

JAERI-M
82-069

酸化物燃料の照射下熱伝導度

1982年6月

大道 敏彦・福島 奨

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

酸化物燃料の照射下熱伝導度

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

大道 敏彦・福島 奨

(1982年5月27日受理)

UO₂, (U, Pu)O₂の熱伝導度ならびにその温度依存性が実用原子炉——軽水炉, 高速増殖炉——内での照射により, どのように変化するかを, 酸化物燃料の熱伝導度に関する諸報告を参考にしながら検討した。燃料の低燃焼度時と高燃焼度時とに大別し, 各々において燃料ペレット内で起る諸現象——燃料組織再編成, 燃料構成元素である酸素, プルトニウムなどの再分布, および核分裂生成物の蓄積など——が熱伝導度の値に与える効果を議論した。

Thermal Conductivity of Oxide Fuel under
Reactor Irradiation

Toshihiko OHMACHI and Susumu FUKUSHIMA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research
Establishment, JAERI

(Received May 27, 1982)

Thermal conductivity and its temperature dependence for UO_2 and $(U,Pu)O_2$ under irradiation in nuclear reactor were reviewed and discussed. Fuel restructuring, oxygen redistribution, build-up of fission products and so forth occurred in fuel pellets under irradiation were taken up as the factors having influence on thermal conductivity. Classifying roughly irradiation into low burn-up and high burn-up, increase or decrease of thermal conductivity due to the phenomenal changes in fuel pellets was speculated.

Keywords: Thermal Conductivity, Uranium Dioxide, Mixed Oxide,
Reactor Irradiation

目 次

はじめに	1
1. UO_2 , $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の未照射熱伝導度	1
1.1 化学量論的二酸化ウラン	1
1.2 非化学量論的二酸化ウラン	3
1.3 ウラン-プルトニウム混合酸化物	3
1.4 気孔率の熱伝導度におよぼす効果	4
2. 燃料ペレットの熱伝導度の燃焼度による変化	5
2.1 低燃焼度における熱伝導度の変化	5
2.2 高燃焼度における熱伝導度の変化	6
ま と め	8
謝 辞	9
参考文献	10

Contents

Foreword	1
1. Thermal Conductivity of non-irradiated UO_2 and $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$..	1
1.1 Stoichiometric Uranium Dioxide	1
1.2 Nonstoichiometric Uranium Dioxide	3
1.3 Uranium-Plutonium Mixed Oxide	3
1.4 Influence of Porosity	4
2. Change of Thermal Conductivity of Fuel Pellet with Burn-up ..	5
2.1 Change of Thermal Conductivity in Low Burn-up	5
2.2 Change of Thermal Conductivity in High Burn-up	6
Summary	8
Acknowledgements	9
References	10

はじめに

燃料物質の熱伝導度は燃料の熱挙動を直接的に支配する物性値なので、照射下におけるその値を吟味することは重要である。

酸化物燃料の熱伝導度は、照射温度も低く、照射量も小さい時には明らかな照射効果を示す。しかし、実際の原子炉中での高温と大きな温度勾配の環境において、燃料中で起る種々の現象は、熱伝導度値に様々に寄与するため、照射効果を複雑なものにしている。熱伝導度に対して原子炉照射が及ぼす効果としては、

- (1) 照射による格子の損傷欠陥
- (2) 燃料の構造的変化；例えば燃料組織再編成 (restructuring) など、
- (3) 燃料の化学組成的変化；例えば燃料構成元素、特に酸素の再分布 (redistribution)、核分裂生成物の蓄積など、

である。

酸化物燃料の熱伝導度が照射によりどのように変化していくかと云う問題は、未照射試料の熱伝導度に上のような効果を重ねあわせることによって論議される必要がある。本稿の目的は、 UO_2 および $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の照射下の熱伝導度をこのような観点に立って眺めることにある。しかし、(1) 照射による結晶格子の損傷欠陥の効果は、照射温度が約 500°C 以下の場合には明らかであるが、現実の軽水炉、高速増殖炉の燃料で 500°C 以下である部分は少なく、従って実用的にはいわゆる格子欠陥の熱伝導度におよぼす影響は比較的重要でないと考えられる。従って、(2) 燃料の構造的変化、および、(3) 燃料の化学組成的変化が熱伝導度におよぼす効果が主になってくるであろう。

本稿では、まず最初に照射下の熱伝導度を検討する場合の基本となる未照射 UO_2 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の熱伝導度について述べる。次いで、実際の原子炉内の燃料ペレットの熱伝導度が燃焼度によりどのように変化するかを、低燃焼度の場合と高燃焼度の場合に別け、燃料の構造的、化学組成的変化の観点から考察して見る。

1. UO_2 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の未照射熱伝導度

1.1 化学量論的二酸化ウラン

UO_2 の未照射熱伝導度については、その伝導機構をも含めて多くの研究がある。1965年のIAEAパネル会議では、 UO_2 の輸送的性質の一つである熱伝導にしばった詳細な検討作業が行われた。⁽¹⁾ 約 1300°C 以下の温度範囲では、測定者間で熱伝導度値にかなりの変化があるものの、温度依存性では同じような傾向、すなわち熱伝導度は温度の上昇とともに減少するということが確認された。この中で、パネル会議では 1300°C 以下で Godfrey et al.⁽²⁾ および Stora et

はじめに

燃料物質の熱伝導度は燃料の熱挙動を直接的に支配する物性値なので、照射下におけるその値を吟味することは重要である。

酸化物燃料の熱伝導度は、照射温度も低く、照射量も小さい時には明らかな照射効果を示す。しかし、実際の原子炉中での高温と大きな温度勾配の環境において、燃料中で起る種々の現象は、熱伝導度値に様々に寄与するため、照射効果を複雑なものにしている。熱伝導度に対して原子炉照射が及ぼす効果としては、

- (1) 照射による格子の損傷欠陥
- (2) 燃料の構造的変化；例えば燃料組織再編成 (restructuring) など、
- (3) 燃料の化学組成的変化；例えば燃料構成元素、特に酸素の再分布 (redistribution)、核分裂生成物の蓄積など、

である。

酸化物燃料の熱伝導度が照射によりどのように変化していくかと云う問題は、未照射試料の熱伝導度に上のような効果を重ねあわせることによって論議される必要がある。本稿の目的は、 UO_2 および $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の照射下の熱伝導度をこのような観点に立って眺めることにある。しかし、(1) 照射による結晶格子の損傷欠陥の効果は、照射温度が約 500°C 以下の場合には明らかであるが、現実の軽水炉、高速増殖炉の燃料で 500°C 以下である部分は少なく、従って実用的にはいわゆる格子欠陥の熱伝導度におよぼす影響は比較的重要でないと考えられる。従って、(2) 燃料の構造的変化、および、(3) 燃料の化学組成的変化が熱伝導度におよぼす効果が主になってくるであろう。

