

JAERI - M
88-210

第9次および第10次 OGL-1 燃料体の黒鉛スリーブ
および黒鉛ブロック中の核分裂生成物の分布

1988年10月

林 君夫・小林 紀昭・湊 和生
足立 守・福田 幸朔

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

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。
入手の間合わせは、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, 1988

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 桜高野高速印刷

第9次および第10次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブおよび
黒鉛ブロック中の核分裂生成物の分布

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

林 君夫・小林 紀昭・湊 和生
+
足立 守・福田 幸朔

(1988年9月27日受理)

第9次および第10次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブおよび黒鉛ブロック中の金属核分裂生成物(FP)の分布を旋盤切削とガンマ線スペクトル分析によって測定した。これらの燃料体は原研で開発中の高温工学試験研究炉(HTTR)のための量産設備によって製造した高温ガス炉燃料コンパクトを装荷し、炉内ガスループOGL-1中で照射したものである。スリーブ中で検出されたFPは ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb および $^{110\text{m}}\text{Ag}$ である。しかし、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は不純物として含有されている安定同位体 ^{109}Ag の放射化によって生成した可能性がある。 ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{144}Ce および ^{125}Sb については黒鉛スリーブの有効な保持性能が見られたが、 ^{137}Cs および ^{134}Cs については見られなかった。黒鉛ブロック中の ^{137}Cs の濃度は冷却材の上流側より下流側のほうが明らかに高かった。これは ^{137}Cs が冷却材流れに沿って移動し、黒鉛ブロックの表面に収着したためであると考えられる。

Distribution of Fission Products in Graphite Sleeves and
Blocks of The Ninth and Tenth OGL-1 Fuel Assemblies

Kimio HAYASHI, Fumiaki KOBAYASHI, Kazuo MINATO
Mamoru ADACHI⁺ and Kousaku FUKUDA

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

(Received September 27, 1988)

Distribution of fission products in graphite sleeves and blocks of the ninth and tenth OGL-1 fuel assemblies was measured by gamma spectrometry with lathe sectioning. The assemblies were loaded with HTGR fuel compacts, which had been produced by a scaled-up facility for the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) being developed by JAERI; and they were irradiated in an in-pile gas loop, OGL-1. Fission products detected in the sleeves were ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{155}Eu , ^{154}Eu , ^{144}Ce , ^{125}Sb and $^{110\text{m}}\text{Ag}$. The last nuclide, however, may have been produced by activation of a stable isotope, ^{109}Ag , contained as impurity. Effective retention capability of the sleeve was observed for ^{155}Eu , ^{154}Eu , ^{144}Ce and ^{125}Sb ; while, not for ^{137}Cs and ^{134}Cs . Concentration of ^{137}Cs in the graphite blocks was markedly higher at the downstream side than at the upstream side of the coolant. This was ascribed to migration of the nuclide with the coolant flow and its subsequent sorption on the surface of the block.

Keywords: Distribution, Fission Product, Fuel, HTGR, Cesium, Silver, OGL-1,
Diffusion, Release, Graphite

+ Department of Research Reactor Operation

目 次

1. はじめに	1
2. 実 験	5
2.1 試 料	5
2.2 照 射	5
2.3 放射能分布測定	5
3. 結 果	18
3.1 第9次OGL-1燃料体中の核分裂生成物分布	18
3.1.1 黒鉛スリーブ軸方向分布	18
3.1.2 黒鉛ブロック軸方向分布	18
3.1.3 黒鉛スリーブ径方向分布	19
3.2 第10次OGL-1燃料体中の核分裂生成物分布	20
3.2.1 黒鉛スリーブ軸方向分布	20
3.2.2 黒鉛ブロック軸方向分布	20
3.2.3 黒鉛スリーブ径方向分布	20
4. 考 察	31
4.1 各核種の生成源	31
4.2 黒鉛スリーブ中への核分裂生成物の放出割合	34
4.3 冷却材流れの影響	37
4.4 OGL-1配管のプレートアウト放射能との関連	38
5. 結 論	59
謝 辞	60
参考文献	61
付録1 第9次および第10次OGL-1燃料体の黒鉛内筒軸方向の 核分裂生成物分布 (図)	65
付録2 第9次OGL-1燃料体黒鉛スリーブ径方向の ¹³⁷ Csの 規格化濃度分布 (図)	68
付録3 第10次OGL-1燃料体黒鉛スリーブ径方向の ¹³⁷ Csの 規格化濃度分布 (図)	75

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	5
2.1 Specimen	5
2.2 Irradiation	5
2.3 Measurement of activity distribution	5
3. Results	18
3.1 Distribution of fission products in the ninth OGL-1 fuel assembly	18
3.1.1 Axial distribution in graphite sleeve	18
3.1.2 Axial distribution in graphite block	18
3.1.3 Radial distribution in graphite sleeve	19
3.2 Distribution of fission products in the tenth OGL-1 fuel assembly	20
3.2.1 Axial distribution in graphite sleeve	20
3.2.2 Axial distribution in graphite block	20
3.2.3 Radial distribution in graphite sleeve	20
4. Discussion	31
4.1 Origin of each nuclide	31
4.2 Fractional releases of fission products into graphite sleeve	34
4.3 Influence of coolant flow	37
4.4 Relation with plate-out activity on piping of OGL-1	38
5. Conclusions	59
Acknowledgements	60
References	61
Appendix 1 Axial distribution of fission products in graphite inner-tubes of the ninth and tenth OGL-1 fuel assemblies	65
Appendix 2 Radial distribution of normalized concentration of ¹³⁷ Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly (figures)	68
Appendix 3 Radial distribution of normalized concentration of ¹³⁷ Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly (figures)	75

1. はじめに

高温ガス炉燃料は、共通して被覆燃料粒子（以下、被覆粒子）を用いるものの、燃料体（燃料要素）の形状や構造はFig. 1.1に示す様々なものが開発されてきた⁽¹⁻⁸⁾。このうち現在使用または研究されているのは、西独のペブル型^(7,9,10)、米国のマルチホール型^(2,11)および日本のピイ・イン・ブロック型^(12,13)である。ペブル型はAVR（Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor）およびTHTR（Thorium Hochtemperatur Reaktor）に用いられている球状燃料要素で、Fig. 1.2に示す3つのタイプのものが開発されてきたが、最近（AVR-IIIおよびTHTR）は全てラバープレス型（molded type）になっている。一方、マルチホール型はFig. 1.3に示すFort Saint Vrain炉（FSV）に用いられているもので、燃料体は六角柱黒鉛ブロックの多数の小孔中に、被覆粒子を黒鉛マトリックスに分散したもの（fuel rodと称する）を収納する構造となっている。原研で建設予定の高温工学試験研究炉（High Temperature Engineering Test Reactor, 以下HTTR）の燃料体はピン・イン・ブロック型であり、1970年代初めにDECADの共同プロジェクトとして運転されたDragon炉⁽²⁾に似た構造である。その構造をFig. 1.4に示す。

黒鉛および黒鉛マトリックスは核分裂生成物（以下、FP）の障壁機能を持つ材料として、被覆粒子の被覆層に次ぐ第2番目の幾何学的位置にあり、それぞれの型の炉の開発においてFP移行挙動が詳しく調べられてきた。ペブル燃料では直径60mmのうち外周部（厚さ5mm）は無燃料領域であり、照射済燃料の無燃料領域中のFP分布^(14,15)が調べられた。また黒鉛マトリックス中のFP移行⁽¹⁶⁾やFP放出^(17,18)に関する研究も行われた。また、Peach Bottom炉⁽¹⁹⁻²¹⁾、FSV炉⁽²²⁾の開発に関連して黒鉛材料や黒鉛マトリックス中のFP移行挙動が調べられた。特に炉内ガスループ照射によってFP挙動を調べたものとしては、GAT（General Atomic Technologies）社のGail^(23,24)、英国AEREのPluto⁽²⁵⁾、フランスSaclayのSSL-1⁽²⁶⁾によるものがある。

原研においては、大洗研究所の材料試験炉（JMTR）内に設置した高温高圧の炉内ガスループOGL-1（Oarai Gas Loop-1）⁽²⁷⁾において、HTTR燃料体を模擬した燃料体の照射を行ない、その健全性に関する知見を得ると共に、気体FPおよび金属FPの放出挙動を調べてきた⁽²⁸⁻³³⁾。また、JMTR密封キャプセル照射を行なった燃料棒の黒鉛スリーブ中の金属FP分布測定⁽³⁴⁾や、非照射黒鉛材⁽³⁵⁻³⁸⁾および黒鉛マトリックス^(37,39)中のFP拡散挙動の研究も行なってきた。

本報告書はOGL-1照射を行なった第9次および第10次燃料体の黒鉛スリーブおよび黒鉛ブロック中の金属FP分布を測定し、その移行挙動を調べた結果の速報である。これらの燃料体に用いられた燃料は製造企業において量産規模の製造装置を用いて製造した第1作目および第2作目の試作燃料であり、その照射試験結果はHTTRの安全審査の際のデータとして重要な意味を持つものである。これらの燃料体の照射および照射後試験全体については別に報告する予定である。

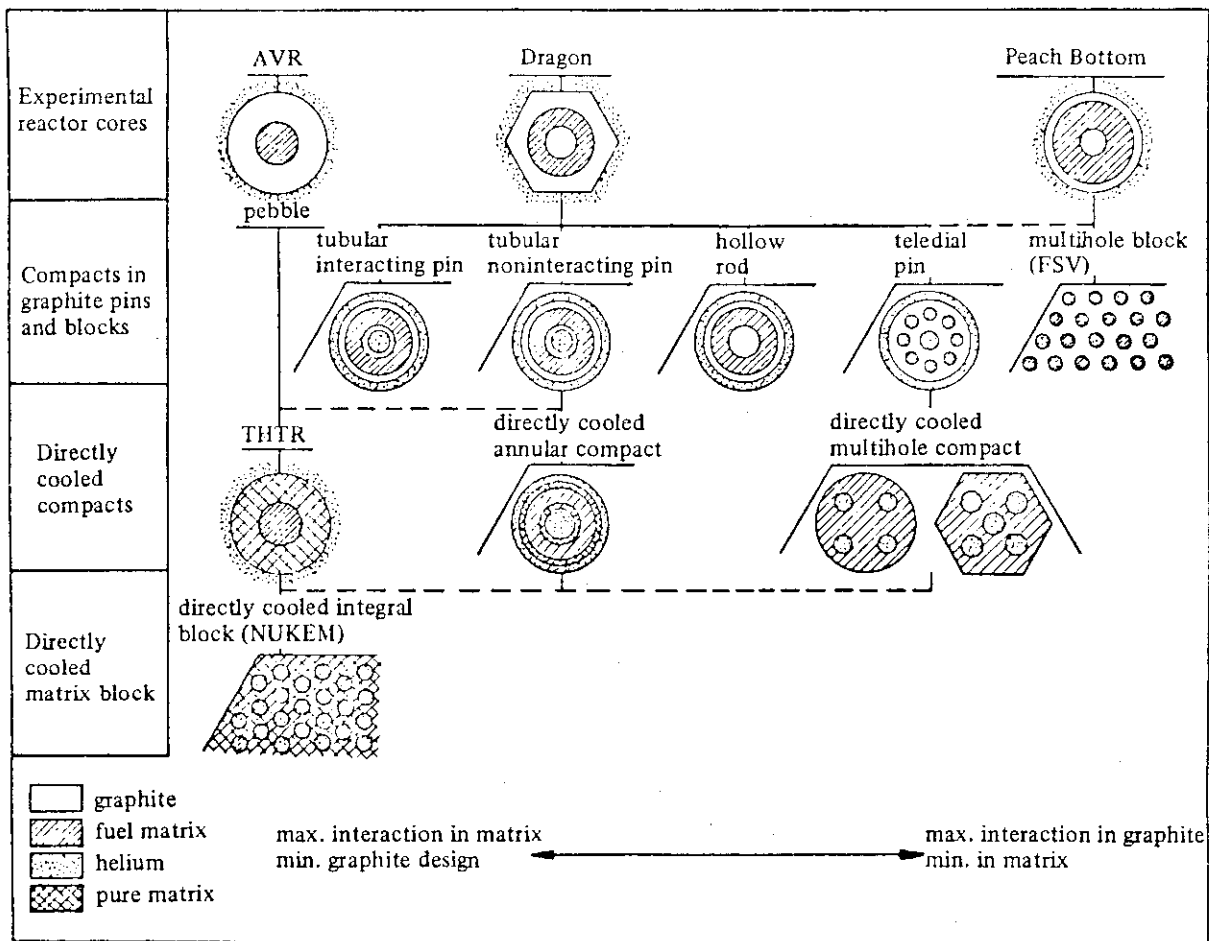


Fig. 1.1 HTGR fuel-element designs. (1-4)

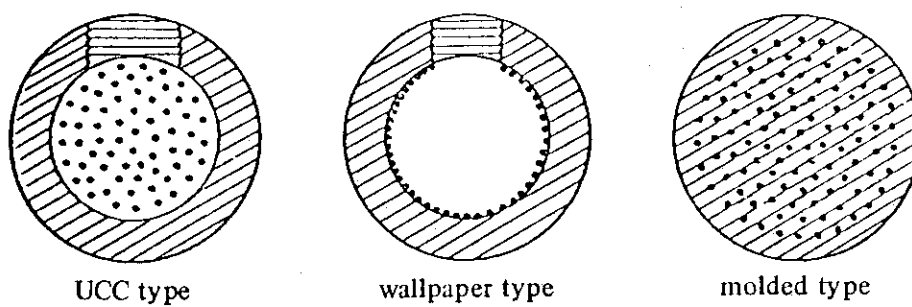


Fig. 1.2 Three types of AVR fuel elements. (2,5,7)

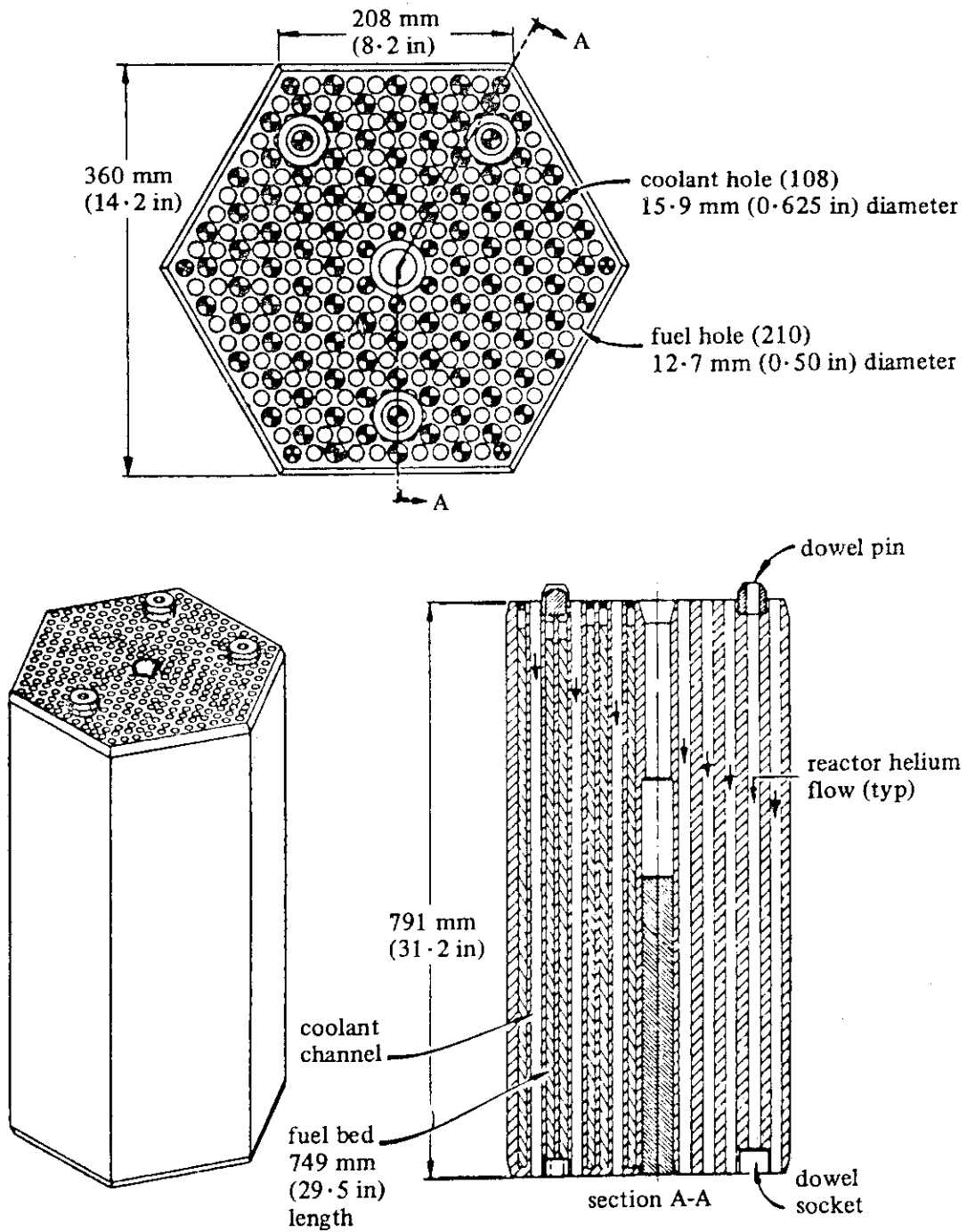


Fig. 1.3 Prismatic fuel block for the Fort Saint Vrain reactor. (2,5,8)

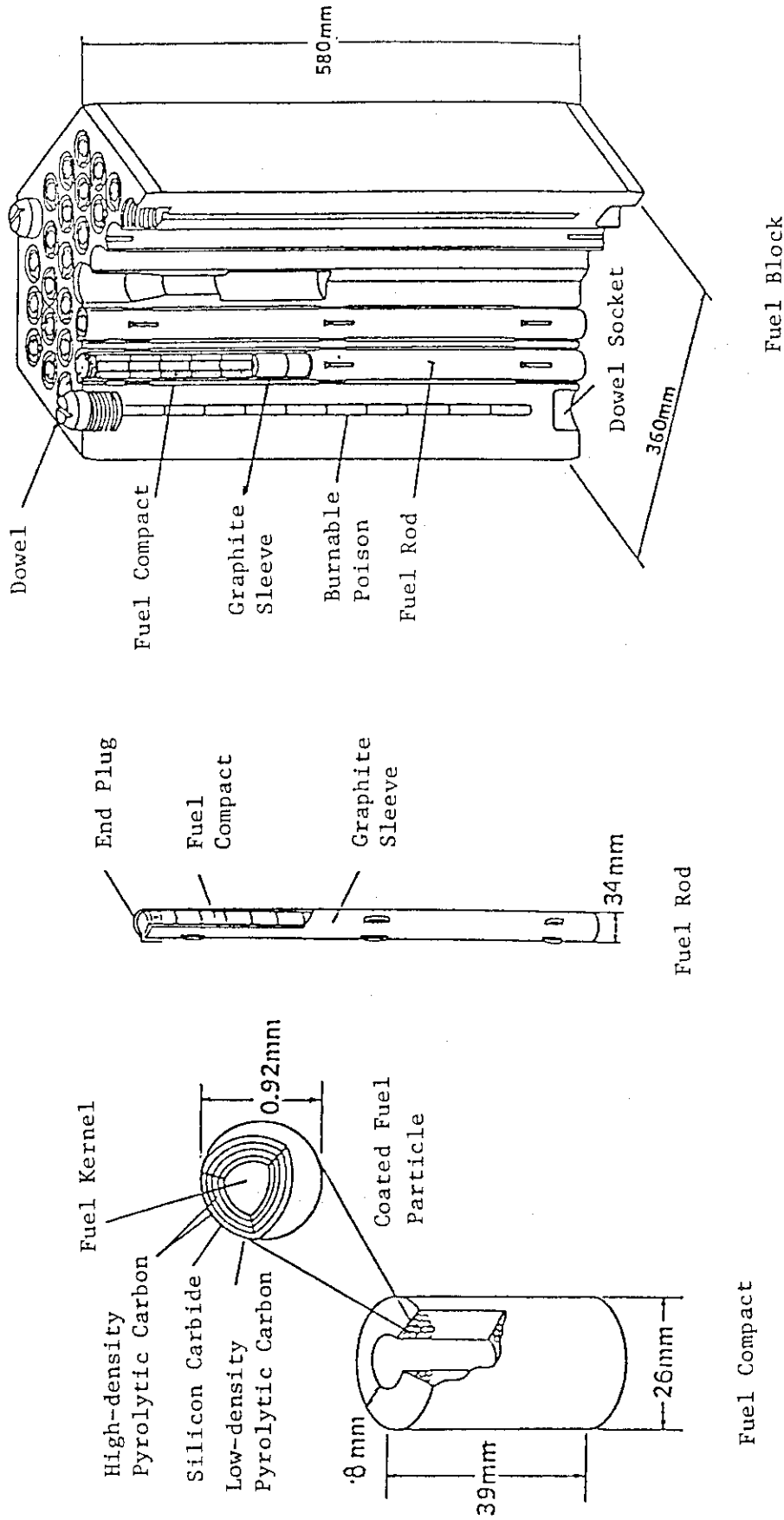


Fig. 1.4 Design structure of fuel assembly of the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR).

2. 実 験

2.1 試 料

本研究に用いた燃料試料である第9次および第10次OGL-1燃料体は、HTTR設計仕様の前身である多目的高温ガス炉（VHTR）第1次概念設計^(40,41)に基づいた仕様（以下MK-Ⅲ仕様と呼ぶ）の燃料コンパクトを、同仕様模擬の燃料棒および黒鉛ブロックに収めたものである。第9次および第10次OGL-1燃料体の仕様の概要をTable 2.1に、燃料体の構造をFig. 2.1に示す。

これらの燃料仕様の要点は、(1)OGL-1燃料照射位置における中性子束がやや低いので、高燃焼度を得るため濃縮度を約20%とMK-Ⅲ仕様（2-6%）やHTTR仕様（約3-10%）より高めていること、(2)燃料棒の長さ（790mm）がMK-Ⅲ仕様（555mm）やHTTR仕様（約579mm）より長いこと、(3)燃料コンパクトと黒鉛スリーブのギャップ（直径で0.2mm）がMK-Ⅲ仕様やHTTR仕様（いずれも直径で0.3mm）より小さいこと、等である。その他の寸法や材料の仕様はMK-Ⅲ仕様と殆んど同じである。また、第9次および第10次燃料体の構造や製造・検査方法は第3次燃料体⁽²⁹⁾と殆んど同じである。詳細は文献(29)を参照されたい。

2.2 照 射

第9次および第10次OGL-1燃料体の照射条件の概要をTable 2.2~2.4に示す。第9次燃料体はJMTRの7サイクルの全照射期間を通して燃料最高温度約1340℃ではほぼ定常な照射を行なった。第10次燃料体は6サイクルの全照射期間のうち、はじめの5サイクルは燃料最高温度約1330℃で定常運転を行なった後、最終サイクルにおいて燃料最高温度約1330℃から1500℃まで段階的に昇温を行なった。両燃料体の照射履歴をFig. 2.2~2.4に示す。

照射中の燃料コンパクトの温度は燃料コンパクトの内側の黒鉛内筒に収めたタングステン・レニウム（W-5%Re / W-26%Re）熱電対によって測定した。また、黒鉛スリーブの温度は黒鉛スリーブに2箇所（炉心側と反炉心側）挿入孔を設けクロメル・アルメル（CA）熱電対で測定した。Fig. 2.2~2.4に示した燃料コンパクト温度は最高温度である。黒鉛スリーブ温度は上端から約220mmにある熱電対位置での温度であり、Fig. 2.4に示した第10次燃料体の最終照射サイクル中の黒鉛スリーブ最高温度（軸方向中央付近）は1250℃程度であると推定される。

2.3 放射能分布測定

照射した燃料体は東海ホットラボにおいて照射後試験に供された。燃料体のうち黒鉛スリーブ、黒鉛ブロックおよび黒鉛内筒等の黒鉛部品は所定の照射後試験の終了後、冶金特研に運搬してFP放射能分布の測定を行なった。

FP放射能分布の測定方法をFig. 2.5に模式的に示す。従来と同じく、鉛ブロックで幅10mmのスリットを構成し、黒鉛スリーブ等を軸方向（長さ方向）に少しずつ動かしその度ごとに γ 線スペクト

ル分析を行なって軸方向の分布を求めた。使用した装置はA P T E C / N R D社の高純度 Ge 検出器およびC A N B E R R A社のシリーズ40型マルチチャンネル波高分析器である。放射能の絶対値への校正は英国 The Radiochemical Centre Ltd. の γ 線測定用標準線源 (^{152}Eu , ^{137}Cs および ^{60}Co)を用いて行なった。放射能濃度の値は黒鉛単位重量あたりの値 (Bq/Kg-graphite) に換算してある。

黒鉛スリーブの径方向(厚さ方向)のF P分布は、小型旋盤で円筒形の黒鉛スリーブ試料を外周から少しずつ削り、その黒鉛粉末を葉包紙に集め、これを γ 線スペクトル分析することによって求めた。この時、スリーブの内面まで精度良く削るため、スリーブの内径(36.2mm)に適合する外径36mmの金属製芯をスリーブに挿入しスリーブ内面との間を接着剤を用いて固めた。 γ 線スペクトル分析は上記の装置のほかに、C A N B E R R A社製高純度 Ge 検出器および同社シリーズ35プラス波高分析器からなる系を用いて行ない、それらの測定結果の解析には東洋テクニカ社の解析ソフトウェア“PCガンマ”を用いた。

F P分布測定の見誤差については文献(9)で既に評価した。その要点を以下に列記する。

- (1) 原子核崩壊の統計的性質およびコンプトン散乱等に起因する統計的測定誤差は10%以下に制限した。
- (2) 黒鉛スリーブなどの円筒形試料の幾何学的形状による放射能濃度の補正は行っていない。本研究における主眼は軸方向および径方向のF P分布の相対値を求めることにあり、放射能濃度については係数2~5程度以内の信頼度(確度)で求められているものと考えている。黒鉛切削粉末試料の放射能測定においては幾何学的因子による測定誤差は無視できる。
- (3) 旋盤切削によって径方向の分布を求める際に、旋盤回転軸(主軸)と黒鉛スリーブ試料の中心軸との偏心が0.1mm程度生じることは避けられなかった。このため、最も内側と最も外側の分画試料については切削黒鉛粉末重量の評価誤差が数10%に達する。これに伴って径方向の濃度分布がなだらかな核種(^{137}Cs , ^{134}Cs 等)については放射能濃度の誤差は数10%にとどまるが、濃度変化が極めて大きい核種(^{155}Eu , ^{144}Ce 等)については内表面における濃度の誤差は1桁以上になりうる。ただし、黒鉛スリーブ内部(内表面および外表面以外の部分)では偏心による黒鉛重量の評価誤差はせいぜい10%程度であり、これに伴う放射能濃度評価誤差も小さい。

なお、放射能測定は第9次燃料体については照射終了後約2年後、第10次燃料体については照射後約8ヶ月経過した時点で行った。従って半減期が20日程度以下の短半減期核種は減衰して検出不能となっている。

Table 2.1 Specification of the ninth and tenth OGL-1 fuel assemblies.

	ninth fuel	tenth fuel
Irradiation Period	Jan. 1984 - March 1986	May 1986 - June 1987
(JMTR cycle)	# 67 - 73	# 74 - 79
Irradiation Time (efpd) ^{*1}	145.5	130.2
Maximum Burnup ^{*2} (MWd/tU)	22,540	23,060
Maximum Fast Neutron Fluence (m ⁻² , E > 0.18MeV)	2.8x10 ²⁴	2.4x10 ²⁴
Maximum Fuel Temperature (°C)	1,340	1,500
Maximum Outlet Coolant Temperature (°C)	910	900

*1 Effective full power day.

*2 Calculated from heat generation.

Table 2.2 Outline of irradiation conditions of the ninth and tenth OGL-1 fuel assemblies.

Component	Material	Size	Density
< Coated Fuel Particle >		(μm)	(Mg/m^3)
Kernel	uranium dioxide (19.9% enriched)	600 ± 60	10.41 ± 0.22
Buffer	low-density pyrolytic carbon	60 ± 15	1.10 ± 0.10
Inner PyC	high-density pyrolytic carbon	30 ± 5	1.85 ± 0.05
SiC	pyrolytic silicon carbide	25 ± 5	> 3.20
Outer PyC	high-density pyrolytic carbon	45 ± 5	1.85 ± 0.05
.....			
< Fuel Assembly >		(mm)	(Mg/m^3)
Compact	coated particles + graphite matrix	$18^{\text{ID}} \times 36^{\text{OD}} \times 36^{\text{L}}$ *1	*2
Sleeve	IG-110 graphite	$36.2^{\text{ID}} \times 46^{\text{OD}} \times 790^{\text{L}}$	*3
Inner-tube	IG-110 Graphite	$13^{\text{ID}} \times 17.8^{\text{OD}} \times 735^{\text{L}}$	*3
Block	IG-110 Graphite	$50^{\text{ID}} \times 80^{\text{OD}} \times 785^{\text{L}}$	*3

*1 Inner diameter (ID), outer diameter (OD) and length (L).

*2 Measured values: 2.33 and 2.36 Mg/m^3 for the ninth and tenth fuel assemblies, respectively.

*3 Measured values: 1.77 and 1.79 Mg/m^3 for the ninth and tenth fuel assemblies, respectively.

Table 2.3 Irradiation conditions of fuel compacts of the ninth OGL-1 fuel assembly.

Position	Fuel compact name	*1 Temp. (°C)	*2 Burnup (fima)	*2 Burnup (fifa)	*3 Fast fluence (10^{24} n/m ²)	*4 Relative FP inventory	*4 Relative fast fluence
(bottom)							
1	830P1-01 FP1	1104	1.56	8.2	1.22	0.584	0.43
2	830P1-02 FP2	1168	1.83	9.6	1.62	0.684	0.57
3	830P1-03 FP3	1225	2.09	10.9	1.93	0.783	0.68
4	830P1-04 FP4	1273	2.28	11.9	2.22	0.854	0.78
5	830P1-05 FP5	1313	2.45	12.8	2.47	0.917	0.87
6	830P1-06 FP6	1344	2.54	13.3	2.64	0.952	0.93
7	830P1-07 FP7	1366	2.60	13.6	2.75	0.975	0.97
8	830P1-08 FP8	1378	2.67	14.0	2.84	1.000	1.00
9	830P1-09 FP9	1381	2.66	13.9	2.84	0.997	1.00
10	830P1-10 FP10	1374	2.61	13.7	2.78	0.977	0.98
11	830P1-11 FP11	1358	2.55	13.3	2.67	0.954	0.94
12	830P1-12 FP12	1333	2.41	12.6	2.56	0.904	0.90
13	830P1-13 FP13	1298	2.27	11.9	2.39	0.852	0.84
14	830P1-14 FP14	1255	2.11	11.1	2.19	0.791	0.77
15	830P1-15 FP15	1202	1.92	10.1	1.93	0.719	0.68
16	830P1-16 FP16	1148	1.71	8.9	1.70	0.639	0.60
17	830P1-17 FP17	1072	1.49	7.8	1.48	0.557	0.52
18	830P1-18 FP18	1008	1.28	6.7	1.25	0.478	0.44
19	830P1-19 FP19	981	1.06	5.5	1.02	0.397	0.36
20	830P1-20 FP20	958	0.87	4.6	0.77	0.326	0.27
(top)							

*1 Time-averaged temperature of fuel compacts calculated from heat generation (STPDSP2 code).
 *2 Calculated by STPDSP2 code; 19.126% enriched; burnup in fissions per initial metal atom (fima) and fissions per initial fissile atom (fifa).
 *3 Fast-neutron fluence ($E > 0.18$ MeV).
 *4 Relative activity of ¹⁴⁴Ce measured for rotating fuel compacts.

Table 2.4 Irradiation conditions of fuel compacts of the tenth OGL-1 fuel assembly.

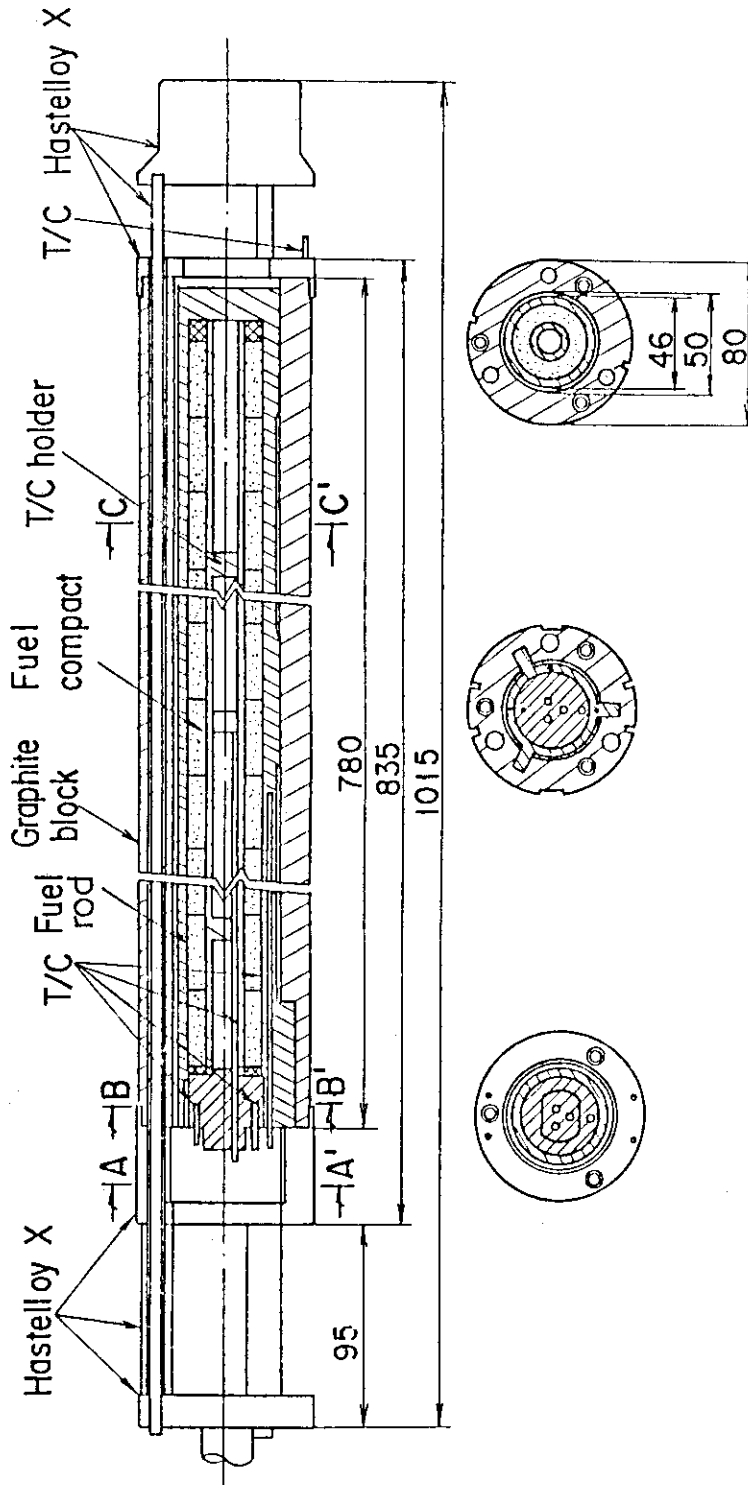
Position	Fuel compact name	*1 Temp. (°C)	*2 Burnup (%fima)	*2 Burnup (%fifa)	*3 Fast fluence (10^{24} n/m ²)	*4 Relative FP inventory	*3 Relative fast fluence
(bottom)							
1	84OP1-01 FP1	1057	1.71	8.8	1.02	0.611	0.43
2	84OP1-02 FP2	1103	2.00	10.2	1.36	0.713	0.57
3	84OP1-03 FP3	1181	2.21	11.4	1.62	0.791	0.68
4	84OP1-04 FP4	1230	2.43	12.5	1.86	0.868	0.78
5	84OP1-05 FP5	1270	2.61	13.4	2.07	0.932	0.87
6	84OP1-06 FP6	1300	2.71	13.9	2.21	0.969	0.93
7	84OP1-07 FP7	1321	2.80	14.4	2.31	1.000	0.97
8	84OP1-08 FP8	1331	2.80	14.4	2.38	1.000	1.00
9	84OP1-09 FP9	1331	2.80	14.4	2.38	1.000	1.00
10	84OP1-10 FP10	1320	2.74	14.1	2.33	0.979	0.98
11	84OP1-11 FP11	1300	2.63	13.5	2.44	0.941	0.94
12	84OP1-12 FP12	1270	2.48	12.7	2.14	0.884	0.90
13	84OP1-13 FP13	1230	2.31	11.8	2.00	0.824	0.84
14	84OP1-14 FP14	1180	2.14	11.0	1.83	0.762	0.77
15	84OP1-15 FP15	1121	1.91	9.8	1.62	0.683	0.68
16	84OP1-16 FP16	1054	1.69	8.6	1.43	0.602	0.60
17	84OP1-17 FP17	978	1.45	7.5	1.24	0.519	0.52
18	84OP1-18 FP18	929	1.24	6.3	1.05	0.442	0.44
19	84OP1-19 FP19	909	1.01	5.2	0.86	0.361	0.36
20	84OP1-20 FP20	879	0.83	4.3	0.64	0.297	0.27
(top)							

*1 Time-averaged temperature of fuel compacts calculated from heat generation (STPDSP2 code).

