高速炉構成材料の高温ナトリウム中における質量移行

厚 母 榮 夫*

*動力炉・核燃料開発事業団, 高速炉開発本部

Mass Transfer Phenomena of Fast Breeder Reactor Constituent Materials in High Temperature Sodium

Hideo Atsumo*

*FBR Development Project, PNC

Keywords: Sodium Cooled Fast Breeder Reactor Constituent Material, mono-metallic, bye-metallic (loop) gross metal loss, local corrosion, depletion of alloying elements, austenitic stainless steel, ferritic steel, carbon transfer, carburization, decarburization, decarburization rate constant, annealed, normalized-tempered.

1. ま え が き

全地球的にみてエネルギー消費量は年を追って増大しつつあり、従来から我々がエネルギー資源として利用してきたいわゆる化石燃料（石炭・石油・天然ガスなど）のみをもってしては、到底その需要を満足できなくなる日の来ることは明白となりつつある。特にその利用率、利用方法などから最も重要な燃料と目される石油については、次第に涸渇の方向に近づいていると試算されている。従って、世界中の先進国は勿論のこと中進国、低開発国においても石油に代るべき資源の開発に着目し、その開発に努力しつつあることは周知のことである。

今日、最も実現性の強い核燃料を用いた原子力発電がその本命である。

我が国においては石油資源の大部分を中近東地区等から輸入している現状なので、エネルギー資源を代替エネルギー——原子力発電に頼らざるを得ないことも、また、知明の理であろう。既に、商業用発電炉（熱中性子炉）の総電気出力は、近年中¹⁾に 1,000 万キロワットに達するものと見込まれている。

一方、天然に存在する核燃料をさらに有効活用するために消費した核燃料の量以上の燃料を生産する増殖炉 (Breeder) の開発が世界の工業先進国の間で強力に推進されている。増殖炉は理論上は多くの概念があるが、現在、先進各国で工業的に実用化されつつあるものは、

²³⁹Pu に高速中性子 (Fast Neutron) をあてて核分裂エネルギーを取出すと同時に天然に存在する ²³⁸U から消費した量以上の ²³⁹Pu に転換する形式のものである。

これは高速中性子反応を利用するところから高速増殖炉 (Fast Breeder Reactor) といわれる。

また、特に冷却材に液体ナトリウムを使用するので、液体金属冷却高速増殖炉 (Liquid Sodium Cooled Fast Breeder Reactor) とも呼ばれる。

世界の先進諸国における高速増殖炉の開発状況を示せば図 1²⁾ のようである。

我が国は、先進諸国中でも特に天然資源に乏しい国であり、高速増殖炉等によるエネルギー開発を早急にかつ、最も有効適切に推進せねばならない立場にある。昭和 42 年 10 月、動燃事業団が設立され、関連する各種の R & D 計画の上²⁾に立って、高速実験炉「常陽」は昭和 45 年に大洗工学センターで着工して以来、幾多の困難を克服して昭和 52 年 4 月 24 日に初臨界に達した。その後、極めて順調に出力上昇試験を続け、昭和 53 年秋から出力の 50 MW 定常運転に入り、その後に出力を 75 MW に上昇する計画である。更に、その後は出力 100 MW で燃料・材料の照射試験用の高速炉として運転する予定である。これに続く高速増殖原型炉「もんじゅ」は、昭和 54 年に着工し昭和 60 年末の臨界を目指して設計研究が重ねられ、また、これをバックアップする R & D が着々と進められている。高速炉開発の終着駅である商用炉に至る前に実証炉を手がける必要があり、昭和 61 年の着工を目標に設計研究が進められている。

上述のように、我が国におけるナトリウム冷却高速増

* 〒107 東京都港区赤坂 1-9-13 (三会堂ビル) (1-9-13, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan)

図 1 世界の高速炉開発スケジュール概況

図 2 主系統概要図

殖炉の開発は着実に推進されつつあるが、高速実験炉「常陽」から高速増殖原型炉「もんじゅ」へ進む段階で、使用温度が高温化したために高温構造設計概念の導入が要求されるようになった。従って、高温およびナトリウ

ムの両方の効果をふまえた検討が必要となった。
本稿では、「常陽」における多くの経験を基にして、「もんじゅ」用に検討せねばならない事項を加えて、高温ナトリウム中における主要機器材料の挙動を質量移行

