



JAEA-Technology

2007-020



JP0750153

**プルトニウムとアメリシウムの径方向再分布  
モデルのコードの開発**

Development of Plutonium and Americium Redistribution Code

佐藤 隆彦

Takahiko SATO

東海研究開発センター  
核燃料サイクル工学研究所  
プルトニウム燃料技術開発センター  
燃料技術部

Fuel Technology Department  
Plutonium Fuel Development Center  
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories  
Tokai Research and Development Center

March 2007

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)  
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター\*では実費による複写頒布を行っ  
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

\*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2007

プルトニウムとアメリシウムの径方向再分布モデルのコードの開発

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 核燃料サイクル工学研究所  
プルトニウム燃料技術開発センター燃料技術部  
佐藤 隆彦\*

(2007年1月22日受理)

高速炉燃料では、照射中における急激な径方向温度勾配による燃料組織変化とともに、Pu、Am等の濃度が中心空孔近傍で上昇する「再分布」挙動が観察される。Puの再分布の機構として、固相内の熱拡散による元素の移動と、気孔が中心部へ向かって移動する際の蒸発凝固機構による移動が考えられている。「常陽」で実施した照射試験結果から、AmについてもPuと同様の機構により再分布するものと考えられるため、PuとAmの再分布挙動は同じ機構に基づくものとして両者の再分布モデルを統合したコードの開発を行った。

ここで開発したモデルの検証として、常陽で照射を行ったB型特殊燃料集合体特殊燃料要素のペレット(初期Am含有率0.9wt%)のSXMA測定による試料横断面の元素分布と計算結果の比較を行った。

比較の結果、Pu、Am濃度とも今回開発したモデルは実測値とほぼ一致する計算結果を与えることを確認した。

Development of Plutonium and Americium Redistribution Code

Takahiko SATO\*

Fuel Technology Department  
Plutonium Fuel Development Center  
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories  
Tokai Research and Development Center  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 22, 2007)

In the MOX fuels irradiated in FBR, the enhanced concentration of plutonium and americium together with fuel restructuring caused by the steep temperature gradient in the radial direction is observed around the central void. The atoms transport caused by thermal diffusion and the pore migration toward the pellet center due to evaporation-condensation is considered as Pu redistribution mechanism. Since the redistribution mechanism for Am is expected to be similar to that for Pu as the results of JOYO irradiation test, assuming that their redistribution would be caused by the similar mechanism, we developed the redistribution model for Pu and Am.

In order to verify the redistribution model for Pu and Am, developed in this study, the computed radial distribution of Pu and Am concentration was compared with the results of SXMA measurements for MOX fuels, of which initial Am concentration was 0.9 wt%, irradiation in Uninstrumented Fuel Irradiation Subassembly Type-B of JOYO. As a result, it was confirmed that the computed radial distribution of Pu and Am would be in good agreement with the observed one.

Keywords: Fast Breeder Reactor, MOX Pellet, Plutonium, Americium, Diffusion, Redistribution, Fuel Design Code

---

\* Attached staff from Japan Nuclear Fuel Limited (JNFL)

目次

1. 緒言 .....	1
2. Pu 再分布モデル .....	2
2.1. 固相での拡散モデル .....	2
2.2. 気相での拡散モデル .....	2
2.3. ペレット内の Pu の拡散 .....	3
3. Am の再分布モデル .....	4
4. DIRAD-III の概略 .....	5
4.1. ペレット内温度分布モデル .....	5
4.2. ボイド移動速度モデル .....	5
4.3. フローダイヤグラム .....	6
5. 照射による Pu 及び Am の再分布と計算結果の比較 .....	7
5.1. 照射条件 .....	7
5.2. SXMA 分析 .....	7
5.3. Pu 及び Am 再分布計算 .....	7
6. 結言 .....	9
謝辞 .....	10
参考文献 .....	10

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Pu redistribution models .....	2
2.1. Diffusion model by thermal diffusion .....	2
2.2. Diffusion model by pores movement .....	2
2.3. Pu diffusion in a pellet .....	3
3. Am redistribution models .....	4
4. DIRAD-III outline .....	5
4.1. Temperature distribution model .....	5
4.2. Pore velocity model .....	5
4.3. Flow diagram .....	6
5. Comparison between the computation results of Pu and Am redistribution and the results of SXMA analysis .....	7
5.1. Irradiation conditions .....	7
5.2. SXMA analysis .....	7
5.3. Pu and Am redistribution computation .....	7
6. Conclusions .....	9
Acknowledgment .....	10
References .....	10

表リスト

表 5-1	B8-HAM 燃料のペレットの緒言および被覆管の製造仕様	11
表 5-2	B8-HAM 燃料の照射実績	11
表 5-3	B8-HAM 燃料の照射履歴	12
表 5-4	SXMA 分析時の Pu 同位体および Am の組成(wt%)	12

図リスト

図 4-1	DIRAD-Ⅲフローダイヤグラム	13
図 5-1	Pu の特性 X 線強度の径方向分布	14
図 5-2	Am の特性 X 線強度の径方向分布	14
図 5-3	Pu 濃度の径方向分布	15
図 5-4	Am 濃度の径方向分布	15
図 5-5	Pu 濃度の実測値と計算値の比較	16
図 5-6	温度分布と Pu 再分布計算の比較	16
図 5-7	Pu 濃度の時間による変化(気相と固相による拡散)	17
図 5-8	Pu 濃度の時間による変化(固相による拡散)	17
図 5-9	Am 濃度の実測値と計算値の比較	18

This is a blank page.



## 1. 緒言

高速炉において照射中の燃料ペレット内では、径方向に生じる急激な温度勾配による燃料組織変化に伴い、中心空孔近傍の Pu 濃度の増加する Pu 再分布が生じる<sup>1, 2)</sup>。Am についても Pu と同様に、「常陽」で実施した照射試験結果により中心空孔近傍で濃度の増加する再分布が観察されている<sup>3)</sup>。

燃料ペレットの融点や熱伝導度等の物性は、Pu や Am 濃度の変化により影響を受けることが考えられるため、燃料設計を行うにあたりアクチニドの再分布挙動について把握することが重要である。

現在、Pu 再分布の機構として、固相内の熱拡散と、気孔の移動による蒸発凝固機構の両者が考えられている<sup>2)</sup>。Am の再分布についてはデータが少なく、解析的な評価を行うモデルは存在しないが、「常陽」で実施した照射試験結果<sup>3)</sup>では Pu 濃度と同様に Am 濃度が中心部で増加していることが観察されている。このため、Am の再分布は Pu と同様の機構により再分布するものと考えられる。ここでは Pu と Am の再分布挙動は同じ機構に基づくものとして両者の再分布モデルのコードの開発を行った。

日本原子力研究開発機構(以下、JAEA)において高速炉燃料設計に使用されている解析コード「DIRAD-Ⅲ」では、Pu 再分布のモデルとして固相内の熱拡散しか考慮されておらず、気孔の移動による蒸発凝固機構はコードに組み込まれていない。また、Am 再分布に関する研究や実験データは乏しく、これまで Am の再分布モデルは存在していない。そのため、関連する文献の調査を行い、「DIRAD-Ⅲ」の Pu 再分布サブルーチンへの蒸発凝固機構の組み込みと、Am 再分布サブルーチンの追加を行った。

また、この再分布モデルの妥当性を検証するため、本コードによる Pu と Am の再分布解析結果と初期 Am 含有率約 0.9wt% の燃料ペレットを充填した「常陽」B 型特殊燃料集合体特殊燃料要素(B8HAM)に対する照射後試験(PIE)結果の比較を行った。

