

窒化物燃料の照射挙動および設計評価用  
モデルに関する調査・検討

(研究報告)

2000年3月

核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転写する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4-49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquires about copyright and reproduction should be addressed to :  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2000

## 窒化物燃料の照射挙動および設計評価用モデルに関する調査・検討 (研究報告)

井上賢紀\*、鶴飼重治\*、浅賀健男\*

### 要旨

実用化戦略調査研究における窒化物燃料オプションの実現性評価に資するため、窒化物燃料の照射挙動および設計評価用モデルに関する調査・検討を行った。

#### (1) 燃料ピン機械設計評価 (CDF 評価) への反映

被覆管のクリープ寿命分数和の評価には、内圧変化 (FP ガス放出率) と被覆管減肉挙動 (FCCI 挙動) に関する情報が必要である。また、窒化物燃料は酸化物燃料に比較して FP ガス放出率をかなり小さく抑えられる可能性があることが指摘されており、プレナム長さの低減による炉心燃料集合体の短尺化の可能性もある。そこで、窒化物燃料の FP ガス放出挙動と FCCI 挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域までの予測評価を行った。

#### (2) 燃料ピン仕様選定への反映

燃料体積率向上の観点からはより高い燃料スミア密度の燃料ピン仕様が望まれるが、窒化物燃料は酸化物燃料に比較して燃料スエリングが大きく、FCMI 挙動の観点からスミア密度には上限値 (許容燃料スミア密度) が存在すると考えられる。そこで、窒化物燃料の燃料スエリング挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域に対する予測評価を行った。

#### (3) 水冷却オプション特有の問題に関する調査

軽水炉あるいは超臨界圧水炉を発展させた高速炉概念に関連し、窒化物燃料と高温水との共存性に関する過去の報告例を整理した。

---

\* 大洗工学センター システム技術開発部 燃料材料技術開発グループ

## Irradiation Behavior and Performance Model of Nitride Fuel

Masaki INOUE\*, Shigeharu Ukai\*, Takeo ASAGA\*

### Abstract

Irradiation behavior and performance models were investigated in order to apply for nitride fuel options in feasibility study on fast breeder reactor and related recycle systems.

#### (1) Mechanical Design of Nitride Fuel Pin

The behaviors of fission gas release (increase of internal pressure) and fuel-to-cladding chemical interaction (decrease of cladding thickness) are needed to evaluate cumulative damage fraction in case of fuel pin mechanical design. The behaviors of fission gas release and fuel-to-cladding chemical interaction were investigated from the past studies up to high burnup, since the lower fission gas release in nitride fuel than in oxide fuel could contribute to reduce the plenum volume and result in the shortening of fuel pin length.

#### (2) Fuel Pin Smear Density

The higher fuel smear density is preferred for the higher fissile density to improve the core characteristic. The behaviors of fuel pellet swelling were investigated from the past studies up to higher burnup, since the larger fuel pellet swelling in nitride fuel than in oxide fuel would restrict high burnup capability due to fuel-cladding mechanical interaction.

#### (3) Compatibility of Nitride Fuel with High Temperature Water

Compatibility of nitride fuel with high temperature water were investigated from the past studies to contribute water cooled fast breeder reactor options.

---

\* Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division, Oarai Engineering Center

目次

|                        |    |
|------------------------|----|
| 1.目的                   | 1  |
| 2.窒化物燃料の照射実績           | 2  |
| 3.FP ガス放出挙動            | 3  |
| 3.1 照射実績データ            | 3  |
| 3.2 予測評価               | 3  |
| 4.FCCI 挙動              | 6  |
| 5.許容燃料スミア密度            | 8  |
| 5.1 燃料スエリングに関する照射実績データ | 8  |
| 5.2 予測評価               | 8  |
| 6.高温水との共存性             | 10 |
| 7.まとめ                  | 11 |
| 8.参考資料・参考文献            | 12 |

## 表図リスト

|      |  |    |
|------|--|----|
| 表 1  | 239Pu の核分裂にともなう主な FP と化学形態                           | 16 |
| 図 1  | 炭化物燃料の FP ガス放出挙動                                     | 17 |
| 図 2  | 窒化物燃料の FP ガス放出率に及ぼす燃焼度・燃料ペレット相対密度・<br>燃料平均温度の影響：その 1 | 18 |
| 図 3  | 窒化物燃料の FP ガス放出率に関する Storms 式計算値と実験データとの比較            | 19 |
| 図 4  | 核燃料における FP ガス放出・燃料スエリングの基本挙動                         | 20 |
| 図 5  | 窒化物燃料の FP ガス放出率に及ぼす燃焼度・燃料ペレット相対密度・<br>燃料平均温度の影響：その 2 | 21 |
| 図 6  | 高速炉 MOX 燃料におけるリム効果                                   | 22 |
| 図 7  | 窒化物燃料の照射による燃料組織変化                                    | 23 |
| 図 8  | UN と PuN の二元系状態図                                     | 24 |
| 図 9  | 窒化物燃料における FCCI 挙動                                    | 25 |
| 図 10 | 窒化物燃料の燃料スエリングに関する Ross 式計算値と実験データとの比較                | 26 |
| 図 11 | 窒化物燃料の FP ガス放出率と燃料スエリングに関する実験データの比較                  | 27 |
| 図 12 | UN と (U,Pu)C の燃料スエリング挙動の比較                           | 28 |
| 図 13 | UN と水蒸気との共存性   | 29 |

## 1. 目的

実用化戦略調査研究における窒化物燃料オプションの実現性評価に資するため、窒化物燃料の照射性能の観点から調査を行った。調査の目的は下記のとおりである。

### (1) 燃料ピン機械設計評価 (CDF 評価) への反映

被覆管のクリープ寿命分数和の評価には、内圧変化 (FP ガス放出率) と被覆管減肉挙動 (FCCI 挙動) に関する情報が必要である。また、窒化物燃料は酸化物燃料に比較して FP ガス放出率をかなり小さく抑えられる可能性があることが指摘されており、プレナム長さの低減による炉心燃料集合体の短尺化の可能性もある。

そこで、窒化物燃料の FP ガス放出挙動と FCCI 挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域までの予測評価を行う。

### (2) 燃料ピン仕様選定への反映

燃料体積率向上の観点からはより高燃料スミア密度の燃料ピン仕様が望まれるが、窒化物燃料は酸化物燃料に比較して燃料スエリングが大きく、FCMI 挙動の観点からスミア密度には上限値 (許容燃料スミア密度) が存在すると考えられる。

窒化物燃料の燃料スエリング挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域に対する予測評価を行う。

### (3) 水冷却オプション特有の問題に関する調査

軽水炉あるいは超臨界圧水炉を発展させた高速炉概念に関連し、窒化物燃料と高温水との共存性に関する過去の報告例を整理する。

### (4) 調査の範囲

(1) と (2) の調査範囲は定常照射時の挙動に限定し、異常な過渡変化時あるいは事故時の挙動は対象外とする。

また、FCCI 挙動の調査における対象被覆管材料はステンレス鋼に限定する (米国の宇宙炉用 Nb, Ta, W のような特殊合金は除く)。

高燃焼度領域までの予測評価範囲としては、実証炉高燃焼度段階炉心を参考とし、取出平均燃焼度約 150GWd/t に対応するピーク燃焼度 246GWd/t (約 26at%BU) を上限値として設定する。

## 2. 窒化物燃料の照射実績

窒化物燃料の照射実績は酸化物燃料に比較して圧倒的に少なく、炭化物燃料よりもさらに少ない。窒化物燃料の燃焼度実績範囲は現時点で報告されているところでは、高速炉では約 10at%BU、熱中性子炉では約 19at%BU までである。

照射試験実績に関するレビューには、最も新しいところで IAEA-TECDOC-1083[1] がある。ロシアの BR-10 が UN (90%濃縮) をドライバー燃料として全炉心に装荷している実施例 (最大 9at%BU) [2-4] を除き、少数燃料ピン本数の「クラスター」照射試験にとどまる。Phenix では「NIMPHE」試験 [5-12] が進行中であり、「常陽」では原研と JNC との共同研究による試験ピン 2 本の照射試験が行われている。窒化物燃料の物性と照射挙動は、Matzke[13]、半田 [14]、鈴木 [15]、大道 [16]、Blank[17-19] によって詳しいレビューが行われている。



### 3.FP ガス放出挙動

#### 3.1 照射実績データ

##### (1) データベース

窒化物燃料のFPガス放出率に関する報告は少なく、炭化物燃料（図1 [19,20]）のような米国と欧州の照射試験結果に基づく総合評価例は見当たらない。

具体的に収集できたデータ点数は、欧州と日本の合計で6点（DFR-DN1試験：4点 [21-23]、JMTR-88F-5A試験：2点 [24,25]）であり、Storms[26]が整理した米国のETR・MTR・EBR-IIにおける照射実績（134点：UN95点+MN39点）が圧倒的である。窒化物燃料のFPガス放出率が燃料温度に敏感であるため、燃料温度に関する情報が評価に不可欠である。しかし、Stormsのデータには燃料温度評価結果が対応しているが、欧州と日本のデータではそれぞれ1点づつに過ぎない [21,24]。

図2 (a)~(c)は、燃焼度を横軸に、Pu含有の有無、高速炉・熱中性子炉、相対密度レベル、燃料温度レベル（3.2(1)で設定するモデルケースを先取り）をパラメータとして、Stormsのデータベースに欧州と日本の照射試験結果を含めてプロットした結果である。なお、燃料平均温度と燃料中心温度の差は、「常陽」照射燃料ピンでの解析事例を参考に150℃を設定した。また、図2と図3の"Discarded by Storms"のデータ点はStormsが相関式作成にあたって棄却した点を示し、具体的な棄却基準としては0.1%未満（測定ミス=サンプルガス喪失）と15%超（クラック効果）のデータを設定している [26]。

##### (2) 相関式

窒化物燃料のFPガス放出率相関式としては、1973年にWeinstein[27]による報告があり、Storms[26]が1988年に報告した(3-1)式が現時点では最も新しい。

$$R = \frac{100}{\exp\left\{0.0025\left(\frac{90TD^{0.77}}{B^{0.09}} - T_{fave}\right)\right\} + 1} \quad (3-1)$$

ここで、R、TD、B、T<sub>fave</sub>はそれぞれ下記のとおりである。

- R： FPガス放出率 (%)
- TD： 相対密度 (%TD)
- B： 燃焼度 (at%BU)
- T<sub>fave</sub>： 燃料平均温度 (K)

Stormsの相関式の適用範囲は1727℃かつ5at%BUまでであり、Thomas式 [28] とBaars式 [29] をレビューした上で作成されている。

#### 3.2 予測評価

##### (1) モデルケースの設定

Heボンド（平均温度1600℃）、Naボンド（平均温度1000℃）、両者の中間（平均温度1300℃）の3種類の温度レベルに、85%TDと95%TDの2種類の燃料ペレット相対密度レベルの組合せによる計6種類のモデルケースを設定する。

窒化物燃料は高温分解による物質移動の問題を避けるため、燃料最高温度を1727℃

以下に抑えるように推奨 [30] されており、平均温度 1600℃は燃料最高温度 1727℃にほぼ対応する。また、Na ボンドを採用して燃料中心温度 1200℃以下に抑えることを推奨した設計研究例 [31] もあり、平均温度 1000℃は燃料最高温度 1200℃にほぼ対応する。

