

JAERI-M
82-109

第1次,第2次OGL-1燃料体黒鉛スリーブ
中の,核分裂生成物の拡散放出挙動に関する
計算

— 1次元拡散方程式の数値解析 —

1982年9月

林 君夫・井川勝市

JAERI-M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。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 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。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section
Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,
Naka-gun Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1982.

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)原子力資料サービス

第1次, 第2次OGL-1燃料体黒鉛スリーブ中の
核分裂生成物の拡散放出挙動に関する計算
— 1次元拡散方程式の数値解析 —

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
林 君夫・井川勝市

(1982年8月2日受理)

第1次, 第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中の核分裂生成物の拡散放出挙動を調べるため, Fickの法則に基づいて, 計算プログラムFPDRを作成した。濃度分布の実測値と計算値を比較することによって, 第1次燃料スリーブ中の ^{90}Sr の拡散係数は, $(2\sim 5)\times 10^{-13}\text{ m}^2/\text{s}$ と評価された。同じく, 第2次燃料スリーブ中の ^{137}Cs , ^{90}Sr の拡散係数は, 各々, $\sim 1\times 10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$ またはそれ以上, 及び, $\sim 10^{-14}\text{ m}^2/\text{s}$ と評価された。2次燃料スリーブからの ^{90}Sr の放出は無視できる。 ^{137}Cs の放出量は, もし, その拡散係数が $10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$ 以上ならば, 拡散係数に対して, 直線的に増加するが, 蒸発パラメータの値には, 實際上依存しない。

A Calculation on the Diffusion and Release Behavior of
Fission Products in the First and Second OGL-1 Fuel Sleeves

Kimio HAYASHI and Katsuichi IKAWA

Division of Nuclear Fuel Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 2, 1982)

Based on the Fick's law the computer program FPDR has been developed to calculate the one-dimensional diffusion and release behavior of fission products in the graphite sleeves of the first and second OGL-1 fuel assembly. Through the comparison between the measured and calculated penetration profiles, the diffusion coefficient of ^{90}Sr in the first fuel sleeve has been estimated to be $(2\sim 5)\times 10^{-13}\text{m}^2/\text{s}$; those of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the second fuel sleeve around or larger than $1\times 10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$, and $\sim 10^{-14}\text{m}^2/\text{s}$, respectively. The release of ^{90}Sr from the second fuel sleeve is negligible; that of ^{137}Cs depends linearly on its diffusion coefficient if the coefficient is larger than $10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$, but practically does not depend on its evaporation parameter.

Keywords: Computer Program, Diffusion, Release, Fission Product
Cesium-137, Strontium-90, OGL-1 Fuel, Graphite Sleeve, Fick's Law,
Evaporation Parameter

目 次

1. はじめに	1
2. 計算コードFPDRの概要	2
3. OGL-1燃料体スリーブ中のFP分布計算	4
3.1 実験の概要	4
3.2 計算条件の設定	4
3.2.1 拡散係数, 崩壊項, 生成項	4
3.2.2 初期条件・境界条件	5
3.3 実測値と計算結果の比較	7
4. スリーブ表面からの ¹³⁷ Csの放出量の計算	9
4.1 蒸発パラメータと放出量の関係	9
4.2 拡散係数と放出量の関係	10
5. 計算コードの拡張の検討	12
6. 結 論	12
謝 辞	13
参考文献	13
記号説明	15

Contents

1. Introduction	1
2. Outline of the computer code FPDR	2
3. Calculation of the distribution of fission products in the fuel sleeve	4
3.1 Outline of the experiment	4
3.2 Decision of the calculation conditions	4
3.2.1 Diffusion coefficient	4
3.2.2 Initial and boundary conditions	5
3.3 Comparison between the measured and calculated profiles ...	7
4. Calculation of release of ^{137}Cs from the sleeve surface	9
4.1 Relation between the release and evaporation parameter	9
4.2 Relation between the release and diffusion coefficient	10
5. Discussion for the extention of the code FPDR	12
6. Conclusion	12
Acknowledgements	13
References	13
Notation	15

1. はじめに

原研では、大洗材料試験炉(JMTR)内に設置した炉内高温HeガスループOGL-1(Oarai Gas Loop-1)⁽¹⁾を用いて、高温ガス炉用燃料の実炉に近い条件での照射試験を行ってきた。Fig. 1は、OGL-1用燃料体の模式図である。被覆燃料粒子は、 UO_2 燃料核に、熱分解炭素(PyC)、熱分解炭化ケイ素(SiC)の層を4重に被覆したものであり、TRISO型と呼ばれている。燃料コンパクトは、多数の被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス中に分散させて、高温で加圧、焼成したものである。燃料棒は、これらの燃料コンパクトを、スリーブと呼ばれる黒鉛製の筒に入れて、上・下両端に、黒鉛繊維製の緩衝材を挿入し、端栓で締めつける構造となっている。

高温ガス実験炉、さらには実用炉において、核分裂生成物(FP)の燃料棒から一次冷却系への移行は、原子炉の保守、点検などの作業を困難にし、作業従事者の被曝量を増大させるだけでなく、環境の汚染にもつながる可能性をもっており、極力低く押さえるべきものである。黒鉛スリーブ中のFP分布は、一次系へのFP移行についての様々な情報を与えるものであり、FPの放出量を評価する上で重要な意味を持っている。スリーブ中のFP分布測定と合わせて、He冷却系への放出量を実験的に求めることが重要であるが、現在のところ、OGL-1には、そのような測定系は設置されていない。本報告は、簡単な拡散方程式解析コードを作成して、黒鉛スリーブ中のFP分布の測定結果と比較することにより、FPの拡散係数、及び、冷却系への放出量を評価した結果の報告である。この計算コードは、FPDR(Fission Product Diffusion and Release)と名づけられている。なおFP分布の測定結果については、別に発表されており、⁽²⁾⁽³⁾ここでは、計算コードの説明、および実験データと計算結果との比較に重点を置いて報告する。

被覆燃料粒子は、極めて高いFP保持能を有しており、粒子温度1300°C程度の通常運転条件では、被覆層が健全である限り、FP放出は実際的にゼロとみなしうる。しかし、コンパクトマトリックス中には、全ウラン量に比して、極く微量の汚染ウランが存在しており、⁽⁴⁾また、製造中及び照射中の被覆粒子破損率も健全粒子に比して 10^{-4} 程度または、それ以下の割合で存在する。⁽⁵⁾高温ガス炉燃料中のFP移行に関する計算コードとしては、このような異なったメカニズムによるFP移行過程を十分正確に記述し、それぞれの寄与を分析的に評価できるものが望ましい。

現在までに開発された主な非正常計算コードとしては、FIPER⁽⁶⁾、FECUND⁽⁷⁾などがある。

前二者は我々の研究室では使用していない。FECUNDは、被覆粒子からのFP放出については、計算が可能であるが、燃料コンパクト、黒鉛スリーブなどの体系を考えると、入力データの条件によっては、解が不安定になって求められない場合がある。本報告の場合のように、スリーブ中のFP分布が実測されたうえで、その拡散係数を算出したり、放出量を評価する目的には、FECUNDは必ずしも適していない。そこで、拡散方程式の差分を求めるといった簡単な計算コードを作成し、黒鉛スリーブ中のFP拡散挙動の記述に適用した。この計算コードは、作成途上にあり、5章に述べられているような拡張を行なう予定である。

2. 計算コードFPDRの概要

新たに作成した、FP拡散計算コードFPDRの概要を以下に述べる。ただし、種々の物性値を変えれば、このコードは、任意の拡散種と媒体から成る系に適用できる。また、拡散・放出の各過程について、かなり自由な選択が行なえるようになっている。

一様な等方性の媒質中で、FP濃度が十分に低い時（希薄合金系）、次に示すFickの第1法則が成立し、媒体の単位面積を単位時間あたり移動するFP核種の量 J （例えば $\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ ）は、拡散係数 D （ m^2/s ）を用いて、

$$J = -D \text{ grad } C \quad (1)$$

と表わされる。ただし、 $C = C(r, t)$ はFP濃度（ kg/m^3 ）を示し $\text{grad } C$ は、濃度勾配を示している。さらに、FPの生成・消滅を含めた非定常拡散を考えると、Fickの第2法則によつて、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \text{div}(D \text{ grad } C) - \lambda C + B \quad (2)$$

なる拡散方程式が成立する。ここで、 λ は崩壊定数（ $1/\text{s}$ ）、 B はFP生成速度（ $\text{kg}/\text{m}^3 \cdot \text{s}$ ）である。右辺第1項は、濃度勾配を駆動力とする拡散の項、第2項は、拡散時間中の原子核崩壊による減少、第3項は、生成を示している。

円筒座標系で、半径 r 方向だけの拡散を考えると式(2)は、

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} &= r \frac{\partial}{\partial r} \left(r D \frac{\partial C}{\partial r} \right) - \lambda C + B \\ &= D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial D}{\partial r} \frac{\partial C}{\partial r} - \lambda C + B \end{aligned} \quad (3)$$

と表わすことができる。拡散係数 D が位置によらず一定のとき $\partial D/\partial r = 0$ となり、(3)式の最後から3番目の項は省略され、(3)式は簡単になる。拡散係数の媒質中の位置に対する依存性については、3.2.1に記述する。また、後に示すように、FP生成速度 B についても、黒鉛スリーブ中では考慮する必要がないので無視しており、これについても、3.2に記述する。

この時、(3)式は、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) - \lambda C \quad (4)$$

となる。この式を以下に示す方法により差分化した（Fig. 2 参照）。

$$\begin{aligned} C(r, t) &= C_{m,k} \\ r &= a + (m-1)h \\ t &= k \Delta t \end{aligned}$$

$$\frac{1}{\Delta t} (C_{m, k-1} - C_{m, k}) = \frac{D}{h^2} (C_{m+1, k} - 2C_{m, k} + C_{m-1, k}) + \frac{D}{a + (m-1)h} \frac{C_{m+1, k} - C_{m-1, k}}{2h} - \lambda C_{m, k}$$

ここで、 a は、中空円筒の内半径 (inner radius)、 h 、 Δt は、各々、半径方向及び時間方向の刻みである。

$$\therefore C_{m, k+1} = R'' \left\{ \left(1 + \frac{1}{(a/h) + m - 1} \right) C_{m+1, k} + \left(1 - \frac{1}{(a/h) + m - 1} \right) C_{m-1, k} \right\} + (1 - 2R') C_{m, k} \quad (5)$$

$$R'' = D\Delta t / h^2$$

$$R' = R'' + \lambda \Delta t / 2$$

実際のプログラムでは、試行用の拡散係数 D の値に対して、 $R' \leq 0.2$ となるように、時間の刻みをかえて計算した。

差分による計算の誤差をみるため、次のような予備計算を行なった。 x 軸方向の一次元半無限体媒質中の拡散方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (6)$$

で表わされ、その差分形式は、

$$C_{m, k+1} = R'' (C_{m+1, k} + C_{m-1, k}) + (1 - 2R'') C_{m, k} \quad (7)$$

となる。一方、境界条件として、 $C(0, t) = C_0$ (一定)とした時の解析解は、よく知られているように、

$$C(x, t) = C_0 \cdot \operatorname{erfc}\{x / (Dt)^{1/2}\} \quad (8)$$

となる。ここで、 $\operatorname{erfc}(y)$ は補誤差関数 (error function compliment) であり

$$\operatorname{erfc}(y) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^y \exp(-z^2) dz$$

