

原子炉燃料からの気体状核分裂生成物放出量の測定

(インパイル・ガスループ実験とその解析)

Fission-gas Release from Nuclear Fuels with In-pile Gas-loop

井 上 清* 谷 口 薫*
 Kiyoshi Inoue Kaoru Taniguchi
 土 井 彰** 大 沢 康 男**
 Akira Doi Yasuo Osawa

要 旨

東京原子力産業研究所の日立教育訓練用原子炉に常圧貫流形のガスループを設置し、昭和40年、原子炉燃料の照射実験に着手した。発電用原子炉における燃料の使用状態に実験条件をあわせ、電気加熱の補助手段を用いて燃料温度を上げ、燃焼中の UO_2 燃料からの気体状核分裂生成物の放出現象を究明している。実験開始以来、高温照射を目標に逐次ループを改造し、 UO_2 燃料を装てんする照射要素の改良を続けてきた。この間、燃料温度 $1,200^\circ C$ 以下で UO_2 燃料中の格子欠陥の消滅が核分裂生成物の放出に重要な役割を果たすことを指摘し、結晶成長が進行する $2,000^\circ C$ の高温時の気体状核分裂生成物放出に関する新しい知見を得た。

1. 緒 言

核分裂性物質を含む原子炉燃料は燃焼の進行に伴い多種多様の核分裂生成物を生み出し、その多くは放射性核種である。沸騰水形原子炉発電所では各種の安全防護施設を備え放射性廃棄物処理装置を設けており、核分裂生成物の外部放出を完全に防止している。これら施設および装置の機能向上の基礎資料となり、また原子炉燃料(現在多くは UO_2 燃料を実用)の被覆管強度に保証を与えるものの一つに、原子炉燃料における核分裂生成物の挙動に関する実験的研究がある。

この研究を遂行する手段がインパイル・ループである。燃料試料を装てんした照射要素を原子炉内にそう入して、核分裂の進行および温度を調節制御し、これらの関数として燃料性能を評価し核分裂生成物の挙動を解明することができる。ループ配管内をガスが循環あるいは貫流している場合は、ガスループと呼ぶ。この報文はこうしたインパイル・ガスループの実験に関するもので、実験技術の進展について述べ、その間に得られた気体状核分裂生成物(核分裂生成ガスと略称する)の放出に関する知見を概括している。

の小形ガスループの予備設計を開始し、昭和40年秋から東京原子力産業研究所の日立教育訓練用原子炉(Hitachi Training Reactor, HTR と略称)で実験に着手した。この HTR は熱出力 100 kW のスイミング・プール形式の原子炉で、透明な水で炉心放射線を遮蔽(しゃへい)しており原子炉炉頂からループの燃料試料を装てんした照射要素をそう入することができる。照射要素を原子炉炉心にそう入したときには、燃料試料表面で $1 \times 10^{12}\text{ n/cm}^2\text{ s}$ の熱中性子束が得られる。なお、反応度事故現象の究明のため HTR には原子炉出力を急激に上昇させる機器が併設されていて⁽¹⁾⁽²⁾、昭和43年夏には $1.2\% \Delta k/k$ の反応度を投入したパルス運転を行なった。現在まだパルス運転炉心にガスループをそう入していないが、原子炉事故を仮想した条件下で核分裂生成ガス放出量を測定し、燃料破損検出あるいは破損現象の究明に資することが可能である。従来、二種類の照射要素(A形とB形)を実験に使用してきた。図1はA形照射要素を、また図2はB形照射要素の HTR 炉心へのそう入状況を示したものである。

