

JAERI - M  
84-054

被覆粒子燃料のスープガスキャプセル  
照射試験( I )

(74F-9Jキャプセルによる照射)

1984年3月

福田 幸朔・小川 徹・鹿志村 悟・井川 勝市  
岩本 多實・山本 克宗・鈴木 絃・松島 秀夫

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、お申しこしてください。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, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 いばらき印刷(株)

被覆粒子燃料のスweepガスキャプセル照射試験(I)  
(74F-9J キャプセルによる照射)

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部  
福田幸朔・小川徹・鹿志村悟・井川勝市  
岩本多實・山本克宗<sup>+</sup>・鈴木紘<sup>++</sup>・松島秀夫<sup>++</sup>

(1984年2月2日受理)

本報告は日本原子力研究所で最初のスweepガスキャプセルによる照射試験に関するものである。この試験の主な目的は、照射下でのFPガス放出率を測定することにより、被覆粒子の照射健全性を調べることであり、また、スweepガス装置の性能試験を行うことである。

照射試料は48年度、49年度試作の予備設計仕様被覆粒子であり、これらはルーズな状態で照射された。49年度国産被覆粒子は最高1600℃まで照射されたが、その時のFPガス放出、85 m Kr, 率は最高 $8.3 \times 10^{-4}$ であった。また、49年度英国製被覆粒子は、1120℃で $6.6 \times 10^{-6}$ の放出率を示した。FPガスの放出から被覆破損率の評価を行うとともに、照射後試験では外観検査、X線ラジオグラフィ、酸浸出などにより被覆破損率を測定した。その結果、照射条件がきびしかった49年度国産被覆粒子の破損率は $1.5 \sim 45 \times 10^{-3}$ 、また照射条件がゆるやかであった49年度英国製被覆粒子の破損率は、 $2.7 \sim 9.2 \times 10^{-4}$ であった。また、FPガス放出挙動からFPガス放出機構、I-Xe拡散などについて考察した。さらに、照射後試験では、被覆粒子を収納していた黒鉛容器に吸着されていた金属FP量を測定し、これから $^{137}\text{Cs}$ 放出率を求めた。

---

+ 材料試験炉部

++ 研究炉管理部

Irradiation Experiment of Coated Particle Fuels  
by Sweep Gas Capsule (I)  
(Irradiation by 74F-9J Capsule)

Kousaku FUKUDA, Toru OGAWA, Satoru KASHIMURA, Katsuichi IKAWA,  
Kazumi IWAMOTO, Katsumune YAMAMOTO<sup>+</sup>, Hiroshi SUZUKI<sup>++</sup>, Hideo MATSUSHIMA<sup>++</sup>

Department of Fuels and Materials Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 2, 1984)

This report relates to the first irradiation experiment of coated particle fuel by a sweep gas capsule at JAERI. The main purposes were to study irradiation performance of coated particles by measuring fission gas releases under irradiation and to test functions of the sweep gas system.

Samples used in this experiment were the coated particles which had been fabricated under preliminary design for VHTR in this country and England. The domestic particles fabricated in 1974 were irradiated up to 1600°C, where the fractional release of  $^{85m}\text{Kr}$  was  $8.3 \times 10^{-4}$ , and the English particles fabricated also in 1974, up to 1120°C, where the release was  $6.6 \times 10^{-6}$ . By the fractional releases of fission gases, estimation of failure fraction of coated particles was made. In PIE, the failure fraction of the coated particles were measured by surface inspection, X-ray microradiography and acid leaching. Consequently, the failure fraction of the domestic coated particles was in range between  $1.5 \times 10^{-3}$  and  $4.5 \times 10^{-3}$ , and that of English particles, between  $2.7 \times 10^{-4}$  and  $9.2 \times 10^{-4}$ . Besides the estimation, release mechanism of fission gases and I-Xe diffusion were discussed. In PIE, release of metallic fission product,  $^{137}\text{Cs}$ , which had been absorbed by the graphite container for the coated particles in the capsule, was measured and the fractional releases of the nuclide were obtained.

Keywords: Sweep Gas Capsule, Irradiation, JMTR, Fission Gases, Fractional Release  
Coated Particles, PIE, Failure Fraction

---

+ Department of JMTR Project, Oarai, JAERI

++ Department of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

## 目 次

1. 序論	1
2. スイープガスキャプセル装置	2
2.1 照射キャプセル	2
2.2 スイープガス炉外装置の概要	3
3. 照射試料	7
3.1 照射試料	7
3.2 照射前試験	7
4. 照射	16
4.1 照射の概要	16
4.2 照射温度	16
4.3 中性子照射量	16
4.4 燃焼率	17
5. FP ガスの放出	20
5.1 FP ガス放出率の算出	20
5.2 FP ガスの放出結果	21
6. 照射後試験	33
6.1 照射後試験の概要	33
6.2 被覆粒子の外観	33
6.3 被覆粒子の断面組織	34
6.4 X線ラジオグラフィ	35
6.5 酸浸出率	35
6.6 金属FP放出率	36
7. 考察	48
7.1 FP ガス放出挙動についての一般的考察	48
7.2 FP ガス放出と被覆破損との関係	51
7.3 FP ガス放出機構	54
7.4 照射後試験における被覆破損	55
8. 結論	61
謝辞	61
参考文献	63

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Irradiation facility for sweep gas capsule .....	2
2.1 Sweep gas capsule .....	2
2.2 Out-of-pile installations for sweep gas capsule .....	3
3. Samples .....	7
3.1 Samples for irradiation .....	7
3.2 Pre-irradiation examination .....	7
4. Irradiation .....	16
4.1 Outline .....	16
4.2 Irradiation temperature .....	16
4.3 Neutron fluence .....	16
4.4 Burnup .....	17
5. Fission gas release .....	20
5.1 Procedure for estimation of fractional release .....	20
5.2 Results of fractional release .....	21
6. Post-irradiation examination .....	33
6.1 Outline .....	33
6.2 Inspection of surface appearance of coated particles ...	33
6.3 Ceramography of coated particles .....	34
6.4 X-ray radiography .....	35
6.5 Acid leaching fraction .....	35
6.6 Release of metallic fission product .....	36

7. Discussion .....	48
7.1 Discussion on release behavior of fission gas .....	48
7.2 Relation between fission gas release and coating failure .....	51
7.3 Mechanisms of fission gas release .....	54
7.4 On coating failure .....	55
8. Conclusions .....	61
Acknowledgement .....	61
References .....	63

## List of tables

- Table 1 Characteristics of samples for irradiation by 74F-9J capsules.
- Table 2 Results of non-destructive pre-irradiation examination.
- Table 3 Results of pre-irradiation examination.
- Table 4 Results of examination on the defective particles.
- Table 5 Irradiation data of 74F-9J capsule
- Table 6 Kr and Xe isotopes used for evaluation of R/B.
- Table 7-1 Data of R/B from 74FC-1( middle inner capsule ).
- Table 7-2 Data of R/B from 74UC-1( bottom inner capsule).
- Table 8 Iodine contribution to Xe release.
- Table 9 Results of surface inspection and X-ray radiography.
- Table 10 Results of acid leaching experiment for coated particles irradiated by 74F-9J capsule.
- Table 11 Fractional release of Cs from Triso  $UO_2$  particles irradiated by 74F-9J capsule in JMTR.
- Table 12 Parameters on iodine and xenon releases.
- Table 13 Kr diffusion coefficients for FECUND calculation.
- Table 14 Summary of failure fractions of coated particles irradiated by 74F-9J capsule.

## List of figures

- Fig. 1 Configuration of 74F-9J capsule.
- Fig. 2 Details of inner capsule.
- Fig. 3 Irradiation facility for sweep gas capsule.
- Fig. 4 Typical X-ray radiographs of coated particles.
- Fig. 5 Flow diagram of pre-irradiation examination.
- Fig. 6 Defects and contamination in coated particles.



- Fig. 7 Appearance of defective particles found in the samples.
- Fig. 8 Variation of irradiation temperature of 74F-9J capsule.
- Fig. 9 Distribution of neutron fluence through the capsule axis.
- Fig. 10 GAMSPEC calculation<sup>(11)</sup> for accumulated activities of fission gases vs. irradiation time.
- Fig. 11 Typical example of  $\gamma$ -ray counting of sweep gas.
- Fig. 12 Variation of R/B values of  $^{85m}\text{Kr}$  and  $^{135}\text{Xe}$ , and temperature with time.
- Fig. 13 Decrease of Xe release in sweep gas after reactor shut-down.
- Fig. 14 Variation of gross-gamma activities in exhausted sweep gas.  
Note that the shaded peaks would be caused by failure of coated particles.
- Fig. 15 Flow diagram of post-irradiation examination for 74F-9J capsule.
- Fig. 16 Surface inspection of coated fuel particles after irradiation.
- Fig. 17-1 Ceramographs of 73FC1.
- Fig. 17-2 Ceramographs of 74FC1.
- Fig. 17-3 Ceramographs of 74UC1.
- Fig. 18-1 X-ray radiographs of 73FC1.
- Fig. 18-2 X-ray radiographs of 74FC1.
- Fig. 18-3 X-ray radiographs of 74UC1.
- Fig. 19 Fractional release, R/B, versus decay release parameter,  $\phi$ <sup>(25)</sup>.
- Fig. 20 Temperature dependence of measured and calculated fission-gas release.
- Fig. 21 Tentative calculation of R/B from failed and intact coated fuel particles.

Fig. 22(a) Estimation of failure fraction( $F_d$ ) by R/B(74FC1).

Fig. 22(b) Estimation of failure fraction( $F_d$ ) by R/B(74UC1).

Fig. 23(a) R/B versus decay constant for 74FC1.

Fig. 23(b) R/B versus decay constant for 74UC1.

## 1. 序 論

多目的高温ガス実験炉（以下、実験炉と略す）の開発研究は、昭和45年から始められ、同年には JRR-2 に設置していた水ループ（HWL-1）を使って最初の被覆粒子燃料の照射試験<sup>1)</sup>が行われ、引続き、昭和46年には、JMTR を使って本格的な照射試験<sup>2)</sup>が始められた。

被覆粒子燃料の照射試験では、密封キャプセル、OGL-1 及びスweepガスキャプセルの三つの方法によって照射が行われ、被覆粒子燃料の照射性能が試験されてきた。密封キャプセルでは、燃料コンパクトやルーズな状態での被覆粒子を高照射し、照射後試験において、それらの照射変化や耐照射性を調べており、また OGL-1 では、燃料体に組込んだ大量の燃料コンパクトを高温高圧下で照射し、燃料体としての照射挙動の研究を行っている。

スweepガスキャプセルは、照射下で燃料表面を He（ヘリウム）ガスでスweepすることにより、燃料から放出される Kr や Xe などの核分裂ガス（FPガス）をキャプセルの FPガス測定系に導出し、燃料からの FPガス放出率を評価できるものであり、主に照射下での被覆粒子燃料の健全性を調べるのに使われている。

外国においては、スweepガスキャプセルを使った被覆粒子燃料の照射試験の歴史は古く、1965年には ORR（米国）や R2（スウェーデン）炉を使って行った被覆粒子燃料のスweepガスキャプセル照射試験が ORNL<sup>3)</sup> やドラゴン・プロジェクト<sup>4)</sup> から報告された。また、KFAは最初のボール燃料のスweepガスキャプセル照射試験<sup>5)</sup>を R2 炉を使って1968年に行っている。

日本原子力研究所においては、1974年からスweepガスキャプセル照射についての検討を開始し、1975年には試験用スweepキャプセル（74F-9J）及び炉外のスweepガス回路の製作を始めた。この間、JMTR部内ではFPガススweep・ワーキング・グループを結成し、キャプセル構造<sup>6)</sup>、スweepガス回路及びFPガス測定などについて精力的に検討が行われた。74F-9Jキャプセルは、上述のごとく、スweepガス装置の試験用のキャプセルであるとともに、照射下のFPガス放出率を測定することにより、被覆粒子照射健全性を調べることを目的としたキャプセルでもある。キャプセルへの被覆粒子の装荷は、1977年1月に行い、1977年12月から1978年7月まで JMTR反射体領域でスweepガス照射を行った。全照射期間を通じて、28～29回の He ガス中の FPガス濃度の測定を行ったが、このうち、高温照射中の測定は20回行い、残り8～9回は炉停止時に行った。照射終了後の74F-9Jキャプセルは、1980年4月15日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボへ搬入され、被覆粒子の照射後試験が開始された。

## 2. スイープガスキャプセル装置

スイープガスキャプセル装置は、照射キャプセルとキャプセルへの He スイープガスの給排気系及び FP ガス測定のためのサンプリング系などを含むスイープガス炉外装置から成っている。以下に、このスイープガス・キャプセル装置について記す。

### 2.1 照 射キャプセル

74F-9J キャプセルの概念図を Fig. 1 に示す。74F-9J キャプセルはキャプセル本体部から構成されている。本体部には上段、中段、下段に分けて3個の内部キャプセルが組込まれており、1本の共通した給気管からキャプセル内に He スイープガスが導入され、各々の内部キャプセルの被覆粒子表面をスイープした後、別々の排気管からスイープガス炉外装置へと排出される。一方、保護管部には、チャコール・フィルター、排気管の熱電対を分離するための分離端子、He 給気ガスの逆流を防止するための電磁弁などが組込まれている。74F-9J キャプセルの設計、製作の詳細については文献(6)を参照されることを勧めるが、以下には、このキャプセルの構造の概要について記す。

#### (1) キャプセル本体部

キャプセル本体部に組込まれている内部キャプセルの組立図を Fig. 2 に示す。被覆粒子は、同心円の円環ギャップ孔を有する黒鉛試料ホルダーに装荷されており、ホルダー中心部の黒鉛芯にはさらにスイープガス排出管受止め用ネジ孔およびスイープガス通気孔があげられている。なお、このスイープガス排出管には被覆粒子温度測定用の熱電対が挿入されており、上述したように、上部保護管内で排出管と熱電対とは分離する。また、試料ホルダー上端栓の円環ギャップに対面する部分には、スイープガス流入用に多数の穴があげられており、内部キャプセル上端部から流入したスイープガスは、この穴を通して被覆粒子表面をスイープし、試料ホルダーの下端部から中心部の通気孔を通して排出される。試料ホルダーは、2重の Nb-1% Zr 内筒に収納されており、黒鉛と Nb-1% Zr との反応を防ぐため、試料ホルダー表面には Mo が溶射されている。

被覆粒子の照射温度は、2重の Nb-1% Zr 内筒のギャップの He ガス真空度を外部から調節することにより制御されるが、外側の Nb-1% Zr 内筒の上栓には、このための真空度制御管が接続されている。Al 熱媒体には、被覆粒子と同じ高さに、中性子照射量を測定するための Fe 及び Co-Al 中性子フルーエンス・モニタが装荷されている。

#### (2) 保護管部

上述したように、保護管部には、分離端子、チャコールフィルター、電磁弁及び気密端子が組込まれており、これらは全てキャプセル外部への FP ガス漏洩に対する安全装置である。チャコール、フィルターは、スイープガス中の I (ヨウ素) を除去するために設けたもので、照射中には最高 100°C の温度に達するものと思われる。W/Re 熱電対のシース・先端部が破損し

たとき、シース内絶縁材の間をFPガスが上昇してくる恐れがあり、このような場合でもFPガスの上昇を阻止するために気密端子が設けられている。また電磁弁は、ヘリウムガス供給装置に異常が生じ、ヘリウムの流れが止まった場合に、FPガスが給気管を逆拡散してくるのを防ぐために設けたものである。

## 2.2 スイープガス炉外装置の概要

スイープガスキャプセル照射のための炉外装置の概要をFig. 3に示す。キャプセルへのスイープガスは、スイープガス供給装置、測定装置及び排気装置などから成っている。スイープガス供給管は1キャプセルあたり1本であり、その供給圧力は、3 kgG、ガス流量は、 $100 \text{ cm}^3/\text{min}$ である。排気管は、1キャプセルあたり、最大3本で、2本のキャプセルが同時に接続できる。測定装置はグローブ・ボックス内に収められており、手動によるバルブ操作により各排気管からFPガスを含んだスイープガスを各サンプリング・ボルトに捕集できるようになっている。サンプリングボルトの容積は $21 \text{ cm}^3$ である。なお、この測定装置に接続して、昭和55年度にFFD（破損燃料検出装置）の設置工事が行われ、昭和56年度の#55サイクルから実験が開始された。排気系では、排気ガス中の放射能を監視するモニターや排気ガス中のFPガスを除かれたのち、いくつかの監視モニターを経て、大気へ放出される。

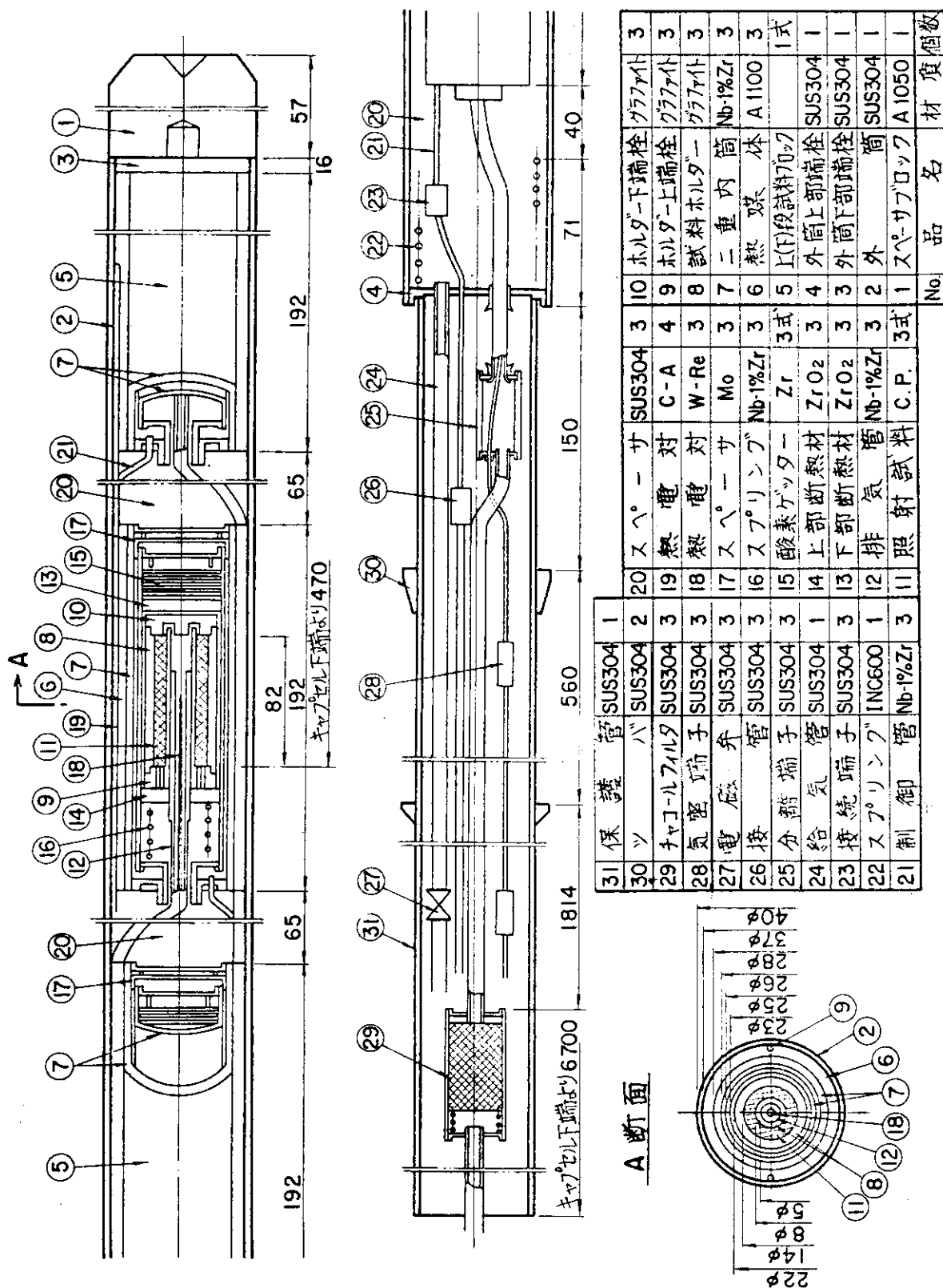


Fig. 1 Configuration of 74F-9J capsule.

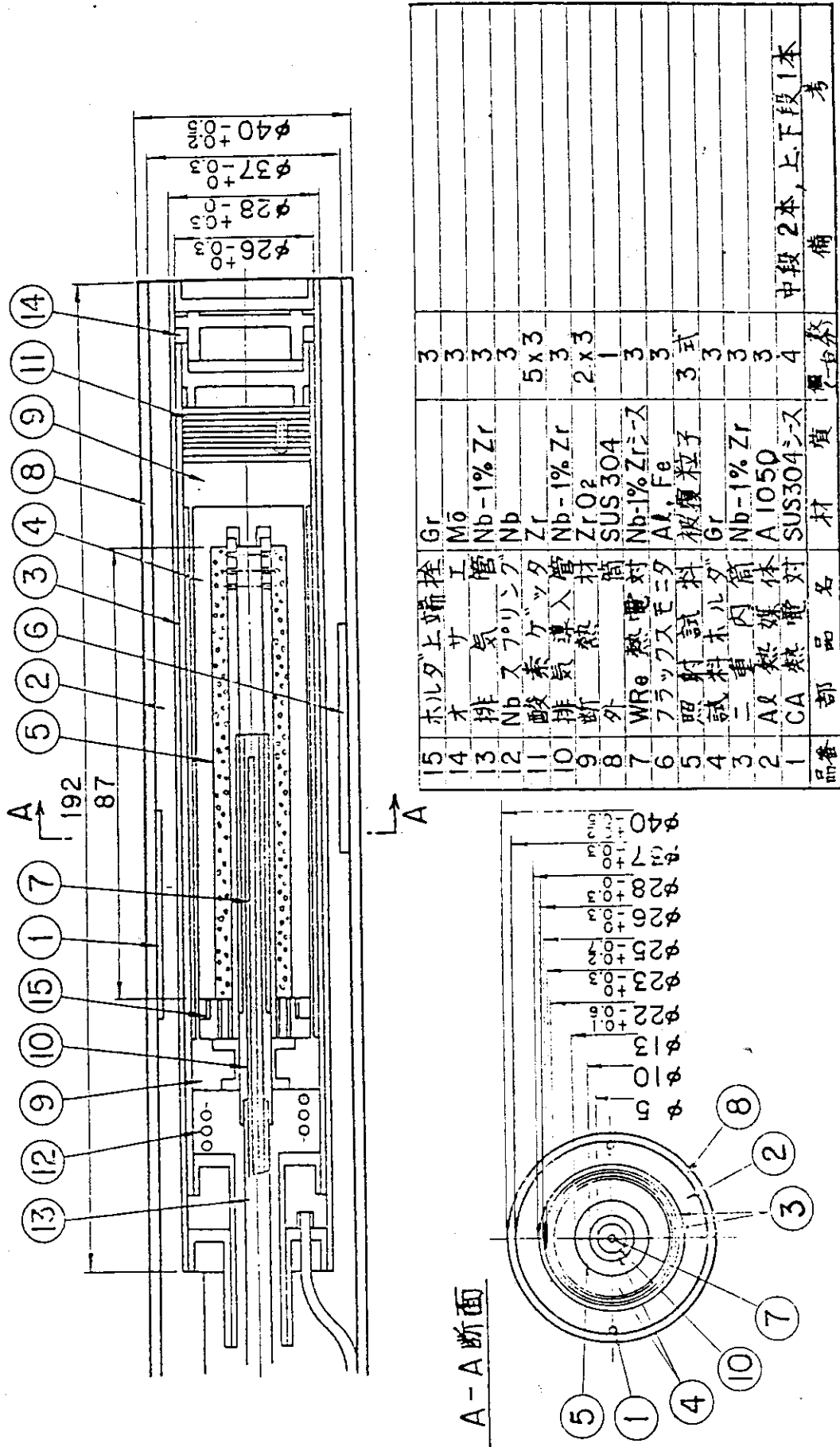


Fig. 2 Details of inner capsule.

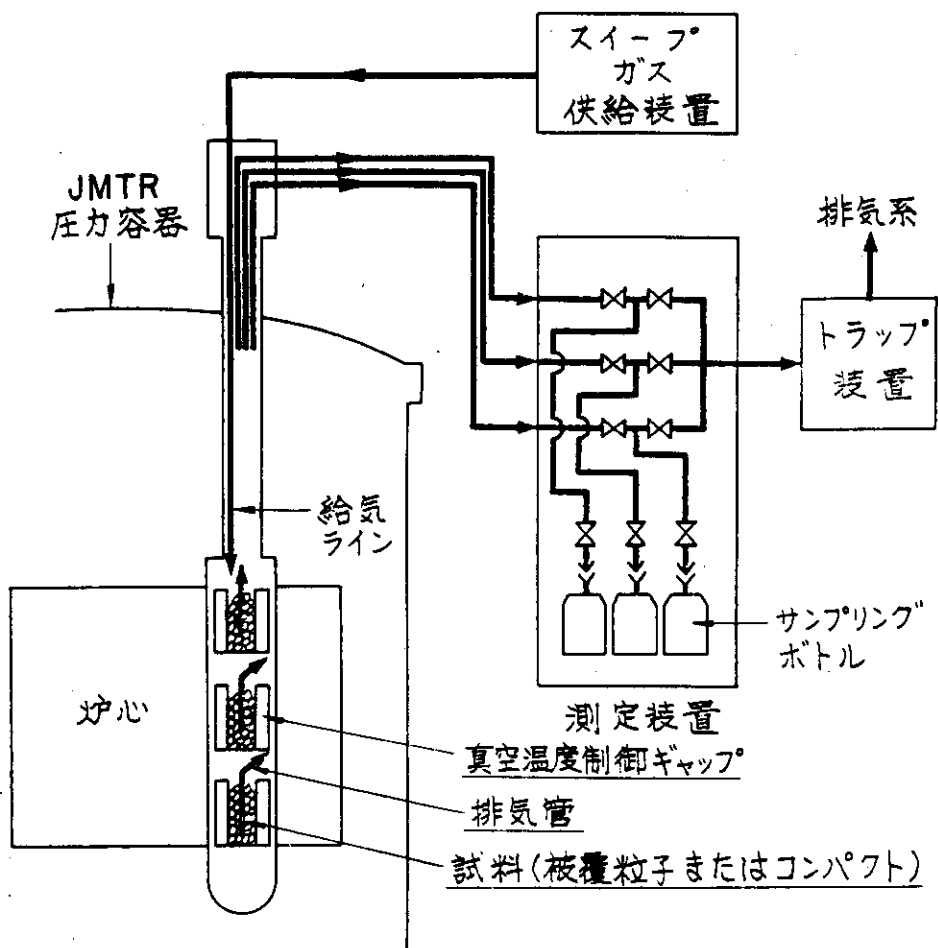


Fig. 3 Irradiation facility for sweep gas capsule.



