

大学における核燃料の研究について

大阪大学工学部 佐野 忠雄

1. まえがき

原子力という名のもとに、この方面の（それは主として原子炉を対象としたが）研究が始まって早や10年になる。一体その間日本の原子力がどの位すすみ、われわれ大学で研究する者が、それに対してどの位の役割りを果たしたのでしょうか。日本の原子力の長期計画が目まぐるしく変化したこともあるが大学にいる人達も原子力の研究に相当甘い考を従来もっていたのではないかと思います。原子力、原子核の名のもとに各大学に学科が研究所が出来ました。その上、足りない足りないとはいいながら、他学科に較べれば数多くの装置も出来つつあります。こういう時点において、私達はいつまでも諸外国での知識のつめ込みに専念していいはずはない。日本人には日本人としての研究の方向があるはずで、原子力が出たがために、従来では想像も出来なかった研究がすすめられ、またその間に得られた結果や方法が物理、化学その他の分野に還元されてそれらの学問も前進する。両々相まって一層広い分野の学問が前進するというようにならなくてはいけないと思う。こういう観点にたつて全く個人的に感じます事柄を、特に核燃料の研究をとりあげてのべてみたい。

2. 北欧における核燃料の研究

雪の降るある年の3月末一人の人間がストックホルムの雪の飛行場につきました。日本人の訪れることの少ない北欧の原子力の事情をさぐるべく、大きな希望をもって一歩ふみ入れたのです。ペチカが燃えているとは思いません。ただストーブが赤々とついてました。この国は社会保証のいきわたった口であります。人口の少ない豊かな国の原子力というのは何が目的でしょうか。ストックホルムの町の真中に核燃料研究所がある。この国の原子力施設は公社といいながら、大部分は国家より費用が支出されている。この研研所でやっていることは UO_2 とジルカロイ2 (Zr に S_n と少量の Fe, Cr, Ni の入った Zr 合金)の製造に焦点をあつめている。開発しようとする原子炉はわが国の原子力発電会社の計画している B.W.R. (Boiling Water Reactor)と同じである。(原子力利用の目的は発電であり船舶用である)従って燃料は UO_2

燃料を包む皮覆材とよばれる材料は Zircalloy 2である。どこかの国のように原子炉の型を決めて、あとはそっくり誰かに作ってもらい、出来た原子炉の名前の最初に J のマークを入れるというのとはわけが違う。というのは、研究所で研究された燃料、材料はストックホルムの南方150 Km,バルチック海に面するスワードビック原子力研究所で直ちに照射試験が行はれる。照射後の結果は再び研究所に通知され、また新しい研究が始まる。研究の焦点は狭い。しかし独自の技術の開発を徹底的に行う。何のためか。スウェーデンにはウランの産出も少く、ジルカロイもない。原子炉は従って何処かに作らさなくてはならない。しかし自分達が詳細な知識をもつことによって、あわてることなく輸入の条件をよくしようとするのである。既にスウェーデンのある会社はジルカロイ2の製造法の優秀なため、逆に米国において共同の会社を設立しようとしていると聞く。鉄と木材の国が、今新しい工業を起こそうとする。事に処して余裕ある態度は羨ましい。ストックホルムより飛行機で1時間ノールウェーの首都オスロ、そのオスロより車で1時間たらずのリリストラムにノールウェーの原子力研究所がある。水力があり余り、電力を外国に輸出している国がノールウェーである。従って原子力利用の目的も船舶用原子炉の開発である。海国ノールウェーの原子力船が南水洋に活躍する。パイキングの精神はとどまる処がない。この国の原子炉も B.W.R. であるが、施設の規模はスウェーデンに及ばない。しかし全趣旨のもとに、この国はこの国の B.W.R. の開発に努力している。一方デンマークの原子力事情はどのようであろうか。コペンハーゲンより車で約一時間リゾーという処に原子力研究所がある。ここで開発しようとしている原子炉は有機剤減速の原子炉である。ノールウェーとは全く逆に、デンマークは電力を輸入している。しかし原子力使用の目的は船舶用原子炉である。さらにオランダ、ベルギーが独自の技術も入れて開発しようとする原子炉 P.W.R. (Pressurize Water Reactor) も、すべて主として船舶用である。北欧の諸国が、そしてオランダ、ベルギーが原子炉開発の目標を明確にし、ただ一つの炉にしほり、大学と研究題目を分担し開発をすすめている現状を日本と比較すれば如何でしょうか。西ドイツ、また独自の高温原子炉を開発して

