

「照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験」結果の評価
(研究報告)

2002年2月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

「照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験」結果の評価

(研究報告)

中桐 俊男*、佐藤 勇**

要旨

燃料材料試験部照射燃料試験室および要素技術開発部熱化学安全試験グループで実施した「照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験」(FP-1、FP-2) 結果について、核分裂生成物 (FP) の燃料ペレットからの放出挙動をソースタームの観点から評価した。

評価の結果、以下のような結論および課題を得た。

- (1) FP-1 および FP-2 実験での FP (Cs、Sb、Ru、Eu) 放出割合を ORNL 等の実験結果、NUREG-0772 モデルから計算された放出割合と比較し、また、Booth モデルで使用するべき FP 拡散係数を算出して ORNL の実験結果から算出された FP の拡散係数と比較した結果、どちらかと言えば従来酸化雰囲気で得られた放出割合、拡散係数等に近いことがわかった。ナトリウム蒸気等を含む還元性雰囲気では FP の化学形態・放出挙動が今回とは異なることが考えられるため、別途実験を実施して放出挙動に関するデータを取得する必要があると考えられる。

また、今回の結晶粒内の FP 拡散係数算出には組織写真から得られる幾何学的な径を基に Cs のペレット内分布を考慮した等価径径を使用したが、本来は Booth モデルで使用するべき BET 吸着面積から算出された等価径を基に、結晶粒径分布、FP 分布による補正を加えた径を使用することが望ましいと考えられる。

- (2) Cs の放出メカニズムとしては、今回考慮した結晶粒内での FP 固体拡散メカニズムに加え、燃料ペレット表面に付着した Cs 化合物の蒸発放出の影響を考慮する必要がある、低揮発性の Ru、Eu の放出メカニズムとしてはペレット表面からの蒸発が律速するメカニズムを考慮する必要があると考えられる。しかし、これらの放出メカニズムを考慮した評価を行うためには、燃料ペレット内での FP の化学形態と分布、キャリアガス中の酸素ポテンシャルおよび FP の化学形態等を別途評価する必要があると考えられる。

* : 大洗工学センター 要素技術開発部 熱化学安全試験グループ

** : 大洗工学センター 燃料材料試験部 照射燃料試験室

FPs Release Behavior from Irradiated FBR MOX Fuel

Toshio Nakagiri*, Isato Sato**

Abstract

Fission products (FPs) release behavior in the experiments (FP-1, FP-2) performed at JNC were evaluated from the viewpoint of source-term evaluation of FBR.

Release fraction of FPs (Cs, Sb, Ru, Eu) in the experiments were calculated by NUREG-0772 model, and grain (hypothetical spheres) radius of fuel pellets and diffusion coefficient of FPs in grains for Booth model were calculated in the evaluation. Furthermore, the calculated values were compared with the values obtained in other experiments. The results of evaluation are summarized bellow.

- (1) The experiments (FP-1, FP-2) were performed in inert gas (Ar) condition, but FPs release fractions and diffusion coefficients in fuel grains almost agree with the values obtained in the other experiments which were performed in oxidized conditions.

FPs release behavior in reduced condition containing such as sodium vapor are expected to be different from the behavior in FP-1 and FP-2. Some other experiments in reduced condition should be performed to investigate FPs release behavior in reduced conditions.

Geometric grain radius obtained from metallographic images is used for the base data of diffusion coefficients evaluation, but the radius calculated from BET surface area is desirable.

- (2) Another release mechanism such as evaporation from the fuel pellet surface should be considered for more detailed evaluation of Cs composite and low volatile Ru and Eu release behavior, but, FPs chemical composition in fuel pellet, oxygen potential in carrier gas and FPs chemical composition in carrier gas, etc, should be evaluated in advance.

* : Thermo-Chemistry Safety Engineering Group, Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center

** : Alpha Gamma Section, Fuels and Materials Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center

目次

1. 概要	1
2. 実験装置・実験条件	2
2.1 実験装置	2
2.2 実験条件	2
3. 実験結果概要	3
3.1 装置内での各元素の分布 (Cs、Sb、Ru、Eu)	3
3.2 焼結金属フィルタ部でのオンライン γ 線測定結果	4
4. FP の分類、評価モデル	5
4.1 FP の分類	5
4.2 NUREG-0772 モデル	5
4.3 Booth の等価球モデル (固体拡散モデル)	6
4.4 その他のモデル	7
5. FP 放出挙動の評価	10
5.1 実験での FP 放出割合と NUREG-0772 モデルによる計算結果との比較	10
5.2 Booth モデルで使用すべき、結晶粒径、拡散係数の評価	12
6. 考察	16
6.1 Cs の放出挙動	16
6.2 Sb の放出挙動	21
6.3 Ru、Eu の放出挙動	21
6.4 ソースターム評価への反映	23
7. まとめ	24
8. 謝辞	25
9. 参考文献	26

1. 概要

燃料材料試験部照射燃料試験室および要素技術開発部熱化学安全試験グループで実施した「照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験」¹⁾ (FP-1、FP-2) における核分裂生成物（以下 FP と略す。）の燃料ペレットからの放出挙動評価をソースターム（核分裂生成物の種類と量）評価の観点から実施した。

評価においては、実験で得られた固体 FP のセシウム、アンチモン、ルテニウム、ユーロピウム（以下それぞれ Cs、Sb、Ru、Eu と記す。）の放出割合を、従来からソースターム評価で使用されてきた NUREG-0772 モデル²⁾による計算結果や米国 ORNL (Oak Ridge National Laboratory) の実験結果と比較し、さらに燃料ペレット内の固体拡散を考慮した Booth モデル³⁾で使用すべき等価結晶粒径、拡散係数等を算出して、その妥当性について考察を行った。

また、得られた実験結果のうち、評価が困難であった温度勾配管および焼結金属フィルタへの Cs の付着プロファイル、燃料ペレット表面からの Cs の放出挙動、低揮発性 FP (Ru、Eu) のペレット表面からの放出挙動については、過去の知見に基づいた考察を行った。

FP-1、FP-2 実験では、希ガス (Kr、Xe) の放出については、実験でのバースト状放出を再現できる評価モデルの調査が必要であると考えられるため、本報告書では、希ガス (Kr、Xe) の放出挙動評価は行っていない。別途調査、適用性検討を行う必要がある。

2. 実験装置・実験条件¹⁾

2.1 実験装置

ホットセル内に設置したFP放出挙動試験装置では、高速実験炉「常陽」で実際に照射したウラン-プルトニウム混合酸化物燃料(MOX)を温度制御しながら溶融するまで加熱し、その際のFP放出の様子を各種分析装置により測定する。装置は図1の概略図に示すように高周波誘導加熱炉、サンプリング装置、分析装置等から構成されている。

加熱、溶融された燃料から放出されるFP等のサンプリング装置への導入には高純度アルゴン(純度99.9995%以上)のキャリアガスを用いている。

サンプリング装置は、放出されたFP(Cs、Sb、Ru、Eu等)を分別捕集する温度勾配管、焼結金属フィルタ(5段、フィルタエレメントの孔径は、上流側から43、30、10、5、1 μ m)、ガスサンプリングボトル(希ガス用)等を加熱炉下流に直列に配置している。また、分析装置は γ 線スペクトル測定装置、ガス分析装置(ガス質量分析装置、ガスクロマトグラフィ分析装置)から構成されている。

2.2 実験条件

(1) 使用した燃料

FP-1、FP-2ともに使用した燃料は、PFD549集合体のうち、燃焼度が約65GWd/tのL001およびLOC72ピンから採取されたものであり、試料重量が約10gとなるように、約62mm長さに切断した後、縦割り切断機を用いて被覆管を取り除いたものである。使用した燃料の照射実績、重量等をまとめて表1に示す。

(2) 試験温度

実験での加熱履歴は、図2に示すようにFP-1、FP-2ともに、2つの温度一定部を持ち、昇温速度は15 $^{\circ}$ C/secであった。FP-1試験では2,000 $^{\circ}$ Cおよび3,000 $^{\circ}$ Cで、FP-2試験では1,500 $^{\circ}$ Cおよび2,500 $^{\circ}$ Cでそれぞれ30分間温度を保持した。

3. 実験結果概要

得られた実験結果のうち、希ガス (Kr、Xe) については別途評価を行うため、ここには記載していない。

3.1 装置内での各元素の分布 (Cs、Sb、Ru、Eu)

試験前の試料ペレット内の FP 量については、FP-2 試験前に少量 (0.22 g) のインベントリ評価用試料について測定された量を基に算出された。また、試験後の装置内の FP (Cs、Sb、Ru、Eu) 分布は、オフライン γ 線計測により評価された。FP-1、FP-2 での試料内 FP インベントリ、実験前後のルツボ内の FP 量およびルツボからの FP 放出割合を表 2 に、実験後の装置内各部のオフライン γ 線測定結果を表 3-1、表 3-2 に示す。

(1) Cs

Cs (Cs-134、Cs-137) については、表 3-1、表 3-2 のオフライン測定結果からわかるように、どの実験温度でも温度勾配管および焼結金属フィルタへの付着が確認され、表 2 からわかるように、FP-2 では 2,500℃で、FP-1 では 3,000℃では全量が放出されたと考えられる。

また、どの実験温度でも温度勾配管と焼結金属フィルタでの捕集割合はほぼ同じであり、約 3 割が温度勾配管、約 7 割が焼結金属フィルタで捕集された。同様の温度勾配管 (長さ、温度分布がほぼ同様) を使用した ORNL の試験⁴⁾では、温度勾配管、焼結金属フィルタで捕集された FP はそれぞれ蒸気、エアロゾルであるとされていることから、今回の実験でも同様な傾向があるものと推定される。

温度勾配管内の各サンプリング管 (No. 1~No. 14) への付着量をまとめて表 4 に、また、Cs-134、Cs-137 についてそれぞれ図 3-1、図 3-2 に示すが、約 550℃ (サンプリング管 No. 5) より下流側に付着していることがわかる。付着量が多い場合 (2,000℃、2,500℃) には、下流側にかけてほぼ同じ量の付着が見られるが、付着量が少ない場合 (1,500℃、3,000℃) では、Cs が付着領域のまん中あたりの約 410℃ (サンプリング管 No. 8) ~約 150℃ (サンプリング管 No. 13) への付着量が少なくなっている。

焼結金属フィルタでの各段への付着量分布を FP-1、FP-2 についてそれぞれ図 4-1、図 4-2 に示すが、ほとんどが最も上流側の孔径 43 μ m の部分で捕集されて

いることがわかる。

(2) Sb

Sb (Sb-125) については、表 3-1、表 3-2 からわかるように、高温側の 2,500℃、3,000℃でのみルツボからの放出、温度勾配管への付着が確認されており、低温側の 1,500℃、2,000℃ではルツボからの放出が見られない。

表 2 からわかるように、最高温度 2,500℃の FP-2 では、98% が、最高温度 3,000℃の FP-1 では全量が放出された。

温度勾配管内の各サンプリング管 (No.1~No.14) への付着量を表 4 に、付着分布を図 5 に示すが、2,500℃では高温側の約 750℃ (サンプリング管 No.1) ~ 約 660℃ (サンプリング管 No.3) での付着量が多く、3,000℃では約 550℃ (サンプリング管 No.5) ~ 約 150℃ (サンプリング管 No.13) でほぼ均等な付着となっている。

(3) Ru、Eu

Ru-106、Eu-154 については、オンライン γ 線計測では検出されていないが、表 2 に示すように試験前後のルツボ部 γ 線計測結果の比較から、放出割合が算出された。Ru-106 については、最高温度 3,000℃の FP-1 実験では、放出割合は 8%であり、最高温度 2,500℃の FP-2 実験では 13%である。また、Eu-154 については、最高温度 3,000℃の FP-1 実験では、放出割合は 0%であり、最高温度 2,500℃の FP-2 実験では 4%である。

3.2 焼結金属フィルタ部でのオンライン γ 線測定結果

FP-1 は 2,000℃、FP-2 は 1,500℃で、A 系統の焼結金属フィルタ部のオンライン γ 線測定が実施された。測定された Cs-134 および Cs-137 の付着量の時間変化を図 6-1、図 6-2 に示す。また、この結果を Cs 全体 (Cs-134 + Cs-137) のカウント数の増加速度 (cps/分) に変換したものを図 7-1、図 7-2 に示す。

上述のように、焼結金属フィルタ部ではルツボから放出された Cs のうち約 7 割が捕集されおり、図 7-1、図 7-2 の時間変化の傾向はルツボからの放出速度の時間変化に近いものであると考えられるが、そのままルツボからの Cs の放出速度評価に使用できるものではない。

4.FP の分類、評価モデル

FP の分類、FP 放出挙動を評価するためのモデル等について以下に述べる。

4.1 FP の分類

FBR のソースターム評価上の FP の分類例⁵⁾および分類された各グループに属する FP 元素に対し軽水炉用 UO₂ 燃料用に提案されている放出メカニズム⁶⁾を表 5 に示す。

今回の実験でルツボからの放出が確認されたグループ 6 に属する Ru およびグループ 7 に属する Eu については、軽水炉の知見⁶⁾を参考として、ペレット表面からの蒸発が律速すると考えられるが、今回の評価ではこのモデルによる評価は行わず、固体拡散を考慮する Booth モデルでの拡散係数を評価した。

4.2 NUREG-0772 モデル²⁾

軽水炉用燃料からの FP 放出挙動に関する実験データを基に、燃料温度と FP 放出速度定数（単位時間あたりの FP 放出割合：fraction/min）としてフィッティングした相関式であり、米国 NRC により事故時の燃料からの FP 放出速度評価式として推奨されていたものである。放出速度係数算出のための定数の値を表 6 に示す。

$$\Delta F = 1 - \exp[-k(T) \cdot \Delta t] \quad (1)$$

Δt : 時間 (min)

ΔF : Δt あたりの FP 放出割合変化

$k(T)$: FP の放出速度係数

$$= A \cdot \exp(B \cdot T)$$

A : 定数 (1/min)

B : 定数 (1/°C)

T : 燃料温度 (°C)

また、温度変化が線形で、 $T = a+bt$ で表される場合は次式で表される。

$$\Delta F = 1 - \exp\{[K/C] \cdot [1 - \exp(C \cdot \Delta t)]\} \quad (2)$$

$$K := A \exp(B \cdot a)$$

$$C := B \cdot b$$

同様なモデルとして、CORSOR、CORSOR-Mなどがある⁷⁾。

4.3 Booth の等価球モデル (固体拡散モデル)^{3),8)}

燃料の結晶粒をすべて径が等価な球とみなし、結晶粒表面での FP 濃度をゼロとにおいて、結晶粒内の FP の拡散を考慮するモデルである。一般に一次元球対象の拡散方程式を解くことにより得られる以下の式が使用されている。

$$\begin{aligned} F_d &= 6 (Dt/\pi a^2)^{1/2} - 3 Dt/a^2 & (Dt/a^2 \leq 1/\pi^2) \\ F_d &= 1 - 6/\pi^2 \exp(-\pi^2 Dt/a^2) & (Dt/a^2 > 1/\pi^2) \end{aligned} \quad (3)$$

F_d : 固体拡散による FP の放出割合 (-)

D : 結晶粒内の FP の拡散係数 (cm^2/s)

a : 結晶粒の等価径 (等価径 : cm)

t : 時間 (s)

FP 放出実験では、FP の放出割合 (F_d 等) とそれに対応する測定時刻がわかるため、結晶粒径がわかれば、拡散係数 (D) が算出できる。

結晶粒の等価径は、窒素、クリプトン等を用いた気体吸着法 (BET 法) により測定される BET 吸着表面積 (または比表面積) を用いて、以下のように算出される^{3),9)}。

$$\begin{aligned} a &= 3 m/S d \\ &= 3 / S' d \end{aligned} \quad (4)$$

S : BET 表面積 (cm^2)

m : 質量 (g)

D : 理論密度 (g/cm^3)

S' : BET 吸着比表面積 (= S / m)

BET 吸着表面積は、結晶粒の表面の凹凸の影響により、幾何学的表面積より大きくなる。このため、(3)式より算出される結晶粒径（等価径）は、金相組織写真等から幾何学的に算出されたものよりも小さくなる⁹⁾。また、BET 吸着表面積はその測定原理から考えて、吸着されるガス分子の大きさによって異なるものと考えられる。

MOX 燃料の結晶粒径を BET 吸着法で測定した例としては、Findlay らが未照射ペレットを粉砕し、Kr ガスを使用して測定したものがあり¹⁰⁾、文献に記載されているデータから算出した粒径は約 20 μm であった。Findlay らの BET 吸着表面積から今回算出した等価直径を表 7 に示す。

しかし、評価対象の FP の燃料ペレット内での分布が一様でない場合には、FP の存在割合が高い部分の結晶粒径が FP 放出に与える影響が大きくなるため、結晶粒径分布と FP の分布を考慮して等価直径を算出することが必要になると考えられる。

以上から、Booth モデルで使用すべき等価径は、基本的には評価対象とする FP 元素と同様な分子径（原子径）を持つガスにより測定した BET 表面積から算出すべきものであるが、燃料ペレット内での結晶粒径分布および FP 分布を考慮した補正も必要であると考えられる。

しかし、今回の実験（FP-1、FP-2）で使用した燃料と同様な照射履歴等を持つ MOX 燃料について、BET 吸着法による表面積測定を行った結果を入手することができなかつたため、今回の評価では、同様な照射履歴を持つ燃料の金相組織写真から求めた径方向分布を考慮した幾何学的な平均径に、ペレット内での Cs 分布に対する補正を加えて算出した径を使用した。軽水炉分野でも、試験前や試験後の金属写真から求めた幾何学的な径を使用して拡散係数を評価した例が見られる^{7),8)}。

4.4 その他のモデル

4.4.1 ペレット表面からの蒸発モデル

表 5 に既に示したように、揮発性が低い FP 元素および化合物の場合、燃料ペレットからの放出モデルとしては、ペレット表面からの蒸発を考慮した下記のようなモデルが提案されている⁶⁾。低揮発性 FP 元素等の場合には、結晶粒内の FP 原子の拡散速度よりも、ペレット表面からの蒸発速度が遅くなるため、ペレットからの放出速度は表面からの蒸発速度が律速となるためである。

$$R_i = S \gamma_i N_A \{ k_{im} (\chi_{is} - \chi_{i\infty}) \} \quad (5)$$

R_i : 放出速度 (atoms/s)

S : ペレット表面積 (m^2)

k_{im} : 質量移行係数 ($mol/m^2 s$)

χ_{is} : ペレット表面での FP (及び化合物) のモル分率 ($= p_{iv}/p_T$)

$\chi_{i\infty}$: キャリアガス中での FPi のモル分率 ($\doteq 0$)

γ_i : 分子あたりの FPi の数

N_A : アボガドロ数 ($= 6.022 \times 10^{23} /mol$)

ペレット表面に付着している Cs 等の場合にも、このモデルが適用できると考えられる。

ペレット内の固体拡散速度とペレット表面から蒸発速度があまり変わらない場合には、2つのメカニズムに対応する放出割合を別個に算出し、得られた2つの放出割合から以下のように全放出割合を算出する方法も提案されている⁶⁾。

$$1/F = 1/F_d + 1/F_v \quad (6)$$

F : ペレットからの FP の全放出割合

F_v : 蒸発による FP 放出割合

4.4.2 溶融燃料からの FP 放出モデル⁷⁾

燃料が溶解すれば、結晶粒は消滅し、Booth モデルのような固体中の FP 拡散を考慮したモデルは適用できない。

軽水炉の事故時に形成される (U, Zr) O_2 プールからの FP 放出については、希ガスおよび揮発性 FP については VICTORIA コード等で取扱われているような気泡放出が、中低揮発性 FP については FP の化学形および濃度が主な支配的な放出になると言われている⁷⁾。高速炉用の MOX 燃料についても、燃料溶融時には同様なメカニズムになる可能性が高いと考えられる。

実際に解析コード等で計算する場合には、希ガス、揮発性 FP の放出については燃料が溶融した時点で全 FP が放出される、瞬時放出モデルがよく用いられる

方法である。

また、不揮発性 FP の場合には、燃料マトリックスの蒸発による FP の濃縮が考慮される場合もある。

5. FP 放出挙動の評価

5.1 実験での FP 放出割合と NUREG-0772 モデルによる計算結果との比較

5.1.1 評価方法

FP-1、FP-2 についてそれぞれ図 8 に示すように、加熱過程を 4 つの領域に分割し、以下のような方法で放出割合を算出した。

(1)昇温過程 1 : この過程開始時には $F_0=0$ として、(2)式を使用して過程終了時の放出割合 F_1 を算出した。

$$F_1 = F_0 + \Delta F_1 \quad (7)$$

F_0 : 初期放出割合 (= 0)

