

JAERI - M

86-146

貫通破損粒子を含む燃料コンパクトからの短半減期
希ガス・ヨウ素の放出率

1986年10月

小川 徹・福田 幸朔・小林 紀昭

菊池 輝男・飛田 勉・鹿志村 悟

菊地 啓修・山本 克宗

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, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 協高野高速印刷

貫通破損粒子を含む燃料コンパクトからの
短半減期希ガス・ヨウ素の放出率

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・小林 紀昭・菊池 輝男⁺¹
飛田 勉・鹿志村 悟・菊地 啓修・山本 克宗⁺²

(1986年9月19日受理)

ガススweep照射燃料コンパクトについて、短半減期希ガス・ヨウ素の放出率 (R/B) データを整理した。代表核種として ^{88}Kr をえらび、R/Bを貫通破損割合および温度の関数として求める経験式を提出した。その他の希ガス核種のR/Bについては、 ^{88}Kr のR/Bに対する比として求める方法を使った。また、ヨウ素のR/Bを予測する方法を提出した。安全上特に重要な ^{131}I については、 $(R/B)_{\text{I}^{131}} = (R/B)_{\text{Xe}^{135}}$ であることを予測した。

これらの方法にしたがって、OGL-1燃料体(5次, 6次)のR/Bを予測した結果、実測値との良い一致が得られた。

東海研究所： 319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+1 研究炉管理部

+2 大洗研究所材料試験炉部

Fractional Release of Short-lived Noble Gases and Iodine
from HTGR Fuel Compact Containing a Fraction of Coated
Fuel Particles with Through-coating Defects.

Toru OGAWA, Kosaku FUKUDA, Fumiaki KOBAYASHI,
Teruo KIKUCHI⁺¹, Tsutomu TOBITA, Satoru KASHIMURA,
Hironobu KIKUCHI and Katsumune YAMAMOTO⁺²

Department of Fuels and Materials Research,
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 19, 1986)

Fractional release (R/B) data of short-lived noble gases and iodine from sweep-gas irradiated HTGR fuel compacts were analyzed. Empirical formulas to predict R/B of ^{88}Kr as a function of temperature and fraction of through-coating defects, and to calculate ratios of R/B's of other short-lived gases to that of ^{88}Kr were proposed. A method to predict R/B of iodine was also proposed. As for ^{131}I , a fission product of major safety concern, $(\text{R/B})_{\text{I}131} \approx (\text{R/B})_{\text{Xe}133}$ was predicted.

Applying those methods, R/B from OGL-1 fuel element (5th and 6th) was predicted to show a good agreement with observation.

Keywords: HTGR Fuel, Coated Fuel Particle, Short-lived Noble Gases, Iodine, Fractional Release, UO_2 .

+1 Department of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI.

+2 Department of JMTR Project, Oarai, JAERI.

目 次

序 論	1
1. 短半減期希ガス放出率 (R / B) の貫通破損割合 (ϕ) ・照射温度依存性	3
2. 短半減期希ガスの放出率 (R / B) の崩壊定数 (λ) 依存性	5
3. ヨウ素の放出率 (R / B)	7
4. 応用例 - OGL - 1 燃料体の R / B	8
5. 考察 - 文献データとの比較	9
謝 辞	10
付録 先行核種の拡散を考慮した希ガスの放出モデル	11

CONTENTS

Foreword	1
1. R/B of short-lived gases as a function of fraction through-coating defects (ϕ) and irradiation tempera- ture.	3
2. R/B of short-lived gases as a function of decay constant (λ).	5
3. R/B of iodine.	7
4. Application: R/B of OGL-1 fuel.	8
5. Discussion: Comparison with literature data.	9
Acknowledgements	
Appendix: Noble-gas release model considering precursor effect.	10
References	11

序 論

本報告の目的は、主として J M T R ガススリーブ照射燃料コンパクトについて、短半減期希ガス・ヨウ素の放出率 (R / B) データを整理し、R / B 予測のための経験式 (半経験式) の 1 組を提出することである。考察の対象として、貫通破損粒子を 1 粒以上含む燃料コンパクトに限った。ガススリーブ照射試験、燃料の照射前・後の試験の詳細に関しては、それぞれのキャプセルについての報告にゆずることとした。本報告では利用の便を考慮して、結論として R / B 予測のための数式をまず提出し、次いで、経験式の導出法と、その基礎となった 1 連のデータを追記する形式を採った。したがって、各章は次のように構成されている。

- A. 経験式 - R / B 予測のための経験式を提示する
- B. 適用範囲 - 式の応用できる条件を示す
- C. 導出の方法 - 式の導出方法および基礎としたデータを記述する
- D. 結果 - 式の基礎データとの一致を確認する
- E. 問題点 - データの信頼性、式の導出、応用に関する問題点を列挙する

従来、原研の高温ガス炉設計では、燃料ピンを黒鉛ブロックの冷却チャンネルに挿入した、いわゆるピン・イン・ブロック型の燃料形式を採用してきた。燃料ピンは、 UO_2 を核とする四重 (Triso) 被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス中に分散成形したコンパクトを、黒鉛のスリーブに収めたものである。コンパクトの製法はオーバーコート・プレス法と呼ばれる、被覆粒子にフェノール樹脂添加黒鉛粉末を雪玉状につけたものを、圧粉・成形したのち焼成する方法である。標準的な最終焼成温度は $1800^{\circ}C$ である。

貫通破損粒子とは、被覆の第 2 層熱分解炭素、第 3 層炭化ケイ素、第 4 層熱分解炭素を貫通する破損を含む粒子をいう。第 1 層は低密度熱分解炭素なので、健全であってもガス保持能を持たない。貫通破損割合は、製造時には沸騰硝酸溶液で浸出されるウランの割合、すなわち、露出ウラン率で代表される。照射後は、同様に浸出される核分裂生成物の $^{144} (Ce - Pr)$ の割合 (照射後酸浸出率) で表される。

J M T R でのガススリーブ照射試験は、コンパクト成形前のルーズな被覆燃料粒子について 1977 年から、コンパクトについて 1979 年から進められてきた。これまで 10 本のガススリーブキャプセルが照射され、計 13 製造ロットのコンパクト試料について R / B が測定された。うち 1 種は ZrC 被覆粒子を使用し、2 種は燃料照射研究室で自作したものであった。残り 10 種のうち、2 種については製造時貫通破損粒子数は 0 と判定された。したがって、本報告の考察の対象となったのは、主に、残る 8 種の燃料コンパクトである。

上記の他に、日独研究協力の 1 部として、1982 年に西独ユーリッヒ原子力研究所において、国産燃料コンパクト 2 種が照射された。同コンパクトは通常のコンパクトとやや形状が異なっていたが、同一設計の被覆粒子を用い、ほぼ同じ方法で成形、焼成されたものであった。ただし、キャプセル構造上の理由から、コンパクト表層部に無燃料領域を作るため、二度にわたって圧粉成形されたことなどから、貫通破損割合は異例に高くなってしまった。しかし、高温で、高い破損割合における貴重なデータが取得できた。

先に、ルーズな被覆燃料粒子からの希ガスの放出については、福田等によって理論的な解析がなされている⁽¹⁾。しかし、コンパクトについては破損粒子のウランとマトリックス汚染ウランとが分析の上で正確に区別しがたいことと、これら露出ウランの物理的性状、化学形が特定できないことから、経験的あるいは半経験的なR/B予測式の一組を得る方針を取った。

第4章では、これら予測式の応用例として、OGL-1燃料体のR/Bを算出し、実測値と比較した。

1. 短半減期希ガス放出率 (R/B) の 貫通破損割合 (ϕ) ・照射温度依存性

A. 経験式

$$R/B(^{88}\text{Kr}) = \phi \{ 428 \cdot \exp(-16200/T) + 0.0136 \pm 0.0043 \} \quad (1.1)$$

R : 放出速度 (atoms/s)

B : 生成速度 (atoms/s)

ϕ : 貫通破損割合 (製造時露出ウラン率, 照射後酸浸出率)

T : 絶対温度 (K)

ただし, 係数及び定数の上下限は, 基礎データのばらつきの $\pm 1\sigma$ (標準偏差) に対応する。

B. 適用範囲

オーバーコート・プレス法による, 1800°C焼成, UO₂核被覆燃料粒子分散コンパクトで, 貫通破損粒子を1粒以上含むもの。すなわち, ϕ とコンパクト中の全粒子数との積が ~ 1 以上のもの。照射温度は800°C \sim 1600°C。燃焼率は5% FIMA以下。

C. 導出の方法

(解析)

1. 代表核種を⁸⁸Krとした。⁸⁸Krは短半減期Kr同位体のなかでは, 親核種(XeについてI, KrについてBr)の放出の寄与が最も小さいと考えられる⁽³⁾。¹³⁷Xe, ¹³⁸Xeも親核種の寄与が小さいが, 半減期が短すぎてJMTRガススイープ照射では測定精度が悪い。また, 短半減期希ガスの中では⁸⁸Kr(娘⁸⁸Rb)が生物学的毒性が最も大きい⁽⁴⁾。
2. 放出機構として拡散支配を想定した。ただし, 露出ウランの化学形・物理的形狀が特定できないので, 拡散係数は求めない。炉内でのセラミックス燃料中の拡散の一般的知見⁽²⁾に基づき, 高温で熱活性化過程, 低温で照射に起因する過程(非熱活性的, あるいは, 弱い温度依存性)を仮定した。
3. 以下に選択した基礎データについて, 1000°C以下での(R/B)/ ϕ については温度に依存しない定数と仮定して平均値を取った((1.1)式第2項)。それ以上の温度での(R/B)/ ϕ からこの定数項を引いた値について, 最小二乗法によりArrhenius式を当てはめた((1.1)式第1項)。
4. 核種毎の放出率はR/Bの崩壊定数依存性として第2章で取り扱ってある。
5. 破損粒子を1粒も含まないコンパクトの汚染ウランからの放出はここでは扱わない。

