資 料

加圧水型原子炉における燃料欠陥率の評価, (V)

←被覆欠陥に伴う特別の現象

青 木 敏 男*

(1982年 3月18日 受 理)

(1982年 9月20日 再受理)

Evaluation of Fuel Performance in Reactor (PWR), (V)

Special Behavior Caused by Cladding Defect

By Toshio AOKI

This is continued from report (IV) to treat the extreme cases, in which recoil and knockout phenomena of fission products from fuel pellet, and surface contamination due to ejected UO_2 may cause abnormal contamination of primary coolant accompanied with enlargement of crack on cladding of fuel.

For these cases, transient behaviors of iodine concentrations ^{131}I , ^{133}I and ^{135}I in primary coolant are analyzed, and variations of relations between ratios of $^{131}\text{I}/^{133}\text{I}$ and $^{135}\text{I}/^{133}\text{I}$ are explained.

These most unfavorable defects of fuel cladding should be caught by reactor operator so as to take a suitable and prompt action. The above analysis offers much information to judge phenomena occurring in the reactors.

KEYWORDS: recoil, knockout, uranium dioxide, hair crack, fuel cladding, pellet, primary coolant concentration, iodine 131, iodine 133, iodine 135, concentration ratio, surface contamination

I. 緒 言

原子炉の運転中燃料に万一異常が起きたら、その内容をいち早く少しでも詳しく知ることは大切な着眼である。本報では第Ⅳ報⁽⁴⁾に続いて、燃料の一部が実質的に冷却水に曝露したような欠陥が生じた場合について、1次冷却水のヨウ素濃度に現れる状況と、それによってこうした異常の発見法について述べる。

ペレットから1次冷却水までの逸出率をヨウ素に対して $1.3 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1(4)}$ とする根拠になった実験に用いられた穴は、 $120 \sim 381 \mu\text{m} (10^{-4} \text{ cm})^{(5)(6)}$ といった程度であった。これくらいまでなら第Ⅲ報⁽²⁾ならびに第Ⅳ報の理論解析が活用される。しかし、実際はもっと穴が大きくなって、燃料表面の一部が実質的に1次冷却水に曝露したような状況を呈すること⁽⁷⁾⁽⁸⁾がある。このような場合には、 ^{131}I と ^{133}I から ^{131}I の正味拡散成分を計算して欠陥率を求める従来の方法⁽⁴⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾では、上記のような状況の発生は見逃してしまうであろう。

この場合燃料棒については第Ⅲ報における $\nu_{21} \rightarrow \infty$ の条件、すなわちペレットから拡散で gap へ出たものはそのまま水へ出てしまうが、さらに水に曝露した燃

料表面近くに起きた核分裂片の一部は直接放出されると考えておく。

この recoil 現象ならびにそれに伴って UO_2 の ejection が起き、同時に内蔵する分裂片が knock out される影響が出てくるであろう。この後段の影響と、こうした欠陥を検出する方法について述べる。

II. Recoil, knock out, ejection の扱い方

まず、いわゆる recoil, knock out, ejection の解析的な取扱い方について述べる。

1. Recoil

ペレット中におきた核分裂片の内で、被覆との間の gap へ直接放出される i 核種の数は、毎秒燃料1本当り次のように与えられる⁽⁹⁾。

$$\frac{FPY_i}{N_0} \cdot \frac{R}{d} \cdot \frac{h}{R_i} \left(2 - \frac{h}{R_i} \right) \quad (1)$$

ただし、 h : ペレットと被覆間の gap

R : UO_2 中における核分裂片の飛程^{(11)~(13)}

R_i : gap が蒸気で充満しているとして、その蒸気中における同じく飛程

* 関西電力㈱ (Kansai Electric Power Co.)

d : ペレットの直径

P : 原子炉熱出力(MWt)

$F=3.2 \times 10^{16}$ (fission/MWt·s)