## 2. Pu 再分布モデル

### 2.1. 固相での拡散モデル

「DIRAD-III」における固相での Pu 拡散モデルは、Bober と Schumacher による U-Pu の 2 元系の固相での温度勾配、濃度勾配による拡散のモデル<sup>4)</sup>を使用している。このモデルでは、周方向、軸方向に対して温度は均一であると仮定し、径方向にのみ温度勾配があり、物質の移動も径方向のみを考慮している。この時、燃料ペレット内の固相での Pu の流束は以下のように表される。

$$J_{Pu,s} = -\rho D_{UPu} \left( x_U x_{Pu} \frac{Q_{UPu}^*}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial x_{Pu}}{\partial r} \right) \quad (2.1)$$

- $\rho$  : ペレット密度(g/cm<sup>3</sup>)
- $D_{UPu}$  : U-Pu の相互拡散係数(cm<sup>2</sup>/sec)
- $x_U, x_{Pu}$  : U, Pu 濃度(frac)
- $r$  : ペレット半径(cm)
- $T$  : 温度(K)

$$D_{UPu} = D_0 \exp(-Q_{Pu}/RT)$$

- $D_0$  : 振動数項(0.046cm<sup>2</sup>/sec)
- $Q_{Pu}$  : Pu の活性化エネルギー(90000cal/mol)
- $R$  : ガス定数(1.9865cal/molK)

熱拡散因子 $\alpha_{Pu}$ として $\alpha_{Pu} = -Q_{UPu}^*/RT$ を定義し、輸送熱 $Q_{UPu}^*$ は絶対温度に比例すると仮定すると $\alpha_{Pu}$ は定数になる。ここでは Olander が与えている $\alpha_{Pu} = 11$ とする<sup>1)</sup>。したがって、(2.1)式に示した $J_{Pu,s}$ は以下のようなになる。

$$J_{Pu,s} = \rho D_{UPu} \left( x_U x_{Pu} \frac{\alpha_{Pu}}{T} \frac{\partial T}{\partial r} - \frac{\partial x_{Pu}}{\partial r} \right) \quad (2.2)$$

### 2.2. 気相での拡散モデル

照射中の燃料ペレットは高温であり、かつ、燃料径方向に急激な温度勾配が生じる。このため、製造時から燃料ペレット内に存在している気孔がペレット中心部へ向かって移動する。このとき、蒸気圧の差により気孔の高温部で $UO_3$ が多く蒸発し、低温部へ移動、凝縮するため Pu が高温部に取り残される形となり、結果として高温部すなわちペレットの内側に Pu が濃縮される。この機構の移動による Pu の流束は次式に示す Clement と Finnis によるレンズ状気孔の蒸気輸送モデル<sup>5, 6, 7)</sup>を使用する。

$$J_{Pu,p} = \frac{P_r D_{UPu}}{d} \frac{\vec{v}}{v} \delta x_{Pu} \exp\left(-\frac{D_{UPu}}{lv}\right) \quad (2.3)$$

- $P_r$  : 気孔率(frac)
- $d$  : 気孔の厚さ( $\mu\text{m}$ )
- $l$  : 気孔の直径( $\mu\text{m}$ )
- $v$  : 気孔の速度(cm/sec)

$\delta x_{Pu}$  は以下のように定義される。

$$\delta x_{Pu} = \frac{l x_{Pu}}{20} \left| \frac{\partial T}{\partial r} \right| \quad (2.4)$$

気孔の厚さ、直径については個々に測定あるいは計算を行うことは困難であるが、温度勾配により移動するレンズ状の気孔の一般的な大きさとして  $8\mu\text{m}$ 、 $80\mu\text{m}$  とする<sup>11)</sup>。気孔の移動方向は温度分布が径方向であり、これに沿って外周から中心方向へ向かってしか移動しないため、 $\vec{v}/v$  は  $-1$  とする。したがって、気相による拡散の流束は次式のようなになる。

$$J_{Pu,p} = -\frac{P_r D_{UPu}}{d} \frac{l x_{Pu}}{20} \left| \frac{\partial T}{\partial r} \right| \exp\left(-\frac{D_{UPu}}{lv}\right) \quad (2.5)$$

### 2.3. ペレット内の Pu の拡散

照射中のペレットでは上記の固相での拡散および気相での拡散が同時に生じているが、両者の干渉はないと仮定し、全体の流束は両者の和で表されるとする。

$$J_{Pu} = J_{Pu,s} + J_{Pu,p} \quad (2.6)$$

ペレット内において軸方向の元素の拡散は無く、ペレットを径方向に同心円状に分割した任意のリングの Pu の収支は、リングの外側から流入する Pu と内側から流出する Pu の差がそのリング内の変化分に等しくなるため、次式によって表される。

$$\rho\pi(r^{L2} - r^{R2}) \frac{\partial x_{Pu}}{\partial t} = 2\pi r^L J_{Pu}^L - 2\pi r^R J_{Pu}^R \quad (2.7)$$

L,R 外側、内側のリングを表すサフィックス

上式より、Pu 濃度の微少時間での変化量が得られる。

$$\frac{\partial x_{Pu}}{\partial t} = (2\pi r^L J_{Pu}^L - 2\pi r^R J_{Pu}^R) / \rho\pi(r^{L2} - r^{R2}) \quad (2.8)$$

よって、各微少時間でのリング内の Pu 濃度は以下のように求められる。これを元に任意の時刻の Pu の径方向分布を求める。

$$x_{Pu,j} = x_{Pu,j-1} + \frac{\partial x_{Pu}}{\partial t} \delta t \quad (2.9)$$

ペレット内外表面において Pu の流入、流出は生じないため、以上の計算を行うための境界条件としてペレット表面での流束を  $J_{Pu}=0.0$  とする。

### 3. Am の再分布モデル

MOX ペレット内における Pu と Am の照射による再分布は同じような傾向を示すことが報告<sup>3)</sup>されており、Am の挙動は Pu と類似していると考えられている。このため、Am の流束にも基本的に Pu の再分布モデルと同様の固相による拡散と気相による拡散が同時に生じるモデルを使用する。

$$J_{Am} = J_{Am,s} + J_{Am,p} \quad (3.1)$$

$$J_{Am,s} = \rho D_{Am}^* \left( x_{Am} \frac{\alpha_{Am}}{T} \frac{\partial T}{\partial r} - \frac{\partial x_{Am}}{\partial r} \right) \quad (3.2)$$

$$J_{Am,p} = -\frac{P_r D_{Am}^* l x_{Am}}{d} \frac{\partial T}{\partial r} \exp\left(-\frac{D_{Am}^*}{lv}\right) \quad (3.3)$$

ペレット内における Am の拡散を考慮する場合、U-Pu-Am 三元系の拡散モデルを作成して、それに基づいて解析を行うことが最良であるが、Pu の流束の式(2.1)は U と Pu の二元系であり、活量係数 $\gamma$ と濃度  $x$  が  $\partial \ln \chi_U / \partial \ln x_U = \partial \ln \chi_{Pu} / \partial \ln x_{Pu}$  の関係を満たすことを前提としている<sup>4)</sup>。この等式は三元系では成立しない。このため三元系では新たに熱拡散方程式を解く必要があるが問題が複雑となり困難である。そのため、ここでは  $UO_2$ - $PuO_2$  の母相の中を Am が拡散していくといった単純化したモデルを採用する。また、Am の固相による拡散では、ペレット内の Am の濃度は非常に低いため(数%以下)、拡散係数は濃度依存性がないと仮定して、 $UO_2$ - $PuO_2$  相内の自己拡散係数  $D_{Am}^*$  を使用する。