(基礎データ)

JMTR ガススイープキャプセルの照射初期放出率 (BOL R/B) と製造時露出ウラン率との関係、および照射末期放出率 (EOL R/B) と照射後酸浸出率との関係 (Table 1.1)。

(基礎データの選択)

Table 1.1 のデータにおいて、製造時露出ウラン率 (ϕ_U) と照射後酸浸出率 (ϕ_A) とが矛盾する場合は、後者を優先させた。以下のデータを除外した。

1. 80FP6A, 84TF9A。コンパクト焼成温度が低い (1400°C)。照射初期では露出ウランの化学形が通常のコンパクト (1800°C 焼成) と異なる可能性がある。
2. 75FP2A。キャプセル装荷試料と ϕ_U 測定試料とで破損粒子数が異なる可能性が高い。後者が0粒破損に対し、前者は1粒程度破損と見做される。
3. 78FP2A の BOL R/B。BOL より EOL の方が R/B が大きいにもかかわらず、 ϕ_U が ϕ_A より大きい。 ϕ_A から見て ϕ_U が過大評価されていると考えられる。
4. 79FP2A の BOL R/B。例えば、78F3A-2 キャプセル試料では R/B は BOL と EOL とで変らない。 ϕ_A から考えて、 ϕ_U が過小評価されているか、被覆の欠陥のため、照射の極初期に貫通破損が発生した。同試料の製造時 SiC 層破損割合は異例に高かった。
5. 83FP1 の BOL R/B。高温における R/B のほうが低温における R/B より小さい。

一方、以下のコンパクト未成形被覆粒子のデータ (Table 1.2) を付加した。

1. 74FC1, 74UC1 の EOL R/B。照射末期の破損粒子のウランの化学形、物理的形狀はコンパクト中のそれに類似すると考える。

D. 結果

Fig. 1 参照。(1.1) 式による計算値を実線で示し、個々のデータと比較した。中央の実線を挟む上下2本の実線は、 $\pm 1\sigma$ に対応する。破線は同一ロットのコンパクトを結んでいる。破損粒子のウランの化学形、形状は、破損発生時の温度、燃焼率、破損発生後の履歴等に応じて様々であり得るので、データのばらつきはある程度不可避と考えられる (第5章参照)。

E. 問題点

1. 製造時露出ウラン率はロット内のばらつきが無視できない。これが Fig. 1 のデータのばらつきにある程度反映していると考えられる。
2. 800°C 以下のデータがほとんど存在しない。(1.1) 式の予測精度の向上のためには、低温でのデータ取得に努める必要がある。
3. 上記経験式中の定数項 (第2項) は、中性子束あるいは燃料の出力密度の関数と考えられる^(2,3)。この点の確認には、JMTR 照射条件より低い中性子束下での測定が必要であろう。
4. EOL R/B については、照射温度および (温度から評価される) B がやや過小評価されている恐れがある。これは現状では、照射による W/Re 中心熱伝対の起電力変化、およびキャプセル内温度分布の変化が明確でないことによる。
5. 破損粒子数0と見做されるほど低い ϕ の場合の R/B を解析するために、マトリックス黒鉛

粒のウラン汚染の精度よい分析法の確立が必要である。この場合、露出ウランに対するR/Bは(1.1)式による予測より大きくなるはずである。

2. 短半減期希ガスの放出率 (R/B) の崩壊定数 (λ) 依存性

A. 経験式

Krについて,

$$(R/B) / (R/B)_{\text{Kr 88}} = K (\lambda_{\text{Kr 88}} / \lambda_{2^*})^{1/2} \quad (2.1)$$

Xeについて,

$$(R/B) / (R/B)_{\text{Kr 88}} = K (2 \lambda_{\text{Kr 88}} / \lambda_{2^*})^{1/2} \quad (2.2)$$

R : 放出速度 (atoms/s)

B : 生成速度 (atoms/s)

$(R/B)_{\text{Kr 88}}$: ^{88}Kr の放出率

$\lambda_{\text{Kr 88}}$: ^{88}Kr の崩壊定数 (/s)

λ_{2^*} : 当該核種の崩壊定数 (/s)

ここで, Kは以下で与えられる。

$$K = (x^3 - 1) / \{ 1.209 (x^2 - 1) \} \quad (2.3)$$

$$x = \alpha (\lambda_{2^*} / \lambda_1)^{1/2} \quad (2.4)$$

λ_1 : 当該核種の親核種の崩壊定数 (/s)

α : 定数 (Xeについて1, Krについて $\sqrt{200}$)

ただし, ^{135}Xe については,

$$\lambda_{2^*} = \lambda_2 + \sigma \phi_{\text{th}} \quad (2.5)$$

σ : 中性子吸収断面積 (cm^2)

(JMTR キャプセルでは $2.08 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$)

ϕ_{th} : 熱中性子束 (/ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)

他については, $\lambda_{2^*} = \lambda_2$ 。

B. 適用範囲

第1章に同じ。ただし, ^{133}Xe については, 適用温度を約 1300°C 以下とする。^(*1)

(*1) 温度が上昇し R/Bが大きくなると (2.1) ~ (2.2) 式は成立しない。半減期の長い ^{133}Xe の R/Bは ^{88}Kr よりかなり大きいので, 適用温度上限が他の核種より低くなる。

粒のウラン汚染の精度よい分析法の確立が必要である。この場合、露出ウランに対するR/Bは(1.1)式による予測より大きくなるはずである。

2. 短半減期希ガスの放出率 (R/B) の崩壊定数 (λ) 依存性

A. 経験式

Krについて,

$$(R/B) / (R/B)_{\text{Kr 88}} = K (\lambda_{\text{Kr 88}} / \lambda_{2^*})^{1/2} \quad (2.1)$$

Xeについて,

$$(R/B) / (R/B)_{\text{Kr 88}} = K (2 \lambda_{\text{Kr 88}} / \lambda_{2^*})^{1/2} \quad (2.2)$$

R : 放出速度 (atoms/s)

B : 生成速度 (atoms/s)

$(R/B)_{\text{Kr 88}}$: ^{88}Kr の放出率

$\lambda_{\text{Kr 88}}$: ^{88}Kr の崩壊定数 (/s)

λ_{2^*} : 当該核種の崩壊定数 (/s)

ここで, Kは以下で与えられる。

$$K = (x^3 - 1) / |1.209(x^2 - 1)| \quad (2.3)$$

$$x = \alpha (\lambda_{2^*} / \lambda_1)^{1/2} \quad (2.4)$$

λ_1 : 当該核種の親核種の崩壊定数 (/s)

α : 定数 (Xeについて1, Krについて $\sqrt{200}$)

ただし, ^{135}Xe については,

$$\lambda_{2^*} = \lambda_2 + \sigma \phi_{\text{th}} \quad (2.5)$$

σ : 中性子吸収断面積 (cm^2)

(JMTR キャプセルでは $2.08 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$)

ϕ_{th} : 熱中性子束 (/ $\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)

他については, $\lambda_{2^*} = \lambda_2$ 。

B. 適用範囲

第1章に同じ。ただし, ^{133}Xe については, 適用温度を約 1300°C 以下とする。^(*1)

(*1) 温度が上昇し R/Bが大きくなると (2.1) ~ (2.2) 式は成立しない。半減期の長い ^{133}Xe の R/Bは ^{88}Kr よりかなり大きいので, 適用温度上限が他の核種より低くなる。

C. 導出の方法

(解析)

1. 各照射試料について、照射初期の R/B の比、照射後期の R/B の比を取った。それらの値について、平均値及び標準偏差を求めた。
2. 上のようにして得られた値について、崩壊系列中の 1 核種の拡散放出に関する数学モデルを当てはめた^(5,6) (付録参照)。崩壊定数、崩壊系列は文献 (21) を参照した。
3. 第 1 章に述べた理由により、拡散係数は求めなかった。

(基礎データ)

JMTR ガススリーブキャプセル照射燃料コンパクトについて、照射初期、後期における、各核種の R/B の、 ^{88}Kr の R/B に対する比 (Table 2.1)。JMTR サイクル終了時の値を用いた。 ^{133}Xe については JMTR 半サイクルを通じて約 1300°C 以下の場合のみ採用した。すなわち、 ^{133}Xe についてのみ、75F5A-1 (50 サイクル)、75F5A-3、78F3A-3 (55 サイクル)、83F1A-T (73 サイクル) のデータを除外した。

D. 結果 実測の R/B 比は以下の通り。^(*)2)

$$\begin{array}{ll} {}^{85\text{m}}\text{Kr} / {}^{88}\text{Kr} = 1.6 \pm 0.5 & {}^{87}\text{Kr} / {}^{88}\text{Kr} = 1.3 \pm 0.1 \\ {}^{133}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 9 \pm 6 & {}^{135}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 1.8 \pm 0.8 \\ {}^{135\text{m}}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 1.6 \pm 0.7 & {}^{138}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 0.41 \pm 0.15 \end{array}$$

