

JAERI - M
89-077

過酷炉心損傷時における核分裂生成物の
燃料棒からの放出速度およびその化学形

1989年6月

中村 武彦・柳原 敏

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, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 いばらき印刷(株)

過酷炉心損傷時における核分裂生成物の
燃料棒からの放出速度およびその化学形

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

中村 武彦・柳原 敏⁺

(1989年5月25日受理)

本報告書は、過酷炉心損傷時における核分裂生成物の環境への放出挙動を検討しているソースターム研究において、燃料棒の破損により一次冷却系へ放出される核分裂生成物の化学形や放出率を炉外実験により評価している、SASCHA 実験(西独 PNS 計画)と HI-V 実験(米国 ORNL における燃料棒加熱実験)の結果を整理し、検討したものである。両実験は、TMI-2 事故を契機として始められた過酷炉心損傷時のソースターム評価に、基本的なデータを提供している。また、実験手法やデータの解析方法も優れており、今後このような燃料棒の加熱実験を実施する上でも有用な情報を得ることが出来る。本報告書では、西独 SASCHA、米国 ORNL の炉外実験をレビューし、過酷炉心損傷時のソースターム研究における、燃料棒からの核分裂生成物の放出挙動を評価する場合に、注目すべき項目、実験上の技術的問題点等を明らかにした。

また、上記実験から得られた核分裂生成物の化学形に関する知見をまとめると共に、揮発性核分裂生成物(Kr, Cs等)の放出速度に関し、拡散モデルによる評価を行った。この結果、燃焼度依存の拡散係数を用いる事により、簡単な拡散モデルが ORNL の実験結果をよく再現する事が明らかとなった。

A Review on Fission Product Source Term from Fuel
at Severe Accident Conditions, Chemical Forms
and Release Rates

Takehiko NAKAMURA and Satoshi YANAGIHARA⁺

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 25, 1989)

Fission product source terms at severe accident conditions have been studied vigorously since the accident at TMI unit 2. Among with the effort, some series of out-of-pile experiments have been performed to investigate fission product release behavior, exclusively, from fuel rods at the off-normal conditions.

This report reviews the results of two major series of the source term tests, i.e. SASCHA (PNS Project, FRG) and HI-VI test (ORNL, USA). These tests have been the major sources for estimating fission product source terms in the primary cooling system, in the containment and subsequently to the environment at hypothetical Severe Accidents.

Findings on the chemical forms of some important fission products in these tests are summarized. A diffusion model is introduced to represent volatile fission product release observed in the ORNL tests. The diffusion model described Kr and Cs releases better than the existing CORSON-M model does. In addition, experimental and analytical techniques used in these tests are also summarized, in order to clarify the reliability and problems of the test data.

Keywords: Fission Product, Severe Accident, Chemical Forms, Release Rates

⁺ Department of JPDR

目 次

1. 序 言	1
2. 炉外核分裂生成物放出実験の現状	2
2.1 SASCHA 実験	2
2.1.1 実験の概要	2
2.1.2 実験装置	2
2.1.3 実験結果	3
2.2 HI 実験	11
2.2.1 実験の概要	11
2.2.2 実験装置と実験方法	11
2.2.3 実験結果	12
2.3 VI 実験	32
2.3.1 実験の概要	32
2.3.2 実験結果	32
3. 揮発性核分裂生成物の放出速度の評価	34
3.1 拡散モデル	34
3.2 HIおよびVI実験への拡散モデルの適用	36
3.3 放出速度に影響する実験条件	36
3.4 拡散係数の燃焼度依存の経験式	37
4. まとめ	48
4.1 核分裂生成物の化学形の評価	48
4.2 核分裂生成物の放出速度の評価	48
4.3 シビアアクシデント研究への適用	49
参考文献	53
付録A HI およびVI実験で用いられている核分裂生成物の測定方法	55
付録B SSMSによる微量核分裂生成物の測定結果	59

Contents

1. Introduction	1
2. Status of Out-of-pile Fission Product Release Tests	2
2.1 SASCHA Tests	2
2.1.1 Outline of the Tests	2
2.1.2 Test Facility	2
2.1.3 Test Results	3
2.2 HI Test	11
2.2.1 Outline of the Tests	11
2.2.2 Test Facility and Procedure	11
2.2.3 Test Results	12
2.3 VI Tests	32
2.3.1 Outline of the Tests	32
2.3.2 Test Results	32
3. Evaluation of Volatile Fission Product Release Rates	34
3.1 Diffusion Model	34
3.2 Application of the Diffusion Model to HI and VI Tests	36
3.3 Effects of Test Conditions	36
3.4 Burnup Correlation of Diffusion Coefficient	37
4. Summary	48
4.1 Chemical Forms of Fission Products	48
4.2 Release Rates of Fission Products	48
4.3 Application to Severe Accident Research	49
References	53
Appendix A Measuring Methods of Fission Products in HI and VI Tests	55
Appendix B Releases of Less Dominant Fission Products Measured by SSMS	59

1. 序 言

1979年3月に米国ペンシルバニア州スリーマイル島のスリーマイル・アイランド2号炉(TMI-2)の事故を契機として、設計基準を超える、いわゆるクラス9事故に関する研究の必要性が指摘され、各国において、苛酷燃料損傷事故(Severe Accident, シビアアクシデント)に関する研究が進められている。特に、TMI-2炉事故の発生原因、経過、結果についての詳細な調査が進むにつれ、事故の全貌が明らかになると共に、シビアアクシデントに関するさまざまな問題点が指摘された。この中でも、シビアアクシデント時における燃料の損傷挙動を明らかにし、かつ、燃料棒中に存在する核分裂生成物(Fission Products, FP)の環境への放出量を正しく評価することは、原子炉のもつリスクを明らかにし、シビアアクシデントが環境へ及ぼす影響を詳細に把握する上で、最も必要な項目である。そこで、米国NRC(原子炉規制委員会)では、苛酷燃料損傷を伴う軽水炉事故時の影響を評価するためのデータベースと解析手法を確立するため、SFD/FPST(Severe Fuel Damage/Fission Products Source Term)計画を開始し、現在も継続中である。本計画では、炉心からのFP放出量の評価、燃料損傷時における炉心状態の評価、炉心冷却性限界の評価等が主要な研究テーマであり、燃料損傷・冷却性評価およびFP放出挙動に関しては、アイダホ国立工学研究所(INEL)、サンディア国立研究所(SNL)、カナダ原子力公社で炉内実験が実施されている。また、FPの燃料棒からの放出挙動に関しては、オークリッジ国立研究所(ORNL)を中心として、サンディア国立研究所等で炉内外実験が続けられている。

上述した研究項目の内、FPの放出挙動についてみると、燃料棒内におけるFPの化学形の究明、 UO_2 ペレットから一次冷却系への放出率の評価、一次冷却系におけるFPの輸送の評価等、多くの究明すべき問題点を挙げることが出来る。これらに関しては、SFD/FPST計画以前から各国において、実験及び解析による究明がなされていた。特に、西独におけるSASCHA計画およびORNLにおける炉外FP放出量評価実験、燃料棒の温度を主要なパラメータとして、燃料棒又は UO_2 燃料棒からの各FP核種の放出率を評価したものであり、FP放出量評価に関して基本的なデータを提出している。これらのデータは、TMI-2炉事故後各国で実施されているソースターム評価実験においても、実験結果を評価する上で重要な役割を果たしているということが出来る。これは、 UO_2 燃料棒中に蓄積されたFPは、基本的には UO_2 の温度を関数としてその放出率を評価出来るためである。しかし、燃料棒が高温において急冷される場合には、FPのバーストが測定されたり、また、 UO_2 とジルカロイ被覆管との間に反応が生じると UO_2 ペレットの溶融が生じるためFPの放出率が増加する等、必ずしも燃料温度の関数としてFP放出率を評価出来ない場合も生じるため、燃料の損傷挙動との対応からFP放出率を評価することも必要である。そこで、SASCHA実験及びORNLのFP放出評価実験の結果を基本として、種々の条件下で破損した燃料棒からのFP放出率を詳細に評価する必要があると思われる。

本レポートは、上述した2つの実験計画の結果をレビューすると共に、これらの結果のSFD時のソースターム評価への適用性について検討した結果をまとめたものである。

2. 炉外核分裂生成物放出実験の現状

2.1 SASCHA 実験^{1),2),3)}

2.1.1 実験の概要

SASCHA 実験は西独における PNS (Nuclear Safety Project) 計画の一つとして 1975 年より約 10 年間実施された炉外の小規模実験であるが、後述する ORNL の実験シリーズと共に、 UO_2 燃料からの FP 放出率を評価する上で重要なデータを提供している。本 SASCHA 実験の主な目的を以下に示す。

- * 加熱した燃料又は燃料を含む融体から放出される FP や放射化物の量を定量的に評価する。
- * 原子炉の一次系や格納容器内において生成され、かつ放射性物質の移行や沈着をコントロールするエアロゾルの物理的および化学的性質を究明する。

このような目的により、多くの実験が行なわれているが、その総てが詳細に発表されている訳ではなく、各テーマ毎に実験結果や考察がまとめられてレポートに公開されている。そこで、本節においては、SASCHA 実験装置および実験結果を主要なテーマ毎に紹介する。

2.1.2 実験装置

SASCHA 装置の概要を図 1 に示す。本図に示されている様に、SASCHA 装置は、模擬燃料を高温に加熱する高周波加熱用のコイル及び炉と格納用のベッセル、模擬燃料より放出された放射性物質から成るエアロゾルを捕集するフィルターやカスケイド・インパクターおよびその他の付属設備より構成されている。実験の主要なパラメータを以下に記す。

- | | |
|----------|------------------------------|
| * 溶融物の重量 | 200 - 250 g |
| * 照射量 | 44 GWd/tU 模擬 |
| * 雰囲気 | 蒸気, Ar-蒸気, Ar-H ₂ |
| * 圧力 | 2 bar |
| * 流量 | 30 l/min |
| * 加熱速度 | 50 - 300 °C |

SASCHA 実験では、I, Cs, Te, Ba, Ag, In, Cd の核種に着目してその放出率を 1500 ~ 2800 °C の範囲で評価している。これらの核種は以下の理由により着目された。

- * I, Cs, Te, Ba, Sr : Fission Products の内でも最もリスクが大きいと考えられる核種
- * Ag, In, Cd : 制御棒中に含まれる物質であり、エアロゾルを形成する基本的核種。特に Ag は水に難溶性の AgI となり、I のトラップとして重要である。

これらの物質は 3 本の Zry 被覆の短尺燃料棒内に入れられ、炉心溶融を模擬するためにステンレス鋼や吸収材と共に加熱された。全重量は 200 - 250 g である。なお、FP 模擬核種は 44 GWd/t の燃焼度を模擬した重だけ挿入されている。

加熱実験においては、時間を関数にして、温度と各核種の放出率が測定された。各核種の放出

率はグラスファイバーフィルターによりエアロゾル粒子を収集することにより実施された。これらのフィルターは実験中は自動的に交換できる機構となっている。実験終了後は、輸送管等に着した粒子についても放射線分析が行われた。

2.1.3 実験結果

前述した様にSASCHA実験は多くのパラメータを変えて詳細にFPの放出率に関するデータを得ている。これらの結果については、(1)加熱実験におけるI, Csの放出率の評価, (2)エアロゾルの特性評価, (3)FP放出に及ぼす水蒸気供給量の影響評価, (4)融体・コンクリート反応におけるFP放出量の評価, (5)FP放出率係数の評価についてまとめて検討されているため、本節においてもこれらの結果を紹介する。

(1) 加熱実験におけるI, Cs放出率の評価

1) 放出率の評価

IとCsの放出率および放出後の挙動を評価するために、以下の化合物を含む燃料棒についての加熱実験が実施された。

* HIO_3 : 300 °C以上で分解

* Cs_2CO_3 : 610 °C "

* CsI : 沸点(1280 °C)以上までは安定

なお、本実験ではトレーサーとして ^{126}I , ^{134}Cs を使用している。実験は蒸気雰囲気2 barで行なわれた。この結果、最高温度1900-2250 °C、昇温速度40~80 °C/minにおいて、90~100%のI, Csの放出が測定された。図2に3回の実験におけるI, Csの放出率の測定結果と各実験の温度履歴を示す。これらの実験より、 CsI の化学形においては、温度が300~400 °C高くなると、 Cs, I が独立して存在する場合と等しい放出率が得られないことが分る。又、 Cs, I が各々独立して存在する場合はその放出挙動はほぼ類似している。

これらの実験から得られた主な結論は以下の通りである。

* 燃料中において、 HIO_3 や Cs_2CO_3 が熱分解することによって CsI の化学形が生成されることはない。

* CsI は燃料中では2000 °Cまでは安定な化合物である。そうでなければ、2000 °Cまでの Cs, I の放出率は60%以上であると考えられる。

2) 沈着量の評価

上記加熱実験において、エアロゾルの輸送経路及びフィルターに沈着したI, Csの量が評価された。表1にIの沈着量を評価した結果を示す。

S-273 Test : 本試験においては HIO_3 の分解によって各元素が放出される。実験の結果、ガラス容器のIは2.5%, ステンレス鋼には化学吸着により53.1%, グラスファイバーのフィルターには、1500 °C以上で溶融して形成したエアロゾルがIを吸着することにより、43.3%が沈着し、残りの1.1%のIがヨウ素フィルターに存在していた。つまり、ろつぼからヨウ素フィルターへ移行する2秒間のうちに、大部分のヨウ素が装置の表面に沈着してしまっただことが分る。

S-276 Test : 本試験では CsCO_3 とAg-In-Cdを HIO_3 に加えて入れ加熱した。試験

の結果、ステンレス鋼に化学吸着する I が減少したのに対しガラス容器とグラスファイバー・フィルターに沈着する I が増加した。これは、 CsCO_3 と Ag-In-Cd を付加することにより、ヨウ素がエアロゾルとして形成する原因になったものである。ヨウ素フィルターに吸収されたヨウ素の量は 0.1% と減少している。

S-270 a Test : CsI を燃料中に混合した場合は、ほとんど全てのヨウ素が溶解炉から放出された後微粒子状になるものと考えられる。これは、ガラス容器とグラスファイバー・フィルターに沈着したヨウ素の量が増加していることから明らかである。ステンレス鋼に沈着している 5.8% のヨウ素も多分エアロゾルとして存在していると考えられる。

セシウムの沈着量を評価した結果 (表 2) では、沈着挙動は全ての試験においてほぼ等しく、初期の化学形に影響されないことが分る。特に、ガラス容器とグラスファイバー・フィルター内での沈着については、各試験の相違はほとんど認められない。

(2) テルルとバリウムの挙動

SASCHA 実験では、 2400°C までの加熱実験により、テルルとバリウムの放出率を評価した。これらの結果を ORNL の実験と比較検討した結果、テルル、バリウムの放出率は水蒸気の有無に大きく影響されることが判明した。

図 3 は水蒸気の供給量を変えて、テルルの放出率を評価した結果である。本図より、水蒸気の供給量が減少すると、テルルの放出率が明らかに少なくなることが分る。つまり、 $\text{Ar} + 5\% \text{H}_2$ の雰囲気条件の試験では 3~10 分の間では他の条件に比較 $200 \sim 400^\circ\text{C}$ 温度が高いのに対して、テルルの放出率が少ないことが分る。酸化の程度が少ない場合においては、テルルはジルカロイ被覆管や鉄、クロム、ニッケル等のステンレス・スチールの成分元素と化学反応してルツボの中に残存するものと考えられる。酸化が進行すると、酸化反応熱によりテルルが分解してその放出が加速する。

バリウムについてみると、水蒸気の供給量と放出率との関係はテルルとは反対の傾向を示す。図 4 は水蒸気の供給量が異なる 3 つの試験について、温度とバリウムの放出率との関係を示したものである。本図からは、水蒸気のみ雰囲気に対して、アルゴン + $5\% \text{H}_2$ の雰囲気条件では、バリウムの放出率は 2 桁大きいことが分る。酸化反応の自由エネルギーは、 BaO よりも ZrO_2 の方が大きい。このため、金属ジルカロイは燃料中に含まれる BaO を還元して Ba をより揮発性の化学形に変換していると考えられる。

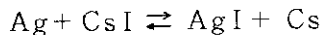
① 銀・インジウム・カドミウムの挙動

SASCHA 試験において、ルツボ内にスチールや核分裂性物質と共に 2 g の制御材の物質を加えて、銀、インジウム、カドミウムの単体の挙動について検討した。昇温試験時におけるこれらの元素の放出率を図 5 に示す。本図からは、カドミウムは 1500°C にまで昇温する間にほぼ 100% 放出されているのに対し、銀とインジウムは、 2050°C までに各々、55%、92% 放出していることが分る。図 6 は、水蒸気の供給量を変えて銀の放出率を評価した結果を示したものである。本図より、銀は水蒸気の供給量に対してテルルとはほぼ同様の挙動を示していることが分る。銀は明らかに金属ジルコニウムと共晶反応を生じて残存している。しかし、 ZrO_2 相が形成されて反応を防止する場合には、被覆管に関係なく銀は放出されることになる。

② 放出された銀とヨウ素との反応

酸化した銀と燃料から放出されたヨウ素との反応の程度を検討するため、スズとヨウ素を含む核物質片を2gの制御材と共に溶融させる実験を行った。ヨウ素の化学形はCsIであり、その銀との重量比は1:5.6である。昇温試験により放出されたエアロゾルはフィルターにより収集し、その組成を分析した。実験においては、輸送経路における通常元素分析の他に、ガラス容器やフィルターに沈着した量を、水中及び $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ への溶解の程度から検討した。

実験の結果、放出されたヨウ素のうち $25 \pm 3\%$ は水に溶解しないのに対して、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 溶液中には溶解した。つまり、この結果はヨウ素の化学形がAgIであることを示している。図7はAgIの放出量の履歴を示した結果である。本図からは、例えば 1480°C においては、100mgのヨウ素が放出されているのに対して、10%がAgIとして認められているにすぎない。又、 1700°C においては、ヨウ素と銀の放出量はほぼ等しい。本図からは、銀の質量はヨウ素よりも少し少ないので、 1700°C 以上では放出された銀に対してヨウ素が全て反応しても良いはずであることが予想される。しかし、実際にはAgIのしめる割合は48%であった。つまり、本実験においては、ヨウ素の化学形は次式のような反応に全て従って形成される訳ではないことが分る。



以上の結果についてまとめると

- 銀とヨウ素の質量比が $\text{I}/\text{Ag} = 1 : 5.6$ の場合についてみると、これは比較的低い燃焼度の条件 $\text{I}/\text{Ag} = 1 : 000$ とは異なるが、25%以上のヨウ素が銀と反応する。
- 実炉とSASCHA実験とでは、制御棒からの銀の蒸発の程度は異なる。しかし、実炉では溶融した制御棒は炉心の下部に落下するのでその約10%が水面上に停まると考えられる。すると、ヨウ素と銀の比は20GWd/tの燃焼に対して1:12となるため、AgIの生成率が25%であることを示した本実験の結果を実際的でないとは言えない。

③ まとめ

核分裂生成物と制御棒材Ag-In-Cdについて、放出挙動を評価した結果、以下の事が分った。

- UO_2 -Zry-seamの雰囲気においては、CsIは 2000°C まで安定であった。
- 燃料中において HIO_3 と CsCO_3 が分解してCsIが生成されることはありえない。
- 数秒間で99%のガス状のヨウ素が、気相中での反応、エアロゾルへの吸着、ステンレス鋼への化学吸着、ステンレス鋼への化学吸着によって、大気中から除去される。又、 HIO_3 に比べて、CsI又は Cs_2CO_3 とAg-In-Cd雰囲気の方が残存するヨウ素は1桁少ない。
- Ba, Te, Agの放出は、ジルカロイの酸化の程度に強く影響される。水蒸気の供給が増加するにつれてTe, Agの放出量が増加するのに対し、Baは減少する。この結果により既に発表されているORNLとKfKのBaの放出率の相違を説明することが出来る。しかし、Teの放出率はORNLにより示された結果より低い値を示している。
- 蒸発した銀の量は25%のヨウ素と反応するだけ十分存在する。

表1 SASCHA実験における実験後のヨウ素の分布⁽²⁾

Test No.	S-273	S-276	S-270a
Chemical Form	HIO ₃	HIO ₃	CsI
Additives ^{a)}	-	Cs ₂ CO ₃ + Ag-In-Cd	-
m _I : m _{Cs} ^{b)}	-	1 : 3.4	1 : 1
m _I : m _{Ag}	-	1 : 10	-
Deposition (%) on ^{c)}			
- Glass Vessel	2.5	14.1	18.5
- S.S. Components	53.1	26.6	5.8
- Glassfiber Filters	43.3	59.2	75.7
- Iodine Filter ^{d)}	1.1	0.1	<0.1

a) relevant additives besides usual f.p. inventory

b) mass ratios in Moles

c) normalized for 100% release

d) AC-6120 (AgNO₃ impregnated amorphous silicid acid)表2 SASCHA実験における実験後のセシウムの分布⁽²⁾

Test No.	S-276	S-279	S-282	S-292
Type of Vessel	Glass	Glass	Steel	Steel
Vessel Temperature (°C)	200 - 350	200 - 350	300 - 650	500 - 800
Maximum Fuel Temp. (°C)	1950	2050	2470	2000
Chemical Form of I/Cs in the Fuel	HIO ₃ +Cs ₂ CO ₃	CsI	HIO ₃ +Cs ₂ CO ₃	CsI
Test Atmosphere	Steam	Steam	Ar+5% Steam	Steam
Distribution of I (%):				
Vessel	11.7	17.0	0.5	0.2
Steel Tubes	29.0	13.3	14.1	16.4
Glassfiber Filters	59.2	70.7	85.2	82.8
Iodine Filter	0.1	0.1	0.2	0.5
Distribution of Cs (%):				
Vessel	15.7	15.7	1.5	0.5
Steel Tubes	7.1	12.7	10.4	16.8
Glassfiber Filters	77.2	71.6	88.1	82.6

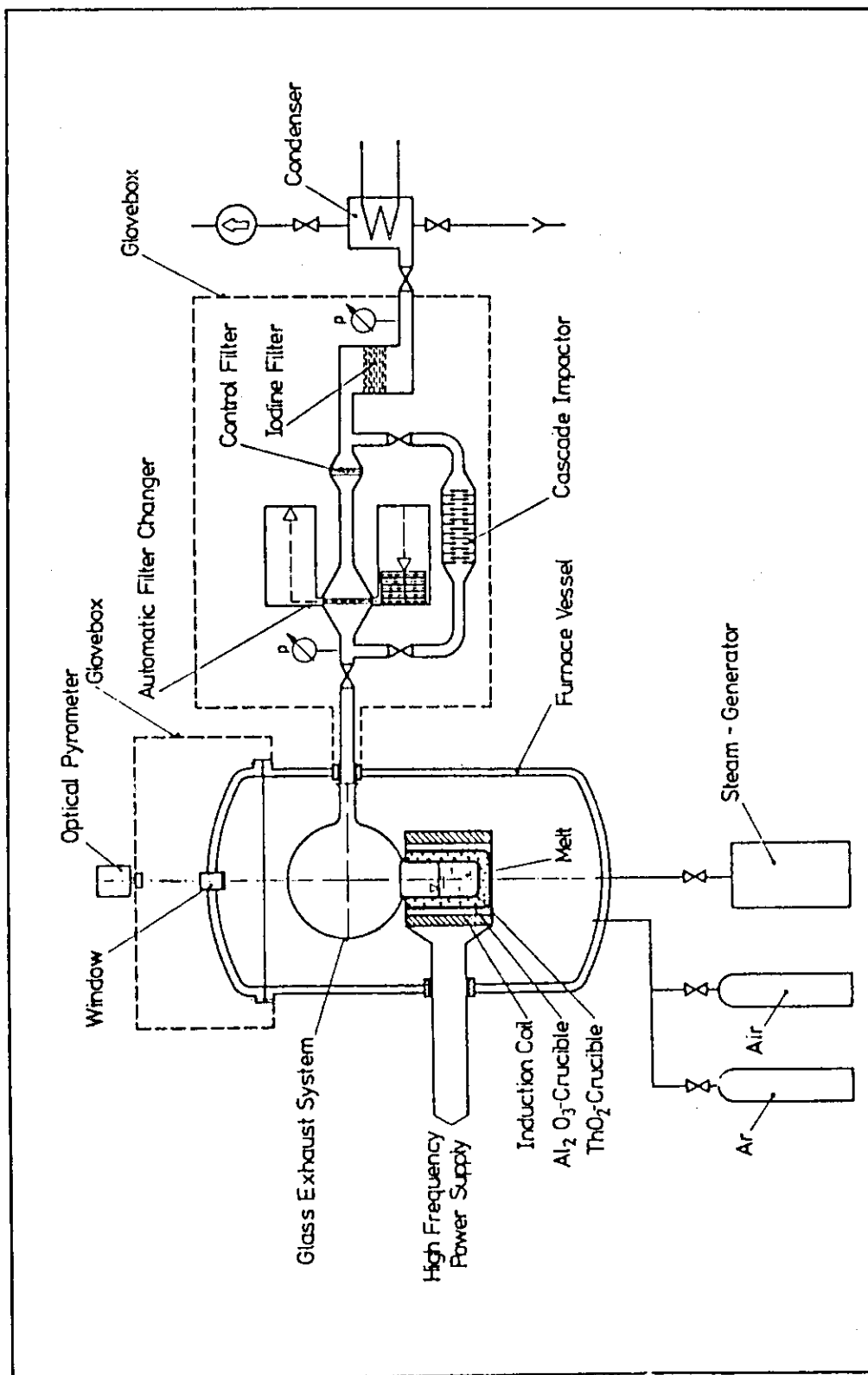


图1 SASCHA 装置概念图(2)