本稿では、まず最初に照射下の熱伝導度を検討する場合の基本となる未照射 UO_2 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の熱伝導度について述べる。次いで、実際の原子炉内の燃料ペレットの熱伝導度が燃焼度によりどのように変化するかを、低燃焼度の場合と高燃焼度の場合に別け、燃料の構造的、化学組成的変化の観点から考察して見る。

1. UO_2 , $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ の未照射熱伝導度

1.1 化学量論的二酸化ウラン

UO_2 の未照射熱伝導度については、その伝導機構をも含めて多くの研究がある。1965年のIAEAパネル会議では、 UO_2 の輸送的性質の一つである熱伝導にしばった詳細な検討作業が行われた。⁽¹⁾ 約 1300°C 以下の温度範囲では、測定者間で熱伝導度値にかなりの変化があるものの、温度依存性では同じような傾向、すなわち熱伝導度は温度の上昇とともに減少するということが確認された。この中で、パネル会議では 1300°C 以下で Godfrey et al.⁽²⁾ および Stora et

al.⁽³⁾の値を、最も信頼できるものとして取り上げることが提案された。推奨された理論密度の95% (以下%TDと略す) の多結晶 $UO_2, 0.05 \pm 0.005$ の熱伝導度は

$$K \text{ (w/cm} \cdot \text{°K)} = \frac{1}{5.28 + 0.0237 T} \text{ (T : °K)} \dots\dots\dots (1)$$

であらわされる。

しかし、1500°C以上では測定者間で温度依存性について食違い、すなわち、熱伝導度が温度とともに上昇する結果と温度にあまり依存しないという結果が共存し、このパネル会議では、この点に関しての結論は得られなかった。

翌年には、高温における温度依存性の問題の解決のためにRound Robin Experimental Programとして、米国を中心とした七つの研究機関により共通資料を用いた熱伝導度あるいは熱拡散率の測定が行われ、 UO_2 の熱伝導度は1600~1700°Cで最少値を示すことが確認された。⁽⁴⁾

その後、熱伝導度の測定値は各国で蓄積されたが、Washingtonは、報告熱伝導度値を評価して、95%TDの試料に対して

$$K = \frac{1}{4.0 + 0.0257 T} + 0.73 \times 10^{-12} T^3 \dots\dots\dots (2)$$

を与えた。⁽⁵⁾これはGodfrey et al.⁽¹⁾による1000°C以下の熱伝導度をフォノン伝導の理論式、 $K = (A + BT)^{-1}$ にフィッティングさせて、A、Bを得、次いで1000°Cから融点に至る熱伝導積分値68w/cmを用いて、 T^3 項を導入したものである。高温で熱伝導度が温度とともに上昇するのは、従来、熱輻射による伝導の寄与と考えられていたが、 T^3 項の導入はこれを意識したものである。

しかし、KerriskおよびCliftonは未照射 UO_2 の室温から融点に至る温度範囲のエンタルピーのデータから比熱を求めて、1500°C以上で UO_2 の比熱に急激な上昇があることを示した。⁽⁶⁾熱伝導度の理論式には、フォノンの平均自由行程の温度依存性を示すもの以外に、比熱の項が含まれているため、現在では UO_2 の熱伝導度の高温における上昇は、この比熱の効果によるものと考えられている。この効果を考慮した熱伝導度式がINEL (Idaho National Engineering Laboratory) のTREE-NUREG-1005において、次のように表現されている。⁽⁷⁾

0°C < t < 1600°Cでは

$$K = \frac{[1 - \beta(1 - D)]}{1 - \beta(1 - 0.95)} \left[\frac{K_1}{K_2 + t} + K_3 \exp(K_4 t) \right], \text{ (t : °C)}$$

また1600°C < tでは

$$K = \frac{[1 - \beta(1 - D)]}{1 - \beta(1 - 0.95)} [K_5 + K_3 \exp(K_4 t)]$$

} \dots\dots (3)

ここで、Dは理論密度であり、 β は $2.58 - 0.58 \times 10^{-3} t$ で与えられる。Table 1には $K_1 \sim K_5$ の定数を示す。上式は UO_2 の熱伝導度値の合理的な 476 点を統計処理して得られたものであり、信頼性は高い。なお、 UO_2 の融点に至るまでの熱伝導度は

$$\int_{0^{\circ}\text{C}}^{T_m} KdT = 97 \text{ w/cm}$$

に最も良く一致することを示している。

Fig. 1 には、式(2)および(3)の熱伝導度を示す。

1.2 非化学量論的二酸化ウラン

超化学量論的 UO_{2+x} の熱伝導度のデータは少ない。Goldsmith および Douglas の結果⁽⁸⁾では、 1500°C 以下で熱伝導度は x の増加とともに減少する。すなわち、 $K = (A + BT)$ において、94% TD 試料では、 x が 0.11 より小さい範囲で $A = A_0 + 351x$ とあらわされる。 A_0 は $UO_{2.0}$ に対応する値である。また、 B は x が 0.04 より小さい範囲では定数として取扱うことが出来る。 1500°C 以上での測定例は見当たらないが、高温では過剰酸素のためにフォトンによる熱伝達が増加し、温度とともに熱伝導度が減少するとも考えられる。しかし、その効果が期待出来ず、 1500°C 以上では化学量論的組成での熱伝導度依存性の使用を推奨している例も存在する。⁽⁹⁾

亜化学量論的 UO_{2-x} は、室温において単相として存在しないため、多くの場合に試料中の遊離ウランを金相的に見出して亜化学量論的としているため、 O/U 比の効果は明確でない。しかし多くの場合、化学量論的 UO_2 と比較して、大きな熱伝導度が示される。

1.3 ウラン-プルトニウム混合酸化物

混合酸化物 $(U, Pu)O_2$ の熱伝導度の報告例は、 UO_2 のそれと比較すれば少ない。

Washington は 95% TD の $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_2$ の熱伝導度に

$$K = \frac{1}{4.2 + 0.0271 T} + 0.69 \times 10^{-3} T^3 \dots\dots\dots (4)$$

と与えた。この式は $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_2$ の熱伝導度を UO_2 のそれより 10% 小さいと評価して、得られたものである。

また、前出の TREE-NUREG-1005 では $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_2$ の熱伝導度式が、 UO_2 のそれと同型の式、すなわち(3)式で示され、 $K_1 \sim K_5$ については Table 1 の値を与えている。⁽⁷⁾ ただし、 $1650 \sim 2000^{\circ}\text{C}$ ではわずか 10 点の値しか存在しないため、高温側の式は今後のデータによって改められる可能性が強い。