これに対し、上式による R/B 比の予測値は、

$$\begin{array}{ll} {}^{85\text{m}}\text{Kr} / {}^{88}\text{Kr} = 1.95 & {}^{87}\text{Kr} / {}^{88}\text{Kr} = 1.09 \\ {}^{133}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 8.87 & {}^{135}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 1.9 \\ {}^{135\text{m}}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 1.88 & {}^{138}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 0.345 \end{array}$$

ただし、予測では ^{135}Xe について $\phi_{\text{th}} = 2 \times 10^{14} / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$ を仮定してある。Fig. 2 に両者を比較する。親核種の放出の寄与を考慮しない、従来の拡散モデル (R/B の $\lambda^{-1/2}$ 依存性) は粗い近似としてしか成立しないことが分かる。両者の良い一致から考えて、上記以外の短半減期希ガス (^{137}Xe , ^{90}Kr 等) の予測についても、上の式を用いることができる。例えば、 $^{137}\text{Xe} / {}^{88}\text{Kr} = 0.190$ 。

E. 問題点

1. ^{133}Xe は測定ガス中の濃度が低く、測定誤差が大きい。
2. $^{135\text{m}}\text{Xe}$ より短半減期のガスについては、サンプリング点までのガスの到達時間 (上では 10 分を仮定) が大きく影響する。^(*)2) ガス到達時間を正確に求める必要があるが、容易ではない。

(*)2) ^{135}Xe については高中性子束下でのみ λ^* が大きくなる。高中性子束場内のスリーブガス滞留時間は十分短いと仮定して、 ^{135}Xe については実測値の崩壊補正は行わなかった。即ち、燃料中の拡散過程での崩壊は λ^* に支配されるが、燃料表面を離脱した後の崩壊は λ に支配される。

3. ヨウ素の放出率 (R/B)

A. 経験式

^{133}I , ^{135}I の R/B を同じ質量数の Xe の R/B に対する比として表す。

$$(R/B)_I / (R/B)_{Xe} = x (x^2 - 1) / (x^3 - 1) \quad (3.1)$$

R : 放出速度 (atoms/s)

B : 生成速度 (atoms/s)

ここで, x は次式で与えられる。

$$x = (\lambda_{Xe} / \lambda_I)^{1/2}$$

ただし, ^{135}Xe については, (2.5) 式で定義された実効崩壊定数を用いる。

^{131}I については, ^{133}I の (3.1) 式による R/B を用いて,

$$\begin{aligned} (R/B)_{I131} &= (R/B)_{I133} (\lambda_{I133} / \lambda_{I131})^{1/2} \\ &= 1.1 (R/B)_{Xe133} \end{aligned} \quad (3.2)$$

とする。

B. 適用範囲 不明。一応, 第1章に準ずるものとする。

C. 導出の方法

(解析)

第2章で導出したモデル式は, Xe とヨウ素との拡散係数の比として, $D(\text{Xe})/D(\text{I}) = 1$ を含意する。(3.1), (3.2) 式は, このことから数学的に導出された(付録参照)。測定データが少なすぎるので, 上式を以下の実測値と比較するに留めた。ヨウ素の R/B は ^{88}Kr のそれとの比としても表せる。しかし, 実験的にヨウ素放出率を求める際, Xe の R/B の ^{88}Kr の R/B に対する比が大きくばらつく(第2章D)ので, 後者の方法を取ると, 予測値と実測値の一致が見掛け上, 悪くなる。

(基礎データ)

75F5A, 78F3A, FRJ2-P26 キャプセル(日独共研)で得られた炉停止後の ^{133}Xe と ^{135}Xe の放出データ。炉停止後は燃料自体からの Xe の放出はなく, ガス中の Xe は配管内の沈着ヨウ素の崩壊によって生じる。炉停止後の Xe 濃度を炉停止時に外挿することによって, 沈着ヨウ素の量, したがって, ヨウ素の R/B を求めることができる。本来は, 炉停止後のスィープガス中の Xe 濃度の減衰は, ヨウ素の半減期にしたがうべきものであるが, 実験結果は決してその通りにはなっていない。その理由としては, (1)炉停止時の破損粒子燃料核の熱衝撃破壊に伴い, 閉気孔内に貯まっていた ^{133}Xe が放出されること, (2)ヨウ素がキャプセル構造物表面層に拡散侵入し, 崩壊生成物の Xe が低温ではその侵入位置から放出されがたいこと, (3)炉停止後相当時間経

過後も燃料からのヨウ素・希ガスの放出が続くこと、などが考えられるが、定かではない。したがって、現状では、この種の実験からのヨウ素の R/B の評価値の信頼性はあまり高くない。

D. 結果

予測値を実験からの評価値と Table 3.1 に比較する。Fig. 3 に見るように、78F3A キャプセルでは、炉停止後に著しい ^{133}Xe の放出がみられた。同図に示した、 ^{88}Kr の濃度の減衰から考えて、この異常放出の影響は6時間後も続いていると考えられる。したがって、同キャプセルの ^{133}Xe については、炉停止後約27時間の時点の測定値のみをもちい、 ^{133}I の半減期 (20.8 h) を用いて、炉停止時に崩壊補正した。その他のキャプセルの Xe 濃度の見かけの半減期も、親のヨウ素の半減期 (^{135}I は 6.6 h) から隔たっている。このうち、見かけの半減期がヨウ素のそれとほぼ一致する、78F3A キャプセルの ^{135}I の R/B は実験からの評価値と (3.1) 式による予測とが良く一致する。 ^{131}I についてはガススリーブキャプセルでの測定値はまだないが、OGL-1 ガスループの沈着量から評価された $(R/B)_{\text{I}131}$ は、 $(R/B)_{\text{Xe}133}$ とほぼ等しくなっている (第4章)。

E. 問題点

1. I の放出率の測定データが少なすぎ、それ自体としてまだデータベースを構成し得ない。
2. 安全上最も重要な ^{131}I の放出率測定法を開発する必要がある。娘の $^{131\text{m}}\text{Xe}$ の放射能が弱すぎて、通常の方法では測定できない。

4. 応用例一 OGL-1 燃料体の R/B

燃料体を構成する各コンパクトの温度について、上式により $(R/B)/\phi$ を求め、それぞれの出力で重みをつけて平均する。温度・出力分布は報告 (7) から採った。3本ピンの5次 OGL-1 燃料体の製造時露出ウラン率、 ϕ_{U} は 1.7×10^{-3} であった。照射1サイクル目 (JMTR 52 サイクル) の ^{88}Kr の R/B の予測値は 3.4×10^{-5} 、実測値は $\sim 3 \times 10^{-5}$ であり、良く一致した。

6次燃料体の照射1サイクル目 (JMTR 59 サイクル) 前半の ^{88}Kr の R/B の温度依存性を予測結果と下に比較する。 ϕ_{U} は 5×10^{-5} 、すなわち、破損粒子数は 0-1/コンパクトであった。燃料体の温度・出力分布では、R/B は最高出力部位 (コンパクト No. 7) の温度でほぼ定まる。計算では、コンパクト No. 4 と No. 9 の中心温度測定値の平均を実効の照射温度とした。下に見る通り、照射温度依存性が良く予測されている。

最高温度 (°C)	実効温度 (°C)	実測 R/B	予測 R/B	実測値/予測値
1115	1057	6.6×10^{-7}	8.29×10^{-7}	0.80
1396	1329	1.4×10^{-6}	1.75×10^{-6}	0.80
1448	1382	1.7×10^{-6}	2.13×10^{-6}	0.80
1478	1404	1.9×10^{-6}	2.36×10^{-6}	0.80

過後も燃料からのヨウ素・希ガスの放出が続くこと、などが考えられるが、定かではない。したがって、現状では、この種の実験からのヨウ素の R/B の評価値の信頼性はあまり高くない。

D. 結果

予測値を実験からの評価値と Table 3.1 に比較する。Fig. 3 に見るように、78F3A キャプセルでは、炉停止後に著しい ^{133}Xe の放出がみられた。同図に示した、 ^{88}Kr の濃度の減衰から考えて、この異常放出の影響は6時間後も続いていると考えられる。したがって、同キャプセルの ^{133}Xe については、炉停止後約27時間の時点の測定値のみをもちい、 ^{133}I の半減期 (20.8 h) を用いて、炉停止時に崩壊補正した。その他のキャプセルの Xe 濃度の見かけの半減期も、親のヨウ素の半減期 (^{135}I は 6.6 h) から隔たっている。このうち、見かけの半減期がヨウ素のそれとほぼ一致する、78F3A キャプセルの ^{135}I の R/B は実験からの評価値と (3.1) 式による予測とが良く一致する。 ^{131}I についてはガススリーブキャプセルでの測定値はまだないが、OGL-1 ガスループの沈着量から評価された $(R/B)_{\text{I}131}$ は、 $(R/B)_{\text{Xe}133}$ とほぼ等しくなっている (第4章)。

E. 問題点

1. I の放出率の測定データが少なすぎ、それ自体としてまだデータベースを構成し得ない。
2. 安全上最も重要な ^{131}I の放出率測定法を開発する必要がある。娘の $^{131\text{m}}\text{Xe}$ の放射能が弱すぎて、通常の方法では測定できない。

