

JAERI-M

7855

F P 追加放出現象の解析

1978年9月

武田常夫・永井 齊

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

この報告書は、日本原子力研究所がJAERI-Mレポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

F P 追 加 放 出 現 象 の 解 析

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

武田常夫・永井 斉

(1978年8月16日受理)

欠損燃料体が存在する場合の核分裂生成物 (F P) の冷却水中への追加放出挙動について、計算コードを使用し定性的な検討を行った。その結果、主蒸気管破断事故等の事故を想定した圧力・温度変動時および原子炉起動・停止時に起る追加放出は、欠損孔を通して燃料ピン内に流れ込みまたは流れ出る水の挙動に大きく依存していることが明らかになった。また、炉内ループを用いた F P 追加放出挙動実験の結果についても検討を加えた。その結果、今後 F P のピン内内部蓄積量 (ペレットを含まない) ・追加放出量について評価方法の検討およびピン内水挙動の評価方法の検討が必要であることがわかった。同時に炉外実験の必要性およびキャプセル実験の必要性について検討を加えなければならないことが明らかになった。

JAERI-M 7855

An Analysis of the Additional Fission Product Release Phenomena

Tsuneo TAKEDA and Hitoshi NAGAI

Division of Reactor Safety,  
Tokai Research Establishment, JAERI

( Received August 16, 1978 )

The additional fission product release behavior through a defect hole on the cladding of fuel rods has been studied qualitatively with a computer program CODAC-ARFP. The additional fission product release phenomena are described as qualitative evaluation. The additional fission product release behavior in coolant temperature and pressure fluctuations and in reactor start-up and shut-down depends on coolant water flow behavior into and from the free space of fuel rods through a defect hole. Based on the results of evaluations, the experimental results with an inpile water loop OWL-1 are described in detail. The estimation methods of fission product quantity in the free space and fission product release ratio ( quantity released into the coolant / quantity in the free space before beginning of release ) are necessary for analysis of the fission product release behavior; the estimation method of water flow through a defect hole is also necessary. In development of the above estimation methods, outpile and capsule experiments supporting the additional fission product release experiments are required.

KEYWORDS: Fission Product, Release, Additional Fission Product Release, Defect Hole, Defect Fuel, Fuel Cladding, Water Flow, CODAC-ARFP Program, Iodine Spiking.

## 目 次

1. はじめに	1
2. PF追加放出実験と計算モデル	2
2.1 FP追加放出を支配する因子	2
2.2 FP追加放出実験の概要	4
2.3 FP追加放出計算モデル	7
3. FP追加放出現象	10
3.1 FP追加放出現象の概要	10
3.2 原子炉起動時および停止時の放出挙動	19
3.3 温度変動および圧力変動時の放出挙動	26
3.4 その他の因子による放出挙動	29
4. 実験結果および検討	36
4.1 実験結果の概要	36
4.2 実験(I)	37
4.3 実験(II)	37
4.4 実験(III)	38
5. 結 論	47
5.1 解析上の問題点	47
5.2 計算モデル上の問題点	48
5.3 破損燃料検出上の問題点	49
謝 辞	50
文 献	51

1	Introduction .....	1
2	Outline of experiments and calculation model of additional fission product release behavior .....	2
2.1	Outline of effective factors for additional fission product release behavior .....	2
2.2	Outline of experiments of additional fission product release behavior .....	4
2.3	Outline of computer code of additional fission product release behavior .....	7
3	Additional fission product release phenomena .....	10
3.1	Outline of additional fission product release phenomena ....	10
3.2	Fission product release behavior at reactor start-up and shut-down .....	19
3.3	Fission product release behavior at coolant condition fluctuation .....	26
3.4	Fission product release behavior under other conditions ....	29
4	Discussions on experiment results of additional fission product release behavior .....	36
4.1	Outline of experiment results .....	36
4.2	Experiment result (I) .....	37
4.3	Experiment result (II) .....	37
4.4	Experiment result (III) .....	38
5	Conclusions .....	47
5.1	Considerations on analysis of experiment results .....	47
5.2	Considerations on calculation model .....	48
5.3	Considerations on detection of defect fuels .....	49
	Acknowledgements .....	50
	References .....	51

## List of Tables and Figures

- Table 1 Typical value of off-normal factors at steady state
- Table 2 Specifications of test fuel with artificially defect pin-hole
- Fig. 1 Flow diagram of the OWL-1 in-pile water loop
- Fig. 2 Outline of the OWL-1 loop related to the experiment of fission product release behavior
- Fig. 3 Schematic diagram of the OWL-1 loop related to the experiment of fission product release behavior
- Fig. 4 An example of output ( CODAC-ARFP code )
- Fig. 5 Typical behavior of fission product released into coolant
- Fig. 6 An example of fission product release behavior resulted in the case (A)
- Fig. 7 An example of fission product release behavior resulted in the case (B)
- Fig. 8 Definitions of parameters observed on release peak
- Fig. 9 Relations between quantities of fission product produced in a free space of fuel rod and released into coolant (A)
- Fig.10 Relations between quantities of fission product produced in a free space of fuel rod and released into coolant (B)
- Fig.11 Fission product release behavior at reactor start-up ( water behavior effect )
- Fig.12 Fission product release behavior at reactor start-up ( fission product diffusion effect )
- Fig.13 Fission product release behavior at reactor shut-down ( water behavior effect )
- Fig.14 Fission product release behavior at reactor shut-down ( fission product diffusion effect )
- Fig.15 Fission product release behavior at reactor shut-down ( excessive water flow effect )
- Fig.16 Fission product release behavior at coolant condition fluctuation ( decreasing of coolant pressure )
- Fig.17 Fission product release behavior at coolant condition fluctuation ( increasing of coolant pressure )
- Fig.18 Fission product release behavior depending on time interval between two fluctuations

- Fig.19 Fission product release behavior (I) (half-life effect)
- Fig.20 Fission product release behavior (II) (half-life effect)
- Fig.21 Fission product release behavior (III) (half-life effect)
- Fig.22 Fission product release behavior (VI)  
(demineralizer efficiency effect)
- Fig.23 Additional fission product release experiment (I)
- Fig.24 Additional fission product release experiment (II)
- Fig.25 Additional fission product release experiment (III)



## 1. はじめに

照射に伴い燃料ペレット内に生成した核分裂生成物 (FP) の一部は、燃料ペレットの外部に、すなわち被覆管内面とペレットの間のギャップ部分およびプレナム部分に放出される。健全な燃料体の場合には被覆管に欠損孔は存在しないから、放出された核分裂生成物はギャップ部分およびプレナム部分に蓄積される。しかし何らかの原因で被覆管に小さな欠損孔 (ピンホール) が生じている場合には、ギャップおよびプレナム部分に蓄積された核分裂生成物の一部は被覆管内外の圧力差および拡散によって被覆管外に、すなわち冷却水中に放出される。一般に原子炉の定常運転時には、この冷却水中の核分裂生成物の濃度は脱塩装置などの働きによってほぼ一定の値を保ちそれほど高くない。しかし出力変化あるいは冷却水圧力変動など (外乱) がある場合には、被覆管内に蓄積した核分裂生成物は欠損孔を通して冷却水中へ放出され、冷却水中の核分裂生成物の濃度を一時的に高くする。すなわち追加放出現象が、一般に知られている。近年軽水炉では、燃料破損が検出されても一次冷却系の核分裂生成物の濃度が保安基準より低い場合には、(1)通常一次冷却系が閉回路であり、さらに格納容器が設けられているのでただちに危険ということはない、(2)炉をたびたび停止し破損燃料を交換することは主に経済上の要請から好ましくないなどの理由から炉の運転を継続しようとする傾向がある。このようにして燃料破損の規模が小さい場合には炉の運転が継続された後、破損燃料が燃料交換の際交換される。その際一次冷却系の圧力を下げてから行うため、炉停止後の定常状態よりも核分裂生成物の濃度が高いことが考えられる。また主蒸気管破断事故の場合には、破断後主蒸気隔離弁によって冷却水流出が止まるまでの間に冷却水圧力は減少し被覆管内に蓄積した核分裂生成物 (FP) が冷却水中へ追加放出される。隔離弁閉鎖後、水蒸気が漏えいするものとする、定常運転時より放射能濃度の高い水蒸気が放出することが考えられる。さらに通常の炉停止後の作業においても同様に追加放出によって冷却水中の放射能濃度が高くなり従業員の被曝が増すことが考えられる。

このようなことから、炉停止前に破損燃料の本数・その位置・および破損の程度を知り、出力変化などの外乱時における核分裂生成物の追加放出挙動あるいは量を予測できるようにすることが望まれている。また逆に、冷却水中の核分裂生成物の濃度変化を測定し、破損燃料の数・位置およびその程度を知ることも望まれている。

## 2. FP追加放出実験と計算モデル

### 2.1 FP追加放出を支配する因子

FP追加放出 (additional fission product release) を支配する因子としては、大別して外乱因子 (off-normal condition factor) ・形状因子 (specification factor) ・水挙動因子 (water behavior factor) およびFP挙動因子 (fission product behavior) に分けられる。FP追加放出実験 (additional fission product release experiment) では、形状因子に対する外乱因子の影響を冷却水中のFP濃度の変化を測定し、合せてFP放出挙動を調べている。外乱因子は、原子炉またはインパイルループの運転者が条件を任意に設定することのできる因子であり、FP追加放出実験では主に原子炉の出力変化 (起動および停止) ・ループ冷却水の圧力および温度を変化させて外乱 (off-normal condition) を起しFPの放出挙動を調べている。形状因子は、インパイルループ実験の場合照射用燃料体製作時に選択決定することのできる因子であり、燃料および欠損孔の形状に関する項目である。重要なものとしては人工的に設ける欠損孔の断面積 (cross section of defect hole) があげられる。水挙動因子は、FP放出挙動に間接的に影響を及ぼす因子であり、過渡的な状態における水または水蒸気の挙動を支配する因子である。FP挙動因子は、FPの放出挙動に直接影響を及ぼす因子であり、FPの放出挙動はこのFP挙動因子と前出の外乱因子・形状因子および水挙動因子によって決まると考えられる。これら4種の因子を整理すると次のようになる。

- |       |                             |
|-------|-----------------------------|
| A     | 外乱因子                        |
| A-1   | 原子炉出力                       |
| A-2   | 冷却水温度                       |
| A-3   | 冷却水圧力                       |
| A-4   | 冷却水水蒸気含有率                   |
| A-5   | 脱塩系運転効率                     |
| A-6   | 脱ガス系運転効率                    |
| A-7   | 再循環系効率 (再循環速度および一次系冷却水給排水量) |
| B     | 形状因子                        |
| B-1.a | 欠損孔数                        |
| B-1.b | 欠損孔位置                       |
| B-1.c | 欠損孔形状 (クラックまたはピンホール)        |
| B-1.d | 欠損孔断面積                      |
| B-2   | 燃料体形状                       |
| B-3.a | プレナム部位置                     |
| B-3.b | プレナム部体積・形状                  |

- B-4 ギャップ部体積・形状
- B-5.a ペレット数
- B-5.b ペレット配置
- B-5.c ペレット体積・形状
- B-5.d ペレット重量・密度およびU-235濃縮度
- B-6 封入ガス組成または種類
- C 水挙動因子
- C-1.a 外乱による過渡的な状態における温度分布変化（特に被覆管内）
- C-1.b 外乱による過渡的な状態における圧力分布変化（特に被覆管内）
- C-1.c 外乱による過渡的な状態における水および水蒸気の分布（特に被覆管内）
- C-1.d 外乱による過渡的な状態における被覆管内各部の寸法および体積変化（特に水または水蒸気存在時）
- C-2 過渡状態で水および水蒸気の存在するときのギャップコンダクタンスの変化
- C-3.a 被覆管内部における過渡的な圧力・温度変化にともなう水の相変化
- C-3.b 相変化にともなう温度・圧力変化とその速度
- C-4 過渡状態下における蓄積熱量の変化
- C-5 これらの因子の変化による過渡状態下における水および水蒸気の移動および放出
- C-6 過渡状態下における水および水蒸気の移動放出にともなう熱の移動および圧力変化
- C-7 静的なバランスを超えて過渡的な状態下に移動する水および水蒸気の量（特に被覆管内の温度あるいは圧力が下るとき、静的なバランスを超えて過剰に流入する水の量）
- C-8 欠損孔を通しての過渡的な水あるいは水蒸気の移動
- D FP挙動因子
- D-1 過渡および定常時におけるUO<sub>2</sub>ペレットからのFPの放出率（一次反跳による放出、ロックアウトによる放出、拡散による放出および組織変化による放出）
- D-2.a UO<sub>2</sub>ペレットと水または水蒸気との反応によるUO<sub>2</sub>の微細化および粒度分布、水に対するUO<sub>2</sub>の反応および溶解
- D-2.b 微細化したUO<sub>2</sub>および溶解したUO<sub>2</sub>の欠損孔を通しての冷却水中への放出量
- D-3.a FPと水蒸気または水との反応および溶解
- D-3.b FPの過渡状態下における気液分配
- D-4 ループ内（冷却水流路内）におけるUO<sub>2</sub>およびFPの沈着と分布
- D-5 水および水蒸気の移動放出によるFPの移動放出（特に被覆管内部と外部）
- D-6 FPの濃度差（拡散）による移動放出（特に被覆管内部と外部）
- D-7 脱ガス系によるFPガスおよび揮発性FPの除去効率
- D-8 脱塩系のFP除去効率

D-9 燃焼率の影響

D-10 化学形と化学形変化の影響

水挙動因子およびFP挙動因子については、この他にも数多くの因子をあげることができる。また、これらの因子は互に密接な関係があり、かつ過渡的な状態における変化の様子を求めなければならない。これらの因子の中で特に水挙動因子については、過渡的な状態下における燃料体ふるまい、およびギャップまたはプレナム部分に水または水蒸気の存在するときの熱伝達現象の研究成果に期待される。したがって本報では、水挙動因子については簡略化し多くの仮定を設けて計算処理した。また、これらの諸因子のうちで、特に重要なものは、外乱因子・形状因子と水挙動因子C-6・7・8およびFP挙動因子D-1ならびにD-5・6・7・8・9である。特にC-7については、以下超過流または過剰流 (excessive dynamic flow) と呼ぶことにし、静的なバランスを保ちながら流れ込む水の流れ (equibrated static flow) と区別する。

## 2.2 FP追加放出実験の概要

FP追加放出実験では、人工的に欠損孔を設けた燃料体 (fuel pin with artificially defect pin-hole) をJMTR (Japan Material Testing Reactor) のOWL-1水ループを用いて照射し行われている<sup>1)</sup>。照射される人工欠損孔付き燃料体の仕様 (形状因子) をTable 1に示す。これらの燃料体の一部には、ペレット部分の温度測定用に熱電対が取り付けられている。また、これらの燃料体を照射するOWL-1水ループの概略図をFig. 1に示す。欠損燃料体 (defect fuel) を照射する個所はJMTRの炉心に位置するテストセクションである。OWL-1には、「B-mode」および「P-mode」と呼ばれる2種類の運転状態があり、これらの運転モードにおける外乱因子の定常状態における値をTable 2に示す。これらの値はBWR・PWRのそれとは異なるが、水蒸気含有率の相違によってそれぞれBWRおよびPWRの実験条件を模擬することができる。FP追加放出実験では、主に原子炉起動時および停止時の冷却水中へ放出されたFPの挙動と、圧力変動 (coolant pressure fluctuation, 例えば71 kg/cm<sup>2</sup> G → 61 kg/cm<sup>2</sup> G) 時および温度変動 (coolant temperature fluctuation, 例えば約260 °C → 110 °C → 260 °C) 時における冷却水中のFPの放出挙動を調べている。これら外乱時 (off-normal condition) にFPの追加放出現象が観測される。

Table 1 Typical value of off-normal factor at steady state

Operation mode of water loop	B-mode	P-mode
Reactor power (MW)	50	50
Coolant temperature		
at the inlet of test section (°C)	~286	~260
Coolant pressure		
at the inlet of test section (Kg/cm <sup>2</sup> )	71	71
Steam content of coolant		
at the inlet of test section (%)	~8	0

Table 2 Specifications of test fuel with artificially defect pin-hole

Pellet	Enrichment of U-235	1.5 %
	Diameter	13.4 mm
	Height	18.0 mm (x2)
	Number of pellets	2
Clad	Material	SUS316
	Outer diameter	15.0 mm
	Thickness	0.6 mm
	Length with end cap	108-135 mm
Defect hole (pin-hole)	Position	Pellet or plenum part
	Diameter	50-500 μm
	Number of hole	1

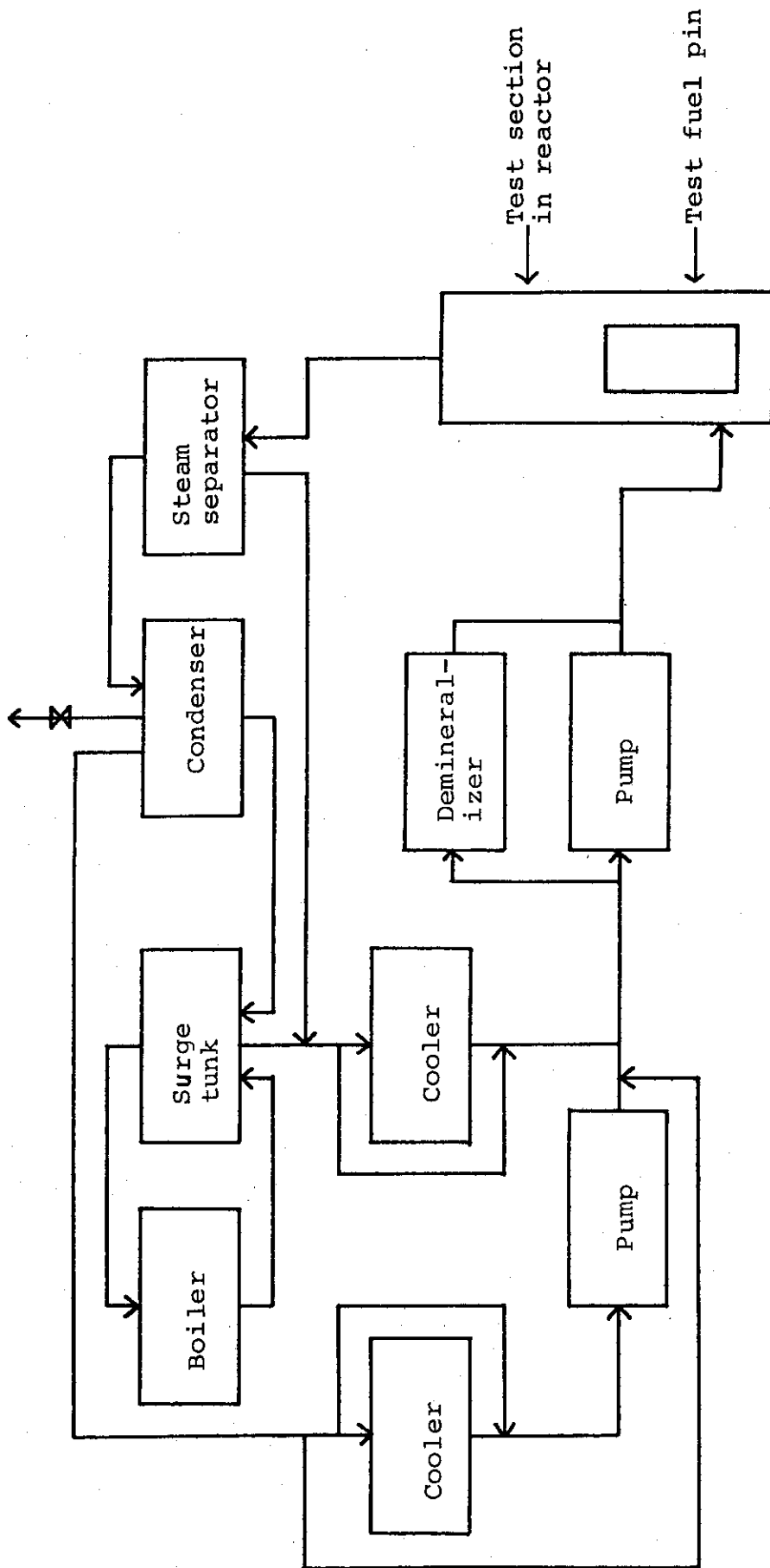


Fig. 1 Flow diagram of the OWL-1 in-pile water loop

### 2.3 FP 追加放出計算モデル

FP 追加放出挙動の一般的傾向を調べるために CODAC-ARFP (Complex decay and activation chain-Additional fission product release) コードを作成し使用した<sup>2)</sup>。JMTR の OWL-1 水ループで照射される燃料体は、ペレットの数は多くて 2 個であり燃料体長さは端栓部を含めて長くて約 140mm 程度である。したがって、この CODAC-ARFP では、燃料体を Fig. 2 および 3 に示すように 3 種の部分 (part) と 7 種の領域 (region) に分けて水 (または水蒸気) および FP の両者の移動および放出が計算される。入力としては、外乱因子のうち原子炉出力・冷却水温度・圧力および水蒸気含有率ならびに脱ガス系および脱塩系の運転効率である。再循環系効率については、一般に定常の運転状態にあるため入力は省いた。その他については、同レポートに<sup>2)</sup>述べられている。形状因子のうち欠損孔形状はピンホールとして取扱いその有効径を入力する。他に核データの入力が必要である。計算結果の一例を Fig. 4 に示す。Fig. 4 の前半 (上部) は JMTR 原子炉出力 50 MW, 後半 (下部) は 0 MW で、他の外乱因子は定常状態のままである。プロットされた点は、各 FP の冷却水中での放射能濃度 ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ) であり、上から下に向って時間が経過している。原子炉停止直後から、I-131 などの FP の追加放出が起り、冷却水中濃度が一時的に上昇しているのがみられる。第 3 章以下では、このコードで得られた結果を整理して使用しさらに追加放出の詳細について言及する。第 3 章で述べるように、出力で得られる曲線は必ずしもいつもなめらかではなく細かいふらつきがある。したがって、第 3 章で使用するグラフはこれら出力を書き換えたものであり、不明瞭な部分が一部残っている。