いる。英、米、仏の大国はいざしらずこれらの現状に日本のすすむべき方向は自ら明かとなるのではなからうか。日本の現状は如何か。目的がないとは決して云わないけれども東海村にそびえる JRR 1~4の4基の原子炉、さらに太平洋に面してそびえたつ JPDR と原子力発電会社のコールドホール原子炉。豊かな国情を反映したこれらの原子炉の林立。私達は考えねばならないと思う。一体国家も原研も大学もしっかりせねばならないと考える。日本も工業国である。しかし、英、米、仏に対抗するような原子力事情があったのだろうか。日本も海国である。北欧三ヶ国はすでに船舶用を目的としてやっている。あまりにも日本は背のびしすぎていないか。一人の人間は深く考えて仏、英、米を廻って帰って来た。

3. 日本の大学の核燃料の研究はどうすればよいか。

原子力の研究が始まった直後、各社がすぐに作ったのが、核燃料の製造部門である。ウランは少くともわれわれがそれまでに手がけたことのないものであった。多くの人が浅い知識で、したかぶりで新しいことを次々追っかけて行った。しかし会社は徐々におちつきを取り戻し精力的に研究をされた。ウラン金属を製造し、また UO_2 の燃料要素を製作する技術を発展させた。しかし大部分は外国の技術の追随と再現といってよい。原研はどうか。自分こそは原子力の研究の第一人者と考えあらゆる面に手をのびした。(従ってあらゆる面に、玉石相まじり偉い人が出来すぎた。これがその後の研究の混乱を招いた大きな一因と考えている) 初期の日本原子力学会は原研、会社の方によって占められたといって過言でない。それから何年か経った現在どれ程の研究が残り評価の対象となっているだろうか。(しかしながら会社の目標は燃料要素の製造技術の向上、改善であって、研究ばかりではない。物理屋さんの設計する燃料要素は芸術品であって、私はそんなのをみる度に、もしも何かの事故のあった時あの燃料が、あの材料が悪かったと云いうるだろうかと思う) 原研は原子炉を数多くもった有力な研究所である。しかしそれらの原子炉は原研の研究者によってほとんど占有されている状態である。それならば原研の燃料、材料の研究者は、それら燃料、材料の製造研究も、また基礎的な研究もと考える必要がないのではないかと考えている。日本の事情では原子炉をもつ原研は、会社でつくられた核燃料の、大学で研究した基礎研究の原子炉での照射についての効果を研究してほしいと思う。三者それぞれすすむべき方向のあるはずで、これでこそ原子力は発展し、大学のこの方面のすすむべき道があると考えている。しからば大学は何をやるか。ある大学は

UO_2 を、ある大学はウラン炭化物その他アクチニド化合物の基礎研究をやって行けばよい。これらの化合物は原子力と共に出て来たものである。われわれがとりあげたのは半導体的な酸化物より、より興味をもった炭化物、窒化物である。これら化合物は今後の原子炉の燃料として、最近各方面で、ひろく研究されているので、われわれの研究の一部も紹介しながら、これら化合物にふれてみたい。核燃料は何といっても危険なものである。それだけ基礎研究は技術開発につながって行く。

