

# 原子炉酸化物燃料における 気体状核分裂生成物の高温照射中挙動

Fission-gas Behavior of Nuclear Oxide Fuel  
under Irradiation at High Temperature

土井 彰\* 井上 清\* 谷口 薫\*  
Akira Doi Kiyoshi Inoue Kaoru Taniguchi

## 要 旨

東京原子力産業研究所の研究炉HTRで、常圧貫流形ガスループを用い原子炉酸化物燃料（二酸化ウラン・ペレット）を2,000°Cの高温に電気加熱した状態で熱中性子照射をした。傍熱時と中心加熱時における気体状核分裂生成物の高温照射挙動を調べて、次の研究結果を得ている。

- (1) 二酸化ウランの等軸晶成長が均一温度下で進行している場合、気体状核分裂生成物の放出量は2,000°C付近では結晶成長とは無関係であって、拡散式でその放出量を表現できる。
- (2) 二酸化ウランの柱状晶成長は中心加熱時におこり、この部分に観測される気泡(きほう)の温度こう配をさかのぼる移動が気体状核分裂生成物の放出に重要な関係を持つ。
- (3) 中心加熱試料として使用した円筒状二酸化ウランを内面温度2,000°C（内面付近の温度こう配1,300°C/cm）で30時間熱中性子照射をした実験では、気体状核分裂生成物の放出には拡散と気泡移動が同程度の寄与をしていることが示された。

## 1. 緒 言

核分裂性物質を含む原子炉燃料は燃焼の進行に伴い多種多様の核分裂生成物を生み出し、その多くは放射性核種である。沸騰水形原子力発電所では各種の安全防護施設<sup>(1)</sup>を備え放射性廃棄物処理装置<sup>(2)(3)</sup>を設けており、放射性核分裂生成物の外部放出を完全に防止している。これら施設と装置の機能向上の基礎資料となり、また原子炉燃料の被覆管設計に保証<sup>(4)</sup>を与えるものの一つに、原子炉燃料における核分裂生成物の挙動に関する実験的研究がある。

この研究のために、昭和40年の秋、東京原子力産業研究所の研究炉HTRに常圧貫流形ガスループを設置し、原子炉酸化物燃料の熱中性子照射実験<sup>(5)(6)</sup>を開始した。その後、沸騰水形原子力発電所で原子炉燃料を使用する状況に実験条件をあわせる趣旨で、2,400°Cまで燃料試料を加熱できる中心加熱方式のB形照射要素<sup>(5),(7)(8)</sup>を設計して昭和42年から実験に着手した。さらに傍熱方式のC形照射要素<sup>(8)</sup>を使った照射実験で中心加熱照射実験結果の解釈を助けた。この報文はこうした原子炉燃料の高温照射実験に関

するもので、炉外加熱実験結果を述べつつ、気体状核分裂生成物（核分裂生成ガスと略称する）の原子炉燃料内挙動について得た知見を概括している。

## 2. 実験方法

照射実験に使用したガスループの系統略図<sup>(5),(8)</sup>は図1に示すとおりである。照射要素として前述の2種類を用いた。B形照射要素では外径12mmφ、内径4mmφ、高さ10mmの円筒状二酸化ウラン・ペレットの中心軸上にタングステン棒ヒータを配置し、C形照射要素では直径8mmφ、高さ8mmの円柱状二酸化ウラン・ペレット