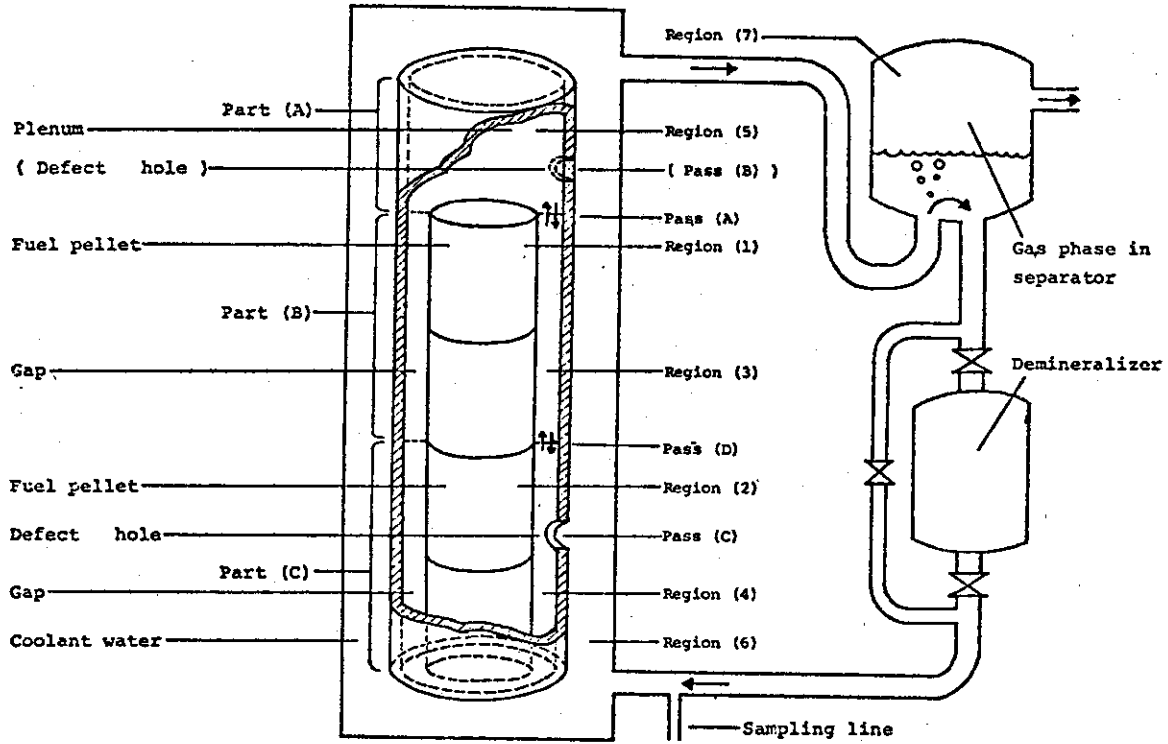


Fig. 2 Outline of the OWL-1 loop related to the experiment of fission product release behavior

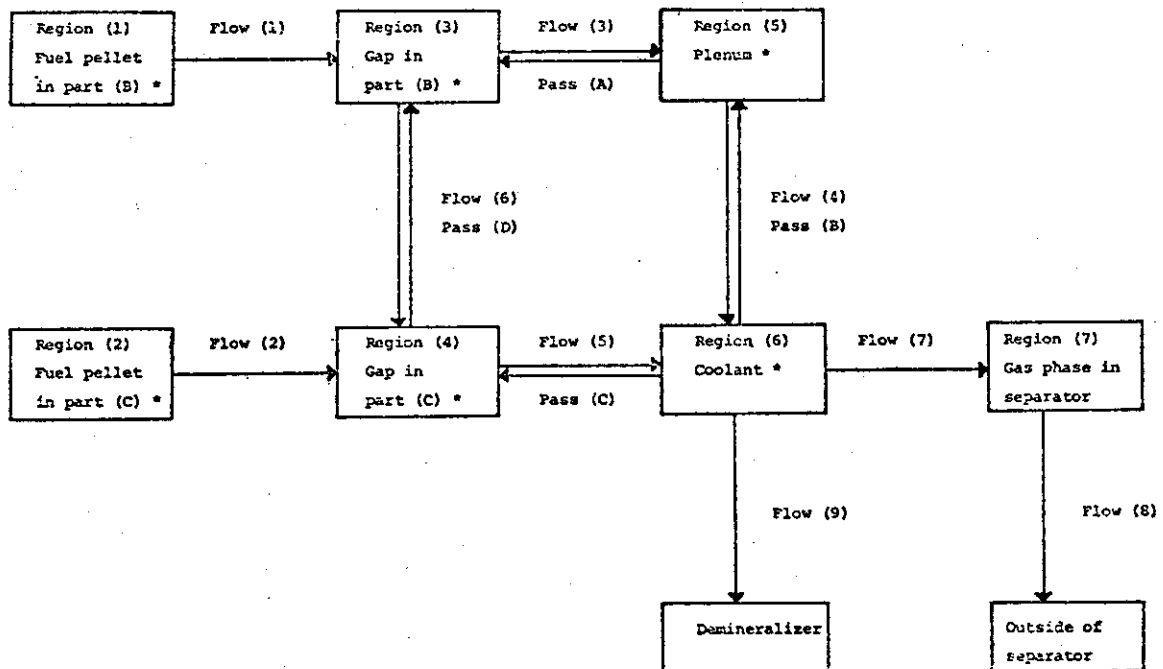


Fig. 3 Schematic diagram of the OWL-1 loop related to the experiment of fission product release behavior (\*; regions in reactor)



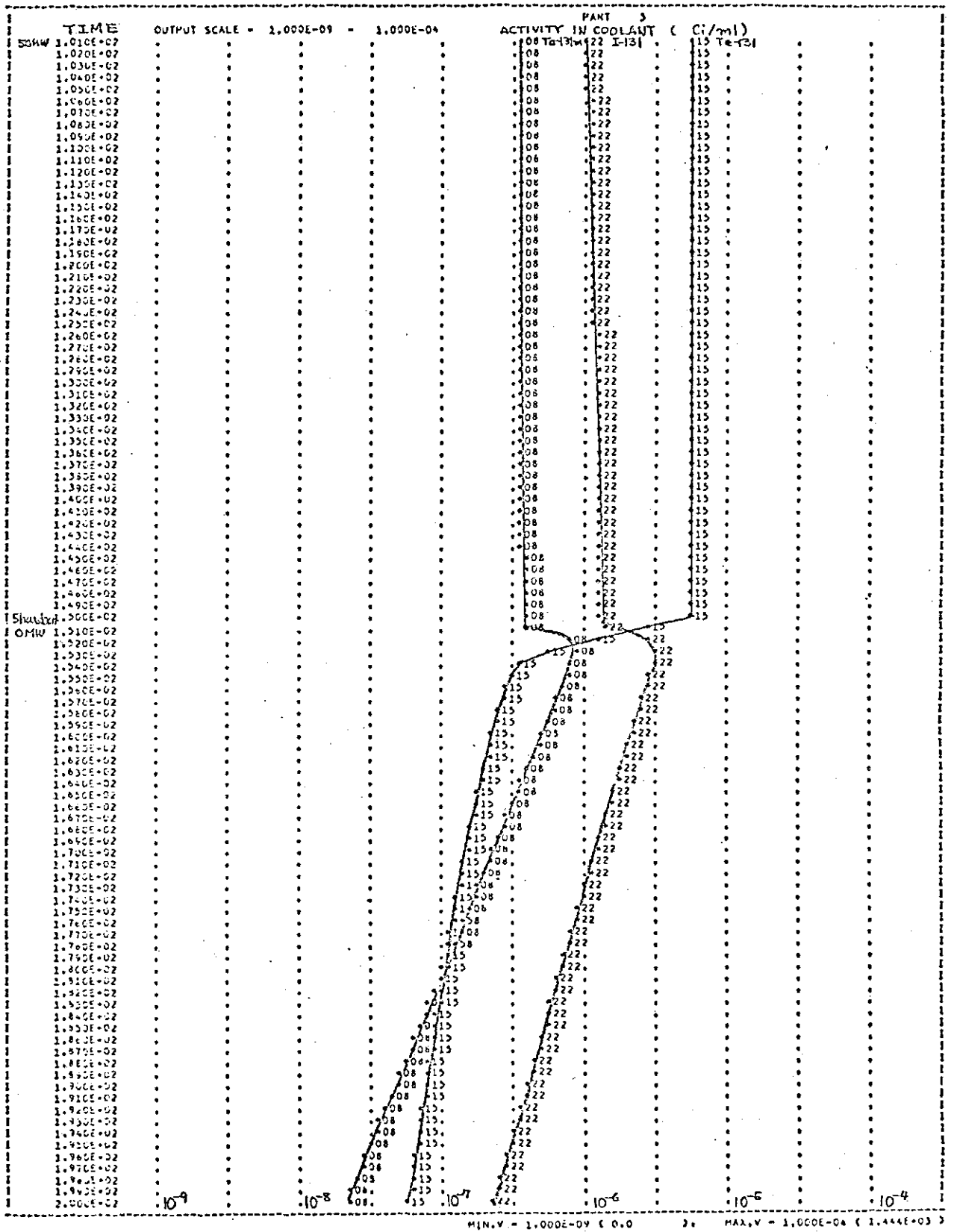


Fig. 4 An example of output ( CODAC-ARFP code )

### 3. FP追加放出現象

#### 3.1 FP追加放出現象の概要

FPの追加放出現象は、外乱時特に原子炉起動時および停止時にみられる。その典型的な例をFig. 5に示す。原子炉出力を除いた他の外乱因子は定常状態にあり、放出FP核種としては、半減期の値が日単位のFP（例えばI-131）を考える。原子炉の起動とともに、冷却水中に放出されたFPの濃度は増加しピークを示した後定常的な濃度となる。さらに原子炉停止後、FP放出濃度は、そのFPの壊変と脱ガスおよび脱塩系による除去によって単調に減少するのではなく、ピークを示し一時的に高くなった後単調に減少する。これらの原子炉起動および停止などの外乱時に冷却水中FP濃度変化がピークを示す現象が、FP追加放出現象である。この追加放出現象は、健全燃料体だけが存在する場合にはみられず、何らかの原因で生じた欠損孔（おおよそ数 $\mu\text{m}$ 以上の直径）を有する燃料体が存在する場合にみられる特有の現象である。換言すれば、この追加放出現象を調べることによって破損した燃料体の存在を知ることができる。

以下、この章で引用する図は、先に述べた計算コードの出力にもとづくものである。

参考のためにFig. 5に被覆管内の平均温度（ギャップおよびプレナム部分に含まれる水および水蒸気の体積平均温度的なものを考える。以下内部平均温度と呼ぶ。）と水の量（ギャップおよびプレナム部分に含まれる水および水蒸気の総量で、水蒸気は水として換算する。以下内部水量と呼ぶ。）の変化を合せて示す。さらに、FPの濃度差による拡散効果のみによってFPが放出された場合と、水または水蒸気の移動放出のみによってFPが放出された場合の冷却水中FP濃度の変化も合せて示す。ここで示す放出FPの挙動はこれら2種の放出が合った結果であり、これら2種の放出効果は相互に密接な関係がある。したがって、Fig. 5で示す拡散および水の移動の各々の効果による放出挙動は、総合的な放出FP挙動を単純にこれら2成分に分けたものとは異なる。また、水の移動によるFP濃度の変化の中で定常状態にはいつてからほぼ一定のFP放出がみられるが、これは欠損孔付近での水の振動的な動き（オシレーション）による放出で拡散効果による放出と類似した結果をもたらすと考えられる。

原子炉起動時の追加放出は、被覆管内部の温度上昇にともなって内部に存在していた水が気化して生成した水蒸気（Burnupゼロの新燃料では、封入ガスと水蒸気）が欠損孔を通して冷却水中へ放出され、このときギャップおよびプレナム部に生成蓄積していたFPが放出されて起ると考えられる。また停止時にみられる追加放出は、次のような原因によって起ると考えられる。原子炉停止後被覆管内の温度の降下にともなって低温の冷却水が内部に浸入する。しかし、内部の温度はペレットの蓄積熱などのため冷却水温度より高く、浸入した水は気化して蒸気となる。このとき、内圧が冷却水圧力より高くなると内部に蓄積していたFPは欠損孔を通して水蒸気とともに冷却水中へ放出される。

ところで、原子炉起動にともなって起る被覆内部の温度上昇が水蒸気を生成するまでには致らない場合をFig. 6に示す。原子炉起動後内部の温度上昇にともなって水の密度は減少し、その分だけ内部の水は冷却水中へ放出される。しかしこの場合、水の放出量は蒸気生成によって放出

される水の量に比べはるかに小さく起動前に内部にあつた水の量の数%以下であるから、放出に要する時間は短い。したがって、内部に生成蓄積したFP量は少ない。たゞし、再起動の場合で対象とするFP核種の半減期に比べて炉の停止期間が十分短い場合は別である。そのため、原子炉起動時の追加放出によるピークはみとめられない。また、原子炉停止時において被覆管内部では水蒸気が生成していないため内部の温度降下による水の密度の増加分だけ冷却水が浸入する。浸入後の蒸気生成はほとんどないから追加放出は起らず、冷却水中FP濃度はその核種の壊変と除去系の作用によって単調に減少する。

また、原子炉の起動にともなう被覆管内部の温度が水蒸気を生成する温度以上に上昇し他方水は静的に挙動するとした場合をFig. 7に示す。原子炉起動時には、Fig. 5に示した例と同様の原因で追加放出がみられる。しかし、原子炉停止時には、Fig. 6に示した例に類似しているがFig. 5とは異なり追加放出によるピークはみられない。炉停止後内部の温度降下にもなつて水は被覆管内圧と外圧のバランスを保ちながら浸入する。そのため、冷却水中のFP濃度の変化に追加放出はみとめられず、単調に減少していく。

これらのことから、原子炉起動時の追加放出に関しては燃料被覆管内での水蒸気の生成が必要条件であり、他方原子炉停止時における追加放出に関しては上述の水蒸気の生成に加えて動的な水の挙動（過剰流）が必要条件であると考えられる。

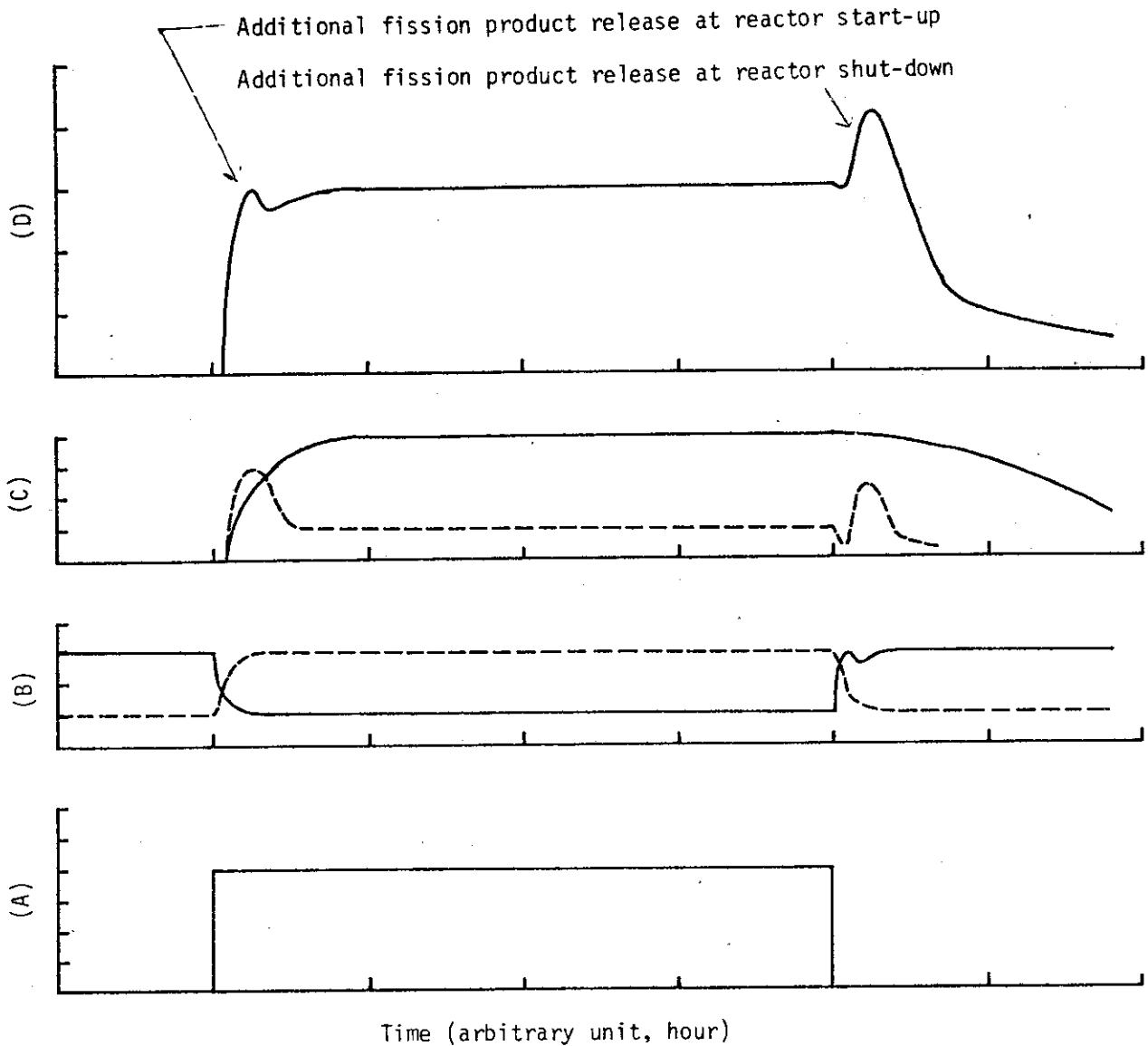
次節以降に原子炉起動時および停止時と温度・圧力の変動実験時における放出挙動について述べるが、今後の説明を簡便にするためにいくつかの定義を設けることにする。まずはじめに、原子炉起動時の放出ピークの典型的な例をFig. 8のaに示す。横軸に時間を取り原子炉起動時刻を時間軸の原点とする。縦軸に冷却水中のあるFP核種の濃度をとる。実線で放出ピークの様子を、そして破線でFig. 6の例で示したように追加放出のない場合の様子を示す。この両方の曲線で囲まれた部分の積分値を追加放出量 $R_a$ とする。また放出のピークが極大に達する時刻を $t_a$ 、ピークの後の極小に達する時刻を $t_b$ 、そして定常状態に達する時刻を $t_c$ とする。それぞれの時刻におけるFP濃度の値を $y_a$ 、 $y_b$ および $y_c$ とする。さらにFig. 8 aに示すように、定常状態におけるFP濃度 $y_c$ をベースラインとし、ピーク時のFP濃度 $y_a$ が半分になる時刻の中、すなわち半値中に相当する値を $w_a$ とする。同様にして原子炉停止時の放出ピークに対してそれぞれ $R_b$ ・ $t_d$ ・ $t_f$ ・ $y_d$ ・ $y_e$ ・ $y_f$ および $w_b$ をFig. 8のbに示すように、そして変動実験時の放出ピークに対してそれぞれ $t_g$ ・ $t_h$ ・ $t_i$ ・ $y_g$ ・ $y_h$ ・ $y_i$ および $w_c$ をFig. 8のcに示すように定義する。

また追加放出量 $R$ に関連して一般にFig. 9に示すような関係がある。縦軸に被覆管内ギャップおよびプレナム部に蓄積したFP量（ペレット内の蓄積量は含まない。以下FP内部蓄積量と呼ぶ）を、横軸に原子炉起動時を原点に時間をとる。核分裂鎖列の親子関係が問題とならずかつ原子炉が一定の出力で運転されている場合には、FPの内部蓄積量は一定の割合で増加し続ける。時刻 $t_x$ で追加放出が起りそのときの追加放出量が $R_x$ であったとすると、放出直後の内部蓄積量 $Q_x$ は追加放出直前の内部蓄積量 $P_x$ から放出量 $R_x$ を引いた残りである。したがって一般に追加放出量 $R_x$ は追加放出直前の内部蓄積量 $P_x$ を超えることはない。1回目の追加放出後のFPの内部蓄積量は再び一定の割合で増加し続ける。もし時刻 $t_y$ で2回目の追加放出が起ったとすれば、追加放出量 $R_y$ の最大値は $P_y$ である。しかし実際には、FPは欠損孔を通しての水のオシレーションおよびFP濃度差による拡散によって一部分ほぼ一定の割合で冷却水中へ放出されているか

ら、FP内部蓄積量はFig. 10に示すようにある値まで増加し続けその後一定の値 $P_{sat}$ におちつくと考えられる。時刻 $t_x$ および $t_y$ における追加放出量 $R_x$ 、および $R_y$ の最大値は、Fig. 8の場合と同様にして求めることができる。2回目の追加放出の時刻 $t_y$ から比較的短い時間の後に3回目の追加放出が起ったとすると、そのときの追加放出量 $R_z$ の最大値は $P_z$ であり放出量の小さな追加放出が起る。また比較的長い時間たった時刻 $t_z'$ で追加放出が起ったとすると、そのときの内部蓄積量 $P_z'$ からわかるようになりに大きな追加放出が起り得ることがわかる。またFP追加放出量 $R$ と放出直前の内部蓄積量 $P$ との比、すなわち放出率 $S$ は、外乱と同時に被覆管に大きな破損が起り被覆管内にFPをトラップできないようなときを除いて、一般に1.0よりほぼ等しいか小さい。他方、放出量 $R$ は内部蓄積量 $P$ を一般に超えることはないが、外乱と同時にペレット内部に蓄積していたFPがギャップおよびプレナム部分に放出されるような場合（例えば、組織変化が起った場合）には、みかけ上放出直前の内部蓄積量 $P$ を超えることがある。