現象を中心に解説する。

2. 高速増殖炉と構成材料

既に、1章で述べたように目下我々が取組んでいる最大のプロジェクトは、高速増殖原型炉「もんじゅ」の完成である。従って、以下に「もんじゅ」を対象として述べる。

図2は、「もんじゅ」における主要な系統概要を示す図である。原子炉で発生した熱は図2に示すように一次ナトリウム系によって取出される。ナトリウムは原子炉容器の下方から入り、炉容器の中央部付近から流出する。(この系統は3ループから構成される)。

一次ナトリウムは 397°C で原子炉に流入し、核燃料により加熱されて原子炉出口温度で 529°C となる。この加熱された一次ナトリウムは、中間熱交換器を介して二次系ナトリウムを 325°C から 505°C に加熱上昇させ、これがさらに蒸気発生器(蒸発器および過熱器)を介して水系に伝えられる。水は、240°C でヘリカルコイル型の蒸気発生器に供給され、過熱器をへて、127 kg/cm²、483°C の過熱蒸気となってタービン発電機へ送られる。原子炉の熱出力は 714 MW で、電気出力は発電端で約 300 MW となっている。

原型炉「もんじゅ」の設計製作を進める中で、材料の選択、施工検査法との関連において、常に相互の整合性を確認しておかねばならない。表1に示したのは、現時点における主要構成材料を一覧表にたしものである。

原子炉容器、主要配管、中間熱交換器および蒸気発生器本体などは SUS 304 あるいは 316 であり、蒸気発生器伝熱管は 2 $\frac{1}{2}$ Cr-1Mo 鋼が候補材として考えられている。今後、さらに設計の進行につれて多少の変更は考えられるが、構造材料としては上記の諸材料が本命となるであろう。すなわち、高速炉の構成材料を選定するに当たって、高温の金属ナトリウムとの共存性、特に炉心材としては高速中性子により照射効果を考慮して主要部材としては SUS 304、316 などが、また、蒸気発生器伝熱管用には特に耐応力腐食を考慮してフェライト系 Cr-Mo 鋼が注目されている。もっとも、中性子遮蔽材としての B₄C、表面硬化材としてのステライト、コロモノイ合金なども構成材料と言えるが、供支材料全体からいえば極く少量なので、ここでは省略し、主要材料についてのみ考えることにする。

3. 冷却体ナトリウム中における腐食と質量移行

既に2章で述べたように高速増殖炉「もんじゅ」の冷却材は液体ナトリウムであり、その冷却系統は図2に示すように極めて重要であり、また、膨大である。各配管、機器は温度条件の異なるナトリウムに常時接触して

表 1 高速増殖原型炉の主要構造物材質

品 名	機器分類	材 質	運転温度 (°C)	使用環境
原子炉容器	1種容器	SUS304HP	529	一次Na
		"		
		"		
		"	397	
炉内構造物	炉心支持 構造物	SUS304	397	一次Na
		"		
一次系主配管	1種管	SUS316 または SUS304	529	一次Na
		SUS304	397	
		SUS304	397	
		SUS304	397	
主中間熱交換器 (IHX)	1種容器	SUS304	529	一次Na
		SUS304HTB	510	外 一次Na 内 二次Na
		SUS304鍛造材		
二次系主配管	3種管	SUS316 または SUS304	510	二次Na
		SUS304	450	
		"	320	
		"	320	
蒸 発 器 (EV)	3種容器	SA387G722	入口450.8 出口320	二次Na
		STBA24	入口239 出口369	外部二次Na 内部水蒸気
		SA182F22		
過 熱 器 (S/H)	3種容器	SUS304		二次Na
		SUS304HTB または SUS316HTB または SUS321HTB		外 部 二次Na 内 部 乾質蒸気
		SUSF304 または SA182F316 または SUSF32・1		

いるために、それらの接触個所では種々の表面現象が生じる。この場合、一般的には高温部で材料表面からナトリウム中への溶出が生じ、また、低温部で沈着が生じるいわゆる温度差質量移行現象が進行する。これに伴って腐食が問題となる。質量移行によって高温部側に生ずる腐食層を腐れ代といい、これを次のように考えている。

- (1) 一般腐食 (Gross metal loss)
- (2) 粒界腐食 (Intergranular attack)
- (3) 表面変質層 (Depletion of alloying elements)

