

博士論文

軽水炉混合酸化物燃料の熱伝導率低下
緩和メカニズムに関する研究

平成25年1月

高阪 裕二

目 次

第1章 序論	1
1.1 諸言	2
1.2 軽水炉における MOX 燃料	3
1.2.1 軽水炉 MOX 燃料利用の必要性	3
1.2.2 軽水炉における MOX 燃料の使用実績	4
1.2.3 MOX 燃料の軽水炉使用における課題	6
1.3 MOX 燃料照射挙動に関する問題提起	7
1.3.1 軽水炉照射下における酸化物燃料温度のふるまい	7
1.3.2 照射下燃料温度測定による熱伝導率評価	12
(1) 酸化物熱伝導率の燃焼度による低下	12
(2) 照射下燃料温度測定による熱伝導率燃焼度依存評価	13
① Halden 炉 IFA-626 照射試験	13
② Halden 炉 IFA-702 照射試験	14
1.3.3 MOX 燃料熱伝導率燃焼変化に係わる課題	23
1.3.4 熱伝導率燃焼変化要因メカニズム	24
1.4 本研究の目的	25
第2章 酸化物燃料熱伝導率低下モデルのレビュー	27
2.1 酸化物燃料の熱伝導率低下モデル	28
2.1.1 異種金属原子固溶の効果	30
2.1.2 模擬 F P 元素による燃焼効果に関する研究	31
2.1.3 実照射材による燃焼効果に関する研究	32
2.2 MOX 燃料の熱伝導率レビュー	39
2.3 熱伝導率低下モデル構築のアプローチ	42
2.4 まとめ	46
第3章 MOX 燃料微細組織の燃焼に伴う変化	47
3.1 MOX 燃料の微細構造	48
3.1.1 結晶構造	48
3.1.2 化学量論組成の特徴	53
3.2 軽水炉用 MOX 燃料の工業的製法とその特徴	57
3.2.1 MIMAS 法	57
3.2.2 SBR 法	57
3.3 MOX 燃料の燃焼特性	61

3.4	まとめ	65
第4章	擬似二相モデルによる熱伝導率解析	66
4.1	二相材熱伝導率計算モデルのレビュー	67
4.2	Schulz モデルの適用性評価	70
4.2.1	実験データによる検証	70
(1)	測定試料	70
(2)	測定方法	71
(3)	測定結果	71
(4)	Schulz モデル計算との比較	72
4.2.2	FEM 解析による検証	77
(1)	解析方法	77
①	Schulz 解析式による二相材熱伝導率解析	77
②	FEM による熱伝導率解析	77
(2)	解析結果と考察	78
①	分散相個数密度の影響	78
②	分散相不定形形状の影響	79
③	分散相配置の影響	79
④	酸化物燃料二相材への Schulz 解析式適用性比較	80
4.3	まとめ	89
第5章	MOX 燃料 Pu スポット分散相の二相材効果による熱伝導率への影響評価	90
5.1	擬似二相モデルによる熱伝導率評価方法	91
5.1.1	Pu スポット分散相の製造時体積割合と Pu 濃度	91
(1)	EPMA 面分析マッピング画像からの抽出方法	91
(2)	MIMAS 法 MOX 燃料製造時データによる抽出結果	92
5.1.2	Pu スポット部の燃焼度推定	101
5.2	解析結果	106
5.3	まとめ	111
第6章	核分裂生成物組成による熱伝導率への影響評価	112
6.1	MOX 燃料における核分裂生成物の相違	113
6.2	照射試験に基づく FP 収率計算	115
6.3	固溶性 FP 元素の蓄積による熱伝導率への影響	124
6.4	析出性 FP 元素の蓄積による熱伝導率への影響	126

6.5	まとめ	129
第7章	総合評価	130
7.1	高燃焼度下での材料特性変化と熱伝導率への影響	131
7.1.1	気泡形成の影響	131
7.1.2	化学量論組成変化の影響	137
7.1.3	照射欠陥蓄積の影響	140
7.2	Pu スポット部超高燃焼度化の影響検討	144
7.2.1	超高燃焼度下での熱伝導率挙動の外挿性	144
7.2.2	擬似二相材熱伝導率に与える影響	146
7.3	MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズム評価	151
7.3.1	複数要因による影響の定量的比較評価	151
7.3.2	熱伝導率低下緩和メカニズムの検証	157
	(1) 照射試験データとの比較	157
	(2) MOX 燃料中心温度の不確定性要因	160
	① 燃料照射挙動解析 (FEMAXI-6) による不確定要因について	160
	② 照射実験における不確定要因	162
	③ 今後の検討課題	163
7.3.3	考察	166
	(1) MOX 燃料熱伝導率低下緩和メカニズム	166
	(2) 工学的な有用性	167
	① 燃料設計	167
	② 安全評価	168
	(3) 課題と提言	168
7.4	まとめ	170
第8章	結 論	172
	参考文献	176
	謝辞	188

第 1 章

序 論

1.1 諸言

軽水炉燃料に混合酸化物燃料（MOX 燃料）の利用は、欧州では長い実績があるのに対し、我が国における実用利用は緒についたばかりであるが、MOX 燃料のプルサーマル利用については我が国の核燃料サイクル政策の骨格を成すものである。2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震において、東京電力福島第一発電所の 1～4 号機で放射性物質の放出を伴う重大事故が発生したことを受け、日本の原子力政策について見直しの議論が行われている状況にあるが、原子力技術が社会から信頼を取り戻し、MOX 燃料利用を安全に定着させるために、その技術的基盤を確実なものにしてゆく重要性は今後も変わらないと考えられる。

本論文はこの MOX 燃料の重要な熱物性の一つである熱伝導率について、特に高燃焼度照射における熱伝導率低下の挙動に関わる解明について論じたものである。MOX 燃料を高燃焼度まで利用するため、近年試験炉等で高燃焼度までの照射試験が実施され、その照射挙動が報告される中で、MOX 燃料において、従来知見に対し、燃焼に伴う熱伝導率の低下が緩和されると考えられる事象が報告されている。本論文は MOX 燃料における熱伝導率低下緩和について、そのメカニズムを提案し、その可能性について実験並びに解析により考察を行った。

第 1 章では、我が国における MOX 燃料利用の状況を概観するとともに、熱伝導率低下が緩和される事象に関わる報告事例のレビューを行って、そのメカニズム要因を提示し、本研究の目的について述べる。第 2 章では、MOX 燃料熱伝導率の燃焼に伴う変化について既往の研究報告についてレビューし、その課題点について言及する。第 3 章では、MOX 燃料の特性についてレビューするとともに、MOX 燃料の製造時特性に起因する熱伝導率低下緩和メカニズムを提案する。第 4 章及び第 5 章では、提案したメカニズムについて、照射試験に供した MOX 燃料の製造時データを使用して熱伝導率低下緩和に与える影響を定量的に評価する。第 6 章では、第 5 章までに検討したメカニズム以外に残されたメカニズムについて、その可能性を定量的に評価し、第 7 章で総合的に比較評価をおこなって、その結論を第 8 章にて総括する。

1.2 軽水炉における MOX 燃料

1.2.1 軽水炉 MOX 燃料利用の必要性

我が国における原子力政策の基本的方針は、従来より原子力委員会により原子力政策大綱として示されている。MOX 燃料利用に関しては、最新の原子力政策大綱^[1]（平成 17 年策定）において、以下のように位置づけが示されている^[2]。

平成 17 年策定の原子力政策大綱（抜粋）

使用済燃料の取扱い（核燃料サイクルの基本的考え方）

「我が国においては、核燃料資源を合理的に達成できる限りにおいて有効に利用することを旨として、安全性、核不拡散性、環境適合性を確保するとともに、経済性にも留意しつつ、**使用済燃料を再処理し、回収されるプルトニウム、ウラン等を有効利用すること**を基本的方針とする。」

軽水炉による MOX 燃料利用（プルサーマル）

「我が国においては、使用済燃料を再処理し、回収されるプルトニウム、ウラン等を有効利用するという基本的方針を踏まえ、当面、**プルサーマルを着実に推進**することとする。」

以上のように、原子力は日本の基幹エネルギーとして位置付けられ、その中で MOX 燃料利用の着実な実用化（合理的安全性の高い設計・製造技術の確立と実績の蓄積）の必要性が明確に示されてきた。

しかし、平成 23 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震において、東京電力福島第一発電所の 1～4 号機で放射性物質の放出を伴う重大事故が発生したことを受け、日本の原子力政策について、その見直しの議論が行われている状況にある。このような状況下では、MOX 燃料利用は必要性の問題の範疇ではなく、核燃料サイクル政策の基本的選択肢の問題と考えられる。非常に大雑把に言うと、以下の 3 つの選択肢が想定される。

<u>選択肢</u>	<u>MOX 燃料の必要性</u>
①脱原子力（退場）	不要
②縮小維持（主役から脇役へ）	当面必要、将来は？
③現状維持及び将来は発展拡大（将来的に主役）	必要

著者は、資源の乏しい我が国の実情を考慮すると、エネルギー安全保障上も原子力は基幹エネルギーとしてその必要性は失われないと信ずるものであるが、この議論に結論

を得るには、まだ相当の時間を要すると推測され、またこの問題を議論することは、本研究の目的ではないので、ここでは以上のような状況の記述に留めたい。

1.2.2 軽水炉における MOX 燃料の使用実績

商業用軽水炉における MOX 燃料の使用は、海外では 1960 年代より開始されており、多数の使用実績がある。国別の MOX 燃料使用実績^[3]を表 1.2-1 に示すが、欧州を中心に 5000 体以上の MOX 燃料集合体を実機で照射されてきている。

一方国内の商業用軽水炉での実績は、1980 年代に少数体の実証試験^[4]が行われた後、暫くの間 MOX 燃料の利用は行われていなかったが、以下に示すように 2009 年より実用規模利用が開始され、順次その利用する商業炉の数を増やしてゆく段階にあった^[5]。

少数体実証

1986/6～1990/2 原電敦賀 1 号（2 体）

1988/3～1991/12 関電美浜 1 号（4 体）

実用規模利用

2009/12～ 九電玄海 3 号

2010/3～ 四電伊方 3 号

2010/9～2011/3 東電福島第一 3 号

2010/12～ 関電高浜 3 号（8 体）

2012/?～ 北電泊 3 号（計画）

201?/?～ 中電浜岡 4 号（計画延期）

しかし、平成 23 年 3 月の東日本大震災による東電福島第一原発事故のため、福島第一 3 号炉は廃炉となり、その他についても現状停止した状態で再開の目途は立っていない。

表 1.2-1 海外におけるプルサーマルの現状と実績

国名	現状(2005年(平成17年)末現在)		これまでの実績	
	運転中の軽水炉 (基)	プルサーマル 実施中の軽水炉 (基)	プルサーマルを 実施した軽水炉 (基)	2005年(平成17年) までの MOX燃料装荷体数 (体)
フランス	58	20	21	2466
ドイツ	17	10	15	2012
ベルギー	7	2	3	313
スイス	5	3	3	308
米国	103	1	7	95
イタリア	0	0	2	70
インド	2	0	2	10
オランダ	1	0	1	7
日本	54	0	2	6
スウェーデン	10	0	1	3
合計	257	36	57	5290

1.2.3 MOX 燃料の軽水炉使用における課題

使用実績の状況から分かるように、MOX 燃料の国内における使用実績は UO_2 燃料に比較して乏しいことは明らかである。このような使用実績の違いから、国内における取り出し燃焼度制限値は、MOX 燃料は UO_2 燃料に比較し現状では低く設定されている。

しかしながら、Pu 資源の有効利用、経済性向上、廃棄物低減、炉心運用性向上の観点から、MOX 燃料の燃焼度制限値を UO_2 燃料並に引き上げることが望まれ、今後の開発課題と考えられている^[6,7]。

このような燃焼度制限の引き上げには、高燃焼度における MOX 燃料の照射挙動データを蓄積し、その照射挙動を良く理解し把握することが、合理的で安全な設計を行う上で重要な課題と考えられる。

1.3 MOX 燃料照射挙動に関する問題提起

1.3.1 軽水炉照射下における酸化物燃料温度のふるまい

商業用軽水炉においては、加圧水型軽水炉（PWR）、沸騰水型軽水炉（BWR）のいずれにおいても、開発された初期段階より、その核燃料として二酸化ウラン（ UO_2 ）をベースとした酸化物燃料を使用している。酸化物燃料は、粉末を圧縮成形して焼結した燃料ペレットとして使用される。

図 1.3-1 に燃料集合体の構造概念を PWR の例にとって示す。燃料ペレットは外径、高さが約 1cm 程度の円柱体形状をしており、これを約 4m 長のジルカロイ製の被覆管内に不活性ガス（主に He）と共に充填して燃料棒を構成している。この燃料棒約 250 本前後を正方形配列に束ねて燃料集合体が構成される。原子炉においては、この集合体の単位で取り扱われ、燃料集合体の燃焼状態や、炉心の運用に応じて原子炉への出し入れや炉心内再配置が行われる。

原子炉内では、中性子照射によって燃料ペレット内で核分裂がおこり、そこで発生した熱がペレット内を伝導し被覆管を通して、被覆管の外側を流れる冷却材（軽水）に伝わって除熱される。原子炉が定常状態にある場合には、燃料ペレット内の発熱量と冷却水による徐熱量がバランスするように設計されており、PWR の場合では被覆管の外表面温度は凡そ 300℃前後となる。

このような定常状態における、燃料棒内の径方向の温度分布の概念図を図 1.3-2 に示す。このように、被覆管外表面温度が一定に保たれると、内部の温度勾配は、構成材の各々の熱伝導率とその間の熱伝達率によって決まる。すなわち、ジルカロイ被覆管の熱伝導率、ペレット - 被覆管ギャップ熱伝達率（P-C ギャップコンダクタンス）及び燃料ペレット熱伝導率により、この温度分布が決まることになる。

被覆管と燃料ペレットの熱伝導率は、材料の物性だけで決まるが、P-C ギャップコンダクタンスは P-C 間の距離や接触状態に依存するので、各部材の熱膨張や照射変形等複数の要因によって変化する。図 1.3-3 に燃料ペレット内の温度分布を解析した例⁸⁾を示すが、定常状態における PWR 燃料の代表的な出力である 20kW/m で比較すると、燃料ペレット外表面温度は約 500℃程度であることから、被覆管外表面からペレット外表面の間の温度差は約 200℃程度である。これに対し、ペレット内の温度勾配は表面と中心の間では 500℃以上の差が生じ、燃料温度を予測する上で燃料ペレットの熱伝導率が重要であることが分かる。

燃料ペレットの線出力と燃料ペレット中心温度の関係は次式で求められる。

$$\int_{T_s}^{T_c} k(T) dT = \frac{F}{4\pi} \cdot W \quad \dots \dots (1-1)$$

$K(T)$: 燃料ペレット熱伝導率 (W/mK)

T_c : 燃料ペレット中心温度 (°C)

T_s : 燃料ペレット外表面温度 (°C)

F : 燃料ペレット内径方向出力分布による係数 (<1)

W : 燃料ペレット線出力 (W/m)

ここで、同一線出力条件で考えると、熱伝導率が一定の割合 K 変化した場合に、燃料中心温度の変化量 ΔT は以下の関係式となる。但し、熱伝導率は簡単のため最もシンプルなフォノン伝導式（温度一次式の逆数）とした。

$$\int_{T_s}^{T_c} \frac{1}{A + B \cdot T} dT = \int_{T_s}^{T_c + \Delta T} \frac{K}{A + B \cdot T} dT \quad \dots \dots (1-2)$$

K : 熱伝導率変化割合

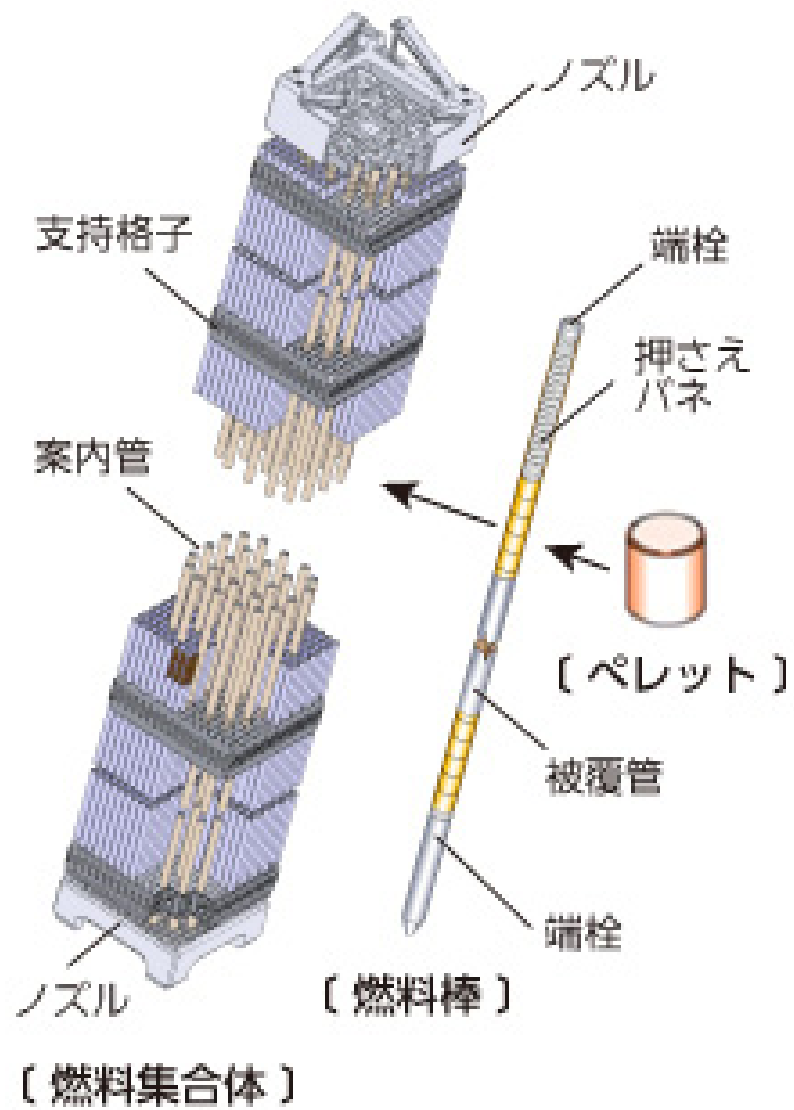
この関係式から、 K と ΔT の間に以下の関係式が導かれる。

$$\Delta T = \left(\frac{A}{B} + T_c \right)^{1/K} \cdot \left(\frac{A}{B} + T_s \right)^{\frac{K-1}{K}} - \left(\frac{A}{B} + T_c \right) \quad \dots \dots (1-3)$$

軽水炉における定常状態の代表的な温度として、燃料ペレット中心温度を $T_c=800, 1000, 1200^\circ\text{C}$ 、外表面温度を $T_s=500^\circ\text{C}$ と仮定し、Gates ら^[9]の UO_2 熱伝導率式を参考に $A/B=464$ として得られる計算値を図 1.3-4 に示す。燃料ペレットの熱伝導率の変化により、例えば熱伝導率低下 ($K<1$) により中心温度は上昇し、燃料温度に無視し得ない影響があることが分かる。

軽水炉燃料では、燃料ペレットの最高温度が融点を超えないことが設計上のクライテリアとして求められており^[10]、また融点未満の温度で燃料ペレットの形状を維持しても、温度の上昇にともなって気体状の核分裂生成物 (FP ガス) の放出が促進され、燃料棒内の内圧を上昇させたり P-C ギャップコンダクタンスを低下させると考えられていることから、燃料棒の合理的かつ安全な設計を行う上で、照射中の燃料温度を精度良く予測することが極めて重要である。

このような観点から、照射下における熱伝導率の低下を、その挙動メカニズムを把握して精度よく予測できることが求められている。



(三菱原子燃料株式会社ホームページより)

図 1.3-1 燃料集合体の構造 (PWR 燃料の例)

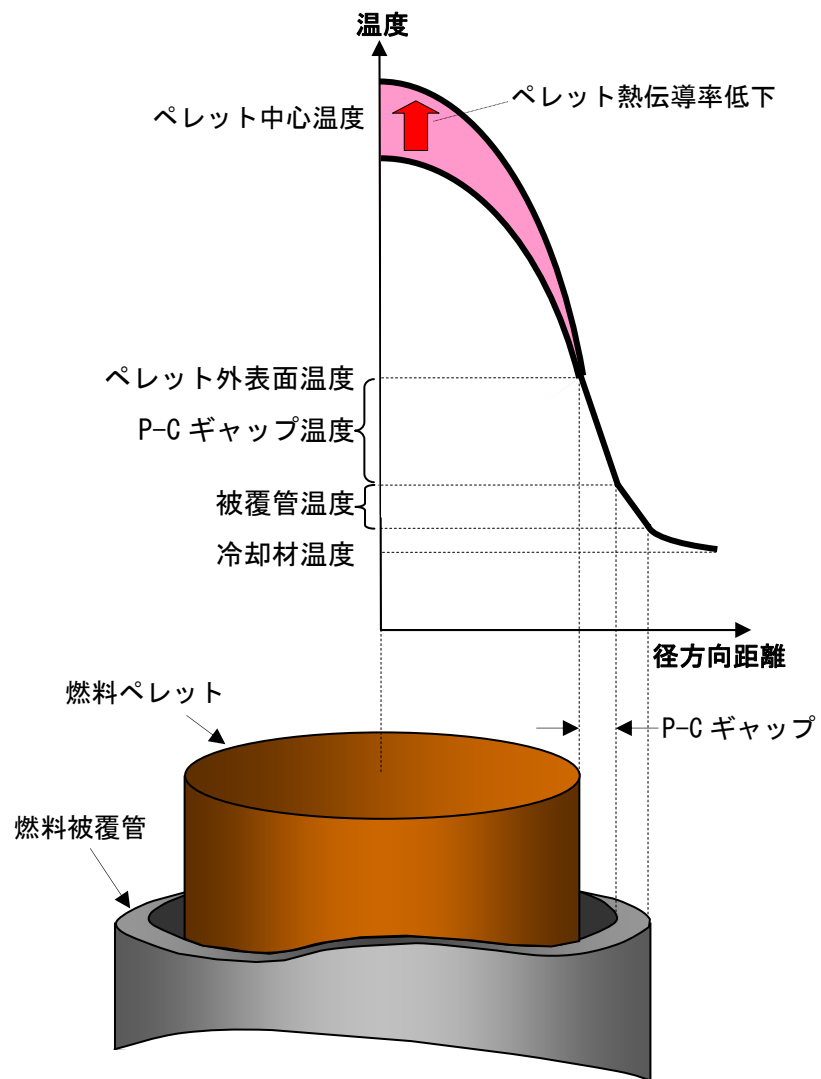


図 1.3-2 燃料ペレット内の径方向温度分布概念図

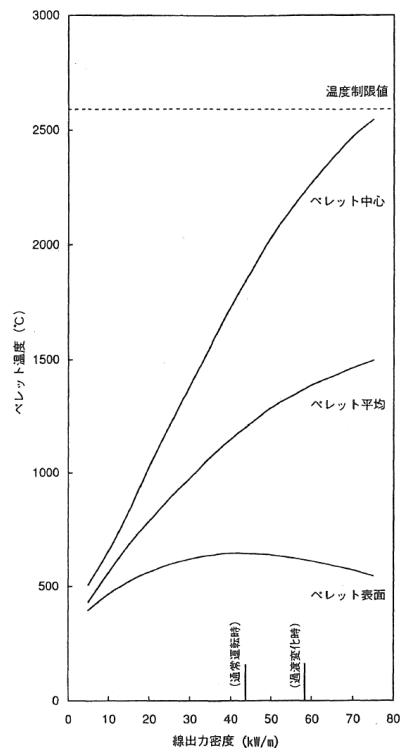


図 1.3-3 燃料ペレット内温度の解析例（PWR 燃料の例） [8]

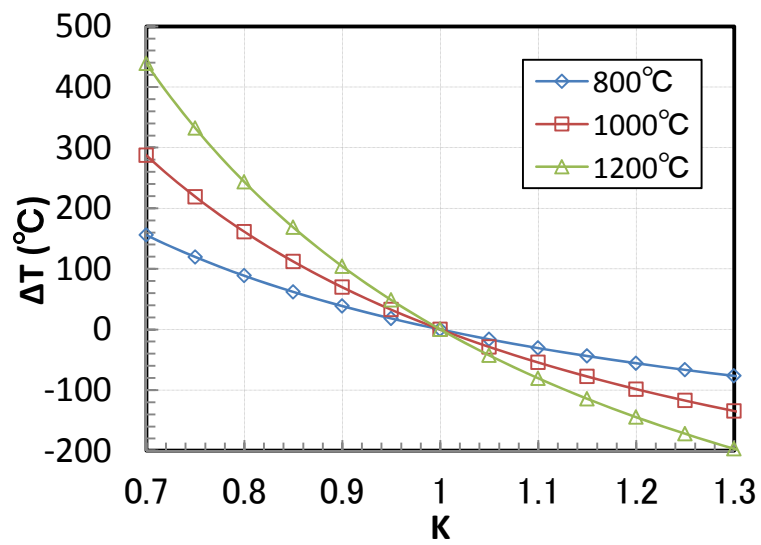


図 1.3-4 積分熱伝導率偏差と燃料ペレット中心温度偏差の相関

1.3.2 照射下燃料温度測定による熱伝導率評価

ここでは、最近の MOX 燃料照射試験における高燃焼度下での燃料温度測定結果の評価により得られた、MOX 燃料と UO₂ 燃料の熱伝導率低下の相違についてレビューし、その課題点を整理する。

(1) 酸化物熱伝導率の燃焼度による低下

一般に酸化物燃料では、照射による燃焼に伴い熱伝導率が低下することが知られている^[11-14]。

図 1.3-5 に J.J.Carbajo ら^[14]による MOX 燃料熱伝導率低下モデルの一例を示す。このように例えば照射中燃料ペレットの表面温度に近い 700K では、高燃焼度領域で約 40% 近く熱伝導率が低下することが示されており、照射下における燃料中心温度を評価する上で、この熱伝導率低下を正確に評価することは、特に高燃焼度で重要である。

酸化物燃料の熱伝導率低下のメカニズムについては、過去に多くの研究が行われてきたが、J.J.Carbajo ら^[14]は酸化物熱伝導率の燃焼に伴う低下のメカニズムモデルのレビューを行って、以下のようなモデル式を提案している。

$$k = \left[\frac{1}{A + C \cdot t} + \frac{6400}{t^{2.5}} \cdot \exp\left(-\frac{16.35}{t}\right) \right] \cdot \left[\omega \cdot \arctan(1/\omega) \right] \cdot \left[1 + \frac{0.019B}{(3 - 0.019B)} \cdot \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{(T - 1200)}{100}\right)} \right] \cdot \left[1 - \frac{0.2}{1 + \exp\left(\frac{T - 900}{80}\right)} \right]$$

$A(x) = 2.85x + 0.035$
 $C(x) = -0.715x + 0.286$
 $t = T / 1000$
 $\omega = 1.09 / B^{3.265} + 0.0643(T / B)^{1/2}$

未照射フォノン伝導項及び電子伝導項 燃焼に伴う低下項

固溶固体FPの寄与項 析出固体FPの寄与項 照射欠陥の寄与項

..... (1-4)

ここで、

x : 化学量論組成 (O/M 比=2.00) からの偏差 ($0.00 \leq x \leq 0.05$)

T : 温度 (K) ($700K \leq T \leq 3100K$)

B : 燃焼度 (at%)

但し、Pu の組成範囲は、 $0.03 \leq y \leq 0.15$ in (U_{1-y},Pu_y)O_{2-x} とされている。

このモデルでも示されるように、酸化物燃料の熱伝導率は、未照射の熱伝導率項と燃焼による低下項の積で表現されている。

未照射の酸化物熱伝導率では、 UO_2 燃料に比較し MOX 燃料では、Pu 原子が U 原子に置換して固溶することにより、U/Pu 間の質量差とイオン半径の違いによって、フォノン-格子散乱を増加させる要因となるため、MOX 燃料のフォノン熱伝導率低下要因となる。このことより、MOX 燃料の未照射熱伝導率モデルは UO_2 燃料の熱伝導率モデルを基にして、その係数を調整するモデルが提唱されている^[14-22]。

一方、照射に伴う熱伝導率の低下の割合については、MOX 燃料に関する熱伝導率低下に関する実測データが乏しいこともあり、 UO_2 燃料の熱伝導率低下の割合と同等と考えられており、同じモデルで評価されているのが現状である。

(2) 照射下燃料温度測定による熱伝導率燃焼度依存評価

前述のように、MOX 燃料の照射に伴う熱伝導率低下については、 UO_2 燃料のそれと同等に考えられてきたが、最近の MOX 燃料を使用した試験炉における照射試験結果では、両者の間に違いがあることを示唆する結果が報告されている。ここではその照射試験における温度評価に基づく熱伝導率低下についてレビューする。

① Halden 炉 IFA-626 照射試験

この照射試験は日本の PWR グループによる電力共研として 1995-2006 年に実施された^[23]。この照射試験はノルウェー Halden にある試験炉 (HBWR) にて、照射試験リグ IFA-626 にて照射された。照射を行った燃料の種類は、SBR-MOX, MIMAS-MOX, Ref.- UO_2 の 3 種類各 4 本、計 12 本で、試験燃料棒には照射中計装として、燃料棒内圧、燃料中心温度、燃料スタック長、被覆管伸びの計装が装備され照射中のオンラインデータが取得された。達成燃焼度は約 65GWd/tM(Rod 平均)である。照射試験に使用した試験燃料の主要な仕様を表 1.3-1 にまとめて示す。また照射リグ IFA-626 の概念図を図 1.3-6 に示す。

この照射試験において、照射期間中に測定された燃料中心温度の測定結果を燃料棒線出力履歴と合わせて図 1.3-7 に示す。Halden 炉は試験炉であるため、他の試験燃料の試験条件等のため、定常的な出力条件で照射されていないが、大まかな傾向としては、照射初期から後期に向けて、出力が減少する傾向にあり、それに応じて増減する燃料中心温度の履歴が得られていることが分かる。

約 11 年間の照射期間中、原子炉の停止・立上げを何回も経験しており、燃料出力・温度がその都度温態停止状態まで落とされている。この停止・立上げにおける燃料出力と燃料温度の相関を、照射中期及び後期の代表的な測定結果について図 1.3-8 に示す。燃料の線出力と、燃料中心温度とはほぼ直線的な相関が得られていることが分かる。

燃料ペレットの出力と半径方向の温度差との関係は、熱伝導率を介して、定常状態では以下の式で近似的に表すことができる。

$$(T_0(t) - T_r(t)) \cdot k(T) = Q(r, t) \cdot q(t) \quad \dots \dots (1-5)$$

ここで、

$T(t)$ ：時刻 t の半径位置 r における温度

$k(T)$ ：燃料ペレット熱伝導率

$q(t)$ ：単位体積の時刻 t における発熱量

$Q(r, t)$ ：時刻 t の半径位置 r における出力分担比

従って、燃料の線出力と燃料中心温度との間の直線関係における傾きに、燃料ペレットの熱伝導率は反比例する関係にある。この観点で図 1.3-8 の照射中測定結果を見ると、照射中期では UO_2 燃料の傾きが MOX 燃料よりも小さい傾向にあり、従って UO_2 燃料の熱伝導率が MOX 燃料のそれよりも大きい傾向にあったと推定される。これに対し、照射後期では、僅かではあるが UO_2 燃料の傾きと MOX 燃料の傾きが逆転する傾向が認められることから、照射後期では MOX 燃料の熱伝導率が UO_2 燃料に比較し、同等あるいは若干大きいことが示唆される。このことは、照射に伴う熱伝導率の低下の割合が、 UO_2 燃料と MOX 燃料で異なることを意味している。

同様な Halden 炉における MOX 燃料の照射試験 (IFA-687, IFA-688) において、Nakamura ら^[24]は商用炉で約 70GWd/t の高燃焼度まで照射された MOX 燃料に、照射試験用計装として熱電対を装荷し、照射中の燃料温度測定を実施した。照射中に測定された燃料温度と線出力依存性の関係性を評価した結果から、IFA-626 試験結果と同様に、 MOX 燃料の熱伝導率低下が UO_2 燃料のそれよりも緩和されることを示している。

② Halden 炉 IFA-702 照射試験

この照射試験は、前述の IFA-626 照射試験に継続して、JNES プログラムとして 2007-2011 年に実施された^[25]。

IFA-626 で照射された 12 本の燃料棒から、SBR-MOX, MIMAS-MOX, Ref.- UO_2 の各 1 本計 3 本を選定し、これらに燃料棒内圧、燃料中心温度測定熱電対を再度新たに装着し、約 100 日間の追加照射期間中の照射データをオンラインで測定した。燃焼度は、約 70GWd/tM(Rod 平均) を達成した。照射試験に使用した試験燃料の主要な仕様を表 1.3-2 にまとめて示す。また照射リグ IFA-702 内の配置図を図 1.3-9 に示す^[26]。

この追加照射における出力履歴を、IFA-626 の照射履歴と合わせて図 1.3-10 に示すが、高燃焼度の照射後期において、IFA-626 に比較して高い線出力で照射が行われた。

この追加照射期間中に測定された燃料中心温度の測定結果を、燃料棒線出力履歴と合わせて図 1.3-11 に示す。この追加照射期間では、照射開始直後で段階的に出力を上昇させて約 7 日後に最高出力に到達後、徐々に出力が低下する履歴であった。

照射末期における燃料出力と燃料温度の相関を図 1.3-12 に示すが、IFA-626 と同様

に、燃料の線出力と燃料中心温度との間には、ほぼ直線的な相関が得られている。この相関関係における傾きを見ると、 UO_2 燃料の傾きが最も大きく、**SBR-MOX** 燃料もそれに近いのに対し、**MIMAS-MOX** 燃料の傾きが最も小さい傾向にあることが分かる。この傾向は、**IFA-626** の測定結果でも述べたように、熱伝導率低下の割合が **MOX** 燃料と UO_2 燃料の間で異なることを示しており、その傾向は **IFA-626** と一致し、特に **MIMAS-MOX** 燃料の熱伝導率低下の割合が最も小さい傾向にあることが示唆される。

これらの照射中に測定された燃料中心温度に対し、燃料棒仕様並びに出力履歴等を入力値として照射挙動解析 **FEMAXI-6** コード^[27]を使用して燃料中心温度を計算し、**MIMAS-MOX** 燃料について比較した結果を図 1.3-13 に示す^[28]。従来の **MOX** 熱伝導率を使用した計算した燃料中心温度は、実測値に対し顕著に高い結果となった。この燃料中心温度の計算値が実測値よりも高い要因が、**MIMAS-MOX** 燃料の熱伝導率を過小評価していることによると仮定すると、同図に示すように従来の熱伝導率に対し約 1.3 倍の補正をすることにより、実測値と計算値がほぼ一致することが示された。このような照射挙動解析コードを介した定量評価から、約 75GWd/t 高燃焼度では、従来の **MOX** 熱伝導率モデルに比較し、熱伝導率が約 30% 高い可能性、すなわち熱伝導率低下が抑制されている可能性があることが示唆される。

表 1.3-1 IFA-626 照射試験燃料の主要仕様^[23]Specification of the fuel rods in IFA-626
MOX

	SBR	MIMAS	UO ₂
Pellet			
-fabricator	BNFL	COMMOX	IFE
-Pu-f content (wt%)	6.12	6.12	---
- ²³⁵ U content (wt%)	Depleted	Depleted	8.0
-diameter (mm)	8.19	8.05	8.19
-density (%T.D.)	95	←	←
Cladding			
-material	Zircaloy-4	←	←
-diameter (mm) (outer/inner)	9.50 / 8.36	9.50 / 8.22	9.50 / 8.36
Fuel rod			
-number of rods	4	←	←
-stack length (mm)	300	←	←
-filled gas	He	←	←

表 1.3-2 IFA-702 照射試験燃料の主要仕様^[25]

Fuel rod No	702-1	702-2	702-3
Fuel pellet			
Pellet type	SBR-MOX	UO ₂	MIMAS-MOX
Outer diameter* (mm)	8.19	8.19	8.05
Density* (%TD)	95	95	95
²³⁵ U enrichment* (wt%)	Depleted	8	depleted
Pu content* (wt%)	8.4	-	8.4
Pu ^f content* (wt%)	6.1	-	6.1
Cladding			
Material	Zircaloy-4		
Outer diameter* (mm)	9.5	9.5	9.5
Inner diameter* (mm)	8.36	8.36	8.22
Thickness* (mm)	0.57	0.57	0.64
Fuel rod			
Instrumentation	Thermocouple (upper position) Pressure gage (lower position)		
Achieved average burnup** (GWd/t)	65	65	65
Achieved peak burnup** (GWd/t)	71	71	70

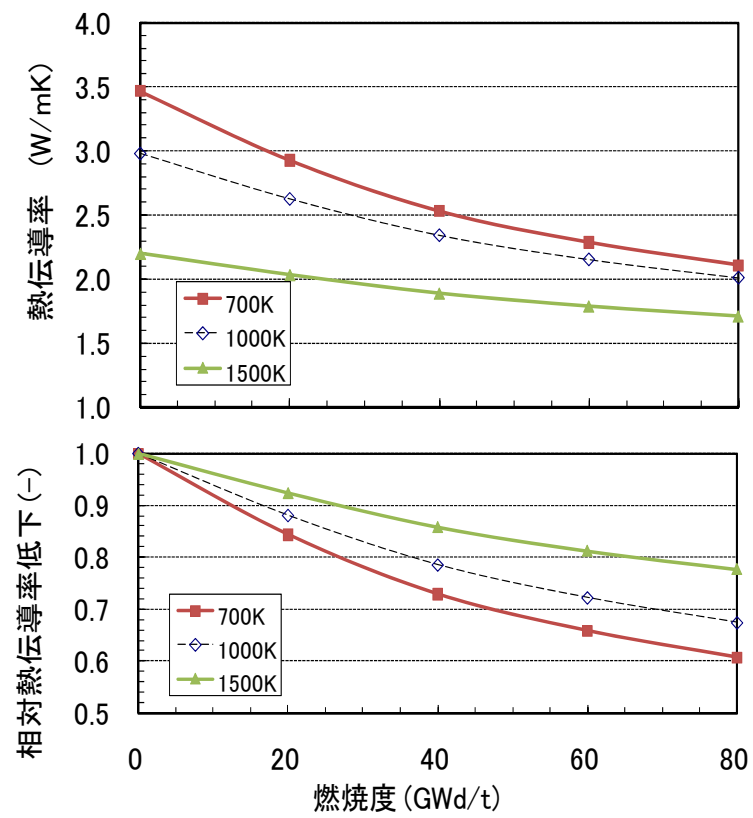


図 1.3-5 J.J.Carbajo らによる MOX 燃料熱伝導率低下モデル

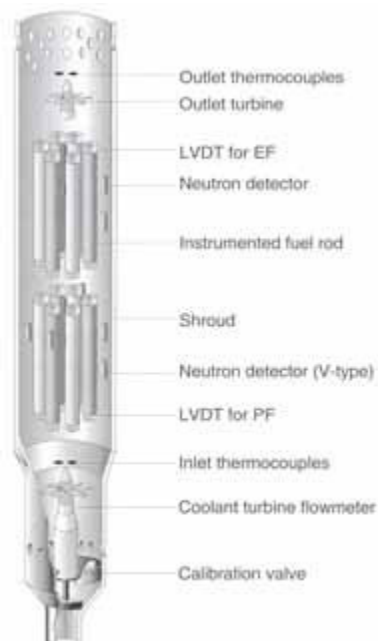


図 1.3-6 照射リグ IFA-626 の概念図^[23]

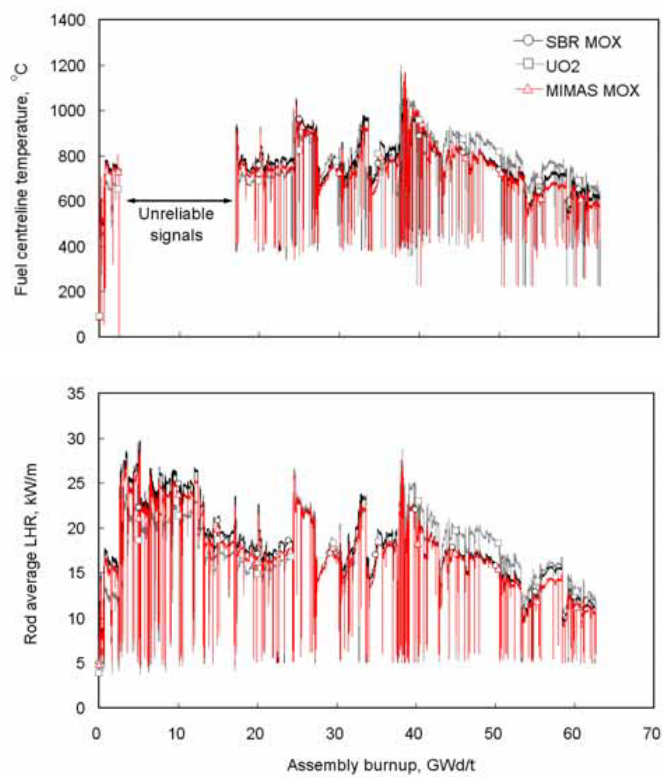


図 1.3-7 照射期間中の燃料線出力履歴と燃料中心温度測定結果（IFA-626）^[23]

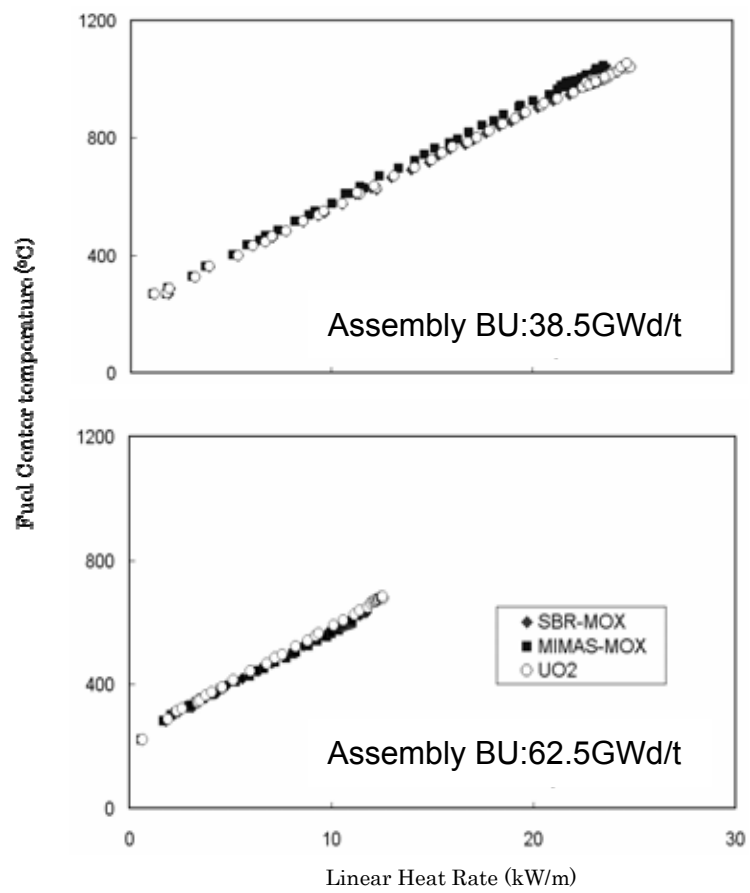


図 1.3-8 照射中期及び後期における燃料中心温度と線出力の関係^[23]

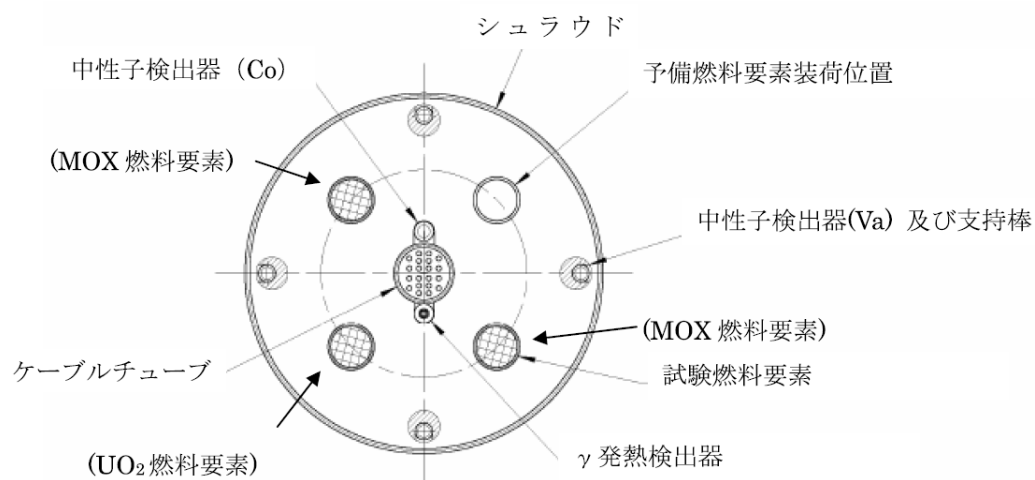


図 1.3-9 照射リグ IFA-702 内の配置図^[26]

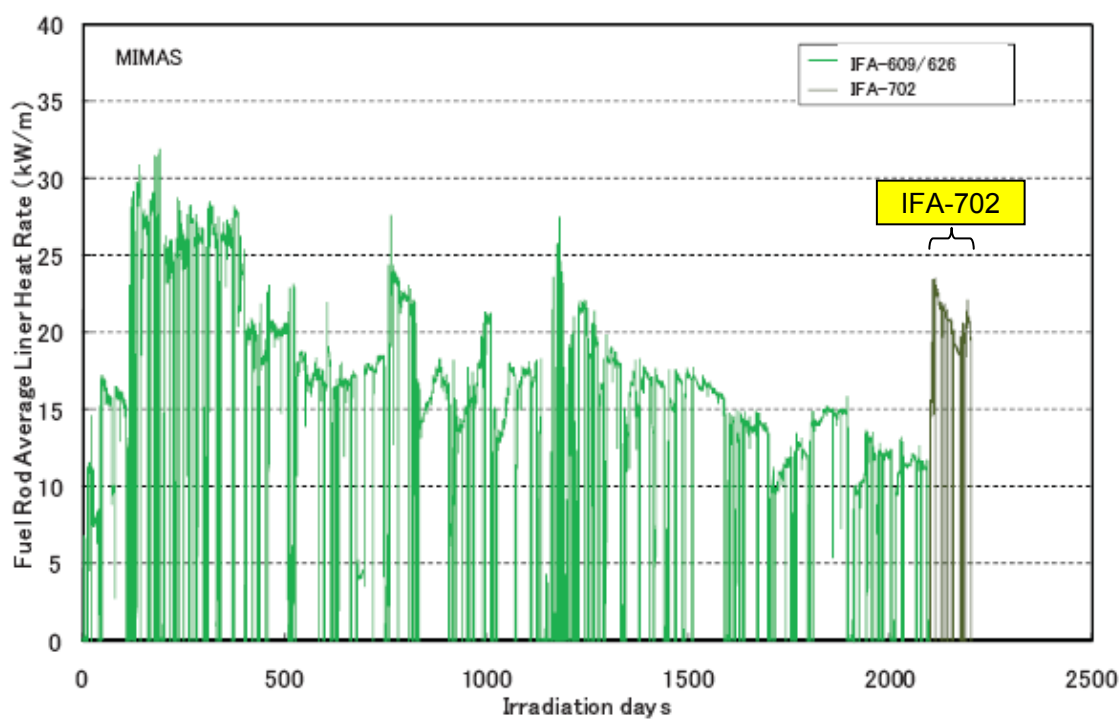


図 1.3-10 追加照射 IFA-702 の照射履歴 (MIMAS-MOX) ^[25]

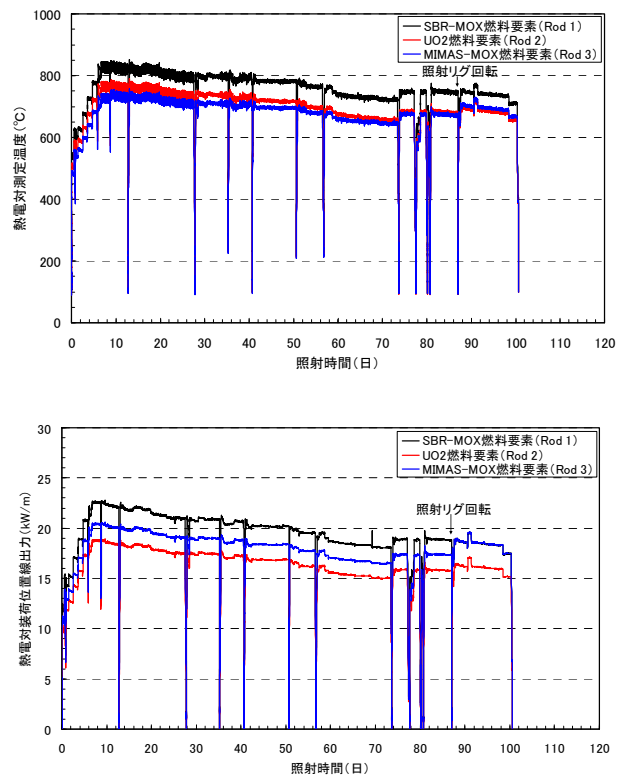


図 1.3-11 追加照射期間中の燃料線出力履歴と燃料中心温度測定結果 (IFA-702) [28]

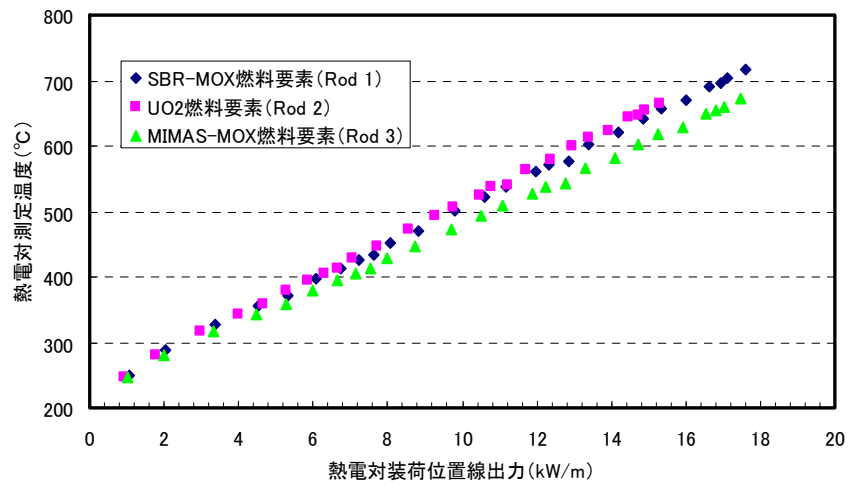


図 1.3-12 燃料ペレット温度と線出力との関係 (照射日数 87 日) [28]

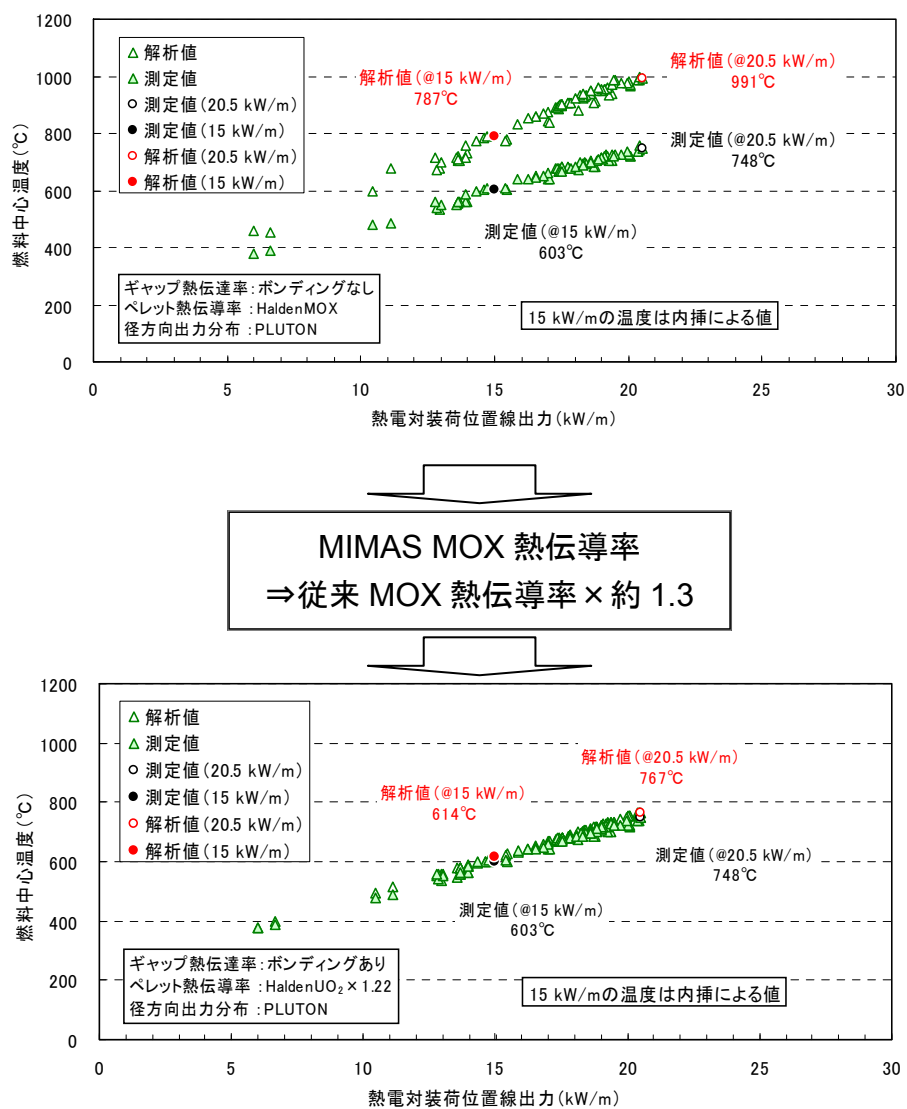


図 1.3-13 照射末期燃料温度測定結果に基づく照射挙動解析コードによる UO₂/MOX の熱伝導率比較^[28]

1.3.3 MOX 燃料熱伝導率燃焼変化に係わる課題

照射試験の燃料温度測定評価より、MOX 燃料熱伝導率低下の挙動について、従来知見と異なる以下の課題が指摘される。

- 1) MOX 燃料の熱伝導率は、未照射では UO_2 燃料に比較し低い、約 70GWd/t を超える高燃焼度では、同等あるいは MOX 燃料の方が高くなる事実から、燃焼に伴う熱伝導率低下の割合が同等ではなく、MOX 燃料の方が UO_2 燃料に比較し低下が緩和されると推論され、従来知見と異なる可能性がある。
- 2) 熱伝導率低下の割合は、MOX 燃料の間でも、燃料マトリックス中の Pu 濃度分布が不均一な MOX 燃料ほど、熱伝導率低下がより緩和される事実から、製造時の微細組織構造とその燃焼特性と熱伝導率低下割合に相関があると推論されるが、そのメカニズムは明らかでない。

これらの課題において、1) は MOX 燃料の物性に依存するのに対し、2) は MOX 燃料の製造手法や条件に依存することを考慮すると、課題 2) のメカニズムを解明・把握することは MOX 燃料を実用規模利用する上で、工学的に重要度が高いと考えられる。

1.3.4 熱伝導率燃焼変化要因と推定メカニズム

MOX 燃料の燃焼に伴う熱伝導率の変化が、従来の UO_2 燃料と異なる挙動を示す主要な材料的要因（照射前段階における材料特性の相違点）としては、以下の3つに分類して考えることが可能である。

- ・ Fissile 元素の燃料ペレット内空間分布不均一(Pu スポット)による要因
- ・ Fissile 元素が U から Pu に置き換わることによる要因
- ・ これら要因に対する局所的な高燃焼度化の影響

このような材料的要因によって引き起こされるであろう、照射下熱伝導率変化への影響メカニズムとして以下が考えられる。

Fissile 元素の燃料ペレット内空間分布不均一(Pu スポット)による要因

①燃料マトリクス部（連続相）燃焼抑制効果

連続相を形成する低 Pu 濃度部の熱伝導率低下が抑制されるため、バルク熱伝導率低下を抑制する効果

Fissile 元素が U から Pu に置き換わることによる要因

②固溶性 FP 元素濃度が小さい効果

固溶性 FP 元素（Sr, Y, Zr, ランタノイド元素等）濃度が小さいために結晶構造歪量が減少し、従ってフォノン伝導低下を抑制する効果

③析出金属 FP 元素濃度が大きい効果

析出性金属 FP 元素（熱伝導率高, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd 等）が増加するため、バルクの熱伝導率を押し上げ熱伝導率低下を抑制する効果

高燃焼度化による上記要因に影響を与える要因

④局所的 Morphology 変化（気孔分布）の効果

Pu スポット部で局所的に気孔形成・集積が進み熱伝導率を低下させる一方、燃料マトリクス部（連続相）での気孔形成が少なく、そのためバルクの熱伝導率低下を抑制する効果

⑤照射欠陥（Radiation damage）の局所的蓄積の効果

Pu スポット部における照射欠陥が局所的に蓄積して熱伝導率を低下させる一方、燃料マトリクス部（連続相）での照射欠陥蓄積が少なく、そのためバルクの熱伝導率低下を抑制する効果（気孔分布と類似メカニズム）

⑥化学量論組成変化の効果

貴金属 FP 元素収率増→酸素ポテンシャル上昇→化学量論組成増大の可能性が考えられるが、化学量論組成（O/M 比=2.00）からのずれは、熱伝導率を低下させる要因と推定され、MOX 燃料の熱伝導率低下抑制には働き難い。

1.4 本研究の目的

本研究では、1.3.3 項で抽出した従来知見と異なる MOX 燃料の熱伝導率変化の課題について解明するため、以下を目的とする。

燃焼に伴って酸化物燃料の熱伝導率が低下する事象について、従来の UO_2 燃料の挙動に比較して MOX 燃料においてその低下が緩和される主要なメカニズムを、特に局所的に Pu 濃度が高い領域（Pu スポット）が存在し、燃焼が空間的に不均一な効果に着目して解明し、定量的に評価する手法を確立する。

具体的には 1.3.4 項にて推定した MOX 燃料熱伝導率低下緩和に寄与する要因について、図 1.4-1 に示すようなフローにて検討を行う。すなわち本研究では、第 1 章において MOX 燃料熱伝導率低下に関する課題抽出とその要因推定を行い、第 3 章にて MOX 燃料の製造時特性に起因する Pu 濃度不均一性の熱伝導率への影響のメカニズムを推定し、第 4 章、第 5 章にてその定量化モデルの具体的方法論とその結果を論ずる。また、FP 収率差による要因については、第 6 章にてそのメカニズム推定と具体的な解析手法及びその結果について検討を行う。第 7 章の総合評価では、これらの MOX 熱伝導率低下緩和に関する複数の要因に加え、局所的な高燃焼度化による熱伝導率に与える影響のメカニズムとその定量的な評価モデルを検討した上で、複数の要因による熱伝導率低下緩和効果を定量的に比較評価し、定量的な評価手法を示した上で MOX 燃料の熱伝導率低下緩和の主要なメカニズムの解明を行う。