### 3. 照射試料

#### 3.1 照射試料

74F-9J キャプセルの照射試料は、ルーズな状態の被覆粒子で、3段の内部キャプセルには異った種類が装荷されている。Table 1に、キャプセルに装荷した被覆粒子の特徴を示す。上段試料は、48年度試作の被覆粒子(73FC1)、中段は、49年度試作被覆粒子(74FC1)、そして下段は、49年度に英国 Reactor Fuel Element Laboratories (Springfields) で製造された被覆粒子(74UC1)である。これらの被覆粒子は、いずれも予備設計仕様に準じたもので、低濃縮 $UO_2$ 核の TRISO 被覆である。73FC1及び74FC1など国産被覆粒子の燃料核は、硝酸ウラン( $UO_2(NO_3)_2$ )液(ゾル)をアンモニア( $NH_3$ 及び $NH_4OH$ )中でゲル化した後、乾燥、焼成する方法(いわゆるゾル・ゲル法)によって製造された。一方、英国で製造された74UC1の燃料核は、 $H_2$ 雰囲気中、 $1650^\circ C$ で粉末冶金法によって製造された。被覆の第1層は、低密度熱分解炭素(Pyrolytic Carbon ;PyC)で、どの被覆粒子ともアセチレン( $C_2H_2$ )ガスの熱分解によって蒸着したものである。第2層は高密度PyCで、プロピレン( $C_3H_6$ )の熱分解によって蒸着したものであるが、 $C_3H_6$ 熱分解の場合、その蒸着温度が $CH_4$ 熱分解に比べて低いため、LTI-PyC(Low Temperature Isotropic PyC)と呼ばれており、73FC1、74FC1などのLTI-PyCは $1500^\circ C$ で蒸着されている。第3層は、SiC層であり、メチルトリクロロシラン( $CH_3SiCl_3$ )の熱分解で蒸着したものである。SiC密度はいずれの粒子においても、 $3.20g/cm^3$ と高密度を呈しており、密度の点からはどのSiC層も問題はない。第4層は、第2層と同じLTI-PyCであり、それらの蒸着条件は、第2層LTI-PyCとまったく同じである。

各々の内部キャプセルへの被覆粒子装荷量は約11gであり、これは粒子数にして約11000個である。これらの試料粒子は、次節に示す非破壊の照射前試験を経て、照射キャプセルに封入された。

#### 3.2 照射前試験

被覆粒子の照射前試験は、非破壊及び破壊の両方で行われた。

##### (1) 非破壊試験

非破壊試験では、キャプセル装荷するために秤量した全部の被覆粒子に対し、外観及びX線ラジオグラフィ検査を行い、欠陥粒子数を確認したのち、それらの被覆粒子を取り除かずに、そのままキャプセルに装荷した。Fig. 4にそれらのX線ラジオグラフを示す。Table 2に、これらの検査結果をまとめている。この表に示すように、外観検査では73FC1と74UC1にマイクロクラックが生じている被覆粒子が認められたが、X線ラジオグラフィでは被覆層を貫通したクラックは確認出来なかった。また、X線ラジオグラフィでは、内部の第1層から第3層に欠陥を有する被覆粒子が73FC1に最大6粒認められた。

## (2) 破壊試験

破壊試験では、照射試料と同一の製造バッチから抜き取った被覆粒子について、被覆層破損率及びウラン汚染率の測定を行い、またこれらの被覆粒子を加熱した後、同じような測定を行った。これらの破壊試験に供した被覆粒子量は以下のとおりである。

試料粒子	被覆層破損率, ウラン汚染率測定用(g)	加熱試験用(g)
73 FC 1	34.9861	10.9984
74 FC 1	10.8538	11.1228
74 UC 1	35.0028	11.1068

試験の手順を Fig. 5 に、また被覆破損及びウラン汚染の定義を Fig. 6 に示す。各項目の測定方法は以下のとおりである。

表面ウラン汚染率測定： $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O} = 1$  の硝酸溶液で被覆粒子を浸出し、この液一定量を Al フォイル上で乾燥した。また、既知ウラン量を含む標準溶液を同じように乾燥した後、これらを JRR-4 で照射し、それらの放射能を比較することにより、浸出液中のウラン量を定量した。これを [A] として示す。

最外 PyC 層 (第 4 層) 中のウラン汚染率測定：重クロム酸カリ ( $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ) で飽和した  $\text{HNO}_3$  液中 140 °C で最外層 PyC を厚みの半分まで湿式酸化し、この液を [A] と同様に JRR-4 で照射した後、その中のウラン量を定量した。これを [B] として示す。

SiC 及び内部 PyC 層破損率測定：最外 PyC 層をマッフル炉で空気雰囲気 800 °C にて完全に酸化し、SiC 層を露出させた後、SiC 層より内側の被覆層破損率を目視で測定した。これを [D] として示すが、炉外加熱を施した被覆粒子の破損率を [D'] として示す。

最外 PyC 層及び被覆層貫通破損率の測定：目視にて最外 PyC 層に異状が認められた被覆粒子については、加熱を施さない被覆粒子に対して、1 粒毎に酸浸出を行い、酸浸出率を測定した。その後、[D] と同様に、マッフル炉の空気雰囲気中 800 °C にて最外 PyC 層を完全に酸化させた後、目視で SiC 層より内側の被覆に破損があるかどうかを調べた。これより、最外 PyC 破損 [E, E'] と被覆層貫通破損 [C, C'] とを区別する。

破壊試験の総合的な結果を Table 3 に、また最外 PyC 層に異状が認められた破損粒子についての検査結果を Table 4 に示す。Table 4 の酸浸出率の結果では、1 粒毎の測定であるため、それらの酸浸出率に多くの誤差があると思われるが、浸出率の大きさからみて、被覆層に貫通破損が生じていると思われる粒子は、74 UC 1-No. 1 だけである。Table 4 に見られる 73 FC 1 の酸浸出率は、比率に換算して  $5 \times 10^{-3}$  程度であり、Table 3 に示した被覆粒子表面汚染率 ( $2.0 \times 10^{-7}$ ) に比べてもはるかに大きい。同様に、Table 4 の 74 FC 1 の酸浸出率は約  $1 \times 10^{-2}$  (比率換算) で、Table 3 の表面汚染率 ( $1.6 \times 10^{-6}$ ) に比べてもかなり大きい。Table 4 に示した表面に異常が認められた被覆粒子の外観を Fig. 7 に示す。73 FC 1 や 74 FC 1 の最外 PyC 層の荒れ (metallic luster) は金属光沢を呈しており、貫通破損は起していないが、酸浸出率の大きさからみても、恐らくウランではないかと思われる。このウランの発生源としては、被覆層蒸着中に破損した被覆粒子燃料核が、流動中に近くの被覆粒子とく

っつき、再び離れることが考えられる。

この試験では、このような表面流れも破損とみなしたため、SiC層にも破損が生じている73 FC1-No.2, 74 UC1-No.1, -No.2 粒子は貫通破損とみなした。

Table 3に示すウラン汚染率及び被覆破損率は全て比率(fraction)として示している。73 FC1では、貫通破損(C, C')が若干認められるが、これは加熱後には認められなかった。SiC層破損(D, D')では、加熱によって多少増加の傾向が見られる。74 UC1では、加熱によっても貫通破損はまったく起っていないが、(D)と(D')の比較からわかるように、SiC層破損率は加熱によって2桁ほども増加している。74 UC1では、未加熱粒子でもその貫通破損率は高く、加熱によってわずかながら増加しているようである。また、SiC層破損率では、74 FC1ほどではないが、かなり大幅な増加が見られた。

Table 1 Characteristics of samples for irradiation by 74F-9J capsule.

		73FC1	74FC1	74UC1
Kernel	Material	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>
	Mean diameter ( $\mu\text{m}$ )	487.8	493.1	495.0
	Enrichment (%)	8.1	7.9	8.0
1st layer (buffer PyC)	Mean thickness ( $\mu\text{m}$ )	37.7	43.3	40.7
	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.11	1.09	1.09
2nd layer (LTI-PyC)	Mean thickness ( $\mu\text{m}$ )	27.2	31.7	30.8
	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.84	1.83	1.83
3rd layer (SiC)	Mean thickness ( $\mu\text{m}$ )	25.8	27.9	27.4
	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	3.198	3.20	3.195
4th layer (LTI-PyC)	Mean thickness ( $\mu\text{m}$ )	41.7	42.3	44.2
	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.81	1.80	1.83
Mean diameter of coated particles ( $\mu\text{m}$ )		751.8	765.3	790.0
Weight of sample (g)		11.08	11.12	10.86

Table 2 Results of non-destructive pre-irradiation examination.

Sample	73FC1	74FC1	74UC1
Number of defective particles in the sample detected by Visual inspection*	1 <sup>a</sup>	nd	6 <sup>a</sup>
X-ray microradiography*	4 <sup>a</sup> , 2 <sup>c</sup>	1 <sup>b</sup> , 2 <sup>d</sup>	1 <sup>b</sup> , 2 <sup>d</sup>

where, defect types are expressed as;

- a ..... microcrack,      c ..... no buffer or inner PyC layer,  
 b ..... no SiC layer,      d ..... defect of SiC layer,  
 nd ..... not detected.

Table 3 Results of pre-irradiation examination.

	[A]	[B]	[C]	[C']	[D]	[D']	[E]	[E']
73FC-1	$2.0 \times 10^{-7}$	$3.8 \times 10^{-5}$	$2.85 \times 10^{-5}$	0	$1.57 \times 10^{-3}$	$3.10 \times 10^{-3}$	$1.43 \times 10^{-4}$	$3.60 \times 10^{-4}$
74FC-1	$1.6 \times 10^{-6}$	$1.1 \times 10^{-4}$	0	0	$3.59 \times 10^{-4}$	$2.6 \times 10^{-2}$	$8.97 \times 10^{-5}$	0
74UC-1	$1.3 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^{-4}$	$1.49 \times 10^{-4}$	$1.93 \times 10^{-4}$	$1.79 \times 10^{-4}$	$7.70 \times 10^{-4}$	$2.98 \times 10^{-5}$	$4.82 \times 10^{-4}$

where,

[A] uranium contamination on the coated particle surface,

[B] uranium contamination in OPyC coating layer,

[A] and [B] are expressed as fraction of contaminated uranium to total uranium in the coated particles,

[C] fraction of through-coating failure,

[D] fraction of SiC and IPyC coating failures,

[E] fraction of OPyC coating failure,

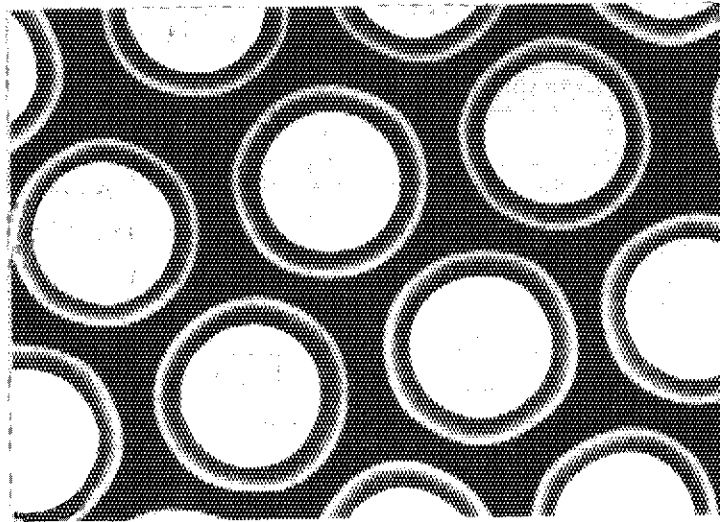
see Fig. 1 for [A] - [D] defectiveness, and

[C'] - [E'] denote above mentioned defectiveness after out-of-pile annealing of the coated particles under Ar gas flow at 1600°C for 500 h.

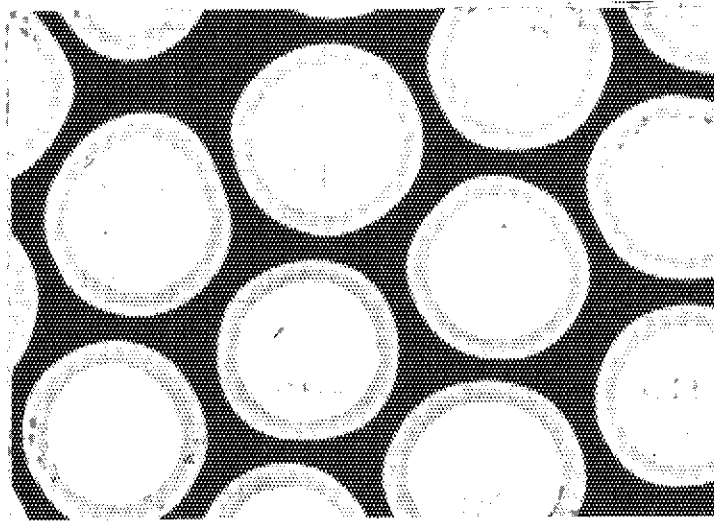
Table 4 Results of examination on the defective particles.

Sample	Particle No	Appearance of outer PyC	Appearance of SiC	Uranium leaching fraction (g U/ g particles)	Type of defect*
73FC1	1	metallic luster	intact	$2.70 \times 10^{-3}$	E
	2	metallic luster	failed	$2.60 \times 10^{-3}$	C
	3	metallic luster	intact	$2.90 \times 10^{-3}$	E
	4	metallic luster	intact	$2.50 \times 10^{-3}$	E
	5	metallic luster	intact	$2.30 \times 10^{-3}$	E
	6	metallic luster	intact	$2.20 \times 10^{-3}$	E
74FC1	1	metallic luster	intact	$6.90 \times 10^{-3}$	E
74UC1	1	micro-crack	failed	$5.90 \times 10^{-1}$	C
	2	micro-crack	failed	$2.32 \times 10^{-2}$	C
	3	micro-crack	intact	$1.42 \times 10^{-2}$	E

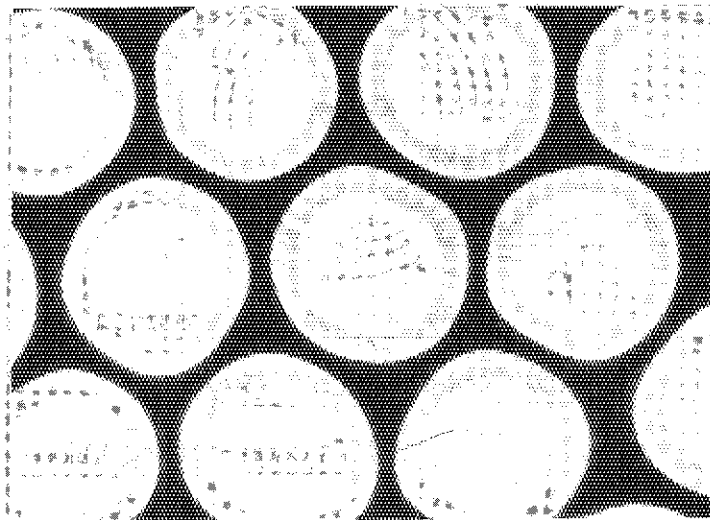
\* E denotes defect of outer PyC layer, C , through-coating failure.



74UC1



74FC1



73FC1

Fig. 4 Typical X-ray radiographs of coated particles.

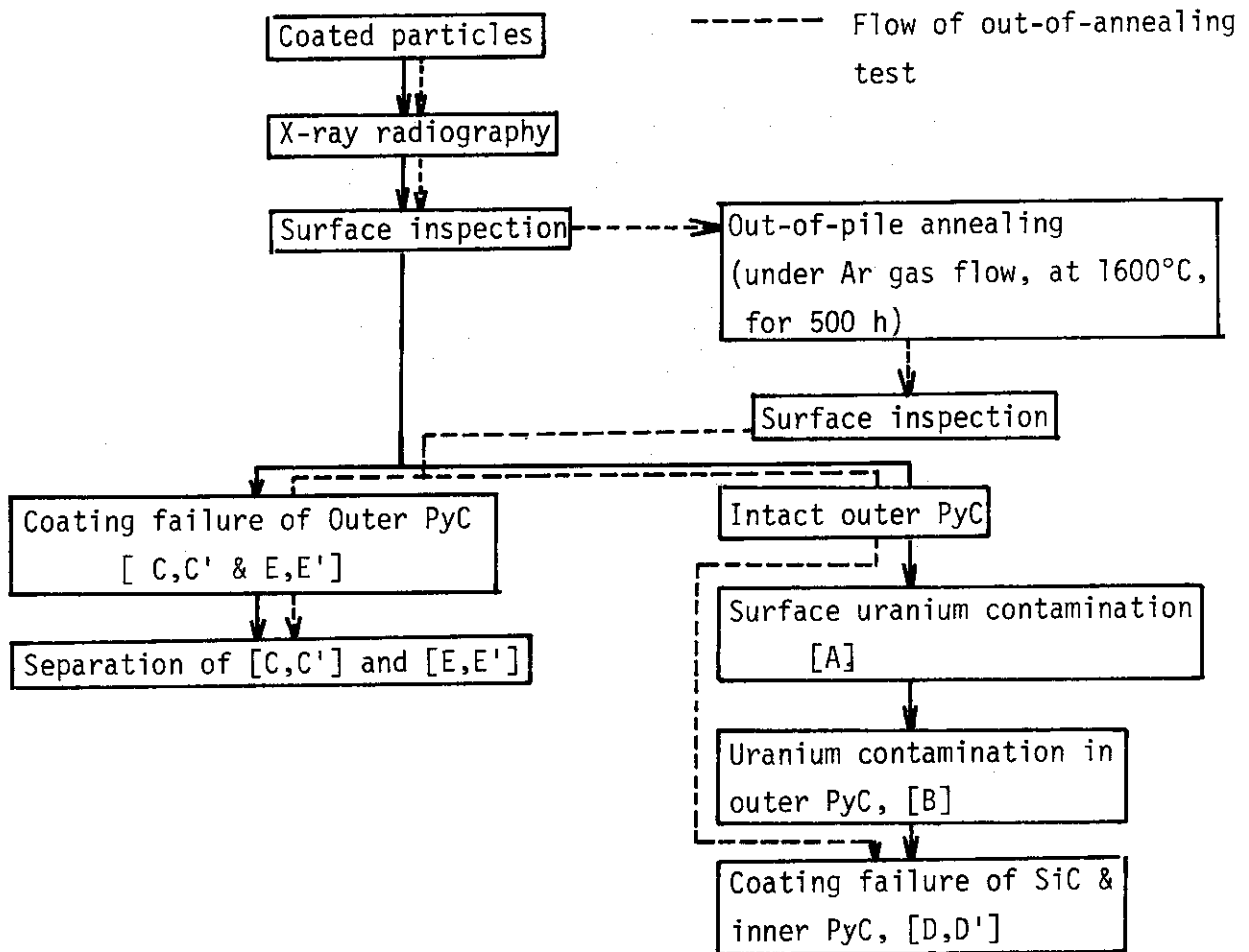


Fig. 5 Flow diagram of pre-irradiation examination.

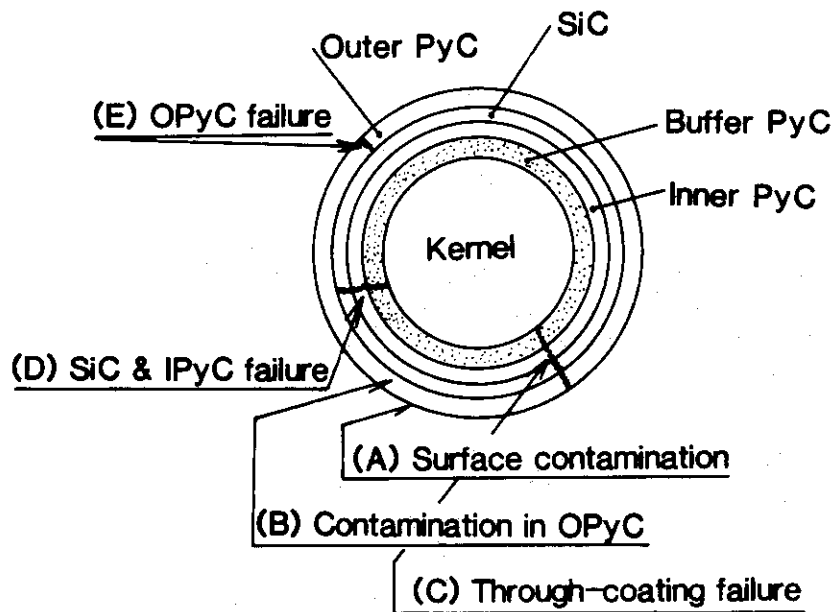
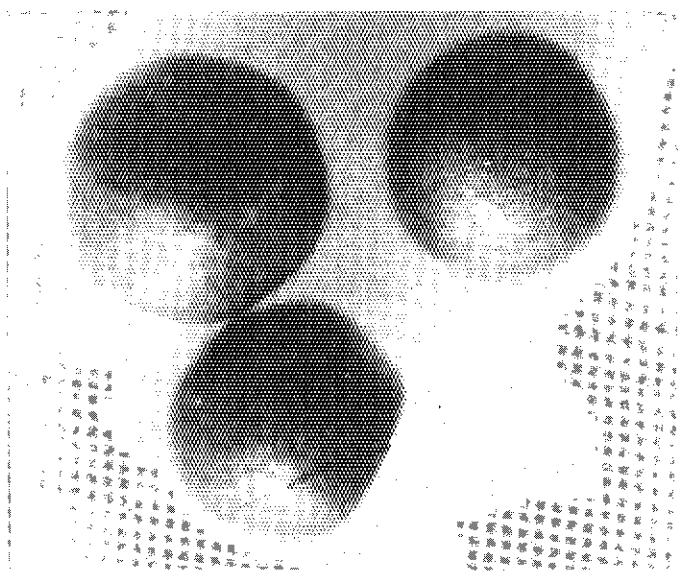
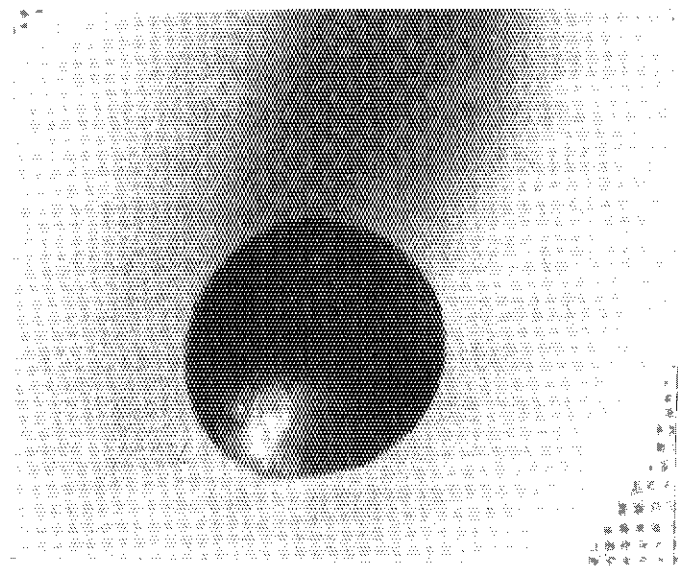


Fig. 6 Defects and contamination in coated particles.

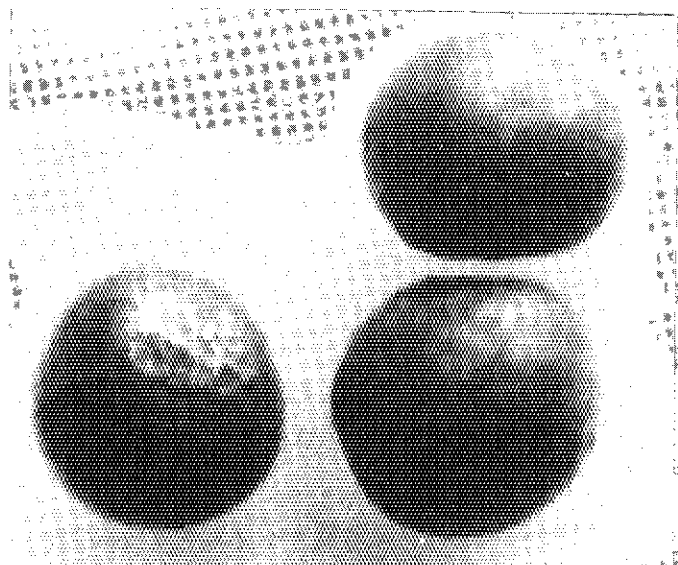




(74UC1)  
MICRO-CRACK



(74FC1)  
METALLIC LUSTER



(73FC1)  
METALLIC LUSTER

Fig. 7 Appearance of defective particles found in the samples.

