[52] 被覆粒子燃料の概要と研究現状

岩 本 多 實*

(1972年 12月 1日 受 理)

Outline and Current Research Status of Coated Particle Fuels

By Kazumi IWAMOTO

In the past few years, great interest has been aroused in the HTGR from the viewpoint of effective use of nuclear energy as well as alleviation of environmental problems in Japan. This article outlines the coated particle fuels for the HTGR, and reviews the current research status of the relation between the properties and irradiation behavior of the coated fuel particles.

KEYWORDS: coated particle fuels, coated fuel particles, pyrolytic carbon, pyrolytic silicon carbide, graphite, irradiation, radiation effects, coating failure, fission product diffusion

I. はじめに

最近、わが国では高温ガス炉が核エネルギーの効率的利用と環境対策の面から注目されている。この炉には、在来炉の燃料とは著しく形態を異にした被覆粒子燃料が用いられるが、この燃料は、直径が数 100μ のU, Thの炭化物または酸化物の球状粒子(燃料核)のまわりを核分裂生成物(F.P.)の放出を抑制する壁の役割をする被覆層で何重にも被覆したもの(被覆燃料粒子)を基本とし、この粒子を黒鉛材中に分散して球型とするか、あるいはベレット状にして黒鉛のさや、またはブロックに収めたものである。以下に、この燃料の製造、性質、照射挙動についての概要を記すとともに、最近の研究動向についても言及する。あらましについては海外のレビュー⁽¹⁾⁻⁽⁷⁾や会議の報告⁽⁸⁾⁻⁽¹⁴⁾のほか、和文による紹介⁽¹⁵⁾⁻⁽¹⁹⁾もあるので参照されたい。とくに文献(1), (4)には被覆粒子燃料全般について、(7)には使用経験について、また、(8)には球型燃料の開発の最近の状況について紹介されている。

II. 概 要

1. 燃料の分類^{(1)-(4)**}

(1) 被覆燃料粒子

燃料核としてはU, Th, Puなどの炭化物もしくは酸化物が、単独または混合して用いられ、その大きさは数 100μ である。核の仕様は燃料サイクル、核熱発生

のほか、製造、照射健全性を考慮して決められる。燃料核に多重の被覆が施され、被覆燃料粒子が出来上がる。被覆層には熱分解炭素(PyC)と必要に応じてSiCを用いるのが普通で、BISO型(低密度PyC-高密度PyCの2重被覆)、Duplex型(高密度PyC-高密度PyCの2重被覆)、Triplex型(低密度PyC-高密度PyC-高密度PyCの3重被覆)、およびTRISO型(低密度PyC-SiC-高密度PyCの3重被覆およびBISO型にSiCと高密度PyCを加えた4重被覆の総称で、4重被覆を特にTRISO-II型と呼ぶこともある)などがあり**、代表的なものを写真1に示す。さらに、低密度PyCのまわりに高密度の薄い層(シール層)を入れる場合もある。これらの中でも、BISO型とTRISO型が近年多く用いられている。これらの粒子では、密度が $1.0\sim 1.2\text{ g/cm}^3$ の多孔質低密度PyCを燃料核の第1層目の被覆として用い、燃料核からの核分裂片損傷をくい止め、核から放出される気体状F.P.のガスだめとするほか、核のスウェリングを吸収するなどの機能をもたせている。この第1層PyC層は緩衝層と呼ばれる。また、高密度PyC層は、気体状F.P.やCOのような発生ガスを高温で封じ込め

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

** 燃料に関する用語には外国でも統一して使用されていないものがあるので多少私見も入っている。

** 分類の仕方はアメリカで用いられる俗称に従っている。これらのほかに高密度PyC単層のものもあり、Peach Bottom炉に使用された。

a: 燃料核(写真では UO_2 核), b: 緩衝 PyC 層, c: SiC 層, d: 高密度等方性 PyC 層

写真 1 代表的な被覆燃料粒子の断面

る圧力容器の役割を有している。しかしながら Cs, Ba, Sr のような特定の F.P. を通しやすいので、これらの放出を制御するのに SiC 層を設ける。

(2) 燃料ペレット

被覆燃料粒子は結合してペレット状の成形体として使用される。そのさい、被覆粒子を円筒状に充填して

おき、この中に結合材を加えて成形するベッド型と被覆粒子に結合材を予め加えたものを加圧成形するコンパクト型とに区別できる。

(3) 燃料要素

燃料ペレットは黒鉛内に収められて燃料交換を行う最小単位である燃料要素が形成されるが、形状により

a: カーボンセメントづけプラグ
b: 機械加工黒鉛殻
c: 被覆燃料粒子
d: 炭素質マトリックス

I. Peach Bottom 炉用黒鉛ロッド型燃料要素 (ホットプレス法で造った燃料コンパクトを 90° 高さに充填する)

II. 球型燃料要素 (被覆粒子を炭素質マトリックス中に分散し、外径 6 cm, 内径 4 cm の黒鉛球殻内に入れる)

III. Fort St. Vrain 炉用黒鉛六角柱ブロック型燃料要素 (燃料孔に結合ベッドペレットを入れ、冷却孔は別に設ける)

第 1 図 代表的な高温ガス炉用燃料要素

ロッド型 (Peach Bottom 炉の単一ロッドや Dragon 炉のロッドクラスタなど)、球型 (AVR や THTR 用) およびブロック型 (Fort St. Vrain 炉, 西ドイツ HHT 計画, Dragon 計画 HTR に見られる六角柱ブロック) に分類できる。代表的な要素を第 1 図に示す。熱除去はロッド型では外部から、ブロック型では、HHT や HTR のように冷却ガス孔内に燃料を入れる方式と、冷却ガス孔を燃料孔と別にする方式 (Fort St. Vrain 炉) とがある。

2. 燃料の使用例

第 1 表に稼動中および計画中の高温ガス炉用の燃料の概要とその使用条件を一覧している⁽³⁾⁽⁷⁾。稼動中の炉としては Dragon 炉 (20 MWt, 0 MWe, 1964 年 8 月臨界, 1966 年 4 月全出力運転), Peach Bottom 炉 (115 MWt, 40 MWe, 1966 年 3 月臨界, 1967 年 1 月発電開始), AVR (46 MWt, 15 MWe, 1966 年 8 月臨界, 1968 年初頭全出力運転) があり, UHTREX (3 MWt, 0 MWe) は 1966 年 10 月臨界に達し, 1970 年に運転を終了した。燃料が炉に使用できるかどうかは被覆粒子の性能によって決まる。被覆粒子の使用限界は高速中性子照射量, 燃焼度, 温度および装荷期間で決まるものであるが, 第 1 表の最大の使用条件下でも課せられた要求—被覆が製造工程中や装荷期間中一定限度以上こわれないようにすること, 分裂性物質の保持, F.P. ガスの保持 (F.P. ガス生成速度 (B) に対する F.P. ガス放出速度 (R)) の比, R/B をある一定値以下に抑える, この値は炉によって差があるが 1×10^{-4} 以下である), 固体 F.P. の保持—を満たす必要がある。この要求のうち, はじめの 3 つは燃料体の形状とは無関係に冷却材の放射能に直接影響するが, 固体 F.P. はペレット・マトリックスや黒鉛壁の保持能力にも影響を受ける。燃料の仕様は, 炉内における使用条件に耐えるようにその設計・照射試験結果などを基本に決められる。

III. 被覆粒子燃料の製造

1. 燃料核⁽⁴⁾

燃料核の代表的製造法として, (i) 粒子溶融法⁽⁴⁾⁽²⁰⁾, (ii) 粉末冶金法⁽¹⁾⁽⁴⁾, (iii) ソル・ゲル法⁽⁴⁾⁽¹⁸⁾ がある。粒子溶融法にはベッド溶融, プラズマ溶融, 消耗電極溶融などがある。ベッド溶融は GGA 社で炭化物核製造用に開発されたもので, あらかじめ球状化した原料核を真空中で $2,450^{\circ}\text{C}$ 程度の高温で溶融し, 表面張力で球状化して高密度の核を得る方法である。粉末冶金法は, 酸化物あるいは炭化物 (酸化物に炭素を加えておく) の原料粉末にバインダーを加え, 細孔から押し出して短い

