

JAERI - M
94-075

第11次および第12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

1994年6月

林 君夫・福田 幸朔・鶴田 晴通・菊池 輝男

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。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

第11次および第12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研究部

林 君夫・福田 幸朔・鶴田 晴通⁺

菊池 輝男⁺⁺

(1994年3月31日受理)

原研大洗研究所の材料試験炉（J M T R）に設置した高温・高圧の炉内ガスループOGL-1を用いて第11次および第12次燃料体を照射し、それらの黒鉛スリーブおよび黒鉛ブロック中の核分裂生成物（F P）の分布をガンマ線スペクトル分析法によって測定した。第11次燃料体は高温工学試験研究炉（H T T R）用初装荷燃料の量産試作燃料の比較的短期照射における照射健全性試験を目的としたものである。第12次燃料体は同じく長期照射を行ったものであり、H T T R炉心用燃料の設計値と同程度の燃焼度を達成した。

第11次燃料体の黒鉛スリーブでは、軸方向にF Pの濃度ピークが見られた。燃料コンパクトの表面において破損粒子の露出は検出されなかったが、黒鉛マトリックスのオーバーコート境界に隙間が生じていることが観察された。このことから、燃料コンパクトの内部に存在していた破損粒子から放出されたF Pが、黒鉛マトリックスの隙間を移行して黒鉛スリーブ内面に達したものと推定された。

第12次燃料体の黒鉛スリーブ中では、¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs等のF Pのほかに、^{110m}Agが検出された。^{110m}Agは特異な分布を示した。すなわち、溶融した熱電対シーズ材から黒鉛中スリーブに移行したものと思われる⁸⁰Coが高濃度で存在する領域では、^{110m}Agは低濃度となっていた。このことから、^{110m}Agの黒鉛中の移行挙動は、Coを含む金属による黒鉛気孔構造の変化または金属による共収着の影響を受けることが推測された。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 大洗研究所材料試験炉部

++ ホット試験室

Distribution of Fission Products in Graphite Sleeves and Blocks
of the Eleventh and Twelfth OGL-1 Fuel Assemblies

Kimio HAYASHI, Kousaku FUKUDA, Harumichi TSURUTA⁺ and Teruo KIKUCHI⁺⁺

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

(Received March 31, 1994)

The 11th and 12th fuel assemblies were irradiated in an in-pile gas loop, OGL-1, installed in the Japan Materials Testing Reactor (JMTR) of Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). Distribution of fission products in the graphite sleeves and blocks of the assemblies was measured by gamma-ray spectrometry. The 11th fuel assembly was aimed at testing the irradiation performance of mass product fuels in trial manufacturing of the first charge fuel for the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) in relatively short irradiation, and the 12th assembly in long-term irradiation. The 12th assembly attained a burnup approximately as high as that of the HTTR driver fuel design.

In the graphite sleeve of the 11th assembly, high concentration peaks of fission products were found in the axial distribution. Exposure of failed fuel particles was not detected on the surface of fuel compacts, while fissures of graphite matrix at over-coat boundaries were observed on the surface. These results led to a presumption that fission products, which were released from failed particles located inside of the fuel compact, was easily transported through the fissures of the matrix to the inner surface of the sleeve.

In the graphite sleeve of the 12th assembly, ^{110m}Ag was detected together with other fission products of ^{137}Cs , ^{134}Cs etc. Silver-110m showed characteristic distribu-

⁺ Department of JMTR Project, Oarai Research Establishment

⁺⁺ Department of Hot Laboratories

tion: this nuclides was less concentrated at the region with highly concentrated ^{60}Co which is presumed to have been transported from melted sheath material of thermocouples to the graphite sleeve. It was inferred from the distribution that the transport behavior of ^{110}mAg had been influenced by co-sorption or by pore structure change in the graphite material of the sleeve, which had been induced by metallic elements including cobalt.

Keywords: Fission Product, Cesium, Silver, Graphite, Diffusion, Failure, Coated Fuel Particle, OGL-1, HTTR, HTGR

目 次

1.はじめに	1
2.実験	3
2.1 試料	3
2.2 照射	3
2.3 FP分布測定	5
2.4 燃料コンパクトの外観観察	6
3.結果および考察	16
3.1 第11次燃料体中のFP分布	16
3.2 第12次燃料体中のFP分布	18
3.2.1 黒鉛スリーブ軸方向のFP分布	18
3.2.2 黒鉛スリーブ径方向のFP分布	19
3.2.3 黒鉛ブロック中のFP分布	21
3.3 黒鉛スリーブ中へのFP放出割合および各核種の生成起源のまとめ	22
3.4 今後の研究課題	24
4.まとめ	41
謝辞	42
参考文献	42
付録1 第12次OGL-1燃料体の熱電対シース材の溶融	45
付録2 第11次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ軸方向の核分裂生成物および放射化 生成物の分布(図)	49
付録3 第12次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ径方向の核分裂生成物分布(図)	56
付録4 第12次OGL-1燃料体の黒鉛ブロック径方向の核分裂生成物分布(図)	72

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	3
2.1 Specimens	3
2.2 Irradiation	3
2.3 Measurement of Fission Product Distribution	5
2.4 Observation of Surface Appearance of Fuel Compacts	6
3. Results and Discussion	16
3.1 Fission Product Distribution in 11th OGL-1 Fuel Assembly	16
3.2 Fission Product Distribution in 12th OGL-1 Fuel Assembly	18
3.2.1 Axial Distribution of Fission Products in Graphite Sleeves	18
3.2.2 Radial Distribution of Fission Products in Graphite Sleeve	19
3.2.3 Distribution of Fission Products in Graphite Block	21
3.3 Fractional Releases of Fission Products into Graphite Sleeve and Summary of Origin of Each Nuclide	22
3.4 Further Research Subjects	24
4. Summary	41
Acknowledgements	42
References	42
Appendix 1 Melting of Thermocouple Sheath Material of 12th OGL-1 Fuel Assembly	45
Appendix 2 Axial Distribution of Fission and Activation Products in Graphite Sleeves of 11th OGL-1 Fuel Assembly (Figures)	49
Appendix 3 Radial Distribution of Fission Products in Graphite Sleeve of 12th OGL-1 Fuel Assembly (Figures)	56
Appendix 4 Radial Distribution of Fission Products in Graphite Block of 12th OGL-1 Fuel Assembly (Figures)	72

1. はじめに

本報告書は、原研大洗研究所の材料試験炉（J M T R）に設置した高温・高圧の炉内ガスループ O G L - 1 (Oarai Gas Loop-1) で照射した模擬高温ガス炉燃料体である第11次および第12次 O G L - 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 (F P) の分布の測定結果に関するものである。

(1) 高温工学試験研究炉用燃料^(1, 2)

高温工学試験研究炉 (H T T R) の炉心燃料 (A型燃料体) は、六角柱状の黒鉛ブロック中に燃料棒(燃料要素)を挿入する構造のピン・イン・ブロック型であり、UO₂燃料核を熱分解炭素 (P y C)、炭化ケイ素 (S i C) で被覆した被覆燃料粒子 (以下、被覆粒子) を用いる。炉心燃料の構造を Fig. 1.1 に示す。炉心燃料の仕様は、原研における高温ガス炉開発の比較的初期に多目的高温ガス炉第1次概念設計仕様 (Mark-III仕様)⁽³⁻⁵⁾ として定めたものを基礎としている。

(2) O G L - 1 燃料体によるこれまでの F P 挙動研究

O G L - 1 は、高温・高圧の H e ガスループであり、H T T R に近い条件下で燃料体を照射できるという特徴を持つ⁽⁶⁻⁸⁾。このことから、O G L - 1 照射における核分裂生成物 (F P) の挙動の測定結果は、H T T R 運転中の F P 挙動を予測するうえで、重要な役割を果たしてきた⁽⁶⁾。すでに、第1次および第2次⁽⁹⁾、第3次、第4次^(10, 11)、第5次^(11, 12)、第9次および第10次⁽¹³⁾の各燃料体中の F P 挙動については報告している。なお、O G L - 1 燃料体中の放射化生成物の分布についての報告も行っている⁽¹⁴⁾。

(3) 第11次、第12次燃料体の照射試験の概要および本研究の目的

第11次および第12次燃料体は、H T T R 用量産試作燃料の第3作および第4作を装荷したものである。照射期間は、第11次が3サイクル (実効照射日数 62.2 日間) と短期間、第12次が9サイクル (実効照射日数 195.0 日) とこれまでの O G L - 1 燃料体の照射では最も長期間であった。製造時および照射後の被覆粒子破損率、ならびに照射中の F P ガス放出率は、後述のとおり、いずれも量産試作燃料の第1作および第2作である第9次および第10次燃料体に比べて低いレベルであった。

本研究の目的は、両燃料体について金属 F P の分布を測定し、低い破損率レベルにおける金属 F P 移行挙動を調べることである。

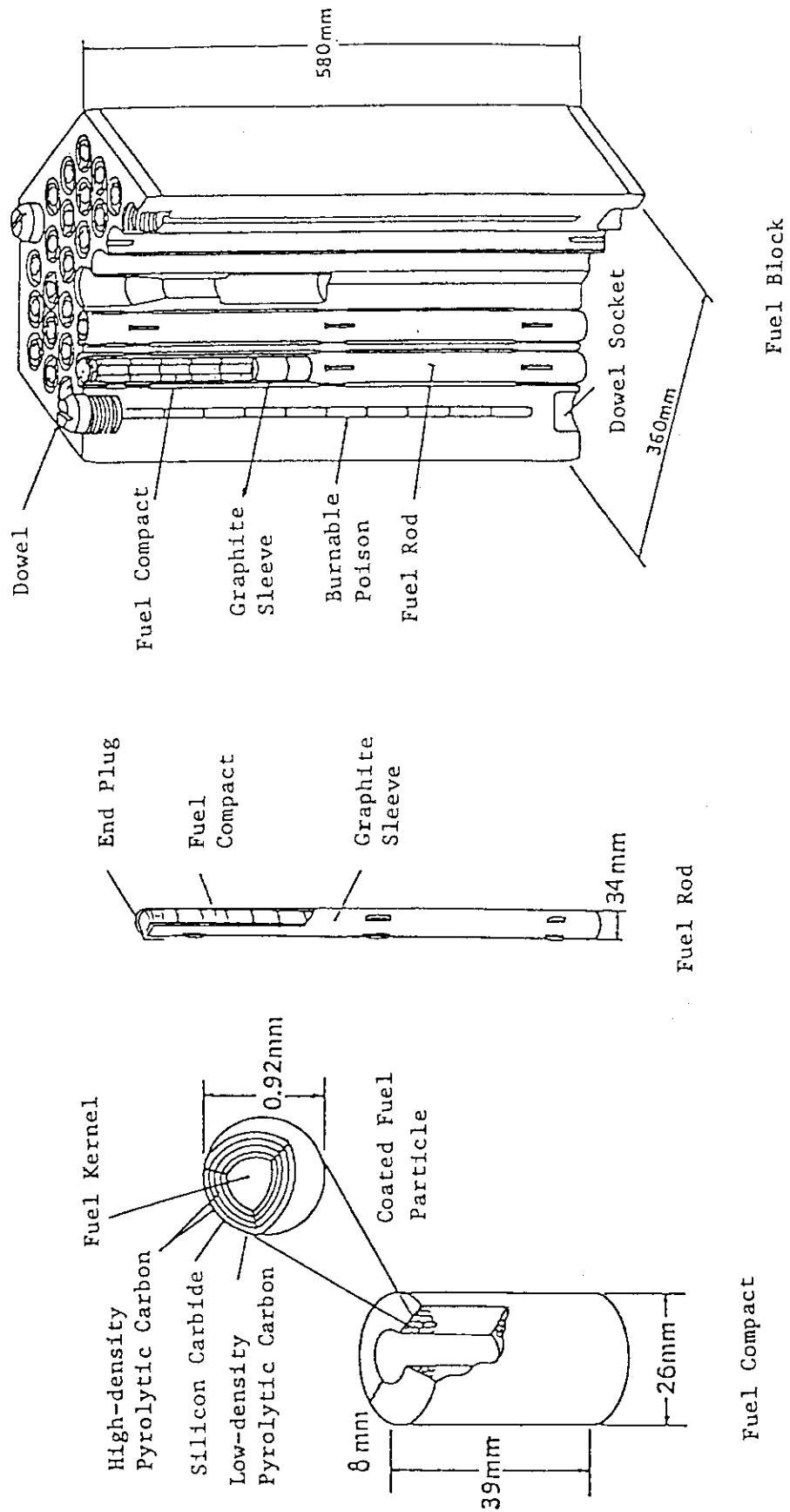


Fig. 1.1 Structure of fuel assembly of the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR).

2. 実験

2.1 試料

第11次燃料体は、HTTR初装荷燃料仕様の被覆粒子を充填した細径型燃料コンパクトを、細径の黒鉛スリーブに収めて燃料棒とし、3本の燃料棒をHTTR燃料体を模擬した黒鉛ブロックの燃料棒挿入孔に挿入したものである。また、第12次燃料体は、HTTR初装荷燃料仕様に基づく被覆粒子、燃料コンパクト、黒鉛スリーブ、燃料棒（一本棒タイプ）および黒鉛ブロックを用いたものである。第11次および第12次燃料体の仕様の概要をHTTR燃料仕様と比較してTable 2.1に示す。また、燃料体の構造をFig.2.1に示す。

第11次および第12次燃料体に装荷したのは、第3作目および第4作目の量産試作燃料である。量産試作とは、第8次までの1被覆バッチあたり 0.5 kg U の小規模製造に対して、1被覆バッチあたり 2 kg U の量産規模の製造装置を用いてHTTR用燃料の製造を行うための試作である。

製造時の被覆粒子の貫通破損率（原研による燃料受入れの際の中間確認検査結果の平均値）をTable 2.2に示す。第11次および第12次燃料ではいずれも $(1 \sim 2) \times 10^{-4}$ のレベルであり、第9次および第10次燃料に比べて低い値であった。

2.2 照射

(1) 概要

第11次燃料体照射は、OGL-1の炉内管を現在の第2世代のものに交換した後、最初の照射であり、炉内管の性能試験を兼ねたものであった。第1世代のOGL-1炉内管は第10次燃料体の照射まで用いられたが照射寿命に達したために交換され、第11次燃料体以降は第2世代の炉内管により照射されることとなった。第11次燃料体の照射期間は#80サイクル（1988年2月）～#82サイクル（1988年7月）の計3サイクル（実効照射日数62.2日間）と短期間であった。

第12次燃料体は、HTTR仕様に基づく燃料をHTTR条件の最高燃焼度程度まで照射することによって、燃料健全性を実証することを目的としたものであった。照射期間は、#83サイクル（1988年10月）～#91サイクル（1990年6月）で、OGL-1燃料体としてはこれまで最長の計9サイクル（実効照射日数195.0日）であった。

(2) 照射温度

照射中の燃料コンパクト（内面）温度は、熱電対ホルダーである黒鉛内筒に収めたタ

ングテン・レニウム熱電対 ($W-5\%Re/W-26\%Re$) によって測定した。第12次燃料体では、黒鉛スリーブの温度を炉心側と反炉心側の2箇所の挿入孔に挿入したクロメル・アルメル (CA) 熱電対で測定した。また、黒鉛ブロック温度も CA 熱電対によって測定した。

第11次燃料体の燃料コンパクト最高温度（燃料棒の下端側から8番目の燃料コンパクトの内面温度）は、燃料棒A、B、Cについて、各々約1110°C、約1350°Cおよび約1340°Cであった。なお、計3サイクルのうち、最初の照射サイクル (#80サイクル) では炉内管の性能確認を行うため、徐々に昇温して照射を行った。第12次燃料体では、燃料最高温度（燃料棒の下端側から8番目の燃料コンパクトの内面温度）は約1340°Cであり、定常照射を行った。なお、燃料棒および黒鉛ブロックの温度分布は、従来の燃料体とほぼ同様と考えられる。

(3) 燃焼度および高速中性子照射量

第11次および第12次燃料体について、燃料コンパクトごとの燃焼度（計算値）および高速中性子照射量を、各々Table 2.3a～2.3cおよびTable 2.4に示す。

燃焼度は、OGL-1用の熱計算コードSTEPDSP2⁽¹⁵⁾を用いて得た燃料棒線出力から求めたものである。最大燃焼度は、第11次燃料体については約1.6%FIMA（燃料棒B）、第12次燃料体については3.9%FIMAである。

高速中性子照射量は、黒鉛ブロック中に装荷したフルエンスモニター (Fe製) の放射能測定値、および、核計算によって求められた燃料棒軸方向の相対分布から得られたものである。

(4) 被覆粒子破損率

照射前後における被覆粒子貫通破損率およびSiC層破損率の測定値をTable 2.2に示す。ここで、照射前の貫通破損率は、燃料コンパクトの電気化学的解碎後に貫通破損粒子に含有されたウランを硝酸で浸出することによって求めた。照射後の貫通破損率は、同じく電気化学的解碎後に硝酸浸出した¹⁴⁴Ceの量 (¹⁴⁴Ceと放射平衡の関係にある¹⁴⁴P_rの放射能の値を用いた) から求めた。一方、SiC層破損率については、解碎済みの被覆粒子を空气中で加熱し、黒鉛マトリックスおよび最外PyC層を酸化燃焼させて除去した後、硝酸浸出し、照射前についてはウラン量を、照射後については¹⁴⁴Ceの量を定量することによって、破損率を求めた。

まず、貫通破損率について見ると、第11次燃料では、3本の燃料棒の各1個の燃料コンパクト（下端側から8番目、軸方向には最高温度位置であり燃焼度もほぼ最大）について、 $(1.9 \sim 2.6) \times 10^{-4}$ の範囲であり、平均値は 2.3×10^{-4} である。第12次燃料体についても、軸方向の中央付近の燃料コンパクト (87OP1-8、軸方向に照射温度、燃焼度ともに最高) については、 7.1×10^{-5} (コンパクト中の全被

覆粒子数、約13500粒に対して推定貫通破損粒子数1個)であり非常に低いレベルであった。

Fig.2.3に第9次～第12次燃料体の照射前後の貫通破損率とその95%信頼限界を示す。この図から、第11次、第12次燃料体では第9次、第10次燃料体に比べて照射前、照射後ともに貫通破損率が低下していることが分かる。また、第11次、第12次燃料体では、照射前後の貫通破損率の95%信頼限界は殆ど重なっていることから、照射による有意な貫通破損率増加は生じなかったと言える。

次に、SiC層破損率について見ると、照射前の値は、第9次燃料体では 3.9×10^{-3} であったのに対して、第12次燃料体では 4.5×10^{-4} まで低下した。照射後の測定は現在、第9次および第10燃料体についてしか行っていないが、両燃料体とともに照射前後のSiC層破損率(平均値)は同程度の値であり、照射による有意な破損率増加は認められない。

2.3 FP分布測定

照射済みの燃料体は大洗ホットラボで解体し、東海ホットラボに輸送して所定の照射後試験を行った。試験終了後、黒鉛スリーブ、黒鉛ブロック、黒鉛内筒、緩衝板を冶金特研に運搬し、FP分布を測定した。測定方法の詳細は前報⁽¹¹⁾に述べた。

(1) 軸方向分布

Fig.2.2に示すように、鉛ブロックで幅10mmのスリットを構成した。そして、スリーブおよびブロックを所定の時間ガンマ線スペクトル測定し、測定が終了するたびにそれらを軸方向に10mmずつ移動させることによって、軸方向のFP分布を求めた。

使用した装置は、高純度Ge検出器(CANBERRA社製)およびマルチチャネル波高分析器(同社製、シリーズ35プラス型)である。得られた放射能の値は、標準線源を用いて放射能絶対値校正により黒鉛単位重量あたりの放射能濃度(Bq/kg-graphite)に換算した。

(2) 黒鉛スリーブ中と燃料コンパクト中の放射能比

各核種ごとに、次式によって定義する放射能比を求めた。

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

スリーブ、コンパクトとも軸方向長さ(幅)10mmの部分にあるFP放射能の比を用いた。(1)式の分子のスリーブ中の放射能は本実験における測定値である。(1)式の分母については、東海ホットラボで測定した被覆粒子あたりの放射能絶対値を用い、これに燃料コンパクトのFPインベントリ相対値を乗じて、コンパクトの長さ10mmあたり

の放射能に換算した。ホットラボでの測定で検出されなかった ^{110m}Ag については、ORIGIN-JRコード⁽¹⁶⁾による計算値を用いて燃料コンパクトのFPインベントリを算出した。

(3) 径方向分布

第12次燃料体については、Fig.2.2に示すように小型旋盤によって黒鉛スリーブの円筒形試料を外周から0.2mmずつ削った。そして、削り取った黒鉛粉末を薬包紙に採取しガンマ線測定することによって、FP放射能を求めた。

2.4 燃料コンパクトの外観観察

黒鉛スリーブ中のFP分布と燃料コンパクト中の破損粒子の存在位置との関連を調べるため、燃料コンパクト外観の拡大検査を行った。東海ホットラボのジュニアセルにおいて、光学顕微鏡を用いて燃料コンパクト表面の拡大観察を行った。

Table 2.1 Comparison between fuel specifications and irradiation conditions of HTTR design, and 11th and 12th OGL-1 fuel assemblies.

	HTTR Design	11th OGL-1	12th OGL-1
Fuel Compact			
Inner Diameter (mm)	10	8	10
Outer Diameter (mm)	26	24	26
Length (mm)	39	40	39
Packing Fraction of CFP (vol%)	30	30	30
Graphite Sleeve			
Inner Diameter (mm)	26.25	24.2	26.2
Outer Diameter (mm)	34	30	34
Length (mm)	577	790	790
Fuel Rod			
No. of Fuel Compacts per Rod	14	18	*1 18+1
Fuel Compact			
Stack Length (mm)	546	720	720
Compact/Sleeve Gap (Diametral) (mm)	0.25	0.2	0.2
Fuel Assembly			
Shape	Hexagonal	Hollow Cylinder	Hollow Cylinder
Graphite Block Size			
Outer Diameter (mm)	-	80	78
Length (mm)	-	785	785
Diameter of Fuel			
Insertion Hole (mm)	41	32.6	41
No. of Fuel Rods per Assembly	33, 31	3	1
 ²³⁵ U Enrichment (wt%)	ca. 3~10	19.307	19.133
Max. Burnup (%FIMA)	3.6	1.6	3.9
Max. Fast Neutron Fluence			
(10^{21}m^{-2} , $E > 0.18 \text{MeV}$)	1.2	0.17	0.31

*1 18 standard compacts (39mm^L) + one short compact (18mm^L)

Table 2.2 Through-coating and SiC-layer failure fractions of coated fuel particles before and after 0GL-1 irradiations (9th-12th fuel assemblies).

Fuel Assembly	Through-coating Failure Fraction		SiC-layer Failure Fraction	
	Compact Position	After Irrad. ^{a)}	Before Irrad. ^{b)}	Compact Position
9th	9101	9.6x10 ⁻⁴		
	9105	1.4x10 ⁻³		
	9109	1.5x10 ⁻³		
	9114	1.5x10 ⁻³		
	9120	1.2x10 ⁻³		
	(average)	-	1.3x10 ⁻³	8.7x10 ⁻⁴
10th	10101	1.1x10 ⁻⁴		
	10105	3.9x10 ⁻⁴		
	10109	6.6x10 ⁻⁴		
	10114	7.7x10 ⁻⁴		
	10120	5.1x10 ⁻⁴		
	(average)	-	4.9x10 ⁻⁴	2.5x10 ⁻⁴
11th	11108	1.9x10 ⁻⁴		
	11208	2.3x10 ⁻⁴		
	11308	2.6x10 ⁻⁴		
	(average)	-	2.3x10 ⁻⁴	1.6x10 ⁻⁴
12th	12108	0.71x10 ⁻⁴		
	12113	4.7x10 ⁻⁴		
	12116	(25.7x10 ⁻⁴) ^{c)}		
	(average)	-	2.7x10 ⁻⁴ d)	1.0x10 ⁻⁴

a) Leached fraction of ¹⁴⁴Ce by nitric acid (7-normal HNO₃ aq.).

b) Leached fraction of exposed uranium by nitric acid (7-normal HNO₃ aq.).

c) Leached fraction for the compact located at thermocouple sheaths melted.

d) Average for compacts at positions of 12108 and 12116.

Table 2.3a Irradiation conditions of fuel compacts of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

Position	Fuel Compact Name	Burnup* ¹ (% FIMA)	Fast Neutron Fluence (E>29fJ) (10 ²⁴ m ⁻²)	Relative* ² FP inventory
(bottom)				
1- 1	850P-01	0.75	0.53	0.63
1- 2	850P-02	0.87	0.71	0.73
1- 3	850P-03	0.97	0.85	0.82
1- 4	850P-04	1.06	0.98	0.89
1- 5	850P-05	1.13	1.08	0.95
1- 6	850P-06	1.16	1.15	0.98
1- 7	850P-07	1.19	1.19	1.00
1- 8	850P-08	1.17	1.20	0.99
1- 9	850P-09	1.15	1.18	0.97
1-10	850P-10	1.10	1.13	0.93
1-11	850P-11	1.04	1.07	0.88
1-12	850P-12	0.96	1.00	0.81
1-13	850P-13	0.87	0.88	0.73
1-14	850P-14	0.77	0.77	0.65
1-15	850P-15	0.66	0.66	0.56
1-16	850P-16	0.56	0.55	0.47
1-17	850P-17	0.43	0.44	0.36
1-18	850P-18	0.35	0.34	0.30
(top)				

*1 Calculated by STEPDSP2 code (rods A:B:C = 0.850 : 1.115 : 1.035); 19.307% enriched.

*2 Estimated from relative activity of ¹⁴⁴Ce measured for rotating fuel compacts of 8th OGL-1 fuel assembly.

Table 2.3b Irradiation conditions of fuel compacts of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

Position	Fuel Compact Name	Burnup* ¹ (%FIMA)	Fast Neutron Fluence (E>29fJ) (10 ²⁴ m ⁻²)	Relative* ² FP inventory
(bottom)				
2- 1	850P-19	0.98	0.72	0.63
2- 2	850P-20	1.14	0.96	0.73
2- 3	850P-21	1.28	1.16	0.82
2- 4	850P-22	1.38	1.34	0.89
2- 5	850P-23	1.48	1.47	0.95
2- 6	850P-24	1.52	1.56	0.98
2- 7	850P-25	1.56	1.61	1.00
2- 8	850P-26	1.54	1.63	0.99
2- 9	850P-27	1.51	1.60	0.97
2-10	850P-28	1.45	1.53	0.93
2-11	850P-29	1.37	1.45	0.88
2-12	850P-30	1.26	1.34	0.81
2-13	850P-31	1.14	1.19	0.73
2-14	850P-32	1.01	1.04	0.65
2-15	850P-33	0.87	0.90	0.56
2-16	850P-34	0.73	0.75	0.47
2-17	850P-35	0.56	0.60	0.36
2-18	850P-36	0.47	0.46	0.30
(top)				

*1 Calculated by STEPDSP2 code (rods A:B:C = 0.850 : 1.115 : 1.035); 19.307% enriched.

*2 Estimated from relative activity of ¹⁴⁴Ce measured for rotating fuel compacts of 8th OGL-1 fuel assembly.

Table 2.3c Irradiation conditions of fuel compacts of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

Position	Fuel Compact Name	Burnup* ₁ (%FIMA)	Fast Neutron Fluence (E>29fJ) (10 ²⁴ m ⁻²)	Relative* ₂ FP inventory
(bottom)				
3-1	850P-37	0.91	0.73	0.63
3-2	850P-38	1.05	0.97	0.73
3-3	850P-39	1.18	1.17	0.82
3-4	850P-40	1.29	1.35	0.89
3-5	850P-41	1.37	1.49	0.95
3-6	850P-42	1.42	1.58	0.98
3-7	850P-43	1.44	1.63	1.00
3-8	850P-44	1.43	1.65	0.99
3-9	850P-45	1.40	1.62	0.97
3-10	850P-46	1.34	1.55	0.93
3-11	850P-47	1.27	1.47	0.88
3-12	850P-48	1.17	1.35	0.81
3-13	850P-49	1.05	1.20	0.73
3-14	850P-50	0.94	1.06	0.65
3-15	850P-51	0.81	0.91	0.56
3-16	850P-52	0.68	0.76	0.47
3-17	850P-53	0.52	0.61	0.36
3-18	850P-54	0.43	0.46	0.30
(top)				

*1 Calculated by STEPDSP2 code (rods A:B:C = 0.850 : 1.115 : 1.035); 19.307% enriched.

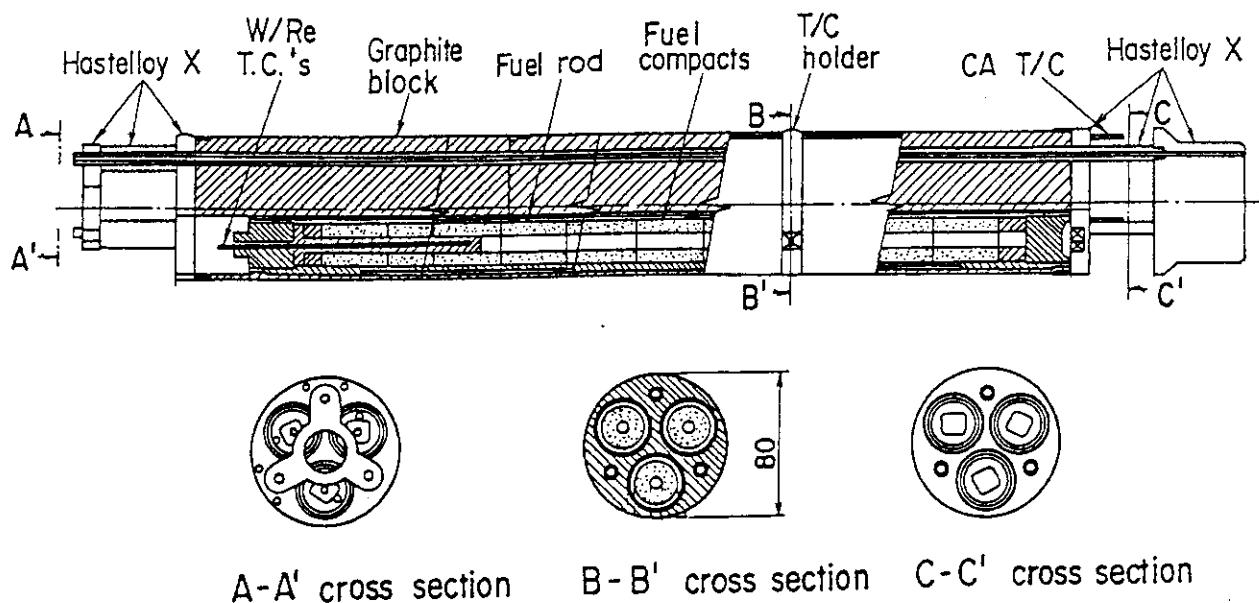
*2 Estimated from relative activity of ¹⁴⁴Ce measured for rotating fuel compacts of 8th OGL-1 fuel assembly.

Table 2.4 Irradiation conditions of fuel compacts of 12th OGL-1 fuel assembly.

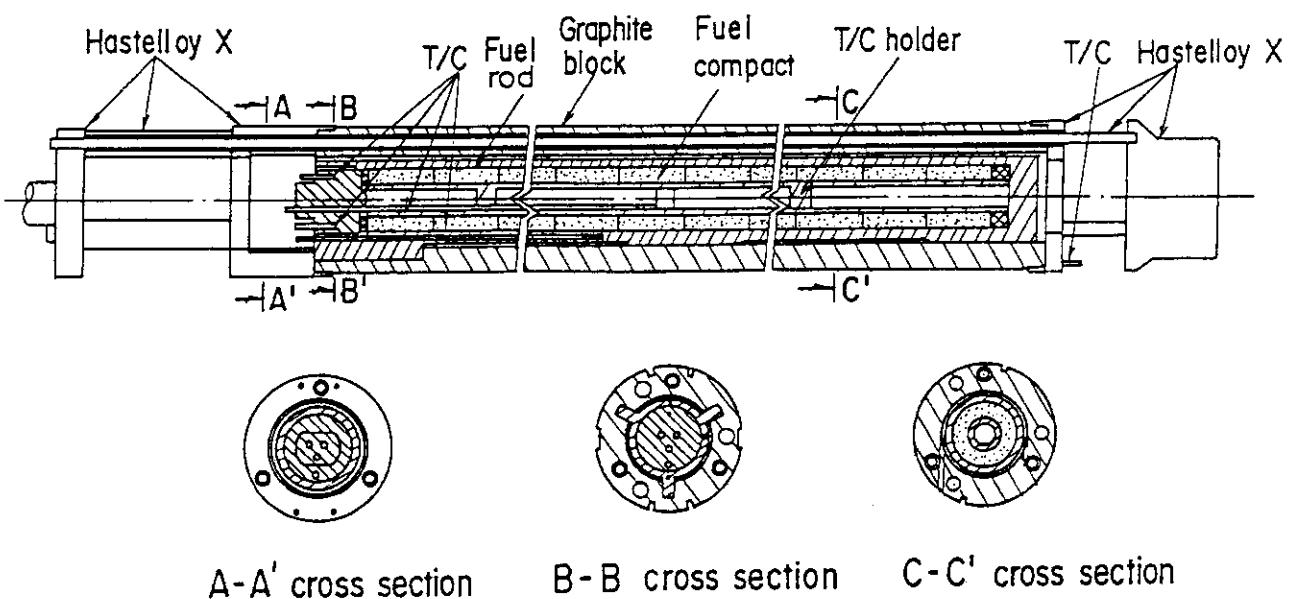
Position	Fuel Compact Name	Burnup* ¹ (%FIMA)	Fast Neutron Fluence(E>29fJ) (10 ²⁴ m ⁻²)	Relative* ² FP inventory
(bottom)				
1	870P1-01	(1)	2.45	1.32
2	870P1-02	(2)	2.84	1.78
3	870P1-03	(4)	3.19	2.15
4	870P1-04	(6)	3.46	2.46
5	870P1-05	(8)	3.66	2.80
6	870P1-06	(9)	3.81	2.91
7	870P1-07	(15)	3.89	3.04
8	870P1-08	(17)	3.89	3.08
9	870P1-09	(19)	3.81	3.03
10	870P1-10	(21)	3.66	2.93
11	870P1-11	(23)	3.50	2.77
12	870P1-12	(24)	3.23	2.58
13	870P1-13	(25)	2.96	2.37
14	870P1-14	(27)	2.65	2.06
15	870P1-15	(30)	2.34	1.81
16	870P1-16	(34)	1.98	1.54
17	870P1-17	(36)	1.60	1.26
18	870P1-18	(38)	1.32	0.98
19	870P2-01	(3)	1.09	0.80
(top)				

*1 Calculated by STEPDSP2 code; 19.133% enriched.

*2 Estimated from relative activity of ¹⁴⁴Ce measured for rotating fuel compacts of 8th OGL-1 fuel assembly.



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



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

Fig. 2.1 Structure of 11th (upper figure) and 12th (lower figure)
OGL-1 fuel assemblies.

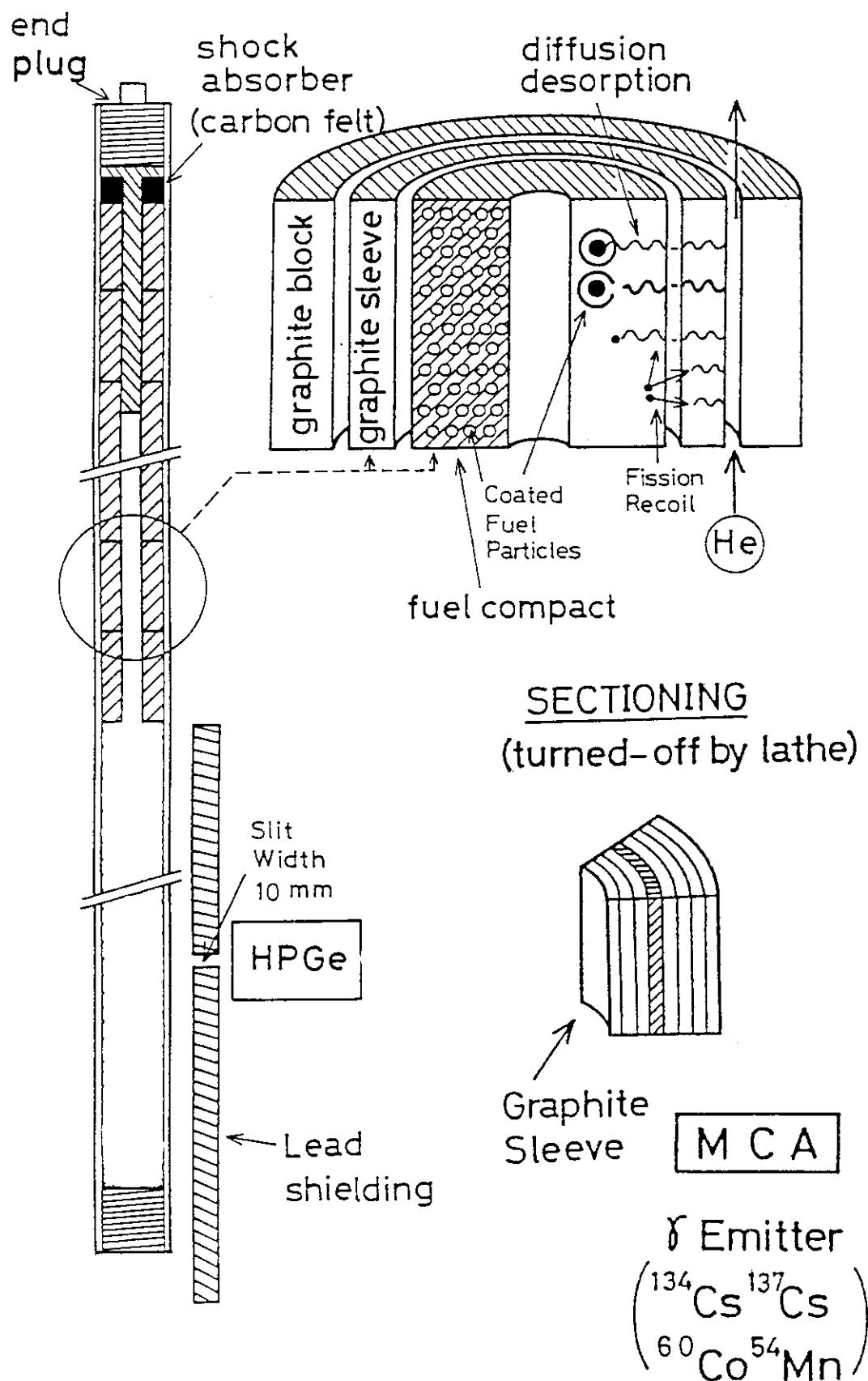


Fig. 2.2 Method for measuring axial and radial distributions of fission products in graphite sleeve.

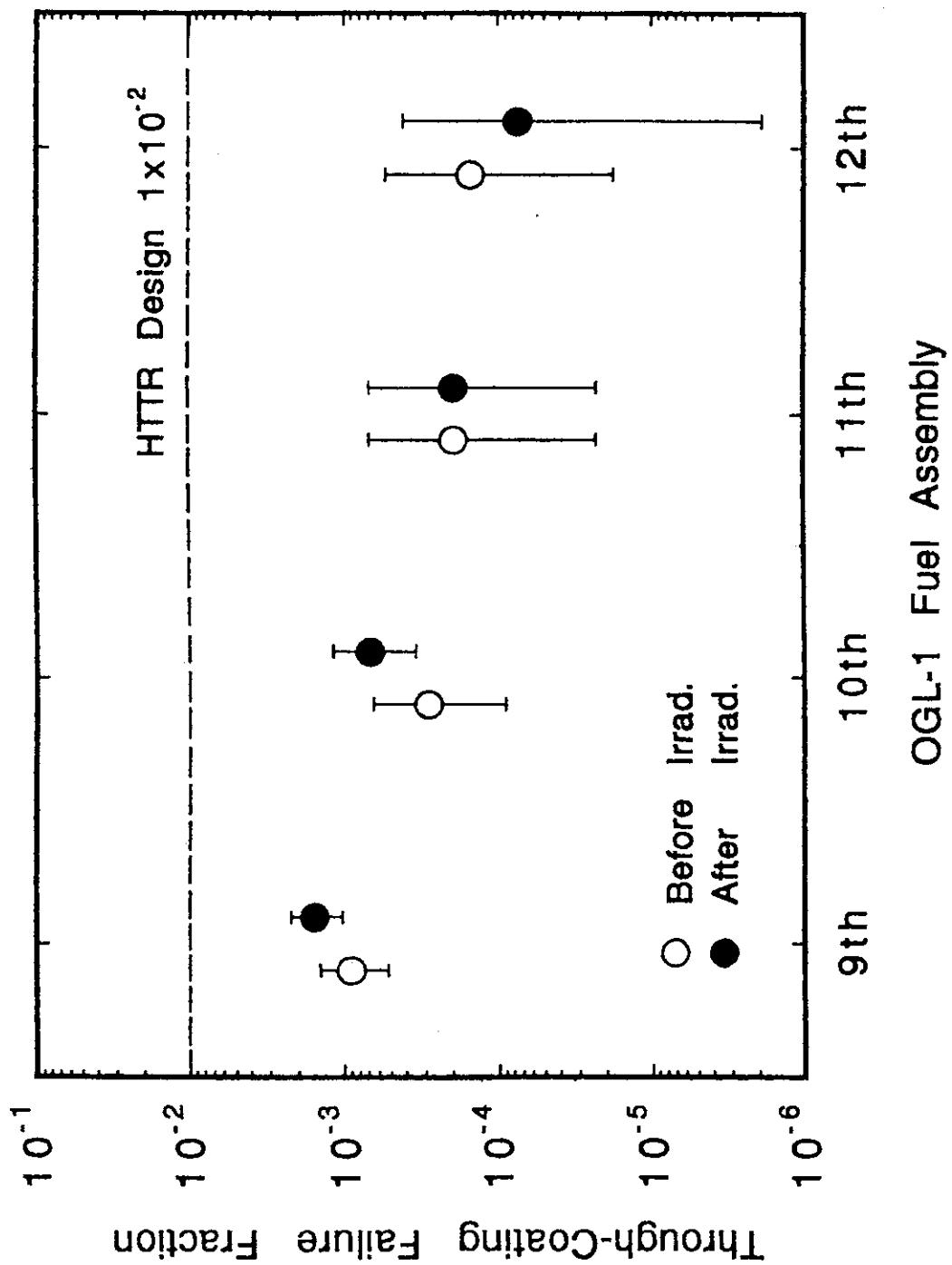


Fig. 2.3 Through-coating failure fractions of coated fuel particles loaded in 9-12th OGL-1 fuel assemblies. The error ranges of the data indicate the upper and lower limits in 95% confidence.