$(U, Pu)O_2$ の熱伝導度を与える O/M 比ならびに Pu 量の影響は重要である。混合酸化物を $U_{1-q}Pu_qO_{2+x}$ と表わすとき、低温では、

$$K = \frac{1}{A(x, q) + B(x, q) T} \dots\dots\dots (5)$$

とあらわされる。q = 0.2における結果^(10, 11, 12)によると亜化学量論的領域でAはxに比例して増加するが、Bの変化はない。超化学量論的領域でも、同様なことが見られる。すなわち、O/M = 2.00で熱伝導度は最大値を示す。x = 0, すなわちO/M = 2.00で、qを変化させた場合はA, Bとも、qの増加とともに増加する、すなわちPu量が増えると熱伝導度は減少する^(13, 14)。Pu量が0から25%に増加すると、熱伝導度は、全ての温度でほぼ15%減少する。しかし、この減少率は化学量論性の変化にともなう熱伝導度の変化から比較すれば小さい。例えば混合酸化物のO/M比が2.00から1.93に変化すると、熱伝導度は800°Cで約40%減少する。後で述べる様に、原子炉内で燃料ペレット内に起り得るPu量、O/M比の変化を考えた時には、熱伝導度におよぼすPu量の変化の影響は無視出来る。

Fig. 2には(U_{0.8}Pu_{0.2})O₂の熱伝導度とO/M比の効果を示す。

1.4 気孔率の熱伝導度におよぼす効果

照射によって、燃料ペレットの密度は変化するため、気孔率の熱伝導度におよぼす影響は重要である。

Kämpf および Karsten⁽¹⁵⁾によれば、気孔形が等方性でしかも気孔熱伝導度(気孔内ガスの熱伝導度と輻射による熱伝達の和) K_pが、マトリックス材質の熱伝導度 K₀に比較して充分小さい場合 (K_p/K₀ ≪ 1/50)

$$K = K_0 (1 - P \frac{2}{3}) \dots\dots\dots (6)$$

で表されることを示した。この式はP < 0.1の範囲では改良されたLoebの式

$$K = K_0 (1 - \alpha P), (\alpha = 2.5) \dots\dots\dots (7)$$

と近似出来る。

Van Craeynest および Stora⁽¹⁶⁾は、50 ~ 1000°CのUO₂熱伝導度が上記のLoebの式のαに温度依存性があるとして

$$K = K_0 \{ 1 - (2.58 - 0.58 \times 10^{-3} t) P \} \dots\dots\dots (8)$$

で良く表現されることを示した。

また、Maxwell - Euckenの式

$$K = K_0 (1 - P) / (1 + \beta P) \dots\dots\dots (9)$$

も良く使われる。α, β等は気孔の形, 寸法, 分布によって変化する上に、ここで示した式以外にも複雑な関係式も提案されているので、どのようなものを気孔率の効果として使用すれば良いのか迷うことが多い。しかし、簡便な方法としては、Pが0.1より小さい範囲ではLoeb

型の補正式を用いて、 $\alpha = 2.5$ とし、 P が 0.1 より大きい範囲では、Maxwell-Eucken の式を用い、 β として 2.0 を使用することが推奨されている⁽⁹⁾。

2. 燃料ペレットの熱伝導度の燃焼度による変化

軽水炉、高速増殖炉などの実用炉においては、燃料ペレットの大部分は 500°C 以上になり、照射による格子欠陥（核分裂による不純物は含まない）の効果はほとんどなく、燃料ペレット内の燃料化学的、組織的变化などの効果が重要になってくる。Kleykamp⁽¹⁷⁾ は、熱伝導度に対する燃焼度効果を、照射初期の場合と、長期照射の場合にわけて考察している。本稿ではこの報告ならびに、酸化物の熱伝導度の燃焼度効果にふれた報告^(18,19)などを参考にしながら、主として $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ の熱伝導度の燃焼度効果を検討する。

2.1 低燃焼度における熱伝導度の変化

燃料ピン中のペレットは原子炉稼働開始から短時間の間に、燃料組織の変化 (restructuring) が起る。燃料中の温度勾配に沿う気孔移動により、ペレットの中心に空洞とその周りに 100 % TD に近い密度をもつ柱状晶領域が形成される。柱状晶の外側には結晶粒の成長した等軸晶の帯が存在し、さらにその外側にはペレット表面にわたって、燃料製造時のままの組織が残っている。

高速増殖炉では、燃料スエリングを重視して、炉装荷時燃料ペレットは 85 % TD 程度のものが用いられるために、燃料ペレットの組織再編成によるペレット内の気孔率の径方向分布の変化が熱伝導度におよぼす影響は大きい。Kleykamp は燃料製造時の組織のままの不変領域、等軸晶領域、柱状晶領域に一定の気孔率を割りあて、照射初期における 85 % TD の $(\text{U}_{0.85}, \text{Pu}_{0.15})\text{O}_2$ の熱伝導度を推定している⁽¹⁷⁾。照射前熱伝導度として(3)式ならびに Table 1 の値を用いて、Kleykamp による方法で得られた 85 % TD の $(\text{U}_{0.8}, \text{Pu}_{0.2})\text{O}_2$ の燃料組織再編成前と後の熱伝導度を Table 2 に示す。燃料表面に近い領域では熱伝導度はあまり変化しないが、高い温度領域では著るしい熱伝導度の増加が起る。

この様な気孔率の変化にともなう熱伝導度の変化と、中心空洞の形成はペレット径方向の放射線温度プロファイルを著るしく変化させる。炉始動時の燃料組織再編成のない状態から中心空洞の生成、成長により燃料中心温度は変化する。Table 2 の熱伝導度を用いて、線出力 500 W/cm の場合の燃料組織再編成前後ならびに中心空洞の成長にともなう燃料ペレット中心温度を求めた結果を Table 3 に示す。燃料組織再編成がペレット中心温度を低下させることに効果的であることがわかる。なお、表中の β はペレット径に対する空洞半径の比率である。

炉稼働開始から短かい期間内に、燃料中の酸素原子の再分布 (Oxygen redistribution) も起る。炉装荷時燃料の O/M 比が化学量論性に近い 2.00 の場合は、ペレット径方向全体にわたって O/M 比はほぼ一定のままであるが、O/M 比が最初から 2.00 からずれている場合は酸素

型の補正式を用いて、 $\alpha = 2.5$ とし、 P が 0.1 より大きい範囲では、Maxwell-Eucken の式を用い、 β として 2.0 を使用することが推奨されている⁽⁹⁾。

2. 燃料ペレットの熱伝導度の燃焼度による変化

軽水炉、高速増殖炉などの実用炉においては、燃料ペレットの大部分は 500°C 以上になり、照射による格子欠陥（核分裂による不純物は含まない）の効果はほとんどなく、燃料ペレット内の燃料化学的、組織的变化などの効果が重要になってくる。Kleykamp⁽¹⁷⁾ は、熱伝導度に対する燃焼度効果を、照射初期の場合と、長期照射の場合にわけて考察している。本稿ではこの報告ならびに、酸化物の熱伝導度の燃焼度効果にふれた報告^(18,19)などを参考にしながら、主として (U, Pu)O₂ の熱伝導度の燃焼度効果を検討する。