糸状にし, 回転円板またはドラムによりころがり運動を与えて球状化するか, あるいは円板状に成形したものをふるい網で細分化し, 振動を与えて球状化した後, 水素中または真空中で焼結して炭化物または酸化物の球状粒子を得る方法である。ソル・ゲル法は, 燃料物質のゾルを適当な液体中に滴下させて球状のゾル滴をゲル化した後, 乾燥・焼結して球状核を得る方法である。この方法では酸化物のほか炭化物も製造できる上, 再処理後の溶液の処理に適し, 遠隔操作が可能であること, 大量生産できること, 低密度のものから高密度のものまで造り得ること, などのため有望視されている。

これらのほか, あらかじめ整粒したイオン交換樹脂に U を吸着させてから焼成する方法も研究され^{(21)~(23)} 800μ のものまで製造でき, 原料が安い, 整粒しやすい, 遠隔操作が容易などの製造上の利点のほか, 後述するアメーバ効果が起こりにくいとも報告されている。欠点としては, 核分裂性物質の種類と核中の濃度とに限界があることが挙げられている。

2. 被覆燃料粒子

燃料核粒子の被覆は, 高温に保持された流動層内で原料ガスを熱分解し, その生成物を粒子に蒸着させることによって行われる。

(1) PyC 被覆⁽²⁴⁾

原料ガスとしては, アセチレン, メタン, プロパン, プロピレンなどの炭化水素ガスを用いることができる。通常, 第 1 層の低密度 PyC 被覆はアセチレンを $1,200^{\circ}\sim 1,400^{\circ}\text{C}$ で, 高密度 PyC 被覆はメタンを $1,800^{\circ}\sim 2,100^{\circ}\text{C}$ でそれぞれ熱分解してつくられる。近年, プロパンを $1,400^{\circ}\sim 1,700^{\circ}\text{C}$ ⁽²⁴⁾, プロピレンを $1,200^{\circ}\sim 1,400^{\circ}\text{C}$ ⁽²⁵⁾, またアセチレンを $1,100^{\circ}\sim 1,200^{\circ}\text{C}$ ⁽²⁴⁾⁽²⁶⁾ で, それぞれ熱分解して高密度 PyC をつくる研究がなされている。これは, メタンの場合より低温で品質に差のないものを大きな蒸着速度で短時間に被覆することによる被覆コストの低下をねらったものである。

流動層で造られる高密度 PyC の構造は, 被覆温度, 原料ガスの種類, 供給量と分圧, 燃料核の大きさと量, 流動層の形状などの熱分解条件によって影響される⁽²⁴⁾。PyC は顕微鏡組織から, 被覆層が偏光下で玉ねぎの皮状に見える層状組織, 偏光下で大小の柱状晶が半径方向に配列して見える柱状組織, 偏光下で等軸の小粒が配列して見える粒状組織, および正常光下でも偏光下でも等方的である等方組織, さらにススを含んだ組織に区別できる (例えば文献 (4), (18) のセラモグラフを参照)。さらに, これらの有する性質を厳密かつ

第 1 表 高温ガス冷却炉用被覆粒子燃料の要約

原子炉	臨界年月 熱出力 (MW) 電気出力 (MW)	Peach Bottom 炉	Dragon 炉	AVR	UHTREX	Fort St. Vrain 炉 分裂性物質 親物質	Dragon 計画 HTR	THTR-300
		1966年3月 115 40	1964年8月 20 なし	1966年8月 46 15	1966年10月 3 なし	1973年予定 837 330		1976年予定
被覆燃料 粒子	燃料核	化学形 Th/U 比 濃縮度 (%) 直径 (μ)	UC — 93 420~570	(U/Th)C ₂ 5/1 93 200	UC ₂ — 93 150~200	(U/Th)C ₂ 4.25/1 93 150~250	ThC ₂ — — 300~500	(U/Th)C ₂ 10/1 400
	被覆層	型 式	TRISO	Duplex	Triplex	TRISO	TRISO	TRISO
	緩衝 PyC シール PyC 厚さ高密度 PyC (μ) SiC 高密度 PyC	1 重	30 — — 35 110	33 — 74 — —	27 — 35 — 40	50 — 20 20 40	50 — 20 20 40	40 10 45 30 60
	合計	55	175	107	102	130	130	185
燃料コンパ クトまたは 燃料ベッド	直径 (μ)	220~510	770~920	~414	354~400	410~510	560~760	1,170
	形状、寸法	ホットプレスした黒鉛コンパクト (外径2.75, 内径1.75, 長さ3")	黒鉛球 (外径4 cm)	黒鉛球 (外径4 cm)	押し出し成形黒鉛コンパクト	粒子結合ステッキック	黒鉛コンパクト	炭素質マトリックス球
燃料要素	被覆粒子充填率 (%)	22~28	12 (分裂性), 24 (親物質)	22	8~27	60~65		
	形状、寸法	低透過率黒鉛管 (外径3.5", 内径2.75, 長さ7.5") 燃料コンパクトを7.5"以内に燃料コンパクトを充填した7本の低透過率フィートの長さ充填した黒鉛管の集合体	機械加工した黒鉛球 (外径6", 内径4 cm) 内へ被覆粒子とマトリックス材を射出成型法で入れたもの		黒鉛円筒 (外径1.1", 内径0.5", 長さ5.5") 内に黒鉛コンパクトを入れたもの	六角状黒鉛ブロック (外面径14, 長さ31") の燃料孔に粒子結合ステッキックを配列したもの	六角状黒鉛管内に六角状黒鉛コンパクトを入れたもの	六角状黒鉛管内に六角状黒鉛コンパクトを入れたもの
F.P. パージ系	熱除去	あり	あり	なし	なし	なし	なし	なし
	炉心出力密度, 平均 (kW/l)	8.3	14	3	1.3	6.3		
燃料使用 条件	温度 (°C)	最高 平均 最低	1,330 980 570	1,250	1,590 1,430 1,080	1,260 840	1,260	1,300
	燃焼度 (% FIMA)	最大 平均	14 —	35~70	13/年	20 16	7	8 14 10
	高速中性子照射量 (n/cm ² , E>0.18 MeV)	最大 平均	4.7×10 ²¹ 3.6×10 ²¹	2.2×10 ²¹ /年 1.7×10 ²¹ /年	1×10 ²¹ /2年 0.7×10 ²¹ /2年	8.2×10 ²¹ 4.8×10 ²¹	8.2×10 ²¹ 4.8×10 ²¹	5×10 ²¹ 6.4×10 ²¹
	寿命 (年)	3	可変	5.4	指定せず	6		

定量的に示すのに、密度、結晶子配向の異方性、結晶子寸法が用いられる。炭素の理論密度は 2.22 g/cm^3 であるが、PyCとしては $0.6 \sim 2.2 \text{ g/cm}^3$ のものを造り得る。密度が $1.3 \sim 1.4 \text{ g/cm}^3$ 以上のものは気体状F.P.を通過させにくいとされ、被覆粒子の耐圧容器壁として被覆でき、また、密度が 1.3 g/cm^3 以下のものは緩衝層として用いられる。高密度PyC層の蒸着炭素結晶子のC軸方向の寸法 L_c は $30 \sim 200 \text{ \AA}$ 程度がふつうである。さらに、蒸着炭素は蒸着面に平行に成長しやすいので、異方性を持ちやすくなる。この異方性は、ベーコン異方性因子(Bacon Anisotropy Factor, BAF)の尺度で表わされる。これは、PyCの蒸着面に関し、垂直方向と平行方向との熱膨張係数の比で定義されるもので、炭素結晶子のa軸方向の膨脹を無視してX線