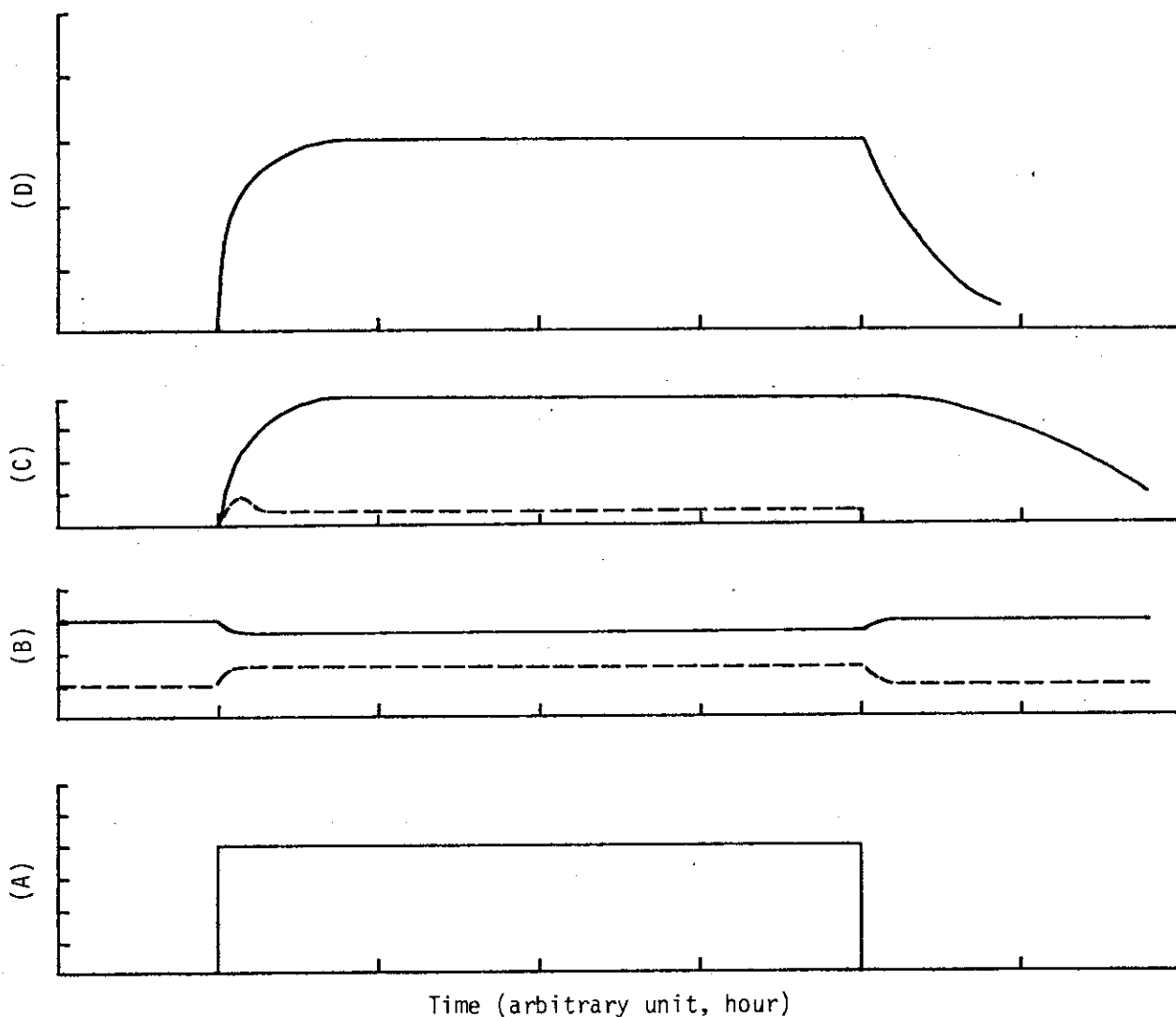
このようなことから考えてFP追加放出実験の当面の目標は、内部蓄積量の最大値 $P_{sat}$ （以下飽和内部蓄積量と呼ぶ）および $P_{sat}$ に達するまでの最小時間 $t_{sat}$ （以下内部蓄積量飽和到達時間と呼ぶ）とそれを決定する因子を評価すること、さらに放出率 $S$ の値とそれを決定する因子を評価することにあると考えられる。

FPの飽和内部蓄積量 $P_{sat}$ を決定する主な因子としては、FP挙動因子のうち定常状態に関するもの、すなわちペレットからの放出と濃度差による拡散、および形状因子である。内部蓄積量飽和到達時間 $t_{sat}$ を決定する主な因子は、欠損孔に関する形状因子・FP挙動因子および水挙動因子の一部である。 $P_{sat}$ は比較的水挙動因子の影響を受けにくいと考えられるが、追加放出直後の内部蓄積量の回復の過程で影響を受けると考えられる。



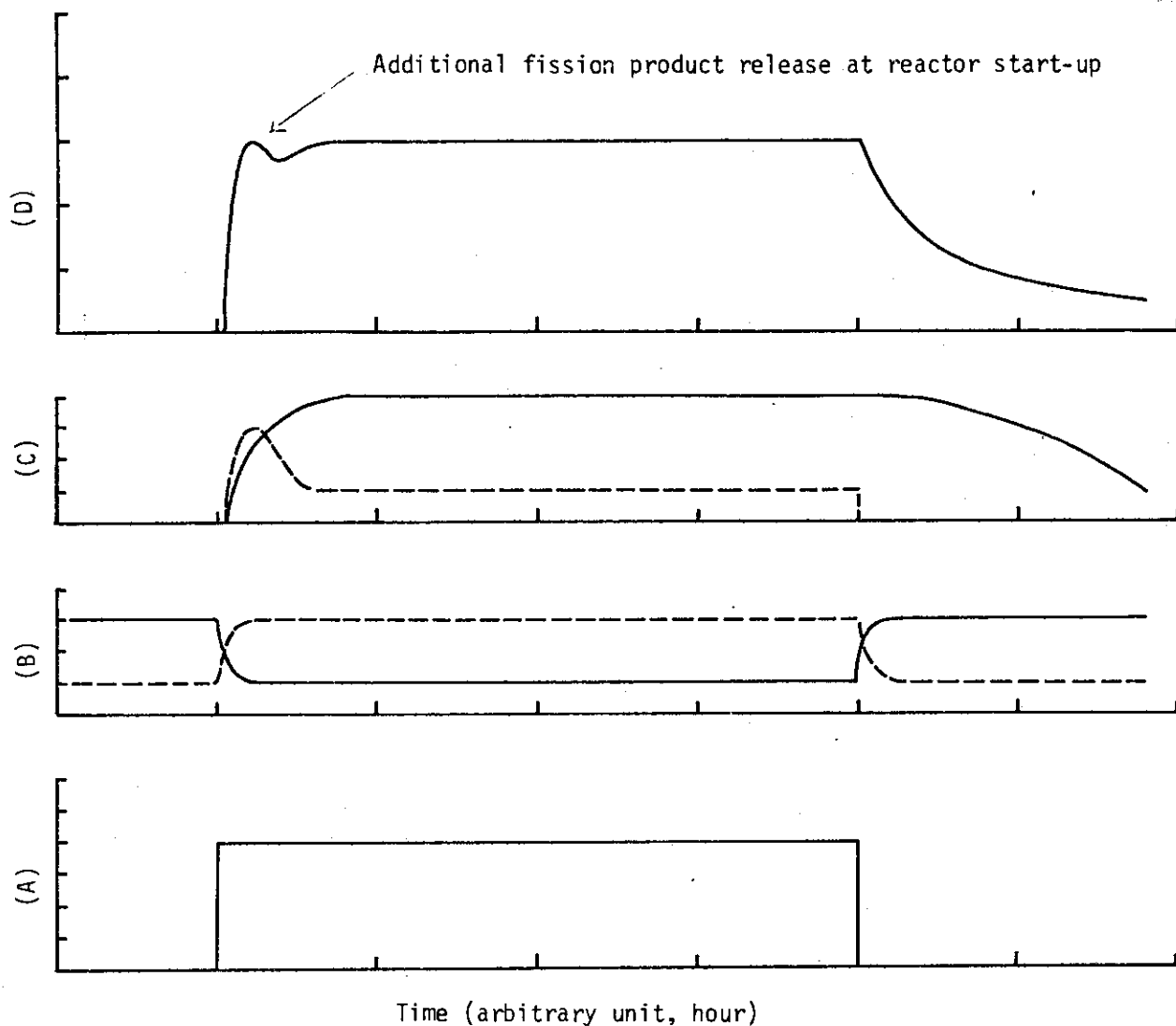
- (A) Reactor power (arbitrary unit, linear scale(MW))
- (B) Water content and average temperature in free space of fuel pin (arbitrary unit, linear scale(mole, °C))
  - water content in free space
  - average temperature in free space
- (C) Fission product concentration in coolant released by each effect (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))
  - released by diffusion effect
  - released by water behavior effect
- (D) Released fission product concentration in coolant superposed by both effects (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))

Fig.5 Typical behavior of fission product released into coolant



- (A) Reactor power (arbitrary unit, linear scale(MW))
- (B) Water content and average temperature in free space of fuel pin (arbitrary unit, linear scale(mole, °C))  
 ——— water content in free space  
 ----- average temperature in free space
- (C) Fission product concentration in coolant released by each effect (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))  
 ——— released by diffusion effect  
 ----- released by water behavior effect
- (D) Released fission product concentration in coolant superposed by both effects (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))

Fig.6 An example of fission product release behavior resulted in the case (A)



- (A) Reactor power (arbitrary unit, linear scale(MW))
- (B) Water content and average temperature in free space of fuel pin (arbitrary unit, linear scale(mole, °C))
  - water content in free space
  - average temperature in free space
- (C) Fission product concentration in coolant released by each effect (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))
  - released by diffusion effect
  - released by water behavior effect
- (D) Released fission product concentration in coolant superposed by both effects (arbitrary unit, log.scale( $\mu\text{Ci/ml}$ ))

Fig.7 An example of fission product release behavior resulted in the case (B)

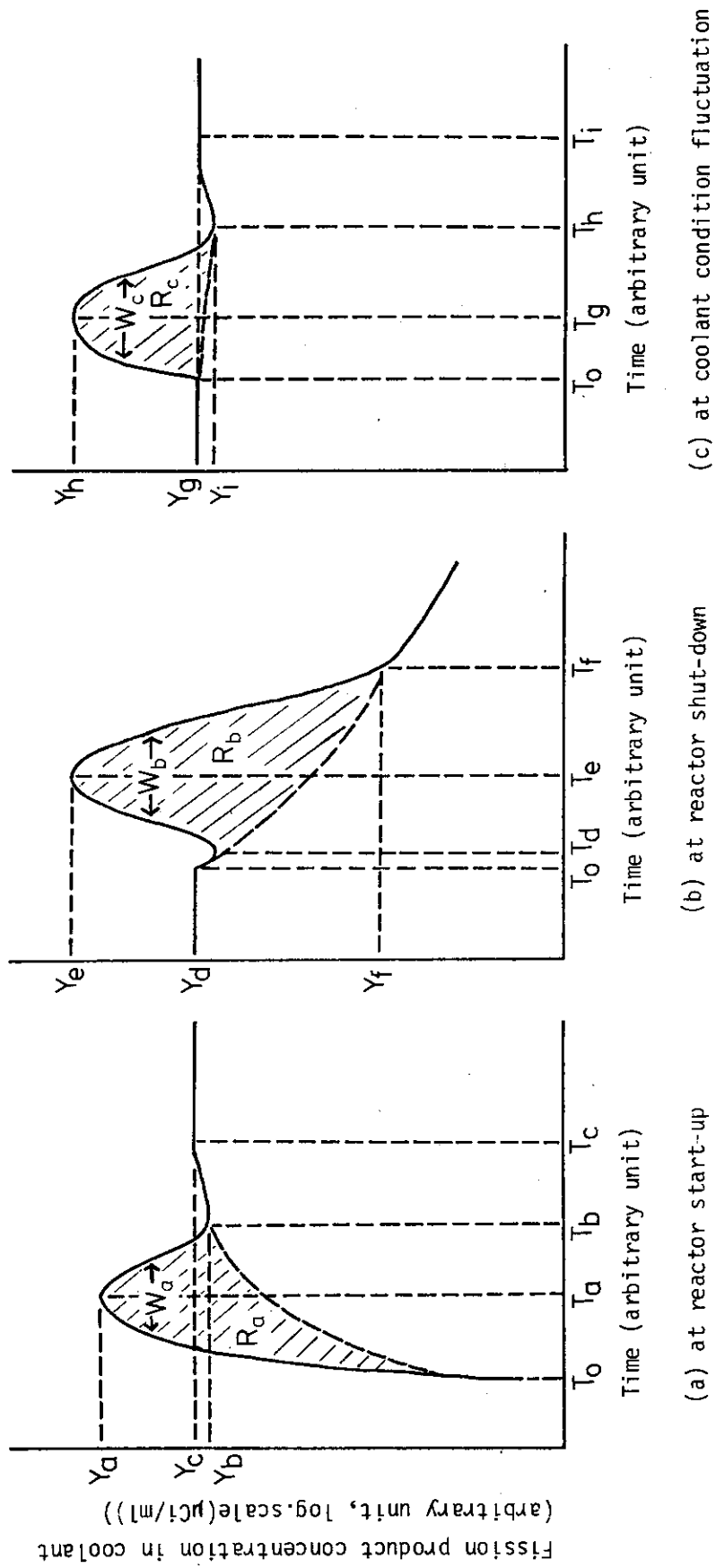


Fig. 8 Definitions of parameters observed on release peak



$P$  =Quantity produced in a free space of fuel rod before beginning of release  
 $Q$  =Quantity remained in a free space of fuel rod after release  
 $R$  =Quantity released into coolant  
 $R/P$  =Release ratio

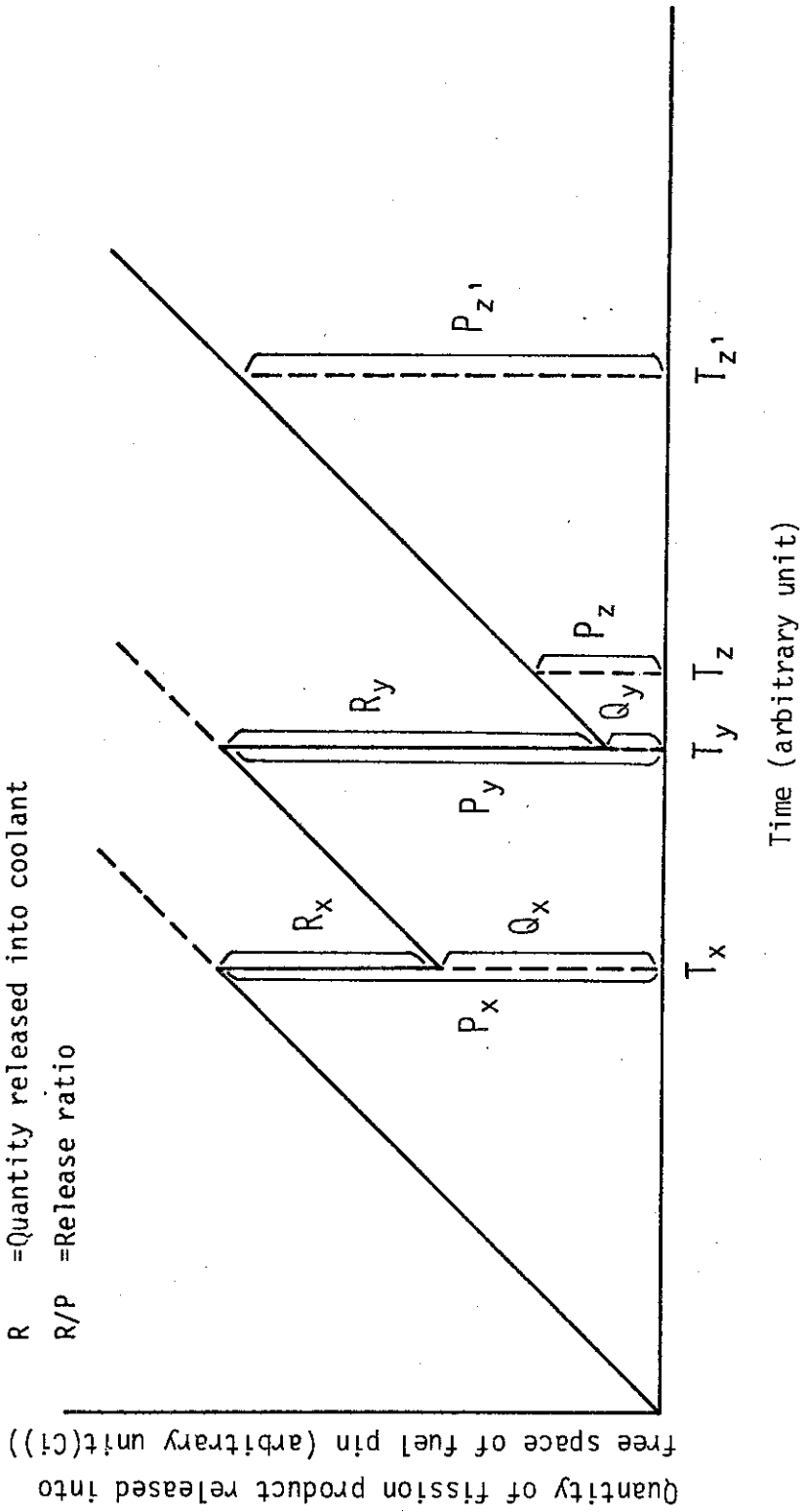


Fig. 9 Relations between quantities of fission product produced in a free space of fuel rod and released into coolant (A)

- P =Quantity produced in a free space of fuel rod before beginning of release
- Q =Quantity remained in a free space of fuel rod after release
- R =Quantity released into coolant
- R/P =Release ratio
- $T_{sat}$  =Saturated time of fission product produced in a free space of fuel rod
- $P_{sat}$  =Saturated quantity of fission product produced in a free space of fuel rod
- =Maximum probable quantity of fission product released into coolant

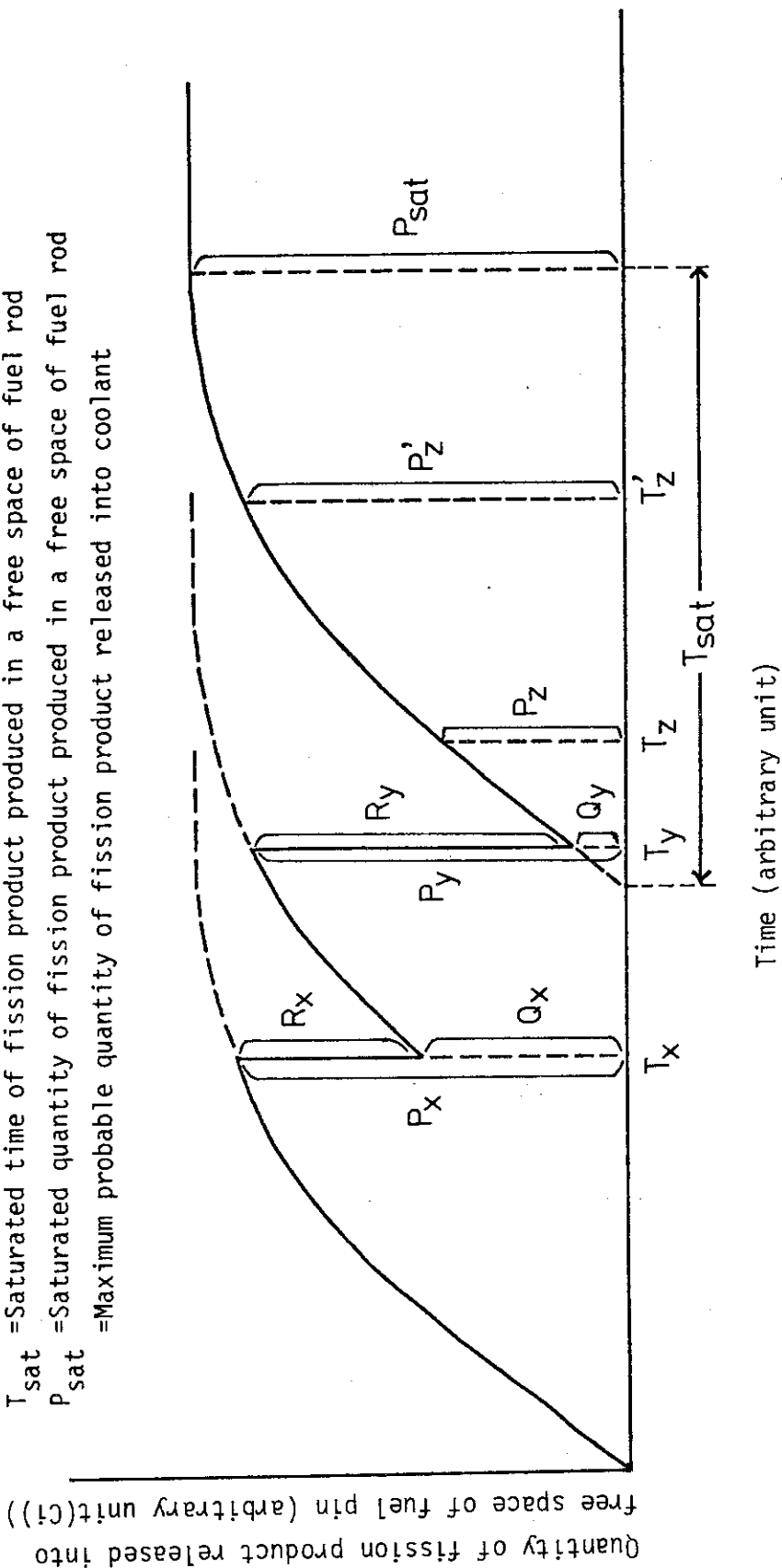


Fig.10 Relations between quantities of fission product produced in a free space of fuel rod and released into coolant (B)