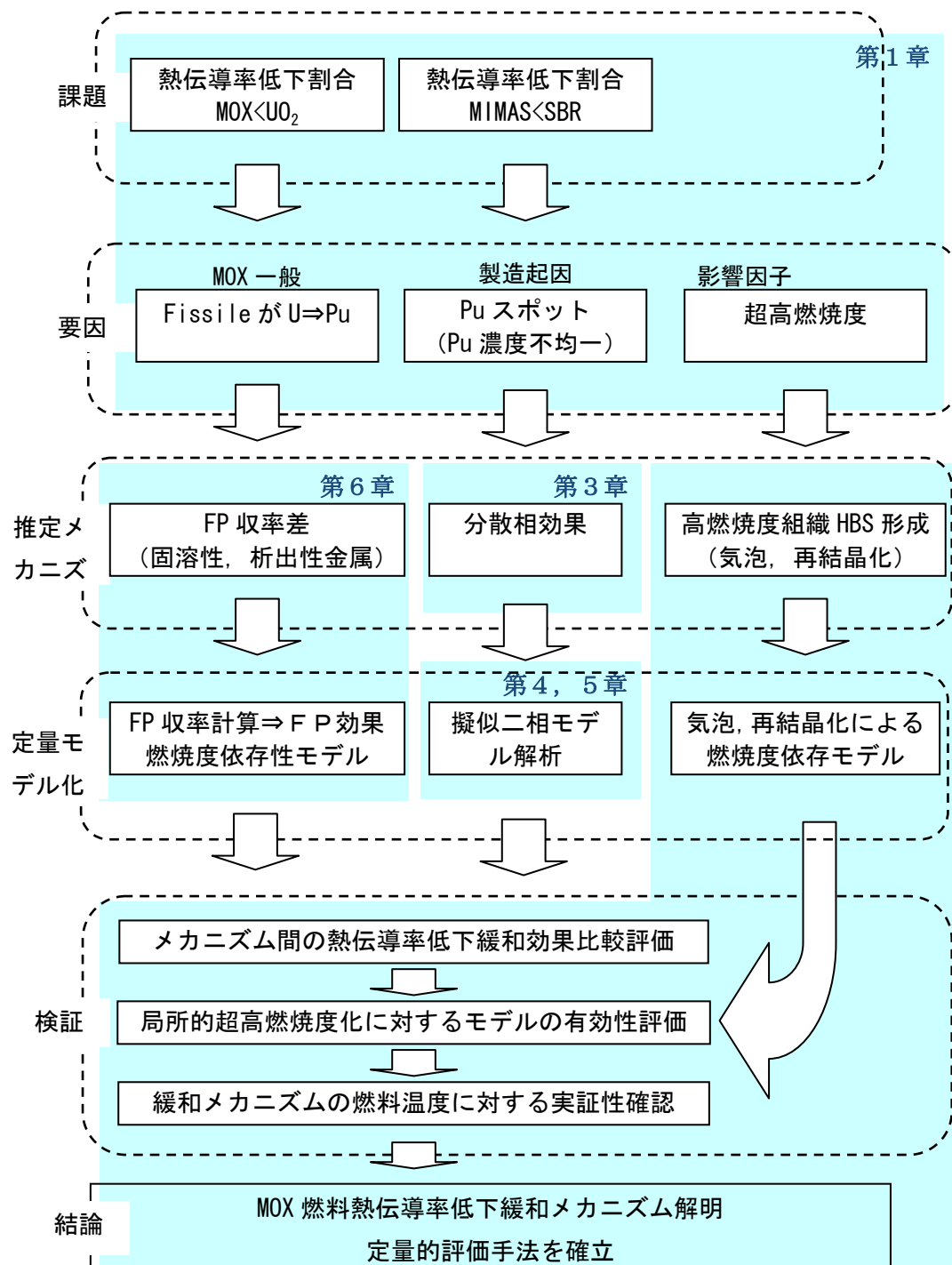


図 1.4-1 MOX 燃料熱伝導率低下の緩和メカニズム検討フロー

第 2 章

酸化物燃料熱伝導率低下 モデルのレビュー

2.1 酸化物燃料の熱伝導率低下モデル

UO₂の熱伝導率は図 2.1-1 にその例を示すように^[1]、室温付近から温度上昇に伴って低下し、約 1800K 近傍から上昇に転じる。UO₂のようなセラミックス材料では一般に、格子振動による熱伝導（フォノン[Phonon]伝導）が支配的であり、温度に対して反比例することが知られている^[2]。従って、温度の上昇とともに熱伝導率は低下するが、約 1800K を超える高温の領域では、電子伝導による熱伝導が指数関数的に増大するため、このような高温領域では転じて増加する傾向にある。軽水炉における酸化物燃料の実用的な使用温度は、主に 1800K 以下の領域であることから、燃焼に伴うフォノン伝導の変化を精度よく把握してそのメカニズムを理解することは重要である。

原子炉における照射に伴い、酸化物燃料では以下のような材料特性の変化が生じる。

- ・ 中性子照射による照射損傷・照射欠陥の蓄積
- ・ 核分裂に伴う重金属原子の減少
- ・ 中性子吸収に伴う重金属原子の核変換
- ・ 核分裂生成物の飛翔に伴う照射損傷・照射欠陥の蓄積
- ・ 核分裂生成物の燃料マトリクス中への固溶・析出
- ・ 気体核分裂生成物の析出・集合による燃料マトリクス中の気泡形成
- ・ 核分裂による金属原子電荷の変化に伴う化学量論組成の変化

このような材料特性変化は、熱伝導率と密接な関係があり、特に酸化物燃料マトリクスの結晶構造に影響を与える要因は、低温領域のフォノン伝導に大きく影響するため、特に重要であり、そのメカニズムも多く研究されてきた。

酸化物燃料熱伝導率の照射による効果の内結晶構造に影響を与える要因は、約 1800K 以下の温度範囲で支配的となるフォノン伝導項で扱われる。フォノン伝導のメカニズムにおいては、フォノン同士の相互作用によるフォノン-フォノン散乱による熱抵抗と、フォノンと結晶格子の散乱中心との相互作用によるフォノン-格子散乱による熱抵抗として表される。ここで、熱抵抗と熱伝導率は、逆数の関係にある。

前述した照射に伴う酸化物燃料の特性変化は、気体核分裂生成物による気泡形成を除くと、いずれも結晶構造に歪を与える要因となり、このような変化はフォノン伝導においては、フォノン-格子散乱項の増加となって熱抵抗を増加（熱伝導率を低下）させる要因となる。

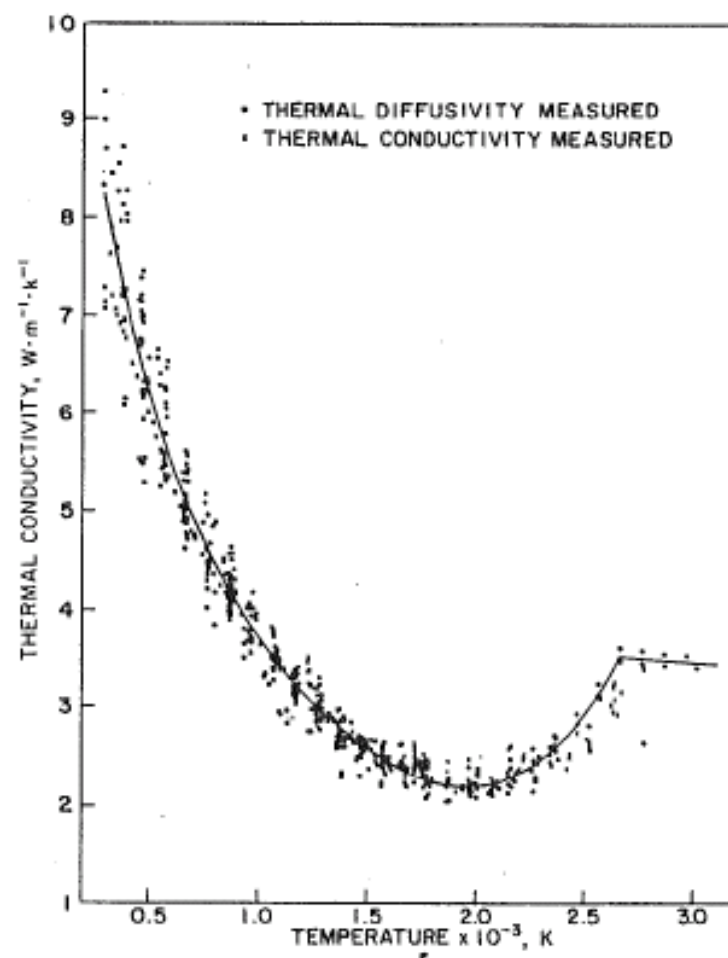


図 2.1-1 UO_2 の熱伝導率温度依存性データ例^[1]

2.1.1 異種金属原子固溶の効果

UO₂ に異種金属原子が固溶することによる熱伝導率低下については、個別の金属元素（主に希土類元素）に対する影響を炉外試験で実測した研究が、Fukushima らにより報告されている^[3-7]。Fukushima らは、酸化物燃料のフォノン熱伝導率を以下の式で表している。

$$k = (A + B \cdot T)^{-1} \quad \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \quad (2-1)$$

ここで、 k は熱伝導率、 T は温度である。

フォノン伝導では、 A がフォノン-格子散乱項を表し、 $B \cdot T$ がフォノン-フォノン散乱項を表す。Fukushima らはフォノン散乱断面積の概念を導入し、 A と散乱断面積 Γ_i の間に以下の関係式を導いている。

$$A = \pi^2 \bar{V} \theta / 3 \bar{v}^2 h \sum_i \Gamma_i \quad \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \quad (2-2)$$

\bar{V} : 平均原子容

θ : デバイ温度

\bar{v} : 平均フォノン速度

h : プランク定数

ここでフォノン散乱断面積 Γ_i は、固溶金属原子 i の平均質量 \bar{M} との差、平均イオン半径 \bar{r} との差により、以下のように表されている。

$$\Gamma_i = x_i \left[\left(\frac{\bar{M} - M_i}{\bar{M}} \right)^2 + \varepsilon \left(\frac{\bar{r} - r_i}{\bar{r}} \right)^2 \right] \quad \cdot \cdot \cdot \cdot \cdot \quad (2-3)$$

x_i : 固溶原子 i の組成

M_i : 固溶原子 i の質量

r_i : 固溶原子 i のイオン半径

従って、以上のような概念からフォノン-格子散乱項を、異種金属原子が存在しない純粋な UO₂ の場合を A_0 とし、異種金属の固溶によって変化した増加分を ΔA とし、以下のように表すことが可能である。

$$A = A_0 + \Delta A$$

照射下における材料特性変化に伴うフォノン熱伝導率の変化は、この式における ΔA を燃焼度の関数としてその相関を定量的に表すことに帰着することができる。

2.1.2 模擬FP元素による燃焼効果に関する研究

前述のように、照射による材料特性変化には、複数のFP元素の固溶や蓄積が係わっており、その組成も元素によって異なるため、その熱伝導率に与える影響を個々に把握してバルク熱伝導率を評価することは複雑であり、不確定性も大きく困難である。そこで、照射燃料において生成するFP元素の内、揮発性FP元素を除く組成を、燃焼度に応じて模擬して酸化物燃料に添加し、燃焼度と熱伝導率低下の相関を実験的に評価した研究が行われている。

このような模擬燃料は、SimFuelとも呼ばれ、Lucutaら^[8-13]、Ishimotoら^[14]やAmayaら^[15]がSimFuelの熱伝導率測定結果を基にした燃焼度依存性モデルを報告している。これらの研究においては、固体物性の緩和理論に基づいてKlemens^[16]が提唱したモデルを基に、格子散乱パラメータの概念を導入することにより、以下のような汎用的な式で、各種の結晶構造変化の寄与を定量的に扱うことが可能としている。

$$\lambda = \lambda_0 \cdot \arctan(\theta) / \theta \quad \dots \dots (2-4)$$

θ : 散乱パラメータ

λ : 固溶体熱伝導率

λ_0 : 無添加UO₂熱伝導率

添加物の無い純粋なUO₂結晶では、ウムクラップ(Umklapp)過程によるフォノン-フォノン散乱が支配的であり、そのような場合には(2-1)式で示したように、そのフォノン熱伝導率はほぼ温度に反比例の関係にある。しかし、添加物量（すなわち燃焼度）が増加し、フォノン-格子散乱がより支配的となると、その温度依存性は $T^{1/2}$ に反比例し温度依存性が変わると考えられる^[14]。

このように、結晶中の欠陥や固溶金属の組成によって温度依存性が変化するため、その熱伝導率温度依存性を2.1.1項で示した(2-1)式の形で表現することに限界があることより、より汎用的な表現である(2-4)式が適していると考えられる。

ここで、散乱パラメータは、固体物理の理論からは、固溶金属濃度に依存する固有のフォノン振動数 ω' とデバイ振動数 ω_D の比として、

$$\theta = \omega_D / \omega' \quad \dots \dots (2-5)$$

と定義される。しかし、実際の照射におけるFP元素は多種にわたり、個々の影響を理論

的に求めることは困難なため、(2-4)式における熱伝導率の散乱パラメータ θ 依存性を、SimFuel による実験的に求められた熱伝導率との相関関係から、実験式を求めている。

Amaya ら^[15]は固溶性 FP 元素による熱伝導率の低下モデル式として、以下のような式を与えている。

$$\lambda = \lambda_0 \cdot [\arctan(\theta) / \theta] + 5.95 \times 10^{-11} \cdot T^3 \quad \dots \dots \dots (2-6)$$

ここで

$$\lambda_0 = \frac{1}{3.24 \times 10^{-2} + 2.51 \times 10^{-4} \cdot T}$$

$$\theta = D_{FP} \cdot (y_{FP} \cdot \lambda_0)^{1/2}$$

$$D_{FP} = 2.81 \exp(-1.63 \times 10^{-4} \cdot T)$$

T : 温度(K)

y_{FP} : 固溶性 FP 金属元素組成

異なる要因（照射欠陥、固溶性 FP 金属、O/M 比等）による個々の影響は、個々の散乱パラメータ θ_i として求められる。固体物理の理論からフォノンの平均自由行程 λ は散乱パラメータ θ_i の 2 乗に比例する関係があること、また個々の散乱要因に起因する平均自由行程とマトリックス全体のフォノン自由行程との間にはその逆数に加成性が成り立つ^[10]ことから、次式のような関係がある。

$$\theta^{-2} = \sum_i \theta_i^{-2} \quad \dots \dots \dots (2-7)$$

2.1.3 実照射材による燃焼効果に関する研究

ここでは、実際に原子炉で照射した燃料に対する実測データを基にした、熱伝導率低下に関する研究についてレビューする^[17,18]。

2.3 節で考察するが、照射材による熱伝導率低下の評価には、原子炉内照射下において直接その温度を測定するその場観察(in-situ)の手法と、照射後にホットセルにおいて燃料ペレット片を採取し、その熱伝導率を加熱昇降温させながら実測する手法に分類することができる。ここでは、これらの代表的な研究例について整理する。

試験炉において照射中の燃料中心温度を測定し、その温度を解析することにより熱伝導率を求める手法により、UO₂ 燃料の熱伝導率燃焼度依存性モデルについて Wiesenack ら^[17]は以下の式を提唱している。

$$\lambda_{95} = \frac{1}{0.1148 + 3.05 \times 10^{-3} B + 2.475 \times 10^{-4} (1 - 3.3 \times 10^{-3} B) \cdot T} + 1.32 \times 10^{-2} \exp(1.88 \times 10^{-3} T) \quad \cdot \cdot \quad (2-8)$$

λ_{95} : 熱伝導率@95%TD(理論密度比) (W/mK)

B : 燃焼度 (MWd/kgUO₂)

T : 温度 (°C)

更に Gates ら^[18]により、この式をベースに複数の照射試験データを蓄積評価して、フォノン伝導項の燃焼度依存性を改良するとともに、MOX 燃料への適用を考慮してフォノン熱伝導項に一定のファクタを乗ずるフォノン伝導式のモデルが以下のように提案されている。

$$\lambda_{95} = \frac{K \cdot 40.4}{464 + 18.4B(1 - 0.003B) + 1.16Gd + (1 - 0.0032B) \cdot T} \quad \cdot \cdot \cdot \cdot \quad (2-9)$$

K : 定数 =1(for UO₂), =0.92(for MOX)

Gd : ガドリニア添加組成 (wt%)

これらの式を基にすると、燃焼に伴うフォノン伝導の低下を考慮した高温までの熱伝導率として、以下の式が推奨される。

$$\lambda_{95} = \frac{K \cdot 40.4}{464 + 18.4B(1 - 0.003B) + 1.16Gd + (1 - 0.0032B) \cdot T} + 1.32 \times 10^{-2} \exp(1.88 \times 10^{-3} T) \quad \cdot \cdot \quad (2-10)$$

これらの式では、燃焼に伴うフォノン伝導の低下は、実験式としてフォノン・フォノン散乱項とフォノン・格子散乱項の両方に考慮しており、後者では燃焼度に対し直線的に増加するのではなく若干飽和してゆく傾向を示していることが特徴である。

MOX 燃料と UO₂ 燃料の間では、一律に定数を乗じているため、燃焼に伴う熱伝導率低下は基本的に同じとして扱われていることが分かる。

照射済みの燃料ペレットをレーザーフラッシュ法を用いてその熱拡散率を炉外で測定し、その熱伝導率の温度、燃焼度依存性を評価結果は多く報告されており、それらを整理した例^[19]を表 2.1-1 に示す。

これらの研究における共通した主要課題は、照射を終了した燃料ペレットをホットセルに輸送して、採取した試料の熱拡散率測定を実施するまでの期間に通常数年の単位を必要とするために、その間に α 核種等の放射線による照射欠陥が新たに蓄積され、実際に炉内で照射された状態に比較して熱伝導率が更に低下している可能性があることにある。実際に照射した燃料ペレット片の熱伝導率を炉外で測定した例を図 2.1-2 に示す。温

度依存性測定のため、試料を昇温して測定した後、降温後に再度測定すると、熱伝導率が回復している事象が観測され、その回復量は昇温する温度が高くなるに従い大きくなる傾向がある。これは昇温により蓄積された照射欠陥が回復するためと解釈されている。従って、炉内における熱伝導率の変化を精度よく評価するためには、この照射欠陥回復による熱伝導率の変化が、照射終了後にどの程度発生したかを定量的に把握する必要があるが、そこには不確定性も大きく、幾つかのモデルが提唱されている。

軽水炉燃料では高燃焼度において、特に燃料ペレットの比較的照射温度が低い径方向外周部に「リム組織」あるいは「HBS(High Burnup Structure)」と呼ばれる特有な組織変化が現れることが知られている。このような高燃焼度における特有の組織変化の発生メカニズムや、それに伴う材料特性変化を解明する目的で、国際共同研究 HBRP(High Burnup Rim Project)プログラムが実施され、その中でこのようなリム組織形成と熱伝導率との相関についても研究され、その成果が Kinoshita ら^[20]により報告されている。

その成果の中で Kitajima のモデルとして以下が報告されている。

$$\lambda = \frac{1}{(A_1 + A_2 \cdot Bu) + (B_1 + B_2 \cdot Bu) \cdot T} + C_1 \exp(C_2 \cdot T) \quad \dots \dots \dots (2-11)$$

λ : 熱伝導率 (W/mK)

Bu : 燃焼度 (MWd/kgHM)

$T < 1273\text{K}$

$$A_1 = 40, \quad A_2 = 4.12$$

$$B_1 = 0.22, \quad B_2 = 0 \quad Bu < 50$$

$$B_1 = 0.447, \quad B_2 = -0.00453 \quad 50 < Bu < 80$$

$$B_1 = 0.084, \quad B_2 = 0 \quad 80 < Bu$$

$$C_1 = 1.216 \times 10^{-5}, \quad C_2 = 1.87 \times 10^{-3}$$

$1273\text{K} < T < 1473\text{K}$

1273K と 1473K の熱伝導率値の直線内挿

$1473\text{K} < T$

$$A_1 = 40, \quad A_2 = 1.74$$

$$B_1 = 0.22, \quad B_2 = 0.0003$$

$$C_1 = 1.216 \times 10^{-5}, \quad C_2 = 1.87 \times 10^{-3}$$

このモデルの熱伝導率燃焼度依存性を、温度をパラメータとして図 2.1-3 に示す。同図で示されたフォノン伝導が支配的となる約 1500℃以下の温度範囲で、燃焼度の増加に伴い顕著に熱伝導率が低下する傾向が示されている。リム組織が形成されると考えられる燃焼度が約 50 から 80MWd/kgHM に増加する範囲で、熱伝導率が逆転して回復する傾向が示されている。これはリム組織の形成により結晶組織の再結晶化によって、フォノン

散乱の中心となる照射欠陥が減少するためと解釈される。

Ronchi ら^[21]は、この HBRP で得られた測定データに、照射温度及び照射後における熱伝導率測定時の試料アニーリング温度を考慮に入れたモデルを提唱しており、また Hirai らは SimFuel で適用した Klemens の理論を基にした熱伝導率低下モデルを照射材に適用したモデルを提唱している^[22,23]。

このように照射材測定を基にした UO_2 の熱伝導率低下モデルは、幾つかの報告が行われており、それらを燃焼度の依存性で比較した例^[19]を図 2.1-4 に示す。モデルによって、特に高燃焼度領域でのばらつきが大きい傾向にあることが分かる。これは、高燃焼度での測定実験の困難さによる不確定性の増大と、リム組織形成等の高燃焼度領域での組織変化メカニズムの解釈をどのようにモデルに反映するかの違いにも拠っていると考えられる。

表 2.1-1 照射済み燃料の炉外熱拡散率測定による熱伝導率評価報告例のまとめ^[19]

Author and reference	Year	Fuel	Irradiation	Burnup (MWd kg HM ⁻¹)	Meas. temp. range (K)	Comment
Yamamoto <i>et al.</i> ⁵³	1993	(U _{0.82} Pu _{0.18})O ₂ FBR	Standard	8, 19, 35	850–1900	No burnup degradation observed
Carrol <i>et al.</i> ⁵²	1994	UO ₂	Standard	40	670–1670	Two samples, two runs each
Gomme <i>et al.</i> ³⁵	1997	UO ₂	Standard	61	670–1794	One cycle
Ohira and Itagaki ⁵⁴	1998	UO ₂	Standard	39		Irradiation with a temperature escalation at 1270 K and then 18 days at 573 K
Hirai ⁴⁹						
Baron, ³¹ Yagnik ⁵⁵	1998 2000	UO ₂ (U,Gd)O ₂	Capsule	28, 39, 63, 80 21, 47	300–1900	Two or more cycles per sample
Nakamura ⁵⁶	1998	UO ₂	Standard	63	Three or four cycles	
Minato <i>et al.</i> ⁵⁷	2001	UO ₂ (U,Gd)O ₂	Capsule	18, 39 39	380–1780	Two cycles
Amaya <i>et al.</i> ⁵⁸	2002	UO ₂ same as Hirai ⁴⁹ (U,Gd)O ₂	Standard	39, 60 43, 50	465–1890	Three cycles
Ronchi <i>et al.</i> ¹ Kinoshita <i>et al.</i> ⁵⁹	2004	UO ₂	Capsule	34, 52, 76, 92	500–1500	Ten samples
Walker <i>et al.</i> ⁶⁰	2006	UO ₂	Standard	102	500–1100	Two samples, three radial positions
Staicu <i>et al.</i> ²⁵	2007	(U,Pu)O ₂ LWR	Standard	33	500–1550	Three radial positions
Cozzo <i>et al.</i> ⁶¹	2008	(U,Pu)O ₂ LWR	Standard	19, 44	500–1500	Three radial positions
Sonoda <i>et al.</i> ²³	2008	UO ₂ same as Ronchi <i>et al.</i> ¹ (U,Gd)O ₂	Capsule	32, 53, 86, 96 32, 53	500–1500	Summary of HBRP results

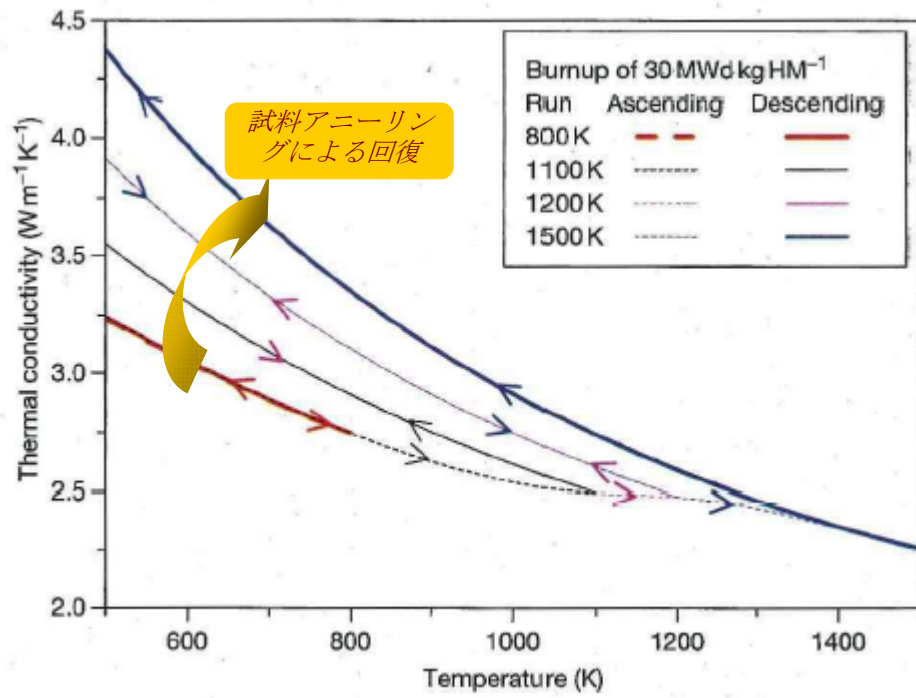


図 2.1-2 照射済み UO_2 熱伝導率温度依存性の炉外測定例^[19]

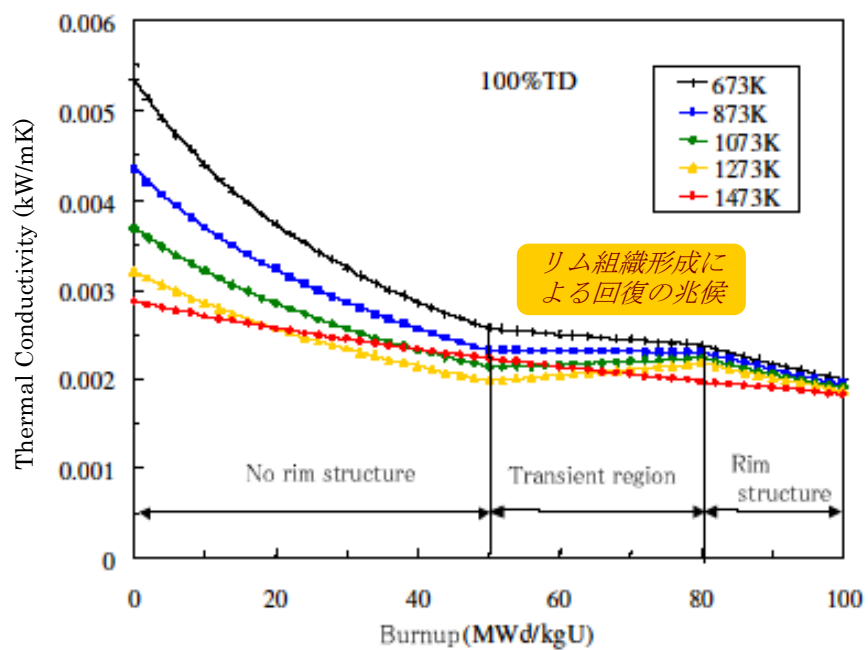


図 2.1-3 UO_2 熱伝導率燃焼度依存性の HBRP モデル^[20]

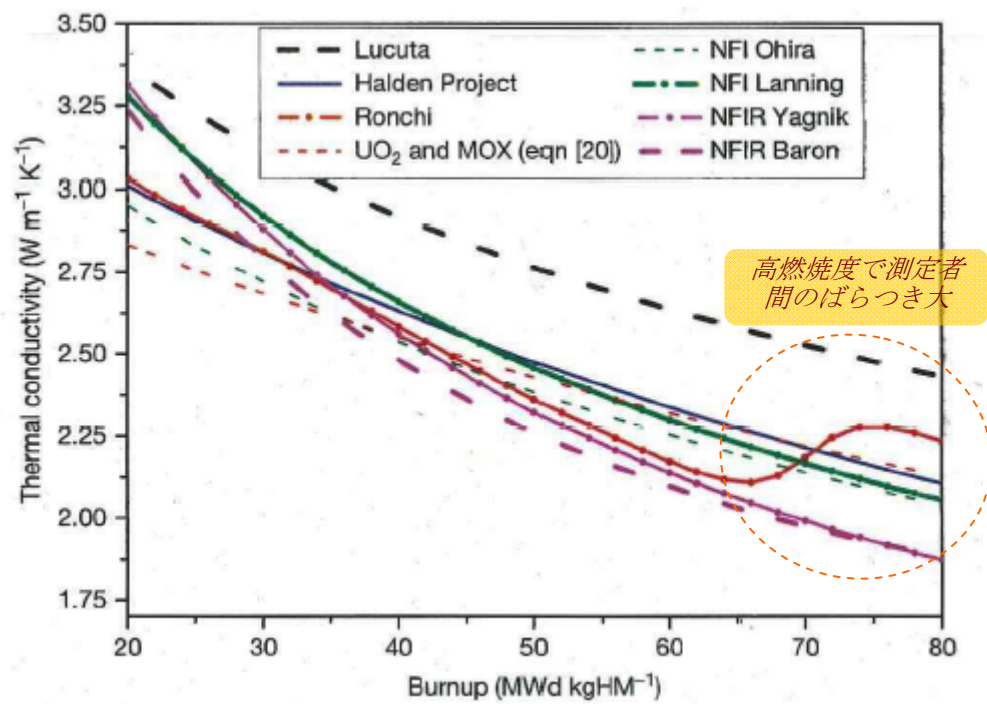


図 2.1-4 照射済み UO_2 の熱伝導率燃焼度依存性モデルの比較例^[19]

2.2 MOX 燃料の熱伝導率レビュー

MOX 燃料の熱伝導率は、影響与えるパラメータが比較的多いので、過去の実測データを比較するためには、それらのパラメータ情報も把握した上で行う必要がある。熱伝導率の測定は、比較的小さな試料片で簡便に測定が可能なレーザーフラッシュ法により実測した報告例が古くよりあり、それらをパラメータ情報も含めて調査した結果をまとめて表 2.2-1 に示す。この調査結果で分かるように、未照射の MOX 燃料については、その材料特性をパラメータとして多くの報告例があるが、照射した MOX 燃料の実測例は限られている。照射材の測定を行った報告の内、軽水炉で照射されて比較的燃焼度が高い Cozzo ら^[46]による測定例を図 2.2-1 に示す。この測定では、Pu 濃度の均一性が異なる 2 種類の MOX 燃料（OCOM 及び SBR）について、いずれも燃焼度が約 44GWd/tHM まで照射された試料について測定している。測定結果では、いずれの試料においても測定時の昇降温によって熱伝導率の回復が観察されており、また試料間でのばらつきも大きいことから、2 種類の MOX 燃料の特性の違いによる熱伝導率の違いは明確に観測されていない。

このような測定例のように、MOX 燃料においては、照射済み燃料の測定データはまだ十分とは言えず、今後のデータ蓄積が望まれる状況にある。

また、過去の測定データをレビューして、MOX 燃料の熱伝導率モデルを提唱している例として、Carbajo ら^[45]は、比較的最近の熱伝導率にかかわる報告をレビューし、前述のような考え方によって、2.1.1 項で示した MOX 燃料の熱伝導率燃焼度依存モデルを提唱している。

このような状況から、MOX 燃料の照射に伴う熱伝導率低下モデルについては、データも多く蓄積され研究が進んでいる UO₂ 燃料の熱伝導率低下モデルを、その低下メカニズムは同等との前提に立って取り込み、未照射における Pu 添加による熱伝導率低下の効果と掛け合わせる形で熱伝導率モデルが提案されているのが現状であると考えられる。

表 2.2-1 MOX 燃料の熱伝導率測定データの報告例

Reference情報		試料情報							照射情報		測定条件情報							モデル式			備 考
報告者	Ref.	Pu含有率 wt%	Pu富化度	O/M比	密度 %TD	製造法	製造者	燃焼度 GWd/t	出力情報	照射炉	測定温度範囲 ℃	測定法	TDデータ	データ	Pu含有率	O/M比	BU				
F.J.Hetzler	24	0.20	N.A.	2.000±0.001 2.048±0.002 1.982±0.002	93.1-96.4	N.A.	N.A.	0	-	-	800-1890	中心加熱法	×	図(曲線)のみ	×	×	×				
F.J.Hetzler	25	20	N.A.	2.000±0.001 2.048±0.002 1.982±0.002	92.1-96.4	硝酸溶液共 沈法	GE	0	-	-	800-1890	中心加熱法	×	デジタル値	×	×	×				
M.Serizawa	26	10,15,20	N.A.	1.985-1.991	95.9-96.1	機械混合法	PNC	0	-	-	800-1800	電子ビーム加熱	○	図(プロット)のみ	×	×	×				
R.A.Laskiewicz	27	0,10,20,30,100	N.A.	1.94-2.00 1.86(100%Pu)	84.0-97.63	機械混合法 共沈法	GE	0	-	-	800-2300	中心加熱法	×	デジタル値	×	○	×	モデル式は20%Puのみ			
R.L.Gibby	28	0,6,13,21,26,30,100	N.A.	2(Stoichiometric)	92-98	共沈法	BMI	0	-	-	100-1200	LF法	×	図(プロット)のみ	○	×	×				
L.A.Goldsmith	29	16,23,30	N.A.	1.99±0.005	95-97	機械混合法	UKAEA	0	-	-	400-1000	LF法	×	デジタル値	×	×	×				
D.G.Martin	30	12-30	N.A.	1.90-2.12		N.A.	-	0	-	-	500-m.p.	-	×	-	×	○	×	実測値無し、レビューペーパー			
大道敏彦	31	20						0	-	-		-	×	-	×	×	×	実測値無し、レビューペーパー			
山口俊弘	32	30		1.94-1.99	85-95			0	-	-	1000-2300	不明	×	図(プロット)のみ	○	○	×				
S.Fukushima	7	20		2	96			0	-	-	400-1500	LF法	○	図(プロット)のみ	×	×	×				
H.Elbel	33	20-25		1.94-1.96	95			0	-	-	800-1400	電子ビーム加熱	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
S.Fukushima	34	20		2	96?			0	-	-	400-1350	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
A.K.Sengupta	35	4		1.997	91			0	-	-	600-1600	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
吉川勝則	36	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	NA(PNC?)	23	N.A.	ふげん	最高約1800	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
Y.Philipponeau	37	20		1.98,2.00	95			0	-	-	500-2000		○	-	×	○	○	レビューペーパー			
MATPRO1993	38	適用範囲不明 (データによる検証 はUO2のみ)		-	-	-	-	0	-	-	-	-	×	モデル式	○	○	×	レビューペーパー			
K.Yamamoto	39	18,28	N.A.	1.97	93-94	N.A.	NA(PNC?)	8,19,35	Relatively Low	常陽	RT-1500	LF法	○	図(プロット)のみ	×	×	×				
I.R.Topliss	40	10	N.A.	2.00-2.02	94-95	SBR/MIMAS	BNFL/BN	0	-	-	400-1600	LF法	△(一部)	図(プロット)のみ	×	×	×				
P.Blanpain	41	6	N.A.	N.A.	N.A.	MIMAS	N.A.	0	-	-	400-1300	N.A.	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
市川達生	42	3.0-6.2	2.25-4.64	(2.00-2.01)	95	N.A.	PNC	26.4(Ass)	max33.7k W/m	原電敦賀 1号(BWR)	230-1700	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
S.Do	43	10	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	0	-	-	400-1600	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	×				
C.Duriez	44	3,6,10,15	N.A.	1.95-2.00	95-96	機械混合法	CEA	0	-	-	427-2027	LF法	×	図(プロット)のみ	×	○	×				
J.J.Carbajo	45	3~15	NA	1.95-2.00	95	-	-	~47	-	-	427-2827 (700-3100K)	-	×	-	×	○	○	実測値無し、レビューペーパー 未照射はDuriez[43]モデルと Ronchi[20]をベース 照射効果はLucuta[12]モデル			
C.CoZZo	46	3.5 3.72 6.9	NA	N.A.	95	OCOM SBR MIMAS	SIEMENS BNFL (BN)	42, 44.4 34,44 23	-	KWO Beznau1 (N.A.)	250-1150	LF法	×	図(プロット)のみ	×	×	○				

影付きは照射材

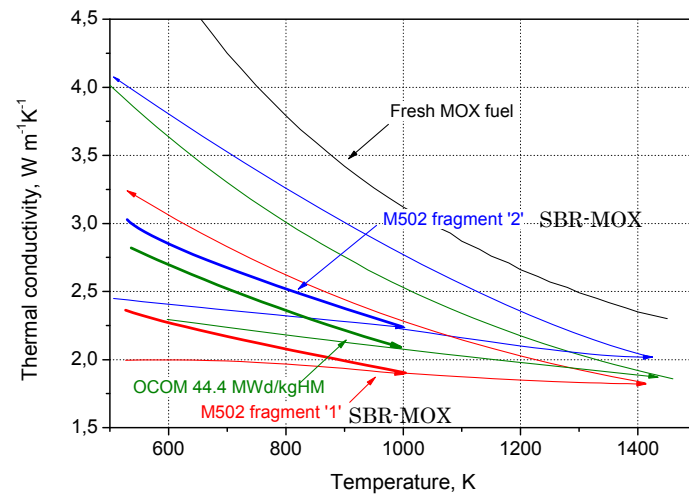


図 2.2-1 Cozzo らによる照射済み MOX 燃料ペレットの炉外熱伝導率測定結果の報告例^[46]

2.3 熱伝導率低下モデル構築のアプローチ

2.1 節の冒頭でも述べたように、照射によって燃料材料中では幾つかの材料特性変化が起こる。これらの変化は、ある一つの照射パラメータ（例えば燃焼度）だけで一意的に決定づけることができない場合が多い。例えば照射欠陥量は、燃焼すなわち核分裂量に依存して増加する一方で、照射環境の温度によってその回復量が変化する。固溶性 FP 元素も核分裂量に依存して増加するが、各 FP 核種生成量は核分裂する核種に依存して異なるので、核分裂性核種の組成によっても影響を受ける。

さらに生成した FP 元素は、照射下環境における温度場や化学ポテンシャル場の状態によって、移動したり相互に化合物を形成する等の複雑な挙動をする可能性がある。

このような照射下における燃料ペレット内の材料特性変化を、個々の厳密なプロセスを全て正確に理解して表現することは現状では困難であるが、熱伝導率に影響を与える主要な材料特性変化を抽出し、抽出した特性の個別寄与メカニズムを解明して、バルクの挙動とを組み合わせ、熱伝導率低下メカニズムモデルを構築する研究が行われている。

このような照射下熱伝導率低下モデル構築の研究を行う実験的な方法論として、以下の3つのアプローチに分類することができる。

- ① 炉外模擬試験による個別因子影響測定とそのメカニズムモデル構築
- ② 照射済み燃料の炉外実測値に基づく実験式モデル構築
- ③ 照射下燃料温度の挙動解析に基づく、その場測定による実験式モデル構築

これらのアプローチには、熱伝導率変化を定量的に把握し、その変化メカニズムを解明する上では、表 2.3-1 にまとめて示すような、各々に一長一短がある。このように、3つのアプローチにはそれぞれ性質の異なる不確定性が含まれるため、これらの内、どれか一つのアプローチが熱伝導率低下モデルを構築する上で最も優れている言うことは困難であり、各アプローチで得られる結果を相互に比較しながら、真のメカニズム究明や定量的モデル構築を行ってゆくべきと考えられる。

ここでは、具体的に MOX 燃料の熱伝導率について、これら3つのアプローチで各々の代表的な研究により得られている熱伝導率モデルの比較検討を行い、MOX 燃料の熱伝導率モデル式としての妥当性について以下に考察する。

前述したように、アプローチ①の最近の報告例として、Carbajo ら^[45]による未照射炉外試験データをベースに、個別の材料特性因子による影響メカニズムを考慮したモデルが挙げられる。アプローチ②の報告例としては、最近 Cozzo ら^[46]が PWR 実機で照射した MOX 燃料の炉外熱伝導率測定結果を報告している。その報告の内、燃焼度約 44GWd/t の SBR-MOX 燃料について、昇降温を繰り返しながら測定した結果を図 2.3-1 に示す。この測定を行った試料の照射温度は約 1100K 近傍と推定されており、炉外測定における

アニーリング温度が照射温度に近づくに従って、熱伝導率が回復する傾向が認められている。

さらにアプローチ③による報告例として、試験炉における燃料中心温度測定によって得られた実験式として Gates ら^[18]による報告が挙げられる。

これらの異なるアプローチによって求められた熱伝導率測定値やモデル式の、温度依存性を比較して図 2.3-2 に示す。この比較を見ると、Carbajo らと Cozzo らの結果は、照射欠陥のアニーリングによる回復効果による熱伝導率の回復現象が見られるのに対し、Gates らの実験式ではほぼ温度に単調な減少傾向を示し、回復する事象は見られなのが特徴である。

炉内における照射温度は寿命中の変動もあり、その回復現象は複雑で現状ではまだ十分に挙動を把握できていないと考えられること、また Gates らの実験式は、照射中のその場測定データを基にして得られていることを考慮すると、その妥当性は否定されるものではないと考えられる。

このような比較から、現状ではいずれのアプローチの結果も優劣をつけることは難しいと考えられるので、本研究の MOX 燃料熱伝導率モデル式としては、その場測定データを基にしている点を重視して、Gates らのモデルを主に採用することとする。

表 2.3-1 照射下熱伝導率低下の実験的手法におけるアプローチ比較

ア プ ロ ー チ	長 所	欠 点	代 表 例
①	精度の高い炉外データによる理論的アプローチが可能	複雑な炉内環境における全物理挙動パラメータを正確に反映することは困難	Carbajo ら [45]
②	炉内環境での材料変化を直接反映したデータによる評価が可能	炉外実測時に、試料を完全な炉内状態に保持することの困難さによる不確定性が大きい	Cozzo ら [46]
③	リアルタイムで炉内環境を直接反映したデータが得られる	間接評価のため、複合的要因の影響分離が困難	Gates ら [18]

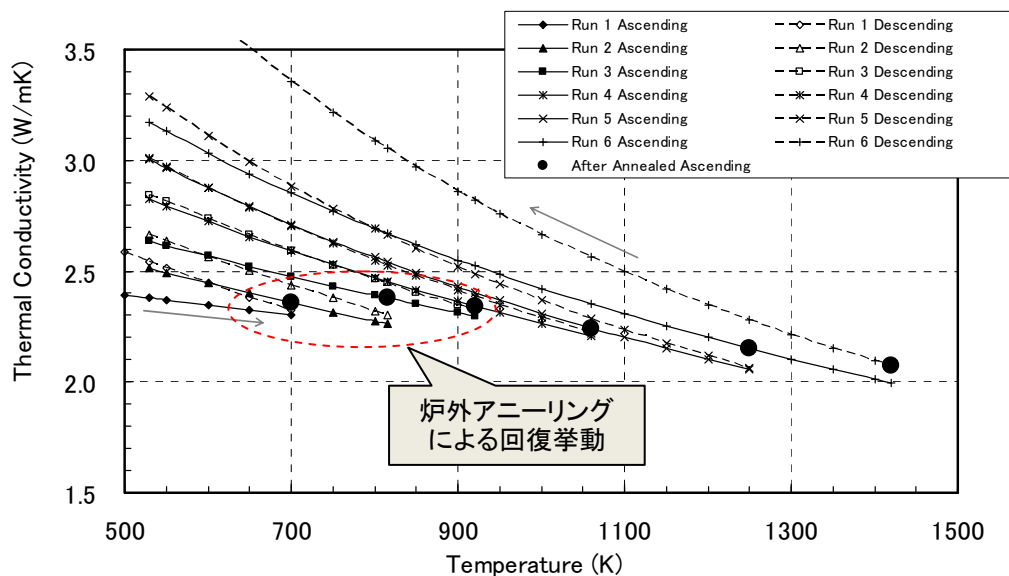


図 2.3-1 Cozzo らによる照射済み SBR-MOX 燃料の熱伝導率炉外実測結果^[46]

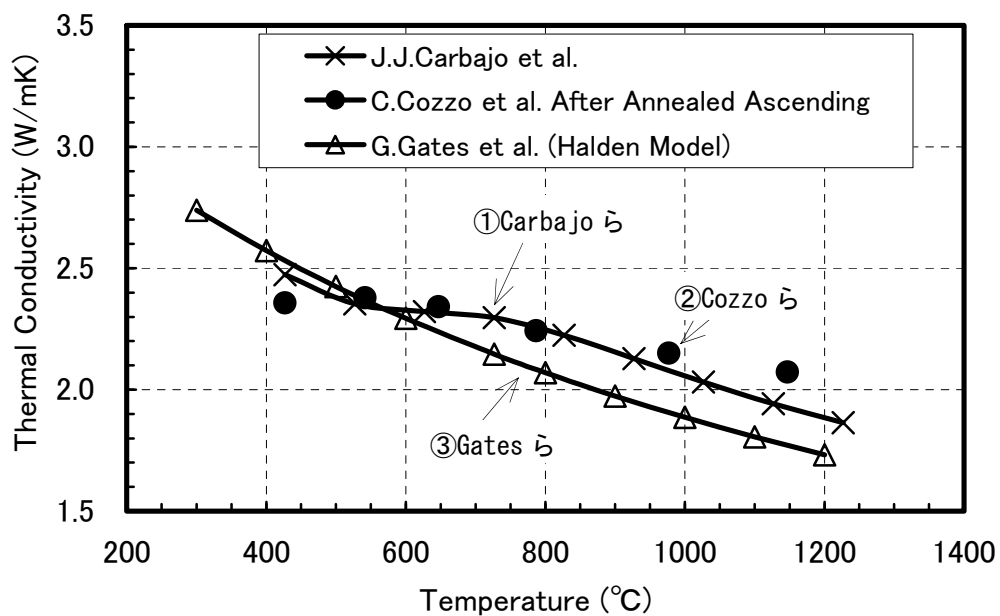


図 2.3-2 アプローチの異なる 3 つの MOX 燃料熱伝導率モデルの比較

2.4 まとめ

照射に伴う熱伝導率は、実用的温度範囲で酸化物燃料の熱伝導率を支配しているフォノン伝導項において扱われる。照射に伴う材料特性の変化は、フォノン伝導においては、フォノン - 格子散乱項にクレメンスらが提唱した固体物理理論に基づくモデルの適用が、照射に伴う材料特性変化を汎用的に扱うモデルとして有用である。

MOX 熱伝導率モデルに関する既往研究においては、Pu の不均一分布について、均一性の異なる試料について実測した例はあるものの、それを考慮した熱伝導率モデルを提案している例は見当たらない。また照射による熱伝導率の低下モデルについては、MOX 燃料のデータがまだ十分に無いこともあり、MOX 燃料と UO_2 燃料との違いは明確になっておらず、既往研究のモデルでは同等として扱われているのが現状と考えられる。

第 3 章

MOX 燃料微細組織の燃焼 に伴う変化

3.1 MOX 燃料の微細構造

ここでは、MOX 燃料の製造や熱物性に関する微細構造に関する基礎的特性について簡単に整理する。

3.1.1 結晶構造

MOX 燃料の化学式は $(U_{1-y}, Pu_y)O_{2-x}$ で表されるように、 UO_2 と PuO_2 の固溶体である。 UO_2 と PuO_2 の結晶構造はいずれも図 3.1-1 に示すような萤石型構造で、金属原子が面心立方格子を形成しその中に酸素原子が単純立方格子を形成している。MOX 燃料ではこの結晶構造の U 原子の位置に、Pu 原子が置換する置換型固溶体を形成し、Pu 固溶量による結晶構造の変化を伴わないため、図 3.1-2 の擬似二元系状態図^[1]に示すように全率固溶し、全組成にわたり連続的な物性の変化を示す。

$(U_{1-y}, Pu_y)O_2$ の格子定数は、Brett ら^[2]、Markin ら^[3]および Lyon ら^[4]により測定されており、その結果は図 3.1-3 に示すように、 UO_2 の格子定数 0.5470nm と PuO_2 の格子定数 0.5396nm の間を Vegard 則に乗る直線的に結ぶ関係にある。これらの結果から、 PuO_2 モル分率に対し格子定数が直線的に減少する以下の式が求められている^[5]。

$$a_y = 0.5470 - 0.0074y \quad \dots \dots (3-1)$$

a_y : 格子定数 (nm)
 y : PuO_2 モル分率

この格子定数を用いると、 $(U_{1-y}, Pu_y)O_2$ の理論密度は次の式で表すことができる。

$$TD_y = \frac{4}{N_A \cdot a_y^3} \cdot [(1-y)M_{UO_2} + yM_{PuO_2}] \quad \dots \dots (3-2)$$

TD_y : 理論密度 ($g \cdot cm^{-3}$)
 N_A : アボガドロ数 (mol^{-1})
 M_i : 化合物 i のモル質量 ($g \cdot mol^{-1}$)

この式に基づいて以下の数値^[6]を用いて計算した結果を図 3.1-4 に示す。

$$\begin{aligned} N_A &= 6.0221367 \times 10^{23} (mol^{-1}) \\ M_O &= 15.9994 (g \cdot mol^{-1}) \\ M_U &= 238.0289 (g \cdot mol^{-1}) \\ M_{Pu} &= 239 (g \cdot mol^{-1}) \end{aligned}$$

この計算結果から、MOX 燃料の理論密度は、 PuO_2 のモル組成に対しほぼ直線的に増

加することが分かり、近似的に以下の式で表すことができる。

$$TD_y = 10.956 + 0.4981y \quad \dots \dots (3-3)$$

寸法重量測定法や液浸法によって測定された密度 D_{meas} に対し、この理論密度との比を計算することによって、次式によりペレットの気孔率 P を算出することができる。

$$P = 1 - D_{\text{meas}}/TD_y \quad \dots \dots (3-4)$$

UO₂, PuO₂ はイオン結合性結晶であり、構成するイオンの半径は以下のような数値である。

イオン半径(nm)	Ref.[7]	Ref.[8]	Ref.[9]	()内の数値は配位数
$r(\text{O}^{2-})$	0.1368 (4)	0.1380 (4)	0.140 (6)	
$r(\text{U}^{4+})$	0.1001 (8)	0.1000 (8)	0.101 (8)	
$r(\text{U}^{5+})$	0.088 (8)	0.0880 (8)	0.087 (6)	
$r(\text{U}^{6+})$	0.086 (8)		0.080 (6)	
$r(\text{Pu}^{3+})$		0.1100 (8)	0.112 (8)	
$r(\text{Pu}^{4+})$		0.0960 (8)	0.096 (8)	

MOX 燃料では、化学量論組成が同じ (O/M 比=2.00) でも、U⁴⁺と Pu⁴⁺のイオンが置換されると、イオン半径が若干異なるために格子の歪が生成することが分かる。また、結晶中の金属イオンの、電荷や配位数によりイオン半径が異なることから、結晶空孔や格子間原子等の欠陥によっても結晶格子の歪が生成する。

○ U または Pu 原子 ● O 原子

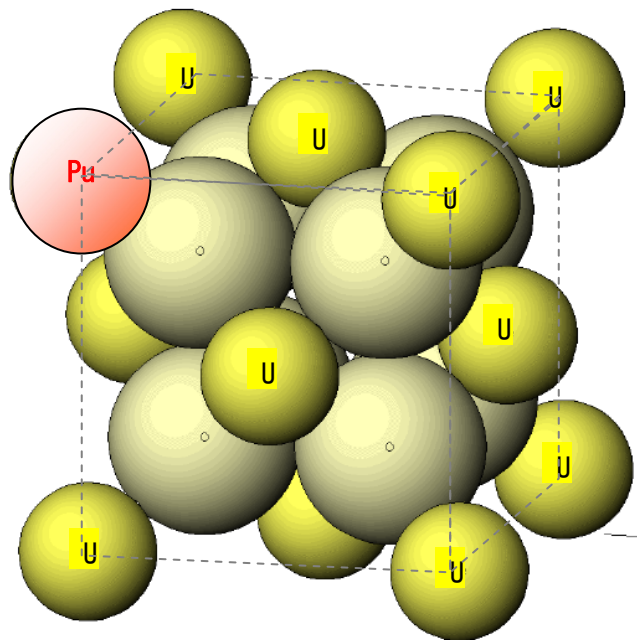
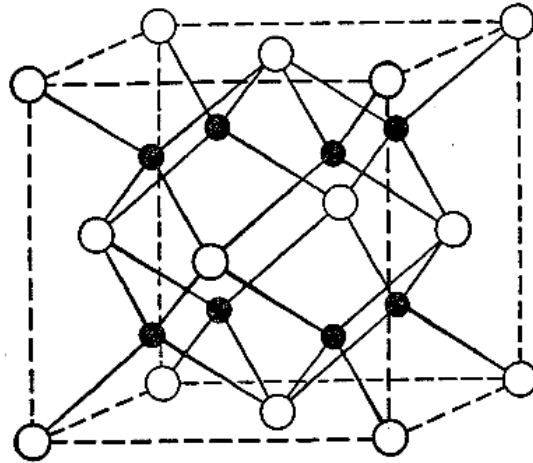


図 3.1-1 MOX 燃料の結晶構造（螢石型構造）

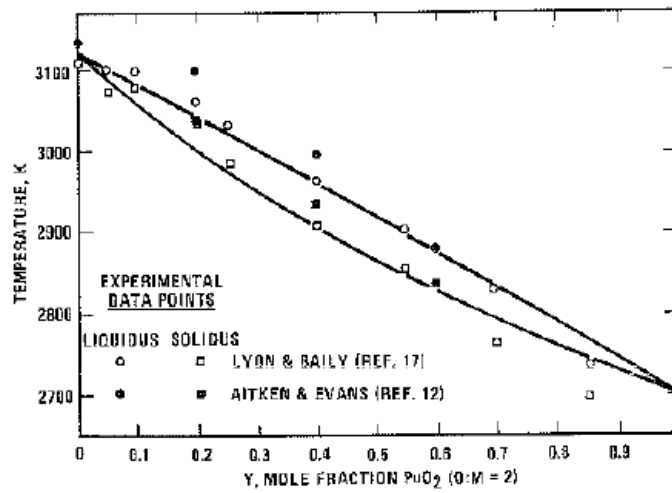


FIGURE 1
Re-evaluated Solidus and Liquidus Data for
Stoichiometric Mixed (U,Pu)-Oxide Solutions

図 3.1-2 UO₂-PuO₂ 擬似二元系状態図^[1]

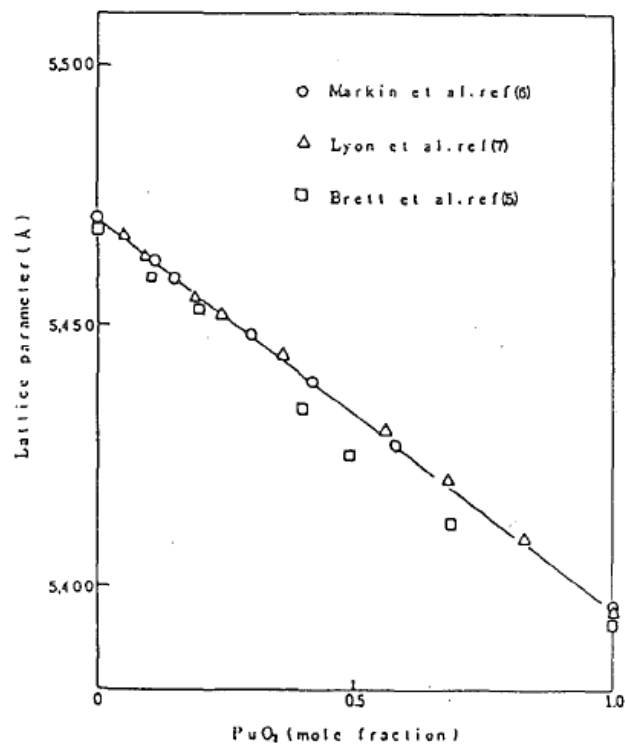


図 3.1-3 (U_{1-y},Pu_y)O₂ の格子定数^[5]

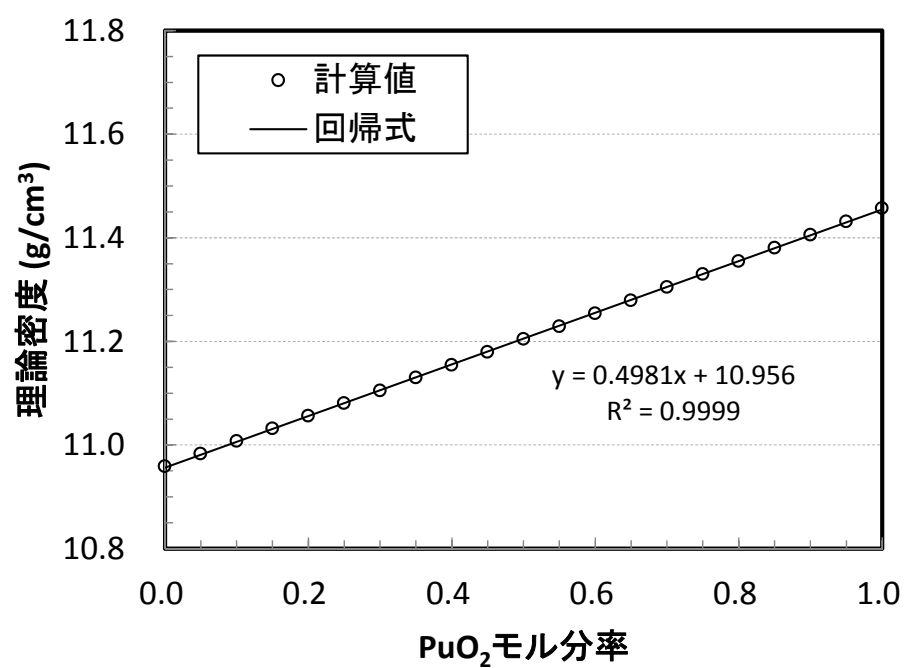


図 3.1-4 格子定数に基づく (U_{1-y}, Pu_y)O₂ 理論密度計算

3.1.2 化学量論組成の特徴

U-O 系の状態図^[10]を図 3.1-5 に示す。

UO_{2+x} は超化学量論組成域 (0 < x) では、固相における U イオンの電荷が、4+ から 5+, 6+ を取り易いため UO₂ が過剰な酸素を格子間原子として固溶し易い性質があり、複数の安定な酸化物化学形が存在することが知られている。その中で UO_{2.00} と同じ蛍石型構造を維持できる範囲は 0 ≤ x < 2.25 の範囲と考えられている。

一方、固相で U イオンの電荷が 3+ をとり難いため亜化学量論組成域 (x < 0) では、約 1500℃ を超える高温領域ではある程度の範囲まで化学量論組成と同じ蛍石型構造を維持できると考えられるが、1500℃ 未満の実用的温度域では UO₂ 相に金属 U 相が析出する二相状態となる。

従って、固相の UO₂ は還元性雰囲気では高温まで比較的安定であるのに対し、酸化性雰囲気下では容易に酸化される性質がある。

Pu-O 系の状態図^[11]を図 3.1-6 に示す。

PuO_{2+x} の固相における Pu イオンは 4+ を超える電荷をとらないため、超化学量論組成 (0 < x) の Pu 酸化物は存在しない。一方、亜化学量論組成域 (x < 0) では、Pu イオンが 3+, 2+ の電荷をとるため、酸素原子の空格子点を生成し易く、複数の安定な酸化物化学形が存在する。その中で、約 -0.38 < x < 0 の範囲では、約 600℃ を超える高温領域で化学量論組成と同じ蛍石型の結晶構造を維持し、低温領域では Pu₂O₃ 相が析出し、二相状態となる。

従って、固相の Pu O₂ は、酸化性雰囲気下では比較的安定で酸化され難いが、還元性雰囲気下では化学量論組成 (O/M 比 = 2.00) が安定ではあるが、酸素ポテンシャルを低くした還元性の強い雰囲気では、亜化学量論組成となり易く還元され易い性質がある。

このように、UO₂ と PuO₂ は同じ化学量論組成でも、酸化還元の性質では異なる性質を持っており、これらを固溶させた MOX 燃料では両者の特徴を合わせ持つ特徴がある。図 3.1-7 に 400～800℃ 範囲の U-Pu-O 3 元系状態図^[12]の一例を示すが、比較的広い化学量論組成において、蛍石型構造 (FCC 構造) の単相 (MO_{2±x}) として存在することが分かる。

UO₂ と MOX の平衡酸素分圧 (酸素ポテンシャル) と化学量論組成 (O/M 比) との相関に関する報告例を図 3.1-8 に示す^[13,14]。UO₂ の場合、非常に低い酸素ポテンシャル領域まで、O/U 比 = 2.00 で安定であるのに対し、MOX では Pu 濃度が大きくなるに従って、ある酸素ポテンシャル以下になると O/M 比が 2 より小さい側 (亜化学量論組成) にシフトしてゆく傾向にあることが分かる。このことから、安定した化学量論組成の MOX 燃料を得るためには、雰囲気酸素ポテンシャルをある一定範囲内に制御する必要がある。

熱物性等の観点からは、化学量論組成が 2.00 である方が有利であることが MOX 燃料に関する最近の融点や熱伝導率測定結果でも報告されている^[15,16]、ことから安定した化学量論組成の MOX 燃料を製造するために、焼結雰囲気酸素ポテンシャル制御は重要である。

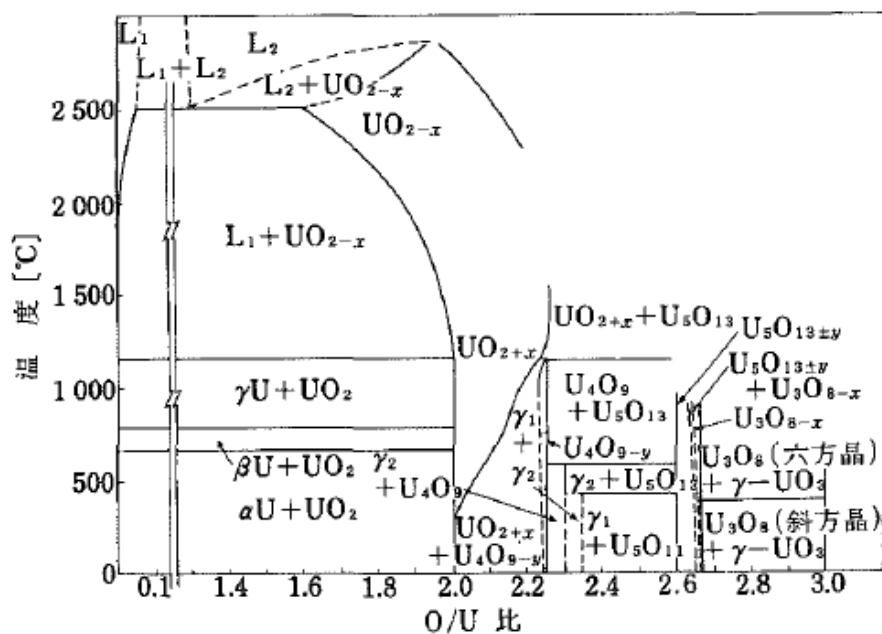


图 3.1-5 U-O 系状态图^[10]

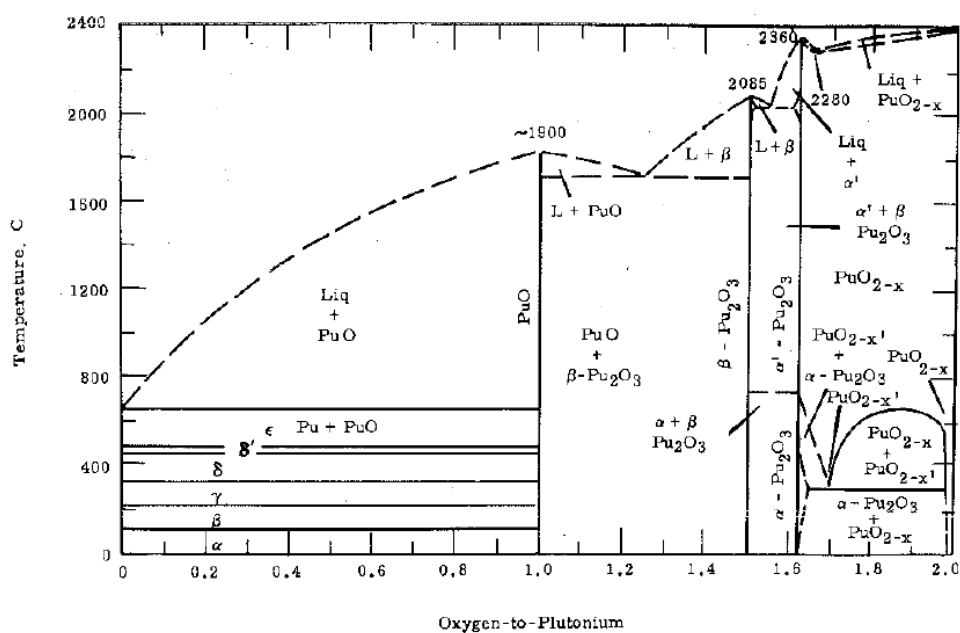


Fig. 3a. Proposed phase equilibria diagram for the system plutonium-oxygen.

