

JAERI-Research  
96-063



高温ガス炉燃料からの  
核分裂生成物放出率推定方法の開発

1996年11月

沢 和弘・湊 和生・福田幸朔

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

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷(株)

高温ガス炉燃料からの核分裂生成物放出率推定方法の開発

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部

沢 和弘・湊 和生・福田 幸朔

(1996年10月22日受理)

高温ガス炉では燃料として被覆燃料粒子を用いる。現在用いられている被覆燃料粒子は微小な燃料核の周りに低密度炭素層、高密度熱分解炭素 (PyC) 層、炭化ケイ素 (SiC) 層、PyC層を四重に被覆したいわゆる TRISO 型である。通常運転時における燃料からの核分裂生成物放出挙動を推定するための方法を開発した。希ガスの放出率評価精度を向上させるために、(1)汚染ウランと破損粒子からの放出の分離、及び(2)燃焼及び高速中性子照射効果のモデル化を行った。また、金属核分裂生成物の放出については、被覆燃料粒子からのセシウム放出モデルを、全被覆層の貫通破損粒子を模擬した人工欠陥粒子、製造時のSiC層破損粒子及び健全粒子の照射試験における放出割合の測定値を用いて検討し、その放出割合をより高い精度で評価できるようSiC層破損粒子のSiC層の拡散係数として等価拡散係数を新たに導入した。さらに、これらのモデルの妥当性をいくつかの照射試験結果を用いて検討した結果を示す。

Development of an Evaluation Method of Fission Product Release Fraction  
from High Temperature Gas-cooled Reactor Fuel

Kazuhiro SAWA, Kazuo MINATO and Kousaku FUKUDA

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

(Received October 22, 1996)

The High Temperature Gas-cooled Reactor (HTGR) uses coated particles as fuel. Current coated particle is a microsphere of fuel kernel with TRISO coatings. The TRISO coatings consist of a low-density, porous pyrolytic carbon (PyC) buffer layer adjacent to the spherical fuel kernel, followed by an inner isotropic PyC layer, a SiC layer and a final (outer) PyC layer. An evaluation method of fission product release behavior during the normal operation was developed. Key issues of fission gas release model were: (1) fission gas releases from matrix contamination uranium and through-coatings failed particle were separately modeled and (2) burnup and fast neutron irradiation effects were newly considered. For metallic fission product, fractional release of cesium from coated fuel particles was investigated by comparing measured data in an irradiation test which contained three kinds of fuel particles; artificially bored particles simulating through-coatings failed particles, as-manufactured SiC-failed particles and intact particles. Through the comparison of measured and calculated fractional releases, an equivalent diffusion coefficient of SiC layer in the SiC-failed particle was introduced. This report describes the developed model together with validation result of the release model.

Keywords: HTGR, Coated Particle, Fission Gas, Model, Cesium, Fractional Release

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. 放出モデル .....	4
2.1 希ガス .....	4
2.2 セシウム .....	6
3. 検 討 .....	20
3.1 希ガス .....	20
3.2 セシウム .....	22
4. まとめ .....	32
謝 辞 .....	33
参考文献 .....	33

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Release Model .....	4
2.1 Fission Gas .....	4
2.2 Cesium .....	6
3. Discussions .....	20
3.1 Fission Gas .....	20
3.2 Cesium .....	22
4. Summary .....	32
Acknowledgements .....	33
References .....	33

# 1. まえがき

高温工学試験研究炉 (HTTR) 燃料体を Fig. 1 に示す。HTTR 燃料は、ピン・イン・ブロック型であり、燃料棒と六角柱黒鉛ブロックからなる。被覆燃料粒子は4重被覆のいわゆる TRISO 型で、燃料核は直径  $600\mu\text{m}$  の低濃縮 (平均6%) 二酸化ウランである。被覆燃料粒子は黒鉛粉末およびフェノール樹脂バイндаとともに焼結し燃料コンパクトとする。燃料棒は、この燃料コンパクトと黒鉛スリーブから成り、六角柱黒鉛ブロックに開けた穴に挿入される。ヘリウムガスは燃料棒を封入している黒鉛スリーブと黒鉛ブロック間の環状流路を流れる<sup>(1)</sup>。

HTTR の安全設計のために希ガスの (R/B) の計算モデルを開発し、その妥当性を (R/B) の測定値と計算値の比較を行うことにより検討した。その結果、(R/B) の計算値は全体に過大評価であることが分かった<sup>(2)</sup>。この違いは、主に燃料コンパクトマトリックス部の汚染ウランの反跳又は照射効果による放出が過大評価されているためと推定された。HTTR の設計は、高い燃料破損率 (0.02~1%) を仮定して行っているため、燃料コンパクトマトリックス部の汚染ウランからの寄与は実際上無視できた。しかしながら、最近の HTTR 初装荷燃料の製造実績によると、貫通破損率は  $10^{-6}$  のオーダーまで低減されてきており、核分裂生成物の放出率を詳細に評価する上で、汚染ウランからの核分裂生成物放出の寄与が無視できなくなってきた。さらに、初装荷燃料よりも高い燃焼度 (目標値 5~10 %FIMA (%fission per initial metallic atom)) まで使用できる高燃焼度燃料の開発も行っており<sup>(3,4)</sup>、高燃焼度、高中性子束照射下においても適用できる核分裂生成物希ガスの放出モデルを作成する必要がある。こうした状況を踏まえ、核分裂生成物希ガス放出モデルの改良を行った。主要な改良点は、(1) 燃料コンパクトのマトリックス部の汚染ウランからの放出と燃料核からの放出を分離したこと及び (2) 燃焼及び高速中性子照射効果を取入れたことである。ここでは、希ガス放出モデルについて述べるとともに、その妥当性をいくつかの照射試験結果を用いて検討した結果を示す。

セシウムは、通常運転状態において燃料から放出されやすく、減圧事故条件下等において環境に放出される可能性があるため、安全評価や遮蔽設計における被曝評価の観点から、その放出割合を精度良く評価することが重要である<sup>(5,6)</sup>。核分裂によって生成したセシウムが1次冷却材中に放出されるまでの障壁として、被覆燃料粒子 (燃料核自身及び燃料粒子の被覆層)、燃料コンパクトのマトリックス部及び黒鉛スリーブがある。実際の燃料コンパクトに含まれる被覆燃料粒子は、HTTR の初装荷燃料を例にとると約1万個を超える (全炉心で約  $10^8$  個)。この中に被覆層が破損している粒子 (破損粒子) が存在する場合、これらの粒子からのセシウムの放出割合が大きくなる。そのため、燃料コンパクトからの放出割合を正確に評価するため

には、破損粒子からの放出を適切にモデル化する必要がある。通常運転時における燃料からのセシウム放出割合を評価するために、解析モデルが開発され、その妥当性を照射試験における放出割合の測定値と計算値の比較を行うことにより検討した<sup>(17)</sup>。その結果、計算値は全体として測定値を上回ることが示され、この違いは破損粒子のモデル化、すなわち、貫通破損粒子（被覆層が全て破損している粒子）及びSiC層破損粒子（被覆層のうちSiC層が破損しているがPyC層が健全である粒子）のモデル化に問題があると推定された。しかしながら、貫通破損粒子及びSiC層破損粒子からの放出割合が実験では個別に得られていなかったことから、定量的な議論はできなかった。本研究では、貫通破損粒子を模擬した人工欠陥粒子、製造時のSiC層破損粒子及び健全粒子の3種類の燃料粒子を別々に照射したICF-51Hキャプセルにおけるセシウムの放出割合の計算値と測定値の比較を行い、破損粒子からの放出モデルについて検討を行い、モデルを改良した。その妥当性は、燃料コンパクトを照射した75F5Aスweepガスキャプセル照射試験におけるセシウムの放出割合の計算値と測定値の比較を行うことにより確認した。

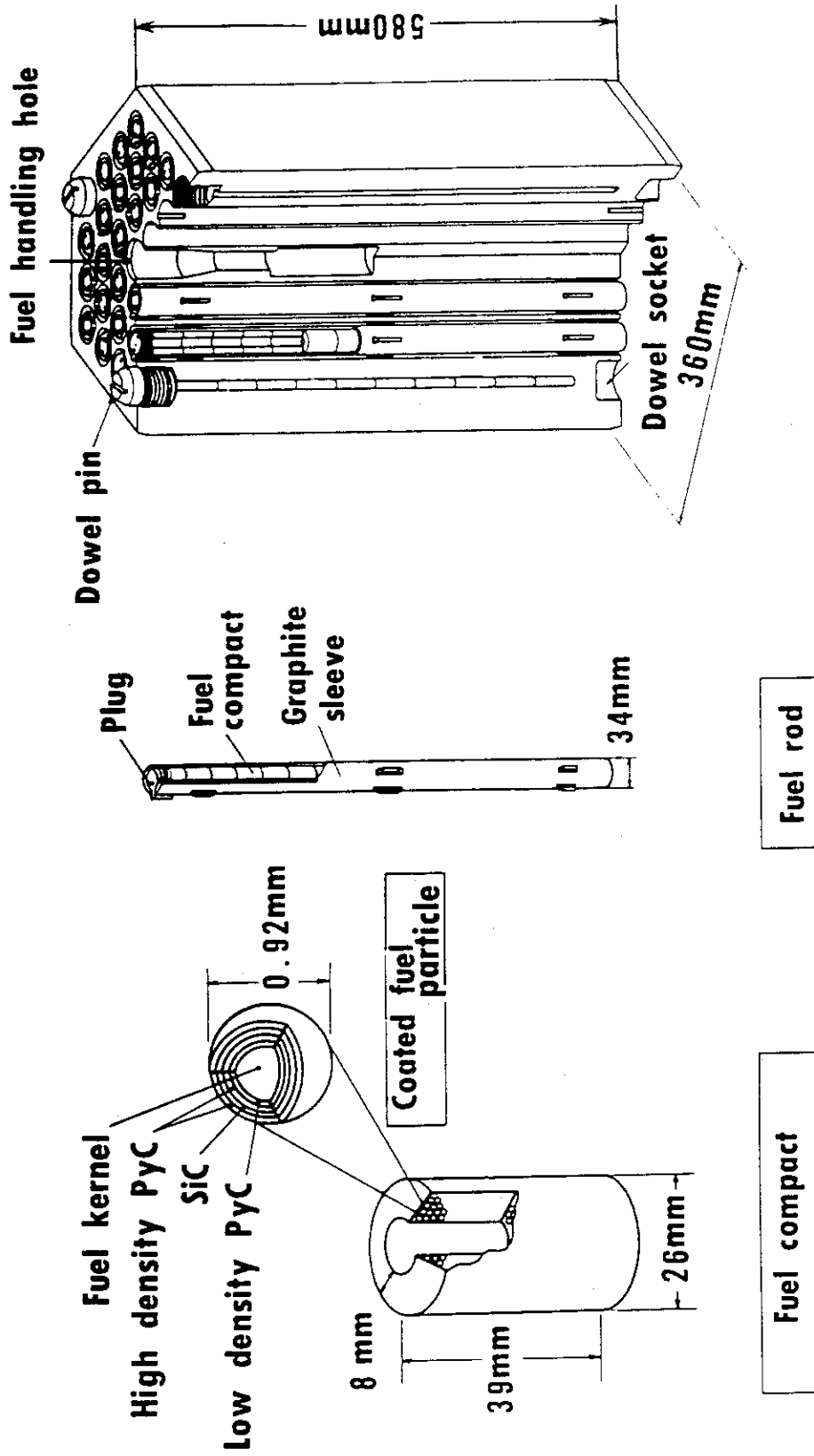


Fig. 1 HTTR fuel assembly.