インパイル・ループは基本的に次の構成をもっている。

2. インパイル・ガスループ

昭和38年秋、核分裂生成ガス放出量測定を目的とした特殊設計

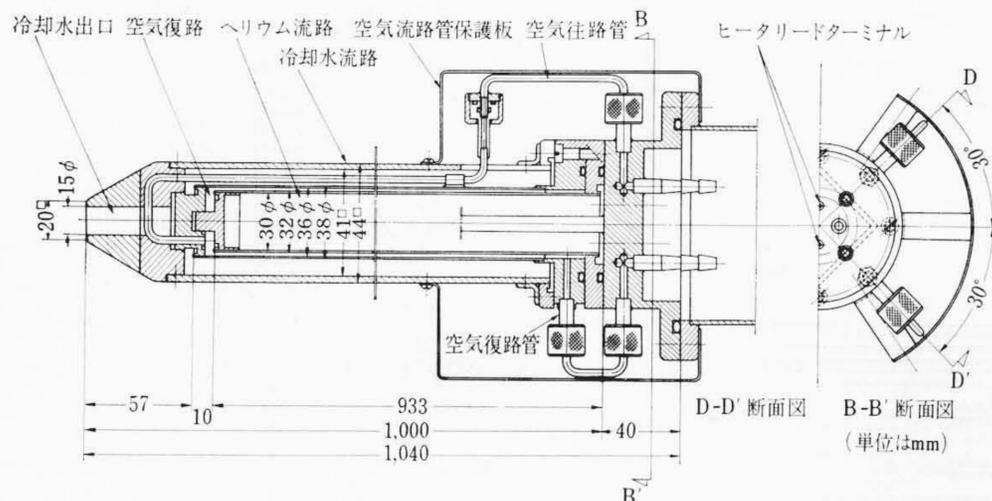


図1 インパイル・ガスループ用A形照射要素

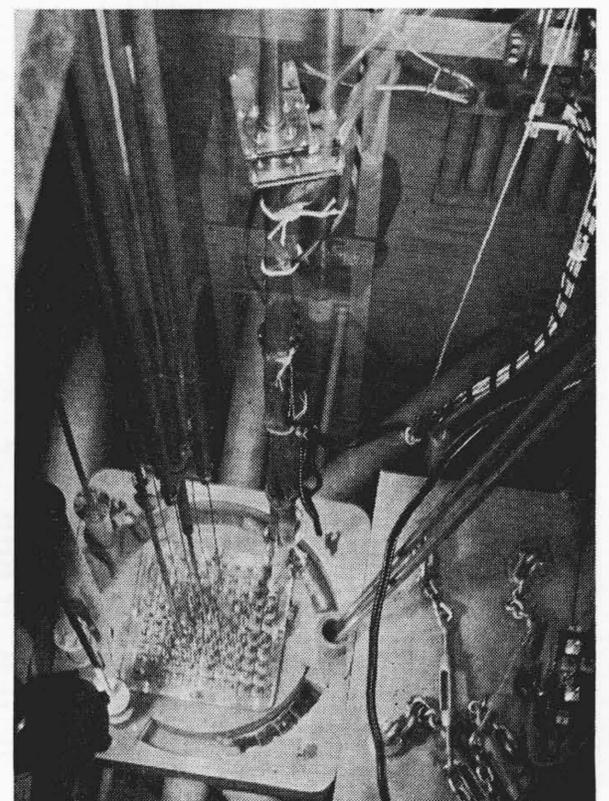


図2 ガスループ用B形照射要素の原子炉炉心へのそう入状況

* 日立製作所中央研究所王禅寺支所 理学博士
 ** 日立製作所中央研究所王禅寺支所

- (a) 担体ガス（燃料試料から放出される核分裂生成ガスを炉外装置に搬出する）をループ内に送入し、純化する機器
- (b) 燃料試料を装てんし炉心にそう入される照射要素
- (c) 担体ガス中にはいった核分裂生成ガスの放射能を計測する機器
- (d) 放射能を除去あるいは減衰させてのち、担体ガスを安全面で管理しつつ排出する機器

このうち照射要素について、A形照射要素⁽³⁾、B形照射要素⁽⁴⁾、ならびに照射前試験をすべて終了したC形照射要素の構成と機能を一括して表1に記入し、ガスループ実験の進展を明らかにした。B形照射要素使用時のガスループ系統略図を図3に、HTRへの配置模式図を図4に示す。担体ガス中にはいった核分裂生成ガス放射能の計測には主として日立製の400チャンネル波高分析器付きのガンマ

線スペクトロメータを用い、担体ガス流路の一部を厚さ100mmの鉛遮蔽でかこみ検出部(NaIシンチレータ)をここにそう入して継続的に測定する方法とガス捕集びんに採取して実験室で測定する方法の両方で、核分裂生成ガスの放出状況を調べている。照射要素の担体ガス出口の近くに、負電圧を印加したステンレス鋼の棒(通称、ドータ・トラップ⁽⁵⁾)を配置して、数秒程度の半減期で減衰する核分裂生成ガスの放出量を低蒸気圧で長寿命の娘核種への放射性壊変を待ちこれの棒上への付着量を計測して、算出できるようにした。実験に使用して放射能を帯びた照射要素は東京原子力産業研究所内の原子炉炉室に接しているホットセルに搬入して解体し、照射実験終了後の照射要素ならびに燃料試料の状況を観測することができる。また、関連測定機器として、マス・スペクトロメータ、ベータ線スペクトロメータ、X線マイクロアナライザ、ガスクロマトグラフなど、各種の計測器を備えている。

表1 各種のガスループ用照射要素の構成と機能

	A形照射要素	B形照射要素	C形照射要素
要素の主材料	2SA1	SUS-27	SUS-27
最大燃料装てん量	100g	100g	100g
燃料ペレット寸法	10mmφ×10mmL	12mmφ(O.D.) ×4mmφ(I.D.) ×10mmL	8mmφ×8mmL
電気加熱方式	傍熱	中心加熱	傍熱
電気加熱構造	ステンレス鋼カプセルの外側にニクロム線ヒータをまきつける。	燃料中心にタングステン棒ヒータを配置し、これに低電圧電流を流す。	燃料を対向したタングステン板間に装着し、タングステン板に低電圧電流を流す。
最高燃料温度	800°C	2,400°C	2,000°C
燃料内温度こう配	なし	あり	なし
担体ガス	ヘリウム	アルゴン	アルゴン
放射能減衰容量	なし	あり	あり

3. A形照射要素を使用した実験

A形照射要素は表1でその構成と機能を概括したとおり、燃料温度800°Cまでの照射実験用に設計された。図5はその主要部分を示すもので、燃料試料(日立製のUO₂ペレット、理論密度比は94%、O/U比は2.00、焼結粒径は数ミクロン)をステンレス鋼のカプセルに収納し、カプセル外壁に巻いたニクロム線ヒータに通電して加熱する構造であった⁽³⁾。

燃料温度150°Cで連日断続的に5時間だけ1×10¹² n/cm²sの熱中性子束で照射したとき、担体ガスとともにループ配管中を流れた核分裂生成ガスの放出量の時間的変化を示したのが図6である⁽³⁾。150°Cの燃料温度では核分裂生成物放出に成立する放出機構は分裂核の反跳が関与するものである⁽⁶⁾⁽⁷⁾。その一つは反跳した分裂核のとび出しであり⁽⁸⁾、他の一つはこれによって生じた熱スパイク⁽⁹⁾で誘起される二次的な核分裂生成物の放出である。二次放出式を設定