3. 結果および考察

3.1 第11次燃料体中のFP分布

(1) 黒鉛スリーブ軸方向のFP分布

燃料棒A、B、Cの黒鉛スリーブ軸方向のFPおよび放射化生成物の分布の測定結果を付録2に示す。ここでは、典型例として燃料棒Bの測定結果をFig.3.1a～3.1dに示す。なお、Fig.3.1bでは¹²⁵Sbの分布を見やすくするために1桁小さく表示している。以下、同様な表記法を用いる。

Fig.3.1a～3.1cにおいて、スリーブ上端から約130mmおよび約520mmの位置に、¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、¹²⁵Sb、¹⁴⁴Ceおよび¹⁵⁵Euのピークが見られる。また、同じく約520mmの位置には¹⁰⁶Ru（放射能測定では¹⁰⁶Ruと放射平衡状態にある¹⁰⁶Rhのガンマ線が検出される）のピークが見られる。これらのFP核種は、貫通破損粒子から放出されたものと考えられる。それらの挙動については、(3)で検討する。

上記の核種のほかに、¹⁵²Euおよび¹⁵⁴Euが検出された(Fig.3.1c)。両核種の分布は、上記のFP核種の分布とは相関が殆どなく、むしろ黒鉛中の不純物の放射化生成物である⁶⁰Coの分布(Fig.3.1d)に近い。このことから、両核種は、主に黒鉛中の不純物¹⁵¹Euおよび¹⁵³Euの放射化によって生成したものであると判断できる。各核種の生成起源については、3.3節にまとめる。

(2) 燃料コンパクト外観観察

(1)に述べたFP濃度ピーク位置に対応する燃料コンパクトの表面を光学顕微鏡で観察したところ、貫通破損粒子（以下、単に破損粒子という）の露出は観察されなかった。ただし、燃料コンパクトのオーバーコート境界にかなり隙間が生じているのが見られた(Fig.3.2c)。これらのオーバーコート境界の隙間は、FP濃度ピーク位置に対応する燃料コンパクトに限らず、そのほかの燃料コンパクトにも見られた。

なお、Fig.3.2aに示すように、燃料コンパクト表面には欠けのようなものが何箇所か見られた。しかし、それらの部分を拡大してみると、露出した被覆粒子は見られたもの、破損していると判断できる被覆粒子は見られなかった(Fig.3.2b)。

(3) 従来の測定結果との比較およびFP移行挙動の検討

これまでのOGL-1照射では、黒鉛スリーブ軸方向のFP分布においてピークが見られ、同時に燃料コンパクト表面において破損粒子が観察されたことがある。その例としては第3次OGL-1燃料体があり、黒鉛スリーブの軸方向には¹⁴⁴Ceおよび¹²⁵Sbの高濃度ピークが見られた^(10, 11)。

一方、第5次OGL-1燃料体では、燃料コンパクト表面に破損粒子は観察されず、燃料コンパクトの断面組織観察によって破損粒子が観察された。そして、主な燃料破損形態は被覆層を径方向に貫通するクラックであった〔文献(12)のFig.3参照〕。この燃料体の場合には、黒鉛スリーブの軸方向にFP濃度ピークは見られず、¹³⁷Csおよび¹³⁴Csの軸方向分布は、第3次燃料体に比べてなめらかであった。そして、その他のFP核種、例えば¹⁴⁴Ceおよび¹²⁵Sbについても、黒鉛スリーブに局所的な濃度ピークは見られなかった。これらの事実は、破損粒子から放出されたFP核種(特に¹⁴⁴Ceと¹²⁵Sb)が黒鉛マトリックスの収着作用による保持効果を受けることと、収着効果が比較的小さいCsについても黒鉛マトリックスを拡散する間に軸方向に広がることのため、黒鉛スリーブ中には局所的なFP濃度ピークが生じないものと考えられた⁽¹²⁾。

第11次燃料体の結果は、以上、第3次および第5次燃料体の結果を踏まえて以下のように説明できる。

すなわち、第11次燃料体の黒鉛スリーブでは、FP核種(¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、¹²⁵Sb、¹⁴⁴Ce、¹⁵⁵Euおよび¹⁰⁶Ru)の濃度ピークが見られたが、これはコンパクト内部に存在していた破損粒子から放出されたものである。放出されたFPはオーバーコート境界の隙間を通り、黒鉛マトリックスの収着作用による保持効果を大きく受けすことなく黒鉛スリーブ内面に到達した。従って、黒鉛スリーブにFP濃度ピークが検出された。

特に、Ce、Sb、Euは、黒鉛マトリックスの収着による保持効果の大きい元素であり、黒鉛マトリックスが健全な場合には、これらの元素は黒鉛マトリックスに有效地に保持されるため、第11次燃料体で見られたような鋭い濃度ピークは生じないはずである。すなわち、第11次燃料体では、オーバーコート境界の隙間が生じたために、コンパクト内部に存在していた破損粒子から放出されたFP核種(特に¹⁴⁴Ce、¹²⁵Sb、¹⁵⁵Eu)の濃度ピークが発生したものと推定される。

(4) 黒鉛マトリックスの隙間の発生の原因

従来のOGL-1燃料では、照射前後ともに本燃料体のような大きな黒鉛マトリックスの隙間は見られなかった。本燃料体に装荷した燃料コンパクト試料については、照射前における光学顕微鏡写真等がないので、照射前後の詳しい比較は行えない。しかし、照射試料と同一バッチで製造した燃料コンパクトについて目視により観察を行ったところ、照射後と同様な黒鉛マトリックスの隙間が認められた。

なお、照射中の黒鉛マトリックスの隙間の発生の原因としては、一般的には、①バインダー炭素材料の熱的な黒鉛化に伴う収縮、②照射寸法収縮が考えられる。①について考えると、照射温度は約1350°C以下であり、コンパクト製造時の焼成温度1800°C(1時間)に比べてはるかに低いため、正常に製造された黒鉛マトリックスについて

は熱的な黒鉛化が著しく進行することは考えにくい。また、②は高速中性子によるはじきだし効果としての照射寸法変化であり、OGL-1照射のような比較的低い照射量条件下 ($<10^{21} \text{m}^{-2}$, $E>29\text{fJ}$) では、黒鉛化に伴う収縮と考えている⁽¹⁸⁾。しかし、第11次燃料体の照射期間は計3サイクルと短かく、高速中性子照射量は最大で $1.7 \times 10^{20} \text{m}^{-2}$ ($E>29\text{fJ}$) と OGL-1 燃料体のうちでも低いレベルである。従って、照射寸法収縮が著しく進行することは考え難い⁽¹⁷⁾。

以上の観察および検討より、本燃料体のオーバーコート隙間については、照射条件の問題よりもむしろ製造時の問題であると考えられる。製造条件の詳細については検討中である。

3.2 第12次燃料体中のFP分布

3.2.1 黒鉛スリープ軸方向のFP分布

黒鉛スリープ軸方向のFP分布をFig.3.3a～3.3cに示す。また、 ^{110}Ag および放射化生成物である ^{60}Co 、 ^{54}Mn の分布をFig.3.3dに示す。

(1) ^{110}Ag 以外のFP核種の分布

Fig.3.3aにおいて、 ^{137}Cs と ^{134}Cs の分布の形および濃度ピーク位置は良く対応していることが分かる。また、Fig.3.3bに示す ^{144}Ce および ^{125}Sb の濃度ピーク位置と対応させて考えると、スリープ上端から約300mm、約430mmおよび約500mmの位置に破損粒子が存在していたものと推定される。

また、 ^{155}Eu および ^{154}Eu についても、他のFP核種の濃度ピークとほぼ一致した分布をしており、このことは両核種が主にFPとして生成したものであることを示している。一方、 ^{152}Eu については濃度ピークは明確ではない。このことは、不純物 ^{151}Eu の放射化による ^{152}Eu の生成の寄与がより大きいことを示している。

以上のとおり、 ^{110}Ag 以外のFP核種については第10次までの燃料体における測定結果⁽⁹⁻¹⁵⁾と大きな相違は認められなかった。

(2) ^{110}Ag の分布

Fig.3.3a～3.3dで特徴的なことは、 ^{110}Ag が高濃度で検出されたことである。 ^{110}Ag の分布に注目すると、(1)に述べた他のFP核種の分布との間に相関が見られないのに対して、 ^{60}Co の分布との間には、明らかな負の相関が見られている。すなわち、 ^{60}Co が高濃度で検出されている箇所では、逆に ^{110}Ag の濃度が低くなっている。

なお、 ^{60}Co の放射能が高い場合、ガンマ線スペクトル測定においてバックグラウンドの上昇によって ^{110}Ag の光電ピークが妨害されることが考えられる。しかし、本測定の場合には、 ^{110}Ag の光電ピーク強度に対するバックグラウンド強度は数%以下であったことから、上記の負の相関は放射能測定上の問題ではないと判断できる。

^{60}Co の生成源としては、

- ①黒鉛スリーブ中および燃料コンパクトの黒鉛マトリックス中に不純物として含まれていた ^{58}Co （天然存在比100%）の中性子捕獲によって生じたもの
- ②熱電対シーズ材の成分として含まれていた ^{58}Co の中性子捕獲によって生じたものの。（付録1に述べるように、熱電対シーズ材の溶融によって、シーズ材成分の ^{58}Co または ^{60}Co がスリーブへ移行したことが推定される。）

が考えられる。そして、Fig.3.3dに見られるスリーブ上端から約180mmの位置にある ^{60}Co 濃度ピークは、主に熱電対シーズ材からの移行によって生じたものであると考えることができる。

従来のOG-L-1燃料体では、 ^{60}Co の分布は中性子照射量分布とほぼ一致していたことから、上記①の不純物起源が主であると考えることができた。一方、第12次燃料体については、上記①に加えて②の寄与が局所的でかつ大きかった。そのため、上記のような ^{110m}Ag と ^{60}Co の分布の相関が明確に現われたものと考えられる。

3.2.2 黒鉛スリーブ径方向のFP分布

異なった軸方向位置におけるスリーブ径方向のFP分布をまとめて付録3に示す。ここでは、典型的な結果として、スリーブ上端から300-310mmの位置での径方向FP分布をFig.3.4a~3.4cに、同じく100-110mmの位置での ^{110m}Ag の分布をFig.3.5に示す。

(1) ^{110m}Ag 以外のFP核種の分布

^{110m}Ag 以外のFP核種の分布については、 ^{60}Co の濃度分布との相関は見られなかった。特に、 ^{137}Cs についてはFig.3.4aおよび付録3に示すように、 ^{60}Co の濃度分布にかかわらず、スリーブ径方向分布は定常状態に達していると考えられる濃度プロファイルを示しており、従来の測定結果と同様であった。

(2) ^{110m}Ag の分布

^{110m}Ag の分布に注目すると、一般的にはFig.3.5に見られるように、黒鉛スリーブ内面側で高濃度、外面側で低濃度となっている。これは、燃料コンパクト（被覆粒子）中で生成した ^{110m}Ag が、黒鉛スリーブ内面側から外面側へ移行したもの解釈できる。

この ^{110m}Ag については、他のFP核種の濃度ピークとの相関が見られないことから、破損粒子から放出されたものではないと思われる。可能性としては、①燃料コンパクトの黒鉛マトリックスに不純物として含まれていた ^{109}Ag が放射化されたもの、および②燃料核から健全な被覆粒子のSiC層を ^{109}Ag または ^{110m}Ag として拡散透過して放出されたもの、が考えられる。両者の寄与の程度について、本測定結果からは判断できない。

^{110m}Ag の分布には、 ^{60}Co の分布との負の強い相関が見られる (Fig. 3.4b 参照)。すなわち、 ^{60}Co が高濃度で検出されている箇所では ^{110m}Ag の濃度が顕著に減少していた。この傾向は、3.2.1項の(2)に述べたスリーブ軸方向分布の結果と整合的である。

以上のことから、 ^{60}Co の高濃度領域では Ag の拡散係数が増大したものと推定される。 Ag の拡散係数が増大する原因としては、以下のことが考えられる^(18, 19)。

①付録 1 に述べる Co を含む金属元素の触媒作用によりスリーブ黒鉛が腐食され、黒鉛の気孔構造が変化して黒鉛中の Ag の拡散係数が増大した。

②黒鉛の気孔表面に Co を含む金属元素が収着し、共収着効果により Ag に対する収着効果の低下が生じ、その結果 Ag の拡散係数が増大した。

黒鉛腐食の効果

黒鉛中の FP 拡散に及ぼす腐食の効果に関しては、 Cs ⁽¹⁸⁾ については知られている。一方、 Ag ⁽¹⁸⁾ については、1 %までの酸化重量減少 (burn-off) に伴って、拡散係数が急速に増加し、それ以上では連続的に減少するとされている⁽¹⁸⁾が、詳細な報告は入手していない。

ちなみに、12次 OGL-1 燃料体の黒鉛スリーブについては、熱電対シースの溶融物が付着したため、照射前後の重量を比較することはできなかった。しかし、従来の測定結果から考えて、重量減少は 0.1 %程度またはそれ以下の極くわずかな程度であると推定される。しかし、 Co を含む金属の触媒作用によって局所的に黒鉛が腐食されて気孔構造の変化が生じ、そのため Ag の拡散速度が増大することは、可能性としては考えられる。

共収着効果

黒鉛中の FP 元素の拡散については、他の元素の存在によって影響を受けることがされている。例えば、 Ca はある濃度レベル以上では Sr の拡散係数に影響を与える。これは、拡散における収着サイトの競合が生じることで説明されており⁽¹⁸⁾、共収着効果と呼ばれている。 Ag の共収着効果に関するデータは入手していないが、 Co を含む金属元素による共収着効果の可能性は考えられる。

黒鉛中の Cs と Ag の存在状態については、以下のように考えられている。すなわち、 Cs は第 1 イオン化ボテンシャル (3.89eV) が、多結晶黒鉛のそれ (推定値 4.6-4.7eV) に比べて小さいため、表面濃度が低い場合には Cs^+ イオンとして存在する⁽¹⁸⁾。そして、 Cs^+ イオンは直径 < 1 nm の微小気孔に捕獲 (trap) されており、微小気孔表面での吸脱着と表面拡散により移動 (migration) が生じる⁽¹⁸⁾ というモデル (拡散-トラップモデル) で黒鉛中の移動が説明されている⁽¹⁸⁾。

一方、 Ag は第 1 イオン化ボテンシャル (7.57eV) が多結晶黒鉛のそれより高いため、原子状態で吸着して存在する⁽¹⁸⁾。そして、 Cs 、 Sr が表面拡散によって移動するの

に対して、Agについては脱着と気相拡散によって移動するという考え方が示唆されている⁽¹⁸⁾。これは、表面拡散原子種については拡散と蒸発の活性化エネルギーの比が1より小さいのに対して、Agではその比が1に近いことから考えられたものである。

本実験結果との対応

本実験において、⁸⁰Co分布との相関がCsとAgで異なっていた理由としては、以下のことが考えられる。

- ① Csの場合、拡散係数が十分に大きく、Coをふくむ金属元素の影響により拡散係数が増加したとしても、スリーブ径方向のプロフィルには影響が現われない。
- ② CsとAgで黒鉛中の拡散機構が異なり、従ってCoをふくむ金属元素の黒鉛酸化促進または共収着の影響が異なる。

拡散機構の解明を含めて、CsとAgの黒鉛中の移動に関する詳細な知見を得るためにには、良く制御された条件 (well-defined conditions) のもとでの実験的研究と理論的な検討が必要であろう。実験的研究は、炉外実験を中心とし、合わせて照射の効果を調べるための照射実験を行うものが有効であろう。

3.2.3 黒鉛ブロック中のFP分布

(1) 軸方向分布

第12次燃料体の黒鉛ブロック軸方向の放射性核種の分布をFig.3.6aおよびFig.3.6bに示す。¹³⁷Cs、¹³⁴Csの生成源については、3.3節で検討する。^{110m}Ag、⁵⁴Mnの生成源については、以下の(2)で検討する。

(2) 径方向分布

黒鉛ブロック径方向の分布については、詳細は付録4に示し、ここでは典型的な例として、ブロック上端から290-300mmの位置における径方向分布をFig.3.7a~3.7cに示す。

径方向分布では、ブロック内表面（燃料棒挿入孔表面）および外表面で^{110m}Agが検出された(Fig.3.7b)。冷却材の流れは内表面側と外表面側で分離していることを考えると、黒鉛スリーブ側から放出された^{110m}Agまたは¹⁰⁸Agが、黒鉛ブロックの外表面側に移行することは考えにくい。従って、この外表面で検出された^{110m}Agは、冷却材流れに乗って移動してきた¹⁰⁸Agが、ブロック外表面に沈着し、中性子捕獲反応により放射化されたものと考えられる。その¹⁰⁸Agのソースとしては、燃料体の金属製構造材等に不純物として含まれていたものが考えられる。

一方、内表面で検出された^{110m}Agについては、FP起源によるものの寄与と不純物放射化の寄与の両方が考えられる。FP起源の場合には、核分裂と引続く崩壊によって、安定核種である¹⁰⁸Agが生成し、さらに中性子捕獲反応〔(n,γ)反応〕により

110m Agが生じる。FP起源による 110m Agの検出については、貫通破損粒子およびSiC層破損粒子（4層の被覆層のうち、SiC層は破損しているものの4層全ての被覆層の貫通破損には至っていないもの）および健全粒子からの放出の可能性がある。また、不純物放射化についても、金属製構造材等含まれていた不純物、黒鉛ブロックまたは黒鉛スリーブ素材に付着していた不純物、燃料コンパクトの黒鉛マトリックス中に含まれていた不純物等の種々の可能性がある。

以上のほかに、黒鉛ブロックの肉厚中央部のタイロッド孔では、 110m Agはブロック内面側よりも高濃度で検出された（Fig.3.7b）。同じ位置において、 54 Mnの濃度がタイロッド孔位置で高くなっている（Fig.3.7c）のは、 54 Mnがタイロッドの材料であるハステロイXの構成元素であるFeから、 $^{54}Fe(n,p)^{54}Mn$ の反応によって生じたものであることを示している。タイロッド孔における 54 Mnの分布から考えると、タイロッド孔の 110m AgはハステロイXに不純物として含まれていた 108 Agの放射化によって生じたものか、または不純物を起源として何らかの原因でタイロッド孔の内表面に沈着したものと考えられ、FP起源により生成した 110m Agが燃料コンパクト側から移行したものではないと推定される。

3.3 黒鉛スリーブ中へのFP放出割合および各核種の生成起源のまとめ

第11次および第12次燃料体について、金属FPの黒鉛スリーブ中とコンパクト中の放射能の比を、各々Fig.3.8～3.10およびFig.3.11に示す。その評価方法については、2.3節の(2)に述べた。これらの図および既に述べたことを用いて、各核種の生成源についてまとめる。

(1) ^{137}Cs および ^{134}Cs

結論的には、両核種の主な生成源は以下のとおりであると考えられる。

第11次 スリーブ	第12次 スリーブ	第12次 ブロック
^{137}Cs	FP起源	FP起源
^{134}Cs	FP起源	FP起源+不純物放射化

^{137}Cs は実際上FPとしてしか生成しない⁽¹¹⁾。一方、 ^{134}Cs については、一般にはFPとして生成した ^{133}Cs の中性子捕獲反応 [$^{133}Cs(n,\gamma)^{134}Cs$] によって

生じるもの（FP起源）と黒鉛中の不純物 ^{133}Cs の中性子捕獲反応による放射化（不純物放射化）による生成がありうる。そして、前者の場合は、スリーブ軸方向分布における破損粒子からの濃度ピークや、スリーブ径方向における相対濃度分布において、両核種は同様な分布を示す。一方、後者では ^{134}Cs は中性子照射量に近い分布を示し、 ^{137}Cs の分布とは必ずしも一致しないという結果が従来のOGL-1燃料体の測定から得られている⁽¹¹⁾。

第11次燃料体、第12次燃料体とともに、黒鉛スリーブにおける ^{134}Cs と ^{137}Cs についての上記放射能比の軸方向相対分布は、破損粒子からの移行によると思われる濃度ピークの位置および形状を含めて、良く似ている。この結果は、測定された ^{134}Cs が主にFP起源により生成したものであることを示している。

一方、第12次燃料体の黒鉛ブロックでは、Fig.3.6aに見られるように、 ^{134}Cs の分布は ^{137}Cs の分布と良く似ているのに対して、中性子照射量分布（第12次燃料体では ^{54}Mn の分布に似ている）とは大きく異なっている。従って、本燃料体の場合には、 ^{134}Cs は主にFP起源により生成したものであると考えることができる。

ただし、冷却材流れの上流側で比較的低温である下端に近い軸方向位置では、 ^{134}Cs と ^{137}Cs は異なった径方向分布をしている（付録4のFig.A4.9a、A4.10a参照）。この結果は、下端側で検出された ^{134}Cs については、黒鉛中の不純物として生成したもののが寄与がより大きいことを示している。

(2) $^{110\text{m}}\text{Ag}$

第11次燃料体では $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は検出されなかった。

第12次燃料体の黒鉛スリーブ中で測定された $^{110\text{m}}\text{Ag}$ については、3.2.2項の(2)で検討した。また、第12次燃料体の黒鉛ブロック中で検出された $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の生成源については、3.2.3節で議論した。

以上より、第12次燃料体で検出された $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の主な生成源について、以下のようにまとめることができる。

黒鉛スリーブ	F P起源（主に燃料核中で生成）または 黒鉛マトリックス中の不純物放射化
--------	---

黒鉛ブロック	
外表面側	不純物放射化
内表面側	F P起源または不純物放射化
タイロッド孔	不純物放射化

(3) Eu 同位体

Eu 同位体の生成源については、3.1節の(1)および3.2.1項の(1)で検討した。検討結果から主な生成源についてまとめると、以下のようなになる。

第11次燃料体 黒鉛スリーブ	第12次燃料体 黒鉛スリーブ
^{152}Eu 不純物放射化	不純物放射化
^{154}Eu 不純物放射化	FP 起源
^{155}Eu FP 起源	FP 起源

^{154}Eu は、黒鉛中の不純物 ^{153}Eu の放射化（熱中性子捕獲反応）によって生成する場合には、その生成量は熱中性子照射量に比例して増加する。一方、FP 起源により生成する場合には、まず、OGL-1 条件では殆ど ^{235}U の核分裂によって安定核種 ^{153}Eu が生成し、さらに中性子捕獲反応によって ^{154}Eu が生じる。すなわち、2 回の核反応を伴うため、 ^{154}Eu の生成量は熱中性子照射量のほぼ 2 乗に比例して増加する。従って、低照射量である第11次燃料体に比べて、高照射量である第12次燃料体では FP 起源からの寄与が不純物放射化の寄与を上回り、上に示したような違いが現われたものと考えられる。

(4) ^{144}Ce 、 ^{125}Sb 、 ^{106}Ru

いずれも実際上 FP としてしか生成しない核種である⁽¹¹⁾。第11次および第12次燃料体においても、不純物放射化による生成の寄与は無視できると考えられる。

3.4 今後の研究課題

今後の課題を以下に検討する。

(1) 健全粒子からの FP (特に Cs) の放出挙動

第12次燃料体では、第9次および第10次燃料体に比べて、被覆粒子の貫通破損率および SiC 層破損率が低い燃料を製造することができたので、このような破損率の低い燃料を長期照射した場合の FP 挙動を調べることを1つの目的としていた。すなわち、金属 FP、特に ^{137}Cs が健全粒子から相当量放出される^(20, 21)のか、それとも放出は実際上無視できる程度に少ないのかという点に注目した。しかしながら、第12次燃料体の被覆粒子の貫通破損率および SiC 層破損率は、健全粒子からの放出を検討できる水準ほどは低くなく、また、熱電対シース材の溶融によって照射中に被覆粒子破損（貫

通破損およびSiC層破損)が生じたために明確な解答は得られなかった。

ちなみに、貫通破損粒子およびSiC層破損粒子の含有率が燃料コンパクトあたり1個以下(HTTR初装荷用燃料コンパクト中に含有される被覆粒子数は約13500個であるから、破損率は 7.4×10^{-6} 以下)になると、以下に示すように、黒鉛スリーブ中のFP分布から、FPの放出源として、貫通破損粒子、SiC層破損粒子、健全粒子の区別を行える可能性がある。

(a) 贯通破損粒子が放出源のとき

^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、Eu同位体(^{154}Eu および ^{155}Eu)のほかに、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb が検出されるはずである。貫通破損粒子が孤立して存在しており、かつFPが放出されやすい破損状態(燃料核が炭化、被覆層に大きなクラック発生、燃料コンパクト表面近くの粒子の破損等)の場合には、黒鉛スリーブ軸方向にFP濃度ピークが見られる可能性がある。

(b) SiC層破損粒子が放出源のとき

Eu同位体は検出されるが、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb は殆ど検出されないであろう。 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs については長期照射では検出されることが期待されるが、それらの放出割合は、Eu同位体の放出割合に比べて小さい可能性がある。

これらの予測は、以下の実験結果から得られたものである。すなわち、SiC層破損粒子を模擬する目的でBISO被覆粒子を一部装荷して照射した第8次OLG-L-1燃料体の黒鉛スリーブ中のFP分布測定において、 ^{155}Eu がBISO被覆粒子を含有したコンパクトの装荷位置で特異的に検出された⁽⁸⁾。また、BISO被覆粒子の照射後加熱実験において、1800°C以下の温度では ^{155}Eu の放出割合が最も大きく、次いで ^{134}Cs および ^{137}Cs の放出割合が大きかった。一方、 ^{144}Ce および ^{125}Sb は、1800°C以上の高温で加熱しない限り放出は検出されなかった^(22, 23)。

以上の結果は、EuのほうがCsよりも熱分解炭素層中の拡散係数が大きいことを示しており、そのためSiC層破損粒子からの放出においても、熱分解炭素層中の拡散係数の大小に従ってEu同位体のほうが放出割合が大きくなることを示唆している。また、後者の実験結果は、1350°C程度の温度での通常運転条件下において、SiC層破損粒子からの ^{144}Ce および ^{125}Sb の放出は無視できる程度であることを示唆している。

(c) 健全粒子が放出源のとき

^{134}Cs 、 ^{137}Cs については、健全なSiC層を拡散透過する可能性があるため、長期照射では検出される可能性がある。しかし、Eu同位体、 ^{144}Ce 、 ^{125}Sb は健全なSiC層によって保持されて、殆ど検出されないと考えられる。なお、なんらかのFP核種について健全粒子からの放出が検出される場合には、

燃料棒軸方向の濃度分布は軸方向の温度分布を反映したものとなることが予想されり、かつ、特異な濃度ピークは生じないはずである。

以上の指標を念頭において、今後、被覆粒子の貫通破損およびS i C層破損率が十分低い燃料について長期照射を行えば、実際の照射下での健全粒子からのF Pの放出挙動を把握できる可能性がある。

なお、O G L - 1 燃料体においては、被覆粒子から放出されたF P、特にCsは、燃料コンパクト中および黒鉛スリーブ中を拡散透過して冷却材中へと移行するため、被覆粒子からの放出総量を求めるることは難しい。一方、スィープガスキャプセル照射では、照射後に黒鉛容器中のF P放射能を測定するなどの方法により、放出総量を正確に測定できる可能性がある。

(2) 110m Agの黒鉛中の移行挙動

第12次燃料体では、 110m Agの分布が 60 Coの分布と負の相関を示すという特異な挙動が観察された。

Agはドイツで開発されたペブル型燃料における黒鉛マトリックス中では、Csに比べて大きな拡散係数を持つことが知られているが⁽¹⁹⁾、IG-110製黒鉛スリーブ中では、逆にCsよりも小さな拡散係数を持つという結果が得られている⁽¹²⁾。しかし、今回の測定結果からは、Agの黒鉛中の移行挙動は単純ではなく、他の元素(Coをふくむ金属元素)の影響を大きく受けることが示された。

将来にわたる高温ガス炉開発において、燃料体に黒鉛材料を用いる場合には、Agの移行挙動に影響を与える元素の種類およびそのメカニズムについて、より深い研究が必要である。ちなみに、Agは、健全な被覆粒子のS i C層中の拡散によって被覆粒子から放出されるという結果がドイツでの研究から得られている^(20, 21, 24)。また、Dragon炉の1次系⁽²⁵⁾およびAVRのVampyr配管^(26, 27)において、 110m Ag(半減期252日)および 111 Ag(同7.45日)の沈着が観察されている。特に、 110m Agはエネルギーの高いガンマ線を放出する長半減期核種であるため、 110m Agの移行挙動を調べることは被曝評価、遮蔽設計等の点で重要である。

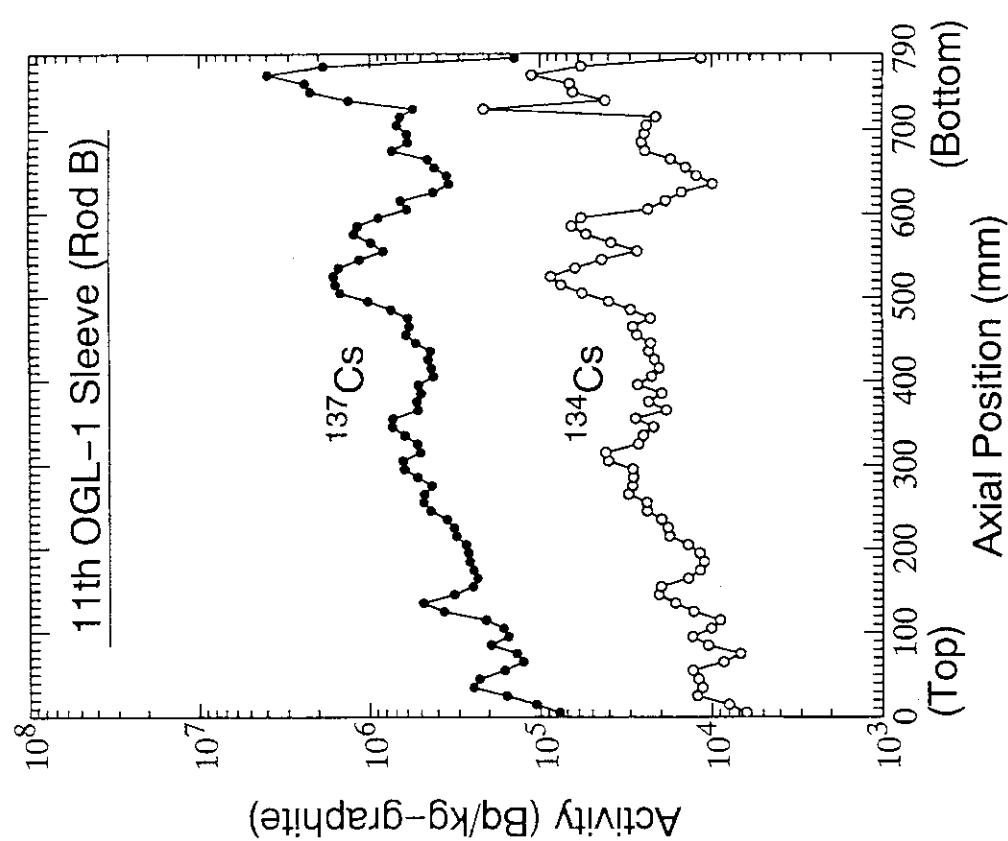


Fig. 3.1a Axial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

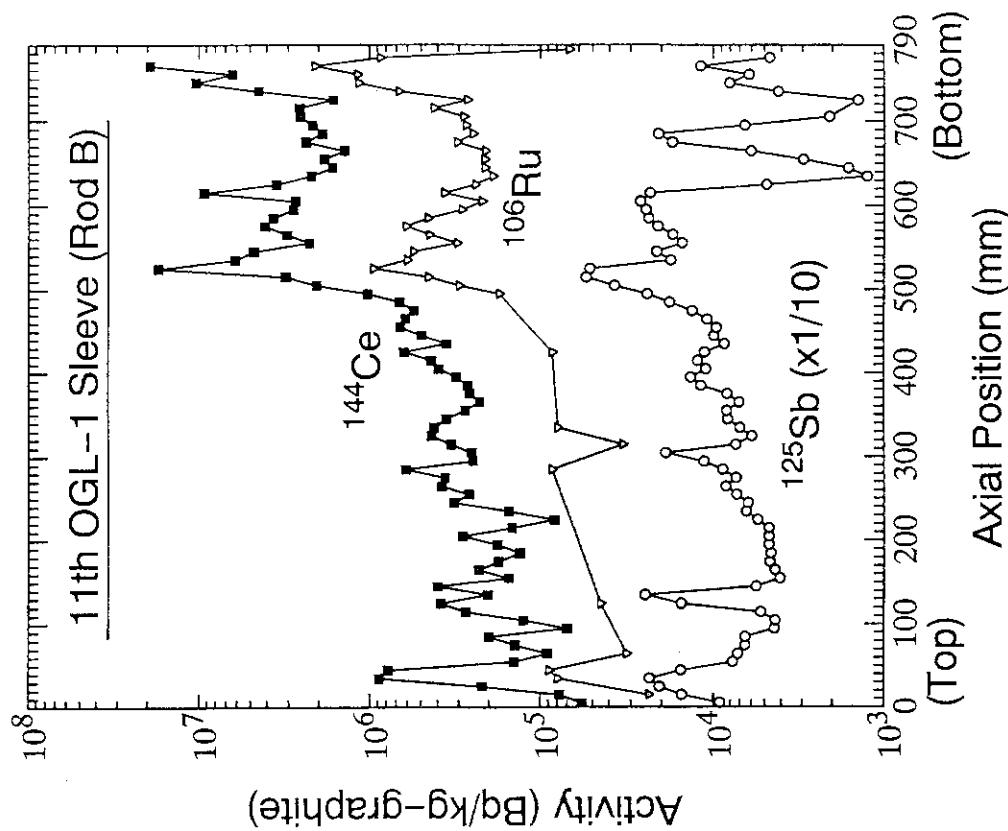


Fig. 3.1b Axial profiles of ^{144}Ce , ^{106}Ru and ^{125}Sb in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B). Activity profile of ^{125}Sb has been depicted by multiplying a factor of 1/10 for convenience in comparison. Similar expression is used below.

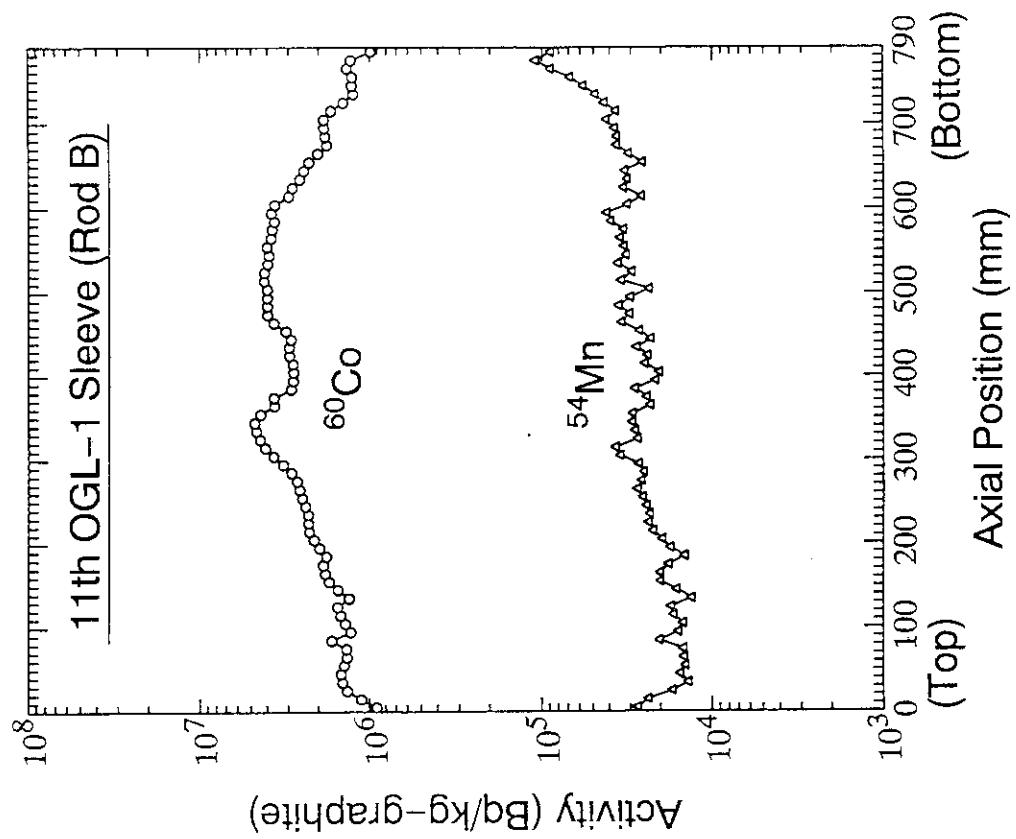


Fig. 3.1d Axial profiles of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

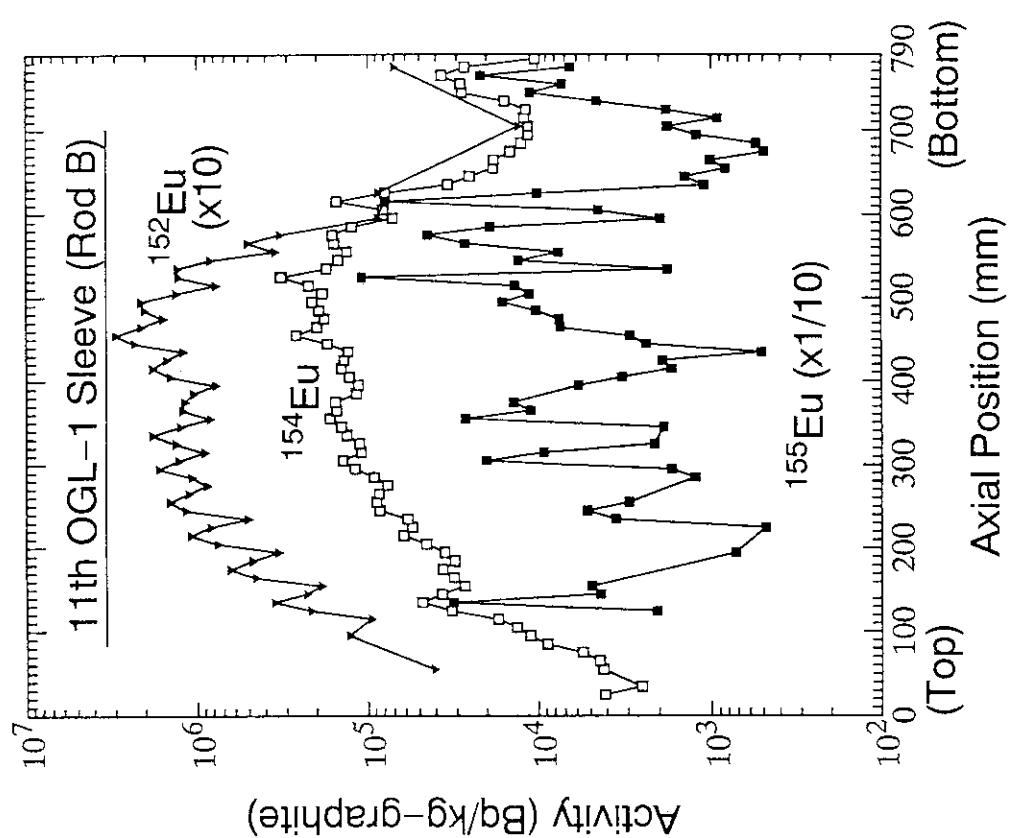
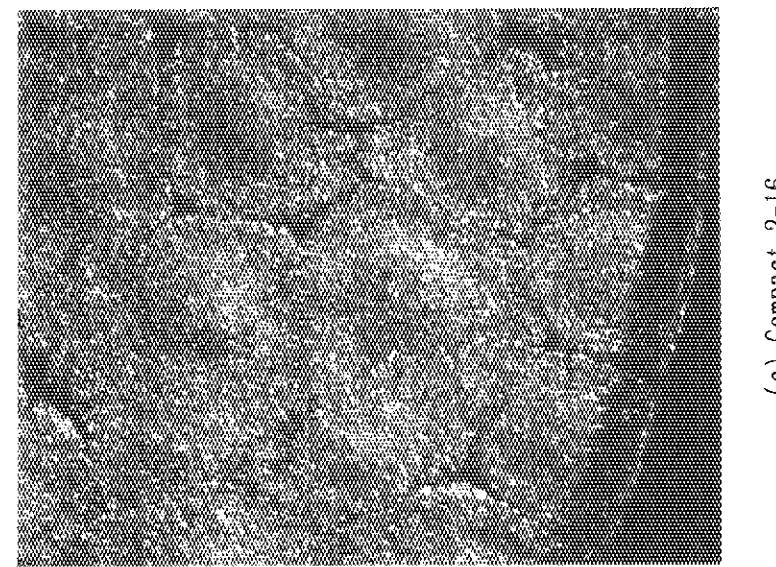
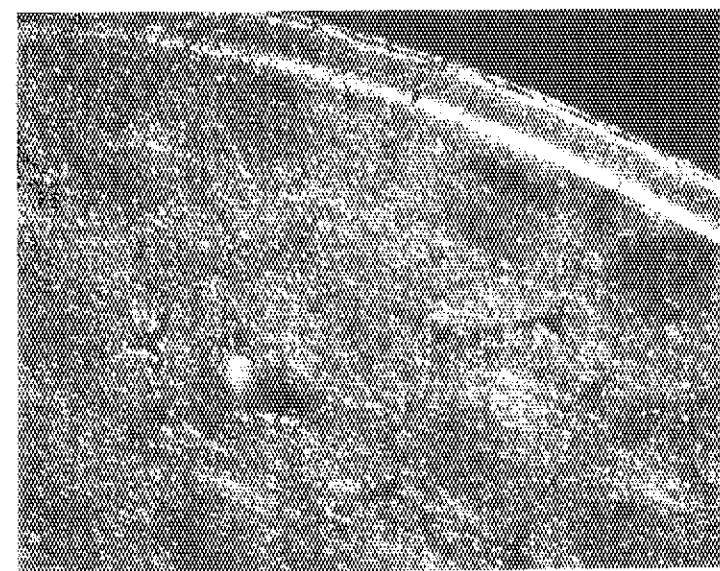


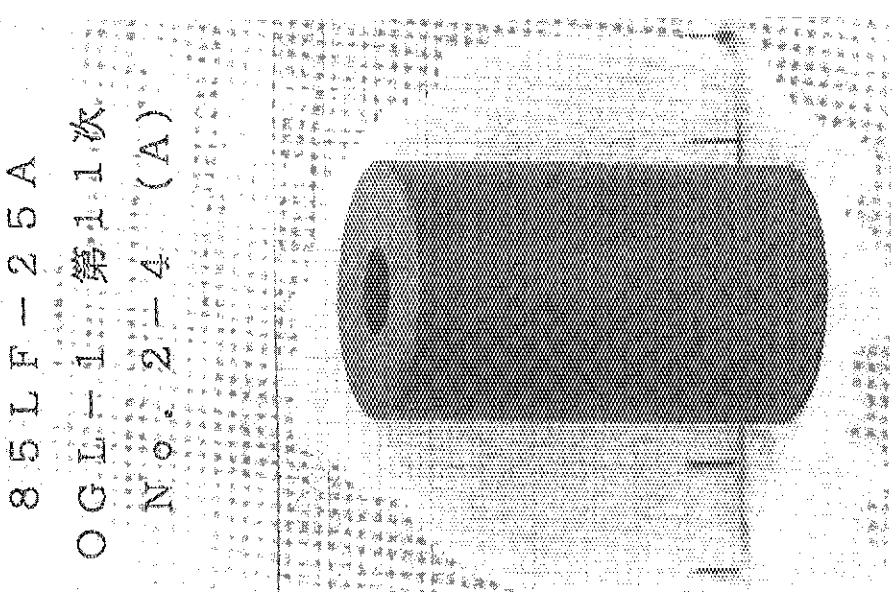
Fig. 3.1c Axial profiles of ^{152}Eu , ^{154}Eu and ^{155}Eu in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).



(a) Compact 2-4
(3Jr-262)



(b) Compact 3-12
(3Jr-241)



(c) Compact 2-16
(3Jr-258)

Fig. 3.2 Surface appearance of fuel compacts loaded in 11th OG1-1 fuel assembly.

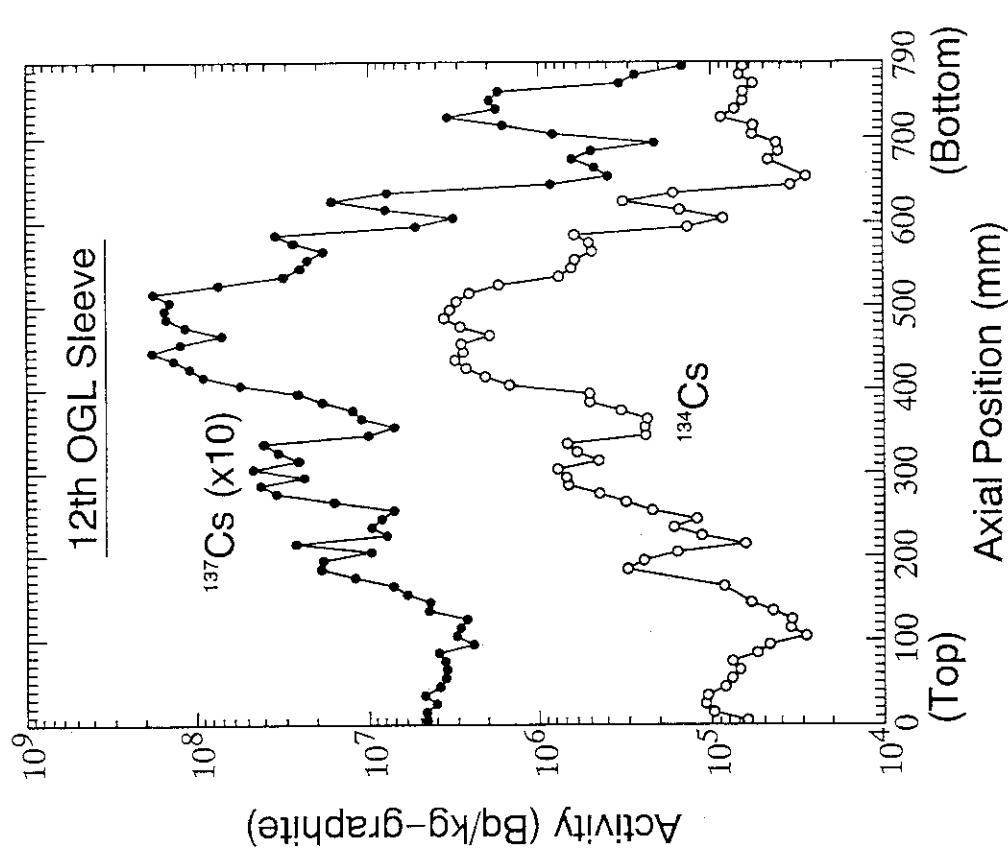


Fig. 3.3a Axial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly.

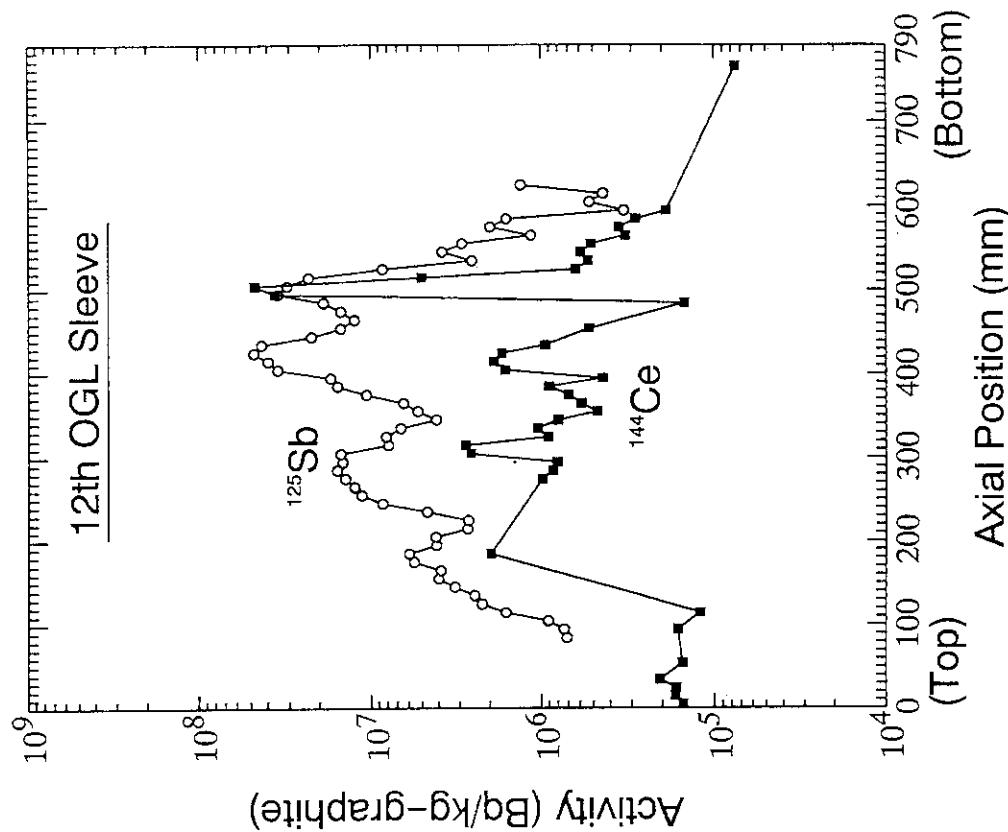


Fig. 3.3b Axial profiles of ^{125}Sb and ^{144}Ce in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly.

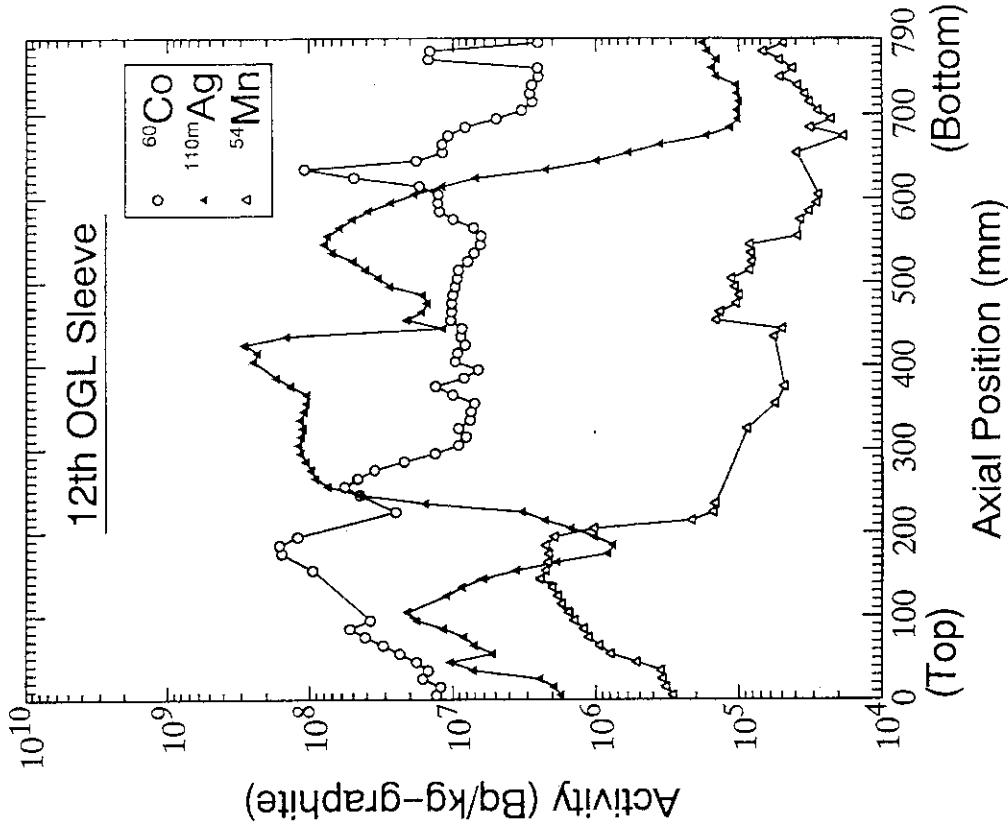


Fig. 3.3d Axial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OG-1 fuel assembly.