4. ウラン炭化物、窒化物等について

核燃料として必要な条件は寿命の長いことと、熱をとり出す比出力の大なることである。今から20何年前、シカゴ大学のグランドにおいて始めて核分裂の実験が行われた。その時使用された燃料はもちろん金属ウランである。金属ウランは密度も大きく、熱伝導もよく、その他種々の利点をもっている。ただ残念なことには、約1100°Cの低い融点までに、3つもの変態をもっている。 α, β, γ がそれである。核燃料は Fission の間、高温に上り、またとめると低温に下る。これらのくり返しの温度変化と同時に、照射の、また核分裂生物の影響をうける。金属ウランはこのため照射後、照射前の元の長さの10倍にも伸び、それと共に曲る。(この原因は簡単な熱応力だけではない) これは金属ウランの結晶系に由来するところも非常に大きい。従って金属ウランを核燃料として使用するためには、当然制限をうけることになる。金属ウランの次に考えられたのが UO_2 である。 UO_2 は約2500°Cの融点をもち、変態もなく、結晶系も立方晶である。しかし一方ウラン密度が低く、熱伝導が悪いという欠点をもつ。だが UO_2 は現在の殆どの原子炉の燃料であり、当分の原子炉の主要燃料である。何故大学の多くの人、小生もふくめて炭化物に興味をもつかというと核燃料としての可能性の大なること以外に研究の対象としてひきつけられるものがあるからである。 CaC_2 というのがある。これに水を加えるとアセチレンが出来る。ウラン炭化物は熱伝導もよく、ウラン密度も、融点も、高く、変態もない。一方化学的に不安定であって、水を加えると加水分解を起し有機物をつくる。原子番号の低いものも、高いものも共に加水分解で有機物をつくる。従って炭化物全体を系統的に研究することは面白いテーマである。

普通ウラン炭化物をつくるには、金属ウランと C、或は $UO_2 + C$ の反応でつくる。われわれは固体とガスの反応を利用した。すなわち、250°C位の温度でウランと水素を反応させると UH_3 という水素化物になる。次に UH_3 を 450°C 附近で真空中で加熱すると分解して粉末ウラン

と水素になる。この粉末ウランにプロパンを700°C以上で反応させると UC, または UC₂ を生ずる。これが炭化ウランである。炭化ウランを核燃料として使用する計画の炉は各国に数多くある。たとえば西ドイツが意欲的に開発をすすめる、完成目前の A.V.R. と称する原子炉もその一例である。これは球状の黒鉛の中に、黒鉛粉と UC₂ を、あるいは黒鉛粉と (U,Th)C₂ を混合したものを燃料としている。また米、英、仏の原子力研究所においては、ウラン炭化物の研究が盛んであって、大学との協力もかなりよく行われている。大学では主として基礎的な研究である。これらウラン炭化物に関する国際会議もたびたび行われており、われわれ研究室も過去何回か発表し、また来年五月の発表を期している。ウラン炭化物の研究といっても範囲が広いので、高温におけるウラン化合物の熱力学、統計熱力学的研究の分野にしぼって、感じます問題点の2~3を示したい。

(i) U-C 系状態図の完成 (問題点1)

ウラン炭化物を研究する場合 U-C 系の平衡を詳細に知ることが必要である。この系の平衡については、多くの発表があるし、われわれも UC₂ について1963年11月英国ハウエルにおける学会で発表した。