图 3.1-6 Pu-O 系状态图^[11]

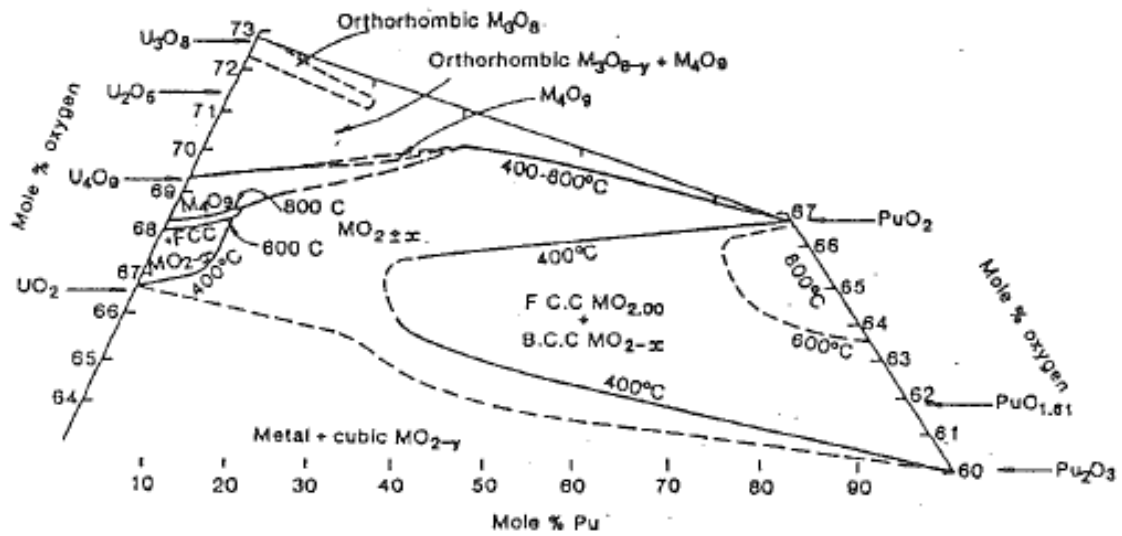
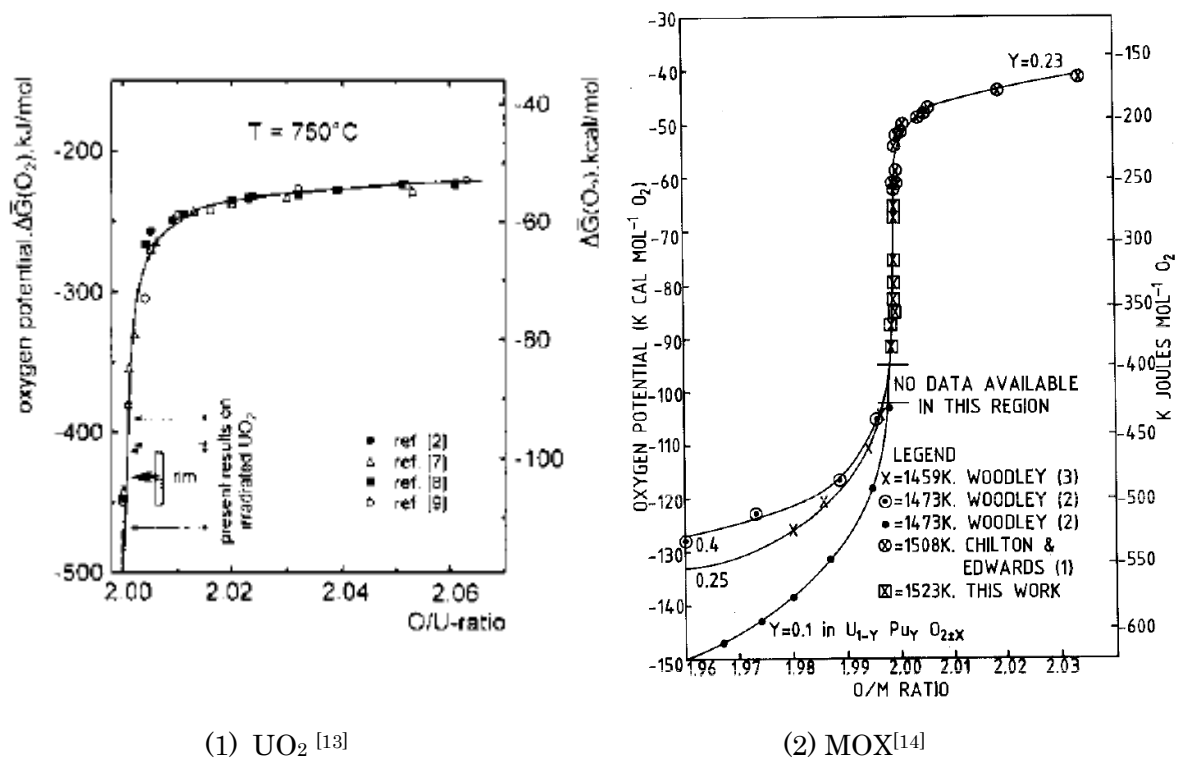


図 3.1-7 U-Pu-O 3 元系状態図の例 (400-800°C) [12]



(1) UO_2 [13]

(2) MOX [14]

図 3.1-8 UO_2 及び MOX の酸素ポテンシャルと O/M 比の相関報告例

3.2 軽水炉用 MOX 燃料の工業的製法とその特徴

MOX 燃料の工業的な製造方法は、基本的に UO_2 燃料のそれと同じである。すなわち、核分裂性同位体組成を調整した酸化物粉末を造粒した後、圧粉成形加工して圧粉体とし、その圧粉体を酸素分圧を調整した還元性雰囲気条件下で焼結して、目標とする密度の焼結体を得る。最終的に焼結体を研削して寸法調整し、製品ペレットとする。

工業的に製造される MOX 燃料では、核分裂性物質である Pu の濃度を酸化物粉末段階で調整することが一般的に行われ、その点が UO_2 燃料と大きく異なっている。この Pu 濃度の調整は、高濃度の PuO_2 粉末と劣化あるいは天然の UO_2 粉末と機械的粉末混合により調整する方法が一般的で、混合する原料酸化物粉末の特性や製品特性に対応するため、各国で種々の方法が開発されてきた。

ここでは、その中の代表的な製法の内、製品 MOX ペレット中の Pu 濃度分布に大きな違いがある 2 種類の製造方法として、MIMAS 法と SBR 法についてその概要と相違点について示す。これらの製法の製造工程を図 3.2-1 に示す。

これら 2 種類の製法以外も含め、国内外の MOX 燃料の製造方法の概要については、他の文献^[17]で整理されているので参照されたい。

3.2.1 MIMAS 法^[18]

MIMAS 法は、ベルギーの Belgonucleaire 社により開発された製法であり、Micronized MASter blend 法の略称である。

原料は、 PuO_2 粉末、 UO_2 粉末及び粉砕・均一化した MOX スクラップが使用され、二段階混合法により均質な混合粉末が得られる。ボールミルによるマスターブレンドでミクロンサイズの粉末に粉砕・混合し、25～40%Pu/HM の濃度の MOX 粉末とする。この中濃度の MOX 粉末に所定の Pu 濃度となるように UO_2 粉末を添加し混合する。

MIMAS 法によって製造された MOX 燃料ペレットの代表的な EPMA による Pu マッピング観察例^[19]を図 3.2-2 に示す。MIMAS 法では前述のように、Pu 濃度の異なる種類の原料粉末を機械的に混合しているため、焼結後のペレットにおいても同図のように、局所的に Pu 濃度の高い領域が、数 10 μm から 100 μm 前後のサイズで分布しているのが特徴的である。

このような Pu 濃度が局所的に高い分散した領域を、“Pu Agglomerate”または日本語では「プルトニウム(Pu)スポット」と一般的に称している。

3.2.2 SBR 法^[20]

SBR 法は、英国 BNFL 社により開発された製法であり、Short Binderless Route 法の

略称である。

PuO_2 粉末、 UO_2 粉末及び回収スクラップを原料粉末として使用され、従来のボールミルの代わりに、BNFL 社が開発したアトリターミルという高エネルギーミルによる粉碎混合を行うことにより、MIMAS 法のような二段階の Pu 濃度希釈混合方法をとることなく、一段階の混合で粉末の混合性を向上させ Pu 濃度均一性を向上させている点が SBR 法の特徴である。その後流動性のある粉末を圧粉成形工程に供給するために、スフェロイダイザーと呼ばれる機器で粉末粒度調整を行う。

本方法では、従来のボールミルによる混合法に比較し短時間で均質な混合粉末が得られ、処理後の凝集塊は $20\sim 30\ \mu\text{m}$ 程度である。また、アトリターミルとスフェロイダイザーとは直結されており、粉末移送時の密封性を維持することにより、粉末飛散を抑制することが可能となり物質の滞留を少なくできる特徴がある。

SBR 法によって製造された MOX 燃料ペレットと MIMAS 法 MOX を比較して EPMA による Pu マッピング観察例^[21]を図 3.2-3 に示す。MIMAS 法に比較し、Pu スポットがほとんど見られず、均一性が良好であることが分かる。



59

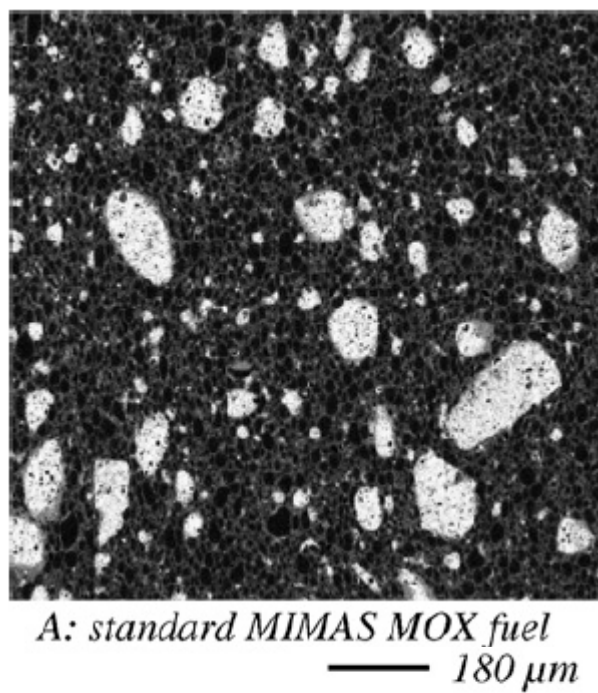


図 3.2-2 MIMAS 法 MOX 燃料ペレットの EPMA による Pu マッピング例^[19]

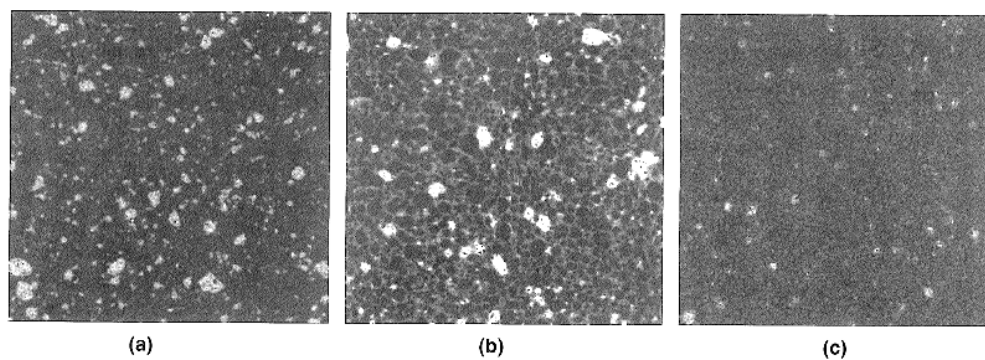


Fig. 2. Plutonium X-ray maps for (a) MIMAS-AUC, (b) MIMAS-ADU and (c) SBR with plutonium contents of 4–5 wt.%. Each map represents an area of approximately $1 \times 1 \text{ mm}^2$. The Pu-rich spots in SBR MOX represent 1–2 vol% of the material and the largest ones are 25–30 μm in diameter (Refs. [12–15]).

図 3.2-3 EPMA による Pu マッピング観察の SBR 法 MOX 燃料ペレットと MIMAS 法 MOX の比較観察例^[21]

3.3 MOX 燃料の燃焼特性

前節で述べたように、工業的に製造される MOX 燃料ペレットでは、局所的に Pu 濃度の高い Pu スポットが存在する。このような高濃度 Pu 領域が存在すると、原子炉内における核分裂の空間的な密度が不均一に発生し、照射中の燃料ペレットの材料特性変化にも均一な UO₂ 燃料とは異なる、特徴的な事象が観察される。

このような Pu スポットが存在する MOX 燃料における照射後の FP 元素分布を調べた結果の例^[22]を図 3.3-1 に示す。この測定例でも分かるように、数 10 μ m サイズの Pu スポット領域では、FP 元素であるネオジウム(Nd)の濃度が非 Pu スポット領域と比較し顕著に（約 3 倍程度）高い分布を示している。Nd は FP 元素の中で比較的収率が高く、その生成量はほぼ燃焼度に比例し、また照射中に酸化物燃料に固溶して安定な酸化物を形成するためほとんど移動しないと考えられている。従って、Pu スポット領域では、核分裂性核種の濃度に比例して燃焼が進み燃焼度が高くなるとともに、生成 FP 量も比例して多くなると考えられる。

このように、未照射の段階では、Pu スポット部と非スポット部の間では、Pu 濃度の相違だけであるが、照射によって Pu スポット部の燃焼が進むに従い、両領域の間に FP 元素蓄積等によって材料特性の違いがより顕著になることが考えられる。従って、このような照射下での挙動の相違は、製造時における Pu 濃度均一性に大きく依存してくる。

既に第 2 章でレビューした通り、燃焼に伴って酸化物燃料の熱伝導率は低下するが、このような燃料ペレット内での燃焼度の不均一が生じると、熱伝導率の低下の度合いもそれに従って異なってくることが予想される。図 3.3-2 に Pu スポットが存在する MOX 燃料における、照射に伴う熱伝導率低下の概念を示す。Pu スポット部では燃焼度がペレットバルクの平均燃焼度に比較して進むため、その熱伝導率は大きく低下することが予想される一方、非 Pu スポット部の燃焼度は、平均燃焼度よりも低くなると推定され、従って熱伝導率の低下も平均燃焼度のそれよりも抑制されると推定される。

MIMAS 法 MOX 燃料の組織観察の例でも分かるように、Pu 濃度の高い Pu スポット部は、燃料マトリックス中において分散相を形成しているのに対し、非 Pu スポット部は連続相を形成していることが分かる。このような分散相が存在する場合に、単純化して分散相と連続相の二相材料として考えると、このような二相材料の熱伝導率が主として連続相の熱伝導率が支配的となることが予想される。

このことと、前述の熱伝導率低下の相違を合わせて考えると、MOX 燃料の連続相である非 Pu スポット部では、バルクの燃焼度よりも燃焼度が抑制されるため、熱伝導率低下も抑制され、この熱伝導率がバルク熱伝導率をより支配することより、バルクの熱伝導率低下が燃焼に対し抑制される効果が表れることが期待される。このような概念を模式的に図 3.3-3 に示す。本研究では、このような MOX 燃料の製造時における Pu 不均一性に依存した、熱伝導率低下抑制のメカニズムについて、定量的な考察を行う。

製造時 Pu 分布

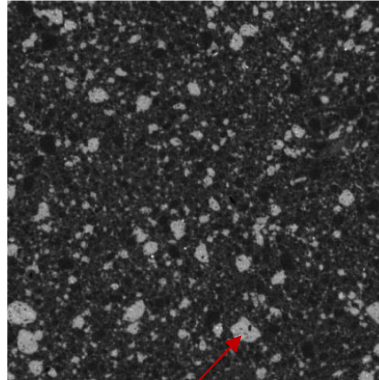


Fig. 4 Pu microprobe image of an AUC type fuel (high Pu enrichment zones in white)

明るい部分が Pu 高濃度域

照射後 Pu スポット部燃焼度分布

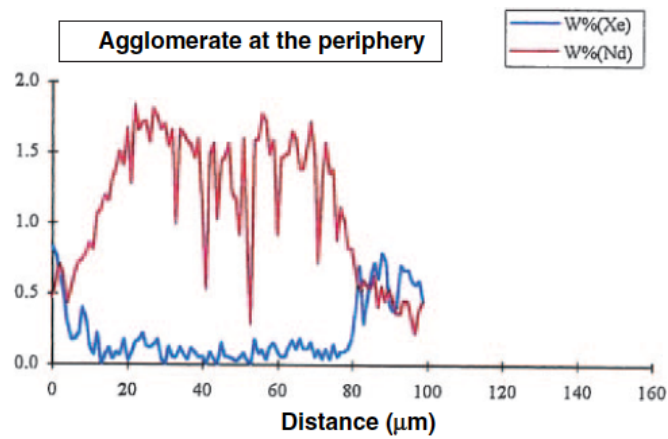


Fig. 8 Microprobe measurement in a large agglomerate of MOX MIMAS/AUC fuel at 5.9% Pu, after 4 annual cycles

図 3.3-1 Pu スポット部における燃焼変化

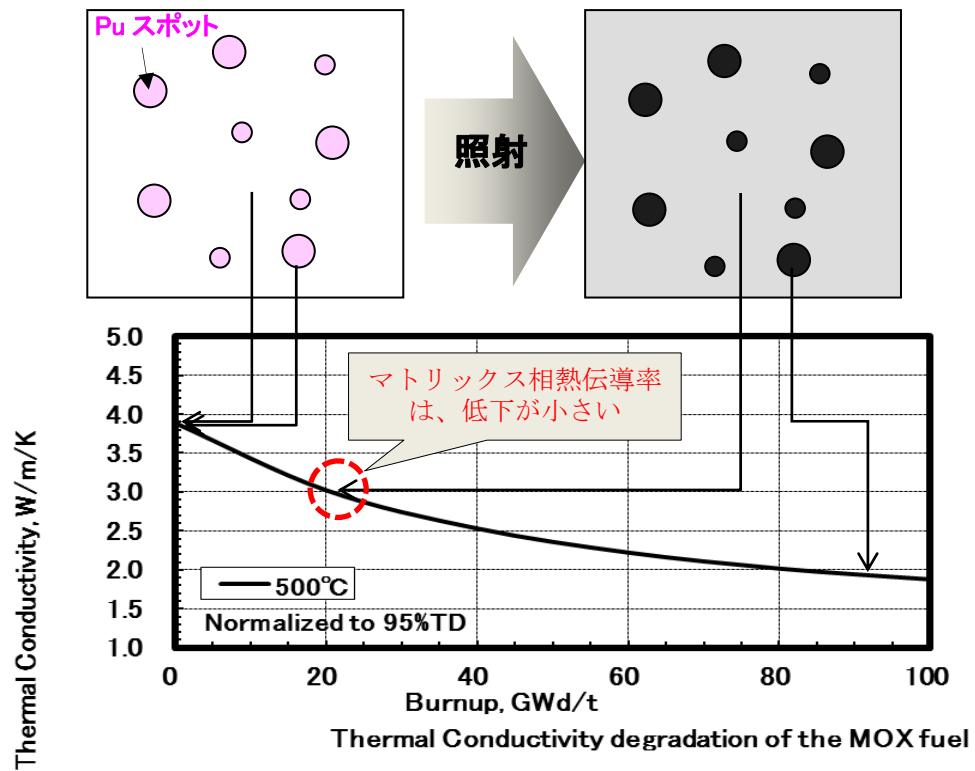


図 3.3-2 Pu スポットが存在 MOX 燃料中の熱伝導率低下概念

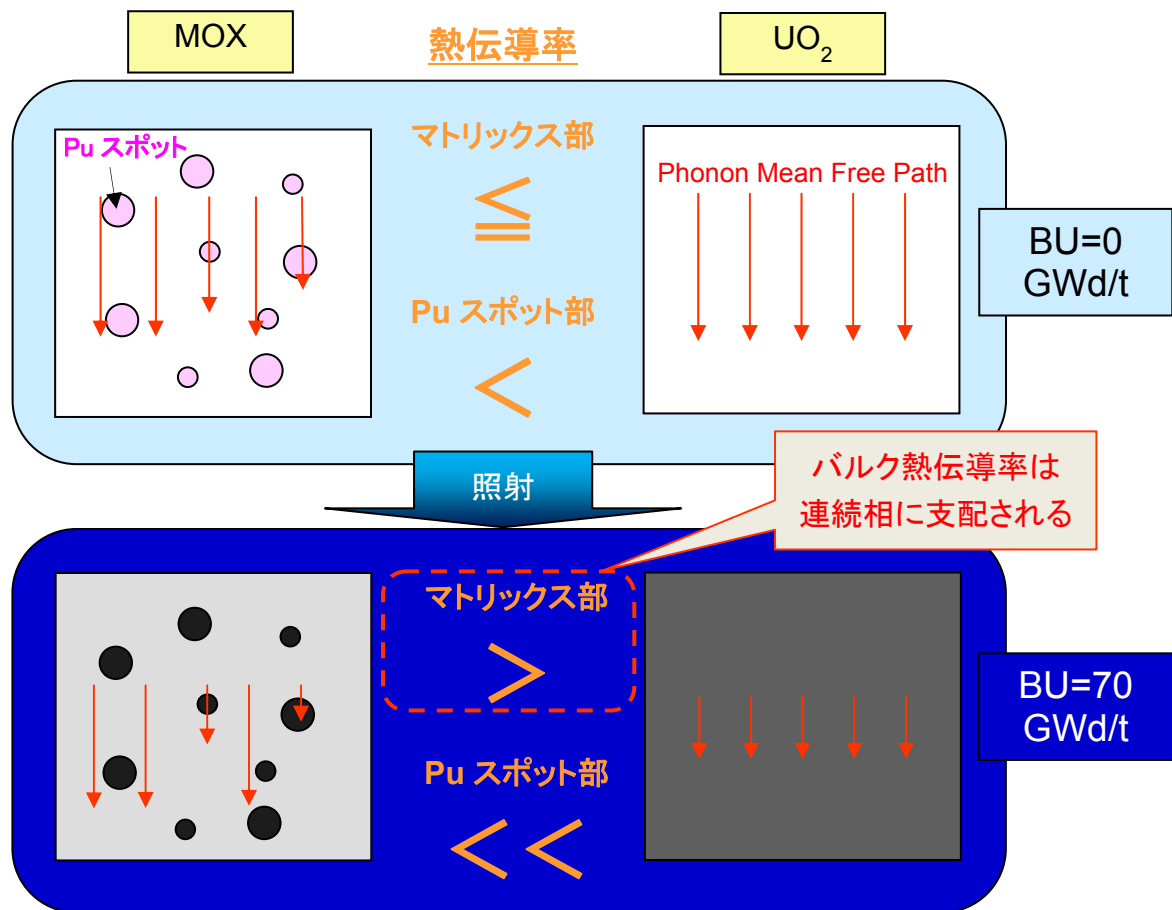


図 3.3-3 二相材としての MOX 燃料の熱伝導率低下抑制の概念

3.4 まとめ

MOX 燃料では、蛍石型結晶構造を有する UO_2 の金属 U 原子が Pu 原子で置換型固溶する構造であり、U と Pu のイオン半径差や質量差によって結晶構造歪が生じるため、熱物性等が Pu 濃度に対し連続的に変化する影響を受ける。

このような置換型固溶をするため、 UO_2 - PuO_2 は全率固溶するが、工業的に製造される軽水炉用 MOX 燃料では、製造方法により燃料ペレット内 Pu 濃度の空間的な不均一分布が生じる。Pu 濃度の高い Pu スポット部は、燃料ペレット内で分散相を形成し、一方非 Pu スポット部は連続相を形成し、このような Pu 濃度不均一は、原子炉内における燃焼の不均一を生じる。非 Pu スポット部は燃焼が進むにつれ、バルクの平均燃焼度に対し燃焼度が低く抑えられるため、熱伝導率低下が平均燃焼度に比べて抑制されるが、バルク熱伝導率も連続相熱伝導率に支配されるとすると、バルクの熱伝導率低下を抑制するメカニズムとして示唆される。本研究では、このような MOX 燃料の製造時における Pu 不均一性に依存した、熱伝導率低下抑制のメカニズムについて、定量的な考察を行う。

第 4 章

擬似二相モデルによる 熱伝導率解析

MOX 燃料では、Pu スポット部と非 Pu スポット部での燃焼特性が大きく異なり、両者間で材料特性の相違が燃焼にともなって顕在化してゆく現象が特徴的であることを指摘した。ここでは、このような燃料マトリックス中に分散相が存在するような材料を擬似的に二相材と見なして、その各々の相の熱伝導率変化によってバルクの熱伝導率がどのように変化するかを定量的に検討する。

4.1 二相材熱伝導率計算モデルのレビュー

二次元的模式図を図 4.1-1 に示すように、熱伝導率が異なる 2 種の材料が混在し、一方が連続相を形成し他方がその中に分散して存在する二相材料において、そのバルク熱伝導率を計算するモデルは、古くから幾つかのモデルが提案されている。

以下にセラミックス材料の気孔率補正等で良く引用される代表的なモデルを示す。

以下の式における共通の定義は以下の通り。

k : 熱伝導率

c_D : 分散相の体積率

添字の定義

D: 分散相(Dispersed phase)

M: 連続相(Matrix phase)

C: 二相材(Composite)

a. Maxwell equation^[1]

$$\frac{k_C}{k_M} = \frac{2k_M + k_D - 2c_D(k_M - k_D)}{2k_M + k_D + c_D(k_M - k_D)} \quad \dots \dots (4-1)$$

b. Loeb equation^[2]

$$\frac{k_C}{k_M} = 1 - \alpha \cdot c_D \quad \dots \dots (4-2)$$

但し、 c_D = Porosity, α : 経験定数

c. Kaempf equation^[3]

$$\frac{k_C}{k_M} = \left\{ 1 - a \cdot c_D^{2/3} \cdot \left[1 - \left(1 + \frac{1}{a} \cdot c_D^{1/3} \left(\frac{k_M}{k_D} - 1 \right) \right)^{-1} \right] \right\} \quad \dots \dots (4-3)$$

a : 等方性係数($a=1$ で等方分布)

d. Schulz equation^[4]

$$(X - K) \cdot (X + nK)^q \cdot X^{-m} + (1 - c_D) \cdot (K - 1) \cdot (1 + nK)^q = 0 \quad \dots \dots (4-4)$$

$$K = k_D / k_M$$

$$X = k_C / k_M$$

$$m = \frac{F(1-2F)}{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)}$$

$$n = \frac{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)}{2F(1-\cos^2\alpha) + (1-F)\cos^2\alpha}$$

$$q = \frac{F(1-2F)}{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)} + \frac{(1-F)2F}{2F(1-\cos^2\alpha) + (1-F)\cos^2\alpha} - 1$$

m, n, q は分散相形状ファクタ

α は分散相楕円体長軸と熱流束方向の間の角度

F は楕円体短径/長径比によるパラメータ（真球で $F=1/3$ ）

（球形では $m=1/3, n=1/2, q=0$ ）

Loeb のモデル式は、分散相を気孔とした場合の気孔率補正式であり、他の 3 つのモデル式では、分散相の熱伝導率とその体積率から二相材の熱伝導率が計算される。これらを、マトリックス相に UO_2 を、分散相に金属材料を想定して熱伝導率を設定（ $k_D/k_M \sim 24$ ）して、体積率 0～10% の範囲で計算結果を比較して図 4.1・2 に示す。いずれのモデルも分散相の体積率増加に伴い、二相材熱伝導率が単調に増加する傾向を表すことについては同じであるが、モデルによりその増加率に差があり、Maxwell 式と Schulz 式はほぼ同程度の効果を示すのに対し、Kaempf 式は若干小さい傾向にあることが分かる。

Maxwell 式では分散相の体積率だけが二相材熱伝導率を決定するパラメータとなっているのに対し、Kaempf 式と Schulz 式では分散相の形状因子もパラメータすることができ、その自由度は Schulz 式の方大きいこと、また Schulz 式については Bakker らの研究^[5,6]により、比較的広い範囲（ $c_D \sim 0.34$, $k_D/k_M = 0 \sim 2$ ）において、FEM 解析結果と良好な一致を示すことが報告されていることから、本研究では Schulz 式を採用することとした。

(4・4)式で示される Schulz モデル式を適用するためには、分散相体積率 c_D 、各相の熱伝導率 k_D , k_M 、分散相形状ファクタを決定する必要がある。

MOX 燃料で想定される二相材料においては、分散相体積率 c_D は、Pu スポット部の体積率として求められる。各相の熱伝導率は、各々の相が均一な単相の MOX 燃料と見做し、Pu スポット部と非 Pu スポット部（マトリックス部）の相違は、製造時における各相の Pu 濃度により表される。さらに燃焼に伴う各相の熱伝導率は、第 2 章で議論した既往の熱伝導率（Gates らの式）を各相に適用する。この式で各相の熱伝導率を決定するには、各相の燃焼度を与える必要があるが、各相の燃焼度はペレット全体の平均燃焼度から、両相の体積率とその Pu 濃度を用いて比例配分して計算する手法をとった。分散相形状については、球形状を仮定し、その妥当性については実験データとの比較により確認した。

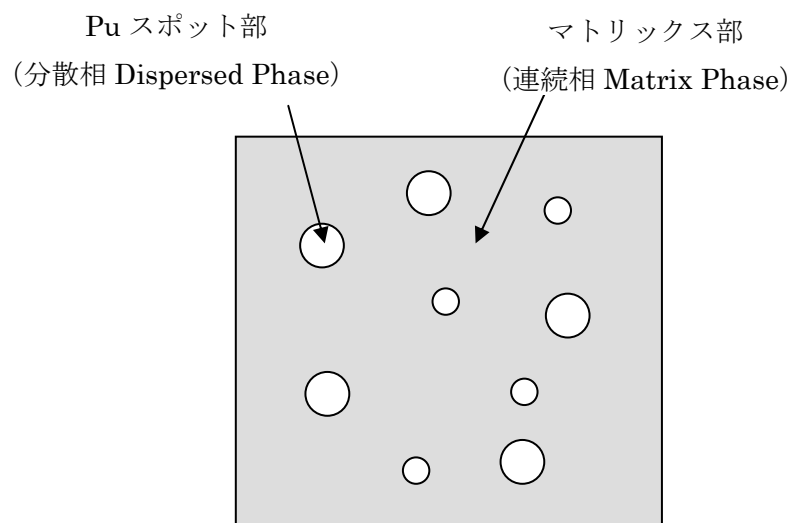


図 4.1-1 分散相と連続相から成る二相材料の二次元模式図

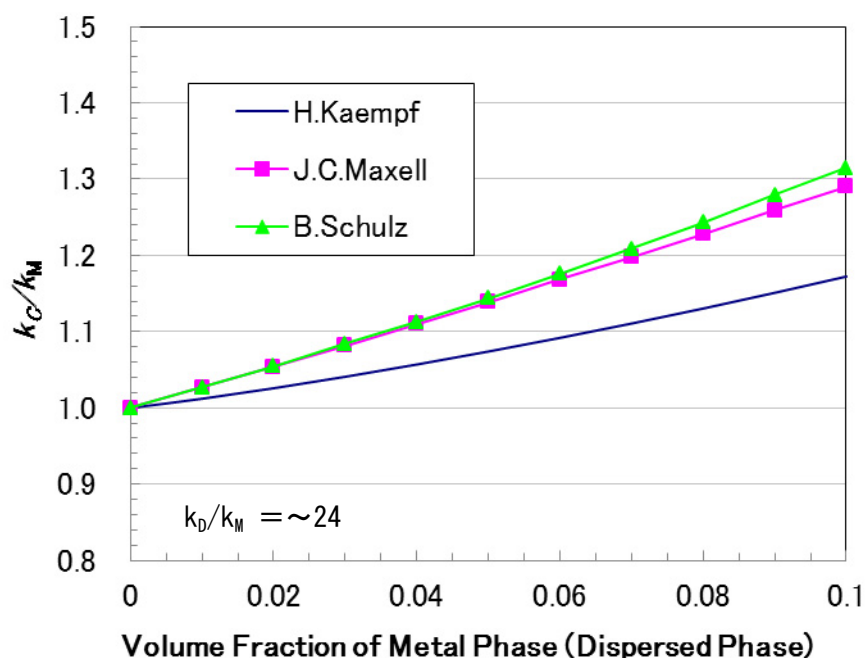


図 4.1-2 既往二相材熱伝導率モデルの比較

4.2 Schulz モデルの適用性評価

MOX 燃料を擬似二相材料として熱伝導率を評価する手法への Schulz モデルの適用性について、実験データによる検証と FEM 解析による検証を合わせて行った。実験では UO_2 をマトリックス材料としたが、 UO_2 よりも熱伝導率が低く、実験室レベルで分散相を容易に模擬できる適切な材料が見当たらないことから、分散相に UO_2 よりも熱伝導率が高く、 UO_2 に固溶しない金属材料を選定して模擬実験を行った。

このような実験データと Schulz モデル計算結果、FEM 解析結果との比較検証を、分散相熱伝導率がマトリックス熱伝導率より高いケース ($k_M < k_D$) で行った上で、MOX 燃料のような逆のケース ($k_M > k_D$) について Schulz モデル計算結果と FEM 解析結果との比較検証を行った。

4.2.1 実験データによる検証

UO_2 マトリックス材に金属モリブデンを分散させた焼結体試料を作製し、その熱拡散率をレーザーフラッシュ法にて測定して熱伝導率を求め、その結果と Schulz モデル式計算結果及び FEM 解析結果との比較を行った。

(1) 測定試料

(模擬材の考え方)

評価モデルは MOX 燃料の熱伝導率評価に適用することを考慮し、熱伝導率特性ができるだけ類似し、実験室で容易に扱えるマトリックス材として UO_2 を使用した。分散相の材料としては、還元性雰囲気下で UO_2 と固溶せず、融点が高い金属材料としてモリブデン(Mo)を選定した。

(試料製作方法)

試料の作製は粉末を出発物質とした焼結法により行った。作製のフローを図 4.2-1 に示す。 UO_2 粉末と Mo 金属粉末(体積比率 5%)を、機械混合法により混合した後、造粒・成形によって圧粉体とした。成形圧力は約 4t/cm^2 である。得られた圧粉体を、還元性雰囲気(加湿水素、露点 $5\sim 10^\circ\text{C}$)中 $1750^\circ\text{C} \times 4$ 時間の焼結を行った。

焼結により得られた焼結ペレットについて、寸法密度測定並びに金相観察を行った。その結果、寸法密度は 10.263g/cm^3 が得られた。また金相観察写真を図 4.2-2 に示すが、Mo が白色の析出相として分散相を形成していることが分かる。

得られた焼結体密度より、次式により気孔率を計算した。

$$P = 1 - c_{Mo} - \frac{D_{meas} - TD_{Mo} \cdot c_{Mo}}{TD_{UO_2}} \quad \dots \dots (4-5)$$

P : 気孔率

c_{Mo} : 分散相 (Mo) 体積率 (0.05)

D_{meas} : 寸法密度測定値 (=10.263 g/cm³)

TD_{Mo} : モリブデン密度 (10.28 g/cm³ [7])

TD_{UO_2} : UO₂ 理論密度 (10.96 g/cm³)

焼結ペレットの密度測定結果より、気孔率 P は 0.06 が得られた。

得られた焼結体は、レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定のため、厚さ約 1mm のディスク形状に加工して測定に供した。

(2) 測定方法

熱伝導率の測定は、レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定により行った。レーザーフラッシュ法は、本研究で測定対象としている比較的小さい固体試料の熱伝導率を、1000℃を超える高温領域まで、比較的短時間で簡便に測定できる特徴があることより、原子燃料材料に限らず広く利用されている^[8]。レーザーフラッシュ法は原理的には均一材料を対象とした測定法であるが、分散相を持つ二相材料においても適用性があることが示されている^[9]。

レーザーフラッシュ法の測定装置概念図を図 4.2-3 に示す。レーザーフラッシュ法では、平板状に加工した試料の片面にレーザーパルスにより熱エネルギーを付与し、反対側の表面におけるパルス照射後の温度履歴を測定する。この温度履歴から、試料厚さ方向の一次元熱拡散の時定数を求め、熱拡散率を求めることができる。しかし、実験においては試料からの熱リーク等により、測定原理の理想条件を測定条件によっては実現できない場合があるため、その補正方法として本測定では対数法^[10]を適用した。

(3) 測定結果

熱拡散率測定を室温から約 800℃まで行った結果を、図 4.2-4 に示す。測定は昇温時に加え、降温時にも行っており、これらは良好な一致が得られており、再現性のある測定結果が得られた。

得られた熱拡散率は、実測した試料密度と熱容量から次式により熱伝導率を求めた。

$$k(T) = \alpha(T) \cdot Cp(T) \cdot \rho(T) \quad \dots \dots (4-6)$$

$k(T)$: 熱伝導率 (W/mK)

$\alpha(T)$: 熱拡散率 (m^2/s)

$C_p(T)$: 熱容量 (J/kgK)

$\rho(T)$: 密度 (kg/m^3)

ここで、熱容量については加成性を仮定し、 UO_2 及び Mo の各々の熱容量^[11,12]を組成平均して使用した。また、密度の温度依存性については、 UO_2 の熱膨張率^[13]を用いて温度補正して使用した。得られた熱伝導率の温度依存性を図 4.2-5 に、 UO_2 熱伝導率モデル ((2-10) 式^[14,15]) と比較して示す。 Mo 添加による熱伝導率の向上が明確に現れた結果が得られた。

(4) Schulz モデル計算との比較

実験で熱伝導率測定を行った試料の分散相 (Mo) の体積率と、 Mo 熱伝導率^[16]と UO_2 熱伝導率 ((2-10) 式) を使用して、(4-4)式による Schulz モデル計算を行って、 Mo 添加 UO_2 の熱伝導率を計算した。実験で得られた熱伝導率と比較して図 4.2-6 に示す。レーザーフラッシュ法の一般的な測定誤差 $\pm 5\%$ を考慮すると、Schulz 計算結果と実験結果とはほぼ一致する結果が得られた。推定される偏差要因として、気孔率評価誤差、分散相形状因子、分散相不均一分布因子等が考えられ、これらについては FEM 解析による検討においても考慮する必要があると考えられる。

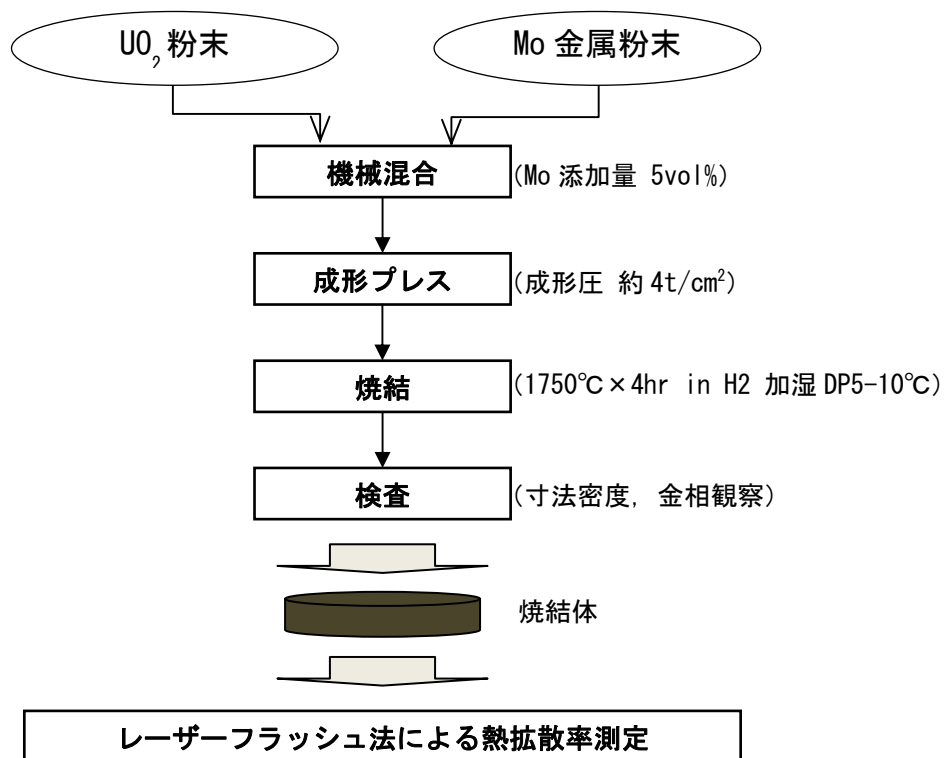


図 4.2-1 Mo 添加 UO₂ ペレットの作製フロー

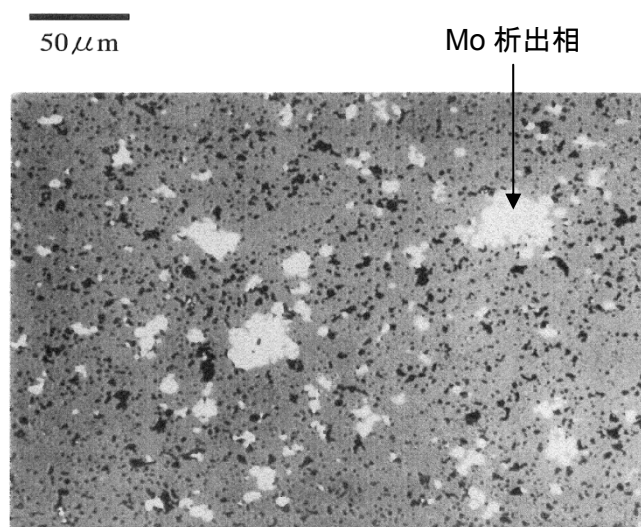


図 4.2-2 Mo 添加 UO₂ ペレットの金相観察

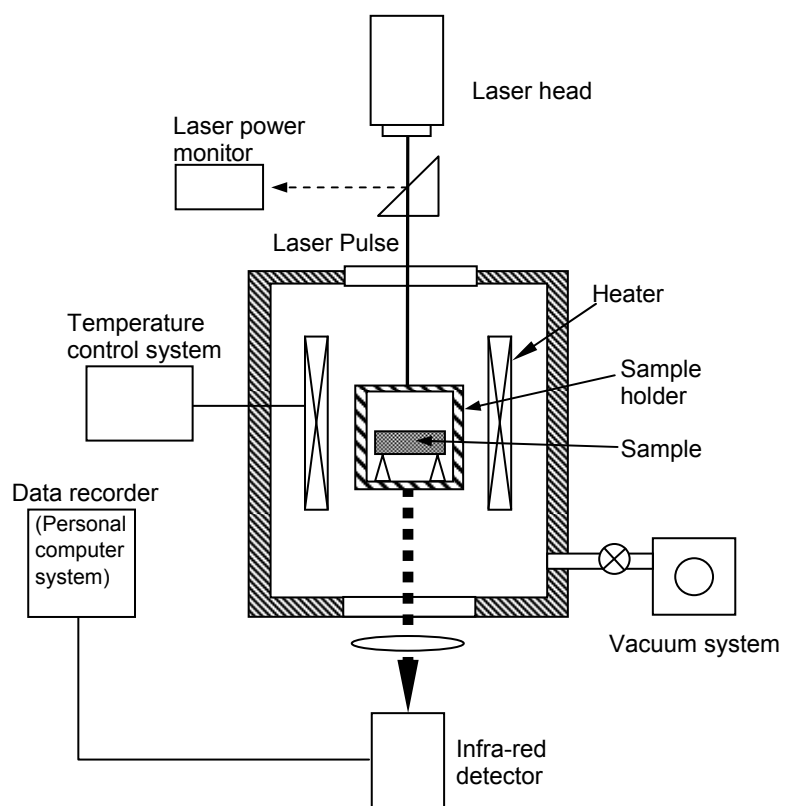


図 4.2-3 レーザーフラッシュ法測定装置概念図

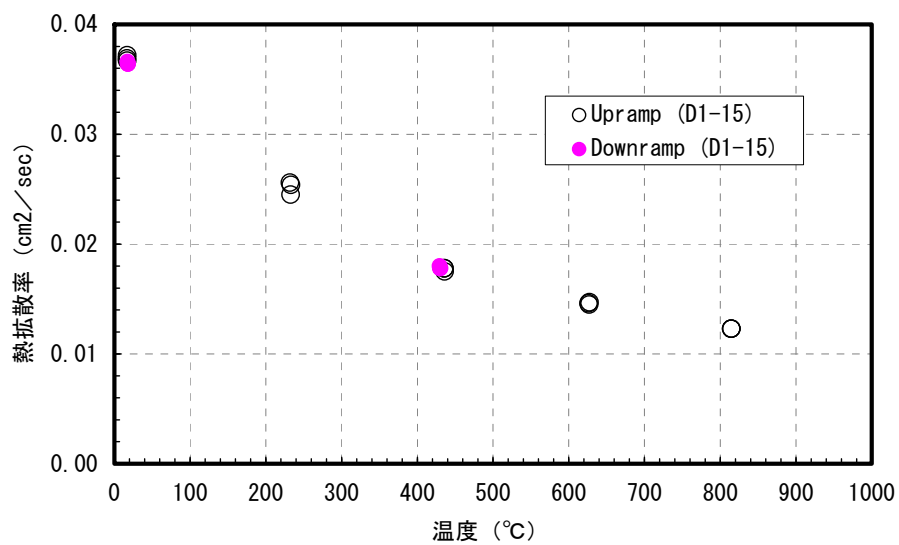


図 4.2-4 Mo 添加 UO_2 ペレットの熱拡散率測定結果

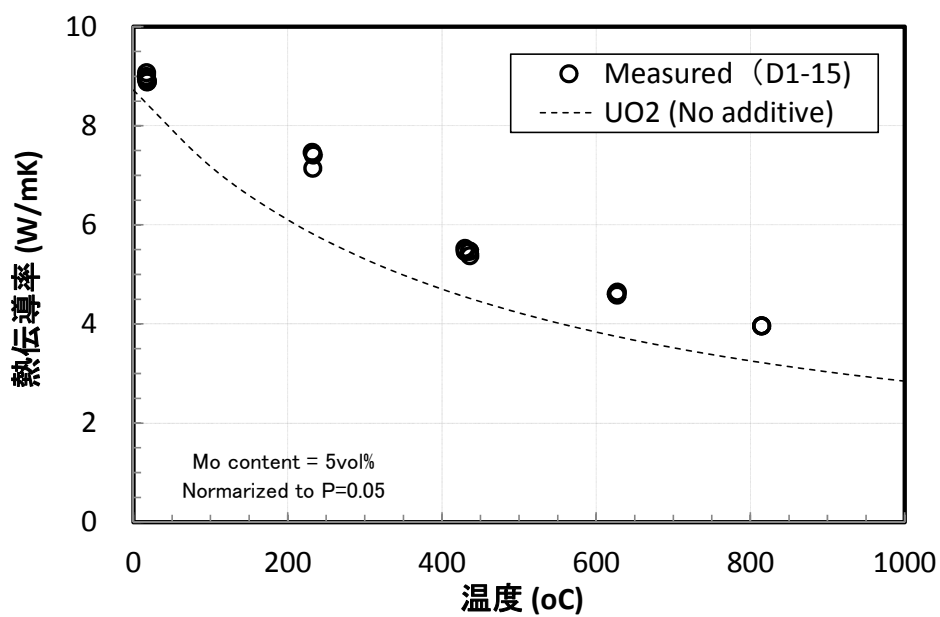


図 4.2-5 Mo 添加 UO_2 ペレットの熱伝導率測定結果

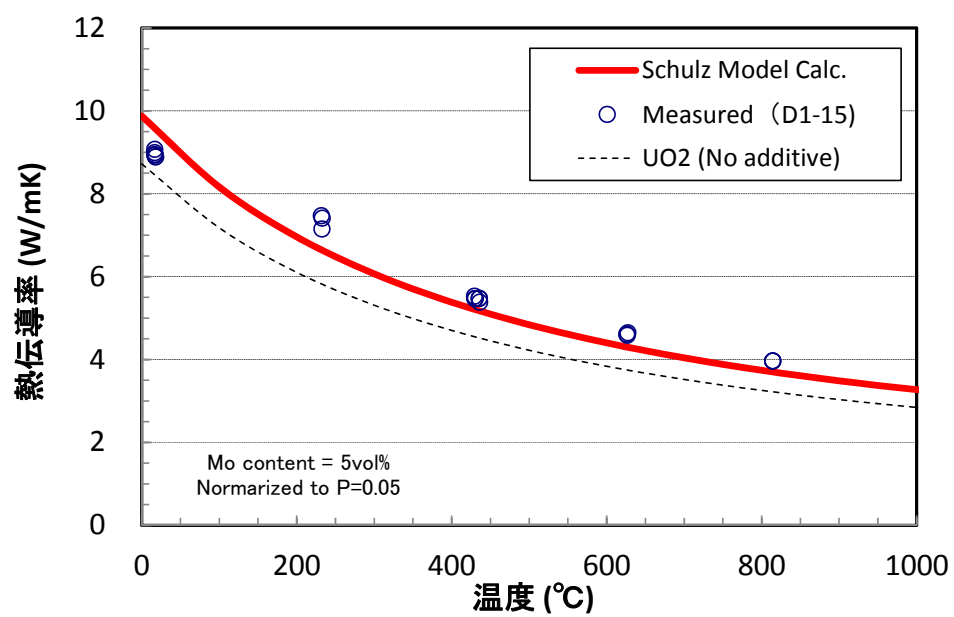


図 4.2-6 Mo 添加 UO_2 ペレットの熱伝導率実測と Schulz モデル計算の比較

4.2.2 FEM 解析による検証

ここでは、二相材料における分散相の配置、形状、体積率、二相間熱伝導率比をパラメータとして、FEM 解析によりバルク熱伝導率との相関を明らかとし、二相材熱伝導率を評価する Schulz 熱伝導率モデル式の適用範囲を検討した。

(1) 解析方法

① Schulz 解析式による二相材熱伝導率解析

(4-4)式で示した Schulz の解析式において、本検討では分散相形状を球形状と単純化して考えるため、 n , m , q は各々 $1/3$, $1/2$, 0 とした。

Schulz 解析式では、分散相がランダムに分布している二相材料において、各相の熱伝導率とその体積率を与えることにより簡便にバルク熱伝導率を評価できる。しかし、分散相の空間的な分布状態の違いについては、解析式中では考慮されていない。そこで UO_2 マトリクス連続相中に熱伝導率が異なる分散相が存在する軽水炉燃料の場合を想定し、その空間的分布パラメータのバルク熱伝導率への影響について FEM 解析との比較を行って、Schulz 解析による結果の適用範囲を評価した。

具体的には以下の観点から評価を行った。

- ・分散相個数密度の影響
- ・分散相不定形形状の影響
- ・分散相配置の影響

② FEM による熱伝導率解析

1) 解析体系

FEM 解析における二相材モデルは、図 4.2-7 に示すように分散相を球形状で模擬し、立方体の単位セル内に所定の体積率となるよう分散相球径とセル寸法の比を設定した。各相の熱伝導率は軽水炉燃料の熱伝導率評価に適用することを考慮し、連続相には酸化ウラン熱伝導率を、また分散相には金属モリブデン (Mo) あるいは MOX 燃料熱伝導率を想定した値を設定した。この単位セル層に対し、定常一次元熱流束を与えてその層両端における温度差 ΔT を解析により求め、バルクの熱伝導率を計算した。

このモデルにおいて、分散相の配置、体積率、二相間熱伝導率比をパラメータとして解析し、バルクの熱伝導率とこれらパラメータの相関を評価した。なお、FEM 解析には汎用有限要素法解析コード ABAQUS^[17]を使用した。

2) 熱伝導率及び境界条件

本 FEM 解析における各相熱伝導率は、連続相に対し分散相が高い熱伝導率を持つケ

ースについては、実験結果との比較を行うため、連続相には UO_2 の熱伝導率を、分散相には、金属 Mo の熱伝導率を適用した。連続相に対し分散相が低い熱伝導率を持つケースについては、 MOX 燃料を想定した熱伝導率を両相共に使用し、両相の相違は燃焼度パラメータを調整して与えた。

UO_2 及び MOX 燃料の熱伝導率は Gates ら及び Wiesenack の実験式を基にした (2-10) 式を使用し、 Mo 熱伝導率は TPRC データ^[16]を基にフィッティングして求めた以下の式を使用した。

$$k_D = \frac{1}{A_1 + A_2 \cdot T} \quad \dots \dots (4-7)$$

$$A_1 = 7.36 \times 10^{-3}, \quad A_2 = 2.20 \times 10^{-6},$$

k_D : 分散相熱伝導率(W/mK)