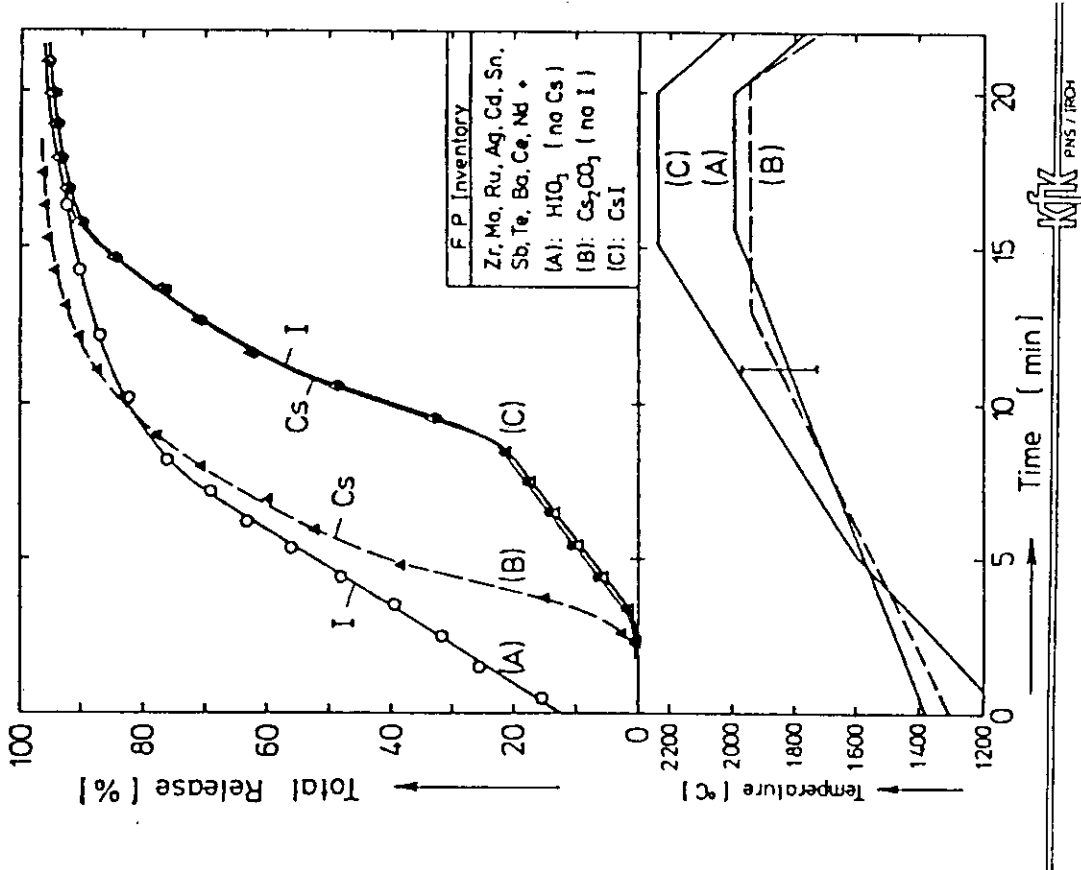


図2 種々の化学形をしたヨウ素とセシウムを含んだフィニウムからのヨウ素とセシウムの放出 (2)

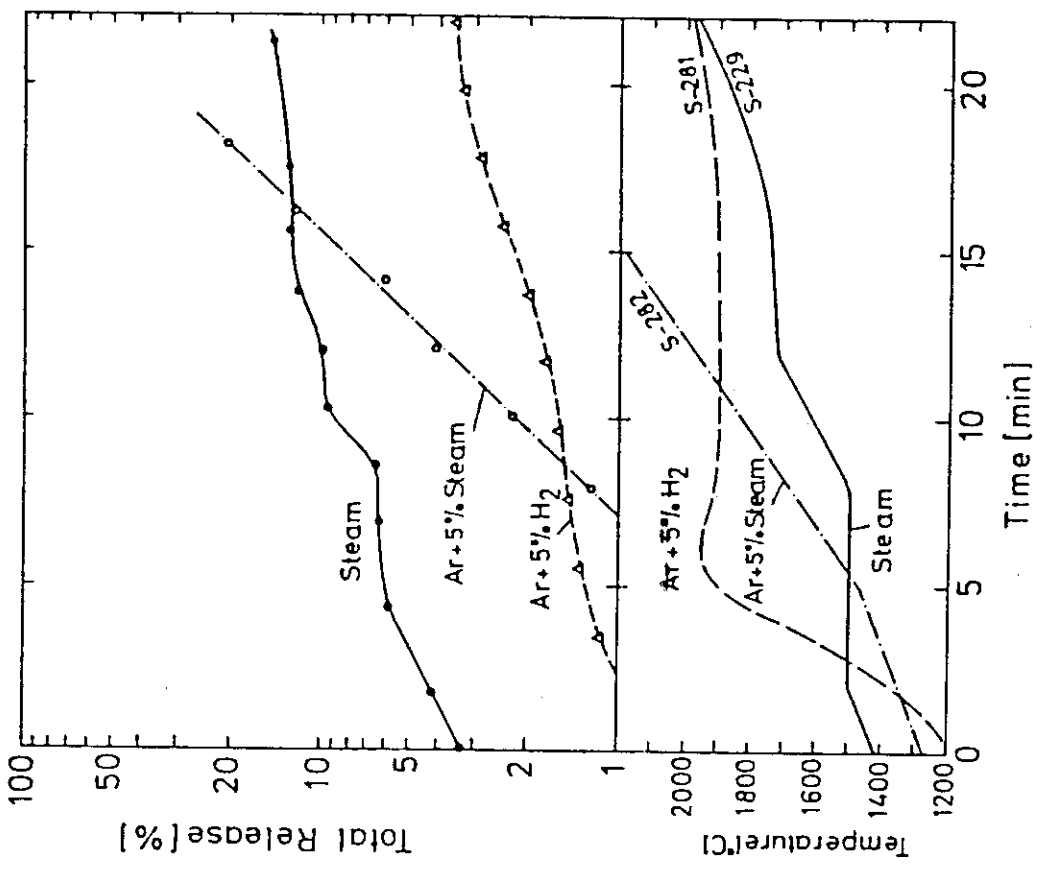


図3 テルルの放出と水蒸気供給量の関係 (2)

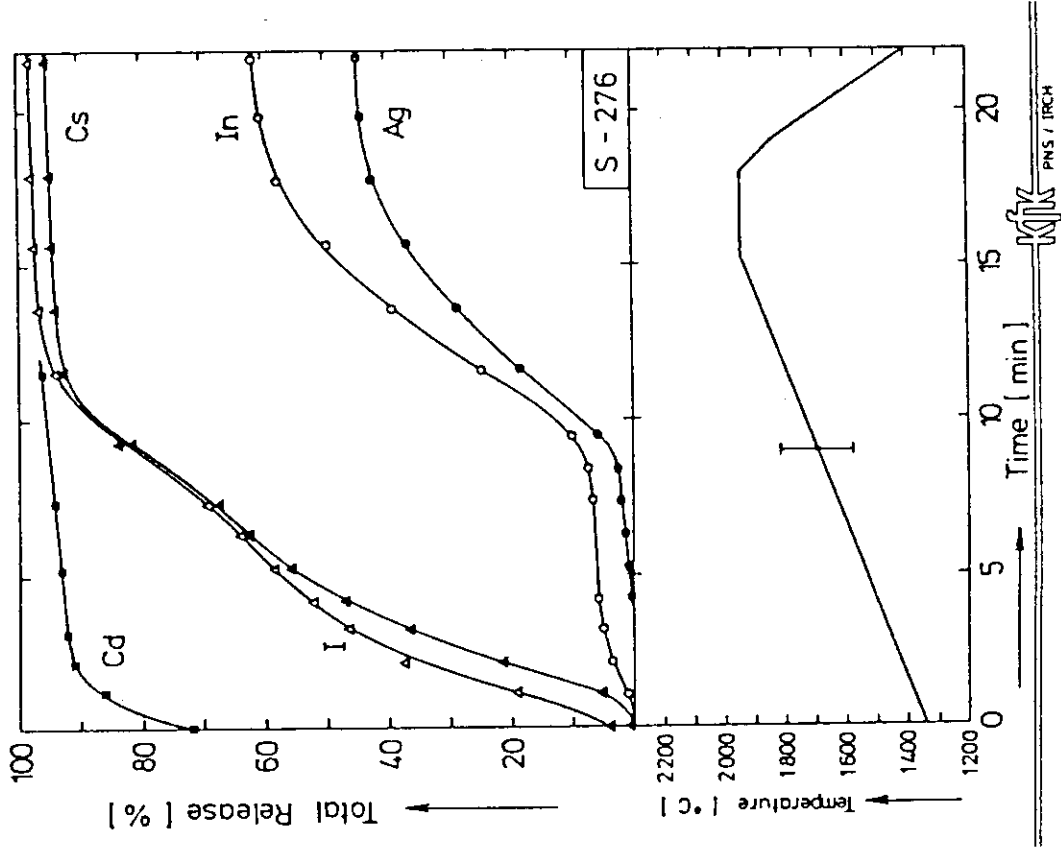


図5 制御棒物質 (Ag-In-Cd) を含むコリウムからのヨウ素, セシウム等の放出⁽²⁾

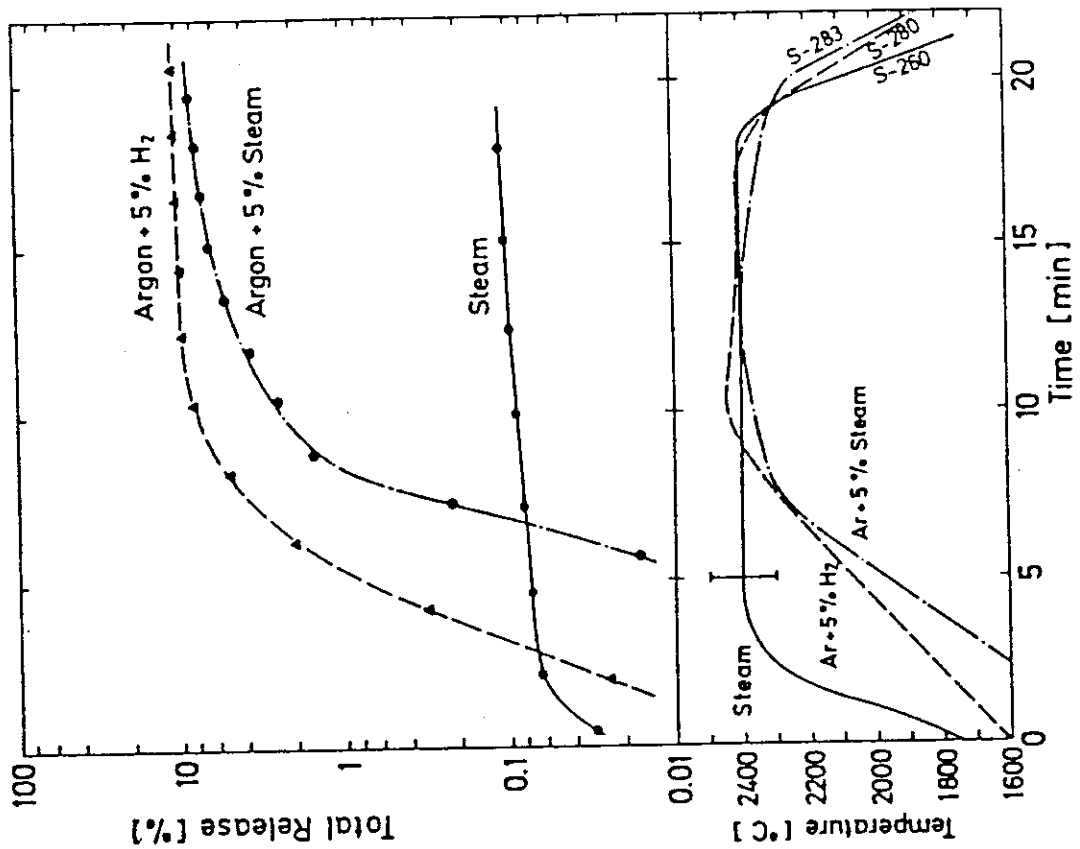


図4 バリウムの放出と水蒸気供給量の関係⁽²⁾

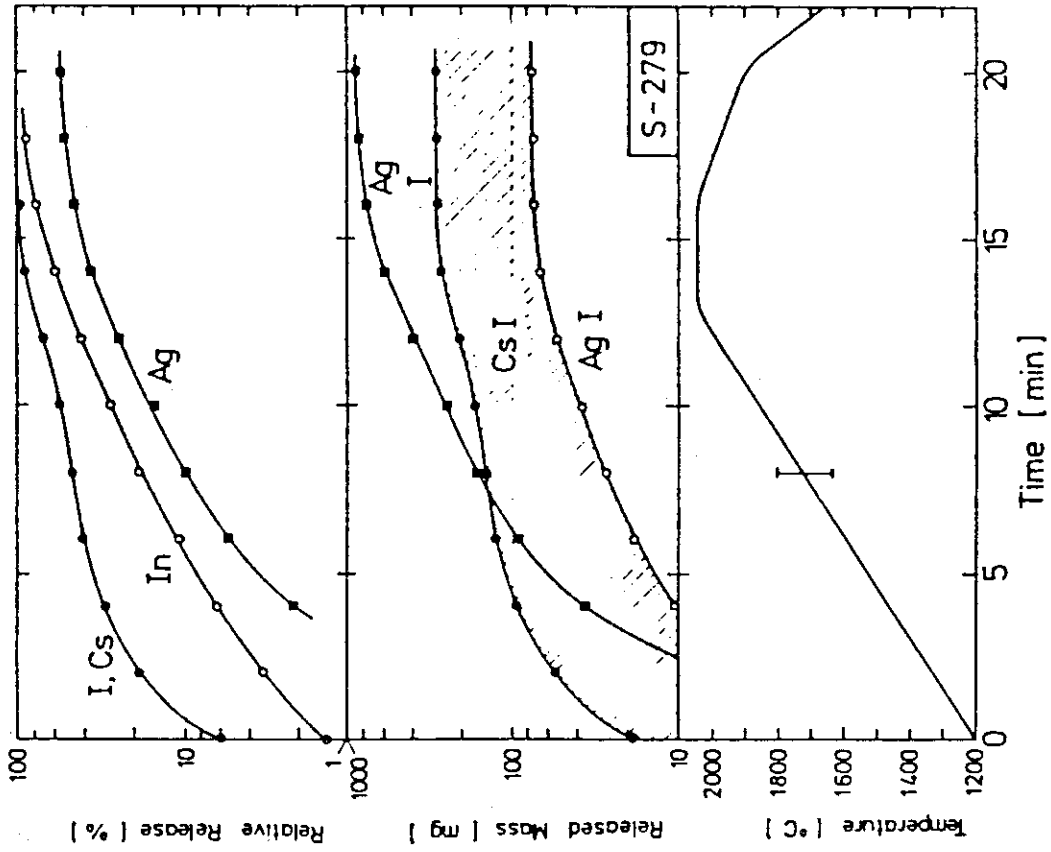


図7 ヨウ化セシウム中ヨウ素のヨウ化銀への化学変化⁽²⁾

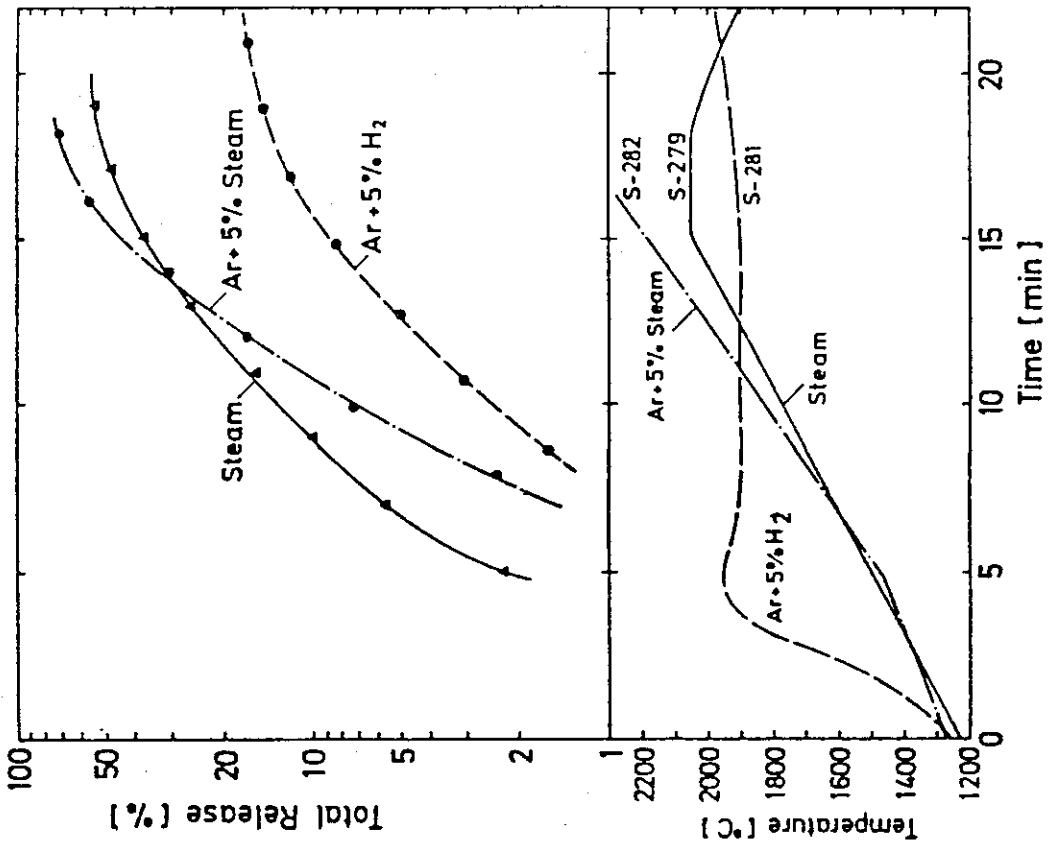


図6 銀の放出と水蒸気供給量の関係⁽²⁾

2.2 HI 実験

2.2.1 実験の概要

ORNLで行なわれたHI 実験では、誘導加熱装置を用いて、実炉で使用され燃焼の進んだ(10~40 MWd/kg) 燃料棒を蒸気雰囲気で1400℃~2000℃まで昇温し、その時の核分裂生成物(FP)の放出挙動を調べている。^{4)~11)} 燃料棒の昇温は水蒸気+ヘリウム(又はアルゴン)ガス雰囲気で行い、電気炉を用いて70~140℃/minの昇温速度で加熱している。また、燃料棒から放出された核分裂生成物はTGT(Thermal Gradient Tube)と呼ばれる温度を変えられる管やフィルターへ付着させ、その付着挙動が測定された。実験は合計6回行なわれた。実験の目的を以下に示す。

- ① 発電炉の使用済燃料からの核分裂生成物の放出率を求める。
- ② 放出された核分裂生成物の化学形、物理形状を求める。
- ③ 放出された核分裂生成物の挙動を化学形、物理形状の変化と対応させて理解する。
- ④ 核分裂生成物の放出解析モデルの開発に役立てる。

本実験の結果、ヨウ素、セシウム、希ガス等の放出挙動に対して有用な知見が得られている。

2.2.2 実験装置と実験方法

(1) 実験装置

HI 実験 で用いられた装置は図8¹⁰⁾に示す様に、蒸気および希ガス供給部、誘導加熱電気炉、TGT(Thermal Gradient Tube)、エアロゾル捕集用フィルターパッケージ、希ガス捕集用活性炭コールドトラップ、そしてγ線検出部から成っている。

誘導加熱電気炉は図9¹⁰⁾に示す構造となっている。試験燃料を入れるジルコニアの管の外側に黒鉛もしくはタングステンの発熱部(サセプター)があり、その周囲をジルコニア断熱材、石英管、誘導コイルが取り巻いている。サセプターはHeガス雰囲気中に保たれ、中央部のジルコニア管の内部のみ水蒸気雰囲気となる構造になっている。実験時の試験燃料温度は、水蒸気入口側を2色式パイロメータで、出口側を熱電対でモニターしている。

電気炉で燃料棒から放出された核分裂生成物は、まず全長約35cm、直径約4mmのTGTを通過する。TGTは入口付近で約850℃であり、下流に行くに従い徐々に温度は下がり出口付近で150℃となっている。TGTの内面はプラチナもしくはSUSのライナーで覆われており、ライナーは、実験後取り出され切断され、付着FPが定量される。

TGTの後段には、約150℃に保たれたフィルターパッケージがあり、エアロゾル等のFP粒子を捕獲する。フィルターパッケージは、ガラス繊維フィルター、HEPAフィルターおよび活性炭カートリッジから成っており、付着場所からその核分裂生成物粒子の挙動を把むことが出来る。フィルターパッケージを通過したガスは、コンデンサおよびドライヤを通り水分が除去される。キセノン、クリプトンといった希ガスは、さらに後段の活性炭コールドトラップによって捕集される。

TGT、フィルタパッケージおよび活性炭コールドトラップには実験中に捕集した核分裂生成物の量をオンラインで測定するために3つのγ線検出器が取付けられている。これら3ヶ所

の γ 線強度の時間変化は、ガス流量、電気炉温度等と共に、図10¹⁰⁾に示すデータ集録系により1分間隔で記録される。

上述の実験装置は、データ集録系と水蒸気供給系を除き全てホットセル内に設置され、試験燃料封入後は全て遠隔操作により実験が行われる。HI実験で使用されたTGT、フィルタパッケージ等実験系の仕様の概略を表3¹⁰⁾にまとめる。

(2) 実験方法

HI実験では軽水発電炉(H.B. Robinson-2, Peach Bottom-2, Oconee Unit 1, Monticell)に於いて使用され燃焼の進んだ燃料棒(10~40 MWd/kg)を20.3 cmあるいは15.2 cmに切り出し、前述の電気炉に於いて70~140 °C/minの昇温率で加熱し、20~30分間1400 °C~2000 °Cに保持した際の核分裂生成物の放出挙動を調べている。実験中試験燃料は、常に水蒸気雰囲気中に保たれている。試験燃料の仕様を表4に示す。

実験のプロセスの概略を以下に説明する。

試験燃料は実炉燃料から切り出された後、両端に端栓が圧着され、被覆管中央に1.6 mm ϕ の穴が開けられた後加熱実験に供される。加熱実験の際には、電気炉温度、TGT温度、水蒸気およびジルカロイ被覆管の酸化反応で生じる水素ガスの流量の測定が行なわれ、TGT、フィルターパッケージ及び活性炭コールドトラップに捕集されたFPの γ 線強度の結果と併せて、1分間隔でオンラインで記録される。

加熱実験終了後、実験装置は解体され細く分断されて各部分の詳細な γ 線スペクトロメトリがなされ、付着した核分裂生成物の核種の同定及び定量がなされる。しかし、¹³⁷Csや¹³⁷Csの放射能が非常に強く、他の微量なFPや低エネルギーの γ 線しか放出しない核分裂生成物の検出が困難であるため、アルカリ水溶液(NH₄OH + H₂O)及び酸(HNO₃ + HF)を用いて洗浄を行い、残留FPに対して γ 線スペクトロメトリが行なわれている。またこうした γ 線測定では検出困難な核分裂生成物に対しては、SSMS(Spark Source Mass Spectrometry)も使われている。この方法は、グラファイト電極にスミヤサンプル、もしくは溶液サンプルを付着させスパークで気化させて質量分析を行なうもので、必ずしも定量的な手法ではないが、ファクターで2程度の測定が可能であると考えられている。ヨウ素に関しては、適当な γ 線を放出する同位体が存在しないので、中性子による放射化法により、溶液に溶かし出した¹²⁹Iを¹³⁰Iに変換し、 γ 線測定により定量する方法がとられている。

こうして得られた核分裂生成物の各核種に対する放出量は、ORIGENコードにより計算された試験燃料内での核分裂生成物インベントリで比較され、放出率(fraction)、放出係数(fraction/sec)が求められている。この手法による放出率の評価の妥当性を調べる為に、セシウムについては、実験前後の燃料中の¹³⁷Csのインベントリを γ 線スペクトロメトリで測定し、計算値を使わず直接実験値だけで評価する方法も行なわれている。

実験方法についての詳しい手法は付録Aにまとめる。

2.2.3 実験結果

ここではHI実験の結果と併せて、以前に行なわれたHT実験¹²⁾の結果も紹介し、その概略を述べる。同時に放出された核分裂生成物(FP)の化学形に関する考察結果を示す。

