1 解説

核燃料挙動と照射促進拡散

(名古屋大学工学部) 桐原 朝夫

核燃料挙動のような複雑な現象をミクロな物性から積み上げるような迂遠なことは、ナンセンスに近いといふ人が多い。ある程度ミクロ的にとらえなければ、複雑な現象の関連を結びつけるモデリングのような手法は充分な結果を与えないのではないかと、私は疑問を持っていた。1977年夏、ユーラトムの Matzke 博士を迎え、まさに「友達方より来たる」感がした。彼はマクロな挙動との関連において、核燃料の拡散の問題を徹底的に究明し、着々と成果を収めている。彼と討論したテーマの1つとして、照射促進拡散について述べる。

I. は し が き

核燃料の照射下の挙動については、まず Swelling (ふくれ) が 10^{19} fission/cm³ 以上で問題とされ、これは主として F.P. ガスに起因することが多くの研究により明らかにされた。1964年のジュネーブ会議報告でペレットの照射焼しまりが報告されているが⁽¹⁾、その後長尺ものを使用するようになり、1972年頃から照射焼しまりによる燃料長さの縮みが問題となった。特にペレットと被覆管間隙(以下ギャップ)の小さい PWR において、上部が被覆管に固着して焼しまりのために全長の中央部に間隙を生じ、この部分がおしつぶされるという現象が起った。この問題は技術的には焼結ペレットの密度を 95% T.D. (理論密度) 以上として、照射焼しまりを少なくし、またギャップを広くすることにより解決されている。しかし、現在もこの現象の機構についての解明は充分とはいえない⁽²⁾。

この問題と同時に、古くから Compatibility (共存性) としてとらえられていた問題が PCMI (Pellet Clad Mechanical Interaction), PCCI (Pellet Clad Chemical Interaction) としてとらえられ、ペレットとクラッドの相互作用によって破損する条件の解明が進められている。技術的には(1)原子炉の起動時の出力上昇を5日間程度として初期の熱変形、照射変形を緩和する⁽³⁾。(2)稼動中急激な出力変化を行わないという方法により燃料棒の破損は防止されている。また、急激な出力上昇による破損は破面の観察から応力腐食割れ(SCC)であると確認されているが、しかしこのような過渡的狀態において起る現象の機構については十分に解明されているとはいえない。

1977年夏、カールスルーエにあるユーラトム 超ウラ

ン研究所の Matzke 博士を日本学術振興会の招へい教授として約50日間迎えることができ、名古屋大学における大学院の特別講義を初め各所での講演会を開いて討論する機会を得た。その間ヨーロッパ、特にドイツおよびユーラトムの開発の方向を知ることができた。その時印象を受けたことは、わが国でもよく R&D といわれるが、ヨーロッパではわが国に比べて研究と開発がかみあった方向で進められ、各国がそれぞれの立場で進められ、秘密を守りながら(フランスはこの点が厳しい)協力関係が持たれているということである。

核燃料に限ると、超ウラン研究所では高速炉の燃料開発が進められており、混合酸化物については拡散の関与する現象の研究は一応終り、被覆管と燃料の化学相互作用の研究が進められている。混合炭化物、チッ化物についてはスウェリング、クリープなどに関連して拡散の研究が進められている。一方同じサイトにあるカールスルーエ研究所(ドイツ)では、混合酸化物と炭化物の研究がほぼ半々で行われている。チッ化物系の研究は現在ヨーロッパの各国ではほとんど進められておらず、ユーラトムの結果を見ているという状況だとのことであった。

Matzke 博士はこれまで炭化物の研究を活発に進めていた日本の研究者、研究機関が他の研究(特に核融合関係)に移っているのを残念がるとともに不思議に感じておられた。また、動燃で混合炭化物系の研究開発が現在まったく行われていないのを知り、不審な顔で

Nuclear Fuel Performance and Radiation Enhanced Diffusion, Tomoo KIRIHARA.

