

高温炉用核燃料

大阪大学工学部 井本正介

はじめに

1. 西ドイツでは

今から12年前の1958年に原子力の平和利用に関する第2回国際会議、いわゆるジュネーブ会議が開かれたが、その際西ドイツは一連の三つの論文を提出した。一つは高温ガス冷却炉の概念に関するものであり、一つはその炉に使う燃料要素のデザインを述べたものであり、残る一つはその燃料要素の中に入れる核燃料物質すなわちウラン炭化物の性質を発表したものであった。日本と同じく、その三年前にやっと原子力研究の禁を連合国から解除された西ドイツが、原子力における先進国が行ってきた開発のあとを追うだけでなく、むしろその先を行くと思われる高温ガス炉のような概念を発表したことは一つの驚きであった。しかも、それは単なるアイデアや思いつきだけではなく、そのような炉に適する燃料要素の形態、さらにそのための燃料化合物の形や性質をも同時に発表していた。特にその中で反響をよんだのは燃料であるウラン炭化物の熱伝導度が大きいということであった。原子炉で発生する核分裂エネルギーを有効に利用するためには、その熱を高温で取り出さねばならない。また高速増殖炉では熱をできるだけ速く取り出す、すなわち大きな比熱出力で動かすことが必要である。そのためには熱を発生する燃料自体が熱をはやく伝えるものでなければならぬ。でなければ、燃料の中心部が溶けるおそれがある。実際、二酸化ウラン燃料では中心溶融が起ることが知られていた。その点、ウラン炭化物は二酸化ウランの数倍から10倍の熱伝導度を持つことが発表され、将来の核燃料としてにわかに注目を集めた。

だが西ドイツでどうしてこのようなことが可能であったのだろうか。もちろんこれはわれわれにとって知るすべもない。しかしあまり知られていない一つの事実としてウラン炭化物 UC が実はドイツで第二次大戦中に研究されていたということがある。硬い鋼などを切削するための材料として炭化タングステンが用いられるが、ドイツではタングステンの資源が少なく、代用品として UC を試みようとしたという話である。

実際には UC は WC のように硬くはなく、恐らく使

用できなかったと思われる。ではなぜ UC を WC の代用品にと選んだのであろうか。私の推論を許してもらえば、U は週期律表で W のちょうど真下にあり、U は W によく似た性質を持つと考えたのではなからうか。しかし、その頃からアメリカで次々と発見された超ウラン元素に関する研究から、U は実は第2稀土類元素に属するものであり、W の真下にくるのは第106番元素であることがわかった。この代用品の話はアクチニド・シリーズ（第2稀土類系列）以前の時代を物語るものと受取ってよいのではなからうか。

さて UC のような燃料を原子炉に装入するためには燃料の容器が必要であり、容器の中に燃料をつめたものを燃料体、あるいは燃料要素と呼んでいる。西ドイツが燃料体としてデザインしたものはちょうど「たどん」と全く同じであった。すなわち直径 5 cm の黒鉛の球であった。（第1図）。ところで黒鉛とウラン炭化物との組合

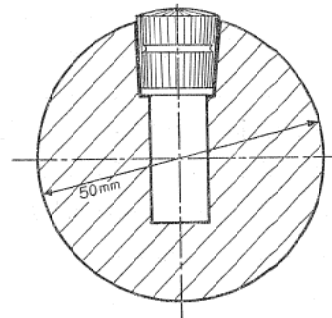


図1 AVR 燃料要素（1958年発表のもの）

せはごく素朴な考えから導くことができる。高温材料としてまず考えられるものの一つは黒鉛であろう。融点は 3500°C 以上であり、安価である。中性子の吸収は少く、減速材の役目もする。一方、ウランは核分裂を起すものとして必須である。ではウランの合金または化合物で、黒鉛と高温で接触した場合、最も安定なものは何だろうか。化学変化という点だけから見れば、それがウラン炭化物、なかでも UC₂ であることは明らかであろう。UC₂ にはウランと炭素以外の元素が含まれておらず、黒鉛と接触しても変化の起りようがないからである。こう

考えた時、あるいはこの話を聞いた時、一人の男の頭の中に十数年前の切削材料としての UC の研究のことが思い出されたのかも知れない。そして高温原子炉(AVR)の設計図が引かれ、1960年には建設がはじまった。

