

JAERI- M

8 9 5 2

燃料コンパクト照射キャプセルの
黒鉛スリーブ中のFP分布

1980年7月

菊池 輝男・岩本 多実・井川 勝市

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

燃料コンパクト照射キャプセルの黒鉛スリーブ中のFP分布

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
菊池 輝男・岩本 多実・井川 勝市

(1980年6月19日 受理)

被覆粒子燃料コンパクトをキャプセル照射した際、燃料コンパクトを封入した黒鉛スリーブ中の放射性核種の分布を、軸方向、半径方向および円周方向について調べた。測定に供した試料は、VP-2およびVP-4キャプセル中に封入したもので、JRR-2、VT-1孔において、それぞれを1380°Cおよび1495°Cで290時間照射し、それぞれを4.0年および3.5年崩壊させたものである。これらの黒鉛スリーブから検出された核種は、 ^{60}Co 、 ^{182}Ta 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs および ^{144}Ce であった。さらに、これらの核種の黒鉛スリーブ中の濃度プロファイルから、 ^{182}Ta 、 ^{90}Sr および ^{144}Ce はTa材および燃料コンパクトとの接触面から、 ^{90}Sr および ^{137}Cs は気相中を通して、黒鉛スリーブ中に移動することがわかった。 ^{60}Co は不純物として、もともと黒鉛材中に存在していたものと考えられる。

Concentration Profile of Radioactive Nuclide in Graphite Sleeve of
Reduced Size Fuel Rod for HTGR

Teruo KIKUCHI, Kazumi IWAMOTO and Katsuichi IKAWA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received June 19, 1980)

Concentration profile of radioactive nuclides in a graphite sleeve of the reduced size fuel rod for HTGR was determined in the axial, radial and circumferential directions. Two fuel rods were irradiated in VP-2 and VP-4 capsules in VT-1 hole of JRR-2 for 290 hr at 1380 and 1495 °C, respectively, allowed to be cooled for 4.0 and 3.5 years. Nuclides ^{60}Co , ^{182}Ta , ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{144}Ce were detected in these graphite sleeves. From the concentration profile of these nuclides, it was confirmed that ^{182}Ta , ^{90}Sr and ^{144}Ce were transported through contacted area between the sleeve and tantalum tube, and between the sleeve and fuel compacts, and that ^{90}Sr and ^{137}Cs were transported through gas gap between the fuel compacts and the graphite sleeve. The ^{60}Co is considered to be the activation product of an impurity originally contained in the graphite sleeve.

Key word: HTGR, Fuel Rod, Fuel Compact, Coated Particle, Post Irradiation Examination, Fission Product, Graphite Sleeve

目 次

1. はじめに.....	1
2. 実験方法.....	1
3. 結果および考察	2
4. まとめ	7
参考文献.....	8

Contents

1. Introduction.....	1
2. Experiment discription.....	1
3. Results and discussion.....	2
4. Conclusion.....	7
References.....	8

1. はじめに

高温ガス炉用燃料からのFP放出の研究は、ループやガススリーブキャプセルを利用し、また、照射済燃料の炉外加熱により、その放出速度や移動特性が調べられている。これらの研究においては、ガス状FPにくらべて固体状FPの報告が少ないが、これは固体状FPの場合、低温の壁面に沈着し、放出した固体状FPを、定量的に採取することが困難なためである。高温ガス炉燃料の安全性の評価にはガス状FPの放出挙動のデータだけでなく、固体状FPのデータも必要であり、特に ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce などの半減期の長い、黒鉛材中を移動しやすい核種のデータの充実が望まれている。

すでに、多目的高温ガス炉用燃料コンパクトの照射挙動に関する知見を得る目的で、燃料コンパクトの照射をJRR-2、VT-1孔で行なった。(そのキャプセルの照射時の温度の解析はすでに報告したが¹⁾照射後試験結果については現在報告書を作成中である²⁾。)これらのキャプセルにおいて、燃料コンパクトは黒鉛スリーブ中に挿入されているため、照射中燃料コンパクトから放出されたFPは、黒鉛スリーブ中を経由して、外部に放出される。従って、これらの黒鉛スリーブ内の固体状FPの分布を調べることは、燃料からのそれらの放出を推定するうえで、貴重な知見を与えるものと思われる。

本報は、VP-2およびVP-4キャプセルに封入した黒鉛スリーブを、外周から0.5mmずつ旋盤によりけずりとることにより、半径方向の固体状FPの分布を求め、つぎに円板状の残材中の放射能を測定して軸方向のFPの分布を求め、さらにこの円板のオートラジオグラムから円周方向のFP分布を求めた結果をまとめたものである。

2. 実験方法

FPの分布を調べた黒鉛スリーブは、VP-2およびVP-4キャプセルにおいて、燃料コンパクトを保持していたものである。キャプセルの構造は、Fig. 1に示す通り、中心から順に燃料コンパクト(外径10.5, 内径2.0, 長さ15mm)、黒鉛スリーブ、タンタル管、アルミ熱媒体およびフィンがアルミ外筒から構成されている。ここで、Ta管とAl外筒は、溶接により封じ、FPのキャプセル外への洩れを防いでいる。燃料コンパクトの中心および黒鉛スリーブ中には、照射温度の測定のため、タンタルシース、タングステン-レニウム熱電対が、それぞれ一対ずつ挿入されており、アルミ熱媒体中には軸方向の温度分布を測定するために、キャプセルの中心と中心からそれぞれ上下30mmのところ、SUSシース、クロメル-アルメル熱電対が1対ずつ、アルミ熱媒体の内側面近くと外側面近くに計6対装荷されている。

燃料コンパクトは、被覆粒子を黒鉛-炭素マトリックス中に分散したもので、被覆粒子の充填率は22 vol%であり、コンパクト中の被覆粒子破損率は 5×10^{-3} 以下である。燃料コンパクトに充填した被覆粒子は、直径460 μm の球状 UO_2 核に、低密度パイロカーボン、

1. はじめに

高温ガス炉用燃料からのFP放出の研究は、ループやガススリーブキャプセルを利用し、また、照射済燃料の炉外加熱により、その放出速度や移動特性が調べられている。これらの研究においては、ガス状FPにくらべて固体状FPの報告が少ないが、これは固体状FPの場合、低温の壁面に沈着し、放出した固体状FPを、定量的に採取することが困難なためである。高温ガス炉燃料の安全性の評価にはガス状FPの放出挙動のデータだけでなく、固体状FPのデータも必要であり、特に ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce などの半減期の長い、黒鉛材中を移動しやすい核種のデータの充実が望まれている。

すでに、多目的高温ガス炉用燃料コンパクトの照射挙動に関する知見を得る目的で、燃料コンパクトの照射をJR R-2、VT-1孔で行なった。(そのキャプセルの照射時の温度の解析はすでに報告したが¹⁾照射後試験結果については現在報告書を作成中である²⁾。)これらのキャプセルにおいて、燃料コンパクトは黒鉛スリーブ中に挿入されているため、照射中燃料コンパクトから放出されたFPは、黒鉛スリーブ中を経由して、外部に放出される。従って、これらの黒鉛スリーブ内の固体状FPの分布を調べることは、燃料からのそれらの放出を推定するうえで、貴重な知見を与えるものと思われる。

本報は、VP-2およびVP-4キャプセルに封入した黒鉛スリーブを、外周から0.5mmづつ旋盤によりけずりとることにより、半径方向の固体状FPの分布を求め、つぎに円板状の残材中の放射能を測定して軸方向のFPの分布を求め、さらにこの円板のオートラジオグラムから円周方向のFP分布を求めた結果をまとめたものである。

2. 実験方法

FPの分布を調べた黒鉛スリーブは、VP-2およびVP-4キャプセルにおいて、燃料コンパクトを保持していたものである。キャプセルの構造は、Fig. 1に示す通り、中心から順に燃料コンパクト(外径10.5, 内径2.0, 長さ15mm)、黒鉛スリーブ、タンタル管、アルミ熱媒体およびフィン(アルミ外筒から構成されている。ここで、Ta管とAl外筒は、溶接により封じ、FPのキャプセル外への洩れを防いでいる。燃料コンパクトの中心および黒鉛スリーブ中には、照射温度の測定のため、タンタルシース、タングステン-レニウム熱電対が、それぞれ一対づつ挿入されており、アルミ熱媒体中には軸方向の温度分布を測定するために、キャプセルの中心と中心からそれぞれ上下30mmのところ、SUSシース、クロメル-アルメル熱電対が1対づつ、アルミ熱媒体の内側面近くと外側面近くに計6対装荷されている。