## 4. 照 射

### 4.1 照射の概要

74F-9J キャプセルの照射データを Table 5 にまとめている。このキャプセルは、52年から53年にかけてJMTR 反射体領域孔(M-6)で3サイクルにわたって照射されたもので、その中段内筒の温度は所定の目標温度 1600℃に達した。上段内筒はキャプセル製作中にスweepガス管が閉塞し、また熱電対が断線したため、ガスをスweepさせることが出来なかったが、中段及び下段の内部キャプセルは十分、その機能をはたし、所定の目的を達することが出来た。

### 4.2 照射温度

74F-9J キャプセルの照射温度の経時変化を Fig. 8 に示す。上述のごとく、上段内筒の熱電対は照射開始前に断線したため温度履歴を図示していないが、Table 5 にその推定温度を示している。中段内筒に装荷した74FC1の照射温度は#42, #43 サイクルで最高 1300℃であるが、#44 サイクルではFP ガス放出の温度依存性を調べるために温度を最高 1600℃まで上げた。一方、下段内筒の74UC1の照射温度は、#42, #43 サイクルで最高 900～880℃であるが、#44 では、中段内筒の温度制御によって 1120℃まで達した。

2.1 に記したように、このキャプセルの黒鉛試料ホルダーでは、同心円のギャップ孔に被覆粒子が充填されているために、ギャップ孔の内側と外側とでは温度差( $\Delta T$ )がかなりついているものと考えられる。GENGTC 計算<sup>7)</sup>では、中段内部キャプセルでは  $\Delta T = \sim 180^\circ\text{C}$ 、下段内部キャプセルでは、 $\Delta T = \sim 130^\circ\text{C}$ であった。ここでは、内側の温度として示す。

### 4.3 中性子照射量<sup>8)</sup>

熱中性子及び高速中性子照射量のキャプセル軸方向における分布を Fig. 9 に示す。熱中性子照射量は 0.17% Co-Al ワイヤモニターを用い、 $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  反応によって生ずる  $^{60}\text{Co}$  (半減期 5.28 年) の生成量をゲルマニウム検出器による  $\gamma$  線分析により定量し、その結果をモニタ位置での中性子照射量に換算したものである。熱中性子照射量算出のための  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  反応の平均微視的断面積  $\sigma(E)$  では 25.7 b が使われた。

一方、高速中性子照射量は、鉄ワイヤをモニタとして用い、 $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$  反応によって生ずる  $^{54}\text{Mn}$  (半減期 313 日) の生成量をゲルマニウム検出器による  $\gamma$  線分析により定量したものである。高速中性子照射量は、1 MeV 以上で求められたが、この算出に用いた  $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$  反応の微視的断面積  $\sigma_{1.0}(E)$  は 73.0 mb<sup>9)</sup>であった。

Table 5 に示すように、最も中性子照射量の大きい中段内部キャプセルでの熱中性子照射量は  $9.2 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  ( $E < 0.683 \text{ eV}$ )、高速中性子照射量は、 $7.1 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )で

あった。この高速中性子照射量は、多目的高温ガス実験炉における設計最高照射量とほとんど同じであった。

#### 4.4 燃焼率

燃焼率測定は健全粒子の $\gamma$ スペクトロメトリーによって、硝酸浸出後の被覆粒子約100粒をX線ラジオグラフィで撮影し、このラジオグラフィにより $UO_2$ 核が残留している被覆粒子数を調べた。製造時の燃料核の寸法、密度データを考慮して、この被覆粒子数から $\gamma$ スペクトロメーに供したU原子数を算出した。一方、 $\gamma$ スペクトルからのFP核種の定量計算には、SPECTRAN-Fコードが使われた。燃焼率計算に用いた核種は、 $^{106}Ru$ - $^{106}Rh$ 、 $^{137}Cs$  および  $^{144}Ce$ - $^{144}Pr$  の3系列である。Pu核分裂割合は $^{106}Ru$  および  $^{144}Ce$  に照射中の崩壊を考慮して、 $^{106}Ru/^{144}Ce$  の生成原子比から求めた。燃焼率及びPu核分裂割合の算出方法の詳細については、文献(10)を参照されたい。

Table. 5に示すように、73 FC 1、74 FC 1及び74 UC 1の燃焼率は、それぞれ1.39、1.97及び1.43 % fimaであり、燃焼に占めるPu核分裂の割合はいずれも10 %以下であった。特に、中段内部キャプセルに装荷した74 FC 1の燃焼率は、高速中性子照射量と同様に、多目的高温ガス実験炉の最高燃焼率とほとんど同じであった。

Table 5 Irradiation data of 74F-9J capsule.

Date of irradiation	13 Dec. 1977 - 8 July 1978		
Irradiation hole	M-6		
Irradiation duration (efpd)*	50.54 (1213 efph)		
Inner capsule	top	middle	bottom
Sample	73FC1	74FC1	74UC1
Thermal neutron fluence (n/cm <sup>2</sup> , E 0.683 eV)	6.1x10 <sup>20</sup>	9.2x10 <sup>20</sup>	6.0x10 <sup>20</sup>
Fast neutron fluence (n/cm <sup>2</sup> , E 0.18 MeV)	4.6x10 <sup>20</sup>	7.1x10 <sup>20</sup>	4.8x10 <sup>20</sup>
Irradiation temperature under 50 MW reactor power	(860)	1260 - 1300	840 - 900
	(870)	1240 - 1300	850 - 880
	(1100) <sub>max.</sub>	1200 - 1600	820 - 1120
Burnup ( % fima ) ( ratio of Pu fission, % )	1.39 (5.2)	1.97 (7.5)	1.43 (4.4)

\* efpd stands for effective full power days.

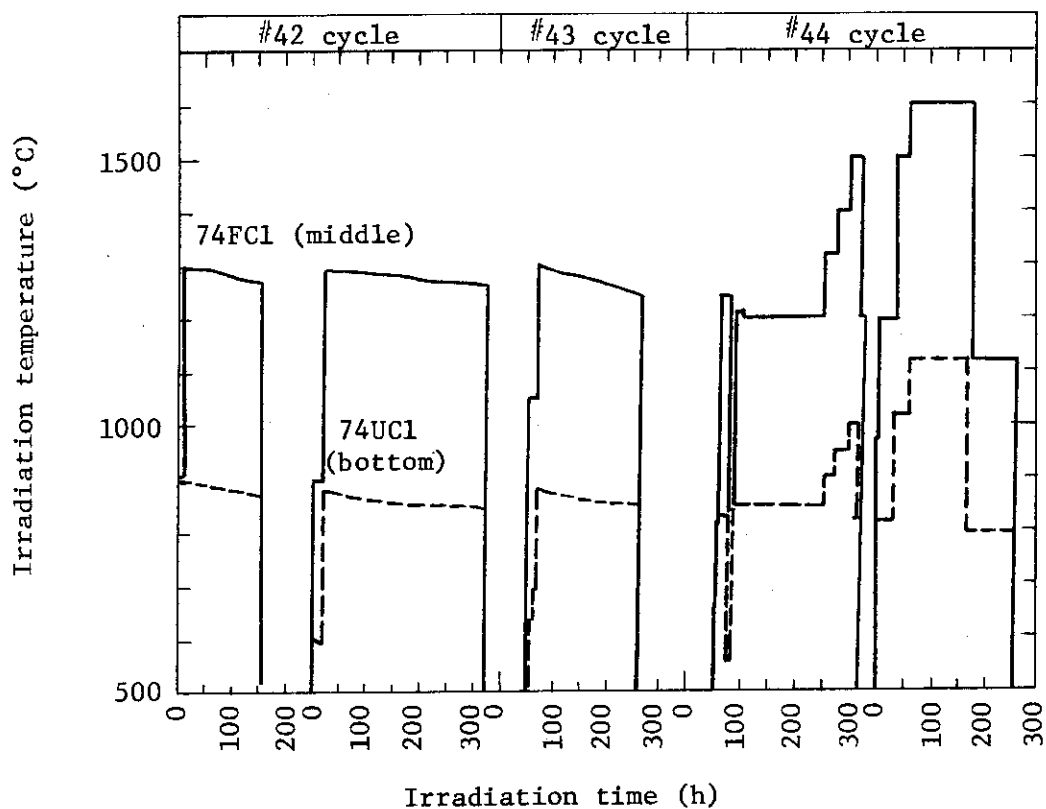


Fig. 8 Valiation of irradiation temperature of 74F-9J capsule

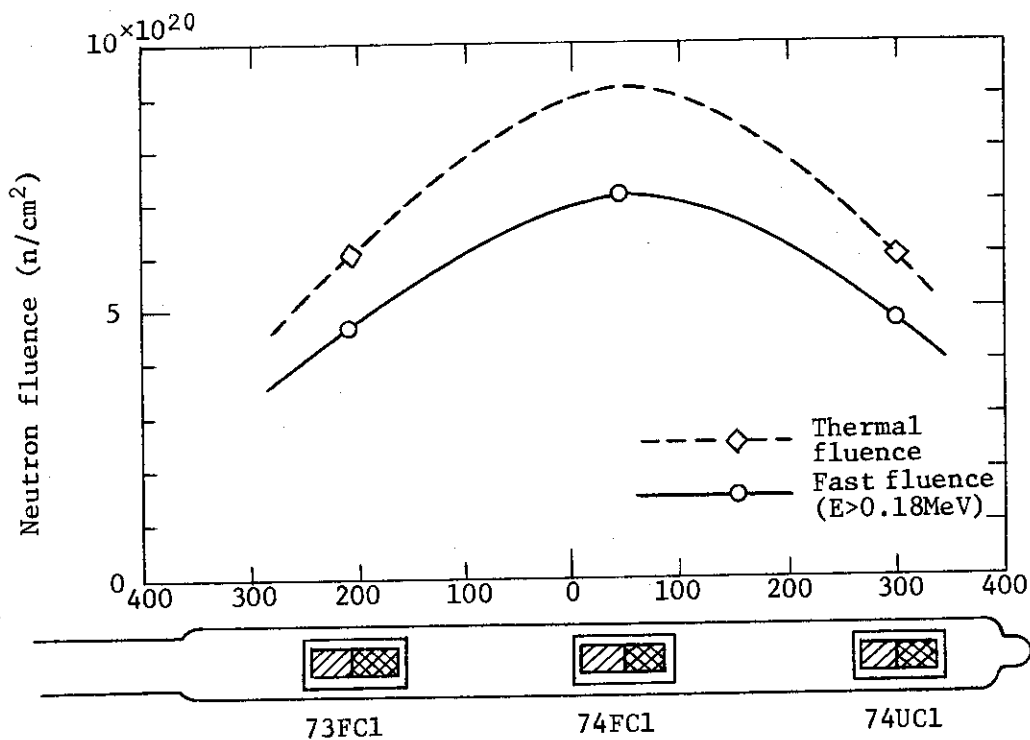
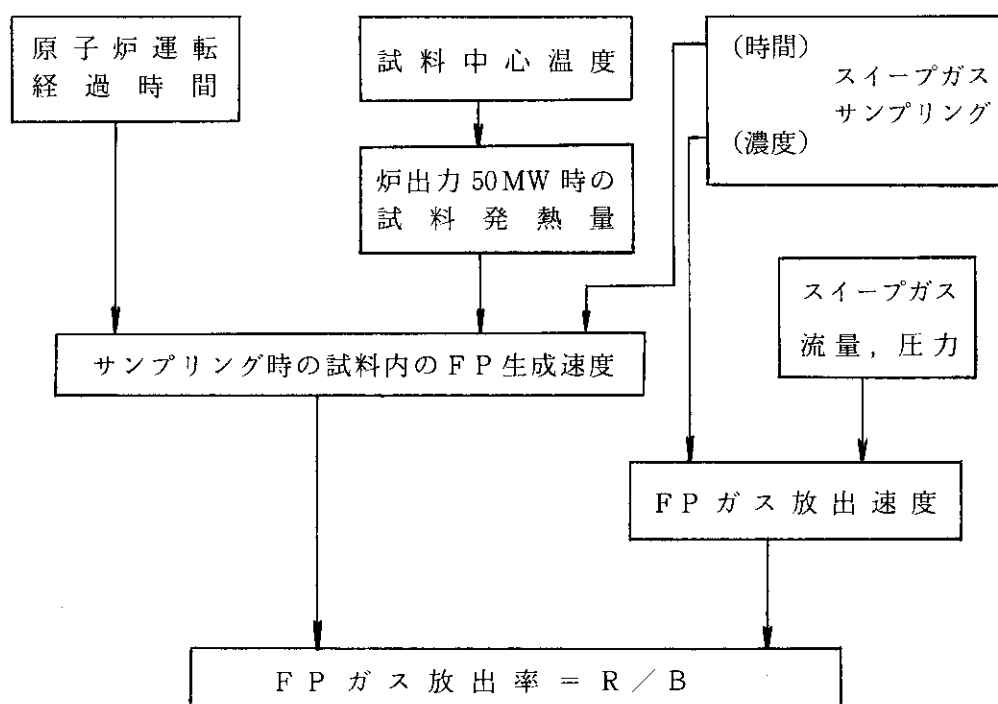


Fig. 9 Distribution of neutron fluence through the capsule axis.

## 5. FPガスの放出

### 5.1 FPガス放出率の算出

照射中に被覆粒子から放出されるFPガスは、その粒子内のFPガス生成との対比によって、放出率として表わされる。FPガスの生成は、原子炉の運転経過、試料中心温度から求められた核分裂発熱量及びスイープガス・サンプリング時間などを考慮して求められる。FPガス放出率算出の手法は以下のようにして求められた。



試料発熱量の測定は、二重内筒中のヘリウム圧を1気圧とし、測定中心温度及びキャプセル構造を入力条件として、GENGTICコードによる次元計算によって、発熱量を求めた。原子炉内に装荷する核燃料物質の発熱は、中性子吸収による核分裂と炉内に存在するガンマ線を試料が吸収して起る、いわゆるガンマ発熱によるものとである。中心温度を測定して得られる発熱量は、両者を加えたものであるが、核分裂生成物の数を求めるためのものは、前者のみである。ガンマ線発熱量としては、JMTR運動初期に実験で求められた値が使われたが、照射孔(M-6)では、縦方向ピーク値として6w/gであった。

#### (1) FPガス放出率

照射下での被覆粒子内のFPガス量の時間的变化は、

$$\text{FP量の時間変化} = \text{生成} - \text{消滅} - \text{放出} \quad (1)$$

で表わされる。

ここで、 生成：核分裂による直接生成及び他核種からの崩壊による間接生成  
 消滅：崩壊による消滅と中性子吸収による消滅

である。

生成 =  $Y_i^* F$  , 消滅 =  $\lambda_i^* N_i$  ( $= (\lambda_i + \sigma_i \phi) N_i$ ) , 放出 =  $L_i N_i$  とおくと, (1)式は

$$\frac{dN_i}{dt} = Y_i^* F - \lambda_i^* N_i - L_i N_i \quad (2)$$

で示される。ここで示した記号の意味は、この章の終りに一覧表として示している。定常状態においては、 $dN_i/dt = 0$  であるので、(2)式は

$$Y_i^* F = \lambda_i^* N_i + L_i N_i \quad (3)$$

である。対象とする核種については、 $\lambda_i = 1.52 \times 10^{-2} \sim 2.1 \times 10^{-3}$  (1/sec) であるのに対し、 $L_i$  は経験的に  $\sim 10^{-8}$  (1/sec) であることがわかっているので、(3)式は近似的に

$$Y_i^* F = \lambda_i^* N_i \quad (4)$$

となる。

ところで、5.1にも記したように、放出率  $(R/B)^*$  は、FPガス放出速度と生成速度との比によって定義される。したがって、 $R/B$  は(4)式を考慮すると、

$$\text{放出率} = \frac{R}{B} = \frac{L_i N_i}{Y_i^* F} = \frac{L_i N_i}{\lambda_i^* F} = \frac{L_i}{\lambda^*} \quad (5)$$

となる。スイープガス実験では、放出速度は実測によって求め、生成速度は計算によって求めた。

## (2) 放出速度

FPガスの放出速度はスイープガス中のFPガス濃度から求められるが、FPガス濃度を測定する方法としては、(1)サンプリングボトルにスイープガスの一部を採取し、その放射能を測定する、(2)スイープガス中のFPガスをチャコール、トラップに採取したのち、メジャリング・ボルトに移す方法、及び(3)メジャリング・ボルトにスイープガスを直接流し、連続的に放射能の測定を行う、などがある。このような種々の測定方法に対して、放出速度 ( $L_i N_i$ ) とスイープガス中のFPガス原子数 ( $N_i^s$ ) との関係は一般に次式によって示される。

$$N_i^s = \frac{(L_i N_i)}{q} \cdot e^{-\lambda T_t} \cdot \int_{V_S} e^{-\lambda t} dv \quad (6)$$

$$A_p(E) = N_i^s \cdot f \cdot e^{-\lambda T_c} \cdot \lambda \cdot T(E) \cdot \eta(E) \cdot \int_0^{T_m} e^{-\lambda t} dt \quad (7)$$

74F-9J キャプセルの場合、サンプリングの方法は上述した(1)であるので、(6)及び(7)は

\*  $R/B = \frac{\text{Release rate}}{\text{Birth rate}}$

$$N_i^s = \frac{(L_i N_i)}{q} \cdot e^{-\lambda T_t} \cdot V_s \quad (8)$$

$$Aq(E) = N_i^s \cdot e^{-\lambda T_c} \cdot \lambda \cdot T(E) \cdot \eta(E) \cdot \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T_m}) \quad (9)$$

(9)式で、サンプリング・ボトルの計測から得られるFPガスの計数率 ( $A_p(E) \cdot \lambda$ ) から  $N_i^s$  を求め、さらにこれを使って(8)式から放出速度 ( $L_i N_i$ ) が求められる。 $N_i^s$  が求められた場合(5)式のR/Bは

$$R/B = \frac{(N_i^s \cdot q / V_s) \cdot e^{\lambda T_t}}{\lambda_i^* N_{ii}} \quad (10)$$

で与えられる。74F-9J キャプセルでは、 $q = 100 \text{ cm}^3/\text{min} (= 1.67 \text{ cm}^3/\text{sec})$ ,  $V_s = 21 \text{ cm}^3$  である。

### (3) 生成速度

上述したように、FPガス生成速度は、熱電対測定による試料温度を GENG TIC コードで解析して得られる試料線出力、 $Q$  をもとに次式で求められる。

$$Y_i^* F (= \lambda_i^* N_i) = Q \cdot \ell \cdot W \cdot Y_i^* \quad (11)$$

74F-9J キャプセルの場合、試料充填長さ、 $\ell = 8.75 \text{ cm}$ 、 $1 \text{ W} \cdot \text{sec}$  あたりの核分裂数、 $W = 3.52 \times 10^{10} \text{ fissionS/W} \cdot \text{sec}$  を使った。

ところで、今までR/Bの算出には、生成量が定常状態である ( $dN_i/dt = 0$ ) として、とりあつかって来た。定常状態では、(5)式に示すようにR/Bは、 $L_i/\lambda_i^*$ のみで表わされ、被覆粒子内のFPガス量、 $N_i$ には依存しなかった。しかし、実際のFPガス濃度の測定では、測定時点でFPガス量が定常であるとは限らない。(2)式で、時間  $t$  でのFPガス量は、

$$N_i = \frac{Y_i^* F}{\lambda_i^* + L_i} (1 - e^{-(\lambda_i^* + L_i)t}) \quad (12')$$

で示される。すでに記したように  $\lambda_i^* \gg L_i$  であるので、(12')式

$$N_i \cdot \lambda_i^* = Y_i^* F (1 - e^{-\lambda_i^* t}) = \text{放射能} \quad (12)$$

となる。(12)式で与えられる放射能を GAMSPEC コードで計算し、一例としてその経時変化<sup>(11)</sup>を Fig. 10 に示す。ここでは、発熱量を 3220 W とした。 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 、 $^{87\text{m}}\text{Kr}$  及び  $^{88}\text{Kr}$  量は照射時間が1日経過した後は定常に達しており、 $^{135}\text{Xe}$  量は、3日後はほぼ定常に達している。しかし、 $^{133}\text{Xe}$  は、照射時間が1週間をすぎてもなお増加しており、定常に到達するのにかかり長時間かかることを示している。

定常状態での放出率 ( $= (R/B)_{\text{sta.}}$ ) と実際の放出率 ( $= (R/B)_{\text{real}}$ ) を比較するため、以下のことを行った。(12)式の両辺に  $L_i$  を掛けると、

$$\frac{L_i N_i}{Y_i^* F} = \frac{L_i}{\lambda_i^*} (1 - e^{-\lambda_i^* t}) \quad (13)$$



となる。放出率は、 $(R/B)_{\text{real}} = \frac{L_i N_i}{Y_i^* F}$ ,  $(R/B)_{\text{sta}} = \frac{L_i}{\lambda_i^*}$  であるので、(13)式は

$$(R/B)_{\text{real}} = (R/B)_{\text{sta}} (1 - e^{-\lambda_i^* t}) \quad (13)$$

となり、 $(R/B)_{\text{real}}$  は照射時間に対して Fig. 9 に示した  $N_i$  の経時変化と同じように変化する。 $^{133}\text{Xe}$  の  $(R/B)_{\text{real}}$  は、照射後 3 日で  $(R/B)_{\text{sta}}$  の ~30%, 1 週間で ~40%, 20 日で 93% となり、 $^{133}\text{Xe}$  放出が定常に達するには、少なくとも 20 日以上はかかることがわかる。

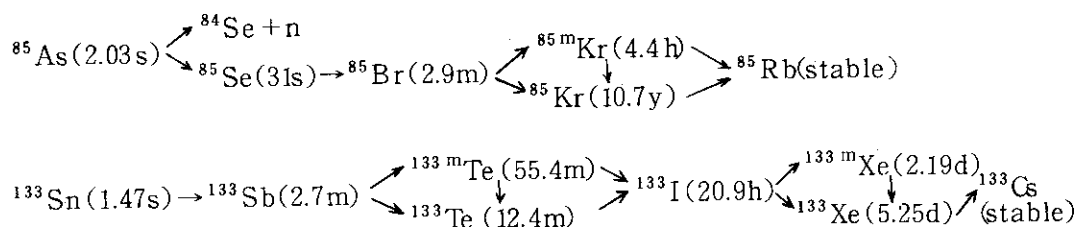
## 5.2 FP ガスの放出結果

スweepガスのサンプリングは、すでに記したように、中及び下段内部キャプセルからのガスラインから行われた。Fig. 11 には、1977 年 12 月 22 日に下段内部キャプセル・ガスラインからサンプリングしたスweepガスの  $\gamma$  線測定の例を示す。この図に見られるように、74 F-9 J キャプセルのスweepガス中の測定可能な FP ガスは、 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ ,  $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{88}\text{Kr}$  及び  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$  であり、この測定に見られる  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{41}\text{Ar}$ ,  $^{40}\text{Kr}$  及び  $^{60}\text{Co}$  は測定器周囲のバックグラウンドである。したがって、74 F-9 J キャプセルでは Kr および Xe の上記 5 核種について R/B の測定を行った。Table. 6 には、これら 5 核種の特性及び  $\gamma$  計測器の計数効率をまとめている。

FP ガス濃度測定は、照射中に 19 ~ 21 回、原子炉停止中に 8 ~ 9 回行い、それらは 5.1 に記した手法により R/B に変換された。ただし、原子炉停止中の FP ガス生成速度は停止直前の値を使った。74 F-9 J キャプセル中段内部キャプセルに装荷した 74 FC 1 試料からの R/B を Table 7.1 に、下段内部キャプセルに装荷した 74 UC 1 試料からの R/B を Table 7.2 にまとめている。また、測定した核種の中で、 $^{85\text{m}}\text{Kr}$  と  $^{135}\text{Xe}$  の R/B の経時変化を Fig. 12 に示す。

Fig. 12 に示した FP ガス放出挙動では、以下のようなことが見られる。 $\#42$  サイクル前半では、両試料とも R/B 値は  $10^{-6} \sim 10^{-7}$  の間で低い値を示したが、後半になると、特に 74 FC 1 の R/B は増加が大きく、また 74 UC 1 においても、わずかながら増加が認められる。 $\#43$  サイクルでは両試料の R/B ともほぼ一定であるが、 $\#44$  サイクルになると、特に 74 FC 1 では照射温度の急激な上昇にともなって R/B 値が著るしく増加している。また、74 UC 1 においては、温度の上昇はかなり高いが、74 FC 1 の R/B ほど急激な増加は示さず、非常にゆるやかな変化にとどまっている。74 FC 1 の場合、1600 °C の照射温度に対し、 $^{85\text{m}}\text{Kr}$  の R/B 値は  $\sim 10^{-3}$  まで増加しているのが特徴である。

FP ガスの放出に対しては、それらの親核種の放出の寄与 (precursor effect) が無視出来ない場合がある。質量数 85 と 133 の壊変系列を一例<sup>12)</sup>として示すと、



( ) は半減期

である。 $^{85m}\text{Kr}$ の親核種である $^{85}\text{Br}$ ,  $^{85}\text{Se}$ ,  $^{85}\text{As}$ などは半減期が非常に短いため、 $^{85m}\text{Kr}$ の放出に及ぼす親核種の影響は考慮しなくても不都合は生じない。しかし、 $^{133}\text{Xe}$ の場合、 $^{133}\text{I}$ の半減期は20.9 hであり、この半減期は $^{85m}\text{Kr}$ の親に比べて相当長い。したがって、測定される $^{133}\text{Xe}$ は $^{133}\text{Xe}$ として試料から放出されたものと、 $^{133}\text{I}$ として放出され、キャプセル内のどこかで $^{133}\text{I} \rightarrow ^{133}\text{Xe}$ に変わったものが混合されていると考えなければならない。Krの場合は、上述した $^{85m}\text{Kr}$ に限らず、 $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{88}\text{Kr}$ ともPrecursor effectは小さいが、Xeでは、 $^{133}\text{Xe}$ とともに、半減期6.6 hの $^{135}\text{I}$ を親とする $^{135}\text{Xe}$ についてもPrecursor effectは無視出来ないと思われる。しかし、74F-9Jキャプセルでは測定出来なかった核種であるが、 $^{138}\text{Xe}$ については、その親である $^{138}\text{I}$ の半減期が6.5 sと非常に短いため、Precursor effectはまったく考慮する必要はない。

Xe放出に及ぼすIの寄与の割合を正確に知ることは出来ないが、その傾向については次のようにして求めることが出来る。原子炉が停止する直前にXe濃度を測定しておき、炉が停止した後に、その濃度の減衰の経時変化を測定し、それを炉停止時に外挿する。その外挿値がIの放出値であり、炉停止直前のXe濃度に対するこの外挿値の比がIの寄与の割合である。Fig. 13は炉止後におけるXeのR/Bの減少を停止後の時間に対してプロットしたものである。74F-9Jキャプセル照射では、 $\#42$ サイクル前半と $\#44$ サイクル前半サイクル終了直後にXeガス濃度の測定を行った。Fig. 13に示すXeのR/Bの減少から得られるIの放出寄与をTable. 8にまとめている。Table 8には、全Xe放出率 $(R/B)_{\text{Xe}}^*$ に対するI放出率 $(R/B)_I$ の割合を示している。この表から、次のような傾向がみられる。I放出割合は1000~1250°Cの温度範囲では、40~60%程度であること、 $^{135}\text{I}$ の割合は $^{133}\text{I}$ より少ないこと、74FCIの $\#44$ サイクルにみられるように、温度が非常に高いと、Iの放出割合は~20%程度まで低下すること、などである。特に、上述した中で、温度の増加にともなうI放出割合の低下の原因については、はっきりしたことはわからないが、ORNLのスweepガス照射実験<sup>12)</sup>では、燃焼率の増加にともなうI放出割合が減少し、Xeとして放出される割合が増加すると報告されており、傾向的にはこのORNLの例と似ている。照射中などに被覆粒子破損が生じると、粒子中のFPガスが一機に放出されるが、このようなバーストが生じると、半減期の長い $^{133}\text{Xe}$ の割合が多くなり<sup>12)</sup>、結果的にIの放出割合が減少することがある。Fig. 14には、 $\#44$ サイクルで測定したスweepガス排気中の希ガス放射能変化を示している。この図には、温度変動にともなうバーストと共に、被覆粒子破損によると思われるバースト(図中斜線)が現われている。6月23日の $\#44$ サイクル前半の炉停止前には、10時50分にHeダンプ運転による温度変化にともなうバーストが現われているが、それ以後、炉停止まではバーストは見られない。したがって、 $\#44$ サイクルの74FCIからの放出に見られる非常に低いI放出割合は、バースト現象とも直接的には関係ないようである。スチュードビック研究所R2炉で照射したドイツのボール燃料の場合<sup>5)</sup>では、900°Cでの $^{133}\text{I}$ 放出割合が平均12.5%、 $^{135}\text{I}$ 放出割合は40.5%であり、本試験でのI放出割合に比べると、特に $^{133}\text{I}$ の割合は少ない。

## 記 号

- $N_i$  ; 核種  $i$  の原子数 (atoms)  
 $t$  ; 時間 (sec)  
 $Y_i^*$  ; 核種  $i$  の実効核分裂収率 (核種  $i$  を生じせしめる直接収率と親核種の崩壊により核種  $i$  を生じせしめる収率との和)  
 $F$  ; 被覆粒子内の核分裂速度 (atoms/sec)  
 $\lambda_i^*$  ; 核種  $i$  の実効崩壊定数 (1/sec) ( $= \lambda_i + \sigma_i \phi$ )  
 $\lambda_i$  ; 核種  $i$  の崩壊定数 (1/sec)  
 $\sigma_i$  ; 核種  $i$  の中性子吸収断面積 ( $\text{cm}^2$ )  
 $\phi$  ; 中性子束 ( $1/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ )  
 $L_i$  ; 核種  $i$  の放出速度係数 (1/sec)  
 $N_i^s$  ; 核種  $i$  のサンプリング原子数 (atoms)  
 $q$  ; スイープガス流速 ( $\text{cm}^3/\text{sec}$ )  
 $T_t$  ; 試料表面からサンプリングボトルまでのスイープガス移行時間 (sec)  
 $V_s$  ; サンプリングボトルの容積 ( $\text{cm}^3$ )  
 $A_p(E)$  ; エネルギー( $E$ )のフォト・ピーク全計数值 (counts)  
 $f$  ; 計測割合  
 $T_c$  ; サンプリングから計測に至るまでの時間 (sec)  
 $T(E)$  ; エネルギー( $E$ )のガンマ線放射率  
 $\eta(E)$  ; エネルギー( $E$ )の計数効率  
 $T_m$  ; 計測時間 (sec)  
 $Q$  ; 線出力 ( $\text{w/cm}$ )  
 $l$  ; 試料充填長さ (cm)  
 $W$  ;  $1 \text{ w} \cdot \text{sec}$  あたりの核分裂数 (fissions/ $\text{w} \cdot \text{sec}$ )  
 $R/B$  ; FPガス放出率, (Release rate) / (Birth rate) の略  
 $(R/B)_{\text{real}}$  ; 時間  $t$  の  $R/B$   
 $(R/B)_{\text{sta.}}$  ; 定常状態での  $R/B$

Table 6 Kr and Xe isotopes used for evaluation of R/B.