回折により求められる。完全に等方質なPyCのBAFは1.00であり、この値が大きいほど異方性は大きい。

PyCの構造および物性と蒸着条件との関係は、第2図に示したメタンの場合や⁽²⁴⁾⁽²⁷⁾、第3図に示したプロピレンの場合に⁽²⁵⁾見られるようにかなり複雑であるが、Ⅳ-2に述べるように、被覆層PyCに要求される条件を満たすよう製造条件が選定され、かつ品質はきびしく規制を受ける。例えば、PyC被覆層のBAFは被覆厚みが大きくなるにつれて変化するもので、これを防ぐように調節がなされる⁽²⁸⁾。

(2) SiC被覆

SiC層は、SiとCを当量含み、常温で液体のメチルトリクロルシランの蒸気を $1,200 \sim 1,800^\circ\text{C}$ の温度で、

A: 微細組織, B: 結晶子寸法, C: 異方性因子, D: 密度
第2図 メタンから造った熱分解炭素の構造と蒸着条件との関係⁽²⁴⁾⁽²⁷⁾

第3図 プロピレンから造った熱分解炭素の組織、蒸着温度、プロピレン濃度、密度、異方性因子の間の関係⁽²⁵⁾

かつ過剰の水素ガス存在下で流動層内で熱分解して蒸着される。蒸着 SiC の組織は温度に大きく影響され、1,400°C 以下でキャリア・ガス流速を大きくした時は層状組織のものになり、遊離の Si を含むので密度も低くなるが、1,400°C 以上では柱状組織であり、高温蒸着ほど高密度になる。結晶構造はほとんどの場合 β 型(立方晶)である⁽²⁸⁾。2" の流動層でシラン濃度を 2% とし、水素と Ar ガスを流動化ガスに用いた場合の SiC の密度と蒸着温度と流動ガスとの関係を第4図に示す⁽³⁰⁾。これからシラン 2%, 温度 1,400~1,700°C, 水素 50~100% で析出した SiC はほぼ理論密度

第4図 熱分解 SiC の密度と蒸着温度、流動化ガス(H₂-Ar)組成との関係⁽³⁰⁾

(3.217 g/cm³) を有することがわかる。

(3) その他の被覆

被覆材として PyC, SiC のほか Al₂O₃, BeO, MgO, ZrC, NbC などが研究された⁽¹⁾。揮発性の金属塩化物を高温で蒸気または炭素ガスにより分解して酸化物の、また炭化水素-水素系で分解して炭化物の被覆を得る方法である。このうち ZrC については、燃料の高温化を目指して、Zr スポンジとハロゲン化メタンから被覆する研究が最近行われている⁽³¹⁾。

3. 燃料ペレット

被覆粒子は、黒鉛粉末およびバインダーからなるマトリックス原料を加えて成形してペレットにして使用されるが、粒子の結合の仕方によってベッド型とコンパクト型とに区別できる。いずれの場合でも約 900°C までの温度で炭化焼成し、さらに約 1,800°C で脱ガス処理して成形体が得られる(第2表)。被覆粒子の充填率はベッド型では最密に近く、コンパクト型ではせいぜい約 40% である。

ベッド型では、粒子と炭素が結合しないと熱伝導が悪いため、結合材であるマトリックス原料を粒子充填層に注入する方法⁽³²⁾、あらかじめ結合材で被覆しておいて(オーバーコートと呼ぶ)振動充填する方法、粒子表面に低密度炭素被覆をしたものを充填して結合材を加える方法などが研究されている。GGA 社の Fort St. Vrain 炉用燃料では結合材を粒子充填層に注入する方法を採用している。

コンパクト型では、被覆粒子に直接結合材を混合するか、または被覆粒子を結合材でオーバーコートするかしてから、型押しまたは押し出しによって成形される。オーバーコートしてから型押しする方法はオーバーコート・プレス法と呼ばれている。なお、加圧成形に際し、結合材によって約 200°C 以下で加圧する温間プレスや約 800°C で加圧する高温プレスがある。型込みは金型またはラバープレスで行われる。Dragon 炉ではオーバーコート温間金型プレス、AVR では温間ラバープレスが開発されている。

結合材は黒鉛粉末にバインダーを混合したものであり、第2表に示すように種々のものが用いられる。バインダーとしてはこのほかにポリエチレンが研究されている。ベッド型では、粒子はちょうど栗おこし状に結合された円柱であるが、コンパクト型では、普通は黒鉛マトリックス中に分散した中空の円柱である。これらについては第1表に記されている。

第 2 表 ペレット成形方法⁽¹⁹⁾

型 式	製 法	フ ィ ラ ー†	バ イ ン ダ ー†	備 考
結合ベッド	射出成型法—焼成—脱ガス	(1) Poco 黒鉛 (2) Poco 黒鉛+サーマックス(<13 μ)	(1) ビッチ (2) フルフルリアルコール	Fort St. Vrain 炉燃料用
コンパクト	オーバーコート・プレス法(〜2,000 psi, 40°〜180°C)—焼成 900°C, N ₂ —脱ガス(1,800°C)	Shell H-100 コークス (<76 μ)	フェノール樹脂	Dragon 炉燃料用
	ホット・プレス法(〜4,500 psi, 800°C)—脱ガス(1,800°C)	NCC-GP-38 黒鉛 (<20 μ)	ビッチ (Barett 30)	Peach Bottom 炉燃料用
	ホット・押し法—焼成—脱ガス	天然黒鉛+等方性黒鉛	ビッチ	
	オーバーコート・ラバープレス法—焼成—脱ガス	天然黒鉛+人造黒鉛	フェノール樹脂	AVR, THTR 燃料用
	押出法 (45°C, 3,000 psi)—焼成(850°C)—脱ガス(1,700°C)	黒鉛 (GLC 1008-S)+サーマックス	フルフルリアルコール (Varcum 8251)+マレイン酸	UHTREX 炉燃料用

† フィラーとバインダーから成るペレットのマトリックスの詳細については公表されていない。

4. 燃料要素

燃料ペレットは黒鉛内に納められて燃料要素が形成される。第 1 図に示した Fort St. Vrain 炉用の燃料要素では、結合材であらかじめ成形した被覆粒子の棒を燃料孔に入れ、He 冷却孔は別にブロック内に設けている。HHT⁽³³⁾ や Dragon 計画 HTR⁽³⁴⁾ の要素では、燃料ペレットを黒鉛のサヤに納めた燃料ロッドをブロック内にあけた孔に入れ、そのまわりを冷却する方式を採用するなど設計上の工夫を検討している。

IV. 性質と照射挙動*

1. 燃料核

燃料核の物性としては、密度、粒子径、粒度分布、真球度、不純物含量あるいは耐摩耗性などが考慮されなければならない。密度については、85〜95% T.D. の空隙率の大きい核とし、スウェリングを自ら吸収して F.P. ガスを蓄える空間をもたせようとする Dragon 計画の考え方で、できる限り理論密度に近いものとしてスウェリングと F.P. ガスの問題は緩衝層によって解決しようとするアメリカの考え方がある。被覆粒子の耐内圧性能は粒子が小さいほど有利であるが、核熱発生、製造、照射健全性を考慮して選択される。実際の寸法は第 1 表に示したとおりであり。

核の化学形としては従来炭化物が普通であったが、近年炭化物が注目されてきた。これは、①炭化物がゾ

ル・ゲル法で製造されれば、炭化物のように雰囲気制御の必要もなく容易になる。②流動層内で被覆する場合、炭化物よりも耐摩耗性がよいので被覆層内へのウラン汚染を少なくできる。③ F.P. 放出面からは汚染ウランに基づく放出が少ない上に、特定の核種、たとえば Ce, Y などを核内に炭化物として保持できる⁽³⁵⁾。などの利点があるためとされている。さらに、最近では Sr, Ba, Cs のような固体 F.P. の保持を燃料核そのものの中で行うという考えから、炭化物核にアルミナを少量添加する研究も行われている⁽³⁶⁾。炭化物核にした場合には、次に述べる CO ガス内圧とアメーバ効果の 2 点に留意する必要がある。