## (2) 高燃焼度までの相関式の外挿計算

Storms の相関式の適用範囲は 1723℃かつ 5at%BU までであるが、検討のために 30at%BU まで外挿計算し、図 2 (c) にオーバープロットしたのが図 3である。なお、現時点では欧州と日本の計 4 点のデータを用いて Storms の相関式の妥当性を確認するのは無理と言える。

図 3 が示すように約 26at%BU の高燃焼度でも、計算上は FP ガス放出率は 40%を下回る結果になる。

## (3) FP ガス放出メカニズム

FP ガス (Kr・Xe) の放出機構は、燃料の化学形態 (酸化物、炭化物、窒化物、金属) によらず、共通している (図 4 [32])。核分裂によって生成した FP ガス原子は、反跳によって放出された原子を除くと、内部に保持される。保持された FP ガス原子は結晶粒内を拡散し、結晶粒内あるいは結晶粒界に FP ガスバブルとして析出する。燃焼が進んで結晶粒界の FP ガスバブルの径と数が増大すると、FP ガスバブル同士が連結してネットワークを形成し、プレナム部への放出経路が生成される。結晶粒内における FP ガス原子の拡散は熱活性化過程によるランダム移動であるのに対し、結晶粒内に生成した FP ガスバブルは温度勾配に沿って結晶粒界に移動すると考えられている。以上のように、FP ガス放出は、温度、燃焼度、結晶粒径に強く依存した現象である。また、化学量論組成、クラック生成、気孔形態 (体積率、径、開気孔/閉気孔比等) にも影響される。

酸化物燃料に比較して窒化物燃料の FP ガス放出率が低い傾向を示すのは、温度レベルの差によるところが大きい (実際には、温度勾配と拡散係数が小さいことも少なからず寄与している [18])。

## (4) 高燃焼度挙動予測

炭化物燃料からの FP ガス放出率は、同一燃焼度レベルと同一温度レベルで比較した場合、一般に窒化物燃料よりも大きい傾向があることが知られている [13,33]。図 1 の He ボンド型炭化物燃ピンの AC-3 のデータを見ると燃焼度 8at%BU 前後でも FP ガス放出率は 10%程度と低く、窒化物燃料の場合は同レベルかより低いレベルにとどまると推定される。図 3 の傾向をみると、Storms 式は燃焼度 10at%BU (ピーク値) までの範囲であれば、保守側の外挿になると推定される。

図 5 (a)(b) に示すように、燃焼度 10at%BU 未満では燃料平均温度が 1450℃を超える場合が相対密度依存性が認められるが、1450℃未満の場合は相対密度依存性は認められない。一方、図 5 (c) からは燃料平均温度が 1150℃未満のデータに相対密度依存性が認められ、同一の燃焼度と燃料平均温度レベルであれば、高相対密度の燃料ペレットは低相対密度の場合よりも FP ガス放出率は小さい傾向があるようである。以上のように、窒化物燃料の FP ガス放出率としては、He ボンドを採用した低相対密度型の

燃料ピンの場合（燃料平均温度～1600℃）は30%、Na ボンドを採用した高相対密度型の燃料ピンの場合（燃料平均温度～1000℃）は20%が上限と判断してよいようである。ちなみに、Lyon は窒化物燃料の設計基準として、燃料最高温度を1200℃以下に抑えること、1at%BUあたり1%放出を仮定して（10at%BU で）ノミナル10%のFPガス放出率を採用することを推奨している[31]。さらに、参考までに、「常陽」許認可は寿命期間中一定の50%を採用している（燃焼度 $t \div 8$ at%BU）。なお、BR-10で8.2at%BUまで照射したところ25%のFP放出率を示したとの報告[4]があるが、燃料温度レベルが不明であることから、参考値扱いにした。

軽水炉酸化物燃料の場合、燃料ペレット外周部に多孔質かつ微細な燃料組織が生成する現象はリム効果として知られている。XRFとEPMAを組合せた分析の結果としてFPガス保持能力は低下していないことがわかっている[34-36]。高速炉酸化物燃料の燃料ペレット外周部（約1100℃以下の領域）のFPガス保持挙動を評価した結果、マトリックスの保持量は約8at%BUでピークに達した後に多孔質な燃料組織に変化し、その後は保持能力が急速に低下することが報告されている（図6 [37]）。多孔質な燃料組織の生成は、炭化物燃料（8.38at%BU）でも報告[38]されており、窒化物燃料でも同様に発生すると推定できる。つまり、窒化物燃料と酸化物燃料のFPガス放出メカニズムは共通しており、窒化物燃料の場合もあるしきい燃焼度を超えると急速なFPガス保持能力の低下が起こり、FPガス放出の顕著な増大現象が発生すると予想される（しきい燃焼度は燃料温度レベルにも依存すると推定される）。実際に、約16at%BUまで照射された窒化物燃料にはFPガス気孔と結晶粒がそれぞれ微細な大きさで分散した燃料組織（図7 [39]）が観察されている。しかし、現時点では窒化物燃料のしきい燃焼度は不明である。以上のように、燃焼度10at%BUを超える領域のFPガス放出率を推定することは困難であり、Na ボンドを採用した場合20～100%、He ボンドを採用した場合30～100%の範囲にあると大きな幅を持った予想にならざるをえない。

#### 4.FCCI 挙動

##### (1) 被覆管鋼種

調査した結果では、FCCI 挙動に関する情報はオーステナイト系鋼に限られており、フェライト系鋼被覆管を用いた炉外加熱試験結果と照射試験データは BREST-300 の例を除き見当たらない。フェライト系鋼を被覆管に採用する場合は、炉外加熱試験と照射試験によってデータ取得を取得していく必要がある。

##### (2) 被覆管と U・Pu との共晶

SUS316 被覆管を金属ウラン相が存在する条件で照射 (6.3at%BU まで) したところ、共晶反応と見られる溶融共晶組織が観察された例がある [17]。図 8 は、UN(a) と PuN(a) のそれぞれ二元系状態図を示している [15]。図 8 のように窒化物燃料は 1200℃以下では組成幅を持たず、亜化学量論組成の燃料の場合に製造段階で存在する金属相が被覆管と接触して共晶反応に至ったと推定される。

##### (3) 被覆管の窒化

SUS304 被覆管を最高 795℃で約 16at%BU まで熱中性子炉で照射した場合も全く変化が見られず (図 9 (a))、EPMA と化学分析を行っても被覆管への FP 侵入と窒素含有量増加は認められなかったとの報告 [39] がある。しかも、Na ボンドに対する結果であり、Na ボンドの方が He ボンドよりも燃料ペレットから被覆管への物質移行はより起こりやすいと考えられ、一般にボンド材による違いは無視しよいと考えられる。

EBR-II 照射試験において、SUS304 被覆管の場合に観察された変色層が窒化層ではないかとの懸念 [39] があったが、SUS316 被覆管を用いた場合は断面の硬度変化がなかったことが報告されている [40]。

##### (4) FP と被覆管との反応

燃料ペレットと SUS304 被覆管との接触面に変色層 (Fission-Recoil-Zone) が認められたとの報告 [39] がある (図 9 (b))。また、被覆管温度が 1000℃を超える熱中性子炉照射の場合、被覆管の腐食は観察されていないが、燃料表面あるいは燃料ペレットクラック内面に被覆管構成元素との反応生成物が観察されている [39]。以上の情報に基づくと、窒化物燃料の場合、強度特性に影響を及ぼすような FP と被覆管との反応は考慮しなくてもよいようである。

##### (5) 鉛ボンドの場合の特異現象

鉛ボンドの 12Cr 系フェライト鋼被覆管燃料ピンを 497~707℃で 5000 時間保持したところ、表面層で被覆管合金元素の再分布が生じて硬度は低下したが、燃料の移行は生じなかったとの報告がある [41]。

鉛リチウム共晶合金とステンレス鋼との共存性に関する調査結果 [42] によると、鉛リチウム環境におけるフェライト鋼被覆管の現実的な使用温度は 500℃以下と考えられている。上記の報告は燃料の移行がないことから、窒化物燃料に起因した FCCI 現象ではなく、鉛によるフェライト鋼被覆管の腐食現象と考えられる。

##### (6) 高燃焼度挙動予測

He ボンドと Na ボンドを採用した窒化物燃料の FCCI は、亜化学量論組成 (金属相生成) の場合や多量の不純物 (炭素・酸素) を含む場合のように製造上の問題がなけ

れば、オーステナイト系鋼被覆管の強度特性への影響は無視できるレベルと報告されている [4]。

窒化物燃料の場合、燃焼によって超化学量論組成側 ( $N/M > 1$ ) に移行 (表 1 [16]) するが、窒化による被覆管の強度特性への影響は小さいと推定される。酸化燃料の FCCI は主に被覆管表面酸化反応であるのに対し、窒化物/炭化物燃料の窒化/浸炭は母相への窒素 (炭素) の拡散浸透であり、発生機構が異なるためである。「常陽」許認可は PNC1520 被覆管を対象に MOX 燃料と同一評価式を採用しており、「常陽」燃焼度率約 8at%BU を超える高燃焼度領域に対しても MOX 燃料と同一の評価式を採用すれば保守側と考えられる。

## 5. 許容燃料スミア密度

### 5.1 燃料スエリングに関する照射実績データ

#### (1) データベース

窒化物燃料の燃料スエリングに関する実測値の報告はFP ガス放出率の場合よりも少ない上、定義（測定方法）がまちまちであり、データ整理すら難しいのが実際である。収集できたデータ点数は、欧州の5点（SILOE-GOCAR 試験 [43]）以外は米国のETR・MTR・EBR-IIにおける照射実績 [17,26,39,44 etc.] が圧倒的である。窒化物燃料の燃料スエリングもFP ガス放出と同様に温度に依存することが知られており、米国データの一部とGOCAR データには燃料温度評価結果が対応している。

窒化物燃料の燃焼にともなう燃料スエリング率については、下記のように多くの報告（公開資料のみ）がある。

|                |  |
|----------------|--|
| Medovedeva [2] | 1.9~2.5%/at%BU (燃料温度 1850°C)                     |
| Kochetkov [4]  | 1.7%/at%BU                                       |
| 大道 [14]        | ~1.5%/at%BU(Free)                                |
| Blank [18]     | 1.5%/at%BU                                       |
| Lyon [31]      | 1.5%/at%BU (推奨値)                                 |
| Bauer [40,45]  | 1.83%/at%BU(Free), 1.44(Restrained)%/at%BU (実験値) |
| Watanabe [46]  | 1.2~1.6%/at%BU (UC,UCN,UN を総括しての実験値)             |

燃料温度との対応あるいは被覆管からの拘束の有無が十分明確でない報告もあるのが実際であるが、1.2~2.5%/at%BU の範囲にある。

#### (2) 相関式

窒化物燃料の燃料スエリング相関式はRoss[47]による(5-1)式があり、相対密度・燃焼度・温度の関数である。相関式のデータベース範囲は相対密度90~98%TD、燃焼度0.05~4.58at%BU、燃料平均温度927~1327°Cである。

$$\frac{\Delta V}{V} = 4.7 \times 10^{-11} T_{fave}^{3.12} B^{0.83} TD^{0.5} \quad (5-1)$$

ここで、 $\Delta V/V$ 、TD、B、 $T_{fave}$  はそれぞれ下記のとおりである。

$$\frac{\Delta V}{V} \quad \text{燃料スエリング (\%)}$$

$T_{fave}$  : 燃料平均温度 (K)

B : 燃焼度 (at%BU)

