

JAERI - M
93-100

超高燃焼燃料の研究開発課題の検討
— 燃料ペレットの開発 —

1993年6月

林 君夫・天野 英俊・鈴木 康文・古田 照夫
永瀬 文久・鈴木 雅秀

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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 Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

超高燃焼燃料の研究開発課題の検討

—燃料ペレットの開発—

日本原子力研究所東海研究所軽水炉将来技術開発計画特別チーム

林 君夫・天野 英俊・鈴木 康文・古田 照夫

永瀬 文久・鈴木 雅秀

(1993年3月19日受理)

燃料の高燃焼度化、Puの本格的利用、超ウラン元素（TRU：Np, AmおよびCm）の消滅処理という観点から、燃焼度100GWd/tを目標とする超高燃焼燃料の概念が提唱されている。筆者らは、燃料ペレットおよび被覆材の研究開発課題を検討してきたが、本報告書はそのうち燃料ペレットについての検討結果を記述したものである。

まず、燃焼に伴う核分裂生成物（FP）生成量の計算および平衡熱力学計算によって、燃料とFPの化学状態を推定し、これに加えて照射後試験結果から得られた知見を調査した。次に、高Pu富化U・Pu混合酸化物（MOX）燃料の照射挙動、ならびに高燃焼度時におけるFPガス放出およびスエリング挙動について検討を行った。さらに、同燃料の再処理性、とりわけ使用済み燃料の溶解性についても検討した。

TRUを添加した燃料については、まず、TRU酸化物の物性データを調査し、データベースとして整理した。また、MOX燃料の製造やTRU添加燃料の照射試験の経験から、製造および照射挙動に関する課題を検討した。

全体としては、本研究により、TRU添加燃料の物性および照射挙動に関する情報を初めとして、燃料ペレットの評価に必要な基礎的データや知見を蓄積していくことの必要性が明らかになった。最後に、以上の検討開発課題をまとめるとともに、燃料ペレットおよび被覆材について今後の研究開発の進め方について提言を行った。

Investigation of Research and Development Subjects
for the Very High Burnup Fuel
- Development of Fuel Pellet -

Kimio HAYASHI, Hidetoshi AMANO, Yasufumi SUZUKI
Teruo FURUTA, Fumihsisa NAGASE and Masahide SUZUKI

Advanced LWR Technology Development Program Team
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 19, 1993)

A concept of the Very High Burnup Fuel aiming at a maximum fuel assembly burnup of 100 GWd/t has been proposed in terms of burnup extension, utilization of Pu and transmutation of transuranium elements (TRU: Np, Am and Cm). The authors have investigated research and development (R&D) subjects of the fuel pellet and the cladding material of the Fuel. The present report describes the results on the fuel pellet.

First, the chemical state of the Fuel and fission products (FP) was inferred through an FP-inventory and an equilibrium-thermodynamics calculations. Besides, knowledge obtained from post-irradiation examinations was surveyed. Next, an investigation was made on irradiation behavior of U/Pu mixed oxide (MOX) fuel with high enrichment of Pu, as well as on fission-gas release and swelling behavior of high burnup fuels. Re-processibility of the Fuel, particularly solubility of the spent fuel, was also examined.

As for the TRU-added fuel, material property data on TRU oxides were surveyed and summarized as a database. And the subjects on the production and the irradiation behavior were examined on the basis of experiences of MOX fuel production and TRU-added fuel irradiation.

As a whole, the present study revealed the necessity of accumulating fundamental data and knowledge required for design and assessment of the

fuel pellet, including the information on properties and irradiation performance of the TRU-added fuel.

Finally, the R&D subjects were summarized, and a proposal was made on the way of development of the fuel pellet and cladding materials.

Keywords: Light Water Reactor, High Burnup, Fuel, Pellet, Development, Transuranium, Property, Chemical State, Irradiation

目 次

1.はじめに	1
2.超高燃焼燃料の概念	4
2.1 超高燃焼炉心概念と燃料仕様	4
2.2 超ウラン元素の消滅処理	5
2.3 超高燃焼燃料に要求される特性	6
3.超高燃焼燃料ペレットの研究開発課題	16
3.1 概要	16
3.2 燃料と核分裂生成物の化学状態	16
3.2.1 燃料の化学組成	17
3.2.2 SOLGASMIX-PVコードによる燃料の化学状態の予測	18
3.2.3 照射効果を考慮した酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形	21
3.2.4 燃料の化学状態に関する照射後試験結果	22
3.2.5 燃料の化学状態に係わる課題のまとめ	27
3.3 照射挙動	68
3.3.1 プルトニウム高富化燃料ペレットの照射挙動	68
3.3.2 超高燃焼燃料の照射挙動	72
3.3.2.1 核分裂生成ガス放出	72
3.3.2.2 スエーリング	79
3.4 再処理性	106
3.4.1 超高燃焼燃料の再処理上の課題	106
3.4.2 超高燃焼燃料の溶解性	107
3.4.3 TRU添加燃料の再処理	110
3.4.4 まとめ	110
4. TRU添加燃料の研究開発課題	116
4.1 概要	116
4.2 TRU酸化物の物性	116
4.2.1 結晶学的性質	117
4.2.2 熱的性質	119
4.2.3 热力学的性質	120
4.2.4 TRU酸化物の物性に関する課題のまとめ	122
4.3 TRU添加燃料の製造	143
4.4 TRU添加燃料の照射挙動	152

5.	超高燃焼燃料の研究開発課題のまとめ	158
5.1	超高燃焼燃料ペレット	158
5.2	T R U添加燃料	159
5.3	燃料棒および燃料集合体	159
6.	研究開発の進め方	161
6.1	燃料開発の方向性	161
6.2	燃料開発技術の展開	162
7.	おわりに	164
	謝 辞	166
	付録1 超高燃焼燃料に要求される特性の検討	167
	付録2 SOLGASMIX-PVコードにおける解析方法	172

Contents

1. Introduction	1
2. Concept of Very High Burnup Fuel	4
2.1 Concept of Very High Burnup Reactor Core and its Fuel Specification	4
2.2 Transmutation of Transuranium Elements	5
2.3 Characteristics Required for Very High Burnup Fuel	6
3. Research and Development Subjects for Very High Burnup Fuel Pellet	16
3.1 Outline	16
3.2 Chemical State of Fuel and Fission Products	16
3.2.1 Chemical Composition of Fuel	17
3.2.2 Prediction of Chemical State of Fuel by SOLGASMIX-PV Code	18
3.2.3 Chemical State at Oxide-fuel/Cladding Gap Considering Radiation Effects	21
3.2.4 Results of Post-irradiation Examinations on Chemical State of Fuel	22
3.2.5 Summary of Subjects Relating to Chemical State of Fuel ..	27
3.3 Irradiation Behavior	68
3.3.1 Irradiation Behavior of Highly Pu-enriched MOX Fuel Pellet	68
3.3.2 Irradiation Behavior of Very High Burnup Fuel	72
3.3.2.1 Fission Gas Release	72
3.3.2.2 Swelling	79
3.4 Reprocessibility	106
3.4.1 Subjects on Reprocessing of Very High Burnup Fuel	106
3.4.2 Solubility of Very High Burnup Fuel	107
3.4.3 Reprocessing of TRU-added Fuel	110
3.4.4 Summary	110
4. Development Subjects for TRU-added Fuel	116
4.1 Outline	116
4.2 Properties of TRU Oxides	116
4.2.1 Crystallographic Properties	117
4.2.2 Thermal Properties	119
4.2.3 Thermodynamic Properties	120

4.2.4 Summary of Properties of TRU Oxides	122
4.3 Production of TRU-added Fuel	143
4.4 Irradiation Behavior of TRU-added Fuel	152
5. Summary of Research and Development Subjects for Very High Burnup Fuel	158
5.1 Very High Burnup Fuel Pellet	158
5.2 TRU-added Fuel	159
5.3 Fuel Rod and Fuel Assembly	159
6. Proposal on the Way of Research and Development	161
6.1 Direction of Research and Development of Fuel	161
6.2 Advancement of Fuel Development Technology	162
7. Concluding Remarks	164
Acknowledgements	166
Appendix 1 Investigation of Properties Required for Very High Burnup Fuel	167
Appendix 2 Analysis Method in SOLGASMIX-PV Code	172

1 . はじめに

我が国に発電用原子炉として軽水炉が導入されてから既に20年以上が経過し、基軸電力源としての地位を確立するに至っている。これまでの原子力開発利用の長期的基本路線は、ウラン資源を有効に利用するとともに、原子力発電の供給安定性を高めるために、軽水炉の次に高速炉を導入してプルトニウムの利用体系を確立することを前提として構築されている。しかし、高速炉の導入は必ずしも円滑に進んでおらず、21世紀においても相当長期にわたって軽水炉が原子力発電の主流を占めることが予測される。したがって、今後とも軽水炉技術水準の維持が必要であるばかりでなく、軽水炉のより一層の高度化が重要な課題となっている。

(1) 高燃焼度化

軽水炉が相当長期にわたって基軸電力源として期待される状況下において、燃料の高燃焼度化は経済性の向上や廃棄物処理量の低減化等の観点から極めて重要であると考えられる。これまでもBWR、PWRとともに逐次高燃焼度化が図られ、現在ではそれぞれ燃料集合体最高燃焼度で50GWd/tおよび48GWd/tが実用化段階に至っており、さらに60GWd/tおよび55GWd/tを目指して高燃焼度化に向けた開発が続けられている。長期的視点では更に高い燃焼度を目標にした研究開発も行われつつある。

(2) プルトニウムの利用

上記のようなウラン燃料の高燃焼度化とともに、今後の軽水炉燃料に関するもうひとつの開発課題として重要なものに、プルトニウムの本格利用（プル・サーマル）が挙げられる。

我が国におけるプル・サーマル燃料の開発については、海外炉における照射試験の他、国内においてもBWRおよびPWRそれぞれ1基で少数体照射が実施され、今後実証規模に拡大展開して行くべきものと方向付けられている。しかし、プルトニウムの本格的な利用を実現するためには、保障措置等の問題のほか、経済性からの検討が不可欠となる。経済性に関する検討例として、ウラン燃料およびU・Pu混合酸化物(MOX)燃料についてのOECD/NEAの評価結果をFig.1.1に示す。ウラン燃料と比較した場合、MOX燃料は低燃焼度ではコスト高が避けられないと考えるのが一般的であるが、Fig.1.1に示すように高燃焼度化することによって経済性を飛躍的に向上させることができる。すなわち、ウラン燃料の場合には、高燃焼化は濃縮役務費用等を増大させるためにその経済性改善に対して一定の制約があるが、MOX燃料では濃縮が不要でありプルトニウム富化度を上げることは大きなコスト負担にならないことから、高燃焼度化に伴う経済性の改善効果が著しい。このため、プル・サーマル燃料ではウラン燃料で計画されている高燃焼度と同等の燃焼度を達成するばかりでなく、より高い燃焼度を得ることが経済性向上やプルトニウムの有効利用に望ましいと考えられる。

(3) 超ウラン元素への対応

今後燃料の高燃焼度化やプルトニウムの本格利用が進展すると、ネプツニウム、アメ

リシウム、キュリウム等の超ウラン元素（T R U）への対応がより一層重要な課題になると予想される。このため、今後の燃料サイクルにおいてはT R Uの閉じ込めと消滅・処理が最重要課題のひとつである。T R U消滅・処理については、いわゆるオメガ計画として、新しい技術開発によって対応すべく専焼炉や加速器システムに関する研究が進められているが、このような新しい技術の開発には相当の時間を要することが考えられる。したがって、今後の軽水炉の燃料サイクルを考慮する場合には、新技術によるT R U消滅・処理に全面的に依存することなく、成熟した技術である軽水炉におけるT R Uの消滅処理の可能性を検討しておくことが必要となる。M O X燃料へのT R Uの添加は余剰反応度の抑制に対して有効であり、かつ、燃焼度伸長のための効果が大きい。また、軽水炉におけるT R U消滅を選択しない場合でも、高燃焼度化によって燃料内にT R Uの蓄積が進むことから、燃料内におけるT R Uの挙動把握も重要である。このような観点から軽水炉燃料へのT R U添加と振る舞いを調べることが重要課題となる。

(4) 超高燃焼燃料

以上述べた燃料の高燃焼度化、プルトニウムの本格的利用およびT R Uに対する対応を21世紀に向けた燃料開発に係る研究課題として捉らえ、これらの課題を集約化した燃料概念として超高燃焼燃料が提唱されうる。超高燃焼燃料は高プルトニウム富化M O X燃料を用いて100GWd/t以上の超高燃焼度を目指とするもので、同時にT R Uを添加してT R U核種の消滅を目指すことも可能である。また、超高燃焼燃料の開発過程では、現行燃料の改良や高転換炉燃料等の新しい炉心概念用の燃料の開発に必要な技術や情報を提供できるものと期待できる。ただし、超高燃焼燃料を達成しようとした場合、水側腐食に強い被覆材の開発やF Pガス放出挙動の把握と制御をはじめとした大きな課題を解決して行く必要がある。

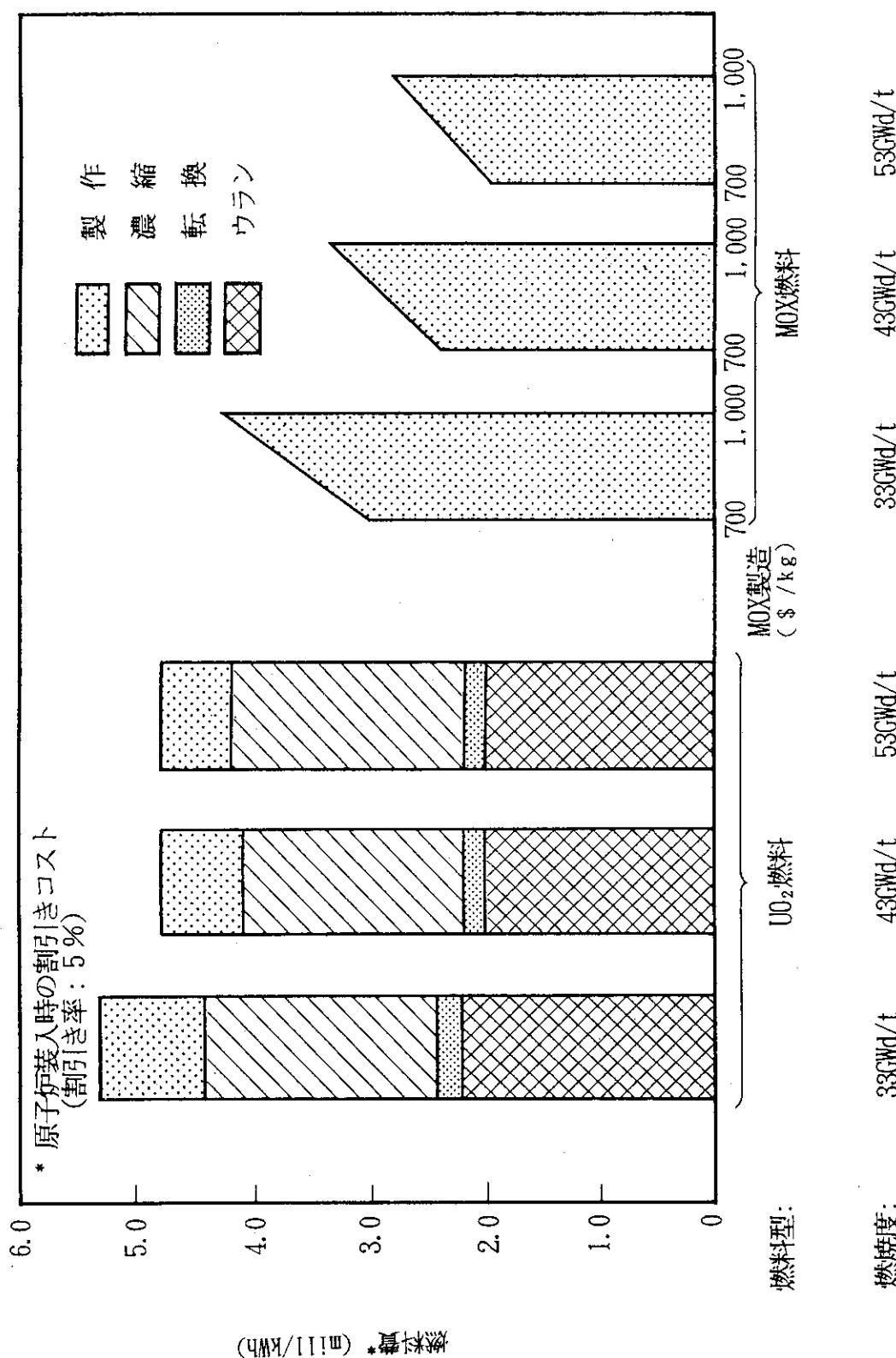
(5) 本報告書の目的

本報告書は、超高燃焼燃料を開発して行く上で検討を要する研究開発課題のうち、燃料ペレットに係る項目を整理・摘出したものである。本報告書の6章では、被覆材の開発を含めて、今後の燃料開発に対する提言を試みる。

なお、被覆に関する検討結果については文献(1)を参照されたい。

参考文献

- (1) 永瀬文久、鈴木雅秀、鈴木康文、吉田照夫、林君夫、天野英俊、"超高燃焼燃料の研究開発課題の検討－被覆材の開発－", JAERI-M 93-104 (1993).

Fig. 1. 1 UO₂燃料およびMOX燃料の経済性に対する燃焼度の効果

2. 超高燃焼燃料の概念

超高燃焼炉概念およびTRU消滅炉心概念については、新型炉検討チームの検討結果⁽¹⁾を踏まえて、軽水炉将来技術開発計画特別チーム（軽水炉特別チーム）で検討されており、その結果は報告書にまとめられる予定である⁽²⁾。したがって、ここでは超高燃焼炉概念およびTRU消滅炉心概念の概略を紹介するとともに、その燃料に要求される特性について述べる。

2.1 超高燃焼炉心概念と燃料仕様

代表的な超高燃焼炉心の主要な仕様を現行のPWRと比較して、Table 2.1にまとめて示す。超高燃焼を達成するための炉心概念の検討に当たっては、既存の軽水炉技術を踏襲することを基本にして検討が行われている。しかし、超高燃焼度を達成するためには長期にわたって安定して反応度を確保する必要があることから、劣化ウランのUO₂ペレットが装荷された特殊吸収棒を導入してスペクトルシフトを行い、初期の余剰反応度を抑制するとともに燃焼中期以降の反応度の確保を行っている。

Fig.2.1およびFig.2.2に超高燃焼燃料集合体の概念と集合体構造を示す。超高燃焼燃料集合体は直径8.72mmのMOX燃料棒と直径22.04mmの特殊吸収棒で構成される。特殊吸収棒は炉出力制御とともに、水／燃料体積比の制御に用いられる。すなわち、燃焼初期には特殊吸収棒を炉心内に挿入することによって、水／燃料体積比を1.5として中性子スペクトルを硬くし、燃焼中期には特殊吸収棒の一部を引き抜き、水／燃料体積比を3.0に引き上げることによってスペクトルシフトを行ない、反応度を確保して最終的に100GWd/t以上の超高燃焼度を達成することが可能となる。Fig.2.3には例として15%プルトニウム富化MOX燃料の場合について、スペクトルシフトによる燃焼反応度特性を示す。

軽水炉で高プルトニウム富化MOX燃料を使用する場合、燃焼度の制約は余剰反応度の大きさと冷却材ボイド反応度となる。余剰反応度については、ひとつの制限値として、プルトニウム富化度20.5wt%、Gd₂O₃濃度0.15wt%が与えられる。この場合のセル燃焼計算結果をFig.2.4に示す。燃焼途中において特殊吸収棒の一部を引き抜き、さらに燃料シャフリングを行って炉心全体の反応度を確保することにより、120GWd/tが達成可能である。また、平衡サイクルの燃焼特性解析計算が行われており、負のボイド反応度が確保できることが確認されている。なお、出力ピーピング係数については、最大時で、軸方向ピーピング、径方向ピーピングおよび局所的ピーピングが、それぞれ1.483、1.693および1.112であり、全体で2.79である。

超高燃焼燃料の設計はFig.2.1に示した集合体概念、およびTable 2.1にまとめた主要仕様をもとに行うことになるが、超高燃焼を目指していることから、これまでの設計手法を参考にしながら全体的な再評価を行う必要がある。Fig.2.5には超高燃焼燃料の設計を行う上で必要な評価項目とその関連性の流れを示す。図中の○印を付した事項は現行燃料に比べ特に重点をおいて検討が必要になると考えられるものである。たとえば、固体FPの蓄積に伴うスエリングを緩和するため、低密度ペレット(85%TD、

Table 2.2参照)を採用しており、その他にも一部に従来のウラン燃料と異なる仕様を取り入れる必要がある。検討結果として超高燃焼燃料の基本的仕様および条件を現行PWR、BWR燃料と対比してTable 2.2に示す。

被覆材についても耐食性向上等の観点からジルカロイ以外の材料も含めて幅広く検討する必要がある。炉心材料の選択に当っては中性子経済が重要であるが、ジルコニウム基合金の代りにステンレス鋼またはチタン合金を用いたときの余剰反応度減少量を評価した結果、プルトニウム富化度15%、水／燃料体積比1.5、燃料棒外径9.5 mm(被覆肉厚0.64 mm)の場合で、それぞれ約3.0%△k/kおよび約2.5%△k/kである。この値は、水／燃料体積比が大きいほど、また、プルトニウム富化度が低いほど大きくなり、燃焼度によらずほぼ一定である。したがって、プルトニウムの富化度を調節することによって、ジルカロイやジルコニウム基合金以外の中性子吸収断面積の比較的大きな材料にも炉心材料選択の幅を広げることが可能である。

超高燃焼を達成するため、集合体については新しい概念を導入しており、特に特殊吸収棒に関して今後詳細な検討が必要である。超高燃焼炉心については、現行炉の仕様とほぼ同等とすることを念頭において検討されたものであり、冷却材に関する条件はPWR 17×17炉心の冷却材入口温度289°C、157気圧、冷却材流速約4.5 m/sに対し、各々291°C、158気圧、6.6 m/sとほぼ同様である。このため、熱水力特性等に関しても安全上十分な余裕を有した構造となっている。

100 GWd/t目標とした超高燃焼燃料は原研が提唱している燃料概念である。しかし、高燃焼度化やプルトニウムの本格的利用は軽水炉燃料の共通課題であり、その開発が燃料サイクルに与えるインパクトには小さからぬものがあると考えられる。この課題に対応して行くためには、高燃焼度領域におけるデータの充足度から見て、今後、基礎基盤を含めた幅広い研究開発が必要となるが、21世紀に向けた軽水炉将来技術のなかでも最重要課題のひとつであると言える。また、高燃焼度化に向けた研究の成果は、同時に現行燃料の高度化にも有用であると期待することができる。

2.2 超ウラン元素の消滅処理

高燃焼度化やプルトニウムの本格利用は燃料内でのTRU核種生成量の割合を大きくする。例としてFig.2.6にプルトニウム富化度14%の超高燃焼燃料を100 GWd/tまで燃焼させた時のウラン、プルトニウム、TRU、テクネチウムの原子密度変化を示す。TRUの存在が燃料の健全性に悪い影響を及ぼすことはないと考えられるものの、燃料内におけるTRUの挙動について正確に把握しておくことが重要となる。さらに高燃焼度化やプルトニウムの本格利用はTRUの閉じ込め、あるいは処理・処分に関する問題を一層重要な課題と位置づけることになる。TRUの消滅処理は高速炉や加速器システムを利用する事が想定されてきたが、仮に高速炉の導入が遅れる等、新技術の開発状況によっては軽水炉の燃料サイクルでTRUの閉じ込めや処理・処分を検討して行く必要に迫られることが考えられる。

Fig.2.7にはTRU核種の生成チェーンと核断面積を示す。TRUと呼ばれる²³⁷Np、²⁴¹Amなどは小さな核分裂断面積を持つものの、吸収断面積が大きく、炉内で中性子を吸収して核分裂性の核種に変換する。この性質を利用することによって変換効率は高

速炉に比べて劣るもの、速い速度でTRUを燃焼させることによって軽水炉においてもTRUの生成を抑制でき、ひいてはTRUの消滅を図ることが可能となる。各種の軽水炉用TRU燃料と金属燃料高速炉、専焼炉におけるTRU消滅特性をTable 2.3に示す。これから軽水炉においてもTRUの消滅が原理的に可能なことが理解される。しかし、軽水炉燃料へのTRUの添加はボイド係数を正の方向にシフトさせるために制約がある。ウラン燃料にネプツニウムを添加させる場合には、添加量を大きくし、消滅量も金属燃料高速炉並みにできるが、MOX燃料にTRUを添加させる場合には、自己生成TRUの添加量がボイド反応度から適切な量と考えられる。

TRU核種が小さい核分裂断面積をもつ反面、吸収断面積が大きいという性質を利用して、高燃焼度燃料の初期余剰反応度を抑制することができる。これまでガドリニウムがバーナブルポイズンとして利用されてきたが、その効果は1～2サイクルの間で消えるため、高燃焼度燃料に対してはその利用に限界があると考えられる。この点、TRUは長期にわたって反応度抑制効果を持続させるばかりでなく、核変換によって燃焼末期における反応度欠損を小さくすることも可能である。プルトニウム富化燃料に対してTRUを添加した場合の燃焼に伴う無限倍増係数の変化をFig.2.8に示すが、TRUの添加はその消滅に寄与するばかりでなく、燃焼に伴う燃料の反応度変化の平坦化にも有用である。

今後の燃料開発に当たっては、TRUの存在を念頭におくことが必要である。TRUに関する研究は、軽水炉におけるTRU消滅燃料概念の成立性評価に資するばかりでなく、プルサーマル燃料などの燃料内のTRU挙動把握のためにも重要である。ウラン燃料でリム効果の発生にプルトニウムが関与していると指摘されているように、高燃焼度燃料やプルサーマル燃料の挙動にとってTRUが影響することは十分予想され、この点からもアクチノイド系列として捉えたTRUの挙動把握が望ましいと考えられる。

2.3 超高燃焼燃料に要求される特性

これまでの軽水炉燃料の開発の歴史の中でも、ジルコニウムライナー被覆管の導入、被覆管加工条件の改善、大粒径ペレットの開発等が進められてきた。しかし、超高燃焼燃料では100GWd/t以上の燃焼度を目標とした、極めて意欲的な目標設定を行っており、超高燃焼燃料を実現するためには、今まで以上に多くの課題を解決して行く必要がある。

基本的には現行の安全審査指針等に規定された基準をまず満足させる必要がある。その対応に対する考え方は付録1に整理して示した。このような設計基準を満足させるために必要な燃料開発の考え方は、現行のウラン燃料の開発にも共通したものである。超高燃焼燃料に要求される条件は、現行の軽水炉と同様の環境に長時間（約10年）おかれた場合に十分燃料の健全性が確保できることであり、そのためには高中性子照射量（ $2 \times 10^{22} n/cm^2$, $E > 1 MeV$ ）と高燃焼度（100GWd/t以上）に耐える必要がある。このような環境では、現時点で問題点として指摘されている項目も含めて、被覆材では水側腐食の加速、寸法変化、機械的性質の低下等の事象に注意する必要があり、燃料ペレットでは、FPガス放出の増加、スエリングの影響、酸素ポテンシャルの上昇と被覆管内面腐食等について燃料の健全性に及ぼす影響を評価する必要がある。また、必要に応

じて、新素材の開発や既存技術の改良・改善を図って行くことが要求される。現時点ではこれらの事象を見極めることは、高燃焼度領域における照射データが不十分であることから困難であり、今後、照射データの蓄積を図りながら燃料ふるまいを把握していく必要がある。

以上の観点から、超高燃焼燃料を開発して行く上で重要と考えられる開発課題を次章以降で検討し、整理する。

参考文献

- (1) 内藤倣孝、古田照夫、市川博喜、高野秀機、"超長寿命軽水動力炉心の設計研究", JAERI-M 91-028 (1991).
- (2) 高野秀樹、藤根幸雄、佐藤治、JAERI-M 投稿 (1993).

Table 2.1 超高燃焼炉心の主要仕様

項目	超高燃焼炉心	PWR
炉心熱出力 (MW)	3, 411	3, 411
平均出力密度 (kW/m)	85.7	105
線出力密度 (kW/m)	16.3	17.9
燃料	MOX	UO ₂
燃料集合体		
燃料棒配列	20×20	17×17
燃料棒ピッチ (cm)	1.21	1.26
制御棒 (吸収棒)	UO ₂	Ag-In-Cd合金
炉心		
炉心高さ (cm)	351	366
炉心等価直徑 (cm)	380	337
炉心体積 (m ³)	39.8	32.6
燃料集合体数	193	193
可動吸収棒付燃料集合体数	60	53
固定吸収棒付燃料集合体数	133	140 (注1)
重金属装荷量 (ton)	120	89

注1 バーナブルポイゾン

Table 2.2 超高燃焼炉および現行炉の条件比較

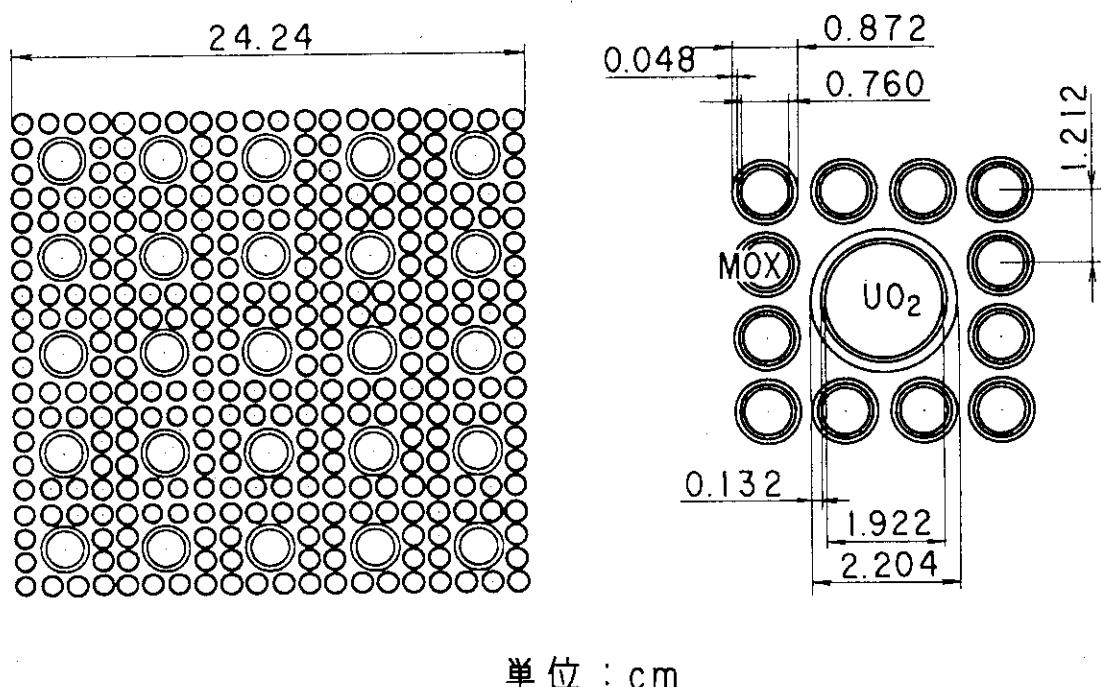
項目	炉型		
	BWR(注1)	PWR(注2)	超高燃焼炉
熱中性子束 ($10^{13} \text{n/cm}^2\text{s}$)	4.2	5	1.5 (<3.9eV)
高速中性子束($E > 1 \text{ MeV}$) ($10^{13} \text{n/cm}^2\text{s}$)	4.0	9	8.0
熱中性子照射量 (10^{22}n/cm^2)	1.0	0.4	0.4
高速中性子照射量($E > 1 \text{ MeV}$) (10^{22}n/cm^2)	1.0	0.8	2.0
燃料ペレット			
燃料物質	UO ₂ 焼結体	UO ₂ 焼結体	混合酸化物焼結体
ペレット外径 (mm)	8.19	10.3	7.60
密度 (%T.D.)	9.5	9.5	8.5
線出力、通常時最大(W/cm)	約430	約440	約300
被覆管			
材質	ジルカロイ4	ジルカロイ2	新材料
熱処理条件	冷間加工	再結晶焼きなまし 処理	開発課題
外径 (mm)	9.50	12.30	8.72
肉厚 (mm)	0.57	0.86	0.48

注1 17×17集合体 (50GWd/t相当)

注2 8×8集合体 (39GWd/t相当)

Table 2.3 TRU消滅処理軽水炉、金属燃料高炉及び車焼炉の消滅特性

項目	Np-PWR(UO_2)	Np-PWR(MOX)	TRU-PWR(MOX)	MFR	ABR
炉心特性					
炉出力(MWt)	3410	3410	3410	1800	800
燃料	UO_2	MOX	MOX	Metal	Metal
水対燃料体積比(V_m/V_f)	3.0	3.0	3.0	(0.64)	-
Pu富化度(wt.%)	7.6EU	9.0	9.0	10.0	-
燃焼度(GWd/t)	58	65	62	80	-
サイクル長(EEPД)	1500	1690	1610	600	450
TRU消滅特性(kg)					
装荷TRU	^{237}Np	^{237}Np	^{237}Np	^{237}Np	^{237}Np
装荷量	2700	2756	2756	2500	1971
消滅量	1484	1435	1370	615	
生成量	74	650	640	40	
正味消滅量	1410	785	730	575	
300日当たり消滅量	282	139	136	288	189
1Gwt・300日当たり消滅量	83	41	40	160	236



単位 : cm

Fig. 2.1 超高燃焼燃料集合体の概念

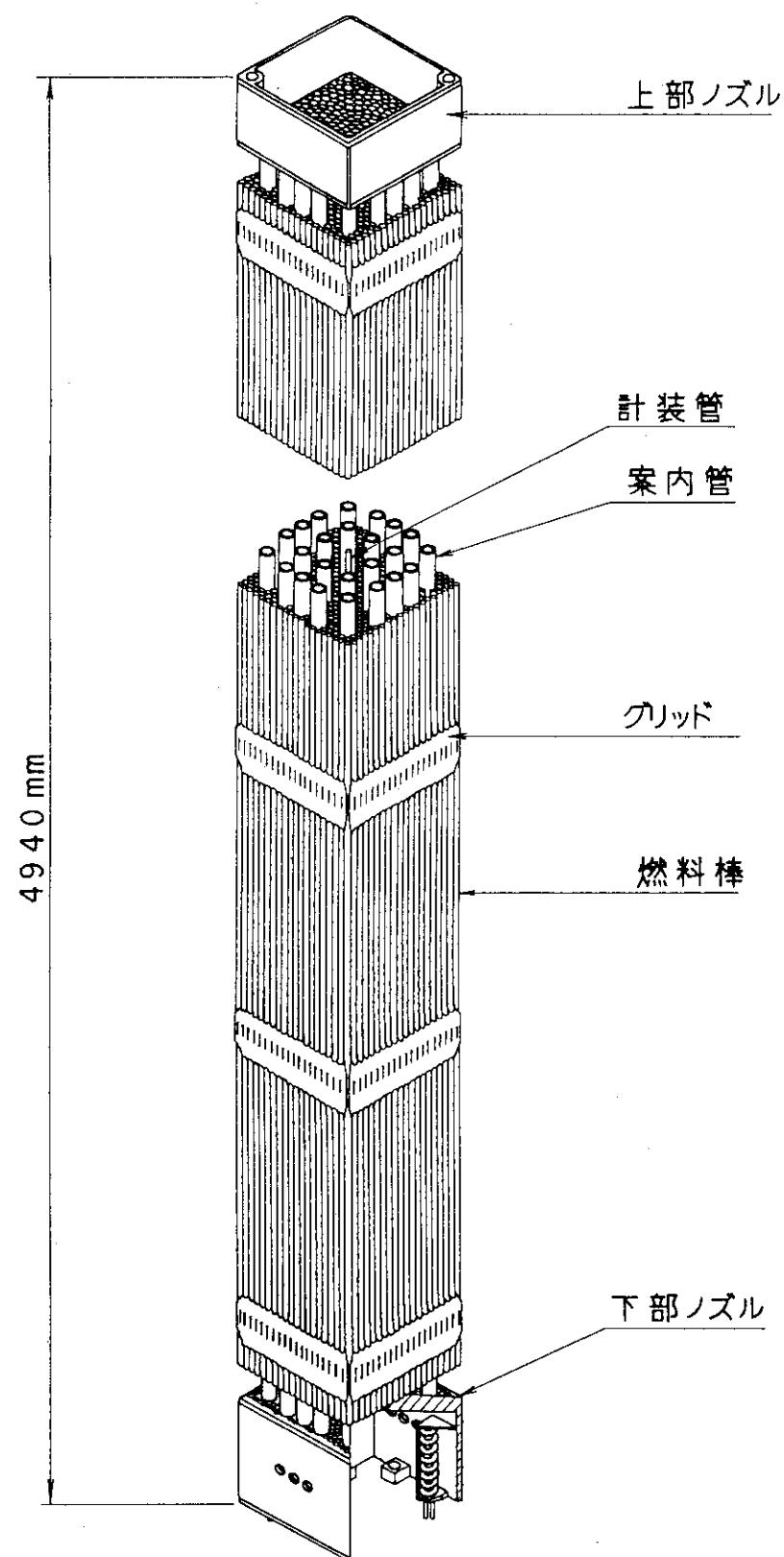


Fig. 2.2 燃料集合体構造図

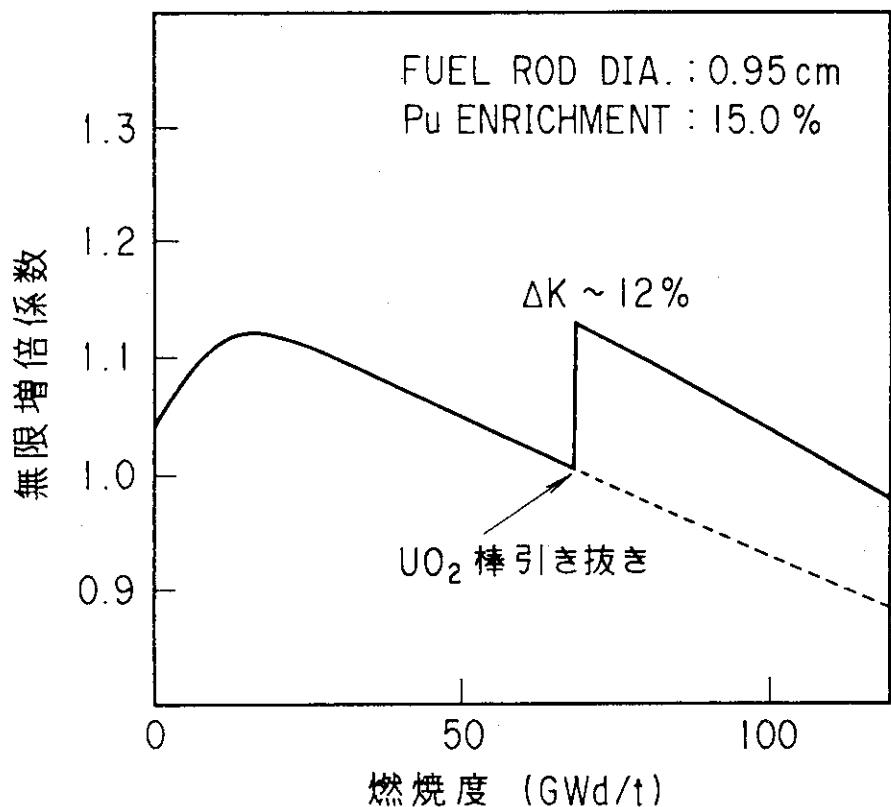


Fig. 2.3 15% プルトニウム富化MOX燃料の燃焼反応度特性

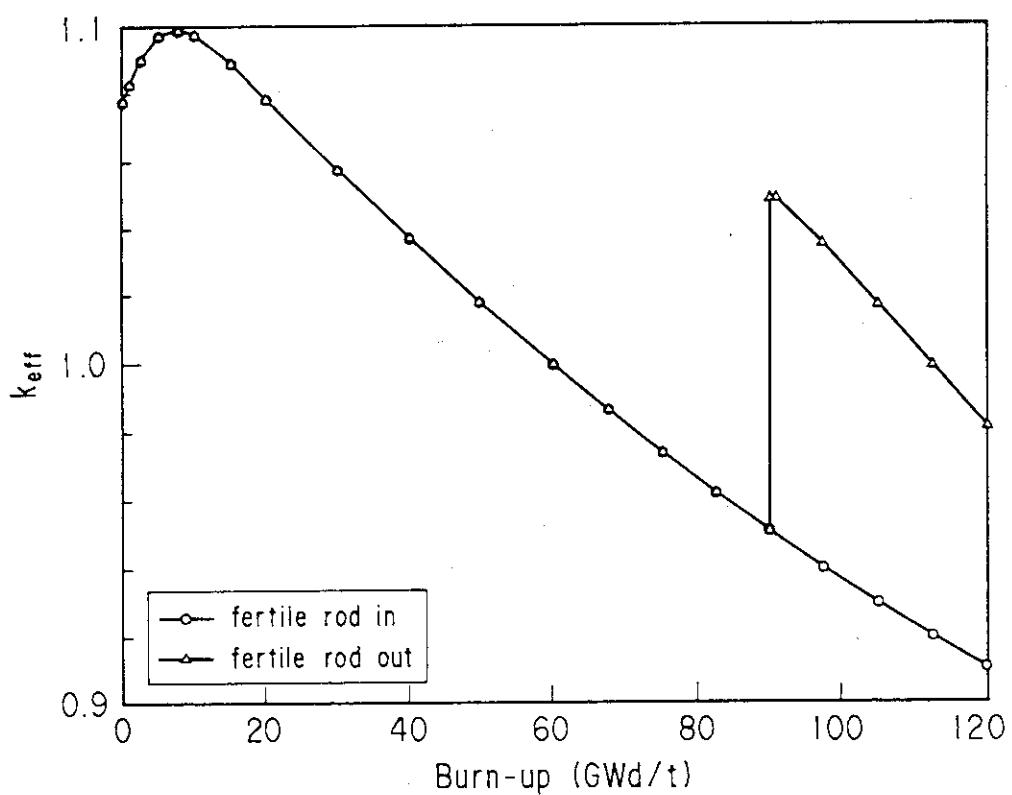


Fig. 2.4 燃焼度增加に伴う実効増倍係数の変化

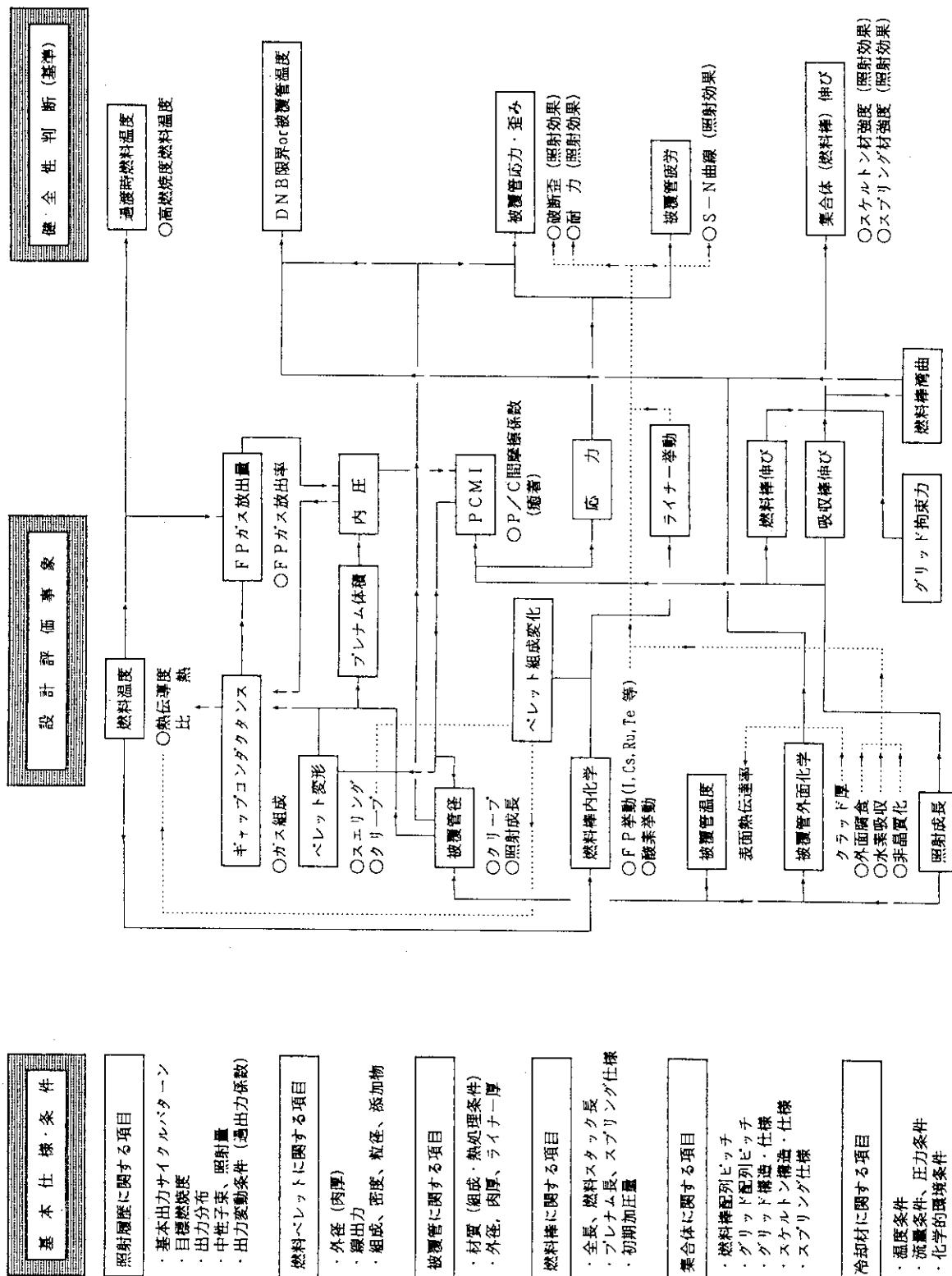


Fig. 2.5 超高燃焼燃料の設計流れ図

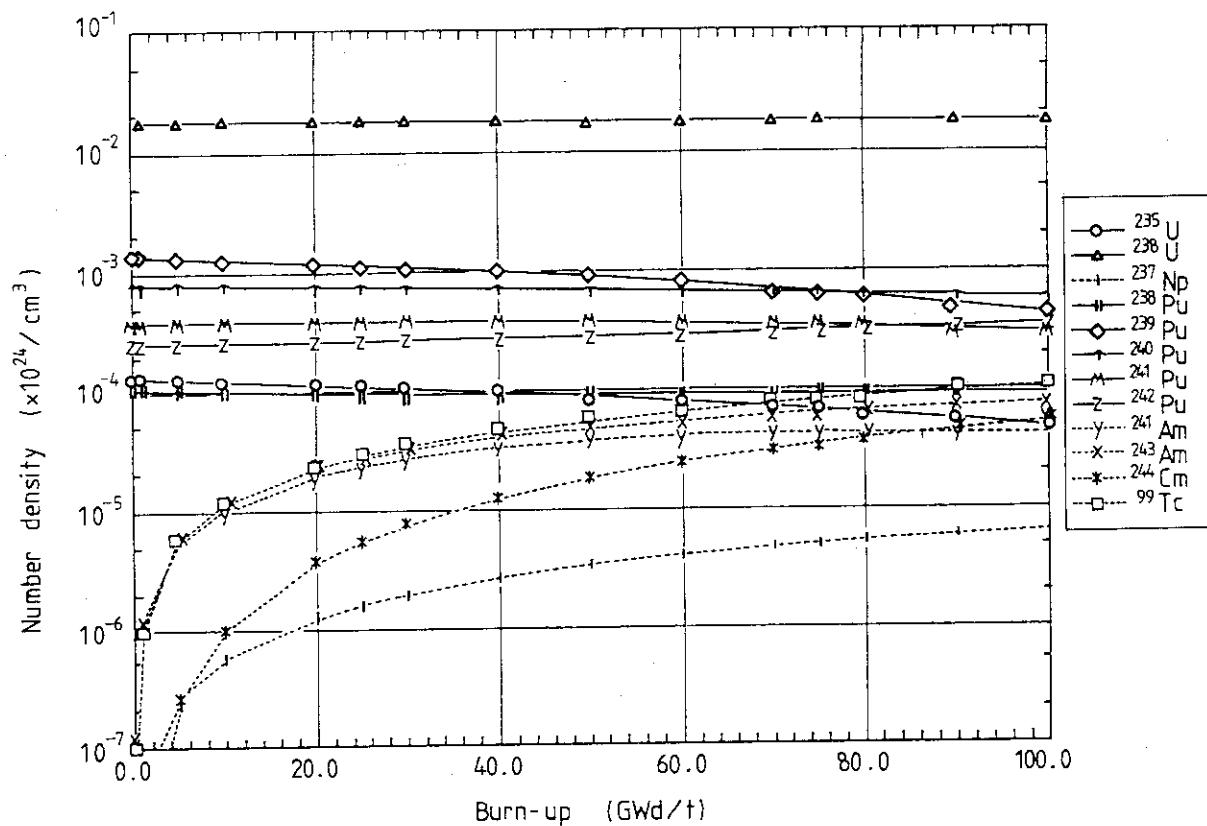


Fig. 2.6 100GWd/t燃焼におけるU, Pu, TRUおよびTcの原子数密度変化
(Pu富化度14wt%)

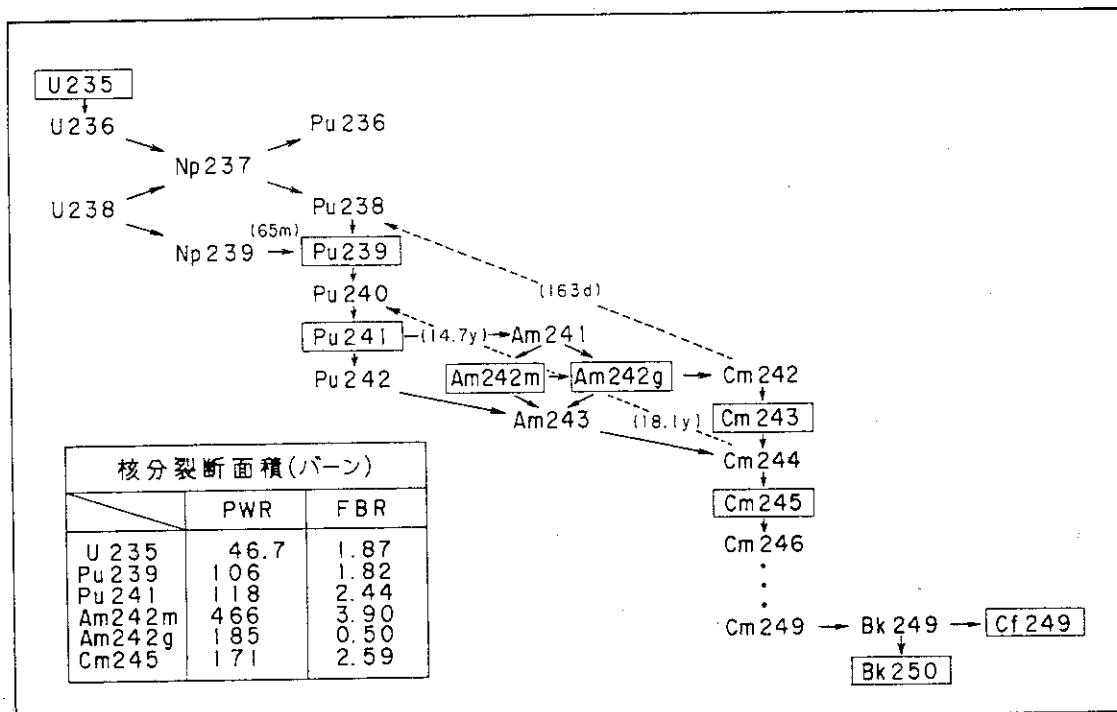


Fig. 2.7 TRUの主要燃焼チェーン

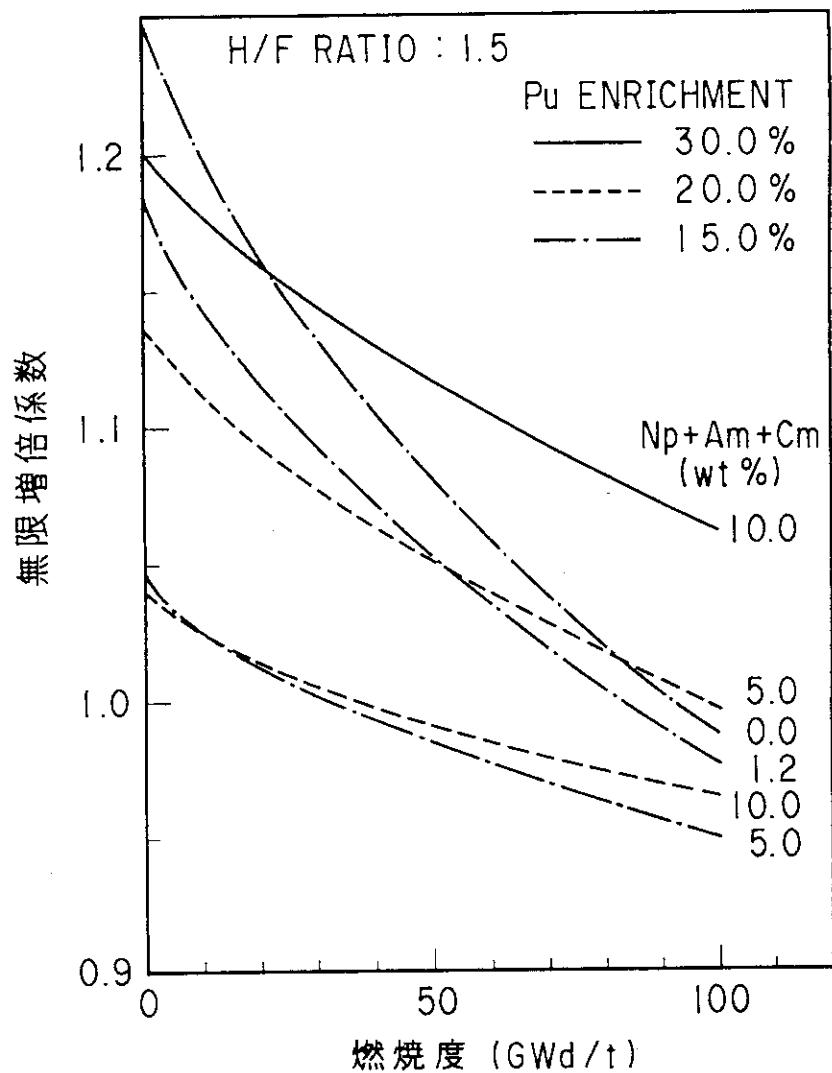


Fig. 2.8 TRU (Np, Am, Cm) の各含有率ごとの燃焼に伴う無限増倍係数の変化

3. 超高燃焼燃料ペレットの研究開発課題

3.1 概要

第1章および第2章に述べたように、「超高燃焼燃料」は、極めて意欲的な目標設定を行った燃料概念であり、燃料ペレットの開発においても、「高燃焼度化」に対応する開発課題のほか、Pu利用に伴う問題、更にTRUに関する課題をもつ。実際に燃料開発を進めると現段階で予想されない未知の研究課題が新たに現われることも考えられる。

本章では、まず超高燃焼時の燃料挙動を評価するために、超高燃焼時のアクチノイドおよび核分裂生成物(FP)の生成量を計算し(3.2.1項)、更に熱力学平衡計算コードによって化学状態の予測を行う(3.2.2項)。得られた結果をもとに、燃料の化学状態に関する課題を検討する。

次いで、Pu高富化MOX燃料ペレットの照射挙動の文献調査を行い(3.3.1項)、その結果をもとに、特にFPガス放出(3.3.2.1)およびスエリング(3.3.2.2)の点で超高燃焼燃料の照射挙動に関する検討を行い、研究開発課題を検討する。

最後に、燃料の再処理性、特にTRUを含むMOX燃料の溶解性について課題を検討する(3.4節)。

3.2 燃料と核分裂生成物の化学状態

酸化物燃料棒内で核分裂が起きると、30種類以上のFPが生成する。熱力学的観点から、これらのFPを大別すると、

- ① 酸化し燃料中に固溶するもの
- ② 酸化し燃料と複合酸化物を形成するもの
- ③ 金属状で燃料中に析出するもの
- ④ 振発性、腐食性で燃料、被覆管と複合酸化物を形成するもの
- ⑤ 核分裂ガスとなるもの

に分類できる。このうち、①②③に属するFPの特性が比較的よく解明されており、⑤は放出による燃料棒内圧上昇、スエリング等の観点から精力的に研究が進んでいる。これに対し、④に属するセシウム(Cs)、ヨウ素(I)、テルル(Te)等は、燃料棒内の低温領域に相当する燃料被覆管ギャップに蓄積し、燃料、被覆管あるいは他のFPと反応し、種々の化合物を形成する。

これらのFP核種が、種々の燃焼度でどのような化学形をもつかは、

- a) 燃料-被覆管化学的相互作用(FCCI)による被覆管の腐食
- b) 燃料のスエリング
- c) 燃料の熱伝導度

等に関係するので、燃料棒の健全性、寿命評価を行う上で重要なパラメータとなる。そこで、本研究では、燃料棒内に発生するすべての核分裂生成物と燃料、被覆管の構成元素のすべてを考慮したとき、Cs、I、Teを中心とした核分裂生成物がどのような化

学形になるかを温度、酸素ポテンシャルの関数として、多成分、多相の熱力学的平衡計算によって調べた。

3.2.1 燃料の化学組成

(1) 燃料初期組成の設定

計算に用いた燃料形態は3種類である。その初期組成をTable 3.2.1に示す。MOX燃料を用いる場合、使用するプルトニウム同位体組成によって核分裂性プルトニウム富化度は変化することとなる。高燃焼度燃料やプルサーマル燃料の再処理から得られるプルトニウムは高次化しているため、プルトニウム富化度も高くする必要がある。100 GWd/t(平均燃焼度)を目指すことを想定した場合、最高で8.5%のプルトニウム富化度が必要である。従って、ここでは8.5%(P_{uf})を初期濃度として設定した(Table 3.2.1、ケース2)。また、全プルトニウム富化度は同位体組成によって変化し、最大で約14%となりうる。しかし、ここでは通常入手しうる富化度を想定した。この場合、 $P_u/(U+P_u)$ 比は約10.4%となる。 UO_2 燃料の ^{235}U 濃縮度については、機械的にケース2のプルトニウム富化度と同じ数値を与えた(ケース1)。

軽水炉においてもTRU核種の消滅が可能である。しかし、燃料設計上ボイド係数を負とする条件では、MOX燃料に添加し得るTRU量は制限される。自己生成したTRUのみをサイクルさせる場合には、TRU添加量は約1%となり、この場合には燃料の健全性には大きな影響がないと期待される。しかし、計算上は、評価を厳しくすると言う観点からTRU添加量を5%と設定した(ケース3)。

(2) 燃焼計算

上記3種類の燃料形態についてORIGEN-2⁽¹⁾を用いて燃焼計算を行い、FPおよびアクチノイドの生成量を評価した。各燃料は照射開始から150 GWd/tまで連続照射とし、30 GWd/tから20 GWd/t毎の計算を行った。炉型はPWRとし、比出力は40 MW/tとした。

Table 3.2.2には各燃料の照射前および150 GWd/t燃焼後の組成比較を示す。燃焼計算による詳細データをTable 3.2.3に示す。同表において、計算結果の出力は照射時間単位で行っており、燃焼度を求めるためには250日あたり10 GWd/tとして換算を行う必要がある。なお、ORIGEN-2は評価対象燃料に対する適用性を保証していないが、高燃焼時の燃料ふるまいの検討の一環として利用した。

(3) 燃焼度および P_u 富化の影響

ORIGEN-2による計算結果から、生成元素をグループ毎に区分し、燃焼度および初期燃料組成の影響の観点から整理した。その結果をFig.3.2.1~3.2.5に示す。

i) アクチノイド(Fig.3.2.1)

P_u を除くTRUについては、 UO_2 燃料の場合はNpが多く、その量は燃焼度とともに増加する。しかし、超高燃焼度領域になるとNpの生成量の増加は低下し、AmおよびCmの生成が大きくなる。その他、TRU添加燃料では、燃焼に伴いCmは増加するが、NpおよびAmは大きく減少し、TRUの消滅が可能なことが理解される。MOX燃料については、Npの生成は無視できるが、高燃焼度領域でCmおよびAmの生成

が顕著である。

ii) 希ガス (K r、X e) および揮発性元素 (B r、I) (Fig.3.2.2)

希ガスおよびIの生成量については、MOX燃料ではUO₂燃料より若干減少するが、大きな差は認められていない。生成割合としては、いずれの燃料でもXeが圧倒的に多い。

iii) 貴金属 (Fig.3.2.3)

Mo、Tcおよび貴金属 (Pd、Rh、Ru) は燃料内で金属析出物となるため、燃焼に伴って酸素が余剰となり、酸素ポテンシャルが大きくなる要因となっている。これらの金属の生成量はUO₂燃料と比べMOX燃料で増加することが計算結果でも確認される。特にPdの増加が顕著である。一方、Moについては、MOX燃料の方がその生成量はわずかに少ない。

iv) ランタノイドおよびY (Fig.3.2.4)

ランタノイドの全体量はUO₂燃料と比べてMOX燃料の方がその生成量は少ないが、その差はそれほど大きくない。一方、Yは、生成量自体は大きくないが、MOX燃料で顕著な生成量の低下が認められる。

v) Rb、Cs、Sr、BaおよびZr (Fig.3.2.5)

これらの元素は複合酸化物を形成することで知られているが、MOX燃料では、特にZrの生成量が少なくなることが特徴的である。その他ではBaの生成量が少なくなっていることが分かる。

参考文献 (3.2.1項)

- (1) M.J.Bell, "ORIGEN, the ORNL isotope generation and depletion code", ORNL-4628 (1973).

3.2.2 SOLGASMIX-PVコードによる燃料の化学状態の予測

SOLGASMIX-PVコード⁽¹⁻³⁾の解析方法の概要を付録2に示す。以下には、超高燃焼燃料の条件で照射した (TRUは添加していない) MOX燃料についての解析結果を示す。なお、TRU元素については、熱力学データが十分整備されていないため本解析では考慮していない。

(1) 解析体系

プルトニウム富化度8.5wt%のPWR燃料棒で1gの燃料重量の軸方向の高さを解析の対象とした。燃焼度は、50 GWd/tとした。ペレットの密度、直径、被覆管の内・外径、厚さ、組成等の解析条件をTable 3.2.4に示す。

次に、解析方法としては、半径方向を等間隔に5等分し、さらに燃料-被覆管ギャップを1セクションとして解析した。燃料-被覆管ギャップでは、燃料ペレット体積の10%、被覆管は内面から50μmまでが反応に関与するものと仮定した。

Fig.3.2.6に、その概況を示す。

(2) 入力データ

i) U、Pu、FPのモル数の燃焼度依存性

ORIGEN-2コードで50 GWd/tまで計算した結果をTable 3.2.5に示す。

ii) 燃料ペレット内の燃焼度分布

熱中性子に対する核分裂断面積が大きいため、燃料ペレット内では中性子束分布が不均一になる。この不均一分布として電力中央研究所で開発された簡易モデル⁽⁴⁾を採用した。計算式を次に示す。

$$F(r) = (C_0 + C_1 r + C_2 r^2 + C_3 r^3)/(r-b)$$

ただし、 C_0 、 C_1 、 C_2 、 C_3 、 b は濃縮度、燃焼度に依存する定数である。燃焼度 50 GWd/t まで燃焼させたときの、燃焼度の半径方向分布の計算結果をFig.3.2.7に示す。またこのときの領域1～5までのU、Puおよび核分裂生成物の量（モル数）をTable 3.2.6に示す。

(3) 熱力学データ

燃焼させた燃料中で考えられる燃料、被覆管、核分裂生成物の間で生成すると予想される化合物の種類とその熱力学データ⁽⁵⁻⁹⁾をTable 3.2.7に示す。ここでgは気相、sは固相、lは液相、cは凝縮相である。そのほかに計算対象とした化学種を以下に示す。

気相 I₂、O₂、Xe、Kr、He

金属析出相 Mo、Tc、貴金属 (Ru、Rh、Pd)

被覆管材相 Fe、Cr、Sn、Zr

(4) 温度分布の計算とその結果

温度分布は燃焼度分布と同様に、中性子束の半径方向の不均一分布を考慮して次の熱伝導方程式を解くことによって求めた⁽¹⁰⁾。

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left\{ r K(r) \frac{dT}{dr} \right\} + H(r) = 0$$

ただし、 $K(r)$ は熱伝導率、 $H(r)$ は発熱密度である。

220W/cm、328W/cmの線出力について、計算した結果をFig.3.2.8に示す。また、この計算結果から求めた燃料棒各領域での平均温度をTable 3.2.8に示す。

(5) 解析結果

i) Cs、I、Te化合物の形成

線出力220W/cm、328W/cmのときの各燃料領域でのCsの化合物の存在比を、それぞれFig.3.2.9～3.2.14 および Fig.3.2.15～Fig.3.2.20に示す。Fig.3.2.21には、被覆管ギャップ温度が上記の2つの線出力の場合 (873Kおよび1016K)よりも低い場合 (700K)について、核分裂生成物と被覆管の反応による生成物の存在比を酸素ポテンシャル $[\Delta G(O_2) = RT \ln P_{O_2}]$ の関数として示す。これらの結果より次のことが言える。

- ① 高温ではCsの気相および液相は $\sim -500 \text{ kJ/mol}$ まで安定である。
- ② Cs_2Te は $\sim -300 \text{ kJ/mol}$ まで安定である。
- ③ CsI は $\sim -150 \text{ kJ/mol}$ まで安定である。
- ④ Cs_2MoO_4 は $\sim -600 \text{ kJ/mol}$ から形成し始める。 $\sim -400 \text{ kJ/mol}$ になると Cs_2

TeがCs₂MoO₄に変換し後者の量が増大する。

- ⑤ Cs₂UO₄は-550~-450kJ/molで形成し、低温になるほどその量は増大する。
- ⑥ Cs₂ZrO₃は873K以下、~-650kJ/molで形成する。燃料-被覆管ギャップではその量は大きい。

ii) BaZrO₃の存在量

上記の計算条件のもとでは、Baはほぼ100%がBaZrO₃として存在する。このため、BaZrO₃の存在量は燃焼度にはほぼ比例する。

iii) Mo、Tc、Zrの存在量の酸素ポテンシャル依存性

Fig.3.2.22~3.2.24に、燃料領域5でのMo、Tc、Zrの各化学種の存在量の酸素ポテンシャル依存性を示す。これらの結果より次のことが言える。

- ① Mo金属は~-600kJ/molまで安定であるが、この値を超えるとCs₂MoO₄が形成し始め、~-500kJ/molを超えるとMoO₂が形成する。
- ② Cs₂Teは~-400kJ/molまで安定であるが、この値を超えると分解して元素状のTeとなる。
- ③ Zrは~-600kJ/mol近傍でCs₂ZrO₃を形成するが、それ以外ではBaZrO₃、ZrO₂として存在する。

参考文献(3.2.2項)

- (1) G.Eriksson, "Thermodynamic studies of high temperature equilibria III. SOLGAS, a computer program for calculating the composition and heat conduction of an equilibrium mixture", Acta Chem. Scand. 25 (1971) pp.2651-2658.
- (2) G.Eriksson and E.Rosen, "Thermodynamic studies of high temperature equilibria VII. General equations for calculation of equilibrium in multiphase systems", Chemica Scripta 4 (1973) pp.193-194.
- (3) T.M.Besmann, "SOLGASMIX-PV, a computer program to calculate equilibrium relationships in complex chemical systems", ORNL/TM-5775 (1977).
- (4) 松村哲夫、亀山高範、電力中央研究所 T88007 (1963).
- (5) E.H.P. Cordfunke and R.J.M.Kornings ed., Thermochemical Data for Reactor Materials and Fission Products, North-Holland (1990).
- (6) O.Kubaschewski and C.B.Alcock, Metallurgical Thermochemistry, 5th ed., Pergamon Press (1979) p.267.
- (7) D.C.Fee and C.E.Johnson, "Fuel-cladding chemical interaction in uranium-plutonium oxide fast reactor fuel pins", J. Nucl. Mater. 96 (1981) pp.80-104.
- (8) Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, PNCT 842-80-01 (1980).
- (9) R.G.J.Ball W.G.Burns, J.Henshaw, M.A.Mignanelli and P.E.Potter, "The chemical composition of the fuel-clad gap in oxide fuel pins for nuclear

reactors", J. Nucl. Mater. 167 (1989) pp.191-204.