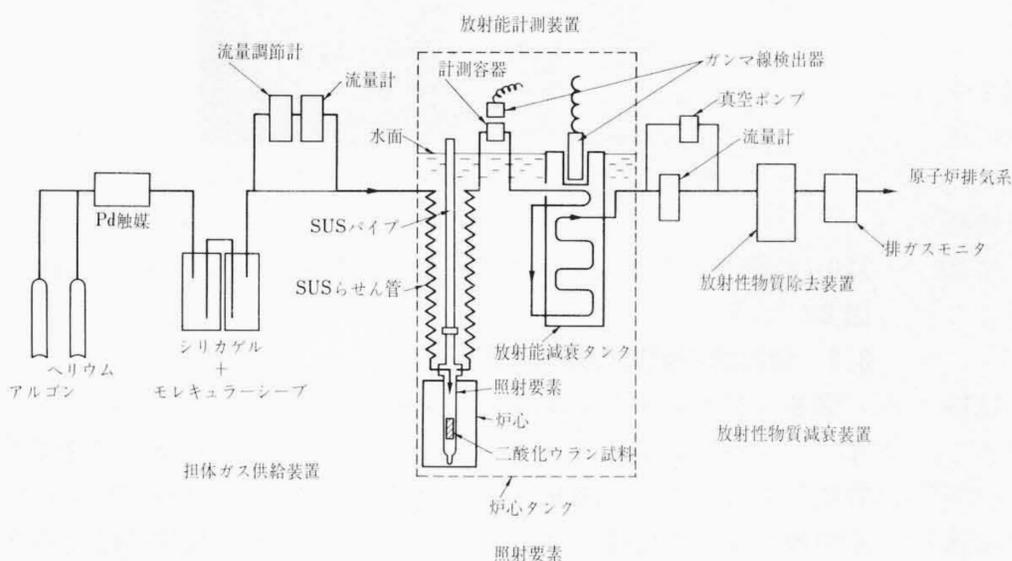


図1 ガスループ装置の流れ線図（高温照射の場合）

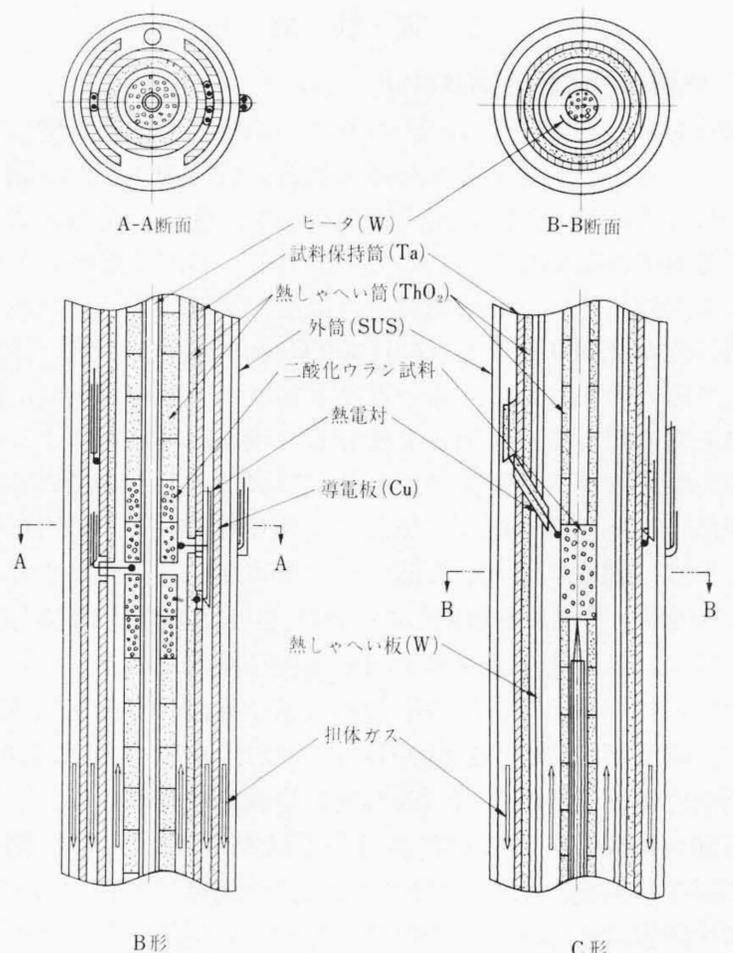


図2 B形およびC形照射要素の試料加熱部

\* 日立製作所原子力研究所 理学博士

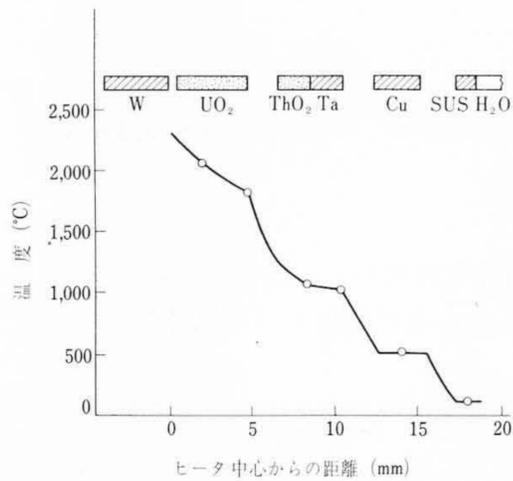


図3 B形照射要素内の温度分布(径方向)

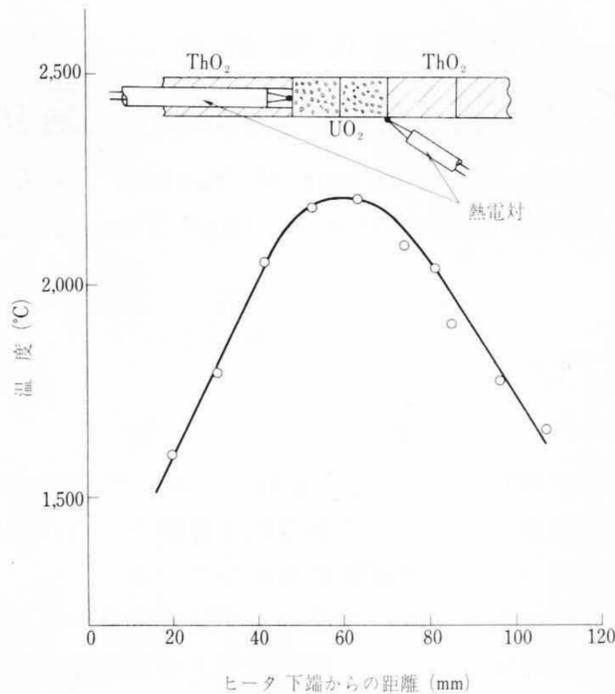


図4 C形照射要素内の温度分布(軸方向)

