the rupture of test capsule of cladding material was diluted with the cover gas to the 3 ~ 150 ppb at the nuclide concentration of krypton. The cover gas was collected and the tagging gas was analyzed by means of the RIMS system. The kind of released tagging gas was determined by the isotopic ratio of the released tagging gas using RIMS on the basis of tagging gas composition enclosed in the capsule.

As the result, the tagging gas could be determined in a unique kind, and the rupture capsule could be identified. There results agreed with detection by temperature fluctuation of thermocouples with the passage of the bubble.

It was confirmed that the RIMS system could be applied to identification method for in-pile creep irradiation test.

*1 Reactor Technology Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center

*2 Inspection Development Company, Ltd.

目 次

1. 緒言	1
2. 炉内クリープ破断試験	2
2.1 溫度制御型材料照射装置	2
2.2 既設の試料破断検知・同定法	2
2.3 既設の検知・同定法による破断試料同定結果	3
3. RIMS による炉内クリープ破断試料検出法	10
3.1 レーザ共鳴イオン化質量分析法	10
3.2 RIMS による破断試料検出方法	10
4. 「常陽」の炉内クリープ破断試験への適用	13
4.1 試験方法	13
4.2 放出されたタグガスの同位体比計算	13
4.3 試験結果	14
4.3.1 タグガス分析結果	14
4.3.2 破断試料同定結果	17
5. 結言	35
謝辞	36
参考文献	37

表リスト

表 2-1 照射試料データ	4
表 2-2 破断検知及び同定結果	5
表 4-1 タグガスの種類	18
表 4-2 破断検知及び破断試料同定結果	19
表 4-3 RIMS によるタグガス分析結果 (12 回目破断試料)	20
表 4-4 RIMS によるタグガス分析結果 (13 回目破断試料)	21
表 4-5 RIMS によるタグガス分析結果 (14~17 回目破断試料)	22
表 4-6 RIMS によるタグガス分析結果 (19 回目破断試料)	23
表 4-7 RIMS によるタグガス分析結果 (20~22 回目破断試料)	24
表 4-8 RIMS によるタグガス分析結果 (24 回目破断試料)	25
表 4-9 破断試料の同定 (キャップセル No. 3-A)	26
表 4-10 破断試料の同定 (キャップセル No. 3-B)	27
表 4-11 破断試料の同定 (キャップセル No. 3-C)	28
表 4-12 破断試料の同定 (キャップセル No. 4-A)	29
表 4-13 破断試料の同定 (キャップセル No. 4-B)	30
表 4-14 破断試料の同定 (キャップセル No. 4-C)	31

図リスト

図 2-1 温度制御型材料照射装置 (MARICO)	6
図 2-2 温度制御型キャプセル	7
図 2-3 オンライン γ 線モニタ概略図	8
図 2-4 照射キャプセルの装荷位置	9
図 3-1 RIMS 装置の構成	12
図 4-1 オンライン γ 線モニタによる第 31 サイクル測定結果	32
図 4-2 オンライン γ 線モニタによる第 32 サイクル測定結果	33
図 4-3 RIMS による質量スペクトル測定例	34

1. 緒言

高速実験炉「常陽」では、燃料寿命の制限因子である被覆管材料の中性子照射下におけるクリープ破断強度の評価を目的とした炉内クリープ破断試験を実施している。本試験では、照射材料の温度がクリープ破断強度に大きく影響するため、オンラインで照射材料の温度を計測するとともに、温度制御を可能にした材料照射装置を開発し、照射試験を実施してきた^[1]。

照射試料には内部を加圧するための He に加え、予め試料毎に Xe と Kr の同位体組成比を変えた混合ガス（タグガス）が封入されており、この照射試料を原子炉内で照射し、クリープ破断が発生するまでの時間を測定する。この時間を測定するためには、どの試料がいつ破断したかを正確に検知する必要があり、従来は、試料破断時に試料から放出される気泡を検出するボイド計による検出及び気泡の通過に伴う熱電対の温度信号の揺らぎを検出する方法が用いられてきた。しかし、過去の照射試験では、照射試料の破断時に、ボイド計、熱電対の温度信号揺らぎとも検知できないケースがあり、破断試料を確実かつ正確に同定できる手段を整備する必要があった。

そこで、本研究では、試料破断検知の信頼性をより高めるため、破断により He とともに放出されたタグガスの同位体比をレーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) により分析し、破断試料を同定する手法を開発した。RIMS は、特定のレーザ波長に共鳴する元素のみをイオン化することにより、従来の質量分析に比べて検出感度を飛躍的に向上できる手法であり、「常陽」では、本手法を用いた破損燃料位置検出技術の開発を行ってきた^[2,3]。この技術を「常陽」MK-II 炉心第 31、32 サイクルに実施した炉内クリープ破断試験に応用し、クリープ破断により放出したタグガスの同位体比をレーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) により分析し、破断試料の同定を試みた。

本報では、これらの研究内容について報告する。第 2 章では、MARICO による炉内クリープ破断試験と既設の検出系による破断試料同定結果を概説する。第 3 章で RIMS による破断試料検出法について述べ、第 4 章では、MARICO 装置のボイド計及び温度計の揺らぎ信号から破断試料を同定した結果と、RIMS 装置による結果を比較し、炉内クリープ破断試験への RIMS の適用性を評価する。第 5 章では研究結果をまとめ、今後の予定について述べる。

2. 炉内クリープ破断試験

2.1 溫度制御型材料照射装置^[1]

中性子照射下での燃料被覆管材料の内圧クリープ破断強度は、燃料寿命を制限する重要な因子の一つである。そのため、「常陽」では高速炉用燃料被覆管材料の炉内クリープ破断試験を行っており、タガガスを含む He ガスにより加圧した試験試料を炉内で照射中にクリープ破断させ、試料が破断に至るまでの照射時間を測定する。

本照射試験は、図 2-1 に示す温度制御型材料照射装置 (MARICO) を用いて行われる。試料照射部には、照射試料を装填したキャップセルが径方向 3 基、軸方向 5 段の計 15 基組み込まれている。このうち、炉心燃料集合体の中心位置にある第 3 段、及びその上段である第 4 段は、温度制御型のキャップセルであり、クリープ破断試験のために使用される。その他のキャップセルについては、第 1 段及び第 5 段が無計装型、第 2 段は温度計測型であり、クリープ歪みやスエリング歪みの照射試験に使用される。

温度制御型キャップセルの構造を図 2-2 に示す。温度制御は、キャップセル外周の二重壁の空間に充填した Ar と He の混合比を変化させて、熱伝導率を調整することにより行われる。1 キャップセルあたり、照射試料が径方向に 4 試料、軸方向に 2 試料の計 8 試料が組み込まれる。照射試料には、識別用として Kr 及び Xe の安定同位体の組成比を変えたタガガスがそれぞれ約 2cc ずつ封入されている。

2.2 既設の試料破断検知・同定法

MARICO の温度制御型キャップセルには、図 2-2 に示すように、オンライン計装用として照射試料のクリープ破断検知のための温度補償型ボイド計及び照射温度を測定する熱電対がそれぞれ 1 本ずつ取り付けられている。照射試料が破断すると封入ガスが気泡状に放出されるため、これをボイド計で検知し、または気泡通過によるナトリウム温度の揺らぎを熱電対で検出して、破断した照射試料が組み込まれたキャップセルを同定する。

ボイド計及び温度揺らぎによる破断検出は、8 個の照射試料が装荷された照射キャップセル単位で行われ、1 キャップセルに装荷された照射試料は基本的には同一材料とし、かつ、照射試料毎の破断時間が十分離れるように内圧応力が設定されている。これより、同一キャップセル内の照射試料は高応力側から順番に破断するため、同一キャップセル内の破断試料の同定が可能となる^[1]。

また、「常陽」には、1 次系カバーガス中の放射能及び不純物濃度を監視するオンライン γ 線モニタ^[4]及びオンラインガスクロマトグラフが設置されており、試料の破断の有無は、これらの設備により検知することができる。

オンライン γ 線モニタは、1 次系カバーガスの放射能濃度を連続監視する設備で、カ

バーガス中の放射性核種から放出される γ 線を高分解能の γ 線検出器により測定する。オンライン γ 線モニタの概略及び測定手順を図2-3に示す。オンライン γ 線モニタでは、活性炭吸着床にカバーガスを通気してXeを選択的に吸着させ、高純度Ge半導体検出器を用いて測定する。カバーガスの通気、フラッシング、 γ 線計測、清浄Arガスによるガスパージの一連の操作を行い、30分間隔で連続測定する。MARICOの照射試料からカバーガス空間(6.5m³)に放出されたタグガスは、元素濃度で約300ppbまで希釈され、このタグガス成分のうち炉内照射により放射化したXeの核種がオンライン γ 線モニタで測定可能である。

オンラインガスクロマトグラフは、1次系カバーガス中の不純物元素の濃度を連続監視する設備で、測定対象元素にHeも含まれている。MARICO試料の破断に伴い、試料内圧の加圧用のHeが放出されるため、オンラインガスクロマトグラフで1次系カバーガス中のHe濃度の上昇を測定することにより、試料の破断を検知できる。

2.3 既設の検知・同定法による破断試料同定結果^[1]

MARICOによる炉内クリープ破断試験は、MK-II炉心第29サイクルから第32サイクルまでの期間で行われた。照射キャップセルの装荷位置を図2-4に、照射試料の鋼種、目標破断時間等のデータを表2-1に示す。

