

|              |   |
|--------------|---|
| Title        | 核燃料体における核分裂生成ガスの放出に関する研究  |
| Author(s)    | 大沢, 安隆  |
| Citation     |   |
| Issue Date   |   |
| Text Version | none  |
| URL          | <a href="http://hdl.handle.net/11094/29047">http://hdl.handle.net/11094/29047</a> |
| DOI          |   |
| rights       |   |
| Note         |   |

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

|         |   |
|---------|---|
| 氏名・(本籍) | 大 沢 安 隆<br>おお さわ やす たか  |
| 学位の種類   | 工 学 博 士   |
| 学位記番号   | 第 8 0 9 号   |
| 学位授与の日付 | 昭 和 40 年 12 月 1 日   |
| 学位授与の要件 | 学位規則第 5 条第 2 項該当  |
| 学位論文題目  | 核燃料体における核分裂生成ガスの放出に関する研究  |
| 論文審査委員  | (主査)<br>教授 佐野 忠雄<br>(副査)<br>教授 桜井 良文 教授 井本 正介 教授 犬石 嘉雄<br>教授 吹田 徳雄 教授 関谷 全 教授 篠田 軍治<br>教授 稔野 宗次 |

### 論 文 内 容 の 要 旨

核燃料の照射によって生成される核分裂生成ガスの放出挙動の研究は核燃料の性質の評価だけでなく、原子炉における燃料棒の設計、燃料棒の破損による放射能の事故解析さらには無被覆燃料体の開発などに対する基準となり、核燃料の原子炉への適用性および安全性を確保する上に重要である。

核分裂生成ガスの放出においてはリコイル、ノックアウトおよび拡散が代表的な放出の機構とされているが、なかでも拡散による放出は燃料の温度や燃料の物理・化学的性質と密接な関係をもち、特に高温で運転される動力用原子炉において重要な機構とされている。したがって、核分裂生成ガスの放出の研究においては拡散による放出挙動を追求することが核燃料の評価ならびに原子炉への適用性を知る上に必要である。

本研究は JRR-1 において低温 (100°C 以下) で低照射した金属ウラン、ウラン炭化物および二酸化ウラン燃料体から核分裂生成ガスの主として拡散による放出挙動を照射後加熱することにより考察し、拡散の基礎となる拡散係数を求めると共に、燃料の物理・化学的性質と核分裂生成ガスの放出の関連性を調べ、さらに実用面における燃料の評価、燃料体の製造条件に対する考察など原子炉における燃料の適用性について研究した。

第 1 章においては従来の研究の結果について考察し、本研究を行なうための予備考察をした。

照射によって生成される核分裂生成ガスは大部分が安定元素の Xe および Kr であるが、実験を行なう上には放射性の、かつ、単一の元素について追跡するのが便宜であり、照射条件や実験方法から本研究では  $^{133}\text{Xe}$  を追跡子として撰定した。燃料(試料)の照射条件は熱中性子束  $3 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ 、照射温度 100°C 以下、照射時間 5 時間、総熱中性子  $5 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2$  である。また、実験方法として試料の加熱に際しては、雰囲気中の不純物ガスの影響を極力さけるために真空下外部加熱方式を採

用した。

第2章においては結晶粒度を異にした種々の金属ウラン燃料について、400°～800°Cの加熱による金属ウランの結晶粒度、結晶成長および相変態などの結晶組織変化や、加熱雰囲気中の微量不純物ガスと活性な金属ウランの表面反応などと核分裂生成ガスの拡散による放出の関係について研究した。

金属ウランは $10^{-5}$ mmHg以下の高真空加熱下でも雰囲気中の不純物ガスと表面反応を起こし核分裂生成ガスの放出に支配的な因子となることがわかり、従来から報告されている拡散係数の $10^5$ に及ぶ相違は、これらの表面反応によって影響を受けていることを明らかにした。 $10^{-5}$  mm Hgの真空下における拡散係数は $D=68 \times 10^{-10} \exp\left(\frac{-21,900}{RT}\right)$  cm<sup>2</sup>/sec が得られたが、表面反応を伴わない金属ウランの拡散係数はさらに低く、このことより燃料中の核分裂生成ガスの保留性が高く、したがって核分裂生成ガスが金属ウランの体積膨張を起こす要因になることが推定できた。結晶粒度の相違や相変態は核分裂生成ガスの放出に影響を及ぼさないことがわかった。しかし、結晶粒成長は核分裂生成ガスの放出を抑制させるような効果があることが明らかにされた。

第3章においてはウラン炭化物からの核分裂生成ガスの放出として、まず溶融および焼結一炭化ウラン粉末について900°～1400°Cの加熱過程における核分裂生成ガスの拡散による放出挙動を調べ、次に一炭化ウランと二炭化ウランを種々に配合したウラン炭化物焼結ペレットおよび炭化ジルコニウムや炭化ニオブと一炭化ウランの三元固溶焼結ペレットからの核分裂生成ガスの放出挙動を1400°Cに至る加熱過程で求め、化学組成の相違、粉末と焼結体の相違ならびに化学反応と核分裂生成ガスの放出の関連性について研究した。