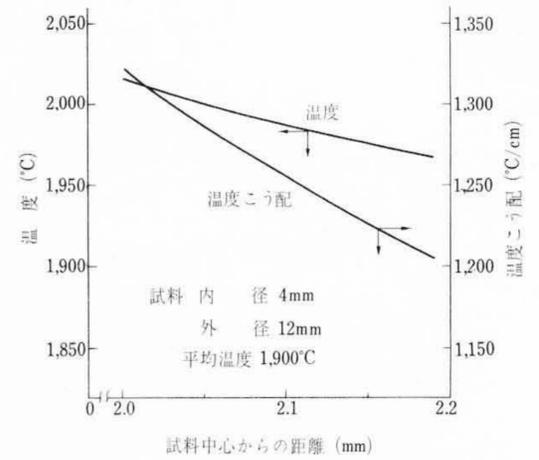


図5 試料内温度分布と温度こう配

を対向させたタングステン板ヒータの中間に装着した。両照射要素内の燃料試料、ヒータ、熱電対、担体ガスの流れなどを図2に示している。燃料試料である天然二酸化ウランのペレットは化学量論的組成比にある粉末を水素ふんい気で1,650°Cに加熱して焼結したもので、ペレットのO/U比は $2.002 \sim 2.003 \pm 0.002$ 、BET表面積比は $10 \pm 10 \text{ cm}^2/\text{g}$ 、結晶の平均粒径は $7 \pm 3 \mu$ 、理論密度比は $94.25 \sim 94.53 \pm 0.03\%$ であった。試料位置の熱中性子束密度は $2 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ で、ウランの核分裂による発熱は小さく燃料試料内で自己発熱で生ずる温度こう配はたかだか $10^\circ\text{C}$ の程度にすぎず、この報文で述べる実験結果には全く影響を与えない。

担体ガスには主としてアルゴンを用いた<sup>(8)</sup>。照射要素を貫流して一定速度で流れる担体ガスにのって、燃料試料から放出された核分裂生成ガスは原子炉炉頂に設けた放射能計測部に達する。ここでは担体ガス流路の一部を鉛しゃへいで囲んで外部放射線をさえぎり、担体ガス中の核分裂生成ガス核種が放射するガンマ線だけを計数(半導体検出器を使用)するようにした。

### 3. 実験結果

#### 3.1 燃料試料の炉外加熱試験

照射要素内の温度分布を決めるために照射要素を水槽に沈めておき、ヒータに低電圧電流を通じ燃料試料を加熱した。図3は中心加熱方式のB形照射要素内温度分布を、図4は傍熱方式のC形照射要素内温度分布を示したものである。B形照射要素に装てんされた円筒状燃料試料内面付近の温度が図5のように推測され、内面付近が $2,000^\circ\text{C}$ のときに $1,300^\circ\text{C}/\text{cm}$ の温度こう配が半径方向に生ずると考えられる。この温度と温度こう配の推測は、図2中の熱電対を使つての実測と温度分布の理論計算に基づき、次に述べる二酸化ウラン結晶粒の成長状況で裏づけたものである。

傍熱によって均一温度に加熱されたC形照射要素の円柱状燃料試料では、図6に記入した関係式で表現される二酸化ウラン結晶粒(等軸晶)の成長を観測した。均一温度 $2,000^\circ\text{C}$ で30h加熱したときには、二酸化ウランの平均結晶粒径が前述の $7 \mu$ から $50 \mu$ に粗大化していた。一方、中心加熱方式で昇温した円筒状燃料試料では、高温側( $2,100 \sim 1,850^\circ\text{C}$ )に二酸化ウランの柱状晶成長が、中間温度部分( $1,850 \sim 1,750^\circ\text{C}$ )に等軸晶成長がみられ、低温側( $1,750 \sim 1,600^\circ\text{C}$ )では結晶粒は全く粗大化しなかった。図7は燃料試料中の気泡の観察を目的とした光学顕微鏡写真である。高温側で半径方向の熱流に直角に扁平な形状の気泡が見いだされた。同種の基礎実験で扁平な気泡が熱流と逆方向に移動して、低温側