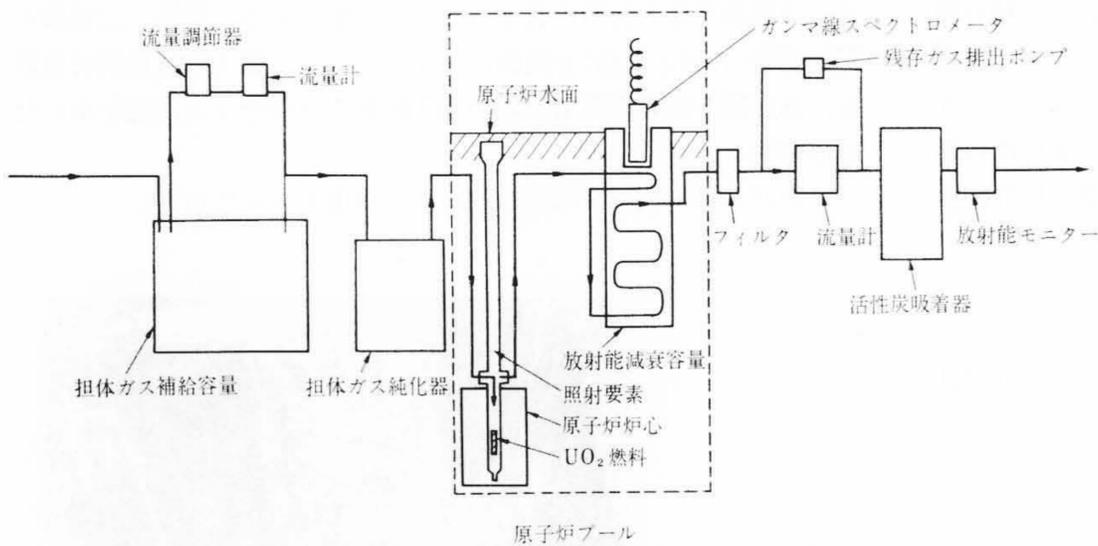


図3 B形照射要素使用時のガスループ系統略図

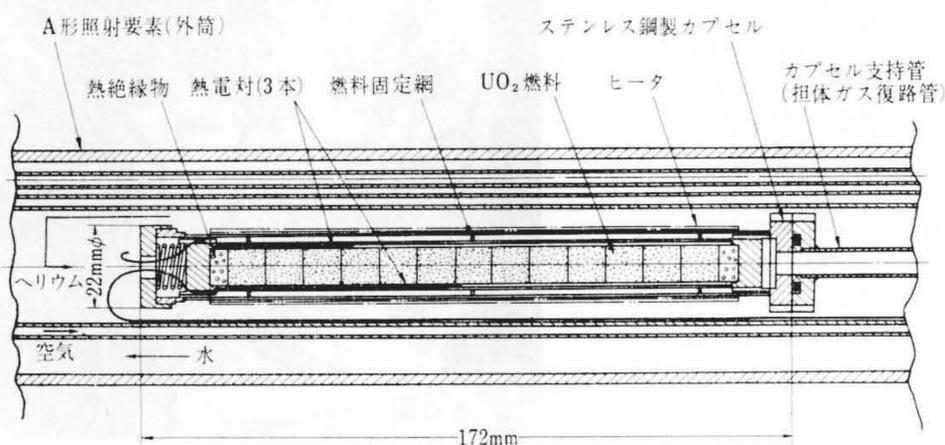


図5 A形照射要素主要部の断面図

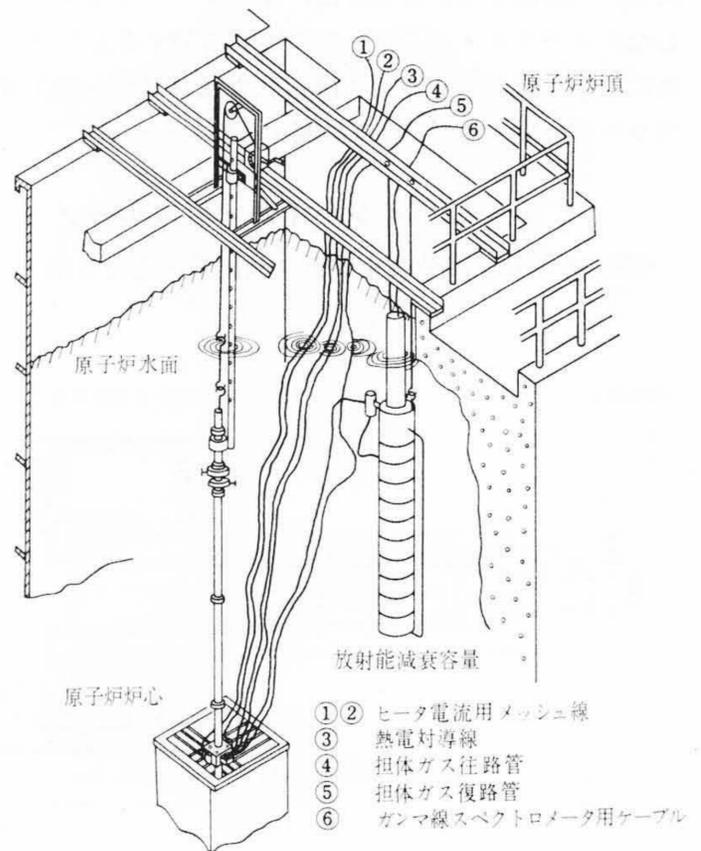


図4 B形照射要素とその付属部品の原子炉内配置模式図

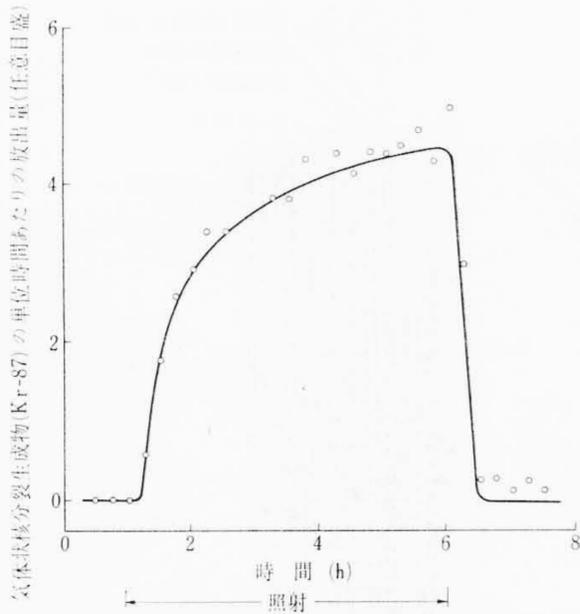


図6 分裂核反跳の関与する放出が支配的な温度領域における気体状核分裂生成物の放出量曲線

し⁽³⁾、短半減期核種のもつ放射能の重畳、長半減期の先行核種の放射能壊変、さらにガスループで担体ガスが放射能計測部に到達するまでの過渡応答などの補正を加えながら、実験条件を二種類の核分裂生成物放出式に代入して比較検討した。この結果、図6に示した核分裂生成ガスの放出現象を解釈するためには上記の両放出機構がともに成立しているとすべきことが確認され、次の場合に二次放出が顕著になることを放出式の表示から推測した。