F_1 : 昇温過程 1 終了時放出割合

ΔF_1 : 昇温過程 1 の間に放出される割合 ((2)式により算出)

(2)温度保持過程 1 : 昇温過程 1 終了時点での放出割合 F_1 および(1)式を使用して過程終了時の放出割合 F_2 を算出した。

$$F_2 = F_1 + (1 - F_1) \times \Delta F_2 \quad (8)$$

(3)昇温過程 2 : (2)式を使用し、(8)式と同様にして、過程終了時の放出割合 (F_3) を求めた。

(4)温度保持過程 2 : (1)式を使用し、(8)式と同様にして、過程終了時の放出割合 (F_4) を求めた。

今回の評価で使用した NUREG-0772 モデル用定数をまとめて表 8 に示す。ただし、Eu については、Clad (Zr, Sn) のデータを使用した。

5.1.2 評価結果

NUREG-0772 モデルによる FP-1、FP-2 の放出割合の計算結果をそれぞれ表 9-1、表 9-2 および図 9-1、図 9-2 に示す。以下に概要を述べる。

(1) Cs

1,500℃(FP-2、加熱時間 30 分)では、実験結果は NUREG-0772 モデルによる計算結果の 1.92 倍の放出割合であるが、2,000℃(FP-1、加熱時間 30 分)では、逆に実験結果は NUREG-0772 モデルによる計算結果の 0.62 倍となっている。

また、加熱終了後の放出割合は FP-1(2,000℃、3,000℃でそれぞれ 30 分加熱)、FP-2(1,500℃、2,500℃でそれぞれ 30 分加熱)ともに実験、NUREG-0772 モデルの両方で 100%である。

実験での放出割合が 1,500℃では NUREG-0772 モデルよりも大きく、2,000℃では小さくなっている原因については、ペレット表面に存在していた Cs の蒸発の影響等が考えられるが、この現象を明らかにするためには、まず 6 章に述べるように、ペレット表面での Cs の存在割合、化学形態等を特定する必要があると考えられる。

(2) Sb

1,500℃(FP-2、加熱時間 30 分)、2,000℃(FP-1、加熱時間 30 分)では、実験での放出割合はゼロであり、NUREG-0772 モデルではそれぞれの温度で $6.66\text{E}-3$ 、 $1.71\text{E}-1$ であり、実験結果より大きくなっている。

また、加熱終了後の放出割合は FP-1(2,000℃、3,000℃でそれぞれ 30 分加熱)では、実験が NUREG-0772 モデルの 2.10 倍であり、FP-2(1,500℃、2,500℃でそれぞれ 30 分加熱)では、実験結果が、NUREG-0772 モデルの 9.61 倍となっている。

実験結果の温度依存性が NUREG-0772 モデルと異なる原因としては、5.2 項の拡散係数評価結果で述べるように、燃料中およびキャリアガス中の雰囲気が酸化雰囲気に近いことも影響している可能性もあるが、原因特定のためには、キャリアガス中の酸素ポテンシャル評価に加え、特に 2,000℃～2,500℃での燃料ペレット中の Sb の化学的・物理的な存在状態を評価する必要があると考えられる

(3) Ru、Eu

Ru、Eu では実験終了後の実験結果のみが、NUREG-0772 モデルと比較可能である。

FP-1 (2,000°C、3,000°Cでそれぞれ 30 分加熱) では、実験結果は NUREG-0772 モデルの 1.20 倍、FP-2 (1,500°C、2,500°Cでそれぞれ 30 分加熱) では 7.26 倍となっている。

Eu では実験終了後の実験結果のみが、NUREG-0772 モデルと比較可能である。FP-1 (2,000°C、3,000°Cでそれぞれ 30 分加熱) では、実験結果はゼロであるため NUREG-0772 モデルとの比較は不可能である。FP-2 (1,500°C、2,500°Cでそれぞれ 30 分加熱) では実験結果は NUREG-0772 モデルの 132.45 倍となっている。

NUREG-0772 モデルによる計算結果は実験結果と数値的に大きく異なるが、Ru の放出割合が高く、Eu の放出割合が低いという今回の実験結果は、6 章に述べるように、酸化雰囲気での他の実験結果に近いものである。放出挙動をより詳細に評価するためには、Sb の場合と同様に、キャリアガス中酸素ポテンシャルの評価や燃料ペレット内およびキャリアガス中での FP 化学形態の評価が必要である。

5.2 Booth モデルで使用すべき、結晶粒径、拡散係数の評価

実験で取得された放出割合データのうち、拡散係数評価での使用の有無をまとめて表 10 に示す。また、今回の評価で使用した結晶粒径は組織写真から得られたものであり、本来使用すべき BET 吸着法により測定されたものではない。このため、今回算出された拡散係数はあくまで暫定値である。

5.2.1 ペレット結晶粒径の評価

今回の実験で使用したペレット (PFD549 集合体、L001 および LOC72 ピン) の結晶粒径については測定されていない。このため、Booth モデルに適用すべき結晶粒径は、同様な照射履歴を持つ燃料集合体 PFD306 の E96452 試料について測定された結晶粒径分布および PFD080 集合体の H71042 試料について測定されたペレット内の Cs 分布¹¹⁾の結果を使用して以下のように算出した。

(1) 結晶粒径分布

上記のように、Booth の拡散モデルで使用すべき結晶粒径は、本来は BET 吸着法で測定されたデータを基本とすべきものであるが、BET 吸着法で測定したデータは入手できなかった。このため、同様の照射履歴を持つ PFD306 集合体 (燃焼度 63.9Gwd/t) の E96452 試料の金属組織写真から (図 10 に示す)、米国 National

Institutes of Health (NIH) 作成の画像処理ソフト (NIH Image)¹²⁾ を使用して幾何学的な等価径を測定した。

測定にあたっては、図 10 に示した写真を径方向に 11 の領域に分割し、それぞれの領域での平均粒径を求めた。測定結果を表 11 にまとめて示す。

(2) Booth モデルに適用した平均粒径の算出

燃料ペレット内の Cs の存在分布については、今回の実験で使用した燃料については測定されていないが、同様な照射履歴を持つ PFD080 集合体の H71042 試料 (燃焼度 86.7GWd/t) については測定が行われており、表 12 および図 11¹¹⁾ に示すように、ペレット内 Cs 分布は一様ではなく、周辺部に存在する割合が多くなっている。

このため、Booth モデルに適用すべき結晶粒径は上項で算出した平均径ではなく、ペレット内の Cs 分布と粒径分布を考慮して算出すべきであると考えられ、上記図 10 に示した 11 の各領域内での平均粒径と図 11 に示した Cs 分布を使用し、次式によって結晶粒の個数平均の径を算出した。算出された平均粒径は 3.35 μm であった。

$$a_b = \sum_i a_i \cdot c_i \quad (9)$$

a_b : Booth モデルに適用した粒径

i : 分割した領域の No.

a_i : 分割した各領域の平均粒径

c_i : 分割した各領域に存在する Cs の割合 (= Cs 相対濃度 \times 結晶粒数から算出される割合)

5.2.2 Cs の拡散係数の算出

表 10 に示したように、FP-1 の 3,000 $^{\circ}\text{C}$ および FP-2 の 2,500 $^{\circ}\text{C}$ では、温度プラトー終了時の Cs の放出割合はほぼ 100% であり、Cs の放出終了時刻が特定できない。このため、3,000 $^{\circ}\text{C}$ および 2,500 $^{\circ}\text{C}$ での拡散係数等の算出は不可能である。このため、ここでは時刻歴の放出プロファイルが得られている 1,500 $^{\circ}\text{C}$ (FP-2)、2,000 $^{\circ}\text{C}$ (FP-1) の結果について評価を行った。

Cs の放出初期には、Cs の固体拡散放出に加え、ペレット表面に付着した Cs

の蒸発放出およびその他のメカニズムによる放出が起こるため、固体拡散に関する拡散係数の算出は温度プラトー後半のデータを用いて行うのが正しい方法である⁹⁾。しかし、燃料ペレット表面に存在する Cs の量、化学形態、蒸発形態が不明であることから、今回の実験結果で得られた放出割合を、固体拡散、蒸発放出に対応するものに分離して定量的に評価することは不可能である。また、他の元素の評価方法との整合を取り、ソースターム評価上利用可能な形に整理するためには、固体拡散のみを考慮した評価が妥当であると考えられる。

これらのことから、拡散係数が算出可能な 1,500℃および 2,000℃について、温度プラトー終了時の放出割合を用いて参考値を算出した。結晶粒径としては、5.2.1 項で求めた平均粒径を使用し、加熱開始時の放出割合（ゼロ）と温度プラトー終了時刻での放出割合を Booth モデル式（(2)式）に代入し、繰り返し計算により拡散係数を算出した。算出した Cs の拡散係数を表 13 に示す。また、Booth モデルで得られる Cs の放出プロファイルを FP-1、FP-2 の焼結金属フィルタ部での時刻歴の Cs 捕集量から推定したプロファイルとともにそれぞれ図 12-1、図 12-2 に示す。図中の「A 系統焼結金属フィルタ部での測定結果から推定したプロファイル」は、「A 系統焼結金属フィルタ部での Cs 捕集プロファイル」に「(温度勾配管+焼結金属フィルタ)の Cs 捕集量 / (焼結金属フィルタ)の Cs 捕集量」の比率を乗じて、ルツボからの Cs 放出プロファイルを推定したものである。

さらに、算出された拡散係数を図 13 に Oak Ridge National Laboratory（以下 ORNL と略す）で実施された実験結果（HI および VI 実験シリーズ）¹³⁾とともに示す。2,000℃での拡散係数は ORNL の実験結果とほぼ等しいが、1,500℃では ORNL の結果を大きく上回っている。1,500℃での拡散係数が大きい原因としては、ペレット表面に付着した Cs 化合物割合が ORNL で使用された燃料より大きいことが考えられ、ペレット表面に存在する Cs 量等の評価が必要であると考えられる。

また、図 13 では、ORNL の結果が酸化雰囲気 (H_2O) と還元雰囲気 (H_2) で異なるように見えるが、一般には Cs 等の揮発性 FP の放出に関して雰囲気の影響は少ないと言われており、図 13 を今回の実験装置内での雰囲気の判断材料にはできないと考えられる。

5.2.3 Sb の拡散係数の算出

表 10 からわかるように、拡散係数算出に使用できる放出割合データは FP-2 の 2,500℃での温度プラトー時のもののみである。結晶粒径としては、5.2.1 項で Cs 用に求めた平均粒径を使用し、加熱開始時の放出割合（ゼロ）と温度プラトー終了時刻での Sb の放出割合を Booth モデル式（(2)式）に代入し、繰り返し計算により拡散係数を算出した。算出した Sb の拡散係数を表 13 に示す。

算出された拡散係数を図 14 に ORNL の結果¹³⁾とともに示す。今回算出された拡散係数は、ORNL の実験結果のほぼ中間に位置することがわかる。

5.2.4 Ru の拡散係数の算出

表 10 からわかるように、拡散係数算出に使用できる放出割合データは FP-1、FP-2 での実験前後の放出割合の差から得られるもののみである。このため、FP-1、FP-2 のそれぞれ、2,000℃、1,500℃の温度プラトー部での放出量を含んだ評価となっている。結晶粒径としては、5.2.1 項で Cs 用に求めた平均粒径を使用した。算出した Ru の拡散係数を表 13 に示す。

算出された拡散係数を図 15 に ORNL の酸化雰囲気（H₂O）での結果¹³⁾とともに示す。今回の実験での拡散係数は、ORNL の酸化雰囲気での実験結果から得られた拡散係数のうち大きめのものに近く、6 章にも述べるように、揮発性の酸化 Ru が生成していた可能性が考えられる。

5.2.5 Eu の拡散係数の算出

表 10 からわかるように、拡散係数算出に使用できる放出割合データは FP-2 での実験前後の放出割合の差から得られるもののみである。このため、1,500℃の温度プラトー部での放出量を含んだ評価となっている。結晶粒径としては、5.2.1 項で Cs 用に求めた平均粒径を使用した。算出した Ru の拡散係数を表 13 に示す。

算出された拡散係数を図 16 に ORNL の結果¹³⁾とともに示す。ORNL の実験結果と比較した場合には中位にあることがわかる。

6. 考察

6.1 Csの放出挙動

5章の評価では、燃料ペレット表面に付着したCsの存在は考慮せず、ペレット結晶粒内からの固体拡散放出のみを考慮した。

しかし、前田等の知見¹⁴⁾では、ペレット表面に存在するCsはMo等との化合物(Cs_2MoO_4)を生成する可能性が指摘されており、加熱時には、蒸発等の固体拡散とは異なるメカニズムで放出されると考えられる。

また、ペレットから放出された後のキャリアガス中でのCsの化学形態等についても下記のようにCs単体、CsI、 Cs_2O 等が考えられ、温度勾配管および焼結金属フィルタへの付着プロファイルに影響を与えているものと考えられる。

これまでに上記項目に関係する情報の収集を行ってきたが、評価に反映できるまでには至っていない。ここでは、収集した情報および考察した結果についてまとめる。

6.1.1 ペレット表面に存在するCs量および化学形態等

(1) ペレット表面に存在するCs量および固体Cs化合物の化学形態

今回の実験で使用した燃料ペレットについては、ペレット表面に存在するCs量は測定されておらず、ペレット内および表面に存在する全Cs量に対する割合も不明であるが、今回の実験で使用したPFD549集合体のピンパンクチャー実験結果では、Xeのインベントリのうち29.8%がプレナム中に放出されていること等から、約7割がペレット中に保持されていたとされている¹¹⁾。

また、ORNLで軽水炉燃料を使用して実施されたHBU-12(加熱温度700℃~1,200℃)、BWR-4(加熱温度700℃~1,100℃)⁴⁾でも加熱試験前にプレナムへ放出された希ガス(Kr)の割合とCsのギャップインベントリがほぼ一致していると推定している。

ペレット表面に存在する固体Cs化合物の化学形は、図17に示す前田らの測定結果¹⁴⁾等から Cs_2MoO_4 である可能性が高いものと考えられ、 Cs_2MoO_4 の融点が $1,229.5 \pm 0.2K$ (965.35℃)と高いこと¹⁵⁾から比較的高温まで、液体の Cs_2MoO_4 として存在することが考えられる。しかし、図17からわかるように、酸化物相(oxide layer)内の被覆管側ではMoの割合が高く、図18の Cs_2MoO_4 - MoO_3 系の状態図¹⁵⁾よりCs化合物の融点が800K以下に低下する可能性もあると考えられるため、酸化物相の化学的な特性を特定するのは難しい。

また、キャリアガス中にナトリウム（以下 Na と略す）蒸気が存在するような条件ではキャリアガス中の酸素ポテンシャルが低下して Cs_2MoO_4 が還元され、揮発性の Cs 単体蒸気が生成して、放出が起こりやすくなる可能性が考えられる。

(2) 結晶粒界に存在する Cs について

使用済の軽水炉（LWR）用燃料の炉外加熱実験では、拡散理論に基づく放出より非常に早い放出はよく見られる現象であり⁷⁾、Peehs らによる使用済 UO_2 燃料の小サンプルの Knudsen セルによる加熱実験では、粒界に存在する FP（I、Cs）の加熱初期のバースト状放出とそれに続く緩やかな拡散放出が報告されている。

しかし、今回使用した燃料ペレットでは、粒界に存在する Cs 量は不明であり、照射量の増加に伴いペレット外周部に存在した Cs がペレット表面（燃料-被覆管ギャップ部）に移動するメカニズムも考慮すれば¹⁴⁾、粒界に存在する量は小さいものと考えられる。

(3) 蒸発気体の化学形態

今回の実験では、図 3-1、図 3-2 に示すように、温度勾配管の 600℃ 近傍から 100℃ 近傍までの広い範囲にほぼ均等に Cs の付着が見られ、また、最も高温の 700℃ 以上の部分にも少量の付着が見られる。

今回の実験に先立ち実施された CsI を使用した予備試験結果を図 19 に示すが、今回の実験結果とほぼ同じ付着プロファイルとなっている。しかし、今回の実験に使用した燃料中（9.55g 中）の I、Cs の全インベントリ量を ORIGEN-2 により計算した結果では、それぞれ $4.60\text{E}-5$ mol、 $4.91\text{E}-4$ mol¹⁾ となっており、Cs の中で CsI として存在する割合は高々 10% であろうと考えられる。

今回の実験と同様に希ガス（Purified Helium）中で実施された ORNL の HBU-12、BWR-4⁴⁾ では、温度勾配管の 500℃～350℃ の間にピークが見られることから、高揮発性の Cs 単体ではなく、CsI（融点は約 630℃⁴⁾）か Cs_2O （融点は約 495℃⁴⁾）等の酸化物であると推測されており、高揮発性の単体 Cs であれば、より温度の低い温度勾配管の下流部、フィルタ部等で捕集されるはずであると述べられている。 Cs_2O 生成の可能性を評価するためには、キャリアガス中に含まれる不純物酸素や、MOX 燃料中の酸素の影響を考慮した酸素ポテンシャルの評価が必要であると考えられる。

また、蒸発気体の化学種に Cs_2MoO_4 が含まれた場合には、融点が $1,229.5 \pm 0.2\text{K}$

(965.35°C) と高いことから温度勾配管の上流側の高温部(750°C)での付着が起こると考えられる。1,070K~1,170K で測定された Cs₂MoO₄ の飽和蒸気圧¹⁵⁾を次式に示すが、1,500°C、2,000°Cでの飽和蒸気圧は、それぞれ、0.049 atm、2.65 atm となり、Cs₂MoO₄ 蒸気の生成の可能性も否定できない。

$$\log (p/\text{atm}) = -13,984 (T/\text{K})^{-1} + 6.5752 \quad (10)$$

これらのことから、温度勾配管内面へ付着した Cs の化学形態としては、高揮発性の Cs 単体、それほど揮発性の高くない CsI、Cs₂O 等の酸化物、低揮発性の Cs₂MoO₄ 等の複数の化学種の蒸気を考慮する必要があると考えられ、付着プロファイルのみから化学種の存在割合を特定することは不可能である。今後の実験においては、温度勾配管に付着した Cs の化学形態を特定するための分析手法の検討が必要であると考えられる。

また、ペレット表面に付着した Cs の場合と同様に、キャリアガス中に Na 蒸気が存在する場合には Cs₂O が還元されて Cs 単体蒸気の比率が増加する可能性が考えられる。

6.1.2 温度勾配管、焼結金属フィルタへの付着挙動について

FP の温度勾配管、焼結金属フィルタへの付着プロファイルの評価を可能にするためには、6.1.1 項で述べたような化学形態に関する評価とともに、FP 蒸気のキャリアガス内での移行挙動、高融点化合物のエアロゾル生成量等について検討する必要がある。

このため、ここでは、従来からある温度勾配管への FP 付着挙動評価モデルの概要を述べるとともに、エアロゾル生成の影響について考察した結果をまとめた。

(1) 温度勾配管への FP 付着挙動評価モデル

温度勾配管への付着挙動を評価するモデルとしては、今までに以下のようなものが提案されている¹⁶⁾。

- (a) 単純温度勾配管モデル
- (b) 温度勾配管内ガス空間の断面方向拡散を考慮したモデル

(a) の単純温度勾配管モデルでは、キャリアガス中の FP の蒸気濃度が、温度勾配管各部の温度での FP 飽和蒸気圧を超えた場合に凝縮が起こるとするものであり、キャリアガス中から温度勾配管内面への FP 蒸気の拡散速度を考慮しないため、凝縮開始点近傍に集中的に付着するプロファイルとなる。このため、**図 3-1**、**図 3-2** に示した今回の実験のような下流の低温側に長くのびたプロファイルは再現できない。

(b) のモデルは、温度勾配管内ガス空間の断面方向の FP 蒸気の拡散を考慮するモデルであり、次式のように表される。

$$D \left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial}{\partial r} \right) \right] (p\rho) - \left(\frac{\partial}{\partial x} \right) (p\rho v) = 0 \quad (11)$$

ρ : ガス密度 (mol/m³)