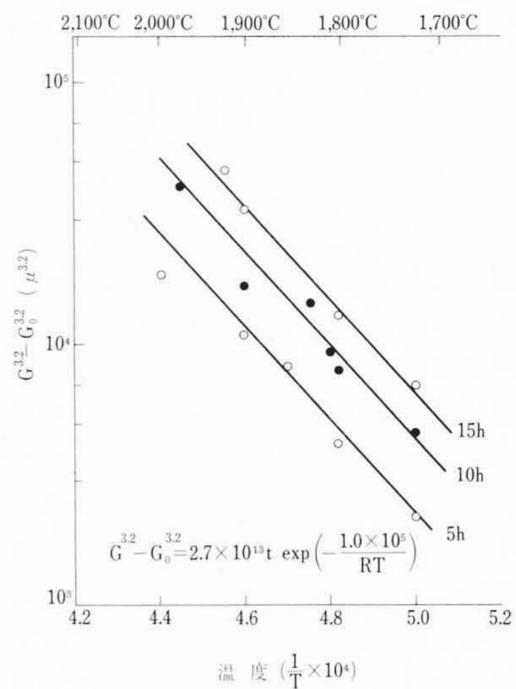


図6 結晶粒径の変化と温度との関係

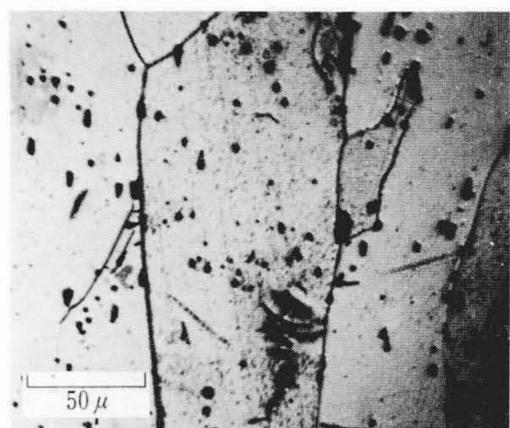


図7 二酸化ウラン中の気泡の光学顕微鏡写真

$120 \mu$ の範囲の小気泡を集めている光学顕微鏡写真を得た。これを図8に示す。

#### 3.2 傍熱燃料試料の照射実験

図9に担体ガス中にはいった核分裂生成ガスのガンマ線エネルギー・スペクトルを例示した。担体ガスはループ内を一定速度で貫流しているので、図9の各光電ピークの面積は燃料試料からのその放射性ガス核種の単位時間あたりの放出量(放出速度と略称する)に比例する。既知の放射線源のガンマ線強度との比較で、以下の実験結果では放出速度は1秒間の放出原子数で表現されている。