Y_i : i 核種の核分裂収率

N_0 : 燃料の全本数

もし被覆がなく、直接水中に曝露しておれば、

$$\frac{FPY_i}{N_0} \cdot \frac{R}{d} \quad (2)$$

で与えられる。ここで R/d はペレットの横断面において、ペレットの表面から R までの面積と全断面積との比の $1/4$ に相当するから、(2) はペレット表面から飛程内におきる全核分裂による i 核種の $1/4$ が recoil によって外部へ出ることを表わしている。しかし被覆が近く $h < R_i$ であれば、(1) と (2) との差に相当するものが被覆にたたき込まれるであろう。

2. Ejection⁽¹⁰⁾

核分裂片は燃料の中で、半径 $b/2$ 、長さ R の回転楕円体内に、瞬間にその全運動エネルギーを放出すると考えられる。そしてペレットの表面近くで起きた分裂片のうち、燃料表面から飛び出すものについては、その分裂片の飛跡(燃料内で直径 b を有する)について考えた上記の回転楕円体が燃料表面を切る面積を楕円面と見て、これを中心面とする回転楕円体の燃料内側、すなわち $1/2$ に相当する体積中⁽¹⁰⁾の UO_2 が表面から放出されると一応考える*。そして核分裂はペレット内で一様におき、飛散する方向も 4π 方向に全く平等であるとして、その平均体積 V_m (cm^3) を求めると次のようになる。

$$V_m = \frac{\pi b^3}{6(2r-R)} \left\{ R + (r-R) \frac{\pi^2}{6} \right\} (1-\sigma) \quad (3)$$

ここに、 b : 燃料内における核分裂片飛跡の直径

r : $d/2$, ペレットの半径

σ は核分裂のおきる位置が表面から $1/2 b$ より浅いときを考えた修正項であるが、実際に計算すると 0.0056 といった小さい値であるから省略できる。いま $r = 0.466 \text{ cm}$ について $R = 8 \times 10^{-4} \text{ cm}$, $b = 10^{-6} \text{ cm}$ と仮定すると、 $V_m = 4.307 \times 10^{-10} \text{ cm}^3$ となる。さて毎秒ペレット表面から長さ 1 cm 当り欠損してゆく UO_2 の体積は(2)によって次のように与えられる。

$$\frac{2FP}{N_0 l_0} \cdot \frac{R}{d} V_m \quad (\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} / \text{cm}) \quad (4)$$

l_0 は燃料棒 1 本当り燃料の正味の長さ(cm)である。いま $P/N_0 l_0 = 156 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-1}$ と仮定すると、深さが飛程だけ減るのに要する時間は約 176 h である。しかし、これは全部水へ出ると考えた場合で、実際は被覆が近

くにあるだろうから、一部はこの内面に付着するであろう。しかし、時間がたてば再びたたき出されるであろう⁽¹³⁾。

3. UO_2 ejection に伴って knock out

される問題核種の数

ペレット中の核種の分布をここでは一様と考えておく。しかし、外表面では recoil 現象で $1/2$ が外部へ飛び出すから、表面は中心部の密度の $1/2$ であると考え。いま N_i を燃料棒 1 本当り i 核種の飽和量とし、これを C_i 数で Q_i とすると、

$$Q_i = \frac{1}{3.7 \times 10^{10}} \lambda_i N_i = \frac{a}{N_0} \cdot \frac{\lambda_i}{\alpha_i} \sum Y_i \xi_i \quad (5)$$

$$\text{ただし, } a \equiv \frac{FP}{3.7 \times 10^{10}}, \quad \alpha_i \equiv \lambda_i + \nu_{i1}$$

ν_{i1} : i 核種のペレットからの逸出率(s^{-1})

λ_i : i 核種の崩壊定数(s^{-1})

ξ_i は積算収率 $\sum Y_i$ に対して親核種の逸出を考慮した修正係数である。ペレット周辺部の密度は $(1/2 N_i) / (\pi d^2 l_0 / 4) = (2 N_i) / (\pi d^2 l_0)$ であるから、燃料 1 本当り毎秒 knock out される i 核種の数は(4)から次のように表わされる。

$$k \chi N_i \quad (6)$$

$$\text{ただし, } k \equiv \frac{4}{\pi} \cdot \frac{R}{d^2 l_0} V_m, \quad \chi \equiv \frac{FP}{N_0}$$