- (10) 例えは、D.R.Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, published by Technical Information Center of U.S. ERDA, TID-26711-P1, 1976 p.127.

3.2.3 照射効果を考慮した酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形

Potterらは、PWRとFBRの燃料ピンにおける燃料／被覆管ギャップでの化学平衡を "SOLGASMIX" コードを用いて計算した。また、彼らは化学平衡に加えて、核分裂片による照射効果を取り上げ、"FACSIMILE" コードによって数値的に解いた^(1, 2, 3)。

(1) PWRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形

PWRでは、Table 3.2.9に示す化学種のなかで、MoとZrに注目した。MoとZrの有無を考慮したTable 3.2.10に示す4つの場合を取り上げ、酸素ポテンシャルの関数としてCs、Cs₂、Cs₂Te、Te、CsI、Iの各分圧を "SOLGASMIX" コードによって求めた。MoとZrの両者が含まれていない時の結果をFig.3.2.25に、両者を含んだ時の結果をFig.3.2.26に示す。なお両図には、ジルカロイのSCCが観測されたヨウ素分圧が示してある。Fig.3.2.25より、計算されたヨウ素ポテンシャルは、ジルカロイのSCCしきい値 ($P_{\text{O}_2} = 10^{-12} \text{ atm}$) 以下であることが分かる。Moを含むとヨウ素ポテンシャルは、Moがない場合と比べてFig.3.2.26に示すように増加するが、この時においても、ヨウ素ポテンシャルはジルカロイのSCCしきい値以下である。

核分裂片による照射効果が加わると、燃料ピン内に存在するヘリウム原子が励起され、励起ヘリウム原子とCsI、Cs₂Teガス分子との反応が加わる結果、Table 3.2.11に示すようにヨウ素とテルルの濃度が増加し、ヨウ素ポテンシャルはジルカロイのSCCしきい値を越えることが、"FACSIMILE" コードによる計算の結果分かった。

(2) FBRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形

FBRでは、被覆管SUSの成分であるクロムが加わるため、考慮すべき化学種の数が増加する。計算に用いた2、10、20%燃焼度における化学種の濃度をTable 3.2.12に示す。Table 3.2.13のCase 2と3に対して、"SOLGASMIX" コードによって求めた $\log(Te/I)$ 、 $\log(Te/Cs)$ 、 $\log(I/Cs)$ の値を酸素ポテンシャルの関数として Fig.3.2.27とFig.3.2.28に示す。両図から一定酸素分圧下では、Moの濃度が増加すると、ヨウ素とテルルのポテンシャルは増加することが分かる。Cr₂O₃の生成が抑制され、Te/Cs > 0.5となると、被覆管表面上にCsとTeが析出し、SUSとTeの反応が起こる。

Table 3.2.13のCase 2と3の条件下において、核分裂片による照射効果が加わった時の結果をTable 3.2.14に示す。照射効果は "FACSIMILE" コードによって計算した。Table 3.2.14から、核分裂による照射効果が加わると、ヨウ素とテルルのポテンシャルはかなり増加することが分かる。しかし、照射によるテルル分圧の増加は、酸素ポテンシャルが大きい時には少ない。

参考文献 (3.2.3項)

- (1) J.H.Gittus, J.R.Matthews and P.E.Potter, J. Nucl. Mater. 166 (1989) 132.
- (2) R.G.J.Ball, W.G.Burns, J.Henshaw, M.A.Mignanelli and P.E.Potter, J. Nucl. Mater. 167 (1989) p.191.
- (3) P.E.Potter, Pure and Appl. Chem. 60 (1988) p.323.

3.2.4 燃料の化学状態に関する照射後試験結果

(1) はじめに

燃料内では燃焼の進行に伴って、種々の核分裂生成物(FP)が生成し、濃度勾配に基づいた化学拡散、および温度勾配に基づいた熱拡散により燃料内を移動する。多量のFPが蓄積する高燃焼度では、燃料ペレット内でのFPの化学形態や状態の変化ばかりでなく、その移動速度が燃料挙動に大きな影響を及ぼす。

固体FPによるスエリングはFPの化学形態に直接支配される。低密度FP化合物の形成は、大きなスエリングにつながる。また、燃料マトリックスへの固体FPの固溶やFP化合物の析出は、燃料の熱伝導率の低下をもたらすと考えられている。燃料ペレット外へ放出された固体FP、特に蒸気圧の高い揮発性FPは、被覆管内表面へ移動し、内面腐食により被覆管を脆化させる要因となる。一方、気体FPは粒内および粒界に気泡として析出し、大きなスエリングの原因となり、高燃焼度におけるペレット-被覆管機械的相互作用(PCMI)を厳しくする。ペレット外へ放出されたFPガスは燃料棒内の内圧を上昇させることになる。FPガス挙動についての詳細は、3.3.2項に記述されているので参照されたい。

固体FPの化学形態とその放出挙動に関する実験的研究は、1960年代の後半から行なわれ、多量のデータが蓄積されてきた。Kleykamp⁽¹⁾は1985年にそれまでに得られた知見をレビューにまとめている。ここでは、彼のレビューを下敷として、主に1985年以降に公表された固体FPの化学的挙動と被覆管との化学的相互作用に関する最近の照射後試験(PIE)結果を中心にまとめる。

(2) 固体FPの分類

Kleykamp⁽¹⁾は固体FPをFig.3.2.29の周期率表上で次の4つに分類している。

- (a) 燃料固溶相(Sr, Zr, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm)
- (b) 金属析出相(Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, Te)
- (c) 酸化物析出相(Rb, Cs, Ba, Zr, Mo, Te)
- (d) 挥発性FP(Br, I)

すなわち、酸化物燃料中のFPの化学形態は、燃料温度がペレット外周部においても500°C以上であることから、第一近似として熱力学的検討により評価することができる。Fig.3.2.30⁽¹⁾は、主要なFP酸化物の酸素ポテンシャル(実線)をUO₂およびU_{0.8}Pu_{0.2}O₂燃料の値(鎖線)と比較して示したものである。燃料の酸素ポテンシャルよりも高い値をもつFPは単体として析出する。TcおよびRu, Rh, Pdの貴金属元素は金属として析出する。

MoO₂の酸素ポテンシャルはUO_{2+x}のそれに近いため、xの値によってMoは金属と酸化物の2つの形で存在し得ると考えられる。また燃料の酸素ポテンシャルより低い

F Pは酸化物として存在する。さらに、酸化物の中で、 U^{+4} のイオン半径(0.10 nm)とほぼ同じイオン半径を持つ希土類元素、Zr、Srは UO_2 マトリックス中に固溶し、CsおよびBaは主にU、Zr等との複合酸化物として析出する可能性がある。

このような熱力学的な評価で最も重要な因子は、燃料の酸素ポテンシャルである。次に、照射により燃料の酸素ポテンシャルがどのように変化するのか、測定例を示す。なお、特に定常運転時における軽水炉燃料の燃料温度はペレット中心でも1000~1200°C以下とそれほど高くないことから、熱力学的には存在し得ても、反応速度論的には反応が進行しないこともあることに留意する必要がある。

(3) 照射済燃料の酸素ポテンシャル

未照射 UO_2 および(U, Pu) O_2 の酸素ポテンシャルとO/M比との相関は、過去多くの測定と理論的な検討がなされ、Lindemerら^(2, 3)によりデータレビューされている。また UO_2 と+2~+4価の異種金属(模擬FPとみなせる)酸化物との固溶体の酸素ポテンシャルデータがFujinoとMiyake⁽⁴⁾によってレビューされている。その結果、希土類元素を中心とした低原子価金属の固溶により、同一O/M比で比較すると、酸素ポテンシャルは上昇することが示された。 UO_2 ⁽⁵⁾および(U, Pu) O_2 ⁽⁶⁾に模擬FPを添加した燃料の酸素ポテンシャルが測定されており、同様の結果が得られている。

1回の核分裂により生成した2個の遊離酸素は、燃料の酸素ポテンシャルに依存して各種FPと結合して、その多くが消費される。軽水炉燃料条件でFPの化学形態を種々仮定した酸素の収支評価では、1%燃焼度あたりO/U=0.0014の酸素が余剰となるといわれている⁽¹⁾。軽水炉燃料では、燃料内の酸素はさらにジルカロイ被覆管によって吸収され酸素は余らない可能性もある。

照射により燃料内の酸素が過剰となり、O/M比および酸素ポテンシャルがどのように変化するのか、ステンレス被覆管の内面腐食と関連して(U, Pu) O_2 の高速炉燃料で古くから議論されてきており、Redox法、固体電池法、格子定数測定法によりいくつかの測定がなされている⁽⁷⁾。Fig.3.2.31に最近の固体電池による UO_2 ⁽⁸⁾および(U, Pu) O_2 ペレット⁽⁹⁾の酸素ポテンシャルの測定結果を示す。両燃料の初期O/Mは2.00および1.98であり、燃焼度の増加と共に両者の酸素ポテンシャルは増加している。この酸素ポテンシャルの増加は、O/M比の増加によるものではなく、低原子価FPの固溶効果と解釈されている。

格子定数の測定結果から、高速炉用(U, Pu) O_2 燃料のO/M比は増加するという報告⁽¹⁰⁾(Fig.3.2.32)と、増加しないという報告⁽⁹⁾(Fig.3.2.33)がある。また軽水炉用 UO_2 燃料の格子定数の評価から、O/M比は増加しないとされた⁽⁸⁾。

先に示したように、Mo/MoO₂の酸素ポテンシャルは酸化物燃料のそれと比較的近い。従って、生成したMoが金属として存在するのか、他の酸化物として存在するのかを調べることによって、燃料の酸素ポテンシャルを評価することができる(Redox法)。Fig.3.2.34⁽¹¹⁾およびFig.3.2.35⁽¹²⁾に、高速炉燃料および軽水炉燃料ペレットで分析された金属FP析出物内のMoの組成比の燃焼度依存性をそれぞれ示す。高速炉燃料では、燃焼度7~8%までMo/Ruの比は、それらの収率の比にはほぼ等しいが、8%以上の高燃焼度では急激に低下している。このことは、高燃焼度で燃料の酸素

ポテンシャルが上昇し、Moが酸化されたことを明確に示している。一方、Fig.3.2.35の軽水炉燃料では、燃焼度約60 GWd/tまでMoの組成比はその収率比に一致しており、その範囲で UO_2 燃料の酸素ポテンシャルは大きく上昇しなかったことが示された。

(4) FP の化学的挙動

i) 燃料固溶相

Yおよび希土類元素 (La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm) は、 UO_2 と広い組成範囲で萤石型の固溶体を生成する⁽⁴⁾。従って、核分裂によって生成した希土類元素が数wt%の時には、希土類元素は照射中に UO_2 マトリックスに固溶すると考えることができる。1000°C以上で焼鈍され、照射欠陥が消滅している照射済 UO_2 ペレットの格子定数が、模擬FPを固溶させたペレットの値と良く一致していることから、固溶体の形成が確認できる^(1, 8)。

アルカリ土類元素であるSrおよびBaの UO_2 中への固溶度は、希土類元素のそれに比べて低い (Table 3.2.15)。Srの固溶度は1500°Cで約10at%であることから、希土類元素と共にほとんど固溶すると考えられる。一方、Baの固溶度は2000°C以上の高温においても1at%以下であることから、その多くは UO_2 に固溶せず、ほとんどはグレイ相と呼ばれる酸化物として析出する。Fig.3.2.36は、出力急昇を経験した軽水炉燃料ペレット内の半径方向のBa濃度分布を示している。ペレット中心部でBaOとして蒸発したBaは燃料内の不純物Siと反応して $BaSiO_3$ となり、ペレット中間部のクラックやボアに析出したと考えられた⁽¹³⁾。

Zrは、 PuO_2 と全率固溶体を作るが、 UO_2 に対しては1200°C以下の固溶度は1%以下であることから、その一部は固溶せず、Ba等の他のFPと複合酸化物を形成する。

FPの固溶による照射挙動への影響として UO_2 燃料の熱伝導率の低下が挙げられる。Fig.3.2.37に希土類元素、Zr、Srを固溶させた模擬燃料の熱伝導率を示す⁽¹⁴⁾。燃焼度、すなわち固溶FP量の増加と共に熱伝導率が低下し、90 GWd/t相当では1000Kで約25%低下している。高燃焼度燃料では、熱伝導率の低下に基づく燃料温度の上昇に着目しておく必要がある。

ii) 金属析出物

Mo、Tcおよび貴金属 (Ru, Rh, Pd) は、 UO_2 中の固溶度が極めて低いこと、また、各金属酸化物の酸素ポテンシャルがMoを除いて UO_{2+x} の酸素ポテンシャルより高いことから、ほとんど合金を形成して析出する。Fig.3.2.38に Mo-(Tc, Ru)-(Rh, Pd) 摂三元系状態図上で、分析された金属FP析出物の組成を示す⁽¹⁵⁾。軽水炉燃料では分析された組成比は各元素の収率と良く一致している。一方、高速炉燃料では燃焼に伴って酸素ポテンシャルが高くなり、Fig.3.2.34に示したのと同様に合金中のMoは減少する。高速炉燃料で酸素ポテンシャルが高い高燃焼度では、Moは酸化され、おそらく MoO_3 のガスとして低温のギャップ部に移動し、Fig.3.2.39に示すようにCsとの複合酸化物 (Cs_2MoO_4) が形成する。 Cs_2MoO_4 の形成は熱力学計算によっても予測されている。しかし、軽水炉燃料ではMoの複合酸化物は報告されていない。

Pdは金属FP析出物の他に、燃料構成元素や他のFPと合金を作ることが知られて

いる。これは、Pdが高温で高い蒸気圧をもっているためと理解されている。その例として、高速炉燃料ではPd-Ag-Cd合金のギャップへの析出や、Pd-Sn-Sb-Te合金の中心孔への析出が観察されている。また、中心孔では(U, Pu)Pd₃も同定されている。

Ag, Cdは酸化物の酸素ポテンシャルが燃料のそれよりも高いことから、単体、あるいは他のFPとの化合物として析出する。Fig.3.2.40は軽水炉ジルカロイ被覆管内表面付着物の特性X線像を示す⁽¹⁶⁾。Ag, Cd, Uが共存しており、U-Ag-Cd合金を示唆している。

Teの生成量は小さいが、その挙動は複雑である。Te/TeO₂の平衡酸素ポテンシャルは燃料の値よりもはるかに高いことから、単体あるいは燃料構成元素や他のFPと金属相および複合酸化物を作る。高速炉燃料内では、Teが一部(U, Pu)O_{2-x}マトリックスに固溶していることが示されている。またギャップ部ではBa-Te酸化物やCs-Te化合物が認められている。Fig.3.2.41は、軽水炉ジルカロイ被覆管内表面でCsとTeが検出された析出物の両者の組成比の相関を示している⁽¹⁷⁾。Cs₂Teと思われる析出物の他に、Te単体が析出していることが示唆される。

iii) 酸化物析出相

Zr、Ba、Te、Moの酸化物析出相については、既に他の項目で述べたので、ここではCs(Rb)の挙動について記述する。CsはUO₂中への固溶度が低いため(表3.2.15)、燃料や他のFPと反応してスエリングや被覆管の腐食を伴うことから、古くからその挙動が調べられている。

Cs化合物としては、CsI、Cs₂Te、Cs-U-(Pu)-O、Cs-Mo-O等が知られている。先に示したCs₂Teと同様に、CsIもジルカロイ被覆管内表面に付着しているのが確認されている⁽¹⁸⁾(Fig.3.2.42)。Cs-U-(Pu)-O複合酸化物には、Cs₂M₄O₁₂、Cs₂MO₄、Cs₂MO_{3.58}[M=U, Pu]等の多くの化合物が報告されており、その安定性は酸素ポテンシャルに強く影響される。酸素ポテンシャルが高い高速炉燃料では、Cs₂M₄O₁₂の存在が確認されている。酸素ポテンシャルが低い軽水炉燃料では、Cs₂M₄O₁₂ではなくCs₂MO₄やCs₂MO_{3.58}の形成が予測されているが、相の同定は行なわれていない。しかし、高出力を経験した軽水炉燃料でCs-U-O化合物がペレット外周部で見出された例もある⁽¹⁹⁾(Fig.3.2.43)。

他の複合酸化物、Cs₂MoO₄は先に示したように酸素ポテンシャルの高い高速炉燃料のギャップ部で見出されている(Fig.3.2.39)。Cs₂MoO₄は高温では気相として安定であり、照射場では高温で分解し、生成した気体状のMoO₃がギャップ部に移行してCs₂Oや他のCs化合物と反応してCs₂MoO₄となると考えられている。酸素ポテンシャルの低い軽水炉燃料ではCs₂MoO₄は観察されていない。

iv) 撃発性FP

IおよびBrは最も撃発性の高いFPと考えられている。IはCs, Ag, Ba等のFPと反応してヨウ化物を生成することが熱力学評価から示唆されている。照射後試験では、被覆管内表面にCsIの存在が確認されており、ジルカロイ被覆管の応力腐食割れ(SCC)と関連して放射線分解によるヨウ素分圧の上昇が検討されている。Brに

については情報が無く、CsBrのような化学形も未だ確認されていない。

(5) 被覆管との化学的相互作用

FPと被覆管との化学的相互作用、FPによる被覆管の腐食は燃料の健全性と関連して重要である。Cs、Te、I等の揮発性FPによるステンレス被覆管の腐食は古くから多くの研究がある。一方、軽水炉燃料におけるジルカロイ被覆管とFPとの相互作用については、軽水炉燃料の燃焼度が低いこと、また燃料温度が低くFP放出量が高速炉燃料よりも少ないことから現在のところ顕在化しておらず、ペレットとジルカロイ被覆管との癒着（ボンディング）が見られているに過ぎない。以下、軽水炉燃料で見られているボンディングと被覆管へのFPの打込みについてのデータをまとめた。

i) ボンディング

Fig.3.2.44にペレットとジルカロイ被覆管とのボンディング相の分析例を示す⁽²⁰⁾。燃料の燃焼度は35 GWd/tである。被覆管側から、数μmの厚さのZrO₂酸化膜が、その上に約10μmのU-Zr-(Cs)-Oから成る反応相が生成し、ペレットと被覆管とが強固に癒着している。反応相内のUおよびZrの組成がほぼ連続的に変化していることから、反応相の化学形態は立方晶系の(U, Zr)O₂固溶体である可能性を考えられる。ZrO₂の結晶構造は、被覆管内表面温度の400~500°Cでは单斜晶が安定であり、2300°C以上で立方晶が安定となる。しかし、Cs等の低原子価イオンを固溶させると立方晶系が安定化し、低温においても(U, Zr)O₂固溶体が生成することになる。

現在までに報告されているボンディング相の分析結果が、Table 3.2.16にまとめられている⁽²¹⁾。ジルカロイ被覆管内表面のZrO₂相の厚さは数μmから10μmであり、反応相の厚さは最大約10~20μmである。反応相の成分は、いずれもU、Zrが主成分であり、そこに少量のCsが混入している。以上の結果から、燃焼度約50 GWd/tまでの燃焼度では、ボンディング相の形成による被覆管の腐食としては高々約30μm程度を考えておけば良い。また、ボンディング相形成による被覆管母相への顕著なFPの浸食は認められていない。これは、おそらくジルカロイ内表面に形成したZrO₂相がFPに対するバリアーとして働いているためと思われる。

ii) 被覆管へのFPの打込み

最近ジルカロイ被覆管へのFPの侵入深さが放射化学的に測定された。Fig.3.2.45⁽²²⁾およびFig.3.2.46⁽²³⁾は、燃焼度29および47 GWd/tの燃料被覆管内表面からの深さと各種FP濃度との関係を示している。いずれも被覆管内面から数μmの領域でFP濃度が高く、10μm以上奥にはFPは侵入していない。この侵入深さは、核分裂片の反跳距離と良く一致しており、上記FPの侵入が化学的効果によるものでないことが分かる。従って、FPの打込み厚さは、高々約10μmを考えておけば良い。

参考文献 (3.2.4項)

- (1) H.Kleykamp, J. Nucl. Mater. 131 (1985) 221.
- (2) T.B.Lindemer and T.M.Besmann, J. Nucl. Mater. 130 (1985) 473.
- (3) T.M. Besmann and T.B.Lindemer, J. Nucl. Mater. 130 (1985) 489.
- (4) T.Fujino and C.Miyake, "Handbook on the Physics and Chemistry of the

- Actinides", eds. A.J.Freeman and C.Keller, Elsevier Science Publishers B.V., 1991, p.155-240.
- (5) K.Une and M.Oguma, J. Nucl. Sci. Technol. 20 (1983) 844.
 - (6) R.E.Woodley, J. Nucl. Mater. 74 (1978) 2990.
 - (7) 杉崎、古屋, 日本原子力学会誌 22 (1980) 379.
 - (8) K.Une, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 28 (1991) 409.
 - (9) Hj.Matzke, et al., J. Nucl. Mater. 160 (1988) 142.
 - (10) 吉川ら, 日本原子力学会、昭63秋の大会、H15.
 - (11) M.Tourasse, et al., J. Nucl. Mater. 188 (1992) 49.
 - (12) M.Charles, et al., IAEA Specialists Meeting on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, Pembroke, APRIL, 1992.
 - (13) C.T.Walker, et al., J. Nucl. Mater. 173 (1990) 14.
 - (14) S.Ishimoto, et al., 12th Japan Symposium on Thermophysical Properties, p.271 (1991).
 - (15) H.Kleykamp, Nucl. Technol. 80 (1988) 412.
 - (16) A.Ohuchi, et al., IAEA Technical Committee Meeting on Post Irradiation Examination and Experience, Tokyo, November, 1984.
 - (17) A.Ohuchi and H.Sakurai, ANS Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Williamsburg, 1988.
 - (18) D.Cubicciottie, et al., J. Nucl. Mater. 78 (1978) 96.
 - (19) J.Bajin, et al., Nucl. Energy Maturity 3 (1975) 123.
 - (20) M.Oishi, IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Performance at High Burnup for Water Reactors, Studsvik, June, 1990.
 - (21) R.Kohli, Proc. on Chemical Reactivity of Oxide Fuel and Fission Product Release, Berkeley, April, 1987.
 - (22) T.Hirabayashi, J. Nucl. Mater. 174 (1990) 45.
 - (23) J.Vehlow, The Third Int. Conf. on Nucl. Fuel Reprocessing and Waste Management, Sendai, Japan, April, 1991.

3.2.5 燃料の化学状態に係わる課題のまとめ

燃料の化学状態はスエリングや被覆管内面腐食などに強い効果を示すことなどから、化学状態を明らかにすることは重要な課題である。これまでの軽水炉燃料では燃料温度が低いことに加えて燃焼度も低いため、燃料の化学状態がその健全性に問題を起こすような影響を与えることは考えられないが、超高燃焼度化によるFPの蓄積、Puの利用に伴なう酸素ポテンシャルの上昇を考慮すると、今後精力的な研究が必要である。SOLG ASMIX等の計算による評価は、今後更に有効な手段となり得ると考えられるが、評価に必要な熱力学データが不足しており、早急にその整備が行われることが望まれる。同時に超高燃焼領域の照射データを蓄積して両者から超高燃焼燃料の化学状態を把握することが必要である。今後のPu利用を想定すると、特に酸素ポテンシャルを関数としてデータ蓄積を図ることが重要である。

Table 3.2.1 燃焼計算対象燃料初期組成

ケース	燃料形態	組 成
1	UO ₂ 燃料	²³⁵ U濃縮度：8.5%
2	MOX燃料	Pu富化度：8.5% (Puf)
3	MOX/TRU燃料	Pu富化度：8.5% (Puf)、TRU添加量：5%

注 プルトニウムおよびTRUの同位体組成を以下のとおりと仮定した。

プルトニウム ²³⁸Pu:0.1%，²³⁹Pu:77.8%，²⁴⁰Pu:18.4%，²⁴¹Pu:3.2%，

²⁴²Pu:0.5%

TRU ²³⁷Np:49.4%，²⁴¹Am:26.5%，^{242m}Am:0.1%，²⁴³Am:16.7%，

²⁴²Cm:<0.1%，²⁴³Cm:0.1%，²⁴⁴Cm:6.7%，²⁴⁵Cm:<0.1%，

²⁴⁶Cm:0.1%，²⁴⁷Cm:<0.1%

Table 3.2.2 各燃料に関する燃焼計算結果

元素	UO ₂ (8.5% ²³⁵ U)	MOX(8.5% Puf)	MOX(8.5% Puf+5%TRU)
Np	0	0	1.097 E+02
	9.680 E+00	2.225 E+00	1.980 E+01
Pu	0	4.386 E+02	4.386 E+02
	6.201 E+01	1.057 E+02	1.991 E+02
Am	0	0	9.423 E+01
	5.154 E+00	1.384 E+01	1.927 E+01
Cm	0	0	2.705 E+00
	8.181 E+00	2.109 E+01	3.706 E+01
全FP	0	0	0
	1.289 E+03	1.260 E+03	1.258 E+03

注 単位：GRAM-ATOM

上段数字：初期組成、下段数字：150GWd/t燃焼時

Table 3.2.3 a ORIGEN-2コードによるアクチノイド生成量計算結果 (UO_2 燃料)

* IRRADIATION OF UO_2 FUEL ASSEMBLY (UO_2 ; 8.5 W/O)
 POWER = 4.00000E+01 MW, BURNUP = 1.50000E+05 MWD, FLUX = 3.28E+14 N/CM**2-SEC

3 SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS

	UO ₂ FUEL ASSEMBLY								
CHARGE	250.00	750.00	1250.00	2250.00					
H	0.0	1.310E-04	4.561E-03	4.128E-02	1.691E-01	4.522E-01	9.178E-01	1.552E+00	2.30E+00
U	4.206E+03	4.152E+03	4.049E+03	3.949E+03	3.850E+03	3.754E+03	3.659E+03	3.565E+03	3.477E+03
NP	0.0	3.281E-01	1.334E+00	2.995E+00	5.184E+00	7.548E+00	9.289E+00	9.930E+00	9.680E+00
PU	0.0	9.287E+00	2.367E+01	3.492E+01	4.417E+01	5.152E+01	5.700E+01	6.049E+01	6.201E+01
AM	0.0	1.111E-03	5.192E-02	2.585E-01	7.405E-01	1.663E+00	2.963E+00	4.227E+00	5.154E+00
Cm	0.0	4.587E-05	5.674E-03	5.022E-02	2.412E-01	8.874E-01	2.460E+00	5.049E+00	8.181E+00
SUMTOT	4.206E+03	4.162E+03	4.074E+03	3.987E+03	3.901E+03	3.816E+03	3.731E+03	3.648E+03	3.564E+03
TOTAL	4.206E+03	4.162E+03	4.074E+03	3.987E+03	3.901E+03	3.816E+03	3.731E+03	3.648E+03	3.564E+03

CUMULATIVE TABLE TOTALS

AP+FP	1.019E+04								
ACT+FP	4.206E+03	4.162E+03	4.074E+03	3.987E+03	3.901E+03	3.816E+03	3.731E+03	3.648E+03	3.564E+03
A ² +ACT+FP	1.439E+04	1.435E+04	1.426E+04	1.418E+04	1.409E+04	1.400E+04	1.392E+04	1.384E+04	1.375E+04

Table 3.2.3 b ORIGEN-2コードによる核分裂生成物生成量計算結果 (UO_2 燃料)

* IRRADIATION OF UO₂ FUEL ASSEMBLY (UO_2 ; 8.5 W/D)
 POWER= 4.00000E+01 MW, BURNUP= 1.50000E+05 MW, FLUX= 3.28E+14 N/cm²*2-SEC

FISSION PRODUCTS

3 SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS

CHARGE	250.00	750.00	1250.00	1750.00	2250.00	2750.00	3250.00	3750.00
H	5.011E-03	1.490E-02	2.463E-02	3.437E-02	4.435E-02	5.446E-02	6.444E-02	7.398E-02
GE	2.686E-03	7.937E-02	1.307E-02	2.290E-02	3.209E-02	4.220E-02	5.230E-02	3.655E-02
AS	0.0	6.177E-04	2.332E-03	3.811E-03	5.238E-03	6.589E-03	7.842E-03	8.996E-03
SE	0.0	2.389E-01	7.004E-01	1.139E+00	1.549E+00	1.920E+00	2.254E+00	2.562E+00
BR	0.0	9.378E-02	2.722E-01	4.371E-01	5.828E-01	7.027E-01	7.952E-01	8.674E-01
KR	0.0	2.663E+00	4.765E+00	7.650E+00	1.021E+01	1.238E+01	1.419E+01	1.575E+01
RB	0.0	1.561E+00	4.444E+00	7.117E+00	9.495E+00	1.149E+01	1.312E+01	1.449E+01
SR	0.0	4.576E+00	1.189E+01	1.841E+01	2.397E+01	2.837E+01	3.172E+01	3.435E+01
Y	0.0	2.284E+00	6.118E+00	9.585E+00	1.263E+01	1.509E+01	1.702E+01	2.002E+01
ZR	0.0	1.356E+01	3.937E+01	6.380E+01	8.649E+01	1.064E+02	1.417E+02	1.577E+02
NB	0.0	4.870E-01	5.125E-01	4.826E-01	4.505E-01	4.211E-01	4.021E-01	3.956E-01
NO	0.0	9.373E+00	3.111E+01	5.249E+01	7.334E+01	9.352E+01	1.130E+02	1.319E+02
TC	0.0	2.577E+00	7.514E+00	1.194E+01	1.566E+01	1.841E+01	2.013E+01	2.178E+01
RU	0.0	6.731E+00	1.729E+01	2.990E+01	4.410E+01	6.043E+01	7.874E+01	9.826E+01
RH	0.0	1.096E+00	3.641E+00	5.597E+00	6.813E+00	7.241E+00	7.128E+00	6.909E+00
PD	0.0	9.208E-01	4.461E+00	1.038E+01	1.926E+01	3.177E+01	4.756E+01	6.542E+01
AG	0.0	4.852E-02	2.322E-01	5.058E-01	8.627E-01	1.285E+00	1.715E+00	2.471E+00
CD	0.0	8.202E-01	7.207E-01	1.406E+00	2.106E+00	4.340E+00	6.708E+00	9.554E+00
IN	0.0	9.605E-03	1.970E-02	2.263E-02	2.274E-02	2.238E-02	2.248E-02	2.334E-02
SN	0.0	1.129E-01	4.222E-01	7.644E-01	1.1666E+00	1.6445E+00	2.195E+00	2.793E+00
SB	0.0	5.215E-02	1.5556E-01	2.603E-01	3.703E-01	4.092E-01	6.122E-01	8.324E-01
TE	0.0	9.488E-01	2.847E+00	4.8633E+00	7.0166E+00	9.338E+00	1.182E+01	1.706E+01
I	0.0	4.851E-01	1.381E+00	2.325E+00	3.290E+00	4.285E+00	5.223E+00	6.135E+00
XE	0.0	1.116E+01	3.370E+01	5.659E+01	7.993E+01	1.038E+02	1.281E+02	1.527E+02
CS	0.0	6.763E+00	2.005E+01	3.254E+01	4.405E+01	5.442E+01	6.363E+01	7.194E+01
BA	0.0	3.210E+00	9.362E+00	1.585E+01	2.280E+01	3.036E+01	3.660E+01	4.753E+01
LA	0.0	2.860E+00	8.389E+00	1.374E+01	1.888E+01	2.373E+01	2.822E+01	3.252E+01
CE	0.0	7.340E+00	1.909E+01	2.960E+01	3.956E+01	4.918E+01	5.058E+01	6.775E+01
PR	0.0	2.306E+00	7.388E+00	1.222E+01	1.691E+01	2.122E+01	2.880E+01	3.224E+01
ND	0.0	7.119E+00	2.348E+01	4.045E+01	5.726E+01	7.361E+01	8.946E+01	1.050E+02
PM	0.0	7.663E-01	1.498E+00	1.781E+00	1.377E+00	1.101E+00	9.020E-01	8.152E-01
SM	0.0	9.958E-01	3.615E+00	6.476E+00	9.209E+00	1.161E+01	1.359E+01	1.527E+01
EU	0.0	2.177E-01	5.567E-01	2.154E+00	2.194E+00	2.689E+00	3.060E+00	3.820E+00
GD	0.0	2.461E-02	1.440E-01	1.375E-01	1.154E+00	2.678E+00	5.188E+00	8.649E+00
T8	0.0	1.129E-03	5.245E-03	1.105E-02	2.281E-02	4.020E-02	6.856E-02	1.147E-01
DY	0.0	3.907E-04	2.139E-03	5.429E-03	1.112E-02	2.065E-02	3.582E-02	5.911E-02
HO	0.0	2.014E-05	1.469E-04	4.711E-04	1.266E-03	3.091E-03	6.713E-03	1.273E-02
ER	0.0	1.110E-05	6.155E-05	1.843E-04	5.064E-04	1.415E-03	3.793E-03	8.951E-03
SUMTOT	0.0	8.857E+01	2.644E+02	4.373E+02	6.120E+02	7.831E+02	9.521E+02	1.120E+03
TOTAL	0.0	8.857E+01	2.6448E+02	4.372E+02	6.120E+02	7.831E+02	9.521E+02	1.120E+03

CUMULATIVE TABLE TOTALS

AP+FP	1.019E+04	1.028E+04	1.061E+04	1.080E+04	1.097E+04	1.114E+04	1.131E+04	1.148E+04
ACT+FP	4.206E+03	4.251E+03	4.339E+03	4.426E+03	4.513E+03	4.683E+03	4.768E+03	4.853E+03
AP+ACT+FP	1.439E+04	1.444E+04	1.4533E+04	1.4611E+04	1.470E+04	1.479E+04	1.487E+04	1.504E+04

Table 3.2.3 c ORIGEN-2コードによるアクチノイド生成量計算結果 (MOX燃料)

* IRRADIATION OF MOX FUEL ASSEMBLY (FISSILE PU ; 8.5 W/0)
 POWER= 4.00000E+01 MW, BURNUP= 1.50000E+05 MWD, FLUX= 2.68E+14 N/CM**2-SEC.

3 SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS

	CHARGE	250.00	750.00	1250.00	1750.00	2250.00	2750.00	3250.00	3750.00
HE	0.0	2.332E-02	2.336E-01	8.809E-01	2.215E+00	6.311E+00	6.924E+00	9.608E+00	1.205E+01
U	3.764E+03	3.747E+03	3.725E+03	3.698E+03	3.663E+03	3.618E+03	3.563E+03	3.497E+03	3.422E+03
NP	0.0	2.034E-01	3.059E-01	5.1902E-01	9.070E-01	1.288E+00	1.685E+00	2.023E+00	2.225E+00
PU	4.386E+02	4.073E+02	3.444E+02	2.845E+02	2.314E+02	1.863E+02	1.499E+02	1.231E+02	1.057E+02
AM	0.0	6.901E-01	2.454E+00	4.614E+00	7.094E+00	9.797E+00	1.235E+01	1.391E+01	1.384E+01
CM	0.0	3.166E-02	2.467E-01	7.160E-01	1.154E+00	4.063E+00	8.162E+00	1.431E+01	2.109E+01
SUMTOT	4.2000E+03	4.157E+03	4.073E+03	3.989E+03	3.906E+03	3.824E+03	3.742E+03	3.660E+03	3.577E+03
TOTAL	4.2000E+03	4.157E+03	4.073E+03	3.989E+03	3.906E+03	3.824E+03	3.742E+03	3.660E+03	3.577E+03

CUMULATIVE TABLE TOTALS

AP+FP	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04	1.018E+04
ACT+FP	4.2001E+03	4.157E+03	4.073E+03	3.989E+03	3.906E+03	3.824E+03	3.742E+03	3.660E+03	3.577E+03
AP+ACT+FP	1.437E+04	1.433E+04	1.423E+04	1.416E+04	1.408E+04	1.400E+04	1.392E+04	1.384E+04	1.376E+04

Table 3.2, 3 d ORIGEN-2コードによる核分裂生成物生成量計算結果

* IRRADIATION OF MOX FUEL ASSEMBLY (FISSILE PU ; 8.5 W/0)
 POWER= 4.00000E+01 MW, BURNUP= 1.50000E+05 MWD, FLUX= 2.68E+14 N/CM**2-SEC

3 SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS

	CHARGE	250.00	750.00	1250.00	1750.00	2250.00	2750.00	3250.00	3750.00
H	0.0	7.261E-03	2.083E-02	3.356E-02	4.498E-02	5.577E-02	6.581E-02	7.521E-02	8.397E-02
Ge	0.0	2.156E-03	6.361E-03	1.055E-02	1.471E-02	1.895E-02	2.331E-02	2.706E-02	3.257E-02
As	0.0	7.198E-04	2.125E-03	3.459E-03	4.756E-03	6.016E-03	7.252E-03	8.476E-03	9.472E-03
Se	0.0	1.636E-01	4.010E-01	7.851E-01	1.073E+00	1.347E+00	1.616E+00	1.889E+00	2.170E+00
Br	0.0	6.782E-02	1.960E-01	4.252E-01	7.152E-01	5.972E-01	6.71BE-01	7.405E-01	
Kr	0.0	7.687E-01	2.271E+00	3.742E+00	5.179E+00	6.584E+00	7.976E+00	9.376E+00	1.079E+01
Rb	0.0	6.551E-01	1.918E+00	3.176E+00	4.410E+00	5.618E+00	6.810E+00	8.003E+00	9.199E+00
Sr	0.0	1.776E+00	4.669E+00	7.669E+00	1.043E+01	1.307E+01	1.562E+01	1.812E+01	2.059E+01
Y	0.0	9.153E-01	2.441E+00	3.929E+00	5.378E+00	6.785E+00	8.168E+00	9.547E+00	1.093E+01
Zr	0.0	8.529E+00	2.464E+01	4.046E+01	5.595E+01	7.109E+01	8.605E+01	1.011E+02	1.161E+02
Nb	0.0	3.619E-01	3.823E-01	3.707E-01	3.627E-01	3.580E-01	3.581E-01	3.647E-01	3.737E-01
Mo	0.0	8.726E+00	2.829E+01	4.757E+01	6.641E+01	8.482E+01	1.029E+02	1.208E+02	1.386E+02
Tc	0.0	2.502E+00	7.373E+00	1.194E+01	1.602E+01	1.944E+01	2.202E+01	2.374E+01	2.472E+01
Ru	0.0	9.721E+00	2.656E+01	4.229E+01	5.974E+01	7.717E+01	9.537E+01	1.145E+02	1.343E+02
Rh	0.0	2.178E+00	7.092E+00	1.098E+01	1.345E+01	1.439E+01	1.397E+01	1.266E+01	1.118E+01
Pd	0.0	5.094E+00	1.782E+01	2.525E+01	4.923E+01	6.803E+01	8.802E+01	8.056E+02	1.285E+02
Ag	0.0	5.094E-01	1.664E+00	2.610E+00	3.362E+00	3.874E+00	4.130E+00	4.197E+00	4.197E+00
Cd	0.0	3.117E-01	1.150E+00	2.359E+00	4.074E+00	6.483E+00	9.592E+00	1.337E+01	1.761E+01
In	0.0	1.864E-02	4.124E-02	5.082E-02	5.039E-02	4.583E-02	4.077E-02	3.726E-02	3.602E-02
Sn	0.0	2.328E-01	6.972E-01	1.179E+00	1.692E+00	2.237E+00	2.821E+00	3.446E+00	4.106E+00
Sb	0.0	1.025E-01	2.716E-01	4.129E-01	5.357E-01	6.462E-01	7.508E-01	8.524E-01	9.48E-01
Tc	0.0	1.446E+00	4.151E+00	6.769E+00	9.339E+00	1.182E+01	1.4285E+01	1.661E+01	1.941E+01
I	0.0	8.655E-01	2.413E+00	3.861E+00	5.165E+00	6.313E+00	7.324E+00	8.223E+00	9.025E+00
Xe	0.0	1.101E+01	3.285E+01	5.402E+01	7.303E+01	1.042E+02	1.471E+02	1.710E+02	
Cs	0.0	7.465E+00	2.232E+01	3.647E+01	4.953E+01	6.135E+01	7.184E+01	8.103E+01	8.906E+01
Ba	0.0	2.738E+00	8.093E+00	1.358E+01	2.026E+01	2.738E+01	3.538E+01	4.434E+01	5.420E+01
La	0.0	5.950E+00	1.451E+00	1.259E+00	1.208E+01	1.690E+01	2.169E+01	2.638E+01	3.534E+01
Ce	0.0	2.010E+00	6.526E+00	1.094E+01	2.503E+01	3.407E+01	4.308E+01	6.117E+01	7.031E+01
Pr	0.0	5.836E+00	1.915E+01	3.321E+01	5.152E+01	1.941E+01	2.342E+01	2.728E+01	3.098E+01
No	0.0	6.930E-01	1.487E+00	1.773E+00	1.671E+00	1.444E+00	1.198E+00	1.002E+00	8.824E-01
Ph	0.0	1.357E+00	4.480E+00	7.755E+00	1.082E+01	1.355E+01	1.588E+01	1.784E+01	1.947E+01
Sh	0.0	2.575E-01	9.344E-01	1.9-0E+00	3.205E+00	4.546E+00	5.502E+00	5.844E+00	5.893E+00
Eu	0.0	1.256E-01	4.703E-01	9.186E-01	1.661E+00	2.914E+00	5.034E+00	8.155E+00	1.197E+01
Gd	0.0	1.666E-02	3.259E-02	5.611E-02	8.176E-02	1.094E-01	1.392E-01	1.757E-01	2.281E-01
Tb	0.0	4.558E-03	1.493E-02	2.573E-02	4.313E-02	6.344E-02	8.913E-02	1.211E-01	1.607E-01
Dy	0.0	1.585E-04	6.960E-04	1.633E-04	3.404E-03	6.756E-03	1.263E-02	2.186E-02	3.487E-02
Ho	0.0	9.976E-05	3.472E-04	7.186E-04	1.421E-03	2.951E-03	6.394E-03	1.373E-02	2.751E-02
Er	0.0	8.503E+01	2.541E+02	4.222E+02	5.909E+02	7.587E+02	9.258E+02	1.093E+03	1.260E+03
SUMTOT	0.0	0.0	8.503E+01	2.541E+02	4.222E+02	5.909E+02	7.586E+02	9.250E+02	1.093E+03
TOTAL	0.0	0.0	8.503E+01	2.541E+02	4.222E+02	5.909E+02	7.586E+02	9.250E+02	1.093E+03

CUMULATIVE TABLE TOTALS

AP+FP	1.018E+04	1.026E+04	1.043E+04	1.060E+04	1.077E+04	1.093E+04	1.110E+04	1.127E+04	1.144E+04
ACT+FP	4.200E+03	4.242E+03	4.327E+03	4.412E+03	4.497E+03	4.503E+03	4.666E+03	4.753E+03	4.837E+03
AP+ACT+FP	1.437E+04	1.442E+04	1.450E+04	1.459E+04	1.467E+04	1.484E+04	1.493E+04	1.501E+04	

Table 3.2.3 e ORIGEN-2コードによるアクチノイド生成量計算結果
(MOX/TRU燃料)

* IRRADIATION OF MOX FUEL ASSEMBLY (FIS PU;8.5W/0, TRU;5W/0)
POWER = 4.00000E+01 MW, BURNUP = 1.50000E+05 MWD, FLUX = 2.13E+14 N/cm²*2-SEC

ACTINIDES+DAUGHTERS						
SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS						
CHARGE	250.00	750.00	1250.00	1750.00	2250.00	2750.00
HE	0.0	2.804E+00	1.373E+01	2.499E+01	3.534E+01	4.431E+01
U	3.761E+03	3.749E+03	3.726E+03	3.701E+03	3.670E+03	3.632E+03
NP	1.097E+02	1.031E+02	9.044E+01	7.748E+01	6.373E+01	5.022E+01
PU	4.386E+02	4.186E+02	3.815E+02	3.461E+02	3.141E+02	2.840E+02
AM	9.423E+01	8.263E+01	6.347E+01	4.770E+01	3.536E+01	2.726E+01
CM	2.705E+00	1.020E+01	1.676E+01	2.115E+01	2.495E+01	2.808E+01
SUMTOT	4.406E+03	4.366E+03	4.292E+03	4.218E+03	4.143E+03	4.066E+03
TOTAL	4.406E+03	4.366E+03	4.292E+03	4.218E+03	4.143E+03	4.066E+03

CUMULATIVE, TABLE TOTALS

AP+FP	1.017E+04	1.017E+04	1.017E+04	1.017E+04	1.017E+04	1.017E+04
ACT+FP	4.406E+03	4.366E+03	4.292E+03	4.218E+03	4.143E+03	4.066E+03
AP+ACT+FP	1.458E+04	1.454E+04	1.447E+04	1.439E+04	1.432E+04	1.424E+04

Table 3.2.3 f ORIGEN-2コードによる核分裂生成物計算結果
(MOX/TRU燃料)

* IRRADIATION OF MOX FUEL ASSEMBLY (FIS PU; 8-SW/0% TRU; SW/0%)
POWER= 4.00000E+01 MW, BURNUP= 1.50000E+05 MWD, FLUX= 2.13E+14 N/CM²*2-SEC

FISSION PRODUCTS

3 SUMMARY TABLE: CONCENTRATIONS, GRAM-ATOMS

	CHARGE	250.0D	750.0D	1250.0D	1750.0D	2250.0D	2750.0D	3250.0D	3750.0D
H	0.0	7.180E-03	2.064E-02	3.321E-02	4.472E-02	5.565E-02	6.562E-02	7.492E-02	B.360E-02
GE	0.0	2.125E-03	6.276E-03	1.041E-02	1.451E-02	1.866E-02	2.283E-02	2.707E-02	3.141E-02
AS	0.0	7.303E-04	2.095E-03	3.417E-03	4.693E-03	5.942E-03	7.150E-03	8.340E-03	9.509E-03
SE	0.0	1.099E-01	4.734E-01	7.744E-01	1.059E+00	1.334E+00	1.600E+00	1.868E+00	2.139E+00
SE	0.0	6.663E-02	3.335E-01	4.116E-01	4.178E-01	4.135E-01	4.135E-01	6.814E-01	7.502E-01
BR	0.0	7.578E-01	2.211E+00	3.702E+00	5.121E+00	6.521E+00	7.890E+00	9.257E+00	1.063E+01
KR	0.0	6.350E-01	1.893E+00	3.141E+00	4.360E+00	5.567E+00	6.747E+00	7.926E+00	9.108E+00
RB	0.0	1.750E+00	4.714E+00	7.505E+00	1.031E+01	1.295E+01	1.566E+01	1.792E+01	2.034E+01
SR	0.0	9.020E-01	2.408E+00	5.805E+00	6.215E+00	6.720E+00	8.084E+00	9.442E+00	1.080E+01
Y	0.0	8.413E-00	2.413E+01	4.009E+01	5.545E+01	7.066E+01	8.555E+01	1.005E+02	1.155E+02
ZR	0.0	3.572E-01	3.811E-01	3.756E-01	3.681E-01	3.701E-01	3.665E-01	3.692E-01	3.728E-01
NB	0.0	8.616E+00	2.797E+01	4.722E+01	6.597E+01	8.455E+01	1.027E+02	1.208E+02	1.388E+02
HO	0.0	2.475E+00	3.311E+00	1.192E+01	1.947E+01	1.977E+01	2.285E+01	2.536E+01	2.732E+01
TC	0.0	9.628E+00	2.637E+01	4.286E+01	5.943E+01	7.675E+01	9.436E+01	1.126E+02	1.314E+02
RU	0.0	2.152E+00	7.036E+00	1.102E+01	1.376E+01	1.531E+01	1.579E+01	1.553E+01	1.482E+01
RH	0.0	5.165E+00	1.774E+01	3.250E+01	4.904E+01	6.719E+01	8.670E+01	1.066E+02	1.267E+02
PD	0.0	5.652E+00	4.659E+00	4.652E+00	4.652E+00	4.652E+00	4.652E+00	4.652E+00	4.652E+00
AG	0.0	3.109E-01	1.146E+00	2.322E+00	3.967E+00	6.167E+00	8.874E+00	1.205E+01	1.561E+01
CD	0.0	1.862E-02	4.166E-02	5.276E-02	5.392E-02	5.157E-02	4.809E-02	4.543E-02	4.383E-02
IN	0.0	2.295E-01	6.801E-01	1.165E+00	1.666E+00	2.109E+00	2.732E+00	3.294E+00	3.800E+00
SN	0.0	1.009E-01	2.679E-01	5.002E-01	6.286E-01	6.335E-01	5.368E-01	5.311E-01	9.205E-01
SB	0.0	1.425E-00	4.095E+00	6.720E+00	9.252E+00	1.175E+01	1.420E+01	1.668E+01	1.928E+01
TE	0.0	8.527E-01	2.379E+00	3.8023E+00	5.1333E+00	6.333E+00	7.414E+00	8.422E+00	9.359E+00
I	0.0	1.087E+01	3.250E+01	5.447E+01	7.664E+01	9.942E+01	1.222E+02	1.453E+02	1.686E+02
XE	0.0	7.397E+00	2.166E+01	3.622E+01	4.964E+01	6.195E+01	7.316E+01	8.356E+01	9.263E+01
CS	0.0	2.711E+00	8.023E+00	1.381E+01	2.009E+01	2.711E+01	3.478E+01	4.322E+01	5.243E+01
BA	0.0	2.421E+00	7.200E+00	1.204E+01	1.684E+01	2.168E+01	2.661E+01	3.107E+01	3.565E+01
LA	0.0	5.885E+00	5.567E+00	2.493E+01	3.390E+01	4.298E+01	5.192E+01	6.092E+01	6.998E+01
CE	0.0	1.985E+00	6.457E+00	1.087E+01	1.517E+01	1.940E+01	2.349E+01	2.748E+01	3.138E+01
PR	0.0	5.773E+00	1.897E+01	3.304E+01	4.734E+01	6.195E+01	7.652E+01	9.116E+01	1.059E+02
ND	0.0	6.878E-01	1.487E+00	1.793E+00	1.765E+00	1.624E+00	1.446E+00	1.299E+00	1.185E+00
PM	0.0	1.344E+00	4.448E+00	7.728E+00	1.006E+01	1.376E+01	1.633E+01	1.865E+01	2.074E+01
SM	0.0	2.551E+01	9.228E+01	1.874E+00	3.112E+00	4.438E+00	5.525E+00	6.258E+00	6.597E+00
EU	0.0	1.248E-01	4.672E-01	9.261E-01	1.599E+00	2.669E+00	4.317E+00	6.629E+00	9.545E+00
GD	0.0	1.068E-02	3.279E-02	5.689E-02	8.253E-02	1.102E-01	1.385E-01	1.690E-01	2.050E-01
TB	0.0	4.532E-03	1.480E-02	2.734E-02	4.268E-02	6.192E-02	8.505E-02	1.122E-01	1.438E-01
DY	0.0	1.554E-04	6.795E-04	1.568E-03	3.152E-03	5.916E-03	1.035E-02	1.684E-02	2.569E-02
HO	0.0	9.086E-05	3.432E-04	7.013E-04	1.325E-03	2.529E-03	4.835E-03	9.091E-03	1.639E-02
ER	0.0	8.408E+01	2.517E+02	4.205E+02	5.879E+02	7.569E+02	9.237E+02	1.091E+03	1.250E+03
SUMTOT	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
TOTAL	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

CUMULATIVE TABLE TOTALS

$$\begin{aligned}
 AP+FP & 1.017E+04 & 1.022E+04 & 1.042E+04 & 1.059E+04 & 1.076E+04 & 1.093E+04 & 1.110E+04 & 1.127E+04 & 1.143E+04 \\
 ACT+FP & 4.406E+03 & 4.450E+03 & 4.544E+03 & 4.639E+03 & 4.731E+03 & 4.823E+03 & 4.912E+03 & 4.999E+03 & 5.085E+03 \\
 AP+ACT+FP & 1.45DE+04 & 1.462E+04 & 1.472E+04 & 1.481E+04 & 1.490E+04 & 1.509E+04 & 1.517E+04 & 1.526E+04 & 1.532E+04
 \end{aligned}$$

Table 3.2.4 解析に用いた体系

燃料			
タイプ	17×17		
ペレット密度	95%TD		
Pu富化度	8.5wt%		
ペレット直径	8.15mm		
被覆管			
内径	8.36mm		
外径	9.50mm		
厚さ	0.57mm		
密度	6.56g/cm ³		
Sn	5.8096E-5 mol		
Fe	1.7639E-4 mol		
Zr	2.7923E-4 mol		
Cr	9.0215E-5 mol		
Zircaloy-4の組成 (wt%)			
Sn	Fe	Cr	Zr
14.7	21	10	balance

Table 3.2.5 (a) 高燃焼度燃料の組成 (初期燃料量 1g当たりのモル数)
初期燃料 Pu=8.5wt%, O/M=2.00

1, U, Puのモル数

GWd/t	0	10	30	50
U	3.761E-3	3.749E-3	3.725E-3	3.698E-3
Pu	4.386E-4	4.073E-4	3.444E-4	2.845E-4
Pu/(U+Pu)(%)	10.444	9.800	8.463	7.144

Table 3.2.5 (b) 高燃焼度燃料の組成 (初期燃料量 1g当たりのモル数)
初期燃料 Puf=8.5wt%, O/M=2.00

2, FPのモル数

GWd/t	10	30	50	70
He	2.332E-8	2.336E-7	8.809E-7	2.215E-6
Xe	1.101E-5	3.285E-5	5.487E-5	7.735E-5
Kr	7.687E-7	2.271E-6	3.742E-6	5.179E-6
Cs ⁽¹⁾	8.110E-6	2.423E-5	3.965E-5	5.394E-5
I	8.655E-7	2.413E-6	3.861E-6	5.165E-6
Y ⁽²⁾	1.960E-5	5.857E-5	9.753E-5	1.366E-4
Mo	8.726E-6	2.829E-5	4.757E-5	6.641E-5
Zr	8.529E-6	2.464E-5	4.046E-5	5.595E-5
NM ⁽³⁾	1.960E-5	5.885E-5	9.845E-5	1.385E-4
Te	1.446E-6	4.151E-6	6.789E-6	9.339E-6
Ba (4)	4.514E-6	1.287E-5	2.155E-5	3.069E-5

(1) Cs=Cs+Rb

(2) Y=La+Ce+Pr+Nd+Pm+Sm+Eu+Gd+Y

(3) NM=Tc+Ru+Rh+Pd

(4) Ba=Ba+Sr

Table 3.2.6 平均燃焼度50GWD/tの場合の各領域でのU, Pu, FPの量
(初期燃料量 1gあたりのモル数)

	REGION 1	REGION 2	REGION 3	REGION 4	REGION 5
U	3.7041E-3	3.7041E-3	3.7039E-3	3.7028E-3	3.6862E-3
Pu	2.9795E-4	2.9795E-4	2.9759E-4	2.9504E-4	2.6663E-4
He	7.3560E-7	7.3560E-7	7.3947E-7	7.6698E-7	1.3298E-6
Xe	4.9930E-5	4.9930E-5	5.0059E-5	5.0995E-5	6.2435E-5
Kr	3.4120E-6	3.4120E-6	3.4206E-6	3.4831E-6	4.2256E-6
Cs	3.6120E-5	3.6120E-5	3.6281E-5	3.6916E-5	4.4459E-5
I	3.5360E-6	3.5360E-6	3.5446E-6	3.6062E-6	4.2998E-6
Y	8.8780E-5	8.8780E-5	8.9017E-5	9.0673E-5	1.1068E-4
Mo	4.3240E-5	4.3240E-5	4.3357E-5	4.4177E-5	5.3910E-5
Zr	3.6910E-5	3.6910E-5	3.7003E-5	3.7676E-5	4.5672E-5
NM	8.9560E-5	8.9560E-5	8.9797E-5	9.1480E-5	1.1193E-4
Te	6.1970E-6	6.1970E-6	6.2126E-6	6.3247E-6	7.6471E-6
Ba	1.9600E-5	1.9600E-5	1.9653E-5	2.0022E-5	2.4626E-5

Table 3.2.7 热力学データ

Compound	Gibbs Energy of Formation (kJ/mol)	Temp. Range (K)	Ref. in 3.2.2
Cs(g)	69.093-0.07314T	650-1200	(5)
UO ₂ (s)	-1080.0+0.169T	650-1200	(5)
PuO ₂ (s)	-1047.8+0.182T	650-1200	(5)
ZrO ₂ (s)	-1095.5+0.185T	650-1800	(5)
Y ₂ O ₃ (s)	-190.5+0.30T	650-1200	(6)
MoO ₂ (s)	-582.07+0.175T	650-1200	(5)
FeI ₂ (l)	-106.0+0.041T	860-1100	(7)
CsI(l)	-403.43+0.121T	900-	(5)
Cs ₂ O(l)	-455.35+0.2852T	-	(8)
Cs ₂ UO ₄ (c)	-1929.97+0.41899T	650-1200	(5)
Cs ₂ U ₂ O ₇ (c)	-3203.18+1.18254T	650-1200	(5)
Cs ₂ CrO ₄ (c)	-1498.2+0.452T	600-1800	(5)
Cs ₂ MoO ₄ (c)	-1607.6+0.455T	600-1800	(5)
BaZrO ₃ (c)	-1777.1+0.2861T	600-1500	(5)
Cr ₂ O ₃ (c)	-1221.0+0.2534T	650-1200	(9)
BaO(c)	-551.7+0.099T	600-1800	(5)
NiI ₂ (c)	-135.0+0.126T	600-1100	(7)
Cs ₂ Te(c)	-373.89+0.0669T	-1000	(5)
Cs ₄ CrO ₄ (c)	-1604.4+0.4453T	650-1200	(5)
Cs ₃ CrO ₄ (c)	-1545.1+0.4019T	-	(5)
Cs ₂ ZrO ₃ (c)	-1578.2+0.3194T	-	(5)
ZrI(c)	-315.511+0.13301	-	(5)
ZrO ₂ (c)	-1098.0+0.194T	-	(5)

Table 3.2.8 燃料の各領域における温度と燃焼度
 Cases for calculation of interaction between FP and fuel
 (Average burnup=50GWd/t, LHR=220W/cm)

Case	Range	Region	Temp(K)	Burnup(GWd/t)
1	$r = 0 \sim 0.2$	1	1313	45.51
2	$r = 0.2 \sim 0.4$	2	1273	45.51
3	$r = 0.4 \sim 0.6$	3	1173	46.63
4	$r = 0.6 \sim 0.8$	4	1023	46.48
5	$r = 0.8 \sim 1.0$	5	873	56.73
6		GAP	873	56.73

Cases for calculation of interaction between FP and fuel
 (Average burnup=50GWd/t, LHR=328W/cm)

Case	Range	Region	Temp(K)	Burnup(GWd/t)
7	$r = 0 \sim 0.2$	1	1733	45.51
8	$r = 0.2 \sim 0.4$	2	1677	45.51
9	$r = 0.4 \sim 0.6$	3	1525	46.63
10	$r = 0.6 \sim 0.8$	4	1293	46.48
11	$r = 0.8 \sim 1.0$	5	1016	56.73
12		GAP	1016	56.73

Table 3.2.9 PWRにおける燃料／被覆管ギャップの化学形の計算に用いた
化学種とその濃度

The quantities of components used in the calculation of the chemical constitution within the fuel-clad gap of a PWR fuel pin. All figures are given per gram of original oxide fuel. Free volume in fuel pin is $1.393 \times 10^{-5} \text{ dm}^3$

Component	Amount (mol) ^{a)}
He	1.31×10^{-5}
Cs	2.07×10^{-7}
I	1.21×10^{-8}
Te	3.18×10^{-8}
Mo	2.52×10^{-7}
U	3.68×10^{-3}
Cladding Zr	2.52×10^{-9}

^{a)} Inventory at 2.9% burn-up and 1% release of fission product elements in the gap.

Table 3.2.10 PWRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップの化学形の計算に
用いたMoとZrの濃度

Cases for calculation of the fuel-clad gap constitution of a PWR fuel pin. Temperature: 650 K; burn-up 2.9%; amount of fission product elements is 1% of inventory in pin

Case	Amounts per gram of fuel (mol)	
	Mo	Zr
1	0	0
2	2.52×10^{-7}	0
3	0	2.51×10^{-9}
4	2.52×10^{-7}	2.51×10^{-9}

Table 3.2.11 PWRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでのガス分圧に及ぼす照射効果

The effect of radiation on the pressures of the gaseous species in the fuel-clad gap of a PWR fuel pin at 650 K. Case 1 (table 2).
Condensed phases CsI, Cs₂Te

Partial pressures (bar)						
CsI	Cs	I ₂	Cs ₂ Te	Te	Te ₂	
$\bar{G}_{O_2} = -698 \text{ kJ/mol}$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
1.8 × 10 ⁻⁸	1.6 × 10 ⁻²	1.2 × 10 ⁻²⁹	9.6 × 10 ⁻⁵²	1.3 × 10 ⁻⁸	5.8 × 10 ⁻¹⁷	1.8 × 10 ⁻⁵⁷
<i>With radiation</i>						
1.8 × 10 ⁻⁸	1.6 × 10 ⁻²	1.8 × 10 ⁻¹⁵	2.6 × 10 ⁻³¹	1.3 × 10 ⁻⁸	2.2 × 10 ⁻¹⁷	3.9 × 10 ^{-55 a)}
1.8 × 10 ⁻⁸	1.6 × 10 ⁻²	2.5 × 10 ⁻¹⁷	1.0 × 10 ⁻³⁴	1.3 × 10 ⁻⁸	2.2 × 10 ⁻¹⁷	3.9 × 10 ^{-55 b)}
$\bar{G}_{O_2} = -400 \text{ kJ/mol}$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
1.8 × 10 ⁻⁸	4.6 × 10 ⁻¹⁴	4.3 × 10 ⁻¹⁸	1.2 × 10 ⁻²⁸	1.3 × 10 ⁻⁸	6.9 × 10 ⁻¹⁴	2.6 × 10 ⁻¹¹
<i>With radiation</i>						
1.8 × 10 ⁻⁸	4.6 × 10 ⁻¹⁴	8.5 × 10 ⁻⁸	2.6 × 10 ⁻⁶	1.3 × 10 ⁻⁸	1 × 10 ⁻⁵	3.5 × 10 ^{-12 c)}

a) With 2nd order rate constants for Reaction 8, table 11.

b) With 3rd order rate constants for Reaction 8, table 11.

c) With 2nd and 3rd order rate constants for Reaction 8, table 11.