ウラン炭化物の1000°C以下の低温における核分裂生成ガスの放出は1000°C以上の高温における拡散による放出とは異なり、ウラン炭化物表面に吸着している不純物ガスとの酸化反応によって促進され、酸化反応速度と不純物ガスの脱着速度との相関性から300°～400°Cの低温で酸化が最も激しく、かつガスの放出も著しく高くなることがわかった。1000°C以上の高温においては拡散のモデルに従った放出を示し、ウラン炭化物の化学組成、粉末と焼結体の区別、溶融体と焼結体の区別はなく、ほぼ等しい拡散係数を示し、1400°Cの拡散係数は $1 \times 10^{-16} \sim 2 \times 10^{-15}$  cm<sup>2</sup>/sec、活性化エネルギーは50～85 Kcal/mol が得られた。これらの活性化エネルギーは一炭化ウランの原子空孔形成と移動の活性化エネルギーとまた一炭化ウランのウランおよび炭素の自己拡散の活性化エネルギーと一致することがわかった。しかし、一炭化ウランと炭化ジルコニウムまたは炭化ニオブの三元固溶体からの拡散係数はウラン炭化物よりも1桁程度高く、これは結晶粒度の相違に起因していることが推定できた。一炭化ウランと二炭化ウランによる三、二炭化ウランの合成反応は従来からの予測に反し、核分裂生成ガスの放出を促進させるような効果を示さなかった。

第4章においては二酸化ウランからの核分裂生成ガスの放出として、同じ二酸化ウラン粉末から出発した圧粉体を焼結の雰囲気（水素中および真空中）と焼結温度を異にして理論密度比が90%～96%の種々の二酸化ウラン焼結ペレットを製作し、それらのペレットからの核分裂生成ガスの放出挙動を1400°Cまでの加熱過程で求め、二酸化ウラン焼結体の密度、比表面積、O/U比および不純物ガスの影響などの物理・化学的性質と核分裂生成ガスの放出の関係について研究した。

二酸化ウラン焼結体からの低温における核分裂生成ガスの放出はウラン炭化物と同じように、 $300^{\circ}\text{C}$ ～ $400^{\circ}\text{C}$ で二酸化ウラン表面に吸着している不純物酸素による表面反応が大で、これによって核分裂生成ガスの放出が促進されることがわかった。理論密度比 $90\%$ ～ $94\%$ の比較的密度の低い二酸化ウラン焼結体は $1200^{\circ}\text{C}$ 以上の加熱において焼結性が進行し、これに伴って核分裂生成ガスの放出が著しく減少することがわかった。しかし、 $1200^{\circ}\text{C}$ 以下の焼結性の進行前の温度においては、このような焼結体からの核分裂生成ガスの放出は高く、この原因は結晶粒内の閉気孔の粒界への移動に伴った核分裂生成ガスの粒界への移動と開気孔に近い状態の粒界からの拡散によって放出されるためであることがわかった。したがって、低密度焼結体からの核分裂生成ガスの拡散係数は低温で高く、高温で低く、活性化エネルギーを低下させることがわかった。理論密度比が $96\%$ 以上の高密度焼結体からの拡散係数は $1400^{\circ}\text{C}$ で $1\times 10^{-15}\sim 5\times 10^{-15}\text{ cm}^2/\text{sec}$ 、活性化エネルギーは $65\sim 90\text{ Kcal/mol}$ で、ウラン炭化物からの拡散係数とはほぼ等しいが、従来から二酸化ウランについて報告されている拡散係数の最低限に位する値となることがわかった。このような相違には本研究の低密度焼結体に認められたような加熱中の結晶の変化に起因する要素があることがわかった。また、 $\text{O/U}$ 比は核分裂生成ガスの放出と密接な関係を持ち、真空焼結体 ( $\text{O/U}\cong 2.007$ )からの核分裂生成ガスの放出は水素焼結体 ( $\text{O/U}\cong 2.000$ )よりも拡散係数にして $2\sim 4$ 倍高くなることが認められた。

第5章においては核燃料の低温・低照射中に放出される核分裂生成ガスの挙動として、金属ウランウラン炭化物焼結ペレットおよび二酸化ウラン焼結ペレットを $100^{\circ}\text{C}$ 以下の低温で、総熱中性子 $5\times 10^{15}\text{ n/cm}^2$ の照射中に放出される核分裂生成ガスの挙動を照射後、試料照射管における核分裂生成ガスの分布および量を知ることにより研究した。