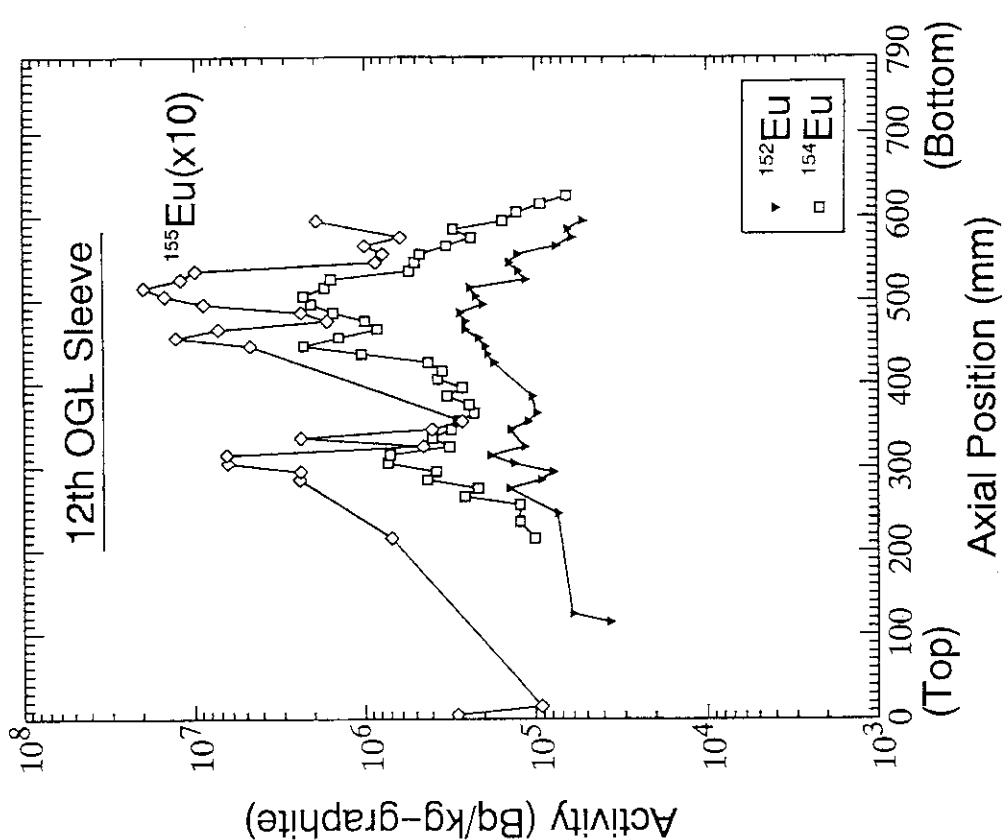


Fig. 3.3c Axial profiles of ^{154}Eu and ^{155}Eu in graphite sleeve of 12th OG-1 fuel assembly.

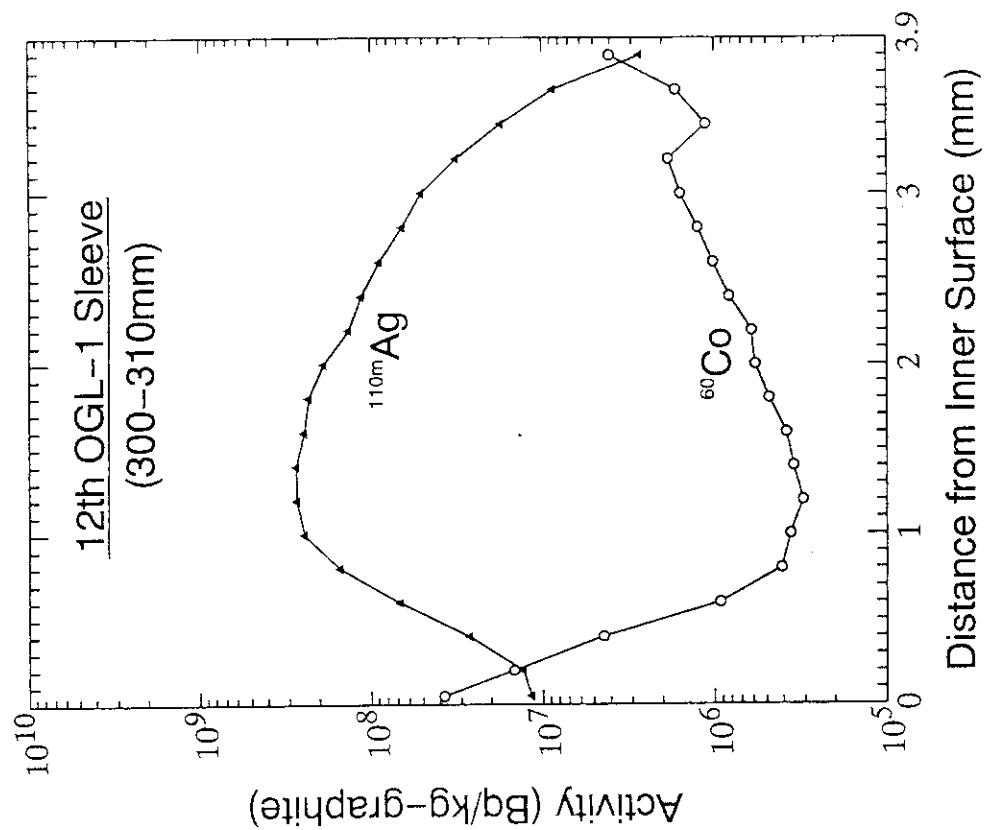


Fig. 3.4b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300–310mm from sleeve top.

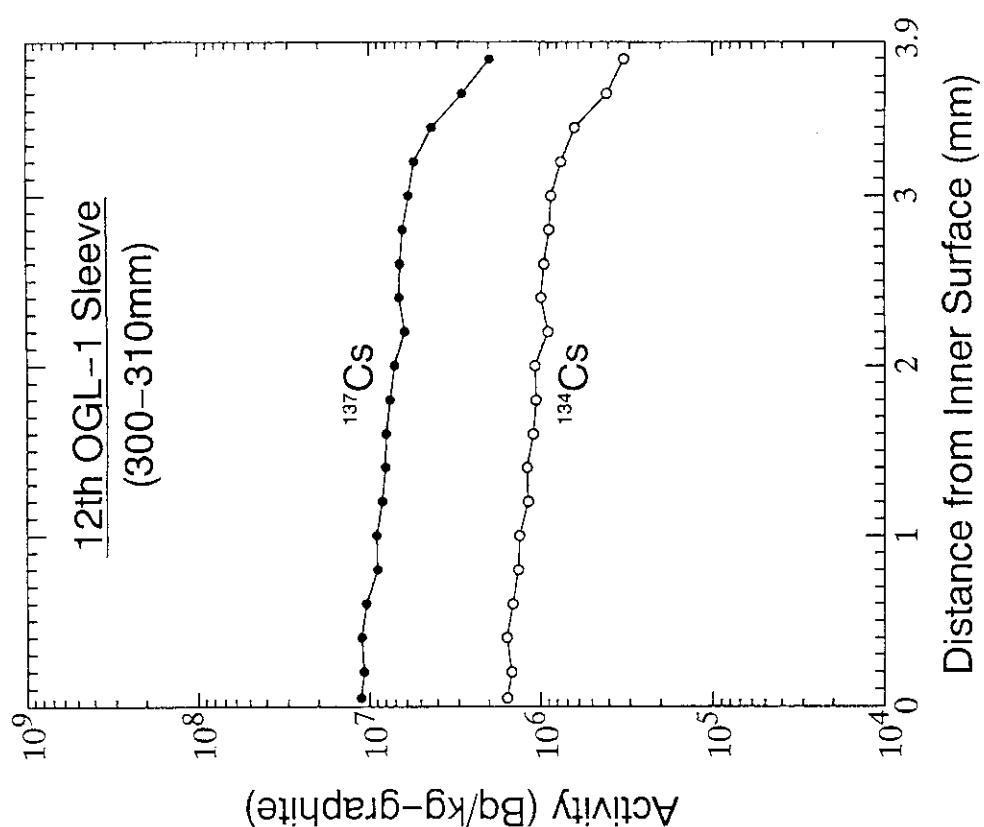


Fig. 3.4a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; at axial position of 300–310mm from sleeve top.

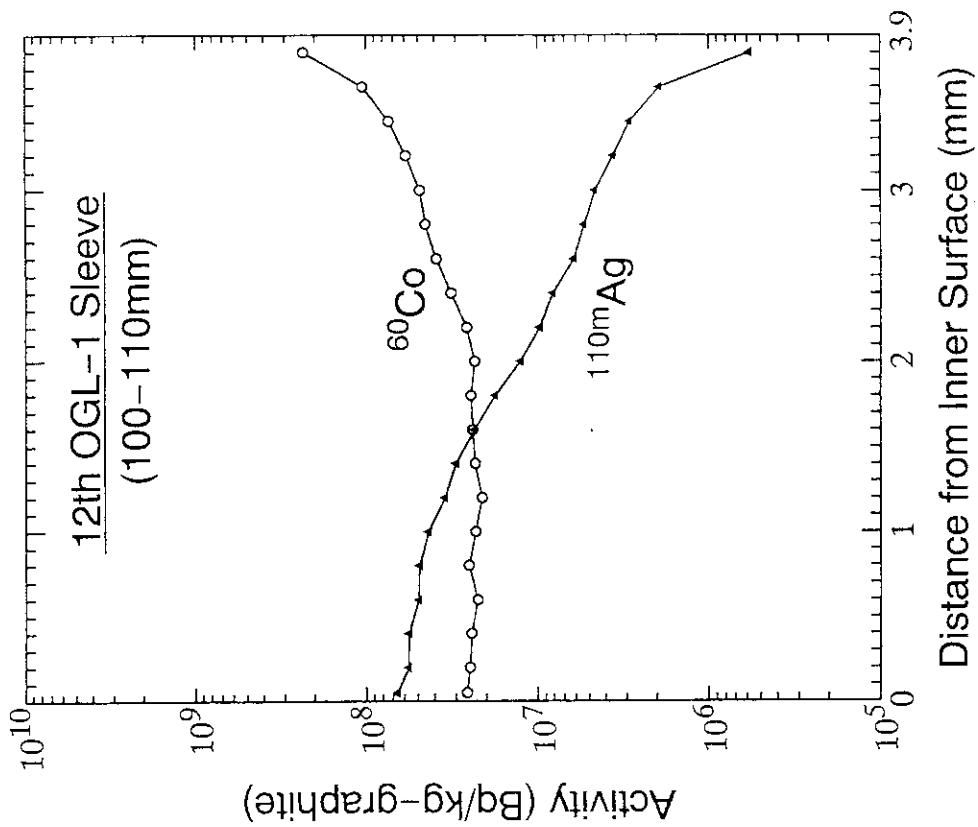


Fig. 3.5 Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 100-110mm from sleeve top.

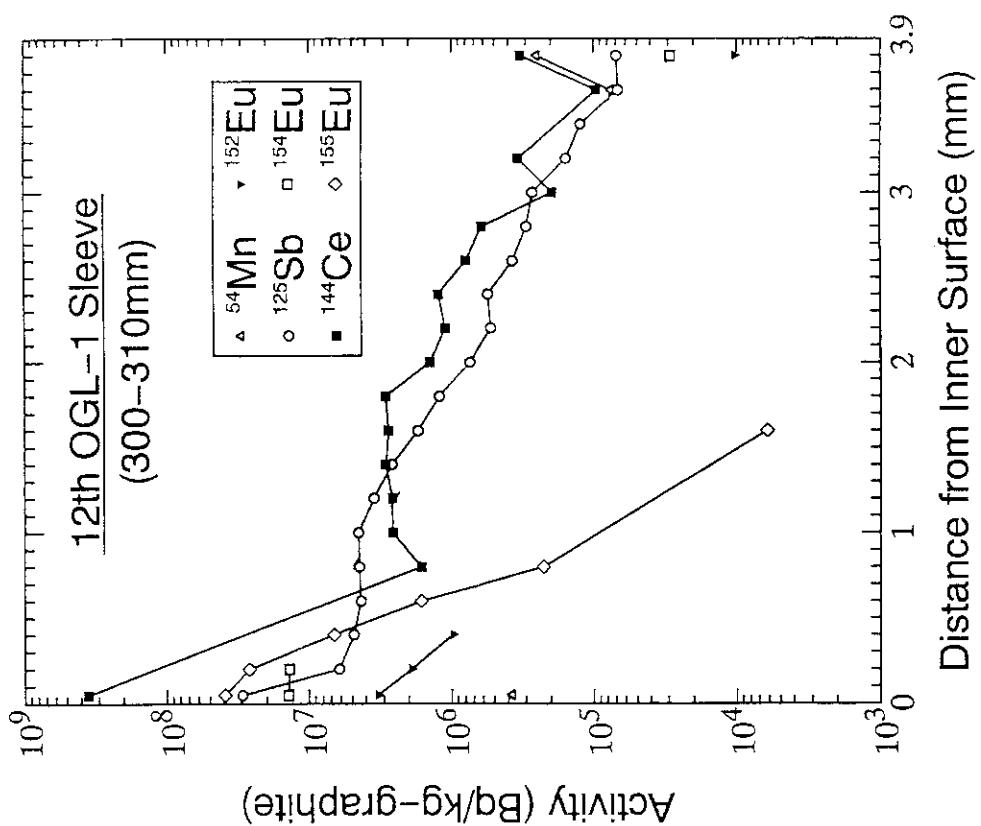


Fig. 3.4c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300-310mm from sleeve top.

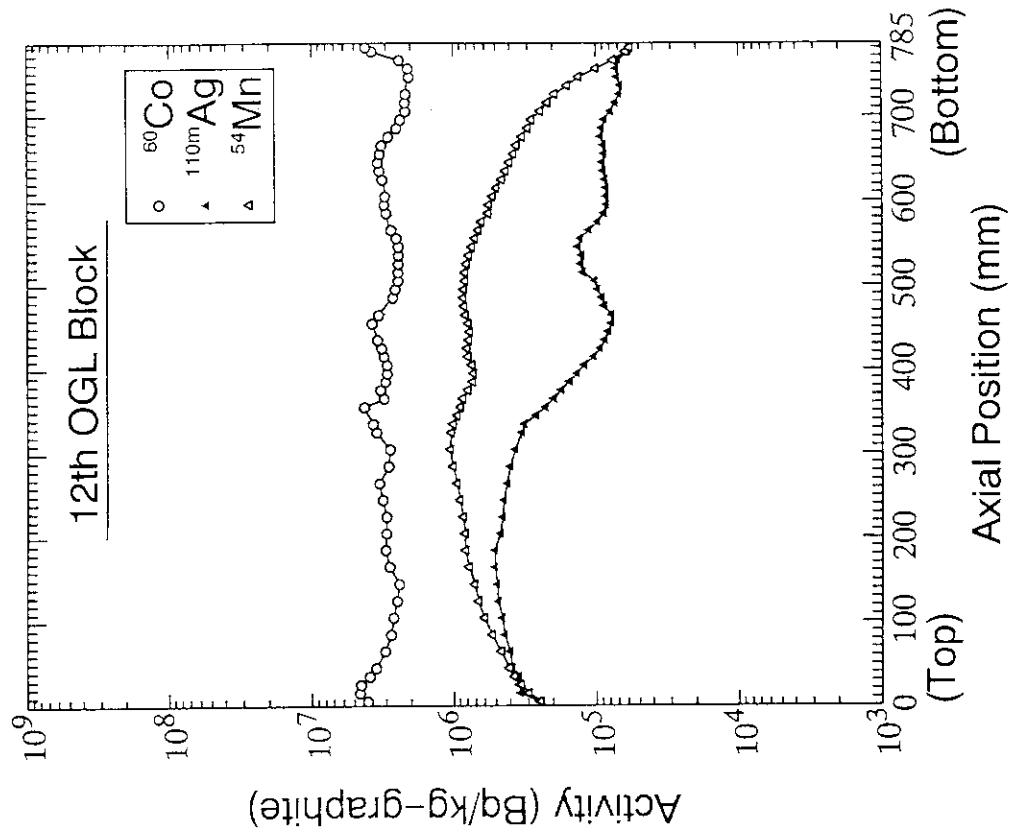


Fig. 3.6b Axial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly.

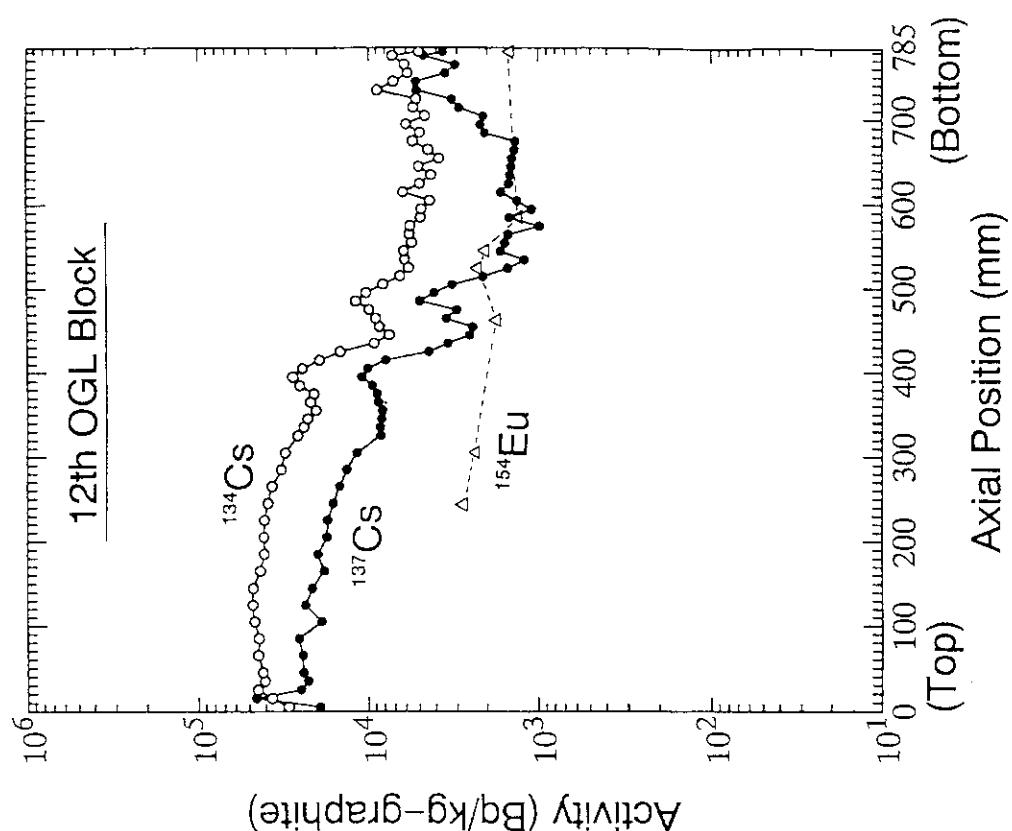


Fig. 3.6a Axial profiles of ^{137}Cs , ^{134}Cs and ^{154}Eu in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly.

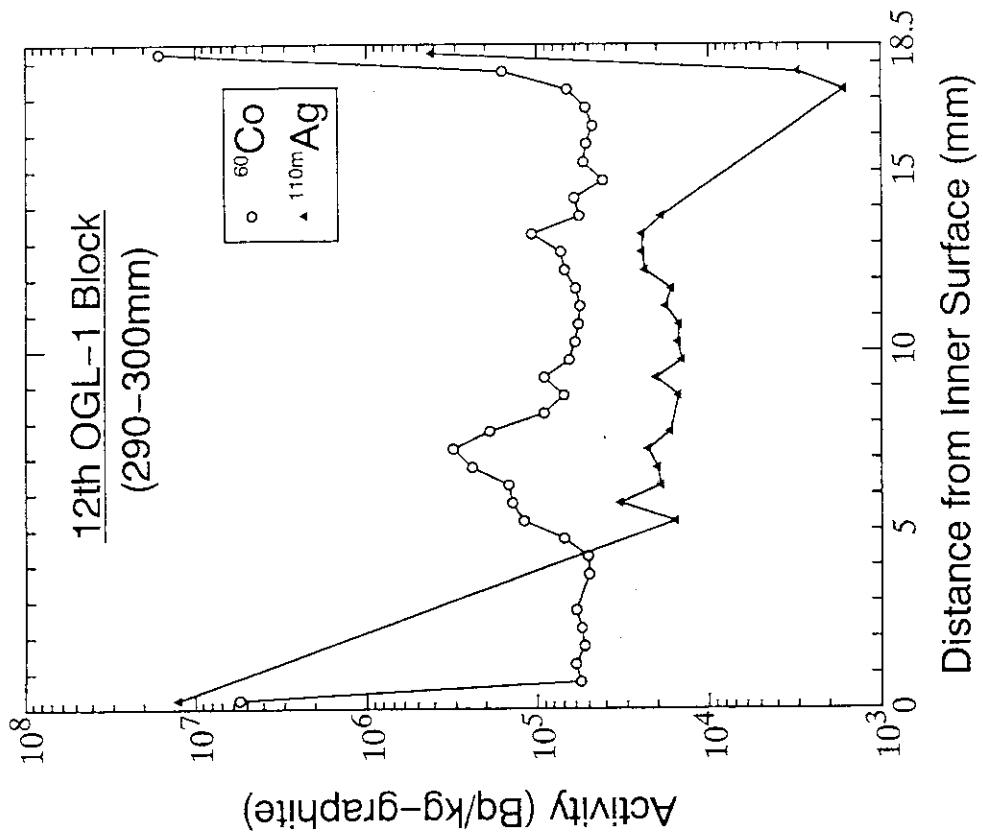


Fig. 3.7b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290-300mm from block top.

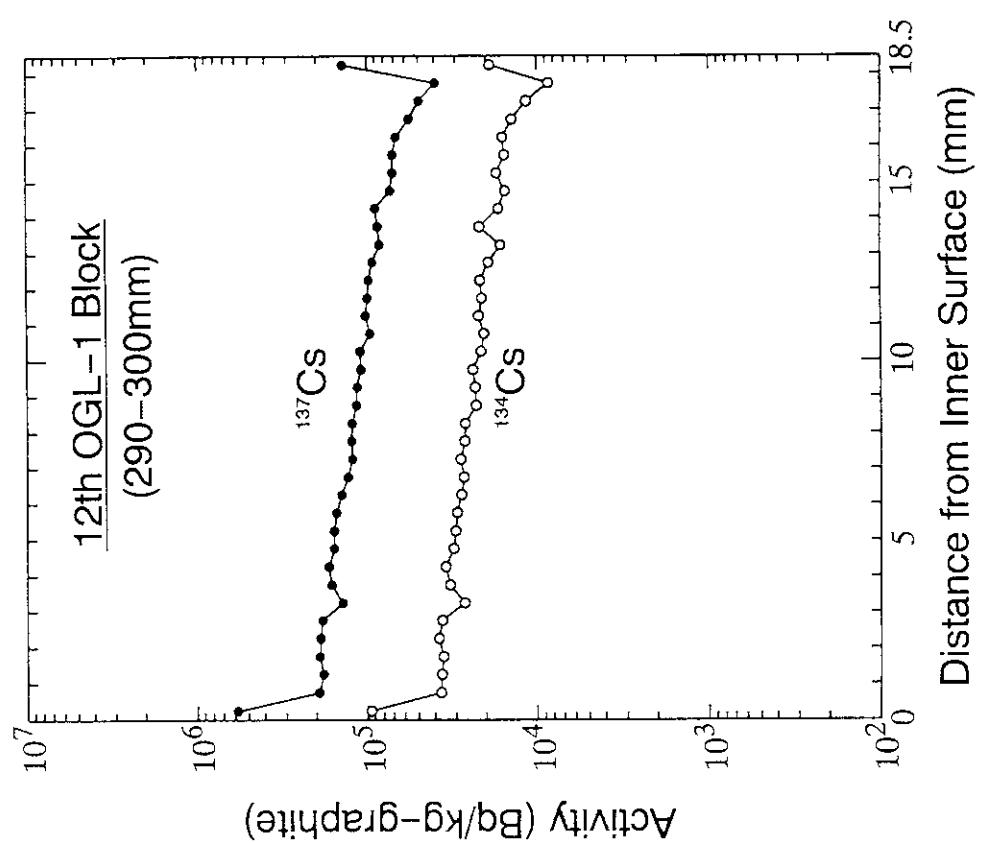


Fig. 3.7a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290-300mm from block top.

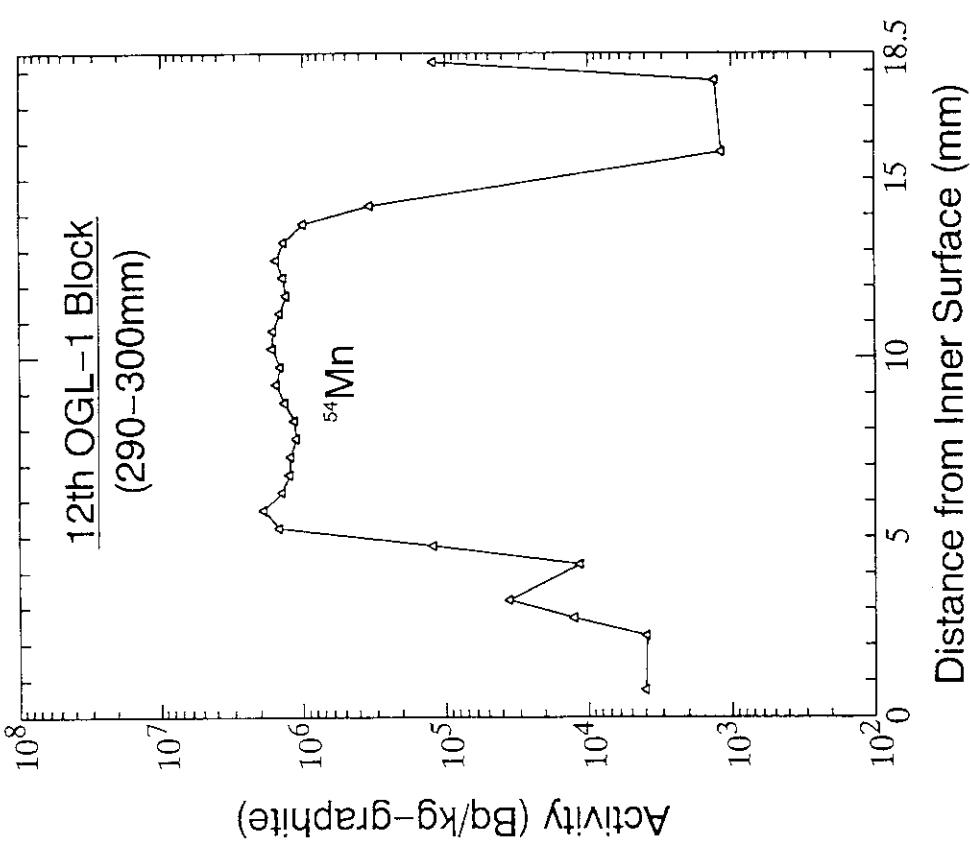


Fig. 3.7c Radial profiles of ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290–300mm from block top.

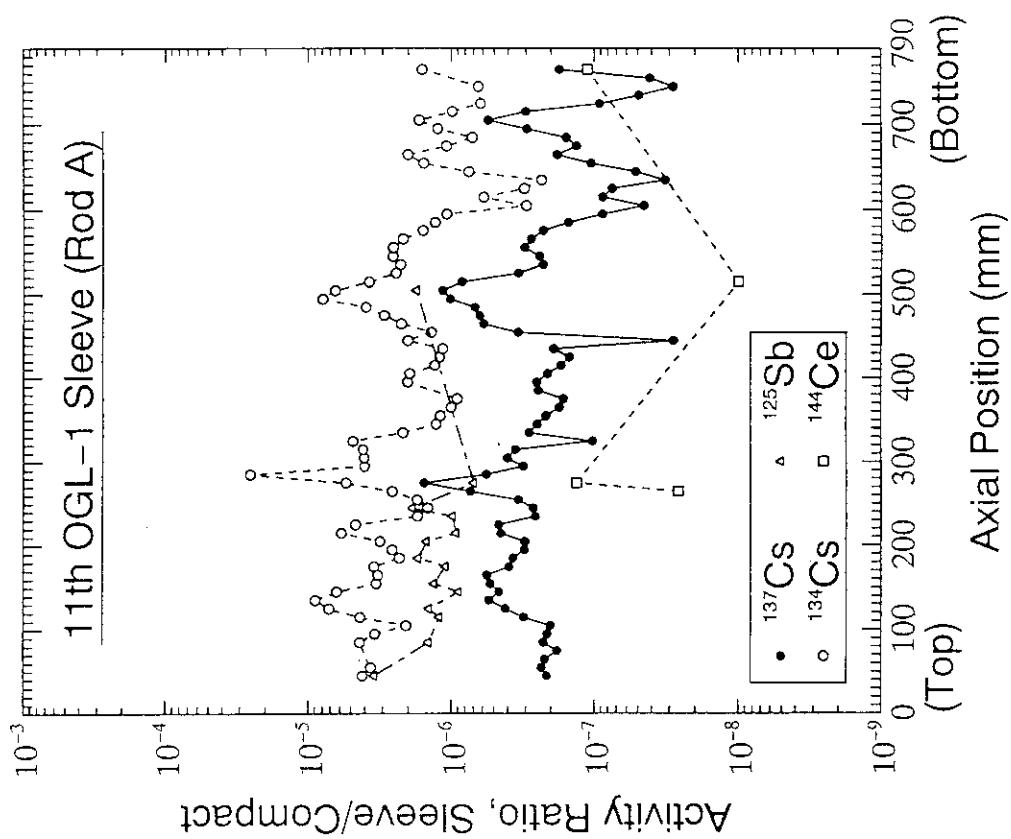


Fig. 3.8a Axial profiles of activity ratios of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb and ^{144}Ce in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

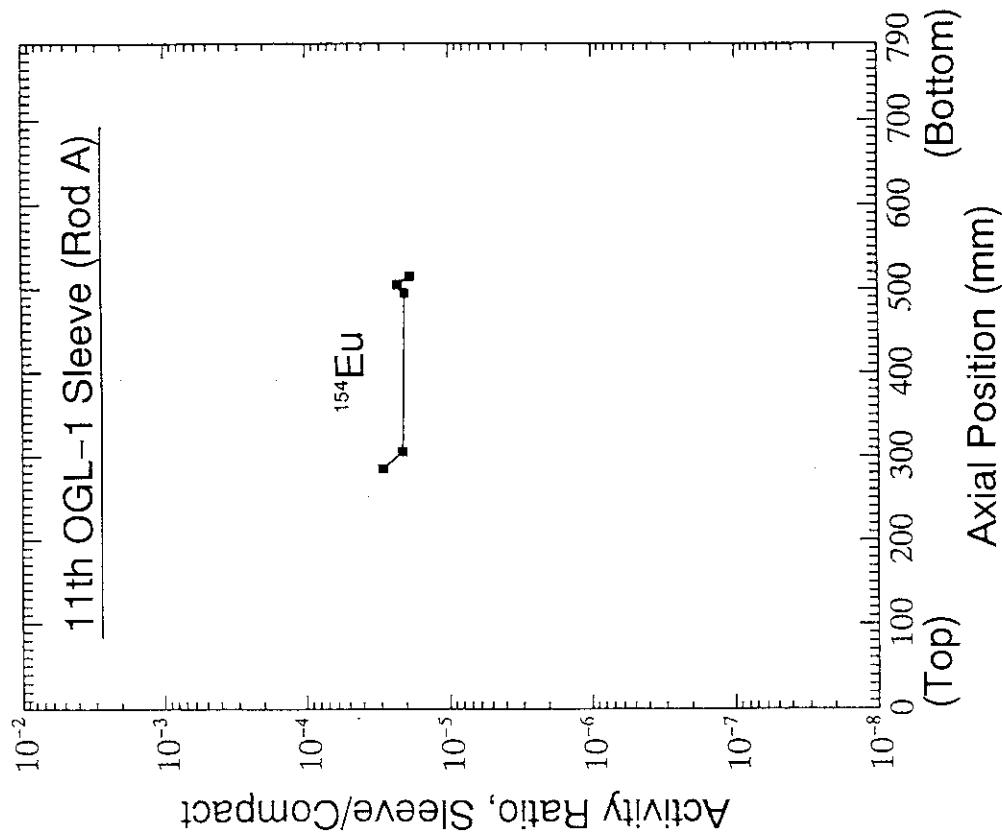


Fig. 3.8b Axial profile of activity ratios of ^{154}Eu in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

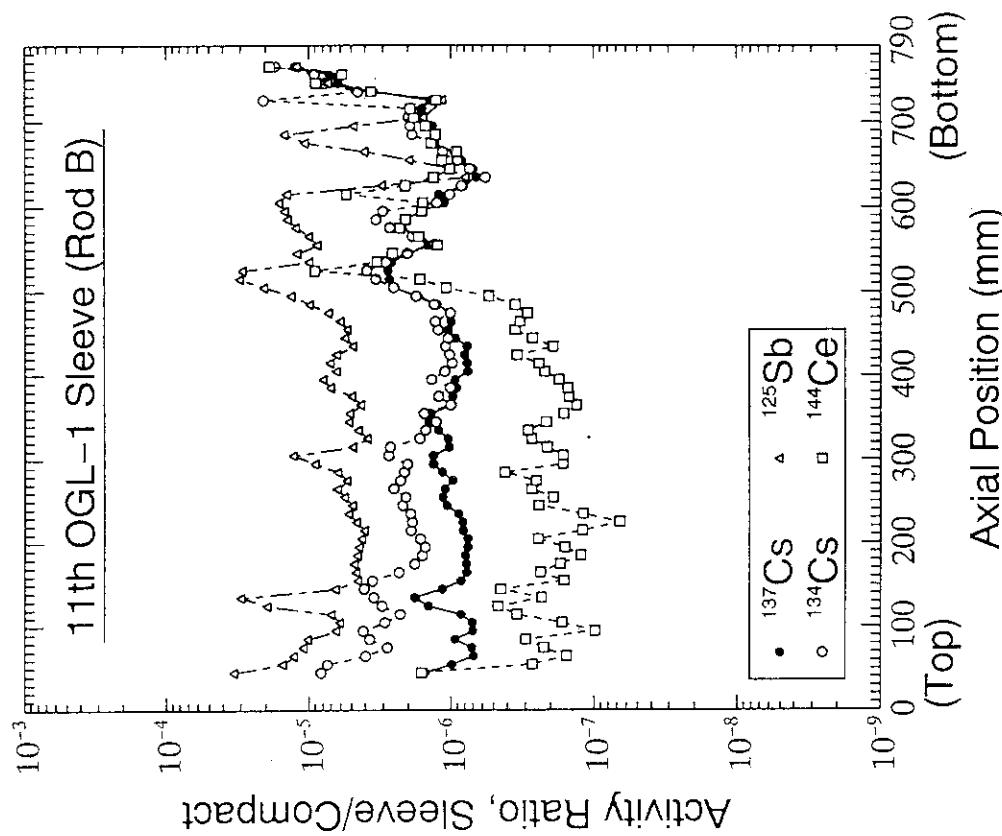


Fig. 3.9a Axial profiles of activity ratios of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb and ^{144}Ce in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

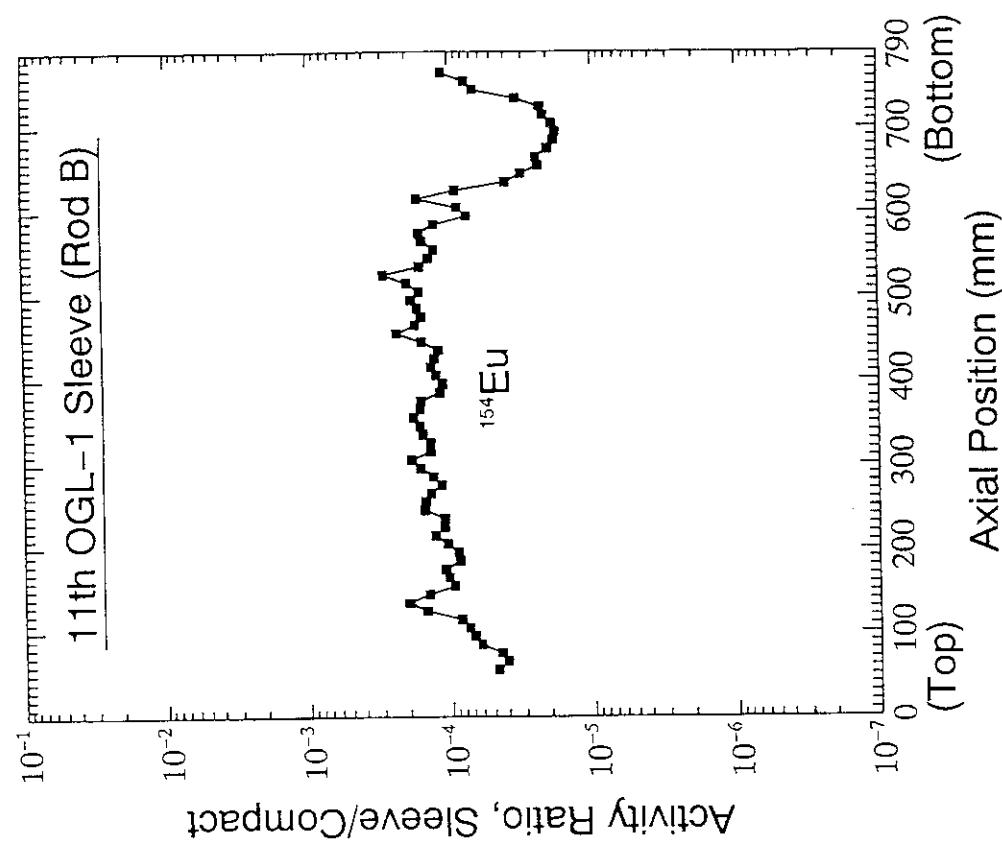


Fig. 3.9b Axial profile of activity ratios of ^{154}Eu in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

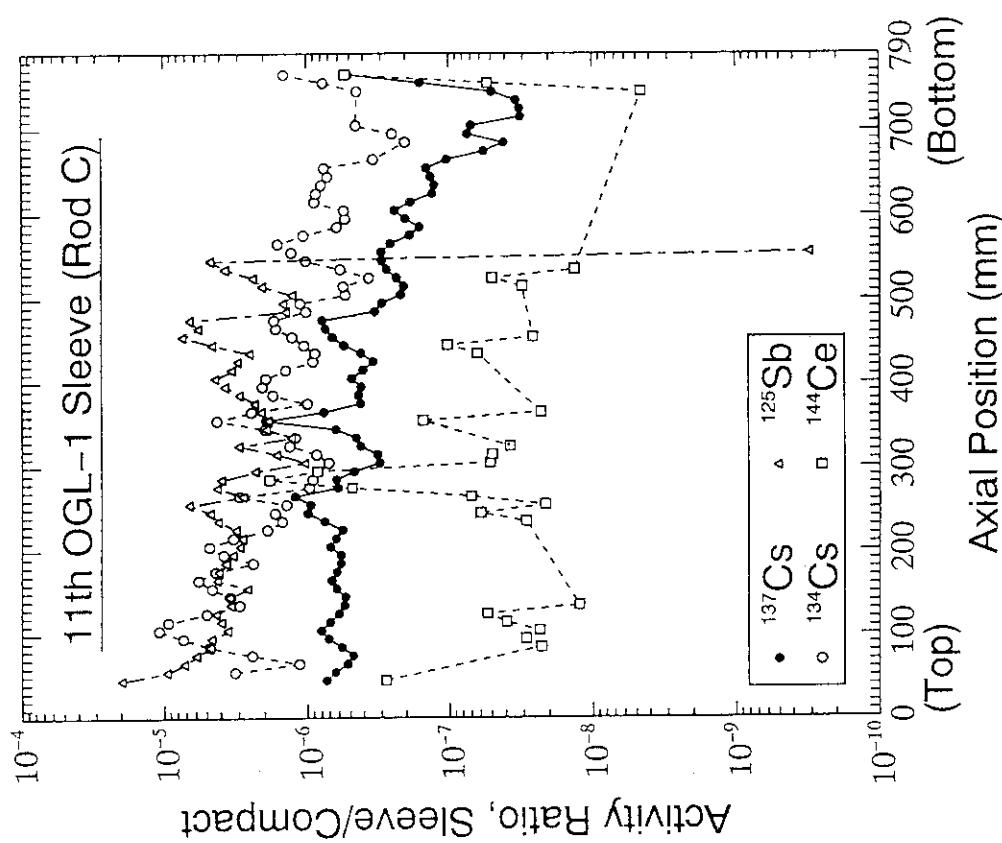


Fig. 3.10a Axial profiles of activity ratios of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb and ^{144}Ce in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

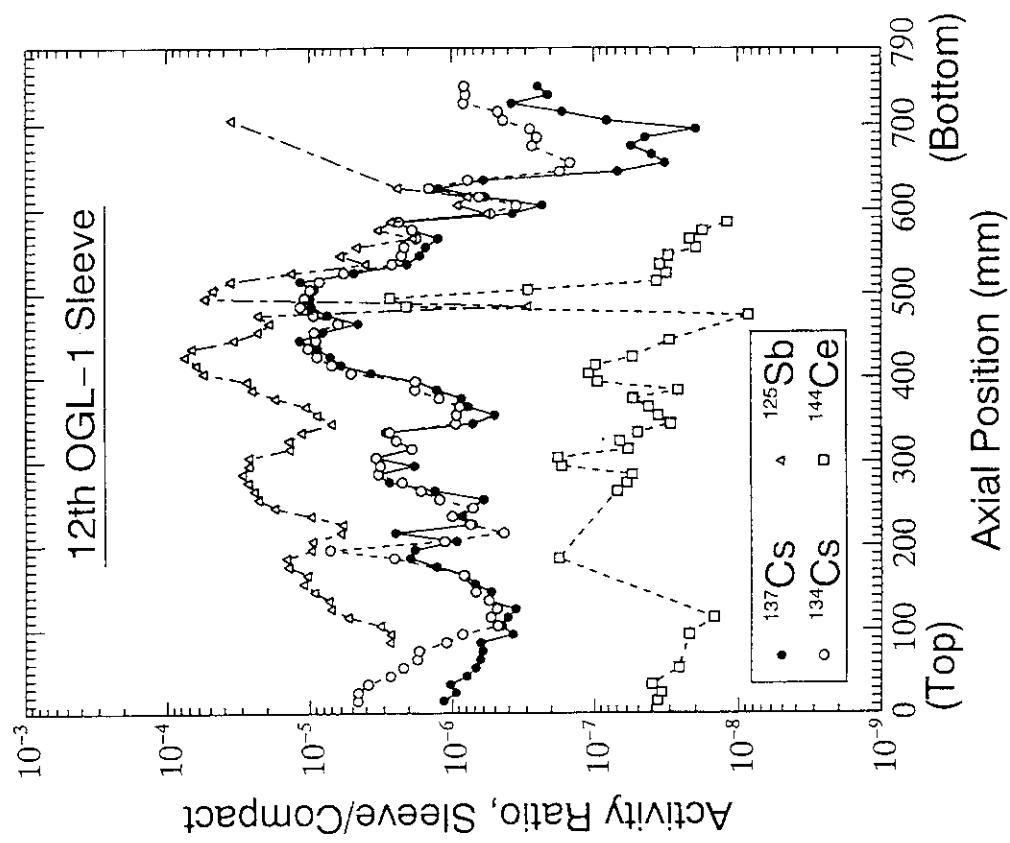


Fig. 3.11a Axial profiles of activity ratios of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb and ^{144}Ce in graphite sleeve and fuel compact of 12th OGL-1 fuel assembly.

