

JAERI-M
85-041

被覆粒子燃料からの照射中金属FP放出
—74F9J, 75F4A, 75F5A スイープガス
キャプセル—

1985年3月

小川 徹・福田 幸朔・鹿志村 悟
飛田 勉・伊藤 忠春・喜多川 勇
宮西 秀至・関野 甫・沼田 正美
岩本 多美・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 Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1985

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

被覆粒子燃料からの照射中金属FP放出

— 74F9J, 75F4A, 75F5A スィープガスキャプセル —

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

小川 徹・福田 幸朔・鹿志村 悟
飛田 勉・伊藤 忠春⁺・喜多川 勇⁺
宮西 秀至⁺・関野 甫⁺・沼田 正美⁺
岩本 多実・井川 勝市

(1985年2月12日受理)

74F9J, 75F4A, 75F5Aの3本のスィープガスキャプセルで照射した。計9種類のTriso被覆 UO_2 粒子試料について、キャプセル内部に放出された金属FP量を照射後に定量した。照射温度, 時間, 照射終了時貫通破損割合 (ϕ_{EOL}) および金属FP放出割合をもとに, 個々の試料について主たるFP放出機構を判定した。幾つかの試料については, ϕ_{EOL} および製造時SiC層破損割合 (ϕ_{BOL}) では説明できない多量の Cs^{137} の放出が認められた。この余剰の Cs^{137} 放出を, ①照射による新たなSiC層破損の発生, あるいは, ②健全なSiC層を通しての拡散放出, の二通りの仮説によって検討した。 Ag^{110m} は Cs^{137} を上回る放出割合を示した。その他の金属FPでは Eu^{154} が大きな放出割合を示した。

Release of Metal Fission Products from Coated Particle Fuel - Sweep-gas Capsules 74F9J, 75F4A and 75F5A

Toru OGAWA, Kosaku FUKUDA, Satoru KASHIMURA,
Tsutomu TOBITA, Tadaharu ITOH⁺, Isamu KITAGAWA⁺
Hideyuki MIYANISHI⁺, Hajime SEKINO⁺, Masami NUMATA⁺,
Kazumi IWAMOTO and Katsuichi IKAWA

Department of Fuels and Materials Research

Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 12, 1985)

Total nine samples of Triso-coated UO₂ particle fuel were irradiated in three sweep-gas capsules 74F9J, 75F4A and 75F5A. Amount of fission products released into the capsule components were measured after irradiation. Predominant mechanism of release was assigned to each sample by considering the irradiation temperature, time, end-of-life through-coating failure fraction (ϕ_{EOL}) and fractional releases of metal fission products. Some samples showed substantial release of Cs¹³⁷, which could be explained by neither ϕ_{EOL} nor beginning-of-life fraction defective SiC (ϕ'_{BOL}). This excess release of Cs¹³⁷ was analyzed by either one of the two hypotheses: (1) additional generation of defective SiC, or (2) diffusion through intact SiC. The Ag^{110m} showed higher fractional release than Cs¹³⁷. Among other metal fission products, Eu proved to escape from coated fuel particles in a substantial fraction.

Keywords: Metal Fission Products, Triso-coated Fuel Particle, UO₂, SiC, Diffusion, Sweep-Gas Irradiation

+ Department of Research Reactor Operation

目 次

1. 序 論	1
2. 照射試験	4
2.1 キャプセル構造	4
2.2 燃料試料	4
2.3 照射履歴	4
3. 金属FP放出量測定	13
3.1 測定方法	13
3.2 γ 線スペクトル	13
4. 結 果	15
4.1 FP分布	15
4.2 FP放出割合	15
5. 考 察	21
5.1 FP放出機構	21
5.2 SiC層破損の発生	28
5.3 SiC層中の拡散	31
5.4 Cs ¹³⁷ 以外の核種の挙動	34
5.4.1 Cs ¹³⁴	36
5.4.2 Ag ^{110m}	37
5.4.3 Eu ¹⁵⁴	37
6. 結 論	40
謝 辞	40
参考文献	41
附録A 中心熱伝対の中性子照射による温度測定誤差	43
附録B Ag ^{110m} インベントリーの評価	46
記号表	48

Contents

1.	Introduction	1
2.	Irradiation tests	4
2.1	Irradiation arrangements	4
2.2	Fuel sample	4
2.3	Irradiation history	4
3.	Measurement of released metal fission products	13
3.1	Techniques	13
3.2	Gamma spectrum	13
4.	Results	15
4.1	Distribution of fission products	15
4.2	Fractional releases of fission products	15
5.	Discussions	21
5.1	Fission product release mechanisms	21
5.2	Generation of defective SiC	28
5.3	Diffusion through SiC	31
5.4	Fission products other than Cs ¹³⁷	34
5.4.1	Cs ¹³⁴	36
5.4.2	Ag ^{110m}	37
5.4.3	Eu ¹⁵⁴	37
6.	Conclusions	40
	Acknowledgements	40
	References	41
	Appendix A Decalibration of center thermocouple by neutron irradiation	43
	Appendix B Estimation of Ag ^{110m} inventory	46
	Notation	48

LIST OF TABLES

- Table 1 Characters of coated fuel particles irradiated in capsules 74F9J, 75F4A and 75F5A
- Table 2 Summary of irradiation conditions of coated fuel particles charged in the sweep-gas capsules 74F9J, 75F4A and 75F5A.
- Table 3 Fractional release (F) of metal fission products. Parenthesized values are estimated as the upper limits.
- Table 4 Criteria to assign predominant mechanism of metal fission product release.
- Table 5 Relative contributions to primary-circuit gamma dose rate by metal fission products. Retention by graphite component and plate-out behavior are not taken into account.

LIST OF FIGURES

- Fig. 1 Triso-coated UO_2 particle by the present specification.
- Fig. 2a Schematic arrangement of sweep-gas capsule 75F4A.
- Fig. 2b Schematic arrangement of sweep-gas capsule 75F5A.
- Fig. 3 Radial temperature profiles in sweep-gas capsules 75F4A (left) and 75F5A (right).
- Fig. 4a Irradiation temperature of sweep-gas capsule 74F9J.
- Fig. 4b Irradiation temperature of sweep-gas capsule 75F4A.
- Fig. 4c Irradiation temperature of sweep-gas capsule 75F5A.
- Fig. 5 Typical gamma spectrum of graphite holder.
Capsule: 75F4A-2.
- Fig. 6 Distribution of metal fission products and activation products among the components of the sweep-gas capsules: F, fuel; G, graphite holder; T, sweep-gas tube. Letters S, M and W denote strong, medium and weak intensities, respectively, in each spectrum.
- Fig. 7 Axial distributions of fission products in the graphite holder of 75F5A-1 (left) and 75F5A-3 (right).
- Fig. 8 Defect types of Triso-coated particle. (From left to right): the intact, the through-coating failed and the defective SiC particles.
- Fig. 9 Reduced diffusion coefficient of Cs^{137} in UO_2 kernel⁽¹³⁾.
- Fig. 10 Comparison of observed and calculated fractional releases of Cs^{137} , $F_K(\text{Cs}^{137})$, from UO_2 kernel into coating of Triso-coated particles. Number denotes burnup (%FIMA) of each sample particles⁽¹³⁾.
- Fig. 11 Fractional releases of Ru^{106} , Ce^{144} and Sb^{125} from UO_2 kernel into coating against that of Cs^{137} ⁽¹³⁾.

- Fig. 12 Predominant release mechanisms of metal fission products against irradiation temperature and time: C, contamination; F, through-coating failure; S, defective SiC; D, diffusion of $\text{Ag}^{110\text{m}}$ through intact SiC. $t_D = (L_2 + L_4)^2 / 6D_{\text{PyC}}$ and $D_{\text{PyC}}(\text{Cs}^{137}) = 0.019(\text{cm}^2/\text{s}) \exp(-60754\text{cal}/\text{mol}/\text{RT})$
- Fig. 13 Ratio of F to F_K of Cs^{137} against Pd penetration calculated from nominal irradiation temperature (left) and from temperature corrected as described in the text (right).
- Fig. 14 Fractional releases of Cs^{137} and $\text{Ag}^{110\text{m}}$ as analyzed by a simple diffusion model.
- Fig. 15 Comparison of $D_{\text{SiC}}(\text{Cs}^{137})$ as estimated by a simple diffusion model with those in the literature.
- Fig. 16 Comparison of $D_{\text{SiC}}(\text{Ag}^{110\text{m}})$ as estimated by a simple diffusion model with those in the literature.
- Fig. 17 Equilibrium vapor pressures of metal fission products in the systems UO_2 -FPs (fission products) and C-FPs⁽¹³⁾.
- Fig. A1 Decalibration of W-5%Re/W-26%Re thermocouple by neutron irradiation.
- Fig. A2 Axial temperature gradient in the sweep-gas capsule 80F4A-2: T_1 , W-5%Re/W-26%Re; T_2 , CA; T_0 , hypothetical constant point.
- Fig. B1 Residual Activity ratio $A(\text{Ag}^{110\text{m}})/A(\text{Cs}^{137})$ in the UO_2 kernel of Triso-coated particle as functions of burnup and U^{235} enrichment. Number denotes $F_K(\text{Cs}^{137})$.
- Fig. B2 Residual activity ratio $A(\text{Ag}^{110\text{m}})/A(\text{Cs}^{137})$ in the UO_2 kernel of Triso-coated particle as a function of burnup and percent contribution of Pu fission. Number denotes $F_K(\text{Cs}^{137})$ ⁽¹³⁾.

1. 序 論

被覆燃料粒子からの長半減期金属性核分裂生成物（FP）放出挙動は、高温ガス炉一次系内の長期にわたる沈着放射エネルギーを定めるという点で重要である。特に、日本原子力研究所で設計を進めている多目的高温ガス実験炉では、燃料公称最高温度が1310℃にも達する見込みであるが、このような高温下における被覆燃料粒子の金属FP保持能については、十分定量的なデータが存在しない。Fig. 1には現時点における被覆燃料粒子の仕様を示した。実験炉ではいわゆる Triso 型被覆を採用しており、FP に対する拡散障壁として高密度熱分解炭素層（PyC）および炭化ケイ素層（SiC）を有している。しかし、既存の種々のデータは、PyC 中の金属FPの拡散係数がかなり大きく、高温、長時間の照射では同層によっては金属FPを保持できないことを示している。そこで、金属FPに対する拡散障壁機能はSiC層が担っていることになる。しかし、SiC層の金属FP保持能については未だ定説がない。その一つの原因は、流動床中で化学蒸着法によって作られるSiC層の性状が、蒸着条件によって様々に異なってくることにある。また、SiC層中の金属FPの拡散係数が、実験条件や解析モデルの選択に影響されていることも疑われる。したがって、実験炉炉心条件での被覆燃料粒子からの金属FP放出量の評価にあたっては、拡散係数に関する既存の文献値から選択し、適当な解析モデルによって算出するという行き方は、いまのところ少なからぬ誤差を含み得る。

現時点では、ほぼ実験炉仕様に準じて製造された被覆燃料粒子の照射試験結果が、金属FP放出挙動については最も直接的な情報を与える。すなわち、照射後にキャプセルを解体して試料容器等の内部に、放出・蓄積されている金属FP量を測定するものである。ここでは、74F9J、75F4A、75F5Aの3本のJMTR スィープガスキャプセルから得られた結果を報告する。スィープガスキャプセルでは試料がそれぞれ種類ごとに独立した金属内筒に納められていることと、照射中のFPガス放出を測定して試料の健全性を把握していることから、金属FP放出挙動の研究には特に適している。ただし、スィープガスキャプセル照射から得られる情報についても、精度の点で幾つかの問題点が見出される。ここでは、これらの問題点についても、叙述の過程で明らかにするように努めた。

本研究および関連する研究の目的は、多目的高温ガス実験炉の炉心条件下における、被覆燃料粒子からの長半減期金属FPの放出割合（Fractional Release）を予測することにある。ある核種の放出割合は、ある特定の時点において、燃料試料の外部に存在する量（N）を、系内に存在する全量、すなわちインヴェントリー（I）で除した値として定義される。

$$F = N / I \quad (1)$$

ここで、その核種の放出測度を R (atoms / s)、生成速度を B (atoms / s)、崩壊定数を λ (/s) とすると

$$dI/dt = B - \lambda I \quad (2)$$

$$dN/dt = R - \lambda N \quad (3)$$

である。したがって、放射化学的平衡においては、

$$B = \lambda I$$

$$R = \lambda N$$

$$F = N / I = R / B = \text{const}$$

となる。すなわち、所与の照射条件と燃料性状とに変化のない限り、半減期より十分長い時間の後には、この平衡状態が達成される。しかし、長半減期 FP については燃料寿命中にこの平衡が達成されることはあり得ないので、 $F \neq R / B$ であり、かつ、時間の関数である。最も単純な場合として、発熱一定 ($B = \text{const}$) における安定同位体 ($\lambda = 0$) については、

$$F = N / Bt \quad (4)$$

となる。しかし、原子集団の統計的な運動をとまなう限り R は必ず時間の関数なので、(3) 式の解としては $N \neq Rt$ である。さらに、原子集団の移行は熱活性化過程を含むと考えられるから、 R はまた、温度の関数でもある。したがって、長半減期金属 FP の放出挙動の研究は、所定の燃料性状に対して、各核種の放出割合を温度と時間の関数として把えることを目的としている。この関数のなかには、さらに、中性子束、燃焼速度、燃焼率など、媒質の物性や系の化学に影響するパラメータが入るはずであるが、これらについて論ずることは我々のデータの範囲内ではほとんど不可能である。

なお、ここで報告する 3 本のスィープガスキャプセルの照射後試験はすべて終了している。74F9J キャプセルについては既に報告書が出されている⁽¹⁾。また、他の 2 本のキャプセルについても、FP ガス放出挙動について既に詳細な検討がなされている^(2,3)。

Component	Size (μm)	Density (g/cm^3)
UO ₂	600 \pm 60	10.41 \pm 0.22
Buffer	60 \pm 15	1.10 \pm 0.10
PyC (Inner)	30 \pm 5	1.85 \pm 0.05
SiC	25 \pm 5	\geq 3.20
PyC (Outer)	45 \pm 5	1.85 \pm 0.05

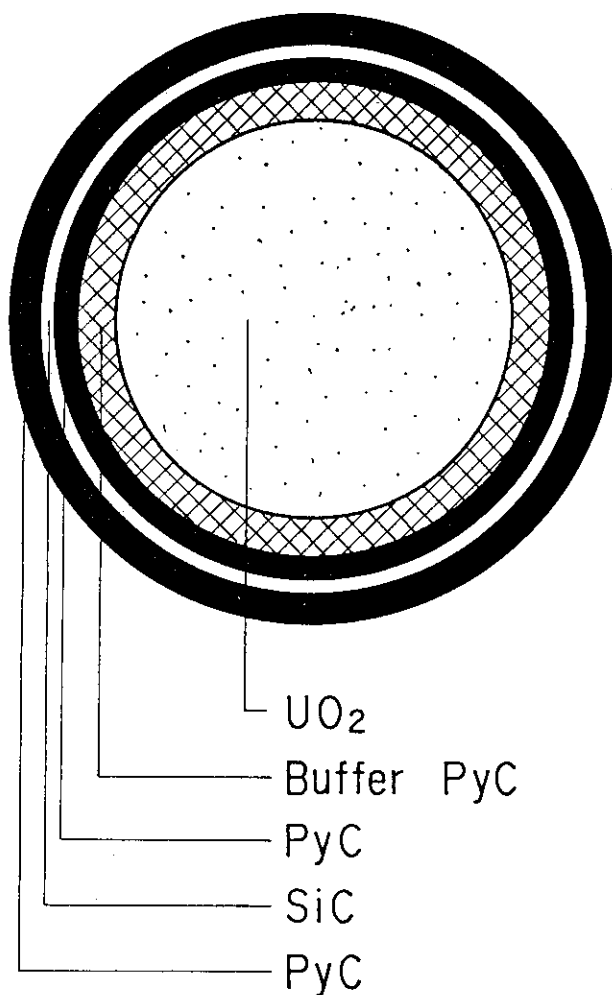


Fig. 1 Triso-coated UO₂ particle by the present specification.

2. 照射試験

2.1 キャプセル構造

スィープがスキャプセルの構造を、75F4A、75F5Aの2本について、Fig.2に模式的に示した。74F9Jキャプセルの構造は前者に似ている。3本のキャプセルのうち、75F5Aだけが燃料コンパクトを試料とし、他の2本は未成型の被覆燃料粒子を黒鉛試料容器に収めた。各キャプセルはそれぞれ軸方向に3個の内筒を有していた。3個の内筒はスィープガス給気系を共有とし、排気系を各独立としていた。ヘリウム・スィープガス流量は質量流量制御により各段100 cc/min(標準状態)に設定された。74F9J、75F4Aキャプセルではスィープガスは黒鉛試料容器端栓の多数のドリル孔から流入し、試料粒子充填部を通過して、容器底部から中央の排気管を通して排出された。75F5Aキャプセルでも同様であるが、この場合は、上端栓から流入したスィープガスはコンパクト外表面と黒鉛容器内壁との間を通過して、底部から排気管に入った。スィープガス排気管は内筒を出るとステンレス・スペーサー内に入り、低温の外筒側に屈曲していた。

Fig.3にはキャプセル内の径方向温度分布の計算による推定結果を示した。74F9Jキャプセルでは黒鉛試料容器表面にモリブデンを溶射してあったのに対し、75F4A、5Aキャプセルでは黒鉛試料容器とNb-1%Zr合金内筒との間にモリブデン筒を挿入した構造になっていた。内筒は二重構造となっており、二つの内筒壁間の真空度を介して、試料部の温度を制御した。

2.2 燃料試料

照射試料の寸法・密度等の諸元を、Table1に示した。幾つかの試料については寸法は現在の標準仕様(Fig.1)と若干異なっているが、製造過程は基本的に同一であり、密度等の物性値は現在の仕様を満足している。75F5Aキャプセルの被覆燃料粒子は燃料コンパクトとして照射後に1800℃1時間の焼成を経験している点が、未成型の被覆燃料粒子として照射された74F9J、75F4Aキャプセル試料と異なっている。

2.3 照射履歴

Table2に各試料の速中性子照射量、燃焼率、推定Pu核分裂割合⁽⁵⁾および照射終了時貫通破損割合($\phi_{e,OL}$)を示した。Fig.4には、各試料の温度履歴を示した。照射温度はW-5%Re/W-26%Re中心熱電対の読みで代表させた。同熱電対の起電力は照射によって低下するので、照射後半においては温度が過小評価される傾向にある(附録A)。しかし、他方では、2.1節に見たように中心熱電対位置の温度は燃料試料の平均温度よりも高い。したがって、こ

に示した照射温度は少なからぬ誤差を含んでいる。なお、Fig. 4 に見るように温度変化が著しいのは、これらのスィープがスキップセル照射では短半減期 FP ガス放出率の温度依存性を調べることを主な目的としていたためである。