Isotope	Half life	Gamma energy of photo-peak (KeV)	Absolute intensity	Counting efficiency* (%)	
				I	II
$^{85m}\text{Kr}$	4.4 h	151	0.761	6.29	0.85
$^{87}\text{Kr}$	76.4 m	403	0.483	2.05	0.313
$^{88}\text{Kr}$	2.8 h	196	0.38	4.33	0.67
$^{133}\text{Xe}$	5.29 d	81	0.366	3.11	0.413
$^{135}\text{Xe}$	15.6 m	250	0.92	3.53	0.518

\* I ; direct contact with the detector,  
 II ; second stage from the detector.

Table 8 Iodine contribution to Xe release

Mass number	Reactor operation cycle	74FC1		74UC1	
		Temperature at shut-down ( $^{\circ}\text{C}$ )	$(\text{R/B})_{\text{I}}/(\text{R/B})_{\text{Xe}^*}$	Temperature at shut-down ( $^{\circ}\text{C}$ )	$(\text{R/B})_{\text{I}}/(\text{R/B})_{\text{Xe}^*}$
133	# 42	1250	0.57	850	0.65
135			0.38		0.57
133	# 44	1500 $\rightarrow$ 1200	0.22	1000 $\rightarrow$ 820	(0.36)
135			0.18		0.51

Table 7-1 Data of R/B from 74FC-1( middle inner capsule ).

Date of measurement					Temperature (°C)	Power (MW)	Kr-85m	Kr-87	Kr-88	Xe-133	Xe-135
Y	M	D	H	M							
1977	12	20	16	20	1270	50	7.21E-07	6.86E-07	5.75E-07	-	3.50E-07
		22	9	47	1270	50	7.65E-07	5.46E-07	4.78E-07	-	2.91E-07
1978	1	14	9	55	1270	50	5.69E-07	3.38E-07	3.16E-07	2.42E-07	1.81E-07
		19	15	00	1270	50	1.88E-06	1.04E-06	1.05E-06	3.39E-06	4.76E-07
		23	14	10	1270	50	3.19E-06	1.79E-06	1.85E-06	2.42E-06	6.04E-07
		25	17	10	1270	50	3.28E-06	1.93E-06	1.37E-06	3.48E-06	6.42E-07
		26	9	53	1270	50	3.73E-06	1.89E-06	1.96E-06	6.06E-06	6.29E-07
1978	3	3	14	10	1200	50	4.52E-06	3.57E-06	3.19E-06	2.32E-06	1.10E-06
		10	13	42	1200	50	4.69E-06	3.76E-06	3.05E-06	6.01E-06	1.78E-06
			15	17	25	0	3.97E-06	-	-	3.25E-06	6.08E-07
			16	39	25	0	1.87E-07	-	-	2.98E-06	5.44E-07
			18	08	25	0	1.19E-07	-	-	2.87E-06	5.02E-07
		11	10	30	25	0	1.92E-09	-	-	1.07E-06	1.56E-07
1978	6	14	10	25	1200	50	5.22E-06	4.01E-06	3.34E-06	5.76E-06	1.24E-06
		20	9	34	1200	50	6.69E-06	5.05E-06	4.22E-06	1.51E-05	1.48E-06
		20	11	21	1320	50	7.99E-06	5.97E-06	5.00E-06	7.95E-06	1.45E-06
		21	10	00	1320	50	1.17E-05	8.90E-06	7.29E-06	3.53E-05	2.63E-06
		22	9	32	1400	50	1.84E-05	1.40E-05	1.16E-05	3.00E-04	8.72E-06
		23	9	33	1500	50	1.14E-04	4.99E-05	5.28E-05	1.03E-03	5.15E-05
			14	09	1200	50	2.56E-05	1.66E-05	1.46E-05	2.30E-03	6.24E-05
			16	06	25	0	-	-	-	5.29E-04	2.97E-05
			17	54	25	0	-	-	-	4.43E-04	9.74E-06
		24	9	45	25	0	-	-	-	1.21E-04	3.74E-06
			10	59	25	0	-	-	-	1.17E-04	3.57E-06
	6	29	9	34	1200	50	1.91E-05	1.51E-05	1.17E-06	4.93E-05	6.13E-06
		30	9	40	1500	50	4.65E-05	3.95E-05	3.01E-05	3.83E-04	3.88E-05
	7	3	14	06	1600	50	8.33E-04	4.03E-04	4.10E-04	1.55E-02	6.40E-04
			14	21	1600	50	7.84E-04	3.99E-04	3.91E-04	1.53E-02	6.56E-04
			15	22	1600	50	5.72E-04	3.21E-04	2.93E-04	1.43E-02	7.10E-04

Table 7-2 Data of R/B from 74UC-1( bottom inner capsule).

Date of measurement					Temperature (°C)	Power (MW)	Kr-85m	Kr-87	Kr-88	Xe-133	Xe-135
Y	M	D	H	M							
1977	12	20	16	31	900	50	1.01E-06	8.62E-06	7.14E-06	-	4.07E-07
		22	10	27	900	50	1.11E-06	8.24E-07	6.60E-07	-	4.86E-07
1978	1	14	10	43	860	50	1.00E-06	6.91E-07	5.61E-07	-	3.31E-07
		19	15	15	860	50	1.91E-06	1.40E-06	1.21E-06	6.03E-07	6.29E-07
		23	14	20	860	50	2.07E-06	1.36E-06	1.18E-06	3.05E-07	6.52E-07
		25	13	44	860	50	1.88E-06	1.25E-06	1.13E-06	2.42E-07	6.38E-07
		26	10	00	860	50	1.77E-06	1.09E-06	9.80E-07	2.00E-07	5.81E-07
1978	3	3	14	15	850	50	2.63E-06	2.04E-06	1.78E-06	2.12E-06	1.01E-06
		10	13	35	850	50	2.48E-06	1.99E-06	1.62E-06	3.23E-06	9.65E-07
			15	10	25	0	1.93E-07	-	-	1.83E-06	5.07E-07
			16	45	25	0	3.94E-09	-	-	1.54E-06	4.20E-07
			18	16	25	0	7.51E-10	-	-	1.60E-06	3.92E-07
		11	10	25	25	0	-	-	-	4.34E-07	1.09E-07
1978	6	14	10	39	850	50	2.67E-06	2.14E-06	1.74E-06	3.30E-06	1.09E-06
		20	10	08	850	50	2.86E-06	2.37E-06	1.86E-06	4.28E-06	1.15E-06
			11	37	900	50	4.45E-06	3.33E-06	2.78E-06	2.36E-06	1.15E-06
		21	9	42	900	50	3.36E-06	2.74E-06	2.19E-06	5.17E-06	1.25E-06
		22	9	45	950	50	3.74E-06	3.09E-06	2.44E-06	5.71E-06	1.20E-06
		23	9	59	1000	50	4.24E-06	3.50E-06	2.75E-06	7.58E-06	1.21E-06
			14	26	820	50	2.33E-06	2.02E-06	1.58E-06	4.92E-06	1.13E-06
			16	25	25	0	-	-	-	1.66E-06	5.77E-07
			18	13	25	0	-	-	-	2.01E-06	4.92E-07
			19	00	25	0	-	-	-	1.37E-06	4.64E-07
		24	10	24	25	0	-	-	-	4.85E-07	1.44E-07
			11	25	25	0	-	-	-	5.27E-07	1.45E-07
		29	9	50	820	50	2.83E-06	2.28E-06	1.81E-06	4.13E-06	1.25E-06
		30	10	00	1020	50	4.50E-06	3.74E-06	3.00E-06	5.50E-06	1.22E-06
	7	3	14	32	1120	50	6.55E-06	5.25E-06	4.38E-06	6.08E-06	1.63E-06

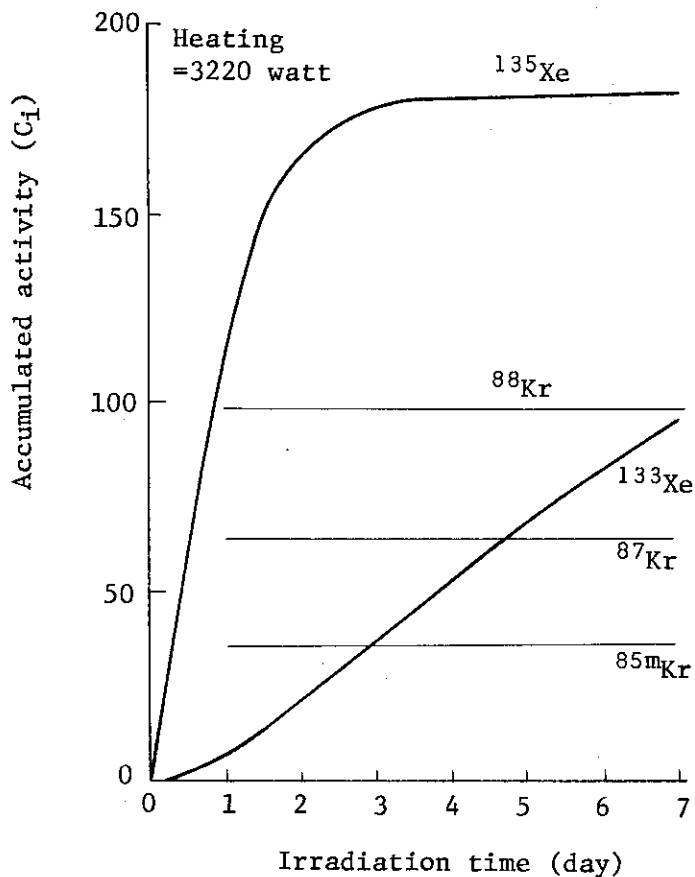


Fig. 10 GAMSPEC calculation<sup>(11)</sup> for accumulated activities of fission gases vs. irradiation time

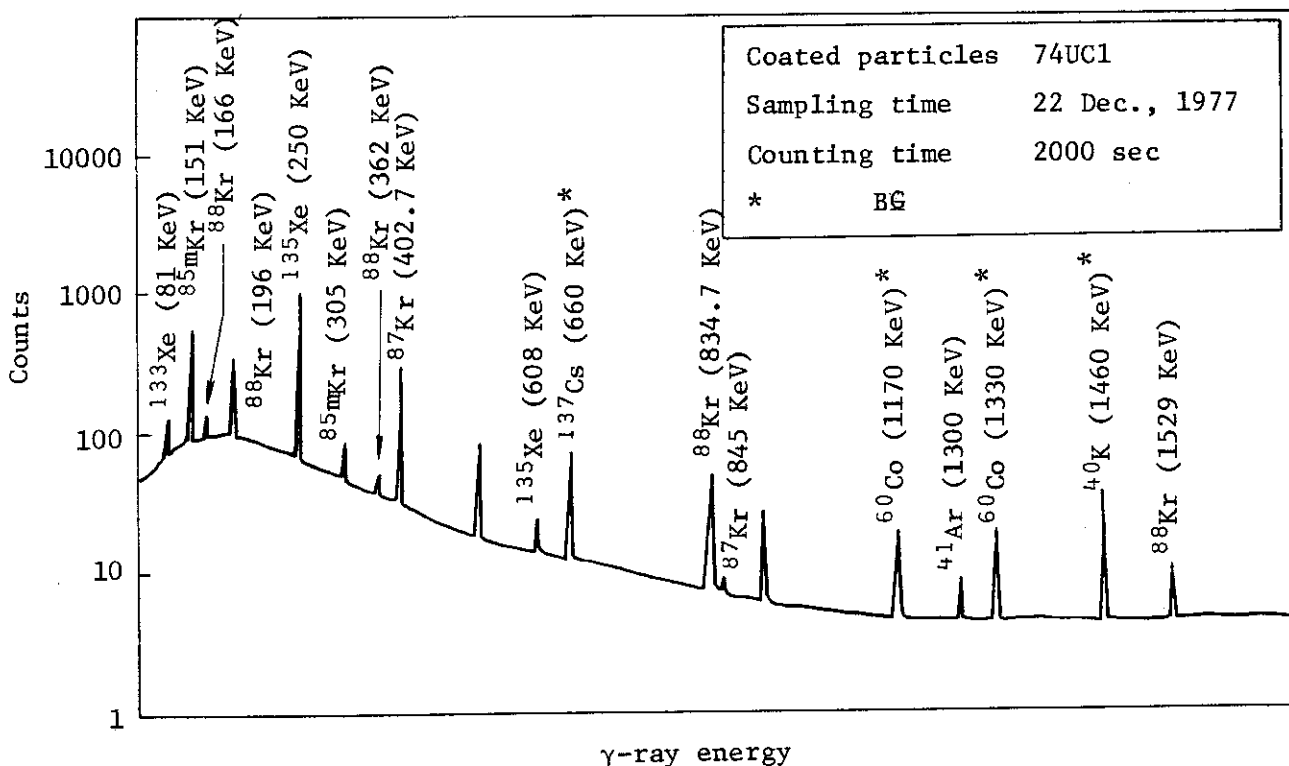


Fig. 11 Typical example of  $\gamma$ -ray counting of sweep gas

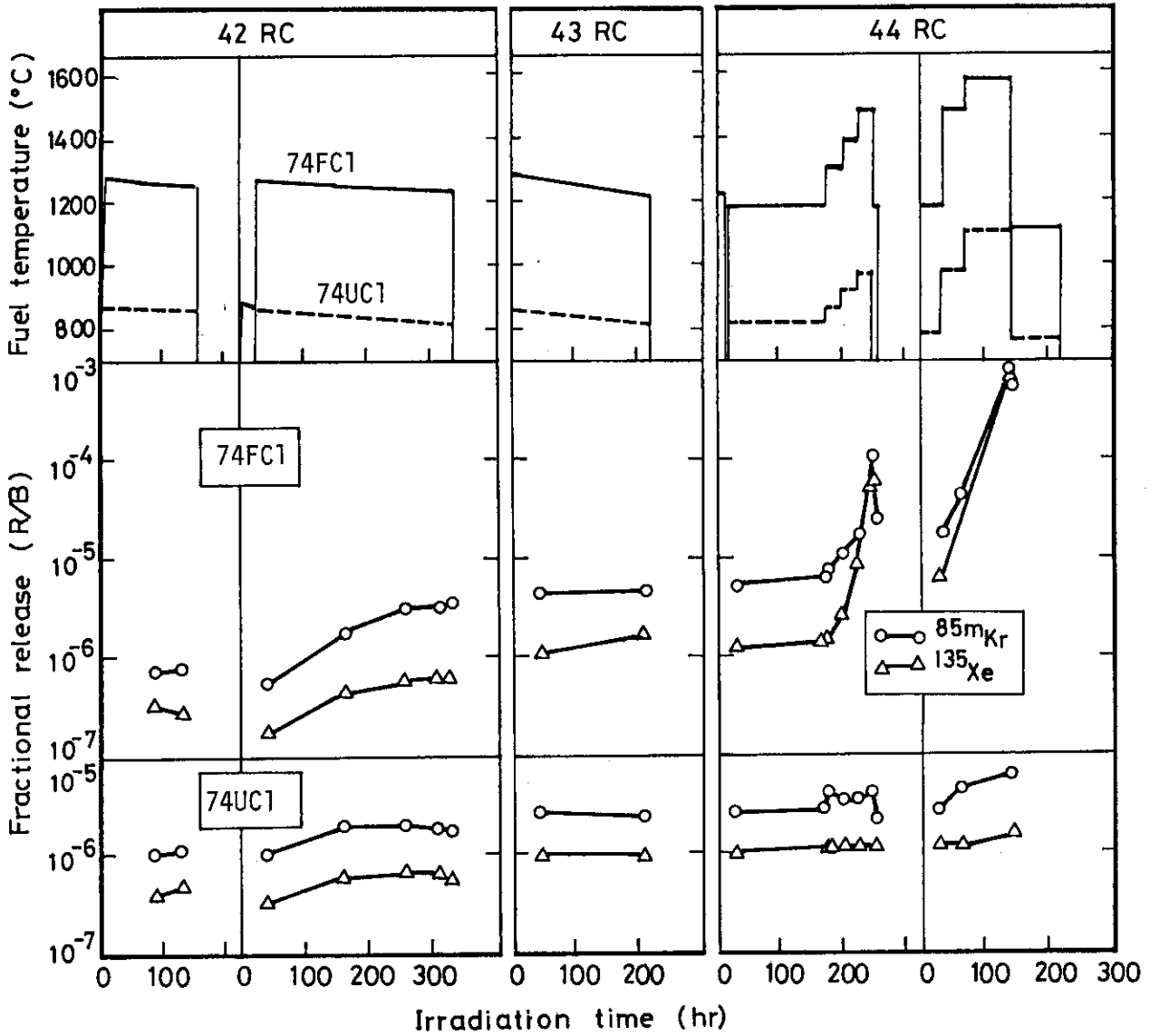


Fig. 12 Variation of R/B values of <sup>85m</sup>Kr and <sup>135</sup>Xe, and temperature with time.



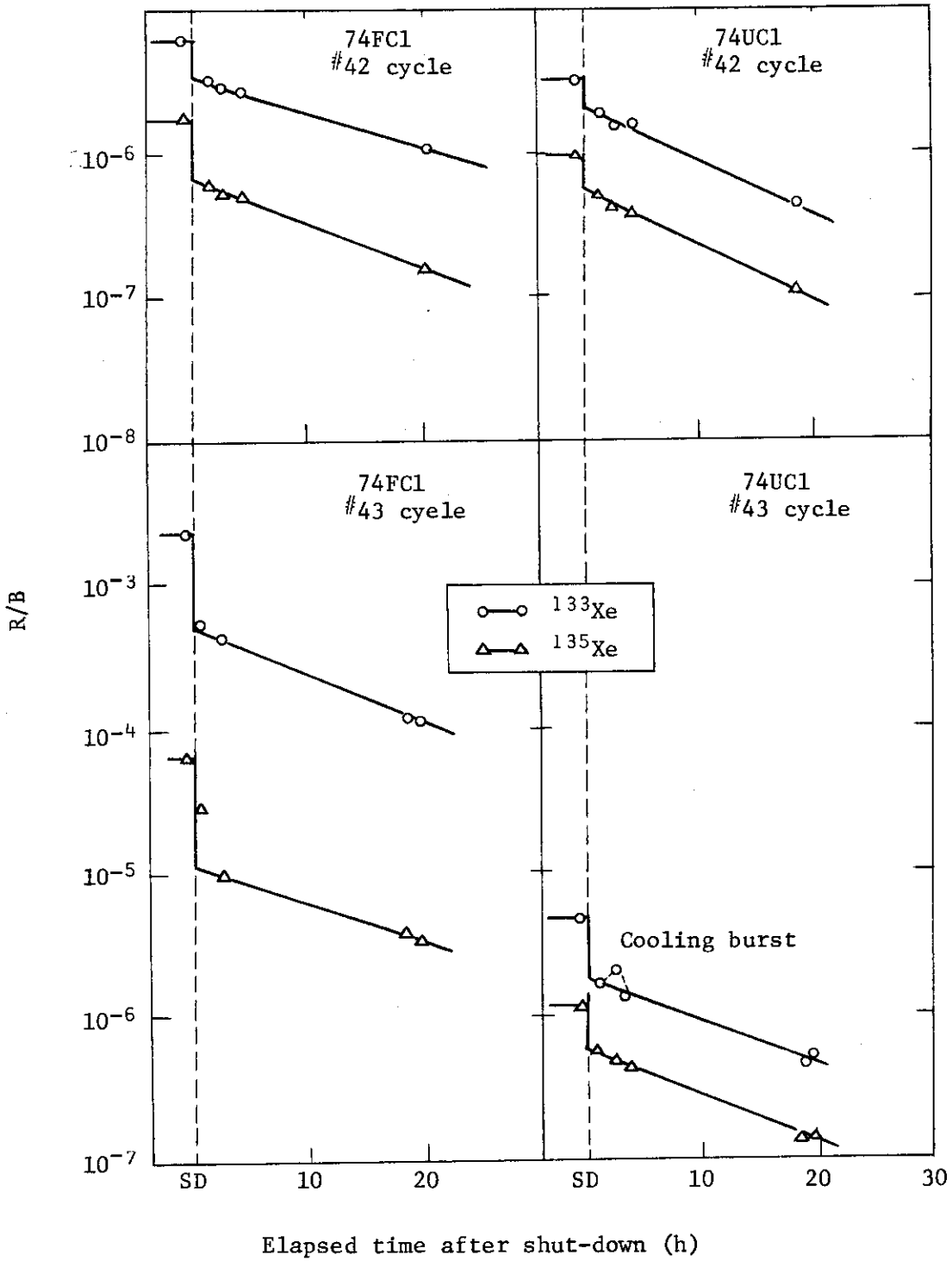


Fig. 13 Decrease of Xe release in sweep gas after reactor shut-down

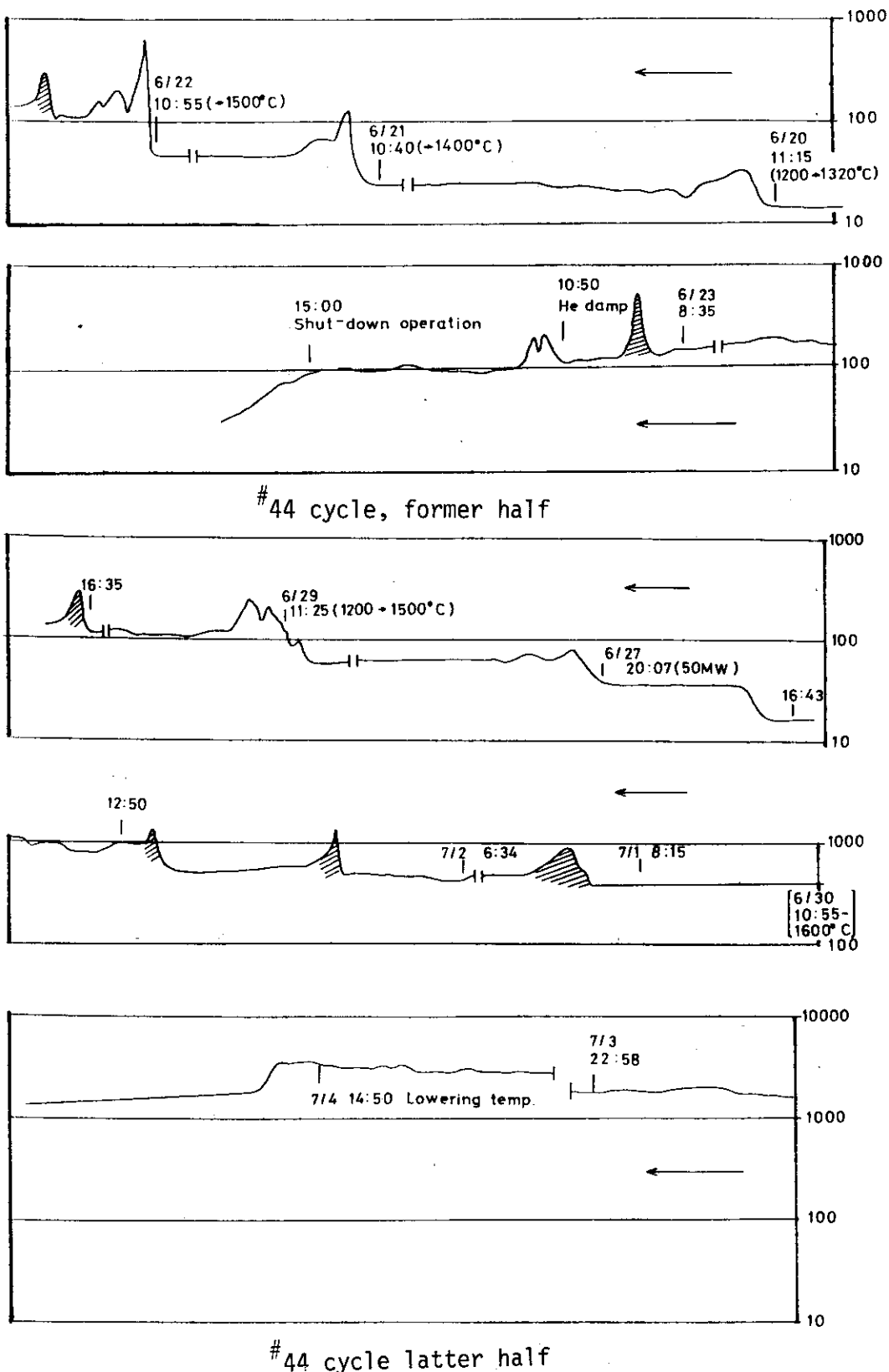


Fig. 14 Variation of gross-gamma activities in exhausted sweep gas.  
 Note that the shaded peaks would be caused by failure of coated particles.