D : キャリアガス中での FP の拡散係数

v : 軸方向のキャリアガス流量 ($\rho v = 2q(a^2 - r^2)/\pi a^4$)

q : キャリアガス流量

a : 温度勾配管の径

x : 軸方向座標

r : 径方向座標

このモデルでは、温度勾配管内ガス空間の断面方向の FP ガス拡散速度と温度勾配管下流側へのキャリアガスによる FP 輸送速度の大小関係によって、付着プロファイルが決まり、今回のように下流側に長くのびたプロファイルを再現することも可能である。しかし、エアロゾル生成の影響が大きい場合（拡散速度が小さくなる等）には、この影響を考慮できるように改良する必要がある。

(2) キャリアガス中での FP の拡散係数

6.1.1 項に述べたように、燃料から放出された Cs 蒸気の化学形は Cs₂MoO₄ や Cs 酸化物 (Cs₂O 等) を含み、分子径が Cs 単体蒸気に比べ分子量が大きくなるため、次式⁶⁾からわかるように、キャリアガス中での拡散係数は小さくなるものと考えられる。

$$D_{AB} = 1.8583 \times 10^{-3} T^{3/2} (1/M_A + 1/M_B)^{1/2} / P \sigma_{AB}^2 \Omega_{AB} \quad (12)$$

D_{AB} : 相互拡散係数 (cm^2/s)

M_A 、 M_B : 分子量 (原子量)

P : 圧力 (N/m^2)

$$\sigma_{AB} = 1/2 (\sigma_A + \sigma_B) \xi^{-1/6}$$

ξ : 補正係数

$$\Omega_{DAB} = 1 / \{0.7049 + 0.2910 \ln(\kappa T / \varepsilon_{AB})\}$$

$$\varepsilon_{AB} = (\varepsilon_A \varepsilon_B)^{1/2} \xi^2$$

$$\varepsilon / \kappa = 1.15 T_b \text{ (liquid)}, 1.92 T_m \text{ (solid)}$$

$$\sigma = 1.166 V_b^{1/3} \text{ (liquid)}, 1.222 V_m^{1/3} \text{ (solid)}$$

T_b, T_m : 沸点、融点 (K)

V_b, V_m : 沸点、融点での体積 (cm^3/mol)

また、キャリアガスと温度勾配管内面の温度差が大きくなるような場合には、エアロゾルの温度勾配管への付着メカニズムとして熱泳動を考慮する必要があると考えられる。

(3) Cs 化合物のエアロゾル生成について

6.1.1 項に述べたように、燃料から放出された Cs の蒸気の化学形態は融点が約 $1,200^\circ\text{C}$ の Cs_2MoO_4 、約 630°C (903.5K) の CsI や約 495°C (768K) の Cs_2O 等を含むため、温度勾配管の比較的上流側で凝縮してエアロゾル化する可能性が考えられる。図 4-1、図 4-2 に示すように、焼結金属フィルタに付着したエアロゾル粒径が大きい ($43\mu\text{m}$ のエレメントに付着したものが最も多い) ことからこの推定は妥当であると考えられる。また上流側で生成した高融点 Cs 化合物のエアロゾルが核になり、Cs 単体蒸気の凝縮が起こった可能性も考えられる。これらの現象の影響により、温度勾配管での Cs 捕集割合が約 3 割と低くなった可能性も考えられる。

また、(11)式に示したモデル式からもわかるように、キャリアガスの流量が温度勾配管断面内での拡散速度に比べて大きい場合には、キャリアガス内の FP 蒸気圧が過飽和になった状態で下流の低温側に輸送されるため、エアロゾル生成が起りやすくなると考えられる。

これらのことから、今後の実験において温度勾配管での FP の捕集効率を上げるためには、キャリアガス流量を小さくして低温側に輸送される FP 量を減少させ、FP 蒸気の過飽和度を小さくして、エアロゾル生成を抑えることが有効であると考えられる。

6.2 Sb の放出挙動

5章に述べたように、今回の実験結果から算出した拡散係数は ORNL 実験の中でも高めの酸化雰囲気での結果に近いものとなっている。また、Sb 単体での融点は 903K(630°C)、沸点は 1,908K(1,635°C)であることから⁵⁾、Sb 単体蒸気による放出を仮定すると今回の実験の 2,000°Cでの放出割合(ゼロ)は小さすぎると考えられる。さらに、高速炉の MOX 燃料中では、Sb は金属(合金)相を形成する¹⁷⁾とされており、合金化によって蒸気圧が低下し、放出量が減少した可能性も考えられる。

今後は、燃料中の酸素ポテンシャル、Sb の化学形態、蒸気圧等についてさらに調査する必要があると考えられる。

6.3 Ru、Eu の放出挙動

(1) 他の実験結果との比較

今回の実験結果では、2,500°C、3,000°Cともに、Ru の放出割合が Eu の放出割合に比べ相対的に高くなっている。

表 15 に他の実験結果の一覧を示すが、 H_2O が主成分の酸化雰囲気の場合には Eu の放出割合が低くほとんど放出されず、 H_2 のみの還元雰囲気の場合には Eu の放出割合が高くなっている。これは、酸化雰囲気では燃料中に揮発性の低い Eu_2O_3 で存在するため放出しにくくなっているが、還元性雰囲気では Eu_2O_3 が還元されて放出されやすい化学形に変化するためであると言われている⁶⁾。また、図 15、図 16 に示すように、拡散係数は ORNL の結果のうち、Ru は酸化条件の結果に近く、Eu は酸化・還元条件の中間に位置している。

これらの事実や温度勾配管内で Cs_2O の生成の可能性があることも併せて考えると、図 20 からわかるようにキャリアガス内の酸素ポテンシャルはかなり高いものと考えられる。酸素ポテンシャルが高い場合には、キャリアガス中の Ru、Eu は酸化物である可能性が高い。

(2) Ru の放出挙動

Ru については、単体での融点は約 2,700K (2,427°C)、沸点は 4,392K (4,119°C) と非常に高くなっていることから、今回の 10%程度の高い放出割合を考えると、上記のように揮発性の酸化物の形成が考えられる。気体状の Ru 酸化物の化学形態は、2,000K までは $\text{RuO}_3(\text{g})$ 、 $\text{RuO}_4(\text{g})$ であり、さらに高温では $\text{RuO}_2(\text{g})$ 、 $\text{RuO}(\text{g})$ 等であると言われている¹⁵⁾。図 20 からわかるように、高温ではこれら酸化物を生成するためには非常に高い酸素ポテンシャルを必要とする。また、還元性雰囲気では上記のように揮発性の低い Ru 単体に変化し、放出割合も低下する可能性が考えられる。

(3) Eu の放出挙動

Eu は燃料マトリックス中で固溶していると言われているが、酸化物の生成に必要な酸素ポテンシャルが低く、化学形としては Eu_2O_3 等の酸化物に近いものと考えられる⁶⁾。

ガス状 Eu 酸化物の化学種は、マススペクトロメトリーにより測定された結果では、 EuO 、 Eu_2O_2 、 Eu_2O があり、固体の Eu_2O_3 上では、 EuO が主要な化学種であると述べられている¹⁵⁾。

(1)項でも述べたように、今回の実験結果での Eu の低い放出率は、酸化雰囲気での他の実験結果の傾向と一致するものである。

(4) 放出メカニズムについて

これら低揮発性の元素については、軽水炉燃料では、燃料ペレット結晶粒内の固体拡散よりも、ペレット表面からの蒸発が律速になると言われている⁶⁾。今回の実験で使用した FBR 用の MOX 燃料で同様なメカニズムが律速となるかどうかを確認するためには、これら FP の時刻歴の放出プロファイルを測定し、(4)式のような時間に依存しない一定の放出速度となることを確認する必要がある。

また、(4)式を使用して蒸発速度を評価するためには、FP 蒸気の化学種を特定し、飽和蒸気圧やキャリアガス中での拡散係数等のデータを入手する必要がある。

燃料が融点以上の温度で溶融した場合には、FP の化学的・物理的な存在状態が変化すると考えられる。基本的な放出メカニズムは溶融プール中からの高揮発性酸化物としての蒸発放出や燃料マトリックスの放出に伴うエアロゾル状で

の放出であると考えられるが、**図 20** からわかるように、高温での Ru 酸化物生成のためには高い酸素ポテンシャルを必要とするため、溶融した燃料中では Ru 単体で存在し、放出量が低くなる可能性も考えられる。

今回の実験のうち、燃料の融点 (2,677°C : 燃焼度約 65GWd/t) 以上の 3,000°C (FP-1) では、燃料は溶融状態にあると考えられる。溶融状態の燃料からの Ru、Eu の蒸発メカニズムを特定し、蒸発速度を定量的に評価するためには、溶融燃料中での Ru、Eu の化学形態、高温での蒸気の化学形態、キャリアガス中の酸素ポテンシャル等についてさらに調査を行う必要があると考えられる。

6.4 ソースターム評価への反映

上記の評価結果および考察等から、FP-1、FP-2 実験が不活性実験で実施されたにもかかわらず、Eu 等の放出挙動を考えると、酸素雰囲気での挙動に近いものであると考えられる。このため、今回取得されたデータは、事故時のソースターム評価においては、燃料ペレットからの FP 放出が先行し、その後に冷却材 Na または Na 蒸気と反応するような事象へ反映することができると考えられる。

また、燃料ペレットが Na 蒸気または冷却材 Na と接触した後に FP 放出が起こるような事象に対しては、別途 Na 蒸気 (または H₂) を使用した還元性雰囲気での実験によるデータ取得が必要であると考えられる。

7.まとめ

FP-1 および FP-2 実験で得られた FP 放出割合に関するデータを他の実験結果や NUREG-0772 モデル、Booth モデルの計算結果と比較し、以下のような結論および課題を得た。

- (1) FP-1 および FP-2 実験でルツボからの放出が確認された Cs、Sb、Ru、Eu の放出割合を ORNL 等の実験結果、NUREG-0772 モデルから計算される放出割合と比較し、FP-1、FP-2 実験の FP 放出割合から算出された燃料ペレット内の FP 拡散係数を、ORNL 実験結果から算出された FP の拡散係数と比較した結果、どちらかと言えば従来酸化雰囲気で得られた放出割合、拡散係数等に近いことがわかった。

Na 蒸気等を含む還元性雰囲気では FP の化学形態が今回の実験とは異なり、放出挙動も異なることが考えられるため、別途実験を実施し、放出挙動に関するデータを取得する必要があると考えられる。

- (2) Cs の放出メカニズムとしては、結晶粒内の固体拡散が律速である放出メカニズムに加えて、燃料ペレット表面に付着した Cs 化合物 (Cs_2MoO_4 等) の蒸発放出の影響を考慮する必要がある、低融点の Ru、Eu の放出については、ペレット表面からの蒸発が律速となるメカニズムを検討する必要があると考えられる。

しかし、これらの放出メカニズムを考慮した評価を行うためには、燃料ペレット内での FP の化学形態、キャリアガス中の酸素ポテンシャル、キャリアガス中での FP の化学形態等を別途評価する必要があると考えられる。

- (3) 結晶粒内の FP 拡散係数算出には、組織写真を基に、Cs のペレット内分布を考慮した等価直径を使用した。しかし Booth モデルで本来使用すべき BET 吸着面積から算出された等価径を基本とし、結晶粒径分布、FP 分布による補正を加えた径を使用することが望ましい。
- (4) 温度勾配管、焼結金属フィルタへの Cs の付着プロファイルを評価するためには、キャリアガス中に放出された後の Cs の化学形態 (Cs 単体、CsI、 Cs_2O 、 Cs_2MoO_4) とそれぞれの化学形態の存在比率を明らかにする必要がある。また、比較的融点の高い化合物を含むため、キャリアガス中でのエアロゾル生成の影響も評価する必要がある。

8. 謝辞

本報告書を作成するにあたり、貴重な助言、文献情報を提供して頂いた古屋
廣高九州大学名誉教授に感謝します。

9. 参考文献

- 1) 廣沢孝志、佐藤勇、両角勝文、滑川卓志、高井俊秀、中桐俊男、宮原信哉、「照射 MOX 燃料を用いた FP 放出挙動試験 (試験報告)」、JNC TN9430 2001-002、2001 年 5 月。
- 2) U.S.NRC, “Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents”, NUREG-0772, June 1981.
- 3) A. H. Booth, “A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO₂ Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test,” CRDC-721, January 1960.
- 4) J.L.Collins, M.F.Osborne, R.A.Lorenz, and A.P.Malinauskas, “Fission Product Iodine and Cesium Release Behavior Under Light Water Reactor Accident Conditions,” Nucl. Tech. Vol.81, April 1988.
- 5) R. P. Wichner, R. L. Jolly, Uri Gat, B. R. Rodgers, “Chemical Factors Affecting Fission Product Transport in Severe LMFBR Accidents,” ORNL/TM—9178, October 1984.
- 6) B. J. Lewis, B. Andre, G. Ducros, D. Maro, “A Model for Nonvolatile Fission Product Release during Reactor Accident Conditions,” Nucl. Tech. Vol.116, October 1996.
- 7) A. L. Wright, et al., “Primary System Fission Product Release and Transport,” State-of-the-Art Report to the Committee on the Safety of Nuclear Installations, NUREG/CR-6193, June 1994.
- 8) B.Andre, G.Ducros, J.P.Leveque, M.F.Osborne, R.A.Lorenz, and D. Maro,” Fission Product Releases at Severe Light Water Reactor Accident Conditions: ORNL/CEA Measurements versus Calculations,” Nucl. Tech. Vol.114, April 1996.
- 9) 古屋廣高、「燃料からの核分裂 (F. P) ガス放出挙動 (受託研究)」、PNC ZJ268 82-01.
- 10) J. R. Findlay, M. J. Waterman, R. H. Brooks and R. G. Talor, “The Emission of Fission Products from Uranium-Plutonium Dioxide During Irradiation to High Burn-up,” Journal of Nuclear Materials 35 (1970) 24-34.
- 11) I.Sato, T.Nakagiri, T.Hirosawa, S.Miyahara, and T.Namekawa,” Fission Products Release from Irradiated FBR MOX Fuel during Transient Conditions,” 執筆中.
- 12) 米国 National Institutes of Health (NIH) のホームページ、
<http://rsb.info.nih.gov/nih-image/about.html>

- 13) R. A. Lorenz, M. F. Osborne, "A Summary of ORNL Fission Product Release Tests With Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients," NUREG/CR-6261, July 1995.
- 14) K. Maeda, et al., "Fission Product Behavior in Peripheral Region of FBR Mixed Oxide Fuel Pellet under High Burnup Condition," International Workshop on Interfacial Effects in Quantum Engineering Systems," Mito (1996).
- 15) E. H. P. Cordfunke, R. J. M. Konings, "Thermochemical Data for Reactor Materials and Fission Products," North-Holland Elsevier Science Publishers B.V., 1990.
- 16) D. A. Collins, R. D. Collins, R. Taylor, A. E. McIntosh and W. N. Roys, "The Temperature-Gradient Tube Technique for Characterisation of Released Fission Products," TRG Report 1332 (W), United Kingdom Atomic Energy Authority, 1967.
- 17) J.H.Gittus, J.R.Matthews and P.E.Potter," Safety Fuel Aspects of Behaviour During Faults and Accidents In Pressured Water Reactors and In Liquid Sodium Cooled Fast Breeder Reactors," J.Nucl.Mater.166 (1989) 132-159.

表1 燃料照射実績、重量等

集合体名	PFD549	
照射実績	58.1GWd/t(集合体全体) 75.3 GWd/t (最高)	
ピン名	L001およびL0C72 燃焼度:約65GWd/t	
試料重量	FP-1	9.55g
	FP-2	9.52g

表2 ルツボからのFP放出割合

試験名	核種	エネルギー (keV)	計数率 (cps)		放出率	
			試験前	試験後	(%)	誤差(%)
FP-1	Cs-134	604.6	1209	0	100	±0.0729
	Cs-137	661.7	26955	5	100	±0.0154
	Sb-125	427.9	177	0	100	±0.1902
	Ru-106 ^{*1}	622.2	925	847	8	±0.0070
	Ce-144 ^{*2}	696.7	-	-	-	-
	Eu-154	1274.7	133	133	0	-
	Pm-146	746.0	65	0	100	±0.3132
FP-2	Cs-134	604.6	1736	0	100	±0.0450
	Cs-137	661.7	31512	29	100	±0.0106
	Sb-125	427.9	251	6	98	±0.1156
	Ru-106 ^{*1}	622.2	1116	967	13	±0.0075
	Ce-144 ^{*2}	696.7	118	127	-	-
	Eu-154	1274.7	201	194	4	±0.0048

*1:Rh-106の γ 線を測定*2:Pr-144の γ 線を測定

表3-1 実験後の装置内FP分布 (FP-1)

位置	カウント数 (cps)				
	Sb-125 (427.9 kV)	Cs-134 (604.6 kV)	Ru-106 (622.2 kV)	Cs-137 (661.7 kV)	Eu-154 (1274.7 kV)
るっぽ内	0	0	847 100.00%	5 0.01%	133 100.00%
A系統 (2,000°C)	温度勾配管	0	310 15.49%	0	4812 14.17%
	フィルタ	0	900 44.94%	0	15260 44.93%
B系統 (3,000°C)	温度勾配管	6 42.20%	245 12.22%	0	4113 12.11%
	フィルタ	8 57.80%	547 27.35%	0	9772 28.77%
合計	14	2002	847	33962	133

表3-2 実験後の装置内FP分布 (FP-2)

位置		カウント数 (cps)				
		Sb-125 (427.9 kV)	Cs-134 (604.6 kV)	Ru-106 (622.2 kV)	Cs-137 (661.7 kV)	Eu-154 (1274.7 kV)
A系統 (1,500°C)	るっぽ内	6	0	967 100.00%	29 0.09%	194 100.00%
	温度勾配管	0	150 7.04%	0	2275 6.95%	0
B系統 (2,500°C)	フィルタ	0	233 10.96%	0	3669 11.20%	0
	温度勾配管	19 24.19%	434 20.39%	0	6837 20.88%	0
合計		80	2126	967	32744	194

表5 FPの分類、想定される放出メカニズム

Category No.	Group ^{*1}	Element	放出割合 (%)		解析モデル ^{*2}	
			AGF (FP-1) 3,000°C	AGF (FP-2) 2,500°C		
1	Noble gases	Kr, Xe	Kr (83, 84, 86) Xe (131, 132, 134, 136)	100 100	100 100	固体拡散 (十バースト放出)
2	Halogens	I, Br	—	—	—	固体拡散
3	Alkali metals	Cs, Rb	Cs134 Cs137	100 100	100 100	固体拡散 (十表面からの蒸発)
4	Tellurium	Te, Sb, Se	Sb125	100	98	固体拡散
5	Alkaline earths	Ba, Sr	—	—	—	固体拡散
6	Noble metals	Ru, Rh, Pd, Mo, Tc, Ag	Ru106	8	13	蒸発律速
7	Rare earths (plus Zr, Nb, Y)	La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd plus Y, Zr, Nb	Eu154 Ce144 (Pm146)	0 — 100	4 —	蒸発律速
8	Plutonium	Pu	—	—	—	(蒸発律速)

*1: ORNL/TM-9178による分類

*2: Denis Haro et.al, "A Model for Nonvolatile Fission Product Release During Reactor Accident Conditions", Nucl. Tech. Vol.116, Oct. 1996. を参考とした。

表6 NUREG-0772モデル用定数

元素	1000°C < T ≤ 2200°C		T > 2200°C	
	A	B	A	B
Uranium (UO2)	10 ⁻¹⁴	0.00768	same	same
Clad (Zr, Sn)	4.6 × 10 ⁻¹⁴	0.00768	same	same
Structure (Fe)	3.2 × 10 ⁻¹¹	0.00576	same	same
Ru	1.36 × 10 ⁻¹¹	0.00768	8.49 × 10 ⁻⁷	0.00262
Zr	8.3 × 10 ⁻¹⁰	0.00622	1.44 × 10 ⁻⁵	0.00173
Sr	7.28 × 10 ⁻¹⁰	0.00677	6.40 × 10 ⁻⁷	0.00377
Sb	1.0 × 10 ⁻⁸	0.00667	1.55 × 10 ⁻⁵	0.00303
Te, Ag	2.96 × 10 ⁻⁸	0.00677	1.17 × 10 ⁻⁵	0.00404
Cs, I	1.65 × 10 ⁻⁷	0.00667	1.89 × 10 ⁻⁵	0.00451