Am の再分布は常陽の燃料で観察されており、中心空孔付近で増加するといった Pu の再分布と同様の傾向を示すことが観察されている<sup>3)</sup>。このため、式(3.2)及び(3.3)で使用されている各係数は Pu と同様の値を使用する。したがって、 $D_{Am}^*$  は  $D_{UPu}$  と同様にアレニウスの関係に依存した  $D_{Am}^* = D_0 \exp(-Q_{Am}/RT)$  から求められるとし、振動数項と活性化エネルギーは  $D_0 = 0.046 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、 $Q_{Am} = 90000 \text{ cal/mol}$  とする。

$J_{Am,s}$  の第 1 項の Am 濃度についても Pu と同じモデルとしているのであれば  $x_{Am}(1-x_{Am})$  であるが、低濃度であるため  $x_{Am}$  で近似する。

Am の気相による拡散も Pu と同様の過程を経て高温部に濃縮すると考え、レンズ状気孔の蒸気輸送モデルを使用する。

以上のモデルを使用して、固相、気相による拡散を別個に計算し全体としての Am 流束を求める。この後、式(2.7)~(2.9)において、 $J_{Pu}$ 、 $x_{Pu}$  を  $J_{Am}$ 、 $x_{Am}$  に置き換えてペレット内の濃度の分布を計算する。

#### 4. DIRAD-Ⅲの概略

DIRAD-Ⅲとは、任意の出力分布、出力履歴、被覆管温度履歴等を元に燃料要素の温度、組織変化等の熱的挙動を解析するコード<sup>8)</sup>である。Pu及びAmの再分布挙動に関係する箇所の概略およびフローダイアグラムを示す。

##### 4.1.ペレット内温度分布モデル

本コードでは、軸方向および周方向に熱流の発生は無いとして、一次元熱伝導方程式  $\nabla(\lambda\Delta T)=-q$  を円筒座標系の基で解き、径方向の温度差 $\Delta T_i$ を求める。

$$\Delta T_i = \frac{q'''}{4\lambda} (r_{i+1}^2 - r_i^2) - \left( \frac{q''}{2\lambda} r_i^2 - \frac{q'}{2\pi\lambda} \right) \ln \left( \frac{r_{i+1}}{r_i} \right) \quad (4.1)$$

T : 温度(°C)

$\lambda$  : 熱伝導度

q : 発熱密度(W)

q' : 単位長さあたりの発熱量(W/cm)

q''' : 発熱密度(W/cm<sup>3</sup>)

任意の径での温度を  $T_{i+1}=T_i+\Delta T_i$  とし、 $(T_i+T_{i+1})/2$  が収束するまで繰り返し計算を行うことにより求める。

##### 4.2.ボイド移動速度モデル

本コードでは、径方向温度勾配に起因するペレット内のボイド移動により生じる径方向密度分布を求め、質量保存則に基づいて中心空孔径を決定する。ここで径方向のボイド移動速度はペレット内の温度勾配による蒸発凝固機構で気孔が高温側(中心方向)に移動することであり、この速度として Dehalas の提唱する次式<sup>10)</sup>を使用する。

$$\begin{aligned} v &= \Omega D \frac{dn}{dT} \left( \frac{dT}{dr} \right)_{pore} \\ &= \Omega D \left( \frac{1}{kT} \frac{dP}{dT} - \frac{P}{kT^2} \right) \left( \frac{dT}{dr} \right)_{pore} \end{aligned} \quad (4.2)$$

$\Omega$  : 分子の体積(cm<sup>3</sup>/mol)

D : ガス拡散定数(cm<sup>2</sup>/s)

n : 単位体積あたりの蒸気分子の個数(1/cm<sup>3</sup>)

P : (U,Pu)O<sub>2</sub> 蒸気圧(mmHg)

k : ボルツマン定数(erg/deg)

$(dT/dr)_{pore}$  : 気孔内の温度勾配

ここで、気孔内の蒸気圧は PuO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> の蒸気圧を温度による関数とし、以下のようにそのモル分率の和によって表す。

$$P_{\text{PuO}_2} = 5.012 \times 10^{10} \cdot \exp\left(-\frac{6.838 \times 10^4}{T}\right) \quad (4.3)$$

$$P_{\text{UO}_2} = 2.697 \times 10^{12} \cdot \exp\left(-\frac{7.640 \times 10^4}{T}\right) \quad (4.4)$$

$$P = x_{\text{PuO}_2} P_{\text{PuO}_2} + x_{\text{UO}_2} P_{\text{UO}_2} \quad (4.5)$$

気孔による再分布を評価するためには重金属の原子、酸化物ごとの蒸気圧を評価することが重要であるが、今回使用した Finnis と Clement のモデルでは原子、分子ごとの蒸気圧の差が重金属の流束に直接影響を与えることは考慮していないので、このように温度の関数により決定する  $\text{UO}_2$  と  $\text{PuO}_2$  の分圧を使用して、気孔の移動速度の計算を行う。また、Am の蒸気圧はモル比が小さいく、ボイド移動速度に与える影響が少ないので、この計算式では無視する。

#### 4.3. フローダイヤグラム

図4-1のDIRAD-ⅢのフローダイヤグラムにおいてPu及びAmの再分布サブルーチンの組込み箇所を網掛けで示す。ペレット内の温度分布、密度、ボイド移動速度等を計算後に、これらの数値を利用してPu及びAmの再分布の計算を行う。

## 5. 照射による Pu 及び Am の再分布と計算結果の比較

常陽第 25～27 サイクルで照射された B 型特殊燃料集合体特殊燃料要素(B8HAM)の Pu 及び Am 再分布が久田らによって報告されている<sup>3)</sup>。ここでは、この再分布データを「DIRAD-Ⅲ」の計算結果との比較し、コードの検証を行った。B8HAM は通常よりも高い Am 濃度(約 0.9wt%)を有し、Am の再分布の評価に適しているため今回の比較に用いた。以下に、B8HAM で得られている結果の概略を示す。

### 5.1. 照射条件

B8HAM のペレット緒元および被覆管の製造仕様を表 5-1 に示す。燃料ペレット直径は平均 5.399mm、理論密度比は平均 85.91%である。燃料カラム長は 550mm であり、カラムの 4 箇所熱遮蔽ペレット(劣化ウラン製)を挿入してある軸方向非均質燃料要素である。

B8HAM の常陽の第 25～27 サイクル(25' サイクルを除く)において照射されており、第 27 サイクルの途中で一度プラント停止があった以外は、原子炉熱出力は約 100MW で一定に推移し、累積照射日数(100MW 相当日数)は 134.447EFPD となった(表 5-2, 5-3)。

照射終了後の SXMA 分析時のペレットの平均組成は Pu が 27.35wt%、Am が 1.44wt% である。詳細は表 5-4 に示す。

### 5.2. SXMA 分析

SXMA 分析の試料として局所燃焼度、線出力が最大となり、中心空孔、柱状晶、等軸晶の組織変化が観察されている燃料要素中央部のペレットを用いた。ペレットの横断面に対して中心空孔から外表面までを 10 $\mu$ m 間隔でスキヤニングを行うことにより、測定対象の元素の特性 X 線強度の径方向分布を測定した。これを最も X 線強度が強い箇所の相対濃度を 1 とする相対的な元素の濃度分布とした。

この測定では、測定箇所が気孔やクラック上にある場合、相対濃度が著しく小さな値となるので、それを除いたものを図 5-1, 2 に示す。ペレット中心部において Pu 及び Am の特性 X 線強度の増加がみられることがわかる。