T : 温度(°C)

図 4.2-7 に示した体系の境界条件は、垂直方向に与えられた熱流束方向に対し、水平方向には対称性のある連続体とし側面は断熱条件とした。また酸化物燃料では燃料表面を一様に冷却して熱除去を行うことを考慮し、熱流束出口側の表面温度を固定した。出口側表面温度は、系の平均温度がほぼ目標設定温度となるように設定している。熱流束方向に温度差 ΔT が数 K/単位セルとなるよう熱流束を設定して、軸方向温度依存性を考慮した非線形解析により入口側温度を計算し、その熱流束方向温度差 ΔT の解析値よりバルク熱伝導率を以下の式で求めた。

$$k_{\text{BULK}} = \phi \cdot L / \Delta T \quad \dots \dots (4-8)$$

ϕ : 熱流束(W/m²)

L : 熱流束方向体系厚さ(m)

ΔT : 熱流束方向温度差(K)

(2) 解析結果と考察

① 分散相個数密度の影響

分散相の体積率一定で、分散相形状は球形状で同一サイズで分布しているとし、分散相の個数密度の違いによるバルク熱伝導率への影響を評価した。

単純化した最も極端な体系モデル例として、図 4.2-8 に示すように体系中に分散相が 1 個存在する場合と、複数個存在する場合の比較を考える。このような体系を解析するため、FEM 解析としては、図 4.2-8 に示すように単位セル中に分散相が 1 個存在する場合と、同一体積率で熱流束方向に複数個 (5 段) 分散相が存在する場合とを比較した。(4-8) 式で示されるように、バルク熱伝導率は熱流束方向温度差 ΔT による不確定幅に線形に依存する。FEM 解析では体系の熱流束入口端面における面内に分散相の分布に

依存して温度分布が生じ、そのため温度差 ΔT の不確定幅は最大で温度分布幅 δT (面内最高温度と最低温度の差) の間にある。そこで、分散相の個数密度の違いによる不確定幅の指標として、 $\delta T / \Delta T$ 比がどのように変化するかを調べた。

図 4.2-9 に分散相体積率が想定される最大のケースとして、50% の場合について解析した結果を比較して示す。連続相に対する分散相の熱伝導率が大きいケースを分散相 Mo ($k_D/k_M=25.6$) で、また小さいケースを分散相 MOX 燃料 ($k_D/k_M=0.691$) として解析した。ここで δT の符号は図 4.2-8 で示した端面内の中心位置を基準として決定している。

いずれのケースにおいても、分散相単位セルの層数が多いほど $\delta T / \Delta T$ への影響は小さくなることが確認され、高燃焼度 MOX で想定される熱伝導率比における $\delta T / \Delta T$ は 5 層体系で ~1% 程度と十分小さい範囲にあることが分かる。この事象は、熱伝導率の異なる分散相の存在による連続相中温度場の歪は、セル単位 (すなわち分散相 1 個) では、単層・複層いずれの場合もほぼ相似的であり、従って層数が増加すると全体の熱流束方向温度差 ΔT に対する表面での温度ばらつき δT の相対割合が小さくなるためと解釈される。

また、このような局所的な温度場歪によるばらつきが層数の減少で拡大することに依存して、平均値である ΔT の相違がどの程度かを比較すると、Mo 添加の場合で約 17% 程度大きくなり、MOX 燃料の場合では約 0.3% 程度小さくなり、影響を受けるものの、その度合いは小さい。

従って MOX 燃料のような実材料においては、分散相体積率が 50% と大きい場合でも、その個数密度の影響は 1% よりも十分小さいと考えられる。

本検討では、熱流束方向に対する分散相の相対的な数密度の影響を評価したが、数密度が異なることは分散相の相対的なサイズ (本検討では球径) をパラメータとして影響を評価したものと同等である。第 5 章で実際の MOX 燃料データで分散相を評価するが、そのサイズは数 $10 \mu\text{m}$ サイズでランダムに分散しており、本解析で実施した 5 層以上の分散相分布は局所的に十分成立していると考えられる。このことは、分散相が 5 層レベル以上含まれる視野においては、分散相のサイズに分布があったとしても、その影響は本検討で評価したように十分小さいと考えられる。

② 分散相不定形状の影響

酸化物連続相中に析出する分散相は、FEM 解析の体系モデルのような球形状でなく、一般的には不定形の形状で存在する。UO₂ のマトリックス中に金属 Mo を添加し析出分散した試料の金相観察例が図 4.2-2 に示されているように、白色に観察される Mo 析出相の分散相の形状・サイズ・分布はランダムな状態であることが分かる。このような分散相の FEM 解析における形状との相違の影響を把握するために、金属 Mo 添加した UO₂ の熱伝導率実測値と単位セルを 5 層とした解析結果との比較を行った。比較した結果を図 4.2-10 に示す。ここで気孔率は 5% に規格化して補正⁶⁾して比較している。

実測結果の温度依存性と比較し、**FEM** 解析結果は若干低い傾向があるもののほぼ妥当な一致を示し、レーザーフラッシュ法による熱伝導率測定における不確定幅 $\pm 5\%$ 程度であることを考慮すると、**FEM** 解析において分散相形状を同一サイズの球形状と仮定することで顕著に解析結果に影響を与えることがないことが確認できた。

③ 分散相配置の影響

図 4.2-2 で示したように、添加物を加えて酸化物中に分散相を析出させた二相材料では、分散相の空間的な分布は、**FEM** 解析モデル体系のように一列に整列した状態とは異なる。そこで **FEM** 解析モデルの体系を、熱流束方向に対し垂直面での分散相配置を変えてバルク熱伝導率への影響度合いを評価した。

図 4.2-11 に示すように、分散相の体積率は同一として、分散相が一列に整列した基本配置をレファレンスとし、1 層おきに一次元方向に $1/2$ 単位セル幅をスライドした体系、1 層おきに二次元方向に $1/2$ 単位セル幅スライドした体系、さらに 1 層おきに三次元方向に $1/2$ 単位セル幅スライドした体系について、各々のバルク熱伝導率を解析比較した。

分散相熱伝導率が連続相より低い **MOX** 分散相の比較結果を図 4.2-12 に示す。この図では、レファレンス配置の熱伝導率に対する各配置での熱伝導率の偏差の割合(%)を分散相体積率に対しプロットしている。この解析結果から、レファレンス配置に比較し x - y 面内で分散相配置をスライドさせた、1 次元、2 次元スライド配置では、熱伝導率が低下するもののその幅は僅か ($\sim 0.1\%$) であることが分かる。一方、3 次元スライドのケースでは、レファレンスケースに比較し熱伝導率が僅かではあるが増加する傾向にあることが分かる。分散相熱伝導率が連続相より低い本解析の場合、バルク熱伝導率は主に連続相に支配されると考えると、連続相の熱流束方向に垂直な横断面積にバルク熱伝導率が依存すると考えられる。

簡単な幾何学計算により、 z 方向（熱流束方向）に垂直な横断面の連続相面積を計算すると、図 4.2-13 のような結果が得られる。同図の横軸は、単位セル幅を 1 とした時の z 方向相対位置を示す。この計算結果より、連続相横断面の最小値は、3 次元スライド配置では他の配置に比較し顕著に大きくなっていることが分かる。熱伝導率の高い連続相の横断面面積最小部分が熱伝導のネックとなって、バルク熱伝導を抑制する主要要因と解釈される。

このような連続相横断面面積がレファレンス配置と同等である 1 次元、2 次元スライド配置では、レファレンスと比較し z 方向の熱流束をその配置の違いにより若干阻害するものの、横断面面積に違いがないためその影響は小さいと解釈される。

実際の酸化物燃料中における分散相の配置は、図 4.2-2 の観察写真の例でも分かるように規則性が無くランダムな配置をしており、本解析で行ったレファレンス配置から 3 次元配置までが混在している状態と考えられる。従って、酸化物燃料の分散相をレ

ファレンスのような一列配置によって代表させた解析結果は、分散相配置の影響による不確定幅は小さく、 $\pm 0.3\%$ 程度と考えられる。

④ 酸化物燃料二相材への Schulz 解析式適用性比較

前項までの FEM 解析による検討により、単純な一列配置の 5 層体系モデルでバルク熱伝導率を解析することによる不確定幅を明らかにした。ここでは、このレファレンス配置によるバルク熱伝導率解析結果と、同条件で Schulz 解析式による計算を行った結果について比較検討する。

Mo 添加 UO_2 と MOX 条件の比較検証結果を図 4.2-14 に示す。この結果を基に、連続相と分散相の熱伝導率比を、MOX と Mo 添加 UO_2 の場合を包絡する範囲で振らせ、分散相の体積率を最大 50% の範囲で比較した結果を図 4.2-15 に示す。

両相の熱伝導率の違いが大きくなるに従い、Schulz 解析式と FEM 解析の間の偏差が拡大する傾向にあり、分散相の体積率増加に伴い増加することが分かる。

4.2.2 項(2)①の分散相個数密度の影響評価で見たように、FEM 解析では 1 つの分散相の近傍における連続相中の温度場が局所的に歪むことを示したが、Schulz モデル計算においてはこのような局所的な温度歪は考慮されず平均的に扱われることの違いによると考えられる。分散相の体積率増加に伴ってその違いが顕著になるのは、分散相近傍の温度歪が狭い範囲の内はバルクの温度勾配への影響が小さく、その増加に伴い温度場歪がバルク温度勾配に対し相対的に無視できなくなる効果によるものと考えられる。

4.2.2 項(2)①の FEM 解析において、Mo 分散相の体積率を 50% とした解析例では、分散相の熱伝導率が連続相に比べ大きいため、端面内の温度分布が中心部に対し外周部で高くなる差が生じることを示した。この分散相周囲の温度場の歪の増加によって、熱流束方向温度差 ΔT が増加することも FEM 解析結果から得られている。一方、分散相の熱伝導率が連続相に比べ小さい MOX 燃料の解析結果では、Mo 分散相とは逆に端面内中心部の温度が高くなる温度差が生じるが、この分散相周囲の温度場の歪の増加によって、 ΔT は減少することが FEM 解析結果から得られている。

従って、分散相の周囲の温度歪の影響が大きくなるに従い、Mo 分散相の場合では FEM 解析による熱伝導率は小さくなる、すなわち Schulz モデル計算結果との比が増加すると考えられ、MOX 分散相の場合では逆にその比は減少する傾向になる。

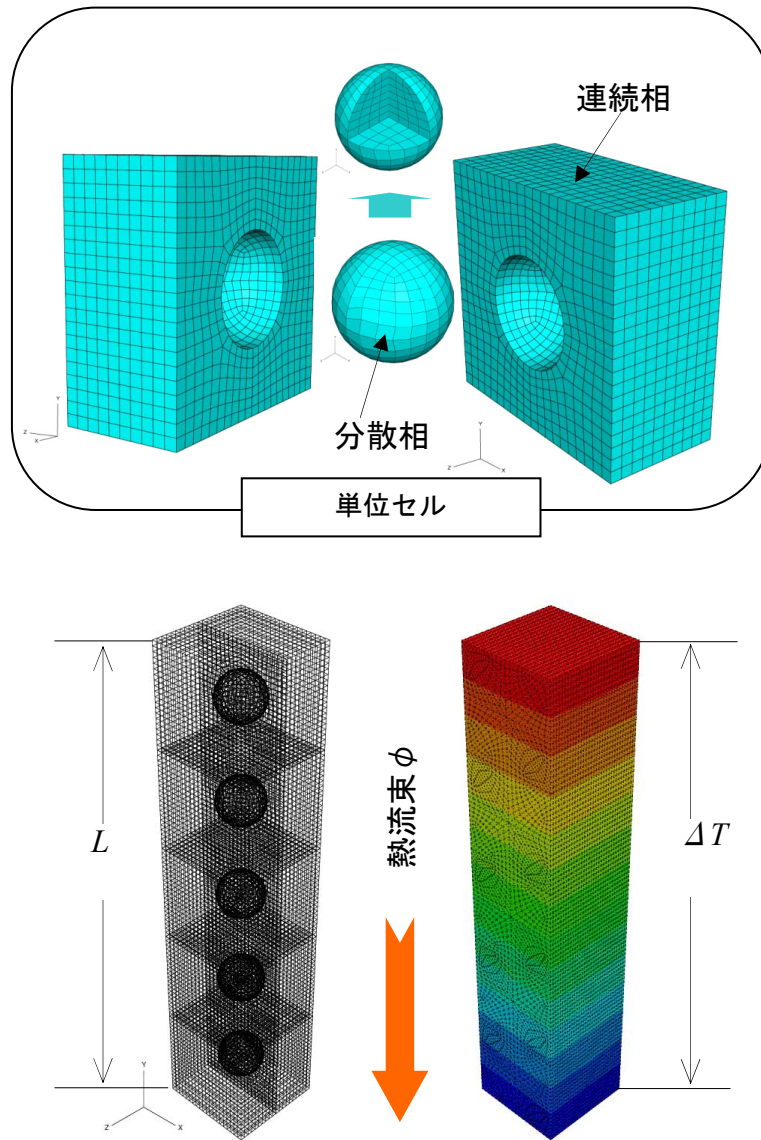


図 4.2-7 FEM 解析における二相材解析体系概念図

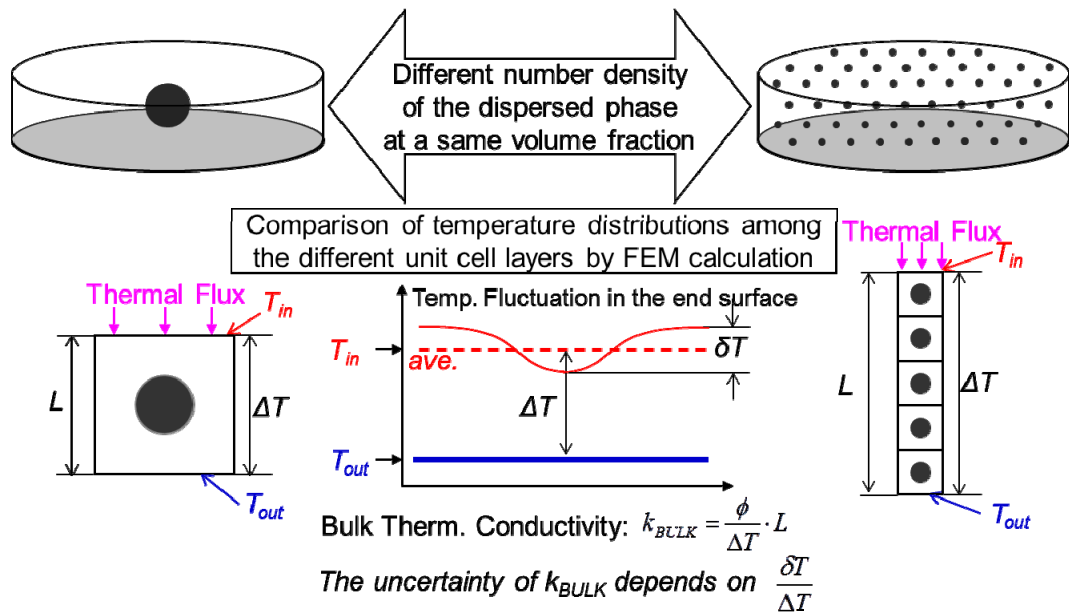


図 4.2-8 分散相個数密度の影響評価モデルの概念

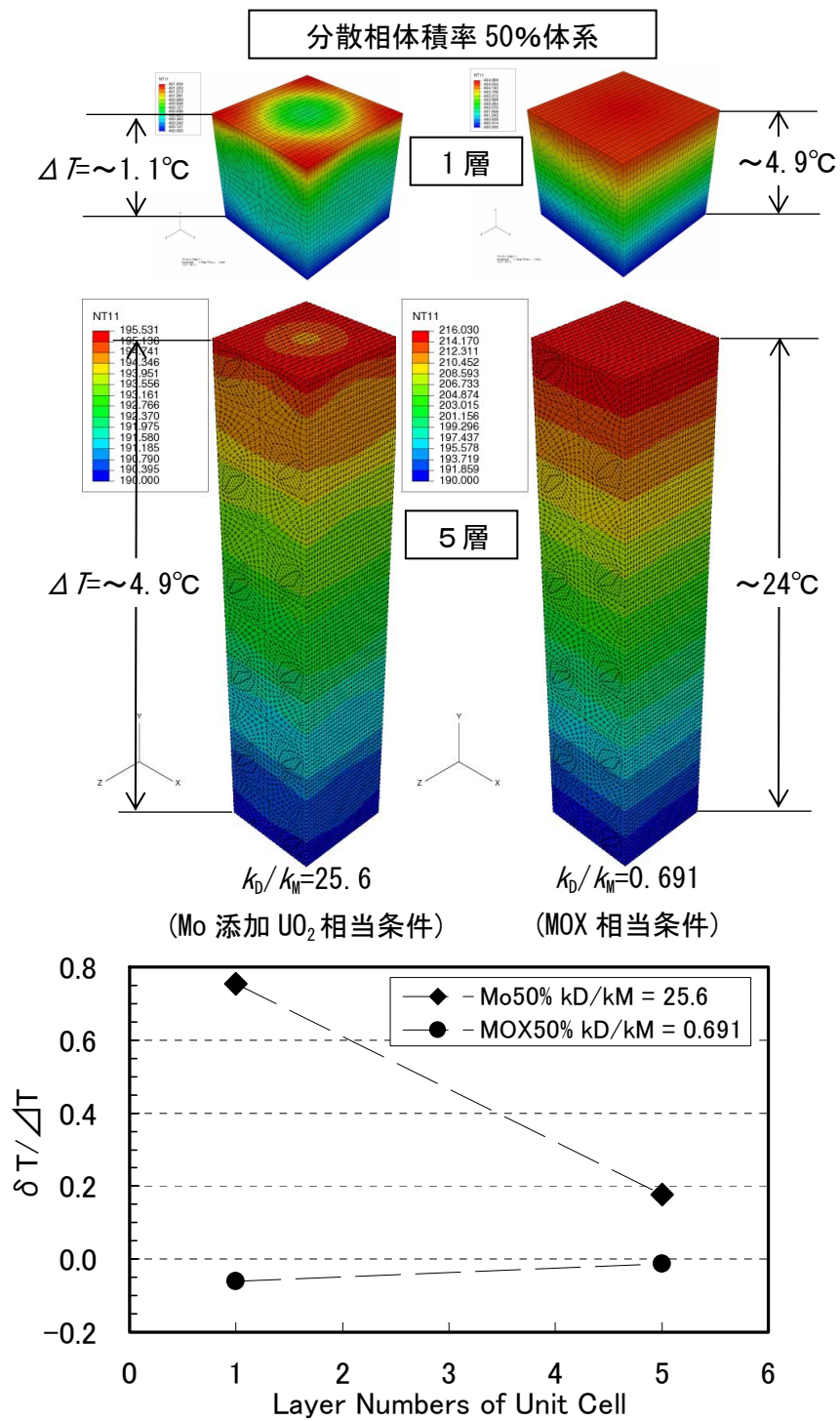


図 4.2-9 端面間温度差 ΔT の分散相単位セル厚さ依存性

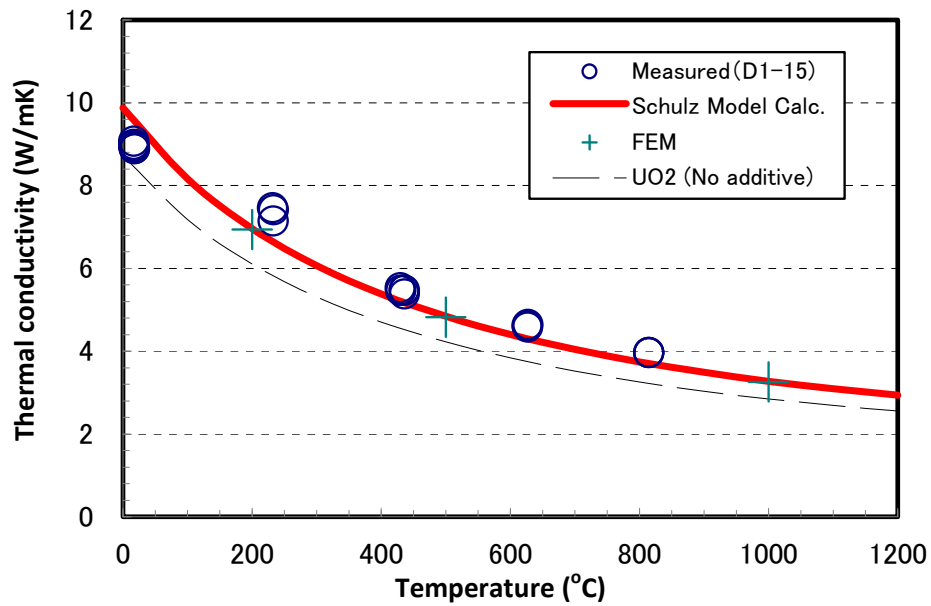


図 4.2-10 金属 Mo5vol%添加 UO₂ 熱伝導率の実験値と FEM 解析結果の比較

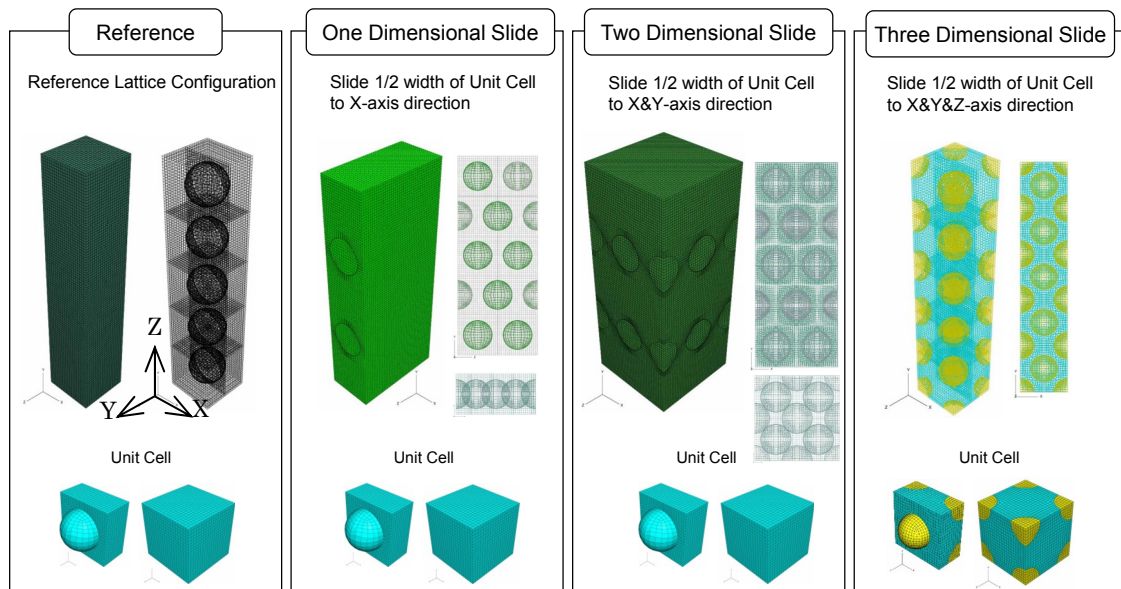


図 4.2-11 分散相の配置をパラメータとした FEM 解析体系

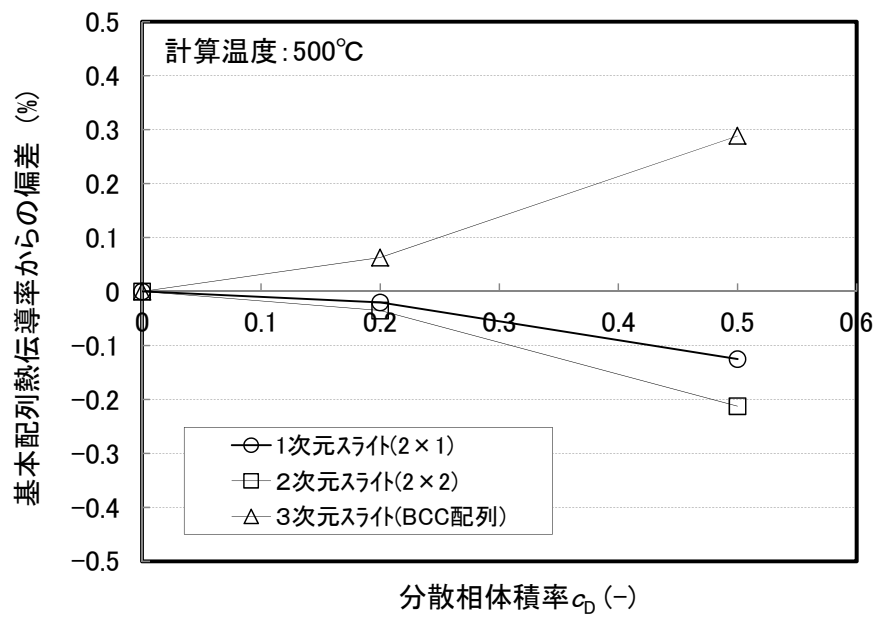


図 4.2-12 分散相配置の異なる体系のバルク熱伝導率 FEM 解析比較

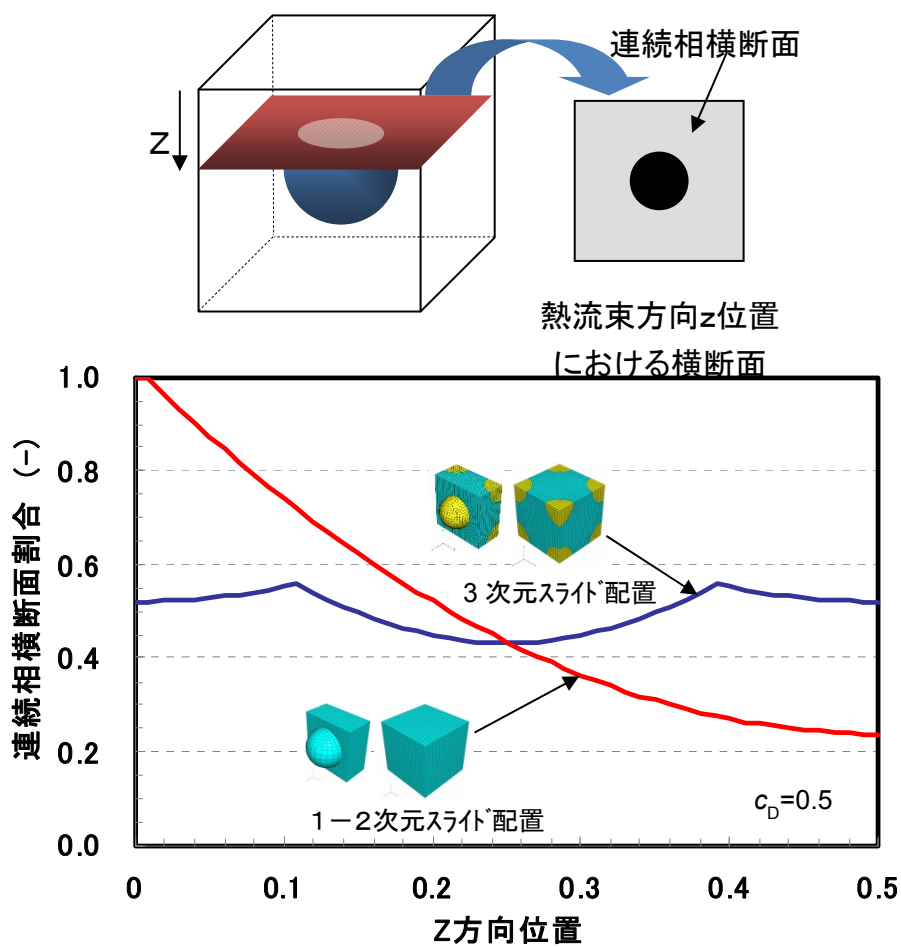
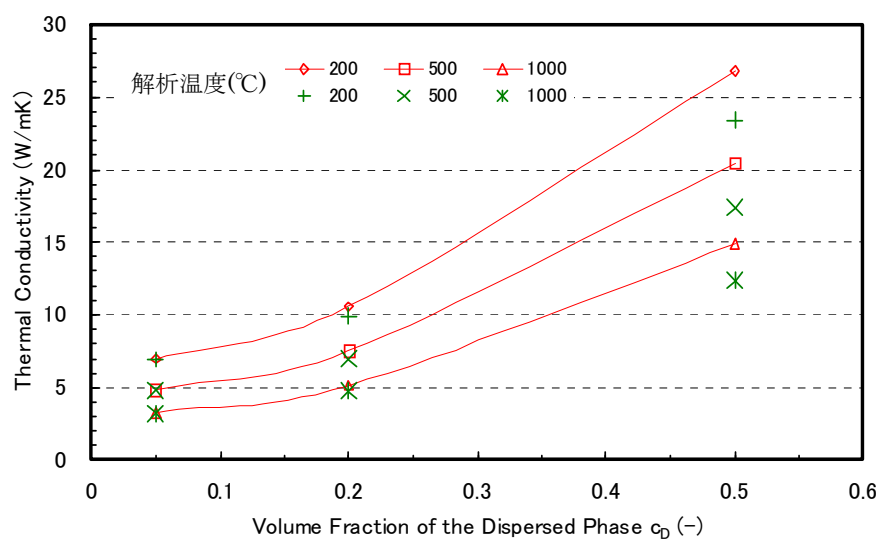
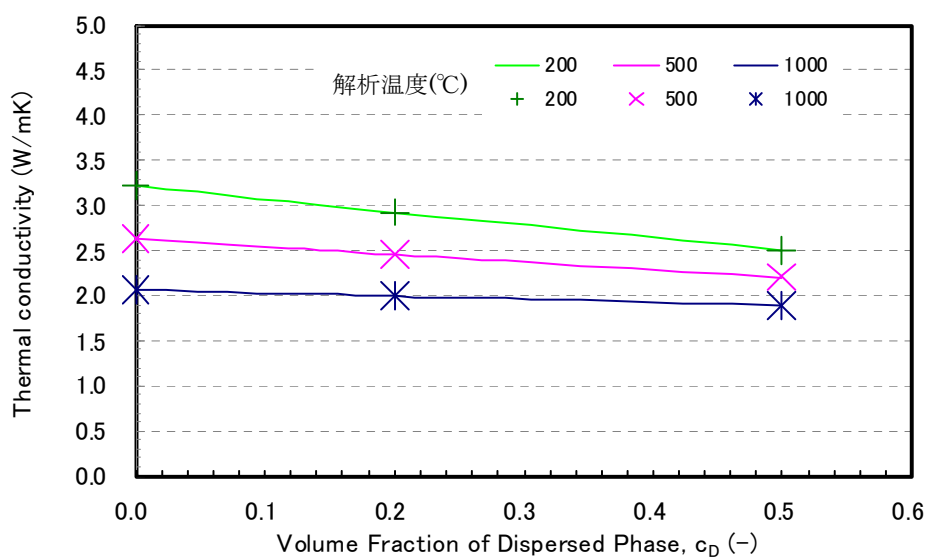


図 4.2-13 分散相配列の相違による FEM 熱伝導率解析結果が増減した要因



(1) Mo 添加 UO₂ 条件



(2) MOX 条件

図 4.2-14 FEM 解析と Schulz モデル計算の比較検証

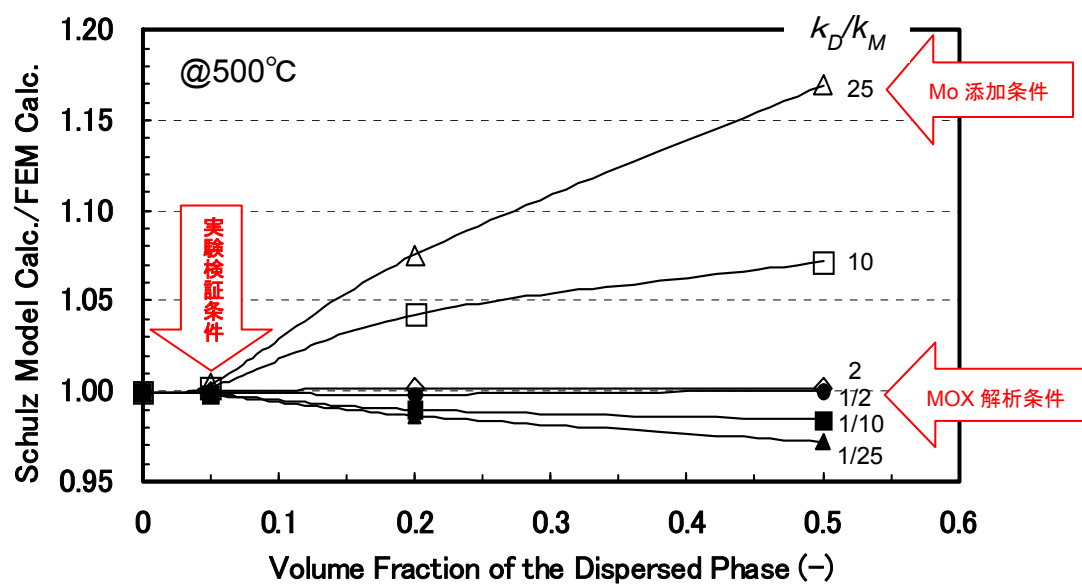


図 4.2-15 連続相と分散相の熱伝導率比をパラメータとした FEM 解析と Schulz モデル計算結果の比較

4.3 まとめ

二相材の熱伝導率を解析するモデル式として Schulz のモデルを選定し、二相材熱伝導率解析における Schulz 解析式の不確定性を FEM 解析との比較により行い、以下の成果を得た。

- (1) 分散相個数密度による不確定性は、熱流束方向の分散相層数増加により減少する傾向が確認され、MOX 燃料のような実材料においては、分散相体積率が 50%と大きい場合でも、その個数密度の影響は 1%よりも十分小さいと考えられる。
- (2) 実材料の不定形形状をした分散相を、球形によるモデルで置き換えて評価することの妥当性を分散相体積率 5%における実測値との比較により確認した。
- (3) 分散相の格子配置の相違による影響は僅か（<0.3%程度以内）である。
- (4) FEM 解析による検討結果より、分散相熱伝導率が連続相より大きい場合、その比が大きく分散相体積率が大きい領域では、連続相の温度場歪が大きくなり、バルク熱伝導率不確定幅が増大するため、Schulz 解析式の適用範囲が制約されることが分かった。
- (5) 実材料で想定している MOX 燃料のような、熱伝導率比が 1/2 程度の場合には、その温度場歪は広い分散相体積率範囲で比較的小さく、FEM 解析と Schulz 解析式の結果は 0.5%以内で良い一致を示すことが分かった。

第 5 章

MOX 燃料 Pu スポット 分散相の二相材効果による 熱伝導率への影響評価

本章では、Pu スポットが存在する MOX 燃料において、Pu スポット部が分散相を形成する擬似二相材として取り扱い、Schulz モデルを適用してその熱伝導率の燃焼度依存性を評価する。

5.1 擬似二相モデルによる熱伝導率評価方法

二相材料熱伝導率解析への Schulz モデルの適用については 4.1 節で述べたが、MOX 燃料を擬似二相材として取り扱うためには、(4-4)式において分散相の体積率と、各相の熱伝導率を求める必要がある。ここでは、照射試験に供した MOX 燃料の製造時における燃料特性データを基に、これらのパラメータの決定方法とその結果について述べる。

これらのパラメータを決定する上では、以下のような課題について検討が必要となる。

○Pu スポット分散相の製造時体積割合 (c_D) と Pu 濃度

- ・ 2 相の分級しきい値の設定方法
- ・ 各相における Pu 濃度の設定方法

○Pu スポット部の燃焼度推定

- ・ 各相の燃焼度の設定方法 (両相の Fissile 濃度比配分とする妥当性)

これらについて、具体的な製造時データを解析してその方法を検討した。

5.1.1 Pu スポット分散相の製造時体積割合と Pu 濃度

MOX 燃料の Pu 濃度に関する製造時データは、通常ペレット平均の U, Pu 組成、同位体組成が測定されるが、ペレット内の Pu 濃度分布やその微細構造との関係に関わる詳細なデータは取得されることが稀である。第 1 章で述べた試験炉(Halden 炉)における照射試験^[1]を実施した MOX 燃料では、Pu 濃度分布に関する詳細データが得られていることから^[2]、本研究ではこれらを基に、製造時の Pu 濃度分布に関する解析評価を実施した。

図 5.1-1 に照射試験に使用された MIMAS 法 MOX 燃料の、製造時におけるペレット断面の EPMA 分析データを示す。図中の EPMA による Pu 濃度マッピングにおいて、白色部は Pu 濃度が相対的に高い領域を示し、局所的に白い領域が分散して存在していることが分かる。図中には、Pu スポット部を拡大し、Pu スポット領域を横断するように線分析を行い、その濃度分布が測定されているが、マッピング画像の白黒濃淡が、Pu 濃度に対応していることが分かる。

(1) EPMA 面分析マッピング画像からの抽出方法

EPMA により測定された Pu 濃度マッピング画像から、画像解析の手法により、あるしきい濃度以上の領域を抽出して、Pu スポット部に相当する領域とそれ以外の領域の 2

領域に分ける。そして分けられた各領域の面積割合と Pu 濃度の領域平均値を抽出する。図 5.1-2 にその手法の概要を示す。Pu 濃度マッピング画像を画像解析することにより、画像全域における濃淡のヒストグラムが得られる。このヒストグラムの横軸は、画像の濃淡による 256 階調に分類された輝度を表し、Pu 相対濃度に相当する。縦軸は頻度を示し、これは相対的な面積率に相当する。この横軸最大値に Pu 濃度の最大値を当てはめることにより、濃度分布の絶対値を得ることができる。

Pu スポット部に相当する高濃度領域を抽出するには、このヒストグラムにおける横軸の濃度レベルに対し、しきいレベルを設定し、それを境に 2 領域に分けることによって抽出することができる。このしきいレベルは任意に設定が可能であるが、この設定によって分散相領域の面積率や、各相の Pu 平均濃度を決定することになる。図 5.1-1 で示した Pu スポット部の線分析を見ると分かるように、Pu スポット部における Pu 濃度の立ち上がりは、必ずしもシャープではないので、しきいレベルを一意的に設定することは難しいことが分かる。ここでは、最大濃度に対し、20%と 50%の 2 つのしきいレベルを設定し、分散相の抽出を行った。抽出した画像を図 5.1-2 に合わせて示しているが、しきいレベルを下げると、Pu スポット部に相当する領域の境界が広がり、一部では他の分散領域と接続しているように見られる。本検討では、このしきいレベルの違いによる影響も調べるため、この 2 レベルによる画像抽出を行うこととした。

前述のように、この画像解析により Pu 濃度絶対値を決定するには、輝度分布図の横軸最大値、すなわち画像濃淡の最大値にこの領域の Pu 濃度最大値を当てはめる必要がある。図 5.1-1 で示した Pu スポット部の線分析では、Pu スポット領域における Pu 濃度の絶対値が測定されており、この最大値を輝度分布横軸最大値に当てはめることにより、絶対値に変換した。図 5.1-3 にその手法概念を示すが、このように Pu 濃度の絶対値を当てはめることにより、しきいレベルで分類した各領域における Pu 濃度を算出することができ、その結果も合わせて図中に示した。

以上の方法は、Pu 濃度マッピング画像を使用した決定方法であるが、同じ考え方で線分析の Pu 濃度分布測定からも決定することができる。その結果を図 5.1-4 に示す。

このように、2 つのしきいレベルによって 3 つの領域に分けられた、各領域の面積率と Pu 平均濃度の結果を比較して図 5.1-5 に示す。ここで、空間占有率は面分析による面積率であり、線分析では領域の線分率に相当する。この結果から、両者の間では空間占有率に若干ずれが生じることが分かる。線分析では、Pu スポット部位に着目して、その近傍領域のみを測定対象としていることから、ペレット全体の濃度分布の代表性的観点からは、面分析による Pu マッピングを基に測定する方がより妥当と判断した。

(2) MIMAS 法 MOX 燃料製造時データによる抽出結果

前述の面分析結果から分かるように、Pu 濃度は空間的にランダムに分布していると考えられるので、MIMAS 法 MOX ペレットの Pu 濃度分布に関する情報を抽出するには、できるだけサンプリング数を多くすることが、客観的な情報を得るために有効と考えられる。本検討では、図 5.1-6 に示すような、4 つのペレット金相断面における EPMA マッピング画像から、平均的な面積率や Pu 濃度を抽出した。これらの画像は、ランダムに採取された異なる 4 つのペレットより、任意の断面において観察された画像である。

これらを使用して、2 つのしきいレベル（20%, 50%）で分けられた 3 つの領域についてその面積率と Pu 平均濃度を抽出した結果を図 5.1-7 に示す。抽出結果では、各々の観察視野毎に測定した Pu 濃度の平均値を示したが、視野によるばらつきがあるもののこれらの平均値は 8.8wt%であり、製造時データの化学分析値 8.4wt%とおおむね妥当な一致をしており、この抽出データが妥当であると判断した。

以上の方法によって、擬似二相材として得られた分散相（Pu スポット部）と連続相の各々の面積率と Pu 濃度の結果を図 5.1-8 に示す。

Alpha autoradiography

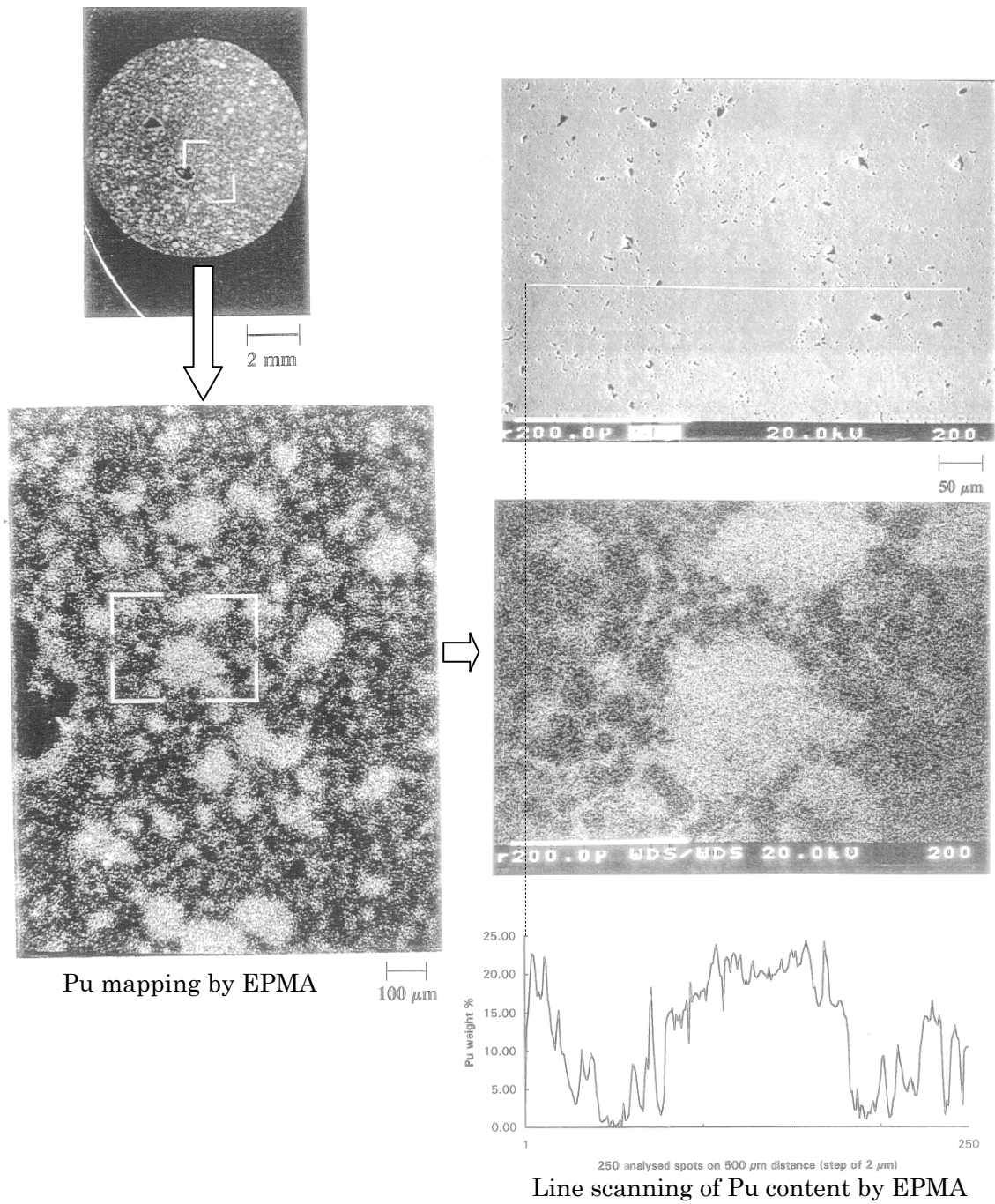
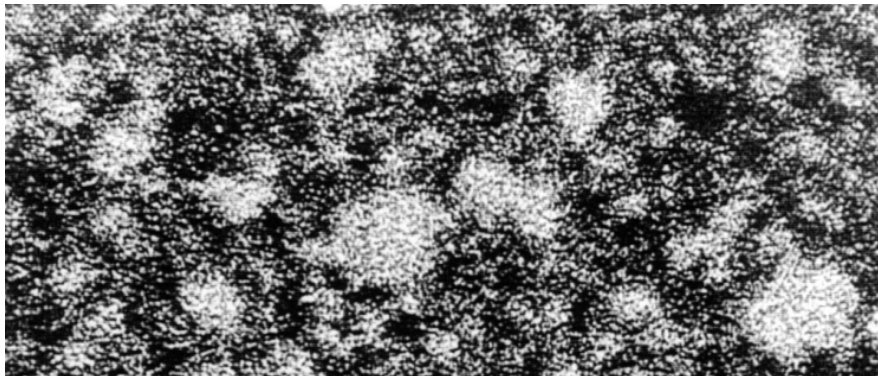


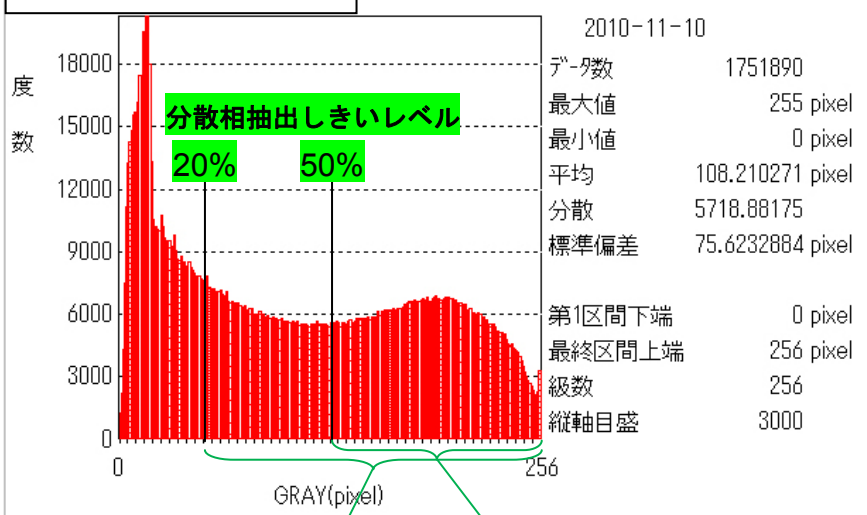
図 5.1-1 照射試験に供した MIMAS 法 MOX 燃料ペレット断面の EPMA による Pu 分布測定例

Pu マッピング画像

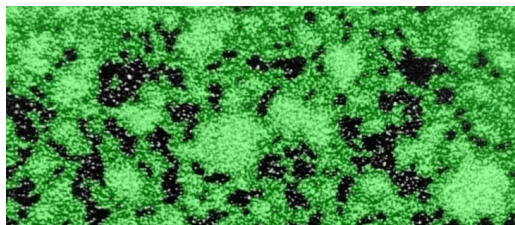


画像解析

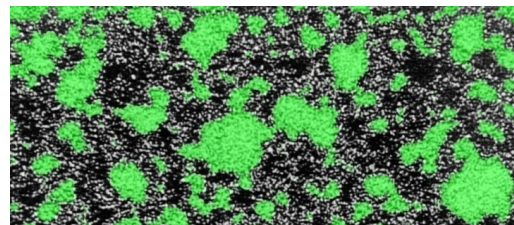
輝度ヒストグラム



しきいレベル 20%抽出画像

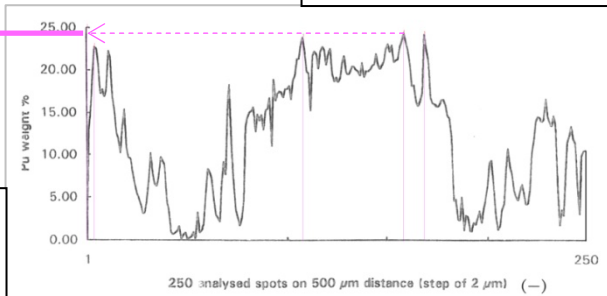
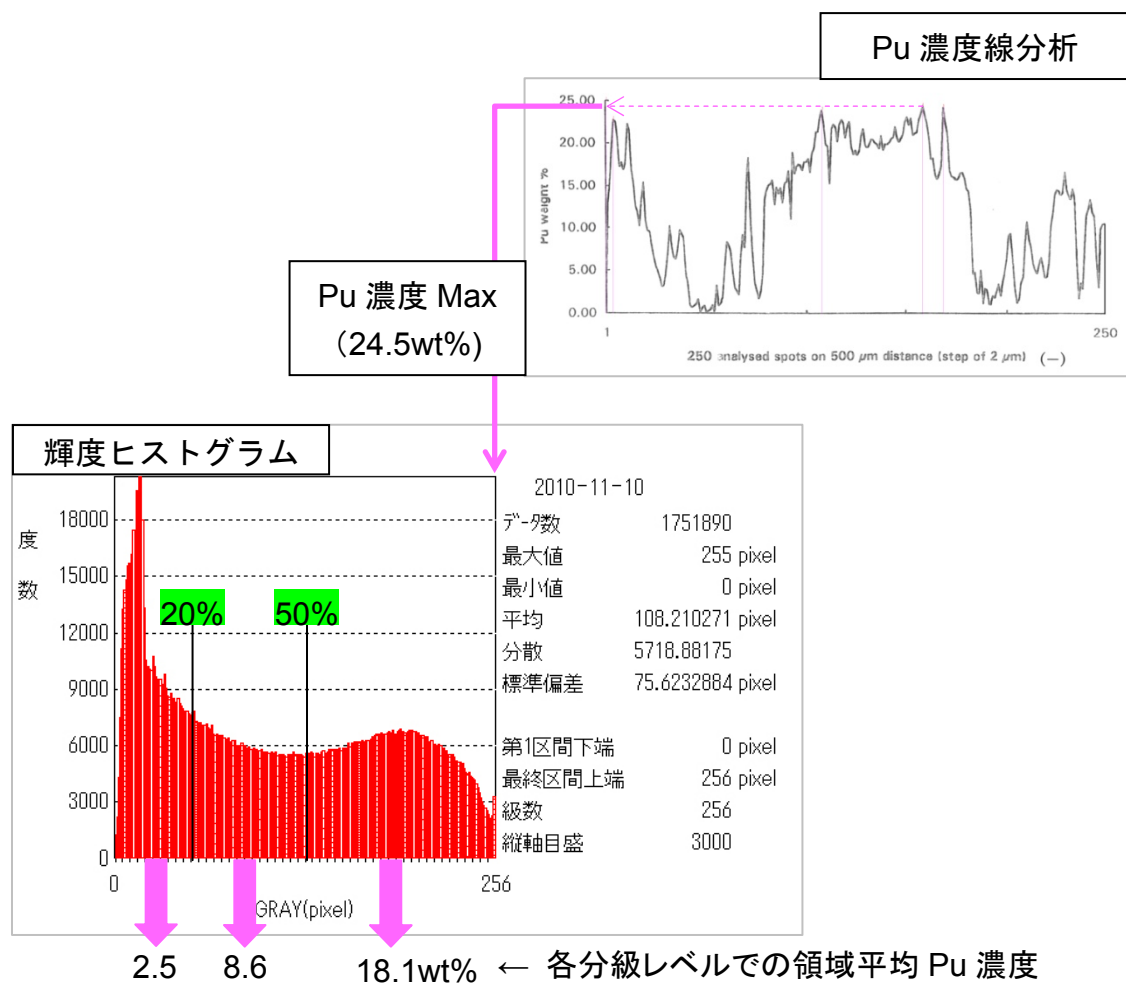


しきいレベル 50%抽出画像

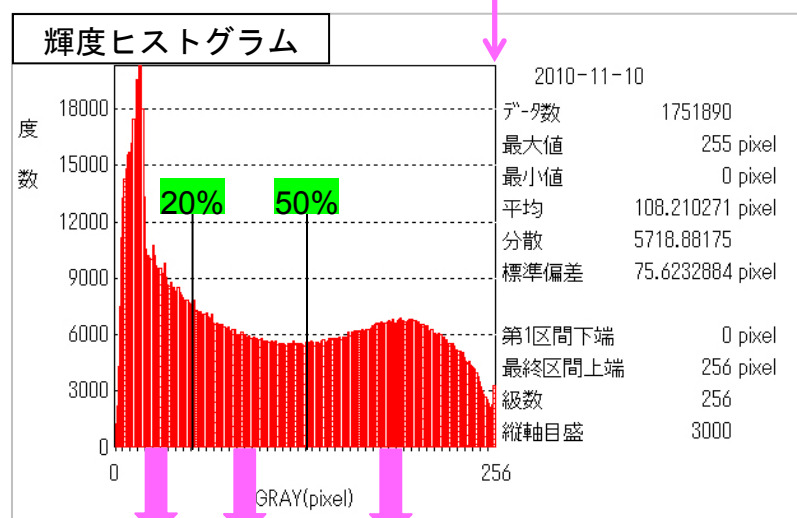


(緑色が抽出領域)

図 5.1-2 EPMA による Pu マッピング画像からの分散相抽出手法



Pu 濃度 Max
(24.5wt%)



