

JAERI-M
90-185

高燃焼度模擬ウラン・プルトニウム
混合炭化物燃料の蒸発挙動

1990年10月

前多 厚・大道 敏彦

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、
お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡
東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-
ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

高燃焼度模擬ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の蒸発挙動

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

前多 厚・大道 敏彦

(1990年9月26日受理)

高燃焼度を模擬したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の蒸発挙動について、高温質量分析計を用いて、1,723～2,173 Kの温度範囲で調べ、燃焼模擬F P元素の化学形と蒸発挙動との関連を考察した。

プルトニウムの蒸発は亜化学量論的組成の混合炭化物の方が超化学量論的組成の混合炭化物よりも大きい。また、希土類元素の酸化物蒸発種が観測され、炭化物燃料中の不純物酸素との共存相からの蒸発であることが推定された。

Vaporization Behavior of Uranium-Plutonium Mixed Carbide
Fuels Simulating High Burnup

Atsushi MAEDA and Toshihiko OHMACHI

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 26, 1990)

The vaporization behavior of the uranium-plutonium mixed carbide fuels simulating high burnup was studied in the temperature range of 1,723 ~ 2,173 K by high temperature mass spectrometry. The relationship between chemical forms and vaporization behavior of simulated fission product elements was discussed.

Plutonium vaporized more highly over hypostoichiometric mixed carbide than over hyperstoichiometric one.

The observed oxide vapor species of the rare earth elements could originate from the phase of the rare earth elements and impurity oxygen in the carbide fuels.

Keywords: Uranium-plutonium Mixed Carbide, Vaporization,
Mass Spectrometry, Fission Products

目 次

1. はじめに	1
2. 実 験	1
2.1 燃焼度模擬炭化物燃料	1
2.2 高温質量分析	2
3. 結果及び考察	3
3.1 燃焼度模擬炭化物燃料からの蒸発種	3
3.2 プルトニウムの蒸発挙動	4
3.3 パラジウム及びバリウムの蒸発挙動	4
3.4 希土類元素の蒸発挙動	5
4. まとめ	7
謝 辞	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Burnup simulated carbide fuels	1
2.2 High temperature mass spectrometry	2
3. Results and discussion	3
3.1 Vapor species over burnup simulated carbide fuels	3
3.2 Vaporization behavior of plutonium	4
3.3 Vaporization behavior of paradium and barium	4
3.4 Vaporization behavior of rare earth elements	5
4. Summary	7
Acknowledgments	7
References	8

1. はじめに

ウラン・プルトニウム (U・Pu) 混合炭化物燃料は、核分裂性物質密度が高く、かつ優れた熱伝導性を有していることから、将来の高速増殖炉用燃料として、開発研究が世界各国において行われてきた。¹⁾ しかし、燃料の健全性評価に必須な照射試験による燃料挙動解析データは、現在において開発主流となっている混合酸化物燃料に比べ、十分ではなく、このため照射データの蓄積が進められている。²⁾ 一方、照射試験と並行して、固体状核分裂生成物 (FP) の蓄積による照射下での燃料中の化学状態の変化を評価するため、FP元素の安定同位体を任意の燃焼度を模擬して混合した炭化物燃料について研究が行われている。それらには、Lorenzelli³⁾ 及び Smailos⁴⁾ のウラン炭化物燃料に関する報告、また Benedict ら⁵⁾ 及び 大道ら⁶⁾ の U・Pu 混合炭化物燃料に関する報告があり、FPの析出相及び燃料マトリックスへの固溶度などの相研究を中心に、スエリング、熱伝導度などの物性値の照射依存性の考察がなされている。

本報告は、燃焼度模擬混合炭化物燃料の高温蒸発挙動を高温質量分析法により調べ、アクチノイドやFP元素の蒸発挙動と燃料中におけるそれらの化学状態との関連について考察したものである。なお、燃焼度模擬炭化物燃料の蒸発挙動に関する研究は、Lorenzelli^{3,7,8)} によるウラン炭化物の報告があるが、プルトニウムを含む混合炭化物燃料の蒸発挙動に関しては報告例がない。

2. 実 験

2.1 燃焼度模擬炭化物燃料

実験に供した燃焼度模擬混合炭化物燃料は、AERE Harwell 製の 10 at. % 燃焼度模擬混合酸化物粉末 (75 wt. % UO_2 , 15 wt. % PuO_2 及び 10 wt. % の固体状 FP 元素の安定同位体を混合、成型し、Ar + 5 % H_2 中、1,823 K で焼結後、粉碎したもの) を出発物質として炭素熱還元反応により調製した。

炭素量の異なる 2 種類の燃焼度模擬混合炭化物燃料の調製を目的とし、原料酸化物粉末に黒鉛粉末を、2.76 及び 3.14 の割合で混合し、成型圧縮後、1,773 K、He 気流中 20 時間加熱による炭素熱還元を行った。炭素熱還元後のペレットは再粉碎し、成型圧縮した後、2,033 K、Ar 気流中で 5 時間焼結した。炭素量の少ない方を試料 1、多い方を試料 2 として以下の記述を行う。

試料の特性試験として、化学分析、X線回折、X線マイクロアナライザ (XMA) による分析を行った。炭素及び酸素の分析は高周波加熱電量法⁹⁾ 及び不活性ガス融解電量法¹⁰⁾ に因った。X線回折では、相同定及び燃料マトリックス MC ($M = \text{U} + \text{Pu} + \text{FPs}$) 相の格子定数の測定を行った。これらの特性試験結果を Table 1 に示す。また、X線回折パターンを Figs 1 及び 2 に示す。

1. はじめに

ウラン・プルトニウム (U・Pu) 混合炭化物燃料は、核分裂性物質密度が高く、かつ優れた熱伝導性を有していることから、将来の高速増殖炉用燃料として、開発研究が世界各国において行われてきた。¹⁾ しかし、燃料の健全性評価に必須な照射試験による燃料挙動解析データは、現在において開発主流となっている混合酸化物燃料に比べ、十分ではなく、このため照射データの蓄積が進められている。²⁾ 一方、照射試験と並行して、固体状核分裂生成物 (FP) の蓄積による照射下での燃料中の化学状態の変化を評価するため、FP元素の安定同位体を任意の燃焼度を模擬して混合した炭化物燃料について研究が行われている。それらには、Lorenzelli³⁾ 及び Smailos⁴⁾ のウラン炭化物燃料に関する報告、また Benedict ら⁵⁾ 及び 大道ら⁶⁾ の U・Pu 混合炭化物燃料に関する報告があり、FPの析出相及び燃料マトリックスへの固溶度などの相研究を中心に、スエリング、熱伝導度などの物性値の照射依存性の考察がなされている。

本報告は、燃焼度模擬混合炭化物燃料の高温蒸発挙動を高温質量分析法により調べ、アクチノイドやFP元素の蒸発挙動と燃料中におけるそれらの化学状態との関連について考察したものである。なお、燃焼度模擬炭化物燃料の蒸発挙動に関する研究は、Lorenzelli^{3,7,8)} によるウラン炭化物の報告があるが、プルトニウムを含む混合炭化物燃料の蒸発挙動に関しては報告例がない。

2. 実 験

2.1 燃焼度模擬炭化物燃料

実験に供した燃焼度模擬混合炭化物燃料は、AERE Harwell 製の 10 at. % 燃焼度模擬混合酸化物粉末 (75 wt. % UO_2 , 15 wt. % PuO_2 及び 10 wt. % の固体状 FP 元素の安定同位体を混合、成型し、 $\text{Ar} + 5\% \text{H}_2$ 中、1,823 K で焼結後、粉碎したもの) を出発物質として炭素熱還元反応により調製した。

炭素量の異なる 2 種類の燃焼度模擬混合炭化物燃料の調製を目的とし、原料酸化物粉末に黒鉛粉末を、2.76 及び 3.14 の割合で混合し、成型圧縮後、1,773 K、He 気流中 20 時間加熱による炭素熱還元を行った。炭素熱還元後のペレットは再粉碎し、成型圧縮した後、2,033 K、Ar 気流中で 5 時間焼結した。炭素量の少ない方を試料 1、多い方を試料 2 として以下の記述を行う。

試料の特性試験として、化学分析、X線回折、X線マイクロアナライザ (XMA) による分析を行った。炭素及び酸素の分析は高周波加熱電量法⁹⁾ 及び不活性ガス融解電量法¹⁰⁾ に因った。X線回折では、相同定及び燃料マトリックス MC ($M = \text{U} + \text{Pu} + \text{FPs}$) 相の格子定数の測定を行った。これらの特性試験結果を Table 1 に示す。また、X線回折パターンを Figs 1 及び 2 に示す。