この測定データはペレット径方向の同心円状の各リングの濃度を代表していると考えられるので、この相対濃度とリングの面積の積を径方向に積分したものをペレット断面積で除したものが、ペレットの平均相対濃度となる。この値は Pu では 0.7086、Am では 0.7495 となる。この平均相対濃度と 5.1. で示した平均組成との比により、照射後のペレットの Pu, Am 濃度の径方向分布を求める(図 5-3, 4)。

### 5.3. Pu 及び Am 再分布計算

5.1. で示した条件を基に「DIRAD-Ⅲ」による Pu 及び Am 再分布の計算を行った。「DIRAD-Ⅲ」では照射中の元素の生成、消滅については計算を行わないため、燃焼初期から SXMA 分析時の平均組成で各元素がペレット中に存在したものとして計算を行った。また、被覆管-ペレットのギャップコンダクタンスとして 1000BTU モデル、ペレットの熱伝導度としてもんじゅ設計式を使用した。実際には 3 サイクル照射され、サイクルの間に停止期間があるが、解析条件としては、出力ははじめに 100MW まで上昇した後、134.447EFPD に達するまで一様に照射されたものとする。

図5-5にPu再分布の実測値と、固相と気相による拡散を対象にした計算結果及び固相による拡散のみを対象とした計算結果を示す。どちらの計算結果も外側から中心部へ向かうにしたがって、いったん濃度の低下が生じ、更に中心空孔に近づく濃度の上昇が起こるといった実測値と同じ傾向を示す。Pu濃度は前者のほうが半径1000~1500 $\mu\text{m}$ にかけて低く、逆に中心空孔付近では高くなり、後者よりも実測値と一致している。図5-6に温度分布との比較を示すが、ペレットの中心空孔に近づくほど高温になり、気孔の移動が大きくなることが考えられる。このため、固相の拡散だけを考えた場合に比較して、中心空孔付近での再分布が促進されたものと考えられる。

図5-7及び図5-8に計算によるPu濃度の時間変化を示す。図5-7は気相、固相両者による拡散を計算したもの、図5-8は固相の拡散で計算したものである。全体として同じ経過日数であれば前者のほうが中心空孔付近での再分布が進んでいる。特に10EFPDまでの照射初期では固相による拡散による濃度変化はほとんど見られないのに対して、気相による拡散を考慮に入れた場合は再分布が生じている。ペレットの組織変化は一般に照射開始数日で生じる。このときに柱状晶の形成による気泡の移動が顕著なため、照射初期には気相による拡散の影響が大きくなる。その後は組織変化が完了しているため気泡の移動が少なく、温度勾配による固相内での拡散が上乗せされると考えられる。

次に図5-9にAmの再分布に3.で示したモデルを適用して計算したものと実測値の比較を示すが、Puの再分布と同様によく一致していることがわかる。

今回のAmの再分布モデルではAmとPuの挙動が同じ傾向を示すと考え、拡散係数や熱拡散因子はPuと同じものを用いている。しかし、本来これらの係数はAmとPuで異なるものであり、このような係数がこのモデルにどのような影響を与えるかは今後の課題である。



## 6. 結言

照射中のペレットの Pu 及び Am の挙動についてのモデル化、「DIRAD-III」コードへの実装を行い、その計算結果と常陽で照射した燃料の濃度分布の比較を行った。Pu 及び Am 濃度分布の計算値と実測値はほぼ一致していることが確認できた。

しかし、今回の気孔による拡散のモデルでは O/M 比の変化による気孔内の各金属元素、酸化物の蒸気圧の変化については十分に考慮されていない。高 O/M 比の場合は Pu の金属、酸化物の蒸気圧が U の金属、酸化物の蒸気圧より低いため、中心部での Pu の増加が生じる。検証で用いた照射データは製造時 O/M 比が 1.99 であり、照射後には中心部で低下が生じるが、それでも解析の結果では 1.97 を超えており、比較的高い O/M 比の状態での Pu 及び Am の濃度分布である。この限定された条件のために計算値と実測値が一致している可能性が考えられる。したがって、O/M 比が低い場合への適用は更に検討が必要となる。

また、今回は拡散係数や熱拡散因子は Pu と Am で同じものを用いているが、これらの係数は Am と Pu で異なるものであり、このような係数の影響についても今後の課題である。

本報告では Pu 及び Am の濃度分布は一例しか取り上げなかったため、今後は多くの照射燃料についても比較、検証を行う必要がある。

謝辞

本報告書を作成するに当たり、プルトニウム燃料技術開発センター燃料技術部設計解析課の齋藤技術員より Pu 及び Am の再分布モデルに対する助言、NESI 株式会社の中島氏より DIRAD-III コードの開発に対する助言、及びプルトニウム燃料技術開発センター燃料技術部設計解析課の小澤 TL、生澤技術員より燃料の挙動についての助言をいただいた。また、大洗研究開発センター燃料材料試験部の前田 TL より B8HAM 燃料の Pu 及び Am の再分布データを提供いただいた。ここに感謝の意を申し上げます。

参考文献

- 1) D.R.Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements" Technical Information Center, Energy Research and Development Administration, (1976)
- 2) Tetsuya Ishii, Takeo Asaga, "An investigation of the Pu migration phenomena during irradiation in fast reactor", Journal of Nuclear Materials, 294(2001)13-17
- 3) 久田雅樹、小川真一、山本一也、"Am 含有燃料照射試験(B8-HAM)の Am 再分布挙動(試験報告)"、JNC TN9430 2000-002
- 4) M.Bober, G.Schumacher, "Advances in Nuclear Science and Technology", 121-179(1973)
- 5) C.F.Clement, "The movement of lenticular pores in UO<sub>2</sub> nuclear fuel elements", Journal of Nuclear Materials, 68(1977)63-68
- 6) C.F.Clement, M.W.Finnis, "The movement of lenticular pores in mixed oxide (U, Pu)O<sub>2</sub> nuclear fuel elements", Journal of Nuclear Materials, 75(1978)115-124
- 7) C.F.Clement, M.W.Finnis, "Plutonium redistribution in mixed oxide (U, Pu)O<sub>2</sub> nuclear fuel elements", Journal of Nuclear Materials, 75(1978)193-200
- 8) 田中健哉、中島弘、山口俊弘、上村勝一郎、中江延男、松本光雄、"高速増殖炉用燃料の温度解析に用いる計算コード(DIRAD コード)について"、PNC TN8410 92-187
- 9) F.Schmitz, R.Lindner, "Diffusion of heavy elements in nuclear fuels: actinides in UO<sub>2</sub>" Journal of Nuclear Materials 17(1965)259-269
- 10) D.R.Hdhalas, G.R.Horn, "Evolution of Uranium dioxide structure during irradiation of fuel rods", Journal of Nuclear Materials 8(1963)207
- 11) H.Hoffmann, "Crack formation, crack healing and porosity redistribution during irradiation of UO<sub>2</sub> and (U, Pu)O<sub>2</sub>", Journal of Nuclear Materials 54(1974)9-23

表 5-1 B8-HAM 燃料のペレットの緒言および被覆管の製造仕様

ペレット形状	中実ペレット	
ペレット外径(平均)	5.339	mm
ペレット密度(平均)	85.91	%TD
Pu 富化度	28.7	wt%
U 濃縮度	21.5	%
Am 濃度	約 0.9	wt%
O/M 比	1.97 <sup>+0.02</sup> <sub>-0.03</sub>	
被覆管材質	PNC316	
被覆管外径	6.5±0.03	mm
被覆管内径	5.56±0.025	mm
燃料ピン全長	1416±2	mm