2. イギリスでは

イギリスではよく知られているように原子炉の開発はプルトニウム生産のための黒鉛減速・ガス冷却炉から始まった。第2回ジュネーブ会議にはその延長としてすでに高温ガス冷却炉の概念設計を発表した。しかし実は燃料については何もきまっていなかったといつて過言ではない。炉の建設が半ばまで進んだ時でさえも、まだ燃料体の最もかんじんの部分がきまっていなかった。では燃料体の最も大切な機能とは何であろうか。それは分裂生成物を外に出さないということである。いうまでもなく、ウランは原子炉の中で中性子を吸収すると分裂し、放射性的な分裂生成物となる。このうち大部分はもとの固体燃料中に止まる。たとえば二酸化ウラン結晶の中のウランが分裂してジルコニウムができると、そのジルコニウムは分裂前のウランとくっついていていた酸素をとって酸化ジルコニウムとなり、二酸化ウラン結晶の中にとけ込む。しかしクリプトンやゼノンのような希有ガスは他の元素と結合する性質を持たないので、しだいに結晶の外に出てゆく傾向がある。もし、燃料容器が十分に気密性のものでなかったならば、これらの放射性ガスは大量に冷却ガスの中に入り、場合によっては大気中にまで洩れることがある。それ程でなくても、冷却系は全体として放射能が強くなり、操作や保守が極めて困難になる。したがって分裂生成ガスの閉じ込めは必須のことであり、核燃料の問題は資源問題を除いてはすべてこの問題に集中しているということができよう。イギリスにおいても高温炉では閉じ込めの容器として黒鉛を採用した。しかしふつうの黒鉛は金属に比べると穴だらけである。これでは全く使いものにならないので、穴を埋める技術が開発された²⁾。フルフリルアルコールのような液体に黒鉛を浸し、次にこれを高温で加熱すると、フルフリルアルコールの中の炭素が穴の中に沈着する。これを数回繰り返すと確かにガスの浸透性は1万分の1、あるいは10万分の1にまで落ちる。しかしそれでも燃料の被覆材としては不十分だった。同じことは西ドイツの AVR 燃料(第1図)についてもいえた。同じような黒鉛材料を使う限りでは全く同じであり、またここでは栓の所から特に洩れる可能性もあった。イギリスで建設中の原子炉 Dragon ではこのような点を考慮して、一次冷却ガスの一部をわざと燃料体の中を通して分裂生成ガスをひきつけ、これを精製した後、主冷却系へ戻すといういわゆるページ方式を採用していたからまだしも、AVR ではこのような

方式も採用していなかった。

3. アメリカでは

一方、カリフォルニアのサン・ジェゴにある GA (現在は Gulf General Atomics) においても1959年頃から高温ガス冷却炉の開発が進められていた。燃料要素は Dragon のものと同じで、黒鉛の被覆材の中にリング状の燃料体をならべたものであり、そのリング状の黒鉛燃料体の中には100~400 μ の小さな燃料粒が数多く分散されていた。燃料粒としては (Th, U)C₂ が採用された。二炭化物であることは黒鉛との共立性 Compatibility を保証する。しかし、(Th, U)C₂ は湿気に対して敏感で、このような燃料体は空気中に数時間さらすとこわれた。この問題を解決するため、その燃料粒を炭素で被覆する研究が行われた。そしてこの炭素で蔽った燃料粒は湿気に対して抵抗を持つに至ったばかりでなく、分裂生成物の閉じ込めにも大いに役立つことが分ったのである³⁾。この被覆炭素は Pyrolytic-carbon と呼ばれているが、これはその一、二年前に BMI (Battelle Memorial Institute) で開発されたばかりのものであった。やがて pyrolytic-carbon で被覆した燃料粒、すなわち coated particle は1000°C 以上の高温においても分裂生成ガスの閉じ込めに十分な性能を持つことが分り、GA が Peach Bottom で建設しようとしていた HTGR ではもちろん、イギリスの Dragon でも、ドイツの AVR でも結局はこれが採用され、燃料問題はほぼ完全に解決した。いずれも黒鉛の中に coated particle を分散させた燃料体を用いることによって、Dragon が先ず1964年8月、次に HTGR が1966年3月、最後に AVR が同年8月に臨界に達した。

4. 日本では

1958年のジュネーブ会議がはじまる前、日本はすでに高温ガス炉の燃料への適用の可能性を持つ一つの概念を持っていた。それは現在東北大学の矢島教授が原子力研究所に在職中に提唱されたもので、黒鉛中に二酸化ウランの粒を分散させて新しい燃料体としようというものであった。当時これは何ら高温ガス炉と関係を持つものではなかった。燃料を小さくすることによって、分裂生成物を燃料自身の中に止めず、まわりの黒鉛に受けとめさせ、燃料そのものの照射損傷を小さくしようとの考えであった。その後この考え自体はそれほどうまくいかなかった。黒鉛の照射損傷が大きいことが実験的に分ったからである。しかし、黒鉛の中に小さい燃料粒を分散させるという概念はいろいろの可能性を含み、平均質燃料として原子力研究所の一つの大きなプロジェクトにまで発展した。その燃料を用いるいわゆる平均質炉が検討され、平均質炉に対応する臨界実験装置が作ら

れた。半均質炉は高温ガス炉を目指すものではなかったけれども、高温ガス炉への可能性をも含んでいたし、燃料においては、上に述べたように高温ガス炉の燃料と非常によく似ていた。イギリス、アメリカ、ドイツに次いで日本が第4番目の高温ガス炉を持つ可能性が決してなかったとはいえない状態であった。しかし、1962年はやくも半均質炉の開発プロジェクトにはブレーキがかかり、やがてその研究は全面的に停止した。そして HTGR と AVR とが臨界に達し、Dragon が全出力運転を達成した頃もはや半均質という言葉さえも聞かれなくなっていた。だがそれから2年後、1968年のはじめに西ドイツが高温ガス炉を製鉄プロセスに適用する計画を発表した時、日本では高温ガス炉は多目的炉という名の下に極めて新しい概念であるかのように登場したのである。