## 2. 放出モデル

### 2.1 希ガス

燃料コンパクトからの希ガスの放出率は、原研にて開発したモデルを用いて計算できる。本モデルは、(1) 貫通破損粒子からの放出とマトリックス部の汚染ウランからの放出を分離して取扱うこと、及び(2) 燃料核からの放出率に燃焼依存性を、燃料コンパクトマトリックス部における放出率に高速中性子照射依存性を考慮している点に特徴がある。HTTRに装荷される燃料の製造時の破損率は低いため、燃料コンパクトの汚染ウランからの放出による影響が無視できないことから本モデルを用いて破損率を推定する必要がある。

燃料コンパクトからの放出率を以下のように表す。モデルをFig. 2に示す。

$$(R/B) = (f_{kd} + f_{kr}) \times f_{md} \times \phi_k + (f_{md} + f_{mr}) \times \phi_c \quad (1)$$

ここで、  
 $f_{kd}$  : 燃料核からの拡散放出率、  
 $f_{kr}$  : 燃料核からの反跳放出率、  
 $f_{md}$  : 燃料コンパクトマトリックスからの拡散放出率、  
 $f_{mr}$  : 燃料コンパクトマトリックスからの反跳拡散放出率、  
 $\phi_k$  : 貫通破損率、  
 $\phi_c$  : 燃料コンパクトの汚染ウラン率 である。

燃料核からの拡散放出率は、以下の式で計算する。

$$f_{kd, Kr-88} = 1500 \exp\left(-\frac{17750}{T}\right) \times f_{BU} \quad (2)$$

ここで、  
 $T$  : 燃料温度 (K)、  
 $f_{BU}$  : 燃焼による補正因子 である。

燃焼度補正因子は、照射による格子欠陥の増加に伴う照射促進拡散による効果<sup>(8)</sup>を考慮したもので、以下の式で表す。

$$f_{BU} = \frac{4}{3} \times Bu + 1 \quad (3)$$

ここで、  
 $Bu$  : 燃焼度 (%FIMA) である。

燃料核からの反跳放出率は、以下の式で計算できる<sup>(9)</sup>。

$$f_{kr} = \left(\frac{3}{4}\right)\left(\frac{R}{a}\right) - \left(\frac{1}{16}\right)\left(\frac{R}{a}\right)^3 \quad (4)$$

ここで、 R :反跳距離 (10 μmとする)、  
a :燃料核半径 (μm) である。

燃料コンパクトマトリックス部からの放出経路として、粒内及び粒界拡散放出を仮定する。

$$f_{md} = (\alpha \times f_{gb} + (1 - \alpha) \times f_{ig}) \times f_F \quad (5)$$

ここで、  $f_{gb}$  :粒界拡散による放出率、  
 $f_{ig}$  :粒内拡散による放出率、  
 $\alpha$  :粒内の核分裂生成物、  
 $f_F$  :高速中性子照射による補正因子 である。

燃料コンパクトマトリックス部の拡散に対する高速中性子照射による補正因子は、照射によって核分裂生成物のトラップサイトが増加する<sup>(8)</sup>ことを考慮して設けたもので、高速中性子照射量が  $3 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$  で放出率が半分になると仮定した。

$$f_F = \frac{3}{\Phi + 3} \quad (6)$$

ここで、  $\Phi$  :高速中性子照射量 ( $\text{m}^{-2}$ ) である。

拡散放出率は、以下の拡散方程式の解で計算する。

$$f_{md} = 3 \sqrt{\frac{D'}{\lambda}} \coth\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D'}} - \sqrt{\frac{D'}{\lambda}}\right) \quad (7)$$

ここで、  $D'$  :換元拡散係数 ( $\text{s}^{-1}$ ) である。

粒内の換元拡散係数はPyC内の拡散係数に等しいと仮定し、以下の式を適用する<sup>(10)</sup>。

$$D'_{ig} = 7.32 \times 10^{-10} \exp\left(-\frac{36200}{T}\right) \quad (8)$$

粒界の拡散係数は未知であり、以下の仮定に基づきさだめた。(1) 一般に、粒界拡散の温度依存性は小さいことが知られていることから、粒内の拡散係数の半分の活性化エネルギーを仮定する。(2) 頻度因子は温度が1000~1200°Cで放出率が1になるよう定めた。

$$D'_{gb} = 4 \exp\left(-\frac{18100}{T}\right) \quad (9)$$

燃料コンパクトのマトリックス部の汚染ウランの反跳放出割合は、無限長さの中空円筒の燃料コンパクトの形状から、以下の式で計算する。

$$f_{mr} = \frac{R(3(r_i + r_o) - 2R)}{6(r_o^2 - r_i^2)} \quad (10)$$

ここで、 $r_o$  : 燃料コンパクトの外径、  
 $r_i$  : 燃料コンパクトの内径 である。

## 2.2 セシウム

### (1) モデルの概要

燃料核中で生成した核分裂生成物の冷却材中への移行に対する障壁として、二酸化ウラン燃料核、被覆層（PyC層及びSiC層）、燃料コンパクト及び黒鉛スリーブが考えられる。さらに、燃料コンパクトと黒鉛スリーブ間のギャップ部及び黒鉛スリーブの外面と1次冷却材の間でも吸着等による保持効果がある<sup>(2,10)</sup>。最初の障壁は燃料核それ自身で、半減期の短い核分裂生成物に対して保持効果がある。最も重要な障壁はPyC及びSiC層である。PyC層は希ガス及びヨウ素に対しては主要な拡散障壁である。SiC層は、その拡散係数がPyC層よりもさらに小さいため、希ガス、ヨウ素のみならず金属核分裂生成物に対しても効果的な拡散障壁となる。燃料コンパクトは低密度の黒鉛マトリックスであり、粒子から放出された希ガスとヨウ素に対してはほとんど保持効果を有しないが、金属核分裂生成物に対してはある程度の保持効果を有する。黒鉛スリーブは、燃料コンパクトよりも密度が高いため、燃料コンパクトよりも吸着能力は小さいが、拡散に関してはより効果的な障壁である<sup>(10,11)</sup>。

上記の議論は被覆層全てが正常である「健全粒子」の燃料核内で発生した核分裂生成物に対するものであり、破損粒子からの核分裂生成物放出経路や汚染により燃料核以外の場所に存在しているウランの核分裂によって生じた核分裂生成物の経路はこれとは異なり、上記の障壁の一部が期待できないこととなり、破損粒子からの放出割合は著しく大きくなる。

一般に金属核分裂生成物は、希ガス及びヨウ素に比べて揮発性が低く、燃料核及び被覆層で保持することができ、1次冷却材へ放出されることはほとんどない。しかし、これまでの照射試験結果から、金属核分裂生成物の一部の核種、例えばセシウムは、高温ガス炉の通常運転時の燃料温度条件下における蒸気圧が比較的高く、かつ燃料核中で安定な化合物を作らないことが分かっている。金属核分裂生成物の燃料核から1次冷却材へリウム中への移行過程は、被覆燃料粒子中の移行と、燃料棒での移行の2つに大別される。移行過程の概念図をFig. 3に示す。被覆燃料粒子中の金属核分裂生成物の移行は、多領域の非均質領域における拡散をFickの法則を用いてモデル化している。燃料要素での移行は、燃料コンパクトの外表面及び黒鉛スリーブの内、外表面における吸脱着及び黒鉛スリーブ部における拡散をモデル化している。さらに、黒鉛スリーブ外面から1次冷却材への移行については、金属核分裂生成物の蒸気圧平衡及び1次冷却材の境界層での物質移動でモデル化している。評価の対象となる金属核分裂生成物は半減期が長いため、これらの移行過程を解析する際には非定常計算を行う必要がある。そこで、放出割合の計算のためにいくつかの数値計算コードが開発されている<sup>(9,12-15)</sup>。これらのコードは、解法等の違いはあっても、基本的には上記のモデルに基づいている。

#### (a) 被覆燃料粒子からの放出

被覆燃料粒子からの金属核分裂生成物の放出割合は、多重被覆した非均質領域での拡散を下記に示すFickの第1及び第2法則を用いて計算する。

$$\frac{\partial C(r,t)}{\partial t} = B(r,t) - \lambda C(r,t) - \nabla J(r,t) \quad (11)$$

$$J(r,t) = -D(r) \nabla C(r,t) \quad (12)$$

ここで、  
 C : 核分裂生成物濃度 (atoms/m<sup>3</sup>)、  
 J : 核分裂生成物フラックス (atoms/m<sup>2</sup>·s)  
 D : 拡散係数 (m<sup>2</sup>/s) である。

これらの式を1次元球体系について差分法で解いている。

#### (b) 燃料棒からの放出

燃料コンパクトと黒鉛スリーブ間のギャップには冷却材が充満しており、金属核分裂生成物は蒸発によってこの間を移行する。燃料コンパクトと黒鉛

スリーブは核分裂生成物の吸着性が異なり、ギャップ部における障壁効果が生じる。ギャップ部における燃料コンパクト及び黒鉛スリーブ表面における核分裂生成物濃度は、吸着した核分裂生成物の蒸気圧が両面で等しくなる条件で求めた。黒鉛スリーブの外表面では、以下に示す連続の式を適用した。

①黒鉛スリーブ外面 $r_0$ における流束は、物質移行と拡散によって以下の式で表される。

$$-D \frac{\partial C(r, t)}{\partial r} = h(C(r, t) - C_0) \quad (13)$$

ここで、  
 $h$  : 物質移行係数 (m/s)、  
 $C_0$  : 冷却材中の核分裂生成物濃度 (atoms/m<sup>3</sup>)、  
 $D$  : 黒鉛中の拡散係数 (m<sup>2</sup>/s) である。

②核分裂生成物の蒸気圧は以下の式で表す<sup>(12)</sup>。

$$RTC(r, t) = e^{a + \frac{b}{T}} C(r, t)^{f + \frac{g}{T}} \quad (14)$$

ここで、  
 $R$  : 気体定数 (J/mol·K)、  
 $T$  : 温度 (K)、  
 $a, b, f, g$  : 定数 である。

金属核分裂生成物の放出割合評価の精度は、上述の物理的なモデルの妥当性のみならず、燃料核、被覆層、黒鉛中の拡散係数などのデータベースにも強く依存するため、これらのデータを適切に選択する必要がある。<sup>137</sup>Csに対して選定した拡散係数をTable 1に示す<sup>(10)</sup>。この選定に当たっては、これらの物性値が製造方法等に依存することを考慮し、できるだけ国産の被覆燃料粒子等を用いて測定されたものを用いることとした。なお、バッファ層は低密度であり、金属核分裂生成物に対してほとんど保持効果を有していないと考え、計算上は十分大きな拡散係数 (10<sup>-16</sup> m<sup>2</sup>/s) を用いた。

## (2) 従来の粒子モデル

実体系における被覆燃料粒子からの金属核分裂生成物の放出割合の評価に当たっては、以下の3種類の粒子、すなわち、「健全粒子」、「SiC層破損粒子」、「貫通破損粒子」を考慮してきた。健全粒子及び貫通破損粒子の他にSiC層のみが破損している「SiC層破損粒子」をモデル化しているのは、実際の燃料製造においてSiC層破損粒子が貫通破損粒子よりも多く含まれていること、及び既に述べたように、SiC層

は金属核分裂生成物に対する主要な障壁であることによる。モデル化に当たっては以下の仮定を用いた。

- ① 健全粒子は、被覆層に全く欠陥のない理想的な粒子と考える。
- ② 破損粒子は被覆層が全て無くなっている裸の燃料核として考える。
- ③ SiC層破損粒子は主に製造時に生じているものと仮定し、本来SiC層があるべき場所がPyC層になっている粒子として取扱ってきた。具体的には、第3層の拡散係数がPyC層の拡散係数に等しい粒子としてモデル化してきた。