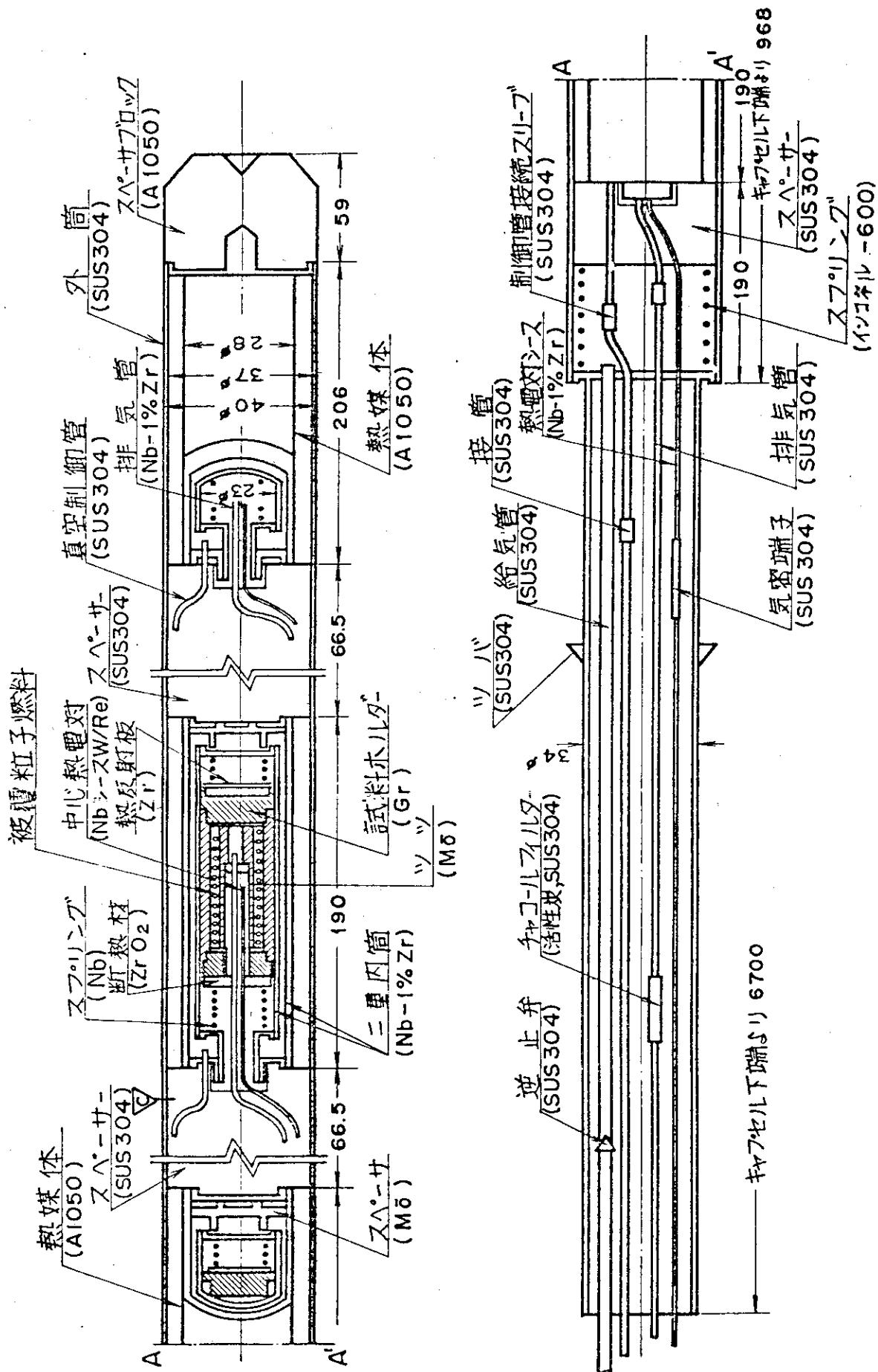


Fig. 2a Schematic arrangement of sweep-gas capsule 75F4A.

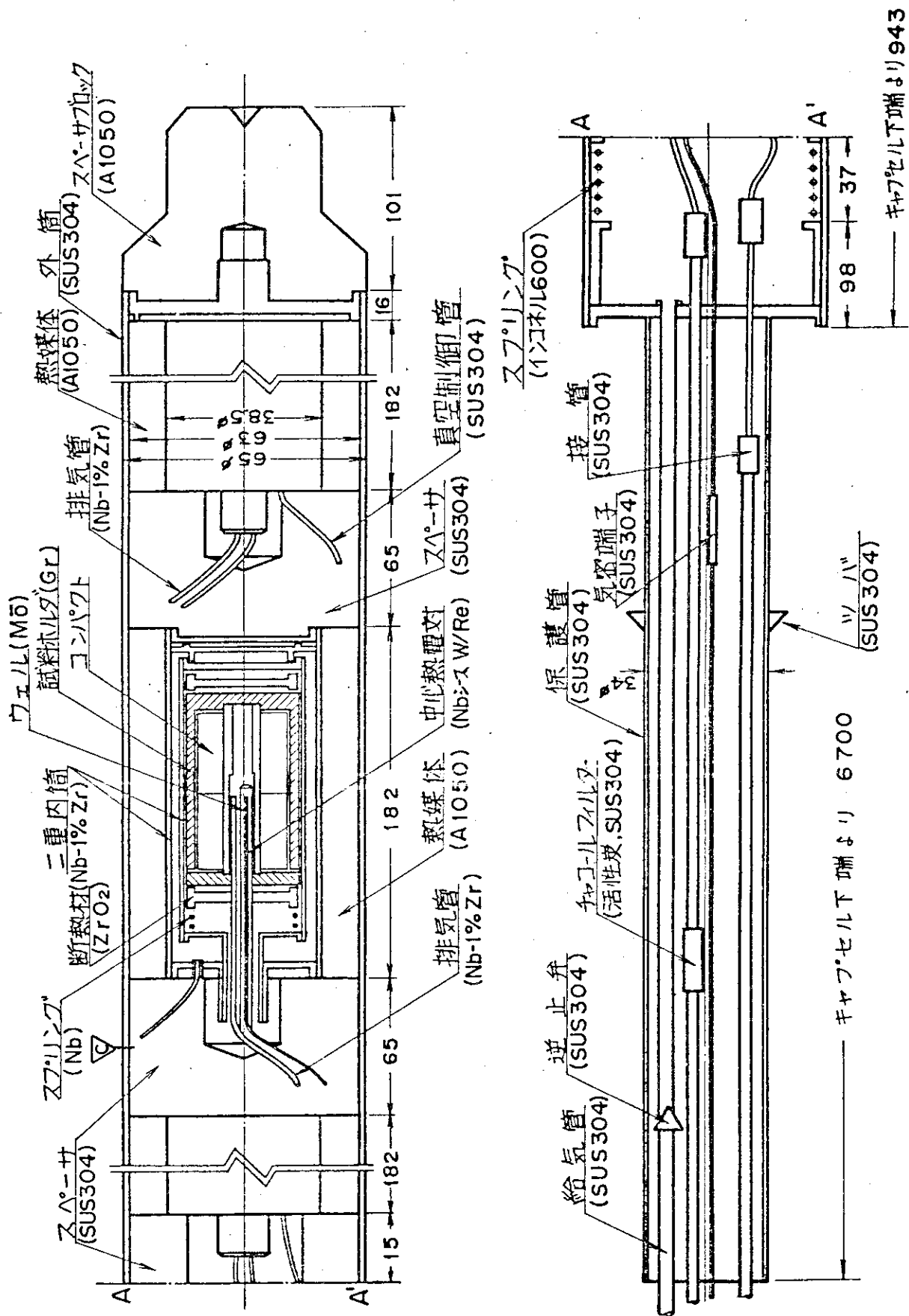


Fig. 2b Schematic arrangement of sweep-gas capsule 75F5A.

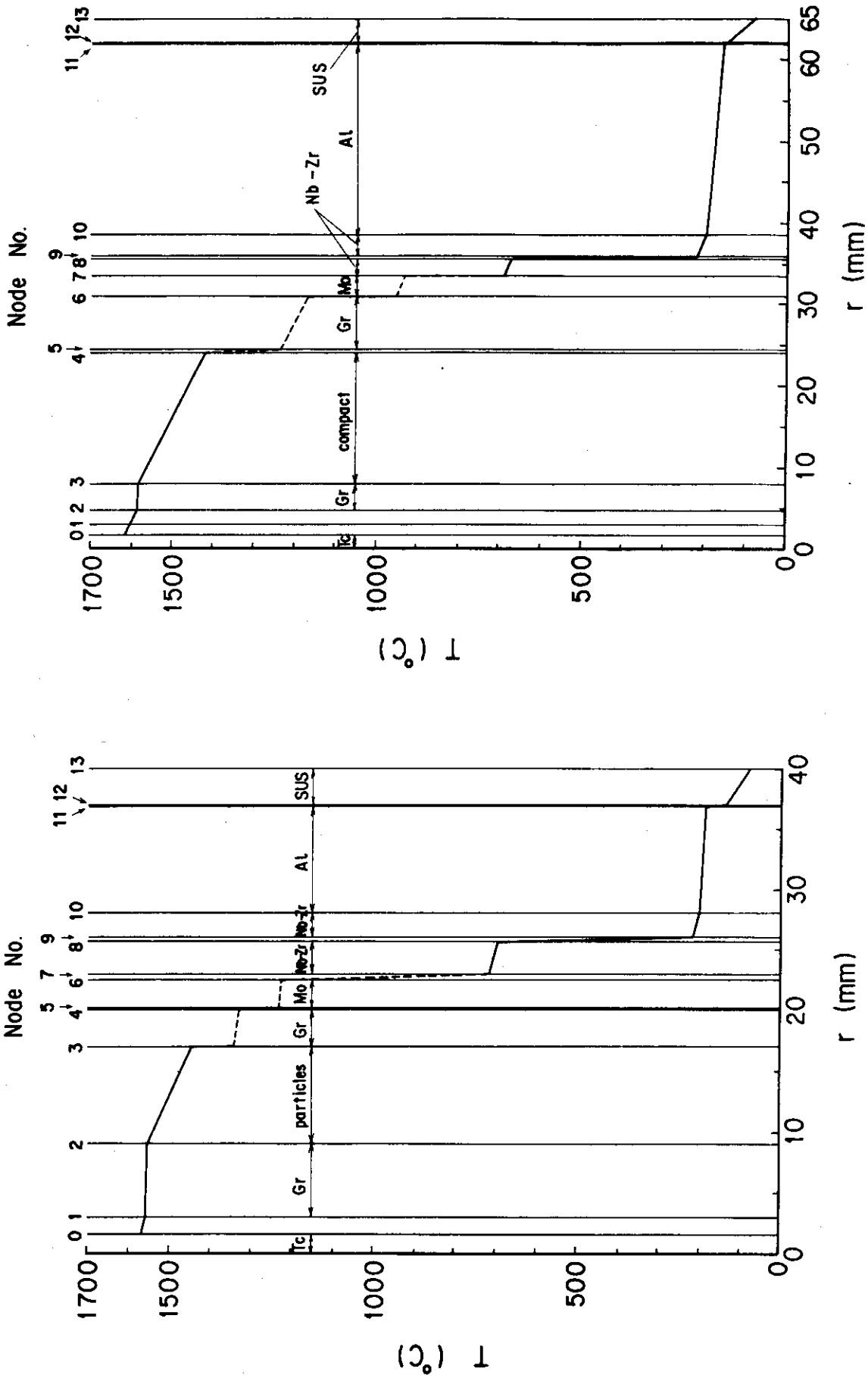


Fig. 3 Radial temperature profiles in sweep-gas capsules 75F4A (left) and 75F5A (right).

Table 1 Characters of coated fuel particles irradiated in capsules
74F9J, 75F4A and 75F5A.

Capsule	74F9J-1	74F9J-2	74F9J-3	75F4A-1	75F4A-2	75F4A-3	75F5A-1	75F5A-2	75F5A-3
Sample name	73FC1	74FC1	74UC1	76OPC3	76FPC1A	75FPC4A	75FP4A	75FP2A	75FP3A
UO ₂ kernel									
Mean diameter (μm)	488	493	495	599	602	617	617	505	507
U ²³⁵ enrichment (%)	8.1	7.9	8.0	12.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
Density (%T.D.)			96	95	96.5	97	97	97	97
Buffer PyC									
Mean thick. (μm)	38	43	41	59	60	59	59	44	40
Density (g/cm ³)	1.11	1.09	1.09	1.18	1.20	1.1	1.1	1.1	1.1
ILTI PyC									
Mean thick. (μm)	27	32	31	30	31	29	29	27	30
Density (g/cm ³)	1.84	1.83	1.83	1.86	1.86	1.84	1.84	1.89	1.85
SiC									
Mean thick. (μm)	26	28	27	26	25	29	29	27	29
Density (g/cm ³)	3.20	3.20	3.20	3.21	3.21	3.21	3.21	3.20	3.21
OLTI PyC									
Mean thick. (μm)	42	42	44	45	43	46	46	45	44
Density (g/cm ³)	1.81	1.80	1.83	1.86	1.84	1.81	1.81	1.87	1.86
Sample weight (g) ^a	11.08	11.12	10.86	16.92	16.76	16.69	44.8	32.3	43.0

a) g-particle per capsule.

Table 2 Summary of irradiation conditions of coated fuel particles charged in the sweep-gas capsules 74F9J, 75F4A and 75F5A.

Capsule	74F9J-1		74F9J-2		74F9J-3		75F4A-1		75F4A-2		75F4A-3		75F5A-1		75F5A-2		75F5A-3	
	Sample name	73FC1	74FC1	74FC1	74UC1	74UC1	76OPC3	76FPC1A	76FPC1A	76FPC1A	75FPC4A	75FPC4A	75FPC4A	75FP2A	75FP2A	75FP2A	75FP3A	75FP3A
Form ^a	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	LP	C	C	C	C	C
Temp. (°C)	(900)	1200-1600	1200-1600	800-1100	800-1100	800-1100	950-1400	950-1300	950-1300	850	850	850	850	800-1500	800-1500	900-1600	900-1600	800-1500
Time (efpd) ^b	50.5	50.5	50.5	50.5	50.5	50.5	83.1	83.1	83.1	83.1	83.1	83.1	83.1	78.0	78.0	78.0	78.0	78.0
Burnup (%FIMA)	1.4	2.0	2.0	1.4	1.4	1.4	1.9	1.2	1.2	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8	0.8	1.3	1.3	1.0
%Pu fission	5.2	7.5	7.5	4.4	4.4	4.4	4.2	16	16	11	11	11	11	12	12	22	22	15
Fast fluence ^c	0.5	0.7	0.7	0.5	0.5	0.5	0.7	1.1	1.1	0.8	0.8	0.8	0.8	0.7	0.7	1.1	1.1	0.9
$\phi_{\text{EOL}}^{\text{d}}$	3×10^{-4}	2×10^{-3}	2×10^{-3}	3×10^{-4}	3×10^{-4}	3×10^{-4}	3×10^{-4}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	5×10^{-4}	5×10^{-4}	5×10^{-4}	5×10^{-4}	4×10^{-4}

a) LP, loose bed of particles; C, fuel compact.

b) Effective full power days.

c) Fast neutron fluence ($E > 0.18 \text{ MeV}$) in 10^{21} n/cm^2 .

d) End-of-life through-coating failure fraction determined by acid leaching of cerium.

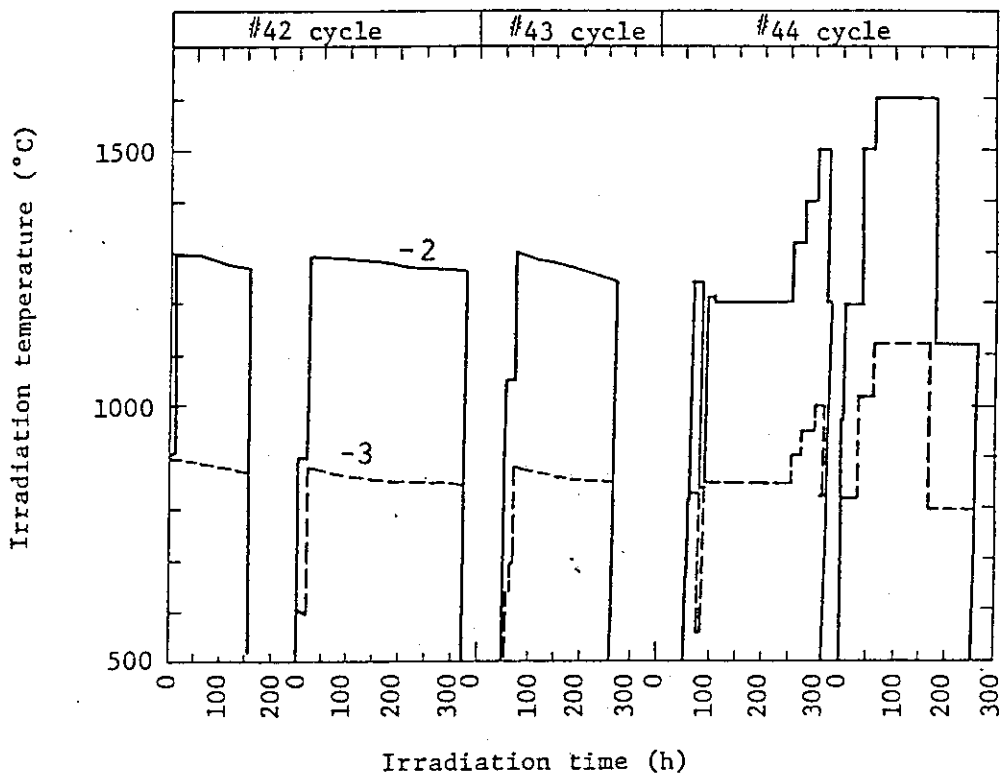


Fig. 4a Irradiation temperature of sweep-gas capsule 74F9J.