Pyrolytic Carbon

1. Pyrolytic Carbon とは

Pyrolytic Carbon はそのまま日本語に訳すと熱分解炭素となるが、この言葉に示されるように炭化水素などを熱分解してつくった炭素のことである。油を燃やすと「すす」が出ることはよくわれわれの見る所であるが、この「すす」も広い意味での Pyrolytic Carbon であろう。熱分解を行う温度をもっと高い温度に、たとえば 2000°C 以上にすると、得られたものは結晶性が発達して graphite すなわち黒鉛になる。このようなものは Pyrolytic Graphite 熱分解黒鉛または気相分解黒鉛といわれる。熱分解炭素と熱分解黒鉛とのちがいは、ちょうど炭素と黒鉛との区別がはっきりしないのと同じく、きっちりしたものではない。熱分解黒鉛という言葉（以後 PG とよぶ）は結晶性の発達したもので、たとえば板状のような形でそのまま用いるときに使い、熱分解炭素という言葉（以後 PyC とよぶ）は小さな粒子に被覆するような場合に使うようである。したがって、燃料粒に被覆されるものは、それが実際には結晶性が発達して黒鉛

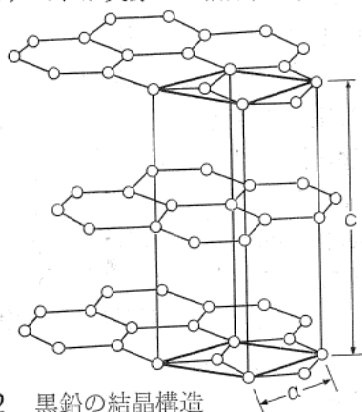


図2 黒鉛の結晶構造
 $a=2,641\text{\AA}$
 $c=6,708\text{\AA}$

とよぶにふさわしいものであっても、PyC と呼んでいる。ここでは先ず PG の生成とその性質について述べるが、その前に黒鉛の結晶構造を思い出してみよう。

黒鉛の結晶構造は第2図の通りである。すなわち炭素のみから成る六角形の網目の層が約 3.4\AA ずつ離れて重っている。六角形の網目の面内では炭素間の距離は 1.42\AA であり、炭素と炭素とは強い化学結合で結ばれている。この化学結合は二種類の化学結合の重ったものと考えることができる。一つは σ 結合といわれるもので、二つの炭素を結びつける「なかだち」をしている電子はほとんど二つの炭素の中間に局在している。他の一つの結合は π 結合といわれており、ここでは電子は六角形網目の上面または下面に在って炭素間をわたり歩き、その結合に与っている。この電子は π 電子とよばれ、六角形網面の中では比較的自由に動くことができるので、電気伝導や熱伝導の Carrier となることができる。それはちょうど金属の中の自由電子と同じである。しかし黒鉛では、網面と次の網面との間は 3.4\AA も離れていて、その間の結合は弱く (Van der Waals 力による)、網面に垂直な方向、すなわち c 方向には π 電子もほとんど動かない。黒鉛が二次元の金属といわれるのもこのためである。われわれはたとえば、アルミ箔を何枚も適当な間隔をあけて重ねたものを想像すればよい。アルミ箔の面内では電気も熱もよく伝わる。しかしそれに垂直な方向には伝わりにくいだらう。また気体は箔と箔との隙間を面に沿って流れることができる。しかし面をつらぬいて流れることは極めてむづかしい。同様のことが黒鉛の単結晶についてもいえる。

実際の黒鉛、たとえば鉛筆の芯や乾電池の電極棒に見るような黒鉛はこのようにきわ立った非等方性を持っていない。それは、コークスの粉をピッチで練り、それを焼き固めて作ったような黒鉛では黒鉛の結晶がほとんど不定の方向にならんでいるからである。しかもその中には穴がたくさんあいていることは黒鉛のみかけの密度が $1.5\sim 1.7\text{g/cm}^3$ であることから分る。なお、単結晶では密度は 2.26g/cm^3 である。黒鉛の単結晶は自然には稀に存在するが、今の所人工的につくることはできない。しかし、それにできるだけ近づけて人工的につくったものが PG である。

黒鉛の基材を 2000°C 以上に加熱し、そこにメタンやプロパンのような炭化水素ガスをアルゴンで稀めて流すと、炭化水素は熱分解を起して水素を放ち、炭素同志がくっついて基材の上に沈着する。それはちょうどカードを床の上にまくようなものである。一枚のカードはいくつかの炭素が平たく結合したものを意味している。カードは床に落ちて床面に平行につみ重なるだらう。同様に

基材の上には基材の面と平行な c 面を持つ黒鉛の結晶が発達する。基材からはがした後に得られる一枚の PG の板はちょうど黒鉛の単結晶のような非等方性を持っている。ただ完全な単結晶と異なる所は、単結晶では六角形の網面が一つの層と次の層との間で完全な規則性を持って積み重なっているのに対し、PG では全く不規則に網面が積み重なっていることである。単結晶はいわばカードをきちんとそろえた状態に対応し、PG はカードの向きがでたらめなまま重ねられている状態に対応している。しかしそのことは黒鉛結晶の持つ本質的な非等方性にはさして重要な問題ではないだろう。こうして得られた PG はたとえば熱伝導率は面方向では $3.8 \text{ cal/cm, sec}^\circ\text{C}$ であり、これに垂直な方向では $0.018 \text{ cal/cm, sec, }^\circ\text{C}$ であるという例が示されている⁹⁾。

Coated particle, 粒状燃料は小さな燃料粒をこのような PG でとり巻いたものであって、これが燃料中で生成する放射性ガスを閉じ込めるはたらきをすることは容易に理解できる。直径 200μ という小さな粒のまわりを黒鉛がうまく割れずにとり巻くことができるだろうかと少し心配になるが、いまこれを10万倍に拡大してみると、球の大きさは直径 20 m 、黒鉛の層間距離は 0.035 mm となり、巨大なガスタンクを薄紙でおおうような感じである。なお、被覆層の厚さを 35μ とすると、これは黒鉛の網面を10万層重ねたことになる。