Table 3.2.12 FBRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形の計算に用いた化学種とその濃度

The quantities of components used in the calculation of the chemical constitution within the fuel-clad gap of an LMFBR fuel pin. All figures are given per gram of original oxide fuel. Free volume in fuel pin is $1.17989 \times 10^{-4} \text{ dm}^3$

Component	Amount (mol)		
	Burn-up	Burn-up	Burn-up
	2%	10%	20%
Xe, Kr	1.87×10^{-5}	9.41×10^{-5}	1.87×10^{-4}
Cs	1.60×10^{-5}	8.17×10^{-5}	1.61×10^{-4}
I	1.41×10^{-6}	4.90×10^{-6}	8.92×10^{-6}
Te	2.54×10^{-6}	1.14×10^{-5}	2.23×10^{-5}
Mo	1.37×10^{-5}	7.6×10^{-5}	1.59×10^{-4}
U	2.57×10^{-3}	2.42×10^{-3}	2.33×10^{-3}
Pu	1.07×10^{-3}	9.19×10^{-4}	7.58×10^{-4}

Table 3.2.13 FBRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでの化学形の計算に用いたMoとZrの濃度

Cases for calculation of the fuel-clad gap constitution of a LMFBR fuel pin

Case	Temper- ature (K)	Burn-up (%)	Amounts per gram of fuel (mol)	
			Mo	Cr
1	900	2	1.37×10^{-6}	2.15×10^{-5}
2	900	10	7.64×10^{-6}	2.15×10^{-5}
3	900	10	7.64×10^{-5}	2.15×10^{-5} ^{a)}
4	900	10	7.64×10^{-6}	0
5	900	2	1.37×10^{-6}	2.15×10^{-5} ^{a)}
6	900	10	7.64×10^{-6}	2.15×10^{-5} ^{a)}
7	900	10	7.64×10^{-6}	1.16×10^{-4}
8	1200	2	1.37×10^{-6}	2.15×10^{-5}
9	1200	10	7.64×10^{-6}	2.15×10^{-5}
10	1200	10	7.64×10^{-5}	2.15×10^{-5}
11	900	20	1.59×10^{-4}	2.15×10^{-5}
12	900	20	1.59×10^{-5}	2.15×10^{-5}
13	900	20	1.59×10^{-4}	2.15×10^{-5} ^{a)}

^{a)} Fuel was not allowed to take part in any reaction.

Table 3.2.14 FBRにおける酸化物燃料／被覆管ギャップでのガス種の分圧に及ぼす照射効果

The effect of radiation on the pressures of the gaseous species in the fuel-clad gap of a fast breeder reactor fuel pin at 900 K.
Condensed phases CsI, Cs₂Te

Partial pressures (bar)						
CsI	Cs	I ₂	Cs ₂ Te	Te	Tc	Tc ₂
<u>Case 2 (table 6)</u>						
$\bar{G}_{O_2} = -595 \text{ kJ/mol O}_2$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
2.8×10^{-4}	3.0×10^{-2}	6.9×10^{-18}	1.4×10^{-31}	1.2×10^{-3}	3.8×10^{-11}	2.0×10^{-34}
<i>With radiation: dose rate 21.6 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	3.0×10^{-2}	1.5×10^{-10}	3.0×10^{-22}	1.2×10^{-5}	4.1×10^{-13}	2.2×10^{-27}
<i>With radiation: dose rate 50 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	3.0×10^{-2}	3.7×10^{-12}	1.8×10^{-21}	1.2×10^{-5}	1.0×10^{-12}	1.3×10^{-26}
$\bar{G}_{O_2} = -312 \text{ kJ/mol O}_2$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
2.8×10^{-4}	7.4×10^{-10}	2.7×10^{-10}	2.1×10^{-16}	1.2×10^{-5}	5.6×10^{-7}	5.2×10^{-4}
<i>With radiation: dose rate 21.6 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	7.4×10^{-10}	6.1×10^{-5}	6.6×10^{-4}	1.2×10^{-5}	8.1×10^{-5}	1.3×10^{-1}
<i>With radiation: dose rate 50 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	7.4×10^{-10}	8.1×10^{-5}	8.9×10^{-4}	1.2×10^{-5}	1.4×10^{-4}	2.7×10^{-3}
<u>Case 3 (table 6)</u>						
$\bar{G}_{O_2} = -602 \text{ kJ/mol O}_2$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
2.8×10^{-4}	6.4×10^{-1}	3.2×10^{-19}	3.0×10^{-14}	1.2×10^{-5}	8.1×10^{-23}	1.0×10^{-19}
<i>With radiation: dose rate 21.6 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	6.4×10^{-1}	4.1×10^{-13}	9.6×10^{-29}	1.2×10^{-5}	8.9×10^{-16}	4.5×10^{-34}
<i>With radiation: dose rate 50 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	6.4×10^{-1}	9.6×10^{-13}	5.8×10^{-28}	1.2×10^{-5}	2.1×10^{-13}	2.7×10^{-33}
$\bar{G}_{O_2} = -424 \text{ kJ/mol O}_2$						
<i>Thermal equilibrium</i>						
2.8×10^{-4}	1.6×10^{-10}	1.3×10^{-9}	5.2×10^{-15}	2.2×10^{-6}	2.6×10^{-6}	1.1×10^{-2}
<i>With radiation: dose rate 21.6 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	1.6×10^{-10}	6.6×10^{-5}	1.8×10^{-3}	2.2×10^{-6}	8.1×10^{-5}	2.2×10^{-3}
<i>With radiation dose rate 50 W/g</i>						
2.8×10^{-4}	1.6×10^{-10}	8.9×10^{-5}	2.4×10^{-3}	2.2×10^{-6}	1.4×10^{-4}	6.1×10^{-3}

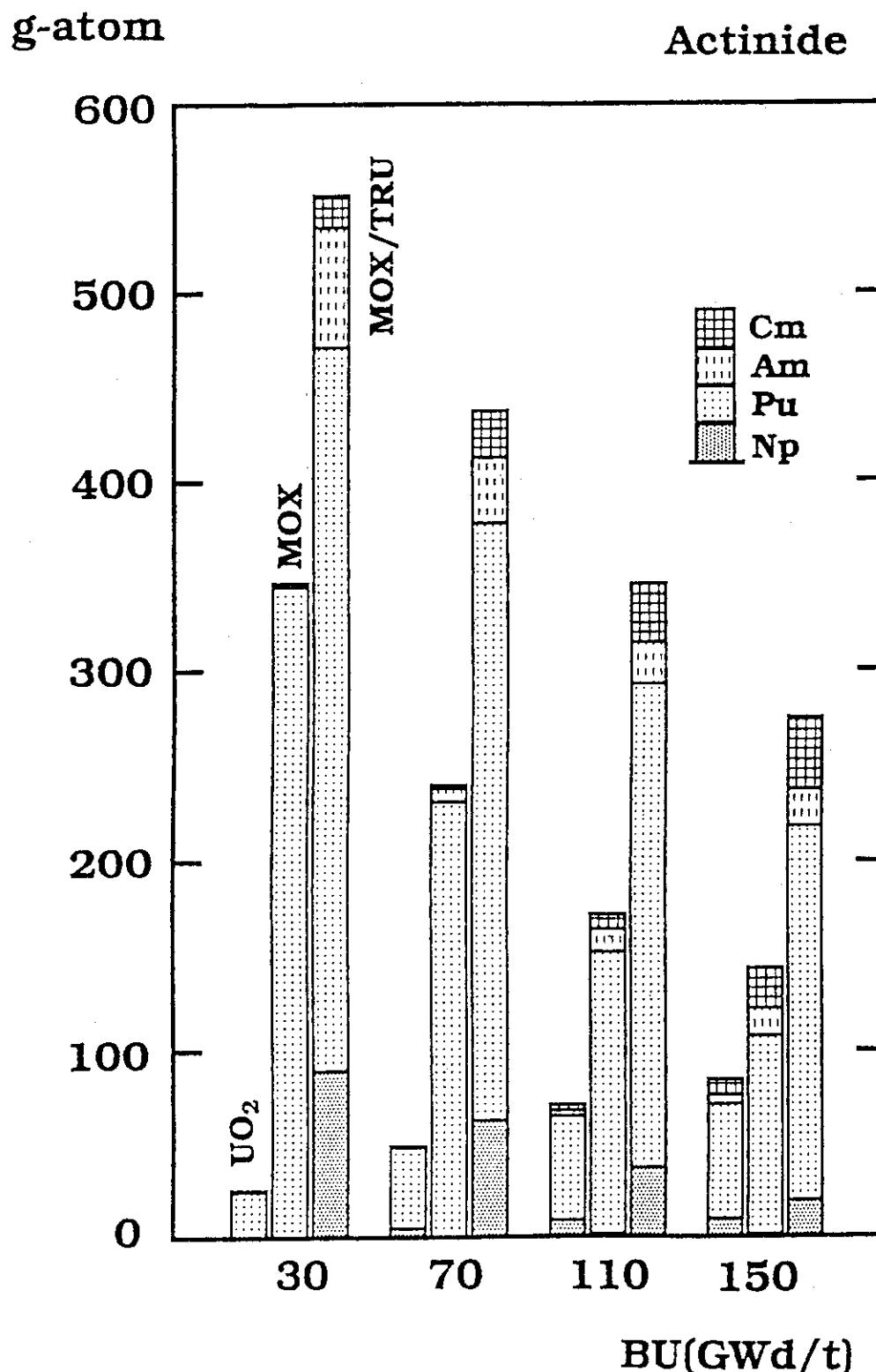
Table 3.2.15 酸化物燃料へのFPの最大固溶度

Fission Product	Maximum solubility wt% f.p.	at "f.p.)O ₂ "	Solvent	Temperature (°C)	Ref.
Cs	0.5 ± 0.3 ^{a,c}	1.2	UO ₂ , _∞	1000 ^a	[57]
Cs	0.16 ± 0.04 ^b	0.3	UO ₂ , _∞	1900 ^a	[57]
Sr	= 4	= 12	UO ₂ , _∞	1500	[59]
Ba	1.6 ^c	3.1	U _{0.8} Pu _{0.2} O ₂	1450	[60]
Ba	0.6	1.2	U _{0.8} Pu _{0.2} O ₁	> 2800 ^a	[60]
Ba	0.30	0.6	UO ₂ , _∞	2000 ^a	[57]
Nb	= 1	= 3	U _{0.7} Pu _{0.3} O _{2-x}	> 2000	[56]
Mo	< 0.002	< 0.006	UO ₂ , _∞	1900 ^a	[57]
Mo	0.02	0.06	U _{0.85} Pu _{0.15} O _{2±x}	> 1700 ^a	[58]
Tc	0.27	0.6	UO ₂ , _∞	1000 ^a	[57]

^a Annealing under high pressures in welded capsules.^b Room temperature lattice parameter $\alpha = 547.5$ pm.^c Possibly no equilibrium was attained.

Table 3.2.16 燃料-被覆管ボンディング層のまとめ

Reference	Irradiation Conditions	Thickness (μm) of ZrO_2 Layer	Composition of Bonding Layer
Garzarolli et al. (1974)	19,500 MWD/MTU 270 W/cm	5	Cs/Zr/O/U
Bazin et al. (1974)	10,000-35,000 MWD/MTU 450 W/cm	10	U/Zr/Cs/O; the weight ratio was 37/45/4/20 at 32,000 MWD/MTU, 460 W/cm. The thickness was 5 μm .
Fuhrman et al. (1976)	13,000 MWD/MTU 300 W/cm	5-6	Cs/U/Zr; the weight ratio 1-17/45-60/22. Also traces of I and Te were present. The thickness of the bonding layer was 1-2 μm .
Romeo and Wolff (1977)	12,000-16,000 MWD/MTU 600 W/cm	1-4	Cs/Zr; the weight ratio was ~0/20. The thickness was 1 μm .
Jones et al. (1978)	44,500 MWD/MTU 580 W/cm	--	Zr/U/Cs; the weight ratio was 77-53/14-37/9-10. The thickness was 20 μm .
Kleykamp (1979)	41,000 MWD/MTU 430 W/cm	5	Cs/Zr/O/Sn; the weight ratio was 13/70/14/1; ZrO_2 . The thickness was 5-10 μm .
Oi (1979)	14,500 MWD/MTU 480 W/cm	--	U/Zr/O; ZrO_2 . The thickness was ~15 μm .
Kohli (1984)	48,000-56,000 MWD/MTU	5	Cs/Zr/O; the weight ratio was 65/24/11 (Cs_2ZrO_3); ZrO_2 . The thickness was 5-10 μm .
Ohuchi (1986)	3,800-25,100 MWD/MTU 210-390 W/cm	--	Cs/U/Zr/O; Ba/Ag/Te/Cd; $\text{Cs}_{2-x}\text{Te}_{2+y}$; CsI; ZrO_2 ; UO_2 . The thickness was 2-10 μm .

Fig. 3.2.1 UO₂, MOXおよびMOX/TRU燃料の燃焼に伴うアクチノイド生成量の変化

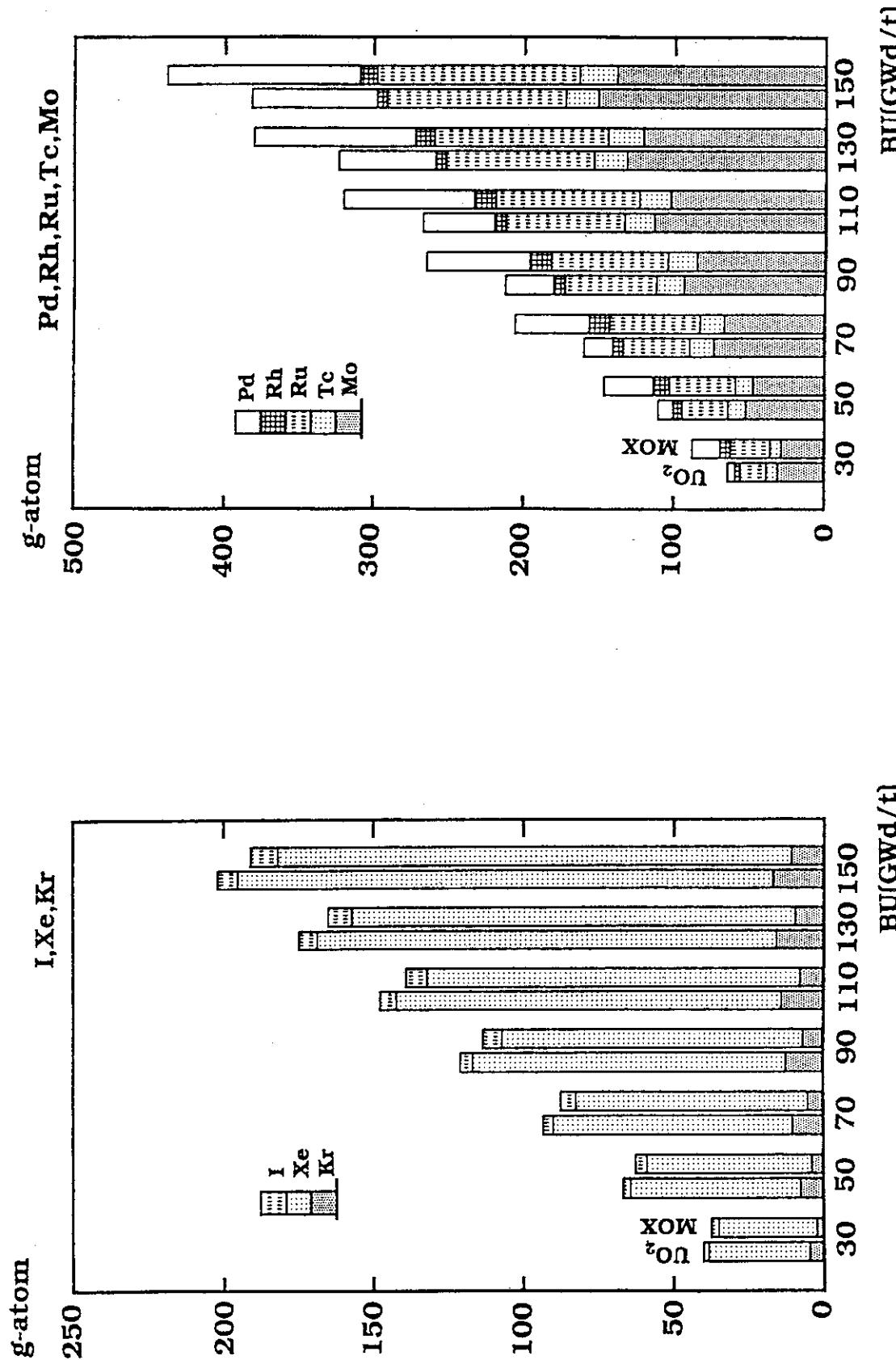


Fig. 3.2.2 UO_2 およびMOX燃料の燃焼に伴うFP生成量の変化
(希ガスおよびヨウ素)

Fig. 3.2.3 UO_2 およびMOX燃料の燃焼に伴う
FP生成量の変化 (Mo , Tc および貴金属)

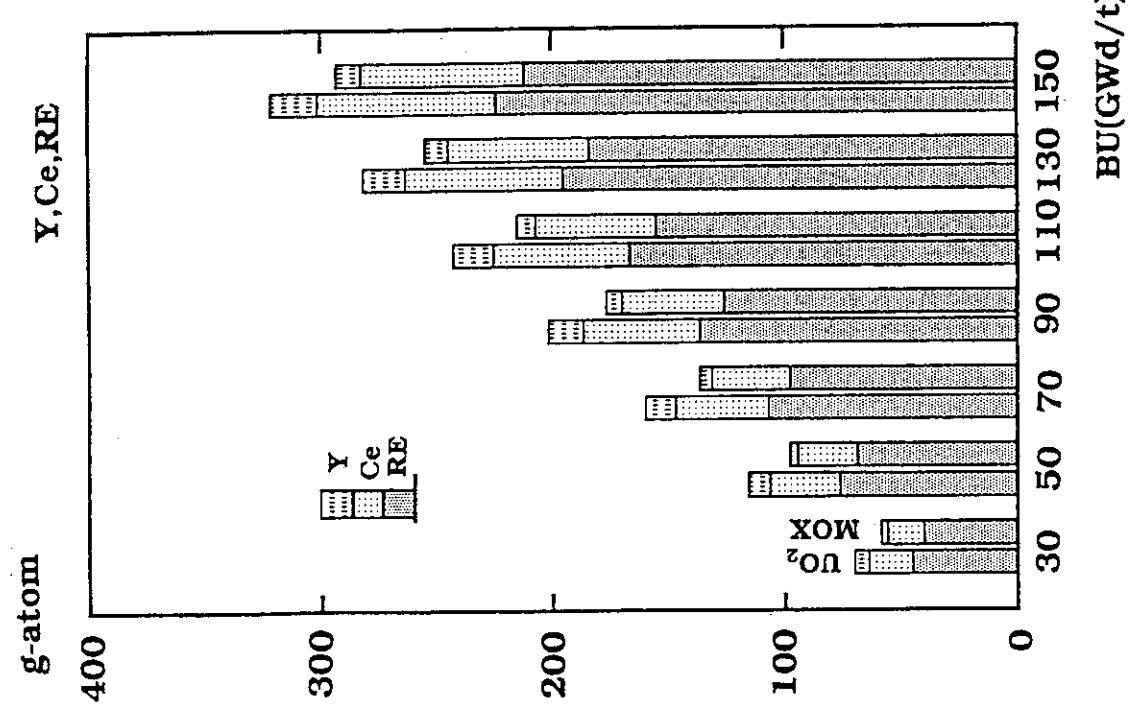


Fig. 3.2.4 UO₂およびMOX燃料の燃焼に伴うFP生成量の変化
(ラントナイトドおよびY)

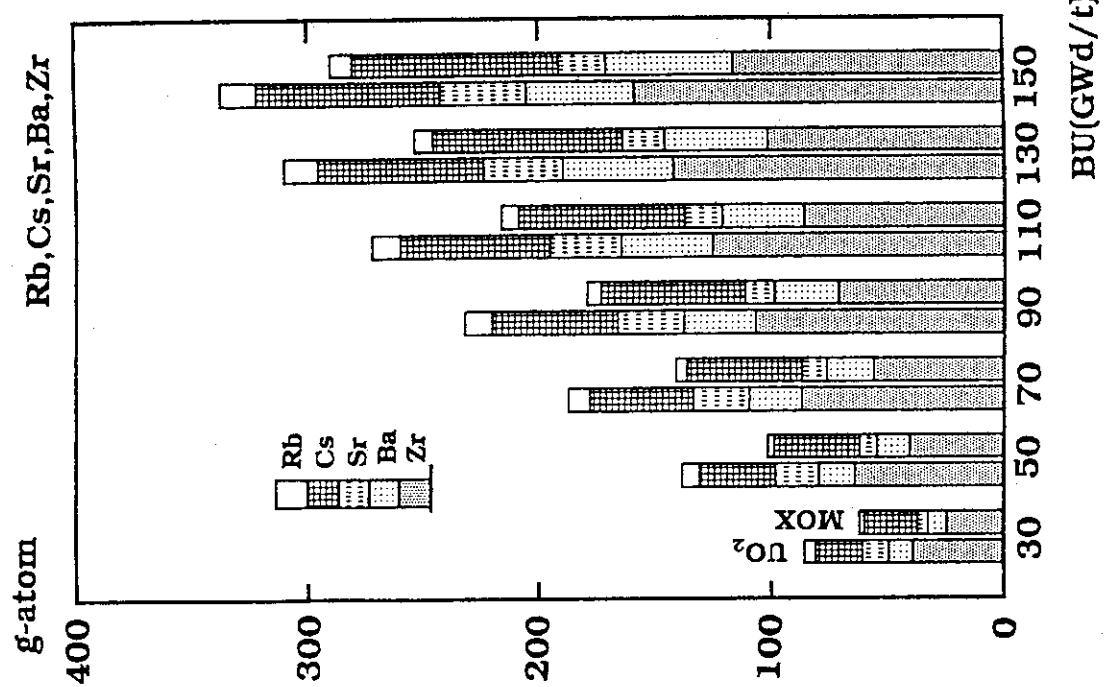


Fig. 3.2.5 UO₂およびMOX燃料の燃焼に伴うFP生成量の変化
(Rb, Cs, Sr, BaおよびZr)

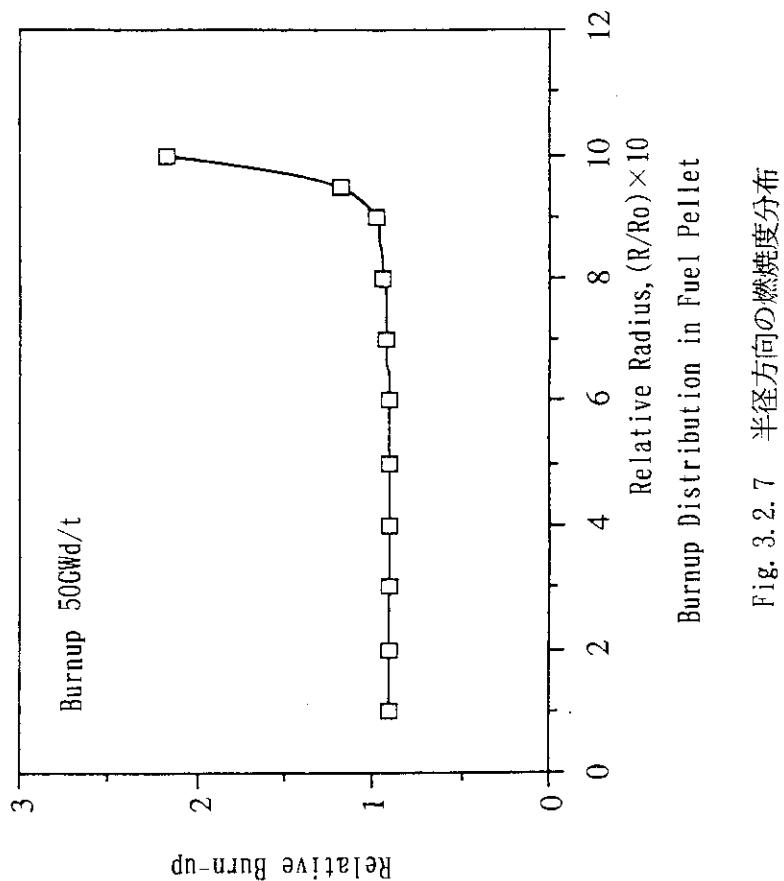


Fig. 3.2.7 半径方向の燃焼度分布

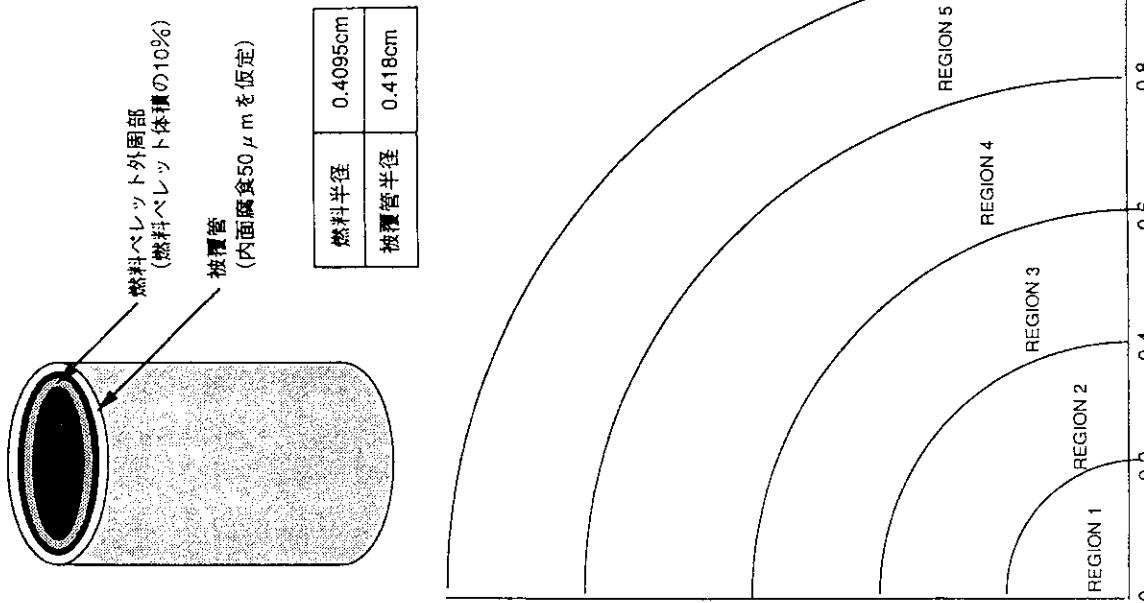


Fig. 3.2.6 解析に用いた体系

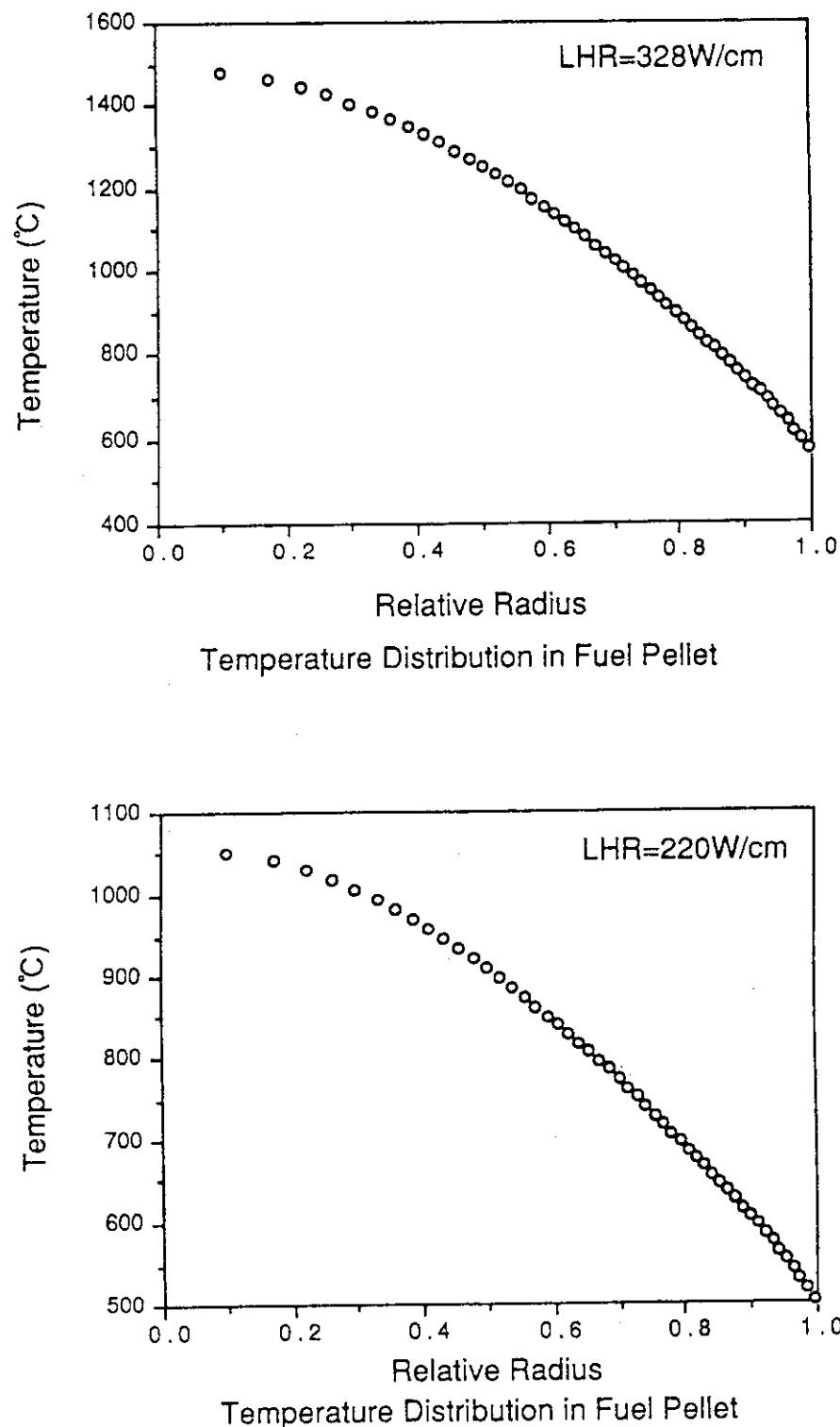


Fig. 3.2.8 線出力328, 220W/cmでの温度分布

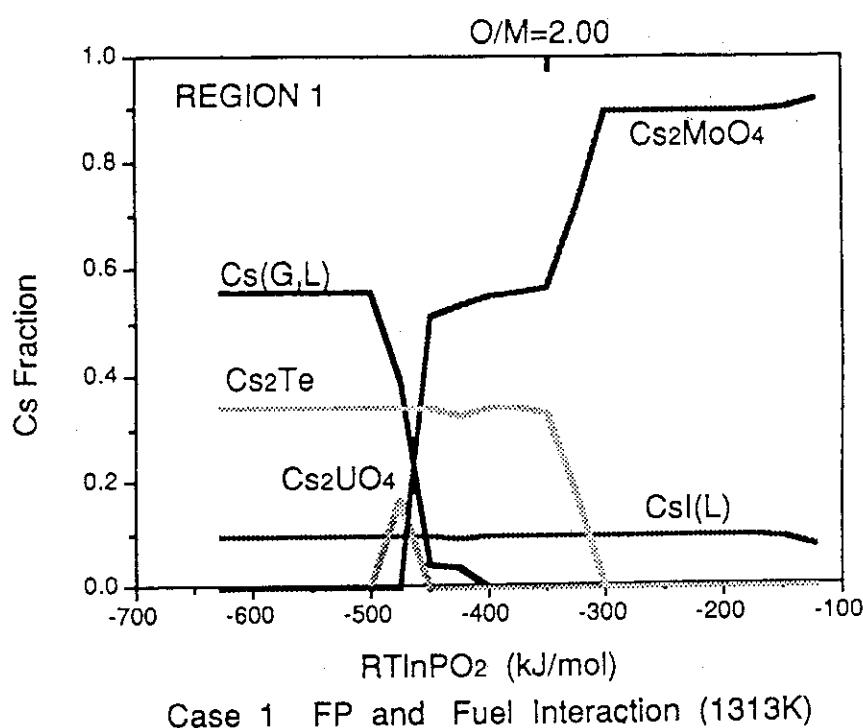


Fig. 3.2.9 燃料領域 1 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力220W/cm)

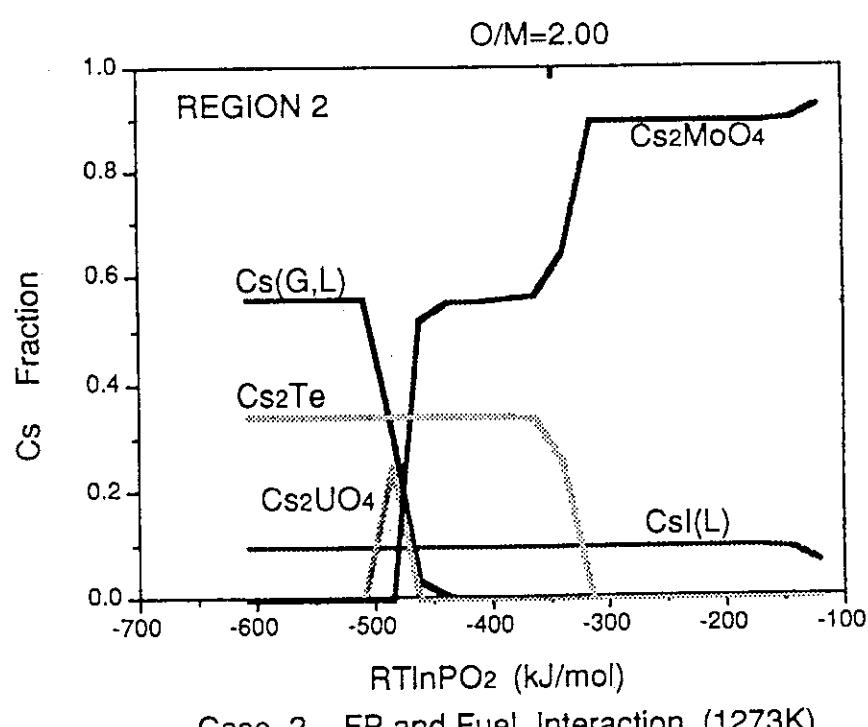


Fig. 3.2.10 燃料領域 2 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力220W/cm)

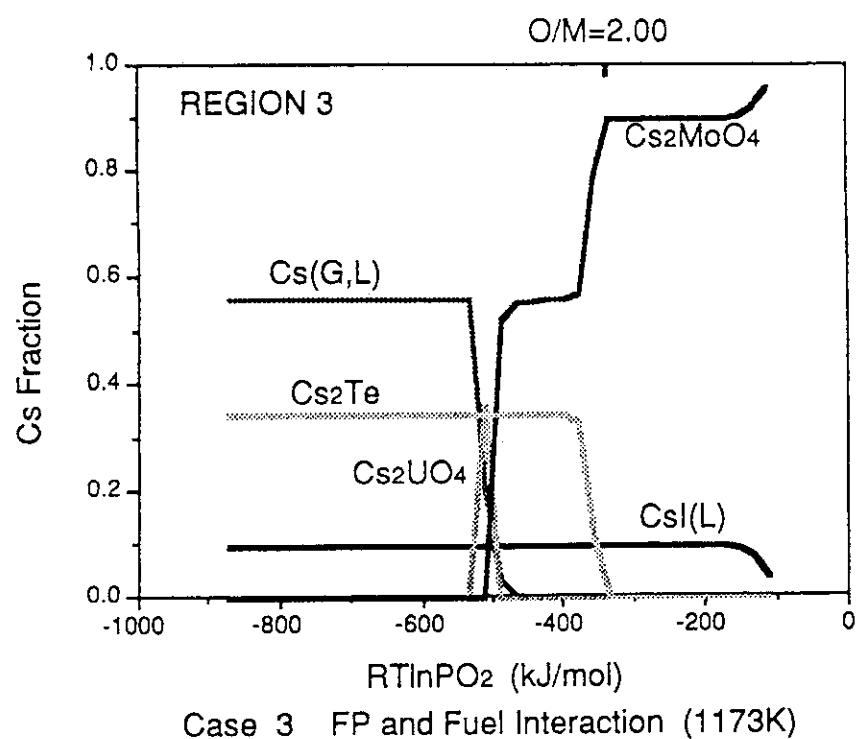


Fig. 3.2.11 燃料領域 3 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力220W/cm)

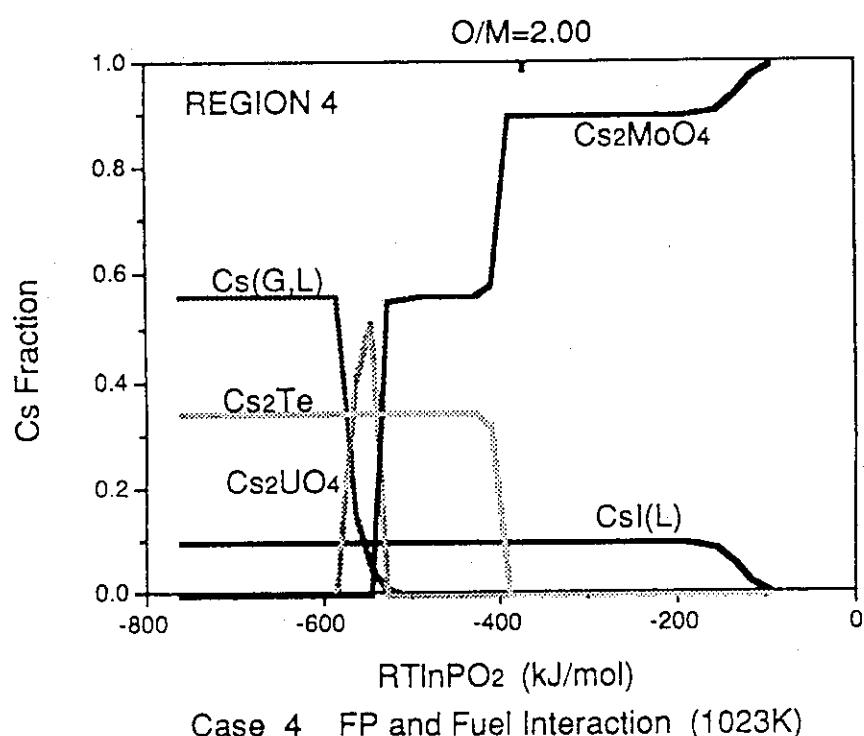


Fig. 3.2.12 燃料領域 4 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力220W/cm)

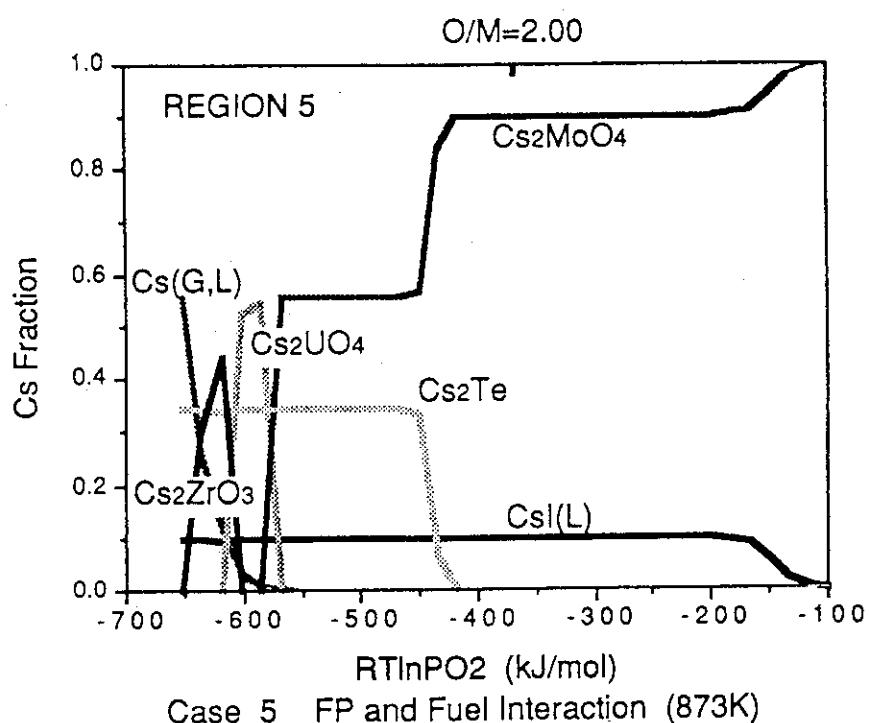


Fig. 3.2.13 燃料領域 5 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力 220W/cm)

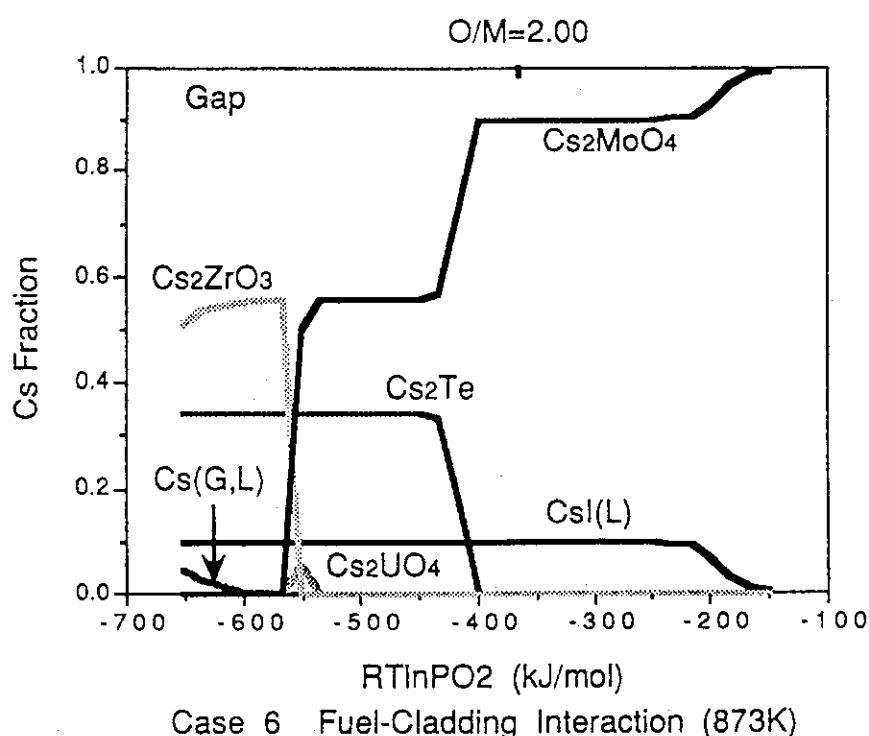


Fig. 3.2.14 燃料-被覆管ギャップでの燃料、被覆管と
Cs, Te, I の反応 (線出力 220W/cm)

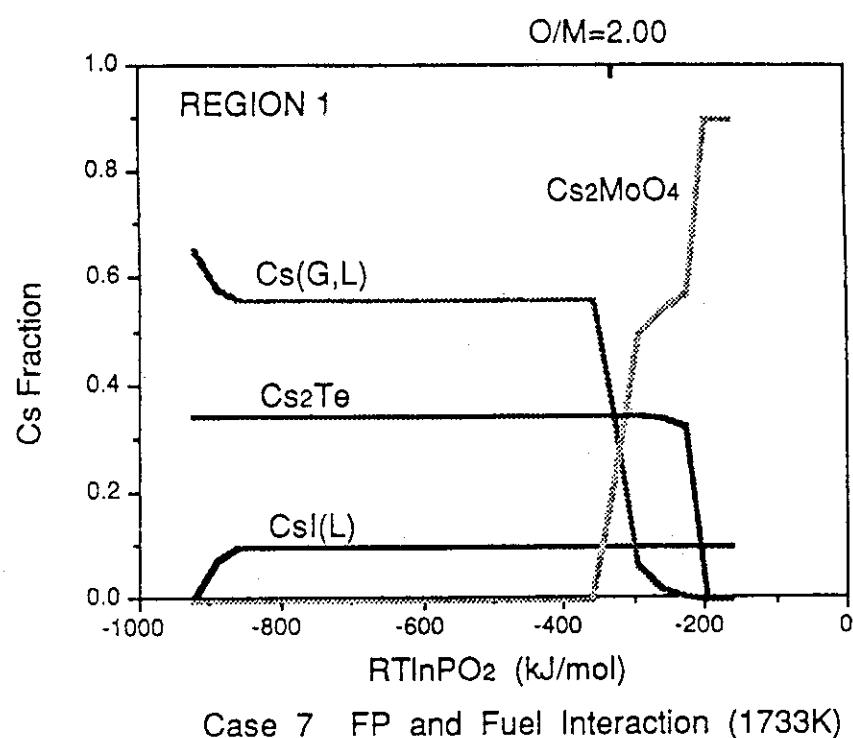


Fig. 3.2.15 燃料領域1での燃料とCs, Te, Iの反応
(線出力328W/cm)

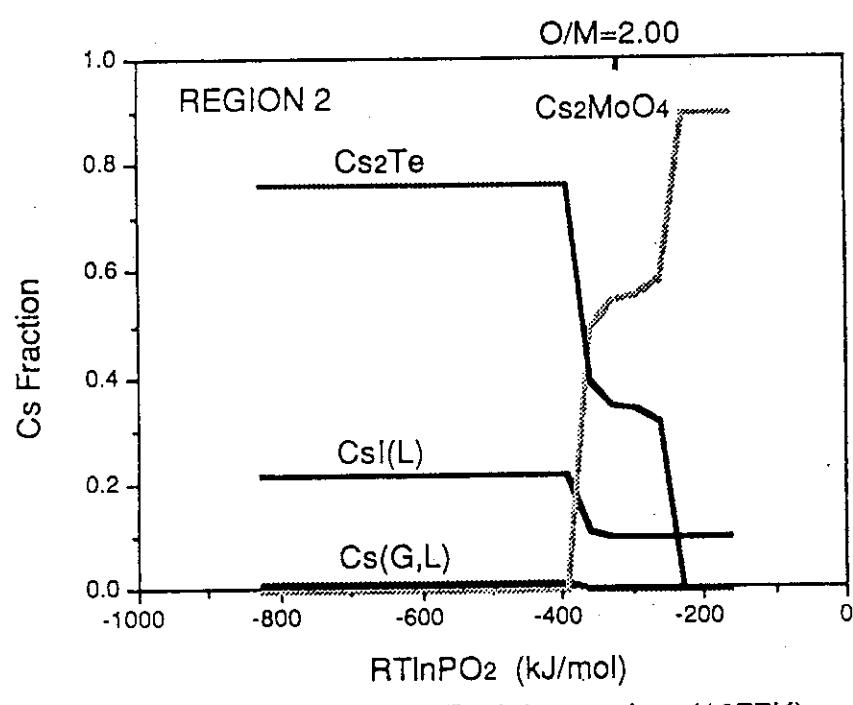
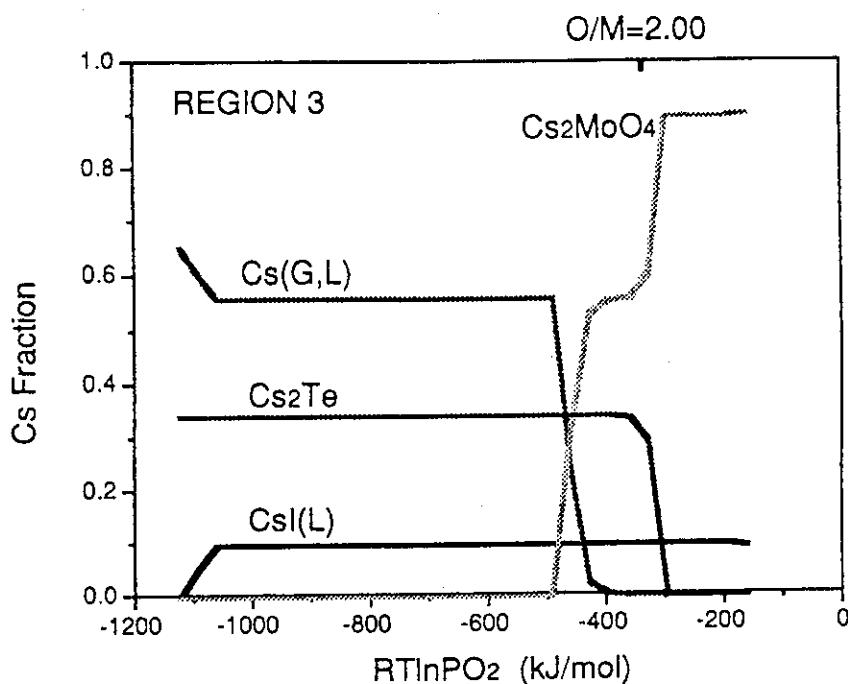
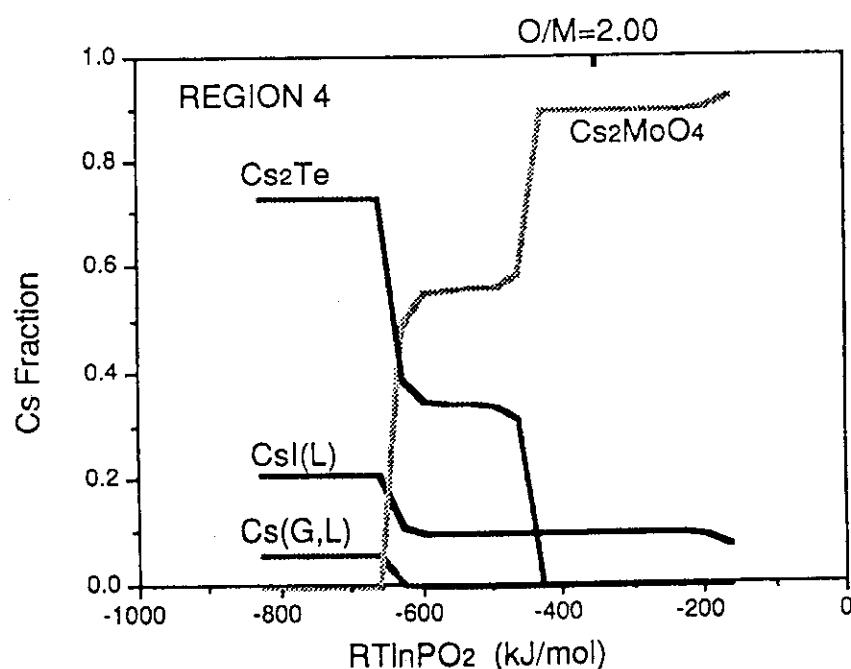


Fig. 3.2.16 燃料領域2での燃料とCs, Te, Iの反応
(線出力328W/cm)



Case 9 FP and Fuel Interaction (1525K)

Fig. 3.2.17 燃料領域 3 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力328W/cm)



Case 10 FP and Fuel Interaction (1293K)

Fig. 3.2.18 燃料領域 4 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力328W/cm)

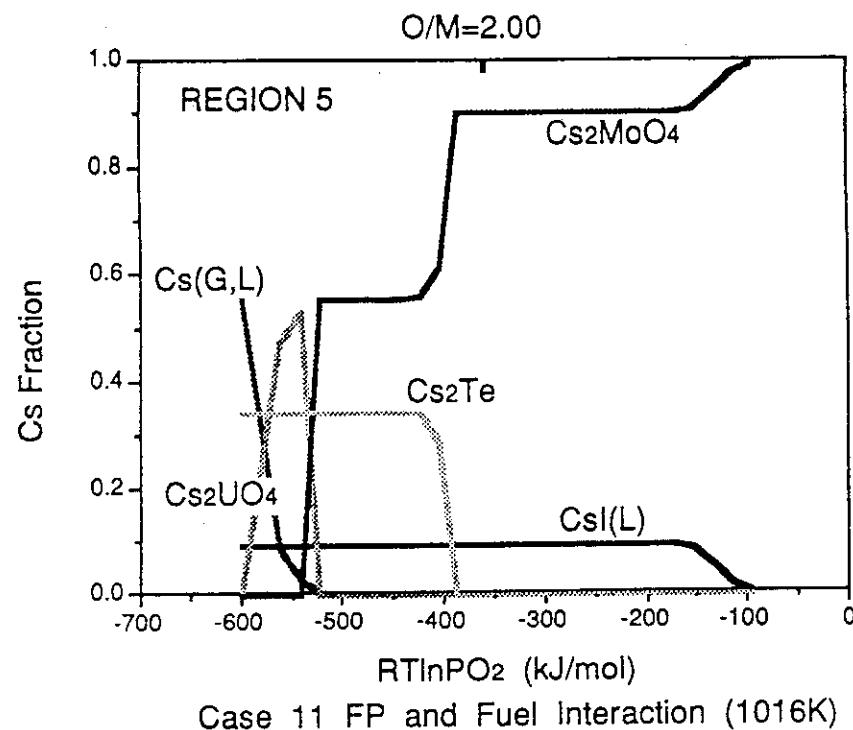


Fig. 3.2.19 燃料領域 5 での燃料と Cs, Te, I の反応
(線出力328W/cm)

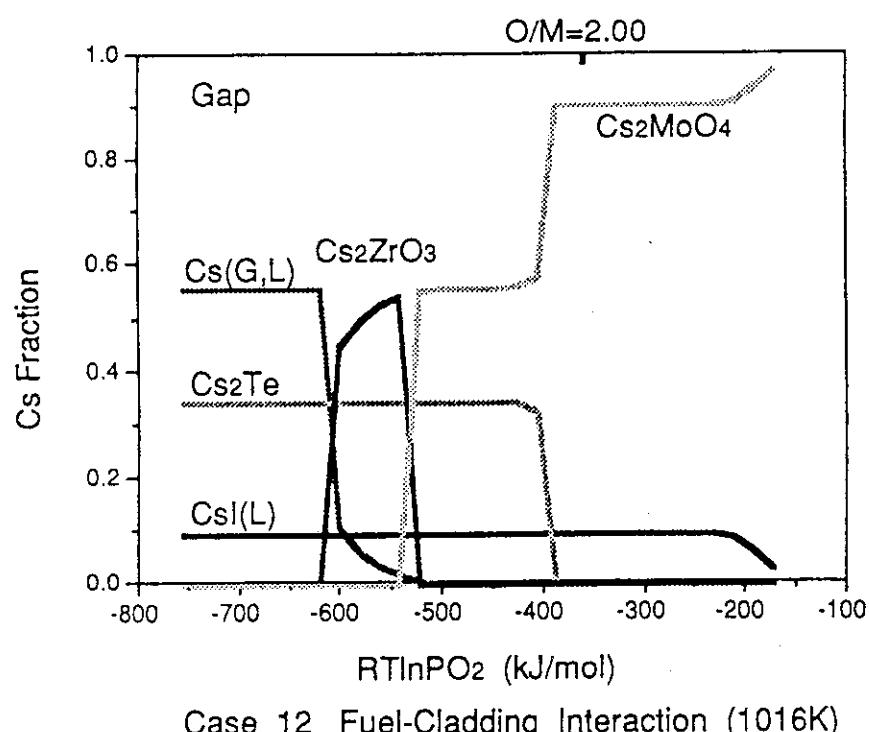


Fig. 3.2.20 燃料-被覆管ギャップでの燃料、被覆管と
Cs, Te, I の反応 (線出力328W/cm)

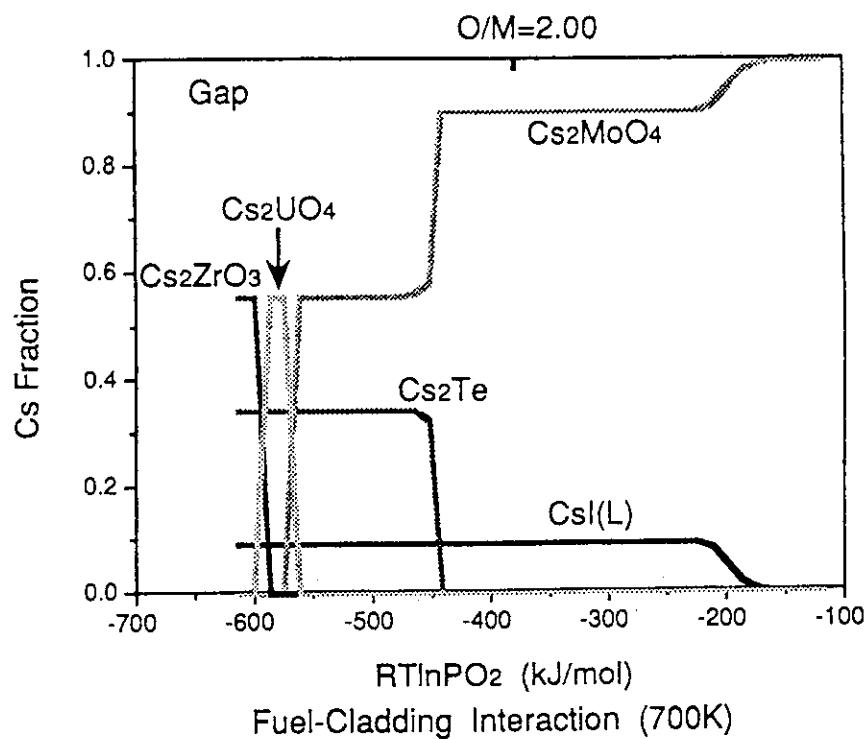


Fig. 3.2.21 被覆管温度が低い (700K) ときの燃料、被覆管、
Cs, Te, I, Moとの反応

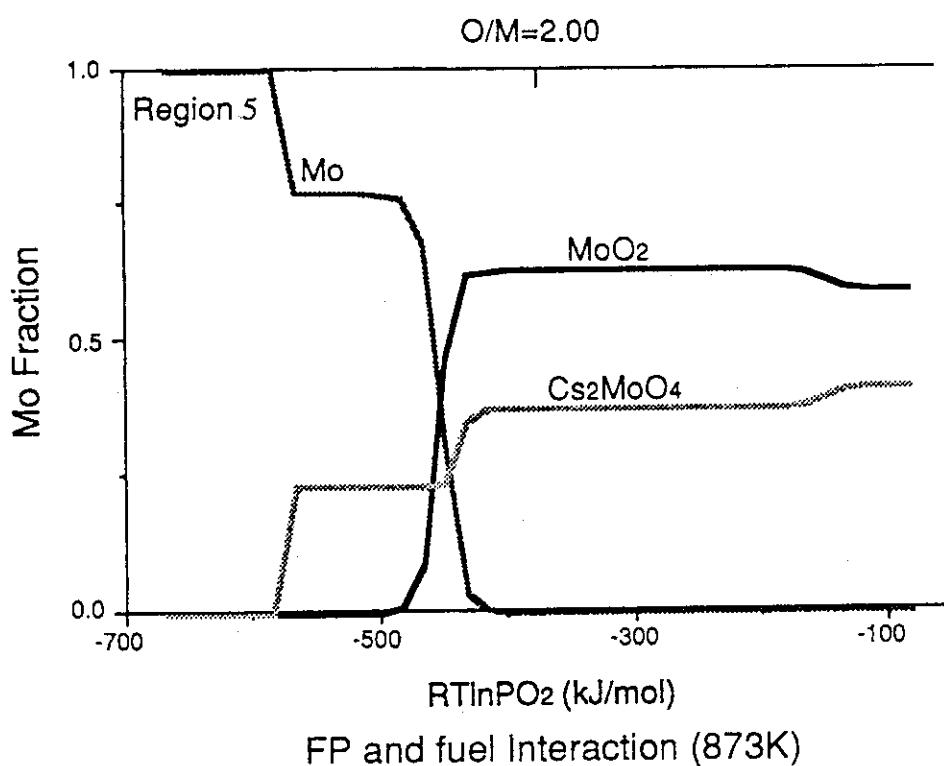
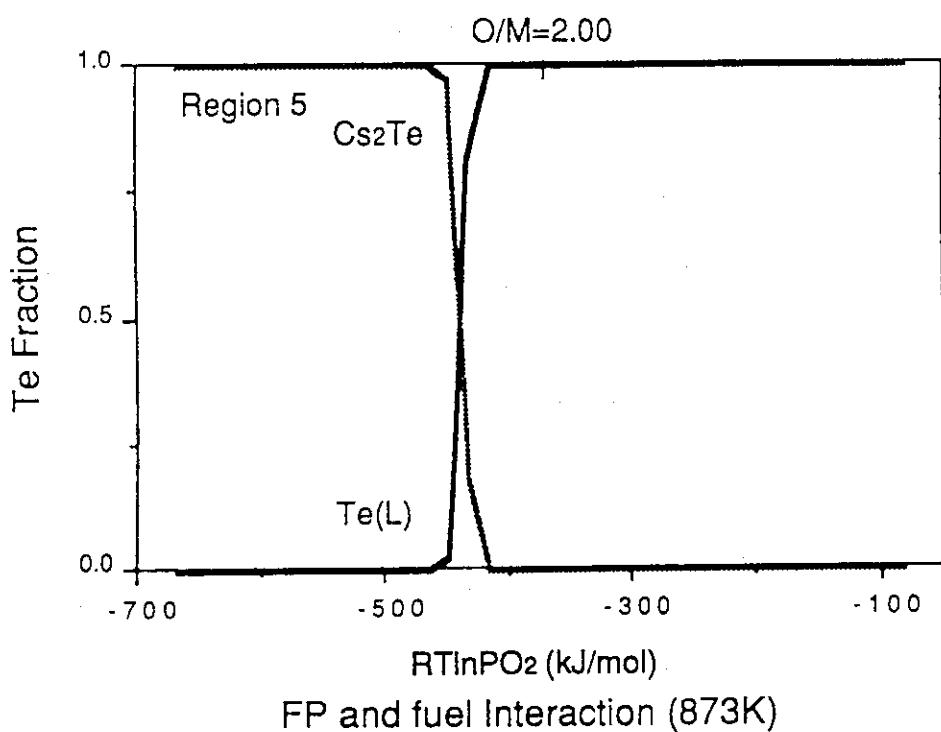
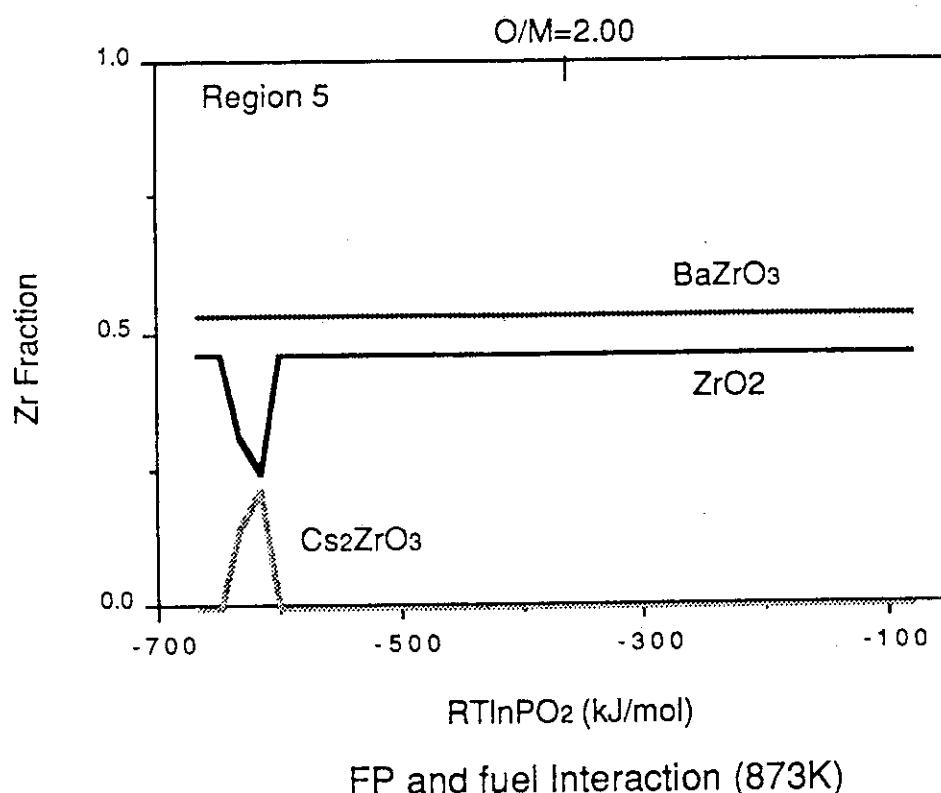
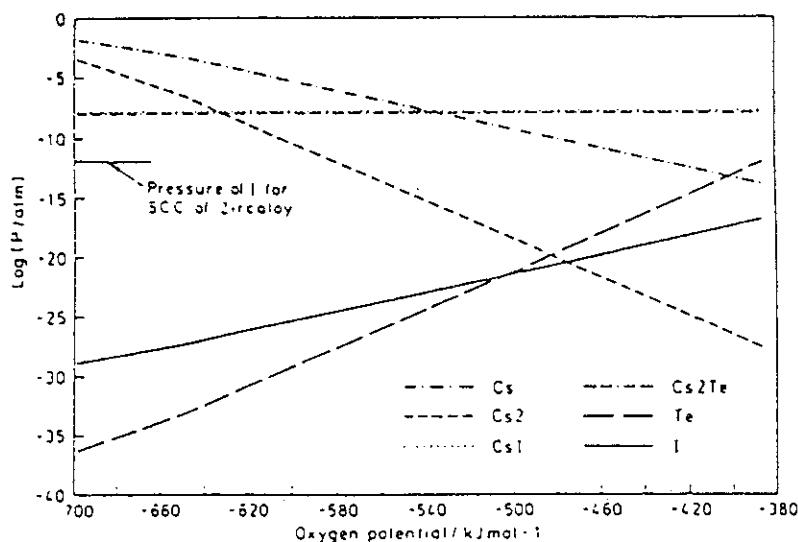


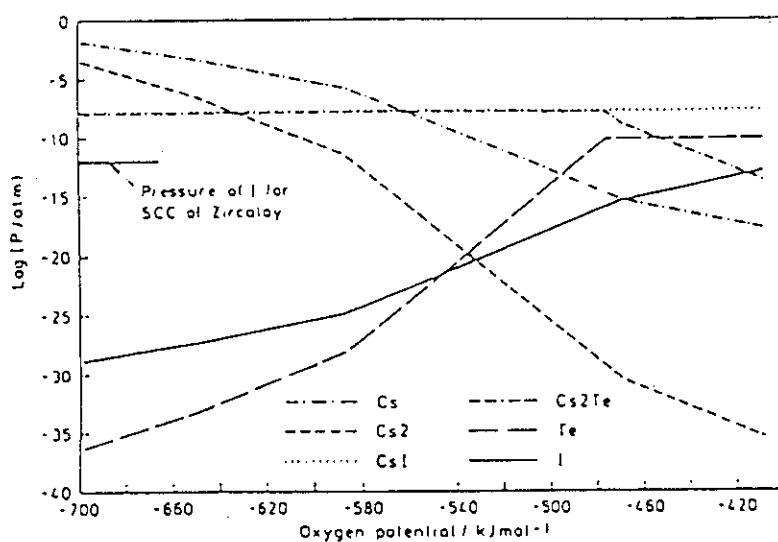
Fig. 3.2.22 Mo化合物の存在比の ΔG (O_2) 依存性

Fig. 3.2.23 Te化合物の存在比の ΔG (O_2) 依存性Fig. 3.2.24 Zr化合物の存在比の ΔG (O_2) 依存性



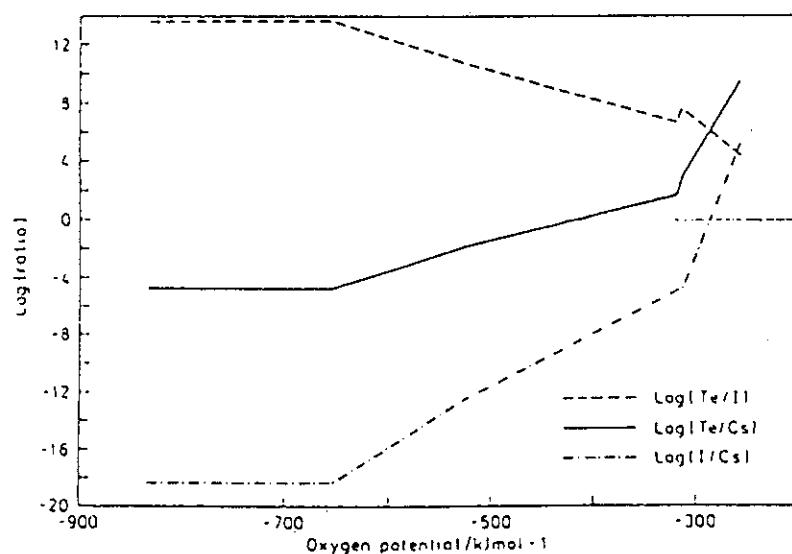
Variation of the pressures of the predominant gas phase species with oxygen potential for Case 1 (table 2) of the PWR calculations.