- (a) 単位時間あたりの核分裂量が大きい場合、 UO_2 燃料に対しては濃縮度が高く熱中性子束が大きい場合
- (b) 幾何学的表面積に対する微細な凹凸まで考慮に入れた全表面積の比率が大きい場合、すなわち燃料密度が低く閉孔に対して開孔が大きな割合で存在する場合
- (c) 燃料をとりまく気体層の厚さが薄い場合、したがって、ペレット燃料よりはむしろ振動充てん燃料あるいはスエージ燃料を使用する場合
- (d) 短半減期で減衰するものよりも長寿命の核分裂生成物の放出に着目する場合

ただし、発電用原子炉燃料は $1,000^\circ C$ をはるかに越える高温で使用され、分裂核の反跳が関与する放出機構は核分裂生成物放出量が小さい点で実際上重要ではない。たとえば、上記(a)の場合には核分裂による燃料の自己発熱が大になって燃料温度を高め、後述の燃料温度に依存する核分裂生成物の放出が支配的になり、分裂核の反跳が関与する放出機構を検討する意義がうすれる。なおこの実験解析で決定した、 UO_2 燃料表面を貫通してとび出す分裂核1個あたりのU原子の放出数は 5×10^4 であった⁽³⁾。この放出数は公表されている照射後測定値⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾とだいたい一致することを見いだした。

図7は電気加熱で急速に燃料温度を上昇させたときの核分裂生成ガス放出量変化の実験例である。核分裂生成ガスのバースト放出(図7)を観測できたけれども、単結晶の UO_2 燃料の照射実験例⁽⁷⁾から予測したバースト放出よりも小さく、燃料温度をさらに高めて UO_2 燃料(焼結)からの核分裂生成ガス放出量の測定を行なうべきことと、燃料温度に依存する核分裂生成物の放出機構のうち欠陥トラップ説⁽¹¹⁾を中心とした理論解析の必要を認識した。なお、前記の分裂核の反跳に基づく二次放出は次に述べる欠陥トラップ説で解釈することができる。

4. 気体状核分裂生成物放出の実験解析

従来、核分裂生成ガス放出量が UO_2 燃料の温度とともに指数関数的に増大する観測事実が、等価球拡散モデル⁽¹²⁾を適用した拡散

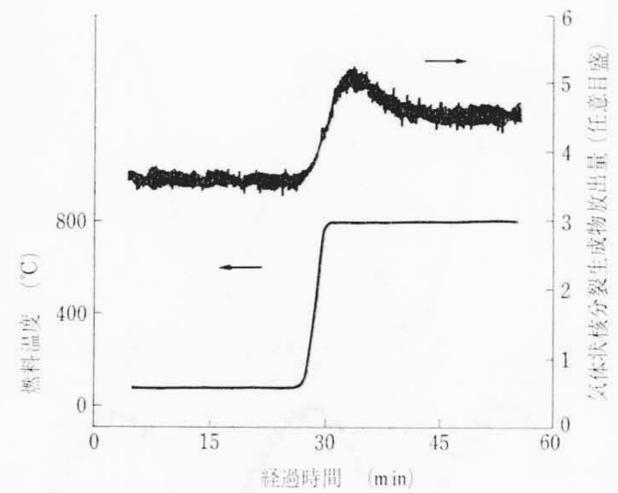


図7 24時間の照射継続後、急激に UO_2 燃料温度を高めたときの気体核分裂生成物放出量の時間的变化

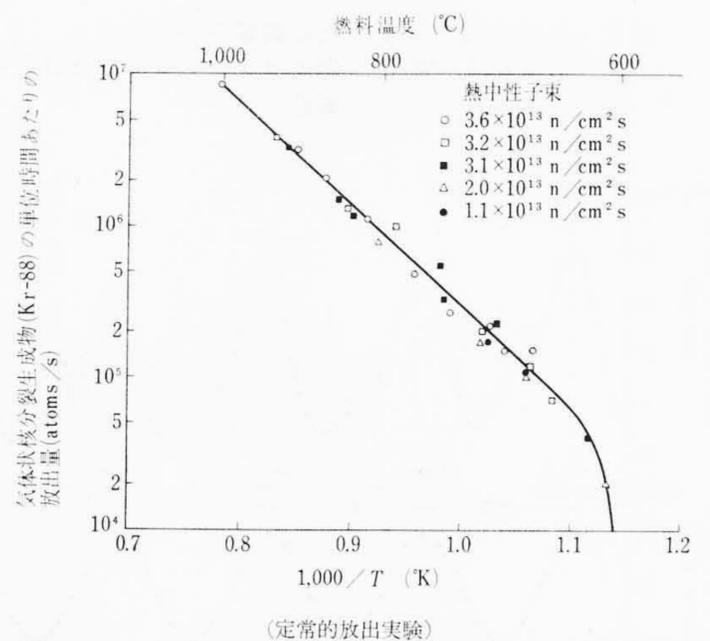


図8 分裂核の反跳が関与する放出量を差引いて決定された、気体状核分裂生成物の放出量と燃料温度との関係

理論式で解析されてきた。 UO_2 燃料の照射後測定によって得られた核分裂生成ガスの拡散に対する活性化エネルギーの値は、良い一致を示すことなく $20 \sim 120 \text{ kcal/mol}$ ⁽⁸⁾の間に散在していた。これは等価球拡散モデルにおける等価球半径の決定の困難さや閉孔を測定できずその寄与を明確にし得なかったことに基づき、さらに拡散係数を等価球半径の二乗で割った値が核分裂量の関数⁽¹¹⁾でもある複雑さに原因する。アメリカのオークリッジ国立研究所のDr. Carrollはこの放出現象の解明に努め、類似構成のインパイル・ガスループ⁽¹³⁾を用い、 $1,200^\circ C$ 以下の燃料温度で温度依存性をもつ核分裂生成ガスの放出量を測定した。このガスループは燃料温度あるいは単位時間あたりの核分裂量を独立して正弦波状に変化させる機器を備え、これにより核分裂生成ガスの定常的放出と周期的放出の両者を特定の燃料試料に対して容易に観測できた(報告者のひとりも実験に参加⁽⁴⁾)。以下、拡散理論式に欠陥トラップ説を導入したDr. Perezの核分裂生成ガスの定常放出式⁽¹⁵⁾に立脚して行なった、単結晶の UO_2 燃料に対する実験解析の結果⁽¹⁶⁾について記述する。