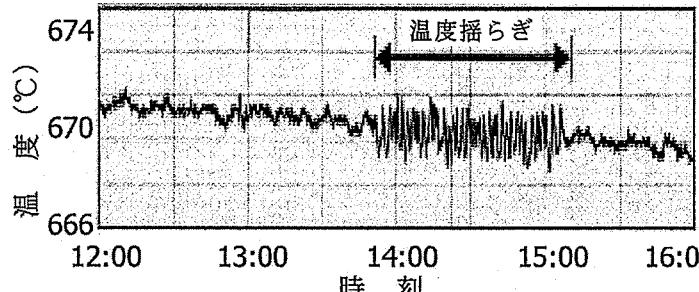
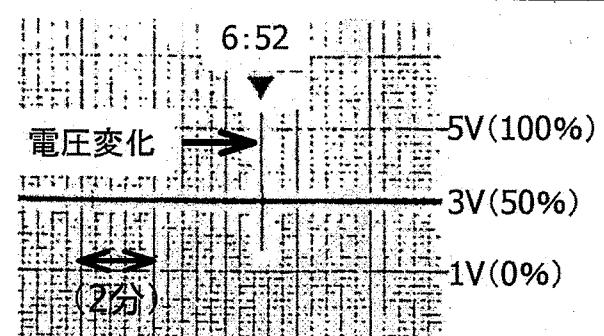
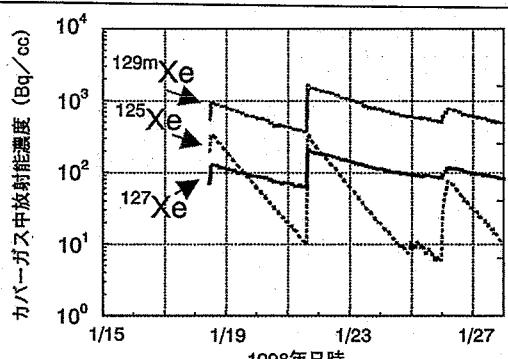
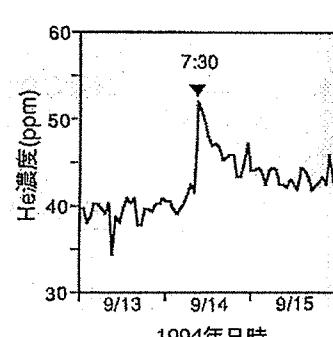
既設の検知・同定法による照射試料の破断検出及び試料同定結果を表2-2に示す。照射後試験の外観観察及び重量変化測定により、照射期間を通じて23試料のクリープ破断が確認されているが、このうち、熱電対の温度信号の揺らぎにより破断を検知し、その試料を同定できたのは19試料であった。ボイド計で検知・同定できたのは2試料のみであった。

一方、オンライン γ 線モニタでは、タグガス(Xe)の放射化核種のピークが24回検知された。これは、照射後試験で確認された破断試料数より1回多いが、同一試料から2回のタグガス放射化核種の放出があったためと思われる。また、オンラインガスクロマトグラフでは、He濃度の上昇が17回検知された。

表2-1 照射試料データ

鋼種	照射温度(°C)	キャブセルNo.	試料No.	目標破断時間(Hr)	設定応力(MPa)	封入ガス
PNC316	605	4-A	AR01	500	382	Tag032 +He
			AR02	1000	346	
			AR03	1500	324	
			AR04	2000	309	
			AR05	3000	287	
			AR06	4000	272	
			AR41	6000	250	
			AR08	8000	234	
	670	3-C	AR09	8000	106	Tag014 +He
			AR10	10000	96	
			AR11	12000	85	
PNC1520	605	4-B	BR01	8000	293	Tag011 +He
			BR02	10000	282	
			BR03	13000	270	
			BR04	15000	265	
	670	3-A	BR05	1000	245	Tag048 +He
			BR06	1500	233	
			BR07	2000	215	
			BR08	3000	198	
			BR41	4000	186	
			BR10	6000	171	
			BR11	8000	159	
			BR12	13000	141	
1525 (15Cr25Ni)	605	4-B	CR41	1000	374	Tag051 +He
			CC02	2000	334	
			CC03	4000	299	
			CC04	6000	279	
	670	3-B	CR05	1000	217	Tag005 +He
			CR06	1500	204	
			CR07	2000	185	
			CR08	3000	169	
			CR09	4000	157	
			CR10	6000	143	
			CR11	8000	133	
			CR12	13000	119	
High Ni Alloy(I)	605	4-C	DR01	1000	256	Tag015 +He
			DR41	1500	234	
			DR03	2000	211	
			DR04	3000	187	
			DR05	4000	177	
			DR06	6000	163	
			DR43	8000	151	
			DR08	10000	144	
	670	3-C	DR09	1000	152	Tag038 +He
			DR10	2000	123	
			DR11	3000	109	
			DR12	4000	101	
			DR13	6000	90	

表 2-2 破断検知及び同定結果

破断検知及び破断試料同定	熱電対 破断試料からの放出ガスの通過に伴う温度揺らぎを検知 (実績: 19 / 23 回)	 <p>熱電対の温度揺らぎ (1997年4月8日)</p>
	ボイド計 破断試料からの放出ガスの通過に伴う電圧変化を検知 (実績: 2 / 23 回)	 <p>ボイド計の電圧変化 (1994年9月14日)</p>
破断検知のみ	オンラインγ線モニタ 破断試料から放出されたタガガスの放射化核種をγ線スペクトル分析により検知 (実績: 24 / 23 回)	 <p>オンラインγ線モニタによる検知例</p>
	ガスクロマトグラフ 破断試料からの He 放出に伴うカバーガス中の He 濃度の増加を検知 (実績: 17 / 23 回)	 <p>ガスクロマトグラフによる検知例</p>

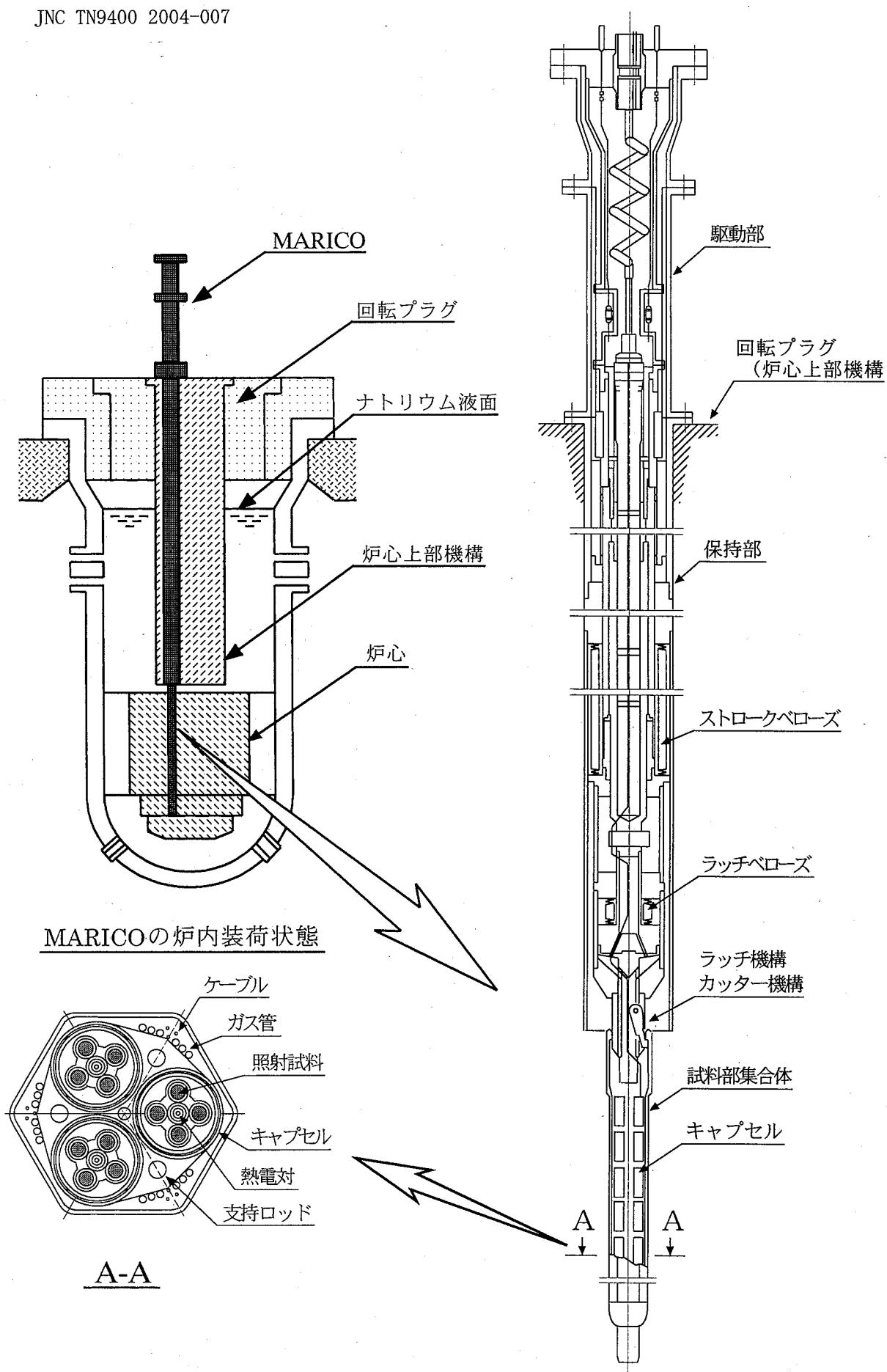


図2-1 溫度制御型材料照射装置 (MARICO)