これらについて、以下に述べる。

3.1 一般腐食

一般腐食は一定期間の重要減少として測定される。これを通常年間の壁厚減少速度に換算した値 ($\mu\text{m}/\text{年}$) を

図 3 650°C のナトリウム (酸素濃度20~30 ppm) 中浸漬後の各種鋼の腐食量と Re (レイノルズ数) との関係

図 4 600°C のナトリウム中における Type 304 ステンレス鋼の腐食量と Re の関係

用いる。英国の Netlley らはナトリウム流速、温度およびナトリウム中の酸素含有量が一定の場合には腐食速度は一定になる (初期を除き) ことを確かめている。この結果は我々の場合³⁾も同様である。また、Thorley³⁾らは腐食速度の流速依存性についてはレイノルズ数で整理することが適当であるとし、レイノルズ数 7×10^4 以上では依存性がなくなるとしている。我々の結果⁴⁾ではレイノルズ数が、 4.36×10^4 (流速 3m/s) と、 7.61×10^4 (流速 12 m/s) とでは約 2 倍の増加が認められた。

腐食速度の温度依存性に関しては、熱力学的考察に基づき、 $v = v_0 \exp(-Q/RT)$ の形が容認されている。

ただし、 v_0 : ナトリウム流速、酸素含有量の効果を含む。酸素濃度の増加につれて腐食速度が増加することはこれまでに多くの結果が得られている。特に、Thorley らのデータは Zebroski, Schrock および我々⁴⁾のデータと比較して腐食速度が数倍高い値を示している。これは、Thorley らのデータが時期的に古いことと、データの根拠が不詳なことが挙げられている。

3.2 粒界腐食

ナトリウム浸漬における粒界腐食割れについては、世界中の情報をまとめても極めて稀である。GE 社のテストグループで粒界腐食が検出された例がある。その他の例

図 5 600°C のナトリウム中における Type 304 S.S. の腐食量に対する酸素濃度の影響

においても腐食量はたかだか数ミクロン程度で、しかも 600°C 以上の高温ナトリウム中では認められたが工学的には無視しうるものである。ただし、粒界から始まったペネトレーションがきっかけとなって全面腐食に至ることは認められており、特に、ホットレグ機器が高酸素ナトリウムにさらされると粒界での腐食が促進される可能性が生じる。従って、ナトリウムプラントあるいは、ループでは局部的に高酸素ナトリウムが生じることがないように十分注意して製作し、また、運転管理を行う必要があろう。

このほか、隙間腐食、応力腐食、腐食疲れなども考えられるが、別途検討するべきであるのでここでは省く。

3.3 表面変質層

ナトリウム接液面では運転中に材料表面から特殊元素の溶出が生じる。

オーステナイトステンレス鋼についていえば、表面変質層はフェライト相の成生として観察される。特殊元素の溶出状態はナトリウム温度、酸素濃度などによって異なることが認められている。一例として、動燃事業団大洗工学センターにおける実験結果⁴⁾を示せば以下のようになる。図 6 は、600°C で 5,000 h (酸素濃度 10 ppm)、ナトリウム中に浸漬後の SUS 304 鋼中の Cr, Ni, Fe などの溶出状況を表わしたものである。すなわち、Cr および Ni は表面から約 7 μm までは減少し、Fe は逆に増加するが約 10 μm を越えると一定量となる。これを検鏡写真によって観察すると表面から約 5 μm まではフェライト相に変質している。同上の条件でナトリウム浸漬時間をさらに延長した場合の試験結果からも変質層の厚さはたかだか 10~12 μm 程度なることが確認されて

図6 流動ナトリウム中に浸漬した Type 304 S.S. のフェライト層における合金元素の変化およびその顕微鏡写真

いる。ナトリウム酸素濃度が高いと変質層の厚さは増加するが、これまでに得られたデータからは約 25 μm 以下といわれている。ナトリウム温度が 600°C 以下の場合には変質層厚さは減少し、例えば 550°C, 10,000 h の結果では表面変質層はほとんど生じていない。高速増殖原型炉「もんじゅ」の構造材料では最高 550°C を考慮すればよいので、表面変質層に関しては特別な配慮はしなくてもよいと考えられる。