Table 1 に示すように、試料 1 は全体として炭素当量が 1 より小さい亜化学量論的組成、試料 2 は、1 より大きい超化学量論的組成である。また、両試料とも不純物酸素が含有されており、試料 1 は試料 2 よりその量は多い。

X線回折による相同定から、試料 1 では主相である MC 相のほか、 $UMoC_2$ 及び $UMoC_{2-x}$ 型相が、また、試料 2 では、MC、 M_2C_3 相のほか、 $UMoC_2$ 及び U_2RuC_2 型相が存在する。MC 相の格子定数は両試料とも 4.94 \AA 近くの値であり、MC 相への FP 元素の固溶により、FP 元素を含有しない場合より低値を示す。

試料中のアクチノイド及び FP 元素の分布を知るために XMA による分析結果について、反射電子 (BSE) 像及び U, Pu 並びに他の FP 元素の特徴的な元素分布状態を示す例としての Mo, Ru 及び Nd の X線像を Photos. 1 及び 2 に示す。

XMA による分析結果は、X線回折結果とはほぼ対応するものである。すなわち、試料 1 での Mo 及び試料 2 での Mo 及び Ru の分布は X線回折における同定析出相に対応する。試料 1 における U が多く存在する相は MC マトリックスであるが、Pu については MC 相とは別の相も存在し、Ru と共存している。これは X線回折では同定出来なかったが、Ru との金属間化合物 $PuRu_2$ 型相である⁶⁾と推定される。試料 2 には MC 及び M_2C_3 相が存在するが、Pu の偏析すなわち、 M_2C_3 相の方が Pu 富有になっていることが XMA による分析で明確に示されている。Nd を例とする希土類元素 (RE) の存在個所は、BSE 像との対応から気孔周辺部あるいはその内部であり、試料 1 では Ru との共存も一部みられ、 $RERu_2$ 型の析出相であると推定される。また、試料 2 における析出相は希土類元素の炭化物相であると推定される。⁶⁾

2.2 高温質量分析

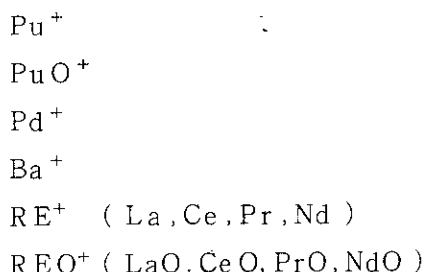
蒸発挙動は、プルトニウム取扱い用グローブボックス内に設置されている高温質量分析装置 (クヌーセルと質量分析計を組み合わせた真空加熱装置) により調べた。^{11,12)} 燃焼度模擬混合炭化物燃料ペレットから得た約 100 mg のブロック状試料は、黒鉛製のクヌーセル (内径 8 mm, オリフィス径 1 mm) 内の表面炭化タンタル (TaC) 処理化したタンタル製容器上に置いた。クヌーセル部の模式図を Fig. 3 に示す。表面を TaC 化した容器に試料を置いたことは、高温における混合炭化物燃料との両立性を考慮したものである。容器の TaC 化は、加工した Ta 板をタンマン炉において真空中 2,000 K で黒鉛粉末との接触反応により行った。

クヌーセル内の試料は、 $10^{-4} \sim 10^{-5} \text{ Pa}$ の真空中でタングステンコイルヒータにより加熱し、セルふたのオリフィスからの蒸発種をセル直上の四重極子型質量分析計により検出した。イオン化エネルギーは 20 eV である。加熱は、蒸発イオン種が観測される 1,723 K から 2,173 K まで 20~40 K の間隔で段階的に行った。

3. 結果及び考察

3.1 燃焼度模擬炭化物燃料からの蒸発種

1,723 ~ 2,173 Kの温度範囲において観測された主蒸発イオン種は次のとおりである。



アクチニドの蒸発に関しては、Pu蒸発種のみであり、U蒸発種は観測されなかった。これは、混合炭化物燃料におけるUの蒸気圧は2,000 KにおいてPuの蒸気圧が 10^{-7} MPa程度であるのに比べ、 10^{-10} MPaと3桁低く、¹³⁾ 実験に用いた質量分析計の感度上、測定が困難であったと推定される。

蒸発種*i*のイオン電流の大きさ I_i^+ と絶対温度*T*の積 I_i^+T は、蒸発種の分圧 P_i に比例する量であり、各蒸発種のイオン強度*I*を測定し、 $\log IT$ と絶対温度の逆数 $1/T$ の関係を求めた。

この結果、上記蒸発イオン種について、 Pu^+ 、 PuO^+ 以外のFP元素蒸発イオン種は、2,000 K ~ 2,100 Kにわたって、それまでの $\log IT$ 値と $1/T$ の直線性が失われ、 $\log IT$ 値の減少が認められた。Figs. 4 ~ 8に各蒸発イオン種の温度依存性を示すが、2,173 Kまで測定したうち、 $\log IT$ 値が測定中の時間経過とともに著しく減少した温度域については省略している。

このような $\log IT$ 値の減少は、測定試料の高温実験中における組成変化が起きていることが原因であると判明した。Figs. 9 ~ 10に実験後における試料のX線回折パターンを示す。試料1では UMoC_{2-x} 型相が消滅し、 U_2RuC_2 型相が生成している。また、試料2では、大幅な M_2C_3 相の増加が生じている。さらに、試料を置いたクヌーセンセル内のTaC化表面処理した内容器の変質、すなわち、試料接触面を含む表面のTaC(金色)が Ta_2C あるいはTa(銀白色)化しており、試料への炭素移行が起きたと推定される。

混合炭化物燃料とTaCとの高温での両立性については、2,273 K以下では反応しない¹³⁾とされており、本報告の実験に先がけて行った $(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{C}_{1.0}$ 、 $(\text{U}_{0.8}\text{Pu}_{0.2})\text{C}_{1.1}$ 試料と表面TaC化容器との試験では実験後の相変化はなく、TaC内器の変質は接触面においてわずかに認められるのみであった。本実験でみられた模擬混合炭化物燃料との両立性については含有されているFP元素の影響が考えられるが、その機構については現段階ではその解釈が困難である。しかし、これはたぶん、前述したように、 Pu^+ 、 PuO^+ 以外のイオン種で2,000 ~ 2,100 Kにおける $\log IT - 1/T$ 関係が損なわれることに関連していると考えられる。すなわち、この温度範囲で、なんらかの理由により、TaCから試料への炭素移行が起ったと思われる。この考えに従い、次項以後は、 $\log IT - 1/T$ 関係が失われない温度域においては、高温質量分析測定実験以前の試料の状態が保たれているとして論議を行うこととする。

3.2 プルトニウムの蒸発挙動

試料1及び2からのPu⁺及びPuO⁺のlog IT-1/TをFig. 4にそれぞれ実線及び点線で示す。Puの蒸発は試料1の方が試料2より大きい。

前に述べたように全体組成として亜化学量論的組成である試料1では、PuはMCマトリックス相とXMA分析で観察されたPuRu₂型相に含まれている。また、超化学量論的組成である試料2ではMC及びM₂C₃相に存在している。Ohseら¹³⁾の(U_{0.8}Pu_{0.2})Cでの2,000 KにおけるPu蒸気圧の測定結果では、C/M=1.014のMC領域で約8.6×10⁻⁷ MPa、C/M=1.15のMC+M₂C₃領域で約2.1×10⁻⁷ MPaの値であり、超化学量論的組成になるほどPuの蒸気圧は低く、燃焼度模擬炭化物燃料の測定結果はこの結果と一致している。

試料1に存在するPuRu₂に関する蒸気圧については、Peterson¹⁴⁾が1,503～1,778 Kで測定しており、この結果を2,000 Kに外挿して求めたPuRu₂におけるPu蒸気圧は、約1.4×10⁻⁷ MPaであり、試料1におけるPuの蒸発は主にMCマトリックスからのものと考えられる。また、Ohseら¹³⁾のC/MによるPuの蒸気圧の変化と、試料1及び2のlog IT値から推定されるPu蒸気圧の相対的な比はほぼ同程度であり、Puの蒸発挙動は模擬炭化物燃料の場合でも大きな差異はないことが推定される。