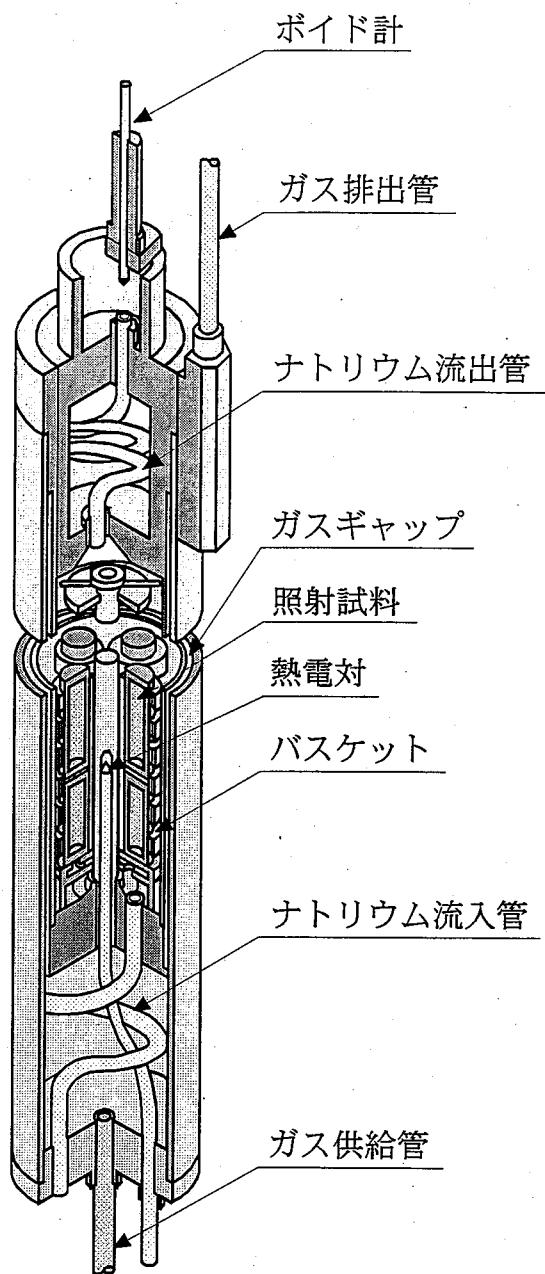
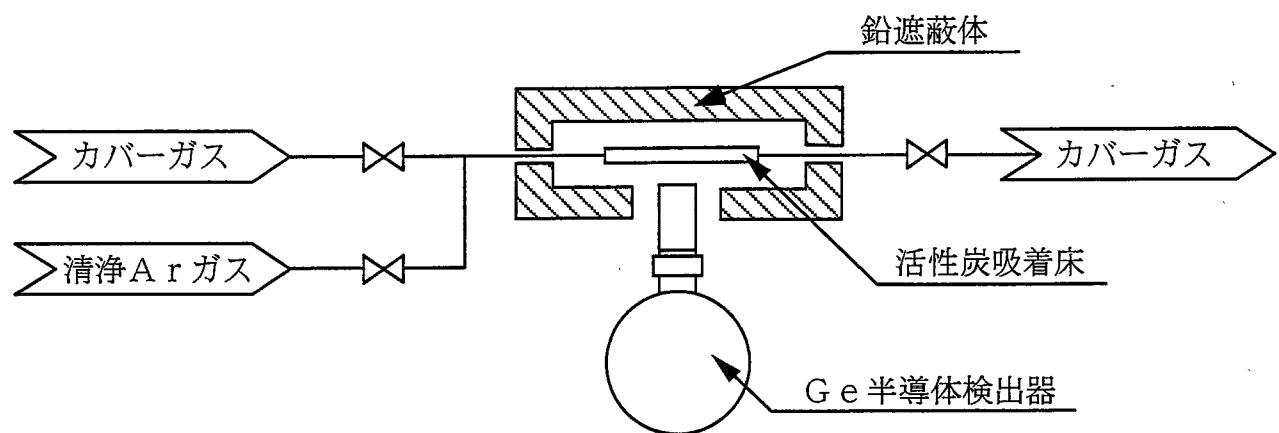


図2-2 溫度制御型キャプセル



測定手順

1. 吸着床へのカバーガス通気 6分
2. 吸着床のフラッシング 20秒 検出下限
3. γ 線スペクトル測定 11分40秒 約0.01~0.1 Bq/cc
4. 吸着床のガスパージ 12分

図2-3 オンライン γ 線モニタ概略図

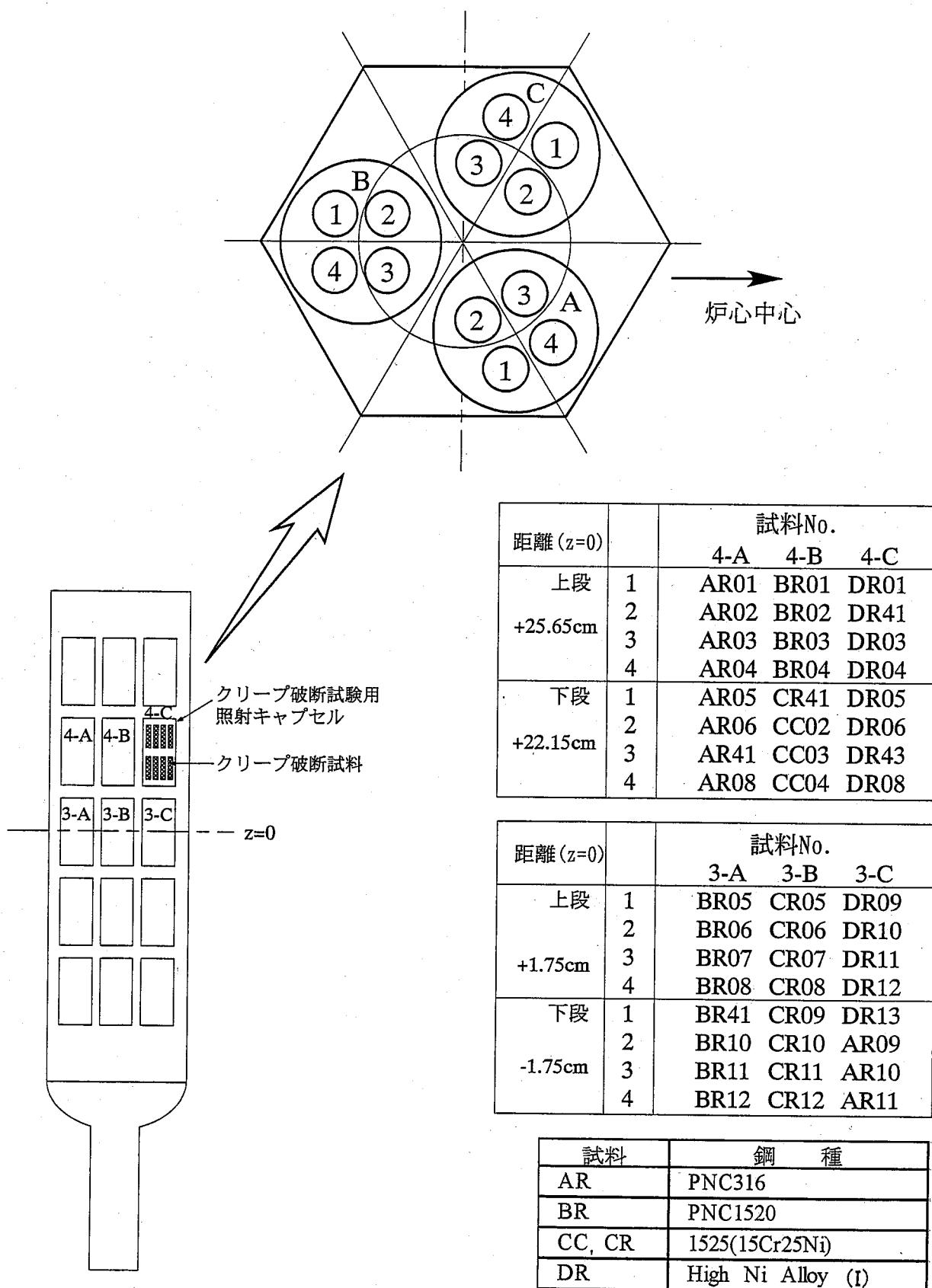


図2-4 照射キャプセルの装荷位置

3. RIMS による炉内クリープ破断試料検出法

3.1 レーザ共鳴イオン化質量分析法^[2,3]

レーザ共鳴イオン化質量分析法（RIMS）とは、イオン源にレーザ共鳴イオン化方式を用いる質量分析法である。対象とする原子の二つの電子状態（準位）のエネルギー差に相当する波長の光子を照射し、下準位の原子を選択的に特定の上準位に励起することを共鳴遷移という。レーザを照射することにより共鳴遷移を起こし、複数の中間準位を経由させて多段階にてイオン化させ、質量分析器により分析する方法が RIMS である。レーザ共鳴イオン化は、特定の対象元素のみを選択的にイオン化することが可能であるため、同重体干渉が原理的に存在せず、同位体組成比測定に対し高い信頼性を有する。

これまで、RIMS を高速炉の破損燃料位置検出技術に適用するための技術開発を進めてきた。「常陽」で開発した RIMS 装置の構成を図 3-1 に示す。Ar ガス中の Kr、Xe の検出限界はそれぞれ 30ppt 及び 0.7ppt、定量下限は 100ppt 及び 2.2ppt であり、高速増殖原型炉「もんじゅ」のタギング法 FFDL に概ね適用可能な性能を有する。

3.2 RIMS による破断試料検出方法

RIMS を用いた炉内クリープ試験における破断試料の同定は、オンライン γ 線モニタで試料破断の検知後、カバーガスをサンプリングし、RIMS 装置でタグガスの同位体比を分析することにより行う。具体的な手順は、以下のとおりである。

(1) オンライン γ 線モニタによる破断検知

オンライン γ 線モニタでタグガスの放射化核種を検出することにより、試料の破断を検知する。2.で述べたように、オンライン γ 線モニタは、過去、全ての試料破断を検知できており、既設の検出系では最も信頼性が高いため、本手法を採用した。

(2) カバーガスサンプリング

オンライン γ 線モニタで試料破断を検知した後、カバーガスサンプリングを行った。サンプリング前の試料の 2 重破断（複数個の試料のタグガスが混在すると、同定が困難になる。）やカバーガスの呼吸によるタグガスの希釈効果のため、破断検知後はできるだけ速やかにサンプリングすることが望ましく、破断検知後、1 日以内にサンプリングを行った。