2. Coating の方法

直径 200μ から 500μ という小さな燃料粒に PyC を

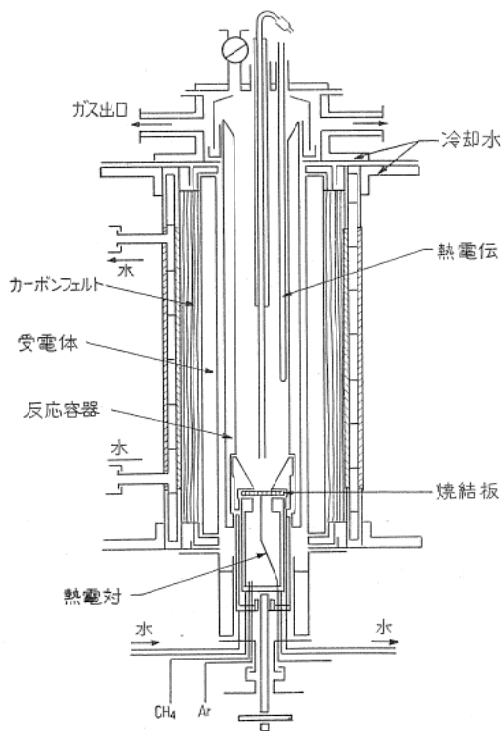


図3 流動床による PyC 被覆装置

被覆するにはふつう流動床による方法が用いられる。第3図に示すように反応容器の中にまだ被覆されていない燃料粒をいれ、その下のノズル、または小さい穴のたくさんある板から適当な圧力で気体を噴出させると、粒は舞い上って流動床といわれる状態になる。反応容器は $1400^\circ\text{C} \sim 2000^\circ\text{C}$ に加熱され、下から送り込む気体には炭化水素ガスが混合されているので、炭化水素ガスは反応容器内では熱分解を起して燃料粒に沈積する。しかしこうしてできた熱分解炭素 PyC の構造や性質は温度、ガスの成分、流量、装置のディメンジョンなどいろいろの条件によって支配される。ある定まった装置を用い、炭化水素ガスとしてメタンを使ったときの系統的な研究によれば、PyC の構造は熱分解温度とメタンの流量とに主に依存し、その関係は第4図のようである¹⁰⁾。すなわち、

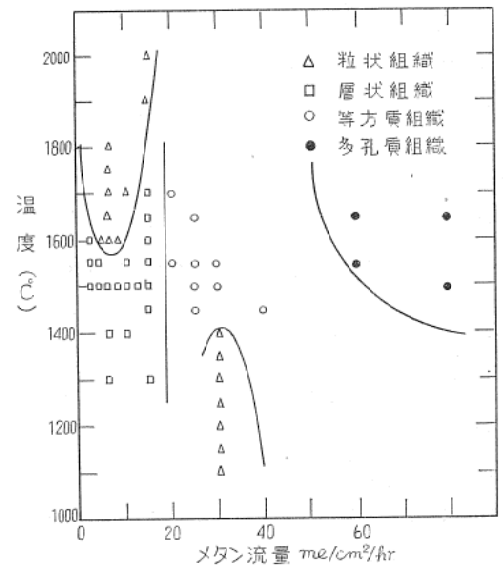


図4 PyC の結晶組織

(1) 粒状組織 (Granular Structure) は高温、低いメタン流量の所でできる。この組織のものは密度が高く (2.0 g/cm^3 以上)、非等方性も大きい。またこれは低温で中位のメタン流量の所でもできる。

(2) 等方質組織 (Isotropic Structure) は中位のメタン流量で中温の所でできる。この組織のものは弱い、弾力性がある。

(3) 層状組織 (Laminar Structure) は低温で流量も低い所でできる。強度が大きく、伸びが小さい。非等方性が大きく、この層を通しての拡散は他の組織のものよりも小さい。また熱伝導度も等方質組織や粒状組織のものよりも一桁小さい。

(4) 多孔質組織 (Porous Structure) は高温で流量が大きい所で生じ、密度が低く ($\sim 1.0 \text{ g/cm}^3$) ほとんど

等方的である。

このように生成条件を変えることによっていろいろの性質の PyC が得られるが、実はこのことが PCy の興味ある組合せを提供する。しかしその前に、粒状燃料を中性子照射した場合のいろいろの損傷についてしらべてみよう。

粒状核燃料の照射損傷

1. 照射損傷

粒状核燃料を原子炉中で照射するといろいろの変化や現象が起る。まず高速中性子が PyC にあたると結晶中の炭素原子をはじき出す。はじき出された炭素原子は層間に入り、あとには空孔が残る。これらの格子間原子と空孔とは移動し、ある場合には再結合して消滅することもあるが、ある場合には空孔は空孔だけ集ることもある。また結晶粒界や転位につかまることもある。これらの過程の詳細は非常に複雑であるが、しかし全体の結晶としては層面に平行な方向には収縮し、層面に垂直な方向にはぼう張ることが知られている。たとえば、よく黒鉛化した PG を 10^{22} ケ/cm² だけ中性子照射したものは層面に垂直な方向には約15%伸び、層面に平行な方向には5%収縮する例がある⁹⁾。PyC 全体としてこれを見た時、もし PyC の非等方性が大きければ（たとえば層状組織のように）、球の半径方向には伸びて、曲面方向にはちぢむことになる。この結果、被覆層の外側では張力が働き、内側では圧縮力が働くが、これは第5図(a)からたやすく理解できるであろう¹⁰⁾。もし PyC がより等方的であれば、個々の微結晶の張力と圧縮力とは全体として打消し合い、被覆層には大きな力を及ぼさない。この点から見ると被覆に用いる PyC は等方質組織でなるべく密度の高いものがよい。