燃料コンパクトは、被覆粒子を黒鉛-炭素マトリックス中に分散したもので、被覆粒子の充填率は22 vol%であり、コンパクト中の被覆粒子破損率は 5×10^{-3} 以下である。燃料コンパクトに充填した被覆粒子は、直径460 μm の球状 UO_2 核に、低密度ピロカーボン、

高密度パイロカーボン、SiCおよび高密度パイロカーボンを、この順序で四重にコーティングしたもので、被覆粒子の外径は740 μm である。燃料核 UO_2 のウラン濃縮度は20%である。なお、VP-2キャプセルには燃料コンパクト7個を、VP-4キャプセルには5個を封入した。

VP-2およびVP-4キャプセルは、JRR-2の炉心中心にある垂直実験孔、VT-1孔において、それぞれ10日間および12日間照射した。VP-2キャプセルの中心の燃料コンパクトの照射サイクル中の最高温度は、1380°C、VP-4キャプセルの中心の燃料コンパクトのそれは、1495°Cであった。なお、高速中性子照射量 ($> 0.18 \text{ MeV}$) は、VP-2で $2.6 \times 10^{19} \text{ nvt}$ である。これらのキャプセルは、照射終了後3か月程度のクーリングを行なったあと、キャプセルを解体し、照射後試験を行なった。黒鉛スリーブについては、更に3.5~4.0年程度のクーリングを行なったあと、実験を供した。

黒鉛スリーブは、Fig. 2に示す位置を、巾2mm、直径方向12、厚さ0.5mmづつを、旋盤によりセクショニングした。各セクションの黒鉛粉はあつめて、NaIシンチレーション検出器によりこれに含まれる放射性核種の量を測定した。VP-4キャプセルのセクショニング試料に対しては、 ^{182}Ta の放射能が、 ^{137}Cs および ^{60}Co のそれにくらべて極端に強いために、 ^{137}Cs および ^{60}Co の測定は行なわなかった。さらに、これらのセクショニング試料の一部は、硝酸一重クロム酸混液に溶解し、この溶液から ^{90}Sr を分離し、GMカウンターによりその量を測定した。なお、Fig. 2は、VP-2キャプセルの黒鉛スリーブのサンプリング位置を示したものであるが、VP-4キャプセルの黒鉛スリーブの場合も、これに準じて行なった。旋盤によりセクショニングしたあとの残材(厚さ1~2mm程度の中空円板)については、Ge-Li検出器による放射能の測定と、オートラジオグラフィによる円板内の放射能の分布を調べた。

Ge-Li検出器による放射性核種の定量は、 ^{137}Cs については0.663 MeV、 ^{60}Co については1.332 MeV、 ^{144}Ce については0.696 MeV、 ^{182}Ta については、0.264 MeVのフォトピークについて行なった。なお、放射性核種相互の標準化は行っていない。

オートラジオグラム乾板は、富士写真フィルム製原子核乾板、ET-2F、乳剤厚15 μm を用いた。なお、オートラジオグラムは、キャプセルの照射終了後、4.5年ないし5.0年経過したあと撮影したものである。なお、オートラジオグラムの露出時間は、約10日である。

3. 結果および考察

Fig. 3およびFig. 4は、VP-2およびVP-4キャプセルの黒鉛スリーブから切り出した円板試料中に含まれる放射性核種を、Ge-Li検出器により測定し、それを中心からの距離に対してプロットした結果である。これらの図の下側に、燃料コンパクトの封入位置を示す。これらの円板試料から検出された放射性核種は、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{182}Ta および ^{60}Co で、 ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30 \text{ y}$) および ^{144}Ce ($T_{1/2} = 285 \text{ d}$) は、燃料コンパクトから放出されたものであり、 ^{182}Ta ($T_{1/2} = 115 \text{ d}$) は、試料筒などのキャプセル材および熱電対のシース材から移動したものである。 ^{60}Co ($T_{1/2} = 5.27 \text{ y}$) については後述する。

高密度パイロカーボン, SiCおよび高密度パイロカーボンを, この順序で四重にコーティングしたもので, 被覆粒子の外径は740 μm である。燃料核 UO_2 のウラン濃縮度は20%である。なお, VP-2キャプセルには燃料コンパクト7個を, VP-4キャプセルには5個を封入した。

VP-2およびVP-4キャプセルは, JRR-2の炉心中心にある垂直実験孔, VT-1孔において, それぞれ10日間および12日間照射した。VP-2キャプセルの中心の燃料コンパクトの照射サイクル中の最高温度は, 1380°C, VP-4キャプセルの中心の燃料コンパクトのそれは, 1495°Cであった。なお, 高速中性子照射量 ($> 0.18 \text{ MeV}$) は, VP-2で $2.6 \times 10^{19} \text{ nvt}$ である。これらのキャプセルは, 照射終了後3か月程度のクーリングを行なったあと, キャプセルを解体し, 照射後試験を行なった。黒鉛スリーブについては, 更に3.5~4.0年程度のクーリングを行なったあと, 実験を供した。

黒鉛スリーブは, Fig. 2に示す位置を, 巾2mm, 直径方向12, 厚さ0.5mmづつを, 旋盤によりセクショニングした。各セクションの黒鉛粉はあつめて, NaIシンチレーション検出器によりこれに含まれる放射性核種の量を測定した。VP-4キャプセルのセクショニング試料に対しては, ^{182}Ta の放射能が, ^{137}Cs および ^{60}Co のそれにくらべて極端に強いために, ^{137}Cs および ^{60}Co の測定は行なわなかった。さらに, これらのセクショニング試料の一部は, 硝酸一重クロム酸混液に溶解し, この溶液から ^{90}Sr を分離し, GMカウンターによりその量を測定した。なお, Fig. 2は, VP-2キャプセルの黒鉛スリーブのサンプリング位置を示したものであるが, VP-4キャプセルの黒鉛スリーブの場合も, これに準じて行なった。旋盤によりセクショニングしたあとの残材(厚さ1~2mm程度の中空円板)については, Ge-Li検出器による放射能の測定と, オートラジオグラフィによる円板内の放射能の分布を調べた。

Ge-Li検出器による放射性核種の定量は, ^{137}Cs については0.663 MeV, ^{60}Co については1.332 MeV, ^{144}Ce については0.696 MeV, ^{182}Ta については, 0.264 MeVのフォトピークについて行なった。なお, 放射性核種相互の標準化は行なっていない。

オートラジオグラム乾板は, 富士写真フィルム製原子核乾板, ET-2F, 乳剤厚15 μm を用いた。なお, オートラジオグラムは, キャプセルの照射終了後, 4.5年ないし5.0年経過したあと撮影したものである。なお, オートラジオグラムの露出時間は, 約10日である。

3. 結果および考察

Fig. 3およびFig. 4は, VP-2およびVP-4キャプセルの黒鉛スリーブから切り出した円板試料中に含まれる放射性核種を, Ge-Li検出器により測定し, それを中心からの距離に対してプロットした結果である。これらの図の下側に, 燃料コンパクトの封入位置を示す。これらの円板試料から検出された放射性核種は, ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{182}Ta および ^{60}Co を示す。これらの円板試料から検出された放射性核種は, ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30 \text{ y}$) および ^{144}Ce ($T_{1/2} = 285 \text{ d}$) は, 燃料コンパクトから放出されたものであり, ^{182}Ta ($T_{1/2} = 115 \text{ d}$) は, 試料筒などのキャプセル材および熱電対のシース材から移動したものである。 ^{60}Co ($T_{1/2} = 5.27 \text{ y}$) については後述する。

次に核種毎の軸方向の分布を調べてみると、VP-2キャプセルの下側の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs は、キャプセルの中心から3 cmの間では濃度が小さく、下端に近づくに従って急激に濃度が増加している。上側の黒鉛スリーブ中では、濃度のバラツキはあるが、上端に向かって濃度が漸減したあと、再び増加に転ずる。VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs は、上下スリーブとも燃料コンパクトの充填されている領域ではフラットな分布を示すが、上側の黒鉛スリーブ中のCsの濃度は、下側のそれにくらべて約2.5倍大きい。また、下側のスリーブでは燃料コンパクトの充填領域をはずれると、約半分程度に減少するが、上側のスリーブでは、燃料コンパクトの充填領域をはずれたところで一たん減少し、その後再び同じレベルまで回復している。VP-2キャプセルとVP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の濃度分布に関して、上側のスリーブではその濃度プロファイルが比較的似ているのに対し、下側のスリーブでは濃度プロファイルの類似性は全くみられない。また、両キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の量は、VP-2キャプセルの方がはるかに多い。