このモデルを用いて検証計算を行った結果を以下に示す<sup>(2)</sup>。被覆燃料粒子からの放出モデルの妥当性の検討は、75F5Aスweepガスキャプセル照射試験結果を用いて行った。燃料棒まで含めたモデルの検証は第5次OGL-1燃料体照射試験について行った。75F5Aスweepガスキャプセルは、75F5A-1,-2,-3という3つのインナーキャプセルから成っており、それぞれが2個の燃料コンパクトを含んでいた<sup>(16)</sup>。それぞれのインナーキャプセルは異なった燃料温度で照射された。<sup>137</sup>Csの放出割合は、インナーキャプセル内面に沈着した量と燃料内に残った量の測定値から求めた。第5次OGL-1燃料体照射試験用燃料体は3本の燃料棒から成る<sup>(17)</sup>。各燃料棒には20個の燃料コンパクトが装荷された。照射中の燃料最高温度は1360°Cであった。<sup>137</sup>Csの放出割合は、OGL-1の1次系配管の沈着分布の測定値から求めた。OGL-1燃料体照射試験では、金属核分裂生成物は、被覆層、燃料コンパクト、黒鉛スリーブを経て1次冷却材中に放出される。したがって、75F5Aキャプセルでは確認できなかった燃料コンパクト及び黒鉛スリーブ部における保持効果も検証できた。

これらの計算値と実験値の比較をFig. 4に示す。横軸が測定値、縦軸が計算値である。75F5Aスweepガスキャプセルにおける測定値と計算値の比較では、75F5A-2インナーキャプセルを除いて計算値は全体として若干大きめになった。第5次OGL-1燃料体照射試験における計算値と実験値の関係は、全体には75F5Aスweepガスキャプセルの結果とほぼ同じ傾向で、計算値が実験値よりもやや大きくなった。このことは、粒子からの放出割合がモデルでは過大評価されていること、及び燃料コンパクト及び黒鉛スリーブ部の<sup>137</sup>Cs保持能力が適切にモデル化されていることを示している。

### (3) 粒子モデルの改良

検証結果から、従来の粒子モデル、即ち「貫通破損粒子」及び「SiC層破損粒子」からの放出モデルが十分でない可能性があることが分かった。そこで、被覆層の破損の形態が既知の破損粒子を装荷し、金属核分裂生成物の放出挙動を調べたICF-51Hキャプセルの結果<sup>(18)</sup>を用いてモデルの検討を行った。

ICF-51Hキャプセルでは6個の内部キャプセルを照射した。被覆燃料粒子は、健全、

製造時SiC層破損、人工欠陥の3種類である。それぞれの内部キャプセルには1種類の被覆燃料粒子を装荷した。健全粒子は全ての被覆層が健全である粒子をX線ラジオグラフにより選定した。SiC層破損粒子は、IPyC層とSiC層が破損し、OPyC層が健全である粒子を同じくX線ラジオグラフで選定した。人工欠陥粒子は、OPyC層の外側からドリルで燃料核表面まで貫通する直径約200 $\mu\text{m}$ の穴をあけたものである。燃料粒子の特性値をTable 2に示す。

内部キャプセルは2個ずつキャプセル内の同一位置、上部、中央部、底部で照射された。上部及び中央部では、健全粒子及びSiC層破損粒子が照射された。底部では、健全粒子と人工欠陥粒子が照射された。照射はJRR-2において143EFPD (effective full power days) で行われた。時間平均燃料温度は、上、中、底部でそれぞれ1325、1363、1318 $^{\circ}\text{C}$ であった。燃焼度は約2%FIMA (% fission per initial metallic atom) である。燃料粒子からの $^{137}\text{Cs}$ の放出割合は、被覆燃料粒子内の残留放射エネルギーをガンマ線測定することにより求めた。結果をTable 3に示す。

従来の粒子モデルによる $^{137}\text{Cs}$ の放出割合の計算値をFig. 5に示す。照射温度を反映して、中央部の内部キャプセルからの放出割合が同種の被覆燃料粒子の中では一番高くなっている。SiC層破損粒子は、照射初期には特に人工欠陥粒子よりも高い保持能を示しているが、照射が進むにつれ、人工欠陥粒子からの放出割合に漸近していく。照射終了時のSiC層破損粒子及び人工欠陥粒子からの放出割合と健全粒子からの放出割合の比をFig. 6に示す。X軸は測定値、Y軸は計算値である。図から、(1) SiC層破損粒子からの放出割合の計算値は過大評価されていること、(2) 人工欠陥粒子からの放出割合の計算値は過小評価されていることが分かる。

#### (a)貫通破損粒子モデルの改良

照射後の人工欠陥粒子のX線ラジオグラフによると、二酸化ウラン燃料核が炭化され、部分的に粒子外に放出されているものが認められた<sup>(18)</sup>。ウラン炭化物中のセシウムの拡散係数は、二酸化ウラン中の値に比べて極めて大きいことが知られている<sup>(11)</sup>。一方、従来の粒子モデルでは、貫通破損粒子を裸の燃料核としてモデル化し、その拡散係数として二酸化ウラン中のセシウムの拡散係数を用いている。さらに、炭化に伴う組織変化により、燃料核中のセシウムが放出される。このため、炭化が生じた燃料核では、実験値と比べて計算値が過小評価となったと考えられる。実験結果から見ると、炭化により燃料中のセシウムはほぼ100%放出されると考えられる。

#### (b)SiC層破損粒子モデルの改良

従来の粒子モデルでは、SiC層破損粒子のSiC層の拡散係数は、PyC層と同じであると仮定していた。しかしながら、本実験結果によると、破損のあるSiC層はPyC層よ

りも高い保持能を有している。SiC層は被覆層の中で最も小さな拡散係数を有しているため、セシウムはSiC層の内面に蓄積されると考えられる。ICF-51Hキャプセル照射試験におけるSiC層の破損形状をFig. 7に示す<sup>(18)</sup>。SiC層破損粒子では、セシウムは濃度勾配により移動し、破損が生じている部分から粒子外へ拡散放出されると考えられる。この放出過程をモデル化するために、破損SiC層の等価拡散係数(EDC: equivalent diffusion coefficient)を新たに仮定した。EDCはSiC層の破損の形状、程度に強く依存すると考えられるので、製造時の実際のSiC層破損粒子を用いて定量化しなくてはならない。そこで、本実験結果を基にSiC層破損粒子からの放出割合の計算値と実験値の比較を行った。計算では、SiC層の拡散係数の頻度因子をパラメータとしてEDCを求めた。上部及び中央部の内部キャプセルの比較をFig. 8に示す。放出割合の計算値は、上部及び中央部内部キャプセルともに頻度因子を約90倍するとこの実験結果と良く一致することが分かる。このことは、ICF-51Hキャプセルで照射された製造時のSiC層破損粒子は、セシウムの放出の観点からほぼ同じような破損形態であったことを示唆している。このことから、製造時のSiC層破損粒子は、拡散係数が健全なSiC層よりも約2桁大きいEDCを用いることによりその放出割合を適切にモデル化できると仮定できる。



Table 1 Diffusion coefficients of  $^{137}\text{Cs}$ .

Material	Diffusion coefficient ( $\text{m}^2/\text{s}$ )
$\text{UO}_2$ kernel	$6.75 \times 10^{-10} \exp(-2.13 \times 10^4/T)$
PyC layer	$6.69 \times 10^{-9} \exp(-2.38 \times 10^4/T)$
SiC layer	$6.75 \times 10^{-12} \exp(-2.13 \times 10^4/T)$

T : temperature (K)

Table 2 Characteristics of coated fuel particles irradiated in the ICF-51H capsule.

Material	Thickness ( $\mu\text{m}$ )	Density ( $\text{Mg}/\text{m}^3$ )
$\text{UO}_2$ kernel	606 (diameter)	10.5
Buffer layer	64	1.11
IPyC layer	32	1.82
SiC layer	26	3.20
OPyC layer	46	1.82

Table 3 Measured activities of  $^{137}\text{Cs}$  in the ICF-51H capsule.

Sample name	Particle type	Location	Activity ( $\text{Bq}/\text{particle}$ ) <sup>*</sup>
T-I	Intact	Top	$2.16 \times 10^6$
T-S	SiC-failed	Top	$1.84 \times 10^6$
M-I	Intact	Middle	$2.38 \times 10^6$
M-S	SiC-failed	Middle	$1.82 \times 10^6$
B-I	Intact	Bottom	$2.27 \times 10^6$
B-A	Artificially failed	Bottom	$5.82 \times 10^5$

\* Activities corrected to January 1, 1992

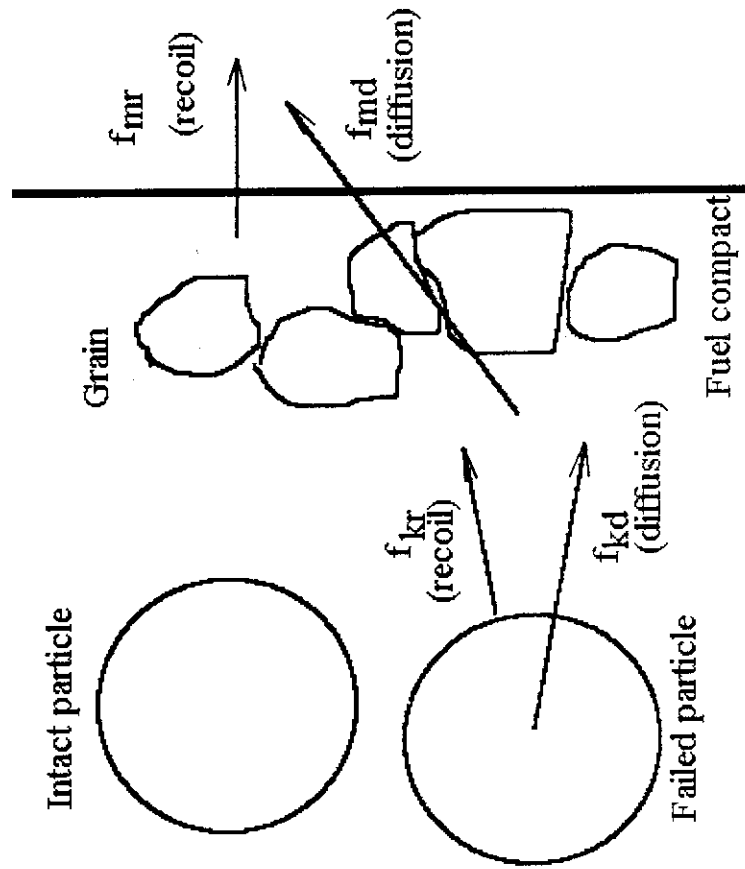


Fig. 2 Description of revised fission gas release model.