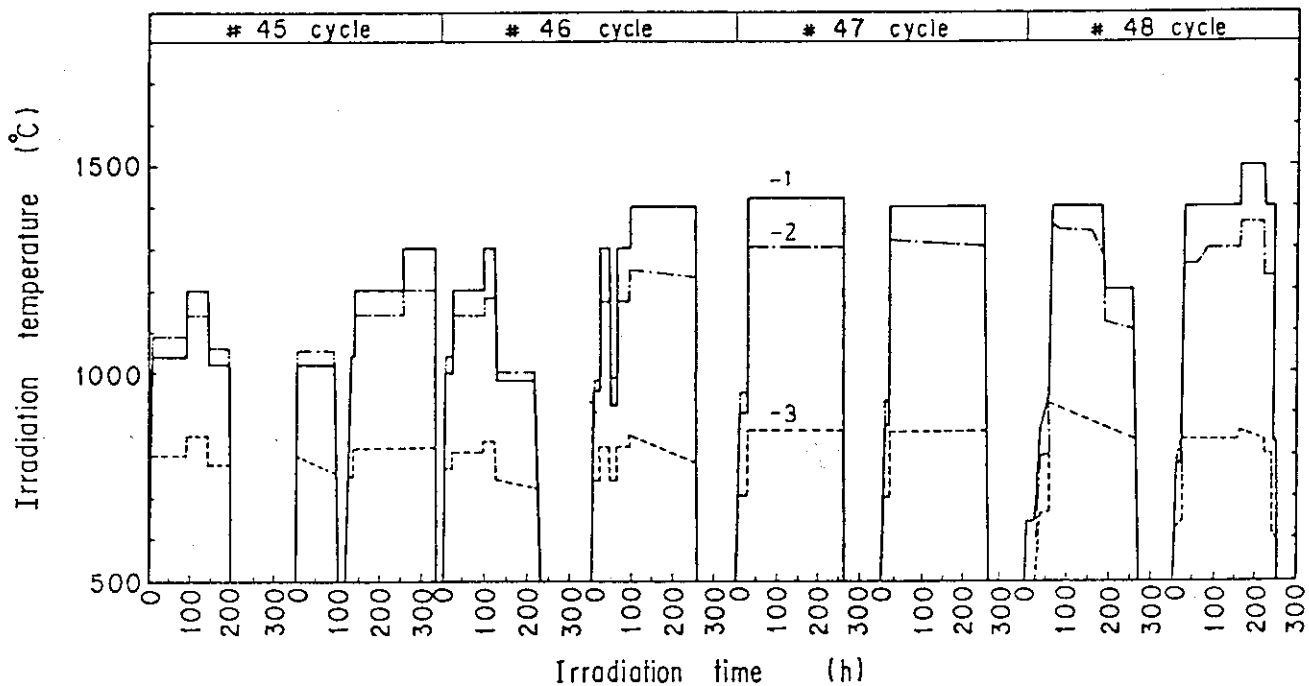


Fig. 4b Irradiation temperature of sweep-gas capsule 75F4A.

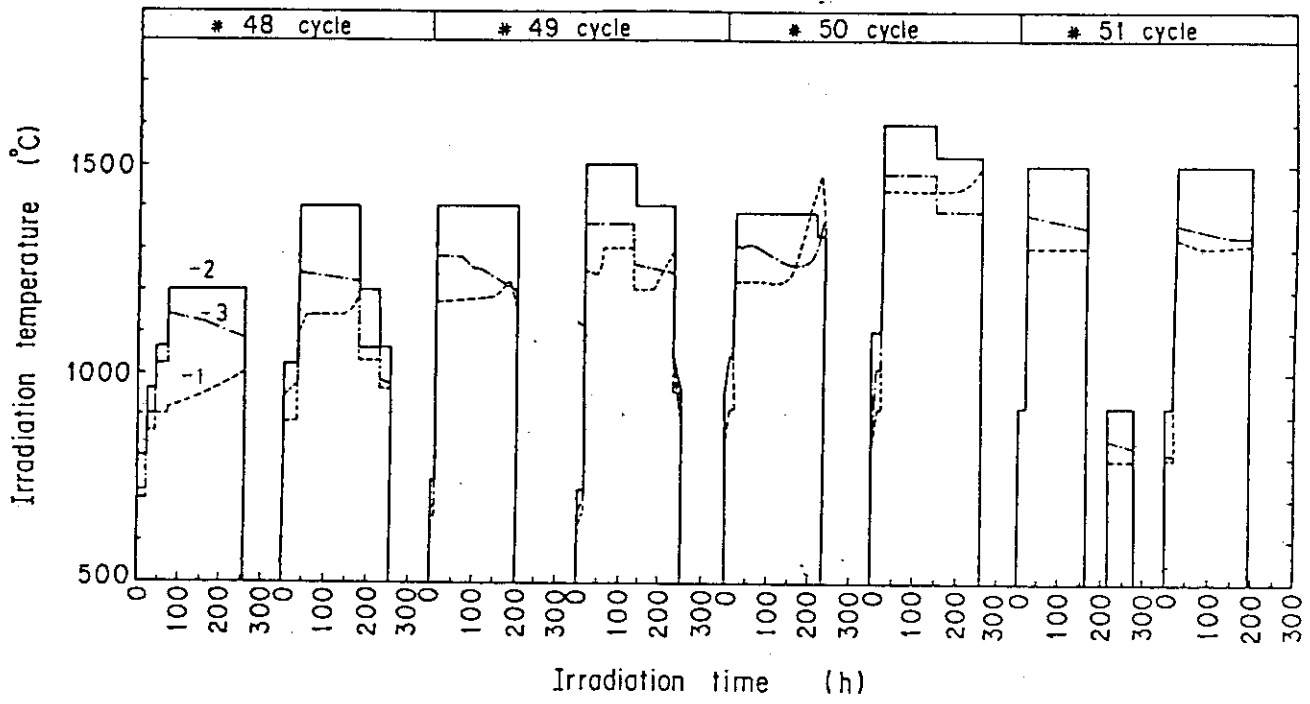


Fig. 4c Irradiation temperature of sweep-gas capsule 75F5A.

3. 金属FP放出量測定

3.1 測定方法

金属FP放出量の測定には、東海ホットラボのコンクリートケーブに設置されている γ 線スペクトロメータを用いた。純Geの検出器を操作室に置き、ケーブ壁のプラグ孔を介して計測した。線源から検出器までの距離は約2300mmであった。標準線源としては450 μ CiのEu¹⁵²を用い、 γ 線スペクトルはBOB 75⁶¹コードを用いて解析した。

測定対象は黒鉛試料容器（以下、黒鉛容器）とスweepガス排気管（以下、スweep管）であった。黒鉛容器の外側に位置するモリブデン筒、Nb-1%Zr内筒等については測定しなかった。2.1節に示したように、スweepガスの流れの中で、黒鉛容器より外側はFP放出源である燃料試料より上流に位置している。しかし、燃料試料から黒鉛容器に移行したFPが、さらに黒鉛中を外側に拡散して、モリブデン筒や内筒の側に移行した可能性は否定できない。ただし、Csの場合、モリブデン表面では元素状として存在すると考えるなら、黒鉛表面と吸着平衡の点で、モリブデン筒への移行は著しく制約されたであろう。モリブデン筒内面温度は少なくともCsの沸点近傍にあったと推定されるからである。一方、黒鉛はCsに対してかなり大きな吸着能を有する⁽⁷⁾。

スweep管はFig.2のおおよそカッティングマークより下の部分のみが測定試料として回収された。74F9Jキャプセルについての二次元熱計算結果では、Nb-1%Zr二重内筒直上のステンレス・スペーサー内面温度は、試料温度1450~1500℃に対して約400℃である⁽⁸⁾。JMTRにおけるOGL-1ガスループを用いたFPプレートアウト実験では、Cs¹³⁷は400~600℃の配管に多く沈着している⁽⁹⁾。したがって、回収したスweep管はCs沈着領域の大半を含んでいるものと考えられる。

上記の範囲に測定試料が限られたのは、実は、キャプセル解体時の技術的制約によっている。その理由は、照射後における金属FP放出絶対量の測定が、キャプセル設計時の主たる実験目的に入っていなかったことにある。

3.2 γ 線スペクトル

Fig.5に代表的な例として、75F4A中段内筒（75F4A-2）黒鉛容器の γ 線スペクトルを示した。FP以外に、Nb-1%Zr内筒材料の放射化生成物であるNb⁹⁴、Ta¹⁸²のピークが強く現われている。Zr⁹⁵、Nb⁹⁵については放射化生成物である他に、FPの寄与も考えられる。

Ta¹⁸²はきわめて数多くの γ 線ピークを示し、これらキャプセル構造材の γ 線スペクトルを複雑にする主因となっている^{注)}。Nb⁹⁴の871.1 keV、Ta¹⁸²の1273.6 keVの γ 線は、Eu¹⁵⁴の

注) 一部のデータブックでは代表的なピーク7、8本しか記載がないので注意すること。

873.2 keV, 1274.4 keV の γ 線と間違え易いので注意が必要である。したがって、ここでは、123.1 keV の γ 線が見られた場合にのみ、Eu¹⁵⁴ と同定した。

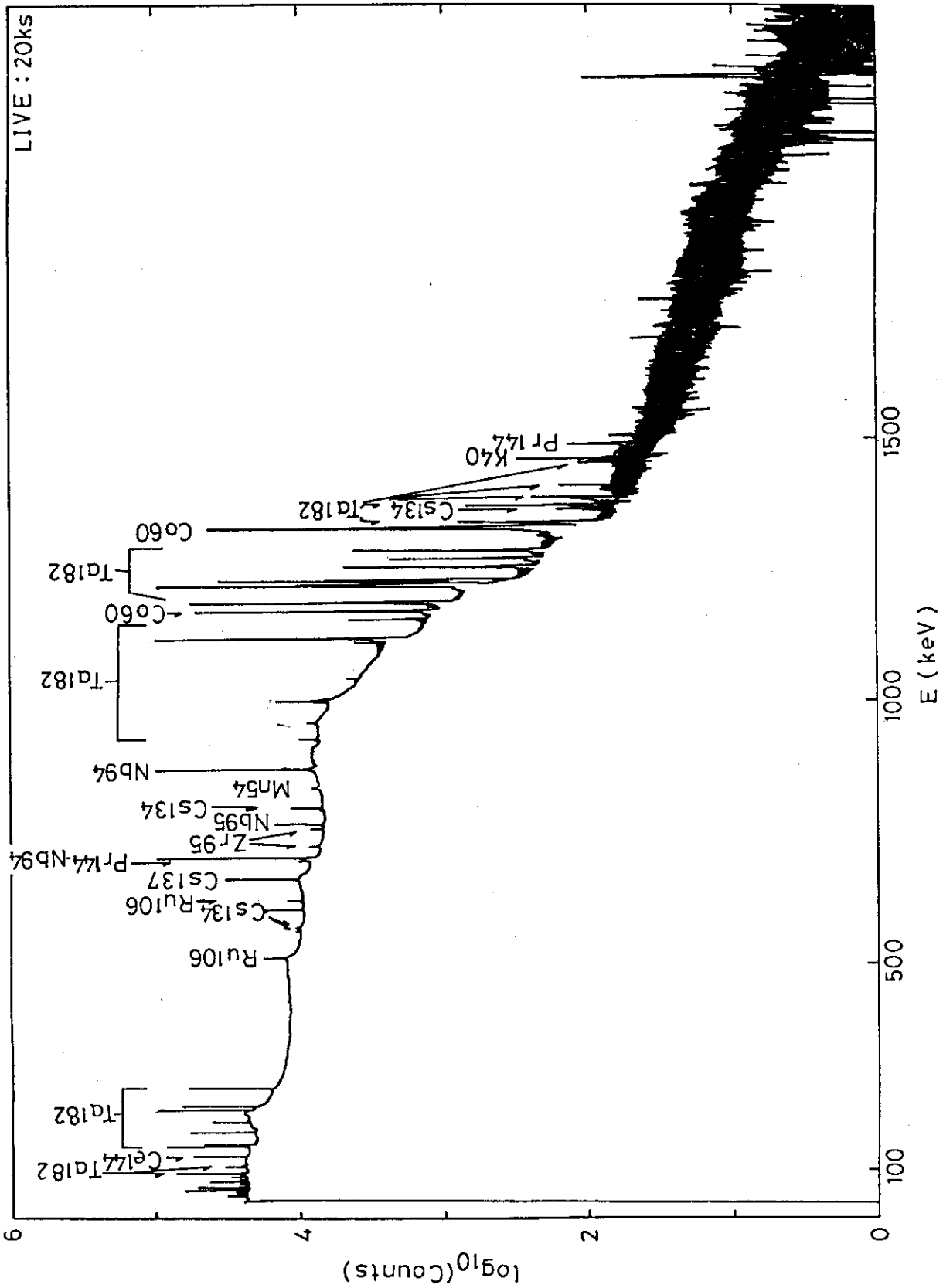


Fig. 5 Typical gamma spectrum of graphite holder. Capsule: 75F4A-2

4. 結 果

4.1 FP分 布

燃料試料，黒鉛容器，スィープ管中のFP核種および放射化生成物（ Co^{60} ， Mn^{54} ， Eu^{152} ）の分布状況をFig. 6にまとめた。同図では各 γ 線スペクトル中におけるピークの相対強度を，S（強），M（中），W（弱）として表示した。ピークが出現しなかった場合には黒く塗りつぶしてあるが，このことは必ずしも当該核種が存在しないことを意味しない。化学的分離を行わない本研究の方法では，相対的に存在量の少ない核種の γ 線ピークは，他の優勢な核種の γ 線によるコンプトン散乱部の中に埋もれてしまうことがあるからである。ある γ 線ピークを相対誤差約30%以下で検出するのに必要な最小ピーク面積は，

$$Nm = 3 (\sqrt{2n\bar{B} + 2.25} + 1.5) \quad (5)$$

で与えられる⁽¹¹⁾。ここで， n はピーク領域の幅（チャンネル数，ch）， \bar{B} はベースライン平均計数値（カウント数/ch）である。

放射化生成物のうち， Co^{60} ， Mn^{54} は黒鉛容器に最も多く見出され，燃料試料やスィープ管には同容器から移行したものと考えられる。 Eu 同位体のうち， Eu^{152} はどの部位においても検出されなかった。不純物 Eu から放射化生成する同位体は Eu^{152} が最も多いので， Eu^{152} が見出されず， Eu^{154} が見出されていることは，後者がFPであることを意味する。

75F5A-1，3の黒鉛容器については軸方向のFP分布を測定した（Fig. 7）。 Ru^{106} がおそらく燃料コンパクトから放出された位置からあまり動かずにいるのに対し， Ag^{110} は高温部では黒鉛容器内壁にとどまらず，スィープガスに運ばれて低温部に凝縮していることが分かる。一方， Cs 同位体は比較的一様な分布を示し，黒鉛容器内壁に良く吸着され，さらに黒鉛中に拡散しているものと考えられる。

4.2 FP放出割合

以上の測定結果に基づいてTable 3にFP放出割合を算出した。 Ag^{110m} のインヴェントリーは表中の他のFP核種に比べてきわめて小さく，燃料試料の γ 線スペクトルデータから直接求めることは不可能であったので，附録Bに詳述するように別に評価した。

Table 3では， γ 線スペクトル上に検出されなかった核種については，4.1節(5)式で評価した限界値を，（ ）内に表示した。

各燃料試料の照射履歴が様々なので，Table 3の数値だけではあまり多くを論ずることはできない。しかし，放出割合の大小関係は以下のものであることが見て取れる。

$$\text{Ce}^{144}, \text{Ru}^{106} < \text{Cs}^{137}, \text{Cs}^{134} < \text{Ag}^{110m}$$

また、 Cs^{134} の放出割合は Cs^{137} のそれよりも僅かに大きい値となる傾向を示している。ただし、後述(5.4節)するように、75F9J-1, 3で Cs^{134} の放出割合が見かけ上、著しく高い値を示しているのは、黒鉛中のCs不純物の放射化によるものと考えられる。

Eu^{154} は上の序列のなかの位置が定まらないという点で特異である。その放出割合がCe, Ruより高く、Agより低いことはほぼ間違いないが、74F9J-2, 75F4A-1ではCs同位体の数分の1であるのに対し、75F4A-2ではCs同位体より1けた高くなっている。

以上の諸点について以下に考察を加え、現時点で可能な範囲内で、被覆燃料粒子からの長半減期金属FP放出挙動を評価した。

Capsule	T _{max} (°C)	Cool. (y)	⁵⁴ Mn	⁶⁰ Co	⁹⁵ Zr	¹⁰⁶ Ru	^{106m} Ag	¹²⁵ Sb	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce	¹⁵² Eu	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu	T _{1/2} (y)	E (keV)	Remark
			FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT	FGT			
74F9J-1	900	2.90	W	S	W	W	W	W	M	S	S	W	W	W			Sweep tube not measured.
74F9J-2	1600	2.90	W	S	M	W			M	S	S	W	W	W			
74F9J-3	1100	2.90	W	W	S	W			M	W	M	S	W	W			
75F4A-1	1500	1.48		M	W	W	W	W	M	S	S	W	W	W			
75F4A-2	1300	1.48	W	S	M	W	W	W	M	S	S	W	W	W			
75F4A-3	850	1.48	W	S	M	W	W	W	M	S	S	W	W	W			
75F5A-1	F,T 1.24 G 2.08	1450	M	W	S	M	W	W	M	S	S	W	W	W			Sb ¹²⁵ , Ce ¹⁴⁴ , Eu ¹⁵⁴ peaks not analyzed.
75F5A-2	F,T 1.24 G 3.60	1500	M	M	W	M	W	W	M	S	S	W	W	W			
75F5A-3	F,T 1.24 G 2.08	1500	M	S	M	W	W	W	M	S	S	W	W	W			Sb ¹²⁵ , Ce ¹⁴⁴ , Eu ¹⁵⁴ peaks not analyzed.

Fig. 6 Distribution of metal fission products and activation products among the components of the sweep-gas capsules: (F) fuel; (G) graphite holder; (T) sweep-gas tube. Letters S, M and W signify relative intensities in each spectrum: S, strong; M, medium; W, weak.

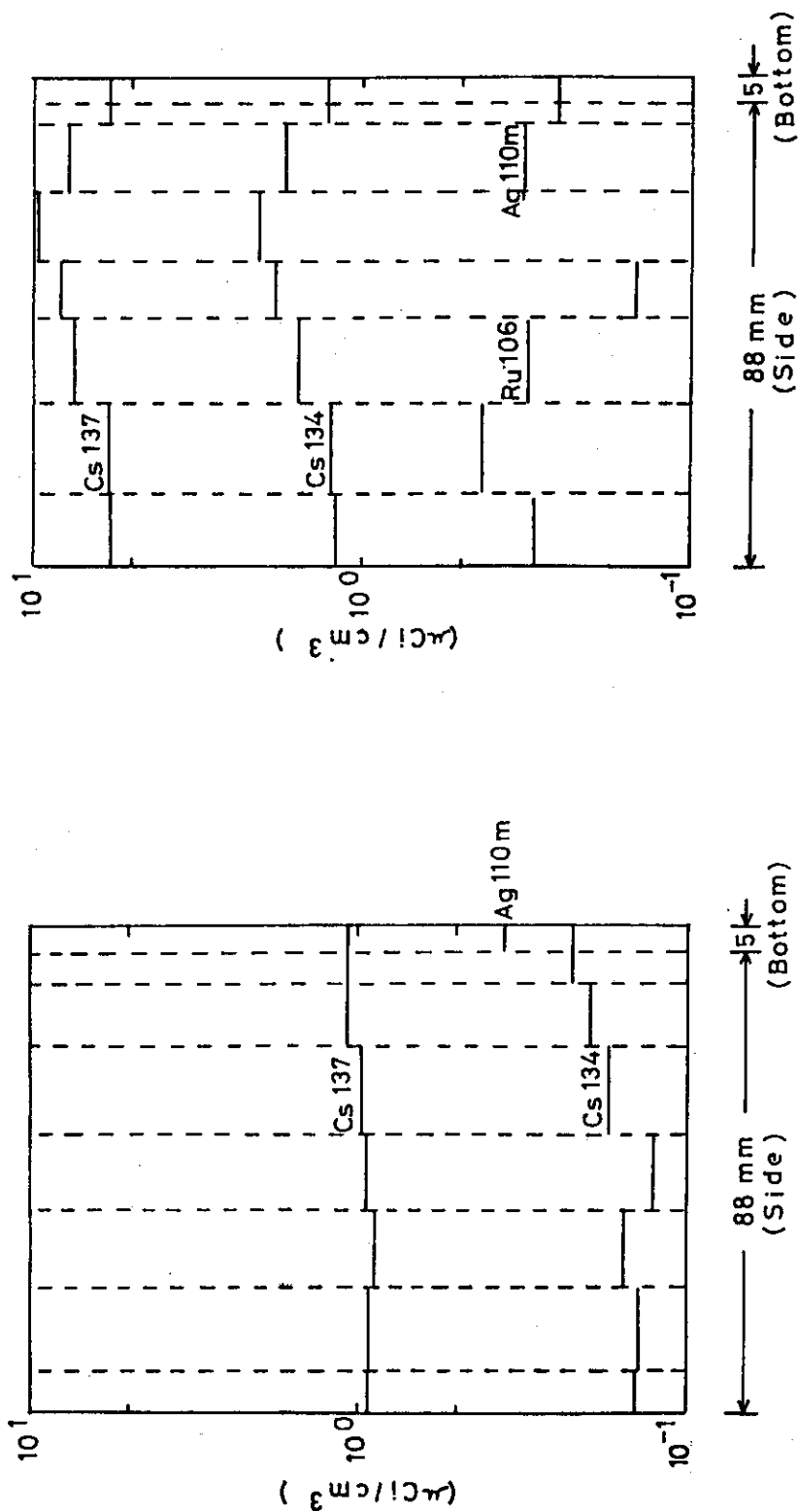


Fig. 7 Axial distributions of fission products in the graphite holder of 75F5A-1 (left) and 75F5A-3 (right).