HI および HI 実験での運転条件を表 5¹⁰⁾ にまとめ、例として HI-5 実験における、 ^{137}Cs と ^{85}Kr の放出挙動を図 11⁹⁾ に示す。縦軸の放出率は後で行った実験装置解体後の詳細な γ 線スペクトロメトリによって得られた総放出率に規格化してある。温度下降開始時に若干 ^{137}Cs および ^{85}Kr の放出率が上昇する傾向が見られるが、これは冷却開始時に試験燃料の被覆管にクラックが入ったためだと考えられている。

加熱実験終了後の試験燃料の外観を図 12⁵⁾ に示す。これは水蒸気雰囲気中で 1700°C まで昇温した例であるが、直径が約 10% 膨張していることが分る。

(1) γ 線スペクトロメトリ及び放射化法による測定

加熱実験終了後、実験装置各部について行なわれた詳細な γ 線スペクトロメトリ及び放射化法によって定量された FP の放出率 (ORIGEN2 コードによって計算された FP のインベントリに対する値) を表 6 にまとめる。この結果から求めた FP の放出速度を HT 実験の結果と併せて表 7¹⁰⁾ および図 13¹⁰⁾ に示す。図 13 中で、実線で示したのは NUREG-0772 で米国 NRC が評価したセシウム、ヨウ素、クリプトンの放出速度である。HI 実験の結果は HI-2,6 を除くと NUREG-0772 のカーブと平行な滑らかな曲線で結ぶことが出来、その値はファクターで 3~2 程小さくなっている。ここで HI-2,6 での放出速度が大きくなったのは、この 2 つの実験で昇温時試験燃料の被覆管に縦方向のほぼ全長に渡るクラックが入ったためであると考えられている。また、HT 実験の結果も NUREG-0772 の評価値に比べて逆に約 6 倍大きい値となっている。(HT-4 の結果は高温保持時間が短かったために除いてある。) HI 実験と HT 実験の結果の間のこの大きな違いは、次に示す 2 つの理由により HT 実験の燃料ペレットに、より多くのクラックが昇温・冷却の過程で生じたからであると考えられている。

① HT 実験では、昇温速度および冷却速度が HI 実験に比べて大きい。

(昇温速度：6 倍，冷却速度：9 倍)

② HT テストシリーズに用いた燃料棒は、ペレット被覆管間のギャップを 0.38 mm に広げる前処理を施してある。

こうして、HI, HT 両実験の結果、水蒸気雰囲気での、Kr, I, Cs といった代表的 F.P. の放出係数が求められ、ほぼ NUREG-0772¹⁶⁾ の評価値と一致していることが分ったが、温度以外に、温度履歴、ペレット被覆管のギャップの問題といった他の要因の効果が無視出来ないことが分る。

(2) 試験燃料棒直接測定による Cs 放出率の評価

昇温実験の前後で試験燃料棒を直接 γ 線スペクトロメトリにかけ、 ^{137}Cs の放出率を ^{154}Eu の量を基準に定量する方法 (Method II) が HI-3~6 で行なわれており、実験装置各部での付着量と ORIGEN によるインベントリ計算値に基づいた放出率の値 (Method I) と比較して、よい一致を示している。両方法による ^{137}Cs の放出率を表 8¹⁰⁾ に示す。Method I による放出率の評価法は

① 燃料内インベントリが実測値ではなく計算値である。

② 測定しているのは、捕集量であり必ずしも放出量を 100% 捕集しているとは言えない。という 2 つの問題を含んでいるが、この結果に見られるとおり、ほぼ信頼出来る評価法だと考えることが出来る。

(3) SSMSによる測定結果

TGTおよびフィルターパッケージの付着物は、サンプリングされSSMSで分析されている。この結果構造材物質を含めて多くの核種が定量されている。定量に際しては、 γ 線スペクトロメトリで得られた ^{137}Cs の量を物差しとしている。HI実験の4および5について、SSMSによる測定値を基に評価されたFP元素の放出率を表9⁽⁸⁾⁹⁾に示す。ヨウ素についてカッコ内に示してあるのが、放射化法で求めた放出率である。多少の誤差は覚悟する必要があるが、ほぼ信用できる値と思われる。SSMS法による詳しい測定結果は付録Bにまとめて示す。

(4) 化学形に関する検討

HI実験において放出された核分裂生成物のうちその量が最も多いものがセシウムとヨウ素である。特にセシウムはヨウ素の約10倍と放出量は極立って大きい。この他に注目されている核種としては、銀、アンチモン、テルルがある。これらの核種の挙動はその化学形によって大きく変わるものと考えられる。HIテストの行なわれた水蒸気雰囲気でのこれらの核分裂生成物の化学形に関する考察を以下にまとめる。

(a) セシウム

セシウムの化合物として代表的なものにCsIが考えられるが、ヨウ素はセシウムの約1/10しか放出されないためセシウムの挙動を変える上でCsIの効果はあまり重要でない。図14⁽⁶⁾にHI-2で得られたTGT上でのセシウムの分布と、CsIによる寄与を余いたものを示した。HI実験の結果TGTに付着しているセシウムの多くは、S、W、Mo等と化合していると考えられている⁽¹³⁾その根拠として以下のものが考えられる。

- ・ セシウムは燃料からCsO₂の形で放出され、水蒸気雰囲気ではその直後にCsOHに変化していると考えられるが、いずれも、揮発性が大きく蒸気圧と付着部でのTGT温度の関係からこれらの化学形をとっているとは考え難い。
- ・ SSMSにより、S（電気炉中の不純物）、Zr（被覆管）、Mo（核分裂生成物）W（HI-1, 2でのサセプター材料）等がいくつかのテストでかなりの量発見されており、CsOHはこれらの元素と結合して酸化物の形をとり易い（付録B参照）。
- ・ セシウムの炭素化合物も考えられるが、これはかなり揮発性が高く、あってもさ程量は多くないと思われる。

表10^(5)~10)にセシウムとヨウ素の付着分布を示す。この表に見られる様に、セシウムはほとんどの実験において電気炉から放出されたうちの50%以上がフィルター部に達しており、付着分布とTGT温度分布に併う蒸気圧の変化を考えると、燃料から放出されたセシウム化合物の蒸気は直接TGT等に付着するのではなく、大部分がエアロゾル化し、その後徐々に沈着していると考えられる。エアロゾルの構成物質として、HI実験ではEDX (Energy Dispersive X-ray Analysis)により、Cs, I, Si, S, Cd, Zr等が見出されている。また、HI実験以前に行ったHI実験以前に行ったHT実験や各種のコントロール実験の結果を併せて、蒸気雰囲気、He雰囲気及び空気雰囲気でのセシウムとヨウ素が燃料から放出される時の化学形を表11にまとめる。水蒸気雰囲気での主な化学形はCsOHおよびCsIとなる。

(b) ヨウ素

FP ソースタームとして最も重要視されているヨウ素の化学形として、HI 実験では、 I_2 や CH_3I といった透過性の高い化学形をしたヨウ素の存在は少く、フィルターパッケージを透過したヨウ素は、全ての実験において放出量の 0.5% 以下であった。ヨウ素の大部分は水蒸気雰囲気にあつては、CsI の化学形をしていると考えられる。また、表 10 に示すように、放出量の 60~70% は TGT 後段のフィルターに達しており、キャリアガス中のヨウ素濃度の減少に比べて、下流側での TGT への付着量の減少 (5~10 分の 1) がはるかに大きいことを考えると、CsI の多くはエアロゾル化しているものと考えられる。

CsI の付着速度に関しては、HI 実験で得られた値¹⁴⁾ は Nicolski や Baybntt らが求めた値¹⁵⁾ (820~1310 K で SUS304 もしくは Inconel-600 への付着速度が $3.6 \times 10^{-6} \sim 1.0 \times 10^{-3} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$) に比べて 1000 倍以上大きくなっている。HI テストの場合 TGT のライナーは Pt であるが SUS と Pt への付着速度は変わらないことが C-8 テストで確かめられている。HI テストにおける付着速度 V_d

$$\ln V_d = -(5.7 \pm 2.1) + (4800 \pm 1600)/T$$

T : Pt 表面温度 (k)

で表わせ、付着速度は温度が上昇すると減少している。図 15¹⁴⁾ に各実験でヨウ素の付着量がピークになっている温度での付着速度を上記の評価式と併せて示した。

(c) テルル

F.P.として問題となるテルルの同位元素のほとんどは、短半減期であり放出する γ 線エネルギーも低いことから測定が困難であるため、セシウムやヨウ素あるいは希ガス FP と比べてデータが少く見過されがちであったが、ヨウ素の先行核でもあり事故時の FP ソースタームを考える上で見逃せない核種の 1 つである。

テルルの放出挙動において最も特徴的なことは、その放出率が燃料被覆材であるジルカロイの酸化状態に大きく依存することである。ジルカロイの酸化が少ない場合テルルはジルコニウムと反応して、 $ZrTe$ 、 Zr_5Te_4 、 $ZrTe_5$ 等の化合物を作り易く被覆管に捕獲されてしまい、環境へ放出される割合は非常に小さくなる。

ORNL の Lorenz ら¹⁸⁾ は HI 実験の結果から、テルルの放出挙動は大きく 2 つのモードに分けて考えられるとしている。

- ① ジルカロイ被覆管の酸化が 90% 以下の場合、テルルは未酸化のジルコニウムと結合し燃料棒からは容易には放出されない。この場合放出率はヨウ素の放出率に比べて約 1/40 と小さい。
- ② ジルカロイの被覆管の酸化が 90% 以上に達する場合、その部分からのテルルの放出はヨウ素と同程度に大きい。

HI テストにおけるテルルの放出率とジルカロイ被覆管の酸化程度を表 12 にまとめて示す。

(d) アンチモン、銀

HI テストシリーズにおいて、HI-2, 5 実験で ^{125}Sb と $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が有意な量検出されている。 ^{125}Sb については HI-1 実験においても微量検出されている) これらの元素の放出挙動

はテルルの場合と同様にジルカロイ被覆管の酸化度に支配されている。つまり被覆管が未酸化の場合アンチモンおよび銀はそのほとんどが、被覆管と反応してしまい放出されない。したがって、ジルカロイがほぼ 100% 酸化した実験においてのみ検出されている。また、ペレットから放出される時の化学形はアンチモンについては Sb_2 、銀については単体の銀つまり Ag だと考えられている。¹³⁾

アンチモンおよび銀は、その放出挙動は非常に似かよっているが、図 16⁶⁾に見られる様にその付着挙動は大きく異っている。この図はプラチナ・ライナー付の TGT での付着分布を TGT 表面温度の関数として付着量を示したものであるが、アンチモンは TGT の下流に向かってイクスポンシャルに付着量が減少している。こうした間着挙動はアンチモンがプラチナと非可逆的に反応していると考えられ、次に示す簡単な式で評価出来る。

$$R = k \cdot D \cdot C_g$$

R : TGT への付着速度

k : 比例定数

D : ガス中でのアンチモンの拡散係数 (温度の関数)

C_g : アンチモンのガス中濃度

この関係より評価した HI-2 での付着分布を図 17¹⁴⁾に示す。この方法による評価を Norwood は文献(14)において HBU-11, HI-1 等について行っており、実験値とほぼ合っている。

一方、銀は TGT 全体に渡り平坦な分布を示しておりこちらは、エアロゾルに吸着され、それが TGT 表面にゆっくりと付着したものだと思われ、多くがフィルターに達している。ORNL における分析の結果では、SASCHA で言われている AgI の化学形は見出されていない。

表3 HI実験における実験条件の要約 (10)

Component/condition	Test HI-1	Test HI-2	Test HI-3	Test HI-4	Test HI-5	Test HI-6
Furnace thermocouple	Pt-10% Rh vs Pt (bare)	Pt-10% Rh vs Pt (bare)	W-5% Re vs W-26% Re (ZrO ₂ thermowell)	W-5% Re vs W-26% Re (ZrO ₂ thermowell)	Pt-10% Rh vs Pt (bare)	W-5% Re vs W-26% Re (ZrO ₂ thermowell)
Susceptor	Tungsten	Tungsten	Graphite	Graphite	Tungsten	Graphite
Pretreatment of fibrous ZrO ₃ insulator	None	Zirconyl nitrate (1 coat)	Zirconyl nitrate (1 coat)	Zirconyl nitrate (2 coats)	Zirconyl nitrate (1 coat)	Zirconyl nitrate (1 coat)
Thermal gradient tube liner	Platinum	Platinum/gold	Platinum	Platinum	Platinum	Stainless steel
Thermal gradient tube length (cm)	30.5	35.6	35.6	35.6	35.6	37.0
diameter (cm)	0.38	0.38	0.38	0.38	0.38	0.425
Connector, thermal gradient tube to filter pack	3.2 mm ID x 76 mm long Teflon	3.2 mm ID x 76 mm long Teflon	4.6 mm ID x 190 mm long stainless steel	4.6 mm ID x 190 mm long stainless steel	4.6 mm ID x 190 mm long stainless steel	4.6 mm ID x 190 mm long stainless steel
Entrance cone to filter pack	Teflon	Teflon	Stainless steel	Stainless steel	Stainless steel	Stainless steel
Glasswool prefilter	30 mm diam. Teflon screen	30 mm diam. Teflon screen	51 mm diam. stainless steel screen	51 mm diam. stainless steel screen	51 mm diam. stainless steel screen	51 mm diam. stainless steel screen
Dryer and cold charcoal temperature (°C)	-78	-78	-195	-195	-78	-78
Inert gas	Argone	Argone	Helium	Helium + 0.05% H ₂	Helium	Helium

表4 HI実験に使用した試験燃料のまとめ

	HI-1	HI-2	HI-3	HI-4	HI-5	HI-6
Fuel rod identification	H. B. Robinson 2 (PWR)			Peach Bottom-2 (BWR)	Oconee Unit 1 (PWR)	Monticello (BWR)
Irradiation data						
Period	1971.10~1974.5			1974.1~1976.5	1975.2~1979.11	1974.5~1980.2
Burn-up	28,000Mwd/t	28,000Mwd/t	25,200Mwd/t	10,100Mwd/t	~40,000Mwd/t	40,300Mwd/t
Specimen data						
Length		20.3 cm		20.3 cm	15.2 cm	15.2 cm
Cladding O.D.		1.072 cm		1.43 cm	-----	1.243 cm
Weight of fuel	137.3 g	135.3 g	136.2 g	254.6 g	107.47 g	126.0 g
Total weight	168 g	166 g	167 g	306 g	133.02 g	170.2 g
Gas released during irradiation		0.35% Kr 0.25% Xe		10.2% Kr 9.86% Xe	4.1%	2%

表5 HTおよびHI実験における実験条件のまとめ⁽¹⁰⁾

Test No.	Temperature (°C)	Heatup rate (°C/s)	Cooldown rate (°C/s)	Time at temperature (min)	Heatup/cooldown allowance ^a (min)	Steam flow (L/min STP)	Inert gas flow (L/min STP)
HT-1	1325	9.9	12.2	10	0.25	0.72	0.87 (He)
HT-2	1445	11.1	11.1	7	0.25	0.94	0.87 (He)
HT-3	1610	6.7	17.0	3	0.38	1.02	0.87 (He)
HT-4	1400	18.5	11.0	0.33	0.20	0.93	0.79 (He)
HI-1	1400	0.97	0.60	30	3.8	1.00	0.50 (Ar)
HI-2	1700	1.04	1.17	20	2.5	0.99	0.33 (Ar)
HI-3	2000	2.78	1.67	20	1.3	0.30	0.30 (He)
HI-4	1850	1.93	1.58	20	1.6	0.32	0.30 (He)
HI-5	1700	1.00	1.33	20	2.5	0.39	0.40 (He)
HI-6	2000	1.77	2.00	1	1.5	~1.00	0.42 (He)

^a Equivalent to additional time within 85°C of test temperature.

表6 HTおよびHI実験におけるFP放出量のまとめ

Test No.	Fuel Type	Burnup (MWd/kg U)	Temperature (°C)	Time ^a (min)	Amount release (% or original fuel rod inventory)						
					In reactor ^b	In test	¹³⁷ Cs	¹²⁹ I	^{110m} Ag	¹²⁵ Sb	
⁸⁵ Kr											
HT-1	PWR	28	1325	10.3	0.3	2.1 ^c	0.22 ²	0.33 ^c			
HT-2	PWR	28	1445	7.3	0.3	9.6 ^c	9.6 ^c	4.7 ^c			
HT-3	PWR	28	1610	3.4	0.3	16.5 ^c	21.9 ^c	25.2 ^c			
HT-4	PWR	28	1400	0.5	0.3	5.6 ^c	6.1 ^c	3.5 ^c			
HI-1	PWR	28	1400	33.8	0.3	2.83	1.75	2.04	---	<0.1	
HI-2	PWR	28	1700	22.5	0.3	51.5	50.5	53.0	2.59	1.55	
HI-3	PWR	25	2000	21.3	0.3	59.0	58.8	35.4	0.015	10 ⁻³	
HI-4	BWR	10	1850	21.6	10.2	21.1	31.7	24.7	---	---	
HI-5	PWR	39	1700	21.5	3.5	16.5	20.3	22.4	18.8	0.33	
HI-6	BWR	40	2000	2.5	2.0	29.6	33.1	24.7	6.0	0.06	

a: Time includes heatup/cooldown allowance.

b: Measured by rod puncture corrected for individual test segment burnup.

c: Estimated release from fully heated portion of test segment.

表7 HTおよびHI実験結果より求めた ^{85}Kr , ^{137}Cs , ^{129}I の放出速度⁽¹⁰⁾

Test No.	Temperature (°C)	Release rate coefficients (fraction/min)		
		$^{85}\text{Kr}^a$	^{137}Cs	^{129}I
HT-1	1325	2.06×10^{-3}	2.13×10^{-4}	3.21×10^{-4}
HT-2	1445	1.38×10^{-2}	1.38×10^{-2}	6.59×10^{-3}
HT-3	1610	5.30×10^{-2}	7.27×10^{-2}	7.51×10^{-2}
HT-4	1400	1.15×10^{-1}	1.26×10^{-1}	7.13×10^{-2}
HI-1	1400	8.49×10^{-4}	5.22×10^{-4}	6.10×10^{-4}
HI-2	1700	3.22×10^{-2}	3.13×10^{-2}	3.36×10^{-2}
HI-3	2000	4.19×10^{-2}	4.16×10^{-2}	2.05×10^{-2}
HI-4	1850	1.24×10^{-2}	1.77×10^{-2}	1.31×10^{-2}
HI-5	1700	8.72×10^{-3}	8.61×10^{-2}	9.57×10^{-2}
HI-6	2000	1.30×10^{-1}	1.62×10^{-1}	1.13×10^{-2}

a: Calculated based on the amount of ^{85}Kr in the fuel at the start of the heatup.

表8 2つの ^{137}Cs 放出量評価法による結果の比較⁽¹⁰⁾

Test No.	Percentage cesium releases	
	Method I ^a	Method II ^b
HI-1	1.75	c
HI-2	50.5	c
HI-3	58.8	60.2
HI-4	31.7	35.8
HI-5	20.3	24.5
HI-6	33.1	38.9

a: Based on gamma counting of apparatus components and ORIGEN determined segment inventory.

b: Determined by counting fuel rod segment before and after test.

c: Fuel rod segment was not counted.

表9 SSMS法によるHI-4, 5実験におけるFPの放出量のまとめ⁽⁸⁾⁽⁹⁾

Fission product	Fraction of test segment inventory found (%) ^a	
	HI-4	HI-5
Cs	17 ^b	12.3
Rb	20	13.0
I	35 (24.7) ^c	11.5 (14.8) ^c
Ag	19	0.2 ^d
Cd	80	100
Te	<0.37	<0.02
Ba	<0.015	<0.003
Sr	<0.005	----
Br	----	11.0

- a: Includes only deposits in the TGT and on the glasswool prefilter.
- b: Cesium value was determined by gamma spectrometry and used as a standard to determine the others.
- c: Value determined by neutron activation.
- d: Gamma counting showed that most of the released Ag deposited on (reacted with) ZrO₂ components at the outlet end of the furnace. None of the furnace components were included in the SSMS analyses.

表 10 HI実験後のヨウ素とセシウムの分布^{(5)~(10)}

Test No.	Nuclide	Fraction of Fuel Inventory Found (%)				
		Furnace	TGT	Filters	Charcoal	TOTAL
HI-1	¹³⁷ Cs	0.79	0.58	0.38	1×10 ⁻⁸	1.75
	¹²⁹ I	0.016	0.83	1.18	0.01	2.04
HI-2	¹³⁷ Cs	8.82	15.5	26.2	10 ⁻⁶	50.5
	¹²⁹ I	~0.14	16.8	35.9	0.187	50.3
HI-3	¹³⁷ Cs	14.6	15.7	28.5	10 ⁻⁷	58.8
	¹²⁹ I	0.6	12.4	22.4	10 ⁻³	35.4
HI-4	¹³⁷ Cs	14.13	8.49	9.10	10 ⁻⁴	31.72
	¹²⁹ I	0.89	8.56	15.20	10 ⁻³	24.65
HI-5	¹³⁷ Cs	7.68	4.71	7.81 (0.05*)	0	20.25
	¹²⁹ I	0.135	7.36	14.74 (0.1*)	0.017	22.35
HI-6	¹³⁷ Cs	7.88	16.82	8.4	0	33.10
	¹²⁹ I	0.17	8.15	16.38	0	24.70

表 11 ヨウ素とセシウム の雰 囲 気 による 主要 な 化学 形 の 変化

Atmosphere	Cesium	Iodine
Steam and He	CsOH*	CsI
He	Cs ₂ O	CsI
Dry air	Cs ₂ O	I ₂

表 12 HI 実験 における テルル 放出⁽¹⁸⁾

Test number	Temperature (°C)	Time (min)	I, Cs, Kr release (%)	Te release ^b (%)	Zircaloy oxidized (%)
HI-1	1400	30	1.8 - 2.8	0.3	40 ^c
HI-2	1700	20	50	50 - 100	100 ^c
HI-3	2000	20	55	0.6	~35 ^d

a: H. B. Robinson PWR fuel, 28,000 MWd/MT.

b: Accuracy is within a factor of 2.

c: Based on posttest metallographic examination.

d: Based on amount of hydrogen formed. Steam supply limited maximum cladding oxidation to ~60%.