また、本実験におけるPuの蒸発挙動の大きな特徴は、PuO⁺がPu⁺に対して約1/7程度観測されることであり、PuO⁺強度は試料1の方が試料2より大きい。その程度は、それぞれに含有されている不純物酸素量に対応していると考えられる。

3.3 パラジウム及びバリウムの蒸発挙動

Pd⁺及びBa⁺のlog IT-1/T図をそれぞれ、Figs. 5及び6に示す。Pd及びBaの蒸発挙動は、Pdにおいて試料1の方が蒸気圧が高い傾向がみられるが、試料1,2ともほぼ同様であった。

炭化物燃料中のPdの化学形態は、Ru、Rhなどと異っている。Pdは、他の白金族元素のようにU₂RuC₂型の三元系化合物は形成せず、UPd₃として存在するといわれているが、他の白金族存在相に安定化されて存在している場合があり、本実験におけるPdの蒸発挙動からは推定が困難であった。UC_{1±x}の模擬燃料の蒸気圧を測定したLorenzelliら⁷⁾の結果をFig. 11に示すが、UC_{1±x}模擬燃料では亜化学量論的組成、超化学量論的組成のウラン炭化物からのPdの蒸気圧は一致しており、化学量論性による蒸発挙動の差異はない。

炭化物燃料ではBaはマトリックスとは固溶せず、BaC₂として存在している。試料1及び2のBa蒸発挙動がほぼ一致していることから同一の化学形態で存在していると推定される。また、炭化物燃料において酸素含有量が多い場合、酸化燃料におけるBaと同様に安定なBaZrO₃の形成が考えられるが、詳細については不明である。

3.4 希土類元素の蒸発挙動

希土類元素の蒸発イオン種は、La, Ce, Pr, Ndの単原子イオン(RE^+)とモノ酸化物イオン(REO^+)であった。 RE^+ 及び REO^+ の $\log IT-1/T$ 図を、試料1についてはFig. 7に、また試料2についてはFig. 8に示す。

試料1では2,023 Kまで RE^+ 及び REO^+ とも $\log IT-1/T$ 関係において直線性がみられ、Ndを除けば、 RE^+ 強度より REO^+ 強度の方が大きい。試料2では CeO^+ 、 NdO^+ 、 PrO^+ 及び Pr^+ は1,973 Kで、また Nd^+ は2,053 Kで $\log IT$ の温度依存性の変化がみられ、 RE^+ と REO^+ 強度については、試料1の場合に比較すると、 REO^+ 強度が小さいが、試料1とほぼ同様な関係がみられた。試料2における CeO^+ 等が挙動に変化を示す1,973 Kは、Fig. 4に示す PuO^+ の挙動が変化する温度に対応している。

上記のように希土類元素の蒸発挙動は元素によってその挙動を異にしているが、Fig. 9に示すLorenzelliら³⁾の模擬 UC_{1+x} 燃料における蒸気圧測定結果においても、希土類元素の蒸発が大きいことが特徴であり、蒸気圧の大きさは $Nd > Ce > La$ となっており(Pr は模擬FP元素として添加していない)、本実験と一致がみられる。

試料中の希土類元素の化学形態については、第2章で述べたように試料1ではRu等と合金相を形成している可能性があり、試料2では $REC_{1.5}$ あるいは $REC_{2.0}$ の高次炭化物相として存在している。他方、Benedictら⁵⁾は比較的酸素含有量の多い混合炭化物模擬燃料における希土類の酸化物(REO)相の存在を指摘しており、また、Kleykamp¹⁵⁾も照射混合炭化物燃料において希土類元素の酸炭化物析出相が存在することを報告している。

希土類元素の酸化物生成自由エネルギーはFP元素の中では相対的に小さく、炭化物燃料中の不純物酸素は、MCマトリクスに固溶する以外に、熱力学的に安定な酸化物をつくりやすい希土類元素と共存しやすい。本実験に使用した試料では、希土類元素の酸化物相や酸炭化物の存在は確認されていないが、少なくとも試料2の炭化物相はかなり酸素を含んだ相であることが予想される。

Fairclothら¹⁶⁾による REC_2 の蒸発に関する報告では、 REC_2 からのRE種の蒸気圧は、La, Ce, Ndの順に大きくなっている。これは試料2の実験事実と対応している。REO種に関しては、RE種とのイオン強度の比、 REO/RE を比較すると、Prの場合を除けば、Nd, Ce, Laの順に大きくなっていることが認められる。この比が直接、酸炭化物中の酸素量を示す割合にはならないが、定性的にはそれを示していると考えられる。事実、希土類元素の三二酸化物(RE_2O_3)の生成自由エネルギー¹⁷⁾を比較すると、Nd, Ce, Laの順に大きくなっている。正確な論議は REC_2 の熱力学量の不備のために困難であるが、定性的には REO/RE 比の大小を酸炭化物中の酸素の量として理解出来る。Prの三二酸化物の生成自由エネルギーはNdのそれよりやや小さく、 PrO^+ の挙動を上のような方法で説明できないが、Prの酸化物は、他の希土類元素の場合と異なり、 Pr_6O_{11} 等の酸化物が存在し得るため、これらの影響を考慮しなければならない。

試料2における蒸発種の $\log IT$ の温度依存性の変化は多分、酸炭化物中の酸素が減少していくことに対応していると考えられる。

試料1においても、 RE^+ 及び REO^+/RE^+ 比とも、その傾向は試料2の場合と同様であることが認められる。試料1では希土類元素は合金相に集まっていることが考えられるが、この相の希土類元素の挙動を推測するデータがないため、本実験の結果を説明することは困難である。しかし、試料中の酸素はなんらかの形で希土類元素と強く関与していることが推定される。

4. ま と め

高燃焼度を模擬したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の蒸発挙動において得られた知見は次のとおり要約される。

- 1) Puの蒸発は亜化学量論的組成の炭化物の方が超化学量論的組成の炭化物よりも大きく、F Pを含まない混合炭化物の挙動と類似している。
- 2) 観測された蒸発模擬F P元素はPd, Ba及び希土類元素(La, Ce, Nd, La)である。
- 3) Pd及びBaの蒸発挙動は、炭化物の化学量論性に影響せずほぼ同様である。
- 4) 希土類元素の蒸発が大きいことが模擬炭化物燃料の蒸発挙動の大きな特徴である。また、希土類元素の蒸発種には酸化物蒸発種が存在し、希土類元素の酸炭化物相からの蒸発であることが推定される。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、貴重な助言をいただいた近藤達男燃料・材料工学部長、半田宗男同次長に感謝の意を表します。また、同部プルトニウム燃料研究室塩沢憲一氏のXMA分析に関する協力に感謝いたします。

4. ま と め

高燃焼度を模擬したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の蒸発挙動において得られた知見は次のとおり要約される。

- 1) Puの蒸発は亜化学量論的組成の炭化物の方が超化学量論的組成の炭化物よりも大きく、FPを含まない混合炭化物の挙動と類似している。
- 2) 観測された蒸発模擬FP元素はPd, Ba及び希土類元素(La, Ce, Nd, La)である。
- 3) Pd及びBaの蒸発挙動は、炭化物の化学量論性に影響せずほぼ同様である。
- 4) 希土類元素の蒸発が大きいことが模擬炭化物燃料の蒸発挙動の大きな特徴である。また、希土類元素の蒸発種には酸化物蒸発種が存在し、希土類元素の酸炭化物相からの蒸発であることが推定される。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、貴重な助言をいただいた近藤達男燃料・材料工学部長、半田宗男同次長に感謝の意を表します。また、同部プルトニウム燃料研究室塩沢憲一氏のXMA分析に関する協力に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 半田宗男, 鈴木康文, 日本原子力学会誌, 26 [1], 2 (1984), LA-tr-84-33 (1984)
- 2) Herbst R.J., Trans. Am. Nucl. Soc., 47, 188 (1984)
- 3) Lorenzelli N., CEA-R-4465 (1973), ANL-trans-979 (1975)
- 4) Smailos E., KFK1953 (1974), EURFNR-1179 (1974)
- 5) Benedict U., Giacchetti G., Matzke H.J., Richter K., Sari C. and Schmidt H.E., Nucl. Technol. 35, 154 (1977)
- 6) 大道敏彦, 鈴木康文, 前多厚, 塩沢憲一, 半田宗男, JAERI-M 84-161 (1984)
- 7) Lorenzelli N. and Marcon J.P., J. Nucl. Mater., 44, 57 (1972)
- 8) Lorenzelli N. and Marcon J.P., "Behaviour and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels", 99 (1974) IAEA, ANL-trans-920 (1972)
- 9) 半田宗男, 前多厚, 塩沢憲一, JAERI-M 8414 (1979)
- 10) 半田宗男, 前多厚, 矢幡胤昭, JAERI-M 8406 (1979)
- 11) 大道敏彦, 笹山龍雄, 前多厚, 渡辺齊, JAERI-M 7572 (1978)
- 12) 前多厚, 大道敏彦, 福島獎, 半田宗男, JAERI-M 85-120 (1985)
- 13) Ohse R.W. and Capone F., "Plutonium 1975 and other Actinides", 245 (1976) North Holland
- 14) Peterson D.E., J. Nucl. Mater. 91, 306 (1980)
- 15) Kleykamp H., "Advanced LMFBR Fuels", 166 (1977) ANS
- 16) Faircloth R.L., Flowers R.H. and Pummery F.C.W., J. inorg. nucl. Chem., 35, 1925 (1973)
- 17) Kubaschewski O. and Alcock C.B., "Metallurgical Thermochemistry" 5th Edition (1979)