と定義される。(7)式から求めた差分解は、解析解(8)と99.9%の精度で一致することが確かめられた。

Fig. 3に、この計算コードの概略フローチャートを示す。全体的には、濃度分布の測定データ、試行用の拡散係数の数値を入力して、最も良くフィットする拡散係数の値を求める構造となっている。しかし、実測データに関係なく、試行用の拡散係数の値から、濃度プロファイルのみを計算することもできる。Fig. 4は、初期データ入力用サブルーチンのフローチャートを示している。計算コードの拡張に備えて、媒質の温度、熱中性子束などの空間分布を入力することもできるようにしている。Fig. 5は、差分解計算のフローチャートを示している。差分計算が発散しない条件として $R' \leq 0.5$ が必要である。比較的精度よく計算できて、かつ計算時間が短くなる条件として、 $R' \leq 0.2$ となるように、時間ステップをそろえている。

3. OGL-1 燃料体スリーブ中のFP分布計算

3.1 実験の概要

ここで、計算の説明に必要な範囲で実験の概要をまず述べておく。Fig. 6は、2次OGL-1燃料体の燃料コンパクト、黒鉛スリーブ、黒鉛ブロックについて、照射中の温度分布の推定値を示している。黒鉛スリーブの温度は、最高1200°C程度である。

黒鉛スリーブの厚さ方向のFP分布は、中空円筒形のスリーブを旋盤で少しずつ削り、その粉を集めて、ガンマ線スペクトル分析を行ない、さらにイオン交換分離法により、 ^{90}Sr の分布を求めたものである。Fig. 7はFP分布の測定方法を模式的に示したものである。実験的に黒鉛スリーブ中の濃度プロファイルが求められた核種は、 ^{134}Cs (半減期2.05 Y)、 ^{137}Cs (3.0 Y)、 ^{90}Sr (27.7 Y)の長半減期核種である。

3.2 計算条件の設定

黒鉛スリーブの厚さ方向へのFP拡散について、前述の計算コードを使用して、FPの拡散係数を求める計算を行なった際の条件の設定の仕方をFig. 8に要約してある。

3.2.1 拡散係数、崩壊項、生成項

まず、スリーブ厚さ方向については、拡散係数の値は一定と考えても良いことを示す。拡散係数の温度依存性については、通常、

$$D = D_0 \cdot \exp(-E/RT) \quad (9)$$

なるアレニウス型の表現が用いられる。ここで、 D_0 は定数 (m^2/s)、 E は活性化エネルギー (J/mol)、 R は気体定数 ($8.32 \text{ J/mol}\cdot\text{K}$)、 $T(r)$ は媒質(黒鉛)の各点での温度である。

一方、スリーブの厚さは、1次、2次燃料体とも2.9 mmと薄く、また黒鉛の熱伝導率が大きいため、スリーブ内面と外面の温度差は、10~20°C程度にしかすぎないことが計算により評価されている。従って、一次近似として、スリーブ厚さ方向には温度が一定であるとして良い。

さらに、黒鉛中のFPの拡散に関して、拡散係数のFP濃度依存性が知られている。1000°Cの黒鉛中で、安定同位体を含む全Sr濃度が62 mg/kg以下では、 ^{85}Sr の拡散係数は $2 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度の一定値であるが、全Sr濃度 C がこの値をこえて増加すると、拡散係数も $C^{3.15}$ に比例して増大することが報告されている⁽⁸⁾。2次燃料スリーブ中の ^{90}Sr の拡散の場合、精製黒鉛を用いているため、例えば、 ^{90}Sr のキャリアの関係にあるSrの濃度は十分低く、スリーブの厚さの範囲では、一定濃度とみなしてよいであろう。さらに ^{90}Sr 自体も濃度としては、極微量であることから、 ^{90}Sr の拡散係数は濃度によらず一定値をもつと考えて良い。

以上、温度依存性、及び濃度依存性の両方の点から考えて、拡散係数は一定とみなして良い。次に、拡散中の原子核崩壊の項について考えよう。FP核種の半減期が、照射時間に比べて十

分長い時、崩壊の効果は無視できる ($\lambda \approx 0$)。ちなみに、照射サイクルの間の待ち時間、及び照射後の冷却期間は、半減期に比して無視できないこともありうるが、これは、拡散を伴わない単純な崩壊であるので別に計算すれば良い。

更に、媒質中のFP生成項について考えるが、スリーブ中では、FPの生成はないとしてよい。というのは、スリーブ中における汚染ウランや不純物ウランの存在については、実際的には考える必要がなく、スリーブ中でのFPの生成は、燃料コンパクトからのFP流入に比べて完全に無視できるからである。このことは、Fig. 8の実測のFP濃度分布をみても、拡散しにくい核種である ^{106}Ru 、 ^{144}Ce がスリーブ内部では全く検出されていないことによって確かめられる。なお、厳密に言えば、燃料コンパクト表面近傍にあった汚染ウランの核分裂反跳を通じて、スリーブ内表面近傍に入射するFP核種があり、スリーブ中での生成と考えることもできる。しかし反跳粒子の飛程は、数十マイクロン以下であるので、スリーブ中のミリメートルの桁での拡散を考える立場からは、反跳粒子の入射は、スリーブ内表面での吸着と共に、境界条件によって処理できる。

以上のような条件を設定すると、今考えている拡散方程式は

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} &= D \left(\frac{\partial C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) \\ D &= \text{一定} \end{aligned} \right\} (10)$$

という簡単な拡散方程式になる。

3.2.2 初期条件、境界条件

初期条件としては、照射開始時に、スリーブ内には、FP核種が存在しないとして、

$$C(r, 0) = 0 \quad (11-a)$$

とおくことが現実的である。ただし、計算コードとしては、初期条件として、任意のFP濃度分布を

$$C(r, 0) = f(r) \quad (11-b)$$

なる形で入力できるようにした。

問題は境界条件の設定の仕方である。まず、スリーブ内表面側における現象は、次のような項目に分けて考えることができる。

- ① 燃料コンパクトのマトリックス中では、健全な被覆粒子の被覆層を通過したFP核種、破損被覆粒子から逃げ出したFP核種、及び、最外被覆層やマトリックス中の汚染ウランから生じたFP核種が共に存在する。これらのFP核種が、マトリックス中の拡散を経て、コンパクトの外表面から蒸発し、スリーブ内表面に吸着するのが、スリーブ内表面におけるFP流入の1つのプロセスである。
 - ② マトリックス中の汚染ウランのうち、コンパクトの外表面に極めて近い位置にあるものは、核分裂反跳によってFPを直接スリーブ内表面に打ちこむ。このことは3.2.1でも述べた。
- 上の①、②の現象は複雑であり、各寄与に対へてモデルを作成したり、仮説的な数値を設定するには、現在のところ情報が不足している。

そこで、第1近似として、スリーブ内表面 ($r = a$) でのFP濃度が、照射開始直後から常に

一定に保たれる

$$C(a, t) = C_0 \quad (\text{一定}) \quad (12-a)$$

か、または、照射時間(t)に比例して増加する

$$C(a, t) = k t \quad (12-b)$$

場合を考えた。ここで、 C_0 は照射後試験における実測のFP濃度の値とし、定数kは、照射終了時($t = t_{\text{irrad}}$)における濃度 $k \cdot t_{\text{irrad}}$ が、 C_0 と等しくなるとして、実測データとの対応をつけた。

上の②の反跳のプロセスによるFPのスリーブへの流入量は、熱中性子のフルエンスに比例する。すなわち、時間に比例すると考えるのが妥当である。①のプロセスについて考えると、FPの生成自体は時間に比例するが、マトリックス内での拡散による時間遅れを伴ってスリーブ内面に到達することが、定性的には予想される。

一方、スリーブ外表面($r = b$)における境界条件は、

$$C(b, t) = 0 \quad (\text{完全蒸発}) \quad (13-a)$$

$$\frac{\partial C}{\partial r} = 0 \quad (\text{完全蓄積}) \quad (13-b)$$

$$-D \frac{\partial C}{\partial r} = \alpha (C(b, t) - C_{e,q}) \quad (13-c)$$

のいずれかを選択できるようにした。⁽⁹⁾(13-a)は、スリーブの内側から拡散してきたFPが外表面に到達すると直ちに蒸発する場合に対応し、(13-b)は逆に、スリーブ外表面での蒸発がなく、全てスリーブ内に蓄積される場合に対応している。(13-c)において、Dは拡散係数、 α は定数(ここでは蒸発パラメータと呼ぶ、単位はm/s)で、FP元素と媒体に依存する物性値である。 $C_{e,q}$ は気相中のFP濃度と平衡になるようなスリーブ中のFP濃度であるが、燃料スリーブ付近の冷却系では、FP濃度が十分低くなると考えて $C_{e,q} = 0$ とした。この時、 $\alpha = 0$ (完全蓄積)とすると、(13-c)は(13-b)と一致し、逆に $\alpha \rightarrow \infty$ (完全蒸発)とすると、(13-a)に一致することは式の上からも明らかである。

なお、(13-c)式は、無次元の蒸発パラメータ、 α' を用いることにより、次のようにも表現できる。⁽¹⁰⁾

$$\frac{\partial C}{\partial r} = -\frac{1}{\alpha' b} \left\{ C(b, t) - C_{e,q} \right\} \quad (14-a)$$

$$\alpha' = \frac{D}{b} \cdot \frac{1}{\alpha}$$

この式で、 α' と α とは逆数的な関係であることに注意を要する。また、

$$\frac{\partial C}{\partial r} = -V \left\{ C(b, t) - C_{e,q} \right\} \quad (14-b)$$

$$V = \frac{\alpha}{D}$$

なるVを蒸発定数と呼ぶこともある。⁽¹¹⁾いずれの表現も本質的には、同じ物理的意味を持っている。

スリーブ外表面境界条件の差分表現は次のようになる。

$$\begin{aligned} m_{\max} &= (b-a)h \\ C_{m_{\max},k} &= 0 \end{aligned} \quad (13-a)'$$

$$\left. \begin{aligned} \frac{C_{m_{\max},k} - C_{m_{\max-1},k}}{h} &= 0 \\ \therefore C_{m_{\max},k} &= C_{m_{\max-1},k} \end{aligned} \right\} (13-b)'$$

$$\left. \begin{aligned} -D \cdot \frac{C_{m_{\max},k} - C_{m_{\max-1},k}}{h} &= \alpha \cdot C_{m_{\max},k} \\ \therefore C_{m_{\max},k} &= \frac{1}{(1 + \alpha h/D)} C_{m_{\max-1},k} \end{aligned} \right\} (13-c)'$$

(13-c)' 式において、 α をパラメータとして、 D/h のまわりに数値ふるせることによって、 $\alpha \rightarrow 0$ から $\alpha \rightarrow \infty$ までの範囲における α の変化に伴う、スリーブ外表面から冷却系へのFP放出量の変化を見た。その結果は4.1節に述べられている。

3.3 実測値と計算結果の比較

まず、計算結果の例として、照射時間(拡散時間)の増加に伴う濃度プロファイルの変化を示す。Fig. 9 a-dはいずれも、拡散係数 $D = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ と固定した時の照射時間に伴う濃度プロファイルの変化を、スリーブ内表面、外表面における境界条件の各々の場合について示したものである。図の縦軸には、全照射時間後の内表面濃度 $C(a, t_{\text{irrad}})$ で規格化した濃度 $C(r, t)$ の値をとっている。

外表面上が完全蒸発条件の場合(Fig. 9 a, 9 c)には、しだいに直線的な濃度プロファイルに近づくが、完全蓄積条件の場合(Fig. 9 b, 9 d)には、全深さにわたって、濃度が増加し、一様な濃度に近づいていくことが示されている。