Fig. 3.2.25 MoとZrを含まない場合の主な化学種の酸素分圧依存性



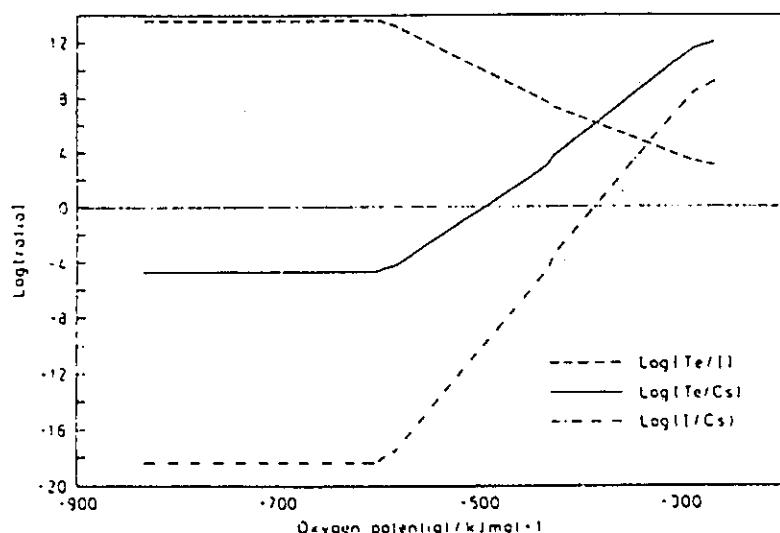
Variation of the pressures of the predominant gas phase species with oxygen potential for Case 4 (table 2) of the PWR calculations.

Fig. 3.2.26 MoとZrを含む場合の主な化学種の酸素分圧依存性



Variation of the ratios of amounts of Te:Cs, I:Cs and Te:I in the gas phase with oxygen potential for Case 2 (table 6) of the LMFBR calculations. The gaseous caesium iodide species were assumed not to contribute to these ratios.

Fig. 3.2.27 Table 3.2.13のCase 2における $\text{Log}(\text{Te}/\text{I})$, $\text{Log}(\text{Te}/\text{Cs})$, $\text{Log}(\text{I}/\text{Cs})$ の値の酸素ポテンシャル依存性



Variation of the ratios of amounts of Te:Cs, I:Cs and Te:I in the gas phase with oxygen potential for Case 3 (table 6) of the LMFBR calculations. The gaseous caesium iodide species were assumed not to contribute to these ratios.

Fig. 3.2.28 Table 3.2.13のCase 3における $\text{Log}(\text{Te}/\text{I})$, $\text{Log}(\text{Te}/\text{Cs})$, $\text{Log}(\text{I}/\text{Cs})$ の値の酸素ポテンシャル依存性

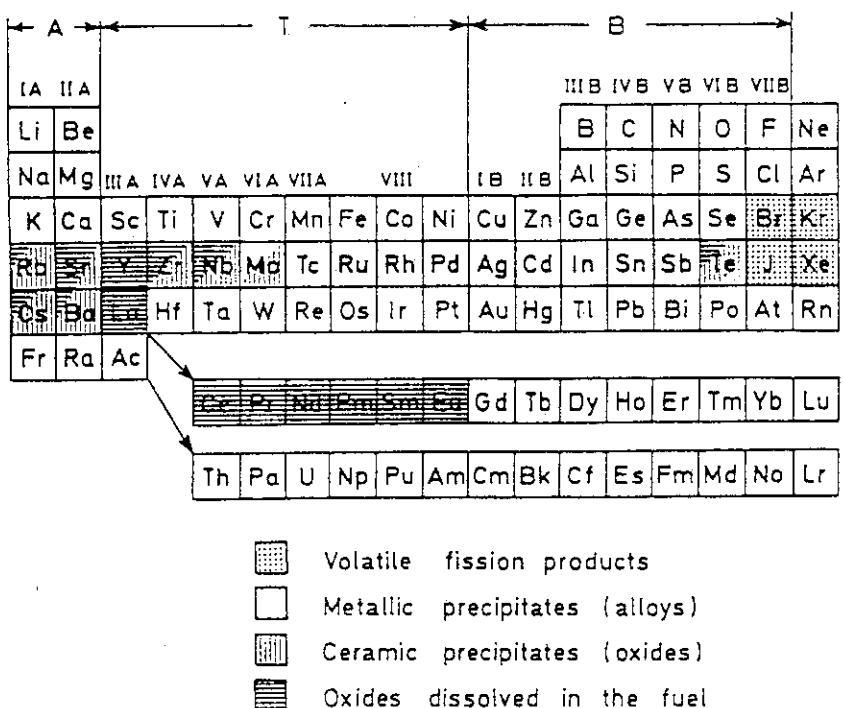


Fig. 3.2.29 酸化物燃料内のFPの化学形態

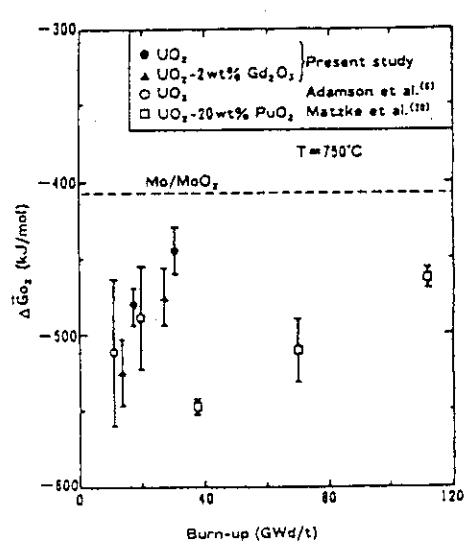


Fig. 3.2.31 照射済酸化物燃料の酸素ポテンシャルの燃焼度依存性

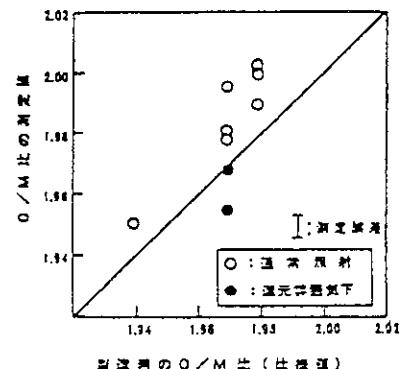


Fig. 3.2.32 照射前後のO/M比の比較

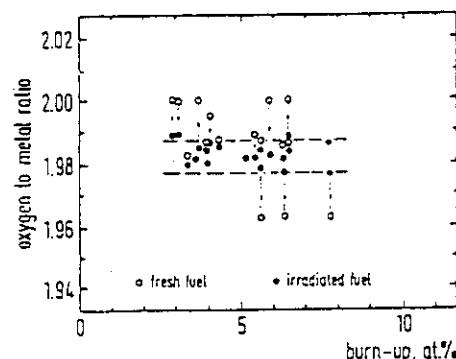


Fig. 3.2.33 格子定数の値から評価したO/M比

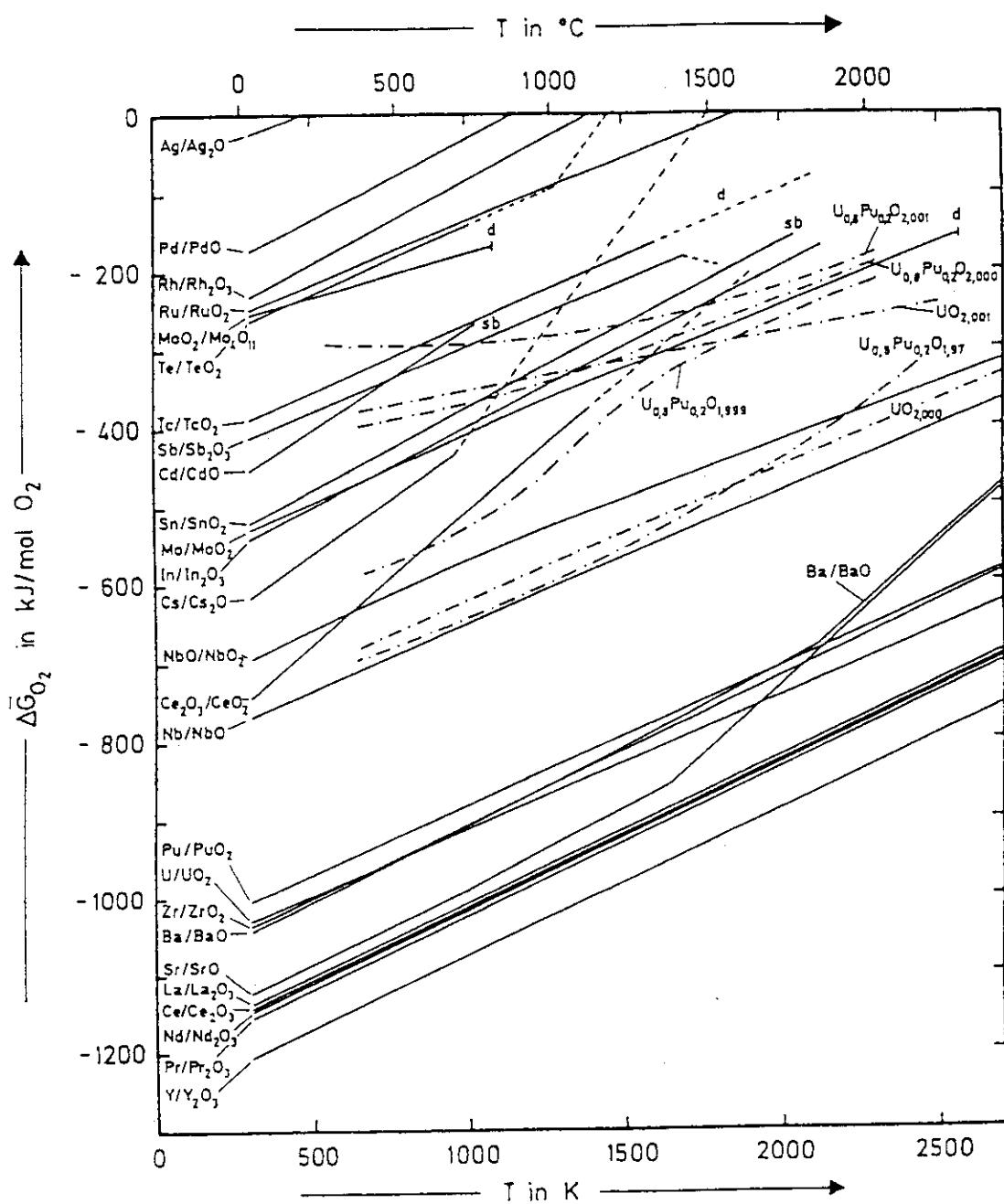


Fig. 3.2.30 FP酸化物および酸化物燃料の酸素ポテンシャル

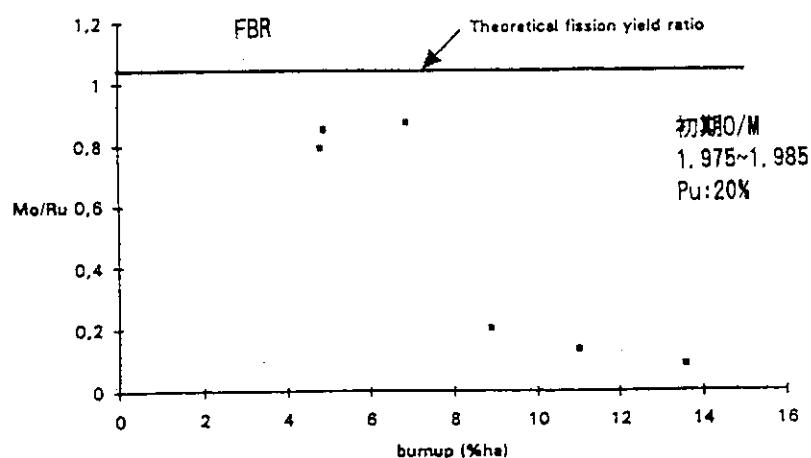


Fig. 3.2.34 金属析出物内のMo/Ru比

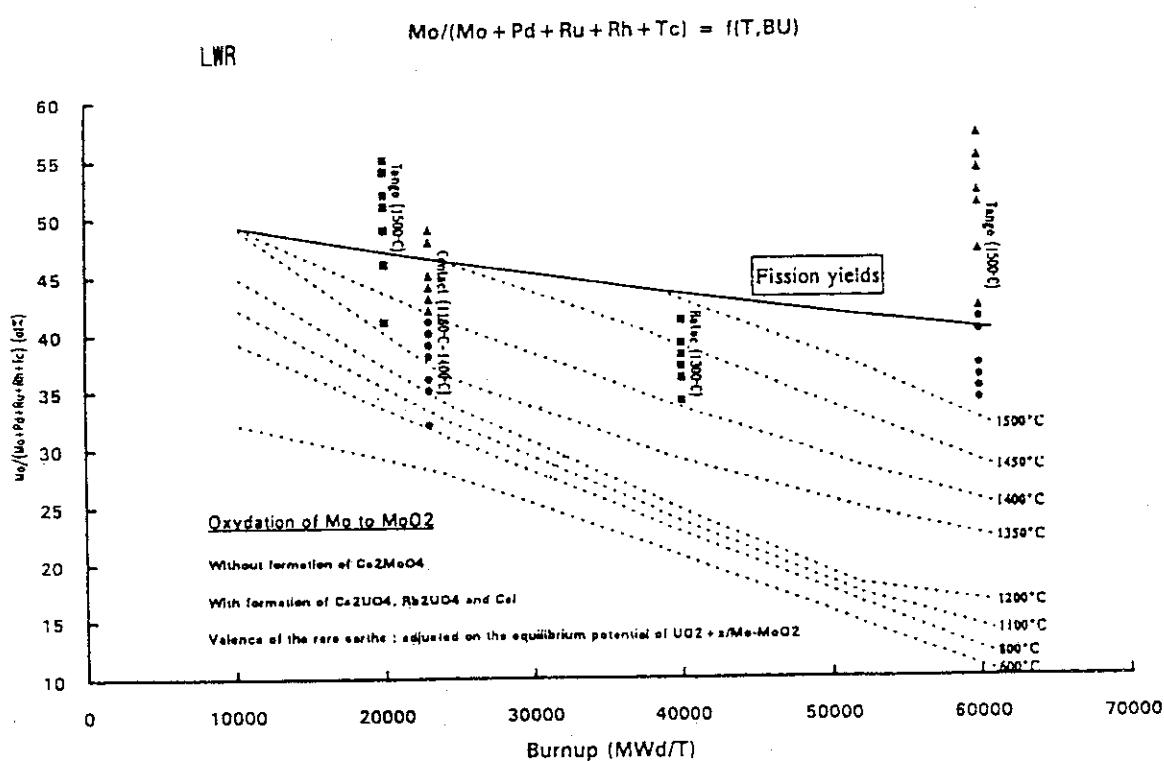


Fig. 3.2.35 金属FP析出物内のMoの割合

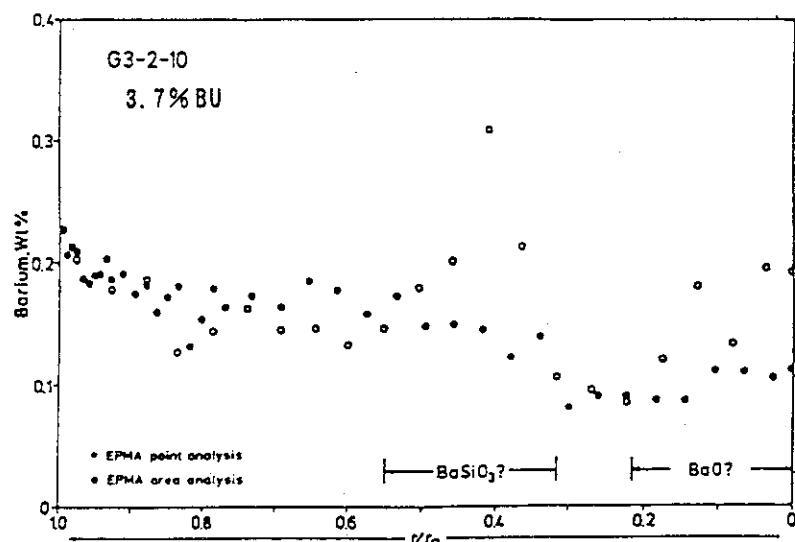


Fig. 3.2.36 出力急昇燃焼ペレット内のBaの径方向分布

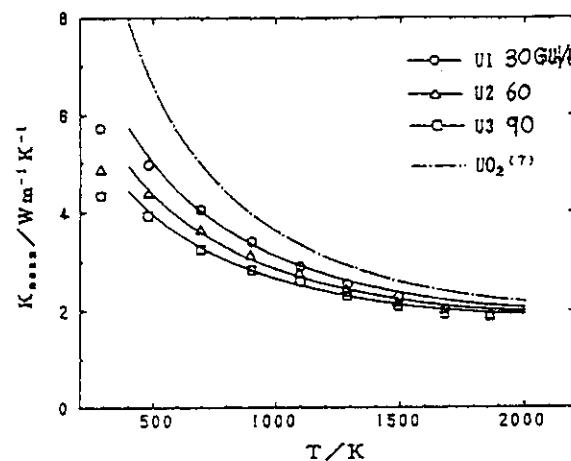
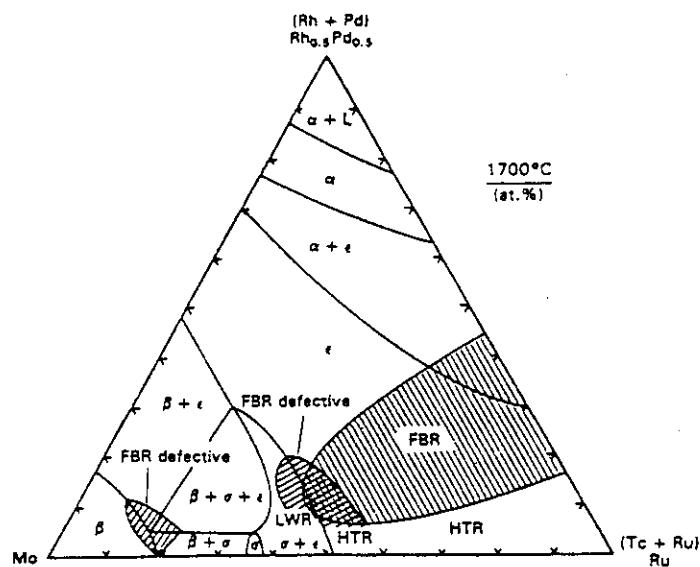
Fig. 3.2.37 (U, FP) O₂の熱伝導率

Fig. 3.2.38 FBR, LWR, HTR燃料内の金属FP析出物の組成比

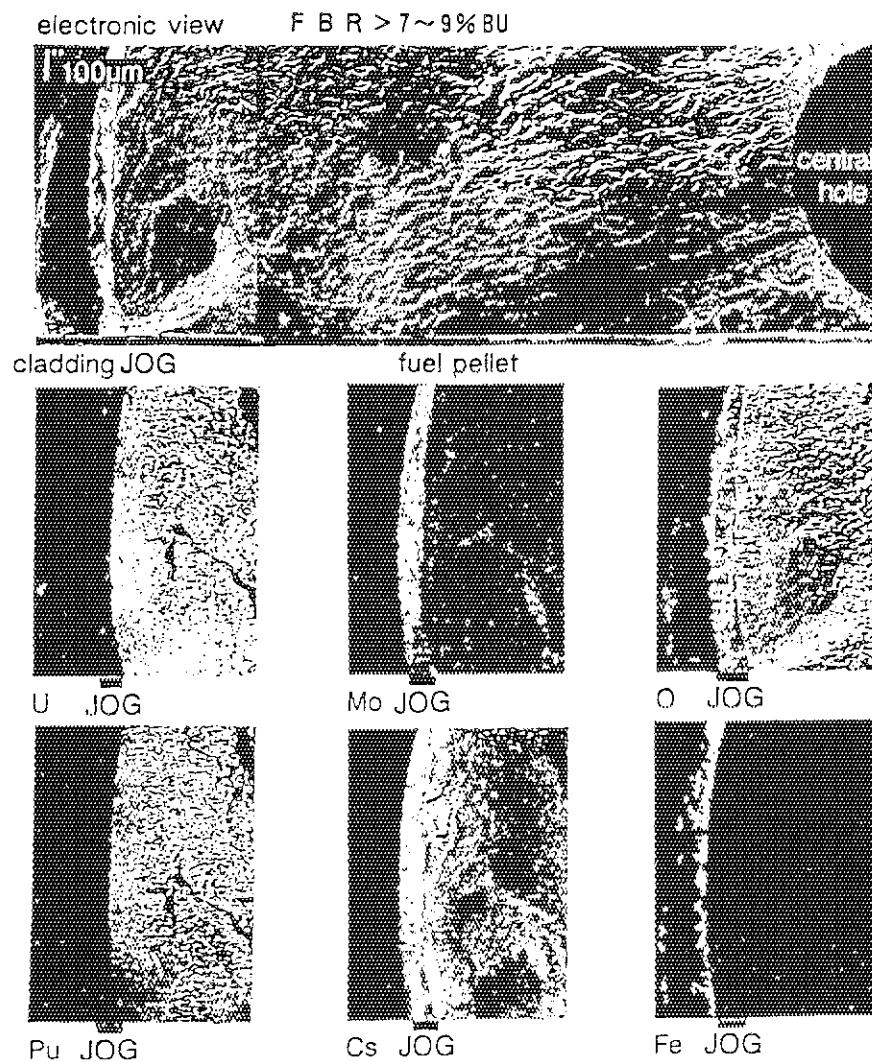


Fig. 3.2.39 高燃焼度燃料のギャップ部に見られたJOGのX線マッピング
(高速炉燃料)

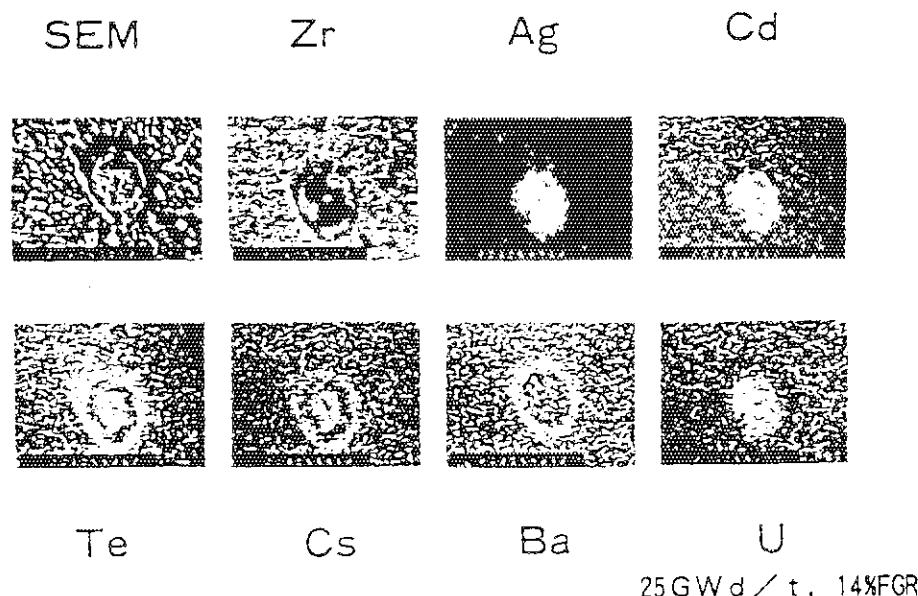


Fig. 3.2.40 特性X線像 (軽水炉燃料)

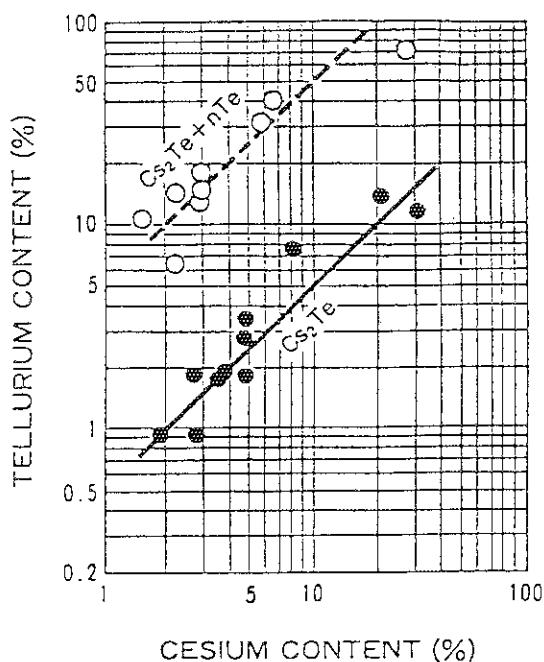


Fig. 3.2.41 ジルカロイ被覆管への析出物のCsとTe比

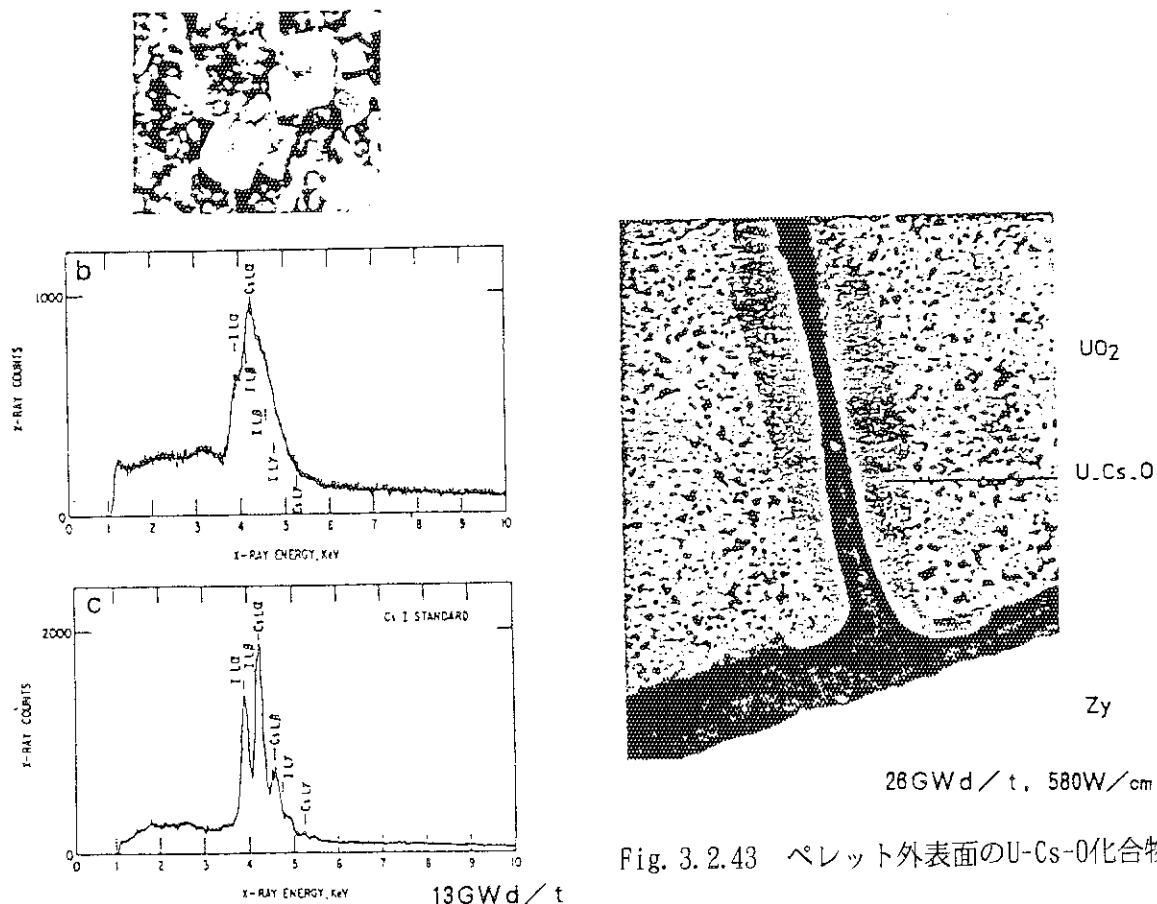


Fig. 3.2.42 ジルカロイ被覆管へ析出した CsI の X 線スペクトル

Fig. 3.2.43 ペレット外表面のU-Cs₂O化合物

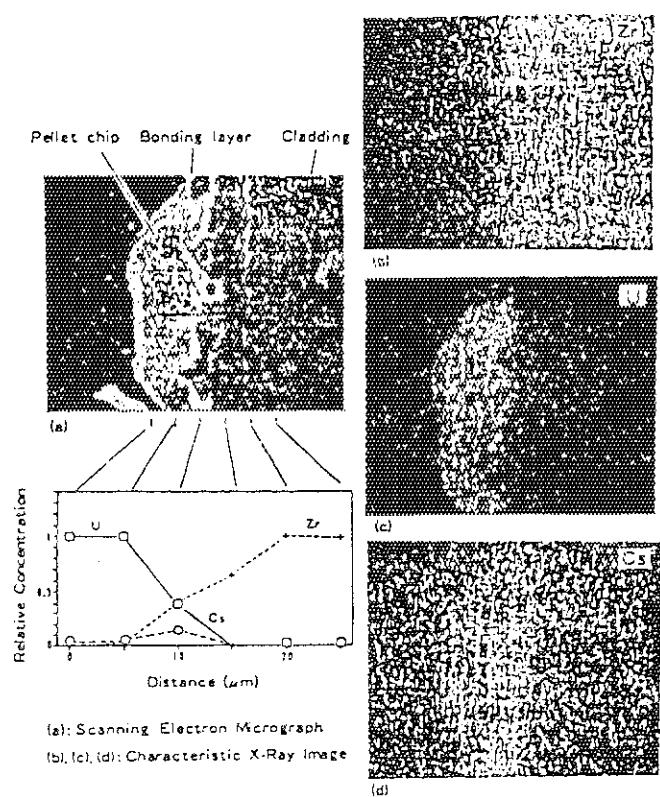


Fig. 3.2.44 ペレット-被覆管ボンディング層

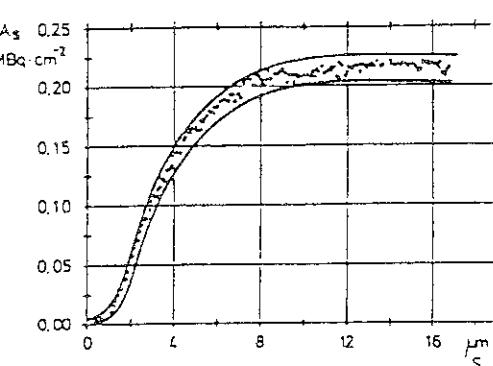
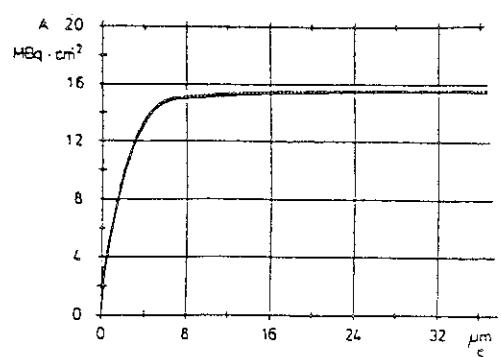
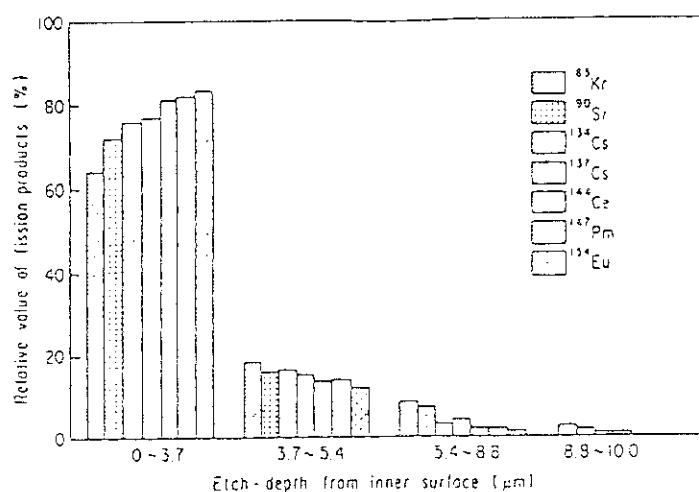
Fig. 3.2.46 47GWD/t被覆管内表面近傍の
Cs-137, Kr-85の放射能

Fig. 3.2.45 29GWD/t被覆管内表面近傍のFPの存在比

3.3 照射挙動

3.3.1 プルトニウム高富化燃料ペレットの照射挙動

MOX燃料は欧米で既に軽水炉で実用に供されており、我が国でも小数体照射試験が実施される等、その照射挙動に関する情報は蓄積されつつある。燃料物性については、今後に残されている課題が若干あるものの、高速炉燃料開発の成果として蓄積されている。本項では、MOX燃料の照射挙動について調査・検討し、その開発課題を整理する。

(1) 調査の概要

MOX燃料の照射挙動として、照射に伴う物性変化、燃料組織変化、焼きしまり／スエリング挙動、FPガス放出挙動／燃料棒内圧増加、燃料棒寸法変化、過渡時挙動およびその他の挙動について、1987年以降に公開された20件の文献（参考文献参照）を調査し、整理した。以下に調査結果を項目ごとに記述する。

(2) 照射挙動

i) 物性変化

照射したMOX燃料の比熱、熱伝導率、熱膨張率、融点など基本的な物性値に関する報告例は少ない。未照射のMOX燃料の熱膨張率について、従来報告されているUO₂やMOX燃料のデータを整理した結果をFig.3.3.1⁽¹⁸⁾に示す。熱膨張率は、Pu富化度が30%以内の範囲で化学量論組成であれば、UO₂燃料とほぼ同じであると報告されている。

MOX燃料の融点については、照射済燃料（Pu富化度18～25wt%）の測定結果が報告されており、その結果をFig.3.3.2⁽¹⁶⁾に示す。測定データのバラツキは大きいものの燃焼度の増加につれて融点は緩やかに下がる傾向を示している。

照射したMOXペレットの熱伝導率変化に関する報告例はないが、試験炉を用いて照射中のペレット中心温度をMOX燃料とUO₂燃料で測定した結果をFig.3.3.3⁽³⁾に示す。線出力と中心温度の関係において両者は同様な結果を示したが、MOX燃料の中心温度が線出力200 W/cmで、UO₂燃料に比べてわずかに（40°C）高いと報告されている。この結果は、MOX燃料がUO₂燃料に比べて熱伝導率がわずかに小さいことを示している。

ii) 燃料組織変化

MOX燃料の照射による組織変化については、気孔分布、結晶組織の変化およびPuスポット部でのそれらの変化が調べられている。

ペレットマクロ観察の代表例として、機械混合法で製造され、23.2、38.8 GWd/tまで燃焼したMOXペレットの観察結果をFig.3.3.4⁽⁷⁾に示す（420 W/cmの出力急昇試験後ペレットの観察結果を含む）。ペレットクラックは、両者とも同等な照射条件下のUO₂燃料と同様なパターンを示している。到達燃焼度23.2 GWd/tのペレットミクロ観察結果（気孔状態）をFig.3.3.5⁽⁷⁾に示すが、Pu粒子の部分で核分裂に伴う気孔が形成され、それはペレット外周部分で明確に見られている。また、38.8 GWd/tまで燃焼したペレットの同様な写真をFig.3.3.6⁽⁷⁾に示すが、Pu粒子の部分は非常に多気孔な組織構

造となっている。 UO_2 マトリックス部分の気孔組織の変化は、 UO_2 燃料と同様であると報告されている⁽²⁾。

Pu スポット部分の組織観察結果（燃焼度28 GWd/t）をFig.3.3.7⁽¹⁾に示す。高 Pu 領域でFPガスバブルの生成が見られている。

これらの調査結果より、MOX燃料の照射に伴う組織変化として、ペレットクラックパターンは、 UO_2 と同様なパターンを示し、 UO_2 マトリックス中の気孔組織等の変化は基本的に UO_2 燃料と同等である。

また、 Pu スポット部においては燃焼に伴い多孔化する。その傾向はペレット周辺部で顕著であり、ペレット中心部では、大きな気孔が形成される傾向がある。

iii) 焼きしまり／スウェーリング挙動

焼きしまり／スウェーリング挙動に関する報告例は少なく、SIEMENS/KWU燃料の1件のみである。

MOX燃料ペレットの照射による密度変化測定結果をFig.3.3.8⁽⁶⁾に示すが、MOX燃料の緻密化／スウェーリング挙動は50 GWd/t以下の燃焼度範囲内では UO_2 燃料とほぼ同等であると報告されている。

iv) FPガス放出挙動／燃料棒内圧増加

照射中におけるMOX燃料のFPガス放出挙動に関しては、比較的多くの報告例がある。これらの報告例によると、MOX燃料のFP放出挙動は燃料ペレットの製造方法に依存する所が大きい。

FPガス放出率および燃料棒内圧の燃焼度依存性に関する報告例を各々Fig.3.3.9⁽⁵⁾およびFig.3.3.10⁽⁸⁾に示す。

Fig.3.3.9では、燃焼度<40 GWd/tの範囲において、MOX燃料のFPガス放出率は UO_2 燃料とほぼ同等である。なお、このMOX燃料ペレットは、MIMAS (Micro-nized Master Blending) 法によって製造された粉末が使用されている。

一方、Fig.3.3.10では、2種類の粉末を使用したMOX燃料ペレットの照射試験によって、燃料棒の内圧の燃焼度依存性を調べているが、機械混合粉末ペレット(MB)が共沈法粉末ペレット(MH)に比べ燃料棒の内圧が大きく、すなわちFP放出量が大きくなる傾向が報告されている。

FPガス放出率の燃料温度依存性に関して、MOX燃料(Pu 富化度8.3wt%)と UO_2 燃料との比較をFig.3.3.11⁽⁸⁾に示す。燃料ペレットからのFP放出が加速される燃料温度は1300~1500°C程度であり、MOX燃料と UO_2 燃料との間に大きな差異は認められない。

v) 燃料棒寸法変化

BNC/CEAによるMOX燃料棒の照射に伴う全長変化の測定結果をFig.3.3.12⁽¹³⁾に、また外径変化をFig.3.3.13⁽¹³⁾に示す。

MOX燃料棒の長さや外径は、照射中における原子炉内の環境(冷却材温度、圧力、高速中性子照射量等)に応じて変化するが、中性子照射量に対する燃料棒の伸び率や外径変化は、 UO_2 燃料棒と同等であると報告されている。

vi) 過渡時燃料挙動

a) 出力急昇時の燃料挙動

出力急昇時のMOX燃料の健全性に関する調査として、照射燃料のランプ試験によって燃料の破損限界が調べられている。出力ランプ試験結果の一例として、KWU/AG/ALKEMにより実施された結果をFig.3.3.14⁽¹⁵⁾に示す。

MOX燃料はUO₂燃料の破損限界を超えた出力まで非破損であり、ランプ性能がUO₂燃料に比べ劣るとの報告はない。

出力上昇後の燃料でPuの半径方向分布を測定した例をFig.3.3.15⁽²⁾に示す。Puの濃度はペレット中心領域で大きくなっているが、MOX粒子のマトリックス中への固溶現象によるものと考えられている。なお、定常照射時には、U/Puの相互拡散は生じていないと報告されている⁽²⁾。

b) 事故時の燃料挙動

反応度事故時の燃料挙動に関する調査として、MOX燃料棒の破損しきい値（エネルギー投入量）および破損に与えるPuスポットの影響が原研のNSRR（Nuclear Safety Research Reactor）で調べられている。燃料棒の破損しきい値に関して、UO₂燃料とMOX燃料の比較をTable 3.3.1⁽¹⁷⁾に示す。MOX燃料の破損しきい値はUO₂燃料と同等であり、また、Puスポットは～1100μmの大きさまで、被覆管の破損状態に影響を与えないとい報告されている⁽¹⁷⁾。

(3) MOX燃料開発上の課題

MOX燃料の軽水炉利用における照射挙動について、最近の文献を調査、整理したが、UO₂燃料と比較して燃料棒の健全性を損ねるような大きな挙動の相違は見られていない。しかしながら、それらに関するデータベースは少ない。FP放出挙動に関しては、挙動の相違の一因として燃料製造要因（ペレットの微細構造の相違）との関連が指摘されている。その中でも、Puスポットに関してはMOX燃料の高燃焼度利用において充分な挙動把握が必要である。

従って、今後のMOX燃料の開発においては、

- ① 照射経験の増大（高燃焼度データの取得）
- ② 物性データの把握（未照射材および照射材）
- ③ 均質なMOX燃料ペレットの製造

が課題と思われる。

(4) MOX燃料の照射挙動の特徴と今後の研究開発課題のまとめ

MOX燃料ではU燃料との相違点としてPuスポットの存在が指摘される。Puスポットが燃料挙動に強く影響を及ぼすことから、U燃料と比べてMOX燃料は燃料製造履歴の影響を受けやすい。これまでの照射試験に供された燃料が様々な製造法によって造られていたため、Puの均質性が異なり、その照射データに大きな変動が認められている。このPuスポットの影響は微視的なものと巨視的なものに分かれる。Puスポット周辺では局所的に高燃焼となり、発熱が大きく、多孔質組織の生成が見られる。これが巨視的に見るとFPガス放出の増加につながるものと考えられる。データ蓄積が十分でないため予測段階であるが、燃料製造法の相違、すなわちPuスポットの存在状態の相

違がFPガス放出に影響を与えていたり可能性が強い。十分に均質でPuスポットを無視し得るMOX燃料の場合にはFPガス放出がU燃料と同レベルであるとする考え方があるが、高Pu濃度の場合の適用性については結論づける段階に至っていない。

FPガス放出のほかにも、燃料組織変化、焼きしまり、スエリング、過度時燃料挙動等について照射データの蓄積を図って行く必要がある。低富化のMOX燃料の挙動はU燃料と比べて有意な相違がないとされているが、Pu富化度の増加によりPu添加の影響が顕在化し、U燃料と異なる挙動を示す可能性がある。PuO₂は、UO₂と比較すると機械的性質の点では、より“柔らかい”物質であり、物質移動を起こしやすいと言える。このことは、PCI等の機械的相互作用については緩和傾向の方向に作用するものの、物質移行が活発となり、FPガス放出の増加や被覆内面腐食を促す可能性を示唆する。特に被覆管の内面腐食については、Pu添加による酸素ポテンシャルの変化に注目する必要がある。今後、特性の明確な燃料を使って照射データを蓄積することが望まれる。

参考文献(3.3.1項)

- (1) M.Lippens and N.Cadelli, "A European investigation of MOX fuel performance in LWRs", ANS Topical Meeting on LWR fuel performance, April 17-20, 1988, pp.54-65.
- (2) C.T.Walker and M.Coquerelle, "Correlation between microstructures and fission gas release in high burnup UO₂ and MOX fuels", International Topical Meeting on LWR fuel performance, Avignon, April 21-24, 1991, vol.2, pp.506-517.
- (3) L.Caillot, M.Charkes and C.Lemagnan, "Analytical measurement of thermal behavior of MOX fuel", ibid., vol.2, pp.651-661.
- (4) H.Bairiot and M.Lippens, "Commercial MOX fuel: the experimental and demonstration background", Recycling of Plutonium and Uranium Water Reactor Fuels, IWGFPT/35, Proc. of a Technical Committee Meeting Organized by The IAEA, Cadarache, 13-16, Nov., 1990, pp.181-187.
- (5) D.Haas and J.M.Baugnet, "Belgium R&D programme in the field of MOX fuel for LWRs", ibid., pp.188-193.
- (6) F.U.Schlemmer, H.P.Fuchs and R.Manzel, "Status of irradiation experiences with recycled fuel materials in the Federal Republic of Germany for Siemens/KWU type fuel assemblies", ibid., pp.193-198.
- (7) M.Coquerelle, Hj.Matzke and C.T.Walker, "MOX fuel studies at the European Institute for Transuranium Elements", ibid., pp.204-217.
- (8) T.Mishima, K.Kamimura, S.Maeda and K.Tanaka, "Thermal and mechanical behavior of MOX fuel rods", ibid., pp.218-224.
- (9) A.Chotard and Y.Musante, "PROMOX: the French R&D Programme on MOX fuel, part 2: first results of the overall programme on PWR rods", ibid.,

pp.227-234.

- (10) E.Porrot, M.Charles, C.Lemaignan, A.Chotard and X.Thibault, "Part 1: thermal behaviour and fission gas release of MOX fuel - comparison with UO₂ in the THERMOX and GRIMOX experimental programmes", ibid., pp.235-237.
- (11) D.Parrat, R.Warlop, F.Montagnon and Y.Musante, "Part 2: Behaviour of a defective MOX fuel in a reactor environment - the EDTHERMOX experiment", ibid., pp.238-241.
- (12) P.Deramaix and A.Charlier, "MOX fuel concepts for PWRs and BWRs", IAEA-SM-288/65P, pp.537-550, 1987
- (13) H.Bairiot, D.Haas, M.Lippens, J.F.Marin, G.Lebastard and F.Motte, "LWR MOX fuel experience in Belgium and France with special emphasis placed on the results obtained in the BR3 PWR", IAEA-SM-288/38, pp.363-383 (1987).
- (14) D.Haas, "Building a data base on MOX performance in LWR", Nuclear Engineering International 32 (1987) pp.35-36.
- (15) H.Roepenack, F.U.Schlemmer and G.J.Schlosser, "Development of thermal plutonium recycling", Nucl. Technol. 77 (1987) pp.175-186.
- (16) J.Komatsu, T.Tachibana and K.Konashi, "The melting temperature of irradiated oxide fuel", J. Nucl. Mater. 154 (1988) pp.38-44.
- (17) 反応度安全研究室、NSRR管理室, "NSRR実験プログレスレポート・17 (1985年1月～1985年12月)", JAERI-M 89-097 (1989) pp.21-41.
- (18) D.G.Martin, "The thermal expansion of solid UO₂ and (U,Pu) mixed oxides - a review and recommendations", J. Nucl. Mater. 152 (1988) pp.94-101.
- (19) J.E.Bainbridge, C.B.A.Fortyn and D.G.Martin, "The grain growth of mixed fuel during irradiation", J. Nucl. Mater. 171 (1990) pp.230-236.
- (20) M.Billaux and J.Vanvliet, "Impact of fuel heterogeneities on fission gas release for LWR U-Pu mixed oxide fuels", Res. Mechanica 17 (1986) pp.411-57.

3.3.2 超高燃焼燃料の照射挙動

様々な燃料挙動のなかで、FPガス放出とスエリングは相互に深い関連性をもちながら、大きな比重を有する。超高燃焼度では、これらの挙動が燃料の挙動や健全性に影響を与える。従って本項では、FPガス放出とスエリングに焦点をあて、その研究開発課題の整理を行う。

3.3.2.1 核分裂生成ガス放出

(1) 最近のデータと知見

ガス放出に関するデータソースとしては、以下の種類がある。

- ① 炉内計装燃料の実時間データ
- ② 積分データ（パンクチャデータ、プレナムガスγ線計測）
- ③ 炉外再加熱試験

- ④ ペレット内残留ガス分布測定 (EPMA、XRF、破碎、溶解)
- ⑤ 組織観察 (光学顕微鏡、SEM、TEM)

現在、高燃焼度にむけ、ガス放出と燃料温度の関係を調べたデータ源としては、炉内計装燃料のデータを取得し、かつ照射後の組織観察を行ったRISO計画(フェーズ3)が最も包括的である(Fig.3.3.16)。他の計装による温度計測をともなうものとしてハルデン計画および高燃焼化学(HBC)のデータがある。より高い燃焼度に対しては、パンクチャ、残留ガス分析および組織観察のデータが、バッテル研究所による高燃焼時諸効果研究計画(HBEP)、BN社によるTRIBULATION計画から得られている。また、炉外試験としては、AEA-Tech(旧UKAEA、Harwell)、EC超ウラン元素研究所(TUI)、日本核燃料開発㈱(NFD)などで個別に行われた照射試料の再加熱試験がある。

以下に、これらのデータから明らかとなった高燃焼時の現象およびその解析・モデル化の現状を記す⁽¹⁻⁶⁾。

i) 高燃焼時のガス放出率の増加と、放出領域の拡大

PWR燃料の照射後試験から、高燃焼時のガス放出率の増加が報告されている(Fig.3.3.17)。この傾向は燃料ペレットの製造ルートによらず共通している⁽⁷⁻⁹⁾。また、上記の国際プロジェクトのガス放出データについて、PSI研究所(スイス)などが挙動解析コードによりこの放出率の増加傾向を定量的に評価している^(8, 10)。その結果は、PWR燃料に関して現行の設計において健全性、安全性に大きな問題が生じる範囲ではない。また、照射後試験の金相観察および残留ガスのEPMA測定、X線蛍光分析(XRF)から、ペレット径方向のFP放出領域(ダークリング)、すなわち放出半径が燃焼度の増加により拡大する傾向が明らかになった(Fig.3.3.18、Fig.3.3.19)。これは定常放出⁽⁷⁾および出力上昇による過渡放出⁽³⁾の両方で共通に観察される。

燃料温度とFPガス放出との関係については、燃焼度によらず1200°Cがその放出開始温度となっていることが、燃焼度44 GWd/tUまでのPWRおよびBWR燃料を用いたRISO計画により明らかにされた。但し、この開始温度は、約1日～数日の過渡的な照射試験の評価であるため、数年にわたる長時間照射における放出開始温度は、より低い値である可能性もある。

さらにRISO計画で温度と組織変化との相関を調べた結果、先述した商用炉燃料に見られる高燃焼時のガス放出率増加の原因是、①ペレットの熱伝導率が低下する、②燃料温度の径方向分布が低い燃焼度の放物型曲線から台形型の傾向に変化するため(Fig.3.3.20)と推定されている^(1, 3)。

ii) 粒界のガス蓄積量の増加と、粒界の割れによる放出

高燃焼度まで照射した燃料の炉外再加熱試験によって、FPガス放出のプロセスが研究されている⁽¹¹⁻¹⁴⁾。特に、出力過渡時の放出の模擬として、この実験は有効である。加熱時の放出過程として、温度上昇の開始時に速いバースト放出があり、その後に拡散的なゆっくりとした放出が観測される(Fig.3.3.21)。バースト放出は粒界に蓄積しているガスの放出と考えられる。この結果、粒界への蓄積量が、従来の予想よりもはるか

に高い値であることが明らかとなった。すなわち、従来の機構論的なガス放出モデルでは、粒界の気泡は外圧と平衡にあると仮定し、その量は $2 \times 10^{18} / \text{m}^2$ 程度と推定されていた^(15, 16)。しかし燃料を破碎して粒界のガス量を測定したところ、粒界には、 $2 \times 10^{20} / \text{m}^2$ 程度までは蓄積するとの結果が得られている⁽¹⁷⁾。これは 50 MPa 相当の圧力平衡状態と同等と推定され、現在では粒界気泡は過剰圧の状態にあると推定されている⁽¹⁸⁾。また比較的低い温度での再加熱試験では、放出開始温度として還元性雰囲気 ($\text{H}_2\text{O} : \text{H}_2 = 1 : 10$) で、1100°C から若干の開始が、また 1200°C から有意な放出 (100°C ステップで上昇し各ステップの保持時間は短く、1 時間である) が観測された⁽¹⁴⁾。この放出開始温度は R I S O 計画の炉内実験の測定値とほぼ一致する。

過渡時のガス放出において、この粒界ガス量の増加が影響をあたえる。R I S O 計画やハルデン計画では、内圧計装燃料において、急速に出力を上昇ないし低下させた際にガス内圧が突発的に上昇する事象が観測されている (Fig. 3.3.16)⁽¹⁾。その事象数は数例であるが、データの分析から出力変化速度にガス放出を引き起こす閾値があり、16.2 ~ 444 kW/m/h より速い変動時に放出が生じることが明らかとなった⁽²⁾。また、出力サイクルを繰り返した際のオンラインガス放出測定と組織観察の相関から、ペレットの割れとガス放出に強い相関が存在することが明らかとなった⁽¹⁹⁾。また、粒界の拘束力の変動とガス放出相関を機構論的にモデル化する試みも行われ、R I S O 実験の出力引き下げ時の放出再現に成功している⁽²⁰⁾。

iii) 粒内の組織変化

照射後試験において、定常的なガス放出が始まらない程度に低い温度で、かつ高燃焼度の燃料領域では、金相試料のエッティングにより線状のピットが結晶粒内に生成することが観察されている (Fig. 3.3.22)^(14, 21, 22)。透過電顕による観察から、これは平面状の空洞構造をもち、その周囲に転位が集積し応力が加わった形跡があるため、現状態では内部に高い圧力の気体が存在したと推定されている。その面方位として [111] が同定された例があり、従ってこれは FP ガスがエネルギー的に有利な面に析出してできた平面状気泡と思われる⁽²²⁾。この構造、およびこの発生の原因となった照射損傷の蓄積状態が、より高い燃焼度でガス放出にどのような影響を与えるか現時点では未知である。しかし粒内のガス輸送過程に影響することは明らかであり、特にペレットの低燃焼度領域からのガス放出を増加させている可能性がある⁽⁷⁾。

また、理論的な解析および実験から、高燃焼時には高圧の微小な粒内気泡（液相ないし固相）が発生することが知られている⁽²³⁾。さらにこの気泡が酸素と相互作用してこれを実効的に吸収し、酸素ポテンシャルないし O/M に影響するとするモデルが提示されている。この効果が顕著であれば、過渡時に温度上昇により相が変化し、酸素ポテンシャルが上昇してガス放出過程に大きな影響があるが、現在のところその確証は得られていない^(15, 18)。

このように、高燃焼時において、粒内の FP ガス放出に関する基礎過程には、まだ不明なことが多い。

iv) リム効果と細粒化

リム効果は軽水炉に特有な核的な現象である。従って核的な側面の研究は、基本的な

検討データを与えるために重要である。このため、炉型による相違などが調べられている⁽²⁴⁻²⁶⁾。

リム領域にて発見された燃料の細粒化や顕著なスエリングなどのいわゆるリム構造は、履歴中の局所燃焼度が約70 GWd/tU以上、局所温度が約1100°C以下の領域で発生することが明らかとなった (Fig.3.3.23 ~ Fig.3.3.26) ^(22, 26-28)。バッテル計画の82 GWd/tU燃料では、このリム構造がペレット周辺から中心まで全域に広がった例が観察されている。このペレットは中空であったため、照射期間を通じて上記の温度燃焼度条件の範囲にある⁽¹³⁾。

リム領域では、結晶粒は製造時の径の1/10以下、0.1~0.2 μm程度に細粒化している。リム領域の残留ガスをEPMAとX線蛍光分析で測定すると、前者では減少がみられるが後者では減少量はわずかである (Fig.3.3.27) ⁽¹⁾。またEPMAでは、ガスがスポット的に集積していることが観察される。従ってFPガスは各々連結せずに独立な、球状の比較的大きなポアないし気泡に集まっていると推定される。この気泡の形成はスエリングの原因でもある。リム領域ではこのようにFPガスは局在化する。従って、軽水炉においては、リム構造の生成は必ずしもガス放出の顕著な増加には繋がらない。しかし、PWR燃料の高燃焼時のガス放出率の増加は、このリム形成が原因であろうとの推測がなされている。

(2) 今後の研究方向

i) 基礎過程の理解

軽水炉で特徴的な高燃焼時の低温ガス放出について、現在の知見をもとにした現象の流れをFig.3.3.28に示す。すなわちガス放出過程においては、まずFPが蓄積し、さらに照射損傷が加わり、これによってFPの拡散、欠陥構造の発達、FPの析出などの動的過程が進行する。さらにこれらは時間の経過、温度上昇などによって組織変化に進み、最終的な放出過程に至る。

現在、求められている研究課題として、Fig.3.3.28をもとに特に以下の項目が考えられる。

① 基礎過程モデルの開発

a) 粒内拡散輸送の機構

ガス放出の時間依存の動的な過程を把握することは、超高燃焼時の燃料挙動を理解し、今後の燃料の改良を進める上で重要である。すなわち燃料改良の為にはこの輸送機構の制御因子を同定することが必要である。把握すべき基礎過程として、①ガス原子の拡散過程、②気泡の生成、消滅、成長、移動、③転位とガス原子や気泡の相互作用、④析出物とガス原子や気泡の相互作用、などがある。

一方、燃料は、低燃焼度から超高燃焼度に至るまで、広範囲の出力・温度履歴の多様な状況を経る。従って上記のうち気泡の成長のみを取り上げても、移動・衝突による成長が支配的な場合や、單原子拡散や微小気泡移動を媒介としたOstwald-ripeningが支配的な場合などが存在する。従って、燃料の挙動を理解するには、これらの動的現象を統一的に扱うことのできる理論的枠組みをつくりあげることが必要である。この意味で、気泡数の分布関数を扱うモデルは定量的手

法として最も有望である。

b) 照射損傷

大幅な高燃焼度に至るまで低温度での照射が継続した場合には、多量の照射損傷が燃料内に蓄積することは明らかである。しかし、これが微視的にどのような現れ方をするか、 UO_2 についてすら充分には明らかになっていない。すなわち照射初期の、良く定義できる欠陥に関する研究は一般的に完了していると思われるが、照射量が大きく UO_2 のような化合物で、かつイオン結合性の強い格子の規則性の乱れについては、充分な研究が行われているとは言えない。特に、高燃焼燃料の低温部で見られる積層欠陥と思われる様相の形成条件を同定することは、燃料の挙動評価の上で極めて重要であると考えられる。これは、このような平面状の欠陥は、実効的な熱伝導率の低下や、ガス原子の捕獲、粒内のガス輸送等を大きく変える効果があると予想されるからである。また、格子の規則性の乱れの様相は、フォノンの散乱に影響を与える。従って、熱伝導率の変化には単にFP原子がUに置換することによる効果に加えて、格子の乱れの影響が加わると考えられる。このため、格子の乱れを詳細に実験的に解明することが求められており、オーダパラメータの同定・観測が重要な課題である。この情報は、燃料が細粒化（リム構造）に至る過程の解明のためにも重要である。

② 組織変化の観察と同定

高燃焼度では、その特徴的な組織変化として、固体FP析出物、高圧の粒内気泡、平面状の欠陥、そして細粒化などの生成が観察される。今後は、これらの組織変化と燃焼度や温度との関係を明らかにすることが重要である。また、挙動の理解を進めるためには、粒内気泡分布や粒界気泡の発達度の定量化が、フラクタル的な観点など、これまでより進んだ手法で試みられるべきであると考えられる。また、細粒化に関しては、その発生状況、特にその粒径分布や結晶方位、また関連する比表面積、気孔率の形態の定量化が現象解明に不可欠である。

③ 製造時の状態、ガドリニアなど添加物の影響の評価

細粒化の発生状況には、O/Mなどが影響していると見られる場合がある⁽²²⁾。これは製造時の初期条件が照射欠陥の蓄積、欠陥構造の成長に関わりがあることを暗示している。すなわち、低温度照射した場合には、高燃焼度に達しても製造時の情報が完全に失われることなく、影響を保持している可能性が大である。このため、実験に当たっては、各種の製造条件の影響を比較することが重要である。また、ガドリニア等の添加物の影響を評価することは工学的に重要である。添加物は燃料を改良する有力な方策であり、その効果を実験的に検討することは、今後とも積極的に行うべきである。

ii) 結語

燃料の超高燃焼度化、すなわちこれを10年に至る長期間用いることは、燃料といえども、構造材と同様に、材料としてより高度な性能が要求されることを意味する。軽水炉燃料の特徴は、比較的低い温度で用いることにある。特に、その照射損傷による結晶格子の乱れに対しては、これが自己組織化過程（self-organizing process）であるという

観点が必要である。従って、低温照射では、燃料の組織変化やF Pガス放出などの燃焼挙動は、上記の過程の初期条件である製造時の特徴に左右され、多様な現象が出現すると予想される。燃料材料の分野は、よく制御された実験環境での研究としては、かならずしも十分開拓されているとは言えず、照射下のセラミック材料論、物性論としても、多くの本質的な課題がある。高純度なセラミックとして燃料を製作し、実験を行うことが有効である可能性もある。この燃料材料の初期組織、組成と燃焼時の変化との因果関係の把握は、電力会社など燃料ユーザにとり、きわめて重要な課題であり、工業的にも今後多くの投資が必要となると考えられる。

参考文献 (3.3.2.1)

- (1) P.Knudsen, C.Bagger, M.Mogensen and H.Toftegaard, "Fission gas release and fuel temperature during power transients in water reactor fuel at extended burnup", IAEA Technical Committee Meeting on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, April 28-May 1, 1992, Pembroke, Ontario, Canada.
- (2) M.Mogensen, C.Bagger, H.Toftegaard and P.Knudsen, "Fission gas release below 20 kW/m in transient tested water reactor fuel at extended burn-up", ibid.
- (3) C.Bagger and M.Mogensen, "Experimental assessment of a temperature threshold for thermally induced fission gas release in transient tested water reactor fuel with extended burn-up", ibid.
- (4) M.E.Cunningham, M.D.Freshley and D.D.Lanning, "Development and characteristics of rim region in high burnup UO₂ fuel pellets", J. Nucl. Mater. 188 (1992) pp.19-27.
- (5) M.Lippens, "The TRIBULATION Programme, an assessment of the high burnup fuel behavior after fast power transient", ANS/ENS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Palais des Papes, Avignon, France, April 21-24, 1991.
- (6) L.A.Nordstrom and C.Ott, "An aproach to modelling fuel behavior using data from some international high burn up fuel programs", IAEA Technical Committee on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, April 28-May 1, 1992, Pembroke, Ontario, Canada.
- (7) R.Manzel, R.P.Bodmer and G.Bart, "Fission gas release of high burnup fuel", ibid.
- (8) T.Aoki, S.Koizumi, H.Umemura and K.Ogata, "Fission gas release behavior of high burnup fuels during power ramp tests", ibid.
- (9) C.Forat, B.Blanpain, B.Kapusta, P.Guedeney and P.Permenzel, "Fission gas release enhancement at extended burnup: experimental evidence from French PWR irradiation", ibid.
- (10) C.Ott, L.A.Nordstrom and H.K.Kohl, "A comparison of measured and

calculated results using three rods of the TRIBULATION programme and the codes COMETHE, INTERPIN and TRANSURANUS, an assessment of the high burnup fuel behavior after fast power transient", ANS/ENS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Palais des Papes, Avignon, France, April 21-24, 1991.

- (11) J.R.Matthews and J.G.Small, "Towards a mechanistic understanding of transient fission gas release", IAEA Technical Committee Meeting on Water Reactor Fuel Element Computer Modelling in Steady State, Transient and Accident Conditions, Preston, September 19-22, 1988.
- (12) K.Une, K.Nogita, S.Kashibe and M.Imamura, "Microstructure change and its influence on fission gas release in high burnup UO₂", J. Nucl. Mater. 188 (1992) pp.65-72.
- (13) K.Une and S.Kashibe, "Fission gas release during post irradiation annealing of BWR fuels", Enlarged Halden Programme Group Meeting, Bolkesjo, June 10-13, 1991.
- (14) M.Coquerelle and D.Bottomley, "Hot cell fission gas release studies on UO₂", IAEA Technical Committee Meeting on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, April 28-May 1, 1992, Pembroke, Ontario, Canada.
- (15) J.R.Matthews, N.Beatham and D.A.Howl, "Twenty five years of fuel modelling in the UK", Nuclear Energy, vol.29, No.2, Apr. (1990) pp.101-106.
- (16) P.A.Jackson, J.A.Turnbull and R.J.White, "ENIGMA fuel performance code", Nuclear Energy, vol.29, No.2, Apr. (1990) pp.107-114.
- (17) H.Zimmermann, "Fission gas behavior in LWR fuel during loss of coolant accident", Eur. Appl. Res. - Nucl. Sci. Technol, vol.5, No.6 (1984) pp.1349-1361.
- (18) N.A.Leech, M.R.Smith, J.H.Pearce, W.E.Ellis and N.Beatham, "Fission gas release modelling: developments arising from instrumented fuel assemblies, out-of-pile experiments and microstructural observations ", Nuclear Energy, vol.29, No.2, Apr. (1990) pp.131-139.
- (19) M.Charles, G.Eminet and C.Lemaignan, "Intergranular fission gas bubbles and solid precipitates in UO₂ irradiated at high burnup in various conditions", ibid.
- (20) T.Kogai, "A simple fission gas release / gaseous swelling model", ibid.
- (21) L.E.Thomas, C.E.Beyer and L.A.Charlot, "Microstructural analysis of LWR spent fuels at high burnup", J. Nucl. Mater. 188 (1992) pp.80-89.
- (22) C.T.Walker, T.Kameyama, S.Kitajima and M.Kinoshita, "Concerning the microstructure changes that occur at the surface of UO₂ pellets on irradiation to high burnup", J. Nucl. Mater. 188 (1992) pp.73-79.