(1978年 7月29日 受理)

* 文献(1)中に、最初1%伸びた後一定出力で徐々に0.2%縮むと述べられている。

私にたずねられた。この疑問に対して筆者は「日本は技術の開発の歴史が短いからだ」と説明すると、彼は「日本は周囲に協力する国がなく、核融合など何でも自分でやらなければならないのはわかるが。」と日本人の開発のやり方が理解できないようであった。ユーラトムおよびドイツの新燃料(Advanced fuel)のR&Dの目標は1985年までに研究を終り、SNR原型炉(計画中)で開発研究を進めて1995年実用を目的としている。

本稿では、Matzke 博士の討論と関連して照射促進拡散の問題をとりあげ2,3の問題について述べる。

II. 未照射核燃料の金属空格子の拡散

拡散が照射挙動と重要な関係があることは万人の考えることであり、早くから注目されており、未照射の UO_2 , UC に関するデータは相当に蓄積されている⁽⁴⁾⁽⁵⁾が、研究者により値が異なる。拡散の関連する焼結、クリープ等の挙動において、セラミック燃料では拡散にくい金属空格子の拡散、すなわち金属(イオンまたは原子)の拡散が重要であるから、ここではこれらに限って述べる。

Matzke は従来の拡散定数の測定値には以下のような問題点があり、真の体積拡散の値を示していないことを指摘している。①表面拡散、粒界拡散、転位による拡散などが含まれている。②セクション法を用いない場合には計測する放射線の吸収の補正が正確でない。③表面が平滑でトレサの厚さが薄くなければならない(厚さ $< 0.1\sqrt{Dt}$, D : 拡散係数, t : 拡散時間)。そこで UO_2 については Reiman ら⁽⁶⁾の値を支持し、活性化エネルギーとしては $31 \text{ kJ}(130 \text{ kcal})/\text{mol}$ ($\sim 5.7 \text{ eV}$)が妥当としている⁽⁷⁾。第1図に Matzke らの結果を示しておく。また、混合酸化物中における金属空格子の拡散については信頼のできる結果はないとしている。

炭化ウラン系については $\text{UC}^{(8)-10}$, $\text{UC}_2^{(9)(12)}$, $\text{U}_2\text{C}_3^{(9)}$, $\text{U}_3\text{C}_4^{(13)}$ 等を初め混合炭化物⁽¹⁴⁾, 混合炭チ化合物⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾中の Pu の拡散等を進めている。U の体積拡散係数は $\text{UC} < \text{U}_2\text{C}_3 < \text{UC}_2$ の順である。第2図に示すように UC の単結晶は $\log D_v$ 対 $1/T$ が直線であるが、アーク溶解した多結晶体では折れ曲った線となる。この低温での拡散の促進について多方面から検討している。その結果、高温領域を複空格子、低温領域を単空格子と考えやすいが、①低温の D^0 値が1より非常に小さい、②単結晶には低温側が生じない、ということから、この多結晶の場合の屈曲は空格子と不純物の相互作用による促進と考える方が妥当としている⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

信頼できる酸化ウランの値を2本の実線で示し、信頼できない従来の実験値を黒色帯状部で示してある。

第1図 酸化ウラン中のUの拡散係数⁽⁷⁾

○: 単結晶, ●: 多結晶, ×: Lindner らの値

第2図 炭化ウラン(UC)中のUの拡散係数⁽⁸⁾

III. 核燃料の照射下での促進拡散

核燃料の照射下で促進拡散が起ることは古く U-Mo 燃料について報告されているが、 UO_2 に対して不純

物や不定比による促進拡散とは桁違いに大きな促進拡散が照射下で起ることが、照射下でのクリープ速度の異質な増加から推算され注目された⁽¹⁵⁾。ユーラトムにおいては、RADIF計画⁽¹⁶⁾⁽¹⁰⁾として照射下の促進拡散係数の測定が Matzke らにより進められ、混合酸化物についても一応の成果を得て、現在混合炭化物についての研究が進められている。酸化物に対する結果を第3図*に示す。

○: RADIF の結果*, 斜線部: 中江らの結果(第5図参照)
第3図 酸化ウラン中のUの照射促進拡散係数⁽²⁷⁾

また、混合酸化物についても大差ない結果を得ている。核分裂速度(fission rate)の拡散係数に対する関係は1乗か $\frac{1}{2}$ 乗かまだデータが少なく確実ではないが、一応1乗として整理されている。この点は機構を解明する上から重要である**。また、全核分裂量依存は考慮されていない。これは次章で述べるような機構を考えているためである。