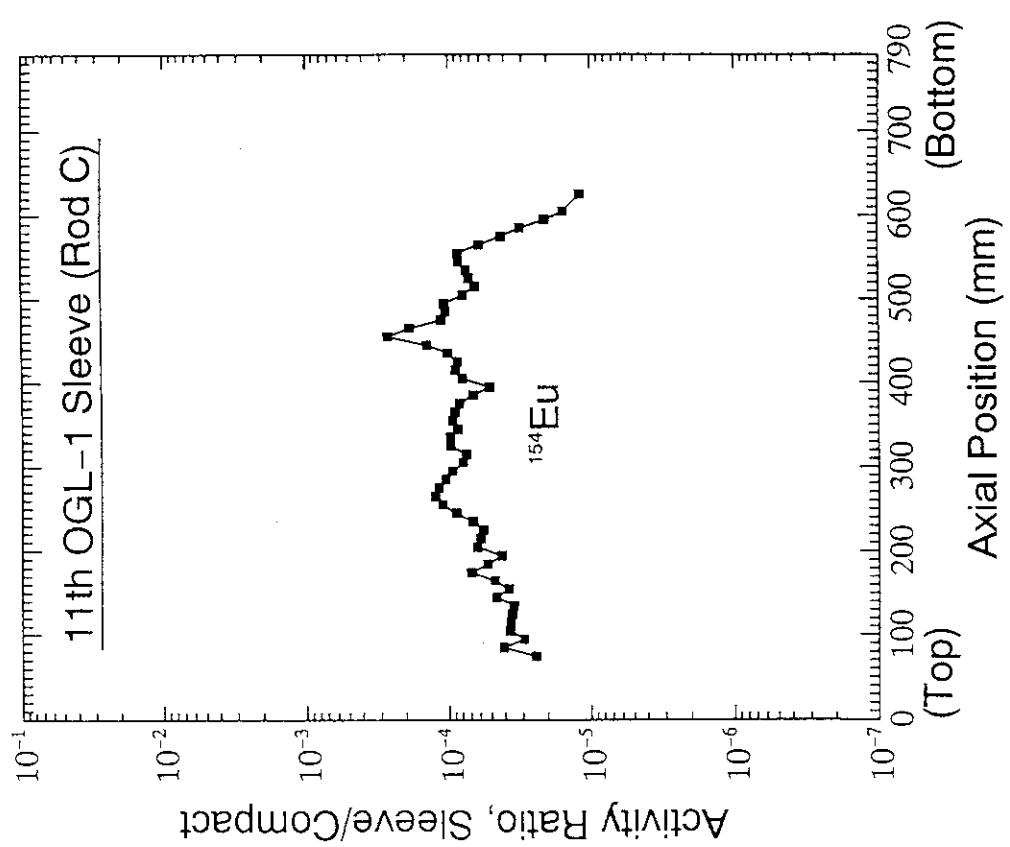


Fig. 3.10b Axial profile of activity ratios of ^{154}Eu in graphite sleeve and fuel compact of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

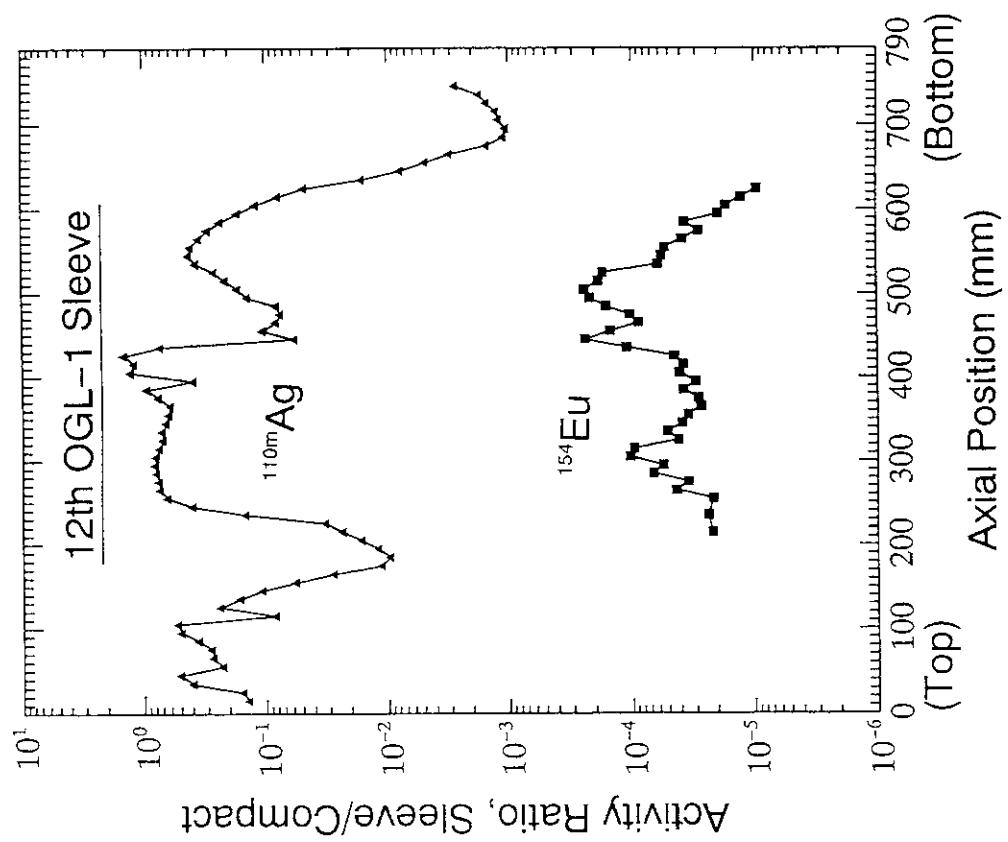


Fig. 3.11b Axial profile of activity ratios of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{154}Eu in graphite sleeve and fuel compact of 12th OGL-1 fuel assembly.

4. まとめ

第11次および第12次OGL-1燃料体の照射後の黒鉛スリーブ、黒鉛ブロック中の金属FP分布をガンマ線スペクトル分析法によって測定した。第11次燃料体は高温工学試験研究炉(HTTR)用初装荷燃料の量産試作燃料の短期照射を行ったものであり、第12次燃料体は同燃料の長期定常照射を行ったものである。測定の結果、以下の知見が得られた。

- (1) 第11次燃料体の黒鉛スリーブでは、軸方向に ^{137}Cs 、 ^{134}Cs に加えて、 ^{125}Sb 、 ^{144}Ce 、 ^{155}Eu および ^{106}Ru の濃度ピークが見られた。しかし、燃料コンパクトの表面観察においては破損粒子の露出は検出されず、そのかわり黒鉛マトリックスに隙間が生じてた。このことから、燃料コンパクトの内部に存在していた破損粒子から放出されたFPが、黒鉛マトリックスの隙間を移行して黒鉛スリーブ内面に達したものと推定した。
- (2) 第12次燃料体の黒鉛スリーブ中の ^{137}Cs の濃度は、第9次、第10次燃料体の測定結果に比較すると低いレベルであった。これは、被覆粒子破損率の低下に対応しているものと考えることができる。
- (3) 第12次燃料体の黒鉛スリーブ中では、 ^{110m}Ag は特異な分布を示した。すなわち、熱電対シーズ材の溶融によって黒鉛中スリーブに移行したものと思われる ^{60}Co が高濃度で存在する領域では、 ^{110m}Ag は逆に低濃度であった。このことから、 ^{110m}Ag の黒鉛中の移行挙動は、 ^{60}Co を含む金属による黒鉛気孔構造の変化または金属による共収着の影響を受けることが推測された。

以上のとおり得られた測定結果は、従来からのOGL-1燃料体中のFP分布測定によって得られた知見と整合的であり、かつ、さらに拡充するものであった。

最後に、今後の課題として、①健全粒子からの金属FP、特に ^{137}Cs の放出の程度を定量的に把握するため、被覆粒子の貫通破損率およびSiC層破損率の十分低い燃料を長期照射しFP放出挙動を調べること、および、② ^{110m}Ag の黒鉛中の移行挙動をさらに詳しく調べること、が残されていることを指摘した。

謝辞

本報告書に述べた第11次および第12次OGL-1燃料体の照射試験を進めるにあたっては、燃料体の設計および照射については原研大洗研究所材料試験炉部の照射2課、計画課および検査技術課の各位に、燃料体の製作および組み立てについては東海研究所技術部工作課の各位に、照射後試験については東海研究所ホット試験室ホットラボ課の各位に協力を頂いた。特に、照射2課の北島敏雄氏および峯島博美氏には燃料体の設計および照射全般について、ホットラボ課の伊藤忠春氏、関野甫氏、飯田省三氏をはじめとする方々には黒鉛部材の解体・輸送、燃料コンパクト表面の拡大外観観察および燃料中のFPインベントリ測定に関して協力を頂いた。

燃料研究部燃料照射研究室の小林紀昭氏、湊和生氏、白鳥徹雄氏、菊地啓修氏にはOGL-1燃料体の照射、輸送および照射後試験に関して協力を頂き、また本研究を進めるにあたって同研究室の方々に助言および協力を頂いた。黒鉛中のFP分布測定および本報告書の作成にあたっては、業務協力員井上正行氏および川辺勝氏の協力を頂いた。また、燃料研究部の立川圓造部長、半田宗男次長に激励を頂いた。

本報告書の作成にあたっては、上記湊和生氏および小林紀昭氏より貴重な助言を得た。以上の方々に深く感謝いたします。

参考文献

- (1) 日本原子力研究所，“高温ガス炉研究開発の現状”，1993; Japan Atomic Energy Research Institute, “Present status of HTGR research and development”, March 1991.
- (2) 斎藤伸三、他，“高温工学試験研究炉の設計と研究開発”，日本原子力学会誌 32 (1990) p.847.
- (3) 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).
- (4) 青地哲男、他，“多目的高温ガス実験炉の炉心参考設計Mark-III”，JAERI-M 6895 (1976).
- (5) 荒井長利、他，“多目的高温ガス実験炉Mark-III炉心の燃料特性”，JAERI-M 6945 (1977).
- (6) 福田幸朔、他，“高温ガス炉用燃料に関する試験研究”，JAERI-M 89-007 (1989).

謝 謝

本報告書に述べた第11次および第12次OGL-1燃料体の照射試験を進めるにあたっては、燃料体の設計および照射については原研大洗研究所材料試験炉部の照射2課、計画課および検査技術課の各位に、燃料体の製作および組み立てについては東海研究所技術部工作課の各位に、照射後試験については東海研究所ホット試験室ホットラボ課の各位に協力を頂いた。特に、照射2課の北島敏雄氏および峯島博美氏には燃料体の設計および照射全般について、ホットラボ課の伊藤忠春氏、関野甫氏、飯田省三氏をはじめとする方々には黒鉛部材の解体・輸送、燃料コンパクト表面の拡大外観観察および燃料中のFPインベントリ測定に関して協力を頂いた。

燃料研究部燃料照射研究室の小林紀昭氏、湊和生氏、白鳥徹雄氏、菊地啓修氏にはOGL-1燃料体の照射、輸送および照射後試験に関して協力を頂き、また本研究を進めるにあたって同研究室の方々に助言および協力を頂いた。黒鉛中のFP分布測定および本報告書の作成にあたっては、業務協力員井上正行氏および川辺勝氏の協力を頂いた。また、燃料研究部の立川圓造部長、半田宗男次長に激励を頂いた。

本報告書の作成にあたっては、上記湊和生氏および小林紀昭氏より貴重な助言を得た。以上の方々に深く感謝いたします。

参考文献

- (1) 日本原子力研究所，“高温ガス炉研究開発の現状”，1993; Japan Atomic Energy Research Institute, “Present status of HTGR research and development”, March 1991.
- (2) 斎藤伸三、他，“高温工学試験研究炉の設計と研究開発”，日本原子力学会誌 32 (1990) p.847.
- (3) 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).
- (4) 青地哲男、他，“多目的高温ガス実験炉の炉心参考設計Mark-III”，JAERI-M 6895 (1976).
- (5) 荒井長利、他，“多目的高温ガス実験炉Mark-III炉心の燃料特性”，JAERI-M 6945 (1977).
- (6) 福田幸朔、他，“高温ガス炉用燃料に関する試験研究”，JAERI-M 89-007 (1989).

- (7) 松永朔郎、田中利率、馬場治、高橋秀武、中村団夫、逆井実、小畠清和、亀ヶ谷勝彦、山田邦貴、臼井伸一，“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) p.249.
- (8) H. Itami, H. Nakata, I. Tanaka, K. Yamamoto, I. Aoyama and K. Ikawa, "High temperature irradiation facilities in JMTR for VHTR fuel development", JAERI-M 83-104 (1983).
- (9) 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. 115 (1983) p.233.
- (10) 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 (1985) p.207.
- (11) 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).
- (12) 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) p.57.
- (13) 林君夫、小林紀昭、湊和生、足立守、福田幸朔，“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分布”，JAERI-M 88-210 (1988).
- (14) K. Hayashi, et al., "Distribution of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite material of irradiated HTGR fuel assemblies", JAERI-M 84-088 (1988).
- (15) 小野寺一幸、馬場治、本間健三，“OGL-1静特性計算プログラム STEPDS P 2”，原研未公開資料.
- (16) K. Koyama, N. Yamano and S. Miyasaka, "ORIGEN-Jr: A computer code for calculating radiation sources and analyzing nuclide transmutations", JAERI-M 8229 (1979); M. J. Bell, "ORIGEN: The ORNL isotope generation and depletion code", ORNL-4628 (1973).
- (17) 林君夫、湊和生、小林紀昭、足立守、飛田勉、菊池輝男、黒羽根史朗、足立守、福田幸朔，“OGL-1燃料体の燃料コンパクトと黒鉛スリーブの照射寸法変化”，JAERI-M 88-107 (1988).
- (18) B.F. Myers, "A review of the diffusion of selected fission product metals in polycrystalline graphite", Hahn-Meitner-Institut Report HMI-372 (1983) p.56.

- (19) E.Hoinkis, "The determination of diffusion coefficients of cesium and silver by the release method in as-received, oxidized and neutron irradiated graphite matrix", *ibid.*, p.77.
- (20) H.Nabielek and B.F.Myers, "Fission product retention in HTR fuel", BNES Conf. Advances in Fuel, Core and Structural Materials, Bristol, Sept. 20-24, 1982 (Gas-cooled Reactors Today, vol.2) p.145.
- (21) W.Amian, P.Biederman, B.Hagmann, R.Hecker, H.J.Layers and D.Stoever, "Results of fission product and actinide studies in coated fuel particles and matrix graphite", *ibid.*, p.153.
- (22) K. Hayashi and K. Fukuda, "Release behavior of metallic fission products from pyrocarbon-coated uranium-dioxide particles at extremely high temperatures", *J. Nucl. Sci. Technol.* 27 (1990) p.320.
- (23) K. Hayashi and K. Fukuda, "Diffusion coefficients of fission products in the UO₂ kernel and pyrocarbon layer of BISO-coated fuel particles at extremely high temperatures", *J. Nucl. Mater.* 174 (1990) p.35.
- (24) H.Nabielek, P.E.Brown and P.Offermann, "Silver release form coated particle fuel", *Nucl. Technol.* 35 (1977) p.483.
- (25) E.H.Voice, H.Walther and J.York, "The behavior of silicon carbide coatings in the HTR", BNES Intern. Conf. on Nuclear Fuel Performance, London, Oct. 15-19, 1973, paper 20.
- (26) J.Engelhard, H.Mehner, H.Gottaut and K.H.Muenchow, "The behavior of solid fission products in the AVR pebble bed reactor", *ibid.*, paper 22.
- (27) J.Engelhard, K.Krueger and H.Gottaut, "Investigation of the impurities and fission products in the AVR coolant gas at an average hot-gas tempearture of 950°C", *Nucl. Eng. Design* 34 (1975) p.85.

付録 1 第12次OGL-1燃料体の 熱電対シース材の溶融

(1) 概要

以下に述べるように、第12次OGL-1燃料体の照射後試験において、燃料コンパクト中心温度測定用の熱電対に異状が検出された。

(2) 热電対シース材の仕様および損傷状況

熱電対としては、以下に示す3種類が使用されていた。シース材としては、W/Re熱電対（W型）にはNb-1%Zr合金が、クロメル・アルメル（C/A）熱電対（K型）には、インコネル600（NCF600）が用いられていた。

熱電対番号	指示値番号	測定位置*	熱電対素材	シース材質	シース外径 (mm)
TC-1	T071	下部	W/Re	インコネル600	1.6 (細径)
TC-2	T072	中央	W/Re	Nb-1%Zr	3.2 (太径)
TC-3	T073	上部	C/A	インコネル600	1.6 (細径)

*測定位置：燃料コンパクトの中心で、燃料棒の軸方向の上部、中央および下部

Fig.A1.1に熱電対の損傷状況を示す。この図から分かるように、TC-1およびTC-3のシース材が溶融していた。なお、結果的にはTC-1は熱電対が断線したが、TC-3は断線しなかった。

溶融の原因是、以下に述べるように、Nb-1%Zrシース（TC-1用）とインコネル600（TC-3用）が反応を起こして、低融点の合金を形成したためであると推定される。

(2) 指示温度履歴

第12次燃料体の各熱電対の温度指示履歴をFig.A1.2に示す。指示温度と熱電対の対応は上記のとおりである。

TC-3（T073）は、照射初期には1230°C程度の温度を指示していたが、その後、指示値は徐々に低下している。TC-1（T071）は、初期に約1300°Cを

指示した後、指示値は相当急激に低下し、5サイクルめ（第87サイクル）の運転中に断線した。一方、TC-2(T072)の指示温度は全照射期間を通じてほぼ一定値を示していた。TC-2の太径W/Re熱電対については、従来の使用実績が豊富であること、および冷却材温度等から判断して定常運転が継続されたことは確実であることから判断して、その指示温度は信頼しうるものと考えることができる。また、TC-1およびTC-3で測定していた他の燃料コンパクトの温度についても、従来の運転経験からみて、実際にはほぼ一定値を保ったものと考えることができる。

以上のことから、TC-1とTC-3のシースの反応は照射初期から始まり、その結果両者の熱起電力の低下が進行し、最終的にはTC-1の断線に至ったものと推定される。

(3) シース材の反応の推定

シース材の接触によってどのような反応が生じたかについての検討を行った。

C/A用シース材インコネル600の成分(Ni、Fe、Cr)、W/Re用シース材(Nb、Zr)および周辺の黒鉛材料との反応で生じうる低融点の2元系化合物としては、以下のものが挙げられる^(1, 2)。

Ni-Zr (共晶温度 961, 1010, 1070, 1170°C)⁽²⁾

Ni-Nb (共晶温度 1282°C: Ni - 16.0 at%Nb)⁽²⁾

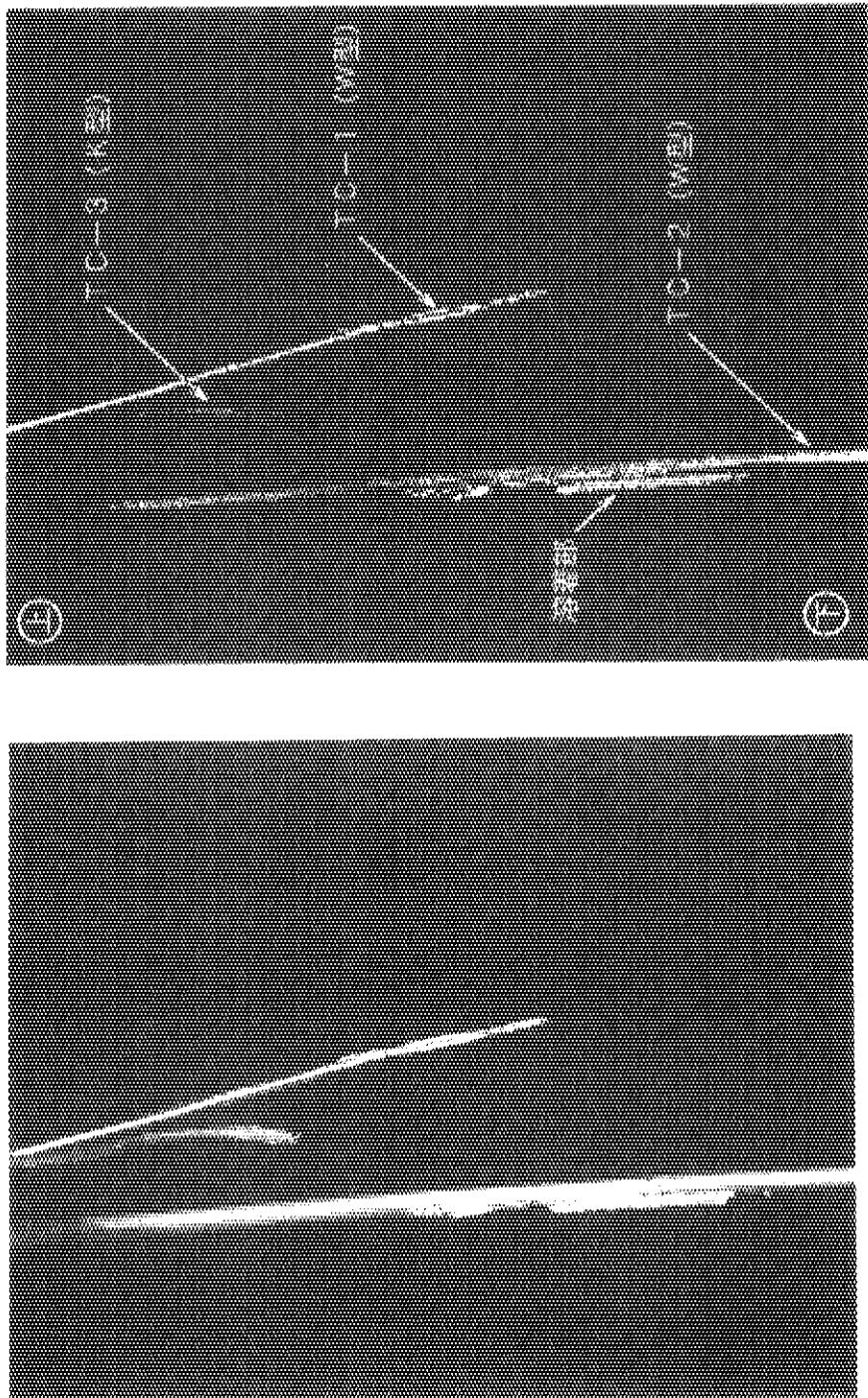
(同上 1175°C: Ni - 45.0 at%Nb)⁽²⁾

Ni-C (共晶温度 1326.5°C: Ni - 2.7 at%C)⁽²⁾

これらのうち、主要成分元素であるNi-Nbの反応（共晶温度1175°C）は、1200°C以上に達した本照射条件下では十分に生じうるものであり、主な反応であると考えられる。なお、実際には多元系の化合物が生じたものと考えられる。例えば、Ni-Nb-Cr合金(Ni₈Nb₅Cr₂等)生成が考えられる⁽³⁾。詳細な反応推定には実験的な確認が必要である。

参考文献

- (1) 八巻治恵、野村靖、長谷川孝昭、山原武、酒井陽之，“被覆粒子照射用キャップセルの故障報告”，JAERI-M 6250 (1975) p.63.
- (2) T.B.Massalsky, ed., “Binary alloy phase diagram”, Am. Soc. Metals, Metals Park, Ohio, USA, 1986.
- (3) R.J.Meyer, “Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie”, 8. Auflage (1965), System-Nummer 57, Nickel, Teil B ~ Lieferung 1, Seite (Page) 227.



(3冶C 0045)

Fig. Al.1 Appearance of damaged thermocouples for fuel compacts of 12th OGL-1 fuel assembly.

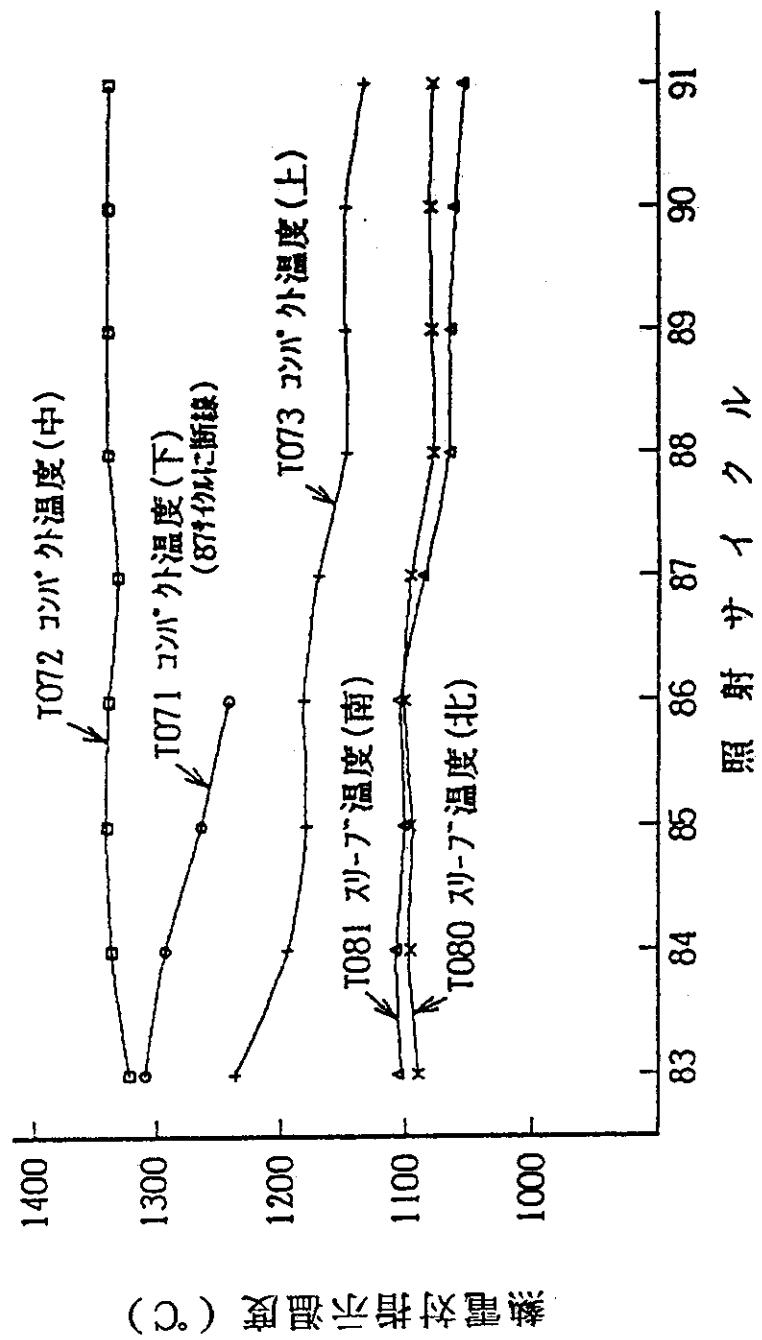


Fig. A1.2 Operation history of thermocouple-indicated temperatures for fuel compact and graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly.

付録 2 第1 1次 OGL-1 燃料体の黒鉛
スリーブ軸方向の核分裂生成物お
よび放射化生成物の分布(図)

第1 1次 OGL-1 燃料体の黒鉛スリーブ軸方向のFPおよび放射化生成物の分布を示す。各図と燃料棒は以下のように対応している。

Fig.A2.1a～A2.1d : 燃料棒 A

Fig.A2.2a～A2.2d : 燃料棒 B

Fig.A2.3a～A2.3d : 燃料棒 C

なお、本文3.1節の(1)において、燃料棒Bについての測定結果を典型例として取り上げて説明した。

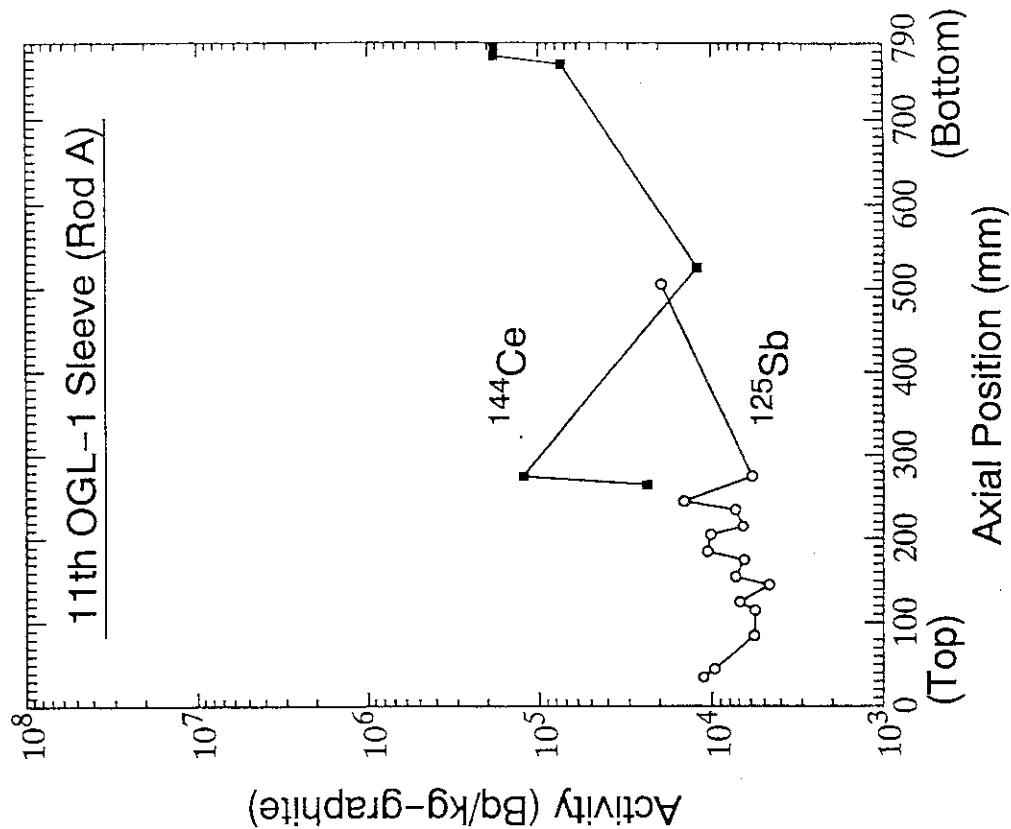


Fig. A2.1a Axial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

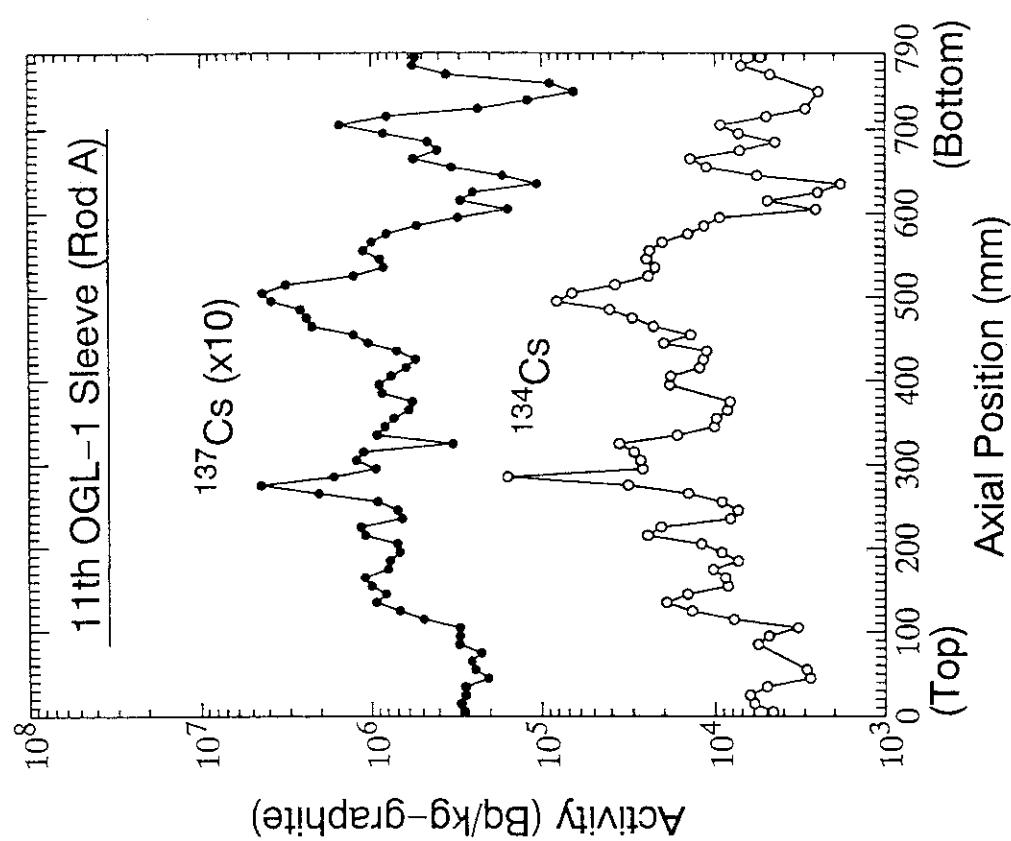


Fig. A2.1b Axial profiles of ^{144}Ce and ^{125}Sb in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

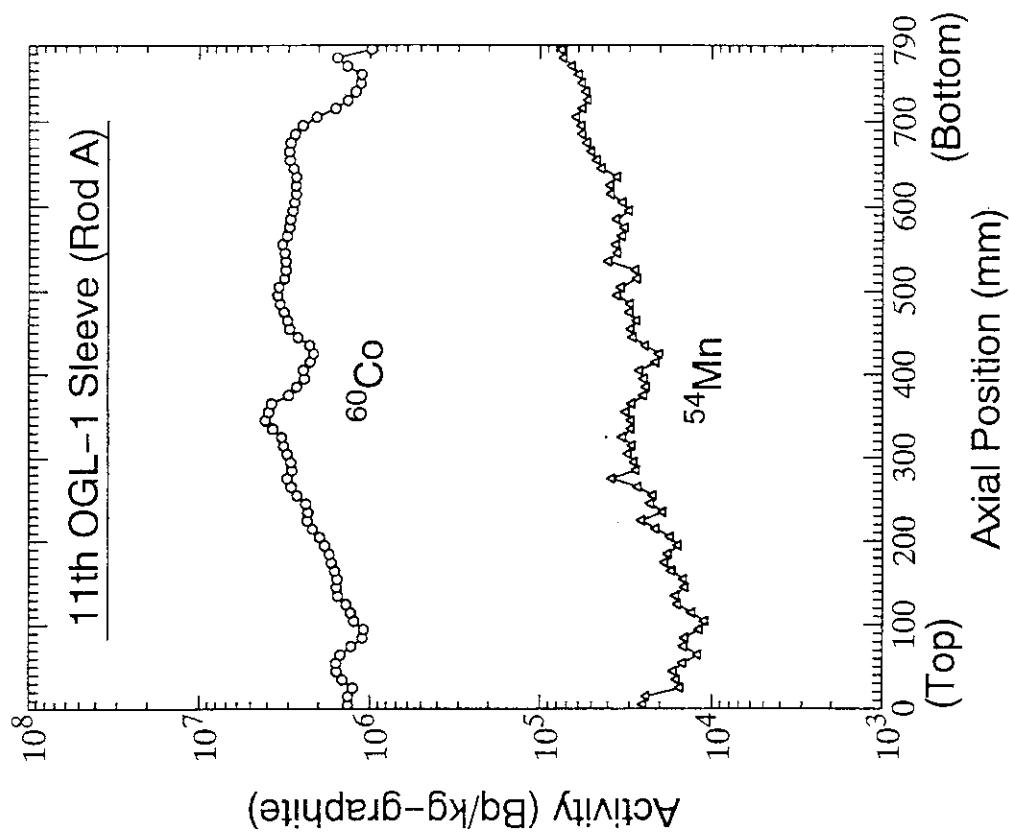


Fig. A2.1d Axial profiles of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

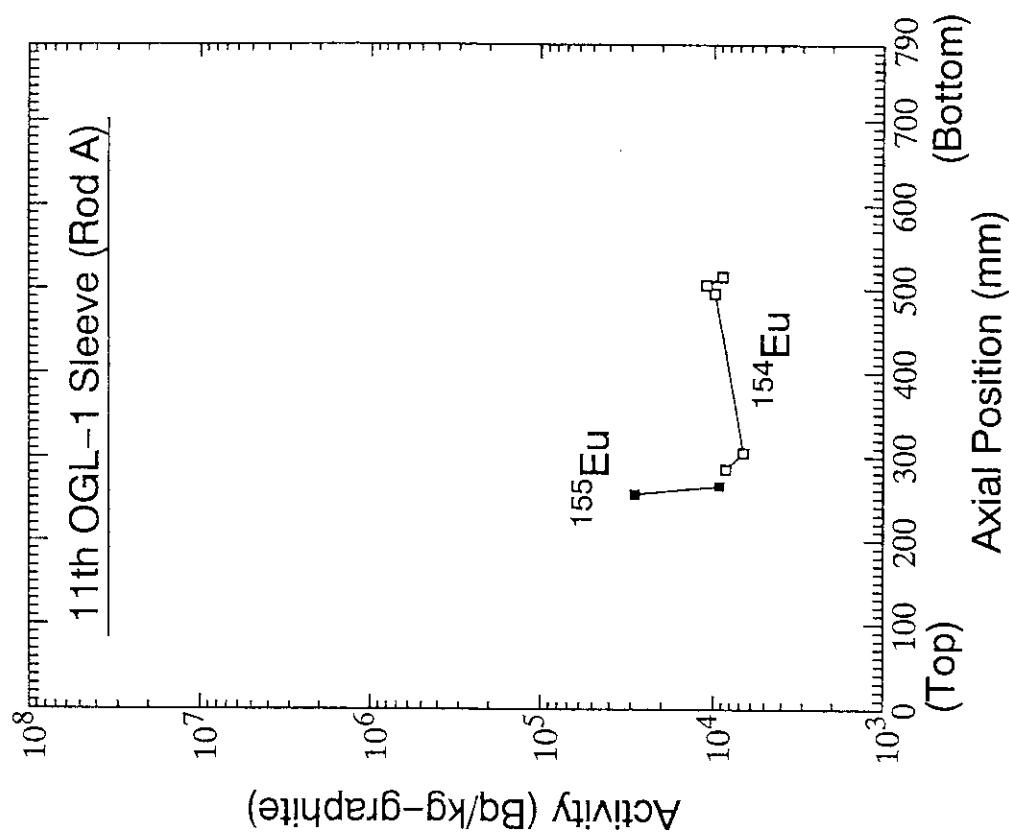


Fig. A2.1c Axial profiles of ^{154}Eu and ^{155}Eu in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod A).

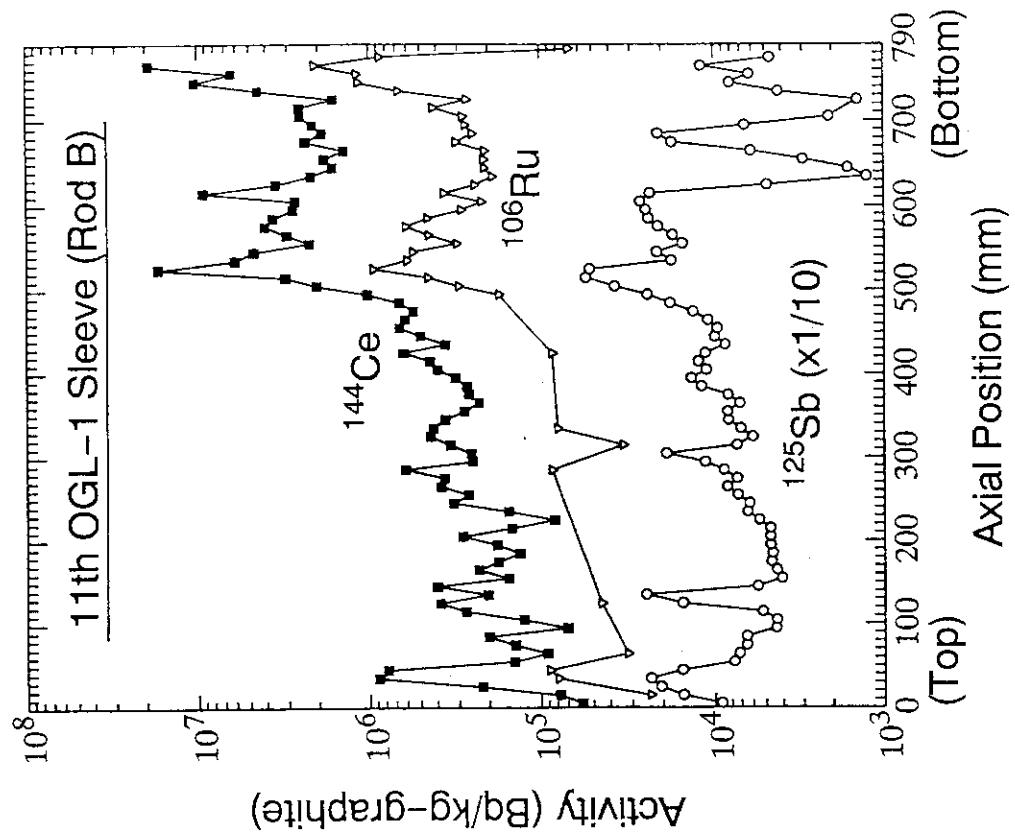


Fig. A2.2b Axial profiles of ^{144}Ce , ^{106}Ru and ^{125}Sb in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

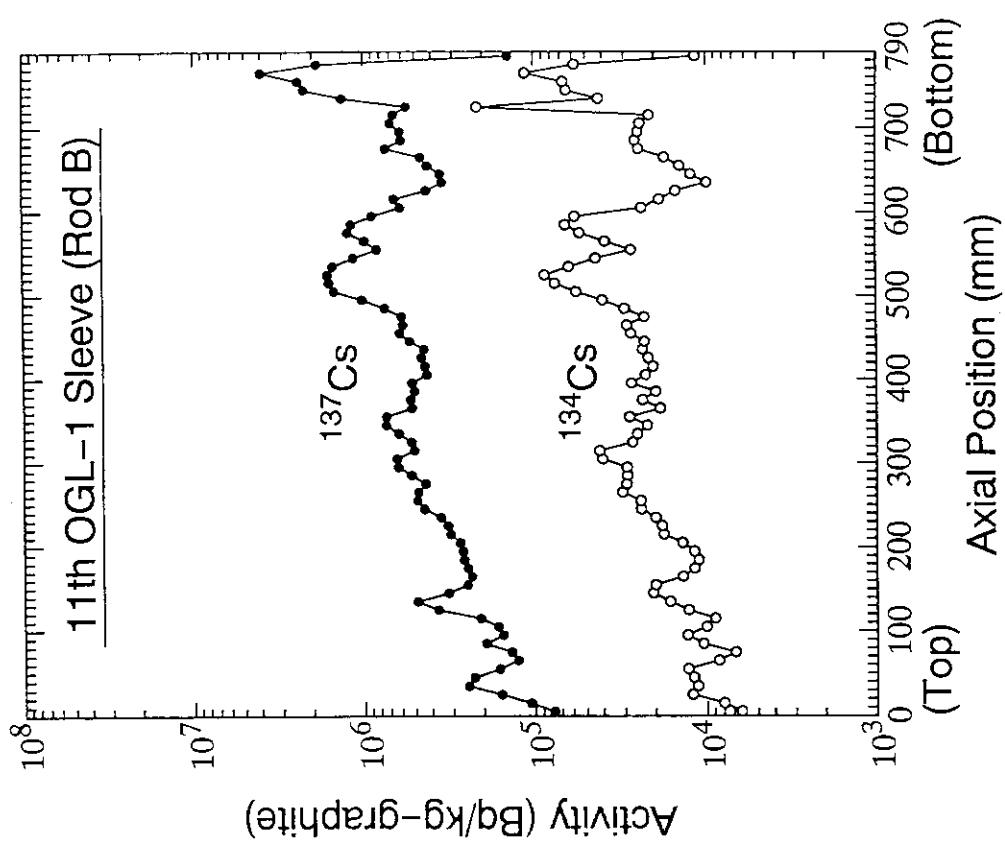


Fig. A2.2a Axial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

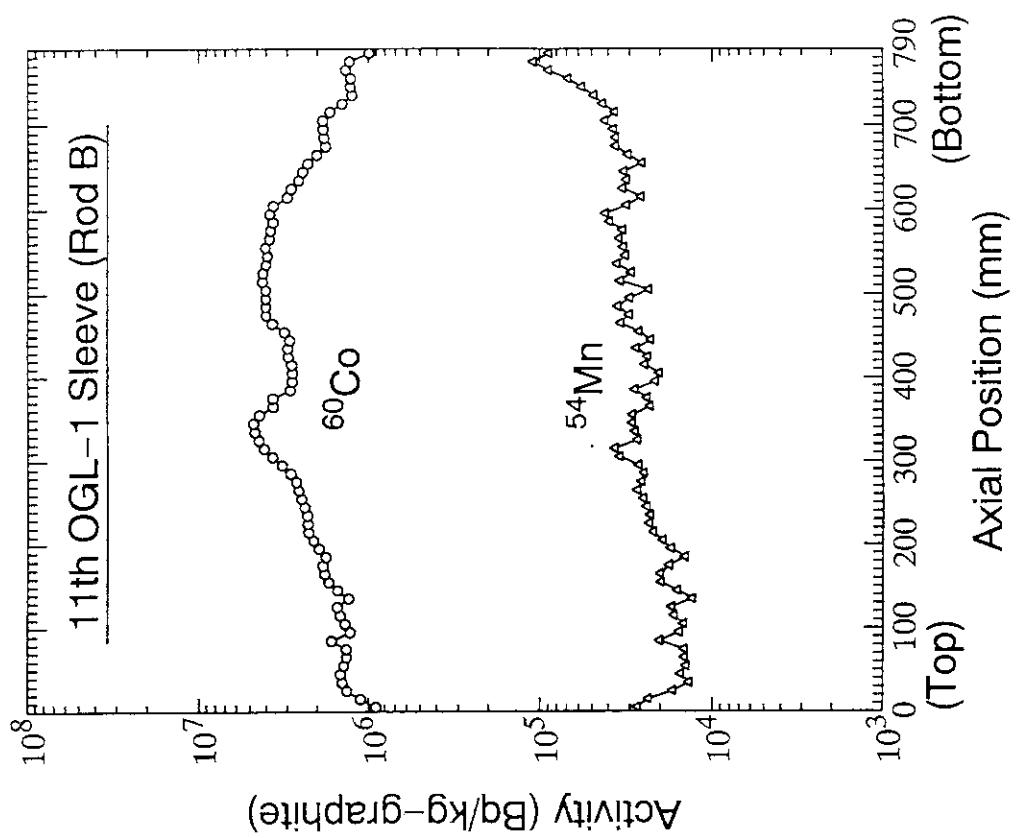


Fig. A2.2d Axial profiles of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

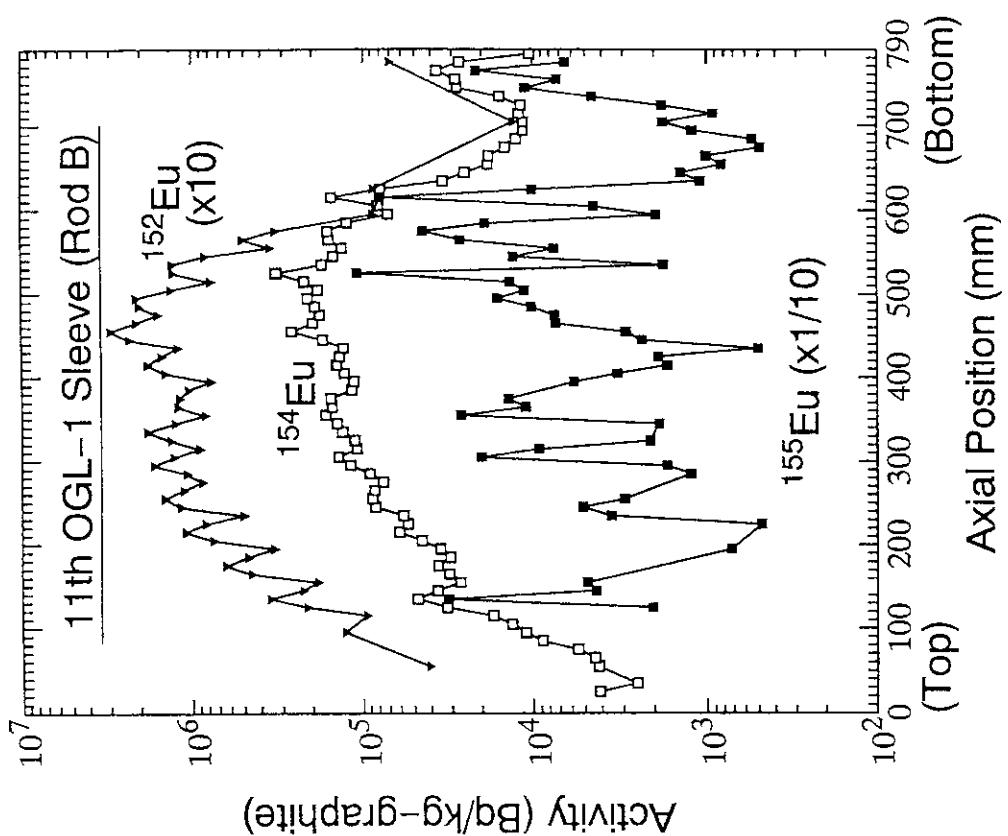


Fig. A2.2c Axial profiles of ^{152}Eu , ^{154}Eu and ^{155}Eu in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod B).

