

JAERI-M

6851

炭化物系燃料LMFBRの開発戦略

1976年12月

半田宗男

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

JAERI-M 6851

炭化物系燃料LMFBRの開発戦略

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

半田宗男

(1976年12月2日受理)

各国の炭化物系燃料LMFBRの開発戦略についてまとめた。また戦略を決定する基礎となった最近の炭化物系燃料の照射試験データについて記述したほか、炉外試験データについてもトピック的にとりあげて詳しく議論した。各国の酸化物燃料LMFBRの開発現状についても付記した。

JAERI-M 6851

Strategies in Development of Advanced Fuels for LMFBR

Muneo HANDA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received December 2, 1976)

Overseas strategies in development of advanced fuels for LMFBR are reviewed. Recent irradiation experiment and out-of-pile test data of the fuels are given in detail. The present status of development of oxide fueled LMFBR is also treated.

目 次

1.	はしがき	1
2.	酸化物燃料 LMFBR の開発状況	2
3.	各国の炭化物系燃料の開発戦略	4
3.1	フランス	5
3.1.1	炭化物系燃料の研究および開発プログラム	5
3.1.2	Camille 実験	5
3.1.3	He ボンド炭化物系燃料の技術的問題：高いスエリング率	5
3.1.4	Na ボンド燃料の照射および被覆材の浸炭現象	8
3.1.5	照射による炭化物燃料の炭素活量の变化	11
3.1.6	今後の技術開発課題	15
3.2	西ドイツ	17
3.2.1	S N R 用炭化物系燃料の開発戦略	17
3.2.2	炭化物系燃料のスエリングに関する研究	20
3.2.3	炭化物系燃料と酸化物燃料のスエリングメカニズムの相違	21
3.2.4	高出力 He ボンド炭化物系燃料の照射	25
3.2.5	炭化物系燃料中の原子の拡散	28
3.2.6	炭化物系燃料とステンレス鋼被覆材の両立性	28
3.2.7	照射および炉外試験の予備評価と炭化物および窒化物燃料の適性	31
3.3	アメリカ	34
3.3.1	新型増殖炉燃料開発プログラム 1975~1985	34
3.3.2	E B R - II による炭化物燃料の照射	35
3.3.3	F F T F による新型燃料の照射計画	37
3.3.4	CRBRPへ炭化物燃料集合体を導入した場合の効果および安全評価	42
3.3.5	商用炭化物燃料 LMFBR の設計および安全評価	44
3.4	イギリス	48
3.4.1	LMFBR 用新型燃料の開発戦略	48
3.4.2	Na ボンド炭酸化物燃料の照射	49
3.4.3	照射した炭化物および炭酸化物燃料中の F P 析出相	49
3.4.4	炭化物燃料ペレットの半径方向への質量移行	49
3.4.5	Ni 添加および高燃焼度模擬燃料の物性の測定	50
4.	あとがき	53

1. は し が き

U-Pu混合炭化物系燃料は、混合酸化物燃料に比べて、核分裂性物質密度が3.0~4.0%高いことおよび熱伝導率が2~5倍大きいなど液体金属冷却高速増殖炉(Liquid Metal Cooled Fast Breeder Reactor)*用燃料として、すぐれた特性を有している。しかし、大気中で不安定なため不活性ガス雰囲気中で取扱わなければならないことおよび化学量論的組成の燃料の製造がむずかしいために、燃料とステンレス鋼被覆材の両立性などに難点があるとされていた。これに対して大気中で取扱える酸化物燃料は、軽水炉で経験があり、さらに化学量論的な燃料を使用すればステンレス鋼との両立性も熱力学的に問題がないとされていた。このため、各国ともLMFBR燃料として、まず酸化物を中心に開発を進めてきた。しかし、1973~74年におけるエネルギー危機を契機として、ウラン資源の節減および将来のウラン価値の変動に大きく影響されない安定な燃料サイクルの確立の必要性が認識され、短い増殖時間をもったLMFBRの開発が重要視されるようになった。

1960年の後半に発表された1000MWe LMFBRのFollow-on-Studyによれば、酸化物燃料の増殖比は1.4~1.5と大きく、したがって、10年前後の短い増殖時間をもっているものと考えられていた。しかし、最近の詳細な炉計算によれば、現在の酸化物燃料の増殖比は、当初予想されていた値よりもずっと小さく、1.1~1.2であり、増殖時間も20~30年であると推定されている。この原因の約 $\frac{1}{3}$ は、Puの中性子捕捉/核分裂比の測定誤差によるものであった。残りの $\frac{2}{3}$ は、中性子照射に伴うステンレス鋼のボイドスエリングによる機械的強度の劣化を補う目的で、燃料被覆材および集合体ダクト材を厚くしたために、炉心における燃料体積分率が低下したことなどによる¹⁾。被覆材との両立性についても、燃料の燃焼が進行するにつれて、余剰酸素を生じ、燃料の酸素活量が上昇し、これにFPのCsが加わって、被覆材内壁に数10 μ mの粒界腐蝕が観測され、機械的強度が著しく悪化されることが判明した²⁾。この問題は、亜化学量的組成の燃料、(U, Pu)O_{1.90~1.95}を使用すれば解決するが、このような組成の燃料を大量に生産できる技術はまだ確立されていない。また増殖比が1.2以下の場合には、燃料再処理および再製造時のPuの損失(1~0.2%)に増殖時間が大きく左右されるといわれている³⁾。

酸化物燃料に対して、炭化物系燃料の増殖比は1.3~1.5と高く、したがって、増殖時間も8~15年であると試算されている⁴⁾。炭化物燃料は、燃焼の進行に伴って、余剰炭素を生じることなく、超化学量論的組成の燃料の場合、C/M比(M=U+Pu)は減少する。さらに、Mo, Sr, BaなどのFPが余剰炭素の緩衝剤として作用することが熱力学的な計算から予測されている⁵⁾。また高燃焼度を模擬した炭化物燃料とステンレス鋼の炉外面立試験で、FPの添加は、被覆材の浸炭現象を加速しないことも明らかにされている⁶⁾。炭化物系燃料は、熱伝導率が大きいために、太い燃料ピン(8~10mm)を採用することができる。このため、燃料製造過程で不活性ガス雰囲気を必要とした炭素熱還元工程が追加されるにもかかわらず、燃料の製造費は、酸化物燃料と同等かまたは少し安いという結果すら報告されている⁴⁾。炭素熱還元法で製造された炭化物燃料の中には数1000ppmの酸素不純物の混入はさげられ

* 以下LMFBRと略記する。

ない。この不純物酸素は、燃料と平衡にあるCOガス圧を上昇させ、燃料中の質量移行に悪影響を及ぼすと考えられていた。しかし、イギリスでは、1 wt%の酸素を含んだ炭酸化物燃料〔(U, Pu)C_{0.8}O₂〕について被覆材の破損なしに10 at.%の高燃焼度を達成していることから判断して、微量の酸素不純物の存在は、燃料の健全性を左右する重要な要素ではないことも分ってきた。⁷⁾ 酸化物および炭化物燃料の燃料サイクル費についても、後者の方が、2~4割安いと推定されている。^{4, 8)}

炭化物系燃料で克服しなければならない大きな技術的問題は、Heボンド燃料では、2~3% ΔV/V/at.% 燃焼度におよぶ高いスエリング率をいかに制御して、被覆管を破損させることなく高燃焼度を達成するかということである。⁹⁾ Naボンド燃料では、燃料と被覆管のすき間を大きくとることができ、また燃料温度も低いので、スエリング率はあまり問題とならない。しかし、照射によって燃料にクラックが生じたとき、燃料の小さな破片が、燃料と被覆管の間にはさまり、被覆管に局所的に大きな応力がかかり、被覆管の破損に到る“Ratcheting現象”⁴⁾や、被覆材に小さな穴が生じた場合、プレナム内に蓄積されたFPガス圧により、Naが押出されて起る燃料熔融事故など安全性全般についての技術の確証試験が必要とされている。¹⁰⁾ 前者については、Naボンド内に多数の穴のあいた薄い金属製のスリーブを設置する方法、後者については、ベント型燃料を採用する方法などが考えられている。これらの新技術については、今後照射試験データを蓄積していき、燃料の安全性を実証する以外に道はない。

本稿では、まず、各国における酸化物燃料LMFBRの開発現状について紹介する。続いて、各国ごとに炭化物系燃料の開発計画およびその戦略についてのべる。また、そのような戦略をとるにいたった最近の炭化物系燃料の照射試験ならびに炉外試験の話題について議論する。

2. 酸化物燃料LMFBRの開発状況

世界のLMFBRの開発現状を表1にまとめて示す。20年前に建設されたEBR-IIおよびDFRなど初期の実験炉は、²³⁵Uを核分裂物質に用いた合金燃料であった。1960年代に入って、合金燃料よりもFPガス保持率は劣るが、スエリング率が小さく、高燃焼度が達成できる混合酸化物燃料が主流を占めるようになった。このFPガス保持率が小さいという難点は、燃料ピンにプレナムを設けることで解決された。LMFBRの開発現状は、BN-350(ソ連)、フェニックス(仏)、およびPFR(英)の原型炉がすでに稼動中であり、SNR-300(西独)が建設中、CRBRP(米)が建設に着手されようとしており、原型炉の時代といえる。これらの国では1000 MWe以上の実証炉の詳細設計が着々と進められている。表1に示したように実証炉の建設が予定どおり進めば、10年後には、LMFBRの開発は、実証炉の段階に到達しているであろう。これら初期の実証炉用燃料としては、照射挙動のよく判っている酸化物燃料が使用されるであろう。

ない。この不純物酸素は、燃料と平衡にあるCOガス圧を上昇させ、燃料中の質量移行に悪影響を及ぼすと考えられていた。しかし、イギリスでは、1 wt%の酸素を含んだ炭酸化物燃料〔(U, Pu)C_{0.8}O₂〕について被覆材の破損なしに10 at.%の高燃焼度を達成していることから判断して、微量の酸素不純物の存在は、燃料の健全性を左右する重要な要素ではないことも分ってきた。⁷⁾ 酸化物および炭化物燃料の燃料サイクル費についても、後者の方が、2~4割安いと推定されている。^{4, 8)}

炭化物系燃料で克服しなければならない大きな技術的問題は、Heボンド燃料では、2~3% ΔV/V/at.% 燃焼度におよぶ高いスエリング率をいかに制御して、被覆管を破損させることなく高燃焼度を達成するかということである。⁹⁾ Naボンド燃料では、燃料と被覆管のすき間を大きくとることができ、また燃料温度も低いので、スエリング率はあまり問題とならない。しかし、照射によって燃料にクラックが生じたとき、燃料の小さな破片が、燃料と被覆管の間にはさまり、被覆管に局所的に大きな応力がかかり、被覆管の破損に到る“Ratcheting現象”⁴⁾や、被覆材に小さな穴が生じた場合、プレナム内に蓄積されたFPガス圧により、Naが押出されて起る燃料溶融事故など安全性全般についての技術の確証試験が必要とされている。¹⁰⁾ 前者については、Naボンド内に多数の穴のあいた薄い金属製のスリーブを設置する方法、後者については、ベント型燃料を採用する方法などが考えられている。これらの新技術については、今後照射試験データを蓄積していき、燃料の安全性を実証する以外に道はない。

本稿では、まず、各国における酸化物燃料LMFBRの開発現状について紹介する。続いて、各国ごとに炭化物系燃料の開発計画およびその戦略についてのべる。また、そのような戦略をとるにいたった最近の炭化物系燃料の照射試験ならびに炉外試験の話題について議論する。

2. 酸化物燃料LMFBRの開発状況

世界のLMFBRの開発現状を表1にまとめて示す。20年前に建設されたEBR-IIおよびDFRなど初期の実験炉は、²³⁵Uを核分裂物質に用いた合金燃料であった。1960年代に入って、合金燃料よりもFPガス保持率は劣るが、スエリング率が小さく、高燃焼度が達成できる混合酸化物燃料が主流を占めるようになった。このFPガス保持率が小さいという難点は、燃料ピンにプレナムを設けることで解決された。LMFBRの開発現状は、BN-350(ソ連)、フェニックス(仏)、およびPFR(英)の原型炉がすでに稼動中であり、SNR-300(西独)が建設中、CRBRP(米)が建設に着手されようとしており、原型炉の時代といえる。これらの国では1000 MWe以上の実証炉の詳細設計が着々と進められている。表1に示したように実証炉の建設が予定どおり進めば、10年後には、LMFBRの開発は、実証炉の段階に到達しているであろう。これら初期の実証炉用燃料としては、照射挙動のよく判っている酸化物燃料が使用されるであろう。

表 1 世界の高速炉開発スケジュール概況

昭和51年10月現在

原 子 炉	昭和	20	25	26	30	31	35	36	40	41	45	46	50	51	55	56	60	61	65	66	70	
実験炉 Clementine (25kwt)	米	☒																				
実験炉 EBR-I (12MWt)	米		☒																			
実験炉 EBR-II (20MWt)	米																					
実験炉 E-FERMI (66MWe)	米																					
実験炉 SEFOR (20MWt)	米																					
実験炉 FFTF (400MWt)	米																					
原型炉 CRBRP (360~380MWe)	米																					
大型炉 NCBR (1000~1500MWe)	米																					
実験炉 DFR (15MWe)	英																					
原型炉 PFR (250MWe)	英																					
大型炉 CFR (1300MWe)	英																					
実験炉 BR-10 (10MWt)	ソ																					
実験炉 BOR-60 (60MWt)	ソ																					
原型炉 BN-350 (350MWe)	連																					
原型炉 BN-600 (600MWe)	連																					
大型炉 (~1500MWe)	連																					
実験炉 Rapsodie (40MWt)	フ																					
原型炉 Phenix (250MWe)	ラ																					
大型炉 Super Phenix (1200MWe)	ス																					
実験炉 KINK-II (20MWe)	西																					
原型炉 SNR-300 (300MWe)	独																					
大型炉 SNR-2 (1300~1500MWe)	独																					
実験炉 PEC (125MWe)	リ																					
実験炉 FBTR (15MWe)	イ																					
実験炉「常陽」 (100MWt)	日																					
原型炉「もんじゅ」 (300MWe)	日																					
大型炉	本																					
西 暦		45	50	51	55	56	60	61	65	66	70	71	75	76	80	81	85	86	90	91	95	

注：建設開始から初臨界までを示す。

☒ 実験炉 ☐ 原型炉 ■ 大型炉 ⊗ 閉鎖

3. 各国の炭化物系燃料の開発戦略

各国の炭化物系燃料の照射およびLMFBRへの導入計画をまとめて表2に示す。各国とも、現在の酸化物燃料の改良（高出力、高燃焼度等）と炭化物系燃料の開発を、実験炉および原型炉を利用して並行して進め、1990～2000年頃に、炭化物系燃料を実証炉に導入することに目標をおいている。フランスでは、ラプソディおよびフェニックス炉を利用して得られた照射データの解析結果から、He ボンド燃料は、高燃焼度を目標としたとき、燃料と被覆料の機械的相互作用を制御することはむずかしいと判断され、ベント型のNa ボンド燃料の開発に重点がおかれている。1980年代にラプソディの炉心燃料を炭化物燃料で置換する計画をもっているが、実証炉への導入については、具体的な計画はまだ発表されていない。^{11,12)} これに対して西ドイツは、Na ボンド燃料はHe ボンド燃料に比べて、大きな可能性を潜めているが、安全性の実証には長い期間が必要であると予測している。一方、He ボンド燃料の増殖比も十分に大きいことから、He ボンド燃料のスエリング挙動の解析に重点をおいて開発を進めている。そして、1995年頃には、実証炉SNR-2の炉心に炭化物系燃料を導入する計画を持っている。¹³⁾ イギリスも西ドイツと大体同様な考え方で、炭化物系燃料の開発を進めている。すなわち、Na ボンド燃料は、再処理および燃料製造技術がむずかしいことを考慮して、He ボンド燃料に重点をおいて開発し、1990年以降に、実証炉CFRに炭化物系燃料を採用するか、それとも改良型酸化物燃料を採用するかの決定を行ないたいと考えている。¹⁴⁾ アメリカでは、ここ数年炭化物系燃料の開発は、LASLに限定され、スローダウンしていたが、1974年USAECは「新型燃料開発プログラム1975～1985」を発表し、炭化物系燃料の開発が再開された。¹⁵⁾ このプログラムで注目される点は、高速材料試験炉FFTFの酸化物炉心燃料集合体のうち、13本を酸化物燃料と同一外形寸法および出力に設計された炭化物燃料集合体で置換えた大規模な照射実験を実施しようとしていることである。照射データの蓄積を待って、1978年末には新型燃料のうち、炭化物か窒化物かの選定を行い、1985年までには、実証炉用燃料としての健全性を評価することに目標がおかれている。

表2 各国の新型燃料の照射および導入計画

年	1975	1980	1985	1990	1995	2000	2005
フランス ^{11,12)}	フェニックス炉で 照射実験	ラプソディ炉ドライバ 燃料に使用			未定 (Na ボンド)		
イギリス ¹⁴⁾	PFRで照射試験			CFRに新型燃料を採用するか否か決定 (He ボンド)			
西ドイツ ¹³⁾		SNR-300で照射試験			SNR-2に新型燃料を採用するか 否か決定 (He ボンド)		
アメリカ ¹⁵⁾	FFTF, CRBRPで照射試験		NCBRに採用するか否か決定 (ボンド未定)				
	1980年頃炭化物・窒化物の選択						

3.1 フランス

3.1.1 炭化物系燃料の研究および開発プログラム¹¹⁾

炭化物系燃料は、酸化物燃料の線出力 500 W/cm 程度に比べて、 1000 W/cm 程度の高出力をとることができる。また炭化物系燃料は、酸化物燃料に比べて核分裂性物質密度が $30 \sim 40\%$ 高い。このため同一出力の高速炉の場合、炭化物系燃料の炉心装荷量は酸化物に比べて少なくすむ。例えば、電力出力 1200 MWe のスーパーフェニックスの場合、炉心燃料装荷重量は、酸化物の 4.5 t に対して、炭化物では 2.7 t である。炭化物の倍增時間^{*}は約 8 年であるのに対して、現在の酸化物燃料では約 20 年と推定されている。フランスにおける全発電量に対する原子力発電、酸化物燃料および炭化物燃料を使用した場合の高速炉の導入予測を図 1 に示す。

フランスでは、炭素熱還元法で製造された炭化物系燃料について 10 年以上照射実験を行っている。焼結ペレットの密度は、 $80 \sim 90\% \text{ TD}$ に調製されている。計装付カプセルによる熱中性子照射はほとんど終了し、現在はラプンディ炉を用いて計装なしで燃料バンドルの照射が行われている。最高燃焼率および線出力は、それぞれ $140,000 \text{ MWD/T}$ および $3,200 \text{ W/cm}$ である。目標は、1980 年までに炭化物系燃料の定常時および異常時における短寿命 FP ガスの放出挙動および安全問題を含めて満足できる照射挙動を実証し、1980 年代にラプンディ炉に Na ボンドのベント型炭化物燃料を導入することである。以下このような燃料を選ぶに至った最近の照射データおよび今後の開発課題についてのべる。また、トピックとして、燃焼の進行に伴う炭化物燃料の炭素活量の変化についてのべる。

3.1.2 Camille 実験¹⁶⁾

本実験は、ラプンディ炉を利用した Na ボンド炭化物燃料の最初の照射実験である。照射は 1968 年 8 月ラプンディ炉の初期炉心で開始され、1970 年 40 MW に出力が増大されるまで行われた。照射された燃料ピン、照射条件および結果をまとめて表 3 に示す。燃料破損は 1 本も検出されなかった。(U, Pu)CMo 燃料は、スエリング、FP ガス放出値などから考えて、その他の燃料に比べて劣っており、高速炉燃料としては適さないと判断された。

3.1.3 He ボンド炭化物燃料の技術的問題：高いスエリング率¹⁷⁾

He ボンドの炭化物系燃料をラプンディ炉で照射を開始してまもなく、この燃料のスエリング率が約 $2.5 \Delta V/V\%/at.\%$ 燃焼度と酸化物燃料 ($1 \Delta V/V\%/at.\%$ 以下) に比べて大きいことが分った。93~95% のスミア密度の燃料を、線出力 650 W/cm 、燃料中心温度 1350°C で 2 at.% まで照射した結果、燃料棒の直径が肥大し、被覆材が軸方向の全燃料領域で破損した。(表 4 参照) この大きいスエリング率は、固体状 FP の生成と FP ガスの粒界への析出によるものであった。表 4 に示したデータから、高いスミア密度の燃料では、高燃焼度で燃料の変形および破損は避けられないと判断された。

* 正確には、複合装荷燃料倍增時間 (Compound Inventory Doubling Time) で、その定義は次のとおりである。

$$CIDT = \frac{(\log 2) \times (\text{核分裂性物質装荷量}) \times (\text{炉外滞留時間})}{(\text{年間の核分裂性物質の利得}) - (\text{再処理、製造時および放射性崩壊による年間の核分裂性物質の損失})}$$