Dr. Perezの定常放出式は、従来の拡散理論式から予期される核分裂生成ガスの放出量に $\{1+g(\lambda+b)^{-1}\}^{-1/2}$ の係数を乗すべきことを指摘したものであった。ここに、 g は UO_2 中で核分裂生成ガスがトラップされる確率、 λ は核分裂生成ガスの壊変定数、 b は核分裂生成ガスが上記のトラップから脱出する確率であり、この二種の確率は核散係数とともに温度依存性を有するとした。定常的放出の実験結果(図8)⁽⁷⁾の数値解析によって、上記の両確率ならびに拡散係数に含まれている活性化エネルギーの値を決定し、理論的考察を加

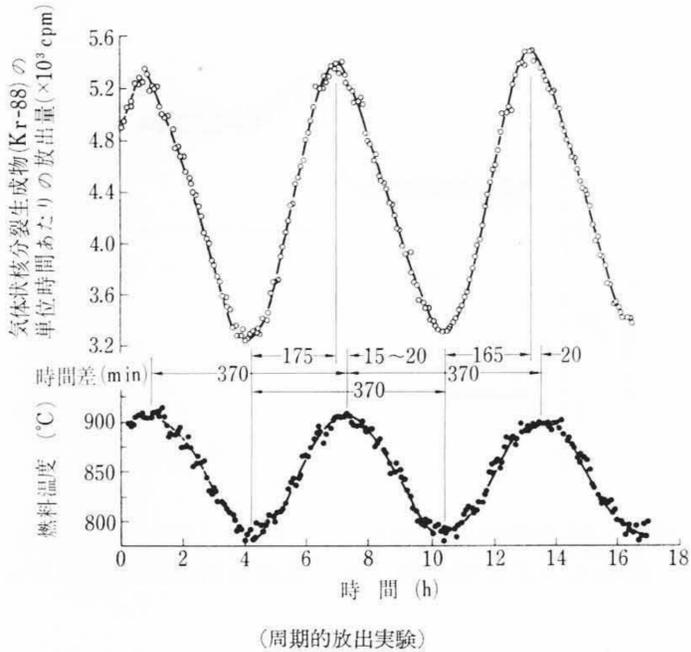


図9 単位時間あたりの核分裂量を一定に保ち、燃料温度を正弦波状に変化させたときの気体状核分裂生成物の放出量曲線

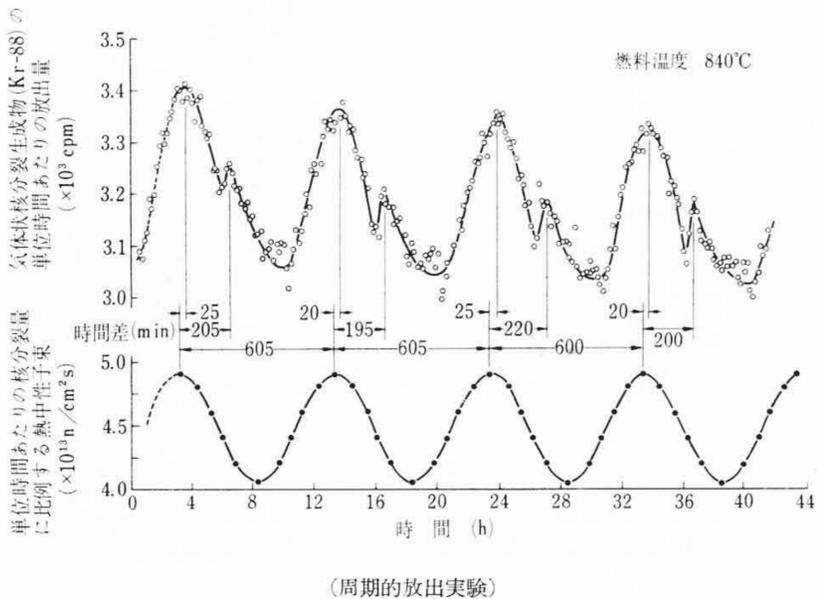


図10 燃料温度を一定に保ち、単位時間あたりの核分裂量を正弦波状に変化させたときの気体状核分裂生成物の放出量曲線

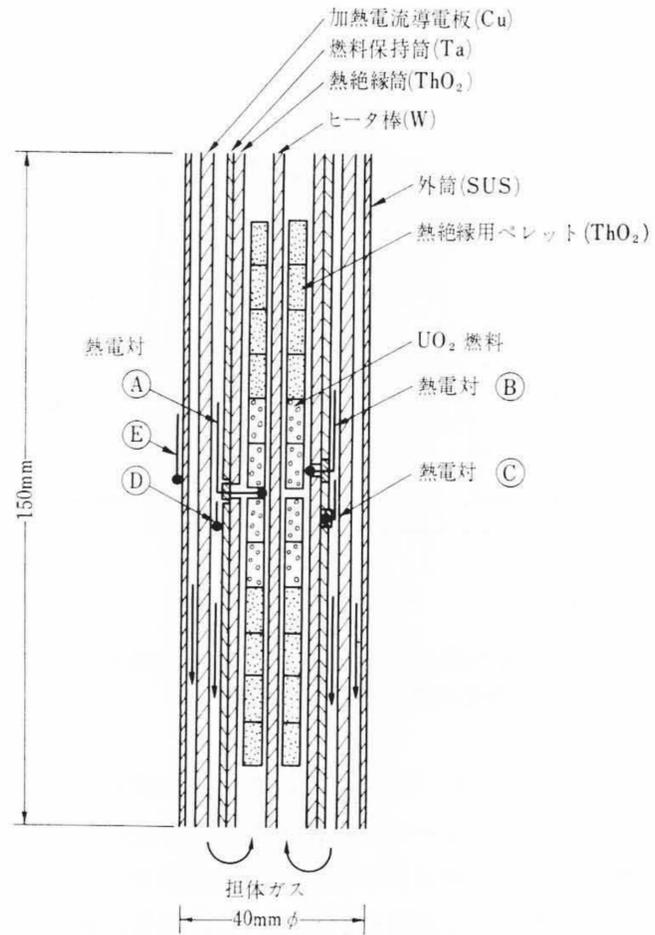


図11 B形照射要素主要部の断面図

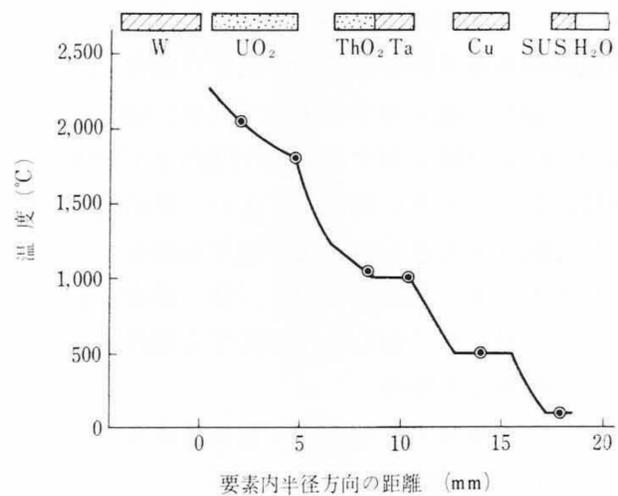


図12 B形照射要素内温度分布

えて下記の物理的現象にそれぞれ対応することを指摘した。

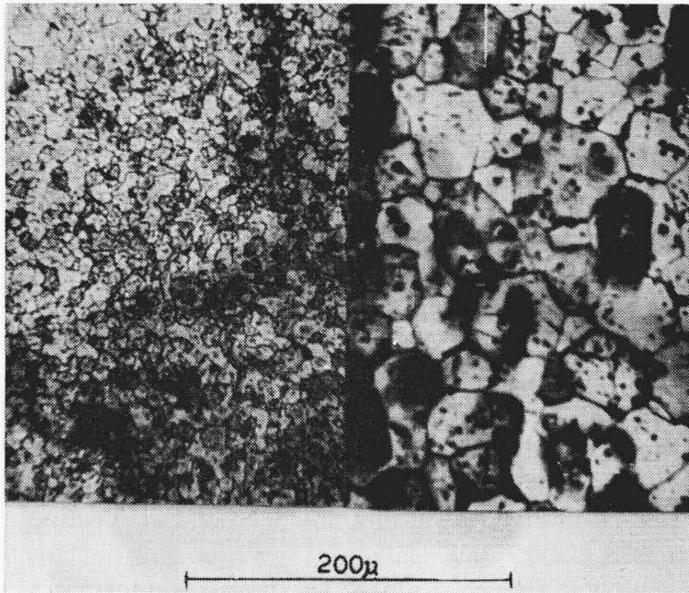
- (a) 焼鈍効果による UO_2 燃料中の空格子点消滅の活性化エネルギーの値は 20 kcal/mol
- (b) 焼鈍効果によって核分裂生成物をトラップした格子欠陥が消滅するときの活性化エネルギーの値は 40 kcal/mol
- (c) トラップから脱出した核分裂生成物が UO_2 燃料内を拡散移動するときの活性化エネルギーの値は 30 kcal/mol