### 3.2 原子炉起動時および停止時の放出挙動

#### (1) 原子炉起動時の放出挙動

原子炉起動時の放出挙動については、3.1節でも述べたように追加放出が起るためには被覆管内で水蒸気が発生する以上に温度が上昇することが必要条件の一つであると考えられる。また、追加放出挙動の様子を支配するFP挙動因子のうち特に重要なものは、先に述べたD-1の欠損孔を通しての水の移動とD-5の欠損孔を通してのFPの拡散である。Fig. 11には、この2種の因子のうち前者の水の移動速度に対して、FPの放出挙動がどのように変化するかを示す。原子炉起動時の出力の変化は、いずれについても同じであり、かつ他の外乱因子はすべて定常状態にあると考える。この水の移動速度は、水が蒸気となった場合や欠損孔の形状・深さなどによって種々に変化しうる性質のものである。Case(1)から(4)にかけて水の移動速度は順に遅くなっている。原子炉起動と共にFig. 10で示したようにFPの内部蓄積量は徐々に増す。水の移動速度が小さい場合は、放出量Rは増大し追加放出ピークが顕著となる。また、極大点に達するまでの時間 $t_0$ は長くなる傾向がある。

Fig. 12には、先に述べた因子のうち後者の因子、すなわちFPの欠損孔を通しての拡散速度に対してのFP放出挙動変化を示す。この因子も、同様に種々の理由からいろいろの値を取りうる性質のものである。Case(1)から(4)にかけてFPの拡散速度は順に遅くなっている。拡散によって失われる量がCase(1)の方が大きいので、FP内部蓄積量は多少小さくなる。しかし、拡散によるFPの移動は速いから、冷却水中のFP濃度は速く定常状態に達する。したがって、FPの拡散速度が速いほど追加放出ピークの形は顕著になる。しかし、追加放出量Rはそれほど大きくはならない。

例えば、欠損孔の断面積が大きくなるとFPのみかけの拡散速度は大きくなり水の移動速度も大きくなる。追加放出ピークの形に対して、これら両因子は概して反対の傾向を持つことになり、ピーク形状を予測するのは一般にむずかしい。また、原子炉は一般に瞬時に定格出力に持って行くのではなくステップ状に出力をあげ定格出力に持って行く。したがって、原子炉起動時の追加放出は、この出力上昇のパターンに大きく依存する部分があると考えられる。一例としてBurn upの速度は遅くFPの内部蓄積量はあまり増加しないが、被覆管内部の温度は水蒸気が発生するような温度でかつある程度以上の時間このような状態が持続していたと考える。このような状態の後定格出力へ持っていけば、追加放出があったとしてもその量は少なく、ピークはほとんど認められない場合がでてくる。

#### (2) 原子炉停止時の放出挙動

3.1節でも述べたように、原子炉停止時の追加放出が起るためには、被覆管内自由空間（プレナムやギャップからなるフリースペース）に欠損孔を通じて冷却水が動的に流れ込むこと（過剰流）が必要条件と考えられる。この追加放出を支配する主要な因子としては、2.1節で述べた各因子のうち、D-5の欠損孔を通してのFPの拡散・D-1の欠損孔を通しての水の移動そしてC-11の過剰流である。Fig. 13・14および15にそれぞれD-5・D-1およびD-11の各因子の変化に対するFP放出挙動の様子を示す。これらの図において、原子炉出力停

止の様子はみな同じであり、他の外乱因子はすべて定常状態にあるものとする。

Fig. 13には、欠損孔を通しての水の移動速度の変化に対する追加放出の変化を示した。Case (1)から(4)に従って水の移動速度は遅くなっている。先に述べたように、原子炉停止後動的な状態で欠損孔を通して被覆管内に侵入してきた水は、内部の蓄積熱によって水蒸気となり体積が増しFPと共に冷却水中へ放出される。Case (1)では、原子炉停止後比較的早い時間に水が侵入しそして蒸気になり放出されるため、追加放出量Rは大きい。しかし、Case (4)では、比較的時間が経ってから水が侵入しかつそのときには蓄積熱量も少なくなっているから水蒸気放出量も少なく、したがって追加放出量Rは小さくなる。そのため、冷却水中FP濃度は炉停止後一端下りその後放出ピークがあらわれそして再び下っていくのが特色である。また、水の放出速度が小さくなるに従って放出ピークの幅(Wb)が大きくなり、さらに、ピーク値( $y_e$ )も小さくなる傾向がある。

Fig. 14には、欠損孔を通してのFP拡散速度の変化に対するFP放出挙動変化の様子を示す。Case (1)から(4)に行くにしたがって拡散速度は順に遅くなっている。FPの拡散速度が速いと、原子炉停止後のFPの内部蓄積量の減少は速くなる。したがって、放出量RはCase (1)の方が(4)に比べて大きくなる。

Fig. 15には、過剰水流に対するFP追加放出の変化の様子を示す。先に述べたように、過剰の意味は、被覆管内水蒸気が外圧(冷却水圧力)とバランスするのに必要な分をこえて存在するということである。すなわち、炉停止後燃料体温度が徐々に下りそれに合せて内圧が減少しその分だけ冷却水が侵入してくる。そのとき侵入してくる水は、直接蒸気に変化してはいつてくるのではなく、水としてはいり後に蓄積熱によって水蒸気になる。したがって、内部に侵入する水は、わずかではあるが静的バランスを保つには過剰の量である。過剰水量の増減の要因としては、主として形状因子があげられる。欠損孔近傍で起った圧力・温度の変化が被覆管内部全体にまで行きわたるのに時間のかかる構造の燃料体の場合、この過剰水量は大きくなると考えられる。Case (1)から(4)にかけて過剰水量は少なくなっている。追加放出量Rは、Case (1)の方が大きい。また、極大値も、Case (1)の方が大きい。現在のところ、この過剰流がいつどの位そして何回位反復されるのか、それとも1回だけであるかといった事柄については、わかっていない。

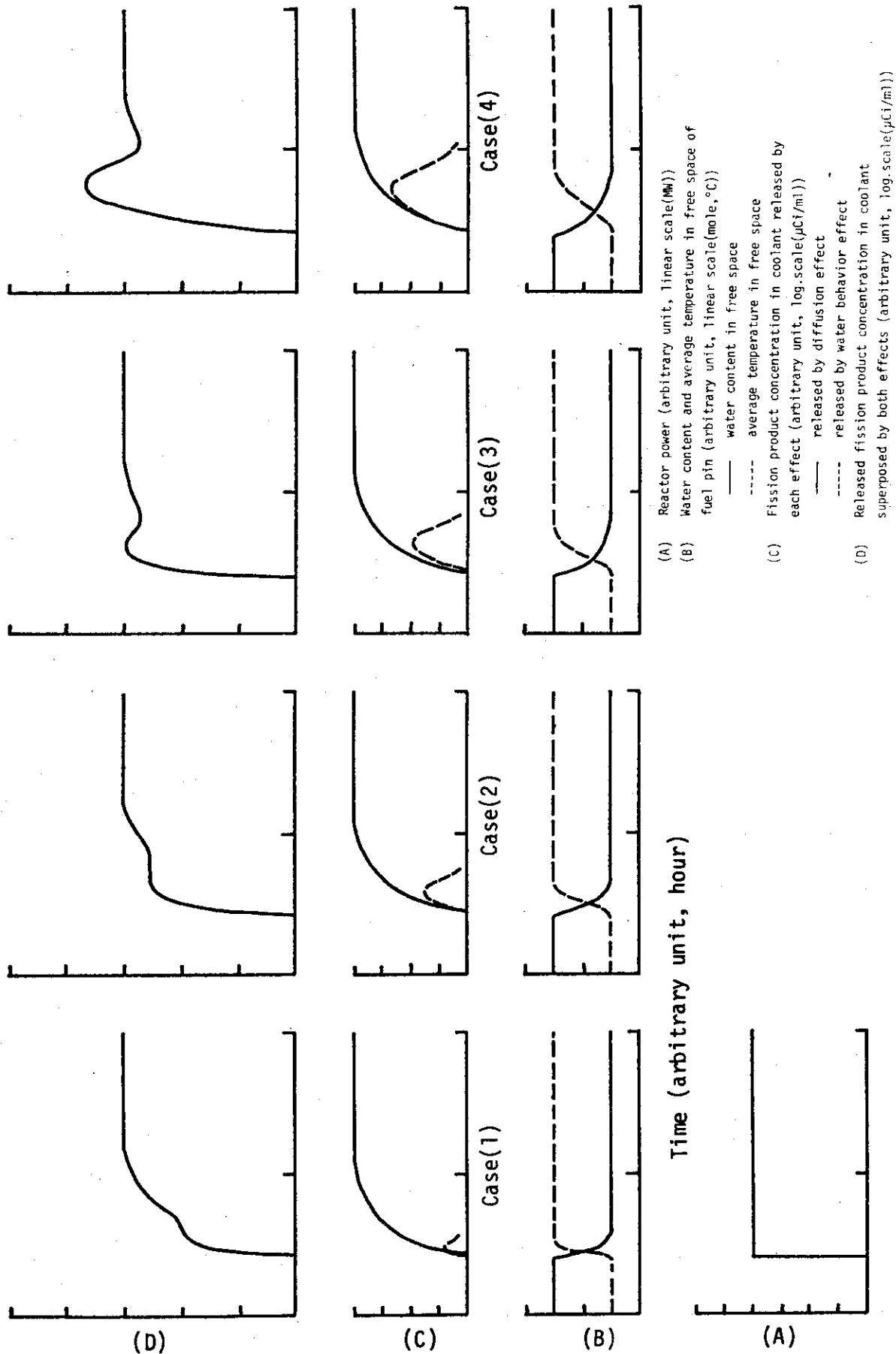
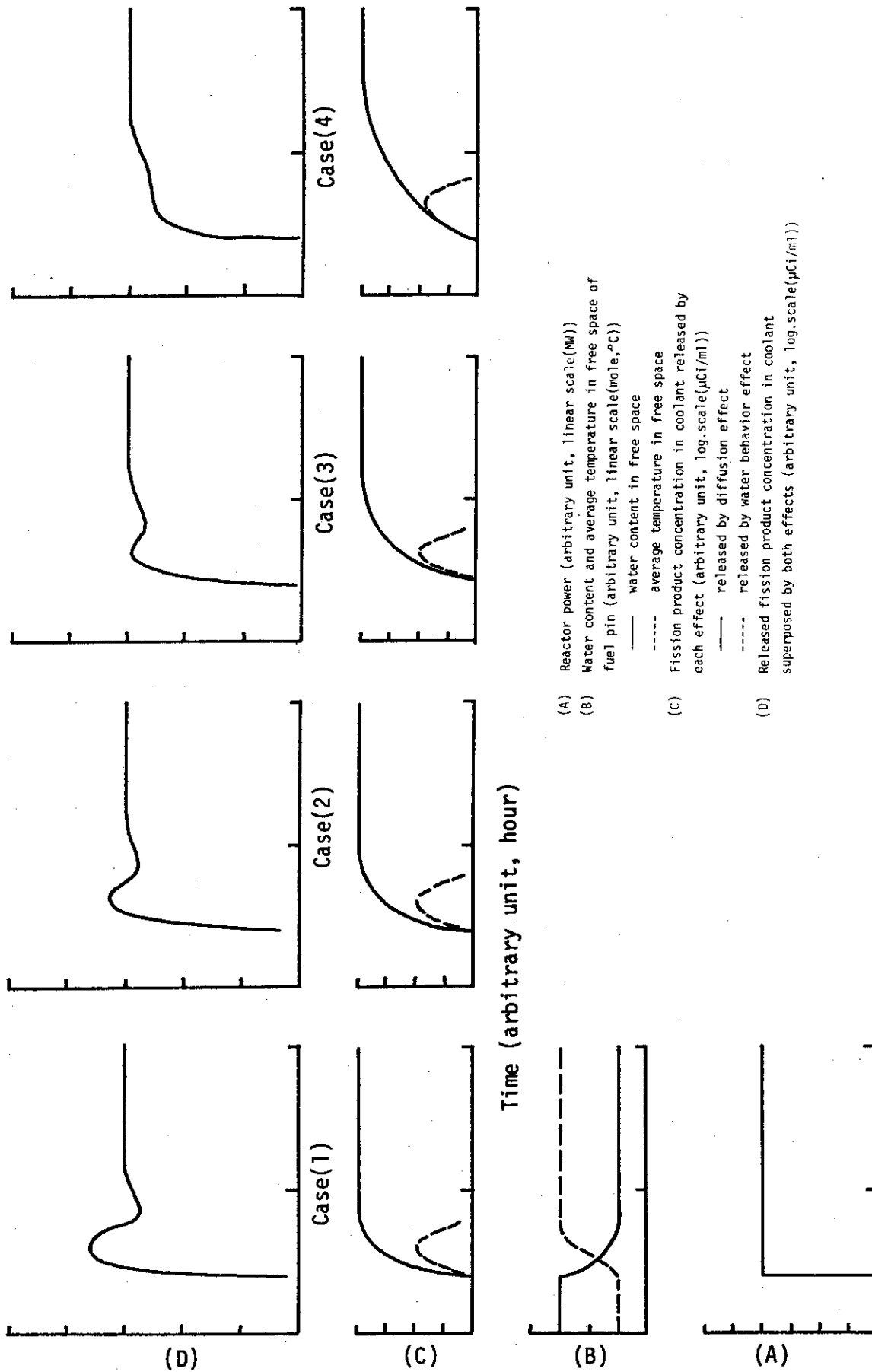


Fig.11 Fission product release behavior at reactor start-up (water behavior effect)



(A) Reactor power (arbitrary unit, linear scale(MW))  
 (B) Water content and average temperature in free space of fuel pin (arbitrary unit, linear scale(mole, $^{\circ}$ C))  
 — water content in free space  
 ----- average temperature in free space  
 (C) Fission product concentration in coolant released by each effect (arbitrary unit, log.scale( $\mu$ Ci/ml))  
 — released by diffusion effect  
 ----- released by water behavior effect  
 (D) Released fission product concentration in coolant superposed by both effects (arbitrary unit, log.scale( $\mu$ Ci/ml))

Fig.12 Fission product release behavior at reactor start-up (fission product diffusion effect)

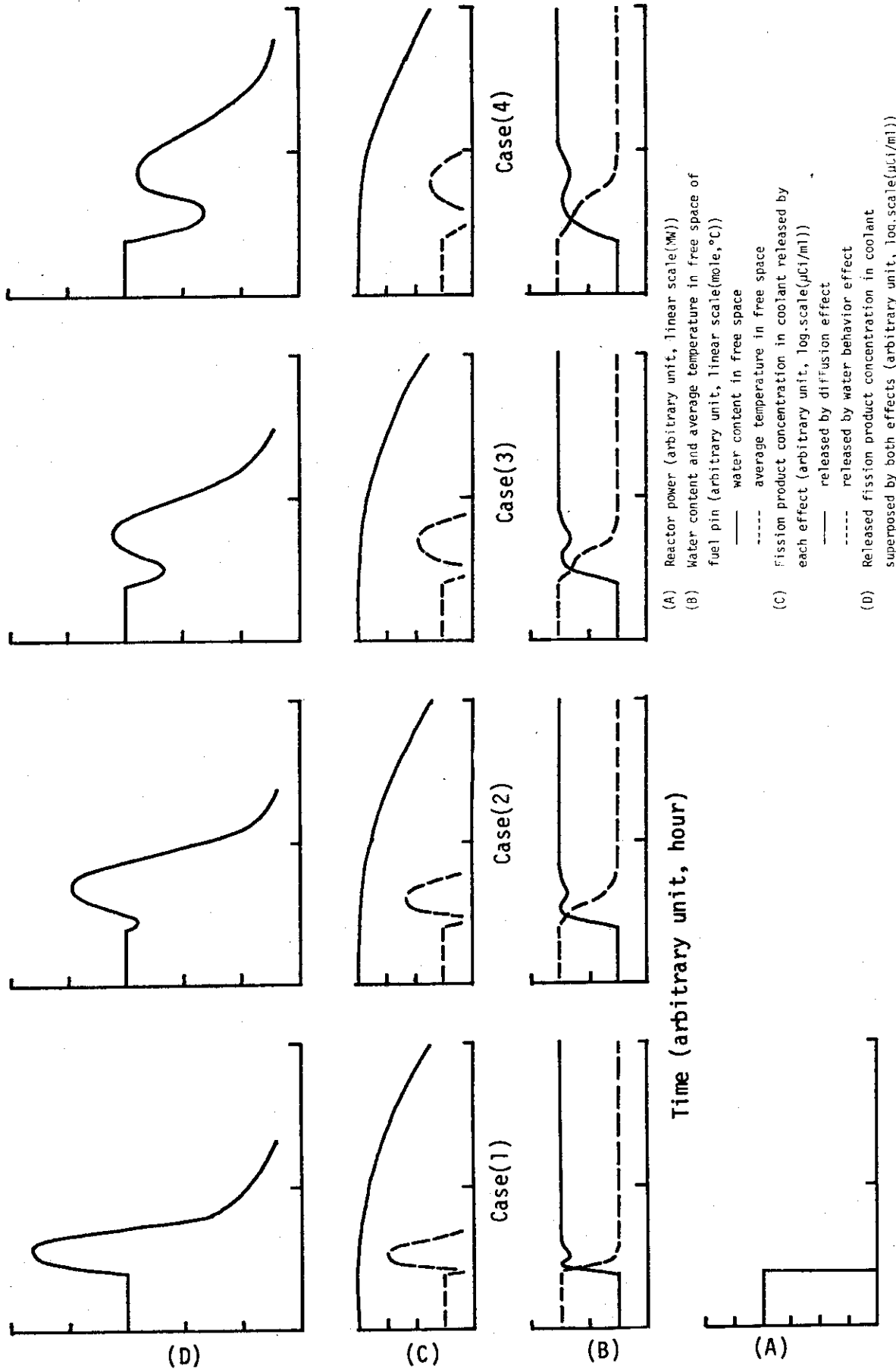


Fig.13 Fission product release behavior at reactor shut-down (water behavior effect)

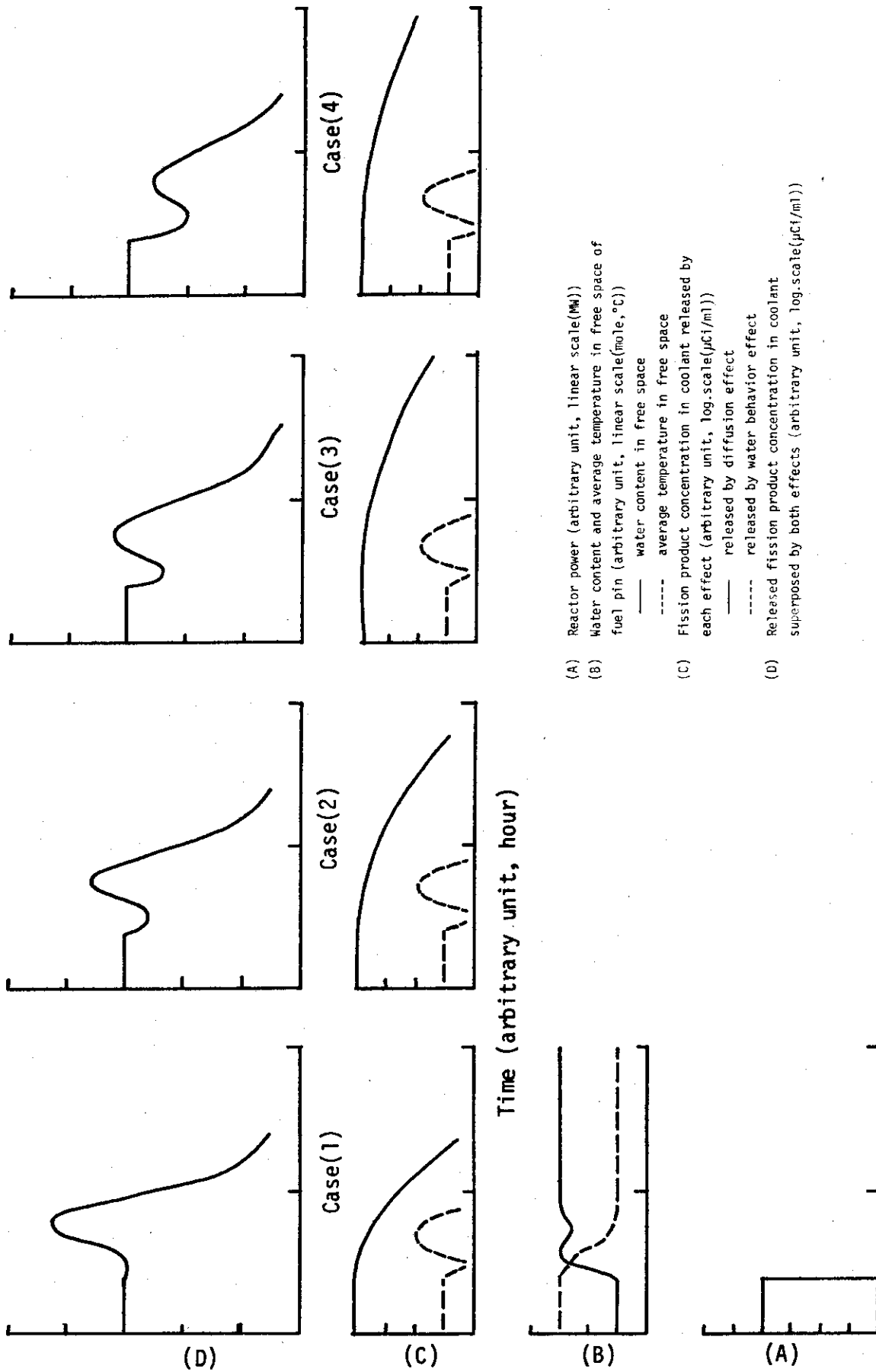


Fig.14 Fission product release behavior at reactor shut-down (fission product diffusion effect)