表 5-2 B8-HAM 燃料の照射実績

累積照射日数	134.447	EFPD
最大線出力	399	W/cm
最高燃焼度	26500	MWd/t
被覆管最高温度	558	℃
燃料最高温度	2250	℃

表 5-3 B8-HAM 燃料の照射履歴

サイクル		25	26	27	合計
運転期間		1992.8.14~ 1992.10.22	1992.12.21~ 1993.2.2	1993.2.20~ 1993.3.26	
最大熱出力(MW)		100	100	100	
本サイクル運転時間(hr)		1648.88	1029.25	785.51	3463.64
100MW 相当日数(EFPD)		64.849	39.513	30.085	134.447
最大中性子束 ( $\times 10^{15}n/cm^2s$ )	Total	3.66	3.72	3.73	
	$E \geq 0.1MeV$	2.45	2.49	2.49	
出口温度( $^{\circ}C$ )	BOC	547	546	545	
	EOC	543	544	543	
冷却材流量(kg/s)	BOC	0.29	0.29	0.29	
	EOC	0.29	0.29	0.29	

表 5-4 SXMA 分析時の Pu 同位体および Am の組成(wt%)

$^{238}Pu$	$^{239}Pu$	$^{240}Pu$	$^{241}Pu$	$^{242}Pu$	Pu	$^{241}Am$
0.20	18.76	6.46	1.03	0.90	27.35	1.44

