

論文の内容の要旨

論文題目 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

氏 名 高阪 裕二

1. はじめに

我が国における原子力発電において、回収されるプルトニウム(Pu)を再度軽水炉で使用するプルスール利用が、主要な選択肢の一つとして位置付けられ、Pu酸化物をウラン酸化物燃料(UO₂燃料)に混合した、混合酸化物燃料(MOX燃料)として使用される。MOX燃料の軽水炉利用では、特に高燃焼度におけるMOX燃料のデータを蓄積し、その照射挙動を良く理解し把握することが合理的な設計を行う上で重要である。本研究は、照射下の燃料温度設計において最も基本的かつ重要な物性の一つである燃料ペレット熱伝導率に関し、燃焼に伴う燃焼度低下がUO₂燃料と比較し緩和される現象について、そのメカニズムを解明することを狙いとして実施した。

2. 本研究の目的

MOX燃料の試験炉照射試験において、ペレット燃焼度が70Gwd/tを超える高燃焼度における照射中の燃料中心温度測定結果が報告されており、この高燃焼度下での燃料出力と燃料温度の相関の測定例を図1に示す。高燃焼度下ではMOX燃料の燃料温度は、同一線出力においてUO₂燃料と比較し若干低い傾向にあり、特にMOX燃料中のPu濃度分布が不均一なMIMAS法MOX燃料の温度が他に比較し低い傾向である。

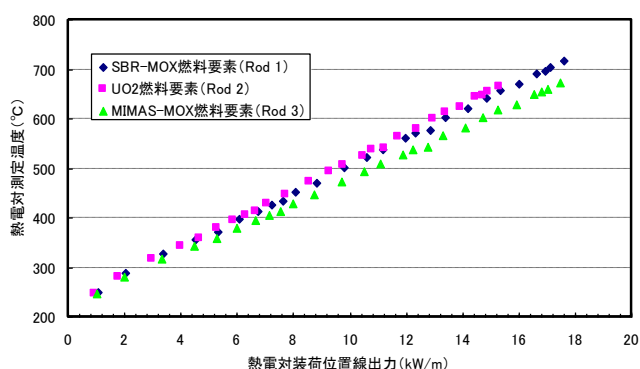


図1 試験炉照射下の燃料ペレット温度と線出力との関係

従来の知見によれば、MOX燃料ではPuの固溶により、UO₂燃料と比較し、主に格子歪の増加に伴うフォノン - 格子散乱項増加によって若干熱伝導率が低下することが知られている。またCarbajoらによればMOX燃料とUO₂燃料で燃焼に伴う熱伝導率低下の効果は同等であると考えられており、同一条件下で照射された場合、MOX燃料の熱伝導率はUO₂燃料に比較して低いため、その燃料中心温度が高くなることが予想される。

照射試験結果はこのような従来知見とは異なる傾向を示しており、MOX燃料の燃焼に伴う熱伝導率低下の割合がUO₂燃料と同等ではなく、MOX燃料ではUO₂燃料に比較し低下が緩和されると推論される。またその傾向は、製造時のPu濃度均一性に大きく依存している可能性が強く示唆されている。

そこで本研究では、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UO₂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ことを目的とした。

3. MOX燃料微細組織の燃焼に伴う変化

工業的な製造法によるMOX燃料では、図2の例に示すように、燃料マトリックス中にPu濃度の高い領域(Puスポット)が分散相として存在することが一般的である。このような高Pu濃度分散相が分布すると、図3に模式的に示すように、燃料マトリックス内に分散相であるPuスポット部燃焼度が非常に高く、連続相であるマトリックス部燃焼度が平均に対し低く抑制される。バルク熱伝導率は連続相の熱伝導率により強く支配される