Table 1 Data of the simulated fuels studied

Sample	1	2
C, wt.%	4.55	5.95
O, wt.%	0.35	0.10
E.C.C. ^a , wt.%	4.81	6.03
Phase ^b	MC ^c UMoC ₂ UMoC _{2-x}	MC M ₂ C ₃ UMoC ₂ U ₂ RuC ₂
Lattice parameter of MC phase (Å)	4.9435	4.9404
Composition estimated	MC _{0.87} O _{0.05}	MC _{1.16} O _{0.01}

^a Equivalent carbon content

^b Found in X-ray diffraction analysis

^c M = U + Pu + FPs

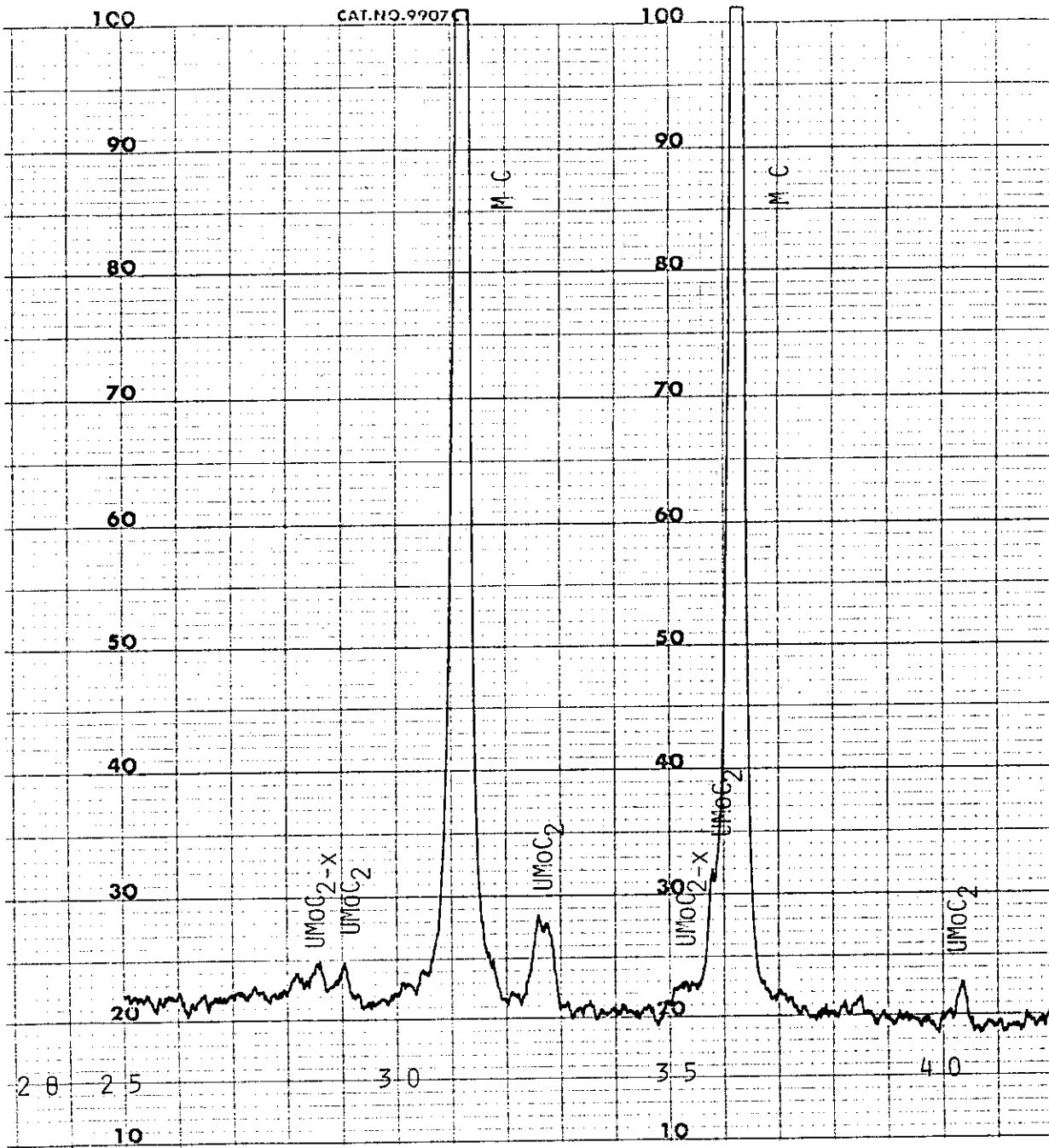


Fig. 1 X-ray diffraction pattern of sample 1

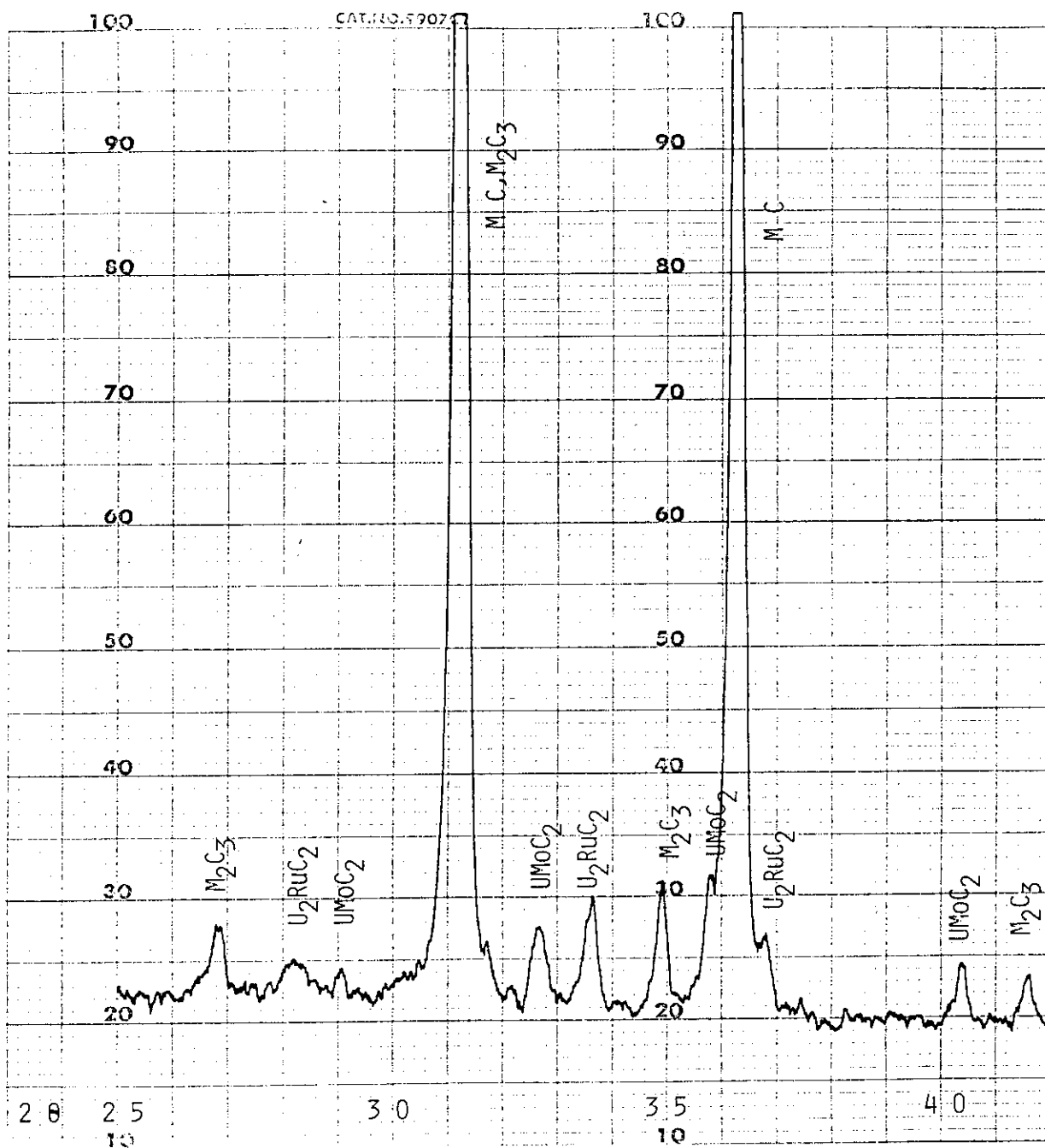


Fig. 2 X-ray diffraction pattern of sample 2

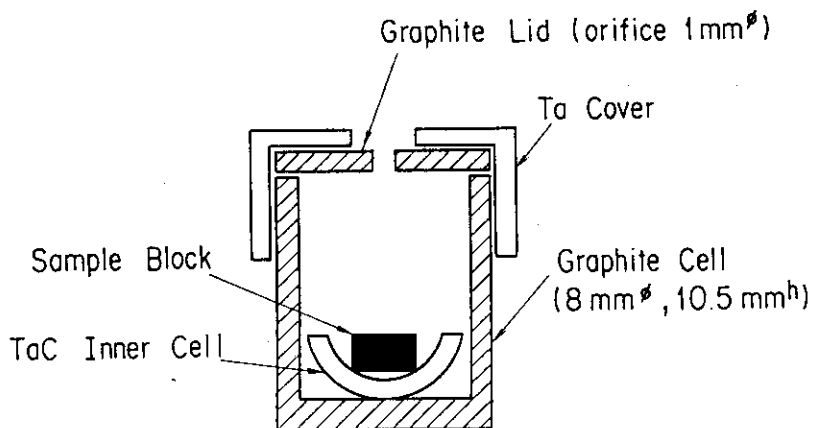


Fig. 3 Cross section drawing of the Knudsen cell

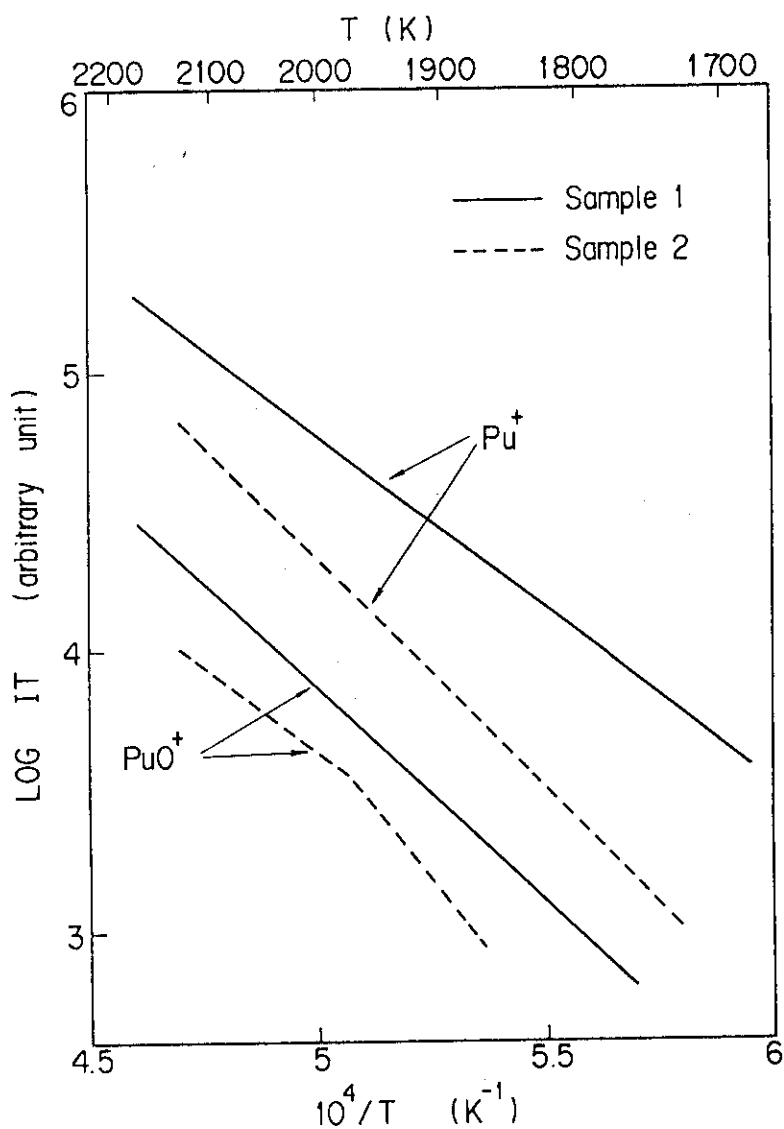


Fig. 4 Plot of log IT versus $1/T$ for Pu^+ and PuO^+