次に、濃度プロファイルの実測値と、計算値の比較からFP核種の拡散係数を評価する。

Fig. 10は、2次OGL-1燃料スリーブの上端から600-610mmの位置における、 ^{137}Cs の半径方向分布の実測データと計算結果の比較を示している。①, ②は、各々、外表面での境界条件を完全蒸発($C_b = 0$)、及び完全蓄積($\partial C/\partial r = 0$)とおいた時の計算結果である。いずれの場合についても、実測値に適合する拡散係数の値は $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度である。一方、③は、この ^{137}Cs の濃度プロファイルが定常拡散状態にすでに達しており、内外表面で、異なる一定値になっていると仮定して、最小2乗法により実測データから求めた、直線状の濃度分布を示している。この場合にも、拡散係数として、 $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度の値が得られており、 ^{137}Cs の濃度分布は、すでに定常状態に達しているか、もしくは、それに近い状態にあることがわかる。もし、定常状態に達しているとすれば、拡散係数の値は、この値より大きいことになる。

次に、外表面側での境界条件について考えると、完全蓄積条件より、完全蒸発条件により近いことがわかる。このことは、スリーブ内部での拡散速度に比べて、外表面における蒸発速度が十分に速く、この蒸発過程は、Cs放出の律速過程ではないことを示唆している。

Csの黒鉛中の拡散に関する多くの研究によると、⁽¹²⁾表面拡散、粒内拡散、気孔内気相拡散など、いくつかの拡散プロセスが共存しているため、Fickの法則に従わないことが知られている。ここでは、拡散機構には立ち入らないが、本研究の実測結果は、上で比較したように、見かけ上、Fickの法則によって記述できた。これについては、見かけ上、1つの拡散プロセスが、実験的に検出されたことも考えられる。

Table 1は、上と同様な計算によって得られた各核種についての拡散係数の値をまとめたものである。上の¹³⁷Csと同じ位置における、¹³⁴Csの拡散係数についても、 10^{-12} m²/s程度 の値が得られた。Csについては、スリーブ外表面から一次系への放出が無視できないことが、濃度分布から理解される。この放出量の評価の計算は、次の章で行なう。

次に、1次燃料スリーブ中の⁹⁰Srの濃度プロファイルについて、同様の計算を行なった結果を Fig. 11に示す。軸方向の中央付近における⁹⁰Srの拡散係数は、 5×10^{-13} m²/s程度である。Table 1にまとめられているように、スリーブ長さ方向の位置や、境界条件の選択にあまり依存せず、 $(2 \sim 5) \times 10^{-13}$ m²/s程度の拡散係数が得られている。

一方、Fig. 12 a, 12 bは、2次燃料スリーブ中の、各々、長さ方向400-410, 600-610 mmの位置における⁹⁰Srの分布を示している。実測値に適合する拡散係数の値は、いずれも、 10^{-14} m²/sの桁であり、1次燃料スリーブの場合に比較して、1桁以上小さい値となっている。また、内表面から、スリーブ内部に向うにつれて、濃度が急激に低くなっており、バックグラウンド近くまで達している。すなわち、⁹⁰Srはスリーブによって、He冷却系への放出がほぼ完全に阻止されていることがわかる。

2次燃料スリーブ中に比べて、1次燃料スリーブ中で⁹⁰Srの拡散係数が1桁以上高くなっている理由について、断定はできないが、黒鉛中の不純物Sr濃度が高いことによる拡散係数の増加が考えられる。第2次以後のOGL-1燃料体では、精製黒鉛素材を使用しているため、⁹⁰Srの拡散挙動も、2次燃料スリーブの場合と同様な挙動が期待される。

4. スリーブ表面からの ^{137}Cs の放出量の計算

3章では、スリーブ中のFP濃度プロファイルの実測値と計算結果を合わせることにより、FPの拡散係数を求めた。測定されたFP核種のうち、 ^{90}Sr のスリーブ外表面からの放出は皆無であるが、 ^{137}Cs は大きな拡散係数を持っており、放出がおこっていることは確実である。そこで、この章では、 ^{137}Cs の放出量を評価するため、前章までに述べてきた計算コードを用いて、更に次のような計算を行なった。

前章、3.2.2の境界条件(13-c)を用いると、スリーブ外表面における単位面積あたりのFP放出速度($\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$)は、

$$\frac{dM_1}{dt} = -D \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_b = \alpha \left\{ C(b, t) - C_{eq} \right\} \quad (15)$$

と表わされる。⁽⁹⁾ $M_1(t)$ は、照射開始時刻から、時刻 t までの単位面積あたりの放出量(kg/m^2)であり、前述のように $C_{eq} = 0$ と仮定する。全照射時間 $T(\text{s})$ 間に、スリーブ単位長さあたり、周方向表面から放出されるFPの量は、スリーブ外径を r_{out} として、

$$\begin{aligned} M &= 2\pi r_{out} \int_0^T \frac{dM_1}{dt} dt \\ &= 2\pi r_{out} \int_0^T \alpha \cdot C(b, t) dt \quad (\text{kg}/\text{m}) \end{aligned} \quad (16)$$

となる。

4.1 蒸発パラメータと放出量の関係

Fig. 13は、拡散係数 D を $10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$ に固定して、蒸気パラメータ α の変化に伴う ^{137}Cs の全照射時間中の放出量を示している。放出量は、スリーブの長さ方向の各位置における単位長さあたりの ^{137}Cs の放射能(Bq/m)に換算されている。半径方向の刻み h に対して、 $\alpha < D/h$ の時には、 α の増加につれて、放出量も増加するが、 $\alpha \geq D/h$ となると、 α の増加に対して、放出量は一定値に近づき完全蒸発条件($\alpha \rightarrow \infty$)における放出量に等しくなることがわかる。

文献(10)によると、球形マトリックス黒鉛からの ^{137}Cs の放出実験では、無次元蒸発パラメータ α' の値として、1279.5 Kで0.05、1382 Kで0.1という値が得られている。Fig.13の横軸には、 α' の値も記されているが、 $\alpha' = 0.05 \sim 0.1$ の範囲では放出量は、完全蒸発条件における値に近く、 α の増加に伴う放出量の変化は少ない。本実験においても、 α' の値が文献(10)の値と同程度であると仮定すると、 ^{137}Cs の放出量の評価の際には、完全放出条件を設定することが妥当であり、同時に、放出量の最大値を押さえるという意味で安全側の設定を行なうことになる。

4.2 拡散係数と放出量の関係

次に、拡散係数の値の変化に伴う ^{137}Cs の放出量の変化を見るため、次のような計算を行なった。

非定常状態におけるFP放出量は、式(16)から得られる。4.1に述べたように、放出量の上限を評価するため、完全蒸発条件 ($\alpha \rightarrow \infty$) における放出量を計算した。ただし、 $\alpha \rightarrow \infty$, $C(b, t) = 0$ とすると、放出量Mの値は不定となるので、 $\alpha \gg D/h$ なる条件における値で代用した。

試行用拡散係数の値が小さい時には、差分繰り返し数も少ない為、全照射時間にわたって差分計算を行なっても計算時間は短かくてすむ。

拡散係数の値が大きい時には、以下に示すような、計算の簡略化を行なった。Fig. 9cに概に示したように、スリーブ内表面では時間に比例して濃度が増加し、外表面では、完全蒸発する場合を考える。拡散係数の値が $10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ とかなり大きい時には、十分な時間が経過すると、濃度プロファイルは直線状となり、さらに時間が経過するに従って勾配が大きくなってゆくことがわかる。

スリーブ内面 ($r = a$), 外面 ($r = b$) での濃度は、

$$C(a, t) = kt$$

$$C(b, t) = 0$$

であり、直線的濃度分布は、

$$C(r, t) = kt(1 - r/b) \quad (17)$$

で表わされる。直線的濃度プロファイル到達以後の単位面積あたり、単位時間あたりのスリーブ外面からの放出量は

$$\frac{dM_1}{dt} = -D \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_b = D \cdot kt/b$$

である。全照射時間Tにわたる、単位スリーブ長さあたりの、周表面からの放出量Mは、

$$M = 2\pi r_{out} \left\{ \int_0^{T_1} \alpha \cdot C(b, t) dt + \int_{T_1}^T D \cdot kt/b dt \right\}$$

$$= 2\pi r_{out} \left\{ \int_0^{T_1} \alpha \cdot C(b, t) dt + \frac{Dk}{2b} (T^2 - T_1^2) \right\} \quad (18)$$

となる。ここで、 T_1 は、直線状プロファイルに達するまでの時間であり、仮に非定常時間と呼ぶことにする。非定常時間の決め方は、濃度プロファイルが十分直線状になっていれば任意である。

次に、3.3節の結果に見られるように、 ^{137}Cs は、 $D = 10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ のとき、全照射時間の間に十分直線的な濃度分布に達することを利用する。Dの値が例えば2倍になると、非定常時間は、全照射時間の1/2になることは当然である。この関係を用いて、拡散係数が数桁にわたって変化する時の放出量の変化をFig. 14に示す。

図のように、放出量は、拡散係数Dの増加に伴って増加する。特に、 $D > 10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ の時、放出量は拡散係数に対して一次関数的に増加し、粗い評価としては、拡散係数にほぼ比例して増加すると考えることができる。

また、スリーブ全表面からの放出量を以下のようにして求め、同じく Fig. 14 中に破線によって示した。全放出量は、当然、長さ方向の各点における単位長さあたりの放出量を長さ方向に積分することによって得られる。スリーブ中に存在する F P 量の長さ方向分布は実験的に得られているので、この相対分布を、F P 放出量の相対分布に置きかえた。この仮定は、スリーブの長さ方向の温度分布を考えれば、放出量を過大評価するものであり、それゆえ、安全側の評価であると言える。図のように、拡散係数 D が $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ の時、全放出量は 10^3 Bq ($\sim 50 \mu\text{Ci}$) 程度にすぎず、 $D = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ と仮定しても全放出量は 10^6 Bq (40 mCi) 程度にとどまっている。

以上、4.1, 4.2 を通じて、スリーブ外表面からの放出量を考える際、蒸発パラメータより、むしろ、スリーブ中の拡散係数が問題であることがわかった。

5. 計算コードの拡張の検討

前章までの計算はスリーブ中のFPの半径方向の分布に限られていたため、一次元非定常拡散方程式の適用が可能であった。この章では、被覆燃料粒子、コンパクトマトリックス、黒鉛スリーブ、黒鉛ブロックから成る体系を考え、この体系におけるFP挙動を記述できるように計算コードを拡張する際に必要な検討事項を以下に簡単に示す。

- ① 基本的な体系として、半径方向(r)、軸方向(z)の二軸からなる円筒座標系を考える。拡散係数の大きい核種(希ガス、ヨウ素、Csなど)については、半径方向だけでなく、軸方向への拡散についても記述できるようにする。
- ② 固体媒質中において、濃度勾配に起因する通常の拡散だけでなく、温度勾配に起因する熱拡散の寄与もとり入れる。
- ③ 各固体媒質と気相との界面、および気相中のFP挙動を主な核種の特殊性も含めて記述する。
- ④ 健全な被覆燃料粒子からの放出挙動を記述すると共に、破損燃料粒子についても、破損のモードに応じた現実的なモデルを設定する。コンパクトマトリックス中の汚染ウランからのFP生成と拡散挙動を、被覆粒子によるFP生成・拡散挙動とは独立に記述する。特に、コンパクト外表面から、スリーブ内表面への核分裂反跳によるFPの入射を記述する。
- ⑤ FPの固体媒質中の拡散係数について、温度依存性だけでなく、濃度依存性もとり入れる。更に、照射量など、拡散係数に影響を与える因子の効果を検討する。

以上のような検討を行なうにあたっては、実測のデータとの対応を絶えず考え、拡散係数などの物性データの確度を増すと同時に、実測結果に対する各因子の効果の大きさを把握する必要があると考えている。