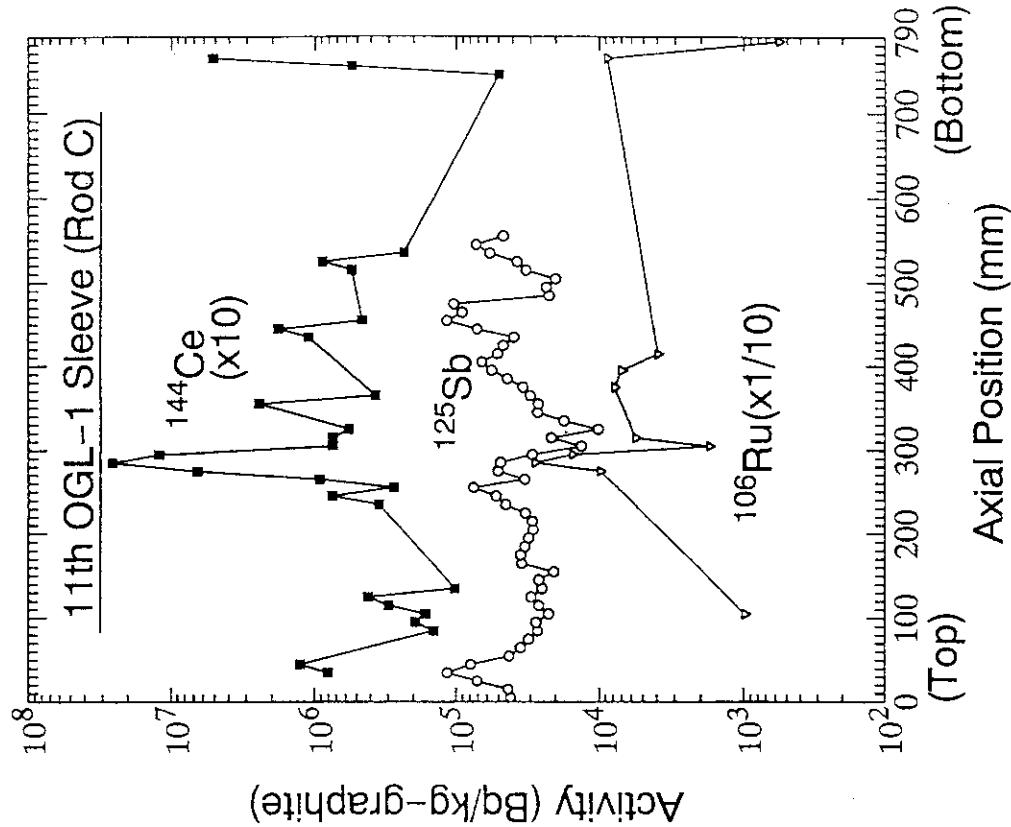


Fig. A2. 3b Axial profiles of ^{144}Ce , ^{125}Sb and ^{106}Ru in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

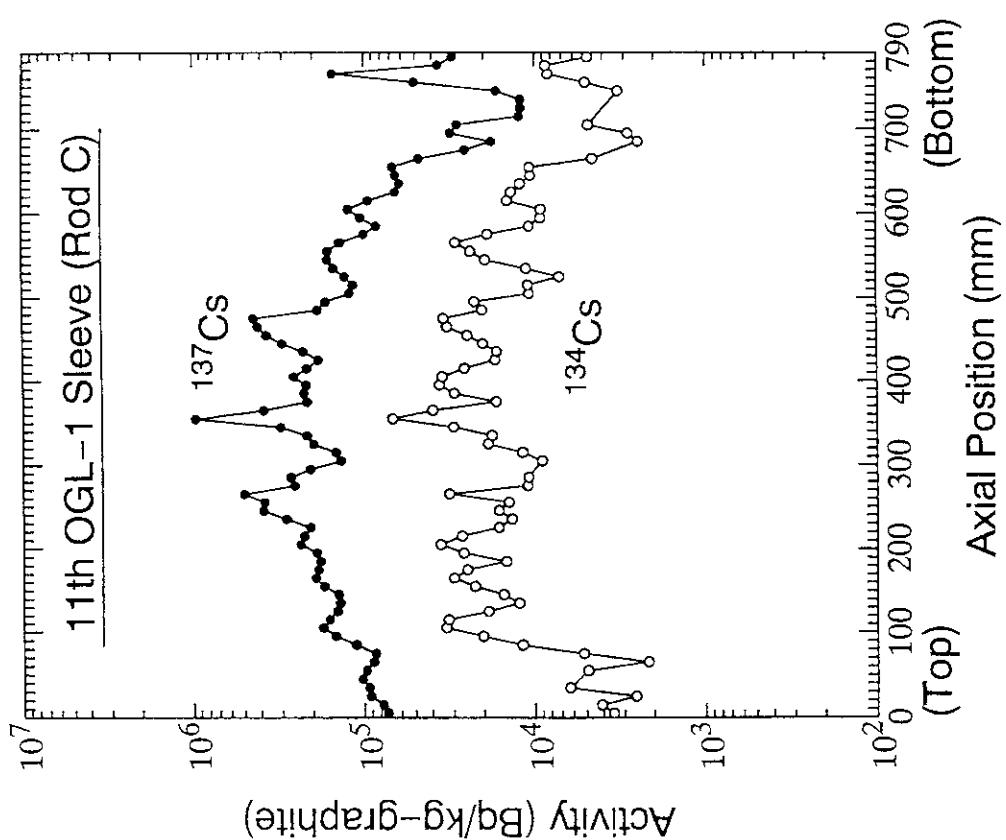


Fig. A2. 3a Axial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

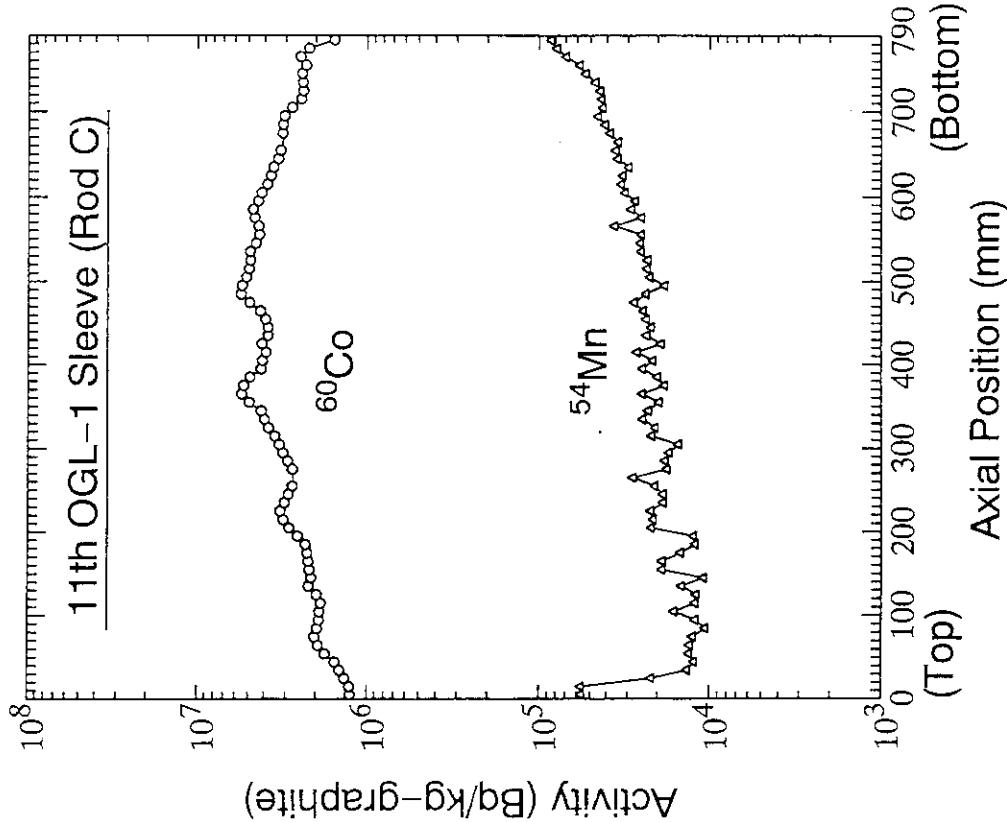


Fig. A2.3d Axial profiles of ^{60}Co and ^{54}Mn in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

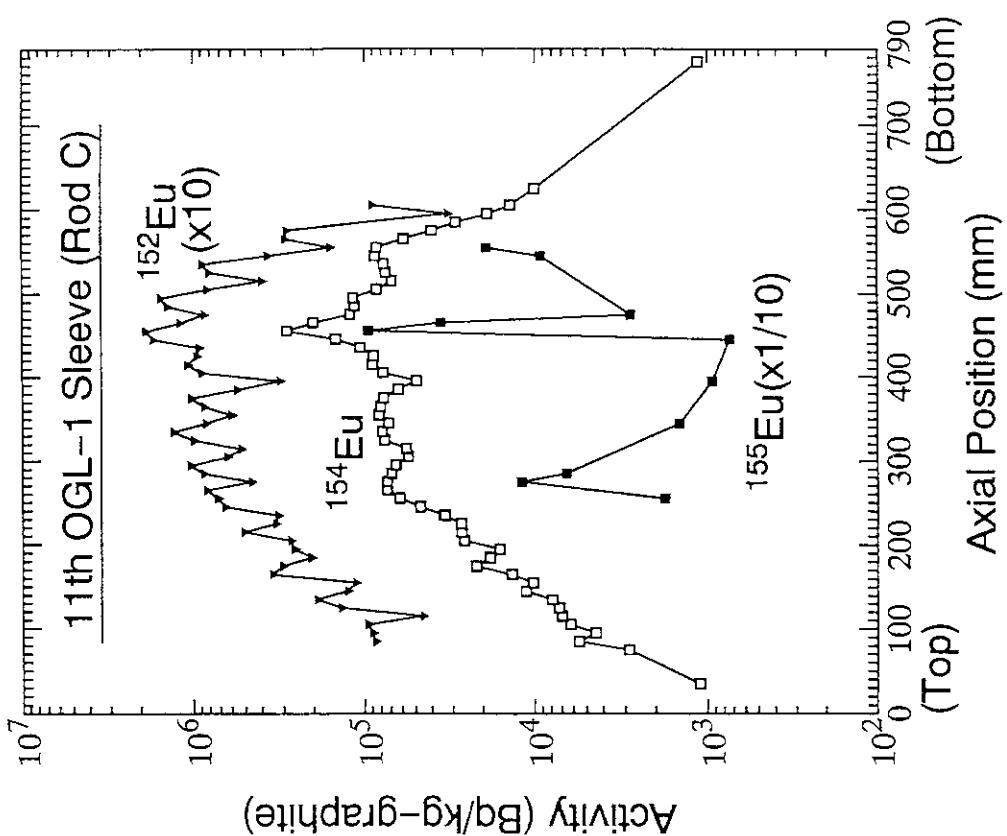


Fig. A2.3c Axial profiles of ^{152}Eu , ^{154}Eu and ^{155}Eu in graphite sleeve of 11th OGL-1 fuel assembly (rod C).

付録3 第12次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ径方向の核分裂生成物分布(図)

第12次OGL-1燃料体の黒鉛スリーブ径方向中のFPおよび放射化生成物の分布を、異なった軸方向位置について、Fig.A3.1～Fig.A3.10に示す。各図と軸方向位置は以下のように対応している。

- Fig.A3.1a～A3.1c : スリーブ上端から100-110mm
- Fig.A3.2a～A3.2c : スリーブ上端から130-140mm
- Fig.A3.3a～A3.3c : スリーブ上端から200-210mm
- Fig.A3.4a～A3.4c : スリーブ上端から230-240mm
- Fig.A3.5a～A3.5c : スリーブ上端から300-310mm
- Fig.A3.6a～A3.6c : スリーブ上端から400-410mm
- Fig.A3.7a～A3.7c : スリーブ上端から500-510mm
- Fig.A3.8a～A3.8c : スリーブ上端から530-540mm
- Fig.A3.9a～A3.9c : スリーブ上端から600-600mm
- Fig.A3.10a～A3.10c : スリーブ上端から630-640mm

本文3.2.2項において、スリーブ上端から300-310mmおよび100-110mmの位置における測定結果を典型例として取り上げて説明した。

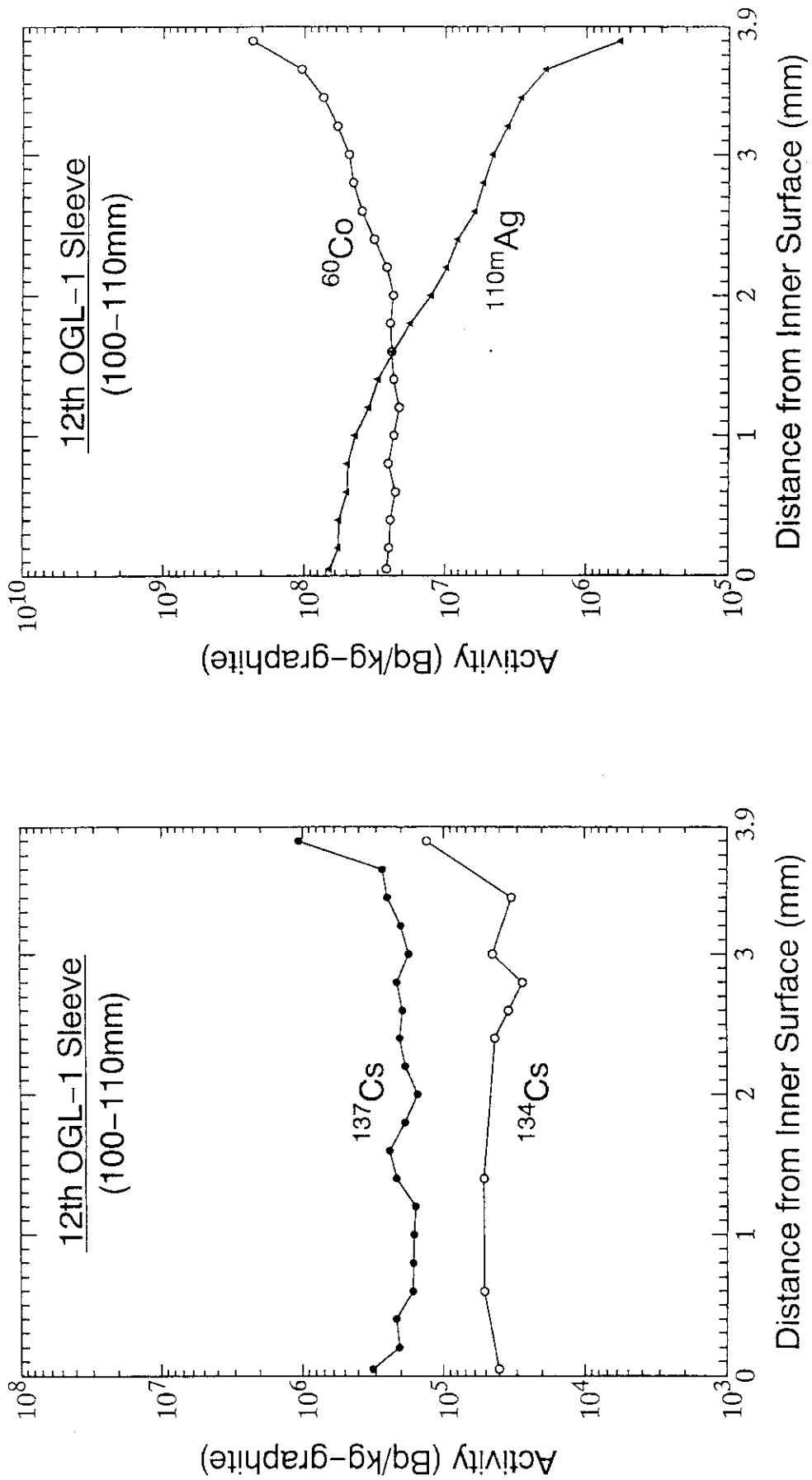


Fig. A3.1a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 100-110mm from sleeve top.

Fig. A3.1b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 100-110mm from sleeve top.

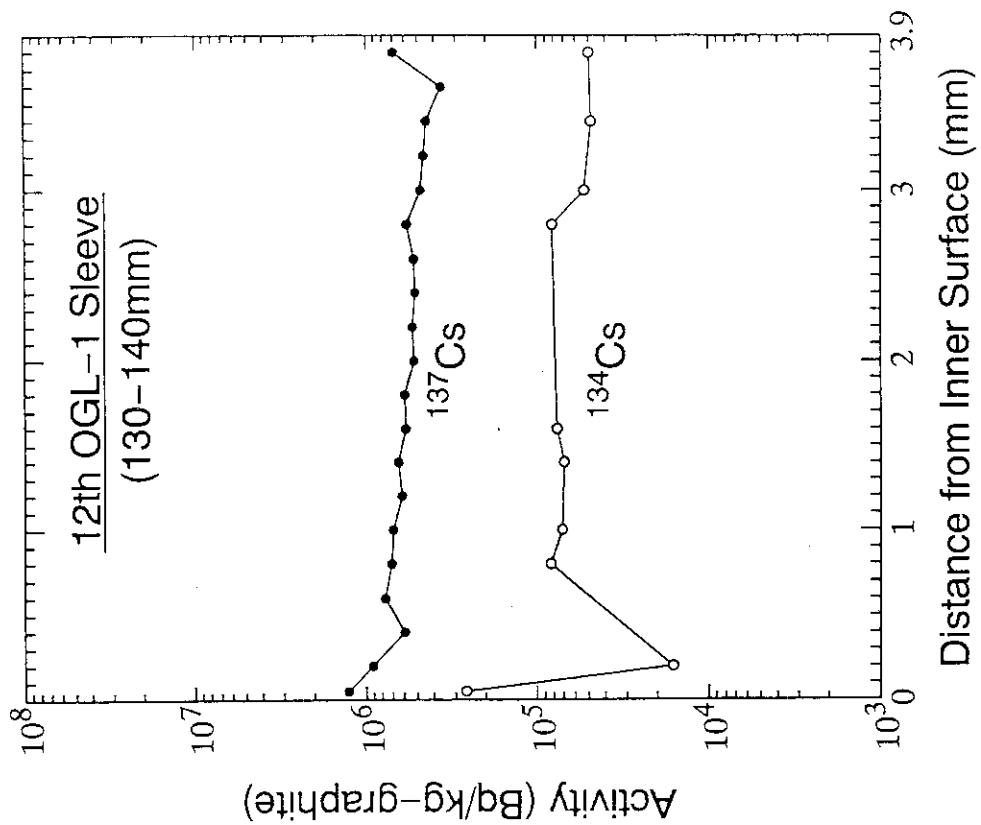


Fig. A3.2a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 130-140mm from sleeve top.

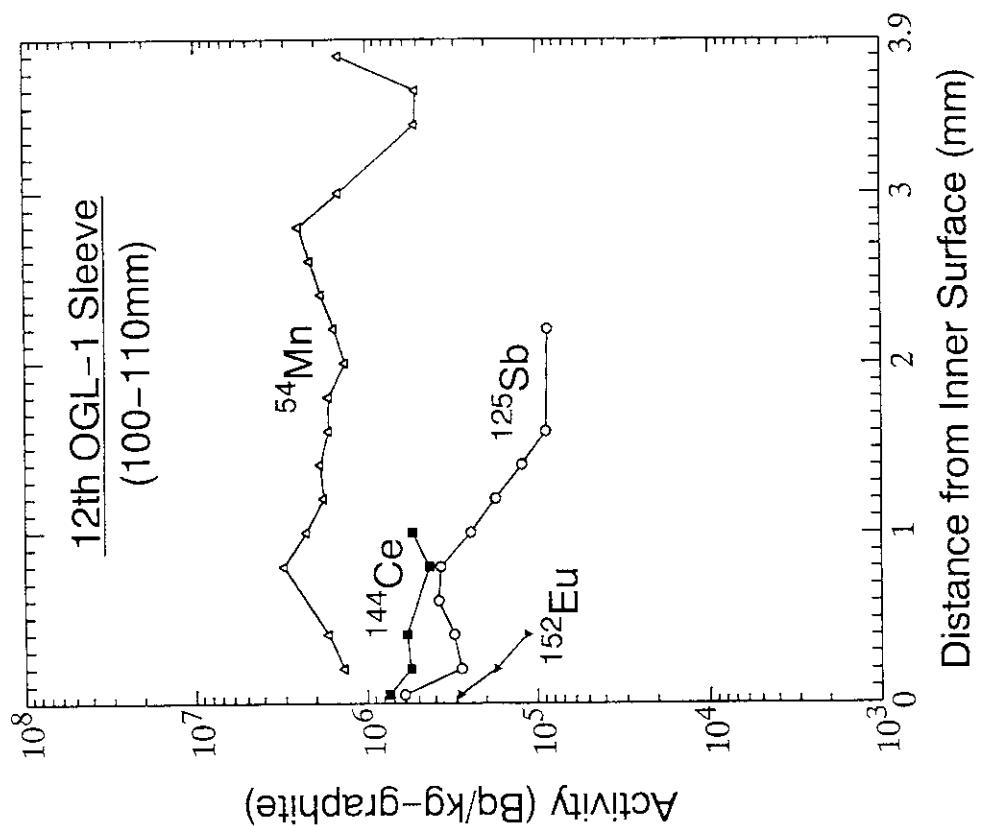


Fig. A3.1c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300-310mm from sleeve top.

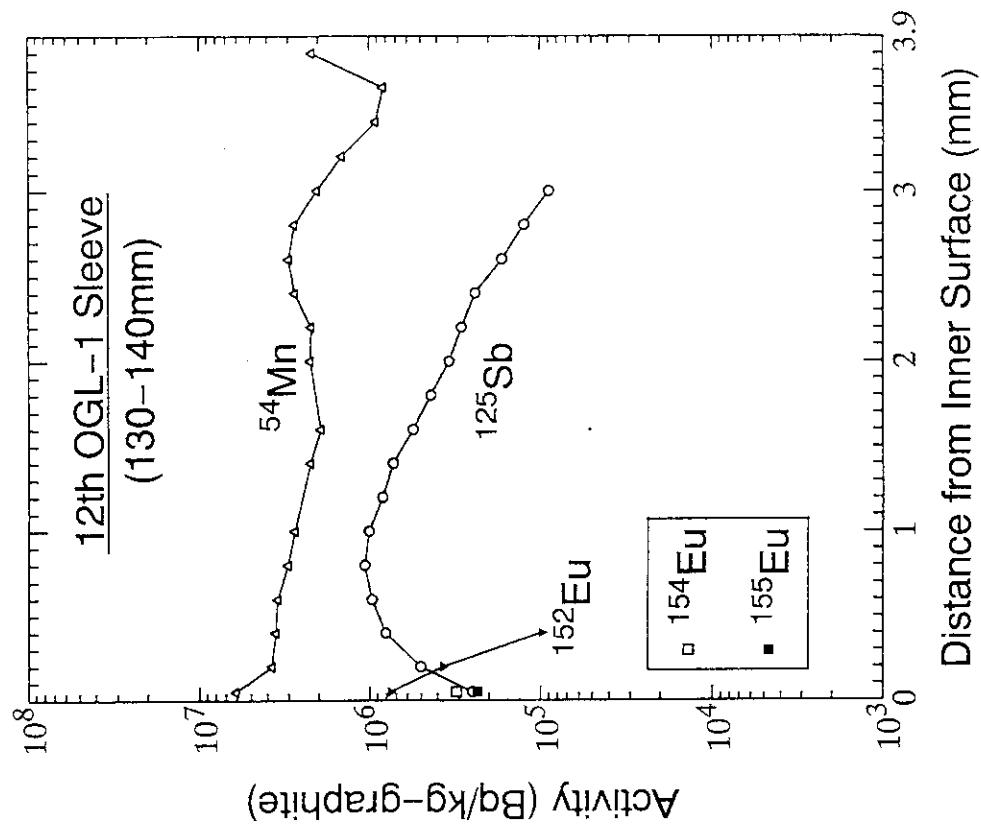


Fig. A3.2c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 130-140mm from sleeve top.

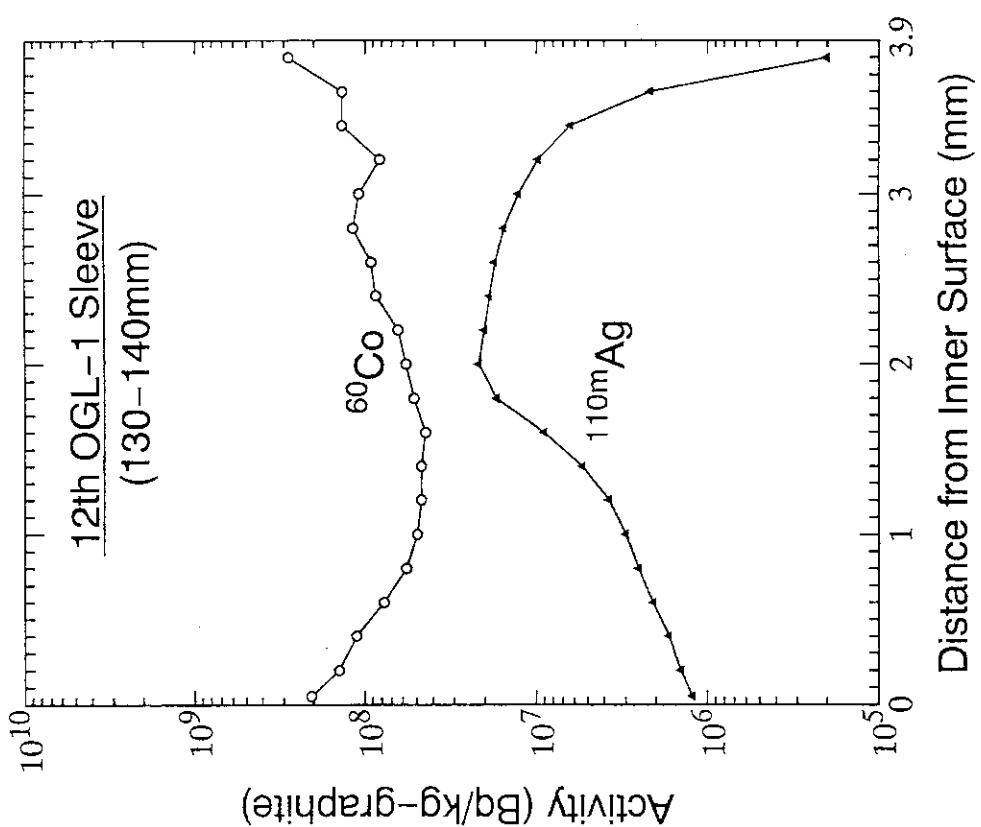


Fig. A3.2b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 130-140mm from sleeve top.

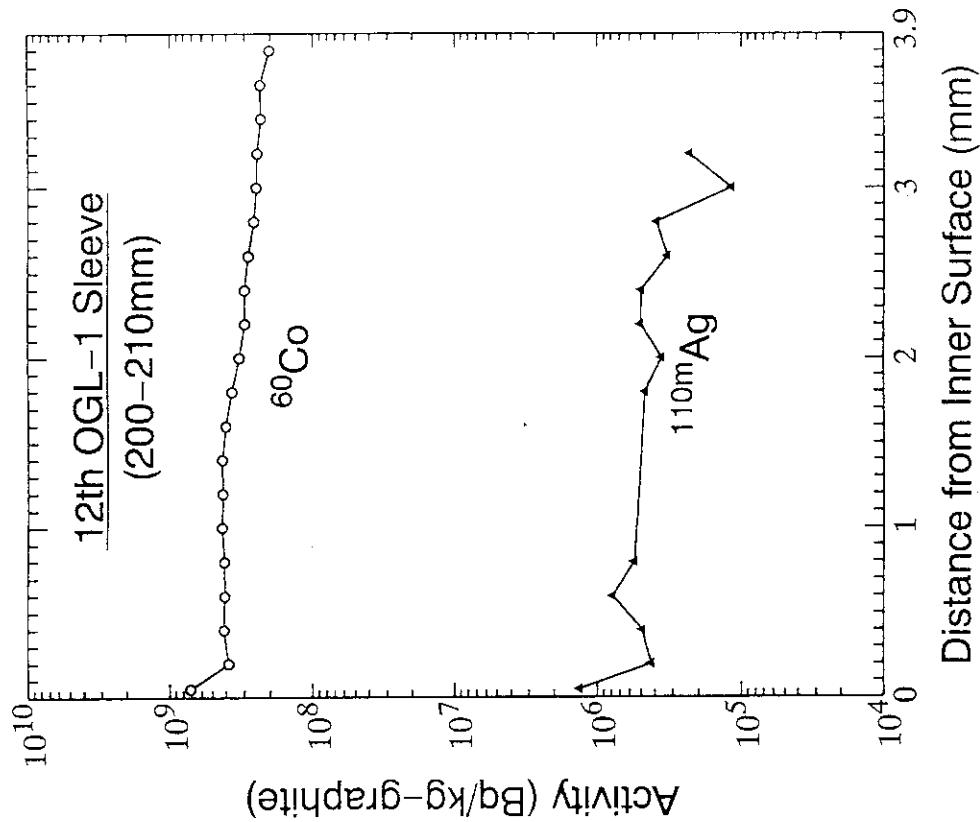


Fig. A3.3b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 200-210mm from sleeve top.

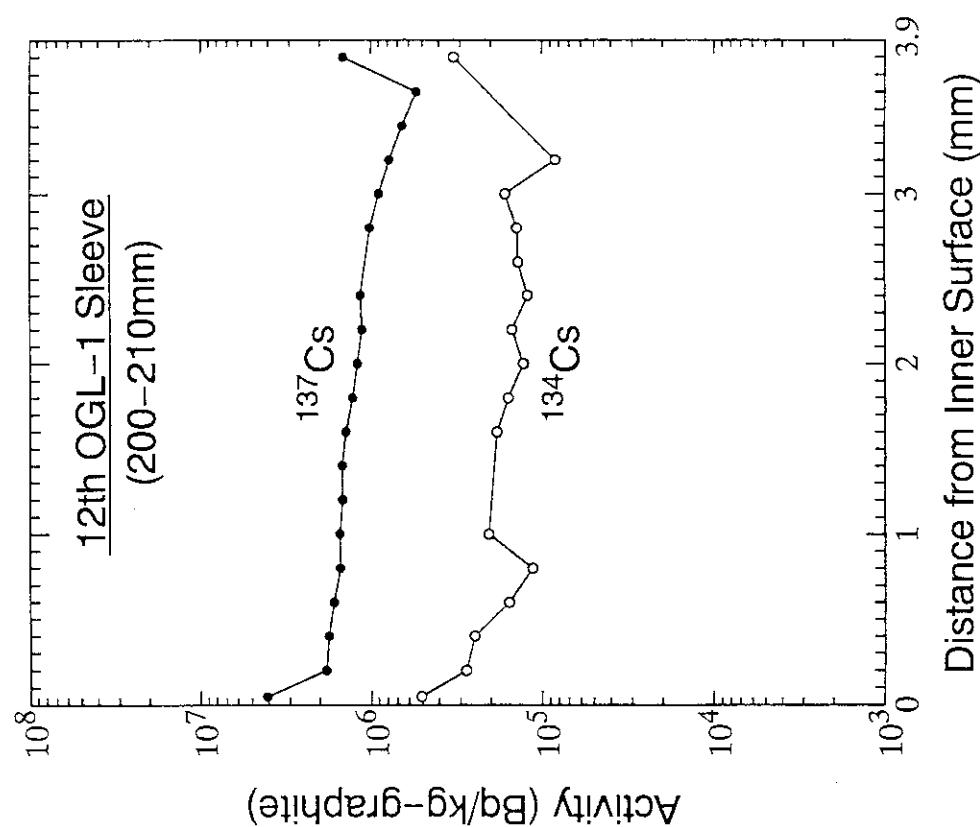


Fig. A3.3a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 200-210mm from sleeve top.

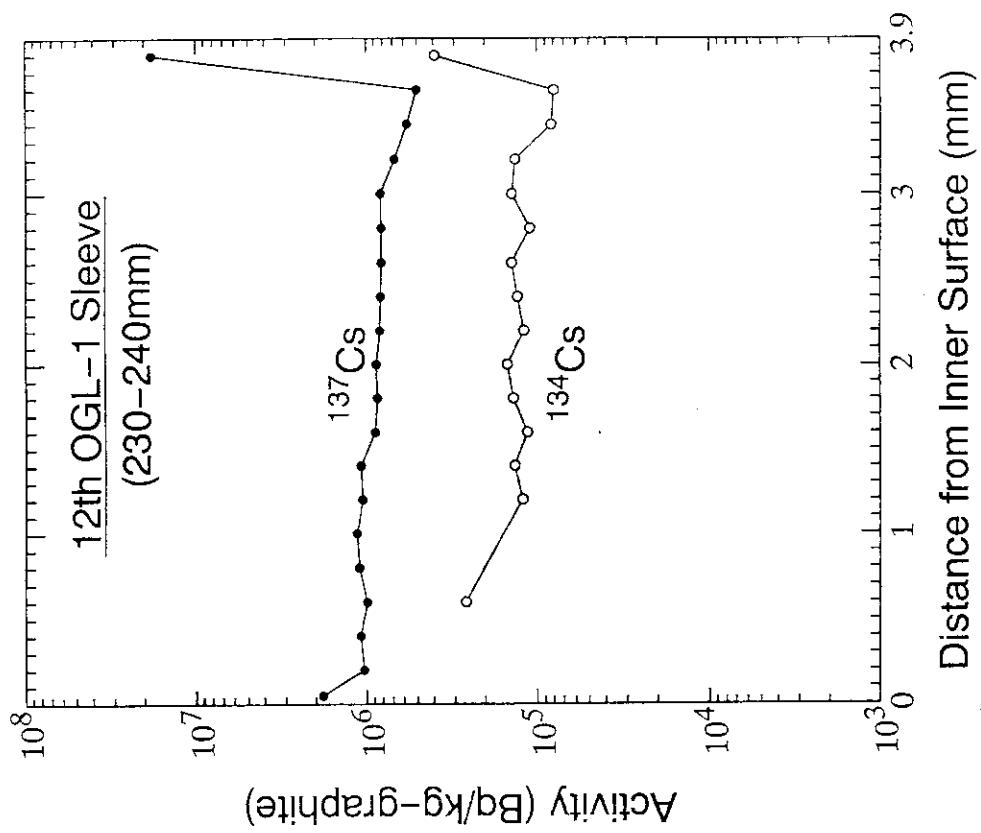


Fig. A3.4a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 230-240mm from sleeve top.

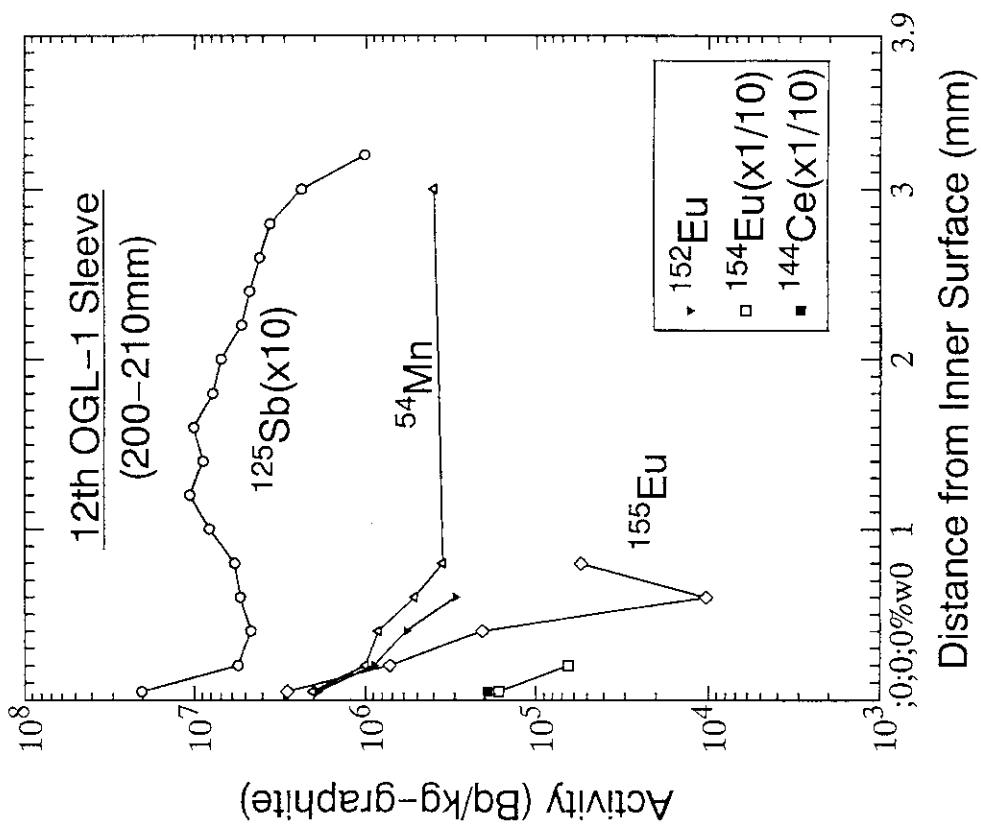


Fig. A3.3c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{54}Mn , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{144}Ce in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 200-210mm from sleeve top.

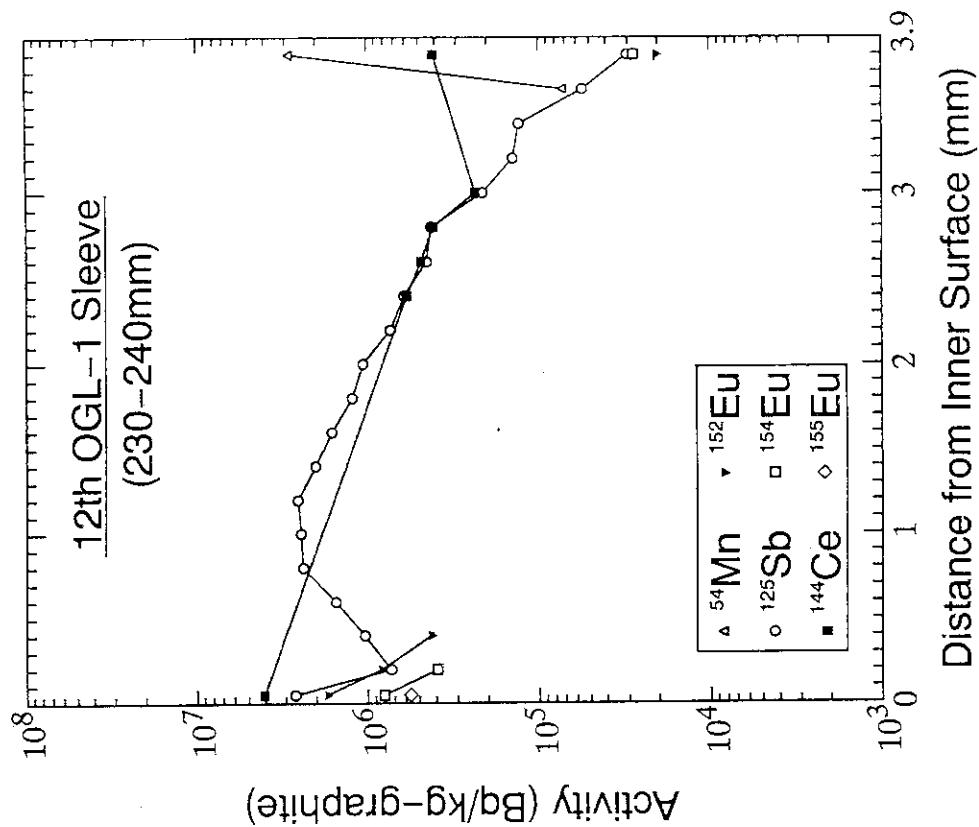


Fig. A3.4c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 230-240mm from sleeve top.

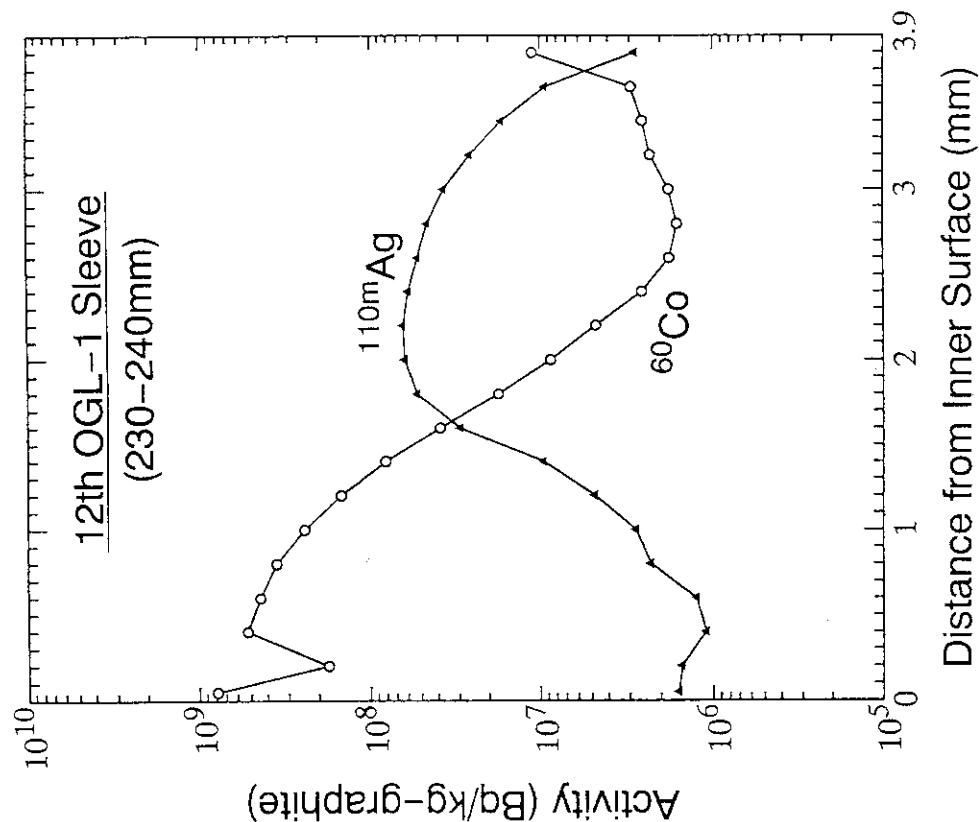


Fig. A3.4b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 230-240mm from sleeve top.

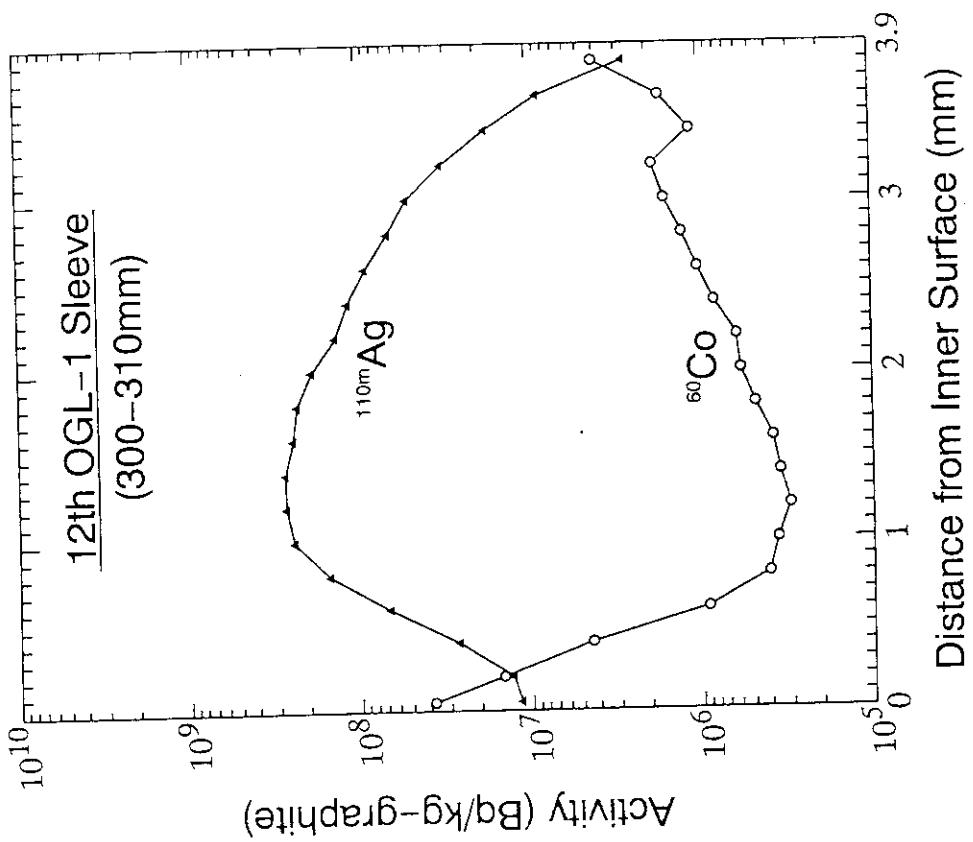


Fig. A3. 5b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300-310mm from sleeve top.