2.5 8.6 18.1wt% ← 各分級レベルでの領域平均 Pu 濃度

図 5.1-3 Pu マッピング画像の輝度分布から Pu 濃度絶対値への変換手法

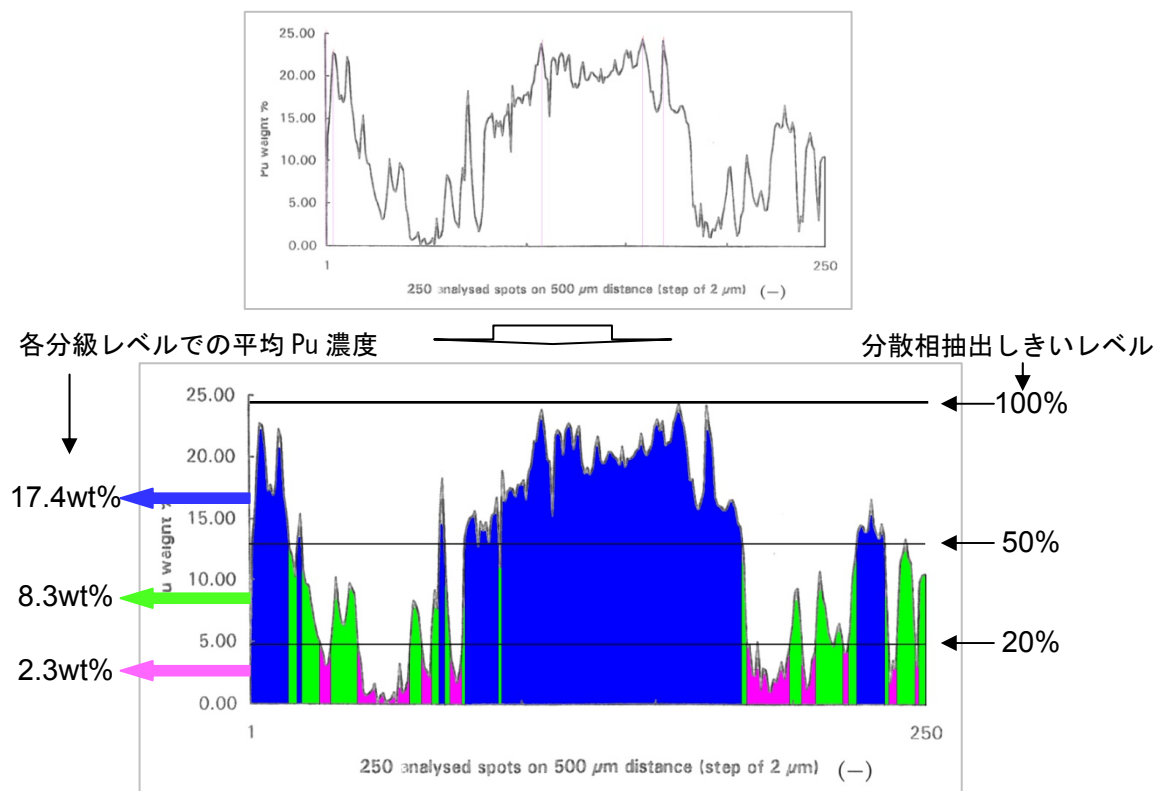


図 5.1-4 Pu スポット部線分析結果に基づくしきいレベル分級

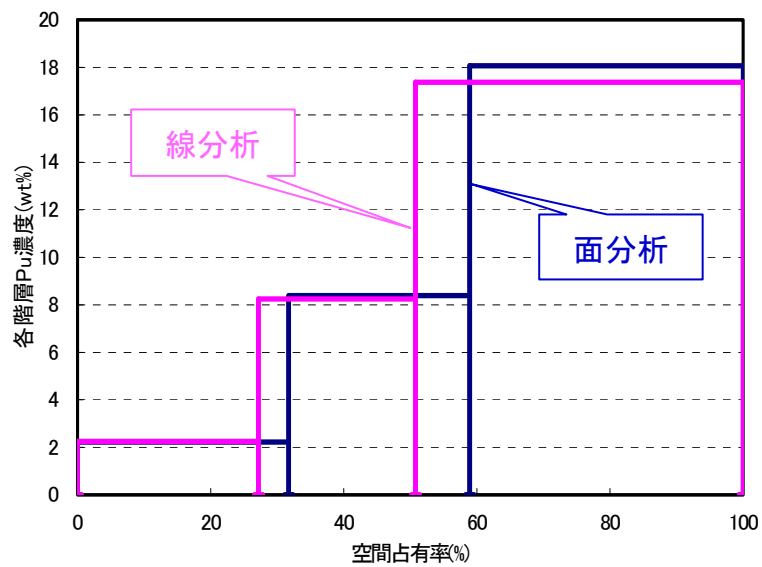


図 5.1-5 2つのしきいレベルで分級された各相の空間占有率と平均 Pu 濃度の比較

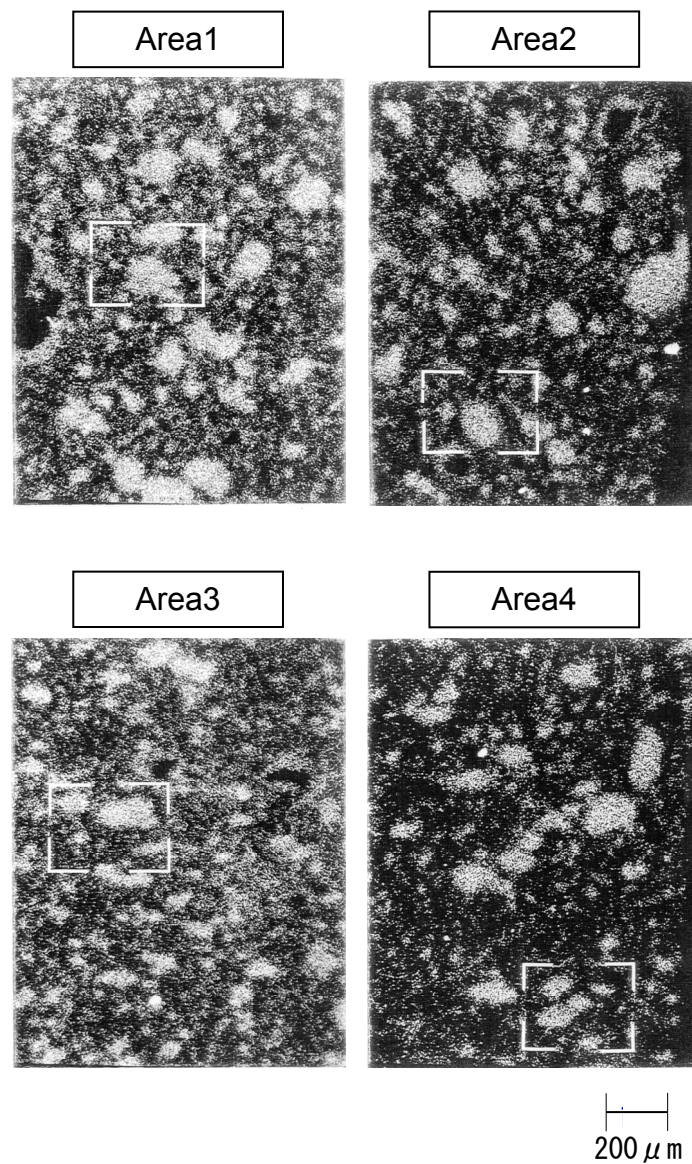


図 5.1-6 照射試験に供した MIMAS 法 MOX 燃料の製造時 Pu マッピングデータ

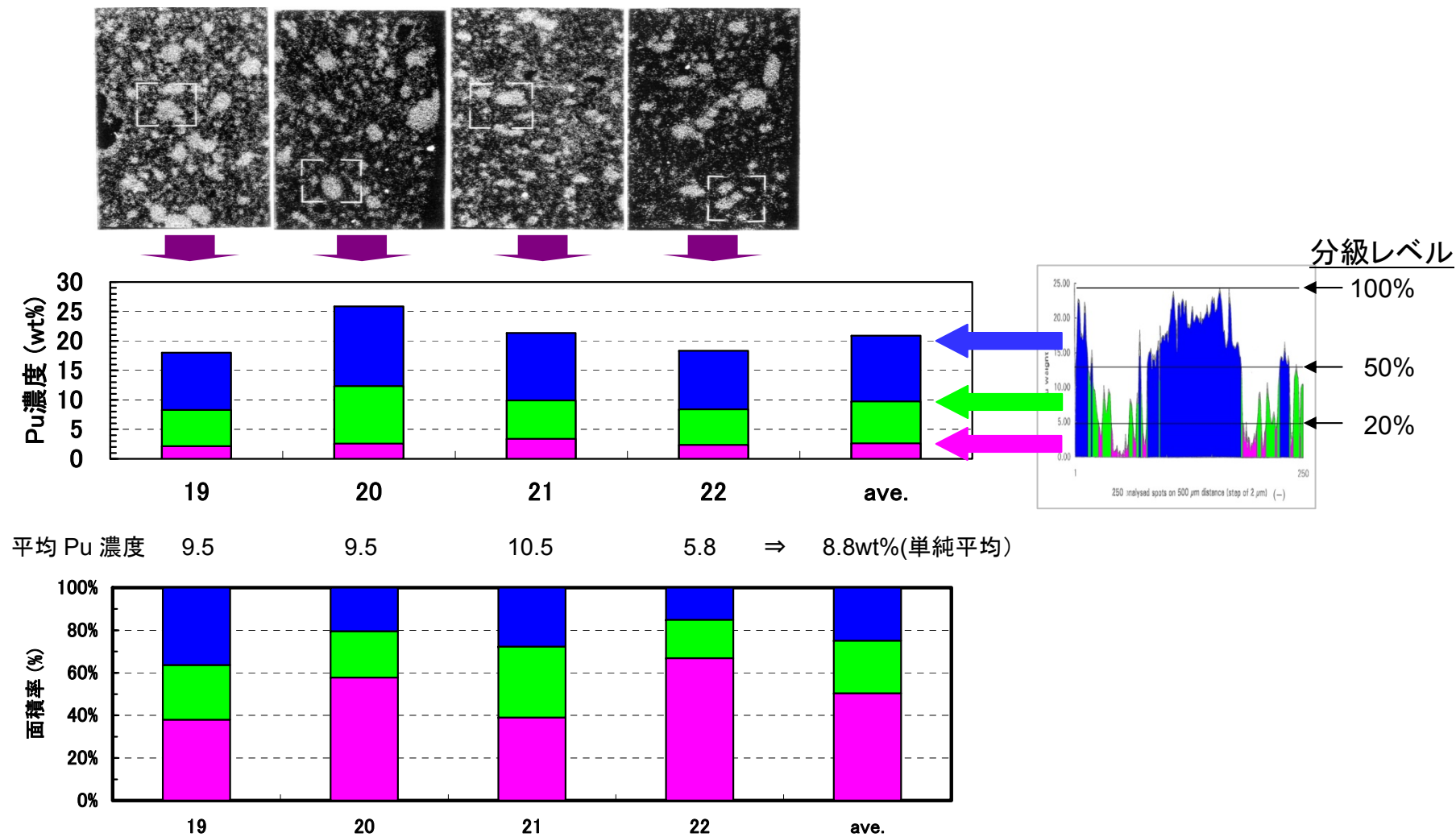


図 5.1-7 MIMAS 法 MOX 燃料製造時データに基づく Pu スポット部情報抽出結果

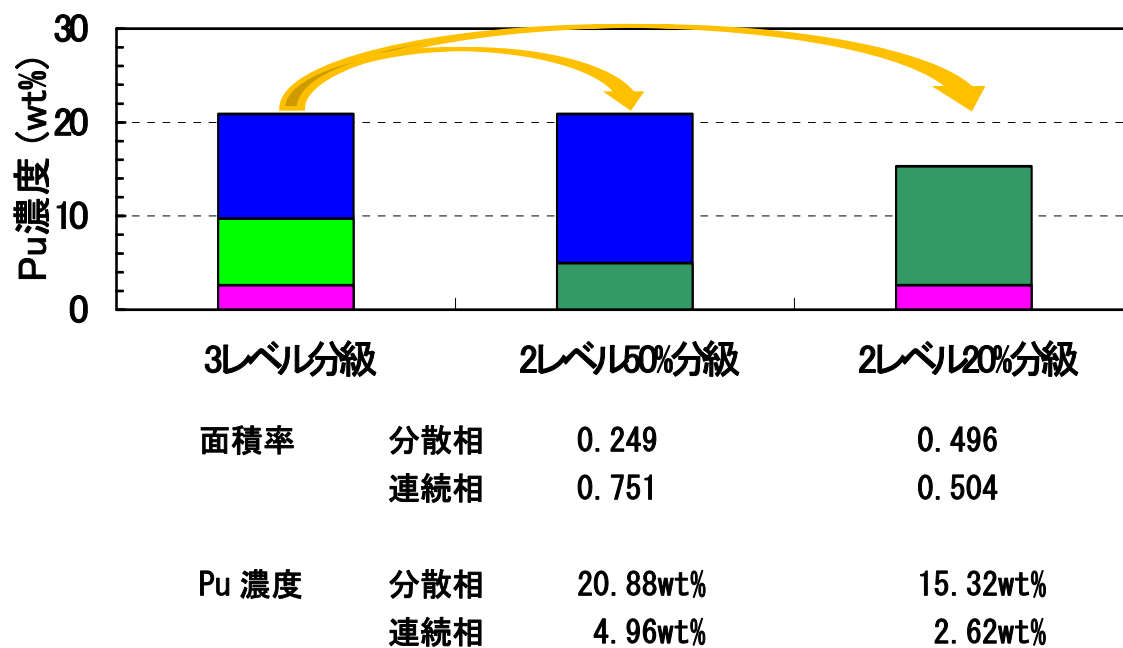


図 5.1-8 MIMAS 法 MOX 燃料の擬似二相材各相面積率及び Pu 濃度抽出結果

5.1.2 Pu スポット部の燃焼度推定

MOX 燃料ペレットを擬似二相材として扱い、Schulz モデルを使用してその熱伝導率を評価するには、各相の熱伝導率を与える必要がある。本研究では、各相の熱伝導率に同一の MOX 熱伝導率の燃焼度依存式を適用しており、各々の相の燃焼度によって決定される。従って、燃焼に伴う各相の燃焼度を求める必要があるが、照射試験においてはペレットの平均燃焼度は計算されるものの、ペレット内の Pu 濃度分布による燃焼度の違いは通常得ることができない。そこで、製造時における両相の Fissile 核種濃度比に応じて、ペレット平均燃焼度を配分する方法で、各相の燃焼度を推定する。

各相の燃焼度の体積率平均がペレット平均燃焼度であるから、次式が成り立つ。

$$BU_{ave} = BU_D \cdot c_D + BU_M \cdot (1 - c_D) \quad \dots \dots (5-1)$$

これより、

$$BU_M = \frac{BU_{ave}}{1 + c_D \cdot (\beta - 1)} \quad \dots \dots (5-2)$$

但し、ここで両相の燃焼度比を β とし、この比が両相の Pu Fissile 濃度比に等しいと仮定し以下の関係を使用している。

$$\beta = \frac{BU_D}{BU_M} = \frac{C_D}{C_M} \quad \dots \dots (5-3)$$

以上においては、以下の定義を使用している。

BU_i : 相 i の燃焼度 (GWd/t)

c_D : 分散相体積率 (-)

G_i : 相 i の Fissile 濃度または Pu 濃度 (wt%)

添字の定義

D : 分散相

M : 連続相

ave : ペレット平均

(5-2)式の関係から、分散相体積率 c_D と、両相の Fissile 濃度比 β を決定することにより、ペレット平均燃焼度から各相の燃焼度 BU_D , BU_M を決定できる。

Fissile 核種の分散相対連続相の濃度比は、両相間の Pu 濃度比と同じであるから、製

造時データによって得られる両相間の Pu 濃度比により β は決定できる。従って、5.1.1 項において製造時の Pu 分布データから抽出された分散相体積率や各相濃度によってこれらは決定することが可能であることが分かる。

(5-3)式の関係においては、両相の燃焼度比は Pu 濃度の比に等しいとの前提を置いており、ここではその妥当性について、照射した MOX 燃料に関する Pu スポット相の燃焼度を分析した報告例を基に検証を行う。

Lemoine^[3]は、Pu 濃度が不均一な MOX 燃料について、製造時の Pu 分布データと合わせ、それらを約 50GWd/t の燃焼度まで照射した後に、照射後試験を行って Pu スポット部に関する詳細な特性試験を行った結果を報告している。

図 5.1-9 に照射試験に供した MOX 燃料の製造時における EPMA による Pu マッピング画像を示すが、MIMAS 法 MOX 燃料に類似した、Pu 濃度の高い Pu スポットが分散相を形成している状況にある。この画像を基に、画像解析によって輝度分布を測定した結果を図 5.1-10 に示す。この輝度分布測定による輝度の平均値と、輝度最大値の比は約 4.7 倍と得られた。製造時情報によれば、ペレット平均 Pu 濃度は 5.9wt%で、製造時の混合原料粉末最大 Pu 濃度は 27wt%と報告されており、この比は約 4.6 倍であり、画像解析により得られた比とほぼ一致した。このことから、製造された MOX 燃料ペレット Pu スポット部における Pu 最大濃度が、製造混合時の最大濃度と同等であることが分かった。

この燃料を照射した後に、照射後試験においてこの Pu スポット部分について EPMA により FP 元素の線分析を行った結果が図 5.1-11 のように報告されている。約 80 μ m 程度の範囲にわたり、FP 元素である Nd の濃度が大きく分布し、一方で気体 FP である Xe の濃度が低く分布している Pu スポット部の特徴的な分布が得られている。FP 元素の Nd は、酸化物燃料中では固溶体を形成してほとんど移動しないと考えられており、空間的な燃焼度分布の指標と考えられている。この EPMA による Nd 分布測定結果から、Pu スポット部における最大濃度は 1.87wt%程度と読み取られ、これは 2.13at%に相当する。

このように照射後の MOX 燃料の Pu スポット部で得られた FP 濃度から、当該領域での燃焼度を推定するため、ORIGEN コード^[4]を用いて、燃焼度と FP 元素生成量の関係を計算した。Lemoine の報告では、その照射履歴に関する情報は不明であるので、ORIGEN 計算の入力としては、典型的な照射履歴を仮定し、また Pu 濃度組成についても、最大 30wt%までの 3 ケースで試算を行った。従って、この計算結果は定量的な精度の議論は困難であり、目安程度の評価であることに留意する必要がある。

図 5.1-12 に照射後ペレットの Nd 濃度から ORIGEN 計算を基に Pu スポット部燃焼度を推定した結果を示すが、ペレット平均燃焼度に対し、約 4 倍程度の比であることが分かる。製造時データを基に算出した同比が約 4.6 倍であるのに対し、1 割程度低い結果である。照射後試験で測定対象とした Pu スポット部が、最大 Pu 濃度の代表性があるかが

不明であることや、照射中の Pu スポット中 Pu の拡散移動による Pu 濃度の低下の可能性により、製造時に比較し照射後の比が低くなる可能性が考えられる。また ORIGEN 計算の不確定性等も考慮すると、この結果により (5-3) 式の仮定の妥当性はある程度支持されるものと判断される。

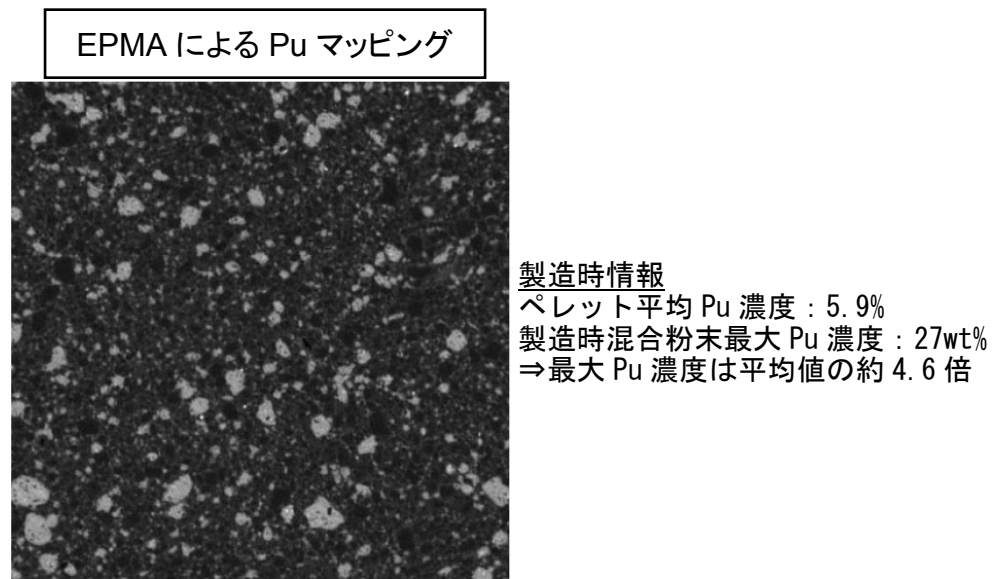


Fig. 4 Pu microprobe image of an AUC type fuel (high Pu enrichment zones in white)

図 5.1-9 Lemoine による照射試験用 MOX 燃料の製造時 Pu 濃度分布測定データ^[3]

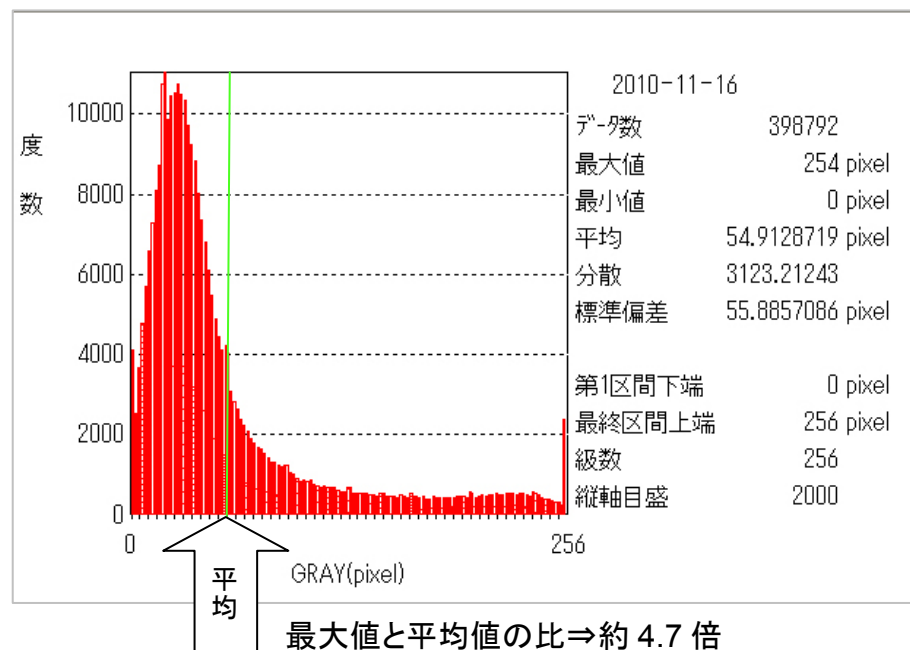


図 5.1-10 製造時 Pu マッピング画像から Pu 濃度ヒストグラム測定結果

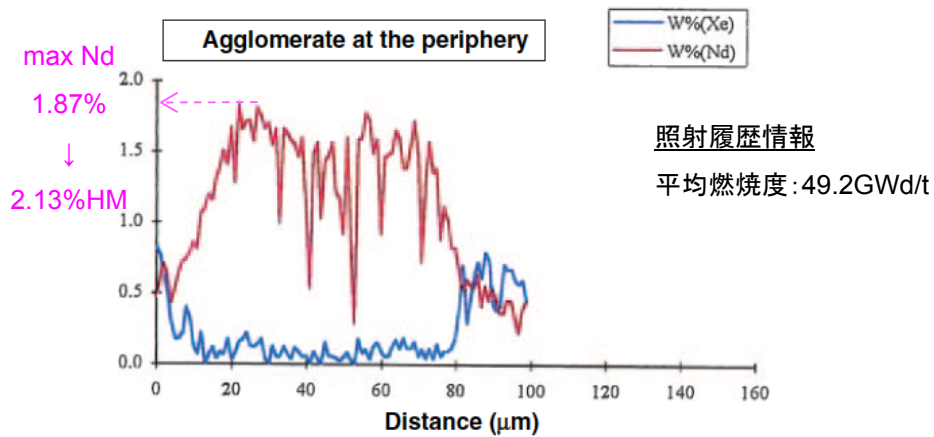


Fig. 8 Microprobe measurement in a large agglomerate of MOX MIMAS/AUC fuel at 5.9% Pu, after 4 annual cycles

図 5.1-11 MOX 燃料の照射後 EPMA 試験 Pu スポット部 FP 分布測定結果^[3]

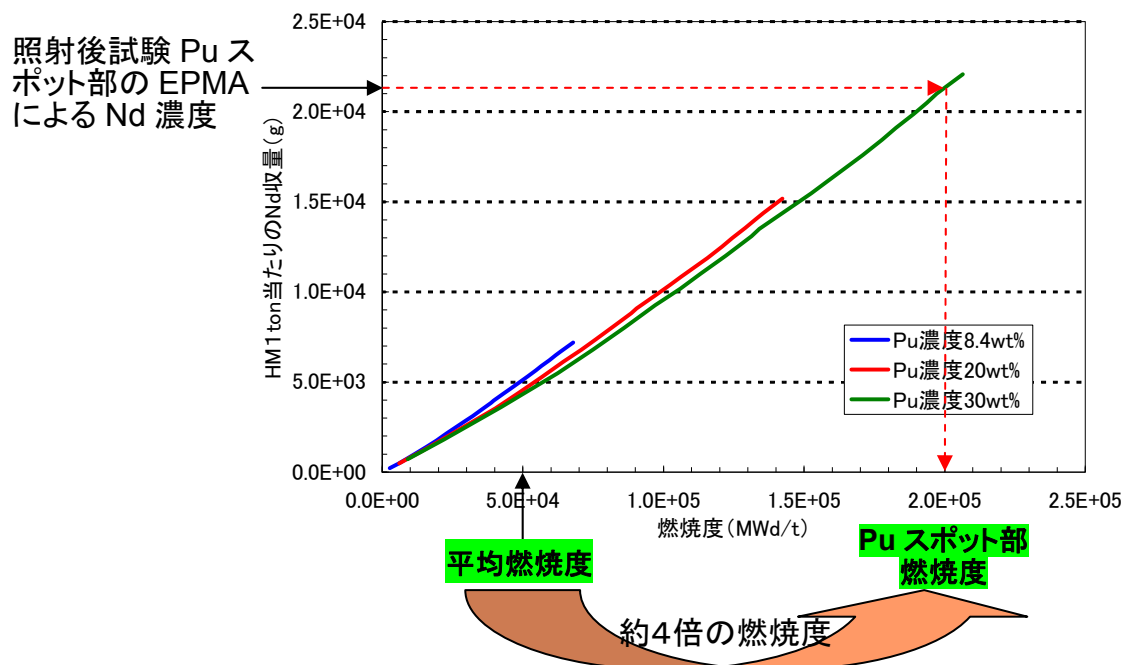


図 5.1-12 ORIGEN 解析による Nd 収量と燃焼度の関係

5.2 解析結果

照射試験に供した MOX 燃料ペレットの製造時データから 5.1 節にて抽出された擬似二相材の分散相体積率及び Pu 濃度比を基に、Schulz モデルを使用して分散相による熱伝導率低下緩和について解析を行う。

ここで、解析計算に使用する計算式と各々の設定値について、再度以下にまとめる。

Schulz モデル式 ((4-4)式)

$$(X - K) \cdot (X + nK)^q \cdot X^{-m} + (1 - c_D) \cdot (K - 1) \cdot (1 + nK)^q = 0 \quad \dots \dots (5-4)$$

$$K = k_D / k_M$$

$$X = k_C / k_M$$

$$m = \frac{F(1-2F)}{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)}$$

$$n = \frac{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)}{2F(1-\cos^2\alpha) + (1-F)\cos^2\alpha}$$

$$q = \frac{F(1-2F)}{1-(1-F)\cos^2\alpha - 2F(1-\cos^2\alpha)} + \frac{(1-F)2F}{2F(1-\cos^2\alpha) + (1-F)\cos^2\alpha} - 1$$

但し、F=1/3 (球状) ⇒ m=1/3, n=1/2, q=0

k: 熱伝導率

c_D : 分散相の体積率

添字の定義

D: 分散相(Dispersed phase)

M: マトリックス相(Matrix phase)

C: 二相材(Composite)

MOX 熱伝導率燃焼度依存式 ((2-9)式)

$$k_{95} = \frac{K \cdot 40.4}{464 + 18.4B(1 - 0.003B) + 1.16Gd + (1 - 0.0032B) \cdot T} \quad \dots \dots (5-5)$$

k_{95} : 熱伝導率@95%TD(理論密度比) (W/mK)

B: 燃焼度 (MWd/kgUO₂) ($B[\text{MWd/kgUO}_2] = 0.88 \times BU[\text{MWd/kgHM}]$)

T: 温度 (°C)

K: 定数 =1(for UO₂), =0.92(for MOX)

Gd: ガドリニア添加組成 (wt%) (本研究では0)

擬似二相材の各相燃焼度 ((5-2)式, (5-3)式)

$$BU_D = \beta \cdot BU_M \quad \dots \dots (5-6)$$

$$BU_M = \frac{BU_{ave}}{1 + c_D \cdot (\beta - 1)} \quad \dots \dots (5-7)$$

BU_i : 相 i の燃焼度 (GWd/t)

c_D : 分散相体積率 (-)

添字の定義

D : 分散相

M : 連続相

ave : ペレット平均

擬似二相材パラメータ ((5-3)式)

製造時データより以下の値を設定 (図 5.2-1)

しきいレベル 50% ケース : $c_D = 0.249$, $\beta = 4.21$ ($C_D = 20.88$, $C_M = 4.96$)

しきいレベル 20% ケース : $c_D = 0.496$, $\beta = 5.85$ ($C_D = 15.32$, $C_M = 2.62$)

$$\beta = \frac{BU_D}{BU_M} = \frac{C_D}{C_M} \quad \dots \dots (5-8)$$

C_i : 相 i の Fissile 濃度または Pu 濃度 (wt%)

以上の解析式と設定値を使用し、燃焼度を変えて計算した結果を、均一相の熱伝導率と比較して図 5.2-2 に示す。擬似二相材の熱伝導率低下が、均一相材のそれに比較して緩和される傾向が示され、その緩和の程度は燃焼度が高くなるに従い大きくなっている。

図 5.2-3 には一定温度 (500℃) における、燃焼度に対する変化を、擬似二相材と均一相材で比較して示すが、燃焼度の増加とともに熱伝導率低下が擬似二相材で緩和される傾向が示された。両者の比をとると約 75GWd/t の燃焼度において、擬似二相材の熱伝導率が 10%以上高くなる可能性が示され、その傾向は Pu スポット分散相境界を設定するしきいレベルを 20%と 50%とを比較して、顕著な違いは見られずしきいレベルによる影響は小さいことが分かる。

しきいレベル 50%における、擬似二相材の計算結果に対し、フォノン伝導の一般式である以下の式で燃焼度依存性の回帰式を求めた。

$$k_C = \frac{1}{(a_1 + a_2 \times BU + a_3 \times BU^2) + (b_1 + b_2 \times BU + b_3 \times BU^2) \times T} \quad \dots \dots (5-9)$$

k_C : 擬似二相材 MOX 熱伝導率 (W/m/K)

T : 温度 (K)

BU : 燃焼度 (GWd/tHM)

回帰式の各々の係数は以下のように求められた。

$$\begin{aligned} a_1 &= 5.172 \times 10^{-2}, \quad a_2 = 3.889 \times 10^{-3}, \quad a_3 = -1.302 \times 10^{-5}, \\ b_1 &= 2.689 \times 10^{-4}, \quad b_2 = -3.994 \times 10^{-7}, \quad b_3 = -2.520 \times 10^{-9} \quad \text{for Porosity} = 0.05 \end{aligned}$$

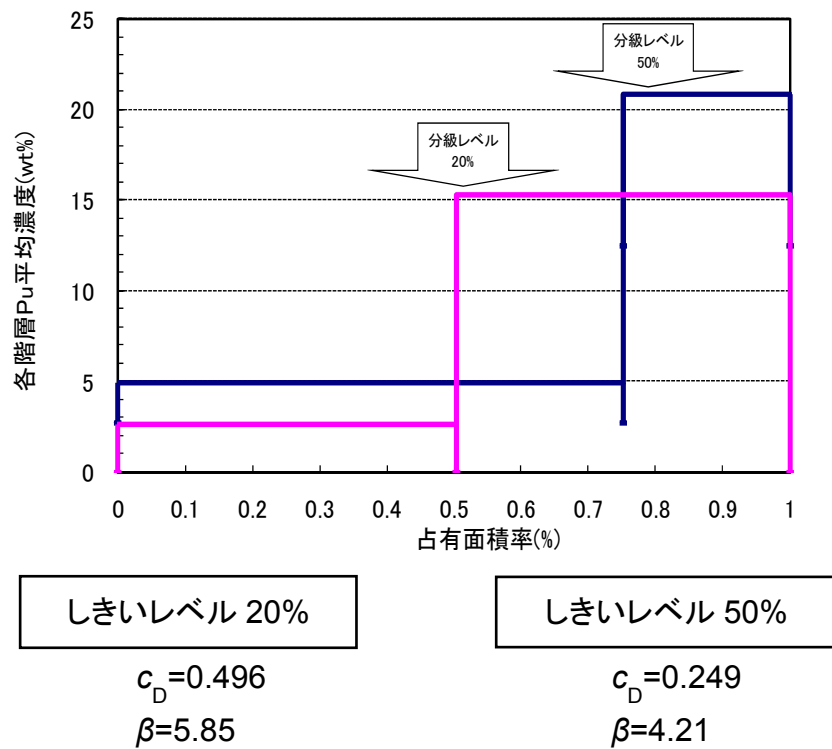


図 5.2-1 MOX 燃料の擬似二相材パラメータ設定値

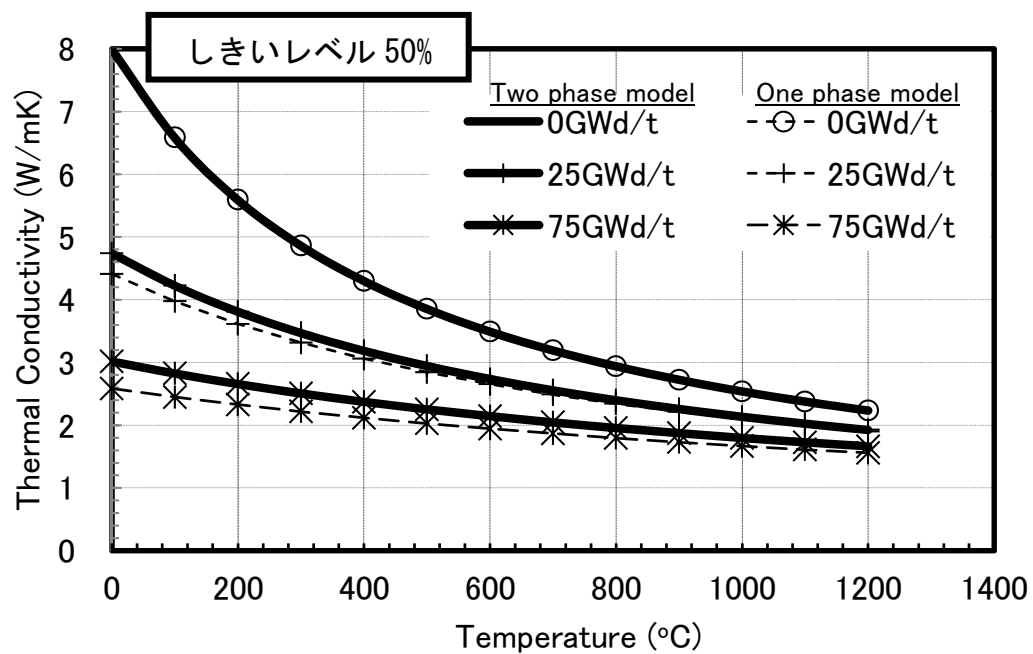


図 5.2-2 擬似二相材モデルによる熱伝導率計算結果の均一相との比較

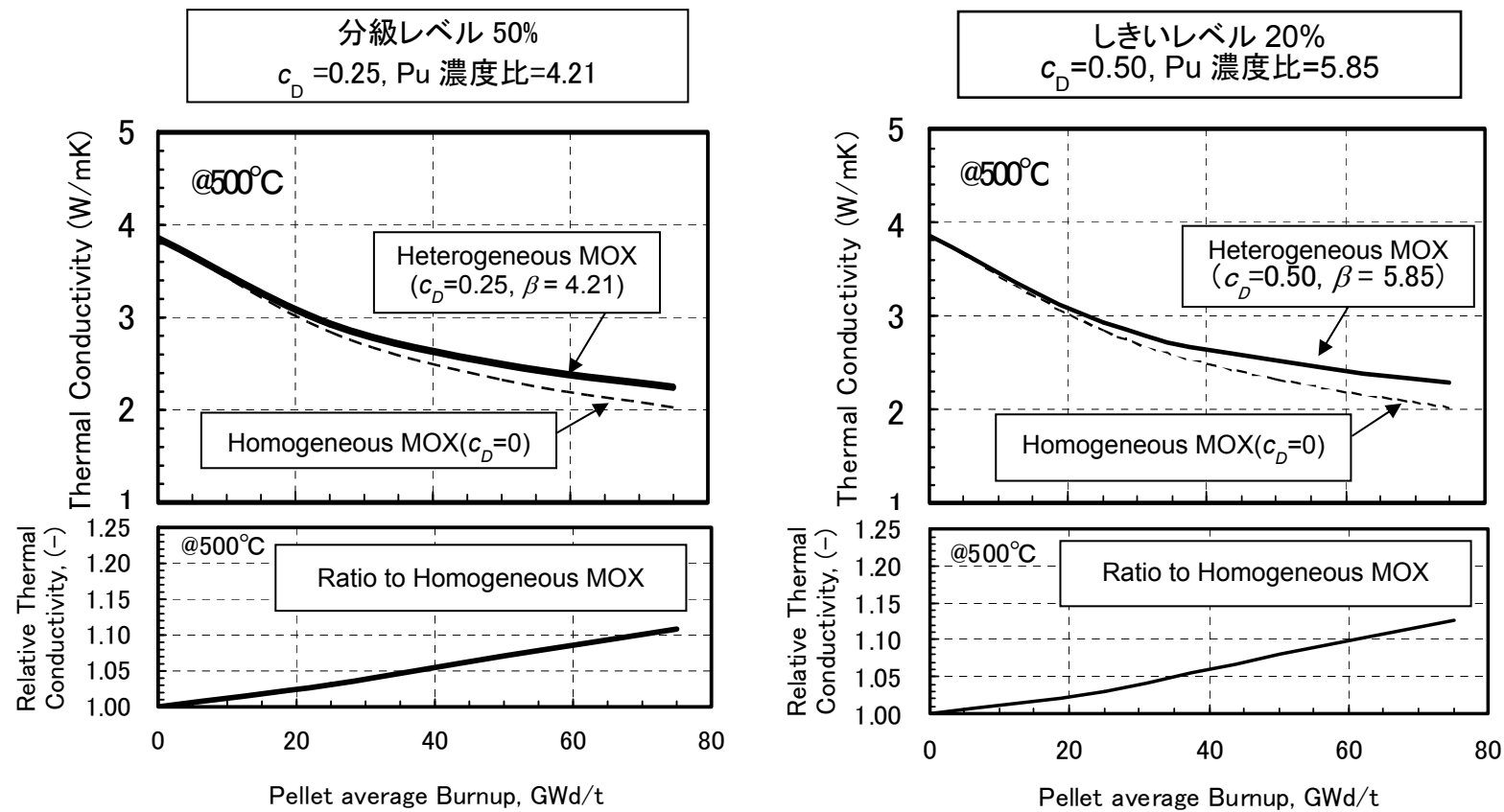


図 5.2-3 擬似二相モデルと均一相との熱伝導率燃焼度依存性比較

5.3 まとめ

照射試験に供した MOX 燃料の製造時データの内、EPMA 測定による Pu 濃度分布に関するデータを基に、Pu スポットを分散相として、擬似二相材の分散相と連続相のパラメータ抽出を画像解析により行った。画像解析により得られる Pu の平均濃度は、ペレット平均濃度分析値と妥当な一致が得られ、画像解析による濃度分布測定の妥当性を確認し、分散相と連続相の体積率と各相の Pu 濃度を抽出した。このような製造時データに基づく擬似二相材パラメータを使用して、Schulz モデルにより熱伝導率燃焼度依存性を計算し、均一相のそれと比較した結果、燃焼に伴って熱伝導率低下が擬似二相材で緩和される傾向が得られ、燃焼度約 75GWd/t では、擬似二相材が約 10%程度熱伝導率が高くなる可能性が示された。この計算結果に対し、フォノン伝導熱伝導率式の回帰式を求めた。

第 6 章

核分裂生成物組成による 熱伝導率への影響評価

MOX 燃料の熱伝導率低下を緩和させる推定メカニズムについて 1.3.4 項にて列挙した内、Pu 濃度不均一性による効果について前章までで議論したが、本章ではもう一つの主要な要因と推定される、U と Pu の FP 収率差に起因する熱伝導率低下に与える影響について、実際の試験炉照射における FP 収率を ORIGEN コードを使用して定量評価し、熱伝導率低下緩和効果を MOX 燃料と UO_2 燃料で比較評価する。

6.1 MOX 燃料における核分裂生成物の相違

軽水炉における核分裂性核種は、 UO_2 燃料では主に U-235 であり、MOX 燃料では Pu-239 が主な核種である。核分裂によりこれら核種は 2 つの核分裂生成核種 (FP : Fission Product) を生成するが、同じ熱中性子束環境下でも、その FP の収率分布が異なることが知られている。

熱中性子による FP の質量数分布を比較した報告^[1]を図 6.1-1 に示す。この図のように、これら核分裂性物質による FP の質量数に対する分布は、2 つの山を持つことが良く知られており、U-235 と Pu-239 を比較すると特に質量数の小さい側の山で、そのピーク位置にずれがある。U-235 では Pu-239 に比較し、より小さい質量数側にシフトした分布を示し、このことは酸化物を形成する FP (Sr, Y, Zr 等) の収率が UO_2 燃料では大きく、一方 MOX 燃料では金属相として析出し易い Mo, Tc, Ru, Rh, Pd のような貴金属 FP 元素の収率が大きいことを示している。また、質量数の高い側の山においても、 UO_2 燃料では MOX 燃料に比較し、酸化物を形成するランタノイド系の収率が若干大きい傾向にある。

第 2 章でレビューしたように、酸化物燃料熱伝導率はこのような FP 収率に影響を受けることから、 UO_2 燃料と MOX 燃料の間での FP 収率の差が、燃焼に伴う熱伝導率低下の現象に違いを与える可能性がある。そこで本章では、具体的な照射試験の例によって FP 収率を計算し、その収率計算結果を基に熱伝導率低下にどのような影響があるかを定量的に評価した。

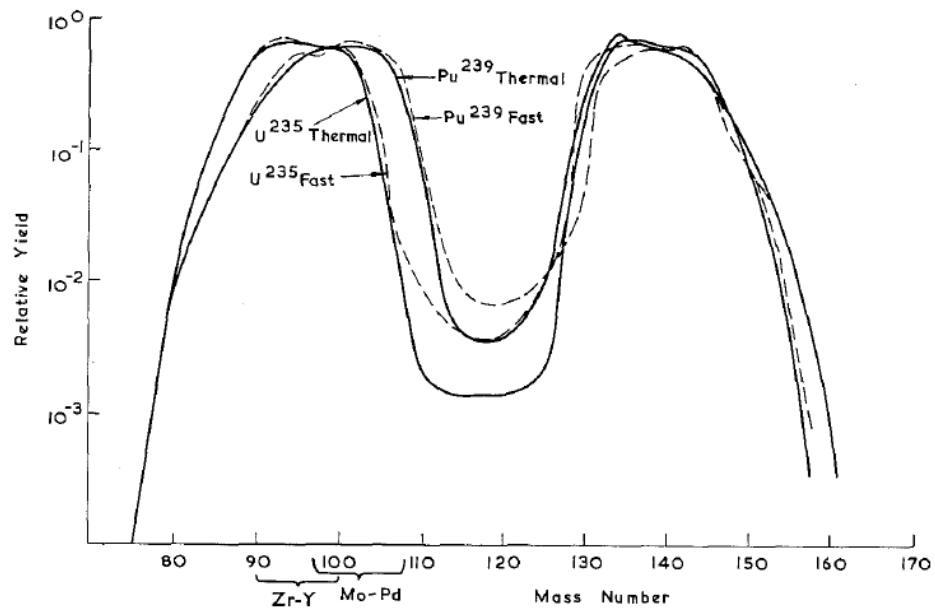


図 6.1-1 U-235 と Pu-239 の核分裂収率比較^[1]

6.2 照射試験に基づく FP 収率計算

第 1 章で述べた Halden 炉での照射試験結果を基に、その照射履歴に基づく FP 収率を解析コードを用いて計算し、 UO_2 燃料と MOX 燃料の間での FP 収率差を定量的に評価した。解析計算コードは ORIGEN2 Version 2.2^[2]を使用した。

解析の入力値として使用した U, Pu の同位体組成は、公開データ^[3,4]を基に表 6.2-1 に示す値を使用し、照射の出力履歴は第 1 章で示した出力履歴を参考に入力値とした。核反応ライブラリについては、ORIGEN コードに用意されているライブラリには、Halden 炉のような重水使用の BWR に適合するものが見当たらないので、暫定的に軽水炉 BWR 用の MOX 燃料ライブラリを使用して解析を行った。

解析計算結果から各照射時間ステップ毎の元素モル組成を、MOX 燃料のケースについて表 6.2-2 に、また UO_2 燃料のケースについて表 6.2-3 に示す。

これらの元素の内、収率が比較的高く、酸化物燃料中で酸化物として固溶すると考えられる元素として、Sr, Y, Zr 及び Ln 系の元素を選定し、その組成を合計した値の変化を、燃焼度に対してプロットして図 6.2-1 に示す。これら固溶性 FP 元素濃度は、 UO_2 燃料、MOX 燃料いずれにおいても燃焼に伴いほぼ直線的に増加する傾向であるが、高燃焼度域（約 70GWd/t）では、その濃度が MOX 燃料で約 5%であるのに対し、 UO_2 燃料では約 6.5%と 3 割程度大きく、無視し得ない差となることが分かる。

次に、収率が比較的高く、酸化物燃料中で析出金属相として存在すると考えられる元素として、Mo, Tc, Ru, Rh, Pd を選定した。軽水炉で約 48GWd/t の燃焼度まで照射した UO_2 燃料について、析出 FP 元素の分布状態を調べた報告例^[5]を図 6.2-2 に示すように、これらの元素は個別あるいは合金状態として金属析出相を分散相として形成することが知られている。

ここで、これら析出性金属 FP 元素が、酸化物燃料中に固溶することなく全て単独で金属析出相を形成すると仮定し、また析出金属相以外の部分は未照射 UO_2 と同等密度と仮定して次式により金属析出相の固相中の体積率を計算した。

$$VF_{\text{metalFP}} = \frac{\sum_i y_i \cdot V_i}{\sum_i y_i \cdot V_i + \left(1 - \sum_i y_i\right) \cdot V_{\text{UO}_2}} \quad \dots \dots (6-1)$$

VF_{metalFP} : 金属 FP 析出相体積率

y_i : 金属 FP 元素 i のモル組成

V_i : 金属 FP 元素 i のモル体積 (cm^3/mol)

各元素、 UO_2 のモル体積は、モル質量 M_i と理論密度 TD_i より、 $V_i = M_i / TD_i$ で計算され、計算に使用した数値は表 6.2-4 に示す通りである。

このようにして計算した金属 FP 析出相体積率の変化を、燃焼度に対してプロットして図 6.2-3 に示す。UO₂ 燃料、MOX 燃料いずれにおいても、固溶性 FP の増加傾向と同じように、燃焼に伴いほぼ直線的に増加する傾向である。高燃焼度域（約 70GWd/t）では、固溶性 FP の場合とは逆に、その体積率が UO₂ 燃料で約 1.3%であるのに対し、MOX 燃料では約 1.8%と 4 割程度大きく、絶対値としては小さいものの無視し得ない差があることが分かる。

表 6.2-1 ORIGEN 解析計算の U,Pu 同位体組成入力値

(単位：%)

	MOX	UO ₂
Pu	8.89	0
U	91.11	100
Pu 同位体組成		
Pu238/Pu	1.94	0
Pu239/Pu	58.61	0
Pu240/Pu	23.75	0
Pu241/Pu	10.19	0
Pu242/Pu	5.50	0
U 同位体組成		
U234/U	0	0
U235/U	0.3	8
U236/U	0	0
U238/U	99.7	92

注：MOX の Pu 同位体組成は文献[4]を参照し、Am 組成を 0 として設定
MOX の Pu 含有量は、文献[3]に基づき Pu-f 富化度が 6.12%となるよう設定
MOX の U 同位体組成は文献[3]に基づき劣化 U 組成とした
UO₂ の U 同位体組成は文献[3]に基づき 8%とした

表 6.2-2 ORIGIN 解析による元素モル組成 (MOX)

累積照射時間	0.0S	108.9D	192.7D	301.5D	410.4D	510.9D	619.8D	753.9D	829.2D	913.0D	1017.7D	1132.5D	1197.8D	1306.7D	1386.3D	1449.1D	1599.9D	1708.7D	1805.1D	1905.6D	2014.5D	2098.2D	2198.8D
区間燃焼速度 (MWd/t)	0	2630	3300	4640	5100	3610	3450	3700	3110	2580	3190	3420	882	3330	2450	1780	4640	2750	2030	2820	2260	1710	4460
累積燃焼速度 (MWd/t)	0	2630	5930	10570	15670	19280	22730	26430	29540	32120	35310	38730	39612	42942	45392	47172	51812	54562	56592	59412	61672	63382	67842
αFIMA	0.000%	0.265%	0.597%	1.068%	1.581%	1.945%	2.294%	2.671%	2.990%	3.249%	3.575%	3.923%	4.010%	4.344%	4.592%	4.775%	5.249%	5.524%	5.728%	6.015%	6.250%	6.423%	6.876%
mol/s																							
H	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.003%	0.003%	0.003%	0.003%	0.003%
LI	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
BE	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
C	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
CO	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
QU	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
CU	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
ZN	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
GA	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
GE	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
AS	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
SE	0.000%	0.001%	0.002%	0.004%	0.006%	0.007%	0.008%	0.010%	0.011%	0.012%	0.013%	0.014%	0.014%	0.015%	0.016%	0.017%	0.018%	0.019%	0.020%	0.021%	0.021%	0.022%	0.023%
BR	0.000%	0.000%	0.001%	0.002%	0.002%	0.003%	0.003%	0.004%	0.004%	0.005%	0.005%	0.006%	0.006%	0.006%	0.006%	0.007%	0.007%	0.007%	0.008%	0.008%	0.008%	0.008%	0.009%
KR	0.000%	0.005%	0.011%	0.019%	0.028%	0.034%	0.040%	0.046%	0.051%	0.055%	0.061%	0.066%	0.068%	0.073%	0.077%	0.080%	0.088%	0.092%	0.095%	0.100%	0.103%	0.106%	0.113%
SR	0.000%	0.004%	0.009%	0.016%	0.023%	0.028%	0.033%	0.039%	0.043%	0.047%	0.051%	0.056%	0.057%	0.062%	0.065%	0.068%	0.074%	0.078%	0.081%	0.084%	0.088%	0.090%	0.096%
RB	0.000%	0.012%	0.025%	0.043%	0.072%	0.101%	0.135%	0.162%	0.187%	0.215%	0.237%	0.261%	0.282%	0.306%	0.328%	0.348%	0.374%	0.398%	0.421%	0.442%	0.462%	0.481%	0.500%
Y	0.000%	0.006%	0.013%	0.022%	0.031%	0.037%	0.042%	0.048%	0.054%	0.058%	0.063%	0.068%	0.069%	0.075%	0.079%	0.082%	0.089%	0.093%	0.096%	0.101%	0.104%	0.107%	0.115%
ZN	0.000%	0.056%	0.124%	0.216%	0.315%	0.382%	0.446%	0.513%	0.572%	0.619%	0.677%	0.740%	0.754%	0.817%	0.862%	0.894%	0.977%	1.025%	1.060%	1.111%	1.150%	1.180%	1.262%
BR	0.000%	0.003%	0.006%	0.009%	0.011%	0.010%	0.008%	0.008%	0.008%	0.008%	0.008%	0.008%	0.008%	0.007%	0.007%	0.007%	0.007%	0.006%	0.006%	0.005%	0.005%	0.008%	0.008%
MC	0.000%	0.053%	0.122%	0.224%	0.338%	0.424%	0.506%	0.593%	0.659%	0.717%	0.789%	0.866%	0.890%	0.961%	1.013%	1.052%	1.151%	1.212%	1.258%	1.317%	1.367%	1.404%	1.491%
TO	0.000%	0.016%	0.036%	0.064%	0.094%	0.115%	0.135%	0.155%	0.172%	0.186%	0.203%	0.220%	0.228%	0.241%	0.252%	0.261%	0.282%	0.294%	0.303%	0.315%	0.325%	0.331%	0.347%
RU	0.000%	0.070%	0.151%	0.257%	0.370%	0.441%	0.508%	0.577%	0.644%	0.692%	0.753%	0.821%	0.829%	0.901%	0.951%	0.986%	1.079%	1.130%	1.165%	1.223%	1.263%	1.298%	1.413%
RU	0.000%	0.010%	0.027%	0.055%	0.084%	0.108%	0.128%	0.149%	0.160%	0.174%	0.189%	0.199%	0.205%	0.210%	0.218%	0.220%	0.230%	0.237%	0.243%	0.246%	0.252%	0.251%	0.262%
AD	0.000%	0.034%	0.077%	0.143%	0.218%	0.276%	0.335%	0.401%	0.453%	0.500%	0.559%	0.629%	0.651%	0.718%	0.768%	0.805%	0.900%	0.956%	1.005%	1.064%	1.116%	1.159%	1.258%
PG	0.000%	0.044%	0.089%	0.161%	0.242%	0.299%	0.333%	0.388%	0.442%	0.045%	0.049%	0.052%	0.053%	0.059%	0.058%	0.059%	0.063%	0.065%	0.067%	0.069%	0.071%	0.071%	0.074%
AD	0.000%	0.002%	0.005%	0.010%	0.014%	0.016%	0.018%	0.021%	0.023%	0.024%	0.025%	0.026%	0.026%	0.028%	0.028%	0.029%	0.031%	0.031%	0.032%	0.032%	0.032%	0.032%	0.033%
IN	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%
SN	0.000%	0.001%	0.003%	0.006%	0.009%	0.010%	0.012%	0.014%	0.016%	0.017%	0.019%	0.021%	0.022%	0.024%	0.025%	0.026%	0.029%	0.030%	0.032%	0.033%	0.035%	0.036%	0.039%
SB	0.000%	0.001%	0.001%	0.002%	0.004%	0.004%	0.005%	0.005%	0.006%	0.006%	0.007%	0.007%	0.007%	0.008%	0.008%	0.008%	0.009%	0.009%	0.010%	0.010%	0.010%	0.010%	0.011%
TE	0.000%	0.010%	0.021%	0.036%	0.053%	0.064%	0.074%	0.085%	0.095%	0.103%	0.112%	0.123%	0.127%	0.136%	0.143%	0.148%	0.162%	0.170%	0.175%	0.184%	0.190%	0.195%	0.208%
XE	0.000%	0.000%	0.013%	0.021%	0.031%	0.037%	0.043%	0.049%	0.055%	0.058%	0.064%	0.069%	0.070%	0.076%	0.079%	0.082%	0.088%	0.092%	0.095%	0.099%	0.102%	0.104%	0.110%
I	0.000%	0.072%	0.165%	0.296%	0.439%	0.538%	0.632%	0.730%	0.815%	0.885%	0.970%	1.067%	1.090%	1.183%	1.251%	1.301%	1.428%	1.503%	1.557%	1.634%	1.693%	1.744%	1.875%
CS	0.000%	0.048%	0.105%	0.184%	0.270%	0.322%	0.391%	0.454%	0.503%	0.548%	0.597%	0.650%	0.664%	0.713%	0.749%	0.775%	0.841%	0.881%	0.909%	0.948%	0.979%	1.001%	1.059%
BA	0.000%	0.019%	0.041%	0.071%	0.103%	0.125%	0.147%	0.171%	0.193%	0.209%	0.231%	0.255%	0.261%	0.287%	0.305%	0.318%	0.353%	0.375%	0.392%	0.415%	0.434%	0.450%	0.487%
LA	0.000%	0.016%	0.036%	0.063%	0.092%	0.113%	0.133%	0.154%	0.172%	0.186%	0.204%	0.223%	0.228%	0.247%	0.261%	0.271%	0.297%	0.312%	0.323%	0.336%	0.351%	0.361%	0.386%
PR	0.000%	0.091%	0.215%	0.374%	0.542%	0.691%	0.823%	0.937%	1.032%	1.104%	1.159%	1.202%	1.235%	1.268%	1.295%	1.316%	1.352%	1.379%	1.404%	1.428%	1.451%	1.473%	1.500%
PL	0.000%	0.011%	0.027%	0.050%	0.077%	0.097%	0.116%	0.136%	0.150%	0.164%	0.180%	0.197%	0.203%	0.218%	0.230%	0.239%	0.261%	0.275%	0.285%	0.298%	0.309%	0.318%	0.335%
ND	0.000%	0.035%	0.082%	0.151%	0.228%	0.287%	0.345%	0.408%	0.456%	0.501%	0.554%	0.613%	0.634%	0.688%	0.729%	0.760%	0.837%	0.886%	0.923%	0.969%	1.010%	1.041%	1.110%
PM	0.000%	0.005%	0.011%	0.018%	0.024%	0.028%	0.030%	0.032%	0.033%	0.034%	0.035%	0.034%	0.033%	0.032%	0.031%	0.031%	0.031%	0.030%	0.029%	0.029%	0.029%	0.027%	0.026%
SE	0.000%	0.008%	0.019%	0.036%	0.054%	0.068%	0.082%	0.097%	0.109%	0.120%	0.133%	0.147%	0.151%	0.164%	0.173%	0.180%	0.197%	0.207%	0.215%	0.224%	0.233%	0.239%	0.252%
EU	0.000%	0.002%	0.004%	0.007%	0.011%	0.014%	0.017%	0.021%	0.025%	0.028%	0.031%	0.037%	0.039%	0.044%	0.048%	0.051%	0.059%	0.062%	0.065%	0.069%	0.072%	0.075%	0.083%
GD	0.000%	0.001%	0.002%	0.004%	0.006%	0.007%	0.009%	0.011%	0.013%	0.014%	0.016%	0.019%	0.020%	0.022%	0.025%	0.026%	0.032%	0.035%	0.038%	0.041%	0.045%	0.048%	0.056%
TB	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%
DY	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%
HO	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
CR	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
YM	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
TR	0.000%	0.																					