ORNL DWG 82-279R2

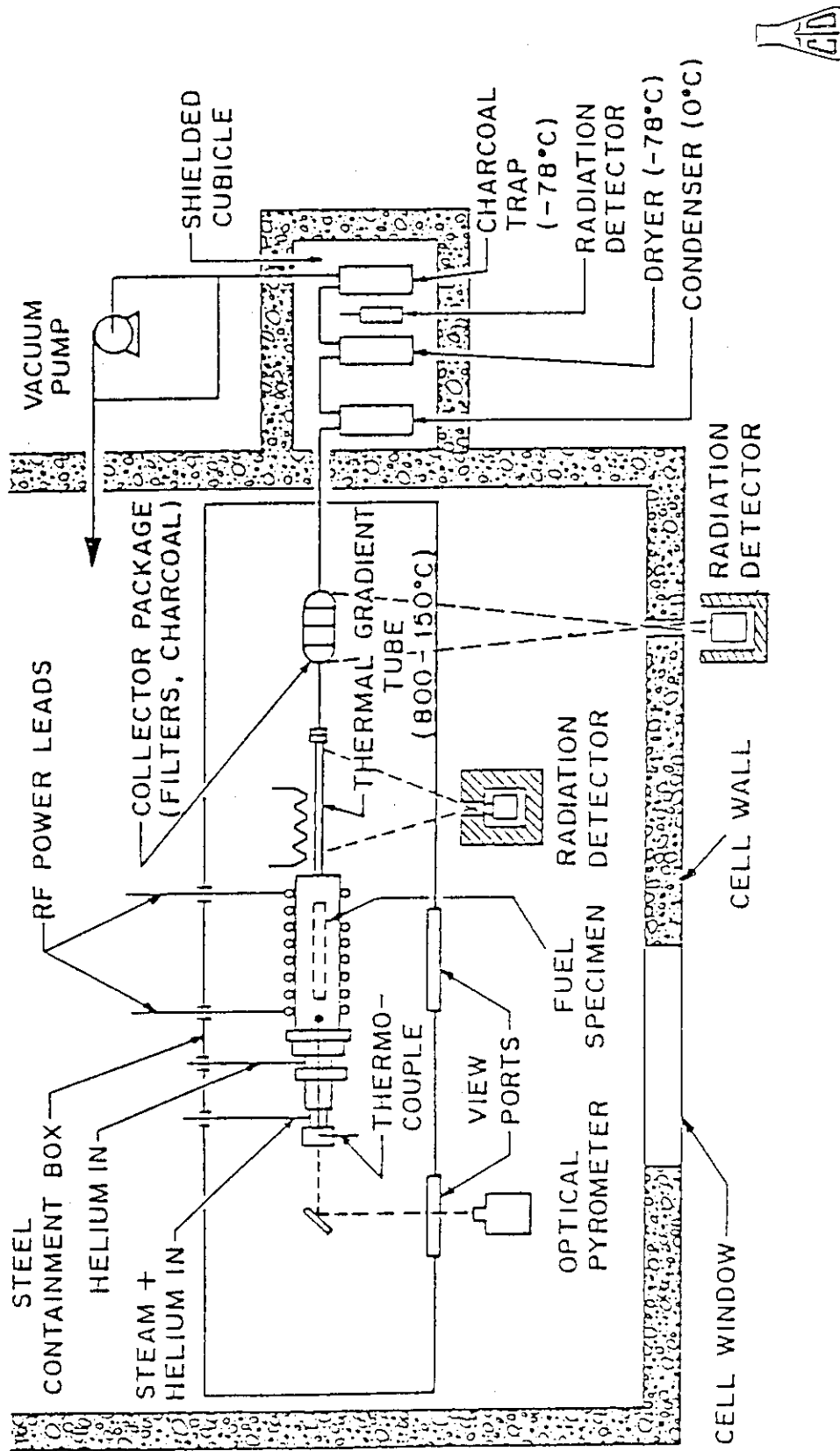


図8 HI実験の概念図 (10)

ORNL-DWG 81-1540iR3

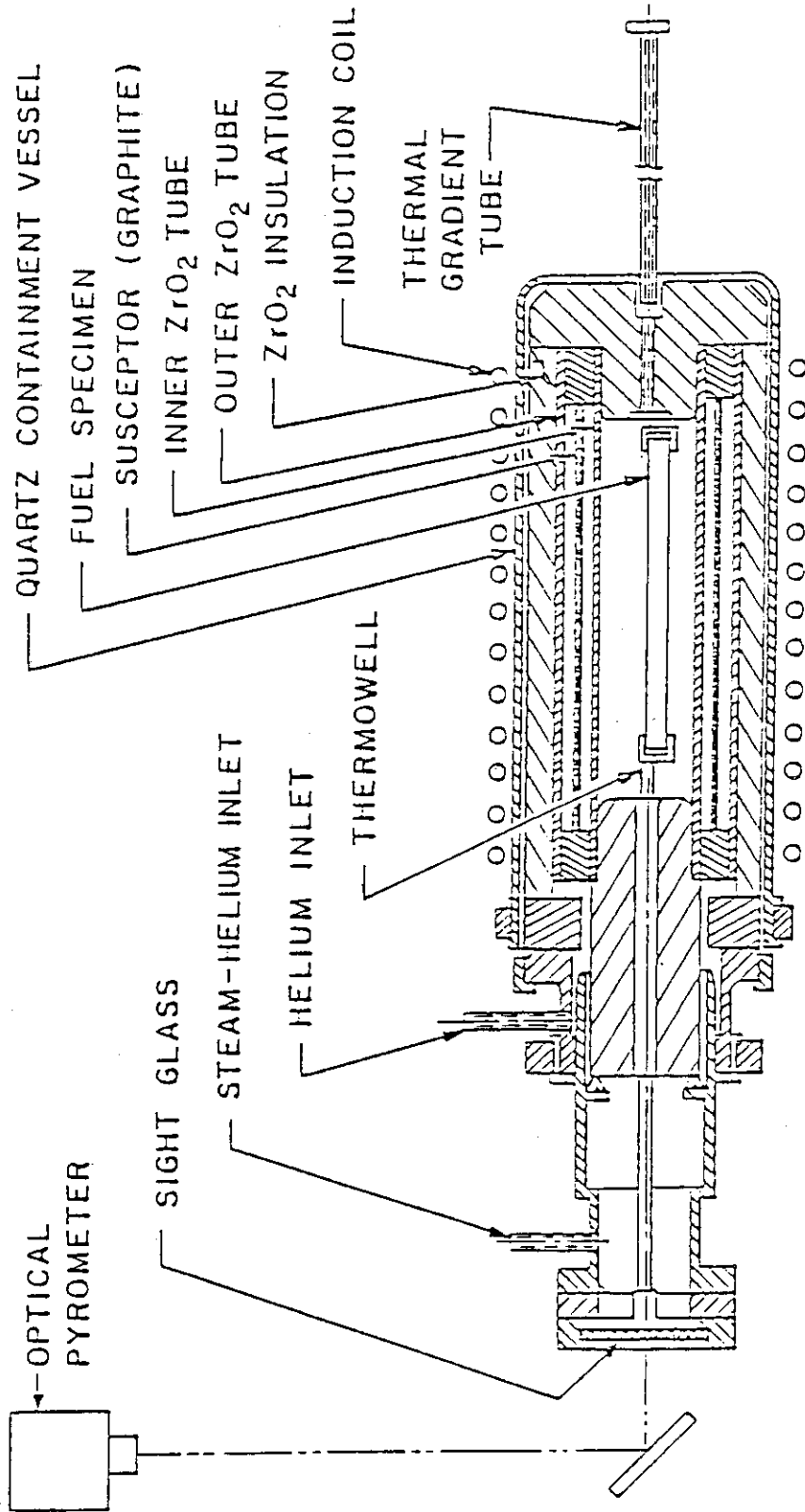


図9 圧実験に使用された誘導加熱電気炉(10)

ORNL DWG 82 - 1041R

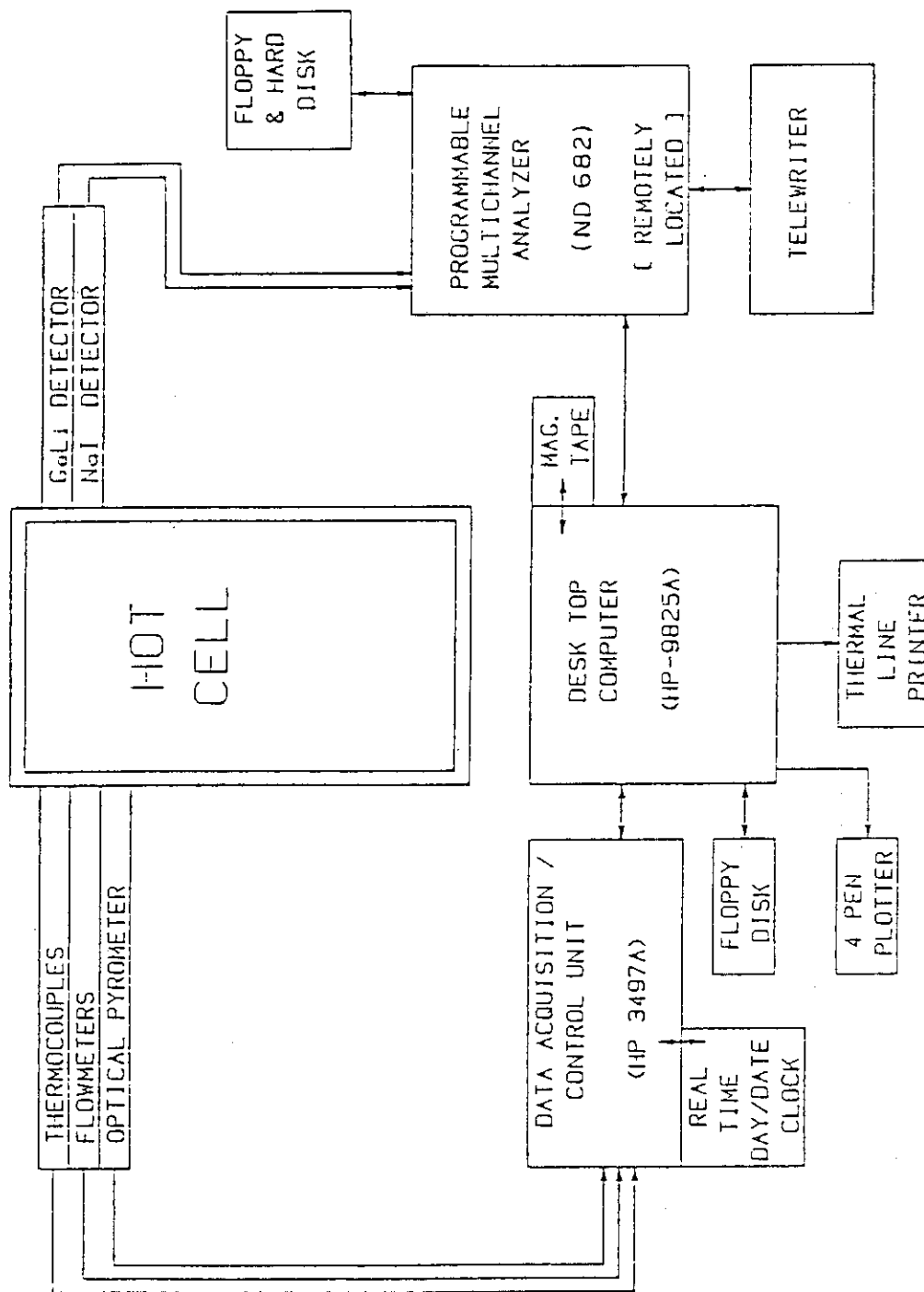


図 10 HI 実験データ収録系の構成 (10)