4. ナトリウム環境効果

既に述べてきたように、ナトリウム冷却高速増殖炉においてはその構成材料は高温条件下でのナトリウム環境効果を重畳的に受けることになる。従って、これらの効果を別々に検討する必要があるが、高温の効果については別途検討中なのでここでは省略し、ナトリウム効果について述べる。

4.1 オーステナイトステンレス鋼

3章で腐食については実例をあげて述べたので、ここでは脱炭・浸炭等について簡単に整理するとどめる。

4.1.1 ナトリウム中での脱・浸炭

ナトリウム冷却高速増殖炉の一次系は、構成材料がオーステナイトステンレス鋼のモノメタリックであり、鋼中の炭素はナトリウムを介して高温から低温に移行する。一般的には、ループの高温部では脱炭が、また、低温部では浸炭が生じる。一方、二次系は構成材料がオーステナイトステンレス鋼とフェライト系 2½ Cr-1 Mo 鋼のバイメタリックループであり、この場合は 2½ Cr-1 Mo 鋼は脱炭し、この炭素を源としてオーステナイトステン

レス鋼が浸炭される。これらの現象を炭素移行現象 (Carbon Transfer Phenomena) と称する。これらナトリウム中の炭素移行については多くの議論が重ねられている。脱炭機構については定説はないようであるが、鋼中の炭素とナトリウム中の炭素の化学ポテンシャルの差に起因するとの考え方が有力⁹⁾である。一方、浸炭はナトリウム中の炭素活量と鋼材表面の炭素活量との差により生じ、鋼中に侵入した炭素は鋼中で安定なカーバイドを生成するとの考え方が一般的⁹⁻¹⁰⁾である。

オーステナイトステンレス鋼の脱炭について国内データの結果¹⁰⁻¹²⁾によれば、SUS 304 および 316 の 600°C × 10,000 h ナトリウム浸漬試験後でも脱炭はほとんど検出されていない。従って、SUS 304 鋼を 550°C で 30 年間 (2 × 10⁵ h) 程度使用した場合でも、工学的に有意な脱炭は起こらないであろうと推定される。

オーステナイトステンレス鋼の浸炭については、モノメタリックループの低温部の浸炭の報告はほとんどないが、2½ Cr-1 Mo 鋼とのバイメタリックループにおけるステンレス鋼の浸炭については多くのデータがある。すなわち、松本¹⁴⁾は SUS 316 をナトリウムループ中 (酸素濃度 8~50 ppm) の温度下降域 (554~539°C) に約 1,000 h 浸漬した結果、表面から約 100 μm 浸炭されたと報告している。(SUS 304 モノメタリックループ中に 2½ Cr-1 Mo 鋼の炭素源が存在する)。また、吉川¹⁵⁾は 540~350°C, 3,600 h 運転後のナトリウムループ配管材 SUS 304 の表面から最大 300 μm の浸炭を報告している。さらに、ISES から「常陽」二次冷却系機器の 8,000 h 使用後の材料試験結果が報告¹⁶⁾されている。

図7 1000°F ナトリウム中におけるオーステナイト・ステンレス鋼の浸炭におよぼす応力（板厚—0.010 in）の影響

図8 SUS 316 のホットレグ中におけるナトリウム中浸漬時間の影響

これによると、高温部（約 470°C）では約 100 μ の浸炭が認められている。一般にオーステナイトステンレス鋼のナトリウム中における浸炭特性に及ぼす因子は、材料の種類、結晶粒度、冷間加工度、温度、時間およびループ条件等が考えられる。例えば、図7は応力と浸炭量との関係を示したものである。ステンレス鋼は負荷応力の増加と共にやや浸炭量が増し、SUS 316 は 304 よりも浸炭抵抗がやや大きいことを示している。また図8は¹⁸⁾、ナトリウム浸漬時間と浸炭量との関係を示すが、時間とともに浸炭量は放物線的に増加し、また、高温の方が浸炭量が大きいことを示している。

4.2 クロム・モリブデン鋼

既に述べたように、高速増殖炉構成材料はナトリウムとの共存性などから、大部分の機器、配管などにはオーステナイトステンレス鋼が使用されている。蒸気発生器の伝熱管は内側を水蒸気が流れるために応力腐食割れを考慮して、オーステナイトステンレス鋼以外の構造材料が候補としてあげられ各国でそれぞれ研究開発の結果、Cr-Mo 鋼を取上げている国が多い。日本の場合は、「もんじゅ」の概念設計以来、従来から火力発電用として実績のある 2 1/4 Cr-1 Mo 鋼が採用されることになっている。一般的に言って、2 1/4 Cr-Mo 鋼は高温ナトリウム環境にさらされると、その表面および内部が変質する。表