*2 Calculated by STPDSP2 code; 19.502% enriched; burnup in fissions per initial metal atom (fima) and fissions per initial fissile atom (fifa).

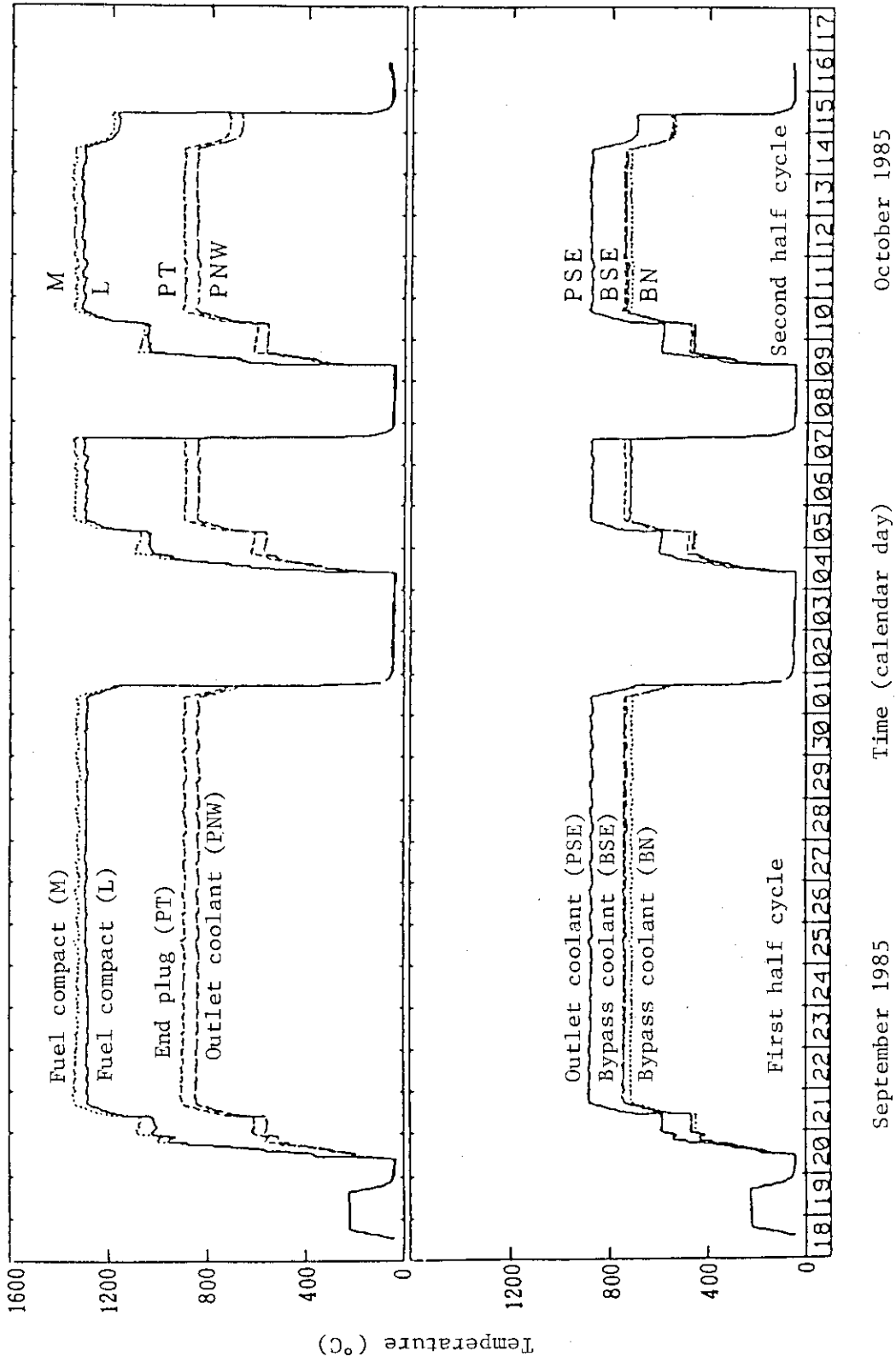
*3 Fast-neutron fluence ($E > 0.18$ MeV).

*4 Relative activity of ^{137}Cs measured for totating fuel compacts.



A-A' cross section B-B' cross section C-C' cross section

Fig. 2.1 Structure of the ninth and tenth OGL-1 fuel assemblies.



September 1985 Time (calendar day) October 1985

Fig. 2.2a Temperature history of the ninth OGL-1 fuel assembly;
70th cycle of JMTR

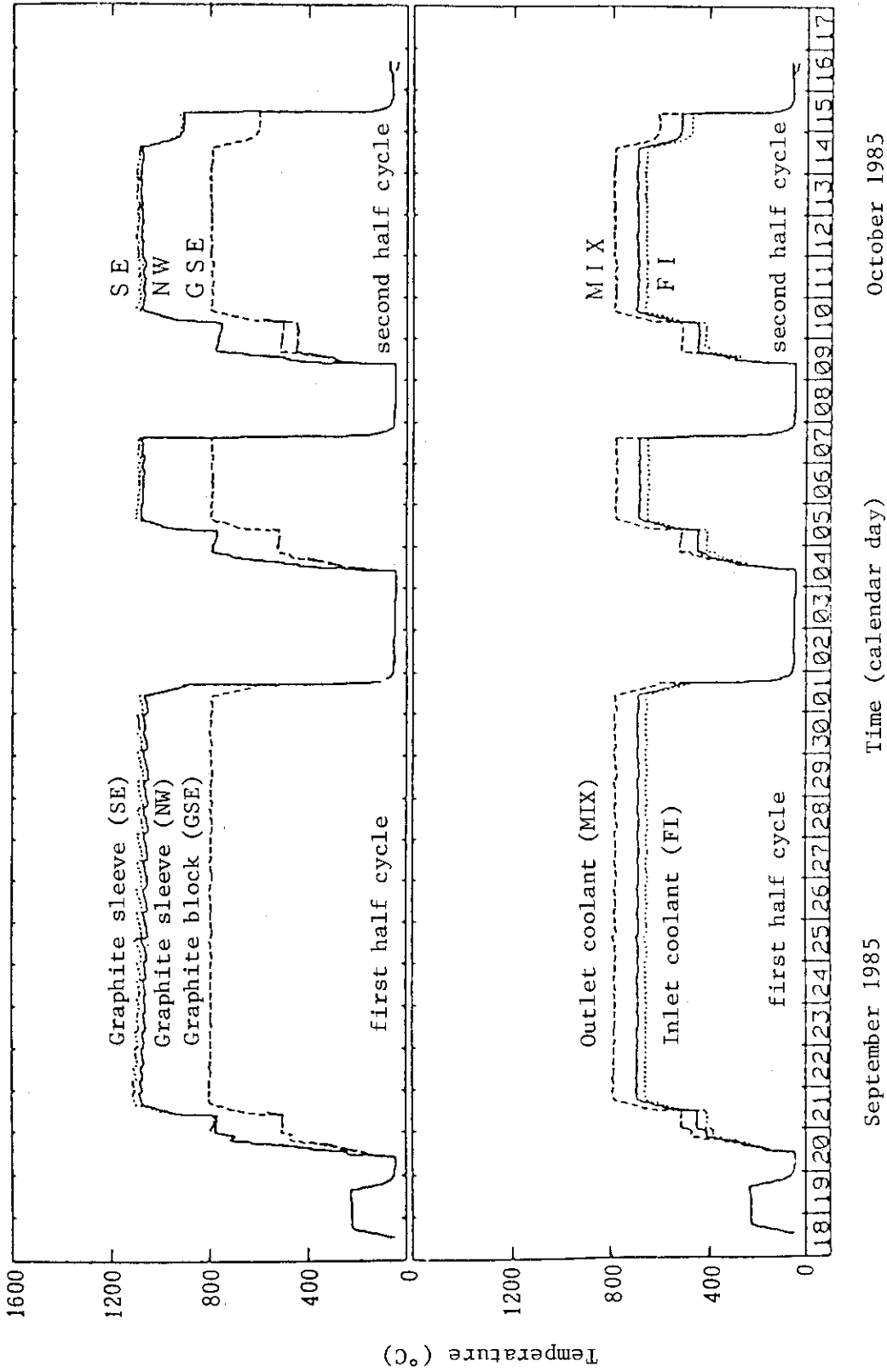


Fig. 2.2b Temperature history of the ninth OGL-1 fuel assembly;
70th cycle of JMTR (continued).

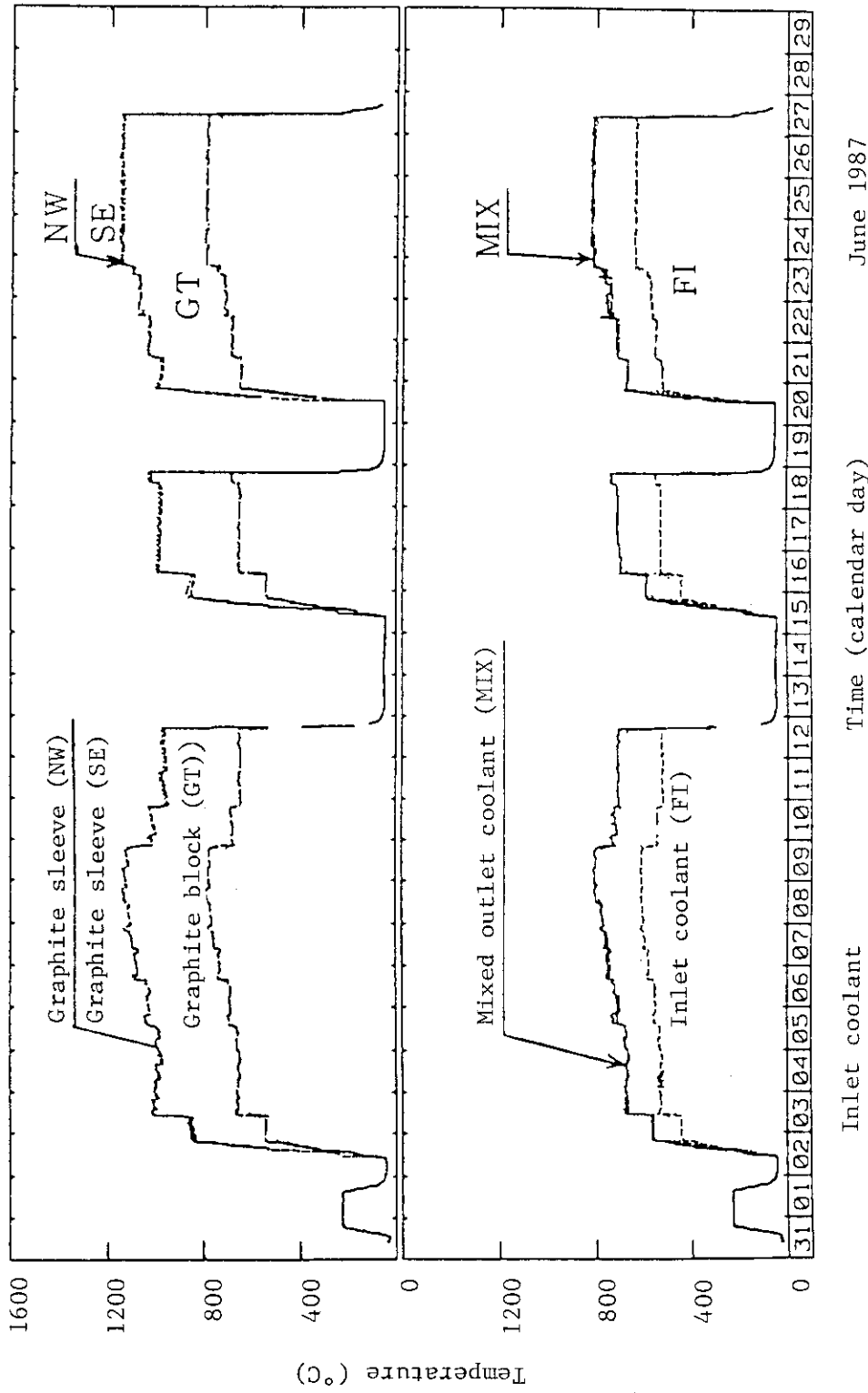


Fig. 2.3a Temperature history of the tenth OGL-1 fuel assembly;
79th cycle of JMTR.

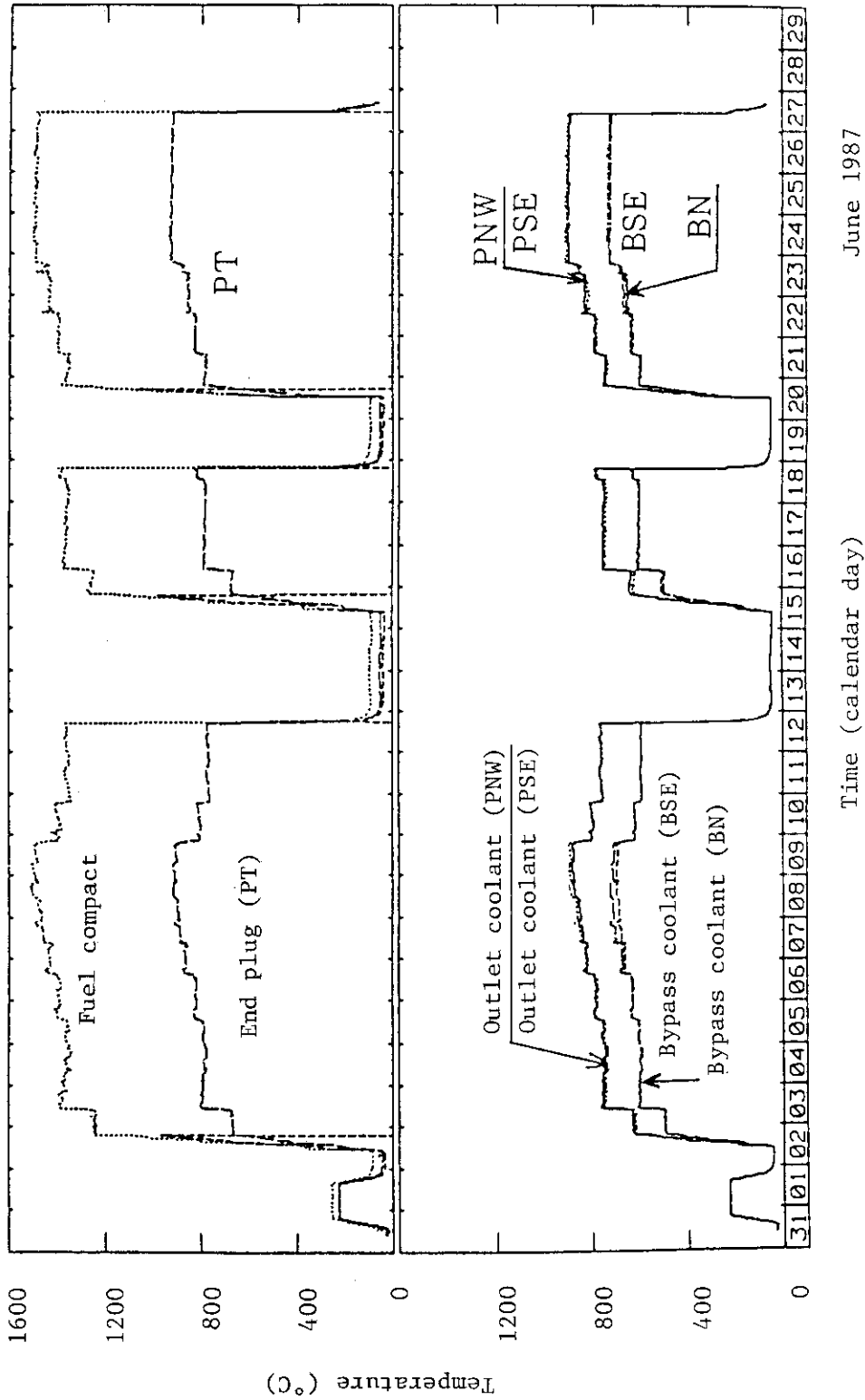


Fig. 2.3b Temperature history of the tenth OGL-1 fuel assembly;
79th cycle of JMTR (continued).

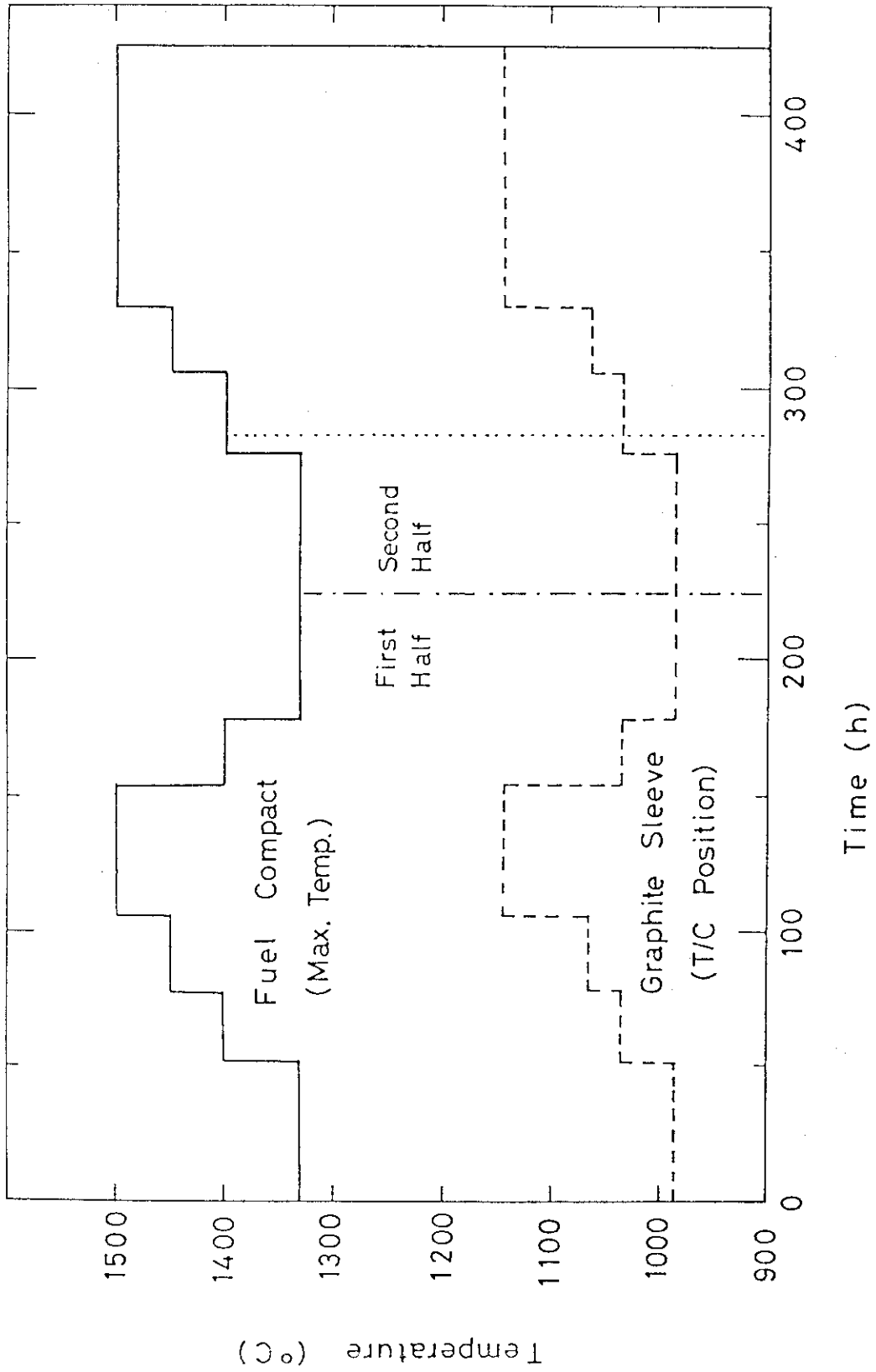


Fig. 2.4 Temperature history of fuel compact and graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly during the 79th operation cycle of JMTR.

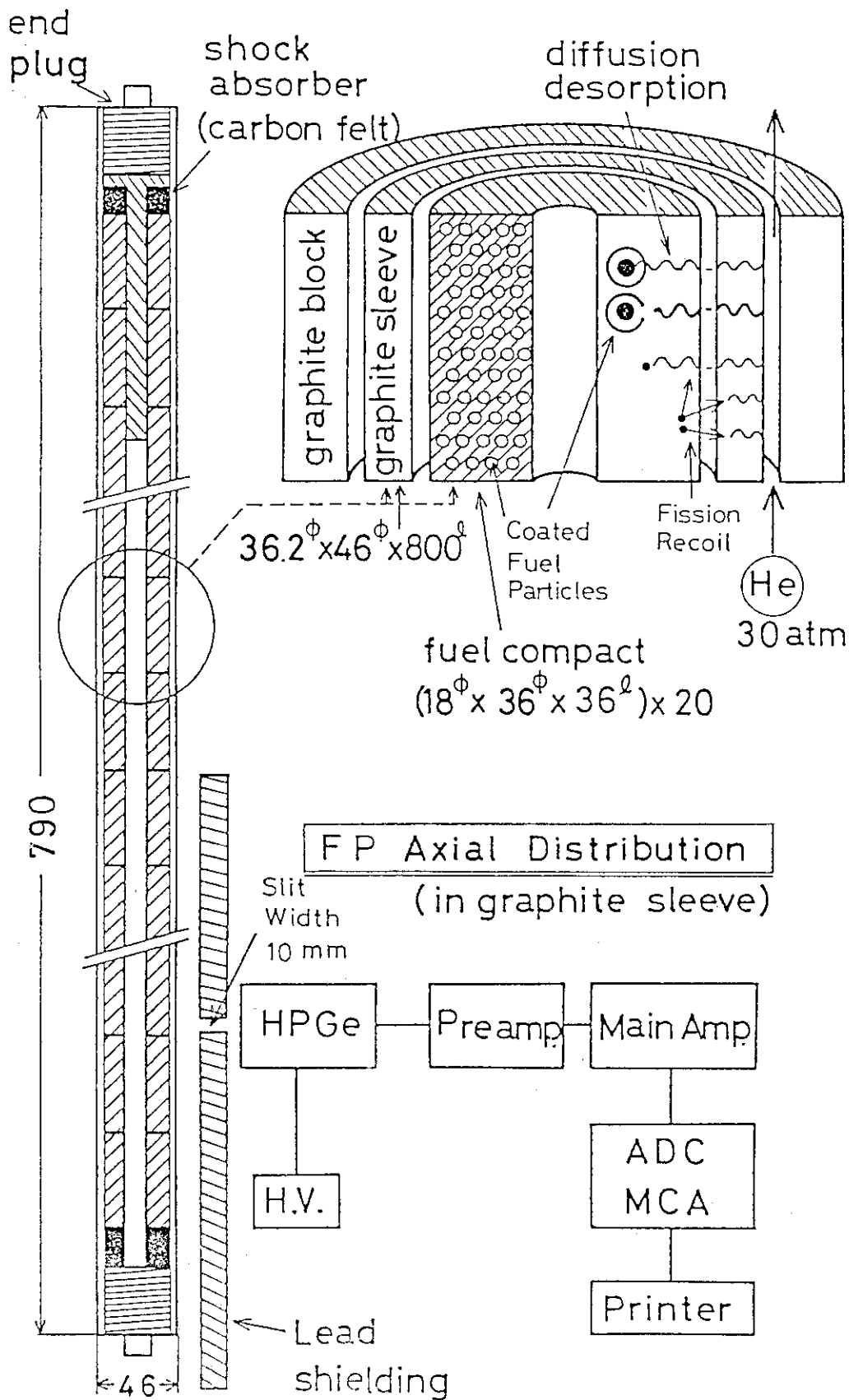


Fig. 2.5 Schematics of method of measuring the axial distribution of fission products in graphite sleeve.

3. 結 果

3.1 第9次OGL-1燃料体中の核分裂生成物分布

3.1.1 黒鉛スリーブ軸方向分布

第9次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブの軸方向のFP分布をFig. 3.1a およびFig. 3.1b に示す。単位は前述のとおり黒鉛単位重量あたりの放射能 (Bq/kg-graphite) である。検出されたFP核種は ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{155}Eu および ^{154}Eu である。このほかに ^{60}Co , ^{54}Mn が検出されたが、これらの核種は核分裂生成物ではなく、放射化生成物であり図中には示さなかった。放射化生成物の分布とその生成源については文献(42)にすでにまとめてあり、今回の測定結果はその報告書に記載した結果と良く対応していた。

Fig. 3.1a, Fig. 3.1b に示した分布の特徴的な点を以下に列挙する。

- ① ^{137}Cs , ^{134}Cs の濃度はこれまでの燃料体に比べて高いレベルである。高温でかつ中性子束の高い燃料棒軸方向中央付近で高濃度で、両端に向かうにつれて低濃度になっている。また、両核種の分布はなめらかであり、顕著な濃度ピークは見られない。
- ② ^{155}Eu , ^{154}Eu の分布は ^{137}Cs , ^{134}Cs の分布に似ており比較的なめらかである。
- ③ $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の分布も軸方向中央付近で高濃度となっている。
- ④ ^{125}Sb の分布は軸方向で非対称的であり、燃料棒上端側で相対的に高濃度となっている。

以上に関連して、検出された各FPの生成源については4.1節で、燃料コンパクトからの移行割合や被覆粒子破損率との関係は4.2節で、冷却材流れの影響については4.3節で検討する。

3.1.2 黒鉛ブロック軸方向分布

黒鉛ブロックの軸方向の金属FPおよび ^{60}Co の分布をFig. 3.2に示す。 ^{60}Co の分布は文献(42)でも示したように、炉心高さ方向の熱中性子束と良く一致している。これは中性子捕獲により ^{60}Co を生じる親核種 ^{59}Co が黒鉛中に不純物として一様に含有されているためと考えており、この図では中性子束分布を示す指標として示したものである。

図からわかるように、 ^{134}Cs の分布は ^{60}Co の分布とほぼ同様な分布をしている。 ^{134}Cs の生成経路としては以下のものがあげられる。

- 〔A〕 核分裂性物質 (主に ^{235}U) の核分裂によってFPとして生じた ^{133}Cs (安定核種) が中性子捕獲反応をおこして ^{134}Cs になるが、この ^{133}Cs または ^{134}Cs の形で燃料棒から放出され黒鉛ブロック中に移行する。
- 〔B〕 FPとして生じたものではあるが ^{133}Cs の気体前駆体である ^{133}I (半減期20.9h) および ^{133}Xe (同5.25d) の形で燃料棒から放出され黒鉛ブロック中に移行した後崩壊して ^{133}Cs となり、中性子捕獲反応によって ^{134}Cs となる。
- 〔C〕 黒鉛中に不純物として含有されている ^{133}Cs が中性子捕獲反応によって ^{134}Cs となる。

黒鉛ブロック中で検出された ^{134}Cs が経路〔A〕によって生じたものであれば前記3.1.1の黒鉛スリーブ中で見られたように ^{137}Cs (FPとしてしか生じない) と ^{134}Cs とは同様な分布をするはずで

ある。一方、経路〔C〕によって ^{134}Cs が生成したのであれば、不純物含有量が黒鉛素材中で一様であるとの仮定のもとでは ^{134}Cs の分布は熱中性子束分布と一致するはずである。一方、これまでのOGL-1燃料体照射実験において経路〔B〕の結果生じる ^{134}Cs の黒鉛ブロック中の分布が実験的に確認されたことはない。放出された ^{133}I や ^{133}Xe は冷却材流れに乗って移動するはずであるのでおそらく燃料棒において ^{133}I や ^{133}Xe の放出量の大きい部分（被覆粒子破損率の高い燃料コンパクト位置または高温部）より冷却材流れの下流側でより高濃度になることが予想される。

上述のとおりFig. 3.2に示した黒鉛ブロック中の ^{134}Cs の分布は ^{60}Co の分布、すなわち熱中性子束分布に近い分布をしており、 ^{134}Cs の生成源として経路〔C〕の不純物起源が主であり、これに経路〔A〕のFP起源からの寄与が加算されたものであると考えることが妥当である。経路〔B〕の寄与の割合については現在のところ明らかでない。

^{137}Cs の分布は冷却材の下流側で高濃度となっている。これは黒鉛スリーブから放出された ^{137}Cs が、黒鉛スリーブと黒鉛ブロックの間のギャップ（冷却チャンネル）を流れる冷却材Heの流れに乗って下流側へ移行したものと考えている。これについては4.3節で再び検討する。

Fig. 3.2に示したように、黒鉛ブロック中には $^{110\text{m}}\text{Ag}$ も検出されている。しかし、後に示すように、黒鉛スリーブの径方向の分布からは $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が燃料コンパクト側から黒鉛スリーブを透過して黒鉛ブロックへと移行したと考えるべき根拠は得られていない。むしろ、この $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は燃料棒以外の部分（例えば黒鉛ブロック材料またはOGL-1配管材料中）に含有されていた不純物 ^{109}Ag （安定核種）が中性子捕獲反応によって $^{110\text{m}}\text{Ag}$ になった可能性のほうが大きいと考える。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の分布が中性子束分布とはほぼ対応していることはこの可能性を支持する1つの状況証拠である。

3.1.3 黒鉛スリーブ径方向分布

黒鉛スリーブの軸方向の各位置における、スリーブ径方向のFP分布の典型的な例をFig. 3.3a～3.3fに示す。これらの図からわかる特徴的な点を以下に列挙する。

- ① ^{137}Cs と ^{134}Cs の分布は非常に良く似ており、またそれらの濃度勾配は他の核種の濃度勾配に比べてゆるやかである。
- ② ^{125}Sb の濃度勾配は ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の濃度勾配に比べてかなり急勾配であり、スリーブ外表面上では殆んど検出できない濃度まで減少している。
- ③ $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の濃度勾配は全体としては ^{125}Sb の濃度勾配より大きい、スリーブ内表面側で濃度の減少する奇妙な現象が見られる。
- ④ ^{155}Eu および ^{154}Eu はスリーブ内表面近傍だけでしか検出されない。すなわち、両核種は実際上黒鉛スリーブによって完全に保持されることができると考えることができる。
- ⑤ スリーブ外表面上に、共通して ^{144}Ce が比較的低濃度で検出されている。

①の事実は、 ^{137}Cs と ^{134}Cs がともにFPとして生成したものであること、スリーブ中の拡散係数が大きいことを示している。さらにこの燃料体の被覆粒子破損率が相当高いことから考えて、両核種は主に破損粒子から放出されたものであると考えるのが妥当である。このことは4.2節で改めて議論する。

また、4.3節において、 ^{137}Cs の径方向濃度プロファイルを用いて、スリーブ外表面上における ^{137}Cs 放出挙動と冷却材流れとの関連を検討する。

3.2 第10次OGL-1燃料体中の核分裂生成物分布

3.2.1 黒鉛スリーブ軸方向分布

第10次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブの軸方向のFP分布をFig. 3.4a および Fig. 3.4bに示す。第9次OGL-1燃料体の場合と同じく ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{125}Sb 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{155}Eu 、 ^{154}Eu が検出された。この燃料体では各核種の軸方向分布は必ずしもなめらかではないが、第9次燃料体と同様に以下のような特徴が見られる。

- ① ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の濃度はこれまでの燃料体に比べて高いレベルにあり、また両者の軸方向分布の形は良く似ている。
- ② ^{155}Eu 、 ^{154}Eu の分布は互いに似ている。また両核種の最大濃度位置（上端から480mm）は ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の最大濃度位置と一致している。このことは、この位置に相対的に多数の破損粒子があり、そこからこれらの核種が放出されたことを示唆している。
- ③ $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の分布は、高温かつ高中性子束である軸方向中央付近で高濃度となっているが、他のFP核種の分布と関連を持っていないように見えない。

第10次燃料体は2.2節で述べたように最高1500°Cで照射したが、黒鉛スリーブ中の各FP核種の濃度は、約1340°Cで定常運転を続けた第9次燃料体の場合と同程度のレベルであった。すなわち、1500°Cという高温照射にもかかわらず燃料体中のFP移行挙動はあまり大きな影響は受けなかったと言える。

ただし、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ については第9次燃料体に比べて第10次燃料体のほうが放射能濃度の最大値レベルは約1桁ほど大きいことが注目される。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の生成起源については4.1節で検討する。

3.2.2 黒鉛ブロック軸方向分布

第9次燃料体の場合と同様に、Fig. 3.5にFP核種の分布に加えて中性子束分布との対比のため ^{60}Co の分布を合わせて示す。ここでも ^{137}Cs と ^{134}Cs の分布に違いが見られる。 ^{137}Cs の分布は冷却材流れの下流側で高濃度となっている。 ^{134}Cs は ^{137}Cs と ^{60}Co の分布をある割合にして加え合わせた分布をしていると見ることができる。すなわち、3.1.2で述べたように ^{134}Cs の生成源として、黒鉛素材に不純物として含有されていた ^{133}Cs （安定核種）の放射化に起因するものと、FPとして生じ燃料棒から ^{133}Cs または ^{134}Cs の形で放出されたものが加算されたものと考えることができる。

一方、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の分布はほぼ ^{60}Co の分布に沿ったものとなっており、黒鉛に含有または付着（沈着）している不純物 ^{109}Ag の放射化によるものであることが推定される。

3.2.3 黒鉛スリーブ径方向分布

黒鉛スリーブの軸方向各位置における、スリーブ径方向のFP分布の典型的な例をFig. 3.6a～Fig. 3.6fに示す。前述の第9次燃料体の場合と同様な特徴が見られる。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の分布は、全体としてはスリーブ内表面側で高濃度、外表面側で低濃度となっているものの、内表面のごく近傍では逆に濃度が減少していることがわかる。この原因は現在のところ不明である。

^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{152}Eu はスリーブ内表面近傍にしか検出されておらず、これらの核種は黒鉛スリーブによって實際上完全に保持されていると言える。

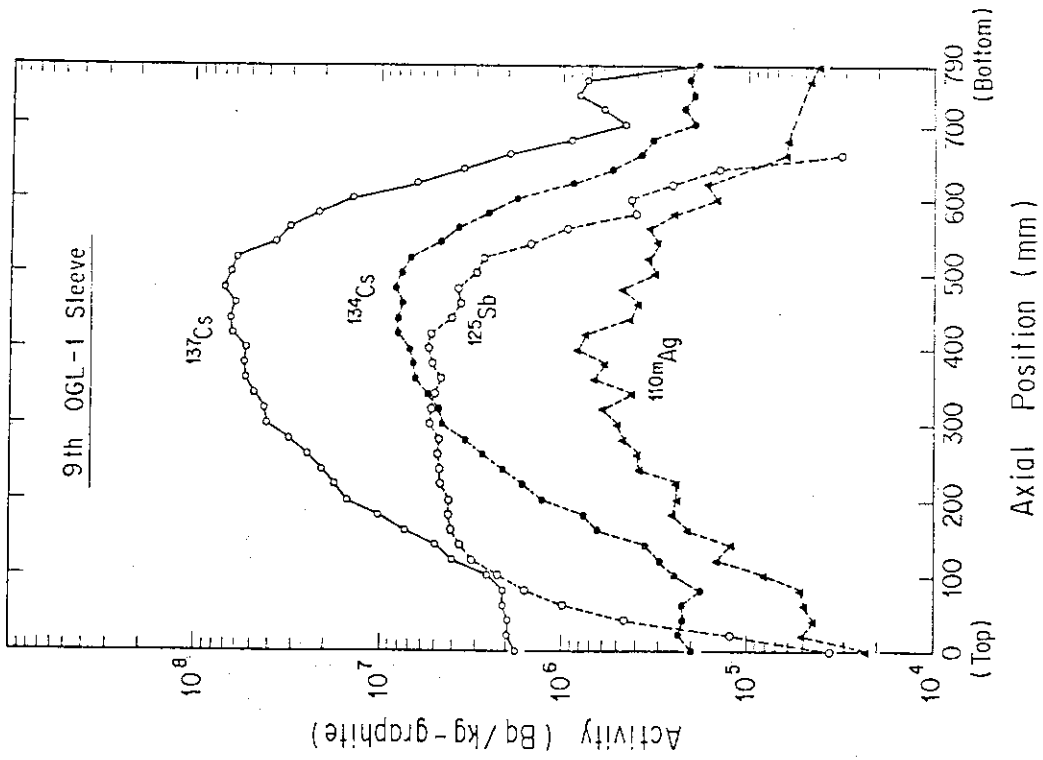


Fig. 3.1a Axial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly.