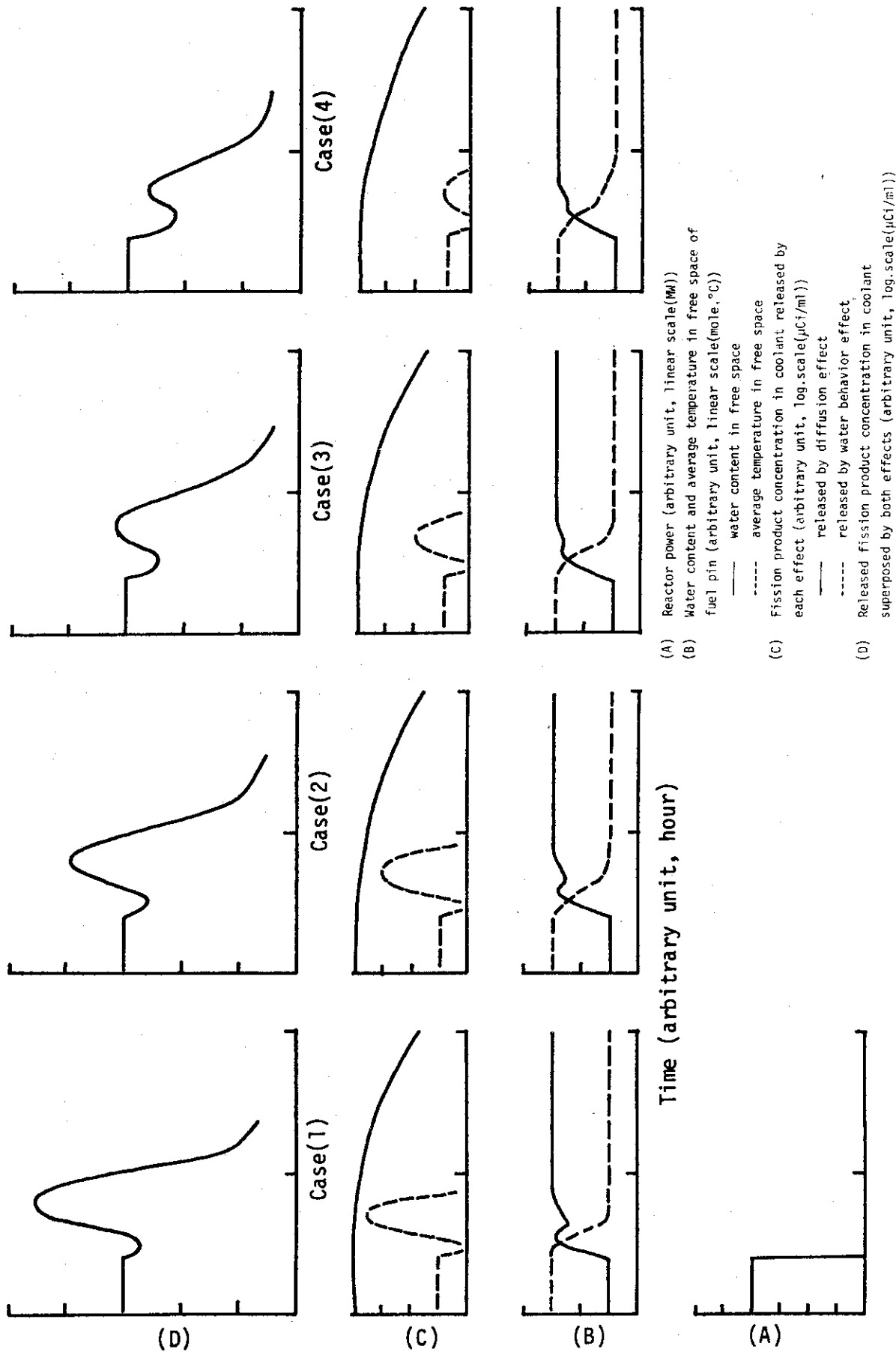


Fig.15 Fission product release behavior at reactor shut-down (excessive water flow effect)

### 3.3 温度変動および圧力変動時の放出挙動

JMTRのOWL-1を使用した追加放出実験では、原子炉起動および停止時以外にも追加放出現象が認められている。それは、冷却水圧力が変動した場合および冷却水温度が変動した場合である。計算コードの結果では、温度変動と圧力変動のときの追加放出の様子に現在のところでは大きな差あるいは特色はみい出せない。しかし、圧力減少と温度上昇、圧力上昇と温度減少とはそれぞれ似た傾向を示している。したがって、本節では圧力変動について言及し、温度変動については重複をさけるために省略する。温度変動については、上述の対応を基にして現在のところほぼ同じ傾向であると考えてよいであろう。

まず、冷却水圧力減少の与える影響について述べる。圧力減少の場合のFP放出挙動の例を、Fig. 16に示す。Case (1)から順にCase (4)にかけて圧力減少中は、大きくなっている。冷却水圧力減少の場合は、内部フリースペースに蓄積されていたFPが水蒸気と共に冷却水中へ放出される。そして、この放出は、内部の水蒸気圧が減少し冷却水圧力とバランスするまで続くと考えられる。したがって、圧力減少中がかなり小さい場合には、あまり冷却水中FP濃度の変化はみられず、場合によっては放射能計測時の統計誤差などにかくれたりFP内部蓄積量が飽和量に比べて小さかったりして事実上観測されないこともある。圧力減少中が十分に大きい場合には、放出ピークは顕著なものとなる。

次に、冷却水圧力上昇に伴う放出について述べる。冷却水圧力上昇の場合には、冷却水が被覆管内フリースペースへ流れ込む。しかし、静的に水が流入しただけでは、冷却水中へFPが追加放出されることはないであろう。後述する実験結果および3.2節の原子炉停止時追加放出からもわかるように、いわゆる過剰水流を考慮に入れなければならない。圧力上昇時の放出挙動の例をFig. 17に示す。冷却水中FP濃度変化の面から見ると、圧力減少の場合はそれほど大きな差はないようである。Fig. 16と同様、Case (1)から順にCase (4)にかけて圧力上昇中は大きくなっている。前述した圧力減少の場合と同様に、圧力上昇中が大きい場合には、放出ピークは顕著なものとなる。また、上昇中が小さい場合には、放出ピークが観測されない場合もある。

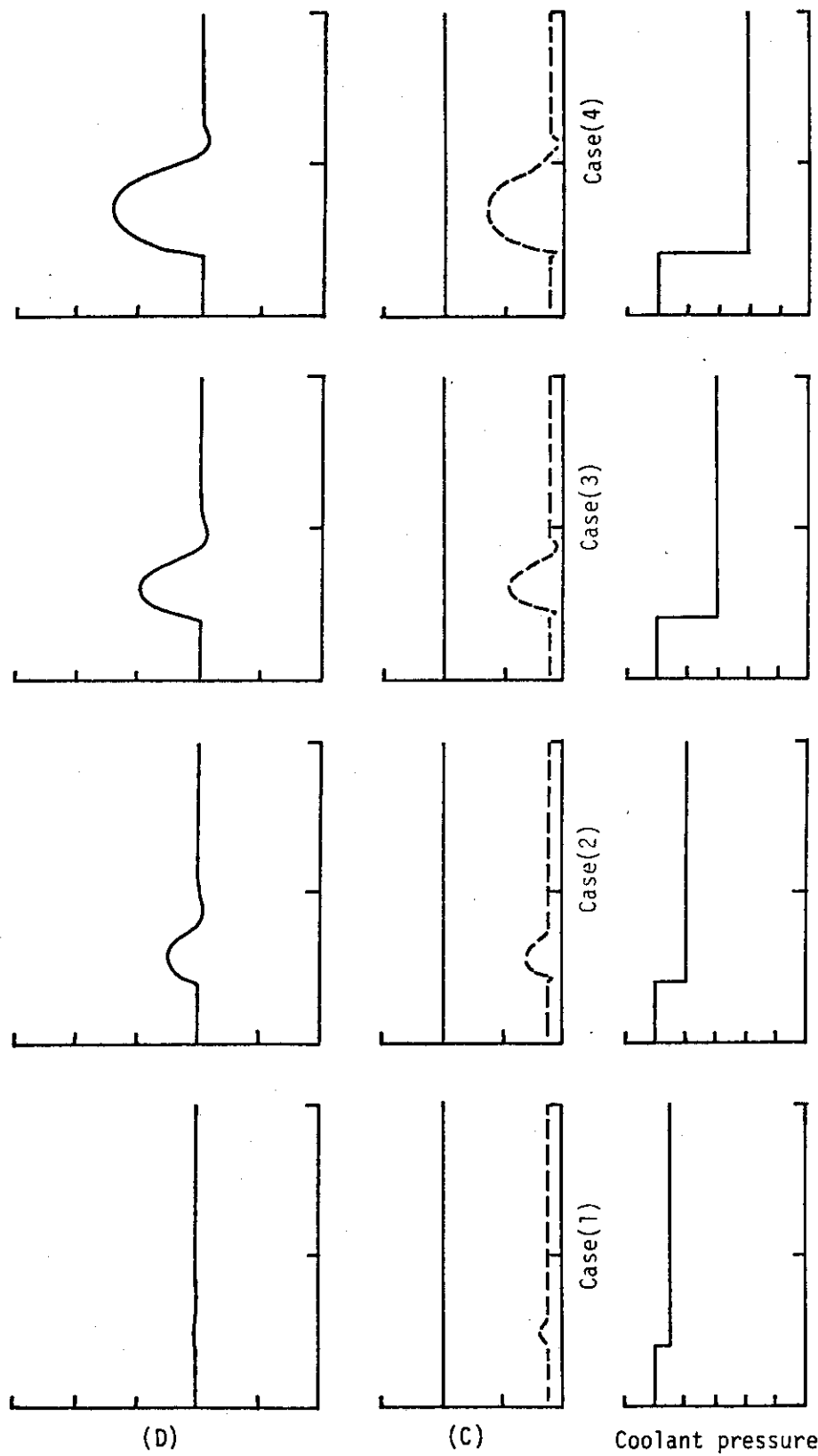


Fig.16 Fission product release behavior at coolant condition fluctuation (decreasing of coolant pressure)

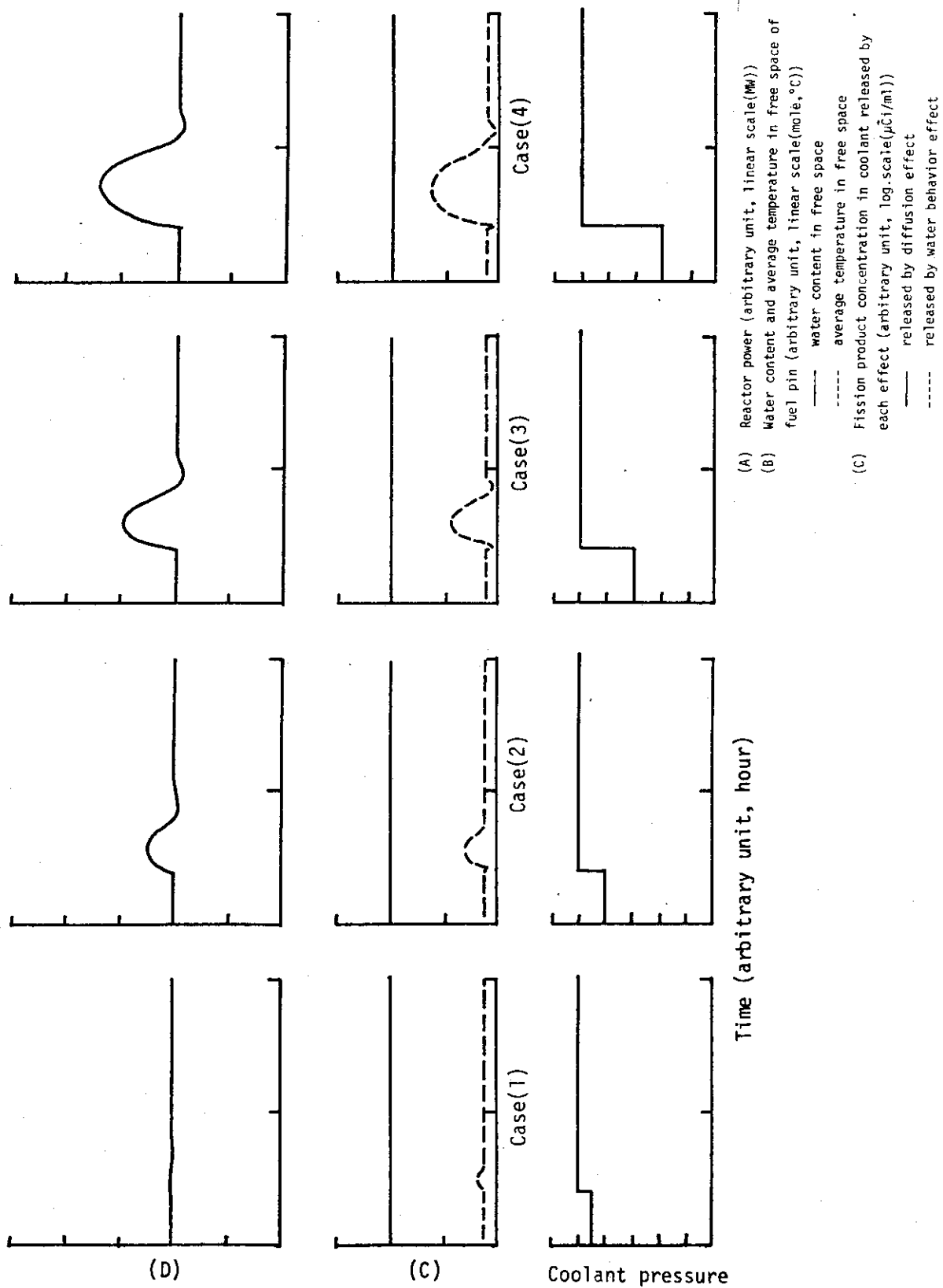


Fig.17 Fission product release behavior at coolant condition fluctuation (increasing of coolant pressure)

### 3.4 その他の因子による放出挙動

#### (1) 放出現象後の放出挙動

3.2 および 3.3 節で述べたような外乱因子に起因する F P 放出が起った直後に、つぎの外乱因子に起因する変動が起った場合、そのときの F P 放出挙動は直前の外乱の影響をどのように受けるであろうか。3.1 節で用いた Fig. 10 からわかるように、1 回目の放出によって F P の被覆管内内部蓄積量は飽和量に比べて減少しており、 $t_{sat}$  だけ時間が経過しないと飽和量に達しない。このようなことから考えて、一般に 1 回目の放出からの経過時間にほぼ比例して 2 回の放出量は大きくなると考えられる。これらの例を、Fig. 18 に示す。Case (1) から順に Case (4) にかけて、1 回目放出からの経過時間が大きくなっている。それに従って放出量も多くなっている。2 回目の放出によって、被覆管内フリースペースの水蒸気は、いずれの Case も同じ量だけ移動していても、みかけの放出量は経過時間によって異っている。すなわち、放出率（放出量/そのときの内部蓄積量）は、いずれの場合も同じであるがみかけの放出量は異なる。もちろん、1 回目および 2 回目の放出のときの変動因子（外乱因子）が異なる場合は、放出率も異ってくる。1 回目の放出後あまり時間が経過しないうちに、2 回目の変動を起し放出を行うと、F P 内部蓄積量がきわめて小さくなっている場合には 2 回目の放出ピークが、3.3 節で述べた場合と同様に事実上観測されない場合も生じてくる。

#### (2) 半減期による放出挙動の相違

今まで述べてきた原子炉起動時および停止時ならびに冷却水圧力・温度変動時における放出挙動については、主に I-131 などの半減期が日単位程度の核種についてであった。OWL での追加放出実験において冷却水中濃度変化の対象として選択されている核種は現在までのところ主として I-131 および Cs-137 などである。これらの核種は被曝管理上の観点から考えると測定対象として省くことのできない核種ではあるが、追加放出についてのより詳細な解析を行う上で測定対象として適切であるかどうかは、さらに検討を用する。Fig. 19・20 および 21 に、これらの検討結果を示す。ここでは、炉出力を除いて他の外乱因子はすべて定常状態にあると仮定する。これら 3 種の図の差は、主に欠損孔の径と F P の拡散速度・水の移動速度であり、同一の図の中では全く同じ条件にある。また、各図の Case (1) から (3) は、核種のちがいである。Case (1) は、I-131 (8 日) で代表される半減期が日単位の核種、Case (2) は Te-131 m (30 時間) で代表される半減期が時間単位の核種、そして Case (3) は Te-131 (25 min) 代表される半減期が分単位の核種である。実際の実験では、半減期の効果の他にその核種の化学形の効果も加わってくると考えられるが、数式として処理できるほどには化学形の効果は現在のところ十分ではない。そこで、この計算においては、どの核種（化学種）も同じに挙動する（すなわち、希ガスと同じに挙動する）と仮定した。

一般に半減期が短くなるにつれて、原子炉起動時および停止時の追加放出ピークは、鋭くかつ顕著になる傾向がある。F P の量が飽和に対するのに、一般に半減期が短いほど速いからであると考えられる。また、一般の F P の decay chain では、半減期の短い核種は先行核種の少なくなる傾向があるからである。このようなことから、半減期の短い核種の方が放出量 R を

評価するのに、また飽和到達時間が小さいから放出率を求めるのに都合がよい。さらに、外乱が起った直後に、放出ピークがあらわれるため、何の外乱に起因するのか判断しやすい傾向がある。また、先行核種（親核種）の影響も受けにくい。これに比べ、長半減期の核種では、外乱後F P濃度変化に谷がみられた後、放出ピークがあらわれる場合がある。しかし、Fig. 17に示すように原子炉停止直後に短半減期核種に小さな放出ピークがある場合にはサンプリングラインに達する前にその短半減期核種は壊変してしまい放出ピークが観測されない場合があるが、他方ある程度以上長い半減期の核種ではピークが観測されることがある。したがって、半減期の面からみると、現象解析のために半減期の値が分単位ないし時間単位あるいは日単位の核種を、そして被曝管理上問題となる核種と合せて測定核種として選択するのが有利であるといえよう。また、計算モデルの都合と実験結果の解析の手間から考えると、短寿命核種を測定してF P追加放出の機構をより明確にしモデルに反映させその後計算によって長寿命核種について評価した方がより近道であるように思われる。なぜなら、長寿命核種の挙動から放出機構を推定するのは、前述してきたような理由から加えなければならない補正項目が多く評価にかなりむずかしい点が残ると考えられるからである。

### (3) 脱塩系 (demineralizer) の影響

脱塩系の動作状態は、F P追加放出現象の本質には関係がない。しかし、観測される冷却水中F P濃度変化は、脱塩系動作状態によって大きく異なり実験結果の解析の際にも重要となってくる。脱塩系は、通常の運転のときは100%の効率で動作しており、今まで述べてきた冷却水中F P濃度の変化の様子は、すべてこの100%の効率で動作したときの議論である。ところが、放射能測定上の観点からあるいは脱塩系におけるF Pの除去効率評価のために一時的に、この脱塩系を完全に停止させる場合がある。このときのF Pの濃度変化の様子をFig. 22に示す。Case (1)および(2)の中段(1)で示されるF P濃度変化が、脱塩系停止を含む場合である。上段(2)で示されるF P濃度変化が、もし仮りに脱塩系が通常の100%の効率で動作していた場合の様示である。Case (1)は冷却水圧力が減少した場合であり、Case (2)は冷却水圧力減少後再び圧力を上昇させた例である。どちらの場合も、脱塩系を停止した期間中だけ、上段(1)を積分した形に変わる。もちろん、脱塩系を停止してもF Pの壊変による減少はあるから、(2)で示されるF P濃度変化を完全に100%積分した形になるわけではないことを考慮に入れなくてはならない。また、先行核種からの壊変が無視できない場合は、先行核種の方も考慮に入れなくてはならない。