表7 MOX燃料ペレットのBET吸着表面積測定結果 (Findlay) および等価直径

試験体No.	試験体名	組成	化学量論比	質量		BET表面積 (cm ² /g)	理論密度 (g/cm ³)	等価直径	
				(mg)	(g)			(cm)	(μ m)
1	A1	25.4% Pu, 74.6% U	2.00	13.1	0.0131	73	10.64	3.86E-03	38.6
2	B	25.4% Pu, 74.6% U	2.00	10.1	0.0101	210	10.64	1.34E-03	13.4
3	A2	14.9% Pu, 85.1% U	2.00	22.2	0.0222	40	10.64	7.05E-03	70.5
4	C	15% Pu, 85% U	2.00	7.2	0.0072	-	-	-	-
								平均	40.8

表8 FP-1、FP-2実験の評価で使用了したNUREG-0772モデル用定数

	昇温過程1			温度保持過程1			昇温過程2*						温度保持過程2	
	0°C->2000°C a=0 b=15*60			2000°C			2000°C->2200°C a=2000 b=15*60			2200°C->3000°C a=2200 b=15*60			3000°C	
FP-1	K	C	A	B	K	C	K	C	K	C	K	C	A	B
Eu	4.6E-14	6.912	4.6E-14	0.00768	2.16E-07	6.912	1E-06	6.912	4.6E-14	0.00768	1E-06	6.912	4.6E-14	0.00768
Ru	1.36E-11	6.912	1.36E-11	0.00768	6.37E-05	6.912	0.000271	6.912	8.49E-07	0.00262	0.000271	2.358	8.49E-07	0.00262
Sb	1E-08	6.003	1E-08	0.00667	0.006216	6.003	0.001217	6.003	1.55E-05	0.00303	0.001217	2.727	1.55E-05	0.00303
Cs	1.65E-07	6.003	1.65E-07	0.00667	0.102559	6.003	0.385063	6.003	1.89E-05	0.00451	0.385063	4.059	1.89E-05	0.00451

	昇温過程1			温度保持過程1			昇温過程2*						温度保持過程2	
	0°C->1500°C a=0 b=15*60			1500°C			1500°C->2200°C a=1500 b=15*60			2200°C->2500°C a=2200 b=15*60			2500°C	
FP-2	K	C	A	B	K	C	K	C	K	C	K	C	A	B
Eu	4.6E-14	6.912	4.6E-14	0.00768	4.63E-09	6.912	1E-06	6.912	4.6E-14	0.00768	1E-06	6.912	4.6E-14	0.00768
Ru	1.36E-11	6.912	1.36E-11	0.00768	1.37E-06	6.912	0.000271	6.912	8.49E-07	0.00262	0.000271	2.358	8.49E-07	0.00262
Sb	1E-08	6.003	1E-08	0.00667	0.000221	6.003	0.001217	6.003	1.55E-05	0.00303	0.001217	2.727	1.55E-05	0.00303
Cs	1.65E-07	6.003	1.65E-07	0.00667	0.003653	6.003	0.385063	6.003	1.89E-05	0.00451	0.385063	4.059	1.89E-05	0.00451

*1:「昇温過程2」においては、NUREG-0772モデルで使用すべき定数A, Bが2200°Cで変わるため、過程を2つに分割して計算した。

表9-1 NUREG-0772モデルによる放出割合計算結果と実験結果の比較(FP-1)

元素名	区分	放出割合(-)			
		0°C→2000°C昇温後	2000°C保持後	2000°C→3000°C昇温後	3000°C保持後
	所要時間(min)	2.2	30.0	1.1	30.0
Eu	NUREG-0772	3.12E-08	6.50E-06	7.40E-05	1.40E-02
	実験結果	-	-	-	0.00
	実験結果/NUREG-0772	-	-	-	0.00
Ru	NUREG-0772	9.22E-06	1.92E-03	2.77E-03	6.65E-02
	実験結果	-	-	-	0.08
	実験結果/NUREG-0772	-	-	-	1.20
Sb	NUREG-0772	1.03E-03	1.71E-01	2.10E-01	4.77E-01
	実験結果	-	0.00	-	1.00
	実験結果/NUREG-0772	-	0.00	-	2.10
Cs	NUREG-0772	1.69E-02	9.55E-01	9.99E-01	1.00E+00
	実験結果	-	0.59	-	1.00
	実験結果/NUREG-0772	-	0.62	-	1.00

表9-2 NUREG-0772モデルによる放出割合計算結果と実験結果の比較(FP-2)

元素名	区分	放出割合(-)				
		0°C->1500°C昇温後	1500°C保持後	1500°C->2500°C昇温後	2500°C保持後	
	所要時間 (min)	1.7	30.0	1.1	30.0	
Eu	NUREG-0772	6.70E-10	1.40E-07	1.59E-06	3.02E-04	
	実験結果	-	-	-	0.04	
	実験結果/NUREG-0772	-	-	-	132.45	
Ru	NUREG-0772	1.98E-07	4.13E-05	2.21E-04	1.79E-02	
	実験結果	-	-	-	0.13	
	実験結果/NUREG-0772	-	-	-	7.26	
Sb	NUREG-0772	3.69E-05	6.66E-03	1.70E-02	1.02E-01	
	実験結果	-	0.00	-	0.98	
	実験結果/NUREG-0772	-	0.00	-	9.61	
Cs	NUREG-0772	6.08E-04	1.04E-01	3.60E-01	1.00E+00	
	実験結果	-	0.20	-	1.00	
	実験結果/NUREG-0772	-	1.92	-	1.00	

表10 拡散係数評価での放出割合データ使用の有無

FP元素名	測定波長	FP-1		FP-2		備考
		2,000°C	3,000°C	1,500°C	2,500°C	
Cs	Cs-134 (604.7kV)	53%	100%	23%	100%	放出割合は試験前後のルツボ内Cs存在量および温度勾配管への付着量から算出 ×：放出終了時刻不明
	Cs-137 (661.7kV)	○	×：放出終了時刻不明	○	×：放出終了時刻不明	
Sb	Sb-125 (427.9kV)	0%	100%	0%	98%	放出割合は試験前後のルツボ内Sb存在量および温度勾配管への付着量から算出 ×：放出なし
		×：放出なし	×：放出終了時刻不明	×：放出なし	○	
Ru	Ru-106 (622.2kV)	8%		13%		放出割合は試験前後のルツボ内Ru存在量から算出 ×：放出なし
		○		○		
Eu	Eu-154 (1274.7kV)	0%		4%		放出割合は試験前後のルツボ内Eu存在量から算出 ×：放出なし
		×：放出なし		○	○	

表11 PFD306集合体(燃焼度63.9GWd/t)の試料No.E96452で測定された結晶粒径分布

測定位置		測定位置での平均粒径
燃料半径 (r)	相対半径* ¹	
(cm)	r/ro	(μ m)
0.234	0.974	2.80
0.222	0.922	3.21
0.209	0.870	2.68
0.197	0.818	5.73
0.178	0.740	9.34
0.153	0.636	9.51
0.128	0.532	6.43
0.103	0.429	4.37
0.078	0.325	4.43
0.053	0.221	5.86
0.028	0.117	7.60

*1: r₀ (ペレット外径) = 2406 μ mとした場合

表12 燃料ペレット内でのCs濃度分布および粒径評価結果

領域 No.	領域中心位置 の相対半径	各領域の体積割合 (%)	各領域の平均半径 ^{*1} (μm)	結晶粒数割合 ^{*2} (%)	Csの相対濃度 ^{*3}	ペレット全体平均半径 ^{*4} (μm)
1	0.975	9.75	2.80	35.0	1.00	3.35
2	0.925	9.25	3.21	22.1	0.73	
3	0.85	17.00	4.20	18.1	0.54	
4	0.75	15.00	9.34	1.5	0.42	
5	0.65	13.00	9.51	1.2	0.32	
6	0.55	11.00	6.43	3.3	0.30	
7	0.45	9.00	4.37	8.5	0.21	
8	0.35	7.00	4.43	6.4	0.18	
9	0.25	5.00	5.86	2.0	0.15	
10	0.15	3.00	7.60	0.5	0.18	
11	0.05	1.00	3.80	1.4	0.15	
合計	-	100.00	-	100.00	-	

*1：PF0306集合体（燃焼度63.9GWd/t）のE96542試験について測定されたペレット内各領域の平均粒径。

*2：左欄の「各領域の体積割合」から算出した結晶粒体積で除したもの。

*3：PF080集合体（燃焼度86.7GWd/t）のH71042試験について測定されたペレット内のCs相対濃度。領域1の濃度を1とした場合の値。

*4：左欄の「各領域の平均半径」、「結晶粒数割合」、「Csの相対濃度」から算出した個数平均の結晶粒半径。

表13 拡散係数の計算結果

	拡散係数 (cm ² /sec)			
	1,500°C	2,000°C	2,500°C	3,000°C
Eu	-	-	6.58E-15	-
Ru	-	-	7.31E-14	3.53E-14
Sb	-	-	1.52E-11	-
Cs	1.91E-13	2.93E-12	-	-

表14 他の実験でのFP放出割合測定結果

試験名	ORNL						CEA					
	VI-1	VI-2	VI-3	VI-4	VI-5	VI-6	HEVA02	HEVA03	HEVA06	VERCORS03	VERCORS04	
燃料	40	44	44	47	42	42	19.40	28.00	36.00	38.3	38.3	
加熱温度 (K)	2,020 2,300	2,300	2,000 2,700	2,440	2,000 2,720	2,310	2,140	2,070	2,370	2,570	2,570	
加熱時間 (min)	20 20	60	20 20	20	20 20	60	15	30	30	15	30	
雰囲気ガス	H2O	H2O	H2O	H2	H2	H2 H2O	H2O H2	H2O H2	H2	H2	H2	
FP放出割合 (%)	Cs 33 0 0	67 68 0 0	100 99 ~0.01 5.0	96 6.4 19 0	100 18 57 0	80 64 14 0	69 41 15 5	38 20 <3 <2	30 0 5 0	70 69 9 0.36	93 97 <5 7	

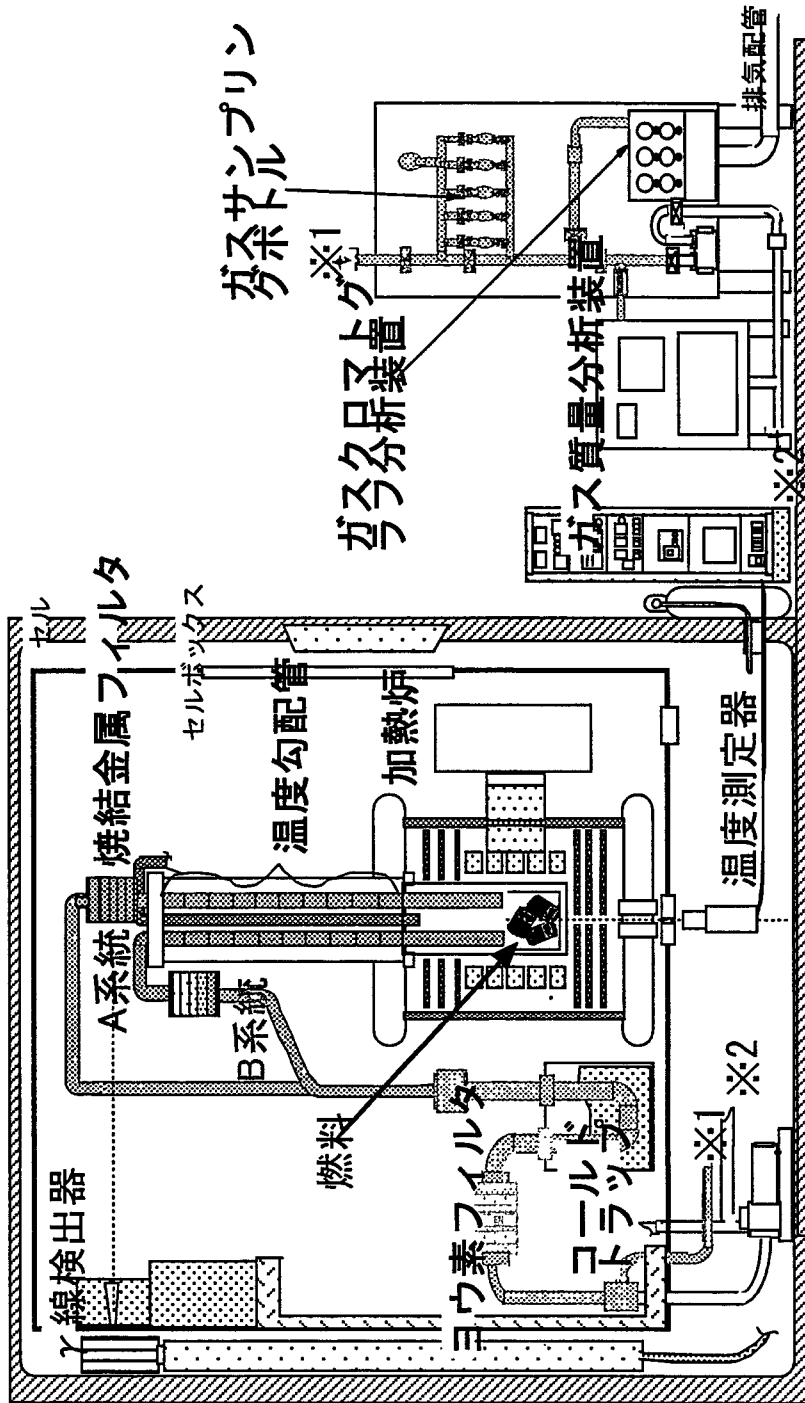


図1 FP放出実験装置概略図

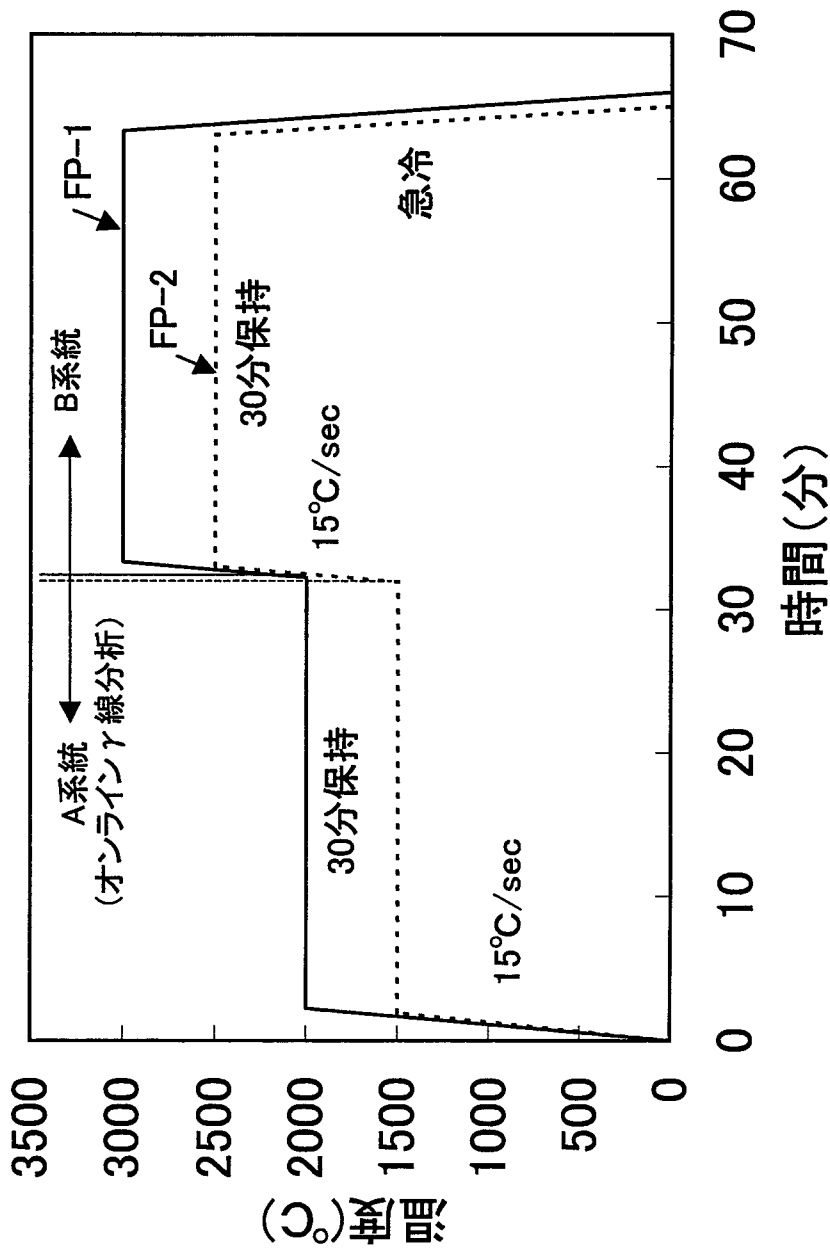


図2 加熱温度履歴 (FP-1、FP-2)