ことから、これがバルク熱伝導率低下を緩和させる効果となる。この効果を擬似二相モデルによって解析評価する。

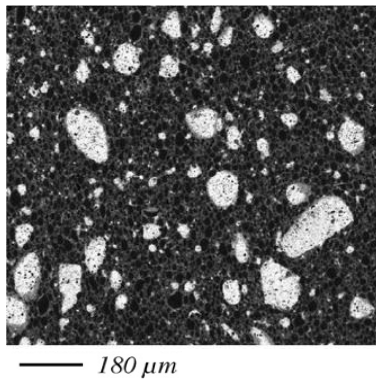


図2 典型的MOX燃料のPu濃度分布
EPMA測定例

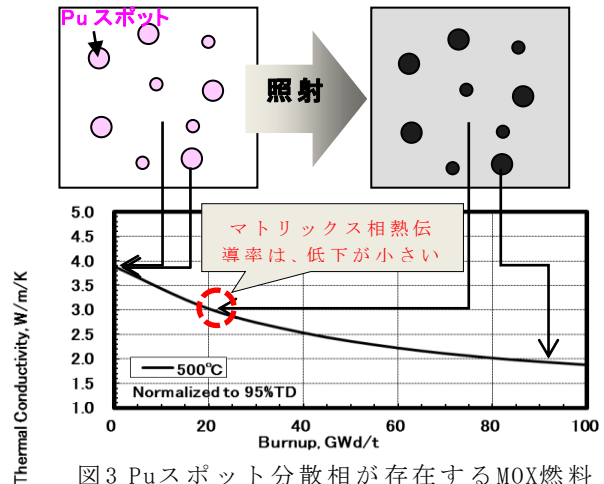


図3 Puスポット分散相が存在するMOX燃料の熱伝導率低下模式図

4. 擬似二相モデルによる熱伝導率解析

4.1 計算モデル

二相材のバルク熱伝導率を評価するモデルとしてSchulzモデルを採用した。分散相形状は楕円体とし、その形状パラメータと分散相体積率を考慮している。

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

$$X = k/k_M, \quad K = k_D/k_M$$

k : バルク熱伝導率

k_D : 分散相熱伝導率 (Puスポット相)

k_M : 連続相熱伝導率 (マトリックス相)

c_D : 分散相 (Puスポット相) 体積率

ここで、パラメータ m, n, q は分散相形状により決定され、ここでは最も単純な球形状を仮定することにより、 $m=1/3, n=1/2, q=0$ とした。

4.2 Schulzモデルの適用性評価

4.2.1 実験値による検証

前述したSchulzモデルによる擬似二相材の解析計算の妥当性を検証するため、 UO_2 マトリックス相に固溶しない金属材料(モリブデンMo)を分散させた試料を製作し、その熱伝導率を実測して、Schulzモデルによる計算結果との比較評価を行った。

Mo添加 UO_2 ペレット製作概要は以下の通り。

- UO_2 粉末+Mo金属粉機械混合
- ディスク状成形プレス (成形圧約4t/cm²)
- 焼結 (1750°C×4hr in H₂ 加湿DP5-10°C)
- 焼結体密度 約94%T.D.
- Mo添加量 5vol%

製作したペレットの組織観察結果を図4に示すが、Mo金属析出相が分散してランダムに分布していることが確認された。試作したペレットについて、

室温から約800°Cの温度範囲で、レーザーフラッシュ法により熱拡散率を実測し、密度、比熱容量を乗じることによって熱伝導率を求めた。

測定結果と、同条件でのSchulzモデルによる擬似二相モデル熱伝導率計算結果を比較して図5に示すが、ほぼ良好な一致が得られ、Schulzモデルの適用性が確認された。

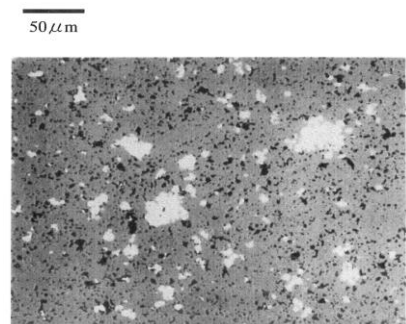


図4 Mo添加 UO_2 ペレットの金相組織

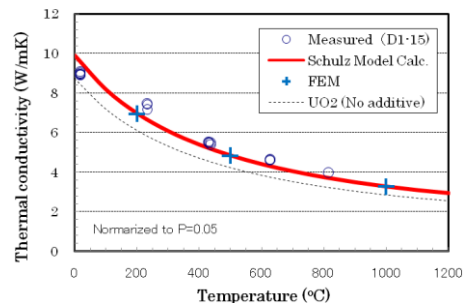


図5 Mo添加 UO_2 ペレット熱伝導率の実測値, Schulzモデル計算値とFEM解析結果の比較

4.2.2 FEM解析による検証

Mo添加UO₂では、分散相熱伝導率が連続相熱伝導率より高いが、本研究対象である照射MOX燃料では、分散相のPuスポット部が連続相であるマトリックス部より熱伝導率が低い。そこで、FEM解析によりその適用性を検討した。