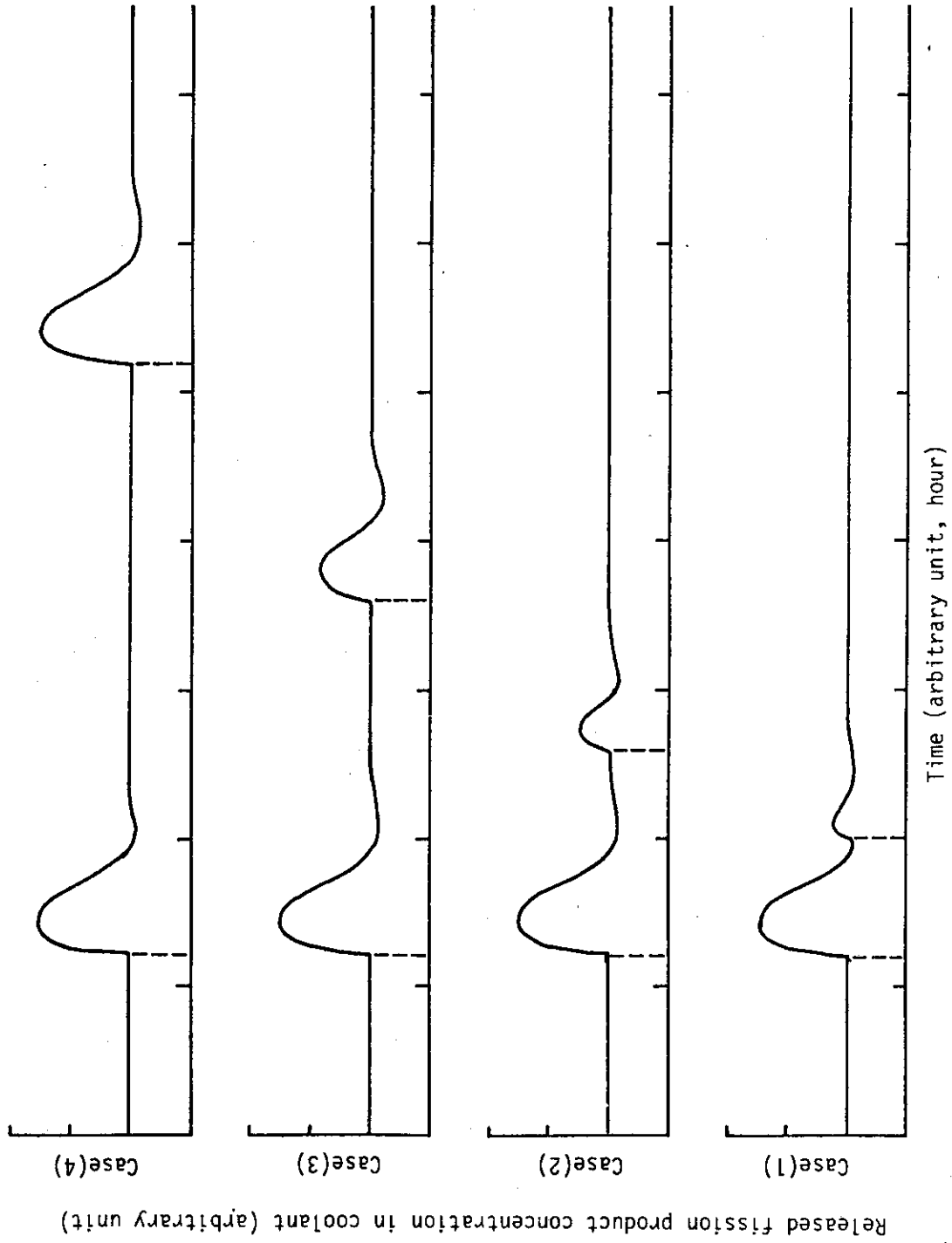


Fig.18 Fission product release behavior depending on time interval between two fluctuations

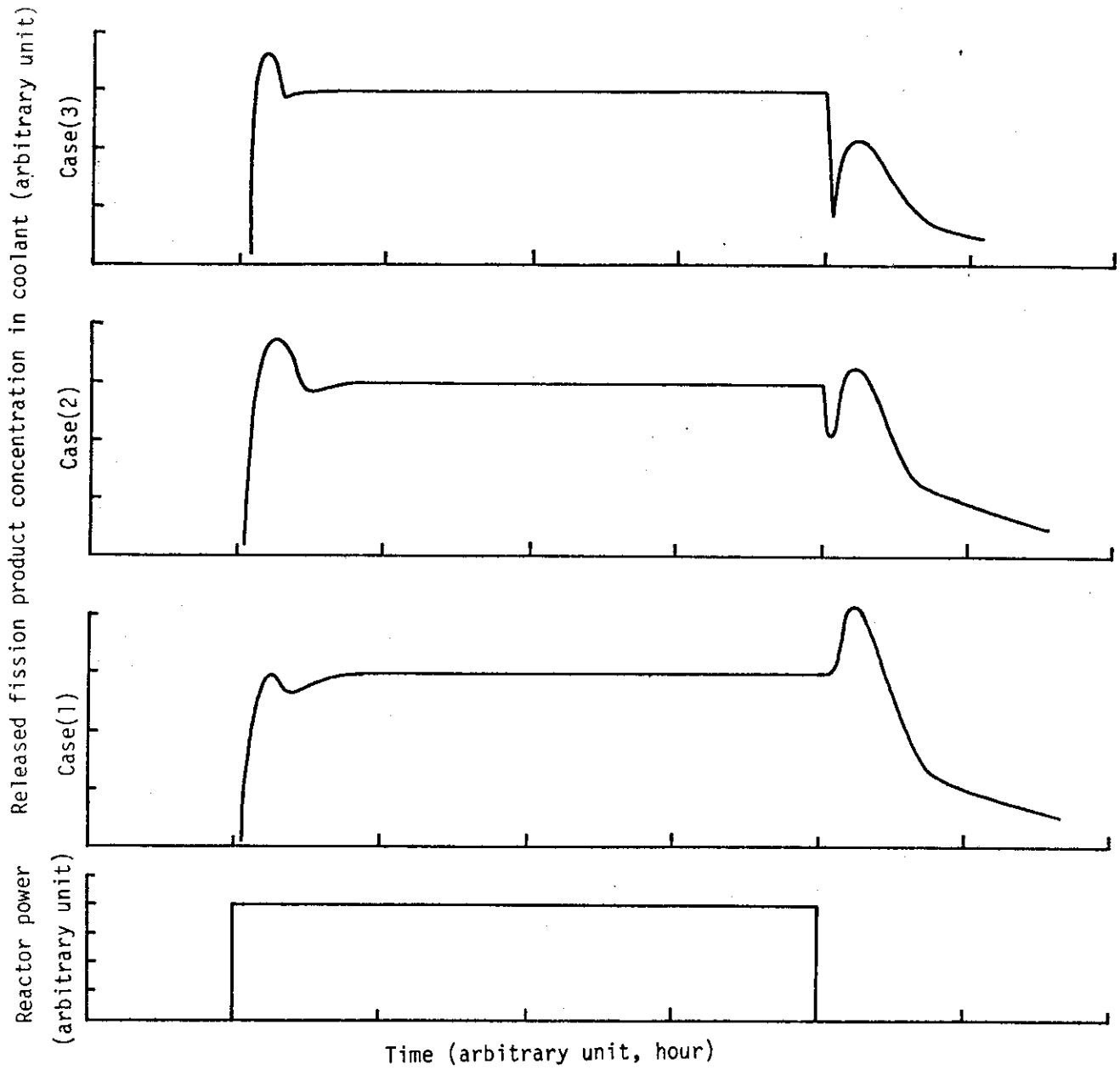


Fig.19 Fission product release behavior (I)  
(half-life effect)



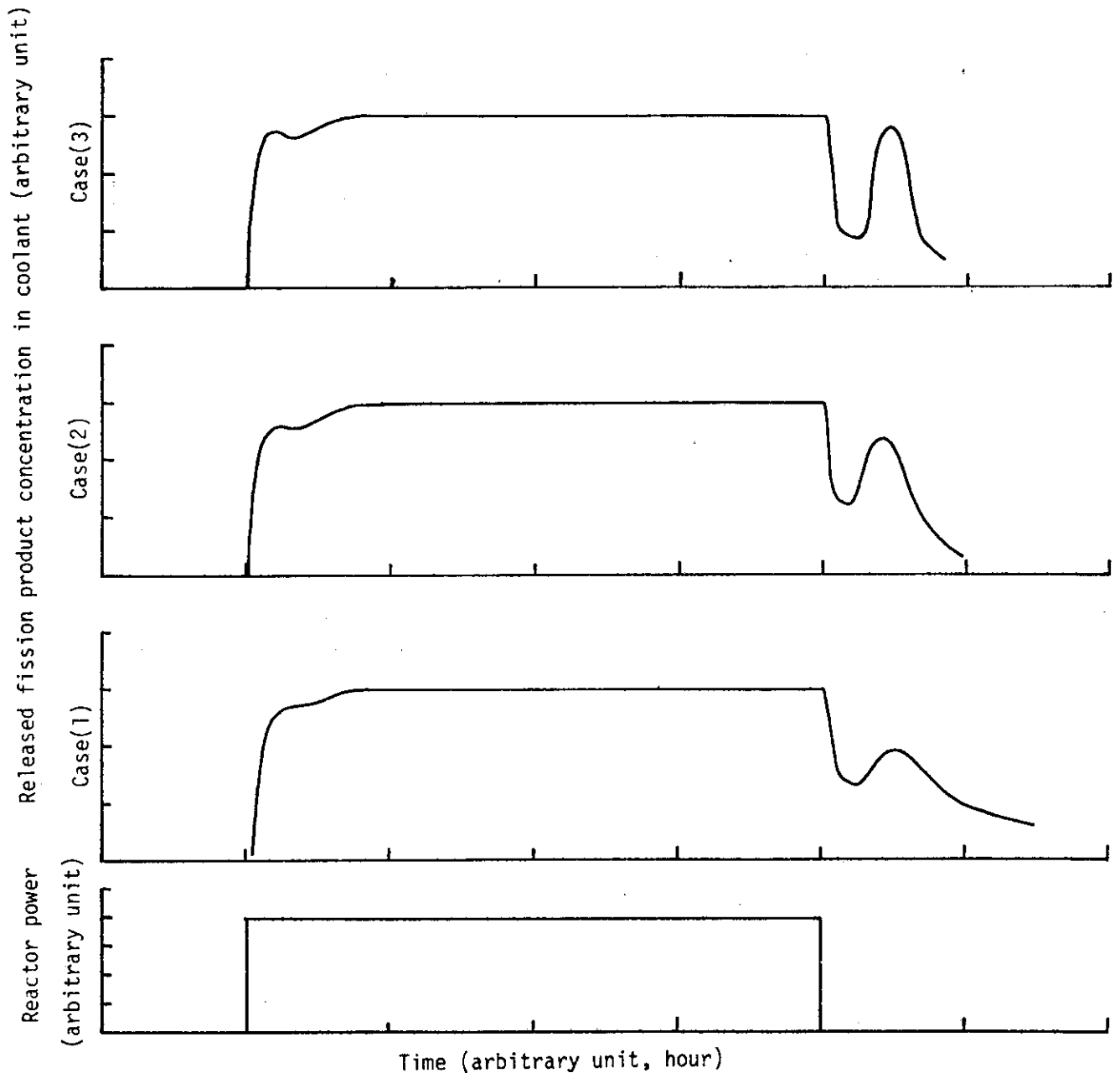


Fig.20 Fission product release behavior (II)  
(half-life effect)

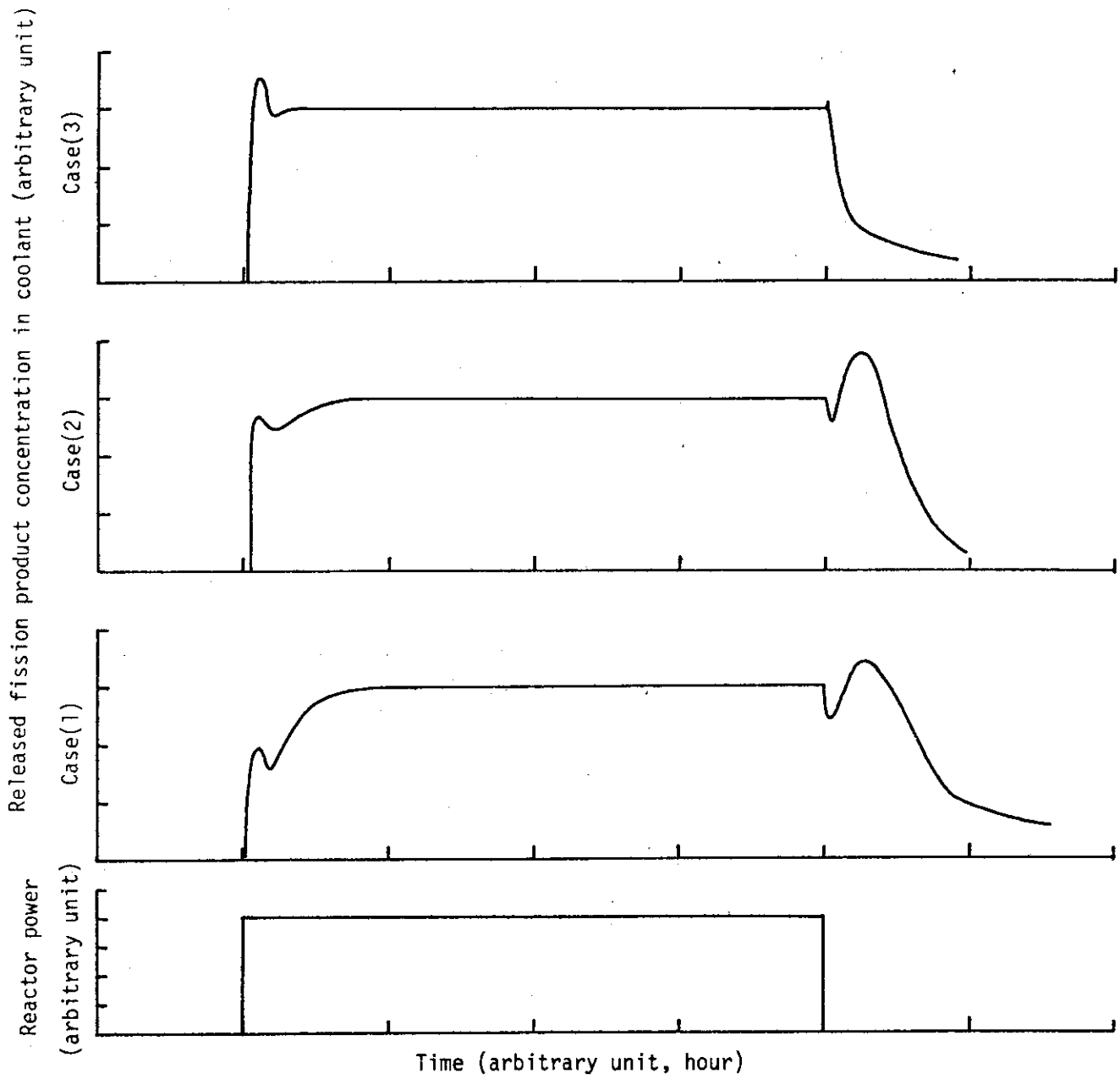


Fig.21 Fission product release behavior (III)  
(half-life effect)

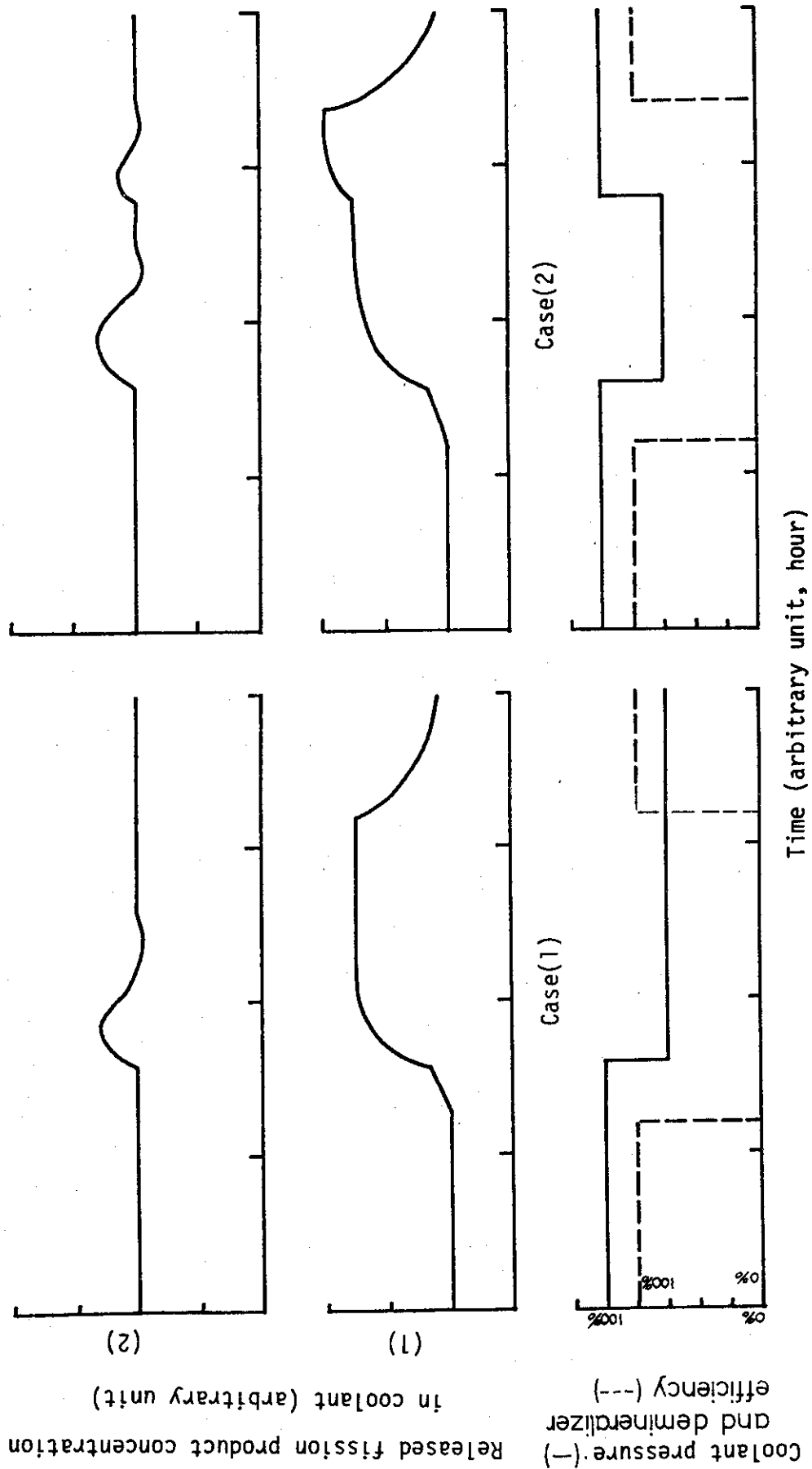


Fig.22 Fission product release behavior (IV)  
(demineralizer efficiency effect)

## 4. 実験結果および検討

### 4.1 実験結果の概要

OWL-1 水ループを用いたFP追加放出実験試料の詳細については、2.2節で述べた。実験結果<sup>1)</sup>の解析は目下進行中であり、したがってここではその実験結果の一部を示す。他の実験結果も合せて、解析が終了し次第より詳しい事柄が公表されるであろう<sup>8)</sup>。ここでは、実験(I)、(II)および(III)の結果の概要を、それぞれFig. 23・24および25に示す。実験(I)では、2.2節Table 2で示した諸元の他に、燃料ペレットの外側に近い方にTC1の熱電対が、そして中心に近い側にTC2の熱電対が取り付けられ照射中の燃料ペレットの温度変化を知ることができるようになっている。実験(II)では、実験(I)の試料体を数カ月炉外に保管した後、再び照射しており、中心に近い方の熱電対が切断した状態で実験が開始されている。実験(III)は、新しく作成した試料体を用い熱電対はついていない。実験(I)では、温度変動および圧力変動実験は行なわれず、先に述べたループの運転モード(PとB)の切換えのみが行なわれた。実験(II)では、2回の冷却水温度変動と1回の圧力変動の実験が行われた。実験(III)では、7回の温度変動と1回の圧力変動実験が行われ、さらに1回脱塩系が停止された。これら3回の実験のデータは、すべて項目について連続測定されたわけではなく定時測定値を結んだものも含まれている。

冷却水中FP濃度変化は、別途I-131およびCs-137に注目して測定され目下解析が進行中であり、ここではこれらの代りにループバックアップシステム中に配置された放射線モニターの指示値を示してある。その一つはループキュービクル室内のモニターであり、もう一つはテストセクション出口の炉水モニターである。これらのモニターで測定される核種は、上記のI-131およびCs-137よりさらに半減期の短い核種が主であり、Gross gamma-rayで測定されているため詳細な核種のうちわけは不明である。これら2つのモニターのうち、テストセクション出口のモニターの方がより半減期の短い核種を捕えていると考えられる。いずれの実験の場合も、原子炉起動および停止時ならびに冷却水圧力および温度変動時のほとんどに、FP追加放出ピークが認められる。ここで、後の節での説明のために各実験の主要な放出ピークに番号を付しておく。後日、I-131やCs-137の濃度変化が公表された段階で論ずべきであるかもしれないが、そして3.4節の議論からもわかるように分ないし時単位の半減期をもつ核種の方が、FP追加放出現象の機構を解析するには都合がよいようである。

以下の節では、各実験ごとに、冷却水中FP濃度変化でみられる個々の追加放出ピークについて、簡単にその原因(理由)を述べる。ただし、現時点で追加放出挙動の全詳細がわかっているわけではないので、明確な理由がすべてのピークについて判明しているわけではない。

## 4.2 実験 (I)

先に述べたように、実験(I)では冷却水条件の変動実験は含まれていない。主として、ループ運転モード(PとB)によるFP挙動の差と両モード切換時のFP挙動、そして燃料ペレットの温度変化に注目して実験が行われている。Fig. 23のループキュービクルに取付けられた $\gamma$ 線モニターにあらわれた放出ピークにそって概略を説明する。ピーク101は、原子炉起動に伴う放出ピークである。ピーク103は、炉停止に伴う追加放出ピーク、ピーク104は、炉のステップ状起動の第1ステップ目に対応し、ピーク105は第2ステップ目の出力上昇に対応している。ピーク106はループ運転モードの切換(PからB)に対応しており、ピーク107は炉停止時の追加放出ピークである。ピーク108は1ステップ目の炉起動、ピーク109は第2ステップ目の炉出力上昇に対応している。ピーク110については、現在のところ明確なことはわかっていないが、燃料ペレットに取付けられた熱電対の指示値変化から freespace内へのかなり激しい水の流入があったからではないかというのが一つの解釈である。しかし、人によって意見のちがうところである。ピーク111は、ループ運転モード切換え(PからBへ)に、そしてピーク112は原子炉停止時の追加放出に対応している。この時点で2本の熱電対のうちペレット中心に近い方の熱電対が断線したと推定されている。しかし、ピーク108または109の近傍でこの断線した熱電対は既に正常ではなくなっていたのではないかという意見もあり、まだ統一した見解はない。今後の炉外試験などの結果が待たれる。実験結果を熱的な面からみると、ループ運転モードBのときの方がペレットに取付けられた熱電対指示値が高い。また、原子炉起動時熱電対指示値に比べ、その後の定常運転期間中に指示値が徐々に下っていくことなどが認められる。