4. 応用例 - OGL-1 燃料体の R/B

燃料体を構成する各コンパクトの温度について、上式により $(R/B)/\phi$ を求め、それぞれの出力で重みをつけて平均する。温度・出力分布は報告 (7) から採った。3本ピンの5次 OGL-1 燃料体の製造時露出ウラン率、 ϕ_{U} は 1.7×10^{-3} であった。照射1サイクル目 (JMTR 52 サイクル) の ^{88}Kr の R/B の予測値は 3.4×10^{-5} 、実測値は $\sim 3 \times 10^{-5}$ であり、良く一致した。

6次燃料体の照射1サイクル目 (JMTR 59 サイクル) 前半の ^{88}Kr の R/B の温度依存性を予測結果と下に比較する。 ϕ_{U} は 5×10^{-5} 、すなわち、破損粒子数は 0-1/コンパクトであった。燃料体の温度・出力分布では、R/B は最高出力部位 (コンパクト No. 7) の温度でほぼ定まる。計算では、コンパクト No. 4 と No. 9 の中心温度測定値の平均を実効の照射温度とした。下に見る通り、照射温度依存性が良く予測されている。

最高温度 (°C)	実効温度 (°C)	実測 R/B	予測 R/B	実測値/予測値
1115	1057	6.6×10^{-7}	8.29×10^{-7}	0.80
1396	1329	1.4×10^{-6}	1.75×10^{-6}	0.80
1448	1382	1.7×10^{-6}	2.13×10^{-6}	0.80
1478	1404	1.9×10^{-6}	2.36×10^{-6}	0.80

5次 OGL-1 第1サイクル前半の R/B の比を、Fig. 2 に×印で示す。 ^{137}Xe は予測の R/B の ^{86}Kr に対する比 0.19 に対し実測比は 0.23 であった。

ループ配管内にプレートアウトした ^{131}I 量⁽¹⁹⁾ から、6次 (59 サイクル) の ^{131}I の平衡時^(*) R/B は $\sim 6 \times 10^{-6}$ と評価された。これに対し、(3.2) 式による予測値は $\sim 6 \times 10^{-6}$ であり、良く一致した。同様に、3次～9次燃料体について、 $(R/B)_{\text{I}131} = (R/B)_{\text{Xe}133}$ であることが認められた⁽²⁰⁾。

以上、予測値は実測値と良く一致しているが、この一致は照射の進行とともにやや悪くなる。というのは、OGL-1 では、R/B が所定の照射条件において、暫減する傾向を示すためである⁽¹⁴⁾。この OGL-1 特有の現象の原因はまだ解明されていない。

5. 考察—文献データとの比較

燃料コンパクト中の貫通破損粒子のウランの物理的形狀および化学形は、破損発生前および後の燃料の履歴の関数であろう。この意味で、我々のデータと文献データ (Fig. 4) との比較は容易ではない。

Klersy 等⁽⁸⁾ は、裸の燃料核を分散した燃料コンパクトについて希ガスの R/B を測定した。燃料核は 9.5% 濃縮の高密度 UO_2 であった。コンパクトは健全粒子を約 6000 粒含み、裸の核の含有率は $5 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-2}$ であった。出力密度は 100～150 W/cm、スイープガスは He-Ne 混合気であった。コンパクト焼成温度は不明であるが、NUKEM 社で製造されたことから、西独ボール燃料に準じ 1800℃ 程度と考えられる。被覆層が存在しないことを別とすれば、製造時貫通破損粒子を含むコンパクトの一応の模擬となっていると言えよう。ただし、焼成あるいは照射による燃料核の炭化の程度は、被覆に微細な亀裂がはいった場合より甚だしいはずである。その意味で、破損粒子の燃料核が炭化した場合の放出の上限に相当するであろう。

Findlay⁽⁹⁾ は、被覆層に亀裂を生じさせた粒子からの R/B を測っている。燃料核は 18% 濃縮の高密度 UO_2 であった。CO を添加した He でスイープして、燃料核の炭化を防ぎ、1% FI MA まで照射した。これは、照射中に発生した破損の直後、まだ燃料核がほぼ定比組成の UO_2 に留まっている場合の模擬となっていると考えられる。ただし、コンパクト中の粒子の場合、このようなコンパクト未成形粒子のように亀裂が開かないはずである。また、別に、Turnbull 等⁽³⁾ は多結晶 UO_2 からの短半減期希ガスの放出率が燃焼率とともに上昇することを見出している。1400℃ では、 $\sim 0.2\%$ FI MA から放出率は急増し、 $\sim 0.6\%$ FI MA ではほぼ飽和した。放出率急増時の燃焼率は、出力密度⁽³⁾ や結晶粒径⁽¹⁶⁾ に依存しなかった。これは安定希ガスが燃焼の進行とともに結晶粒界に集ってきて、多結晶体表面に達するトンネルを形成するためである。Turnbull 等が単結晶を用いて求めた短半減期希ガスの拡散係数は、照射下での値としては、最も信頼性が高いものの一つと考えられている。その拡散係数を採用し、高密度 UO_2 核の組織を考慮すると、照射初期の UO_2 核からの R/B は Findlay による値よりかなり小さくなるはずである。したがって、Findlay のデータは、ある程

(*1) JMTR 半サイクルでは放射化学的平衡に達していない。文献(15)にある拡散放出に関する非平衡時の R/B の式を用いて、平衡時の R/B を評価した。

5次 OGL-1 第1 サイクル前半の R/B の比を、Fig. 2 に×印で示す。 ^{137}Xe は予測の R/B の ^{88}Kr に対する比 0.19 に対し実測比は 0.23 であった。

ループ配管内にプレートアウトした ^{131}I 量⁽¹⁹⁾ から、6次 (59 サイクル) の ^{131}I の平衡時^(*) R/B は $\sim 6 \times 10^{-6}$ と評価された。これに対し、(3.2) 式による予測値は $\sim 6 \times 10^{-6}$ であり、良く一致した。同様に、3次～9次燃料体について、 $(R/B)_{\text{I}131} = (R/B)_{\text{Xe}133}$ であることが認められた⁽²⁰⁾。

以上、予測値は実測値と良く一致しているが、この一致は照射の進行とともにやや悪くなる。というのは、OGL-1 では、R/B が所定の照射条件において、暫減する傾向を示すためである⁽¹⁴⁾。この OGL-1 特有の現象の原因はまだ解明されていない。

5. 考察—文献データとの比較

燃料コンパクト中の貫通破損粒子のウランの物理的形狀および化学形は、破損発生前および後の燃料の履歴の関数であろう。この意味で、我々のデータと文献データ (Fig. 4) との比較は容易ではない。

Klersy 等⁽⁸⁾ は、裸の燃料核を分散した燃料コンパクトについて希ガスの R/B を測定した。燃料核は 9.5% 濃縮の高密度 UO_2 であった。コンパクトは健全粒子を約 6000 粒含み、裸の核の含有率は $5 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-2}$ であった。出力密度は 100～150 W/cm、スweepガスは He-Ne 混合気であった。コンパクト焼成温度は不明であるが、NUKEM 社で製造されたことから、西独ボール燃料に準じ 1800℃ 程度と考えられる。被覆層が存在しないことを別とすれば、製造時貫通破損粒子を含むコンパクトの一応の模擬となっていると言えよう。ただし、焼成あるいは照射による燃料核の炭化の程度は、被覆に微細な亀裂がはいった場合より甚だしいはずである。その意味で、破損粒子の燃料核が炭化した場合の放出の上限に相当するであろう。

Findlay⁽⁹⁾ は、被覆層に亀裂を生じさせた粒子からの R/B を測っている。燃料核は 18% 濃縮の高密度 UO_2 であった。CO を添加した He でスweepして、燃料核の炭化を防ぎ、1% FIMA まで照射した。これは、照射中に発生した破損の直後、まだ燃料核がほぼ定比組成の UO_2 に留まっている場合の模擬となっていると考えられる。ただし、コンパクト中の粒子の場合、このようなコンパクト未成形粒子のように亀裂が開かないはずである。また、別に、Turnbull 等⁽³⁾ は多結晶 UO_2 からの短半減期希ガスの放出率が燃焼率とともに上昇することを見出している。1400℃ では、 $\sim 0.2\%$ FIMA から放出率は急増し、 $\sim 0.6\%$ FIMA でほぼ飽和した。放出率急増時の燃焼率は、出力密度⁽³⁾ や結晶粒径⁽¹⁶⁾ に依存しなかった。これは安定希ガスが燃焼の進行とともに結晶粒界に集ってきて、多結晶体表面に達するトンネルを形成するためである。Turnbull 等が単結晶を用いて求めた短半減期希ガスの拡散係数は、照射下での値としては、最も信頼性が高いものの一つと考えられている。その拡散係数を採用し、高密度 UO_2 核の組織を考慮すると、照射初期の UO_2 核からの R/B は Findlay による値よりかなり小さくなるはずである。したがって、Findlay のデータは、ある程

(*) J MTR 半サイクルでは放射化学的平衡に達していない。文献 (15) にある拡散放出に関する非平衡時の R/B の式を用いて、平衡時の R/B を評価した。

度燃焼の進んだ粒子が破損したときの、当初の R/B のほぼ上限に相当するであろう。福田等によるルーズな被覆粒子が照射により破損したときの R/B の評価値⁽¹⁾は、1200°C 付近で、Findlay のデータと良く一致する。