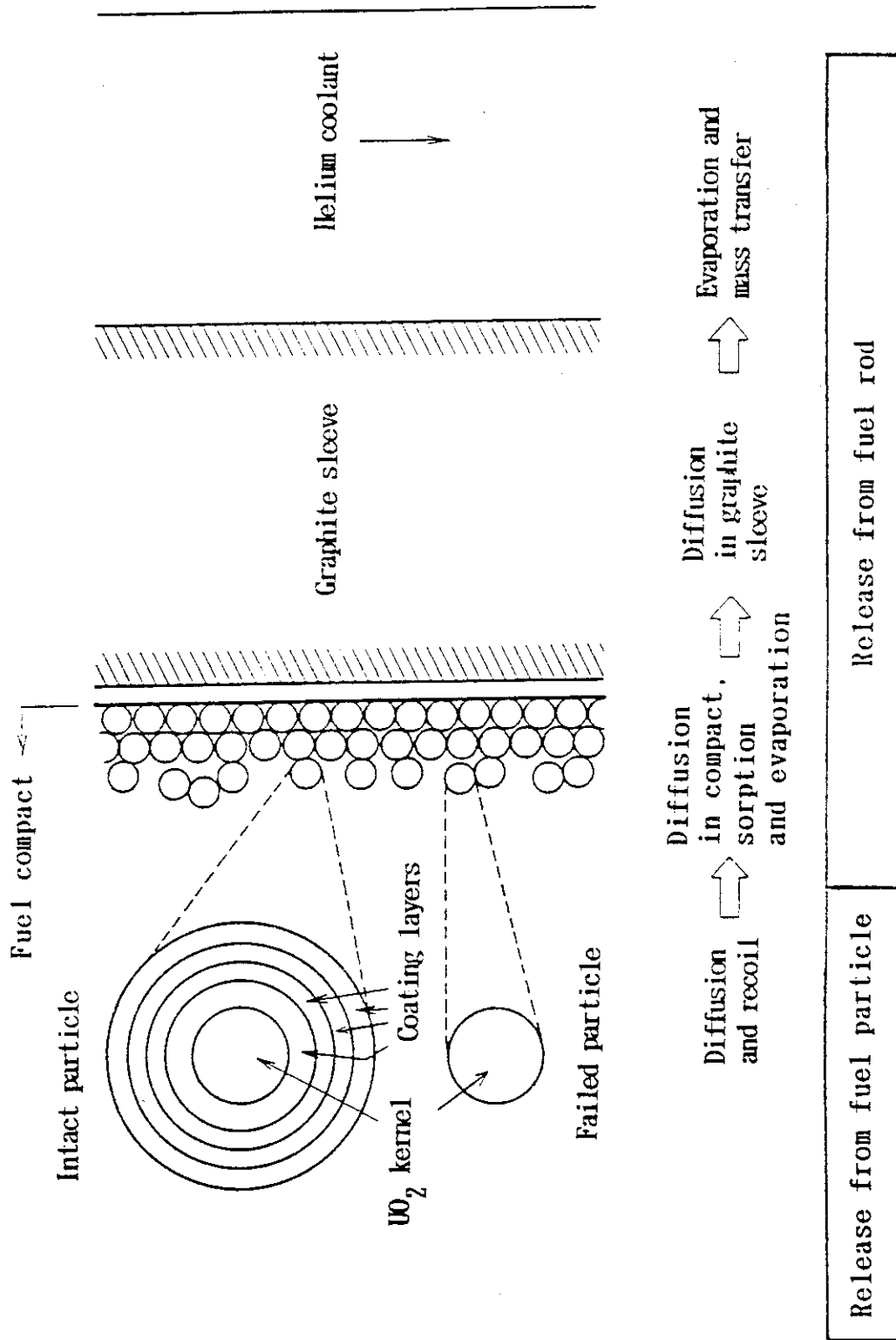


Fig. 3 Metallic fission product transport model.

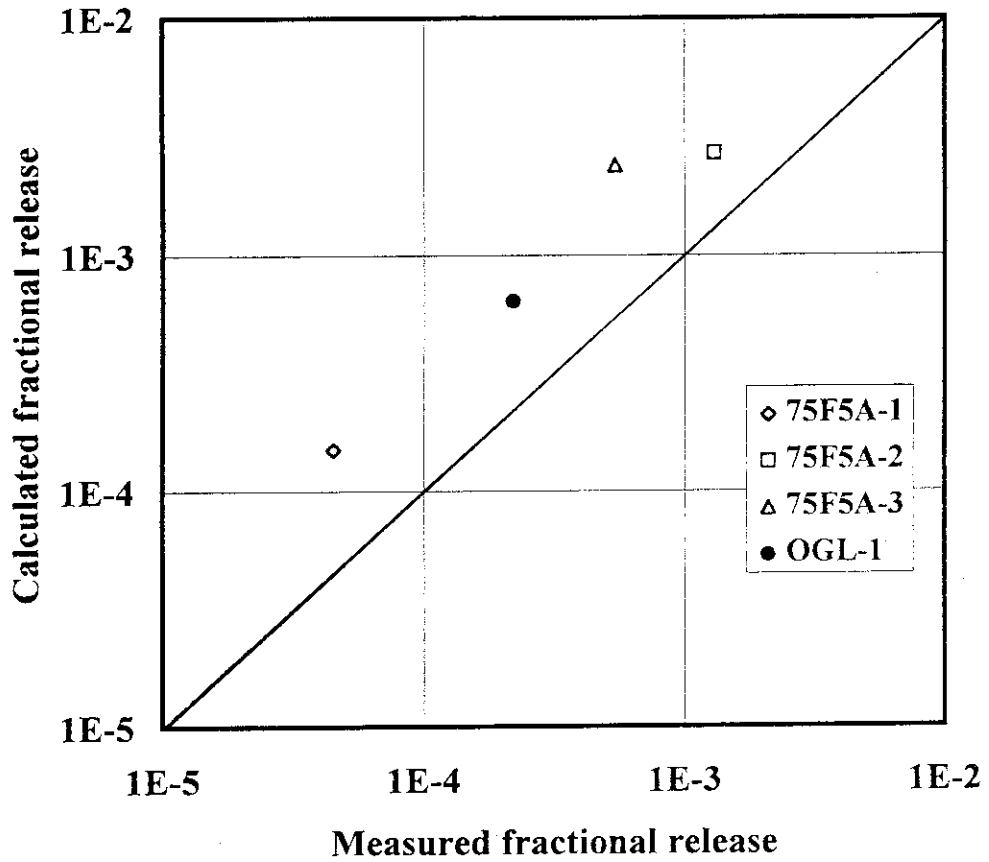


Fig. 4 Verification result of <sup>137</sup>Cs release from 75F5A capsule and the 5th OGL-1 irradiation tests.

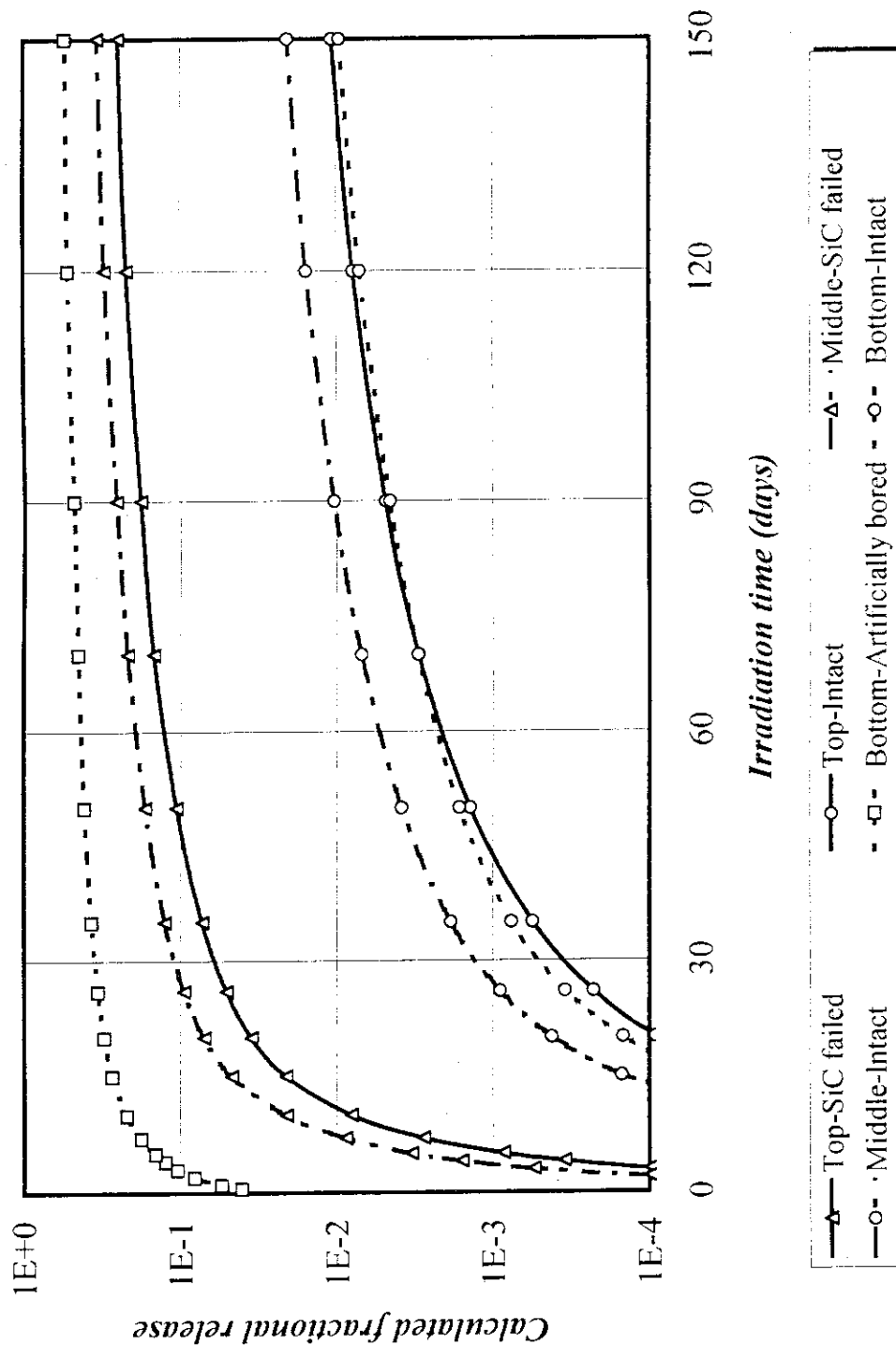


Fig. 5 Calculated fractional release of <sup>137</sup>Cs of the ICF-51H capsule.

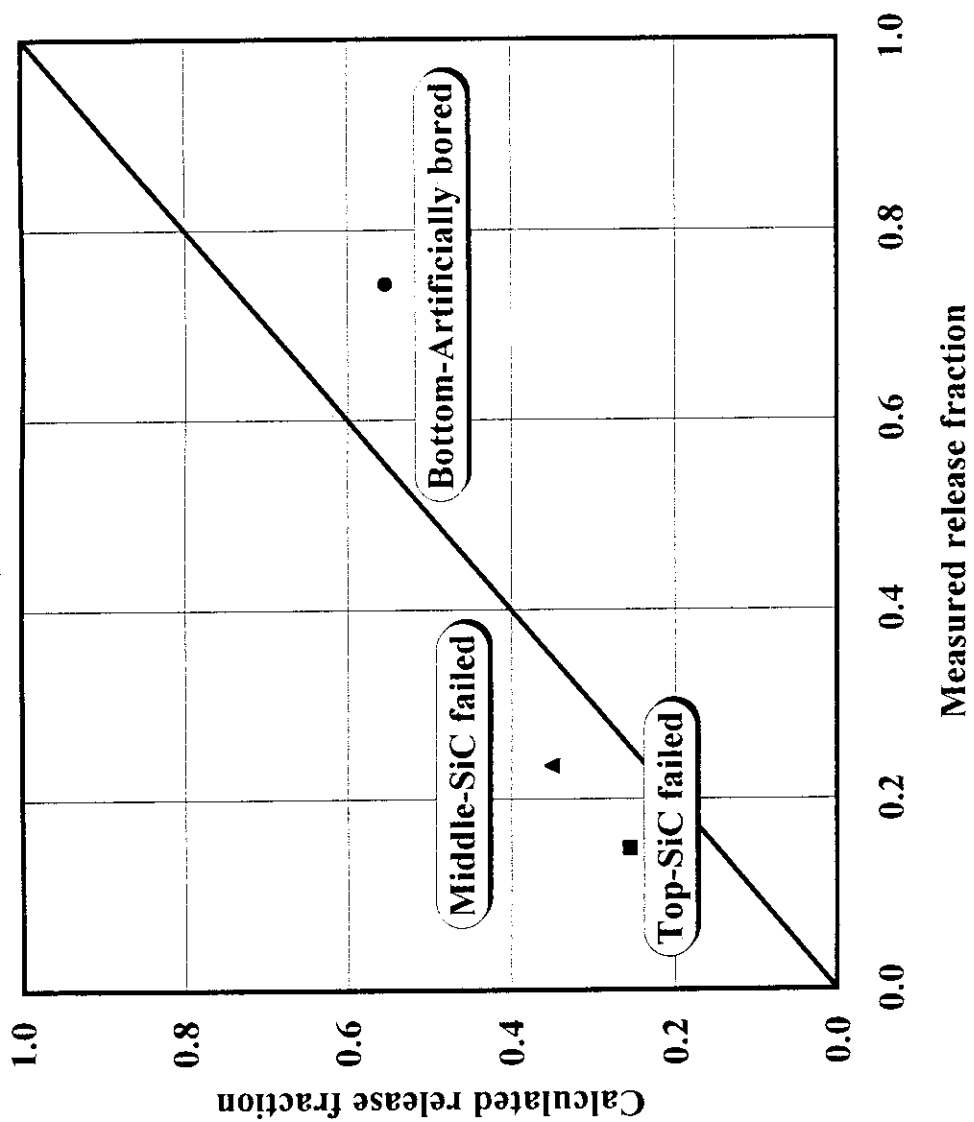


Fig. 6 Ratio of fractional release of  $^{137}\text{Cs}$  in the ICF-51H capsule.