FEM解析を行った体系を図6に示す。単位セル中心に、体積率5%の球状分散相を配置し、これらにMo金属の熱伝導率(11)とUO₂の熱伝導率(8)を与えて、一次元熱流束を与えた場合の温度差を解析しバルク熱伝導率を求めた。解析結果とSchulzモデル計算並びに実験結果を比較して図5に示すが、良好な一致が得られることが確認できた。更に、MOX燃料のように分散相熱伝導率が連続相より低いケースについてもFEM解析とSchulzモデル計算結果を比較し、良い一致が得られSchulzモデルの適用性を確認した。

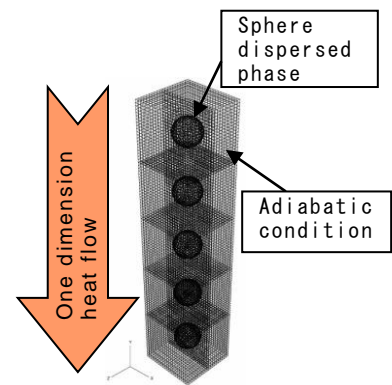


図6 FEM解析の体系概念図

5 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

(1)式で示したSchulzモデルにより、バルク熱伝導率の燃焼による変化を求めるためには、各相の熱伝導率と分散相の体積率を、決定する必要がある。これらのパラメータは製造時データを基に以下のように決定した。

図3で模式的に示したように、二相は各々異なる燃焼度となるので、各相の熱伝導率を決定するためには、ペレット平均燃焼度に対し各相の燃焼度を決定する必要がある。そこで二相の燃焼度の比は、製造時の核分裂性元素(MOX燃料ではPu)の濃度の比に比例すると考え、製造時のEPMAによるPu濃度マッピング画像より、画像解析によって抽出決定した。また、同じ画像解析により、Puスポット分散相の面積割合も抽出して決定した。画像解析によるPu分散相領域の抽出例を図7に示す。画像解析で得られた平均Pu濃度(8.9wt%)は分析値によるPu濃度(8.4wt%)に近い値が得られ、代表性があるものと判断された。

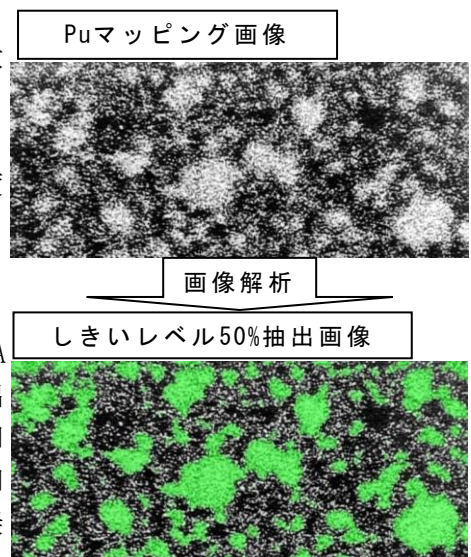


図7 画像解析によるPu分散相抽出

製造時データから得られた、擬似二相材の組成と各相のPu平均組成を使用して(1)式を数値解析し、バルク熱伝導率の燃焼度依存性を解析した。複数の燃焼度条件で解析し、その解析結果からフォノン伝導項の温度、燃焼度依存性として以下の回帰式を得た。

$$k_c = \frac{1}{(a_1 + a_2 \times BU + a_3 \times BU^2) + (b_1 + b_2 \times BU + b_3 \times BU^2) \times T} \dots (2)$$

k_c : 擬似二相モデルによるバルク熱伝導率 (W/m/K)
 T : 温度 (K)
 BU : 燃焼度 (GWd/tHM)
 $a_1 = 5.172 \times 10^{-2}$, $a_2 = 3.889 \times 10^{-3}$, $a_3 = -1.302 \times 10^{-5}$,
 $b_1 = 2.689 \times 10^{-4}$, $b_2 = -3.994 \times 10^{-7}$, $b_3 = -2.520 \times 10^{-9}$
 for Porosity = 0.05