^{144}Ce は、VP-2キャプセルの黒鉛スリーブ中では連続分布はみられず、上下スリーブとも中心から2 cm附近にのみ検出されただけであるのに対し、VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中では、かなり広い範囲に分布しており、上下の黒鉛スリーブともキャプセルの中心に対して全くの対称形ではないが、キャプセルの中心附近で濃度が最も高く、これから離れるに従って濃度が減少している。下側のスリーブにおいては、燃料コンパクト2.5個相当の距離内に分布しているのに対し、上部スリーブにおいては、燃料コンパクト3.5個相当の距離内に分布している。黒鉛スリーブ内で検出された ^{144}Ce の量を、両キャプセルについて比較すると、VP-4キャプセルの方が多い。

^{182}Ta のVP-2キャプセル中の分布は、キャプセル中心から4.5 cmの間では上下黒鉛スリーブともあまり濃度の変動はみられないが、これからはずれると急激に濃度が増加している。また、上側の黒鉛スリーブにおいて濃度分布のフラットな部分の濃度レベルは、下側のスリーブのそれにくらべて約2.5倍大きい。VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{182}Ta の分布も、VP-2キャプセルとよく似た濃度分布を示し、上下両端部で濃度が大きくなっているが、下側のスリーブにおいてフラットな濃度の部分は、VP-2キャプセルの黒鉛スリーブにくらべてわずかしみられない。このフラットな部分の濃度を上下黒鉛スリーブについて比較すると、上側のスリーブでは下側のスリーブよりも約2倍大きい。

^{60}Co については、VP-2キャプセルの黒鉛スリーブ中では、上下両側ともキャプセルの中心で濃度が最も大きく、両端に向かって濃度が減少するが、下側の黒鉛スリーブでは、再び濃度が増加し、中心附近のレベルまで回復したあと、以後この濃度を保っている。上側のスリーブでは減少したあと、フラットな濃度分布をとる。VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中では、上下ともキャプセルの中心部で最も低く、両端部に向かってゆるやかに増加しているが、上端部のみ他の位置にくらべて高いレベルにある。黒鉛スリーブ中の ^{60}Co の分布のプロファイルに関して、VP-2とVP-4キャプセルとは全く共通性がなく、また、 ^{60}Co の濃度に関しては、VP-2キャプセルの方がわずかに高いレベルにある。

Fig. 5, 6, 7, 8は、VP-2およびVP-4キャプセルの黒鉛スリーブを、Fig. 2に矢印で示した位置で、旋盤によりセクショニング(巾2 mm, 半径方向厚さ0.5 mm)した際の切削黒鉛粉中に含まれる ^{137}Cs , ^{182}Ta および ^{60}Co を、NaIシンチレーション検出器に

より測定した結果を、キャプセルの中心からの距離に対してプロットしたもので、これらの図の右端に示してあるA, B, C……, Iは、切削位置に示したもので、Aは外表面から0.5 mmまでを、Bは0.5から1.0 mmまでを、Cは1.0 mmから1.5 mmまでを切削したことを示している。(以下同様)

このようにセクションした場合のVP-2キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の各層ごとの分布を、Fig. 5に示す。各層とも黒鉛スリーブの下端に近づくに従って ^{137}Cs の濃度が増加しており、下端の ^{137}Cs の濃度はキャプセル中心附近に比較し、一桁以上大きくなっている。一方、上側の黒鉛スリーブでは、各層とも上端に向ってゆるやかな減少を示している。また、最外層から最内層に至るまで、各層の濃度プロファイルはそれぞれよく似ている。しかし、燃料コンパクトと接触している内側面および上下両スリーブの接触面においては、 ^{137}Cs の濃度の変動が大きい。また、黒鉛スリーブの表面部と内部とでは、表面部の方が大きく、内部では小さい舟底型の分布を示している。

VP-2キャプセルの黒鉛スリーブの各セクション毎の ^{182}Ta の分布を、Fig. 6に示す。 ^{182}Ta も ^{137}Cs 同様、黒鉛スリーブの内側面や外側面および上下両スリーブの接触面において濃度が高い。いわゆる舟底型の分布を示していることがわかる。また、軸方向に関して、黒鉛スリーブの最外セクションおよび最内セクションにおいては、 ^{182}Ta の濃度の変動がはげしいが、内部ではフラットである。また、上側の黒鉛スリーブの各セクションにおいて、 ^{182}Ta の濃度変動が大きいのは、Ta製熱電対シースが挿入されるためと推定される。Fig. 6の結果から、先にFig. 3の下側の黒鉛スリーブの下端でみられた ^{182}Ta の濃度の増大は、黒鉛スリーブの内側面近傍の濃度の影響であることがわかる。VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ内の ^{182}Ta の分布を、Fig. 7に示す。VP-4キャプセルにおいても、VP-2キャプセル同様、スリーブ表面で ^{182}Ta の濃度が大きく、内部では小さい舟底型の分布を示している。また、上側および下側の黒鉛スリーブの各セクション毎の ^{182}Ta の分布は、各々似たプロファイルを示しており、上側の黒鉛スリーブでは、フラットな分布を示しているのに対し、下側の黒鉛スリーブでは急激な濃度低下を示したあと、再び増加している。

VP-2キャプセルの黒鉛スリーブ内の ^{60}Co の分布を、Fig. 8に示す。黒鉛スリーブの最外セクションおよび最内セクションにおいて、 ^{60}Co の濃度が部分的に異常に大きいのが、内部ではほぼフラットな分布を示している。試料筒内には、Ta, インコネルおよび Al_2O_3 しか封入されていないから、黒鉛スリーブの内外側面上の ^{60}Co は、ホットラボでの解体作業におけるクロスコンタミによるものと考えられ、スリーブ内部の ^{60}Co は、もともとスリーブ中に存在していた不純物によるものと推定される。また、Fig. 3にみられる ^{60}Co の濃度プロファイルは、外側面および内側面上に分布している ^{60}Co に、支配されていることがわかる。

VP-4キャプセルの黒鉛スリーブのセクション試料中の ^{144}Ce については、一部の試料をGe-Li検出器により測定した結果、この核種は内外両側面から、一番目と二番目のセクションにのみ検出され、これにより内部では全く検出されなかった。 ^{137}Cs については、両側面近傍において、大きな濃度勾配が存在しているものの、スリーブ内部においても検出され、その分布は舟底型の分布であった。

Fig. 9~Fig. 13 に黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムを示す。このうち、Fig. 9 は、VP-2 キャプセルの中心から下に約 0.5 cm における黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムであり、Fig. 10 は同じく中心から約 1.0 cm における黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムである。両者に共通してみられるのは、黒鉛スリーブの断面におけるきわめて強烈な感光と、外周上のスポット状の感光である。そして、このように強く感光する円板試料は、キャプセルの中心から両側に、それぞれ約 2.5 cm 以内のところから採取したものである。これらの円板試料のとなりから採取した黒鉛粉末を、硝酸一重クロム酸に溶解し、核種単離を行なった結果、この感光は ^{90}Sr によるものであることがわかった。Fig. 10 では黒鉛スリーブの内側面近傍の一部にのみ強烈な感光がみられるのに対し、Fig. 9 では感光の程度は弱いものの、黒鉛スリーブの内表面近傍の全周にわたって ^{90}Sr による感光がみられる。これらのオートラジオグラムの観察から、 ^{90}Sr は燃料コンパクトとの接触点およびコンパクト-スリーブ間のガスギャップを通して、黒鉛スリーブ中へ移動したものと推定される。また、Fig. 9 および Fig. 10 の断面の外周上にみられるスポット状の感光は、 ^{137}Cs によるものであることが、この部分をエメリーペーパーによりけずりとり、Ge(Li)検出器により測定した結果からわかった。

Fig. 11 は、VP-2 キャプセルの中心から下に約 5.0 cm における黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムである。この感光は、先に示した FP 分布の測定結果から推定し、 ^{137}Cs によるものと推定される。外側面上には ^{137}Cs が多く分布しており、また、黒鉛のマトリックス内においては、スポット状に ^{137}Cs が分布しているのが観察される。一方、VP-2 キャプセルの上側の黒鉛スリーブの Fig. 11 と対応する位置には、これと同じような ^{137}Cs の分布はみとめられなかった。

一方、VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブ中には、Fig. 9 や Fig. 10 のような ^{90}Sr の分布および Fig. 11 のような ^{137}Cs の分布はみられなかった。VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムの 1 例を、Fig. 12 および Fig. 13 に示す。これと類似のオートラジオグラムは、感光の程度に強弱があり、VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブ全域および VP-2 キャプセルの前出の領域以外のところで観察されている。Fig. 11 は、VP-4 キャプセルの中心から上に 1.5 cm の位置におけるオートラジオグラムで、外側面および熱電対孔側面上が感光している。外側面上の感光は ^{137}Cs および ^{182}Ta によるものであるが、熱電対孔内のそれは、 ^{182}Ta によると推定される。Fig. 13 は、キャプセルの中心から約 4.5 cm における黒鉛スリーブ断面のオートラジオグラムで、外側面上に強い感光がみられるが、これは ^{182}Ta によるものである。