6. 結 論

一次元拡散方程式の差分計算プログラムFPDRを新たに作成して、第1次、第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の分布を計算し、実測結果との比較から、拡散係数、及びスリーブ外への放出量を評価した。

- (1) 燃料コンパクト内でのFP生成、拡散挙動の複雑さを避ける為、スリーブ内部における半径方向の一次元拡散に問題を限定した。スリーブ内表面へのFPの流入、外表面からのFPの放出は、簡単な境界条件によって記述した。
- (2) 1次燃料スリーブ中の ^{90}Sr の拡散係数は $(2 \sim 5) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 、2次燃料スリーブ中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の拡散係数は各々、 $\sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、またはそれ以上、及び、 $10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度と評価された。
- (3) 2次燃料スリーブの外表面からの放出は、 ^{90}Sr では皆無であるが、 ^{137}Cs の場合には無

5. 計算コードの拡張の検討

前章までの計算はスリーブ中のF Pの半径方向の分布に限られていたため、一次元非定常拡散方程式の適用が可能であった。この章では、被覆燃料粒子、コンパクトマトリックス、黒鉛スリーブ、黒鉛ブロックから成る体系を考え、この体系におけるF P挙動を記述できるように計算コードを拡張する際に必要な検討事項を以下に簡単に示す。

- ① 基本的な体系として、半径方向(r)、軸方向(z)の二軸からなる円筒座標系を考える。拡散係数の大きい核種(希ガス、ヨウ素、Csなど)については、半径方向だけでなく、軸方向への拡散についても記述できるようにする。
- ② 固体媒質中において、濃度勾配に起因する通常の拡散だけでなく、温度勾配に起因する熱拡散の寄与もとり入れる。
- ③ 各固体媒質と気相との界面、および気相中のF P挙動を主な核種の特殊性も含めて記述する。
- ④ 健全な被覆燃料粒子からの放出挙動を記述すると共に、破損燃料粒子についても、破損のモードに応じた現実的なモデルを設定する。コンパクトマトリックス中の汚染ウランからのF P生成と拡散挙動を、被覆粒子によるF P生成・拡散挙動とは独立に記述する。特に、コンパクト外表面から、スリーブ内表面への核分裂反跳によるF Pの入射を記述する。
- ⑤ F Pの固体媒質中の拡散係数について、温度依存性だけでなく、濃度依存性もとり入れる。更に、照射量など、拡散係数に影響を与える因子の効果を検討する。

以上のような検討を行なうにあたっては、実測のデータとの対応を絶えず考え、拡散係数などの物性データの確度を増すと同時に、実測結果に対する各因子の効果の大きさを把握する必要があると考えている。

6. 結 論

一次元拡散方程式の差分計算プログラムFPDRを新たに作成して、第1次、第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の分布を計算し、実測結果との比較から、拡散係数、及びスリーブ外への放出量を評価した。

- (1) 燃料コンパクト内でのF P生成、拡散挙動の複雑さを避ける為、スリーブ内部における半径方向の一次元拡散に問題を限定した。スリーブ内表面へのF Pの流入、外表面からのF Pの放出は、簡単な境界条件によって記述した。
- (2) 1次燃料スリーブ中の ^{90}Sr の拡散係数は $(2 \sim 5) \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 、2次燃料スリーブ中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の拡散係数は各々、 $\sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、またはそれ以上、及び、 $10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度と評価された。
- (3) 2次燃料スリーブの外表面からの放出は、 ^{90}Sr では皆無であるが、 ^{137}Cs の場合には無

視できない。 ^{137}Cs の放出に対して、蒸発パラメータの値は、実際上大きな影響を与えない。拡散係数が $10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$ より大きい時放出量は、拡散係数にほぼ比例して増加する。

- (4) FP分布の実測データと、計算結果との比較から、FP核種の反跳、拡散、吸・脱着の過程が検討された。そして、 ^{137}Cs の冷却系への放出については、黒鉛スリーブ中の拡散が律速過程であることが推量された。

更に、燃料体全体にわたるFP挙動を記述するための計算コードの拡張が検討された。なおこの計算プログラム自体は、物性値を変えさえすれば、FP核種に限定されず、Fickの法則に従う任意の拡散種と固体媒体に適用できる。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、計算機使用法、及び解析モデルの検討について有益な助言を賜った、福田幸朔副主任研究員、菊池輝男氏、及び、燃料照射研究室の諸兄に感謝します。本報告をまとめるにあたり、御助言と御激励を賜った、燃料工學部長下川純一博士、並びに、特別研究員佐々木泰一博士に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) 松永朔郎, 他: “高温ヘリウムインパイルガスループ(OGL-1)の建設と性能試験”, 日本原子力学会誌 21 (1973) 245.
- (2) 林 君夫, 他: “第1次, 第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中のFP分布”, 日本原子力学会, 昭和57年年会, H21.
- (3) K. Hayashi et al., “Distribution of Fission and Activation Products in the Graphite Sleeves of HTGR Fuel Rods: First and Second OGL-1 Fuels”, to be submitted to J. Nucl. Mater.
- (4) 湊 和生, 飛田 勉, 福田幸朔, 井川勝市: JAERI-M 9339.
- (5) K. Fukuda, K. Minato, K. Ikawa, T. Itoh and H. Matsushima, “Detection of Failed Coated Particles in HTGR Fuels by Acid Leaching”, J. Nucl. Sci. Technol. 18 (1981) 887.
- (6) R. Forutanpour and B. Roos, GA-9904 (1969).
- (7) 牧野正彦, 安川 茂, JAERI-M 4883.
- (8) F. J. Sandalls and Mrs. M. R. Walford, “Laboratory Determinations of Strontium Diffusion Coefficient in Graphite”, J. Nucl. Mater. 62 (1976) 265.
- (9) J. Crank, The Mathematics of Diffusion (Clarendon Press, Oxford, 1975), p. 35, p. 73.

視できない。 ^{137}Cs の放出に対して、蒸発パラメータの値は、實際上大きな影響を与えない。拡散係数が $10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$ より大きい時放出量は、拡散係数にはほぼ比例して増加する。

- (4) FP分布の実測データと、計算結果との比較から、FP核種の反跳、拡散、吸・脱着の過程が検討された。そして、 ^{137}Cs の冷却系への放出については、黒鉛スリーブ中の拡散が律速過程であることが推量された。

更に、燃料体全体にわたるFP挙動を記述するための計算コードの拡張が検討された。なおこの計算プログラム自体は、物性値を変えさえすれば、FP核種に限定されず、Fickの法則に従う任意の拡散種と固体媒体に適用できる。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、計算機使用法、及び解析モデルの検討について有益な助言を賜った、福田幸朔副主任研究員、菊池輝男氏、及び、燃料照射研究室の諸兄に感謝します。本報告をまとめるにあたり、御助言と御激励を賜った、燃料工學部長下川純一博士、並びに、特別研究員佐々木泰一博士に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) 松永朔郎, 他: "高温ヘリウムインパイルガスループ(OGL-1)の建設と性能試験", 日本原子力学会誌 21 (1973) 245.
- (2) 林 君夫, 他: "第1次, 第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中のFP分布", 日本原子力学会, 昭和57年年会, H21.
- (3) K. Hayashi et al., "Distribution of Fission and Activation Products in the Graphite Sleeves of HTGR Fuel Rods: First and Second OGL-1 Fuels", to be submitted to J. Nucl. Mater.
- (4) 湊 和生, 飛田 勉, 福田幸朔, 井川勝市: JAERI-M 9339.
- (5) K. Fukuda, K. Minato, K. Ikawa, T. Itoh and H. Matsushima, "Detection of Failed Coated Particles in HTGR Fuels by Acid Leaching", J. Nucl. Sci. Technol. 18 (1981) 887.
- (6) R. Forutanpour and B. Roos, GA-9904 (1969).
- (7) 牧野正彦, 安川 茂, JAERI-M 4883.
- (8) F. J. Sandalls and Mrs. M. R. Walford, "Laboratory Determinations of Strontium Diffusion Coefficient in Graphite", J. Nucl. Mater. 62 (1976) 265.
- (9) J. Crank, The Mathematics of Diffusion (Clarendon Press, Oxford, 1975), p. 35, p. 73.

視できない。 ^{137}Cs の放出に対して、蒸発パラメータの値は、實際上大きな影響を与えない。拡散係数が $10^{-12}\text{ m}^2/\text{s}$ より大きい時放出量は、拡散係数にはほぼ比例して増加する。

- (4) FP分布の実測データと、計算結果との比較から、FP核種の反跳、拡散、吸・脱着の過程が検討された。そして、 ^{137}Cs の冷却系への放出については、黒鉛スリーブ中の拡散が律速過程であることが推量された。

更に、燃料体全体にわたるFP挙動を記述するための計算コードの拡張が検討された。なおこの計算プログラム自体は、物性値を変えさえすれば、FP核種に限定されず、Fickの法則に従う任意の拡散種と固体媒体に適用できる。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、計算機使用法、及び解析モデルの検討について有益な助言を賜った、福田幸朔副主任研究員、菊池輝男氏、及び、燃料照射研究室の諸兄に感謝します。本報告をまとめるにあたり、御助言と御激励を賜った、燃料工學部長下川純一博士、並びに、特別研究員佐々木泰一博士に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) 松永朔郎，他：“高温ヘリウムインパイルガスループ(OGL-1)の建設と性能試験”，日本原子力学会誌 21 (1973) 245.
- (2) 林 君夫，他：“第1次，第2次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ中のFP分布”，日本原子力学会，昭和57年年会，H21.
- (3) K. Hayashi et al., "Distribution of Fission and Activation Products in the Graphite Sleeves of HTGR Fuel Rods: First and Second OGL-1 Fuels", to be submitted to J. Nucl. Mater.
- (4) 湊 和生，飛田 勉，福田幸朔，井川勝市：JAERI-M 9339.
- (5) K. Fukuda, K. Minato, K. Ikawa, T. Itoh and H. Matsushima, "Detection of Failed Coated Particles in HTGR Fuels by Acid Leaching", J. Nucl. Sci. Technol. 18 (1981) 887.
- (6) R. Forutanpour and B. Roos, GA-9904 (1969).
- (7) 牧野正彦，安川 茂，JAERI-M 4883.
- (8) F. J. Sandalls and Mrs. M. R. Walford, "Laboratory Determinations of Strontium Diffusion Coefficient in Graphite", J. Nucl. Mater. 62 (1976) 265.
- (9) J. Crank, The Mathematics of Diffusion (Clarendon Press, Oxford, 1975), p. 35, p. 73.

- (10) H. J. Leyers, Jül-1703, p. 2.
- (11) H. Gaus, W. Hensel, E. Hoinkis and D. Stritzke, HMI-B 315.
- (12) B. F. Myers and W. E. Bell, GA-A 13990(1979)6-1.