Table 3 Fractional release (F) of metal fission products. Parenthesized values are estimated as the upper limits.

Capsule No.	74F9J-1	74F9J-2	74F9J-3	75F4A-1	75F4A-2	75F4A-3	75F5A-1	75F5A-2	75F5A-3
<i>Inventory (Ci)^a</i>									
Ru106	0.073	0.15	0.073	0.45	0.52	0.29	0.74	1.2	0.99
Ag110m	2x10 ⁻⁵	6x10 ⁻⁵	2x10 ⁻⁵	4x10 ⁻⁴	3x10 ⁻⁴	1x10 ⁻⁴	2x10 ⁻⁴	1.3x10 ⁻⁴	7.4x10 ⁻³
Cs134	0.012	0.037	0.013	0.080	0.079	0.037	0.090	0.18	0.13
Cs137	0.23	0.40	0.25	0.59	0.37	0.27	0.65	0.75	0.76
Ce144	0.46	0.83	0.48	3.7	2.2	1.6	4.2	4.6	4.8
Eu154	5.7x10 ⁻⁴	1.3x10 ⁻³	9.0x10 ⁻⁴	3.7x10 ⁻³	4.1x10 ⁻³	1.9x10 ⁻³	4.5x10 ⁻³	8.8x10 ⁻³	7.0x10 ⁻³
<i>Release (Ci)^a</i>									
Ru106	(5x10 ⁻⁵)	(6x10 ⁻⁵)	(5x10 ⁻⁵)	(3x10 ⁻⁵)	3.9x10 ⁻⁵	4.9x10 ⁻⁵	3x10 ⁻⁶	4.1x10 ⁻⁵	6x10 ⁻⁶
Ag110m	(3x10 ⁻⁵)	(3x10 ⁻⁵)	(3x10 ⁻⁵)	1.5x10 ⁻⁵	(1x10 ⁻⁵)	(1x10 ⁻⁵)	1.4x10 ⁻⁶	1.0x10 ⁻⁴	3.3x10 ⁻⁶
Cs134	2.5x10 ⁻⁵	2.7x10 ⁻³	2.1x10 ⁻⁵	1.3x10 ⁻³	1.4x10 ⁻⁵	7.0x10 ⁻⁶	4.6x10 ⁻⁶	2.1x10 ⁻⁴	8.1x10 ⁻⁵
Cs137	(2x10 ⁻⁵)	2.4x10 ⁻²	(3x10 ⁻⁵)	8.5x10 ⁻³	6.2x10 ⁻⁵	5.1x10 ⁻⁵	2.9x10 ⁻⁵	9.8x10 ⁻⁴	4.1x10 ⁻⁴
Ce144	(5x10 ⁻⁵)	(6x10 ⁻⁵)	(5x10 ⁻⁵)	5.5x10 ⁻⁵	1.4x10 ⁻⁴	1.7x10 ⁻⁴	(b)	1.5x10 ⁻⁴	(b)
Eu154	(1x10 ⁻⁵)	2.3x10 ⁻⁵	(1x10 ⁻⁵)	3.7x10 ⁻⁵	(7x10 ⁻⁶)	(7x10 ⁻⁶)	(b)	1.9x10 ⁻⁴	(b)
<i>F=R/I</i>									
Ru106	(7x10 ⁻⁴)	(4x10 ⁻⁴)	(7x10 ⁻⁴)	(7x10 ⁻⁵)	7.5x10 ⁻⁵	1.7x10 ⁻⁴	4x10 ⁻⁶	3.4x10 ⁻⁵	6x10 ⁻⁶
Ag110m	(1)	(0.5)	(1)	0.04	(0.03)	(0.1)	7x10 ⁻³	0.077	4.5x10 ⁻³
Cs134	2.1x10 ⁻³	0.074	1.6x10 ⁻³	0.016	1.8x10 ⁻⁴	1.9x10 ⁻⁴	5.1x10 ⁻⁵	1.2x10 ⁻³	6.2x10 ⁻⁴
Cs137	(9x10 ⁻⁵)	0.060	(1x10 ⁻⁴)	0.014	1.7x10 ⁻⁴	1.9x10 ⁻⁴	4.5x10 ⁻⁵	1.3x10 ⁻³	5.4x10 ⁻⁴
Ce144	(1x10 ⁻⁴)	(7x10 ⁻⁵)	(1x10 ⁻⁴)	1.5x10 ⁻⁵	6.4x10 ⁻⁵	1.1x10 ⁻⁴	-	3.3x10 ⁻⁵	-
Eu154	(0.02)	0.018	(0.01)	0.010	(2x10 ⁻³)	(4x10 ⁻³)	-	0.022	-
<i>Mechanism^c</i>									
	C	S+(D)	C	S+D	C+F	C	F+D	S+D	S+D

Table 3 (Continued)

- a) Activity normalized to June 1, 1981 for 74F9J and 75F4A; January 8, 1982 for 75F5A.
- b) Not included in the region of interest (ROI) in the gamma spectrometry.
- c) Predominant mechanism of release (see text).
 - C, contamination; F, through-coating failure; S, defective SiC;
 - D, diffusion of Ag^{110m} through intact SiC.

5. 考 察

5.1 FP 放出機構

被覆燃料粒子集団中には、ある割合の破損粒子が含まれている。破損粒子はFP放出との関連で大きく二種に分類される。すなわち、第2層から第4層まで貫通する損傷を有する貫通破損粒子と、第2、第4層熱分解分解炭素の健全性にかかわらずSiC層が損傷を有するSiC層破損粒子とである。このように分類する理由は、健全な第2・第4層高密度等方質PyCが希ガスおよびハロゲンに対してはほぼ完璧な保持能を有する、と仮定できるからである。しかし、高温、長時間における金属FPに対する保持能はSiC層に期待するしかない。

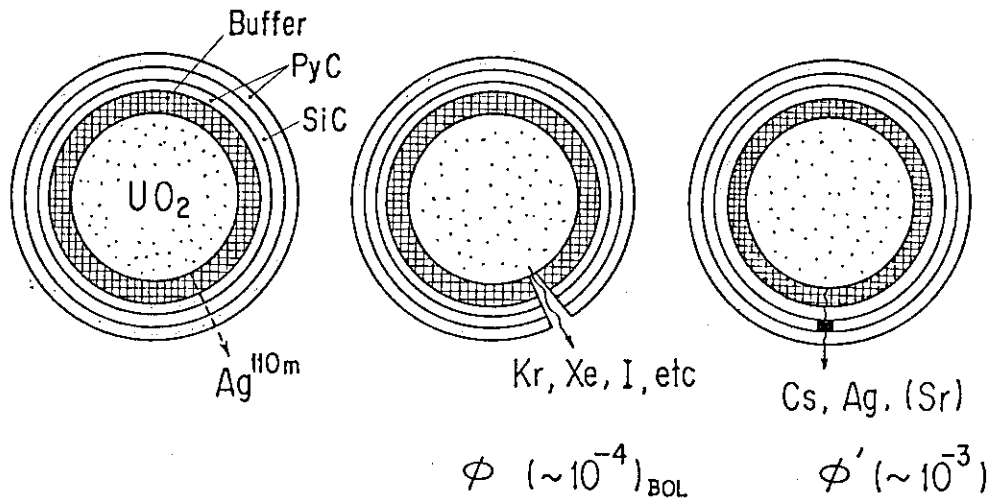


Fig. 8 Defect types of Triso-coated particle. (From left to right): the intact, the through-coating failed and the defective SiC particles.

以上の関係を図示したのがFig. 8である。したがって、 Kr^{88} のような短半減期希ガスFPの放出率(R/B)は以下のように表わされる。

$$R/B = (R/B)_{\text{intact}} + \phi (R/B)_{\text{fail}} \quad (6)$$

ここで、第1項は健全粒子の第4層汚染ウラン、あるいは燃料コンパクトの場合には黒鉛マトリックスの汚染ウランからの放出に相当する。第2項は貫通破損粒子からの放出率に貫通破損粒子の存在割合(貫通破損割合) ϕ を乗じたものである。一方、 Cs^{137} のような長半減期金属

FPの放出割合 F は次のようになる。^{注1)}

$$F = F_{\text{intact}} + \phi' F_{\text{fail}} \quad (7a)$$

$$= F_{\text{intact}} + \alpha \phi' F_k \quad (7b)$$

(7a) 式第2項は、SiC層破損粒子からの放出割合 F_{fail} にSiC層破損粒子の存在割合 (SiC層破損割合) ϕ' を乗じたものである。(7b) に示したように、 F_{fail} は、燃料核から被覆層中への放出割合 (F_k) に、PyC層の若干の保持能を考慮した因子 (α) を乗じたものとして表わすことができる。したがって、

$$\phi < \alpha \phi' < \phi'$$

である。健全粒子からの放出割合 (F_{intact}) には、被覆層汚染ウランからの放出と、健全な被覆層を通しての拡散放出との寄与が含まれる。拡散放出では特に $\text{Ag}^{110\text{m}}$ が問題となる。

以上のように、被覆燃料粒子からのFP放出挙動には様々な因子が関与している。本節では、幾つかの特徴を手がかりに、所定の温度、時間条件下ではどのような機構によるFP放出が支配的であるかを考察する。そのための準備として、まず UO_2 燃料核から被覆層へのFP移行に関する知見を概観する。

照射下における UO_2 核からの Cs^{137} の放出については、いまのところ Booth モデルによって評価している。Booth モデルは、 UO_2 をそれと比表面積の等しい一定半径 a の球体の集合としてとらえ、この球体からのFPの非定常拡散放出を古典的な拡散問題として解くものである。このとき、長半減期FPの UO_2 からの放出割合 F_k は次式のように表現される⁽¹²⁾

$$F_k = 1 - \frac{1}{15\tau} + \frac{6}{\pi^4 \tau} \sum_{n=1}^{\infty} \exp(-n^2 \pi^2 t) / n^4 \quad (8)$$

$$\tau = D't \quad (9)$$

$$D' = D / a^2 \quad (10)$$

ここで、 D は UO_2 中の拡散係数であり、 D' は換元拡散係数 (reduced diffusion coefficient) と呼ばれている。Fig. 9 には原研標準粒子の UO_2 核に対して求めた Cs^{137} の換元拡散係数を示した⁽¹³⁾。Fig. 10 には、この D' と(8)式から算出した、 UO_2 核から破覆層への放出割合 F_k を、実測値と比較した。同図中の添字は燃焼率 (% FIMA)^{注2)} を示しており、燃焼率にかかわらず妥当な近似が得られていることが分かる。Fig. 11 には、 UO_2 核から被覆層への Cs^{137} の放出割合に対して、他の金属FP核種の放出割合を示してある⁽¹³⁾。 F_k (Cs^{137}) が著しく増加しても、 F_k (Ru^{106}) は約2%のままである。一方、 F_k (Ce^{144}) はむしろ減少する。約2%の放出割合は、 UO_2 核表面近傍からの反跳放出に相当している。 Ce^{144} では酸化物が著しく安定であるために、PyC中に反跳放出された原子も時間とともに UO_2 核中に還流してしまうのである。なお、 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ の UO_2 核からの放出挙動は Cs^{137} のそれに近いと考えられる (附録B 参照)。

注1) F , R / B の定義は第1章

注2) Fissions per initial metal atom.

上記の UO_2 核から被覆層への F P 放出の知見をもとに、照射下の被覆燃料粒子からの主たる F P 放出機構を Table 4 のように分類し、判定条件を付した。ここでは、第 4 層のウラン汚染率を 10^{-4} で代表させる⁽¹⁴⁾ すなわち、燃料核の U 量 1 mg に対して $0.1 \mu\text{g}$ が第 4 層 PyC 中に製造時の汚染として分散しているものとする。このとき、測定された F P 放出割合において核種依存性が顕著ではなく、しかも、(8)式から算出した Cs^{137} の UO_2 核から被覆層への放出割合 F_K と照射終了時の貫通破損割合 ϕ_{EOL} (Table 2) の積が、第 4 層ウラン汚染率 10^{-4} より小さければ、その試料からの F P 放出はほとんどが汚染ウランに帰因するものと見なすことができる。しかし、F P 放出割合に核種依存性があり、 Cs^{137} の放出割合が $F_K \times \phi_{\text{EOL}}$ にほぼ等しければ、貫通破損粒子からの放出が主となっていると考えられる。さらに、 ϕ_{EOL} では説明できないほど大きな Cs^{137} 放出割合が認められるなら、SiC 層破損粒子からの放出が寄与しているものと考えられる。そして、 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ については、 UO_2 核から被覆層への放出割合 F_K は Cs^{137} のそれとほぼ等しいと考えられるので、被覆燃料粒子からの放出割合 $F(\text{Ag}^{110\text{m}})$ が $F(\text{Cs}^{137})$ を大きく上回る場合には、健全な被覆層を通しての $\text{Ag}^{110\text{m}}$ の拡散放出が起きているものと見なすことができる。

Table 4 の判定条件に基づいて、各々の試料について主たる金属 F P 放出モードを判定した結果を Table 3 の最下段に示した。また、 UO_2 中の Cs^{137} の拡散の活性化エネルギー (Fig. 9) を用いて規格化した実効照射温度と、照射時間とについて、金属 F P 放出モードの変化を示したのが Fig. 12 である。 $\phi_{\text{EOL}} \approx 10^{-3}$ 、第 4 層ウラン汚染率を 10^{-4} としたとき、 $10^{-3} F_K = 10^{-4}$ の線を境に、 Cs^{137} で代表させた長半減期金属 F P の放出は、汚染ウラン支配から貫通破損支配に変わるであろう。この線の 420 日への外捜は約 1100°C である。また、高密度 PyC 中の Cs^{137} の拡散係数として、Stover ら⁽¹⁵⁾ による次の値を採用したとき、

$$D_{\text{PyC}}(\text{Cs}^{137}) = 0.0188 (\text{cm}^2/\text{s}) \exp \left(\frac{60,754 (\text{cal/mol})}{RT} \right) \quad (11)$$

第 2, 4 層 PyC の厚さを L_2, L_4 として、SiC 層破損粒子からの Cs^{137} の放出の遅延時間 t_D は、最大、

$$t_D = \frac{(L_2 + L_4)^2}{6 D_{\text{PyC}}} = 9.375 \times 10^{-6} \frac{1}{D_{\text{PyC}}} \quad (12)$$

となる。ここでは、仮に $100 t_D$ で PyC による F P 保持能が全く失われるものとした。というのは、後述する非定常拡散放出モデル (5.3 節) の予測では、 $\sim 100 t_D$ で被覆層の F P 保持能がほぼ完全に失われるからであり、また、Fig. 12 の実測データの分布もこの付近に境界があることを示しているからである。同境界線の 420 日への外捜は $1200 \sim 1250^\circ\text{C}$ となる。すなわち、 Cs^{137} に関しては、燃料寿命 420 日に対し、燃料温度 $1200 \sim 1250^\circ\text{C}$ 以上で SiC 層破損粒子からの放出が支配的となるであろう。

ただし、上述の議論では、照射温度に関わらず、健全な SiC 層は Cs^{137} に対してほぼ完璧な拡散障壁として作用することが前提されている。しかし、ある照射条件下では、健全な SiC 層を通しての Cs の拡散放出の寄与が無視できなくなるかもしれない。この問題については 5.3

節で検討する。

また、上述の議論のなかで、貫通破損粒子の UO_2 核の炭化の効果は無視されている。しかし、Fig. 12 で $10^{-3} F_k = 10^{-4}$ の線より右側の領域では、すでに UO_2 核からの Cs^{137} 放出割合は $F_k \geq 0.1$ である。したがって、この領域では Cs, Ag といった揮発性の高い長半減期 FP の放出割合に及ぼす炭化の影響は比較的小さい、と言って良いであろう。しかし、アルカリ土類および希土類に属する FP の炭化物上の蒸気圧はかなり高いので、これらの放出割合は大きな影響を受けるに違いない。また、炭化の進行した領域では Booth モデルに関する等価球半径が変わるので、特に短半減期 FP の R/B は大きな影響を受けるであろう。

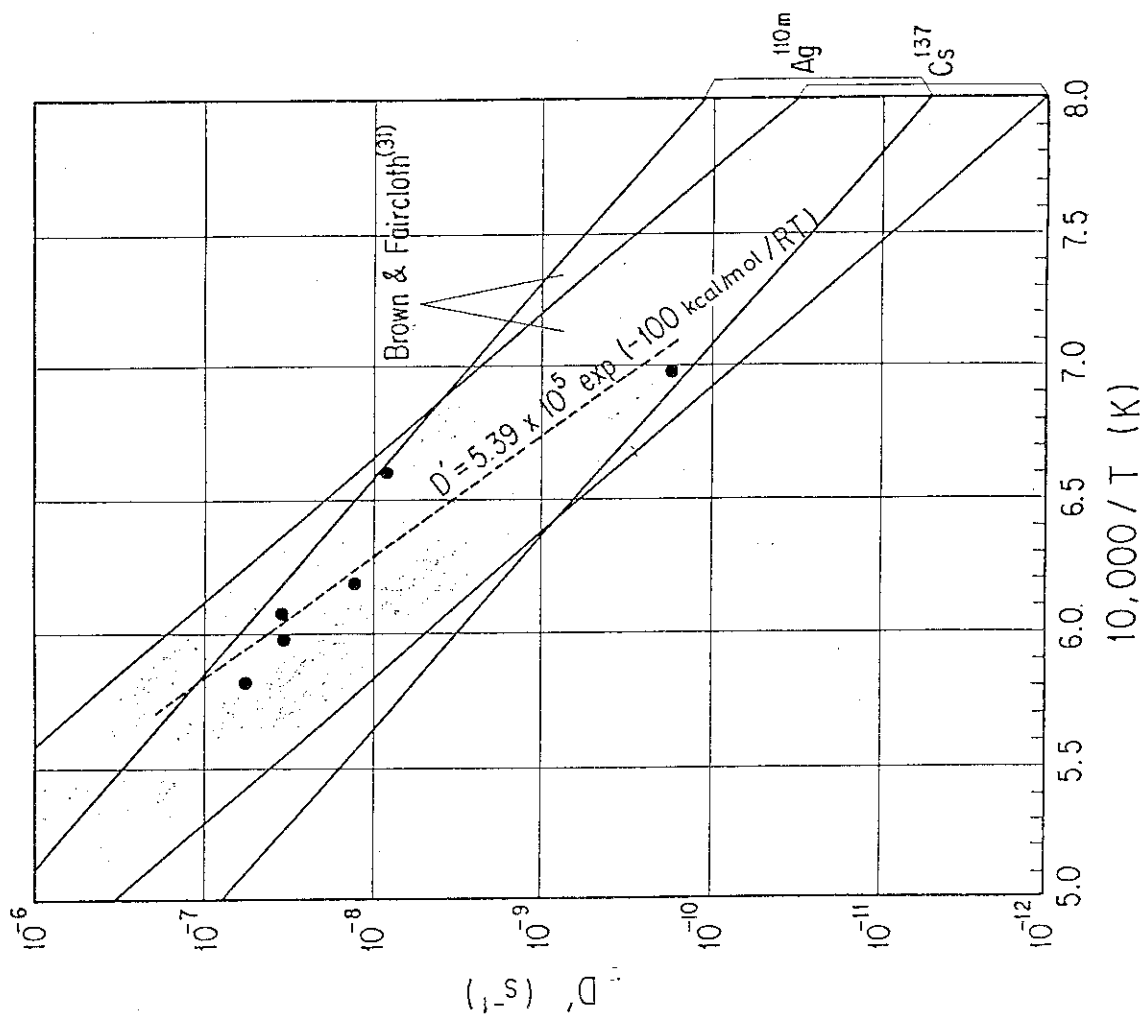


Fig. 9 Reduced diffusion coefficient of Cs¹³⁷ in UO₂ kernel (3).