- (23) D.A.MacInnes and I.R.Brearley, "A model for the release of fission gas from reactor fuel undergoing transient heating", J. Nucl. Mater. 107 (1982) pp.123-132.
- (24) 亀山高範、村松哲夫、木下幹康、"高燃焼時における軽水炉燃料のリム効果の解析"、電力中央研究所研究報告、T89024、平成2年2月。
- (25) T.Kameyama, T.Matsumura and M.Kinoshita, "Analysis of rim effect in high burnup fuel irradiated in HBWR and commercial LWR", Enlarged Halden Programme Group Meeting, Bolkesjo, Norway, Feb.11-16, 1990.
- (26) 亀山高範、村松哲夫、木下幹康、"軽水炉高燃焼度燃料内のリム領域形成とリム効果による温度変化の解析"、電力中央研究所研究報告、T90063、平成3年6月。
- (27) T.Kameyama, T.Matsumura and M.Kinoshita, "Analysis of rim structure formation in Battelle High Burnup Effects Program", ANS/ENS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Palais des Papes, Avignon, France, April 21-24, 1991.
- (28) K.Une, K.Nogita, S.Kashibe and M.Imamura, "Microstructural change and its influence on fission gsa release in high burnup UO₂ fuel", J. Nucl. Mater. 188 (1992) pp.65-72.

3.3.2.2 スエリング

スエリングは、FPガスや固体FPがペレット内に蓄積されて生じる体積膨張であるから、通常の出力や燃焼度の範囲では燃焼度にほぼ比例して直線的に増加する。しかし、100 GWd/tもの超高燃焼度では、この延長線上で評価できないことが予想される。すなわち、FPガス放出によるスエリングの低下や、高燃焼度でのペレット・リム部で見出された組織変化や、新たな核分裂生成核種による化学反応などがスエリングに影響を及ぼすであろう。これらの効果を総合して定量的に記述するにはデータが不足なので、ここでは個々の要因の効果を考察する。

(1) 高燃焼度でのスエリング・データ

UO₂および(U,Pu)O₂燃料のスエリング率については、古くから多くの報告がある⁽¹⁻¹²⁾。これらの主なものはMATPROのFSWELLモデルに集約されており、これをFig.3.3.29に示す⁽¹³⁾。すなわち、スエリング率は1400°C以下では0.28% / 10²⁰ fission/ccであり、より高温ではFPガスの拡散速度が高まるため増加して1800°Cで最大 0.92% / 10²⁰ fission/ccに達し、さらに高温ではFPガスの放出によってスエリングが低下するというものである。

その後の井上ら⁽¹⁴⁾およびBalfourら⁽¹⁵⁾による商用炉でのデータをそれぞれFig.3.3.30およびFig.3.3.31に示す。約10 GWd/tまでは焼きしまりによる密度増加(体積収縮)が見られ、約35 GWd/t以上からスエリングの効果が表れている。スエリング率についての最近のデータとしては、Moisioら⁽¹⁶⁾、Turnerら⁽¹⁷⁾、Wiesenachら⁽¹⁸⁾の報告等があり、これらを含めて実用条件下でのスエリング率は下記の通り集約できる。

$$0.5 \sim 1.0 \% / 10 \text{ MWd/kg U} (10 \text{ GWd/t U})$$

$$\begin{aligned}
 &= 0.5 \sim 1.0 \% / \% \text{BU} \\
 &= 0.2 \sim 0.4 \% / 10^{20} \text{ fission/cc} \\
 &= 0.44 \sim 0.88 \% / 10 \text{ GWd/tUO}_2
 \end{aligned}$$

UO_2 と MOX 燃料とで有意な差は認められていない⁽³⁻⁵⁾。

超高燃焼度でのスエリングは、Zimmermannの実験データ (Fig.3.3.32)⁽¹⁹⁾によって推測される。これには、上記の温度依存性や拘束力依存性が示されているほか、100 GW d/t以上でスエリングが飽和する傾向が見られる。本稿の目的は、この意味を考察することである。

(2) スエリングのメカニズム

^{235}U および ^{239}Pu の核分裂によって生成されるFP核種の収率とその化学状態をそれぞれTable 3.3.2とTable 3.3.3⁽²⁰⁾に示す。超高燃焼度ではTable 3.3.2に記載されたFPのほかに、Pu、Np、Am、Cmなどのアクチニド元素や、これらの α 崩壊や (n, α) 反応によって生じる ^4He ガスの存在が無視できない。スエリングのメカニズムは、FPガスによるものと固体FPによるものとに大別できる。

i) FPガススエリング

Xe, KrなどのFPガスは UO_2 に溶解せず、化学的に不活性なので、単体で気泡として成長したり、結晶粒内を拡散して転位や粒界に析出する。

気泡の合体による体積の増加は、合体前のn個の気泡の体積の単純な加算より \sqrt{n} 倍大きくなるといわれる⁽²¹⁾。一方、FPガス気孔は核分裂片の衝突によってマトリックス中に再溶解するとして、Stehleらの焼きしまりモデル⁽²²⁾を導入したモデルが最近報告されている⁽²³⁾。FPガスは温度勾配に沿って高温側に拡散し、粒界やペレットクラック等に蓄積してスエリングに寄与する。粒内におけるガスの拡散係数は、

$$D = 1.5 \times 10^{-14} \exp(-50 \text{ kJ/mol}/RT) [\text{cm}^2/\text{s}]$$

程度である⁽²⁷⁾。さらに、温度や圧力に依存してFPガスが放出され、スエリングが減少する。低温、低燃焼度ではFPの生成および拡散が充分でなく、かつ焼きしまりによるポアの消滅過程に吸収されてFPガススエリングは問題にならない。また高燃焼度では、Fig.3.3.33⁽²⁴⁾に見るようFPガス放出のしきい温度の低下、あるいはペレット熱伝導度の低下によってFPガス放出が加速されることから、スエリング率が低下すると期待される。しかし、これを定量的に評価するには至っていない。

ii) 固体FPスエリング

Table 3.3.3に見るように、固体FPは移動し易さや化学状態によってスエリングに及ぼす影響が異なる。

CsやIは低温のペレット外周部に移動し、U-Cs-Zr-Oからなる結合相 (bonding) を作ったり、PCI/SCCの原因となる。特にCsは収率も大きく、単体、酸化物、UやFPとの化合物など、様々な形態でペレット内に滞留するのでスエリング上重要である。Fig.3.3.34に敦賀炉で照射された燃料中の ^{137}Cs の分布を示す⁽²⁵⁾。Csがペレット中心から外周に向けて移動するのがわかるほか、半径中間部でのCsの偏

析が注目される。これは、高燃焼度ペレットに見られるダークリングに対応し、このリングはFPガス放出の開始点といわれている^(26, 27)からである。

Mo、Tc、RuなどのFPは、稠密六方晶の単体または合金としてペレットの中心近くの粒界に析出し、SEMでは0.1~2 μmの白色の粒に見える。中でもMoは収率が大きく、酸化物やUやFPとの化合物を作るので重要である。Moは、金属として存在すればスエリング率は0.4%/%BU、MoO₂およびMoO₃として存在すればスエリング率はそれぞれ0.5%および0.61%/%BUになるといわれる⁽³⁸⁾。

Zr、Sr、BaなどのFPは、UO₂と安定な固溶体を作るほか、灰色の(Ba, Sr)ZrO₃などのペロブスカイト型化合物を作り、主としてペレットの中間半径部に析出する。

(3) 超高燃焼度でのスエリングに及ぼす影響因子

i) 結晶粒径について

高燃焼度でのFPガス放出を抑えるため、近年、結晶粒径を大きくする傾向がある。これはFPガスの拡散が粒界まで達しにくいため、結晶粒内のスエリングを増す方向にある。ところで、結晶粒径の粗大化がFPガス放出の抑制に有効であるかについては数年来賛否両論がある。最近の報告から、効果があったとされるHowらの結果をFig.3.3.35に示す⁽²⁸⁾。ただし、この結果は大粒径の効果と中空ペレットの効果が分離されていない。効果がなかったとされるのはKnudsen⁽²⁹⁾、Turner⁽¹⁷⁾などである。後者は密度測定結果から、ニオビア添加ペレット(粒径45 μm)のスエリング率は377 GWd/tまでの照射において、0.77% / 10 GWd/t Uで、無添加(粒径6~8 μm)の場合の0.83% / 10 GWd/t Uよりも小さかったと報告している。

宇根⁽³⁰⁾は炉外実験として、ニオビア添加、チタニア添加、および無添加UO₂についてそれぞれ結晶粒径を変化させたペレットをCO₂/CO混合ガス中で焼鈍することにより、FPガススエリングを模擬して、粒径や添加物の効果を比較した。この結果をFig.3.3.36に示す。すなわち、結晶粒径が大きいほどスエリング率が小さいこと、また、同じ粒径ならばニオビア添加、チタニア添加、無添加の順にスエリング率が大きいことを同図は示している。

ii) 粒内／粒界ガスバルブの寄与について

小飼⁽³¹⁾は粒界ガスバルブがスエリングに寄与するとして下記の式を与え、Mogensen⁽³²⁾の粒内ガスバルブ説に反論している。

$$\Delta V/V = 2\pi N_{gb} r_{gb}^3 / r_s$$

ここで、N_{gb}: 粒界ガスバルブの面積密度、r_{gb}: 粒界ガスバルブの半径、r_s: 結晶粒径である。

前項(3.3.2.1)でも、炉外再焼結試験の結果から、50 MPaの圧力平衡状態に相当するFPガスが粒界に蓄積されると述べている。これ自体予想以上に大きいとしても、FPガスが粒内を拡散する以上、より高燃焼度ではより高圧の小さいバルブが粒内に発生する可能性もある。

iii) ミクロ組織変化について

高燃焼度ペレットの周辺部で観察されるリム効果については前項で述べられた (Fig. 3.3.24 参照)。ここは中性子減速材と冷却材を兼ねた水に近いので、燃焼度が高く (> 70 GWd/t)、マトリックス温度が低く、従って FP が多量に発生し、かつ FP ガス放出が少ないとからスエリングが著しく大きいと推察される。事実、多数の FP 放出孔が見られるものの、XRF 分析によれば試料表面下数 μm 以上の粒界には FP ガスが残留しており⁽³³⁾、Cs の分布も最も高い⁽²⁵⁾。一方、エピサーマル中性子の共鳴吸収によって多量の Pu が生成しており⁽³⁴⁾、TRU や He の生成も期待される。この領域の熱伝導度は低いといわれるが⁽³⁵⁾、温度分布にどう効くか、さらに高燃焼度でリム効果はペレット全域に広がるか、などが今後の課題となろう。

高燃焼度ペレットの中間半径部に見られるダークリング (Fig. 3.3.18 参照) は、FP ガス放出が開始する径方向位置 SBS (radial position for Start of Bump test related Swelling) ともいわれ^(26, 27, 33)、FP ガス放出のしきい温度付近に生じ、燃焼度とともに外側に移行するといわれる^(27, 36)。ダークリング部は粒内に析出した 0.1 ~ 0.6 μm の小さな FP ガスバブルで構成されており、FP ガス放出機構やペレットの温度分布に関連するものとして注目されるが、スエリングへの影響は小さいと思われる。

iv) ガス／固体スエリングの寄与について

FP ガスは放出されるのに対し、固体 FP は何らかの形態でペレット内に蓄積されるので、高燃焼度では固体 FP の寄与が大きくなることが予想される。

伊藤ら⁽³⁷⁾による最近の報告から、FBR 用 MOX 燃料の 200 W/cm、315 GWd/t までの LIFE-IV コードによる予測計算結果を Fig. 3.3.37 に示す。縦軸はペレット一被覆管接触圧力、X/L は炉心底部からの軸方向位置を表わすが、寿命初期に見られるピークは FP ガススエリングによるもので、その後被覆管のスエリングによる逃げと FP ガスの放出によってプレナムガス圧程度に下がり、より高燃焼度では固体 FP スエリングが支配的になるというものである。

v) 超高燃焼度での固体 FP スエリングについて

超高燃焼度での固体スエリングは、3.2節に記載したように ORIGEN コードと SOLGASMIX コードを用いて FP 核種とそれらの化学形態を決定し、さらにモル体積を求ることによって評価し得る^(38, 39)。しかし、現行の燃焼度範囲では固体スエリングはさほど問題にならず、この分野の研究は主として FCCI (ペレット一被覆管の化学作用) を対象としてきたので、スエリングが計算できるほどすべての FP 化合物について熱力学データが揃っておらず、また、それらのペレット内での分布や、拘束力、温度勾配、放射線などの条件下で平衡に存在し得るか、など未解明ことが多い。

今後は、照射結果と対比しながら、これらの基礎的なデータを積み重ねる必要がある。

参考文献 (3.3.2.2)

- (1) R.C.Daniel, et al., WAPD-263 (1962).
- (2) R.C.Nelson, et al., Trans. ANS, 9 (1966) p.412.
- (3) P.N.Duncan, ANS Fast Reactor Fuel Tech. Topical Meeting, New Orleans

(April 14, 1971).

- (4) T.C.Rowland, Trans. ANS, 18 (1974) p.124.
- (5) W.E.Baily, Trans. ANS, 19 (1975) p.348.
- (6) H.Assmann, et al, J. Nucl. Mater. 68 (1977) p.360.
- (7) J.T.A.Roberts, et al, IWGFPT/12, Tokyo (1981).
- (8) T.A.Coleman, et al., ANS Topical Meeting, Williamsberg (April 4-8, 1982) No.1-3.
- (9) H.Stehle, et al., ibid., No.1-4.
- (10) S.R.Pati, et al., ibid., No.4-4.
- (11) M.Bruet, et al., ibid., No.4-5.
- (12) H.Gross, et al., IAEA Specialist Meeting, Mol (May 7-11, 1984) DE-2.
- (13) Olsen,C.S. et al., TREE-NUREG 1005 (1976).
- (14) K.Inoue, et al., ANS Topical Meeting, Orlando (April 21-24, 1985) No.1-3.
- (15) M.G.Balfour, et al., BNES Conf., Stratford upon Avon (March 25-29, 1985) No.17.
- (16) J.Moisio, et al., IAEA Tech. Committee Meeting, Studsvik (June 5-8, 1990) No.9.
- (17) J.E.Turner, et al., ANS/ENS Topical Meeting, Avignon (April 21-24, 1991) I.B.12.
- (18) W.Wiesenach, et al., IAEA Technical Committee Meeting, Pembroke (April 28-May 1, 1992) No.3-5.
- (19) H.Zimmermann, Nuclear Technology 41 (1978) p.408.
- (20) 原子力安全研究協会, 軽水炉燃料のふるまい (平成2年7月) .
- (21) F.A.Nichols, WAPD-TM-570 (1968).
- (22) H.Stehle, et al., J. Nucl. Mater. 61 (1976) p.326.
- (23) H.C.Suk, et al., IAEA Technical Committee Meeting, Pembroke (April 28 - May 1, 1992) No.4-7.
- (24) C.Forat, et al., Ibid, No.2-2.
- (25) 土江保男, ほか, 日本原子力学会誌, 29 (1987) p.219.
- (26) C.Bagger, et al., IAEA Technical Committee Meeting, Pembroke (April 28-May 1, 1992) No.1-3.
- (27) R.Manzel, et al., Ibid, No.2-1.
- (28) D.A.Howl, et al., Ibid, No.2-3.
- (29) P.Knudsen, et al., Ibid, No.1-1.
- (30) K.Une, J. Nucl. Mater. 158 (1988) p.188.
- (31) T.Kogai, IAEA Technical Committee Meeting, Pembroke (April 28-May 1, 1992) No.5-2.
- (32) M.Mogensen, J. Nucl. Mater. 131 (1985) p.162.
- (33) M.E.Cunningham, et al., ANS/ENS Topical Mtg., Avignon (Apr.21-24, 1991)

III.1

- (34) J.H.Pearce, et al., J. Nucl. Mater. 116 (1983) p.1.
- (35) N.Kjaer-Pedersen, et al., IAEA Technical Committee Meeting, Pembroke (April 28-May 1, 1992) No.3-4.
- (36) R.Manzel, et al., ANS/ENS Topical Meeting, Avignon (Apr. 21-24, 1991) III.2.
- (37) 伊藤邦博, ほか, 日本原子力学会誌, vol.34, No.10 (1992) p.984.
- (38) B.Frost, et al., Pu Conference, Brussel (1967) SM 88/25.
- (39) F.Anselin, et al., Trans. ANS 10 (1967) p.103.

Table 3.3.1 MOX燃料とUO₂燃料の反応度事故時破損しきい値の比較

Comparison of the failure thresholds
of NSRR standard test UO₂ fuel,
Phase 1 test mixed oxide fuel and
Phase 2 test mixed oxide fuel.

(1) Fuel Failure Threshold Energy Deposition at Axial Center

Standard UO ₂ Fuel:	253 - 264 cal/g
Phase 1 (U,Pu)O ₂ Fuel:	255 - 260 cal/g
Phase 2 (U,Pu)O ₂ Fuel:	215 cal/g

(2) Fuel Failure Threshold Energy Deposition at Failure
Location Considering Axial Power Distribution

Standard UO ₂ Fuel (1.06):	268 - 280 cal/g
Phase 1 (U,Pu)O ₂ Fuel (1.1):	280 - 286 cal/g
Phase 2 (U,Pu)O ₂ Fuel (1.3):	280 cal/g

Table 3.3.2 長寿命及び安定FPの核分裂収率

(²³⁵U, 热中性子)

	%Yield		%Yield
(Se)	0.4	Sn	0.1
(Br)	0.3	(Sb)	0.1
(Kr)	3.8	(Te)	2.5
(Rb)	1.3	(I)	1.0
Sr	6.2	(Xe)	20
Y	4.8	(Cs)	20
Zr	36.9	(Ba)	6.7
Nb		La	6.6
Mo	25	Ce	12.3
Tc	6.1	Pr	5.9
Ru	8.3	Nd	20.5
Rh	4.9	Pm	2.3
Pd	1.4	Sm	1.9
(Ag)	0.2	Eu	0.2
(Cd)	0.1		

□: ガスFP ○: 摂発性FP

Table 3.3.3 UO_2 燃料ペレット中におけるFPとアクチニドの化学状態

化学種	移動しやすさ	化 学 状 態
Xe と Kr 希土類元素と Y Zr	高い温度で移動する ほとんど動かない 同 上	单体, 高い温度で気泡として析出 UO_2 と安定な固溶体を作る UO_2 と安定な固溶体を作るが一部は(Ba, Sr) ZrO_3 として析出 同 上
Ba, Sr, Zr	同 上	金属析出物または MoO_2 (O/U と温度に依存)
Mo	同 上	单体, 金属析出物
Tc, Ru, Rh, Pd	同 上	单体で蒸気圧高い, ギャップで Cs_2Te などとして存在
Te	幾分移動する 移動しやすい 同 上	I_2 , ギャップで CsI などとして存在
I	同 上	单体, 銀化物, Cs_2UO_4 あるいはよう化合物
Cs と Rb	ほとんど動かない 同 上	UO_2 と安定な固溶体を作る
Am Cmなどの アクチニド	アクトニド	

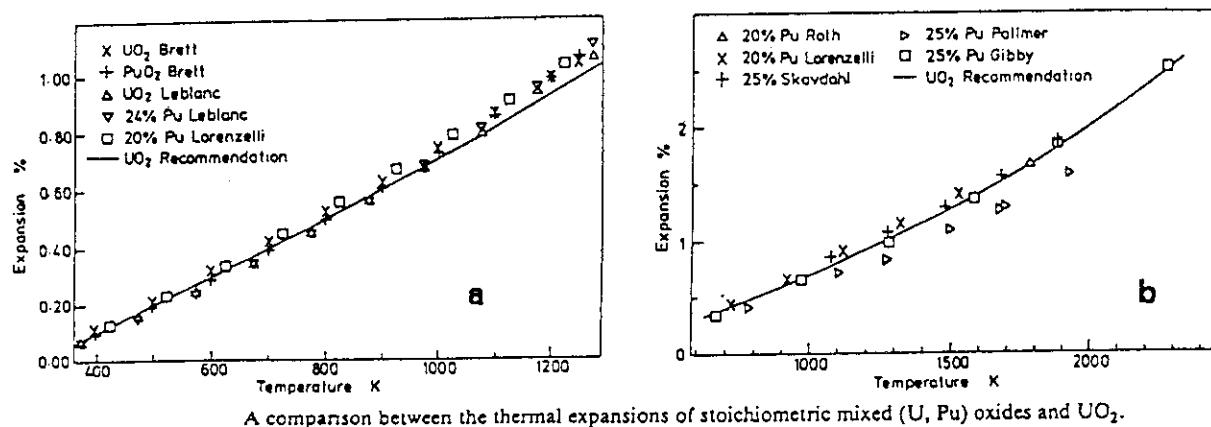
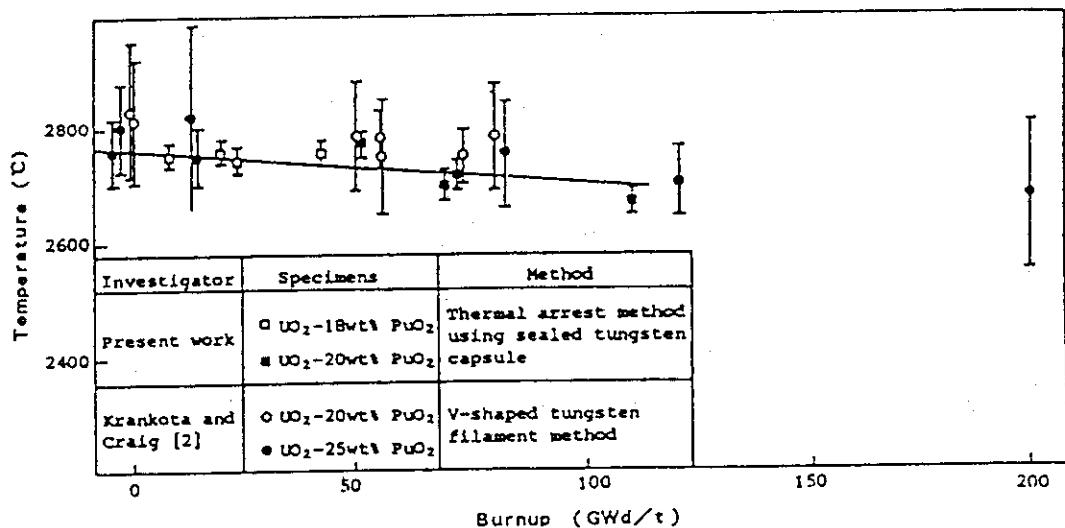
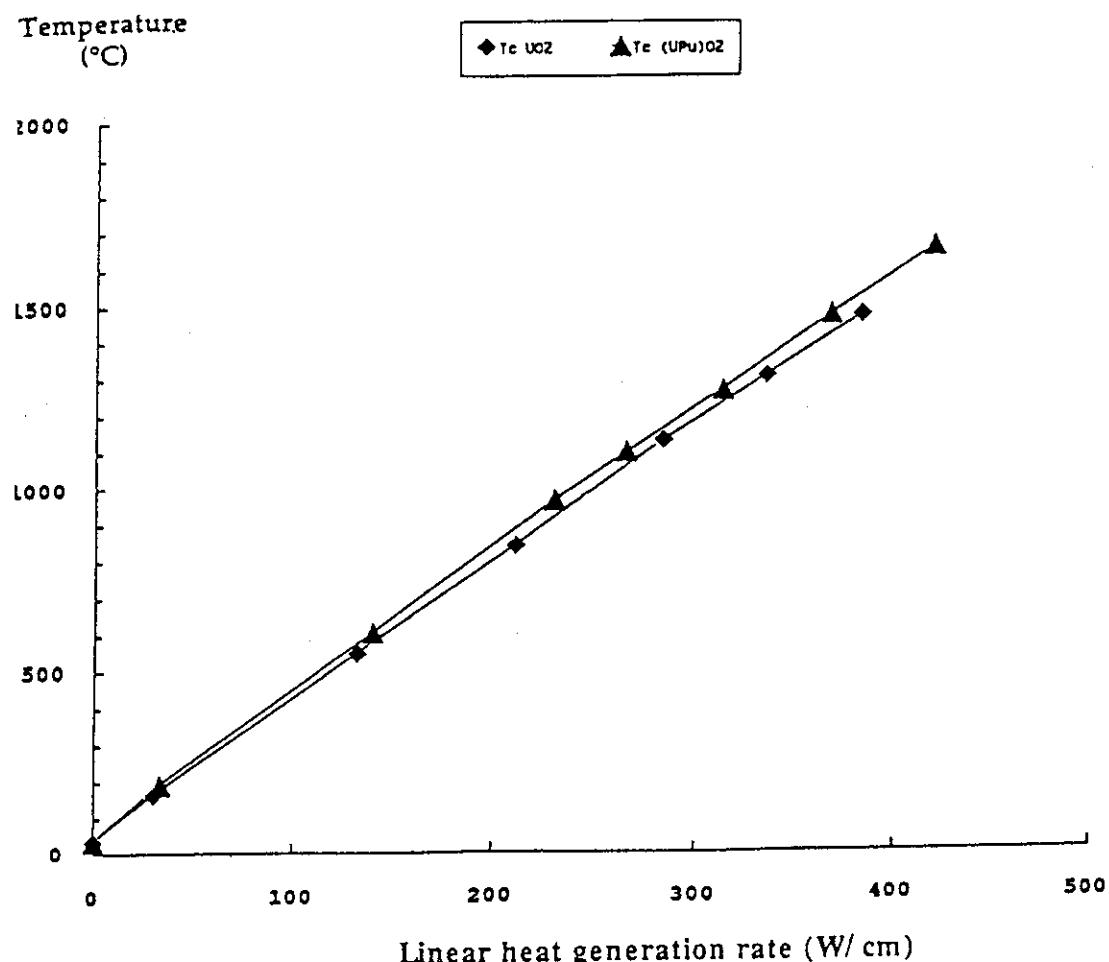


Fig. 3.3.1 (U, Pu) O_2 と UO_2 の熱膨張率の比較 (未照射材)
(a, b は異なる温度領域に対応する)



Change in melting temperature of (U, Pu) O_2 fuels with burnup.

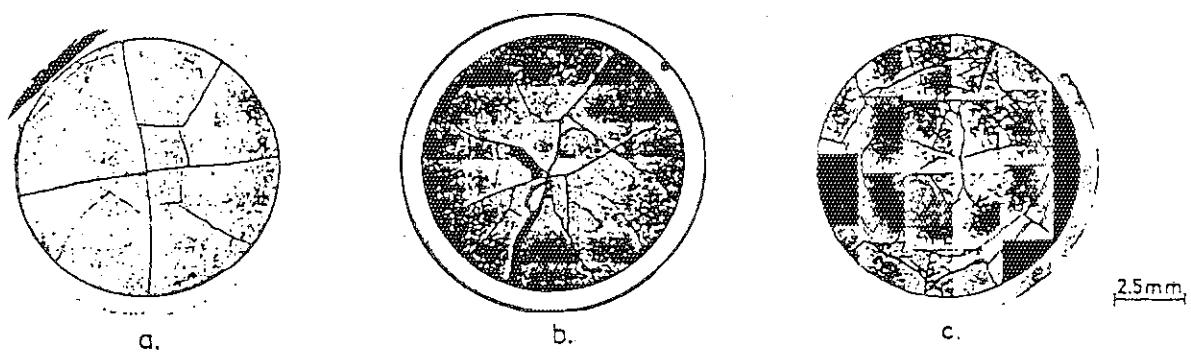
Fig. 3.3.2 (U, Pu) O_2 の燃焼に伴う融点の変化



CENTRELINE TEMPERATURES* OF MOX AND UO₂

(*) Measured by W-Re thermocouples located in the annular pellets ; the central hole is of low influence on to the temperatures.
 At 200 W.cm⁻¹ in UO₂, computation indicates a difference of only 3°C between the maximum temperatures with and without central hole. (diameter : 1.25 mm).

Fig. 3.3.3 MOXとUO₂燃料の線出力と中心温度の関係



Appearance of MOX fuel, a) at a burn-up of 23.2 GWd/t, b)
at a burn-up of 38.8 GWd/t and c) after a transient test
to 42 kWe.

Fig. 3.3.4 MOX燃料のマクロ観察写真

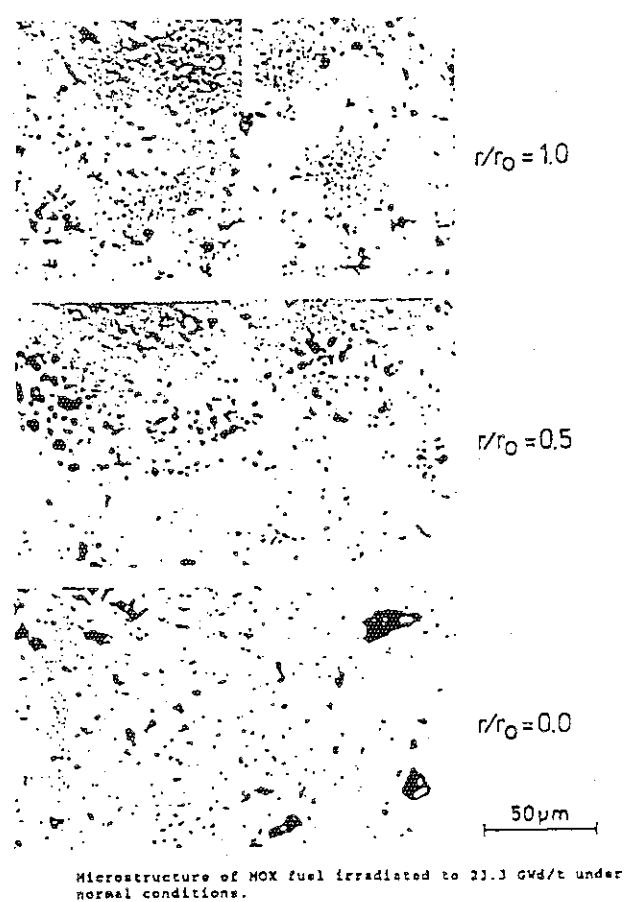


Fig. 3.3.5 MOX燃料のミクロ観察写真（気孔観察）

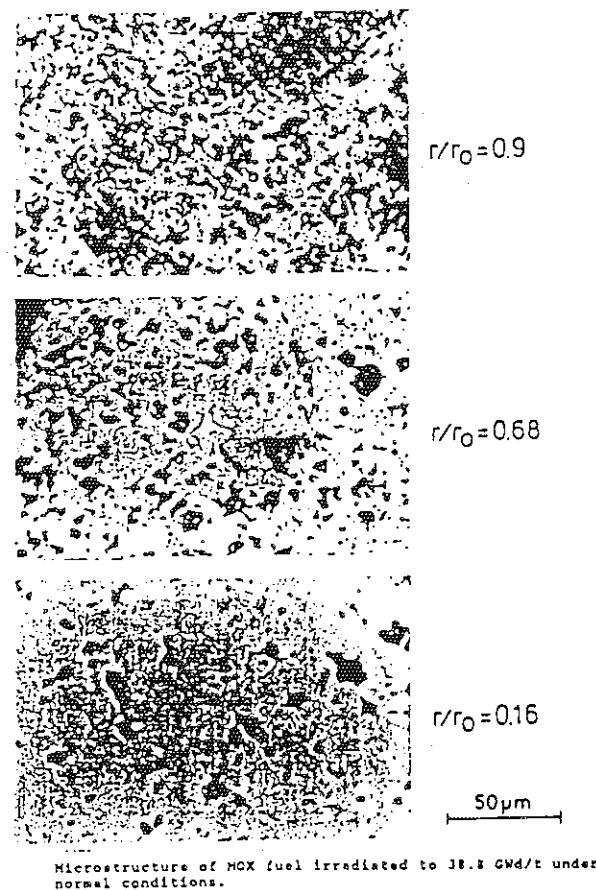


Fig. 3.3.6 MOX燃料のミクロ観察写真（気孔観察）



U AND Pu MICROSCOPIC REPARTITION IN IRRADIATED MOX FUEL (DODEWAARD/B304).

Fig. 3.3.7 MOX燃料のミクロ観察写真（結晶組織）

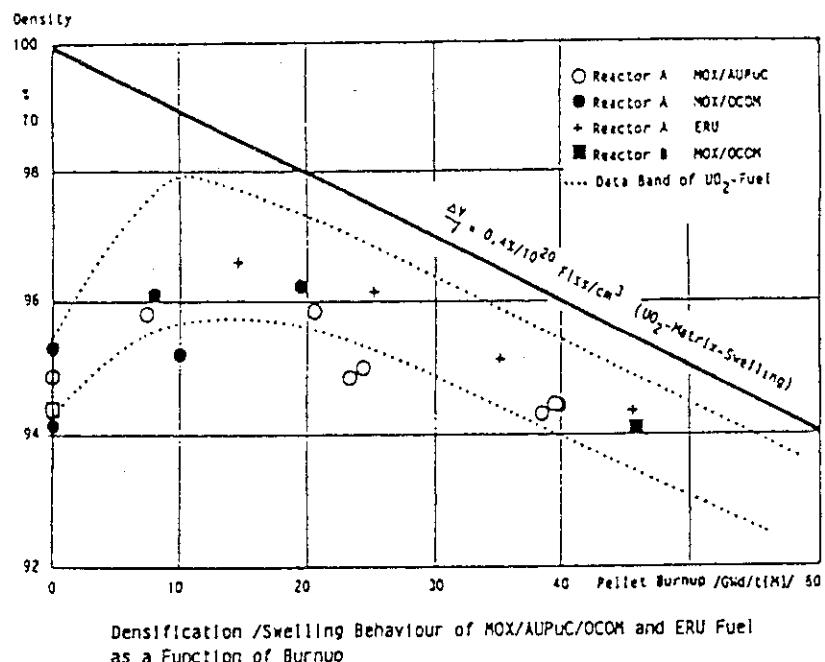
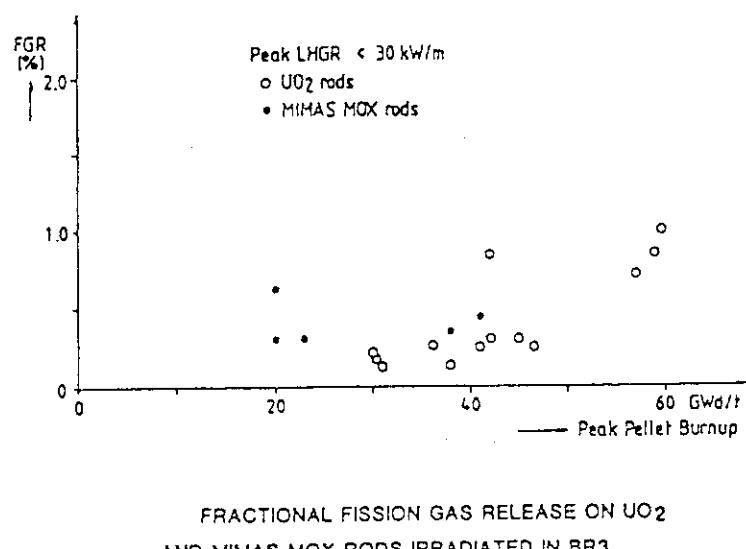
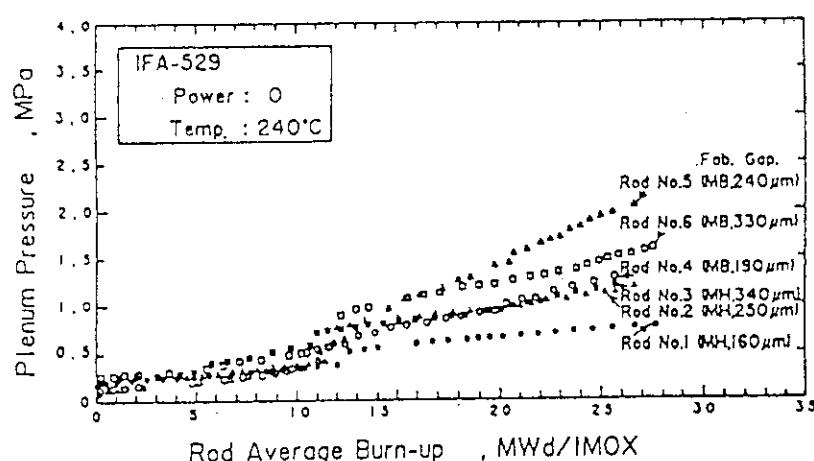


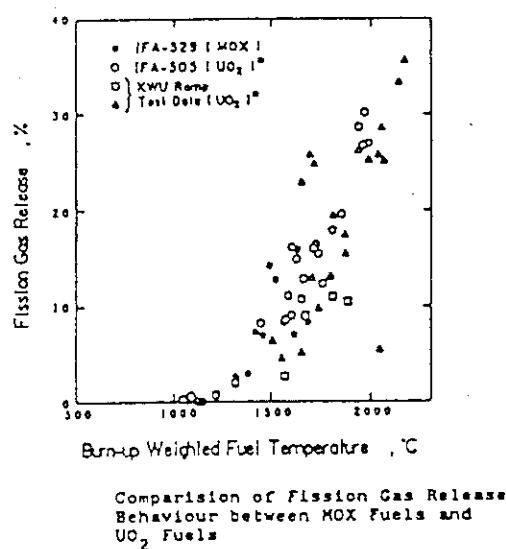
Fig. 3.3.8 MOX燃料ペレットの燃焼に伴う密度変化

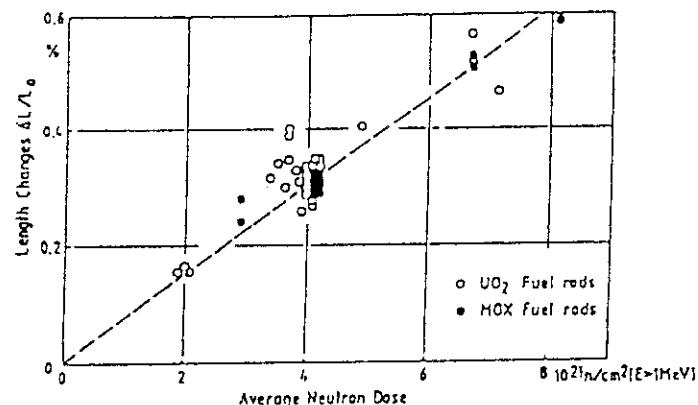
Fig. 3.3.9 UO_2 燃料とMOX燃料（MIMAS法）のFPガス放出率（燃焼度依存性）比較



Plenum Pressure in IFA-529 at Zero Power as a Function of Burn-up

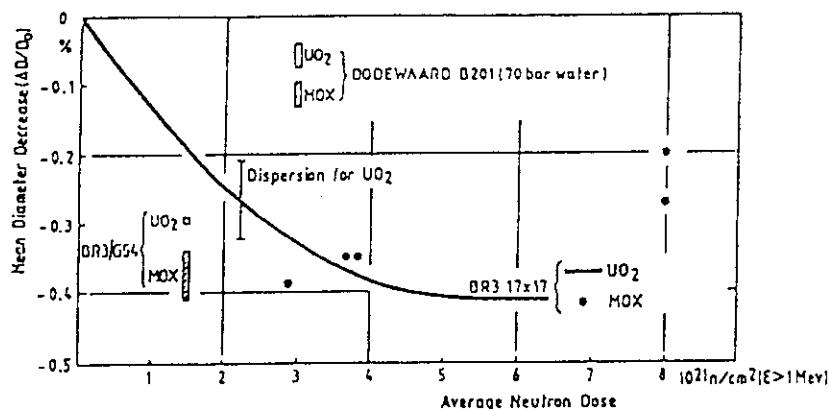
Fig. 3.3.10 MOX燃料棒内圧の燃焼度依存性

Fig. 3.3.11 MOX燃料とUO₂燃料のFPガス放出率（燃料温度依存性）の比較



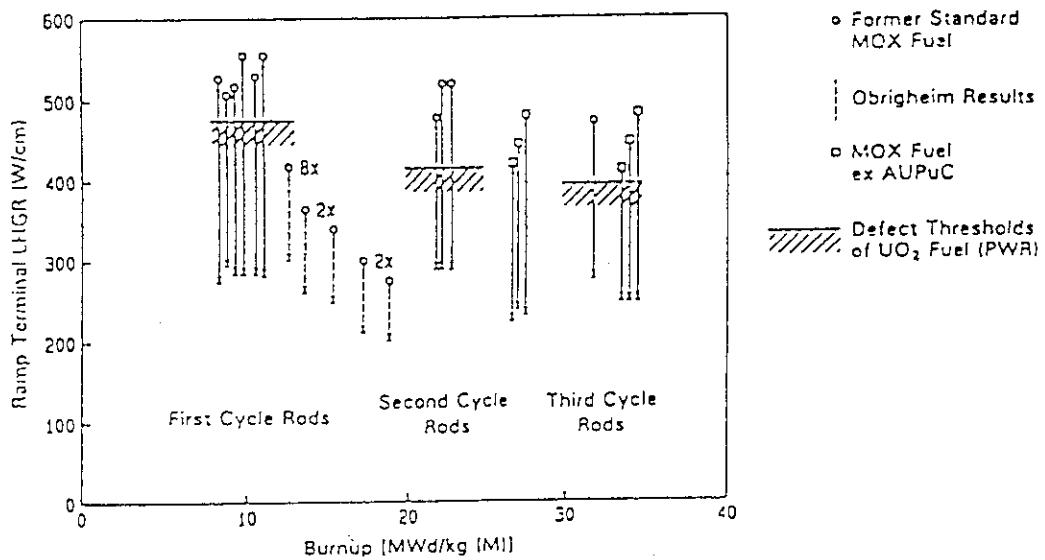
Length increase of BR3 UO_2 and MOX fuel rods as a function of neutron dose
(BN-CEN/SCK programme).

Fig. 3.3.12 MOX燃料棒全長変化と中性子照射量の関係



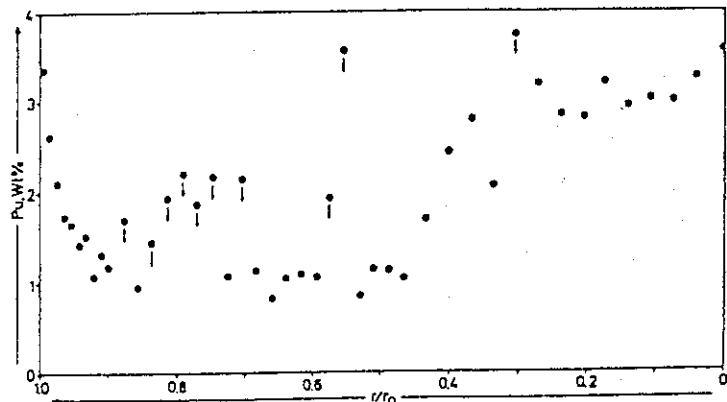
Rod diameter decrease results of MOX and UO_2 fuels for BR3 and Dodewaard experiments (BN-CEN/SCK programme).

Fig. 3.3.13 MOX燃料棒外径変化と中性子照射量の関係



Ramping experiments with MOX fuel rods in KWO and in HFR Petten (all rods are nondefective).

Fig. 3.3.14 MOX燃料棒のランプ試験結果



Radial distribution of Pu in the UO₂ matrix of the transient-tested MOX specimen PN225.

Fig. 3.3.15 出力急昇試験後MOXペレットのPuの半径方向分布

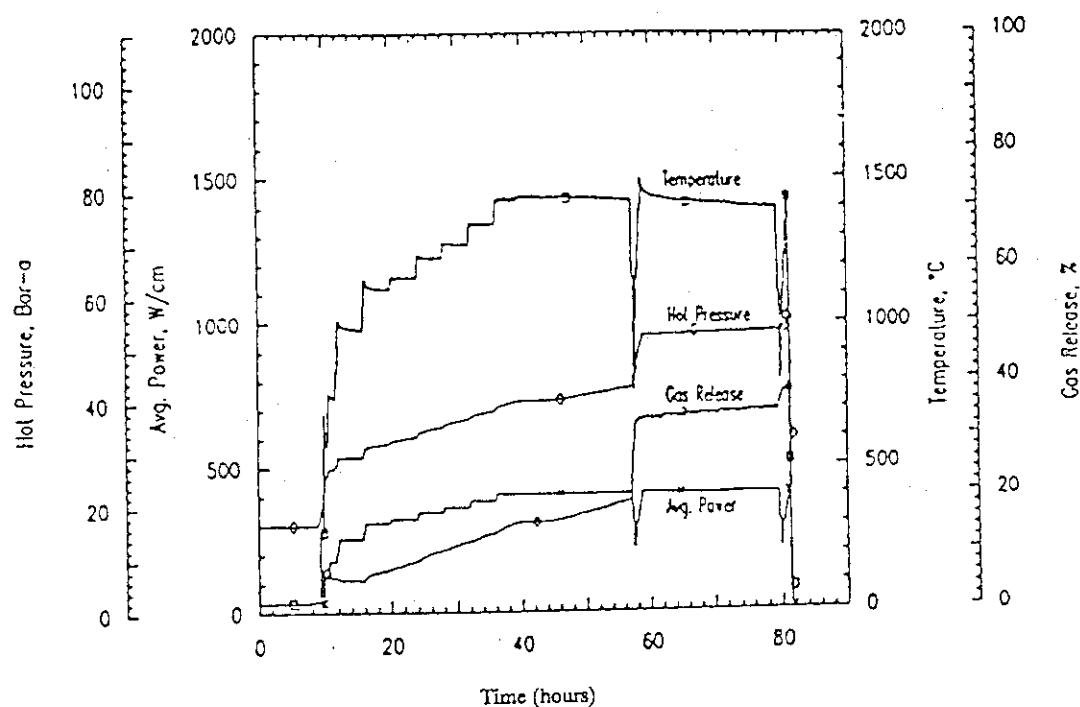


Fig. 3.3.16 RISO計画PWR仕様燃料のバンプ照射試験結果
(燃焼度4.4%FIMA)

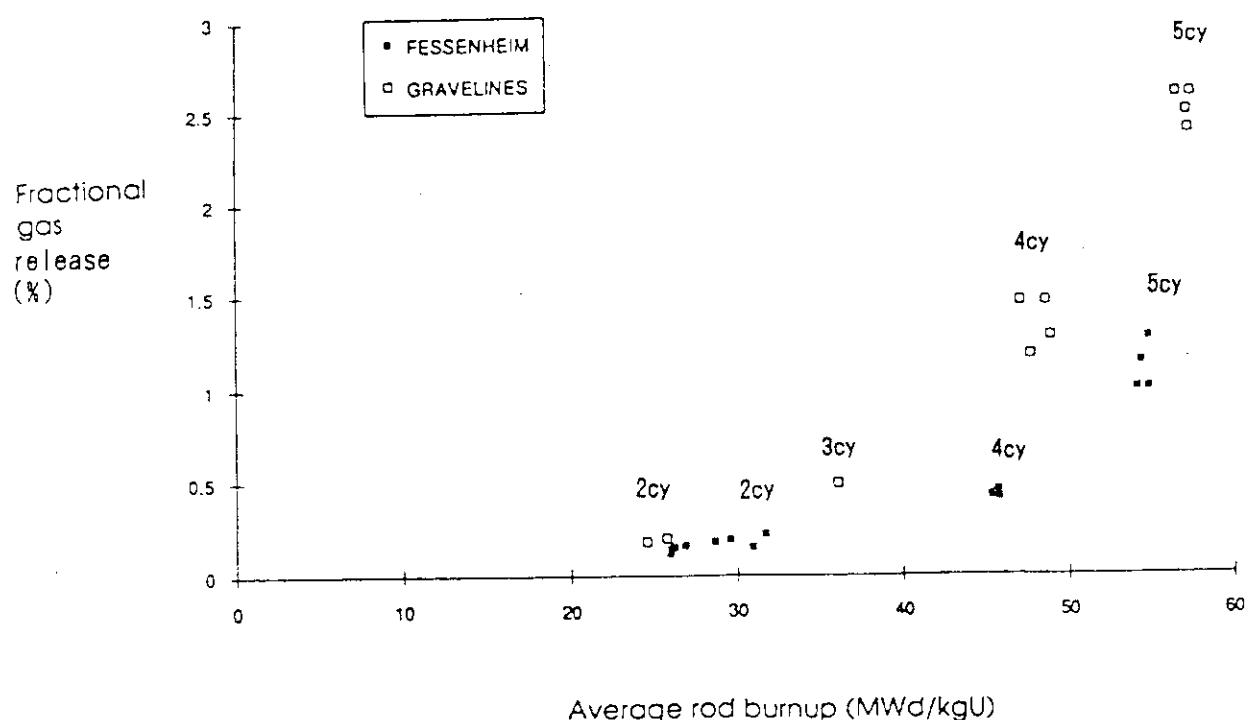


Fig. 3.3.17 PWR商用燃料のFPガス放出率

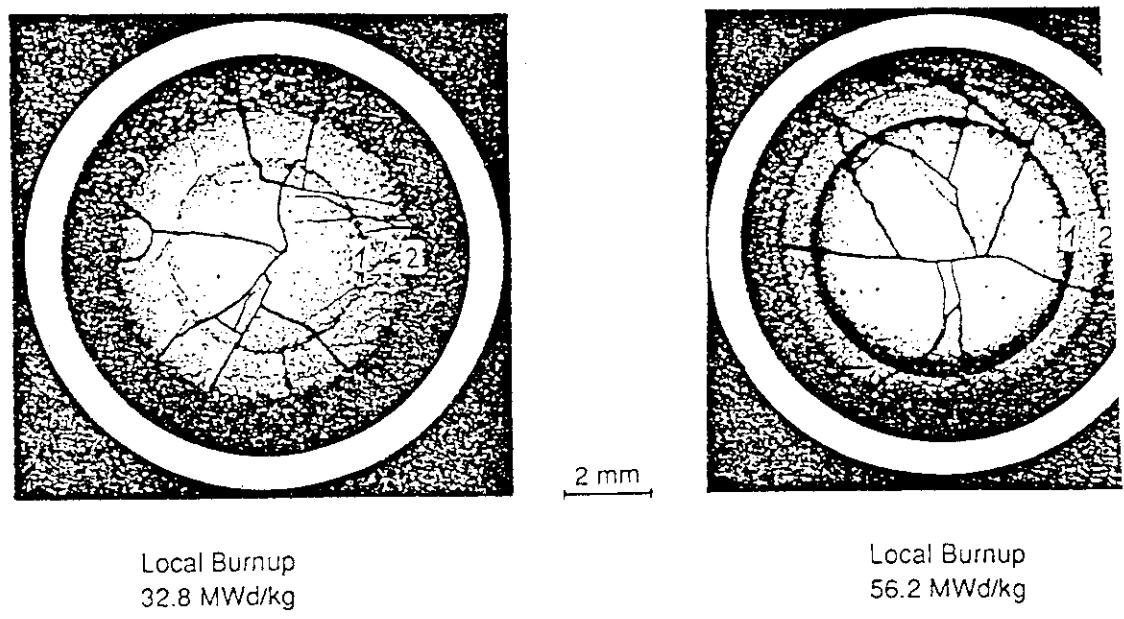


Fig. 3.3.18 中燃焼度（2 サイクル）と高燃焼度（4 サイクル）
燃料の金相断面写真

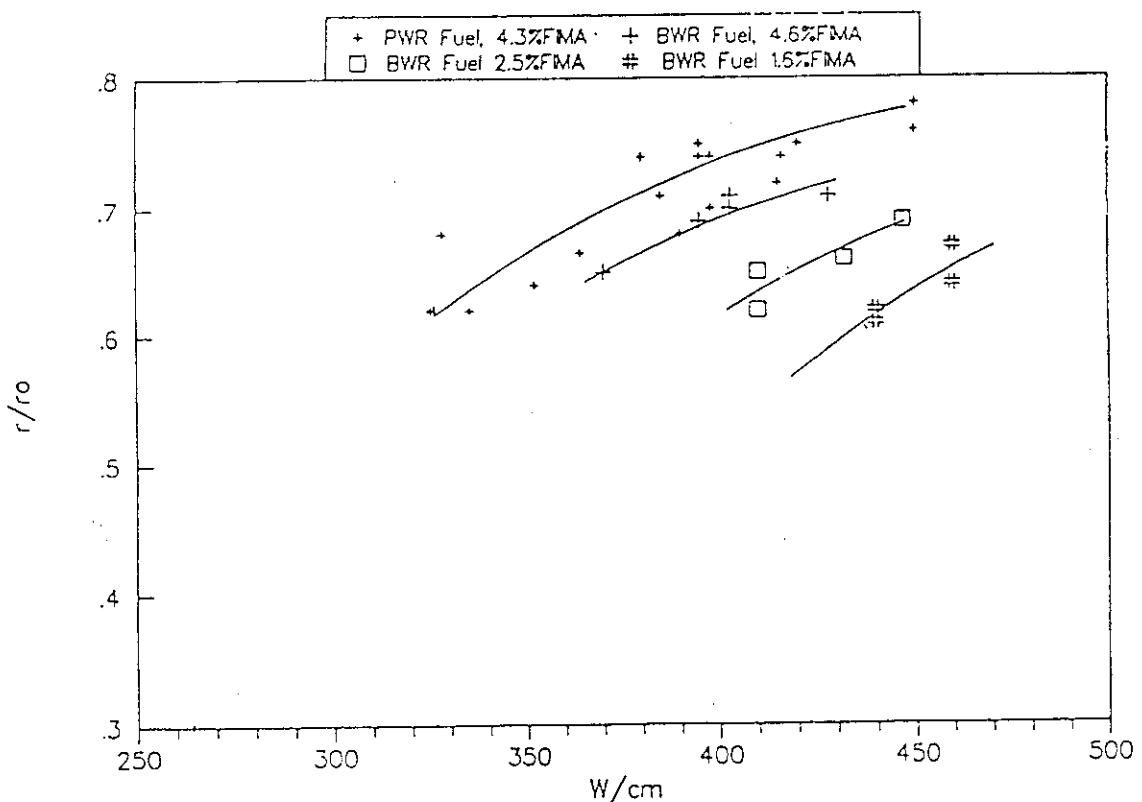


Fig. 3.3.19 RISO計画バンプ照射、36～62時間定出力保持時の
FPガス放出開始半径

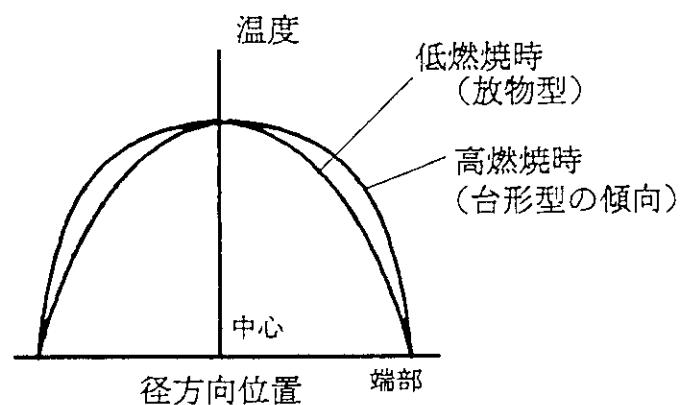
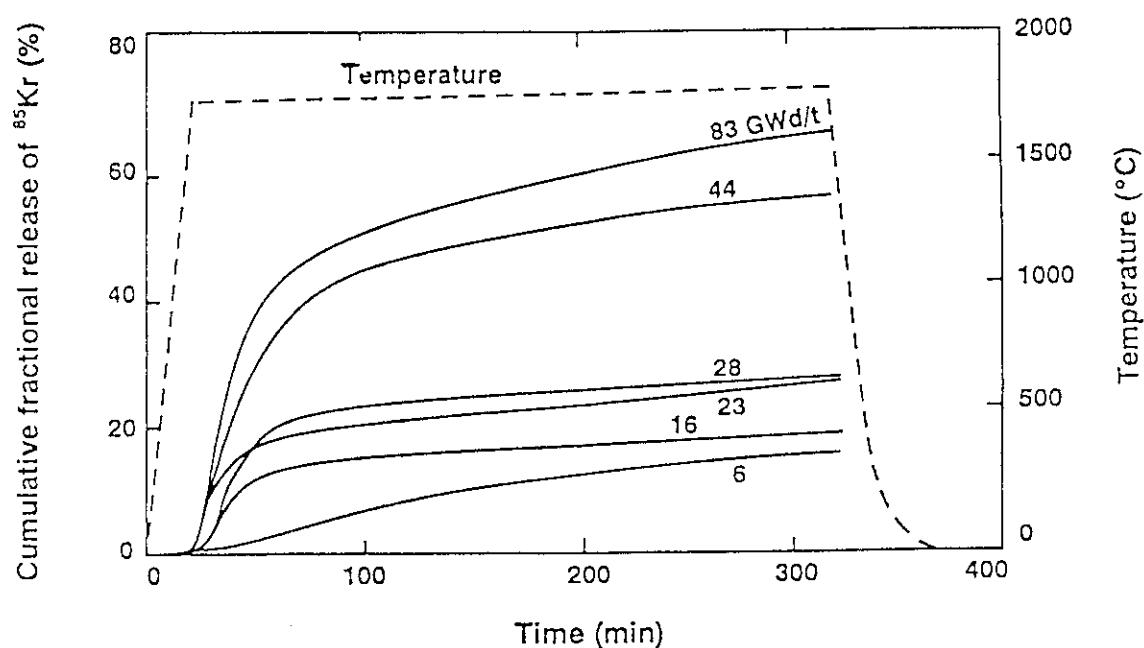


Fig. 3.3.20 燃料径方向の温度分布の燃焼度変化の模式図

Fig. 3.3.21 炉外加熱試験時 (1800°C) のガス放出 (^{85}Kr)



b) ABB 9K2-1 (1100x), $r/r_0 = 0.92$

Fig. 3.3.22 BWR仕様燃料 (53MWd/kgU) の周辺部のエッティング
(H_2SO_4/H_2O_2) で現れたエッチピット,
平面上の欠陥と推定される

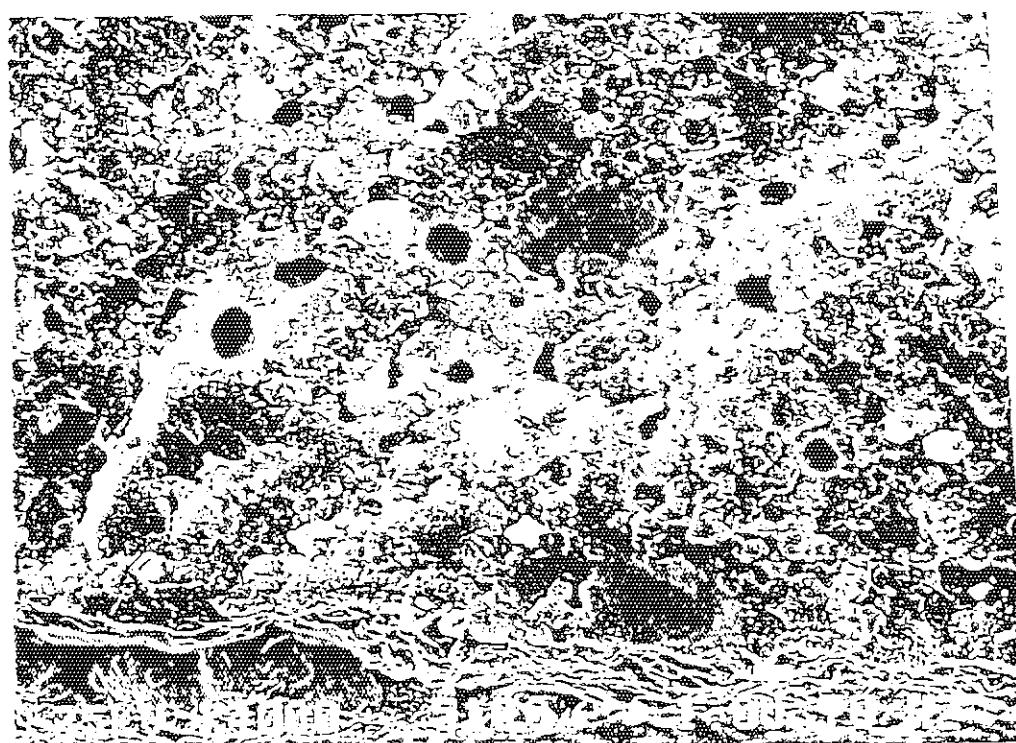


Fig. 3.3.24 SEMによるリム構造観察例 (ペレット平均燃焼度45MWd/kgUのPWR
仕様燃料のリム部。局所燃焼度82MWd/kgU)

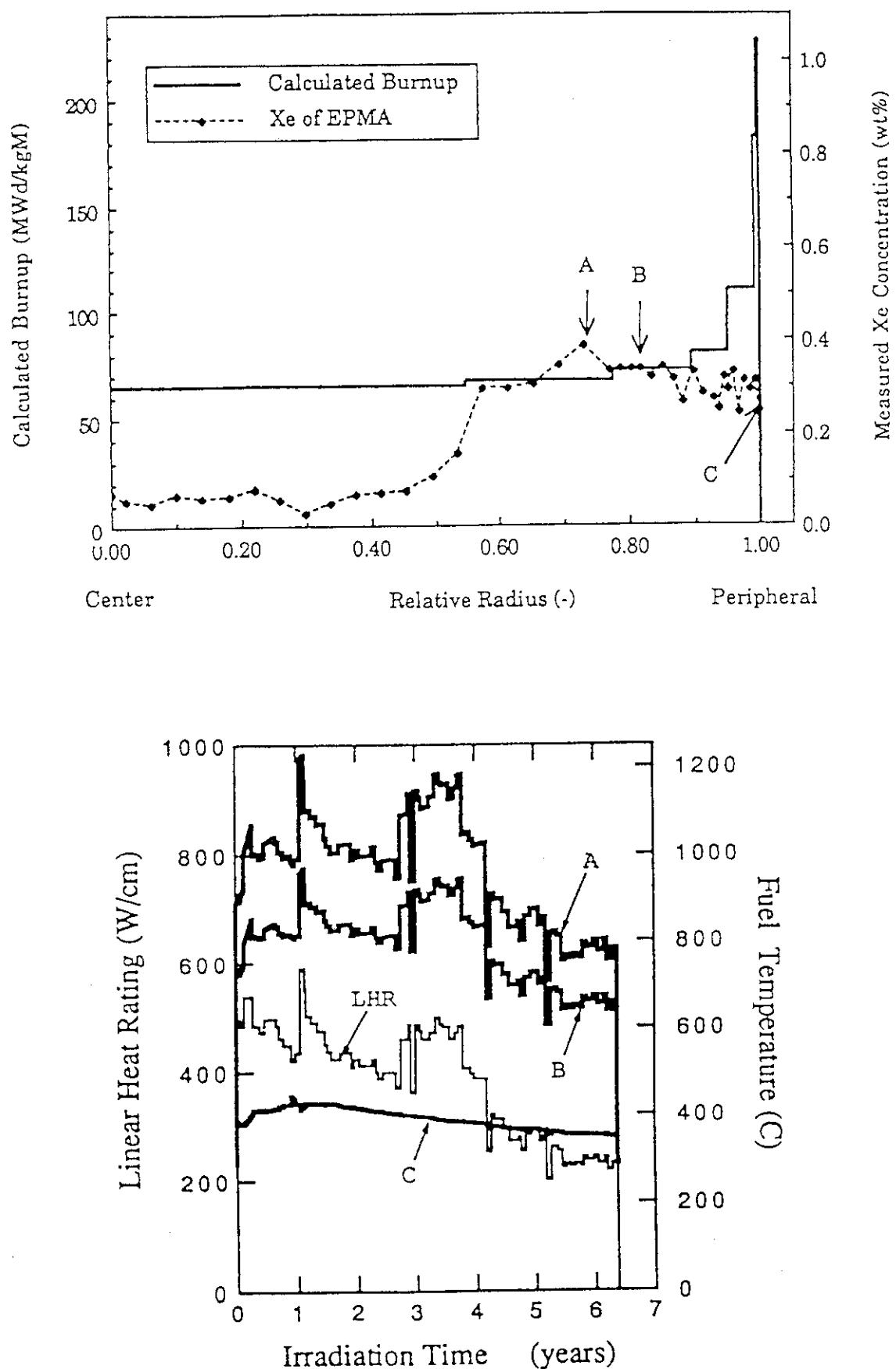


Fig. 3.3.23 燃焼度70MWd/kgU燃料のリム領域（AないしB点より外側、上図）の
温度推定結果（下図）



Fig. 3.3.25 SEMによる細粒化の観察例（ペレット径方向位置 $r/r_0 = 0.75$, ペレット平均燃焼度82MWd/kgU）

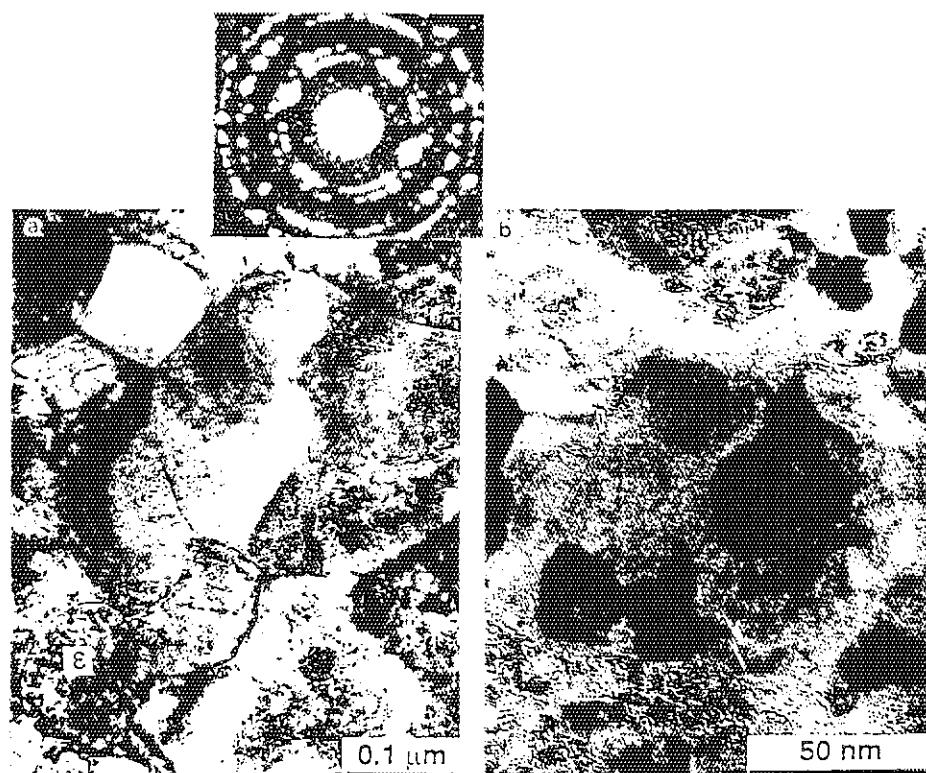


Fig. 3.3.26 TEMによるリム構造観察例。a : 細粒化構造 (fine-grained-structure) と ϵ フェーズ粒子, b : 粒界上の微小気泡, 回折像は大傾角粒界であることを示している。