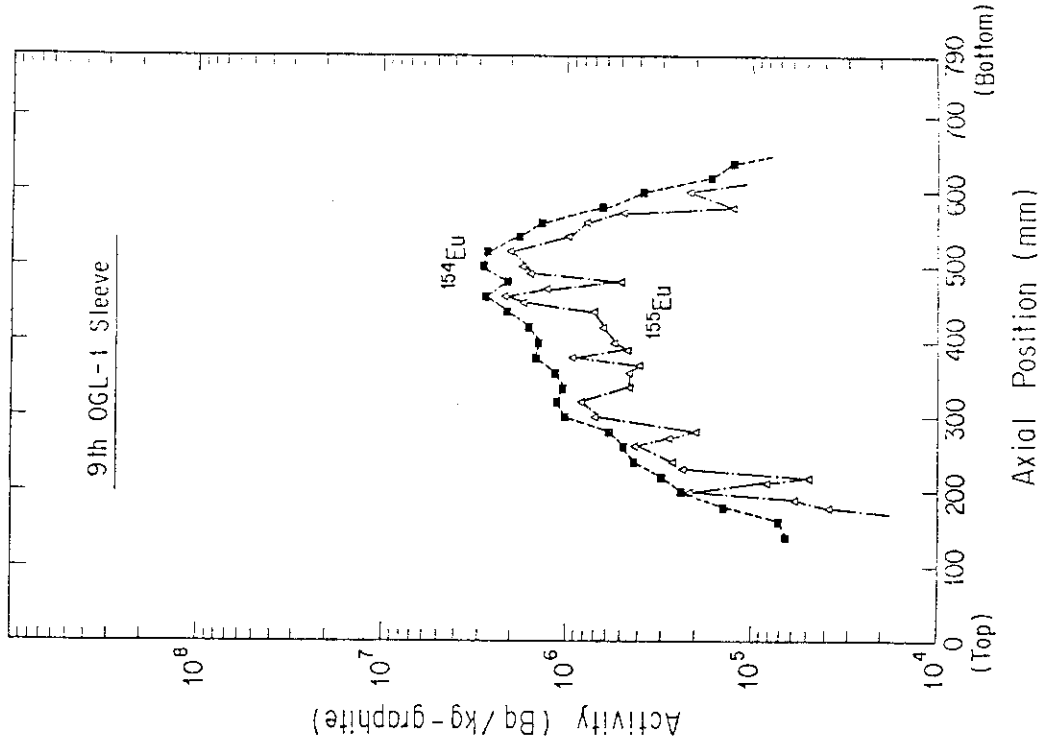


Fig. 3.1b Axial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly (continued).

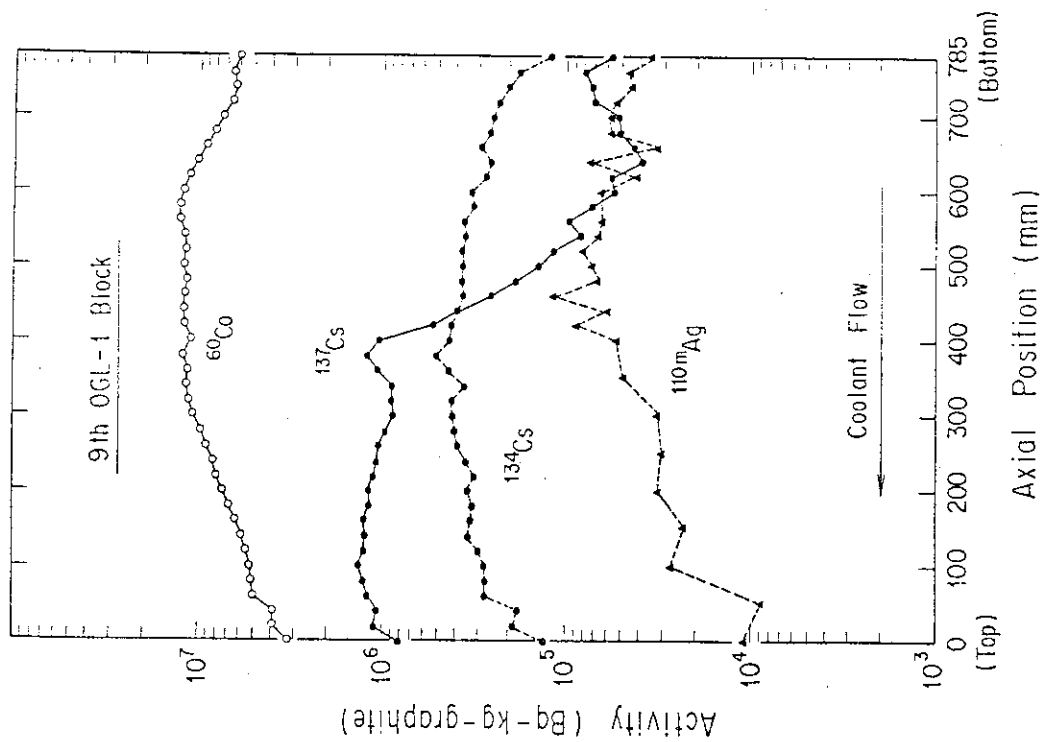


Fig. 3.2 Axial distribution of fission products and ⁶⁰Co in graphite block of the ninth OGL-1 fuel assembly.

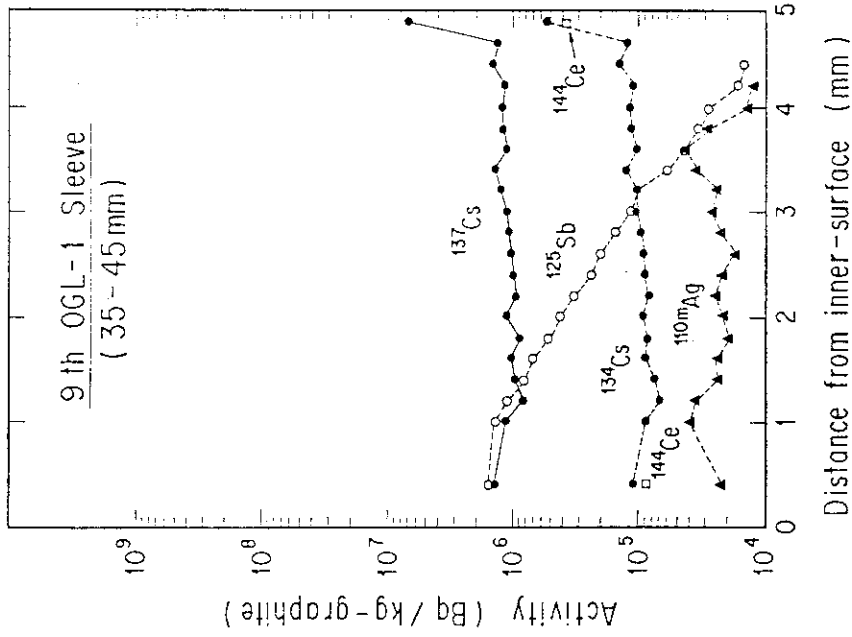


Fig. 3.3b Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 35-45 mm from its top.

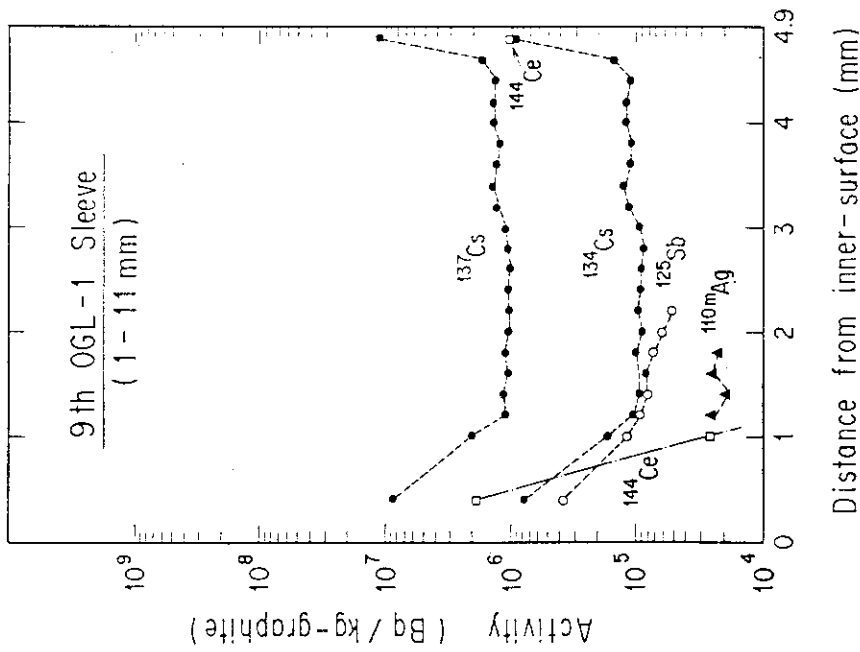


Fig. 3.3a Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 1-11 mm from its top.

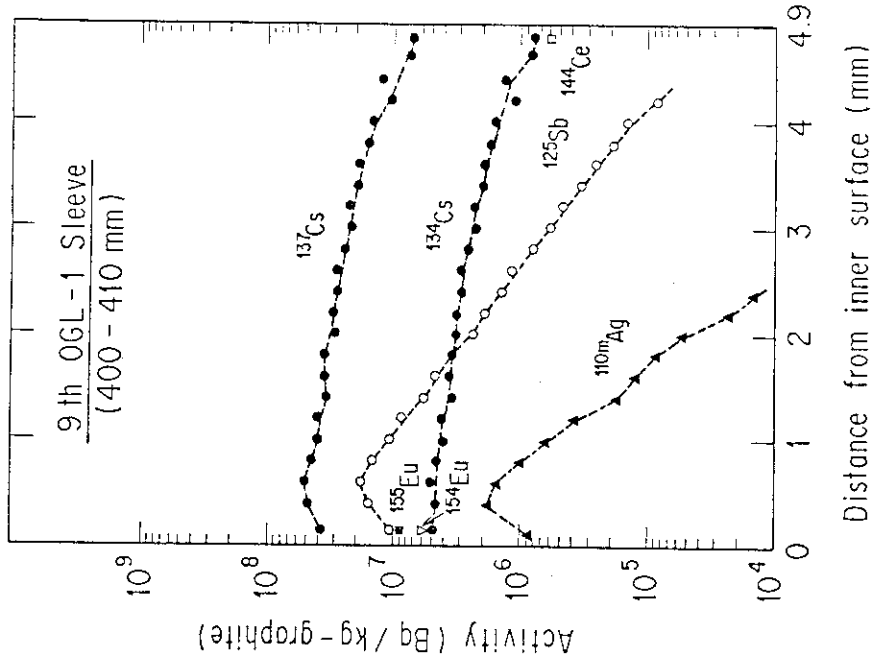


Fig. 3.3d Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 400-410 mm from its top.

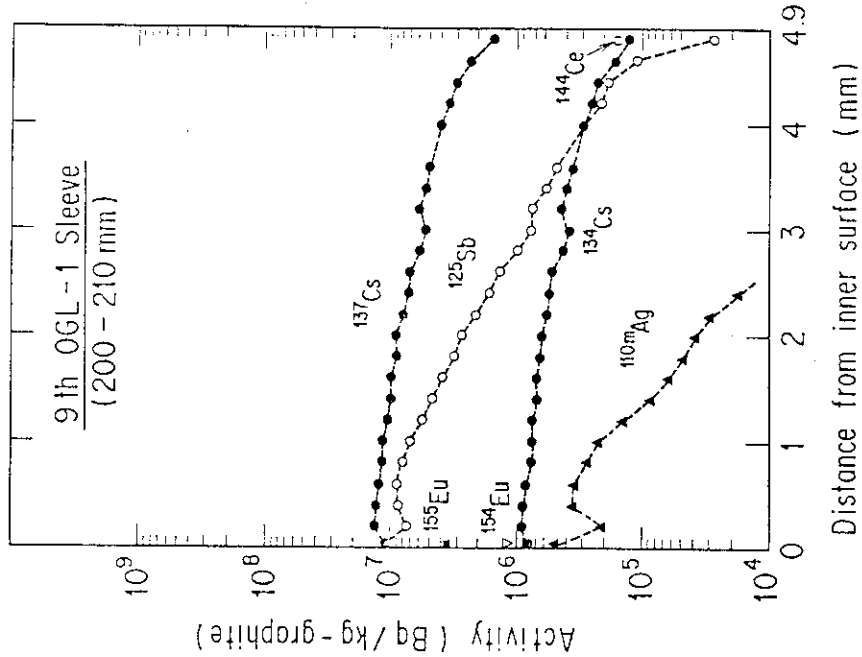


Fig. 3.3c Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 200-210 mm from its top.

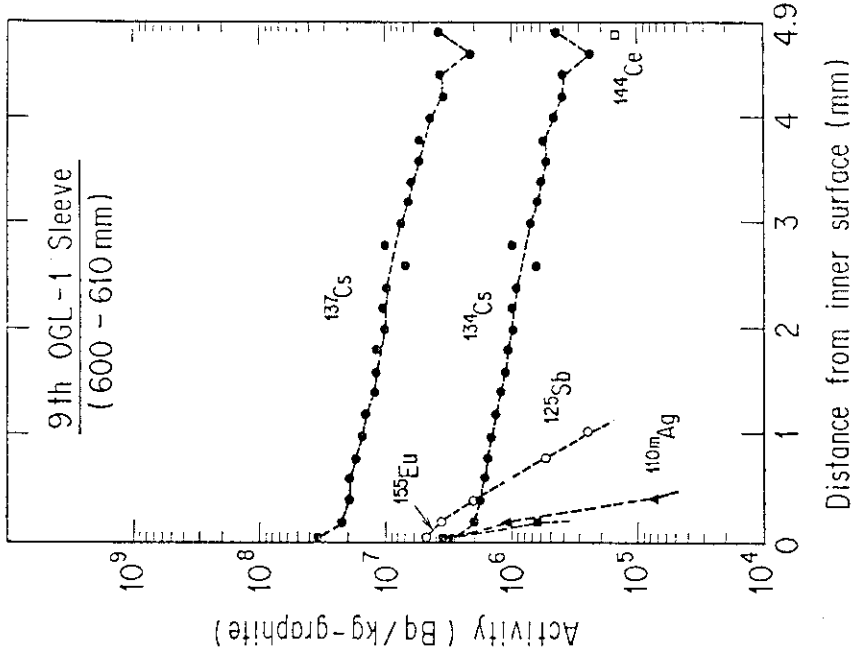


Fig. 3.3f Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 600-610 mm from its top.

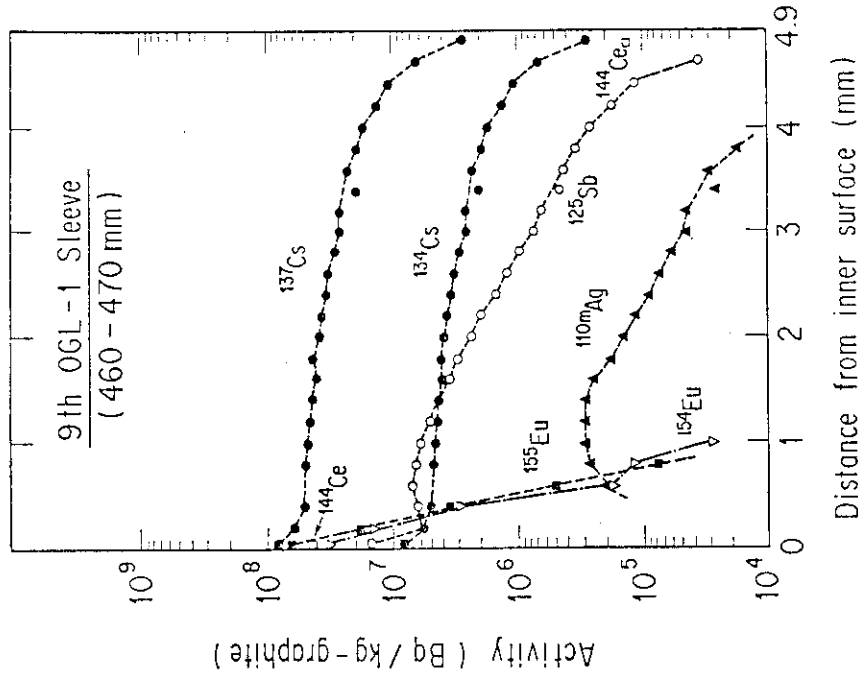


Fig. 3.3e Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 460-470 mm from its top.

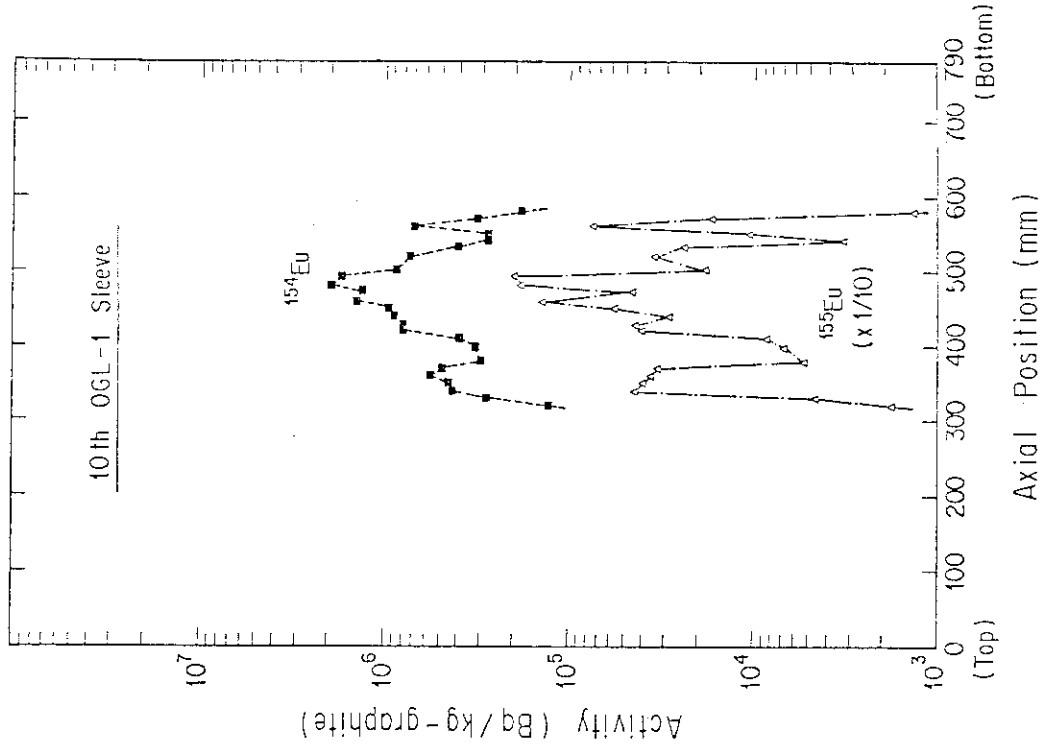


Fig. 3.4b Axial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly (continued).

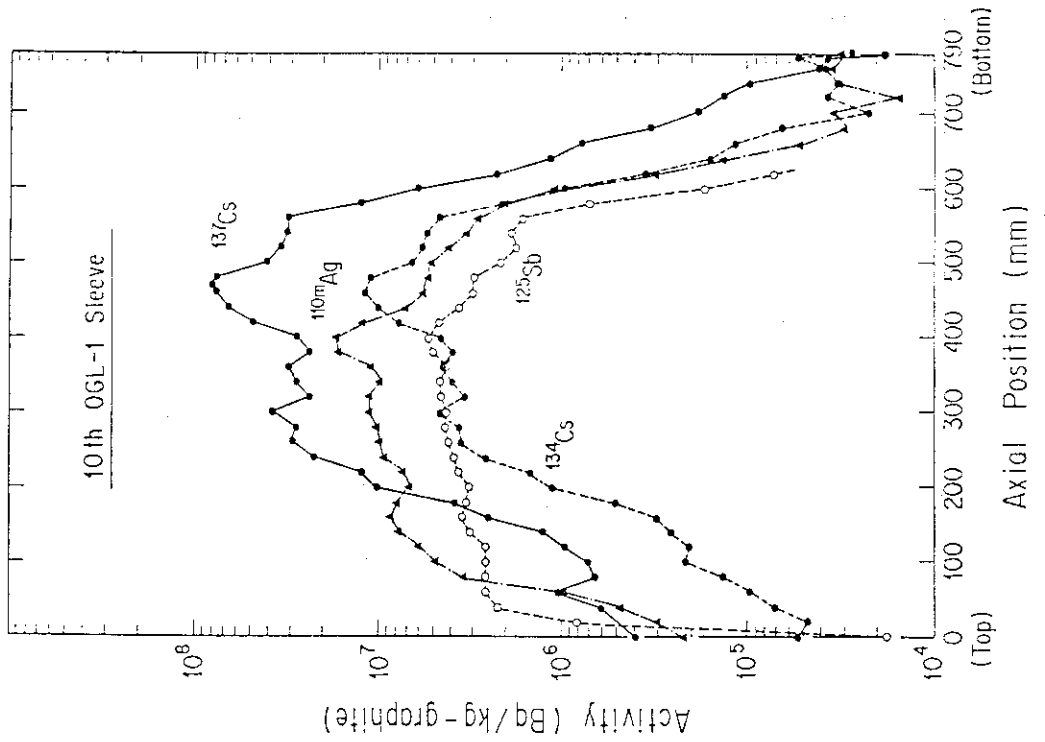


Fig. 3.4a Axial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly.

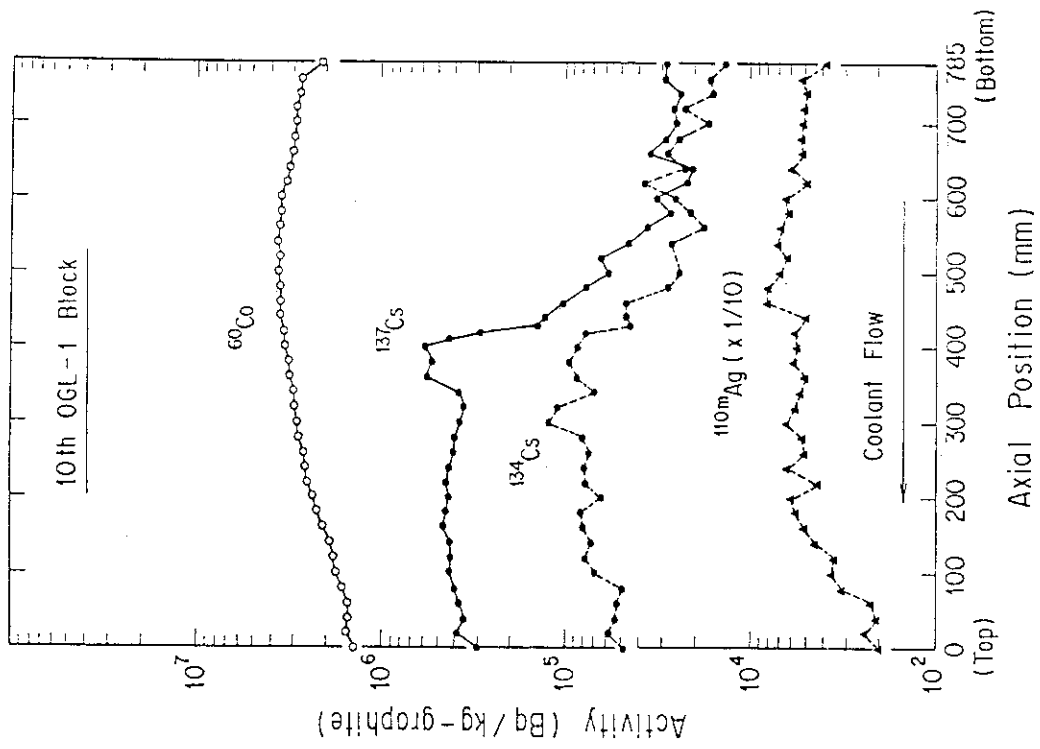


Fig. 3.5 Axial distribution of fission products and ^{60}Co in graphite block of the tenth OGL-1 fuel assembly.

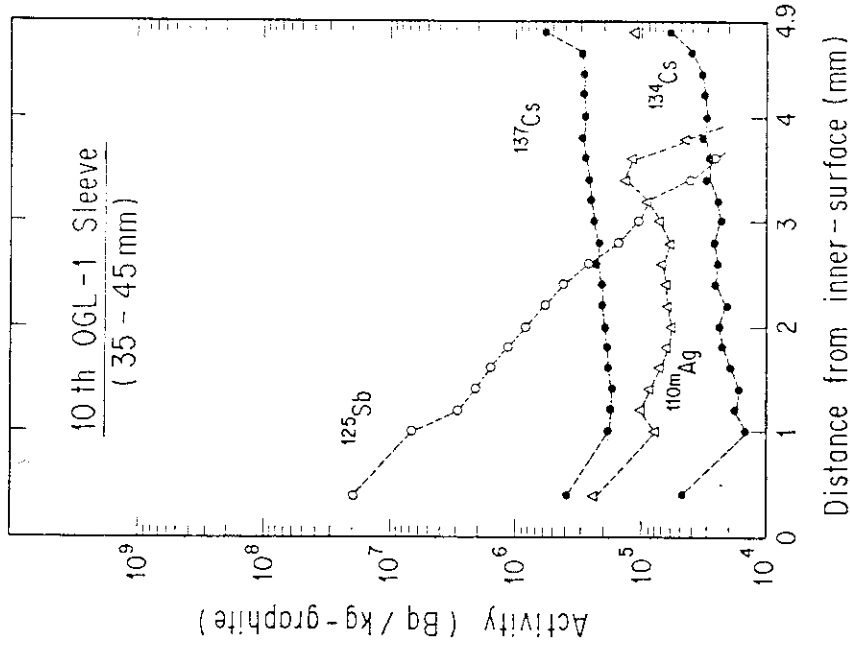


Fig. 3.6b Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 35-45 from its top.

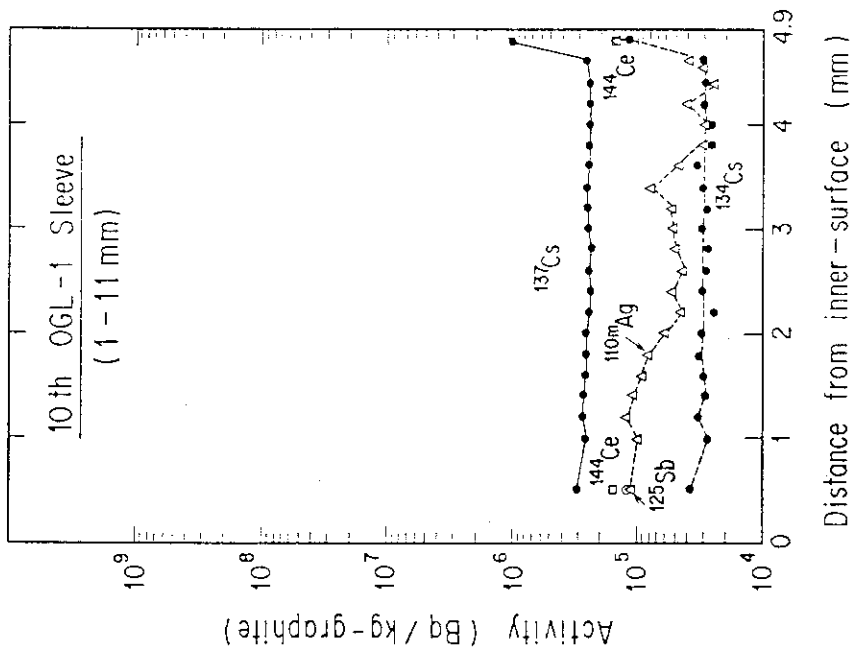


Fig. 3.6a Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 1-11 from its top.

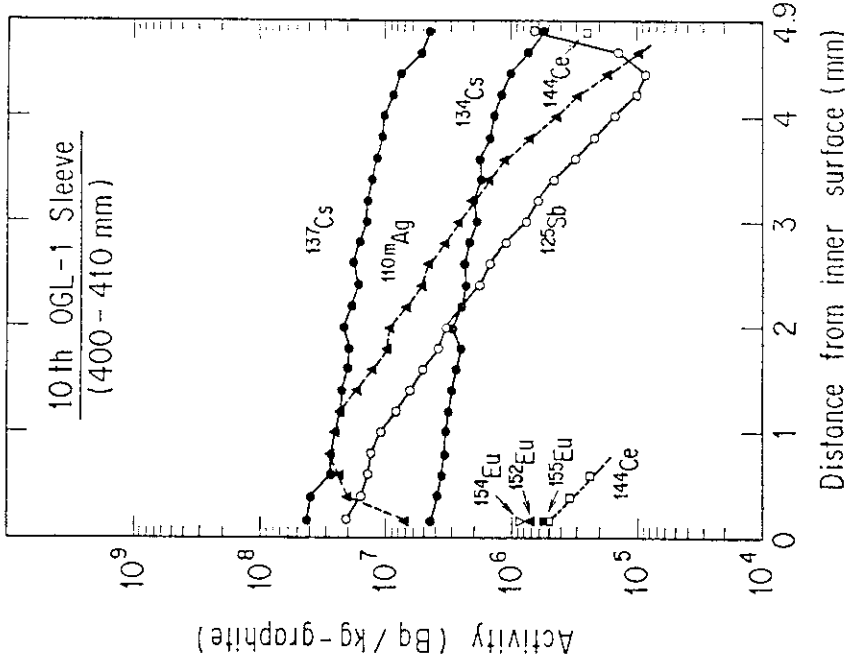


Fig. 3.6d Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 400-410 mm from its top.

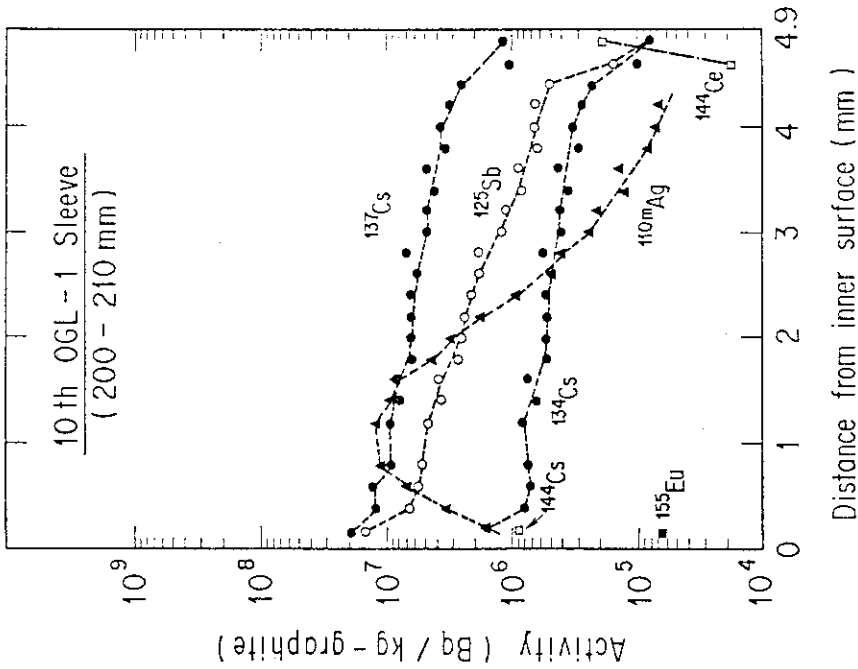


Fig. 3.6c Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 200-210 mm from its top.