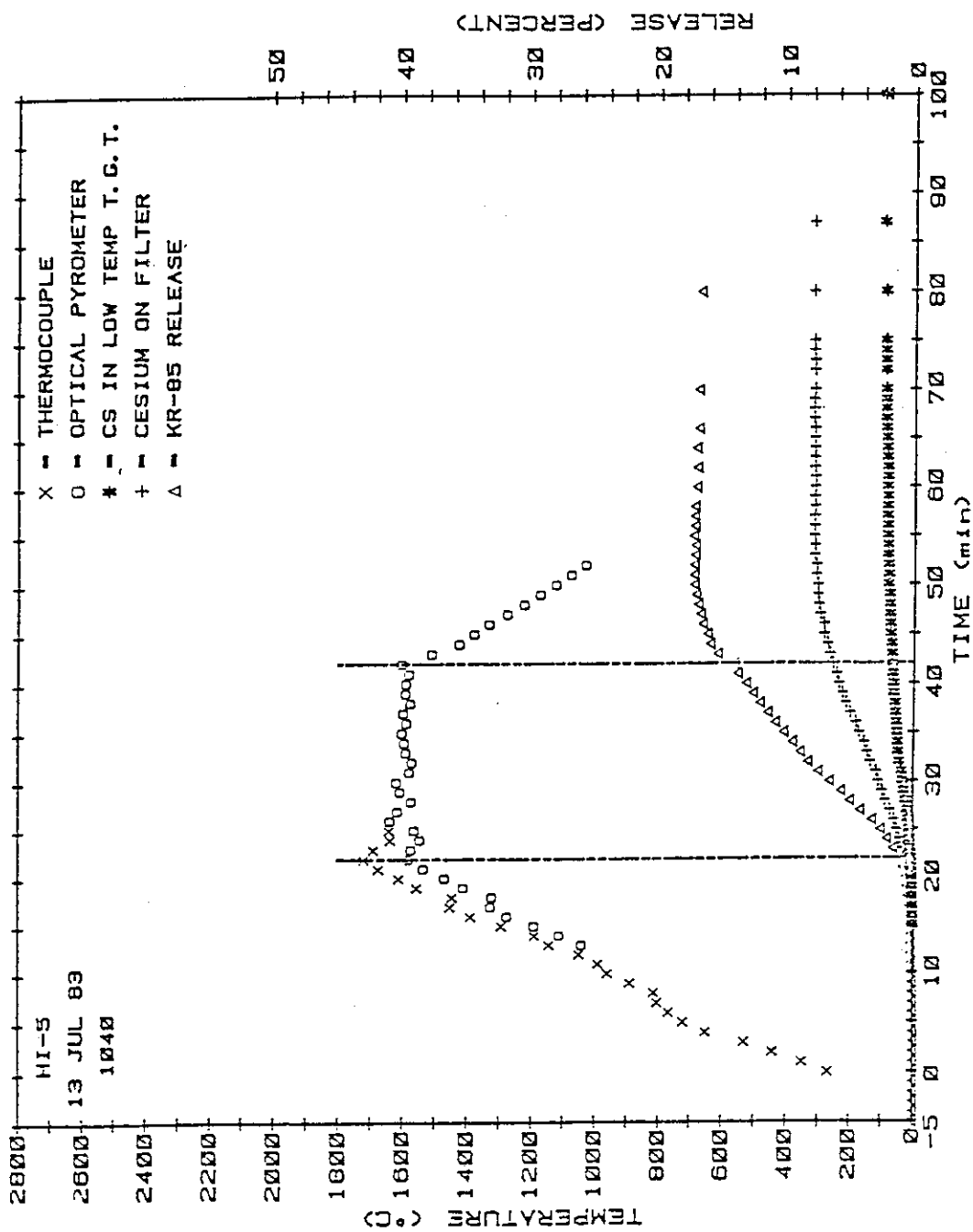


図 11 HI-5 実験における ^{85}Kr と ^{137}Cs の放出挙動⁽⁹⁾

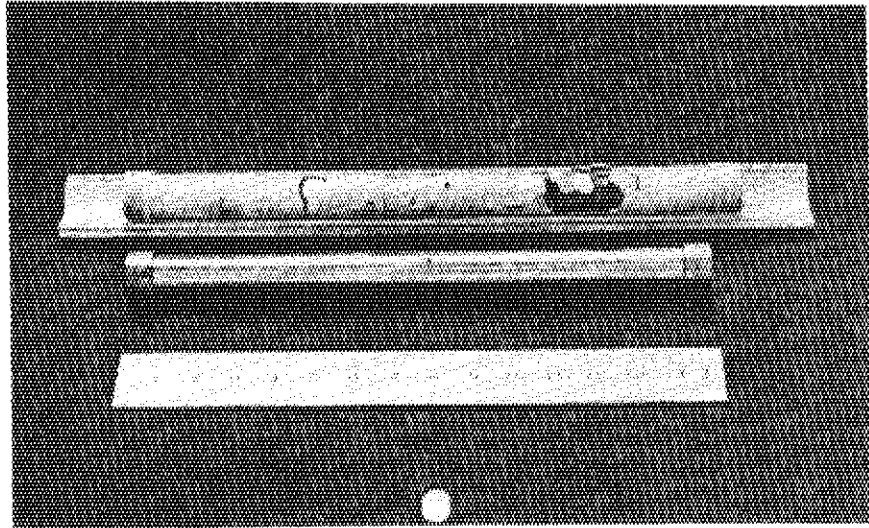


図12 加熱実験前後の試験燃料の外観の比較⁽⁵⁾

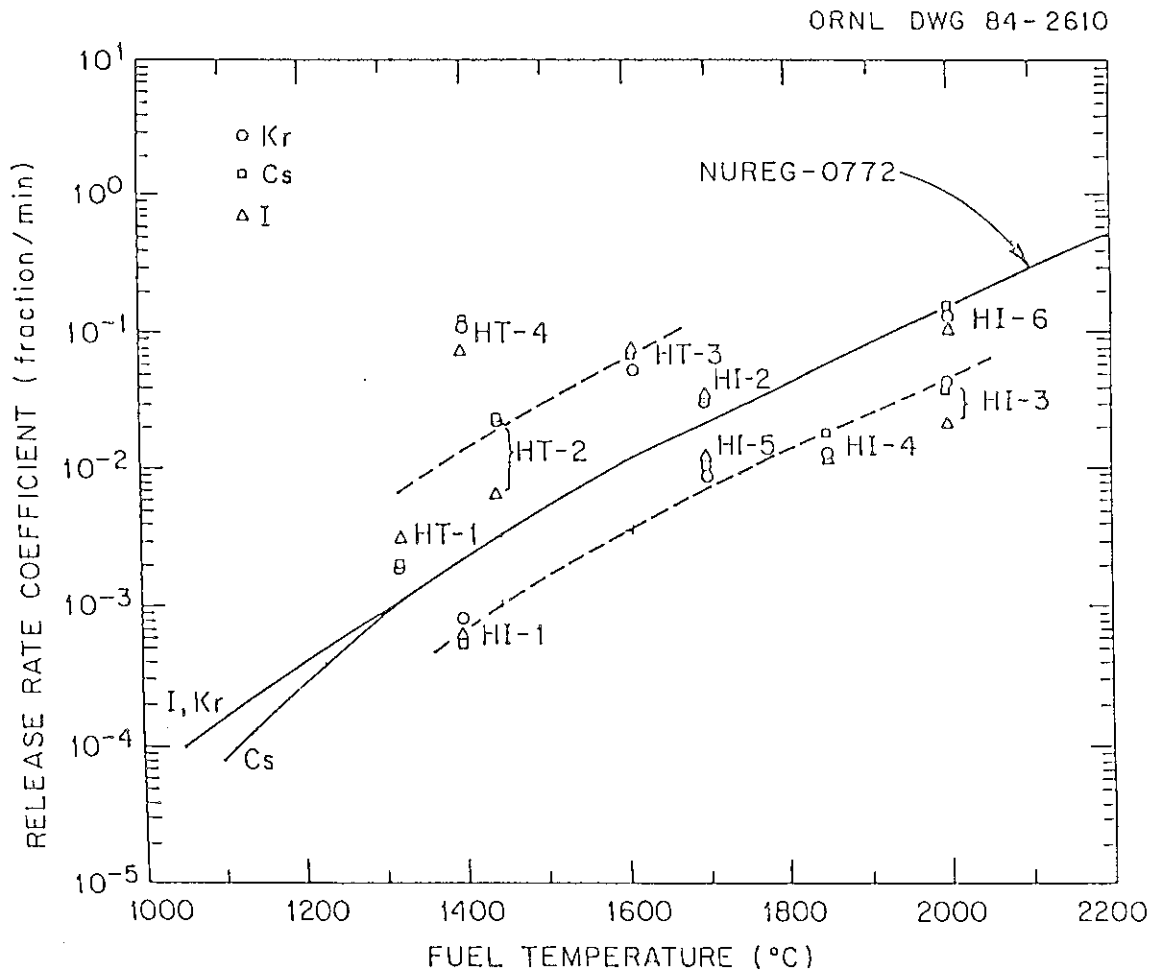


図13 燃料温度と Kr, Cs, I 放出挙動の関係
 HT・HI 実験結果と NUREG-0772 の比較⁽¹⁰⁾

ORNL DWG 84-48

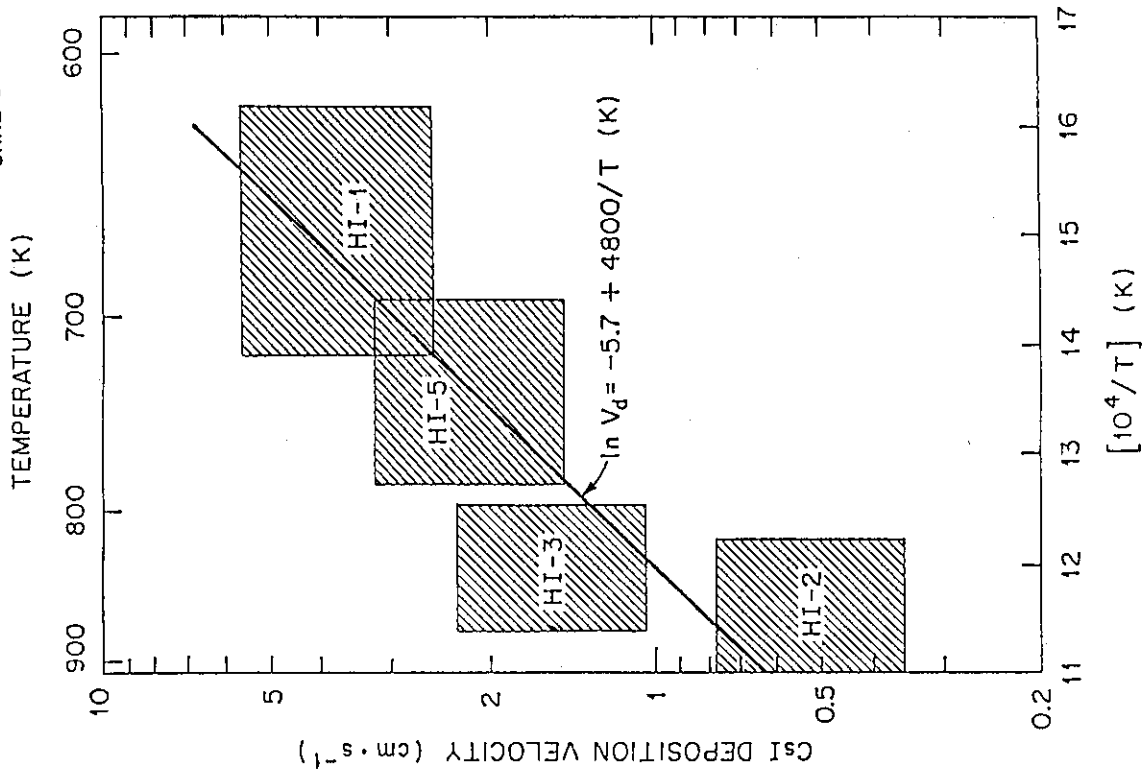


図 15 ヨウ化セシウムの沈着速度と温度の関係⁽¹⁴⁾

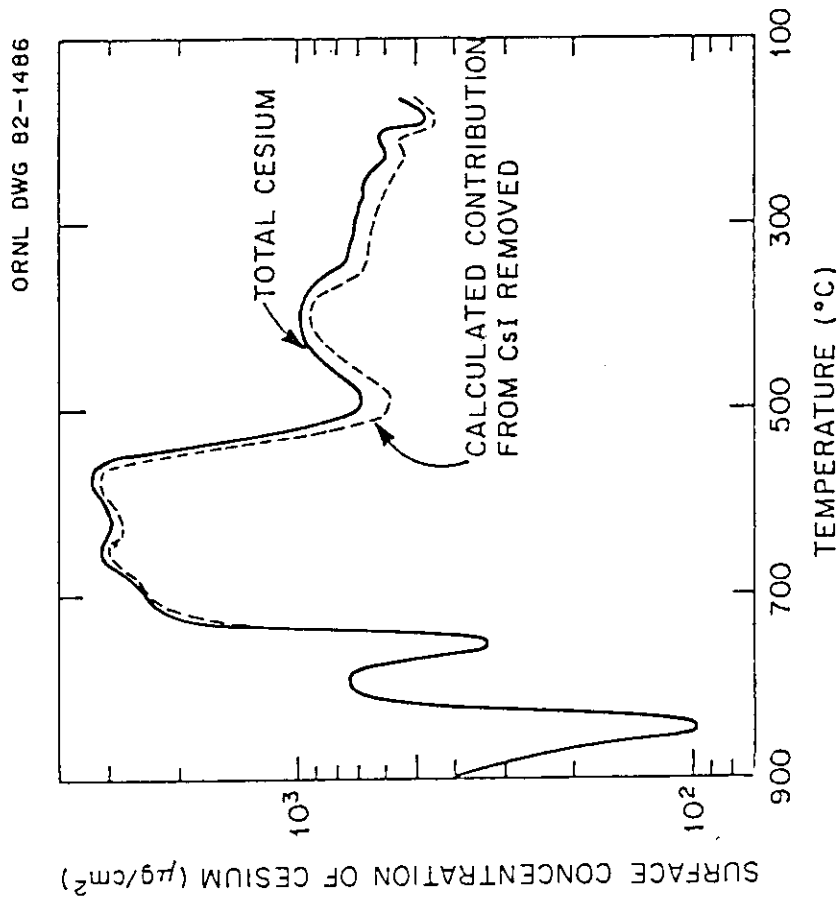


図 14 HI-2 実験において TGT に付着したセシウムの分布と TGT 温度の関係⁽⁶⁾

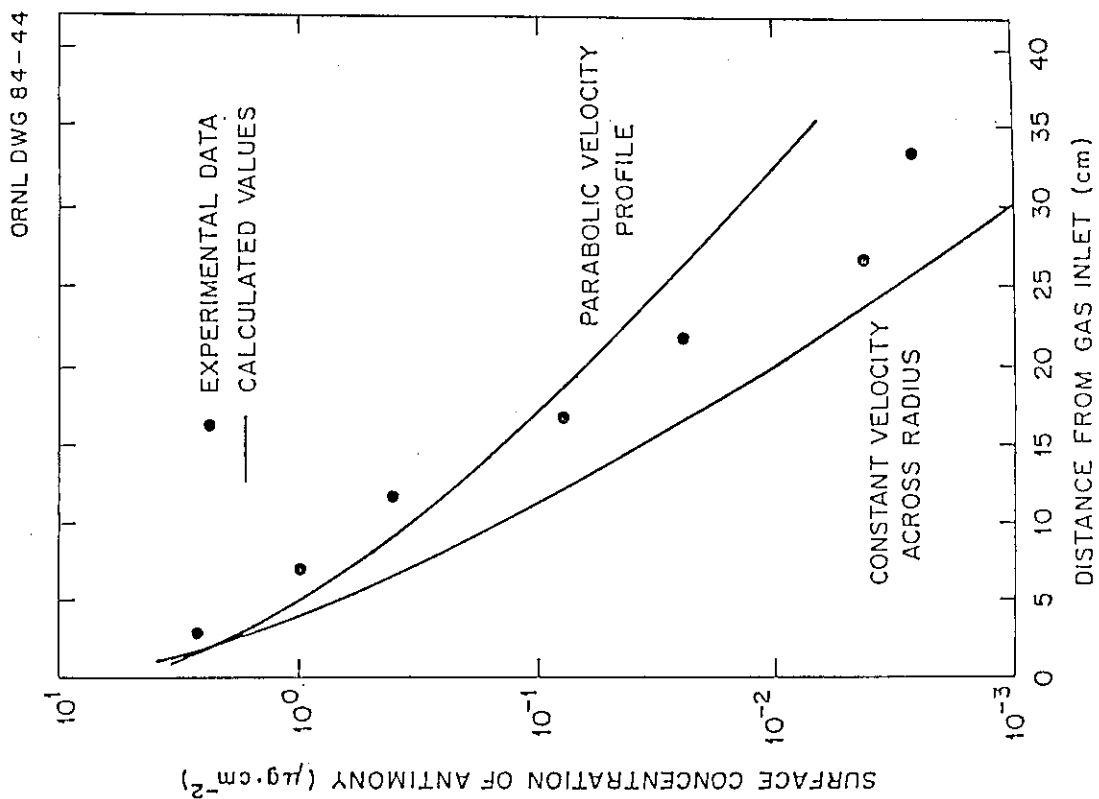


図 17 HI-2 実験におけるアンチモンの付着量のモデルとの比較⁽¹⁴⁾

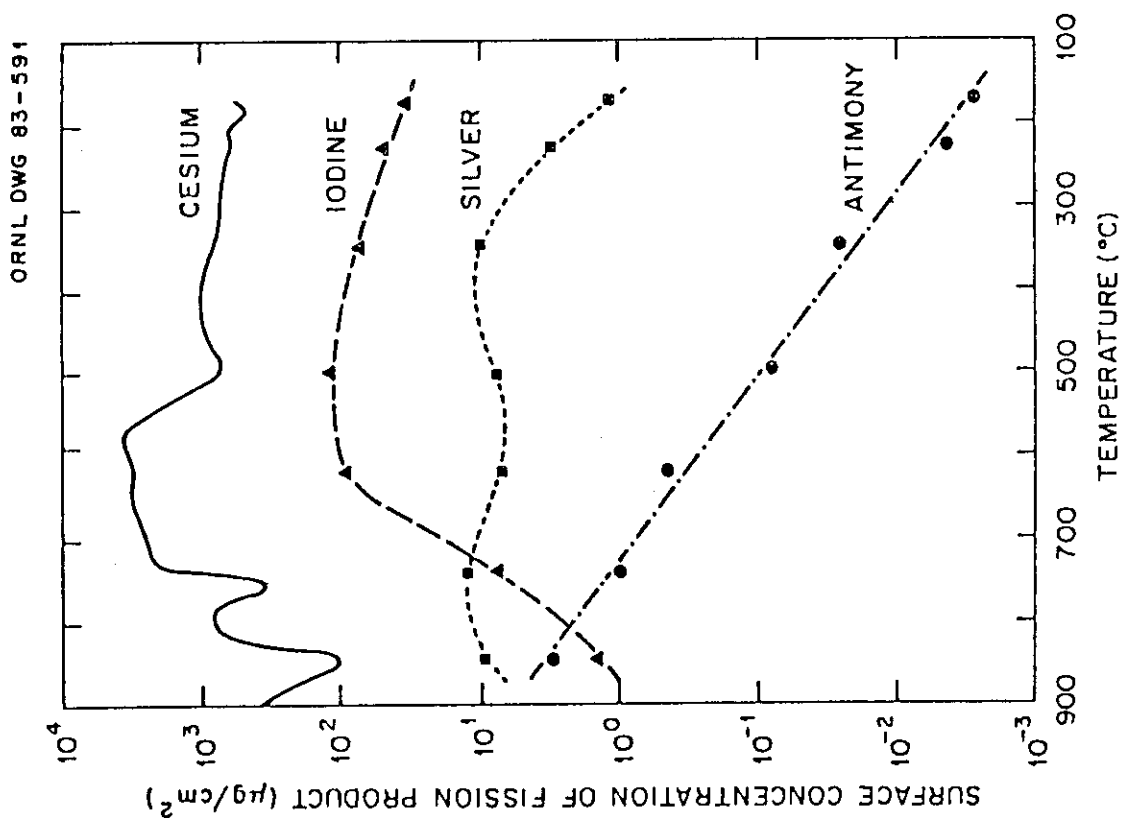


図 16 HI-2 実験における Cs, I, Ag, Sb の TGT 付着量⁽⁶⁾

2.3 VI 実験

2.3.1 実験の概要

6 回行われた HI 実験に続き、ORNL では現在 VI 実験が行われている。HI 実験と VI 実験の間には、実験目的上および測定技術上の本質的な違いはない。しかし、VI 実験では、事故条件下の炉心をより忠実に模擬するために縦置き試験燃料を加熱する実気炉が採用され、また、より高温条件での実験を行うため電気炉を構成するセラミック材に一部 ThO_2 を使う等の改良がなされている。さらに、放出された核分裂生成物の放出履歴をより正確に求めるために、捕集系を 3 系統に分け、時間を追って逐次切り換えて使う方式が採られている。VI 実験装置の概略を図 18¹⁷⁾ に示す。実験方法等の細かい点については HI 実験と同様なのでここでは省略し、次項に結果の概略を示す。

2.3.2 実験結果

現在(1989年2月)までに合計4回のVI実験が行われている。そのうち3回までの結果が公開されている。¹⁷⁾表 13¹⁷⁾に公開されている VI-1, 2, 3 実験の実験条件を示す。同表に示されるとおり、最高温度 2025~2425 °C、高温保持時間 20~60 分と HI 実験と比べ、より高温・長時間での実験が行われている。

これまで公開された放出データは、Kr, Cs, Ag, Sb に限られているが、高温・長時間実験により HI 実験に比べ非常に大きい放出が測定されている。試験燃料を最高温度 2425 °C に 20 分間保持した VI-3 実験では、ほとんど 100% の Kr, Cs の放出が見出されている。また、3 実験は全て水蒸気雰囲気中で実施され、被覆管は実験中の比較的早い時期に全て酸化し、HI 実験に比べて非常に大きい銀 (Ag) およびアンチモン (Sb) の放出が測定されている。この結果は HI 実験において被覆管が 100% 酸化した実験のみ両元素の放出が見出された結果とよい一致を示しており、両元素が未酸化の被覆管と反応し吸着されるとする Lorenz らの考えを裏付けている。また、VI 実験で見だされた Ag と Sb の放出率は Kr や Cs の放出率にかなり近い値を示しており、Ag と Sb の燃料ペレットからの放出速度自体は、Kr や Cs といった揮発性 FP の放出速度と大差ないであろう事を示している。

この様に、VI 実験の結果はヨウ素等一部重要な元素の放出量評価結果を欠くものの、これまでに公開された結果は、HI 実験で得られた結果と矛盾せず、より広範囲の条件下での核分裂生成物の放出データを提供している。しかし、高温長時間条件での揮発性 FP の放出履歴が明らかになるにつれ、シビアアクシデント事のリースターム評価によく使われている CORSOR モデル (図 13 に示す NUREG-0772¹⁶⁾ と同じ温度と放出速度の関係を、他の FP も含めてコンピュータ計算モデルとしたもの) では、揮発性 FP の放出挙動を十分表現出来ない事が判明して来た。つまり、CORSOR モデルではある温度において一定不変であるが、実験結果は放出が進むにつれ放出速度が減少する傾向を示しているのである。ここで放出速度は

$$\frac{\text{単位時間当りの放出量}}{\text{残存量}} \quad \{ \text{fraction/min} \}$$

として定義され、その時点での残存量に対する放出の割合を表わす。この現象および現象を表現するために導入したモデルについては次項で詳しく議論する。また、この議論の適用範囲を Kr および Cs 等揮発性 FP の一部に絞っている理由は、ORNL 実験で詳しい放出履歴が測定されている元素が、放射能の強い ^{85}Kr 及び ^{137}Cs (^{134}Cs) に限られているためである。

3. 揮発性核分裂生成物の放出速度の評価

ORNLにおける, Severe Accident 条件での燃料からの核分裂生成物 (FP) 放出実験は, 系統的に数多く行われた世界でも数少ない有用なデータである。この実験は, 比較的単純な体系で行われ燃料温度も均一に保たれた点で, 結果の評価も比較的容易である。ソースターム・コードパッケージ (STCP) の中で燃料棒からの FP の放出を計算する CORSOR モデルは, ORNL で行われた初期の FP 放出実験の結果を中心に作られた実験式で成り立っている。当時の実験では, 技術的な問題から燃料は数分間以下しか高温に保持されず, 短時間での放出データしか得られていなかった。しかし, 近年 HI 及び VI 実験において, より長時間 (20 ~ 40 分), より高温 (~ 2425 °C) の実験が行われた結果, たとえ燃料温度が一定であっても, セシウムやクリプトンといった揮発性の FP の放出は, 放出が進むにつれ小さくなる事が判明した。CORSOR モデルでは, ある温度での FP の放出速度 (放出量を時間およびその時点での燃料中の FP の存在量で割ったもの) は一定であると仮定しており, 揮発性 FP の放出を, 実験の結果と比べて, 特に実験後期において過大評価する事が明らかになって来ている。例として VI-2 実験で得られた Cs の放出速度の時間変化を温度変化と併せて図 19¹⁹⁾ に示した。同図より, 燃料温度が 2300 K で一定に保たれている間にも Cs の放出速度が時間と共に大きく減少している事が分る。NUREG-0772 モデルあるいは CORSOR モデルは, 2300 K において約 0.2 [fraction/min] 一定の放出速度を予測し, 実験結果を再現出来ない。

3.1 拡散モデル

前述の放出速度の時間変化を表現するために, Booth¹⁹⁾によって導入された拡散モデルを応用してみた。フィックの方則によると拡散で支配される領域での原子数密度は,

$$\frac{\partial C}{\partial t} = DV^2C \quad (1)$$

の関係を満足する。領域を球状の結晶粒とし, 粒界での原子数密度を 0, さらに球状の結晶粒内での初期濃度分布は均一であると仮定すると, 幾つかの近似を使う事によって Booth¹⁾らは, 結晶からの原子の放出率 f [fraction] が次の 2 式で表わせる事を示した。

$$f = 6 \sqrt{\frac{D't}{\pi}} - 3D't \quad D't < \frac{1}{\pi^2} \quad (2)$$

$$f = 1 - \frac{6}{\pi^2} \exp(-\pi^2 D't) \quad D't > \frac{1}{\pi^2} \quad (3)$$

ここで

$$D' = \frac{D}{a^2} \quad (4)$$

D : 拡散係数 (cm²/s)

a : 球状結晶の半径 (cm)

t : 時間 (s)

である。

これらの式より、放出率が拡散係数、結晶粒半径および時間の3つのパラメータで表現出来る事が分る。さらに拡散係数は理論的に

$$D = D_0 \exp\left(\frac{Q}{RT}\right) \quad (5)$$

とされる、ここで

T : 絶対温度 (K)

D₀ : 定数 (cm²/s)

Q : 活性化エネルギー (cal/mol)

R : ガス定数 (≒ 1.99 cal/mol/k)

である。D₀ および Q は定数であり、拡散する原子、UO₂ の酸化度(ストイキオメトリ)、燃焼度等によって決まると考えられている。

ORNL における HI・VI 実験の様に、放出量及び温度の時間変化が詳しく(1分毎に)記録されている実験結果を用いると、(2)(3)式を逆に用いる事により、放出率 f から温度の関数として拡散係数を求める事が出来る。即ち、(2)および(3)式を D't について解くと、

$$D't = \frac{2}{\pi} \frac{f}{3} - 2 \sqrt{\frac{1-f}{\pi^2} - \frac{f}{3\pi}} \quad D't < \frac{1}{\pi^2} \quad (6)$$

$$D't = \frac{1}{\pi^2} \ln\left(\frac{\pi^2(1-f)}{6}\right) \quad D't > \frac{1}{\pi^2} \quad (7)$$

が得られ、ある時 t での放出率 f から D't を求める事が出来る。ここで、ORNL 実験の様に温度が時間変化する場合には、D' も時間変化するので、D't は単なる D' と時間 t の積ではなく、D' の時間積分となる。つまり、(6)(7)式の左辺は $\int_0^t D' dt$ となる。ここで時刻 t₀ および t での放出率をそれぞれ f₀, f とし、時刻 t₀ から t までの Δt 間の燃料平均温度を T とすると、それぞれの時点での D' の時間積分は(6)もしくは、(7)式に f₀ および f を代入する事によって得られるので、

$$D' \Delta t = \int_0^t D' dt - \int_0^{t_0} D' dt \quad (8)$$

$$\therefore D = a^2 D' = \frac{\int_0^t D' dt - \int_0^{t_0} D' dt}{\Delta t} \quad (9)$$

として得られる。つまり、細い時間きざみで放出率 f が測定されている実験は、それぞれの時点での $\int_0^t D' dt$ を求める事によって、その時刻での燃料温度に対応する拡散係数が得られるのである。

3.2 HIおよびVI実験への拡散モデルの適用

(7), (8)および(9)式をHI・VI実験で得られたKrおよびCsの放出履歴を基に求めた。得られた拡散定数を温度の関数として図20および図21に示す。ここで、実際の結晶粒は完全な球ではない事から、過去多くの研究で UO_2 結晶の表面積と体積の比を用いた方法が用いられている。

$$a \simeq 3 \frac{V}{S} \left(\text{球では } 3 \frac{\frac{4}{3} \pi a^3}{4 \pi a^2} = a \text{ となる} \right)$$

しかし、HIおよびVI実験の場合、燃料は多結晶であり、いろいろな大きさを持つ結晶粒が存在する。このため粒径の代表値としては、PIE²⁰⁾で得られた平均結晶粒径を用いた。また、 UO_2 結晶は実験時に高温に長時間さらされる事により成長し粒径が大きくなるが、今回の評価には、結晶粒径の時間変化は考慮せず、実験前後での結晶粒径の平均値を用いた。

図20および21にIIA, IIBと示された2つの領域は、Mazke²¹⁾が UO_2 中での輝ガスの拡散係数を調べた過去の実験を整理した結果である。IIAは希ガス単原子の本当の意味での拡散係数が値をとる範囲であり、IIBは UO_2 結晶中に存在する欠陥やガスバルブ等に一時的に捕獲される事により、小さくなった見かけ上の拡散係数が存在すると評価された範囲である。ORNLのHI及びVI実験で得られた拡散係数は低温域から加熱してゆく過程、つまり実験初期での低温域のデータで一部IIB域を外れているものも見られるが、大部分がIIBの範囲に納っている。多くの実験において、加熱時の低温領域において高めの放出、つまり、高めの拡散係数を示している原因は、炉内照射中に、結晶粒内を拡散し粒界等の放出され易い場所へ移動していたKrあるいはCsの放出による効果だと見られる。この事はHI4実験のように、炉内照射時の燃料温度が高く希ガスの炉内放出が多かった燃料(約10%)を使った実験が、低温域でより高い拡散係数を示している事からも分る。結論として、図20および21からHI・VI実験より求められたKrおよびCsの拡散係数は、過去のデータに矛盾しない事、KrとCsの拡散係数にほとんど差がない事が分る。

3.3 拡散係数に影響する実験条件

表13に示すとおり、ORNLでのFP放出実験では、燃料条件、加熱条件等が色々と異っており、こうした条件の違いが図20や図21に見られる拡散係数のばらつきとなって表われているものと思われる。そこで、まずその原因として燃料の燃焼度を考える。図22にKrの拡散係数を低燃焼度燃料($\leq 30,000 \text{ MWD/t}$)からの放出と、高燃焼度燃料($\geq 40,000 \text{ MWD/t}$)からの放出の2つのグループに分けて示す。図に見られるとおり、高燃焼度グループ燃料での拡散係数は、低燃焼度燃料での拡散係数に比べて大きく、その傾向は低温部程大きい。高燃焼度燃料でのKrの拡散係数は、低燃焼度燃料での値に比べて、 2000°C で約4倍となっている。拡散係数における4倍の違いは、放出速度(fraction/min)では約2倍の違いに対応する。高燃焼度燃料では、輝発性FP原子は核分裂により生成された後、長時間高温条件下にあるために結晶粒界等の放出され易い領域へ移動していた割合が大きくなっており、結果的に過熱初期の低温領域での放出が大きくなっているものと考えられる。

次に、従来から希ガス原子の燃料結晶中の拡散に大きな効果を持つものとして知られている O/U を考える。図 23 に HI-2 および 3 実験における拡散係数を実線及び破線で示す。2 つの実験はどちらも H.B. Robinson 炉で燃焼した燃料であり同程度の燃焼度を持つ条件のそろった燃料である。にもかかわらず、その拡散係数は、出発点である低温部 ($1/T < 0.00065$) ではほぼ一致しているものの高温では、HI-2 実験の結果は、HI-3 実験の結果に比べて約 1 ケタ大きい値を示している。加熱実験後 PIE の結果 HI-3 実験では O/U に大きな変化が見られなかったものの、HI-2 実験では UO_2 の顕著な酸化が見られた。O/U の測定は HI-2 実験のみでなされており、他の実験では FP 金属ビーズの存在状態や UO_2 の液化の程度から推定されているに滞っている。このため ORNL 実験からだけでは定量的な議論は出来ないが、 UO_2 の酸化が著しく Kr の放出を加速した事は明らかである。また、Cs についても図 21 から同様の傾向が読み取れる。

HI-2 実験では、実験初期に燃料被覆が破裂し、 UO_2 ペレットが大きく水蒸気に露出された。 UO_2 の水蒸気による酸化は Bittel²²⁾ によって測定されているが、露出部の表面積および時間の平方根に比例するとされる。同モデルによると HI-2 実験条件下では、 UO_{2000} が UO_{2005} に酸化するのに、燃料ペレット表面の 50% が水蒸気にさらされたと仮定すると 5 分とはかからない。一方 HI-3 実験のように UO_2 の水蒸気への露出が小さい場合では、仮に UO_2 表面積の 10% が露出したと仮定しても、同じく UO_{2005} まで酸化するためには 100 分以上かかる計算となる。また、I.R. Brearly²³⁾ らの研究によると、 UO_{2005} 結晶中での希ガスの拡散係数は UO_{2000} 中での約 10 倍の値を示している。以上 2 つのモデルから、HI-2 実験において Kr および Cs の放出が加速された原因は、被覆管の破裂に供う UO_2 ペレットの水蒸気中への露出による O/U の増加である可能性が非常に高い。 UO_2 の酸化に伴う拡散係数の増加量は、実測値もかなりばらついており、実験式も幾つか存在するので上述の評価が必ずしも定量的に正しいとは言えない面もある。しかし、HI-3 実験結果の比較から定性的な結論として、次の 2 点が言える。

- HI-2 実験を除くほとんどの CRNL の実験条件では被覆管は UO_2 の酸化を防ぐバリアーとして機能しており、少なくとも実験時間内に大きな酸化は起こっていないものと考えられる。
- HI-2 実験の様に、被覆管が破裂し水蒸気中に大きく露出した場合には、 UO_2 は急速に酸化され揮発性 FP の放出が加速されるものと考えられる。

3.4 拡散係数の燃焼度依存の経験式

前項までに示した様に、ORNL で行われた FP 放出実験の結果から得られた見かけの拡散係数は、非常にまとまった値を示している。そこで、見かけの拡散係数に代表値を与える事を検討する。ここで、HI-2 実験の結果に見られる大きな拡散係数は、 UO_2 の酸化が原因と考えられ、定量的評価が困難なので検討対象から除外する。

図 22 で示した 2 つの燃焼度グループの燃料を使った実験結果に対して、それぞれを代表する拡散係数を図 24 に示す。つまり、高燃焼度燃料 ($\geq 40,000$ MWDt) に対しては、

$$D = 7.63 \times 10^{-5} \exp\left(-\frac{74300}{1.99T}\right) \quad [\text{cm}^2/\text{s}]$$

また、低燃焼度燃料 ($\leq 30,000$ MWDt) に対しては

$$D = 2.0 \times 10^{-3} \exp\left(\frac{-95700}{1.99T}\right) \quad [\text{cm}^2/\text{s}]$$

となる。ここでTは燃料温度(K)であり、これらの拡散係数はKr, Csのいずれにも適用出来る。図25にVI-2実験を上述の拡散係数を用いて評価した結果およびCORSOR-Mモデルを用いた評価結果を、測定結果と併せて示す。同図より、拡散モデルが、実験で見られた放出速度の変化および総放出量を比較的良好に再現している事が分る。CORSOR-Mモデルは、放出速度と温度の関係を比較的古いデータを基にまとめたものであり、燃焼度や結晶粒径への依存性を持たず、VI-2実験の結果を過大評価している。また、図26に拡散モデルとCORSOR-Mモデルによる各実験での総放出量をKr及びCsの放出量の実測値と比較して示す。同図よりCORSOR-MモデルがKrおよびCsの放出を過大評価する事、燃焼度依存の見かけの拡散係数を用いた拡散モデルが比較的良好に総放出量を再現する事が分る。

表 13 VI実験条件のまとめ

Parameter	Test number									
	HI-1	HI-2	HI-3	HI-4	HI-5	HI-6	VI-1	VI-2	VI-3	VI-3
Fuel specimen: ^a	HBR	HBR	HBR	PB	Oco	Mont	Oco	BR3	BR3	BR3
Mass (fuel + clad), g	168	166	167	306	133	170	135	103	103	102
Burnup, MWd/kg	28	28	25	10	38	40	38	45	45	45
In-pile Kr release, %	0.3	0.3	0.3	10.2	4.1	2.0	0.7	~2	~2	~2
Test conditions:										
Heatup rate, K/s	1.2	1.3	2.1	2.3	1.1	2.3	1	1	1	0.3
Test temperature, K	1675	2000	2275	2200	2025	2250	2020, 2300 ^b	2300	2000, 2700 ^b	
Time at test temp., min	30	20	20	20	20	1.0	20, 20	60	20, 20	
Effective time										
at test temp., min	33.8	22.5	21.3	21.6	21.5	2.5	8.9, 55.6	71.2	64.2, 47.3 ^c	
Time at >2000 K, min	0	0	24.5	23.7	16.5	5.0	54	70	90	
Steam flow ^d	High	High	Low	Low	Low	High	High	High	High	
Fractional release, %										
⁸⁵ Kr	3.13	51.8	59.3	31.3	19.9	31.6	57	31	>96	
^{110m} Ag ^e	-----	3.13	0.02	0.09	18.0	6.0	33	8.9	ND	
¹²⁵ Sb ^e	0.02	1.55	0.001	0.01	0.33	0.06	28	68	>89	
¹³⁷ Cs	1.75	50.5	58.8	31.7	20.3	33.1	74	63	99	

a: HBR = H. B. Robinson; PB = Peach Bottom; Oco = Oconee; Mont = Monticello; BR3 = BR3 reactor in Belgium.

b: Some tests (VI-1 and VI-3) were conducted in two phases, at two different temperatures.

c: Because of slow heatup and cooldown rates in test VI-3, the effective times at test temperatures were unusually long.

d: Steam flow rates: high = >1 L/min, and low = 0.2 L/min.

e: Because gamma decay rates were very low, data for ^{110m}Ag and ¹²⁵Sb are minimum release values.