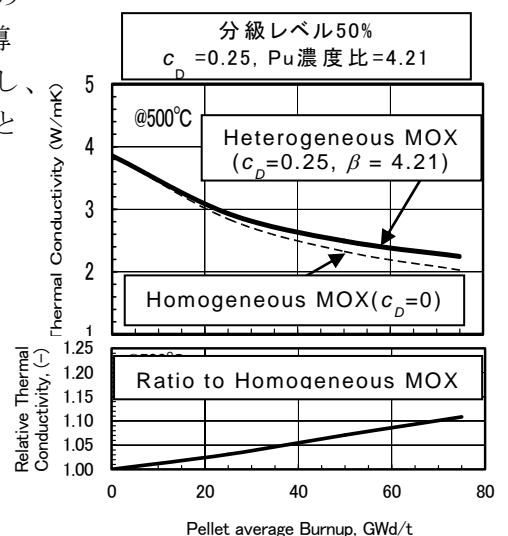


図8 擬似二相モデルによる熱伝導率燃焼度依存性比較

得られたバルク熱伝導率温度依存性を一定温度（500℃）において単相モデルと比較し、燃焼度に対する熱伝導率低下傾向を図8に示す。約75GWd/tの高燃焼度では、10%以上の熱伝導率低下緩和の効果があることが分った。

6. 核分裂生成物組成の影響及び総合評価

MOX燃料とUO₂燃料では主たる核分裂性核種が異なり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収率の違いが熱伝導率低下に影響を及ぼす。これらの収率差を、試験炉照射試験のケースについてORIGEN解析計算を基に定量的に求め、固溶性FPによるフォノン熱伝導への影響についてはAmayaらのモデルにより、また、析出性金属FPの分散相効果による影響はSchulzモデルにより各々比較評価した。その結果、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、UO₂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。固溶性FP元素蓄積と析出性金属FP元素蓄積の効果と比較すると、熱伝導率低下緩和への影響は前者が支配的であり、高燃焼度における固溶性FP元素蓄積による効果は、MOX燃料ではUO₂燃料に比較し5%程度熱伝導率低下を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効果があることが分かった。

Pu濃度不均一による分散相の効果、FP収率差による効果と、高燃焼度化に伴うリム組織形成の効果も含めた複数の効果を熱伝導率燃焼度依存式に考慮して、照射挙動解析コードに組み込み、照射試験における燃料温度を解析評価した結果を、実測値と比較して図9に示す。解析値は実験値に一致するまでに至らないものの、大幅に予測性が向上できることが示され、提案したメカニズムが熱伝導率低下緩和の主要な要因であることを確認した。

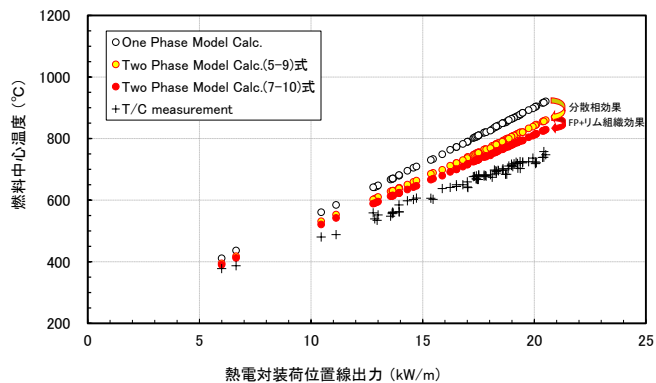


図9 複数要因を考慮した熱伝導率燃焼度依存式を使用した燃料温度解析結果と照射試験結果の比較

7. 結論

Pu濃度が不均一に分布するMOX燃料では、燃焼に伴う熱伝導率低下が、均一分布に比較し高燃焼度では緩和される実験結果を説明するため、擬似二相材の熱伝導モデルの概念によるメカニズムを提案した。擬似二相モデル熱伝導率解析にSchulz式を適用し、製造時のPu濃度不均一性に基づくMOX燃料の燃焼に伴う熱伝導率低下を定量的に評価する手法を確立した。この手法で熱伝導率低下の燃焼度依存性を評価した結果、Pu濃度の不均一性がMOX燃料熱伝導率低下緩和に寄与することを定量的に示し、熱伝導率低下緩和の主要な要因の一つであることを明らかにした。しかし、このメカニズムだけで実験結果を説明に不十分であり、MOX燃料とUO₂燃料のFP収率差による熱伝導率低下緩和の効果も、Pu濃度不均一の効果に比較して小さいものの主要な要因であることを示した。

MOX燃料熱伝導率低下緩和のこれらメカニズムを考慮しても、照射実験で得られた燃料温度と評価値にはまだ有意な差が残り、その課題として照射実験における温度測定の不確実性と高燃焼度における燃料ペレット内径方向出力分担比の不確実性の可能性を指摘した。