以上、VP-2 および VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{90}Sr 、 ^{182}Ta 、 ^{60}Co の分布について調べたが、両キャプセルとも同じような条件で照射したにもかかわらず、黒鉛スリーブ中のこれらの核種の分布は、必ずしも同じではない。 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{90}Sr の三核種は、燃料コンパクトから放出されたものである。 ^{90}Sr は VP-2 キャプセルでは中心から両側にそれぞれ 2.5 cm の範囲に連続的に分布していたのに対し、VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブからは全く検出されない。 ^{137}Cs は、VP-2 キャプセルでは、下側の黒鉛スリーブの下端附近で急激に濃度が大きくなっており、VP-4 キャプセルの黒鉛スリーブ中では、 ^{137}Cs の分布位置と燃料コンパクトの充填領域とはほぼ一致している。 ^{144}Ce は、

VP-2キャプセル中では、中心から約2.0 cmの位置にのみ検出されたのに対し、VP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中では、広い範囲にわたって連続的に分布していた。

燃料コンパクトからのFP放出に影響をおよぼす因子として、照射温度、被覆粒子のコーティングの健全性、燃料コンパクトのマトリックスのウラン汚染が考えられる。黒鉛スリーブ中のFPの分布に影響をおよぼす因子としては、黒鉛スリーブの温度および温度分布が考えられる。VP-2キャプセル中心の燃料コンパクトの照射中の最高温度は1380°C、最低温度は1360°C、黒鉛スリーブ内の最高温度は1185°C、最低温度は1170°Cである。一方、燃料コンパクトのスタックの両端付近の温度は、アルミ熱媒体中の温度から推定し、燃料コンパクトの中心の温度にくらべて約10°C程度低いものと推定される。VP-4キャプセル中心の燃料コンパクトの照射中の最高温度は1495°C、最低温度は1380°C、同じく黒鉛スリーブの最高温度は1287°C、最低温度は1187°Cである。また、燃料コンパクトのスタックの両端附近では、VP-2キャプセルの場合と同程度の温度降下が予想される。VP-4キャプセルで、1495°Cを維持した期間は約2日で、その後3日間で1380°Cまでさがり、以後この温度を照射終了まで保っていた。また、照射期間は、VP-2キャプセルが約10日であるのに対し、VP-4キャプセルは12日である。FP放出量は、照射温度および照射期間に対応するから、VP-4キャプセルの方が多くなければならない。しかし、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の放出量は、VP-2キャプセルの方が多い。照射後試験による粒子破損率の測定結果は、VP-2キャプセルで 10^{-4} のオーダー、VP-4キャプセルで 10^{-5} あるいはこれ以下のオーダーで²⁾前者と後者では粒子破損率は、約1けた以上の差がみられる。放出FPに対する標準化は行なっていないので、これをそのままVP-2キャプセルからの放出量の多い理由にするには若干問題があるが、原因の1つに数えてもよいであろう。

円板中の放射性核種の測定は、VP-2キャプセルで照射終了後4.0年、VP-4キャプセルで3.5年後に行ったので、 ^{140}Ba ($T_{1/2} = 12.8 \text{ d}$) や ^{95}Zr ($T_{1/2} = 6.4 \text{ d}$) は消滅しており、燃料コンパクトから放出されていたかどうか判定できないが、 ^{106}Ru は半減期が366 dと長いことから、放出されていれば検出されるはずであるが、全く検出することができなかった。Bromleyら³⁾の照射試験では、黒鉛スリーブから検出された核種は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{140}Ba 、 ^{131}I 、 ^{125}Sb 、 ^{95}Zr 、 ^{106}Ru および $^{129\text{m}}\text{Te}$ で、 ^{106}Ru の放出量は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{140}Ba 、 ^{144}Ce の放出量にくらべて小さいけれども確認されている。筆者らの実験において ^{106}Ru の放出のみられなかった理由として、試料のちがいでBromleyらは、ウランを直接黒鉛粉のなかに分散させている—によるものと推定される。UO₂の照射では、Mo-Tc-Ru-Rhのような合金相が形成されるために高融点FPの放出が抑制される⁴⁾。

アルカリ土類や希土類の場合、その酸化物の自由エネルギーは、UO₂のそれとほぼ同じレベルかあるいはそれより小さいから⁵⁾、これらのFPはUO₂内では安定に存在することができる。一方、アルカリやRuの酸化物の自由エネルギーは、UO₂のそれよりはるかに上にあるため、還元されやすく不安定で、放出率もSrやCeにくらべて桁程度大きい⁶⁾。しかし、被覆粒子燃料のように、UO₂と炭素とが共存すると事情が変わるようで、SrやCeの放出がCsなみに多くなることを本実験は示している。

Taは3000°C以上の融点を有する高融点金属であるにもかかわらず、黒鉛スリーブ中

への移動量がきわめて多い。前述した通り、 ^{182}Ta は黒鉛スリーブの内外両側面およびTa材との接触面において濃度が高い。VP-2キャプセルの下側の黒鉛スリーブの内側面近傍において、下端から中心に向って存在する濃度勾配は、燃料コンパクトのスタックの下端に配置されているTa板から、拡散により移動した結果生じたものと推定される。VP-4キャプセルの下側の黒鉛スリーブの場合は、黒鉛スリーブをとりまくTa管から拡散により移動したものと推定される。更に、両キャプセルの上側の黒鉛スリーブでは、熱電対シースからのTaの移動がある。

黒鉛スリーブの内外両側面は、Taと直接接触していないにもかかわらず、Taの濃度が異常に大きい。これは拡散による移動とは考えにくい。この移動に対しては、ガス相中の移動、すなわちTaの揮発、沈着が考えられるが、TaにはMoのように揮発しやすい酸化物はないが、Taのハロゲン化物は揮発性である⁷⁾。キャプセル内の不純物に対するデータは全くないから、これがどうして起ったか現時点では不明である。

VP-2キャプセルの下側の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の分布をみると、 ^{137}Cs は拡散源(この場合拡散源は燃料コンパクト)から遠ざかるに従って、その濃度が高くなっている。一般に、Fickの法則に従う場合には、拡散源から遠ざかるに従って拡散質の濃度も小さくなるが、このケースはこの逆になっている。これはCsの化学ポテンシャルが、高温の黒鉛内にとどまるよりも、低温の黒鉛内にとどまった方が安定であることを示している。また、黒鉛スリーブの外側面上にみられるスポット状の ^{137}Cs については、ホットラボでの解体作業に際してのクロスコンタミとも考えられるが、Csがきわめて揮発しやすい金属であることから、ガス層から黒鉛スリーブ表面にデポジットしたものと考えた方がよさそうである。

4. ま と め

VP-2およびVP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中の放射性核種の分布を、種々の方法により調べた。その結果、次のことがわかった。

1. キャプセル材料であるタンタルは、高融点金属であるにもかかわらず、黒鉛スリーブ中への移動量はかなり多い。タンタルの化合物は、ハロゲン化物を除いて低沸点の化合物は存在しないから、黒鉛スリーブ中への移動は、タンタルと黒鉛との接触により拡散支配によるものと考えられる。
2. 燃料コンパクトから黒鉛スリーブへの ^{90}Sr の移動は、主として両者の接触点を通して起る。
3. 黒鉛スリーブの内外側面上の ^{137}Cs の分布は、スポット状に呈しており、これはガス層からデポジットした結果であると推定される。
4. ^{182}Ta および ^{137}Cs は、黒鉛スリーブの内外側面において濃度が高く、内部では低い舟底型の分布を呈していた。

への移動量がきわめて多い。前述した通り、 ^{182}Ta は黒鉛スリーブの内外両側面およびTa材との接触面において濃度が高い。VP-2キャプセルの下側の黒鉛スリーブの内側面近傍において、下端から中心に向って存在する濃度勾配は、燃料コンパクトのスタックの下端に配置されているTa板から、拡散により移動した結果生じたものと推定される。VP-4キャプセルの下側の黒鉛スリーブの場合は、黒鉛スリーブをとりまくTa管から拡散により移動したものと推定される。更に、両キャプセルの上側の黒鉛スリーブでは、熱電対シースからのTaの移動がある。