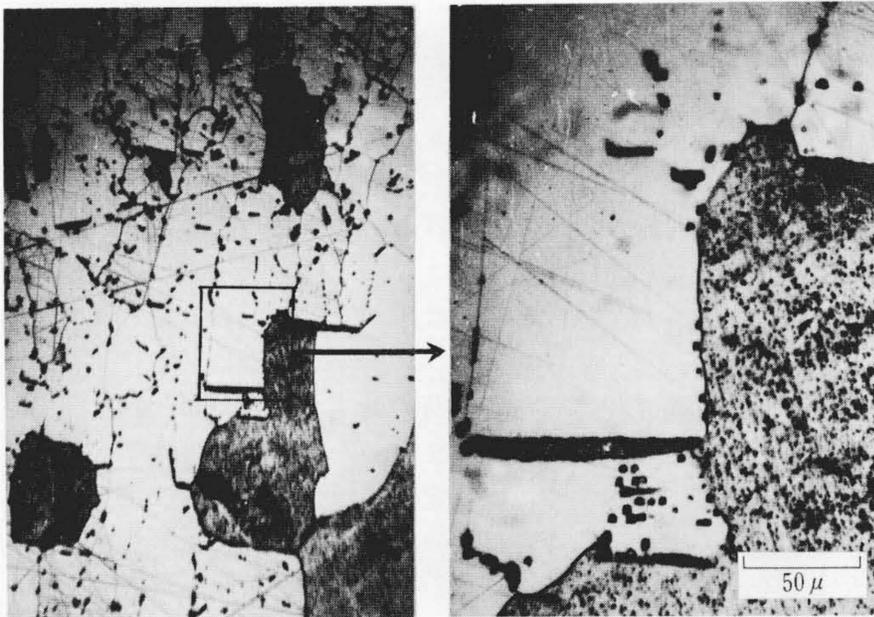


図8 二酸化ウラン中の気泡の光学顕微鏡写真

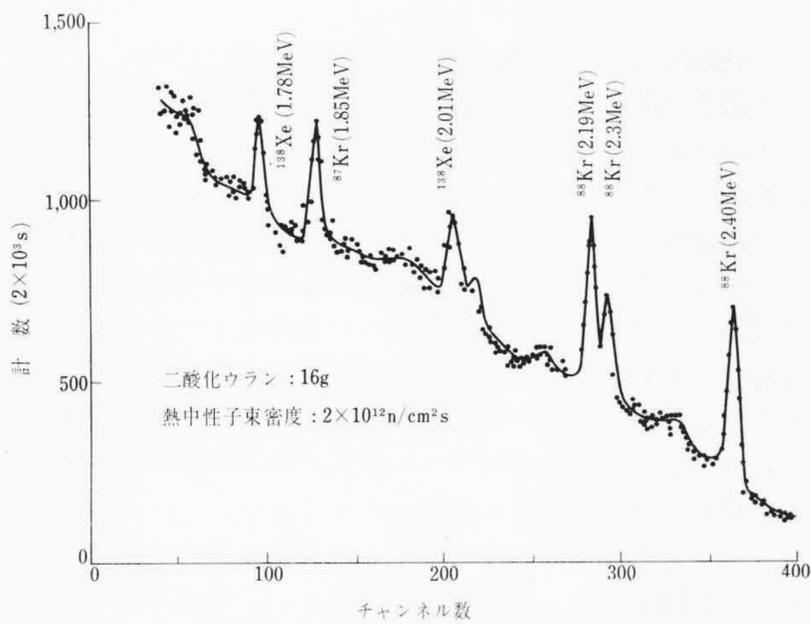


図9 核分裂生成ガスのガンマ線スペクトル

円柱状燃料試料を 2,000°C の均一温度に保って 30 時間の照射実験をしたとき、図 10 に示すように、核分裂生成ガスの放出速度は実験開始後の過渡期間を経て一定の飽和値に達した。過渡期間の変化は測定の対象とした放射性ガス核種の壊変定数に依存し、燃料試料中のその核種の存在原子数曲線と同様な変化を示している。炉外加熱試験で二酸化ウランの平均結晶粒径が約 7 倍に同じ加熱条件下で粗大化した事実と関連させると、等軸晶成長は核分裂生成ガスの放出に影響しないとみることができる。

図 11 は核分裂生成ガスの放出速度と燃料試料の温度が Arrhenius Law を満足していることを示すものである。こうした場合には核分裂生成ガスの放出速度を拡散式で表現することができる。図 11 から算出した拡散の活性化エネルギーは 76 kcal/mole である。

### 3.3 中心加熱燃料試料の照射実験

図 12 に中心加熱の円筒状燃料試料からの核分裂生成ガス放出速度の時間的変化を示した。図中に記入した温度は次の考え方で定義した円筒状燃料試料の平均温度である。

- (a) 均一温度の傍熱燃料試料で実測して得た核分裂生成ガスの放出速度式を、中心加熱試料における各温度部分からの放出速度式として適用する。
- (b) 中心加熱試料の体積平均の核分裂生成ガスの放出速度を算出する。
- (c) この平均放出速度を与える傍熱燃料試料の温度を、中心加

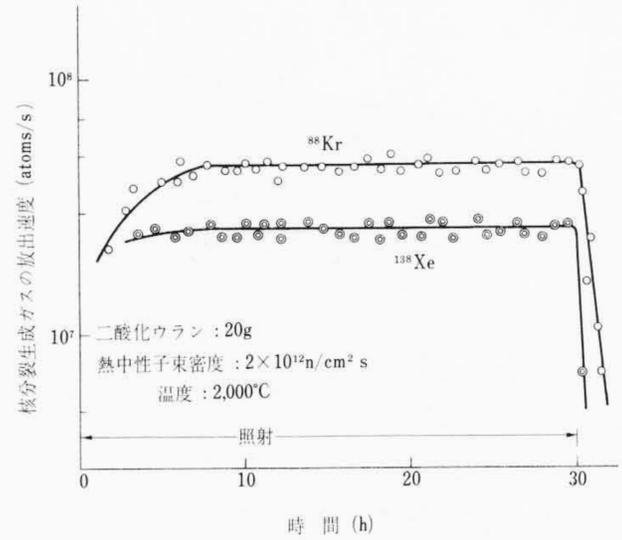


図10 核分裂生成ガスの放出速度の時間的変化(均一加熱)