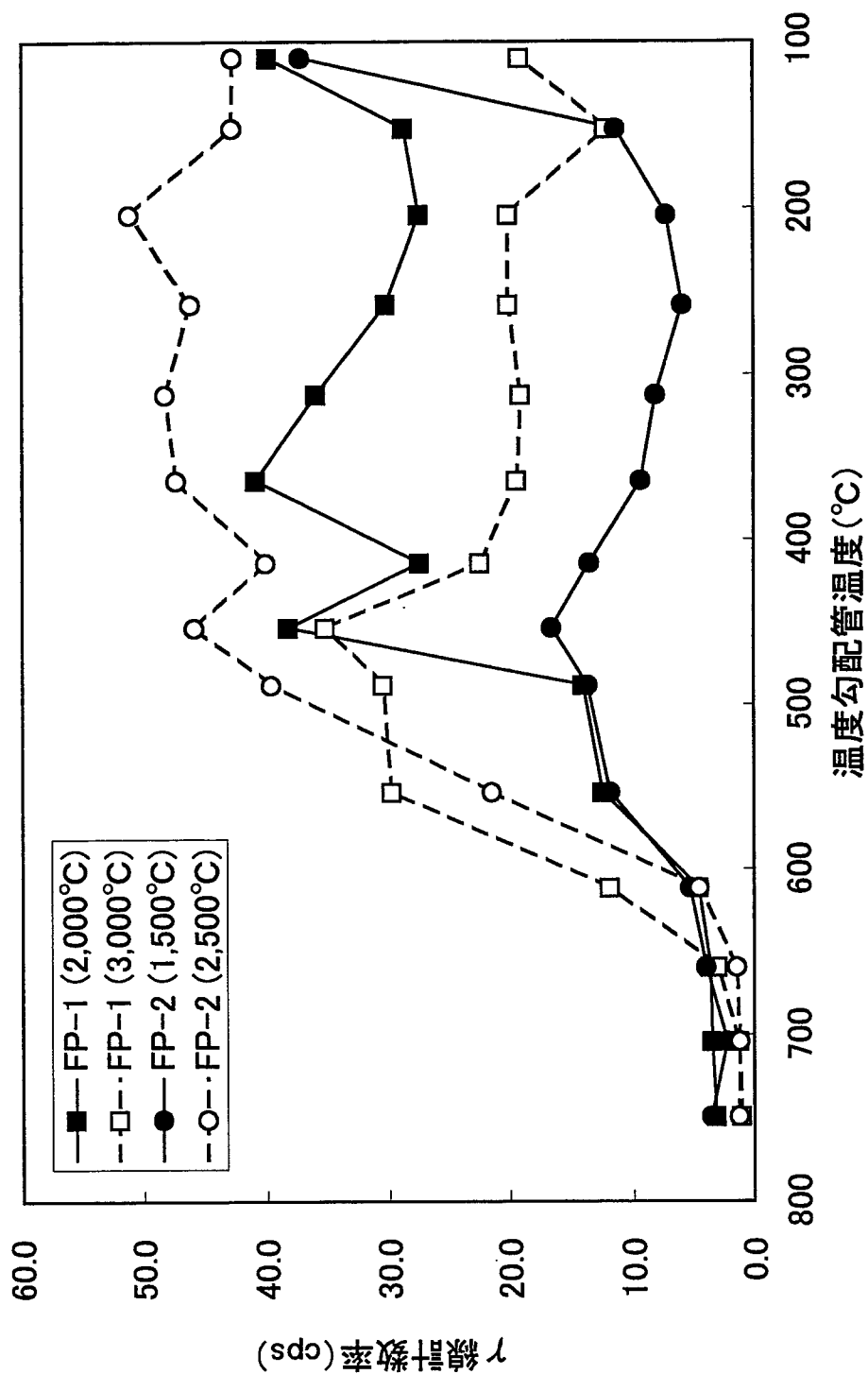


図3-1 温度勾配管へのCs-134付着分布

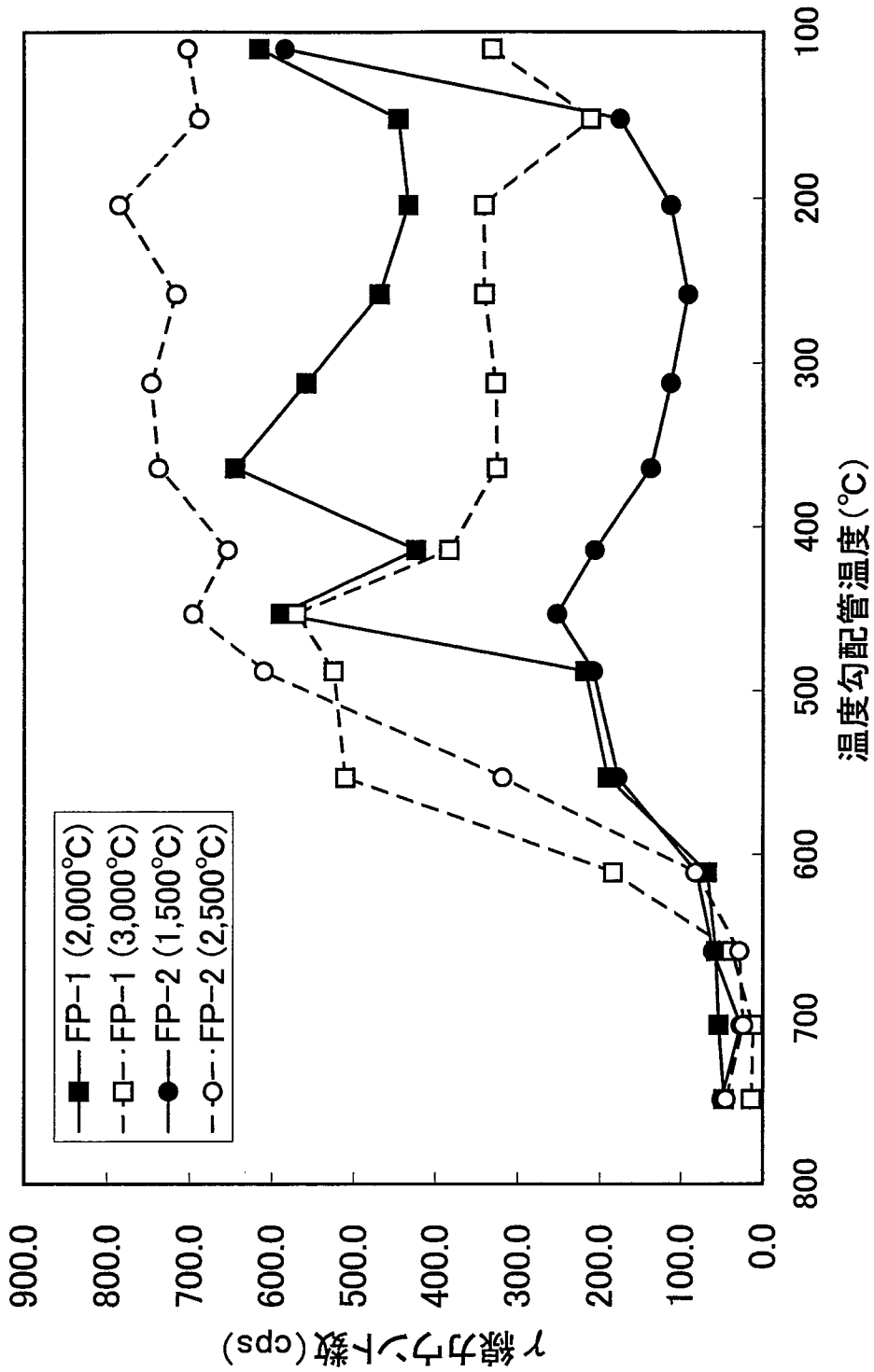


図3-2 温度勾配管へのCs-137付着分布

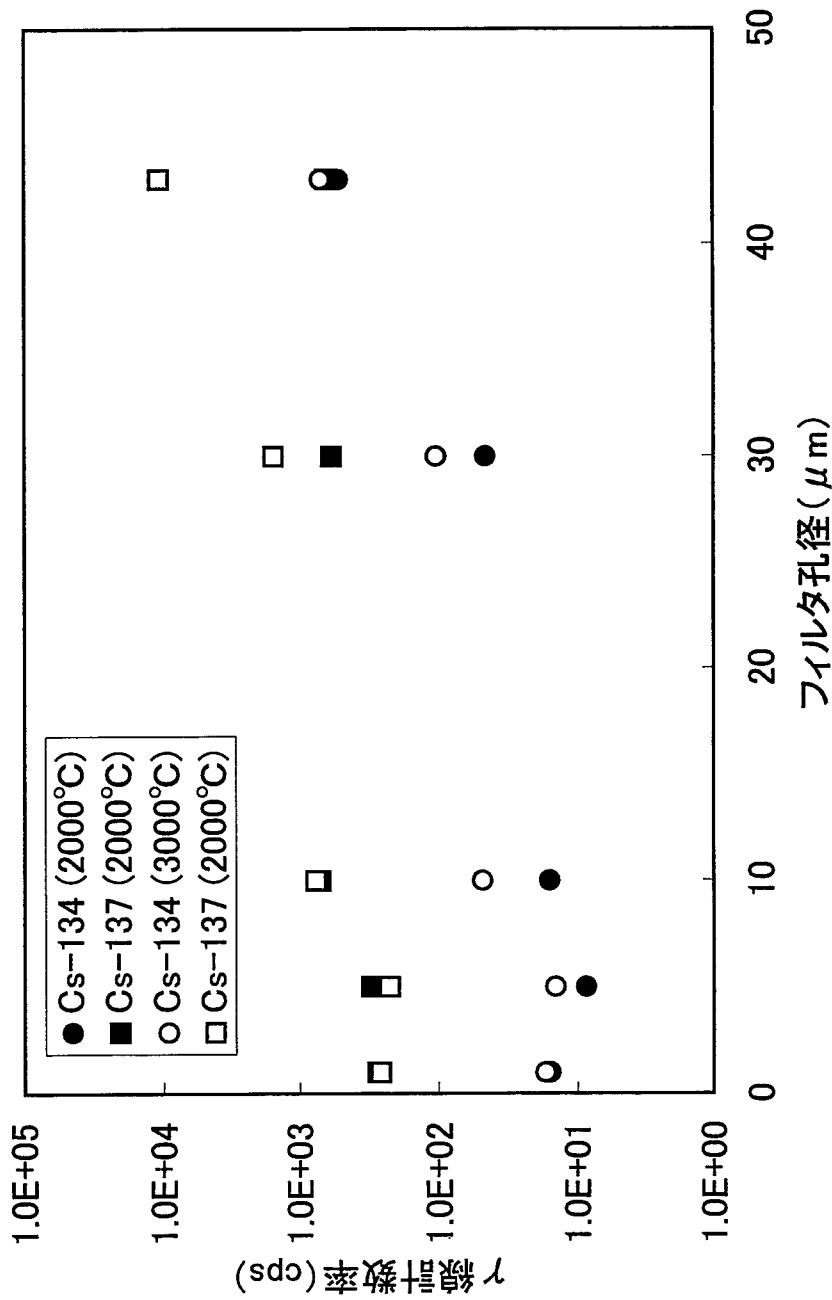


図4-1 焼結金属フィルタへのエアロゾル付着分布 (FP-1)

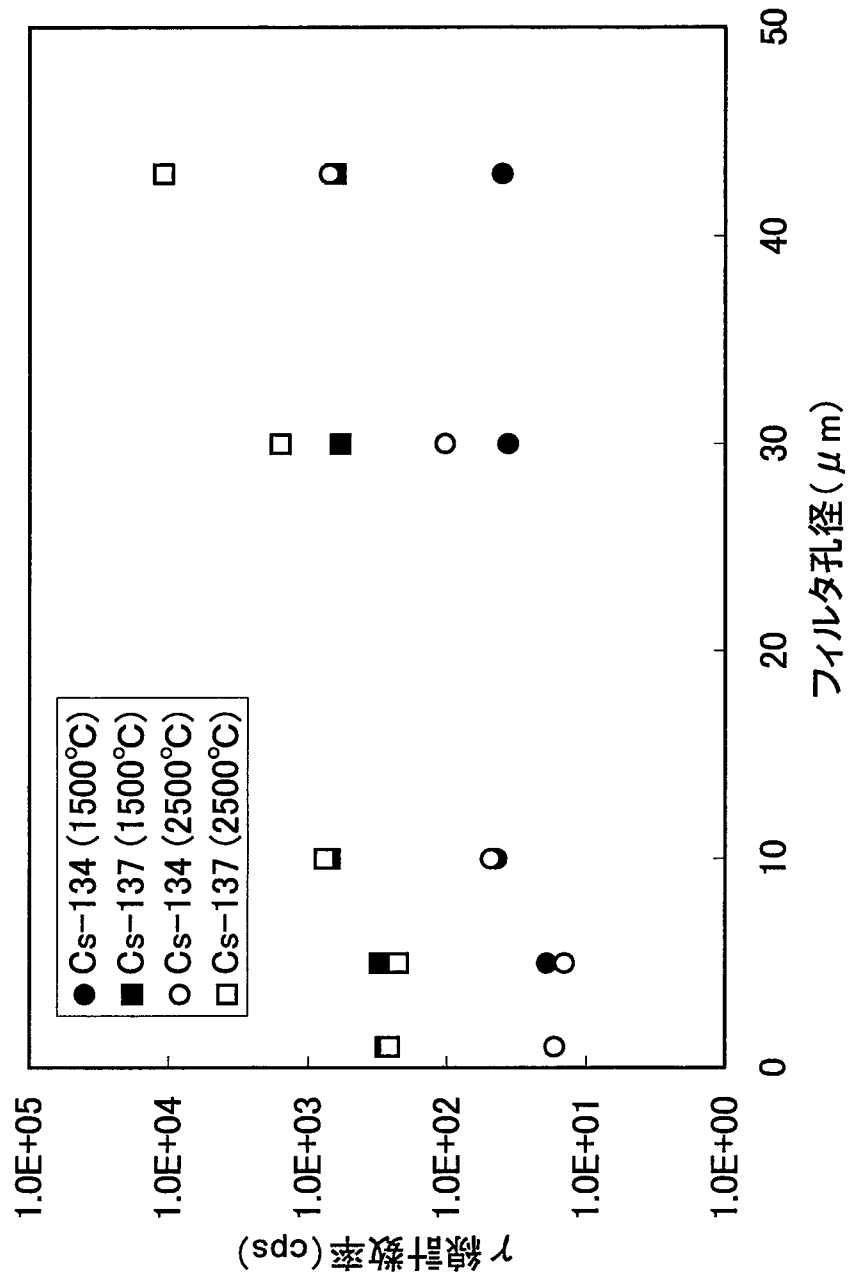


図4-2 焼結金属フィルタへのエアロゾル付着分布 (FP-2)

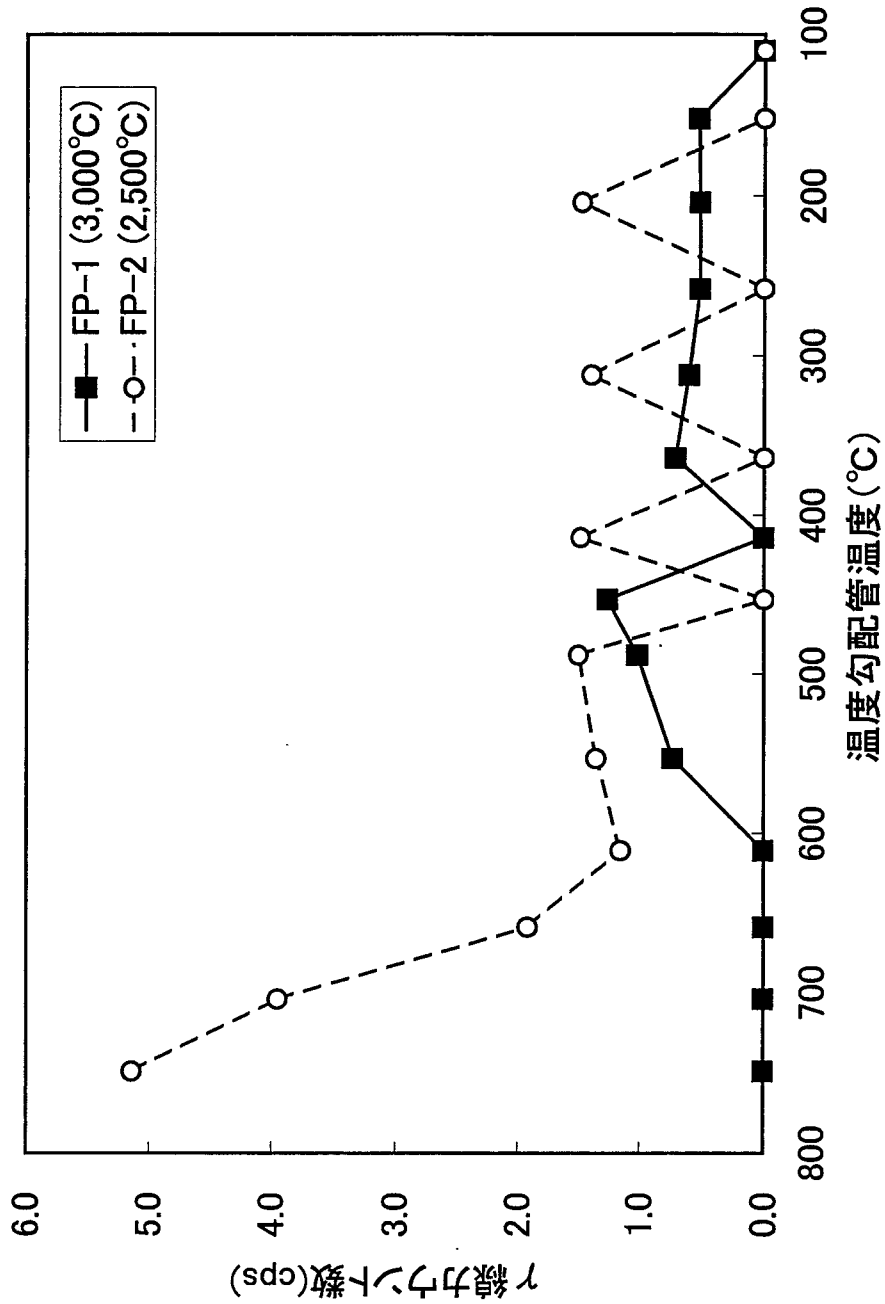


図5 温度勾配管へのSb-125附着分布

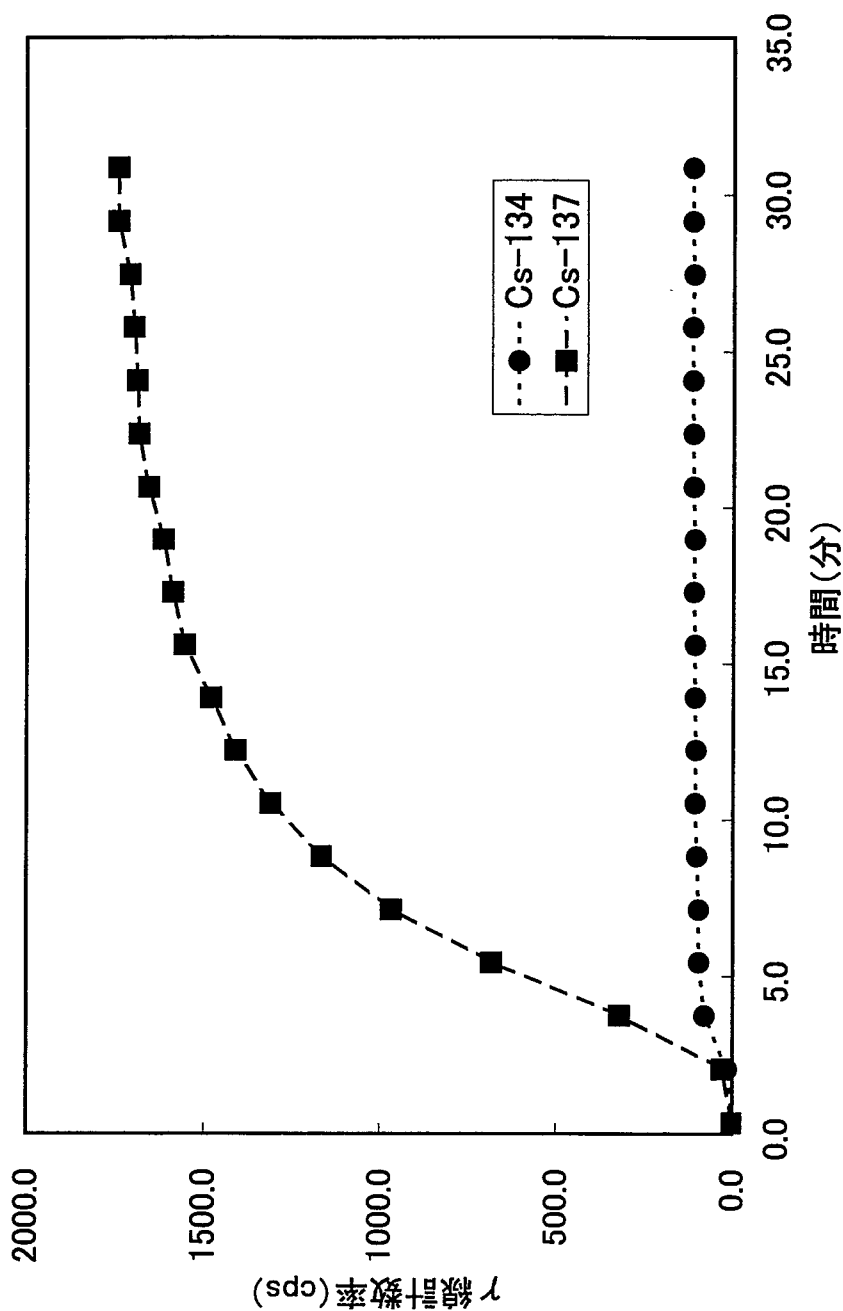


図6-1 A系統の焼結金属フィルタ部でのオンラインγ線測定結果(FP-1)