2.1 低燃焼度における熱伝導度の変化

燃料ピン中のペレットは原子炉稼働開始から短時間の間に、燃料組織の変化 (restructuring) が起る。燃料中の温度勾配に沿う気孔移動により、ペレットの中心に空洞とその周りに 100 % TD に近い密度をもつ柱状晶領域が形成される。柱状晶の外側には結晶粒の成長した等軸晶の帯が存在し、さらにその外側にはペレット表面にわたって、燃料製造時のままの組織が残っている。

高速増殖炉では、燃料スエリングを重視して、炉装荷時燃料ペレットは 85 % TD 程度のものが用いられるために、燃料ペレットの組織再編成によるペレット内の気孔率の径方向分布の変化が熱伝導度におよぼす影響は大きい。Kleykamp は燃料製造時の組織のままの不変領域、等軸晶領域、柱状晶領域に一定の気孔率を割りあて、照射初期における 85 % TD の (U_{0.85}, Pu_{0.15}) O₂ の熱伝導度を推定している⁽¹⁷⁾。照射前熱伝導度として(3)式ならびに Table 1 の値を用いて、Kleykamp による方法で得られた 85 % TD の (U_{0.8}, Pu_{0.2}) O₂ の燃料組織再編成前と後の熱伝導度を Table 2 に示す。燃料表面に近い領域では熱伝導度はあまり変化しないが、高い温度領域では著しい熱伝導度の増加が起る。

このような気孔率の変化にともなう熱伝導度の変化と、中心空洞の形成はペレット径方向の放射線温度プロファイルを著しく変化させる。炉始動時の燃料組織再編成のない状態から中心空洞の生成、成長により燃料中心温度は変化する。Table 2 の熱伝導度を用いて、線出力 500 W/cm の場合の燃料組織再編成前後ならびに中心空洞の成長にともなう燃料ペレット中心温度を求めた結果を Table 3 に示す。燃料組織再編成がペレット中心温度を低下させることに効果的であることがわかる。なお、表中の β はペレット径に対する空洞半径の比率である。

炉稼働開始から短かい期間内に、燃料中の酸素原子の再分布 (Oxygen redistribution) も起る。炉装荷時燃料の O/M 比が化学量論性に近い 2.00 の場合は、ペレット径方向全体にわたって O/M 比はほぼ一定のままであるが、O/M 比が最初から 2.00 からずれている場合は酸素

の移動が起ってくる。高速炉燃料は通常、O/M比が1.98程度のもので使用されるので、この場合にはペレット表面近くではO/M比は2.00に近く、燃料中心に近い側の柱状晶領域では1.96程度が予想される。O/M比の減少は熱伝導度の減少をもたらすため、柱状晶領域の熱伝導度は減少し、この領域の密度増加による熱伝導度上昇を差引くことになる。

軽水炉の場合は、ペレットの高密化現象(densification)を考慮して、95% TD以上の高密度ペレットが炉装荷される。従って、燃料組織編成にともなう熱伝導度の変化ははげしくない。Table 4にはFayl および Hansen による94% TD UO_2 の炉内実験から得られた照射初期($\sim 10^{19}$ fissions/cm³: $\sim 0.1\%$ B.U)の熱伝導度⁽²⁰⁾を示す。同時に(3)による95% TD および100% TDの未照射 UO_2 の熱伝導度値も参考のために示した。

軽水炉においては、一般にO/U比が2.00よりわずかに大きい燃料を炉装荷する。酸素の再分布により、燃料中心部分のO/U比は増加するため熱伝導度は減少するが、軽水炉の場合は高速炉燃料の場合ほど中心温度の上昇を見こまないため、ペレット内温度勾配も小さく、酸素再分布が熱伝導度におよぼす影響も小さい。

2.2 高燃焼度における熱伝導度の変化

燃焼度の増加とともに、Kr, Xeなどの気体状核分裂生成物以外に、いわゆる固体状核分裂生成物も増加する。固体状核分裂生成物を燃料中で取り得る形態に従って、次のような三つのグループに区分することが可能である。すなわち、(1) 燃料母体と固溶体酸化物を形成する希土類, Zr など、(2)酸化物となるが、燃料母体とは固溶体を形成せずに新しい相をつくる, Sr, Ba, Zr および超化学量論的酸化物中のMo, および (3) 金属間化合物として存在するMo, Tc, Ru, Rh および, Pd などである。

Kr, Xe等は気孔の熱伝導度に寄与する。Kämpf および Karsten はこの問題を詳しく論じている⁽¹⁵⁾。気孔の分布が均一で燃料母体の熱伝導度と気孔の熱伝導度の比, ν が充分大きい場合は、気孔率の熱伝導度への影響は(6)式で近似出来ることは前に示した。Fig. 3には酸化物燃料の気孔寸法に対する ν の依存性を示す。Kr, Xeが気孔内ガスの場合には1000°Cでは100 μ 程度の気孔まで、この式の使用が可能であるが、1700°Cでは30 μ 程度に対しては使用出来ない。しかし、高燃焼度では燃料中の気孔、気泡はスエリングのため閉じる傾向にあるため、燃焼が進むに従って気孔中のガス成分に変化が起ろうとも、未照射 UO_2 等について用いられている気孔率と熱伝導度との関係を示す式からの変更を考慮する必要はないであろう。また、Kr, Xeの蓄積は被覆管と燃料ペレット間のギャップコンダクタンスに当然ながら影響を与えるが、ギャップコンダクタンス自体が非常に複雑なものであり、ここでは触れない。

第一グループの固体状核分裂生成物の酸化物の熱伝導度の値は UO_2 のそれと同程度の大きさをもつ。しかし、固溶体の熱伝導度は溶質元素の量が小さい場合にはこの量とともに減少するので、第一グループの固体状核分裂生成物の蓄積は熱伝導度を減少させる効果をもつ。

Westinghouse⁽²¹⁾の炉内実験の結果では、燃料中心温度1000°Cの UO_2 において、 1.7×10^{21} fissions/cm³ ($\sim 10\%$ B.U)で、熱伝導度は未照射のその75%に減少した。また、Runfors⁽²¹⁾は同じ燃焼度を想定して UO_2 に Zr, 希土類, アルカリ土類酸化物も加えた模擬

実験を行ない 500 ~ 1000°C において、熱伝導度は純粋な UO_2 のその 82% に減少した。これらの報告における核分裂主生成物元素には、燃料母体と固溶しないものも含まれているが、少くとも 1000°C 程度以下の温度では、高燃焼度において第一グループの固体状核分裂生成物が著るしく熱伝導度を減少させる影響をもつことが期待される。

Hartlib et al.⁽²²⁾ は 10% B.U の $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ で 2.1% の酸化物核分裂生成物が固溶すると仮定した炉外模擬実験において、1000 ~ 2000°K で 5 ~ 8% の熱伝導度の減少結果を得ている。Kleykamp⁽¹⁵⁾ は 10% B.U の $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ で 2000°C において第一グループの固体状核分裂生成物の効果による熱伝導度の低下を 25% と推定している。