TD : 相対密度 (%TD)

### 5.2 予測評価

#### (1) 相関式と燃料スエリング率報告値による高燃焼度までの外挿計算

図10は、燃料平均温度レベルに着目し、収集した実験データと3.2(1)のモデルケースによる計算値とを比較した結果である。燃料スミア密度を80%TDとしても吸収できる最大の燃料スエリング量は約20%である。Ross式のデータベースは約5at%BUと1327°Cが上限なので、5at%BUを超える領域と1600°Cに対する計算値は信頼性に乏しい。図10を見るかぎりLyon[31]が推奨するようにNaボンドを使用して燃料中心温

度を 1200℃未滿に抑えない限り、10at%BU の達成は困難であるように見える。

燃料スミア密度 80%TD に対して 1.2~2.5%/at%BU の燃料スエリング率を仮定すると、達成できる燃焼度は約 8~17at%BU にとどまる。

NIMPHE 照射試験で想定している 1%/at%BU の燃料スエリング率が確性されれば、約 20at%BU が達成できる計算になる。

## (2) 燃料スエリングメカニズムと高燃焼度挙動予測

燃料スエリング（燃焼による体積変化）の原因は、固体 FP と FP ガスの寄与に大別できる。固体 FP としては、アルカリ土類、4d 金属、ランタニドがある、窒化物燃料では一窒化物あるいはアクチニドとの金属間化合物を形成し [15]、固溶または第 2 相として析出して燃料スエリングの原因となる。FP ガスによる燃料スエリングは、3.2(3) で解説した FP ガス放出メカニズムと関係しており、結晶粒内あるいは結晶粒界に生成したガスバブルによる体積変化である。図 1 1 のように FP ガス放出率と燃料スエリング挙動との関係をプロットしてみると、両者には相関が認められ、FP ガス放出率と燃料スエリング量がよりよい相関を示す点が注目される。

燃料温度が高いほどガスバブルの生成・成長・合体が顕著になるため、燃料スエリングは大きくなる傾向がある。なお、ガスバブルが押しつぶされるような外部からの拘束が働く（例えば、FCMI が始まる）と燃料スエリング率は小さくなる [32]。

窒化物燃料の燃料ペレット外周部で観察されたような FP ガス保持能力がしきい燃焼度以上で急速に低下する現象が窒化物燃料でも生じれば、FP ガス放出率は急速に増大するが、燃料スエリングは飽和する可能性がある。図 1 2 (a)[48] は、炭化物燃料 [49] と窒化物燃料 [50] の燃料スエリング相関式を比較している。窒化物燃料と炭化物燃料の照射挙動の類似性を考慮すると、窒化物燃料でも高温では FP ガス放出が顕著になって燃料スエリングが飽和傾向を示すことが期待されるが、飽和レベルは 30%より大きくなる可能性が強い（なお、炭化物燃料の相関式は 5.5at%BU までのデータに基づくが、EBR-II 照射によって  $\leq 16\text{at}\%$ かつ  $\leq 1727^\circ\text{C}$  までの範囲に対する有効性が確認されている：図 1 2 (b)[48]）（UO<sub>2</sub> では約 20%程度との報告がある [33]）。

## (3) 許容燃料スミア密度

窒化物燃料の燃料スエリング挙動については照射試験データが極端に少なく、燃料スエリング率の想定値あるいは実験値は 1~2%/at%BU と非常に幅があるのが現実である。現時点では燃焼度 10at%BU（ピーク値）に対する許容燃料スミア密度として約 80%TD を設定するのが限界であり、より高燃焼度の目標値に対して設定するのは困難である。

## 6. 高温水との共存性

UNの酸化反応については製造性の観点からある程度の報告はあるが、高温水との反応に言及した報告は1960年代後半に限られる。

Blankのレビュー[17]によると、UNと水との反応は(6-1)式で表わされる。



反応速度が化学量論組成（金属相と $U_2N_3$ 相のいずれも耐食性に有害）に依存することが報告[51]されている。UN粉末は100℃の沸騰水中の反応は有意ではなく、低圧水蒸気（30Torr）の場合は300℃超で反応が開始されるが、高圧水の場合は200-250℃で有意な反応が進行するとの報告がある[52]。また、PuNは常温においても容易に水と反応する[52]。図13[52]はUN粉末の30Torrの水蒸気中の反応速度を比較しているが、反応はかなり急速である。

80atmの高温水とUN粉末との共存性については、180℃から反応が始まり、220℃を超えると急速に進行する[53]。単結晶の場合は、230℃未満では反応しないが、280℃を超えると急速に反応する[53]。焼結ペレットでも約200℃で反応が始まり、粒界に沿って反応が起こり、ペレットの剥離を生じる[53]。

UNの酸化過程（水との反応も含む）で中間相として $U_2N_3$ が生じて $UO_2$ - $U_2N_3$ -UNの3層構造が形成するとの報告[52]がある。中間相が酸化反応で遊離した窒素の拡散放出を遅らせる効果と3相の結晶格子の配向性がよい点が指摘[52,53]されているが、実際には粒界に沿った反応によるペレットの剥離が発生することから、保護膜（かさぶた）の役割は期待できないと考えられる。PuNとPuO<sub>2</sub>は結晶構造が異なるため、保護膜（かさぶた）の効果は全く期待できない[52]。

現時点では超臨界圧水（>373.95℃and>22.064MPa）[54]と窒化物燃料との共存性を実験した例は見当たらない。しかし、窒化物燃料は高温水蒸気に対して非常に活性であり、軽水炉あるいは超臨界圧水炉を発展させた高速炉概念に窒化物燃料を適用することためには、燃料破損の検出システム、破損拡大の抑制方策等の技術開発が必要と考えられる。



## 7.まとめ

### 7.1 燃料ピン機械設計評価 (CDF 評価) への反映

窒化物燃料の FP ガス放出挙動と FCCI 挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域までの予測評価を行った。

#### (1) FP ガス放出挙動に関する調査・検討の結果

燃焼度が 10at%BU までの範囲では、He ボンドを採用した低相対密度型の燃料ピンの場合 (燃料平均温度 $\sim$ 1600 $^{\circ}$ C) は 30%、Na ボンドを採用した高相対密度型の燃料ピンの場合 (燃料平均温度 $\sim$ 1000 $^{\circ}$ C) は 20%が上限と判断してよいと考えられた。しかし、現時点では燃焼度 10at%BU を超える領域の FP ガス放出率を推定することは困難であり、Na ボンドを採用した場合 20 $\sim$ 100%、He ボンドを採用した場合 30 $\sim$ 100%の範囲にあると大きな幅を持った予想にならざるをえない。

#### (2) FCCI 挙動に関する調査・検討の結果

He ボンドと Na ボンドを採用した窒化物燃料の FCCI は、亜化学量論組成 (金属相生成) の場合や多量の不純物 (炭素・酸素) を含む場合のように製造上の問題がなければ、オーステナイト系鋼被覆管の強度特性への影響は無視できるレベルと推定された。

### 7.2 燃料ピン仕様選定への反映 (燃料スエリング挙動に関する調査・検討の結果)

窒化物燃料の燃料スエリング挙動に関する過去の報告例を整理し、実績範囲を明確化するとともに、高燃焼度領域に対する予測評価を行った。

窒化物燃料の燃料スエリング挙動については照射試験データが極端に少なく、燃料スエリング率の想定値あるいは実験値は 1 $\sim$ 2%/at%BU と非常に幅があるのが現実である。現時点では燃焼度 10at%BU (ピーク値) に対する許容燃料スミア密度として約 80%TD を設定するのが限界であり、より高燃焼度の目標値に対して設定するのは困難であった。

### 7.3 水冷却オプション特有の問題に関する調査 (水反応に関する調査・検討の結果)

軽水炉あるいは超臨界圧水炉を発展させた高速炉概念に関連し、窒化物燃料と高温水との共存性に関する過去の報告例を整理した。

窒化物燃料は高温水蒸気に対して非常に活性であり、軽水炉あるいは超臨界圧水炉を発展させた高速炉概念に窒化物燃料を適用することためには、燃料破損の検出システム、破損拡大の抑制方策等の技術開発が必要と考えられた。

## 8. 参考文献・参考資料

- (1) IAEA, "Status of Liquid Metal Cooled Fast Reactor Technology," IAEA-TECDOC-1083 (1999)
- (2) 日本原子力産業会議、「日口 FBR 材料照射影響セミナー原産代表団報告書」、(1992)
- (3) J.H.Kittel et.al., "History of Fast Reactor Fuel Development", Journal of Nuclear Materials, Vol.204, P.1-13 (1993)
- (4) L.A.Kochetkov et.al., "Operating Experience of Fast Breeder Reactors in the USSR", Proceedings of International Conference on Fast Reactor and Related Fuel Cycles (FR'91), Kyoto Japan, October 28-November 1, 1991, P.2.6-1-2.6-10 (1991)
- (5) H.P.Alder et.al., "Advanced Fuel for Fast Breeder Reactors Produced by Gelation Methods", IAEA Technical Committee Meeting on Advanced Fuel for Fast Breeder Reactor, Vienna Austria, November 3-5, 1987 (1987)
- (6) C.Prunier et.al., "Fabrication Experience with Mixed Nitride Fuels", Transactions of the ANS Winter Meeting, San Francisco, California, November 1989, P.318 (1989)
- (7) H.Bailly et.al., "Alternate Fuels for the French Fast Breeder Reactors Program", Symposium on Nuclear Fuel Fabrication, NUFAB 1988, CEA-CONF-9579, Bombay India, December 12-14, 1988 (1988)
- (8) C.Prunier et.al., "European Collaboration on Mixed Nitride Fuel", Proceedings of International Conference on Fast Reactor and Related Fuel Cycles (FR'91), Kyoto Japan, October 28-November 1, 1991, P.15.9-1~15.9-12 (1991)
- (9) H.Bernard, "Advanced Fuel Fabrication", Journal of Nuclear Materials, Vol.169, P.105-111 (1989)
- (10) TUAR-88 (EUR12385EN) (1988)
- (11) J.L.Faugere et.al., "The CEA Helium-Bonded Nitride Fuel Design", Proceedings of International Conference on Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants, (ANP'92), Tokyo Japan, October 25-29, 1992, Volume III, P.28.1-6 (1992)
- (12) TUAR-91 (EUR144935EN) (1991)
- (13) H.J.Matzke, "Science of Advanced LMFBR Fuels", North Holland (1986)
- (14) 半田宗男ら、「高速炉用燃料の特性および照射挙動 U-Pu 混合酸化物、炭化物、窒化物、金属」、日本原子力学会誌, Vol.31, No.8, P.886-893 (1989)
- (15) 「次世代燃料」研究専門委員会、「プルトニウム燃料工学 第4章プルトニウムおよびアクチニド燃料 (4.4 窒化物及び炭化物燃料)」、社団法人日本原子力学会 (1998)
- (16) 「極限燃料技術」研究専門委員会、「核燃料工学－現状と展望－」、社団法人日本原子力学会 (1993)
- (17) A.A.Bauer, "Nitride Fuels: Properties and Potentials", Reactor Technology, Vol.15, No.2, Summer, P.87-104 (1972)