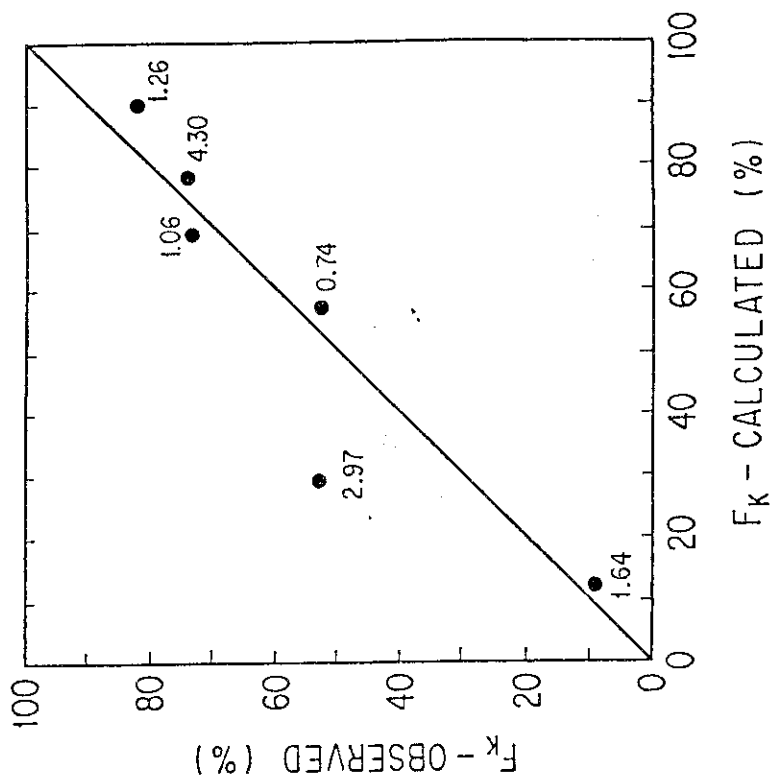


Fig. 10 Comparison of observed and calculated fractional releases of Cs¹³⁷, F_k (Cs¹³⁷), from UO₂ kernel into coating of Triso-coated particles. Number denotes burnup (%FIMA) of each sample particles (3).

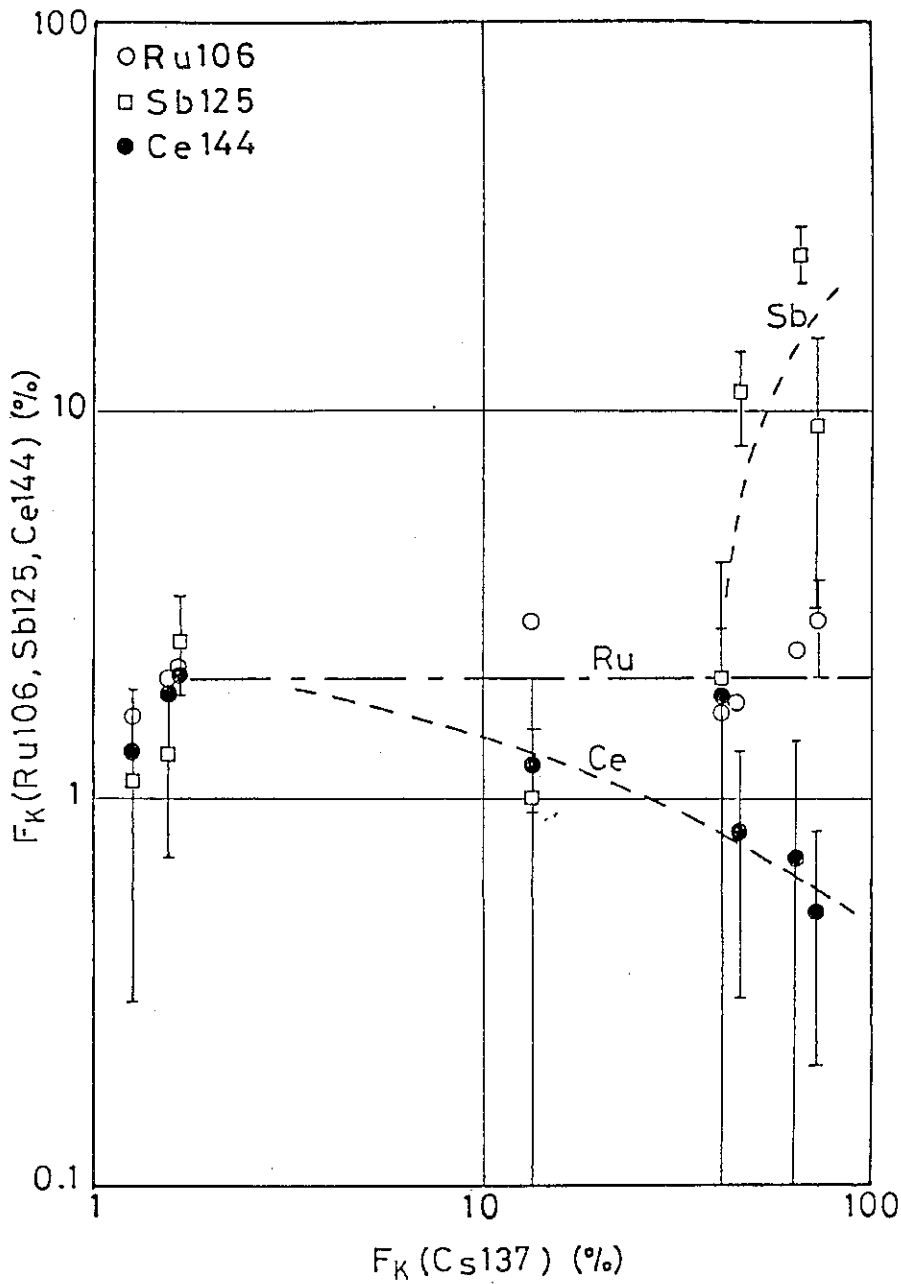


Fig. 11 Fractional releases of Ru^{106} , Ce^{144} and Sb^{125} from UO_2 kernel into coating against that of Cs^{137} (13).

Table 4 Criteria to assign predominant mechanism of metal fission product release.

MECHANISM	CRITERIA
Contamination	$F_K(CS^{137}) \times \phi_{EOL} \leq 10^{-4}$, $F(Cs) \approx F(Ce^{144}), F(Ru^{106})$
Through-coating failure	$F(CS^{137}) \approx F_K(CS^{137}) \times \phi_{EOL}$, $F(Cs) > F(Ce^{144}), F(Ru^{106})$
Defective SiC	$F(CS^{137}) > F_K(CS^{137}) \times \phi_{EOL}$
Diffusion of Ag through SiC	$F(Ag^{110m}) \gg F(CS^{137})$

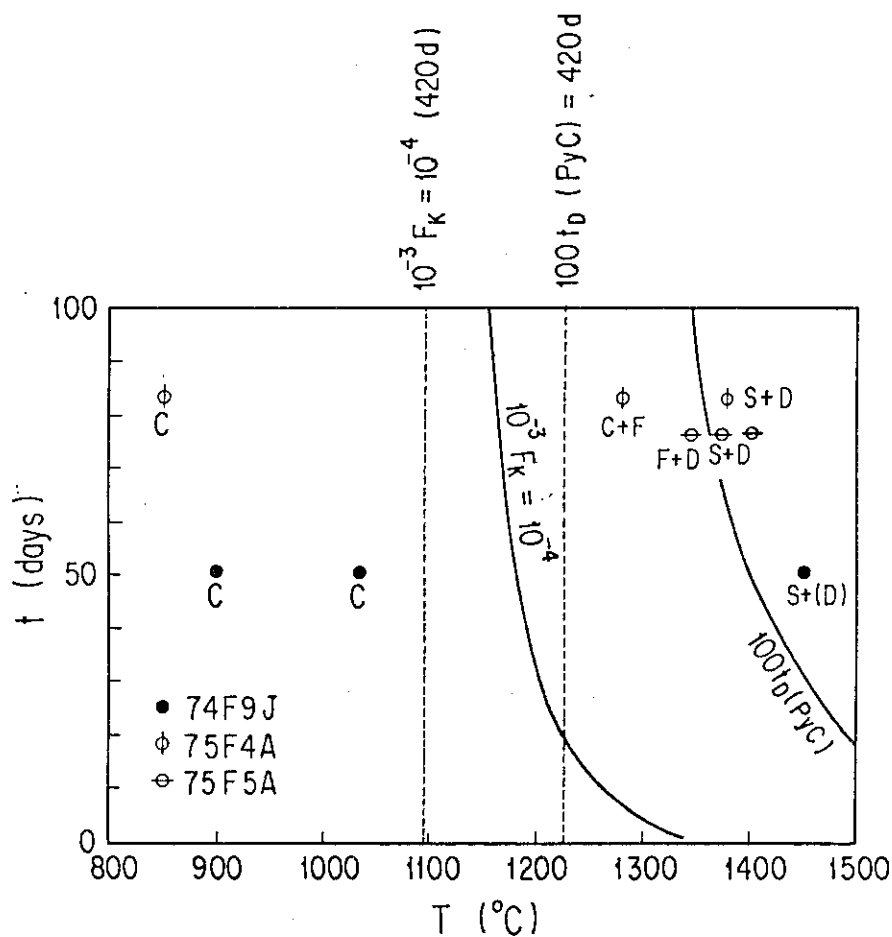


Fig. 12 Predominant release mechanisms of metal fission products against irradiation temperature and time: C, contamination; F, through-coating failure; S, defective SiC; D, diffusion of Ag^{110m} through intact SiC. $t_D = (L_2 + L_4)^2 / 6D_{PyC}$ and $D_{PyC}(Cs^{137}) = 0.019 (cm^2/s) \exp(-60754 cal/mol/RT)$

5.2 SiC 層破損の発生

被覆燃料粒子の製造時 SiC 層破損割合 ϕ'_{bol} は 10^{-3} で代表させることができる⁽¹⁶⁾ また、製造時貫通破損割合 ϕ_{bol} は 10^{-4} 程度である。貫通破損粒子は 5.1 節の定義から SiC 層破損粒子に含めて数える。本節の目的は、 ϕ' が照射によってどのように変化するかを、金属 FP 放出割合を手がかりに検討することにある。

Table 3 および Fig. 12 に示したように、74F9J-2, 75F4A-1, 75F4A-2, 75F5A-3 の 4 試料については、SiC 層破損粒子からの放出が支配的であると判断された。これらの試料について、 $F > F_K \times \phi'_{\text{bol}} \approx 10^{-3} F_K$ であれば、元来健全であった SiC 層が照射によって破損したか、あるいは、健全な SiC 層を通しての拡散放出が生じたかのいずれかと考えられる。そして、確実に $F > 10^{-3} F_K$ となっているのは、74F9J-2, 75F4A-1, 75F5A-2 の 3 試料である。

ここでは、SiC 層は Cs に対して完璧な拡散障壁として作用すると仮定する。したがって、 F が $10^{-3} F_K$ を超える分はすべて、照射による SiC 層破損に帰して考察を加える。

しかし、照射による SiC 層破損が現実に起きているのかどうかは、粒子断面の顕微鏡観察を主とする現状の照射後試験では確認することは難しい。74F9J-2, 75F4A-1 では粒子の断面観察において燃料核移動（アマーバ効果）が認められている。このうち、74F9J-2 については、約 30 粒観察したなかで、SiC 層内面がわずかに侵食されている粒子が少くとも 1 粒見出されている⁽¹⁾。一方、75F4A-1 の核移動はほぼバッファ層の内側で止まっていた。75F4A-1 試料については、別に EPMA 観察を行い、最大 $9 \mu\text{m}$ の深さの Pd 腐食^(注)を見出した⁽¹⁷⁾。75F5A-2 試料では、観察された限り、燃料核移動、Pd 腐食ともに顕著ではなかった。しかし、これら 3 試料のうち、75F5A-2 についてだけは照射後の SiC 層破損割合が調べられており、照射前に比べて統計的に有意な程度の SiC 層破損割合の上昇が認められている⁽¹⁸⁾。

以下では照射条件の苛酷さの指標として、仮に、Pd 腐食深さの予測値を用い、SiC 層破損の進行を示すパラメータとして $F(\text{Cs}^{137})/F_K(\text{Cs}^{137})$ を用いて、両者の相関を調べてみた。なお、Pd 腐食深さの計算には以下の式を用いた⁽¹⁹⁾。

$$\begin{aligned} P(\mu\text{m}/\text{h}) &= 6.43 \exp(-1.299 \times 10^4/T) \quad (T \leq 1689 \text{ K}) \\ P(\mu\text{m}/\text{h}) &= 4.2 \times 10^7 \exp(-3.949 \times 10^4/T) \quad (T > 1689 \text{ K}) \end{aligned} \quad (13)$$

Pd 腐食については、これまで様々な速度式が得られているが、上の二式は 1400°C 付近で見かけの活性化エネルギーが変化している点で他と異なっている。Pd-Si-C 三元系では、 1400°C 以上で Pd/SiC 反応の生成物は Pd-Si 液体合金相になり腐食反応の様相が変わることが予想される⁽²⁰⁾。上の二式を選んだのはこの理由によっている。

結果を Fig. 13 a に示す。未成型被覆燃料粒子と燃料コンパクト成型被覆燃料粒子とのそれぞれについて、Pd 腐食深さの予測値と Cs^{137} の F/F_K 値との間には相関が見られる。未成型

注) FP の Pd により SiC が局部的に腐食される現象。

状態とコンパクト成型状態とで挙動が異なる理由は不明である。しかし、従来から、未成型状態の被覆燃料粒子はコンパクト成型後に比べて照射安定性の劣ることが知られている。ここでは、形式的に、未成型粒子の実効照射温度として公称の照射温度より 50℃高い値を用い、Fig. 13 b のように両者の一致をはかった。Fig. 13 b では P とともに F/F_K も Fig. 13 a の値とは異なっている。というのも、 F_K は前節(8)式による計算値だからである。

既に述べたように、Fig. 13 において、 P_d 腐食深さの予測値は単に照射条件の苛酷さの指標として用いられている。実際の照射下 SiC 層破損は、この他にアメーバ効果や内圧の上昇が複合した現象であろう。同図にはまた、1350℃に規格化した照射日数を示してある。これから、1350℃100日以上に相当する照射条件では、照射によって Cs 放出につながるような欠陥が導入される危険性のあることが予測される。

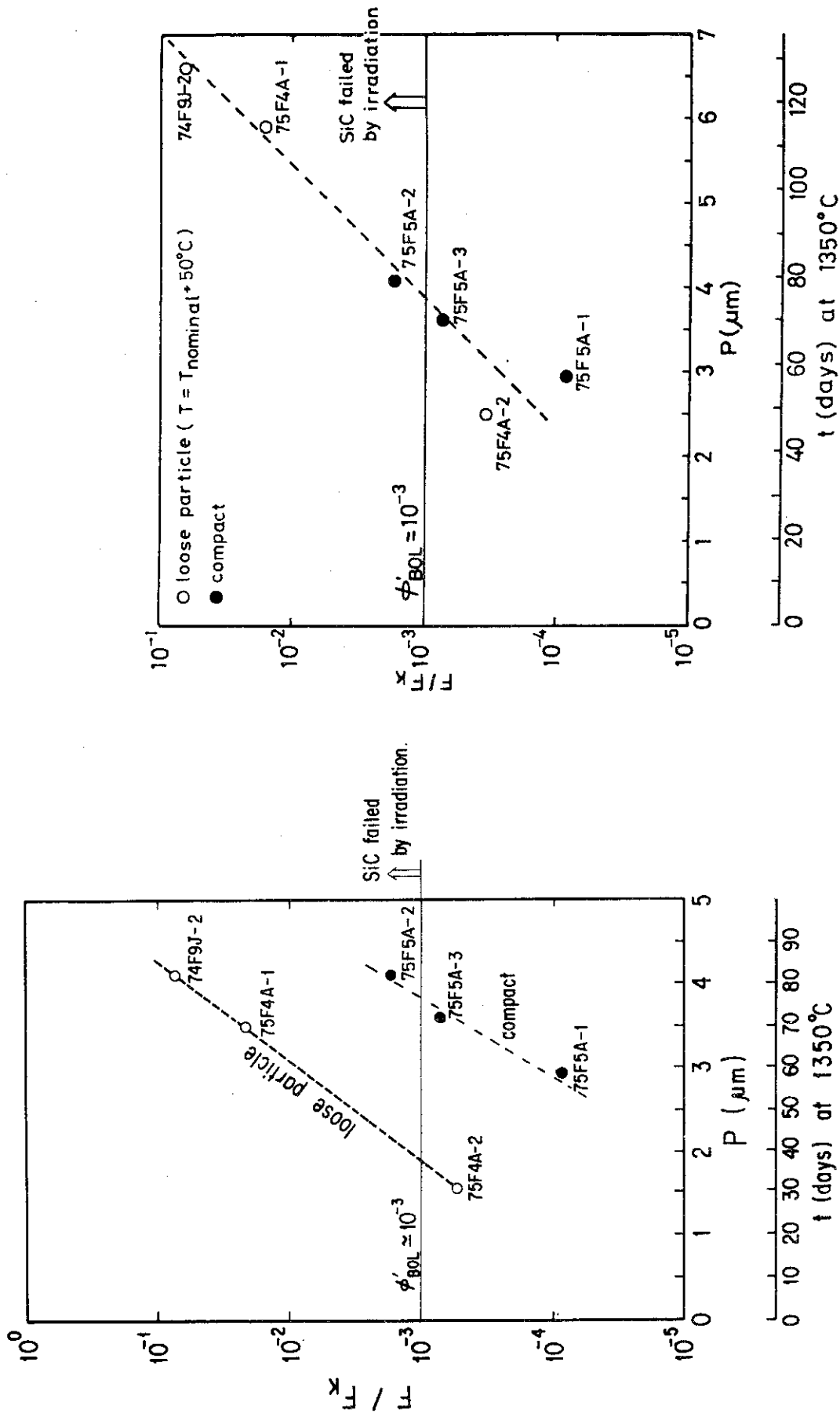


Fig. 13 Ratio of F to F_K of Cs^{137} against Pd penetration calculated from nominal irradiation temperature (left) and from temperature corrected as described in the text (right).