米国 GA 社では、被覆燃料粒子を分散した黒鉛ロッドからの希ガス (^{85m}Kr) の R/B を、照射後の貫通破損割合で除して、1100°C で 0.005⁽¹⁰⁾、1300°C で 0.008⁽¹¹⁾ 付近の値を得た。燃料核は主に高密度炭化物であろうが、 UO_2 核が炭化した場合とは、物理的・化学的状态が大分異なるはずである。ここでは参考値として示す。

Fig. 4 には、GA 社の ^{85m}Kr のデータは ^{88}Kr と比較のために 0.5 を乗じてある。斜線を付したのが、我々のデータの範囲である。また、図には、第 1 章では基礎データから除いた、80FP6A、84TF9A の R/B を星印で示した。80FP6A はバッファ層被覆しか持たない粒子を約 1% 含み、標準より低い 1400°C で焼成された⁽¹²⁾。84TF9A はダイヤモンドドリルで被覆に微小な穴を開けた粒子を含み、やはり 1400°C で焼成された⁽¹³⁾。これら 2 種の模擬破損粒子の核の炭化の程度は、1800°C 焼成の標準のコンパクトにおけるよりも小さかったものと考えられる。事実、84TF9A の R/B は 1200-1350°C で 20 日間のうちに、矢印のように上昇した⁽¹³⁾。ただし、これが炭化の効果によるものか、上述の燃焼の効果によるものかは、今はまだ決めることができない。

80FP6A の R/B が Findlay の破損模擬燃料の R/B と大きく異なる理由は幾つか考えられる。一つの理由としては、雰囲気の違いから、 UO_2 の定比性が異なることが考えられる。 UO_2 中の希ガスの拡散係数は定比性によって著しく変化することが知られている⁽²⁾。また、80FP6A の焼成温度が低いとは言え、燃料核表面の炭化はある程度まで進行していたであろう。さらに、上述した燃焼の効果も考えられる。

以上を要約すれば、貫通破損粒子を含む燃料コンパクトからの希ガスの R/B は、Klersy 等あるいは Findlay による、破損模擬燃料のデータをほぼ上限とした、ある分布を有する。この分布は、貫通破損割合の評価誤差以外に、燃料の製造過程、照射履歴等の種々の因子が関与した、ある程度必然的なものと考えられる。

謝 辞

本報告にまとめたガススweepキャプセル試験は以下の課室の協力によって遂行された。深く感謝の意を表します。

(1) キャプセル設計、制作、照射
大洗研究所材料試験炉部照射 1 課、同 2 課、同 3 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

また、日独共同研究に関して、Dr. H. Nabelek はじめ西独ユーリッヒ研究所 (KFA Juelich) のスタッフに感謝します。

度燃焼の進んだ粒子が破損したときの、当初の R/B のほぼ上限に相当するであろう。福田等によるルーズな被覆粒子が照射により破損したときの R/B の評価値⁽¹⁾は、1200°C 付近で、Findlay のデータと良く一致する。

米国 GA 社では、被覆燃料粒子を分散した黒鉛ロッドからの希ガス (^{85m}Kr) の R/B を、照射後の貫通破損割合で除して、1100°C で 0.005⁽¹⁰⁾、1300°C で 0.008⁽¹¹⁾ 付近の値を得た。燃料核は主に高密度炭化物であろうが、 UO_2 核が炭化した場合とは、物理的・化学的状态が大分異なるはずである。ここでは参考値として示す。

Fig. 4 には、GA 社の ^{85m}Kr のデータは ^{88}Kr と比較のために 0.5 を乗じてある。斜線を付したのが、我々のデータの範囲である。また、図には、第 1 章では基礎データから除いた、80FP6A、84TF9A の R/B を星印で示した。80FP6A はバッファ層被覆しか持たない粒子を約 1% 含み、標準より低い 1400°C で焼成された⁽¹²⁾。84TF9A はダイヤモンドドリルで被覆に微小な穴を開けた粒子を含み、やはり 1400°C で焼成された⁽¹³⁾。これら 2 種の模擬破損粒子の核の炭化の程度は、1800°C 焼成の標準のコンパクトにおけるよりも小さかったものと考えられる。事実、84TF9A の R/B は 1200-1350°C で 20 日間のうちに、矢印のように上昇した⁽¹³⁾。ただし、これが炭化の効果によるものか、上述の燃焼の効果によるものかは、今はまだ決めることができない。

80FP6A の R/B が Findlay の破損模擬燃料の R/B と大きく異なる理由は幾つか考えられる。一つの理由としては、雰囲気の違いから、 UO_2 の定比性が異なることが考えられる。 UO_2 中の希ガスの拡散係数は定比性によって著しく変化することが知られている⁽²⁾。また、80FP6A の焼成温度が低いとは言え、燃料核表面の炭化はある程度まで進行していたであろう。さらに、上述した燃焼の効果も考えられる。

以上を要約すれば、貫通破損粒子を含む燃料コンパクトからの希ガスの R/B は、Klersy 等あるいは Findlay による、破損模擬燃料のデータをほぼ上限とした、ある分布を有する。この分布は、貫通破損割合の評価誤差以外に、燃料の製造過程、照射履歴等の種々の因子が関与した、ある程度必然的なものと考えられる。

謝 辞

本報告にまとめたガススweepキャプセル試験は以下の課室の協力によって遂行された。深く感謝の意を表します。

(1) キャプセル設計、制作、照射
大洗研究所材料試験炉部照射 1 課、同 2 課、同 3 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

また、日独共同研究に関して、Dr. H. Nabelek はじめ西独ユーリッヒ研究所 (KFA Juelich) のスタッフに感謝します。

付録 先行核種の拡散を考慮した希ガスの放出モデル

放出が拡散制御であり、希ガスの親核種の拡散が無視できるとしたとき、放射化学的平衡状態での希ガスの R/B は次式で表される⁽¹⁵⁾。

$$R/B = 3 \left(\coth \sqrt{\mu} / \sqrt{\mu} - 1 / \mu \right) \quad (\text{A.1})$$

$$\mu = \lambda / D' \quad (\text{A.2})$$

ここで D' は換元拡散係数とよばれ、次元は s^{-1} である。いわゆる等価球モデル (Boothモデル) では、粒内拡散係数を D として $D' = D / a^2$ である。a は等価球半径とよばれ、自由表面積 S および体積 V と次式で関係付けられる。

$$3/a = S/V \quad (\text{A.3})$$

Friskney と Speight⁽⁵⁾ は、このモデルを拡張して、希ガス (Xe, Kr) の親核種 (I, Br) の拡散の寄与を考慮に入れた。親核種を添字 1, 娘核種を添字 2 でしめすと、この場合の平衡時の R/B は次式のようになる。

$$R/B = 3 \left[\left(\coth \sqrt{\mu_1} / \sqrt{\mu_1} - 1 / \mu_1 \right) / \Gamma_1 + \left(\coth \sqrt{\mu_2} / \sqrt{\mu_2} - 1 / \mu_2 \right) / \Gamma_2 \right] \quad (\text{A.4})$$

$$\Gamma_1 = 1 - \mu_1 / \mu_2 \quad (\text{A.5})$$

$$\Gamma_2 = 1 - \mu_2 / \mu_1 \quad (\text{A.6})$$

μ が十分大きいとき ($100 \leq \mu$) では、 $\coth \sqrt{\mu} / \sqrt{\mu} - 1 / \mu = 1 / \sqrt{\mu}$ である。したがって、(A.1), (A.4) 式は、それぞれ、

$$R/B = 3 / \sqrt{\mu} \quad (\text{A.1}')$$

および、

$$R/B = (3 / \sqrt{\mu}) (x^3 - 1) / (x^2 - 1) \quad (\text{A.4}')$$

となる。ここで、

$$x = \alpha (\lambda_2 / \lambda_1)^{0.5} \quad (\text{A.7})$$

$$\alpha = (D'_1 / D'_2)^{0.5} \quad (\text{A.8})$$

である。

上述のモデルによる実測値のあてはめは、次のようにして行った。

例えば、 ^{87}Kr と ^{86}Kr について、(R/B) の比の実測値の平均は 1.3 であった (第 2 章 D)。

(A. 4') 式でこれら Kr 同位体の R/B を表し比をとることにより、 α を未知数とする方程式が得られる。今の場合、 $\alpha = 2.3$ と求まる。同様に、 ^{85m}Kr と ^{88}Kr との比からは、 $\alpha = 8$ が得られる。実測値のばらつきを考慮してここでは両者の平均を丸めて、 $D'_{\text{Br}} / D'_{\text{Kr}} = 200$ を採用した。その結果、 ^{88}Kr については、

$$R/B = (3/\sqrt{\mu_{\text{Kr } 88}}) \times 1.209 \quad (\text{A. 9})$$

と書ける。(A. 4'), (A. 9) 式から、次式が得られる。

$$(R/B)_{\text{Xe}} / (R/B)_{\text{Kr } 88} = (\lambda_{\text{Kr } 88} / \lambda_{\text{Xe}})^{0.5} (D'_{\text{Xe}} / D'_{\text{Kr } 88})^{0.5} \cdot (x^3 - 1) / (x^2 - 1) \quad (\text{A. 10})$$