CO 圧は、UO₂ が被覆第 1 層目を PyC で囲まれ、反応することによって生じる。この反応は、被覆層で仕切られた系内で起るため、温度と核の O/U 比で定まる一定の平衡圧に達する。この平衡圧は、O/U が 2.00 に近ければ 1,400°C でせいぜい数気圧であるが⁽²²⁾、2.10 になれば数 100 気圧に達する⁽⁶⁾。また、燃焼の進行に伴い酸素に対する F.P. 原子の親和度が U 原子や生成する Pu 原子と異なることに起因する過剰の酸素生成が、PyC との反応による CO 圧増大に寄与することも検討する必要がある。被覆粒子を高温で温度勾配下に置き、粒子内に非対称な温度分布を与えるとき、燃料核

* 照射試験に用いるキャプセルについては説明を省略する。

が高温側または低温側に移動する現象が見られ、アメーバ効果と呼ばれている^{(5)(6)(18)(37)~(40)}。この効果は、炭化物核でも酸化物核でも、また照射下でも照射しないときでも観察される。しかも、この移動はPyC層中もSiC層中も同じくらいの速さで起こり、これらの層では移動を防ぐことができず、はなはだしいときは被覆層は突き破られる(写真2参照)。移動は普通酸化物が低温側へ、炭化物は高温側へ向う。この現象がなぜ起こるかについての定説はないが、酸化物と炭化物では機構が異なっているようである。酸化物核の場合、高温部ではCが UO_{2+x} の O_2 や照射の進行に伴う過剰の O_2 または CO_2 と反応してCOを生成し、低温部でCOが分解してCが蒸着し、結果としてCは高温部から低温部に移行するために核移動が起こるという考え方⁽⁵⁾⁽⁶⁾⁽¹⁸⁾が支配的である。機構はさておき、実験データのまとめ方として、被覆破損の始まる時間を温度と温度勾配で相関しようとする試みもある⁽⁴¹⁾。炭化物核の場合では、高温側と低温側とで UC_2 の組成が異なることに原因し⁽¹⁸⁾、熱拡散でデータをまとめる試み⁽⁴²⁾がある。しかしながら、この効果は高温で粒子あたりの温度差が大きいときに著しく起こるので、

実燃料ではできるだけ温度差を小さくする必要がある。

(a)燃料核が高温側に移動した UO_2 核 TRISO型被覆粒子
(b)燃料核が低温側に移動した UO_2 核 BISO型被覆粒子

写真2 アメーバ効果(被覆粒子を温度勾配下で加熱した場合に見られる燃料核の定方向移動)

2. 被覆層

(1) 高密度 PyC

PyCの構造と蒸着条件との関係はすでにⅢ-2節で述べたが、破壊の強度、ひずみ、ヤング率などの機械的性質、および熱膨脹、熱伝導度などについても研究されている。第3表には被覆に使う高密度等方性PyCの性質をSiCと比較して示している⁽⁷⁾⁽⁴³⁾。

第3表 熱分解炭素(PyC)とSiCとの性質の比較(GGA社による代表的な値)⁽⁷⁾⁽⁴³⁾

性 質		PyC		β -SiC
		HTI ^(a)	LTI ^(a)	
結 晶 構 造		乱 層 構 造 (六方晶, $c/a=2.8$)	乱 層 構 造 (六方晶, $c/a=2.8$)	立 方 晶
密 度 (g/cm^3)		1.8~2.1	1.8~2.1	3.2
破 壊 強 度 (psi)	未 照 射	35×10^3	50×10^3	120×10^3
	照射($\sim 2.5 \times 10^{21}$ nvt, 1,000°C)	50×10^3	(b)	120×10^3
ヤ ン グ 率	未 照 射	2×10^6	5×10^6	60×10^6
	照射($\sim 2.5 \times 10^{21}$ nvt, 1,000°C)	4×10^6	(b)	60×10^6
熱 伝 導 率 (室温 cal/ cm·sec·°C)	未 照 射	3×10^{-2}	10^{-2}	0.1
	照射($\sim 2.5 \times 10^{21}$ nvt, 1,000°C)	2×10^{-2}	(b)	(b)
熱膨脹係数(400°C, 1/°C)		5×10^{-6}	6×10^{-6}	4.5×10^{-6} (c)
照射による寸法変化(1,000°C, %/ 10^{21} nvt)		垂直方向: +2.5 平行方向: -2.0 不飽和	垂直方向: +3 ^(d) 平行方向: -2 ^(d) 不飽和	+0.1 (等方的) 飽和
照射クリープ定数($\sim 1,000^\circ\text{C}$, 1/psi·nvt)		$1 \sim 2 \times 10^{-27}$	10^{-27} (d)	3×10^{-29} (d)

(a) HTI PyC: CH_4 を約1,900°Cで熱分解して造った等方性PyC, High Temperature Isotropic PyCの略

LTI PyC: C_2H_6 を約1,400°Cで熱分解して造った等方性PyC, Low Temperature Isotropic PyCの略

(b) データなし, (c) 文献値, (d) 予備的な値

PyC は黒鉛に似て高速中性子照射下での寸法安定性がよくない⁽⁶⁾⁽²⁴⁾⁽²⁷⁾⁽⁴⁴⁾⁽⁴⁵⁾。第5図⁽⁶⁾に示すように、 $1 \sim 2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ の照射量までは等方的に収縮し、それ以上の照射量ではa軸方向に収縮し、c軸方向に膨脹する非等方的な寸法変化を起こす。その度合はPyCの密度、異方性および照射温度に依存する。密度については、照射前の値のいかんにかかわらず、 $1 \sim 2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 以上の照射量では、第6図⁽⁶⁾に見られるように、共通の値 $1.9 \sim 2.1 \text{ g/cm}^3$ になることが知られている。PyC が照射の初期に等方的に収縮するのは、この密度変化の寄与が大きいとされている。一方、照射によってはじき出された原子が層間に集積しやすくなるため結晶子はc軸方向に伸び、またはじき出しのあとに残る空格子点とその網目の周囲の原子を引き寄せる作用をするためa軸方向に収縮する寸法変化を起こす。PyC が完全等方質ならその効果はゼロで、結晶子の寸法変化も最小になる。そして $1 \sim 2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 以上

での寸法変化は密度の減少をもたらす。異方性をもつときには、結晶子の層面が蒸着面に垂直方向よりも平行方向により多く配列されているので、垂直方向に伸び、平行方向に収縮する非等方的挙動を示し、その度合はPyCの異方性に依存する。BAFが1.1以下のいわゆる高密度等方性PyCに対しては、照射量が $3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 程度では蒸着面に平行方向に5~10%収縮することが第5図からわかる。PyCの破壊強度が約40,000 psi、ヤング率が約 $2 \times 10^6 \text{ psi}$ であることを考え合わせると、PyC自体のクリープ変形がなければPyCは物理的に破壊されることになる。PyCは加熱しても約2,000°C以下でクリープ変形しないが、高速中性子照射下ではクリープがかなり大きく、900~1,200°Cで照射量 $2 \sim 3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ではクリープ歪みは10%に達する。SiCは照射下でも寸法は安定しているので、TRISO型被覆粒子の設計上からは、蒸着面に平行方向に10%以下の歪みを受けるPyCのみが最外被覆層として用い得るものになる。これらから、高密度PyCの構造因子としては、後に述べるように密度 $1.6 \sim 1.95 \text{ g/cm}^3$ 、BAF 1.00~1.05が必要とされる。