黒鉛スリーブの内外両側面は、Taと直接接触していないにもかかわらず、Taの濃度が異常に大きい。これは拡散による移動とは考えにくい。この移動に対しては、ガス相中の移動、すなわちTaの揮発、沈着が考えられるが、TaにはMoのように揮発しやすい酸化物はないが、Taのハロゲン化物は揮発性である⁷⁾。キャプセル内の不純物に対するデータは全くないから、これがどうして起ったか現時点では不明である。

VP-2キャプセルの下側の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の分布をみると、 ^{137}Cs は拡散源(この場合拡散源は燃料コンパクト)から遠ざかるに従って、その濃度が高くなっている。一般に、Fickの法則に従う場合には、拡散源から遠ざかるに従って拡散質の濃度も小さくなるが、このケースはこの逆になっている。これはCsの化学ポテンシャルが、高温の黒鉛内にとどまるよりも、低温の黒鉛内にとどまった方が安定であることを示している。また、黒鉛スリーブの外側面上にみられるスポット状の ^{137}Cs については、ホットラボでの解体作業に際してのクロスコンタミとも考えられるが、Csがきわめて揮発しやすい金属であることから、ガス層から黒鉛スリーブ表面にデポジットしたものと考えた方がよさそうである。

4. ま と め

VP-2およびVP-4キャプセルの黒鉛スリーブ中の放射性核種の分布を、種々の方法により調べた。その結果、次のことがわかった。

1. キャプセル材料であるタンタルは、高融点金属であるにもかかわらず、黒鉛スリーブ中への移動量はかなり多い。タンタルの化合物は、ハロゲン化物を除いて低沸点の化合物は存在しないから、黒鉛スリーブ中への移動は、タンタルと黒鉛との接触により拡散支配によるものと考えられる。
2. 燃料コンパクトから黒鉛スリーブへの ^{90}Sr の移動は、主として両者の接触点を通して起る。
3. 黒鉛スリーブの内外側面上の ^{137}Cs の分布は、スポット状に呈しており、これはガス層からデポジットした結果であると推定される。
4. ^{182}Ta および ^{137}Cs は、黒鉛スリーブの内外側面において濃度が高く、内部では低い舟底型の分布を呈していた。

Reference

- 1) KIKUTI, T., KIKUTI, A., TOBITA, T., KASHIMURA, S., MIYASAKA, Y., IWAMOTO, K.,
JAERI-M 6913(1977)
- 2) TOBITA, T., KIKUTI, T., to be published
- 3) Bromley, J., Large, N.R., Proceedings of the 5th conference on carbon,
365 (1961)
- 4) Jeffery, B.M., J.Nucl.Mater., 22, 335 (1967)
- 5) O'Boyle, D.R., et al., J.Nucl.Mater., 29, 27 (1969)
- 6) Parker, G.W., Barton, C.J., Creek, G.E., Martin, W.J., Lorenz, R.A., ORNL-3981
(1967)
- 7) Bailar, J.C., Emeleus, H.J., Nyholm, R., Trotman-Dickenson,
A.F., Comprehensive Inorganic Chemistry, Pergamon Press,
(1973)