従来、 UO_2 と核分裂主生成物酸化物固溶体の熱伝導度をくわしく測定した例は少なかったが、Fukushima et al.^(23, 24) は UO_2 と三価希土類酸化物固溶体の熱伝導度を測定して、1500°C 以下の熱伝導度はフォノン伝導の式、 $K = (A + BT)^{-1}$ に従い、B は希土類濃度に依存せず、ほぼ一定であるが、A は希土類濃度の増加とともに増加することを見出した。また、A の値は固溶体をイオン結晶とし、固溶体を形成するイオンの半径と質量とから熱伝導度の欠陥モデル^(25, 26) を用いて、理論的に評価出来ることを示した。このことは、第一グループの固体状核分裂生成物の熱伝導度に与える影響を予測出来る可能性を示すものである。また、Fukushima et al. による結果は、高燃焼度における燃料酸化物の熱伝導度は、未照射の場合と比較して低温ではその減少が著るしいが、高温ではその減少は小さいことを示している。

燃焼度が進んだ燃料では Sr, Ba, Zr の酸化物が、 $(\text{Zr, Ba, Sr})\text{O}_3$ として、柱状晶と等軸晶の境界付近にあらわれる。また、Mo, Te, Ru, Rh, Pd などは U, Pu と金属間化合物を形成して柱状晶領域に分布する。Fig. 4 に SrO, BaO, Mo, Te, Ru 等の熱伝導度⁽²⁷⁾ を示すが、これから固体状核分裂生成物のうち第二グループの析出酸化物ならびに第三グループの析出金属間化合物などの熱伝導度は UO_2 のそれよりも少くとも一桁程度は大きいことが予想される。また、これらが分布する領域は高温領域に片よっていることから、第二、第三グループの固体状核分裂生成物の熱伝導度への影響を一括して考察することが許されるであろう。Kleykamp⁽¹⁷⁾ は両者の介在物の熱伝導度を $0.8 \text{ W/cm} \cdot ^\circ\text{C}$ と見つかり、サーメット系の熱伝導度式⁽²⁸⁾

$$1 - V_{\text{Me}} = \frac{K_{\text{Me}} - \bar{K}}{K_{\text{Me}} - K_{\text{ox}}} \left(\frac{K_{\text{ox}}}{\bar{K}} \right)^{\frac{1}{3}}$$

を用いて、10% B.U $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ において 2000°C で 8% の熱伝導度の減少が第二、第三グループの核分裂生成物からもたらされるとしている。なお、上式で \bar{K} はサーメットの熱伝導度であり、 K_{ox} , K_{Me} は燃料マトリックス、金属相（今の場合は析出酸化物相も含む）の熱伝導度、 V_{Me} は金属相の体積割合である。

固体核分裂生成物の以上のような効果、すなわち第一グループのものは熱伝導度を減少させ、第二、第三グループのものはこれを増加させる効果は、燃料ペレット内の各領域の熱伝導度に対しておおよそ、次の様な影響を示すであろう。ペレット表面に近い比較的温度の低い領域では第一グループのものにより、熱伝導度の減少が著るしい。一方、ペレット中心に近い高温領域では、第一グループの影響が小さくなるとともに、第二、三グループのもの熱伝導度を上昇させる効果のために、全体としては固体状核分裂生成物の蓄積の影響はあまりないこ

とが予想される。

高速炉では核分裂収支と酸素量の関係から、燃焼度とともに、燃料ペレット中のO/Mは増加すると云われてきた。従って、炉装荷時燃料のO/M比が2.00より小さい場合でも、燃焼度の増加とともに2.00に近づいていくため、熱伝導度は増加して行くと考えられる。しかしながら、例えばJ. Johnson et al の炉内実験の結果⁽²⁹⁾によれば、 $\text{Mo} \rightarrow \text{MoO}_2$ の反応、ならびにBd, Srのジルコネイト化等による析出酸化物の生成、および被覆管への酸素の移動などが燃料母体からの酸素の損失を促進させるために、予想されるほどにはO/M比を増加させない。炉装荷時のO/M比が1.988～2.0の燃料を用いた場合、4.7%～10.9% B.Uでは燃料ペレット中心においてO/M比は1.95～1.96程度、表面においてはほぼ化学量論的組成をもつ。酸素の再分布は照射開始直後の短時間で完了してしまい、その後のペレット内の酸素濃度の変化は上の結果からゆるやかと考えられるので、燃焼度の進行にともなう熱伝導度に対するO/M比効果は小さいであろう。

Puの再分布は、酸素のそれよりはゆるやかに起る。燃焼度が進むにつれ、Puは燃料の中心方向に移動するがPu/(U+Pu)比の熱伝導度に対する影響は小さいため、この効果は高温領域の熱伝導度をわずかに下げるにとどまる。

ま と め

原子炉内における酸化燃料の熱伝導度に対する諸効果を検討した。

- (1) 原子炉の稼動初期には燃料組織再編成による燃料内密度変化が熱伝導度におよぼす影響が大きく、特に高温領域の熱伝導度を増加させる。また、酸素の再分布の影響も大きい。化学量論的組成からずれた燃料を炉装荷した場合、高温領域の熱伝導度を下げる。
- (2) 高燃焼度では、固体状核分裂生成物の熱伝導度に与える影響が大きい。燃料母体と固溶する核分裂生成物は熱伝導度を減少させる。一方、介在物として第二相を形成する核分裂生成物は熱伝導度を上昇させる。全体としては、熱伝導度を減少させ、特に低温領域でのそれが著しい。

上のような熱伝導度の挙動は次のような意味をもつ。燃料ペレットは、照射前ではペレット全体で同一物質から成立っているが、照射を受けることによりペレット中の各点での物理・化学的变化が進行し、燃料ペレット表面から中心にわたって連続的に特性の異なった物に変化してしまう。このことは、燃料の熱挙動の把握に有用な熱伝導積分で使用される熱伝導度の値には、これを考慮した値を用いなければならないことになる。熱伝導度が照射によりどのように変化するかという問題は、それがペレットの場合には照射温度と燃焼度を別々にパラメータとして解決することではない。

Fig. 5には、燃料装荷時の理論密度が85%である(U, Pu)O_{2.00}の熱伝導度が、照射前、原子炉稼動初期ならびに10% B.U程度の燃焼度時と照射が進んで行くに従ってどのように変化するかを示す。(あくまで著者の推定によるものである。)明らかに熱伝導度積分に用いるべき熱伝導度の値は燃焼度の進行とともに変化する。