欠陥燃料 1 本当り、その p 部分**($p < 1$) が実質的に 1 次冷却水に曝露しているとする。このような曝露部分のある燃料棒の中にある i 核種の全量 Q_i は、その表面でおきる recoil, knock out による放出の極めて少ないことを考えると、結局(5)式のままでよい。

Ⅲ. Recoil, knockout 現象による 1 次冷却水濃度

曝露欠陥をもった燃料 N_1 本について、その p 部分は実質的に 1 次冷却水に曝露して、残りの $(1-p)N_1$ 部分は第Ⅲ報に示したように、 ν_{21} が非常に大きいだけで直接 recoil, knock out 成分は水へは出ないものとする。このような N_1 本の燃料による 1 次冷却水濃度を i 核種について V_i とする。第Ⅲ報 Fig. 2 の崩壊系に従って、 $i=0$ (Sn) から解き進んで V_i を求める。ただし、 Te^m , Te は壁へ付着してヨウ素化すると、直ちに冷却水中へ出ると考えて解くと、

* 本計算によると飛び出す U の数は 10^4 個くらいになる。実験上は $2,000^{(18)}$ 以上いろいろある⁽¹⁴⁾。一応の仮定の計算である。次節末尾の p 、さらに次章以下参照のこと。

** p についてはさらに後章参照。

$$V_4 = V_{40} + \frac{Sa}{N_0} \left[\sum_{i=0}^4 R_i (1 - e^{-\omega_i t}) + \sum_{i=2}^3 R_{\lambda i} (1 - e^{-\lambda_i t}) \right] \quad (7)$$

$$\text{ただし, } V_{40} = \frac{Sa}{N_0} \cdot \frac{\nu_{14}\lambda_4}{\alpha_4\omega_4} \sum Y_i \zeta_{a4} N_i$$

V_{40} は N_i 本が ν_{14} 一定, $\nu_{24} \rightarrow \infty$ で安定した 1 次冷却水濃度 ($\mu\text{Ci/g}$) である。 ζ_{a4} は第 II 報⁽¹⁾の ζ_4 で親核種に対する除染効果が $\sum Y_i$ に及ぼす影響を修正する係数であるが, なお Te^m , Te は付着率 A (s^{-1}) で付着し, ヨウ素化とともに水中に出るとして計算し直した値である。(7)式で $R_i, R_{\lambda i}$ の小さい項を省略すると,

$$V_4 \div V_{40} + \frac{Sa}{N_0} [R_4 (1 - e^{-\omega_4 t}) + R_{\lambda 4} (1 - e^{-\lambda_4 t})] \quad (8)$$

ただし, $S = 10^3 / W_p$

W_p : 1 次冷却水の実効全量 (g)

V_4 は結局 I と Te^m の項だけになる。 $R_{\lambda i}$ は付着した Te^m がヨウ素化して出て来る項である。 $R_i, R_{\lambda i}$ はともに λ_i, β_i, A および J_i の関数で, もちろん pN_i に比例する。ここに J_i は

$$J_i = \left(\frac{\chi k}{\alpha_i} \sum Y_i \xi_i + \frac{R}{d} Y_i \right) p N_i \quad (9)$$

で与えられる。ちょうど recoil, knock out 成分が崩壊収率に対して修正される項に当たっている。 ^{135}I については Te^m がなく, Te の項も結局省略できて, (8)式で $R_{\lambda i}$ に相当する項がなくなる。

Fig. 1 は, $t=0$ の安定値 $V_{40}/(Sa/N_0)$ と $(V_4 - V_{40})/(Sa/N_0)$ の時間経過と共に $W_4/(Sa/N_0)$ として示したものである。図中, 前者を A, 後者を B として示した。いずれも $\nu_{14} = 1.3 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$, $N_i = 1$, $p = 1$ としてある。この図は一応発電所に関係ないが, 厳密には基準的に用いた浄化率 β_1, β_{10}^* に対して, 当該発電所の値を用いて修正する必要がある。