ここで、 x は Xe について (A. 7) 式で表したものである。 ^{133}Xe , ^{135}Xe それぞれについて (A. 10) 式を用い、さらに両者の比をとることによって、 $\alpha = (D'_{\text{I}} / D'_{\text{Xe}})^{0.5}$ を未知数とする方程式が得られる。実測値の平均、 $(R/B)_{\text{Xe } 133} / (R/B)_{\text{Xe } 135} = 9 / 1.8$ から、 $\alpha = 0.9$ となる。この α を (A. 10) 式に代入すると、 $(D'_{\text{Xe}} / D'_{\text{Kr}})^{0.5} = 1.47$ と求まる。

こうして、第2章 (2.1) ~ (2.4) 式は、

$$D'(\text{Kr}) = D'(\text{Xe}) / 2 \quad (\text{A. 11})$$

$$D'(\text{I}) = D'(\text{Xe}) \quad (\text{A. 12})$$

$$D'(\text{Br}) = 200 D'(\text{Kr}) \quad (\text{A. 13})$$

と置いた場合に等しい。これは、Turnbull 等⁽³⁾による UO_2 中の拡散係数の関係に等しい。照射下で $D(\text{I}) = D(\text{Xe})$ を示唆するデータは他にも UO_2 ^(6,17,18) については幾つか存在する。しかし、我々の試料の場合、露出ウランが UO_2 として存在しているとは限らない。

本文第3章にも述べたように、ヨウ素についてはまだデータが十分ではないので、(A. 12) の関係に基づいて R/B の予測式を導出した。(3.1) 式は $(R/B)_{\text{I}}$ を (A. 1') 式によって、 $(R/B)_{\text{Xe}}$ を (A. 4') 式によって表し、両者の比を取るることによって得られる。また、(3.2) 式は (A. 1') 式と (3.1) 式とから導出される。

参 考 文 献

1. K. Fukuda et al., J. Nucl. Sci. Technol. 19 (1982) 889.
2. H. J. Matzke, Rad. Eff. 53 (1980) 113.
3. J. A. Turnbull et al., J. Nucl. Mater. 107 (1982) 168.
4. S. D. Su and A. W. Barsell, GA-A-16086 (1980).
5. C. A. Friskney and M. V. Speight, J. Nucl. Mater. 62 (1976) 89.
6. A. D. Appelhans et al., NUREG/CR-2298 (1981).
7. 福田 幸朔 他, JAERI-M 84-183 (1984).
8. R. Klersy et al., EUR 5363e (1975).
9. J. R. Findlay, cited by F. Homan et al., Juel-1502 (1978).
10. R. D. Burnette et al., in "Nuclear Fuel Performance" (BNES, 1973), session 10, paper No 16.
11. F. E. Vanslager et al., GA-10073 (1970)
12. 菊池 輝男, 原研所内報告。
13. 飛田 勉, 原研所内報告。
14. 福田 幸朔 他, JAERI-M 86-092 (1986).
15. S. D. Beck, BMI-1433 (1960).
16. J. A. Turnbull and C. A. Friskney, J. Nucl. Mater. 71 (1978) 238.
17. I. J. Hastings et al., Res Mechanica 6 (1983) 1673.
18. J. R. Findlay, in "Chemical Nuclear Data", (The Institution of Civil Engineers, London, 1972), p. 91.
19. 松本 実喜夫, 露崎 典平, 原研所内資料。
20. 小林 紀昭 他, 原研所内資料。
21. C. M. Lederer and V. S. Shirley eds., Table of Isotopes, 7th ed., Wiley, New York, 1978.

Table 1.1 R/B of ^{88}Kr from sweep-gas irradiated HTGR fuel compact

Sample	Pre-irrad. exposed U ^a	No. of particles ^b	No. defect. particles ^c	Capsule	BOL R/B (^{88}Kr)	T(°C)	EOL R/B (^{88}Kr)	T(°C)	Burnup (%FIMA)	PIE leached ^d
75FP4A	9.5×10^{-5}	12250	~1	75F5A-1	1.8×10^{-6}	1180	-	-	1.0	5×10^{-4}
75FP2A	1.1×10^{-5}	15050	~0	75F5A-2	2.7×10^{-6}	1400	-	-	1.6	5×10^{-4}
75FP3A	4.4×10^{-5}	19600	~1	75F5A-3	1.3×10^{-6}	1200	-	-	1.2	4×10^{-4}
76FP1A	1.2×10^{-4}	4500	0~1	76F5A-1	5.8×10^{-6}	1280	8.9×10^{-7}	970	2.1	1×10^{-4}
78FP2A	1.9×10^{-4}	4400	~1	76F5A-3	5.2×10^{-7}	1380	7.5×10^{-7}	970	3.2	6×10^{-5}
79FP2A	4.5×10^{-4}	2400	~1	78F3A-1	4.7×10^{-5}	1080	5.5×10^{-5}	(800)	2.9	4×10^{-3}
				78F3A-2	2.9×10^{-4}	1250	3.6×10^{-4}	1210	4.9	1×10^{-2}
				78F3A-3	1.4×10^{-4}	1240	1.3×10^{-3}	1290	3.7	2×10^{-2}
80FP5A	0.015	2500	~40	FRJ2-F1	4.8×10^{-4}	1440	3.5×10^{-3}	1550	3.7	-
				FRJ2-F1	8.7×10^{-4}	1515	1.0×10^{-2}	1510	4.6	-
80FP6A ^e	0.013	2500	~30	FRJ2-F1	1.4×10^{-4}	1275	1.0×10^{-3}	1370	4.3	-

(Continued)

Table 1.1 (Continued)

Sample	Pre-irrad. exposed U ^a	No. of particles ^b	No. defect. particles ^c	Capsule	BOL R/B (⁸⁸ Kr)	T(°C)	EOL R/B (⁸⁸ Kr)	T(°C)	Burnup (%FIMA)	PIE leached ^d
83FP1	1.6x10 ⁻³	21000	~30	83F1A-T	2.2x10 ⁻⁵	1490	-	-	-	-
				83F1A-B	4.0x10 ⁻⁵	1370	-	-	-	-
84FP1	5.0x10 ⁻⁴	8000	~4	84F8A	9.5x10 ⁻⁶	1420	-	-	-	-
84TF9A ^f	(4x10 ⁻⁴)	10000	(4)	84F9A	9.9x10 ⁻⁷	1190	-	-	-	-

a. Exposed uranium fraction measured on a compact from the same fabrication lot.

b. Number of particles per compact.

c. Estimated number of particles with through-coating defects by (a)x(b).

d. Fraction of ¹⁴⁴Ce-Pr leached by nitric acid.

e. Containing ~1% of buffer-coated particles. Heat treated at 1400°C in contrast with 1800°C for the standard compacts.

f. Containing four diamond-drilled particles. Heat treated at 1400°C in contrast with 1800°C for the standard compacts.

Table 1.2 R/B of ⁸⁸Kr from sweep-gas irradiated Triiso-coated UO₂ particles.

Sample	Pre-irrad. exposed U ^a	No. of particles ^b	No. defect. particles ^c	Capsule	BOL R/B (⁸⁸ Kr)	T(°C)	EOL R/B (⁸⁸ Kr)	T(°C)	Burnup (%FIMA)	PIE leached ^d
74FC1	<1x10 ⁻⁴	10700	~0	74F9J-2	5.8x10 ⁻⁷	1270	2.9x10 ⁻⁴	1600	2.0	2x10 ⁻³
74UC1	1.5x10 ⁻⁴	10400	~2	74F9J-3	7.1x10 ⁻⁷	900	4.4x10 ⁻⁶	1120	1.4	3x10 ⁻⁴

a~d : same with those in Table 1.1 except that b gives number of loose particles irradiated.

Table 2.1 Ratios of R/B's of short-lived noble gases to that of ^{88}Kr at the end of JMTR cycle.

Sample	Capsule	JMTR cycle	Temp (°C)	^{85}mKr	^{87}Kr	^{133}Xe	^{135}Xe	$^{135\text{m}}\text{Xe}$	^{138}Xe
75FP4A	75F5A-1	49	1270 (1220-1290)	1.9	1.3	7.6	3.0	2.3	0.25
		50	1450 (1420-1450)	1.7	1.4	4.7	1.8	1.5	0.29
75FP3A	75F5A-3	49	1240 (1240-1350)	1.9	1.3	7.1	3.0	2.65	0.29
		50	1390 (1390-1490)	1.7	1.4	7.5	2.3	2.3	0.42
76FP1A	76F5A-1	52	1280	1.2	1.1	-	2.1	1.7	0.20
		57	970	1.9	1.3	-	0.93	0.92	0.38
79FP2A	78F3A-1	55	1030 (1010-1080)	2.9	1.4	3.6	0.48	0.36	0.33
		58	(800)	1.7	1.4	4.0	0.69	0.62	0.28
	78F3A-2	55	1280 (1250-1310)	0.41	1.3	13	0.71	0.89	0.49
		58	1210 (1210-1250)	1.7	1.4	9.2	1.4	1.5	0.64
	78F3A-3	55	1240 (1240-1330)	1.1	1.2	3.1	0.86	0.80	0.36
		58	1290 (1270-1290)	1.6	1.2	20	2.4	-	-
83FP1	83F1A-B	70	1375	0.90	1.5	-	2.0	1.9	0.52
		73	1150 (1150-1270)	1.6	1.5	2.8	2.3	1.9	0.62
	83F1A-T	70	1490	1.7	1.4	-	1.9	2.3	0.70
		73	1120 (1120-1370)	1.7	1.3	3.7	2.9	1.7	0.39

Table 3.1 Comparison of experimentally estimated R/B of iodine, $(R/B)_{i-e}$, and model prediction, $(R/B)_{i-t}$.