5.3 SiC 層中の拡散

前節では、照射終了時貫通破損割合 ϕ_{EOL} および製造時 SiC 層破損割合 ϕ_{BoL} で説明できない Cs^{137} 放出割合を、仮に、照射による新たな SiC 層破損の発生として検討した。しかし、そのためには、健全な SiC 層が Cs^{137} に対する完全な拡散障壁として作用していたことが前提となる。被覆層の厚さを L とし、拡散係数を D とすると、放出の遅延時間は $t_0 = L^2 / 6D$ で与えられるので、 $L = 25 \mu m$ 、照射試験日数約 80 日に対して、SiC 中の Cs 拡散係数が $1.5 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以下ならこの条件が満足される。従来、良質の SiC 層中の Cs の拡散係数は $1400 \text{ }^\circ\text{C}$ で $10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以下とされてきた⁽²¹⁾。しかし、最近の研究では、これよりかなり高い値も得られている。例えば、Allelein は次のような拡散係数を、1970 / 71 年 HOBEG 社製の被覆燃料粒子について得ている⁽²²⁾。

$$D_{\text{SiC}}(Cs^{137}) = 1.77 \times 10^{-7} (\text{cm}^2/\text{s}) \exp \left(- \frac{42100 (\text{cal/mol})}{RT} \right) \quad (14)$$

そこで、本節では Table 3 の FP 放出データを拡散放出の見地から整理した。すなわち、前節とは逆に、照射による新たな SiC 層破損の発生は無視できると仮定した。

しかし、Triso 被覆燃料粒子からの非定常拡散放出を物理的な意味で正確に扱うことは、現在の知見からはきわめて困難である。形式的には、被覆燃料粒子の燃料核および各被覆層を、それぞれ、それ自身の内部では均質な媒質と見なし、適当な境界条件を与えることにより、数値解を得ることは可能である。しかし、これら境界条件の設定には、必要な知見の不足から、大きな任意性が含まれる。したがって、ここでは最も単純なモデルの一つとして、Fiocchi と Pierini による単一層被覆燃料粒子に対する非定常拡散の解析解⁽²³⁾を用いた。この場合、PyC 層の FP 保持能は無視でき、有効な拡散障壁は SiC 層だけであることを仮定している。Fig. 12 に見るように、この仮定は少なくとも 75F4A-1, 75F5A-2, 3, 74F9J-2 の 4 試料については妥当している。また、以下の境界条件が仮定されている。

- ①燃料核と被覆層との両界面における濃度は等しい。
- ②被覆層表面における濃度は 0。

Fig. 14 では横軸に無次元時間尺度として、 UO_2 核中の Cs の換元拡散係数 (Fig. 9) と照射履歴 (Fig. 4) とから求めた $D't$ を採っている。縦軸は Cs^{137} 放出割合 (F) の実測値である。ただし、前節にならって、未成型被覆粒子については、実効照射温度として $50 \text{ }^\circ\text{C}$ を加算した温度を用いている。計算では、 UO_2 核を半径 $a_K \approx 300 \mu m$ の均質単一の球体と見なし、 $D_1 = a_K^2 D'$ を燃料核中の拡散係数とした。そして、SiC 層中の拡散係数を D_2 と表わすと、放出割合 F は D_2 / D_1 と $D't$ との 2 つの無次元量の関数として算出される。Fig. 14 に示したように、 Cs^{137} 放出割合の実測点は $D_2 / D_1 = 0.003 \sim 0.006$ と置くことにより、このモデルで説明できる。したがって、SiC 層中の Cs^{137} 拡散係数の確からしい範囲は Fig. 15 の斜線部分のようになる。同図にはまた、Nabielek⁽²⁴⁾による評価値も一緒に示した。これは実験値と言うより、上記 Allelein のデータを含む過去の多様なデータを一つの Arrhenius プロット上に集めて、最小自乗法による当てはめを行なった結果得られたものである。我々の評価した拡散

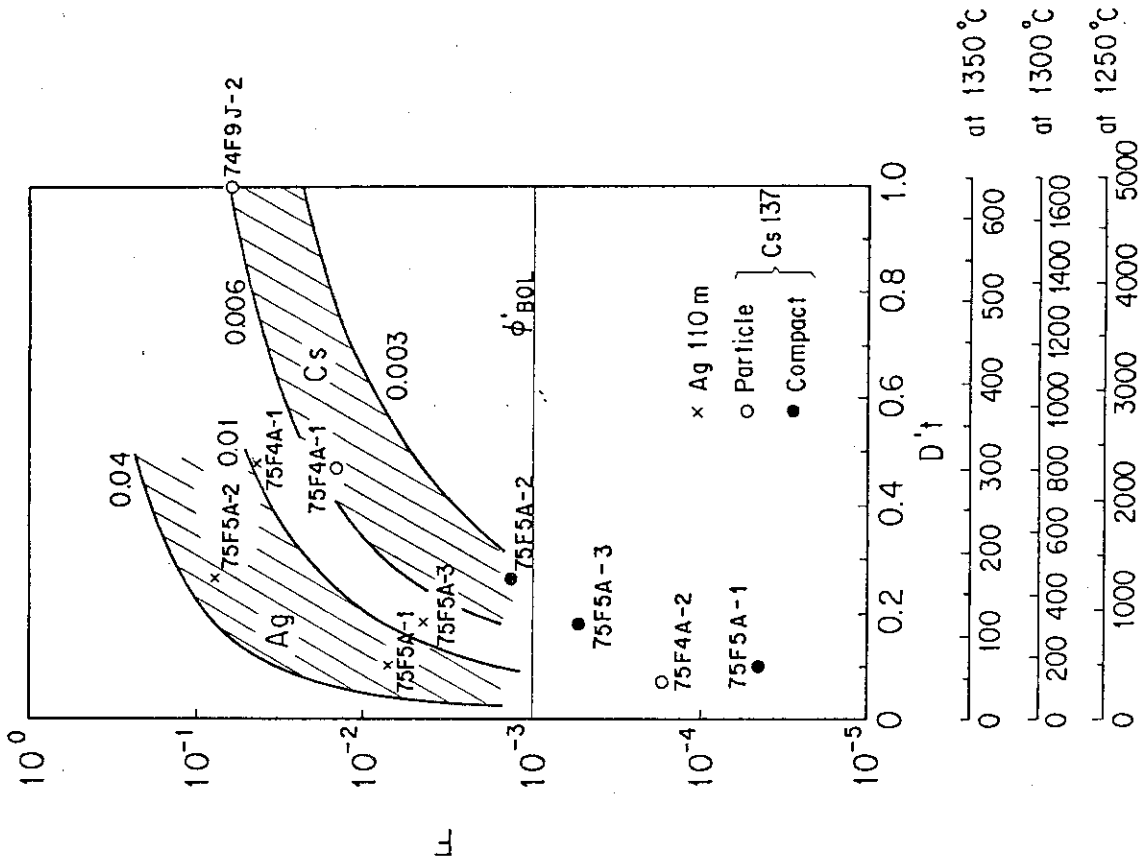


Fig. 14 Fractional releases of Cs^{137} and Ag^{110m} as analyzed by a simple diffusion model.

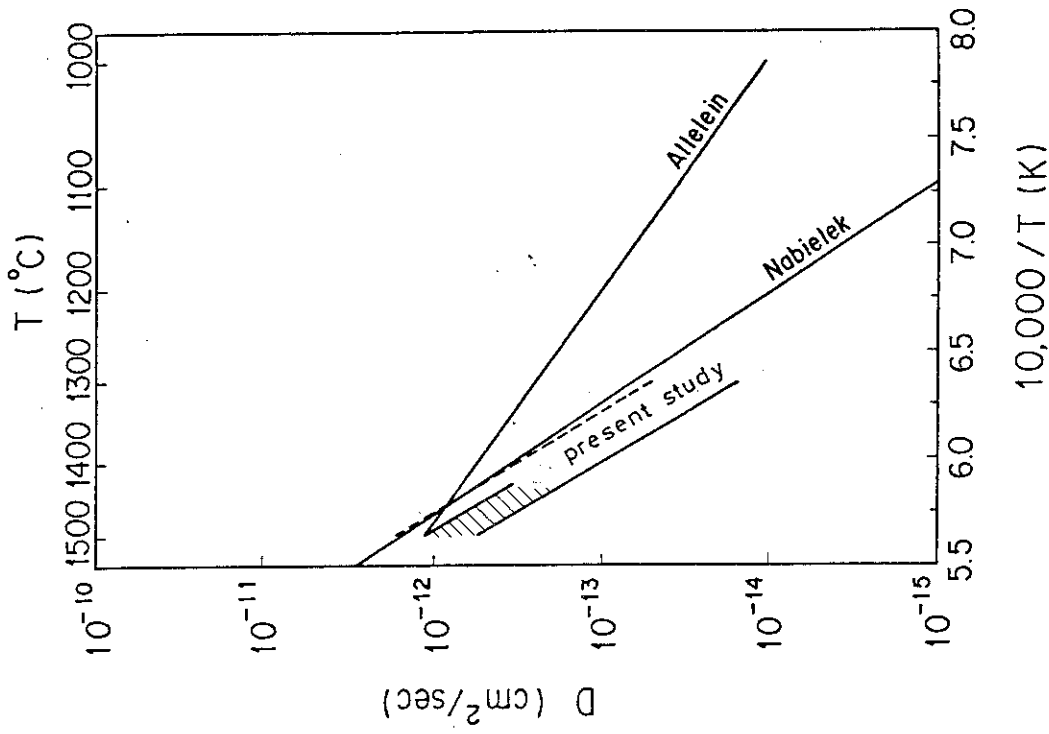


Fig. 15 Comparison of $D_{SiC}(Cs^{137})$ as estimated by a simple diffusion model with those in the literature.

係数の上限値は、このNabielekによる評価値に近いものとなっている。

Fig. 14からは、また、1350℃100日以上照射では、Triso被覆燃料粒子が次第にCs保持能を失うことが予測される。また、燃料寿命420日に対してCs¹³⁷放出割合を製造時SiC層破損割合と同程度の水準(～10⁻³)に抑えるには、燃料温度を1300℃以下にすることが、少くとも上記モデルの範囲内では、求められるのである。

なお、上で評価した拡散係数、あるいは一般にある媒質からの放出曲線から求めた拡散係数を、例えば金属中の自己拡散係数のような物理的な実体のある値と考えるのは、おそらく誤りである。むしろ、ある数学的な拡散放出モデルに適合した、計算上のパラメータと考えた方がよいであろう。

5.4 Cs¹³⁷以外の核種の挙動

前二節では特に Cs¹³⁷ の放出挙動に着目して議論を進めてきた。本節では、さらに他の γ 線放出核種個々の挙動について考察を加える。

Table 5 には、幾つかの金属 F P について、原子炉一次系 γ 線量率への相対的な寄与を半定量的に予測した結果を示した。 γ 線実効エネルギー E_{γ} (MeV/dis) は次式で定義される。

$$E_{\gamma} = \sum E_i \cdot f_i \quad (16)$$

E_i : 特定の γ 線のエネルギー (MeV/photon)

f_i : 1 崩壊当りの上記 γ 線の放出数 (photons)

相対生成放射能 R_0 は、燃料中の Cs¹³⁷ の生成量 (C_i) を 1 としたときの他の核種の生成量を示す。生成量は、4%濃縮燃料を HTGR 炉心で 400 日間で約 20,000 MWD/TU まで燃焼させた場合についての、ORIGEN コードによる計算形果⁽²⁵⁾を用いた。パラメータ A_0 は、崩壊定数を λ (S⁻¹) としたとき、次式で定義される。

$$A_0 = (1 - e^{-\lambda t}) / \lambda \quad (17)$$

すなわち、ある放射性核種が長時間にわたって均一な速度で一次系中に放出され沈積したと単純化したときの蓄積量に対応する。ここでは、仮に $t = 10$ 年とした。したがって、 $E_{\gamma} \times R_0 \times A_0$ は、炉心期間 10 年間にわたって、その期間中に装荷、交換された全燃料から、すべての核種が同一の放出割合で放出されたとしたときの、一次系線量率への各核種の相対的寄与の指標となる。しかし、放出割合 F は実際には核種毎に異なっている。ここでは、主として 75 F 5 A - 2 試料の放出割合 (Table 3) に基づいて F の値を与えた。5.3 節の拡散モデルでは、同試料はおおよそ 1300 °C 400 日間の照射条件に対応している。こうして、 $E_{\gamma} \times R_0 \times A_0 \times F$ が一次系 γ 線量率への各核種の相対的寄与に対応する。

ただし、以上では、実際の燃料要素において燃料コンパクトを収めている黒鉛スリーブの F P 保持能は考慮に入っていない。また、各核種によって一次系内の沈着部位が異なることも考慮されていない。したがって、Table 5 は、被覆燃料粒子研究開発のうえで、特にどの金属 F P の放出挙動に着目していくべきかを考えるための一資料にすぎない。これによると、一次系 γ 線量率への金属 F P の寄与は Cs¹³⁷ + Cs¹³⁴ が最も大きく、これに Ag^{110m} と Eu¹⁵⁴ が続いている。そこで、以下には、Cs¹³⁴, Ag^{110m}, Eu¹⁵⁴ の放出挙動について個別に議論する。

Table 5 Relative contributions to primary-circuit gamma dose rate by metal fission products. Retention by graphite component and plate-out behavior are not taken into account.

	$T_{1/2}$	E_{γ}	Ro	Ao	F	$E_{\gamma}RoAoF^{\alpha}$
Zr95	64.0d	0.74	33.4	0.03	10^{-4}	0.1
Ru/Rh106	367d	0.20	8.26	0.16	10^{-4}	0.05
Ag110m	252d	2.74	0.0121	0.11	10^{-1}	0.6
Sb125	2.7y	0.45	0.312	0.40	(10^{-4})	0.01
Cs134	2.062y	1.58	0.483	0.32	10^{-3}	0.4
Cs137	30.17y	0.60	1	1	10^{-3}	1
Ce/Pr144	284d	0.05	18.6	0.13	10^{-4}	0.02
Eul52	13y	0.57	8.41×10^{-5}	0.87	10^{-2}	$< 10^{-3}$
Eul54	8.5y	1.25	0.0156	0.77	10^{-2}	0.25
Eul55	4.9y	0.09	0.0529	0.60	10^{-2}	0.05

α : Relative contribution to gamma dose rate normalized to that of Cs137.

E_{γ} : Effective gamma-ray energy (MeV/dis).

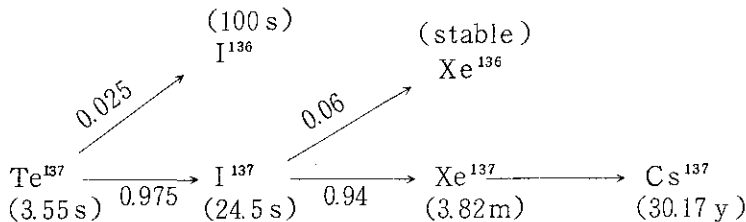
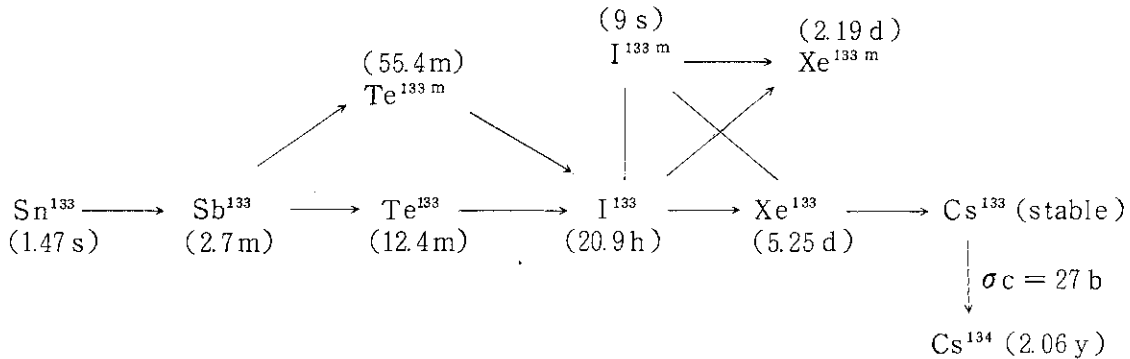
Ro: Inventory (Ci) for 4%U fuel irradiated to 20,000MWD/TU in 400days in HTGR core. Normalized to that of Cs137.

Ao: Decay correction term for 10 years (see text).

F: Fractional release taken from results on 75F5A-2 capsule.