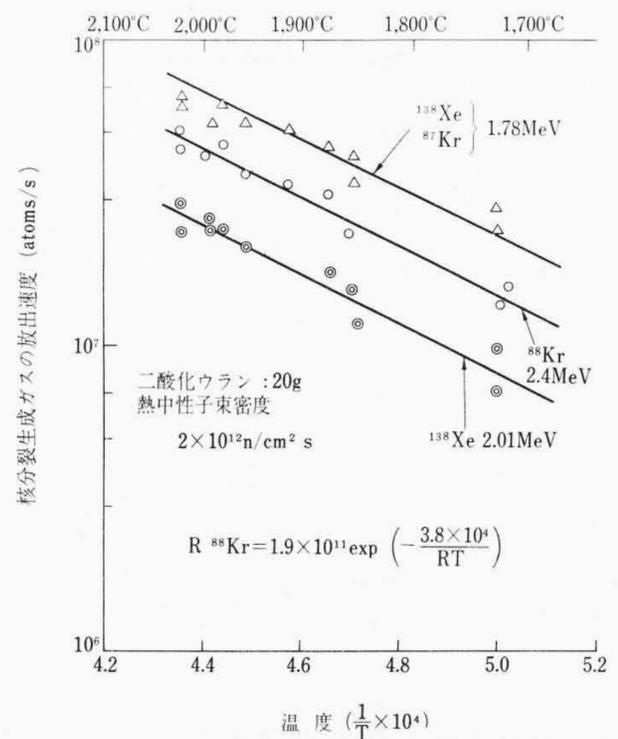


図11 核分裂生成ガスの放出速度と温度との関係(均一加熱)

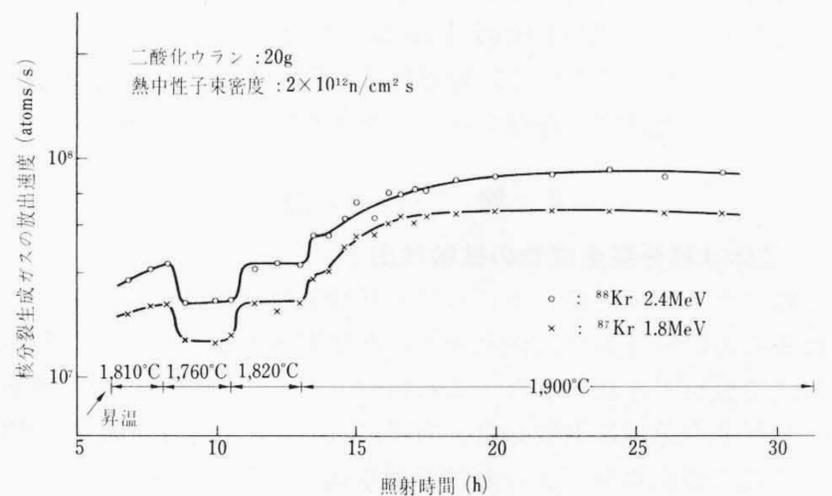


図12 核分裂生成ガスの放出速度の時間的変化(中心加熱)

熱の円筒状燃料試料の平均温度として定義する。こうした定義によれば、円筒状燃料試料の内面温度とその付近の温度こう配は図 5 に示した温度条件すなわち平均温度 1,900°C として記述される。

図 12 に示した実験結果から下記の知見を得た。

- (1) 平均温度 1,800°C 以下のときは、各温度ごとの核分裂生成ガスの放出速度は再現性があり、また、均一温度の場合と同

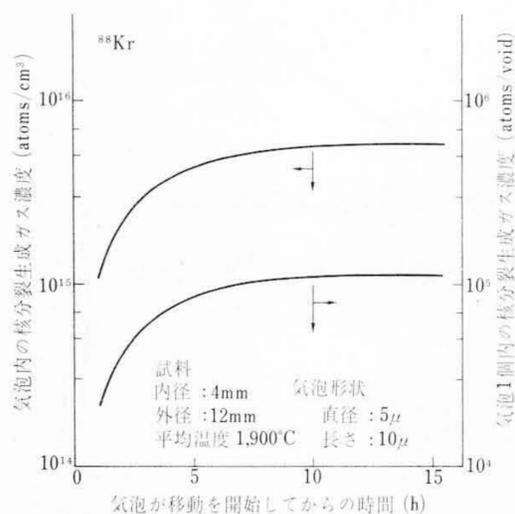


図13 気泡内の核分裂生成ガスの濃度

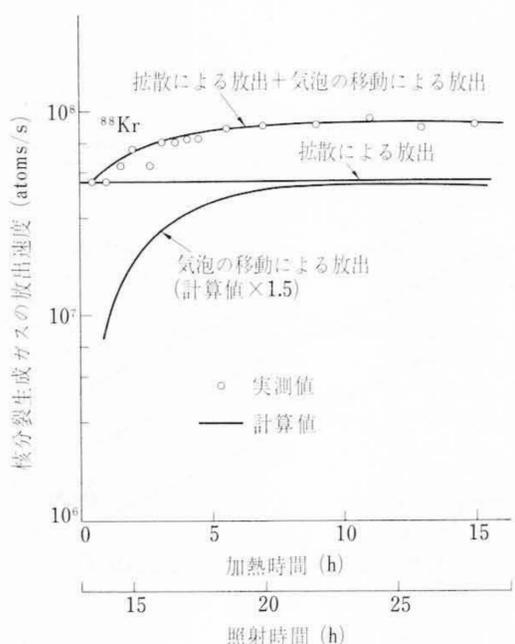


図14 拡散と気泡の移動による核分裂生成ガスの放出を考慮した場合の核分裂生成ガスの放出速度

じく Arrhenius Law に従う。拡散式で放出速度を表現すれば、その活性化エネルギーは 92kcal/mole である。

(2) 平均温度を 1,900°C に上げたときには、核分裂生成ガスの放出速度は時間経過とともに増大し (約 10 時間後に飽和の傾向を示した)、Arrhenius Law は成り立たなくなった。このことは拡散だけでなく、経過時間が関係する別の核分裂生成ガスの放出過程が存在することを示唆するものである。