とが予想される。

高速炉では核分裂収支と酸素量の関係から、燃焼度とともに、燃料ペレット中のO/Mは増加すると云われてきた。従って、炉装荷時燃料のO/M比が2.00より小さい場合でも、燃焼度の増加とともに2.00に近づいていくため、熱伝導度は増加して行くと考えられる。しかしながら、例えばJ. Johnson et al の炉内実験の結果⁽²⁹⁾によれば、 $\text{Mo} \rightarrow \text{MoO}_2$ の反応、ならびにBd, Srのジルコネイト化等による析出酸化物の生成、および被覆管への酸素の移動などが燃料母体からの酸素の損失を促進させるために、予想されるほどにはO/M比を増加させない。炉装荷時のO/M比が1.988～2.0の燃料を用いた場合、4.7%～10.9% B.Uでは燃料ペレット中心においてO/M比は1.95～1.96程度、表面においてはほぼ化学量論的組成をもつ。酸素の再分布は照射開始直後の短時間で完了してしまい、その後のペレット内の酸素濃度の変化は上の結果からゆるやかと考えられるので、燃焼度の進行にともなう熱伝導度に対するO/M比効果は小さいであろう。

Puの再分布は、酸素のそれよりはゆるやかに起る。燃焼度が進むにつれ、Puは燃料の中心方向に移動するがPu/(U+Pu)比の熱伝導度に対する影響は小さいため、この効果は高温領域の熱伝導度をわずかに下げるにとどまる。

ま と め

原子炉内における酸化物燃料の熱伝導度に対する諸効果を検討した。

- (1) 原子炉の稼動初期には燃料組織再編成による燃料内密度変化が熱伝導度におよぼす影響が大きく、特に高温領域の熱伝導度を増加させる。また、酸素の再分布の影響も大きい。化学量論的組成からずれた燃料を炉装荷した場合、高温領域の熱伝導度を下げる。
- (2) 高燃焼度では、固体状核分裂生成物の熱伝導度に与える影響が大きい。燃料母体と固溶する核分裂生成物は熱伝導度を減少させる。一方、介在物として第二相を形成する核分裂生成物は熱伝導度を上昇させる。全体としては、熱伝導度を減少させ、特に低温領域でのそれが著しい。

上のような熱伝導度の挙動は次のような意味をもつ。燃料ペレットは、照射前ではペレット全体で同一物質から成立っているが、照射を受けることによりペレット中の各点での物理・化学的变化が進行し、燃料ペレット表面から中心にわたって連続的に特性の異なった物に変化してしまう。このことは、燃料の熱挙動の把握に有用な熱伝導積分で使用される熱伝導度の値には、これを考慮した値を用いなければならないことになる。熱伝導度が照射によりどのように変化するかという問題は、それがペレットの場合には照射温度と燃焼度を別々にパラメータとして解決することではない。

Fig. 5には、燃料装荷時の理論密度が85%である(U, Pu)O_{2.00}の熱伝導度が、照射前、原子炉稼動初期ならびに10% B.U程度の燃焼度時と照射が進んで行くに従ってどのように変化するかを示す。(あくまで著者の推定によるものである。)明らかに熱伝導度積分に用いるべき熱伝導度の値は燃焼度の進行とともに変化する。

謝 辞

本稿は京都大学原子炉実験所短期研究委員会“核燃料の照射基礎”に於て課題となったテーマを、調査・検討した結果の一部を記したものである。調査の過程で助言をいただいた名古屋大学桐原朝夫教授（研究委員会主査）に感謝します。また、その日本原子力研究所に在勤中には多大の論議を加えていただいた日立エンジニアリング菊池武雄博士に感謝します。また、本研究に御理解と支持をいただいた下川純一燃料工学部部長および佐々木泰一特別研究員に感謝いたします。

参 考 文 献

- (1) "Thermal Conductivity of Uranium Dioxide" Ed. by Kaufmann, B., 1966, IAEA
- (2) Godfrey, T.G., Fulkerson, W., Kellie, T.G., Moore, J.P., McElroy, D.L., ORNL-3556 (1964)
- (3) Stora, J.P., De Sigoyer, B. de B., Deimas, R., Deschams, P., Ldvand, B., Ringot, C., CEA-R-2586 (1964)
- (4) "A Round Robin Experimental Program to Measure The Thermal Conductivity of Stoichiometric UO₂" prepared by Conway, J.B., Feith, A.D., GEMP-715 (1969)
- (5) Washington, A.B.G., TRG-Report - 2236 (1973)
- (6) Kerrisk, J.F., Clifton, B.G., Nuclear Technology, 16 (1972) 531
- (7) "A Handbook of Material Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior" Ed. by MacDonald, P.E., Thompson, L.B., Tree-Nureg - 1005 (1976)
- (8) Goldsmith, L.A., Douglas, J.A., J. Nucl. Mater., 47 (1973) 31
- (9) "Properties for LMFBR Safty Analysis" Ed. by Leibowitz, L. et al, ANL-CEN-RSD-76-1 (1976)
- (10) Schmidt, H.E., High Temp-High Press., 3 (1971) 345
- (11) Gibby, B.L., BNWL -927 (1969)
- (12) Van Craeynest, Weilbacher, J.C., J. Nucl. Mater., 26 (1968) 132
- (13) Gibby, B.L., J. Nucl. Mater., 38 (1971) 163
- (14) Weilbacher, J.C., CEA-R-4572 (1974)
- (15) Kämpf, H., Karsten, G., Nucl. Appl. Technol., 9 (1970) 228
- (16) Van Craeynest, J.C., Stora, J.P., J. Nucl. Mater., 37 (1970) 153
- (17) Kleykamp, H., KFK-1245 (1970)
- (18) Schulz, B., EURFNR-968 (1971)
- (19) Lokken, R.O., Courtright, E.L., BNWL-2270 (1976)
- (20) Fayl, G., Hansen, K., RISO-269 (1972)
- (21) Runfors, U., Fuel and Materials Specialist Meeting, Stockholm, 23/24.10. (1969)
- (22) Hartlib, S.M., Hough, A., Waife, M.P., Hall, A.R., AERE-R-7325
- (23) Fukushima, S., Ohmichi, T., Maeda, A., Watanabe, H., J. Nucl. Mater., 102 (1981) 30
- (24) Fukushima, S., Ohmichi, T., Maeda, A., Watanabe, H., *ibid.* 105 (1982) 201
- (25) Ambegaoker, V., Phys. Rev. 114 (1959) 488

- (26) Abeles, B., Phys. Rev., 131 (1963) 1906
- (27) "Thermophys. Prop. High Temp. Solid Mat" Ed. by Touloukian, Y.S., 1967,
New York
- (28) Ondracek, G., Shulz, B., Thümmel, F., High Temp-High Press., 1
(1969) 439
- (29) Johnson, I., Johnson, C.E., Crouthamal, C.E., Seils, C.A., J. Nucl. Mater.,
48 (1973) 21

Table 1 式(3)における UO_2 (U, Pu) O_2 の熱伝導度の定数

	K_1	K_2	K_3	K_4	K_5
UO_2	40.4	464	1.216×10^{-4}	1.867×10^{-3}	0.0191
(U, Pu) O_2	33.0	375	1.540×10^{-4}	1.710×10^{-3}	0.0171

Table 2 $\text{U}_{0.85}\text{Pu}_{0.15}\text{O}_2$ の照射初期における熱伝導度
(装荷時燃料密度：85% TD)