このように、異方性因子はPyCが被覆層として使用できるかどうかの重要な指標であるが、この因子が高速中性子照射により⁽⁴⁶⁾⁽⁴⁷⁾、また高温での加熱により⁽⁴⁸⁾⁽⁴⁷⁾、さらにF.P.ガス圧やCO圧により被覆層へ応力がかかることにより⁽⁴⁶⁾上昇することが知られている。例えば、最高1,400°Cで照射量が $0.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 以上、9% FIMA 燃焼させた粒子でBAFは15~30%、また $16 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ で<0.2% FIMAで約60%上昇したという例もあり⁽⁴⁶⁾、実際の被覆粒子では照射量、温度、応力の影響が加わるので、BAF上昇はかなり大きくなるものと思われる。上に述べた高密度PyCの密度、BAFはこれらの効果を暗に含んだ実験の結果である。

(2) SiC

流動層内で造られる高密度(>99% T.D.) β -SiCの物性は第3表に示されている^{(7)(48)~(50)}。SiCは高速中性子照射に対してPyCよりはるかに安定で、1,300°Cで $1.6 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2 (E > 0.1 \text{ MeV})$ まで照射しても組織変化はほとんど認められていない⁽⁵⁰⁾。また、寸法変化は等方的で約 $3 \times 10^{20} \text{ nvt}$ で飽和し、飽和値は温度の上昇とともに減少し、室温で約1%、1,000°Cで0.1%以下の膨脹である。最近になって、ある照射量で寸法変化が飽和するという定説を否定する実験データが報告されたが⁽⁵¹⁾、それでも実際の原子炉の照射量による

第5図 1,200°Cでの高速中性子照射における種々の密度の熱分解炭素の寸法変化⁽⁶⁾

第6図 1,200°Cでの高速中性子照射における熱分解炭素の密度変化⁽⁶⁾

寸法変化は問題にならない。熱伝導率に対する照射効果は明らかではないが、照射温度に依存し、照射量とともに減少し、上記の照射量付近で飽和するらしい。他の機械的性質は表に示されたとおりである。さらに、 β -SiC の物性が密度に依存し、低密度になれば表に示した値より好ましくない方にずれることは注意すべきである。このことは、Ⅲ-2 に述べた組織とも関連するので、高密度の方が被覆層には好ましい。

3. 被覆燃料粒子

被覆燃料粒子を構成する燃料核や被覆層についてはすでに述べたので、ここでは被覆破損、照射特性および被覆粒子の設計について述べる。

(1) 被覆破損

被覆粒子の被覆破損は、F.P. 放出を誘発するので極度に小さく抑えなければならない。この破損は以下に述べる物理的な原因と化学的な原因とによって起こる。物理的には被覆層内の応力とひずみの状態が限界を越えると被覆がこわれる。この応力は、①燃料核のスウェリング、②F.P. ガス圧、③酸化物核の場合に炭素との反応で生成する CO ガス圧、④核分裂片損傷による被覆のひずみ、⑤高速中性子照射による被覆層の非等方的寸法変化、⑥熱膨張差や高温アニールによる PyC の寸法変化、などに基因する⁽⁴⁾⁽¹⁸⁾。①、③、④については燃料核密度を小さくし、 UO_2 核に対しては O/U を規制することにより、また低密度の緩衝層 PyC を必要な厚さだけ設けることにより解決が可能であり、実際の粒子でもこのような対策がなされている。また、⑥の効果は一般に小さい。しかし、②については、ある程度まで自由空間により内圧を低めることができるのみであり、⑤については、すでにⅣ-2 で述べたように、被覆層の品質で規制し、寸法変化を

できるだけ小さく、かつ等方的にする以外に手はない。化学的な原因によるものとしては、核と被覆層との相互作用の結果生じるもので、すでに述べたアメーバ効果があるほか、炭化物核の場合に UC が混入していれば被覆層への拡散が大きくなり、SiC と反応して被覆を劣化させる場合もある⁽⁵²⁾⁽⁵³⁾。後者については炭素過剰の二炭化物とし、また SiC 中の遊離 Si をなくすることによってほぼ解決できるようである。

(2) 照射特性

被覆粒子の照射は数多く行われているが⁽⁵⁴⁾、SiC 被覆をもつ粒子についての1969年までの照射試験が第4表に要約されている⁽⁴³⁾。その後も、照射試験は継続されており、最近では被覆層物性の高速中性子照射効果を系統的に調べる傾向がつつよいようである⁽¹⁸⁾⁽⁴⁶⁾⁽⁵⁴⁾⁻⁽⁵⁶⁾。これによると、高密度 PyC 層の照射挙動が被覆粒子の破損にもっとも大きな寄与をしており、PyC 層の物理的破損が密度と BAF とによって支配されることが明らかになっている。高密度 PyC 層が有すべき密度と BAF はそれぞれ1.6 g/cm³以上、1.00~1.05 と⁽⁶⁾、また1,300°C で $16 \times 10^{21} \text{n/cm}^2 (E > 0.1 \text{ MeV})$ の照射結果から、それぞれ1.7~1.95 g/cm³、1.05以下で、かつメタンからの蒸着速度が100 μ/hr 以上ともいわれている⁽¹⁸⁾⁽⁵⁵⁾。さらに、GGA 社での結果によると⁽⁵⁷⁾⁽⁵⁸⁾、温度、燃焼度、高速中性子照射量 ($E > 0.18 \text{ MeV}$) が、それぞれ1,250°C で75% FIMA、 $7.8 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ 、1,325°C で75% FIMA、 $8.7 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ 、また1,400°C で16% FIMA、 $5.7 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ までの照射でも被覆破損は起こらず被覆粒子は健全であったとされており、第1表に示した実際の炉の使用条件は満たされている。

(3) 被覆粒子の設計

第4表 SiC 層をもつ被覆粒子に対する1969年までの照射試験⁽⁴³⁾

研究機関	期 間	照射試験の数	結 果 の 要 約
Dragon	約1961~1969	>75	40以上のキャプセル、ループ試験で Dragon 炉用 PyC-SiC-PyC 被覆粒子の性能を確認。他に Dragon 炉燃料要素として試験中。
General Atomic	1963~1969	114	TRISO 型被覆粒子は 1,375°C、 $4.3 \times 10^{21} \text{nvt}$ で22% FIMA まで、また1,300°C、 $8 \times 10^{21} \text{nvt}$ で27% FIMA まで健全。
Harwell	1966~1968	多少	PyC-SiC 被覆粒子は Dounreay 炉で高い中性子束値まで健全。
ORNL	1967~1969	9	PyC-SiC 被覆粒子から F.P. 放出率は極少量であった (^{85}Kr の R/B は 1,300°C で 6×10^{-5})。
AERE (Springfield)	約1964~1967	多少	PyC-SiC 被覆粒子は AGR 燃料照射試験で好結果を収めた。
BMI	—	2	PyC-SiC 被覆粒子からの F.P. 放出率は極少量であった。

被覆粒子や被覆層試片に対する数多くの照射試験データの蓄積をもとに、被覆粒子の照射下の被覆破損を説明するモデル—Schwartz⁽⁵⁹⁾、Prados-Scott⁽⁶⁰⁾の両モデルは BISO 型を、Kaae⁽⁶¹⁾⁽⁶²⁾のモデルは TRISO 型をそれぞれ対象としている—が提案されている。これらでは被覆層が、F.P. ガスと燃料物質スウェリングを閉じこめる压力容器として働くとし、照射に伴う F.P. ガス量、粒子寸法、PyC や SiC の物性、結晶子配向の変化とクリープ効果を考慮して被覆

- (1) 外部PyC層外表面の接線方向応力
- (2) 内部PyC層外表面の接線方向応力
- (3) 外部PyC層内表面の接線方向応力
- (4) 内部PyC層内表面の接線方向応力

第7図 熱分解炭素(PyC)被覆層中の寸法変化とPyC, SiC被覆層中の応力計算値との対応⁽⁴³⁾⁽⁵⁸⁾

(A: PyCの初期高密度化による応力, B: 照射クリープによる応力緩和, C-C: F.P.ガス蓄積と照射クリープによる両効果が釣り合った状態での応力)