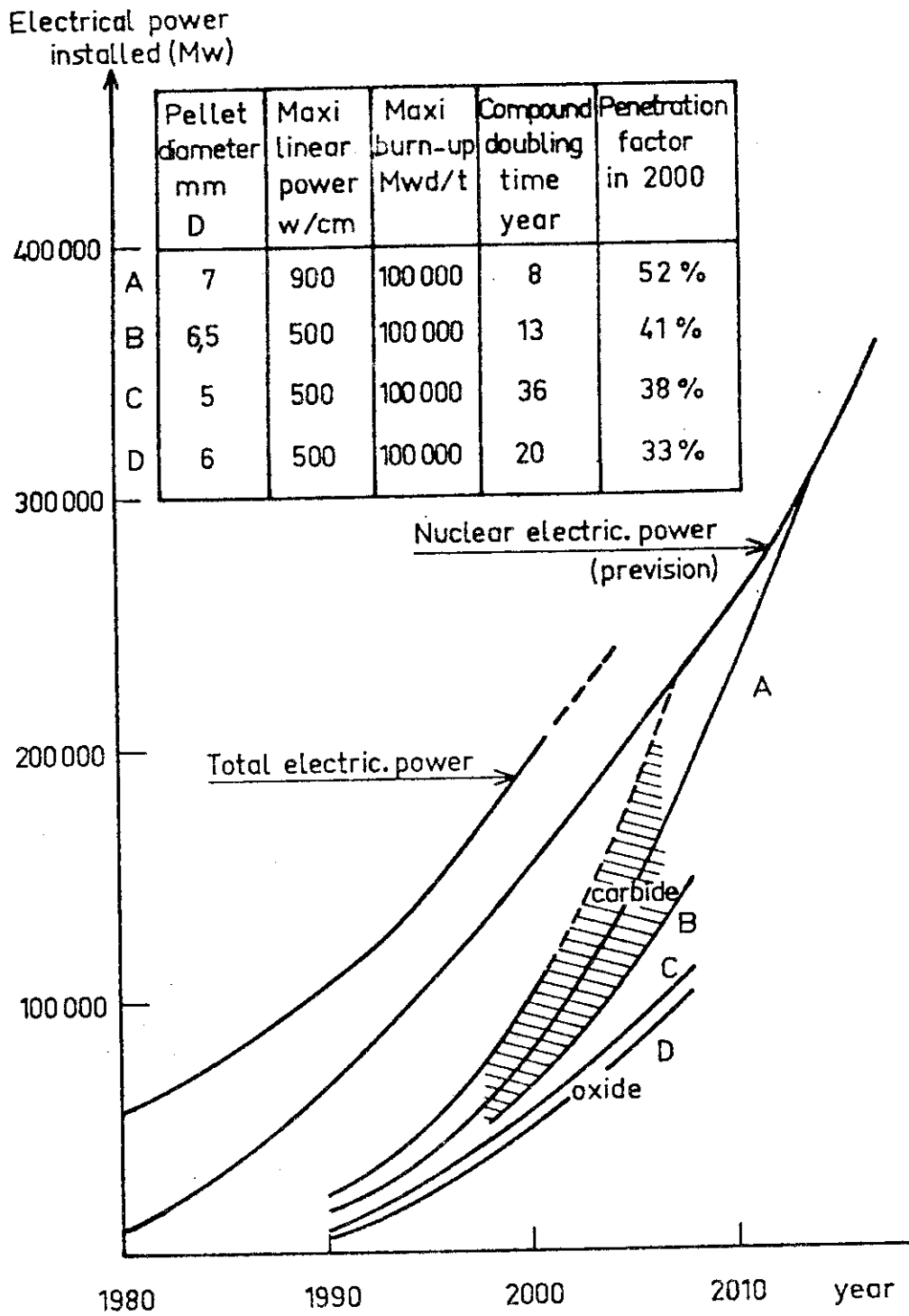


Fig.1 Estimated Fast Reactors Penetration¹¹⁾

表3 Camille 照射実験¹⁶⁾

燃料 (ピン数)	FPガス放出量 (%)	体積スエリング率 (%)	浸炭
(UPu)C (10)	2-9 平均5	3.6	30~170 μ (640°C) 0.05 wt. % \rightarrow 最大2%に増大
(UPu)CN (3)		3.2	
(UPu)N (3)		2.7	
(UPu)CMo*(3)		7.2	

* 5%Mo, (U,Pu)C + (U,Pu)C₁₇Mo

照射条件

燃 烧 度 : 25000 MWD/T
線 出 力 : 800 W/cm
温 度 : 中心 970-1010°C, 表面 662-602°C
燃料密度 : 92% TD
Pu/U+Pu : 20%, ²³⁵ U濃縮度93%

TABLE 4 Irradiation of High-density Carbide Fuel¹⁷⁾

Reference	Smeared Density (% of theoretical)	Linear Heat Rating (W/cm)	Burnup (at.%)	Cladding Deformation $\frac{\Delta\phi}{\phi}$ %	Cladding Condition
$(U_{0.92}Pu_{0.08})C$					
25 N	95	590	1.83	0.55	Cracked
25 U	94	670	2.08	0.34	"
25 C	93.1	715	2.21	0.62	"
$(UC)_{0.92}(PuN)_{0.08}$					
26 N	94.4	640	1.60	0.41	Cracked
26 U	93.9	640	1.63	0.52	"
26 U	94.0	640	2.37	0.34	"

- Cladding temperature: 600°C.

続いて、低いスミア密度燃料の照射を進めた。スミア密度をさげるために、中心孔を有するものおよび20%までの気孔をもった燃料を製造した。燃料中心にW-Reの熱電対を挿入して、中心温度を測定しながら照射を行った。得られた結果を表5および図2に示す。燃料出力を最初640W/cmに6分間保持した場合中心温度はH6ピンの場合、1650から2000℃まで上昇した。この温度上昇はペレットのアウトガスによるものでなくて、燃料のやきしまり現象で、燃料と被覆材間のすき間が増大し、熱伝導率が悪くなったためであると考えられる。酸化物のように、燃料中心孔は形成されなかった。30分間照射したH6燃料について中性子ラジオグラフィで、燃料の寸法測定を行った。その結果、ペレット径およびカラムの高さが、それぞれ0.4mmおよび6mm(4.5%)小さくなっていることが分った。これはペレットの体積で13%減少していることになり、密度は74%から92%に増大していることを示している。最初のやきしまり後、燃料中心温度を2000℃に2.8日保持した。このためには、線出力を640→1,100W/cmに徐々に増大させなければならなかった。その後、1,100W/cmで7日間保持した。このとき、燃料中心温度は2000℃から1,520℃まで下がった。この中心温度の低下は、燃料スエリングにより、燃料と被覆材とのすき間が小さくなり熱伝導度がよくなったことに起因していると思われる。中性子ラジオグラフィの結果、最初のやきしまり後における燃料と被覆材のすき間0.75mmが、2.8日2,000℃に保持したとき0.34mm、さらに7日後0.14mmまで減少していることが分った。これらのデータから、炭化物燃料のフリースエリング率を計算した結果を図3に示す。得られた値は、非常に誤差の大きいものであるが、高温における炭化物燃料のスエリング挙動の概略を知ることができる。図3には、H6以外の実験で得られたデータも合せて示した。図から判るように、スエリング率は、高温では燃料中心温度に大きく依存する。しかし、臨界温度 T_c :1,100℃までは温度にあまり影響されない。この温度以下では、FPガスは燃料マトリックス中に溶解しており、Pu、Uなどの欠陥の移動が可能となる700~800℃で析出が始まる。温度の上昇とともに、気泡の径は大きくなるが、一方その数は減少し、スエリングが加速されるものと思われる。

スエリングを緩和するために、低密度燃料を約600および約1,000W/cmの線出力で照射したが、両方の出力とも被覆材の変形はさげられず、直径は0.2~1.4%増大した。(表6参照)中央に設けた穴もほとんど効果はなかった。測定された変形から被覆材の受けた機械的応力の推定を試みた。その結果、せん断応力は、316ステンレス鋼の弾性限界に近い値を示した。これは、ステンレス鋼のクリープによる変形が起るにはあまりにも低い温度であることから当然のことである。燃料は非常に高い圧縮応力を受けていることになるが、変形が小さいことから判断して、炭化物燃料のクリープ率は低いと予測される。

以上のデータから、安全に高燃焼度に耐えるHeボンド炭化物燃料を開発することはむずかしいという結論に到達した。しかし、Heボンド燃料の研究は、燃料のスエリングを制御できるような機械的強度の強い被覆管材料の開発およびクリープ率の大きな燃料の開発という方向で今後とも検討を進める。

3.1.4 Naボンド燃料の照射および被覆材の浸炭現象^{18, 19)}

Naボンド燃料の特長は次の2点に要約される。第1は燃料温度を低く保つことができるために、FPおよびPuの偏析が起らず、FPと被覆材の相互反応の問題がない。燃料スエリン

TABLE 5 Superheating of Porous Fuels Measured at the Start of Irradiation at Constant Power¹⁷⁾

Reference	Fuel Density (% of theoretical)		Linear Heat Rating in Ramp (W/cm)	Center Temperature Measured in Ramp		Duration of Ramp (h)	Calculated Surface Temperature	
	Pellets (%)	Smeared (%)		Start	Maximum		Start of Ramp	End of Ramp
H1	87 (1)	84	825	1575	1730	20	1350	1520
H2	87 (1)	84	975	1700	1910	10	1460	1680
H6	79 (2)	70	640	1650	2000	0.1	1390	1870

(1) Pellets sintered 4 h at 1650°C in vacuum (initial diametral gap: 0.12 mm).

(2) Pellets sintered 4 h at 1450°C in vacuum (initial diametral gap: 0.37 mm).

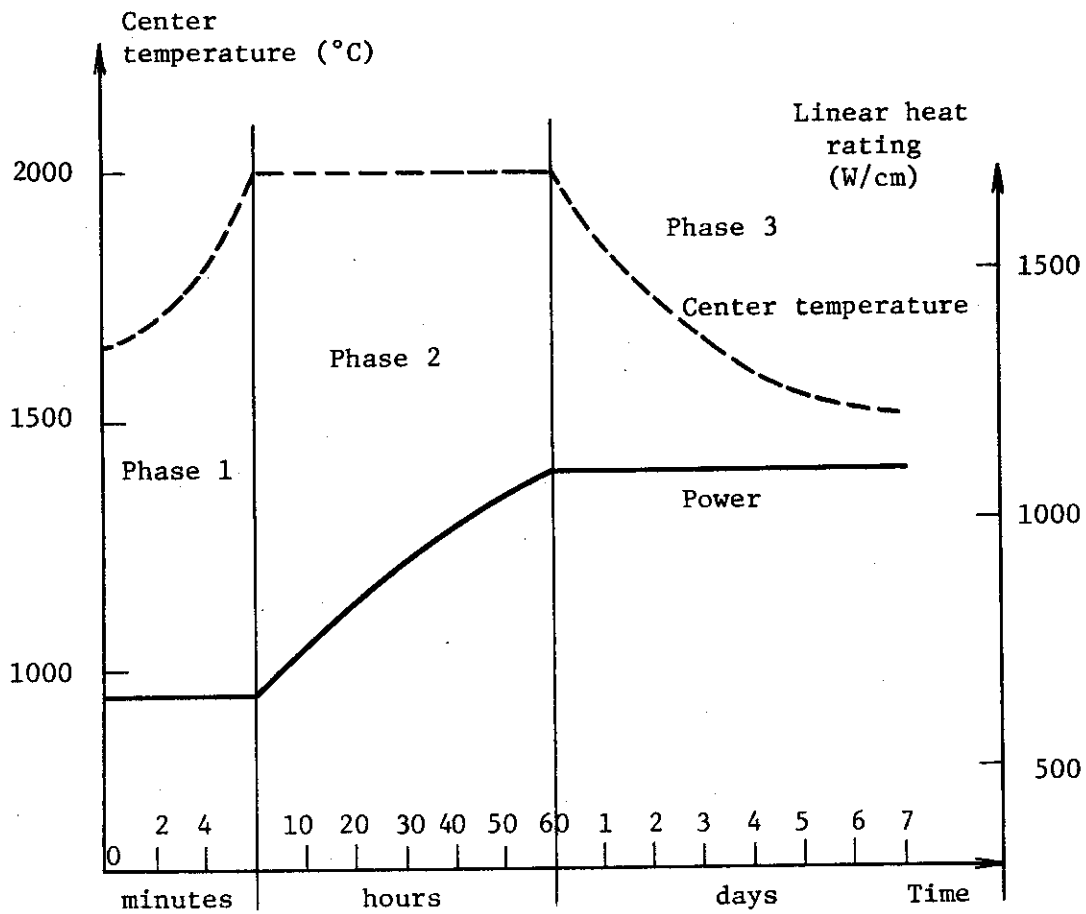


Fig.2 Experiment H6: Center Temperature Variation at the Start of Irradiation ¹⁷⁾

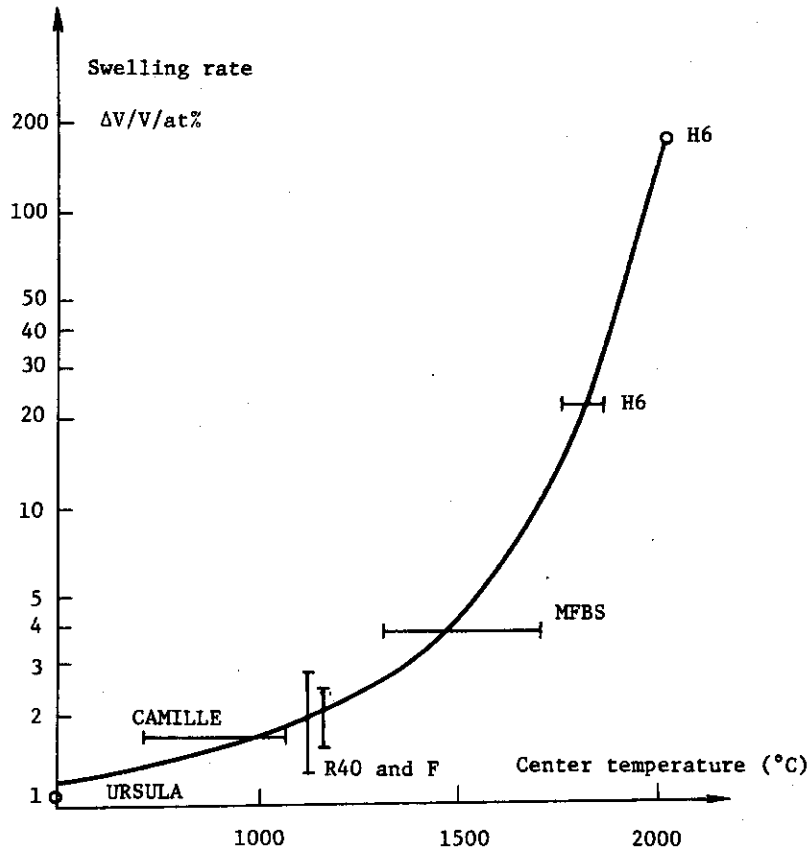


Fig.3 Free Swelling of the Carbide as a Function of Temperature ¹⁷⁾

TABLE 6 Irradiation of Carbide Fuel Elements with Low Smeared Density ¹⁷⁾

Reference	Density		Mean Linear Heat Rating	Burnup (at. %)	Cladding Deformation ($\Delta\phi/\phi$ %)	Cladding Condition
	Pellet	Smeared				
F 21 (1)	83	78.6	670 W/cm	5.00	0.20	Continuous
F 23 (1)	76.2	74.6	650	5.13	0.25	Continuous
F 33 (2)	75.9	73.6	540	4.40	0.50	Continuous
F 51	77.7	76.5	500	5.90	0.40	Cracked
F 52	86.0 + Tc	76.3/83 (3)	500	5.80	1.07	Cracked
F 53	85.8	83	500	6.20	1.38	Cracked
H 1	87 + Tc (83.5)	80.5/84 (3)	1000	3.94	0.87	Continuous
H 2	87 + Tc (83.5)	80.5/84 (3)	950	6.92	1.40	Continuous
H 5	83 (3)	71.6	1150	12.40	1.32	Continuous

(1) Nitride fuel.

(2) Carbonitride fuel.

(3) The second value is the smeared density without the center hole.

グおよびFPガス放出率も小さく保つことができる。第2は、Naボンドが燃料スエリングの緩和に役立つために、燃料と被覆材の機械的相互作用が起らないことである。今までに得られたNaボンド燃料の照射データをまとめて表7に示す。得られた結果は、予想されたとおり良好であった。

2% (U, Pu)₂C₃を含んだ炭化物燃料をラプソディ炉で、最大線出力750W/cm、最大被覆材表面温度660℃、最大燃焼度3%、被覆材316SSの条件で照射した場合、500℃以上の温度領域に浸炭現象が観測された。浸炭層の厚さは、温度とともに増大し、610℃の場合150μmであった。この試料について硬度測定を行い、得られた値から炉外試験で得られた検量線を用いて推定した炭素含有量の値を表8に示す。化学分析の結果では、610℃の場合平均で0.21% (分析値は0.15~0.47%)であった。

最も浸炭が起った試片について、引張り試験を行った。その結果、同一温度および同一中性子照射量では、ラプソディ炉の炭化物燃料被覆材で観測された値と大体同じであった。このように浸炭現象は、被覆材の機械的性質を大きく変化させることもなくまたぜい性も起さないことが分った。これらの結果は、炭素含有量が0.7%を超えなければステンレス鋼の機械的性質に変化はないというアメリカの研究者の推測とよく一致している。

3.1.5 照射による炭化物燃料の炭素活量の変化^{20, 21)}

70,000, 100,000, および 150,000 MWD/T 燃焼度の燃料を模擬したUC燃料を調製し、FPのUCマトリックスへの溶解度、生成するU-C-FP化合物の同定およびクヌーゼンセル-四重極質量分析計を用いて燃料の炭素活量の測定を行った。

(1) 試料の調製

添加したFPは、Zr, Mo, Re (Tcの代り), Ru, Rh, Pd, Y, La, Ce (Ce+Sm+Pm相当分), Nd (Nd+Pr相当分), Sr (Sr+Ba相当分), Cs, I および Te である。これらのFPは金属または水素化物の化学形で添加した。FPの融点によって3群に分け、高融点群から順次添加していき、1,800, 1,500 および 1,000℃の温度で熱処理を行った。

(2) 安定なU-C-FP化合物の同定

燃料中に安定に存在する相は、C/Uによって異なる。C/U > 1の場合 (U₂C₃が存在するとき)の安定な相を表9に示す。C/U < 1の場合、U, Re, Mo および希土類元素を含んだ液相が現われる。

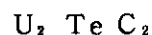
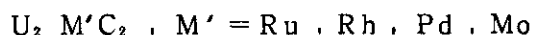
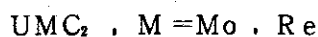
(3) FPの分類

炭化物燃料中のFPは、燃料マトリックスへの溶解度、炭化物の化学形、FP相互の化合物生成等により次のように分類される。

a) UCマトリックス中に完全に溶解するもの：Zr, Nb, Y

b) 部分的に溶解するもの：Mo, 希土類元素

c) 三元化合物を形成するもの：



d) 不溶性のMC₂を生成するもの：MC₂, M = Ba, Sr

TABLE 7 Na-Bonded Carbide Fuel Irradiations 19)

Reference	Fuel		Cladding	Irradiation			Observations	
	type	pellet density (%TD)		smear density (%TD)	linear power	clad temp.		burn-up (MWd/t)
K 1	UC-20%PuC	91,3	76,3	316	1000	600	110 000	ξ = 1% defect in Na-bond at high burn-up ξ = 0,2 % In hot lab. In reactor
K 2	"	"	"	6,60 x 7,50	"	600	56 000	
K 5	"	93,4	"	"	"	580	80 000	
K 6	"	92,4	76	"	"	650	90 000	
Camille	19 pins UC-20%PuC (+)	92	74	7,38 x 8,28	800 (max)	660 (max)	27 000 (max)	No clad rupture No deformation
Y 1	"	92	76	316 6,60 x 7,30	1400	650	73 000	Na-bond exhaust at 40 000 MWd/t
K 7	"	97	84,5	316 9,00 x 9,65	1400-900	650	41 000	gas look at the start of the irradiation
C 1 C 2	UC-20%PuC	91,5	74	316 7,38 x 8,28	1000	650	60 000 fluegge : 5.1022	ξ < 0,3 % In pile (Rapsodie)
C 3	UC-20%PuC	91,5	74	316 7,38 x 8,28	1000	650	8 000	in pile (Rapsodie)
Commando 1 and 2	UC	91	74	"	1200	720	0 (1 hour)	Carbide melting No apparent clad defect

(+) 10 pins UC-20% PuC - 3 pins UN-20% PuN - 3 pins (UPu) C_{0,65}N_{0,35} - 3 pins (UPu)C at 5% Mo

TABLE 8 Carbon Content in the Cladding of Fuel Element CA6 Estimated According to Microhardness Measurements¹⁸⁾

Internal Cladding Temperature	C wt. %	
	Maximum (inside edge)	Mean Across Thickness
500°C	0.29	0.12
610°C	2.0	0.49

- Carbide containing 2% of M₂C₃ phase.
- Initial carbon content of steel: ~0.06%.