- (18) H.Blank and H.Bokelund,"Problems Expected in the Future Fuel Cycle Development of Dense Fuels for FBRs", IAEA-TECDOC-352 (1985)
- (19) H.Blank,"Materials Science and Technology Vol.10A Chapter 4 : Nonoxide Ceramic Nuclear Fuels in Nuclear Materials", edited by B.R.T.Frost, VCH Publishers Inc. (1994)
- (20) R.J.Herbst and R.W.Stratton,"LMR Advanced Fuels-(U,Pu)-Carbide Fabrication, Performance and Reliability", Proceedings of American Nuclear Society International Conference on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson Arizona USA, September 7-11, 1986, P.7-1-14 (1986)
- (21) H.Blank et.al.,"Behavior of Advanced Fast-Breeder Fuels at High Power Density", IAEA-CN-36/369, P.511-526 (1977)
- (22) C.Ronchi and C.Sari,"Swelling Analysis of Highly Rated MX-Type LMFBR Fuels. 1. Restructuring and Porosity Behavior", Journal of Nuclear Materials, Vol.58, P.140-152 (1975)
- (23) H.Blank et.al.,"Study of Advanced Fuels in Highly Rated He-Bonded Pins", Nuclear Energy Maturity, Progress of Nuclear Energy Series, Pergamon Press, Oxford and New York, P.380-402 (1976)
- (24) Y.Arai et.al.,"Fabrication of Uranium-Plutonium Mixed Nitride Fuel Pins for Irradiation Tests in JMTR", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.30, No.8, P.824-830 (1993)
- (25) 鈴木康文ら、「第1回 JMTR 照射用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料ピン (88F-5A) の製作」: JAERI-M 90-116 (1990)
- (26) E.K.Storms,"An Equation which Describes Fission Gas Release from UN Reactor Fuel", Journal of Nuclear Materials, Vol.158, P.119-129 (1988)
- (27) M.B.Weinstein et.al.,"A Fission Gas Release Correlation for Uranium Nitride Fuel Pins", NASA TN D-7401 (1973)
- (28) R.Baars,"A Simple Code for Analysis of Uranium Nitride Fuel Pins", 4th Symposium on Space Nuclear Power Systems, Albuquerque NM USA, January 12-16 1987 (1987)
- (29) J.K.Thomas et.al.,"Material Property and Irradiation Performance Correlations for Nitride Fuels", 5th Symposium on Space Nuclear Power Systems, Albuquerque New Mexico USA, January 11-14, 1988, P.535-541 (1988)
- (30) K.Richter and C.Sari,"Investigation of the Operational Limits of Uranium-Plutonium Nitride Fuels", Journal of Nuclear Materials, Vol.184, P.167-176 (1991)
- (31) W.F.Lyon et.al.,"Advanced Liquid Metal Reactor Technology with Nitride Fuels", Proceedings of International Conference on Fast Reactor and Related Fuel Cycles (FR'91), Kyoto Japan, October 28-November 1, 1991, P.14.8-1~14.8-10 (1991)
- (32) 社団法人日本金属学会、「原子力材料 講座・現代の金属学 材料編8」、社団法人日本金属学会 (1989)

- (33) C.M.Cox et.al., "Fuel Systems for Compact Fast Space Reactors (Chapter 36)", Space Nuclear Power Systems 1984, edited by M.S.El-Genk and M.D.Hoover, Orbit Book Company, Malabar, FL, P301-306 (1985)
- (34) M.Mogensen et.al., "An Experimental Study of the Distribution of Retained Xenon in Transient-Tested UO<sub>2</sub> Fuel", Journal of Nuclear Materials, Vol.199, P.85-101 (1993)
- (35) K.Une et.al., "Effect of Irradiation-Induced Microstructural Evolution on High Burnup Fuel Behavior", Proceedings of the 1997 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland Oregon USA, March 2-6 1997, P478-489 (1997)
- (36) 「次世代燃料」研究専門委員会、「プルトニウム燃料工学 第5章軽水炉燃料の高度化の現状 5.2 燃料挙動」、社団法人日本原子力学会 (1998)
- (37) K.Maeda et.al., "Fission Product Behavior in Peripheral Region of FBR Mixed-Oxide Fuel Pellet under High Burnup Condition", International Workshop on Interfacial Effects in Quantum Engineering Systems (IEQES-96), Mito Ibaraki Japan, August 21-23, 1996, PB-04 (1996)
- (38) I.L.F.Ray and H.j.Matzke, "Observation of a High Burnup Rim-Type Structure in an Advanced Plutonium-Uranium Carbide Fuel", Journal of Nuclear Materials, Vol.250, P.242-243 (1997)
- (39) A.A.Bauer et.al., "Mixed-Nitride Fuel Irradiation Performance", Proceedings on Fast Reactor Fuel Element Technology, P.785-817 (1971)
- (40) A.A.Bauer et.al., "Helium- and Sodium- Bonded Mixed-Nitride Fuel Performance", Proceedings of International Conference on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey California USA, March 5-8, 1979, P.827-841 (1979)
- (41) V.V.Orlov et.al., "Lead-Cooled Reactor Core, Its Characteristics and Features", Proceeding of International Topical Meeting on Advanced Reactors Safety (ARS'94), Pittsburg PA USA, April 17-21 1994, Vol.1, P.516-523 (1994)
- (42) 皆藤威二、「鉛冷却炉における炉心材料の腐食に関する調査・検討」：JNC TN9420 2000-002 (2000)
- (43) C.Ronchi et.al., "Reactor Performance of MC,MN, MCN and MCO- Results of the Comparative Irradiation Experiments GOCAR-", Eur. Appl. Res. Rept.-Nucle Sci. Technology. Nos.1 and 2, P.323-386 (1984) (EUR 9186 EN)
- (44) W.M.Pardue et.al., "Potential of Mixed Nitride (U,Pu)N as a Fast Reactor Fuel", American Ceramic Society, Special Issue, No.2, P.116 (1969)
- (45) A.A.Bauer et.al., "Mixed-Nitride Fuel Performance in EBR-II", Proceedings of Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson Arizona USA, October 10-13, 1977, P.299-312 (1977)
- (46) H.Watanabe et.al., "Irradiation Experiments of Uranium Carbide, Carbonitride and Nitride Fuels in JAERI", Proceedings of Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson Arizona USA, October 10-13, 1977, P.361-374 (1977)

- (47) S.B.Ross et.al., "Uranium Nitride Fuel Swelling Correlation",  
Journal of Nuclear Materials, Vol.170, P.169-177 (1990)
- (48) S.B.Ross et.al., "A Comparison of Uranium Nitride and Mixed Carbide Fuels Swelling",  
5th Symposium on Space Nuclear Power Systems, Albuquerque New Mexico USA,  
January 11-14 1988, P.547-551 (1988)
- (49) H.Zimmermann, "Investigation of Swelling of U-Pu Mixed Carbide",  
Journal of Nuclear Materials, Vol.105, P.56-61 (1982)
- (50) M.S.El-Genk et.al., "Uranium Nitride Fuel Swelling and Thermal Conductivity",  
4th Symposium on Space Nuclear Power Systems, Albuquerque New Mexico USA,  
January 12-16 1987, P313-317 (1987)
- (52) M.Allbutt and R.M.Dell, "Chemical Aspects of Nitride, Phosphide and Sulphide Fuels",  
Journal of Nuclear Materials, Vol.24, P.1-20 (1967)
- (53) R.M.Dell et.al., "Hydrolysis of Uranium Mononitride",  
Trans. Faraday Soc.,63, P.1286-1294 (1967)
- (51) J.Bugl and A.A.Bauer, "Corrosion and Oxidation Characteristics of Uranium Mononitride",  
Nuclear Metallurgy, Vol.10, P.463-476 (1967)
- (54) 石樽顕吉ら、「水化学管理高度化の実績と将来課題」、日本原子力学会誌  
Vol.41, No.8, P.842-852 (1999)

表1 239Puの核分裂にともなう主なFPと化学形態

| 239Puの核分裂に伴う主なFPと化学形態 |                   |      |                                     |   |
|-----------------------|-------------------|------|-------------------------------------|---|
| FP                    | 量<br>(at.%)       | 燃料形態 |                                     |   |
|                       |                   | MC   | MN                                  |   |
| 不活性ガス                 | Xe                | 22.8 |                                     |   |
|                       | Kr                | 2.5  |                                     |   |
| 揮発性FP                 | Cs                | 19.2 |                                     |   |
|                       | Rb, Te, I         | 5.8  |                                     |   |
| アルカリ土類                | Sr, Ba            | 10.1 | BaC <sub>2</sub> , SrC <sub>2</sub> | Ba <sub>3</sub> N <sub>2</sub> , Sr <sub>3</sub> N <sub>2</sub> |
| 4d 金属及び Ag            | Zr                | 19.4 | } 一炭化物、二炭化物、三二炭化物及び複合炭化物            | } 一窒化物、U及びPuと金属間化合物   |
|                       | Mo                | 22.4 |                                     |   |
|                       | Ru                | 21.9 |                                     |   |
|                       | Pd                | 13.0 |                                     |   |
|                       | Y, Nb, Tc, Rh, Ag | 15.0 |                                     |   |
| ランタニド                 | Ce                | 12.8 | } 一炭化物及び二炭化物                        | } 一窒化物  |
|                       | Nd                | 13.8 |                                     |   |
|                       | La, Pr, Pm, Sm    | 16.3 |                                     |   |
|                       | Eu, Gd, Tb        |      |                                     |   |
| Δ x (at%)             |                   |      | Δ C ~ -0.7                          | Δ N ~ +2.1  |

出典 「極限燃料技術」研究専門委員会、「核燃料工学—現状と展望—」、  
社団法人日本原子力学会 (1993)

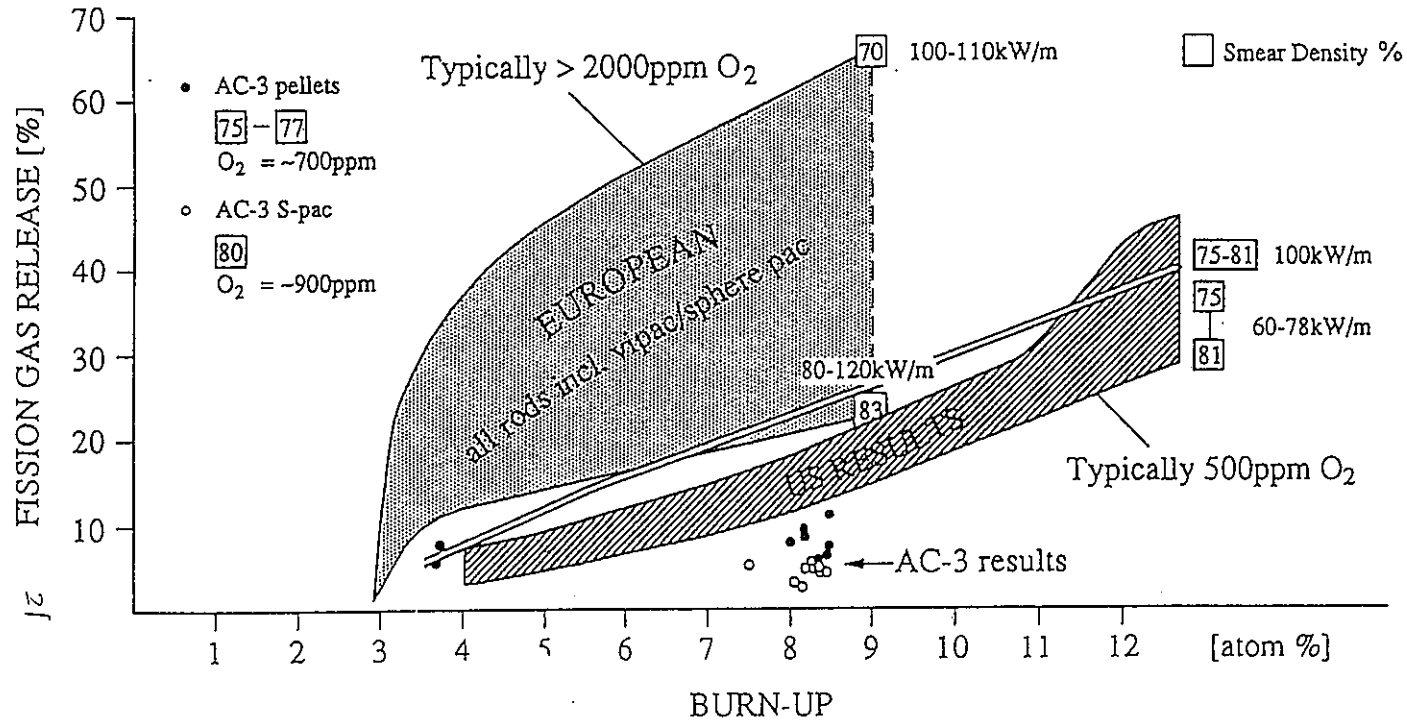


Figure 4-71. Comparison of fission gas release trends in mixed carbide fuels depending on burnup, source, rating, density, and oxygen levels; based on Herbst and Stratton (1986).