層内の応力解析を行なっている。Kaaeモデルによる TRISO-II 型粒子に対する例を第7図に示している⁽⁴³⁾⁽⁵⁸⁾。照射の初期には、PyC の高密度化により PyC 中に引張り、SiC 中に圧縮応力が急増するが、照射とともにPyCの寸法変化速度が小さくなるにつれ、PyC中にクリープにより応力緩和が起こる。さらに、照射量を増やすとPyCの寸法変化が急激に起こるので、PyC, SiCともに応力が増大する。しかし、さらに照射量を大きくすれば、クリープが寸法変化による応力とバランスしてF.P.ガス圧が増大するので、SiC中の圧縮応力も徐々に減少する。図の例では被覆破損は見られないが、SiC層の圧力が圧縮から引張に変化する場合に被覆は破損する。この解析は、照射試験の結果と照合の上、改善されつつ被覆粒子の設計に用いられる⁽⁶³⁾⁽⁶⁴⁾。

4. 燃料ペレット

(1) 性質

ベッド型とコンパクト型とは結合材の組成も異なるので、マトリックスの性質も異なってくる。第5表には、コンパクト型の Peach Bottom 炉用ペレットの性質を例として示している⁽⁴⁷⁾。熱伝導率は被覆粒子充填率によって左右されるが、第6表⁽¹⁰⁾に見られるように、ペレット化することでルーズベッド型よりはるかに大きくできるし、コンパクト型はベッド型より数倍以上大きい。さらにコンパクト型では粒子あたりの温度差を小さくすることができ、F.P.の拡散障壁として有効なほか、He冷却材中の不純物が被覆粒子と

第5表 Peach Bottom 炉用燃料コンパクトの代表的性質⁽⁴⁷⁾

黒鉛密度 (g/cm ³)	1.90~1.95	
破壊強度† (psi)	垂直方向	8,500
	平行方向	7,500
熱膨張係数† (1,000°Cまで, 1/°C)	垂直方向	7.5×10 ⁻⁶
	平行方向	2.25×10 ⁻⁶
熱伝導度(2,000°C, 半径方向, W/cm·°C)	0.3	
電気抵抗 (Ω·cm)	3.5×10 ⁻³	
He透過率 (cm ² /sec)	2×10 ⁻³	
細孔構造	直径1μ以上の細孔による空隙率は1%以下	
照射による寸法安定性	1,100°~1,500°C, 6×10 ¹⁹ fiss./cm ² 後の収縮は0.1%以下	

† 粒子の配向方向基準

反応するのを防止できる上、機械的強度も大きい。ペレット製造時の粒子被覆層の破損は結合ベッド型では起こりにくいが、コンパクト型では起こり得る。そこで後者では、オーバーコートすることにより防止している。

第 6 表 燃料ペレットの熱伝導率⁽¹⁹⁾

ペレット型式		熱伝導率 (cal/cm·sec·°C)
被覆粒子充填層(比較用)		0.005~0.007
結合ベッド		~0.01
コンパクト	温間プレス	~0.04
	ホットプレス	0.06~0.15
	AVR 燃料	~0.07

(2) 照射挙動

ペレットの照射試験は数多く行われている。被覆粒子自体が照射に耐えるものである場合には、マトリックスの照射損傷による収縮が粒子に応力を及ぼし、被覆層を破損しないことが必要である。オーバーコート・プレス法でつくった Dragon ペレットの例では、照射による収縮は初めは等方的に起こり、照射量が増

すと軸方向に伸び、径方向に縮んだほか、粒子の充填率を 10~33% にかえて 2×10^{21} n/cm² まで高速中性子照射しても収縮挙動には差は見られていない⁽⁶⁵⁾。粒子充填率は、製造中の被覆破損のほか、このような照射挙動の点からも検討される。

5. 燃料要素

燃料要素用黒鉛としては、針状コークス異方質のもの(アメリカのガス炉)やギルソナイト系コークス等方質のもの(Dragon 炉で使用)が使用されている。両者の性質を H-327 と H-328 黒鉛を例にとって第 7 表⁽⁶⁵⁾⁽⁶⁷⁾に示す。この両黒鉛を高温照射した場合の寸法変化例を第 8 図⁽⁶⁶⁾⁽⁶⁷⁾に示している。針状コークス系黒鉛 H-327 では、押出し方向に垂直か平行かによって寸法変化が異なるが、型込み成形されたギルソナイト系黒鉛 H-328 では方向性が少なく、等方的で寸法変化も H-327 より小さい。例えば、1,200°C で 5×10^{21} n/cm² ($E > 0.18$ MeV) までの照射では、H-327 は押出し方向に約 5%、それに垂直方向に約 1.8% であるが、H-328 では、約 2% で異方性は見られない。また高温照射することにより、黒鉛材の引張強度、ヤング率、破壊歪み、熱膨脹係数、熱伝導率なども変化する。そして、これらの高温照射挙動結果は燃料要素の設計に反

第 7 表 異方性黒鉛 H-327 と等方性黒鉛 H-328 との性質の比較⁽⁶⁶⁾⁽⁶⁷⁾

		H-327	H-328
成形法		押出し	型押し
方向性		異方性	ほぼ等方性
原料物質	フィラー バインダ 含浸物	ニードルコークス コールタールピッチ コールタールピッチ	ギルソナイトコークス コールタールピッチ コールタールピッチ
見掛け密度 (g/cm ³)		1.79	1.73
引張り強度 (psi)	c 軸方向	1,005±180	2,560±500
	a 軸方向	2,550±250	2,780±250
熱膨脹係数 (22°~500°C, 1/°C)	c 軸方向	3.35×10^{-6}	5.70×10^{-6}
	a 軸方向	1.10×10^{-6}	5.50×10^{-6}
熱伝導率(c 軸方向, cal/sec·cm·°C)	100°C	0.26	0.25
	1,200°C	0.09	0.10
ヤング率 (psi)	c 軸方向	0.8×10^6	1.30×10^6
	a 軸方向	—	1.40×10^6
結晶配向性 (BAF)		0.70	1.10
見掛けの結晶子寸法 (Å)	L_c	1,150	385
	L_a	640	430

第8図 非等方性の H-327 とほぼ等方性の H-328 両黒鉛の寸法変化の高速中性子照射量依存性⁽⁶⁶⁾⁽⁶⁷⁾

映される。なお、黒鉛材料については和文による紹介があるので、それを参照されたい^{(68)~(72)}。

V. F.P. の放出挙動

1. 放出移行過程

F.P. の放出源は、燃料核および被覆層汚染ウランであり、核からの F.P. は、拡散、反跳などにより被覆層中に入り、被覆層中の汚染ウランや核移動によって入り込んだウランから生成した F.P. とともに拡散する^{(73)~(76)}。もちろん被覆層が破損しておれば大量に放出される。最外 PyC 層に達した F.P. は表面を離れてペレット・マトリックス材を移動し、さらに黒鉛スリーブや黒鉛ブロックを通過してから冷却材中に入る⁽⁵⁾。冷却材中では配管、機器の表面に沈着し、あるいはそこから剝離して他の位置に再沈着する。このような F.P. の移行過程に対し、安全性解析の立場から計算コードがつくられている^{(77)~(78)}。なお、高温ガス炉に用いられる物質中での F.P. とアクチノイドの拡散係数についての調査結果もまとめられている⁽⁸⁰⁾。

2. 被覆燃料粒子からの放出

F.P. の放出は、酸化物核の方が炭化物核よりも小さくなるとみなされている⁽⁸⁵⁾。被覆層が健全な粒子からの F.P. 放出率はかなり小さい値である。炉内の使用温度付近までは、被覆層中の汚染ウランによる放出が支配的であるが、温度をさらに高くすると核からの放出も効いてくる。キャプセル照射で得られた Kr の放出率の例を第9図に⁽⁸¹⁾、Dragon 計画 HTR 用