## 6. 照射後試験

### 6.1 照射後試験の概要

昭和53年7月8日に照射を終了した74F-9Jキャプセルは、昭和55年4月15日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボに搬入された。<sup>13)</sup>照射終了日から輸送日まで約2年間の時間が経過したのは、新しい法規を満した照射済キャプセル輸送キャスク(JMHL 78 Y 15 T)を製作していたためである。

74F-9Jキャプセルの照射後試験は、昭和55年4月末から開始された。Fig. 15に74F-9Jキャプセルの照射後試験の流れを示す。キャプセル解体では、被覆粒子を装荷していた黒鉛試料ホルダーの取出しとともに、キャプセルのAl熱媒体中に収納していた中性子フルーエンス・モニターの取出しも行った。その測定結果については、すでに、4章で記述した。キャプセル解体で取出した内部キャプセルには、最高1600℃の燃料試料温度にもかかわらず、特に外観には異状は認められず、健全であった。この上、中、下段の3本の内部キャプセルからおのおのの黒鉛試料ホルダーを取出した。さらに、黒鉛試料ホルダーから照射試料である被覆粒子を取出し、Fig. 15の流れ図に従って照射後試験を行った。また、黒鉛試料ホルダーとともに、内部キャプセル近くのガス・スイープ管には、照射中に被覆粒子から放出された金属FPが吸着されているので、 $\gamma$ 線測定により、これらの金属FP放出量を求め、照射中に生成した実測の金属FP量を使って金属FP放出率へ換算した。

### 6.2 被覆粒子の外観

照射済被覆粒子の外観をFig. 16に示す。外観検査には酔浸出後の被覆粒子約1100粒を使った。73FC1の外観では、被覆層が破損しているものは見られなかった。照射前試験では、全被覆粒子の外観を検査した結果、マイクロクラックを有する被覆粒子が1粒認められたが(Table 2)、照射後の外観では、その中の一部だけの試験であったため、この粒子も確認できなかった。

73FC1の被覆粒子の一部には、写真〔1〕,〔2〕に示したように黒く変色した部分が見られたが、照射前試験で見られた金属光沢を有する変色とは多少、様子が異っている。外観でみる限りこの変色は、被覆層破損に重大な影響を及ぼしているとはみられない。

写真〔3〕,〔4〕に示す74FC1の外観では、著るしい照射変化が認められる。写真〔3〕では、被覆層に穴があいた粒子が見られ、その穴の周囲は白色に輝いている。また、他の被覆粒子の最外層には、黒色の斑点や、クレータ状の窪み(写真4)が見られる。この状況から、被覆粒子は火山の爆発のような状態で破損し、燃料核が溶岩のように飛び散った現象が想像される。ただし、このような現象が、 $UO_2$ の溶解温度(～2700℃)よりはるかに低い温度(最高照射温度, 1600℃)で起きるものかどうかという疑問は残る。

写真〔5〕,〔6〕に74UC1の外観を示す。照射前の74UC1の外観検査では、マイクロクラ

ックを有する被覆粒子が6粒見られたが、照射後においては、1粒も見つからなかった。しかし、写真〔5〕に示すように、被覆層片が1個見られ、恐らくマイクロ・クラックを有する被覆粒子のどれかが割れたものと思われる。また、写真〔6〕に示すように、表面が変色した被覆粒子が見られたが、照射前試験においては、このような変色はまったく見られなかったことから、照射によって生じたものと思われる。

この外観検査に供した試料粒子数と見出された破損粒子数および破損率はTable 9にまとめられている。

### 6.3 被覆粒子の断面組織

上、中、下段の内部キャプセルでそれぞれ照射した73 FC 1, 74 FC 1 および 74 UC 1 の断面組織をFig. 17.1 から 17.3 までに示す。断面組織観察に供した粒子数は1試料あたり約30粒である。

Fig. 17.1 に示す 73 FC 1 の断面組織では、照射温度が非常に低かったため(Table 5 参照)、被覆層には特別な照射変化は認められなかった。燃料核においては、Fig. 17.1 の写真〔3〕や〔4〕に大きな亀裂が見られるが、これらの亀裂は被覆層の健全性には影響を与えていない。73 FC 1 被覆粒子については、73 F-12 A キャプセル<sup>14)</sup>でも照射を行ったが、このキャプセルで照射した比較的低い照射温度(1160-760 °C)の73 FC 1 の断面組織は、Fig. 17.1 に示したものと類似しており、被覆破損は見られないが、わずかながらアメーバ効果が認められた。

Fig. 17.2 に示す 74 FC 1 には、非常に顕著なアメーバ効果が見られた。写真〔2〕に見られるように、著るしい場合には、バッファ層および内部 PyC 層がほとんど完全に侵食されているが、断面組織で観察する限りにおいては、アメーバ効果によって被覆層が貫通して破れるといった現象は見られなかった。すでに記述したように、これらの被覆粒子はルーズな状態で照射されたため、その温度勾配の方向が明確でなく、燃料核移動係数(KMC)を算出することは出来なかった。74 FC 1 は最高 1600 °C で照射されたにもかかわらず、写真〔5〕、〔6〕に見られるように、SiC 層は比較的健全であった。しかし、その内面においては、写真〔5〕で認められるように、わずかながら侵食されており、75 F-4 A キャプセル照射による被覆粒子の XMA 観察結果を考慮すると<sup>15,16)</sup>、この侵食は、パラジウムによるものではないかと思われる。

Fig. 17.3 に示す 74 UC 1 では、ほとんど全ての粒子に、SiC 層と内部 PyC 層の間にギャップが発生しており、また写真〔6〕に見られるように、SiC 層内面が劣化しているのが認められる。74 UC 1 は、73 F-13 A キャプセル(密封)においても照射されているが、74 F-9 J キャプセルでの 74 UC 1 と照射条件が比較的近い 74 UC 1 の断面組織では、Fig. 17.3 に見られるような SiC 層/内部 PyC 層のギャップは、まったく見られなかった。<sup>17)</sup> R. Bullock<sup>18)</sup> は、HRB-12 キャプセル(HFIR 炉, ORNL)で照射した TRISO 粒子に、このようなギャップの発生を報告しており、これが、FP の生成によるものであると判断しているが、この場合では、HRB-12 キャプセルでの燃焼率よりはるかに低く、恐らく Bulloch が観察した現象とは異なるものであろう。73 F-13 A キャプセルと 74 F-9 J キャプセルで照射した 74 UC 1 の断面組織に、このような異った挙動が見られる原因については、現在のところ、明確ではない。しかし、74 F-9 J キャ

プセルで照射した 74 UC1 の SiC 層が他の試料に比べて、より劣化していることは明らかである。

#### 6.4 X線ラジオグラフィ

照射済被覆粒子の X線ラジオグラフを Fig. 18.1 から 18.3 までに示す。Fig. 18.1 に示す 73 FC1 では、特に大きな照射変化は見られなかった。写真〔3〕に示す被覆粒子には、ごくわずかではあるが、燃料核の移動の移動が認められる。また、写真〔4〕～〔6〕においては、バッファー層に亀裂が発生している状況が見られる。

Fig. 18.2 には、74 FC1 の X線ラジオグラフを示す。写真〔3〕には、被覆層片が見られ、また、写真〔4〕には、SiC 層に欠陥があり、恐らく被覆粒子の気密性の低下により酸化ウランが炭化され、ウランが内部 PyC 層まで移行している現象が見られる。写真〔5〕には、燃料核が抜け落ち、被覆層だけになった粒子を示す。この試料粒子には、アメーバ効果が発生している被覆粒子が数多く見られたが、写真〔6〕には、そのアメーバ効果発生例を示す。バッファー層が完全に侵食され、燃料核は内部 PyC 層にまで達している。

Fig. 18.3 に、74 UC1 の X線ラジオグラフを示す。写真〔3〕、〔4〕には、被覆層破片が見られるが、写真〔4〕の被覆層片は、Fig. 16 の写真〔5〕と同一のものであると思われる。写真〔5〕には、74 UC1 に混入していた別の被覆粒子を示すが、この被覆粒子は、製造時に混入したものである。

X線ラジオグラフィによって見出された破損粒子数および破損率は Table 9 に、外観検査結果とともに示す。

#### 6.5 酸浸出率

74 F-9J キャプセルで照射した被覆粒子の酸浸出率の算出には、従来使っていた  $^{137}\text{Cs}$  のような FP ではなく、ウランを使った。その方法については文献〔19〕に示しているが、その概略については、以下のとおりである。全被覆粒子を 100 ml の 6 モル硝酸溶液中で、120 - 130°C 約 8 時間煮沸した後、その中に破損粒子から溶出しているウランを定量するため、1 ml を採取した。この 1 ml を石英アンブル内で乾燥した。この 1 ml を石英アンブル内で乾燥し、減圧封入したのち、標準ウラン試料とともに、JRR-2 で 20 分間の短時間照射を行った。照射後、約 1 ヶ月ほど放射能冷却を行った後、試料および標準ウランの  $^{140}\text{La}$  (1.596 MeV) を計測し、試料中のウラン量を求めた。また、被覆粒子中の初期ウラン量については、製造時の値を採用した。

Table 9 に酸浸出率試験の結果をまとめている。中段内部キャップに装荷した 74 FC1 の酸浸出率が最も大きく、 $1.61 \times 10^{-3}$  であった。また、他の二試料は、 $10^{-4}$  のオーダーであった。これを Table 3 の照射前試験の結果と比較すると (Table 3〔C〕を見よ)、73 FC1、74 UC1 の破損率は照射により若干、増加が見られたが、照射条件のきびしい 74 FC1 の破損率は、著るしく増加した。

## 6.6 金属FP放出率

試料粒子を装荷した黒鉛ホルダーおよび排気管中の金属FPをγスペクトロメトリーにより定量した。結果をTable 11に示す。FP生成量(インヴェントリー)は粒子内残存FP量と放出FP量との和であり、放出FPをインヴェントリーで除したものが放出分率Fである。

上段(73FC1)および下段(74UC1)試料では $^{134}\text{Cs}$ の放出分率が $^{137}\text{Cs}$ のそれを大きく上回る結果になっている。しかし、これは以下の理由により黒鉛ホルダー中の $^{133}\text{Cs}$ 不純物の寄与によるものと考えられる。

$^{134}\text{Cs}$ は $^{133}\text{Xe}$ の娘核種である $^{133}\text{Cs}$ の中性子捕獲反応により生成される。そして、 $^{133}\text{Xe}$ の半減期が5.27日と比較的長いので、崩壊前に放出された $^{133}\text{Xe}$ が粒子外において $^{134}\text{Cs}$ を生成することの効果がある。しかし、このような先行核種放出の効果はTable 11のような放出分率の差をもたらすには、 $\text{UO}_2$ 中における $^{133}\text{Xe}$ の拡散係数が $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ のそれを相当大きく上回る必要がある。<sup>20)</sup>ところが、既存の拡散データは、希ガスFP(Xe, Kr)とCs同位体との間では $\text{UO}_2$ 中の拡散係数にそれ程差がないことを示している。<sup>21, 28)</sup>また、これまで同キャプセルを除く他のキャプセルについて得られているCs放出分率はこのような顕著な同位体依存性を示していない。<sup>23)</sup>

以上の理由から、燃料粒子外に見出された $^{134}\text{Cs}$ は黒鉛中の不純物Csによるものと考えられる。 $^{133}\text{Cs}$ の天然存在比は100%である。(n, γ)反応断面積を29b、熱中性子束を $1.5 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>・sとすると、照射後3年を経過した時点で約 $2 \times 10^{-5}$  Ciの $^{134}\text{Cs}$ 生成に必要なCs量は2 μgにすぎない。すなわち黒鉛ホルダー35g中に0.1 ppmのCsが不純物として存在していたとすれば、十分説明がつくのである。

中段(74FC1)では、燃料粒子からの $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ との2つの同位体の放出分率がほぼ等しくなったものと考えられる。文献データに基づいて $^{137}\text{Cs}$ の $\text{UO}_2$ 中の換元拡散係数を評価すると、

$$D' \approx 40 \exp(-70,000 \text{ cal/mole/RT})$$

となる。<sup>22)</sup>同式から中段照射履歴に対して、ブース・モデル<sup>24)</sup>により $\text{UO}_2$ 核からの放出分率 $F_K$ を推定すると、 $F_K \approx 0.8$ となる。被覆燃料粒子試料からの放出分率は $F_K$ に破損率を乗じたものにはほぼ等しいはずである。しかし、照射後貫通破損割合 $\phi_{\text{EOL}}$ を用いると、

$$F \approx F_K \cdot \phi_{\text{EOL}} \approx 1 \times 10^{-3} \quad (14)$$

と実測放出分率を著しく下回ってしまう。これは、中段照射条件では熱分解炭素層によるCs保持はほとんど全く期待できないので、Fの計算には貫通破損割合 $\phi_{\text{EOL}}$ ではなくSiC層破損割合 $\phi'_{\text{EOL}}$ を用いなければならないからである。したがって、実測放出分率 $F = 6.3 \times 10^{-2}$ を用いて、 $\phi'_{\text{EOL}}$ を推定すると、

$$\phi'_{\text{EOL}} \approx F/F_K \approx 0.08 \quad (15)$$

と著しく大きくなる。すなわち、同試料の照射前SiC層破損割合 $\phi'_{\text{EOL}} < 1 \times 10^{-3}$ であったことから、最高1600℃に達する照射によってかなり多くの粒子においてSiC破損が発生したもの

と考えられる。

一方、下段試料(74 UC 1)では

$$F \simeq F_K \cdot \phi_{EOL} \simeq 3 \times 10^{-3} \times 3 \times 10^{-4} \simeq 10^{-5} \quad (16)$$

と、実測の放出分率との良い一致が得られる。下段照射温度および照射時間では熱分解炭素層にまだ十分な Cs 保持能を期待できることが、このような良い一致をもたらしたのと考えられる。

Table 9 Results of surface inspection and X-ray radiography

Items	73FC1	74FC1	74UC1
Number of coated particles used for both examinations	1103	1091	1085
Surface inspection			
Number of failed particles	0	3	1
Fraction	0	$2.75 \times 10^{-3}$	$9.22 \times 10^{-4}$
X-ray radiography			
Number of failed particles	0	4	1
Fraction	0	$3.67 \times 10^{-3}$	$9.22 \times 10^{-4}$

Table 10 Results of acid leaching experiment for coated particles irradiated by 74F-9J capsule.

Sample	Leached $^{235}\text{U}$ ( g )	Total uranium in coated particles ( g )	$^{235}\text{U}$ in coated particles ( g )	Leaching fraction
73FC1	$1.48 \times 10^{-4}$	6.542	0.532	$2.79 \times 10^{-4}$
74FC1	$8.44 \times 10^{-4}$	6.647	0.525	$1.61 \times 10^{-3}$
74UC1	$1.71 \times 10^{-4}$	6.157	0.495	$3.45 \times 10^{-4}$



Table 11 Fractional release of Cs from Triso  $UO_2$  particles irradiated by 74F-9J capsule in JMTR.

CAPSULE	74F9J-1	*74F9J-2	74F9J-3
PARTICLE	73FC-1	74FC-1	74UC-1 <sup>a)</sup>
INVENTORY(Ci) <sup>c)</sup>			
Cs134	0.012	0.034	0.013
Cs137	0.23	0.38	0.25
RELEASE(Ci) <sup>c)</sup>			
Cs-134	$2.5 \times 10^{-5}$ <sup>b)</sup>	$2.7 \times 10^{-3}$	$2.2 \times 10^{-5}$ <sup>b)</sup>
Cs-137	—————	$2.4 \times 10^{-2}$	$3.4 \times 10^{-6}$
FRACTION			
Cs-134	$2.1 \times 10^{-3}$ <sup>b)</sup>	$7.9 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-3}$ <sup>b)</sup>
Cs-137	—————	$6.3 \times 10^{-2}$	$1.4 \times 10^{-5}$
$\phi$ (EOL) <sup>d)</sup>			
	$2.8 \times 10^{-4}$	$1.6 \times 10^{-3}$	$3.4 \times 10^{-4}$

a) UK particle.

b) Probably due to contamination of graphite holder by Cs133.

c) Normalized to June 1, 1981.

d) Through-coating failure fraction determined by acid leaching after irradiation.

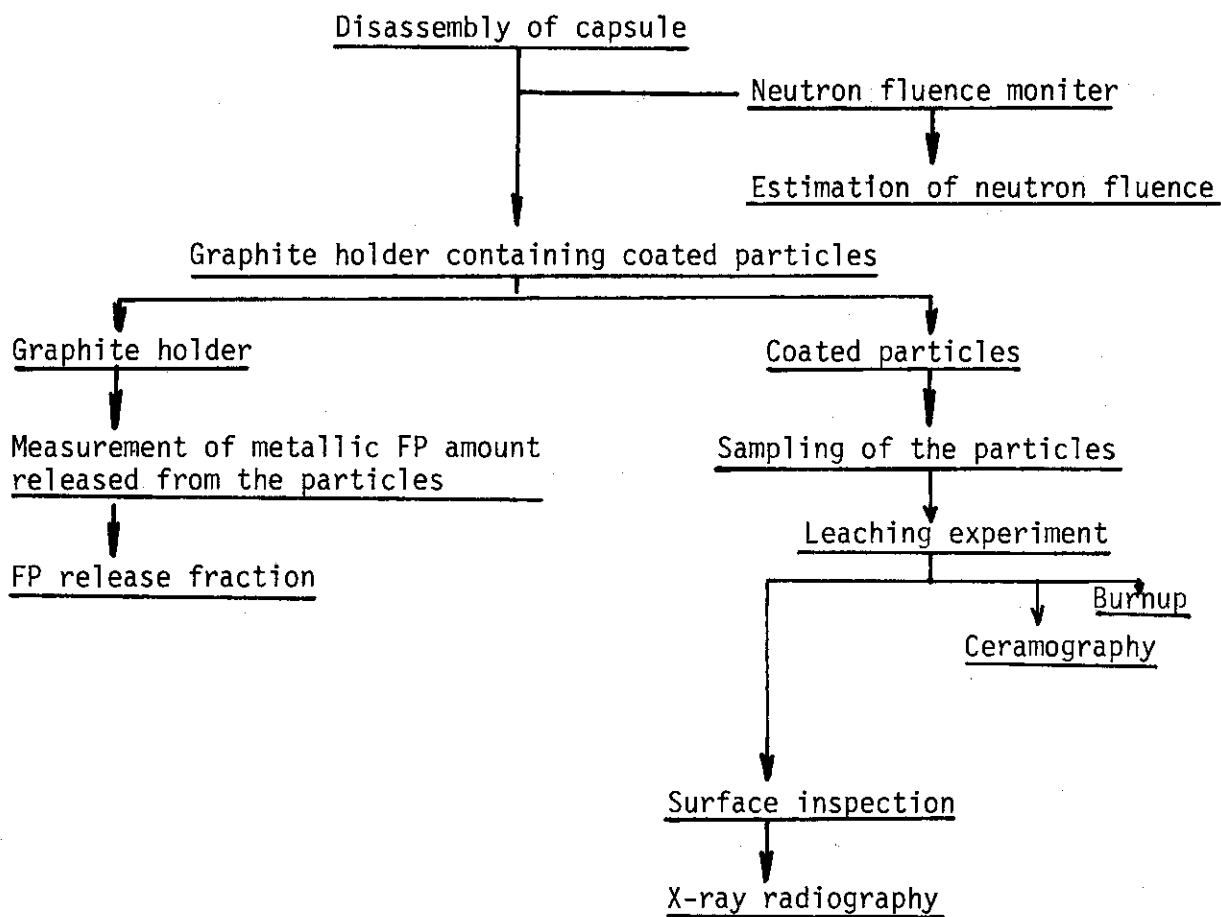
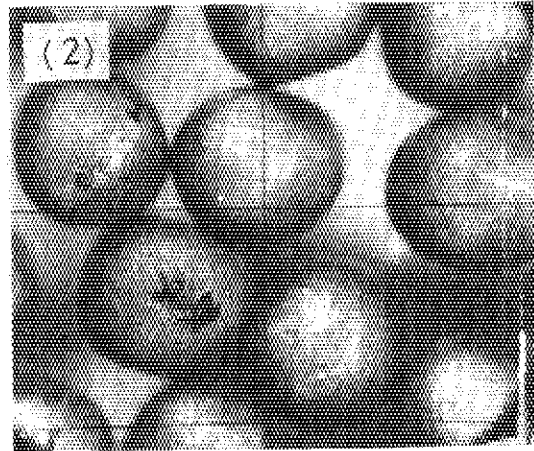
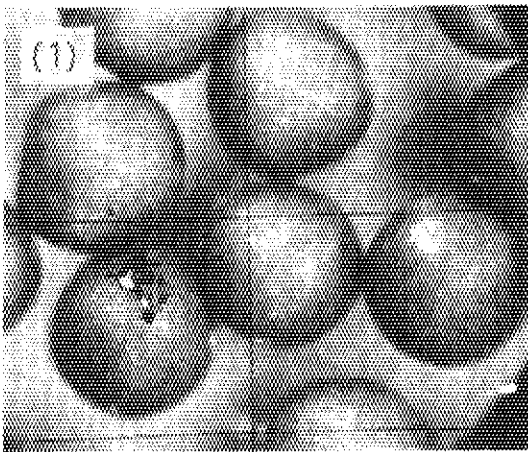
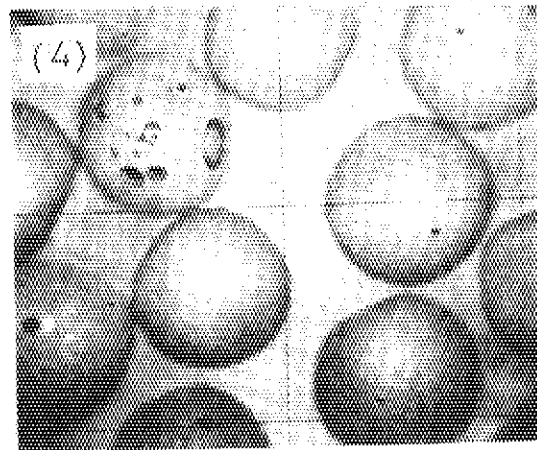
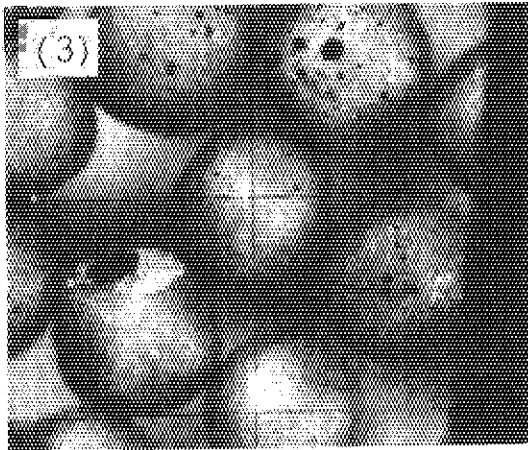


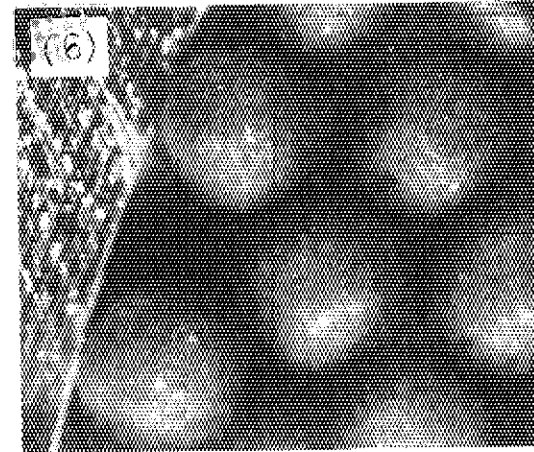
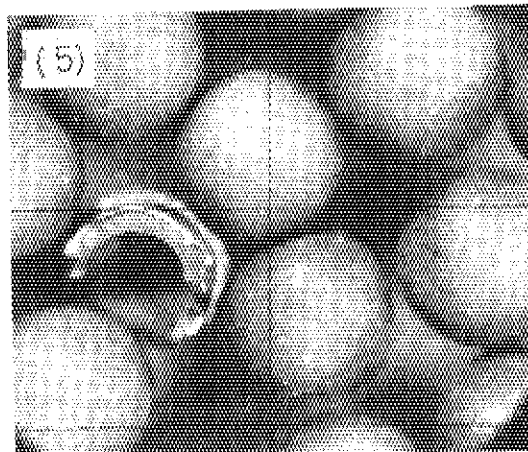
Fig. 15 Flow diagram of post-irradiation examination for 74F-9J capsule.