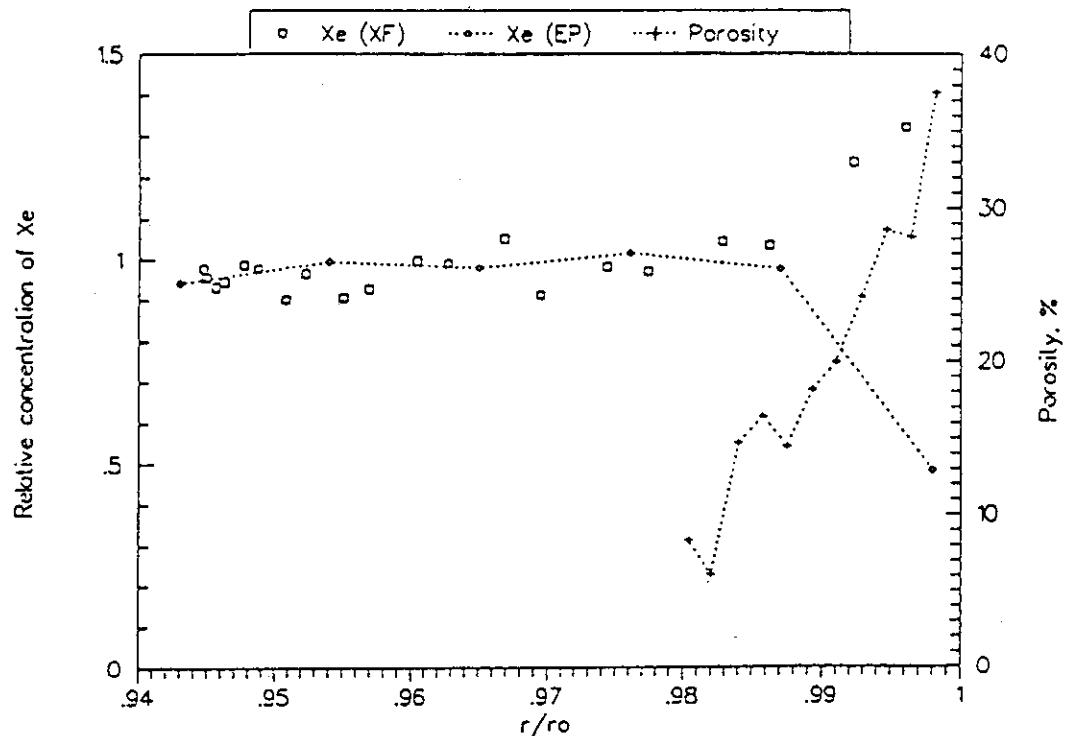


Fig. 3.3.27 リム領域の空孔分布、およびキセノンのX線蛍光分析による残留量の測定結果（ペレット平均燃焼度4.4%FIMA）

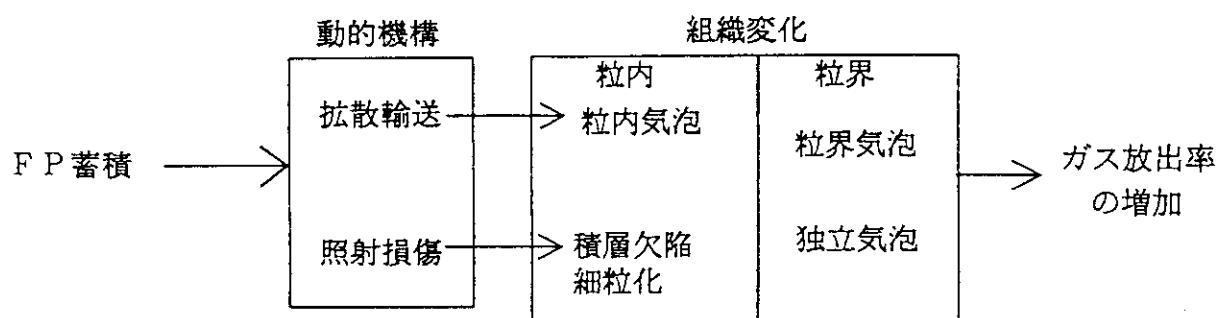


Fig. 3.3.28 ガス放出に至る燃料の挙動

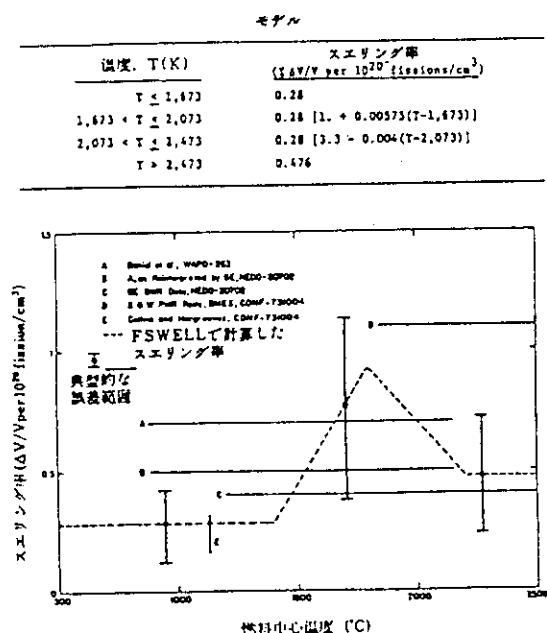


Fig. 3.3.29 MATPROにおけるスエリングモデル

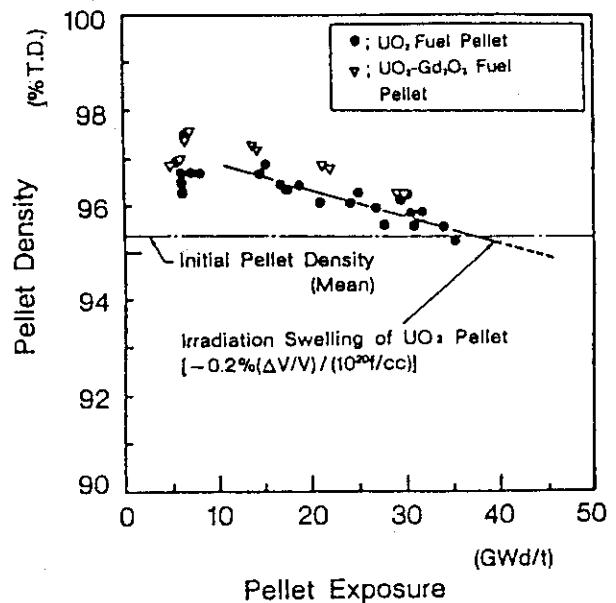


Fig. 3.3.30 日本におけるBWR信頼性実証試験データ

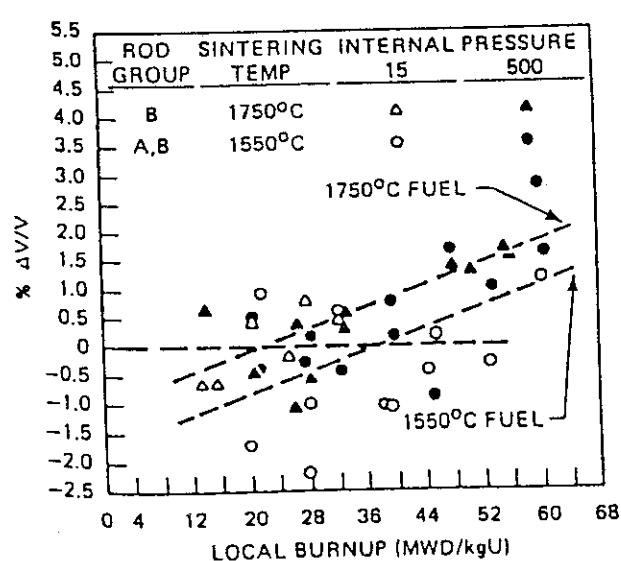


Fig. 3.3.31 Zorita炉におけるスエリングデータ

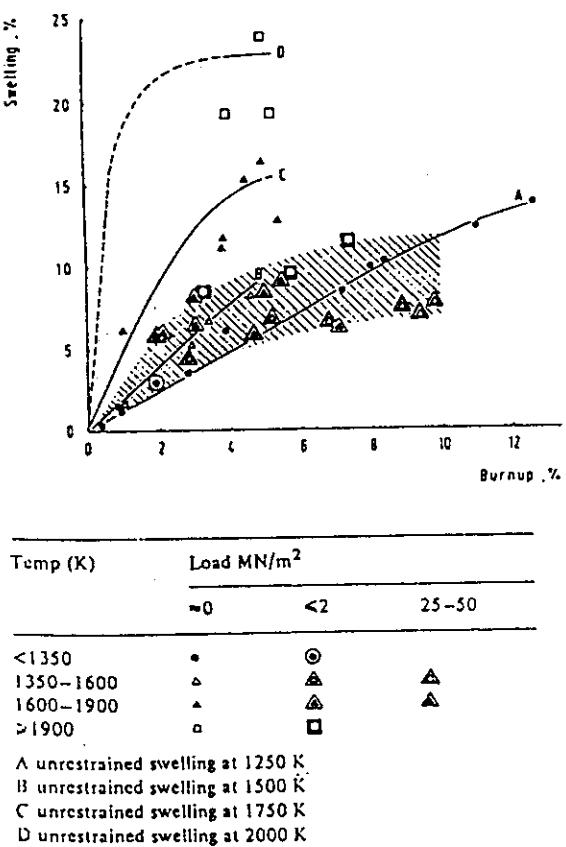


Fig. 3.3.32 高燃焼度スエリングデータ

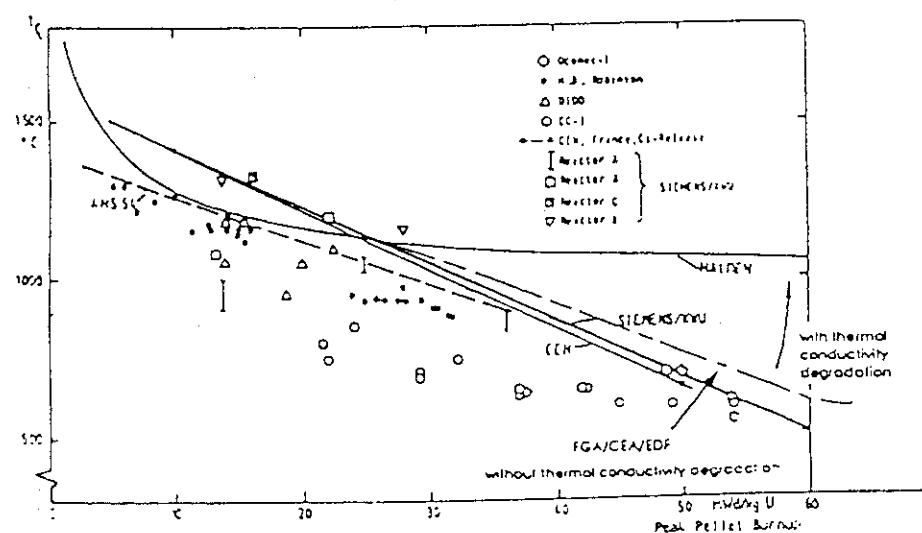


Fig. 3.3.33 FPガス放出しきい温度の燃焼度依存性
(累積放出量 1 %までの)

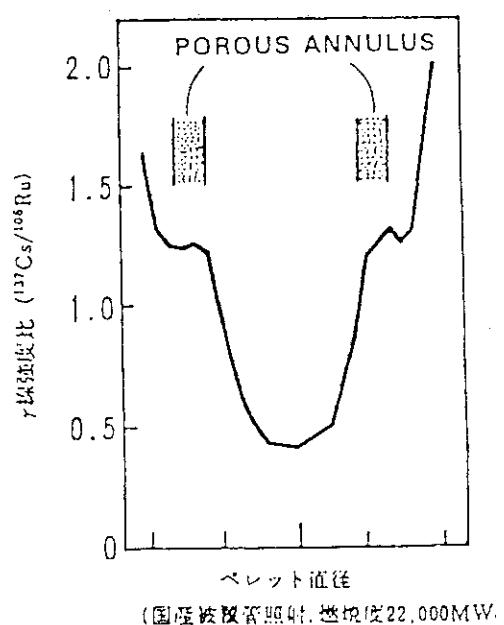
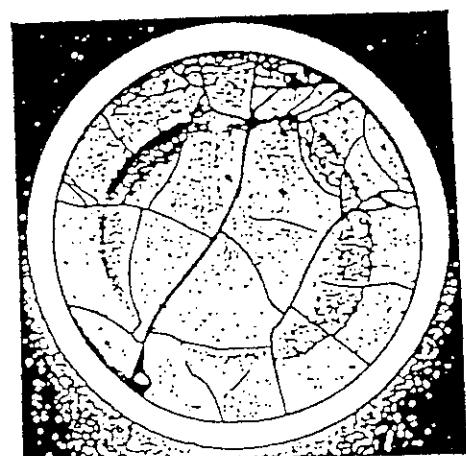


Fig. 3.3.34 敷賀炉で照射したペレット中でのCsの分布

FUEL TYPE	GRAIN SIZE (μm)
Standard solid pellets	15
Solid pellets with large grain size	47
Annular pellets with large grain size	45
Annular pellets doped with 0.25% niobia	20
Annular pellets doped with 0.45% niobia	37

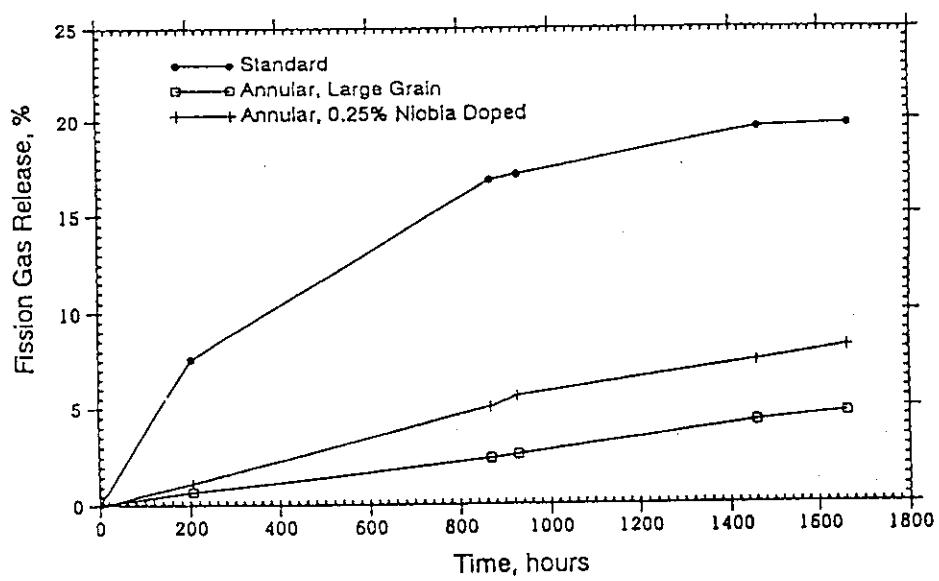
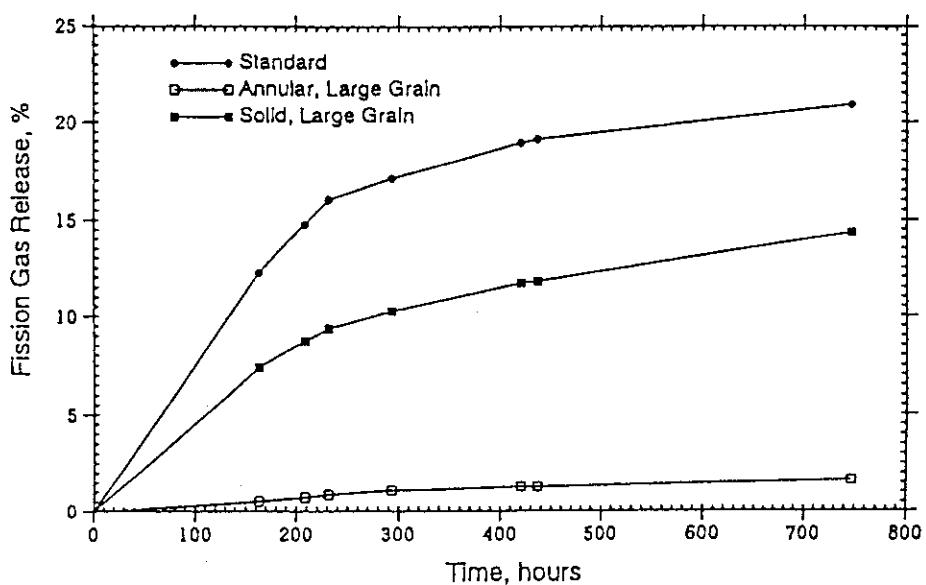


Fig. 3.3.35 FPガス放出に及ぼす結晶粒径の効果

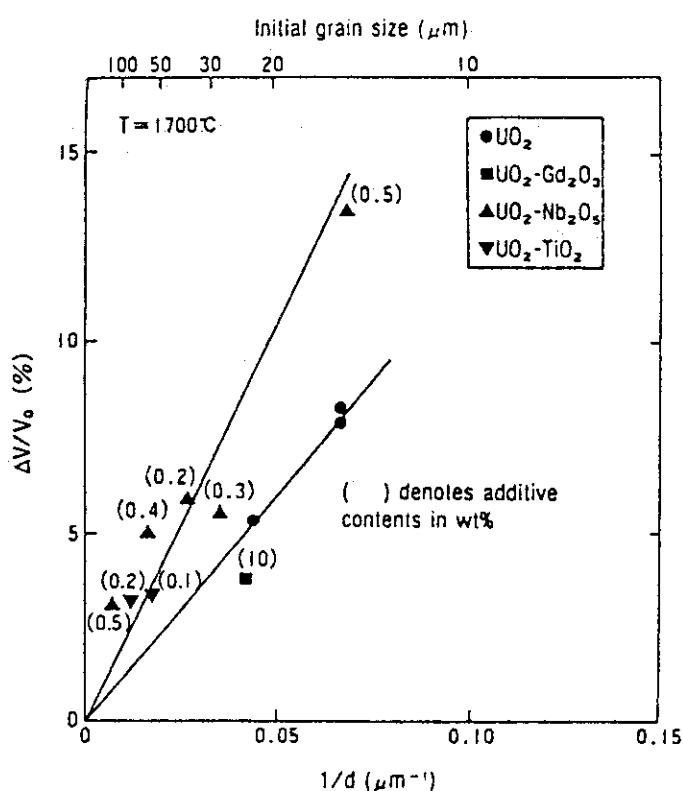


Fig. 3.3.36 スエリングに及ぼす結晶粒径及び添加物の効果
(炉外焼鈍実験による)

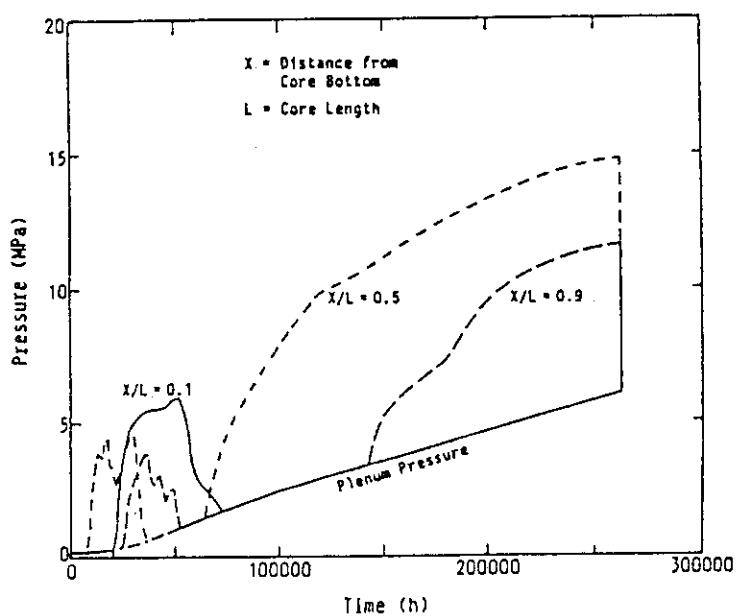


Fig. 3.3.37 ペレット・被覆管接触圧に及ぼす気体及び固体FP
スエリングの寄与

3.4 再処理性

燃料の高燃焼度化は、再処理あるいは関連バックエンド技術に少なからぬ影響を与える。従来の燃料開発は、いわゆるフロントエンド関連先発型であり、燃料の挙動把握や健全性の確認が先行的に行われてきた。これに対して、バックエンドに係る問題は燃料の成立性が明らかになってから本格的に行われる傾向が見られた。しかし、これからの燃料開発が、高燃焼度化に伴って長時間を要するようになってきた今日では、再処理を始めとするバックエンド技術に関する問題についても、燃料開発と同時に検討を始める必要性が高まっている。

3.4.1 超高燃焼燃料の再処理上の課題

超高燃焼燃料に係る燃料サイクル上の技術的問題点は、以下の4つの視点から整理することができる。

- ①再処理・廃棄物処分に関するもの
- ②群分離・消滅処理に関するもの
- ③使用済燃料輸送・貯蔵に関するもの
- ④トリウム燃料サイクルに関するもの

燃料サイクル全体の検討結果は、既に文献(1)に取りまとめられている。

再処理を始めとするバックエンド技術は、複雑な多くの要素技術の集合によって構成されており、各方面において精力的な研究が行われている。燃料溶解以降の溶液処理工程等に関する開発課題はこれらの研究成果を踏まえて打開しうるものと考え、本節では超高燃焼燃料の溶解工程を中心として、研究開発課題を整理する。本項において再処理に関する項目を取り上げ、次の4.3.2項において特に燃料の溶解性を検討する。

本検討にあたっては、今日の技術基盤を考慮し、ピューレックス法による再処理を前提とする。しかし、高燃焼度化に伴い、取り扱う使用済燃料のもつ放射能量が増大するため、例えば、溶媒を用いない乾式再処理法等の研究開発も併せて実施して行く必要のあることは当然といえる。

特に技術的に重要な課題は、MOX燃料の高燃焼度利用によって放射能、特にTRU(Np、Am、Cm)の取扱い量が格段に増加することである。例えば、7.4%富化度MOX燃料を42 GWd/t(平均)まで燃焼させると、中性子量が従来の軽水炉燃料の35倍になるという報告がある⁽²⁾。また、プルトニウムの高次化についても、上記MOX燃料の場合、プルトニウム中の²³⁸Puの割合は3.9%まで増加し、発熱対策等の必要性が高まる。TRUの蓄積が増大することは、しゃへい等の施設設計はもちろん、プロセスの安定性に大きな影響を及ぼすものと考えられている。

軽水炉燃料の高燃焼度化あるいは高性能化が再処理に及ぼす一般的な影響をTable 3.4.1にまとめて示す。その多くは溶液処理工程に与える影響であるが、そのほかに不溶解性残渣量の増加等の燃料に直接係わる項目がある。また、高富化度のプルトニウムの利用は、不溶解性残渣量の増加のほかにも、燃料の溶解性にも影響を与えることが高速炉燃料の経験から指摘されている。

3.4.2 超高燃焼燃料の溶解性

超高燃焼燃料の再処理性を評価するためのデータは極めて少ない。従って、ここではこれまでの高速炉MOX燃料や高燃焼UO₂燃料に関するデータを紹介し、今後の検討課題を整理する。なお、抽出工程、精製工程、廃棄物処理等については、文献(1)に取りまとめられないので参照されたい。

(1) 溶解性

i) 不溶解性残渣の発生

超高燃焼燃料の組成は従来の軽水炉用ウラン燃料よりもむしろ高速炉用MOX燃料に近いと考えるのが妥当である。このため、高速炉用MOX燃料の再処理に関する経験が有用であると考えられる。まず、高速炉用高プルトニウム富化MOX燃料に関する不溶解性残渣については、Kleykampによる研究例⁽³⁾がある。30%PuO₂を含むMOXの溶解試験では、次の3種類の不溶解性残渣の発生が認められている。

- CaF₂型立方晶でプルトニウム濃度の高い(U,Pu)O₂
- 六方晶の金属FP
- 主にはMoとRuを含む酸化物で、硝酸溶液から再析出したもの

最初の高いプルトニウム濃度の不溶解性酸化物は、燃料内部の柱状晶領域および外側の組織再編の起きていない領域から発生する。前者は燃料の組織観察で認められるものと同じであり、40~50%PuO₂濃度をもつ。後者は、燃料の製造時の組織が維持された領域からのものであり、いわゆるプルトニウム・スポットとして燃料中に存在する高PuO₂濃度の粒子に起因するものである。この高PuO₂濃度の酸化物粒子の発生状況は燃料特性と燃焼条件の影響を受ける。

六方晶の金属FPは、後述するMo、Tcおよび貴金属(Ru、Rh、Pd)を主成分とする析出物である。そのほか、Sn、Sb、Teを含む相の存在が指摘されている。

最後に分類された析出物はスポンジ状であり、Cr、RuおよびMoを含む。酸化物あるいは水和酸化物として溶解中、あるいは溶解後に再析出したものと指摘されている。なお、Crは被覆内面腐食によってもたらされたものと考えられている。

ii) 再処理の経験

ドンレー炉で用いられた燃料(燃焼度1~17.6%、未照射燃料を含む。積算処理量17トン)の再処理の経験からは次のことが指摘されている⁽⁴⁾。

- ① 不溶解性のプルトニウム量は、平均0.7%である。
- ② 照射燃料の溶解性と燃料の製造ルートの相違については、相関性が認められない。
- ③ 燃焼度が大きくなることによって溶解性が低下する兆候は認められていない。
- ④ Pu/U比が大きくなてもドンレー炉燃料の試験範囲では溶解性は変わらない。

動燃事業団での40 GWe/t燃焼度までのMOX燃料の溶解試験でも、溶解性は燃焼度依存性を示さず、不溶解性のプルトニウム量は0.4~0.6%であると報告されており⁽⁵⁾、ドンレー炉燃料の経験と一致している。MOX燃料の溶解性については、上述のKleykampの報告⁽³⁾から指摘されるように燃料製造工程における原料プルトニウムの形

態、混合条件、焼結条件等によって異なると考えられている。これは高温処理された PuO_2 は粉末条件でも硝酸に溶けにくいことに起因するものである。しかし、上記のドンレー炉燃料に関する経験から理解されるように、高プルトニウム濃度に起因して発生する不溶解性残渣については対策が講じられつつある。すなわち、燃料中のプルトニウムの不均一は FP ガス放出を大きくする傾向をもつことから、最近は均質性の高い MOX 燃料の製造法が開発されており、溶解性に関して大きな問題とならないことが期待できる。

燃料マトリックスの溶解性に関しては、燃焼度とともに溶解性が高くなると考えられている⁽¹⁾。

(2) 不溶解性残渣の量と組成

不溶解性残渣のなかで酸化物相については燃料の特性に強く依存するものと考えられるが、金属 FP を主成分とする不溶解性残渣は、高燃焼度化あるいはプルトニウム利用によって必然的に増加する。従って、ここでは金属 FP を主成分とする不溶解性残渣について、その特徴と研究開発課題を整理する。

i) 不溶解性残渣の量

3.2.1項で述べたように ORIGEN コードによる燃焼計算からも、高燃焼度化によって Mo、Tc および貴金属 (Ru、Rh、Pd) の生成割合が増加すると評価されており、不溶解性残渣の増加が予想される。

Fig. 3.4.1 は、 UO_2 燃料の不溶解性残渣量と燃焼度の関係を示したものである⁽⁶⁾。このことから約 0.7 GWd/t から 30 GWd/t 燃焼度のあいだでは、不溶解性残渣量が燃焼度に対してほぼ直線的に増加しており、30 GWd/t 以上では、増加の割合がやや高くなる傾向が伺われる。燃焼度が 40 GWd/t の場合には不溶解性残渣量は初期ウラン量に対して 0.4 wt% に相当することがわかる。そのほかにも不溶解性残渣量は 10 GWd/t 当たり 0.11 wt% となるという報告例⁽⁷⁾もあり、100 GWd/t では、不溶解性残渣量が 1 wt% 以上となる可能性がある。今後、高燃焼度領域における不溶解性残渣発生量の正確な把握が必要である。

ウラン燃料とガドリニア添加燃料では不溶解性残渣量の違いが観察されている⁽⁶⁾。これは初期濃縮度が異なるために、実際に核分裂に寄与した核種に相違があるためと考えらる（ウラン燃料と較べてガドリニア添加燃料の ^{235}U 濃縮度は半分近くの 1.7% であり、燃焼度が同一の場合、プルトニウムの核分裂の寄与が大きい）。このことから不溶解性残渣量は、燃料組成に依存することが示唆される。ウランとプルトニウムの核分裂収率の相違から推測されるように、プルトニウムを使用する超高燃焼燃料では、貴金属を主に含む不溶解性残渣の量が格段に増加する可能性が高い。清澄工程の適切な設計のためには、超高燃焼燃料の溶解で発生する不溶解性残渣量を把握すると共に、溶解性を高める研究が必要となる。

なお、不溶解性残渣量の形態は、燃料の使用条件（例えば、線出力）によって変化することが指摘されている⁽³⁾。すなわち、高線出力で照射された場合、組織再編や燃料内での金属析出物の成長によって大きな不溶解性の粒子ができやすい。これに対して、軽水炉条件のように低出力で照射された場合には、組織再編が起りにくく、従って不溶

解性の粒子は微細となる。微細粒子の場合、溶解性を高めることが可能であると考えられるため、燃料特性ばかりでなく、燃料の照射条件と不溶解性残渣量との関連を調べる必要がある。

ii) 不溶解性残渣の組成

UO_2 燃料からの不溶解性残渣に関する元素分析 (Mo、Tc、Ru、Rh、Pd) の結果をFig.3.4.2に示す⁽⁶⁾。この結果から、一部のデータを除いて、 UO_2 燃料では上記元素の存在割合は燃焼度に大きく影響されないことが示唆されており、Ruが最も多く、次いでMoが定量されている。これらの金属は不溶解性残渣重量の70%以上を占める⁽⁸⁾。しかし、これらの金属元素の全てが不溶解性残渣中に取り込められているわけではない。Fig.3.4.3には不溶解性残渣中に認められた金属量とORIGENコードによる金属生成量とを比較した結果⁽⁸⁾を示すが、Ru、Rhの60から40%が不溶解性残渣中に存在すると考えられるのに対して、Moで約16%、Pdで約14%、Tcは約3%となっている。高速炉MOX燃料の場合では、生成したRuの2/3が不溶解性残渣中に認められている⁽⁸⁾。また、 $\text{Mo}_{0.29}\text{Ru}_{0.59}\text{Pd}_{0.12}$ 合金の硝酸中での溶解試験では、Pdの選択的な溶解が観察されている⁽⁹⁾。さらに、溶解速度に関しては、Ru、Rhが $0.01\text{mg}/\text{cm}^2\cdot\text{h}$ 以下であるのに対してPdは $10\text{mg}/\text{cm}^2\cdot\text{h}$ という大きな数字が示されており⁽¹⁰⁾、上記の分析結果と同様の傾向を示す。これらの金属の不溶解性残渣への移行割合と溶解特性の把握は、今後ともデータの蓄積が必要である。

不溶解性残渣のX線回折試験によれば、結晶形は六方晶 ($a = 0.2751-0.2768\text{ nm}$ 、 $c = 0.4413-0.4448\text{ nm}$) でルテニウム合金 (ε 相) と同じパターンを示す。この結果は、照射(5%FIMA)を模擬した燃料で観察されたもの⁽¹¹⁾と同様である。さらに、燃焼度を模擬した燃料に関する観察から、Fig.3.4.4に示すように燃料熱処理温度や雰囲気によって不溶解残渣中の化学成分割合が変化することが報告されており⁽¹²⁾、3.2節述べた、FPの化学形態が酸素ボテンシャルの影響を強く受けることと関連する。

一方、ガドリニア燃料の結果⁽⁸⁾は UO_2 燃料と様子が異なり、Pdの存在比が大きくなっている反面、Moの割合低下が顕著である。また、各金属の存在割合が燃焼度の伸長に伴って変化していることが観察されている。上述の不溶解性残渣量の場合と同様、ガドリニア添加燃料では ^{235}U のほかにプルトニウムの核分裂が影響することによるものと推測される。従って、不溶解性残渣中に存在するFP核種の量や種類が濃縮度や燃料組成に強く影響されることを示している。

その他、燃料棒のせん断の際に発生するジルコニウム粉末や、燃料棒表面のクラッド成分 (Al、Ca、Si) の観察が報告されている⁽⁸⁾。

iii) 不溶解性残渣中のプルトニウム

UO_2 燃料の場合には、不溶解性残渣中のプルトニウム量は0.03から0.08%であることが報告されている。この量は、全プルトニウムの0.005%から0.02%に相当する⁽⁸⁾。このことはプルトニウムが難溶性 PuO_2 の形、あるいは金属析出物の形で不溶解性残渣中に有意に取り込まれることは無いことを意味すると考えられている。一方、高速炉MOX燃料から発生する不溶解性残渣では、60%がアクチノイド (30-40% Pu、20-30% U、1% Am)、30%がFPと被覆材、10%が酸素であると報告されている⁽³⁾。

ただし、この結果ではアクチノイドの割合が高くなっているが、試験に用いられた燃料は古い燃料製造法で作られたものであり、最近の燃料ではPuの均質性が高くなっている、不溶解性残渣中への残留は小さくなるものと推測される。同様に古い燃料製造法で作られた高速炉MOX燃料では、1.9-4.5%のPuの残留が報告されているほか、軽水炉用プルサーマル燃料($U_{0.86}Pu_{0.04}O_2$)では1.3%のPuが不溶解性残渣中に残留していることが観察されている⁽³⁾。プルトニウムは貴金属と金属間化合物を作りやすい。また、共沈法で製造された混合酸化物の場合でも35% PuO₂を超えると、硝酸だけで溶解することが困難となる⁽¹³⁾。従って、高プルトニウム富化MOX燃料の場合にも、不溶解性残渣中へのプルトニウムの取込みを小さくできるかという点については、今後確認が必要である。

(3) ハル

再処理後に廃棄物として処理されるハルについても、含有する放射能量が燃焼度とともに増加することが明らかにされている。Fig.3.4.5はハル内面および外表面における全 α 放射能量と燃焼度との関係を示す⁽⁴⁾。これから高燃焼度化に伴いハルに随伴する α 放射性核種（主にはプルトニウム等の超ウラン元素）が無視しえない量になりうることが示唆される。なお、外表面に較べて内表面において放射能量の増加が顕著なことから、超ウラン元素が被覆管内面に固着したり、あるいは打込まれていることが予想される。

γ 線放出核種に関しては、ハルと随伴する放射能量は α 核種と較べて燃焼度依存性は顕著でなく、FP核種の種類によって異なる傾向を示すようである⁽⁶⁾。

3.4.3 TRU添加燃料の再処理

燃料中のTRUの存在は再処理プロセスに影響を与える可能性をもつ。均質サイクルで想定されている2%程度のTRU添加量は、再処理性に大きな影響を与えないことも考えられるが、TRU添加量の増加に伴って既存のピューレックス法を基礎とした技術では対応できなくなることが予想される。このため、乾式法を含めた新しい技術の開発が必要である。

TRU酸化物の溶解性に関しては、ネプツニウムの場合、特に問題がなく、アメリカンおよびキュリウムはプルトニウムと同程度と考えられている⁽¹⁾。従って、TRU添加燃料の溶解性については、高プルトニウム富化MOX燃料と比較した場合、大きな課題にはならない可能性が高い。ただし、湿式法による再処理を考える場合には、高放射能による溶媒劣化を抑制するため、溶媒抽出工程の前で高い放射性物質を除去することを検討する必要がある。例えば、晶析法のような技術を用いて、非溶媒系でプルトニウムやTRUを存在量の多いウランと分離するプロセス等の開発が必要になると考えられる。

3.4.4 まとめ

高燃焼度燃料に関しては、燃料挙動ばかりでなく、燃料の再処理性についてもデータが少ないので実情である。むしろ、再処理に関する研究は燃料開発よりも遅れていると

言うこともできる。このため、超高燃焼燃料の再処理性について正確な評価を行うためには、今後のデータの蓄積を待たなければならない。しかし、高速炉MOX燃料についてもピューレックス法によって再処理を行う方向で研究が行われており、今後の研究の積み重ねによって軽水炉超高燃焼燃料の再処理技術についても情報の蓄積が進むものと期待される。

参考文献（3.4節）

- (1) 内藤淑孝、古田照夫、市川博喜、高野秀機, "超長寿命軽水動力炉心の設計研究", JAERI-M 91-028 (1991).
- (2) C. Aycoberry, "Reprocessing in France: situation and prospects", Proc. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, vol.1 (1987) p.13.
- (3) H.Kleykamp, "The composition of residues arising from the dissolution of irradiation fast breeder mixed oxide fuel", Nuclear Fuel Cycle, Verlag Chemie GmbH, Weinheim, 1982, p.151.
- (4) J.D.Frew, O.Pugh, D.Thorn, "Operational experience in reprocessing fast reactor fuel at Dounreay", Proc. Fast Reactors and Related Fuel Cycles, 1991, p.156.
- (5) J.Ohuchi et al., "Reprocessing experiments on FBR spent fuels in CPF", Proc. on Fuel Reprocessing and Waste Management, Jackson, Aug. 26-29, 1984, p.108.
- (6) 化学部溶解試験グループ, "使用済燃料の溶解試験", JAERI-M 91-010 (1991).
- (7) 渡辺他, "使用済燃料の特性試験(III) 不溶解性残渣の性状", 日本原子力学年会 昭和62年年会要旨集II (1987) 149 .
- (8) T.Adachi et al., "Dissolution study of spent PWR fuel ; Dissolution behavior and chemical properties of insoluble residues", J. Nucl. Mater. 174 (1990) p.60.
- (9) T.Matsui et al., "Dissolution of a simulated fission-produced noble metal alloy in nitric acid solution at 383 K", J. Nucl. Mater. 174 (1990) p.16.
- (10) H.Renner, Ullmanns Encyklopaedie der Technischen Chemie, 18 (1979) p.702.
- (11) T.Muromura et al., "Metallic phases precipitated in UO₂ fuel I. Phases in simulated fuel", J. Nucl. Mater. 151 (1988) p.318.
- (12) T.Adachi et al., "Metallic phases precipitated in UO₂ fuel Insoluble residue in simulated fuel", J. Nucl. Mater. 160 (1988) p.81.
- (13) E.L.Nicholson, ORNL/TM-5903 (1977).

Table 3.4.1 軽水炉燃料の高度化が再処理に及ぼす一般的影響

燃料性状の変化	一般的影響	施設上の対策
F P核種の増加	不溶解性残渣の増加 $\beta - \gamma$ 放射能量の増加	清澄工程での分離除去の強化 抽出工程でのクラッド生成の抑制 溶媒劣化の抑制
T R U核種の増加	燃料中T R U酸化物量の増加 中性子線量の増加 α 放射線量の増加 T R U廃棄物発生量の増加	溶解性の改善 中性子しゃへいの強化 精製工程での溶媒劣化および水素生成への対策 T R U分離・制御の最適化 廃液からのT R U分離回収
U濃縮度およびPu濃度の増加	臨界管理上の制約の増加	臨界管理技術の高性能化
Pu核種の高次化	製品中のAmの蓄積 製品自身の放射線量增加	燃料加工時期の最適化 再加工施設のしゃへい強化 転換・再加工工程でのしゃへい強化 製品除染係数の最適化
添加物等の第3成分の増加	高レベル廃液中塩濃度の増加	高レベル廃液処理工程の最適化
被覆管の性状変化	被覆管等固体材料の脆化	せん断前処理工程の最適化

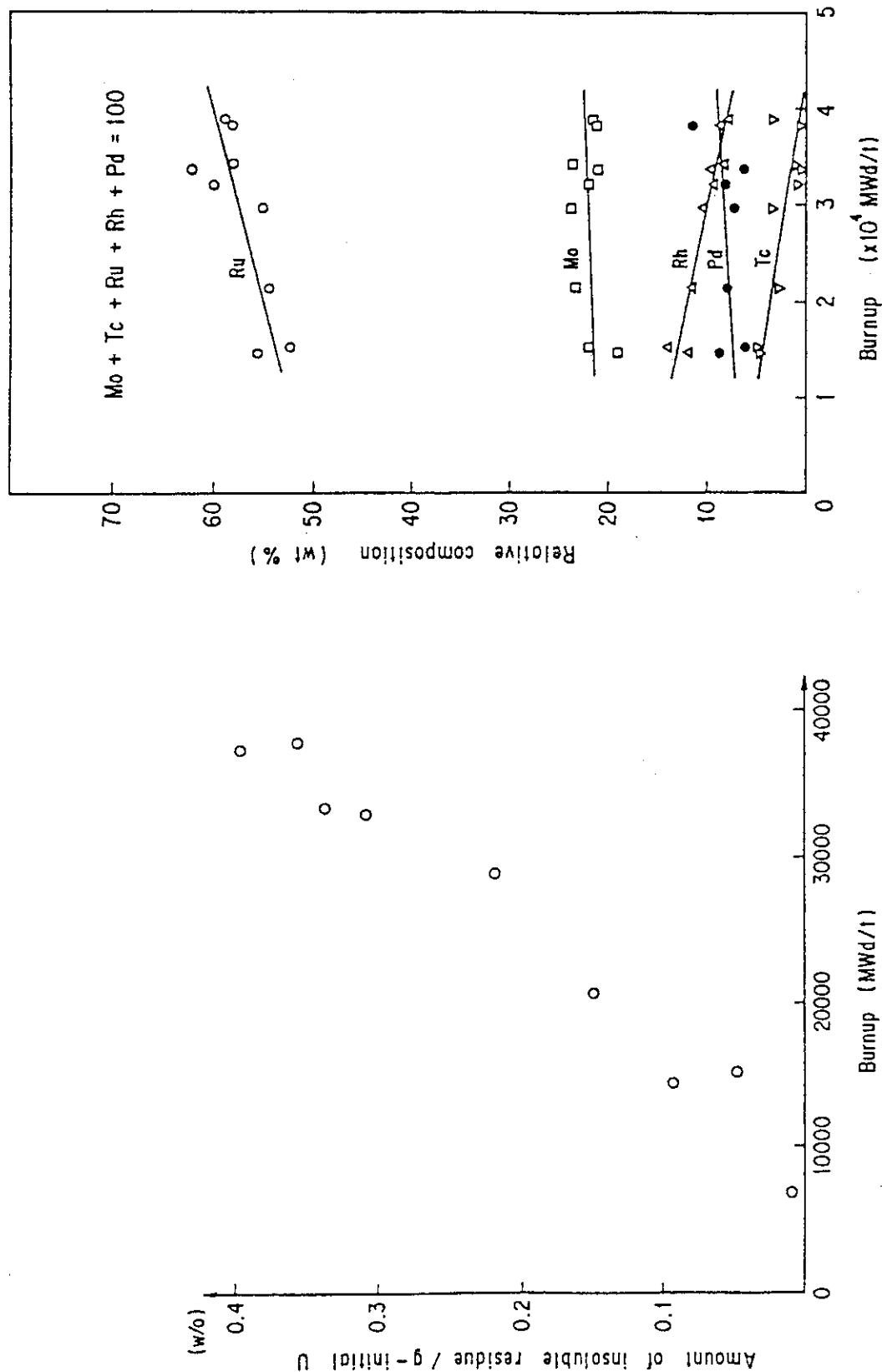


Fig. 3.4.2 不溶解性残渣中の貴金属の組成
燃焼度との関係

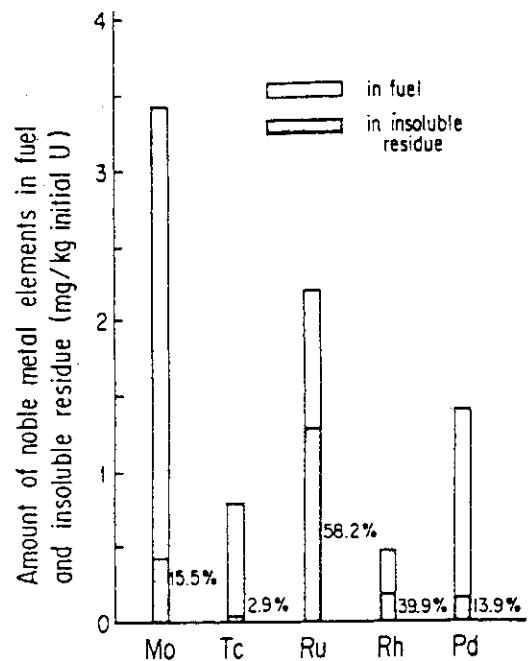


Fig. 3.4.3 ORIGEN2による貴金属生成量評価
値と不溶解性残渣中の貴金属量
(34.1GWd/t)

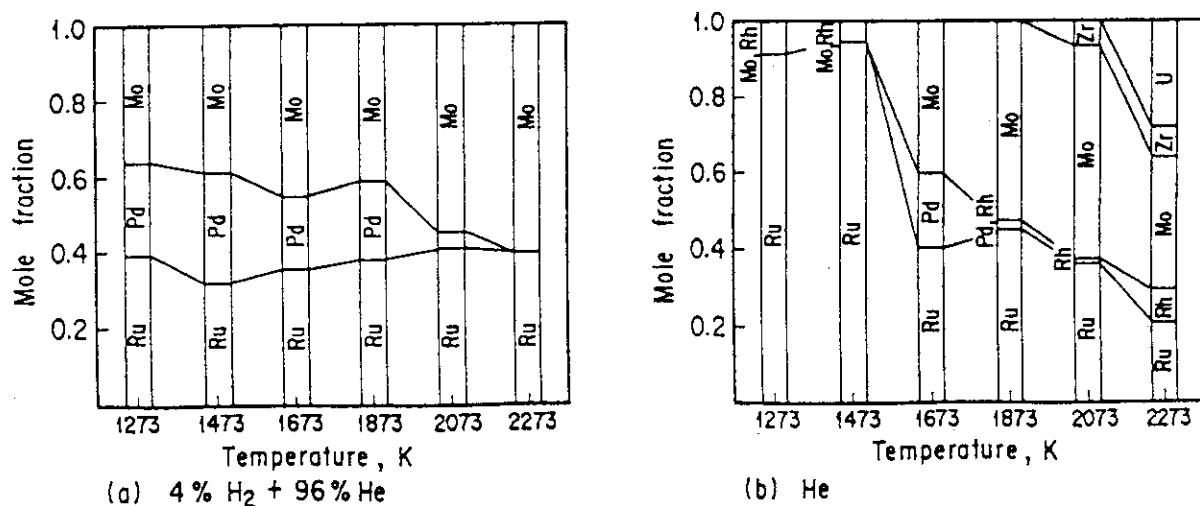
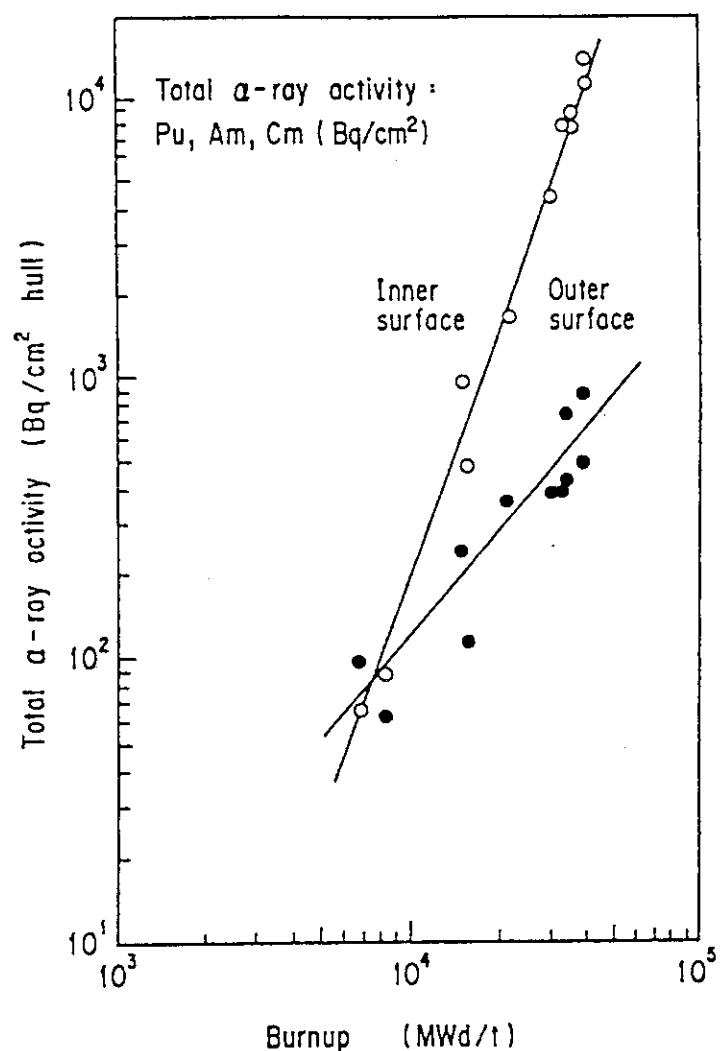


Fig. 3.4.4 不溶解性残渣組成に対する熱処理効果 (5% FIMA)

Fig. 3.4.5 ハルにおける全 α 放射能 (3 M-HNO₃ 溶解)

4. TRU 添加燃料の研究開発課題

4.1 概要

TRUが添加された燃料（以下、TRU添加燃料）の成立性を調べるためにには、燃料の製造、設計、照射挙動等について評価を行わなければならない。しかし、これまでTRUを燃料として用いる考え方で各物性値を整備した報告は殆んどなく、超高燃焼燃料開発の観点からTRU添加燃料の基礎的な物性値を整備し、あわせてTRU添加燃料の開発に関する研究課題を摘出する必要がある。

その第一段階として、ネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)およびキュリウム(Cm)の酸化物およびこれらのTRU元素とウラン(U)、またはプルトニウム(Pu)との混合酸化物の結晶学的データ、熱物性、熱力学的性質等の基礎的な物性値について文献調査を行った。酸化物に限ったのは、軽水炉用 UO_2 燃料およびプルサーマル用MOX燃料の実用化の現状、ならびに高速炉用MOX燃料の開発の現状を考慮すると、酸化物が実用化に最も近い位置にあることと、物性データが最も充足しているであろうと予測されたことによる。調査結果を以下の4.2節に示す。

TRU添加燃料の製造については燃料の均一性が、またその取扱いについては被曝および臨界に起因する制限がより厳しいものとなる。4.3節ではこれらの検討を行うとともに、将来の新型燃料ペレットの開発の必要性およびTRU添加燃料の製造に関する開発課題に言及した。

また、照射挙動については、TRU入り酸化物燃料の照射実績は少なく、これまでに得られた情報はわずかである。最近ではフランスCEAおよびEC超ウラン元素研究所(TUI)が共同で行ったSUPERFACT計画、および米国バッテル研究所と英国Harwell研究所が共同で英国PFR炉で照射した計画がある。4.4節では、すでに一部発表されたSUPERFACT計画の結果に基づき照射挙動の検討を行った。

4.2 TRU酸化物の物性

TRU酸化物の物性を調査するにあたって対象とした文献は、おもにINIS(International Nuclear Information System)のデータベースを用いて調査し、一部検索した文献中の文献(孫引き)も調査対象として、計36件の文献を選定した。INISを用いた文献検索では、対象となるTRU元素に関連した図書、会議録、論文等を選択し、燃料製造や照射挙動に関連した基礎的物性等の項目を検索用語として検索を行ったが、文献の充足度は全般的に低く、特に80年代後半における文献は少なかった。なお、今回の文献調査では、再処理・廃棄物関係の文献は割愛した。

選定した文献の内容調査は、Table 4.2.1に示す調査項目リストに従って分類し、各項目ごとの調査結果をあらかじめ定めた文献調査表にまとめる方式とした。なお、磁気的、電気的性質に関する文献が幾つか検索されたが、部分的にしか検索できなかつたことと、燃料としての物性には直接関連しないとの判断により、本検討からは除外した。以下に調査結果について述べる。

4.2.1 結晶学的性質（結晶構造、格子定数、密度、状態図等）

Np-O系の代表的な状態図をFig.4.2.1a⁽¹⁾および4.2.1b⁽²⁾に示す⁽²²⁾。立方晶 (UO_2 と同じ萤石構造)、 NpO_2 および Np_2O_5 (单斜晶)が安定に存在するほか、金属表面膜としての NpO (立方晶)、 Np (V)からの沈澱物および熱分解や焼灼によって得られる NpO_3 、 H_2O (斜方晶)や Np_3O_8 (斜方晶)などが不安定に存在する。また、 Np_2O_3 (六方晶)については、 NpO_2 を気化させた残渣として検出されているものの、純粹物質としては分離されておらず、正確な組成および安定性については不明である⁽³⁶⁾。 NpO_3 は安定に存在しないことが熱力学的評価から推定されている⁽³²⁾。なお、 Np_2O_3 が安定に存在することを仮定したNp-O系の予備的な状態図⁽³⁶⁾も提案されている。Am-O系の状態図をFig.4.2.2^(24, 25)に示す。萤石型立方晶の AmO_2 、 AmO_{2-x} のほか、A、BおよびC型の Am_2O_3 が安定に存在する。

Am_2O_3 は、 AmO_2 の水素中還元によって得られ、低温相から順にC型(BCC、~800°C)、B型(单斜晶、450~950°C)、A型(六方晶、800°C以上)が存在する。 AmO_2 と Am_2O_3 の中間相についてはデータが少なく、わずかに250°Cまでに AmO_2 に対して格子定数が若干大きな $\alpha-\text{AmO}_{2-x}$ 、250°Cで $\alpha-\text{AmO}_{1.71}$ 、500°Cで $\sigma-\text{AmO}_{1.5+x}$ を経て、600°C以上でC- Am_2O_3 (bcc)が得られたと報告されている⁽²⁰⁾。また、金属表面にAmOが生成するという報告がある。なお、O/Amが2を越すものは報告されていない。

Cm-O系の状態図をFig.4.2.3^(24, 25, 26, 34)に示す。Am-O系と同様に、 CmO_2 、A-、B-、C- Cm_2O_3 、 CmO_{2-x} (α)、 $\text{CmO}_{1.5+x}$ (σ)などが存在する。そのほかに、中間相として $\text{CmO}_{1.72}$ (τ)と $\text{CmO}_{1.81}$ (δ)が報告されているが、X線分析では検出されていない⁽²⁴⁾。その理由としては、²⁴⁴Cmの α 崩壊で格子損傷したものと推定されている⁽²⁴⁾。また、 $\text{CmO}_{1.50-1.71}$ の間に新しい相が検出されたとの報告⁽³⁰⁾もあり、状態図は十分確立していない。CmOはガス相のみというもの⁽²⁵⁾と金属表面に生成されたとするもの⁽²⁶⁾がある。

B- Cm_2O_3 からA- Cm_2O_3 への相転移温度は、 Am_2O_3 の場合より高く1615°Cであるが^(15, 24)、11~54mol%の Gd_2O_3 を固溶すると1700~1860°Cまで高くなる⁽²⁴⁾。さらに、 Cm_2O_3 の高温相として2000°CでH- Cm_2O_3 が、2210°CでX- Cm_2O_3 が報告されている^(24, 25)。 CmO_2 は、380°Cから分解して $\alpha-\text{CmO}_{2-x}$ となり^(20, 25)、さらに500~600°Cで $\tau-\text{CmO}_{1.72}$ となる⁽²⁴⁾。

1) 結晶学的データ

アクチノイド酸化物の室温における格子定数および密度をまとめてTable 4.2.2に示す。 NpO_2 、 AmO_2 、 CmO_2 の結晶構造は、 ThO_2 、 UO_2 等の他のアクチノイド二酸化物と同じ萤石型立方晶である。三二酸化物には、ランタノイド酸化物の場合と同様に、A型(六方晶)、B型(单斜晶)、C型(体心立方晶)の結晶構造3種類が存在する。また、アクチノイド酸化物の MO_2 および M_2O_3 (A、B、C型)の格子定数は、原子番号が大きくなるにつれて減少する⁽²⁴⁾。これをFig.4.2.4に示す。また、 NpO_2 の格子定数は0.5432⁽²⁸⁾~0.5434 nm⁽²⁵⁾で、Fig.4.2.5⁽²²⁾に示すように、O/Npの低下とともに直線的に増加する。Fig.4.2.6は超プルトニウム元素の三二酸化物の相転移温度をまとめたものである⁽¹⁴⁾。Puでは低温領域でのC型から高温領域でのA型への転移のみが見られる

に対し、AmおよびCmではC型→B型→A型への転移が起る。

Puを含む混合酸化物としては、 $(\text{Np}_{0.5}\text{U}_{0.5})\text{O}_2$ および $(\text{Np}_{0.25}\text{Am}_{0.25}\text{U}_{0.5})\text{O}_2$ が得られており、密度は10.50~10.60 g/cm³程度で、混合法（共沈法およびG P S法）や温度の影響が報告されている⁽¹⁸⁾。

また、Amの混合酸化物としては、上記の $(\text{Np}_{0.25}\text{Am}_{0.25}\text{U}_{0.5})\text{O}_2$ のほかに、 $(\text{Am}_{0.5}\text{U}_{0.5})\text{O}_{1.81-1.83}$ の密度⁽¹⁸⁾や $(\text{Am}_{0.64}\text{Cm}_{0.36})\text{O}_{1.5}$ および $(\text{Am}_{0.3}\text{Cm}_{0.7})\text{O}_x$ ($x = 1.52 \sim 2$) の格子定数や結晶系が報告されている。Cmの混合酸化物としては、 $(\text{Am}, \text{Cm})\text{O}_{2-x}$ と $(\text{Cm}_{0.85}\text{Pu}_{0.15})\text{O}_{2-x}$ の報告がある⁽²⁵⁾。これらの混合酸化物は、O/Mが1.83（萤石構造）から1.70（菱面体）および1.61(FCC)と変化する。

そのほか、他の金属（アルカリ、アルカリ土類、III-IV族）との複合酸化物の結晶構造とその格子定数が調べられている⁽¹⁾。また、AmO₂およびAm₂O₃とZrO₂、HfO₂およびThO₂との高温安定性が急冷試料を用いてX線回折により調べられている⁽¹⁾。

2) 自己照射損傷効果

Pu、Am、Cm酸化物の格子定数は、試料調製後長期間保存しておくと²³⁹Pu、²⁴²Am等の α 崩壊により自己照射損傷を受け、保存初期に急速に増加し、その後、増加率△a/aは

$$\Delta a/a = A (1 - e^{-Bt})$$

の式に従って飽和する⁽¹⁾。ここで、A、Bは定数である。

AmO₂の格子定数^(20, 24, 25, 26)は、²⁴¹Amの自己照射損傷によって、製造後3ヶ月の後に0.5377nmから0.5395nmに増加することが報告されている(Fig.4.2.7)⁽²⁴⁾。

また、AmO₂の格子定数に対する²⁴³Amの自己照射損傷挙動が調べられ、室温では60日までは格子定数は日数と共にほぼ直線的に増加すること、および、低温（最低38K）での自己照射による格子定数増加は室温において数日以内に回復することが認められている(Fig.4.2.8)⁽³⁵⁾。

Cmの場合も、²⁴⁴Cmの α 崩壊による欠陥の蓄積によって、²⁴⁴CmO₂の格子定数は常温で3日間放置することにより、0.5357から0.5375nmに増加する^(20, 24)。また、²⁴⁴CmO₂の格子定数が調製直後の値(0.5357nm)から6日後および2週間後では照射期間と共に単調増加を示し、約6ヶ月後には飽和値(0.5385~0.5387nm)となった⁽³¹⁾との報告がある。

一方、室温安定相であるC型Cm₂O₃は自己照射によりA型の六方晶^(2, 28)あるいは萤石相⁽²⁾に相転移することが報告されおり、C型²⁴⁴Cm₂O₃を常温で数週間放置すればA型に変化する⁽²⁶⁾。また、CmO_{1.5}に近い組成でFCCセルの格子定数が0.5498nmに近いときには、 σ 型(BCC、T10_{1.5}型)からA型(六方晶、LaO_{1.5}型)への相転移が見られ、この時 σ 型の格子定数は自己照射期間と共にFig.4.2.9に示すように最大値をとった後減少することが報告されている⁽³¹⁾。この場合、FCCセルの格子定数が0.5498nmから大小両方向に離れたときには、Fig.4.2.10に示すように α 型(萤石型)への段階的な相転移が見られている⁽³¹⁾。

4.2.2 热的性質

1) 融点

Np、Am、Cm酸化物の融点のまとめをTable 4.2.2に示す⁽¹²⁾。NpO₂の融点は、2600Kというものの⁽²⁶⁾と2820±60Kというものの⁽²²⁾がある。後者はFig.4.2.1の状態図に示すようにO/Npとともに低下し、O/Np=1.75で2500Kまで低下する。Np₂O₃についてはその測定例が見当らない。AmO₂(AmO_{2-x})およびA型Am₂O₃の融点はそれぞれ2120°C以上および1750°C以上である⁽²⁸⁾。「以上」という表示は、おそらくHe中で加熱測定中に測定値が加熱速度に依存することから付けられたものと考えられ、AmO₂に対して加熱速度が0.3°C/minでは1750°C、150°C/minでは2120°Cであったという報告がある⁽²⁴⁾。いずれにしても、Am酸化物のデータについては信頼性が乏しい。CmO₂は高温では不安定で、A型Cm₂O₃に分解する。CmO₂の融点は存在せず、分解してCm₂O₃になる⁽²⁸⁾。A型Cm₂O₃では、2265±20°Cというものの^(25, 28)と、2275±25Kというものの⁽²⁴⁾がある。

これらの二元系酸化物の外に、Schmidt⁽¹⁸⁾らは、混合酸化物の融点を測定している。すなわち、(Am_{0.5}U_{0.5})O_{1.81-1.92}は2690K、(Am_{0.25}Np_{0.25}U_{0.5})O₂は2770K、(Np_{0.5}U_{0.5})O_{2.0}は2870Kである。また、U-Pu混合酸化物に(Np-Am-Cm)混合酸化物を1~10wt%添加した燃料の融点が推定されている。10wt% TRU酸化物の添加により燃料の融点は最大20°C低下すると見積られている⁽¹²⁾。

2) 热膨張

NpO₂、AmO₂、BkO₂粉末を用いた高温X線回折による格子定数の測定から、25°Cおよび900°Cにおける热膨張係数が評価されており、Table 4.2.3にアクチノイド酸化物のデータをまとめて示す⁽³⁾。25°Cにおける热膨張係数は、原子番号に依存せず(8-9)×10⁻⁶°C⁻¹でほぼ一定であるのに対し、900°Cの高温における値は原子番号と共に大きくなる傾向にある。

なお、このほかに、NpO₂について室温から700°Cの範囲で

$$(9.5 \pm 0.15) \times 10^{-6} \text{ °C}^{-1}$$

ではほぼ一定であり、1000°Cでは

$$(11.0 \pm 1.0) \times 10^{-6} \text{ °C}^{-1}$$

となるというデータが高温X線測定によって得られている⁽²⁸⁾。

また、B-Cm₂O₃⁽²⁸⁾の热膨張については、25~680°Cの温度範囲で0.60%、25~940°Cで0.85%、25~1300°Cで1.4%という値が得られている⁽²⁸⁾。

3) 热伝導率

NpO₂、AmO₂およびCm₂O₃の热伝導率を温度の関数としてTable 4.2.4に示す⁽¹²⁾。NpO₂の热伝導率は400°Cから1000°Cの温度範囲で0.0100~0.0088kcal/cm·°C·sである⁽²⁵⁾。また、AmO₂およびAm₂O₃の自己α線損傷に基づく热伝導率への影響(測定温度:60°C)が調べられている⁽⁴⁾。3~5×10¹⁶α/cm³の照射により、Am₂O₃で約40%、AmO₂で約30%热伝導率が低下する。

Cm₂O₃(95%TD)については、レーザーパルス法により100°Cから1450°Cの範囲で热拡

散率が測定されており、

$$(190 + 0.0404 T (\text{°C}))^{-1} [\text{cm}^2/\text{s}]$$

で表わされ^(24, 25)、熱拡散率と密度および比熱によって評価された熱伝導率は、0.015～0.016 W/cm·deg) であるという報告がある⁽²⁵⁾。このほか、Cm₂O₃の熱伝導率は、100 °Cから1400 °Cの範囲で0.0245から0.0059 cal/cm·°C·sに変化するもの⁽²⁶⁾（注：単位は kcalの誤りと思われる）や、500～1100 °Cの温度範囲で下記の式が報告されている⁽²⁴⁾。

$$(37.795 + 0.01659 T (\text{K}))^{-1} (\text{W/cm} \cdot \text{°C})$$

さらに、244cmの崩壊による発生熱を用いて測定された値として

$$(35.42 + 0.0155 t (\text{°C}))^{-1} (\text{W/cm} \cdot \text{°C})$$

が与えられている⁽²⁵⁾。

そのほか、(Am_{0.5}U_{0.5})O_{0.81-1.92}、(Am_{0.25}Np_{0.25}U_{0.5})O₂および(Np_{0.5}U_{0.5})O₂について、1000Kから融点までの熱伝導率が熱拡散率の測定値から評価され（～1800K）、あるいは直接加熱法によって測定された（1600K～融点）報告がある⁽¹⁸⁾。