第9図 被覆燃料粒子からの ^{85m}Kr の放出⁽⁸¹⁾

第10図 Dragon 計画 HTR 用被覆粒子から、それを取りまく黒鉛中への Sr 放出⁽⁸²⁾

被覆粒子からの Sr の放出例を第10図に⁽⁸²⁾、また、照射中の F.P. の測定例を第8表に示す⁽⁴³⁾⁽⁸³⁾。これらから、TRISO 型の健全な粒子では F.P. 放出率は $1,300^{\circ}\text{C}$ で $<10^{-4}$ であり、BISO 型で放出を抑制しき

第 8 表 (U/Th)C₂ 核被覆粒子照射中の F.P. 放出⁽⁴³⁾⁽⁸⁸⁾

被覆層型式	照射温度(°C)	¹⁴⁰ Ba	¹⁴¹ Ce	¹⁴⁴ Ce	¹³⁷ Cs	⁸⁹ Sr	⁹⁰ Sr	⁹⁵ Zr
TRISO	900	2×10^{-6}	9×10^{-7}	3×10^{-6}	9×10^{-6}	3×10^{-6}	5×10^{-6}	1×10^{-6}
	1,300	1×10^{-4}	3×10^{-6}	1×10^{-5}	3×10^{-4}	1×10^{-4}	1×10^{-3}	3×10^{-6}
BISO	1,300	4×10^{-2}	1×10^{-4}	4×10^{-5}	8×10^{-5}	8×10^{-2}	2×10^{-1}	6×10^{-6}

注) TRISO 型粒子は13% FIMA, 2×10^{21} n/cm² まで, BISO 型粒子は 2.9% FIMA, 1.6×10^{21} n/cm² まで, それぞれ照射された。

れない Sr, Ba などが TRISO 型では抑制できることを示している。なお, 被覆粒子の被覆層中の F.P. や アクチノイドの分布を測定し, 拡散係数を求めることも試みられている⁽⁸⁴⁾。第11図に例を示す。

第11図 400°C 以下で照射した PyC 3重被覆粒子を 1,500°C で照射後加熱したさいの PyC 被覆中の ¹⁴⁰Ba の分布の経時変化⁽⁸⁴⁾

ペレットの場合には, ペレット化時にウラン汚染が起こらなければ, 被覆粒子で健全である限り, 放出率は被覆粒子に対する値より小さくなる。

3. 黒鉛中の拡散

黒鉛中の拡散についてはかなり研究されている⁽⁷⁹⁾⁽⁸⁰⁾⁽⁸⁵⁾。Sr, Ba, Cs などの金属状 F.P. の黒鉛中の拡散係数が黒鉛の材質や拡散する核種の濃度によって影響されることは, 最近になって指摘されたことである⁽⁷⁹⁾⁽⁸⁶⁾⁽⁸⁷⁾。特に核種濃度による影響が大きいことは第 9 表から明らかで, 濃度が小さいほど拡散係数も小さくなっている。被覆粒子からの F.P. 放出率が小さ

ければ濃度も小さくなるので, 黒鉛のこれらの F.P. の保持能力が大きくなっていく。Fort St. Vrain 炉用 H-327 黒鉛に対しては第10表に示す値をとっている⁽⁴³⁾。

第 9 表 黒鉛中における Ba と Sr の拡散係数の濃度依存性

元素	温度(°C)	元素の濃度(μ mole/gC)	拡散係数(cm ² /sec)	文献
Ba	1,000	$< 1 \times 10^{-6}$	6×10^{-11}	(86)
		$10^{-6} \sim 10^{-8}$	4×10^{-11}	
		$10^{-6} \sim 10^{-8}$	7×10^{-11}	
		$\sim 10^{-1}$	1×10^{-10}	
		~ 1	2×10^{-9}	
		~ 7	1×10^{-8}	
Sr	875	3×10^{-5}	2.4×10^{-9}	(87)
		1.7	4.3×10^{-7}	
		2.5	4.7×10^{-7}	

第10表 Fort St. Vrain 炉用燃料要素黒鉛 H-327中の Sr, Ba, Cs の拡散係数⁽⁴³⁾

元素	拡散係数 D (cm ² /sec) の表示式	$\ln D_0$ (cm ² /sec)	Q (kcal/mole)
Sr	$\ln D = \ln D_0 - \frac{Q}{R T}$	5.7	60
Ba	ただし Q : 活性化エネルギー, R : 気体定数, T : 絶対温度 (°K)	7.4	70
Cs		-1.0	40

Ⅶ. おわりに

本稿は初めに述べたように, すでにこの種のレビューが海外で公表されていることを承知しつつ, 被覆粒子燃料全般についての概要と最近の研究の動向, 状況をまとめたものである。再処理⁽⁸⁸⁾を含めた燃料サイクル全般についての記述を欠いたり, また記述内容に言及しつつせないところが多々あるが, 関心を持たれる読者に何らかの参考となれば幸いであり, ご高見, ご教示を賜わることが願っている。また, 著者が行な