73FC1 (上段内部キャプセル)



74FC1 (中段内部キャプセル)



74UC1 (下段内部キャプセル)

Fig. 16 Surface inspection of coated fuel particles after irradiation.

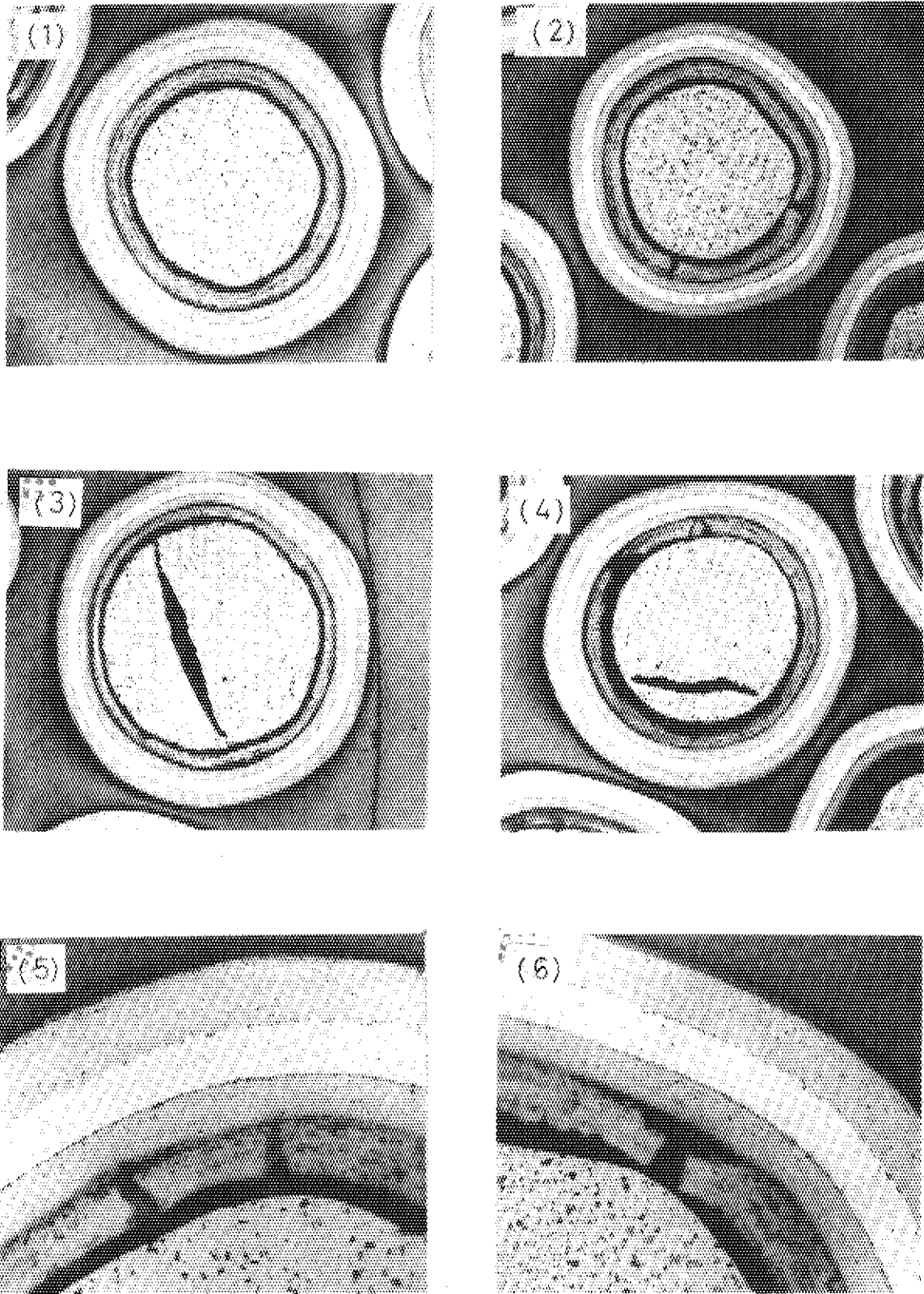


Fig. 17-1 Ceramographs of 73FC1.

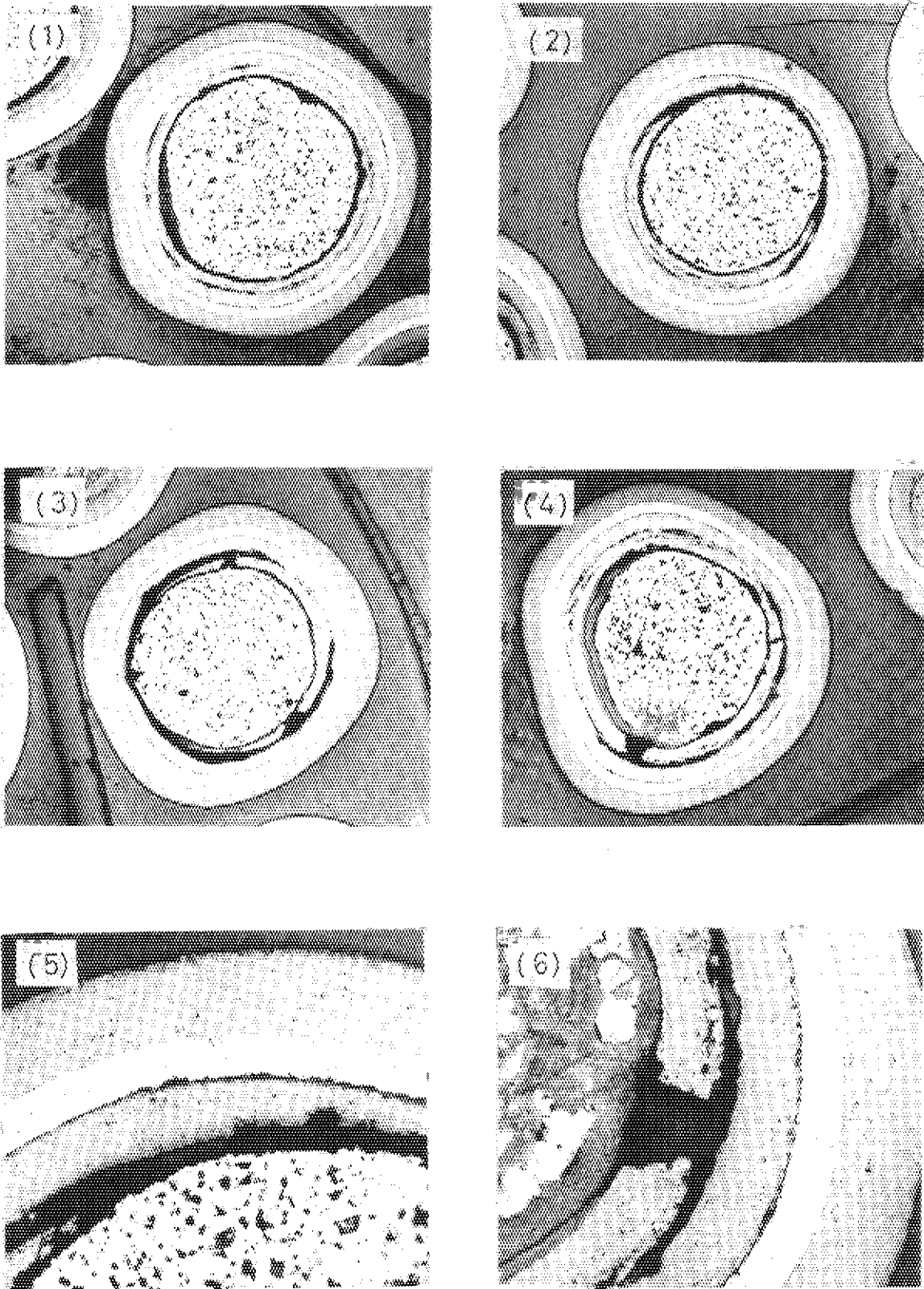


Fig. 17-2 Ceramographs of 74FC1.

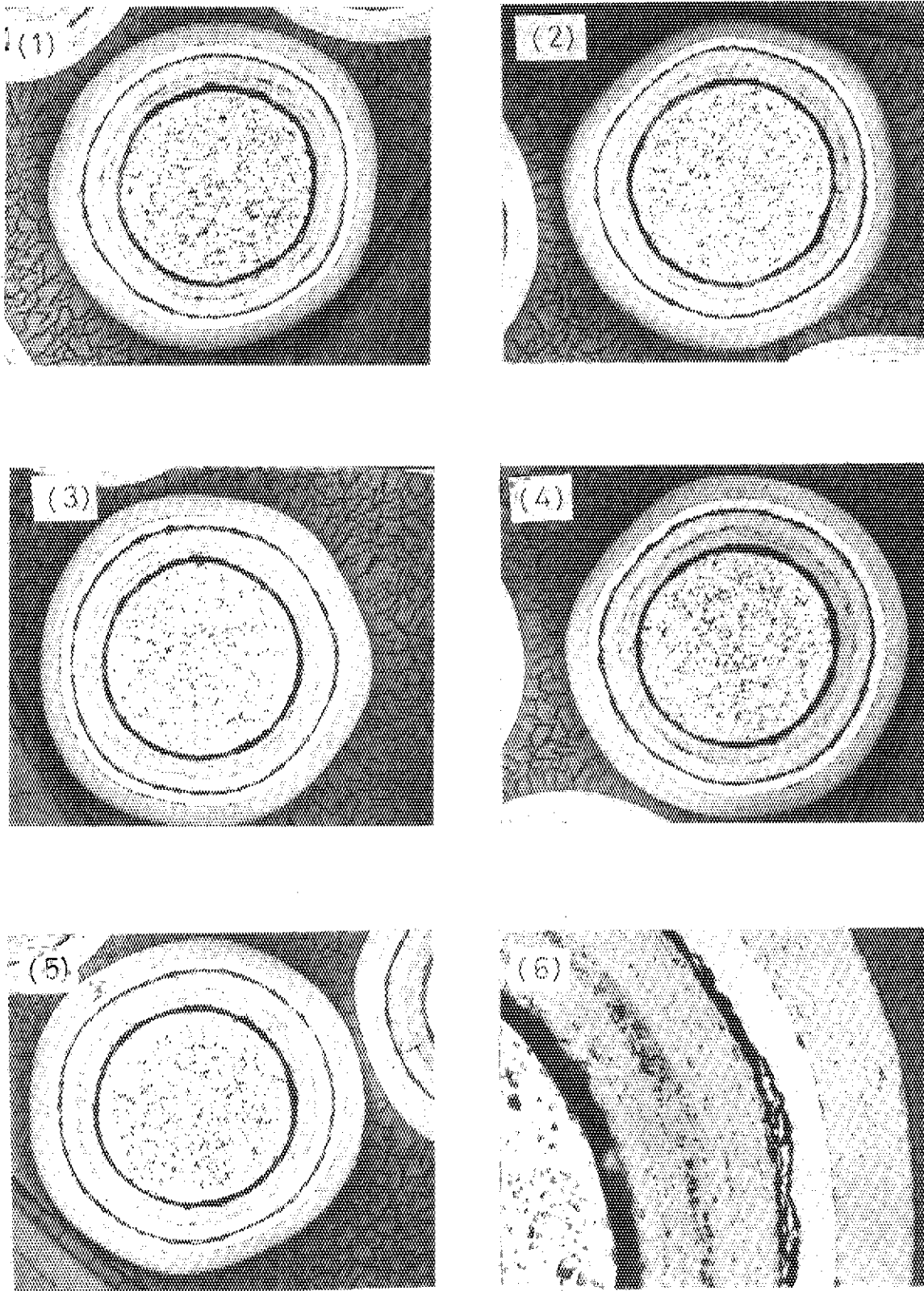


Fig. 17-3 Ceramographs of 74UC1.

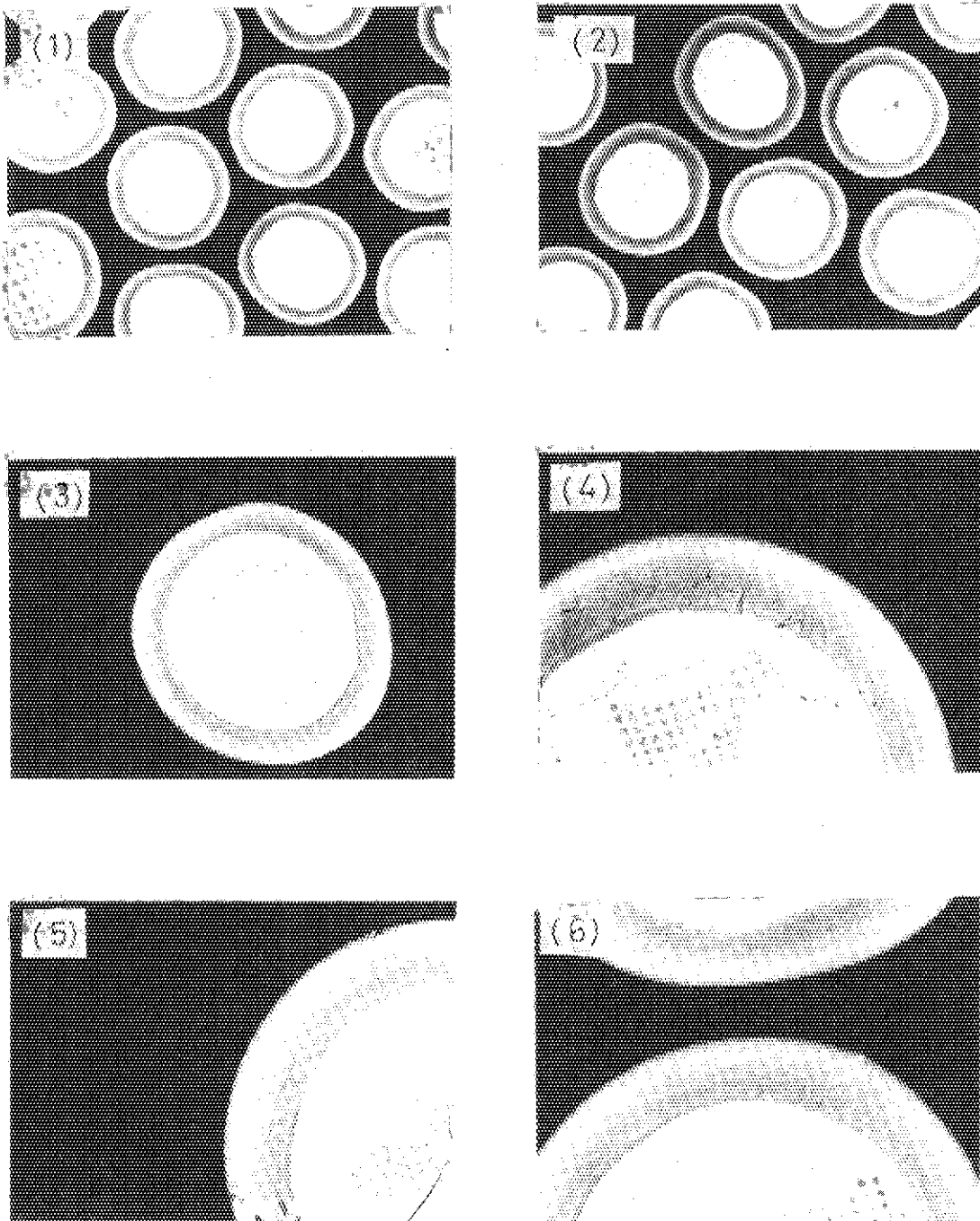


Fig. 18-1 X-ray radiographs of 73FC1.

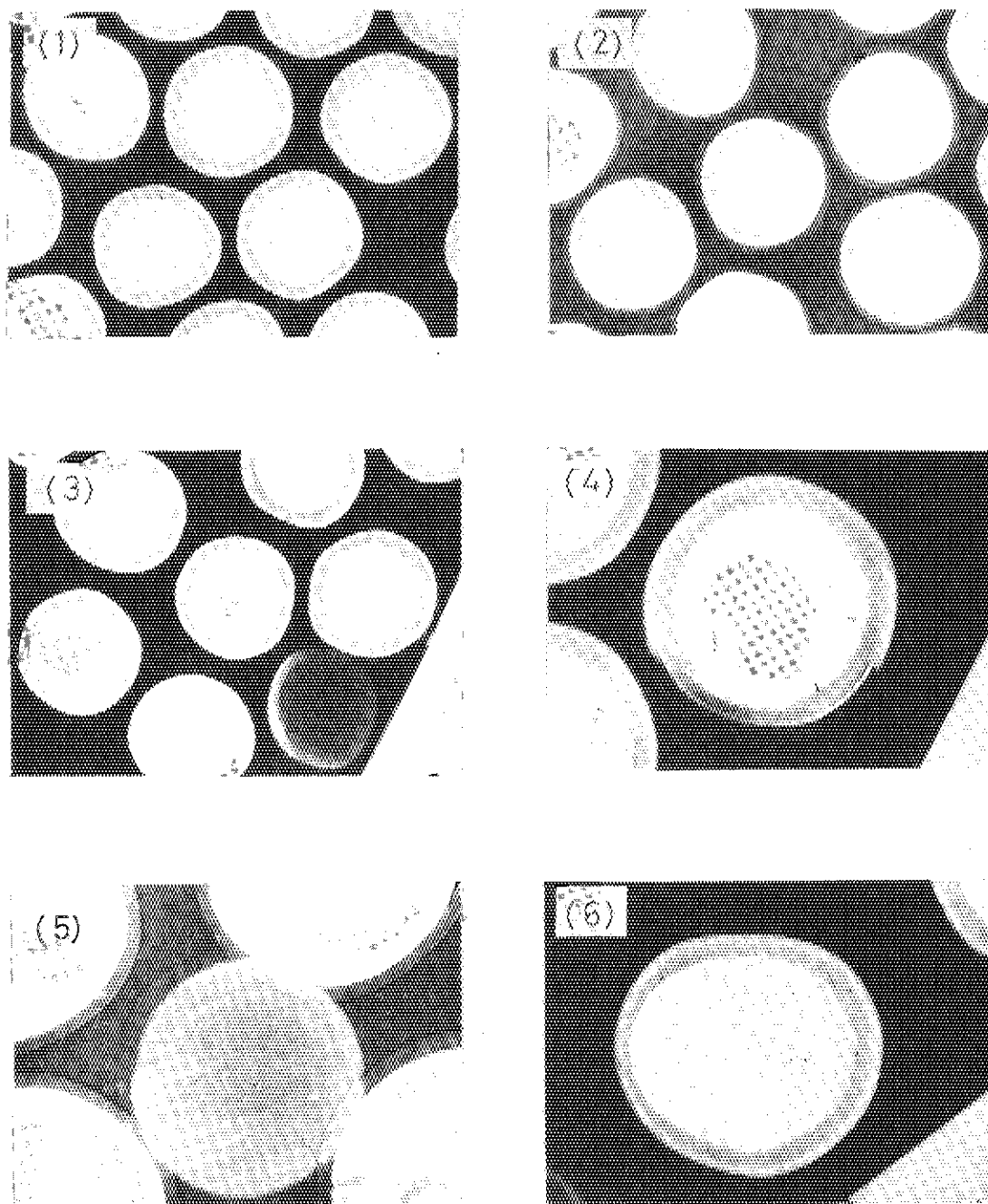


Fig. 18-2 X-ray radiographs of 74FC1.



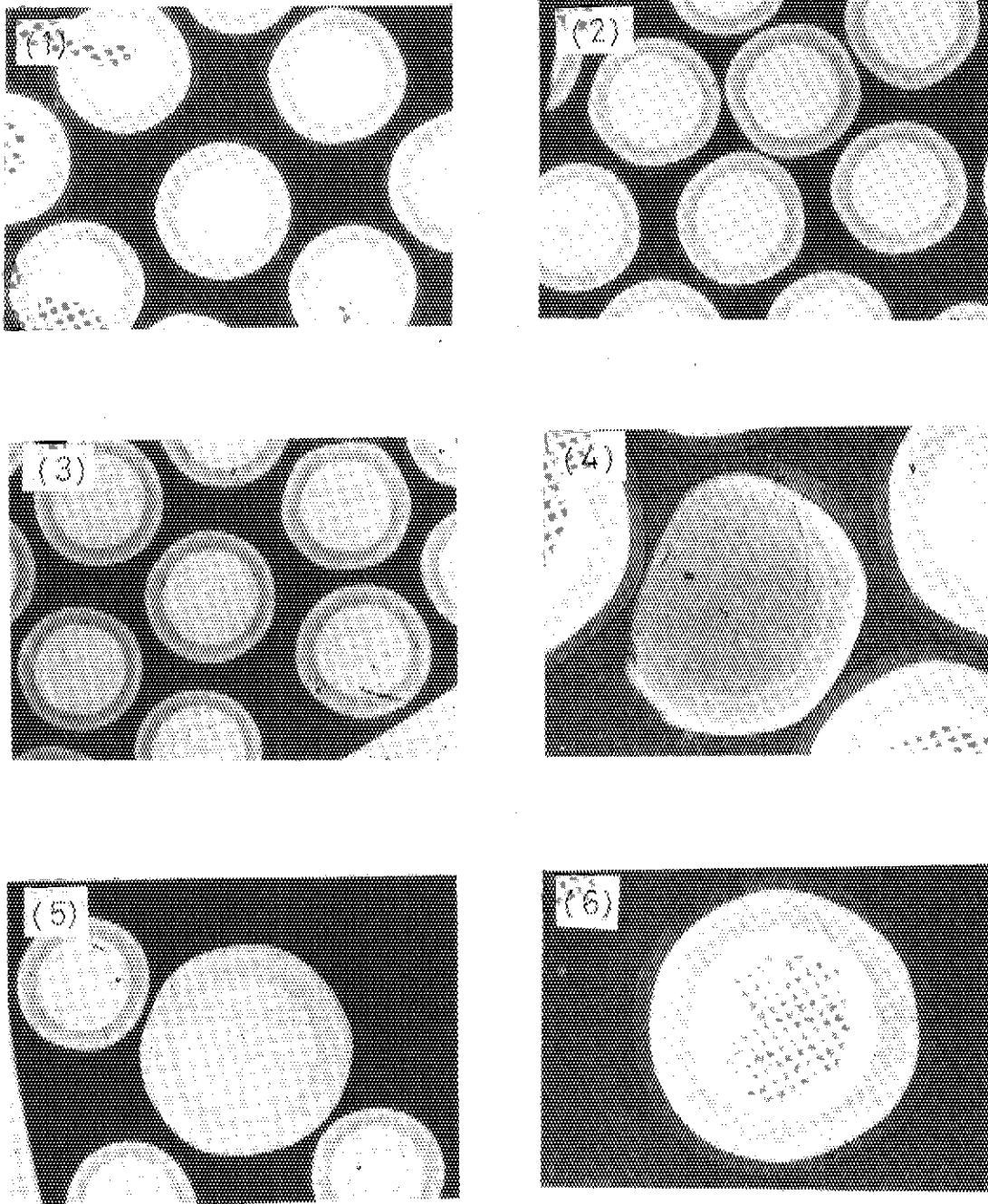


Fig. 18-3 X-ray radiographs of 74UC1.