さらに、定常放出式を摂動論的手法によって周期的放出を解析し得る式に発展させ、定常的放出実験の解析で見いだした活性化エネルギーの値を代入して、燃料温度を正弦波状に変化させたときの核分裂生成ガス放出曲線の位相の進み(図9)⁽⁴⁾と単位時間あたりの核分裂量を正弦波状に変化させたときの核分裂生成ガス放出曲線の中間極大値の出現(図10)⁽⁴⁾を説明した。核分裂生成ガスの定常的放出実験で見いだされ、周期的放出実験で裏付けられた前記の活性化エネルギーの値から、単結晶の UO_2 燃料に対し照射後測定で観測されるべき核分裂生成ガス放出の活性化エネルギーの値は約 70 kcal/mol であることが判明した。焼結した UO_2 燃料では本来的に結晶粒界や空孔などの深いトラップが内在し、また高度の焼結をした UO_2 燃料では転移網ならびに気泡の形成が進行して深いトラップができ、核分裂生成ガス放出の活性エネルギーの値はトラップからの脱出が困難になるに従い増大すると推測される。

5. B形照射要素を使用した実験

B形照射要素は表1でその構成と機能を概括したとおり、燃料温度 2,400°C までの照射実験用に設計されている。図11にその主要部分の断面を示す。燃料試料(日立製の UO_2 ペレット、理論密度比は 95%、O/U 比は 2.00、使用前の焼結粒径は数ミクロン)には中心軸部分が中空のものを使用し、ここにタングステン棒ヒータを通して低電圧電流で加熱する。加熱時の要素内温度分布を図12に、加熱による UO_2 燃料の結晶成長の状況を図13に示す。ヒータに近い側の燃料内部には柱状晶の成長が観察された⁽⁴⁾。

図14に示したガンマ線エネルギー・スペクトルは、ループ配管中を流れる担体ガスにはいった核分裂生成ガスの放出量の温度依存性を明確にするものであり、この場合、特定の光電ピークを形成する計数値の総和がその核分裂生成ガスの放出量に比例するよう実験条件を選定してある。図15では核分裂生成ガス放出量を照射実験時間の関数として整理し、破線で示した放射能壊変だけを考慮して算出した核分裂生成ガスの存在量変化曲線と対応させた。図15によって、 UO_2 燃料に対し結晶成長が進行する温度領域における核分裂生成ガスの放出現象を考察する際には、燃料内での放射能壊変とともに放出による存在量の減少をも考慮すべきことを明確にした。