っているこの燃料の試験研究にご教示、ご激励を賜わり、執筆にあたってご激励下さった日本原子力研究所の諸氏、とりわけ燃料工学部長石原健彦氏に厚く感謝する。

— 参考文献 —

- (1) DAYTON, R.W., OXLEY, J.H., TOWNLEY, C. W.: *J. Nucl. Mater.*, **11**, 1 (1964).
- (2) PILLOTON, R.L.: *ORNL-TM-1335*, (1965).
- (3) GOEDEL, W.V.: *Nucl. Appl.*, **3**, 599 (1967).
- (4) GODFREY, T.G., SCOTT, J.L., BEATY, R.L., et al.: *ORNL-4324*, (1968).
- (5) SHEPHERD, L.R.: *J. Brit. Nucl. Energ. Soc.*, **9**, 173 (1970).
- (6) ROSE, K.S.B.: *J. Inst. Nucl. Eng.*, July/Aug., 95 (1971).
- (7) SIMNAD, M.T.: "*Fuel Element Experience in Nuclear Power Reactors*", p.99 (1971), Gordon & Breach Sci. Publ., N.Y.
- (8) Symposium on Coated Particle Fuels, Nov. 1963, ANS Meeting, *Nucl. Sci. Eng.*, **20**, 153 (1964).
- (9) Dragon Symposium: *J. Nucl. Energy. Soc.*, **5**[3], 244 (1966).
- (10) "*Thorium Fuel Cycle*", *Proc. 2nd Int. Fuel Cycle Symp.*, Gatlingburg, Tenn. May 3~6, 1966, *CONF-660524*, (1966).
- (11) IAEA Symp. Advanced and High Temperature Gas Cooled Reactors, Julich, Oct. 21~25, 1968.
- (12) Reaktortagung 1970, Berlin, Apr. 20~21, p.434~449.
- (13) Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p.618~649.
- (14) *Proc. Gas-cooled Reactor Information Meeting ORNL*, Apr. 27~30, 1970: *CONF-700401*, 439~618, (1970).
- (15) 岩本多実: *JAERI-memo-3645*(未), (1969).
- (16) 鈴木弘茂: *原子力工業*, **16**, 12 (1970).
- (17) 武谷清昭: *JAERI-memo-3765*(未), -3830(未), (1969).
- (18) NICKEL, H.: 本誌, **14**[8], 438 (1972).
- (19) 原安協: 高温ガス冷却炉の安全性に関する調査, p.3~57 (1972).
- (20) HOLDEN, A.N.: "*Dispersion Fuel Elements*", (1967), Gordon & Breach Sci. Publ., N.Y.
- (21) SCOTT, J.L., LEITNAKER, J.M., POLLOCK, C.B.: *ORNL-4589*, 3 (1970).
- (22) SCOTT, J.L., POLLOCK, C.B.: *Gas-cooled Reactor—Thorium Utilization Program*, Semiannual Information Meeting, Apr. 21, 1971, P.18 (Summary of ORNL Presentation).
- (23) POLLOCK, C.B., SCOTT, J.L., LEITNAKER, J.M.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **14**, 139 (1971).
- (24) BOKROS, J.C.: "*Chemistry and Physics of Carbon*", (D.H. Walker, (Ed.)), Vol. 5, 1 (1968), Marcel Dekker, N.Y.
- (25) GYARMATI, E., NICKEL, H., HUSCHKA, H., et al.: Reaktortagung 1970, Berlin, Apr. 20~22, p.434 (1970).
- (26) 小林紀昭, 井川勝市, 岩本多実: 本会昭47核燃料・炉材料分科会予稿集, B15, (1972).
- (27) BOKROS, J.C.: *GA-8888*, (1968).
- (28) HACKSTEIN, K.G., HERRMANN, F.J., HUSCHKA, H., et al.: Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p.618, (1971).
- (29) GULDEN, T.D.: *J. Amer. Ceram. Soc.*, **51**, 424 (1968).
- (30) GYARMATI, E., NICKEL, H., BALTSESEN, E.: Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p.642, (1971).
- (31) 井川勝市, 岩本多実: 本会昭47核燃料・炉材料分科会予稿集, B14 (1972).
- (32) COOBS, J.H.: *Gas-cooled Reactor—Thorium Utilization Program*, Semiannual Information Meeting, Apr. 21, 1971, P.1 (Summary of the ORNL Presentation).
- (33) BUGL, J., HUSCHKA, H.: Reaktortagung 1970, Berlin, Apr. 20~22, p.438, (1970).
- (34) SHEPHERD, L.R.: *A/CONF.*, 49/P/738, (1971).
- (35) MORGAN, M.T., TOWNS, R.L., MORGAN, J. G.: *ORNL-4266*, 77 (1968).
- (36) NICKEL, H., FORTMANN, R., HAMASCH, M.: Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p.634, (1971).
- (37) GOEDEL, W.V.: *GA-3588*, 49 (1962).
- (38) NICKEL, H.: *JUL-687-RW*, (1970).
- (39) REAGAN, P.E., LONG, E.L., MORGAN, J.G., et al.: *ORNL-TM-3361*, (1971).
- (40) IWAMOTO, K., KASHIMURA, S., KIKUCHI, A.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **9**[8], 465 (1972).
- (41) GRAHAM, L.W.: *CONF-700401*, 494 (1970).
- (42) GULDEN, T.D.: *J. Amer. Ceram. Soc.*, **55**, 14 (1972).
- (43) Public Service Co. of Colorado: *DOCKET-50267-14*, (Fort St. Vrain Nuclear Generating Station, Final Safety Analysis Rep.), (1970).
- (44) BOKROS, J.C., GUTHRIE, G.L., DUNLAP, R. W., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **31**, 25 (1969).
- (45) BOKROS, J.C., GUTHRIE, G.L., SCHWARZ, A.S.: *Carbon*, **6**, 55 (1968).
- (46) KOIZLIK, K., BALTSESEN, E.: Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p.630, (1971).
- (47) KOIZLIK, K.: *JUL-868-RW*, (1972).
- (48) PRICE, R.J., GULDEN, T.D., KAAE, J.L.: *GAMD-8415*, (1968).

- (49) PRICE, R.J.: *Amer. Ceram. Soc. Bull.*, **48**, 859 (1969).
 (50) GULDEN, T.D.: *J. Amer. Ceram. Soc.*, **52**, 585 (1969).
 (51) BLACKSTONE, R., VOICE, E.H.: *J. Nucl. Mater.*, **39**, 319 (1971).
 (52) FERGUSON, I.F., WALKER, D.E.Y.: *J. Chem. Soc.*, (A) 35 (1970).
 (53) 福田幸朔, 鹿志村 悟, 飛田 勉, 岩本多実: 未発表データ, (1972).
 (54) LUBY, C.S.: *GAMD-9245*, (1968).
 (55) BAIER, J., W. in der SCHMITTEN, WALGER, P., *et al.*: Reaktortagung 1971, Bonn, Mar. 30~Apr. 2, p. 630, (1971).
 (56) HEWETTE II, D.M., COOBS, J.H., SCOTT, J.L., *et al.*: *ORNL-TM-3441*, (1972).
 (57) GOEDEL, W.V., WINKLER, E.O., LUBY, C.S.: *CONF-700401*, 439 (1970).
 (58) LUBY, C.S., HARMON, D.P., GOEDEL, W.V.: *GA-10468*, (1971).
 (59) SCHWARZ, A.S.: *GA-7262*, (1967).
 (60) PRADOS, J.W., SCOTT, J.L.: *Nucl. Appl.*, **2**, 402 (1966).
 (61) KAAE, J.L.: *J. Nucl. Mater.*, **29**, 249 (1969).
 (62) *idem*: *ibid.*, **32**, 322 (1969).
 (63) KAAE, J.L., STEVENS, D.W., LUBY, C.S.: *Nucl. Technol.*, **10**, 44 (1971).
 (64) GULDEN, T.D., SMITH, C.L., HARMON, D.P.: *ibid.*, **16**, 100 (1972).
 (65) EVERRETT, M.R., MANZEL, R., BARR, P., *et al.*: *D.P. Rep.* 686 (1969).
 (66) ENGLE, G.B., PITNER, A.L.: *GA-9973*, (1970).
 (67) COBB, H.R.W.: *GA-10699*, (1971).
 (68) 佐々木泰一: 炭 素, No. 64, 14 (1971).
 (69) 同 上: 同 上, No. 66, 89 (1971).
 (70) 鈴木弘茂: 原子力工業, **17**, 32 (1971).
 (71) 同 上: セラミックス, **4**, 58 (1969).
 (72) 同 上: 同 上, **7**, 45 (1972).
 (73) DUNLUP, R.W., GULDEN, T.D.: *Nucl. Sci. Eng.*, **32**, 407 (1968).
 (74) PRADOS, J.W., SCOTT, J.L.: *ORNL-3421*, (1963).
 (75) WALTHER, H.: *Nukleonik*, **11**, 171 (1968).
 (76) BAURMANN, K.W.: *JUL-685-PA*, (1970).
 (77) VANSLAGER, F.E., *et al.*: *GA-10073*, (1970).
 (78) ZUMWALT, L.R.: *GAMD-7535*, (1967).
 (79) FLOWERS, F.H.: *AERE-R-6575*, (1970).
 (80) 牧野正彦, 福田幸朔: *JAERI-memo-4915*, (1972).
 (81) LANGER, S., BALDWIN, N.L.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **13**, 561 (1970).
 (82) OECD—High Temperature Reactor Project: *DRAGON Annual Rep.*, No. 9, (1968); No. 10 (1969); No. 11 (1970).
 (83) ADAMS, C.C.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **13**, 584 (1970).
 (84) ENGELHARD, J.: *JUL-752-RG*, (1971).
 (85) IWAMOTO, K., OISHI, J.: *J. Nucl. Mater.*, **29**, 285 (1969).
 (86) ZUMWALT, L.R.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **13**, 566 (1970).
 (87) Gulf General Atomic Corp.: *GA-9227*, (1969).
 (88) 八木英二: *JAERI-memo-4687*, 202 (1972).

なお、被覆粒子燃料の現状と問題点について、長谷川正義, 鈴木弘茂, 藤村理人, 他: 本誌, **14**[11], 619 (1972)の「特集」にも紹介している。

☆昭和48年度会費をお払込み願います☆ (請求書が必要な場合はご一報願います。)

本会の会計年度は4月1日から翌年3月31日までです。会費は定款で全額前納となっておりますので、48年度会費をお払込み願います。

正会員 3,000円 学生会員 1,500円 賛助会員 1口 15,000円(2口以上)

会費未納の間は、年会、分科会の発表申込みや「会誌」投稿は受付けませんので、お含み願います。

会費滞納半年で「欧文誌」、「和文誌」とも発送が停止され、1年滞納すると除名になりますので、ご留意願います(除名の場合には、半年分の誌代を定価(年度会費と同額)でお支払い頂きます)。