## 7. 考 察

### 7.1 FPガス放出挙動についての一般的考察

FPガスが被覆粒子から放出される機構は、主に、拡散および核分裂反跳 (fission recoil) である。これらの機構は、被覆粒子が健全であっても、また被覆層破損が生じている場合においても同じである。被覆粒子が健全な場合、被覆層中の汚染ウランが核分裂し、表面近くでの核分裂では、そのエネルギーで粒子外に直接飛び出していく。また、内部において核分裂から生れたFPガスは、短寿命であれば、拡散中にその一部は消滅するが、他は拡散により外部へ放出される。一方、被覆層が破損している場合、FPガスは燃料核表面から反跳によりバッファー層に打込まれ、破損部分を通して外部へ放出される一方、燃料核中のFPガスは、拡散により外部へ達する。

このような核分裂反跳および拡散によるFPガスの放出を評価する場合、それらの放出源を球体と見做したモデルが一般的に使われている。核分裂反跳による放出では、幾何学的計算により、放出率  $(R/B)_R$  は次式によって示される。<sup>25)</sup>

$$(R/B)_R = \frac{3}{4} \left( \frac{R}{a} \right) - \frac{1}{16} \left( \frac{R}{a} \right)^3 \quad (17)$$

$(R/a) < 0.5$  の場合、17式は

$$(R/B)_R = \frac{3}{4} \left( \frac{R}{a} \right) \quad (18)$$

となる。本試験に使った被覆粒子の場合、 $R \approx 2 \times 10^{-3}$  cm (PyC中の反跳距離)、被覆粒子直径、 $a \approx 3.8 \times 10^{-2}$  cmであり、また、燃料核については、 $R \approx 1 \times 10^{-3}$ 、 $a \approx 2.5 \times 10^{-2}$  であるため、健全粒子および破損粒子のいずれからの反跳放出においても、18式が適用できる。

一方、拡散による放出モデルでは、均一にFPガスが分散した球体からの放出が求められた。燃料核から被覆層へ拡散した短寿命FP核種は、そのほとんどが拡散途中で消滅してしまうため、スイープガスクャプセル実験でとりあつかうような短寿命FPガスの拡散放出においては、最外PyC層中の汚染ウランから発生したFPガスだけを対象とすればよい。また、破損粒子については、燃料核あるいは、球形と見做される燃料核結晶からの放出が考えられる。いずれの場合においても、短寿命FPガスの拡散放出を取り扱ったモデルでは均質球体物質中の拡散と見做される。球体物質中の拡散方程式は、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{2}{r} D \frac{\partial C}{\partial r} - \lambda C + B \quad (19)$$

半径、 $a$  の球表面上の濃度  $C(a)$  は、 $C(a) = 0$  であるので、定常状態においては、

$$C(r) = \frac{B}{\lambda} \left[ 1 - \frac{a \sinh(r \sqrt{\frac{\lambda}{D}})}{r \sinh(a \sqrt{\frac{\lambda}{D}})} \right] \quad (20)$$

したがって、放出速度、 $R_d$  は、

$$R_d = -4 \pi a^2 \frac{\partial C}{\partial r} \Bigg|_{\substack{r=a \\ t=\infty}} = \frac{4 \pi a D B}{r} [\phi \coth \phi - 1] \quad (21)$$

ここで、 $\phi = \sqrt{\frac{\lambda a^2}{D}}$  である。一方、半径、 $a$ 、の球体中の生成速度、 $B_f$  は

$$B_f = \frac{4}{3} \pi a^2 B \quad (22)$$

であるので、拡散による放出率  $(R/B)_D$  は、<sup>25)</sup>

$$(R/B)_D = \frac{3}{\phi^2} [\phi \coth \phi - 1] \quad (23)$$

である。 $\phi > 10$  の場合

$$(R/B)_D \simeq 3/\phi = 3 \sqrt{\frac{D}{a^2 \lambda}} \quad (24)$$

Prados 等<sup>25)</sup> によって計算された23式の  $(R/B)_D$  と  $\phi$  との関係を図 19 に示す。この図の放出率は、最外PyC層中での汚染ウランにより生成したFPガスに対して放出されたFPガスの割合である。したがって、実際の被覆粒子の  $R/B$  に変換するには、この図に示す放出率に最外PyC層中のウラン汚染率を掛けなければならない。Fig. 19 にはFPガス半減期が長くなるに従って、また拡散係数が大きくなるに従って  $\phi$  値は小さくなり、放出率は1に近づく。74F-9Jキャプセル照射で取り扱った核種の中で半減期の最も長いものは<sup>133</sup>Xe ( $\lambda = 1.52 \times 10^{-6}/\text{sec}$ ) である。PyC中での  $K_r$  炉内拡散係数<sup>26)</sup> とXe拡散係数とは同じであると仮定すると、1600°Cにおける760  $\mu\text{m}$  直径被覆粒子の  $\phi$  値は6.9となる。つまり、74F-9Jキャプセル照射実験におけるFPガスの  $\phi$  値は $\sim 7$  より大きいと考えられる。したがって、<sup>133</sup>Xe について24式で放出を評価するには、若干誤差があるが、他の核種に対しては、ほぼ24式で近似できることがわかる。

I-Xeのように、親核種の半減期が長く、娘核種の放出に対して親核種の放出が無視できないときの放出は以下のようにして示される。<sup>25)</sup> 定常状態におけるI-Xeの拡散方程式は、

$$D_I \frac{d^2 C_I}{dr^2} + \frac{2}{r} D_I \frac{d C_I}{dr} - \lambda_I C_I + B = 0 \quad (25)$$

$$D_{Xe} \frac{d^2 C_{Xe}}{dr^2} + \frac{2}{r} D_{Xe} \frac{d C_{Xe}}{dr} - \lambda_{Xe} C_{Xe} + \lambda_I C_I = 0 \quad (26)$$

これらの式から求められる R/B は,

$$(R/B)_I = \frac{3}{\phi_I^2} (\phi_I \coth \phi_I - 1) \quad (27)$$

$$(R/B)_{Xe} = \frac{3}{\phi_{Xe}^2} \left( \frac{\eta^2}{\eta^2 - 1} \phi_{Xe} \coth \phi_{Xe} - \frac{\eta^2}{\eta^2 - 1} \phi_{Xe} \coth (\eta \phi_{Xe}) - 1 \right) \quad (28)$$

ここで,  $\eta = \frac{\phi_I}{\phi_{Xe}} = \sqrt{\frac{D_{Xe} \lambda_I}{D_I \lambda_{Xe}}}$  である。

$\phi_I, \phi_{Xe}$  が大きい場合,

$$(R/B)_I = 3 / \phi_I \quad (29)$$

$$(R/B)_{Xe} = 3 / \phi_{Xe} \left( \frac{\eta}{\eta + 1} \right) \quad (30)$$

で示される。

29および30式から

$$\frac{(R/B)_I}{(R/B)_{Xe*}} = \frac{(R/B)_I}{(R/B)_I + (R/B)_{Xe}} = \frac{\eta + 1}{\eta^2 + \eta + 1} \quad (31)$$

となる。Table 8 に示した炉停止後の Xe の減衰から得られた  $(R/B)_I / (R/B)_{Xe*}$  から, 31式により  $D_I / D_{Xe}$  について次のような値が算出できた。

Table 12 Parameters on iodine and xenon releases.

		質量数 133			質量数 135		
試料	温度 (°C)	$(R/B)_I / (R/B)_{Xe*}$	$\eta$	$D_I / D_{Xe}$	$(R/B)_I / (R/B)_{Xe*}$	$\eta$	$D_I / D_{Xe}$
74FC1	1250 (#42)	0.57	1.32	0.29	0.38	2.33	1.11
	1500 → 1200 (#44)	0.22	4.35	3.11	0.18	5.40	21.28
74UC1	850 (#42)	0.65	1.05	0.18	0.57	1.32	1.27
	1000 → 820 (#44)	(0.36)	2.49	1.01	0.51	1.57	1.80

質量数 133 の核種については、5.1 に記したように、 $^{133}\text{Xe}$  の生成が定常に達するのに少なくとも 20 以上かかるため、ここでのデータは定常であるとはみなされず、したがって、定常状態を前提とした(3)式から導出した質量数 133 の  $D_I/D_{Xe}$  はあまり重要な意味を含んでいない。一方、質量数 135 の核種については、Fig. 10 からみられるように、I 放出を測定した時点では、その生成速度は、ほぼ定常にあり、 $D_I/D_{Xe}$  は、放出が拡散支配によるものであれば、ある物理的な意味を有すると思われる。Table. 12 で、質量数 135 の核種については、74 FC1 の 1500°C における場合を除いて他の  $D_I/D_{Xe}$  は 1.1 ~ 1.8 程度の値であるが、1500°C の  $D_I/D_{Xe}$  だけはこれらより 10 ~ 20 倍ほど大きいことが特徴である。1500°C における 74 FC1 からの  $(R/B)_I/(R/B)_{Xe}$  を測定した #44 サイクル終了時においては、Fig. 12 にみられるように、急激な FP ガス放出率の増加が測定されている。この R/B の増加は、照射後試験における外観検査や酸浸出率測定結果にみられるように、被覆破損によるものであることは確かである。したがって、1500°C における  $D_I/D_{Xe}$  の増加は、この被覆破損と何らかの関係があると思われる。この関係については FP ガス放出機構を考察したあとに、再び検討する。

## 7.2 FP ガス放出と被覆破損との関係

すでに記したように、FP ガスの放出源は、被覆層中の汚染ウランおよび被覆破損による燃料核であり、これらから核分裂反跳および拡散によって放出される。FP ガス放出源を明確にするためには、放出の温度依存性を調べることも一つの方法である。Fig. 20 には FP ガス放出率温度依存性について測定値と計算値とを示している。測定による R/B の温度変化では、74 UC1 から R/B はその照射温度に対してあまり変化していないが、74 FC1 から R/B は温度に対して変化が大きい。照射開始(Beginning Of Life, BOL)と共に、温度一定のもとでも、R/B は急激に増加し、その後、温度増加と共に単調に増加しているが、1400°C 以上になると R/B の増加は急激になり、照射終了時(End Of Life, EOL)では、 $6 \times 10^{-4}$  に達している。

この放出率温度依存性を解析するために、放出率を健全な粒子と破損した粒子とに分け、次の様な関係で示す。

$$(R/B) = (1-f_b)(R/B)_i + f_b(R/B)_f \quad 32$$

ここで、

$(R/B)_i$  ……健全粒子からの放出率

$(R/B)_f$  ……破損粒子からの放出率

$f_b$  ……被覆破損率

である。さらに、 $(R/B)_i$ 、 $(R/B)_f$  とも主に核分裂反跳と拡散による機構で放出されるとすれば、それらの放出率は、

$$(R/B)_{i,f} = (R/B)_R + (R/B)_D \quad 33$$

で示される。ここで、

$(R/B)_R$  ……核分裂反跳による放出率で、(17)式で示される。ただし、最外 PyC 層中

のウラン汚染率を掛けなければならない。(17)式で示すように、 $(R/B)_R$ には温度依存性はない。

$(R/B)_D$ ……拡散による放出率で、定常状態では23, 27, 28式で示されるが、非定常状態では、19, 25, 26の数値解析的に求められる。

このような手法によるR/Bの計算は、原研で開発したFECUNDコード<sup>27)</sup>によって行うことが出来る。Fig. 21には、破損粒子の $(R/B)_f$ と健全粒子の $(R/B)_i$ をFECUNDコードによって計算した例を示す。この計算に使った拡散係数は、以下のとおりである。

Table 13 Kr diffusion coefficients for FECUND calculation.

拡散媒体	拡散係数 (cm <sup>2</sup> /sec)	備 考
UO <sub>2</sub>	$3 \times 10^{-2} \exp(-2.64 \times 10^5/RT)$	本文参照
バッファ層	$1 \times 10^{-7} \exp(-4.2 \times 10^4/RT)$	仮定値
内部 PyC 層	$2.9 \times 10^{-7} \exp(-2.55 \times 10^5/RT)$	HTI-PyC中のXeの拡散係数 文献28
SiC 層	$8.6 \times 10^{-6} \exp(-3.26 \times 10^5/RT)$	SiC中のXe拡散係数 文献29
最外 PyC 層	$2.9 \times 10^{-4} \exp(-2.55 \times 10^5/RT)$	本文参照

R ; ガス定数 (8.314 J/K), K ; 絶対温度 (K)

UO<sub>2</sub>中のFPガスの拡散は、その結晶粒、化学量論組成、燃焼率など多くの因子によって影響を受けるため<sup>30)</sup>、その拡散係数の選択に際しては注意を要する。このFECUNDの計算では、O<sub>i</sub>によって求められた単結晶UO<sub>2</sub>中のXeの拡散係数<sup>31)</sup>を基にした。24式では、aを燃料核半径とみなすことが出来るが、拡散の機構を考慮してみると、このような取り扱いには問題がある。つまりUO<sub>2</sub>結晶中で生まれたFPガスは、結晶内を拡散(捕獲効果や気泡拡散なども含んで)して、結晶粒界に達し、粒界拡散によって燃料核外に放出されるが、この時の結晶内の拡散速度は粒界の拡散速度に比べて著るしく遅く、燃料核からのFPガスの放出は、それを構成する等価球( $\frac{S}{V} = \frac{3}{a}$ で示される)内の拡散で律速されている。そこで、一般化された拡散係数として、

$$D' = \frac{D}{a^2} \tag{34}$$

が用いられる。aを燃料核半径の値を使うと、O<sub>i</sub>の拡散係数によるD'の値は、Brown等<sup>32)</sup>に比べてかなり小さくなるためBrown等の値(D')に近い値にするため、O<sub>i</sub>の値を便宜上、10倍した値を採用した。

最外PyC層中の拡散係数は、この中の汚染ウランから生じたFPガスの拡散による放出に、直接、係わる因子であるため、FPガス放出の評価には非常に重要である。ここに使ったPyC中のFPガス・炉内拡散係数は、74F-9Jキャプセルの次に照射した75F-4AキャプセルからのFPガス放出挙動(ここでの照射では、初期には被覆破損が認められなかった)の解析<sup>26)</sup>から得られたものである。

このような拡散係数および、74FC1の特性を使って計算した(R/B)の温度依存性(Fig. 21)では、破損粒子および健全粒子とも約1200℃以下では(R/B)が温度に対してほとんど一定であ

り、また、この温度以上では、温度増加とともに単調に増加しているが見られる。前者は核分裂反跳により、また、後者は拡散によって支配されているのは明らかである。なお、健全粒子では、核分裂反跳による放出は、隣接する被覆粒子の表面に再突入するため<sup>33)</sup>、反跳によって直接放出される割合は、非常に小さく、Fig. 19 に示す照射初期の低温での R/B と最外 PyC 層中の汚染率を考慮した反跳による (R/B) の比較から直接放出される割合は 3% 程度であると考えられる。

被覆粒子の集団をルーズな状態で照射するとき、その中の破損率によって (B2 式参照)、それらの被覆粒子からの (R/B) は Fig. 21 に示す健全粒子からの (R/B)<sub>i</sub> と破損粒子からの (R/B)<sub>f</sub> の間に存在する。Fig. 20 に示した種々の破損率に対する放出曲線は、このような方法により、FECUND によって計算したものである。Fig. 20 に見られる FECUND による破損率の評価では、74 FC1 について照射開始直後に若干の被覆破損が起っていることが示され、照射終了時には  $1.5 \sim 3 \times 10^{-3}$  に達した。

一方、74 UC1 でも照射開始後にわずかながら破損がみられ、照射中に若干の増加があったが、照射終了時には、 $2.7 \times 10^{-4}$  の破損率を示していた。74 FC1 の場合、Fig. 16 に示した照射後の外観に見られるように、破損した被覆粒子の燃料核は、外部へ飛散し、球形を保っていない。従って、このような破損粒子に対して、燃料核が球形を保った状態と同じように扱えるかどうかの疑問が残る。正確には、同じようには扱えないが、燃料核からの放出が拡散によって支配されている温度領域では、燃料核が分散し、小さな粒に分れても拡散係数が大きく変らなければ、そのような状態からの放出率は、球形核からの放出率と大きな差はないと思われ、便宜的には、上述した方法でも大きな誤差はないと思われる。

一方、R/B からの被覆破損率の評価は、単純化された拡散モデルによって行われた。<sup>34)</sup> B2 式の中で、被覆破損を起した粒子から大部分の FP ガスの放出が拡散のみによって起ると仮定すると、

$$\overline{(R/B)} = f_b (R/B)_f \quad (35)$$

で示される。ここでの (R/B)<sub>f</sub> は B4 式で与えられる。

この評価では、拡散係数を次式に示すように、照射温度とともに核分裂密度  $\phi$  (fission/cm<sup>3</sup>) の関数<sup>35)</sup>として表わした。

$$D \text{ (cm}^2/\text{s)} = 7.6 \times 10^{-6} \exp(-3.5 \times 10^4/T) + 14.1 \times 10^{-18} \phi^{0.5} \exp(-1.38 \times 10^4/T) + 2 \times 10^{-30} \phi \quad (36)$$

B6 式の拡散係数を使って B5 式により種々の破損率での R/B を計算し、照射初期 (BOL) および照射終了 (EOL) 近くでの種々の FP ガスの実測 R/B にフィッティングした結果を Fig. 22 (a, b) に示す。

Fig. 22 (a) に示す 74 FC1 の破損率の結果では  $1.3 \times 10^{-5}$  (BOL)  $\sim$   $4.5 \times 10^{-3}$  (EOL) であり、FECUND による評価、 $0$  (BOL)  $\sim$   $1.5 \sim 3 \times 10^{-3}$  (EOL) とほぼ同じである。また Fig. 22 (b) に示す 74 UC1 の結果では、 $1.3 \times 10^{-4}$  (BOL)  $\sim$   $4.7 \times 10^{-4}$  (EOL) であり、FECUND での評価、 $< 9 \times 10^{-5}$  (BOL)  $\sim$   $2.7 \times 10^{-4}$  (EOL) と大体一致していることがわかる。

## 7.3 FPガス放出機構

前節において、本実験におけるFPガスが $\sim 1200^\circ\text{C}$ 以下では核分裂反跳機構により、またそれ以上の温度では拡散機構で放出されているとみられた。FPガスの放出機構は、その崩壊定数、 $\lambda$ 、依存性からも調べることができる。(18および24式に示したそれぞれ反跳放出および拡散放出のR/Bは、 $\lambda$ に対して

$$\log(R/B) = C_1 \quad \text{反跳放出の場合} \quad (37)$$

$$\log(R/B) = C_2 - \frac{1}{2} \log \lambda \quad \text{拡散放出の場合} \quad (38)$$

となる。つまり、反跳放出では、 $\log(R/B)$ は $\log \lambda$ に対して一定であるが、拡散放出では $\frac{1}{2}$ の勾配となる。Fig. 23(a,b)には、それぞれ74 FC1および74 UC1からのR/Bと $\lambda$ との関係をプロットしている。Fig. 23(a)では、照射初期 $\#42$ サイクルにおいては $\log(R/B) - \log \lambda$ の勾配、 $g$ 、は0.43であり、拡散放出機構の0.5に近い。また、照射終了近くの $\#44$ サイクルにおいては、 $g = 0.56$ に増加している。一方、Fig. 23(b)では、 $\#44$ サイクルで $g = 0.24$ と小さい。これから、74 UC1では、ほとんどのFPガスは破損粒子の燃料核から反跳によって放出されているとみられるが、 $g = 0.24$ と0より大きい値を示したのは、FPガスがバッファ層を通った気相拡散の影響によるものと思われる。また、74 FC1の $\#42$ サイクルからの放出はこの時点でもすでに被覆破損によるものであることが7.2節での解析で明らかであるが、 $g = 0.43$ を示したことは、FPガスのかなりの割合が燃料核から拡散機構により放出されているとみられる。そして、照射終了時の $1600^\circ\text{C}$ においては、ほぼ完全に拡散支配の放出であると思われる。

Table 12に示した $D_I/D_{Xe}$ の中で、特に $\#44$ サイクルにおける74 FC1の $1500^\circ\text{C}$ ( $1200^\circ\text{C}$ )の値が大きかったが、これは、上述したようにかなりの被覆破損が起った後での放出であり、Fig. 16に示したように、燃料核は飛散し、おそらく小さな炭化物の粒として存在しているものと思われる。この時の放出は、上述の検討で拡散機構によるものであると考えられた。一方、74 FC1の $\#42$ サイクル後( $1250^\circ\text{C}$ )では、被覆破損はあまり大きではなく、おそらくこの温度では、Fig. 16に見られたような燃料核の飛散は起っていないと思われ、燃料核は $\text{UO}_2$ の状態にあるものと推察される。ここでも大部分の放出は拡散機構によると考えられた。

Zumwalt等によると<sup>36)</sup> $\text{UC}_2$ 中においては、二つの核種の拡散係数は、

$$D_I \simeq D_{Xe}$$

であり、また、Takagi<sup>37)</sup>やO<sub>i</sub><sup>31)</sup>による $\text{UO}_2$ 中のIとXeの拡散係数の比較でも、両者は数倍の範囲で一致している。これらのことから、単純な拡散だけであれば $D_I/D_{Xe}$ 値は $\#42$ サイクル後も $\#44$ サイクル後もあまり変らないはずである。したがって、 $\#44$ サイクルにおける放出には拡散だけではなく、まったく別の放出機構が作用しているのではないかと疑われた。

Pointud等<sup>38)</sup>による破損粒子からのFPガスの放出研究によると、核分裂密度が $5 \times 10^3$  fission/cm<sup>3</sup>の場合、核分裂反跳による放出と共にノック-アウト放出の可能性が大きいことが報告されている。特に燃料核が飛散し、 $\text{UC}_2$ の小粒で分散している場合には、ノック-アウト放出の可能性も大きくなると思われる。本報告においては、ノック-アウト放出機構が起っているかどうかを確かめることは出来なかったが、 $D_I/D_{Xe}$ の値が著るしく大きくなったことを説明する上では、ノック-アウト放出の可能性をまったくは否定できない。



## 7.4 照射後試験における被覆破損

照射後試験で得られた被覆層破損率（95%信頼区間）および7.2節に示したR/Bから評価した被覆層破損率をTable 14にまとめている。この表に示す73 FC1では、外観およびX線ラジオグラフィによっては破損を見つけることは出来なかったが、酸浸出率では $2.8 \times 10^{-4}$ の値を示しており、これは照射した全73 FC1粒子中に2個の粒子が破損していることを意味している。

74 FC1では、どの試験においても、 $1 \times 10^{-3}$ 以上の被覆破損率を示しているが、それらは、いずれも $1.5 \sim 4.5 \times 10^{-3}$ という近い値を示した。この照射条件は、多目的高温ガス実験炉運転のシステム最高温度を越えるものであり、温度条件だけを見れば、炉設計の最大破損率、 $5 \times 10^{-3}$ 、内には収まっていた。

74 UC1は比較的低い温度での照射にもかかわらず、外観、X線ラジオグラフィでは被覆破損が見られた。それはいずれの試験においても $10^{-4}$ のオーダーの破損であり、破損粒子数としては、全照射74 UC1中で10粒以下である。74 UC1の破損はSiC層に原因があると思われるが、SiC密度だけを見れば（Table 1参照）、他の被覆粒子のSiC層のものとあまり大きくは違っていなく、74 UC1のSiCのどの部分に欠陥があるのかは今後、調べていく必要がある。

キャプセル照射<sup>17)</sup>では、74 UC1は最も条件のきびしい所での照射により10%以上の破損を示しており、おそらく、74 F-9Jキャプセルにおいても、もし照射温度がこれ以上高ければ、かなりの破損を起したであろうと思われる。

## 記 号

- (R/B)<sub>R</sub> ; 核分裂反跳による放出率  
 R ; 核分裂反跳距離 (cm)  
 a ; 等価球モデルによる放出源半径 (cm)  
 r ; 放出源の中心からの距離 (cm)  
 C ; FPガス濃度 (cm<sup>-3</sup>)  
 B ; FPガス生成速度 (cm<sup>-3</sup>・sec<sup>-1</sup>)  
 D ; 拡散係数 (cm<sup>2</sup>/sec)  
 (R/B)<sub>D</sub> ; 拡散による放出率  
 λ ; FPガス崩壊定数 (sec<sup>-1</sup>)  
 V ; 燃料核体積 (cm<sup>3</sup>)  
 S ; 燃料核 BET 表面積 (cm<sup>2</sup>)  
 φ ; 核分裂密度 (fissions/cm<sup>3</sup> UO<sub>2</sub>)

Table 14 Summary of failure fractions of coated particles irradiated by 74F-9J capsule

	73FC1	74FC1	74UC1
Surface inspection (95% confidence limits) (ave.)	0 ~ 3.3×10 <sup>-3</sup> (0)	5.7×10 <sup>-4</sup> ~ 8.0×10 <sup>-3</sup> (2.8×10 <sup>-3</sup> )	2.3×10 <sup>-5</sup> ~ 5.1×10 <sup>-3</sup> (9.2×10 <sup>-4</sup> )
X-ray radiography (95% confidence limits) (ave.)	0 ~ 3.3×10 <sup>-3</sup> (0)	1.0×10 <sup>-3</sup> ~ 9.4×10 <sup>-3</sup> (3.7×10 <sup>-3</sup> )	2.3×10 <sup>-5</sup> ~ 5.1×10 <sup>-3</sup> (9.2×10 <sup>-4</sup> )
Acid leaching fraction	2.8×10 <sup>-4</sup>	1.6×10 <sup>-3</sup>	3.5×10 <sup>-4</sup>
FECUND calculation	—	1.5×10 <sup>-3</sup>	2.7×10 <sup>-4</sup>
Diffusion model	—	4.5×10 <sup>-3</sup>	4.7×10 <sup>-4</sup>

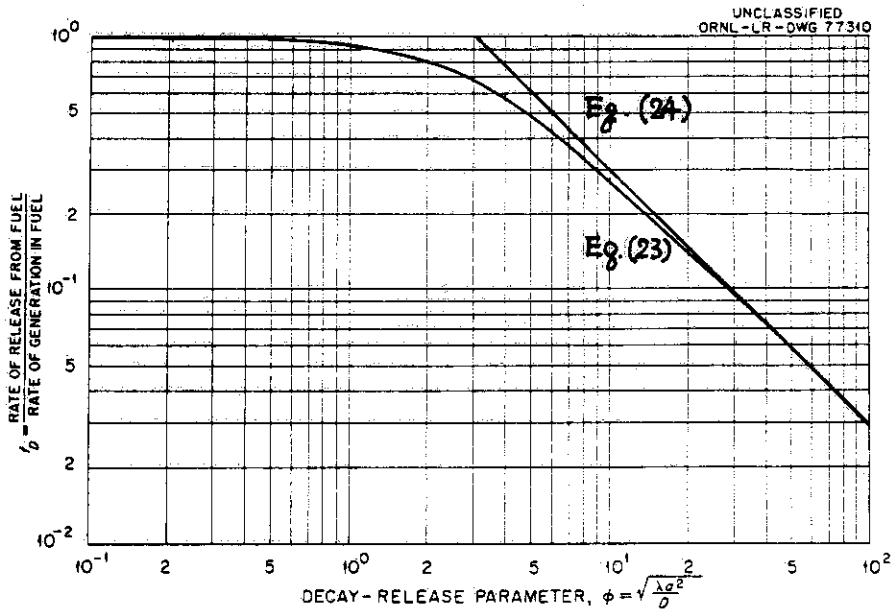


Fig. 19 Fractional release, R/B, versus decay release parameter,  $\phi$  (25).

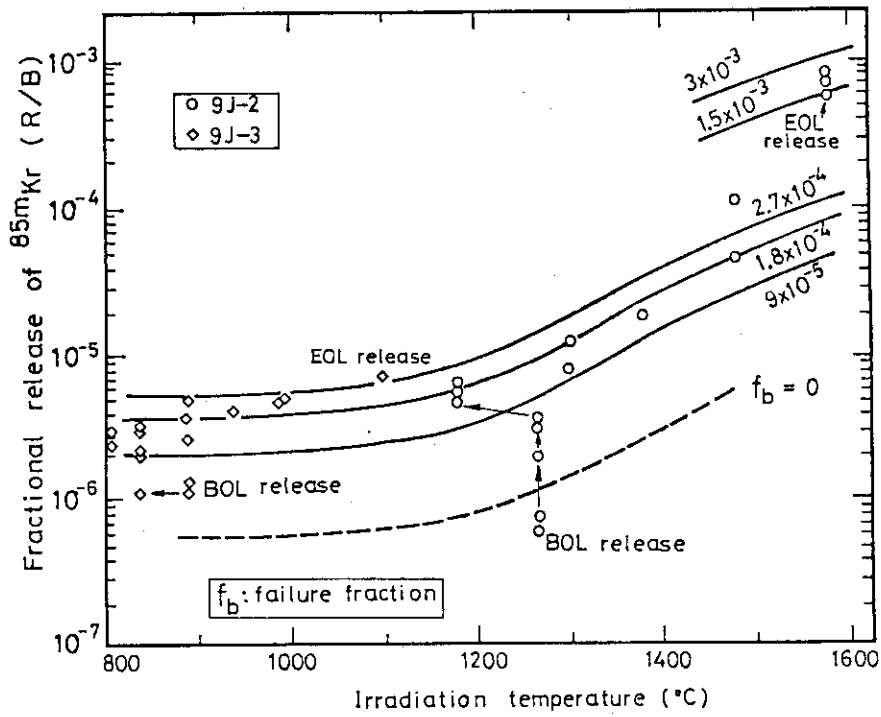


Fig. 20 Temperature dependence of measured and calculated fission-gas release.