TABLE 9 Calculation of the quantity of carbon consumed and released during fission with a burnup of 100,000 MWD/t²⁰⁾

F.P.	Atomic ppm	Probable compounds		Theor. coeff.		C consumed, at.ppm	
		UC +U ₂ C ₃	(U,Pu)C + (U,Pu) ₂ C ₃	UC +U ₂ C ₃	(U,Pu)C + (U,Pu) ₂ C ₃	UC +U ₂ C ₃	(U,Pu)C + (U,Pu) ₂ C ₃
Ru	14 050	U ₂ RuC ₂	U ₂ RuC ₂ +PuRu ₂	0	-1/6	0	-2350
Xe	21 250	gas	gas	0	0	0	0
Zr	27 950	ZrC	ZrC	1	1	27 950	27 950
Cs	18 700	Cs	Cs	0	0	0	0
Mo	22 550	MoC+UC ₂ Mo	MoC+(U,Pu) ₂ C ₂ Mo	1	1	22 550	22 550
Rare earths:	Ce	{ 12 450 15 850 6 000 5 400 4 400 2 350 1 800	MC+εM ₂ C ₃	1	1	48 250	48 250
	Nd						
	La						
	Pr						
	Y						
	Sm						
	Pm						
Pd	4 750	UPd ₃	(U,Pu)Pd ₃	-1/3	-1/3	-1600	-1600
Ba	6 650	BaC ₂	BaC ₂	2	2	13 300	13 300
Tc or Re	5 900	UReC ₂	(U,Pu)ReC ₂	1	1	5 900	5 900
Rh	3 400	U ₂ RhC ₂	U ₂ RhC ₂ +PuRh ₂	0	-1/6	0	-550
Sr	8 100	SrC ₂	SrC ₂	2	2	16 200	16 200
Kr	3 400	gas	gas	0	0	0	0
I	1 600	CsI	CsI	0	0	0	0
Te	2 950	U ₂ TeC ₂	U ₂ TeC ₂	0	0	0	0
Rb	2 300	Rb	Rb	0	0	0	0
Nb	500	NbC	NbC	1	1	500	500
Totals	192 300 C released 96 150					133 050	130 150

MC_2 と $M'C_2$ は不溶 $M'C_2$, $M' = La, Ce, Nd, Pr$

e) 金属間化合物を形成するもの : UM_2 , $M = Pd, Rh, Ru$

f) FP相互で化合物を形成するもの : $CsI, USbSe$

g) 金属状で存在するもの : Cs, Rb

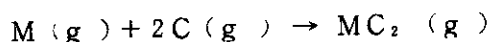
(4) 燃焼の進行に伴うC/M比の変化の熱力学的計算

表9に、100,000MWD/T燃焼時、燃料中に存在するFP濃度をppm単位で示す。UC燃料が燃焼度 τ に達したとき、Uの残量は、 $1-\tau$ であるのに対して、 2τ のFPが生成される。ある燃料温度を仮定した場合、核分裂で生成したFPのうち、その温度でより安定な炭化物を形成するFPから、換言すると炭化物の生成の自由エネルギーの負の値が分子当り大きいFPから、核分裂で放出された τ 個のCと化合して炭化物を生成することになる。このようにして、10% U_2C_3 および Pu_2C_3 を含んだUCおよび(U,Pu)C燃料について、燃焼度100,000MWD/T時における燃料マトリックスのC/M比の変化について計算した結果が表9に示されている。100,000MWD/T時、核分裂で放出されるCは、9.6%であるのに対して、FPによって消費されるCは、UCでは13.3%、(U,Pu)Cでは13.0%である。これは照射開始時 $UC_{1.037}$ および $(U,Pu)C_{1.030}$ の組成が、100,000MWD/T燃焼時には、それぞれ $UC_{1.000}$ および $(U,Pu)C_{1.000}$ に変化することに相当する。すなわち、C/M比は、燃焼の進行に伴って減少する傾向にある。この結果は、混合炭化物燃料の場合、燃焼の進行とともに、余剰酸素が生成され、燃料マトリックスのO/M比が増大する場合と正反対の現象である。実際の燃料ビンの場合、核分裂で生成されたFPのみがCを消費するのではなく、 $C/U > 1$ の場合、ステンレス鋼被覆材の浸炭反応が起る。この浸炭反応は、鋼中のCの拡散に左右されるので時間の平方根の関数となる。一方核分裂で燃料マトリックス中に生成されたFPとCの反応は直線則に従う。結局、燃料中のC/M比の減少は、これら二つの関数に影響されることになる。

さて、燃料マトリックス中に存在する M_2C_3 がすべて消失したあとは、燃料の炭素活量は急に小さくなる。この燃料マトリックスの炭素活量の変化によって、今まで安定に存在していた数種の炭化物は不安定となる。すなわち、まず BaC_2 、 SrC_2 が続いて MC_2 ($M = La, Ce, Nd, Pr$) および U_2RuC_2 が消失する。この段階で、核分裂により放出されるCとFPにより消費されるCの間に平衡が成立し、以後燃料の炭素活量は一定となる。 $UC_{1.00}$ の炭素活量は、1,000°Kで大体0.005程度である。同一温度において3,000ppmのCを含んだ304SSの炭素活量は0.01程度である。したがって、この状態ではステンレス鋼被覆材の浸炭は起らない。

(5) 高燃焼度を模擬した炭化物燃料の炭素活量の測定

クヌーゼンセル-四重極質量分析計を用いて、模擬炭化物燃料の炭素活量の測定を行った。炭素分圧の直接測定はむずかしいので、ガス状の2炭化物 MC_2 と金属Mの蒸気圧を測定して、次の関係式から炭素活量、 a_c をもとめた。



$$a_c = K' \sqrt{\frac{P_{(MC_2)}}{P_{(M)}}}$$

$MC_2(g)$ の生成自由エネルギー $-K'$ と測定されたイオン電流 I_{MC_2} から MC_2 の分圧 $P(MC_2)$ をもとめる係数を知る必要がある。しかし、実際には、 $MC_2(S)+C$ 混合物について、 $I(M)$ および $I(MC_2)$ を測定すれば、次式により与えられた温度での炭素活量をもとめることができる。

$$a_c^2 = \left(\frac{P(MC_2)}{P(M)} \right)_{obs.} \times \left(\frac{P(M)}{P(MC_2)} \right)_{MC_2+C}$$

$$a_c^2 = \left(\frac{I(MC_2)}{I(M)} \right)_{obs.} \times \left(\frac{I(M)}{I(MC_2)} \right)_{MC_2+C}$$

15%の U_2C_3 および100,000 MWD/T 燃焼時に相当するFP (U_2RuC_2 , UC_2M および MC_2 : $M=La, Ce, Nd$) を含んだ燃料について、1850°C以上の温度について測定した炭素活量を図4に示す。図には、 $UC+UC_2$ 系について Storms および Tetenbum が測定した炭素活量も合せて示す。図から明らかなように、 $UC+UC_2$ と $UC+UC_2+FP$ について得られた炭素活量はよく一致している。すなわち、FPの添加によって UC_{1+x} 系の燃料の炭素活量は、影響されないという重要な成果が得られた。

3.1.6 今後の技術開発課題

Na ボンドのベント型炭化物燃料の開発にあたって、今後解決してしなければならない主な技術的課題は次のとおりである。

- a) Na ボンド燃料の高燃焼度での満足できる照射挙動の実証
- b) 定常状態、出力サイクルおよび高燃焼時における短寿命FPガスの放出挙動
- c) 高燃焼時におけるFPガスベント機構の開発
- d) 最適な燃料被覆材の選択
- e) 安全性試験（出力の変化、Naの流量の制限時、燃料-冷却材間の熱的相互作用）
- f) ベント型燃料の燃料破損検出器（FFD）の開発
- g) 事故防止：燃料温度異常時における出力、熱流速および被覆材温度の限界の解析。

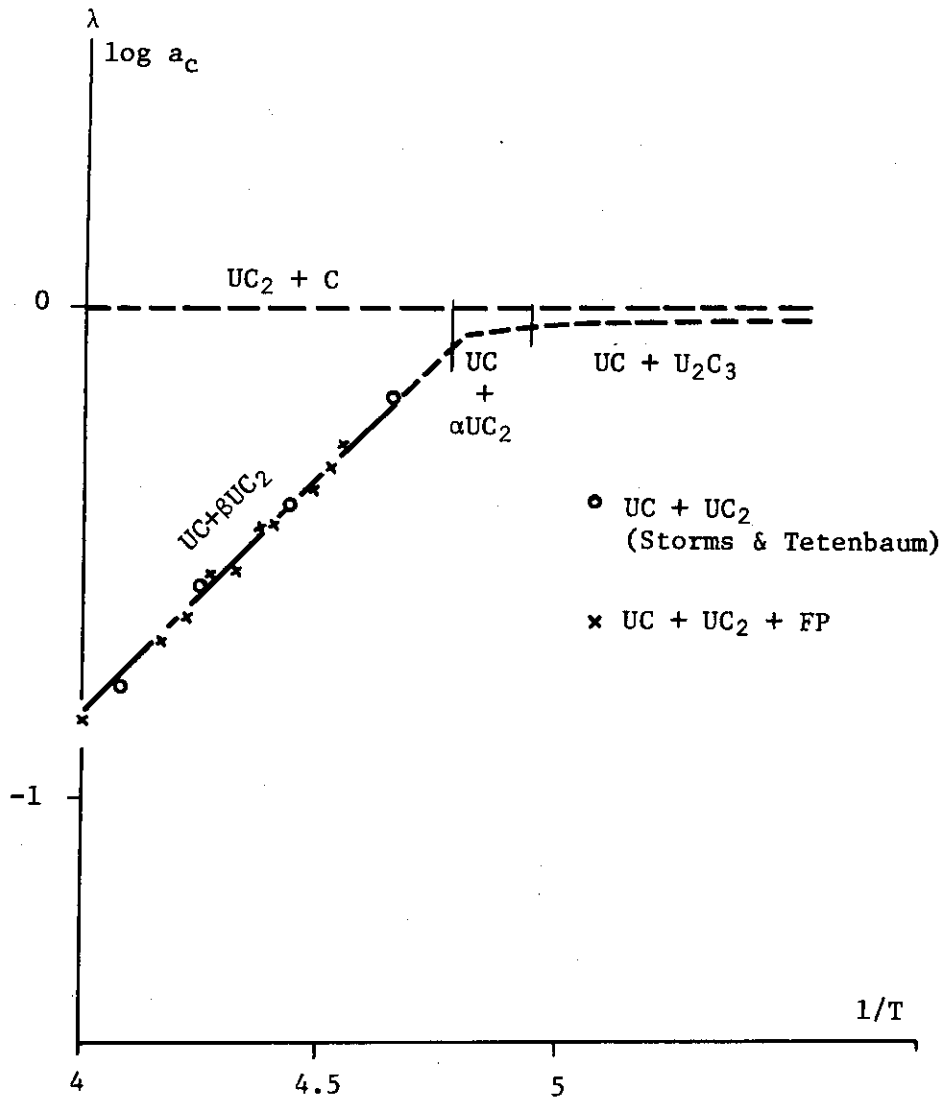


Fig.4 Variation of the carbon activity above UC_{1+x} as a function of $1/T$ (20)

3.2 西ドイツ

3.2.1 SNR用炭化物系燃料の開発戦略¹³⁾

原型炉SNR-300に1980年以降に炭化物系燃料集合体を挿入して照射挙動の研究開発を行い、1995年頃に実証炉SNR-2に炭化物系燃料を導入することを目標に開発を進めている。現在までに報告された諸外国の炭化物系燃料の開発データおよび自国の最近のデータを合せて検討した結果、SNR用炭化物系燃料として、表10に示したような穏和な出力および低スミア密度のHeボンダ燃料が選ばれた。Heボンダを選んだのは、Naボンダに比べて、燃焼時の燃料挙動の予測が容易であり、製造コストが安く、全体的に安全であるためである。燃料再処理工程には、燃料サイクル時間の縮小および高燃焼度燃料の処理など、今後解決しなければならない問題が山積している。炭化物系燃料を早い時期にLMFBRに導入する機会を逸さないためにも、Naボンダのようなむずかしい、新しい形の燃料の採用はさけるべきであると考えている。最近の炉物理計算によれば、Heボンダ燃料のPuの初期炉心装荷量は小さく、また増殖比も十分に大きい。比較のために、現在の酸化物燃料、改良型酸化物燃料およびHeボンダの炭化物燃料を用いたLMFBRの増殖比を表11に示す。Naボンダ炭化物燃料は、Heボンダ燃料に比べて、より大きな可能性を潜めているが、予測される将来においてこの設計の燃料を開発しなければならない直接的な必要性は認められない。図5に、軽水炉を中心にして種々な発電炉を組合せて使用した場合、欧州共同体9ヶ国における推定年間ウラン需要量を示す。²²⁾図から明らかなように、ウラン資源を節減するためには、より早い時期に炭化物燃料LMFBRを導入することが有効であることが分る。

経済性、増殖比、燃料サイクル費および初期炉心燃料装荷量などを考慮した燃料ピンの外径は、7~10mmが最適であると計算されている。SNR-300の酸化物炉心へ、炭化物燃料を順次導入することができるように、炭化物燃料ピン外径として8mmが選ばれた。最高燃焼度も70MWD/kg・HMに制限された。このように燃料燃焼度を低くおさえたのは、表12に示すように、原子炉の規模によって、燃料被覆材およびダクト材の受ける中性子束および線量に大きな差異が生じるためである。実験炉、原型炉および実証炉間に中性子線量という点でまだ重り合いがあるけれども、被覆材のボイドスエリング、クリープなどの現象は、大型炉の設計に種々な新しい問題を提起することが考えられる。放射線損傷をdpa(Displacement per Atom)で表し、この値が炉心材料の放射線損傷の絶対値を示すものと仮定して、LMFBRの規模別に計算した値および相対値を表13に示す。大型実証炉で100MWD/kg・HMの放射線損傷にあたるデータを、実験炉を用いて得る場合には、250MWD/kg・HMの燃焼度まで試験しなければならない。これらの背景を考慮した場合、初期の大型炉の許容燃焼度を70MWD/kg・HMに設定することは妥当であると判断される。大型炉の建設という点から考えてみると、建設過程の半ばまでには、大型炉に使用する材料の許容度および最終設計を終了していることが必要である。このためには、大型炉に使用する燃料の燃焼度が70MWD/kg・HMまたは材料の放射線損傷が120dpaに達する8-10年前までに、原型炉を用いて同レベルの放射線損傷に関するデータを入手しておく必要がある。このような条件を入れて、各国の大型炉の導入時期をまとめた結果を表14に示す。表によれば、多くの国で大型炉の導入は5年程度遅れることになり、したがって炭化物の導入も遅れる。このような遅れをできるだけ短くす

TABLE 10 Reference Data for the SNR Carbide Fuel Element¹³⁾

1. Fuel type	(U,Pu)C, solid pellets
Smear density	75% theoretical density
Bonding	Helium
2. Cladding	1.4970, cold-worked stainless steel
Diameter	8 mm
Wall thickness	0.5 mm
3. Operational conditions	
Linear rating, maximum nominal	800 W/cm
Maximum nominal clad temperature	620°C
Maximum nominal burnup	70 MWd/kg _M

TABLE 11 Typical Design Data for Breeder Power Plants¹³⁾

Electrical power, MW(e)	Standard Oxide	Advanced Oxide	Reference Carbide
Electrical power, MW(e)		1200-2000	
Fuel pin diameter, mm	7.6	6	8
Linear heat rating, W/cm	450	450	800
Specific fissile core inventory, [t/GW(e)]	2.8	1.7	1.7
Total breeding ratio	1.18	1.20	1.35

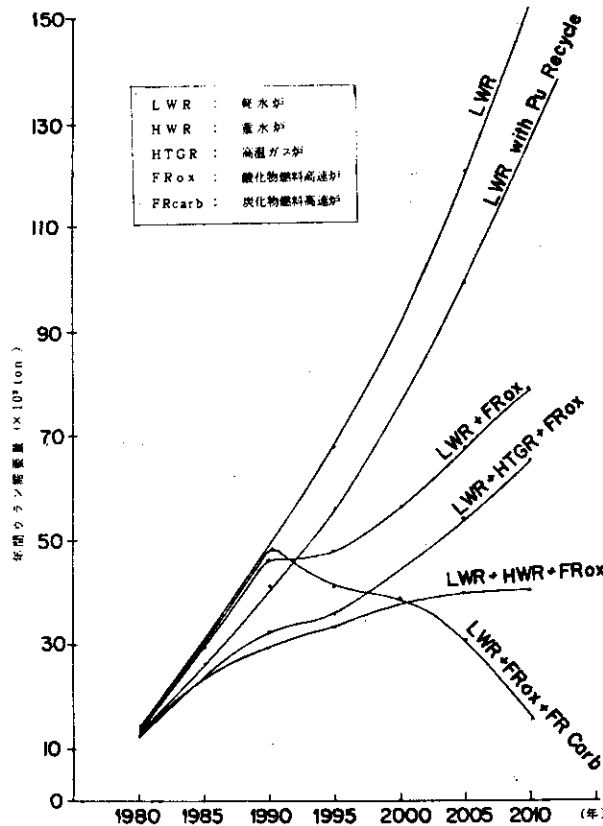


図5 欧州共同体における年間ウラン需要量²²⁾

TABLE 12

Fluxes and Maximum Neutron Doses >0.1 MeV in the Burnup Range of 50 to 100 MWd/kg for Different LMFBR Classes¹³⁾

Reactor type	<100 MW(th)	<1000 MW(th)	3000-5000 MW(th)
Neutron flux > 0.1 MeV n/(cm ² sec)	2 × 10 ¹⁵	4 × 10 ¹⁸	6 × 10 ¹⁵
Neutron dose, n/cm ²	0.4-1.0 × 10 ²³	0.7-1.5 × 10 ²³	1.2-2.5 × 10 ²³
Displacements per atom (dpa)	35-65	70-125	90-180

TABLE 13

Normalized Radiation Damages (dpa) and Burnups (MWd/kg) for Different Reactor Classes¹³⁾

Reactor class	<100 MW(th) (Rapsodie)	<1000 MW(th) (SNR 300)	3000-5000 MW(th) (SNR 2)
Normalized radiation damage at peak burnup	1	1.8	2.5
Normalized radiation damage at average burnup	1	2.1	3.5
Peak burnups related to equal peak radiation damage	250	140	100
Average burnups related to equal average radiation damage	100	60 (100 peak)	40
Peak burnups related to equal average radiation damage	200	100	60

TABLE 14

Comparison of Dates when 120 dpa Damage Has Been Evaluated ⊕ or Has Occurred × for Different Reactors with Date of Design Finalization for Core Construction, ○ *¹³⁾

Country	Reactor	1970	1975	1980	1985	1990	1995
France	Phenix Superphenix		□	⊕ ○	□	×	
U.K.	PFR CFR1		□	⊕ ○	□	×	
USSR	BN350 BN600	□	⊕ ○	□	×		
U.S.	Fast Flux Test Facility Clinch River Breeder Reactor Near commercial			□	⊕ ○	□	×
Japan	Monju				□	⊕	
India	FBR500/1			○	□	×	
Debenelux	SNR 300 SNR 2			□	⊕ ○	□	×

*○ to ⊕ difference within a country is a measure for realistic timing for breeder introduction; □ criticality of demonstration reactors; and ⊠ criticality of large power plants.

るためには、燃料を充てんしない材料のみの照射を、燃料ピンの照射とは独立に進めなければならないといえる。

3.2.2 炭化物系燃料のスエリングに関する研究²³⁾

He ボンドの炭化物系燃料を実証するために克服しなければならない最大の技術的問題は、この燃料の高いスエリング率をいかに制御するかということである。1973年 European Institute for Transuranium Element にMX型燃料(炭化物および窒化物)のスエリングに関する研究プロジェクトが生まれた。⁹⁾ まず、スエリング現象を定量的に定義しておくことが重要であった。以下にのべる定義は、1972年 Gfk/IMF Karlsruhe, SCK/CEN Mol, RCN Petten, TU Karlsruhe, Nukem および Alkem の科学者が、Petten に集まって討議した結果に、H. Blank のアイデアを追補したものである。

(1) 幾何学的スエリング: $\Gamma = \Delta V / V$

Γ は、燃焼度 b における最初の燃料ペレットの体積 V からの増大 $\Delta V (b)$ を導びいたすべての効果を含む。すなわち、 ΔV には、気孔 (Pore)、気泡 (Bubble)、クラック等すべてが含まれる。

(2) 局所スエリング: $A = \frac{\Delta \tau_\lambda}{\tau_\lambda}$

A は、燃焼度 b における燃料の局所的な体積 τ_λ の増大比である。この τ_λ は、数個の粒子を含んだ領域である。このため、 A にはFPガスによる気孔および気泡の生成、固体状FPの蓄積による $A^{(+)}$ と炉内におけるやきしまりによる $A^{(-)}$ の二つの要素が含まれている。

(3) 微小領域のスエリング: $M = \frac{\Delta \tau_\mu}{\tau_\mu}$

微小領域 τ_μ の照射前の体積に対して、照射による体積の増大 $\Delta \tau_\mu$ の比であり、FPガスおよび固体状FPの両方の寄与を含んでいる。 τ_μ の大きさとしては、粒子よりも小さい領域である。このため製造時の空隙および粒界は含まれていない。

さて、クラックの体積を r とすれば、

$$r = \Gamma - A$$

A に対する気孔率 (Porosity) の寄与 λ は次のように表わされる。

$$\lambda = A - M$$

FPガス気泡の M に対する寄与 μ は、

$$\mu = M - \varphi$$

で表わされる。ここで、 φ は固体状FPおよび燃料マトリックス中に溶解しているFPガスによるスエリングである。

スエリングに与える気孔率の寄与 λ は、FPガス放出挙動、さらには、燃料スエリング特性の改良の可能性など、スエリング自体を理解する一つの鍵をにぎっている。 λ および μ は、燃料中のFPガス気孔の大きさによって分別することができる。両者を区別する気孔の径は約 $0.1 \mu\text{m}$ である。

$r < 0.1 \mu\text{m}$ の小さな気孔 $\rightarrow \mu$ に影響する。

$r > 0.1 \mu\text{m}$ の大きな気孔 $\rightarrow \lambda$ に影響する。

この定義は、かなり大胆なようにみえるが、実際は、実験データとよい関連をもっている。すなわち、燃料の臨界温度、 T_c を境にして次のことが成立つ。

$T > T_c$ 微小領域スエリング (M)

$T < T_c$ 局所スエリング (A)

この条件は、燃料温度が T_c 以下の場合、スエリングは粒内のスエリング (M) に左右されるのに対して (このスエリング率は小さい)、 T_c 以上になると、粒界に $10 \mu\text{m}$ 以上の大きな気泡が形成され、スエリング率は急に大きくなる。微小領域のスエリング率 (M)、すなわち、燃料中心温度が T_c 以下の照射データを表 15 に示す。スエリング率は、 $1 \sim 2\% / \text{at.}\%$ 燃焼度であり、FP ガス放出量も非常に小さい。

臨界温度をこえると、微小領域スエリング (M) から局所スエリング (A) になる。この場合、FP ガス放出量も $20 \sim 50\%$ へと急増する。このスエリング率の変化する温度 T_c は、燃焼度 b の関数である。今までに文献に報告されたデータをもとに $T_c(b)$ 曲線を作成した結果を図 6 に示す。この $T_c(b)$ 曲線は、MX 燃料の開発の基礎データといえる。すなわち、Na ボンド燃料では、燃料-被覆材間の熱伝導率がよいために、高密度ペレットを使用しても、燃料の線出力をある程度制限しておけば、燃料中心温度を低く保つことができ、 $10 \text{ at.}\%$ 程度までの高燃焼時まで、スエリング率の低い微小領域スエリング率にとどめておくことが可能である。これに対して、He ボンド燃料では、照射開始時の初期のやきしまり現象で、燃料中心温度は高くなる。このため、燃料組織の変化 (Restructuring) が起り、照射初期から粒界に関連したスエリング率の大きい、局所スエリング (A) に支配されることになる。

3.2.3 炭化物系燃料と酸化物燃料のスエリングメカニズムの相違^{23, 24)}

酸化物燃料は、熱伝導率が悪いために、 500 W/cm 程度の線出力でも、燃料中心温度は非常に高くなる ($> 2000^\circ\text{C}$)。このため、図 6 でのべた臨界温度 T_c を超えており、局所スエリング率 (A) によって支配される。それにもかかわらず、燃料として許容できる $1\% \Delta V/V / \text{at.}\%$ 燃焼度以下の小さなスエリング率しか示さない。この現象は前節でのべた炭化物系燃料のスエリング率と比べた場合大きな相違点があるといえる。この原因について、最近西ドイツの研究者によって次にのべる二つの説明がなされている。

(1) 燃料の蒸発挙動の相違

酸化物燃料では、半径方向の温度こう配が大きい (約 5000°C/cm) ために、照射直後より、燃料製造時に存在していた気泡内で、高温側で燃料の蒸発 (燃料中心に近い方) が起り低温側への凝縮析出現象が起り、その結果気泡は燃料中心部に向かって移動する。この過程で、燃料マトリックス中に生成された FP ガスはスイープされ燃料中心孔に運ばれる。これに対して炭化物燃料では、このような気泡の移行はほとんどおこらない。以下この原因について考察する。

温度こう配下の気泡の移動速度 v は次式で表わされる。

$$v = KT^{-\frac{3}{2}} \cdot P^{-1} \cdot p \cdot \Delta H \cdot \text{grad}(T)$$