核分裂片のリコイルによる放出は高エネルギーをもって試料を通過し、照射管内の空間に留ることなくほぼ $100\%$ が照射管壁中または照射管内空間の障害物中に捕獲されることがわかった。また、照射管内の空間に放出される核分裂生成ガスは核燃料の材料には無関係に燃焼度と試料の比表面積に比例する放出を示し、核分裂片のリコイルによる熱スパイクを主体としたロックアウト機構によって放出され、ロックアウトの影響を受け核分裂生成ガスの放出に関与するウラン原子の数は従来から予測されている数よりも遙かに大で約 $10^5$ 原子となることを明らかにした。

以上の結果から、各核燃料物質からの核分裂生成ガスの主として拡散による放出と燃料の物理・化学的な性質との関連性について多くの知見が得られ、また原子炉に対する重要な基礎資料を得た。

## 論文の審査結果の要旨

本論文は核燃料の照射によって生成される核分裂生成ガスの放出挙動について研究したものである。放出機構についてはリコイル、ロックアウトおよび拡散によるものがあり、特に拡散による放出は燃料の温度や物理化学的性質と密接な関係を持ち高温で運転される動力用原子炉において重要な機構とされている。本研究はJRR-1を使用して低温で低照射した金属ウラン、ウラン炭化物および二酸化ウラン燃料体からの主として拡散による放出挙動を研究したもので緒言本論5章および総括よ

りなっている。

緒言においては本研究の目的と意義をのべている。

第1章は予備考察であって従来のこの種の研究の結果について考察するとともに、本研究を行なうための予備考察を行なっている。すなわち追跡子として  $^{133}\text{Xe}$  を選んだ理由と照射前後の実験方法について詳述している。

第2章は金属ウランよりの核分裂生成ガスの放出について研究したものであって、照射後の金属ウランを $400^{\circ}\sim 800^{\circ}\text{C}$ に加熱し、核分裂生成ガスの放出と金属ウランの結晶粒度、結晶成長、相変態ならびに加熱雰囲気中の微量不純物ガスと金属ウランの表面反応等との関係を求めたものである。金属ウランは $10^{-5}$  mmHg 以下の真空中でも雰囲気中の不純物ガスと反応し、核分裂生成ガスの放出に支配的な因子となり、従来報告されている拡散係数の $10^4$ におよぶ相違はこの種の表面反応によって影響されたもので、金属ウランの拡散係数はさらに低いと述べており、この際の拡散係数をもとめている。また結晶粒度の相違や相変態は単なる加熱冷却では影響のないことがわかったと述べている。

第3章はウラン炭化物からの核分裂生成ガスの放出について研究したものであって、試料としては各種の方法で製造した UC, UC<sub>2</sub>, それら混合物ならびに UC-ZrC, UC-NbC 等について実験を行なっている。ウラン炭化物の $1000^{\circ}\text{C}$ 以下の温度における核分裂生成ガスの放出は、主としてウラン炭化物の表面に吸着している酸素による酸化反応によって促進され、 $300^{\circ}\sim 400^{\circ}\text{C}$ で放出が著しく顕著なることを見出している。一方 $1000^{\circ}\text{C}$ 以上の高温では拡散の法則に従った放出を示し、ウラン炭化物の製造法、化学組成に関係なくほぼ等しい拡散係数を示し、 $1400^{\circ}\text{C}$ におけ活性化エネルギーは $50\sim 85$  Kcal/mol であり、この値より放出機構を考察している。

第4章は二酸化ウランからの核分裂生成ガスの放出について研究したものであって、理論密度90%~96%の種々の二酸化ウラン焼結体を製作し、密度、比表面積、O/U比および不純物ガスの影響等と核分裂生成ガスの放出の関係を求めている。二酸化ウラン焼結体よりの分裂生成ガスの放出は $1000^{\circ}\text{C}$ 以下ではウラン炭化物と同じように酸素による表面反応で促進される。また拡散係数の正確な値を求めるためには密度96%以上のものを使用しなければならないとし、 $1400^{\circ}\text{C}$ での拡散係数活性化エネルギーを求め、従来報告されている値について考察を行なっている。またO/U比は分裂ガス放出とは密接な関係をもち、真空焼結体からの放出は水素焼結体よりも拡散係数にして2~4倍高くなったと述べている。

第5章は核燃料の低温低照射中に放出される核分裂生成ガスの挙動を金属ウラン、ウラン炭化物および二酸化ウランについて研究したものである。照射管内の空間に放出される核分裂生成ガスは核燃料の種類には無関係に燃焼度と試料の比表面積に比例する放出を示し、熱スパイクを主体としたノックアウト機構によって放出されることを明らかにしている。

総括は以上の結果をまとめたものである。

本論文は各種核燃料物質からの核分裂生成ガスの主として拡散による放出と燃料の物理、化学的性質との関連性について研究したものであって、本研究の結果核燃料の評価、原子炉における燃料棒の設計、さらには無被覆燃料体の開発などに対する数多くの知見が得られた。このことは原子力工学ならびに原子力工業の発展に寄与するところ大である。

よって本論文は博士論文として十分価値のあるものと認める。