表 6.2-3 ORIGEN 解析による元素モル組成 (UO₂)

種類照射時間	0.0S	108.9D	192.7D	301.5D	410.4D	510.9D	619.8D	753.9D	829.2D	913.0D	1017.7D	1132.5D	1197.8D	1306.7D	1386.3D	1448.1D	1599.9D	1708.7D	1805.1D	1905.6D	2014.5D	2098.2D	2198.8D
点間燃焼度(MW/d)	0	2290	2680	4110	4520	3350	3370	3740	3040	2650	3570	3880	964	3630	2700	1980	5250	3190	2360	3440	2610	1980	4350
累積燃焼度(MWd/t)	0	2290	4970	9080	13600	16950	20320	24060	27100	29750	33320	37200	38164	41794	44494	46474	51724	54914	57274	60714	63324	65304	69654
%FIMA	0.000%	0.235%	0.521%	0.949%	1.420%	1.767%	2.110%	2.504%	2.810%	3.088%	3.464%	3.866%	3.966%	4.336%	4.619%	4.823%	5.364%	5.690%	5.928%	6.281%	6.555%	6.753%	7.207%
mol%																							
H	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.001%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%	0.002%
LI	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
BE	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
C	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
CO	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
NI	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
CU	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
ZN	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
GA	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
SE	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
BR	0.000%	0.001%	0.003%	0.005%	0.008%	0.010%	0.011%	0.013%	0.015%	0.016%	0.018%	0.020%	0.021%	0.023%	0.024%	0.025%	0.027%	0.029%	0.030%	0.031%	0.032%	0.033%	0.035%
KR	0.000%	0.001%	0.001%	0.002%	0.003%	0.004%	0.004%	0.005%	0.006%	0.006%	0.007%	0.008%	0.008%	0.009%	0.009%	0.009%	0.010%	0.011%	0.011%	0.012%	0.012%	0.012%	0.013%
RR	0.000%	0.009%	0.020%	0.036%	0.053%	0.065%	0.077%	0.094%	0.101%	0.101%	0.122%	0.134%	0.137%	0.148%	0.157%	0.163%	0.176%	0.186%	0.193%	0.202%	0.208%	0.213%	0.224%
SR	0.000%	0.009%	0.018%	0.033%	0.049%	0.060%	0.071%	0.084%	0.093%	0.101%	0.112%	0.124%	0.127%	0.137%	0.145%	0.150%	0.164%	0.172%	0.178%	0.187%	0.193%	0.197%	0.207%
ZR	0.000%	0.028%	0.058%	0.099%	0.141%	0.168%	0.195%	0.224%	0.251%	0.271%	0.298%	0.327%	0.330%	0.357%	0.376%	0.389%	0.422%	0.440%	0.452%	0.472%	0.484%	0.494%	0.519%
FR	0.000%	0.013%	0.028%	0.048%	0.070%	0.085%	0.098%	0.114%	0.127%	0.138%	0.152%	0.167%	0.169%	0.182%	0.193%	0.200%	0.216%	0.227%	0.234%	0.242%	0.252%	0.257%	0.271%
NB	0.000%	0.076%	0.164%	0.296%	0.437%	0.539%	0.640%	0.750%	0.839%	0.915%	1.016%	1.124%	1.150%	1.249%	1.321%	1.373%	1.507%	1.587%	1.644%	1.727%	1.789%	1.835%	1.936%
NB	0.000%	0.003%	0.007%	0.010%	0.012%	0.012%	0.011%	0.010%	0.011%	0.011%	0.011%	0.011%	0.009%	0.009%	0.010%	0.010%	0.010%	0.009%	0.008%	0.009%	0.008%	0.007%	0.009%
MO	0.000%	0.048%	0.108%	0.205%	0.314%	0.400%	0.487%	0.582%	0.652%	0.717%	0.802%	0.894%	0.923%	1.005%	1.066%	1.112%	1.219%	1.303%	1.359%	1.432%	1.492%	1.537%	1.623%
TC	0.000%	0.014%	0.030%	0.055%	0.081%	0.101%	0.120%	0.140%	0.156%	0.170%	0.189%	0.207%	0.212%	0.227%	0.239%	0.248%	0.270%	0.283%	0.293%	0.306%	0.316%	0.321%	0.333%
RU	0.000%	0.033%	0.070%	0.127%	0.189%	0.234%	0.279%	0.330%	0.375%	0.411%	0.462%	0.520%	0.531%	0.589%	0.631%	0.662%	0.745%	0.795%	0.831%	0.890%	0.930%	0.965%	1.051%
RH	0.000%	0.004%	0.011%	0.023%	0.037%	0.048%	0.059%	0.073%	0.077%	0.085%	0.094%	0.101%	0.105%	0.109%	0.113%	0.117%	0.125%	0.131%	0.137%	0.140%	0.146%	0.146%	0.142%
PD	0.000%	0.004%	0.010%	0.021%	0.036%	0.050%	0.065%	0.080%	0.089%	0.114%	0.135%	0.163%	0.171%	0.200%	0.222%	0.239%	0.286%	0.317%	0.343%	0.378%	0.409%	0.435%	0.490%
AG	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.002%	0.003%	0.004%	0.005%	0.005%	0.006%	0.007%	0.008%	0.009%	0.010%	0.011%	0.011%	0.013%	0.015%	0.016%	0.017%	0.019%	0.019%	0.021%
CD	0.000%	0.000%	0.001%	0.002%	0.003%	0.004%	0.005%	0.007%	0.008%	0.009%	0.010%	0.012%	0.013%	0.015%	0.017%	0.018%	0.022%	0.025%	0.027%	0.030%	0.032%	0.035%	0.041%
IN	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
SN	0.000%	0.001%	0.002%	0.003%	0.005%	0.006%	0.008%	0.009%	0.010%	0.011%	0.013%	0.014%	0.015%	0.016%	0.018%	0.019%	0.021%	0.023%	0.024%	0.025%	0.027%	0.028%	0.030%
SE	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.002%	0.002%	0.003%	0.003%	0.004%	0.004%	0.004%	0.005%	0.005%	0.005%	0.006%	0.006%	0.007%	0.007%	0.007%	0.008%	0.008%	0.008%	0.009%
TB	0.000%	0.006%	0.012%	0.021%	0.032%	0.039%	0.047%	0.055%	0.062%	0.068%	0.077%	0.086%	0.088%	0.097%	0.104%	0.108%	0.121%	0.129%	0.135%	0.144%	0.150%	0.155%	0.167%
XE	0.000%	0.003%	0.006%	0.011%	0.016%	0.019%	0.023%	0.027%	0.031%	0.033%	0.037%	0.042%	0.042%	0.047%	0.050%	0.052%	0.058%	0.061%	0.064%	0.068%	0.071%	0.073%	0.079%
I	0.000%	0.060%	0.133%	0.244%	0.367%	0.455%	0.543%	0.640%	0.720%	0.788%	0.881%	0.984%	1.008%	1.103%	1.173%	1.225%	1.361%	1.443%	1.502%	1.590%	1.656%	1.708%	1.823%
CS	0.000%	0.038%	0.082%	0.147%	0.218%	0.272%	0.325%	0.385%	0.430%	0.470%	0.524%	0.578%	0.592%	0.641%	0.678%	0.704%	0.773%	0.814%	0.845%	0.887%	0.920%	0.942%	0.992%
BA	0.000%	0.019%	0.039%	0.069%	0.102%	0.125%	0.148%	0.175%	0.198%	0.217%	0.243%	0.271%	0.278%	0.307%	0.327%	0.343%	0.383%	0.408%	0.427%	0.455%	0.476%	0.494%	0.530%
LA	0.000%	0.016%	0.034%	0.061%	0.090%	0.112%	0.133%	0.156%	0.175%	0.191%	0.213%	0.236%	0.242%	0.263%	0.279%	0.290%	0.320%	0.337%	0.350%	0.369%	0.383%	0.394%	0.417%
CE	0.000%	0.044%	0.092%	0.160%	0.229%	0.275%	0.318%	0.362%	0.404%	0.438%	0.480%	0.526%	0.530%	0.574%	0.606%	0.629%	0.688%	0.721%	0.742%	0.781%	0.805%	0.824%	0.878%
PF	0.000%	0.011%	0.021%	0.036%	0.053%	0.066%	0.079%	0.093%	0.106%	0.119%	0.134%	0.148%	0.151%	0.164%	0.175%	0.182%	0.205%	0.218%	0.228%	0.242%	0.253%	0.264%	0.281%
ND	0.000%	0.036%	0.081%	0.153%	0.234%	0.299%	0.365%	0.440%	0.484%	0.547%	0.615%	0.689%	0.714%	0.780%	0.830%	0.887%	0.967%	1.023%	1.069%	1.128%	1.179%	1.216%	1.289%
PM	0.000%	0.005%	0.009%	0.016%	0.021%	0.025%	0.027%	0.028%	0.030%	0.031%	0.032%	0.030%	0.029%	0.028%	0.028%	0.028%	0.028%	0.027%	0.027%	0.027%	0.026%	0.024%	0.023%
SM	0.000%	0.005%	0.011%	0.022%	0.036%	0.047%	0.058%	0.071%	0.081%	0.091%	0.103%	0.118%	0.122%	0.135%	0.144%	0.151%	0.168%	0.179%	0.187%	0.197%	0.206%	0.213%	0.224%
EU	0.000%	0.001%	0.001%	0.003%	0.005%	0.007%	0.009%	0.011%	0.013%	0.015%	0.018%	0.022%	0.023%	0.027%	0.030%	0.032%	0.037%	0.040%	0.042%	0.045%	0.048%	0.050%	0.056%
GD	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%	0.001%	0.002%	0.003%	0.003%	0.004%	0.005%	0.006%	0.007%	0.008%	0.010%	0.011%	0.015%	0.017%	0.019%	0.022%	0.025%	0.028%	0.034%
TB	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.001%	0.001%
DY	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
HO	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
ER	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
TM	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
YB	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%	0.000%
HE	0.000%	0.000																					

表 6.2-4 析出金属 FP 相の体積率計算使用値

元素 or 化合物	モル質量 M (g/mol) [6]	理論密度 TD (g/cm ³) [6]	モル体積 V_i (cm ³ /mol)
Mo	95.94	10.22	9.387
Tc	99	11.5	8.609
Ru	101.07	12.41	8.144
Rh	102.9055	12.41	8.292
Pd	106.42	12.02	8.854
UO ₂	270.02771	10.96	24.638

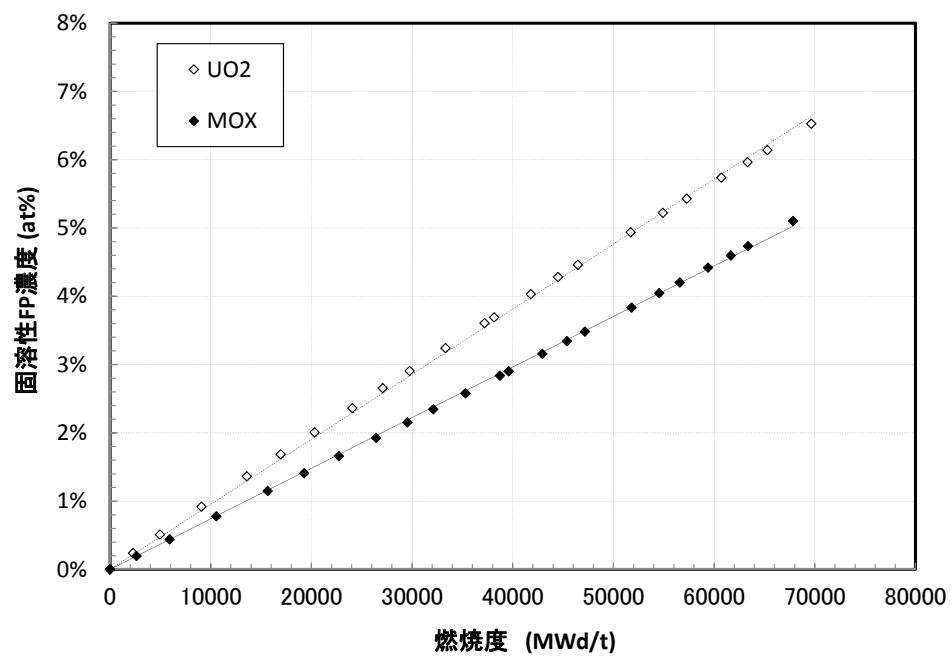


図 6.2-1 ORIGIN 計算による固溶性 FP 元素濃度の比較

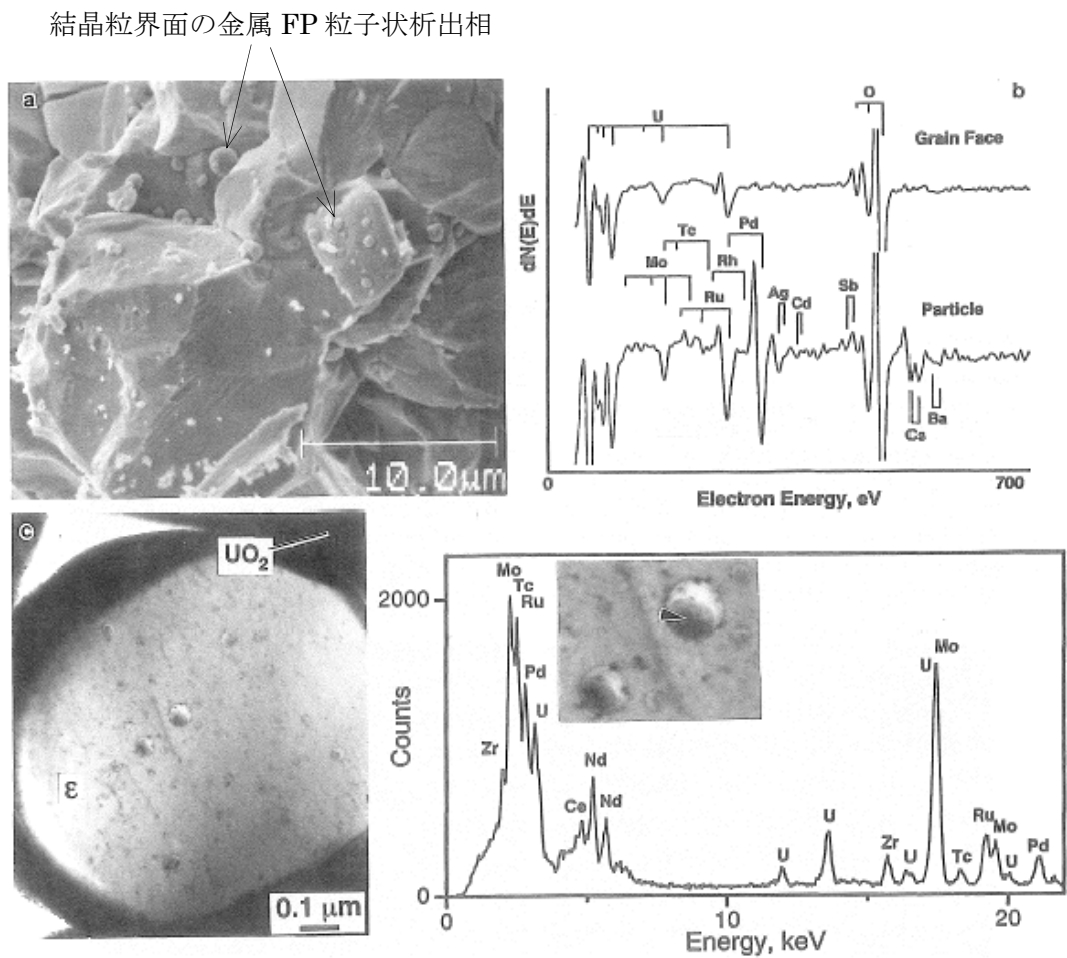


Fig. 3. Grain-boundary precipitates near center of ATM-106 fuel (Zone III). (a) Fracture surface, showing intergranular ϵ -phase particles (SEM). (b) Auger analyses of particle surfaces and particle-free grain-boundary regions. Note lack of general grain-boundary segregation. (c) ϵ -phase particle containing secondary precipitates (TEM). (d) EDS spectrum from $(\text{Nd, Ce, U, Zr})\text{O}_{2-x}$ particle in ϵ -phase.

図 6.2-2 照射済軽水炉燃料における金属 FP 元素の析出相形成に関する報告例^[5]

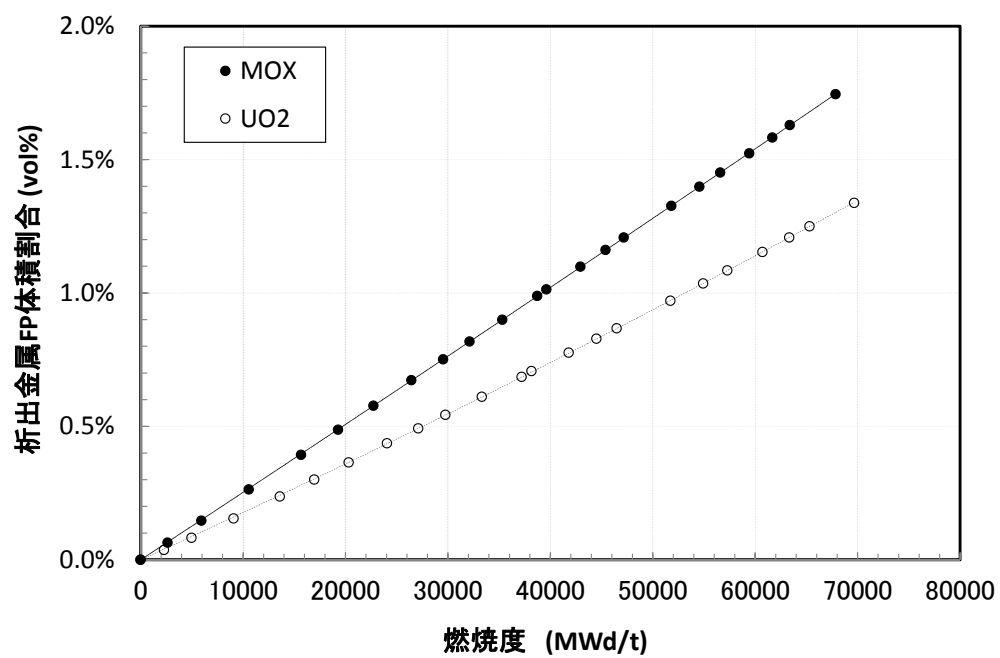


図 6.2-3 ORIGIN 計算による析出性 FP 元素体積割合の比較

6.3 固溶性 FP 元素の蓄積による熱伝導率への影響

固溶性 FP 元素蓄積による熱伝導率への影響については 2.1.2 節でレビューを行ったが、その中で熱伝導率に影響を与える個別の因子について、各々の相関係数を与えている Amaya らのモデル(2-6)式を用いて定量的な効果を評価する。以下に同式を示す。

$$\lambda = \lambda_0 \cdot [\arctan(\theta)/\theta] + 5.95 \times 10^{-11} \cdot T^3 \quad \dots \dots (6-2)$$

ここで

$$\lambda_0 = \frac{1}{3.24 \times 10^{-2} + 2.51 \times 10^{-4} \cdot T}$$

$$\theta = D_{FP} \cdot (y_{FP} \cdot \lambda_0)^{1/2}$$

$$D_{FP} = 2.81 \exp(-1.63 \times 10^{-4} \cdot T)$$

T : 温度(K)

y_{FP} : 固溶性 FP 金属元素濃度

この式において固溶性 FP 金属元素濃度については、図 6.2-1 で示したように、ORIGEN 解析計算による固溶性 FP 元素濃度が燃焼度に対してほぼ直線的に増加する依存性を示していることから、以下の一次回帰式を求めて使用した。

$$\text{(MOX)} \quad y_{FP} = 7.406 \times 10^{-7} \cdot B \quad \dots \dots (6-3)$$

$$\text{(UO}_2\text{)} \quad y_{FP} = 9.526 \times 10^{-7} \cdot B \quad \dots \dots (6-4)$$

y_{FP} : 固溶性 FP 合計濃度 (Atom Fraction)

B : 燃焼度 (MWd/t)

照射中における燃料ペレットの平均的な代表温度として、700℃における計算結果を図 6.3-1 に示す。UO₂ 燃料、MOX 燃料共に、燃焼度とともに減少してゆく傾向は同じで、燃焼度約 70GWd/t 近傍で約 3 割程度熱伝導率が低下する。両燃料で比較すると、MOX 燃料の固溶性 FP 元素の濃度が UO₂ 燃料に比較し小さいため、MOX 燃料の熱伝導率は UO₂ 燃料のそれに比較し低下率が少なく、低下が緩和される効果があることが分かる。両燃料の熱伝導率比を見ると、燃焼度約 70GWd/t の高燃焼度領域では、この固溶性 FP 元素蓄積効果のみを考慮した場合には、MOX 燃料は UO₂ 燃料よりも約 5 %程度熱伝導率が高い傾向であることが分かる。

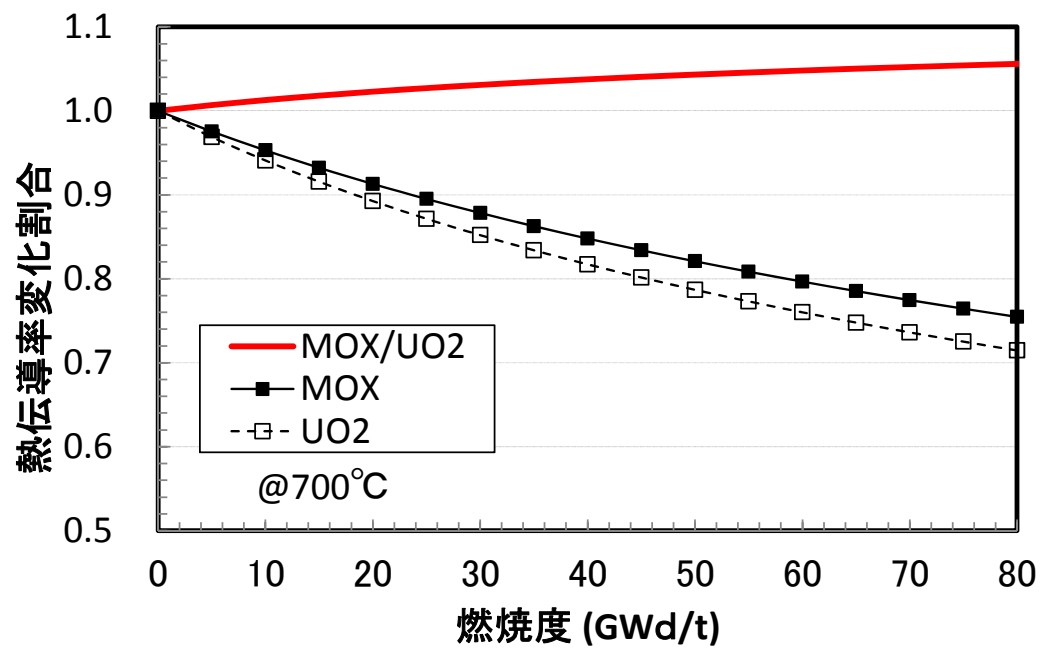


図 6.3-1 固溶性 FP 元素蓄積による熱伝導率への影響比較

6.4 析出性 FP 元素の蓄積による熱伝導率への影響

析出金属 FP は、酸化物燃料マトリクス中への固溶は無いものと仮定すると、第 4 章で議論した二相材料として扱うことが可能である。そこで、ここでは複数の析出性の金属 FP 元素を合計して一つの金属析出相として扱うことで、第 4 章で扱った二相材熱伝導率と同様に、Schulz モデルを適用して、金属 FP 元素の析出相形成による熱伝導率への影響を、UO₂ 燃料と MOX 燃料で定量的に比較を行う。

二相材として Schulz モデルを適用するためには、各相の体積割合と熱伝導率が必要である。まず、分散相の体積率については、析出金属 FP 相の体積率とし、図 6.2-3 で得られた計算結果より求めた以下の回帰式を使用した。

$$VF_{\text{metalFP}} = A_1 \cdot B + A_2 \cdot B^2 \quad \dots \dots (6-5)$$

VF_{metalFP} : 析出金属 FP 体積割合 (-)

B : 燃焼度 (MWd/t) [$0 < B < \text{約 } 70000 \text{ MWd/t}$]

MOX : $A_1 = 2.522 \times 10^{-7}$, $A_2 = 7.509 \times 10^{-14}$

UO₂ : $A_1 = 1.747 \times 10^{-7}$, $A_2 = 2.545 \times 10^{-13}$

また、分散相の熱伝導率については、6.1 節で析出金属相として 5 元素 (Mo, Tc, Ru, Rh, Pd) の金属 FP 元素を対象としており、これらの各々の熱伝導率温度依存性を比較して図 6.4-1 に示す^[7]。実際の照射燃料では、図 6.2-2 の報告例もあるように、金属 FP は合金相を形成するなど必ずしも単純な純金属状態で存在しているとは限らないため、その熱伝導率を正確に評価することは複雑で難しい。解析結果によれば、金属 FP の体積割合では、Mo, Ru の割合が大きく、その和は 5 金属 FP 元素体積割合の、MOX では 2/3 程度、UO₂ では 3/4 程度を占めることを考慮し、ここでは Mo の熱伝導率で代表させることとした。従って、この近似では金属析出相の熱伝導率をやや過大評価する可能性が考えられる。Mo の熱伝導率は、第 4 章で使用したのと同じ以下の式である。

$$k_D = A_1 + A_2 \cdot T + A_3 \cdot T^2 \quad \dots \dots (6-6)$$

k_D : 分散相熱伝導率 (W/cm/K)

T : 温度 (K) ($200\text{K} < T < 2800\text{K}$)

$A_1 = 1.525$, $A_2 = -5.009 \times 10^{-4}$, $A_3 = 8.882 \times 10^{-8}$

一方、連続相の熱伝導率については、本検討では析出金属相の UO₂ 燃料と MOX 燃料間での相違を定量的に比較することを目的とすることから、その他の燃焼効果は考慮せず各々未照射の熱伝導率を使用して計算を行った。

500℃における、燃焼度 0 に対する各燃焼度での熱伝導率増加率を、燃焼度に対してプ

ロットした結果を図 6.4-2 に示す。この比較結果から分かるように、析出金属 FP の蓄積による熱伝導率への寄与は、いずれの燃料においても燃焼とともにほぼ直線的に単調に熱伝導率が増加する傾向にあり、燃焼度が約 70GWd/t の近傍では 4～5%程度まで増加させる効果があることが示された。分散相の金属 FP 熱伝導率を過大に評価している可能性を考慮すると、この増加の効果も若干過大評価の可能性が考えられ、その点を踏まえると、固溶性 FP による熱伝導率への影響が燃焼度約 70GWd/t 近傍で約 3 割程度に対し、析出性 FP 元素による熱伝導率への寄与は限定的であると考えられる。

UO₂燃料と MOX 燃料の結果を比較すると、MOX 燃料では UO₂燃料に比較して熱伝導率増加割合が若干大きい傾向にあるが、その差は燃焼度が約 70GWd/t 近傍では約 1%程度である。

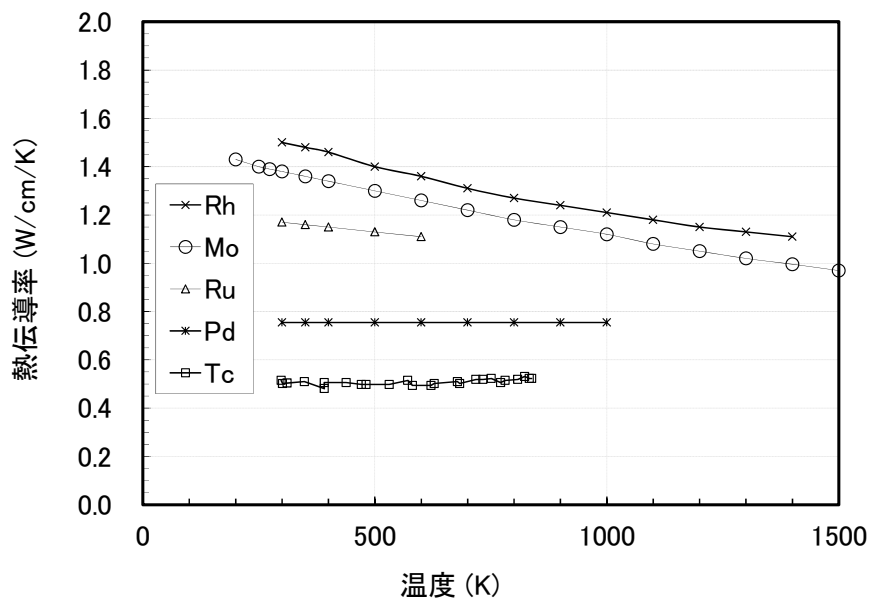


図 6.4-1 金属 FP 元素の熱伝導率比較^[7]

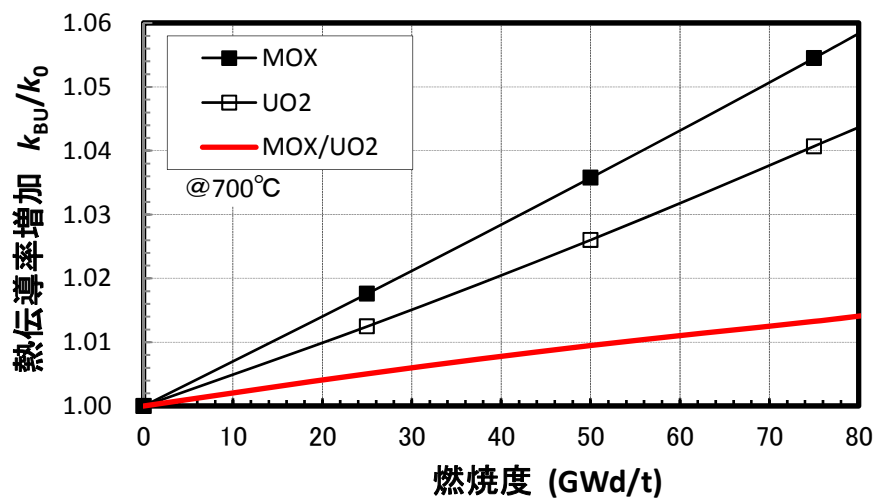


図 6.4-2 析出金属 FP 元素蓄積による熱伝導率への影響比較

6.5 まとめ

MOX 燃料と UO_2 燃料では主たる核分裂性核種が Pu-239 と U-235 で異なり、その FP 収率に差異があり、その中でも固溶性 FP 収率の違いと析出性金属 FP 収率の違いが重要である。これらの収率差が各々の燃料の熱伝導率低下にどのように影響するかを、ORIGEN 解析計算を基に定量的に比較評価した。その結果、以下が得られた。

- (1) 固溶性 FP 元素蓄積により熱伝導率は低下し、逆に析出性金属 FP 元素蓄積により熱伝導率が上昇するが、いずれの効果も燃焼度に対し熱伝導率が単調に変化する効果があることが分かった。
- (2) 固溶性 FP 元素蓄積と析出性金属 FP 元素蓄積の効果はともに、 UO_2 燃料の熱伝導率低下に比較し MOX 燃料のそれを緩和する効果があることが分かった。
- (3) 同じ高燃焼度（約 70GWd/t 近傍）で比較すると、固溶性 FP 元素蓄積により約 3 割程度の熱伝導率低下効果に対し、析出性金属 FP 元素蓄積による向上効果は最大でも 4～5%程度で、前者の影響が後者よりも顕著に大きいことが分かった。
- (4) 高燃焼度における固溶性 FP 元素蓄積による熱伝導率低下を比較すると、MOX 燃料では UO_2 燃料に比較し 5 %程度緩和する効果が示唆され、他の要因に比較し無視し得ない程度の効果があることが分かった。

第 7 章

総合評価

本章では、高燃焼度化に伴う材料特性変化による熱伝導率に与える影響を個別に評価した上で、前章までに検討した MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムモデルと合わせて、総合的に熱伝導率の燃焼度変化を定量評価し、照射実験結果との検証を行ってその主要なメカニズムを明らかにする。また、得られた成果の工学的な有用性並びに今後の検討課題についても整理する。

7.1 高燃焼度下での材料特性変化と熱伝導率への影響

7.1.1 気泡形成の影響

本研究で対象としている酸化物燃料のようなセラミックス材料では、気孔率が熱伝導率に大きく影響を与えることは良く知られており、幾つかの補正式が提案されている^[1]。軽水炉燃料は照射下において、熱的な影響、照射欠陥の形成、気体核分裂生成物 (FP) の蓄積により、製造時の気孔がそのままの状態が維持されず変化するとともに、新たな気泡形成が起こるため、照射にともなって気孔率が変化する。このような気孔率変化による熱伝導率への影響は、燃料マトリックス部の組成変化による影響とは独立して評価する必要があり、ここではこの気孔率変化における UO_2 燃料と MOX 燃料の間の相違について考察する。

照射下における酸化物燃料の気孔率増加を支配する因子として、照射温度と燃焼度が主要な因子として考えられている。照射下の気孔率変化は、燃料ペレットの体積変化すなわちスウェリング挙動のひとつとして研究されている。その中で照射中の気泡形成による体積増加はガスバブルスウェリング挙動として扱われ、主に照射温度に支配され、ある一定以上の温度以下ではほとんど問題にならない程度と考えられている。ガスバブルスウェリングモデルの一例を図 7.1-1 に示す^[2]。このモデルでも示されるように、 UO_2 燃料でガスバブルスウェリングによる体積増加が顕在化するのには、照射温度が概略 1500K を超える領域であると考えられる。軽水炉における通常の運転条件下では、燃料ペレットの大部分は 1500K を超える温度に達することはないと考えられることから、ガスバブルスウェリングによる気孔率増加は殆ど影響を与えないと推定される。

このようなガスバブルスウェリング挙動については、 UO_2 燃料については定量的なモデリングがされているが、MOX 燃料についてこの挙動が UO_2 燃料と比較して明確な差異があるかについては現状では明らかではなく、同等に扱われているのが現状である。これは、MOX 燃料の照射実績データベースが UO_2 燃料に比べて少ないことや、MOX 燃料では Pu の均一性等の材料特性が製造者に依存することも一因として考えられる。

しかしながら、 UO_2 燃料と同等と扱えるような均一な MOX 燃料を考えると、ガスバブルを形成するメカニズムは基本的に同等と考えられることから、本研究の検討におい

て、このような照射温度に依存するガスバブルスウェリング挙動については、 UO_2 燃料と均一な MOX 燃料の間では同等として扱うものとする。

次に、燃焼度の依存性については、通常の照射条件下ではガスバブルスウェリングを生成するような温度に至らず、燃焼に伴って顕著に気泡が形成される現象は見られない。しかし、近年燃料の高燃焼度利用が進められ、その中で、ある一定以上の高燃焼度領域における特異な組織変化に伴い、照射温度が低い環境下でも顕著な気泡形成が起こる事象がクローズアップされ、多くの研究が進められている。

このような、あるしきい燃焼度を超えて発現する高燃焼度特有の組織変化は、1980 年から Pati ら^[3,4]によって燃料ペレットの最外周部において観察結果が報告され、そのため「リム組織(High Burnup Rim Structure)」と呼称されている。その後、このような組織変化はペレット最外周部に限らず、燃料の高燃焼度化に伴って見られる事象であることが明らかとされ、「高燃焼度組織(HBS: High Burnup Structure)」とも呼ばれている^[5]。

HBS 組織の形成メカニズムやその特性変化については、多くの研究報告があるが、本研究における主要な課題は、HBS 組織形成に伴う気泡形成、すなわち気孔率の変化量をどのように定量的に扱うことができるか、また MOX 燃料と UO_2 燃料においてその挙動にどのような違いがあるかである。

Walker ら^[6]は、商業用 PWR で高燃焼度まで照射された燃料ペレットの HBS 組織について、照射後試験を行ってその組織変化について詳細な研究を行っている。図 7.1-2 に Walker らが観察した PWR 燃料ペレット外周部における、典型的な HBS 組織の SEM 観察写真を示す。この燃料ペレットの製造時における平均結晶粒径が $9\sim 12\mu\text{m}$ 、気孔率約 5%だが、この組織観察写真のように、結晶粒は $1\mu\text{m}$ 未満のサイズに細粒化し、また数 μm サイズの気泡が多数観察され、照射前に比較し気孔率が増大していることが示唆される。図 7.1-3 にこの燃料ペレットの半径方向に燃焼度分布と気孔率を測定した結果を比較して示す。この比較によりペレット最外周部 ($r/r_0=0.93\sim 1.0$) で顕著に燃焼度と気孔率が増大する領域が確認され、その燃焼度と気孔率の相関を見ると、概略図 7.1-4 のような関係が得られる。ここで、HBS 組織形成のしきい燃焼度は、Kinoshita ら^[7]の研究成果を基に 60GWd/t と仮定して示している。HBS 組織における気孔率形成の燃焼度依存性については、さらに詳細な検討が必要であるが、ここでは第一次近似として、同図で得られた結果を基に両者に比例関係があるものと仮定し、以下の式を得た。

$$\Delta P_{\text{rim}} = 0.10 \cdot (BU - 60) \quad \dots \dots (7-1)$$

ΔP_{rim} : リム部 (HBS 組織) における気泡形成による追加気孔率 (%)

BU : 燃焼度 (GWd/t) [$60 < BU < 250$]

照射燃料ペレットの気孔率と熱伝導率の相関について、Bakker ら^[8]が Schulz モデル

を基にして以下の関係式を提唱している。

$$k_P/k_0 = (1-P)^{1.7} \quad \dots \dots (7-2)$$

k_P : 気孔率 P の熱伝導率

P : 気孔率

ここでは、この相関式を用いて、HBS 組織形成に伴う気孔率増加によって、熱伝導率がどの程度低下するかを試算した。試算結果を図 7.1-5 に示す。この結果によると、局所の燃焼度が 250GWd/t と非常に高くなると、熱伝導率に対し約 3 割程度の低下要因となり得ることを示している。

以上では、 UO_2 燃料における超高燃焼度域における組織変化に伴う気孔率変化を定量的に調べたが、MOX 燃料については前述のガスバブルスウェリングと同様に、現状 UO_2 燃料のような定量的評価ができるほどの研究がなされているとは言えない。

しかし、燃焼度が高燃焼度まで進むと、同様なメカニズムで組織変化が発現すると予想される。最近の MOX 燃料の照射下における組織変化に関する報告例⁹⁾では、Pu スポット部での燃焼度が非常に高い燃焼度に達しており、その組織変化において HBS 組織と類似した現象が観察されている。このことを踏まえ、MOX 燃料においては MOX 固有の事象ではなく、局所的な燃焼度の違いとして UO_2 燃料と同じ挙動をすると考えることで、ある程度 MOX 燃料の挙動を解釈することは可能と考える。

このような Pu スポット部での気泡形成は、MOX 燃料の分散相 (Pu スポット部) での熱伝導率低下に寄与することから、分散相効果による熱伝導率評価の中で考慮される必要がある。この気泡形成による熱伝導率への定量的な影響評価については、7.3 節にて検討する。

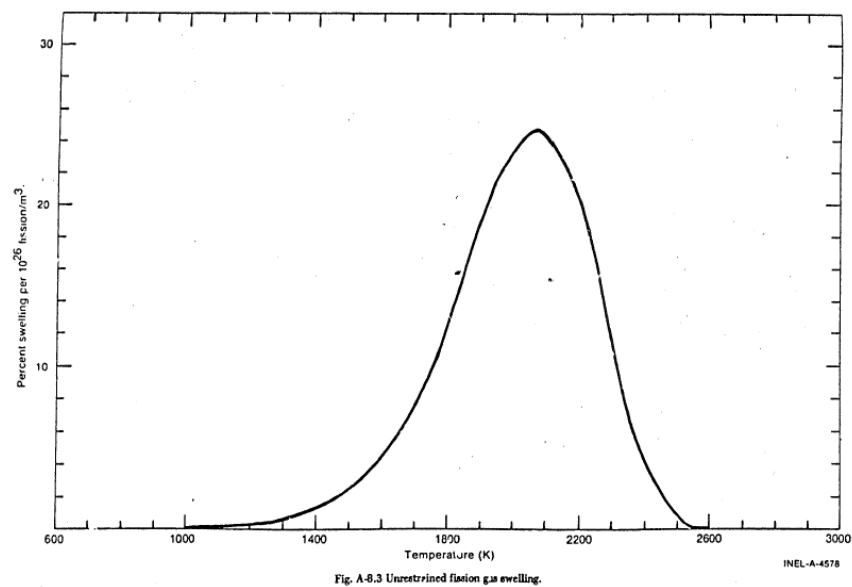


図 7.1-1 UO₂ 燃料におけるガスバブルスウェリングモデルの報告例^[2]

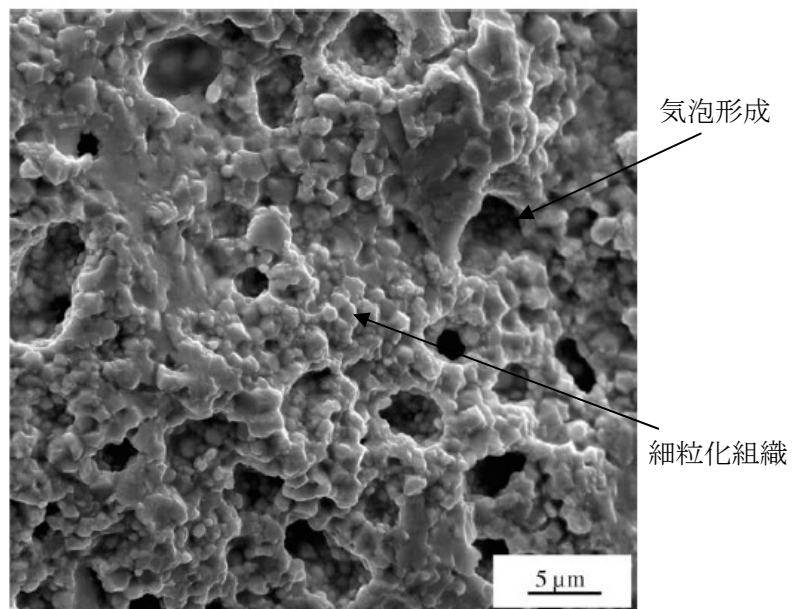


Fig. 6. Appearance of the high burn-up structure at $r/r_0 = 0.99$ in the high burn-up fuel samples. The local burn-up is about 210 MWd/kgHM.

図 7.1-2 商業用 PWR で照射した UO₂ 燃料 HBS 組織 SEM 観察報告例^[6]

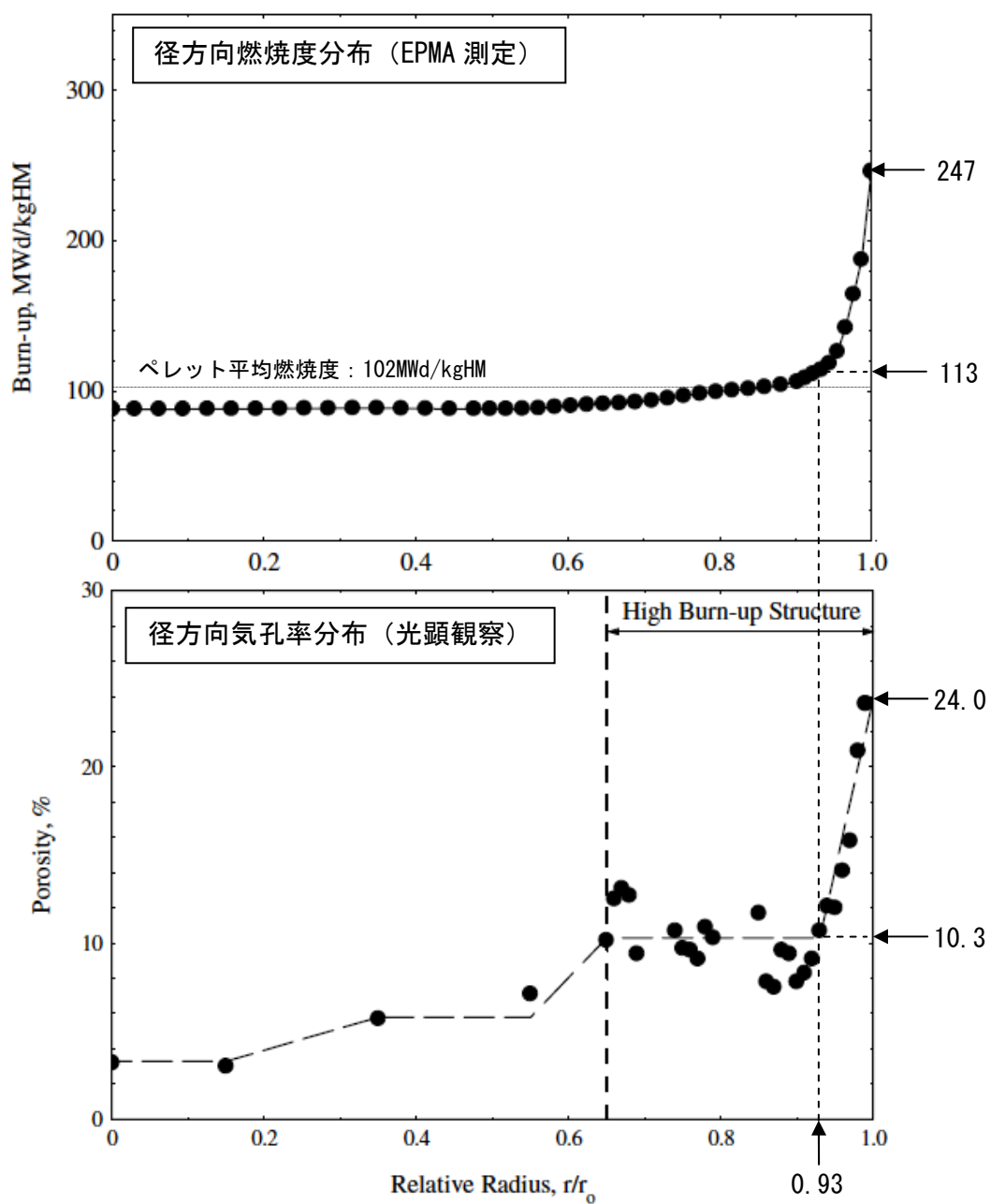


図 7.1-3 Walker ら⁶⁾の報告によるペレット径方向の燃焼度分布と気孔率分布の比較

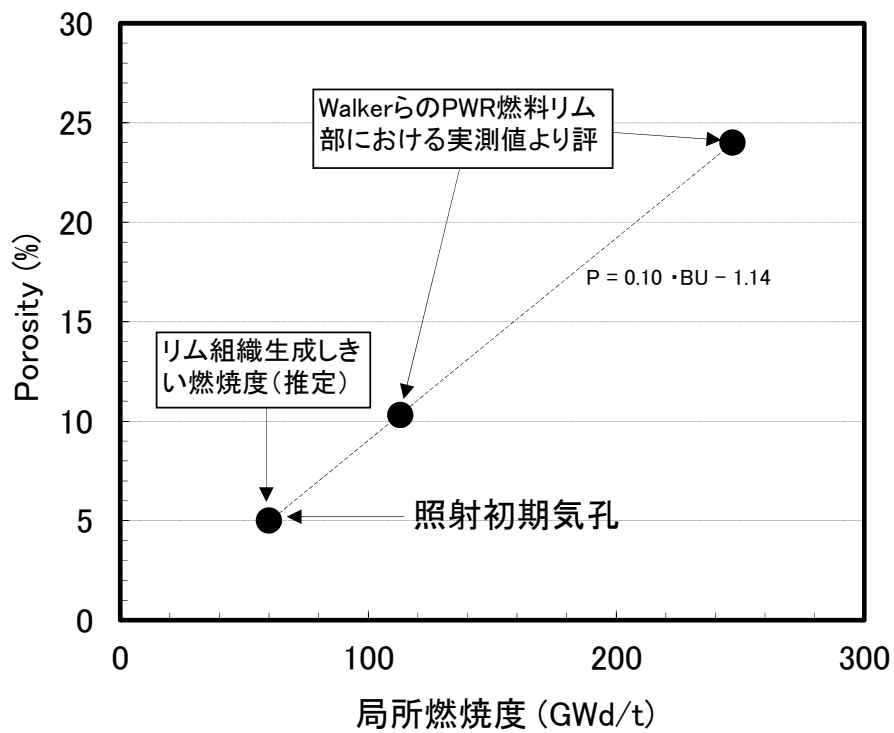


図 7.1-4 Walker ら^[6]の報告に基づくリム部における局所燃焼度と気孔率との相関

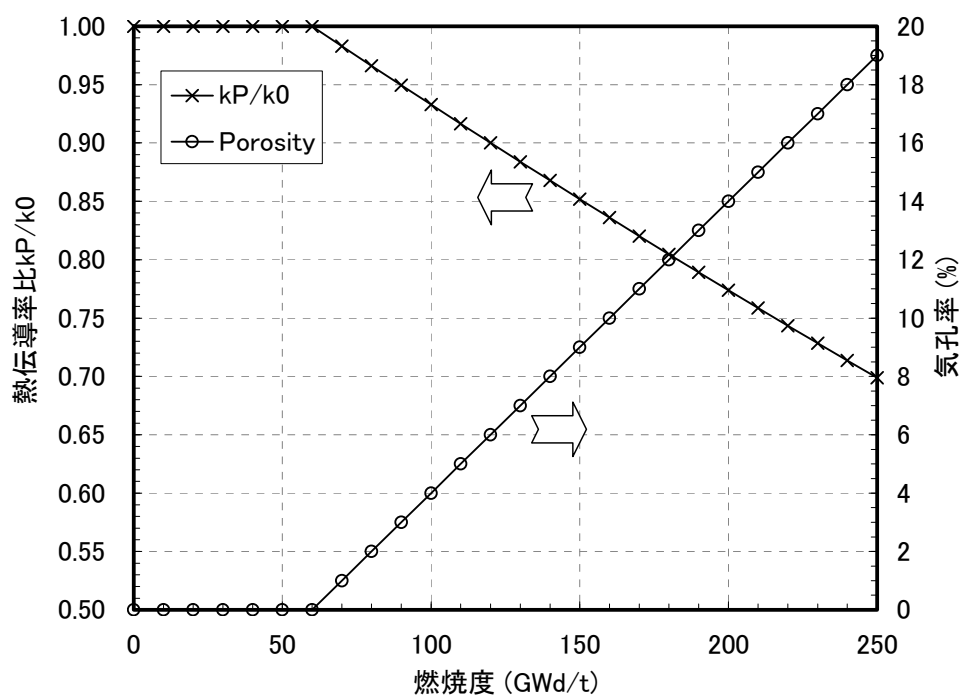


図 7.1-5 HBS 組織気孔率増加に伴う熱伝導率低下割合の計算結果

7.1.2 化学量論組成変化の影響

酸化物燃料の化学量論組成（O/M 比）は、熱物性に大きな影響があることが知られており、熱伝導率についても未照射 MOX 燃料について、O/M 比との相関について過去に幾つかの報告がある（表 2.2-1 参照）。Duriez ら^[10]が報告している O/M 比が 1.95～2.00 の範囲における実測値とそれに基づくモデル式の比較を図 7.1-6 に示すが、O/M 比が 0.05 程度の変化でも、フォノン伝導領域（約 1800K 以下）において熱伝導率が化学量論組成（O/M 比＝2.00）に比べ顕著に低下することが分かる。このような関係から、照射下においても化学量論組成の変化は、熱伝導率の低下に対し無視し得ない程度に影響する可能性が指摘される。

しかし、照射下における酸化物燃料ペレットの O/M 比を直接測定することは難しく、平衡酸素ポテンシャル測定から間接的に評価される。

図 7.1-7 に Matzke^[11]による照射済み酸化物燃料ペレットの酸素ポテンシャルを実測した報告例を示す。照射下では、核分裂により余剰の酸素が生成するため、燃焼に伴って酸素ポテンシャルは上昇する傾向にあると考えられるものの、酸素ポテンシャルが約 -400kJ/mol 近傍において、生成する金属 FP 元素である Mo が金属/酸化物間の平衡酸素ポテンシャル領域となるため、Mo の酸化により酸素ポテンシャルは抑制されると推定され、非常に燃焼度の高いリム組織の領域でも、同程度の酸素ポテンシャルに抑制されると考えられている。この酸素ポテンシャルは、照射開始段階とほぼ同等であり、照射期間中に O/M 比が大きく変化しないことを意味している。

また、燃料ペレットの外周部においては、燃焼度が高くなるに従い、燃料被覆管との接触が強固となるが、燃料被覆管の主要元素である Zr はこのような燃料ペレットの余剰酸素のゲッターとして作用すると考えられ、この効果によっても燃料ペレットの酸素ポテンシャルは抑制されることが期待される。

MOX 燃料においては UO₂ 燃料に比較し、第 6 章で示したように析出性金属 FP 元素の収率が高く、従って余剰酸素量も大きいと考えられている。従って、燃焼が進むに従い、UO₂ 燃料に比較して酸素ポテンシャルの上昇は大きいことが推定される。しかし、UO₂ 燃料における酸素ポテンシャル抑制の効果は、MOX 燃料においても同様に作用することが考えられることから、MOX 燃料においても同様に O/M 比が大きく上昇せずに照射初期 O/M 比＝2.00 が保持されることが推定される。

仮に、酸素ポテンシャルが -400kJ/mol 近傍を超えて上昇したと仮定した場合、図 3.1-8 で示した O/M 比と酸素ポテンシャルとの相関に関する報告例から分かるように、-400kJ/mol 以上の高い酸素ポテンシャル領域において MOX 燃料の O/M 比は比較的広い範囲において、O/M 比＝2.00 で安定していることが分かる。

いずれにしても、O/M 比が化学量論組成 O/M 比＝2.00 からずれることにより、MOX 燃料の熱伝導率は低下するので、UO₂ 燃料に比較し O/M 比＝2.00 の安定な酸素ポテンシ

ャル領域が狭い MOX 燃料においては、照射による化学量論組成の影響としては UO_2 燃料に比較し熱伝導率が低下し難いことを説明することは困難と思われる。

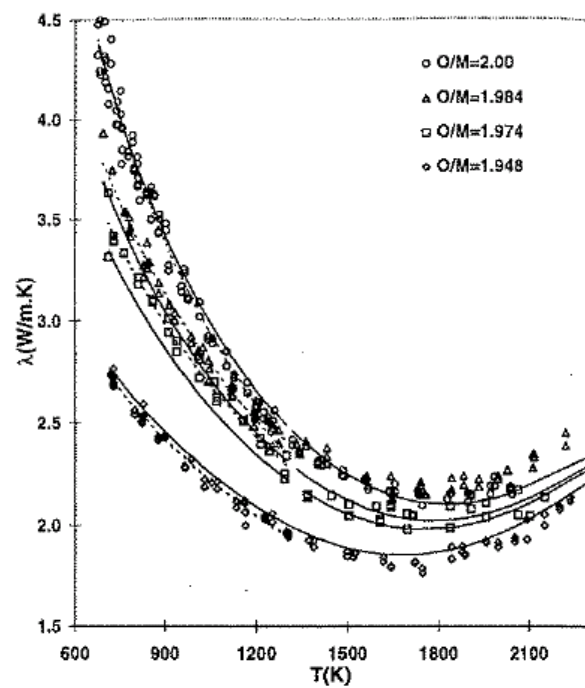


Fig. 11. Comparison of the proposed conductivity relation with the experimental conductivity data for the 15% Pu batch. Full lines: conductivity calculated by Eq. (7). Dashed lines: $1/(A + BT)$ fit of the experimental data (up to 1300 K).

図 7.1-6 MOX 燃料の熱伝導率と O/M 比の関係実測例^[10]

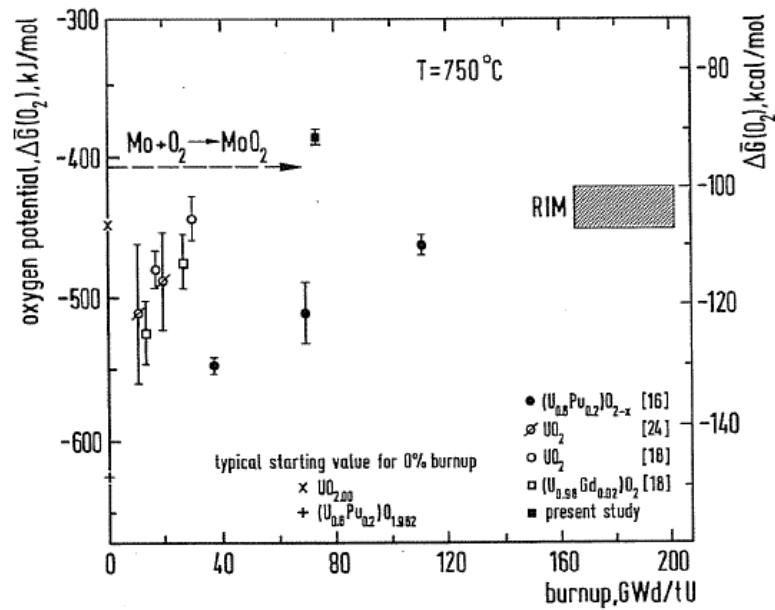


Fig. 6. Burnup dependence of the oxygen potential at 750°C for different irradiated oxide fuels.

図 7.1-7 照射済み酸化物燃料の酸素ポテンシャル報告例^[11]

7.1.3 照射欠陥蓄積の影響

照射欠陥蓄積の効果は、大きく分けて生成と消滅（回復）の 2 つのプロセスで考えられている。

照射欠陥生成濃度は、核分裂数と核分裂により飛翔した核分裂片の運動エネルギーに比例すると考えられるので、燃焼度に比例すると考えることができる。燃焼度の関数と考えると、 UO_2 燃料と MOX 燃料では、同じ燃焼度であれば照射欠陥生成濃度に違いはないと考えることができる。但し、 U-235 と Pu-239 では核分裂当りの開放されるエネルギーが後者の方が若干大きいことを考慮すると、照射欠陥生成密度には差が生じる可能性が考えられる。しかし、これを解明するには詳細な理論と精密な実験データが必要と考えられ、そのような UO_2 燃料と MOX 燃料の違いに関する報告例は見当たらず、本研究ではその詳細にまでの検討には至らない。

一方、照射欠陥の回復については、Amaya ら^[12]は約 1100K の回復温度を設定したモデルを提唱しており、また Carbajo ら^[13]のレビューでは 900K の回復温度によるモデルを提唱している。実際の照射環境下における照射欠陥の回復温度については、その照射履歴等にも依存すると考えられることから、現状の知見で精密にその温度を設定することは難しいと判断される。 UO_2 燃料と MOX 燃料との回復温度の相違については、照射下におけるマトリックス原子の拡散速度に違いが有る可能性は十分考えられるものの、上記のような UO_2 燃料での不確定性を考慮すると、両者の相違を簡単に論ずることは難しいと考えられる。

以上のように、現状では UO_2 燃料と MOX 燃料の照射欠陥の回復事象にかかわる相違を明確にした理論やモデルは提唱されていないことを踏まえ、本研究では両者の違いは考慮しないこととする。

後述するように、Pu 濃度が不均一な MOX 燃料においては、Pu スポット部の分散相における燃焼度が、ペレット平均燃焼度に比較し、顕著に伸長すると考えられる。このような Pu スポット領域では、 UO_2 燃料で知られている HBS 組織に類似した組織が観察される。このような組織変化により、組織の再結晶化により熱伝導率が回復することが報告されている。MOX 燃料についてこのような再結晶化に伴う熱伝導回復の報告例はないものの、HBS 組織と同様な組織変化が観察されていることから、この熱伝導率回復効果について定量的な検討をここでは行う。

UO_2 燃料の高燃焼度における HBS 組織に関し、その発現するしきい条件やその特性変化について詳細な研究が、電中研の主催による国際共同研究 HBRP プロジェクトにて実施され、その中で HBS 組織の生成に伴う熱伝導率回復モデルについて報告されている^[7]。Kitajima の式と呼ばれる、HBS 組織生成による回復効果を考慮した以下のモデル式が提案されている。

$$k = \frac{1}{(A_1 + A_2 \cdot BU) + (B_1 + B_2 \cdot BU) \cdot T} \quad \dots \dots (7-3)$$

k : 熱伝導率 (W/mK)

BU : 燃焼度 (MWd/kgHM)

$T < 1273\text{K}$

$$A_1 = 40, \quad A_2 = 4.12$$

$$B_1 = 0.22, \quad B_2 = 0 \quad (BU < 50)$$

$$B_1 = 0.447, \quad B_2 = -0.00453 \quad (50 < BU < 80)$$

$$B_1 = 0.084, \quad B_2 = 0 \quad (80 < BU)$$

$1273\text{K} < T < 1473\text{K}$

1273K と 1473K の熱伝導率値の直線内挿

$1473\text{K} < T$

$$A_1 = 40, \quad A_2 = 1.74$$

$$B_1 = 0.22, \quad B_2 = 0.0003$$

この式による熱伝導率の燃焼度依存性を図 7.1-8 に示すが、燃焼度 50 から 80 GWd/t の範囲で、熱伝導率が回復することを示している。

この報告結果を基に、燃焼度 50 から 80 GWd/t の範囲における熱伝導率回復比を次のように算出した。燃焼度 50GWd/t における回復比を 1 とし、50GWd/t 未満の燃焼度範囲の熱伝導率モデルをそのまま回復なしとして 80GWd/t まで外挿し、80GWd/t における回復ありの熱伝導率の、外挿した熱伝導率(回復なし)に対する比を算出する。この 50GWd/t と 80GWd/t の 2 つの回復比間の燃焼度依存性を直線で結んで求めた。得られた式は以下の通りである。

$$\left. \begin{array}{ll} BU < 50\text{GWd/t} & RF(BU) = 1 \\ 50 < BU < 80\text{GWd/t} & RF(BU) = (RF_{80}(T) - 1) \times \frac{BU - 50}{80 - 50} + 1 \\ 80\text{GWd/t} < BU & RF(BU) = RF(80) \end{array} \right\} \quad \dots \dots (7-4)$$

ここで、

$$RF_{80}(T) = 2.456 \times 10^{-4} \cdot T + 1.118 \quad (673\text{K} < T < 1273\text{K})$$

$$RF_{80}(T) = -1.806 \times 10^{-3} \cdot T + 3.161 \quad (1273\text{K} < T < 1473\text{K})$$

RF : 回復比

BU : 燃焼度 (MWd/kgHM)

T : 温度 (K)

これを燃焼度に対してプロットして図 7.1・9 に示す。熱伝導率の回復は、温度に依存するが、最大では 3 割を超える回復比が期待されることが分かる。

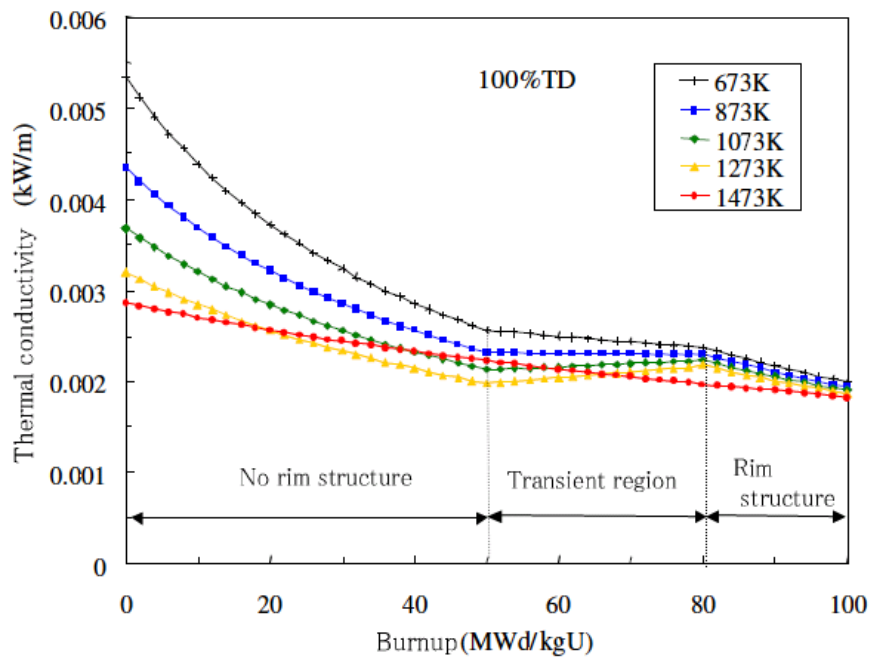


Fig. 5 Thermal conductivity of UO_2 matrix calculated using the Kitajima correlation.