#### 4. 検 討

##### 4.1 気体状核分裂生成物の拡散放出

二酸化ウラン・ペレットにおける核分裂生成ガスの挙動については多くの研究があり、従来その温度依存性が前述のように拡散方程式で表現<sup>(9)</sup>されてきた。これに対して、二酸化ウランの照射損傷の研究が急速に進展した一方で、中間温度領域(1,000~1,600°C)での二酸化ウランからの核分裂生成ガス放出実験が活発に実施された昭和37~43年のころ、拡散過程で説明しきれぬ現象(核分裂生成物の閉孔内蓄積や結晶粒界への集中など)の解釈に欠陥トラップ説<sup>(10)(11)</sup>が提唱された。この報文の前段階で実施した実験解析<sup>(5)(6)(12)</sup>もこの欠陥トラップ説を支持するものであった。二酸化ウランの温度を高めて照射損傷が熱的焼鈍で回復しやすい場合には、欠陥トラップ過程が核分裂生成ガス放出の支配的過程とはならないことはすでに推測されていたが、前 3.2 に述べた等軸晶成長下の核分裂生成ガスの放出が拡散式で表現できる事実は、この推測の正当性を立証するものであった。中間温度領域で核分裂

生成物のトラップである結晶粒界に着目すると、結晶粒の粗大化とともに結晶粒界の面積がこれに反比例して減少しているにもかかわらず、核分裂生成ガスの放出に影響を及ぼしていない。また、図10で核分裂生成ガスの放出速度が一定値を示していたことは、O/U比やBET表面積比などの燃料試料の物性値の変化がこの照射実験で顕著でなかったことを告げる。こうしたことから、均一温度に加熱されている二酸化ウランからの核分裂生成ガスの放出は拡散式で表現され、拡散による放出が支配的であることは明らかである。

拡散の活性化エネルギーは傍熱時の測定では 76kcal/mole、中心加熱時の測定では 92kcal/mole であった。この差異は中心加熱試料の平均温度の標示法や温度測定上の誤差もはいつて生じており、この両者の間に有意な差はないと考えている。二酸化ウランにおけるウランの自己拡散機構はショットキー欠陥を形成して格子拡散することにあることが知られており、その格子拡散の活性化エネルギーは 70~90kcal/mole であると報告されている。この報文の実験で得た拡散の活性化エネルギーが同程度の値を示しているために、核分裂生成ガスは二酸化ウラン中をウランの空格子点を通して拡散すると解釈できる。

##### 4.2 気泡移動による気体状核分裂生成物の放出

前章の図7と図8に示したように、中心加熱燃料試料の高温側(1,850°C以上)で扁平あるいは円柱状の気泡が多く観測され、高温方向に移動している様子がうかがわれた。気泡の中では相対的に考えて高温側では二酸化ウランの蒸発が、低温側で凝固がより多く進行する。この二酸化ウラン蒸気の気泡内での移動は、一方で燃料試料における気泡の高温方向への移動をもたらし、他方で燃料試料中に生成し存在している核分裂生成ガスを気泡に取り込む作用をする。気泡移動の理論的処理は従来数人の研究者が試みたところで<sup>(14)</sup>、上記の二酸化ウラン蒸気の輸送機構のほかに表面拡散や体積拡散を考えた解析が報告されてきた。これらの解析が取り扱った気泡形状は球形であり、この報文の実験で観測した直径 5μ、長さ 10μ といった長い気泡ではない。半径方向に温度こう配が存在する円筒状燃料試料(平均温度 1,900°C、内面付近の温度こう配 1,300°C/cm、図5参照)におけるこの長い気泡内の核分裂生成ガスの濃度を、二酸化ウラン蒸気の輸送機構に立脚して計算した。計算結果の一例は図13に示すとおりである。

3.3 に述べた、平均温度 1,900°C で中心加熱試料からの核分裂生成ガスの放出速度が時間経過とともに増大した事実を説明するには、拡散だけでなくこれに気泡移動の過程を組み合わせることが必要である。図14は両過程の組み合わせで実験結果をよく説明できることを示している。ただし、核分裂生成ガスの放出速度の初期値は Arrhenius Law に従っているので拡散による放出と考え、これからの放出速度増加分を気泡移動による放出と考えた。また図13を基礎にした気泡移動による核分裂生成ガスの放出速度の計算結果を 1.5 倍して実験結果に一致させてある。気泡内の温度こう配は二酸化ウラン中の値の 1.5 倍である<sup>(15)</sup>とする報告を参考にすれば、この補正倍数は妥当な数値と考える。なお、図14に見るように、平均温度 1,900°C の中心加熱燃料試料からの核分裂生成ガス放出には拡散と気泡移動の両過程が同程度の寄与をしている。