ORNL DWG 84 - 1138 R3

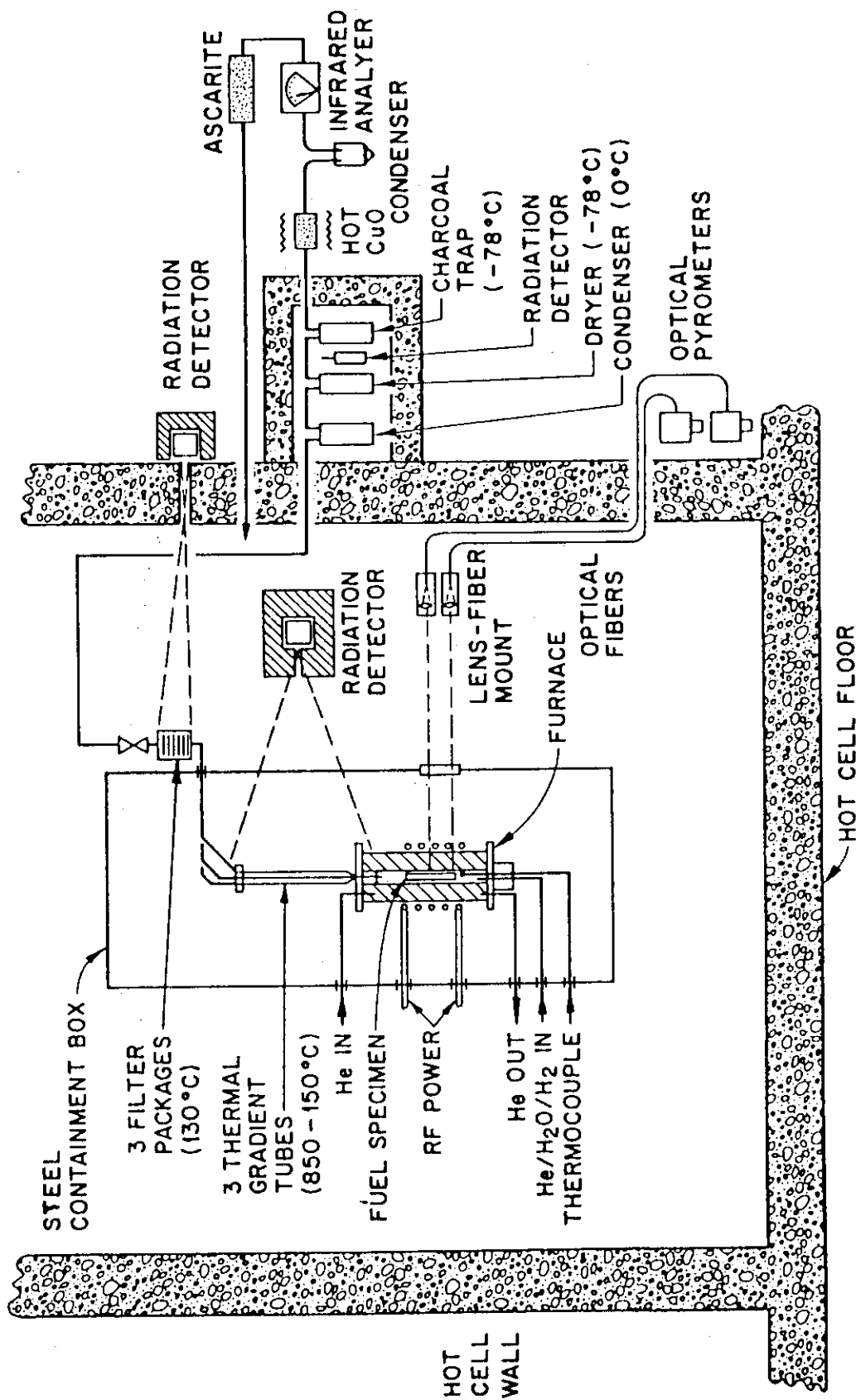


図 18 VI実験装置の概略 (17)