(加熱前) (加熱後)
図13 中心加熱後のUO₂燃料における結晶成長の進行状況

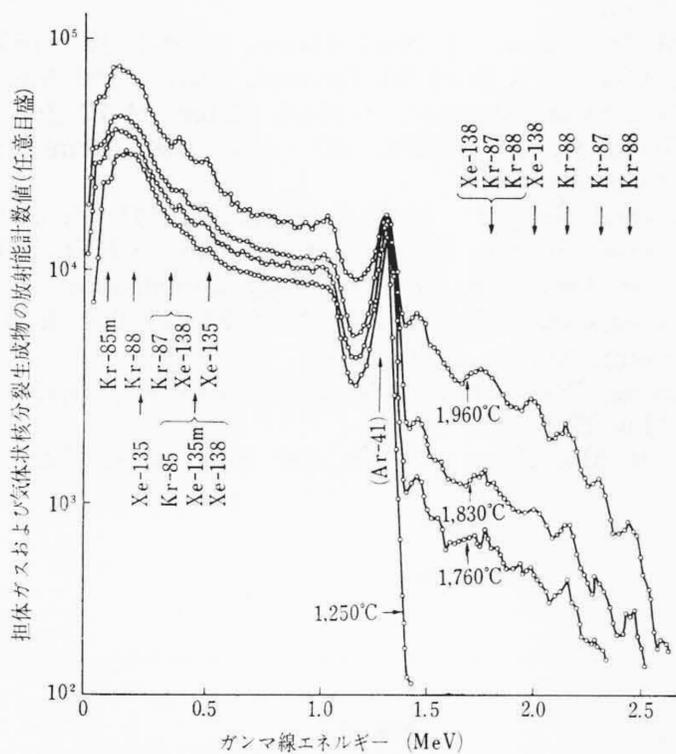


図14 B形照射要素使用時のループ配管中を流れる担体ガス(アルゴン)ならびに気体状核分裂生成物のガンマ線エネルギー・スペクトル

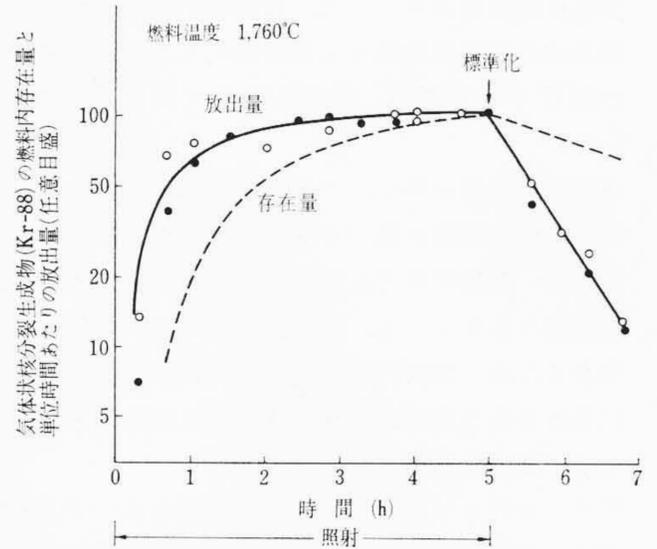
図16は核分裂生成ガス放出量と加熱継続時間を関係づけるものである。一方、実験室において得た結晶成長状況(図17にその実験例として、燃料温度に対して結晶成長の観測結果を図示する。)に基づく知見があったので、図16の核分裂生成ガスの放出量がUO₂燃料の結晶粒粗大化とともに増大し、粒径の2分の1乗に比例した放出量を示すことを見いだした。なお、図17には海外で得られたUO₂燃料を均一温度を保ちつつ加熱したときの結晶成長データ⁽¹⁷⁾も記入されており、UO₂燃料内に温度こう配がある本報の中心加熱実験時には結晶成長が著しく促進されることも明らかになった。

B形照射要素を使用した核分裂生成ガス放出実験は現在なお進行中である。表1で記述したC形照射要素も昭和43年秋から照射実験に用い、UO₂燃料内の温度こう配の有無を明確に区別して、結晶成長が進行する温度領域における核分裂生成ガスの放出現象を究明してゆく。

6. 結 言

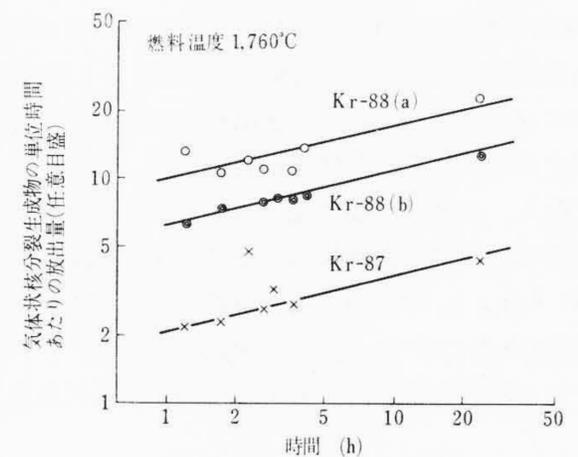
この報文の内容を要約すると次のとおりである。

- (1) 東京原子力産業研究所の日立教育訓練用原子炉に設置した



注： 図中に用いた記号○●は放出量算出の基礎としたガンマ線エネルギー・スペクトルにおける光電ピークの別を示す。

図15 UO₂燃料の結晶成長が進行する温度領域における気体状核分裂生成物の放出量曲線



注： 図中、Kr-88に対して(a)と(b)は放出量算出の基礎としたガンマ線エネルギー・スペクトルにおける光電ピークの別を示し、ガンマ線放射率、その他の補正を加えていない。

図16 気体状核分裂生成物放出量と加熱継続時間の関係

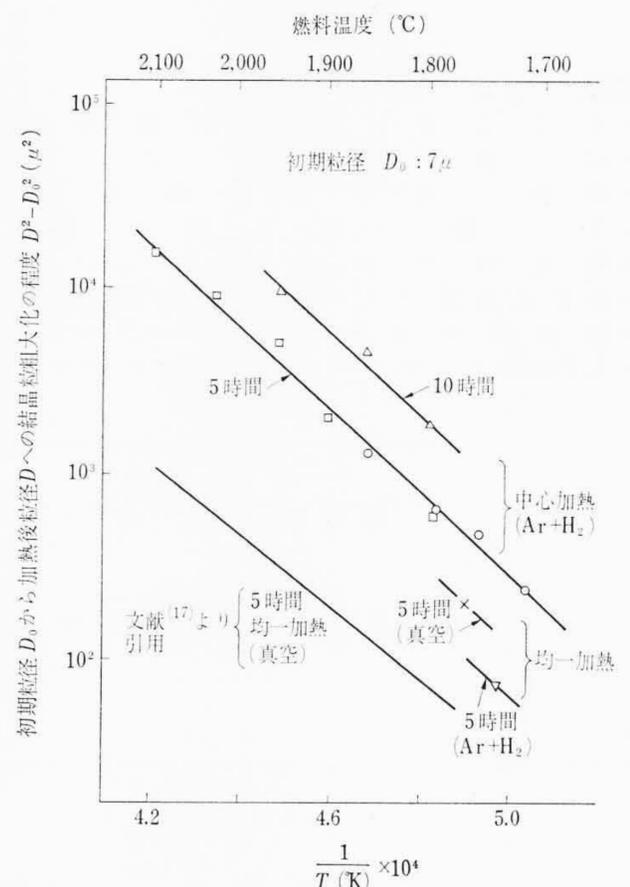


図17 実験室で観測したUO₂燃料における結晶成長と燃料温度との関係

常圧貫流形ガスループは、B形照射要素と呼称する中心加熱方式の燃料試料装てん部を用いて、 UO_2 燃料の結晶成長が進行する2,000°Cの燃料温度で照射実験を実施している。