IV. 核燃料の照射促進拡散の機構

1. Thermal rod による促進拡散

照射下での拡散機構については、さきに述べた照射促進クリープに関連して Brucklacher ら⁽¹⁵⁾⁽¹⁷⁾により提案されている。すなわち、核分裂片損傷の際に生成する Thermal rod 領域で促進拡散が起るという考え方である。Matzke らもこの考え方を支持している⁽¹⁶⁾。このような拡散を照射誘導拡散(Radiation induced diffusion)として区別する人達もある⁽¹⁸⁾。

Thermal rod⁽¹⁷⁾とは、核分裂片の飛程に沿って UO_2 の $1 \times 10^{-15} \text{ cm}^3$ の容積(UO_2 2.45 $\times 10^7$ 個)が平均1,000から3,500°Cまで上昇し、融点(2,800°C)以上に 10^{-11} sec 保持されるような領域である。比熱を0.08 cal/g $\cdot$ °C、融解熱を20 kcal/mol としているから75 MeV となり、

全核分裂片の運動のエネルギーのほぼ50%にあたり、1核分裂片の全エネルギーに相当する。この領域の大きさとして1,000 Åのクラスターを考えている⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾。電顕で観察されている核分裂トラックの幅は $\sim 100 \text{ Å}$ であり、核分裂片の全飛跡は $\sim 10 \mu\text{m}$ であるから直径100 Å、長さ7.5 μm の領域と考えた方が妥当であろう。彼らは Thermal rod の拡散係数は少なくとも UO_2 の融点直下の拡散係数と見積れるとして、Uの促進拡散定数 D^* を次式により求めている。

$$D^* = D(T_m) \times 2 \times 2.45 \times 10^{-7} \times 10^{-11} \times N_0 \times \dot{s},$$

ここで、 $D(T_m)$: 融点の拡散係数

N_0 : 1 cm^3 中のU原子数

$\dot{s}$: 核分裂速度

彼らは UO_2 のUの D^* を $5 \times 10^{-18} \text{ cm}^2/\text{sec}$ と、 $\dot{s}$ を $10^{-8}/\text{sec}$ ($2.5 \times 10^{14} \text{ fission}/\text{cm}^2$)の燃焼率で見積っている。

次に、促進拡散について Matzke 博士との討論について述べよう。上記のような機構で第3図の1,500°C以下の促進拡散が起るという考えのもとに Matzke 博士は、照射促進拡散では拡散の活性化エネルギーのうち空格子の生成エネルギー E_f は不要で、空格子の移動のエネルギーは $E_m=0$ と考えると主張した。

筆者は照射により全体に促進拡散が起るという考えを述べ、空格子濃度の生成に寄与する E_f の項は減少し、 E_m も減少し、しかもいずれも照射量に依存すると主張した。この論議については第IV-4節に譲り、次に核分裂片による損傷過程について多少説明する。

2. 核分裂片損傷における原子のはじき出し

燃料の照射損傷の主体は、中性子によるよりも核分裂片による損傷が大きいという点である。いわゆる、この頃はやりの重イオンによる照射損傷が起っているわけで、質量71~161のイオンが100~60 MeV のエネルギーで UO_2 の場合10~8 μm 、UCの場合8~6 μm の飛程の範囲に損傷を与える。核分裂片は結晶原子(またはイオン)に対して電子の励起(イオン化)、原子の熱振動の励起、原子のはじき出しを起す。この原子のはじき出し過程による損傷については、なお論議のあるところであるが、Brinkman⁽¹⁹⁾の提案したモデルは大すじにおいてこの状態を示していると考えられる。Brinkman は、いわゆるフレンケル対の生成のほかに Displacement Spike (D.S.)領域が生成するとし