温度 ($^{\circ}\text{C}$)	熱伝導度 K [$\text{W}/\text{cm}^{\circ}\text{C}$]		燃料組織再編成 による気孔率	温度範囲
	均一な気孔分布 (照射前)	不均一な気孔分布 (照射後)		
600	0.0256	0.0256	不変領域 $P = 0.15$	$< 1300^{\circ}\text{C}$
800	0.0219	0.0219		
1000	0.0194	0.0194		
1200	0.0176	0.0176		
1400	0.0163	0.0203	等軸晶領域 $P = 0.05$	$1300 \sim 1700^{\circ}\text{C}$
1600	0.0156	0.0191		
1800	0.0170	0.0221	柱状晶領域 $P = 0$	$< 1700^{\circ}\text{C}$
2000	0.0185	0.0235		
2200	0.0204	0.0253		
2400	0.0231	0.0280		

Table 3 燃料組織再編成が $U_{0.85}Pu_{0.15}O_2$ ペレットの中心温度に及ぼす影響
($X = 500 \text{ W/cm}$)

		中 心 温 度 ($^{\circ}\text{C}$)		
		$T_s = 600^{\circ}\text{C}$	$T_s = 800^{\circ}\text{C}$	$T_s = 1000^{\circ}\text{C}$
均一な気孔分布 (燃料組織再編成前)		2350	2600	2790
不均一な気孔分布 (燃料組織再編成後)	$\beta = 0$	2190	2410	2580
	$\beta = 0.1$	2130	2350	2510
	$\beta = 0.2$	2000	2260	2410

Table 4 UO_2 の照射初期における熱伝導度⁽²⁰⁾
(装荷時燃料密度: 94% TD)

温 度 ($^{\circ}\text{C}$)	熱 伝 導 度 ($\text{W/cm}^{\circ}\text{C}$)		
	照 射 後 ¹⁾	94% TD ²⁾	100% TD ²⁾
500	0.047 \pm 0.0035	0.041	0.048
700	0.040 \pm 0.003	0.034	0.040
900	0.0335 \pm 0.0025	0.030	0.034
1100	0.0285 \pm 0.002	0.026	0.030
1300	0.0245 \pm 0.002	0.023	0.027
1500	0.022 \pm 0.0015	0.022	0.025
1700	0.021 \pm 0.0015	0.022	0.024
1900	0.021 \pm 0.0015	0.023	0.025
2000	0.022 \pm 0.002	0.023	0.026