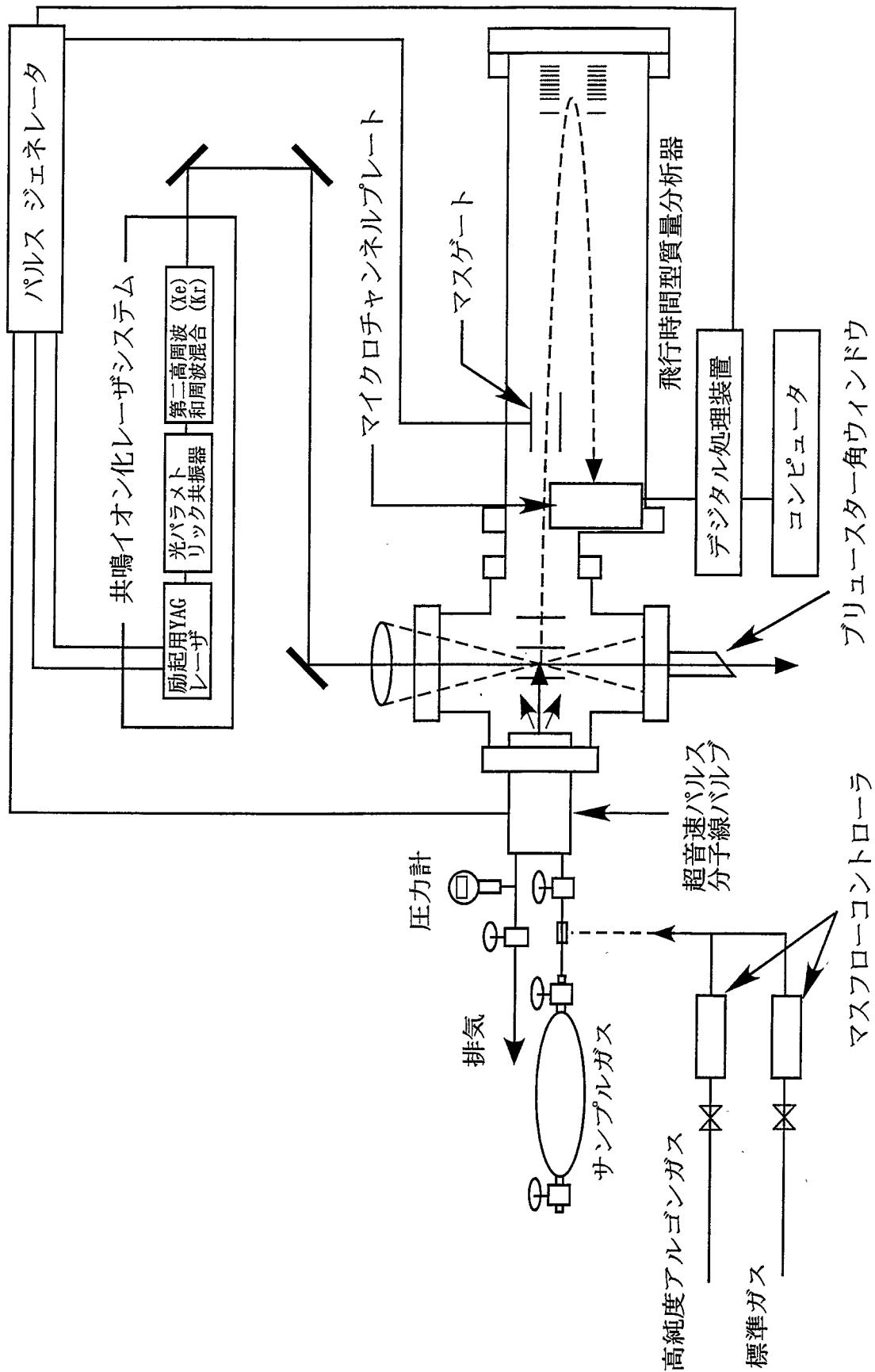
サンプリング容器は、本体の両端にベローズバルブを取り付けた 300cc のステンレス鋼製容器で、バルブにより内部を密閉できる。サンプリング容器内は予め真空引きしておき、容器の片端をカバーガスサンプリング用コックに取り付け、配管の元弁及び容器のバルブを開けてカバーガスをサンプリングする。なお、サンプリング用配管に溜まつ

ている残留ガスを除去した後、測定用のサンプリングを行っている。

(3) RIMS 装置による分析及び同定

サンプリングガスを RIMS で分析し、ガス中のタグガス核種の同位体組成比を測定する。この測定結果とタグガス封入時の同位体組成比を比較し、タグガスの種類を同定する。

なお、RIMS 装置の試料導入系は、液化 Ar 及び標準 Xe、Kr ガスラインから構成され、各々のラインには流量調整用のマスフローコントローラが取り付けられている。従来は、このマスフローコントローラを用いて RIMS 装置に導入するガスの濃度を調整していたが、本研究を実施するにあたり、試料導入配管に直接サンプリング容器を取り付けられるように改造した。



4. 「常陽」の炉内クリープ破断試験への適用

4.1 試験方法

MK-II 炉心第 29 サイクルから第 32 サイクルまでの期間で行われた MARICO による炉内クリープ破断試験において、第 31 サイクル及び第 32 サイクルで発生した試料破断のうち、破断後にカバーガスをサンプリングした合計 11 回について、3.で述べた方法で RIMS による破断試料の同定を試みた。

放出されたタグガスの同位体組成の計算では、照射試料に封入したタグガス組成を基に、破断試料からのタグガス放出率を 100% と仮定し、オンライン γ 線モニタによる放射性核種の減衰曲線からカバーガスのページ（排出）率を求めて希釈効果を補正し、当該破断以前に破断した別の試料から放出されたタグガスの残留分を加算した。詳細は、4.2 に示す。表 4-1 に示す 8 種類のタグガスについてこの計算を行い、RIMS による分析結果と比べて、一致するタグガスの種類を絞り込んだ。

タグガスには Kr と Xe の混合ガスが封入されているが、タグガスの識別には、8 種類のタグガスが用意された Kr を用い（Xe は 3 種類）、Kr の同位体比である $^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ 、 $^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ に着目する。今回、照射試料に封入されたタグガスについては、異なるタグガス間でのスペーシングファクター（タグ比の差）は 15% 以上となっている。 $^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ については、①Tag051、②Tag005 及び 032、③Tag015 及び 014、④Tag038 及び 011、⑤Tag048 の 5 種類が適用された。また、 $^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ については①Tag051、005、015、038 と②Tag032、014、011、048 の 2 種類が適用され、両者を組み合わせて 8 種類のタグガスが用意された。タグ比が最も近いタグガスは Tag014 と Tag011 であり、その値は $^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$ で 15.9% である。

タグガスの同位体比分析により絞り込めるのは、タグガスの種類である。表 2-1 に示すように、タグガスの種類が同一の照射試料は、鋼種及び照射温度が同一であり、これらに加え、照射試料毎の破断時間が十分離れるように内圧応力を設定し、高応力側から順番に破断する設計となっている。これにより、RIMS を用いて破断試料の鋼種及び照射温度のグループが決まり、当該グループ中の破断順から破断試料を同定することができる。

4.2 放出されたタグガスの同位体比計算

MARICO 照射試料の破断により放出されたタグガスはカバーガス空間へ移行し、カバーガスであるアルゴンガスで希釈される。またカバーガスは、系統の圧力が呼吸ガスヘッダにおいて $490 \pm 200\text{Pa}$ となるよう圧力制御されているため、呼吸によるカバーガスの排出でさらにタグガスは希釈される。カバーガスの圧力制御は、給排気弁の開閉で行われており、呼吸ガスヘッダにおいて 690Pa で排気弁が「開」、ヘッダ圧力が 490Pa

まで降下したら排気弁が「閉」となる。同様に呼吸ガスヘッダが 290Pa の場合給気弁が「開」、ヘッダ圧力が 490Pa まで上昇したら給気弁が「閉」となる。

オンライン γ 線モニタにより破断を検出後、サンプリングした試料のタグガス組成は、前回までの破断でカバーガス中に放出され、カバーガスの呼吸により希釈された残留ガスに、当該破断により放出されたタグガスが加算されたものとなる。カバーガスの呼吸による希釈効果については、オンライン γ 線モニタによる ^{127}Xe の測定結果を用いた。オンライン γ 線モニタの測定結果から ^{127}Xe の見かけ上の減衰定数を求め、これと ^{127}Xe の崩壊定数の差を希釈による減衰定数として評価した。

第 31、32 サイクルは、前サイクル終了時から 61 日及び 86 日後に起動している。この原子炉停止期間中も運転中と同様に、呼吸によりカバーガスが希釈されているるとすると、前サイクル終了時と次サイクル起動時のタグガス濃度の比は 10^4 オーダとなり、前サイクル中に放出されたタグガスの残留の影響はない。このことから、第 31、32 サイクル初回の破断時のタグガス分析結果は、照射試料に封入したタグガス組成と一致する。

各サイクル 2 回目の破断については、初回の破断で放出されたタグガス成分の残留分と、照射試料に封入されたタグガスの組成を加えることにより、サンプリングガスの同位体比を計算した。各サイクル 3 回目以降の破断についても、同様に、前回の破断によるタグガスの残留分と、当該破断試料に封入されていたタグガス組成からサンプリングガスの同位体比を計算した。

4.3 試験結果

オンライン γ 線モニタにより、タグガスの放射化核種である ^{127}Xe のカバーガス中放射能濃度を連続測定した結果を図 4-1 及び図 4-2 に示す。これらの図には照射期間を通じての通算破断番号を記載しているが、第 31 及び 32 サイクルでは、通算 12 回目から 24 回目までの合計 13 回の破断を高感度で検知できた。この結果と他の既設の検出法による破断試料の検知・同定結果を表 4-2 に示す。ボイド計では何れも検出できず、熱電対による温度信号の揺らぎでは 10 回の破断を検知し、それぞれ試料キャップセルが同定されている。また、オンラインガスクロマトグラフで破断を検知できたのは、6 回であった。