I 133

Capsule	Temp. (°C)	$(R/B)_{x-e}$	$(R/B)_{i-e}$	$(R/B)_{i-t}$	$(R/B)_{i-e}/(R/B)_{i-t}$
78F3A-2	~1300	2.7×10^{-3}	2.7×10^{-4}	9.8×10^{-4}	0.28
78F3A-3	~1250	4.3×10^{-4}	1.5×10^{-4}	1.5×10^{-4}	1.0
FRJ2-F1-1	1550	1.9×10^{-2}	3.6×10^{-3} (35h)*	6.8×10^{-3}	0.53
FRJ2-F1-2	1510	6.3×10^{-2}	2.0×10^{-2} (13h)	2.3×10^{-2}	0.87
FRJ2-F1-3	1370	4.6×10^{-3}	1.1×10^{-3} (16h)	1.6×10^{-3}	0.69

I 135

Capsule	Temp. (°C)	$(R/B)_{x-e}$	$(R/B)_{i-e}$	$(R/B)_{i-t}$	$(R/B)_{i-e}/(R/B)_{i-t}$
75F5A-2	~ 800	1.4×10^{-6}	6.8×10^{-7} (7.9h)*	1.3×10^{-6}	0.52
78F3A-2	~1300	1.5×10^{-4}	1.5×10^{-4} (7.1h)	1.4×10^{-4}	1.1
78F3A-3	~1250	1.2×10^{-4}	8.4×10^{-5} (7.1h)	1.1×10^{-4}	0.76
FRJ2-F1-1	1550	2.4×10^{-3}	1.5×10^{-3} (46h)	2.2×10^{-3}	0.68
FRJ2-F1-2	1510	6.3×10^{-3}	3.2×10^{-3} (47h)	5.8×10^{-3}	0.55
FRJ2-F1-3	1370	7.3×10^{-4}	6.8×10^{-4} (19h)	6.7×10^{-4}	1.0

* Apparent half-life.

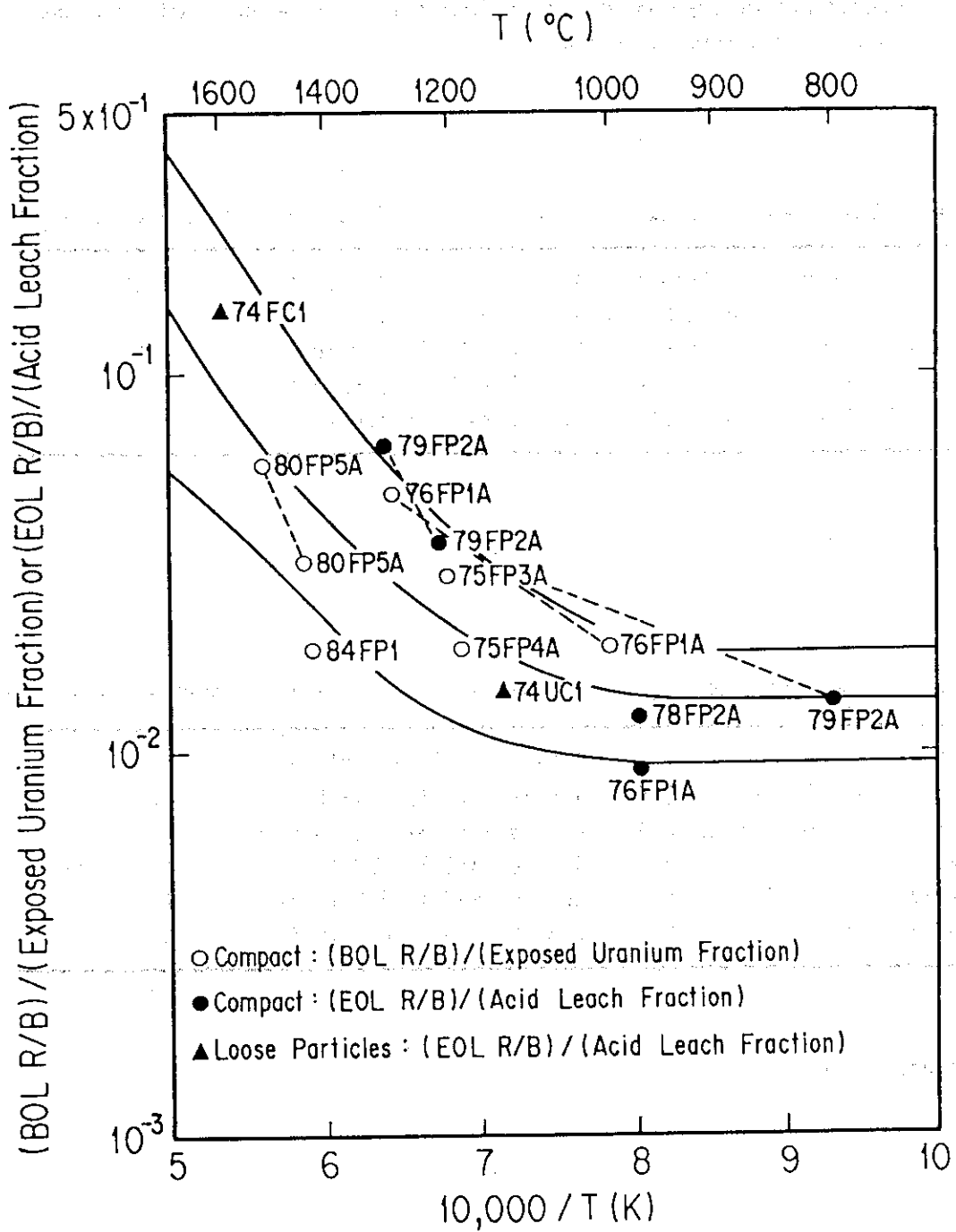


Fig. 1 R/B of ⁸⁸Kr divided by fraction of through-coating defects as a function of irradiation temperature.

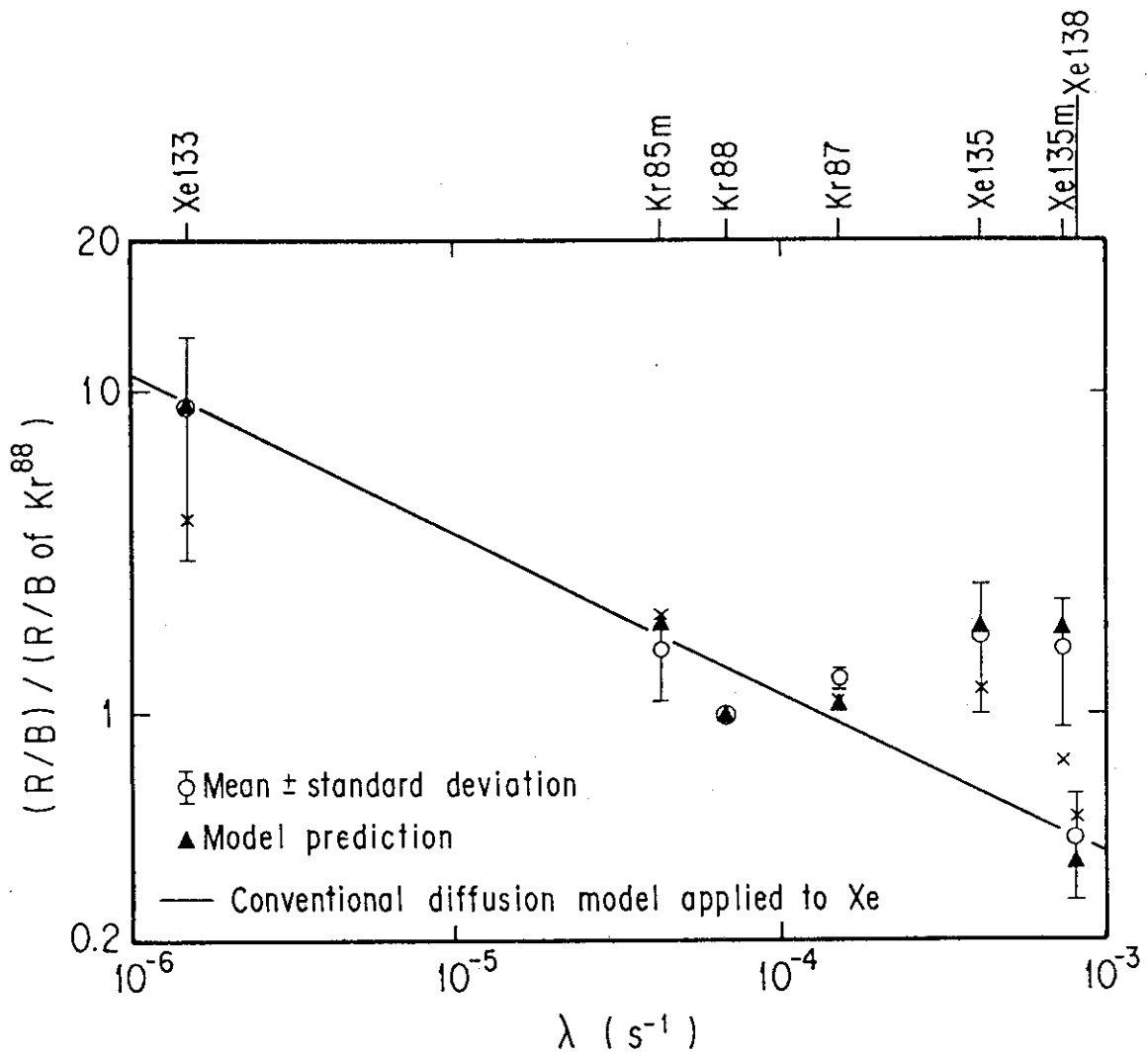


Fig. 2 R/B of short-lived noble gases as a function of decay constant (λ). Conventional diffusion model predicts $R/B \propto \lambda^{-0.5}$, but it is only a rough approximation.