記号説明

$C(r, t)$	F P核種の濃度 (kg/m^3)
D	F P核種の拡散係数 (m^2/s)
λ	F P核種の崩壊定数 ($1/\text{s}$)
B	F P核種の生成速度 ($\text{kg}/\text{m}^3 \cdot \text{s}$)
r	スリーブの半径方向の位置 (m)
a	スリーブの内半径 (内径の半分) (m)
b	スリーブの外半径 (外径の半分) (m)
h	半径方向の刻み (m)
m	半径方向のメッシュ番号 (-)
m_{\max}	$r = b$ におけるメッシュ番号 (-) $m_{\max} = b/h + 1$
t	時間 (s)
Δt	時間の刻み (s)
T	全照射時間 (全拡散時間) (s)
k	時間方向のメッシュ番号 (-)
R''	無次元化された時間刻み (-) $R'' = D \cdot \Delta t / h^2$
R'	無次元化された時間刻み (-) $R' = R'' + \lambda \cdot \Delta t / 2$
E	拡散の活性化エネルギー (J/mol)
R	気体定数 ($8.32 \text{ J}/\text{mol} \cdot \text{K}$)
α	蒸発パラメータ (m/s)
α'	無次元蒸発パラメータ (-) $\alpha' = D / (b \alpha)$
$C_{e,q}$	周囲の気相と平衡になる為に必要な、固体媒体中の F P 濃度 (kg/m^3)

Table 1 Summary of the diffusion coefficients of ^{137}Cs and ^{90}Sr obtained by fitting of the calculated profiles to the measured profiles for the first and second OGL-1 fuel sleeves.

(inner surface : $r=a$, outer surface : $r=b$)

(a) ^{137}Cs for the second fuel sleeve

(unit of diffusion coefficients : $10^{-13}\text{m}^2/\text{s}$)

axial position(mm)	$C_a=\text{const}$		$C_a=k \cdot t$	
	$C_b=0$	$\partial C/\partial r=0$	$C_b=0$	$\partial C/\partial r=0$
200-210	4.0	2.5	>10	5.0
400-410	5.0	3.0	>10	6.0
500-510	8.0	3.0	>10	8.0
600-610	3.0	2.5	>10	5.0

(b) ^{134}Cs for the second fuel sleeve (D in $10^{-13}\text{m}^2/\text{s}$)

600-610	10	40	>10	8.0
---------	----	----	-----	-----

(c) ^{90}Sr for the second fuel sleeve (D in $10^{-15}\text{m}^2/\text{s}$)

200-210	25	25	23	23
400-410	7	7	9	9
500-510	9	9	13	13
600-610	8	8	12	12

(d) ^{90}Sr for the first fuel sleeve (D in $10^{-13}\text{m}^2/\text{s}$)

200-210	3.5	4.5	3.0	5.0
400-410	2.5	2.0	2.5	2.5
600-610	0.8	1.7	0.7	2.0

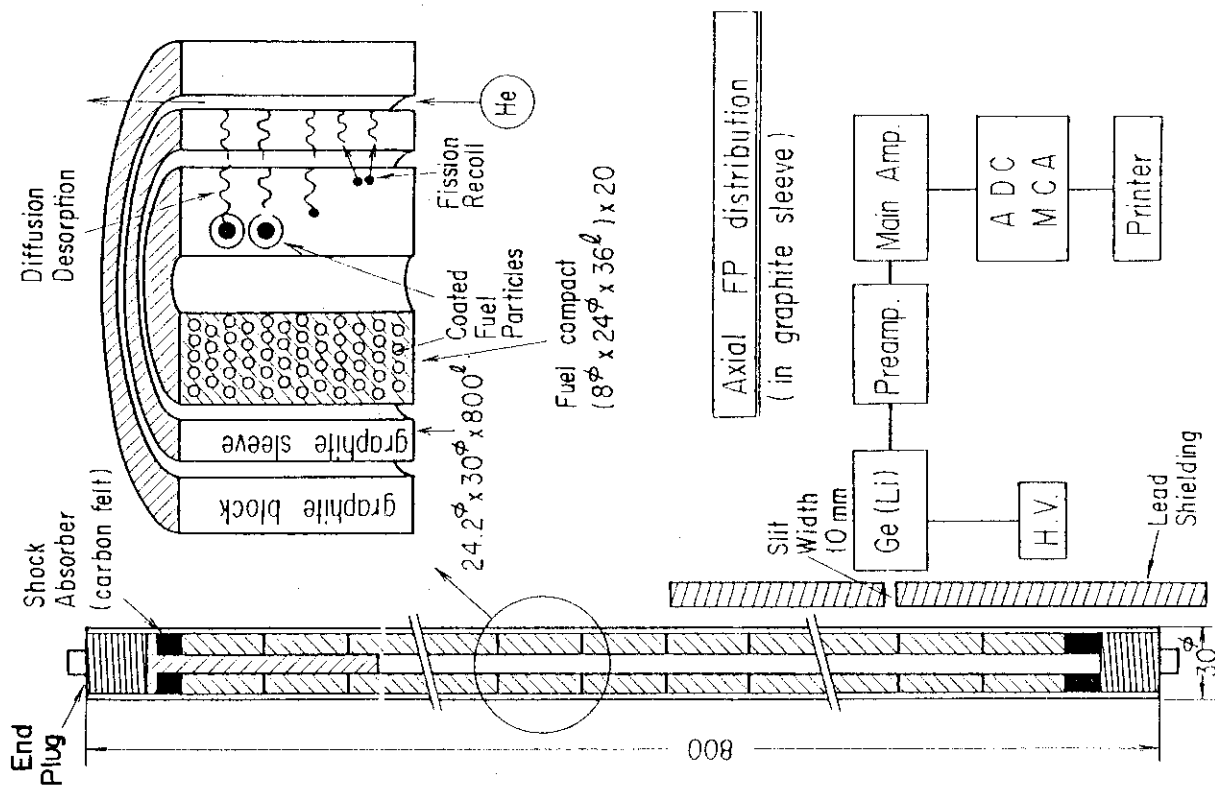


Fig.1 Schematic diagram of the OGL-1 fuel assembly and the method to measure the axial distribution of fission products

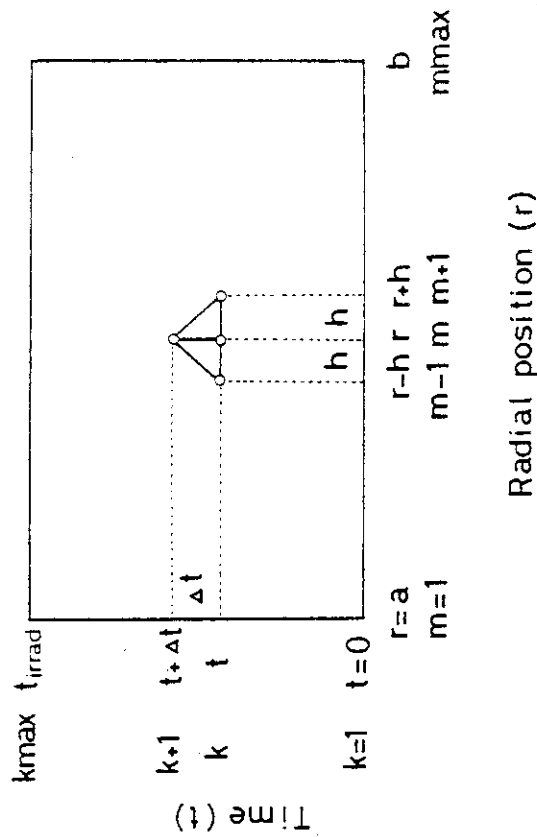


Fig.2 Scheme of the finite-difference method to solve the one-dimensional diffusion equation

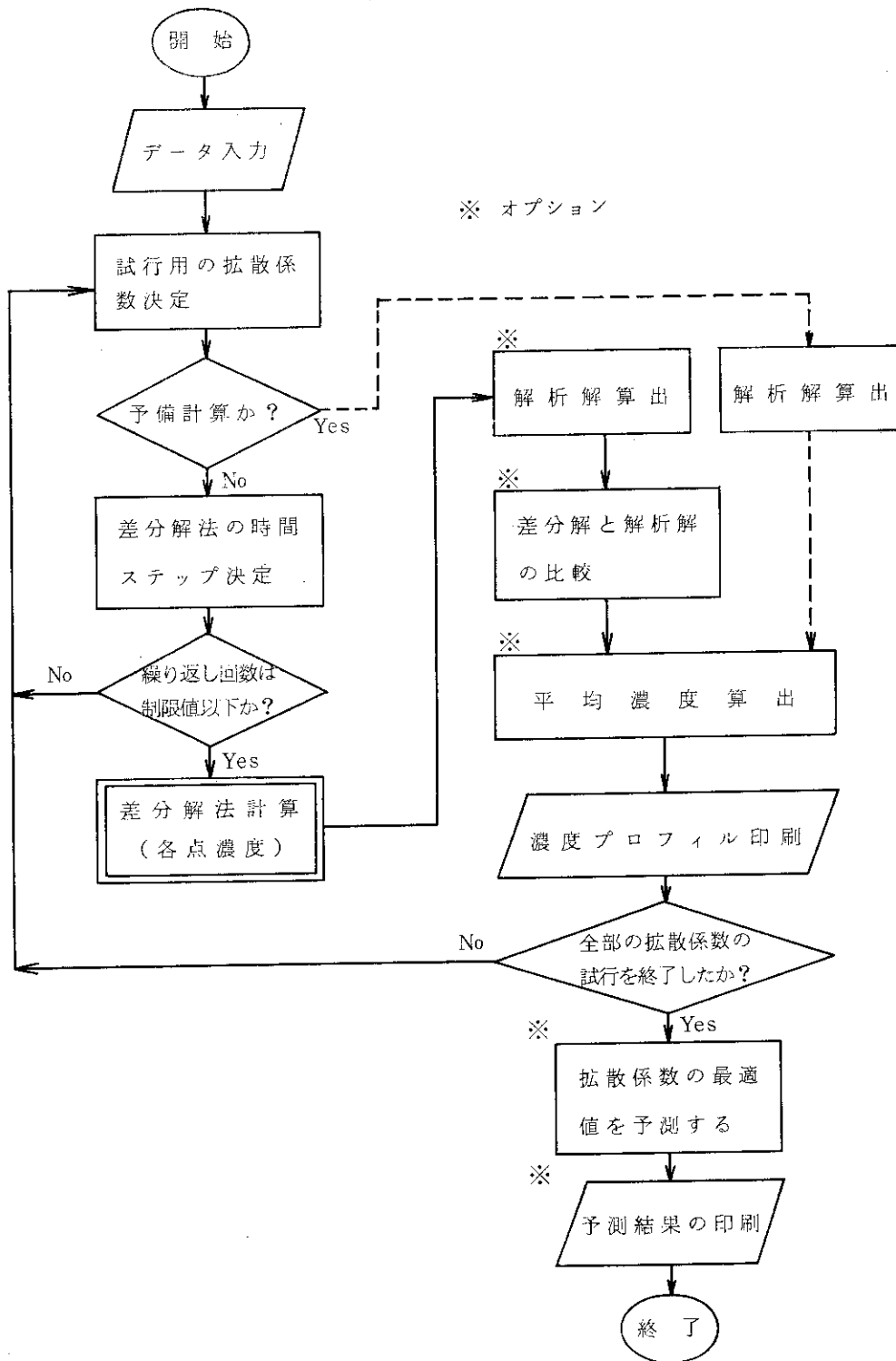


Fig. 3 General flowchart of FPDR program to solve the diffusion equation for fission products.