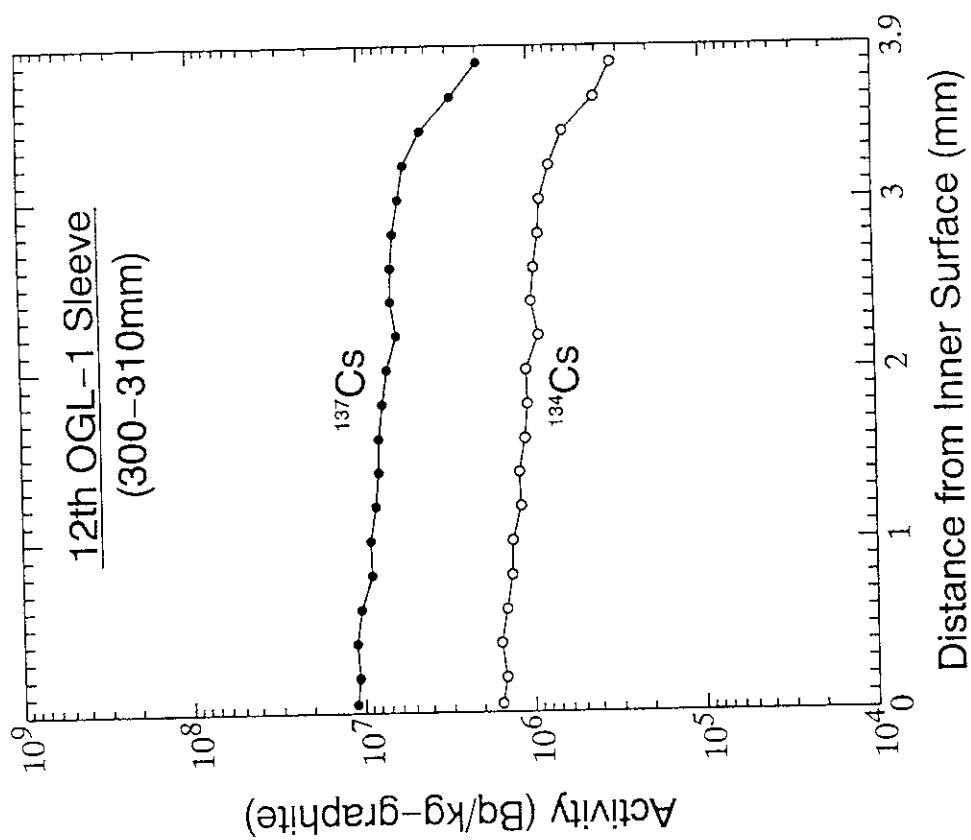


Fig. A3. 5a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300-310mm from sleeve top.

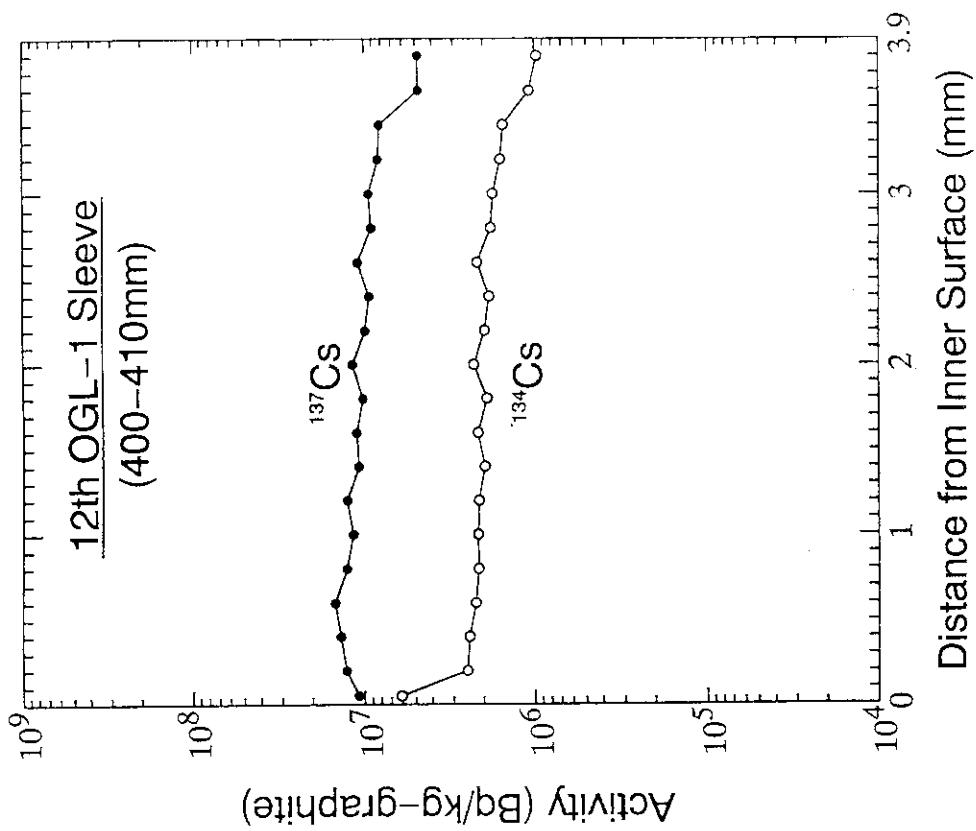


Fig. A3.6a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 400-410mm from sleeve top.

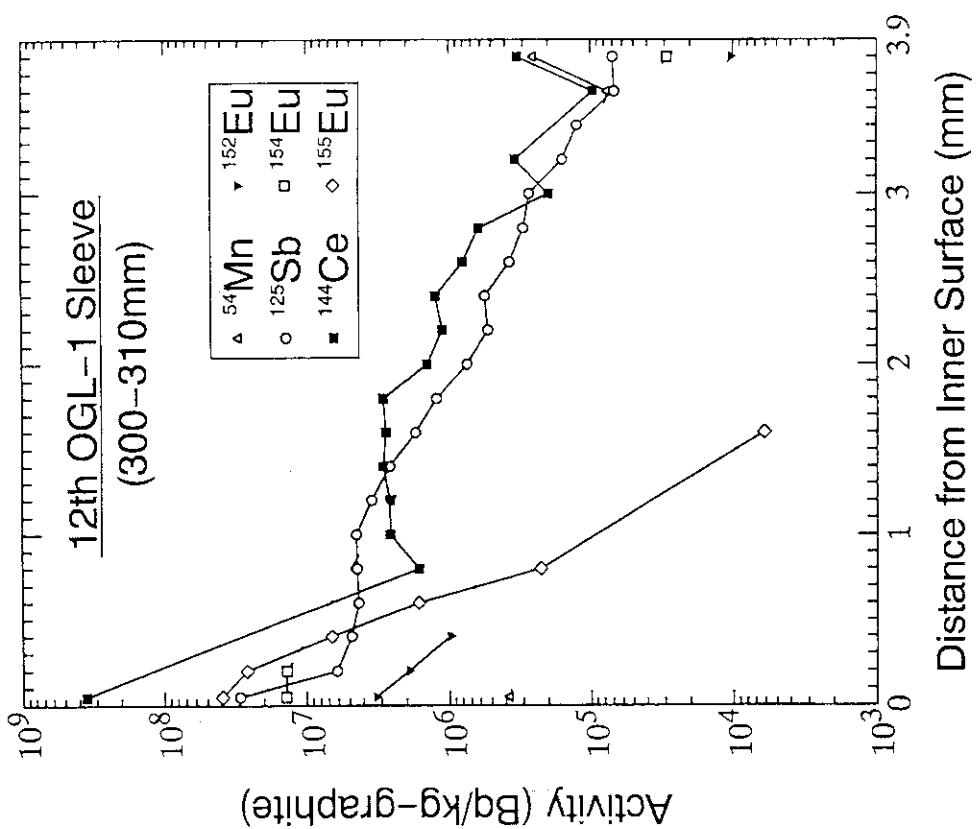


Fig. A3.5c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 300-310mm from sleeve top.

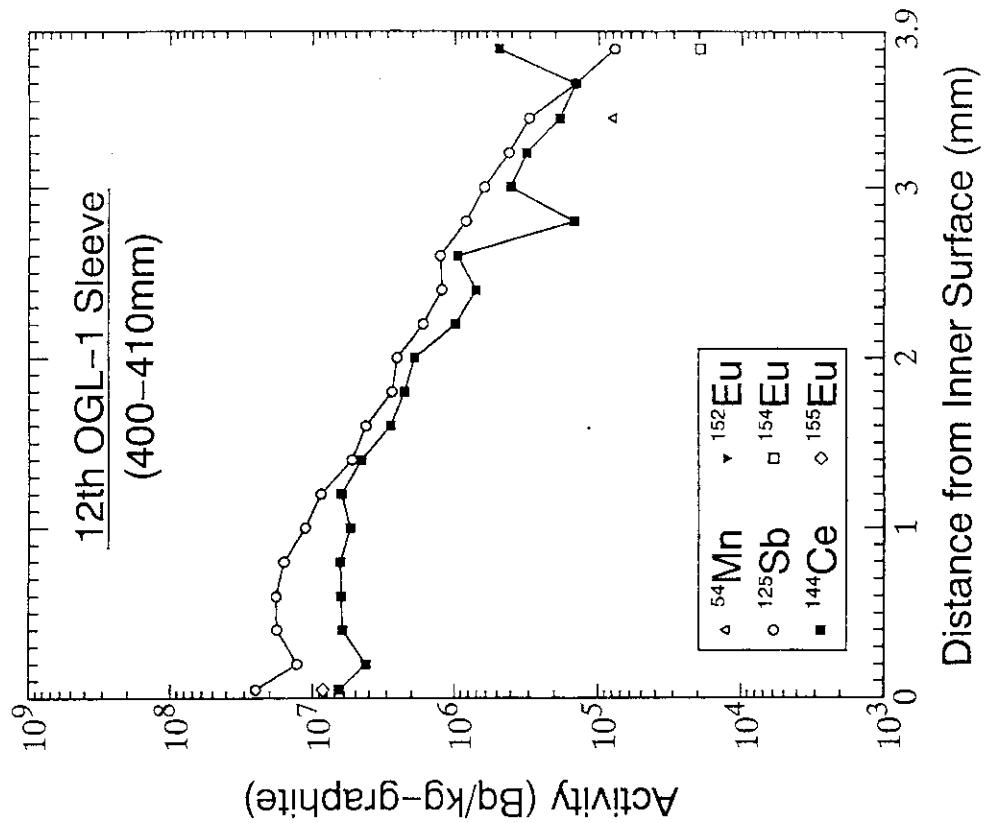


Fig. A3.6c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 400-410mm from sleeve top.

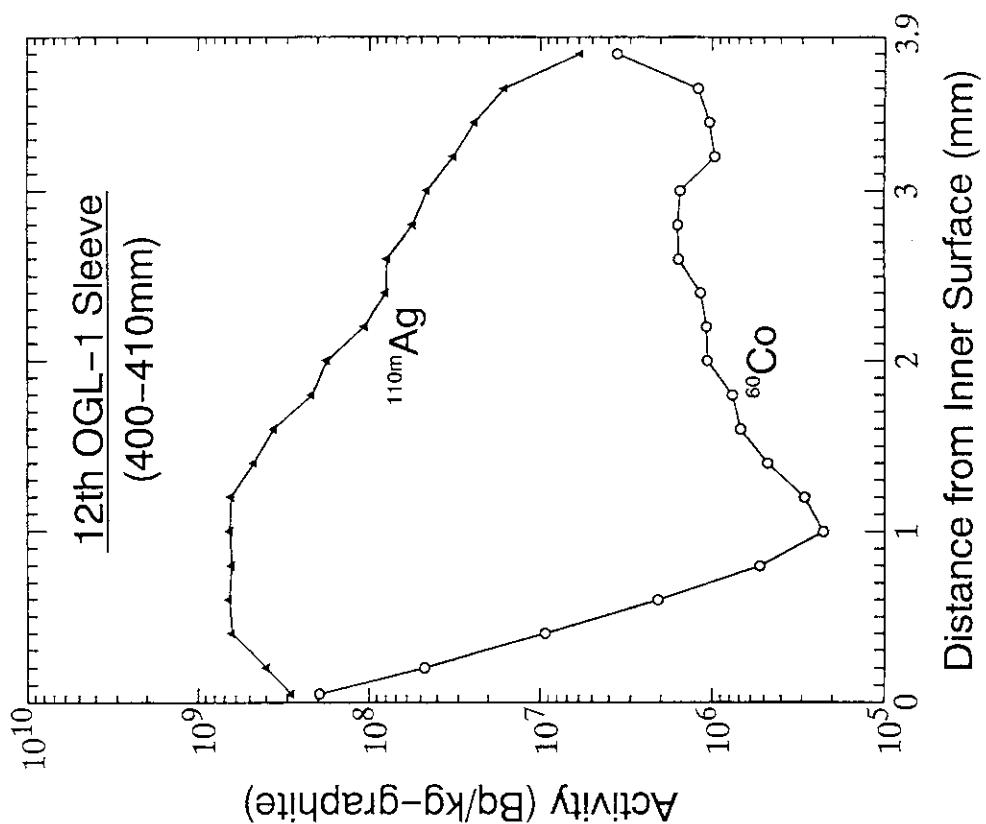


Fig. A3.6b Radial profiles of ^{110}Ag and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 400-410mm from sleeve top.

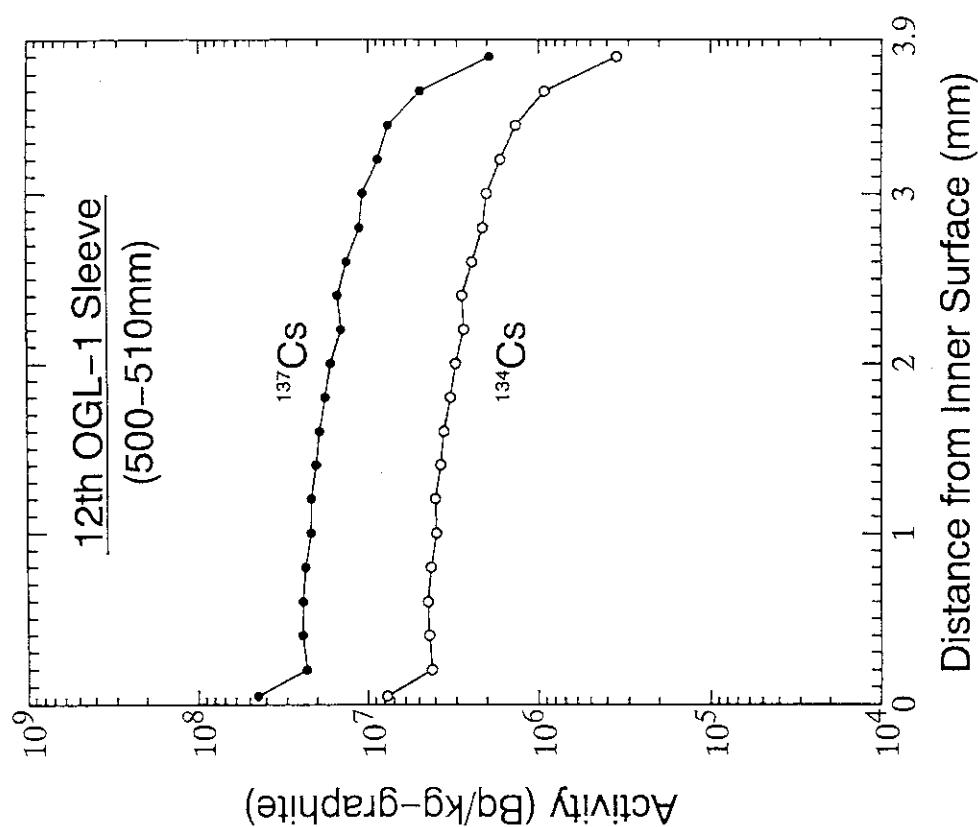


Fig. A3.7a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 500-510mm from sleeve top.

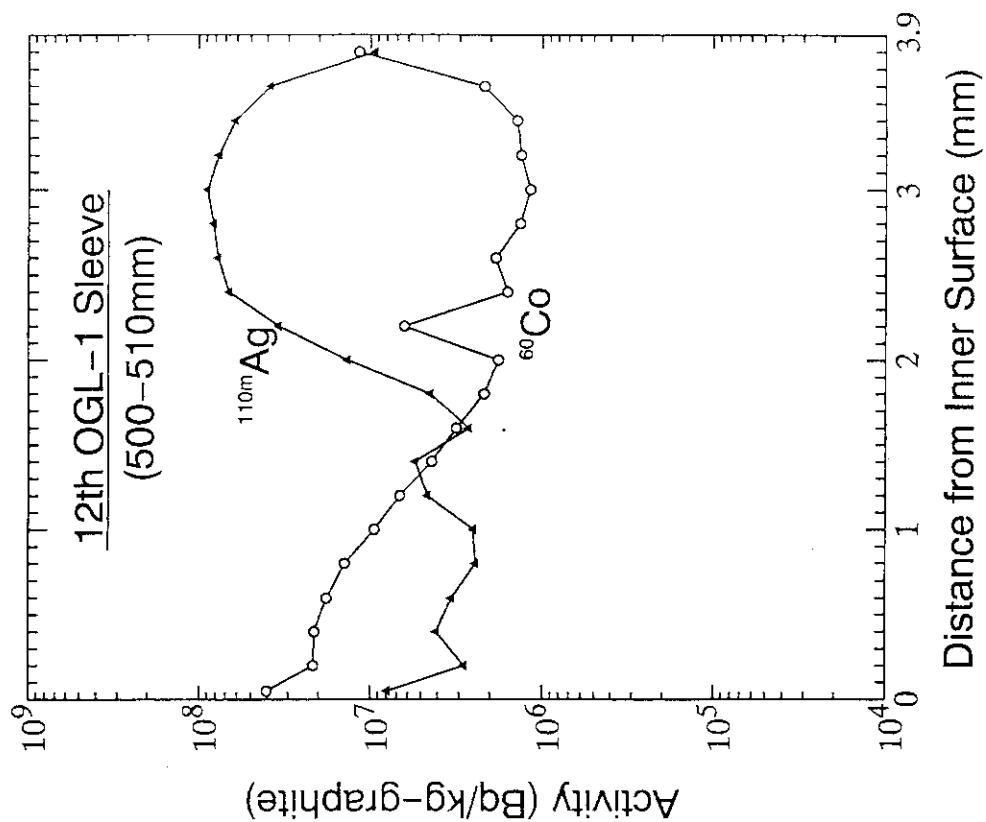


Fig. A3.7b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 500-510mm from sleeve top.

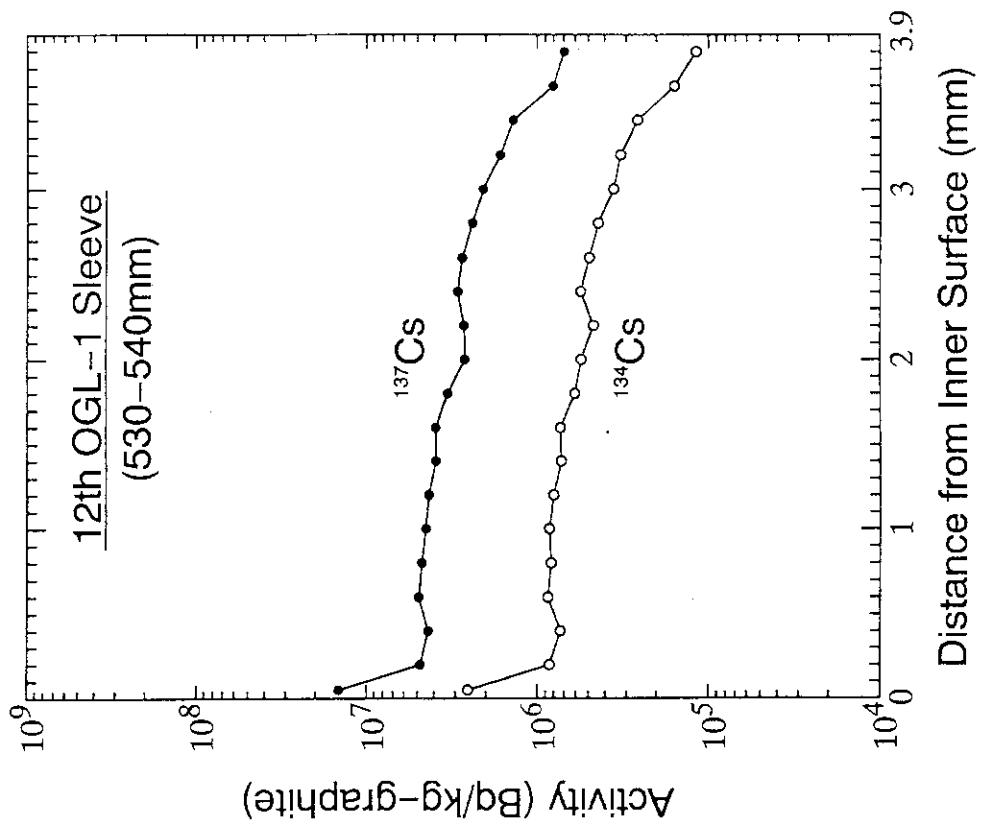


Fig. A3.8a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 530-540mm from sleeve top.

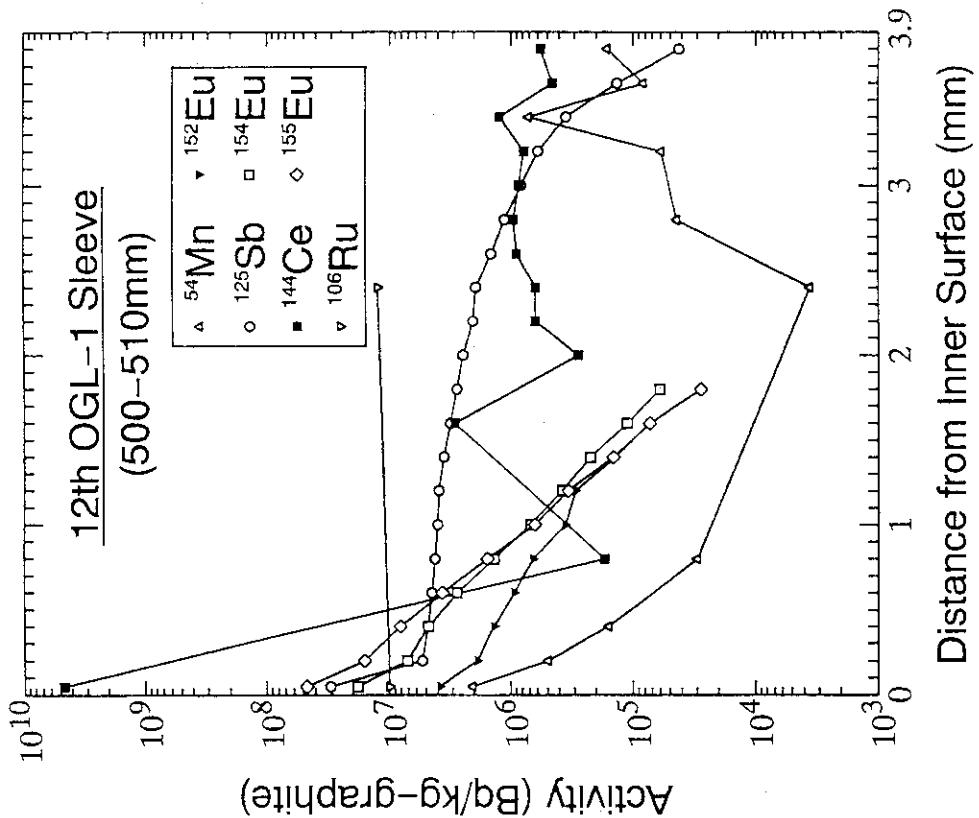


Fig. A3.7c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 500-510mm from sleeve top.

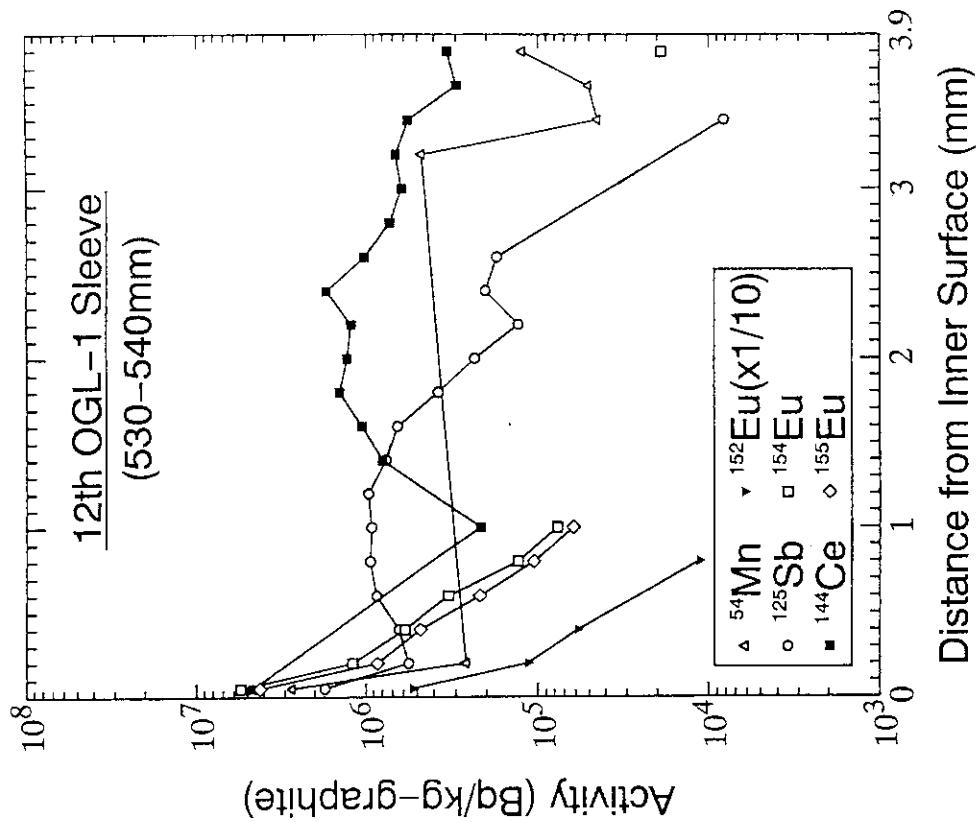


Fig. A3.8c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 530-540mm from sleeve top.

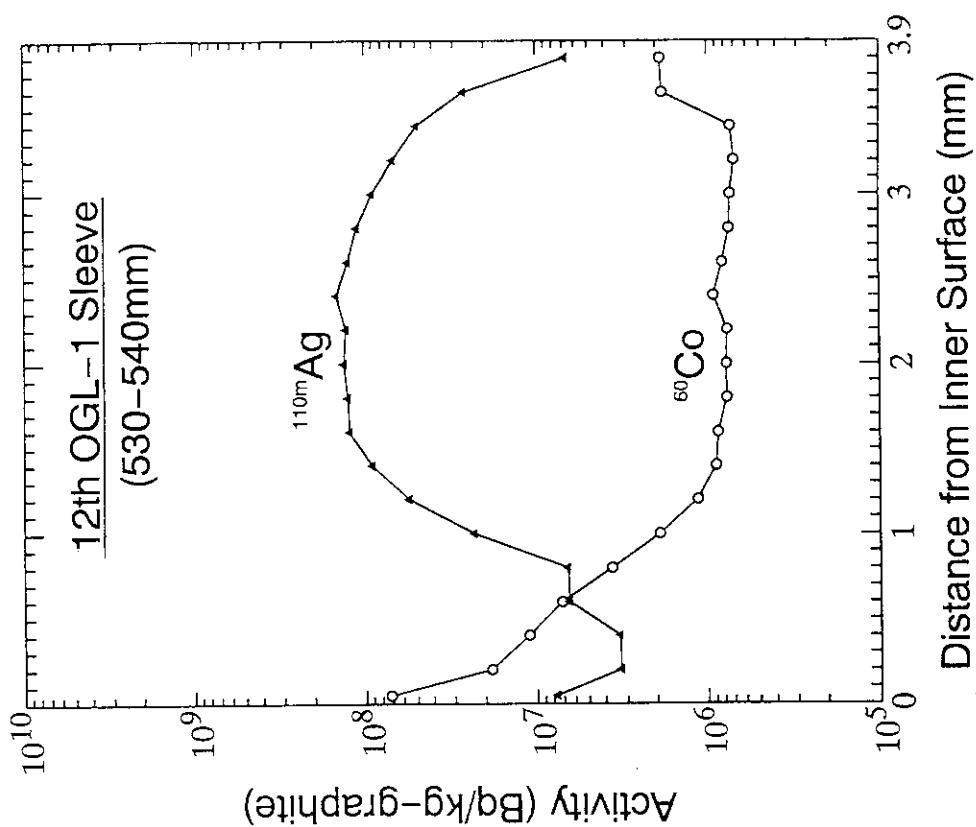


Fig. A3.8b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 530-540mm from sleeve top.

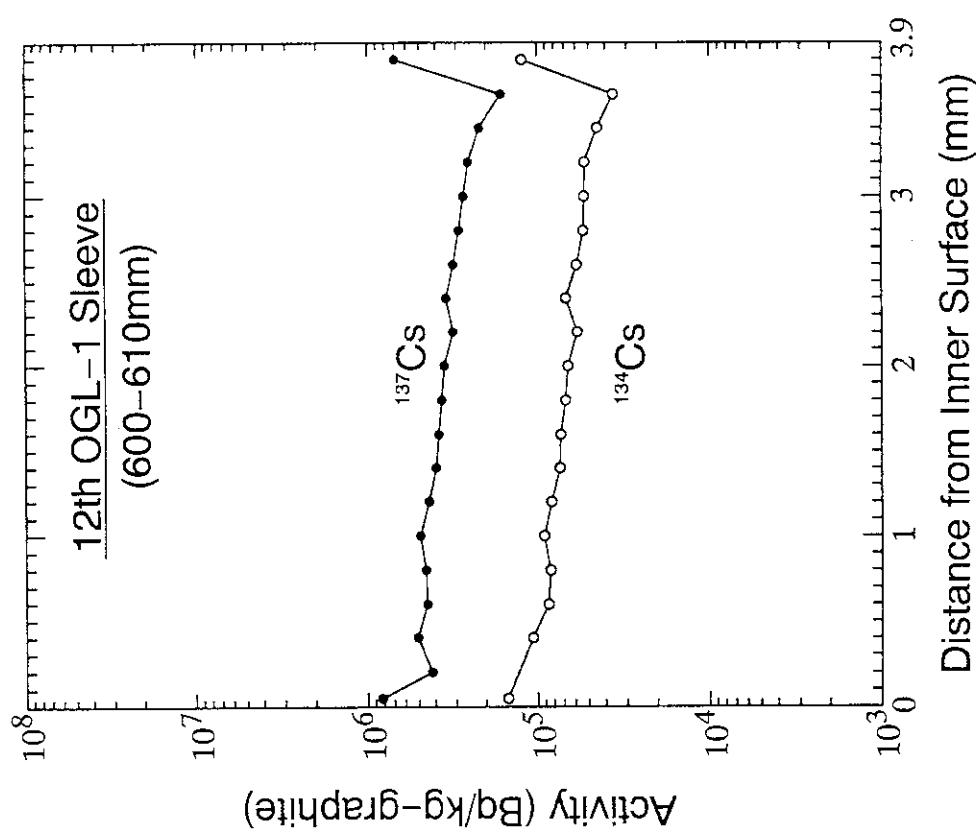


Fig. A3. 9a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly;
600-610mm from sleeve top.

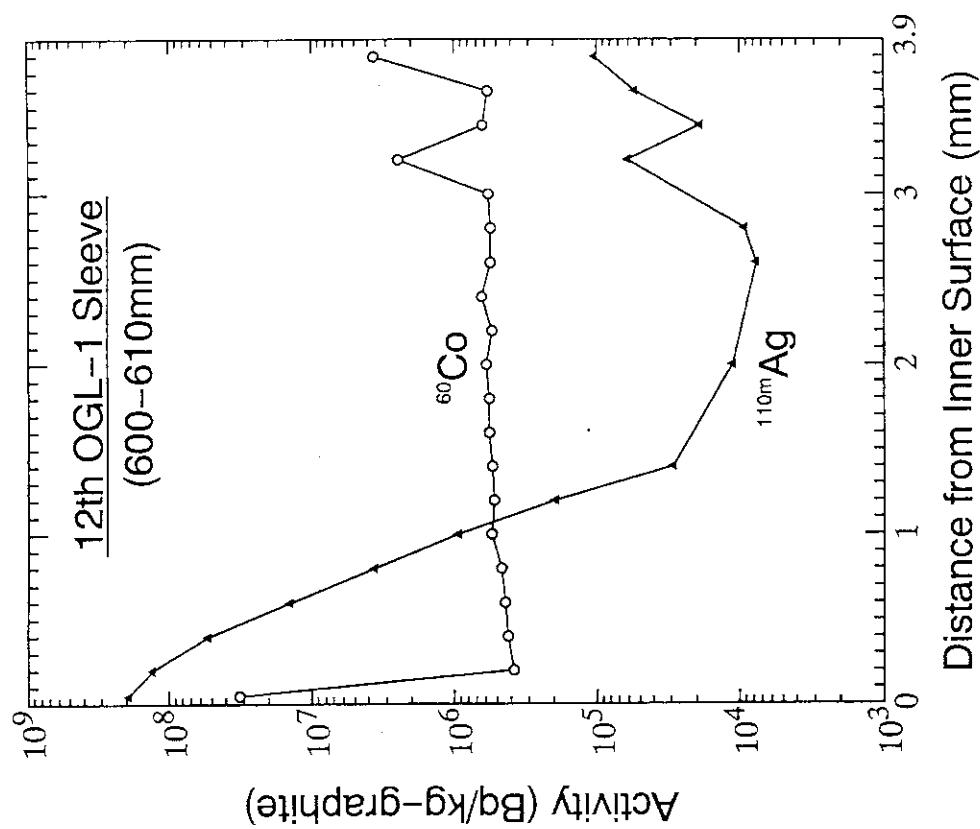


Fig. A3. 9b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly;
600-610mm from sleeve top.

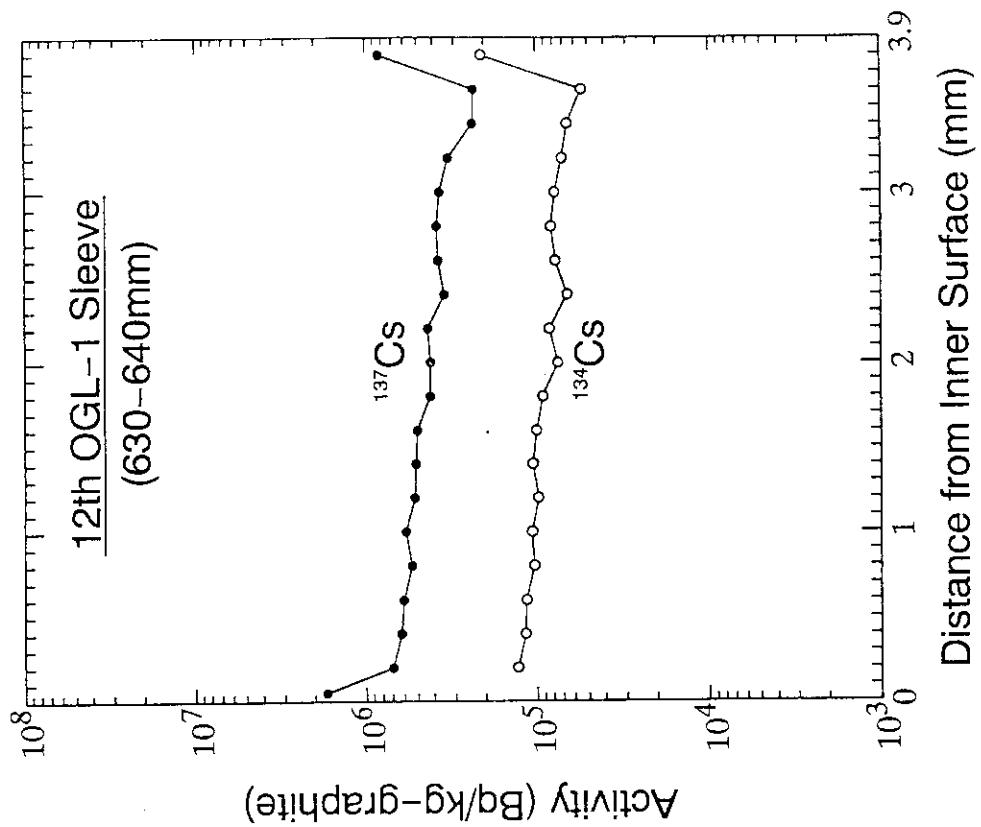


Fig. A3.10a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 630-640mm from sleeve top.

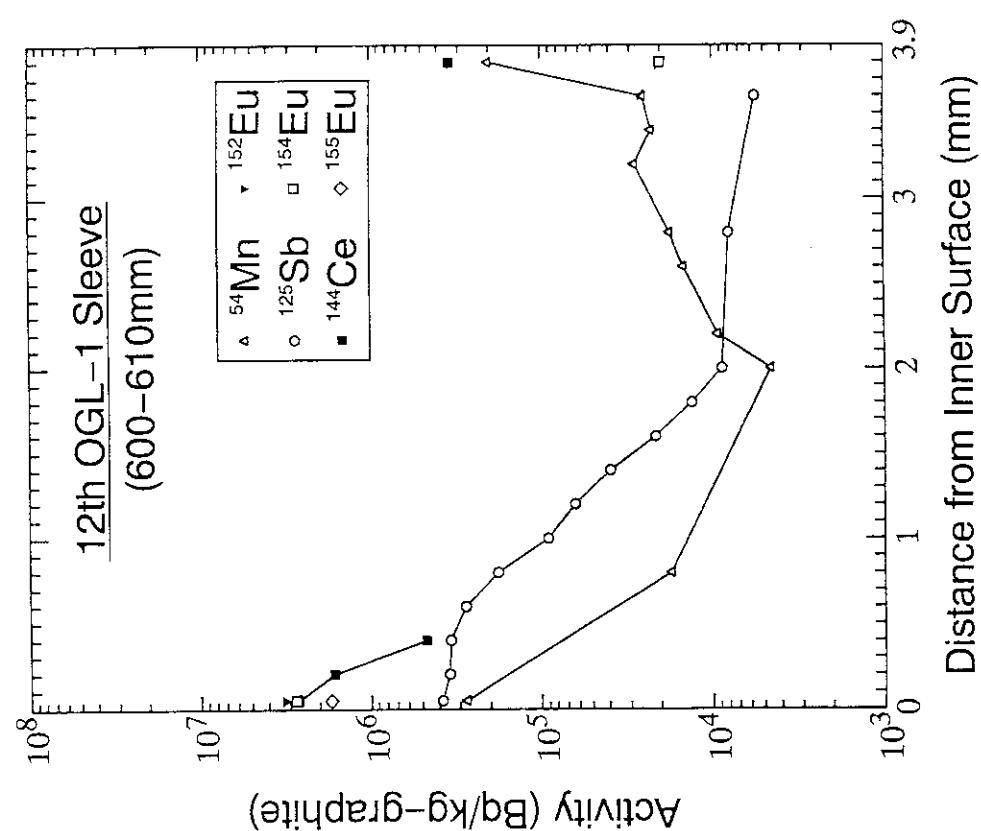


Fig. A3.9c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 600-610mm from sleeve top.

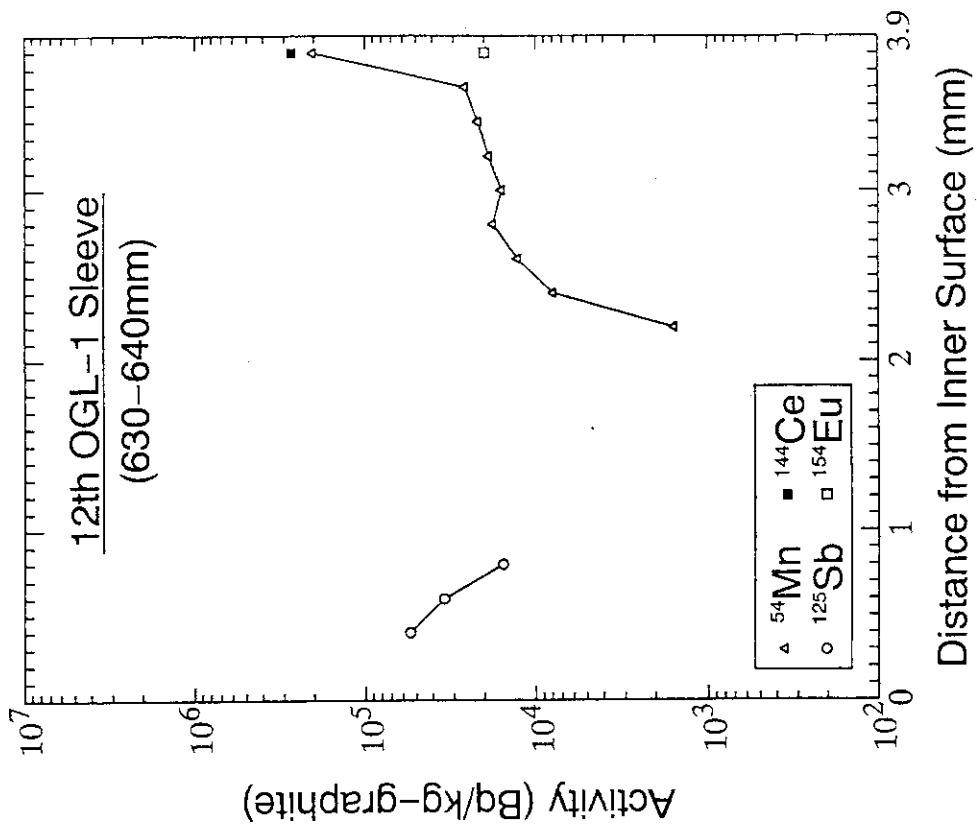


Fig. A3. 10c Radial profiles of ^{125}Sb , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu and ^{54}Mn in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 630-640mm from sleeve top.

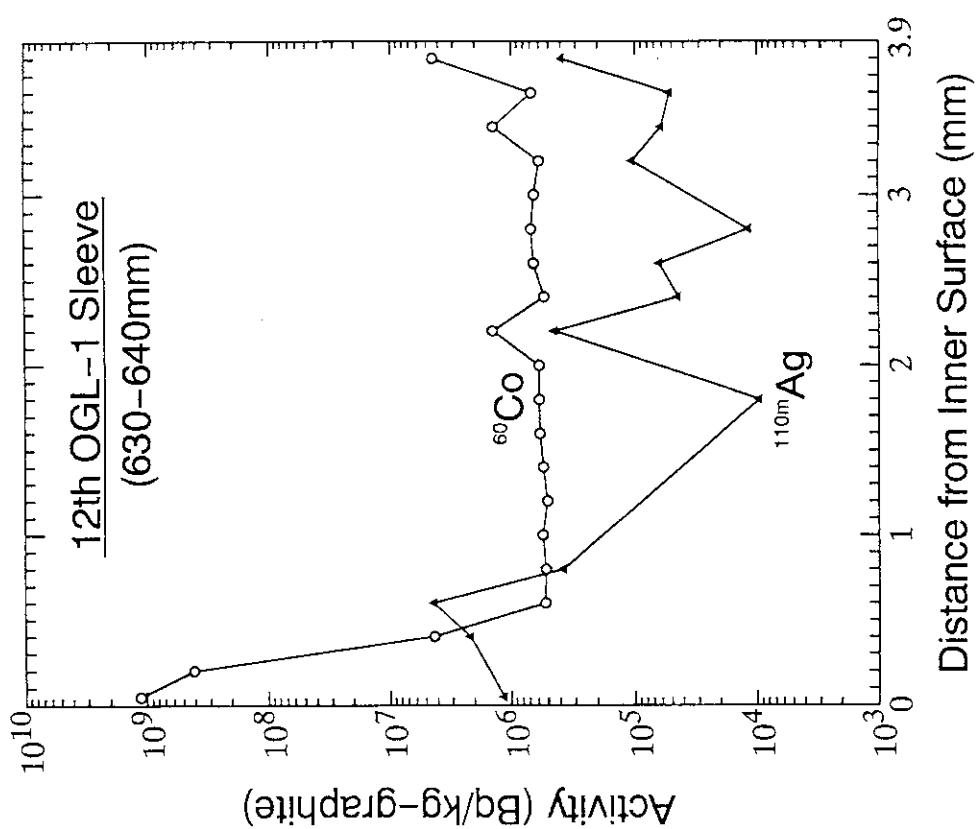


Fig. A3. 10b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 630-640mm from sleeve top.

付録 4 第12次OGL-1燃料体の黒鉛ブロック径方向の核分裂生成物分布(図)

第12次OGL-1燃料体の黒鉛ブロック径方向中のFPおよび放射化生成物の分布を、異なった軸方向位置について、Fig.A4.1～Fig.A4.12に示す。

各図と黒鉛ブロック軸方向位置、および、付録3に示したスリーブ径方向の分布とは下のように対応している。なお、燃料体において、スリーブ上端とブロック上端の軸方向位置は10mmずれている。

	スリーブ上端 からの距離 (mm)		ブロック上端 からの距離 (mm)
		Fig.A4.1	0- 10
		Fig.A4.2	11- 20
Fig.A3.1	100-110	Fig.A4.3	90-100
Fig.A3.2	130-140		
Fig.A3.3	200-210	Fig.A4.4	190-200
Fig.A3.4	230-240		
Fig.A3.5	300-310	Fig.A4.5	290-300
Fig.A3.6	400-410	Fig.A4.6	390-400
Fig.A3.7	500-510	Fig.A4.7	490-500
Fig.A3.8	530-540	Fig.A4.8	520-530
Fig.A3.9	600-610	Fig.A4.9	590-600
Fig.A3.10	630-640	Fig.A4.10	690-700
		Fig.A4.11	764-774
		Fig.A4.12	775-785

本文3.2.3項の(2)において、ブロック上端から290-300mmの位置における測定結果を典型例として取り上げて説明した。

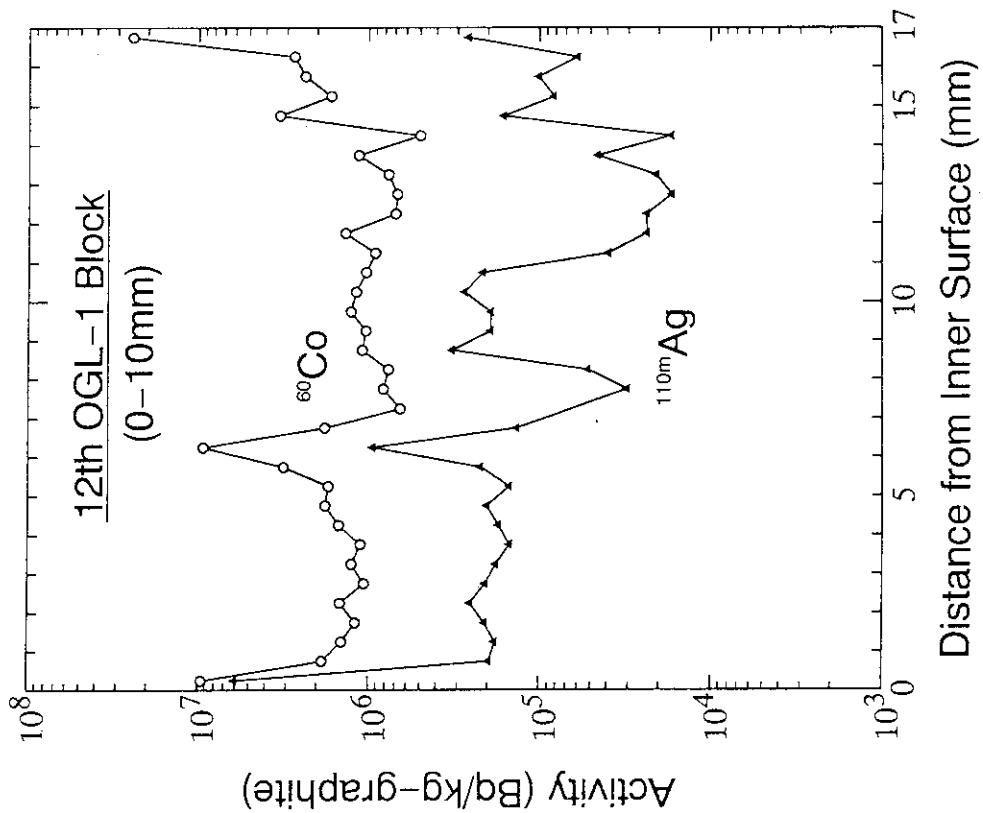


Fig. A4. 1b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 0-10mm from block top.