一方、燃料粒が熱中性子を吸収して分裂を起すと、主に二種類の変化が起る。一つは分裂生成ガスが次第に粒にたまって圧力を呈し、これが被覆層を内部から圧することである。この現象は Swelling とよばれており、被覆層に張力が働いて、粒全体をふくらませるようにす

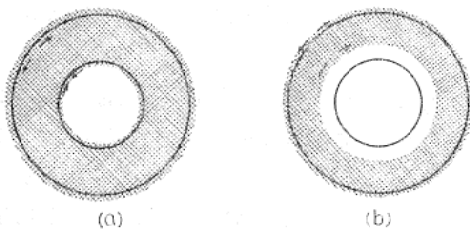


図5 被覆層にはたらく応力

- a) 非等方ぼう張による変形
b) 内圧による変形

る。もう一つは分裂生成物の反跳による PyC の収縮である。ウランの分裂によって生ずる二つの分裂生成物は非常に大きなエネルギーを持っていて、そのあるものは被覆層にとびこむ。この反跳原子は結晶の中を通るときにしだいにエネルギーを失うが、特にその終点においては短い範囲の間に多くのエネルギーを失い、その範囲は局部的に高温に加熱される。これは局部的にその部分の PyC の結晶の規則化、すなわち黒鉛化を進め、ためにその部分は密度が上って、収縮が起ることになる。この現象は層状組織の場合に著しい。収縮は Swelling の場合と同じように PyC 層に張力をもたらすが、これらは図式的には第5図(b)のようになる¹¹⁾。この収縮が著しいと、第6図に見られるように Spearhead fracture といわれる亀裂を生ずる⁴⁾。このように被覆 PyC 層には中性子照射によって種々の原因から生ずるいろいろの力が働き、層を破壊するように働く。

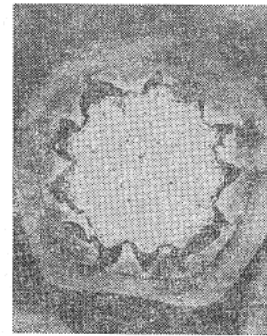


図6 「槍先」状亀裂と燃料粒のスエリング
($\sim \times 200$)

PyC で被覆された燃料粒をその中心温度を 1900°C 以上にして照射したもので、燃料粒全体が被覆層を食い破るようになってある一方向に動いているのが見られる¹²⁾。これはアミーバ効果といわれており、その動く方向ははじめは温度の高い方向であると思われていたが、その後の研究ではこの点は定かでない。

2. 分裂生成物の拡散

照射損傷そのものではないが、PyC による被覆本来の目的である放射性分裂生成物の閉じ込めについてしらべてみよう。これについては非常に多くの実験が行われているが、その結果によれば、密度の高い PyC は 1500°C 以下では稀有ガスの Xe や Kr に対しては不透過性であると考えてよい。数値でいえば、Xe の拡散係数は $10^{-12}\text{cm}^2\text{sec}^{-1}$ 以下なので¹³⁾、もし Xe がこの割合で厚さ 140μ の PyC を拡散するとすると、大半の Xe が PyC を通り抜けるに要する時間は、 $2Dt = \bar{x}^2$ の関係から、 10^8 秒、すなわち約3年ということになる。しかし PyC

も Sr, Ba, Ce のような金属に対してはそれほど不透過性ではない²³⁾。たとえば Sr に対しては拡散係数は Xe の1万倍以上も大きい。これを防ぐために先ず考えられ、有効であった方法は炭化珪素 SiC で被覆することであった²⁴⁾。

この場合、SiC 被覆は二つの PyC 被覆の間にサンドイッチのようにはさまれる。すなわち、燃料粒は PyC, SiC, PyC と三重に被覆される。SiC を被覆するには PyC の場合と同じ装置をそのまま使い、炭化水素ガスを導入する代わりに室温で $\text{CH}_3 \cdot \text{SiCl}_3$ を飽和させた水素ガスを流動床に導入する。このように SiC を含めて三重に被覆することは単に Sr や Ba の拡散を防ぐだけでなく、PyC 被覆に起る Spearhead 状亀裂や剥離を SiC 被覆の内側にのみ止めて、外側まで及ぼさせないという効果を持っている。その一例は第7図に見る通りである²⁵⁾。このような三重被覆は主に Dragon 計画の中で進められ、たしかにすぐれた機能を持っているが、SiC を被覆しないものよりも必ずよいとはまだいえないようである。

一般に粒状核燃料を照射した時に分裂生成物が外へ出てくる原因として三つが考えられる。一つは被覆層の外側、あるいは層のごく表面に近い所に ^{235}U のような分裂性物質がついていて、それが照射によって分裂し、放射性分裂生成物を直接外界に放り出す場合である。すなわち、PyC が燃料物質によって汚れているわけであるが、これは被覆技術の問題であり、このような汚染を起