面の変質は、直接ナトリウムとの反応から生ずるもので腐食および脱炭が考えられる。

2 1/4 Cr-1 Mo 鋼の一般腐食量は¹⁹⁾、500°C のナトリウム中（酸素濃度約 10 ppm）で最高 0.34 mg/cm² (2,500 h 浸漬) と測定されている。これを肉厚減少に換算すると 0.0015 mm/年で、30年間使用後でも 0.045 mm 程度に留まる。合金元素の溶出については種々の報告があり、定量的に示すことが困難である。局部腐食は 2 1/4 Cr-1 Mo 鋼の場合に確認されていないので現段階では問題とならないであろう。2 1/4 Cr-1 Mo 鋼のナトリウム中脱炭現象は、本鋼材がナトリウムよりも炭素活量の高いことによるもので、鋼材表面からナトリウム中に炭素が移行する機構については定説はないが、Thorley ら²⁰⁾は原子状炭素がナトリウム中に溶解するものとしている。2 1/4 Cr-1 Mo 鋼のナトリウム中脱炭量の推定に関しては、Krankota ら²¹⁾が次のように提唱している。

$$M_t = K(T)t^{1/2}$$

ここに、 M_t ：脱炭量

T ：浸漬温度

t ：浸漬時間

K ：脱炭速度定数 とする。

この提唱に従って、国内のナトリウム脱炭データを整理すると次のようなことがいえる。

(1) 材料の熱処理により脱炭速度に差がある。すなわち、2 1/4 Cr-1 Mo 鋼の N & T (焼準し、焼戻し処理) 材は、Ann (焼なまし処理) 材よりも脱炭は速度が小さい。特に、500°C 以下ではその傾向が著しい。すなわち、一般的にいえば、脱炭に関しては N & T 材の方が有利であろう。

(2) ナトリウム流速による差がある。すなわち、流速の小さい方が脱炭速度は小さい。従って、脱炭データを議論する場合には、試験条件の差異に注目せねばならない。鋼材のナトリウム中脱炭挙動はナトリウム中の溶解炭素量（あるいは、炭素活量）によって左右される。実験条件の中で、ナトリウム中溶解炭素量に影響を与える因子には以下のようなものが挙げられる。

- (i) ナトリウム総量
- (ii) ナトリウム中初期含有炭素量
- (iii) ナトリウム浸漬試験中の流速
- (iv) ループ構成材料（モノメタリックかバイメタリックか）
- (v) ループ材料の運転履歴
- (vi) ループの高・低温部の温度差
- (vii) バイメタリックの場合の両材料の表面積比
- (viii) 試験片挿入状況
- (ix) ナトリウム中酸素濃度 等々

今後の課題として、各種実験下におけるナトリウム中

図9 ナトリウム浸漬時間、温度の関数としての $2\frac{1}{2}$ Cr-1Mo 鋼からの溶出炭素量

炭素活量を炭素メータまたは炭素平衡法²²⁾などにより測定し、鋼材の脱炭データと比較することが必要である。可能ならば、実機運転中は常時ナトリウム中炭素活量を監視しておきたいものである。

先に、脱炭速度定数 K 値について述べたが、このような熱処理効果は浸漬前の鋼中炭化物の性質および形状の差異によるものと考えられる。すなわち、高温長時間浸漬後には脱炭中の時効の進行により、熱処理に関係なく同様な平衡炭化物 (M_0C) に落ち着くために、脱炭量の熱処理による差異がなくなるものと考えられる。低温で認められた熱処理効果²³⁾は 650°C では認められず、また、 550°C で長時間側²⁴⁾では熱処理による差異は少なくなる傾向にある。従って、実機使用温度で何時間まで N & T の熱処理効果が維持できるかを確認しておく必要がある。

5. あとがき

昭和48年の OPEC (石油輸出国機構) による原油価格の大幅値上げに端を発したいわゆる石油危機は、我が国をはじめ先進諸国に大きなショックを与え続けてきたが、昨今、再び石油値上げの声が聞かれる。我が国は、いうまでもなく無資源国なるがために、エネルギー源を石油以外の資源に求めねばならぬことは当然といわねばならない。また、そのために核物質を最も有効に活用することの出来る高速増殖炉の開発を、ナショナルプロジェクトの一つとして強力に推進している。