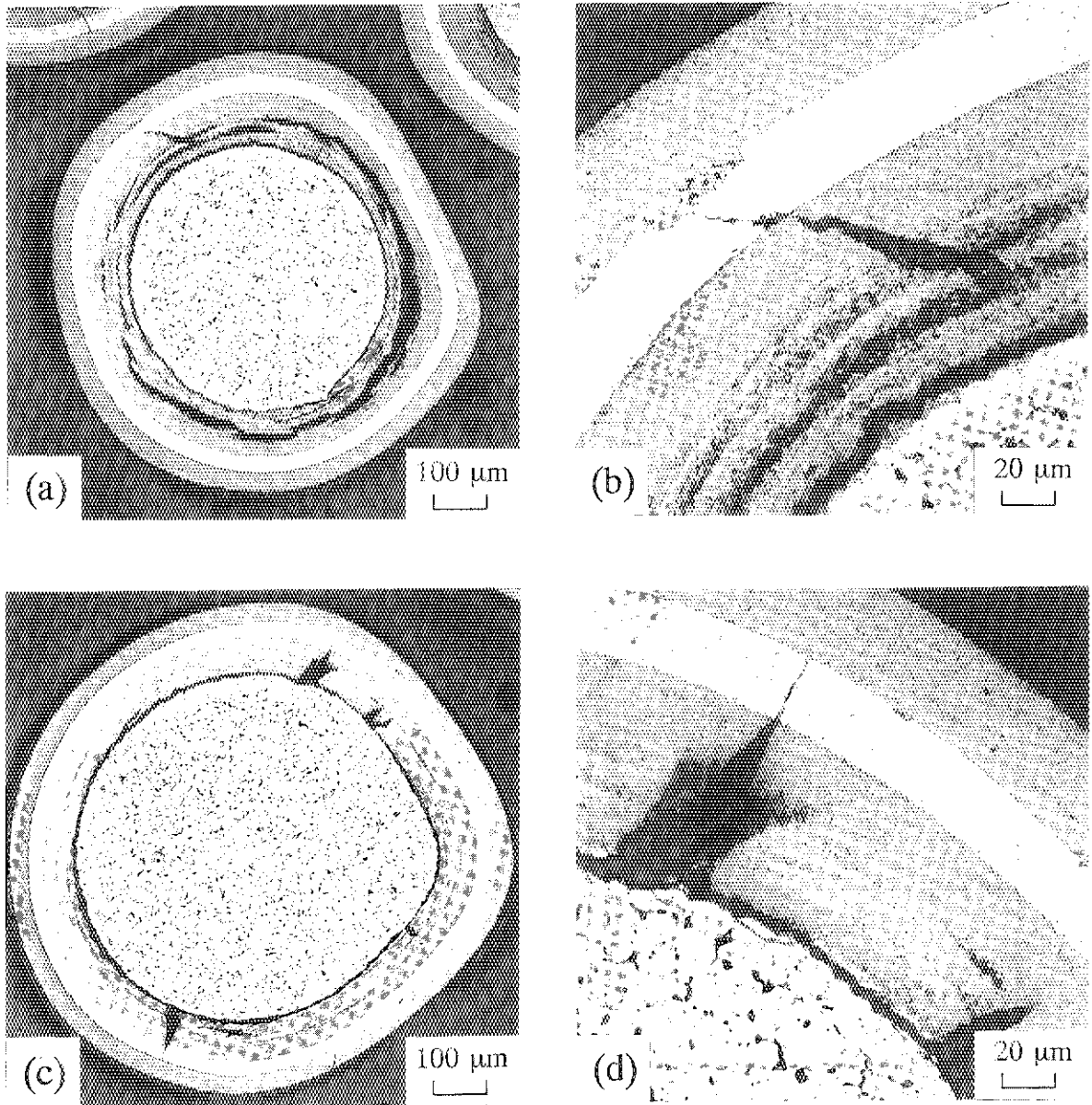


Fig. 7 Configuration of the SiC-failed particle in the ICF-51H capsule.

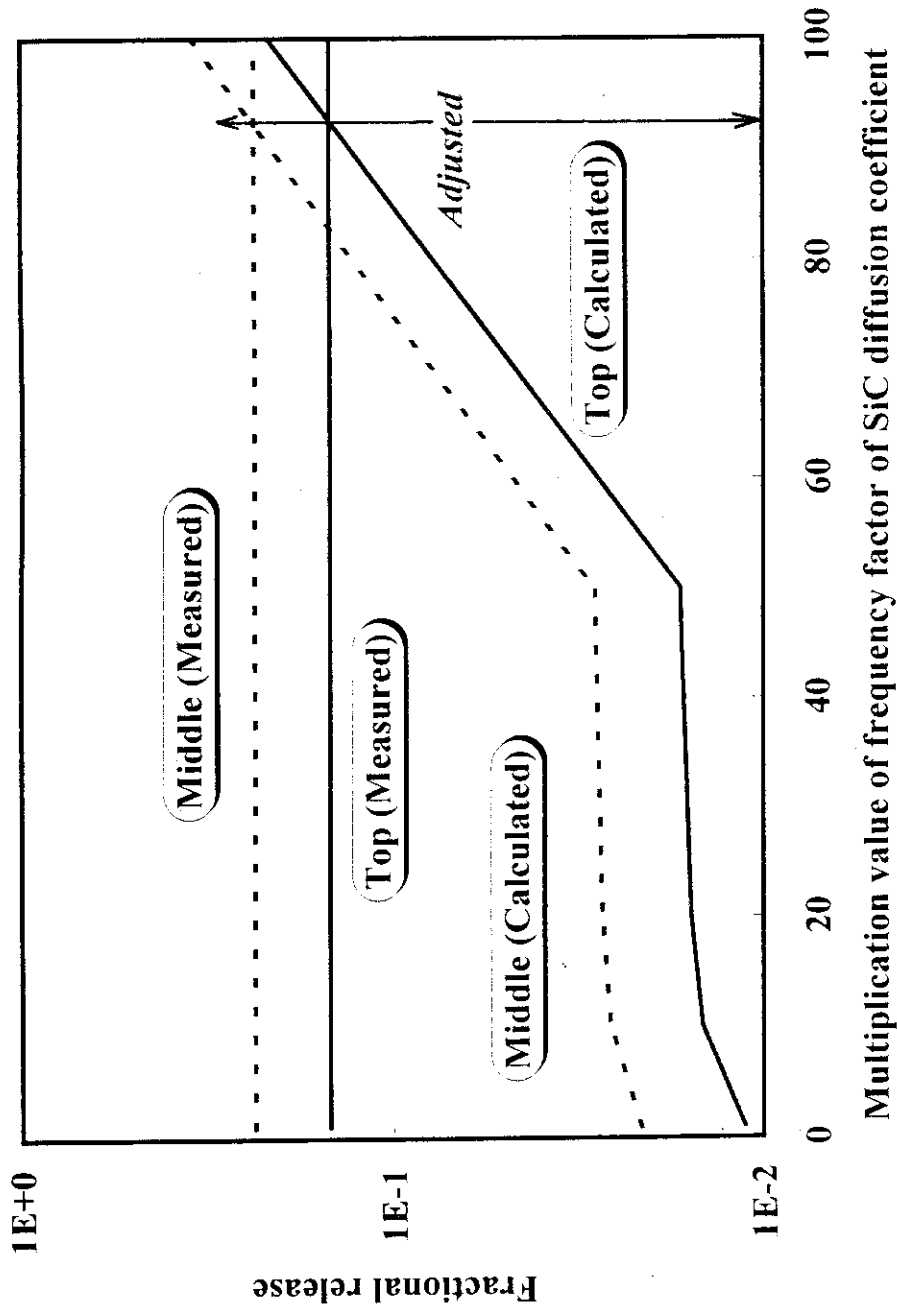


Fig. 8 Comparison of the calculated and measured fractional releases of  $^{137}\text{Cs}$  from the SiC-failed particles.



## 3. 検 討

### 3.1 希ガス

2章で述べた希ガス放出モデルの妥当性を、実験結果と比較することにより検討した。比較に用いた実験は、(1) 第5次OGL-1燃料体照射試験、(2) 第13次OGL-1燃料体照射試験、(3)HRB-22キャプセル照射試験である。各試験の特徴をTable4にまとめた。

#### (1) 照射試験の概要

##### (a) 第5次OGL-1燃料体照射試験<sup>(19)</sup>

第5次OGL-1燃料体照射試験燃料は、1980年に製造されたもので、製造時の破損率が高く（露出ウラン率で $10^{-5}$ のオーダー）、これに対して照射中の追加破損がほとんど無かった。燃料温度、燃焼度及び高速中性子照射量の最大値は、それぞれ1360°C、3.2%FIMA、 $0.42 \times 10^{25} \text{m}^{-2}$ であった。ここでは、主に高い破損率条件下における改良モデルの妥当性を検討するために、第5次OGL-1燃料体照射試験結果との比較を行った。

##### (b) 第13次OGL-1燃料体照射試験<sup>(20)</sup>

第13次OGL-1燃料体照射試験燃料は、露出ウラン率が $10^{-6}$ のオーダーと極めて低い製造時破損率を達成したものである。また、本試験の燃焼度はOGL-1燃料体照射試験の中で最高ある。さらに、最終サイクルで燃料最高温度を1495°Cまで上昇させ、HTTRの過渡時の燃料健全性の確認を行っている。温度の上昇時を含め、追加破損は生じなかった。定常照射時の燃料温度、燃焼度及び高速中性子照射量の最高値は、それぞれ1350°C、5.0%FIMA、 $0.38 \times 10^{25} \text{m}^{-2}$ であった。第13次OGL-1燃料体照射試験は、①低破損率燃料の高燃焼度照射及び②1495°Cまでの燃料温度変化の条件下におけるモデルの検討に適している。

##### (c) HRB-22キャプセル照射試験<sup>(3)</sup>

HRB-22キャプセル照射試験は、ORNLのHFIRにて高燃焼度燃料を照射する目的で実施されたものである。いわゆる高燃焼度燃料は、燃料核を小さくし、バッファ層及びSiC層を厚くした被覆燃料粒子である。照射中の燃料最高温度は1350°Cであった。本試験の特徴は、燃焼度、高速中性子照射量がともに高いことであり、最高値はそれぞれ6.9%FIMA、 $2.5 \times 10^{25} \text{m}^{-2}$ である。試験中の燃料挙動は、2つの方法で監視された。一つはスweepガスの放射能レベルを連続的に電離箱で測定するものである。もう一つは、スweepガスのサンプリングにより核分裂生成物ガスの濃度を測定し、核

種毎の (R/B) 値を定めるものである。照射中に電離箱によって4個の追加破損が検出された。HRB-22キャプセル照射試験は、比較的初期破損率が低かったこと及び高燃焼度、高中性子束まで照射されたことから、従来モデルと改良モデルの検討に適している。さらに、照射中に追加破損が生じたため、追加破損燃料からの放出率の寄与を検討することができる。

## (2) 露出ウラン率と貫通破損率

燃料製造法の改良に伴い製造時破損粒子を含まない燃料コンパクトが製造できるようになったため、燃料コンパクト中のウラン汚染のレベルについてデータが蓄積されてきている。貫通破損粒子が燃料コンパクトに含まれない場合、露出ウラン率は $10^{-7}$ ~ $10^{-6}$ となっている。計算においては、マトリックスの汚染割合として $10^{-6}$ を仮定することとしたが、極めて破損率が低かった第13次OGL-1燃料体照射試験の計算においては、 $10^{-7}$ を仮定した。初期（製造時）の貫通破損割合は、露出ウラン率の測定値及び照射された粒子数から評価した。第5次OGL-1燃料体では露出ウラン率が十分大きい値であったため、貫通破損率として $1.9 \times 10^{-3}$ を用いた。第13次OGL-1燃料体の露出ウラン率の測定値の平均は $5.2 \times 10^{-6}$ であった。燃料体中の粒子数は $2.8 \times 10^5$ 個なので、この値は1又は2個の初期破損に相当する。本計算では1粒子の破損を仮定した。HRB-22キャプセルには $3.2 \times 10^4$ 個の粒子が含まれており、このうち2個が初期貫通破損していたと仮定した。照射中の追加破損は、電離箱信号によりパルス信号が検出されたときに生じたものとした。このことから、破損率は初期の $6.3 \times 10^{-3}$ から末期の $1.9 \times 10^{-4}$ まで変化したとモデル化した。