4.3.1 タグガス分析結果

本試験においてカバーガスをサンプリングしたのは、第 31 サイクル及び第 32 サイクルのうち通算 18 回目と 23 回目を除いた合計 11 回であり、この 11 回について RIMS によるタグガス分析を実施し、放出されたタグガスの組成を絞り込み、破断試料の同定を試みた。RIMS による測定は、Kr 核種について各試料につき 2 回ずつ実施した。カバーガス中に放出されたタグガスの元素濃度は 300ppb 程度に希釈されるが、図 4-3 に

示すように、RIMS によるタグガス分析により良好な質量スペクトルを得ることができた。RIMS によるタグガス分析結果を以下に示す。

① 通算 12、13 回目破断時のタグガス分析

通算 12 回目（第 31 サイクル 1 回目）のタグガス分析結果を表 4-3 に示す。当該破断後のサンプリングガスは、本研究に先立つ名古屋大学との研究協力^[5,6]において使用しており、その残ガスを用いた。そのため、測定に必要な十分なガス圧 (-0.05MPa) を得ることができず、測定誤差が大きくなっている。計算値が測定値に近くなるタグガスは、Tag014 と Tag011 で、いずれも 10% 程度のずれが生じている。

そこで、その次の通算 13 回目（第 31 サイクル 2 回目）の測定結果と組み合わせて考察する。13 回目の試料破断は、12 回目の破断の 4 日後に発生しており、13 回目破断後のカバーガス中には、12 回目の破断で放出されたタグガスが 30% 程度残留している。そこで、12 回目の破断試料を Tag011 と仮定した場合と Tag048 の場合の両ケースにおいて 13 回目破断時のタグガスの同位体比を計算して RIMS による分析値と比較した。その結果、表 4-4 に示すように、12 回目を Tag011、13 回目を Tag014 とする組み合わせと、12 回目を Tag048、13 回目を Tag032 とする組み合わせの 2 通りのケースに絞り込んだ。

一方、熱電対の温度信号の揺らぎでは、12 回目は Tag048 の試料のみが組み込まれた 3A キャップセル、13 回目は Tag032 の試料のみが組み込まれた 4A キャップセルの破断が検知されており、RIMS により絞り込んだ 2 通りのうち前者のケースと一致する。したがって、RIMS の測定結果に加え、熱電対の温度信号の揺らぎによる結果を考慮することにより、12 回目は Tag048、13 回目は Tag032 と 1 通りに絞り込める。

② 通算 14～17 回目破断時のタグガス分析

通算 14 回目（第 31 サイクル 3 回目）から 17 回目（第 31 サイクル 6 回目）までのタグガス分析結果を表 4-5 に示す。これらについては、当該破断後のサンプリングガスの分析のみで、放出されたタグガスの種類をそれぞれ 1 種類に絞り込むことができた。

③ 通算 19 回目破断時のタグガス分析

通算 18 回目（第 31 サイクル 7 回目）の破断については、破断後のカバーガスサンプリングを実施しなかったため、RIMS による分析結果は無い。したがって、通算 19 回目（第 31 サイクル 8 回目）のタグガスの同位体比計算は、18 回目のタグガスを 8 通り仮定し、それぞれに対して 8 通りの合計 64 通りの計算を行うことになる。この計算値と RIMS によるタグガス分析値を比較した結果は、表 4-6 に示すように、18 回目と 19 回目の組み合わせで 4 通り、19 回目のみに着目すると Tag005 または Tag015 の

2種類に絞り込める。

一方、熱電対の温度信号の揺らぎでは、18回目はTag048の試料のみが組み込まれた3Aキャップセルが検知され、19回目は破断を検知できなかった。この結果を考慮すると、RIMSにより絞り込んだ4通りのうち、18回目をTag048、19回目をTag005とする組み合わせに絞り込める。

④ 通算20～22回目破断時のタグガス分析

通算20回目（第32サイクル1回目）から22回目（第32サイクル3回目）までのタグガス分析結果を表4-7に示す。これらについては、14～17回目と同様に、当該破断後のサンプリングガスの分析のみで、放出されたタグガスの種類をそれぞれ1種類に絞り込むことができた。

⑤ 通算24回目破断時のタグガス分析

通算23回目（第32サイクル4回目）の破断については、18回目と同様に破断後のカバーガスサンプリングを実施しなかったため、RIMSによる分析結果が無い。したがって、通算24回目（第32サイクル5回目）のタグガスの同位体比については、19回目と同様に64通りの計算を行い、RIMSによるタグガス分析値と比較した。その結果は、表4-8に示すように、23回目と24回目の組み合わせで6通り、24回目のみに着目するとTag051、Tag005、Tag032またはTag014の4種類に絞り込める。

なお、通算24回目の測定については、RIMS装置のレーザの出力変動が大きく、測定誤差が大きくなつた。 ^{78}Kr の同位体比は約1%と他の同位体に比べて小さく、相対的に誤差が大きくなることを勘案し、計算値と測定値の比較において10数%のずれまでを絞り込みの候補とした。

一方、熱電対の温度信号の揺らぎでは、23回目は破断を検知できず、24回目はTag032の試料のみが組み込まれた4Aキャップセルが検知された。この結果を考慮すると、24回目は、RIMSにより絞り込んだ4通りのうちTag032が一致する。

上記のとおり、RIMSによる分析を実施した11回のうち、ガス量が少なく分析精度が低下したケース及び当該破断の前回の破断試料が同定されていないケースを除く7ケースについては、何れもタグガスの種類を1つに絞り込めた。そのうち、熱電対の温度信号の揺らぎにより照射キャップセルが同定できた破断は6回あったが、その全てについて、RIMSにより絞り込んだ種類のタグガスを封入した試料は、熱電対の温度信号の揺らぎにより同定された照射キャップセルに装荷されており、両同定法は一致した結果となつた。

また、残りの4ケースについては、連続する2回の破断の組み合わせまで計算して分

析結果と比較することにより、2～4種類に絞り込むことができた。さらに、熱電対の温度信号の揺らぎにより得られた同定結果と組み合わせることにより、1種類に絞り込むことができた。

4.3.2 破断試料同定結果

絞り込まれたタグガスの種類から、試料の鋼種及び照射温度のグループが特定される。これと、試料内圧から決まる破断順序から、破断した試料を同定することができる。照射キャップセルごとの破断試料の同定結果を表4-9～4-14に示す。

6種類の照射キャップセルのうち、3-C（表4-11）及び4-A（表4-12）については、タグガスが同定された試料数と照射後試験（PIE）により破断が観察された試料数が一致したため、破断した試料が同定される。

3-A（表4-9）、3-B（表4-10）及び4-B（表4-13）については、両者による試料数が一致しないため、試料No.と破断時間が1対1には決まらない。3-Aについては、PIEにより全8試料の破断が観察されたが、タグガスは9回の放出が同定されており、いずれかの試料から複数回のタグガス放出があったと考えられる。また、オンラインγ線モニタが破断を検知した24回のうちタグガスが同定できなかったのは、通算5、10及び23回目の3回である。これは、3-B及び4-BのうちPIEで破断が観察された試料数とタグガスが検知された試料数の差（3試料）に一致し、3-B又は4-Bのいずれかのキャップセルに内蔵された試料の破断と考えられる。

4-C（表4-14）の試料については、タグガス又は照射キャップセルは同定されておらず、PIEにおいても破断は観察されなかった。

以上の結果から、RIMSを用いたタグガスの同位体比分析による破断試料の同定法を確立することができた。

表4-1 タグガスの種類

Tag №	同位体比(Kr)		同位体比(Xe)
	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{126}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$
Tag 051	0.048	0.240	0.034
Tag 005	0.093	0.241	0.042
Tag 015	0.144	0.236	0.043
Tag 038	0.181	0.238	0.053
Tag 032	0.085	0.422	0.053
Tag 014	0.134	0.427	0.043
Tag 011	0.167	0.431	0.034
Tag 048	0.208	0.426	0.053

表4-2 破断検知及び破断試料同定結果

オンラインγ線モニタによる 破断検出時刻			オンライン ガスクロマ トグラフ	ボイド計	温度揺らぎ (キャップセルNo.)	R I M S (Tag No.)
検出No.	日付	時刻				
第31サイクル						
12	1997年7月19日	20:17	×	×	3-A	Tag 048
13	1997年7月23日	3:47	○	×	4-A	Tag 032
14	1997年8月4日	6:47	×	×	3-A	Tag 048
15	1997年8月8日	6:47	○	×	×	Tag 005
16	1997年8月18日	10:14	○	×	4-B	Tag 051
17	1997年8月21日	19:14	×	×	3-C	Tag 038
18	1997年8月25日	23:14	×	×	3-A	- *
19	1997年8月31日	3:44	○	×	×	Tag 005
第32サイクル						
20	1998年1月18日	11:36	○	×	4-A	Tag 032
21	1998年1月21日	15:06	×	×	3-A	Tag 048
22	1998年1月26日	0:06	×	×	3-A	Tag 048
23	1998年1月31日	21:36	×	×	×	- *
24	1998年2月1日	18:36	○	×	4-A	Tag 032

* : サンプリングを実施しなかった。

表4・3 RIMSによるタグガス分析結果(12回目破断試料)