4) 比熱

NpO₂の比熱は、11～310Kにわたって 0.30～16.07 cal/mol·°Cと報告されており⁽²⁵⁾、270Kでは約15.2cal/mol·°Cである。また、350～1100Kの温度範囲では断熱法による比熱測定の報告⁽²⁹⁾があり、300Kにおける値は約80 J/mol·Kである。室温以下のデータと合わせてFig.4.2.11に示す。

また、Np₂O₅についても、350～750Kの範囲で断熱法による比熱測定が報告されている⁽³³⁾。350Kにおける値は241 J/kg·K (NpO_{2.5}として約67 J/mol·K) であり、温度に對しては

$$C_p (\text{J/kg} \cdot \text{K}) = 179 + 0.178 \cdot T (\text{K})$$

なる関係式によって表わされる⁽³³⁾。

AmO₂の比熱は20～300Kの低温領域で同じく断熱法により測定されている⁽⁵⁾。室温におけるAmO₂の比熱は70 J/mol·Kであり、PuO₂の68 J/mol·Kとほぼ同等であった。また、α自己損傷があまり入っていない試料を用いた測定では、～240K付近に磁気転移と思われる過剰比熱が見られている⁽⁵⁾。さらに、C-Am₂O₃、AmO₂およびC-Cm₂O₃の比熱は、それぞれ下記の式で与えられる⁽²⁶⁾。

$$(\text{Am}_2\text{O}_3) C_p = 20.0 + 15.6 \times 10^{-3} T [\text{cal/mol} \cdot \text{°C}], (298 \sim 1200 \text{ K})$$

$$(\text{AmO}_2) C_p = 1.40 + 6.8 \times 10^{-3} T [\text{J/mol} \cdot \text{K}]$$

$$(\text{Cm}_2\text{O}_3) C_p = 3.7 \times 10^{-2} + 2.91 \times 10^{-5} T [\text{cal/g} \cdot \text{°C}]$$

また、混合酸化物 (Am_{0.5}U_{0.5})O_{0.81-1.92}、(Am_{0.25}Np_{0.25}U_{0.5})O₂および(Np_{0.5}U_{0.5})O₂の比熱について、1050～1800Kの温度範囲にわたって計算による評価が報告されている⁽¹⁸⁾。

4.2.3 热力学的性質

1) ΔG°_f 、 ΔH°_f 、 ΔS°_f

報告されている標準生成エンタルピ ΔH°_f および標準生成エントロピ ΔS°_f の値をTable 2.2.5に示す。単位はcal単位に統一した。標準温度は208Kまたは298Kに設定されたが、1つだけ0Kとされており、原文通り記載した。また、文献番号を酸化物記号の欄に付記した。

Am_2O_3 と AmO_2 の高温における ΔH°_f が下記の式で与えられている⁽²⁶⁾。

$$\Delta H^\circ_f (\text{Am}_2\text{O}_3) = -2.2 \times 10^{-3} T + 3.2 \times 10^{-6} T^2 - 2.8 \times 10^2 T^{-1} - 419 \\ [\text{kcal/mol}] \quad (298 \sim 1200\text{K})$$

$$\Delta H^\circ_f (\text{AmO}_2) = 0.8 \times 10^{-3} T + 1.05 \times 10^{-6} T^2 - 1.9 \times 10^2 T^{-1} - 239.7 \\ [\text{kcal/mol}] \quad (298 \sim 1200\text{K})$$

標準生成自由エネルギー ΔG°_f （又は ΔF°_f ）は $\Delta G^\circ_f = \Delta H^\circ_f - T \Delta S^\circ_f$ で近似され、Table 4.2.5で ΔH°_f と ΔS°_f が与えられている物質については所定範囲の高温における ΔG°_f が計算される。また、 Am_2O_3 と AmO_2 については高温における ΔF°_f が次の温度依存式で与えられている⁽²⁶⁾。

$$\Delta F^\circ_f (\text{Am}_2\text{O}_3) = 5.07 \times 10^{-3} T \log T - 3.2 \times 10^{-6} T^2 - 1.4 \times 10^2 T^{-1} \\ + 48.1 \times 10^{-3} T - 421 \quad [\text{kcal/mol}]$$

$$\Delta F^\circ_f (\text{AmO}_2) = -1.84 \times 10^{-3} T \log T - 1.05 \times 10^{-6} T^2 - 0.95 \times 10^2 T^{-1} \\ + 4.72 \times 10^{-2} T - 240.1 \quad [\text{kcal/mol}]$$

固体状酸化物の外に、気体状の上記金属および酸化物については文献(6)のTable IIに示されている。

2) 融解熱、気化熱、蒸気圧

アクチノイド系酸化物 M_2O_3 および M_2O_2 の融解熱はイオン半径に依存して、従って結晶格子の大きさに依存して変化する。この様子をそれぞれFig.4.2.12aおよび4.2.12bに示す⁽¹⁷⁾。関係文献は、(19)(24)(25)(26)などがある。

気化熱（昇華熱）については、下記の値が報告されている^(24, 25, 26)（単位はkcal/mol）。

$$\begin{array}{ll} \text{NpO}_2 & 142.3 \pm 1.4 \quad (2050 \sim 2450^\circ\text{C}) \\ \text{Cm}_2\text{O}_3 & 114 \pm 8 \sim 133 \pm 2.7 \quad (25, 26) \end{array}$$

蒸気圧Pは下記の式で与えられる（単位はatm）。

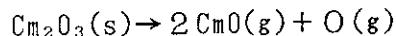
$$\text{NpO}_2^{(24, 25, 26)} : \log P = (8.39 \pm 0.13) - (31100 \pm 300) / T \\ (T = 2000 \sim 2500\text{K})$$

$$\text{AmO}^{(25)} : \log P = (8.19 \pm 0.41) - (25650 \pm 760) / T$$

$$\text{AmO}_2^{(25)} : \log P = (7.28 \pm 0.19) - (28260 \pm 360) / T \\ (T = 1600 \sim 2200\text{K})$$

$$\text{Cm}_2\text{O}_3^{(25, 34)} : \log P = (7.32 \pm 0.26) - (29050 \pm 590) / T$$

(T = 1800~2600 K)

 NpO_2 の蒸気圧は非常に低く、2000°Cで約 5×10^{-8} atm である。 Cm_2O_3 については Knudsen セル - α 線計測法によって 1800~2600 K の蒸気圧が測定され、蒸発熱が求められた (Fig. 4.2.13)。そして、支配的な蒸発プロセスは、であると推定された⁽³⁴⁾。また、アクチノイド一酸化物 (M_O) の解離エネルギーの原子番号依存性が、ランタノイドの場合に似ていることが示された (Fig. 4.2.14)⁽³⁴⁾。

3) 酸素ポテンシャル、酸素分圧

 Np_2O_5 と NpO_2 の平衡酸素分圧 ($\text{Np}_2\text{O}_5 = 2\text{NpO}_2 + 1/2\text{O}_2$) が熱重量法により測定されている⁽⁸⁾。 $\text{P}_{\text{O}_2} = 1 \text{ atm}$ では約 600°C で Np_2O_5 が NpO_2 に分解することが示されている。 NpO_{2-x} の酸素ポテンシャル $\Delta G(\text{O}_2) = RT \cdot \ln P(\text{O}_2)$ がガス平衡法によって測定されている⁽²¹⁾。 Fig. 4.2.15 に、これを O/Np と温度の関数として示す。低 O/Np 側で $\Delta G(\text{O}_2)$ が一定になり、Np と NpO_{2-x} が安定に共存することを示す。低温ではその傾向が著しい。Fig. 4.2.16 に、このデータを $\text{AmO}_{1.82}$ 、 $\text{UO}_{1.99}$ 、 $\text{PuO}_{1.99}$ と比較して示す。Fig. 4.2.17 に、 AmO_{2-x} の酸素分圧 $P(\text{O}_2)$ を示す⁽²⁴⁾。 $(\text{U}_{0.5}\text{Am}_{0.5})\text{O}_x$ 、 $(1.87 < x < 2.09)$ についての酸素ポテンシャルの測定データを Fig. 4.2.18 に示す⁽¹⁸⁾。

4.2.4 TRU 酸化物の物性に関する課題のまとめ

Table 4.2.6 に今回の調査で得られた TRU 酸化物 (Am、Cm、Np) の物性値文献マップを示す。表中の分野別および項目別番号は、今後の文献検索時の便宜を考えて付したものである。本調査で取り上げた文献数は高々 40 報弱であり、 UO_2 や $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 燃料の物性関連の文献数に比べてはるかに少ない研究現状である。

結晶学的データ（結晶構造、格子定数、密度）、状態図、熱物性（融点、比熱、熱伝導率）および熱力学性質（生成自由エネルギー、融解熱、酸素ポテンシャル）についてはいくつかの文献が見られる。しかし、その多くは Am、Cm、Np の各 2 元系酸化物についてのものであり、TRU を酸化物燃料として使用すると考えられている U や Pu との多元系混合二酸化物燃料の物性についての報告は数例に限られている。

燃料の熱・機械設計に必要と思われる基本的な個々の物性を燃料ペレットについてまとめるところになる。熱的物性として、

- 理論密度（固体および液体）
- 熱膨張
- 融点
- 融解熱
- 比熱（固体および液体）
- 热伝導率（固体および液体）
- 辐射率

が挙げられる。また、機械的物性として

- ヤング率

- 弹性限界
- 0.2%降伏応力
- ポアソン比
- 破断歪
- クリープ

が挙げられる。上記物性リストとTable 4.2.6を比べると、特に機械的物性値が著しく欠如しているのが判る。

TRUを含む混合二酸化物の製造性および照射下における燃料の熱的安定性や被覆管との共存性を評価するためには、温度一組成一酸素ポテンシャルをパラメータとした詳細な状態図および高温における燃料の蒸発データが必要となろう。さらに燃料内のFP挙動を評価するには燃料の構成イオンのほか、燃料内のFPの拡散係数も重要な物性と考えられる。

従って、まず現時点で最も可能性が高いと思われるTRUを含む混合二酸化物燃料の組成を想定し、その組成の前後で物性値のパラメータサーベイを系統的に行い、各物性に及ぼす組成の感度を見極める必要がある。この作業を進める上で、 UO_2 にTh、Puあるいは希土類元素を添加した燃料の物性値が参考になると思われる。また、燃料ペレットの各種物性を測定するに当たっては、前述した物性リストの各項目を無作為に測定するのではなく、燃料設計上重要で、しかも UO_2 や $(U, Pu)O_2$ 燃料の物性と大きく異なると予測される項目から着手すべきであろう。

もちろん、得られた物性値を基に設計した燃料の照射試験と照射後試験を行うことにより、設計の妥当性が判断されるべきである。また上記物性のほか、照射下における種々の燃料挙動を評価するのに必要な補助的な燃料物性（粒成長、デンシフィケーション等）のデータも必要となる。いずれにしても、今後のTRU添加燃料の物性値測定は、戦略的にしかも世界的規模で各所で分担し、データを採取していくことが効率的であると考えられる。

参考文献 (4.2節)

- (1) C.Keller, "The solid-state chemistry of americium oxides", The 152nd Meeting of American Chemical Society, 1966/09/13-14.
- (2) L.V.Sudakov, I.I.Kapshukov, "X-ray studies of curium oxides", J. Inorg. and Chem. Supplement (Symp. on Chem. of TRU element), 1976.
- (3) J.A.Fahey, R.P.Turcotte, "Thermal expansion of the actinide dioxides", Inorg. Nucl. Chem. Letters 10 (1974) pp.459-465.
- (4) N.Schmidt, "Some remarks concerning the thermal conductivity of plutonium and americium dioxides", AERE-R-7961 (1975) pp.88-92.
- (5) R.Hall, W.Muller, "Some preliminary results on the low temperature specific heat of AmO_2 ", AERE-R-7961 (1975) pp.93-98.
- (6) R.J.Ackermann, "Systematic thermodynamic properties of actinide metal-oxygen systems at high temp.", IAEA-SM-A90/44, vol.2, pp.3-25, Vienna IAEA 1975.

- (7) L.Manes, K.Buijs, "Investigation of actinide oxides by infrared spectroscopy", 4th Intern. Transplutonium Element Symp., Baden-Baden, 1975/09/13-17.
- (8) J.A.Fahey, "Decomposition, stoichiometry and structure of neptunium oxides", J. Inorg. Nucl. Chem. 38 (1976) pp.495-500.
- (9) D.Filgus, R.Hecker, "Actinide production in different HTR-fuel cycle concepts", 1st Meeting on the Nucl. Transmutation of Actinides (EUR-5897), Ispra 1977/04/16.
- (10) L.Koch, R.Ernstberger, "Formation of minor actinides and requirements of nuclear incineration", 1st Meeting on the Nucl. Transmutation of Actinides (EUR-5897), Ispra 1977/04/16.
- (11) E.Zamorani, J.Cametti, "Impact of By-product actinides on fuel behaviour and fabrication chain", 2nd Meeting on the Nucl. Transmutation of Actinides (EUR-6929), Ispra 1980/04/21.
- (12) E.Zamorani, J.cametti, "Design of fuel pins containing by-product actinides for irradiation in LWR and FBR power plants", 2nd Meeting on the Nucl. Transmutation of Actinides (EUR-6929), Ispra 1980/04/21.
- (13) R.G.Haire, "Preparation of transplutonium metals and compound", Actinides in Perspective The Actinides Conf. USA, 1981/09.
- (14) J.Fuger, "Thermodynamic properties of the actinides: current perspectives", The Actinides Conf. USA, 1981/09.
- (15) L.Morss, J.Fuger, "Enthalpy of formation and magnetic susceptibility of Cm sesquioxide, Cm_2O_3 ", Inorg. Chem. 22 (1983) pp.1993-1996.
- (16) C.Sari, W.Bartscher, "A thermodynamic study of the U-Am oxide $U_{0.5}Am_{0.5}O_2 \pm x$ ", J. Nucl. Mater. 188 (1983) pp.220-223.
- (17) L.R.Morss, "Thermodynamics systematics of oxides of Am, Cm and neighboring elements (Am and Cm chem. and technol.)", Intern. Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu 1984/10/16-21.
- (18) H.E.Schmidt, C.Sari, "The thermal conductivity of oxides of U, Np and Am at elevated temperatures", J. Less-Comm. Met. 121 (1986) pp. 621-630.
- (19) R.Morss, D.Sonnenverger, "Enthalpy of formation of Am sesquioxide; systematics of actinide sesquioxide thermochemistry", J. Nucl. Mater. 130 (1985) pp.266-272.
- (20) L.V.Sudukov, N.Lyalyushkin, "Effect of quartz on thermal stability of AmO_2 and CmO_2 ", Translated from Radiokhimiya vol.28, No.1 (1986) pp.94-99.
- (21) C.Sari, W.Bartscher, "Oxygen potential of hypostoichiometric Np oxide between 1470 and 1850K", J. Nucl. Mater. 140 (1986) pp.91-93.
- (22) C.Sari, K.Richter, "Phase relationships on the Np-oxygen system", J. Nucl. Mater. 148 (1987) pp.266-271.
- (23) J.R.Naegele, "Surface analysis of actinide materials", J. Nucl. Mater.

- 166 (1989) pp.59-67.
- (24) C.Keller, The chemistry of the Transuranium Elements, 1971, vol.3.
- (25) K.W.Bagnall, et al., Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie B band 4: "Transuran", 1972.
- (26) 柴田雄次, 木村健二郎, 無機化学全書 XVII-3 放射性元素", 丸善, 1974.
- (27) E.Schmidt, et al., "Assessment studies on nuclear transmutation of by-product actinides", Comission of the European Communities Joint, Ispra 1982.
- (28) L.V.Sudakov, I.I.Kapshukov, "X-ray diffraction studies of the thermal expansion of Np dioxide", Atomnaya Energiya vol.35, No.2 (1973) p.128.
- (29) V.A.Arkhipov, E.A.Gutina, "Enthalpy and heat capacity of Np dioxide in the temperature range of 350-1100K", Radiokhimiya vol.16, No.1 (1974) pp.123-126.
- (30) L.V.Sudakov, I.I.Kapshekova, "New phases in the system curium-oxygen", Radiokhimiya vol.17, No.3 (1975) pp.446-451.
- (31) L.V.Sudakov, I.I.Kapshekova, "Stability of ^{244}Cm oxides at room temperature", Radiokhimiya vol.19, No.4 (1977) pp.490-496.
- (32) G.V.Malinin, "Evaluation of the thermodynamic stability of NpO_3 and PuO_3 ", Radiokhimiya vol.19, No.6 (1977) pp.829-831.
- (33) Y.I.Belyaev, V.N.Dobretsov, "Enthalpy and heat capacity of Np_2O_5 over the temperature range 350-750K", Radiokhimiya vol.21, No.3 (1979) pp.450-451.
- (34) P.K.Smith, D.E.Peterson, "High-temperature evaporation and thermodynamic properties of Cm_2O_3 ", J. Chem. Phys. vol.52, No.10 (1969) pp.4963-4972.
- (35) U.Benedict, C.Dufour, "Low temperature lattice expansion of Am dioxide", Physica. 102B (1980) pp.303-307,
- (36) Y.I.Belyaev, "Phase diagram of the Np-oxygen system", Radiokhimiya vol. 25, No.6 (1983) pp.791-794.

Table 4.2.1 調査項目リスト

分野別 No.	項目別 No.	項 目	備 考
10	11 12 13	(密度関連) 密度 格子定数 結晶系	
20	21 22	(融点関連) 状態図 融点	
30	31 32 33 34	(熱的性質) 熱伝導率 比熱 熱膨張率 熱拡散率	
40	41 42 43	(熱力学的性質) 融解熱(蒸気圧含む) 酸素ポテンシャル $\Delta G, \Delta H, \Delta S$	
50	51	(拡散関連) 拡散係数	
60	61	(機械的性質) 強度	
70	71	(化学的性質) 酸素分压	
80	81 82	(磁気的, 電気的性質) 磁化率 その他	
90	91 92	(その他) 金相および表面分析 赤外線吸収スペクトル	

Table 4.2.2 a TRU酸化物の結晶学的データ

化合物	色	晶系構造型	$a[\text{\AA}]$	$b[\text{\AA}]$	格子定数	$c[\text{\AA}]$	$\beta[^{\circ}]$	密度	融点	参考文献	備考
NpO		立方	5.01					[g/cm ³]		No.	
NpO		立方 NaCl	5.01±0.01							25	Np-O系状態図は(文獻2,36)
Np ₂ O ₃		六方 La ₂ O ₃		5.440±0.05						26	金属表面に生成
NpO _{1.97}		VII方		5.430±0.05						26	NpO ₂ を活性化後、Np ₂ O ₃ の安定性不明(文獻36)
NpO _{2.0}		VII方							2820±60K	22	0.1Npが1.97~2.0間の格子定数は直線的
NpO ₂		立方	5.434					11.158(TD)		25	
NpO ₂	カーキ	立方 CaF ₂	5.432±0.002					11.14	2600K	26	
NpO ₂			5.4328					11.16	2550°C ⁽¹²⁾	3.11	
Np ₂ O ₅		単斜	4.188	6.592	4.030	90.16				22	
Np ₂ O ₅	黒	単斜	4.183±0.003	6.584±0.005	4.086±0.003	90.32±0.03				25, 26	Np ₂ O ₅ の熱分解で生成
Np ₂ O ₈	チヨコレート 赤褐色	斜方 斜方	4.086±0.005	6.584±0.003	4.183±0.003					25, 26	
NpO ₃ ·H ₂ O			5.607	6.270	9.956	5.74				25, 26	
(NpO ₃ ·H ₂ O) ₂								10.45~10.60	2870K	18	1123~1763Kにおいて
(NpO ₃ ·2Al ₂ O ₃) ₂								0.55(95.5%)	2770K	18	
								10.10		18	at 1103K
AmO		立方	NaCl	5.045±0.003				13.7		26	Am-O系状態図は(文獻A,25)
AmO		立方	4.95							25	
A-Am ₂ O ₃		六方 La ₂ O ₃	3.805±0.004		5.96±0.02			11.8	>1750°C	25, 26	A型は高温相(800°C~)
A-Am ₂ O ₃		六方	3.818		5.972					19	
A-Am ₂ O ₃			3.8155±0.0006		5.975±0.002					19	(文獻9のref.4)
A-Am ₂ O ₃		六方	3.83		5.96					24	格子定数は図中の読みみ
B-Am ₂ O ₃		単斜 立方(bcc) Mn ₂ O ₃	14.38	3.52	8.92	100.4	11.9			25, 26	B型は中温重相(450~950 °C)
C-Am ₂ O ₃		立方 立方	11.03±0.01				10.5			25, 26	C型は低温相(~800 °C)
C-Am ₂ O ₃			11.05							24	格子定数は図中の読みみ
AmO ₂ -X		VII方	11.03					10.49		3.11	約250 °CでAmO _{1.7} (α)、約500 °CでAm _{0.1} ·s+X
										20	(σ)を経て約600 °CでC-Am _{0.1} となる
AmO ₂				5.3743				11.66	2120°C ⁽¹²⁾	3.11	
AmO ₂		立方	5.376							25	
AmO ₂	黒	立方 CaF ₂	5.372±0.0004					11.7	>2120°C		
AmO ₂			5.377(脱離時)						1750°C	24	²⁴ Amの自己吸着により格子定数や融点が変化する。
AmO ₂ (700°C合成)		立方 CaF ₂	5.3741						~2120°C	20	空気中1000°Cまで安定
Am(OH) ₃		六方	6.426±0.002		3.745±0.002					25, 26	

Table 4.2.2b TRU酸化物の結晶学的データ

化合物	色	晶系構造型	格子定数			密度	融点	参考文献	備考
			a[Å]	b[Å]	c[Å]				
(A _{Mo} , s _U ₆ , s ₁₀) ₁ , s ₁ -1, s ₃						10.15(8831TD)	2650K	18	
(A _{Mo} , s ₁ _U ₆ , s ₁) ₁ , s ₃ -1, s ₂						10.50(9531TD)	2650K	18	
(A _{Mo} , s ₄ _U ₆ , s ₃) ₁ , s ₁	単斜	14.321	3.665	8.926	100.17		~1100°C, He + 4K ₂ 中	25	
(A _{Mo} , s ₆ _U ₆ , s ₃) ₁ , s ₁	六方	3.8122		5.9797			~1500°C, He + 4K ₂ 中	25	
(A _{Mo} , s ₃ _U ₆ , s ₁) ₁ , s ₈ -2	fcc	5.368					~350°C, O ₂ 中	25	
(A _{Mo} , s ₃ _U ₆ , s ₁) ₁ , s ₈ -1, s ₃	fcc	5.423					~550°C, O ₂ 中	25	
(A _{Mo} , s ₃ _U ₆ , s ₁) ₁ , s ₈ -1, s ₄	fcc	6.687					~760°C, He中	25	
(A _{Mo} , s ₁ _U ₆ , s ₁) ₁ , s ₂ -1, s ₂	fcc	10.935					~915°C, 4RH ₂ /He中	25	
<hr/>									
CaO		立方(fcc)	5.09			13.10(X線)		24, 26	0m-0系状態図(文庫24, 25, 26, 34)
A-Ca ₂ O ₃		六方	3.739			11.85(X線)	2275±25K	24	
A-Ca ₂ O ₃		六方	3.732~3.739			11.9	2265±20°C	25	
A-Ca ₂ O ₃		Ia ₂ O ₃	3.80±0.02		6.00±0.03		2265±20°C	26	密度は1910°Cで1.0まで下がる。
B-Ca ₂ O ₃		単斜	14.276	3.6521	8.898	100.32		15	(800~1615°C)
B-Ca ₂ O ₃	オリーブ	单斜	14.282	3.652	8.900	100.31		24, 25	
B-Ca ₂ O ₃	黄碌	单斜	Sm ₂ O ₃	14.282±0.008	3.652±0.003	8.900±0.005	100.31±0.05	11.7	
C-Ca ₂ O ₃		立方(bcc)	10.993			10.66(X線)		24	
C-Ca ₂ O ₃		立方	10.99			10.8		25	
C-Ca ₂ O ₃	白又は淡紫色	立方	Mn ₂ O ₃	11.01±0.02		10.8		26	
C-Ca ₂ O ₃			10.94			10.66	2275°C(12)	3, 11	
CaO ₁ , s ₁ -1, s ₂ (σ)		立方		10.96~11.16				24, 25	
CaO ₁ , r ₁ (τ or i)				5.45~5.47				26, 31	500~600°Cで生じる。
CaO ₁ , a ₁ (δ)		fcc	5.42~5.43					26, 31	同上
CaO ₁ , s ₈ -2 (α)		立方	CaF ₂	5.357~5.387				31	^{34}Ca の α 崩壊により格子定数が増加する(文献
CaO ₂ -x (α)		立方		5.357~5.375				20	20は3日間での変化)
CaO ₂	黒	立方(fcc)	CaF ₂	5.372		11.8		24, 26	
CaO ₂				5.36~5.38				20	熱処理温度及びS ₁₀ 保存(380°Cから分解)
CaO ₂				5.353		11.09	分解(12)	3, 11	
CaO ₂		立方	5.359			11.09(X線)		24, 25	
<hr/>									
(Ca _{Mo} , s ₃ ₁ _P U ₆ , s ₁ 5) ₁ , s ₁	fcc	10.994						25	
(Ca _{Mo} , s ₃ ₁ _P U ₆ , s ₁ 5) ₁ , s ₁₀	菱面	6.678						25	
(Ca _{Mo} , s ₃ ₁ _P U ₆ , s ₁ 5) ₁ , s ₃	立方	CaF ₂	5.447					25	

Table 4.2.3 アクチノイド酸化物の熱膨張率 ($a_t = B_0 + B_1 T + B_2 T^2$)

	B_0	$B_1 \times 10^5$	$B_2 \times 10^9$	$a_{25^\circ\text{C}} (\text{\AA})$	$\alpha_{25^\circ\text{C}} \times 10^8$	$\alpha_{900^\circ\text{C}} \times 10^6$
ThO_2	5.5959	4.57	6.27	5.5970	8.22	10.2
UO_2	5.4675	4.51	12.10	5.4685	8.36	12.2
UO_2	5.4701	4.72	11.00	5.4713	8.73	12.2
NpO_2	5.4316	4.82	6.21	5.4328	8.93	10.9
PuO_2	5.3948	4.66	10.20	5.3960	8.73	12.0
AmO_2	5.3733	4.34	14.30	5.3743	8.21	12.9
CmO_2	5.3569	5.44	---	5.3583	10.20	---
CmO_2	5.3559	4.34	---	5.3570	8.10	---
BkO_2	5.3304	4.32	15.00	5.3315	8.25	13.2
CfO_2	---	---	---	5.3100	---	---

Table 4.2.4 純粋化合物の物理的性質

	MP (°C)	TD	λ (W/cm °C)
UO ₂	2840	10.96	$0.073 - (6.375 \times 10^{-5})t + (1.64 \times 10^{-8})t^2$
MgO	2800	3.58	$0.271 - (3.255 \times 10^{-4})t + (1.246 \times 10^{-7})t^2$
ZrO ₂	2700	6.10	$0.016 - (8.75 \times 10^{-6})t - (1.562 \times 10^{-9})t^2$
NpO ₂	2550	11.16	$0.048 - (1.75 \times 10^{-5})t + (5.47 \times 10^{-9})t^2$
AmO ₂	2120	11.66	$0.015 - (1.125 \times 10^{-5})t + (3.91 \times 10^{-9})t^2$
CmO _{1.5}	2275	10.66	$0.022 - (6.25 \times 10^{-6})t + (1.56 \times 10^{-9})t^2$
PuO ₂	2440	11.46	

MP --- Melting point

TD --- Theoretical density

 λ --- Thermal conductivity

Table 4.2.5 Np, Am, Cm酸化物の標準生成エンタルピ $\Delta H^\circ f$
および標準生成エントロピー $\Delta S^\circ f$

酸化物	$\Delta H^\circ f$ (kcal/mol)	$\Delta S^\circ f$ (cal/mol.deg)	温 度 (K)
Np ₂ O ₃ ⁽¹⁹⁾	-364		298.15
" (6)	-378	58	298
NpO ₂ ⁽¹⁷⁾	-256.7±1.2	19.19±0.1	298
" (25)	-256.7±6	19.19±0.1	298.15
" (26)	-256.7±6		298
" (24)	-256.7		298
" (6)	-256.0	40.4	298
Np ₂ O ₅ ⁽²⁶⁾	-510±25		298
AmO ⁽²⁶⁾		17.2	208
Am ₂ O ₃ ⁽¹⁷⁾	-403.9±3.8		298
" (19)	-404 ±1.9		298.15
" (6)	-404.0	64	298
" (26)	-420	37 , 37.8	208
AmO ₂ ⁽¹⁷⁾	-222.8±0.6		298
" (25)	-239.9±6		298
" (26)	-239.9	20.6	208
" (6)	-233.0	42.5	298
CmO ⁽²⁶⁾	-135 ±10		208
Cm ₂ O ₃ ⁽¹⁷⁾	-402.2±2.9		298
" (15,19)	-402.0±2.9		298.15
" (25)	-429 ±8		0
" (26)	-414 ±30	38.4 , 52±8	208
" (6)	-396	58	298
CmO ₂ ⁽¹⁷⁾	-217.7±1.4		298
" (26)	-236 ±8	20.9	298

Table 4.2.6 調査項目別文献数

分野別 No.	項目別 No.	項 目	関連事項記載文献数			
			Am	Cm	Np	概論
10	(密度関連)					
11	密度		3	3	4	1
12	格子定数		9	9	6	2
13	結晶系		3	3	1	3
14						
20	(融点関連)					
21	状態図		5	5	3	2
22	融点		5	4	5	3
23						
30	(熱的性質)					
31	熱伝導率		2	4	3	
32	比熱		3	1	5	
33	熱膨張率		4	3	4	
34	熱拡散率		1	1	1	
35						
40	(熱力学的性質)					
41	融解熱(蒸気圧含)		2	2	3	
42	酸素ボテンシャル		1		3	
43	ΔG , ΔH , ΔS		7	6	6	3
44						
50	(拡散関連)					
51	拡散係数					
52						
60	(機械的性質)					
61	強度			1		
62						
70	(化学的性質)					
71	酸素分圧		1		1	1
72						
80	(磁気及び電気的性質)					
81	磁化率			1	1	
82	その他			1	1	
83						
90	(その他)					
91	金相及び表面分析			1	1	
92	赤外線吸収スペクトル		1	1	1	
93						

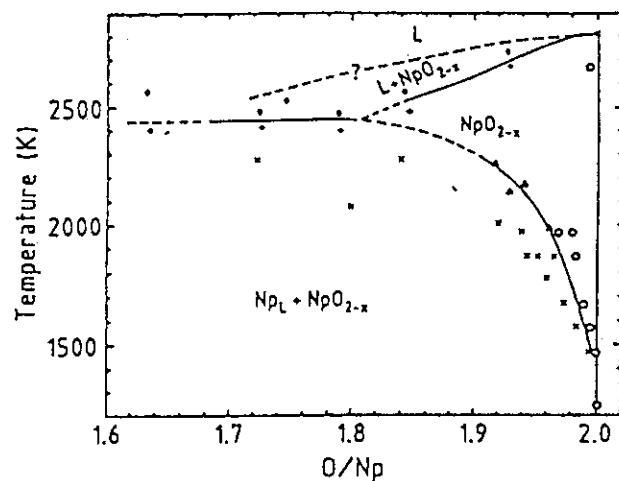


Fig. 4.2.1 a Np-O系実験点の亜化学領域中の相関係：
 ○単相, × 2相, *溶融, ×溶融は観察されず,
 △DTAデータ

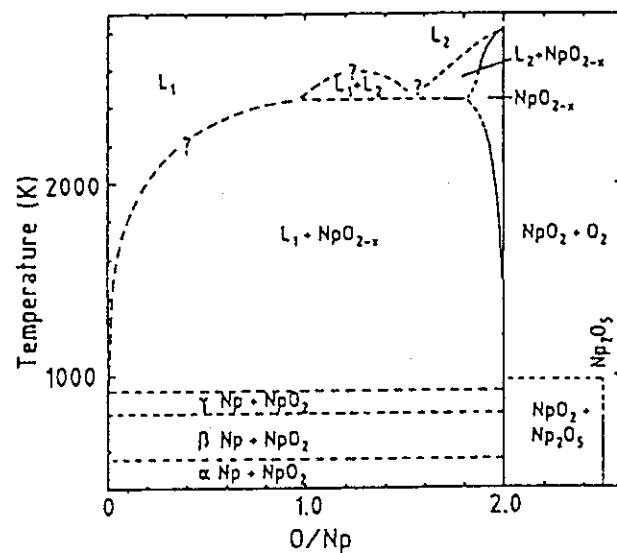


Fig. 4.2.1 b Np-O系の相関係

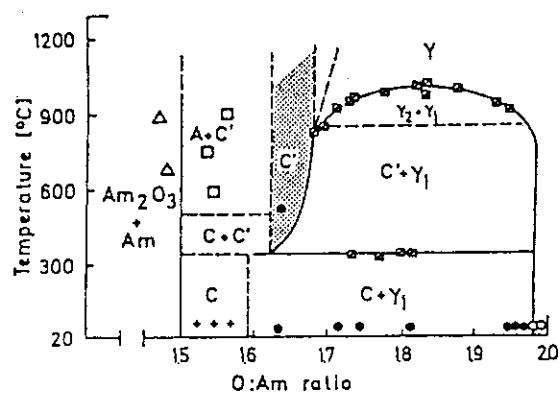


Fig. 4.2.2 低温でのAm-O系状態図；A-六方晶 Am_2O_3 , C-低温bcc Am_2O_3 , C' -高温bcc Am_2O_3 , γ , γ_1 , γ_2 -fcc AmO_{2-x} , ϕ -DTA 測定結果。他の全ての点はミクロ組織分析による。

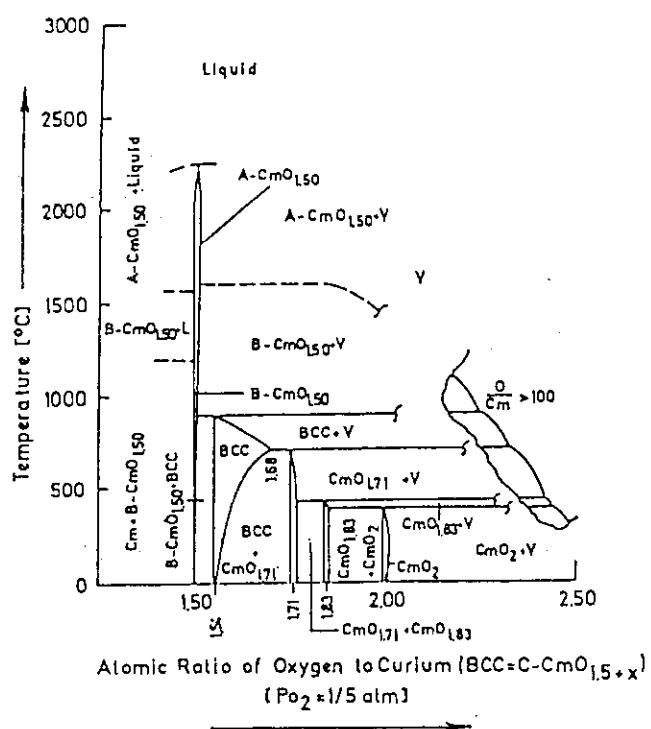


Fig. 4.2.3 Cm-O系の状態図

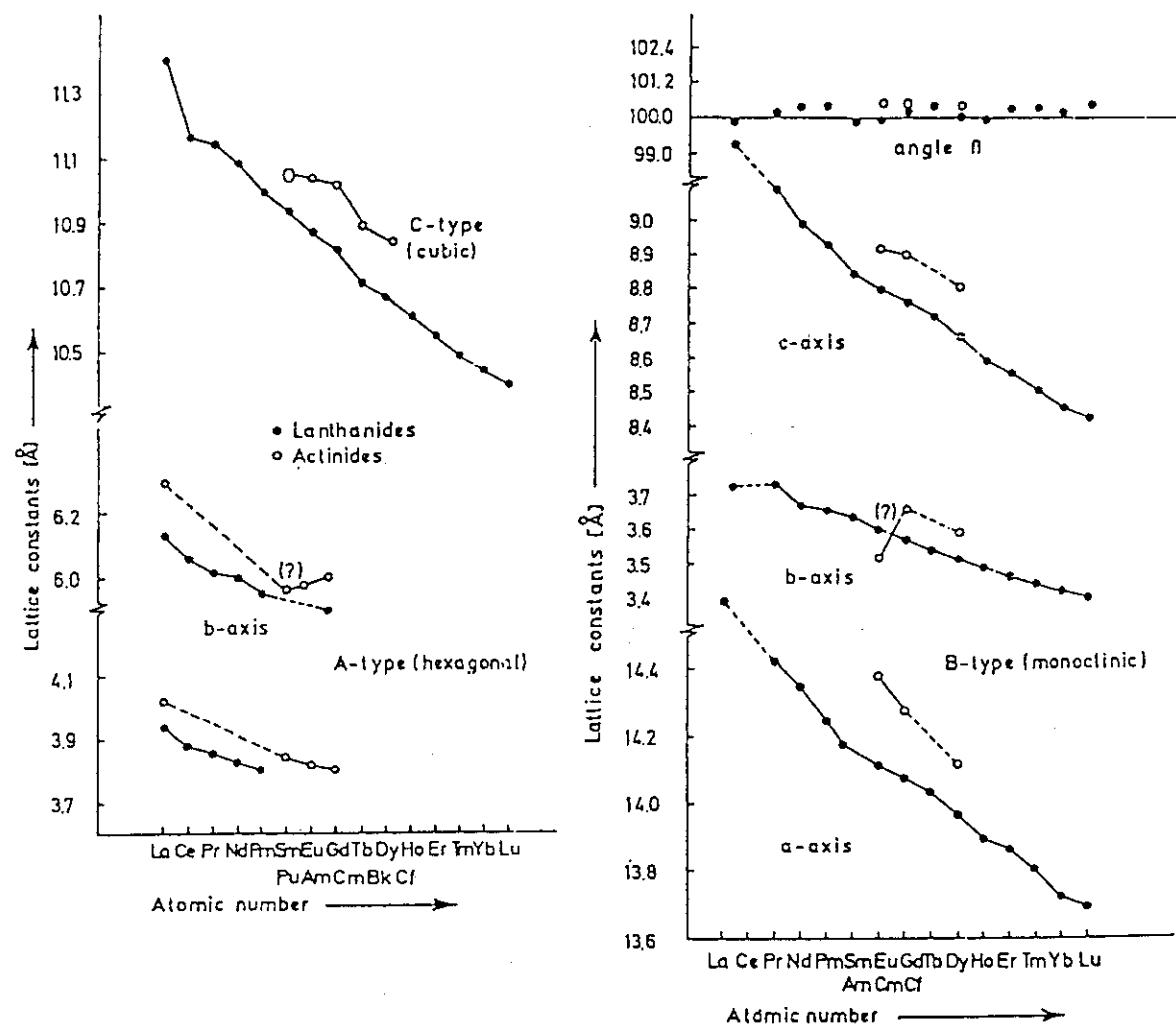


Fig. 4.2.4 原子番号の関数としてのランタノイドおよびアクチノイド
三二酸化物の種々の変態 (modifications) の格子定数

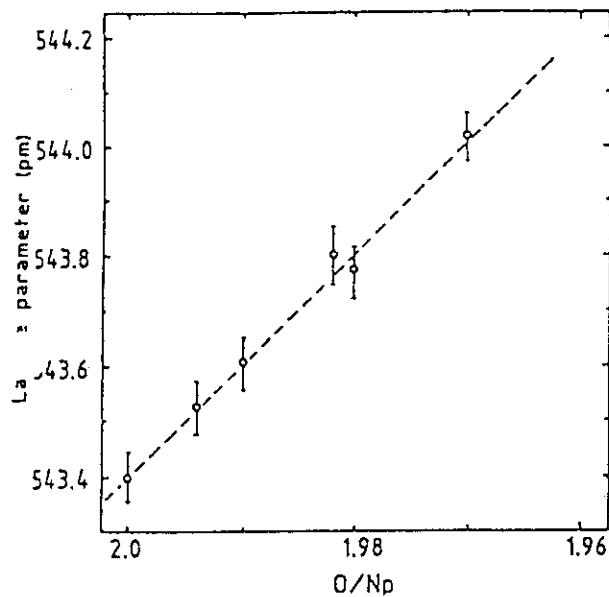


Fig. 4.2.5 O/Np比の関数としてのNp_{0.2-x}相の格子定数変化

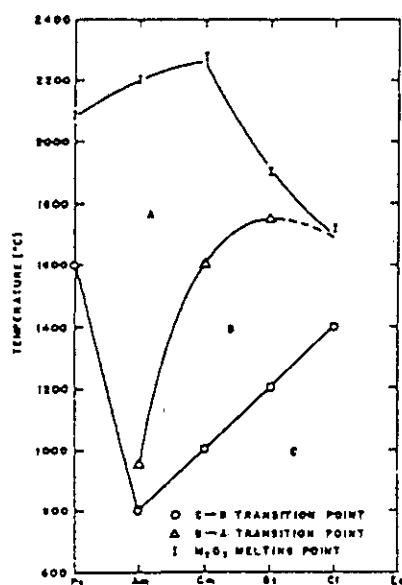


Fig. 4.2.6 超プルトニウム三二酸化物の状態図

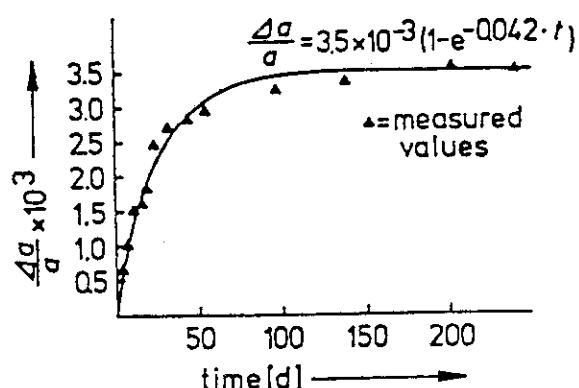
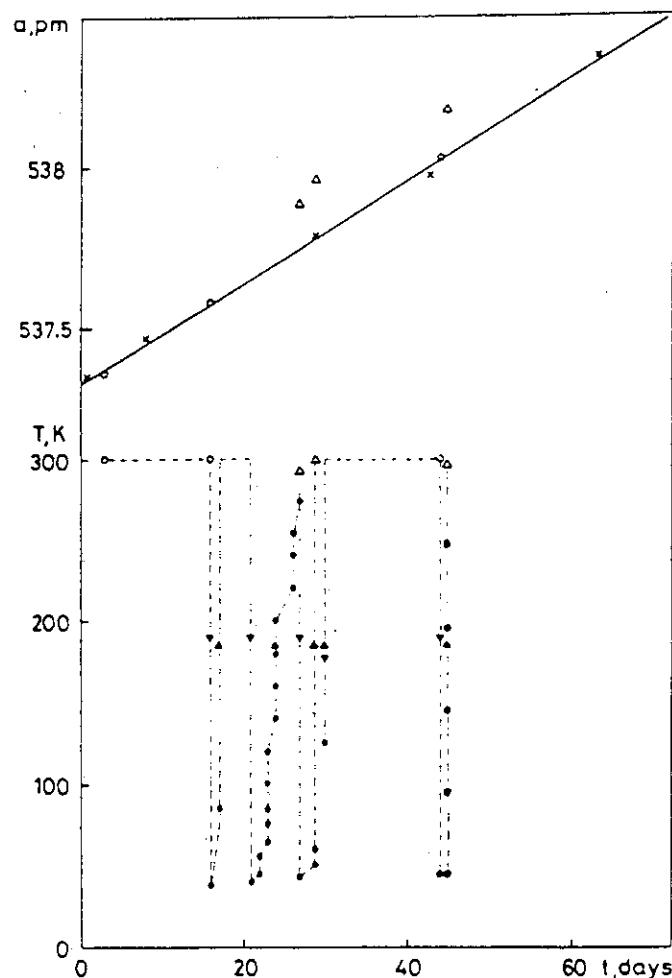


Fig. 4.2.7 貯蔵（自己照射）時間に伴う格子定数の増加。

Fig. 4.2.8 時間に伴う $^{243}\text{AmO}_2$ の室温格子定数の変化および熱サイクル：
×試料 1, 常に室温; △試料 2, 冷却サイクル直後; ○試料 2,
室温, 1 日間以上アニール後。黒三角印は温度変化の方向を示す。
黒丸印は回折スペクトルを記録した温度。

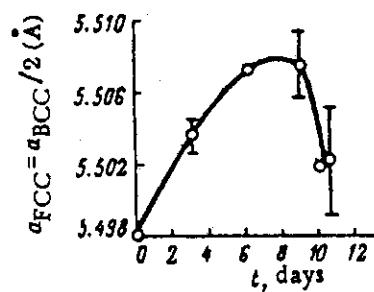


Fig. 4.2.9 室温（自己）照射中の ^{244}Cm 酸化物 (σ -form) の格子定数変化。誤差の増加はX線回折パターン中の回析線の数の減少およびそれらの質の劣化と関連している。

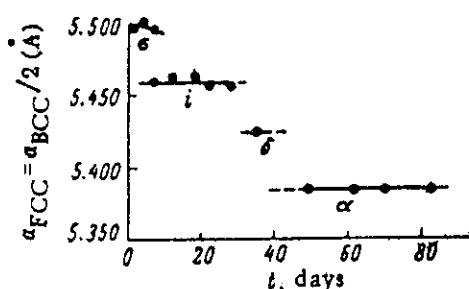


Fig. 4.2.10 初期に σ -form である ^{244}Cm 酸化物の室温（自己）照射中の相変態。

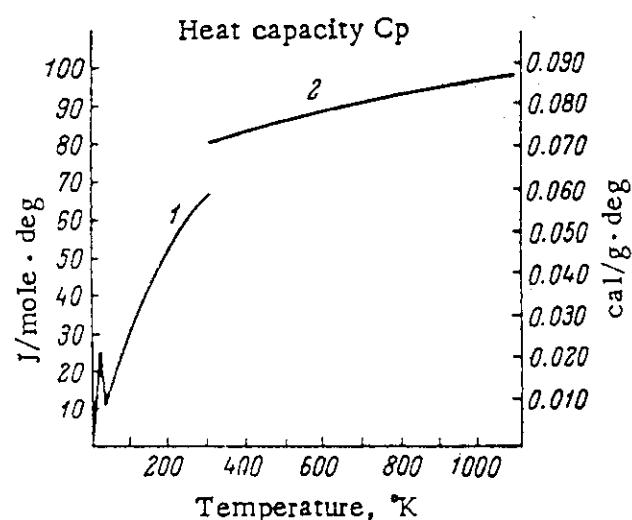


Fig. 4.2.11 Np酸化物の熱容量（比熱）。1) 文献値；2) 実測値。

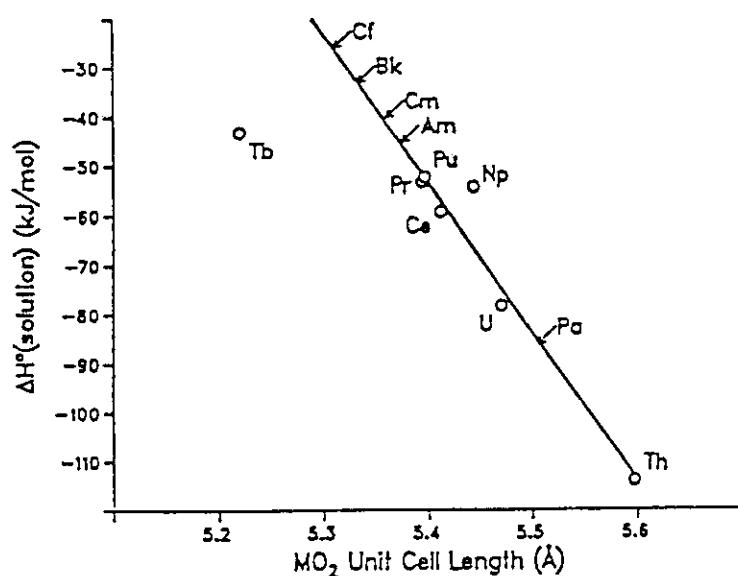
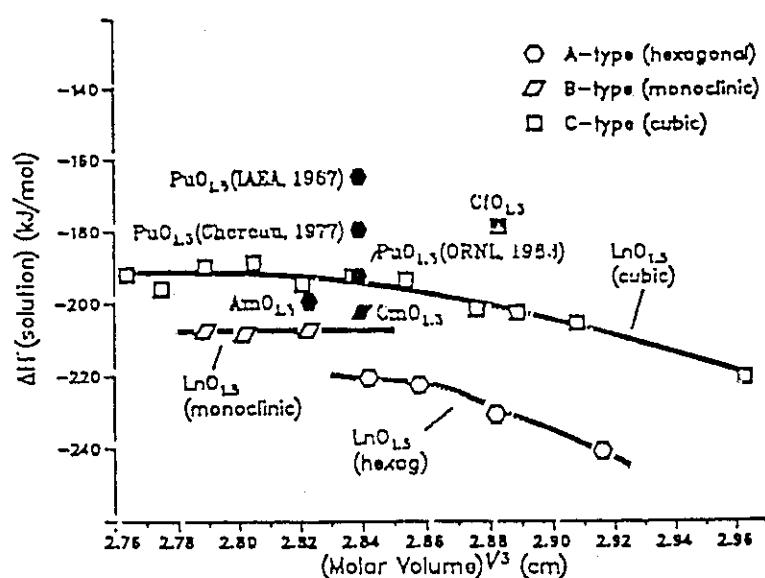
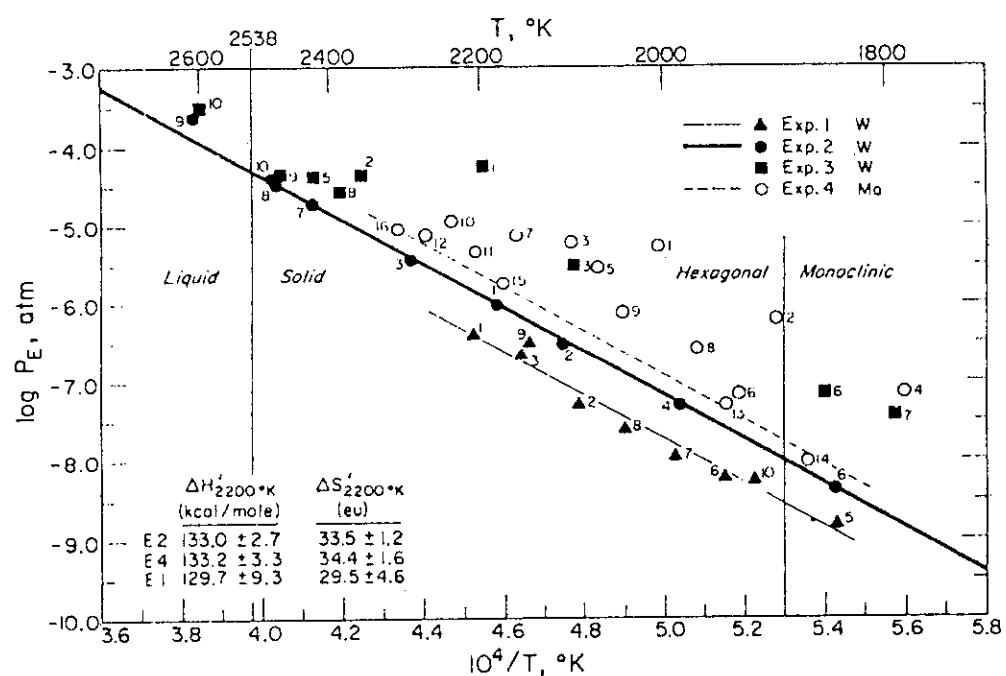
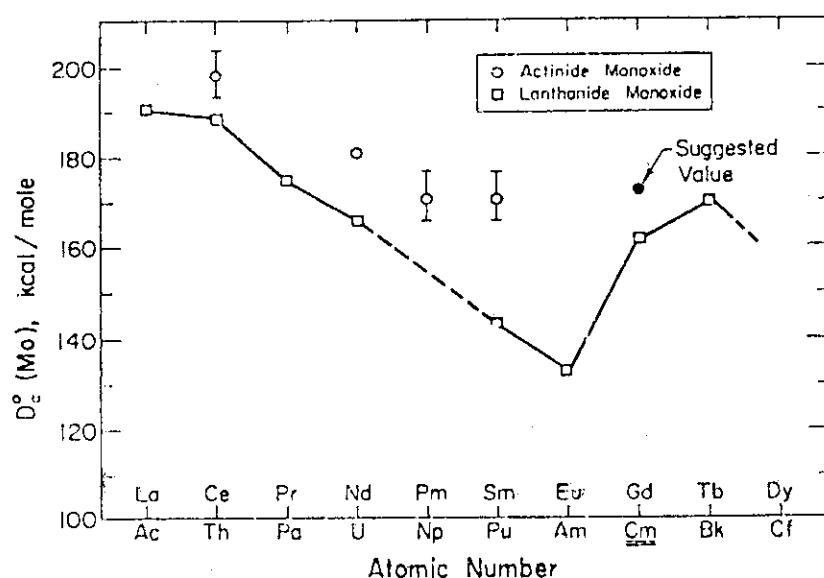
Fig. 4.2.12 a 単位格子のサイズの関数としての MO_2 の溶融エンタルピー。

Fig. 4.2.12 b 原子間距離の関数としてのランタノイド（白抜き記号）およびアクチノイド（黒塗り記号）の三二酸化物の溶解熱。

Fig. 4.2.13 Cm三二酸化物の蒸発における蒸気圧(P_E)と $1/T$ の関係。Fig. 4.2.14 ランタノイドおよびアクチノイド一酸化物の解離エネルギー(D_0 °)。

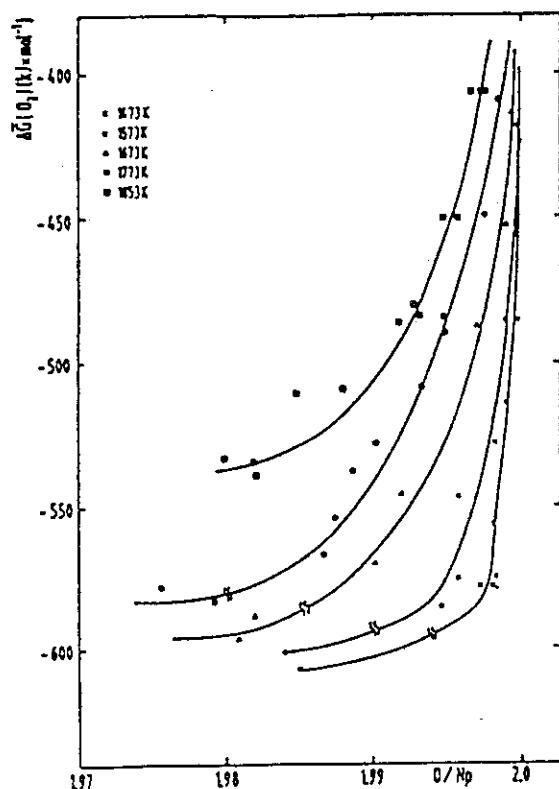


Fig. 4.2.15 O/Np比および温度の関数としての酸素部分モル自由エネルギーの相対値。

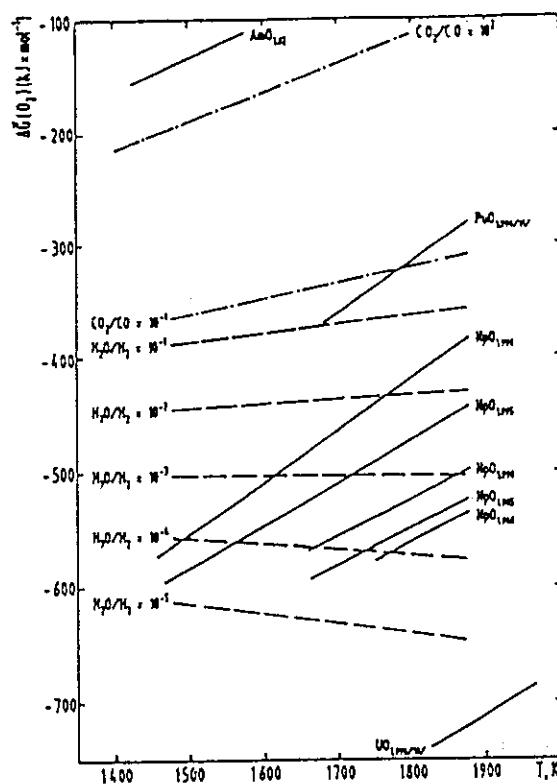


Fig. 4.2.16 温度の関数としてのUO_{2-x}, NpO_{2-x}, PuO_{2-x}および
異なったガス混合比の酸素部分モル自由エネルギーの相対値。

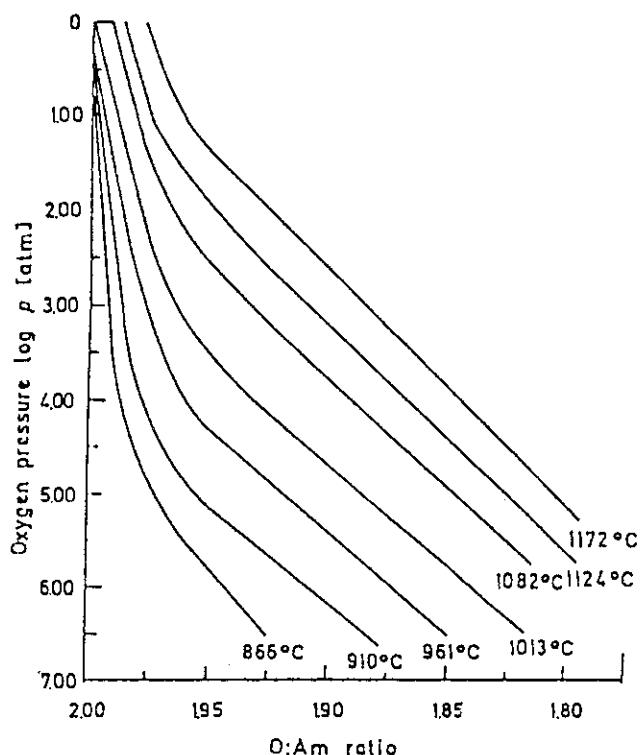


Fig. 4.2.17 種々の温度における $\text{AmO}_{1.80}\text{-}\text{AmO}_{2.00}$ の組成を持つ
Am酸化物上の酸素分圧。

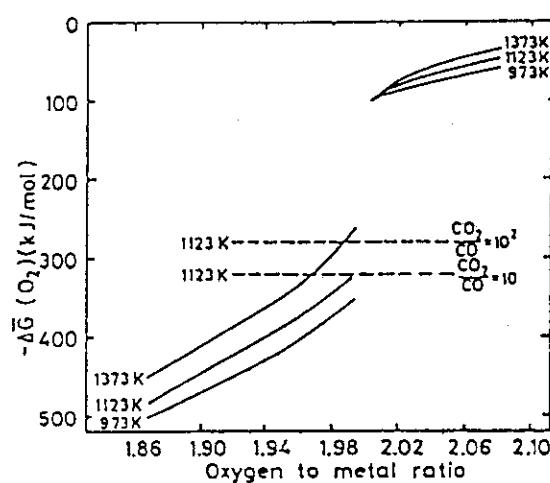


Fig. 4.2.18 3つの異なった温度についての $\text{U}_{0.5}\text{Am}_{0.5}\text{O}_{2\pm x}$ の酸素ポテンシャル。
2つのCO₂/COガス混合物の酸素ポテンシャルも表示している。

4.3 TRU添加燃料の製造

これまでの軽水炉では単一な酸化物燃料 UO_2 を使用しているが、TRU添加燃料では混合酸化物燃料 $(U, Pu)O_2$ にTRUを添加して製造することが予想される。

この時、次のような問題点が発生する。これらの問題は高速増殖炉燃料製造において、ある程度生じているが、TRU添加燃料では一層深刻な問題となる。

(1) 燃料の均一性

燃料製造時、臨界性の制約から、固溶体燃料は粉末混合、加圧成型、焼結の工程を経て製造しなければならない。この方法を用いると、粉末の混合が不充分の時燃料は不均一になる。均一性には、原子論的均一性および巨視的均一性の2種類があり、次のような問題が生ずる。

①原子論的均一性

- a) 基本的物性値の変化（設計、照射後解析が不正確になる）
- b) 破損時の燃料-冷却材反応

②巨視的均一性

- a) 基本的物性値の変化
- b) 燃料照射時の局部加熱
- c) 使用済み燃料再処理時の不溶解残渣の発生

(2) TRU、プルトニウム同位体による被曝量増加

TRUを添加する超高燃焼度燃料では、数回のサイクルを経験した使用するプルトニウムを使用することが予測される。このプルトニウムの同位体比は奇数の原子量を持つ核分裂性核種の存在比が少なくなり、偶数の原子量を持つ非核分裂性核種の存在比が増加することが予想される。この結果、TRU中に含まれる ^{241}Am はガンマ線を発生すること、偶数の原子量を持つ同位体は短い半減期で α 崩壊、自発核分裂するので中性子の発生率が大きいことから、被曝量が増大する。

i) 中性子放出

Table 4.3.1に、プルトニウム(Pu)からフェルミウム(Fm)までの主な核種の自発核分裂の半減期、1核分裂当たりの中性子数、中性子発生率、さらには2つの代表的化合物(PuO_2 、 PuF_4)の、 (α, n) 核反応による中性子発生率を示す。この結果、TRU添加燃料に含まれると考えられる偶数の原子量を持つプルトニウム、キュリウムの同位体(^{236}Pu 、 ^{238}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm)で自発核分裂による中性子発生率が大きく、 α 崩壊の半減期の短い ^{238}Pu で (α, n) 反応による中性子発生率が大きいことがわかる

ii) ガンマ線およびX線

外部被曝で次に問題となる放射線はガンマ線およびX線である。代表的なPu、Th、U、Cm、Cfの同位体が放出するガンマ線、X線のエネルギーとその放出割合をTable 4.3.2に示す。TRU添加燃料中に存在するPu、Cm、同位体(^{236}Pu 、 ^{238}Pu 、 ^{238}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm)のうちで最も問題となる核種は ^{241}Am である。この核種は458年で α 崩壊し安定な ^{237}Np (半減期 2.2×10^6 年)になるが、この際17keVのX

線を38%の割合で、59.6keVのガンマ線を36%の割合で放出し、TRU添加燃料取扱時に中性子放出とともに主な外部被曝源となる。その他の核種も高エネルギーのガンマ線を放出するが、 ^{236}Pu を除くとその割合も小さく問題にならない。

使用済燃料再処理直後のプルトニウム中には ^{241}Am は含まれないことから、ガンマ線の放射能強度も高レベルでないが、半減期13年で β 崩壊(99%)する ^{241}Pu より ^{241}Am が刻々と生成する。このため、再処理後の経過時間が長いプルトニウムほど ^{241}Am の蓄積量が多く、その取扱時に外部被曝が深刻な問題となる。

プルトニウムでは ^{236}Pu の娘核種による被曝も問題である。 ^{236}Pu の崩壊系列をFig.4.3.1に示す。 ^{236}Pu の存在量はきわめてわずかであるが、その半減期が短くさらにその娘核種の半減期が短いため、娘核種の放出する高エネルギーのガンマ線（特に ^{208}Tl の放出する2.6MeVのガンマ線）が外部被曝に重要な役割をもつ。

(3) 臨界による取扱制限量の減少

Table 4.3.3に示すように、 ^{239}Pu の臨界量は ^{235}U に比べ乾燥系、湿式系で小さい。プルトニウム以外のAm、Cm等のTRU核種の臨界量は不明であるが、 ^{235}U に比べ小さいことも予想される。その場合には、取扱時の臨界制限量が一層小さくなり、作業効率が落ちることになる。

(4) 新型燃料ペレットの開発の必要性

燃焼度が大きくなると核分裂ガスの放出量が増大する。さらに、核分裂ガス以外にもTRU添加燃料では α 崩壊によりヘリウムが放出される。したがって、これらの不活性気体を収容する空間を燃料内に作らなければならない。1つの例として「もんじゅ」燃料では密度90%以下の燃料ペレットを使用することを決めている。「もんじゅ」燃料より大きい燃焼度を期待するTRU添加燃料では密度80%以下のペレット、中空ペレット、等の新型の燃料ペレットの開発が必要となることが予想される。

(5) TRU添加燃料の製造に関する課題

燃料製造時には燃料の均一性、O/M比の制御に注意を払う必要がある。またTRUとプルトニウム同位体による中性子およびガンマ線、X線の被曝量の増加、および臨界による取扱い制限量がプルトニウム燃料よりも小さくなること等が課題である。従って、これらに対応した製造工程、および取扱い方式を検討し開発する必要がある。

また、燃焼度の増加およびTRUの混入量を増加させるためには、燃料からの核分裂ガスおよび生成ヘリウムの放出を抑える改良が必要である。燃料棒の設計としては、プレナム体積の増加などの対処法を検討する必要がある。