Fig. 1 を見てわかるように recoil, knock out 成分はその発生の性格から ^{135}I が大きく, 殊にその初期から格別多く出る。そして 50 h もすると実質的にほとんど過渡の項がなくなる。

N_i の燃料棒について解析的に $\nu_{24} \rightarrow \infty$ とすることはよいとしても, recoil, knock out の放出が全長にわたって起きることも, またある長さを考えても, なおそこで出来た全量がそのまま, 殊に上のような計算で出た量が常にそのまま冷却水中へ放出されとも, 一般には考えられない。しかし, ここでは修正係数的な意味も含めて実効的な考えで p で与え, かつ一定としておく。こうした p の値は欠陥のあり方はもちろん, 時

- (A) Permanent state due to ordinary cladding defects
(B) Transient component due to recoil and knock out phenomena
(C) Permanent state due to surface contamination of 1 g
(D) Transient phenomena in surface contamination due to ejected UO_2

Fig. 1 Primary coolant concentration of ^{131}I , ^{133}I and ^{135}I

間的経過によっても変化すると考えるべきである。

IV. UO_2 の ejection に基づく

1 次冷却水濃度

Ejection によって UO_2 が水中へ放出されると, これが燃料の被覆表面に付着して表面汚染になるであろう。燃料棒 pN_i 当り毎秒 eject される UO_2 と全燃料との体積比 k' は(4)から次のように表わされる。

$$k' = \left(\frac{2FP}{N_0} \cdot \frac{R}{d} V_m p N_i \right) / \left(\frac{\pi}{4} d^2 l_0 N_0 \right) \\ = \frac{8}{\pi} \cdot \frac{FP}{N_0^2 l_0} \cdot \frac{R}{d^3} \cdot V_m p N_i \quad (10)$$

したがって, 燃料の全重量を M (g) とすると毎秒 $k'M$ (g) が水中へ放出される。これが一応全部表面汚染になるとすると, 表面汚染 m (g) は

$$\frac{dm}{dt} = k'M - jm = k'M_0 e^{-k't} - jm$$

* $\beta_1 = 1.6855 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1(10)}$, $\beta_{10} = 1.85 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$

で変化する。

ここに, M_0 : $t=0$ における全燃料の g 数

j : 表面汚染が核分裂, (n, γ) 反応等によって毎秒減る比率

Ejection によって放出された UO_2 が全部表面汚染になるとは限らないが, 前と同じく p の意味に含めておく。しかし, ここで注意するのは, この p と前節で与えた recoil, knock out に対する p とは実質的に違う可能性がある。さて k', j は極めて小さいから, 結局上の式より

$$m \doteq m_0 + k' M_0 t \quad (11)$$

と表わされる。 m_0 は $t=0$ における初期表面汚染である。(11)式で示す表面汚染に基づく 1 次冷却水濃度を i 核種について $U_i (\mu\text{Ci/g})$ とする。 U_0 (Sn) から解きすすんで U_i (I) を求め, 影響の少ない項を省略すると結局次のように表わされる。

$$U_i \doteq \frac{S_a}{N_0} \left\{ \theta_0 m_0 \frac{\lambda_\phi}{w_\phi} \sum Y_i \eta_{a4} + \theta_0 k' M_0 \left[\frac{\lambda_\phi}{w_\phi} \sum Y_i \eta_{a4} t - \left\{ \frac{M_\phi}{w_\phi} (1 - e^{-w_\phi t}) + \frac{M_{\lambda_1}}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t}) \right\} \right] \right\} \quad (12)$$

$$\text{ここに, } \theta_0 \equiv \varepsilon N_0, \quad \varepsilon \equiv \frac{1}{2} \cdot \frac{F_s}{F_c} \cdot \frac{1}{M} \quad (1)$$

F_s/F_c : 被覆表面とペレット内の熱中性子密度比

η_{a4} : ζ_{a4} について述べたと同じ要領で計算し直した $\sum Y_i$ に対する修正係数, M_ϕ/w_ϕ , M_{λ_1}/λ_2 : λ_i, w_i, Y_i, A の関数で各収率に應ずる過渡項