### 図1 炭化物燃料のFPガス放出挙動

出典 H.Blank, "Materials Science and Technology Vol.10A Chapter 4 : Nonoxide Ceramic Nuclear Fuels in Nuclear Materials", edited by B.R.T.Frost, VCH Publishers Inc. (1994)

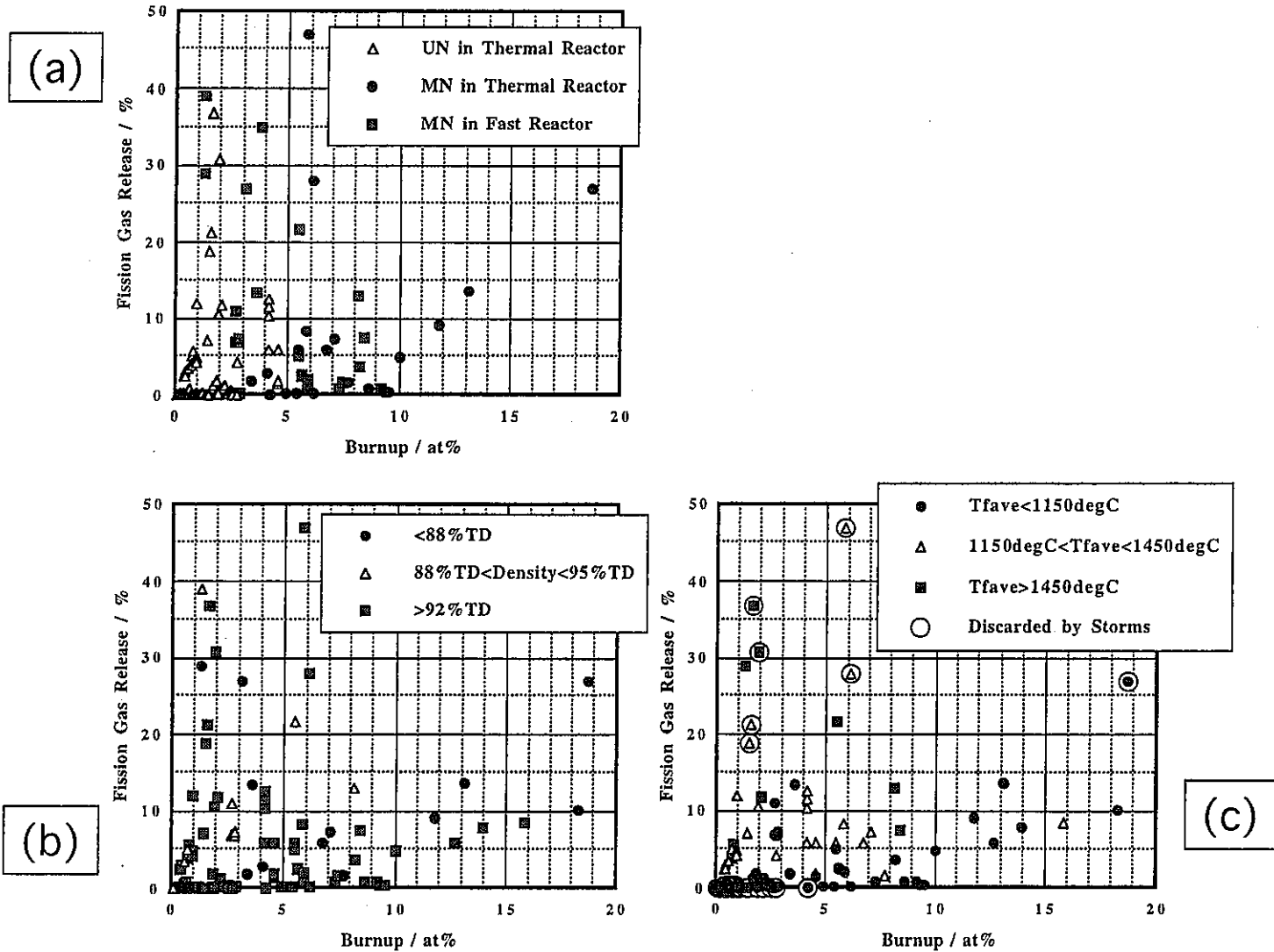


図2 窒化物燃料のFPガス放出率に及ぼす燃焼度・燃料ペレット相対密度・燃料平均温度の影響：その1



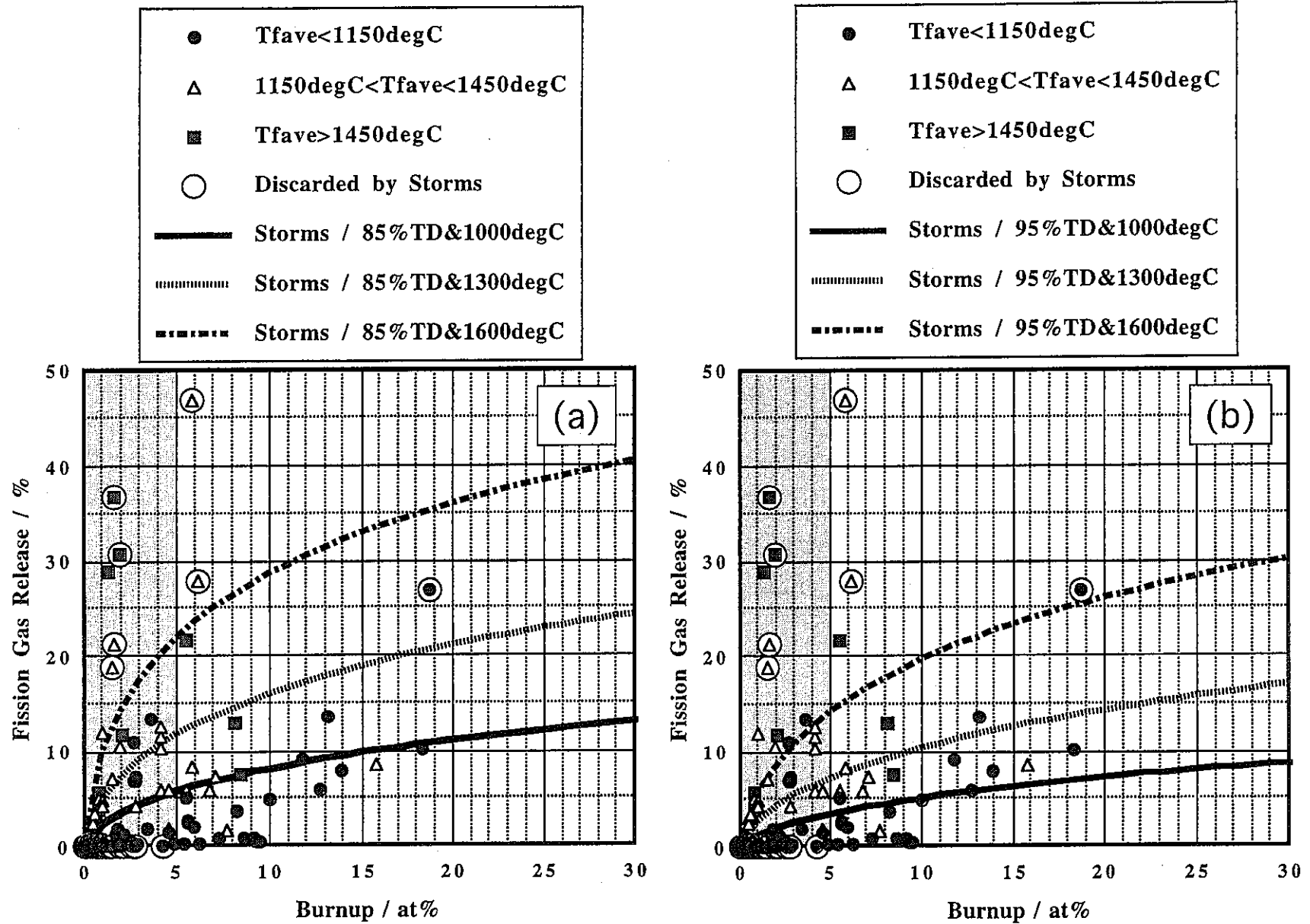


図3 窒化物燃料のFPガス放出率に関するStorms式計算値と実験データとの比較

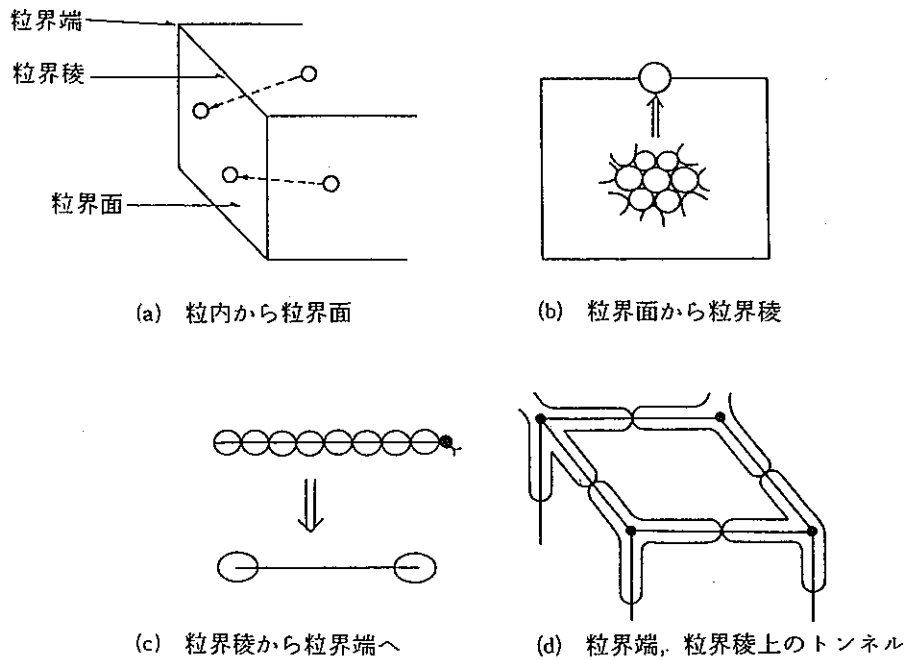


図4-36 立方形の結晶粒におけるFPガス気泡の移動模型

## 図4 核燃料におけるFPガス放出・燃料スエリングの基本挙動

出典 社団法人日本金属学会、「原子力材料 講座・現代の金属学 材料編8」、  
社団法人日本金属学会(1989)