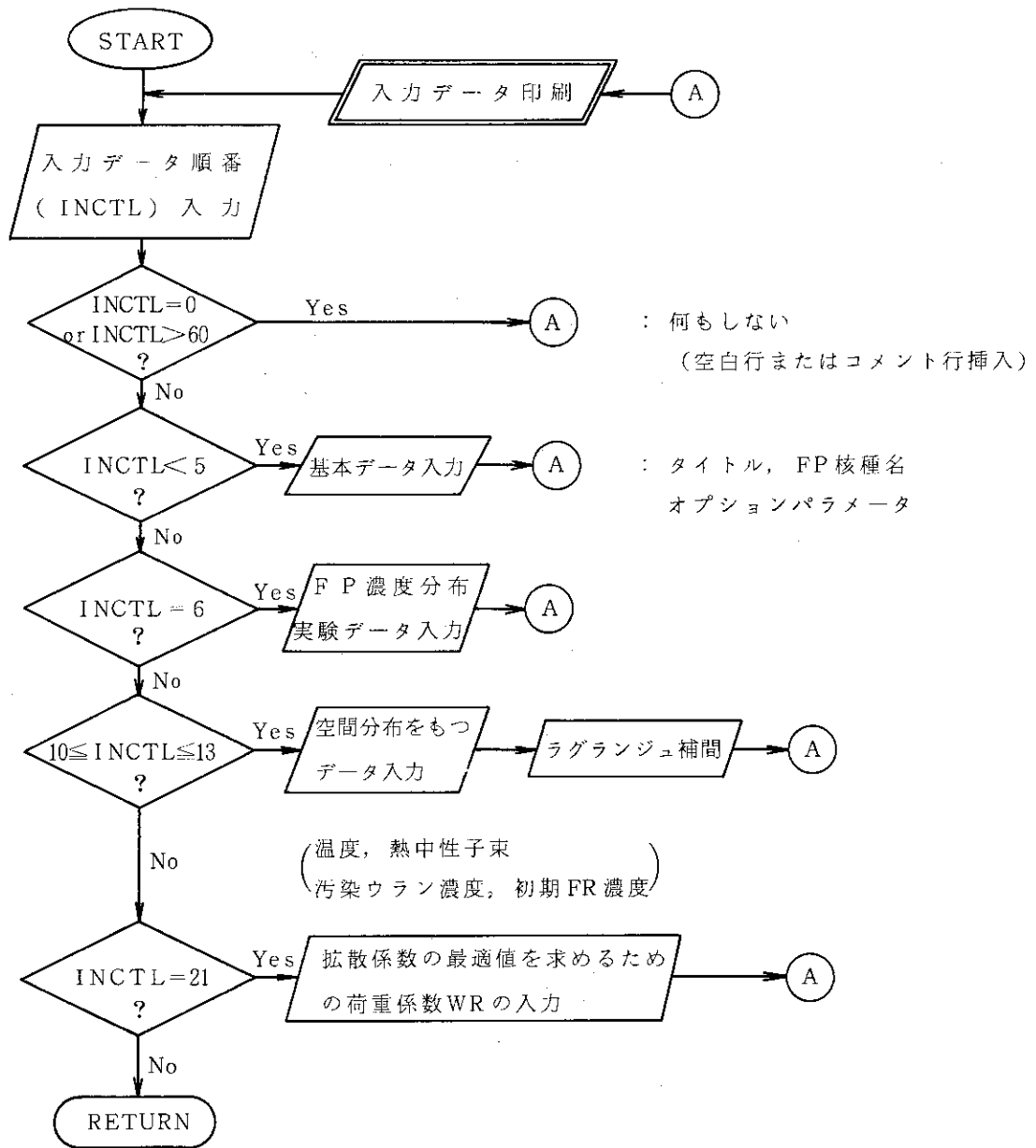


Fig. 4 Flowchart of the subroutine of FPDR program for data input.

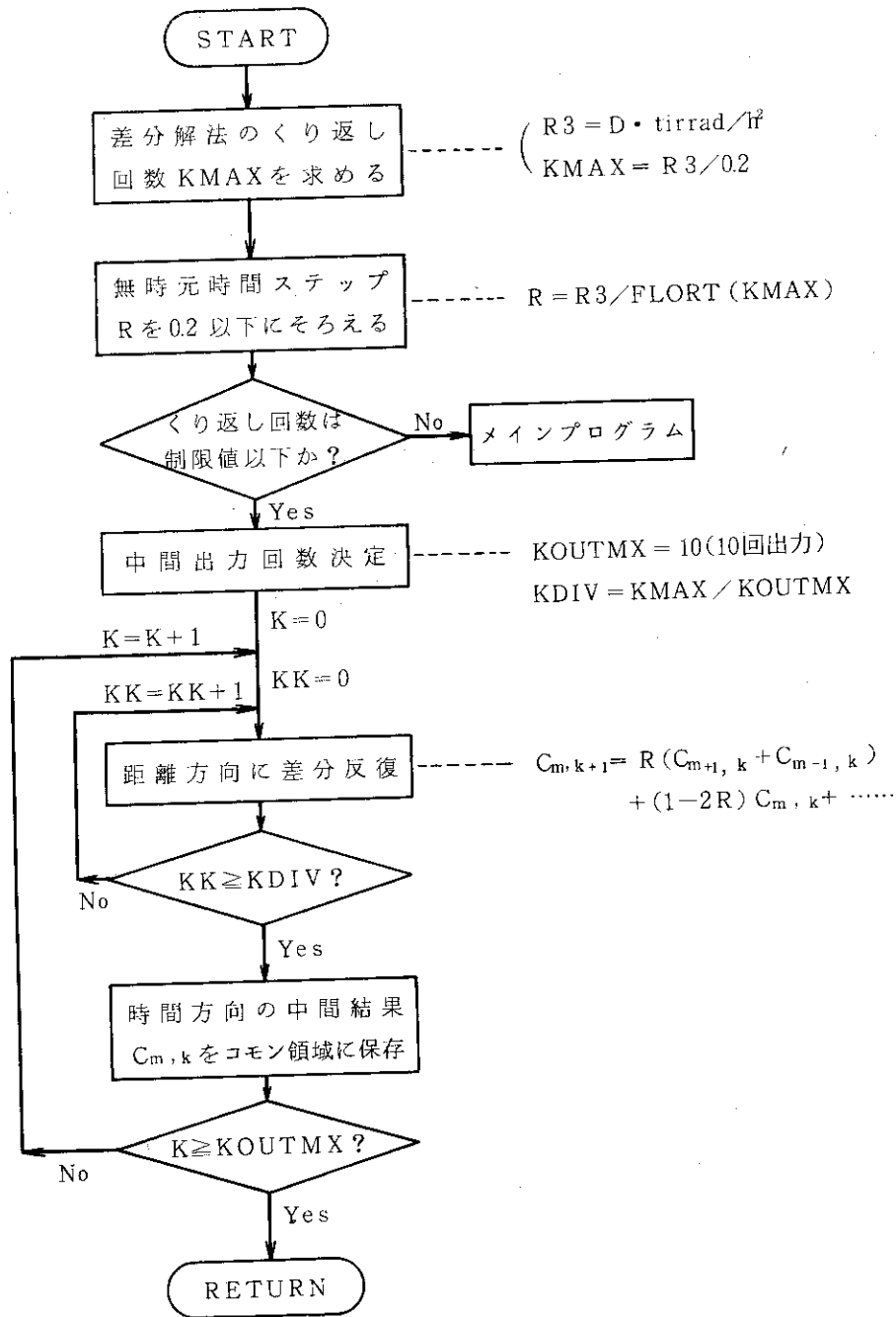


Fig. 5 Flowchart of FPDR program for the finite-difference solution.

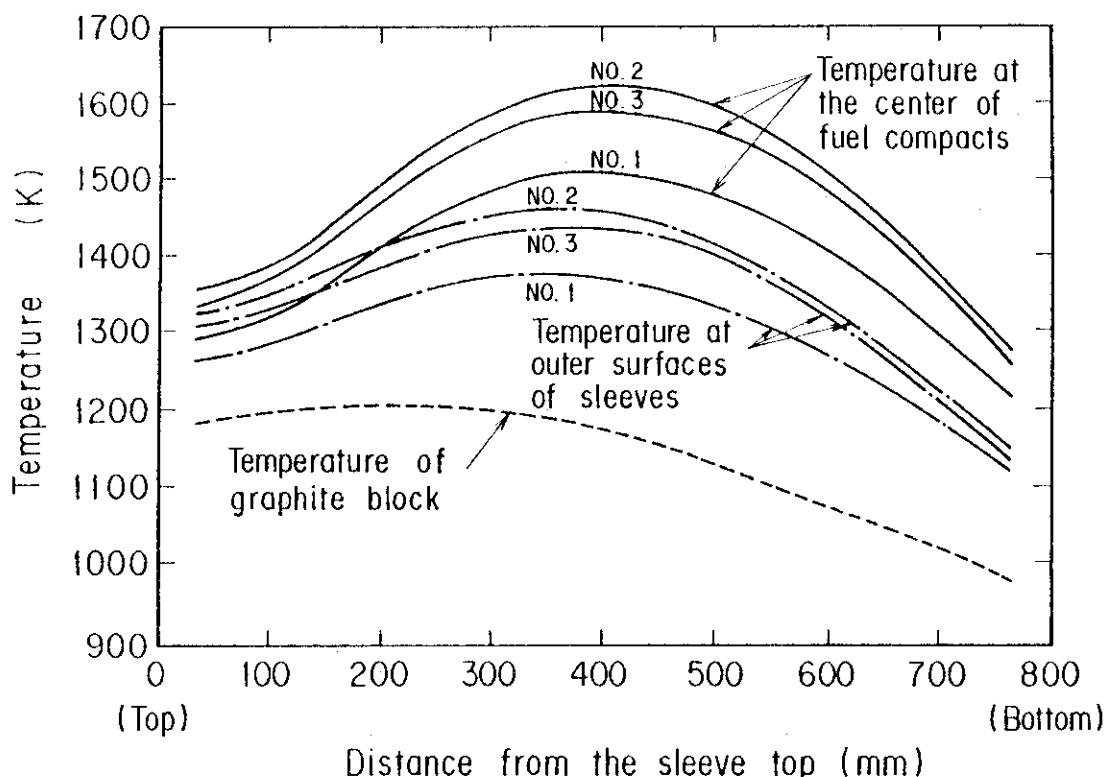


Fig.6 Typical temperature distribution of the fuel compacts, sleeves and graphite block of the second OGL-1 fuel assembly