検出No	測定値		Tag032	Tag011	Tag051	Tag015	Tag048	Tag005	Tag038	Tag014
	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$								
12	0.181	0.502	0.085	0.422	0.167	0.431	0.048	0.240	0.144	0.236
			0.468	0.842	0.919	0.859	0.263	0.479	0.797	0.471
								0.208	0.426	0.093
								0.236	0.093	0.241
								0.208	0.426	0.093
								0.144	0.236	0.093
								0.167	0.422	0.085
								0.431	0.167	0.085
								0.048	0.240	0.181
								0.240	0.144	0.181
								0.144	0.236	0.134
								0.236	0.093	0.238
								0.093	0.241	0.134
								0.241	0.181	0.134
								0.181	0.238	0.134
								0.238	0.134	0.134
								0.134	0.427	0.427
								0.427		

上段：計算値
下段：計算値／測定値
□ : RIMSにより絞り込まれたタグガスの種類

表4-4 RIMSによるタグガス分析結果(13回目破断試料)

12回目の検出 N ₀	測定値	Tag032	Tag011	Tag051	Tag015	Tag048	Tag005	Tag038	Tag014
78Kr/ ⁸² Kr N ₀	⁸⁰ Kr/ ⁸² Kr	⁷⁸ Kr/ ⁸² Kr	⁸⁰ Kr/ ⁸² Kr	⁷⁸ Kr/ ⁸² Kr	⁸⁰ Kr/ ⁸² Kr	⁷⁸ Kr/ ⁸² Kr	⁸⁰ Kr/ ⁸² Kr	⁷⁸ Kr/ ⁸² Kr	⁸⁰ Kr/ ⁸² Kr
Tag011		0.117	0.426	0.167	0.431	0.084	0.299	0.154	0.320
		0.790	0.997	1.129	1.010	0.569	0.700	1.043	0.749
	13 0.148	0.427	0.137	0.424	0.181	0.429	0.102	0.303	0.174
Tag048			0.929	0.993	1.224	1.006	0.690	0.710	1.180
							0.760	1.412	0.998
							0.955	0.745	1.304
								0.741	1.112
								0.741	0.999

上段：計算値

下段：計算値/測定値

□ : RIMSにより絞り込まれたタグガスの種類

表4-5 RIMSによるタグガス分析結果(14~17回目破断試料)

検体No.	測定値		Tag032	Tag011	Tag051	Tag015	Tag048	Tag005	Tag038	Tag014
	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$								
14 0.205	0.426	0.093	0.423	0.163	0.430	0.058	0.261	0.143	0.269	0.201
										0.426
15 0.142	0.312	0.136	0.424	0.179	0.429	0.101	0.305	0.172	0.327	0.206
										0.426
16 0.063	0.253	0.955	1.358	1.258	1.375	0.713	0.978	1.208	1.047	1.451
										1.364
17 0.114	0.245	0.099	0.396	0.161	0.409	0.066	0.256	0.143	0.261	0.982
										1.026
										1.336
										1.021
										1.141
										1.366
										0.259
										0.135
										0.400
										2.147
										1.581
										0.100
										0.341
										0.876
										1.392

上段：計算値
下段：RIMSにより絞り込まれたタグガスの種類



表4-6 RIMSによるタガガス分析結果(19回目破断試験)

18回目の検出 TagNo	測定値	Tag032		Tag011		Tag051		Tag015		Tag048		Tag005		Tag038		Tag014	
		$^{82}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$														
Tag032		0.093	0.386	0.143	0.398	0.067	0.276	0.124	0.287	0.174	0.398	0.097	0.285	0.146	0.283	0.120	0.389
		0.72	1.27	1.12	1.31	0.53	0.91	0.97	0.95	1.36	1.31	0.76	0.94	1.14	0.93	0.94	1.29
Tag011		0.117	0.392	0.160	0.402	0.089	0.290	0.147	0.304	0.186	0.402	0.121	0.300	0.166	0.299	0.141	0.395
		0.92	1.29	1.25	1.33	0.70	0.96	1.15	1.00	1.46	1.33	0.94	0.99	1.29	0.99	1.10	1.30
Tag051		0.080	0.333	0.129	0.354	0.059	0.242	0.107	0.240	0.159	0.357	0.085	0.242	0.129	0.240	0.106	0.338
		0.63	1.10	1.01	1.17	0.46	0.80	0.84	0.79	1.24	1.18	0.66	0.80	1.01	0.79	0.83	1.12
Tag015		0.105	0.345	0.155	0.367	0.077	0.241	0.139	0.239	0.185	0.369	0.110	0.241	0.161	0.240	0.133	0.351
		0.82	1.14	1.21	1.21	0.60	0.80	1.09	0.79	1.45	1.22	0.86	0.80	1.26	0.79	1.04	1.16
Tag048		0.134	0.392	0.172	0.402	0.104	0.294	0.164	0.308	0.196	0.401	0.137	0.304	0.180	0.303	0.156	0.395
		1.05	1.29	1.34	1.33	0.81	0.97	1.28	1.02	1.53	1.33	1.07	1.00	1.40	1.00	1.22	1.30
Tag005		0.095	0.342	0.145	0.363	0.069	0.242	0.126	0.240	0.175	0.366	0.099	0.242	0.148	0.241	0.122	0.347
		0.74	1.13	1.13	1.20	0.54	0.80	0.98	0.79	1.36	1.21	0.77	0.80	1.15	0.79	0.95	1.15
Tag038		0.116	0.341	0.162	0.362	0.086	0.241	0.149	0.239	0.190	0.365	0.120	0.241	0.169	0.240	0.142	0.347
		0.91	1.13	1.26	1.20	0.67	0.80	1.16	0.79	1.49	1.21	0.94	0.80	1.32	0.79	1.11	1.14
Tag014		0.105	0.387	0.153	0.400	0.077	0.279	0.136	0.291	0.182	0.399	0.109	0.288	0.157	0.286	0.131	0.391
		0.82	1.28	1.19	1.32	0.60	0.92	1.07	0.96	1.42	1.32	0.85	0.95	1.23	0.95	1.03	1.29

上段：計算値
下段：RIMSにより繰り込まれたタガガスの種類

表4-7 RIMSによるタグガス分析結果(20~22回目破断試料)

検出No	測定値			Tag032	Tag011	Tag051	Tag015	Tag048	Tag005	Tag038	Tag014	
	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{76}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{80}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	$^{78}\text{Kr}/^{82}\text{Kr}$	
20	0.087	0.418	0.085	0.422	0.167	0.431	0.048	0.240	0.144	0.236	0.208	0.426
			0.980	1.010	1.924	1.031	0.550	0.575	1.668	0.565	2.407	1.019
21	0.184	0.429	0.085	0.422	0.146	0.429	0.057	0.285	0.123	0.303	0.181	0.425
			0.460	0.986	0.793	1.001	0.308	0.666	0.667	0.707	0.981	0.993
22	0.192	0.424	0.129	0.424	0.172	0.429	0.097	0.309	0.163	0.331	0.199	0.426
			0.672	1.000	0.895	1.012	0.506	0.730	0.847	0.782	1.036	1.005

上段：計算値

下段：測定値

□ : RIMSにより絞り込まれたタグガスの種類

表4-8 RIMS1によるタグガス分析結果(24回目破断試験)

23回目の検出 TagNo	測定値	Tag052		Tag011		Tag051		Tag015		Tag048		Tag005		Tag038		Tag014	
		${}^{80}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{82}\text{Kr}/{}^{83}\text{Kr}$	${}^{83}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{84}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{85}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{86}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{87}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{88}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{89}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{90}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{91}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{92}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{93}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{94}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{95}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$	${}^{96}\text{Kr}/{}^{82}\text{Kr}$
Tag052	0.115	0.423	0.153	0.428	0.091	0.328	0.140	0.350	0.177	0.425	0.118	0.344	0.157	0.342	0.136	0.425	
	1.027	1.209	1.365	1.222	0.810	0.937	1.254	1.001	1.583	1.215	1.055	0.982	1.400	0.979	1.215	1.215	
Tag011	0.143	0.427	0.173	0.430	0.117	0.340	0.167	0.363	0.194	0.428	0.146	0.356	0.180	0.355	0.161	0.428	
	1.277	1.219	1.545	1.228	1.046	0.973	1.491	1.037	1.730	1.222	1.299	1.017	1.604	1.015	1.437	1.223	
Tag051	0.097	0.353	0.134	0.367	0.078	0.277	0.118	0.285	0.157	0.369	0.100	0.283	0.134	0.282	0.116	0.356	
	0.866	1.008	1.194	1.048	0.695	0.793	1.055	0.814	1.402	1.054	0.893	0.809	1.198	0.806	1.037	1.018	
Tag015	0.133	0.373	0.169	0.386	0.104	0.282	0.161	0.293	0.193	0.387	0.136	0.290	0.176	0.289	0.154	0.377	
	1.184	1.066	1.510	1.103	0.932	0.807	1.434	0.836	1.724	1.105	1.211	0.829	1.573	0.826	1.376	1.076	
Tag048	0.162	0.425	0.188	0.428	0.135	0.343	0.186	0.365	0.207	0.426	0.164	0.358	0.196	0.357	0.178	0.426	
	1.446	1.214	1.578	1.224	1.203	0.980	1.657	1.043	1.845	1.217	1.465	1.024	1.753	1.021	1.593	1.218	
Tag005	0.117	0.367	0.154	0.380	0.093	0.281	0.143	0.291	0.179	0.381	0.120	0.289	0.159	0.287	0.138	0.370	
	1.047	1.048	1.379	1.086	0.829	0.804	1.273	0.831	1.594	1.039	1.075	0.825	1.417	0.821	1.233	1.058	
Tag038	0.146	0.366	0.178	0.380	0.116	0.281	0.172	0.290	0.200	0.331	0.147	0.288	0.186	0.287	0.165	0.370	
	1.291	1.046	1.585	1.085	1.033	0.802	1.535	0.829	1.784	1.088	1.316	0.822	1.658	0.819	1.470	1.056	
Tag014	0.130	0.425	0.165	0.429	0.104	0.331	0.166	0.354	0.188	0.426	0.133	0.347	0.171	0.346	0.150	0.427	
	1.160	1.213	1.472	1.225	0.926	0.945	1.392	1.010	1.678	1.218	1.186	0.990	1.525	0.987	1.341	1.219	