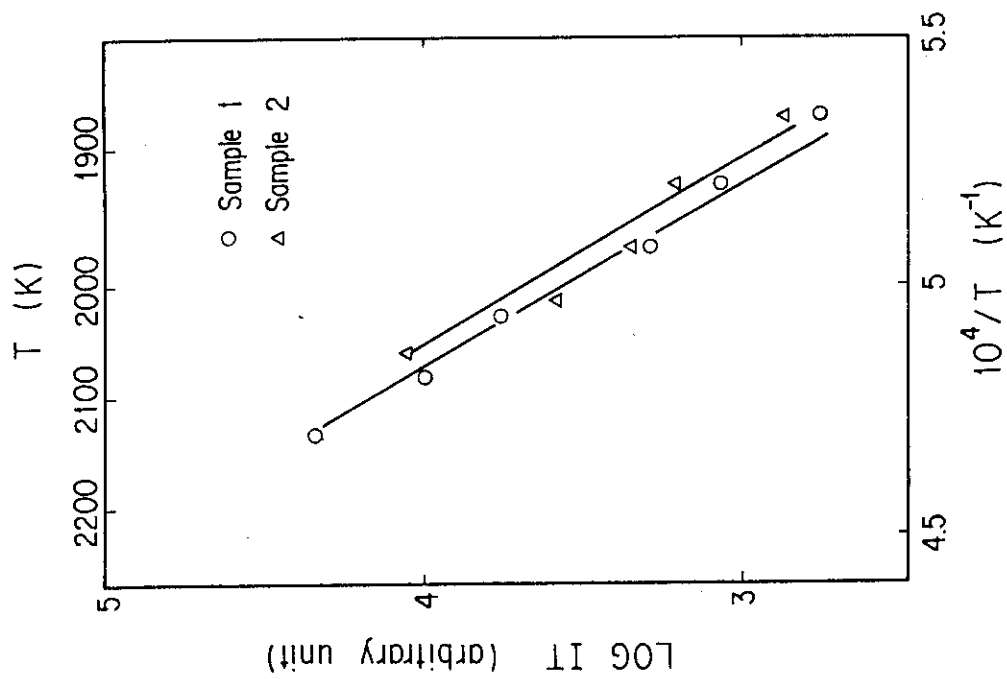


Fig. 6 Plot of $\log I''$ versus $1/T$ for Ba^+

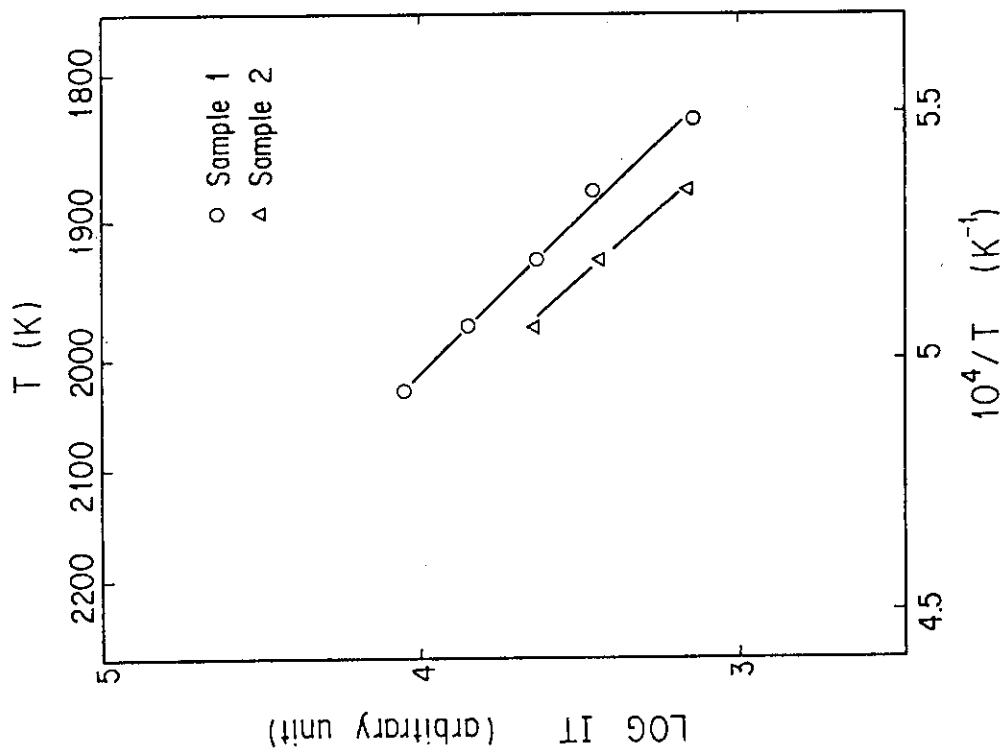


Fig. 5 Plot of $\log I''$ versus $1/T$ for Pd^+

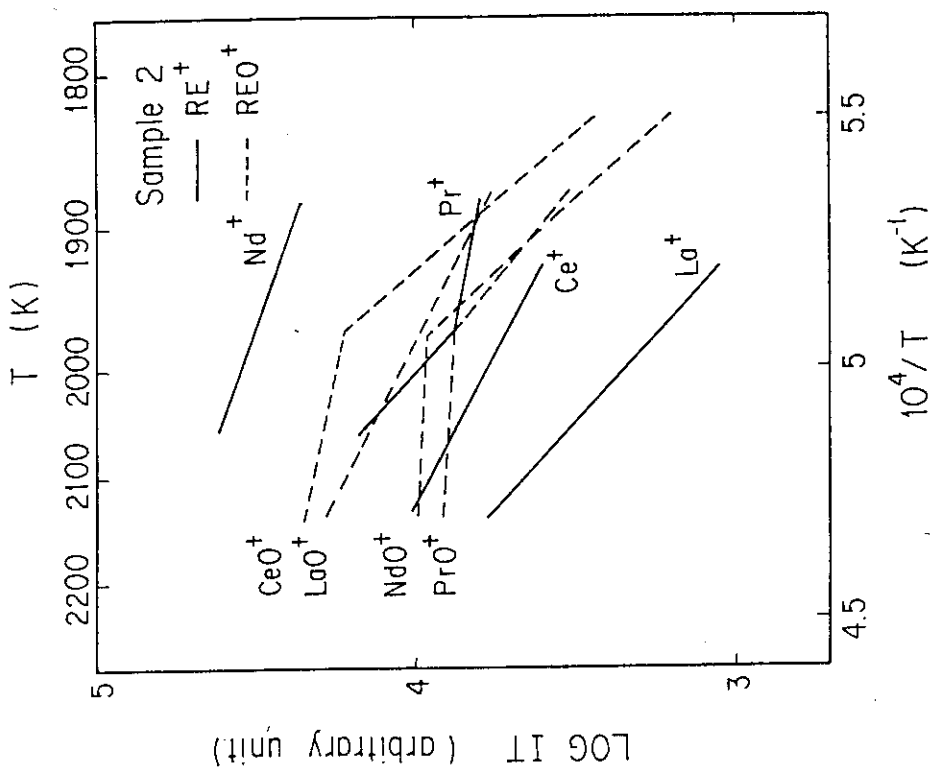


Fig. 7 Plot of log IT versus $1/T$ for RE^+ and REO^+ over sample 1

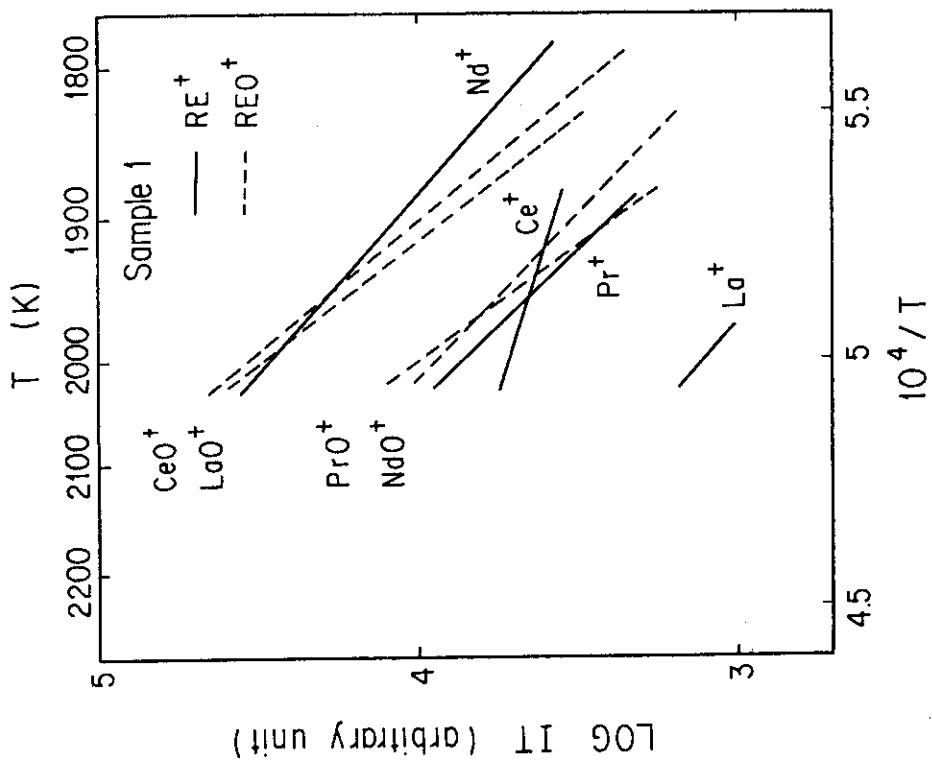