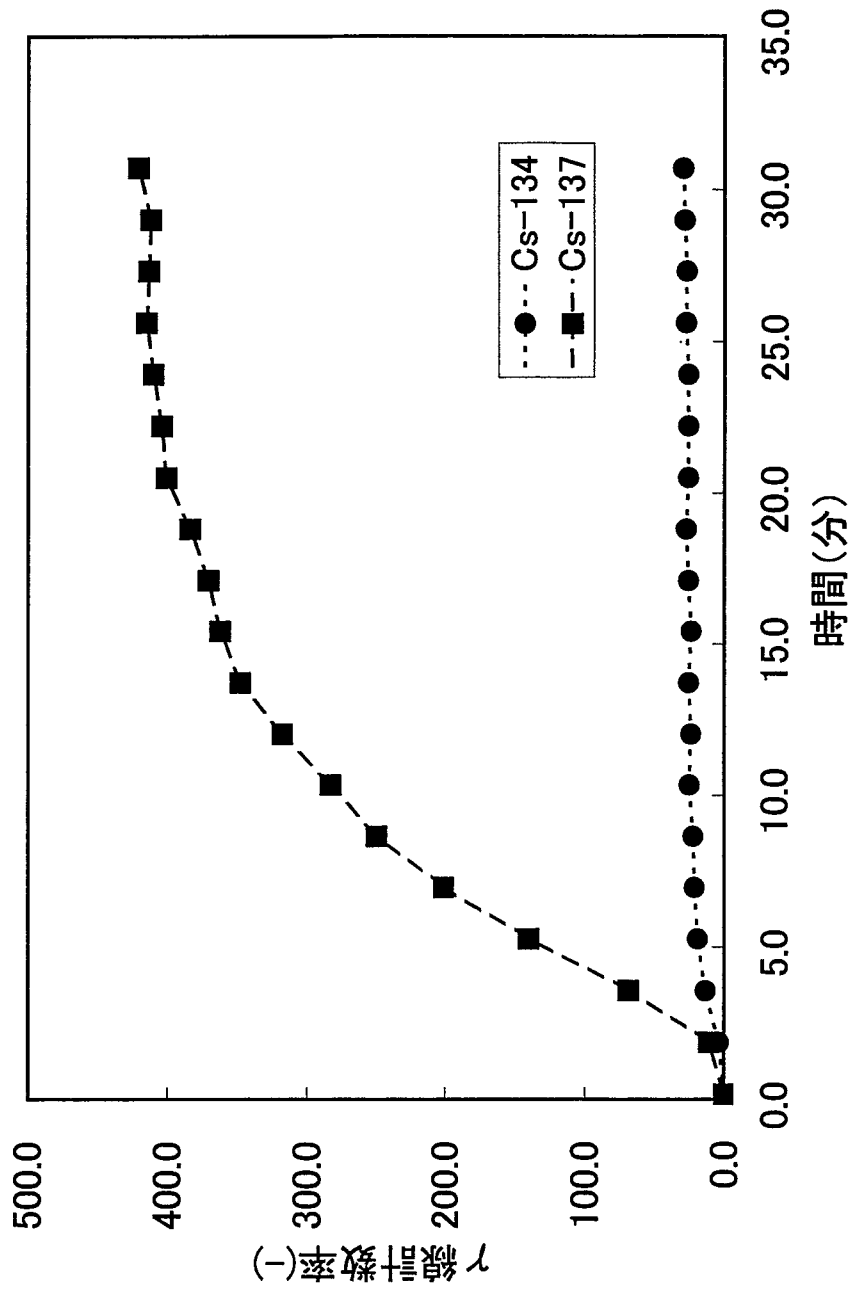


図6-2 A系統の焼結金属フィルタ部でのオンラインγ線測定結果(FP-2)

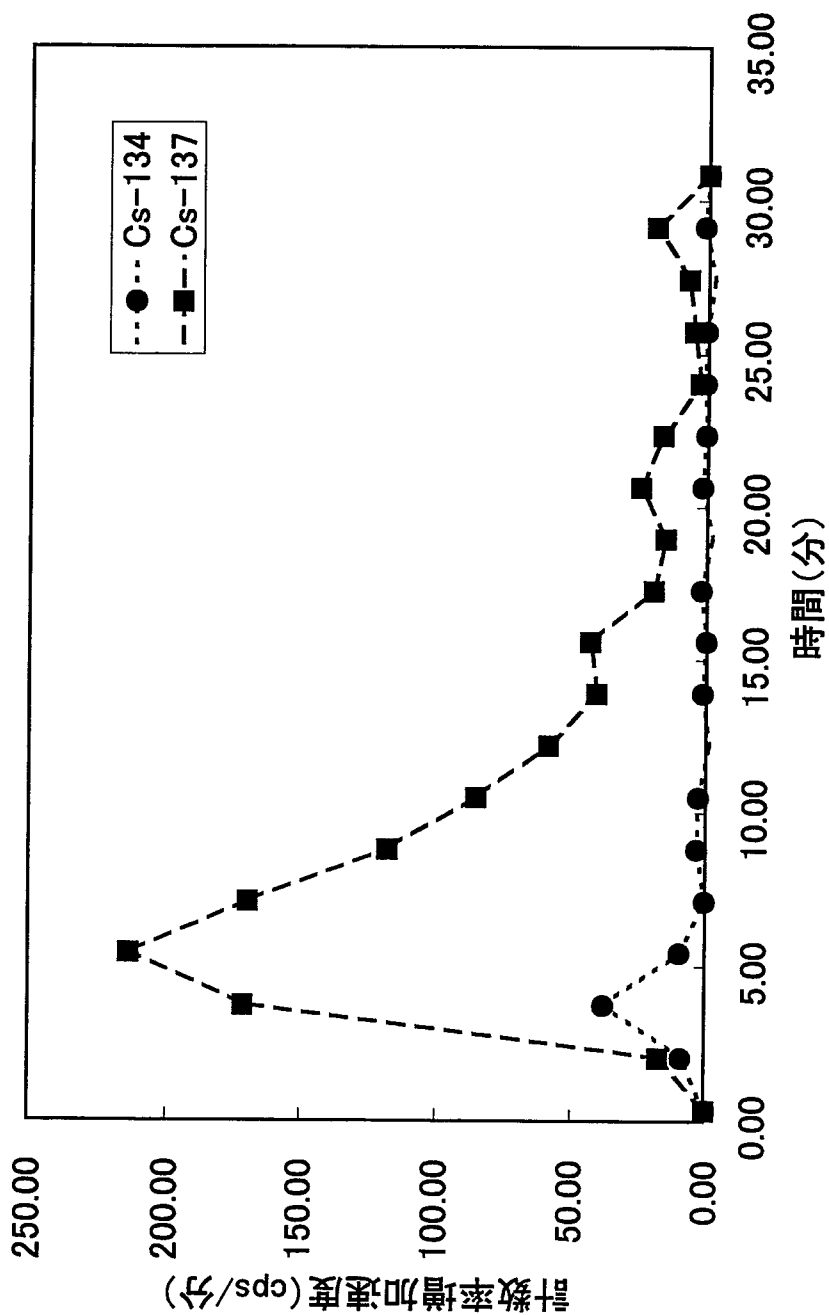


図7-1 オンラインγ線測定での計数率増加速度(FP-1)

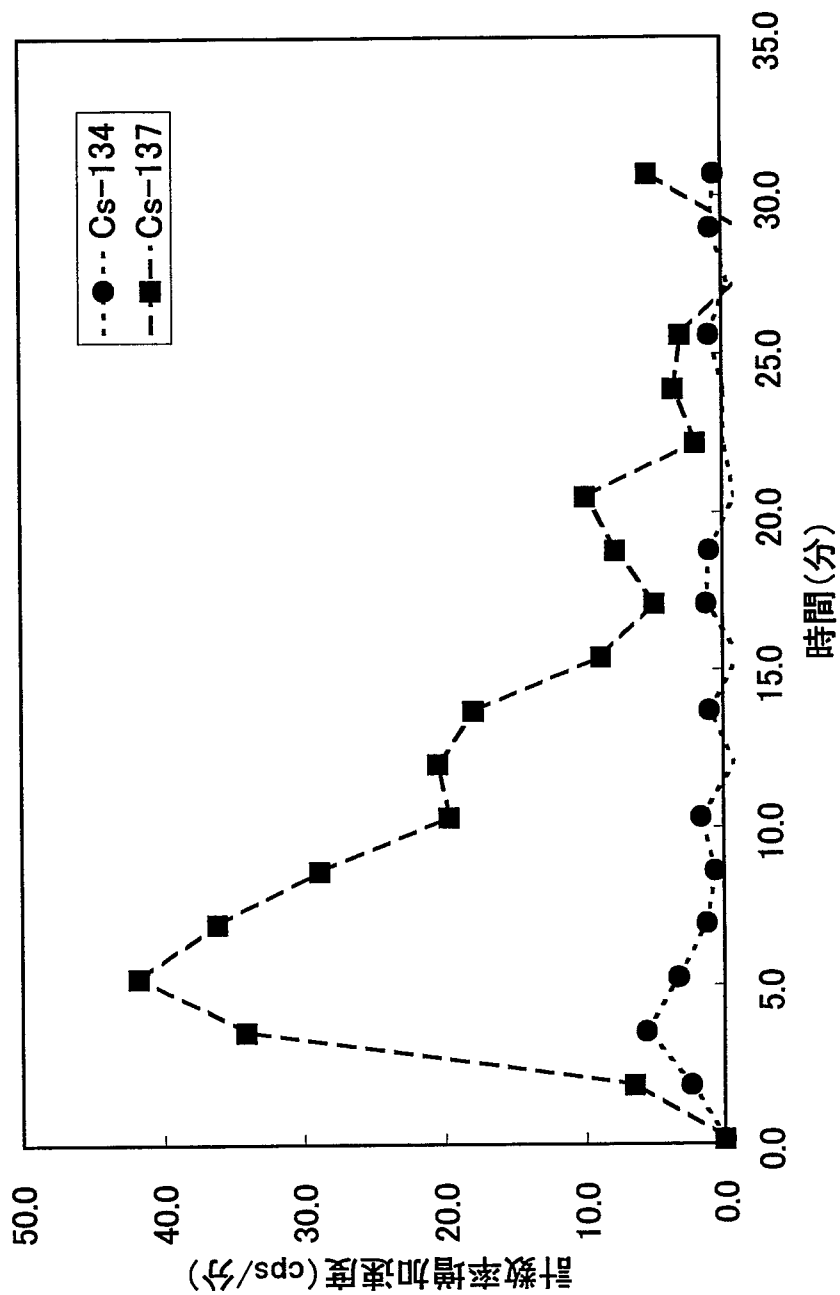


図7-2 オンラインγ線測定での計数率増加速度(FP-2)