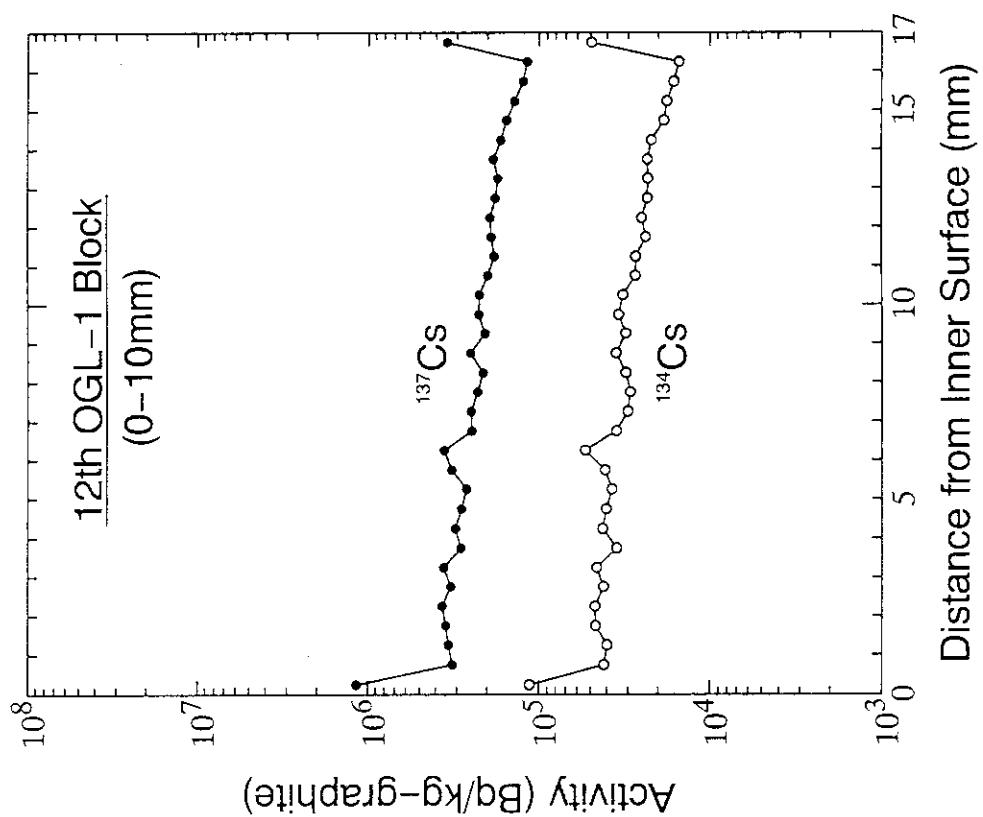


Fig. A4. 1a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 0-10mm from block top.

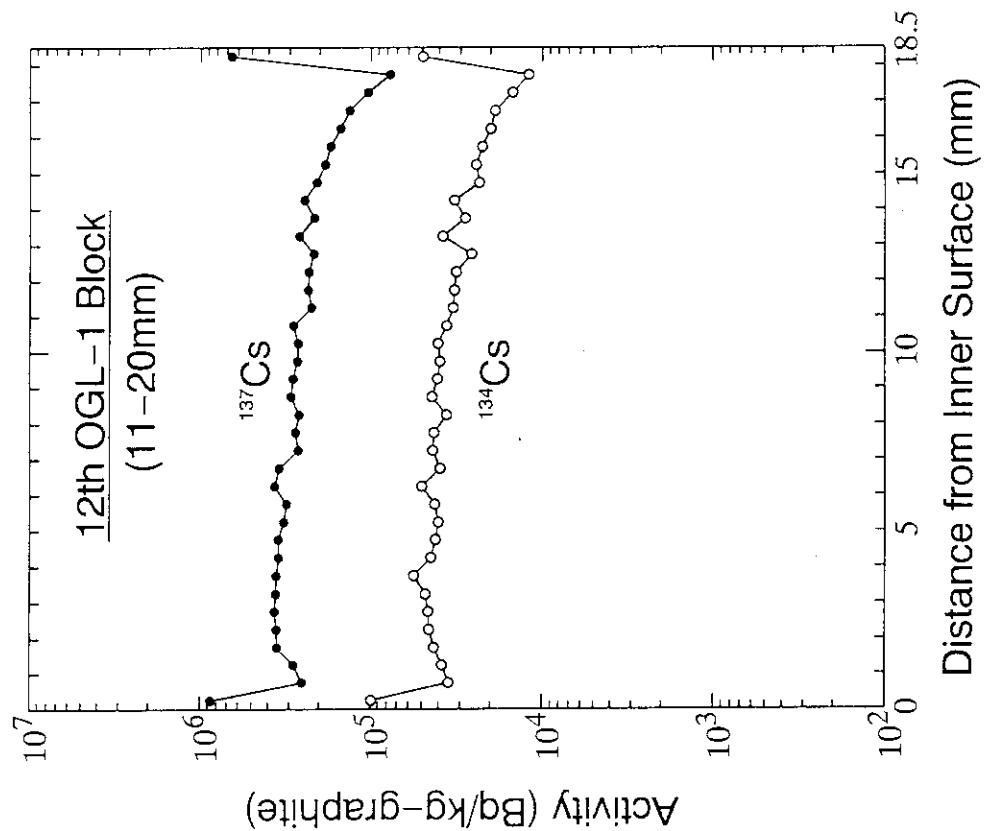


Fig. A4.2a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 11-20mm from block top.

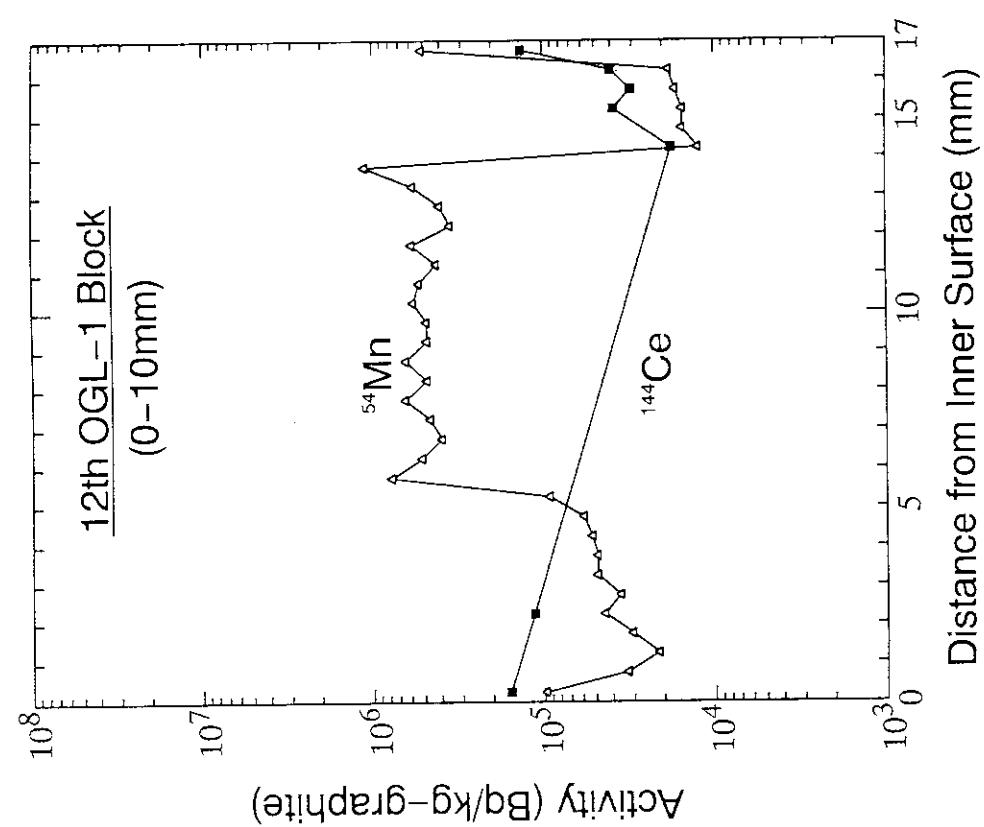


Fig. A4.1c Radial profiles of ^{144}Ce and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 0-10mm from block top.

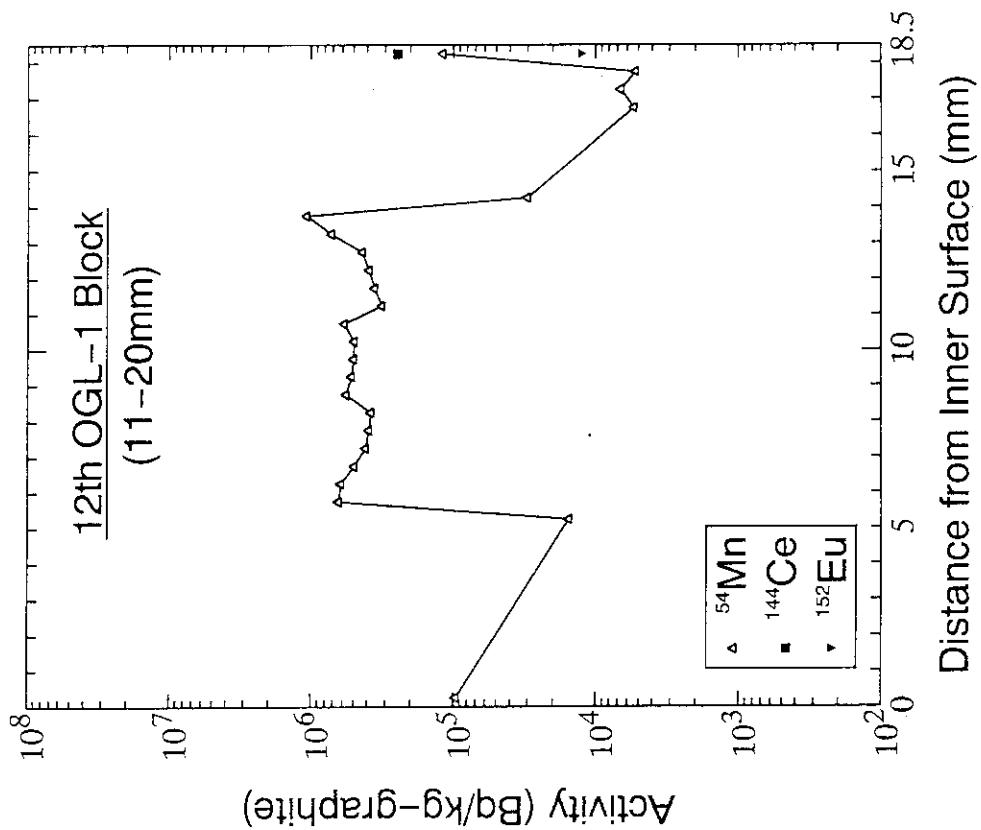


Fig. A4.2c Radial profiles of ^{144}Ce , ^{152}Eu and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 11-20mm from block top.

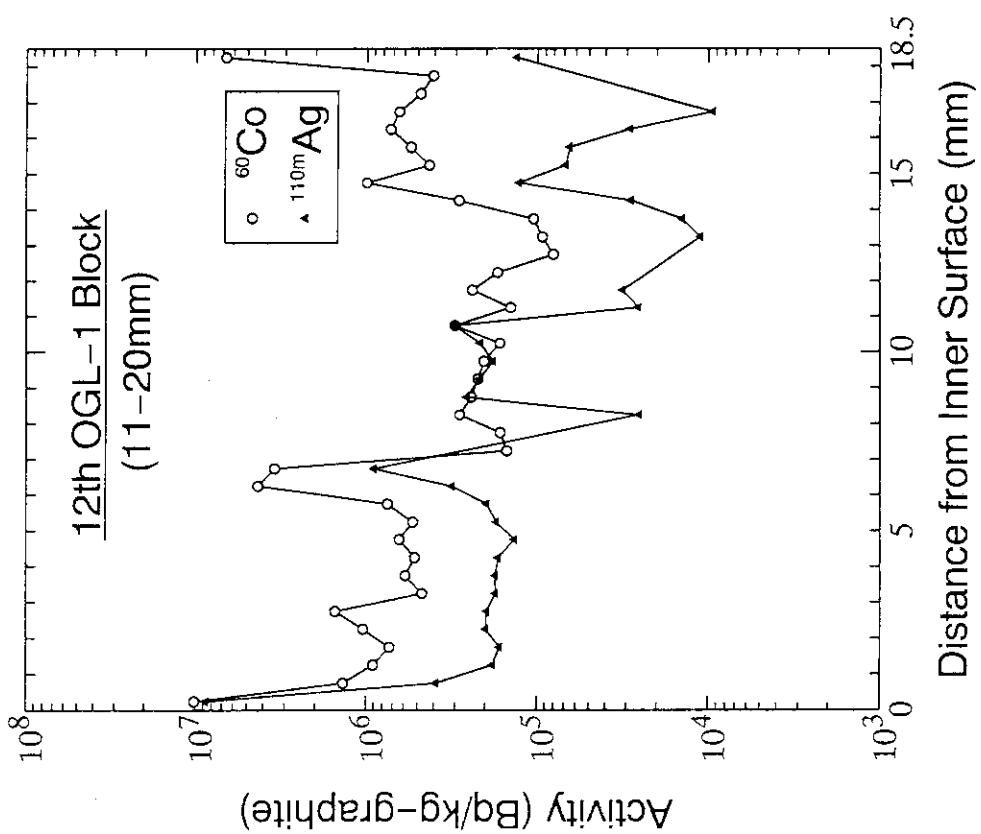


Fig. A4.2b Radial profiles of ^{110}mAg and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 11-20mm from block top.

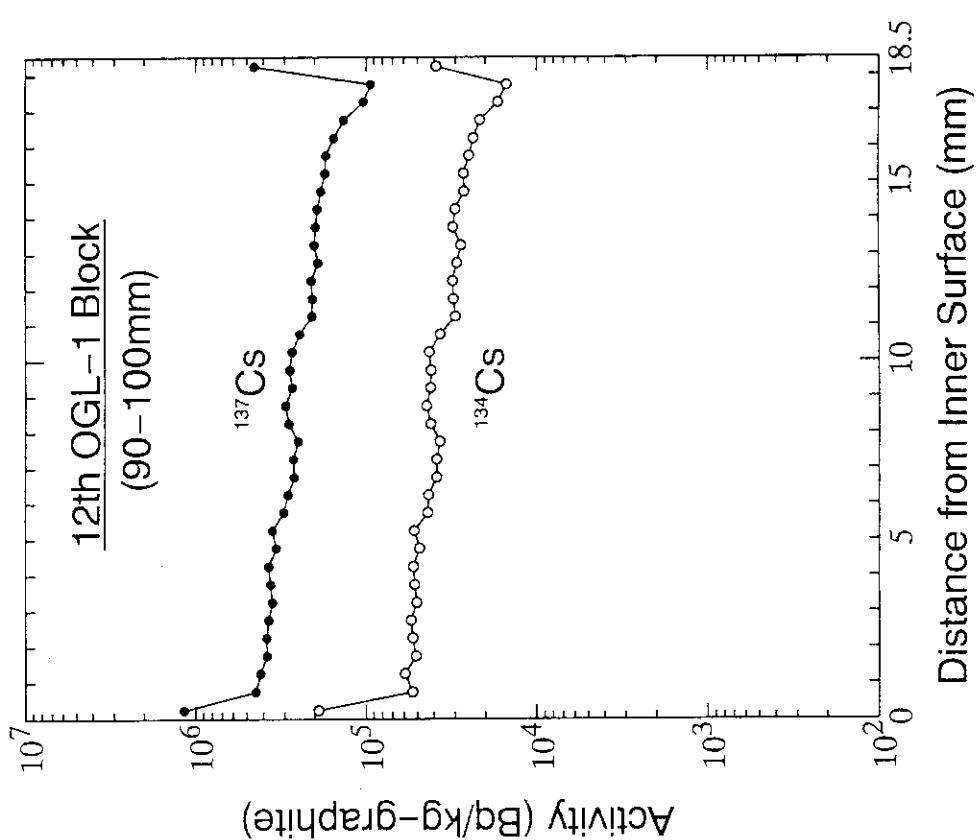


Fig. A4. 3a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 90-100mm from block top.

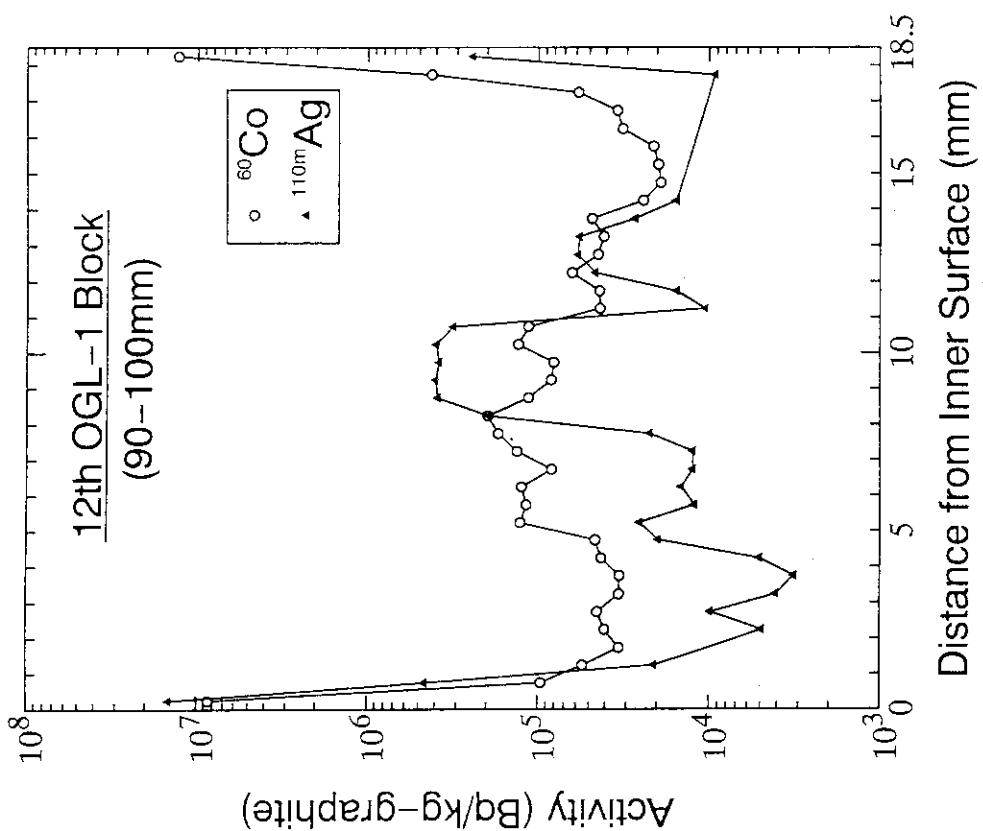


Fig. A4. 3b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 90-100mm from block top.

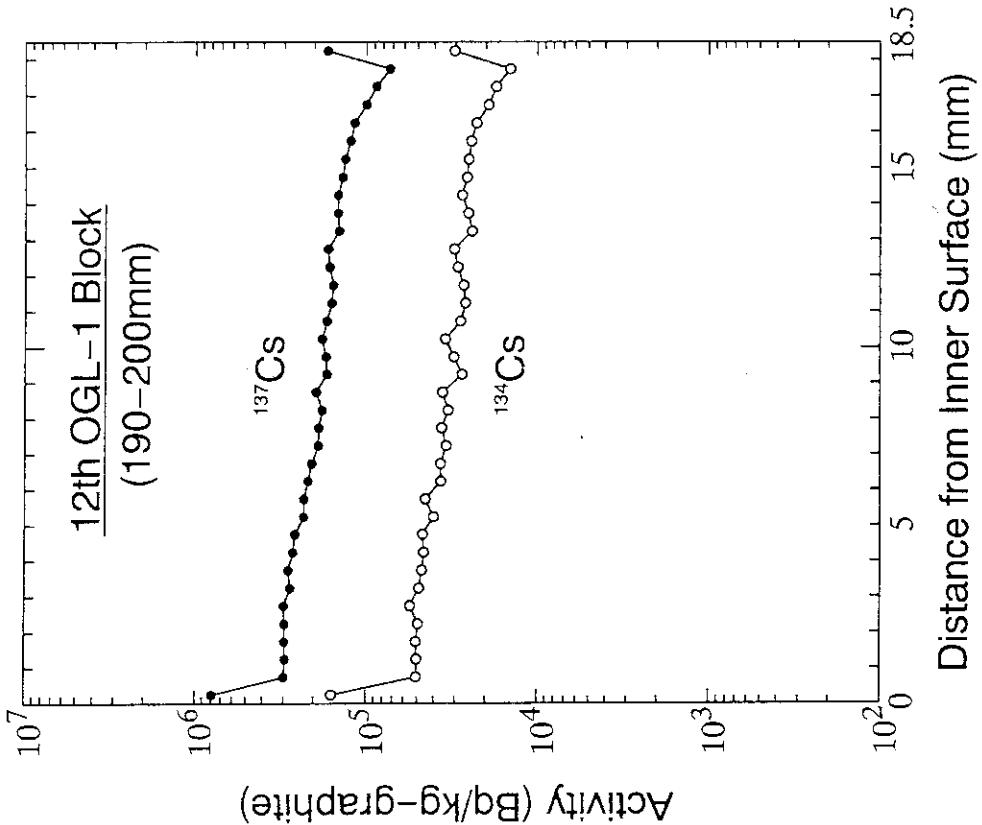


Fig. A4.4a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 190-200mm from block top.

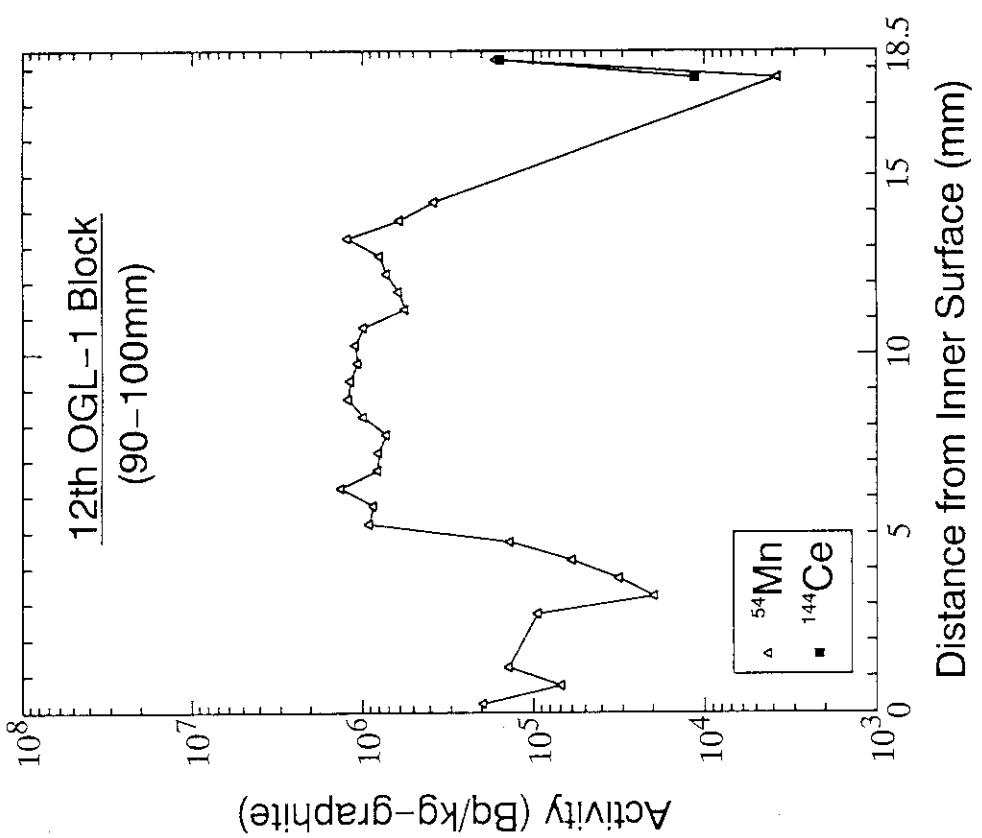


Fig. A4.3c Radial profiles of ^{144}Ce and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 90-100mm from block top.

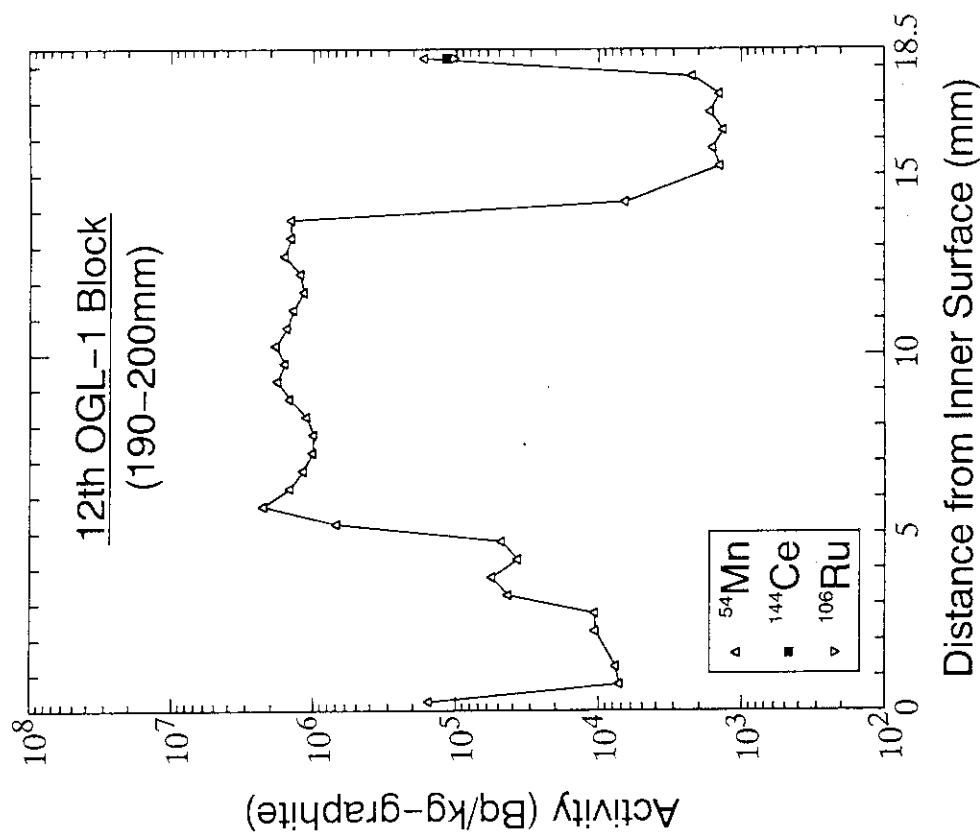


Fig. A4.4c Radial profiles of ^{144}Ce , ^{106}Ru and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 190-200mm from block top.

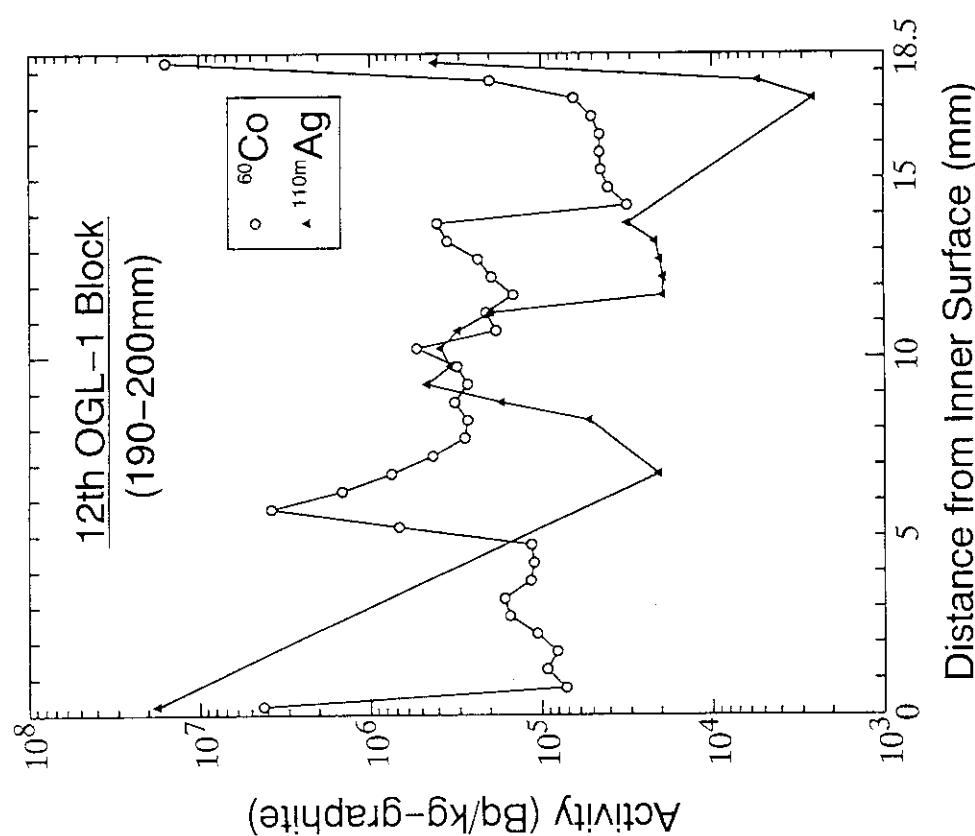


Fig. A4.4b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 190-200mm from block top.

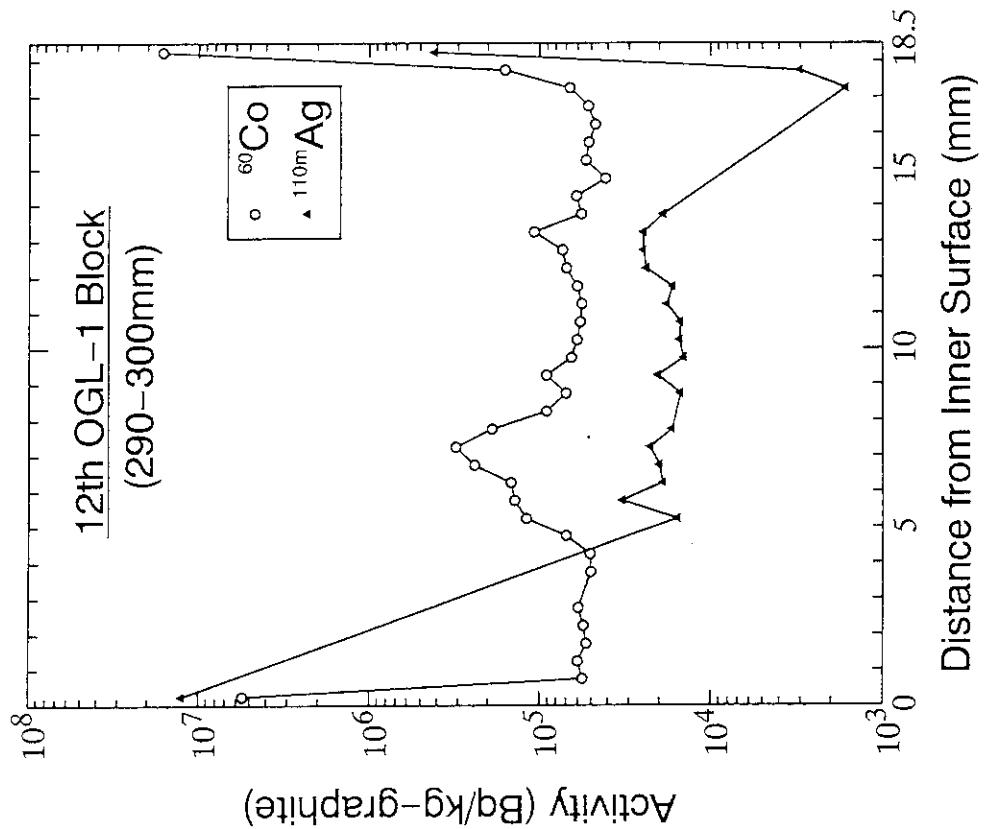


Fig. A4. 5b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290-300mm from block top.

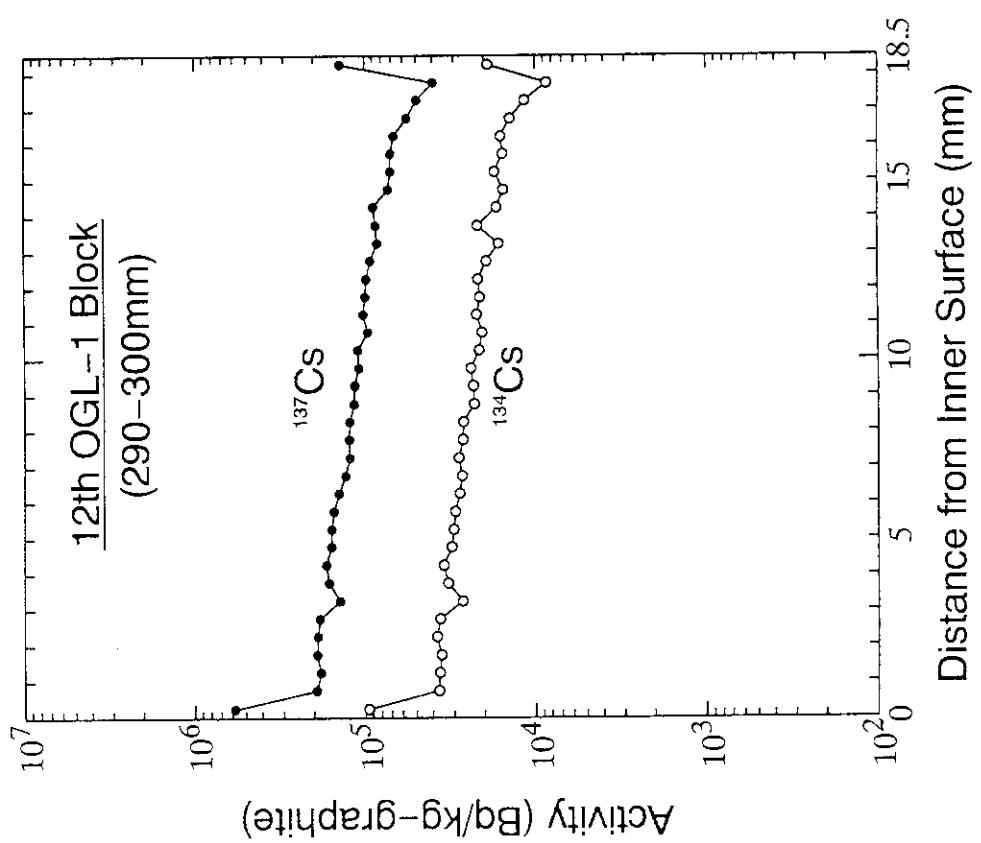


Fig. A4. 5a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290-300mm from block top.

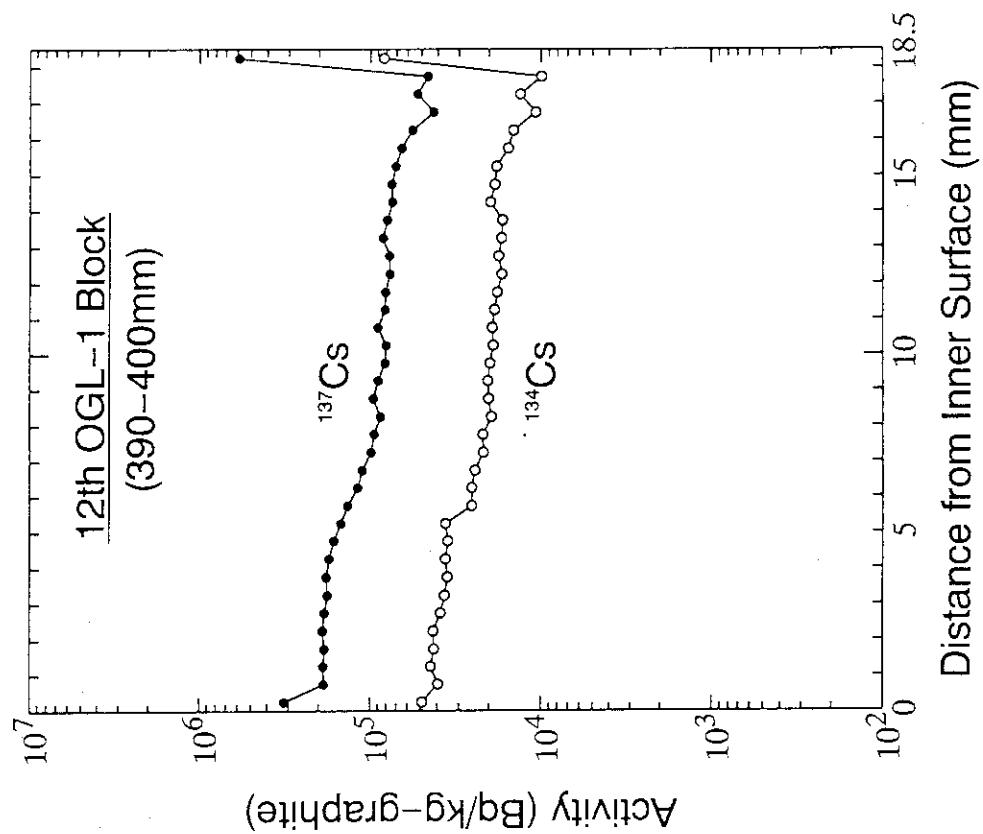


Fig. A4.6a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 390–400mm from block top.

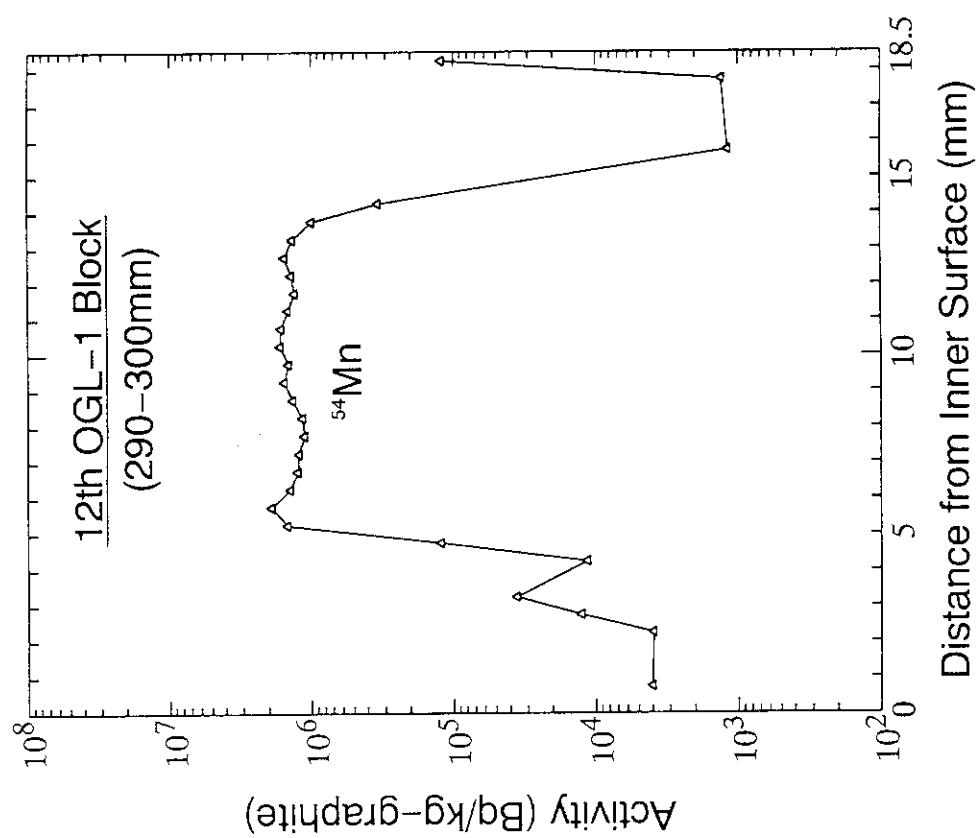


Fig. A4.5c Radial profiles of ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 290–300mm from block top.

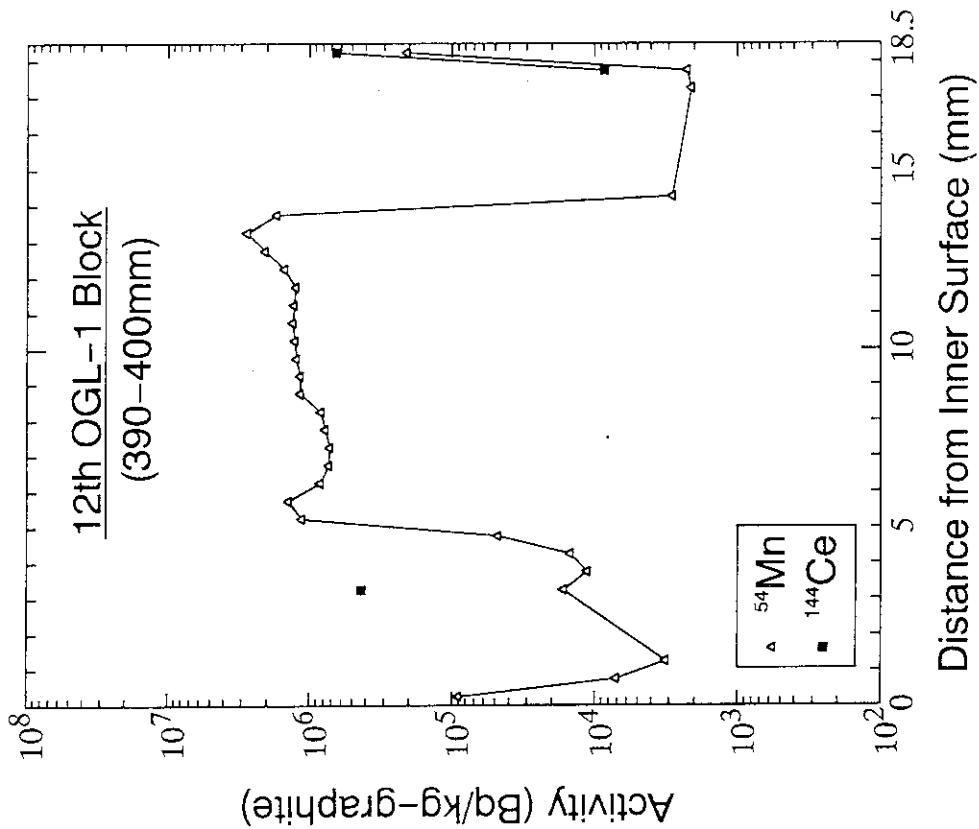


Fig. A4.6c Radial profiles of ^{144}Ce and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 390-400mm from block top.

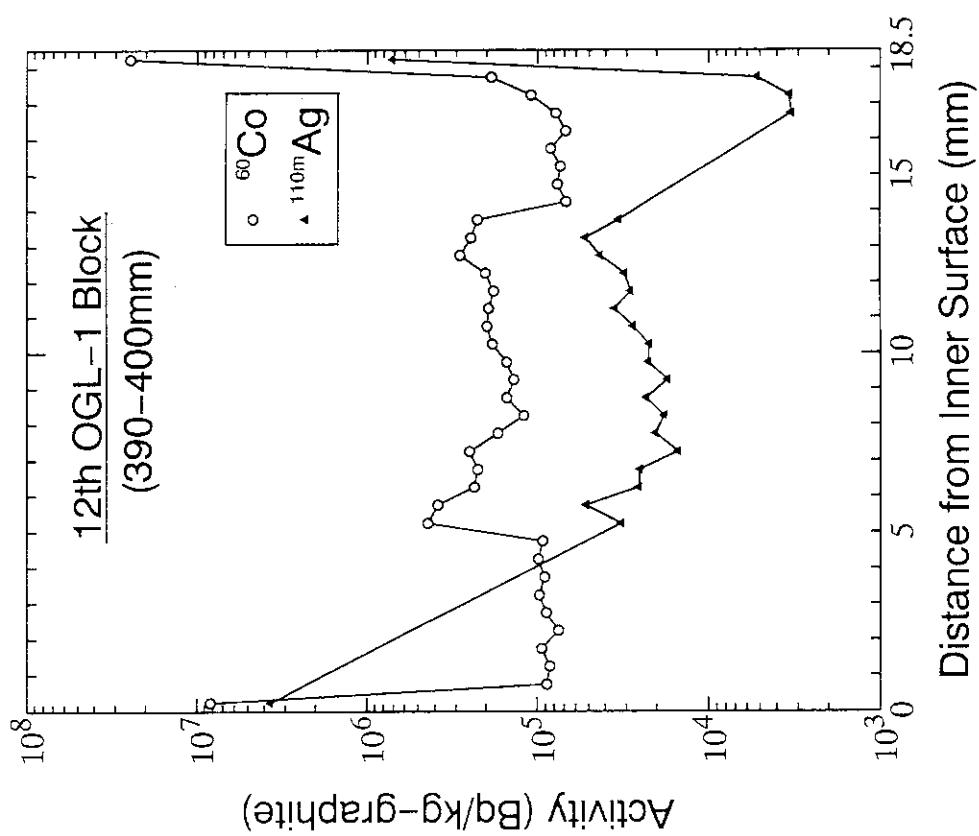


Fig. A4.6b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 390-400mm from block top.