## (3) 結果

計算は、モデル内の代表核種である $^{88}\text{Kr}$ について行った。

### (a) 第5次OGL-1燃料体照射試験

放出率の計算値と測定値の比較をFig. 9に示す。計算値と測定値の比較は測定値が安定した800時間以降について行っている。計算値と測定値は良く一致している。

### (b) 第13次OGL-1燃料体照射試験

測定値と計算値の比較をFig. 10に示す。モデルによる計算値は、昇温試験を実施する220EFPD以前において、燃料温度変化及び追加破損が無いにも係わらず、照射時間とともに増加傾向を示している。モデルでは、放出率に燃焼及び高速中性子照射量依存性を導入している。本試験では、燃料は高燃焼度まで照射されているが高速中性子照射量は低いため、照射促進拡散の効果が照射抑制効果よりも大きく現れたためと考えられる。そのため、全体として放出率の計算値は照射に伴い増加している。

放出率の測定値も同じような挙動を示している。

最終サイクルの220-243EFPDにおいて、昇温試験が実施された。このときの計算値と測定値の拡大図をFig. 11に示す。追加破損は生じなかったことから、結果は温度の効果、すなわち燃料核及び燃料コンパクトマトリックス部の活性化エネルギーを直接表している。計算値は測定値と比較的良く一致している。

### (c) HRB-22キャプセル照射試験

(R/B) 値の測定値と計算値の比較をFig. 12に示す。粒子の追加破損は、30.4、32.6、59.7及び83.3EFPDに生じた。第1回及び第2回目の破損による放出率の増加は明らかに分かり、モデルによる計算値は測定値と良く一致している。第3回及び第4回の破損は燃料温度が下がっているときに生じたため、測定値、計算値ともに明らかな放出率の増加は見られない。追加破損が生じていない0から30EFPDの照射初期には、放出率は燃料温度に伴い変化している。

## 3.2 セシウム

前章で作成した改良モデルの妥当性を、燃料コンパクトの照射を行った75F5A スィープガスキャプセル照射試験結果を用いて検討した。

75F5Aスィープガスキャプセルは、75F5A-1、-2、-3という3つのインナーキャプセルから成っており、それぞれが2個の燃料コンパクトを照射した。それぞれのインナーキャプセルは異なった燃料温度で、JMTRにて約78EFPD (Effective Full Power Day) 照射された。75F5Aスィープガスキャプセルで照射を行った燃料はHTTR初装荷燃料とほぼ同じ方法で製作されたものである。<sup>137</sup>Csの放出割合は、インナーキャプセル内面に沈着した量と燃料内に残った量の測定値から求めた。それぞれのインナーキャプセル内で照射された被覆燃料粒子の寸法、破損率および放出割合をTable 5に示す。照射中に追加破損が生じているが、その時期の特定はできないため、計算においては、貫通破損率は照射前の測定値から照射後の測定値まで時間に対して直線的に増加したと仮定した。燃料コンパクトの温度は、熱電対によって測定された燃料コンパクトの内外面温度を基に、出力密度、コンパクト形状を用いて径方向温度分布を計算して求めた。

従来のモデルによる計算値と実験値の比較はFig. 4に示した。75F5Aスィープガスキャプセルとにおける測定値と従来モデルによる計算値の比較では、計算値は75F5A-1インナーキャプセルについては測定値よりも大きめに、75F5A-3インナーキャプセルについては小さめとなっている。ICF-51Hキャプセル照射試験を通じて得られた結果から、新たに以下の仮定をモデルに取り入れた。

- ①燃料核が炭化した貫通破損粒子からの放出割合は100%である。

Table 4 Major features of irradiation tests.

Irradiation Test	5th OGL-1	13th OGL-1	HRB-22
Fuel type	First loading fuel	First loading fuel	High burnup fuel
Maximum fuel temperature (°C)	1360	1350 <sup>*2</sup> 1495 <sup>*3</sup>	1350
Maximum burnup (%FIMA)	3.2	5.0	6.9
Maximum fast neutron fluence <sup>*1</sup>	0.42	0.38	2.5
Through coatings failure fraction	$1.9 \times 10^{-3}$	$5.2 \times 10^{-6}$	$6.3 \times 10^{-5}$ <sup>*4</sup> $1.9 \times 10^{-4}$ <sup>*5</sup>
Characteristics	<ul style="list-style-type: none"> <li>•High failure fraction</li> <li>•Constant fuel temperature</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>•Low failure fraction</li> <li>•Transient temperature rise</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>•Low failure fraction</li> <li>•High burnup and fast neutron fluence</li> <li>•Additional failure</li> </ul>

\*1 Neutron energy  $\geq 0.18$  MeV ( $n/m^2$ )

\*2 During normal irradiation

\*3 During transient test

\*4 Beginning of irradiation

\*5 End of irradiation

②SiC破損粒子のSiC層のEDCは健全なSiC層の90倍である。

結果をFig. 13に示す。インナーキャプセル2及び3からの放出割合は測定値と良く一致するが、インナーキャプセル1については改良モデルによる計算結果は測定値を大幅に上回っている。本試験の照射温度は、インナーキャプセル2及び3の燃料温度は900から1700°Cの間であったが、インナーキャプセル1については700から1400°Cと比較的低かった。このため、貫通破損粒子の燃料核の炭化は生じなかったと考えられる。Figure 14はインナーキャプセル1において燃料核の炭化が生じなかったと仮定した場合の計算値と測定値の比較である。放出割合の計算値は、測定値と良く一致する。

Table 5 Results of 75F5A capsule irradiation test.

Inner capsule name	75F5A-1	75F5A-2	75F5A-3
Kernel diameter ( $\mu\text{m}$ )	617	505	507
Buffer layer thickness ( $\mu\text{m}$ )	59	44	40
IPyC layer thickness ( $\mu\text{m}$ )	29	27	30
SiC layer thickness ( $\mu\text{m}$ )	29	27	29
OPyC layer thickness ( $\mu\text{m}$ )	46	45	44
Through-coatings failure fraction at BOL <sup>*1</sup>	$9.5 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^{-5}$	$4.4 \times 10^{-5}$
Through-coatings failure fraction at EOL <sup>*2</sup>	$5.0 \times 10^{-4}$	$5.0 \times 10^{-4}$	$4.0 \times 10^{-4}$
SiC failure fraction <sup>*3</sup>	$1.0 \times 10^{-3}$	$2.0 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-3}$
Fractional release of $^{137}\text{Cs}$	$4.5 \times 10^{-5}$	$1.3 \times 10^{-3}$	$5.4 \times 10^{-4}$

\*1 By acid leaching

\*2 By acid leaching of Ce

\*3 By burn-leach

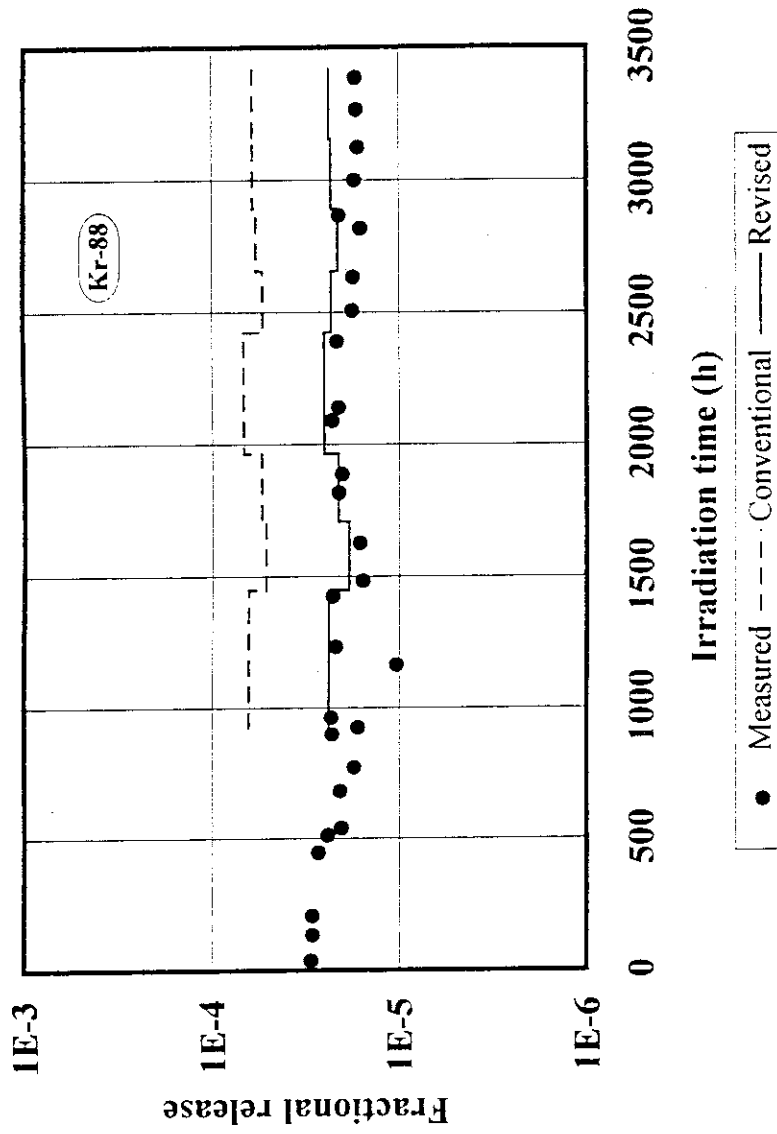


Fig. 9 Measured and calculated fractional releases in the 5th OGL-1 fuel element irradiation test.

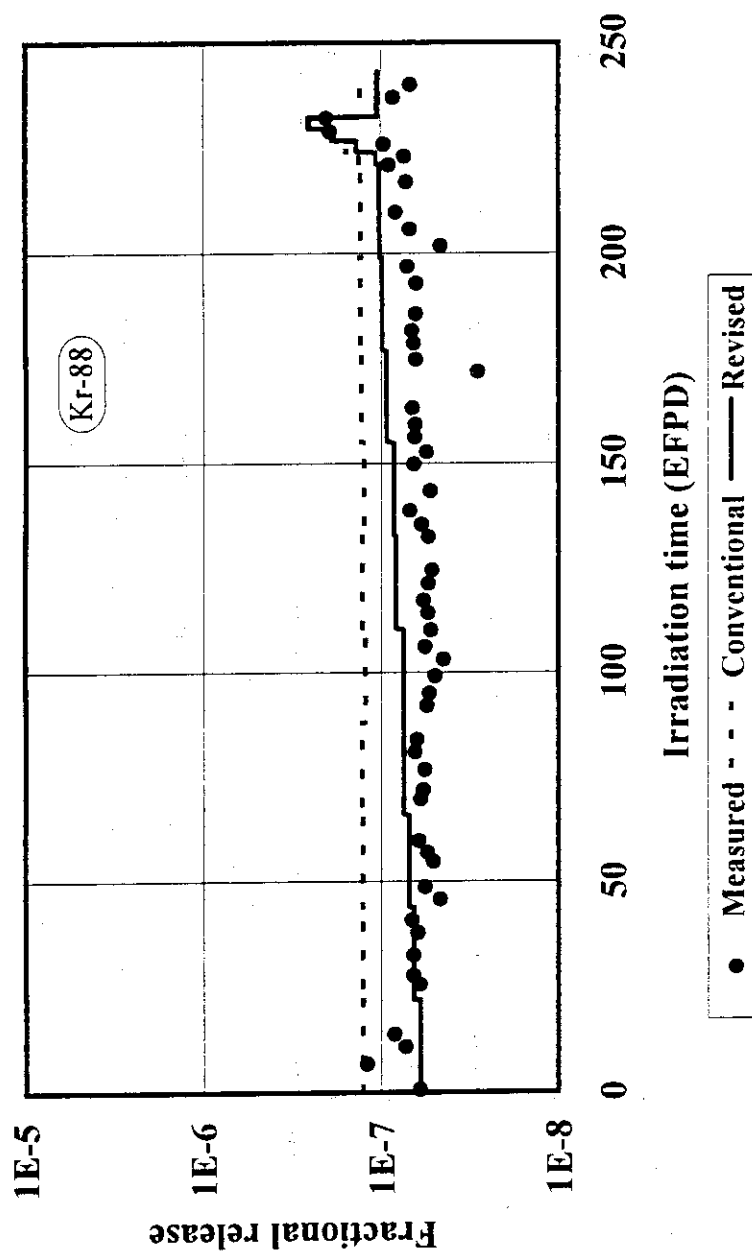


Fig. 10 Measured and calculated fractional releases in the 13th OGL-1 fuel element irradiation test.