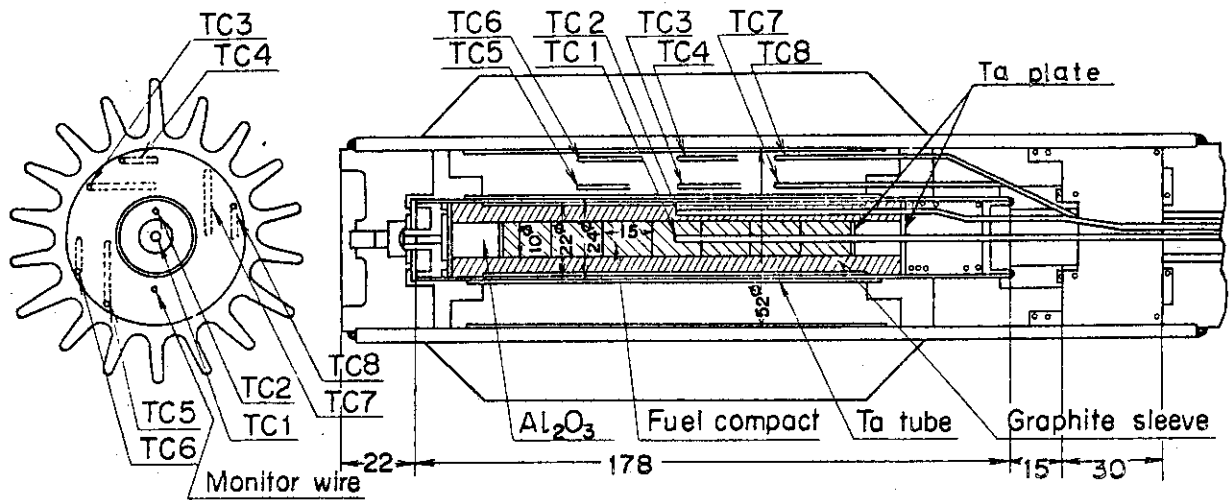


Fig. 1 Schematic representation of VP-2 capsule

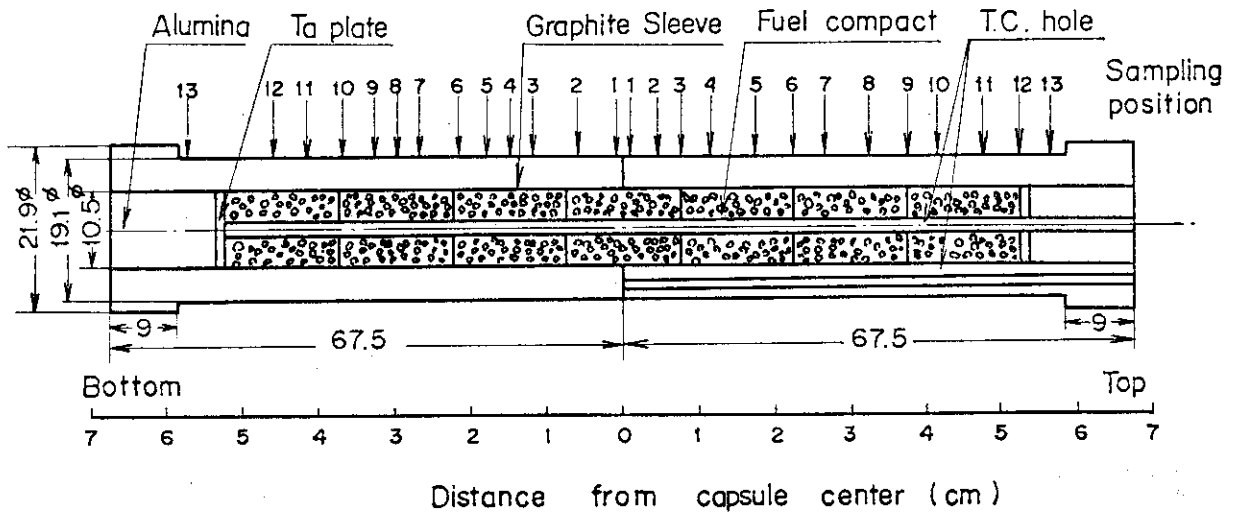


Fig. 2 Sampling schedule of graphite sleeve in VP-2 capsule

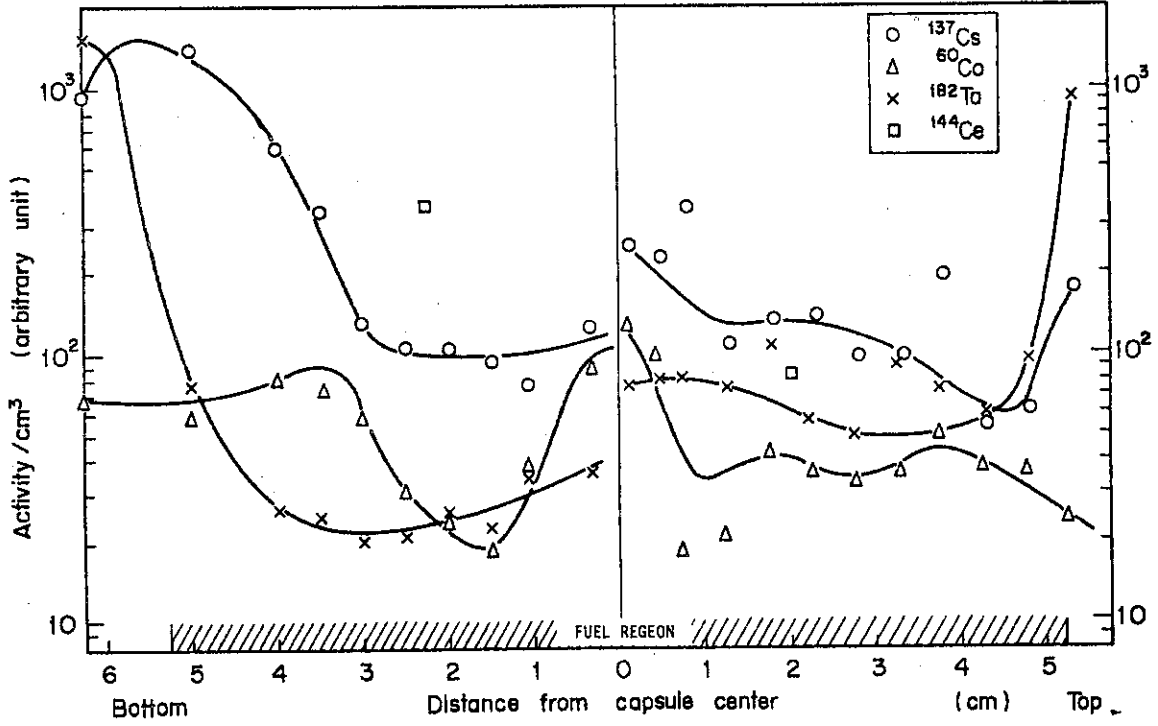


Fig. 3 Gross axial distribution of radioactive nuclide in graphite sleeve in VP-2 capsule

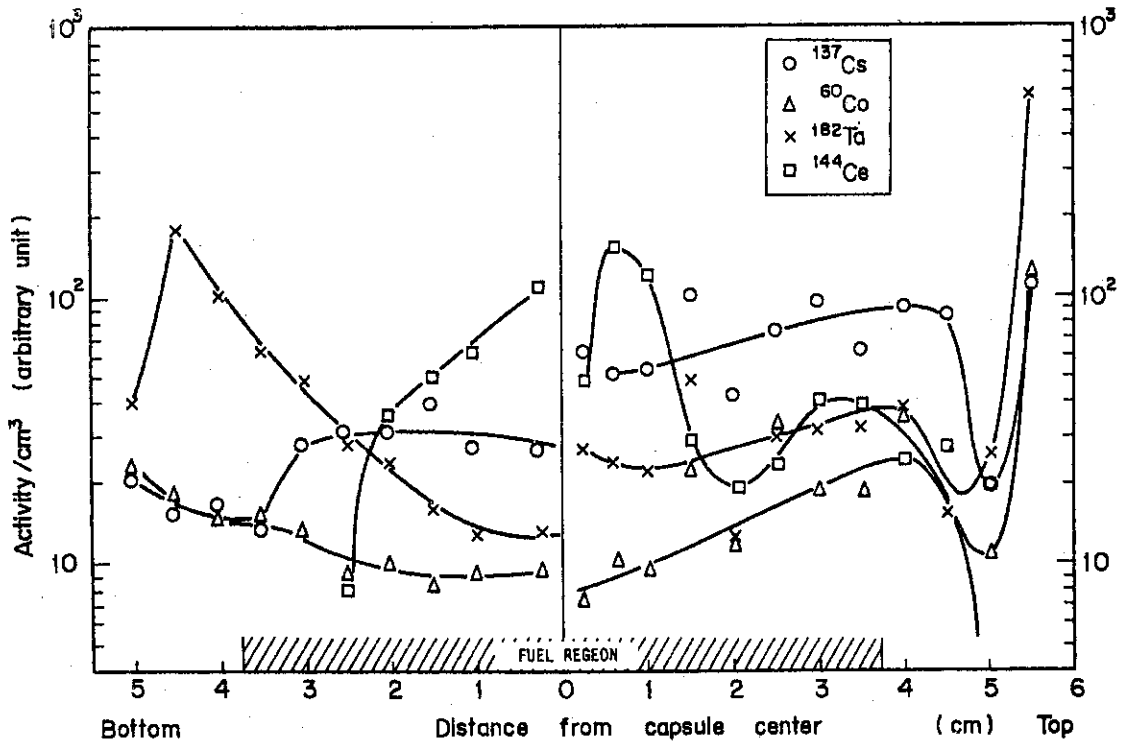


Fig. 4 Gross axial distribution of radioactive nuclide in graphite sleeve in VP-4 capsule

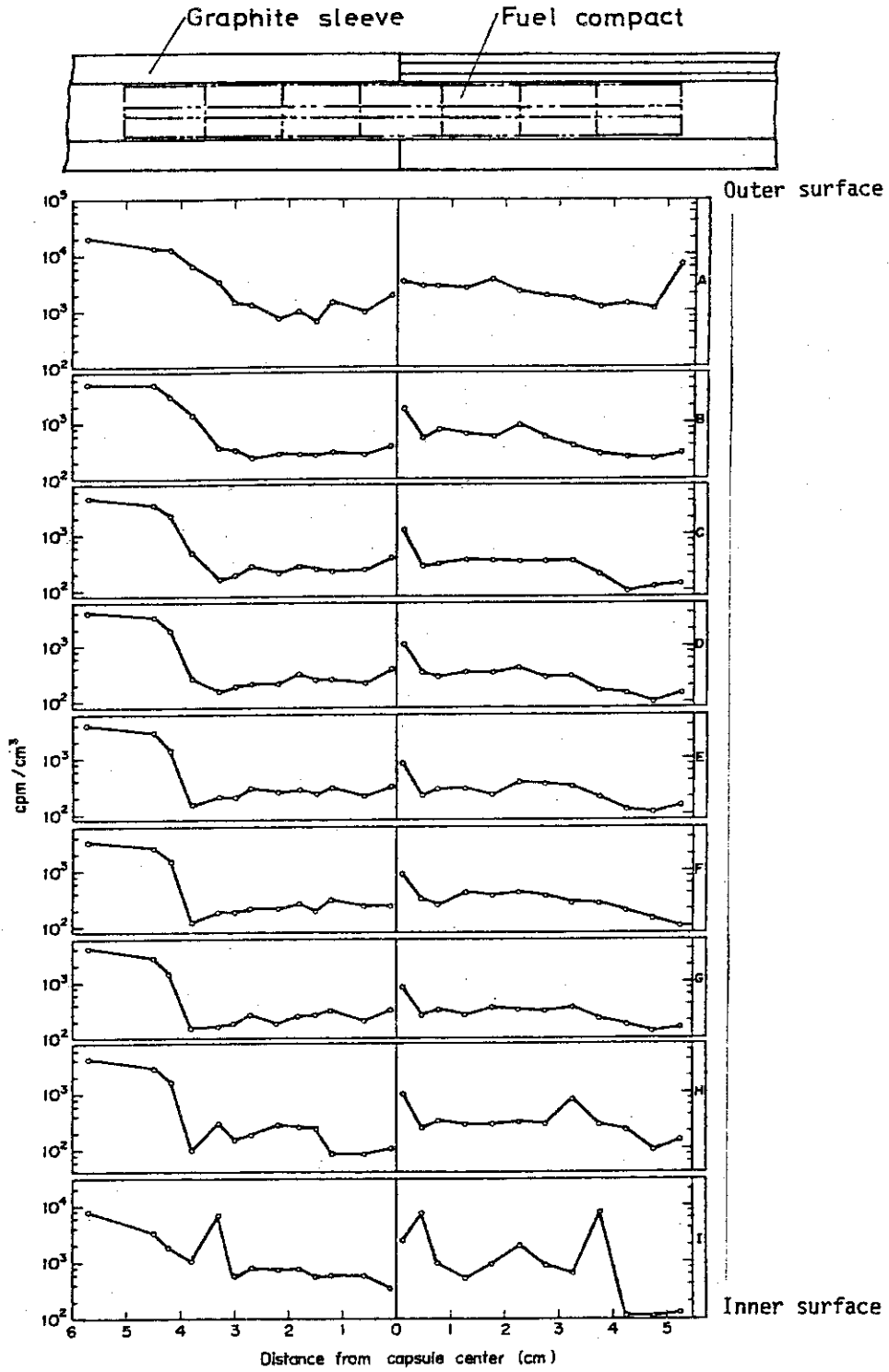


Fig. 5 ^{137}Cs distribution in graphite sleeve in VP-2 capsule irradiated in JRR-2 at 1390°C . A,B,C,... show radial position of graphite sleeve in each 0.5 mm intervals from outer surface.