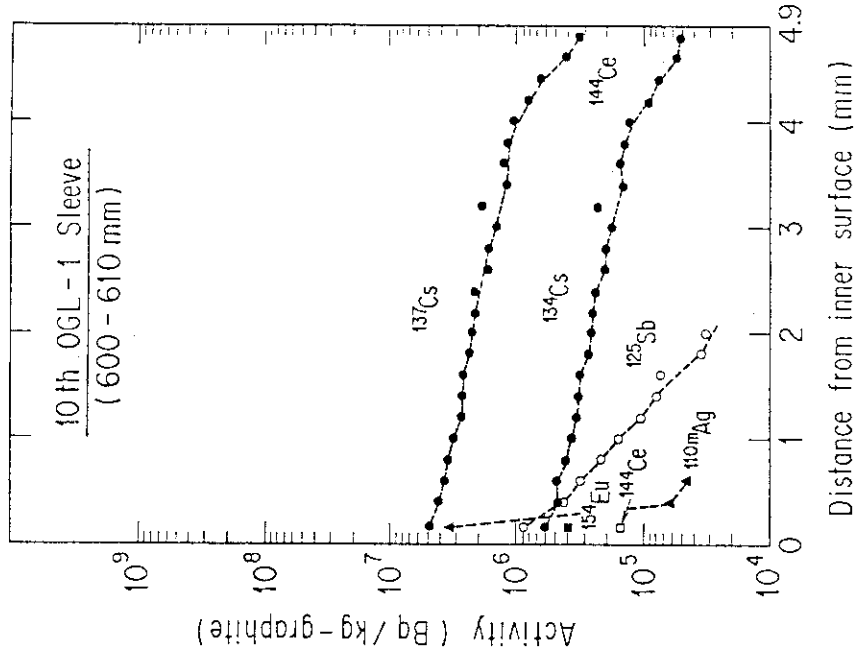


Fig. 3.6f Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 600-610 mm from its top.

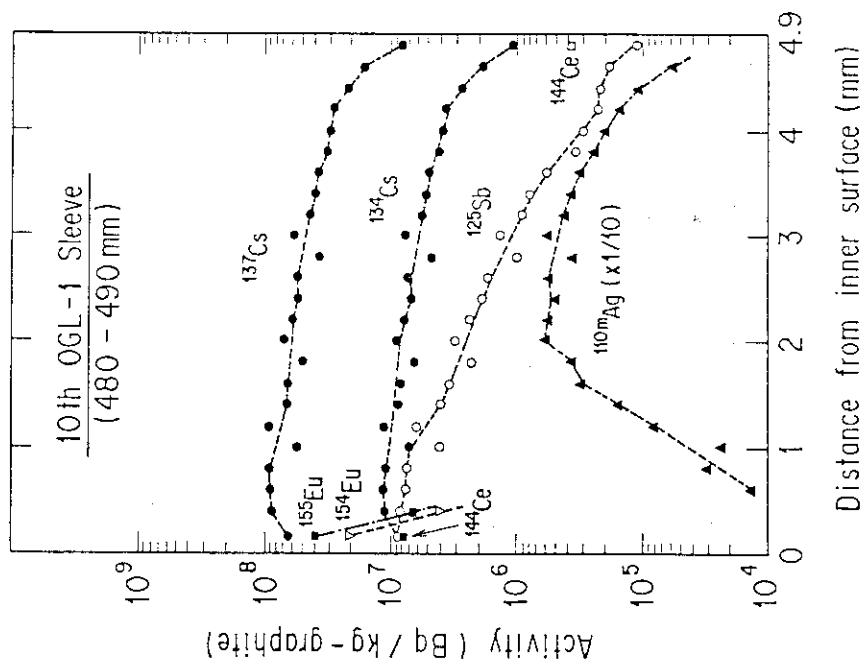


Fig. 3.6e Radial distribution of fission products in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 480-490 mm from its top.

4. 考 察

4.1 各核種の生成源⁽²⁹⁾

黒鉛スリーブや黒鉛ブロックの放射能測定で検出される核種の生成源としては、大きく分けて、(A) 黒鉛素材、燃料コンパクトの黒鉛マトリックス素材、被覆燃料粒子などの燃料体材料やOGL-1配管材料などの種々の構成材料中の不純物の放射化による生成、および(B) 核分裂性物質(OGL-1照射条件下では主に²³⁵U)の核分裂によるFPとしての生成、またはFPとして生成後の放射化による生成があげられる。以下に示すように、これらの寄与の割合は、燃料体材料中の不純物含有率、中性子照射量、燃料体各部の温度分布、燃料コンパクトからの移行量(これ自体が被覆粒子破損率、燃料体温度、照射時間等に依存する)、および配管材料からの移行量等の諸条件に依存する。

ここでは、放射化生成物としてしか生成しない核種(⁶⁰Co, ⁵⁸Co, ⁵⁴Mn, ¹⁸²Ta)を除き、FPとして生成しうる核種について、その生成源の検討を行なう。Fig. 4.1a~4.1eに黒鉛スリーブ中で検出された各核種の生成の核分裂および放射化系列を示す。またTable 4.1にこれらの生成過程に関連した核データをまとめて示す。

第9次および第10次OGL-1燃料体の照射後の被覆粒子破損率は各々 $(1\sim 2) \times 10^{-3}$ および $(1\sim 8) \times 10^{-4}$ とこれまでのOGL-1燃料体の中では高いレベルにある。後に述べるように、今回の測定で黒鉛材料中で検出された核種のうち、¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ce(スリーブ内表面側)については主に破損粒子から放出されたものであると考えている。

一方、温度1400℃程度以下、照射期間百数+日程度の通常照射条件については、被覆粒子破損率が低い時には¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ceの被覆粒子からの放出率も低く、健全な被覆粒子からのこれらの核種の放出が実際上無視できる程度であることが、これまでの高温ガス炉燃料の多くの照射経験からわかっている。また、照射後加熱によって、¹³⁷Cs, ¹³⁴Csを含めた金属FP核種の健全TRISO被覆粒子からの放出挙動を調べる実験⁽⁴³⁾が行なわれており、上のことが定量的に確かめられつつある。

(1) ¹³⁷Cs および ¹³⁴Cs

¹³⁷Csは本照射条件下では実際上全てFPとしてしか生成しないと考えるのが良い。一方、¹³⁴Csについては前記のように、(A) 不純物として存在する天然同位体¹³³Cs(存在比100%)の放射化(中性子捕獲)による生成、および(B) 核分裂およびその後の崩壊によって生じた¹³³Csの中性子捕獲による生成がありうる。従って条件によっては両核種の相対的分布には違いが見られることがある。例えば、第5次燃料体では^(29, 33)黒鉛スリーブの下端部でこの違いが見られる。これは不純物起源の¹³⁴Csの寄与がこの部分で相対的に大きくなったためであると解釈した。

しかし本燃料体の黒鉛スリーブについては、両核種は軸方向、径方向ともに極めて良く似た分布をしている。これは、両核種がいずれもFPとして生じたものであることを示している。さらに、上記のように、第9次および第10次OGL-1燃料体の被覆粒子破損率が相当高いこと、および健全粒子からのCs放出は破損粒子からの放出に比較して通常の条件下では無視しうるほど小さいことから考えて、両核種は主に破損粒子から放出されたと考えるのが妥当である。

4. 考 察

4.1 各核種の生成源⁽²⁹⁾

黒鉛スリーブや黒鉛ブロックの放射能測定で検出される核種の生成源としては、大きく分けて、(A) 黒鉛素材、燃料コンパクトの黒鉛マトリックス素材、被覆燃料粒子などの燃料体材料やOGL-1配管材料などの種々の構成材料中の不純物の放射化による生成、および(B) 核分裂性物質(OGL-1照射条件下では主に²³⁵U)の核分裂によるFPとしての生成、またはFPとして生成後の放射化による生成があげられる。以下に示すように、これらの寄与の割合は、燃料体材料中の不純物含有率、中性子照射量、燃料体各部の温度分布、燃料コンパクトからの移行量(これ自体が被覆粒子破損率、燃料体温度、照射時間等に依存する)、および配管材料からの移行量等の諸条件に依存する。

ここでは、放射化生成物としてしか生成しない核種(⁶⁰Co, ⁵⁸Co, ⁵⁴Mn, ¹⁸²Ta)を除き、FPとして生成しうる核種について、その生成源の検討を行なう。Fig. 4.1a~4.1eに黒鉛スリーブ中で検出された各核種の生成の核分裂および放射化系列を示す。またTable 4.1にこれらの生成過程に関連した核データをまとめて示す。

第9次および第10次OGL-1燃料体の照射後の被覆粒子破損率は各々 $(1\sim 2) \times 10^{-3}$ および $(1\sim 8) \times 10^{-4}$ とこれまでのOGL-1燃料体の中では高いレベルにある。後に述べるように、今回の測定で黒鉛材料中で検出された核種のうち、¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ce(スリーブ内表面側)については主に破損粒子から放出されたものであると考えている。

一方、温度1400℃程度以下、照射期間百数+日程度の通常照射条件については、被覆粒子破損率が低い時には¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Eu, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ceの被覆粒子からの放出率も低く、健全な被覆粒子からのこれらの核種の放出が実際上無視できる程度であることが、これまでの高温ガス炉燃料の多くの照射経験からわかっている。また、照射後加熱によって、¹³⁷Cs, ¹³⁴Csを含めた金属FP核種の健全TRISO被覆粒子からの放出挙動を調べる実験⁽⁴³⁾が行なわれており、上のことが定量的に確かめられつつある。

(1) ¹³⁷Cs および ¹³⁴Cs

¹³⁷Csは本照射条件下では実際上全てFPとしてしか生成しないと考えると良い。一方、¹³⁴Csについては前記のように、(A) 不純物として存在する天然同位体¹³³Cs(存在比100%)の放射化(中性子捕獲)による生成、および(B) 核分裂およびその後の崩壊によって生じた¹³³Csの中性子捕獲による生成がありうる。従って条件によっては両核種の相対的分布には違いが見られることがある。例えば、第5次燃料体では^(29, 33)黒鉛スリーブの下端部でこの違いが見られる。これは不純物起源の¹³⁴Csの寄与がこの部分で相対的に大きくなったためであると解釈した。

しかし本燃料体の黒鉛スリーブについては、両核種は軸方向、径方向ともに極めて良く似た分布をしている。これは、両核種がいずれもFPとして生じたものであることを示している。さらに、上記のように、第9次および第10次OGL-1燃料体の被覆粒子破損率が相当高いこと、および健全粒子からのCs放出は破損粒子からの放出に比較して通常の条件下では無視しうるほど小さいことから考えて、両核種は主に破損粒子から放出されたと考えるのが妥当である。

ここで、両核種の挙動を更に検討するため、黒鉛スリーブ中と被覆粒子中における $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能（インベントリ）の比を考える。Fig. 4.2 a, 4.2 bはこの比を黒鉛スリーブ径方向についてプロットしたものである。また、燃料棒においてはほぼ対応する軸方向位置における燃料コンパクトと黒鉛スリーブ中の両核種の放射能の比をTable 4.2 a および 4.2 b で比較する。例えばTable 4.2 aを見ると、第9次燃料体の中央部では $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の比はスリーブ中で ~ 0.096 に対して被覆粒子中では 0.092 と良く一致していることがわかる。すなわち、高温かつ高中性子束である燃料棒中央部では（破損した）被覆粒子燃料核中でFPとして生じた ^{134}Cs と ^{137}Cs が殆んど同一の放出挙動をとることによって黒鉛スリーブ中へ移行したことが確かめられたと言える。

なお、Fig. 4.2において、黒鉛スリーブ下端部（上端より670-680 mm, および720-730 mm）ではスリーブ外表面側へ向かうにつれて $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の比が大きくなっていることがわかる。これは、外表面に向かうにつれて ^{137}Cs の放射能が低くなるのに対して、 ^{134}Cs の放射能がほぼ一様になっているためであり、これは黒鉛中の不純物 ^{133}Cs の放射化による ^{134}Cs の生成の寄与が低温、低中性子束部分では相対的に大きくなることによると解釈することができる。

一方、第9次、第10次燃料体の黒鉛ブロック中では ^{137}Cs と ^{134}Cs の軸方向分布に違いが見られた（Fig. 3.2 および Fig. 3.5）。上記のとおり、 ^{137}Cs は燃料棒（主に破損した被覆粒子）から移行したものであると考える。しかし、 ^{134}Cs についてはそのほかに、黒鉛素材中に不純物として含まれていた ^{133}Cs の放射化による生成があり、黒鉛ブロック下方側では不純物の寄与のほうが相対的に大きいと考えることによって、両核種の分布の違いは説明できる。3.1.2項および3.2.2項でも述べたように、 ^{134}Cs の軸方向分布が ^{60}Co の軸方向分布、すなわち熱中性子束の相対分布に良く一致していることが、この推論の根拠である。

(2) ユーロピウム同位体

Eu同位体のうち通常検出されるのは ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu である。Table 4.1 に示すように天然には ^{151}Eu , ^{153}Eu が約50%ずつ存在し、中性子捕獲断面積は ^{151}Eu が 5800b ($1\text{b} = 10^{-28}\text{m}^2$), ^{153}Eu が 380b のため、不純物放射化の場合、生成放射能の大小は

$$^{155}\text{Eu} \ll ^{154}\text{Eu} < ^{152}\text{Eu}$$

となる。一方、FPとして生成する場合には、熱中性子照射量が多くない時はFPとして生成した後の中性子捕獲による生成は無視できるので生成放射能は殆んど核分裂収率（Table 4.1 参照）のみによって定まる。この時、放射能の比は

$$^{155}\text{Eu} > ^{154}\text{Eu} \gg ^{152}\text{Eu}$$

と上と全く反対となる。熱中性子照射量が多くなると、FPとして生じる ^{151}Eu , ^{153}Eu が中性子捕獲反応によって各々 ^{152}Eu , ^{154}Eu となり、一方 ^{155}Eu は ^{156}Eu へと核変換されるので各核種の放射能の相対比は変化する。

本測定においては ^{152}Eu は殆んど検出不能であり、また ^{154}Eu と ^{155}Eu はよく似た分布を示した。放射能の大きさとしては

$$^{155}\text{Eu} \simeq ^{154}\text{Eu} \gg ^{152}\text{Eu}$$

である。これらの結果は検出された ^{155}Eu , ^{154}Eu が主にFPとして生成したものであることを示している。

^{152}Eu が検出されなかったのは、他の核種の放射能が相対的に強かったため、測定時間を短くしたことが原因であると考えている。黒鉛素材中の不純物 ^{151}Eu , ^{153}Eu のレベルとしては、 ^{152}Eu が

検出された第8次OGL-1燃料体^(44,45)の黒鉛素材と同程度であると考えている。十分長時間測定を行ないバックグラウンドの影響を小さくすることができるなら¹⁵²Euが検出できるはずである。

(3) ¹²⁵Sb

¹²⁵Sbは実際上FPとしてしか生じず、不純物の放射化による生成は無視できると考えることができる。というのは、Fig. 4.1cから次のことが言えるからである。

① 不純物放射化のターゲット核種として¹²³Sbが考えられるが、¹²³Sb → ¹²⁴Sbへの熱中性子捕獲断面積が3.9bと小さく、さらに¹²⁴Sb → ¹²⁵Sbの熱中性子捕獲断面積も7bと小さい。このため不純物として¹²³Sbがよほど多いか熱中性子照射量が高くない限り¹²⁵Sbの生成量は少ないはずである。

② 不純物放射化のターゲット核種として¹²⁴Snも考えられるが、¹²⁵Snおよび^{125m}Snへの熱中性子捕獲断面積が合計0.14bと小さい。

第1次～第10次のOGL-1燃料体の黒鉛材料中のFP分布測定を通して、検出された¹²⁵Sbが明らかに不純物起源であると判断できる例はない。

第9次および第10次燃料体の黒鉛材料中で検出された¹²⁵Sbは主に破損した被覆粒子から放出されたものを判断することができる。一般に照射後の被覆粒子破損率はウランの酸浸出で定義されるが、¹⁴⁴Ceの酸浸出率と殆んど等しいことがわかっている。⁽⁴⁶⁾ 一方、¹⁴⁴Ceの酸浸出率が小さい時、すなわち被覆粒子破損率が低い時、¹²⁵Sbの酸浸出率も小さいことが経験的にわかっている。すなわち¹²⁵Sbの健全被覆粒子からの放出は通常の照射条件下では無視できる。また、¹²⁵Sbが健全粒子から放出されにくいことは、1600°C以上の高温における照射後加熱実験によって確かめられつつある。⁽⁴³⁾

(4) ¹⁴⁴Ce

¹⁴⁴CeはFig. 4.1dの崩壊・放射化系列から見て実際上FPとしてしか生成しないと考えられる。また前項¹²⁵Sbの生成源に関連して述べたように、¹⁴⁴Ceの酸浸出率は被覆粒子破損率と良く一致しており、このことは健全なTRISO被覆粒子からの¹⁴⁴Ceの放出は通常照射条件下では破損粒子からの放出に比して無視できると予想する1つの根拠である。

本測定において、黒鉛スリーブ内表面側で検出された¹⁴⁴Ceの生成源としては、破損粒子がまず考えられる。第8次OGL-1燃料体で、燃料コンパクトの外表面上に破損粒子が存在する場合には多量の¹⁴⁴Ceの黒鉛スリーブへの移行（すなわち、濃度ピーク）が見られたが、燃料コンパクト内部に破損粒子が存在する場合には¹⁴⁴Ceの濃度ピークは見られなかった。すなわち、破損粒子が燃料コンパクト内部にある場合には、¹⁴⁴Ceは黒鉛マトリックスによって有効に保持されることがわかった。第9次および第10次OGL-1燃料体の照射後試験において、燃料コンパクトの表面には破損粒子は観察されておらず、破損粒子は殆んどが燃料コンパクトの内部に存在しているものと推定される。

(5) ^{110m}Ag

^{110m}Agの生成源としてはFig. 4.1bからわかるように、(A)不純物として含まれる安定同位体¹⁰⁹Agの放射化（中性子捕獲）、および、(B)FPとして生じる¹⁰⁹Agの放射化がある。FPとして生じる^{110m}Agの被覆粒子中のインベントリは、OGL-1燃料体のように²³⁹Puの核分裂割合が小さい場合には、¹³⁷Csなどこれまでに述べた他の金属FP核種に比べて極めて小さいため通常のガンマ線スペクトル分析では検出が難しい。

黒鉛スリーブおよび黒鉛ブロック中で検出された^{110m}Agについては、被覆粒子から放出された可能性はあるが、それと共に、むしろ不純物の放射化によって生成するもののほうが多い可能性があると考えられる。これに関連した実験事実を以下に列挙する。

① ^{110m}Ag の黒鉛スリーブ中の径方向分布（例えばFig. 3.3d）から見て、 ^{110m}Ag は黒鉛スリーブ中に有効に保持されたと考えることができるにもかかわらず、黒鉛ブロック中に相当高濃度で検出される。

② 黒鉛ブロック中の ^{110m}Ag の軸方向分布はほぼ熱中性子束分布に対応しており（Fig. 3.2および3.5）、FPとして黒鉛スリーブ側から移行したことが確実な ^{137}Cs の分布とは相当異なる。むしろ、不純物の放射化によって生成したと考えている ^{134}Cs の分布に似ている。

③ 燃料コンパクトの黒鉛マトリックス素材は黒鉛素材IG-110に比べて不純物含有量レベルが高く、有意量の ^{109}Ag が含有されている可能性がある。ちなみに黒鉛フェルト製緩衝板に ^{110m}Ag が相当多量に検出されている。

④ 黒鉛スリーブ中の軸方向分布において、破損粒子との関連が見られず、また、他のFP核種の分布との相関も見られない。これらの事実から考えられることは、以下のことである。

Ⓐ 黒鉛スリーブ中で検出される ^{110m}Ag は黒鉛マトリックス中の不純物の放射化によって主に生成したものである。

Ⓑ 黒鉛ブロック中の ^{110m}Ag は、黒鉛素材中に含有された不純物、機械加工の際に黒鉛ブロック表面に付着した不純物、および冷却材から黒鉛ブロック側へ移行した不純物等の ^{109}Ag の放射化によって主に生成したものである。

^{110m}Ag の生成源については、OGL-1炉内管の交換後に初めて照射する第1次燃料体中の分布に注目する必要がある。というのは、炉内管の交換によってそれまでに炉内管の管壁上に沈着していた ^{110m}Ag は取り除かれるうえ、この第1次燃料体の照射時間が3サイクル（約60日）と短かいため被覆粒子中の ^{110m}Ag の生成量（インベントリ）が極めて少ないはずだからである。ところが、それにもかかわらず、OGL-1配管のプレートアウト放射能測定において ^{110m}Ag および ^{111}Ag が相当高濃度で検出されている。この配管上の ^{110m}Ag については、主に不純物 ^{109}Ag の放射化によって生じたものであることはほぼ確実である。

4.2 黒鉛スリーブ中への核分裂生成物の放出割合

黒鉛スリーブ中で検出された各FP核種について、燃料コンパクトから黒鉛スリーブ中へと移行した割合を考える。まず、各核種ごとに次式によって放射能比を定義する。

$$\text{放射能比} = \frac{\text{黒鉛スリーブ中の単位長さあたりの放射能}}{\text{燃料コンパクト中の単位長さあたりの放射能}} \dots\dots\dots(1)$$

実際には燃料棒の軸方向10mm幅を考えて、この部分に含まれる放射能の比をとった。

式(1)からわかるように、注目する核種がFPとしてしか生成しない場合には、その殆んど全ては燃料コンパクト内で生成し、その後スリーブ中へと移行することになるので、上の放射能は燃料コンパクト中からスリーブ中への放出割合（fractional release into sleeve）、またはスリーブ中の残留割合（residual fraction in sleeve）になる。しかし、注目する核種が黒鉛材料中、冷却材中、配管材料中などの不純物の放射化によって主に生成する場合には燃料コンパクトからの放出割合にはならない。この例として、著者らは ^{110m}Ag を考えていることはこれまで述べたとおりである。

(1) 各FP核種の放出割合の軸方向分布

Fig. 4.3a およびFig. 4.3b に各々、第9次および第10次燃料体についてのスリーブ中への放出割合を示す。これらの図においてまず気づくのは ^{137}Cs と ^{134}Cs の放出割合が良く一致していることである。注意して見るとこの放出割合の値は上端および下端では ^{137}Cs よりも ^{134}Cs のほうが有意に大きいことがわかる。これは3.1.3にも述べたように両端の低温・低照射量位置において、 ^{134}Cs の全存在量に対する不純物放射化の寄与が燃料コンパクトからの放出の寄与よりも大きくなったためであると解釈できる。

^{137}Cs の放出割合の最大値は黒鉛スリーブ軸方向中央付近の高温部で得られ、その値は第9次燃料体では $\sim 4 \times 10^{-6}$ 、第10次燃料体では $\sim 7 \times 10^{-6}$ である。

第2次～第6次OGL-1燃料体について同様に求めて ^{137}Cs のスリーブ中への放出割合をFig. 4.4に示す。⁽²⁹⁾これからわかるように、第9次および第10次燃料体の ^{137}Cs 放出割合は高いレベルにあり、第5次燃料体の場合と同程度である。

その他の核種についても考える。 ^{110m}Ag については燃料コンパクト中（被覆粒子中）の放射能インベントリが小さすぎて実測値が得られなかったため放射能比は求めていない。

^{154}Eu 、 ^{155}Eu についてはスリーブ径方向の分布において内表面近傍だけにしか検出されておらず、燃料コンパクト側から黒鉛スリーブ中に移行したものは實際上全てスリーブ内に保持されていると考えることができる。

^{125}Sb についてもスリーブ径方向の濃度勾配が大きく、かつ定常状態の濃度プロファイル（濃度および径方向位置を線型目盛でプロットすると直線状になることが期待される）には到達していない。従って燃料コンパクト側からスリーブ中に移行した ^{125}Sb のごく一部はスリーブを透過して冷却材中へ移行したものの、大部分はスリーブ中に保持されたと考えることができる。

従って ^{154}Eu 、 ^{125}Sb についてFig. 4.3a および4.3bに示した放射能比は燃料コンパクトからの全放出割合にほぼ等しいと考えて良い。この全放出割合は第9次燃料体については 10^{-6} の桁である。同燃料体の照射後被覆粒子破損率（ ^{144}Pr の酸浸出率）として $(1 \sim 2) \times 10^{-3}$ という値が得られており、これと比べると、破損粒子1個あたりのこれらの核種のスリーブ中への放出割合は 10^{-3} 程度という相当小さい値にすぎないことがわかる。これは、 ^{154}Eu 、 ^{125}Sb が破損粒子中にも相当保持されることと、燃料コンパクトの黒鉛マトリックスにも保持されるためであると考えている。

(2) ^{137}Cs および ^{125}Sb のスリーブ軸方向移行挙動

Fig. 4.3a およびFig. 4.3bに示した ^{137}Cs の黒鉛スリーブ中への放出割合をスリーブ温度および燃料コンパクト温度についてプロットしたものをFig. 4.5a～4.5dに示す。Fig. 4.5aについて見るとスリーブ上端側と下端側で同じスリーブ温度に対して ^{137}Cs 放出割合は異なった値となっており、上端側のほうが放出割合が大きいことがわかる。これは冷却材流れの影響によるものと考えられる。すなわち、次節にも述べるように、スリーブ中央付近の高温部から冷却材中へ放出された ^{137}Cs が冷却材の流れに乗って上端側に移動し、冷却材中とスリーブ外表面上での吸脱着関係を通して、より低温である上端側の黒鉛スリーブ外表面上に吸着したものであると考える。このことは、次節に示す黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs の濃度プロファイルから見てもほぼ確実である。

^{125}Sb についてもこれと同様に黒鉛スリーブ中への放出割合を黒鉛スリーブ温度および燃料コンパクト温度に対してプロットしたものをFig. 4.6a～4.6dに示す。例えばFig. 4.6aを見ると、

^{125}Sb についても放出割合はスリーブ上端側で大きくなっているが、これを冷却材流れによるスリーブ外表面側での吸脱着の影響と考えることはできない。というのは、Fig. 3.3a ~ 3.3c に示したように、スリーブ上端近くにおいて外表面上の ^{125}Sb 濃度は内部に比べて小さく、外表面上での吸脱着がスリーブ軸方向への移行に影響を与えていることは考えられないからである。

逆に、スリーブ内面側では ^{125}Sb の上端側への輸送が生じていることがわかる。すなわち、燃料棒上端近くにおいて、もはや燃料コンパクトではなく上部緩衝板に接している部分（上端から 35-45 mm の位置）のスリーブ内面において、Fig. 3.3b および Fig. 3.6b に示したように ^{125}Sb は相当高濃度で存在している。さらに、スリーブ最上端部の端栓部分のスリーブ内面（Fig. 3.3a および Fig. 3.6a）においてさえ ^{125}Sb がある程度の濃度で検出されている。これらの位置においては、 ^{125}Sb の生成源である燃料コンパクトはないことから、スリーブ内面側での ^{125}Sb の軸方向移動が生じたことは確実である。

このようなスリーブ内面側における上端側への移行の原因に関しては現在のところ明らかではない。1つの可能性としては次に述べる黒鉛スリーブと燃料コンパクト間のギャップにおける冷却材 He の流れの影響が与えられる。

黒鉛材料は一般に多孔性であり、He の透過性が大きい。^(47, 48) OGL-1 燃料体の運転中において、燃料棒の下端と上端では $\sim 0.02\text{ MPa}$ ($\sim 0.2\text{ kg f/cm}^2$) 程度の冷却材圧力差が生じる。⁽⁴⁹⁾ このため、スリーブ外表面側を流れる冷却材 He のうちごく一部は黒鉛スリーブ下端側のスリーブ肉厚部を透過してスリーブ内面に到達し、スリーブと燃料コンパクト間のギャップを上昇した後上端部で端栓ネジ部を通過して冷却材流れの本流に合流することが考えられる。このギャップを流れる冷却材によって ^{125}Sb が燃料棒中央部の高濃度領域（高温）から上端部に向かって運ばれ、上端部（中央部に比べてより低温）の黒鉛スリーブ内表面上に吸着（収着）した可能性がある。

この仮定が正しいとすれば、OGL-1 燃料体照射条件下では燃料棒上端の端栓ネジ部を通過して燃料棒の外部に移行する ^{125}Sb が（量的にはわずかにせよ）存在することになる。一方、HTTR では燃料棒の端栓は上端にあることは OGL-1 燃料体と同じであるが、冷却材 He は OGL-1 燃料体の場合とは逆に下向きに流れる設計となっている。従って、黒鉛スリーブと燃料コンパクトのギャップに冷却材が流れ込むとしても、冷却材は最終的にはスリーブ肉厚部分を透過してスリーブ外表面側に到達することになる。この場合には ^{125}Sb がギャップ中の冷却材流れに乗ったとしても最終的にはスリーブ径方向の拡散による放出抵抗を受けることになり、直ちに燃料棒の外部に放出されることは考えられない。

^{125}Sb の燃料棒軸方向移行については、上に述べた黒鉛スリーブと燃料コンパクト間の気相ギャップ中の輸送のほかに、①燃料コンパクトの黒鉛マトリックス外表面に沿う表面拡散、②燃料コンパクトの（外観上の）内部を透過する拡散、③黒鉛スリーブ内表面に沿う表面拡散、およびこれらの黒鉛炭素材料表面における吸脱着など様々なプロセスが考えられる。これらの点を含めて、 ^{125}Sb のスリーブ内面での軸方向移動の機構については今後の課題とする。

4.3 冷却材流れの影響

今まで述べてきた ^{137}Cs の移行挙動に及ぼす冷却材 He の流れの影響についてまとめて考える。

(1) 黒鉛ブロック中の ^{137}Cs の分布

Fig. 4.7 および Fig. 4.8 は各々、第9次および第10次 OGL-1 燃料体の黒鉛スリーブと黒鉛ブロックの軸方向の ^{137}Cs の分布を比較したものである。前述のように ^{137}Cs は不純物の放射化によっては生じない核種であるので、黒鉛ブロック中で検出される ^{137}Cs は全て燃料コンパクト中で生成し、黒鉛スリーブ中を拡散透過して冷却材中へと移行し、さらに黒鉛ブロック中への移行したものと考えて良い。なお、黒鉛スリーブおよび黒鉛ブロックの素材に含まれる不純物ウランから生成する ^{137}Cs の量は燃料コンパクトから放出される ^{137}Cs 量に比べて無視できる。

2つの図からわかるように、スリーブ中では ^{137}Cs は軸方向にほぼ対称に分布しているが、ブロック中では冷却材流れの下流側であるスリーブ上端側で相対的に高濃度となる偏った分布をしている。これは黒鉛スリーブ外表面から冷却材中へと放出された ^{137}Cs が冷却材流れに乗って下流側に流され、黒鉛ブロック内表面に沈着したと考えるのが最も妥当な解釈である。

Fig. 4.7, Fig. 4.8 において黒鉛ブロックの中央付近で ^{137}Cs の濃度が小さなピークを形成していることがわかる。この位置には、黒鉛スリーブにスペーサと呼ばれる冷却チャンネル保持用の突起が黒鉛スリーブの製造の際につけられている。このスペーサによって冷却材の流れは乱れをうける。この流れの乱れのため、 ^{137}Cs が黒鉛ブロック表面上に沈着（収着）しやすくなって濃度ピークを生じたものと解釈することができる。

このような冷却材流れの影響は部分的には第5次燃料体の黒鉛ブロック中の FP 分布（文献29の P.2.2.6）で見られているものの、あまり明確ではなかった。今回、第9次および第10次燃料体で明確にその影響が見られたのは、①これらの燃料体が1本棒タイプ（黒鉛ブロック中に燃料棒が1本だけ挿入されるタイプの OGL-1 燃料体）であるため黒鉛スリーブ中と黒鉛ブロック中の分布の対比がしやすいこと、および②黒鉛スリーブから放出された FP 量が多かったため測定しやすく、分布を詳しく調べることができたためであると考えている。

(2) 黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs 分布

黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs 濃度分布について、旋盤切削によって得た各分画中の濃度を、内表面側から2番目の分画の濃度で規格化したプロファイルを付録2および付録3に示す。ここでは典型的な分布を取り上げ、 ^{137}Cs の黒鉛スリーブ径方向および軸方向の移行挙動における冷却材 He の流れの影響について検討する。なお、内表面から1番目の分画においては（おそらく黒鉛開気孔への ^{137}Cs の吸着のために）濃度が内部に比べて特異的に高くなっており、この影響を避けるために上述のように第2番目の分画中の濃度で規格化した。

Fig. 4.9a～4.9h は各々、第10次 OGL-1 燃料体の燃料棒の、(a)最上端（端栓部；以下、上端より1-11mm）、(b)緩衝板位置（35-45mm）、(c)最上端燃料コンパクト位置（84OP20、45-55mm）、(d)130-140mm位置、(e)200-210mm位置、(f)中央部（400-410mm）、(g)600-610mm位置、および(h)第9次燃料体の下端部（720-730mm）における ^{137}Cs の規格化濃度分布である。図から明らかなように、上端から200mmより下側（Fig. 4.9e～4.9hで

は、 ^{137}Cs の規格化濃度は減少し、外表面側においてはゼロに近く (~ 0.1) になっている。これは燃料コンパクト内で生成した ^{137}Cs が黒鉛スリーブ中を径方向に拡散し、スリーブ外表面上で殆んど抵抗を受けることなく冷却材中に移行すること、すなわち拡散律速であることを示している。

一方、燃料棒上端近く (Fig. 4.9a ~ 4.9d) では外表面における規格化濃度はゼロに近づいてはならず、かなり大きい値 (> 0.5) を示している。これは、外表面における ^{137}Cs の吸脱着によるものと考えることができる。以下にやや詳しく検討する。