## 4.3 実験 (II)

実験(II)では、冷却水温度変動が2回ある。このうち、1回目の温度変動は原子炉停止期間中であり、FP放出挙動に対する影響はない。したがって、温度実験は正味2回目に行った1回が有効である。また、圧力変動実験が1回行われ、その直前から直後までの期間(ループキュービクル $\gamma$ 線モニターの記録のうち\*印から\*印までの期間)脱塩系は停止していた。そのため、この圧力変動期間中のFP挙動データについては、3.4節で述べたようにいわゆる積分型になっていることに注目しなくてはならない。この実験では、ペレット部に取付けられた熱電対指示値については、実験(I)からもわかるように(I)の照射期間中に種々のことが起っていると考えられるので、照射後試験の結果と合せてさらに慎重な検討が必要である。

では、Fig. 24のループキュービクルに取付けられた $\gamma$ 線モニターにあらわれた放出ピークにそって概略を説明する。ピーク201は原子炉起動に伴う追加放出ピークである。ピーク202および203は先に述べたようにループ脱塩系停止期間中の放出ピークであり、そのうちピーク202は冷却水圧力減少に、ピーク203は冷却水圧力上昇に伴う放出ピークである。これら両ピークに対応して熱電対指示値が激しく変化していることに注目しなくてはならないが、いまのところまだ明確な解釈はない。ピーク204についてはこのピークに対応する外乱はみつからないが、ペレットに取付けられた熱電対指示値が下がっていることから何らかの原因で被覆管内 freespace

に水が流入しFP放出ピークが生じたと考えられる。ピーク 205 は原子炉停止に伴う追加放出ピーク 206 および 207 は、それぞれ原子炉起動および停止に伴う追加放出ピークである。ピーク 209 は冷却水温度減少に、ピーク 210 は冷却水温度上昇に、ピーク 211 はループ運転モードの切換（PからBへ）、そしてピーク 212 は原子炉停止に伴う放出ピークである。

#### 4.4 実験 (III)

この実験(III)では、実験I・(II)と異なりペレット部の温度計装はない。また、ループ停止直前までループ運転モードはPモードである。合計7回の温度変動実験と1回の圧力変動実験が行われた。圧力変動実験の前で1回脱塩系が停止している。Fig. 25のループ気水分離器に取付けられた $\gamma$ 線モニターにあらわれた放出ピークにそって概略を述べる。気水分離器の $\gamma$ 線モニターでは、主として希ガスFPが計測され、かつそれらはループキュービクルで計測される核種よりもさらに短寿命のFPであると考えられる。そのため、ループキュービクル $\gamma$ 線モニター指示値に比して放出ピークが明瞭である。しかし、ループ脱塩系停止の影響は、キュービクルのモニターに比べ、Fig. 1に示したループ各機器の構成と計測対象が短寿命FPであることから受けにくい。また、脱塩系（デミネライザー）の $\gamma$ 線モニター指示値は、当然のことであるが脱塩系停止期間中は他のモニター指示値と異なりその値は低くなる。そして、この脱塩系モニターでは、他モニターに比べて長寿命の核種が計測されると考えられる。そのため、このモニター指示値にあらわれた放出ピークは、概して巾が広く外乱因子の変化に対する応答がよくない。また、decay chainの関連から外乱発生に対して応答の時間遅れがある。気水分離器・キュービクルおよび脱塩系のモニターの順に計測されるFPの半減期は長くなると考えられ、これら3種の $\gamma$ 線モニター指示値を比較すると、先の3章で述べたようにFP追加放出機構の解明と定量的評価のためには短寿命核種の方が都合が良いと言えるようである。これらのことが、実験(III)全体を通じて言えるようである。

ピーク 301は原子炉起動に伴う追加放出ピークであり、ピーク 302については現在のところ明確ではない。ピーク 303は冷却水圧力減少に対応している。ピーク 304は現在のところ確定的ではないが1回目温度変動時温度上昇による可能性がある。2回目温度変動に対応する放出ピークは認められていないが、これはFP内部蓄積量の減少と変動巾が小さいためではないかと考えられる。ピーク 306は3回目温度変動に対応している。先に述べた(3章)FP内部蓄積量と放出後放出現象の関係から、温度上昇時の放出ピークはほとんど認められない。ピーク 308および309は4回目温度変動の温度減少と上昇にそれぞれ対応している。この4回目変動の場合、変動巾が大きいため2つのピークが観測されている。ピーク 310および311は5回目温度変動に対応している。ピーク 312はループ運転停止（いわゆる cool-down）に、そしてピーク 313は原子炉停止に対応している。ピーク 314については、現在のところ不明である。ピーク 315は原子炉起動時追加放出である。ピーク 316および318は、この節の冒頭で述べたように脱塩系停止時であり、キュービクルと脱塩系モニターにのみ変化があらわれている。ピーク 320および321は、6回目温度変動に対応している。ピーク 322およびピーク 323は7回目温度変動に対応している。この2回の温度変動巾が大きいため、各々2つのピークが観測されている。ピーク 322は、

6回目変動後の経過時間が小さいため、FP内部蓄積量回復に時間がかかりピーク出現に遅れがありかつピークの高さは小さなものとなっている。ピーク324は、原子炉停止に伴う追加放出ピークである。1回行われた圧力変動時の放出ピークは認められないが、これは主として変動巾が小さかったこととループ運転モードがPモードであったことによると推定されているが確定的ではない。

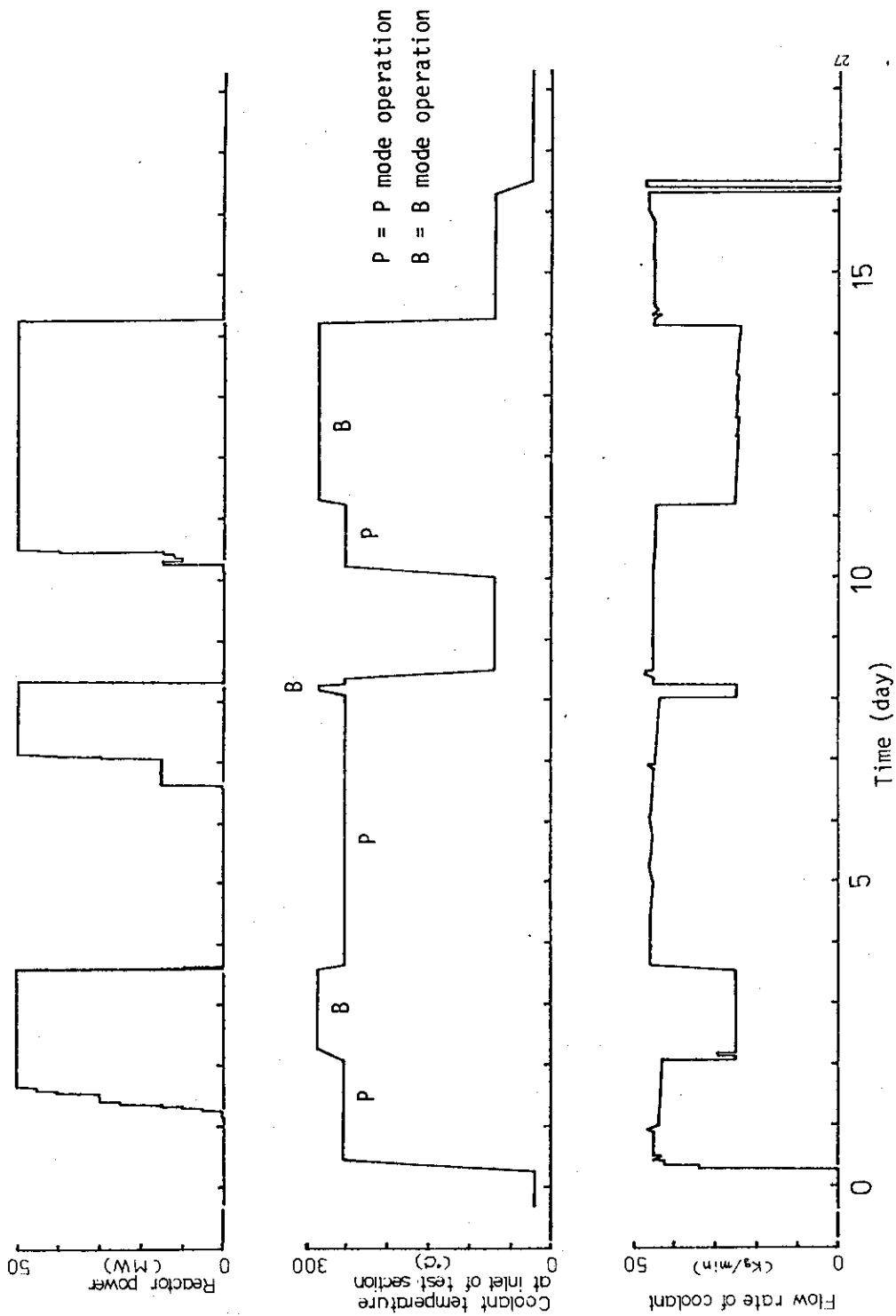


Fig.23a Additional fission product release experiment (I)



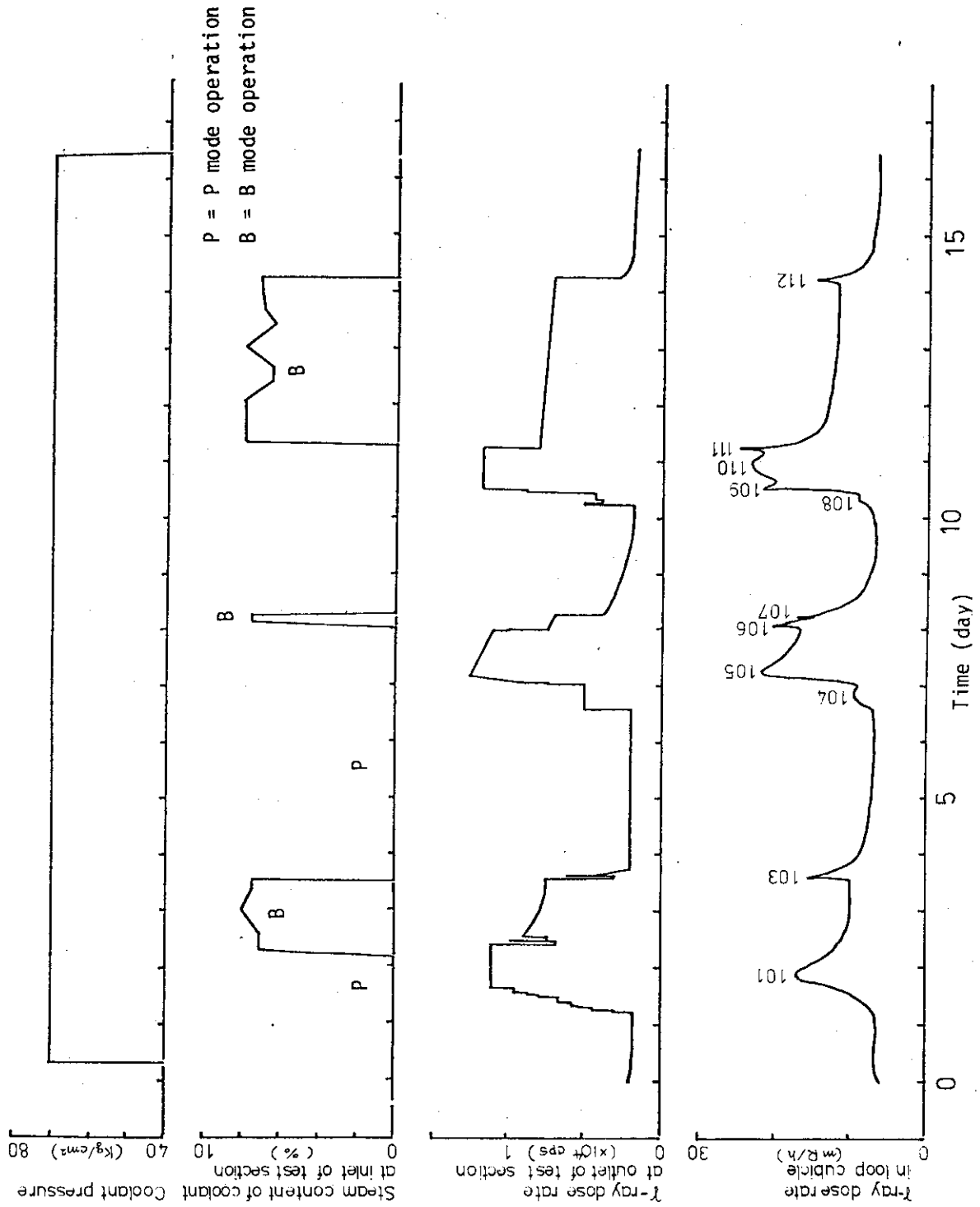


Fig.23b Additional fission product release experiment (I)

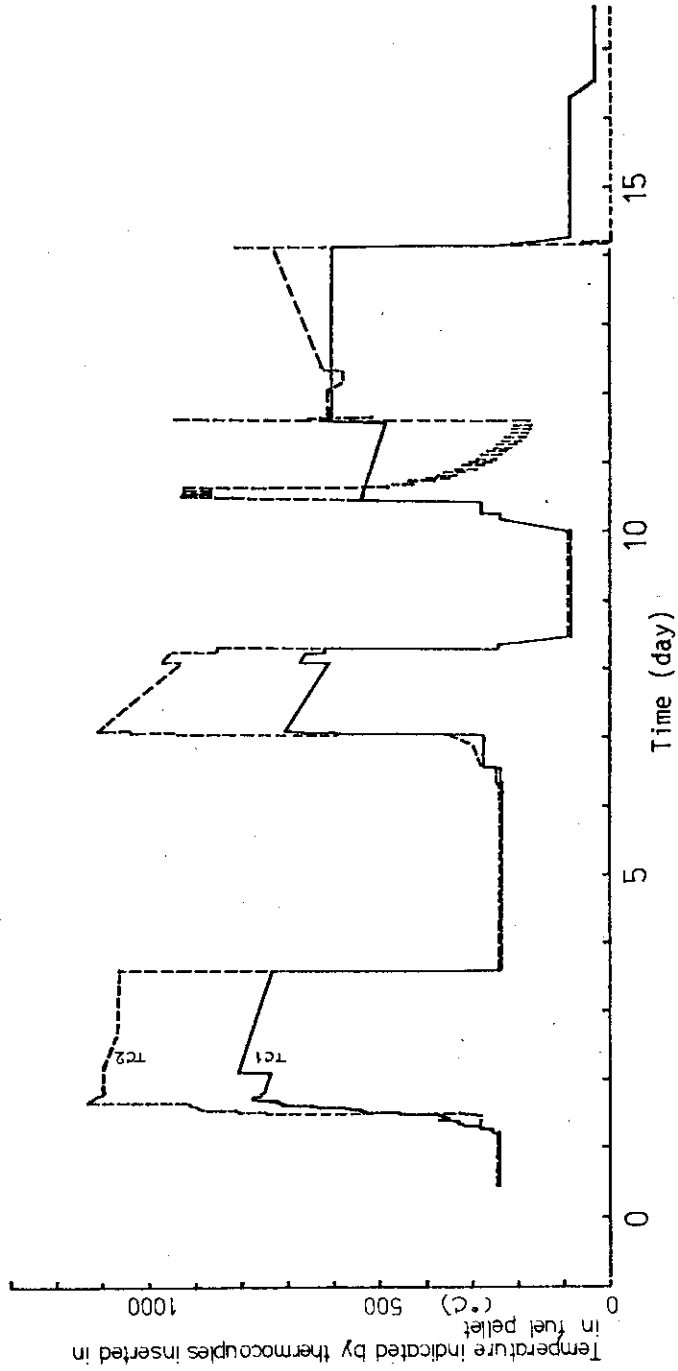


Fig.23c Additional fission product release experiment (I)

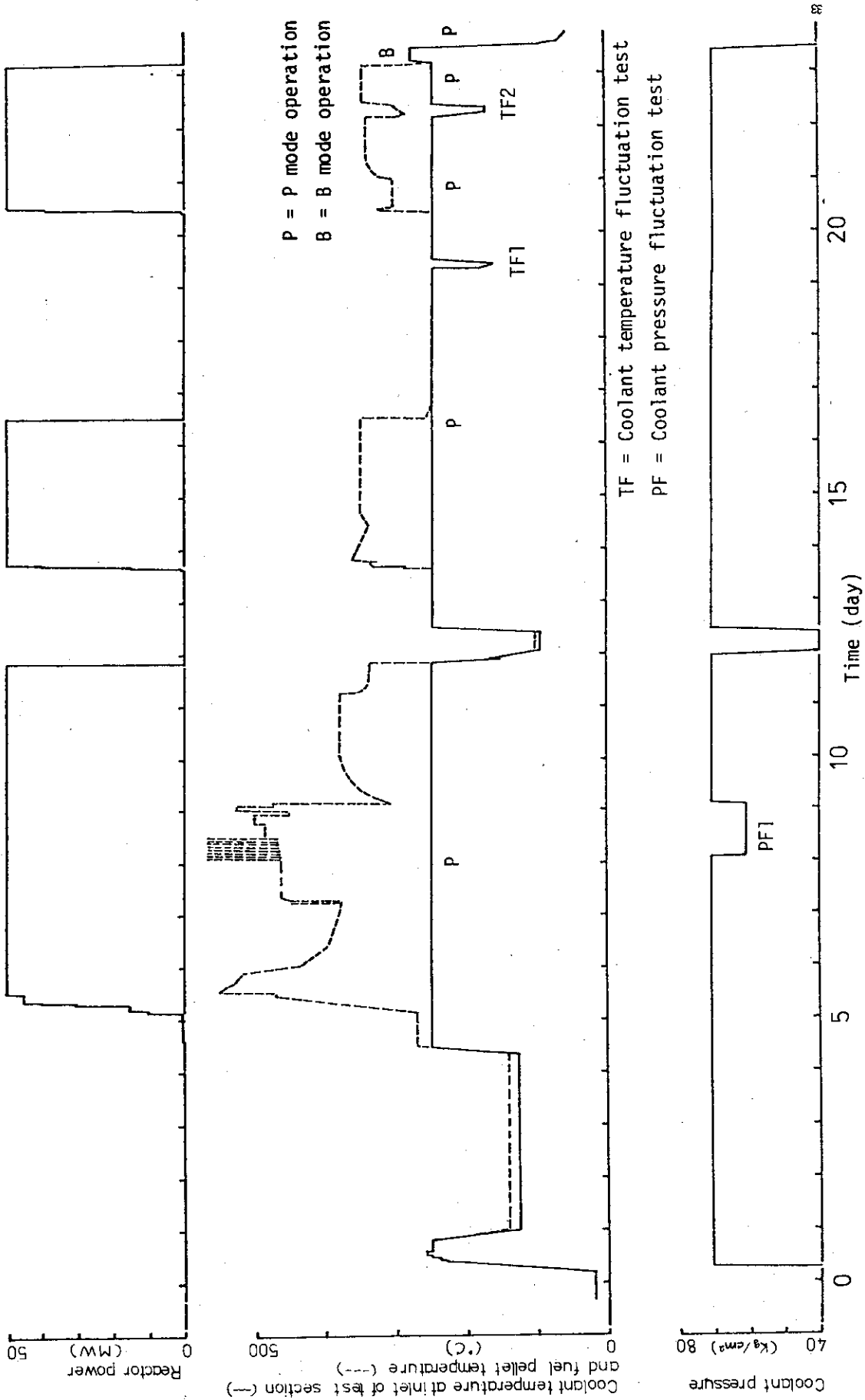


Fig.24a Additional fission product release experiment (II)