5.4.1 Cs¹³⁴

一般に放射性核種の挙動を理解するには、その核種の生成系列を知らなければならない。特に、F P の燃料からの放出を理解するには、先行核種の半減期が重要な意味を有する。以下に、Cs¹³⁴ と Cs¹³⁷ の生成系列を比較する。



Cs¹³⁷ の先行核種の半減期はごく短かく、燃料から放出される前にはほぼ完全に壊変してしまっていると仮定することができる。それに対して、Cs¹³³/Cs¹³⁴ の先行核種のうち、I¹³³、Xe¹³³ は日単位の半減期を有するので、壊変以前に、場合によっては相当量が燃料から放出され得る。

ある均質な燃料系からの F P 拡散放出に関する、このような先行核種放出の効果は Friskney と Speight⁽²⁶⁾ によって解析されている。上の Cs¹³⁴ の系列については、仮に I、Xe、Cs が互いに等しい拡散係数を有するとした場合、Cs¹³³/Cs¹³⁴ の放出割合は Cs¹³⁷ のそれよりも実質的に大きな値になる。

いま、我々の測定結果 (Table 3) について上の効果の有無を検討する。74 F 9 J - 1, 3 については明らかに異常な結果となっている。その他の試料については、Cs¹³⁴ の放出割合は Cs¹³⁷ の放出割合を平均して 10 % 程度上回っており、上の Friskney と Speight の予測と良く一致している。ただし、UO₂ 核から被覆層への移行に関する実験結果⁽¹³⁾ では F_K (Cs¹³⁴) と F_K (Cs¹³⁷) とは、むしろ実験誤差の範囲内で一致している。そして、放出割合 F の 10 % 程度の誤差は、Fig. 10 や Fig. 14 に見られるような計算モデルの予測誤差に比べれば小さいと言える。したがって、現状で Cs¹³⁴ の放出挙動を詳細に調べることは、一次系線量率制御の観点からは、限界的 (marginal) な意義しか持たないであろう。

74 F 9 J - 1, 3 では、Cs¹³⁴ の放出割合が Cs¹³⁷ のそれに比べて著しく高くなっている。こ

れを先行核種の寄与として説明するには、I, Xe の拡散係数がCs のそれよりも桁違いに大きいとしなければならない。これは、従来の知見⁽²⁷⁾から考えても、ありそうにない。そこで、ここでは、この見かけ上高いCs¹³⁴ 放出割合は、黒鉛容器中にたまたま不純物として存在したCs の放射化によるものと見なしておく。Cs¹³³ の天然存在比は100%であり、熱中性子捕獲断面積は27 b である。一方、Cs¹³⁴ は140 b の熱中性子捕獲断面積を有する。74F9J-1,3 の熱中性子束は $1.5 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ であった。これらの数値から推定すると、黒鉛試料容器35 g 中に2~3 μg ($\sim 0.1 \text{ ppm}$) のCs が不純物として含まれていれば、上の説明が成立するのである。

5.4.2 Ag^{110m}

Table 5 に見るように、Ag^{110m} の生成量はCs¹³⁷ の約1%にすぎない。また、半減期は約250日であって、一次系に沈着しても長期的には相当量が崩壊してしまう。にもかかわらず、その被覆燃料粒子からの放出割合FはCs¹³⁷ の100倍にも達し得るので、一次系線量率への寄与はCs¹³⁷ に次ぐことが予想される。

Cs の場合と異なり、SiC 層のAg^{110m} 保持能が低いことについては、以前から研究者間で一致が見られている。5.1節に述べたように、我々の試料においても、Ag^{110m} の放出が確認された場合には、例外なくSiC 層を通しての拡散放出によるものと判定された。

5.3節、Fig. 14では、これらのデータを前記の拡散モデルによって処理してある。ここで、UO₂ 核中のCs とAg の拡散係数はほぼ等しいと仮定した(附録B)。Fig. 16ではこのようにして評価したSiC 層中のAg^{110m} の拡散係数(図中斜線)を、種々の文献値と比較した⁽²⁸⁻³⁰⁾。Amian⁽²⁸⁾とForthmannら⁽³⁰⁾は、照射後炉外加熱による放出曲線を、それぞれ適当なモデルを用いて解析し、SiC 層中の拡散係数を評価している。一方、Nabielekら⁽²⁹⁾は、様々な照射中および照射後放出データを整理して、Amianらとほぼ一致するArrhenius式を得ているが、データのばらつきはきわめて大きく、1200℃付近では $10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以下という小さな値を示すデータも含まれている。

Fig. 14から確実に言えることは、我々の得たAg^{110m} のSiC 層中の拡散係数の範囲が、少くとも過大評価にはなっていないということである。したがって、Ag^{110m} が健全なSiC 層から拡散放出されるという点で、金属FPのなかではCs¹³⁷ と並んでその挙動の解明が最も重要な核種であると結論できる。

5.4.3 Eu¹⁵⁴

Eu 同位体の挙動については不明な点が多い。Fig. 17にはUO₂ 上およびPyC上の金属FP蒸気圧の予測結果⁽¹³⁾を示す。ある金属酸化物(M_{1.0}Ox)上の金属蒸気圧Pは、同温度における純金属上の蒸気圧をP₀、酸化物の生成自由エネルギーを ΔG_{Mox} 、系の酸素分圧をP_{O₂}(atm)として

$$RT \ln P = RT \ln P_0 + \Delta G_{\text{Mox}} - \frac{X}{2} RT \ln P_{\text{O}_2} \quad (19)$$

と表わされる。Eu は同じ希土類に属するCe に比べてP₀ が著しく大きいため、酸化物上

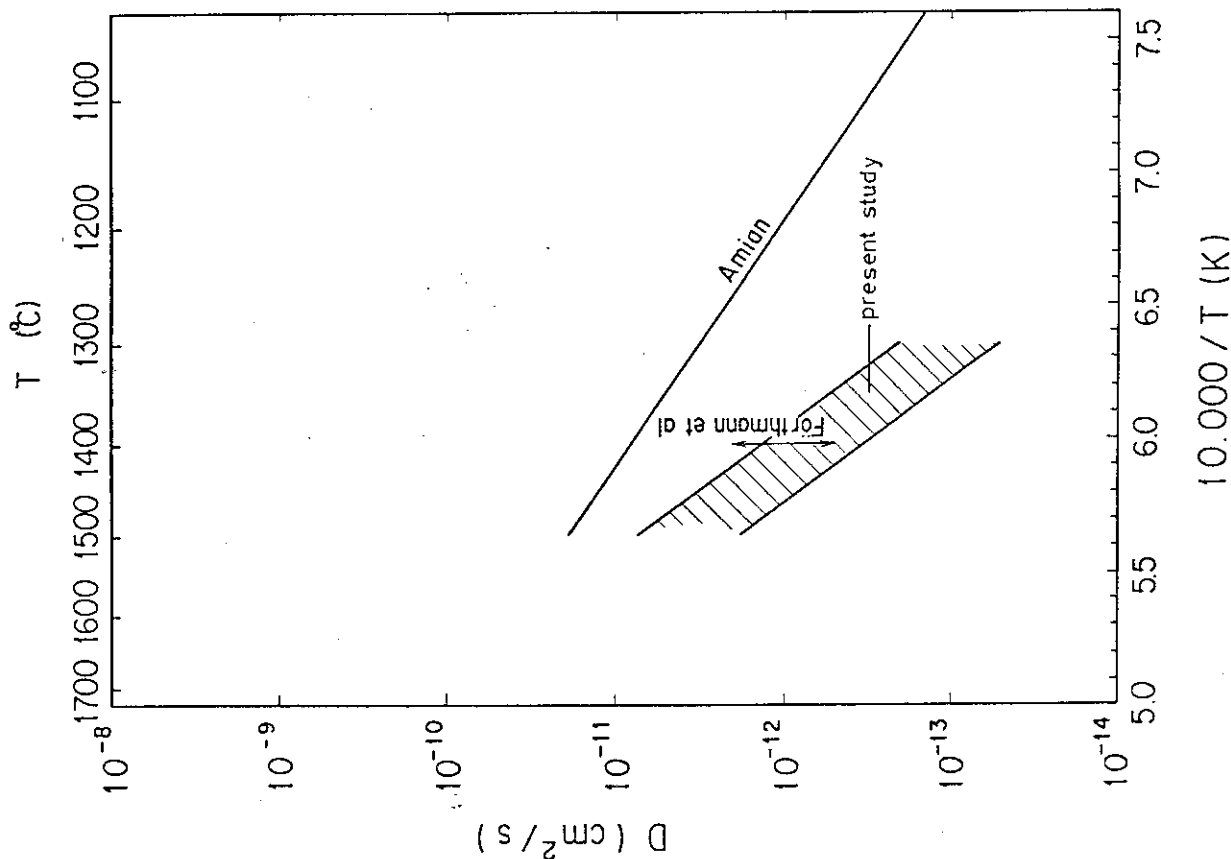


Fig. 16 Comparison of $D_{SiC}(Ag^{110m})$ as estimated by a simple diffusion model with those in the literature.

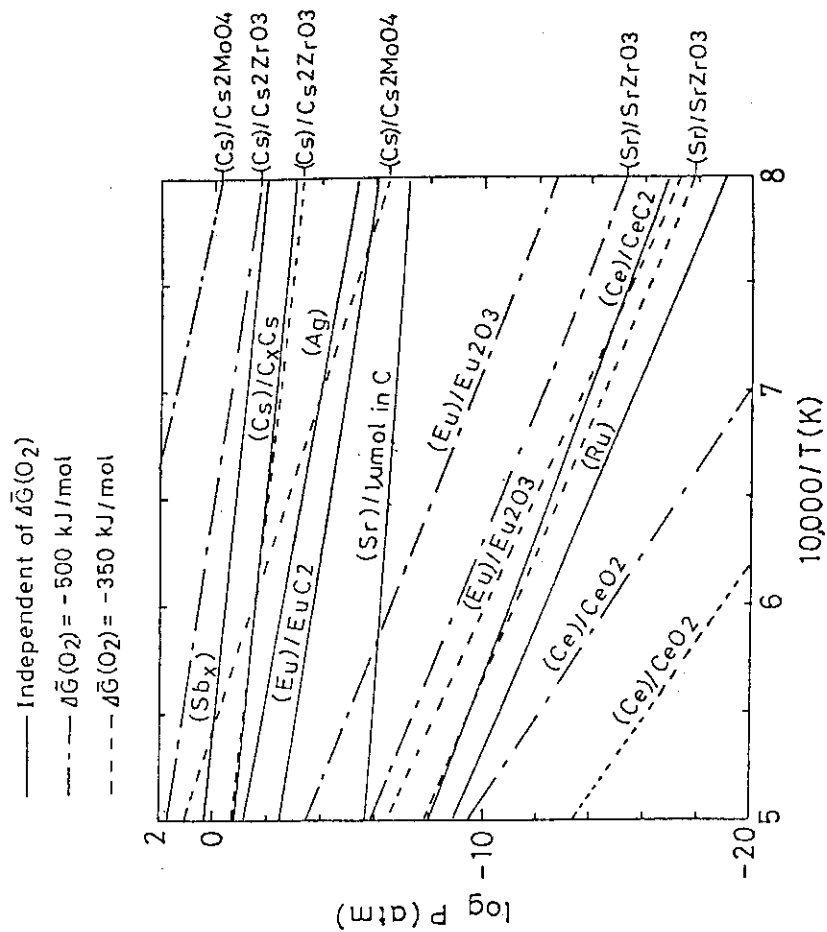


Fig. 17 Equilibrium vapor pressures of fission products in the systems UO_2 -FPs (fission products) and C-FPs (13).

の蒸気圧 P も比較的大きな値となり、 UO_2 上では、おそらく Sr の蒸気圧よりも高い。したがって単に蒸気圧を UO_2 核からの逃散し易さの指標と見なすなら、 Eu は Ce 、 Sr よりもかなり放出され易いが、その放出され易さは Cs 、 Ag には及ばないと言うことができる。

しかし、被覆燃料粒子の UO_2 核から被覆層への移行においては、酸化状態 (UO_2 中) と炭化状態 (PyC 中) とにおける相対的な熱力学的安定性が、もう一つの重要な因子である。Fig. 17 の蒸気圧の比較は、 Eu はおそらく UO_2 核中の方が安定であり、 PyC 層への移行はこの意味からさらに制約され得ることを示している。

我々の測定では 9 試料中 5 試料について Eu^{154} の放出が認められた (Fig. 6)。4.2 節で述べたように、 Eu を除く他の FP の放出割合は

$$Ce^{144}, Ru^{106} < Cs^{134}, Cs^{137} < Ag^{110m} \quad (19)$$

となっていたが、 Eu はこの序列のなかで定まった位置を持たないという点で特異であった。

上の序列において Ce 、 Ru が下位にあるのは、 Cs 、 Ag に比べると著しく UO_2 核から放出されにくいからである。 Ag の放出割合が Cs を大きく上回るのは、 Ag の SiC 層中の拡散係数が大きいためである。そこで、この序列のなかで Eu が定まった位置を持たないことは、 Eu が UO_2 核からは比較的放出されにくいのに対し、 SiC 層中ではかなり大きな拡散係数を有すると考えることによって説明できよう。 UO_2 核から被覆層への移行と、 SiC 層中の拡散とは、それぞれ異なった見かけの活性化エネルギーを有するであろうから、試料の温度履歴によって、上の序列中での Eu の位置が変わり得ると考えられる。

6. 結 論

74F9J, 75F4A, 75F5A スィープがスキップセルで照射した, 計9種類のTriso 被覆燃料粒子試料について照射中に放出された金属FP量を定量した。照射温度, 時間, 照射終了時貫通破損割合 (ϕ_{EOL}) および金属FP放出割合 (F) をもとに, 個々の試料について主たるFP放出機構を判定した。判定条件は5.1節 Table 4 に, 判定結果は Table 3 および Fig. 12 にまとめた。

幾つかの試料については, ϕ_{EOL} および製造時SiC層破損割合 ϕ_{BOL} では説明できない, 多量のCs¹³⁷の放出が認められた。この余剰のCs¹³⁷放出を, ①照射による新たなSiC層破損の発生(5.2節), あるいは, ②健全なSiC層を通しての拡散放出(5.3節), の二通りの仮説によって検討した。その結果, いずれの仮説を採ったとしても, 1350℃100日を超える照射条件下では, Triso被覆燃料粒子は次第にCs保持能を失うことが予測された。

Ag^{110m}の放出割合はCs¹³⁷のそれを大きく上回り, 健全なSiC層を通しての拡散放出が起きていることは, ほぼ間違いない。しかし, 単純な拡散モデルによるSiC層中の拡散係数の評価結果は幾つかの文献値を下回るものであった(5.4節)。その他の金属FPではEu¹⁵⁴が大きな放出割合を示した。Eu¹⁵⁴はCs同位体, Ag^{110m}に次いで原子炉一次系 γ 線線量率に寄与することが予測された(5.4節)。

謝 辞

本報告にまとめた3本のスィープガスキャプセルの照射試験は, 以下の課室の協力のもとに行われた。

- (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

6. 結 論

74F9J, 75F4A, 75F5A スィープがスキップセルで照射した, 計9種類のTriso 被覆燃料粒子試料について照射中に放出された金属FP量を定量した。照射温度, 時間, 照射終了時貫通破損割合 (ϕ_{EOL}) および金属FP放出割合 (F) をもとに, 個々の試料について主たるFP放出機構を判定した。判定条件は5.1節Table 4に, 判定結果はTable 3およびFig. 12にまとめた。

幾つかの試料については, ϕ_{EOL} および製造時SiC層破損割合 ϕ_{BOL} では説明できない, 多量のCs¹³⁷の放出が認められた。この余剰のCs¹³⁷放出を, ①照射による新たなSiC層破損の発生(5.2節), あるいは, ②健全なSiC層を通しての拡散放出(5.3節), の二通りの仮説によって検討した。その結果, いずれの仮説を採ったとしても, 1350℃100日を超える照射条件下では, Triso被覆燃料粒子は次第にCs保持能を失うことが予測された。

Ag^{110m}の放出割合はCs¹³⁷のそれを大きく上回り, 健全なSiC層を通しての拡散放出が起きていることは, ほぼ間違いない。しかし, 単純な拡散モデルによるSiC層中の拡散係数の評価結果は幾つかの文献値を下回るものであった(5.4節)。その他の金属FPではEu¹⁵⁴が大きな放出割合を示した。Eu¹⁵⁴はCs同位体, Ag^{110m}に次いで原子炉一次系 γ 線線量率に寄与することが予測された(5.4節)。

謝 辞

本報告にまとめた3本のスィープガスキャプセルの照射試験は, 以下の課室の協力のもとに行われた。

(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

参 考 文 献

- (1) 福田幸朔, 他, "被覆粒子燃料のスイープガスキャプセル照射試験 (I)", JAERI-M 84-054 (1984)。
- (2) K. Fukuda et al., "Release Behavior of Fission Gas from Coated Fuel Particles under Irradiation", J. Nucl. Sci. Technol. 19 (1982) 889.
- (3) K. Fukuda et al., "In-pile Release Behavior of Gaseous Fission Products from VHTR Fuel", in Proc. 3rd Japan-U.S. Seminar on HTGR Safety Technology, Brookhaven National Laboratory (1982), p.563.
- (4) 材料試験炉部, "JMTR照射ハンドブック", JAERI-M 83-053 (1983)。
- (5) 小川 徹, 他, "JMTR照射低濃縮 UO_2 核被覆粒子のPu核分裂割合", JAERI-M 83-152 (1983)。
- (6) H. Baba, "Usage of the BOB7-series Programs for the Analysis of Ge(Li) Gamma-ray Spectra", JAERI-M 7017 (1977)。
- (7) B.F. Meyers and W.E. Bell, "Cesium Transport Data for HTGR Systems", GA-A-13990 (1979)。
- (8) 野村 靖, 中田宏勝, 原研所内報告。
- (9) 露崎典平, 原研所内報告。
- (10) C.M. Lederer and V.S. Shirley eds., "Table of Isotopes", 7th ed., Wiley, New York (1978)。
- (11) 野口正安, "γ線スペクトロメトリー", 日刊工業新聞社 (1980)。
- (12) S.D. Beck, "The Diffusion of Radioactive Fission Products from Porous Fuel Elements", BMI-1433 (1960)。
- (13) T. Ogawa et al., submitted to J. Nucl. Mater.
- (14) T. Kikuchi et al., "Uranium Contamination in Coating and in Matrix Material of Unirradiated Coated Particle Fuel", J. Nucl. Sci. Technol. 21 (1984) 233.
- (15) D. Stöver and R. Hecker, "Cesium Release Data for Biso-Coated Particles", Nucl. Technol. 35 (1977) 465.
- (16) 小川 徹, 井川勝市, "被覆燃料粒子のSiC層破損割合の統計的検討", JAERI-M 83-051 (1983)。
- (17) K. Minato et al., "Electron Probe Micro-Analysis of Irradiated Triso-Coated UO_2 Particles (II)", JAERI-M 84-002 (1984)。
- (18) 松島秀夫, 他, "照射済被覆燃料粒子のSiC層破損率測定試験", 日本原子力学会58年度秋の分科会(札幌)。
- (19) General Atomic Company, "HTGR Generic Technology Program-Semiannual Report for the Period Ending March 31, 1980", GA-A15842 (1980)。

- (20) 小川 徹, "Pd-Si 系の熱力学的性質と Si C 層の Pd 腐食", JAERI-M 82-098 (1982)。
- (21) B. Chinaglia, cited by P. Zoller, Jül-1324 (1976).
- (22) H.J. Allelein, "Fission Product Behavior - in Particular Cs¹³⁷ - in HTR-Triso-Coated Particle Fuel", Jül-1695 (1980).
- (23) R. Fiochhi and G. Pierini, Energia Nucleare 10 (1963) 481.
- (24) H. Nabilek, private communication.
- (25) 多目的高温ガス実験炉設計室, 所内資料。
- (26) 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 (1976) 89.
- (27) American Nuclear Society Working Group 5.4, "Background and Derivation of ANS-5.4 Standard Fission-Product-Release Model", NUREG/CR-2507 (1981).
- (28) W. Amian, "Experimental Investigations on the Migrational Behavior of Silver in Coated Particle Fuel for High-Temperature Reactors", Jül-1731 (1981).
- (29) H. Nabilek et al., "Silver Release from Coated Particle Fuel", Nucl. Technol. 35 (1977) 483.
- (30) R. Förthmann et al., "Influence of Material Properties on the Retention of Fission Products by Silicon Carbide Coatings", High Temp. - High Press. 14 (1982) 477.
- (31) P.E. Brown and R.L. Faircloth, "Metal Fission Product Behavior in High Temperature Reactors - UO₂ Coated Particle Fuel", J. Nucl. Mater. 59 (1976) 29.