緩衝板位置 (Fig. 4.9b) においては、 ^{137}Cs 濃度は外表面側のほうが高く、内表面側に向かうにつれて濃度は減少している。これは、 ^{137}Cs の径方向の移動が主に外表面側から内表面側に向かって生じたことを示している。この外表面側から ^{137}Cs が流入する機構としては、前述の黒鉛ブロック中の分布と合わせて考えると、冷却材 He の上流側で黒鉛スリーブから放出された ^{137}Cs が下流側でスリーブ外表面上に吸着したと考えるのが妥当である。すなわち、上述のように、スリーブの上端より 200 mm の位置より下側では ^{137}Cs は外表面において抵抗を受けることなく容易に冷却材中へ放出される。放出された ^{137}Cs は冷却材 He の流れの流れて移動し、流れの下流でかつ相対的に低温部である上端近くにおいて、スリーブ外表面上と冷却材中の ^{137}Cs の吸脱着関係に通じて、外表面上に吸着すると考えることができる。この仮定に立つと、Fig. 4.9d の分布はこれらの中間的な場合であり、燃料コンパクト側からスリーブ外表面側への ^{137}Cs の拡散が主なプロセスではあるが、外表面上では冷却材中との吸脱着関係による“放出抵抗”が働いているため外表面濃度がゼロに近づいていないものと考えることができる。

なお Fig. 4.9a ~ 4.9h のいずれの図においてもスリーブ内表面側の 1 番目の分画における ^{137}Cs の濃度は内部での濃度に比べて相当高くなっている。これは、上述のとおり黒鉛自由表面で開気孔 (open pore) が多く、また冷却材中の不純物ガス (CO , H_2O など) による腐食をうけていないため ^{137}Cs に対する吸着作用が強く働いているためであると考えている。特徴的なことは、Fig. 4.9a, 4.9b のように燃料コンパクトを装荷していない位置においても内表面上の ^{137}Cs の濃度が高くなっていることである。これは、燃料コンパクト側からの軸方向移動、すなわち黒鉛スリーブ内表面に沿う ^{137}Cs の表面拡散、または燃料コンパクトと黒鉛スリーブ内面の間の狭いギャップ (直径公差 0.2 mm) 内での ^{137}Cs の気相拡散が生じていることを示唆している。

4.4 OGL-1 配管のプレートアウト放射能との関連^(50, 51)

OGL-1 ループの配管系では非破壊測定法によって運転中の布ガス濃度の測定および各運転サイクル終了後のプレートアウト (沈着) 放射能の測定を行なっている。配管系の放射能測定結果は、燃料体中の放射性核種の分布測定結果と密接に関係するはずであるので、両者の関連について検討する。

配管系の沈着放射能測定では、 ^{60}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{51}Cr などの放射化生成物のほかに、FP である ^{137}Cs 、 ^{131}I 、 ^{140}La などの核種が検出されている。しかし、後述するように、これらの核種の生成過程としては、FP としてのみ生成する場合のほかに、不純物放射化による寄与が含まれている場合があり、また FP としての生成の場合でも気体 FP 前駆体 (precursor) の形で燃料体から放出される可能性もあるので注意が必要である。

^{137}Cs は放射化によっては生成しないので、全て FP として燃料体から放出されたものと考えて良い。黒鉛スリーブ中の径方向分布 (例えば Fig. 3.4) や黒鉛ブロック中の分布 (Fig. 3.2) から見る

と、Csの形で冷却材He中へ移行し、さらに冷却材によって運ばれて配管上に沈着した ^{137}Cs が有意な量存在することは確実である。しかし、これと同時に、 ^{137}Cs の前駆体である ^{137}Xe (半減期3.7分)の形で燃料体から放出され、配管内で崩壊して ^{137}Cs となるものがあることに注意を要する。

例えば、第9次燃料体の照射中のOGL-1ループ中の希ガス ^{137}Xe の放射能から求めた ^{137}Xe の放出率(R/B; Release rate / Birth rate)は 1×10^{-5} 程度の値を持っている。⁽⁵⁰⁾ループ中に放出された ^{137}Xe は約2~3分でループを一周する冷却材の流れと共に移動し、崩壊して ^{137}Cs となる。そのうち極く一部は燃料体まで戻り、黒鉛スリーブや黒鉛ブロックの表面等に沈着するが、大部分はループの配管上に沈着するはずである。このとき、当然ながら、 ^{137}Xe は1つの運転サイクル中に全て ^{137}Cs へと崩壊すると考えて良い。

ここで、第9次燃料体の照射中に ^{137}Xe として放出されてループ全体(燃料体を含む)に沈着する ^{137}Cs 放射能を評価する。なお、照射開始時の ^{137}Xe の非定常放出(初期の短い時間にR/Bはゼロから一定値に近づく)の影響は小さいので、これを無視する。この時次式が成立する。

$$^{137}\text{Xe} \text{ 経由の沈着 } ^{137}\text{Cs} \text{ 原子数 } N = (\text{燃料中の } ^{137}\text{Xe} \text{ の生成速度 } B) \times (^{137}\text{Xe} \text{ の } R/B) \times (\text{時間})$$

^{137}Xe の核分裂収率 $\eta = 6.03\%$ 、燃料コンパクトの最大線出力 $P = 782 \text{ W/cm}$ 、出力ピーキング係数 $f = 1.32$ 、燃料コンパクト・スタック長 $\ell = 72 \text{ cm}$ 、核分裂1回あたりのOGL-1における発生熱エネルギー $E = 176 \text{ MeV/fission} = 2.82 \times 10^{-11} \text{ W}\cdot\text{sec/fission}$ を用いると⁽²⁸⁾

$$\begin{aligned} B &= \frac{P \cdot \ell \cdot \eta}{f \cdot E} \\ &= \frac{782 (\text{W/cm}) \times 72 (\text{cm}) \times 0.0603}{1.32 \times 2.82 \times 10^{-11} (\text{W}\cdot\text{sec/fission})} \\ &= 9.12 \times 10^{13} \text{ } (^{137}\text{Xe atoms/sec}) \end{aligned}$$

なる生成速度Bが得られる。さらに ^{137}Xe のR/Bを 1×10^{-5} 、照射時間を $3492 \text{ h} = 1.257 \times 10^7 \text{ sec}$ とおくと ^{137}Xe の崩壊によって生じる ^{137}Cs の全原子数は

$$\begin{aligned} N &= (9.12 \times 10^{13}) \times (1 \times 10^{-5}) \times (1.257 \times 10^7) \\ &= 1.146 \times 10^{16} \end{aligned}$$

となる。このとき、 ^{137}Cs の放射能は次式によって得られる。

$$\begin{aligned} -\frac{dN}{dt} &= \lambda N = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} N \\ &= \frac{0.693 \times 1.146 \times 10^{16}}{30.17 \times 365.25 \times 24 \times 60 \times 60} \\ &= 8.34 \times 10^6 \text{ Bq} \\ &= 0.225 \text{ mCi} \end{aligned}$$

^{137}Cs の全沈着量のうち、プレートアウト測定を行なえない位置の配管(例えば炉内管部)に沈着するものが一部あり、また上記のように燃料体材料上に沈着するものもごく一部ある。しかし、これら以外は実測されており、全沈着量の大部分は測定されているものとみなすことができる。

上の式のように、第9次燃料体の全照射サイクル中の ^{137}Cs 放出による ^{137}Cs の沈着量を評価すると0.225 mCiである。一方、実測の ^{137}Cs 沈着量は4.7 mCiであり、⁽⁵⁰⁾これは ^{137}Xe として放出されたものと、燃料体中で既に ^{137}Cs となり ^{137}Cs の形で放出されたものの和と考えて良い。ゆえに ^{137}Cs 全沈着量に対する、 ^{137}Xe 経由の ^{137}Cs 沈着量の割合は

$$\frac{0.225 \text{ mCi}}{4.7 \text{ mCi}} = 0.048$$

すなわち5%程度と評価される。

そのほか、前報⁽²⁹⁾に記したことを含め、下記のこと留意しておくことが必要であるとする。

- ① 配管上で検出されている $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は主に放射化生成物として生成している可能性が大きい。4.1節で述べたように、仮に燃料体から放出されたものであったとしても、FPではなく、黒鉛マトリックス中の不純物 ^{109}Ag の放射化等、放射化生成物として生じることがありうるので注意を要する。
- ② $^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$ (放射平衡) が検出されているが、これは ^{140}Ba の形で放出されたのではなく、その前駆体の ^{140}Xe (半減期14秒) の形で放出されている可能性がある。
- ③ 枝管部 (運転中の温度600°C) では ^{152}Eu および ^{154}Eu が検出されており、その放射能は $^{152}\text{Eu} > ^{154}\text{Eu}$ となっている。⁽⁵¹⁾ 一方、FPとして生成する時 $^{152}\text{Eu} < ^{154}\text{Eu}$ となるはずであることから見て、これらは主に放射化生成物であるとするが妥当である。
- ④ ループ配管の沈着放射能測定において、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb 、 ^{155}Eu は検出されていない。^(50, 51) これらの核種は黒鉛ブロックの放射能測定においても殆んど検出されず、従って燃料棒内に効果的に保持されたものと考えられる。

今後、燃料体からの金属FPの移行を調べる際には、上記のような希ガス前駆体としての放出に加えて、ダストに付着したり、エアロゾル (微粒子) の形で冷却材中を移動する過程についても調べる必要があるとする。

Table 4.1 Nuclear data of relevant fission products.

	Half Life ^{*1} (Abundance) ^{*2}	Fission U-235	Yield (%) ^{*3} Pu-239	Capture Cross ^{*4} Section (b)
Ag-109	(48.19%) ^{*2}	0.03	1.38	4.1 (to Ag-110m)
Ag-110m	252d	6×10^{-9}	6×10^{-6}	—
Sb-123	(42.7%) ^{*2}	2×10^{-2}	6×10^{-2}	3.9 (to Sb-124)
Sb-124	60.20d	1×10^{-5}	9×10^{-2}	7 (to Sb-125)
Sb-125	2.7y	0.03	0.11	—
Cs-133	(100%)	6.33	6.84	27.2 (to Cs-134) 2.5 (to Cs-134m)
Cs-134	2.062y	1×10^{-5}	8×10^{-5}	—
Cs-137	30.17y	6.23	6.53	—
Ce-143	33h	5.89	4.37	6.3 (to Ce-144)
Ce-144	284d	5.19	3.77	—
Eu-151	(47.9%)	0.44	0.77	5.8×10^3 (to Eu-152) 3.2×10^3 (to Eu-152m)
Eu-152	13y	5×10^{-7}	1×10^{-5}	—
Eu-153	(52.1%)	0.16	0.38	380 (to Eu-154)
Eu-154	8.5y	2×10^{-4}	3×10^{-3}	—
Eu-155	4.9y	3×10^{-2}	0.21	4.0×10^3 (to Eu-156)

*1 Table of Isotopes, 7th ed. (1978).

*2 Natural abundance of stable nuclide.

*3 E. Akatsu, JAERI-M 82-169 (1982) p.19.

*4 Thermal neutron with a velocity of 2200 m/s; Table of Isotopes, 7th ed. (1978); $1b=10^{-28}m^2$.

Table 4.2a Comparison of activity ratio of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in fuel compacts and graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly.

Fuel Compact Name	830P20	830P14	830P09	830P05	830P01
Axial Position (mm)	45-81	261-297	441-477	585-621	729-765
Activity of ^{137}Cs (μCi)	18.3	34.4	77.9	50.2	31.9
Activity of ^{134}Cs (μCi)	0.486	2.48	7.20	4.19	1.62
Ratio, $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	0.0266	0.0721	0.0924	0.0835	0.0508
Axial Position of Sleeve (mm)	45-55	200-210	400-410	600-610	720-730
Activity Ratio, $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ (uncorrected)	~0.085	~0.075	~0.10	~0.095	~0.03
Decay Factor*2	0.984	0.946	0.952	0.954	0.968
Activity Ratio $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ (corrected)	~0.084	~0.071	~0.096	~0.091	~0.29

*1 Activity per coated fuel particle.

*2 Correction factor for decay of ^{134}Cs between dates of activity measurement of fuel compact and graphite sleeve.

Table 4.2b Comparison of activity ratio of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in fuel compacts and graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly.

Fuel Compact Name	840P20	840P14	840P09	840P05	840P01
Axial Position (mm)	45-81	261-297	441-477	585-621	724-765
Activity of ^{137}Cs (μCi) *1	17.8	44.0	56.3	55.4	36.8
Activity of ^{134}Cs (μCi) *1	0.55	4.07	6.56	6.29	2.73
Ratio, $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	0.0318	0.0925	0.117	0.114	0.0742
Axial Position of Sleeve (mm)	45-55	200-210	400-410	600-610	720-730
Activity Ratio, $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ (uncorrected)	~0.10	~0.085	~0.14	~0.12	0.6~0.9
Decay Factor*2	0.984	0.951	0.938	0.955	0.971
Activity Ratio $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ (corrected)	~0.098	~0.081	~0.13	~0.11	0.6~0.9

*1 Activity per coated fuel particle.

*2 Correction factor for decay of ^{134}Cs between dates of activity measurement of fuel compact and graphite sleeve.

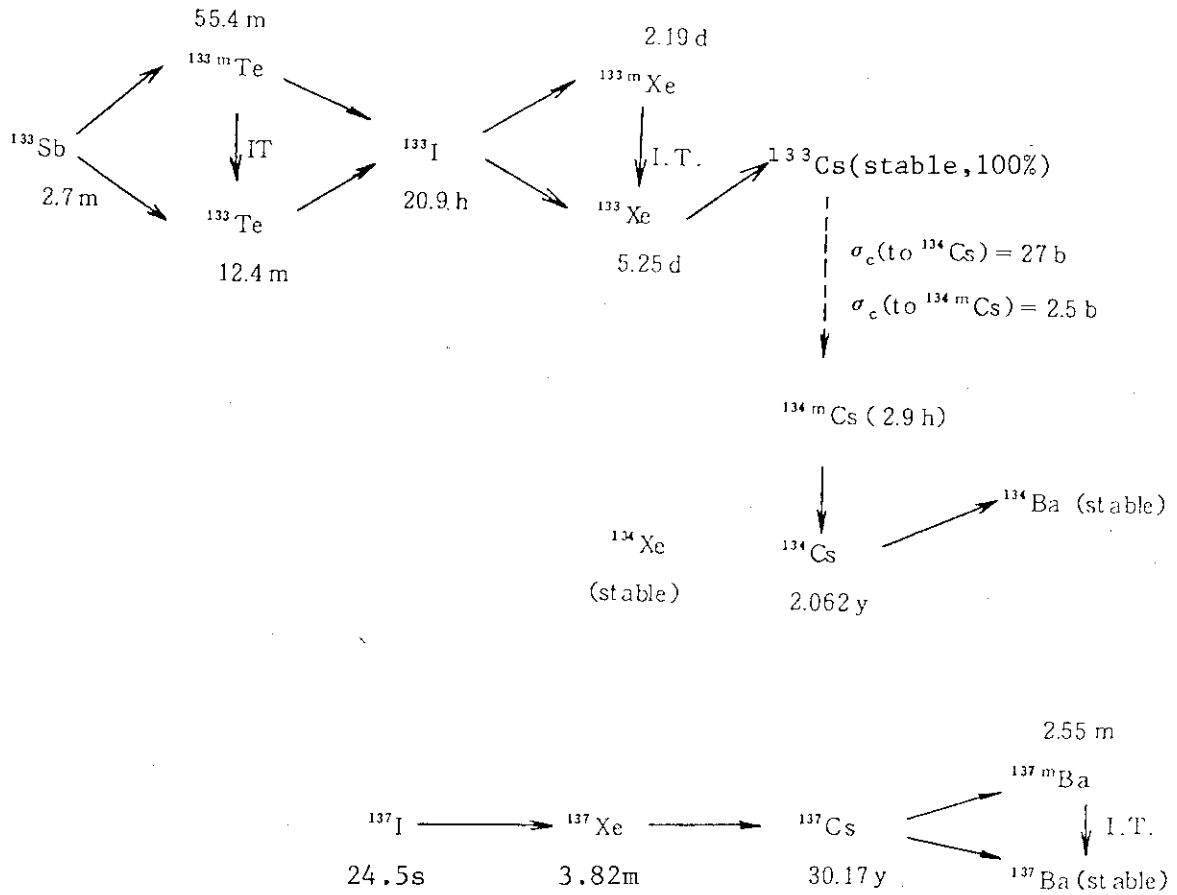


Fig. 4.1a Fission and activation chains for ^{134}Cs and ^{137}Cs .

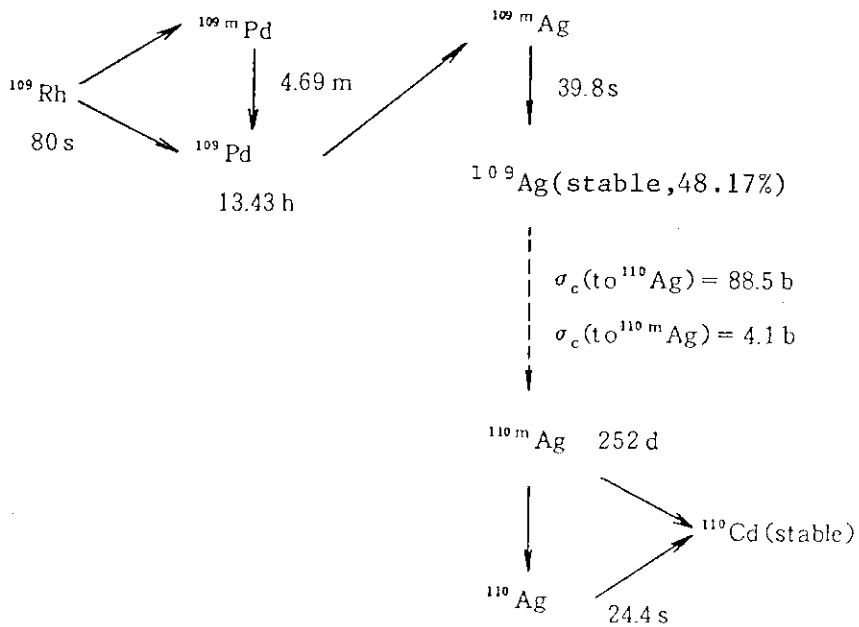


Fig. 4.1b Fission and activation chains for $^{110\text{m}}\text{Ag}$.

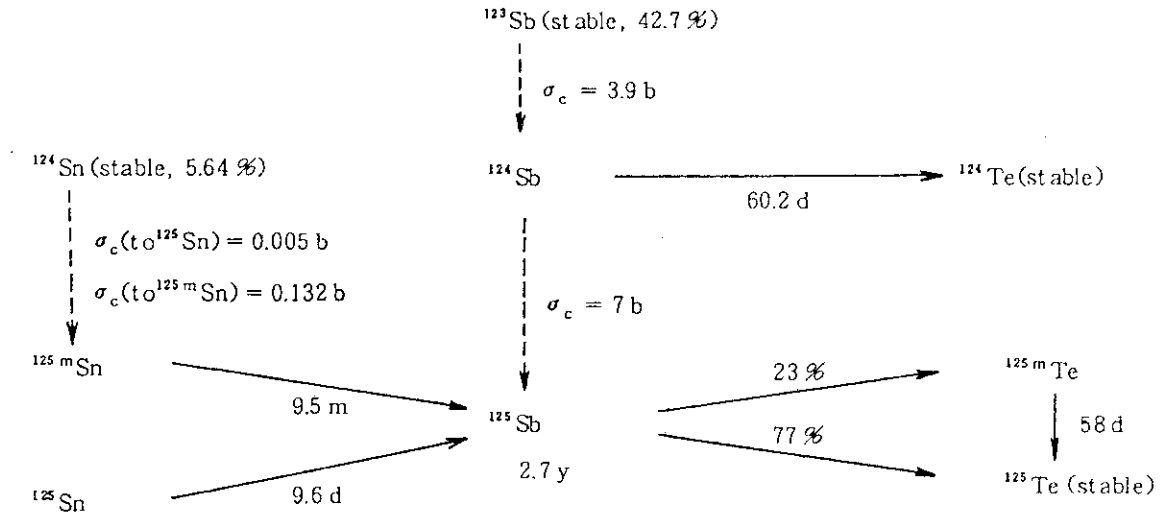


Fig. 4.1c Fission and activation chains for ^{125}Sb .

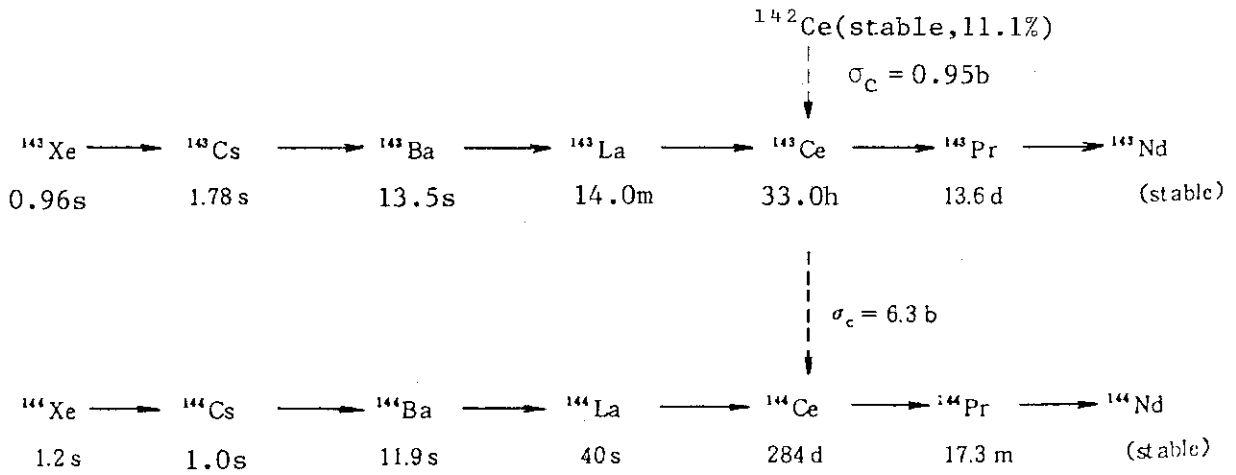


Fig. 4.1d Fission and activation chains for ^{144}Ce .

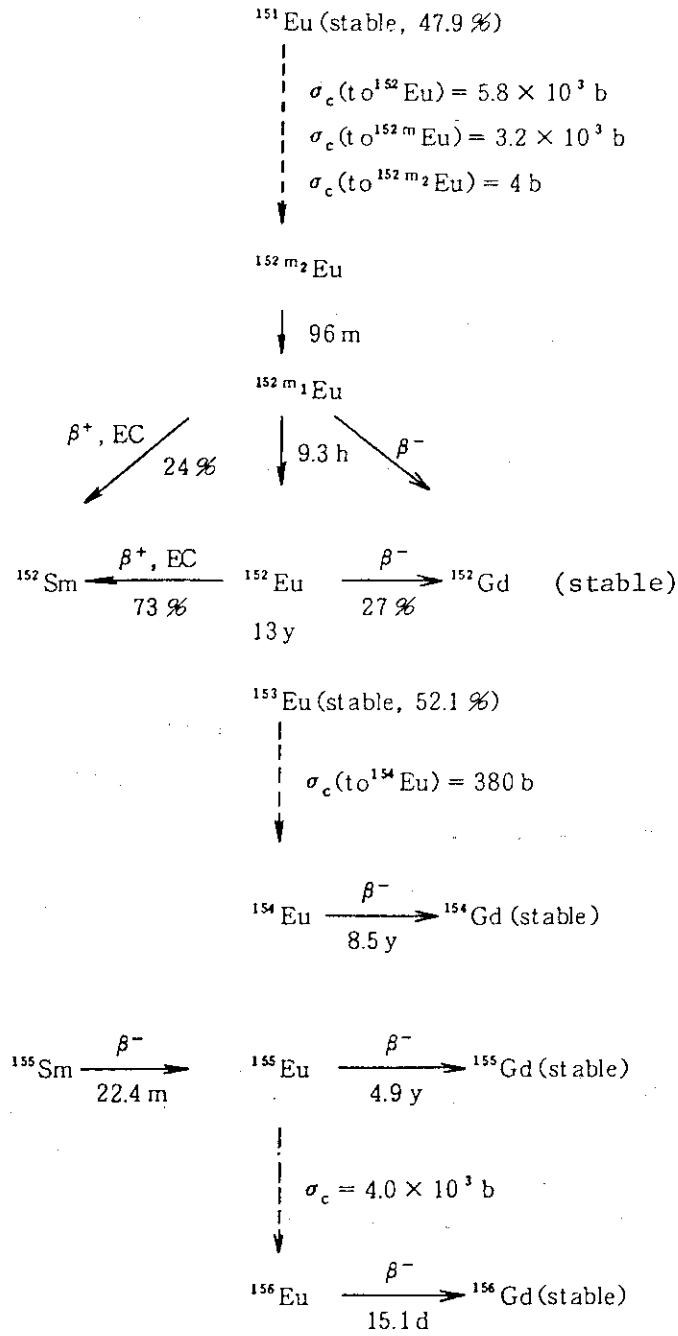


Fig. 4.1e Fission and activation chains for ^{152}Eu , ^{154}Eu and ^{155}Eu .

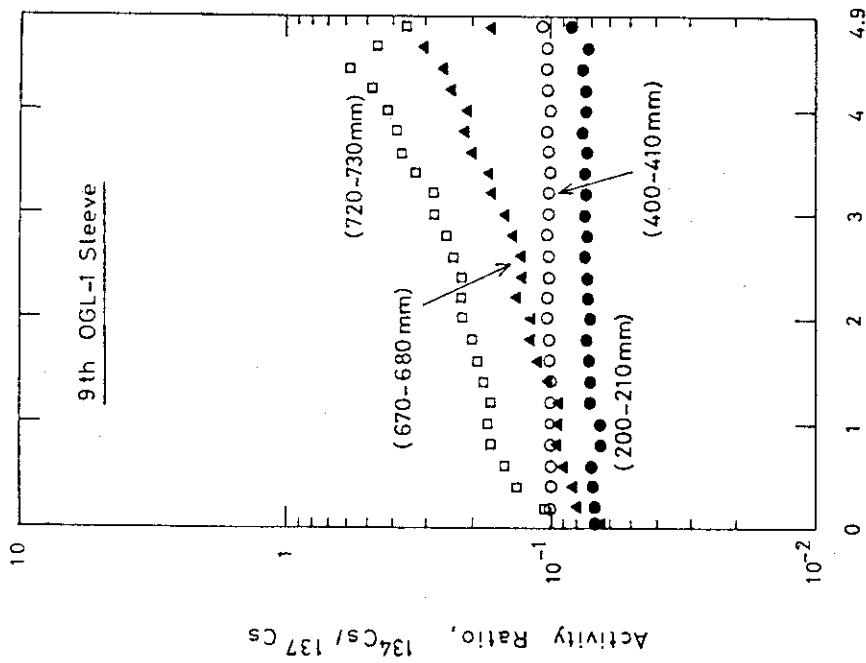


Fig. 4.2a Radial profile of activity ratio of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ at different axial positions of the ninth OGL-1 fuel assembly.

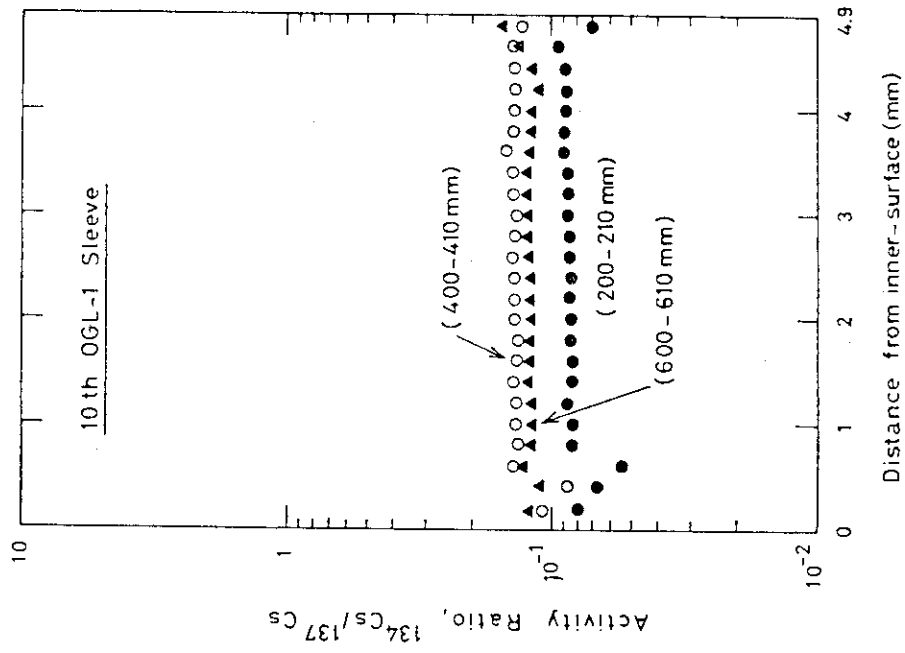


Fig. 4.2b Radial profile of activity ratio of $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ at different axial positions of the tenth OGL-1 fuel assembly.

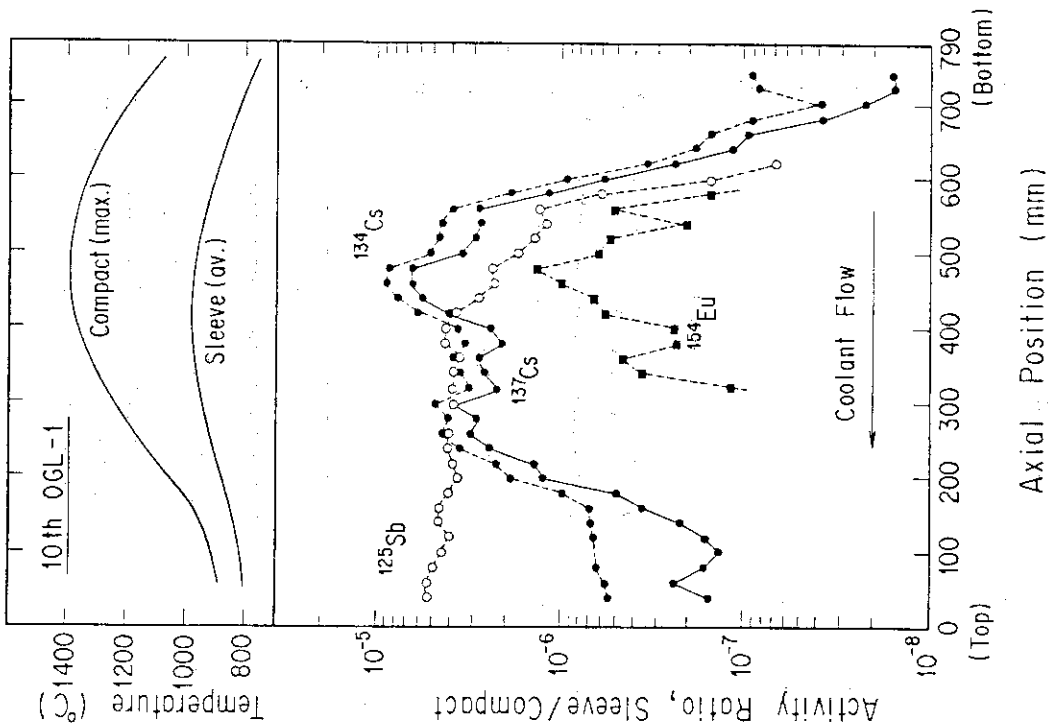


Fig. 4.3a Axial profile of ratio of activities in graphite sleeve and fuel compact of the ninth OGL-1 fuel assembly.

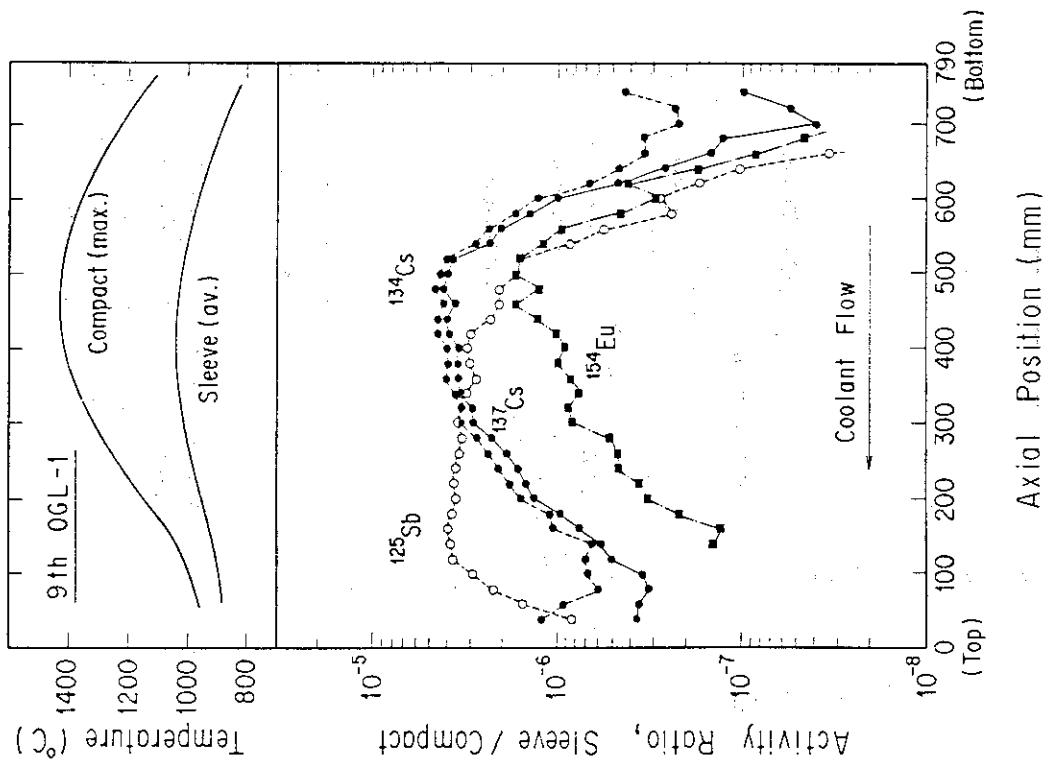


Fig. 4.3b Axial profile of ratio of activities in graphite sleeve and fuel compact of the tenth OGL-1 fuel assembly.