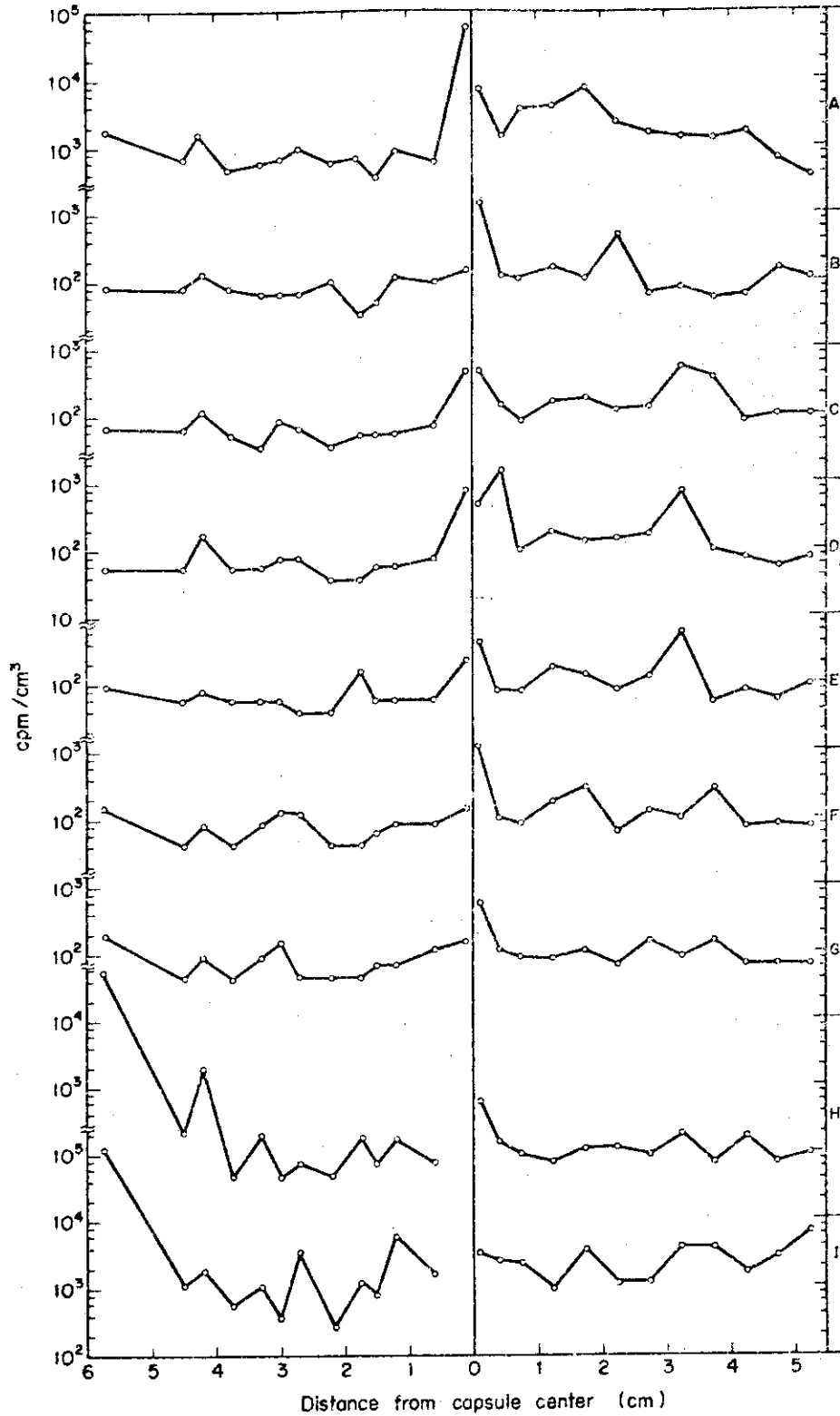


Fig. 6 ^{182}Ta distribution in graphite sleeve in VP-2 capsule irradiated in JRR-2 at 1390 °C. A,B,C,...show radial position of graphite sleeve in each 0.5 mm intervals from outer surface.

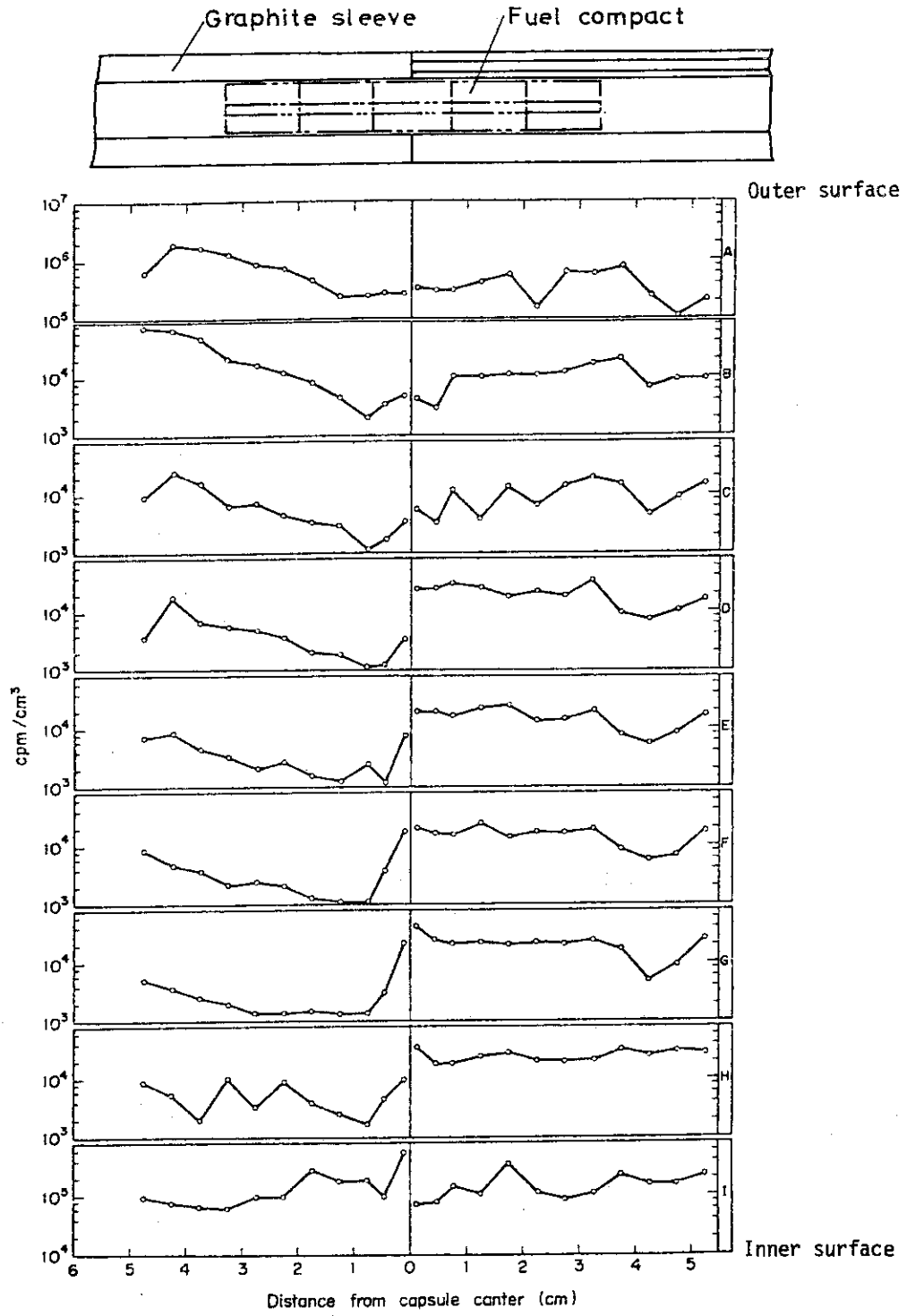


Fig. 7 ^{182}Ta distribution in graphite sleeve in VP-4 capsule irradiated in JRR-2 at 1490 °C. A,B,C,...show radial position of graphite sleeve in each 0.5 mm intervals from outer surface.