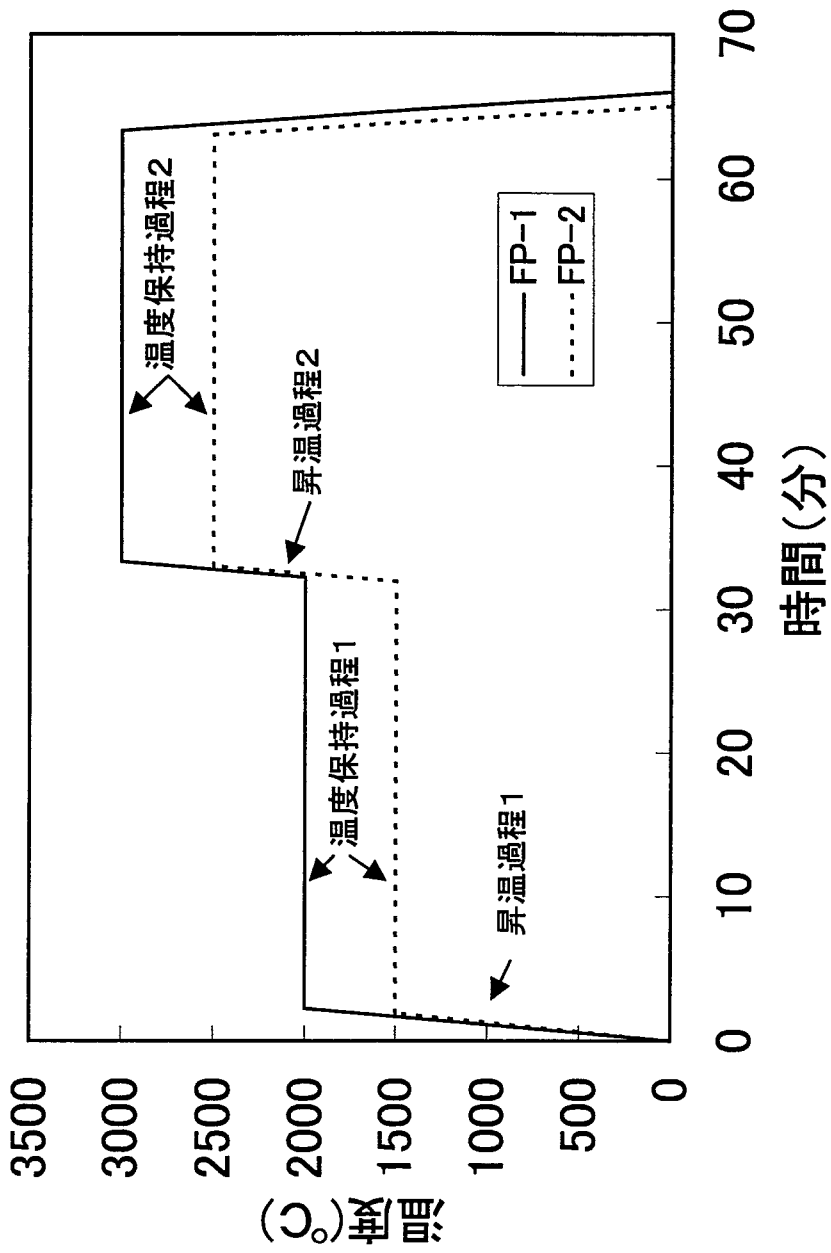


图8 加熱過程領域分割圖

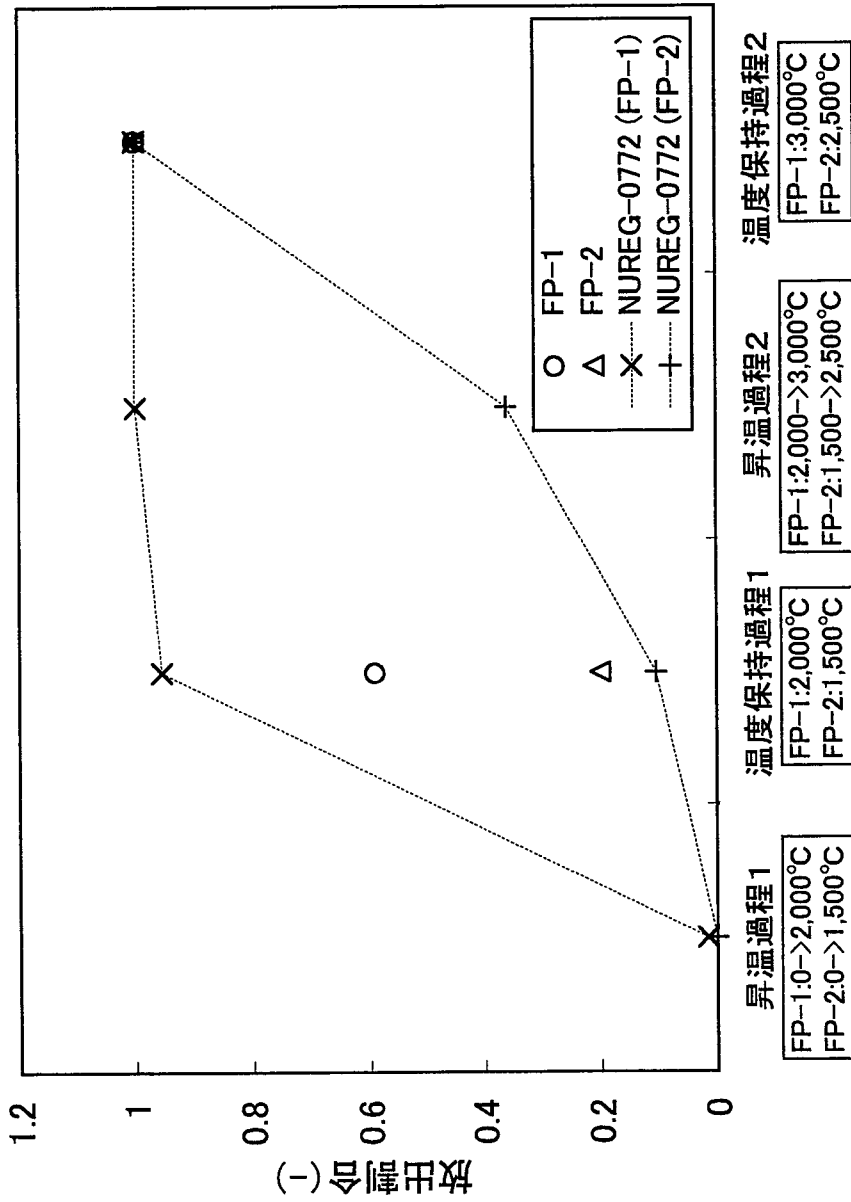


図9-1 Cs放出割合の比較

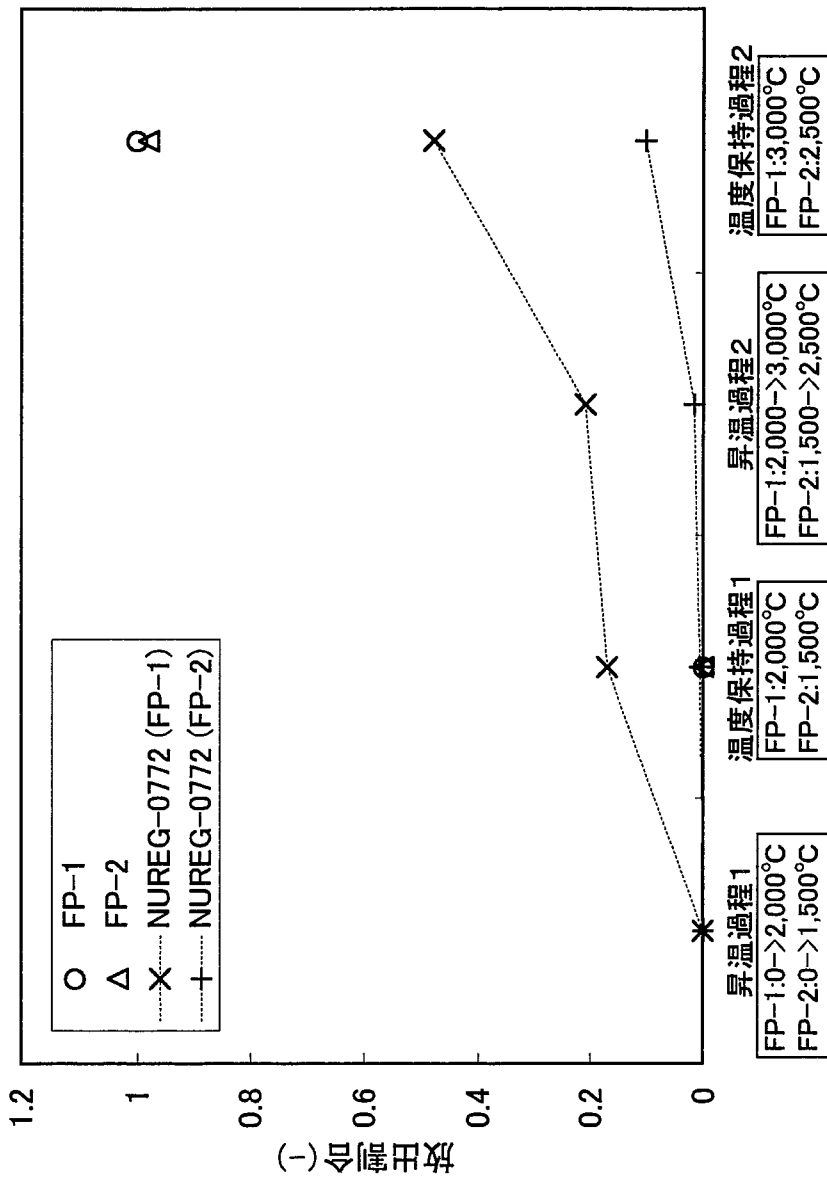


図9-2 Sbの放出割合の比較

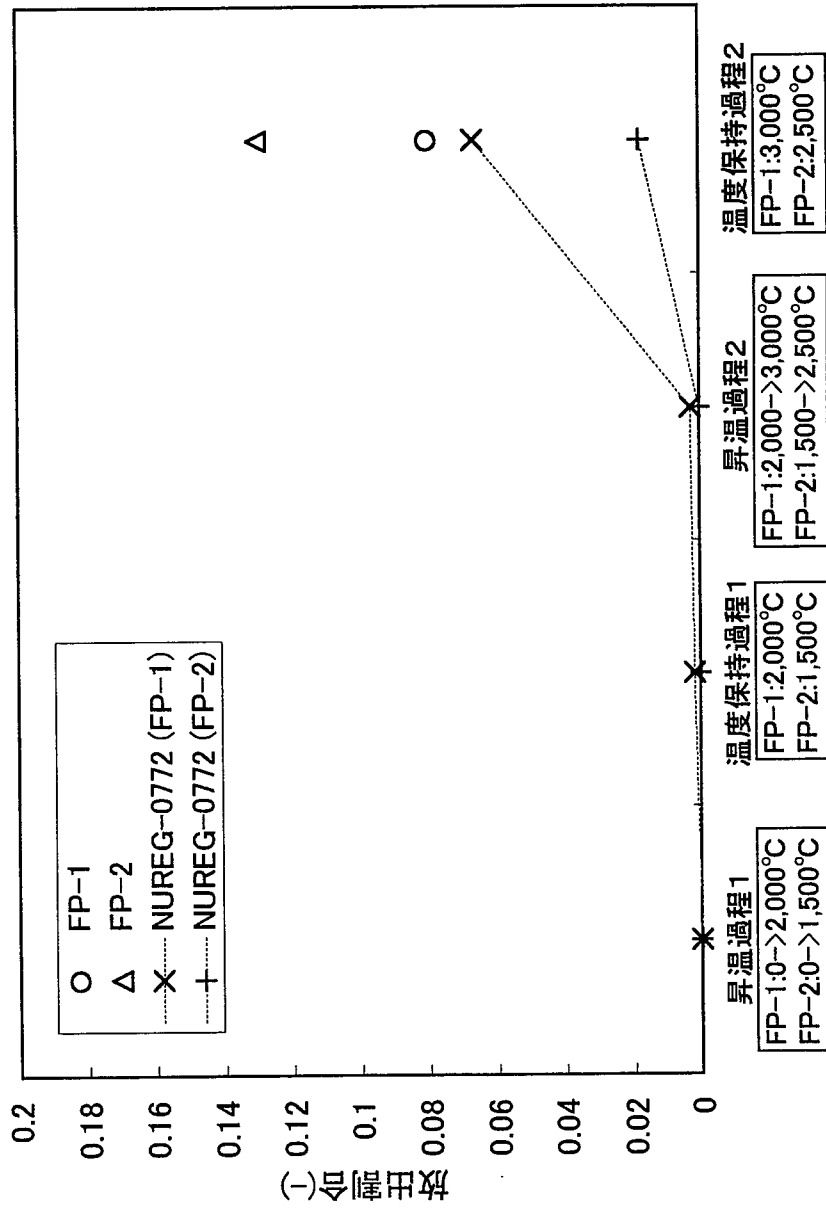


図9-3 Ruの放出割合の比較

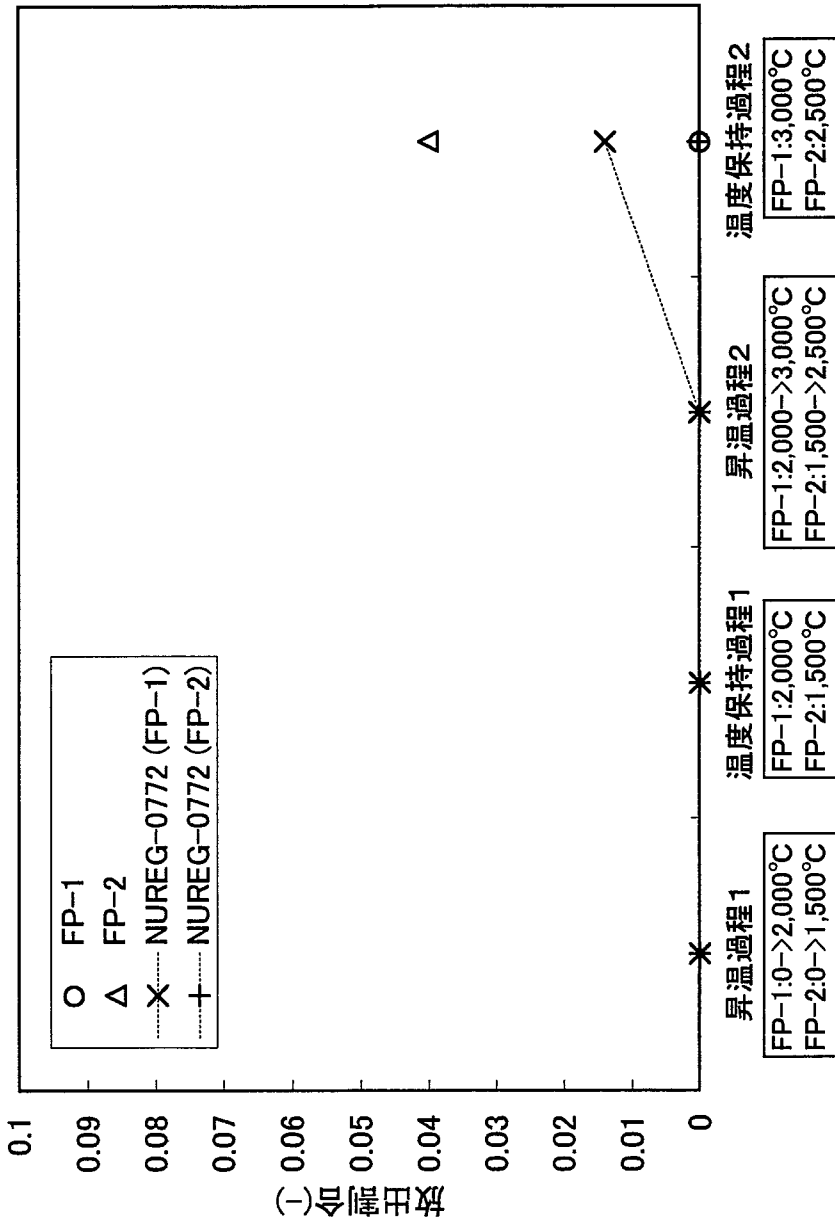
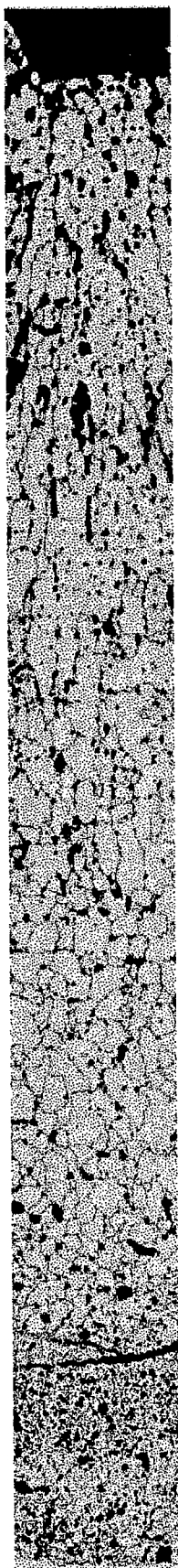


図9-4 Euの放出割合の比較



中心空孔

ペレット外周部

図10 燃料ペレット組織写真
(PFD306集合体、試料 No. E96452)

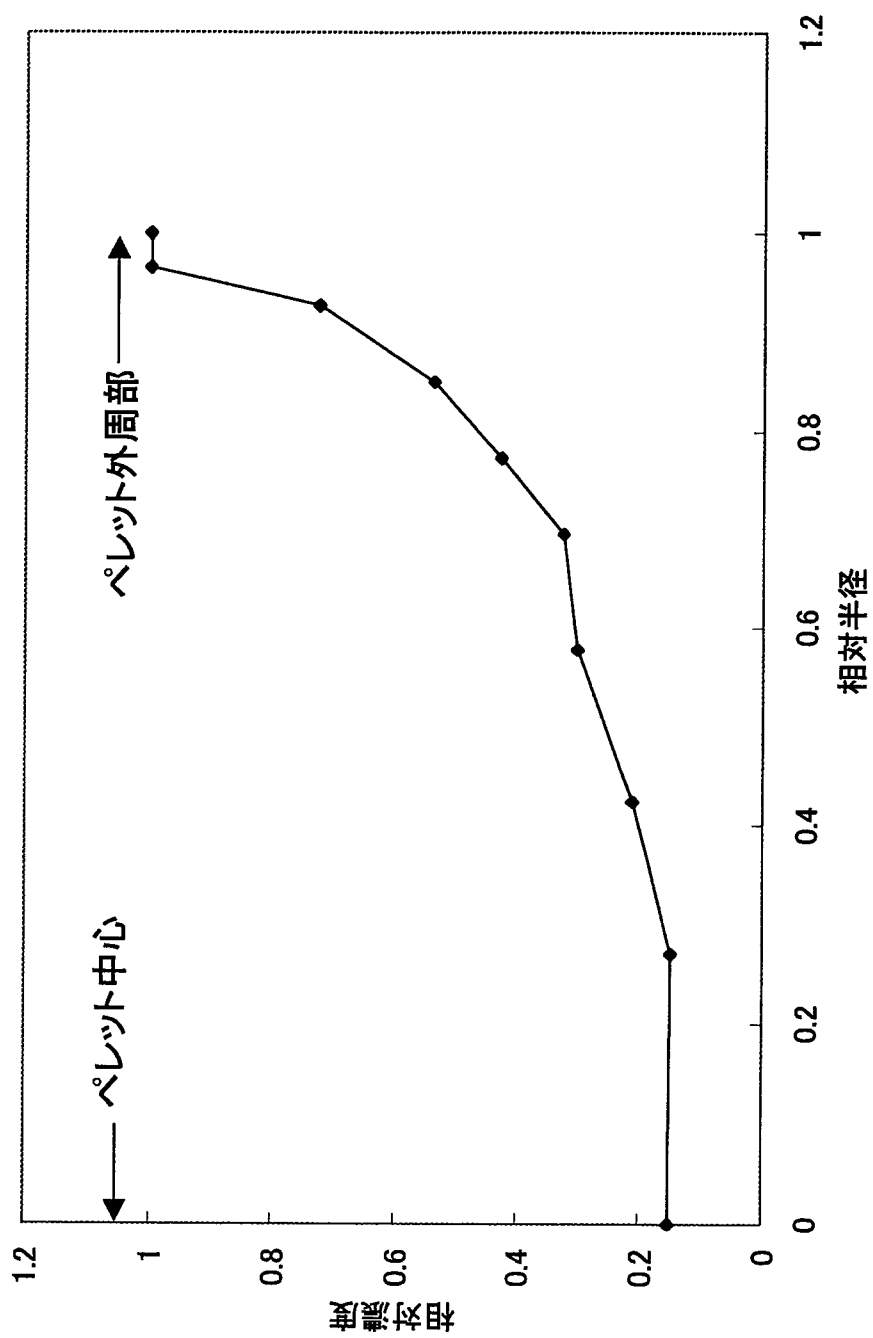


図11 燃料ペレット内の径方向Cs濃度分布
(PFD080集合体H71042試料)

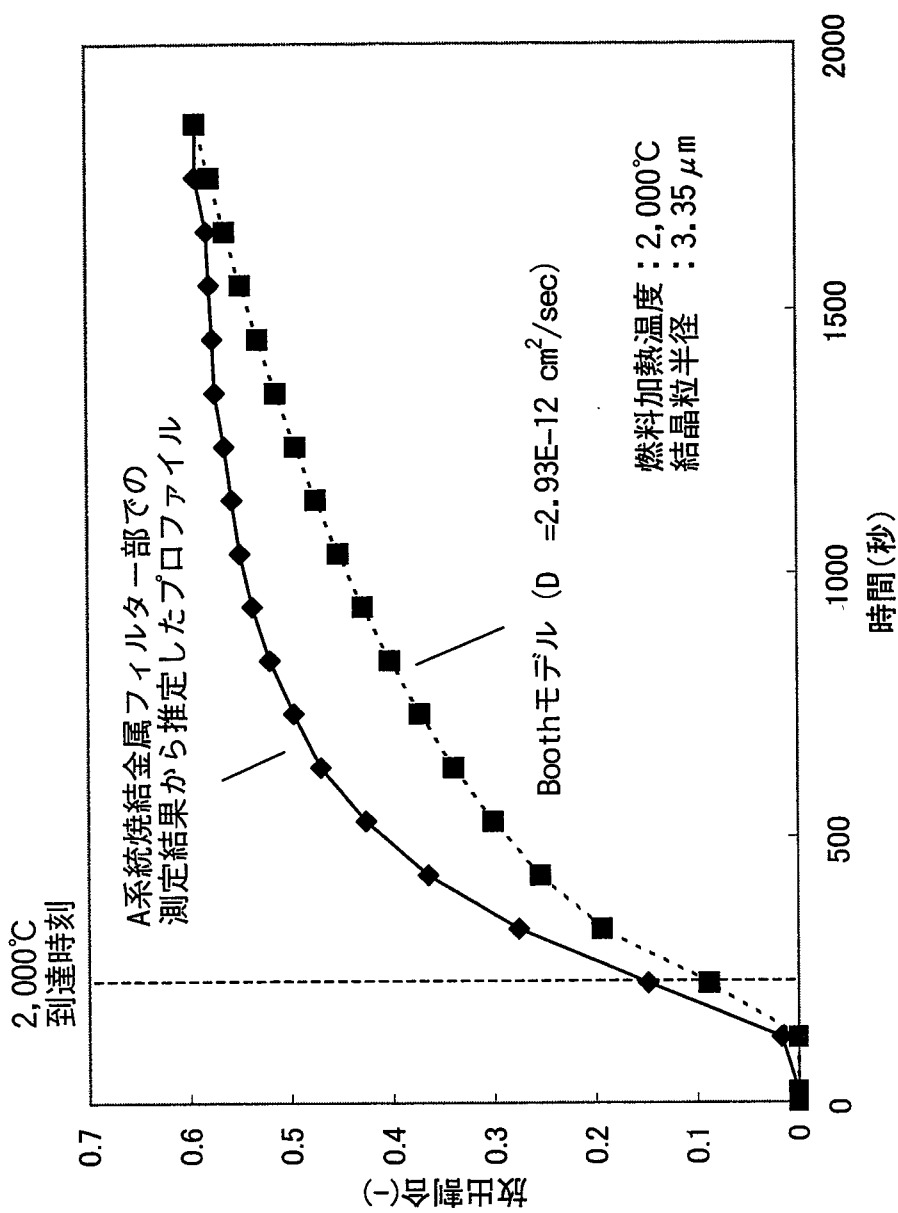


図12-1 BoothモデルによるCsの放出プロファイル(FP-1)

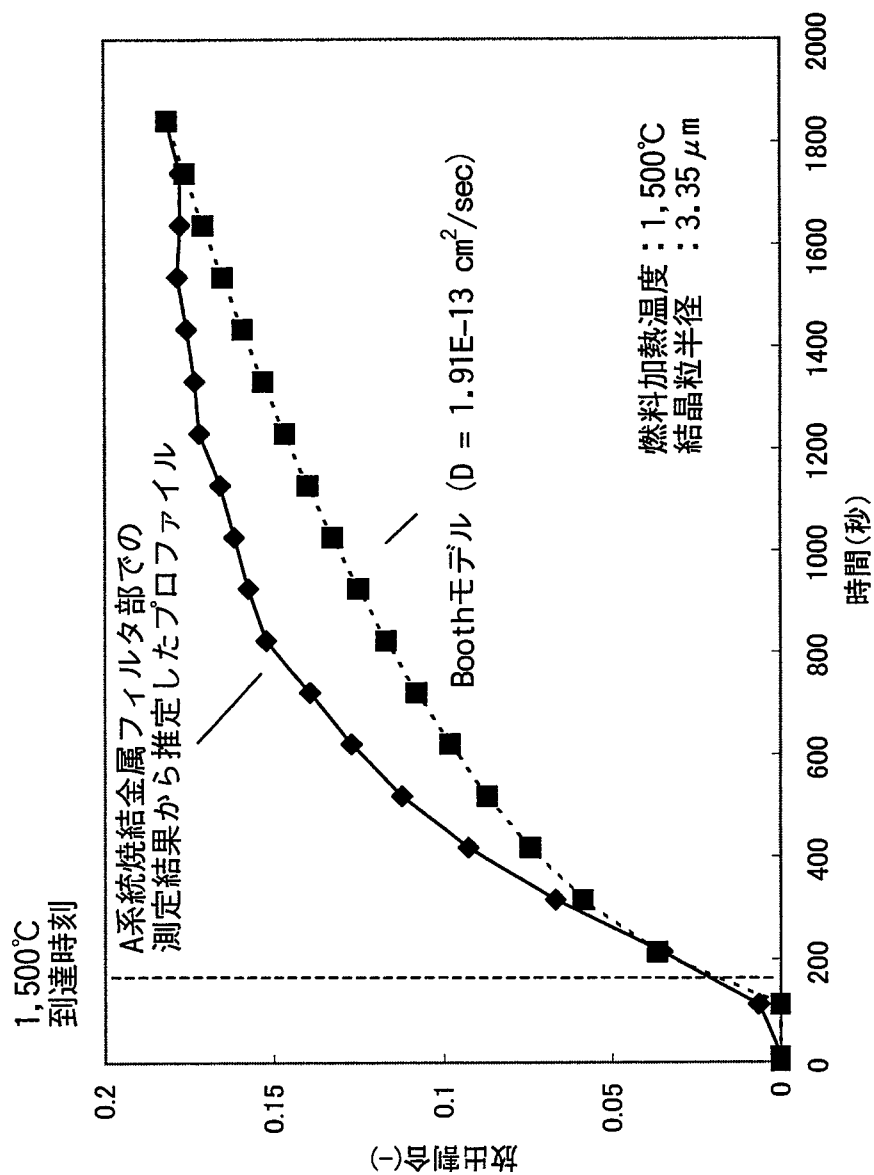


図12-2 BoothモデルによるCsの放出プロファイル(FP-2)