図 7.1-8 Kitajima 式による HBS 組織生成に伴う UO_2 熱伝導率の回復モデル^[7]

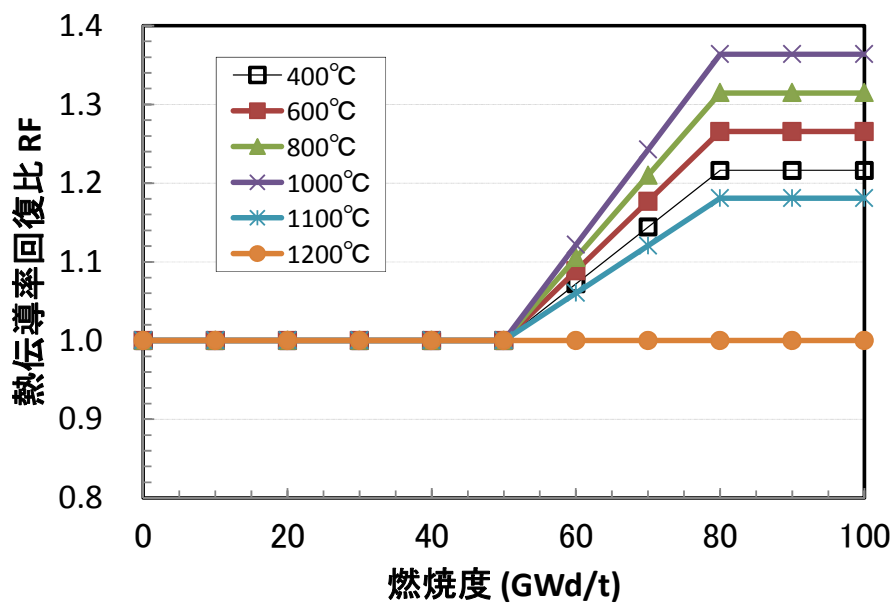


図 7.1-9 Kitajima モデルを基にした HBS 組織生成による熱伝導率回復比

7.2 Pu スポット部超高燃焼度化の影響検討

本研究の主要な課題である、MOX 燃料中の Pu 濃度不均一と熱伝導率低下緩和との関係について、第 5 章において燃料ペレット中の局所的な燃焼度の不均一性を擬似二相材として取り扱うことで、そのメカニズムを検討した。第 5 章で評価した擬似二相材による各相の燃焼度と熱伝導率を図 7.2-1 に示すが、Pu スポット部に相当する分散相における燃焼度は、平均燃焼度が約 75GWd/t において約 180GWd/t 程度まで達している。このことは、均一で単一相の場合に比較し、局所的に 2 倍以上の非常に高い燃焼度に達し、またその領域の熱伝導率の低下も顕著となることを意味している。

本研究で使用している MOX 燃料の熱伝導率燃焼度依存モデル式は、試験炉での照射実験データに基づくものであるが、実証されている燃焼度範囲は約 70GWd/t 程度までの範囲であり、上記のような超高燃焼度領域までの外挿性については検証されているとはいえない。また、このような超高燃焼度までの MOX 燃料の照射特性や、その熱伝導率挙動については研究された例は乏しく、現状でその外挿性を検証することは困難である。

このような 100GWd/t 近傍あるいはそれを超えるような高燃焼度下における燃料特性については、7.1 節でも言及したように UO_2 燃料において HBS 組織と呼ばれる、あるしきい燃焼度を超えると発現する組織変化が研究され、超高燃焼度下における燃料ペレット組織変化について研究が進められている。このような燃焼の伸長に伴う基本的な材料特性変化については、MOX 燃料でも同様に考えることは可能と仮定し、ここでは UO_2 燃料における HBS 組織生成による特性変化モデルに基づき、MOX 燃料の超高燃焼度下における熱伝導率変化について考察を加える。

7.2.1 超高燃焼度下での熱伝導率挙動の外挿性

本研究で MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムの検討において使用している計算モデル等で、特に超高燃焼度までの依存性を必要としている項目を挙げ、そのデータによる実証燃焼度範囲を合わせて示すと以下の通りである。

- | | |
|----------------------------------|-----------|
| ①Gates らによる MOX 燃料熱伝導率式 ((2-9)式) | ～ 70GWd/t |
| ②擬似二相材の二相燃焼度比 β ((5-3)式) | ～200GWd/t |
| ③固溶性 FP 元素濃度 ((6-3)式, (6-4)式) | ～ 70GWd/t |
| ④析出金属 FP 体積割合 ((6-5)式) | ～ 70GWd/t |
| ⑤HBS 組織気泡形成による気孔率 ((7-1)式) | ～250GWd/t |
| ⑥HBS 組織照射欠陥回復による熱伝導率回復率 ((7-4)式) | ～100GWd/t |

このように比較すると、Pu スポット部のような超高燃焼度領域における熱伝導率を評

価する上で、熱伝導率式①、FP 元素蓄積式③④、HBS 組織欠陥回復率⑥の項目については、外挿性の妥当性についての裏付けが乏しい状況にある。

データによる実証性範囲が最も狭いモデルが、擬似二相材モデル評価結果の適用燃焼度範囲を制約となると考えると、図 7.2-1 における分散相燃焼度が約 70GWd/t に達するペレット平均燃焼度の範囲は、約 30~40GWd/t までとなる。

熱伝導率式①については、モデル式のパラメータについては、実験データを基に調整して決定されているが、式の形は 2.1.1 項でレビューしたように、固体物理学の理論を基にしたセラミックス材料のフォノン伝導の一般的な式であり、理論的裏付けのあるものである。また、炉外試験データ等をベースに理論的な燃焼度低下メカニズムモデルとして Carbajo らが提案しているモデル式 ((1-4)式) と、本研究で使用した Gates モデル式 ((2-9)式) の燃焼度依存性を比較して図 7.2-2 に示す。両者は燃焼度に依存して熱伝導率が減少する割合に若干の違いがあるものの、減少傾向はほぼ同様な傾向にあり、燃焼度が高くなるに従い、減少が抑制される傾向にあることが分かる。

これらのことから、酸化物燃料の燃焼に伴う熱伝導率低下は、フォノン伝導理論によると一定値に飽和してゆく傾向にあると考えられるので、本研究で使用している MOX 燃料の熱伝導率モデルを高燃焼度に外挿しても、大きく真値からずれてゆくことは考え難いと思われる。従って、外挿による不確定幅を定量的に示すことは困難であるものの、外挿して使用することが、著しく妥当性を欠くことは無いと考える。

次に FP 元素蓄積③④については、ORIGEN コードの収率計算結果を基にしてモデル化しているので、ORIGEN コードにおける UO_2 及び MOX 燃料に対する実証性に依存することになる。現状では、本研究で対象となるような 150GWd/t を超えるような超高燃焼度領域までの実証性は乏しいと言わざるを得ない。しかしながら、核分裂によって得られる FP 収率組成は、アクチニド核種が異なってもその FP 収率の分布は図 6.1-1 でも示したように大まかには一致していることを考慮すると、燃焼度を外挿した場合でも、燃焼に伴って収率がほぼ直線的に増加する現在の傾向が、大幅に変化するとは考え難く、直線的増加の傾きが徐々に変化する程度と推定される。従って、現状の燃焼に対する直線的な近似は、超高燃焼度領域においても第一次近似として、挙動を評価できるものと考えられる。

さらに HBS 組織欠陥回復率⑥については、HBS 組織の発現に伴う一過性の回復現象であり、超高燃焼度領域でさらなる回復現象が発現するかは明確でない。現状の燃焼度評価範囲では、一過性の回復として扱うことで特に問題は無いものと考えられる。

データによる実証は行っているモデルの内、HBS 組織気泡形成による気孔率⑤については、 UO_2 燃料ペレットのリム部における観察データを基にしたものである。本研究で対象としている超高燃焼度の領域は Pu スポット部が中心であることを考えると、核分裂密度や温度条件が必ずしも同条件とはなっていないことに留意する必要がある。このこ

とを考慮すると、燃焼に伴って気孔率が単調に増加する依存性は基本的に同等と推定されるが、定量的に同じ気孔率依存モデルが適用できるかどうかは、Pu スポット部での組織変化データ等とも照らし今後慎重に検討することが望まれる。

以上の考察より、データベースによる実証がなされている燃焼度範囲で制限すると、本研究で評価した擬似二相材モデルでの燃焼度低下緩和を定量的に評価できる範囲は、ペレット平均燃焼度で約 40GWd/t 程度までであると考えられる。しかし、本研究で行ったペレット平均燃焼度約 80GWd/t 領域においても、評価に使用している個々のモデルの燃焼度依存性はそのメカニズム理解に基づき外挿性はあるものと判断され、定量性に課題があるものの熱伝導率低下緩和の挙動を比較評価することは可能と判断される。

7.2.2 擬似二相材熱伝導率に与える影響

分散相を形成する Pu スポット部では、ペレット平均に比較し燃焼度が非常に高くなり、このような分散相の中で前述のような HBS 組織形成を伴う熱伝導率の変化が起こることが考えられる。ここでは本研究で検討した擬似二相材の概念において、分散相の超高燃焼度化による燃料ペレットのバルク熱伝導率に与える影響を考察する。

ペレットの Pu 濃度平均値と分散相の体積率が与えられると、擬似二相材モデルでは分散相と連続相の Pu 濃度は次式の関係となる。

$$C_M = \frac{C_{ave}}{1 - c_D} - \frac{c_D}{1 - c_D} \cdot C_D \quad \dots \dots (7-5)$$

$$\beta = \frac{C_D}{C_M} \quad \dots \dots (7-6)$$

この式による分散相と連続相の Pu 濃度の関係を図示すると図 7.2-3 のようになる。ここで、製造時データの実績に基づき $C_{ave}=8.4\%$ とし、分散相体積率 c_D を 0.25 と 0.5 のケースで示している。この図でも分かるように、分散相体積率が小さいほど、分散相中の Pu 濃度の取り得る範囲はより高い側に広がる。

実際の分散相中 Pu 濃度は、照射試験に使用した MOX 燃料の製造時のデータを分析した結果では分散相の Pu 濃度は各々、およそ 20%,15%と見積もられている。また、EPMA 測定による最大濃度は約 25% ($\beta \approx 9$) であり、計算上は分散相体積率 $c_D=0.25$ では最高約 33%まで可能である。

分散相の体積率が一定の条件で、このように分散相の濃度が高くなるケースは、製造時に混合された UO_2 と PuO_2 の原料粒子がほとんど固溶せずに、各々が混合前の濃度に近い状態を保っていることを意味している。

本検討では、分散相の燃焼度が非常に高い状態、すなわち分散相 P_u 濃度が非常に高い場合のバルク熱伝導率への影響を評価するため、擬似二相材の熱伝導率計算における β (分散相と連続相の P_u 濃度比 C_b/C_M) をパラメータとして解析する。 β の範囲としては、前述の現実的な分散相 P_u 濃度範囲 ($\beta=4.21$, 約 9) を包絡する 2~20 の範囲で計算を行った。その解析結果を図 7.2-4 に示す。

但し、超高燃焼度における熱伝導率低下の要因として、前項で検討した要因の内、特に熱伝導率を低下させる HBS 組織に形成による気孔率の影響 ((7-1)式及び(7-2)式) のみを考慮している。

この解析結果で示されるように、分散相における局所燃焼度が極端に高くなっても、擬似二相材における熱伝導率はむしろ均一相に比較し少なくとも熱伝導率が低下することではなく、むしろより高くなる傾向にあることが示された。これは、バルクの熱伝導率を支配する連続相の熱伝導率の低下が顕著に抑制される効果が、局所での熱伝導率の低下の効果を大きく上回っていることを意味している。

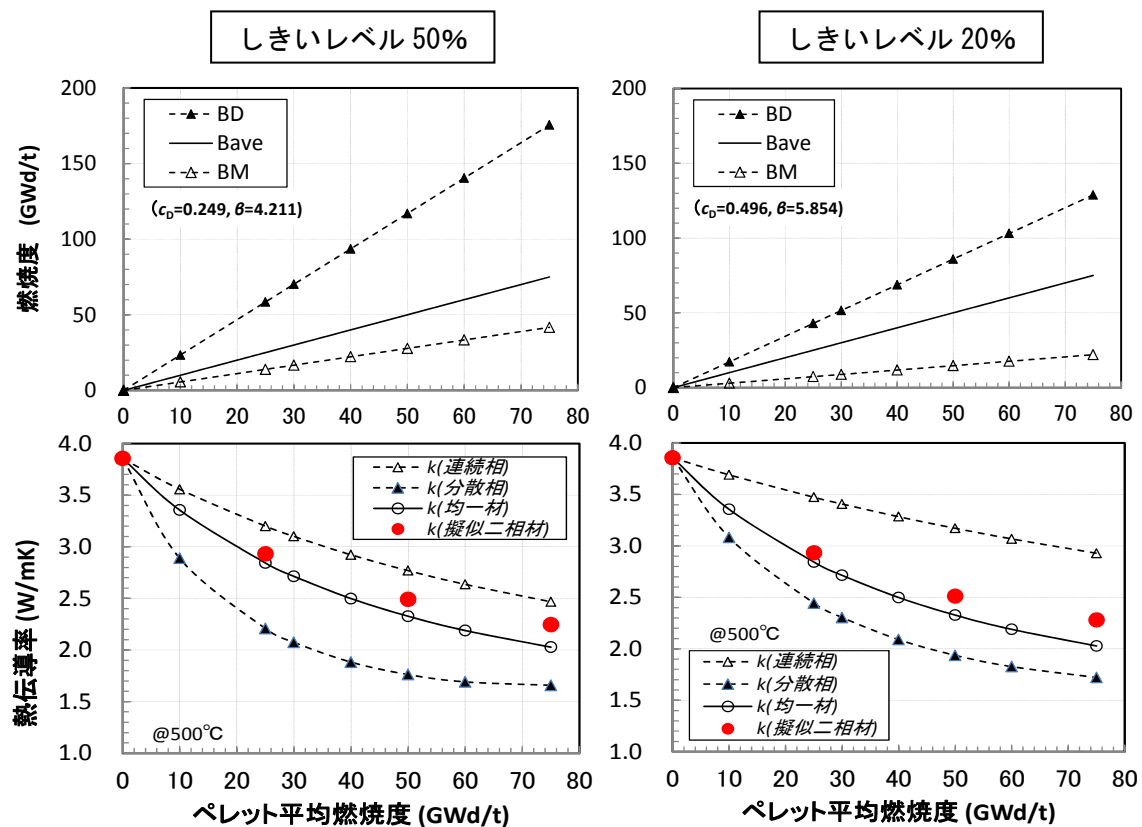


図 7.2-1 擬似二相材モデルにおける MOX 燃料の各相燃焼度と熱伝導率計算値

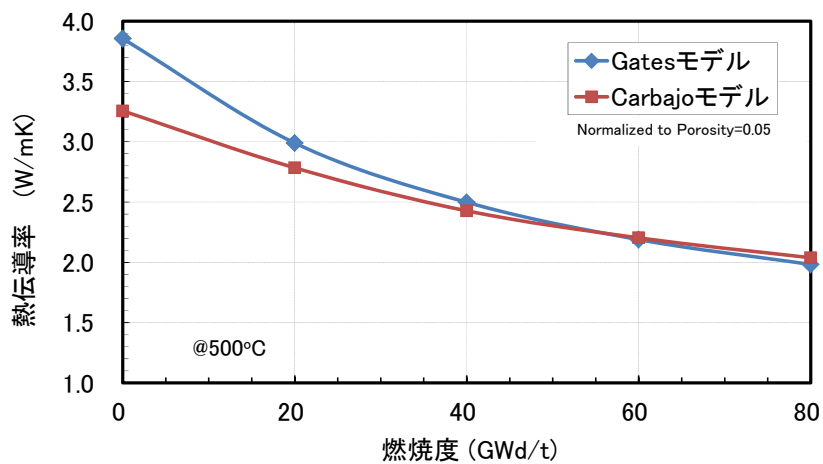


図 7.2-2 MOX 燃料熱伝導率の燃焼度依存モデル式比較

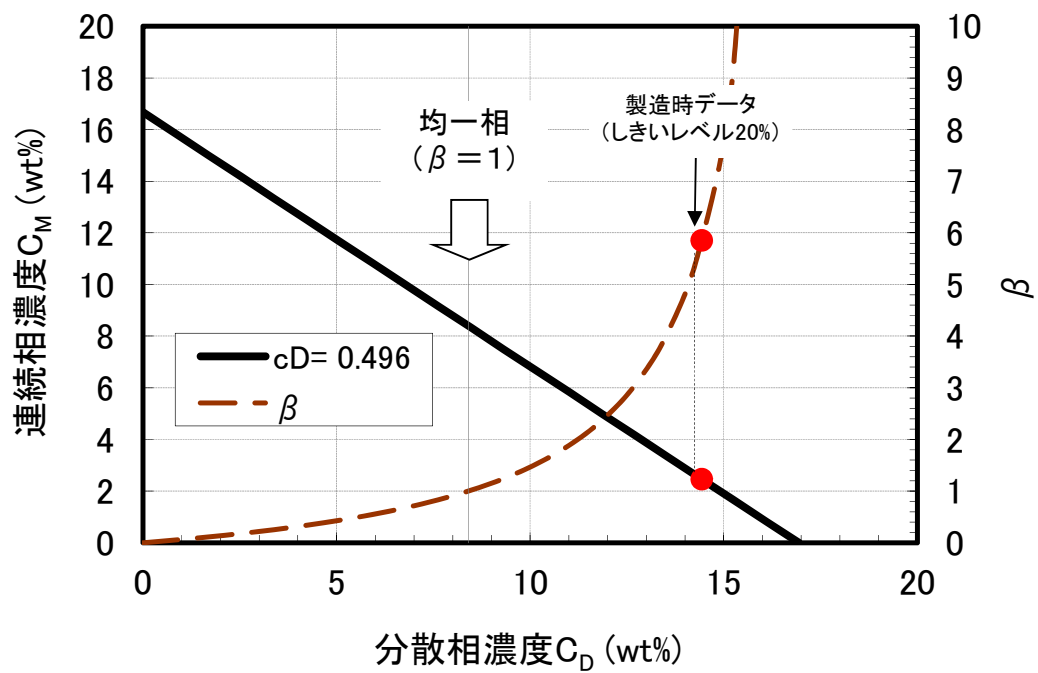
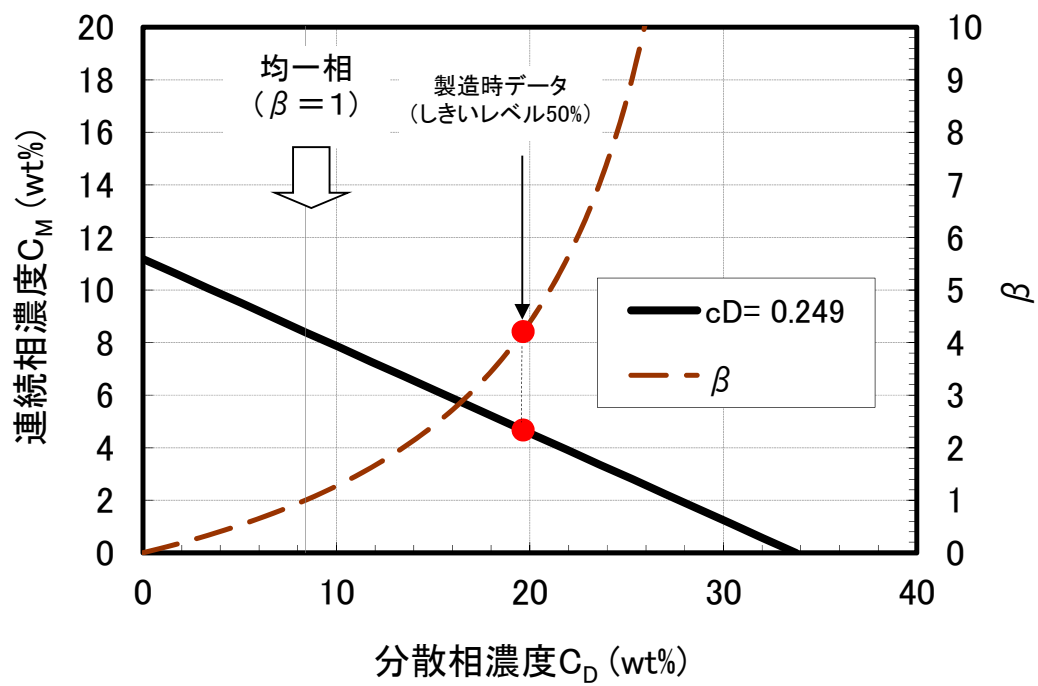


図 7.2-3 分散相と連続相の Pu 濃度相関図

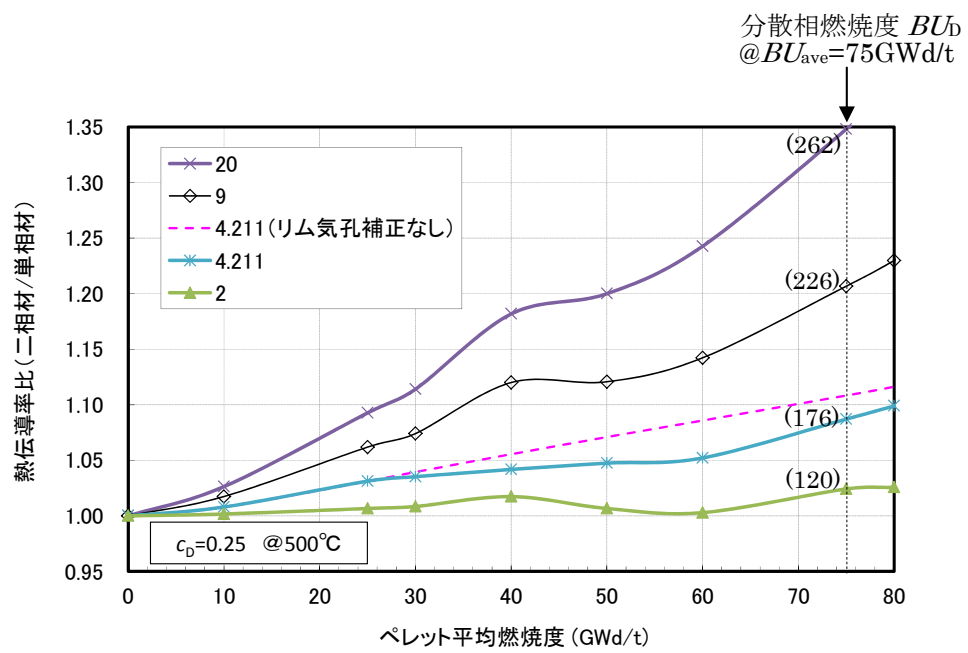


図 7.2-4 分散相/連続相の Pu 濃度比をパラメータとした擬似二相材熱伝導率比較

7.3 MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズム評価

7.3.1 複数要因による影響の定量的比較評価

前節までに、複数の熱伝導率への影響要因を試験炉照射試験データをベースに検討したが、ここではこれらを総合的に評価する。

UO₂ 燃料と比較した MOX 燃料の照射による熱伝導率低下に相違が生じる要因は、前節までに検討したように以下のように整理される。

- ①Fissile が不均一に分散相を形成することに起因する低下緩和
- ②Fissile が U→Pu となったことに起因する FP 収率の違いによる低下緩和
- ③Pu スポット部の超燃焼度化による HBS 組織気泡形成による低下促進
- ④Pu スポット部の超燃焼度化による HBS 組織再結晶化による低下緩和

①については、第 5 章にて Pu スポットが存在する場合の MOX 燃料熱伝導率緩和効果について詳細に検討した。その評価結果について、700℃における擬似二相の均一相に対する熱伝導率低下緩和の割合を、分級レベル 50% (分散相体積率 0.25) について図 7.3-1 に示す。

②については、FP 収率の違いによる熱伝導率低下緩和の影響については、第 6 章において MOX 燃料と UO₂ 燃料を比較した結果を、図 6.3-1 及び図 6.4-2 で示した。これらの結果は、燃焼度約 75GWd/t までの ORIGEN 解析計算に基づくものであるが、この結果から求められた燃焼度多項式の回帰式を、算術的に 250GWd/t まで外挿して図 7.3-2 に示す。またこの図ではこれらの効果の積も合わせてプロットした。75GWd/t を超える高燃焼度領域では、UO₂ 燃料と MOX 燃料の間の FP 収率の違いによる効果は、単調に増加するものの徐々に飽和する傾向を示している。燃焼度 250GWd/t までのこれら曲線の妥当性を示す根拠は無いものの、他にこれらの効果の評価する方法が見当たらないので、ここではこの曲線を暫定的に評価に使用する。

両者の効果の積で得られた曲線に対する、燃焼度多項式による回帰式は以下のように得られる。

$$K_{FP}(BU) = 1 + 1.482 \times 10^{-3} BU - 9.989 \times 10^{-6} BU^2 + 3.796 \times 10^{-8} BU^3 - 5.815 \times 10^{-11} BU^4 \quad \dots \dots (7-7)$$

$K_{FP}(BU)$: FP 効果補正係数

BU : 燃焼度 (GWd/t)

③については、7.1.1 項で得られた(7-1)式及び(7-2)式で表されるように、あるしきい燃

焼度を超えると気孔率が増加する効果となる。この気泡形成による係数を K_P として再度以下に整理して示す。

$$K_P(BU) = \left(1 - \frac{0.1 \times (BU - 60)}{95}\right)^{1.7} \quad \dots \dots (7-8)$$

BU : 燃焼度 (GWd/t) [$60 < BU < 250$]

但し、初期熱伝導率は Porosity=0.05 と設定

さらに、④の HBS 組織再結晶化による熱伝導率回復効果は、(7-4)式で示した回復比 RF として表されるが、ここで再度示す。

$$\left. \begin{array}{ll} BU < 50 \text{ GWd/t} & RF(BU) = 1 \\ 50 < BU < 80 \text{ GWd/t} & RF(BU) = (RF_{80}(T) - 1) \times \frac{BU - 50}{80 - 50} + 1 \\ 80 \text{ GWd/t} < BU & RF(BU) = RF(80) \end{array} \right\} \quad \dots \dots (7-9)$$

ここで、

$$RF_{80}(T) = 2.456 \times 10^{-4} \cdot T + 1.118 \quad (673\text{K} < T < 1273\text{K})$$

$$RF_{80}(T) = -1.806 \times 10^{-3} \cdot T + 3.161 \quad (1273\text{K} < T < 1473\text{K})$$

RF : 回復比

BU : 燃焼度 (MWd/kgHM)

T : 温度 (K)

本研究で使用している MOX 燃料熱伝導率の燃焼度依存式は第2章でレビューしたように、照射試験データに基づく Gates らの以下の式 ((2-9)式に同じ) を使用している。

$$k_{95} = \frac{K \cdot 40.4}{464 + 18.4B(1 - 0.003B) + 1.16Gd + (1 - 0.0032B) \cdot T} \quad \dots \dots (7-10)$$

K : 定数 =1(for UO_2), =0.92(for MOX)

Gd : ガドリニア添加組成 (wt%)

k_{95} : 熱伝導率@95%TD(理論密度比) (W/mK)

B : 燃焼度 (MWd/kg UO_2) (注 : $B=0.88BU$)

BU : 燃焼度 (MWd/kgHM)

T : 温度 ($^{\circ}\text{C}$)

(7-7)式、(7-8)式、(7-9)式で示した各々の要因による影響係数は、 UO_2 燃料との比較による係数であることを考慮すると、(7-10)式における MOX 燃料補正係数 K と同等に扱う

ことが可能である。すなわち、以下のように書き直すことができる。

$$k_{95} = \frac{K \cdot 40.4}{464 + 18.4B(1 - 0.003B) + 1.16Gd + (1 - 0.0032B) \cdot T} \quad \dots \dots (7-11)$$

K : 定数 = 1 (for UO₂)
 = 0.92 · $K_{FP}(BU)$ · $K_P(BU)$ · $RF(BU)$ (for MOX)

ここで、3つの要因による影響係数の内、FP蓄積の効果 K_{FP} と HBS 組織再結晶化の効果 RF は本来温度依存性がある。この内、 RF については温度依存性が顕著であるのでその依存性を考慮するが、 K_{FP} についてはその依存性が比較的単調であることから、燃料ペレットの照射下における平均的温度として 700℃ で代表させ、温度に対しては一定の係数として扱う。

Pu スポット (分散相) の効果については、その分散状態に関する情報を入力値として、Schulz モデルのような解析方法を介して、燃焼度と温度毎に計算を行った後、再度、燃焼度・温度依存式として求め直す必要がある。

この分散相効果を解析する際にも、MOX 燃料の熱伝導率式として本研究では(7-11)式を使用しているが、この式に FP 蓄積効果や HBS 組織形成による効果を考慮すると、分散相効果の解析結果にも影響がでると考えられる。

そこで分散相体積率 $c_D = 0.25$ のケースについて、(7-7)式、(7-8)式、(7-9)式で示した各々の要因による影響係数を使用し、Schulz モデルによる擬似二相材熱伝導率計算を行い、これらの緩和効果を考慮しない熱伝導率 (すなわち(7-11)式) との比を燃焼度に対し求めた。

まず、FP 蓄積効果 ((7-7)式) を考慮した 700℃ における結果を、分散相効果のみの結果と比較して図 7.3-3 に示す。FP 蓄積の効果を検討すると、熱伝導率緩和の程度が、分散相による効果に比較し 1.5 倍以上に緩和されることを示し、FP 蓄積の効果が無視し得ない熱伝導率低下緩和の効果があることが分かる。また、これらの効果は燃焼度が伸長するに伴って、比較的単調に変化する挙動であることから、さらなる高燃焼度に進んでも熱伝導率低下が緩和する傾向はある程度持続することが期待できる。

さらに、この上に HBS 組織生成に伴う気泡形成の効果 ((7-8)式) を考慮して、解析した結果を、さらにその上に HBS 組織生成に伴う再結晶化の効果 ((7-9)式) を考慮した解析結果を合わせて図 7.3-4 に示す。

これらの結果を比較すると、Pu スポット部の燃焼度が平均燃焼度に比較し大幅に伸長することによって生成すると推定される HBS 組織の効果は、高燃焼度では FP 蓄積効果と同程度の影響を与える可能性があることが示唆される。本研究のモデルでは、再結晶化のモデルは燃焼度に対し一過性であるのに対し、気泡形成は燃焼度と共に単調に増大

するモデルであるため、さらなる高燃焼度化では熱伝導率緩和効果が抑制される方向に働くと推定される。しかし、このような超高燃焼度領域における照射効果は、その挙動の定量性に現状では大きな不確定性があるため、より高燃焼度領域への外挿性を予測することは現状では無理がある。

従って、このような比較結果から、HBS 組織を形成するような高燃焼度ではその気泡形成や再結晶化現象が、熱伝導率低下に無視し得ない影響を与える可能性が示唆されることより、熱伝導率の燃焼度依存性メカニズムを明らかにする上では、今後 Pu スポット部における HBS 組織形成に伴う気泡形成挙動や再結晶化による回復現象を解明することが重要であると考えられる。

このような不確定性はあるものの燃焼度約 70GWd/t の領域では、熱伝導率低下緩和の程度は、高燃焼度では 10%を超える可能性があることから、MOX 燃料の熱伝導率を UO_2 燃料のそれに対し 8%程度低く設定する現状のモデルから考えると、高燃焼度領域では、熱伝導率低下緩和の効果によってこの違いがなくなり、あるいは UO_2 燃料熱伝導率よりも MOX 燃料の熱伝導率が大きくなる可能性があることを示唆している。このような結果は、照射試験において MOX 燃料の中心温度測定により評価により得られた結果と整合するものである。

尚、図 7.3-4 に示した 700℃における各効果の燃焼度依存性を、燃焼度の多項式として回帰式を求めた結果を以下に示す。

$$K_i(BU) = A_0 + A_1 \times BU + A_2 \times BU^2 + A_3 \times BU^3 + A_4 \times BU^4 \quad \dots \dots (7-12)$$

$K_i(BU)$: 要因 i による二相材/单相材の熱伝導率比

BU : 燃焼度 (GWd/t) [$BU < 75$]

分散相 : $A_0=1, A_1=3.799 \times 10^{-4}, A_2=3.225 \times 10^{-5}, A_3=-4.361 \times 10^{-7}, A_4=2.139 \times 10^{-9}$

分散相+FP 効果 :

$$A_0=1, A_1=1.820 \times 10^{-3}, A_2=1.752 \times 10^{-5}, A_3=-3.090 \times 10^{-7}, A_4=1.700 \times 10^{-9}$$

分散相+FP+HBS [気孔] :

$$A_0=1, A_1=2.411 \times 10^{-3}, A_2=-1.608 \times 10^{-5}, A_3=-1.546 \times 10^{-8}, A_4=6.152 \times 10^{-10}$$

分散相+FP+HBS [気孔+再結晶] :

$$A_0=1, A_1=7.452 \times 10^{-4}, A_2=1.682 \times 10^{-4}, A_3=-3.398 \times 10^{-6}, A_4=1.882 \times 10^{-8}$$

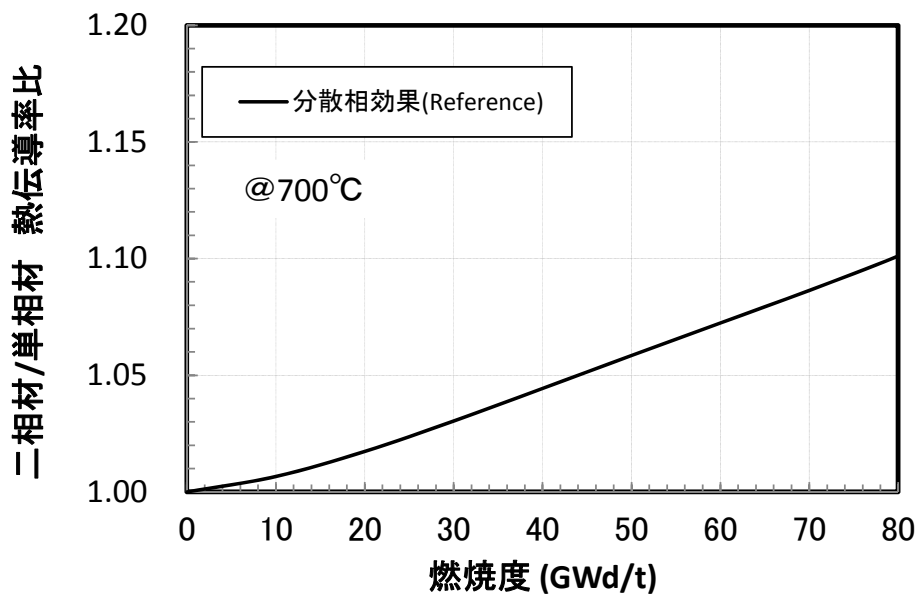


図 7.3-1 分散相効果による熱伝導率低下緩和（分散相体積率 0.25）

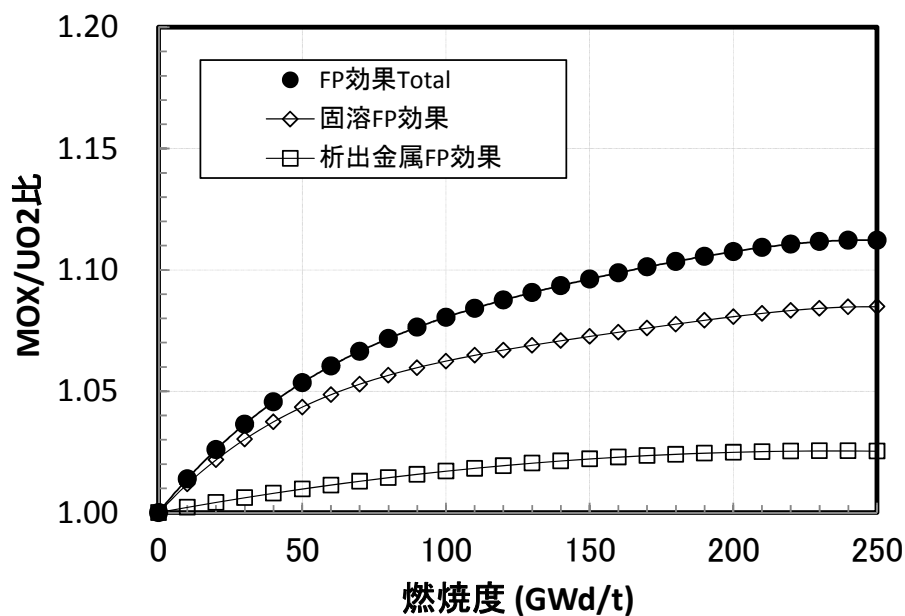


図 7.3-2 FP 蓄積効果による熱伝導率低下緩和の比較

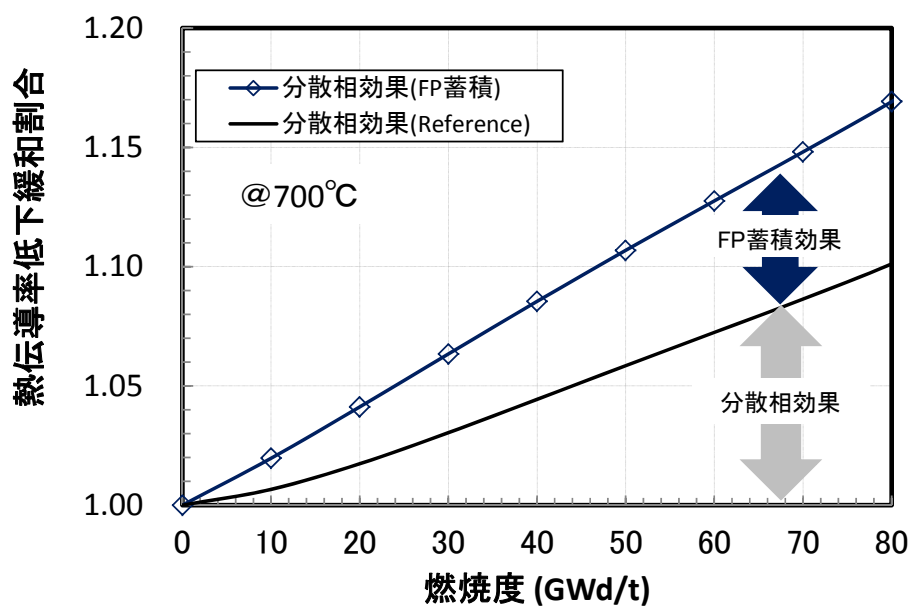


図 7.3-3 FP 蓄積による分散相効果に与える影響比較結果

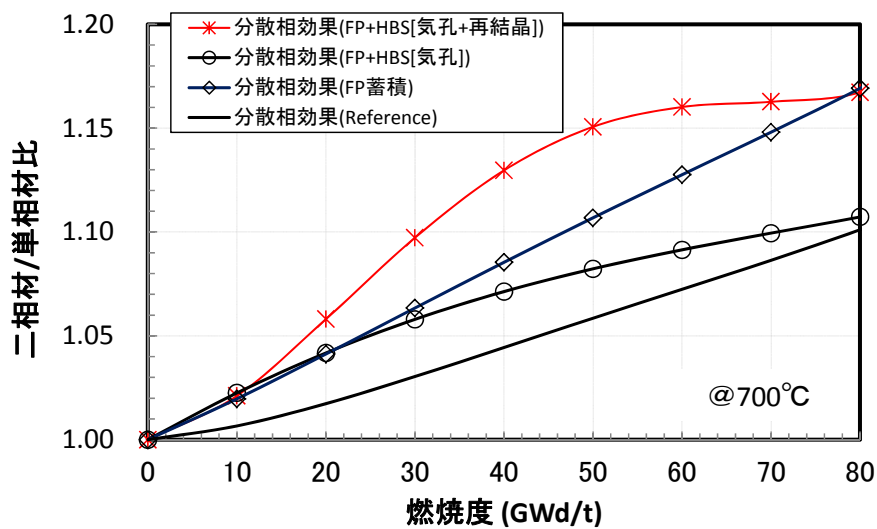


図 7.3-4 複合的要因による熱伝導率低下緩和割合の燃焼度依存性

7.3.2 熱伝導率低下緩和メカニズムの検証

前項までに、本研究で検討した MOX 燃料の熱伝導率低下緩和の定量的メカニズムを評価し、その主要なメカニズムを明らかにした。ここではそのメカニズムモデルを実際の照射データに適用し、照射実験で得られた照射中の燃料温度に対する実証性を検証する。

(1) 照射試験データとの比較

MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムの複数要因について、前項までに熱伝導率の燃焼度依存性の違いを定量的に検討した。ここではこれらの熱伝導率低下緩和モデルを照射挙動解析コードに組み込み、照射下での燃料温度にその緩和効果がどのように現れるか定量的に比較し、また照射実験で測定された MOX 燃料の実測温度とも比較して影響を評価する。照射挙動の解析は、軽水炉燃料の照射挙動解析コードとして日本原子力研究開発機構（旧原研）が開発した公開コードである FEMAXI-6 コード^[14]を使用した。

軽水炉における酸化物燃料の温度解析において、1.3.1 項で概説したように、温度に影響を与える主要な要因として、ペレット内の出力分布、P-C ギャップ熱伝達率、燃料ペレット、被覆管の熱伝導率が挙げられる。

ペレット内の出力分布は、燃焼度に依存してペレット内の径方向の出力分担が徐々に変化するため、燃焼度依存性を把握するには核計算に基づく出力分布モデルが必要である。UO₂ 燃料と MOX 燃料では核特性が異なるので、各々について径方向出力分布の燃焼度による変化を計算する必要がある。本解析では、MOX 燃料への適用が妥当と考えられている PLUTON コード^[15]を使用した。

P-C ギャップ熱伝達率は、ギャップ熱伝達モデルとして FEMAXI-6 コードに用意されている修正 Ross&Stoute モデルを選択して使用したが、P-C 間ギャップにおいてはそのギャップ間の接触状態が最も熱伝達に影響を与えと考えられる。本解析では、燃焼度が約 70GWd/t を超える十分に高い燃焼度であることを考慮し、P-C 間ギャップについては接触してボンディング状態にあるものとして計算した。MOX 燃料ペレットの熱伝導率は、単一相の MOX 燃料の熱伝導率として Halden モデル(7-10)式を使用した。

以下の比較においては、熱伝導率式のみを擬似二相材モデルで得られた式と従来の均一相材の熱伝導率式とで入れ替えた以外は、全て同一条件で比較した。

まず擬似二相材モデルによって得られた、分散相効果による熱伝導率低下緩和について、第 5 章の(5-9)式で得られた熱伝導率燃焼度依存式を照射挙動解析コードに組み込んで、試験炉（Halden 炉）で照射試験をした MOX 燃料の中心温度解析を行って照射中に測定された燃料中心温度実験値と比較した。照射挙動解析によって得られた線出力と燃料中心温度との関係を、MIMAS 法 MOX 燃料の照射試験実測温度の結果と比較して図

7.4-1 に示す。実験結果と比較すると、分散相の効果による熱伝導率低下緩和により、均一相材で解析した結果と実験結果の偏差が明らかに小さくなることが分かり、Pu スポットのような分散相の効果が、熱伝導率低下緩和の主要な要因であると考えられる。しかし、まだ実験結果と解析結果には偏差が残り、この分散相の効果だけでは、十分に MOX 燃料の熱伝導率低下緩和のメカニズムが解明されていないことを示唆している。

次に、7.3 節で得られた分散相効果以外の複数の要因を考慮した熱伝導率低下緩和について、(7-12)式の中の分散相+FP+HBS [気孔+再結晶]効果を考慮した式を組み込んで、照射試験データと比較した結果を図 7.4-2 に示す。熱伝導率低下緩和の燃焼度依存性を評価した図 7.3-4 から予想されるように、燃焼度約 70GWd/t を超える領域では、緩和の効果が分散相効果に比較してその他の要因効果は若干小さいものの、有意な緩和効果が期待される。図 7.4-2 においても、熱伝導率低下緩和の効果により、分散相効果のみの結果に比較して、燃料中心温度の解析結果は低く、実測値に近づく傾向が得られた。しかし、その効果は前述の通り分散相の効果に比較すると小さい傾向にある。

以上の解析結果を踏まえると、MOX 燃料の熱伝導率低下緩和のメカニズムを考慮した熱伝導率式を導入することにより、Pu 濃度が不均一な MIMAS 法 MOX 燃料において燃料温度の予測性が大幅に改善されることから、本研究で検討した MOX 燃料熱伝導率低下緩和のメカニズムがその主要な要因であることが確認できた。

しかし、まだこれらモデルによる解析結果と実測値の間には、有意な偏差が見られ、熱伝導率低下緩和メカニズムだけでは、全て説明できない要因が存在すると考えられる。次項ではそのような熱伝導率以外の考えられる要因について検討する。

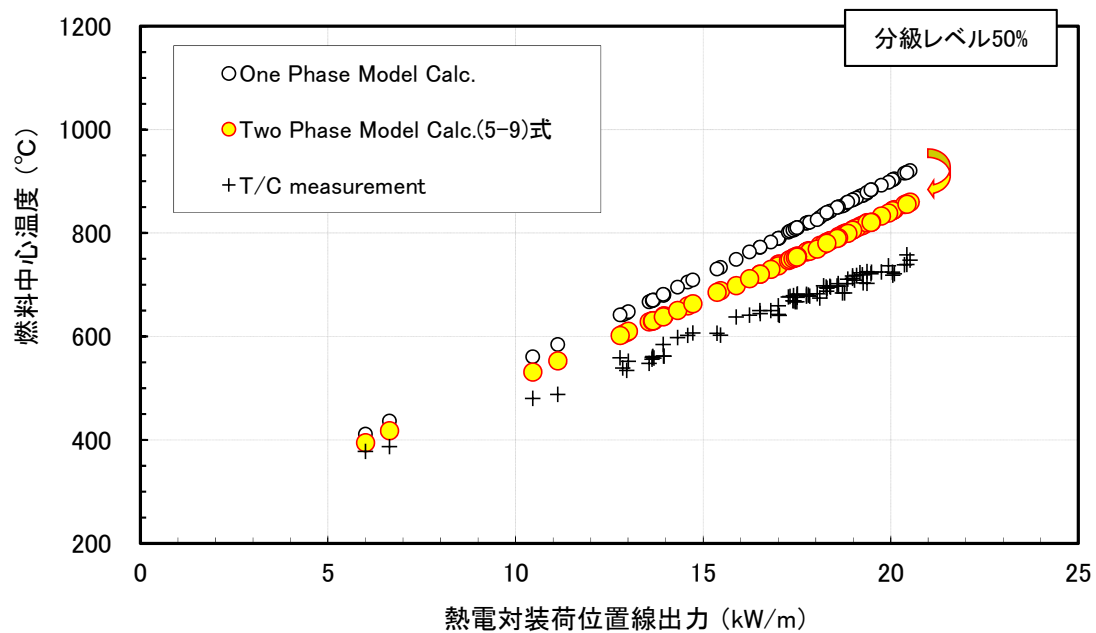


図 7.4-1 擬似二相モデルによる熱伝導率燃焼度依存式を使用した燃料温度解析結果と照射試験結果の比較

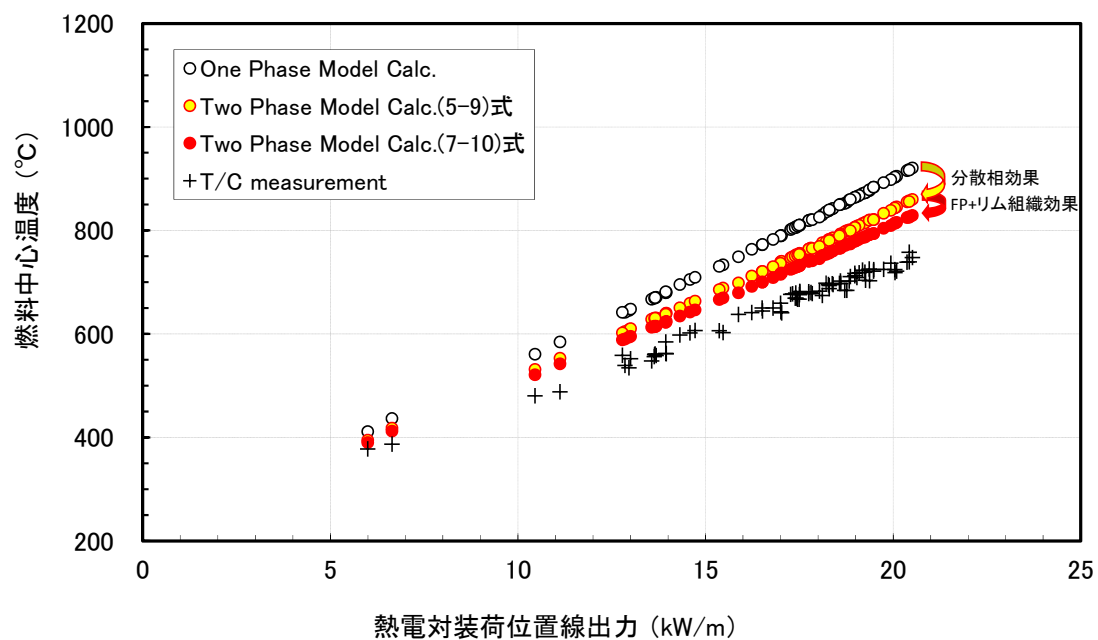


図 7.4-2 複数要因を考慮した熱伝導率燃焼度依存式を使用した燃料温度解析結果と照射試験結果の比較

(2) MOX 燃料中心温度の不確定性要因

前項で示した、照射挙動解析コードを介した照射中燃料温度と照射実験による実測温度との比較においてまだ不一致があることの解釈には、両者において各々不確定性が考えられ、その不確定性についても考慮する必要がある。

まず、燃料照射挙動解析（FEMAXI-6）による、主要な不確定要因として以下が挙げられる。

- ・ 径方向出力分布モデルの不確定性
- ・ P・C ギャップコンダクタンスの不確定性
- ・ ペレット熱伝導率の不確定性

また、照射実験における温度測定による、主要な不確定要因として以下が挙げられる。

- ・ 熱電対測定誤差
- ・ 熱電対偏心による系統的誤差

① 燃料照射挙動解析（FEMAXI-6）による不確定要因について

FEMAXI-6 における燃料中心温度（ T_0 ）計算の基本式は下式である。

$$\frac{T_0(t+\Delta t)-T_0(t)}{\Delta t} \cdot C_V = -(T_0(t)-T_r(t)) \cdot k(T)/s_r + Q(r,t) \cdot q(t) \quad \dots \dots (7-13)$$

ここで、

- $T_r(t)$: 時刻 t の半径位置 r における温度 (K)
- C_V : 体積熱容量 (J/Km³)
- $k(T)$: 燃料ペレット熱伝導率 (W/mK)
- $q(t)$: 単位体積の時刻 t における発熱量 (W/ m³)
- $Q(r,t)$: 時刻 t の半径位置 r における出力分担比 (—)
- s_r : ノード界面面積 (m²)

これより、定常状態では下式が成立している。

$$(T_0(t)-T_r(t)) \cdot k(T) = Q(r,t) \cdot q(t) \cdot s_r \quad \dots \dots (7-14)$$

従って、同一線出力においても、半径方向出力分担比に依存して中心温度に違いが生じることを示している。この半径方向出力分担比は、照射期間中一定ではなく、燃焼が進むに従って変化するので、詳細な燃焼度依存性を決めるためには核計算による解析を必要とする。UO₂ 燃料と MOX 燃料で比較すると核分裂核種が異なるので、こ

の半径方向出力分担比の燃焼度依存性は、若干違いが生じる。従って、この核計算による解析は、 UO_2 燃料だけではなく MOX 燃料にも適した解析を行う必要がある。

FEMAXI-6 では、径方向出力分担比を決めるツールとして幾つかの選択肢があるが、その中で MOX 燃料の半径方向出力分担比を計算する燃焼計算コードとして、PLUTON と RODBURN が用意されている。本研究では、前項で述べたように MOX 燃料に対しある程度の実証性があると考えられる PLUTON を選択したが、本研究のような高燃焼度における実証性については今後もデータ蓄積による検証は必要と考えられ、その不確定性は十分に明らかではない。

本研究における高燃焼度までの出力分担比の燃焼度による変化について、PLUTON と RODBURN を使用して計算した結果^[16]を比較して図 7.5-1 に示す。この計算結果においては、MOX 燃料では RODBURN に比較して PLUTON による半径方向出力分担比では、高燃焼度になるに従い中心部の出力分担が相対的に増大する傾向が顕著であるが、 UO_2 燃料では解析コード間の違いは MOX 燃料ほど顕著ではない。

よって、PLUTON コードでは MOX 燃料において、RODBURN コードに比較すると、燃料中心温度を過大に評価する可能性が推定され、この燃焼計算コードの選択によっては、熱伝導率低下緩和の評価にも影響が出る可能性が考えられる。

しかし、これらの燃焼計算コードの実証性を検証するには、例えば照射後試験におけるペレット径方向の燃焼度分布を詳細に測定したデータ等による比較検討が必要と考えられ、現状では本研究においてそこまでの検証が困難であり、今後の課題と考えられる。

次に P-C ギャップコンダクタンスの不確定性については、ペレットと被覆管のギャップ (P-C 間ギャップ) が存在している場合には、その P-C 間の距離や、ギャップの気体熱伝導率に大きく依存する。P-C 間の距離は、燃料被覆管の照射期間中のクリープダウンによる内径減少と、燃料ペレットの緻密化・スウェリングに伴う体積変化 (すなわち外径変化) のような、燃焼に伴って変化する複数の要因に依存する。照射開始段階においては、径方向温度分布の違いによって燃料ペレットは半径方向クラックが発生して複数の破片に割れ、それによってペレット片が半径方向に再配置される現象が起きる。この再配置は比較的ランダムな現象のため、P-C 間ギャップを正確に予測することが難しく、また燃焼度には基本的に依存せず、主に照射初期に大きく変化する事象である。

またギャップ中の気体には初期 He 以外に照射中の FP ガス放出に伴い、主に Kr, Xe ガスの組成が増加して気体熱伝導率の低下を招くためその FP ガス放出率にも依存してくる。このように P-C 間ギャップが存在すると、多くの燃焼度に依存した要因によってギャップコンダクタンスが変化するため、精度良く予測することが難しい。しかし、高燃焼度ではペレットのリロケーションとスウェリングにより、P-C 間のギャップ

は殆ど消失し、癒着した状態になることが予測されている。このような状態となると、熱伝達が殆ど固体間の熱伝導となり、燃焼度に依存した不確定性が格段に小さくなると考えられる。

Halden 炉における IFA-626 による照射試験（1.3.2 項参照）において、ペレット最高で約 70GWd/t の燃焼度まで照射した、MIMAS 法 MOX 燃料の照射後外径測定結果を図 7.5-2 に示す^[17]。この照射後における外径測定では、被覆管の外面腐食やクラッドの付着によると推定される外径増加が認められるが、明確なクリープダウンによると考えられる外径減少は認められなかった。

この燃料要素の照射期間中における燃料ペレット体積変化は、炉内計装による燃料ペレットスタック長変化として測定されている^[18]。測定結果を図 7.5-3 に示す。この測定結果から、MIMAS 法 MOX 燃料の燃焼に伴うペレット寸法増加は、ほぼ直線的に増加することが明らかとなっており、その増加量は従来固体スウェリングと呼ばれる変化量 10GWd/t 当り $0.6\% \Delta V/V_0$ にほぼ一致している。

Halden 炉照射試験の MIMAS 法 MOX 燃料では、製造時の直径ギャップは約 $170\mu\text{m}$ だが、照射初期のリロケーションでは、平均でその約 40%が減少すると考えられており^[19]、約 $70\mu\text{m}$ 減少すると考えられる。ペレットのスウェリングによるギャップの減少は、70GWd/t の燃焼度ではペレット外径を約 8mm とすると、 $8\text{mm} \times 0.6\% / 3 \times 7 = \text{約 } 110\mu\text{m}$ である。さらに、出力運転時には、被覆管と燃料ペレットの熱膨張差（被覆管<燃料ペレット）により約 $30\mu\text{m}$ 前後のギャップ閉塞が考えられる。これらを総合的に考慮すると、ほぼ初期のギャップは閉塞されていると推定することができる。

以上の検討は、 UO_2 燃料と MOX 燃料のいずれにも適用できることから、P-C 間ギャップは本研究で対象とする高燃焼度下ではほぼ閉塞しており、 UO_2 燃料と MOX 燃料との比較におけるその不確定性はほぼ無視し得るものと考えられる。

燃料ペレット熱伝導率そのものの不確定性としては、高燃焼度化による気泡形成による熱伝導率低下の効果や、Pu スポット部で燃焼度が平均値に対して数倍もの高燃焼度に達する影響等が主要な要因として挙げられるが、これらについては本章 7.1 節及び 7.2 節にて検討を行った。

② 照射実験における不確定要因

照射実験における燃料温度測定には、IFA-626 の照射を終了した燃料要素に、新たに熱電対計装を装着して IFA-702 照射試験が行われた^[20]。熱電対は、燃料の中心温度を測定するため、照射後の燃料ペレットスタック長の内、高燃焼度側の領域にあるペレットについて、燃料ペレットの中心部に熱電対挿入用の新たな孔を穿孔し、そこに装着している。

熱電対自身の温度測定精度については、予め炉外で実施した校正により $\pm 0.4^{\circ}\text{C}$ 以内であることが確認されている。

照射中における温度測定誤差要因として、熱電対の先端位置がペレット中心部から偏心することによる系統的な誤差が大きな要因として考えられる。このような熱電対位置の偏心について、IFA-702 照射試験後にホットセルにおいて照射した燃料要素の熱電対先端位置を切断し、その横断面観察から偏心量を調べた。その結果、MIMAS 法 MOX 燃料以外の燃料要素の偏心は僅かで問題ないものの、MIMAS 法 MOX 燃料要素では明確な偏心が観察され、その影響を試算したところ燃料の線出力が約 16kW/m において、 30°C 程度になる可能性が推定された^[21]。このような偏心により、MIMAS 法 MOX 燃料では実測温度が若干過少に測定される可能性が示唆された。

③ 今後の検討課題

以上のような、主要な不確定要因の検討結果から、本研究成果による MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムだけでは説明しきれなかった、燃料中心温度の実験値と解析予測値との偏差については、解析上の熱伝導率以外のモデルにおける不確定性や実験上の誤差等による可能性が高いことが分かった。

今後、熱伝導率低下緩和メカニズムの定量的精度を向上して検証してゆく上でも、実験値の系統誤差を定量的に明らかされること、またペレット内の半径方向出力分担比については、 UO_2 燃料と MOX 燃料の間の違い、また高燃焼度における振る舞いなど、まだ十分に明らかになっていない点があり、これらについて核計算に基づく詳細な検討や、高燃焼度における照射データ蓄積等による検証をされることが期待される。