(1) 燃焼度 $\approx 10^{19}$ fissions/cm³

(2) 未照射 UO_2 の熱伝導度式より算出

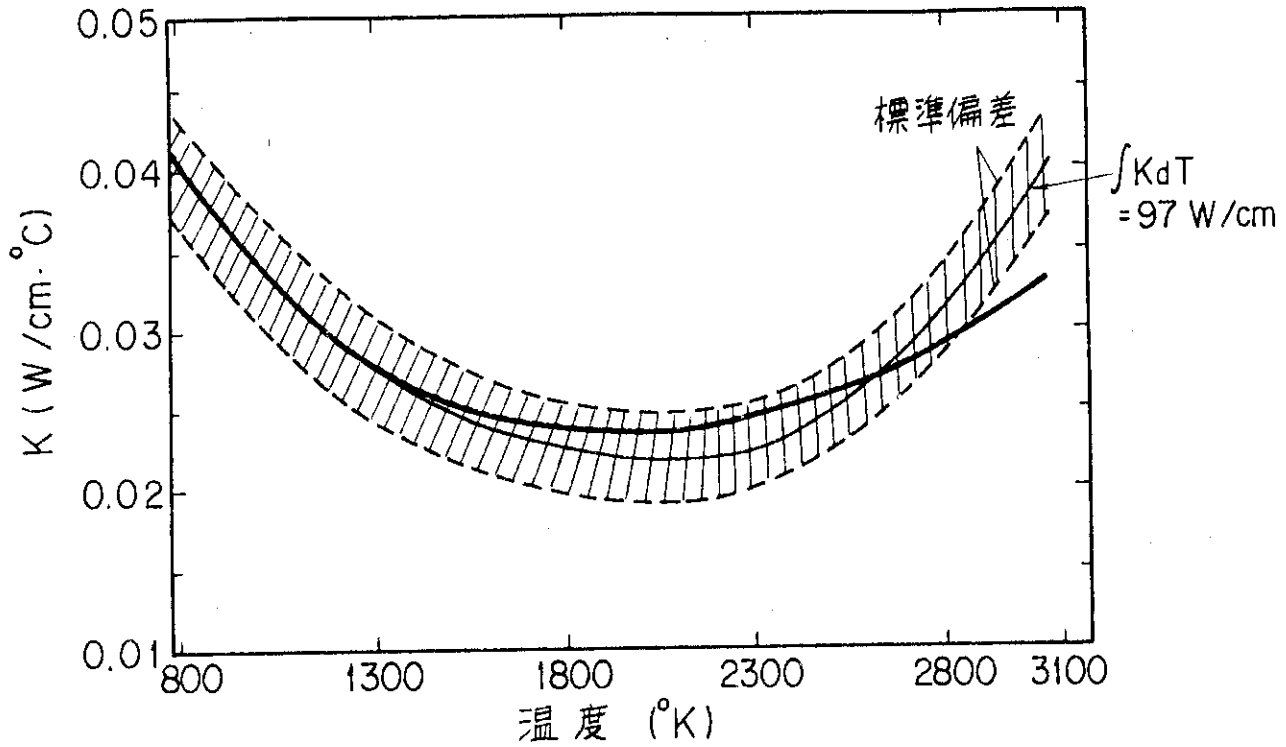


Fig. 1 UO_2 の熱伝導度 (95% TD), /// : Tree-Nureg-1005⁽⁷⁾,
 — : TRG-Report-2236⁽⁵⁾,

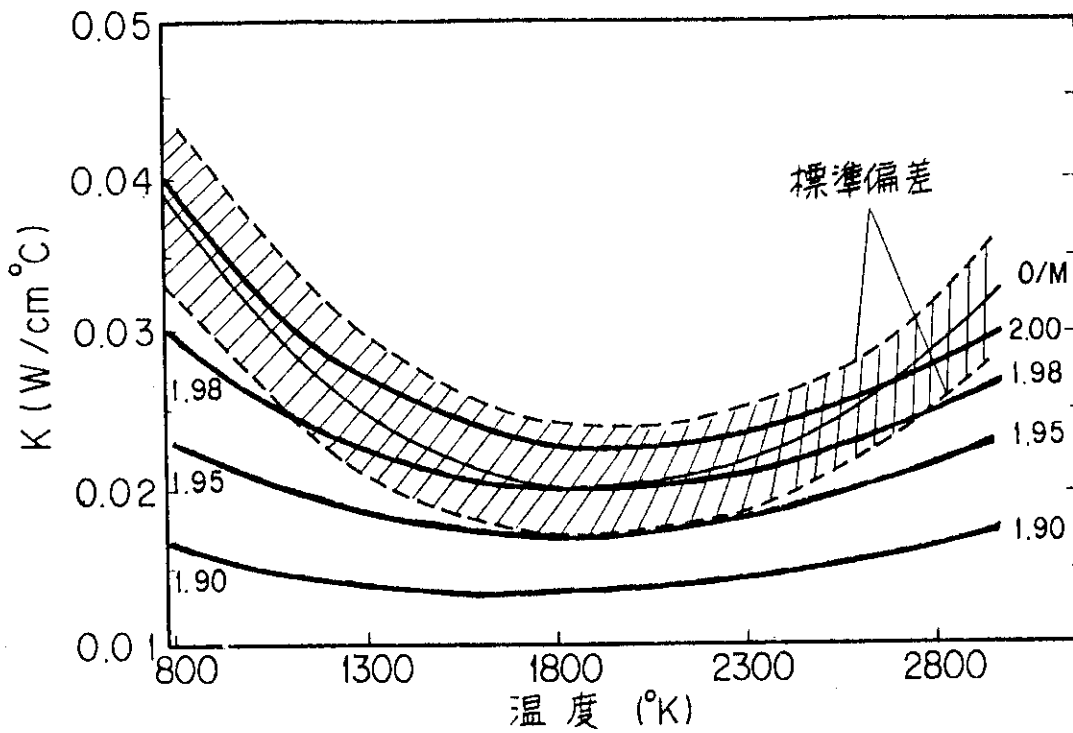


Fig. 2 $(U, Pu)O_2$ の熱伝導度 (95% TD), /// : Tree-Nureg-1005⁽⁷⁾,
 — : TRG-Report-2236⁽⁵⁾

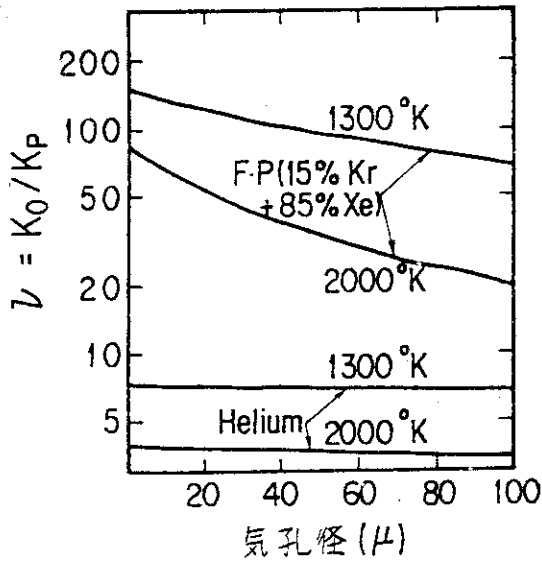


Fig. 3 酸化物燃料の K_0/K_p の気孔径依存性⁽¹⁵⁾

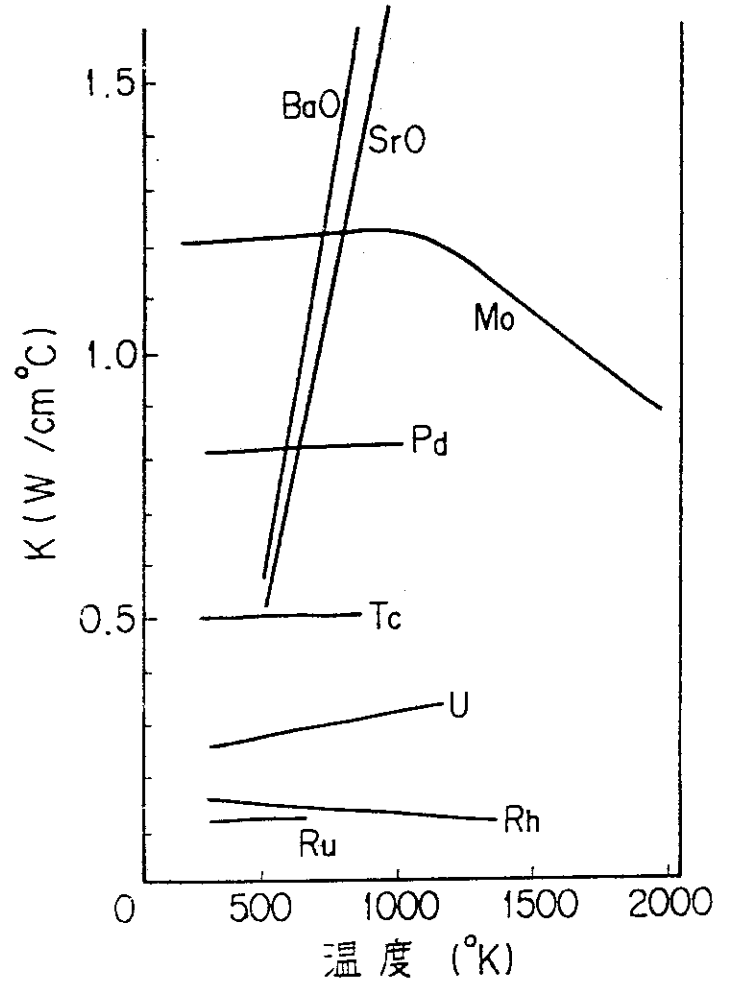


Fig. 4 核分裂生成物の酸化物, 金属の熱伝導度⁽²⁷⁾

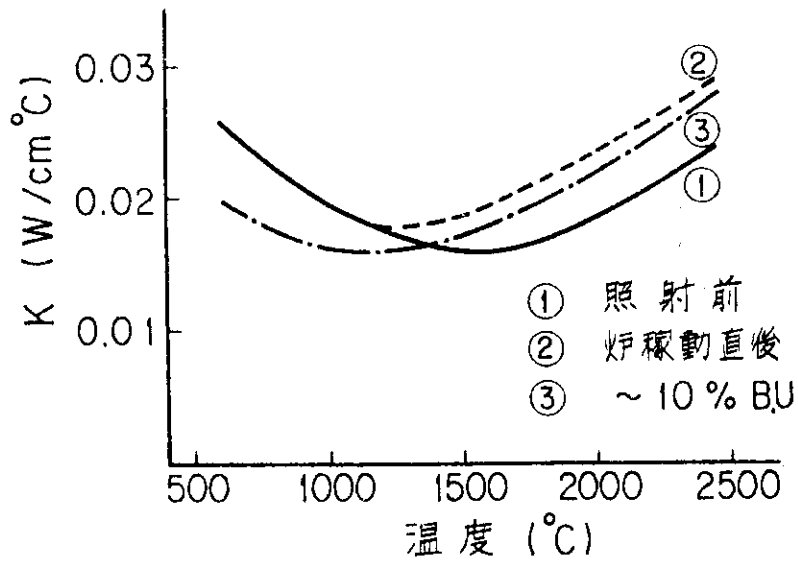


Fig. 5 炉装荷時 85%TDの $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ ペレットの熱伝導度の照射による変化