上の式は ^{131}I , ^{133}I に対しては全く同形で示されるが, ^{135}I に対しては V_4 の場合と同じく (12) 式最後の M_{λ_1}/λ_2 に関する項をとったものとなる。

ここで $k' M_0$ は $p N_1 = 1$ とすると, 燃料棒 1 本当たり毎秒 eject される燃料の目方で $9.82 \times 10^{-8} \sim 1.63 \times 10^{-5} \text{ g}$ といった値である。 $k' M_0 t = 1$ から 1 g に相当する時間が 28~17 h と出るが, 実際は上式が示すようにもっと遅い。

Fig. 1 に $m_0 = 1 \text{ g}$ に相当する濃度と, ejection のみによる 1 次冷却水中の濃度 (共に $\mu\text{Ci/g}$ 値) の時間変化を, いずれも (S_a/N_0) で割って $W_4/(S_a/N_0)$ として示した。なお, 図には前者を C, 後者を D として示す。ここでも $N_1 = 1, p = 1$ としてある。 ^{135}I が最も大きく ^{131}I が極めて少ないことがわかる。そして 50 h (^{131}I は 100 h くらい) もすると, ほとんど時間に比例する項のみになる。この曲線も厳密には発電所について少し違

う。

Fig. 2 は, $\nu_{24} \rightarrow \infty$ で安定して $t=0$ で recoil, knock out, ejection が同時に起きたときの時間変化を, $m_0 = 0$ として Fig. 1 と同じく $W_4/(S_a/N_0)$ として示したものである。 $p N_1 = 1$ として ^{131}I の値は 1,000 h たっても 2 倍にしかならない。 ^{135}I が一番早く大きくなり出し, 各核種とも 50 h もすると, ほとんど時間に比例して増す。

Fig. 2 Primary coolant concentration accompanied with enlargement of crack on cladding after steady state concentration by ordinary defects

V. 濃度比の時間変化

初期の表面汚染に相当する濃度成分を, 観測値から差し引いた残りは被覆欠陥によることを意味する。この欠陥成分のみについての濃度比は, 次の Fig. 3 の $H \rightarrow \infty$ の曲線上におち, 欠陥が大きくなれば $^{131}\text{I}/^{133}\text{I}$ の比がだんだん小さくなって遂に図の j 点*に落着くであろう。一般に ν_{14} の値によってこの点の位置は決まって, 欠陥燃料の本数には関係しない。本数はあらかじめ 1 本当たりの濃度を計算しておけばすぐにわかる。

この欠陥孔が大きくなり, 本報の現象が現れたらどうなるか。これを前章までの式を用いて時間経過を計算して図に示すと Fig. 3 のようになる。

* 図は $\nu_{14} = 1.3 \times 10^{-8}$ でなく解析上の $\nu_{14} \rightarrow 0$ の点をとってあるから, 厳密には少し違う。

Fig. 3 Transient behaviors of relations between $^{131}\text{I}/^{133}\text{I}$ and $^{135}\text{I}/^{133}\text{I}$ due to recoil and knock out, and due to recoil, knock out and ejection phenomena of UO_2 after initial state of ordinary defect

Fig. 3は第Ⅲ報Fig. 1(a)のj-h直線*を示し、その上に併記したものである。軸目盛に乗じてある係数 R_I/R_{Ir} , R_s/R_{sr} は第Ⅲ報に述べたように、

$$R_I/R_{Ir} = \omega_2/\omega_1 \times \omega_{1r}/\omega_{2r}$$

$$R_s/R_{sr} = \omega_2/\omega_3 \times \omega_{3r}/\omega_{2r}$$

なる発電所修正係数である。 ω_{1r} , ω_{2r} , ω_{3r} は ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I に対する $\omega_i = (\lambda_i + \beta_i)$ に当該発電所固有の実効浄化率を用いたものである。したがって、発電所に関係なく一般に活用できるが、前述のように厳密ではない。