* 名大における Matzke 博士の講義から作図したものである。

** 核分裂片によって原子がはじき出されて生成した空格子が促進拡散に関与する場合 $\frac{1}{2}$ 乗に近くなる。

ている。核分裂片が格子原子間程度の平均自由行程で、次々に運動量変換による小角衝突を起し、40,000~400 eV の1次はじき出し原子(PKA)を連続して発生する領域で D.S. を生成するとし、~40,000 eV 以上および~400 eV 以下ではフレンケル対を生成する。D.S. 領域では瞬間的には中央に空格子が集まり、周辺にクラスター状に格子間原子が生じ、やがてこの格子間原子の歪により空格子を押しつぶし、後に種々の欠陥を含む領域ができると考えている。非常に面白いが後述するように、ちょっと話がうますぎるようである。D.S. 領域に消費されるエネルギーとして19 MeV(核分裂片エネルギーの11%)と推算し、この領域の原子が1個当たり1 eV 得るとして 1.9×10^7 個の領域(UO_2 として $7.8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$)としている。この評価は後述のように過大であるが、さきに述べた Thermal rod は D.S. の約7倍のエネルギーに相当している。PKA が、D.S. を生成するエネルギー以下(~400 eV)および以上(40,000 eV<)68 MeV までのエネルギーを持つ場合にはフレンケル対を生成するとし、U金属に対して 5.8×10^5 対という値を得ている。Brinkman は、相互作用のポテンシャルとして Screened Coulomb ポテンシャルと Born-Mayer 型ポテンシャルを加算した形のものを用いて計算しているが、簡単なクーロン・ポテンシャルで、D.S. 領域を除かないで UO_2 のU副格子のみについて計算した結果も $2.8 \times 10^5 \text{ fiss.}^{(19)}$ となる。

Thompson⁽²⁰⁾ は核分裂片損傷の問題は今後の問題としているが、Brinkman の D.S. については否定的である。問題点として、① D.S. を生成する PKA のエネルギーが過大である。② Al と 2 MeV のプロトンの結果から外挿して衝突の平均自由行程は10 μm 程度で、また PKA のエネルギーも低く、連続して衝突は起らない。として電頭で観測される核分裂片トラックの部分~1 $\times 10^4 \text{ cm}$ のところでは1,000 eV 程度の PKA が10 μm ごとに生成し、約1 MeV のエネルギーが消費されているとしている。実際、Brinkman のポテンシャルによって40,000 eV の PKA を生ずる核分裂片の衝突の平均自由行程を求めると非常に大きな値(~200 Å)となり、モデルと矛盾している。

彼のポテンシャルを用いて、1,000~500 eV の PKA の範囲で概算してみる。このような PKA を発生する核分裂片のエネルギーは彼の計算結果から外挿して1~0.5 MeV となり、その衝突の平均自由行程は20~15 Å となる。そこで PKA の平均エネルギーを750 eV、平均自由行程を17.5 Å とすると $5 \times 10^5 \div 750 = 667$, $17.5 \times 10^{-8} \times 667 = 1.2 \times 10^{-4} \text{ cm}$ となり、電頭の核分

裂片トラックの程度となる。1原子当たり1 eV の領域を考えると 5×10^5 個となる。下限はもっと下まで考えられるので~1 $\times 10^6$ 個と考えてもよいであろう。Brinkman の D.S. のモデルをそのままは受け入れられないが、D.S. に似た小さな領域が核分裂片の飛跡の先端~1 μm の所に生成している。これは中性子による損傷などとは非常に異なるところであり、この領域の原子数はフレンケル対を生成する原子数と同程度であろう。以上述べた結果から核分裂片損傷の過程をまとめると、次のようになる。

- (1) 核分裂片によって~ $5 \times 10^5 \text{ at./fiss.}$ のフレンケル対が生成する。これに消費されるエネルギーは~15 MeV である。
- (2) 核分裂片の飛跡の先端約1/10程度(1 μm)のところに損傷密度の高い D.S. のような領域が生成する。
- (3) 損傷の生成に消費されるエネルギーは核分裂片の運動のエネルギー(162 MeV)の10%程度で、他は電子の励起、原子の熱振動の励起に費やされる。

3. 核分裂片損傷における空格子濃度

前節で1核分裂当り生成するフレンケル欠陥、すなわち、格子間原子と空格子との生成初期の数の概算値 $\geq 5 \times 10^5/\text{fiss.}$ が得られたが、これらの間の消滅が起り実際に空格子として残るのはいくらかということが必要である。