さないようにすることは可能である。次は被覆層を通しての拡散による分裂生成物の放出であるが、 1400°C 以下ではそれほど大きな割合を果すとは考えられていない。むしろ問題になるのは第三の原因、すなわち、被覆層がはじめから不完全であったような粒子、あるいは照射の途中で急にこわれて分裂生成物を放出する場合である。第二の拡散の場合でも問題なのは照射によって割れ目や溝ができ、それを通しての大量の拡散である。こうして被覆された粒子の照射損傷による破壊がいつ起るか予想し、またその破壊の時期をどうして遅らせるかが粒状核燃料の問題の焦点として浮び上がってくる。

3. BISO

その一つの解決の方法として HTGR と関連して集中的な研究が行われているのが BISO の概念である²⁶⁾。これは Buffer-ISOtropic の語を短縮したもので、被覆層は buffer といわれる内側の層と、密度の高い等方質 PyC からなる外側の層との二重層からできている。内側の層はアセチレンを熱分解させて得られた、多孔質の、密度の小さい ($\sim 1.0 \text{ g/cm}^3$) 炭素層である。この層は buffer という言葉からも分るように緩衝材としての役割を果している。燃料粒から反跳してきた分裂生成物はすべてこの層の中で止められる。分裂生成物の反跳距離はほぼ 2.8 mg/cm^2 であるから、この炭素層の厚さが 28μ 以上であれば、このことは可能である。次にこの層は多孔質であり、 1.0 g/cm^3 の密度のものではその体積の約半分の容積が開いた孔 (open pore) であり、分裂生成ガスをその中に吸収することができる。最後にこの層は応力に対してたやすく変形するという可塑性を持っている。いわばこの層は PyC でつくられたスポンジのようなものである。

これに対して外側の層は密度の高い層状または等方質組織の PyC であって、メタンを熱分解して得られる。この層はいわば弾力を持つ圧力容器のようなものである。 $1290 \sim 1425^\circ\text{C}$ での照射実験によれば、密度が 1.9 g/cm^3 以上のものが望ましい²⁷⁾。また両方の層を合わせての層の厚さと燃料粒の直径との比 (T/D) は 1500°C という高温では 0.5 位の値が必要であるといわれている²⁸⁾。この際、内側の層の厚さは T/D にかかわらずほぼ 30μ である。

BISO の他に、GA では Triplex と名付けられたものが開発されたが、これは BISO の外側にさらに粒状組織のを巻いたものである。これらについての照射試験の結果の一例は第1表に示されている¹⁵⁾。ここで4列目の FIMA とは Fission per Initial Metal Atom の略で、燃料中に存在している Th や U などの重金属原子のうち、分裂した原子がどれだけあったかの割合、すなわち

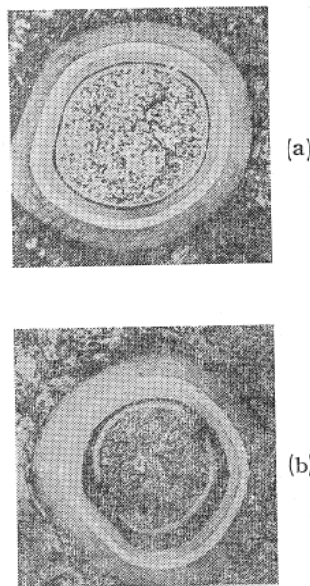


図7 PyC-SiC-PyC/(ThV)C₂ 粒子
a) 照射前
b) 1,350°Cで3.5% FIMA 照射後

第1表 PyC 被覆した Th 燃料粒の照射試験結果

被覆	粒子*	T/D	照射条件			破損率 %
			% FIMA	温度		
				平均	最高	
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	~1	~1000	~1050	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	2.6	1190	1315	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	2.5	1290	1365	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	~1	1350	1410	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	2.5	1370	1430	3
BISO	(Th, U)C ₂	0.32	~1	~1700	~1875	26
BISO	(Th, U)C ₂	0.37	~1	~1000	~1050	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.38	~1	~1000	~1050	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.37	2.5	1190	1315	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.37	~1	1350	1400	0
BISO	(Th, U)C ₂	0.37	2.6	1370	1430	0
BISO	(Th, U)O ₂	0.29	1.9	1330	1390	3
BISO	(Th, U)O ₂	0.29	3.1	1330	1390	0
BISO	(Th, U)O ₂	9.32	2.1	1370	1430	0
BISO	(Th, U)O ₂	0.29	~2.5	~1600	~1700	10
BISO	ThO ₂	0.29	0	1290	1365	0
BISO	ThO ₂	0.29	0	~1700	~1875	~26
Triplex	(Th, U)O ₂	0.37	3.0	1165	1275	0
Triplex	(Th, U)O ₂	0.37	~1	1350	1400	0
Triplex	(Th, U)O ₂	0.37	0.9	1415	1560	0

* Th/U は ThO₂ を除いて12:1~17:1. 粒子の直径は~350 μ

燃料の燃えた割合を示す単位である。この表から、BISO や Triplex は HTGR の燃料が受ける最高温度の1300 °Cよりも高い温度1400°Cでも数% FIMA までの照射に耐えることが分るし、また他の実験ではもっと低い温度では20% FIMA までの照射に耐えることが知られている。また BISO については、この章のはじめに述べたような照射によるいろいろの歪や応力を考慮にいれ、被覆の厚さと被覆層がこわれる予想照射量との関係が導かれており、よく実験結果に対応している¹⁹⁾。