曲線上の数字は現象の開始からの時間数を示す。j点に始まってr点**に終る曲線と、いま一つj点に始まってh点に終る変化が示してある**。 8 h 頃までは両曲線はほとんど重なっている。r点に終る曲線は $t=0$ における $\nu_{24} \rightarrow \infty$ 安定に続いて recoil, knock outのみが起きたとした場合であり、h点まで延びている線は、同時に ejection による表面汚染の起きた場合である。いずれも $p=1$ としてある。

Ejectionの影響が出ると時間とともにh点の方へだんだん近づいてゆく。この辺の事情は第Ⅱ報⁽¹⁾のHの変化としても了解されよう。また当初数時間の間、j-h線より上方に位置するのは knock out 成分に長半減期核種が多いためである。 p が1より小さければj-hの線にだんだん近接するとともにr点がj点に近づく。 p は前に述べたように1より小さい。殊に欠陥発生当初はますます小さいであろう。したがって、上のjから右へ進む時間は図より遅れるであろう。Fig. 3と ^{135}I の増加状況を見ておれば p , つまり欠陥規模^{***}の見当がつく。曲線は N_1 の大きさには関係しない***。

Fig. 4は $\nu_{24} \rightarrow \infty$ の定常項を除いた過渡部分 ΔI について、その濃度比の時間変化を示したものである。図中、破線は recoil, knock out 成分について、実線は

ejection 効果を含めたものである。この曲線は理論的に p に関係しないことが注目される。そして図に見るように、 50 h もたつと急にあとはj-h線上的にのって来ることがわかる。

N_1 以外に曝露に至らない欠陥本数 N_2 が別に存在している場合でも、明らかに曝露欠陥の起こる前の安定濃度がわかっておれば、観測濃度から燃料の初期汚染相当濃度、ならびにこの曝露に至るまでの欠陥相当分汚染濃度を差し引いたものについて、その濃度比の変化を追跡するとFig. 4のように変化してゆくはずである。これにはまず、 ^{131}I がほとんど変化しないのに ^{135}I , ^{133}I が異常に増してゆく現象をとらえねばならない。そして上の差引き分の変化に対する濃度比を求めると、 30 h 頃よりj-h線の上に落ちる。これが p に関係しないということは判断上極めて好都合である。

この場合 m_0 とか N_2 が多いと、測定誤差の問題がその判定に影響することが察せられる。従来から述べているように、詳しく欠陥を追跡しようとするれば、常に測定精度の向上が格別に期待される。

Ⅶ. 結 言

原子炉が全出力で安定したところで、表面汚染と欠陥本数とそのあり方を明らかにした上で、欠陥成分の濃度ならびに濃度比に異常が起き、殊に ^{131}I が余り変化しないのに ^{135}I が急激に増加する現象が起きたら極めて注意を要する。従来 $\nu_{14} = 1.3 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ で ^{131}I , ^{133}I のみに着目して出した欠陥率の%で判断する方法では、全く見失ってしまうことを注意せねばならない。一たんj点近くにあった欠陥成分の濃度比がhの方へ移動したら、燃料ペレットが実質的に曝露しだしたと考えられる。以後厳重な追跡観測を続ける必要がある。前記のr点には重要な意味をもたせることができる。このr点の位置は p の値に関係するが、異常成分のみの濃度比がj-h線の上にかなり近く現れ、しかも

* Fig. 3においてj, h点の値が第Ⅲ報と違うのは、 λ_i , Y_i を GE 旧表⁽¹⁶⁾ から GE 新表⁽¹⁷⁾ にかえたのと、 Te^m , Te の付着率 A はそのままであるが、本図ではその後の検証によって、ヨウ素化とともに離脱すると計算し直したためである。

** このr点はj-h直線より下、 ν_{14} 一定の直線よりさらに理論上少し下に来るが、測定誤差より極めて小さいから結局j-h線上と見てよい。

** 両曲線を分けて書いたのは、両者に対して p が全く同じでないだろうと考えて実用に資するために示したものである。

*** 本解析に仮定してきた V_m 等のとり方に対する見解も含まれるであろう。

*** 濃度比で論ずるのは結局、冷却水汚染濃度になるまでの物理的・化学的現象の不明さを避けるためである。