

氏名	岩 本 多 實 いわもと かず み
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	論 工 博 第 226 号
学位授与の日付	昭 和 43 年 9 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	黒鉛型核燃料からの核分裂生成物の逃散に関する基礎的研究

論文調査委員 (主査) 教授 大石 純 教授 兵藤知典 教授 岐美 格

### 論 文 内 容 の 要 旨

この論文は、黒鉛型核燃料の中性子照射によって生ずる反跳核分裂生成物の、核燃料内における逃散挙動について研究した結果をまとめたもので、緒論、7章および総括からなっている。

緒論ではこの研究の意義、目的を明らかにしている。

第1章では、黒鉛型核燃料を中心として一般の核燃料からの核分裂生成物の逃散挙動に対し従来提唱されている若干のモデルが、逃散の全過程を統一的に説明し得ないことや、非気体状核分裂生成物の逃散には適用し難い点を指摘し、新たなモデルの設定が必要なことを示唆している。

第2章では、平均質炉燃料の再処理実験によって、前章に述べた従来の逃散モデルが包蔵する欠陥を検証した後、著者自身の考案にかかわる新しいモデルを提唱している。まず、中性子照射した二酸化ウラン分散黒鉛型核燃料の加熱浸出実験の結果から、黒鉛内に反跳した非気体状核分裂生成物の逃散挙動は拡散機構のみによるものでなく、拡散以前にいくばくかの活性化エネルギーを必要とする過程が存在すること、加熱によって非気体状核分裂生成物は黒鉛の表面に表面化合物とでもいうべき形態で蓄積しさらに熱分解することを確認している。この知見に基づいて著者は、反跳核分裂生成物は黒鉛結晶内に生じた欠陥に捕獲された後、加熱による捕獲点からの放出、拡散領域内の拡散による表面への移動および表面からの離脱の3過程を経て逃散するとのモデルを設定している。そして放出過程に対しては金属の欠陥回復に関する Primak-Vand の理論にならい、黒鉛結晶の欠陥に捕獲された核分裂生成物がそこから放出される速度は、広範囲に連続的な値をとりかつ不均一に分布する活性化エネルギーをもった  $n$  次の不可逆反応速度式で表現されるとしている。拡散過程に対しては、領域内いたる所に上記の放出速度をもつ源が存在する場合の拡散方程式を適用している。離脱過程に対しては、気体状核分裂生成物は表面に到達した後速かに脱着して系外に去り、非気体状核分裂生成物は表面で直ちに前記の表面化合物を形成し、このものは黒鉛内部での拡散現象に影響を与えないとしている。この基本方針の下に、試料を定速昇温加熱ならびに定温加熱した場合の逃散率を解析し、種々の因子が及ぼす影響を明らかにしている。

第3章は黒鉛表面からの非気体状核分裂生成物の離脱過程を、表面化合物に相当する単体元素の脱着現象で模擬して解析し、実験によって検証したものである。黒鉛表面の吸着点をもつ活性化エネルギーは、一般には結晶内の捕獲点のそれと同じく広範囲に連続的な値をとりかつ不均一に分布していると仮定して、脱着速度を $n$ 次の不可逆反応速度式で表わし、一般解を求めている。ついで、ヨウ素—黒鉛系およびバリウム—黒鉛系の吸脱着実験を行ない、(1)ヨウ素は約 $450^{\circ}\text{C}$ 以上で黒鉛表面に化学吸着する、(2)化学吸着したヨウ素の脱着に対する活性化エネルギーは、仮定したごとく不均一分布をなす、(3)バリウムの脱着も不均一分布の活性化エネルギーのもとで行なわれ、かつ約 $1000^{\circ}\text{C}$ 以上では表面化合物をつくってさらに分解すると推測される、と結論している。

第4章は黒鉛からの気体状核分裂生成物の逃散現象について、 $^{133}\text{Xe}$ を対象して行なった実験に関する記述である。定速昇温加熱の実験からは、逃散速度の温度依存性には数多くのピークが見られ、昇温速度の小さい場合は放出過程が逃散全過程を律速することを見出している。また、定温加熱の実験からは、加熱の初期は逃散速度の速い迅速段階で続いて緩慢段階に入ることを明らかにしている。そして逃散速度の実測値と著者の提唱したモデルによる計算値とを対比して、モデルがよく適合すると述べている。