- (2) A形照射要素を用い、カプセル内に収納した燃料試料からの分裂核の反跳に基づく気体状核分裂生成物の放出量を測定した。被覆管装てん燃料の場合には分裂核の反跳による直接的な放出よりも、反跳路に沿って局所的な高温部分ができるため、燃料内に静止していた核分裂生成物が放出されるとする二次的な放出が支配的になることを述べ、そのための要因を指摘した。
- (3) アメリカのオークリッジ国立研究所のループ実験(報告者のひとりが参加)で得られた気体状核分裂生成物の放出データを解析した。 UO_2 燃料の結晶成長がみられない1,200°C以下の燃料温度では、燃料中の格子欠陥の消滅が気体状核分裂生成物の放出に重要であることを指摘し、欠陥トラップ説を導入した拡散理論式における三種の活性化エネルギーの値を決定した。
- (4) B形照射要素を用い、中心加熱方式で UO_2 燃料を結晶成長が進行する温度領域まで昇温し、気体状核分裂生成物の放出量を測定した。この実験から、温度こう配のある UO_2 燃料における結晶成長ならびに結晶成長進行中の気体状核分裂生成物の放出に関する知見を得た。

終わりに臨み、本報の実験に先だちループ実験ならびに気体状核分裂生成物の放出に関して御指導を受けたDr. R. M. Carroll (Oak Ridge Nat'l Lab.)と、本報の実験と解析の両面でご指導いただいた矢島聖使教授(東北大学)に、深甚の謝意を表す。ループ実験全般にわたって日本原子力研究所燃料工学部の上田隆三部長、武谷清昭

次長のご指導を受け、東京原子力産業研究所の浜田秀則社長、西堀博所長のご支援をいただいた。ループの設置と一部の実験は昭和39年度の原子力平和利用研究補助金によって行なわれ、科学技術庁原子力局のご指導のもとに遂行した。ここに厚くお礼申し上げる。また、昭和38年の計画着手以来、日立製作所中央研究所の神原豊三所長、島史朗支所長(現在、動力炉核燃料開発事業団)の研究指導を受けたことを付記する。

参 考 文 献

- (1) 田上: 日本原子力学会誌 10, 149 (昭43-3)
- (2) 山田, 今井, 井上, 田上, 飯塚: 日立評論 50, 645 (昭43-7)
- (3) Inoue, Taniguchi, Osawa: J. Nucl. Sci. Technol., Japan 4, 387 (Aug. 1967)
- (4) Doi, Hayashi, Osawa, Inoue: J. Nucl. Sci. Technol., Japan 5, 313 (Mar. 1968)
- (5) Townley, Howes, Raines, Diethorn, Sunderman: Nucl. Sci. Eng., 10, 346 (Aug. 1961)
- (6) B. G. Childs: J. Nucl. Mater., 9, 217 (Aug. 1963)
- (7) Carroll, Sisman: Nucl. Sci. Eng., 21, 147 (Feb. 1965)
- (8) J. Belle (Ed.): Uranium Dioxide; Properties and Nuclear Applications, 477 (July 1961, U. S. Atomic Energy Commission)
- (9) M. D. Rogers: J. Nucl. Mater., 16, 298 (July 1965)
- (10) Y. Osawa: J. Nucl. Sci. Technol., Japan, 2, 296 (Aug. 1965)
- (11) Mac Ewan, Stevens: J. Nucl. Mater., 11 77 (Jan. 1964)
- (12) Booth, Rymer: CRDC-720 (Aug. 1958, Atomic Energy of Canada Ltd.)
- (13) Carroll, Reagan: Nucl. Sci. Eng., 21, 141 (Feb. 1965)
- (14) Carroll, Sisman, Fulton, Perez, Inoue: ORNL-3789, 223 (Apr. 1965, U. S. Atomic Energy Commission)
- (15) Perez, Carroll, Sisman: ORNL-TM-743 (Dec. 1963, U. S. Atomic Energy Commission)
- (16) Inoue, Taniguchi: J. Nucl. Sci. Technol., Japan, 4, 260 (May 1967)
- (17) J. R. Mac Ewan: J. Am. Cer. Soc., 45, 37 (Jan. 1962)

Vol. 51 日立評論 No. 4

目 次

■ 論 文

- ・日立における遮断器合成実験
- ・回折格子の製作
- ・最新の火力計算機制御技術
- ・自動復旧装置
- ・最近のデスクーリング設備
- ・移行式窒素プラズマジェット切断装置の特性
- ・新形汎用モートル——Nシリーズ——
- ・LP8000リニアプログラミングシステムの開発

- ・ゴムの浸水課電特性
- ・フェライト系鋳鋼の低温における衝撃特性

■ 電力ケーブル特集

- ・超々高圧用プラスチックOFケーブルの開発
- ・ケーブル被覆用Pb-Cu-Te系合金の諸特性
- ・高電圧3心OFケーブルのノーオフセット布設実験
- ・高電圧ポリエチレンケーブルのトリイーイング劣化
- ・ゴム、プラスチックケーブルの高電圧化
- ・22kV発電新主幹ケーブルの内部強制水冷

発行所 日立評論社
取次店 株式会社 オーム社書店

東京都千代田区丸の内1丁目4番地
郵便番号 100
振替口座 東京71824番
東京都千代田区神田錦町3丁目1番地
便郵番号 101
振替口座 東京20018番