UO_{2+x} , $x=0.004$, 粒度5 μm , 94.5% T.D. および $x=0.004$, 粒度2.5 μm , 95.15% T.D. の2試料について、照射後の格子定数の増加と密度の増加とを測定して、空格子濃度と格子間原子濃度を算出した結果を第4図に示す*⁽²¹⁾⁽²²⁾。簡単に原理を説明する。格子間原子は格子定数を増加させて1原子容を ΔV_i だけ増加させ、空格子は ΔV_v 減少させる。弾性体モデルで U, O の格子間原子、空格子の平均したものを考えて、 ΔV_i (正), ΔV_v (負)を推算した。気孔率の変化のないところでは

$$\Delta V/V(1-P_0) = C_i(\Delta V_i/\Omega) + C_v'(\Delta V_v/\Omega) + C_v' \quad (1)$$

ここで、 ΔV : 体積変化(密度変化から求められる)

C_i, C_v : U, O を平均した格子間原子、空格子の原子率濃度

Ω : 原子容

* 照射温度は約150°C以下であった。 $10^{17} \text{ fiss./cm}^2$ 代の C_v, C_i の値はその後密度の回復実験により第2段の飽和値に近い値となることがわかっているが、以下の議論には大した影響はない。

第4図 酸化ウラン中の空格子および
格子間原子濃度の照射量依

C_V' : シンクへ逃散した格子間原子により
1 原子を増加するための原子率の項

この時、空格子を結晶に残しているから $C_V' = C_V - C_I$ の関係がある。一方、格子定数変化を $\Delta a/a$ とすると

$$3(\Delta a/a) = C_I(\Delta V_i/\Omega) + C_V(\Delta V_v/\Omega) \quad (2)$$

さきに述べた手法で $\Delta V_i = 1.28\Omega$, $\Delta V_v = -0.27\Omega$ と得られ、(1), (2)式より

$$C_I = 2.97(\Delta a/a) + 0.27\{(\Delta V/V(1-P_0)) - 3(\Delta a/a)\}$$

$$C_V = 2.97(\Delta a/a) + 1.27\{(\Delta V/V(1-P_0)) - 3(\Delta a/a)\}$$

により求められる。図において 5.6×10^{16} fissions/cm² 以上の値は気孔率の変化を補正した値である。

ここで注意すべき点は

- (1) 5×10^{14} fissions/cm² 以上では C_I と C_V との差が明瞭で、格子間原子はシンクへ逃散していることを示している。
- (2) C_I の第1段の飽和点で急激に C_V が増加している。この点線の部分では急激にシンク濃度が増したことを示している。この点で密度は急激に減少(体積は増加)し、格子定数は第1段の飽和を示していることから⁽²¹⁾、格子間原子は格子外に逃散しクラスターを生成していると考えられる。この場合、空格子は格子間原子のクラスターに関与しているか、別個にクラスター化していると考えられる。ちょうどこの照射量付近で Wapham ら⁽²²⁾によ

って格子間原子クラスターが観察されている。

- (3) C_V の第1段の飽和値 4.28×10^{15} fissions/cm² の $C_V = 7.5 \times 10^{-3}$ から第1段の範囲の空格子の1核分裂当りの平均生成量を求めると 4.3×10^4 /fission となる。前節のフレンケル対の生成量と比較すると約90%が消滅している。一見、前節の評価が過大のように考えられるが、筆者は空格子生成の速度の定数、すなわち Overlapping Volume(O.V.*)の解析**から前節の評価は妥当なものと考えている。

4. 照射促進拡散係数の概算

前節で得られた結果はUとOの空格子を平均しての濃度である。この値からUの空格子濃度を求めるには

- (1) はじき出し原子の消滅する割合が等しいと仮定すれば、はじき出し原子の断面積の割合**から求められる。
- (2) はじき出し原子が照射焼なましにより、その格子定数が示すような、対応する温度の平衡状態の空格子分布になっていれば、 UO_2 中の U, O それぞれの空格子の生成エネルギーおよびエントロピーを用いて本節で述べるような対応温度を求める方法で求められる。