ここで、 K は温度に依存しない定数、 p は移動化学種の分圧、 P は気泡内の全圧、 ΔH は蒸発エンタルピーである。これらの要素のうち、移動速度を数値もかえるものは移動化学種の蒸気圧 p のみである。図 7 に、酸化物および炭化物系燃料の全蒸気圧のアレニウスプロットを示す。UC および UN の全圧は、 UO_2 および PuO_2 よりも小さいけれども、PuC およ

TABLE 15

Rates of microscopic swelling S_M ($T < T_c$) and rate of swelling due to solid fission products S_ψ in carbides²³⁾

Type of swelling	Rate S [%/%]	Burn-up range %	Fuel temp. T [°C]	Remarks
M	7.4)	1.53	$\gtrsim 1290$	Na-bonding
M	(7.2)	1.78	$\gtrsim 1340$	Na-bonding
M	~ 2.5		$\lessdot 1200$	
M	~ 1.7		$\lessdot 1000$	
M	1.45	~ 2.5	720-970	Na-bonding
ψ	0.6		-	calculated
ψ	0.5	~ 13	-	experimental

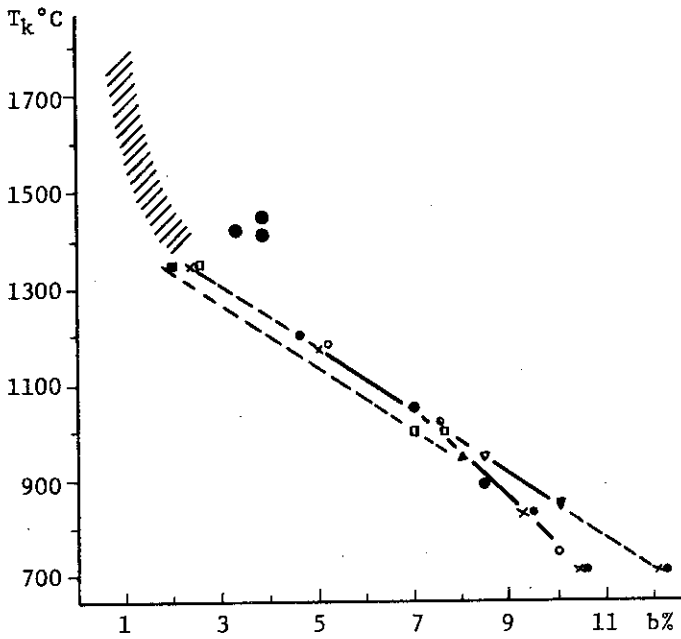


Fig.6 The Relation between Critical Temperature T_c and Burnup b ²³⁾

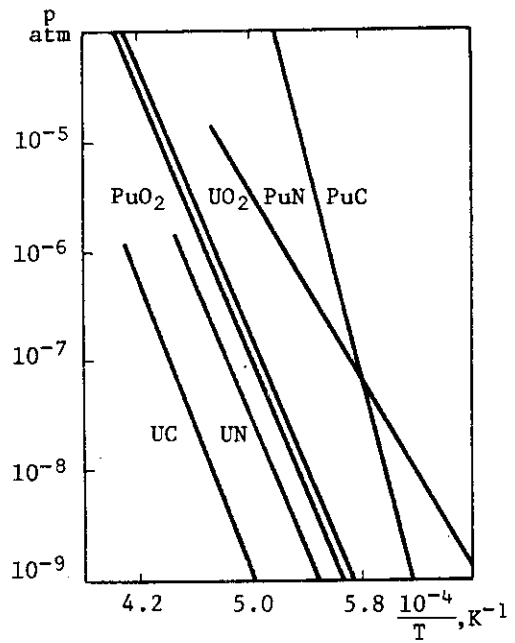


Fig.7 Total vapour pressures of MX-type fuels, compared to those of UO_2 and PuO_2 ²⁴⁾

びPuNの全圧は酸化物よりもはるかに大きい。次に混合酸化物燃料から蒸発する化学種およびその分圧とO/M比の関係を図8に示す。²⁵⁾超化学量論的組成の酸化物から蒸発する主化学種は、 UO_3 であるので、長時間加熱を続けた場合、燃料マトリックスのO/M比は徐々に小さくなる。一方、O/M比 <1.97 の燃料では、 UO_2 およびPuOが蒸発の主成分であるのでO/M比は大きくなる。結局、混合酸化物燃料の組成として考えられているO/M比、 $1.90\sim 2.00$ の燃料では、O/M比は $1.97\sim 1.98$ に落ち付くことになる。図8から類推されるもう一つの重要な結論は、O/M比が、 $1.97\sim 1.98$ の場合、 UO_3 とPuOの化学種の分圧が大体等しいために、燃料から蒸発する主成分は、燃料マトリックスのそれとは異なるけれども、全体的にみた蒸発成分のO/M比は、燃料マトリックスと同じであることである (Congruent Vapourization)。これに対して、混合炭化物燃料および窒化物燃料からの蒸発主成分は、両者ともPu金属蒸気であり、燃料マトリックスとは大きく異っている²⁶⁾ (Incongruent Vapourization)。このようにコングルエントな蒸発挙動を示さない炭化物系燃料では、気泡の移動を引き起こす蒸発-凝縮メカニズムが起りにくく、気泡の移動速度は遅くなる。実際、気泡の高温側でPu金属の蒸発が起り、低温側に凝縮した場合、Puの局所的な枯渇と濃縮が起り、気泡両端における温度差に起因するPuの蒸気圧差が消失する。高温側での蒸発は、Puの自己拡散が起り、気泡の両端におけるPuの濃度が同一になるまでは起らない。結局、炭化物系燃料の全蒸気圧は、酸化物燃料よりも高いにもかかわらず、炭化物燃料中での気泡の移動は非常に遅いということになる。

炭化物燃料の半径方向の温度こう配は、約 $2000\text{ }^\circ\text{C}/\text{cm}$ であり、この値は酸化物燃料の約 $\frac{1}{3}$ である。このように温度こう配が小さい場合、気泡の両端における蒸気圧差も小さくなる。したがって、気泡の移動の計算に、気泡表面の曲率の影響について考慮しなければならぬ。曲面と平面における蒸気圧の関係は次式で与えられる。

$$P_r = P_\infty \exp(2\gamma v^\circ / r RT)$$

ここで、 γ は固体表面エネルギー、 v° は蒸気分子の分子体積、 r は気泡の曲率半径、 P_∞ は平面での平衡圧、 P_r は曲率 r 表面の蒸気圧である。例えば、レンズ状ボイドで高温側表面が凹面、低温部が平面の場合、ある大きさ以上の気泡のみが移動できる。図9に、燃料の出力、気泡両端における蒸気圧および気泡の大きさの関係についての計算結果を示す。図中、曲線より下の領域の気泡の移動は起らない。実際に、気泡の形状によって、移動速度に大きな差異があることが、照射後試験で観測されている。

(2) 熱弾性応力の効果

酸化物燃料は、炭化物系燃料に比べて、熱および電気伝導率が非常に悪いために、核分裂スパイクにより生成される熱弾性応力領域 (多数の欠陥が生成され存在する領域) が大きい。²⁷⁾ このため、核分裂片が気孔および気泡に接近した場所を通過したとき、気泡内に存在していたFPガスの燃料マトリックス内への再溶解現象が起る。この現象は、燃料の全温度領域において起ると考えられる。したがって、高い割合のFPガスが、小さな気孔 ($0.1\ \mu\text{m}$ 以下) として、燃料マトリックス内に閉じ込められる。一方、炭化物系燃料では、熱および電気伝導率が大きいために、核分裂片によって生成される熱弾性応力領域は、酸化物に比べて無視できるほど小さい。このため、FPガスの再溶解現象は、原子相互の直接衝突によって起る

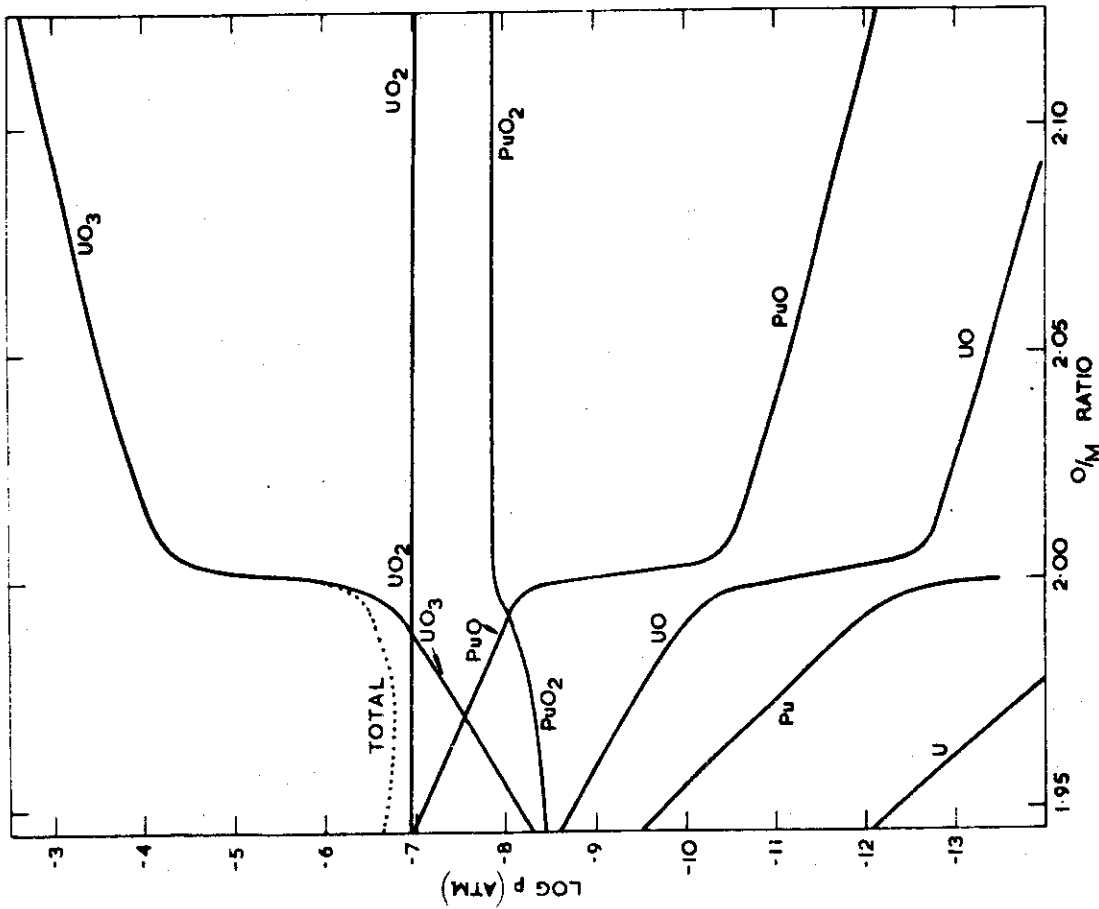


Fig.8 Partial Pressures over (U_{0.85} Pu_{0.15}) O_{2±y} at 2000°K²⁵) (Calculated)

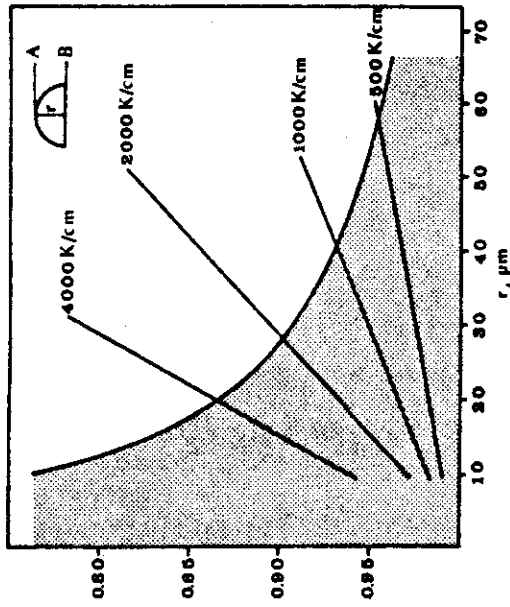


Fig.9 Effect of the pore surface curvature on lenticular pore mobility. The straight lines represent the ratio between the equilibrium vapour pressures in B and in A, as a function of the pore size. The exponential curve represents the opposite effect (p_A/p_B) due to the difference in curvature from the cold to the hot surface. In the region below this curve the pore is immobilized.²⁴⁾

のみでありその割合は小さい。したがって、炭化物系燃料内のFPガス気孔は、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上に成長し、高いスエリング率を示す局所的スエリングによって支配される。

3.2.4 高出力Heボンド炭化物系燃料の照射²⁸⁾

(1) DN-1およびDN-2照射実験

MX型燃料(炭化物、炭窒化物、窒化物)の開発にあたって、まず各燃料について高出力で照射を行い、各燃料のスエリング挙動を調べ、どの組成の燃料が、Heボンド燃料として適しているかを調べる研究を開始した。このためDN-1およびDN-2照射実験が計画された。DN-1実験は、1970年に立案され、照射ベッドにDFRが選ばれた。7本の燃料ピンが、炉心の制御棒設置位置で照射された。Na-Kで冷却することにより、 $200\ \text{W/g}$ ($\approx 1,300\ \text{W/cm}$)程度の高出力での照射が行われた。この計画の途中で、DFRの閉鎖が発表されたため、照射実験は、ラプソディ炉によるDN-2実験に切替えられた。DN-1照射は、窒化物寄りの燃料組成、DN-2照射は、炭化物側の組成が中心であったが、炭酸化合物燃料ピン1本も含まれている。燃料ピン数は、全部で28本である。表16にDN-1およびDN-2照射実験のスケジュールを示す。また、表17に両プログラムの照射実験条件をまとめて示す。

両実験の相違は、DN-1照射ではNaKで冷却され、キャプセル入口の冷却材温度は 230°C であったのに対して、DN-2照射では、Naで冷却され、入口温度は 400°C であった点である。また、ラプソディ炉は、DFRに比べて図10に示したように、少し堅い中性子スペクトル分布をもっている。

(2) 低燃焼率におけるDN-1燃料の微細組織

現在、約1at.%までの低燃焼率の照射後試験のデータしか得られていないが、同一照射条件下での燃料の微細構造は燃料の組成により大きく異っている。大別して次の二つの範ちゅうに分類される。

(a) 窒化物

燃料の組織変化は、軸方向の粒成長によって起り、ペレット燃料では、炉内のやきしまり現象により燃料中心にボイドが形成される。振動充てん燃料では、粒成長は小さく、中心ボイドも不連続である。この差は後者の方が照射初期における熱伝達がよいため燃料中心温度が低いためであると思われる。FPガス気泡は、粒界に析出し、スエリングの主な原因となる。

(b) 炭化物および炭窒化物

原子の移動度が大きく、軸方向の粒成長は窒化物よりも大きい。さらに炭素の格子拡散とともに、蒸気-凝縮メカニズムによる質量移行が半径方向の燃料中心領域で起る。この結果、柱状晶粒を生じ、温度こう配に沿って、気泡が長く伸びる現象が観察される。この傾向は、窒素含有量の増大とともに減少する。燃料中心付近では、温度こう配は、ほとんど零になり、気泡とともに方位をもたない球状粒が現われる。

燃料中に存在する $1\ \mu\text{m}$ までの気孔分布について、電子顕微鏡写真を自動画像分析器にかけて解析した。炭化物および窒化物燃料ピンについて、軸方向の出力の異なる四ヶ所で測定した気孔の半径方向の分布を図11に示す。気孔の分布にも、炭化物と窒化物を比べ

TABLE 16

The Fast Flux Irradiation Program DN1 and DN2²⁸⁾

Fuel			Bonding	Pin		D.F.R. Running Schedule <small>end of the reporting period</small>																			
Type	Composition	$\frac{Pu}{U+Pu}$ Form		Designation	Position in Mini Sub Assembly	08.08.71	09.11.71	71	10.04.72	21.08.72	73	20.01.73	14.04.73	09.06.73	25.09.73	27.02.74	01.02.74	26.05.74	78	79	80				
A	(U,Pu)N	0.2	P	He	AP1	1	129		276		395	5.02	*												
					AP3	5	129	*																	
					AP4	5																			*
					AV2	5				149		270	3.79	*											
					AV3	2	129		276		395	5.02													*
					AV4	6	129	*																	
B	(U,Pu)C _{0.22} N _{0.78}	0.2	P	He	BP1	3	130		277		397	5.05													
					BP2	7	130	*																	
C	(U,Pu)C _{0.5} N _{0.5}	0.2	P	He	BP3	6					125	236													
					CP1	4	130	*																	
D	(U,Pu)C	0.2	P	He	CP2	7			150		272	3.81													
					DP1	4			150		273	3.82												*	
E	(U,Pu)C _{0.8} N _{0.2}	0.2	Vc	He	DP2	6			150	*													*		
					DP3	7																		*	
					EHP4	1																			*
X	(U,Pu)C _{0.8} O _{0.2}	0.2	P	He	EHVc4	3																*			
					XP1	6																			*

Fuel			Bonding	Pin		RAPSODIE Running Schedule <small>end of the reporting period</small>																				
Type	Composition	$\frac{Pu}{U+Pu}$ Form		Designation	Position in Mini Sub Assembly	15.12.71	33	01.07.72	34	12.08.72	22.06.72	35	18.08.72	36	02.11.72	37	38	39	40	41	42	43				
A	(U,Pu)N	0.2	P	Na	ANP	1	2	311	3	35																
C	(U,Pu)C _{0.5} N _{0.5}				CNP	1	2	311	3	39																
					ENP	1	2	311	3	39																
E	(U,Pu)C _{0.8} N _{0.2}				EHP1		1	*																		
					EHP2		1			27	*															
					EHP3					12																*
F	(U,Pu)C _{0.9} N _{0.1}	0.2	Vc	He	EHVc2							12											*			
					EHVc3		1	*																*		
					FHP1		1	*																	*	
					FHP3										12											*
																						*				

Symbols: P= Pelletized; V=Vibrated; Vc=Co-Vibrated; =In-Reactor; =Under examination; * =End of irradiation; #=Failed pin; ⊕=Suspect pin

TABLE 17

Concept and Specifications of DN-1 and DN-2 Irradiation Tests²⁸⁾

<u>fuel</u> : plutonium concentration, Pu/(U+Pu)	= 20 w/o,
uranium enrichment, U-235/U; DN 1	= 93 w/o,
DN 2	= 88 w/o,
smear density	= 82 % of T.D.
pellet diameter	= 8.30 mm,
pellet height	= approx. 10 mm,
<u>cladding</u> : material	= DIN 1.4919,
diameter, inner=	8.50 mm,
outer=	9.50 mm,
<u>fuel pin</u> : overall length, DN 1	= 790 mm, active length : 475 mm
DN 2	= 726 mm, active length : 320 mm
void volume (plenum only)	= approx. 10 cm ³ ,
<u>operating conditions</u> : maximum heat rating	= 200 W/g fuel,
maximum cladding midwall temperature	= 630°C,
burn-up / reactor run	= approx. 1 a/o.

irradiation conditions common to both DFR and RAPSODIE other than the above specifications :

- total neutron flux in center plane of reactor: $1.8 \cdot 10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$,
- scheduled irradiation time per reactor run : 53 - 55 days,

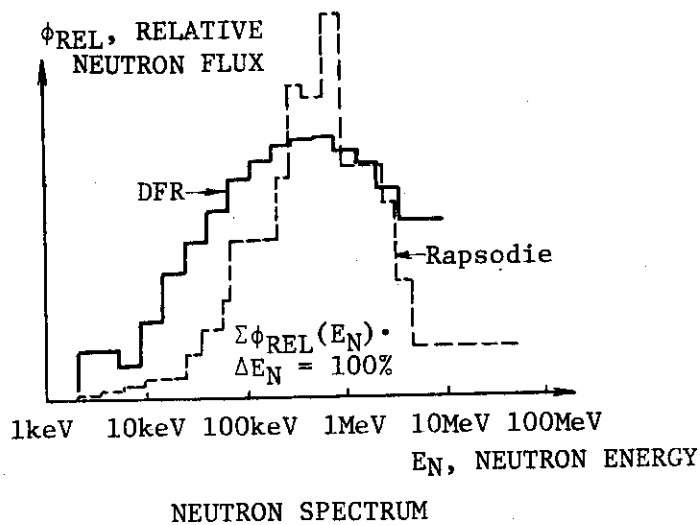


Fig.10 Neutron spectra in the DFR and RAPSODIE reactors²⁸⁾

た場合大きな相違があることが分る。炭窒化物は、炭化物に近い挙動を示した。図 1 1 とセラモグラフを比較した結果、燃料組成によって存在する割合は異なるけれども、半径方向に沿って四種類の燃料組織が観測された。図 1 2 に、これら四種類の代表的な組織写真および気孔率の分布の変化について示す。

領域 1 : 燃料の中で最も温度が高い部分であるが、温度こう配は小さく、数 10 μm の大きな円形の気泡が存在し、空隙率は 30% にも達する。窒化物の場合しばしば中央孔を生じる。

領域 2 : 大きな温度こう配のある部分で、やきしまりが起り、気孔および粒は、温度こう配の方向に伸びた形をしている。

領域 3 : 領域 2 に続く部分で、等軸粒成長が起り、粒界に種々の大きさの気泡が析出している。

領域 4 : 一番温度の低い燃料の外周部で、製造時の組織を保っている。

1.3 at.% 燃焼度の窒化物について、臨界温度 T_c 。以上および以下の領域における FP ガス気泡の大きさの分布を測定した結果を図 1 3 に示す。低温領域では、気泡の大きさは約 200 Å 程度である。燃料中心領域では約 1 μm であり密度は、 $10^{14} \sim 10^{19}/\text{cm}^3$ と広範囲にわたっている。 T_c 以上の温度では、気泡は急に大きくなる。このため、燃料中心部では、5% / at.% 燃焼度にも及ぶ大きな微小領域スエリングを示す。高出力の He ボンド燃料では、微小領域スエリングが幾何学的スエリングに大きく寄与し、大きな粒界の気泡による局所スエリングと同等に作用するといえる。