#### 5. 結 言

原子炉酸化燃料(二酸化ウラン・ペレット)における気体状核分裂生成物の高温照射挙動を究明するために、傍熱方式と中心加熱方式の2種類の照射要素を準備して燃料試料を 2,000°C まで加熱しながら熱中性子照射をした。この報文の主要な結論は次のとおりである。

(1) 均一温度下で二酸化ウランの等軸晶成長が進行していると

きでも気体状核分裂生成物の放出にその影響が現われず、拡散によって気体状核分裂生成物の高温照射挙動を解釈することができる。

- (2) 柱状晶成長が起こる温度こう配を持つ二酸化ウランでは気泡移動が気体状核分裂生成物の放出に拡散と同等の寄与をする。二酸化ウラン中の気泡移動を証明する顕微鏡写真を得た。

この報文を終わるにあたって、研究を指導された東北大学矢島聖使教授に、ガスループ実験で有益な討論をいただいた日本原子力研究所武谷清昭氏をはじめFP研究室諸氏および東京原子力産業研究所野中甲蔵放射線応用部長に、また、原子炉運転に尽力願った東京原子力産業研究所西堀博所長ほか原子炉管理部のかたがたに、深く謝意を表す。なお、ガスループは日立製作所中央研究所試作部が製作し、燃料試料は同じく日立研究所第6部が準備した。あわせてお礼を申し述べる。

参 考 文 献

- (1) 藤江, 山内, 佐川, 小笠原: 日立評論 52 (4) 361 (昭45-3)
- (2) 村田, 神谷: 日立評論 52 (4) 368 (昭45-3)
- (3) 下里, 竹島, 小佐野: 日立評論 52 (4) 368 (昭45-3)
- (4) 井上: JAERI-1172, 8 (昭44-1)
- (5) 井上, 谷口, 土井, 大沢: 日立評論 51 (3) 197 (昭44-3)
- (6) Inoue, Taniguchi, Ohsawa: J. Nucl. Sci. Technol. 4 (8) 387 (1967)
- (7) Doi, Hayashi, Ohsawa, Inoue: J. Nucl. Sci. Technol. 5 (6) 313 (1968)
- (8) Doi, Inoue, Hayashi, Ohsawa: J. Nucl. Sci. Technol. 7 (8) 387 (1970)
- (9) Booth, Rymer: CRDC-720 (1958)
- (10) Mac Ewan, Stevens: J. Nucl. Mater. 11 (1) 77 (1964)
- (11) Carroll, Sisman: Nucl. Sci. Eng. 21 (2) 147 (1965)
- (12) Inoue, Taniguchi: J. Nucl. Sci. Technol. 4 (5) 260 (1967)
- (13) Souhier: Nucl. Applications 2 (2) 138 (1966)
- (14) Nichols: WAPD-TM-570 (1966)
- (15) Carslaw, Jaeger: Conduction of Heat in Solids (1959)

Vol. 54 日 立 評 論 No. 7  
目 次

■ 論 文

- ・油圧エレベータにおけるキャビテーション騒音の低減
- ・ガスタービンスピードトロニック制御
- ・大形回転機固定子コイル用ハイモールド絶縁方式
- ・500kV 1,000/3MVA 単巻変圧器
- ・最近のサイリスタレオナード装置

- ・日立 MI-NI コンタクタとその応用
- ・17形90度偏向20φネックブラウン管の開発
- ・Li, Mn, Znフェライトの焼結およびメモリコアの特性に及ぼす粉砕効果
- ・エンジン直結形ブラシレスACジェネレータ
- ・超細心同軸ケーブルおよび経済形同軸ケーブルの開発

発行所 日立評論社 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号  
郵便番号 100  
取次店 株式会社 オーム社書店 東京都千代田区神田錦町3丁目1番地  
郵便番号 101  
振替口座 東京 20018番

第34巻 日 立 評 論 No. 6  
目 次

- ・グラフ/森をはぐくむ
- ・ルポ/教育の理想像を求めて
- ・ /近代化するウナギ養殖
- ・ /夏の風物を育てる
- ・解説/自動化進む新聞印刷
- ・ /ドライ良し、クール良し“ルームエアコン”

- ・インタビュー/量と質の人口問題
- ・家電コーナー/ルームエアコンのABC
- ・美術館めぐり/玉堂美術館紹介
- ・新製品紹介
- ・ホームサイエンス

発行所 日立評論社 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号  
郵便番号 100  
取次店 株式会社 オーム社書店 東京都千代田区神田錦町3丁目1番地  
郵便番号 101  
振替口座 東京 20018番