実際は(1), (2)の中間の状態にあると考えられる。はじき出し原子UとOの消滅する割合が照射量によって異なっていることは、照射後の回復実験が示しているからである。いまのところ予備的な検討として(2)の方法によってU空格子の濃度を求めた⁽²²⁾。照射後のUとOの空格子濃度はある程度の平衡分布にあるとして、次式により対応温度 T を求めた。

$$10 \exp(2.1/kT_e) + 10 \exp(-1.3/kT_e) = C_V$$

第1項はU空格子濃度を示し、第2項はO空格子濃度を示す。求めた T_e を用いて第1項を計算し、U空格子濃度とした。次節に述べる結果および回復実験結果⁽²¹⁾⁽²⁴⁾から判断して過小な評価と考えている。

拡散係数は $D = \nu C_V \exp(-E_m/kT)$ で表わされる。 ν はジャンプの頻度因子で、未照射の場合と変わらないと考えられる。 C_V は上述の結果を用いる。問題は空格子の移動エネルギー E_m の値である。酸化ウランの空格子の移動エネルギーを求めるには、照射下の拡散

* 1個の空格子の生成に関与する原子数の体積。

** $N_K \times (\text{O.V.}) = N_V \times (\text{O.V.})_V$ の関係から検討した。 N_K : PKAの数, $(\text{O.V.})_K$: PKAのO.V., N_V : 空格子の数, $(\text{O.V.})_V$: 空格子のO.V.

** クーロンポテンシャルを仮定した Displacement Cross Section,

$$\frac{\sigma_U}{\sigma_U + \sigma_O} = \frac{Z_U^2/M_U}{Z_U^2/M_U + 2(Z_O^2/M_O)}$$

係数を直接求めるか、照射後の格子定数の回復を高温 X 線により測定する方法が考えられるが、前述の対応温度 T_c と同程度に結晶がリラックスしていると考えて、未照射の E_m を用いて、上式の T を T_c として U の促進拡散係数 D_U^{irr} を求めた。 D_U^{irr} の値を第 5 図に示す。以上のような手法で求めた促進拡散係数は、絶対値はともかく照射量に対する傾向は示していると考えている。

第 5 図 酸化ウラン中の U の照射
促進拡散係数の推算値

上記の拡散係数を用いて Nabarro-Herring のクリープモデルによりクリープ速度を求め、Clough⁽²⁵⁾ の実験と比較した結果を第 6 図に示す⁽²⁶⁾。傾向は一致している。

促進拡散係数の実験値との比較は、第 3 図⁽²⁷⁾に示したように、実験値に近いものは第 5 図に示した低照射量および高い照射量のもので、空格子濃度の高い中間の照射量では当然のことながら促進拡散係数は大きくなっている。これらの試料はいずれも第 3 図に示したように低温度で照射したものである。RADIF の実験結果は $\sim 10^{19}$ fiss./cm³ のものとのことであり、また核分裂速度の依存性を 1 次と考えて 1×10^{-13} fiss./cm²·sec に規格化したものである。Brucklacher らの推算値をこの核分裂速度に直すと、 $D^* = 2 \times 10^{-17}$ cm²/sec となり実験値を下回るが、熔融状態が 10^{-10} sec 保たれるとするとほぼ実験値と一致する。Thermal rod の考え方による推算は、一応の目安をたてるのには便利な方法である。多分 10^{19} fiss./cm³ 以上の空格子濃度の変動のない領域では促進拡散係数を概算することが可能であろう。第 IV-2 節で述べたように、この考え方はモデル

第 6 図 酸化ウランのクリープ速度
の推算値と実験値との比較

そのものが正しいと考えると問題はあるが、照射下での空格子濃度を推算する便法と考えるべきであろう。Matzke 博士も帰国前にはわれわれの考えに同意され、帰国後低照射量領域を検討することを約束され、また核分裂速度についても検討されるとのことであった。

5. 照射焼しまり

照射焼しまりについて、促進拡散によって焼しまりが起ることに異論はないが、クリープと同様、機構については① Marlow⁽²⁸⁾, MacEwen ら⁽²⁹⁾に代表される照射により全体の拡散係数が変化する、② Assmann ら⁽³⁰⁾の核分裂片スパイクと気孔との衝突による気孔付近の拡散係数が変化する、という 2 つの考え方がある。MacEwen は筆者らと同様、照射により生成する空格子濃度を見積っているが、直接実験に基づいていないため焼しまりの実験結果とは合わない。ここで注意しておきたいのは、第 4 図の空格子濃度 (C_{Vmax}) が最大となる照射量までは体積増加が粒度により (実験誤差の範囲で) 変らない* ことである。この C_{Vmax} を