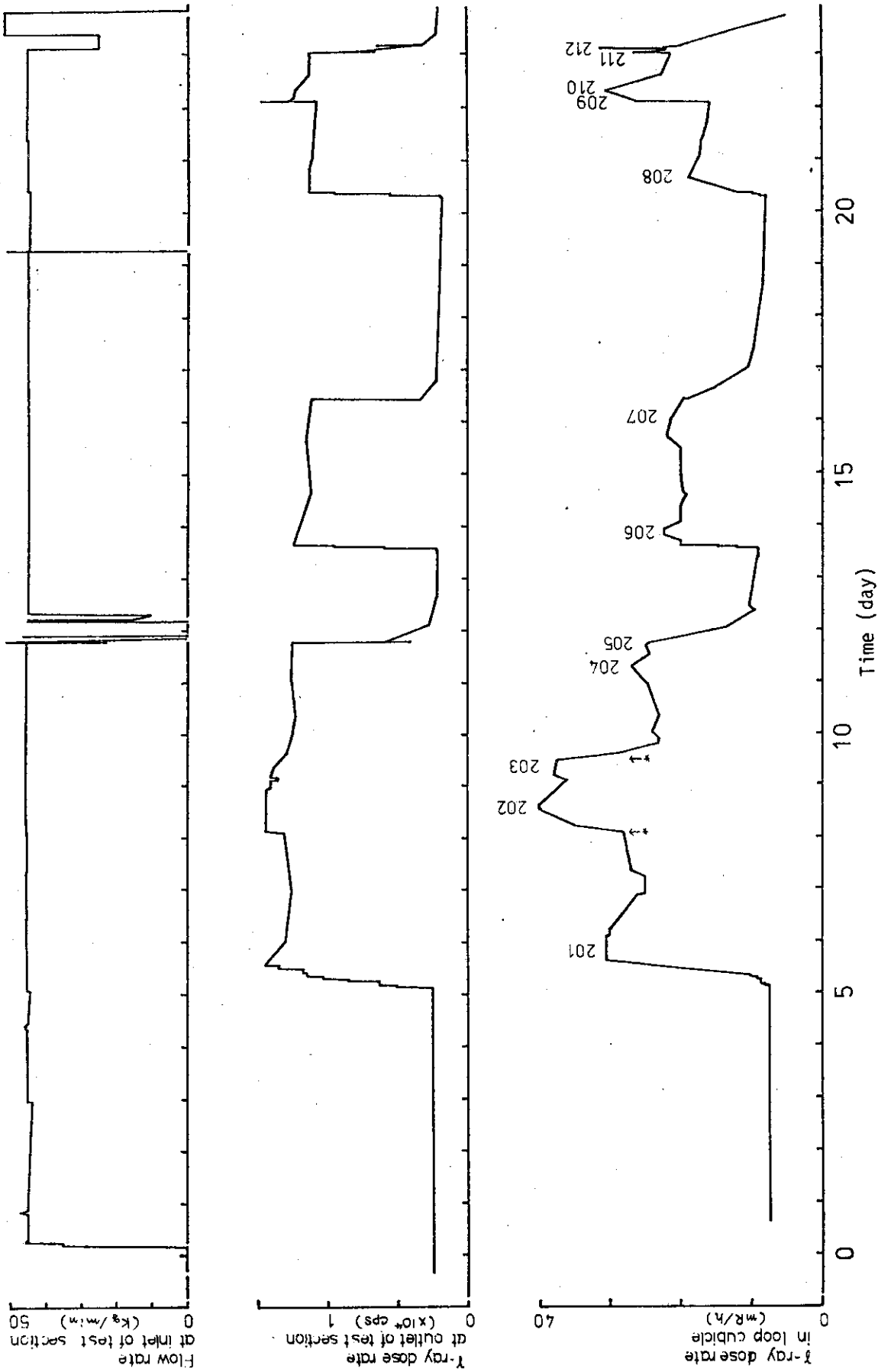


Fig.24b Additional fission product release experiment (II)

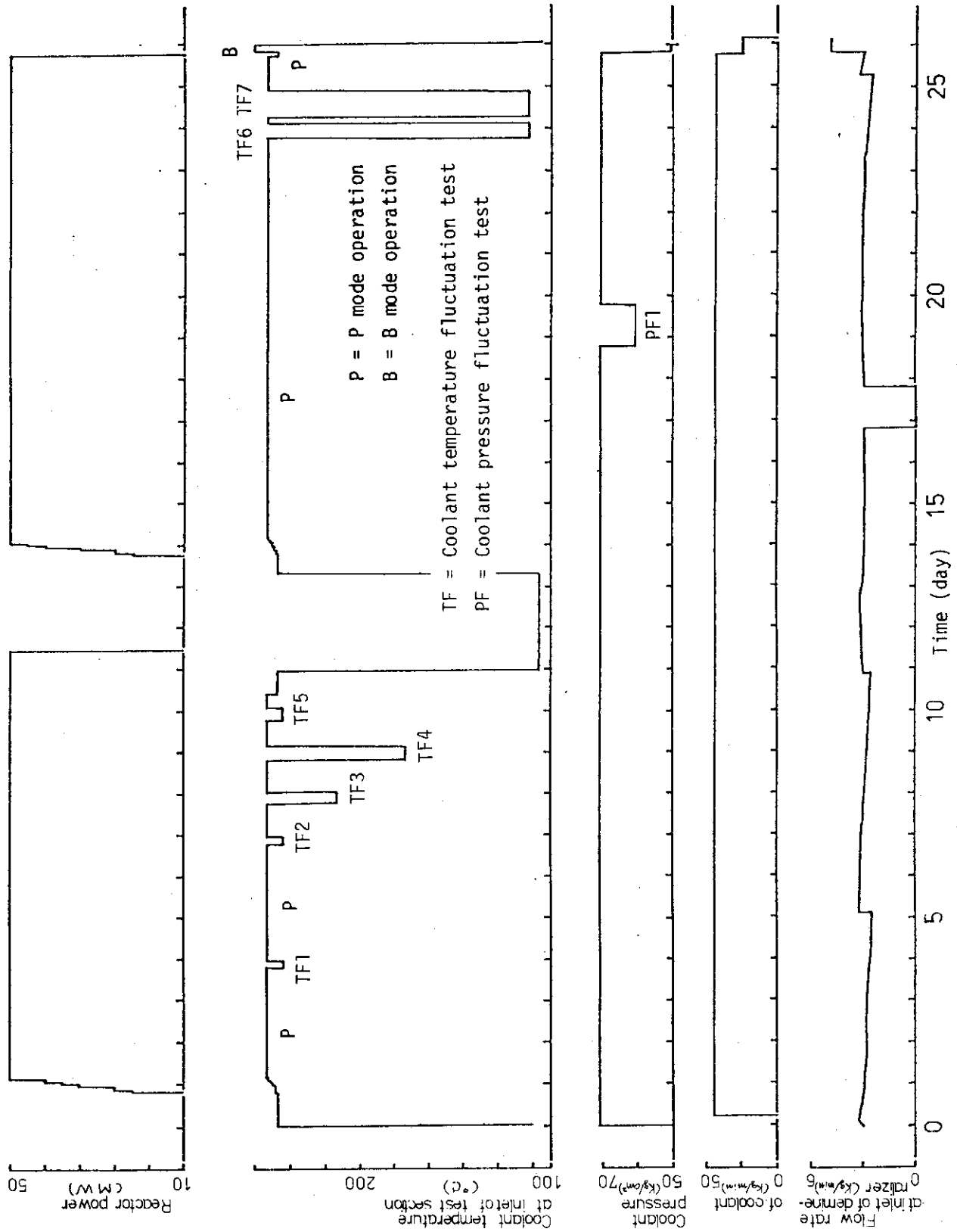


Fig.25a Additional fission product release experiment (III)

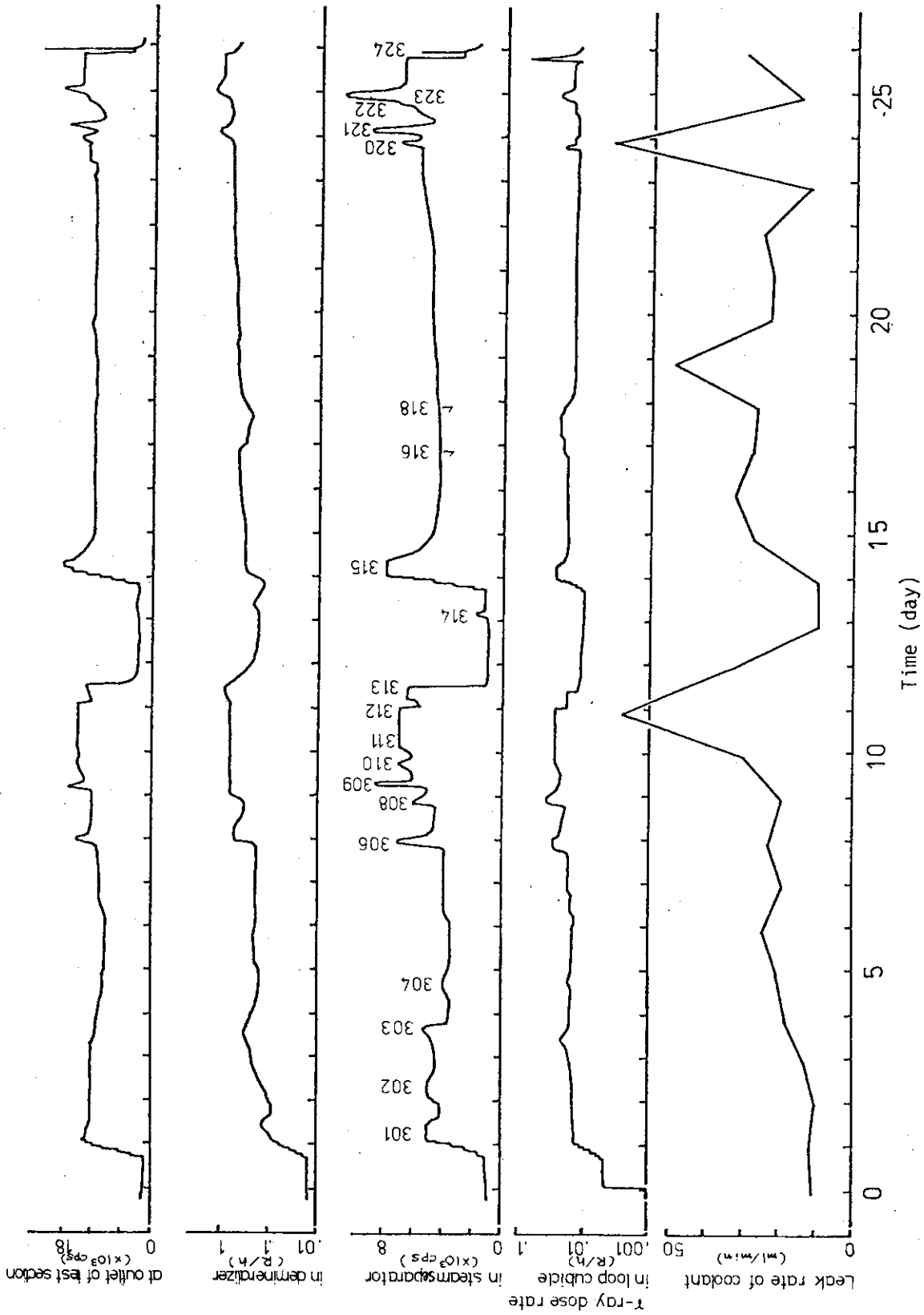


Fig.25b Additional fission product release experiment (III)

## 5. 結 論

### 5.1 解析上の問題点

F P追加放出現象解析のためには、被覆管内水や蒸気の存在するときの温度挙動をどのように評価したらよいか、水や蒸気の挙動を動的な観点からどのように評価したらよいか、水や蒸気が存在するときのペレットから被覆管内フリースペースへの放出されるF Pの化学形を考慮に入れてどのように評価したらよいかなど数多くの未解決の基礎的課題が残る。さらに、重要な項目として、統計的にみて現実に起り得る最も代表的な欠損孔とは、どのような形状のどのような大きさのものであるかという点がある。定常運転時におけるF P追加放出では、F Pがバースト的に冷却水中へ直接放出されるのではなく被覆管内フリースペースに一時的にF Pがトラップされることが必要条件の一つであるから、それほど大きな欠損孔でないことは確かである。このような未解決の問題の他に、F P追加放出実験に期待するものは何かという重要な点がある。ただ単に被覆管理上あるいは安全審査上問題となるF Pについてできるだけ多くの経験値を集収し統計的に処理をほどこせばよいというのであれば解析は容易である。しかし、実炉規模への適用についての発展性やループでは実験できない条件への考慮などをするとすれば、F Pの放出機構の解明に少なからず解析の重点を置かなければならないように思える。また、Brutschyらのデータ<sup>3)</sup>からも分るように、主としてヨウ素の場合追加放出時のF P濃度(彼らの言い方によるとIodine spiking)は、通常運転時の1桁ないし2桁場合によっては3桁も大きくなることもある。事実、4章で述べた実験I)・II)およびIII)で同時に測定されたI-131などの濃度についてもほぼ同じようなことが言える。これらのことを考え合せ、もし放出機構についても多少とも解析するとすれば、次のような事柄を重視し実験を行わなければならないであろう。(1)測定核種の選択に当たっては、3章でも述べたように放出機構解析上必要な短寿命核種を、被覆管理上あるいは安全審査上重要な核種と共に考慮に入れる。(2)測定頻度はほぼ半連続的に少なくとも30分ないし60分位ごとに行う。24時間に1回では不足の場合がある。注目する実験については、さらに頻繁に測定を行う。(3)測定試料の採取個所についても再検討する。(4)外乱後に続いて行う外乱については経過時間を十分に考慮に入れるなどである。このようにして、実験を行った後、解析上の問題として次のようなことがあげられる。(1)短寿命でかつより先行する核種から長寿命核種の挙動を予測評価することは、その逆に比べれば比較的容易であることを考慮に入れておく。(2)当面は、F P飽和到達量と最大放出率(実際の放出量/そのときのF P内部蓄積量)の評価に重点を置く。(3)(2)の後、どのような外乱(変動)があった場合に、どのような放出率となるかを評価する。できれば、数式表現可能な評価の方がよい。などである。なお、この節の冒頭でも述べたような基礎的な事柄をも含め、炉外でのサポート実験が必要と考えられる。特に、近年希ガス雰囲気あるいは蒸気雰囲気中でのペレットからフリースペースへのF P放出について、希ガスF P以外のF Pについても注目し、ANL等<sup>4), 5)</sup>で実験が開始されている。最終結果のレポートはまだであるが、F P追加放出挙動の解明のための重要なデータの一つとなるであろう。上記の実験では行なわれない水雰囲気中でのデータおよび水または蒸気の動的な状態でのデータも将来必

要となるであろう。

## 5.2 計算モデル上の問題点

3章で定性的な傾向をみいだすために用いた計算コードCODAC-ARFPでは、より詳細なモデルの作成や数式表現が現時点でむずかしい事柄について便宜的に一時的な仮定を設けて計算を行ってきた。その中で、いくつかの大きな問題点が明らかになってきた。

その一つは、ペレットから被覆管内フリースペースへのFPの放出である。封入ガス雰囲気中でのフリースペースへの希ガスFPの放出挙動については、既にロックアウトモデルによる経験式など(6), (7), (8)が知られている。また、希ガス雰囲気中では、希ガスFPとその壊変生成物(decay product)について封入ガス中に容易にみいだせるが、よう素(希ガスの先行核種)についてはロックアウトなどによる放出はそれほどでもないことが知られている。しかし、水またはその蒸気の存在する雰囲気中での放出が関係するこのFP追加放出では、よう素の放出量は上述の放出機構によるよりも多いと考えた方が多くの場合都合がよいと考えられる。現在の計算コードの検討から確定的なことは言えないが、おそらく水および蒸気雰囲気下での(特に約1000°C以下の低温)条件では、よう素は希ガスのそれに比べペレットからフリースペースへの放出割合は等しいかあるいは大きいと考えた方がよいようである。計算コードの質の向上のためには、少なくとも上記に関するデータが必要であると考えられる。FPのペレットからフリースペースへの放出に関して、現時点でもう一つの問題点がある。それは、ペレットの組織変化に伴う放出である。ここでいう組織変化とは、燃料挙動の研究でいう組織変化とは異なりかなり広義の意味であり、ペレットの割れの発生や水や蒸気によるペレット表面状態の変化などである。このことについて、いつどのようにして、どのような変化が起るかについては、他の研究テーマの範囲である。しかし、上記のような事象が発生したときに、FPのフリースペースへの放出はその発生の時点で追加の放出が起るのか・そしてその後放出はどのような状態に落ちつくのかについては炉外実験等を含め慎重に検討を加えておく必要があるように思われる。

第2には、被覆管内フリースペースの水の挙動であり、このことは、被覆管内の熱的挙動と密接な関係がある。周知のようにギャップ巾は狭く、流入した水は発生した蒸気と共にそのすき間に複雑な状態で存在していると考えられ、かつ時々刻々変化する。そして、それらがギャップ部熱伝達率を変化させ、その結果また水や蒸気の挙動が変化する。この水や蒸気の挙動が、ペレットからフリースペースへのFP放出挙動を微妙に変化させ、かつFPの被覆管内から冷却水中への放出挙動を支配する。さらに、3章でも述べたように被覆管内へ欠損孔を通して動的に流入する過剰水流の挙動を考慮に加えなければならない。これらは、静的な観点からみた場合に被覆管内から冷却水中へ放出が起りにくいと考えられるとき(例えば原子炉停止時など)の追加放出挙動のために必要な事柄である。今まで述べてきた被覆管内の水(または蒸気)の挙動について、当面その機構に至るほど詳細な計算モデルは必要としないとしても、少なくとも定性的あるいは半定量的表現のモデルが必要と考えられる。

その他にも、多くのモデルまたは式が計算コード開発上、必要である。それらは、主として5.1節で述べた解析結果とこの5.2節で述べた2つの事柄である。現時点でのモデルによって得



られる計算コード出力の要旨は、主として3章で述べた。これらの計算結果は、今のところそれほど矛盾はないようである。しかし、定量的な評価を行うためには、さらに上記のような事柄について解決して行かなければならない。なお、計算コードは上記のような現状であるから、今後の解析の結果や知見によっては多少ともコードの改定を行なわなければならないと考えている。

また、今まで述べたことは、主としてギャップ部に欠損孔のある場合であった。欠損孔の位置による（プレナム部またはギャップ部）FP放出挙動の差については、さらに詳細な検討を必要とする。

また、計算コードは、微少時間巾づつ時間を進めその時間の直前で算出された各パラメータの値を参照しつつその時間直後の各値を算出するような形式となっている。そのため、計算結果をグラフにプロットするといつもなめらかなカーブになるとは限らない。前述の微少時間巾は大きすぎても小さすぎても、計算結果をなめらかなものとしなない。しかし、定性的な検討には、ある時間巾で計算を行えば十分であると考ええる。また、実験結果の定量的な解析が進行中であるため、計算コード内のモデルあるいは数式の詳細について十分に確定できず仮定にもとづく方法や便宜的に定めた方法に従って処理しているのが現状である。炉内ループを用いて行う実験の回数は無限ではないから、可能ならば実験結果解析の進行状態に合わせて随時炉外で小規模の実験を行い、放出機構推定のために役立てることが重要と思われる。このことは、実験結果の解析のためだけでなく、計算モデル作成のためにも有効でありかつ次の炉内実験で行うべき試験の内容を決定する上にも有用である。炉内実験の回数は限られているから、前の実験結果をその都度速かに注意深く検討し最大の効率があがるよう次の炉内実験計画をたてることは、大変有意義であると考えられる。

### 5.3 破損燃料検出上の問題点

FP追加放出について、主として定性的な解析結果について述べた。現状では、冷却水中FP濃度の変化から、どこかの燃料体がどのような欠損孔を持ち、それらが何本あるかについて判断することはむずかしい。しかし、将来の可能性として今後定量的な解析が進行するに従って、欠損燃料体が存在することおよび何mmの欠損孔が何個相当であるかといった事柄については冷却水中FP濃度変化から推定できる可能性がある。

さらに、主蒸気管破断事故の場合のFP追加放出において、破断後主蒸気隔離弁によって冷却水流出が止まるまでの間に冷却水圧力は減少する。したがって、欠損燃料体が存在するとFPの追加放出が起り冷却水FP濃度は主蒸気管破断直前までのFP濃度より高くなることがあると考えられる。もちろん、事故によって燃料体がこなごなになり、FPが被覆管内に一時的にトラップされることなく直接バースト的に冷却水中へ放出される場合は、さらに冷却水中FP濃度は高くなると思われる。

最後に、5章全体のまとめとして次のようなことが言えると考ええる。それは、当面の目標として、実験のときの冷却水試料採取を半連続的にもし可能ならば半自動的にを行い化学分析を最少限にし、もし可能ならば直接 $\gamma$ 線測定を行い短寿命核種にも重点を置いて行えるように検討すること、解析の手順を検討し最大の効率があがるよう配慮すること、定量的検討やモデルの吟味がで

できるようにサポート実験を十分に行えるよう検討することである。

## 謝 辞

本稿をまとめるにあたって、数々の助言を与えてくださった安全工学部部長能沢正雄氏、および実験結果の一部を心よくご提供くださった戸根弘人氏をはじめとする大洗研究所材料試験炉部の多くの方々に深く謝意を表します。また、内容についてご意見をいただいた安全工学部燃料安全第1研究室原山泰雄氏にも深く謝意を表します。

できるようにサポート実験を十分に行えるよう検討することである。

## 謝 辞

本稿をまとめるにあたって、数々の助言を与えてくださった安全工学部部長能沢正雄氏、および実験結果の一部を心よくご提供くださった戸根弘人氏をはじめとする大洗研究所材料試験炉部の多くの方々に深く謝意を表します。また、内容についてご意見をいただいた安全工学部燃料安全第1研究室原山泰雄氏にも深く謝意を表します。

## 文 献

- 1) H. Tone et al (Div. of Japan Material Testing Reactor, Oarai, JAERI), private communications (1978)
- 2) T. Takeda, "Calculation of the Additional FPs Release through a Defect Hole on the Cladding of a Fuel Rod (code CODAC-ARFP)", JAERI-M6399 (1976)
- 3) F.J. Brutschy et al, "Behavior of Iodine in Reactor Water during Plant Shutdown and Startup", NEDO-10585 (1972)
- 4) R.G. Sacks et al, "Light-Water-Reactor Safety Research Program : Quarterly Progress Report (January-March 1977)", ANL-77-34 (1977)
- 5) A.P. Malinauskas et al, "Quarterly Progress Report on Fission Product Behavior in LWRs for the Period April-June 1977", ORNL/NUREG/TM-139 (1977)
- 6) C.E. Beyer et al, "User's Guide for GAPCON-THERMAL-2: A Computer Program for Calculating the Thermal Behavior of Oxide Fuel Rod", BNWL-1897 (1975)
- 7) C.E. Beyer et al, "Prediction of Fission Gas Release from UO<sub>2</sub> Fuel", BNWL-1875 (1974)
- 8) H. Tone et al (Div. of Japan Material Testing Reactor, Oarai, JAERI), "Experimental Results of the Additional Fission Product Release Behavior", to be published.