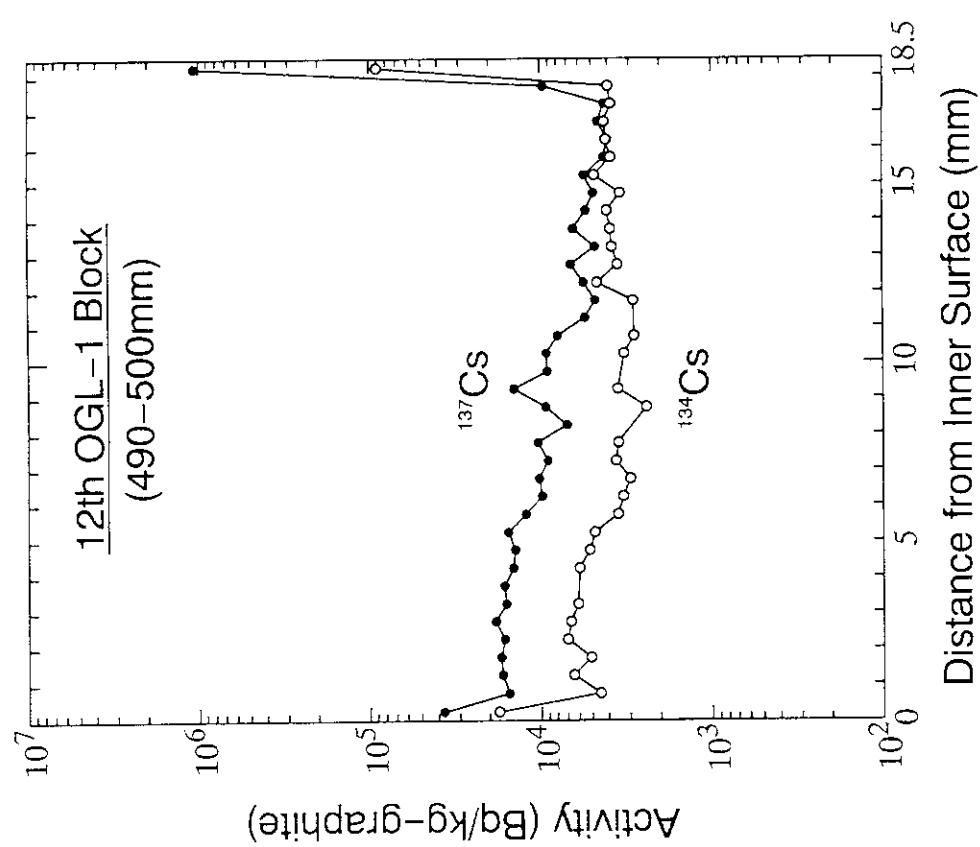


Fig. A4.7a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 490-500mm from block top.

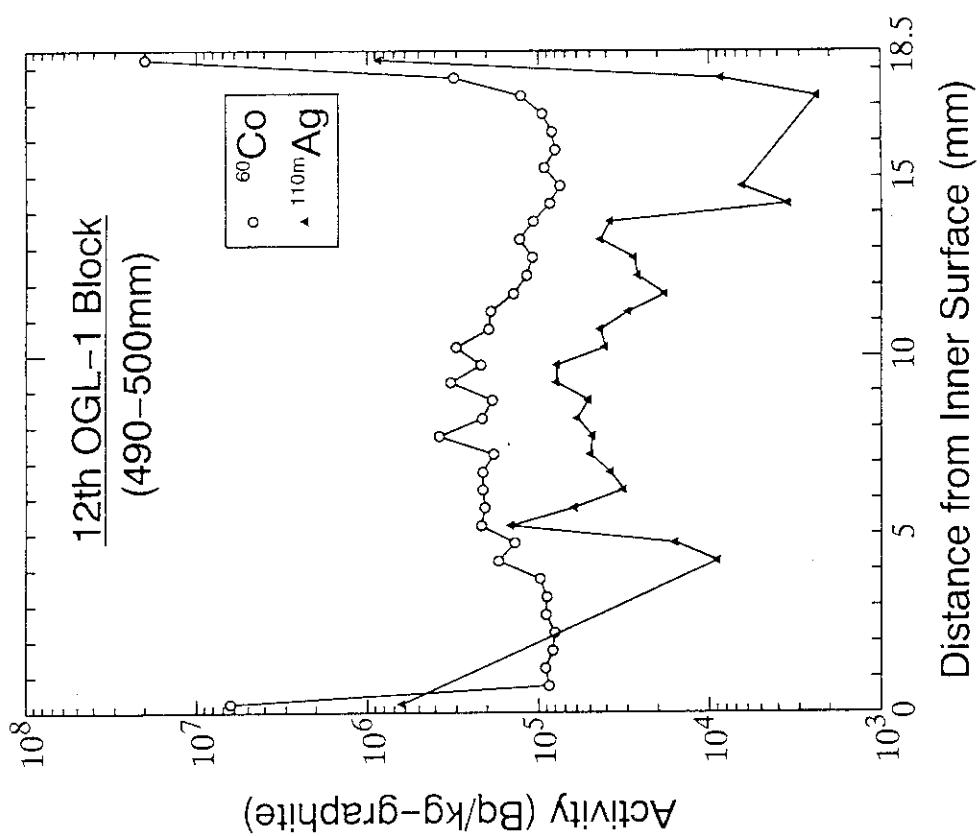


Fig. A4.7b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 490-500mm from block top.

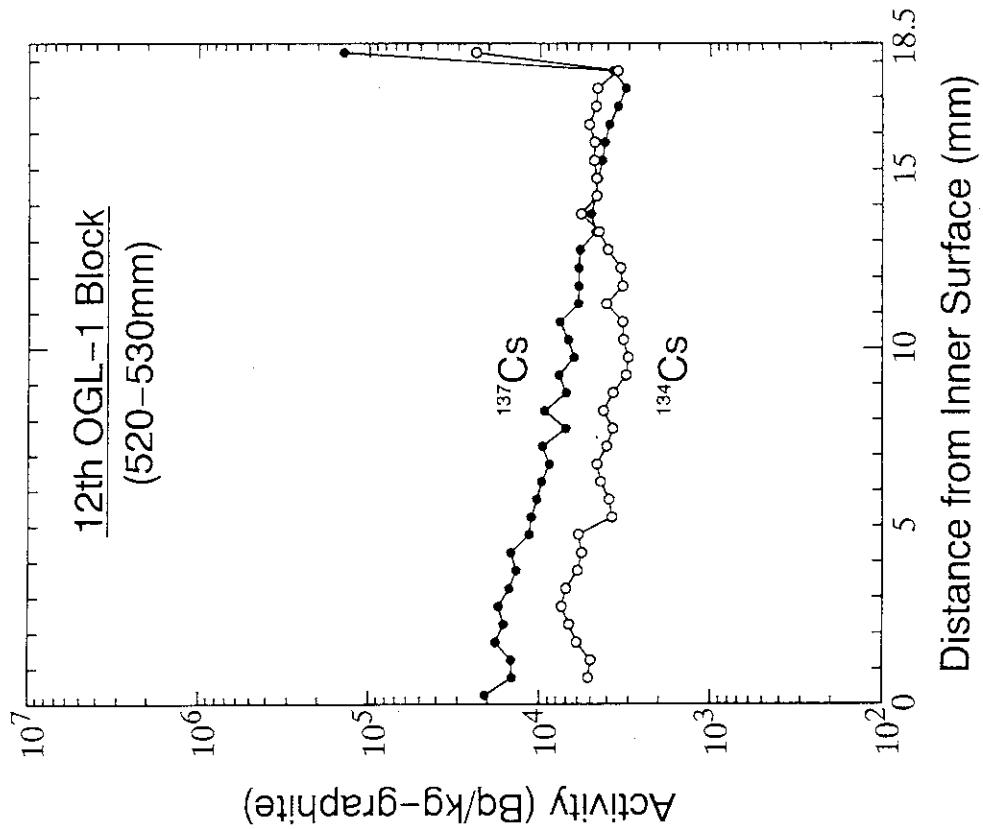


Fig. A4. 8a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 520-530mm from block top.

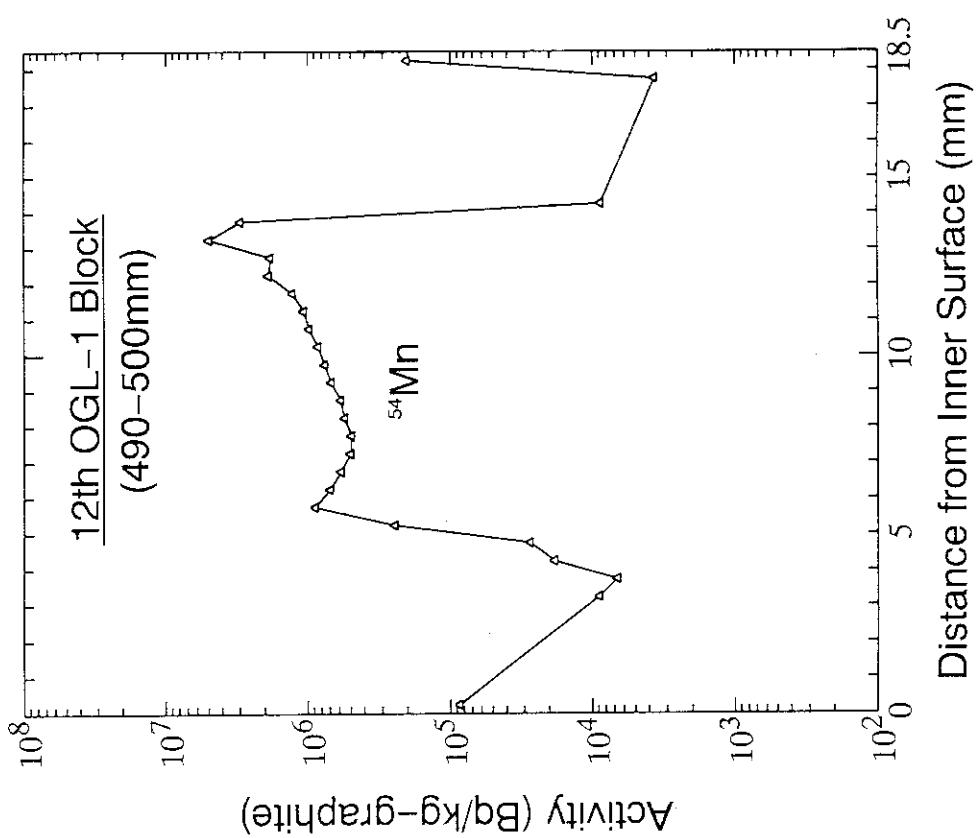


Fig. A4. 7c Radial profiles of ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 490-500mm from block top.

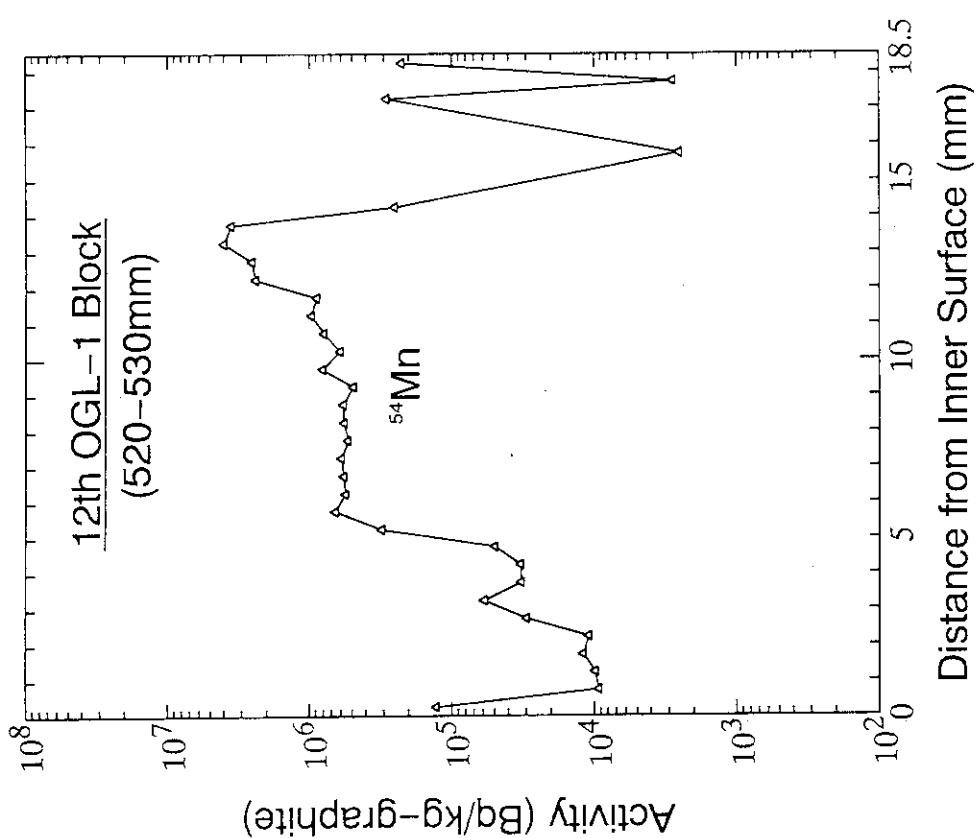


Fig. A4.8c Radial profiles of ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 520-530mm from block top.

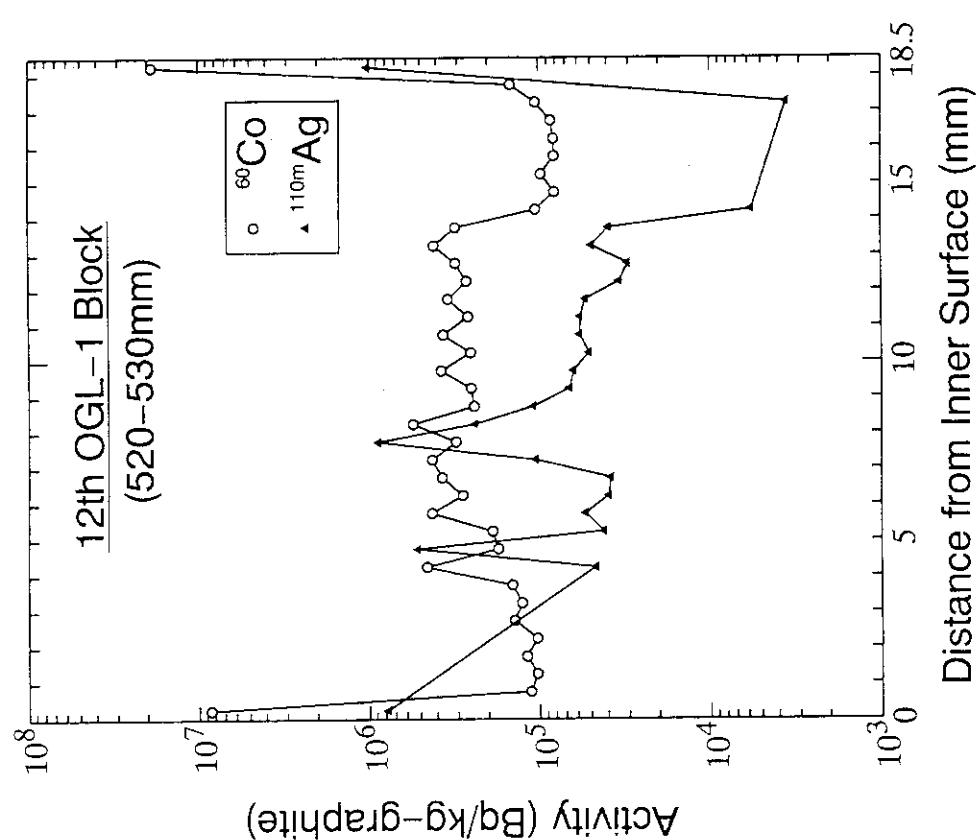


Fig. A4.8b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 520-530mm from block top.

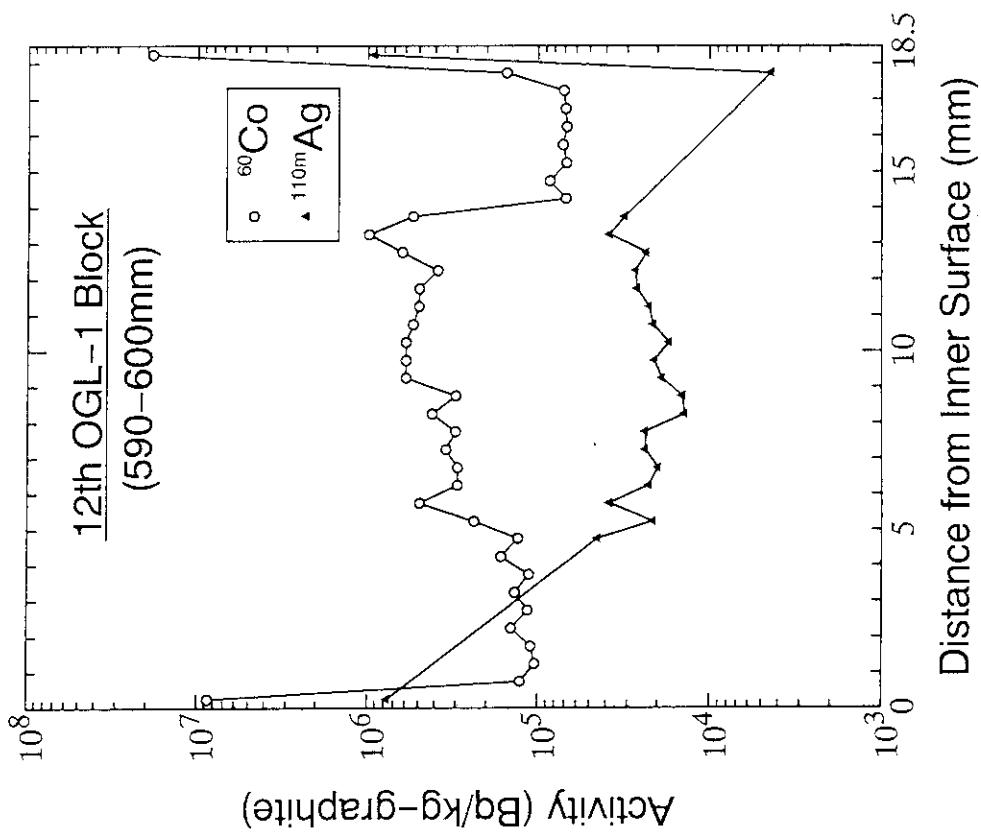


Fig. A4. 9b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite sleeve of 12th OGL-1 fuel assembly; 590-600mm from block top.

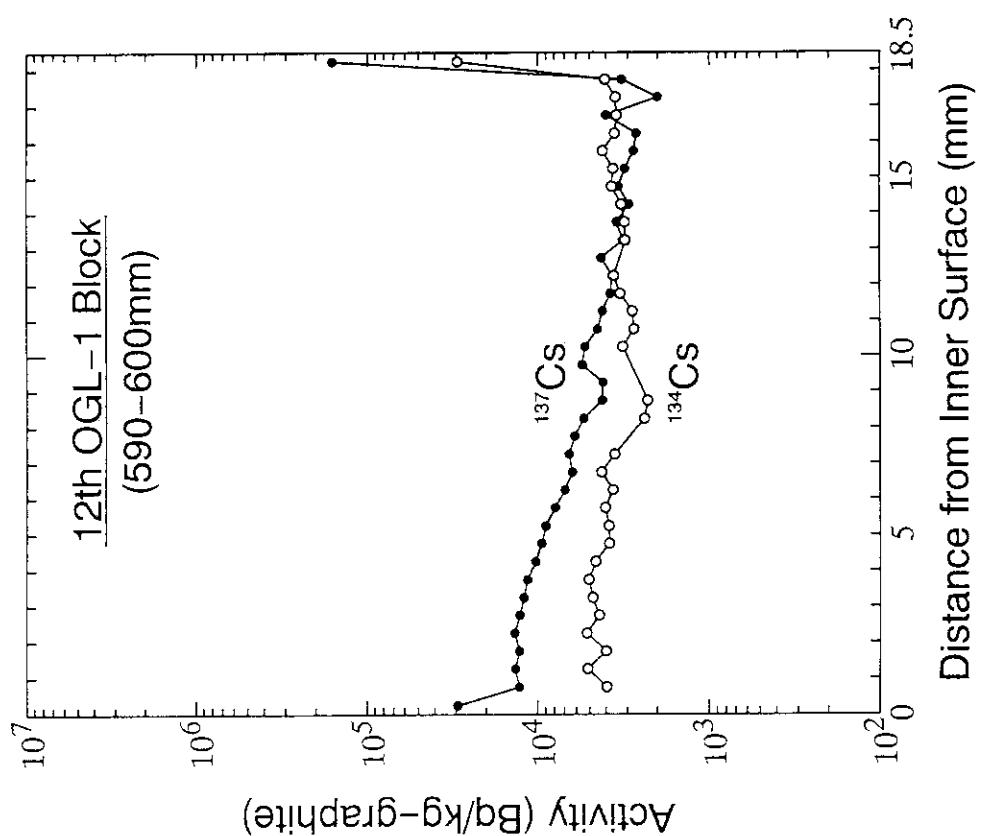


Fig. A4. 9a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 590-600mm from block top.

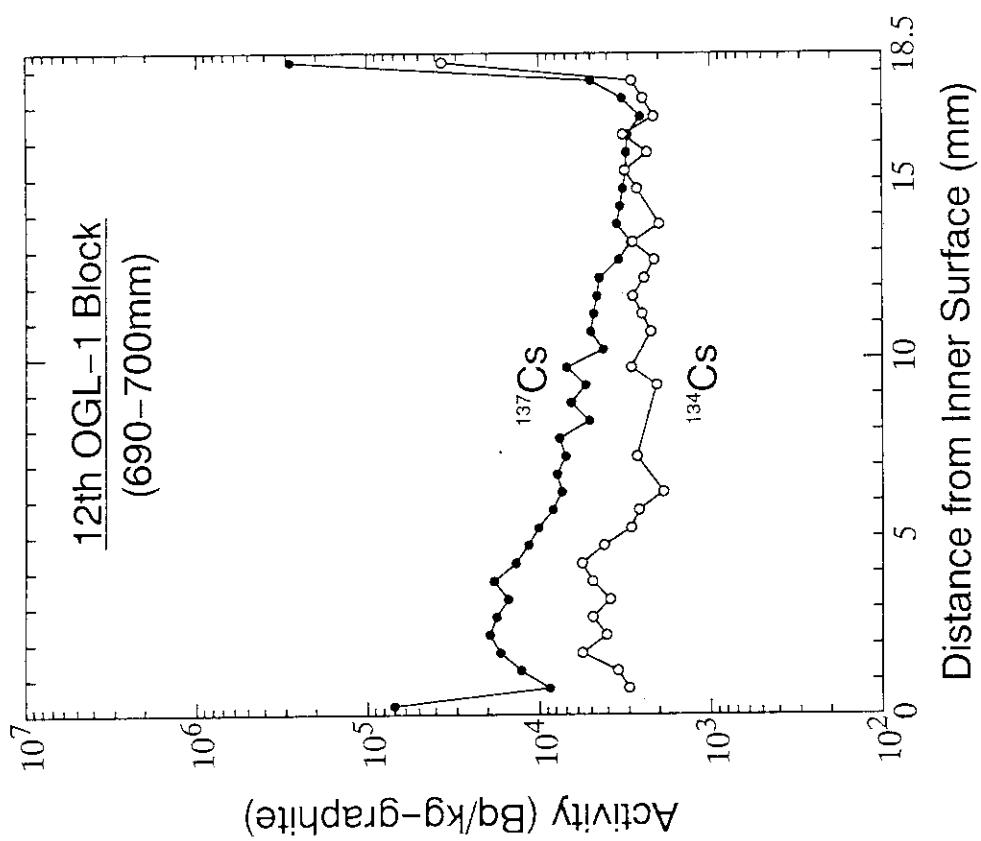


Fig. A4. 10a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 690-700mm from block top.

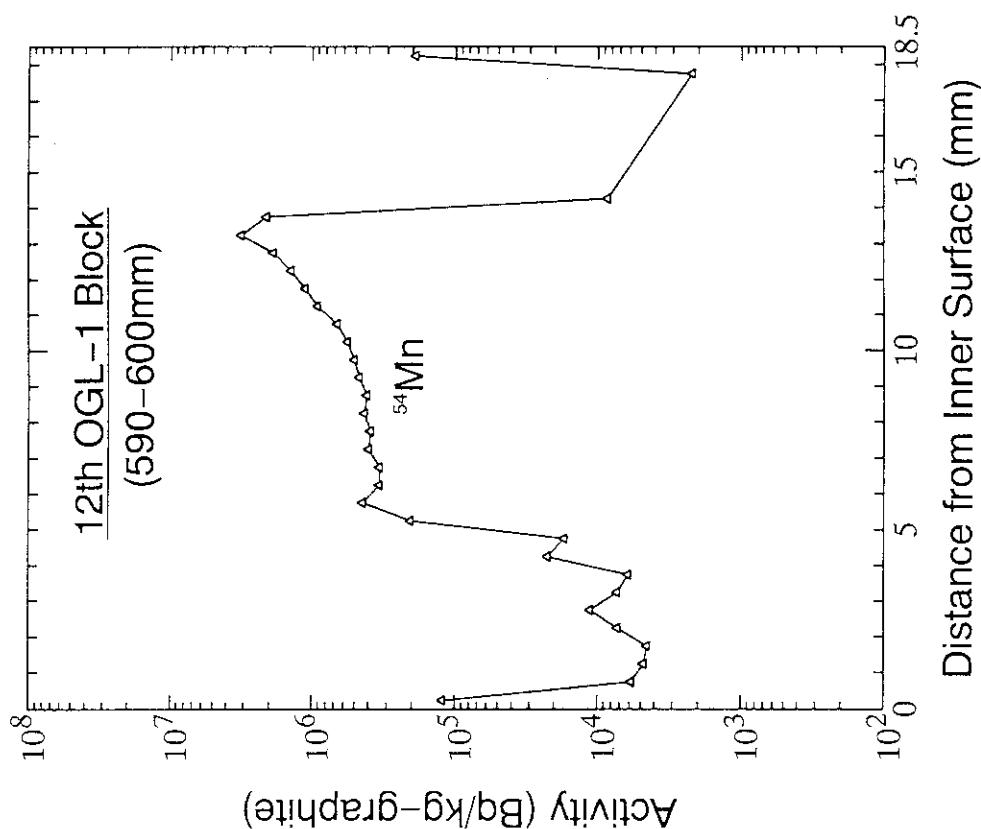


Fig. A4. 9c Radial profiles of ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 590-600mm from block top.

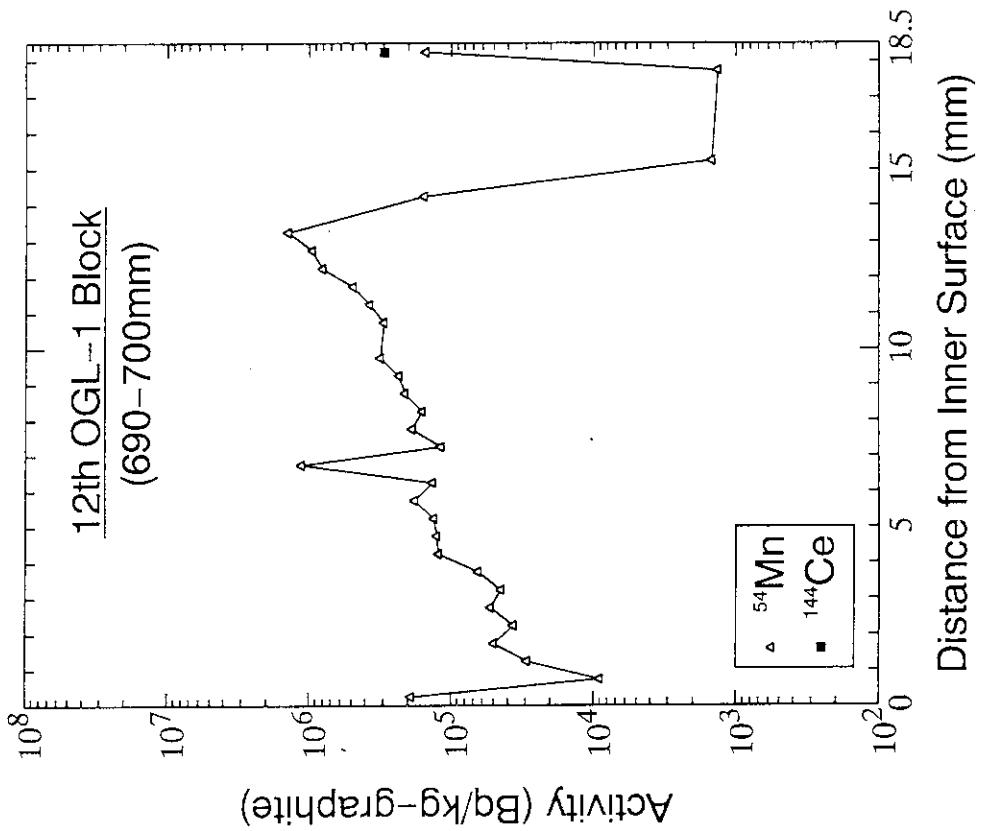


Fig. A4. 10c Radial profiles of ^{144}Ce and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 690-700mm from block top.

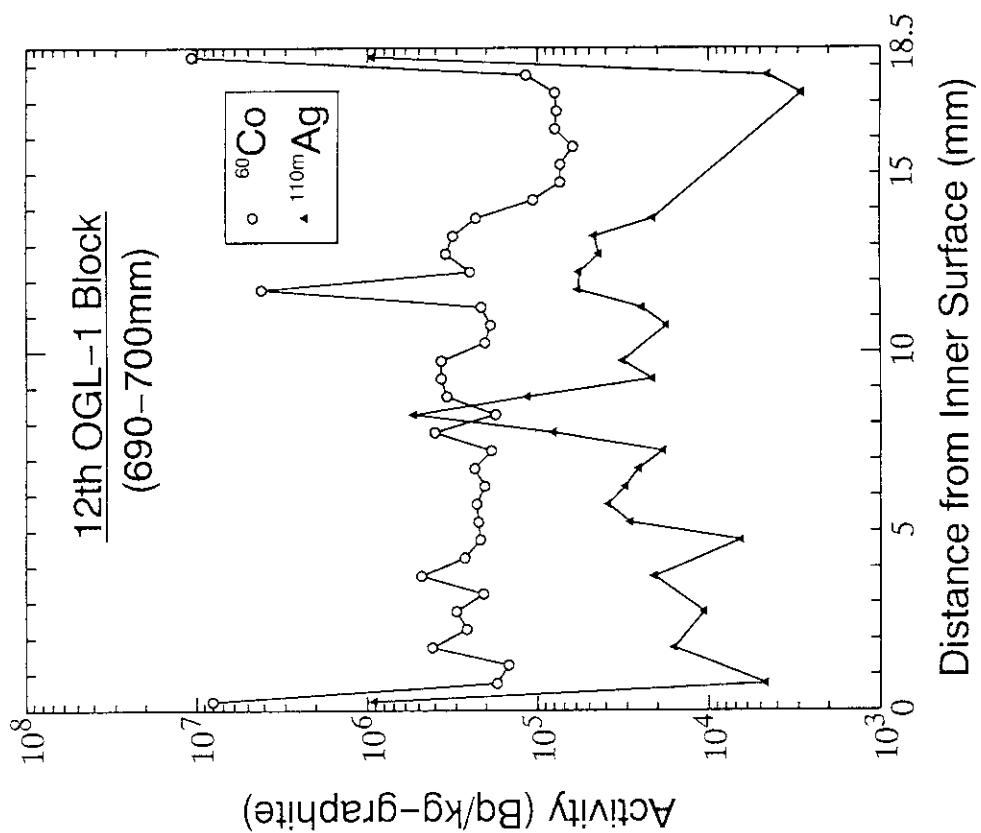


Fig. A4. 10b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 690-700mm from block top.

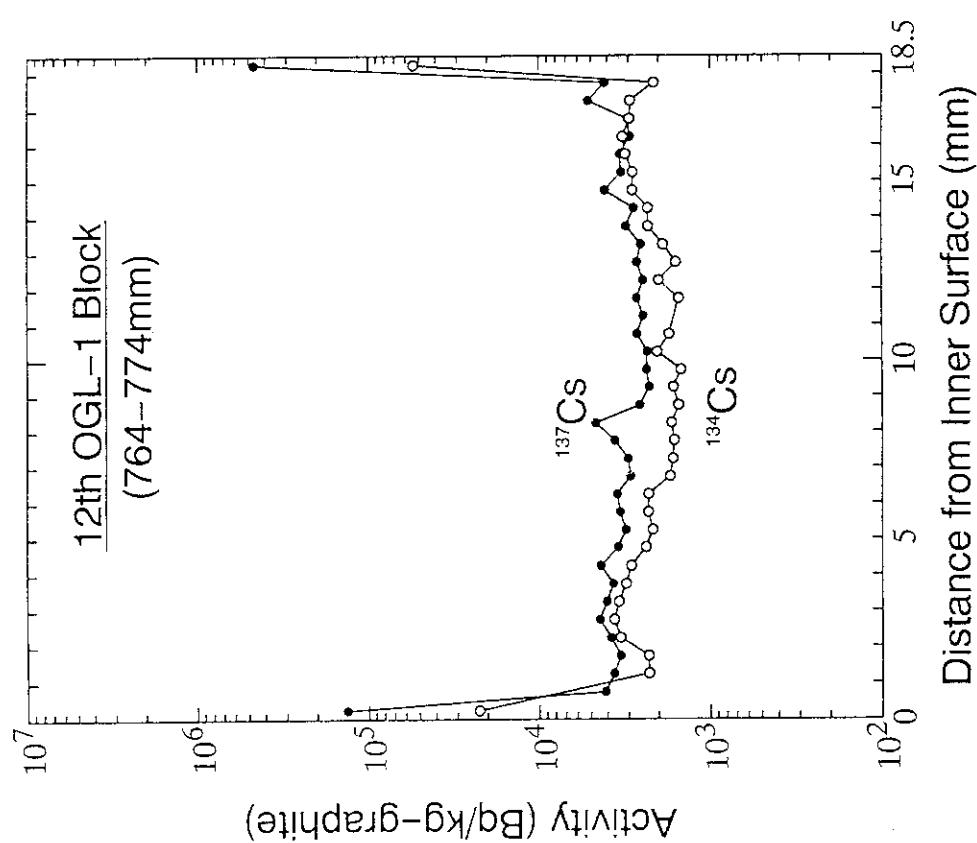


Fig. A4.11a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 764-774mm from block top.

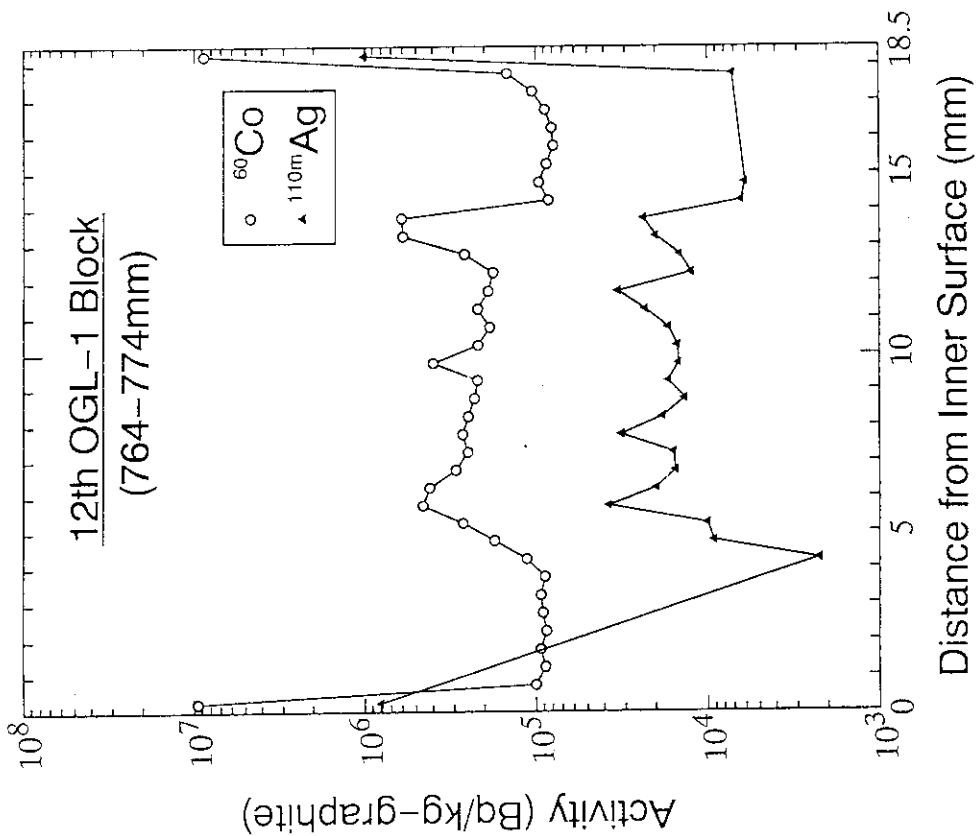


Fig. A4.11b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 764-774mm from block top.

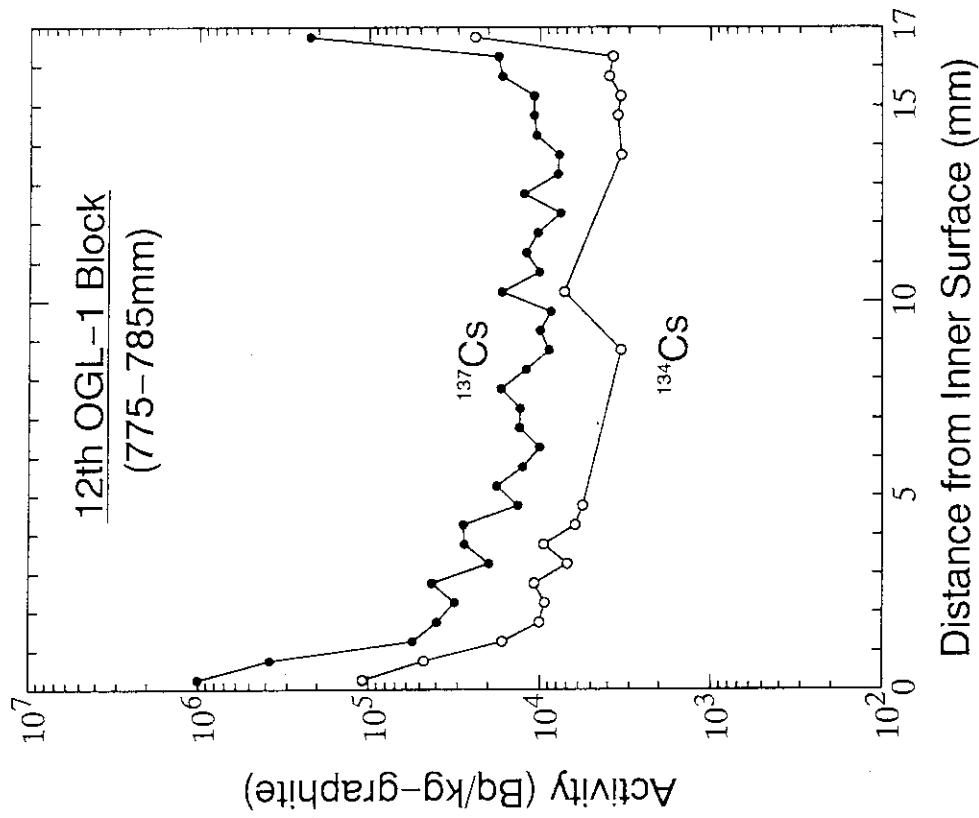


Fig. A4. 12a Radial profiles of ^{137}Cs and ^{134}Cs in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 775-785mm from block top.

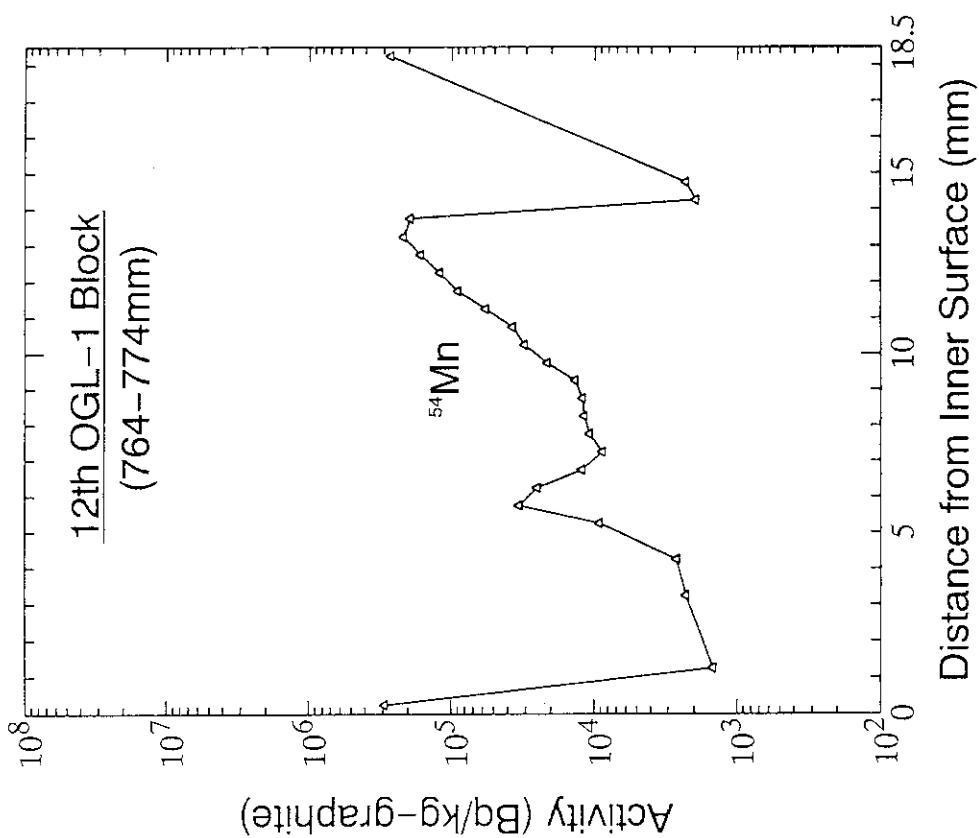


Fig. A4. 11c Radial profiles of ^{144}Ce and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 764-774mm from block top.

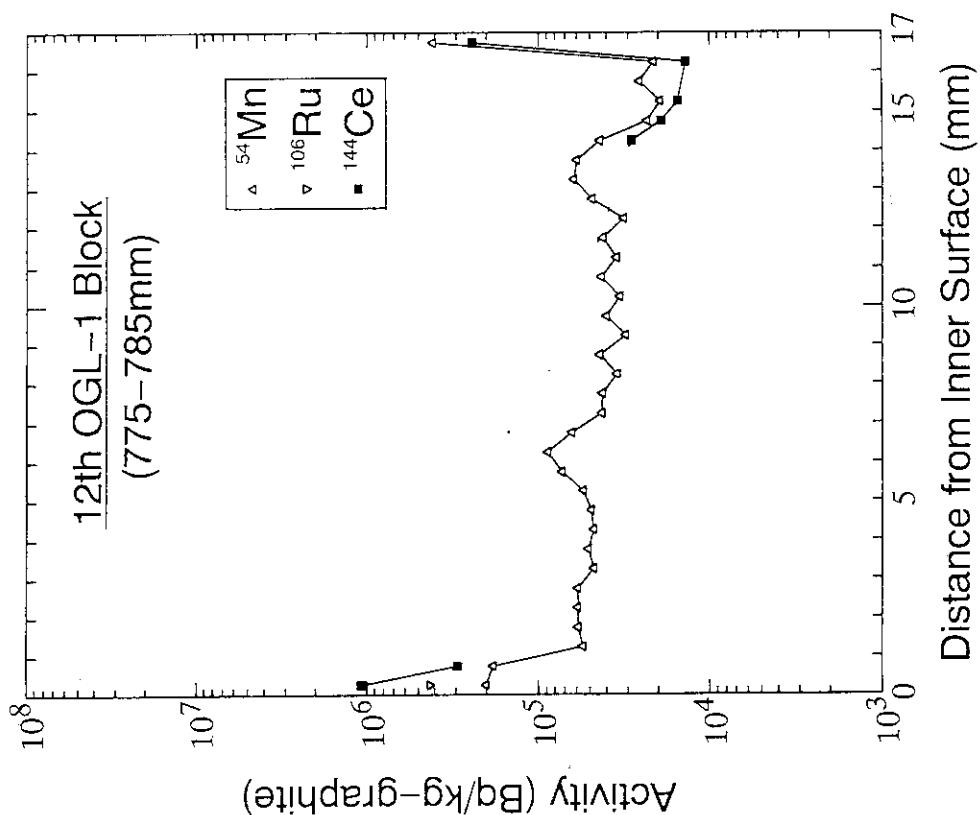


Fig. A4. 12c Radial profiles of ^{144}Ce , ^{106}Ru and ^{54}Mn in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 775-785mm from block top.

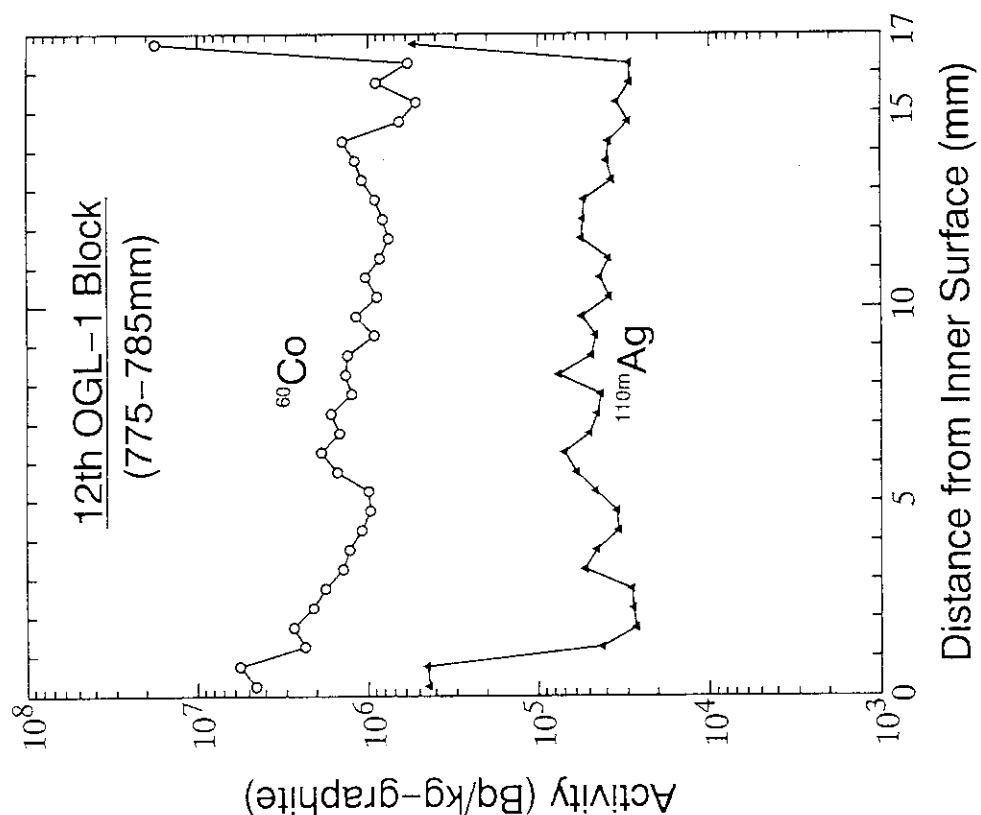


Fig. A4. 12b Radial profiles of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ and ^{60}Co in graphite block of 12th OGL-1 fuel assembly; 775-785mm from block top.