たとえば UC なる化合物に C 特に U の溶解度があるかどうか。仏、サークレーの Accaly は UC には U が固溶し、約1500°Cで最大の固溶度をもつという。固溶度があるとしても、果して固溶量はどの程度であろうか。得られた価は正確なものかどうか。また使用した UC は果して純粋なものであったかどうか。今まで UC の Free Energy について得られた価 (絶対価) の一番小さいものは -20.8 Kcal/mol といわれている。おそらくこの UC は最も Pure なものと考えられる。というのは UC に酸素あるいはチッ素が固溶すればこの価は更に大きい価 (マイナスの価で) になる。それでは純粋な UC はどうしてつくるかとなるとむづかしい。ただ C については、むしろ UC よりも多い目の C を含む UC_{1.2} をあらかじめ作り、1300°~1400°Cで水素で還元してストイキオメトリックな UC にする。核燃料の純粋性を X線や、種々の分析法よりもエンタルピーあるいは Free Energy から考えてゆこうという新しい考察法が生れてきた。また U-UC 間の状態はほとんどいい位分っていない。次にウラン炭化物のもう一つの化合物 UC₂ は更に複雑である。私達は UC₂ というストイキオメトリックな化合物は存在しなくて、UC₂ といわれるものは UC_{1.86} であるとして、その附近の状態について発表した。ハウエルの Lively らの考え方はある意味では実用的であって、UC₂ とは UC_{1.86} O_{max}, 0.14 だとし、UC₂ は酸素が入って安定なものだとして

いる。果して UC₂ とは何か。微量の酸素やチッ素はどうして分析すればよいのだろうか。一方 UC₂ の pure なものをうることは C についてさえ仲々むづかしい。UC の時のように水素で還元すると、UC₂ でとまることなく UC にまで還元されてしまう。その上 UC₂ は約1200°C以上で徐々に分解反応を起し U₂C₃ と C に分解してしまう。このことは UC₂ は高温から早く冷却された時に得られるものであって、従って室温で得られる UC₂ は Meta Stable の状態であるということになる。このように多くの問題を残しながら一步一步 U-C 系の平衡についての研究がすすめられているというのが現状である。ひるがえって U-N 系はどうかというと、またむづかしい。それは一つの成分としてガスが入るからであり、窒化物たとえば UN をとりあげても蒸気圧が高いためである。

(ii) U-C-O, U-C-N, U-N-O, あるいは U-C-N-O 系 (問題点の2)

UC, UC₂ 等に酸素或はチッ素の入ることが U-C 系の研究の障害となり、また UO₂ と考えていた燃料中に照射後予期せぬ化合物が生成したりする。これらの点を考えると逆に表題にあげた系の方が入り易いのではないかと思われる。U-C-O 系中の UC_{1-x}O_x 化合物についても、すでに各地の国際会議で報告がふえて来た。この化合物の x の max. の価についてハウエルでは0.5, グルノーブルでは0.35, アメリカでは0.25~0.3という。

われわれは0.8と報告した。何れにしても酸素の分析法が問題であるが、U-C-O 系ではチッ素だけに注意すればよく、案外早い機会にこの三元系の完成は期待出来るかも知らない。

私達がこの系について研究を始めた時には夢をもっていった。UO₂ という化合物は核燃料としてよい化合物であるが、先にのべたようにウラン密度が低く、熱伝導も小さい。

しからば、もし UO という化合物が存在するならば、これらの点は改良されるだろう。それと同時に未知の U-UO₂ 間の状態が明かになるはずである。金属ウランを酸化するとか、かりに UO という化合物が存在したとしても、すぐ UO₂ にまですすんでしまう。そこで緩やかな酸化を考えてみようとした。Free Energy の計算からは UO の存在は、あるともないとも云えぬ微妙な価が出てくる。そこで UC の C の代りに徐々に O をおきかえて UO にしてみたいと考え UC+UO₂ の反応を加熱温度、真空度を変化させて行った。このようにして出来た最大のものが UC_{0.2}O_{0.8} であったが、既にのべたようにこの価は研究者によって異なっている。その原因はというと、どのような手段によってもよいが微量の

C,N,O の分析法にかかっている。何かよい手段があれば是非御教示をお願いしたい。一方 $UC_{1-x}O_x$ の化合物に水素を反応させたとき、もしCがOよりとび易く、 UO が出来て、U が析出してくれるなら云うことはない。やってみたいと思いつながらまだやっていない。夢をみているのかも分らない。

一方 U-C-N の方は $UC_{1-x}N_x$ が UC と UN の間に全率固溶する条件があるので、割合スムーズに研究出来る系である。精力的な実験、熱力学データの測定と、統計熱力学的考察によってほとんどこの系についての研究は終了したと考えており、逆に U-N 二元系について実験と統計熱力学的考察を行っているのが現状である。この系の結果の一例を図1に示す。