附録A 中心熱伝対の中性子照射による 温度測定誤差

JMTRスィープガスキャプセルでは黒鉛試料容器中心にW-5%Re/W-26%Re熱伝対が挿入されている。しかし、WRe熱電対の起電力が中性子照射によって低下することは良く知られている。そして、中性子照射量の関数としての起電力低下は、中性子スペクトルと熱電対周囲の温度分布とに依存すると考えられている。

JMTRでは過去2本のキャプセルを用いて、クロメル-アルメル(CA)熱電対を基準として、800~1000℃でのWRe熱電対の起電力変化を調べ、Fig.A1の2本の実線のような結果を得ている⁽¹⁾。ここで、起電力変化は真温度(T)に対する変位(ΔT)の割合($\Delta T/T$)として示してある。

ここでは、本報告の対象とした3本のスィープガスキャプセルと類似した、80F4Aスィープガスキャプセルの照射記録を用いて、この起電力変化の検討を行なった。ただし、前記3本のスィープガスキャプセルがNb-1%Zr二重内筒構造であったのに対し、80F4AはSUS316一重内筒構造を有していた。また、JMTR炉内位置は前者が反射体第一層領域であったのに対し、後者は燃料領域であった。

80F4AキャプセルではWRe中心熱電対(T1)と並列にCA熱電対(T5)が配置されていた。CA熱電対先端はWRe熱電対先端の約60mm上方に位置していた。キャプセル内温度分布がほぼ平衡に達しており、また、キャプセル内で燃料試料位置を軸方向に十分離れた位置ではほぼ定温が保たれていると仮定すると、T1とT5との温度を結ぶ直線は第1近似として一点に収束するであろう。事実、Fig.A2において、照射開始直後の30, 40, 50 MWにおけるT1とT5の指示値を結ぶ直線1, 1', 1"はT5上方約90mmの位置に、このような仮想的な定温点 T_0 を有する。しかし、照射の進行とともにT1の指示値が低下する結果、直線3~7のように、T1とT5を結ぶ線の延長は T_0 点からへだたっていく。そこで、逆に、 T_0 とT5集を結ぶ直線のT1への外挿をT1における真の温度と仮定し、T1の起電力変化を評価した結果がFig.A1の破線である。この評価値は、先のJMTRにおける実験結果(2本の実線)の範囲の内におさまっている。

以上から、本報告の対象としたスィープガスキャプセル(74F9J, 75F4A, 75F5A)では、照射末期の温度指示値最高1500~1600℃に対し、真温度はそれより50~150℃高かったものと推定される。しかし、他方、中心熱伝対位置温度は試料平均温度より50~100℃高くなっていると考えられる(本文2.1節)。したがって、試料温度を中心熱伝対指示値で代表させることにより、少くとも照射末期では、以上二つの誤差は相殺される傾向にある。とは言え、本文に示した照射温度がこの程度の誤差を含んでいることに、ここで注意しておきたい。

参考文献

- (1) N. Tsuyusaki et al., "Reliability of thermocouples experienced in JMTR", in Specialist Meeting on In-Core Instrumentation and the

Assessment of Reactor Nuclear and Thermal/Hydraulic Performance,
Fredrikstad (Norway), 10th-13th October, 1983.

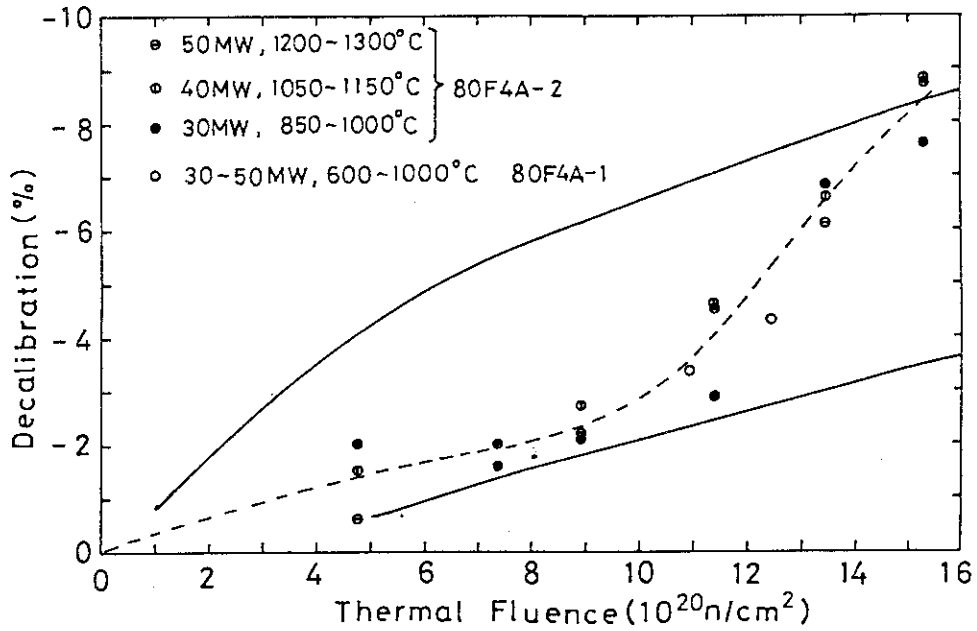


Fig. A1 Decalibration of W-5%Re/W-26%Re thermocouple by neutron irradiation.

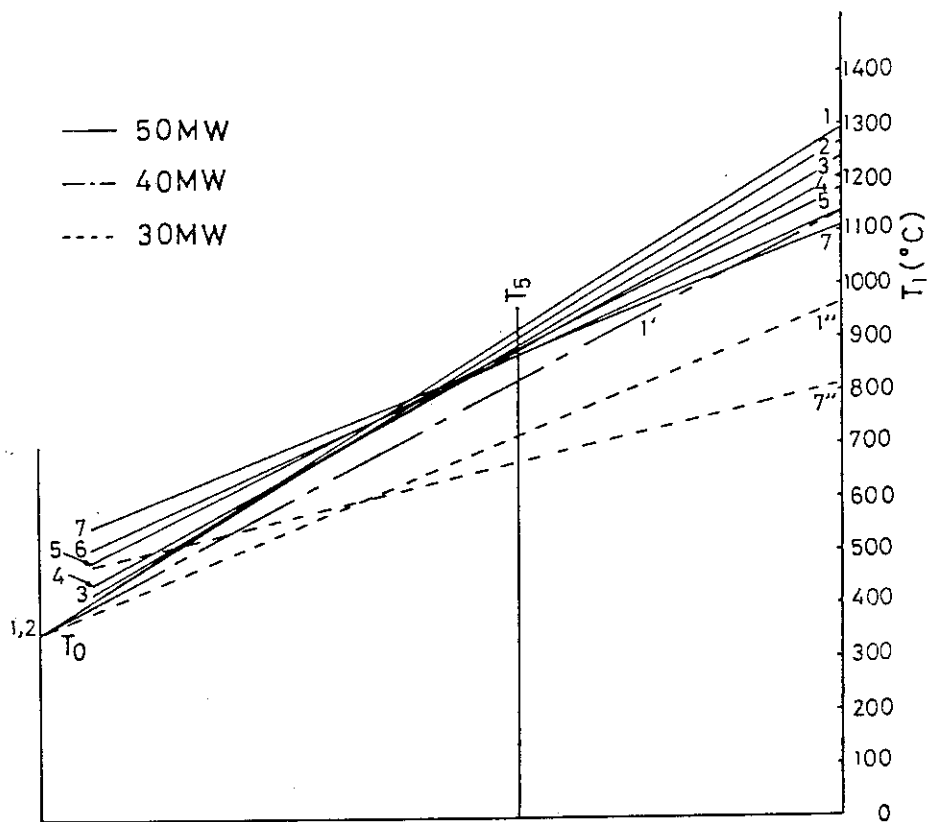


Fig. A2 Axial temperature gradient in the sweep-gas capsule
 80F4A-2: T_1 , W-5%Re/W-26%Re; T_2 , CA; T_0 , hypothetical constant point.

附録B $\text{Ag}^{110\text{m}}$ インベントリーの評価

$\text{Ag}^{110\text{m}}$ の生成過程は複雑である。 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ は Cs^{134} と同じように、直接核分裂生成物ではなく、核分裂生成物の Ag^{109} の中性子捕獲反応によって生成する。しかし、 Cs^{133} の核分裂収率が U^{235} と Pu^{239} とではあまり異ならないのに対し、 Ag^{109} の核分裂収率は U^{235} では約0.03%にすぎないが、 Pu^{239} では約1.65%に達する。したがって、 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ の生成量は燃焼率のなかに Pu^{239} 核分裂の寄与がどれだけ含まれているかに大きく依存する。この意味から、照射試験試料中の $\text{Ag}^{110\text{m}}$ インベントリーを単純に計算で推定することは、いまのところ大きな誤差を含み得る。

我々は UO_2 核中に残留する $\text{Ag}^{110\text{m}}$ を分離回収し、 γ 線スペクトロメトリーにより定量した⁽¹⁾。結果は、 UO_2 核中の残留放射能の比、 $A(\text{Ag}^{110\text{m}})/A(\text{Cs}^{137})$ として整理した(Fig. B1)。というのは $\text{Ag}^{110\text{m}}$ 、 Cs^{137} ともに照射中に UO_2 核から被覆層中に相当量が放出されてしまっているが、既存のデータ⁽²⁾から両者の UO_2 核からの放出割合がほぼ等しいことが予測されたからである。Fig. B1では、 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ 生成量の濃縮度と燃焼率への依存性が現われている。同様のプロットを残留放射能比、 $A(\text{Cs}^{134})/A(\text{Cs}^{137})$ について行くと、燃焼率への一次の依存性が得られるが、Fig. B1ではほぼ二次の依存性が見られている。これは、 Cs^{134} とは異なり、 $\text{Ag}^{110\text{m}}$ 生成量がPu核分裂割合に依存し、Pu核分裂割合は燃焼率とともに増加することによっている。そこで、Fig. B2では横軸に燃焼率(%FIMA)とPu核分裂割合(%Pu fission)との積をとった。この場合、ほぼ一次の依存性が得られ、濃縮度依存性は顕著でなくなる。したがって、JMTR反射体第一層および燃料領域孔で照射された低濃縮 UO_2 について、次の経験式が得られる。

$$A(\text{Ag}^{110\text{m}})/A(\text{Cs}^{137}) = 0.0204 \times \frac{(\% \text{FIMA}) \times (\% \text{Pu fission})}{100}$$

ただし、放射能は照射終了直後に崩壊補正するものとする。

Fig. B1, B2には各測定点の添字として、 Cs^{137} の UO_2 核から被覆層への放出割合(F_K)を示してある。このように、 $F_K(\text{Cs}^{137})$ の値にかかわらず単一の関係式によって残留放射能比が近似できることは、 $F_K(\text{Ag}^{110\text{m}}) \approx F_K(\text{Cs}^{137})$ であり、残留放射能比がインベントリー比をほぼ代表していることを示すものである。

本文Table 3に示した $\text{Ag}^{110\text{m}}$ インベントリーは、実測のある75F5A試料を除いて、上の経験式による評価値である。

参考文献

- (1) T. Ogawa et al., J. Nucl. Mater. (Submitted).
- (2) P.E. Brown and R.L. Faircloth, "Metal Fission Product Behavior in High Temperature Reactors -- UO_2 Coated Particle Fuel", J. Nucl. Mater. 59 (1976) 29.

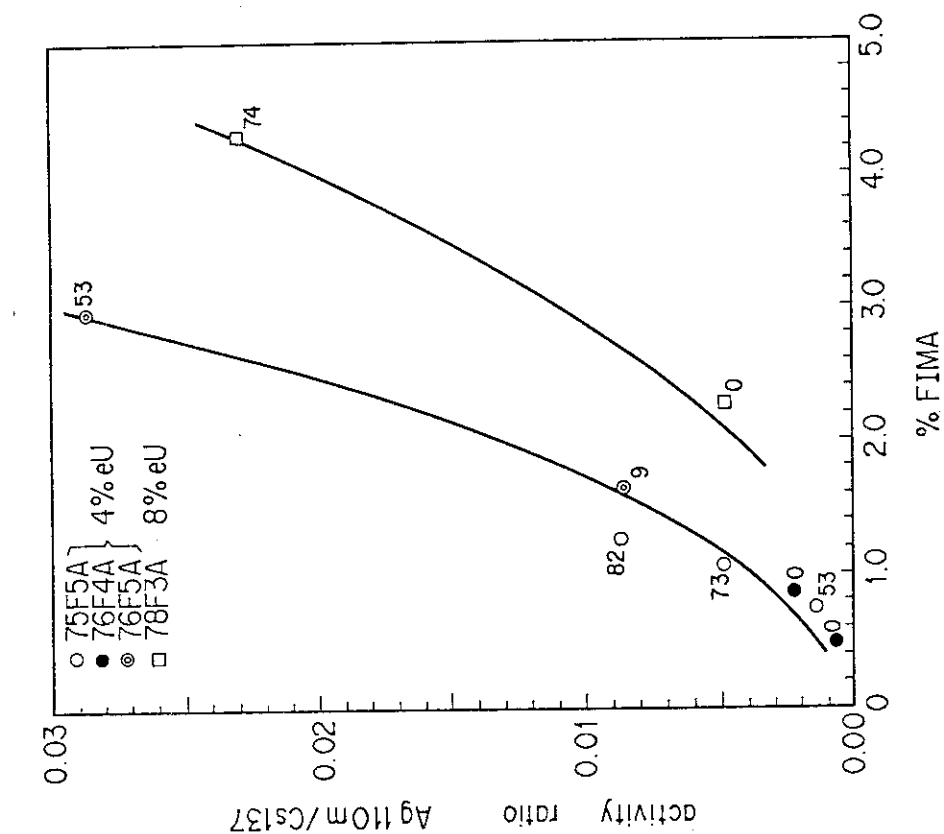


Fig. B1 Residual activity ratio $A(Ag^{110m})/A(Cs^{137})$ in the UO_2 kernel of Triso-coated particle as functions of burnup and U^{235} enrichment. Number denotes $F_K(Cs^{137})$.

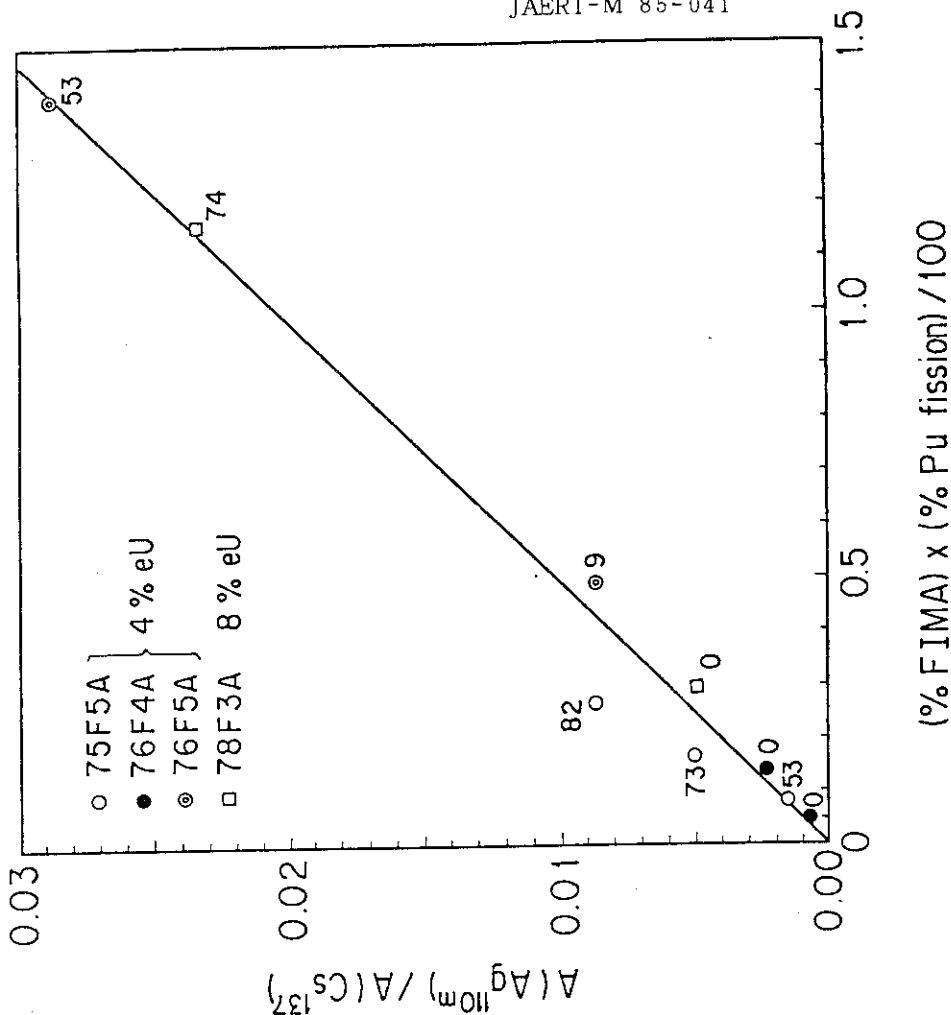


Fig. B2 Residual activity ratio $A(Ag^{110m})/A(Cs^{137})$ in the UO_2 kernel of Triso-coated particle as a function of burnup and percent contribution of Pu fission. Number denotes $F_K(Cs^{137})$.

記 号 表

a	Equivalent sphere radius (cm)
a_K	Kernel radius (cm)
B	Birth rate (atoms/s)
D	Diffusion coefficient (cm^2/s)
D'	Reduced diffusion coefficient (/s) $\equiv D/a^2$
D_1	Effective diffusion coefficient (cm^2/s) $\equiv D' a_K^2$
D_2	Diffusion coefficient in a given coating layer (cm^2/s)
E_γ	Effective gamma-ray energy (MeV/dis)
F	Fractional release from the coated fuel particle
F_K	Fractional release from the fuel kernel into the coating
I	Inventory (atoms or Ci)
L	Thickness of a given coating layer (cm)
N	External accumulation (atoms or Ci)
P	Pressure (atm)
\dot{P}	Palladium penetration rate in SiC ($\mu\text{m}/\text{h}$)
R	Release rate (atoms/s)
R	Gas constant (1,98717 cal/deg·mole or 8.3143 J/deg·mole)
R/B	Release to birth ratio
T	Temperature ($^\circ\text{C}$ or K)
t	time (s)
t_D	Delay time for diffusional release ($\equiv L^2/6D$)
α	Correction factor for release from particles with defective SiC
λ	Decay constant (/s)
ϕ	Through-coating failure fraction
ϕ'	Fraction defective SiC
BOL	Beginning of life
EOL	End of life