上段：計算値／測定値
 下段：RIMS1により絞り込まれたタグガスの種類

表 4-9 破断試料の同定(キャップセル No. 3-A)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定	破断試料の同定実績				
			破断 検出 No.	破断 時間	ボイド 計	温度 揺らぎ	R I M S
BR05	1000	○	4	1004	×	○	未実施
BR06	1500	○	6	1080	×	○	未実施
BR07	2000	○	8	1302	×	○	未実施
BR08	3000	○	9	1507	×	○	未実施
BR41	4000	○	12	2159	×	○	○
BR10	6000	○	14	2531	×	○	○
BR11	8000	○	18	3050	×	○	未実施
BR12	13000	○	21	4271	×	○	○
			22	4376	×	○	○

(注) 3-A キャップセルに装荷された試料のタグガスの種類はすべて Tag048 である。

表 4-10 破断試料の同定(キャップセル No. 3-B)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定
CR05	1000	○
CR06	1500	○
CR07	2000	○
CR08	3000	○
CR09	4000	未破断
CR10	6000	未破断
CR11	8000	未破断
CR12	13000	未破断

破断 検出 No.	破断 時間	破断試料の同定実績		
		ボイド 計	温度 揺らぎ	R I M S
15	2625	×	×	○
19	3159	×	×	○

(注) 3-B キャップセルに装荷された試料のタグガスの種類はすべて Tag005 である。

表 4-11 破断試料の同定(キャップセル No. 3-C)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定	破断試料の同定実績				
			破断 検出 No.	破断 時間	ボイド 計	・ 温度 揺らぎ	R I M S
DR09	1000	○	17	2950	×	○	○
DR10	2000	未破断	—	—	—	—	—
DR11	3000	未破断	—	—	—	—	—
DR12	4000	未破断	—	—	—	—	—
DR13	6000	未破断	—	—	—	—	—
AR09	8000	未破断	—	—	—	—	—
AR10	10000	未破断	—	—	—	—	—
AR11	12000	未破断	—	—	—	—	—

(注) 3-C キャップセルに装荷された試料のタグガスの種類は Tag038 または Tag014 である。

表 4-12 破断試料の同定(キャプセル No. 4-A)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定	破断 検出 No.	破断試料の同定実績			
				破断 時間	ボイド 計	温度 揺らぎ	R I M S
AR01	500	○	1	97	○	○	未実施
AR02	1000	○	3	443	○	○	未実施
AR03	1500	○	7	1240	×	○	未実施
AR04	2000	○	13	2238	×	○	○
AR05	3000	○	20	4195	×	○	○
AR06	4000	○	24	4536	×	○	○
AR41	6000	未破断	—	—	—	—	—
AR08	8000	未破断	—	—	—	—	—

(注) 4-A キャプセルに装荷された試料のタグガスの種類はすべて Tag032 である。

表 4-13 破断試料の同定(キャップセル No. 4-B)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定
CR41	1000	○
CC02	2000	○
CC03	4000	○
CC04	6000	○
BR01	8000	未破断
BR02	10000	未破断
BR03	13000	未破断
BR04	15000	未破断

破断試料の同定実績				
破断 検出 No.	破断 時間	ボイド 計	温度 揺らぎ	R I M S
2	270	×	○	未実施
11	1706	×	○	未実施
16	2869	×	○	○

(注) 4-B キャップセルに装荷された試料のタグガスの種類は Tag011 または Tag051 である。

表 4-14 破断試料の同定(キャプセル No. 4-C)

試料 No.	目標破断 時間	P I E ・外観観察 ・重量変化 測定	破断試料の同定実績				
			破断 検出 No.	破断 時間	ボイド 計	温度 揺らぎ	R I M S
DR01	1000	未破断	—	—	—	—	—
DR41	1500	未破断	—	—	—	—	—
DR03	2000	未破断	—	—	—	—	—
DR04	3000	未破断	—	—	—	—	—
DR05	4000	未破断	—	—	—	—	—
DR06	6000	未破断	—	—	—	—	—
DR43	8000	未破断	—	—	—	—	—
DR08	10000	未破断	—	—	—	—	—