3.2.5 炭化物系燃料中の原子の拡散²⁸⁾

臨界温度 T_c 。以上で燃料中に生成された気泡は、気孔が粒界に拡散し成長したものである。この過程は、拡散速度の遅い元素によって律速される。炭化物系燃料中の C および N などの非金属元素の拡散速度は、Pu および U に比べて数桁大きい。(U, Pu) CN 燃料について、C および N の含有量を変えて、Pu の自己拡散速度を測定した結果を図 1 4 に示す。窒化物中の Pu の拡散は、炭化物中よりも遅い。5% の C を N で置換することにより Pu の拡散速度は遅くなる。同種の実験を粒成長速度について行った結果を図 1 5 に示す。炭窒化物燃料の粒成長は、窒化物よりも約 100 倍大きく、N の含有量の増大とともに遅くなる。図 1 6 に、炭窒化物および窒化物のやきしまりと加熱温度の関連を示す。以上図 1 4 ~ 1 6 に示したように、一般的に原子の移動速度は、N の含有量が増大するにつれて小さくなるといえる。

3.2.6 炭化物系燃料とステンレス鋼被覆材の両立性^{6, 29)}

炭化物燃料の燃焼の進行に伴う C/M 比の変化については、3.1.5 節においてのべたが、その基本データとなる燃料、被覆材および重要な FP の炭素活量を図 1 7 および 1 8 に示す。図から分るように、(U, Pu) C_{1+x} 燃料では被覆材の浸炭現象が起る。燃料の半径方向(温度こう配下)の C の移行が、ガス層の $2\text{CO} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{C}$ 反応で律速されると考えて、燃料中のガス層の $P_{\text{CO}}^2 / P_{\text{CO}_2}$ 比が一定であると仮定して、その比率と温度の関係を図 1 9 に示す。炭素活量は、 $P_{\text{CO}}^2 / P_{\text{CO}_2}$ 比が一定の場合、温度が低くなるにつれて大きくなる。これは燃料中心部の高温領域から、燃料外周の低温部へ C が移行することを意味している。すなわち、燃料表面近くの炭素活量は、高温部よりも高くなり、被覆材の浸炭現象を加速する方向に燃料内での組

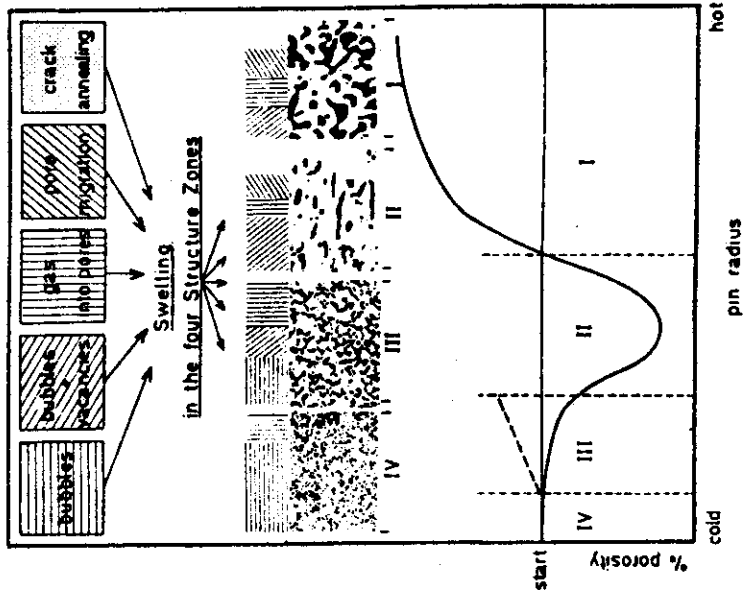


Fig.12 Correlation between a hypothetical typical porosity profile and the four observed structural zones. The micrographs show the characteristic features of each zone (the length of the micrograph is about 150 μm). At the top are indicated the primary swelling mechanisms and their different roles in the restricted zones²⁴⁾

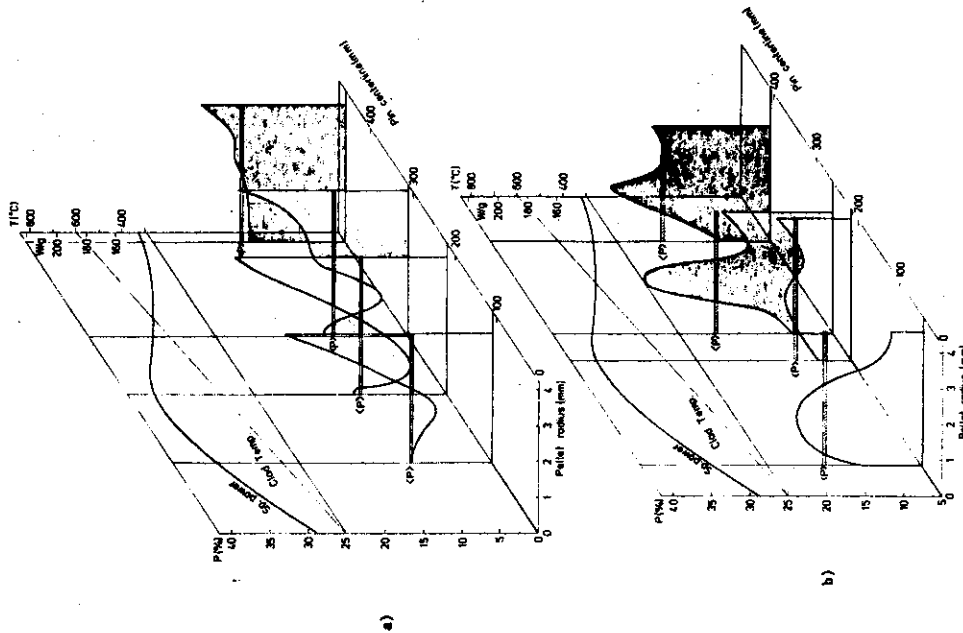


Fig.11 Radial and axial variation of porosity distribution for the pin
a) DP2 (MC) and (b) AP3 (MN) after 1.3a/o burn-up²⁸⁾

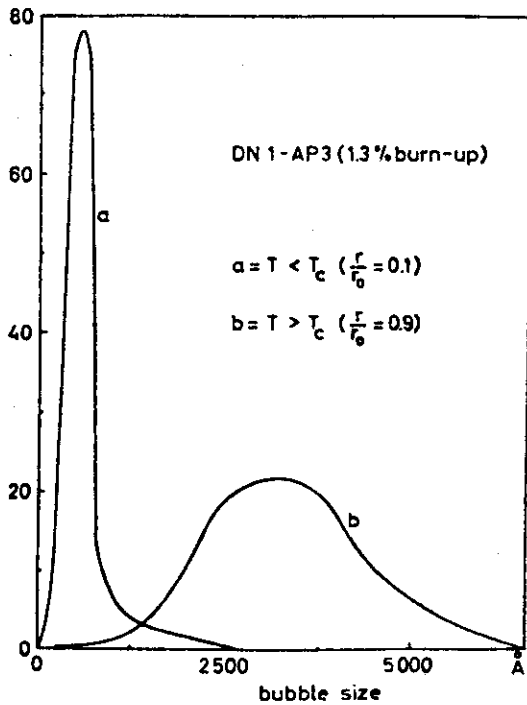


Fig. 13 Size distributions of fission gas bubbles below and above the critical temperature in low burn-up nitride fuel. Ordinate: arbitrary scale²⁸⁾

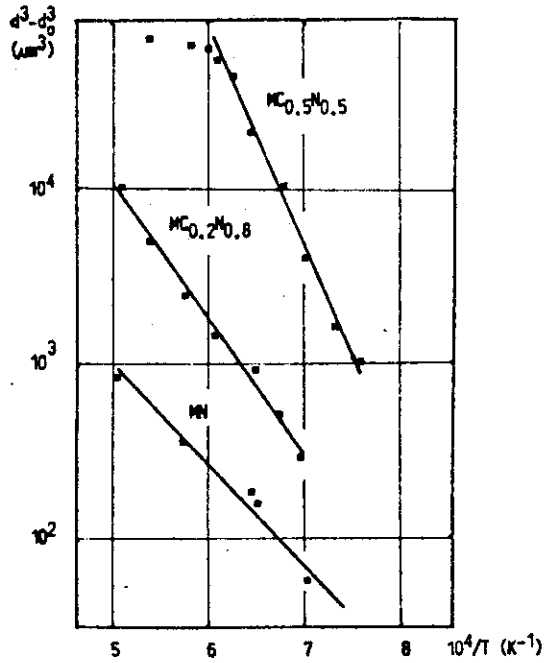


Fig. 15 Temperature dependence of grain growth plotted as $\ln(d^3 - d_0^3)$ versus $1/T$ for MN and for carbonitrides²⁸⁾

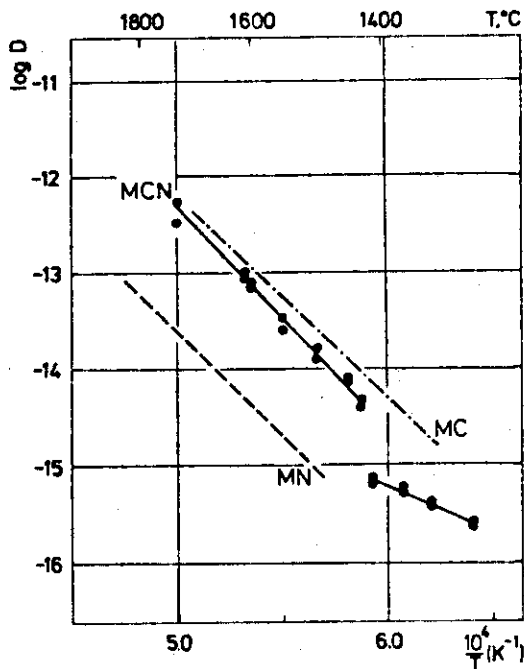


Fig. 14 Arrhenius diagram for self-diffusion of Pu in MC, $MC_{0.8}N_{0.2}$ and MN, ($M=U_{0.8}Pu_{0.2}$)²⁸⁾

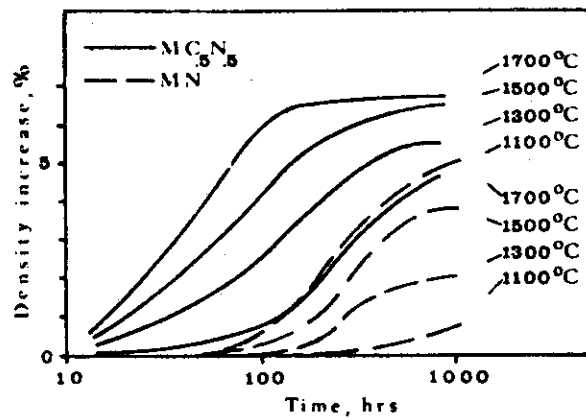


Fig. 16 Densification of carbonitride and nitride pellets as a function of the annealing temperatures²⁴⁾

成変化が起る。また図 19 に示した P_{CO}^2 / P_{CO_2} 比では、700°C以上の温度ですべて (U, Pu)₂C₃ が生成される。

図 20 に、10 at. % 燃焼度を模擬して、Cs, I, Se および Te を添加した UC_{1.05} および FP を添加しない UC_{1.05} とステンレス鋼を接触させて 500 時間加熱した後、被覆材の微小領域の硬度を測定した結果を示す。UC_{1.05} 燃料のみの場合、浸炭現象を示す微小硬度の増大がみとめられたが、4 種の FP を添加した場合、実質的には微小硬度の変化はみとめられなかった。すなわち、FP の添加は、浸炭現象を減速させる方向に作用しているといえる。したがって、炉内における浸炭現象は、炉外テスト（燃料のみの場合）以上には起らないと推定される。なお、加熱試験後のステンレス鋼中の C 濃度は、0.2 ~ 0.4 % であった。酸化物燃料で問題となった Cs は、炭化物の存在下では有害な作用は起さない。ステンレス鋼と Cs の反応は、ある酸素活量以上において、はじめて起るものである。炭化物燃料の酸素活量は非常に小さいので、酸化物燃料の場合のように複雑な Cs-Cr-O 化合物は生成されない。Te とステンレス鋼の反応も、炭化物の存在下では、Te が安定な U₂TeC₂ の三元化合物を生成するためにほとんど起らない。I はステンレス鋼と最も反応しやすい元素であるが、この反応は I が元素で存在しているときのみ問題となる。燃料ピン内では、I は核分裂収率の大きい Cs (I の約 6 倍) と化合して、安定な CsI の形で存在しているものと考えられる。CsI はステンレス鋼と反応しない。結論として、炭化物燃料ピンの場合、FP とステンレス鋼被覆材の両立性には問題はなく、燃料からの浸炭現象のみが進行するといえる。

3.2.7 照射および炉外試験の予備評価と炭化物および窒化物燃料の適性²⁴⁾

これまでに得られたデータは、1.3 at. % の低燃焼度の照射後試験の結果であるが、炭化物系燃料の基本的特性は含まれている。各燃料組成についてのスエリング特性を次にのべる。

(a) 炭化物燃料 (MC)

この燃料は、照射後試験で、燃料断面の広い領域にわたって組織の変化が観測されており、照射挙動の推測は一番むずかしい。燃料組織の変化は、温度および温度こう配に敏感である。それ故、この燃料は、他の組成の燃料よりも燃料の熱履歴に影響を与える不規則なパラメータによって大きく左右される。この燃料の組織の変化は、低燃焼度で高い FP ガス放出率 (約 60 %) を示し、燃料の広範囲にわたってやきしまり現象、「領域 2」* を示すなど、ある面では酸化物燃料に似た挙動を示す。しかし不幸にも、燃料中心部における温度こう配が小さいために、線出力 1000 W/cm 程度の低出力の場合、気泡の移動が起りにくい「領域 1」* が燃料断面の大半をしめる。また照射開始初期のフリースエリングで、燃料が被覆材に接触して、燃料と被覆材間の熱伝達がよくなるために、燃料中心温度が急に低くなる。この結果、FP ガス放出量も漸次小さくなり移動できない気泡 (Closed Pore) が成長し高いスエリング率を示す。

(b) 炭窒化物 (MC_{0.5}N_{0.5})

この燃料は、燃料の軸方向での種々な断面で、より均一な組織を示す。さらに、気孔の分布も炭化物に似ているけれどもより均一である。「領域 1」における気孔率は、絶体値で約 5 % であり炭化物より常に少ない。気孔は小さく均一に分布している。この燃料は、炭化物

* 3.2.4 節(1)項参照のこと。

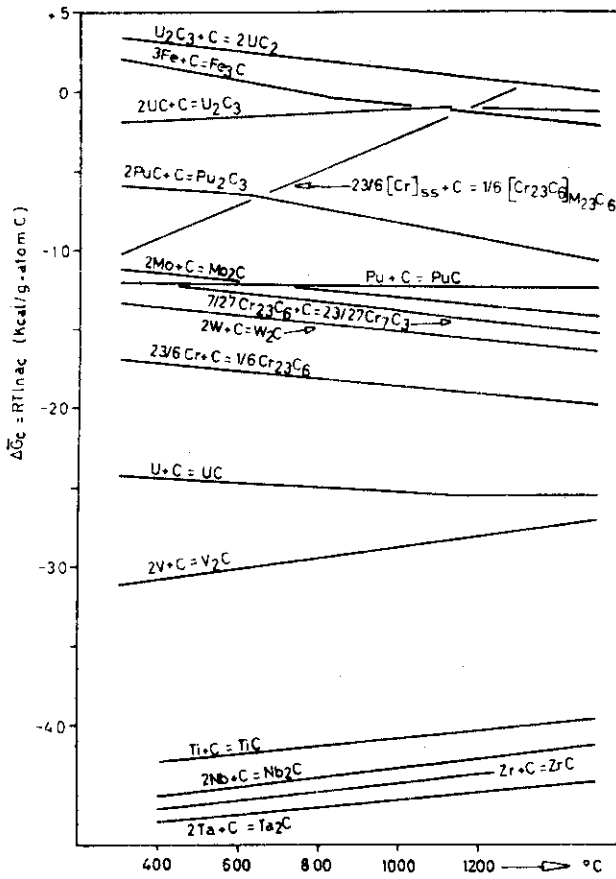


Fig.17 Temperature dependence of carbon potential²⁹⁾

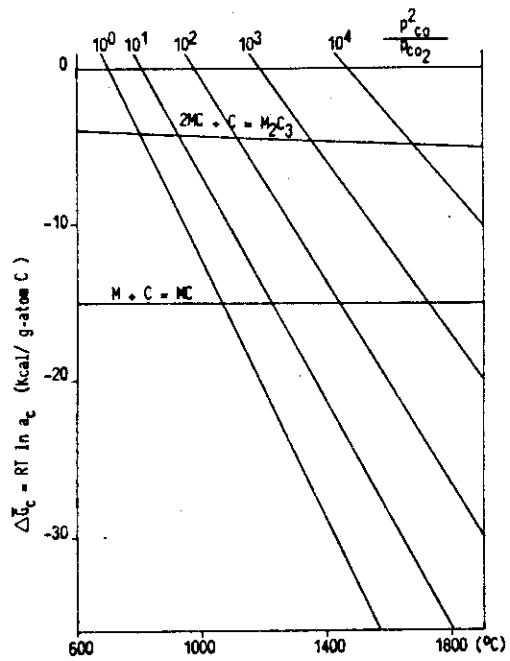


Fig.19 Carbon potential for various p^2CO/pCO_2 ratios according to reaction $2CO \rightarrow C + CO_2$ compared with carbide fuels²⁹⁾

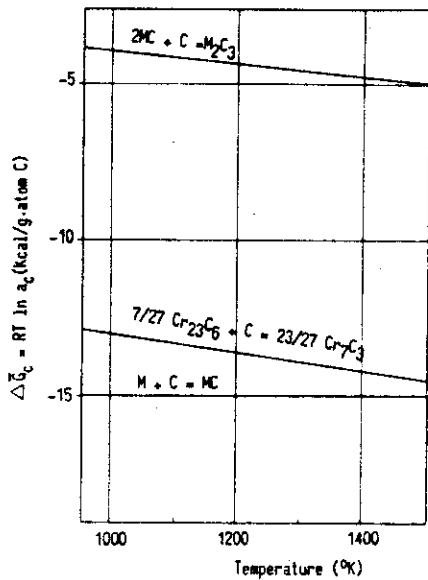


Fig.18 Carbon potential of the ternary U-Pu-C monocarbide phase field for $Pu/(U+Pu)=0.2$ ²⁹⁾

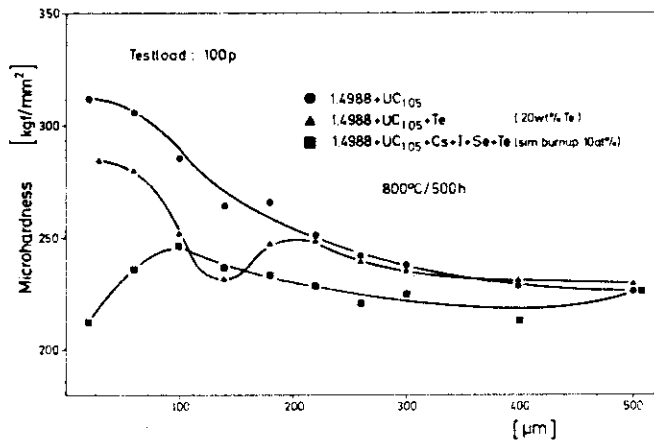


Fig.20 The Effects of FP's Addition on Microhardness of Stainless Steel⁶⁾

の「領域2」で観察されたやきしまりのレベルまで温度が上昇せず、低温で適度なFPガス放出量を示す。

(c) 窒素含有量の高い炭窒化物 ($MC_{0.2}N_{0.5}$)

この燃料は、一見炭化物に似た挙動を示すが、形態学上は、特に低出力燃料では、窒化物に類似した組織をもっている。やきしまり現象は、ほとんど起こらず、気孔は窒化物よりも大きい。炭化物の欠点（領域1の存在）および窒化物の欠点（高い気孔率の領域3の存在）を示し、これといった特長はもっていない。

(d) 窒化物 (MN)

密度が低かったにもかかわらず（85%TD）、照射した全出力にわたって、均一な組織の変化を示した。気孔の分布には変化がみられたが、炭化物や炭窒化物で観測されたような組織変化は付随して起らない。この燃料は、FPガス放出に最適な組織を持っているために、燃料中の原子の拡散速度は遅いにもかかわらず、FPガス放出率は炭化物と同等であった。さらに、高燃焼度において、炭化物の場合FPガス放出率に低下が観測されたが、窒化物の場合変化はみられなかった。

次に各燃料組成の照射挙動から判断した各燃料の開発指針についてのべる。炭化物燃料は、適当な照射条件のもとでは気泡の移動が起り小さいスエリング率を示す理想的な“hot fuel”の挙動を示す。このような条件は、DN-1およびDN-2照射実験の出力（200W/g燃料、1300W/cm）よりももつと高い出力（250~300W/g燃料）で達成されるであろう。すなわち、燃料中心温度および温度こう配を高く保持すれば、FPガス放出率が高く、スエリング率は小さく、高いクリープ率をもっているために被覆材の変形も起こさないで炭化物燃料に類似した炭化物燃料ピンの開発が期待される。これに対して、窒化物燃料は、原子の拡散速度も遅く安定した組織の変化を示す。温度に換算した場合、窒化物は、炭化物のそれより300~400℃低い温度の挙動を示す。このように窒化物燃料は“cool fuel”としての特性をもっており、Naボンド燃料に適している。窒素含有量の少ない炭窒化物は、炭化物に類似した燃料として開発することは可能であるが、炭化物を炭化物の特性を有した“hot fuel”として開発しようとするならば、少量の窒素を含んだ燃料という妥協は必要ないであろう。

3.3 アメリカ

3.3.1 新型増殖炉燃料開発プログラム 1975~1985^{15, 30)}

1974年USAECは、10年以下の倍增時間を有し、かつ150,000 MWD/Tの燃焼度に耐えるLMFBR用の新型燃料開発プログラムを発表した。本プログラムの研究開発課題は次の3項目に要約される。

- (a) 中性子照射量、 2.5×10^{29} nvt ($E > 0.1$ MeV)で、5%以下のスエリング率を有し、かつ1,200°C、中性子束 1×10^{16} nv、20,000 psiの条件下でクリープ率1%以下(クリープ速度 5×10^{-7} in/in·hr)を有する材料の開発。³¹⁾
- (b) この改良型材料を用いた改良型酸化物および新型燃料(炭化物、窒化物)の開発。
- (c) 新型燃料の再処理、製造法および燃料サイクルの確立。