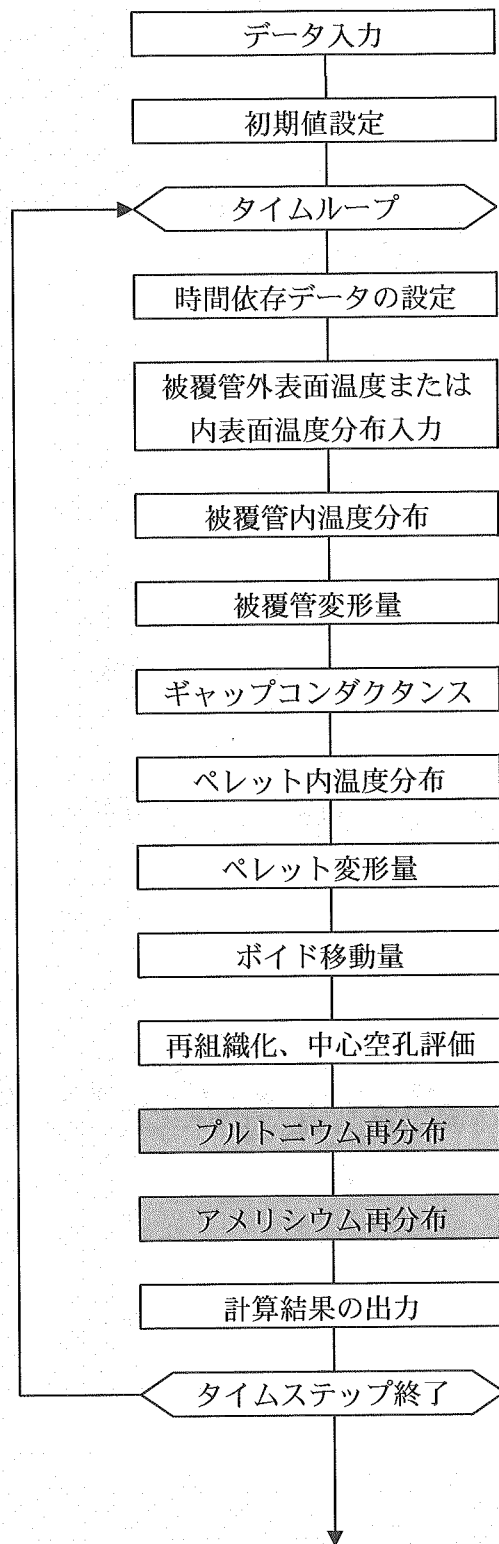


図 4-1 DIRAD-IIIフローダイヤグラム

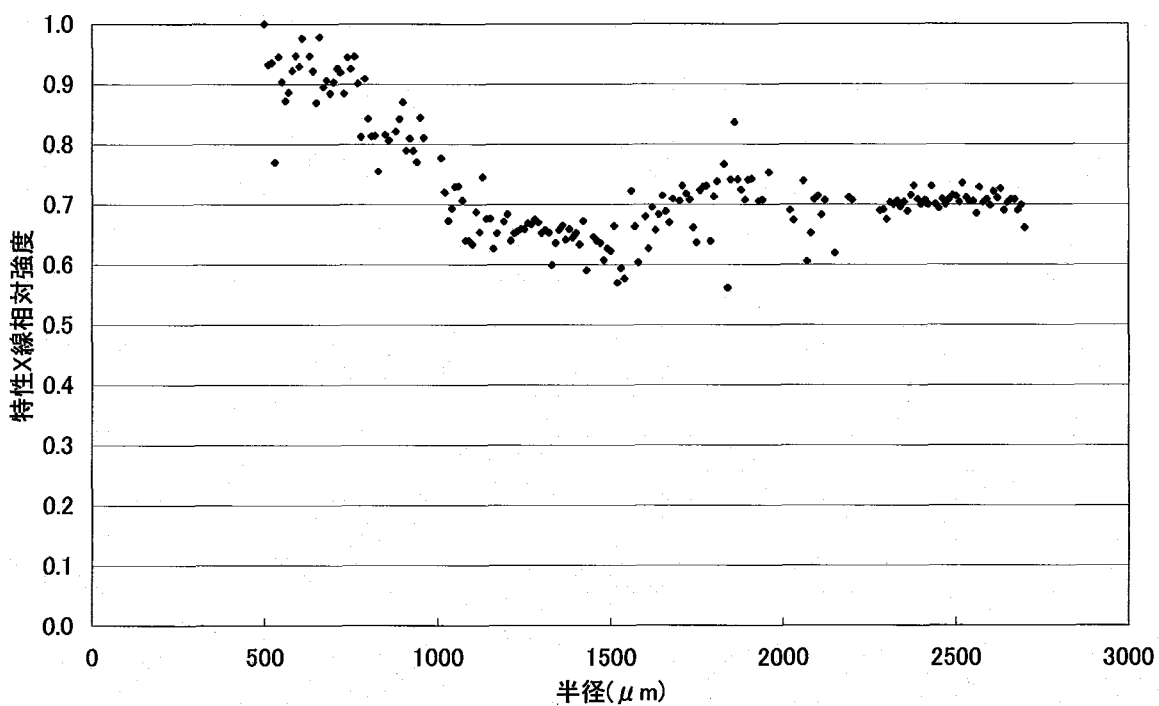


図5-1 Puの特性X線強度の径方向分布

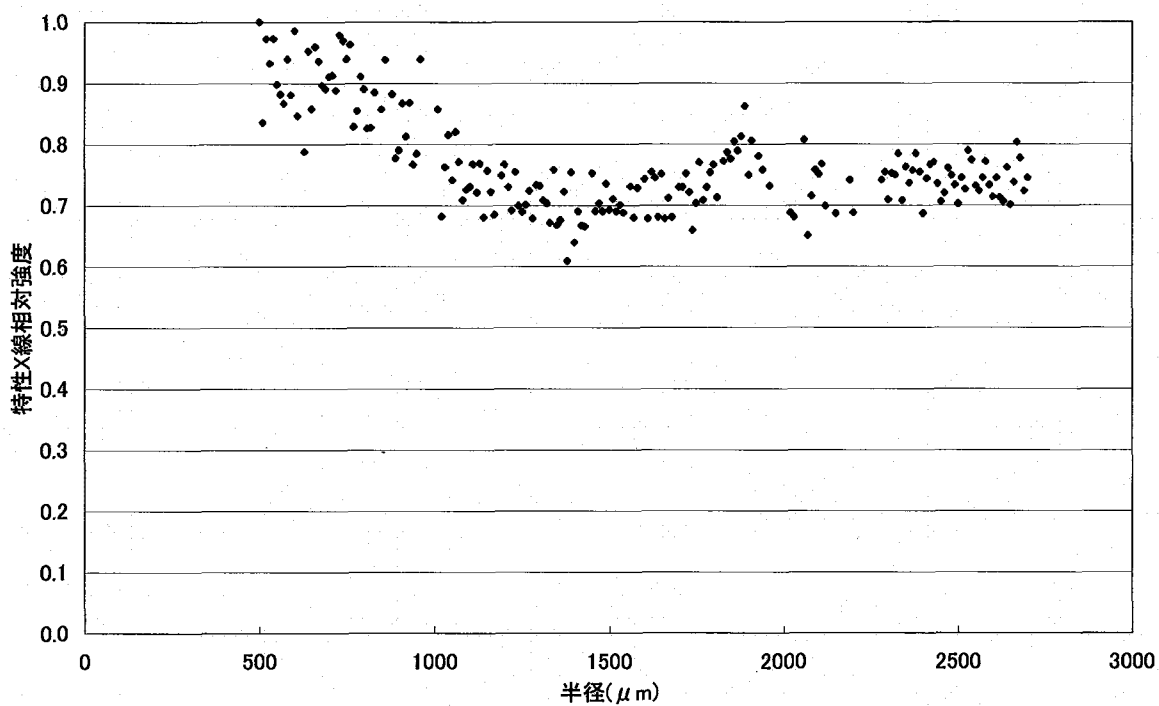


図5-2 Amの特性X線強度の径方向分布

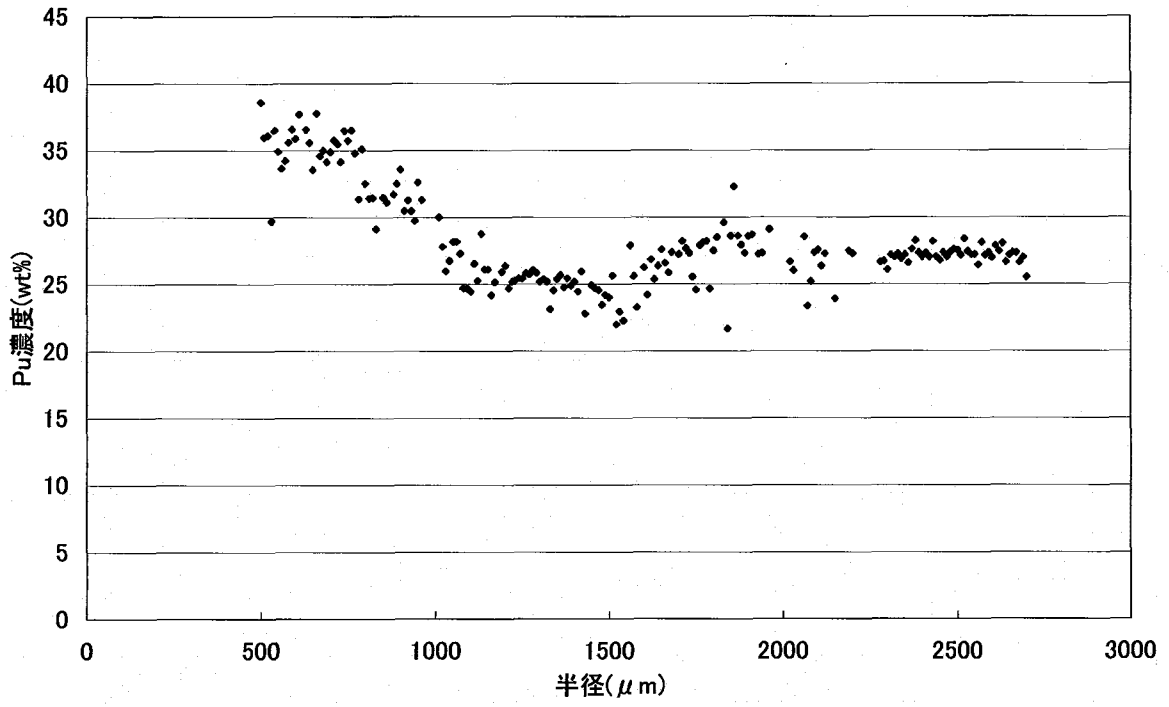


図 5-3 Pu 濃度の径方向分布