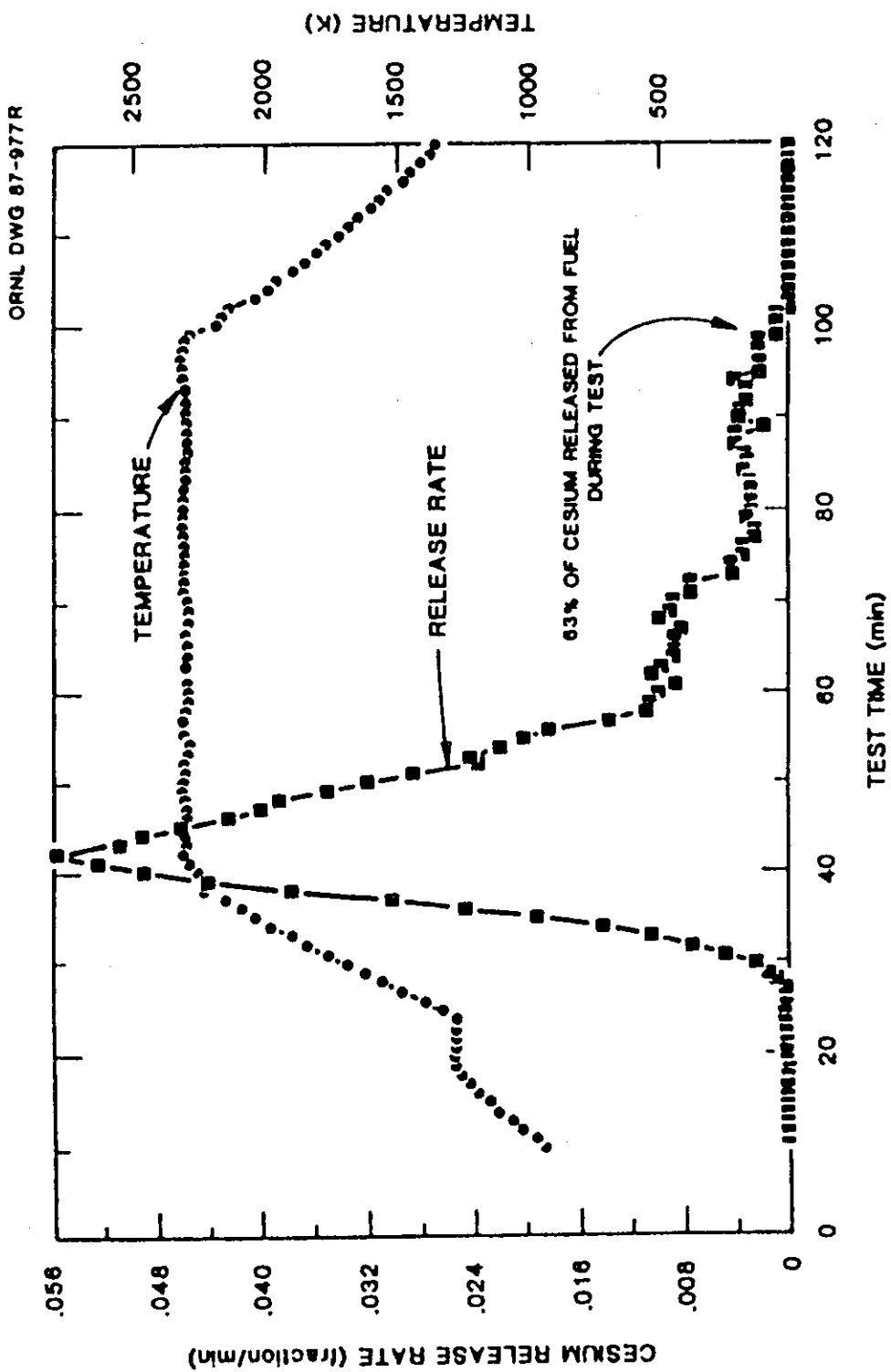


図 19 VI-2 実験における Cs 放出速度の時間変化

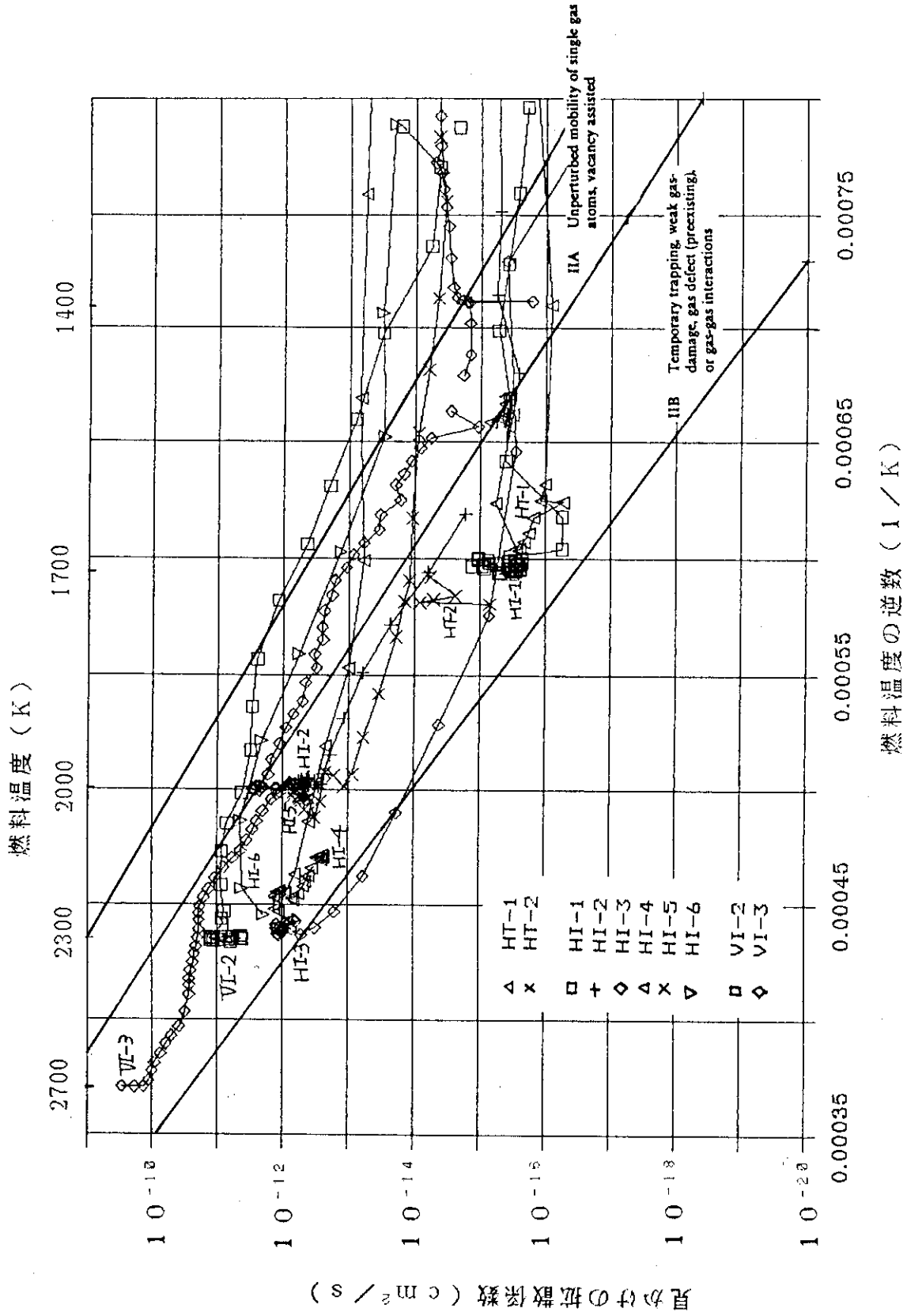


図 20 ORNL 炉外 FP 放出実験結果から求められた Kr の見かけの拡散係数

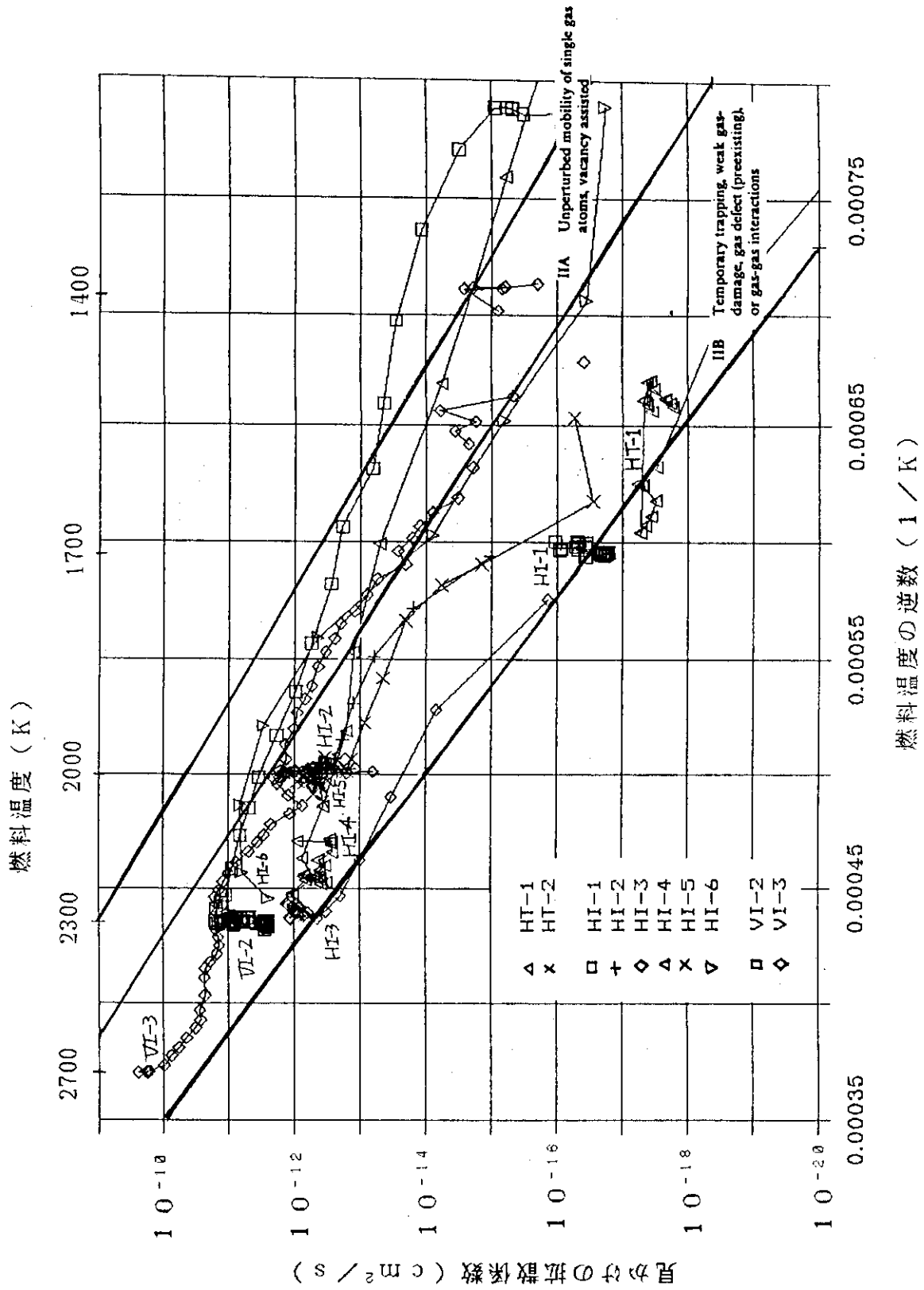


図21 ORNL炉外FP放出実験結果から求められたCsの見かけの拡散係数

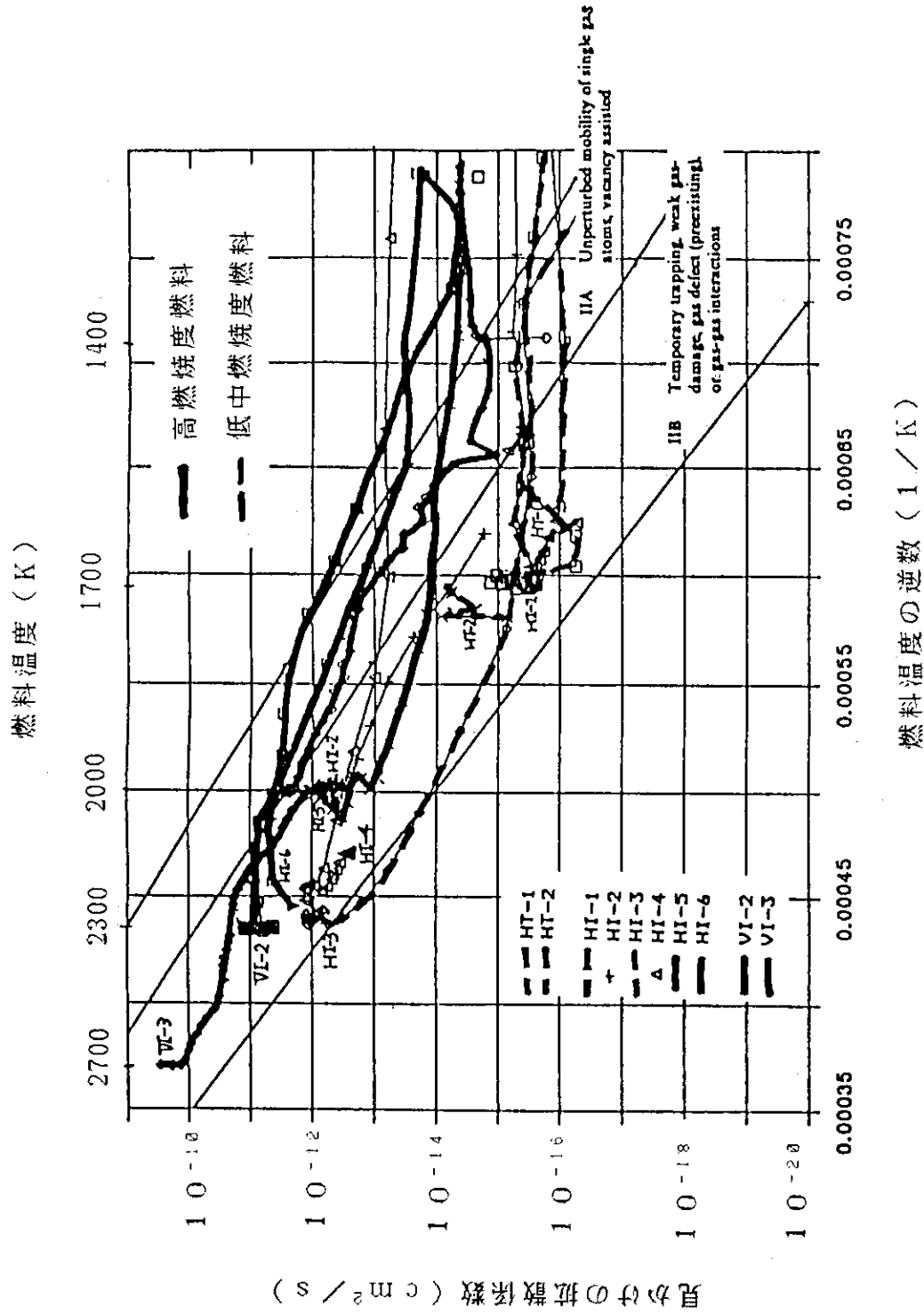


図 22 Kr の見かけの拡散係数の燃焼度依存性

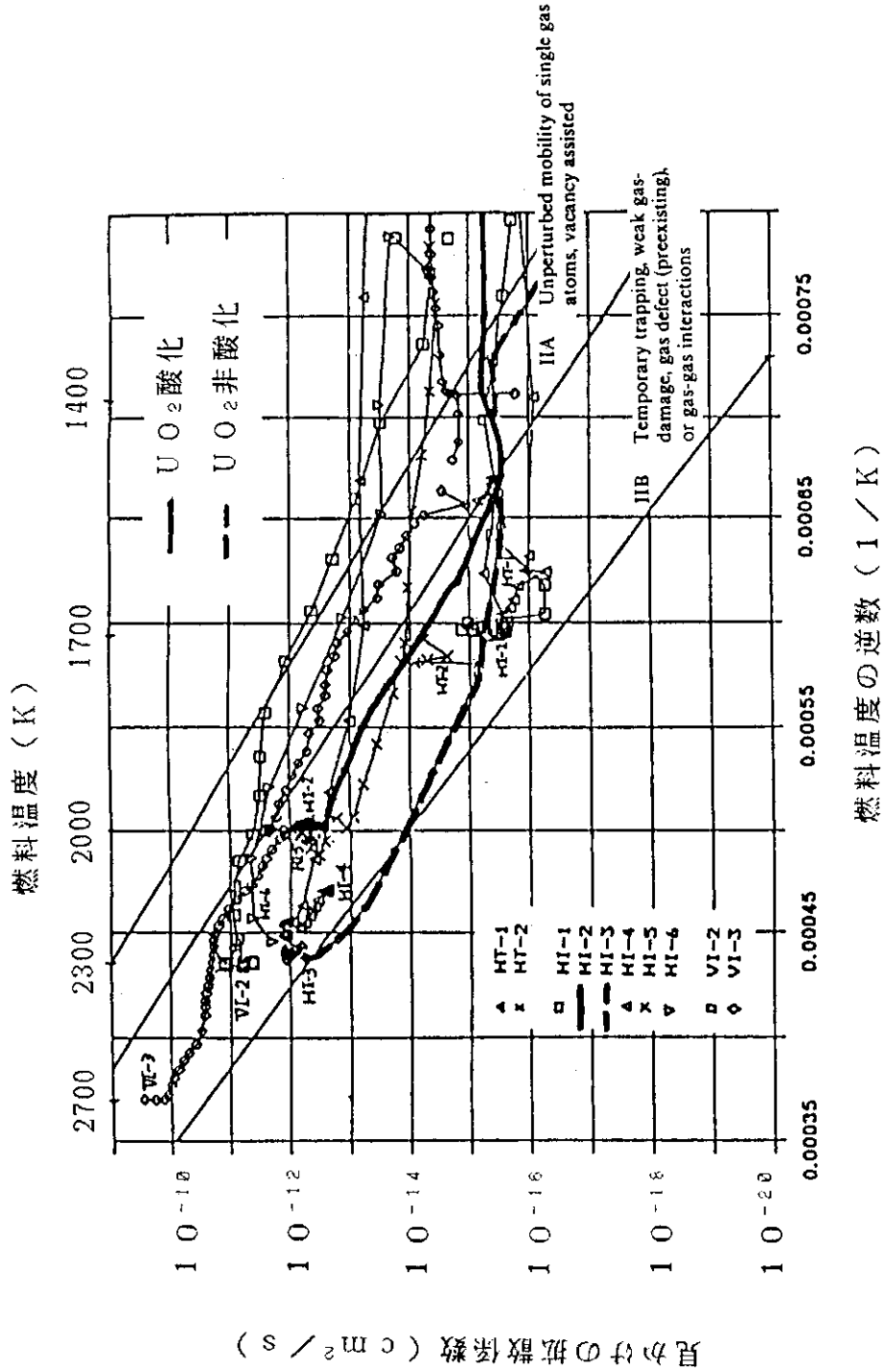


図 23 Kr の見かけの拡散係数の UO_2 酸化による変化

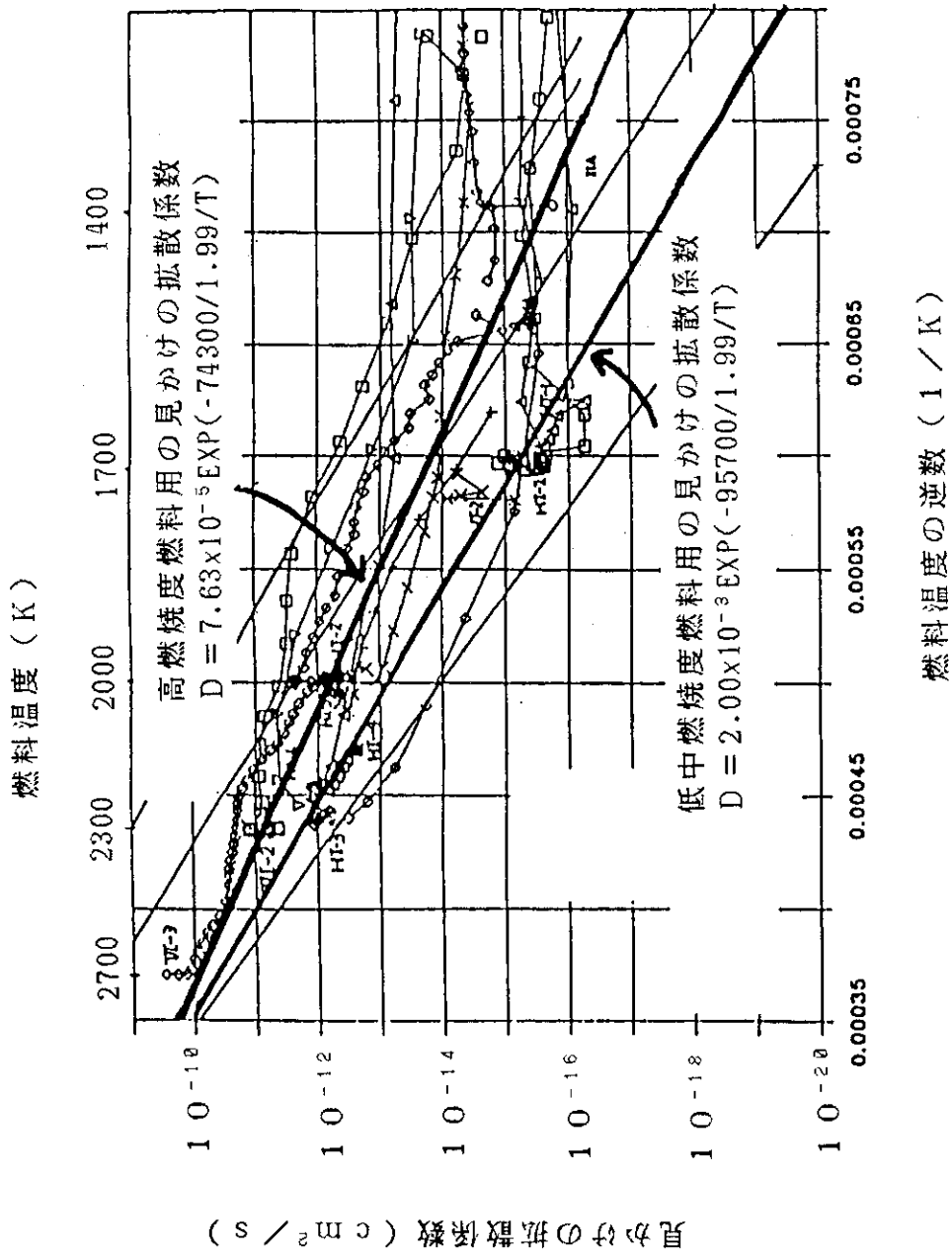


図24 高燃焼度燃料および中低燃焼度燃料に対する Kr および Cs の見かけの拡散係数の代表値

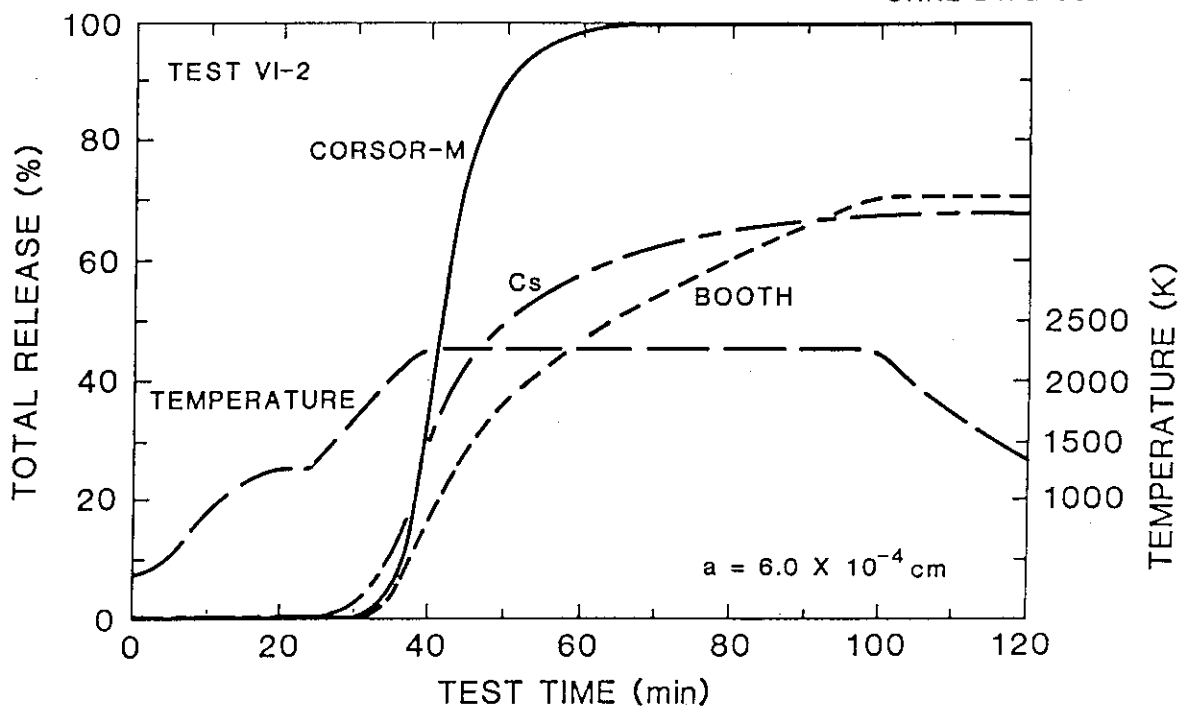


図 25 VI-2 実験に対する拡散モデル (高燃焼度燃料用拡散係数を使用) および CORSOR-M モデルの Cs 放出の評価結果

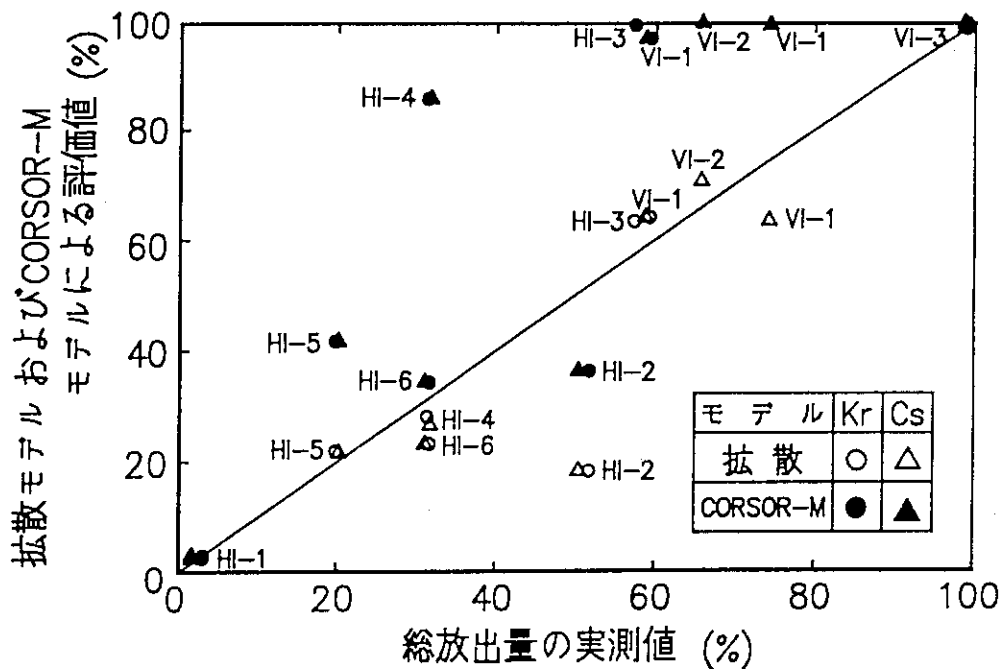


図 26 ORNL 炉外 FP 放出実験における Kr および Cs 放出量の拡散モデル (燃焼度依存の拡散係数を使用) および CORSOR-M モデルによる評価結果と実測値の比較

4. ま と め

4.1 核分裂生成物化学形の評価

水蒸気雰囲気における主なFP元素の化学形および物理的形狀について、CASCHA実験およびHI実験の結果を基にまとめると、表14に示すとおりである。

燃料中では、セシウムは CsO_2 の化学形をしていると考えられているが、水蒸気雰囲気では外に出るや否や $CsOH$ へ変わり、さらにモリブデン等と反応し最終的にはその多くがエアロゾルとなると考えられる。ヨウ素に関してもその多くがエアロゾル化し、化学形はほとんどが CsI だと考えられている。SASCHA、HI両実験において、 I_2 等の透過性の高い化学形のヨウ素は放出量の0.5%以下であった。しかし、揮発性ヨウ素の発生に関しては仏で行われた炉外FP放出実験HEVA-3²⁴⁾において、約10%ものヨウ素が揮発性ヨウ素として放出されたという報告がなされている。この点に関してORNLは、HEVA実験の様に配管系に1度沈着した CsI が加熱され、再蒸発する様な条件では、加熱時に CsI がステンレス鋼もしくはその不純物と反応する事により分解するためだと考えている。この点を究明する実験は未だ行なわれておらず、結論は出ていない。ただし、米国SNLで行なわれた高温高圧条件下での実験、 CsI の分解と揮発性ヨウ素の発生が報告されており、ORNLモデルが妥当である可能性は高い。また、この時発生する揮発性ヨウ素の化学形は主にHIであると考えられている。

テルルに関してはヨウ素の場合程明らかではないが、テルル単体もしくは Cs_2Te の化学形をしていると思われる。テルルはアンチモン、銀などと同様に未酸化の被覆管が存在する場合、被覆管と反応して $ZrTe_3O_8$ 等を作り環境へほとんど放出されない。

他方バリウムに関しては、テルル等とは逆の放出挙動をとる。つまり被覆管の酸化が進む程、放出率が小さくなっている。この現象は燃料中で BaO の化学形をしていたBaが被覆管のジルコニウムに還元され、Ba単体として揮発してしまうためと考えられる。

4.2 揮発性核分裂生成物の放出速度

3章で示された様に、KrおよびCsの放出速度は、燃焼度依存の拡散係数を用いた簡単なモデルでよく再現出来る事が分った。同モデルで放出速度を求めるパラメータは、燃料温度、燃焼度、結晶粒径の3つである。また、被覆管が破裂し、 UO_2 燃料が水蒸気に大きくさらされる場合には、 UO_2 の酸化によりKrおよびCsの放出が加速される現象が1つの実験で見られたが、それ以外の実験では被覆管が水蒸気から燃料の酸化を妨ぐバリアーとして働いたものと考えられる。O/Uが揮発性FPの放出速度に及ぼす効果はORNLの実験結果からは定量的には明らかでなく、今後の重要な研究課題であると考えられる。

ORNL実験から得られた見かけの拡散係数は、高燃焼度燃料および低中燃焼度燃料に対して、それぞれ

$$D = 7.63 \times 10^{-5} \exp\left(-\frac{74300}{1.99T}\right) \quad [\text{cm}^2/\text{s}] \quad (\geq 40,000 \text{ MWD/t})$$

および

$$D = 2.0 \times 10^{-3} \exp\left(-\frac{95700}{1.99T}\right) \quad [\text{cm}^2/\text{s}] \quad (\leq 30,000 \text{ MWD/t})$$

であった。

燃焼度依存の拡散係数を用いた拡散モデルはORNL実験におけるKrおよびCsの放出挙動からのみ得られたものであるが、Iの放出挙動はKrおよびCsとほとんど差が無い事が知れており、同モデルはIの放出にもそのまま適用出来るものと考えられる。他方、揮発性の低いFPの放出量に関しては、測定データが不十分であり見かけの拡散係数を求めるに至っていない。今後の実験ではより高温条件における不揮発性FPの放出量の測定が重要になると考えられる。

4.3 シビアアクシデント研究への適用

ORNLで行なわれたHIテストを含む30回近くにおよぶ実炉燃料を用いた核分裂生成物(FP)放出実験あるいは、KfKで行なわれた模擬FP添加によるFP化合物の放出及び移行実験の結果などにより、 UO_2 燃料あるいは被覆管を含めた燃料棒からのFPの放出挙動はかなり明らかになって来ている。特に希ガス、セシウム、ヨウ素に関してはデータも蓄積されて来っており、放出率についてもかなり定量的な評価が出来る程になっている。また、被覆管破損後も、テルル、アンチモン、銀あるいはBaなどの元素はジルカロイとの反応により放出率が低くおさえられることなど、多くの知見が得られて来ている。

こうした実験結果を見ると、希ガスなど一部の元素を除いて、その放出率が温度以外の条件(水蒸気量、制御材の溶融の有無等)に大きく依存することが明らかであり、事故時のF.P.放出を評価するためには、事故シナリオを明確にしそのシナリオに添った環境でのF.P.の放出挙動についてより詳しいデータを得る必要がある。米国のSNLで行なわれたQUEST(Quantitative Uncertainty Estimate for the Source Term)プログラムにおいて、事故時の崩壊炉心の温度履歴の不確かさとF.P.の放出係数の不確かさが、結果的にF.P.放出率にどの様に影響を与えるかという問題が検討されており、表15に示すとおりBa等の揮発性が低い核種に対して、その放出率に不確かさが効いていることが分る。Ba, Te, Sbといった低揮発性の核種は、条件によっては被覆管に吸着される性質を有しており、その放出率に対する不確かさは、希ガス、ヨウ素、セシウム等の揮発性の多い核種に比べても大きくこれらの核種の放出率の評価はなおさら不確かなものとなっている。今後はこうした核種に対する放出係数が重要になってくるであろう。

こうした放出率の小さな核種の挙動や、昇温速度、被覆管酸化量などをパラメータにして詳しく放出係数を求める上では、燃料棒から放出されるF.P.の挙動を次の2つの現象に分け、その個別効果を知ることがFPの放出をモデル化して、その量を評価する上で必要だと思われる。

① UO_2 ペレットからF.P.の放出

② ジルカロイ被覆管によるトラップ効果を含めたペレット外での化学反応

①について、現在は単に温度の関数として求められているが、ORNLのHIテストシリーズの結

果では昇温率が効いている事が示されており、また、燃料ペレットの燃焼度とそれに伴うペレットの結晶構造の変化が効いて来るものと思われ、こうしたデータを得るためには、実炉燃料を使った出来るだけ単純な体系でのテストが望ましい。②の効果については、被覆管の酸化状態と温度が大きなパラメータになると考えられる。この実験にはSASCHAで行なわれた様な、模擬FP（トレーサー入り）を添加した実験が、正確な測定が可能な点や、ハンドリングの容易さなどの面からみて適している。

昇温速度および被覆管の酸化程度による代表的FP核種の放出率の変化を表16にまとめた。

温度以外に被覆管酸化量や昇温速度等に依存した放出率を求め、これにより事故時のソースタームを評価しようとする際には、事故の進展に伴う炉心損傷の過程とその度合に対してもより詳細な知識が要求されることになり、結果的に環境へ放出されるFP量に大きな影響を与える効果とそうでない効果との区別が増々重要になって来る。

表14 水蒸気雰囲気での主なFPの化学形と物理的形状

核種	主な化学形	主な物理的形状	その他
Kr	Kr	ガス	
Xe	Xe	ガス	
Cs	CsO ₂ → CsOH → CsMoO ₄ etc.	エアロゾル	
I	CsI (I ₂ は0.5%以下)	エアロゾル	制御棒(Ag-In-Cd)と反応してAgIを生成する
Te	Te, Cs ₂ Te	—	未酸化被覆管と強く反応する
Ba	Ba, BaTe	—	被覆管に還元されて単体として放出される
Sb	Sb ₂	ガス	構造材の反応し易い
Ag	Ag	エアロゾル	

表15 ヨウ素, バリウム放出の不確かさ

(a) FRACTIONAL IODINE RELEASE PREDICTIONS

<u>Thermal History</u>	<u>Release Rate Coefficients</u>		
	<u>High</u>	<u>Base</u>	<u>Low</u>
High	1	1	0.99
Base	1	0.99	0.62
Low	1	0.62	0.11

(b) FRACTIONAL BARIUM RELEASE PREDICTIONS

<u>Thermal History</u>	<u>Release Rate Coefficients</u>		
	<u>High</u>	<u>Base</u>	<u>Low</u>
High	0.99	0.58	0.09
Base	0.78	0.18	0.02
Low	0.18	0.02	2E-03

表 16 主なFP核種の温度以外のパラメータ
による放出率の変化

核種	パラメータ	
	昇温速度	被覆管酸化量
Kr	⊕	-
Xe	⊕	-
Cs	⊕	-
I	⊕	-
Te	不明	⊕
Ba	"	⊖
Sb	"	⊕
Ag	"	⊕

- : あまり変わらず

⊕ : パラメータが大のとき放出率が増える。

⊖ : パラメータが大のとき放出率が減る。

参 考 文 献

- (1) H. Albrecht et al. in PNS Annual Reports, KfK-2750 (1979) and KfK-2950 (1981).
- (2) H. Albrecht, H. Wild, "Behavior of I, Cs, Te, Ba, Ag, In and Cd during Release from Overheated PWR Cores", Int. Meeting, Cambridge, Mass., Aug. 28 - Sept. 1, 1983.
- (3) H. Albrecht et al. in PNS Annual Report 1983, KfK-3670 (1984).
- (4) M.F. Osborne, J.L. Collins and R.A. Lorenz, "Experimental Studies of Fission Product Release from Commercial LWR Fuel Under Accident Conditions", Nucl. Technol. 79(2) (August 1987).
- (5) M.F. Osborne, R.A. Lorenz, J.R. Travis and C.S. Webster, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-1, NUREG/CR-2928 (ORNL/TM-8500), December 1982.
- (6) M.F. Osborne, R.A. Lorenz, J.R. Travis, C.S. Webster and K.S. Norwood, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-2, NUREG/CR-3171 (ORNL/TM-8667), February 1984.
- (7) M.F. Osborne, R.A. Lorenz, K.S. Norwood, J.R. Travis and C.S. Webster, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-3, NUREG/CR-3335 (ORNL/TM-8793), March 1984.
- (8) M.F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, K.S. Norwood, J.R. Travis and C.S. Webster, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-4, NUREG/CR-3600 (ORNL/TM-9011), June 1984.
- (9) M.F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, K.S. Norwood, J.R. Travis and C.S. Webster, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-5, NUREG/CR-4037 (ORNL/TM-9437), to be published.
- (10) M.F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, K.S. Norwood, J.R. Travis and C.S. Webster, Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-6, NUREG/CR-4043 (ORNL/TM-9443),
- (11) M.F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, J.R. Travis and C.S. Webster, Design Construction and Testing of a 2000°C Furnace and Fission Product Collection System, NUREG/CR-3715 (ORNL/TM-9135), September 1984.
- (12) R.A. Lorenz, J.L. Collins, A.F. Malinauskas, M.F. Osborne and R.L. Towns, Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel Heated to 1300-1600°C in Steam, NUREG/CR-1386 (ORNL/NUREG/TM-346), November 1980.

- (13) J.L. Collins, M.F. Osborne, R.A. Lorenz, K.S. Norwood, J.R. Travis and C.S. Webster, Observed Behavior of Cesium, Iodine and Tellurium in the ORNL Fission Product Release Program, NUREG/CR-3930 (ORNL/TM-9316), to be published.
- (14) K.S. Norwood, An Assessment of Thermal Gradient Tube Results from the HI Series of Fission Product Release Tests, NUREG/CR-4105 (ORNL/TM-9506), to be published.
- (15) S.L. Nicolosi and P. Baybutt, Vapor Deposition Velocity Measurements and Correlations for I₂ and CsI, NUREG/CR-2713 or BMI-2091, May 1982.
- (16) Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior during LWR Accidents, NUREG-0772, U.S. Nuclear Regulatory Commission, June 1981.
- (17) M.F. Osborne, R.A. Lorenz, J.L. Collins and T. Nakamura, "TIME-DEPENDENT RELEASE OF FISSION PRODUCTS FROM LWR FUEL UNDER SEVERE ACCIDENT CONDITIONS", International ENS/ANS Conference on Thermal Reactor Safety, October 3-7, 1988, France.
- (18) R.A. Lorenz, E.C. Beahm and R.P. Wichner, (ORNL) "Review of Tellurium Release Rates from LWR Fuel Elements Under Accident Conditions", Int. Meeting, Cambridge, Mass., Aug. 28 - Sept. 1, 1983.
- (19) A.H. Booth and G.T. Rymer, Determination of the Diffusion Constant of Fission Xenon in UO₂ Crystals and Sintered Compacts, AECL Report CRDC-720, August 1958.
- (20) R.V. Strain, Preliminary Report on the Posttest Examination of Samples from ORNL Fission Product Release Tests", draft report.
- (21) H.J. Matzke, "Gas Release Mechanism in UO₂ - A Critical View", Rad. Eff. 53, 219 (1980).
- (22) J.T. Bittel, L.H. Sjodahl and J.F. White, "Steam Oxidation Kinetics and Oxygen Diffusion in UO₂ at High Temperature", J. Am. Ceram. Soc. 52, 446 (1969).
- (23) I.R. Brearly and D.A. Macinnes, "Modeling of Fission-Gas Release from Fuel Undergoing Isothermal Heating", J. Nucl. Mater. 118, 68 (1983).
- (24) A. Mathiot, G. Le Marois, R. Warlop, "Analysis of Fission Product Release During a Simulated Severe Fuel Damage Accident - The HEVA Program", IAEA-TC-579-31, Nov. 10-13 1986, VIENNA, Austria.

付録A HIおよびVI実験で用いられている核分裂 生成物の測定方法

HI 実験では、非常に線量の高い実炉燃料を使っており燃料内のインベントリや、放出量を評価するには種々の工夫が必要となっており、測定結果を評価する上で測定方法を知る必要がある。以下にその概略をまとめる。

(1) 試験燃料

商用発電炉より取り出された燃料は 20.3 cm もしくは 15.2 cm に切り出され、図A-1⁵⁾に示す様に中央に標準リークとして、1.6 mm ϕ の穴を開け、端栓を圧着して実験に供される。燃料棒切断時に照射中にギャップ部やプレナム部に放出されたF.P.ガスの分析を行い、試験部からの放出分の評価を行っている。評価方法は燃料棒全体の燃焼分布を求め図A-2⁸⁾、これが線出力密度分布と一致すると仮定する。図A-3⁸⁾に示す定常時での放出率と線出力密度との関係を適用し、放出量を燃料棒各部について相対的に放出率を求め、ガス分析で得られた総放出量の実測値で全体を規格化し、最終的に試験部からの照射中のF.P.放出量を評価している。HI-4の場合では、燃料棒全体平均で燃料インベントリの9.12%のXeとKrがプレナム及びギャップ部に放出されており、試験部からは9.9% (Kr 10.2%, Xe 9.86%) が放出されている。詳細はRef. 10 参照のこと。

(2) γ 線スペクトロメトリー

昇温実験中のオンラインでの γ 線測定は時間経過による相対的な γ 線強度の変化を測定している。注目している核種は、TGT及びフィルターパッケージ部では¹³⁷Cs、活性炭コールドトラップ部では⁸⁵Krである。

昇温実験終了後、実験系を細分化し詳細な γ 線スペクトロメトリーを行い各部に付着したF.P.の定量を行っている。検出される核種は、¹³⁷Cs及び¹³⁴Csである。その他の核種はCsの強い γ 線に隠れてそのままでは検出が困難であり、後述する種々の処理を施した後再び測定されている。

(3) 洗浄

細分化したTGT等の実験系は、Csを取り除くためにアルカリ水溶液($\text{NH}_4\text{OH} + \text{H}_2\text{O}_2$)で洗浄され再び γ 線スペクトロメトリーが行なわれる。これにより¹²⁵Sb(HI-1, 2, 5, 6), ^{110m}Ag(HI-2, 5, 6)が検出可能となっている。この後更に酸($\text{HNO}_3 + \text{HF}$)で洗浄が行なわれ、再度 γ 線スペクトロメトリーが行なわれている。こうした洗浄に対する挙動は、F.P.の化学形を推定する材料となる。

(4) 放射化法による測定

試験燃料は長時間冷却された後なのでヨウ素には適当な半減期と放出 γ 線エネルギーを持つ同位体がない。ヨウ素はアルカリ水溶液にほぼ100%溶けるので洗浄後のアルカリ水溶液からセシウムを取り除いたものを中性子照射し放射化した後、 γ 線スペクトロメトリーを行っている、注目する核種は¹²⁹Iである。

テルルに関しても同様⁹⁾にHCl/HNO₃溶液で溶かし出したものに中性子照射を行い¹³¹Iとし

て、 γ 線スペクトロメトリによる定量する方法が開発されているが、HIテストの解析には未だ用いられていない。

(5) SSMS (Spark Some Mass Specrometry) による測定

低エネルギーの γ 線しか放出しない核種や、短半減期核種、或いは存在量の少ない核種の測定にSSMSが用いられている。この方法はTGTや電気炉をスミヤしたサンプル、或いは洗浄で得られた溶液をグラファイト電極を用い電気スパークにより気化させて質量分析を行うものである。検出感度は高いが本来定量的検出法ではない上に、途中スミアもしくは溶解の段階を経る為に、更に精度は落ちる。定量する際の基準として、 γ 線スペクトロメトリで得られたセシウム量が使われている。OsborneらはSSMSによる定量の精度はファクターで2程度だと評価している。SSMSにより、F.P.と反応してTGTやフィルターに付着している、構造材や不純物等の放射能をもたない元素の挙動を知ることが出来るので、F.P.の化学形を考える上で非常に参考になるデータが得られている。

(6) 試験燃料棒直接測定によるCsの放出量評価

試験燃料棒からのF.P.の放出率は、ORIGENによるインベントリの計算と実験系各部に付着したF.P.の総和により求めている。この結果とクロスチェックするために、実験前後の試験燃料の γ 線スペクトロメトリを行い残留率を直接評価する方法も行なわれている。試験燃料は非常に γ 線レベルが高いので距離(～10 m)と鉛フィルターもしくはコリメータを使い γ 線を減衰させ測定を行っている。実験終了後試験燃料は管につめエポキシ樹脂で固化する必要がある、 γ 線スペクトロメトリは固化後行うことになるので残留 ^{134}Cs を定量するのは簡単ではない。このためORNLでは、高エネルギーの γ 線(1274 keV)を放出しペレット中では揮発性の低い Eu_2O_3 の形をしており昇温実験中の移動も少ないと考えられている ^{154}Eu を基準として ^{134}Cs (放出 γ 線エネルギー1365 keV)の放出率を求めている。つまり、 $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ 値の実験前後での変化から放出率を計算している。HI-6で実際に求めた例を以下に示す。

◦ Attenuation correction factor (for epoxy, containment tubing, etc.)

$$F = \frac{\text{Pretest } ^{154}\text{Eu} (1274 \text{ keV})}{\text{Posttest } ^{154}\text{Eu} (1274 \text{ keV})} = \frac{0.4617 \text{ Ci}}{0.4267 \text{ Ci}} = 1.082$$

◦ % ^{134}Cs released = % cesium released

$$\begin{aligned} &= \frac{[(\text{Pretest } ^{134}\text{Cs}) - (\text{Posttest } ^{134}\text{Cs}) (F)]}{(\text{Pretest } ^{134}\text{Cs})} \times 100 \\ &= \frac{[(7.885 \text{ Ci}) - (4.452 \text{ Ci}) (1.082)]}{(7.885 \text{ Ci})} \times 100 = 38.9\% \end{aligned}$$