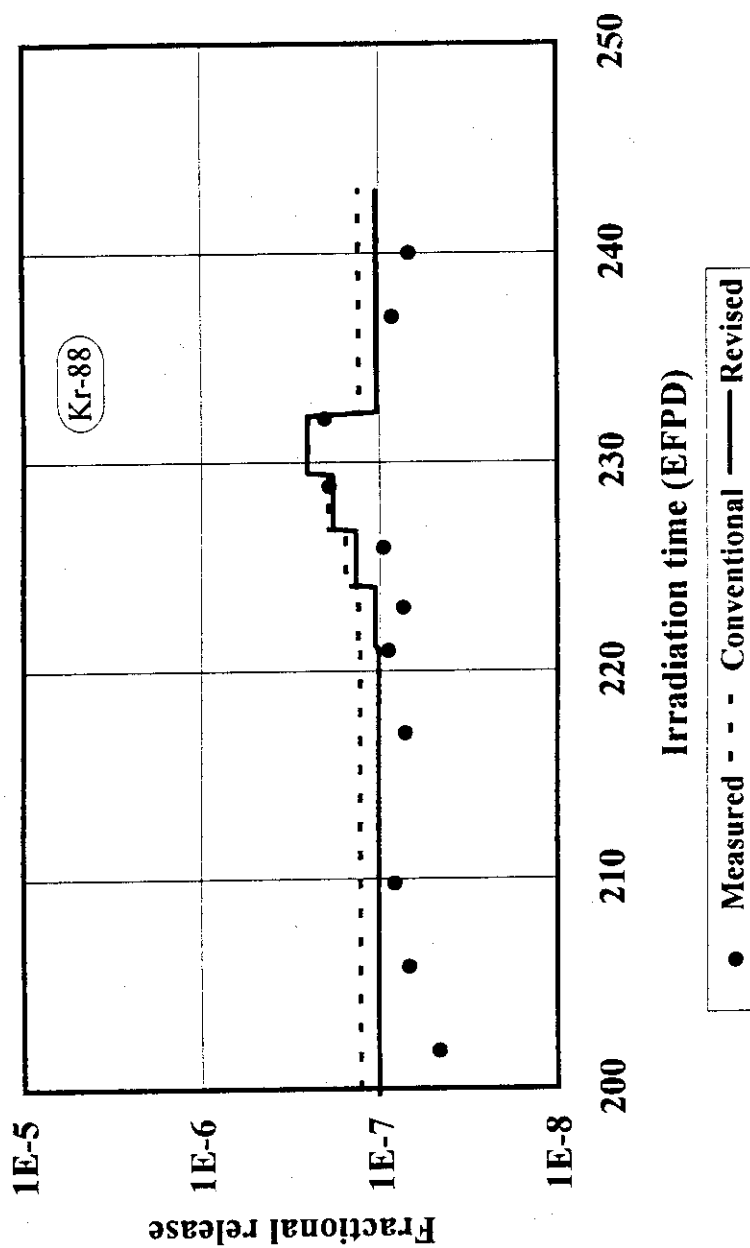


Fig. 11 Measured and calculated fractional releases in the 13th OGL-1 fuel element irradiation test during transient test.

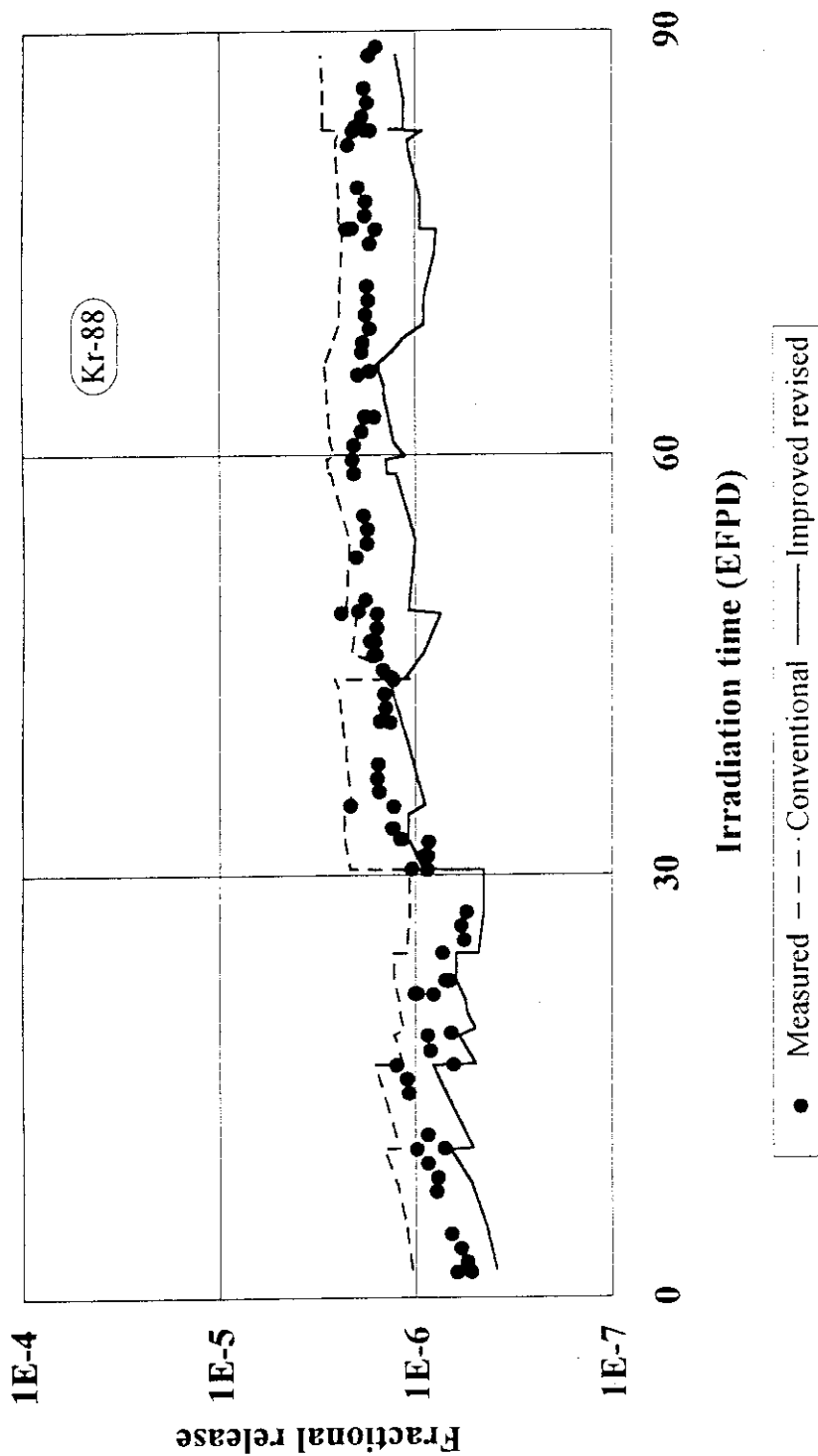


Fig. 12 Measured and calculated fractional releases in the HRB-22 capsule irradiation test.

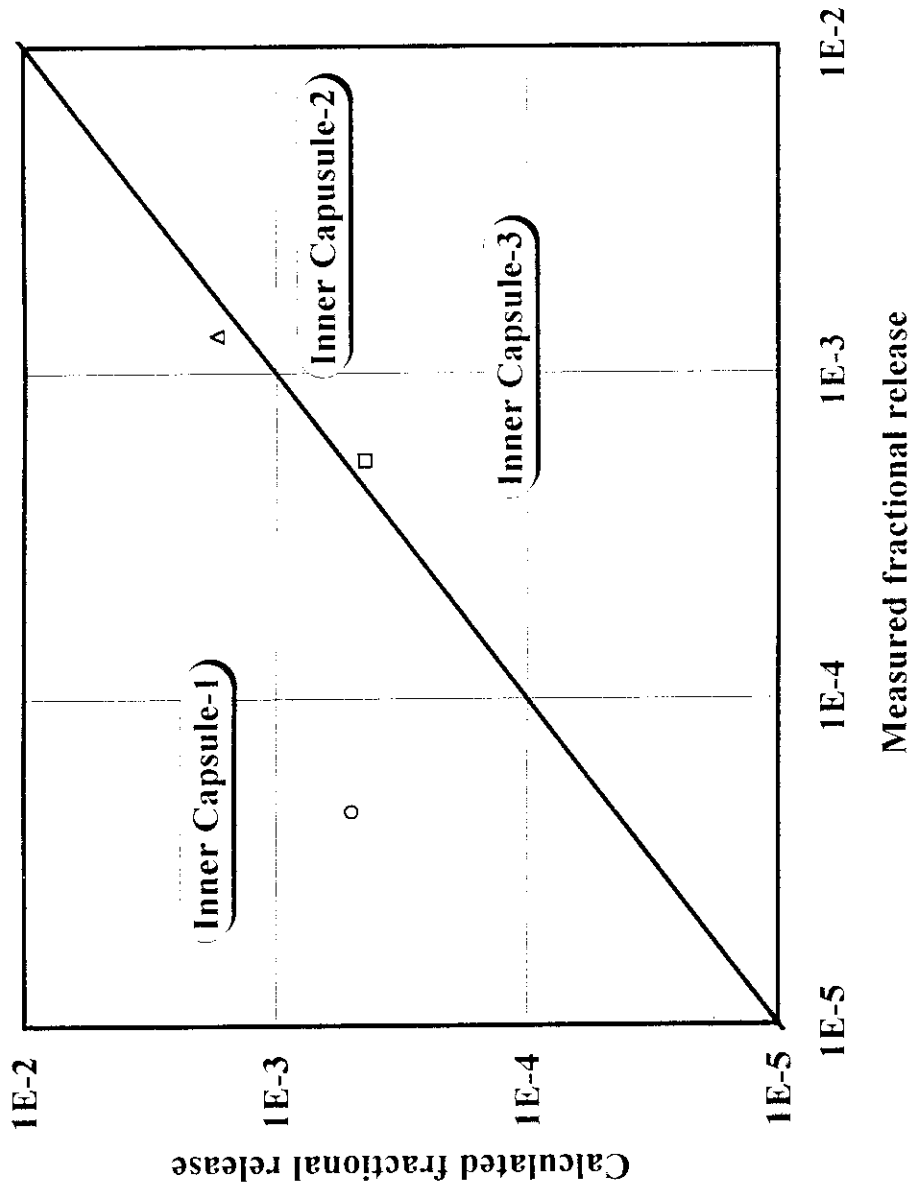


Fig. 13 Calculated fractional release of  $^{137}\text{Cs}$  in the 75F5A capsule by revised model (1).