Fig. 8 Plot of log IT versus $1/T$ for RE^+ and REO^+ over sample 2

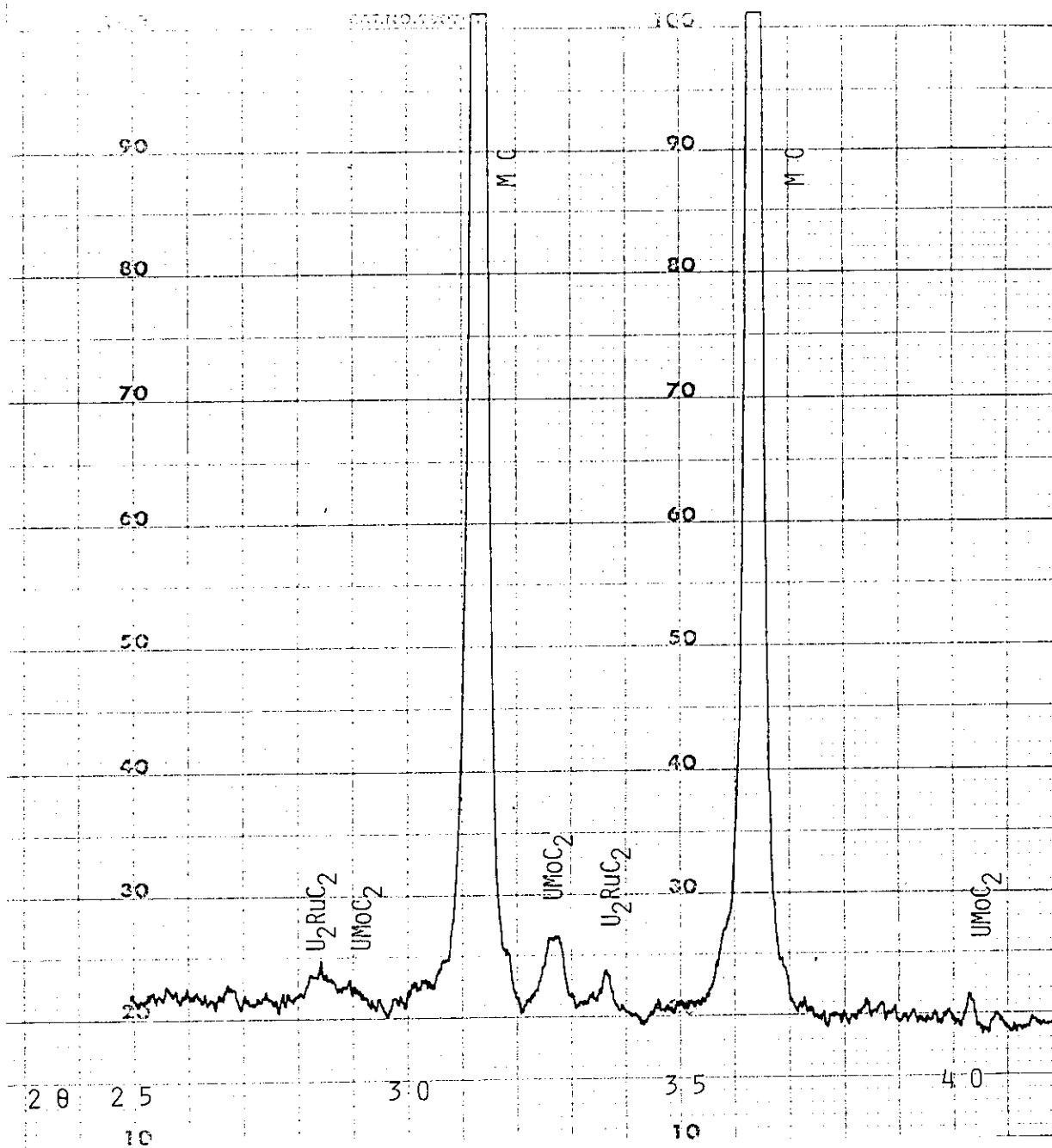


Fig. 9 X-ray diffraction pattern of sample 1 (after heating)

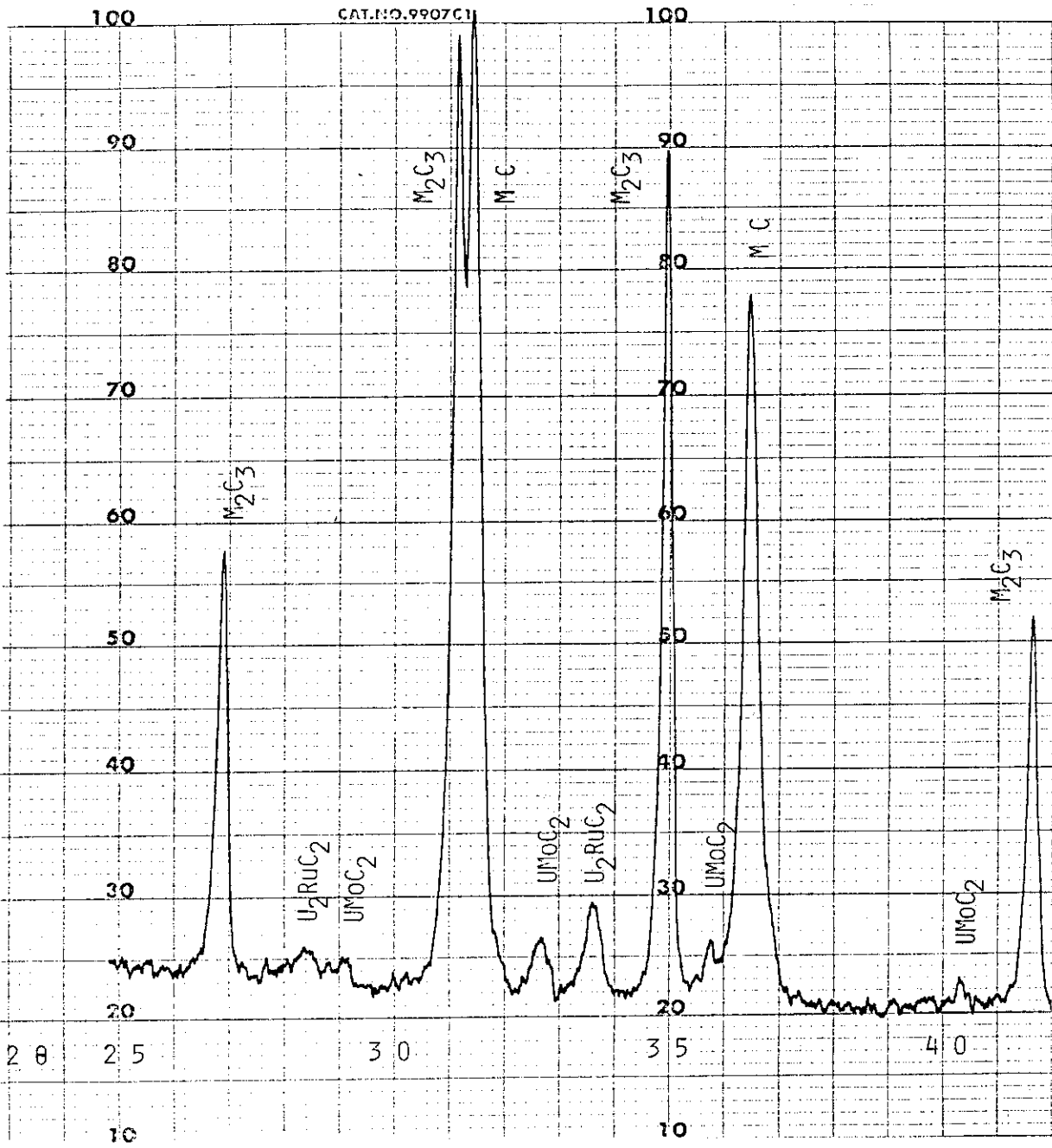


Fig. 10 X-ray diffraction pattern of sample 2 (after heating)

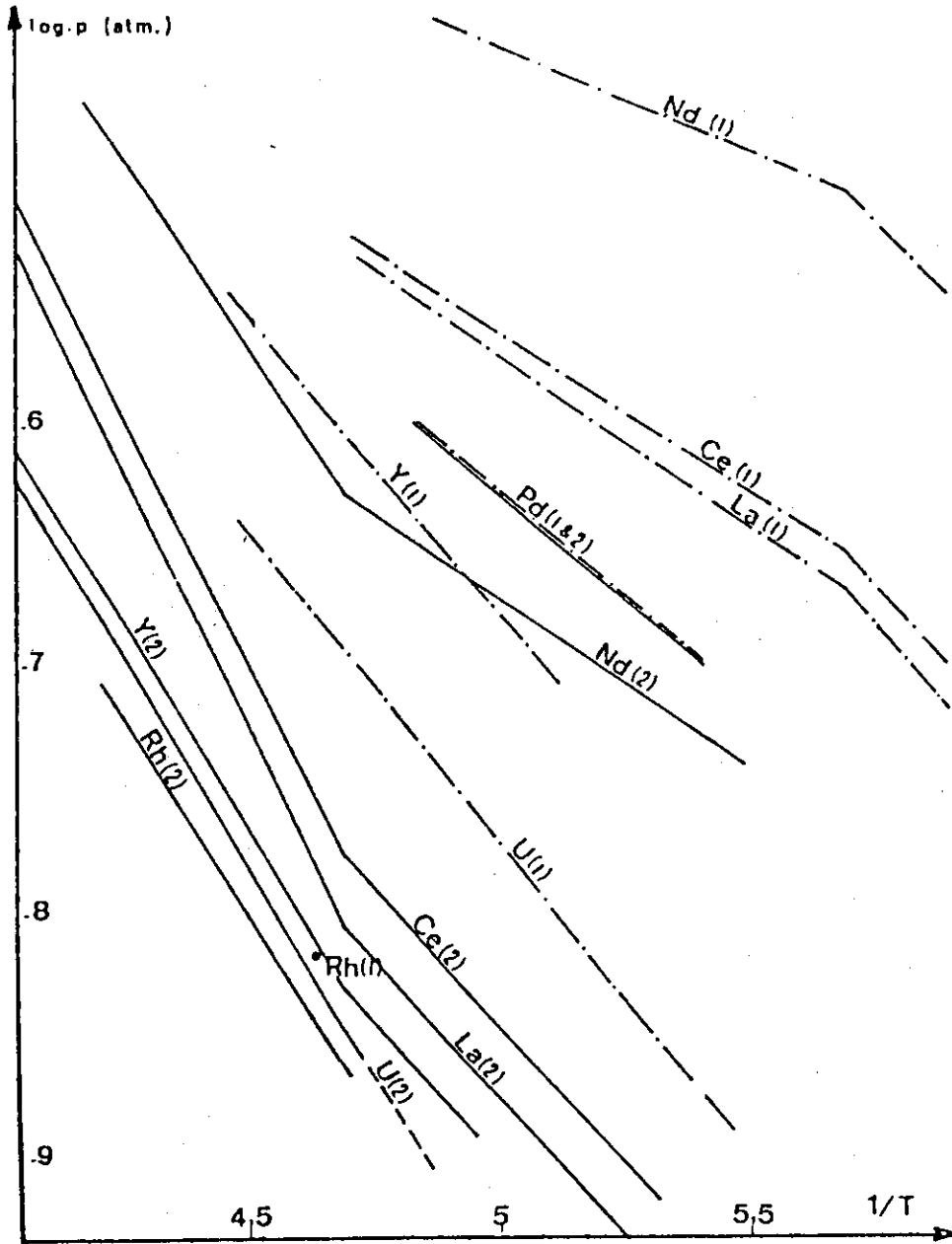
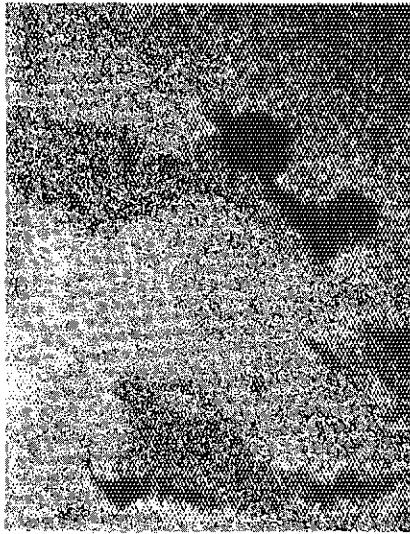