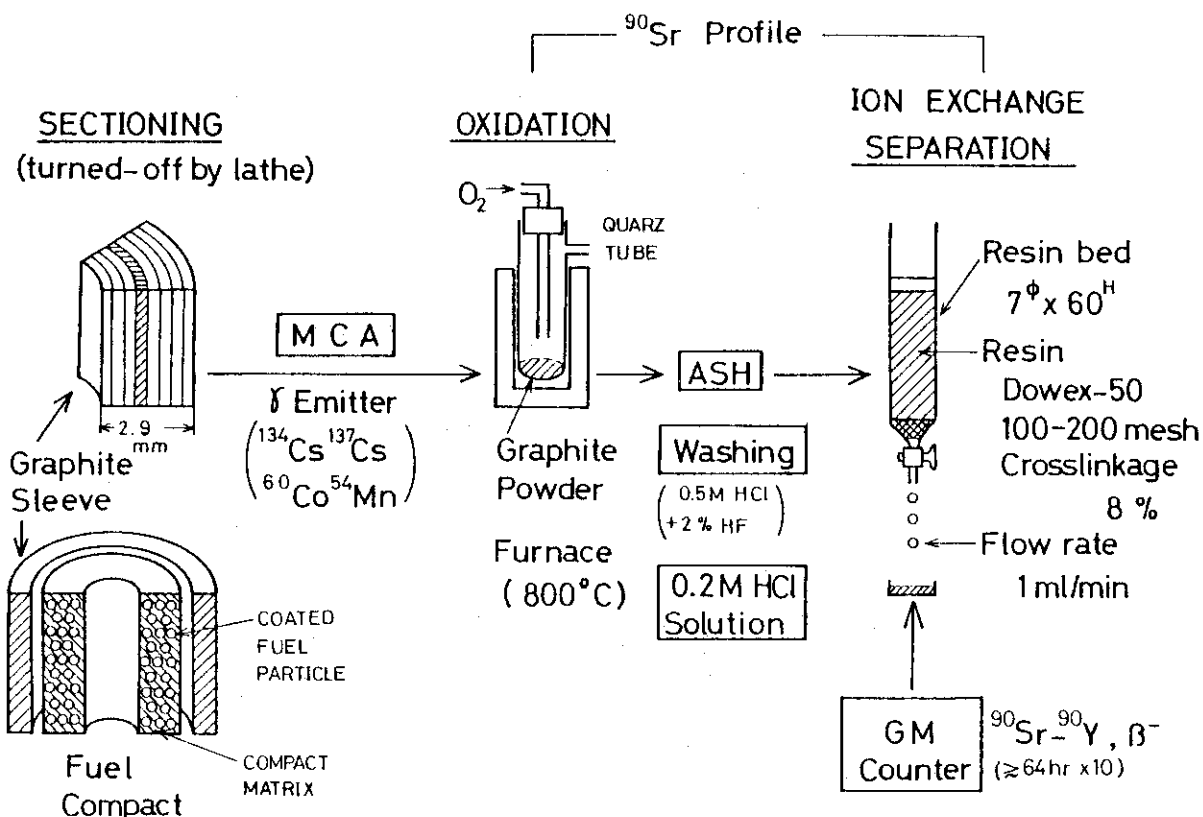
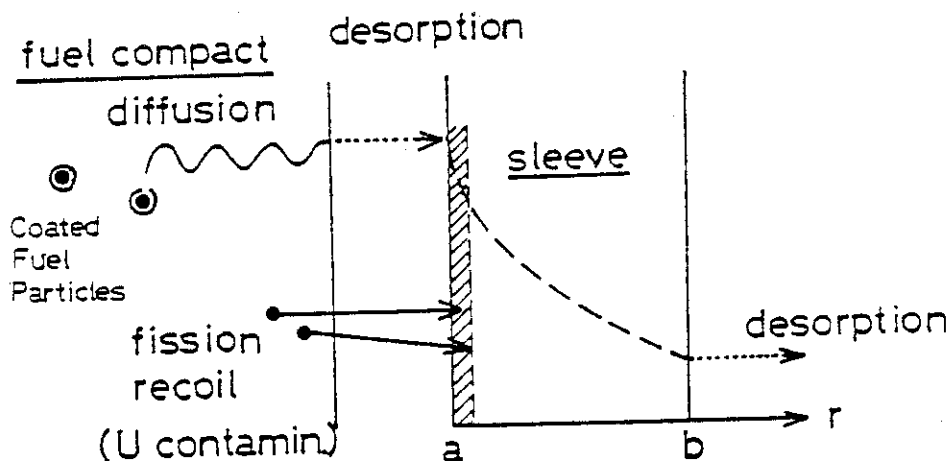


Fig.7 Schematics of the experimental method to obtain the radial profile of fission products



One Dimensional Diffusion Equation

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) - \lambda C + B$$

$C(r,t)$: FP concentration (kg/m³-graphite)

D : Diffusion coefficient (m²/s)
assumed constant for any r and C

λ : Decay constant (1/s)
negligible if $t_{\text{irrad}} = 70.7\text{day} \ll T_{1/2}$

B : FP birth rate (kg/m³-graphite·s)
 $B=0$, $a < r < b$, U contamin. negligible
in sleeve

I.C. : $C(r,0) = 0$

B.C. : $r = a$, $C(a,t) = \text{const}$ or $C(a,t) = kt$
 $r = b$, $C(b,t) = 0$ or $\partial C / \partial r = 0$

Fig.8 Summary of the conditions to solve the diffusion equation for the fission products in the OGL-1 fuel sleeve

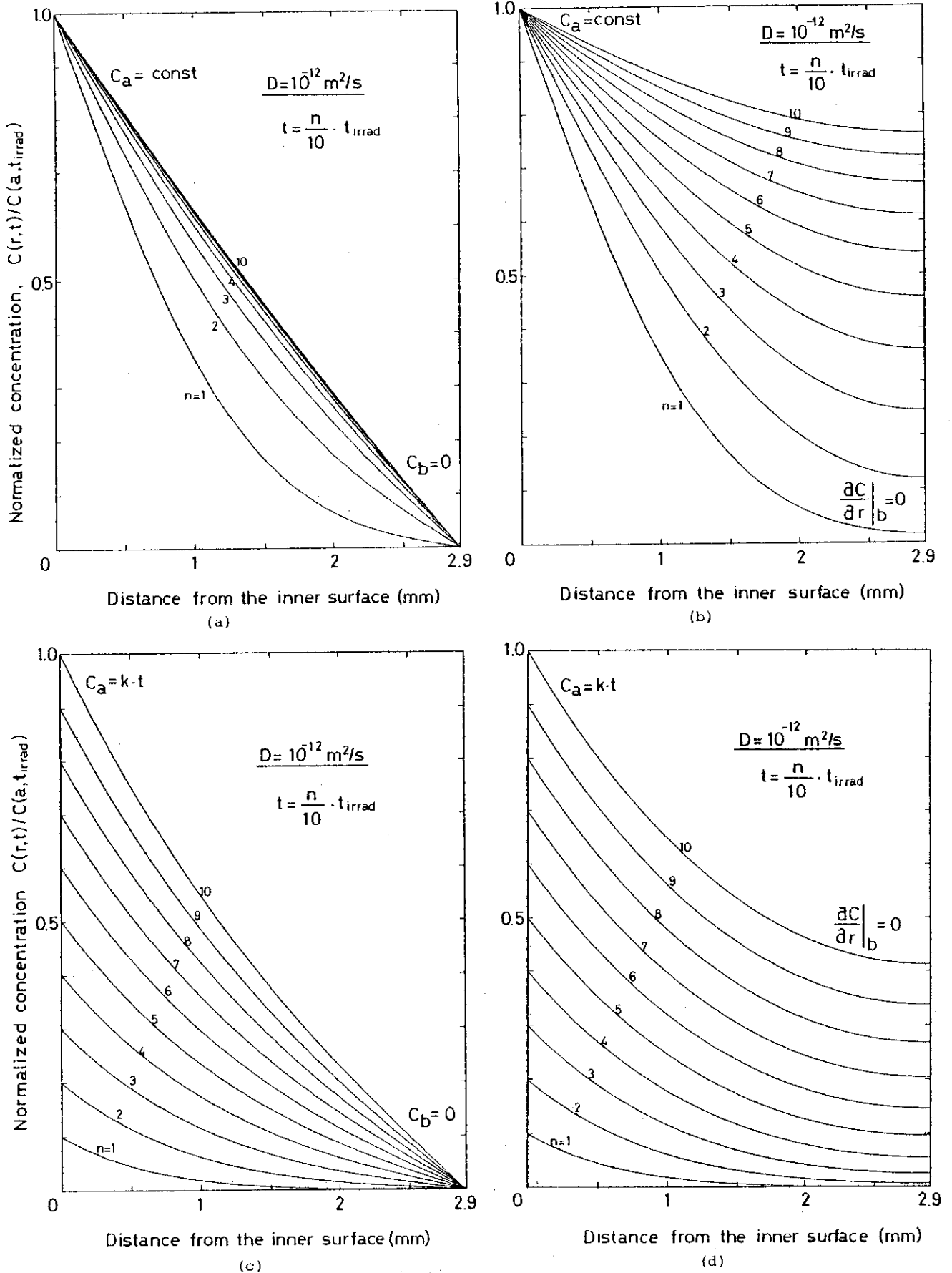


Fig.9 Typical change of radial profiles in accordance with time increase up to the total irradiation time, t_{irrad} . The diffusion coefficient is fixed at $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$. Figs.9a-9d correspond to the alternative boundary conditions for the inner and outer sleeve surfaces

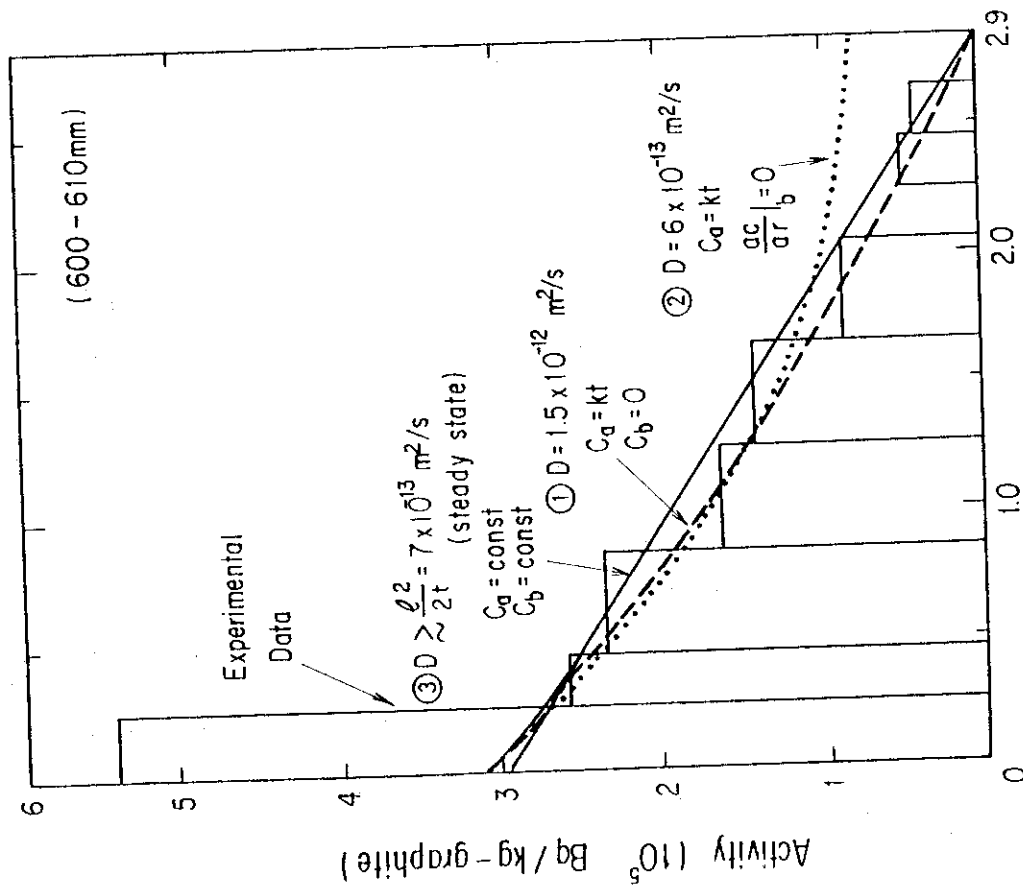


Fig.10 Comparison between the measured and calculated radial profiles of ^{137}Cs in the second OGL-1 fuel sleeve at the axial position to 600-610mm from its top