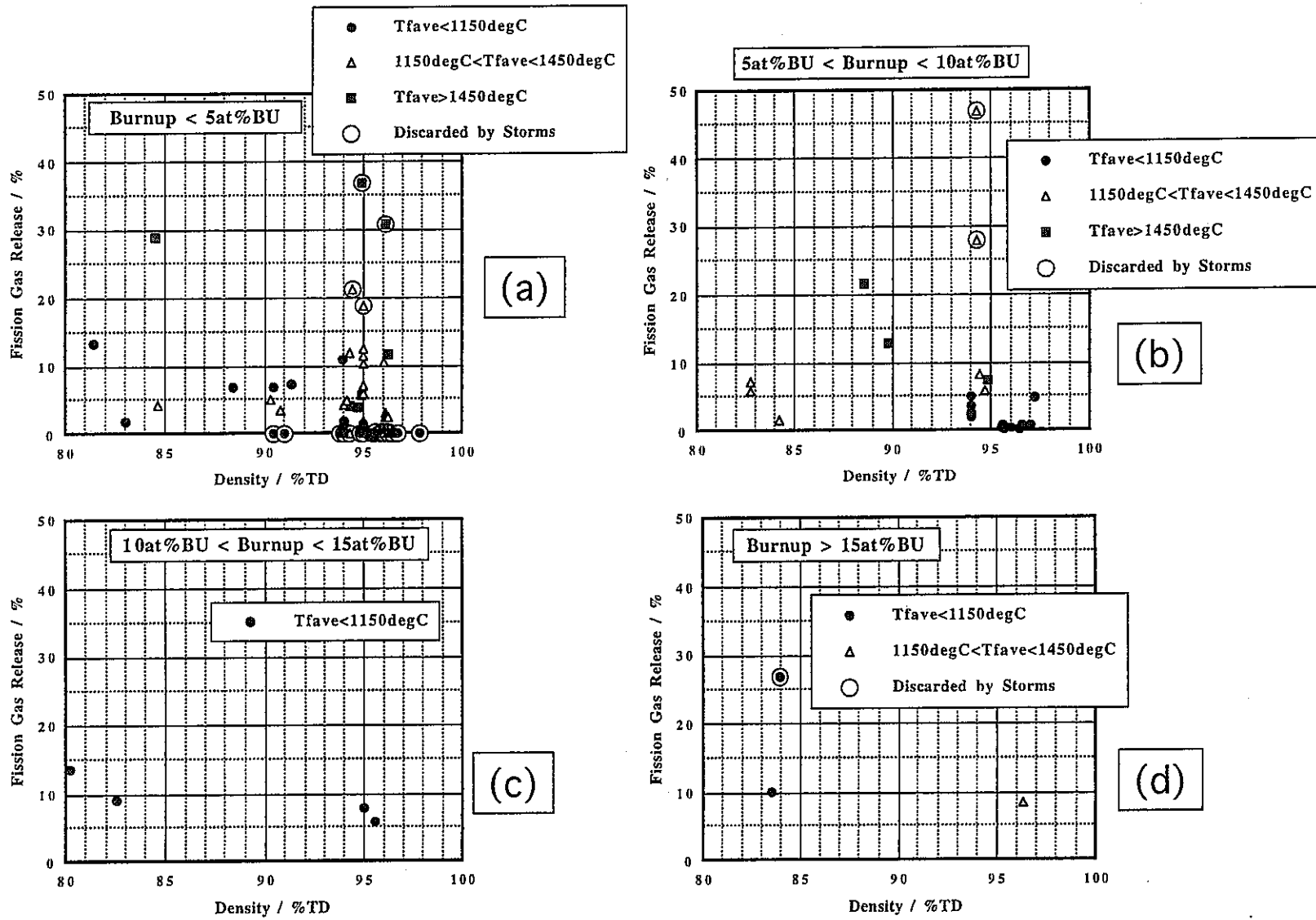


図5 窒化物燃料のFPガス放出率に及ぼす燃焼度・燃料ペレット相対密度・燃料平均温度の影響：その2

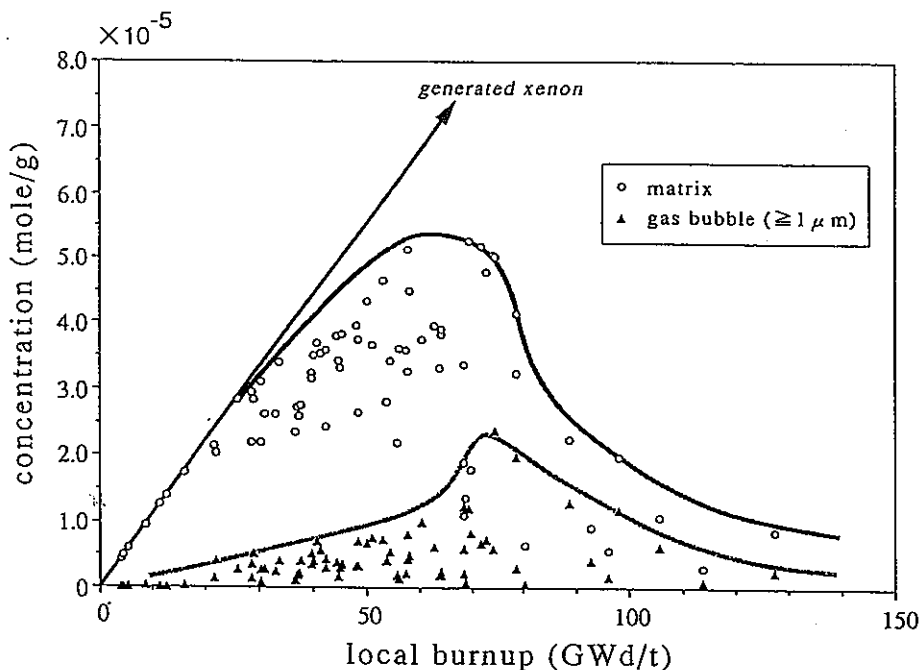


Fig.1 Retained xenon concentration in fuel matrix and gas bubbles (1 μ m) at pellet periphery as a function of local burnup

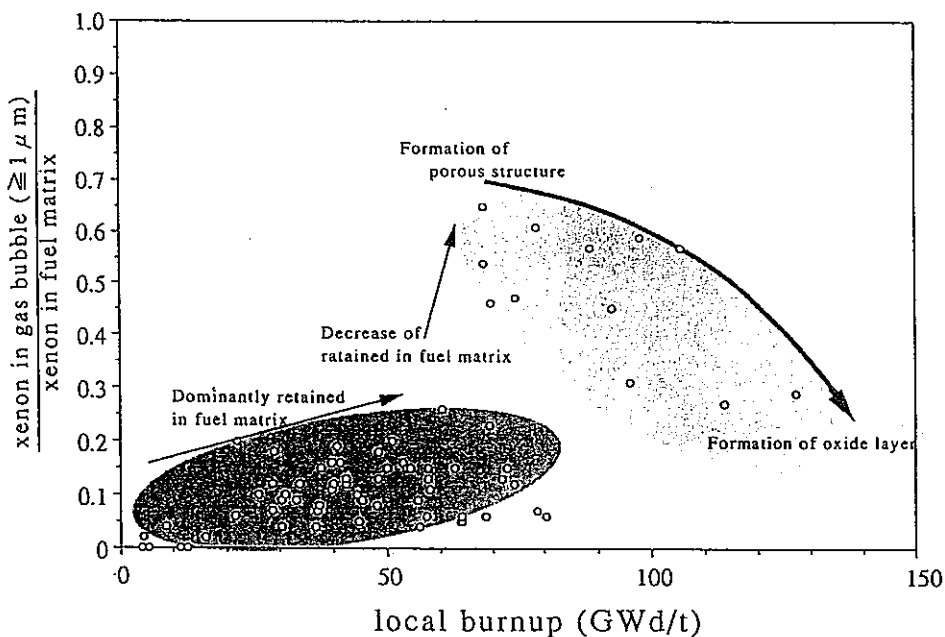


Fig.2 Ratio of concentration in fuel matrix to that in gas bubbles (1 μ m) at pellet periphery as a function of local burnup

### 図6 高速炉 MOX 燃料におけるリム効果

出典 K.Maeda et al., "Fission Product Behavior in Peripheral Region of FBR Mixed-Oxide Fuel Pellet under High Burnup Condition", International Workshop on Interfacial Effects in Quantum Engineering Systems (IEQES-96), Mito Ibaraki Japan, August 21-23, 1996, PB-04 (1996)

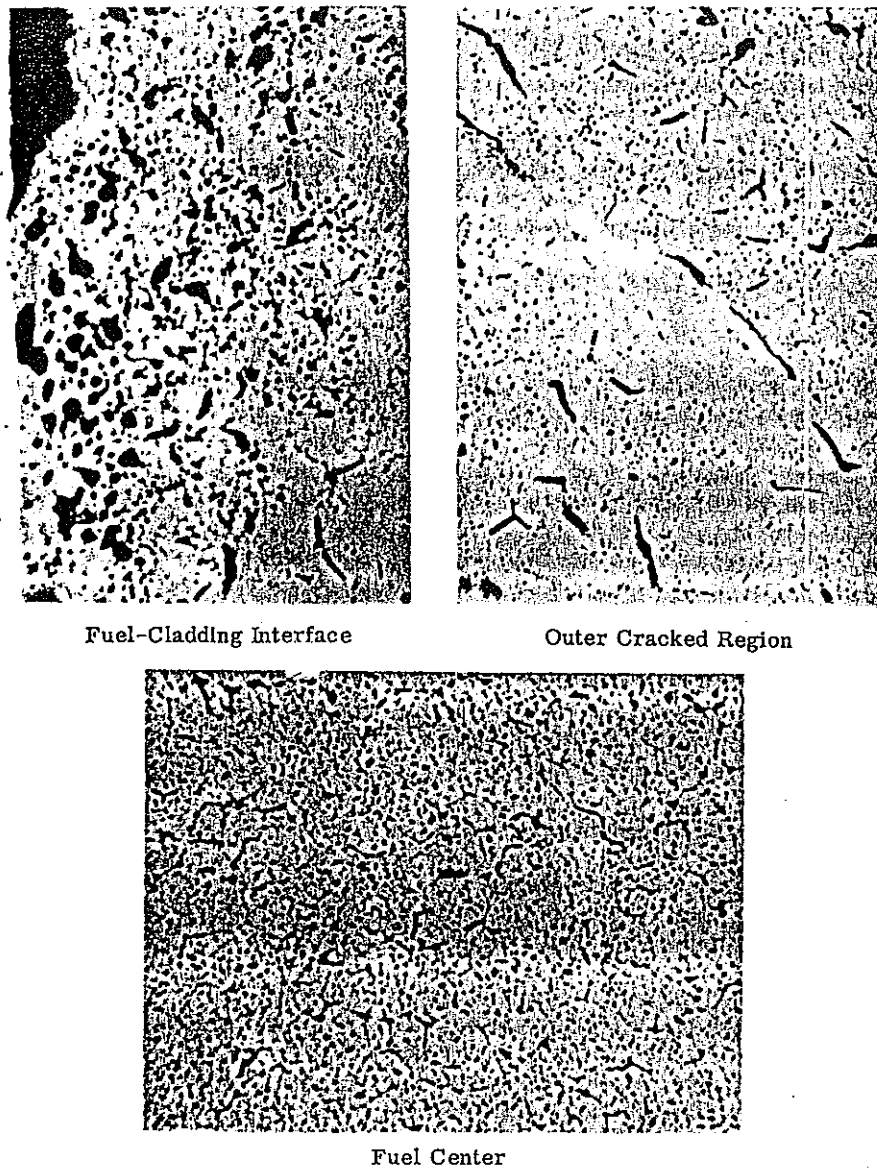


Fig. 4. Microstructures of irradiated, high-density, high-oxygen, (U,Pu)N fuel specimens (500 ×). Burnup: 123,000 MWd/MT, irradiation temperature  $\leq 1090^{\circ}\text{C}$ .