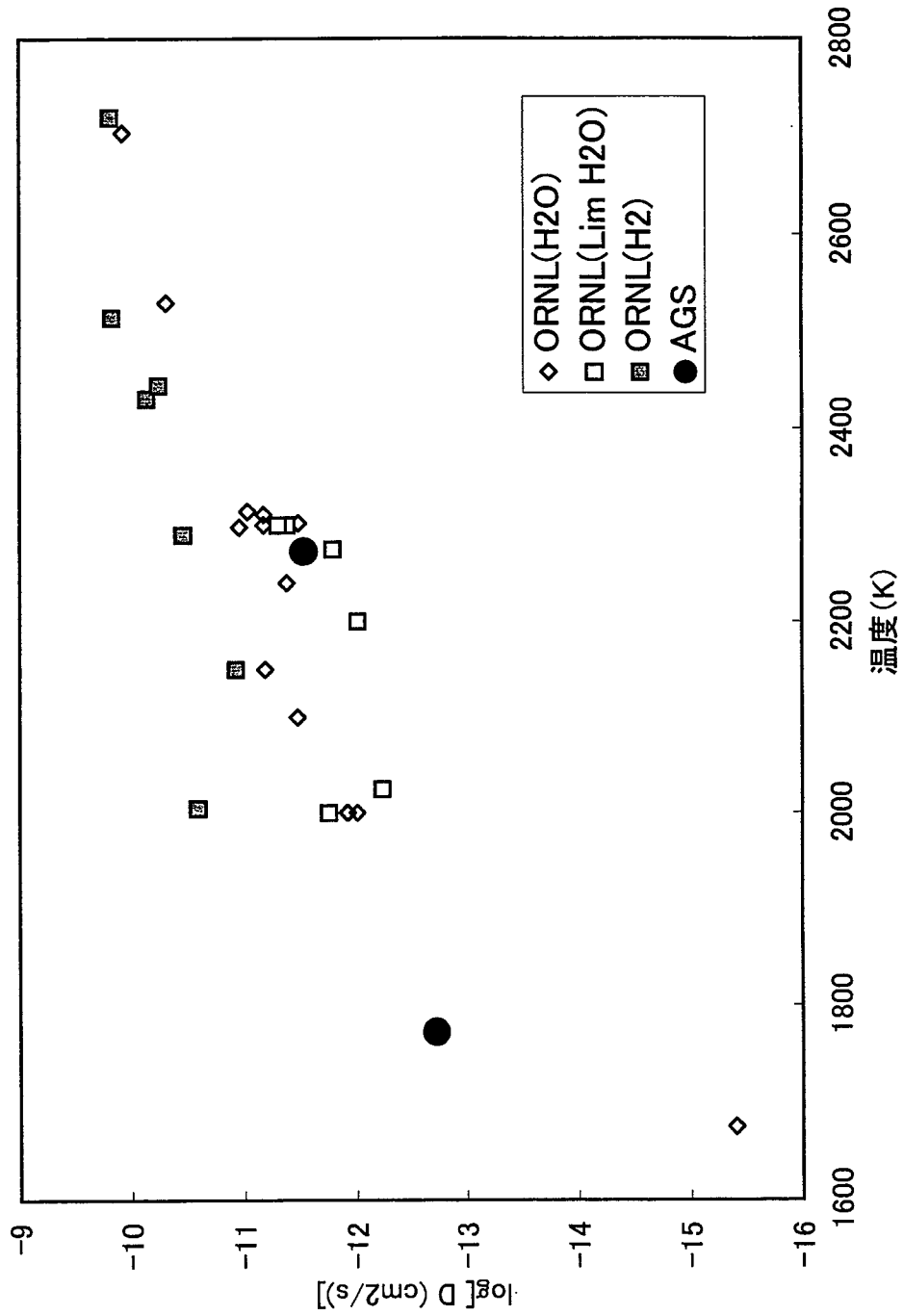


図13 Csの拡散係数の比較

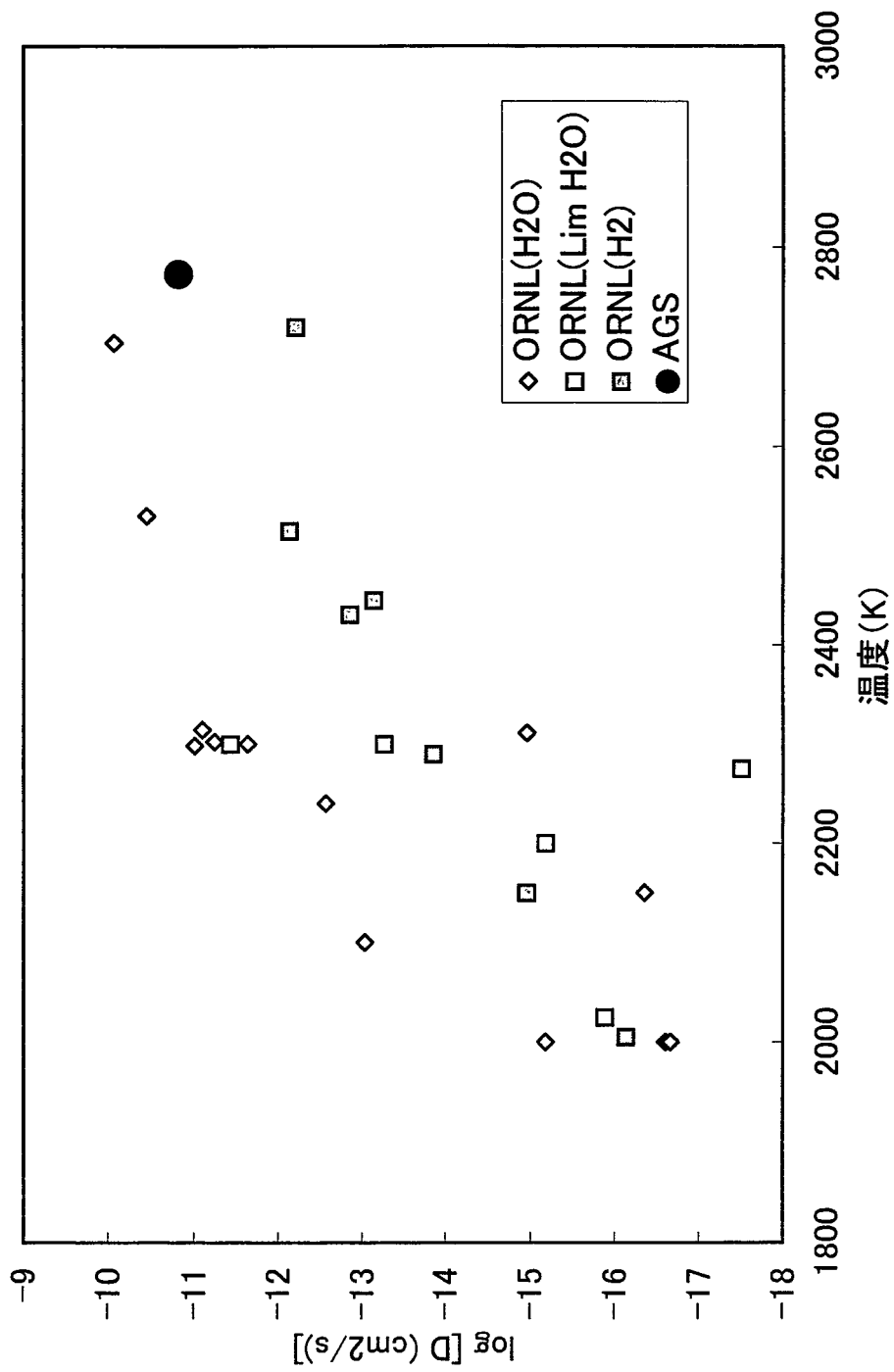


図14 Sbの拡散係数の比較

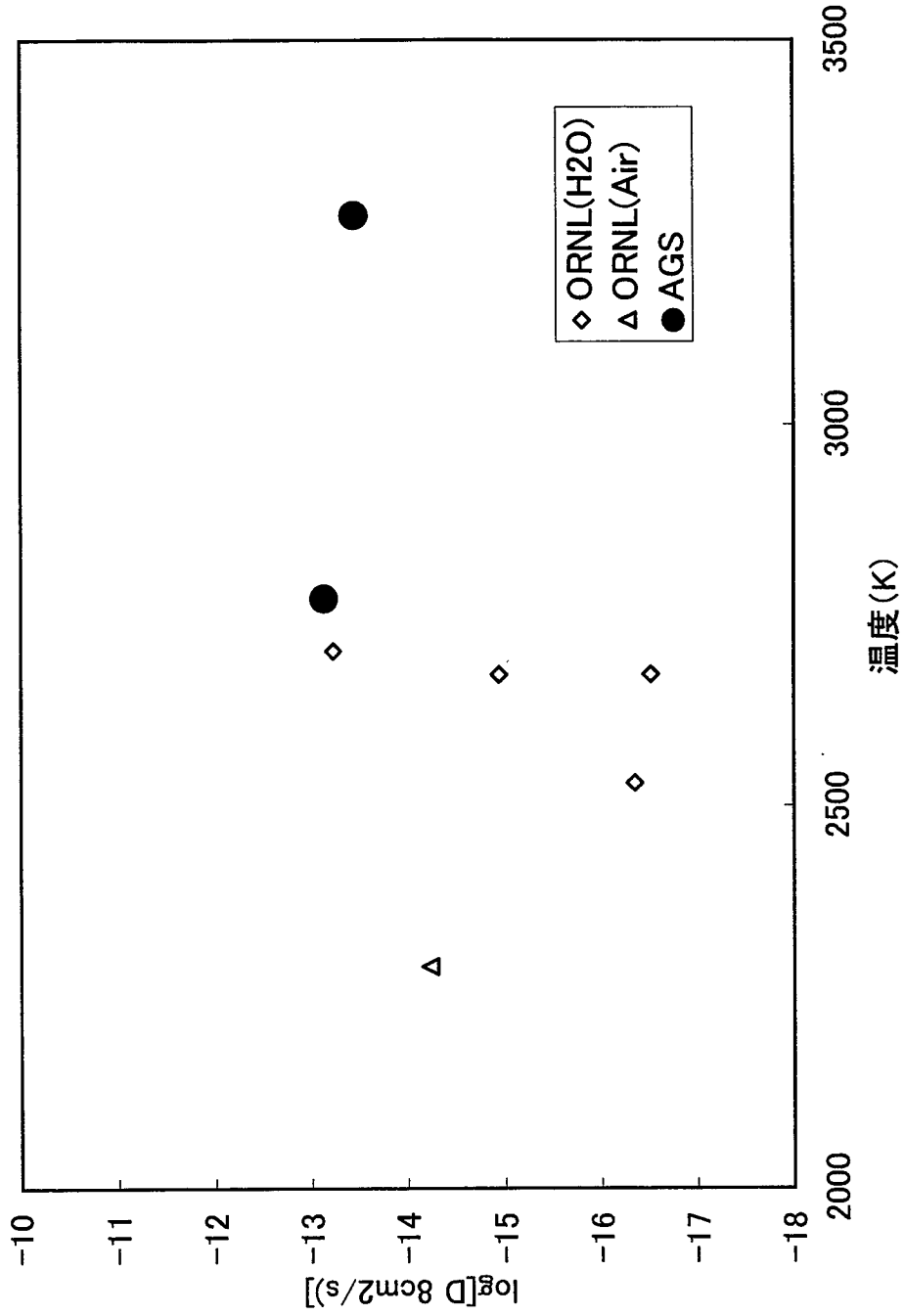


図15 Ruの拡散係数の比較

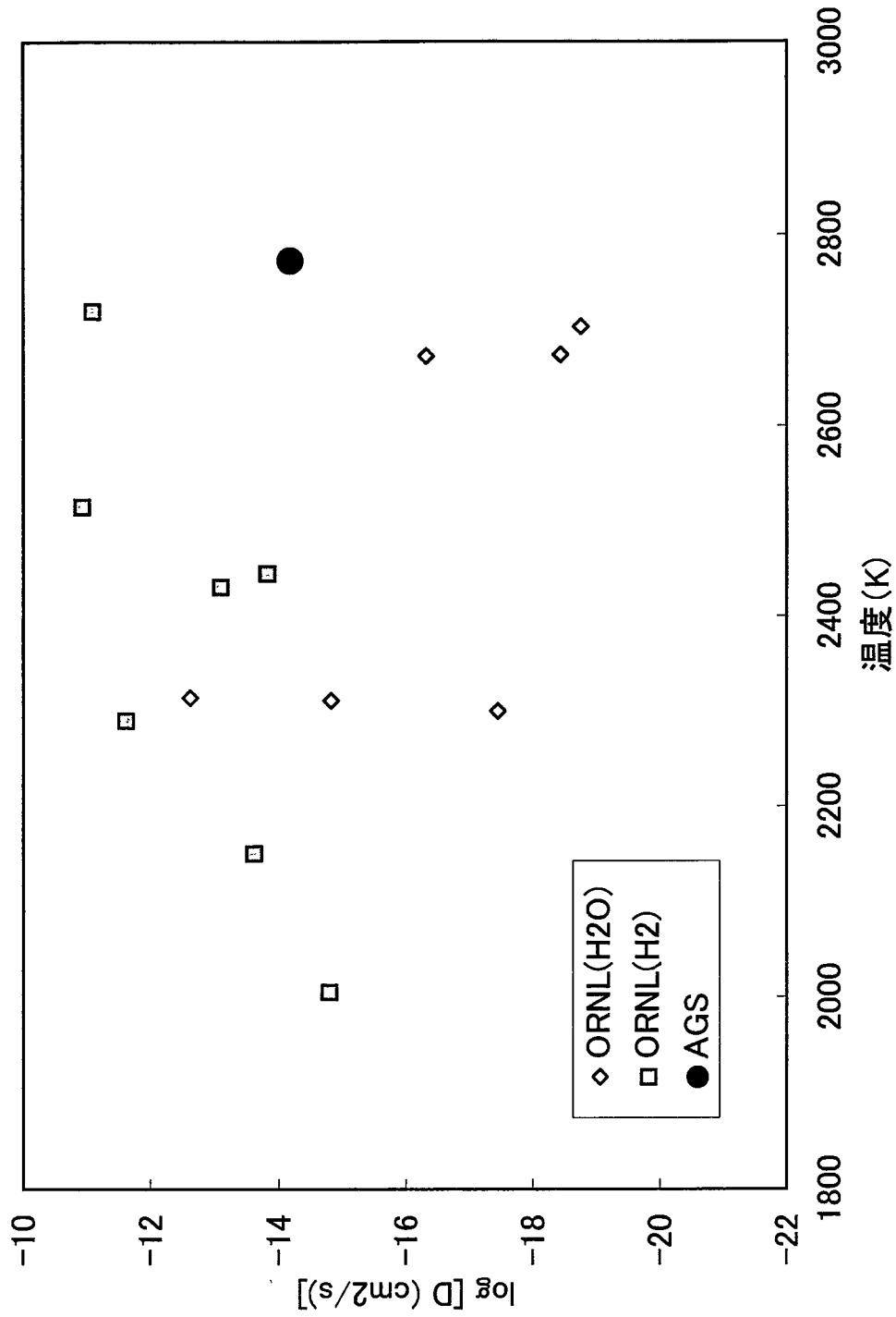


図16 Euの拡散係数の比較

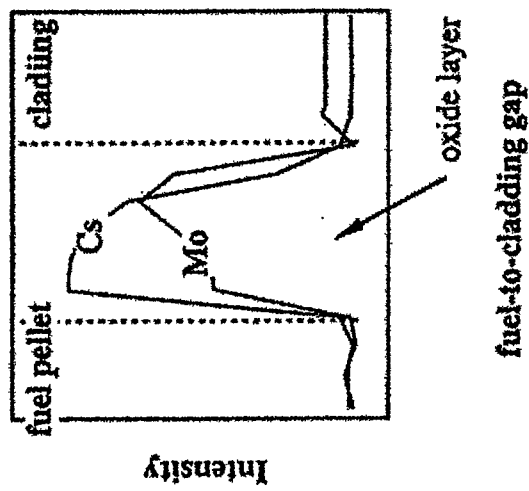


図17 ペレット-被覆管ギャップ内のCs、Mo分布

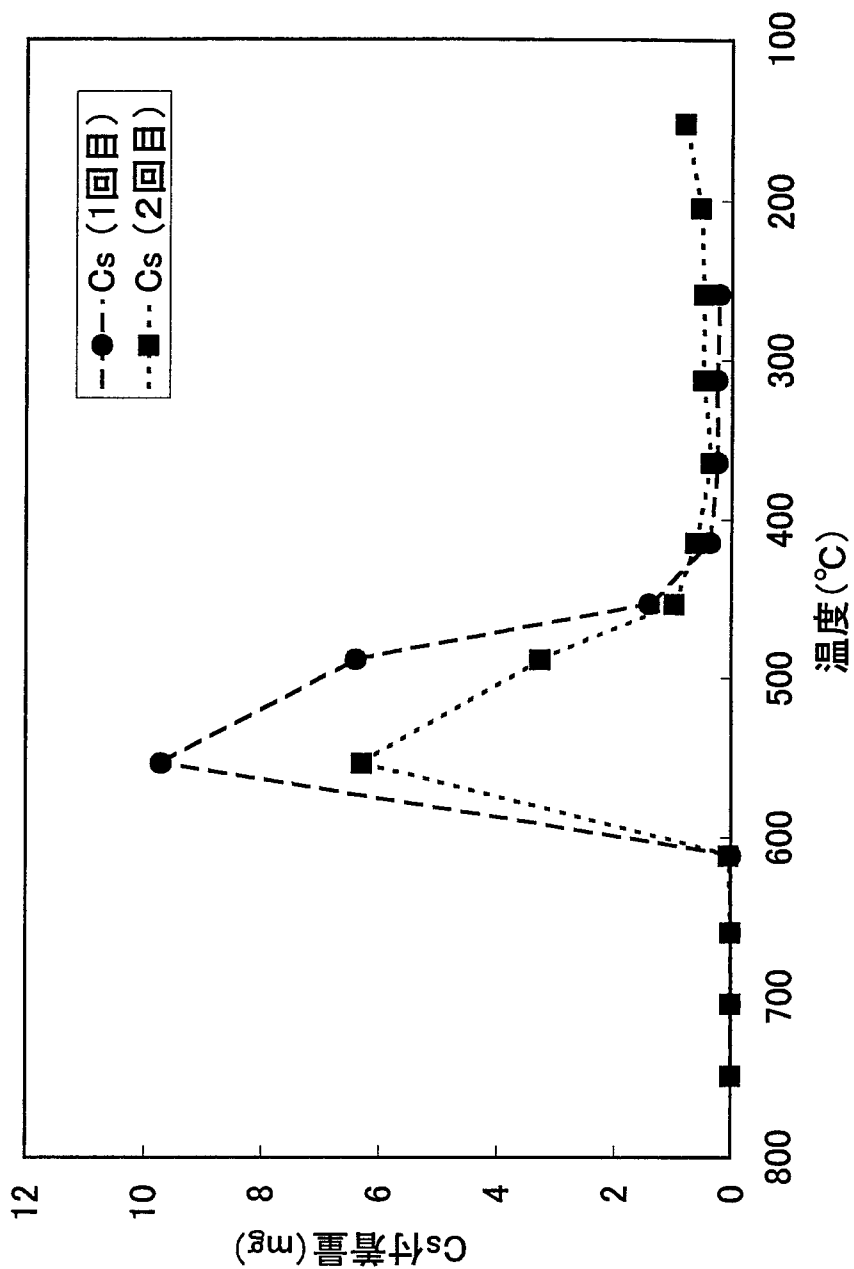
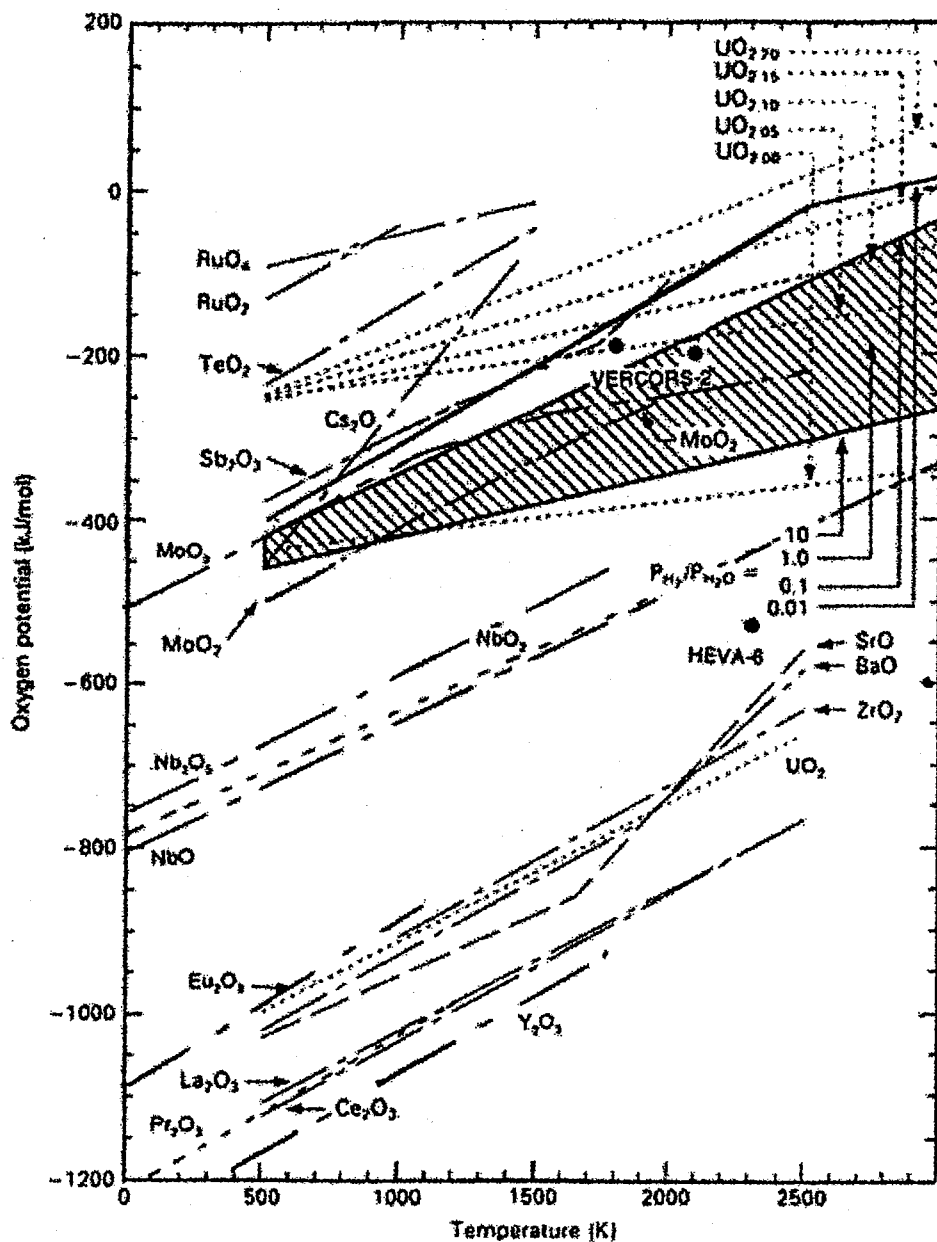


図19 予備試験での温度勾配管へのCs附着プロファイル(CsI試料)



Oxygen potential plotted against temperature for fission product oxides, UO_{2+x} , and hydrogen/steam gas atmospheric mixtures. The oxygen potentials of the HEVA-6 and VERCORS-2 tests (solid circles) are also shown.

図20 FP元素の酸素ポテンシャルの比較例