(注) 4-C キャプセルに装荷された試料のタグガスの種類はすべて Tag015 である。

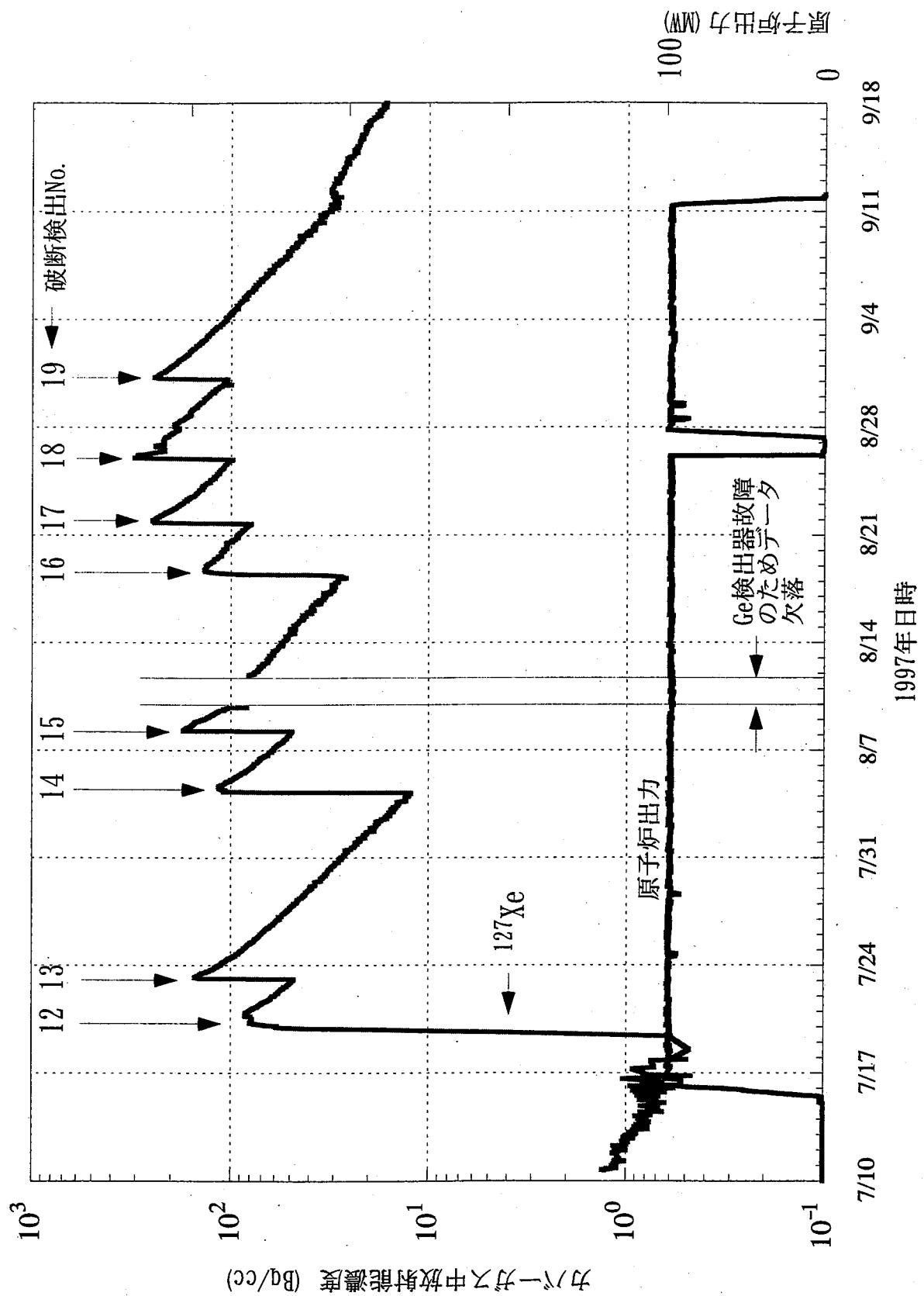


図4-1 オンラインγ線モニタによる第31サイクル測定結果

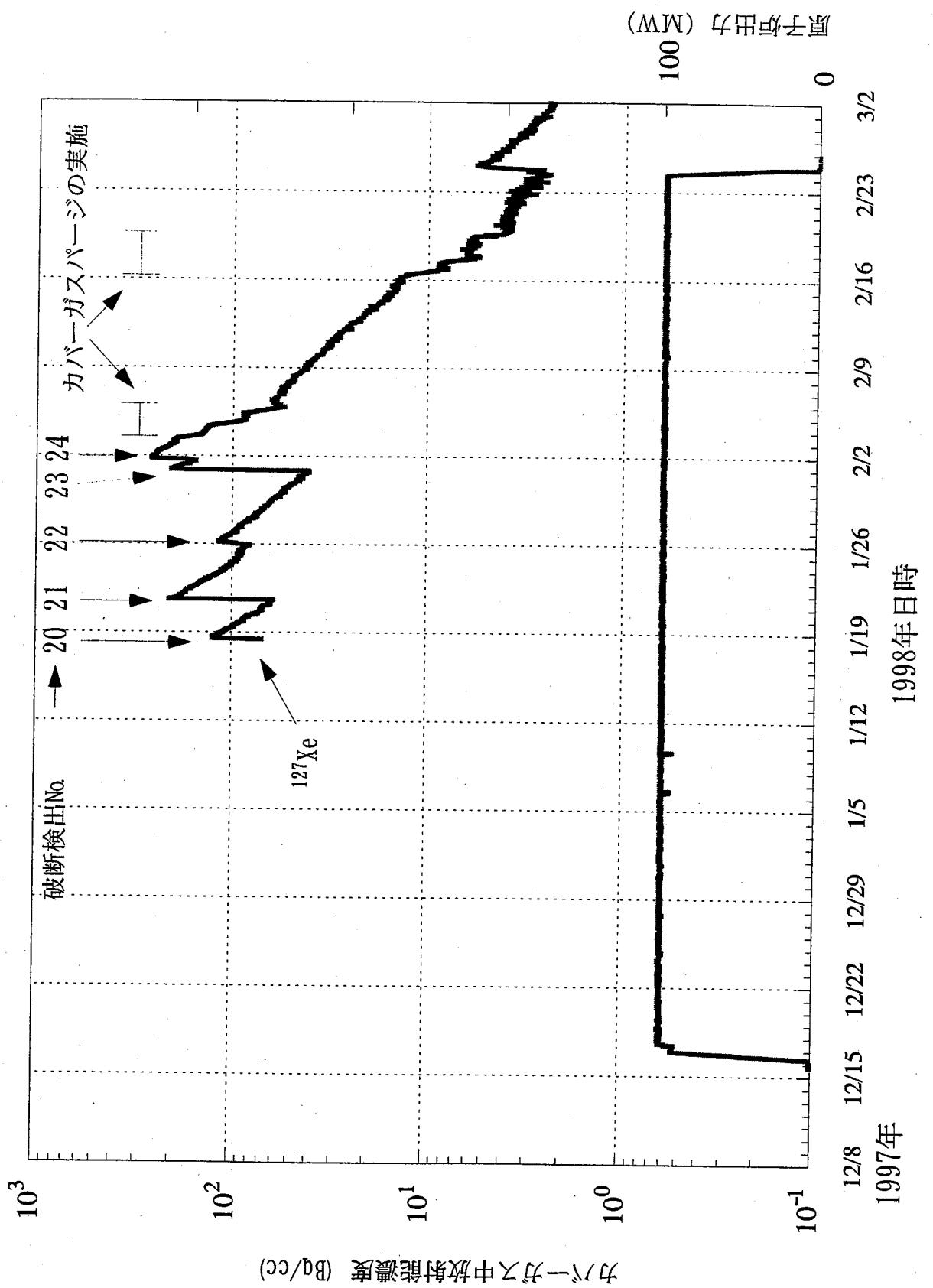


図4-2 オンラインγ線モニタによる第32サイクル測定結果

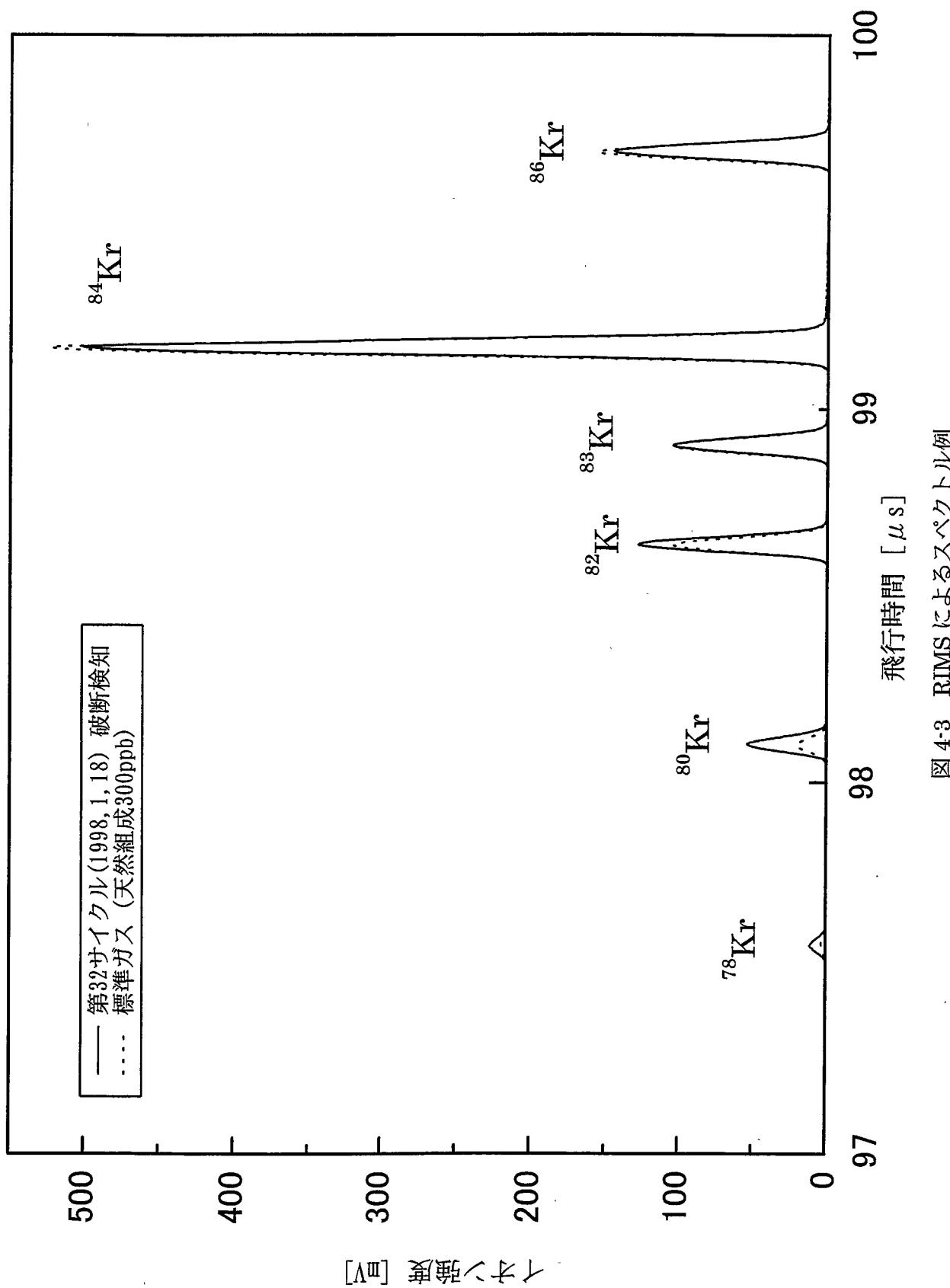


図 4-3 RIMSによるスペクトル例

5. 結言

本研究では、RIMS の照射技術への応用として、高速炉燃料被覆管材料の炉内クリープ強度特性を評価するための炉内クリープ破断試験に本システムを用い、その適用性を評価した。炉内クリープ破断試験では、「常陽」 MK-II 炉心第 29 サイクルから 32 サイクルにおいて、Kr、Xe のタグガスを封入した照射試料を MARICO にて炉内照射し、破断に至るまでの時間を測定した。試料破断後、カバーガスをサンプリングして破断により放出されたタグガスを RIMS 装置にて分析した。照射試料に封入したタグガス組成を基に、カバーガス中に放出されたタグガスの同位体組成を計算し、分析結果と比較して、放出されたタグガスの種類を推定した。

その結果、試料破断前のカバーガス中の希ガス濃度がわかつていれば、放出されたタグガスを 1 種類に絞り込むことができた。この結果は、試料破断時に試料から放出される気泡の通過に伴う熱電対の温度信号の揺らぎを検出する方法による同定結果と一致し、また、温度信号の揺らぎが検出できなかったケースについても、RIMS により放出されたタグガスの種類を同定できた。同定できたタグガスが用いられた照射キャップセル内の破断試料数と PIE により破断が観察された試料数が一致した照射キャップセルについては、内圧を変化させて設定した試料ごとの目標破断時間と組み合わせることにより、破断試料を 1 つに絞り込むことができた。

これらより、RIMS 装置を用いてカバーガス中に含まれる極微量のタグガスを分析することにより、炉内照射クリープ試験における破断試料の同定手段に適用できることを明らかにした。

今後は、本研究の残ガスを用いて Xe 核種の分析を行い、Xe 核種も含めた破断試料同定法の適用性を評価して実用化を図り、「常陽」 MK-III 炉心で実施する MARICO-2 による炉内クリープ破断試験に適用する予定である。

さらには、タギング法破損燃料検出 (FFDL) やカバーガス中の希ガス FP 分析への適用を目的として、MK-III 炉心運転時の実機カバーガス分析を通じて RIMS 装置の運用整備を図るとともに、燃料破損模擬試験、RTCB 試験（燃料被覆管が破損限界に到るまで照射を継続する試験）により RIMS システムを実証していく予定である。

謝辞

本研究の実施にあたり、RIMS 装置による「常陽」1 次系カバーガスの分析及び RIMS 装置の運転、維持管理について、検査開発株式会社の福田政樹氏、山口勝行氏にご協力いただいた。ここに記して謝意を示す。

参考文献

- [1] 片岡一、揃政敏、三次岳志：“「常陽」温度制御型材料照射装置の性能評価”、サイクル機構技報、No.11, p.39 (2001)
- [2] 原野英樹、野瀬正一、伊藤和寛：“レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) を用いた Na 冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発—「常陽」RIMS システムの設計—”、JNC TN9400 2000-076 (2000)
- [3] 原野英樹、伊藤主税、有馬聰宏、山口勝行：“レーザ法による微量希ガス検出技術の「常陽」への適用”、JNC TN9400 2002-003 (2002)
- [4] 青山卓史、鈴木惣十：“高速実験炉「常陽」における計測技術”、JNC TN9420 96-058 (1996)
- [5] 井口哲夫、渡辺賢一、荻田利幸、野瀬正一、原野英樹、伊藤和寛：“レーザー共鳴イオン化分光法を用いた FP ガスモニタリングの基礎研究－先行基礎工学分野に関する最終報告書－”、JNC TY9400 2000-019 (2000)
- [6] 井口哲夫、渡辺賢一、荻田利幸、野瀬正一、原野英樹、伊藤和寛：“レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた高速炉の燃料検出法に関する基礎研究”、サイクル機構技法、No.9, p.79 (2000)