第5章は黒鉛からの非気体状核分裂生成物の逃散現象について、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{140}\text{Ba}$ 、 $^{86}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{141}\text{Ce}$ 、 $^{103}\text{Ru}$ および $^{95}\text{Zr}$ — $^{95}\text{Nb}$ に着目し、定温加熱による逃散実験の結果を記述したものである。実験結果の解析より、(1) $^{131}\text{I}$ の逃散挙動は $^{133}\text{Xe}$ のそれと極めてよく類似している、(2)非気体状核分裂生成物の逃散挙動は新しいモデルでかなりよく説明し得る、としている。

第6章では、黒鉛型核燃料の黒鉛に対する成分である二酸化ウランからの気体状核分裂生成物の逃散現象が取り扱われている。黒鉛の場合と同じく、 $^{133}\text{Xe}$ の逃散を対象にして定速昇温加熱ならびに定温加熱実験を行なった結果、(1)昇温速度のおそい場合は拡散速度が速く、放出過程が律速段階である、(2)二酸化ウランの場合も新しいモデルが適用され得る、ことを見出している。

第7章は前数章で得られた結論に立脚し、原子炉内で一定温度下で中性子照射を受けつつある一般の核燃料から、気体状核分裂生成物が逃散する状況を理論的に解析し、諸外国の代表的な原子炉における実際の逃散状況と比較検討したものである。着目する気体状核分裂生成物Bを中心に、その非気体状親核種Aならびに非気体状娘核種Cの壊変系列を考え、核分裂で生成したAがまず捕獲され、時間経過とともに捕獲点からの放出とBへの壊変が進み、さらにAが捕獲されたまま壊変したBの放出とCへの壊変が生ずるとの状況を設定している。そして、放出の活性化エネルギーは広範囲に連続的な値をとりかつ不均一に分布しており、放出過程が律速段階であるとして、既に用いた手法と同じ手法でもって逃散速度を求め、逃散速度の経時変化、逃散速度に及ぼす親核種の寄与、平衡逃散分率と注目する核種の壊変定数との関係等を解析している。この結果を原子炉における実例と対比して、解析値と実測値とは定性的によい一致を示すと結論している。

総括では、以上各章で得られた結果を要約して述べている。

## 論文審査の結果の要旨

原子炉内で中性子照射を受けつつある核燃料中、あるいは使用済み核燃料中の核分裂生成物の逃散挙動

の研究は、原子炉操作上の安全性あるいは使用済み核燃料の再処理方式の決定の立場から重要である。この論文は核分裂生成物の逃散についてモデル化による解析を行ない、加熱処理実験によって検証するとともに、原子炉内で中性子照射中の核燃料からの気体状核分裂生成物の逃散について考察を加えたもので、主な成果は次の通りである。

(1) 逃散現象に関して従来提唱されていた数種のモデルを検討し、そのいずれも逃散現象の一側面を説明し得るに過ぎないことを指摘するとともに、実験によってこれを明らかにした。

(2) 従来のモデルに代る新しいモデルを提案し、これに基づいて逃散速度を解析して、逃散現象を統一的に表現することに成功した。

(3)  $^{133}\text{Xe}$  を代表とする気体状核分裂生成物および  $^{131}\text{I}$ 、 $^{140}\text{Ba}$  等を代表とする非気体状核分裂生成物の黒鉛からの逃散速度を実測し、著者のモデルの適合することを確認した。

(4) 二酸化ウランからの気体状核分裂生成物の逃散についても、新しいモデルでよく説明し得ることを示した。

(5) 稼動中の原子炉の核燃料から逃散する気体状核分裂生成物の挙動について考察し、上記モデル化による逃散速度が諸外国における実測値と定性的に一致することを明らかにした。

以上述べたように、この論文は黒鉛型核燃料からの核分裂生成物の逃散現象に関して基礎的立場から行なわれた研究結果を記述したものであって、学術上、実際上寄与する所が少なくない。よって本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。