## 図 7 窒化物燃料の照射による燃料組織変化

出典 A.A.Bauer et al., "Mixed-Nitride Fuel Irradiation Performance", Proceedings on Fast Reactor Fuel Element Technology, P.785-817 (1971)

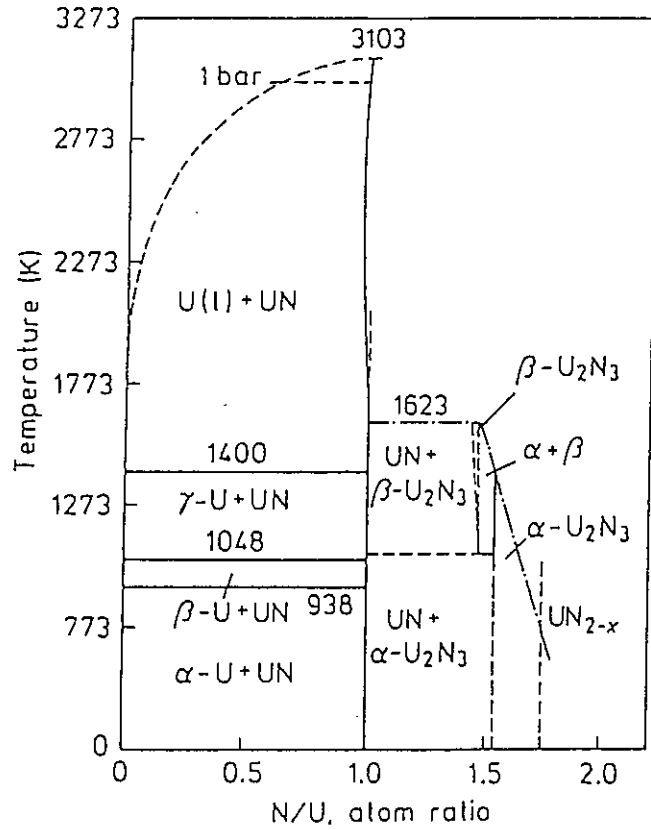


図 4.4-3 U-N 二元系状態図

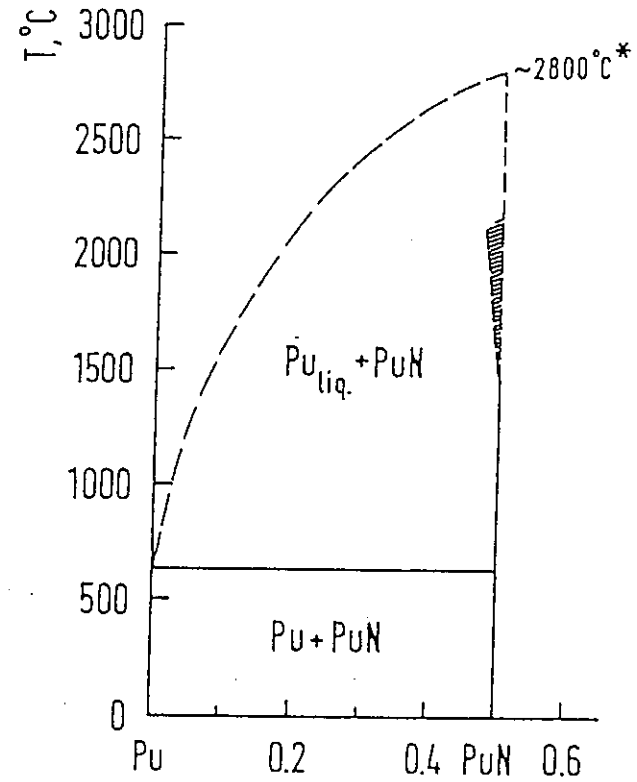


図 4.4-4 Pu-N 二元系状態図

### 図 8 UN と PuN の二元系状態図

出典 「次世代燃料」研究専門委員会、「プルトニウム燃料工学 第4章プルトニウムおよびアクチニド燃料 (4.4 窒化物及び炭化物燃料)」、社団法人日本原子力学会 (1998)



Fig. 10. Type 304 stainless-steel cladding sodium-bonded to (U,Pu)N fuel irradiated to 153,000 MWd/MTM burnup. 150 x.

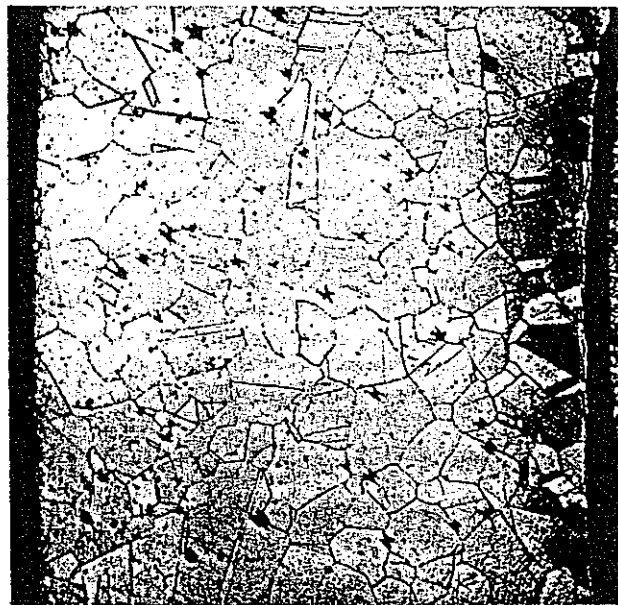


Fig. 16. Type 304 stainless-steel cladding of helium-bonded (U, Pu)N fuel pin irradiated in EBR-II. 150 x.

## 図 9 窒化物燃料における FCCI 挙動

出典

A.A.Bauer et.al., "Mixed-Nitride Fuel Irradiation Performance", Proceedings on Fast Reactor Fuel Element Technology, P.785-817 (1971)