本プログラムを遂行するために、FFTFおよびCRBRPを用いて新型燃料の大規模な照射実験を実施し、燃料の健全性を確立したいと考えている。具体的には、FFTFによる炭化物燃料ピンの照射を1980年から、また炭化物燃料集合体の炉心への導入を1983年に行う計画をもっている。CRBRPへの導入時期としては1986年が予定されている。³²⁾改良型酸化物燃料および新型燃料の開発は、1985年まで並行して進める。1979年(最近の情報では1978年12月³²⁾)に新型燃料として開発する燃料を炭化物にするか窒化物にするかの選定を行う。1985年までには、新型燃料を、酸化物燃料に代って大型炉用燃料として使用するに必要な照射データの収集を終了したいと考えている。本プログラムの予算として、1975~1979年の5年間に、1.4億USドルが計上されている。この中には新型燃料ラインとして0.759億ドルのほか、燃料特性、材料開発、ドジメトリおよび燃料開発のためのモデリング費用などが含まれている。しかし、再処理、燃料再加工のための技術開発ならびに安全性の研究のための費用は含まれていない。

現在の酸化物燃料、改良型酸化物燃料および炭化物燃料を装荷したLMFBRの予想導入時期、倍增時間および増殖比を表18に示す。

TABLE 18
Typical LMFBR Characteristics³³⁾

Reactor Design	Fuel	Years of Availability	Plutonium Simple Doubling Time Years	Breeding Ratio
Early Oxide	Pu-fueled oxide	1987-1990	28.0	1.15
Advanced Oxide	Pu-fueled oxide	1991-	12.5	1.25
Advanced Carbide (small diameter pin)	Pu-fueled carbide	1995-	7.6	1.34
Advanced Carbide (large diameter pin)	Pu-fueled carbide	1995-	7.4	1.46

3.3.2 EBR-II による炭化物燃料の照射

(1) He ボンド燃料³⁴⁾

LASLでは、74本のHeボンド燃料ピンの照射を行った。このうち50本は炉から取出すまでおよび照射中の現在も被覆材の破損は検出されていない。実験条件は次のとおりである。

燃料密度：77～99%TD

被覆材の厚さ：0.22～0.79 mm

燃料-被覆材間のすき間：0～0.41 mm

最大線出力：38～96 kW/m

最大燃焼度：2.0～11.9 at. %

被覆材：304SS, 316SS, Incoloy 800

低密度燃料(77～91%TD)と高密度燃料(96～99%TD)の照射挙動には大きな差違がみられた。低密度燃料では、次にのべる3つの領域からなる燃料組織の変化が観察された。

a) 燃料中心領域で最も大きいスエリング率を示し、多孔性である。b) 中間領域で比較的密な組成を有している。c) 製造時の組織が残っている部分。中心領域は、燃料の直径の0.55～0.80をしめ、Pu/U比は減少し、 β - γ 放射能も低い。これに対して、中間領域では、 β - γ 放射能が強く、特にPr, Nd, Pd, RuなどのFPの増大が観測された。SrおよびCsは、被覆材近くの半径方向に生じたクラック部に検出された。高密度燃料では、組織の変化はほとんど観察されなかった。

4 at. %燃焼度における高密度燃料の破損率は、12/22であったのに対して、低密度燃料では9/31であった。被覆材の種類による破損率の差は認められなかった。高密度燃料の場合、被覆材の厚さは破損率に関係なかったが、低密度燃料では、0.50 mm以上で破損率が急に低下した。高密度燃料の場合、破損率は最初の燃料-被覆材間のすき間に大きく左右され、4 at. %燃焼度で、0.26 mmの場合破損率は9/10であったのに対して、すき間が大きい場合は3/12であった。低密度燃料で、被覆材の厚さが0.50 mm以上の場合は、すき間の大小は破損率にあまり影響しなかった。FPガス放出率は非常に低くて1%程度であったが低密度燃料では最大37%が観測された。低密度燃料の場合、燃料密度が81%以下では、FPガス放出量は大体一定であった。

燃料と被覆材の両立性で問題となるのは、燃料からの炭素移行現象のみであった。316SSおよびIncoloy 800では、それぞれ、25～250 μ mおよび40～110 μ mの浸炭層が観測された。X線マイクロアナライザによる解析で、Fe, Niの減少は、被覆材内表面の10 μ mに限られていることがわかった。

(2) Na ボンド燃料³⁵⁾

LASLでは52本のNaボンド炭化物燃料の照射を進めている。このうち、27本については照射を終了し、照射中のピンを含めて38本は健全である。照射条件は次のとおりである。

燃料密度：88～99%TD

(UPu)₂C₃存在量：0～25 vol. %

被覆材：304SS, 316SS, Incoloy 800

被覆材の厚さ：0.25~0.44 mm

燃料-被覆材間のすき間：0.25~0.83 mm

最大線出力：40~130 kW/m

最大燃焼度：2.4~11.0 at. %

照射パラメータのうち、破損率に最も大きな効果をもっているのは被覆材の厚さであった。0.25 mm厚さの被覆材の破損率は、10/17であったのに対して、0.30~0.44 mmの場合4/35であった。一般的な燃料挙動および照射後の燃料組織は、最初の燃料密度に無関係であった。また、破損率も燃料密度と関連はみられなかった。非対称なスエリングおよび β , γ 放射能分布が多数観測された。これは、Na ボンド中に気泡が存在していた場合の挙動に似ているが、破損と気泡の存在を直接結びつけるデータは得られなかった。非対称な被覆材のだ円化は、燃料に照射時の熱応力でクラックが生じたとき、燃料破片のエッジまたは燃料と被覆材間に小さな燃料破片がはさまって、被覆管に局所的な応力を与えたためであると推定されている。この推定を直接照射後の金相試験で証明しようとする試みが多数行われているが、燃料切断時に再配置が起るために成功していない。非常に薄い(0.09 mm)穴あきのステンレススリーブをNa ボンド中に設置して、燃料にクラックが生じた場合でも燃料の幾何学的状態をもとのままに保持する方法が提案された。7本の燃料ピンについて、3 at. % 燃焼度で得た中性子ラジオグラフの解析で、この形態の燃料が被覆材破損防止に非常に有効であることが示された。燃料とステンレス鋼被覆材の両立性の問題は、He ボンドの場合と同様に浸炭現象のみであった。単相の炭化物に比べて、5~20%の(U, Pu), C₂を含んだ燃料の浸炭層は厚く、その最大値は25 μ mであった。浸炭層ではNiの減少がみられた。FPガス放出量は、3.2~21.3%であった。

(3) 新型燃料ピンのだ円化現象の解析³⁶⁾

燃料ピンのだ円化現象が観測された部分について、軸方向に対して直角な位置をプロフィールメータで測定した。その直径変化を図21に示す。次に機械的相互作用によって被覆管内壁に局所的な半径方向の力が働いたと仮定して、線型の弾性モデルを適用して計算した。この力は、円周方向に20~30°、軸方向には0.25~2.5 mm作用すると仮定した。得られた結果も合せて図21に示す。図から明らかのように計算結果は、実測された変形とよく一致した。Na ボンド燃料の被覆材の破損は、熱サイクルに伴う低いサイクルによる疲労に基づくものと推定された。

(4) 新型燃料の照射挙動の展望³⁷⁾

過去8年間にわたって、EBR-IIを用いて新型燃料の照射特性に関する研究開発が進められてきた。照射燃料ピン数は多くないけれども、新型燃料の一般的特性、特に燃料破損の原因については十分わかってきた。新型燃料は、照射時の温度が低いために、燃料の組織変化はほとんど起らず、FPガス放出量も、10 at. % 燃焼時40%以下と低い。このため、スエリング率は高く、通常の照射条件で1~3 Δ V/V/at. % 燃焼度である。この高いFPガス保持率に加えて、炉内におけるクリープ強度が、酸化物に比べて約1桁高いことが重なる。照射したすべての燃料ピンについて燃料と被覆材間に機械的相互作用が観測された。

高い線出力および高密度のHe ボンド燃料で最も高い機械的作用が起り、これまで用いられていた弱い(薄い)被覆材では破損率が高かった。これに対して、燃料と被覆材間のすき間が大きく、燃料のスミア密度が低く、さらに厚い被覆材を用いた燃料ピンでは、スエリング率も小さく、2.5 kW/ft 以下の出力では高燃焼度まで破損が起らなかった。さらに、物理的に混合した7本の振動充てん炭化物燃料は、P u C相の可塑性により、機械的相互作用を最小限にとどめることができた。このような照射挙動に関する一般的な観測を燃料要素の形態別に分類して、Weisbull 統計を適用し、破損確率をもとめた結果を図22に示す。³⁸⁾ Na ボンド燃料についても合わせて示す。He ボンド燃料の場合、低スミア密度燃料が有利なことが分る。Na ボンド燃料で、4 at. % 燃焼度における低い破損率は、照射初期の燃料のクラックによる被覆材への局所的応力を防止することができれば、この形態の燃料は高燃焼度を達成できる見込みのあることを示している。

EBR-IIによる新型燃料の照射経験を要約すると、

- a) 燃料と被覆材の機械的相互作用が、燃料破損の主原因である。
- b) 穏和な出力、低スミア密度燃料、厚くて強い被覆材の組合せにより、機械的相互作用を緩和させた燃料が、高燃焼度達成の近道であろう。
- c) 新型燃料の高燃焼度の健全性の実証は、まだ確立されていないが、低スミア密度、He ボンドおよび物理的に混合された振動充てん燃料が最も有望と考えられる。

3.3.3 F F T Fによる新型燃料の照射計画³⁹⁾

EBR-IIによる新型燃料のピン照射には限界があり、Combustion Engineering Inc. は、USAECの後援のもとに、F F T Fの炉心の炭化物燃料集合体のうち13本を炭化物燃料ピンよりなる集合体で置換して照射する計画を立案し、集合体の設計および安全性の評価を行った。F F T F炉心には、多数の実験孔およびテストループが付設されているが、新型燃料の開発プログラムを促進させるためには、時間およびスペースとも不十分である。F F T Fの炉心は、将来の大型炉用LMFBR燃料および材料の照射に適した高中性子束を有している。このF F T F炉心における炭化物燃料集合体の照射を行うことによって、短時間に炭化物燃料の照射挙動を実証するに必要なデータを入手することができる。

(1) 炭化物燃料集合体の設計

三種類の炭化物燃料集合体の設計を行った。どの集合体も、F F T Fの炭化物燃料集合体の外形寸法と同じであるので、その取扱いはすべて既存の諸設備で行うことができる。また、燃料ピンおよび集合体の出力、温度、Na 流速、Na の圧損などもすべて同一に設計されているために、直接炭化物燃料集合体と置換することができる。第1の炭化物燃料ピンは、Na ボンドを採用しているが、ピンの外径は、倍増時間および燃料サイクル費の最適化計算を行い、⁴⁰⁾ 0.37 in が選ばれた。(図23参照) 集合体あたりの燃料ピン数は91本である。大型炉で、太い燃料ピンを採用した場合、単位重量あたりの燃料製造費は安くなるが、炉心が大きくなり、かつ炉心への初期装荷燃料が多く必要となる。これらの点を考慮して、第2のNa ボンド燃料ピンの外径は0.315 in が選ばれた。集合体あたりのピン数は127本である。第3の燃料ピンは、He ボンド燃料で、ピン外径および集合体あたりの燃料ピン数は、第2のNa ボンド燃料と同一である。F F T Fへの初期装荷の炭化物燃料ピンの外径

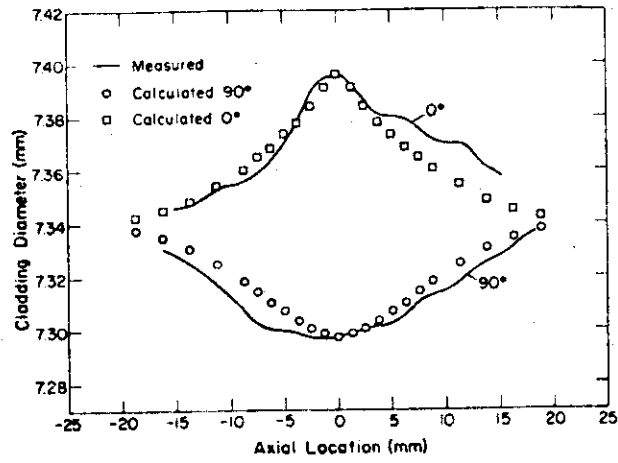


Fig.21 Calculated and measured axial shapes of an ovality. Measured data from element U200³⁶⁾

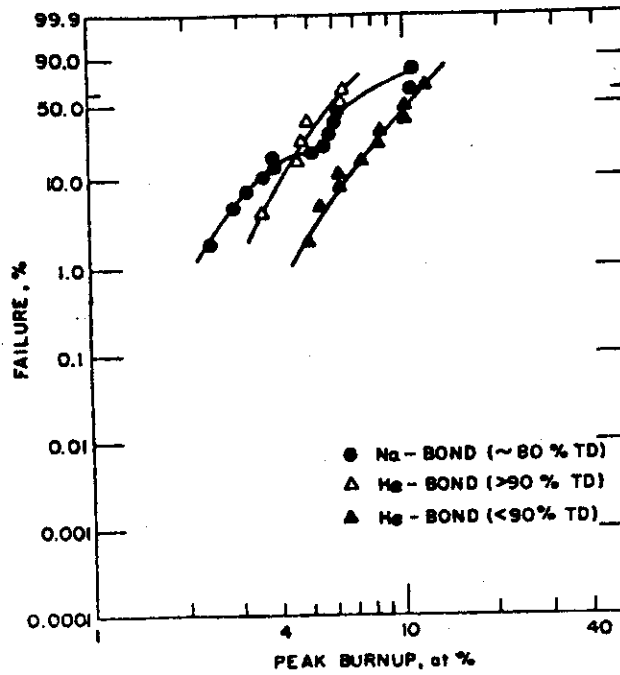


Fig.22 Weibull cumulative failure probability for carbide fuel elements irradiated in the EBR-II³⁷⁾

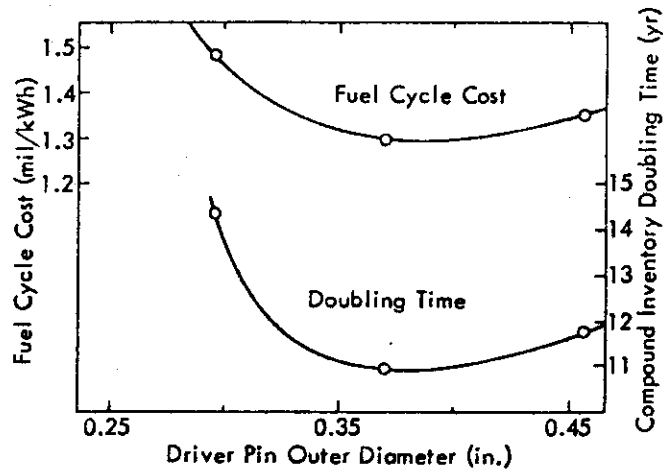


Fig.23 Pin diameter optimization for near-term carbide pin design (sodium velocity at 26 ft/sec)⁴⁰⁾

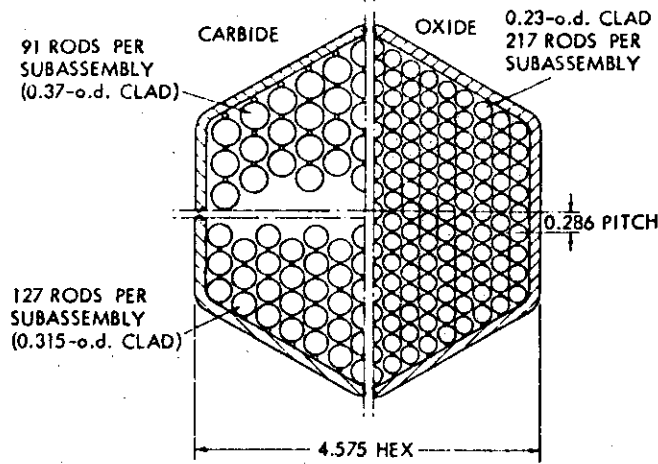


Fig.24 Cross section of proposed carbide test subassemblies and the FTR oxide sub-assembly³⁹⁾

は 0.23 in , 集合体あたりの燃料ピン数は 217 本である。以上にのべた燃料集合体の断面を 図 24 に示す。Na ボンド燃料の場合、燃料と被覆材間のすき間を比較的大きくとり、Na ボンド内に約 4.4 % の穴のあいた 3 mil 厚さのステンレス鋼製のスリーブを設置した。このすき間は、同時に、80,000 MWD/T の燃焼度までの燃料スエリングを吸収緩和するためスペースとしての役割ももっている。He ボンド燃料のすき間は、8.4 % TD の場合 10 mil とした。He ボンド燃料の被覆材の厚さは、20 mil , Na ボンドの場合 15 mil とした。表 19 に F F T F の酸化物燃料、照射テスト用の炭化物燃料および商用原型炉 (3.3.5 節参照) の燃料集合体の特性の比較を示す*。また炭化物燃料マトリックスの製造法および設計に使用したパラメータを表 20 に示す。図 25 に、F F T F の炉心に挿入を計画した 13 本の炭化物燃料集合体の位置を示す。

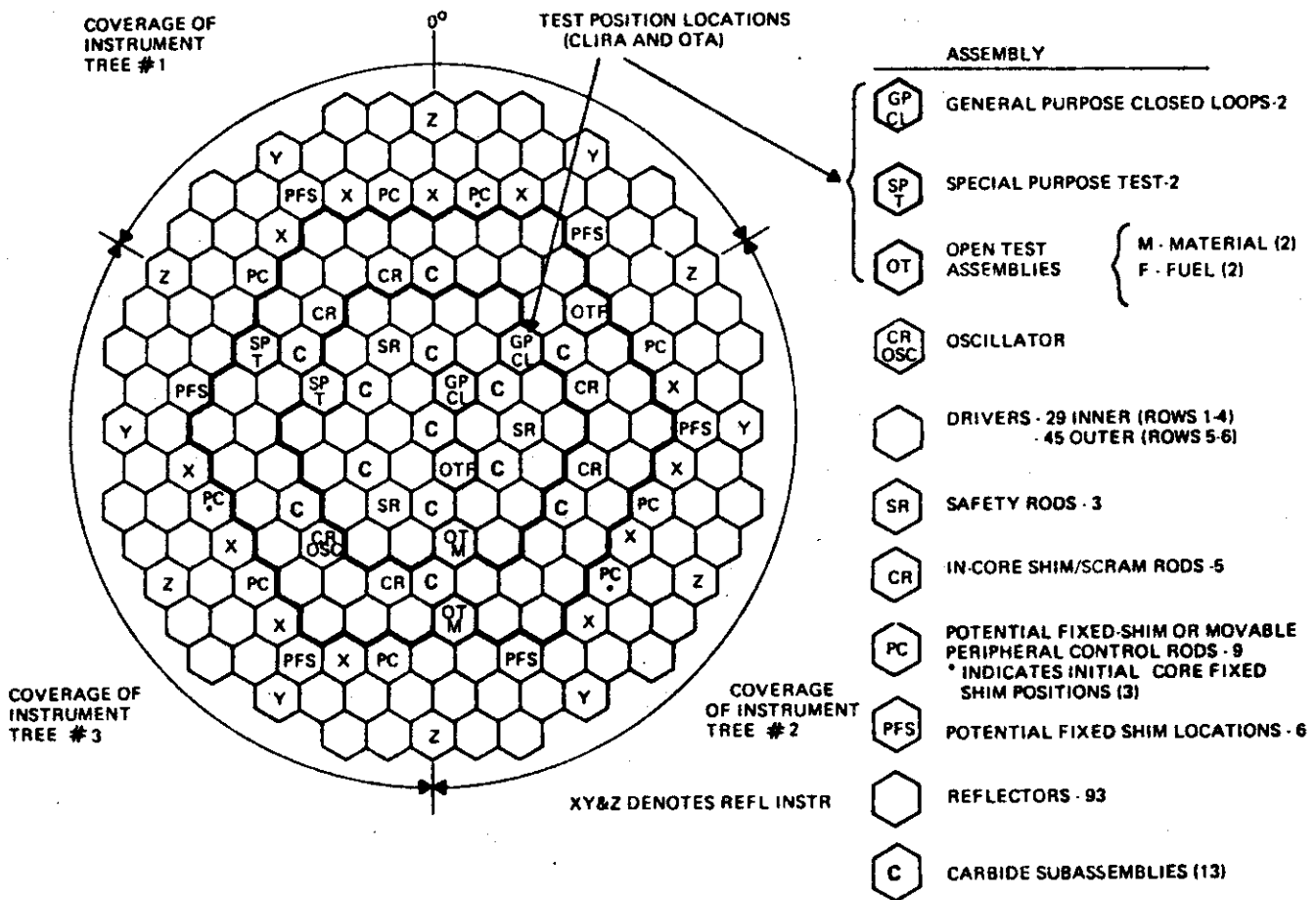


Fig.25 FFTF core plan view modified to show carbide subassembly locations³⁹⁾

(2) F F T F による炭化物燃料の照射実験の安全解析

F F T F 炉心に 13 本の炭化物燃料集合体を導入した場合、酸化物燃料のみの炉心に対し

* F F T F の炉心は F T R (Fast Test Reactor) の役割をもっているということで表では F F T F に代って F T R と表現されている。

TABLE 19

Comparison of Key Subassembly Design and Performance Data for the FTR, Carbide-Fueled Proof Test FTR Drivers and the Commercial Prototype Design³⁹⁾

	FTR Oxide	FBR/CP	FTR Carbide Driver Test		
			row 3	center	center
Core position	center	outer zone	row 3	center	center
Pins per subassembly	217	91	91	127	127
Pin outside diameter, in.	0.230	0.370	0.370	0.315	0.315
Bond material	gas	sodium	sodium	sodium	helium
Fuel-smear density, %	85.5	83.2	82.5	81.7	78.0
Ratio of fuel pin pitch to diameter	1.24	1.19	1.19	1.19	1.19
Peak pin power with hot-channel factors, kW/ft	14.1	30	31.8	24.0	24.0
Subassembly flow rate $\times 10^6$ lb/h	0.206	0.205	0.206	0.206	0.206
Pin-bundle pressure drop, psi	45.5	46.8	39.9	49.0	49.0
Cladding thickness, in.	0.015	0.015	0.015	0.015	0.012
Sodium velocity, ft/sec	23.5	26.0	25.7	26.2	26.2
Peak subassembly mean-temperature rise, °F	382	322	352	382	382
Maximum inner clad temperature BOL (with hot-channel factors)	1200	1309	1249	1247	1270
Estimated peak cladding-temperature change over life, °F	-100	-43	-64	-70	-60
Estimated power change over in-core life, % (excludes axial blanket)	-16.5	-8.4	-10.0	-8.6	-9.0
Fissile enrichment, wt%	20.2 ^a	11.3	12.8 ^a	13.4 ^a	14.8 ^a
Irradiation time, full-power days	300	533	500	400	400
Peak discharge burnup, MWd/kg _{MH}	79.2	72.5	78.7	73.2	79.7
Peak damage fluence, n/cm ² $\times 10^{23}$, $E > 0.1$ MeV	1.23	1.55	1.79	1.61	1.62
Fluence-to-burnup ratio, n/cm ² per MWd/kg _{MH} $\times 10^{21}$	1.55	2.14	2.27	2.20	2.03

^a Fissile enrichment includes ²³⁵U.