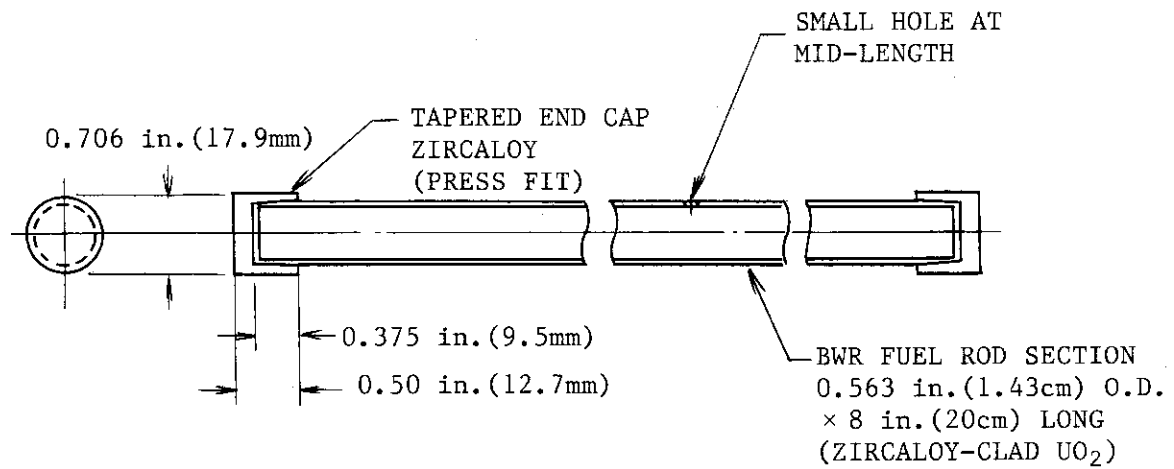


図 A-1 HI実験に使用された試験燃料⁽⁵⁾

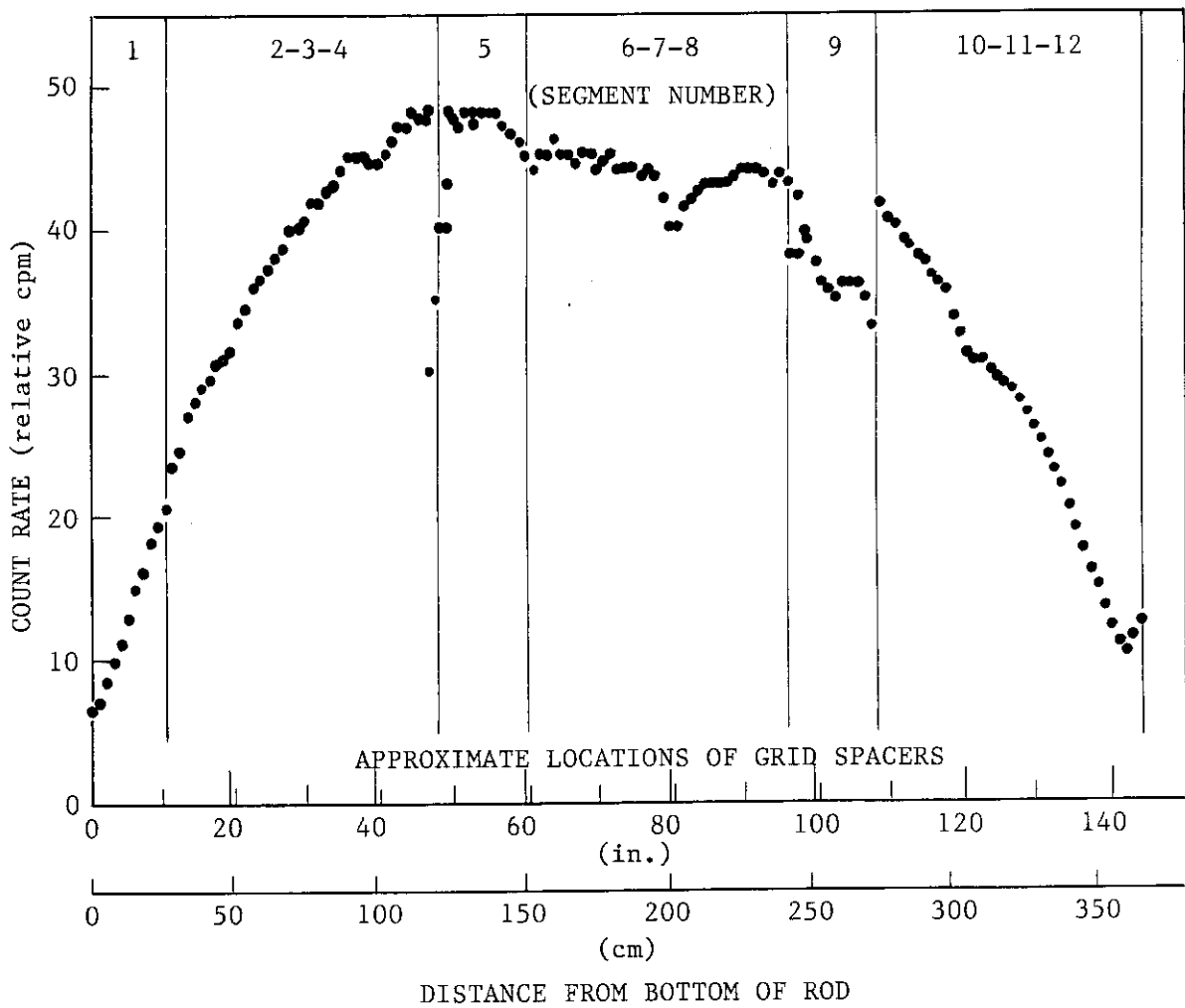
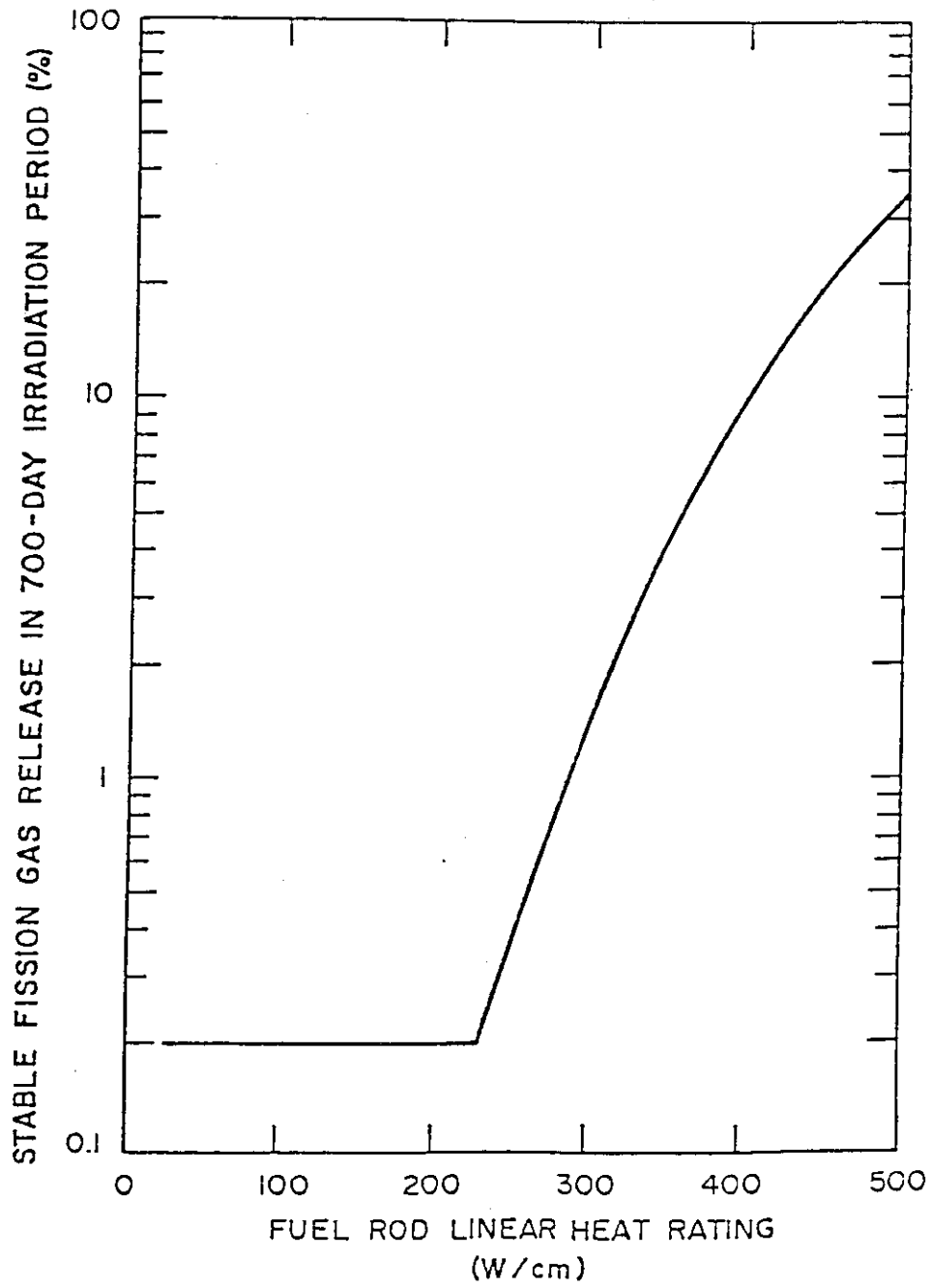


図 A-2 HI-4 実験用試験燃料 (segment 7) を切り取った長尺燃料⁽⁸⁾
(Peach Pottom-2, PH-006/F-6)のガンマスキャン結果

ORNL DWG 79-901



図A-3 線出力から推定される安定FPガスの放出率⁽⁸⁾

付録B SSMSによる微量核分裂生成物の測定結果

SSMSにより得られた微量なF.P.や構造材物質の移行挙動を、HI-4実験を例に示す。表B-1⁸⁾にTGT各部及びフィルタ上に付着した、各元素の量を示す。最近問題視されているTe微量ではあるが検出されている。

図B-1⁸⁾にSSMSによるヨウ素のTGT分布の測定値を放射化法による測定値と比較して示した。両方法による結果は、多少ばらつきはあるものの傾向としては良く一致しており、SSMSによるFP付着量の測定に対する信頼性を裏付ける結果となっている。

図B-2⁸⁾には、TGT上でのFPの付着分布を図B-3⁸⁾には、これらのFP元素と化合して移行したと考えられる構造材等の構成元素の付着分布を示す。

表B-1 HI-4実験終了後の各種FPの分布 (SSMS法による)⁽⁸⁾

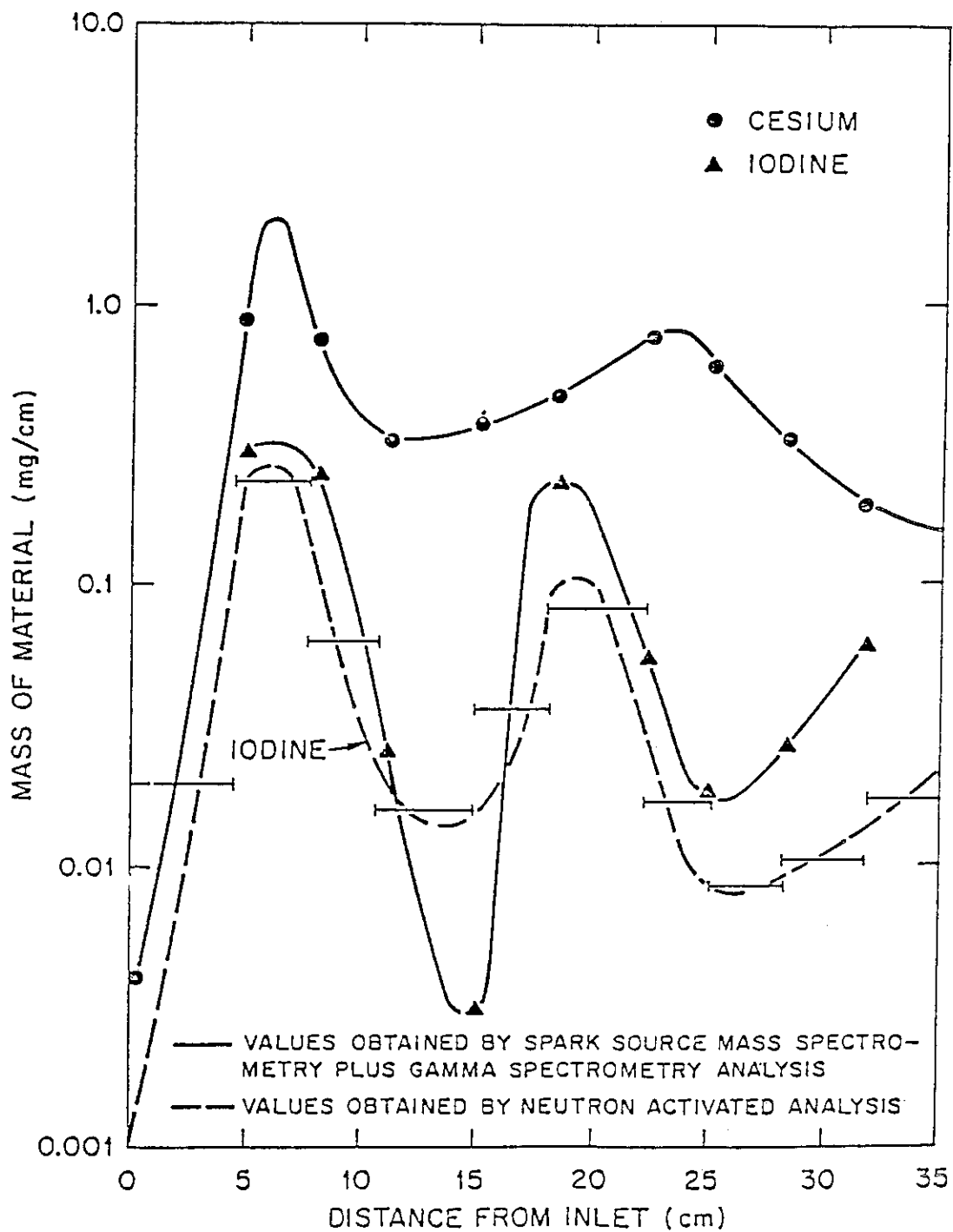
Sample No.	Mass of element (mg/cm)										Filter-1 (mg total)	
	TGTS-1	TGTS-2	TGTS-3	TGTS-4	TGTS-5	TGTS-6	TGTS-7	TGTS-8	TGTS-9	TGTS-10		
Distance from TGT inlet (cm)	0.3	4.9	8.1	11.1	15.2	18.4	22.5	25.0	28.4	31.8		
Element												
(1) Fission products												
Cs(R) ^a	0.004	0.884	0.758	0.329	0.379	0.480	0.758	0.607	0.329	0.190	17.393	
Cd(R)				0.041	0.009	0.095	0.153	0.028	0.058	0.256	8.563	
I(R)		0.310	0.241	0.026	0.003	0.227	0.053	0.018	0.027	0.060	3.996	
Rb(R)	1.5×10 ⁻⁵	0.110	0.050	0.020	0.005	0.047	0.038	0.042	0.135	0.180	2.855	
Ag(R)									0.0008	0.0013	1.427	
Br(R)		0.110	0.101	0.004		0.005	0.004	0.001	0.001	0.0013	0.285	
Te								<0.0006		<0.0003	<0.143	
Eu									<6×10 ⁻⁵	<0.0001	<0.057	
La								<6×10 ⁻⁵	<6×10 ⁻⁶	<10 ⁻⁶	<0.017	
Ba								<0.0001	<10 ⁻⁵	<4×10 ⁻⁵	<0.017	
Sr									<4×10 ⁻⁶	<1×10 ⁻⁵	<0.003	
Total	0.004	1.414	1.150	0.420	0.396	0.854	1.006	0.697	0.551	0.670	34.76	
(2) Special materials^b												
Sn(N)		0.003	0.402						<0.0001			
Zr(N)				0.012	0.004	0.001	0.001	0.0008	0.0004	0.0012		
Mg	0.0025	0.332	0.502	0.020	0.002	0.002	0.153	0.028	0.097	0.115	19.982	
Cs(W)		0.006	0.005	0.006	0.002	0.001	0.002	0.003	0.0002	0.001	0.285	
Pt		1.107	0.502	0.406	0.023	0.189	0.305	0.564	0.097	0.128	<0.200	
U								<0.0003	<0.0001	<0.001	<0.086	
Total	0.003	0.341	0.909	0.038	0.006	0.004	0.156	0.032	0.098	0.118	20.35	
(3) Other materials^d												
Cl	0.0005	0.110	0.201	0.061	0.003	0.014	0.031	0.014	0.010	0.010	8.564	
S	0.0005	0.332	0.402	0.203	0.005	0.047	0.153	0.198	0.136	0.115	5.709	
Ns	0.00005	0.078	0.352	0.020	0.001	0.003	0.015	0.003	0.006	0.004	2.569	
Zn	0.0003	0.022	0.402	0.142	0.002	0.003	0.002	0.003	0.002	0.005	1.427	
Pb		0.006	0.015				0.002	0.002	0.002	0.001	0.856	
K	0.00005	0.022	0.025	0.020	0.002	0.014	0.008	0.002	0.001	0.0008	0.285	
Fe	0.0001	0.011	0.005	0.012	0.005	0.002	0.005	0.006	0.008	0.006	0.257	
P	0.00003	0.003	0.005	0.002		0.0002	0.0003	0.0003	0.0004	0.0004	0.200	
Mn	Mn	0.00002	<0.001	<0.001	<0.001		0.001	<0.0003	<6×10 ⁻⁵	0.0004	0.200	
	Cu									0.00013	0.057	
	Cr		<0.001		<0.001	<0.0001		<0.0003		<9×10 ⁻³	0.029	
	Bi		0.025					0.001				
	Al	0.00005	0.004	0.002	0.004	0.0002	0.001	0.0006	0.002	0.0001	0.0009	
Total others	0.0017	0.591	1.435	0.468	0.019	0.084	0.217	0.232	0.166	0.144	20.15	
Total all	0.009	2.346	3.494	0.926	0.421	0.942	1.379	0.961	0.815	0.952	75.26	
Percentage fission product												
		44.4	60.3	32.9	45.4	94.1	90.7	73.0	72.5	67.6	70.4	46.2

a (R) = radiogenic, (N) = natural.

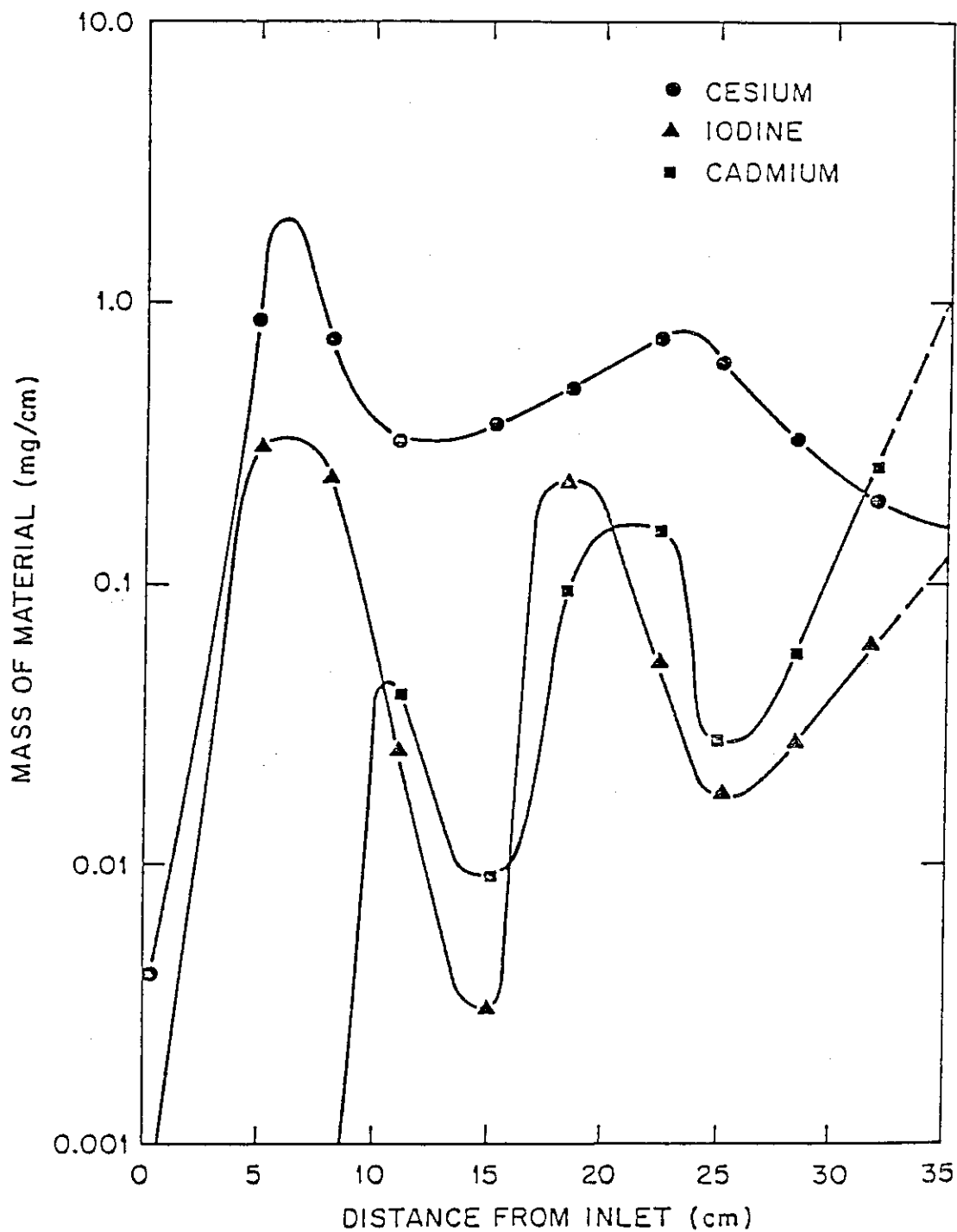
b Material known to be part of test system, such as fuel, cladding, and apparatus materials.

c Excluding platinum, the deposition surface.

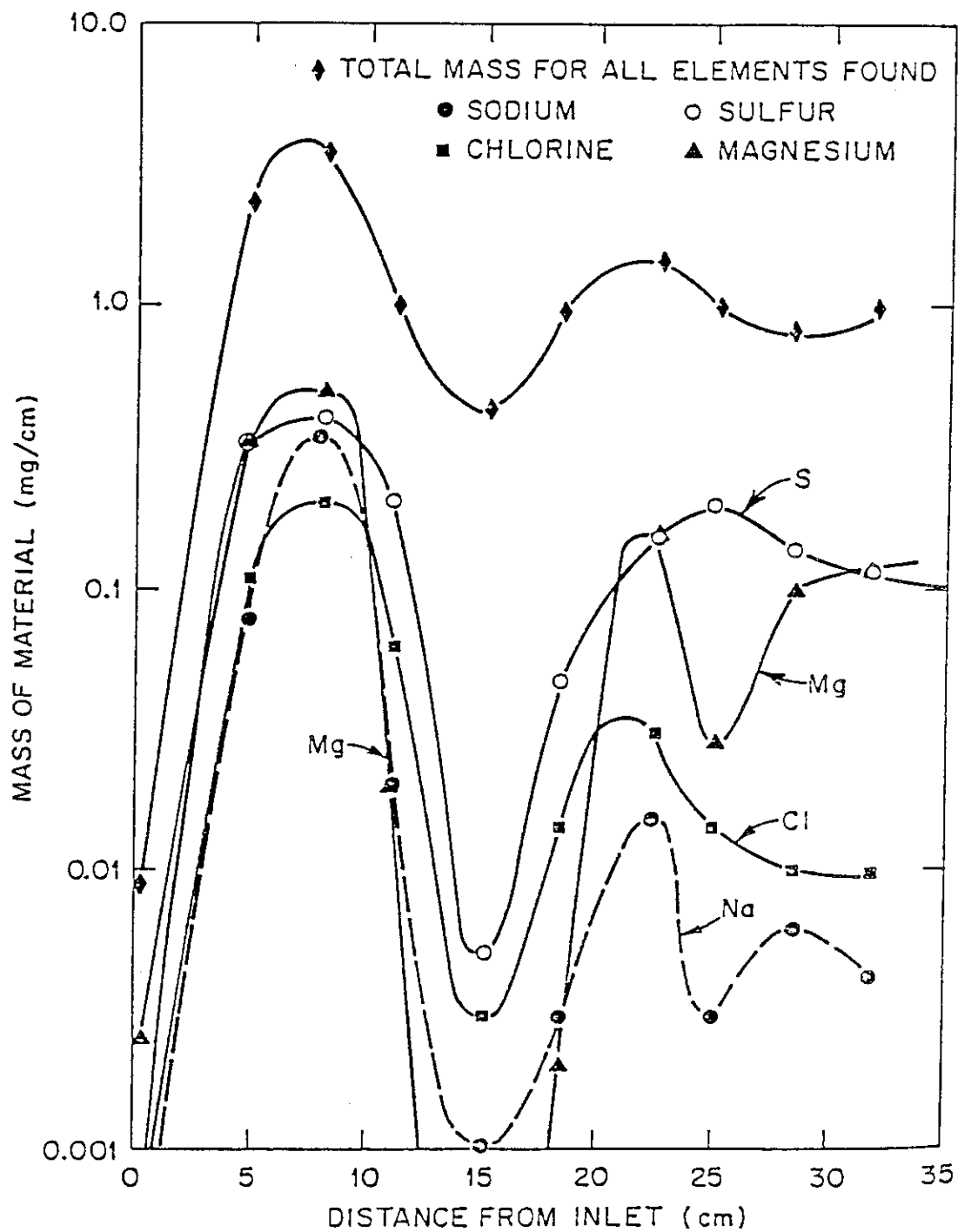
d Apparently impurities in system.



図B-1 HI-4実験におけるヨウ素とセシウムの特種ガラス管(TGT)上での分布(SSMS法)と放射化法による測定結果の比較⁽⁸⁾



図B-2 HI-4実験におけるヨウ素、セシウム、カドミウムのTGT上の分布 (SSMS法)⁽⁸⁾



図B-3 HI-4実験で、図B-2に示したFP核種と化学結合し移動したと考えられる各種構造材元素の分布 (SSMS法)⁽⁸⁾