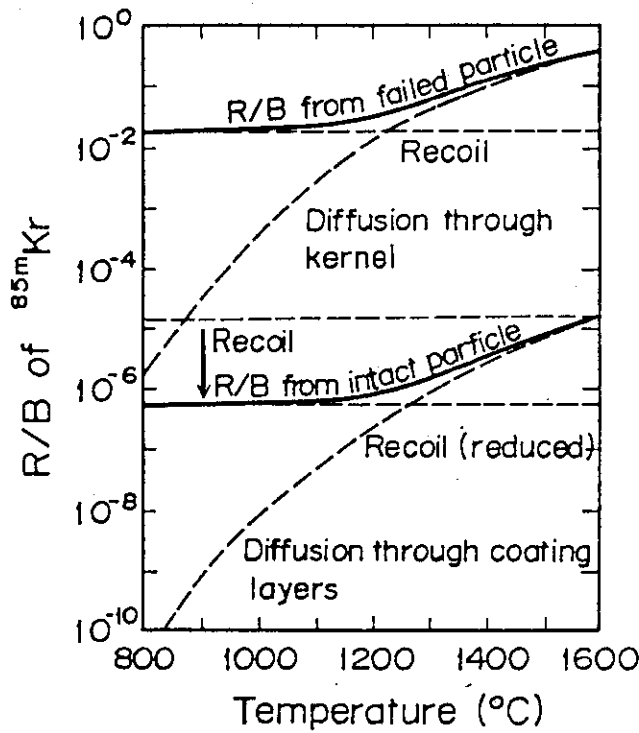
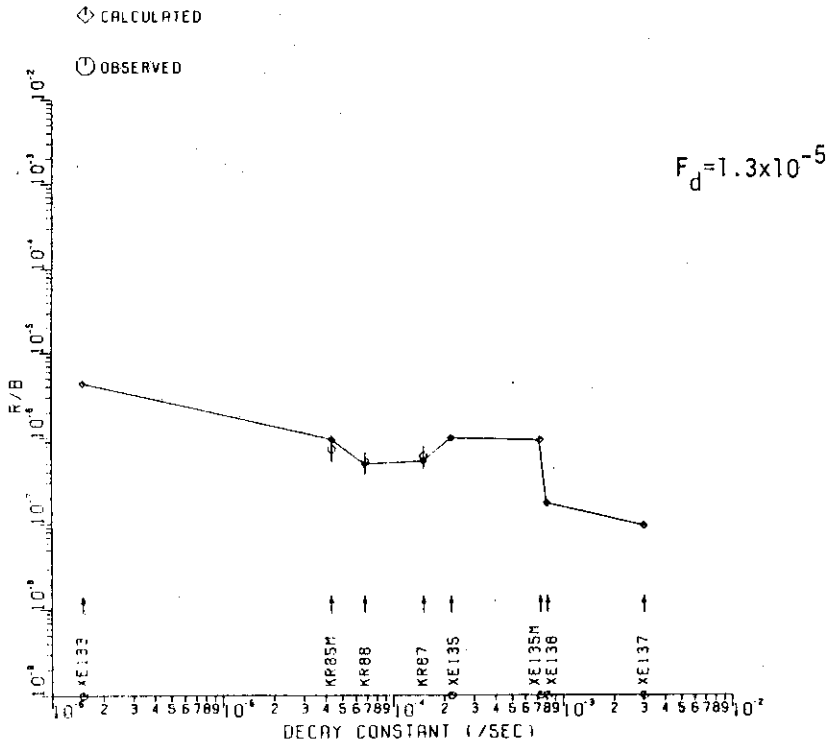


Fig. 21 Tentative calculation of R/B from failed and intact coated fuel particles.

74FC-1 IRRADIATED IN 74F9J-2 CAPSULE AT 42 TH CYCLE(52.12.20 - 52.12.22)



74FC-1 IRRADIATED IN 74F9J-2 CAPSULE AT 44 TH CYCLE(53.7.3 - )

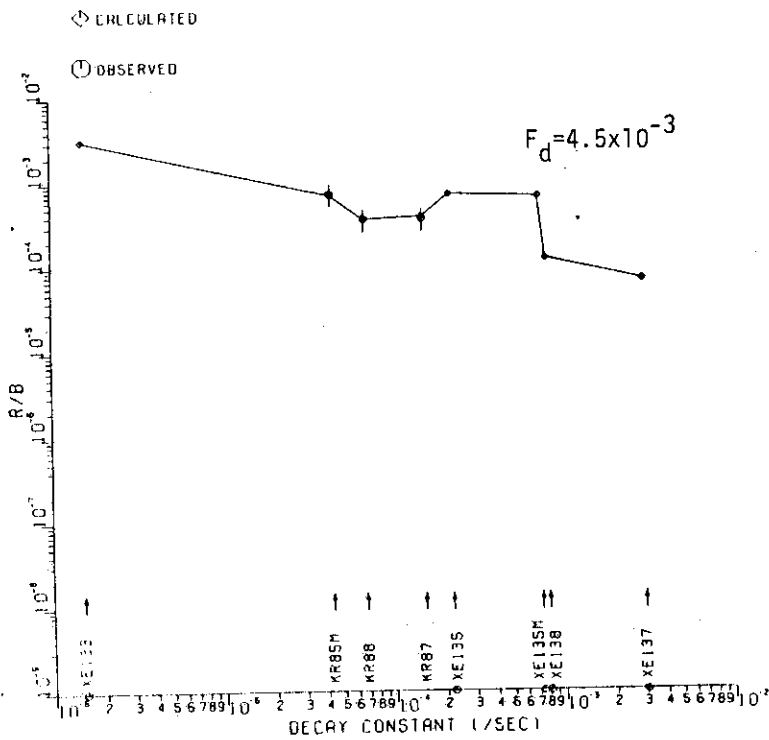
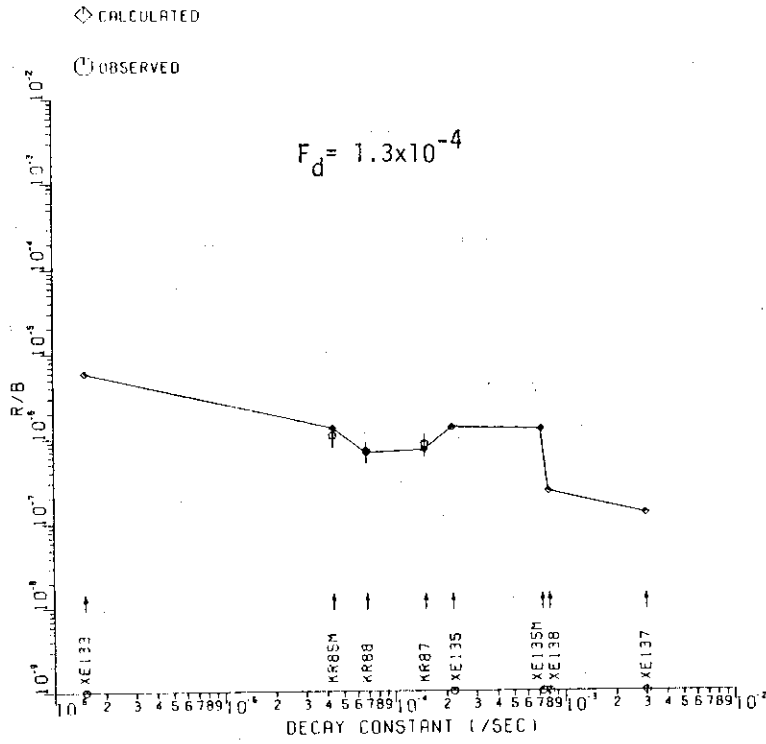


Fig. 22(a) Estimation of failure fraction( $F_d$ ) by R/B(74FC1).

74UC-1 IRRADIATED IN 74F9J-3 CAPSULE AT 42 TH CYCLE(52.12.20 - 52.12.22)



74UC-1 IRRADIATED IN 74F9J-3 CAPSULE AT 44 TH CYCLE(53.7.3 - )

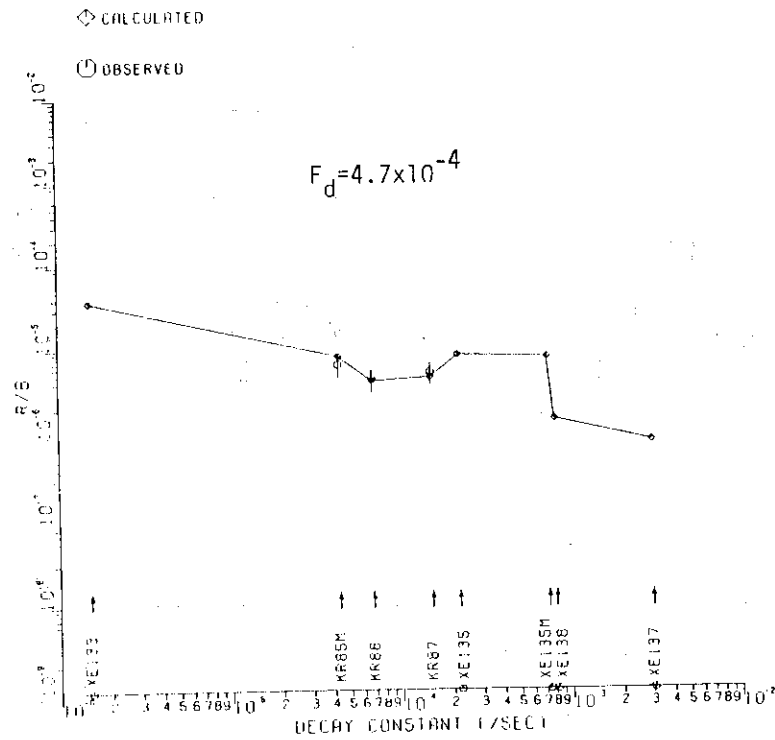


Fig. 22(b) Estimation of failure fraction( $F_d$ ) by R/B(74UC1).

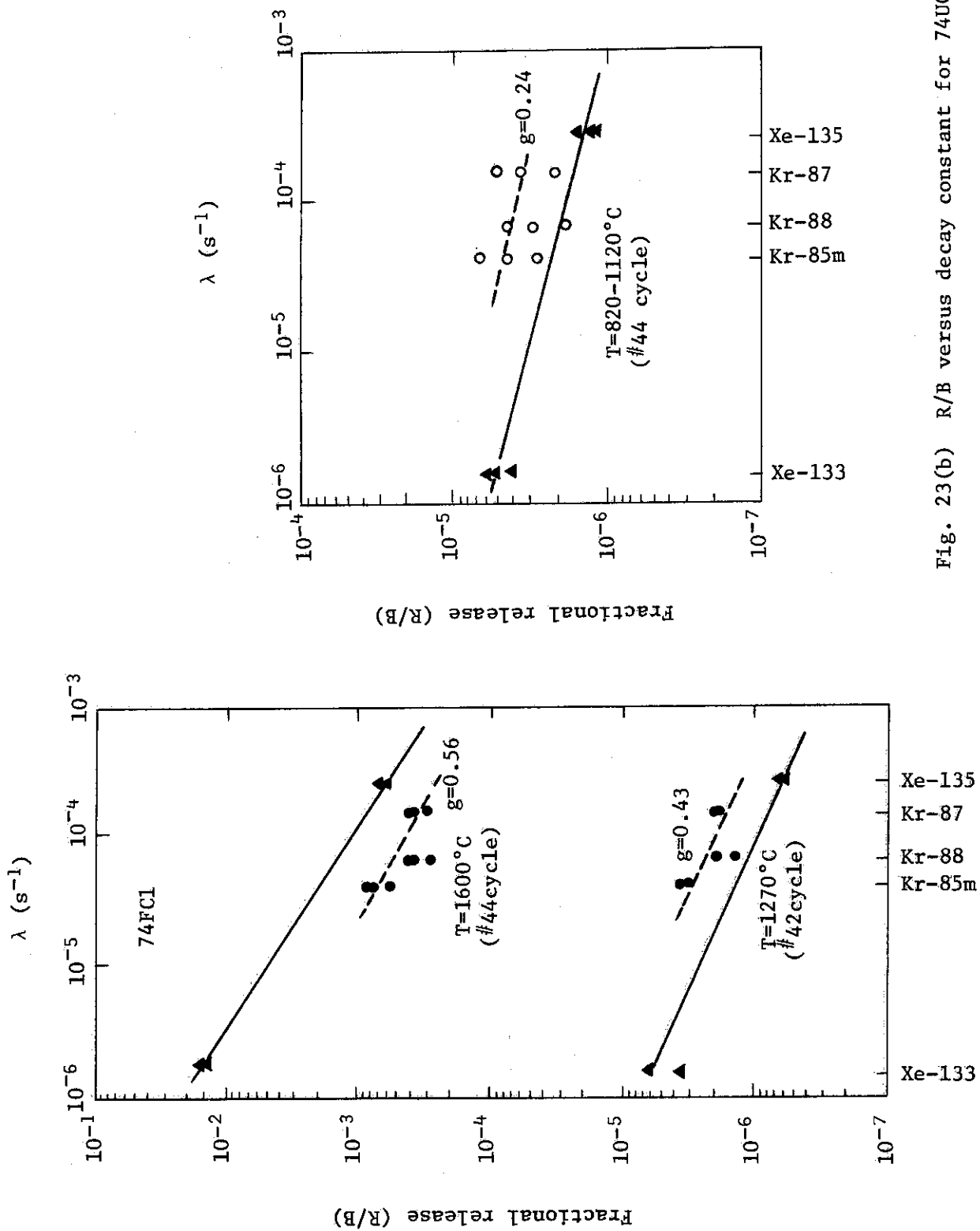


Fig. 23(a) R/B versus decay constant for 74FCl

Fig. 23(b) R/B versus decay constant for 74UC1

## 8. 結 論

日本原子力研究所で最初のスイープキャプセルである 74 F-9 J キャプセルは、材料試験炉部において周到な準備<sup>6)</sup>のもとに、照射が行われ、上段内部キャプセルのスイープ管の閉塞の問題があったが、これを除けば、十分満足のいく結果が得られた。74 F-9 J キャプセル照射試験で得られた結論は、以下のとおりである。

- (1) 49年度予備設計仕様の被覆粒子(74 FC1)から FPガス、 $^{85m}\text{Kr}$  放出率(R/B)は 1600 °C で最高  $8.3 \times 10^{-4}$  を示した。
- (2) 英国で製造した 49年度予備設計仕様の被覆粒子(74 UC1)からの $^{85m}\text{Kr}$ の R/Bは 1120°C で最高  $6.6 \times 10^{-6}$  を示した。
- (3) Xe 放出率に及ぼす I 放出の寄与は、質量数 133 の場合 22% ~ 65%、質量数 135 の場合、18% ~ 51% であった。
- (4) I 放出の評価から得られる Xe と I の拡散係数の比、 $D_I/D_{Xe}$  は、質量数 135 の場合、1.0 ~ 2.0 の間の数値を示したが、被覆が著しく破損した後では、 $D_I/D_{Xe}$  は 21 まで増加した。この原因としては、燃料核が飛散し、炭化されて小粒状態で散らばった時、拡散や核分裂反跳による放出に加えて、別の機構、たとえば、ロック-アウト放出の可能性も考えられた。
- (5) 本キャプセル照射まで測定された $^{137}\text{Cs}$ 放出率は、73 FC1 で  $2.8 \times 10^{-4}$ 、74 FC1 で、 $1.6 \times 10^{-3}$ 、74 UC1 で  $3.4 \times 10^{-4}$  であった。
- (6) 最高 1600 °C で照射した 74 FC1 は、燃料核が飛散し、被覆層の殻だけが残る現象が見られた。
- (7) FECUND コードによる解析により、1200 °C 以下での放出は核分裂反跳により、またこれ以上の温度では拡散機構に支配されていることが明らかになった。
- (8) FECUND コードによる R/B の解析、および拡散モデルによる R/B の解析から得られた被覆粒子破損率は、互に近い値を示した。
- (9) 外観、X 線ラジオグラフィによる被覆破損率、酸浸出率および FECUND 並びに拡散モデルによる解析で求めた破損率から、照射した被覆粒子の破損率は以下のとおりであった。

73 FC1 ……  $2.8 \times 10^{-4}$  (酸浸出率のみ)

74 FC1 ……  $1.5 \sim 4.5 \times 10^{-3}$

74 UC1 ……  $2.7 \sim 9.2 \times 10^{-4}$

### 謝 辞

本キャプセルの照射試験は、以下の課室の御協力のもとに行われたもので、これらの課室の方に深い感謝の意を表します。

- (1) キャプセル設計、製作、照射

大洗研究所材料試験炉部照射一課、同二課、同三課、東海研究所技術部工作課

- (2) 照射後試験

東海研究所ホットラボ管理室、大洗研究所ホットラボ課

## 8. 結 論

日本原子力研究所で最初のスイープキャプセルである 74 F-9 J キャプセルは、材料試験炉部において周到な準備<sup>6)</sup>のもとに、照射が行われ、上段内部キャプセルのスイープ管の閉塞の問題があったが、これを除けば、十分満足のいく結果が得られた。74 F-9 J キャプセル照射試験で得られた結論は、以下のとおりである。

- (1) 49 年度予備設計仕様の被覆粒子 (74 FC1) から FP ガス、 $^{85m}\text{Kr}$  放出率(R/B)は 1600 °C で最高  $8.3 \times 10^{-4}$  を示した。
- (2) 英国で製造した 49 年度予備設計仕様の被覆粒子 (74 UC1) からの  $^{85m}\text{Kr}$  の R/B は 1120 °C で最高  $6.6 \times 10^{-6}$  を示した。
- (3) Xe 放出率に及ぼす I 放出の寄与は、質量数 133 の場合 22 % ~ 65 %、質量数 135 の場合、18 % ~ 51 % であった。
- (4) I 放出の評価から得られる Xe と I の拡散係数の比、 $D_I/D_{Xe}$  は、質量数 135 の場合、1.0 ~ 2.0 の間の数値を示したが、被覆が著しく破損した後では、 $D_I/D_{Xe}$  は 21 まで増加した。この原因としては、燃料核が飛散し、炭化されて小粒状態で散らばった時、拡散や核分裂反跳による放出に加えて、別の機構、たとえば、ロックアウト放出の可能性も考えられた。
- (5) 本キャプセル照射まで測定された  $^{137}\text{Cs}$  放出率は、73 FC1 で  $2.8 \times 10^{-4}$ 、74 FC1 で、 $1.6 \times 10^{-3}$ 、74 UC1 で  $3.4 \times 10^{-4}$  であった。
- (6) 最高 1600 °C で照射した 74 FC1 は、燃料核が飛散し、被覆層の殻だけが残る現象が見られた。
- (7) FECUND コードによる解析により、1200 °C 以下での放出は核分裂反跳により、またこれ以上の温度では拡散機構に支配されていることが明らかになった。
- (8) FECUND コードによる R/B の解析、および拡散モデルによる R/B の解析から得られた被覆粒子破損率は、互に近い値を示した。
- (9) 外観、X 線ラジオグラフィによる被覆破損率、酸浸出率および FECUND 並びに拡散モデルによる解析で求めた破損率から、照射した被覆粒子の破損率は以下のとおりであった。

73 FC1 ……  $2.8 \times 10^{-4}$  (酸浸出率のみ)

74 FC1 ……  $1.5 \sim 4.5 \times 10^{-3}$

74 UC1 ……  $2.7 \sim 9.2 \times 10^{-4}$

### 謝 辞

本キャプセルの照射試験は、以下の課室の御協力のもとに行われたもので、これらの課室の方方に深い感謝の意を表します。

- (1) キャプセル設計、製作、照射

大洗研究所材料試験炉部照射一課、同二課、同三課、東海研究所技術部工作課

- (2) 照射後試験

東海研究所ホットラボ管理室、大洗研究所ホットラボ課



特に、本キャプセルの照射目的を達成するため、周到な準備作業を行われた、八巻治恵氏（元照射一課長，現実用燃料試験室燃料試験技術課長），野村靖氏（元照射一課，現原子力工学試験センター出向），戸根弘人氏（元照射三課，現高温工学部）をはじめ，材料試験炉部の多くの方に深く感謝します。また，本試験を遂行するにあたって御激励を賜った前燃料工学部長下川純一氏に感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- (1) 岩本多實, 他, "JRR-2 水ループ照射 (EFTL-2 及び HWL-1) による UC<sub>2</sub> 核被覆粒子の照射試験", JAERI-M 5876 (1974)
- (2) 岩本多實, 他, "被覆燃料粒子の照射挙動試験 (I) (70 F-4 A キャプセルによる JMTR 照射)", JAERI-M 6480 (1976)
- (3) P.E. Reagan, et al., "Fission Gas Release from Pyrolytic-Carbon-Coated Fuel Particles During Irradiation at 2000 to 2500°F", Nucl. Sci. Eng., 23, 215 (1965).
- (4) G. Rönnerberg, Private communication (1981)  
(sited in D.P. Report 387).
- (5) A. Müller, "Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte (Kr, Xe, J) aus Brennelementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren", Jül-1295 (1976).
- (6) 野村靖, 中田宏勝, "被覆粒子随射用ガススイープキャプセル: 74 F-9 J の設計・製作" (非公開資料), (1978)
- (7) 野村靖, "74 F-9 J キャプセル熱電対指示温度から試料温度を推定する方法" (非公開資料), (1977)
- (8) 材料試験炉部計画課, "中性子照射量報告書" (非公開資料), (1981)
- (9) A. Fabry and J.C. Schepers, "Some Nuclear Data and Considerations Related to Reactor Dosimetry with Threshold Detectors", WGRD report p.5 (1970).
- (10) 小川徹, 他, "JMTR 照射低濃縮 UO<sub>2</sub> 核被覆粒子の Pu 核分裂割合", JAERI-M 83-152 (1983)
- (11) 照射一課検討資料, "42 サイクル (前半) の G.S Data 整理" (未公開資料) (1978)
- (12) P.E. Reagan, et al., "Fission-Gas Release from Pyrolytic-Carbon-Coated Fuel Particles during Irradiation", Nucl. Sci. Eng., 18, 301 (1964).
- (13) 福田幸朔, 他, "JMTR 照射済多目的高温ガス炉燃料試料の輸送" (未公開資料) (1981)
- (14) 福田幸朔, 他, "被覆燃料粒子の照射挙動試験 (IV), (73 F-12 A キャプセルによる JMTR 照射)", JAERI-M 9644 (1981)
- (15) T. Ogawa, et al., "Electron Probe Micro-Analysis of Irradiated Triso-Coated UO<sub>2</sub> Particles - (I)", JAERI-M 83-200 (1983).
- (16) K. Minato, et al., "Electron Probe Micro-Analysis of Irradiated Triso-Coated UO<sub>2</sub> Particles - (II)", JAERI-M 84-002 (1984).
- (17) 福田幸朔, 他, "被覆燃料粒子の照射挙動試験 (V), (73 F-13 A キャプセルによる JMTR 照射)", JAERI-M 83-232 (1983)

- (18) R.E. Bullock, "Fuel-Fluence Tests of Experimental Thermosetting Fuel Rods for High Temperature Gas-cooled Reactor", Nucl. Technol., 52, 246 (1981).
- (19) K. Fukuda, et al., "Detection of Failed Coated Particles in HTGR Fuels by Acid Leaching", J. Nucl. Sci. Technol., 18, 887 (1981).
- (20) C.A. Friskney and M.V. Speight, "A Calculation on the In-pile Diffusional Release of Fission Products forming a General Decay Chain", J. Nucl. Mater., 62, 89 (1976).
- (21) G.W. Parker, et al., "Out-of-pile Studies of Fission Product Release from Over heated Reactor Fuels at ORNL, 1955-1965", ORNL-3981 (1967).
- (22) T. Ogawa, "Comparison of Diffusion Data of Fission Products in  $UO_2$ ", submitted to J. Am. Ceram. Soc..
- (23) 小川徹, 他, "被覆粒子燃料からの照射中金属FP放出挙動", 日本原子力学会 59年度年会 (近畿大学, 1984年3月30日)
- (24) S.D. Beck, "The Diffusion of Radioactive Fission Products from Porous Fuel Elements", BMI-1433 (1960).
- (25) J.W. Prados and J.L. Scott, "Models for Fission-Gas Release from Coated Fuel Particles", ORNL-3421 (1963).
- (26) K. Fukuda, et al., "Release Behavior of Fission Gas from Coated Fuel Particles under Irradiation", J. Nucl. Sci. Technol., 19, 889 (1982).
- (27) 牧野正彦, 安川茂, "高温ガス冷却炉における核分裂生成物の非定常拡散放出量評価コード-FECUND-", JAERI-M 4883 (1972)
- (28) K. Fukuda and K. Iwamoto, "Diffusion and Evaporation of Fission Products in Coated Fuel Particles", J. Nucl. Sci. Technol., 12, 181 (1975).
- (29) K. Fukuda and K. Iwamoto, "Xenon Diffusion Behavior in Pyrolytic SiC", J. Mater. Sci., 11, 522 (1976).
- (30) H.J. Matzke, "Gas Release Mechanisms in  $UO_2$ ", AERE-R-9733 (vol.2), p.345-380 (1980).
- (31) N.Z. Oi, "Xe Diffusion in  $UO_2$ -Single Crystals", Zeit. Naturforschung, 20a, 1569 (1965).
- (32) F. Homan, et al., "Low-Enriched Fuel Particle Performance Review", Jül-1502 or GA-A14759 (1978).
- (33) B.F. Myers, et al., "The Behavior of Fission Product Gases in HTGR Fuel Material", GA-A 13723 (1977).
- (34) 小川徹, 他, "短半減期FPガスのR/B値と被覆燃料粒子破損率", (未公開報告書) (1982)

- (35) J.A. Turnbull and C.A. Friskney, cited in NUREG/CR-2298 (1981) (A.D. Appelhans et al.).
- (36) L.R. Zumwalt, et al., "Fission-Product Release from Monogranular UO<sub>2</sub> Particles", Nucl. Sci. Eng., 21, 1 (1965).
- (37) J. Takagi, et al., "Evaporation Behavior of Non-Gaseous Fission Products from UO<sub>2</sub>", Zeit. Naturforschung, 20a, 1566 (1965).
- (38) M.L. Pointud and P. Chenebault, "Emission of Fission Gases by Failed Coated Oxide Fuel Particles", Nucl. Technol., 35, 494 (1977).