TABLE 20

Carbide Fuel Design Parameters³⁹⁾

Fuel	Hyperstoichiometric mixed carbide (U,Pu)C + 10% (U,Pu) ₂ C ₃
Fabrication process	Pressed and sintered pellets with 0.1% Ni sintering aid
Fuel-pellet manufacturing density, % of theoretical	98
Theoretical density (U _{0.8} Pu _{0.2})C	13.52 g/cm ³
Fuel-pellet sleeve thickness	3 mil
Fuel-pellet sleeve material	Stainless steel with 44% void fraction
Fuel-clad bond	Sodium
Design fuel-swelling rate	2.7% $\Delta V/V$ per 10 MWd/kg
Design peak burnup	80 MWd/kg
Fission-gas release—design basis	41%
Heat capacity, (U _{0.8} Pu _{0.2})C at 1000°F	0.058 Btu/(lb °F)
Thermal conductivity, (U _{0.8} Pu _{0.2})C at 100% density at 1000°F	9.32 Btu/(h ft °F)

て種々な炉物理および炉工学的な効果をもたらすが、炉心の制御は可能である。以下主な効果についてのべる。

- (a) 炭化物燃料集合体は、炉挿入時の出力を置換する酸化物燃料集合体と同一になるように燃料の濃縮度 (^{235}U を含む) を調整しているが、この場合炉の反応度は $1.6 \Delta\text{K}/\text{K}$ 低下する。これは、燃料密度が増大した分だけ、 ^{238}U の炉心装荷量が増大したことに起因している。
- (b) 同じ理由で、 ^{238}U のドプラ係数が 10% 増大する。さらに混合炉心では、転換比がよくなるために、サイクルあたりの反応度の損失は 5% 小さくなる。
- (c) 原子炉がスクラムしたとき、最初の数秒間は酸化物に比べて炭化物燃料集合体の上半分の温度降下速度が大きい。すなわち、酸化物の冷却材温度変化は、 $-25.5^\circ\text{F}/\text{sec}$ であるのに対して、炭化物の場合は $-70^\circ\text{F}/\text{sec}$ である。しかし、全温度の降下量は、酸化物で 255°F 、炭化物では 285°F と大差ない。
- (d) 炉心中心部にある燃料の炉内滞在時における出力変化は、酸化物では 16.5% 、炭化物では 8.4% で約半分である。これは、炭化物の方が転換比が高いためである。このため混合炉心は、酸化物のみの炉心に比べて複雑な出力シフトおよび出力ピーキングパターンを示す。

3.3.4 CRBRPへ炭化物燃料集合体を導入した場合の効果および安全評価^{41, 42)}

CRBRPの炉心酸化物燃料集合体を表19に示した炭化物燃料集合体で置換した場合について安全評価を行った。最も重要な効果は、原子炉がスクラムした場合に生ずる過渡的な熱応力である。特に、炭化物燃料ピンのプレナム室付近における温度変化が大きく、炉がスクラムしてから100秒までに、場所によって異なるが、酸化物に比べて1.4～2.0倍大きな熱衝撃を受けることがわかった。炉容器出口のノズル部においても同様な現象が起る。(図26参照) しかし、CRBRPの炉心容器内部の設計は、酸化物燃料の熱応力を緩和できるように配慮されており、炭化物の熱応力についても小さな修正で対処できると思われる。

次にCRBRPのブランケット燃料を酸化物から炭化物に置換した場合の影響について調べた。表21に酸化物および炭化物をブランケット燃料に使用したときのCRBRPの炉特性を示す。増殖比は0.04～0.05改善され、LMFBRとして要求される燃料サイクル全体を考慮した増殖比1.2が可能となる。³⁾ サイクルあたりの核分裂物質の利得は、酸化物ブランケットに比べて40%よくなり絶対量としては11kg増える。炭化物で置換した場合、最初の炉反応度は少し低くなるが、サイクル中の反応度の減少速度は低い。炭化物ブランケットは、炉心の酸化物燃料に大きな影響は与えない。しかし、核分裂性物質密度が高くなるのでブランケットでの発熱量は大きくなる。平衡状態で、酸化物よりも7.5%余けいに発熱する。ブランケットのある場所の集合体は10～17%酸化物集合体よりも発熱量がふえる。出力こう配が急になり、核分裂以外の発熱がふえるため、炭化物燃料ピンの出力は酸化物に比べて17～24%大きくなる。炭化物ブランケットの最高出力の集合体出口温度は酸化物に比べて29°F高くなり、被覆材温度も71°F上昇する。炉スクラム時、炭化物ブランケットのプレナム周辺の受ける熱応力は少し大きくなる。この問題は、集合体の冷却材のオリフィス分布等の小さな改良で対処できると考えられている。混合炉心の有効的な燃料管理および集合体の設計に関する研究は現在進めら

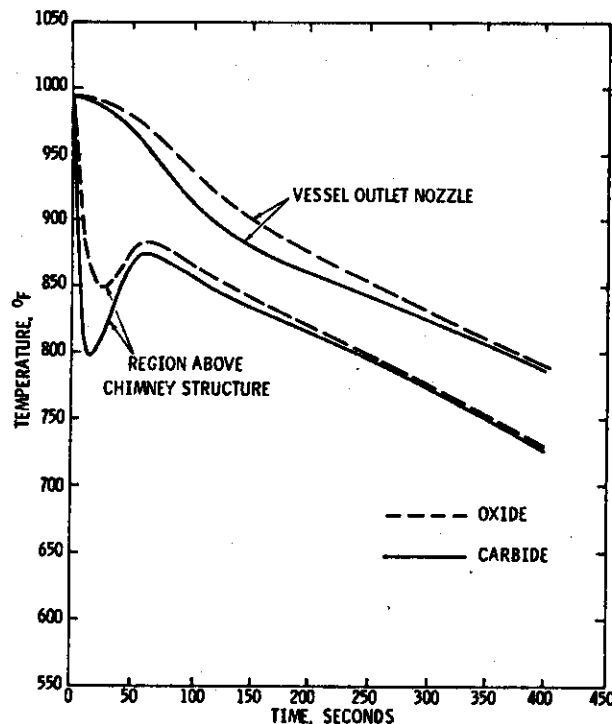


Fig.26 Comparison of oxide and carbide transients in outlet plenum region after normal scram in the CRBR⁴¹⁾

TABLE 21

Summary of CRBR Parameters with Oxide and Carbide Radial Blankets⁴²⁾

Parameter	Oxide Radial Blanket	Carbide Radial Blanket
Reactor Breeding Ratio (BOEC/EOEC)	1.092/1.150	1.131/1.195
Fissile Mass Change Over the Equilibrium Cycle (kg)		
Total Reactor	29.1	40.6
Radial Blanket	86.7	98.1
Reactor k_{eff} (BOEC/EOEC)	1.0829/1.0257	1.0793/1.0228
Total Blanket Fuel, (U,Pu) ₂ O ₂ or (U,Pu)C (kg)	18293	22888
Radial Blanket Power Fraction (BOEC/EOEC)	0.066/0.094	0.071/0.101
Peak Subassembly Power, Row 10, BOL/EOL (kW)	478/1166	561/1303
Peak Linear Pin Power, Row 10, BOL/EOL (kW/ft)	4.9/14.7	6.1/17.2
Peak Subassembly Mixed Mean Outlet Temperature, Row 10, (°F) ^a	975	1004
Maximum 2σ Midwall Cladding Temperature, (°F) ^a	1229	1300

^aUsing the reference radial blanket orifice scheme.

BOEC: Beginning-of-equilibrium cycle

EOEC: End-of-equilibrium cycle

BOL : Beginning-of-life

EOL : End-of-life

れている。

3.3.5 商用炭化物燃料 LMFBR の設計および安全評価 (4, 8)

Combustion Engineering Inc. は、最近 500 および 1,000 MWe の炭化物燃料を装荷した商用高速原型炉 (Fast Breeder Reactor / Commercial Prototype : FBR/CP) の設計を行った。炭化物燃料を商用炉に導入するために提案された戦略の中で重要なステップは、初期の酸化燃料集合体を逐次炭化物燃料集合体で交換していくことである。表 22 に 1,000 MWe の LMFBR の酸化燃料および Na ボンド炭化物燃料の炉心設計パラメータを示す。ブランケット燃料には、両者とも UC を採用した。ブランケットの UC 燃料の温度および燃焼度はともに低く、燃料ピンの照射については、すでに十分なデータの入手を終っている。大規模な燃料製造法の開発および燃料集合体の照射実験をこれから実施しなければならないが、大きな技術的問題はみあたらない。表 23 に、炉心燃料が酸化物の場合、ブランケット燃料に UO_2 または UC 燃料を用いた場合の炉特性を示す。燃料ピンの内径および外径はそれぞれ 0.49 in および 0.52 in であり集合体あたりのピン数は 61 本である。酸化物を炭化物ブランケットに代えることにより、炉の増殖比は 1.6% よくなり、倍增時間も 3.1 年短くなる。ドライバ領域の燃料への影響は少ないが、ブランケットの内側の燃料の出力は大きくなる。ブランケット外側および内側の出力は、炭化物の場合、それぞれ 9.5 および 13.3 kW/ft である。酸化物では 8.0 および 10.9 kW/ft である。炭化物では 13.3 kW/ft で運転されたときでも燃料の中心温度は約 1,400 °C であり酸化物に比べてはるかに低い。炉がスクラムした場合の過渡的な挙動も炭化物ブランケットがすぐれている。図 27 にポンプ故障で炉がスクラムした場合のブランケット燃料出口の温度変化について、ドライバ最外周の燃料と比較して示す。燃料ピンの直径が炉心燃料に比べてブランケット燃料は大きいので、ブランケットの酸化燃料はドライバ燃料に比べて大きな時定数 (8.0 秒対 1.4 秒) を持っておりまた蓄積エネルギーも大きい。これらの条件は、燃料ピン出口の冷却材温度に顕著に現われる。炭化物燃料の時定数は 2.7 秒程度であり、熱伝導がよいために過渡時のドライバ燃料との温度差の最大は 150 °C F であるのに対して、酸化燃料は約 2 倍の 300 °F と大きい。このようにスクラム時の燃料集合体、炉心計器への熱応力が酸化燃料の場合大きいため、設計上種々な問題を生じる。以上のべたように炭化物をブランケット燃料と適用することは、増殖比のみでなく熱的挙動という点からも非常に魅力がある。⁴³⁾

1,000 MWe の FBR/CP 用炉心燃料の設計にあたっては、近い将来実現可能であることを重視した。このため、燃料被覆材の 316 SS の最大中性子照射量は、 $1.8 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ に限定された。中性子照射量 $4.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ に耐える材料が開発されれば、燃焼度 100,000 MWD/T, 倍增時間 10 年以下が期待され、燃料サイクル費も 0.6 mil/kWh 安くなる。このような材料が開発されてはじめて、炭化物燃料の特性が十分に発揮できるといえる。

初期装荷の酸化燃料集合体を炭化物燃料集合体で置換した場合、一番大きな問題は、原子炉がスクラムしたとき燃料集合体、制御棒、炉容器等が受ける過渡的な熱応力である。図 28 に、炉容器からの冷却材出口ノズルおよびドライバ燃料ピン出口部の温度変化を示す。燃料サイクル費の安い炭化物燃料を実現するためには、このようなきびしい過渡的な挙動を設計時から考慮しなければならない。炉がスクラムした場合、炉出力は数 10 秒間に变化するが、この場

TABLE 22

Summary of Principal Reactor Parameters for
1000-MW(e) Commercial Prototype Design (FBR/CP)⁸⁾

	Initial Core	Carbide Core
Fuel in driver-region subassemblies	(U,Pu)O _{1.06}	(U,Pu)C _{1.05}
Fuel in radial-blanket subassemblies	UC	UC
Number of driver-region subassemblies (includes 35 control subassemblies)	547	505
Number of radial-blanket subassemblies	270	246
Lattice pitch, in.	4.76	4.76
Number of fuel pins per driver-region subassembly	169	91
Peak linear pin power, kW/ft	15	30
Driver-region subassembly—fuel-rod clad o.d., in.	0.27	0.37
Number of fuel pins per radial-blanket subassembly	61	61
Radial-blanket subassembly—fuel-rod clad o.d., in.	0.52	0.52
Driver-region fuel-rod spacing	wire wrap	wire wrap
Cladding material/thickness, mil	CW 316SS/15	CW 316SS/15
Bond	gas	sodium
Core pressure drop, psi	75	75
Maximum coolant velocity, ft/sec	23	26
Length of driver region, ft	3.0	3.0
Inner-driver fissile enrichment, wt%	11.8	9.4
Outer-driver fissile enrichment, wt%	14.6	11.3
Smear fuel density driver region, g/cm ³	9.3	11.3
Average discharge burnup of driver-region subassembly, MWd/kg _{HM}	63	48
Peak discharge burnup, MWd/kg _{HM}	90	72.5
Breeding ratio, instantaneous midequilibrium cycle	1.32	1.48
Peak total flux, n/(cm ² sec)	6.9×10^{15}	6.8×10^{15}
Peak damage fluence driver region, $E > 0.1$ MeV, n/cm ²	1.8×10^{23}	1.8×10^{23}
Reactor nozzle to nozzle coolant temperature rise, °F	300	300
Near-term equilibrium fuel costs, mil/kWh	1.65	1.3
Compound inventory doubling time, yr	17.1	10.9

TABLE 23

Oxide and Carbide Radial
Blanket Comparison^{4,3)}

BLANKET FUEL TYPE	Oxide	Carbide
Reactor breeding ratio	1.214	1.249
Reactor doubling time (years)	21.9	18.8
Blanket heavy-metal smear density (g/cm ³)	9.10	12.30
Radial blanket heavy metal (kg)	16,344	21,467
Cylindrical surface leakage (%)	1.02	0.90
Radial power peaking factors (peak/average)		
Outer driver outer row	1.14	1.15
Blanket inner row	1.53	1.61
Average damage flux [n/(cm ² sec × 10 ¹⁵), $E > 0.1$ MeV]		
Outer driver outer row	1.80	1.74
Blanket inner row	0.52	0.50
Radial blanket power fraction	0.058	0.064
Blanket peak burnup (at. %)	1.5	1.4
"Hot" subassembly power at end-of-residence (kW)	834	952
"Hot" subassembly peak pin linear power (kW/ft)	8.0	9.5
Peak fuel temperatures (°F)	2725	1400

合冷却材のNa流速は、炉心にできるだけ温度変化を与えないように減速してやらなければならない。スクラム時の冷却材流速の制御法として、自然に1次系ポンプを停止する方法、ブレーキをかけて急速に1次系ポンプを停止する方法および一次系ループのスロットルバルブを数秒間閉じる方法などが考えられている。⁴⁴⁾ 図29にこれらの方法を用いた場合の燃料集合体出口温度の時間的变化を示す。図からわかるようにスロットルバルブ調節法が最も有効な方法である。しかし、一次系ポンプにブレーキを設置する方法でも、通常の停止方法に比べて熱応力を28%減ずることができる。この方法は経済的な方法であり、FBR/CPの一次系に採用されている。

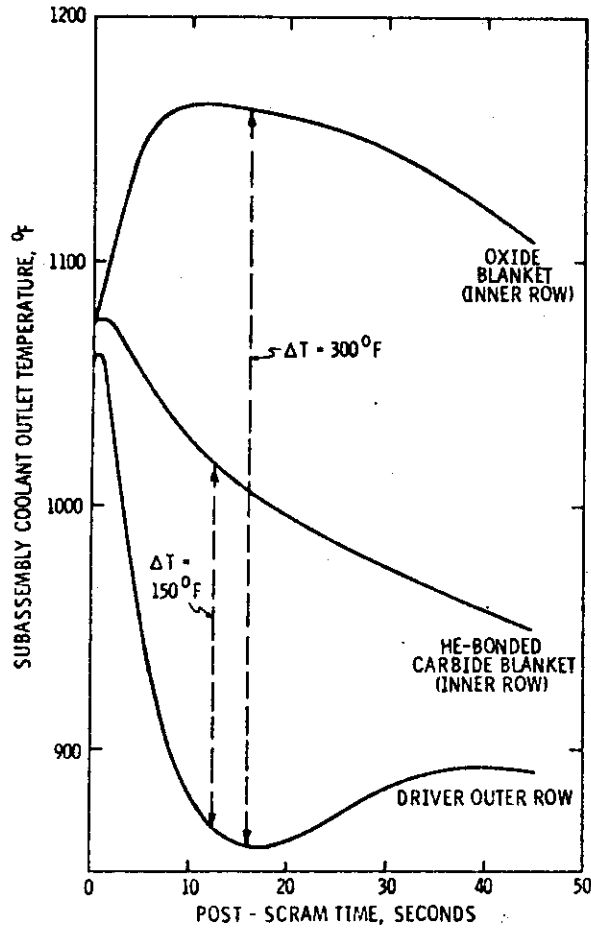


Fig.27 500-MW(e) LMFBR transient behavior of outer driver and inner blanket row subassemblies-scrum with pump coastdown⁴³⁾

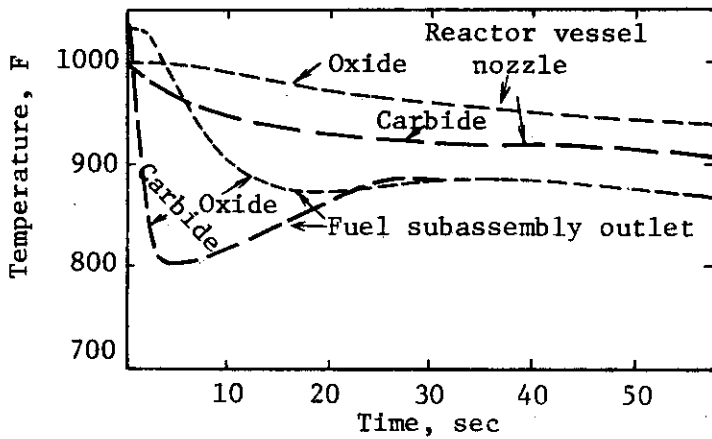


Fig.28 Normal reactor scram⁸⁾

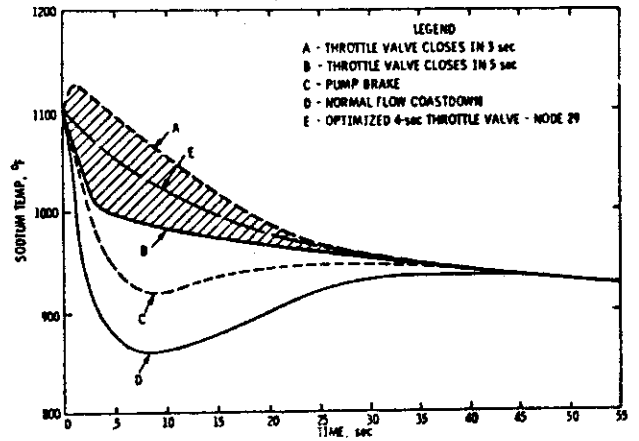


Fig.29 Fuel subassembly outlet thermal transients in LMFBR reactor scram with flow control⁴⁴⁾

3.4 イギリス

3.4.1 LMFBR用新型燃料の開発戦略⁴⁵⁾

250 MWe の高速原型炉 PFR の燃料装荷を 1975 年 11 月に終了し、高速炉の開発重点は、商用炉 CFR の詳細設計に移っている。1,300 MWe の CFR の燃料設計は、これまでに得た知識を基本に進めているが、PFR から得られるデータをもとに設計および材料の選択など見直しが必要であろう。CFR 炉心燃料集合体の開発戦略は次のとおりである。

- (a) PFR 燃料集合体の設計と類似した 325 本の酸化物燃料集合体の詳細設計および開発。
- (b) ラップ管径の大きさの変更を含む高出力、高燃焼度の改良型酸化物燃料の設計と研究。
- (c) 1990~2000 年に CFR に導入することを目標にした He ボンドの炭化物系燃料炉心の開発。

ブランケット燃料については、

- (d) PFR に使用されている酸化物燃料 (UO_2) の転用。
- (e) 大きな外径をもった炭化物燃料 (UC) の開発。

Na ボンド燃料ピンの製造および再処理工程には、今後解決しなければならない技術的問題が多数含まれている。この点を考慮して、イギリスではボンド材として He が選ばれている。また、燃料の健全性および製造技術という点から振動充てん型燃料が選ばれた。表 24 に、実験炉 DFR で照射した燃料ピンについて、燃料組成および燃焼度別に分類して示す。⁷⁾ 約 $\frac{3}{4}$ は、PFR 用の酸化物燃料であるが、種々な形態の炭化物燃料ピンの照射総数も 140 本に達している。

TABLE 24

Summary of DFR Irradiation Statistics⁷⁾

Pin type	Number of pins in given burn-up range							Total
	<5%	5-6%	6-7%	7-8%	8-9%	9-10%	>10%	
Oxide, PFR diameter	265	240	112	57	42	9	153	818
Oxide, larger diameter	100	1	1	34	1	-	-	143
Carbide	61	23	9	27	16	-	4	140
Total	372	264	122	119	59	9	157	1101

PFR を利用して、CFR 用の完全な燃料集合体の照射が計画されており、燃料集合体とその保持構造物との複雑な相互作用についても研究する予定である。PFR には、照射の途中で燃料ピンを取出し試験できる燃料集合体 (Demountable Sub-Assemblies: DMSA) が 6 本設置されており、燃料および材料の照射に使用される。各々の DMSA の外形寸法は、通常の PFR 燃料集合体と同一であり、別個に取出し可能な 6 本のクラスタから構成されている。このクラスタは、さらに数本の燃料ピンを含んでいる。(標準の燃料集合体は、325 本の燃料ピンから構成されているが、DMSA では 19 本の燃料ピンで構成されている) 標準の燃料集合体では、解体作業を開始する前に、Na 中で 30 日間冷却しなければならないが、DMSA では数日間の冷却で解体作業に移れるという特長がある。