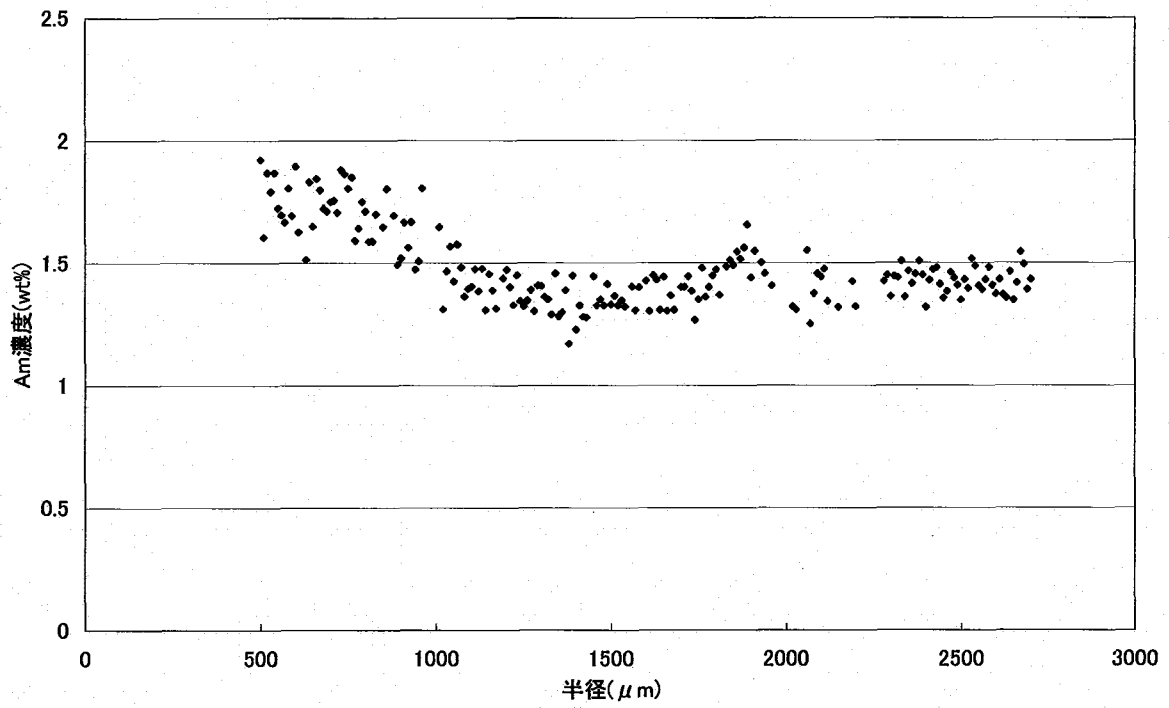


図 5-4 Am 濃度の径方向分布

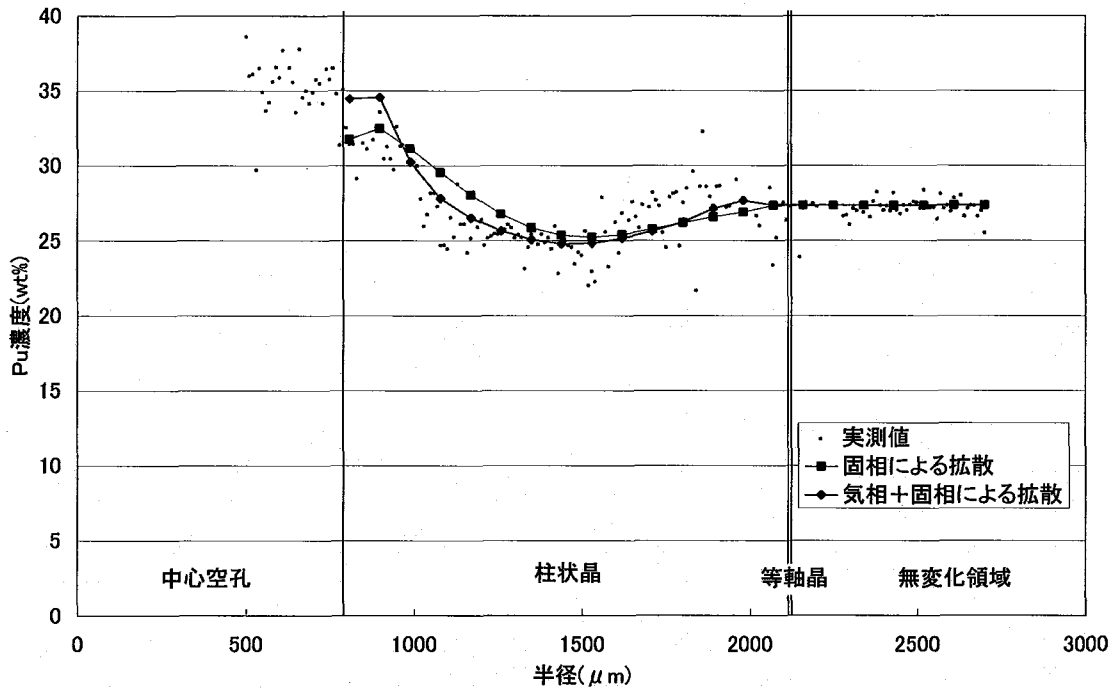


図 5-5 Pu 濃度の実測値と計算値の比較

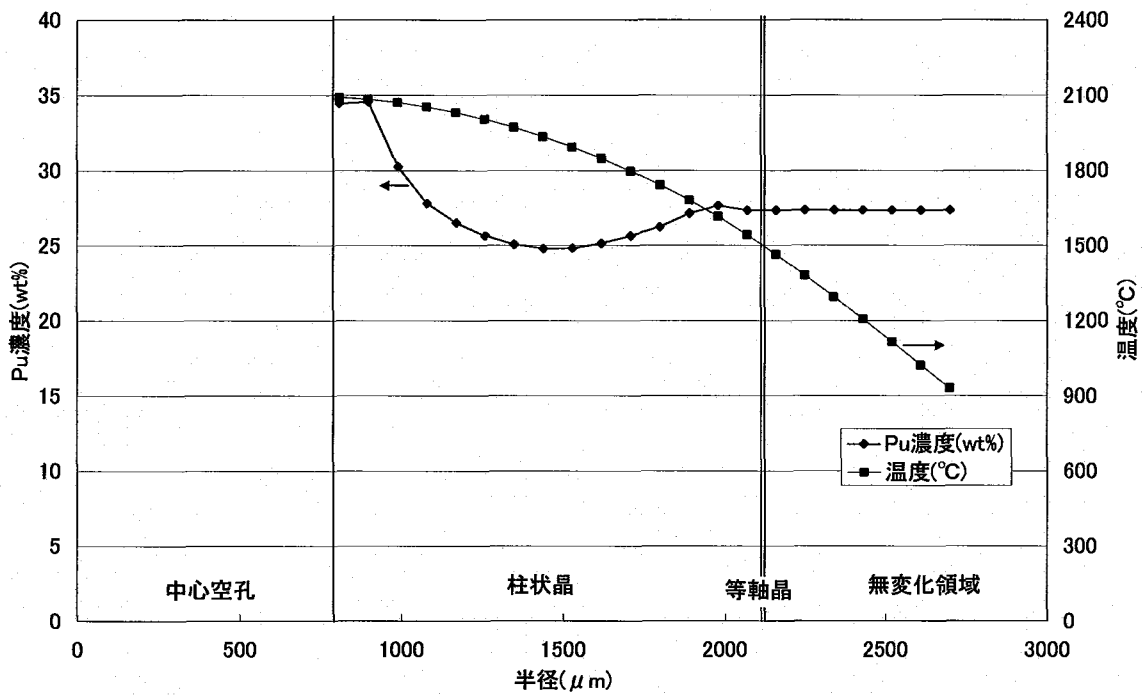


図 5-6 温度分布と Pu 再分布計算の比較



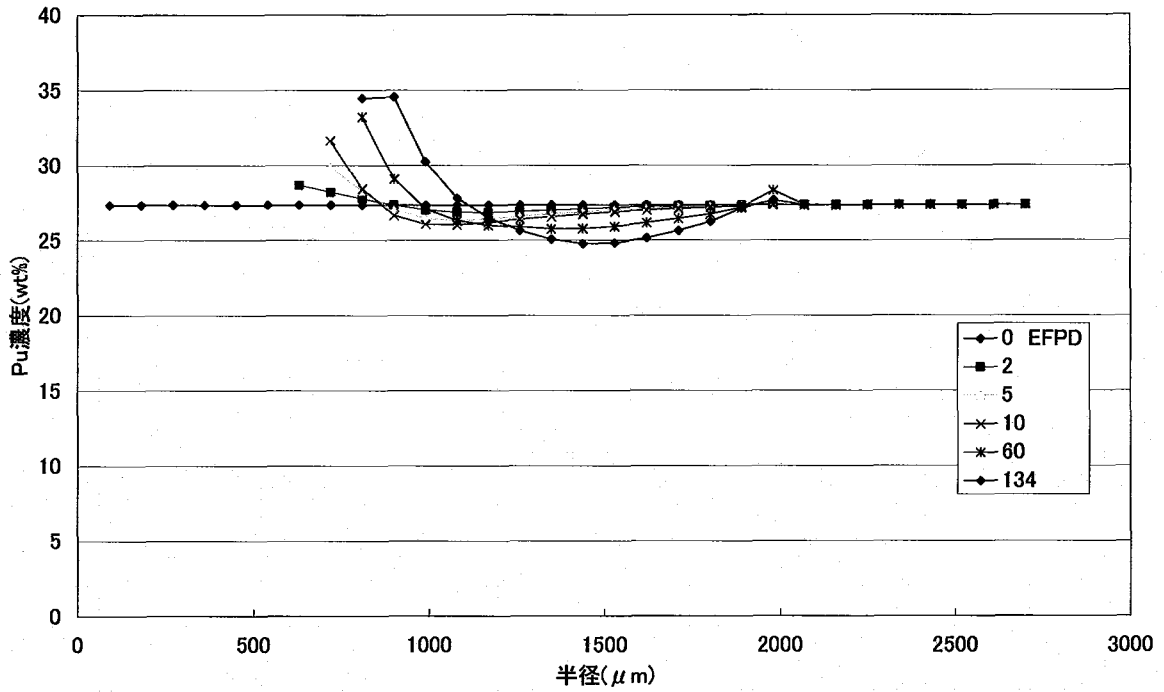


図 5-7 Pu 濃度の時間による変化(気相と固相による拡散)