* 格子間原子による体積変化は無視できるから、体積増加 $\propto$ 空格子濃度となる。

与える照射量 $\sim 5 \times 10^{16}$ fissions/cm³ は実炉での起動時の燃料棒最大伸びの照射量と対応している。 C_{Vmax} 以上の濃度から体積減少すなわち焼しまり現象が始まっている。体積変化を第7図に示す⁽²⁷⁾。

3($\Delta a/a$): 格子定数から求めた結晶格子の容積変化
○, ●: 密度測定から求めた試料の容積変化
△, ▲: 気孔率測定から求めた試料の容積変化
第7図 照射による酸化ウランの容積変化

$3(\Delta a/a)$ (a : 格子定数) は結晶格子マトリックスの体積増加, ΔV_b は密度測定による全体積変化, ΔV_p は気孔率の変化による体積変化を示す。照射焼しまり現象は, ①格子マトリックス外のクラスターの格子原子への組み変り, ②気孔の焼結の2つと考えられ, 全密度増加を Δd とし, ①による項を Δd_c , ②による項を Δd_s とすると,

$$\begin{aligned}\Delta d &= \Delta d_c + \Delta d_s = (\Delta d_c^* + \Delta d_s^*) \\ &\quad - \Delta d_c^* \exp\{k_c(t-t_i)\} \\ &\quad - \Delta d_s^* \exp\{k_s C_V(t-t_i)\}\end{aligned}$$

d の原点は最小密度をとり, t_i は原点の照射時間である。

$\Delta d_c^*, \Delta d_s^*$ は $\Delta V_b - \Delta V_p$, ΔV_p の飽和値から求め, C_V は第4図に示した値を用いる。粒形 $5 \mu\text{m}$ の値を示すと, $k_c = 1.33 \times 10^{-8}/\text{sec}$, $\Delta d_c^* = 1.29\%$, $\Delta d_s^* = 1.55\%$, $t_i = 5.58 \times 10^8 \text{ sec}$ (15.5 hr) である。計算値と実験値とを第8図に示す。スウェリングを考えると JMTR で照射した結果を予測している。

V. あとがき

以上述べたように, 照射下の促進拡散についてはま

○, ●: 密度測定および気孔率測定から求めた密度
(照射温度 $< 150^\circ\text{C}$) 斜線部: 同様の方法による JMTR の結果
(照射温度 $\approx 400^\circ\text{C}$) 実線: 文中の理論式による結果

第8図 酸化ウランの照射焼しまり

だ研究が糸口にとりついたような状態である。ユーラトムではこの問題に相当の力を入れて進められている。彼らはクリープ, スウェリング, 焼しまりなど燃料挙動の根本は拡散にあるという考え方に立っており, これまでに未照射の拡散係数の測定は添加元素を含めて広範にわたって行われ, 照射促進拡散の結果も着々と進められている。「急がば廻れ」という格言はヨーロッパの方が身にしみているようである。アジアにもユーラトムの研究機関のように, 開発を踏えた基礎研究を進める機関があれば後塵を拝せずに進むのだから痛感した。

— 参考文献 —

- (1) ROBERTSON, J.A.L., et al.: *Proc. 3rd UN Conf. Peaceful Uses At. Energy*, Vol. 11, p 3 (1965).
- (2) 水田三千雄, 入佐泰弘: 本誌, 19[5], 311 (1977).
- (3) 牧 英夫: 同上, 18[8], 488 (1976).
- (4) BELLE, J.: *J. Nucl. Mater.*, Review, 30, 3 (1969).
- (5) ROUTBORT, J.R., SINGH, R.N.: *ibid.*, 58, 78 (1975).
- (6) REIMAN, D.K., LUDY, T.S.: *J. Amer. Ceram. Soc.*, 52, 511 (1969).
- (7) MATZKE, H.J.: "*Plutonium 1975 and Other Actinides*", p 801 (1976), North-Holland Pub.
- (8) MATZKE, H.J., et al.: *J. Appl. Phys.*, 45[5], 5187 (1974).
- (9) MATUL, H., et al.: *Nucl. Sci. Eng.*, 66 406 (1978).
- (10) MATZKE, H.J., BRADBURY, M.H.: Private Communication.
- (11) BRADBURY, M.H., MATZKE, H.J.: To be published.
- (12) MATZKE, H.J., POLITIS, C.: *Solid State Commun.*, 12, 401 (1973).
- (13) *idem*: "*Reaktor Tagung 1974*", p 269 (1974), Deutsches Atomforum.
- (14) NIZKI, V., MATZKE, H.J.: "*Reaktor Tagung 1975*", p 399 (1975).