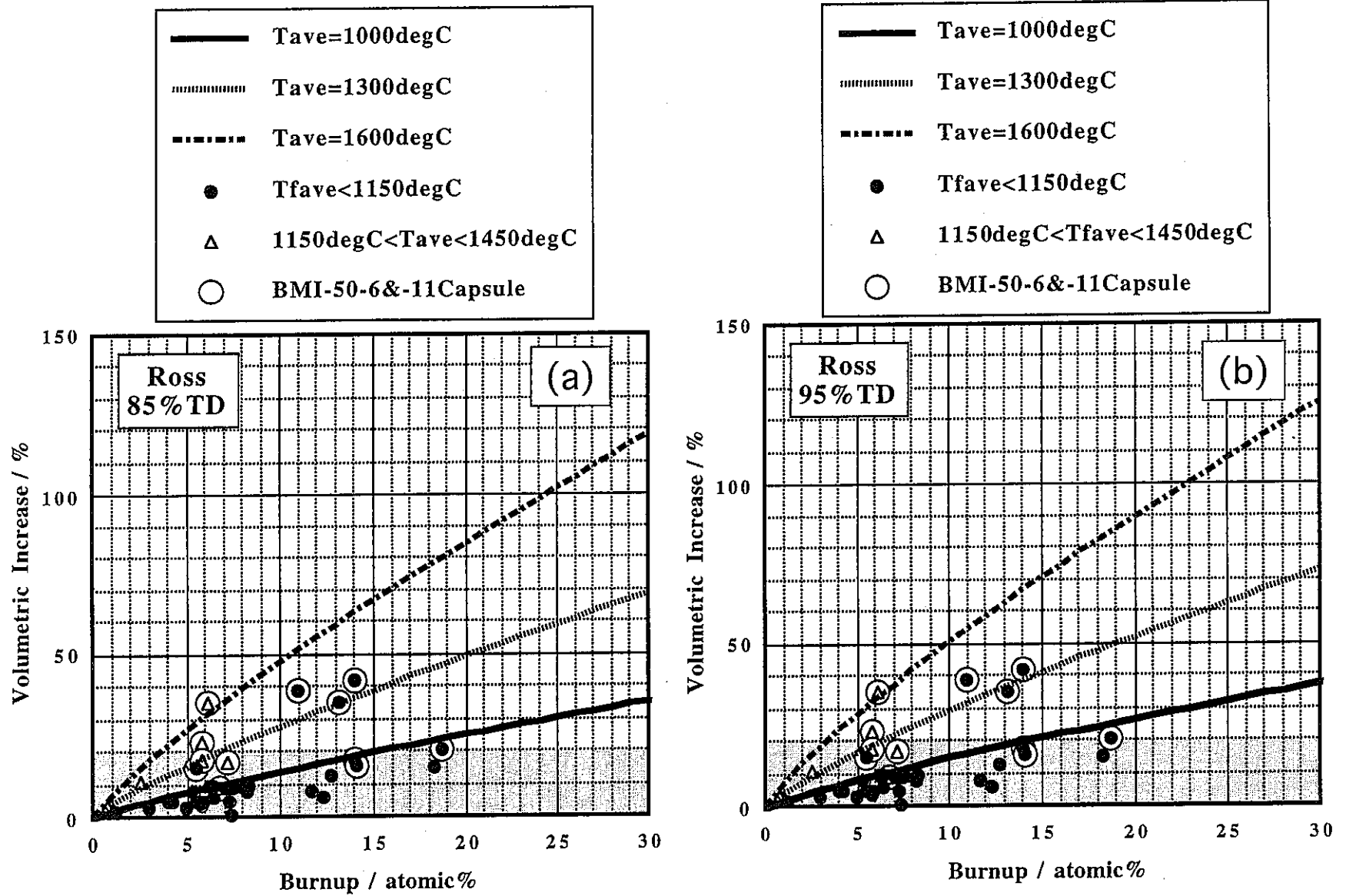


図 1 0 窒化物燃料の燃料スエリングに関するRoss式計算値と実験データとの比較



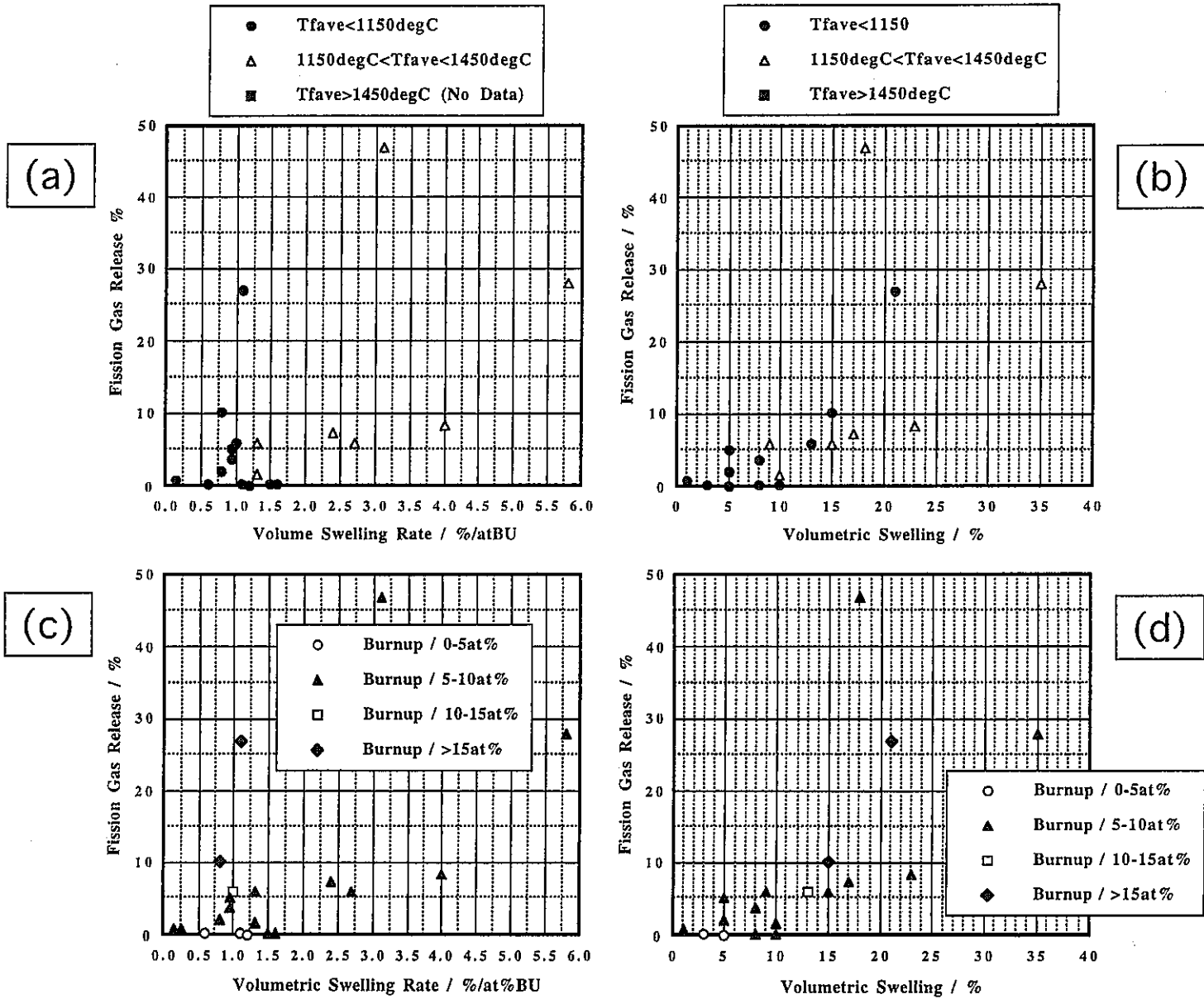


図 1 1 窒化物燃料のFPガス放出率と燃料スエリングに関する実験データの比較

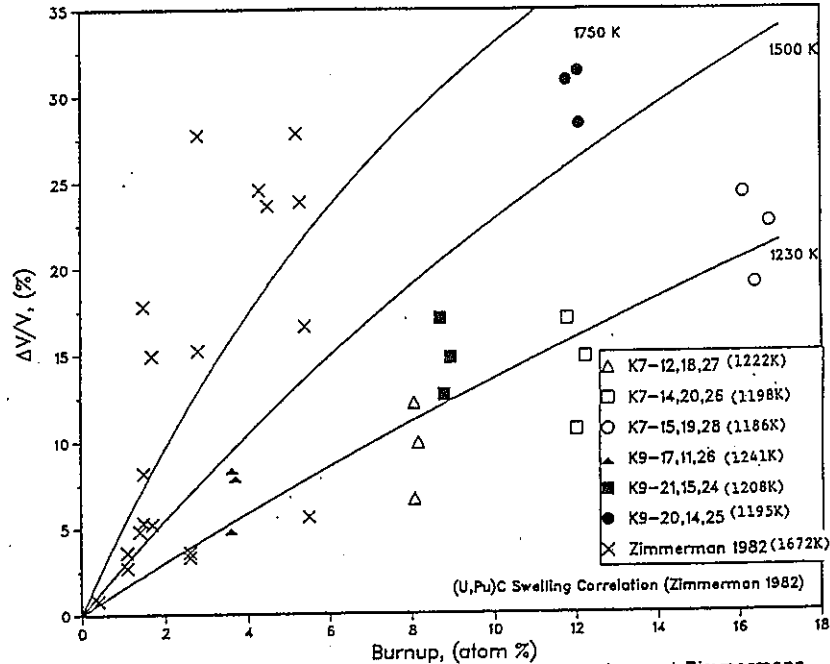


Figure 1. Comparison of Los Alamos K7 and K9 Series and Zimmermann (U,Pu)C Fuel Swelling Data.

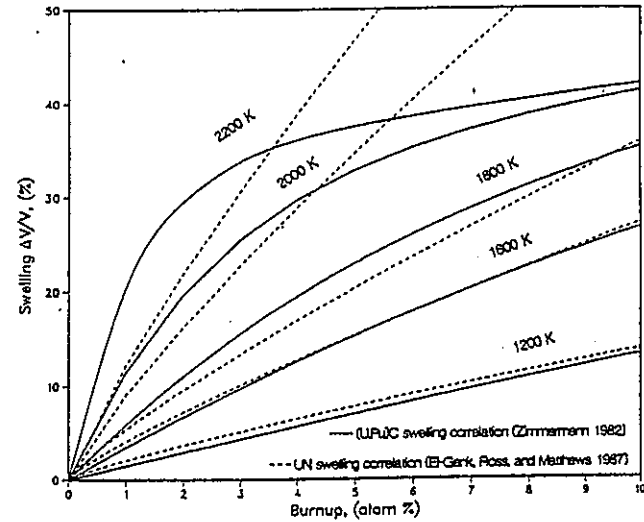


Figure 3. Comparison of UN and (U,Pu)C volumetric fuel swelling predictions up to 2200 K.

## 図 1 2 UN と (U,Pu)C の燃料スエリング挙動の比較

出典 S.B.Ross et.al., "A Comparison of Uranium Nitride and Mixed Carbide Fuels Swelling",  
 5th Symposium on Space Nuclear Power Systems, Albuquerque New Mexico USA,  
 January 11-14 1988, P.547-551 (1988)

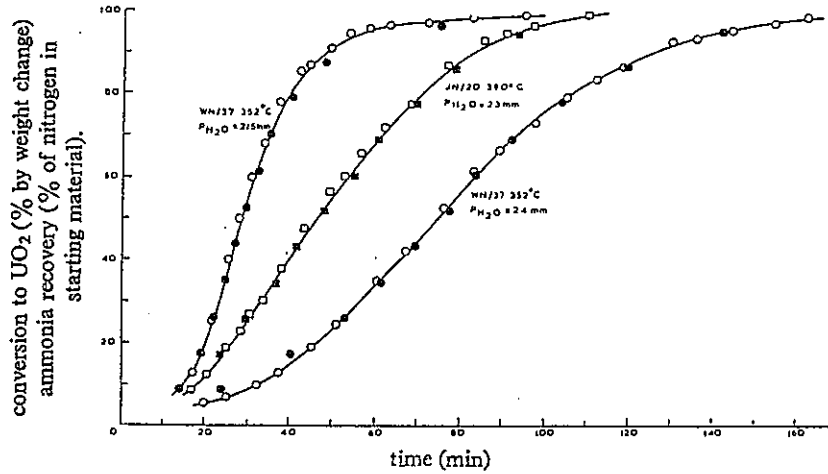


FIG. 1.—Hydrolysis of uranium mononitride by weight change (open symbols) and ammonia recovery (closed symbols)

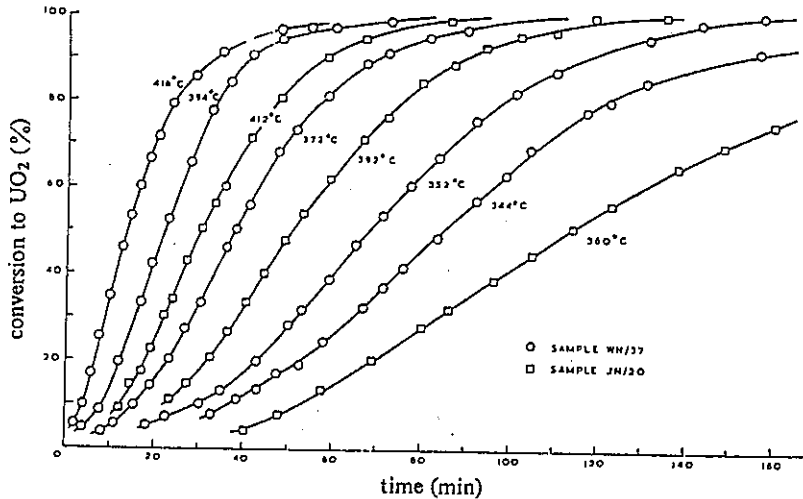


FIG. 2.—Hydrolysis of uranium mononitride powders in water vapour at 30 mm pressure (argon carrier gas).

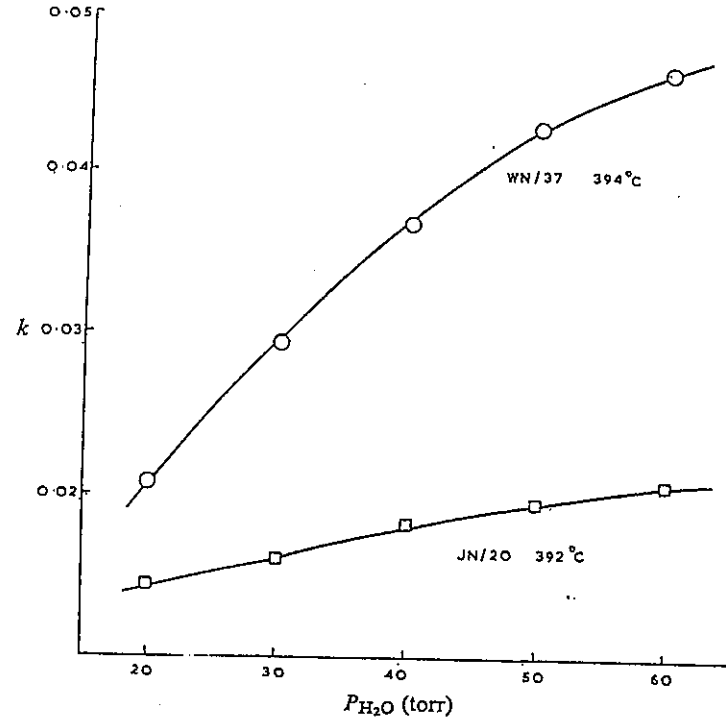


FIG. 3.—Variation of rate of hydrolysis of UN powders with water vapour pressure.

出典

R.M.Dell et al., "Hydrolysis of Uranium Mononitride",  
Trans. Faraday Soc., 63, P.1286-1294 (1967)

図 1 3 UN と水蒸気との共存性