3.4.2 Na ボンドの炭酸化物燃料の照射⁷⁾

1 wt. %の酸素を含んだ(U, Pu)C_{0.5}O_{0.2}燃料では、金属相の析出なしに、高次炭化物を消去できることが熱力学的な相平衡から分っている。被覆材への浸炭現象を防止する試みとして、酸素含有量1 wt. %、Pu/U+Pu比=0.15、スミア密度64~66%の炭酸化物燃料を30~40 kW/mで照射を行った。現在照射は順調に進んでおり、最高燃焼度は、10 at. %に達している。もっと線出力の高い77 kW/mおよび52 kW/mで照射された燃料の燃焼度は、それぞれ、6.9 at. %および7.9 at. %に達している。さらに高出力の117 kW/mの照射も進行中である。149 kW/mの高出力燃料ピンは、5 at. %燃焼度で破損したが原因はよく分っていない。現在までに得られた主な成果は、この組成の燃料は、燃料と被覆材の機械的相互作用が起る前に高燃焼度を達成できることである。この初期の照射実験で得られたデータは次のとおりである。

(a) スエリング率は小さく、燃焼度1 at. %あたりの直径の増加率は、

$$0.40 \pm 0.09 \triangle d/d \text{ (燃料中心の最高温度: } 730 \sim 900 \text{ }^\circ\text{C)}$$

$$0.57 \pm 0.02 \triangle d/d \text{ (燃料中心の最高温度: } 1290 \text{ }^\circ\text{C)}$$

(b) FPガス放出率:

$$0.5 \% \text{ (燃料中心温度 } 1000 \text{ }^\circ\text{C以下, 燃焼度 } 8 \text{ at. \%)}$$

$$1.5 \% \text{ (燃料中心温度 } 1290 \text{ }^\circ\text{C, 燃焼度 } 5 \text{ at. \%)}$$

(c) 半径方向の被覆材の炭素分布の測定で被覆材内壁近くで0.05%の炭素の増大が観測された。

3.4.3 照射した炭化物および炭酸化物中のFP析出相⁴⁶⁾

熱力学的に予測されたFP析出相は多数あるが、実際に照射後試験で確認された析出相は以外と少ない。UCの熱中性子照射(DIDO)およびアーク鑄造された(U_{0.85}Pu_{0.15})C、HeおよびNaボンドの振動充てんおよびペレット状の(U_{0.85}, Pu_{0.15})CO燃料のDFR照射試料について、しゃへい型のX線マイクロアナライザを用いて、析出相の観察を行った。燃料の燃焼度は、3.6~12.5 at. %である。得られた結果は次のとおりである。

(a) 燃料温度が1,100~1,200 °Cの等温領域に析出FP相の環が観測された。この相の組成は炭化物の場合、(U, Pu, 希土類)(Ru, Rh, Pd)、炭酸化物の場合(U, Pu)_{1+x}(Ru+Rh+Tc)Cyであり、xおよびyは、それぞれ、0.5 > x > 0.7、1.5 > y > 3であった。

(b) 炭酸化物のクラック部に検出された灰色の析出物は、Puおよび希土類元素を含んでおり、Pu、希土類の酸化物であると推定された。

(c) 炭酸化物燃料の高温部に金属光沢の析出相があったが、これはPuを多量に含んだ(U, Pu)合金であった。この合金は半径方向の温度こう配により、COガスが燃料中心部から表面に移動した結果生成されたものと思われる。

(d) 高出力燃料、燃料表面温度が高いときは、(a)でのべたFP相が燃料表面まで移動して、被覆材と反応を起こしていることが観測された。

3.4.4 炭化物燃料ピン中の半径方向への質量移行⁴⁷⁾

炭素熱還元法で製造された炭化物燃料中には、数1,000 ppmの酸素不純物の含有はさげられ

ない。炭化物の格子に酸素が溶解した場合、燃料と平衡にあるCOガス圧は高くなる。このCOガスを経由して、高温部（燃料中心）から低温部（燃料表面）への質量移行が起ることについては3.2.6節で紹介した。本節では、酸素含有量が0.1 wt.%以下および0.4 wt.%以上の炭酸化物についての質量移行速度について検討した結果にのべる。比較的純粋な炭化物では、CおよびOの移行は小さく、むしろPuおよびFPのPdの移行が大きい。モデル燃料として、スミア密度75%、Pu/Pu+U比0.15、直径8mm、線出力1,100 W/cmの振動充てん燃料を選んだ。燃料中心温度は、1,900~2,000℃、表面温度は約850℃であると想定した。カバーガス圧は、照射開始時5気圧、4 at.%燃焼度で約100気圧と仮定して、燃料表面および $r/r_o = 0.32$ における断面の質量移行束を計算した。この質量移行束は、照射中徐々に減少する。得られた結果を次に示す。

(a) 純粋な炭化物燃料中のPuの移行

$r/r_o = 0.32$ および燃料表面におけるPuの移行束は、それぞれ、 2.0×10^{-9} および $2.3 \times 10^{-10} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{sec}$ であった。 $r/r_o = 0.32$ の断面を高温部に存在する10%のPuが5.7時間で低温部へ移動する。表面における移行束は小さく無視できる。燃料の外周200 μmのPuの含有量の増大は、年間55 ppmである。燃料を炉心から取出すとき、高温部のPuの含有量は、最初に比べて10~20%低くなる*。燃料表面に到達するPu量は小さいので、被覆材との両立性の問題は起らない。

(b) 0.4 wt.%の酸素を含んだ炭化物燃料中のCおよびOの移行

燃料中心部で急速にOが減少する。 $r/r_o = 0.32$ および燃料表面におけるCO束は、それぞれ、 1×10^{-5} および $1 \times 10^{-11} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。中心部の50%のOの減少は、80秒以内に起る。燃料表面におけるCO束はもはや無視することができず、燃料外周に1年間に到達するCO量は、最初よりも50%増加して0.57 wt.%となる。このため、燃料表面近くには、 M_2C_3 ($M = \text{Pu} + \text{U}$) と MO_2 が生成される。

(c) FPの移行

$r/r_o = 0.32$ および燃料表面におけるPd束は、燃焼度2 at.%、カバーガス圧50気圧のとき、それぞれ、 1.2×10^{-10} および $1.2 \times 10^{-16} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。Pdは燃料中心部から移行して、約1,200℃の中間領域に析出する。

3.4.5 Ni添加および高燃焼度を模擬した燃料の物性測定⁴⁷⁾

(1) 熱伝導度

UCに15%のPuCを加えた場合、熱伝導度は約10%減少する。これは製造時の欠陥に起因するものと思われる。UCにFPを添加した場合、熱伝導度は、800~900℃の0.11~0.13 W/cm·Kから、1,300℃で少し高い値を示し、1,400℃では0.03~0.13 W/cm·Kに急減した。その後増大して、1,800℃では、0.09 W/cm·Kになった。この現象は、加熱および冷却時とも3つの試料について再現性があった。

* 炭化物および炭窒化物燃料について、燃料中心部でPuが減少し、低温部で増大する現象は、西ドイツのDN-1照射実験で実証されている。⁴⁸⁾

(2) クリープ

UCおよび(U, Pu)Cのクリープ速度については、5~35 MN/m²の応力範囲についてすでに多数の報告がある。得られたデータを要約すると、

- (a) 炭素含有量が、4.85~5.4 wt.%の範囲では、クリープ速度に大きな変化はない。
- (b) 粒の大きさは、クリープ速度にほとんど影響しない。
- (c) UCにPuCを加えた場合、15 wt.%までは大きな変化はない。
- (d) 活性化エネルギーは、UCで115~155 Kcal/mol, PuCで105~135 Kcal/molである。
- (e) Zrおよび希土類の添加は、クリープ速度を減ずる。
- (f) Niの添加は、炭化物のクリープ速度に大きな効果を示す。

図30および31に、Niを0.1 wt.%まで添加したUCおよび(U, Pu)Cのクリープ速度を示す。アーク鑄造した炭化物のクリープ速度が小さいのは、粒が大きいためではなく、多分Niの含有量が少ないことに起因している。クリープ速度は一般に次式で表わされる。

$$\dot{\epsilon} = B \delta^r \quad (\dot{\epsilon} : \text{クリープ速度}, \delta : \text{応力})$$

50 ppmのNiを含んだUCのr値は、1,100℃における3.0から1,290℃で2.0に、2,000 ppmでは1,120℃での2.0から1,220℃で1.0と小さくなる。これらの物質については、数種のクリープメカニズムが同時に起っているものと思われる。Ni含有量が高い場合には、Herring-Nabarro、粒界拡散または粒界のすべり過程が重要なメカニズムであると推定される。以上のべたように炭化物のクリープ速度は、焼結補助剤として一般に添加される0.1 wt.%のNiの存在によって非常に大きくなる。したがって、炭化物燃料の照射挙動は、製造方法によって、例えばゾルーゲル法のようにNiが添加されていない燃料は、異った照射挙動を示すであろう。

4. あとがき

混合炭化物系燃料の開発現状は、高速実験炉を用いて、燃料ピンまたは無計装燃料バンドルの照射を行い、この燃料の照射特性の究明が行われている段階にあるといえる。各国の10年以上に及ぶ地道な照射実験の積重ねによって、炭化物系燃料に特有な燃料ピン破損の原因、高いスエリングを引き起す要因、燃料組成（炭化物、窒化物、炭窒化物、炭酸化物）による照射特性の相違など基本的な問題点についてはかなり解明されてきた。しかし、混合炭化物燃料に比べて、燃料の実証のために必要な照射データの蓄積が少ないために、この燃料の開発戦略は、各国によって大きく異っているばかりでなく、1国においても報告者によって差異が認められる。次に具体例を2, 3示す。

(a) 燃料-被覆材のボンド材

フランスではHeボンド燃料では、燃料と被覆材の機械的相互作用の制御はむずかしいと判断して、ベント型のNaボンド燃料の開発に重点をおいている。これに対して西ドイツでは、Heボンド燃料でも現在の燃料ピン（約1000 W/cm）よりも比出力を大きく（1500 W/cm）とれば、炭化物燃料に類似した照射挙動が期待でき、この燃料の高いスエリングを制御できると考えている。アメリカは、EBR-IIの照射データから低スミア密度、振動充てん燃料で厚い被覆材燃料ピンが最も有望であるとされているにもかかわらず、Combustion Engineering Inc. が精力的に設計開発を進めているのは、Naボンド燃料である。イギリスでは、Naボンド燃料の再処理および製造技術のむずかしさを考慮してHeボンドが選ばれている。

(b) 最適線出力

西ドイツのKarstenらは、LMFBRにより早い時期に炭化物系燃料を導入するためには、出力800 W/cm程度の穏和な設計にすべきであるのに対して、Blankらは、高いスエリング率を制御するためには1500 W/cm以上の高出力が必要であると考えている。

(c) 高速炉への導入方法

WH⁴⁹⁾およびANL⁵⁰⁾の報告によれば、炭化物系燃料の特性を十分生かすためには、LMFBRの設計を根本的に改める必要があるとされている。これに対してCombustion Engineering Inc. のプロジェクトでは、初期の炭化物燃料集合体を同一出力、核的性質、外形寸法をもった炭化物燃料集合体で逐次交換することが重要なステップであると考えられている。

炭化物燃料LMFBRの開発現状は、原型炉の時代であるといえる。諸国ともこの原型炉を利用して炭化物系燃料の大規模な照射計画を予定しており、1985~1990年頃までには、炭化物系燃料の実証に必要な照射データの収集を終えることに目標がおかれている。

さて、日本における炭化物系燃料の開発は、その緒についたばかりである。すなわち、1974年、原研大洗研究所に炭化物系燃料開発を目的とした燃料研究棟が建設された。現在、不活性ガス雰囲気7台のグローブボックスによる炭化物系燃料の調製ラインのウランコールド試験が行われている。調製された燃料の特性試験として、金相試験、X線分析および化学

分析 (Pu, U, C, N, O) を行うためのグローブボックスの整備もほぼ終了した。さらに炭化物系燃料の物性測定装置として高温熱処理装置, 蒸気圧測定装置および熱伝導度測定装置の整備が進められている段階である。高速実験炉「常陽」の臨界が, 1977年秋に予定されており, この炉を利用した炭化物系燃料の照射をいかに進めるかについての検討も進められている。今後の国際協力を考える場合, わが国においても, このような地道な実用化研究のための照射データの収集が必須であり, 強力に推進されることを願ってやまない。

最後に, 本報告は野村末雄燃料工学部長の発案によりまとめられたものである。また, 出稿に先だって, 菊池武雄主任研究員, 渡辺斉プルトニウム燃料研究室長ならびに大道敏彦副主任研究員から本稿全体にわたって有益な助言をいただいた。ここに各位に深く感謝の意を表します。

文 献

- 1) R.W. Hardie, R.P. Omberg and R.B. Rothrock, "Implications of Recent Trends on LMFBR Performance Characteristics", Advanced Reactor: Physics, Design and Economics, Ed. by J.M. Kallfelz and R.A. Karam, Pergamon Press, p.153 (1975).
- 2) C.E. Johnson, I. Johnson, P.E. Blackburn, J.E. Battles and C.E. Crouthamel, "Stoichiometric Effects in Irradiated Uranium-Plutonium Oxide Fuel", Behavior and Chemical States of Irradiated Ceramic Fuels, IAEA, STI/PUB/303, p.1 (1974).
- 3) G.C. Tillett Jr. and A.R. Buhl, "Clinch River Breeder Reactor Breeding Characteristics", Nucl. Technol., 28, 92 (1976).
- 4) S.A. Caspersson, R.C. Noyes and J.A. Vitti, "Economic and Nuclear Performance Characteristics of 500 MWe Oxide, Carbide and Nitride LMFBRs", 文献 1 に同じ, p.125 (1975).
- 5) E. Smailos, "Reaction Behavior of Fission Products in Carbide and Nitride Fuel Based on Simulation Investigations", KFK-1953 (1974).
- 6) O. Götzmann and P. Hofmann, "Comparison of In-pile Compatibility Behavior of Oxide and Carbide Fuel Pins According to Simulation Tests", Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Vol. I, IAEA, STI/PUB/346, p.233 (1974).
- 7) K.Q. Bagley, E. Edmonds, H.J. Powell, R.G. Bellamy, R. Paris and J.M. Horspool, "Fuel Element Behavior under Irradiation in DFR", *ibid.*, p.87 (1974).
- 8) R.C. Noyes, J.A. Vitti and S.R. Penfield, "Planning for the Second LMFBR Demonstration Plant: A 1000 MW Commercial Prototype", Proc. Am. Power Conf., Chicago, p.177 (1974).
- 9) U. Benedict, H. Blank, M. Bradbury, F. Caligara, M. Coquerelle, J. Gabolde, G. Giacchetti, R. Mandler, H. Matzke, K. Richter, C. Ronchi and C. Sari, "Study of Advanced Fuels in Highly Rated He-Bonded Pins", Trans. Am. Nucl. Soc., 20, 293 (1975).

- 10) E.R. Siegmann and J.C. Gilbertson, "Safety Margins for Sodium - Bonded Carbide Fuel", Nucl. Technol., 26, 452 (1975).
- 11) R. Lallement, H. Mikailoff and J. Ravier, "Carbide Fuel Element for Fast Reactor - Research and Development Program", Trans. Am. Nucl. Soc., 20, 296 (1975).
- 12) H. Mikailoff, J. Ravier and R. Lallement, "Review of French Carbide Irradiation Program", *ibid.* 19, 84 (1974).
- 13) G. Karsten, G. Mühling and H. Plitz, "Strategy, Design Basis, and Results of the Carbide Program for SNR", Nucl. Technol., 28, 208 (1976).
- 14) K.Q. Bagley, Private Communication.
- 15) G.W. Cunningham, "Advanced Breeder Fuel Development Program 1975-1985", Trans. Am. Nucl. Soc. 19, 83 (1974).
- 16) H. Mikailoff and G. Clottes, "First Irradiation Experiment with Carbide Fuel Elements with a Sodium Bond in Rapsodie", B.I.S.T., No. 196, p.41 (1974). ANL-trans-977.
- 17) H. Mikailoff, "Carbide Fuel Element with Helium Bond for Fast Reactors: Problems Raised by Fuel Swelling", B.I.S.T., No. 196, p.49 (1974). ANL-trans-964.
- 18) H. Mikailoff, M. Housseau and J. Erler, "Irradiation of Sodium-Bonded Uranium and Plutonium Carbides: Carburization of Cladding", Commissariat a l'Energie Atomique, (1974). ANL-trans-965.
- 19) R. Lallement, H. Mikailoff and J. Ravier, "Carbide Fuel Element for Fast Reactors Research and Development Program", Nuclear Energy Maturity, Vol. 3, Ed. by P. Zaleski, Pergamon Press, p.403 (1975).
- 20) N. Lorenzelli and J.P. Marcon, "Variation of the Carbon Activity as a Function of the Burnup in a Carbide Fuel", 文献 2 に同じ, p.99 (1972). ANL-trans-920.
- 21) N. Lorenzelli, "Metallurgical and Thermodynamic Study of a Carbide

- Fuel Containing Inactive Fission Products: Irradiated Nuclear Fuel Simulation", PhD. Thesis, CEA-R-4465 (1973). ANL-trans-979.
- 22) "Prospect of Long Term Development of FBRs in the European Community of the Nine", Commission of the European Communities, (1974).
 - 23) H. Blank, "On the Driving Forces for Bubble Growth and Swelling in MX-Type Fast Breeder Fuels", J. Nucl. Mater., 58, 123 (1975).
 - 24) C. Ronchi and C. Sari, "Swelling Analysis of Highly Rated MX-Type LMFBR Fuels. 1. Restructuring and Porosity Behavior", *ibid.*, 58, 140 (1975).
 - 25) M.H. Rand and T.L. Markin, "Some Thermodynamic Aspect of (U, Pu)O₂ Solid Solutions and Their Use as Nuclear Fuels", AERE-R 5560 (1967).
 - 26) W.M. Olsen and R.N.R. Mulford, "Thermodynamics of the Plutonium Carbides", Thermodynamics of Nuclear Materials, IAEA, STI/PUB/162, p.467 (1967).
 - 27) H. Blank, "Properties of Fission Spikes in UO₂ and UC Due to Electronic Stopping Power", Phys. Stat. Sol. (a), 10, 465 (1972).
 - 28) H. Blank, U. Benedict, M. Bradbery, F. Caligara, M. Coquerelle, J. Gabodge, G. Giacchetti, M. Mandler, Hj. Matzke, K. Richter, C. Ronchi, C. Sari and H.E. Schmidt, "Study of Advanced Fuels in Highly Rated He-Bonded Pins", 文献 19 に同じ , p.380 (1975).
 - 29) O. Götzmann and R.W. Ohse, "Fuel / Cladding Compatibility of Stainless Steels with Gas and Sodium-Bonded Uranium Plutonium Carbide Fuels", 文献 2 に同じ , p.255 (1974).
 - 30) T.A. Nemzek and G.W. Cunningham, "Current Status of the U.S. Fast Breeder Reactor Development Program", 文献 1 に同じ , p.68 (1975).
 - 31) G.W. Cunningham, "Materials Development for Advanced Reactors", Nucl. Technol., 28, 301 (1976).
 - 32) J. Leary, Private Communication.

- 33) S. Strauch, J. Fletcher and L. Bennett, "An Examination of LMFBR Power and Resource Cost Projections", 文献1と同じ ,p.90 (1975).
- 34) T.W. Latimer, J.O. Barner, J.F. Kerrisk and J.L. Green, "Steady-State Irradiation Behavior of Helium-Bonded Uranium-Plutonium Carbide", Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 91 (1974).
- 35) J.O. Barner, T.W. Latimer, J.F. Kerrisk, D. Bost and J.L. Green, "Steady-State Irradiation Behavior of Sodium-Bonded Uranium-Plutonium Carbide", *ibid.*, 19, 91 (1974).
- 36) J.F. Kerrisk, J.O. Barner and R.L. Petty, "Cladding Ovalities in Advanced LMFBR Fuel Elements", *ibid.*, 22, 186 (1976). in detail see Nucl. Technol., 30, 361 (1976):
- 37) J.D.B. Lambert, D.L. Johnson, J.R. Honekamp and L.A. Neimark, "An Overview of Advanced Fuels Behavior in EBR-II", Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 90 (1974).
- 38) G.L. Hofman, L.P. Johnson, S. Greenberg and F.L. Brown, "The Application of Statistical Analysis to Cladding Failure in a Multiparameter Irradiation Program", *ibid.*, 18, 125 (1974).
- 39) J.A. Vitti, P.K. Doherty, G.F. di Lauro, J.C. Gilbertson and D.W. Stuteville, "Design of Prototype Carbide Subassemblies and Evaluation of Proof-Testing Plans in the FFTF", Nucl. Technol., 26, 442 (1975).
- 40) R.C. Noyes, P.K. Doherty, S.A. Caspersson, N. Hanus and D.W. Stuteville, "Optimum Pin Diameter for LMFBR Carbide Fuels", *ibid.*, 26, 460 (1975).
- 41) J.A. Vitti, R.C. Noyes and J.C. Gilbertson, "Preliminary Assessment of the Impact of Carbide-Fueled Subassemblies in the CRBRP", Trans. Am. Nucl. Soc., 21, 391 (1975).
- 42) S.A. Caspersson, D.J. Skuldt, G.F. di Lauro, J.J. Prabalos and D.A. Trumpler, "System Impacts of a Carbide Radial Blanket for CRBRP", *ibid.*, 22, 332 (1976).

- 43) S.A. Caspersson, W.J. Metevia, D.W. Stuteville, R.C. Noyes and J.A. Vitti, "A Carbide Radial Blanket for a Demonstration LMFBR", *ibid.*, 18, 277 (1974).
- 44) W.J. Metevia and J.C. Gilbertson, "Advantages of Primary System Flow Control During Reactor Scram in an LMFBR", *Nucl. Technol.*, 15, 93 (1972).
- 45) K.Q. Bagley, Private Communication.
- 46) F.T. Ewatt, B.M. Sharpe and R.G. Tayler, "Fission Product Phases in Irradiated Carbide Fuels", AERE-R 7962 (1975).
- 47) J.M. Horspool, N. Parkinson, J.A. Findley, P.E. Potter, M.H. Rand, L.E. Russell and W. Batey, "Fuel Materials for Fast Reactors", 文献6に同じ, Vol. I, p.3 (1973).
- 48) K. Richter, M. Coquerelle, J. Gabolde and P. Werner, "Preparation of High-Performance Non-Oxide Fuels: First Results of Fast Flux Experiment DN-1", 文献6に同じ, Vol. I, p.71 (1973).
- 49) J.D. Mangus and M.W. Dyos, "Advanced Fuel and Materials - The Impact on Plant Design", *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 19, 86 (1974).
- 50) Y. Orechwa, J. Beitel, Y.I. Chang and W.P. Barthold, "Breeding Potential of 2000-MW(e) LMFBRs Using Carbide and Nitride Fuel" *ibid.*, 21, 403 (1975).