- (15) BRUCKLACHER, D., et al.: KFK-818 (1968); (菊池武雄訳) JAERI-memo 3523, (1969).
- (16) HÖH, A., MATZKE, H.: *J. Nucl. Mater.*, 48, 157 (1973).
- (17) BRUCKLACHER, D., et al.: *Proc. Int. Meeting Fast Reactor Fuel and Fuel Elements*, GfK, Karlsruhe, p 343, (1970).
- (18) OLANDER, D.R.: "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", TID-26711-P1, (1976).
- (19) BRINKMAN, J.A.: "Radiation Damage in Solid", p 830 (1962), Academic Press.
- (20) THOMPSON, M.W.: "Defects and Radiation Damage in Metals", (1969), Cambridge Univ. Press.
- (21) NAKAE, N., et al.: *J. Nucl. Mater.*, 71, 314 (1978).
- (22) NAKAE, N., et al.: *ibid.*, 74, 1 (1978).
- (23) WHAPHAM, A.D., SHELDON, B.E.: *Phil. Mag.*, 31, 1179 (1965).
- (24) NAKAE, N., et al.: To be published.
- (25) CLOUGH, D.J.: *J. Nucl. Mater.*, 56, 279 (1975).
- (26) 桐原朝夫, 他: 本会昭52分科会予稿集, (II), G49, (1977).
- (27) NAKAE, N.: Defects and induced densification in neutron irradiated uranium dioxide, Doctor Dissertation, Nagoya Univ., (1978).
- (28) MARLOWE, M.O.: GEAP-12188; GEAP-12189, (1971); NEDO-12440, (1973).
- (29) MACEWEN, S.R., HASTING, I.J.: *Phil. Mag.*, 31, 135 (1975).
- (30) STEHLE, H., ASSMAN, H.: *J. Nucl. Mater.*, 52, 303 (1974).

最 新 刊

核燃料サイクルをめぐって 核燃料再処理と放射性廃棄物

日本原子力研究所 中島篤之助・市川富士夫著 B6判/ 270ページ/1,800円/送料160円

現在、わが国で運転・建設中の原子炉は約20基、1990年には全発電量の3分の1が原子力でまかなわれる予定だ。原子力発電の場合、燃料を途中で取出し、ウラン、プルトニウム、核分裂生成物とに分離する必要がある。分離後、ウランはふたたび炉に戻され、プルトニウムも高速炉（開発中）に戻される。この

ような体系は「核燃料サイクル」と呼ばれ、原子力政策の要といわれる。本書では核燃料サイクルをめぐって、各種の事例を豊富に紹介しながら解説しているほか、原子力発電の問題点、核燃料再処理工場の安全性、放射性廃棄物の処理・処分、さらには核ジャックをめぐる諸問題にも言及している。

＜主 要 内 容＞

第1章 総論	第8章 高レベル放射性廃液の処理・処分と廃炉問題
第2章 放射能とその影響	第9章 環境の放射能汚染の現状
第3章 核燃料サイクル	第10章 海洋投棄の問題点
第4章 放射性廃棄物の発生源としての原子炉	第11章 トリチウムとクリプトン-85など
第5章 核燃料再処理	第12章 プルトニウム
第6章 核燃料再処理工場の安全・環境問題	第13章 GESMO—保障措置—フィジカルプロテクション
第7章 放射性廃棄物の処理・処分の技術	

公害対策技術同友会

〒107 東京都港区赤坂 9-1-244 (秀和赤坂ビル)
電話 東京03(404)5714(代) 振替口座 東京 0-17635