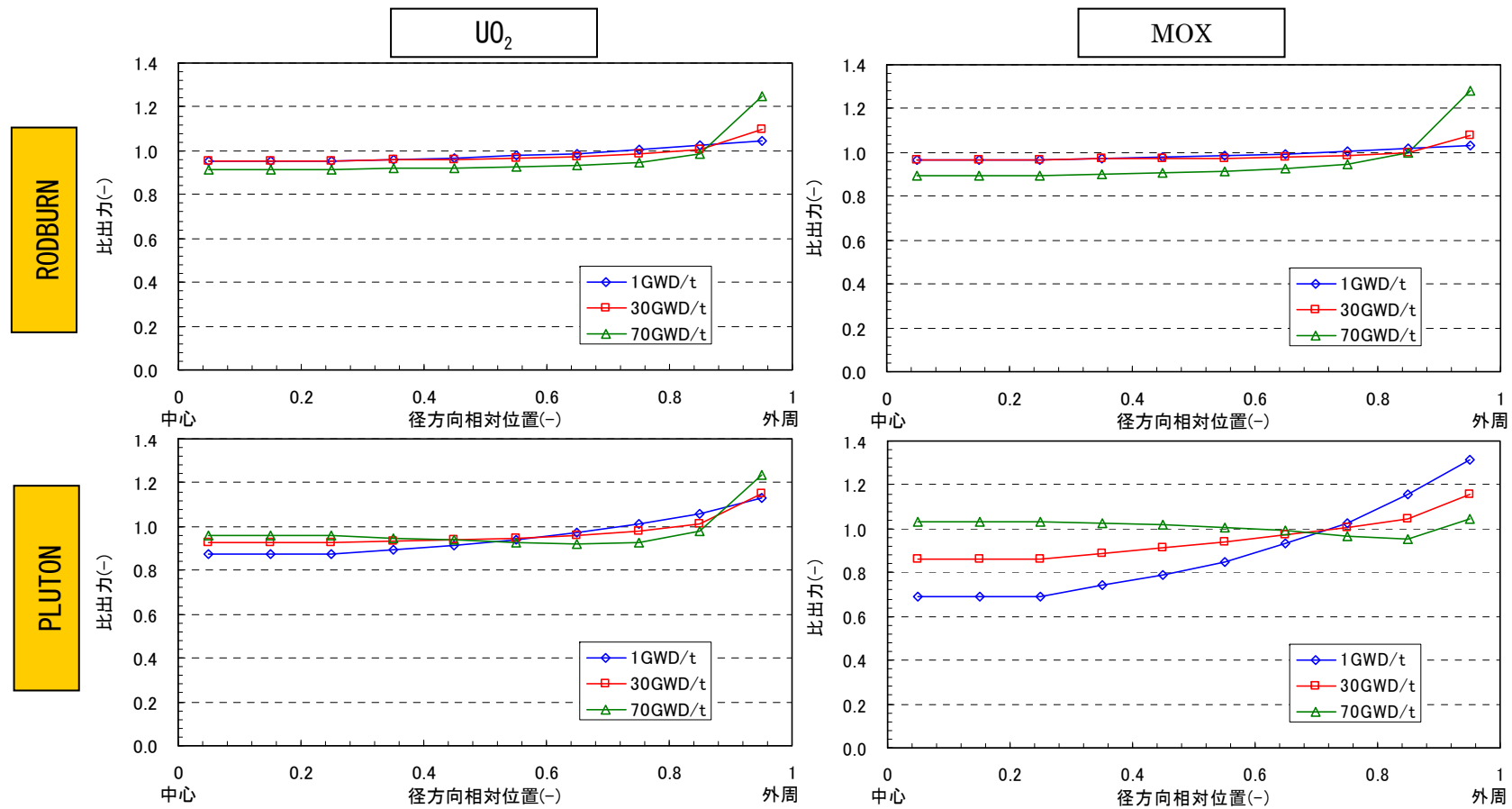


図 7.5-1 RODBURN 及び PLUTON による半径方向出力分担比の計算結果比較^[16]

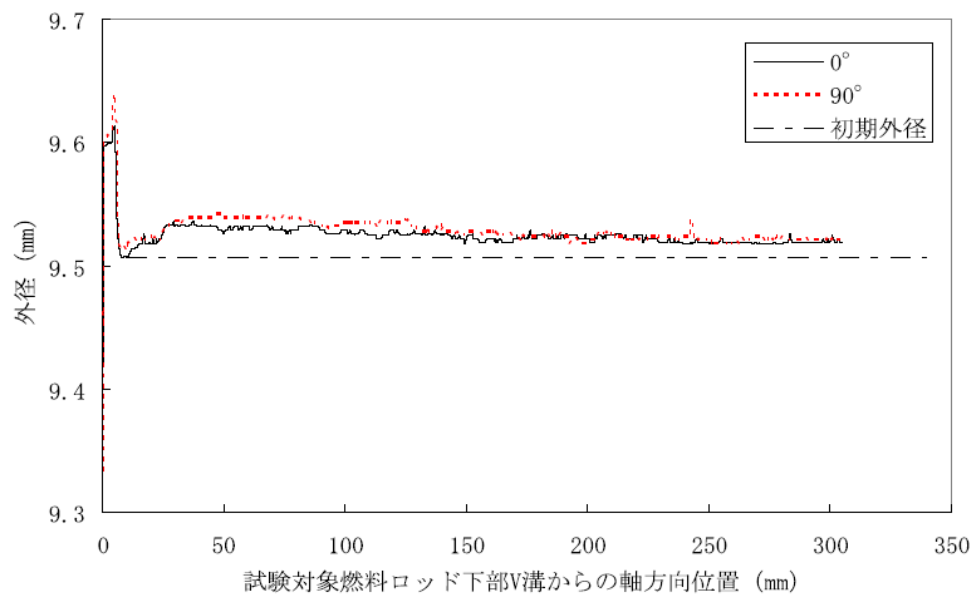


図 7.5-2 IFA-626 照射後における MIMAS 法 MOX 燃料要素の外径測定結果^[17]

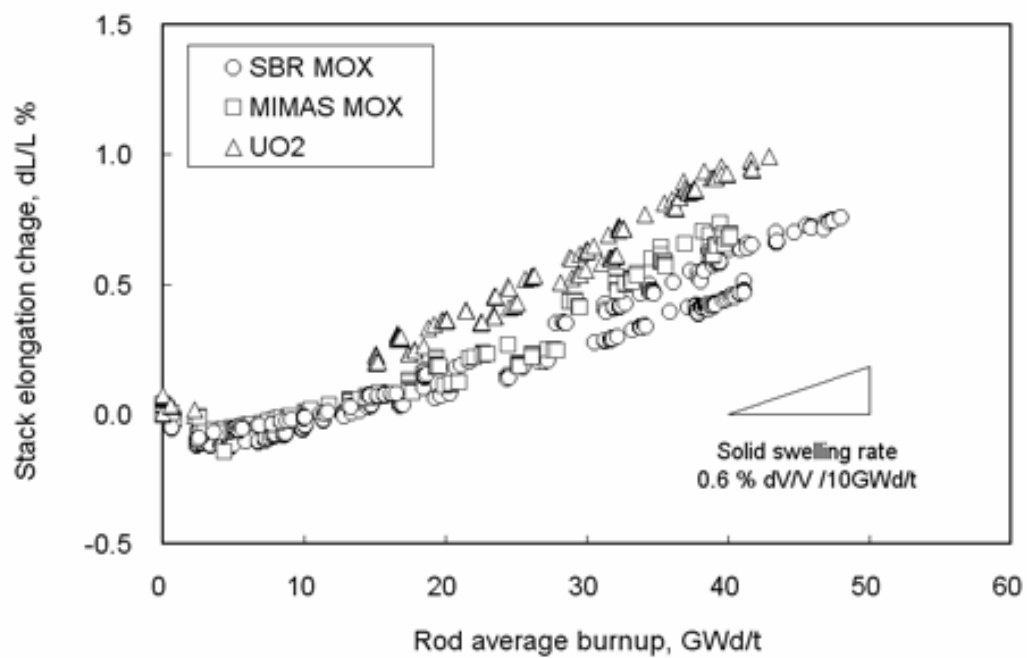


図 7.5-3 IFA-626 照射期間中における燃料スタック長変化測定結果^[21]

7.3.3 考察

(1) MOX 燃料熱伝導率低下緩和メカニズム

本研究では、照射試験の燃料中心温度測定データの評価から、MOX 燃料の熱伝導率低下が、 UO_2 燃料に比較して緩和される可能性を示唆し、特に Pu 濃度が不均一な MOX 燃料ほど緩和の程度が大きいことを指摘し、その推定メカニズムを提案した。その主要なメカニズムとして、U と Pu の FP 収率差による緩和効果と、製造時における Pu 濃度不均一に起因する二相材効果による緩和効果を提案し、その定量化を行った。さらにこれらのメカニズムに加えて、局所的な超高燃焼度化によるこれら緩和効果への複合的な影響を総合的に評価し、以下を明らかにした。

FP 収率差による緩和効果と、Pu 濃度不均一による緩和効果は、定量的な比較評価結果から、いずれも MOX 燃料熱伝導率低下を緩和する主要な要因であることが分かった。本研究で対象とした MIMAS 法 MOX 燃料は、標準的な製法によるものであり、その Pu 濃度分布に基づく不均一性による緩和効果は、他の要因と比較して最も主要な熱伝導率低下緩和効果があることが分かった。

これらの高燃焼度化による複合的效果も含めた緩和効果を考慮した、MIMAS 法 MOX 燃料の中心温度評価結果は、従来熱伝導率モデルによって観測された実験値との大きな偏差を大幅に改善できることから、本メカニズムの妥当性が裏付けられた。

FP 収率差の緩和効果は、製造時の Pu 濃度均一性に依存せず、MOX 燃料全般における低下緩和メカニズムと考えられる。従って、単純化して言うと、SBR 法 MOX 燃料では、主としてこの FP 収率差の効果が、MIMAS 法 MOX 燃料では、さらに Pu 濃度不均一性効果が加わった緩和効果が、熱伝導率低下緩和の主要因であったと考えることができる。このことは照射試験時の燃料中心温度測定結果において、 $UO_2 > \text{SBR 法 MOX} > \text{MIMAS 法 MOX}$ の順で温度が低くなっていたことと定性的には整合しており、実験結果を定性的にこれらメカニズムで説明が可能であることが分かる。また、このような考察から、Pu 濃度の均一性が良好な SBR 法 MOX 燃料の熱伝導率低下緩和は FP 収率差の緩和効果が支配的であったと解釈される。

また、本研究の定量的な解析評価の成果として、既存の測定法によって得られる Pu 濃度分布に関する製造時燃料ペレット特性データを使用し、既往の解析手法を適用することによって、MOX 燃料固有の Pu 濃度不均一性による緩和効果を考慮した熱伝導率の燃焼度依存性を、より精度良く定量的に予測する手法を見出すことができた。

但し、本研究による熱伝導率低下緩和の評価手法には、燃焼度に依存した複数の材料特性変化モデルが寄与しており、これらは局所的な超高燃焼度領域までの燃焼度依存性を必要とするものがあるが、その定量性については十分なデータの裏付けが乏しいことは否定できない。しかし、これらのモデルの燃焼度依存性は、基本的にはそのメカニズ

ムにより予測される依存性を具備していると考えられ、現状 MOX 燃料の実用上必要とされる燃焼度領域（ペレット平均燃焼度約 80GWd/t）までの外挿による予測評価は可能と考えられる。

(2) 工学的な有用性

燃料ペレットの熱伝導率は、原子炉（あるいは原子炉システム）の中で最も高温となる領域の温度を評価するために必須の物性である。その観点から、燃料ペレットの熱伝導率は、非常に高い放射線場であることも含め、過酷な環境下における構造物（燃料棒）の熱機械設計と、さらには原子炉システム全体の安全評価解析においても、必須の物性値であると言える。ここでは、このような工学的位置づけにおける、本研究で得られた熱伝導率低下緩和に関わる成果の有用性について述べる。

① 燃料設計

燃料設計の主要な目的は、使用寿命期間中に健全に照射可能とする機械設計を行うことにある。そのため最確値による照射挙動を把握した上で設計を行うことは重要であるが、設計に用いる物性値等のモデルは健全性を確保する上で保守性が担保されれば、必ずしも最確値が明確でない場合もあり得る。その場合、設計裕度がどの程度あるかを知ることが重要となる。

MOX 燃料の材料特性に関する従来の一般的な知見からは、 UO_2 マトリックス中に Pu 原子が固溶するため、MOX 燃料の熱伝導率は UO_2 燃料に比較し低下すると考えられ、さらに、製法によっては Pu スポットが形成され局所的に燃焼度が大きく伸長する可能性があるため、MOX 燃料では熱伝導率低下がより促進される可能性も考えられた。しかし、本研究成果により、Pu 固有の核的特性により FP の蓄積による熱伝導率低下が UO_2 燃料よりもむしろ緩和されること、また仮に Pu スポットが存在してもそれは熱伝導率低下を促進するよりむしろ緩和する要因となることが示された。このことは、MOX 燃料熱伝導率の燃焼に伴う低下のモデルを、 UO_2 燃料のそれと同等としてきた従来のモデルが、燃料温度を過大に評価することをそのメカニズムにより説明するものであり、現状モデルの保守性について説明性を向上させることができる。

本研究成果で得られた、熱伝導率低下緩和モデルを実用の燃料設計に適用するためには、今後定量性の検証が不可欠と考えられること、また、Pu スポットのような不均一性の依存性を定量評価するためには、実際に使用する MOX 燃料個々の製造時データに依存するため、設計モデルとしてこれをどのように取り扱うかは、燃料設計者/製造者にて考え方を構築する必要があると考えられるが、モデル構築により、より合理的で信頼性を向上した MOX 燃料設計に資することが期待される。

② 安全評価

一方、原子炉システムの安全評価においては、物性値等のモデルの保守性によってシステムの安全性を確保する考え方があるが、事故時の挙動や事故シナリオを解析し評価する場合には、挙動を正確に把握する上で可能な限り最確値に近いモデルによる評価が重要となってくる。その観点で、単にモデルの保守性の積み重ねによるのではなく、確率論的な手法を取り入れた安全解析評価の考え方が導入されてきている。

本研究成果により、前出の燃料設計にて述べたように、MOX 燃料熱伝導率の低下緩和について、その主要なメカニズムを明らかにした。この成果を踏まえると、定量性についてはまだ不十分であるものの、安全評価上のモデルの中で、MOX 燃料の温度挙動を説明シナリオの中で考慮する 1 つのメカニズム要素となり得ると考えられる。

(3) 課題と提言

本研究の成果を踏まえた、今後の検討課題と提言について以下に示す。

本研究成果の検証

① 照射ペレットの熱伝導率測定

本研究で提案した、MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムについて、燃料中心温度による間接的な実証を行っているが、今後、照射実験で使用した照射済みの MOX 燃料ペレット材の熱伝導率を直接測定し、合わせて熱伝導率に影響を与える材料特性データも取得して、緩和メカニズムの検証を行うことが望まれる。

② 照射試験温度測定 of 熱電対偏心評価

Halden 炉照射実験燃料における、熱電対位置の偏心量の確認と、その測定温度への影響評価が望まれる。

高燃焼度外挿精度の向上

③ Pu スポット部組織変化に関する知見拡充

Pu スポット部のような、超高燃焼度に達する領域における組織変化（気泡形成や照射欠陥回復）は、まだ十分解明されておらず、熱伝導率の外挿する上で、大きな不確定要因となっており、特に UO_2 燃料高燃焼度組織との相違の有無に着目したデータ蓄積が期待される。

④ 燃焼度評価手法の高度化

Pu 濃度不均一性に起因する二相の燃焼度配分については、本研究では両相の燃焼度比が製造時の Pu 濃度比と同等との仮定を置いたが、実際には特に高燃焼度でこの仮定から外れる可能性が考えられる。高燃焼度への外挿予測精度を向上する上では、特に Pu 濃度の高い領域での燃焼度評価の精度をあげることが重要であり、その評価

手法の高度化が望まれる。

⑤ MOX 燃料製造時データの拡充

本研究で明らかにした、MOX 燃料の熱伝導率低下緩和モデルには、燃料ペレット中の Pu 濃度分布に関する定量データが必要となる。しかし、一般の工業的な大量生産を行う MOX 燃料製造工程では、製造時のルーチン検査においてこのような Pu 濃度分布に関する個別の定量データは取得されないのが一般的である。商業炉での炉内照射挙動に本モデルを反映してゆく上では、定量的な Pu 濃度分布のデータを代表性が担保される手法によって取得する検査システム構築が望まれる。

7.4 まとめ

本章では、第6章までに検討した熱伝導率低下緩和の主要なメカニズム要因に対し、高燃焼度で課題となる高燃焼度組織形成に伴う気孔率の増大、化学量論組成の変化、照射欠陥の蓄積の影響について検討を加え以下の結果を得た。

- (1) 高燃焼度化による効果では、特に高燃焼度になってから発現すると考えられる HBS 組織形成に伴う気孔率の増加による熱伝導率低下への影響、再結晶化による熱伝導率の回復が、重要であると考えられた。
- (2) 高燃焼度 HBS 組織形成の影響について、熱伝導率を低下させる気孔率増加の定量的な評価モデルや、再結晶化に伴う熱伝導率回復モデルを HBS 組織組織変化に関する報告データを基に作成した。
- (3) MOX 燃料のような Pu スポット部が分散相として存在する場合には、Pu スポット部ではペレット平均の2倍以上にも達する超高燃焼度になることが予測され、その領域での熱伝導率を既往の研究モデルを基に推測し、擬似二相材の熱伝導率への影響を定量的に評価した。その結果 Pu スポット部で非常に燃焼度が高く熱伝導率が低下しても、二相材としてのバルクの熱伝導率は、均一材のそれに比較して低くならないことを確認した。
- (4) MOX 燃料の熱伝導率低下を緩和させる主な要因として、FP 蓄積効果と分散相効果の2つが考えられ、これらを総合的に評価した結果、燃焼度約 75GWd/t の高燃焼度において、その寄与は後者の方が前者よりも大きい傾向にあるが、照射下での熱伝導率評価においては、両者について考慮する必要があることが分かった。
- (5) これに加えて、高燃焼度化による HBS 組織形成の影響について定量的に評価し、約 70GWd/t の高燃焼度においては熱伝導率低下緩和に与える影響は限定的で顕著な違いを与えないことを明らかにした。
- (6) 熱伝導率低下緩和の程度は、高燃焼度では 10%を超える可能性があることから、MOX 燃料の熱伝導率を UO_2 燃料のそれに対し 8%程度低く設定する現状のモデルから考えると、高燃焼度領域では、熱伝導率低下緩和の効果によってこの違いが無くなり、あるいは UO_2 燃料熱伝導率よりも MOX 燃料の熱伝導率が大きくなる可能性があることが分かった。
- (7) 熱伝導率低下緩和の効果を考慮した MOX 燃料熱伝導率を燃料挙動評価コードに組み込み、照射中の燃料温度を評価して照射実験による測定結果と比較し、本研究で検討した主要な熱伝導率低下緩和メカニズムを考慮することにより、燃料予測性が顕著に向上することを確認した。しかし、予測と実測の間にはまだ有意な偏差が存在し、実験や解析における不確定要因の影響があることを指摘した。
- (8) 本研究で解明した MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムの工学的な有用性について、低下緩和モデルを実用的な設計に適用するには定量性の検証が必要であるが、現

行の MOX 燃料設計におけるメカニズムに基づく設計裕度の説明性向上や、安全評価における説明シナリオ中で考慮するメカニズム要素となり得ることを示した。

本研究で得られた MOX 燃料における熱伝導率低下緩和の評価モデルは、複数の不確定性要因を含むため、燃料ベンダーが使用する燃料設計評価に直接適用するには、定量性の観点でまだ検討の余地があると考えられるものの、緩和のメカニズムを考慮する上では有用なモデルとなるものと考えられる。

第 8 章

結 論

本研究は、燃焼に伴って酸化物燃料の熱伝導率が低下する事象について、従来の UO_2 燃料の熱伝導率低下に比較し、MOX 燃料においてその低下が緩和される主要なメカニズムを、特に局所的に Pu 濃度が高い領域 (Pu スポット) が存在し、燃焼が空間的に不均一な効果に着目して解明し、定量的に評価する手法を確立することを目的とした。この目的に対し、以下の成果を得た。

第 1 章では、我が国における MOX 燃料利用の状況を概観するとともに、高燃焼度の MOX 燃料照射試験において、照射下燃料温度実測データの解析結果から MOX 燃料が UO_2 燃料に比較し、熱伝導率低下が緩和される事象が報告されていることを示した。その熱伝導率緩和メカニズム要因について 6 つの主たる要因を提示し、これらの中でも製造時の特性に起因すると考えられる、MOX 燃料中の Pu 濃度不均一によるメカニズムの解明は MOX 燃料を実用規模利用する上で、工学的に重要度が高いと考えられ、そのメカニズム解明を中心として、本研究の目的を設定した。

第 2 章では MOX 燃料の熱伝導率の燃焼度依存性に関する既往の研究報告を調査し、MOX 燃料熱伝導率の支配的メカニズムは、原子炉での実用的温度範囲ではフォノン伝導が支配的であり、照射による低下についてフォノン-格子散乱項の変化として扱うことが妥当であることを明確にした。既往研究では、MOX 燃料の燃焼に伴う熱伝導率低下については、 UO_2 燃料のそれと同等と扱われ、 UO_2 燃料の研究で得られている熱伝導低下モデルがそのまま MOX 燃料に適用されているのが現状で、両者の熱伝導率低下の違いを説明できるモデルの報告例が無いことを明らかにした。

第 3 章では MOX 燃料の結晶構造における特徴を UO_2 燃料との比較において示し、MOX 燃料では蛍石型結晶構造を有する UO_2 の金属 U 原子が Pu 原子で置換型固溶する構造であり、U と Pu のイオン半径差や質量差によって結晶構造歪が生じるため、熱物性等が Pu 濃度に対し連続的に変化する影響を受けることを整理した。また、軽水炉用 MOX 燃料の複数の工業的な製法を整理し、製造方法により燃料ペレット内 Pu 濃度の空間的な不均一分布が生じることを明らかにした。Pu 濃度の高い Pu スポット部は、燃料ペレット内で分散相を形成し、一方非 Pu スポット部は連続相を形成し、このような Pu 濃度不均一は、原子炉内における燃焼の不均一を生じる。燃料マトリックス中で連続相を形成する非 Pu スポット部は、バルクの平均燃焼度に対し燃焼度が低く抑えられるため、熱伝導率低下が平均燃焼度のそれに比べて緩和され、これによってバルク熱伝導率低下も緩和されるとする、MOX 燃料製造時特性に依存したバルクの熱伝導率低下緩和メカニズムを提示した。

第 4 章では Pu スポットが存在する MOX 燃料を擬似二相材として熱伝導率と取り扱う計算モデルとして、Schulz モデルを選定し、その適用性について実験データと FEM 解析により明らかとした。その結果、分散相と連続相の熱伝導率比、分散相の形状、分散相の分布個数密度について適用範囲を明確にすることができ、MOX 燃料の Pu スポット条件に適用できることを確認できた。

第5章では、照射実験で使用した MOX 燃料の製造時データを基に、分散相 (Pu スポット部) と連続相 (非 Pu スポット部) における体積割合、各相平均 Pu 濃度を求める方法を検討し、EPMA による Pu 濃度マッピング画像の画像解析定量化手法により、これらの情報を妥当に得られることを示し、擬似二相材として MOX 燃料熱伝導率を評価のための照射前 MOX 燃料特性データを取得した。さらに、得られた照射前 MOX 燃料の Pu スポットに関わる特性データを入力値として、Schulz モデルによる解析計算を実施した。Pu スポットが存在するような擬似二相材と均一な単相材との熱伝導率低下を求め、その比較を行った結果、擬似二相材の熱伝導率は、燃焼度とともに、単相材の熱伝導率低下に比較し、徐々に低下が緩和されることを明らかにした。

第6章では、MOX 燃料熱伝導率低下緩和の要因として、核分裂生成物 (FP) 収率の MOX 燃料と UO_2 燃料の相違に着目し、その違いの影響を定量的に評価した。照射実験の照射履歴を基に、ORIGEN コードを使用して固溶性 FP 元素の収率と析出性金属 FP 元素の収率を各々について計算した。その結果から、MOX 燃料の方が固溶性 FP 元素の収率は小さく、析出性金属 FP 元素は大きいことを示し、これら収率の相違による熱伝導率低下への影響を定量的に評価した。その結果、固溶性 FP 元素蓄積、析出性 FP 元素蓄積のいずれも、 UO_2 燃料に比較し熱伝導率低下を緩和させる効果があることを示し、特に前者の効果が大きいことを明らかにした。

第7章では、前章までに検討した複数の要因による MOX 燃料熱伝導率低下への影響について、高燃焼度化の影響も加えて総合的に評価した。Pu スポット部では平均燃焼度に比較し、2 倍を超える非常に高い燃焼度に達すると推定されるが、その熱伝導率低下については不確定性が大きいものの、擬似二相材で得られるバルクの熱伝導率の低下は、均一相のそれと比較しても緩和されることが確認できた。燃焼の伸長に伴う熱伝導率低下緩和の要因として、FP 収率差の効果と Pu 濃度不均一の効果为主要なメカニズムであることを示し、高燃焼度においては、FP 収率差効果に比較し Pu 濃度不均一効果が熱伝導率低下緩和により影響が大きいことが分かった。この熱伝導率低下が緩和する結果を適用して、照射試験の燃料中心温度を燃料挙動解析コードにより再評価した結果、熱伝導率低下緩和を考慮しない解析結果に比較しより実測温度に近い結果が得られ、本研究で検討したメカニズムが、Pu 濃度が不均一な MOX 燃料における熱伝導率低下緩和の主要なメカニズムであることが裏付けられた。しかし、まだ実測温度と解析予測温度には有意な差が残り、これらの要因として、実験上の温度測定における不確定性や、燃料温度解析におけるペレット半径方向出力分担比の燃焼度依存性に課題があることを指摘した。

本研究の定量的な解析評価の成果として、既存の測定法によって得られる Pu 濃度分布に関する製造時燃料ペレット特性データを使用し、既往の解析手法を適用することによって、MOX 燃料固有の Pu 濃度不均一性による緩和効果を考慮した熱伝導率の燃焼度依存性を、より精度良く定量的に予測する手法を見出すことができた。

本研究で解明した MOX 燃料の熱伝導率低下緩和メカニズムの工学的な有用性について、

低下緩和モデルを実用的な設計に適用するには定量性の検証が必要であるが、現行の MOX 燃料設計におけるメカニズムに基づく設計裕度の説明性向上や、安全評価における説明シナリオ中で考慮するメカニズム要素となり得ることを示した。

また、熱伝導率低下緩和の程度は、高燃焼度では 10%を超える可能性があることから、MOX 燃料の熱伝導率を UO_2 燃料のそれに対し 8%程度低く設定する現状のモデルから考えると、高燃焼度領域では、熱伝導率低下緩和の効果によってこの違いがなくなり、あるいは UO_2 燃料熱伝導率よりも MOX 燃料の熱伝導率が大きくなる可能性があることが分かった。

本研究で得られた MOX 燃料における熱伝導率低下緩和の評価モデルは、複数の不確定性要因を含むため、燃料ベンダーが使用する燃料設計評価に直接適用するには、定量性の観点でまだ検討の余地があると考えられるものの、緩和のメカニズムを考慮する上では有用なモデルとなるものと考えられる。

このような結論を踏まえると、熱伝導率の観点からは、MOX 燃料において、製造時の PuO_2 と UO_2 の均一性について、均一な分布よりむしろ Pu が局所的に分散する不均一なペレットの方が有利と考えることもできる。しかし、軽水炉燃料を安全に設計する上で、燃料ペレットからの FP ガス放出挙動も非常に重要な特性であり、MOX 燃料において Pu スポット領域が増大すると、FP ガス放出率に影響する可能性も考えられるため、単に熱伝導率の観点のみで判断することは適切ではない。本研究ではこのような FP ガス放出挙動については研究対象としなかったが、最終的にはこれらの挙動を十分に把握した上で、Pu 濃度の不均一性をどこまで許容するかについては、燃料設計者あるいは製造者の思想に依存すると考えられ、その経済性も考慮に入れて判断されるべきものとする。

本研究では限られた MOX 燃料の実験データを基に、解析等の助けを借りて照射に伴う物性の変化の解明に、僅かでも寄与したいとの思いで研究をおこなった。特に高燃焼度領域の挙動についてはデータも限られることもあり、かなりの不確定性、あるいは仮定を置いて評価することは現状止むを得ない点があると考えているが、これらの妥当性については、今後の研究により、挙動の解明が進むことに期待を寄せたいと考えている。MOX 燃料の照射データを取得することは、社会的な制約やコスト的な制約もあり、なかなか実現が困難な情勢にあるが、そのような中でも着実にデータを積み重ねる努力を継続することが、原子力を安全に社会に定着させるために、原子力に携わる技術者に課せられた責務であると考えられる。

参考文献

【第1章】

- [1] 原子力委員会, 「原子力政策大綱」, 平成 17 年 10 月 11 日
- [2] 森本英雄, エネルギーレビュー30(1) (通号 348) [2010.1]
- [3] 2005 年度版「世界の原子力発電開発の動向」(日本原子力産業会議資源エネルギー庁調べ)
- [4] 市川達生他, 「わが国における MOX 燃料の照射実証および照射後試験」, 日本原子力学会誌, vol.39[2](1997)93-111
- [5] 資源エネルギー庁, 「平成 21 年度エネルギーに関する年次報告」(エネルギー白書 2010)
- [6] 亀山高範, 「燃料の高燃焼度化・MOX 燃料利用のための基盤技術」, 電力中央研究所フォーラム 2010
- [7] 日本原子力学会 核燃料部会, 「燃料高度化技術戦略マップ 2008-2009」, 平成 20 年 12 月
- [8] (公財)原子力安全研究協会編, 「軽水炉燃料のふるまい」平成 10 年 7 月, p.68
- [9] G.A. Gates, K. Takano, and R.J. White, “Thermal performance of MOX fuel”, HWR-589, 1999.
- [10] 原子炉安全専門審査会内規「加圧水型原子炉に用いられる 17 行 17 列型の燃料集合体について」, 昭和 51 年 2 月 16 日
- [11] 大道敏彦他, 「酸化物燃料の照射下熱伝導度」, JAERI-M82-069, 1982
- [12] Y. Kosaka, “Thermal conductivity degradation analysis of the ultra high burnup experiment (IFA-562)”, HWR-341(1993)
- [13] W. Wiesenack, “Assessment of UO₂ conductivity degradation based on in-pile temperature data”, Proc.ANS Inter.Topical Meeting, Portland (1997), pp.507-511
- [14] J.J. Carbajo, G.L. Yoder, S.G. Popv *et al.*, "A Review of the Thermophysical Properties of MOX and UO₂ Fuels," J.Nucl.Mater., 299(2001), pp. 181-198
- [15] R.A.Laskiewicz *et al.*, "Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide", GEAP-13733(1971)
- [16] R.L.Gibby, "The Effect of Plutonium Content on the Thermal Conductivity of (U,Pu)O₂ Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 38(1971)163-177
- [17] 山口俊弘他, ”(U_{0.7},Pu_{0.3})O_{2-x} 燃料の熱伝導度測定試験(Ⅲ)”, 日本原子力学会「昭 58 分科会」(1983), H-35
- [18] D.G.Martin, "A Re-appraisal of the Thermal Conductivity of UO₂ and Mixed (U,Pu) Oxide Fuels", J.Nucl.Mater., 110(1982)73-94

【第1章】(続き)

- [19] S.Fukushima *et al.*, "Thermal Conductivity of Near-Stoichiometric (U,Pu,Nd)O₂ and (U,Pu,Eu)O₂ Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 116(1983)287-296
- [20] Y.Philipponeau, "Thermal Conductivity of (U,Pu)O_{2-x} Mixed Oxide Fuel", J.Nucl.Mater., 188(1992)194-197
- [21] C.Duriez, *et al.*, "Thermal Conductivity of Hypostoichiometric Low Pu Content (U,Pu)O_{2-x} Mixed Oxide", J.Nucl.Mater., 277(2000)143-158
- [22] D.L.Hagman, G.A.Reymann (Ed.), "A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior", MATPRO ver.11(1979), NUREG/CR-0497, TREE-1280
- [23] H. Fujii, H. Teshima, K. Kanasugi *et al.*, "Final assessment of MOX fuel performance experiment with Japanese PWR specification fuel in the HBWR," *Proc. of International LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California USA, Sep.30-Oct.3, 2007, Paper 1043
- [24] J.Nakamura, M. Amaya, F. Nagase *et al.*, "Thermal Conductivity Change in High Burnup MOX Fuel Pellet", J.Nucl.Sci.Technol., 46[9](2009), p.944-952
- [25] N. Nakae, H. Ikehata, T. Baba *et al.*, "Irradiation Behavior of MOX Fuel under High Burnup," *Proc. of 2010 LWR Fuel Performance/TopFuel/WRFPM*, Orlando, Florida, USA, Sep.26-29, 2010, Paper 007
- [26] (独)原子力安全基盤機構, 「平成19年度 高燃焼度等混合酸化物燃料特性評価試験 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 成果報告書」, 08 原燃報-0005, 平成20年12月, p.42
- [27] M. Suzuki, H. Saitou, "Light water reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-6 (Ver. 1)," JAEADData/Code 2005-003, Japan Atomic Energy Agency (2005)
- [28] (独)原子力安全基盤機構, 「平成21年度 高燃焼度等混合酸化物燃料特性評価試験 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 成果報告書」, 10 原燃報-0005, 平成22年12月

【第2章】

- [1] J.K.Fink *et al.*, "Thermophysical properties of Uranium Dioxide", J.Nucl.Mater., 102(1981)17-25
- [2] W.D.Kingery *et al.*, "Introduction to Ceramicx", Second Ed.,1976, John Wiley & Sons
- [3] S.Fukushima *et al.*, "The effect of Yttrium content on the thermal conductivity of near-stoichiometric (U,Y)O₂ solid solutions", J.Nucl.Mater., 102(1981)30-39
- [4] S.Fukushima *et al.*, "The effect of Gadolinium content on the thermal conductivity of near-stoichiometric (U,Gd)O₂ solid solutions", J.Nucl.Mater., 105(1982)201-210
- [5] S.Fukushima *et al.*, "Thermal Conductivity of Stoichiometric (Pu,Nd)O₂ and (Pu,Y)O₂ Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 114(1983)260-266
- [6] S.Fukushima *et al.*, "Thermal Conductivity of (Pu_{1-x},Nd_x)O_{2-y} and (Pu_{1-x},Y_x)O_{2-y} Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 115(1983)118-127
- [7] S.Fukushima *et al.*, "Thermal Conductivity of Near-Stoichiometric (U,Pu,Nd)O₂ and (U,Pu,Eu)O₂ Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 116(1983)287-296 (第1章[19]に同じ)
- [8] P.G.Lucuta *et al.*, "Microstructural features of SIMFUEL – Simulated high-burnup UO₂-based nuclear fuel", J.Nucl.Mater.,178(1991)48-60
- [9] P.G.Lucuta *et al.*, "Thermal conductivity of SIMFUEL", J.Nucl.Mater., 188(1992)198-204
- [10] P.G.Lucuta *et al.*, "Modelling of UO₂-based SIMFUEL thermal conductivity The effect of the burnup", J.Nucl.Mater., 217(1994)279-286
- [11] P.G.Lucuta *et al.*, "Thermal conductivity of hyperstoichiometric SIMFUEL", Proc. IAEA Tech. Comm. Meeting, Windermere, UK, Sep.1994
- [12] P.G.Lucuta *et al.*, "Thermal conductivity of hyperstoichiometric SIMFUEL ", J.Nucl.Mater., 223(1995)51-60
- [13] P.G.Lucuta *et al.*, "A pragmatic approach to modelling thermal conductivity of irradiated UO₂ fuel: review and recommendations", J.Nucl.Mater., 232(1996)166-180
- [14] S.Ishimoto *et al.*, "Effects of soluble fission products on thermal conductivities of nuclear fuel pellets", J.Nucl.Sci.Technol.,31[8](1994)796-802
- [15] M.Amaya *et al.*, "The effects of oxidation on the thermal conductivity of (U,M)O₂ pellets (M=Gd and/or simulated soluble FPs)", J.Nucl.Mater., 246(1997)158-164
- [16] P.G.Klements *et al.*, "Reduction in thermal conductivity of ceramics", Proc. 2nd Topical Meeting on the Technology of Controlled Nuclear Fusion – ANS – ERDA – EPRI – 4vol., Sep.1976, 1769.7f CONF-760935, pp.957-964

【第2章】(続き)

- [17] W. Wiesenack, "Assessment of UO₂ conductivity degradation based on in-pile temperature data", Proc.ANS Inter.Topical Meeting, Portland (1997), pp.507-511 (第1章[13]に同じ)
- [18] G.A. Gates, K. Takano, and R.J. White, "Thermal performance of MOX fuel", HWR-589, 1999. (第1章[9]に同じ)
- [19] R.J.M.Konings(Ed.), "Comprehensive Nuclear Materials; Vol.2, Material Properties /Oxide Fuels for Light Water Reactors and Fast Neutron Reactors", Elsevier, Amsterdam, 2012, pp.439-464
- [20] M.Kinoshita *et al.*, "High Burnup Rim Project (III): Properties of rim-structured fuel", Proc. ANS Inter. Meeting on LWR Fuel Performance, paper1102, Orlando, USA, 2004, pp.207-213
- [21] C.Ronchi *et al.*, "Effect of burn-up on the thermal conductivity of uranium dioxide up to 100.000 MWdt⁻¹", J.Nucl.Mater., 327(2004)58-76
- [22] M.Hirai *et al.*, "Thermal diffusivity measurements of irradiated UO₂ pellets", Proc. IAEA Tech. Comm. Meeting, Tokyo, Japan, 28 Oct. - 1 Nov., 1996 (IAEA-TEDOC-1036 (1998), 139-148)
- [23] M.Amaya *et al.*, "Recovery behavior of thermal conductivity in irradiated UO₂ pellets", J.Nucl.Mater., 247(1997)76-81
- [24] F.J.Hetzler, *et al.*, "Thermal conductivity of 20:80(Pu,U)O₂", Trans.Amer.Nucl.Soc., vol.8No.1(1965)36-37
- [25] F.J.Hetzler, *et al.*, "The thermal conductivity of Uranium and Uranium-Plutonium Oxides", GEAP-4879, 1967
- [26] M.Serizawa, *et al.*, "Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Dioxide", J.Nucl.Mater., 34(1970)224-226
- [27] R.A.Laskiewicz, *et al.*, "Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide", GEAP-13733(1971) (第1章[15]に同じ)
- [28] R.L.Gibby, "The Effect of Plutonium Content on the Thermal Conductivity of (U,Pu)O₂ Solid Solutions", J.Nucl.Mater., 38(1971)163-177 (第1章[16]に同じ)
- [29] L.A.Goldsmith and J.A.M.Douglas, "The Thermal Conductivity Plutonium-Uranium Dioxide at Temperatures up to 1273K", J.Nucl.Mater., 43(1972)225-233
- [30] D.G.Martin, "A Re-appraisal of the Thermal Conductivity of UO₂ and Mixed (U,Pu) Oxide Fuels", J.Nucl.Mater., 110(1982)73-94 (第1章[18]に同じ)
- [31] 大道敏彦他, 「酸化物燃料の照射下熱伝導度」, JAERI-M82-069, 1982 (第1章[11]に同じ)

【第2章】(続き)

- [32] 山口俊弘他, " $(\text{U}_{0.7}\text{Pu}_{0.3})\text{O}_{2-x}$ 燃料の熱伝導度測定試験(Ⅲ)", 日本原子力学会「昭 58 分科会」(1983), H-35 (第1章[17]に同じ)
- [33] H.Elbel and H.E.Schmidt, "Characterisation of Mixed Oxide Fuel Pellets with respect to Their Thermal Conductivity", Nucl.Fuel.Performance.BNES, London, 1985, 357-361
- [34] S.Fukushima, *et al.*, "The Effect of Rare Earths on Thermal Conductivity of Uranium, Plutonium and their Mixed Oxide Fuels", J.Less-Common Metals., 121(1986)631-636
- [35] A.K.Sengupta, *et al.*, "Thermal Conductivity of Titania-doped UO_2 -4% PuO_2 ", HighTemp. High Press., 19(1987)509-512
- [36] 吉川勝則他, "「ふげん」MOX 燃料の照射後試験(Ⅳ)ー物性試験ー", 日本原子力学会「1990 年会」(1990), G12
- [37] Y.Philipponeau, "Thermal Conductivity of $(\text{U,Pu})\text{O}_{2-x}$ Mixed Oxide Fuel", J.Nucl.Mater., 188(1992)194-197 (第1章[20]に同じ)
- [38] S D.L.Hagrman, G.A.Reymann (Ed.), "A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior", MATPRO ver.11(1979), NUREG/CR-0497, TREE-1280 (第1章[22]に同じ)
- [39] K.Yamamoto, *et al.*, "Melting Temperature and Thermal Conductivity of Irradiated Mixed Oxide Fuel", J.Nucl.Mater., 204(1993)85-92
- [40] I.R.Topliss, "MEASUREMENT AND ANALYSIS OF MOX PHYSICAL PROPERTIES", Proc.IAEA Tech.Com.Meeting 3(7), 1995, Windermere
- [41] P.Blanpain *et al.*, "Plutonium Recycling in French Power Plants:MOX Fuel Irradiation Experience and Behaviour", Proc.IAEA Tech.Com.Meeting 5(3), 1995, Windermere
- [42] 市川達生他, "わが国における MOX 燃料の照射実証および照射後試験", 日本原子力学会誌, vol.39[2], 1997, 93-111 (第1章[4]に同じ)
- [43] S.Doi and K.Yamate, "HIGH BURNUP MOX FUEL AND FUEL ROD DESIGN IMPRVEMENT", Proc.ANS Inter.Topical Meeting, Portland (1997), pp.46-53
- [44] C.Duriez, *et al.*, "Thermal Conductivity of Hypostoichiometric Low Pu Content $(\text{U,Pu})\text{O}_{2-x}$ Mixed Oxide", J.Nucl.Mater., 277(2000)143-158 (第1章[21]に同じ)
- [45] J.J.Carbajo, *et al.*, "A Review of the Thermophysical Properties of MOX and UO_2 Fuels", J.Nucl.Mater., 299(2001)181-198 (第1章[14]に同じ)
- [46] C.Cozzo, *et al.*, "Thermal Conductivity of Homogeneous and Heterogeneous MOX Fuels with Up To 44MWd/kgHM Burn-Up", Proc.Water Reactor Fuel Performance Meeting, Seoul Korea(2008), paper8072

【第3章】

- [1] M.G.Adamson *et al.*, “Experimental and thermodynamic evaluation of the melting behavior of irradiated oxide fuel”, J.Nucl.Mater., 130(1985)349-365
- [2] N.H.Brett *et al.*, “Sintering behaviour and stability of (Pu,U)O₂ solid solutions”, A.E.R.E. Report R.3900(1962)
- [3] T.L.Markin *et al.*, “The uranium-plutonium-oxygen ternary phase diagram”, J.Inorg.Nucl.Chem., 29(1967)2265-2280
- [4] W.L.Lyon *et al.*, “The solid-liquid phase diagram for the UO₂-PuO₂ system”, J.Nucl.Mater., 22(1967)332-339
- [5] 日本原子力学会編, 「プルトニウム燃料工学」, 1998 年 1 月, p.147
- [6] 国立天文台編, 「理科年表」1992, 丸善
- [7] T.Ohmichi *et al.*, "On the relation between lattice parameter and O/M ratio for Uranium dioxide-trivalent rare earth oxide solid solution", J.Nucl.Mater., 102(1981)40-46
- [8] K. Morimoto *et al.*, “Thermal conductivity of (U,Pu,Np)O₂ solid solutions”, J.Nucl.Mater., 389(2009)179-185
- [9] 結晶工学ハンドブック編集委員会編, 「結晶工学ハンドブック」1971, 共立出版, p.52
- [10] 石森富太郎編, 「原子炉工学講座 4 燃・材料」1972, 培風館, p.53
- [11] T.D.Chikalla *et al.*, “The Plutonium-Oxygen system”, J.Nucl.Mater., 12(1964)131-141
- [12] “The plutonium-oxygen and uranium-plutonium-oxygen systems : A thermodynamical assessment”, Technical Report Series, No.79, p.58, IAEA, Vienna(1967)
- [13] HJ.Matzke, “Oxygen potential measurements in high burnup LWR UO₂ fuel”, J.Nucl.Mater., 223(1995)1-5
- [14] J.Edwards *et al.*, “Oxygen potentials of Uranium-Plutonium oxides in the near stoichiometric region”, J.Nucl.Mater., 130(1985)505-512
- [15] K.Morimoto *et al.*, “Thermal conductivities of hypostoichiometric (U, Pu, Am)O_{2-x} oxide”, J.Nucl.Mater., 374(2008)378-385
- [16] M.Kato *et al.*, “Solidus and liquidus of plutonium and uranium mixed oxide”, J.Alloys and Comp., 452(2008)48-53
- [17] [5]に同じ pp.160-166
- [18] D.Haas, “MOX fuel fabrication experience at Belgonucleaire”, IAEA Technical Comm.Meeting,1995, Windermere UK
- [19] G.Oudinet *et al.*, “Characterization of plutonium distribution in MIMAS MOX by image analysis”, J.Nucl.Mater., 375(2008)86-94

【第3章】(続き)

- [20] MOX oxide fuel supply, BNFL/AEA Technology (1993)
- [21] R.J.White, S.B.Fisher, P.M.A.Cook, R.Stratton, C.T.Walker, I.D.Palmer,
“Measurement and analysis of fission gas release from BNFL’s SBR MOX fuel”,
J.Nucl.Mater., 288(2001)43-56
- [22] F.Lemoine, “Estimation of the Grain Boundary Gas Inventory in MIMAS/AUC
MOX Fuel and Consistency with REP-Na Test Results”, J.Nucl.Sci.Technol.,
43(2006)1105-1113

【第4章】

- [1] J.C.Maxell, "A Trestise on Electricity and Magnetism", 3rd edition, Oxford U.P., Oxford, England, 1904, vol.1, p.440
- [2] A.L.Loeb, "Thermal conductivity: VIII, A theory of thermal conductivity of porous materials", J.Am.Ceram.Soc., 37(1954)96-99
- [3] H.Kaempf *et al.*, "Effects of different types of void volumes on the radial temperature distribution of fuel pins", Nucl.Appl.Technol., 9(1970)288-300
- [4] B.Schulz, "Thermal conductivity of porous and highly porous materials", High Temp High Press., 13(1981)649-660
- [5] K.Bakker *et al.*, "The contribution of thermal radiation to the thermal conductivity of porous UO₂", J.Nucl.Mater., 223(1995)135-142
- [6] K.Bakker *et al.*, "Determination of a porosity correction factor for the thermal conductivity of irradiated UO₂ fuel by means of the finite element method", J.Nucl.Mater., 226(1995)128-143
- [7] 玉虫文一他編, 「理化学辞典」第3版, 1971, 岩波書店
- [8] 日本機械学会編, 「熱物性値測定法」1991, 養賢堂, p.5
- [9] H.J.Lee *et al.*, "Thermal diffusivity of dispersed composites, J.Appl.Phys., 47(1976)148-151
- [10] 高橋洋一他, "レーザーフラッシュ法熱拡散率測定における新しい解析法—対数法—の優位性", 熱測定, 15(1988)103-109
- [11] J.K. Fink *et al.*, "Thermophysical properties of Uranium Dioxide", J.Nucl.Mater., 102(1981)17-25
- [12] O. Kubaschewski *et al.*, "Materials Thermochemistry, 6th Ed.", Pergamon Press, 1993
- [13] D.L.Hagrman, G.A.Reymann (Ed.), "A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior", MATPRO ver.11(1979), NUREG/CR-0497, TREE-1280 (第1章[22]に同じ)
- [14] W.Wiesenack, "Assessment of UO₂ conductivity degradation based on in-pile temperature data", Proc. ANS Inter. Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp.507-511 (第1章[13]に同じ)
- [15] G.A. Gates, K. Takano, and R.J. White, "Thermal performance of MOX fuel", HWR-589, 1999. (第1章[9]に同じ)
- [16] Y.S.Touloukian (Edt), R.W.Powell, C.Y.Ho, P.G.Klemens, Thermophysical Properties of Matter (The TPRC Data Series) vol.1 "Thermal Conductivity-Metallic Elements and Alloys", 1970, IFI/PLENUM, New York-Wasington
- [17] ABAQUS Ver.6.7, 2007 (Providence RI:Dassault Systèmes Simulia Corp.)

【第 5 章】

- [1] H. Fujii, H. Teshima, K. Kanasugi *et al.*, “Final assessment of MOX fuel performance experiment with Japanese PWR specification fuel in the HBWR,” *Proc. of International LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California USA, Sep.30-Oct.3, 2007, Paper 1043 (第 1 章[23]に同じ)
- [2] Y. Kosaka *et al.*, “Thermal conductivity degradation analyses of LWR MOX fuel by the quasi-two phase material model”, *J.Nucl.Sci.Technol.*, 49(2012)966-974
- [3] F.Lemoine, “Estimation of the grain boundary gas inventory in MIMAS/AUC MOX fuel and consistency with REP-Na test results”, *J.Nucl.Sci.Technol.*, 43[9](2006)1105-1113 (第 3 章[22]に同じ)
- [4] S.B.Ludwig *et al.*, “Standard and extended burnup PWR and BWR reactor models for the ORIGEN2 computer code”, ORNL/TM-11018, 1989

【第6章】

- [1] J.H.Davies *et al.*, “The chemical effects of composition changes in irradiated oxide fuel materials”, J.Nucl.Mater., 41(1971)143-155
- [2] S.B.Ludwig *et al.*, “Standard and extended burnup PWR and BWR reactor models for the ORIGEN2 computer code”, ORNL/TM-11018, 1989 (第5章[4]に同じ)
- [3] H. Fujii, H. Teshima, K. Kanasugi *et al.*, “Final assessment of MOX fuel performance experiment with Japanese PWR specification fuel in the HBWR,” *Proc. of International LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California USA, Sep.30-Oct.3, 2007, Paper 1043 (第1章[23]に同じ)
- [4] (公財)原子力安全研究協会編, 「軽水炉燃料のふるまい」平成10年7月, p.157 (第1章[8]に同じ)
- [5] L.E.Thomas *et al.*, “Microstructural analysis of LWR spent fuels at high burnup”, J.Nucl.Mater., 188(1992)80-89
- [6] 国立天文台編, 「理科年表」2000, 丸善
- [7] Y.S.Touloukian (Edt), R.W.Powell, C.Y.Ho, P.G.Klemens, Thermophysical Properties of Matter (The TPRC Data Series) vol.1 "Thermal Conductivity-Metallic Elements and Alloys", 1970, IFI/PLENUM, New York-Washington (第4章[16]に同じ)

【第7章】

- [1] 例えば、中村哲朗, 「セラミックスと熱」 1985, 技報堂, p.87
- [2] D.L.Hagman, G.A.Reymann (Ed.), “A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior”, MATPRO ver.11(1979), NUREG/CR-0497, TREE-1280 (第1章[22]に同じ)
- [3] S.R.Pati *et al.*, “Fission gas release from PWR fuel rods at extended burnups”, Proc.ANS Topical Meeting, Orlando USA (1985), pp.4/19-32
- [4] S.R.Pati *et al.*, “Contribution of pellet rim porosity to low-temperature fission gas release at extended burnups”, Proc.ANS Topical Meeting, Williamsburg (1988), pp.204-215
- [5] HJ.Matzke *et al.*, “Polygonization and high burnup structure in nuclear fuels”, J.Nucl.Mater., 247(1997)108-115
- [6] C.T.Walker *et al.*, “On the thermal conductivity of UO₂ nuclear fuel at a high burn-up of around 100MWd/kgHM”, J.Nucl.Mater., 350(2006)19-39
- [7] M.Kinoshita *et al.*, “High Burnup Rim Project (III): Properties of rim-structured fuel”, Proc. ANS Inter. Meeting on LWR Fuel Performance, paper1102, Orlando, USA, 2004, pp.207-213 (第1章[20]に同じ)
- [8] K.Bakker *et al.*, “Determination of a porosity correction factor for the thermal conductivity of irradiated UO₂ fuel by means of the finite element method”, J.Nucl.Mater., 226(1995)128-143 (第4章[6]に同じ)
- [9] J.Noïrot *et al.*, “Detailed characterization of high burn-up structures in oxide fuels”, J.Nucl.Mater., 372(2008)318-339
- [10] C.Duriez *et al.*, “Thermal conductivity of hypostoichiometric low Pu content (U,Pu)O_{2-x} mixed oxide”, J.Nucl.Mater., 277(2000)143-158
- [11] HJ.Matzke, “Oxygen potential in the rim region of high burnup UO₂ fuel”, J.Nucl.Mater., 208(1994)18-26
- [12] M.Amaya *et al.*, “Recovery behavior of thermal conductivity in irradiated UO₂ pellets”, J.Nucl.Mater., 247(1997)76-81 (第2章[23]に同じ)
- [13] J.J.Carbajo, *et al.*, “A Review of the Thermophysical Properties of MOX and UO₂ Fuels”, J.Nucl.Mater., 299(2001)181-198 (第1章[14]に同じ)
- [14] M. Suzuki, H. Saitou, “Light water reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-6 (Ver. 1),” JAEAData/Code 2005-003, Japan Atomic Energy Agency (2005)(第1章[27]に同じ)
- [15] S.Lemehov, M.Suzuki, “PLUTON-three group neutronic code for burnup analysis of isotope generation and depletion in highly irradiated LWR fuel rods”, JAERI-Data/Code 2001-0025, Japan Atomic Energy Research Institute(JAERI), 2001

【第 7 章】(続き)

- [16] (独)原子力安全基盤機構, 「平成 21 年度 高燃焼度等混合酸化物燃料特性評価試験 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 成果報告書」, 10 原燃報-0005, 平成 22 年 12 月, pp.52-53 (第 1 章[28]に同じ)
- [17] (独)原子力安全基盤機構, 「平成 19 年度 高燃焼度等混合酸化物燃料特性評価試験 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 成果報告書」, 08 原燃報-0005, 平成 20 年 12 月, p.36 (第 1 章[26]に同じ)
- [18] H. Fujii, H. Teshima, K. Kanasugi *et al.*, “Final assessment of MOX fuel performance experiment with Japanese PWR specification fuel in the HBWR,” *Proc. of International LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California USA, Sep.30-Oct.3, 2007, Paper 1043 (第 1 章[23]に同じ)
- [19] (公財)原子力安全研究協会編, 「軽水炉燃料のふるまい」平成 10 年 7 月, p.211 (第 1 章[8]に同じ)
- [20] N. Nakae, H. Ikehata, T. Baba *et al.*, “Irradiation Behavior of MOX Fuel under High Burnup,” *Proc. of 2010 LWR Fuel Performance/TopFuel/WRFPM*, Orlando, Florida, USA, Sep.26-29, 2010, Paper 007 (第 1 章[25]に同じ)
- [21] N. Nake *et al.*, Thermal property change of MOX and UO₂ irradiated up to high burnup”, *Proc. of NuMat 2012*, Osaka, JAPAN, Oct.2012

謝 辞

本研究の遂行並びに本論文を完成させるにあたり、多くの方々のご協力や支えをいただいた。ここにご芳名を記して謝意を表したい。

指導教官である、寺井隆幸教授、鈴木晶大准教授には、遅々として進まぬ研究に対して、常に適切なご指導と、励ましのお言葉をいただき、長期間の間、挫折することなく何とか博士論文を完成させることができたのは、ひとえにこのご指導のおかげである。

関西電力株式会社殿を幹事とする PWR 5 電力殿並びに原子燃料工業株式会社殿には、PWR 電力共同研究にて得られた成果の一部である、MOX 燃料の製造時データの使用を承認いただいた。(独)原子力安全基盤機構殿には、MOX 燃料照射試験に関わる公開成果の一部の利用を了解いただいた。これら情報開示手続き等において、三菱原子燃料株式会社の高野賢治氏、藤井創氏、北川敬明氏、吉野亜弥氏には多大なご尽力をいただいた。また、同社の関一哉氏には、MOX 燃料の高燃焼度利用に関わる有用な情報提供をいただいた。

著者が在籍するニュークリア・デベロップメント株式会社においては、田村仁社長、白鳥義夫管理部長には、寛大にも長期間にわたる社会人博士課程研究を許容いただいた。社会人博士課程研究を開始するに当たって、和田諭氏には著者所属部門担当役員としてご尽力いただいた。既に鬼籍に入られ、研究完了のご報告ができないことは、残念至極である。

社内での研究を進めるに当たって、小林裕氏、佐藤敏彦氏、三枝守幸氏には上司として常に叱咤・励ましをいただき、何とか完成にこぎつけたのはこれらの方々のお支えによるものである。同僚でもある木戸俊哉博士には、励ましの言葉をいただくとともに、会社業務の皺寄せをいつも引き受けて助けていただいた。MOX 燃料の製造時データの解析は、本研究でも重要な要素であり、野瀧友博氏、菊池友氏の協力がなくては十分な成果は得られなかった。擬似二相モデルの FEM 解析による検証は、小川伸太氏、清野俊氏の協力が不可欠であった。MOX 燃料の FP 収率計算では、向井悟氏、長嶺邦孝氏、山内幸久氏に ORIGEN コードによる解析を快く引き受けていただき、また適切なアドバイスをいただいた。MOX 燃料照射挙動の FEMAXI 解析では、全面的に樽松繁氏に頼らせていただいた。論文の仕上げに当たっては、三輪野明美氏にそのきめ細かく、迅速・正確な文書作成技術に負うところが大きかった。

日本核燃料株式会社の平井睦博士には、フォノン熱伝導の理論モデルについて、貴重な助言をいただいた。日本原子力研究開発機構の中村仁一博士には、MOX 燃料の Halden 炉照射実験に関する示唆に富む助言をいただいた。研究室においては、研究室活動にほとんど協力できない著者に対し、研究室員の方々からいつも温かく受け入れていただいた。研究室員の皆様に何も貢献できなかったことをお詫びしたい。

博士課程研究の半ばで父は他界し、結果を知らせることができないのは残念である。遠く故郷で年老いた身で気丈に暮らしつつ、いつもわが子のことを気遣ってくれた母は、常に心の支えであった。

そして、毎晩いつ帰ってくるのか定まらず、またいつ終わるのか分からぬ博士課程研究にも、常に健康を気遣って支え続けてくれた妻典子に、そしていつも家庭を明るくしてくれた愛娘素子に、心より深く感謝したい。

本論文を完成させることが、著者が長年原子燃料の仕事に携わってきたことのささやかながら証とできることに感謝したい。そして、この論文を両親と妻に捧げたい。

平成 25 年 1 月 高阪 裕二