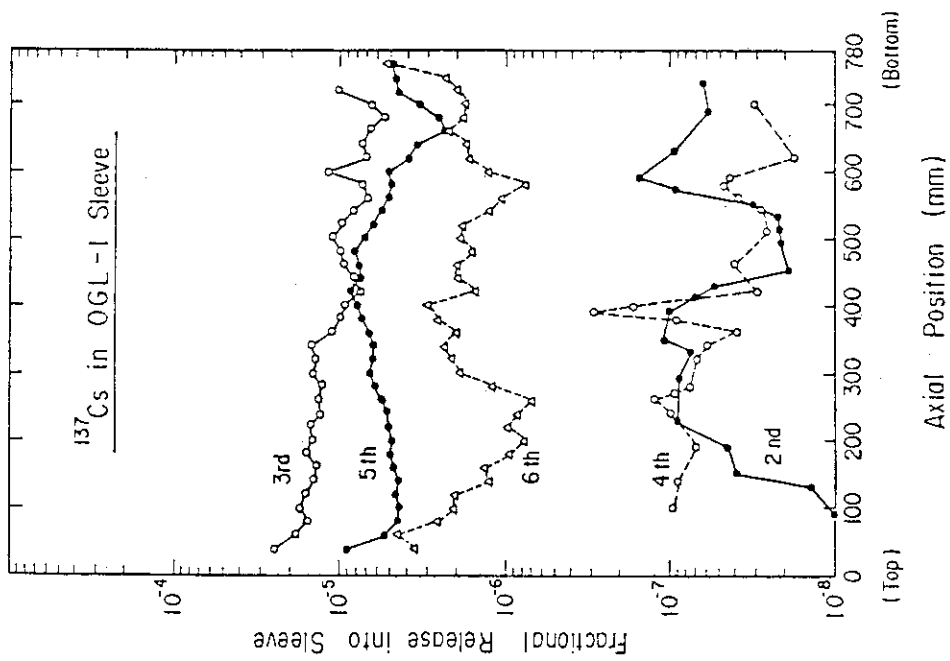


Fig. 4.4 Axial profile of fractional release of ^{137}Cs into the graphite sleeves of the OGL-1 fuel assemblies up to the sixth.

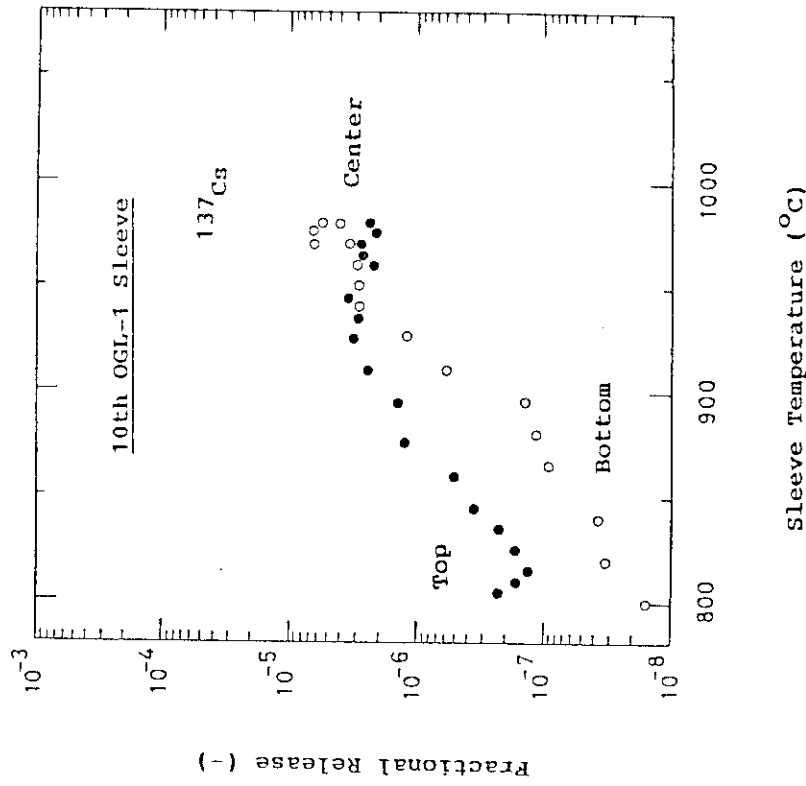


Fig. 4.5b Fractional release of ^{137}Cs into graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly as a function of sleeve temperature.

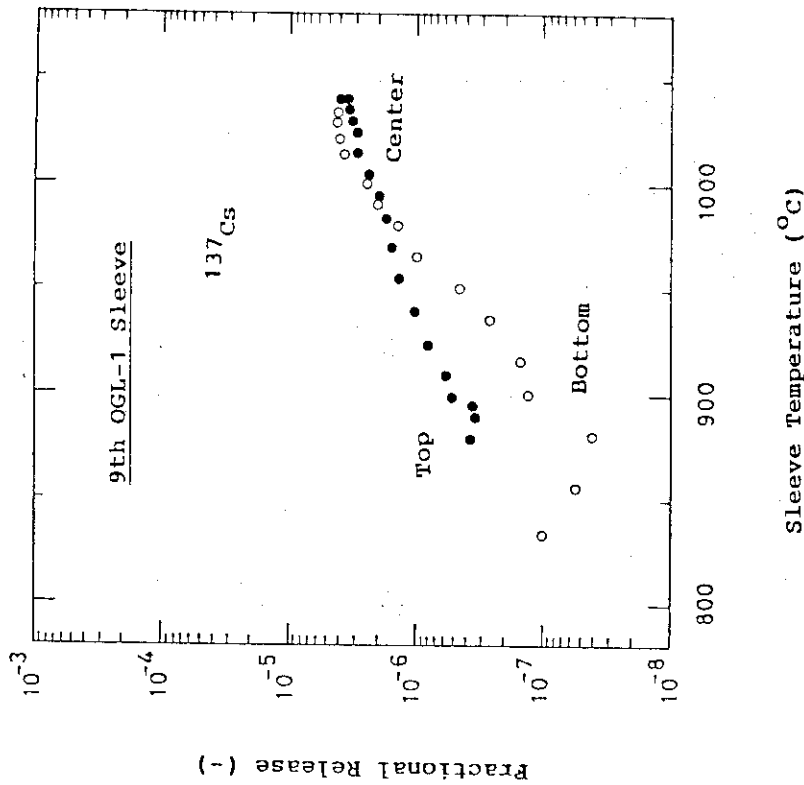
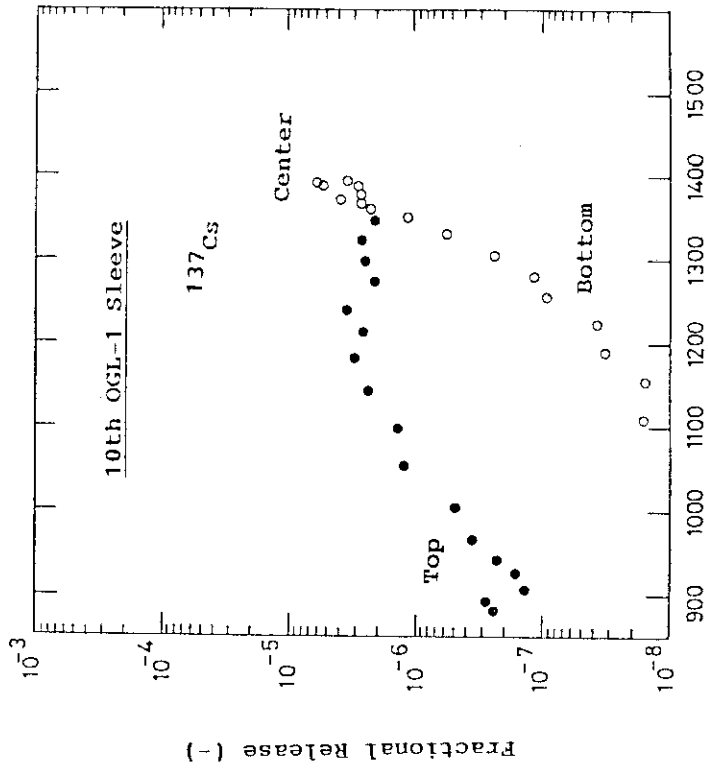
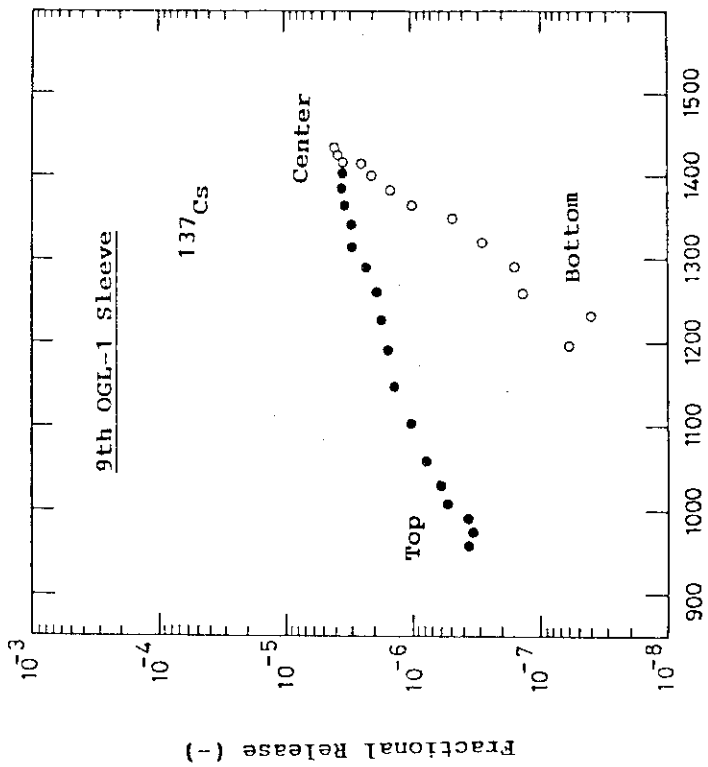


Fig. 4.5a Fractional release of ^{137}Cs into graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly as a function of sleeve temperature.



Fuel Compact Temperature ($^{\circ}\text{C}$)

Fig. 4.5d Fractional release of ^{137}Cs into graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly as a function of fuel compact temperature.



Fuel Compact Temperature ($^{\circ}\text{C}$)

Fig. 4.5c Fractional release of ^{137}Cs into graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly as a function of fuel compact temperature.

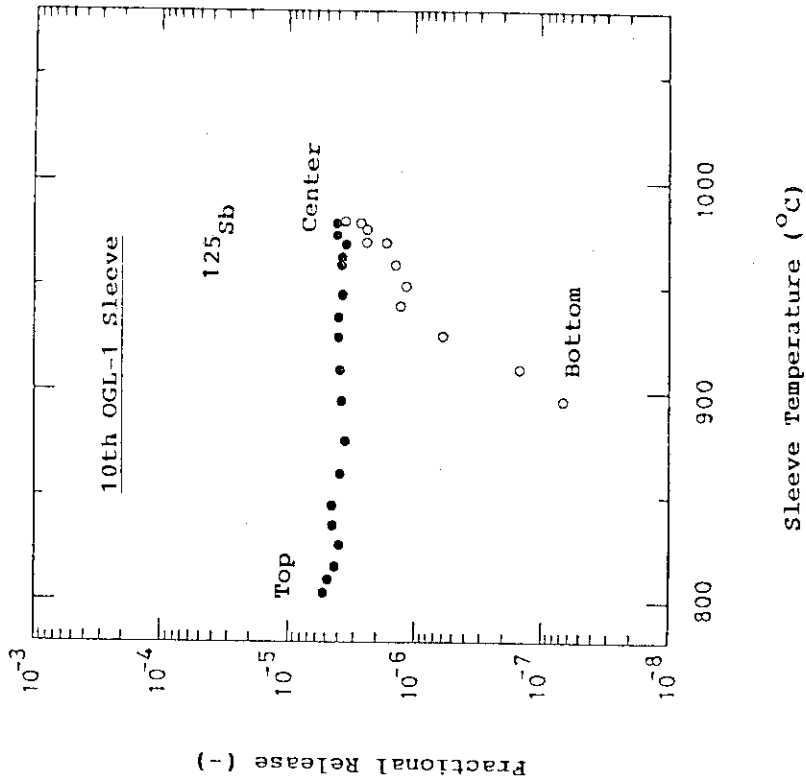


Fig. 4.6b Fractional release of ¹²⁵Sb into graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly as a function of sleeve temperature.

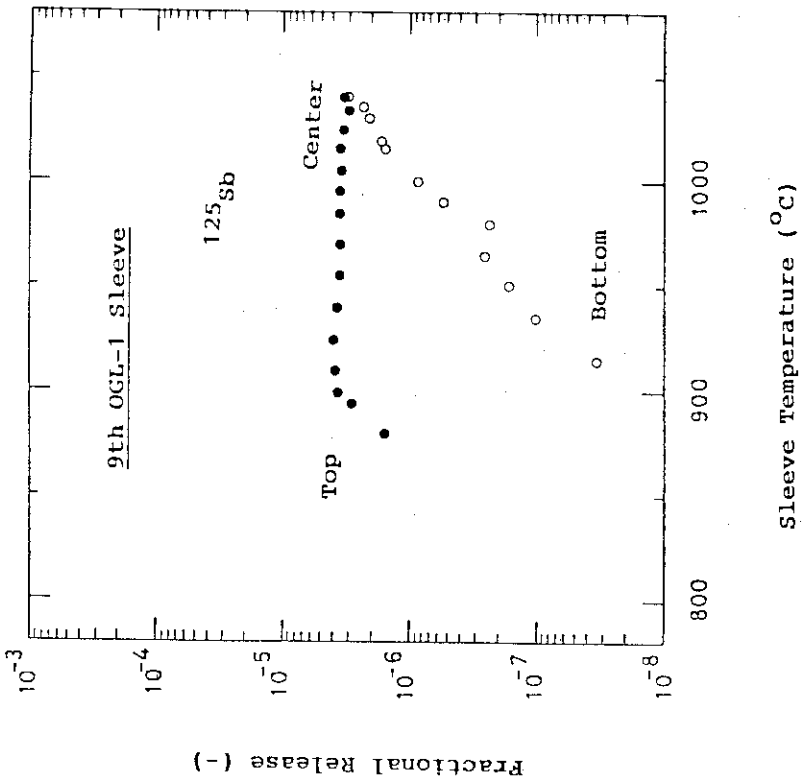


Fig. 4.6a Fractional release of ¹²⁵Sb into graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly as a function of sleeve temperature.

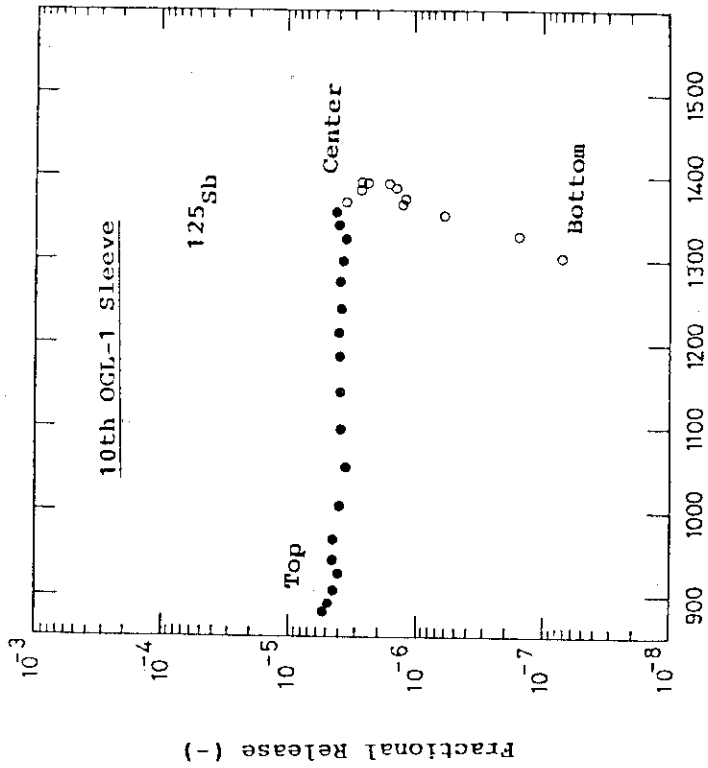


Fig. 4.6d Fractional release of ¹²⁵Sb into graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly as a function of fuel compact temperature.

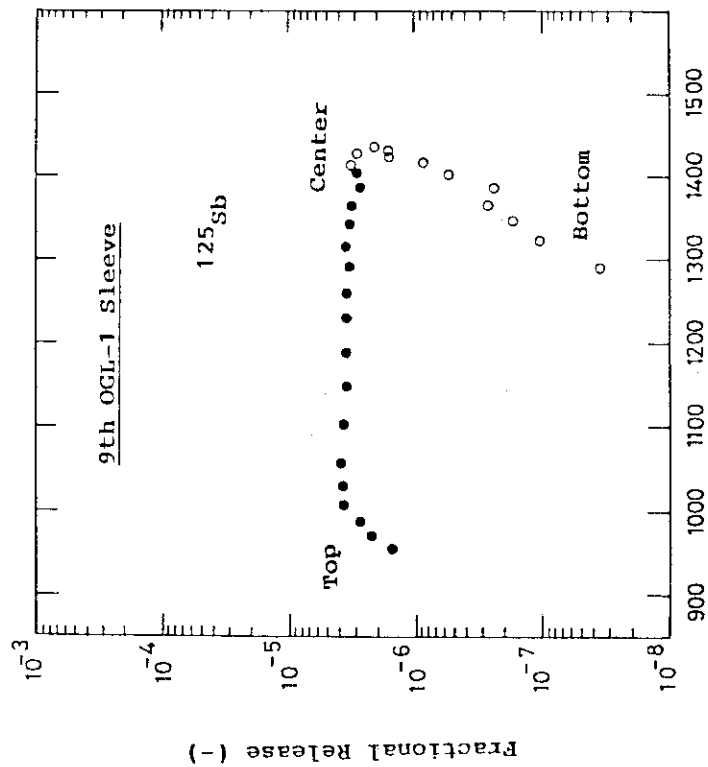


Fig. 4.6c Fractional release of ¹²⁵Sb into graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly as a function of fuel compact temperature.

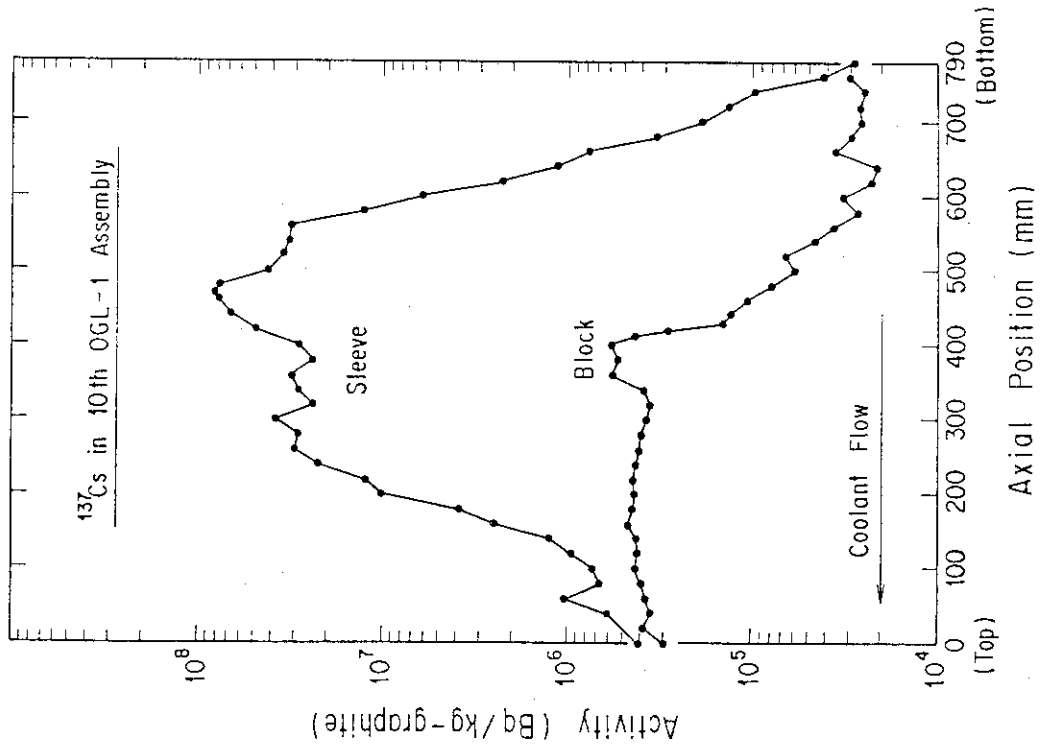


Fig. 4.8 Comparison of axial distribution of fission products in graphite sleeve and block of the tenth OGL-1 fuel assembly.

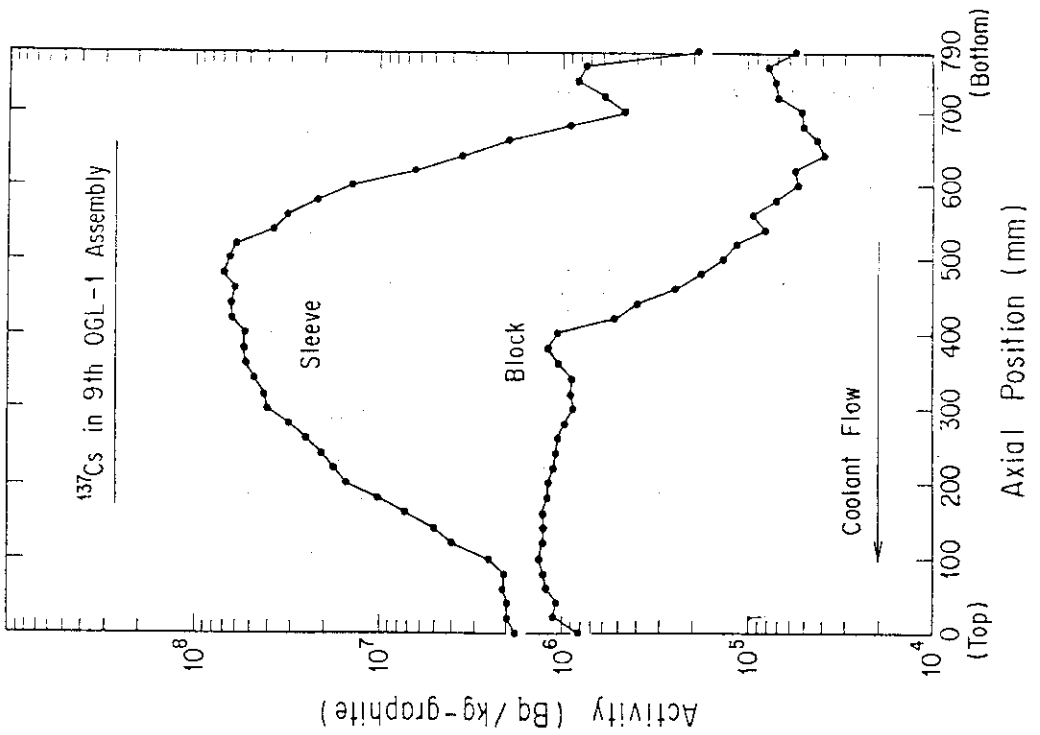
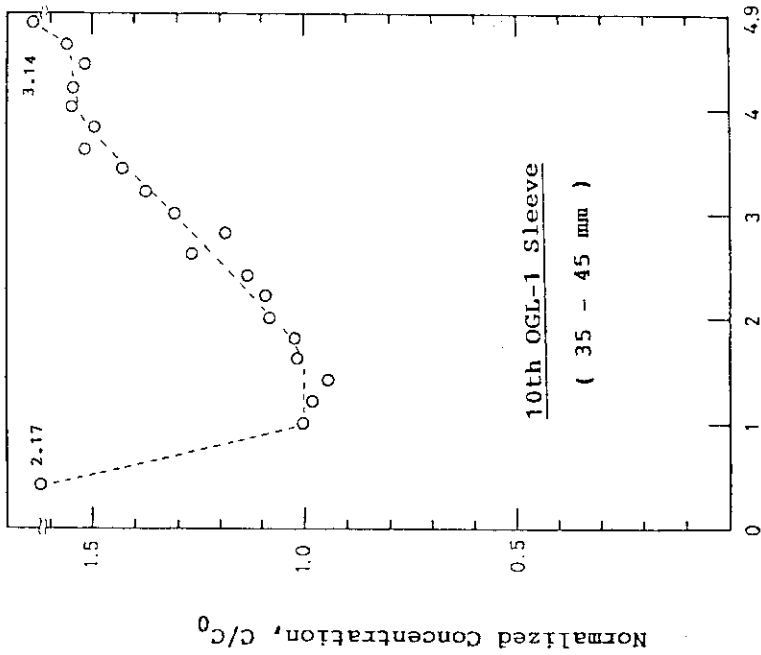
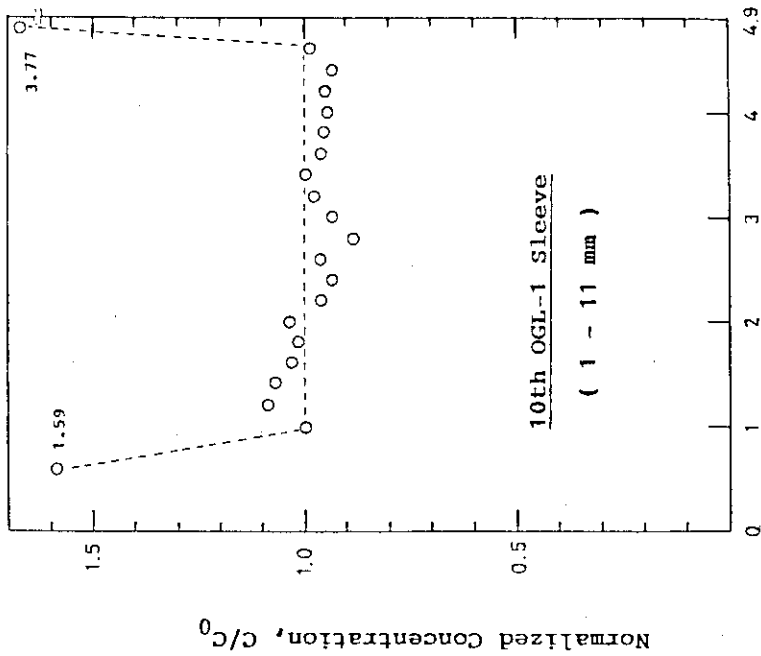


Fig. 4.7 Comparison of axial distribution of ^{137}Cs in graphite sleeve and block of the ninth OGL-1 fuel assembly.



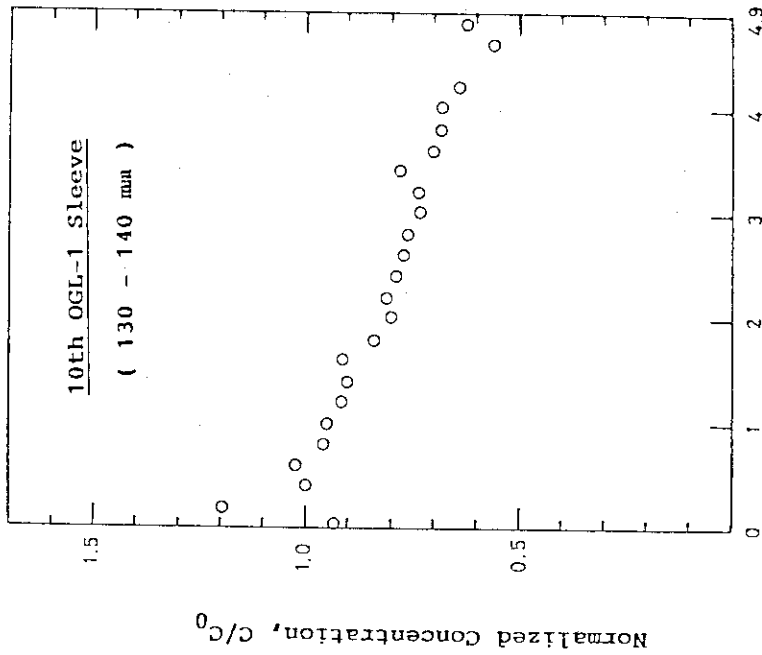
Distance from inner-surface (mm)

Fig. 4.9b Radial profile of ¹³⁷Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 35-45 mm from the sleeve top.



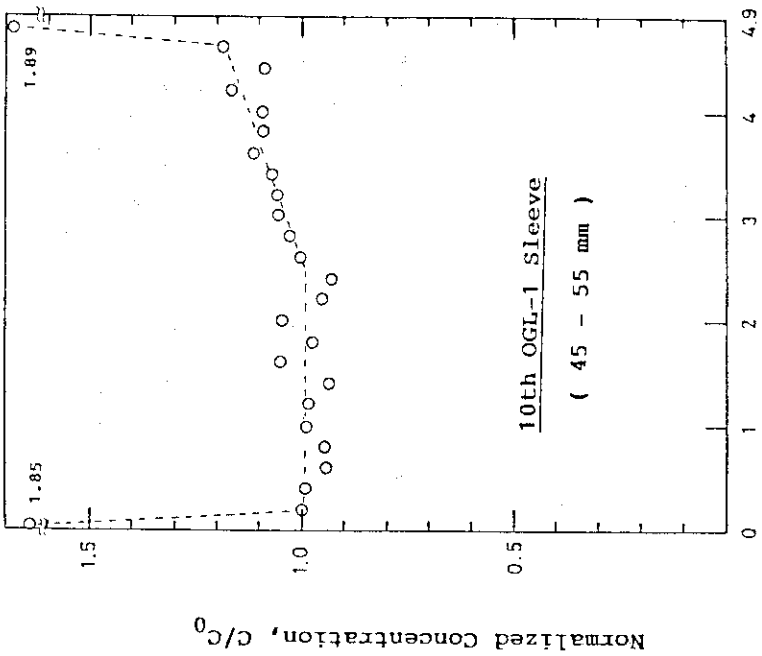
Distance from inner-surface (mm)

Fig. 4.9a Radial profile of ¹³⁷Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 1-11 mm from the sleeve top.



Distance from inner-surface (mm)

Fig. 4.9d Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the third sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 130-140 mm from the sleeve top.



Distance from inner-surface (mm)

Fig. 4.9c Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 45-55 mm from the sleeve top.

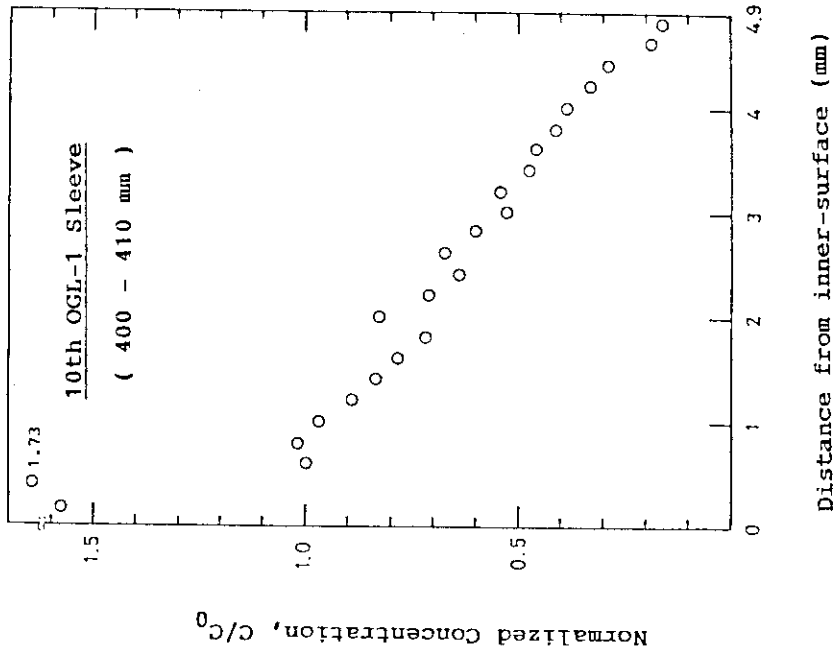


Fig. 4.9f Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the third sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 400-410 mm from the sleeve top.

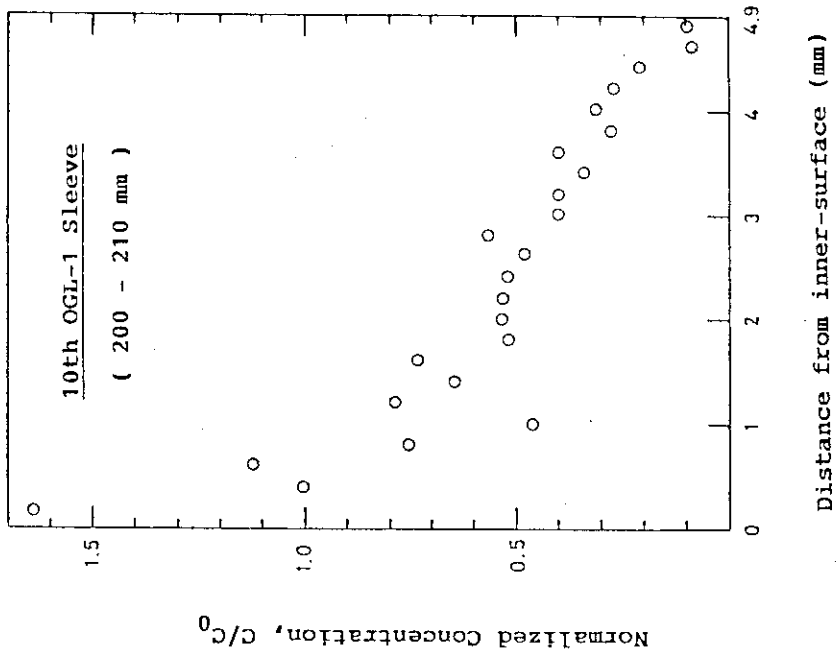


Fig. 4.9e Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 200-210 mm from the sleeve top.

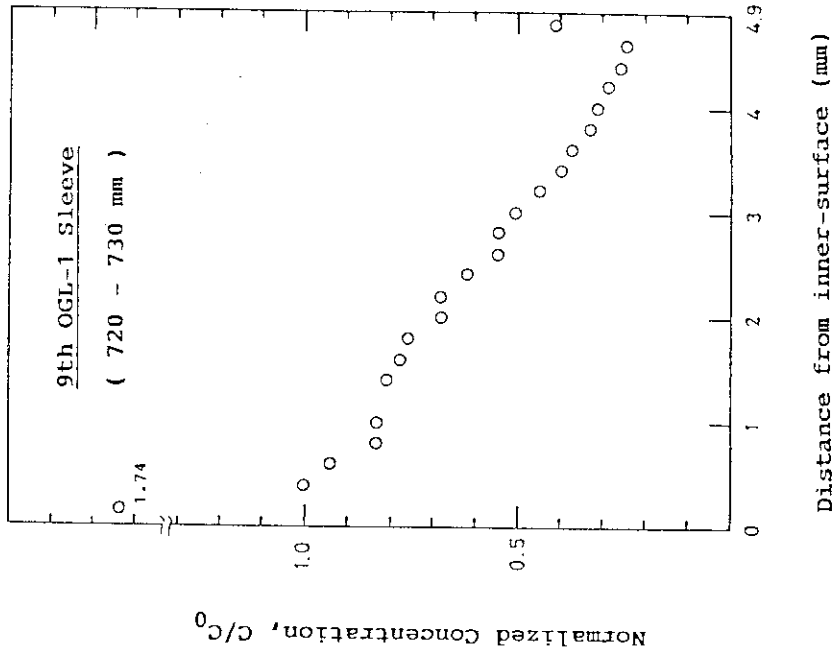


Fig. 4.9h Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 720-730 mm from the sleeve top.