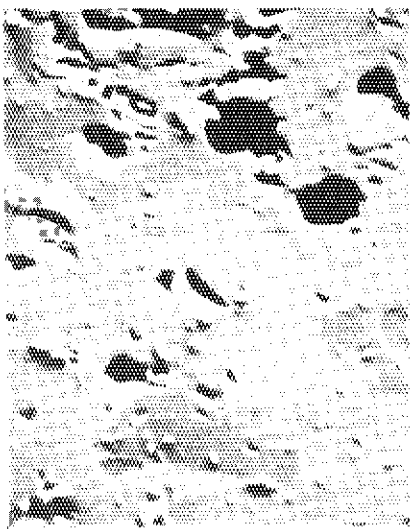
Fig. 11 Partial pressure variation of the different elements above the UC_{1-x} (1) and UC_{1+x} (2) fuels as a function of $1/T$
 (Lorenzelli, N., Marcon, J.P., J. Nucl. Mater. 44(1972)57.)



Pu

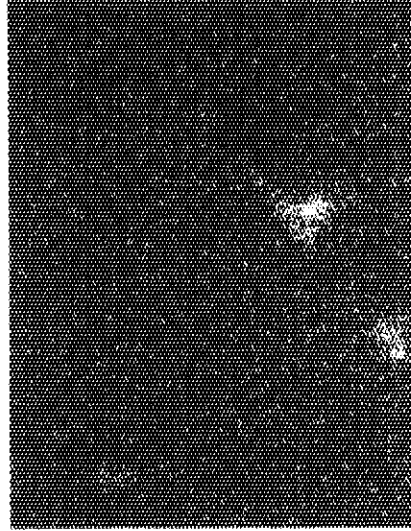


U



BSE

20µm



Nd

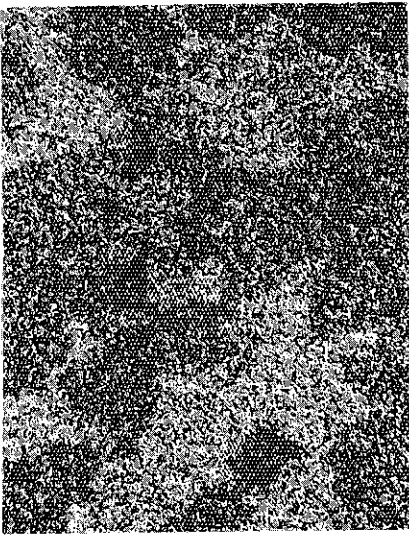


Ru

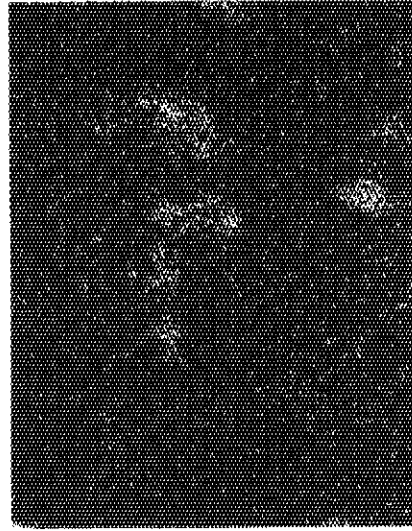


Mo

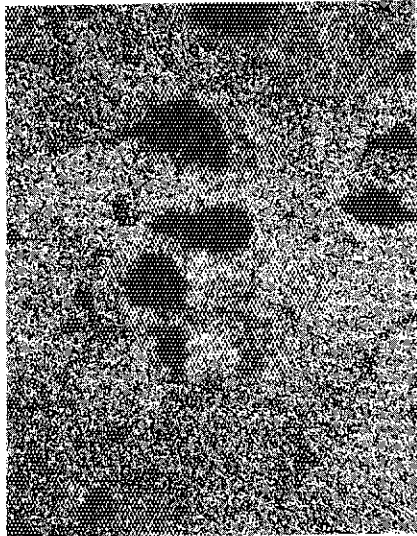
Photo.1 BSE and X-ray images from sample 1 (hypostoichiometric MC)



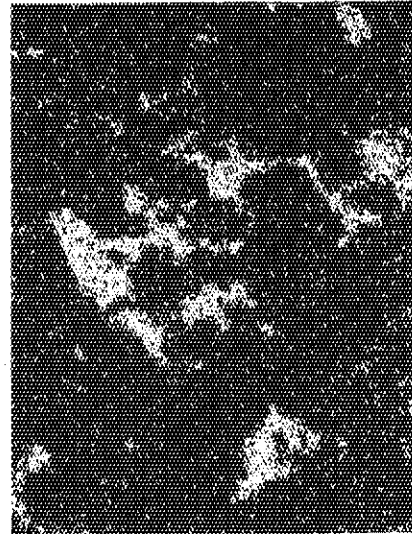
Pu



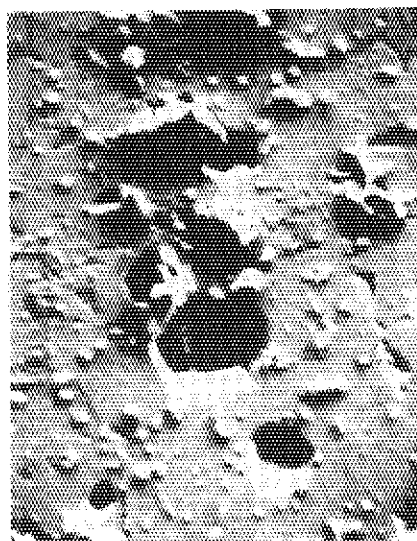
Nd



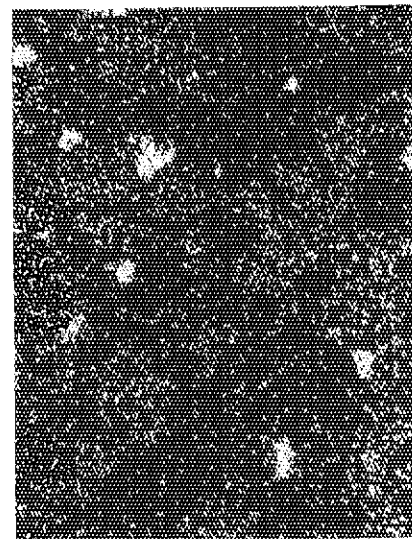
U



Ru



BSE
20µm



Mo

Photo. 2 BSE and X-ray images from sample 2 (hyperstoichiometric MC)