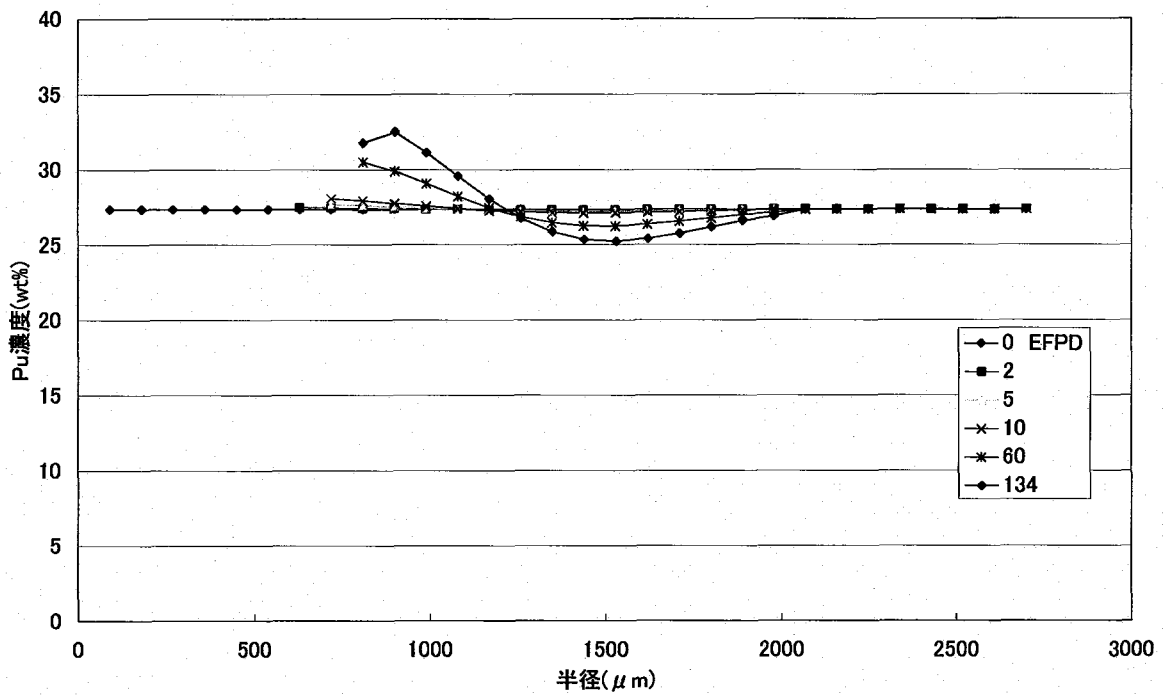


図 5-8 Pu 濃度の時間による変化(固相による拡散)

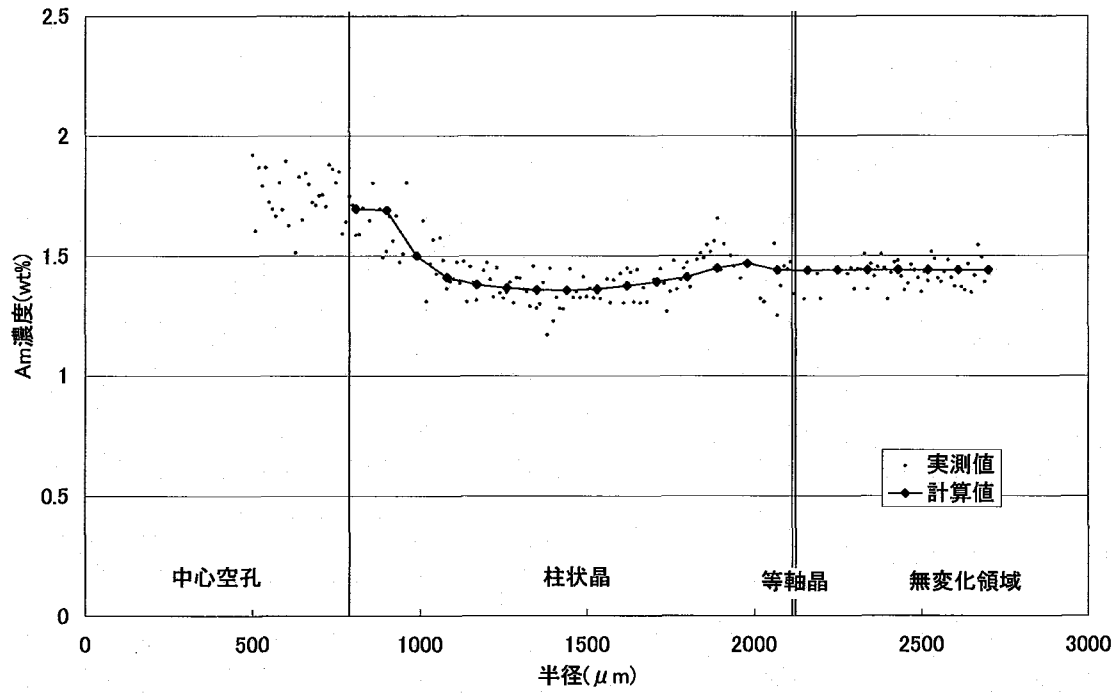


図5-9 Am濃度の実測値と計算値の比較

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
質量体積 (比体積)	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロー	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
	名称	記号		
平面角	ラジアン <sup>(a)</sup>	rad		m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> =1 <sup>(b)</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(a)</sup>	sr <sup>(c)</sup>		m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> =1 <sup>(b)</sup>
周波数	ヘルツ	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
工率, 放射線量	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
電荷, 電気量	クーロン	C		s <sup>2</sup> ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>3</sup> ・A <sup>2</sup>
磁束密度	ウェーバ	Wb	V・s	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(d)</sup>	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd・sr <sup>(c)</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=cd
放射能	ベクレル	Bq	lm/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-4</sup> ・cd=m <sup>-2</sup> ・cd
(放射性核種の) 放射線量, 質量エネルギー一分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
	シーベルト	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作る際のいくつかの用例は表4に示されている。
- (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
- (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
- (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		SI 基本単位による表し方
	名称	記号	
粘着力	パスカル秒	Pa・s	m <sup>-1</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-1</sup>
力のモーメント	ニュートンメートル	N・m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg・K)	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> ・s <sup>2</sup> ・A
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> ・s <sup>2</sup> ・A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・mol <sup>-1</sup>
モルエントロピー	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>
モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> ・s <sup>2</sup> ・A
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> ・m <sup>2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> ・sr)	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup> =kg <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	l, L	1l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	B	1B=(1/2) ln10(Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1.60217733(49)×10 <sup>-19</sup> J
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 <sup>-27</sup> kg
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 <sup>11</sup> m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	海里	1海里=1852m
ノット	ノット	1ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>
ヘクタール	ha	1ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
バール	bar	1bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa
オングストローム	Å	1Å=0.1nm=10 <sup>-10</sup> m
バ	b	1b=100fm=10 <sup>-28</sup> m

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm <sup>2</sup> =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s
ガウス	G	1 G=10 <sup>4</sup> T
エルステッド	Oe	1 Oe=(1000/4π)A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx=10 <sup>-8</sup> Wb
センチルブ	sb	1 sb=1cd/cm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> cd/m <sup>2</sup>
ホト	ph	1 ph=10 <sup>4</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup>

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
X線単位	X unit	1 X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 <sup>-26</sup> W・m <sup>-2</sup> ・Hz <sup>-1</sup>
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	carat	1 metric carat=200 mg=2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.184 J
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m