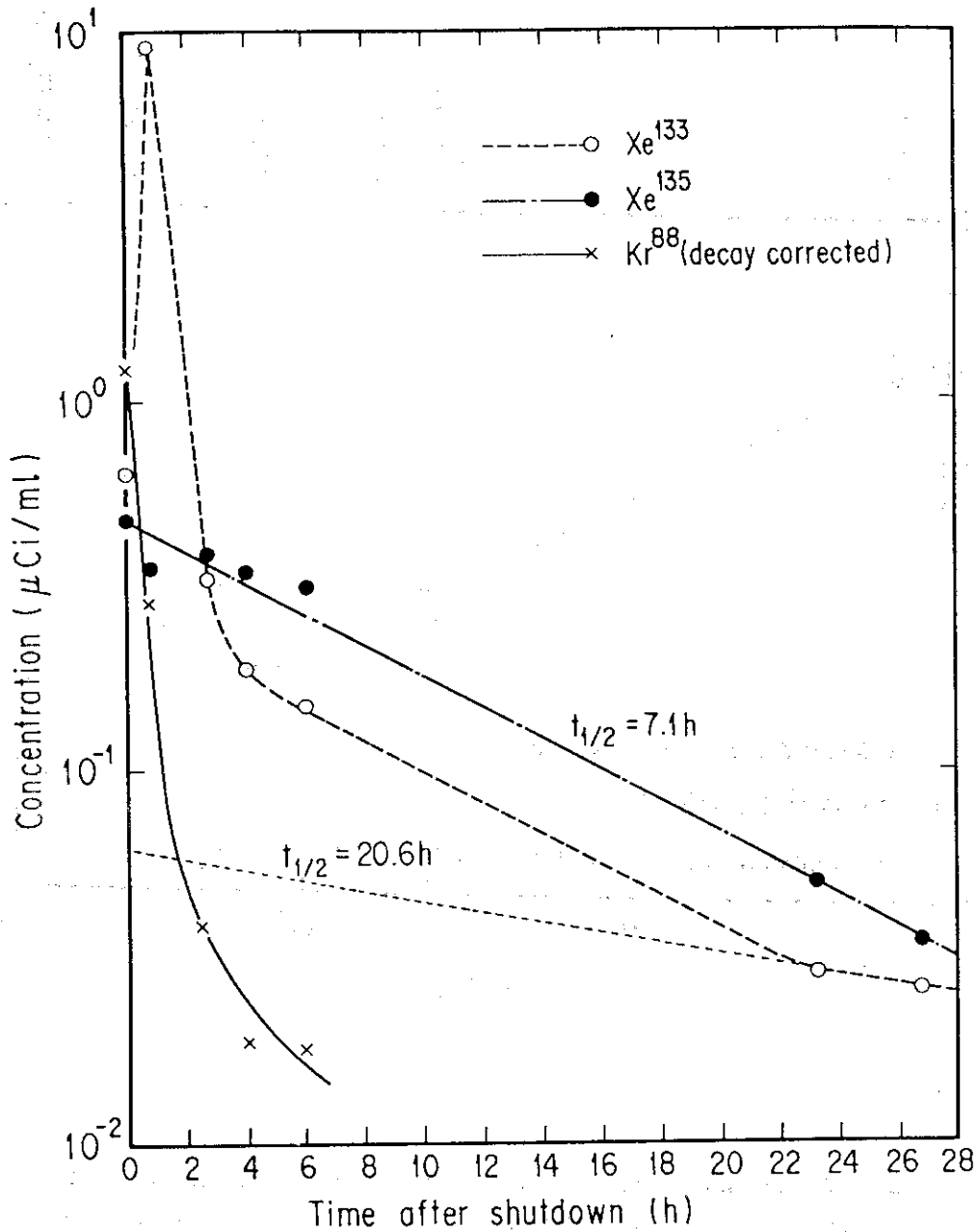


Fig. 3 Concentration of noble gases in sweep gas after reactor shutdown (78F3A-2 capsule). There is a cooling burst of ^{133}Xe whose effect would persist even after 6h, considering decline of ^{88}Kr concentration. Apparent half-life of ^{135}Xe concentration roughly agrees with the half-life of ^{135}I , 6.6h.

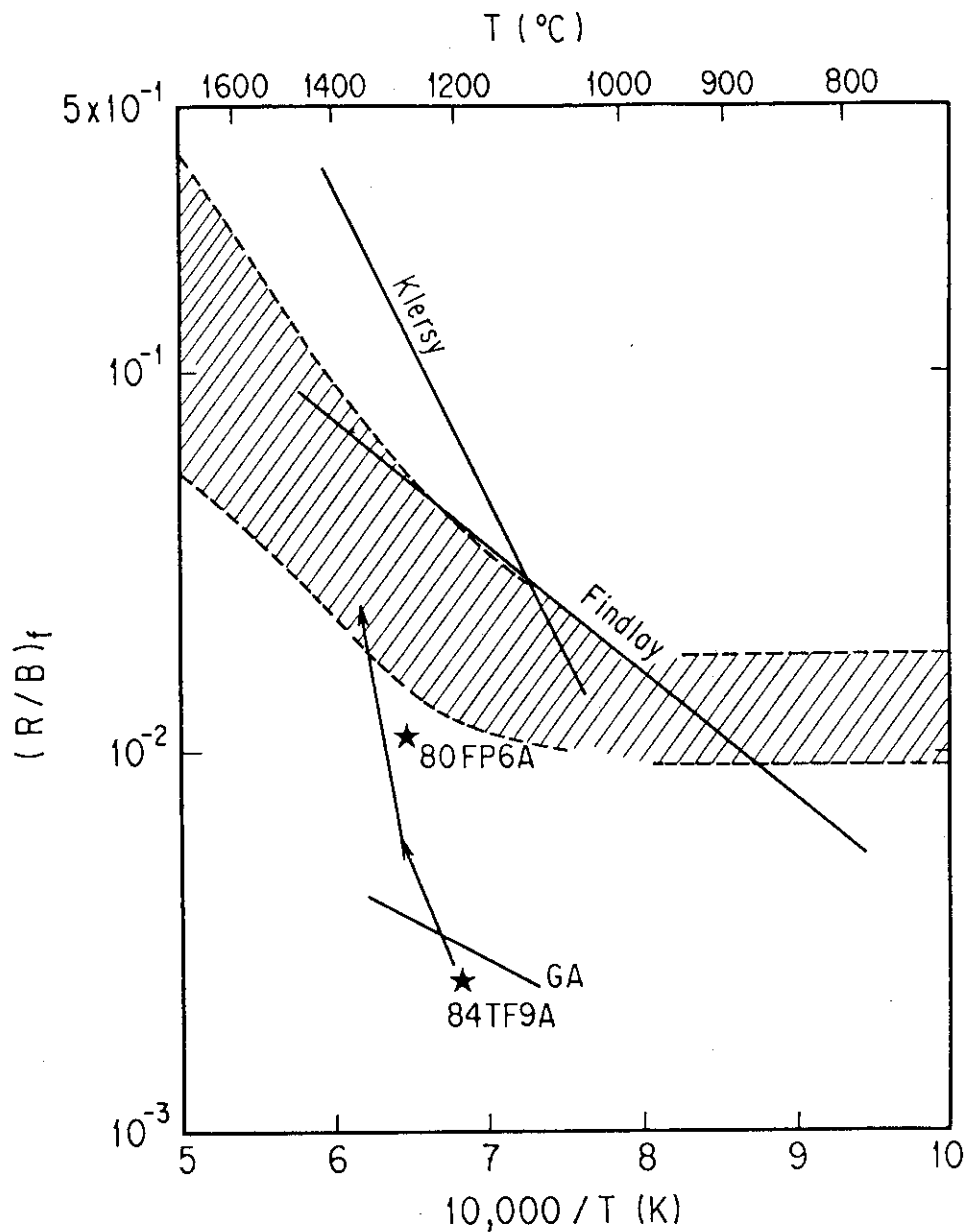


Fig.4 R/B of a failed coated fuel particle, $(R/B)_f$. Present estimates are shown by shaded region. $(R/B)_f$ by Klersy et al. (8) was obtained on fuel compacts containing bare UO_2 kernels; that by Findlay (9) was on artificially cracked coated UO_2 particles. GA data are the average $(R/B)_f$ of various fuel rods and laser-drilled coated particles. 80FP6A contained about 1% of buffer-coated UO_2 particles; 84TF9A contained diamond-drilled coated UO_2 particles. Both 80FP6A and 84TF9A were heat treated at $1400^\circ C$ in contrast with $1800^\circ C$ for the standard fuel compacts.