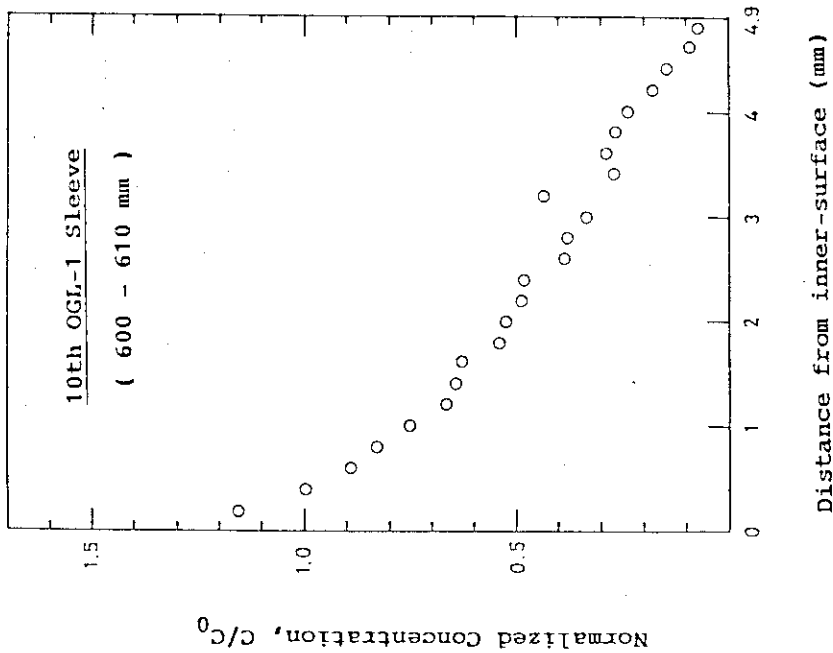


Fig. 4.9g Radial profile of ^{137}Cs concentration in the graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly, normalized by the concentration at the second sectioned point from the inner-surface of the sleeve: axial position, 600-610 mm from the sleeve top.

5. 結 論

第9次および第10次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ、黒鉛ブロック中の金属FPの分布を γ 線スペクトル分析法によって測定した。これらの燃料体は原研で建設予定の高温工学試験研究炉（HTTR）用燃料の開発のため、量産規模の製造装置によって試作した第1回および第2回の燃料を装荷したものである。得られた結果は以下のように要約することができる。

- (1) 黒鉛スリーブ中には ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb が検出され、黒鉛ブロック中には ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が検出された。
- (2) ^{137}Cs と ^{134}Cs の黒鉛スリーブ軸方向および径方向の相対分布は良く一致しており、また両核種の放射能の比は被覆粒子中のインベントリの比を良く一致していた。このことから、両核種ともに主に燃料コンパクト内でFPとして生成したものであると判断できる。
- (3) ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{125}Sb についても同様に主に燃料コンパクト中でFPとして生成し黒鉛スリーブ中へと移行したものであると判断できる。
- (4) $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の生成源は主にOGL-1燃料体材料および配管材料に含まれる不純物 ^{109}Ag の放射化によるものであると推定した。
- (5) 第9次および第10次OGL-1燃料体については $^{110\text{m}}\text{Ag}$ を除くFP核種（すなわち、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{125}Sb 、 ^{144}Ce ）は主に燃料コンパクト中の破損粒子から放出されたものであると推定した。
- (6) 燃料コンパクト中と黒鉛スリーブ中のFP核種ごとの放射能の比、すなわち黒鉛スリーブ中への移行割合は ^{137}Cs については第9次および第10次燃料体ともに 10^{-6} の桁であった。この値は、これまで測定を行なった第1次～第8次燃料体と比較して高いレベルであった。これは、第9次燃料体については被覆粒子の製造時破損率が高かったこと、第10次燃料体については製造時破損率が第9次燃料体ほどではないがやや高かったこと及び照射中に燃料コンパクトの最高温度を約 1500°C まで上昇させたことが主な原因であると考えられる。
- (7) 黒鉛スリーブ径方向の分布から見て、燃料コンパクト側から移行した ^{155}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{144}Ce は実際上完全にスリーブ中に保持され、同じく燃料コンパクト側から移行した $^{110\text{m}}\text{Ag}$ および ^{125}Sb も有効に保持されたと言える。一方、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs に対するスリーブの保持能には限界があり、燃料棒内における全生成量の一部は黒鉛スリーブを透過して冷却材中へ移行したことがわかった。
- (8) 黒鉛ブロック中の ^{137}Cs の軸方向分布は冷却材流れの下流側で高濃度となっていた。これは、黒鉛スリーブから放出された ^{137}Cs が冷却材流れによって下流側に運ばれ、その一部が黒鉛ブロック内面側に収着したものであると考えることができる。
- (9) ^{137}Cs の黒鉛スリーブ径方向相対分布から見て、冷却材上流側（スリーブ中央部および下部）では拡散が律速のプロセスであることがわかった。しかし、冷却材下流側（スリーブ上部）では、外表面上での吸脱着に律速されていると思われる ^{137}Cs 濃度プロファイルが得られた。

これらの測定結果は基本的には従来の第1次～第8次燃料体中のFP分布測定結果を再現したものである。しかし、今回の測定によって幾つかの新たな知見が得られた。それは、上述のように黒鉛ブ

ロック中の ^{137}Cs の分布に冷却材流れの影響と思われるものが顕著に見られたこと、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ のスリーブ径方向分布において内表面側で濃度が減少するという特異な挙動が見られたこと等である。また、従来は ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の黒鉛スリーブからの放出過程においては拡散が律速であると考えてきたが、今回の測定結果から、表面吸脱着支配の条件を検討する必要性が認識された。

今後の研究においては、重要な核種について黒鉛材料および黒鉛マトリックス中の移行および放出の素過程を詳細に調べ、さらに照射効果、拡散種濃度、不純物の種類および濃度等の影響を明らかにしてゆくことが重要である。また、異常時および事故等の燃料体中のFP挙動を把握するため、異常高温時の挙動や、空気侵入、水蒸気侵入など事故条件下の挙動を調べてゆく必要がある。

謝 辞

本報告のOGL-1照射試験を進めるにあたり、燃料体の設計および照射を担当された原研大洗研究所材料試験炉部照射1課、照射2課、照射3課および計画課の各位、燃料体の製作および組立を担当された東海研究所技術部工作課の各位、照射後試験を担当された東海研究所研究炉管理部ホットラボ管理室の各位に深く感謝します。特に照射2課の北島敏雄氏には燃料体の設計および照射全般について、ホットラボ管理室の飯田省三氏、田口剛俊氏、三田尚亮氏には燃料体の解体および黒鉛スリーブ、黒鉛ブロック等の取り出しに関して、同じくホットラボ管理室の伊藤忠春氏、喜多川勇氏には燃料中のFP放射能インベントリ測定に関して多大な協力を頂いた。また、燃料照射研究室の菊地啓修氏にはFP分布測定に協力して頂き、同研究室の他の方々にも助言、討論をして頂いた。本研究の遂行にあたって、燃料材料工学部の近藤達男部長および柴是行次長には激励を賜った。以下の方々に深く感謝いたします。

ロック中の ^{137}Cs の分布に冷却材流れの影響と思われるものが顕著に見られたこと、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ のスリーブ径方向分布において内表面側で濃度が減小するという特異な挙動が見られたこと等である。また、従来は ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の黒鉛スリーブからの放出過程においては拡散が律速であると考えてきたが、今回の測定結果から、表面吸脱着支配の条件を検討する必要性が認識された。

今後の研究においては、重要な核種について黒鉛材料および黒鉛マトリックス中の移行および放出の素過程を詳細に調べ、さらに照射効果、拡散種濃度、不純物の種類および濃度等の影響を明らかにしてゆくことが重要である。また、異常時および事故等の燃料体中のFP挙動を把握するため、異常高温時の挙動や、空気侵入、水蒸気侵入など事故条件下の挙動を調べてゆく必要がある。

謝 辞

本報告のOGL-1照射試験を進めるにあたり、燃料体の設計および照射を担当された原研大洗研究所材料試験炉部照射1課、照射2課、照射3課および計画課の各位、燃料体の製作および組立を担当された東海研究所技術部工作課の各位、照射後試験を担当された東海研究所研究炉管理部ホットラボ管理室の各位に深く感謝します。特に照射2課の北島敏雄氏には燃料体の設計および照射全般について、ホットラボ管理室の飯田省三氏、田口剛俊氏、三田尚亮氏には燃料体の解体および黒鉛スリーブ、黒鉛ブロック等の取り出しに関して、同じくホットラボ管理室の伊藤忠春氏、喜多川勇氏には燃料中のFP放射能インベントリ測定に関して多大な協力を頂いた。また、燃料照射研究室の菊地啓修氏にはFP分布測定に協力して頂き、同研究室の他の方々にも助言、討論をして頂いた。本研究の遂行にあたって、燃料材料工学部の近藤達男部長および柴是行次長には激励を賜った。以下の方々に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- (1) 福田幸朔, 鈴木康文, 赤堀光雄, 林君夫, 前多厚, 井上明彦, 山岸滋, 木内清, “原子炉燃料研究の現状と課題”, 原研未公開所内報 (1986) P.112.
- (2) R. Bullock, "All-ceramic fuel elements for the high-temperature gas-cooled reactor (A review)", High Temp. High Press. 12 (1980) 599.
- (3) L.W. Graham and M.S.T. Price, paper presented at the Nuclex 72 Conference, Basel (1972); Dragon Project Report 803, AEE Winfrith (Paris: OECD Dragon Project).
- (4) M.R. Everett, B. Blackstone, R. Krefeld and W.W. Delle, Nuclear Performance: Proc. BNES Intern. Conf. 15-19 Oct. 1973, London, 24-5.
- (5) 岩本多実, “被覆粒子燃料の概要と研究現状”, 日本原子力学会誌 15 (1973) 86.
- (6) 福田幸朔, “高温ガス炉用被覆粒子燃料の開発とその課題”, 日本原子力学会誌 28 (1986) 312.
- (7) E. Balthesen and H. Ragos, Proc. Intern. Conf. on Physical Metallurgy of Reactor fuel elements, Gloucestershire (London: The Metals Society) p.416.
- (8) A.J. Caputo, D.R. Johnson and C.K. Bayne, "Factors affecting defective fraction of biso-coated high-temperature gas-cooled reactor fuel particles during in-block carbonization", Nucl. Technol. 44 (1979) 276.
- (9) H. Wehner, H. Huschka and W. Rind, "Status of qualification of high-temperature reactor fuel element spheres", Nucl. Technol. 69 (1985) 44.
- (10) L. Wolf, G. Ballensiefen and W. Fröhling, "Fuel elements of the high temperature pebble bed reactor", Nucl. Eng. Design 34 (1975) 93.
- (11) R.E. Bullock, "Review, HTGR fuel rods: carbon-carbon composites designed for high weight and low strength", J. Mat. Sci. 12 (1977) 1499.
- (12) 日本原子力研究所, 高温工学試験研究の現状 (1987).
- (13) 青地哲男, 他, “多目的高温ガス実験炉の設計とその課題”, 日本原子力学会誌 19 (1977) 806.
- (14) E. Groos, G. Mielken, R. Duwe, A. Müller and M. Will, "Fission product release from coated particles embedded in spherical fuel elements for high-temperature reactors", Nucl. Technol. 35 (1977) 509.

- (15) K. Fukuda, E. Groos and J. Rau, "Migration behavior of fission products in and from spherical high-temperature reactor fuel elements", Nucl. Technol. 69 (1985) 368.
- (16) D. Stöver, "Diffusion data from fuel element tests", HMI-B 372 (1983) p.151.
- (17) H. Gaus, W. Hensel, E. Hoinkis and D. Stritzke, "Untersuchungen zum Cäsium-Transport in Graphit", HMI-B 317 (1979).
- (18) H.J. Leyers, "Über die freisetzung von Spaltprodukten aus kugelförmigen Brennelementen", Jül-1703 (1981).
- (19) H.J. De Nordwall, J.O. Kolb, F.F. Dyer and W.J. Martin, "An interim report on fission-product release during operation of the second Peach Bottom core", Gas-cooled reactors today, vol.2: Proc. BNES Conf. on Advances in fuel, core and structural materials, 20-24 Sept. 1982, 18-1.
- (20) B.F. Myers and D.D. Jensen, "The diffusion of cesium and strontium in H-327 graphite during Peach Bottom fuel test element experiments", HMI-B 372 (1983) p.166.
- (21) B.F. Myers, "Diffusion data from Peach Bottom fuel elements", ibid. p.172.
- (22) B.F. Myers and D.W. Hill, "Cesium diffusion in H-451 graphite", ibid. p.68.
- (23) R.F. Turner, R.G. Baumgartel, H.I. Loen, E.O. Winkler and L.R. Zumwalt, "Irradiation test of the Gail III-B fuel element in the General Atomic In-pile Loop", GA-5314 (1964).
- (24) E.O. Winkler, C.S. Luby, W.J. Scheffel and B.D. Snow, "Irradiation test and post irradiation examination of radiochemical examination of the GAIL IV fuel element in the General Atomic in-pile loop", GA-7997 (1967).
- (25) E. Groos and H.J. de Nordwall, "Post irradiation of radiochemical analysis of the loop PLUTO IIIA", AERE-R 4434 (1964).
- (26) D.D. Jensen, M.J. Haire and A. Ballagny, "Analysis of fission product behavior in the Saclay Spitfire Loop Test SSL-1", GA-A 13839 (1978).
- (27) 松永朔郎, 他, "高温ヘリウムインパイルガスループ (OGL-1) の建設と性能試験", 日本原子力学会誌 21 (1979) 245.
- (28) 井川勝市, 他, "OGL-1 第1次, 第2次燃料体の照射試験", JAERI-M 83-012 (1983).
- (29) 福田幸朔, 他, "OGL-1 第3次, 第4次および第5次燃料体の照射試験", JAERI-M 86-092 (1986).

- (30) 福田幸朔, 他, "多目的高温ガス実験炉参照燃料のインパイルガスループ (OGL-1) による照射試験", 日本原子力学会誌 26 (1984) 57.
- (31) K. Hayashi et al., "Distribution of fission and activation products in the graphite sleeves of HTGR fuel rods: first and second OGL-1 fuels", J. Nucl. Mater. 116 (1983) 233.
- (32) K. Hayashi et al., "Distribution of fission products in irradiated graphite materials of HTGR fuel assemblies: third and fourth OGL-1 fuels", J. Nucl. Mater. 136 (1-85) 207.
- (33) K. Hayashi et al., "In-pile release behavior of metallic fission products in graphite materials of an HTGR fuel assembly", J. Nucl. Mater. 149 (1987) 57.
- (34) 菊池輝男, 他, "被覆粒子燃料コンパクトの照射挙動試験 (Ⅲ) (JMTRによる76F-6Aキャプセルの照射)", JAERI-M 84-106 (1984) P.9.
- (35) 菊池輝男, 岩本多實, "種々の黒鉛材中のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の拡散", JAERI-M 5827 (1974).
- (36) T. Kikuchi and K. Iwamoto, "Dependence of strontium diffusion in graphite on dependence of diffusant concentration", J. Nucl. Sci. Technol. 12 (1975) 523.
- (37) 菊池輝男, 井川勝一, 石本清, "多結晶黒鉛および黒鉛炭素マトリックス中のSrの拡散", JAERI-M 83-178 (1983).
- (38) K. Hayashi and K. Fukuda, "Diffusion of cesium in graphite: effect of irradiation and diffusant concentration", J. Nucl. Mater., submitted.
- (39) K. Fukuda, T. Sawai and K. Ikawa, "Diffusion of fission products in matrix graphite for VHTR fuel compacts", J. Nucl. Sci. Technol. 21 (1984) 126.
- (40) 青地哲男, 他, "多目的高温ガス実験炉第1次概念設計", JAERI-M 6845 (1977).
- (41) 安野武彦, 他, "多目的高温ガス実験炉・Mark-Ⅲ炉心の検討", JAERI-M 8399 (1979).
- (42) K. Hayashi et al., "Distribution of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite material of irradiated HTGR fuel assemblies", JAERI-M 84-088 (1984).
- (43) 原研燃料照射研究室, 被覆粒子燃料研究状況報告・第36号, 原研未公開所内報 (1988) P.103.
- (44) 同上・第33号 (1987) P.12.
- (45) 林君夫, 他, "第8次OGL-1燃料体の黒鉛材料中の金属FP分布", 日本原子力学会, 昭和61年秋の分科会 (1986年10月, 九大工学部) J45.

- (46) K. Fukuda, K. Minato, K. Ikawa, T. Itoh and H. Matsushima, "Detection of failed coated particles in HTGR fuel by acid leaching", J. Nucl. Sci. Technol. 18 (1981) 887.
- (47) 菊地輝男, 岩本多実, "種々の黒鉛材料のガス透過率の測定", JAERI-M 5937 (1974).
- (48) 文沢元雄, 滝塚貴和, 鈴木邦彦, "VHTR シール性能試験装置用黒鉛材のガス透過", JAERI-M 84-234 (1984).
- (49) 小林紀昭, 原研燃料照射研究室, 未公開データ.
- (50) 笹島栄夫, 松本実喜夫, 遠藤泰一, 露崎典平, 山本克宗, 猿田徹, 小林紀昭, "OGL-1におけるFPプレートアウト測定 (JMTR #67サイクル~#73サイクル)", 原研未公開所内報 (1986).
- (51) 露崎典平, 松本実喜夫, 遠藤泰一, 横内猪一郎, 猿田徹, 市橋芳徳, "OGL-1におけるFPプレートアウト測定 (JMTR #74サイクル~#79サイクル)", 原研未公開所内報 (1988).
- (52) 文献 (28), P. 231.

付録 1

第9次および第10次OGL-1燃料体の黒鉛内筒軸方向の核分裂生成物分布 (図)

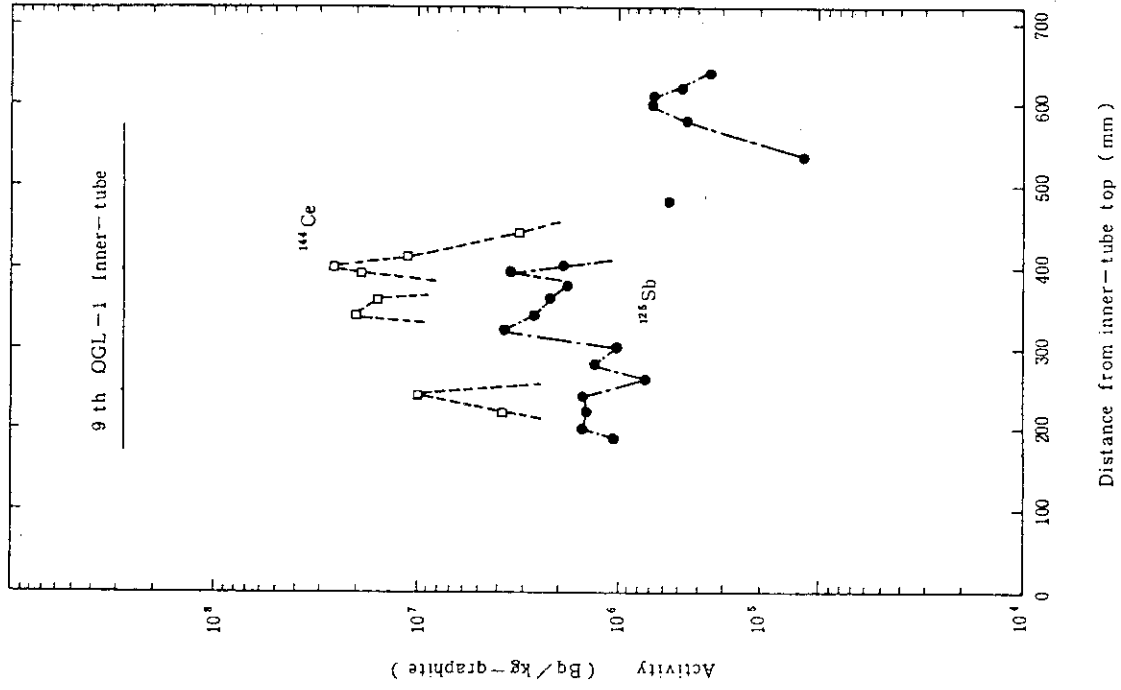


Fig. A.1.1b Axial distribution of fission products in graphite inner-tube of the ninth OGL-1 fuel assembly (continued).

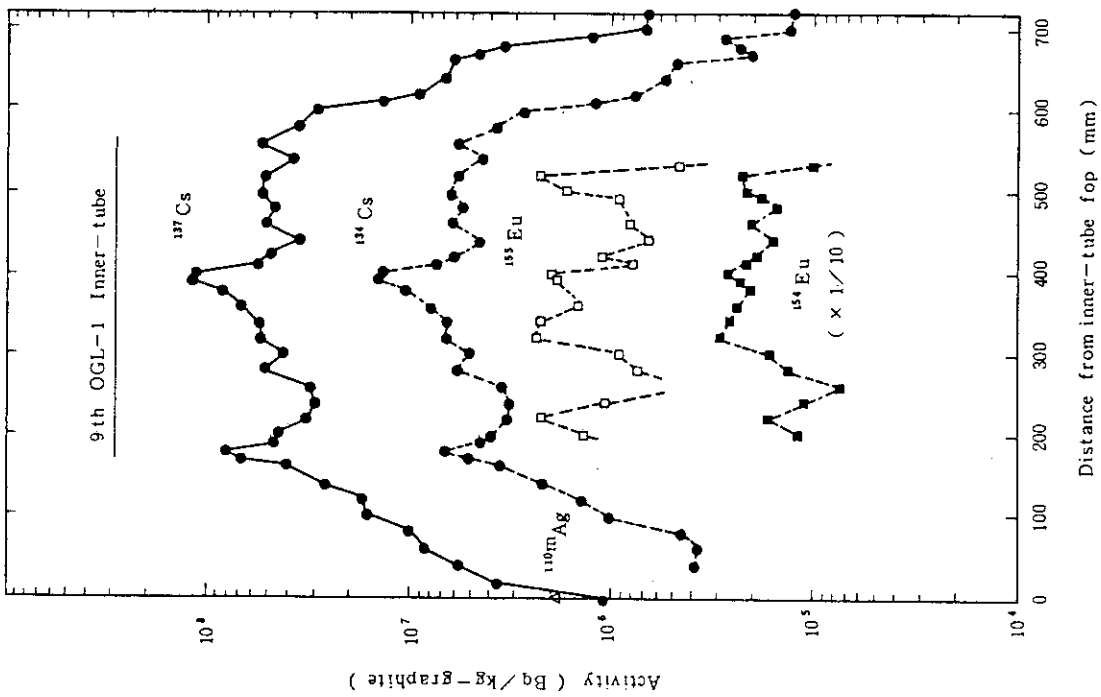


Fig. A.1.1a Axial distribution of fission products in graphite inner-tube of the ninth OGL-1 fuel assembly.

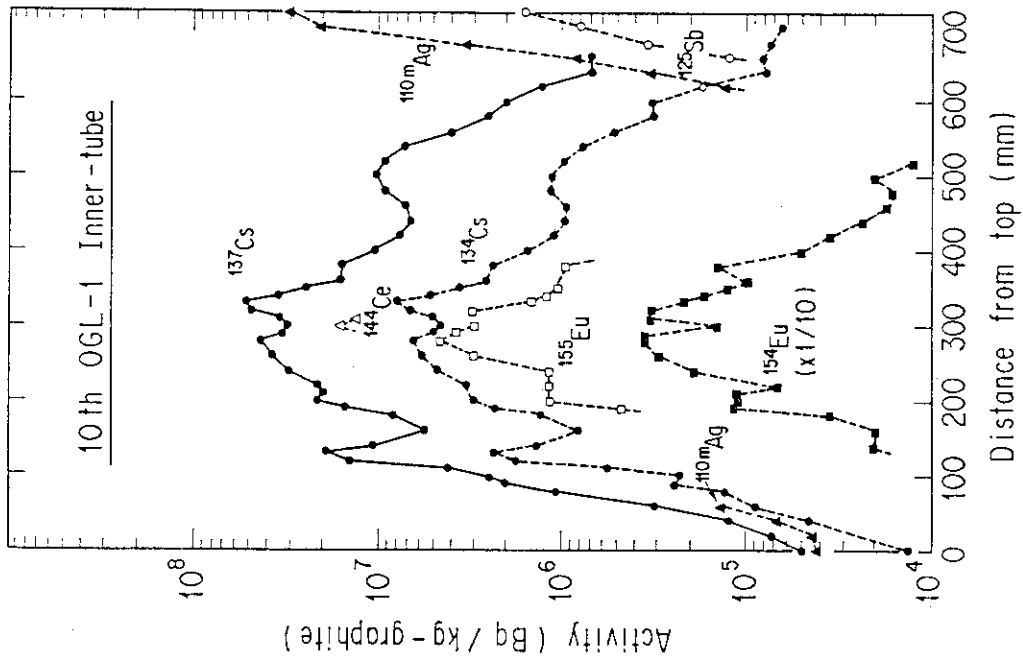


Fig. A.1.2 Axial distribution of fission products in graphite inner-tube of the tenth OGL-1 fuel assembly.

付録 2

第 9 次 OGL-1 燃料体黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs の規格化濃度分布 (図)

本文 4.3 節では黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs の濃度の相対値のプロフィールを取り上げて、黒鉛スリーブ径方向および軸方向の ^{137}Cs の移行挙動について検討した。ここで、 ^{137}Cs の濃度は内表面側濃度で規格化した。ただし、内表面側の第 1 分画は内部に比べて ^{137}Cs 濃度が特異的に高いため、第 2 番目の分画中の濃度を内表面側濃度 C_0 として採用した。

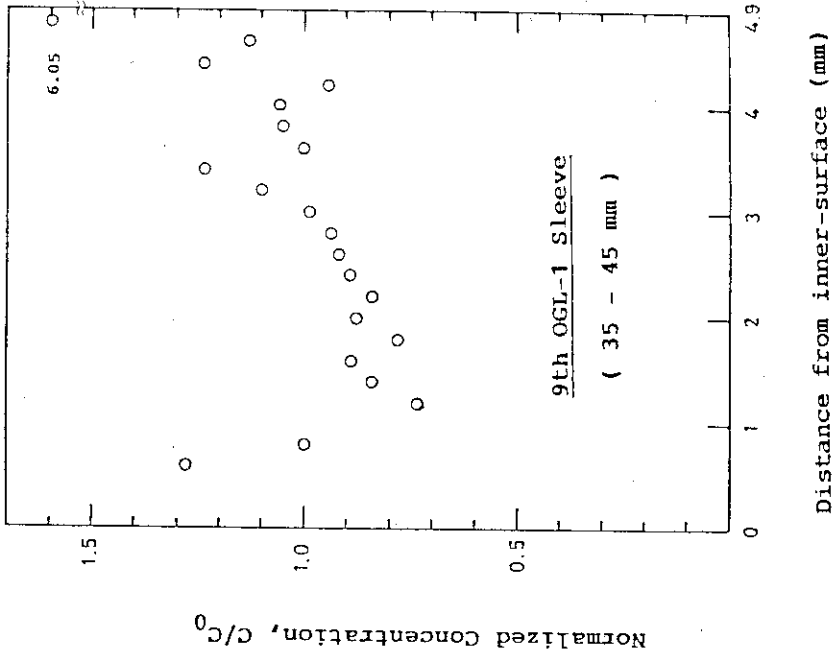


Fig. A.2.2 Normalized profile of ¹³⁷Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 35-45 mm from top.

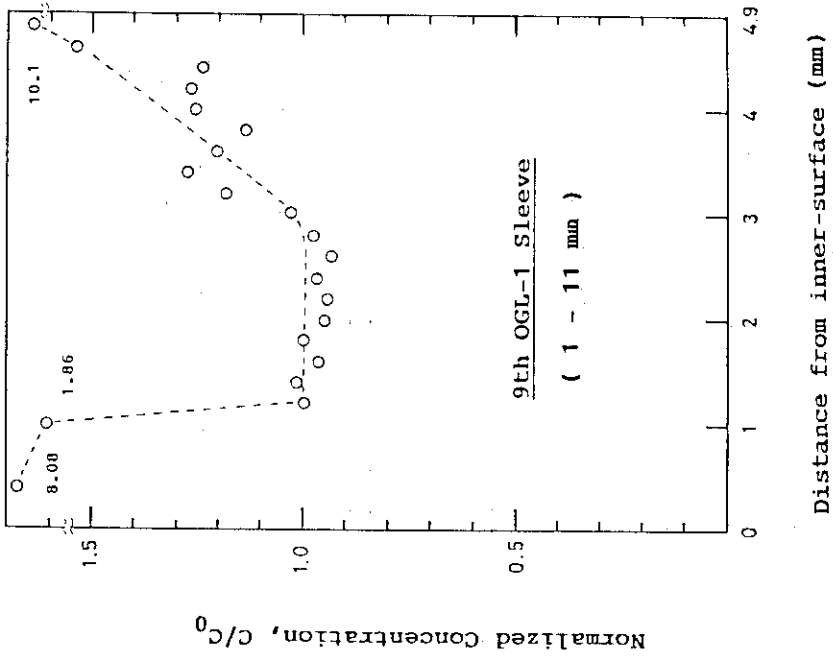


Fig. A.2.1 Normalized profile of ¹³⁷Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 1-11 mm from top.

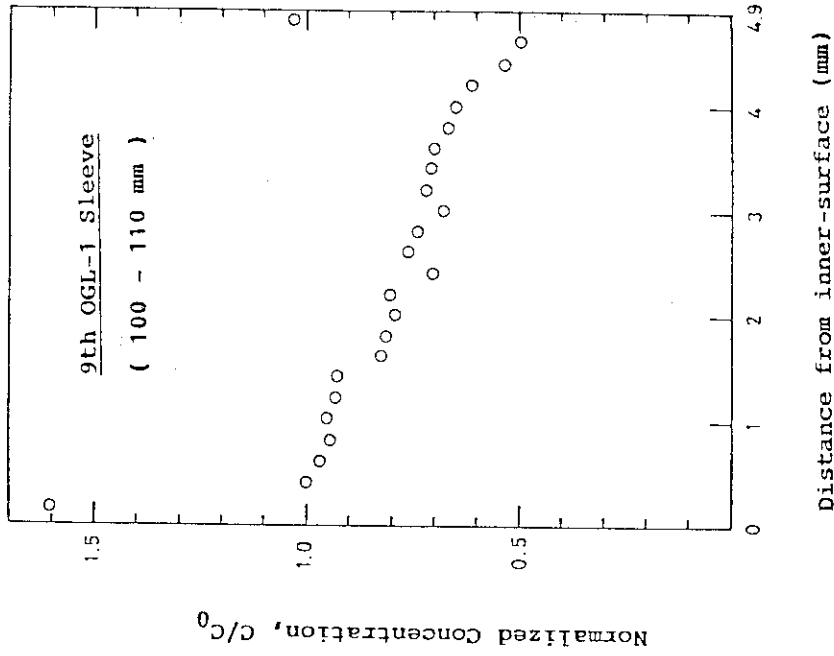


Fig. A.2.4 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 100-110 mm from top.

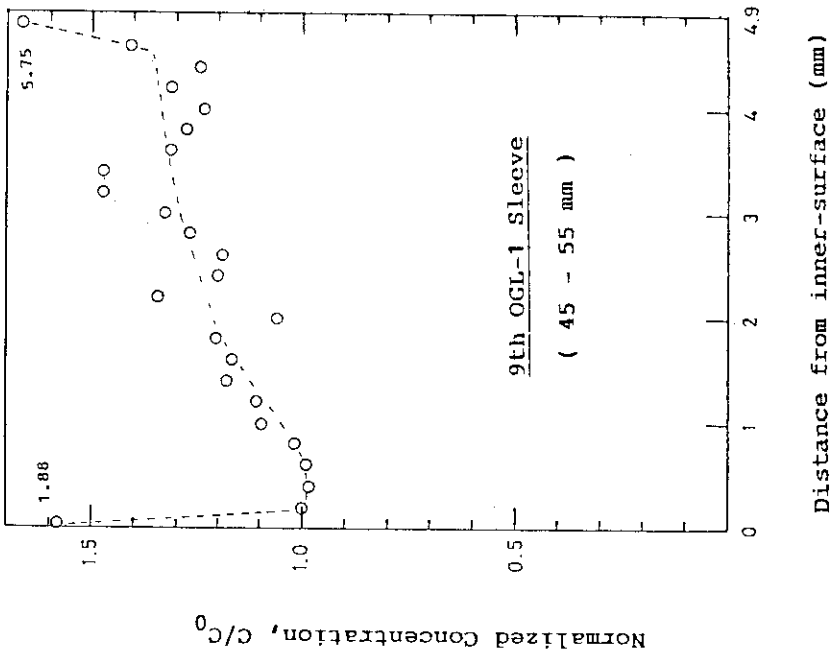


Fig. A.2.3 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 45-55 mm from top.

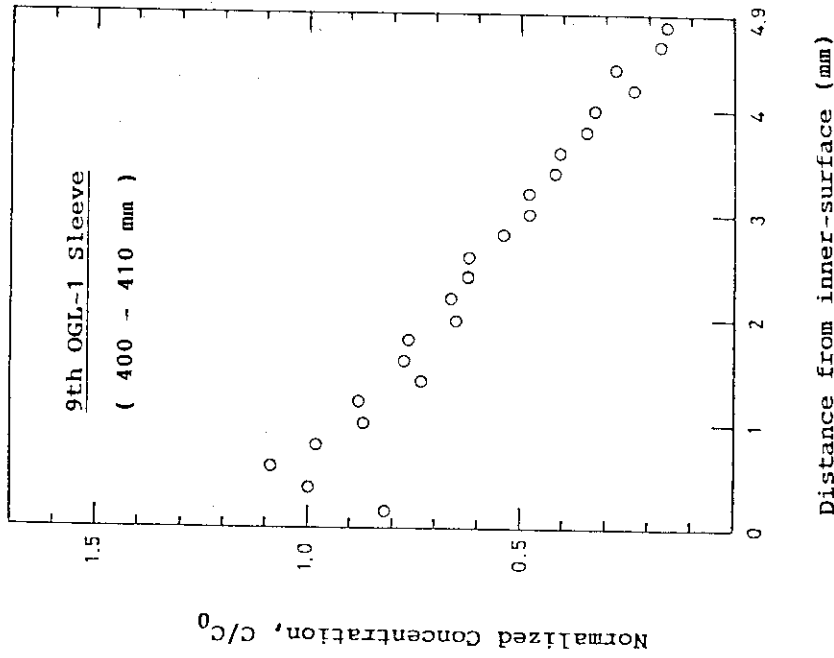


Fig. A.2.6 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 400-410 mm from top.