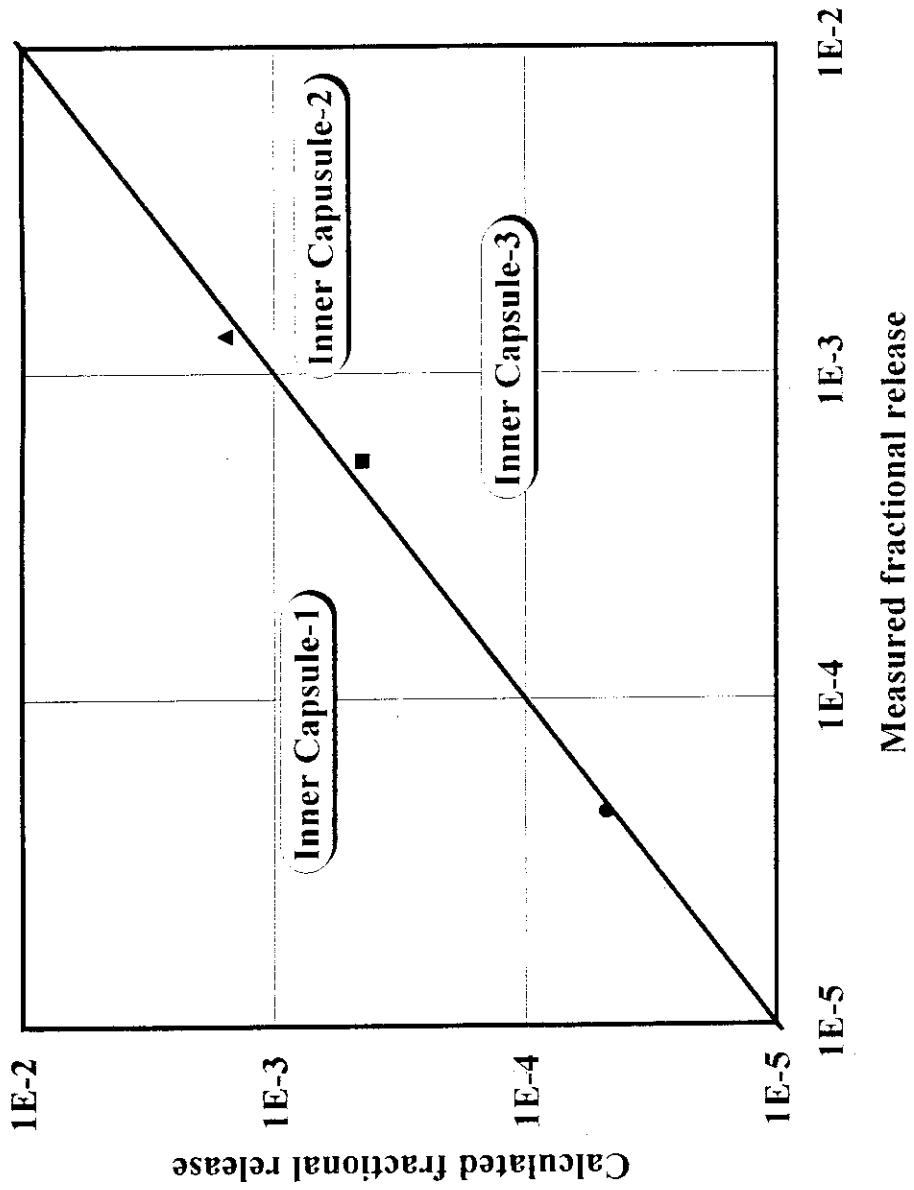


Fig. 14 Calculated fractional release of  $^{137}\text{Cs}$  in the 75F5A capsule by revised model (2).

## 4. ま と め

燃料からの希ガス放出率をより精度良く推定するために、希ガス放出モデルの改良を行った。主な改良点としては、(1)貫通破損粒子からの放出とマトリックス部の汚染ウランからの放出を分離して取扱うこと、及び(2)燃料核からの放出率に燃焼依存性を、燃料コンパクトマトリックス部における放出率に高速中性子照射依存性を考慮することである。本モデルの妥当性を(1)第5次OGL-1燃料体照射試験、(2)第13次OGL-1燃料体照射試験及び(3)HRB-22キャプセル照射試験において得られた放出率を比較計算することにより確認した。その結果、全ての試験において $^{88}\text{Kr}$ の放出率の計算値は測定値と良い一致を示した。

また、燃料粒子からのセシウムの放出モデルの検討を行った。具体的には、貫通破損粒子を模擬した人工欠陥粒子、製造時のSiC破損粒子及び健全粒子の3種類の燃料粒子を別々に照射したICF-51Hキャプセルの放出割合の計算値と測定値の比較を行い、以下の点が明らかになった。

1. 従来の粒子モデルでは、貫通破損粒子を裸の燃料核としてモデル化し、その拡散係数として二酸化ウラン中のセシウムの拡散係数を用いていたため、炭化が生じた燃料核では、実験値と比べて計算値が過小評価となった。
2. 従来の粒子モデルでは、SiC層破損粒子のSiC層の拡散係数は、PyC層と同じであると仮定していたが、実際のSiC層破損粒子のセシウム保持効果はそれよりも大きい。

この結果を受け、以下のようなモデルの改良を行った。

1. 燃料核の炭化が生じた場合、セシウムの放出割合は100%とする。
2. SiC層破損粒子のSiC層の拡散係数として、新たに等価拡散係数を導入する。  
実験値との比較から、等価拡散係数は拡散係数が健全なSiC層よりも約2桁大きい。

さらに、燃料コンパクトの照射を行った75F5Aスィープガスキャプセル照射試験の解析から、燃料核の炭化の有無を適切に考慮することにより、改良モデルはより高い精度でセシウムの放出割合を評価できることが分かった。

## 謝 辞

本研究を行うに当たり、燃料研究部燃料照射研究室の皆様に種々の御協力をいただきました。また、星三千男燃料研究部長、田中利幸高温工学試験研究炉開発部長及び茂木春義HTTR技術開発室長には、種々の御指導を頂いた。HTTR技術開発室の飛田勉氏及び七種明雄氏には、レポートの作成に当たって有益なコメントを頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- (1) S.SAITO, T.TANAKA, Y.SUDO, O.BABA, et.al.:"Design of High Temperature Engineering Test Reactor", *JAERI-1332* (1994).
- (2) K.SAWA, S.SHIOZAWA, K.FUKUDA and Y.ICHIHASHI:"Validation of Fission Product Release from Fuel Element of HTTR", *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.29, p.842 (1992).
- (3) 沢和弘、福田幸朔、R.ACHARYA:"高温ガス炉燃料の高燃焼度照射試験における燃料温度予測", *JAERI-Tech 94-038* (1995).
- (4) K.MINATO, K.KIKUCHI, K.SAWA, T.Tobita, et.al.:"Preirradiation Characterization of HTGR Fuel for HRB-22 Capsule Irradiation Test (JAERI/US DOE Collaborative Irradiation Test for HTGR Fuel)", *JAERI-Tech 95-056* (1996).
- (5) K.SAWA, S.SHIOZAWA and M.SHINDO: "Radiation Exposure in Depressurization Accident of HTTR", *Nucl. Safety*, Vol.32, p.222 (1991).
- (6) 沢和弘、村田勲、新藤隆一、塩沢周策:"高温工学試験研究炉の遮蔽設計における核分裂生成物線源評価", *JAERI-M 91-198* (1991).
- (7) 沢和弘、岡本太志、佐々木克徳、塩沢周策:"HTTR燃料体からのセシウム放出割合の評価法", *JAERI-M 90-063* (1990).
- (8) 内藤完爾:"原子力工学シリーズ5 原子炉化学 下", 東京大学出版社 (1978).
- (9) H.Krohn,R.Finken:"FRESCO- II, Ein Rechenprogramme zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus Kugelformigen HTR-Brennelementen in Bestrahlung-und Ausheizexperimenten", *Jul-Spez-212* (1983).
- (10) 福田幸朔、小川徹、鹿志村悟、林君夫、他:"高温ガス炉用燃料に関する試験研究", *JAERI-M 89-007* (1989).
- (11) K.VERFONDERN, R.C.MARTIN and R.MOORMANN: "Methods and Data for HTGR

## 謝 辞

本研究を行うに当たり、燃料研究部燃料照射研究室の皆様に種々の御協力をいただきました。また、星三千男燃料研究部長、田中利幸高温工学試験研究炉開発部長及び茂木春義HTTR技術開発室長には、種々の御指導を頂いた。HTTR技術開発室の飛田勉氏及び七種明雄氏には、レポートの作成に当たって有益なコメントを頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- (1) S.SAITO, T.TANAKA, Y.SUDO, O.BABA, et.al.:"Design of High Temperature Engineering Test Reactor", *JAERI-1332* (1994).
- (2) K.SAWA, S.SHIOZAWA, K.FUKUDA and Y.ICHIHASHI:"Validation of Fission Product Release from Fuel Element of HTTR", *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.29, p.842 (1992).
- (3) 沢和弘、福田幸朔、R.ACHARYA:"高温ガス炉燃料の高燃焼度照射試験における燃料温度予測", *JAERI-Tech 94-038* (1995).
- (4) K.MINATO, K.KIKUCHI, K.SAWA, T.Tobita, et.al.:"Preirradiation Characterization of HTGR Fuel for HRB-22 Capsule Irradiation Test (JAERI/US DOE Collaborative Irradiation Test for HTGR Fuel)", *JAERI-Tech 95-056* (1996).
- (5) K.SAWA, S.SHIOZAWA and M.SHINDO: "Radiation Exposure in Depressurization Accident of HTTR", *Nucl. Safety*, Vol.32, p.222 (1991).
- (6) 沢和弘、村田勲、新藤隆一、塩沢周策:"高温工学試験研究炉の遮蔽設計における核分裂生成物線源評価", *JAERI-M 91-198* (1991).
- (7) 沢和弘、岡本太志、佐々木克徳、塩沢周策:"HTTR燃料体からのセシウム放出割合の評価法", *JAERI-M 90-063* (1990).
- (8) 内藤完爾:"原子力工学シリーズ5 原子炉化学 下", 東京大学出版社 (1978).
- (9) H.Krohn,R.Finken:"FRESCO- II, Ein Rechenprogramme zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus Kugelformigen HTR-Brennelementen in Bestrahlung-und Ausheizexperimenten", *Jul-Spez-212* (1983).
- (10) 福田幸朔、小川徹、鹿志村悟、林君夫、他:"高温ガス炉用燃料に関する試験研究", *JAERI-M 89-007* (1989).
- (11) K.VERFONDERN, R.C.MARTIN and R.MOORMANN: "Methods and Data for HTGR

Fuel Performance and Radionuclide Release Modeling during Normal Operation and Accidents for Safety Analysis", *Jül-2721* (1993).

- (12) P.D.Smith: "TRAFIC, A Computer Program for Calculating the Release of Metallic Fission Products from an HTGR Core", *GA-A 14721* (1978).
- (13) 牧野正彦、安川茂: "高温ガス冷却炉における核分裂生成物の非定常拡散放出量評価用コードFECUND", *JAERI-M 4883* (1972).
- (14) 林君夫、福田幸朔: "高温ガス炉燃料からの核分裂生成物放出計算コードTRANCS", *JAERI-M 88-020* (1988).
- (15) S.Mitake, F.Okamoto: "An Analytical Study of Volatile Metallic Fission Product Release from Very High Temperature Gas-cooled Reactor Fuel and Core", *Nucl. Technol.*, 81, p7-12 (1988).
- (16) 小川徹、福田幸朔、鹿志村悟、飛田勉、他: "被覆燃料のガススリーブキャプセル照射試験(Ⅱ)", *JAERI-M 87-020* (1987).
- (17) 福田幸朔、小林紀昭、林君夫、湊和生、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).
- (18) 飛田勉、湊和生、沢和弘、福田幸朔、他: "破損被覆燃料粒子からの金属核分裂生成物の放出(ICF-51Hキャプセル照射試験)", *JAERI-Research 96-014* (1996).
- (19) 福田幸朔、小林紀昭、林君夫、湊和生、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).
- (20) 白鳥徹夫、他: 私信.