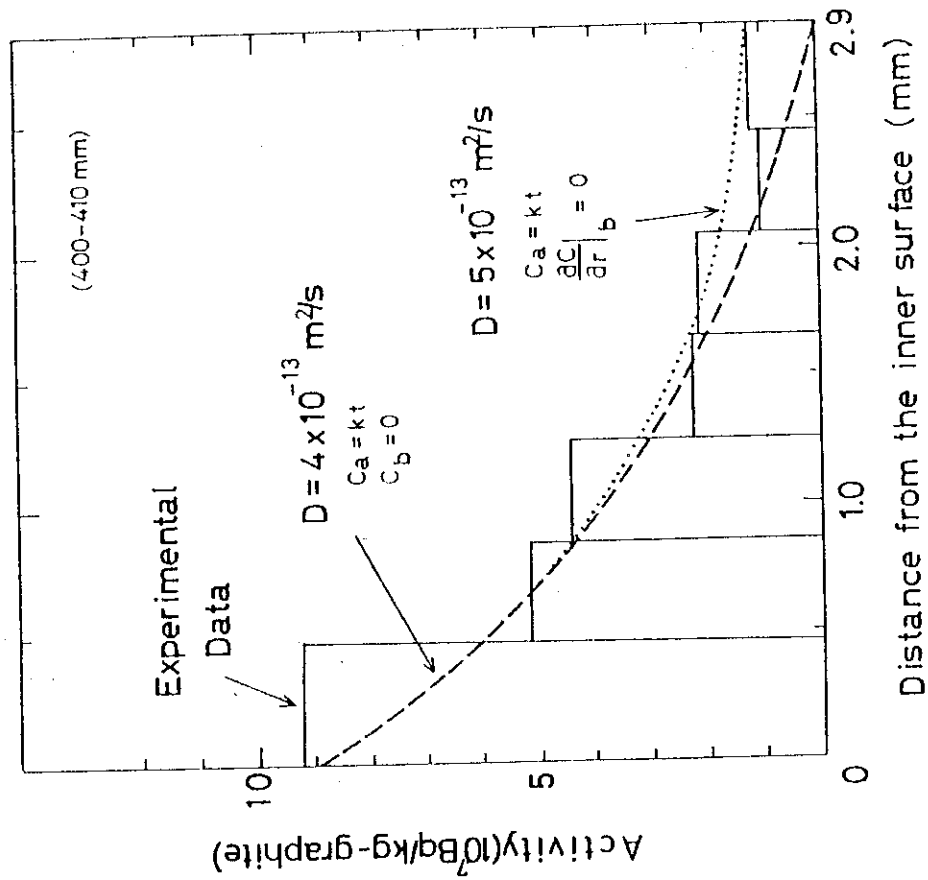


Fig.11 Comparison between the measured and calculated radial profiles of ^{90}Sr in the first OGL-1 sleeve at the axial position of 400-410mm from its top

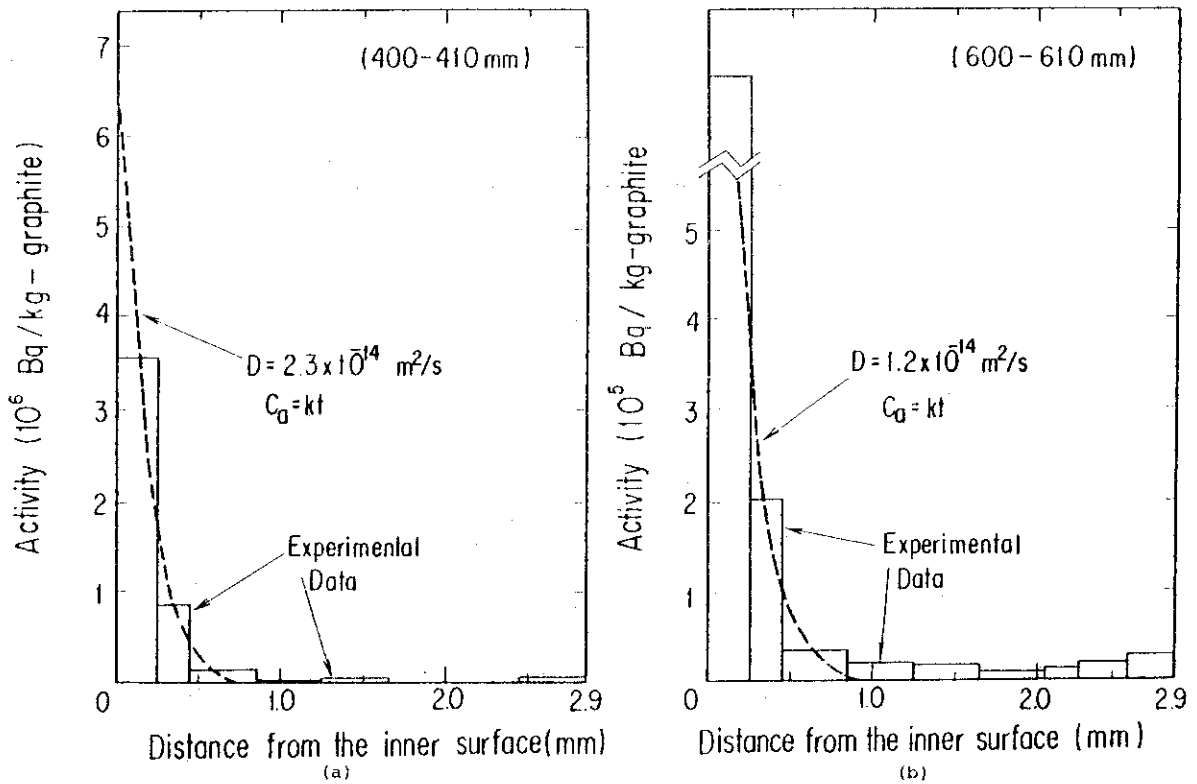


Fig.12 Comparison between the measured and calculated radial profiles of ^{90}Sr in the second OGL-1 fuel sleeve; (a) 400-410mm, (b) 600-610mm from the sleeve top

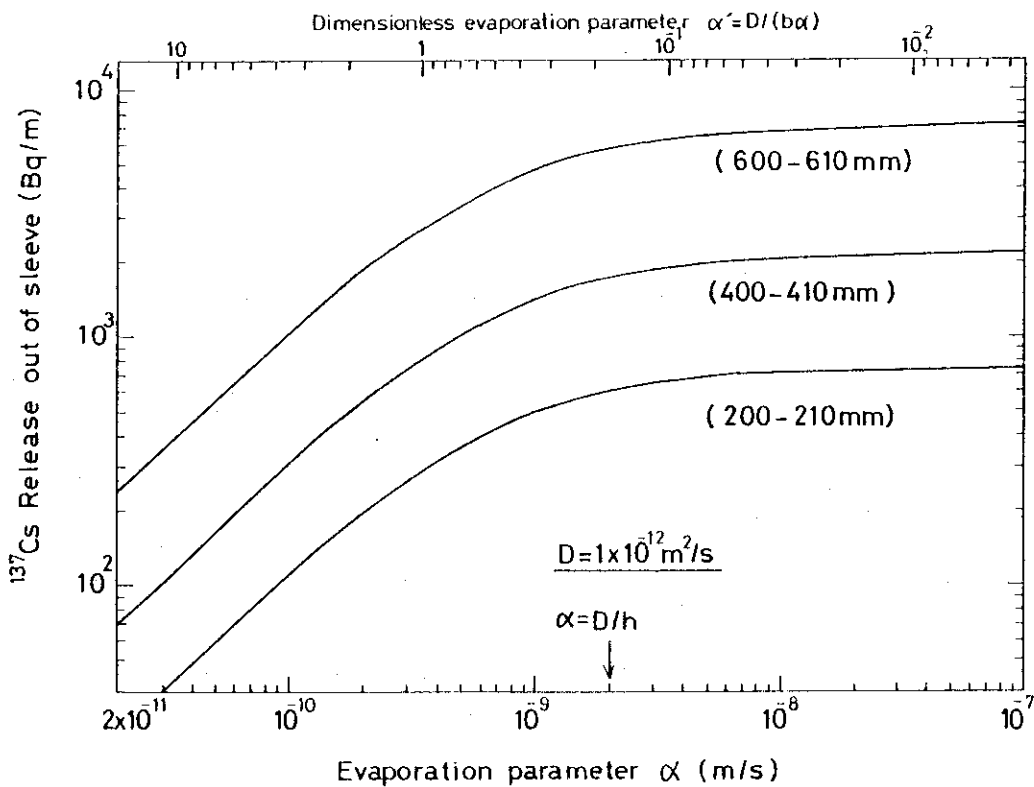


Fig.13 Relationship between the evaporation parameter and the release of ^{137}Cs from the outer surface per unit length of the sleeve

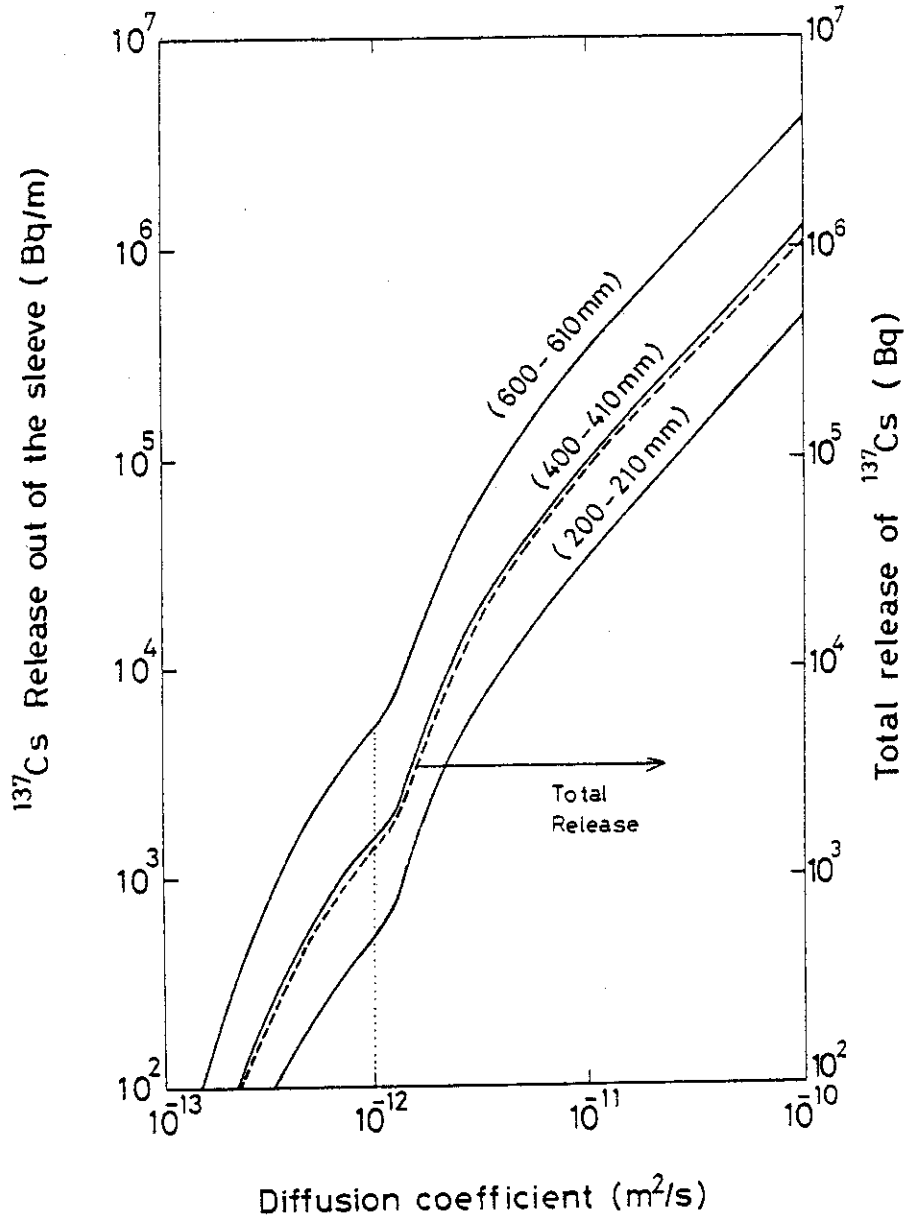


Fig.14 Relationship between the diffusion coefficient of ^{137}Cs and the release from the outer surface of the sleeve. Total release, in Bq unit, from all over the sleeve surface is also presented together with the release per unit length of the sleeve, in Bq/m