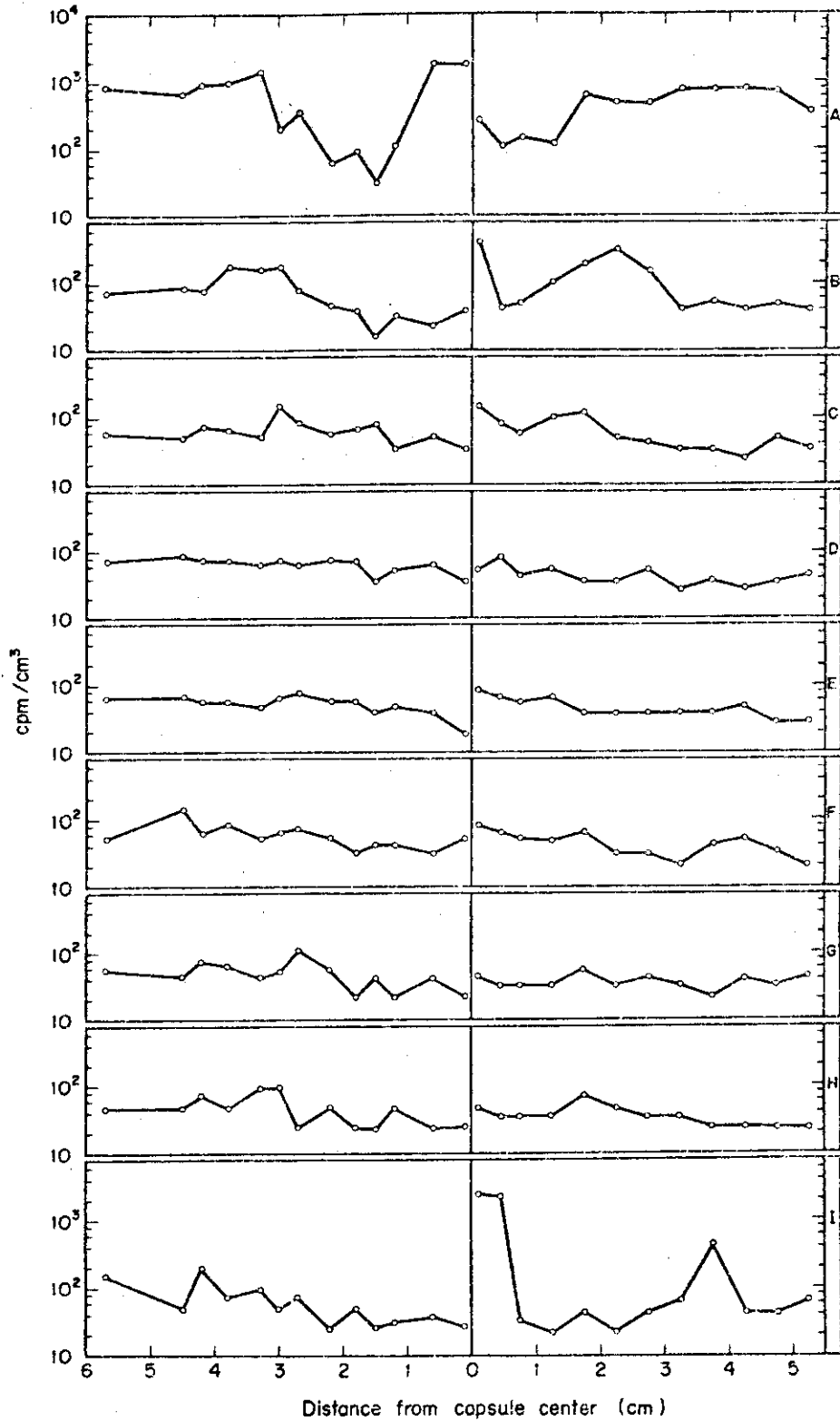


Fig. 8 ⁶⁰Co distribution in graphite sleeve in VP-2 capsule irradiated in JRR-2 at 1390 °C. A,B,C,...show radial position of graphite sleeve in each 0.5 mm intervals from outer surface.

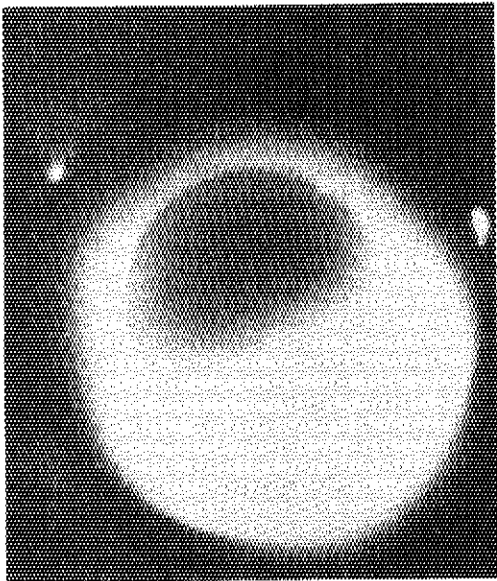


Fig. 9 Autoradiogram of graphite sleeve cross section of VP-2 at about 0.5 cm downward from the capsule center

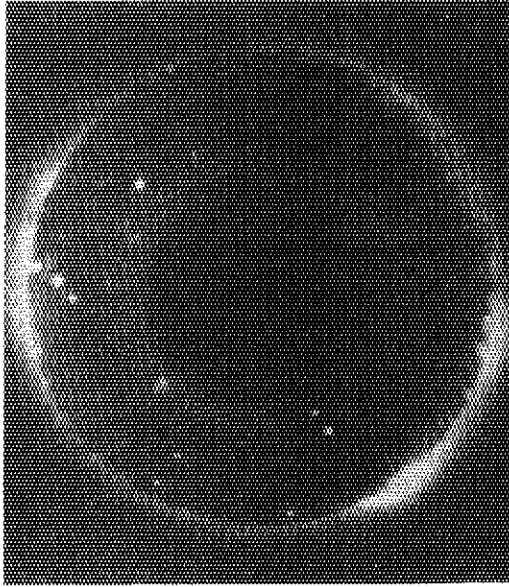


Fig. 11 Autoradiogram of graphite sleeve cross section of VP-2 at about 5.0 cm upward from the capsule center

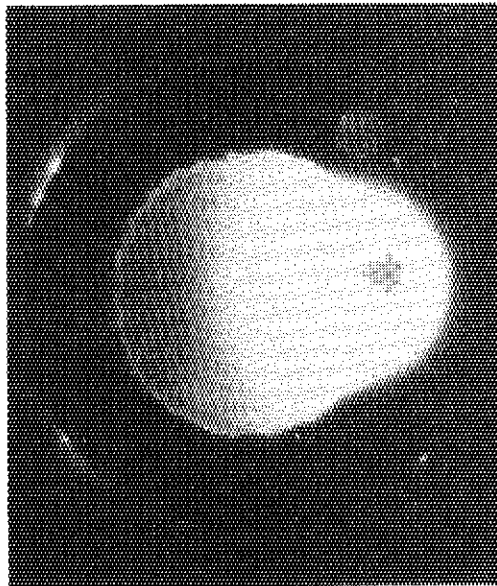


Fig. 10 Autoradiogram of graphite sleeve cross section of VP-2 at about 1.0 cm upward from the capsule center

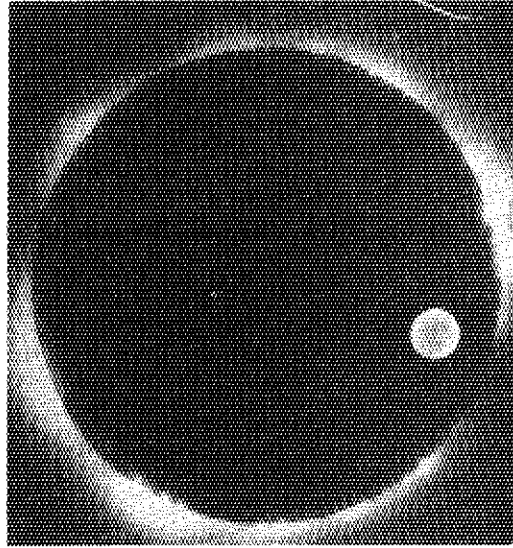


Fig. 12 Autoradiogram of graphite sleeve cross section of VP-4 at about 1.5 cm upward from the capsule center

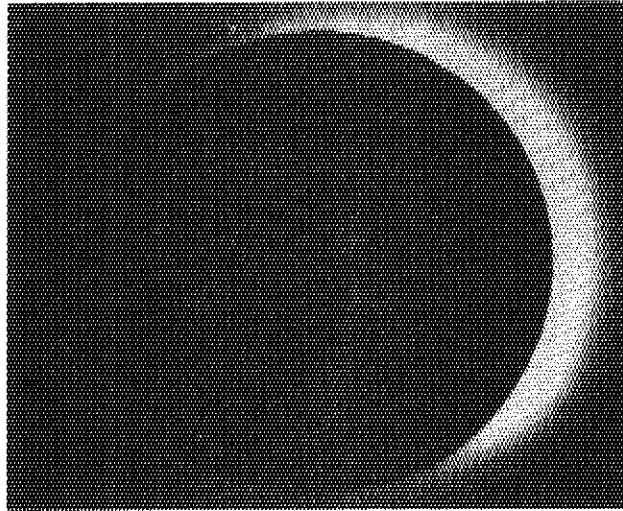


Fig. 13 Autoradiogram of graphite sleeve cross section of
VP-4 at about 3.7 cm downward from the capsule center