Fuel kernel

1. 燃料粒の種類

以上で PyC 被覆について概観したので、ここでは被覆される燃料粒子について述べてみよう。前にも述べたように被覆される燃料粒子は200~500 μ の小さな球であり、fuel kernel またはその形状に主眼をおいて microsphere といわれる。ここでは燃料粒と呼んでおこう。燃料粒のはじめはほとんど (Th, U) C₂ であった。Th/U の比はふつう5以上なので、この化合物は化学的には二炭化トリウムと考えてよい。すなわち、二炭化トリウムのトリウムが一部ウランと置きかわっているのである。二炭化物が選ばれたのは、二炭化物はそれを包む炭素(PyC) と反応しないと考えられたからであろう。しかしその後、燃料粒を二炭化物でつくっても二炭化物と変

らない良好な結果が得られることが分ってきている。また最近いろいろの変り種がしらべられている¹⁰⁾。たとえば ²³⁵U の代りに Pu を用いて分裂源とすることが Dragon 計画の中で開発されている。この場合には PuO₂ が炭素の地の中に分散したもの (C:Pu=30.5:1) を燃料粒として用いる。同じように炭素の中に UC₂ を分散させて U:C=1:10 にしたものも Dragon 計画の中で初期装荷用に研究されており、これは UC₁₀ と名付けられている。また ThC₂、または ThO₂ のみのものも blanket 用としてつくられている。

2. 燃料粒のつくり方

さて、このような小さな粒のつくり方であるが、これにはいろいろの方法が考えられ、また行われてきた。たとえば一つの方法として UO₂ と C とをまぜて棒に煉っておき、これをプラズマジェットの前に出すと、一瞬にして酸化物が還元されて UC または UC₂ が生成し、これが小さな粒となって飛ぶというやや劇的な方法も行われている。しかし、Dragon 計画などで用いられた方法は原料の小さな粉 (<25 μ) を適当なバインダー、たとえばパラフィン、樟腦、イソブチルメチルケトンなどで煉り、これを回転している「ふるい」を通して粒状にし、さらに球状にしようというものであった³⁾。この他オーストリーの Seibersdorf 研究所では次の二つの方法が研究されている¹¹⁾¹²⁾。一つはパラフィン

法といわれているもので、原料の微細な粉をまぜて、その重量の60%位のパラフィンの中に分散させ、180°C位に加熱する。これを絶えずかきまわしながら、ノズルを通して液体窒素の中に噴出させるとそこで小球が得られるというものである。所望の直径の±100 μ の範囲に入るものは15 w/o位であるが、それ以外のものは直接パラフィンの中に入れて recycle させることができる。次にこれを炭素粉の中でまぶした後、500°Cで加熱してパラフィンを蒸発させる。最後に高周波炉で熔融するが、この時まぶしてあった炭素粉が小球を分離し、たがいにとけ合うのを防ぐ。もう一つの方法は樹脂法といわれている。硝酸ウラニルの水溶液とレゾルシノールとを混合した液Aとフォルムアルデヒドの水溶液Bとを別々の容器に貯えておき、これを反応容器に導いて混合する。この混合液はすぐに90°Cに加熱したパラフィン油の中にノズルを通して分散させるが、その際混合液は重合して樹脂となり、小さな粒状で固まる。粒はすぐに洗ってパラフィン油をとり、50°Cで乾燥させる。この二つの方法は先の「ふるい」を通す方法に比べていくつかの利点を持っている。特に後者は微粉を全く用いないという長所を持っている。また、これらの方法は連続的に操作できる。

3. ゾルゲル法

しかしさらに興味があり、特に酸化物の燃料粒の製造に向くと考えられるのは、オークリッジ国立研究所で開発されたゾルゲル法である¹⁴⁾。この方法は基本的には三つの過程から成っている。すなわち、(1) 水性のゾルをつくる。(2) ゾルを脱水して固体状のゲルにする。(3) ゲルを焼いて蒸発性の物を除き、密度を上げる。(1)については、たとえば UO_2 の場合には先ず原料の硝酸ウラニルに白金触媒の下で水素を通して、これを4価の硝酸ウラナスに還元する。次にこれを濾過して白金触媒を除いた後、蟻酸を加えて4価の状態を安定化しておく。これにヒドラジンを含んだアンモニア水を加えると沈澱が起るが、これは $U(OH)_4$ ではなく、 $UH(OH)_3$ 、あるいは水の附加した UO_2 であるといわれている。この沈澱を濾過して集め、60~65°Cに熱していると、どろどろした黒色のゾルが得られる。次に(2)の脱水であるが、燃料粒をつくる場合には脱水剤として2 EH (2-ethyl-1-hexanol) を用いる。上の方が広く、ちょうどメスシリンダーをひき伸ばしたような形のガラス管の中に2 EHを入れて下から上へと還流させておき、どろどろのゾルを上からノズルを通して流しこむと、ゾルは小さな粒に分れて落ちてゆく。それはちょうど細い口から水を落とすやがてそれが水滴に分れてゆくようなものである。そして下へゆっくりと落ちてゆく間に2 EHによって水を奪われ、しだいにゲル化してゆく。ゲル化されるにつれて