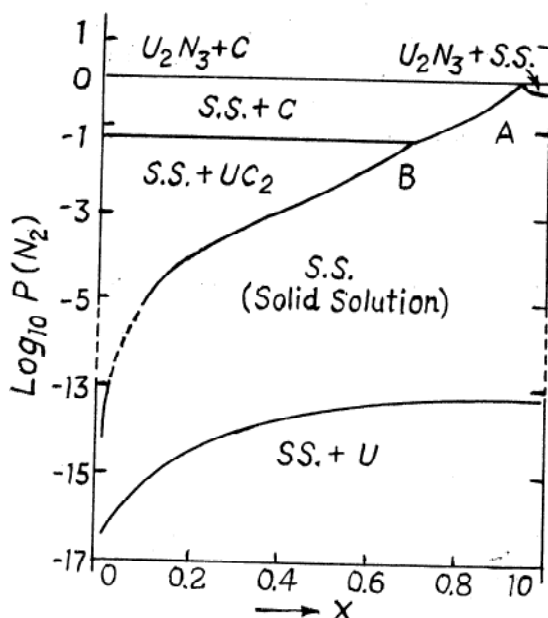


図 1

N_2 Pressure in Equilibrium with $UC_{1-x}N_x$
(佐野・桂)

われわれこの方面の者が次に行うべきものは U-N-O, U-C-N-O 系である。ここでまた困難な酸素分析が出てくる。U-N-O 系は UN の酸化反応より出発するのがよく、私達も始めたばかりである。U-C-N-O 系は井本教授が西ドイツの Dr. Stöcker と共に始めている。とにもかくにも困難な研究が山積し、アクチニド化合物の一つの状態を決めるだけでも大変である。これら化合物の物性にまだ深く手がとどいていない現状である。

以上 U-C, U-N 系、またそれらの三元系の熱力学的研究についてのべて来た。しかし燃料の研究では、照射することもまた非常に重なる研究である。照射中にどの

ような挙動を燃料が示すか、即ち燃料の高温における照射中あるいは照射後の挙動と物性。しかしこれらは原子炉がなくてはやれないことである。原子炉も出来れば中性子フラックスの高い材料炉がほしい。ここに日本の材料炉 JMTR の計画が行われているわけである。大学も JMTR を利用したい。そのため炉の近くに共同研究所を建てたい。そういう計画は現在東北大学を主として、各大学の共同ですすめている。原子炉をもつ原研は Pu と照射の研究を主とし、会社は製造製作を、大学は大学の施設の範囲で出来る基礎研究をやればよい。どうしてこの国の人達は腰がおちつかないのだろうか。浅く何でもやりたがる。残念なことです。

5. むすび

米、英、仏の原子力利用のすすんだ国にのみよい研究者がいるわけでもなく、またよい研究がすすんでいるわけでもない。小さな国にも幅はせまいが深い研究がある。私はこれらの国の人達とも密接に連絡して研究を伸したいと思う。原子力関係の雑用は多い。しかし出来る限り制限し、原子力工業の一つの分野の、そのまた中にある小さな範囲の学問を、世界の方と連絡し、競走し、こちらでやれない範囲のものは、やれる処に人を出し、徐々に研究を完成させて行きたいと願っている。既に研究室より何人かの人々が次々ドイツのユーリッヒ原子力研究所に行った。

最後に今回はウランについてのみかきました。原子力発電炉の増加と共に日本にも多量のプルトニウムが出来ます。この研究は面白くとも相当の設備と人員と取り扱い技術を要します。果して大学で研究する対象として適したものかどうかよく考えねばなりません。(41.3.3)

1966年2月号・高張力鋼板の概況の図7・溶接硬化曲線の比較 が不鮮明であったので下図のように訂正

正誤表