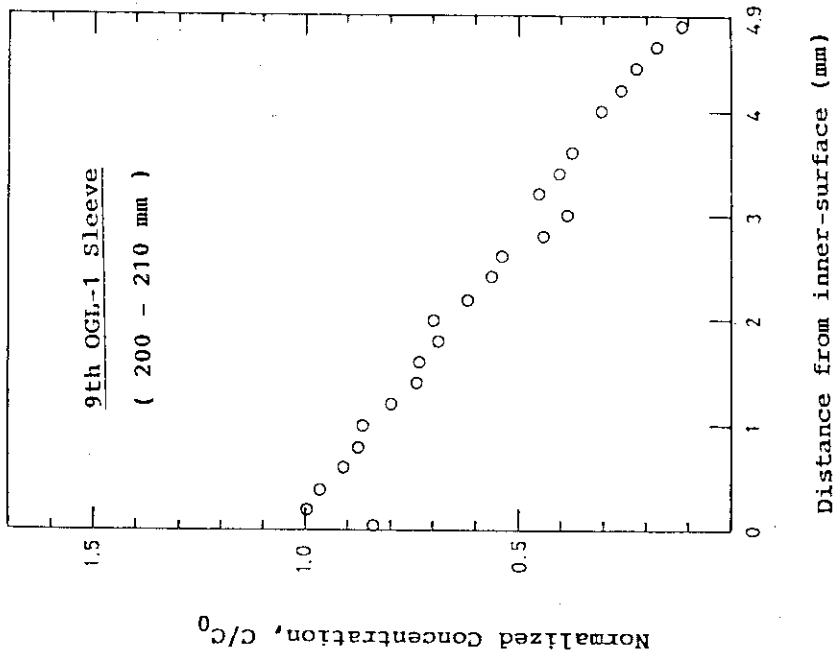


Fig. A.2.5 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 200-210 mm from top.

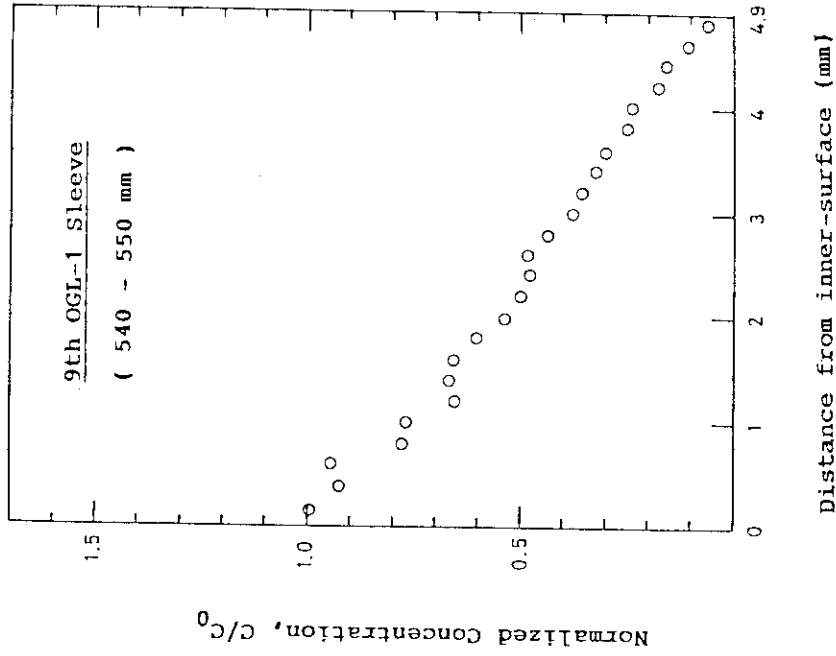


Fig. A.2.8 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 540-550 mm from top.

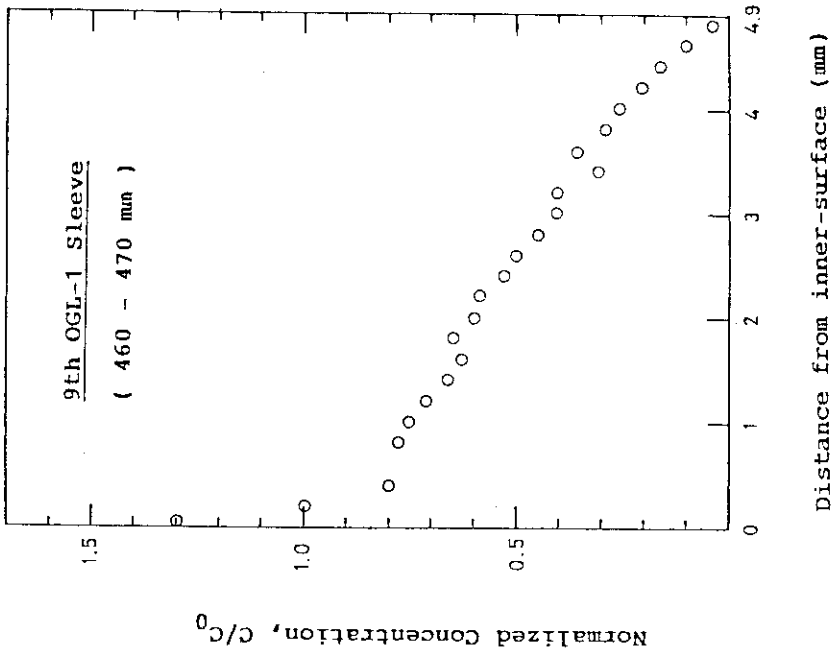


Fig. A.2.7 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 460-470 mm from top.

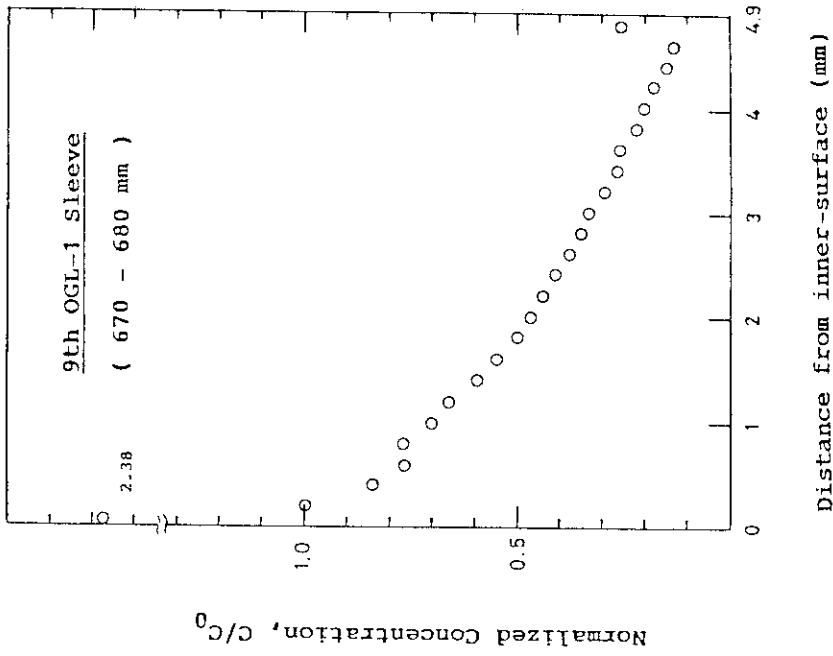


Fig. A.2.10 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 670-680 mm from top.

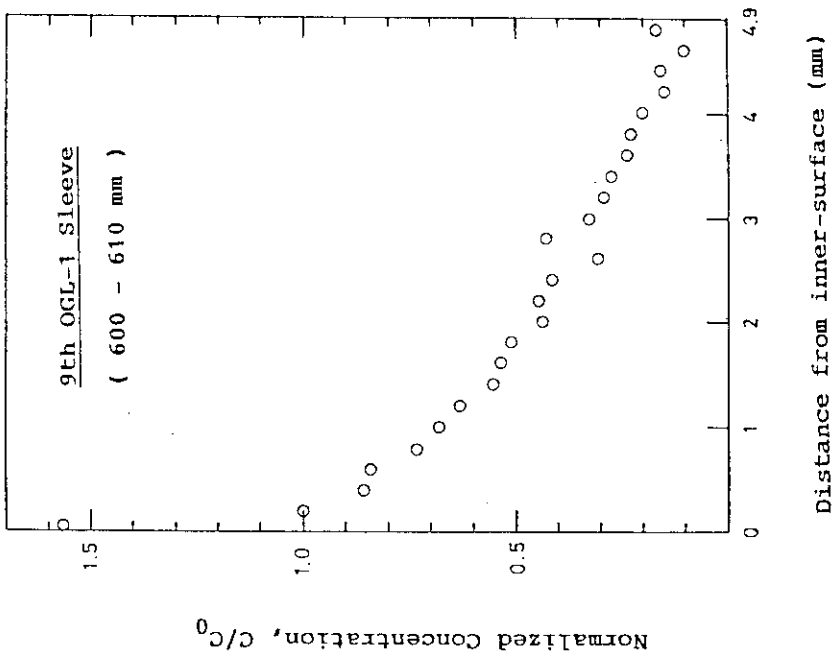


Fig. A.2.9 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 600-610 mm from top.

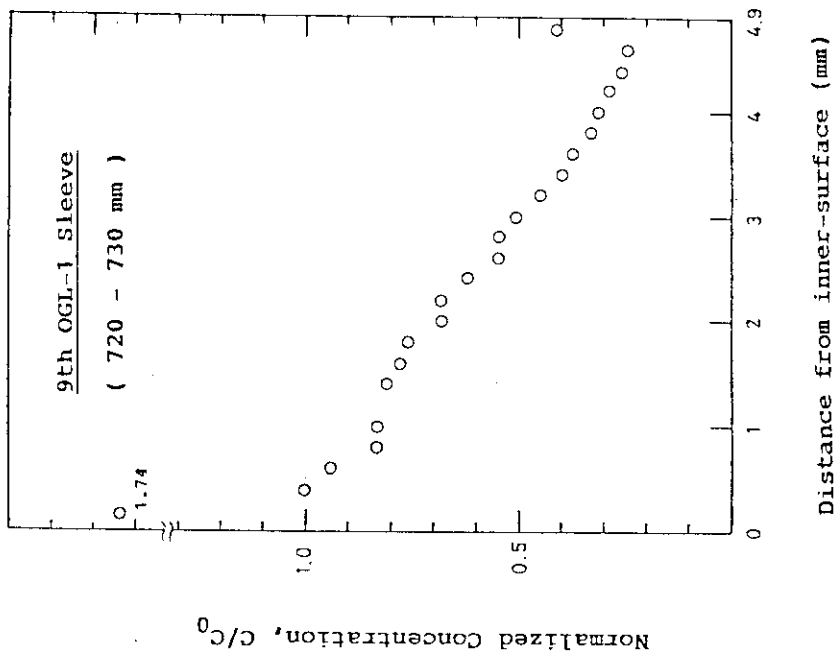


Fig. A.2.11 Normalized profile of ¹³⁷Cs in graphite sleeve of the ninth OGL-1 fuel assembly: 720-730 mm from top.

付録 3

第10次OGL-1燃料体黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs の規格化濃度分布(図)

本文4.3節では黒鉛スリーブ径方向の ^{137}Cs の濃度の相対値のプロフィールを取り上げて、黒鉛スリーブ径方向および軸方向の ^{137}Cs の移行挙動について検討した。ここで、 ^{137}Cs の濃度は内表面側濃度で規格化した。ただし、内表面側の第1分画は内部に比べて ^{137}Cs 濃度が特異的に高いため、第2番目の分画中の濃度を内表面側濃度 C_0 として採用した。

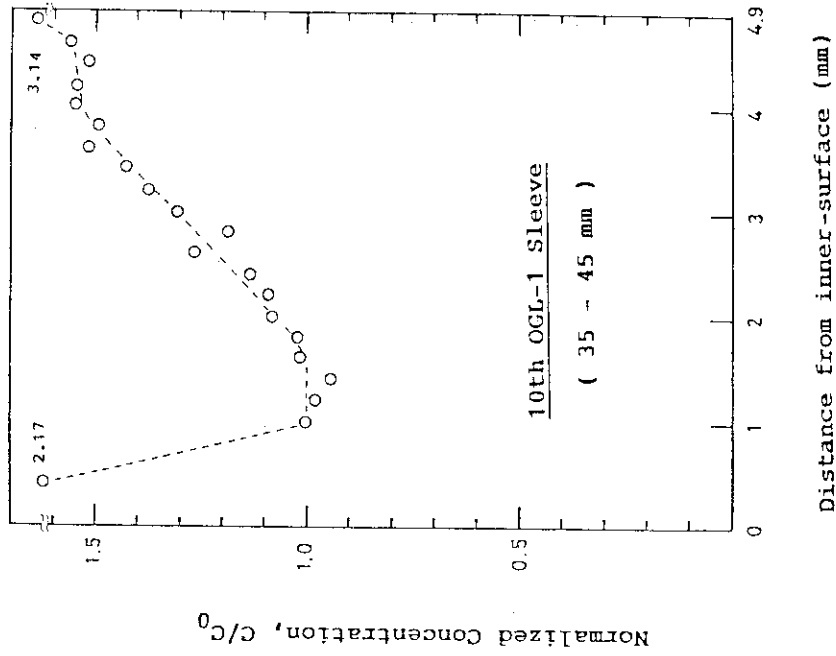


Fig. A.3.2 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 35-45 mm from top.

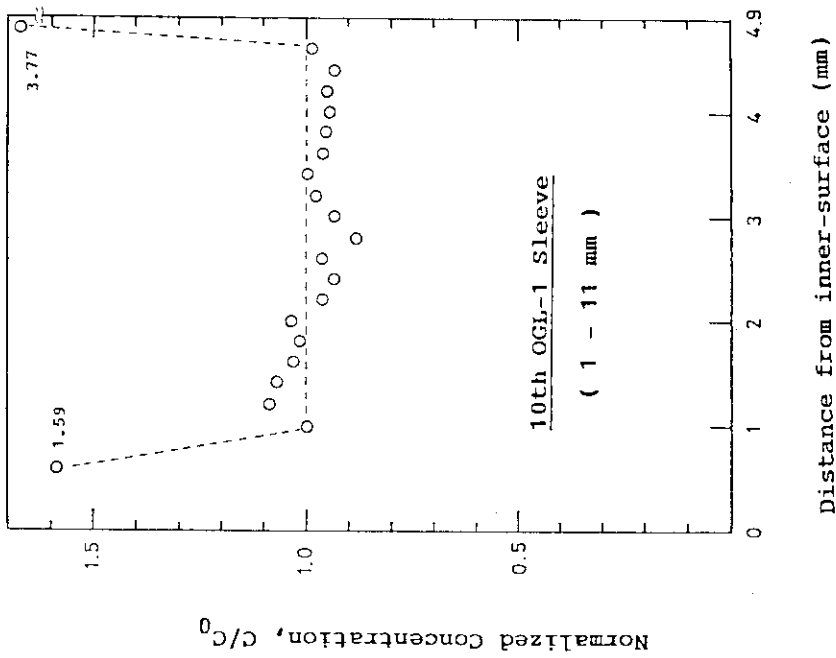


Fig. A.3.1 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 1-11 mm from top.

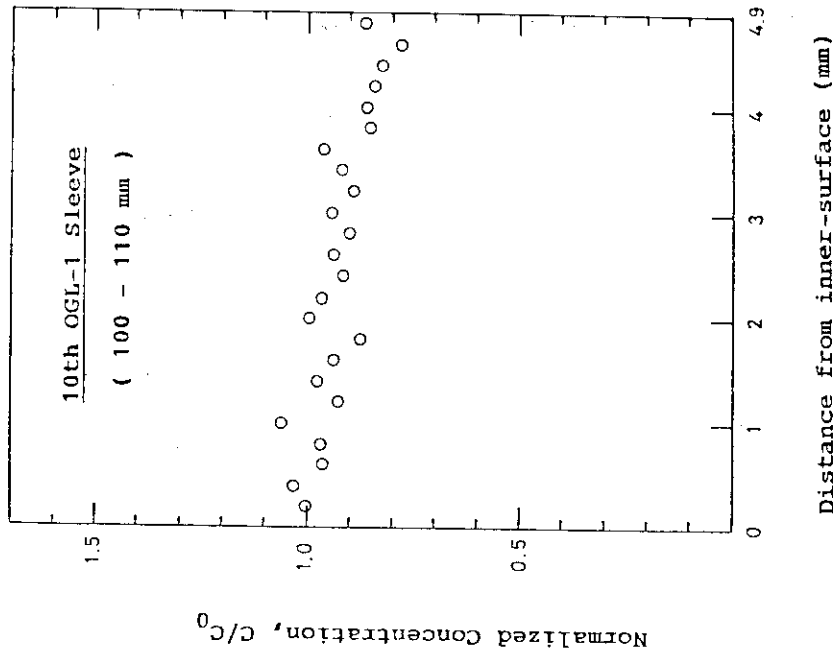


Fig. A.3.4 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 100-110 mm from top.

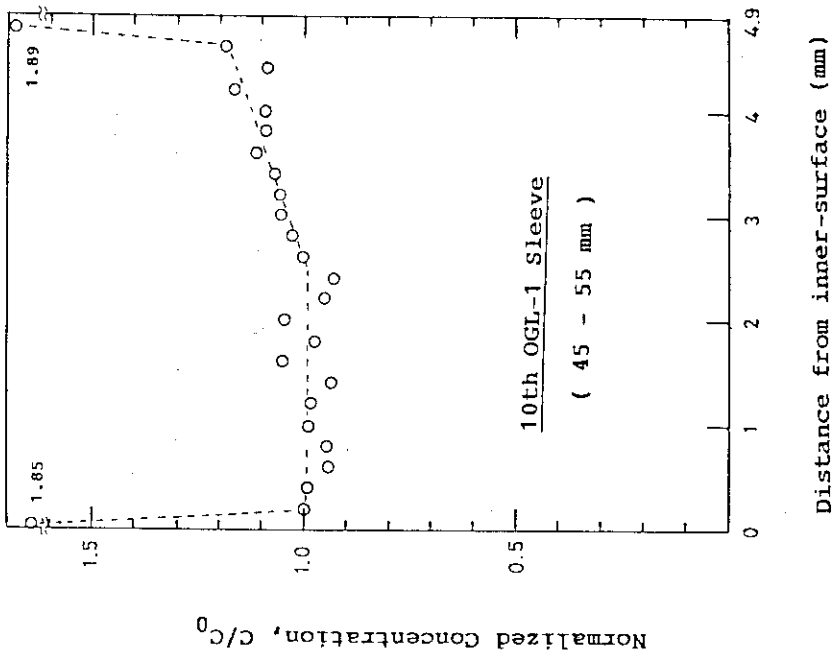


Fig. A.3.3 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 45-55 mm from top.

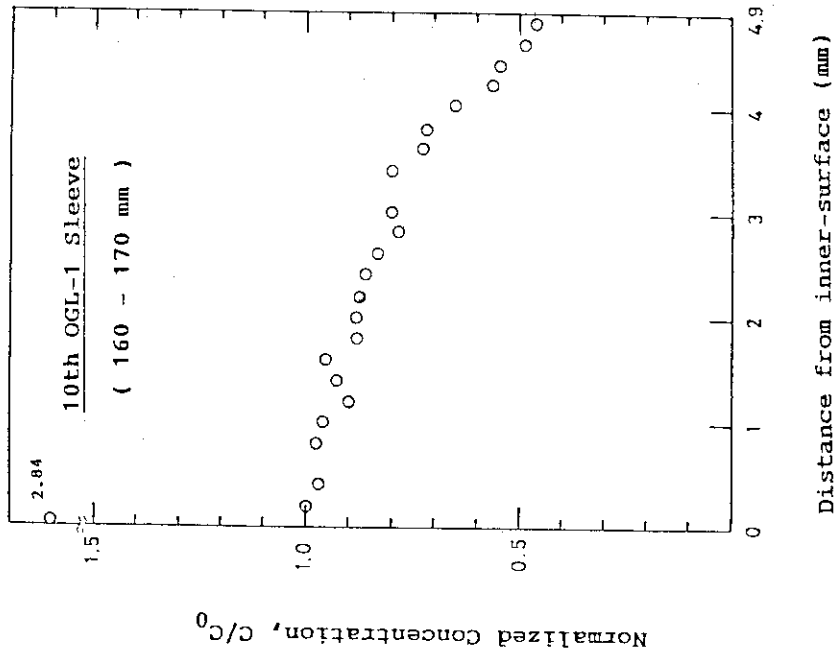


Fig. A.3.6 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 160-170 mm from top.

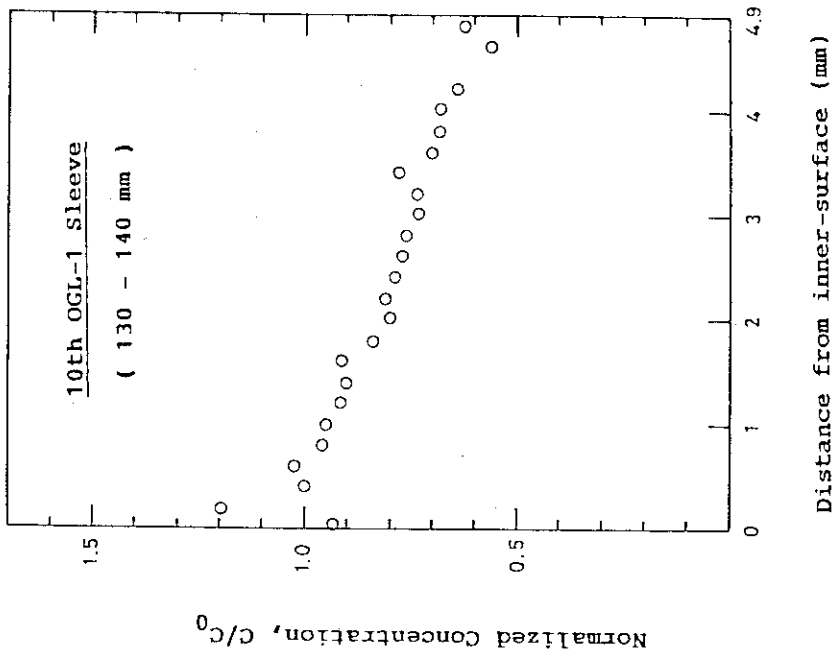


Fig. A.3.5 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 130-140 mm from top.

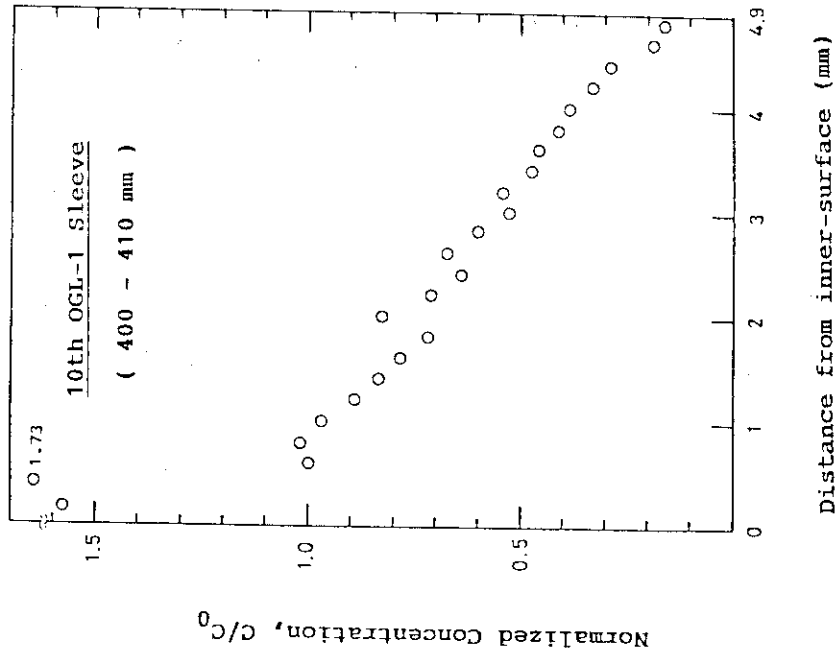


Fig. A.3.8 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 400-410 mm from top.

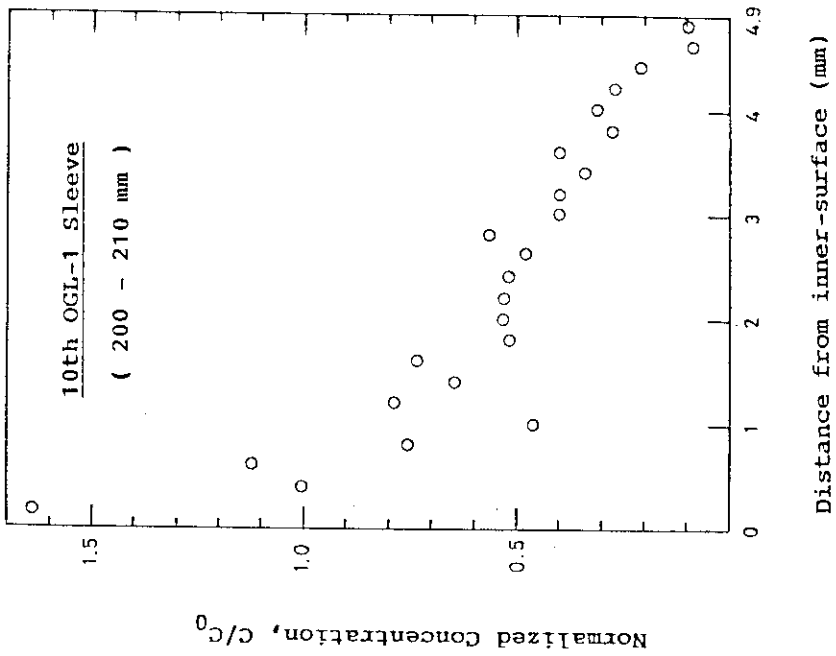


Fig. A.3.7 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 200-210 mm from top.

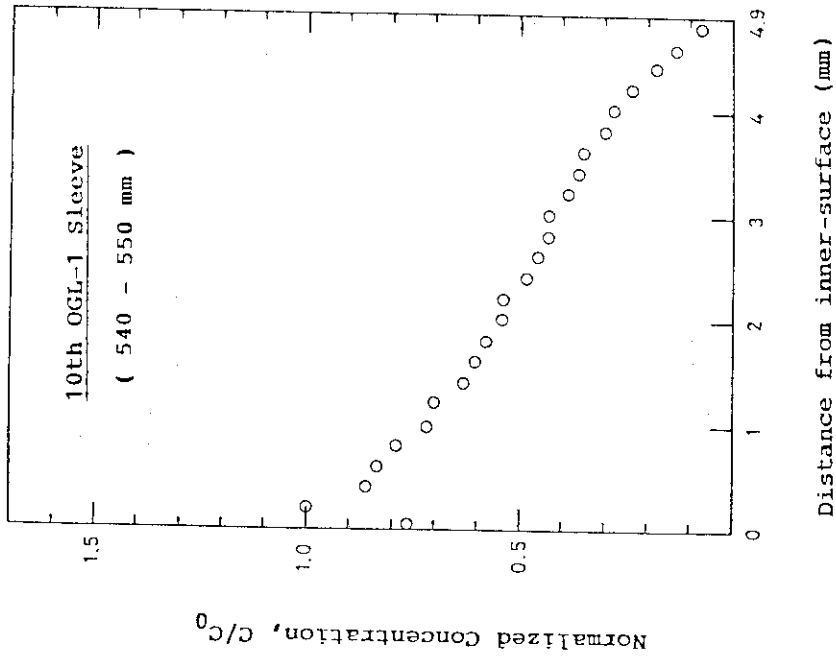


Fig. A.3.10 Normalized profile of ¹³⁷Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 540-550 mm from top.

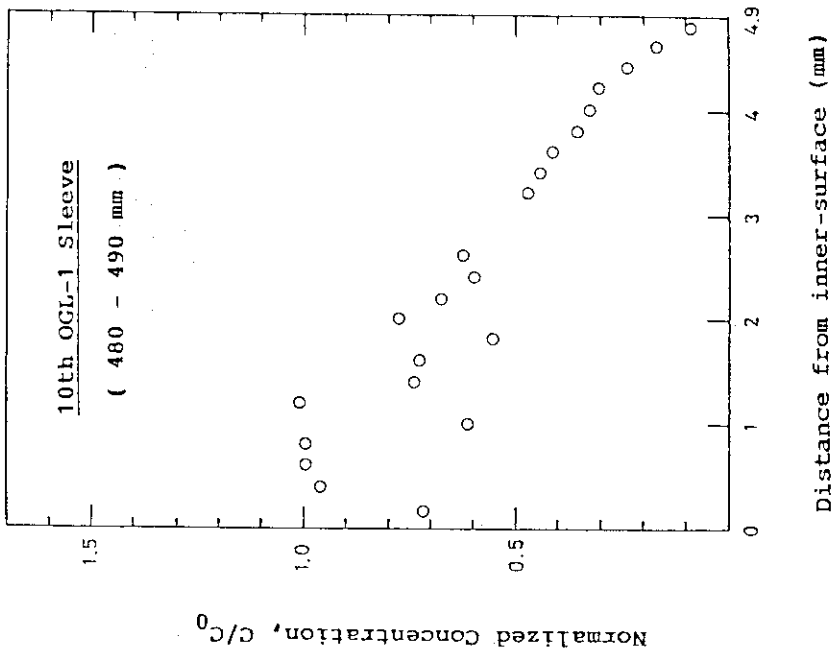


Fig. A.3.9 Normalized profile of ¹³⁷Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 480-490 mm from top.

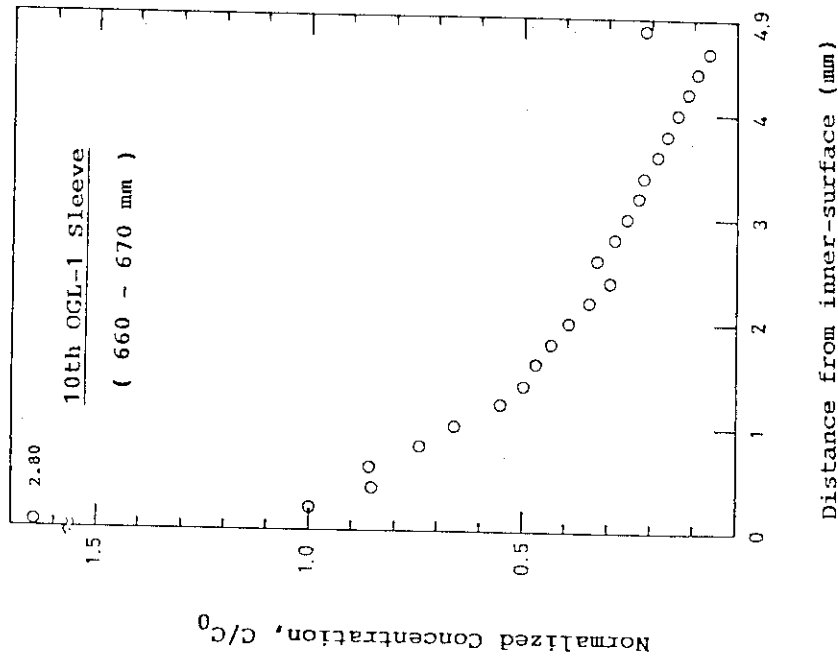


Fig. A.3.12 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 660-670 mm from top.

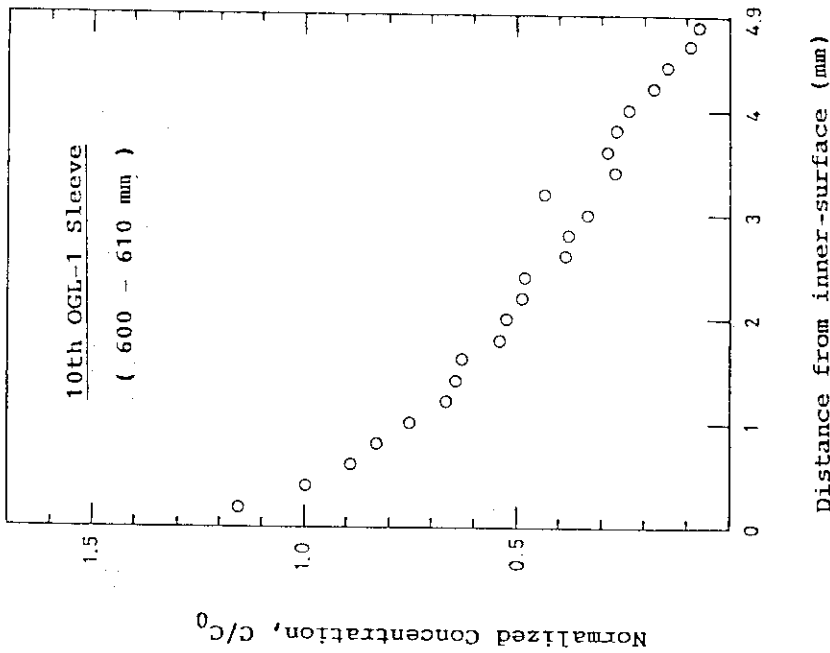


Fig. A.3.11 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 600-610 mm from top.

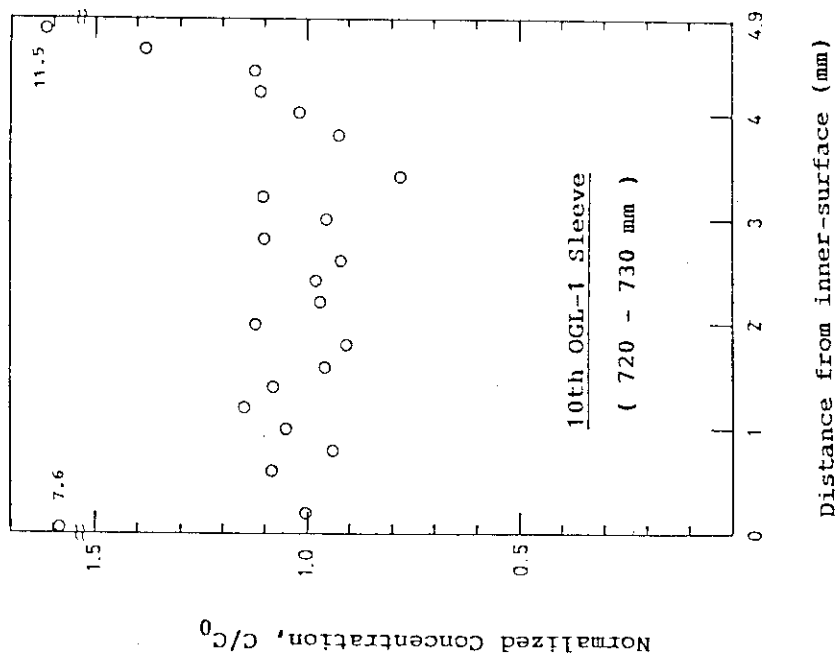


Fig. A.3.13 Normalized profile of ^{137}Cs in graphite sleeve of the tenth OGL-1 fuel assembly: 720-730 mm from top.