いよいよ高速増殖原型炉「もんじゅ」の着工を目前にひかえて、その安全性、経済性を入念に検討中である。

本稿では、高速増殖炉の主要な構成材料についてナトリウム環境効果に絞って考えてみた。表面現象としての腐食の問題、温度差質量移行によって生ずる特殊元素の溶出のこと、特に、炭素移行による脱炭・浸炭に関する

考え方などについて現在までの状況について要約して述べた。我々の最も身近な目標である「もんじゅ」は勿論のこと、世界各国で研究開発中の多くの研究データを参照しているが、暫定的な結論が得られているものの最終的な解決に至らないものが多い。今後の研究開発の方向は、関係先進諸国間の国際協力によるところが多く、これによって、未解決の分野は逐次開発されていくものと確信する。ナトリウム冷却高速増殖炉用構造材料の適合性を考える場合は、当然、高温強度が問題になる訳であるが、本稿では、ナトリウム効果によって材料が如何なる変化を受けるかについての議論にとどめた。高温強度に関する問題は目下、大々的に開発研究を推進しているので何れ報告される機会があろう。

(1979年1月13日受理)

文 献

- 1) 原子力委員会：原子力白書 (昭和52年版), 38 (1977).
- 2) 動燃事業団：第11回報告と講演の会予稿集, 3~8 (昭53.10.4).
- 3) 高温構造安全技術研究組合：ISES-7701, 1~177 (昭52.3).
- 4) 丸山 昭ら：日本原子力学会予稿集, 83 (昭50.11).
- 5) USAEC: LMFBR Program Plan.
- 6) M. Kolodoney: Nuclear Engineering & Design, Vol. 7. (1968).
- 7) M. Kolodoney: ANL-7520, Part 1, (1968).
- 8) C. S. Cambell & C. Tyzack: Proceedings of the symposium on Alkali Metal Coolants, IAEA, Vienna, (1967).
- 9) A. J. Hooper *et al.*: Metals Technology, (1974)
- 10) 日本溶接協会 FNA 小委員会：高速炉構造材料ナトリウム中試験にともなう試験研究(その1), (昭47.10).
- 11) 日本溶接協会 FNA 小委員会：高速炉構造材料ナトリウム中試験にともなう試験研究(その2), (昭48.5).
- 12) 日本溶接協会 FAN 小委員会：高速炉構造材料ナトリウム中試験にともなう試験研究(その3), (昭49.3).
- 13) 日本溶接協会 FAN 小委員会：高速炉構造材料ナトリウム中試験にともなう試験研究(その4), (昭50.3).
- 14) K. Matsumoto *et al.*: "Carbon Transfer Behavior of Materials for LMFBR Steam Generators", International Conf. on Materials for Nuclear Steam Generators, Gatlingburg, (Sept. 1975).
- 15) Y. Yoshikawa *et al.*: "Structural Materials Investigations of 1 MW Steam Generator for PNC/LMFBR", Int. Conf. on Materials for Nuclear Steam Generators, Gatlingburg, (Sept. 1975).

- 16) ISES-7601: 「常陽」2次冷却系機器耐久試験装置材料試験 (I) 成果報告書, (昭 51. 2).
- 17) R. W. Fisher *et al.*: *J. of Nuclear Materials*, Vol. 38 (1971)
- 18) W. E. Ray *et al.*: "Selection of Steam Generator Tubing Material for the W. H. LMFBR Demonstration Plant" *Nuclear Technology* Vol. 11, (June 1971).
- 19) JWES-AE-7604: (March 1975).
- 20) B. Longson & A. W. Thorley: TRG Report 1906 (C), (1970).
- 21) J. L. Krankota & J. S. Armijo: *Met. Trans.*, 3, 25 (1972).
- 22) K. Natesan *et al.*: *Nuclear Technology*, 19, No. 7, 46 (1973).
- 23) K. Natesan *et al.*: *Nuclear Technology*, 28, No. 5, 441 (1976).
- 24) K. Matsumoto *et al.*: *Nuclear Technology*, 28, No. 5, 452 (1976).