下へ落ちてゆく速さは大きくなり、最後に下の容器にたまる。こうして条件を適当に選ぶことによって、直径100 μ から750 μ までの粒状ゲルが思いのままに得られることになる。この粒状ゲルは乾燥され、ついで1200°Cで焼かれる。もし最終生成物として炭化物を得たいときには、ゾルの状態の時に炭素粉を加えておき、ゲル化した後に1700°C附近で真空中、またはアルゴン雰囲気中で焼くとよい。トリウムやプルトニウムを含んだ燃料粒を得る場合にもこのゾルゲル法は適用できるが、くわしくは原報を見られたい。以上、燃料粒の製造についていくつかの方法を述べた。これらはいずれも他にも応用できそうな技術を含んでいるが、逆に見ると、他方面から燃料粒の製造に適用され得る、もっとよい方法があるかも知れない。わが国においても独特の方法が開発されるのを期待するしだいである。

おわりに

実際の原子炉では、PyCで被覆した燃料粒、すなわち coated particle は黒鉛体の中に分散される。黒鉛体の形は HTGR や Dragon ではリング状であり、AVR では直径6 cmの球である。前者はさらに不透過性黒鉛管の中に入れられた後、炉心に装入されるが、後者はそのまま炉心に投入される。このような燃料要素⁷⁾や炉心の構造¹⁰⁾、あるいは実際の運転結果については、与えられた紙数も尽きたし、また「高温原子炉」の方で扱われると思うので省略したい。ただ最後に今後の見通しについて簡単に述べてみよう。

HTGR と Dragon では冷却ガスの出口温度は750°C、AVR では850°Cである。熱交換器など、他の面で支障がなければ、この出口温度はさらに高温を望まれるだろう。実際、この面での努力は絶えず続けられている。出口温度を高くしようとするに燃料粒の温度もそれにつれて高くならざるを得ない。燃料粒がさらされる最高温度は HTGR では1330°C、Dragon と AVR とでは1250°Cあり、この点 AVR は低い燃料温度で高いガス温度を出して効率がよい。アメリカの UHTREX 計画 (The Ultra High Temperature Reactor Experiment) では出口温度が1315°Cを出す高温原子炉を目指しており、燃料の受ける最高温度はほぼ1600°Cと推定されている。一方、照射実験 (第1表) によれば、Triplex の被覆で、0.9% FIMA の場合には、最高温度1560°Cで破損はゼロという結果が出ており、UHTREX 計画の可能性を示唆していると思われる。しかしこれ以上の温度ではアミーバ効果や、それ程でなくてもウランやトリウムの原子が PyC を拡散してくる割合が大きくなり、現在までの被覆では非常に困難であろう。ここであらためてタンクス

文 献

テンなどのような高融点金属,あるいは ZrC のような超硬材料による被覆が再検討されようとしている。

一方, coated particle の破損の割合は温度と照射量との関数なので, AVR のように燃料体が炉内をゆっくりと上から下へ流れてゆく場合には,一つの燃料体が最高温度の領域にさらされる期間は割合に短かく,燃料棒の位置が固定されている他の高温炉に比べると,この点が長所となっている。このようなデザインもまた結果としては,燃料の最高許容温度を高める一つの方法となる。西ドイツでは現在の技術でも 950°C のガス温度を得ることが可能だといっているのはこの辺の事情のためではないだろうか。また,5年後(1973年)には1200°Cのガス温度が可能と推定しているが,アメリカの UHTREX 計画と合わせて考えると,燃料に関する限りでは問題はそれほどむつかしくないであろう。はじめ高温ガス炉が計画された時,適当な燃料体がなく,coated particle の出現によってはじめて燃料の問題が解決したのであるが,こうして生れた coated particle の性能は当時の高温ガス炉の計画よりもはるかにすぐれたものであり,現在ではガス温度を高めようとする,むしろ熱交換器など,他の点に問題があるという事情をもたらしている。一つの新しい材料がもたらす機能の飛躍的な増大の例をここに見る思いである。

- 1) W. V. Goeddel, "Materials and Fuels High-Temperature Nuclear Energy Applications", The M. I. T. Press (1964) p. 130.
- 2) L. R. Zwmwalt, E. E. Anderson, and P. E. Gethard, *ibid.* p 170.
- 3) R. A. U. Huddle and L. R. Shepherd, "Now Nuclear Materials,Technology, Including Non-Metallic Fuel Elements" I. A. E. A.(1964) Vol. 2 p 467.
- 4) J. B. Sayers, K. S. B. Rose, J.H. Coobs, G. P. Hauser and C. Vivante, "Carbides in Nuclear Energy" MacMillan & Co Ltd, (1964) Vol. 2 p 919
- 5) R. E. Nightingale, "High Temperature Nuclear Fuels --- Metallurgical Society Conferences Vol. 42", Gordon and Breach, Science Publishers, (1968) p 11.
- 6) P. T. Nettley and W. H. Martin, *ibid.* p 29.
- 7) M. N. Burkett, W. P. Eatherly, and W. O. Harms, *ibid.* p 45.
- 8) H. J. de Nordwall and J. B. Sayers, *ibid.* p 65.
- 9) W. V. Goeddel and J. C. Bokros, *ibid.* p 85.
- 10) R. A. Huddle, *ibid.* p 119.
- 11) H. Bildstein, *ibid.* p 145.
- 12) P. Koss and H. Bildstein, "Thorium Fuel Cycle" U. S. AEC,(1968) p 253.
- 13) J. W. Prados, R. L. Beatty, H. Beutler, J. H. Coobs, A. R. Olsen, and J. L. Scott, *ibid.* p 273.
- 14) P. A. Haas, W. D. Bond, M. H. Lloyd, and J. P. McBride, *ibid.* p 391.
- 15) C. S. Luby and A. S. Schwartz, *ibid.* p 495.