Table 4.3.1 TRU元素核種からの中性子放出

Isotope	Spontaneous Fission Half Life	ν n/fission	Yield n/gm-sec	(α, n) Reactor Rate n/gm-sec isotope
Pu ²³⁶	3.5×10^9 y	2.3	3.7×10^4	
Pu ²³⁸	3.8×10^8 y	2.33	3.8×10^3	
Pu ²³⁸ _{F4}				2.1×10^6
Pu ²³⁸ _{O2}				1.4×10^4
Pu ²³⁹	5.5×10^{15} y	3.0	3×10^{-2}	
Pu ²³⁹ _{F4}				4.3×10^3
Pu ²³⁹ _{O2}				4.5×10^1
Pu ²⁴⁰	1.22×10^{11} y	2.5	1.02×10^3	
Pu ²⁴⁰ _{F4}				1.6×10^4
Pu ²⁴⁰ _{O2}				1.7×10^2
Pu ²⁴²	7.1×10^{10} y	2.18	1.7×10^3	
Pu ²⁴² _{F4}				1.7×10^2
Pu ²⁴² _{O2}				2.7
Pu ²⁴⁴	2.5×10^{10} y	2.3*	5.1×10^3	
Cm ²⁴⁰	7.9×10^5 y	2.4*	1.67×10^9	
Cm ²⁴²	7.2×10^8 y	2.3-3.0	2.28×10^7 max	
Cm ²⁴⁴	1.4×10^7 y	2.6-2.8	1.1×10^7 max	2.0×10^7 ** (Cm ²⁴⁴ O ₂)
B ²⁴⁸	2×10^5 to 1.5×10^9 y	3.67	9.8×10^6	
Cr ²⁴⁶	2.1×10^3 y	2.88	7.37×10^{10}	
Cr ²⁵²	82 + 6 y	3.5-3.8	2.43×10^{12} max	
Cr ²⁵⁴	55 to 85 d	3.9	1.35×10^{15} max	
Fm ²⁵⁴	200 to 246 d	4.0	3.82×10^{14} max	

* Estimated

** ORNL 4357

Table 4.3.2 a 代表的なアクチニド元素核種の放射線特性

Isotope	Half Life	Gamma Ray		X-ray		
		Energy keV	Yield %	Energy keV	Yield %	e/T
Pu ²³⁶	2.85y	47	.031	17	12.8	1000
		110	.012	17	.067	14
		165	6.6×10^{-4}			
Pu ^{237m}	0.18s	145	5.38×10^{-9}	17	38.5	39
Pu ²³⁷	45.6d	33.2				
		43.5				
		55.6				
		59.6				
		76.4				
		96.0				
Pu ²³⁸	86.4y	43.8	.038	17	11	740
		99	8×10^{-3}	17	.035	11
		150	1×10^{-3}			
		203	4×10^{-6}			
		760	5×10^{-5}			
		810				
		875				
Pu ²³⁹	2.436×10^4 y	37	1.6×10^{-3}	13.6	1.2	
		52	6.4×10^{-3}	17.4	1.4	
		120	9.6×10^{-4}	20.5	3.3	
		207	3.2×10^{-4}			
		340	4.9×10^{-4}			
		380	9.6×10^{-4}			
		420	6.4×10^{-4}			
Pu ²⁴⁰	5.58×10^3 y	45.3	.009	17	4	
Pu ²⁴¹	13.0y	145	2.8×10^{-4}			
Pu ²⁴²	3.79×10^5 y	45	.01	17	4.1	
Pu ²⁴³	49.8h	12.2				
		29.2				
		36.7				
		42.2	1	17	7.3	16
		54				
		84	21	17	16.6	0.2
		96				
		134				
		381	.7			
Th ²²⁸	1.91y	84	1.6			16
		137	0.26			1
		169	0.09			1.2
		205	0.03			

Table 4.3.2 b 代表的なアクチニド元素核種の放射線特性

Isotope	Half Life	Gamma Ray		X-ray		
		Energy keV	Yield %	Energy keV	Yield %	e/T
Th^{230}	$8 \times 10^4 \text{ y}$	212	0.27			
		68	0.59			
		110	1×10^{-4}			1
		142	0.07			
		184	0.014			
		206	5×10^{-6}			
		235	5×10^{-6}			
Th^{231}	25.64 h	253	0.017			
		26	13			
		89.8	11			
		99.3	2			
		136				
		146	0.2			
		163	0.2			
		180	0.06			
		218	0.05			
		310	0.004			
Th^{232}	$1.42 \times 10^{18} \text{ y}$					
Th^{233}	22.12 m	29.2	2.1			2.8
		56.7				
		86.9	2.7			0.9
		171	0.7			
		195	0.3			
		253				
		359				
		453	1			
		590				
		670	0.25			
		751				
		895	0.14			
U^{232}	73.6 y	57.9	0.21			150
		131	$0.075(1.75)^5$			
		268	4×10^{-3}			
		326	4×10^{-3}			
U^{233}	$1.62 \times 10^5 \text{ y}$	29				
		42.8	0.05			
		56.1	0.01			
		310	0.1			
		53	1×10^{-5}			
U^{234}	$2.48 \times 10^5 \text{ y}$	118				

Table 4.3.2 c 代表的なアクチニド元素核種の放射線特性

Isotope	Half Life	Gamma Ray		X-ray		
		Energy keV	Yield %	Energy keV	Yield %	e/T
U^{235}	$7.13 \times 10^8 \text{y}$	95	9			
		110	5			
		144	12			
		165	>4			
		185	55			
		205	4			
U^{238}	$2.39 \times 10^7 \text{y}$	163	0.5			
U^{237}	6.75d	26.4				
		33.2				
		43.5				
		59.6	36			
		65	2.3			
		114				
		165	3.6	17	0.19	0.13
		208	24	17	22	2.3
		267	0.9	17	0.22	0.63
		332	1.4	17	0.22	0.04
		335	0.2	17	0.016	0.2
U^{235}	$4.5 \times 10^8 \text{y}$	368	0			
Np^{237}	$2.2 \times 10^6 \text{y}$	48				
Am^{241}	$4.58 \times 10^2 \text{y}$	29.7	14			
		56.8				
		87	14			
		145	0.8			
		175	0.1			
		200	0.3			
		26.4	2.5	17	6.5	7
		33.2	.15	17	14.3	>240
		43.5	0.073			
		59.6	36	17	21.1	<1.5
		99	0.023			
		103	0.019			
		113	2.5×10^{-3}			
		130	3.8×10^{-3}			
		159	2.9×10^{-4}			
		210	5.8×10^{-4}			
		270	7.6×10^{-5}			
		330	2.5×10^{-4}			
		370	1.5×10^{-4}			

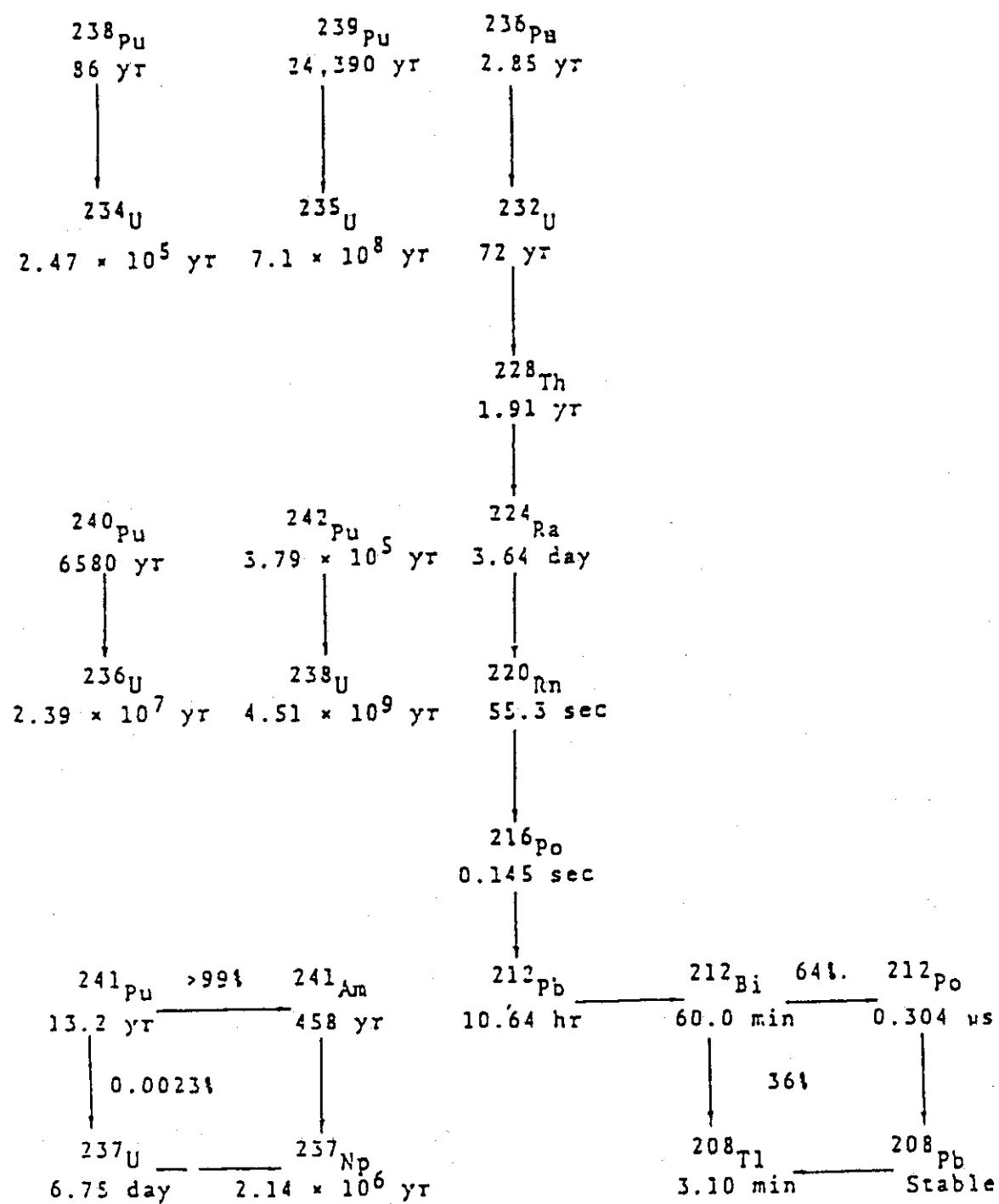
Table 4.3.2 d 代表的なアクチニド元素核種の放射線特性

Isotope	Half Life	Gamma Ray		X-ray		
		Energy keV	Yield %	Energy keV	Yield %	e/T
Am^{242m}	152y	42.28				
		44.5 _{EC}				
Am^{242}	16.01b					
Am^{243}	7.95×10^3 y	75				0.3
Cm^{242}	1625d	44.03	0.039			520
		100	6×10^{-3}			
		157	2.7×10^{-3}			
		210	2×10^{-5}			
		562	1.8×10^{-4}			
		605	1.4×10^{-4}			
		890	9×10^{-5}			
		935				
		1010	10^{-5}			>0.5
Cm^{243}	32y	106				
		210				2.1
		228				2.6
		278				1.2
Cm^{244}	17.6y	43	0.021			760
		100	1.5×10^{-3}			11
		150	1.3×10^{-3}			
Cm^{245}	8×10^3 to 1.4×10^4 y	-130	5			
		173	14			
Cr^{246}	35.7h	42	0.014			
		98	0.012			
		146	3.5×10^{-3}			
Cr^{252}	2 to 2.6y	42	0.014			
		100	0.01			
		others				

Table 4.3.3 ^{235}U と ^{239}Pu の臨界量の比較

	^{235}U		^{233}U		^{239}Pu	
	勧告	最小臨界	勧告	最小臨界	勧告	最小臨界
臨界質量 kg 溶 液 金 屬	0.35 10.00	0.82 22.8	0.25 3.2	0.59 7.5	0.22 2.6 3.5	0.15 5.6 α 相 7.6 δ 相
無限円筒の直径* 溶 液 (cm) 金 屬	5.0(12.7) 2.7(6.8)	5.4(13.7) 3.1(7.8)	3.7(9.4) 1.7(4.3)	4.4(11.2) 1.9(4.8)	4.2(10.7) 1.4(3.6) 1.8(4.6)	4.9(12.4) 1.7(4.3) α 相 2.1(5.3) δ 相
無限平板の厚さ* 溶 液 (cm) 金 屬	1.5(3.8) 0.5(1.3)	1.7(4.3) 0.6(1.5)	0.8(2.0) 0.2(0.5)	1.2(3.0) 0.3(0.8)	0.9(2.3) 0.18(0.5) 0.22(0.6)	1.3(3.3) 0.24(0.6) α 相 0.28(0.7) δ 相
溶液容量 (l) 水溶液の濃度 (同位体グラム/l) 均質水素減速の カランの濃縮度	4.8 10.8	6.3 12.1	2.3 10.0	3.3 11.2	3.4 6.9	4.5 7.8
	0.95	1.0	-	-	-	-

*単位はinch (かっこ内はcm単位)

Fig. 4.3.1 ^{236}Pu の崩壊系列

4.4 TRU添加燃料の照射挙動

既存のわずかな照射実績のうち、最新の SUPERFACT 計画を示す。本計画では、マイナーアクチノイド (Np、Am) を混入した酸化物燃料を製造し、KNK-2炉および Phenix 炉において照射を行った。試験燃料の仕様を Table 4.4.1 に示す。これらのうち、Phenix 照射に関しては、その結果が平成 3 年に京都で開催された FR-91 会議にて報告されており⁽¹⁾、以下にこれをもとに照射挙動を示す。

(1) 燃料仕様

同仕様各 2 本の燃料を照射した。Table 4.4.2 にその製造時データを示す。被覆管は 15/15 チタン鋼 (15Cr-15Ni-Ti、炭化物析出型改良オーステナイトステンレス鋼) を用いた。

TRU の混合比が約 2% と少ない燃料（均質サイクル用 - ホモー）と、混合比が約 20% と多量の燃料（非均質サイクル用 - ヘテロー）の 2 種類を製造し照射した。後者の Am 20% - Np 20% 混合燃料のオートラジオグラフを Fig. 4.4.1 に示す。

(2) 出力履歴

Table 4.4.3 に照射履歴を示す。1986年10月より1988年1月まで 5 サイクル照射した。最高値で 59 dpa NRT (Norgett, Robinson, Torrens) による損傷関数⁽²⁾ を用いた 1 原子あたりのはじきだし数)、383 EFPD (実効照射日数)、8.5at% に達した。

Am および Np を多量に含む燃料では、照射中に、²³⁷Np が ²³⁸Pu に、また ²⁴¹Am は ²⁴²Am (m) に核変換され、特に高速炉では ²³⁸Pu が燃焼するため、反応度が燃焼後期（約 4% 以上）で増加する。これが原因で、TRU 混入量の多い燃料棒 6 と 14、および 5 と 15 は、出力制限から他の燃料と同じサイクル数を照射することはできず、低い燃焼度となった。

(3) 照射後試験結果

本試験で得られた特徴的な結果は以下の通りである。

①被覆管外径変化

燃料棒 14 (Am 20%、Np 20%) でやや大。比較的強い PCM I が発生した (Fig. 4.4.2)。

②ガス分析

Am を多く含む燃料でヘリウムの生成放出が大。通常燃料の 60 倍の放出量となった (Table 4.4.4)。

③金相断面、組織観察

Np 混入燃料棒 7 (Np 2%) で、同出力の Am 混入燃料棒よりもやや中心孔半径が大。燃料熱伝導率がやや低く温度が上昇したと思われる。

Am を多量に混入した燃料 (Am 20%, Np 20%) は、Np 混入燃料よりやや出力が低いにもかかわらず、微細で不規則なクラックが広範囲に生じ、組織変化としてはより顕著であった (Fig. 4.4.3)。

④被覆管内面腐食

Np 混入燃料 (2%) では、線出力がやや高い (38kW/m) が、被覆管内面の一部に

40 μm (肉厚の約10%) の腐食を生じた。この原因は、製造時の酸素ポテンシャルの制御の誤差によるか、Np燃料の照射挙動の特性 (Np酸化物はU酸化物に比較し余剰酸素の吸収能をもたない) かは、不明である。

(3) TRU添加燃料の照射挙動に関する課題

最も新しいTRU入り酸化物燃料の照射計画であるSUPERFACT計画の結果から、以下の課題が明らかになった。

- ①Amを大量に混入した燃料では多量のヘリウム生成と放出が生じる。場合により核分裂ガスよりも放出量が大きく性能支配となる可能性がある。この原因を燃焼系列から詳しく同定することが必要である。現在使われている燃焼生成物予測コードORIGENは、TRU添加燃料の照射時の中性子スペクトルに対応できず、今後は多群の燃焼解析コードを開発する必要がある。
- ②Amを大量に混入した燃料で顕著なスエリングが生じた。原因として、ヘリウム気泡の発生と、相変化 (Cubic \rightarrow Hexagonal) の2つの可能性があり、検討が必要である。
- ③Np混入燃料で、比較的高い出力では被覆管の内面酸化が生じる。Npのみでは、Npが2.0以上に酸素を吸収しない。これに関連して照射中の酸素ポテンシャルの変化を推定する必要がある。
- ④Np混入燃料でやや熱伝導率が低い可能性があり、調査が必要である。
- ⑤その他、燃焼度が進むと、照射による新たな核生成が問題となる。それらがどのような成分比となるか、燃焼系列の解析が必要である。関連して、将来的には固溶体(4元系)の状態図が必要と考えられる。

SUPERFACT計画では照射燃料の健全性が保たれ、一応の実績を得た。しかし、詳細には以上のように不明な点が多い。今後はこのデータ解析とさらなる照射研究が必要である。

参考文献 (4.4節)

- (1) C.Prunier et. al., "Transmutation of minor actinides: behavior of americium- and neptunium-based fuels under irradiation", paper No.19.2, presented at Intern. Conf. on Fast Reactor and Related Fuel Cycles, Kyoto, Japan, Oct.28 - Nov.1, 1991.
- (2) M.J.Norgett, M.T.Robinson and I.M.Torrens, "A proposed method of calculating displacement dose rate", Nucl. Eng. Design 33 (1975) pp.50-55.

Table 4.4.1 SUPERFACT計画の燃料仕様

燃料種別	試験炉
(U _{0.73} Pu _{0.25} Np _{0.01})O _{1.97}	KNK-2
(U _{0.73} Pu _{0.25} Am _{0.02})O _{1.97}	
NpO ₂	
(²⁴¹ Am _{0.5} U _{0.5})O _{1.92}	
(U _{0.77} Pu _{0.21} Np _{0.02})O _{1.97}	Phenix
(U _{0.77} Pu _{0.21} Am _{0.02})O _{1.97}	
(Np _{0.45} U _{0.55})O _{2.00}	
(NP _{0.2} Am _{0.2} U _{0.8})O _{1.95}	

注：ここで Am は全て ²⁴¹Am である。

Table 4.4.2 SUPERFACT燃料の製造時データ

Fuel Data	% Pu/M	% U/M	% Np/M	% Am/M	Pellets		Smear density	Fuel length (mm)	O/M
					% dth	Diameter			
Pin No.									
7 - 13	24.38	74.12	1.50		97.54	5.363	88.08	849.6	1.943
4 - 16	23.71	74.45		1.84	96.27	5.417	89.22	848.1	1.957
5 - 15		55.18	44.82		95.11	5.414	88.98	401.3	1.997
6 - 14		59.64	21.18	19.18	95.95	5.434	89.00	398.6	1.927
Standard	28.19	71.81			94.44	5.428		850	1.983

Where M = U + Pu + Actinides and dth = theoretical density

Table 4.4.3 Phenix炉におけるTRU添加燃料の照射条件

Linear Power Rating (kW/m)				
Pin No.	Fuel	Beginning of Life	End of Life	Max. Burnup (at%)
4 - 16	2 % Am	38.0	32.5	6.8
7 - 13	2 % Np	38.0	32.5	6.8
6 - 14	20 % Am 20 % Np	17.4	27.3	4.3
5 - 15	45 % Np	20.6	28.3	4.6
8	Standard	43.0	37.0	8.5

Table 4.4.4 TRU添加燃料ピンの照射時のFPガス生成量

Pin \ Gas	Kr + Xe %	Kr/(Xe + Kr) %	He %
Standard	100 (235 cm ³)		100 (10.3 cm ³)
4	65	10	387
5	60	10	222
6	57	8	6127
7	65	7	140

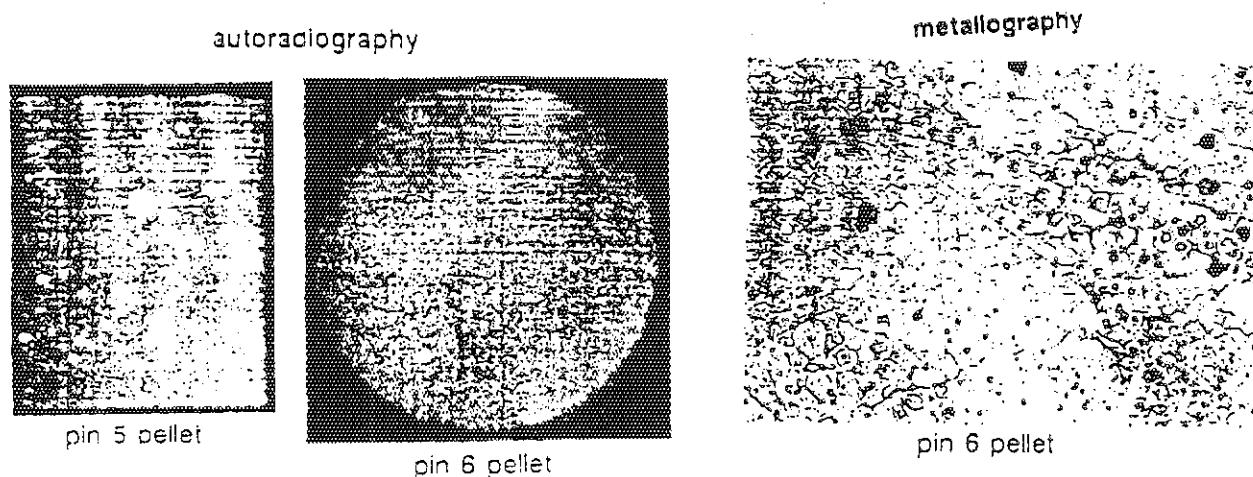


Fig. 4.4.1 ペレットの照射後試験

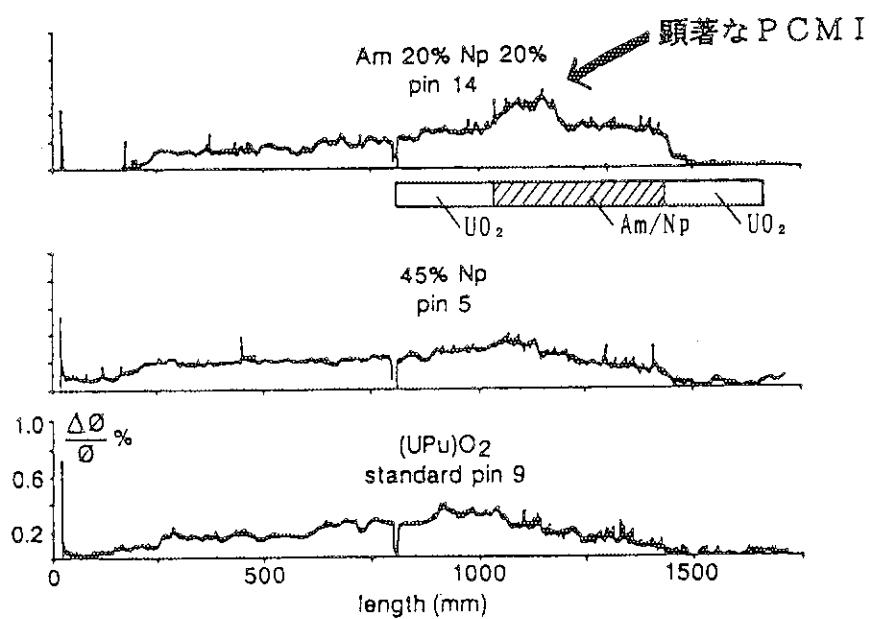
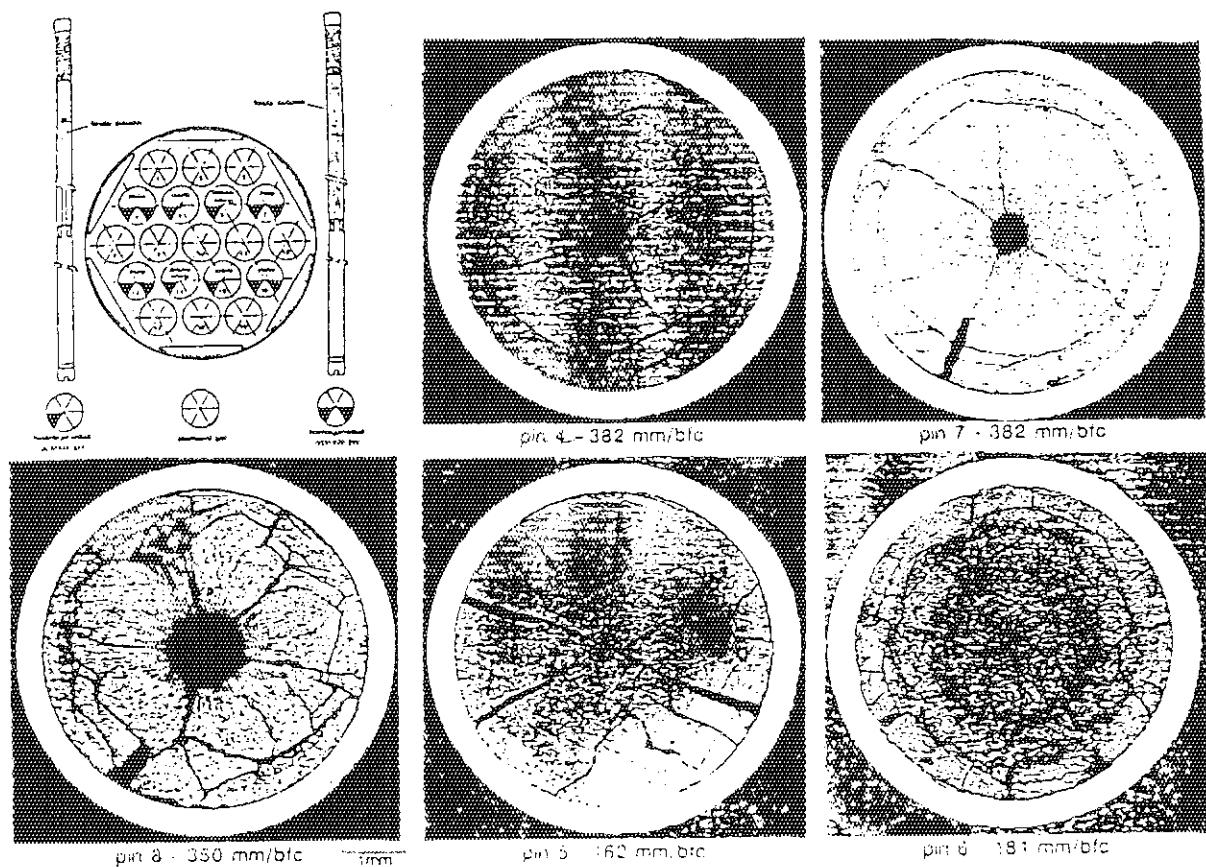


Fig. 4.4.2 非破壊的照射後試験



(左上は試験燃料の集合体内配置。左側の燃料ピンがヘテロ、右がホモ)

Fig. 4.4.3 標準燃料およびTRU添加燃料の全相

5. 超高燃焼燃料の研究開発課題のまとめ

本検討は、超高燃焼燃料の開発を目指す上での研究開発課題を抽出・整理するとともに、研究開発の展開の方向性を検討することを目的とした。本報告書では、これまでの各章において節または項ごとに研究開発課題について示した。本章では、それらを要約する。

全体としては、T R U添加燃料に関する情報を始めとして、燃料ペレットの評価に必要なデータは十分に整備されておらず、今後基礎的なデータを取得して行くことが極めて重要である。それと共に、燃料挙動を予測して燃料の健全性を評価する必要がある。

なお、本報告は、以前に行った超長寿命軽水動力炉用燃料についての検討結果⁽¹⁾を活用し、検討を深めたものである。また、被覆材の研究開発課題については、文献(2)に述べられている。

5.1 超高燃焼燃料ペレット

(1) 燃料とFPの化学状態

燃料の化学状態を知るため、超高燃焼時の燃料組成を評価した上で、燃料とFPの化学状態を熱力学平衡計算と照射後試験の観察結果から評価した。

- ① MOX燃料では、貴金属の生成割合が大きく、燃料中の酸素が燃焼に伴い過剰となるため、これまで以上に酸素ポテンシャルと関連付けた照射データの解析が重要である。
- ② SOLGASMIX-PVによる計算結果と照射後試験結果とを併せて検討すると、燃料の成立性が問題となるような点は特に指摘されないが、今後、更に評価に必要な熱力学データの取得と照射データの蓄積が必要である。

(2) 照射挙動

i) 高プルトニウム富化MOX燃料の照射挙動

最近の文献の調査により、以下の課題が抽出された。

- ① 高燃焼度領域におけるMOX燃料の照射データの取得
- ② FPガス放出挙動を中心として、燃料製造要因（ペレット微細構造）と関連付けたデータの取得、およびプルトニウムスポットの影響評価（均質なMOX燃料ペレットの製造）
- ③ 物性データの充実と照射挙動のデータベース化

ii) 超高燃焼燃料のFPガス放出とスエリング

FPガス放出とスエリング挙動については、相互に関連付けながら超高燃焼時のデータを蓄積して行く必要がある。

- ① FPガス放出は超高燃焼燃料の寿命を決定しうる重要な要因であるが、UO₂燃料の経験から組織変化、燃料温度との関係が明らかにされつつあるほか、リム効果について多くの知見が得られている。これらの知見をふまえて、今後、基礎過程の理解を深め、粒内拡散輸送機構や照射損傷蓄積機構の解明によってFPガス放出基礎過程を明らかにすることが望まれる。
- ② 組織変化と燃焼度、温度の関係、粒内気泡分布等の定量化、ガドリニア等の添加物の影響等について検討を進めて行くことが望まれる。

- ③ スエリング挙動については、結晶粒内及び粒界ガスバルブの寄与について調べるほか、ミクロ組織変化との関係が検討課題である。
- ④ 固体FPによるスエリングについても高燃焼度ではその影響が顕在化する可能性があり、FPやTRU元素の化学形態との関連において検討を進めて行く必要がある。

(3) 再処理性

- ① 高プルトニウム富化に伴う難溶性の高プルトニウム濃度粒子や金属析出物の増加によって、不溶解性残渣量が増加する。従って、これらの不溶解性残渣量の発生状況と高燃焼度MOX燃料の溶解特性の把握が必要である。
- ② そのほか、TRUの蓄積等によってバックエンドに広範に影響が広がると考えられることから、超高燃焼燃料開発に合わせて、バックエンド関連の研究も進めて行く必要がある。

5.2 TRU添加燃料

TRU酸化物の基本物性データの収集を行うとともに、TRU添加燃料の製造と照射挙動に関する調査を実施し、以下の課題を抽出した。

- (1) TRU酸化物の物性
 - i) 燃料設計上必要な物性値の整備
熱的特性、機械的特性、状態図（温度－組成－酸素ポテンシャルの関数）、蒸発データ、拡散等
 - ii) 燃料挙動の解析評価に用いる物性値の整備
粒成長、デンシフィケーション等
- (2) TRU添加燃料の製造
 - i) 高放射性燃料の製造技術の開発
 - ① 均質な燃料（PuスポットやTRUの偏在のない燃料）の製造技術の確立
 - ② O/Mの制御法の確立
 - ii) 遮蔽、臨界安全等の施設安全設計手法の確立
- (3) TRU添加燃料の照射挙動
 - ① ORIGENにかわる多群燃焼解析コードの開発
 - ② 熱伝導度、状態図等の基本的物性データの取得とアクチノイド系列としての理解
 - ③ スエリング（ヘリウム気泡、相変化の影響）、内面酸化（O/M変化）等の基本燃料挙動の把握
 - ④ 照射試験による基礎的な燃料挙動の把握

5.3 燃料棒および燃料集合体

燃料ペレットおよび被覆材の開発、ならびにその特性把握によって超高燃焼燃料の開発を進めるとともに、燃料棒および燃料集合体に関する試験が必要である。本報告では、燃料棒および燃料集合体に関する研究開発課題の検討は行わなかった。その検討は改めて行う必要がある。特に、燃料棒については、燃料と被覆管の相互作用に係る課題を主に照射試験によって確認する必要がある。

超高燃焼領域では、これまでの経験で予測しがたい現象が表面化することも考えられ、

燃料棒の照射試験による燃料挙動の把握と健全性確認が不可欠である。そのほか、燃料集合体の設計に必要なデータの蓄積も進めて行く必要がある。

参考文献

- (1) 内藤假孝、古田照夫、市川博喜、高野秀機、"超長寿命軽水動力炉心の設計研究", JAERI-M 91-028 (1991).
- (2) 永瀬文久、鈴木雅秀、鈴木康文、古田照夫、林 君夫、天野英俊、"超高燃焼燃料の研究開発課題の検討 - 被覆材の開発 - ", JAERI-M 93-104 (1993).

6. 研究開発の進め方

6.1 燃料開発の方向性

軽水炉燃料の開発は、これまでも高性能化、高燃焼度化等に向けて精力的に行われてきた。その基本的な考え方は、①素材開発、②燃料設計に必要なデータ取得、そして③照射ふるまいの把握と健全性の確認、に区分することができる。このうち、前者の2項目については、開発を目指す燃料概念に対応して目標が設定される。超高燃焼燃料の場合については、例えば、耐食性に優れた被覆材の開発と特性把握やFPガス放出の抑制可能なペレットの開発が考えられる。

新しい燃料概念の成立性を確認するための手段として、照射試験は欠くことができないものである。燃料は照射下で、核分裂に伴って多成分、多元系を構成し、時間と共にその状態が変化する。同時に発熱と温度勾配の存在が燃料のふるまいを極めて複雑なものにする。これに対応するためには、燃料挙動解析コードの開発が極めて重要であるが、併せて照射試験によって具体的に燃料挙動を確認していくことが欠かせない。今後、燃料挙動解析コードを高度化することによって、燃料開発が相当合理化されるとしても、実際の照射試験による燃料ふるまいの把握と健全性確認は避けて通れないものである。

照射試験としては、i) 燃料が実際に使用される環境において長時間照射する定常照射試験、ii) 燃料がその寿命中に経験する可能性のある過渡時等の出力の変動を模擬した試験、さらには、iii) 事故時の燃料挙動を把握するための試験、が考えられる。これらの試験の内容は、炉心設計に依存するところが大きいが、基本的に従来の考え方を踏襲することで特に大きな問題はないと考えることができる。ただし、超高燃焼燃料の場合、炉内滞在時間が10年の長期に及ぶことから、より合理的な照射試験が必要となる。また、燃料開発を合理的に進めるための付加的な試験が必要である。この観点から、上記の照射試験に加えて燃料の照射挙動をより基礎的に理解するための研究が重要となる。さらには、これまでに蓄積されている超高燃焼度でのデータが少ないとから、その充実を図ることを目的とした試験が必要になると考える。

このような考え方を立ち、今後の燃料開発の展開を考える上で、大きく分けて以下の2つの視点が必要であると考える。

- ①燃料ふるまいの各素過程の理論的理解とモデリング
- ②高燃焼度領域を中心とした照射データの蓄積とその解析

これらの視点は、原研については、その役割や所有する研究開発設備を考慮すると、特に重要性が大きいと言うことができる。

これまでの燃料ふるまいの理解は、残念ながら経験的な面が強く、その原因となる素過程の理論化は十分でないと言わざるを得ない。従って、この基礎的な研究に今後重点的に取り組むことが必要である。例えば、FPガス放出挙動については、各種パラメータ（プルトニウム富化度、結晶粒径、燃料密度、燃料温度等）に対応した照射データの蓄積が必要であるが、同時に微視的にバブルの挙動を追求する必要がある。粒内に生成したFPガスバブルの粒界への移行、マトリックスへの再溶解、燃料組織変化との相関

等のバブルダイナミックスを解明することは、FPガス放出の理解と改良ペレットの開発にとって非常に大切なものである。

燃料被覆に関しては、材料選択によって各々差異があるものの基本的には水側腐食と照射損傷がある。水側腐食では現行ジルカロイ被覆に認められる炉内腐食と炉外腐食の相違について理論的に説明できるには至っておらず、照射の材料への影響と併せて、使用環境としての水の放射線分解の影響を重畠させた統一的解釈を与える機構の解明が必要とされる。また、被覆としてステンレス鋼を選択する場合には照射誘起応力腐食割れ（IASCC）機構を同様の観点から解明する必要がある。

照射損傷は原子炉内で使用される材料にとって宿命的な現象であり、照射損傷の素過程を解明するだけでなく、析出物の損傷過程を含めて追求して行くことが是非とも必要となる。

6.2 燃料開発技術の展開

燃料開発の基本的考え方は、上述のようにこれまでの手法を踏襲することで特に問題はないと考える。ただし、今後高燃焼度化を目指す場合、照射データひとつをとっても、その取得には長時間を要することになる。このため、従来の手法に加えて新しい技術を取り入れた燃料開発が必要となる。

(1) 加速照射試験

照射試験を短縮化させる手段として加速照射試験が挙げられる。加速照射試験は、燃料のおかれる通常の環境よりも厳しい条件において照射を行うもので、例えば、燃焼度や反応速度を通常よりも高い値に設定する。短期間でデータを取得できるので、燃料開発が長期化することへの対応手段としては極めて魅力的である。しかし、当然のことながら加速照射試験で得られた結果が、そのまま通常条件の燃料ふるまいを示すものではないことは明らかである。加速照射試験のデータを活かすためには、その前提として燃料ふるまいの機構が解明されていることが必要である。残念ながら、燃料ペレットにしても被覆材にしても、その条件整備は十分でなく、当面は、加速照射条件を含めた幅広い照射条件において試験を行い、基礎的な燃料ふるまい機構の把握および解明を進めながら加速照射試験を実施して行くことが必要である。

燃料ペレットに関する代表的加速条件としては、燃焼度が挙げられる。このためには、燃料単位体積当たりの出力を大きくする必要があり、照射条件に一定の制約が伴うが、加速照射によって照射期間を通常の約1/2にすることが可能である。

燃料棒は加速条件下ではより高温と大きな温度勾配をもつことになる。このことは通常の燃料よりも温度勾配を駆動力とするFPや気泡の移行が促進されることを意味する。また、高い燃料温度は、燃料の特性を通常照射条件の場合と異なるものに変化させることは予想され、事前に燃料のふるまいが温度や温度勾配の関数として把握されていることが必要である。現段階では超高燃焼燃料に関して適用可能な統一的な理論構築は行われておらず、今後、積極的な研究展開が望まれる。

被覆材に対する加速条件としては高速中性子束を高めることが不可欠であるが、これに加えて温度を高めたり、化学的条件をより厳しくすることが考えられる。しかしながら

ら、照射下では損傷過程と回復過程が同時に進行することから、加速試験を実施する前提条件として、各々の機構が十分に明らかにされていることが重要であり、素過程の機構解明の研究と併せて行わなければならない。また、ある照射量を受けた材料を途中から加速照射条件へ移行して特定条件を加速することも興味ある方法となる。この方法を採用することにより実機照射済燃料の被覆を利用して種々の材料試験を短期間に行える利点がある。

更に、材料の場合には、加速器を利用した加速照射があるが、加速粒子の差異に基づく損傷過程やミクロ組織発達過程との対応に十分留意して行う必要がある。

(2) 新燃料開発技術

従来の研究手段に加えて、今後とも新しい燃料開発技術を継続して追求していく必要がある。以下、代表的な項目を例示的に検討してみる。

3.2.5項で述べたように、超高燃焼燃料を含めてMOX燃料を今後軽水炉で使用して行くためには、各種の燃料ふるまいを酸素ポテンシャルの関数として把握して行くことが極めて重要である。燃料の酸素ポテンシャルの変化によって、FPの化学状態が変化し、被覆管内面腐食、SCC、スエリング、不溶解性残さの量と性状等が強く影響を受けることが予想される。従って、"その場測定"によって酸素ポテンシャルとこれらの事象との関連性を追求して行くことが望まれる。ただし、酸素ポテンシャルの測定は実験的には高度な技術を要求するものであり、照射場での"その場測定"には技術開発が必要である。

超高燃焼燃料の開発にとって、被覆管の水側腐食が技術的な課題となっている。上記の加速照射試験の項でも述べたように、新しい被覆候補材まで含めると対象となる試験項目は極めて広範囲である。従って、腐食機構を解明するために不可欠となると想定される材料を対象とした"その場測定"による腐食速度計測技術の確立が早急に行われることが望まれる。また、照射誘起腐食割れの場合には、炉内において亀裂進展速度を測定することが重要であり、亀裂進展を電気化学的または音響学的に計測する技術を確立することも望まれる。

燃料の化学状態のほかにも、例えば、スエリング、焼きしまり、クリープ、バブルダイナミックス等の燃料挙動を構成する素過程を抽出して試験を進めることができること、燃料の振る舞いを理解する上で重要であり、そのための試験技術の開発・高度化が望まれる。

材料の超高燃焼時までにおける機械的特性変化のうち、炉内動的試験を必要とするクリープ特性や疲労特性については、でき得る限り使用条件に類似した状態で、かつ試験片としては最も小型のものを用いた実験を実施しなければならないが、この際の計測諸量の検出・測定技術の開発が期待される。

(3) 計算機シミュレーション

燃料のふるまいは極めて複雑であることから、今後の燃料開発においては、計算機を用いた燃料挙動評価が今後有効な手段となる。しかし、このためには、上述のように燃料ふるまいの各素過程の理論的理解とモデリング、ならびに高燃焼度領域を中心とした照射データの蓄積が必要である。逆な言い方をすれば、各種の解析コードの開発・高度化に必要な理論の構築とデータの蓄積が今後の重要な課題であると言える。

ア. おわりに

超高燃焼燃料の開発は、21世紀の軽水炉燃料の一つの重要な目標となりうるものであるが、その達成のためには数多くの研究課題を解決していく必要がある。軽水炉燃料のこれまでの研究の中での未解決の項目も含めて、これまでの研究基盤を生かしながら超高燃焼燃料の開発研究に取り組むことによって、軽水炉燃料の技術水準の維持を図るばかりでなく、さらに発展させることが期待される。

このような観点から、超高燃焼燃料の開発課題の整理と摘出は、(財)原子力安全研究協会に委託して、学識経験者や軽水炉燃料の専門家からなる超高燃焼燃料調査検討委員会のご協力によって行われた(委員会構成をTable 7.1に示す)。本報告書は、同委員会の調査報告書をベースに作成されたものである。同委員会は燃料(ペレット)と被覆に関するワーキンググループに分かれ活動をしたが、本報告書は燃料ペレットに関する調査結果をまとめたものである。超高燃焼燃料に関する研究開発課題の理解のために被覆材に関する別報⁽¹⁾も併せて参照されたい。

本報告書は、21世紀を展望して、軽水炉燃料に係る長期的な研究の軸となる燃料概念として超高燃焼燃料を位置づけ、その研究開発を提案したものであり、平成元年7月に発足した軽水炉将来技術開発計画チームにおける超高燃焼燃料に関する研究活動をまとめたものである。この報告書で示された燃料の研究開発課題と研究開発の進め方に係る提言が、燃料研究のひとつの指針となれば幸いである。

参考文献

- (1) 永瀬文久、鈴木雅秀、鈴木康文、古田照夫、林 君夫、天野英俊、”超高燃焼燃料の研究開発課題の検討－被覆材の開発－”, JAERI-M 93-104 (1993).

Table 7.1 超高燃焼燃料調査専門委員会委員構成
(敬称略、五十音順)

委員長	石野 栄	東京大学工学部原子力工学科教授
副委員長	野村 末雄	(財)核物質管理センター参与 (被覆ワーキンググループ主査)
委 員	穴田 博之	住友金属工業株式会社未来技術研究所新素材研究部 先端金属材料研究室参事補
	阿部 勝憲	東北大学工学部原子核工学科教授
	安部 勝洋	(株)神戸製鋼所鉄鋼事業本部生産本部 鉄鋼技術研究所特殊金属研究室主任研究員
	宇根 勝己	日本核燃料開発株式会社 第2研究部2.2グループ主任研究員
	木下 幹康	(財)電力中央研究所原子力部燃料研究室専門役
	小松 和志	ニュークリア・デベロップメント株式会社 第二研究部材料技術開発室長
	四竈 樹男	東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設助教授
	関村 直人	東京大学工学部附属原子力工学研究施設助教授
	辻 利秀	名古屋大学工学部原子核工学科助教授
	古屋 広高	九州大学工学部応用原子核工学科教授 (燃料ワーキンググループ主査)
	目賀田匡夫	原子燃料工業株式会社主幹技師長

謝 言

軽水炉将来技術開発計画特別チームのテーマのひとつとして、本研究を完遂できたことを、研究のご指導を頂いた松浦祥次郎理事（原研東海研究所副所長）に厚くお礼申し上げます。また、本研究についてご支援を頂いた市川達生副所長に感謝申し上げます。

本報告書のベースとなる委託調査に当って力添えを頂いた石野栄東京大学教授、古屋廣高九州大学教授、野村末男核物質管理センター参与ほか、超高燃焼燃料調査検討委員会の各委員、ならびに、（財）原子力安全技術協会調査部の石川秀高課長、佐藤貞明課長補佐および徳村由美子氏に感謝致します。

本研究の遂行にあたり有益なご意見を頂いた軽水炉将来技術開発計画特別チームの東稔達三チームリーダー、中田宏勝サブリーダーほか同特別チームの皆様に感謝致します。また、本報告書の作成にあたって、草稿閲読および貴重な助言を頂いた燃料・材料工学部燃料照射研究室の福田幸朔室長および湊和生氏に感謝致します。

付録 1 超高燃焼燃料に要求される特性の検討

1. はじめに

原子炉の設置に当たっては、燃料の健全性や安全性の評価が求められ、この評価は、原子力安全委員会が定めた安全審査指針に基づいて行われる。軽水型原子炉施設の安全審査指針の体系は、基本的指針として『原子炉立地審査指針及びその適用に関する判断のめやす』と『発電用軽水型原子炉施設に関する安全設計審査指針』があり、両者をつなぐ『発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針』から成立し、基本的指針を補完する『軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針』、『発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針』等の各指針がある。更に、指針の適用について明確にした安全委員会の了承事項、原子炉安全専門審査会内規が援用されている。指針に定められた項目は数多いが、燃料の健全性評価や安全性評価として直接的に関係し、かつ、燃料被覆管材料の選定を進めていく上で念頭においておく必要があろうと考えられる事項について以下にまとめる。

言うまでもなく、超高燃焼燃料は新しい概念のもとに開発を行おうとするものであり、原子力安全委員会の基本的姿勢として、技術的知見の進歩にともない指針の見直しを行う、また、指針に適合しない場合であっても、指針を満足した場合と同等またはそれを上回る安全性が確保し得る場合を排除しないということからみて、必ずしも現行の審査指針に拘泥する必要はないものと考えられ、今後議論していくべき課題の一つであろう。

2. 『発電用軽水型原子炉施設に関する安全設計審査指針』

本指針は、確認すべき安全設計の基本の方針を定めたものであり、燃料に関しては、

V. 原子炉及び原子炉停止系 指針12. 燃料設計

1. 燃料集合体は、原子炉内における使用期間中に生じ得る種々の因子を考慮しても、その健全性を失うことが無い設計であること。
2. 燃料集合体は、輸送及び取扱い中に過度の変形を生じないこと。

がある。

この解説として、「『生じ得る種々の因子』とは、燃料棒の内外圧差、燃料棒及び他の材料の照射、負荷の変化により起こる圧力・温度の変化、化学的効果、静的・動的荷重、燃料ペレットの変形、燃料棒内のガス組成の変化等をいう」と説明がある。

また、解説の用語の定義に、「燃料の許容設計限界」があり、このめやすとしては、「燃料ペレットの最高温度、燃料被覆管の最高温度、最大熱流束、最小限界熱流束比、最小限界出力比、燃料ペレットの最大エンタルピ、燃料被覆管の最大変形量等が判断の基礎となる」とされている。

本指針に基づき現行で行われている申請書から機械設計に関する部分を抜粋したものの例が、文献(1)の別添一(BWR)および別添二(PWR)に示されている。

これらの評価には、実験で得られたデータのみならず、信頼性のあると認められた燃

料挙動解析コードによる燃料挙動解析が行われている。

更に、最近の燃料高燃焼度化の動きのなかで、燃料健全性について検討されている項目を以下に列挙する。

<u>BWR</u>	<u>PWR</u>
被覆管表面酸化及び水素脆化	被覆管腐食及び水素吸収
F Pガス放出率及び燃料棒内圧	燃料棒内圧
P C I破損	P C I破損
被覆管機械特性	被覆管機械特性
被覆管照射成長	集合体の伸び等
フレッティング腐食	フレッティング摩耗
クリープ圧潰	燃料中心温度

両炉型でそれぞれ検討項目の取り上げ方に違いがあるが、燃料の高燃焼利用により影響を受ける炉内滞在期間の長期化、中性子照射量の増加及び核分裂生成物の蓄積から発生する項目であり、内容はほぼ同じである。これらについても、実験データの参照及び燃料挙動解析コードによる解析が行われている。

3. 『発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針』

本指針は、原子炉施設の安全評価の妥当性について判断する際の基礎を示すことを目的に定められたものである。評価すべき範囲として、運転時の異常な過渡変化及び事故があり、前者の選定事象では、①炉心内の反応度又は出力分布の異常な変化、②炉心内の熱発生又は熱除去の異常な変化、③原子炉冷却材圧力又は原子炉冷却材保有量の異常な変化、④その他原子炉施設の設計により必要と認められる事象が考慮され、後者の選定事象では、①原子炉冷却材の喪失又は炉心冷却状態の著しい変化、②反応度の異常な投入又は原子炉出力の急激な変化、③環境への放射性物質の異常な放出、④原子炉格納容器内圧力、雰囲気等の異常な変化、⑤その他原子炉施設の設計により必要と認められる事象が挙げられている。

そして、両者の判断基準は、

運転時の異常な過渡変化

- (1) 最小限界熱流束比又は最小限界出力比が許容限界値以内であること。
- (2) 燃料被覆管は機械的に破損しないこと。
- (3) 燃料エンタルピは許容限界値以下であること。
- (4) 原子炉冷却材圧力バウンダリにかかる圧力は、最高使用圧力の1.1倍以下であること。

事故

- (1) 炉心は著しい損傷に至ることなく、かつ、十分な冷却が可能であること。
- (2) 燃料エンタルピは制限値を超えないこと。
- (3) 原子炉冷却材圧力バウンダリにかかる圧力は、最高使用圧力の1.2倍以下であること。

- (4) 原子炉格納容器バウンダリにかかる圧力は、最高使用圧力以下であること。
- (5) 周辺の公衆に対し、著しい放射線被ばくのリスクを与えないこと。

となっている。

事故の評価には、基本的指針である本指針を補完する指針として定められた『軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針』や『発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針』等を用いて行われる。

安全評価における燃料の健全性評価に当たっては、過渡事象と事故との間に大きな差異がある。即ち、過渡事象では、燃料の破損が認められていないことに対して、事故では燃料破損が許されることである。そして、これを判断する基準が、“燃料被覆管は機械的に破損しないこと。”であり、この解釈の明確化が原子炉安全基準部会報告書としてまとめられ、原子力安全委員会で了承されている。

この報告書によれば、“燃料被覆管は機械的に破損しないこと”、とは、運転時の異常な過渡変化時に、“燃料被覆管に対する機械的な負荷によって貫通性損傷が系統的には生じないこと”、とされ、具体的判断基準は、被覆管の過歪による損傷を防止する条件、即ち、“被覆管の円周方向の平均塑性歪が1%以下であること”、で代表させてている。そして、被覆管の過歪はペレット被覆管機械的相互作用により生じるもののが支配的であり、ペレットの熱膨張量と関係付けられるので、熱的指標である線出力密度あるいは燃料温度により評価することができるとされている。

この検討に当たっては、燃料の貫通性損傷は、熱的損傷モード、機械的損傷モード、その他の損傷モードに大別され、熱的損傷モードに対して、BWRにおいて最小限界出力比、PWRにおいて最小限界熱流速比による判断基準を設けるとともに、反応度投入事象に対し、エンタルピによる判断基準を設けることにより燃料損傷の防止が図られている。機械的損傷モードに対しては、PCIによる損傷、内圧破裂、外圧挫屈が検討され、被覆の過歪を1%に抑えれば内圧破裂は生じず、外圧挫屈は冷却材圧力バウンダリの健全性判断基準内で生じないと結論されている。PCI損傷については、運転時の異常な過渡変化時にPCIにより燃料の系統的損傷が生ずる可能性は十分小さいと判断されている。また、その他の損傷モードとして疲労、フレティング摩耗、酸化があるが、これらは運転時の異常な過渡変化によって発生するものではなく、燃料の機械設計で十分考慮されているので、燃料に系統的な損傷を発生させる因子とはならないと判断されている。

事故評価のなかで燃料被覆管に対し明瞭な規定のあるのは、冷却材喪失時に炉心の冷却可能な形状を維持しつつこれを冷却し、放射性核分裂生成物の周辺への放出を抑制する目的で設置される非常用炉心冷却系の機能及び性能を評価する『軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針』である。

本指針の判断基準は、

- (1) 燃料被覆の温度の計算値の最高値は、1200°C以下であること。
- (2) 燃料被覆の化学量論的酸化量の計算値は、酸化反応が著しくなる前の被覆管厚さの15%以下であること。
- (3) 炉心で燃料被覆及び構造材が水と反応するに伴い発生する水素の量は、格

納容器の健全性確保の見地から、十分低い値であること。

- (4) 燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期にわたって行われることが可能であること。

であり、これらの根拠については本指針の解説に詳細に述べられている。

即ち、基準の(1)及び(2)に示される温度制限および酸化量制限の目的は、冷却材喪失事故の過程で燃料被覆管がその延性を極度に失うことなく、炉心の冷却可能な形状を維持し得ることを保証することである。基準の(3)は、発生水素が格納容器内の雰囲気と混合し、格納容器内圧を若干上昇させるばかりでなく、雰囲気のガス組成によっては燃焼または爆轟の可能性を生じ、格納容器の健全性に影響を与えることを防止することを要求している。基準(4)は、事故発生後の主要な熱源の一つである核分裂生成物の中には、きわめて半減期の長い核種もあり、これら核種の崩壊熱は、事故後長期間にわたって炉心から除去される必要があり、非常用炉心冷却系がこのような長期間にわたる冷却が行えるような機能を有することを求めている。

『発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針』の判断基準は、

- (1) 運転時の異常な過渡変化にあっては、

- 1) 燃料エンタルビの最大値は、燃料棒内圧から冷却材圧力を差し引いた圧力(燃料棒内外圧差)に依存して決定されるFig.A1.1に示す燃料エンタルビ(燃料の許容設計限界)を超えないこと。
- 2) 原子炉冷却材圧力バウンダリにかかる圧力は、最高使用圧力の1.1倍以下であること。

- (2) 事故にあっては、

- 1) 燃料エンタルビの最大値は、230 cal/g·UO₂を超えないこと。
- 2) 原子炉冷却材圧力バウンダリにかかる圧力は、最高使用圧力の1.2倍の以下であること。

- (3) 運転時の異常な過渡変化及び事故にあっては、浸水燃料の破裂による衝撃圧力等の発生によっても、原子炉停止能力及び原子炉圧力容器の健全性を損なわないこと。

である。

ここで、燃料の許容設計限界の説明で、判断基準(1)-1)に示す燃料エンタルビの制限値は、運転時の異常な過渡変化における燃料被覆の破損防止を意図したものである。急激な反応度投入事象における燃料破損は、浸水燃料を除き、被覆管の高温破裂、溶融及び脆化に起因するものと、燃料ペレットの溶融、蒸発に起因するものとに分類できるが、判断基準(1)-1)は、このうち前者の燃料被覆の破損防止を要求するものであるとされている。

燃焼の進んだ燃料に関して特に考慮すべき事項については、燃料の燃焼が進むと、中性子照射効果により、被覆材の延性が低下するため、反応度投入事象において、ペレットの急激な熱膨張に伴い、被覆管に割れが生じて燃料が破損する可能性があるとして、

今後の課題とされている。

以上述べた指針の内容とほぼ同様のことは、超高燃焼燃料に関しても要求されるものと考えるべきであり、それらを満足するデータを取得することが必要となるであろう。

参考文献

- (1) 永瀬文久、鈴木雅秀、鈴木康文、古田照夫、林 君夫、天野英俊、”超高燃焼燃料の研究開発課題の検討－被覆材の開発－”, JAERI-M 投稿 (1993).

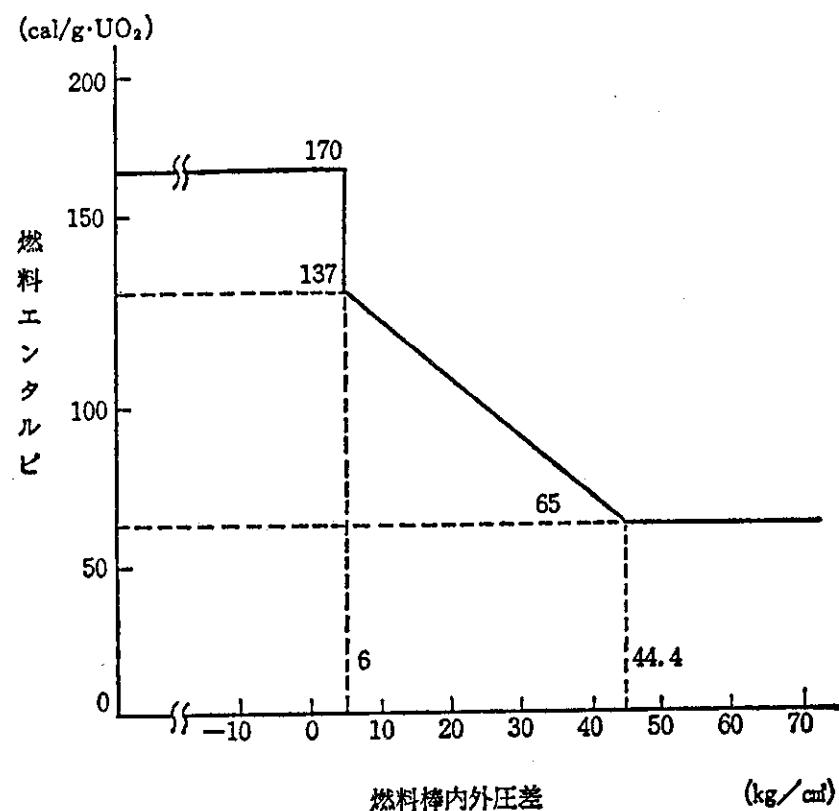


Fig. A1.1 反応度投入事象における燃料の許容設計限界

付録 2 SOLGASMIX-PV コードにおける 角解析方法

温度及び圧力が一定という条件の下では、系は高いGibbs自由エネルギー G_1 の状態から低いGibbs自由エネルギー G_2 の状態へと進んでいき、 G の最小値において平衡状態となる。従って化学平衡点において常に系の自由エネルギーは最小となっている。この原理に基づいて複数の化学種を含む系の平衡組成を計算する方法を自由エネルギー最小化法といい、Whiteら⁽¹⁾によって開発された。同法による平衡組成の計算は、さまざまな化学種間の化学反応を予め考慮する必要がないという利点を有する。また、当初理想気体のみにしか適用できなかった同法も、その後 Erikssonによって複数の液相、固相混合物を含む系についても取り扱えるように改善された (SOLGASMIXコード)^(2, 3)。

SOLGASMIX-PVコード⁽⁴⁾は、SOLGASMIXコードを改良して、定圧条件のほかに、定容条件においても計算できるようにしたものである⁽⁵⁾。以下にその基本的な内容を示す。

① 化学平衡

化学反応が起こる系で平衡状態を取り扱う場合、その系がどのような制約条件にあるかによって解析に使用する熱力学的関数が異なる。等エントロピー、等積、等圧、等温の代表的な組み合わせは熱力学第一法則、第二法則から次のようになる。

$$U = Q - W \quad dU = TdS - pdV + \sum_i \left(\frac{\partial U}{\partial N_i} \right)_{S, V, N_j} dN_i \quad (1)$$

$$H = U + PV \quad dH = TdS - Vdp + \sum_i \left(\frac{\partial H}{\partial N_i} \right)_{S, P, N_j} dN_i \quad (2)$$

$$F = U - TS \quad dF = -SdT - pdV + \sum_i \left(\frac{\partial F}{\partial N_i} \right)_{T, V, N_j} dN_i \quad (3)$$

$$G = H - TS \quad dG = -SdT - Vdp + \sum_i \left(\frac{\partial G}{\partial N_i} \right)_{T, P, N_j} dN_i \quad (4)$$

ここで原子*i*が1ヶ又は1モル当たり変化する時変動する上述の熱力学関数の値を原子*i*の化学ポテンシャル、 μ_i とすると次のようになる。

$$\mu_i = \left(\frac{\partial U}{\partial N_i} \right)_{S, V, N_j} = \left(\frac{\partial H}{\partial N_i} \right)_{S, P, N_j} = \left(\frac{\partial F}{\partial N_i} \right)_{T, V, N_j} = \left(\frac{\partial G}{\partial N_i} \right)_{T, P, N_j} \quad (5)$$

閉じた系において、化学反応が起こるとエントロピーは増加し続け、やがて最大値に到達し平衡に達する。このときエントロピー変化、体積変化、内部エネルギー変化がなくなるので、 $dS = dV = dU = 0$ となる。この関係式と(1)式より、化学平衡時には次の関係式が成立する。

$$\sum_i \mu_i dN_i = 0 \quad (6)$$

我々が最も多く取り扱う系は、等温、等圧の系であるから(6)式を(4)式に適用すると等温、等圧の系における化学平衡は次式が成立するとき成り立つ。

$$(dG)_{T, P} = 0 \quad (7)$$

(4)式の (dG) 表現式の第1項のエントロピーにかかる項はマイナスであるので、化学平衡時エントロピーが最大になることは、Gibbs自由エネルギーが最小になることを意味する。つまり、Gibbs自由エネルギーが最小になるとき化学平衡が成り立つ。

(2)多成分、多相化学平衡 SOL GASMIX-PVプログラムの基礎理論

等温、等圧下において、多成分の元素が気相、固溶体、混合液相、純粋な凝縮相に分布し化学反応が起き平衡に達した時、多成分のGibbs自由エネルギーが最小にならなければならぬ。いま対象としている系内に存在する原子*i*のモル数を*n_i*、化学ポテンシャル（1モル当たりを*g_i*、標準状態での化学ポテンシャルを*g[°]_i*、気相、固溶体、混合液相中の活動度を*a_i*、温度をT、気体定数をRとすれば、多成分、多相系におけるGibbs自由エネルギーは次式で表される。

$$G = \sum_i n_i g_i = \sum_i n_i (g^{\circ}_i + RT \ln a_i) \quad (8)$$

ここで第一の等式は(4)、(5)式より簡単に導出できる。次に第二の等式、すなわち化学ポテンシャルが右辺のカッコ内の式で表されることを理想気体を例にとり証明する。

温度が一定の条件下で1モルの気体のGibbs自由エネルギーの圧力変化を考えると、(4)式より次のようになる。

$$\left(\frac{\partial G}{\partial P} \right)_T = - \frac{RT}{P} \quad (9)$$

いま圧力をP₀からPに変えると△Gは次式となる。

$$\Delta G^{\circ} - G = RT \ln \frac{P}{P_0} \quad (10)$$

この式でP₀=1気圧、G[°]をそのときのGibbs自由エネルギー、圧力Pを分圧と考え、原子の種類を表す添字*i*を付け、G→gに変えれば、(8)式が導出できる。気体の場合、分圧はそのまま活動度になるが、固溶体、混合液相についてもRaoultの法則を適用すれば、理想気体と同様に取り扱うことが出来る。

次に多成分、多相の系で(8)式がどのように表されるかを考える。いま気相の数を1、固溶体、混合液体の相数をq、純粋な凝縮相の数をsとすれば(8)式は各状態相について次のように表される。

$$\frac{G}{RT} = \sum_{i=1}^{m_p} n_{pi} \left[\left(\frac{g^{\circ}}{RT} \right)_{pi} \ln P + \ln \left(\frac{n_{pi}}{N_p} \right) \right] + \sum_{p=2}^{q+1} \sum_{i=1}^{m_p} \left[\left(\frac{g^{\circ}}{RT} \right)_{pi} + \ln \left(\frac{n_{pi}}{N_p} \right) \right]$$

$$+ \sum_{p=q+2}^{q+s+1} \sum_{i=1}^{m_p} n_{pi} \left(\frac{g^o}{RT} \right)_{pi} \quad (11)$$

ここで m_p は P 相における成分の数、 N_p は P 相中の成分のモル数の和、 n_{pi} は P 相中の原子 i のモル数、 P は気相の圧力である。各項について説明すると、右辺第一項はガス状に存在する原子（分子）の Gibbs の自由エネルギーを示す。気相中の全圧力は P であるから、 n_{pi} モル存在する原子（分子）の分圧、すなわち活量 a_i は

$$a_i = \frac{n_{pi}}{\sum_i n_{pi}} P = \frac{n_{pi}}{N_p} P \quad (12)$$

となり、右辺第一項カッコ内の第二項、三項が導出できる。

(11)式の右辺第二項は、固溶相、混合液相中の Gibbs 自由エネルギーを示す。右辺第一項カッコ内と異なる点は、気相は一相しか存在しないため一相のみの Gibbs 自由エネルギーを計算すれば良いが、固溶相（混合凝縮相）では $(U, Pu)O_2$ 相を始め多くの相が存在するので各相について全て計算しなければならないことである。ここでは相の数を q として計算している。最後に右辺の第三項は組成不变の凝縮相（定比化合物）であり、すべての成分について $a_i = 1$ であるので標準状態での Gibbs 自由エネルギーのみとなる。

多成分、多相系において(11)式の Gibbs 自由エネルギーが最小となると化学平衡が成り立つ。反応の過程において各成分の質量保存則は必ず成立しなければならないので、次の方程式が境界条件として常に成立しなければならない。

$$\sum_{i=1}^{m_p} a_{pij} n_{pi} + \sum_{p=2}^{q+1} \sum_{i=1}^{m_p} a_{pij} n_{pi} + \sum_{p=q+2}^{p+q+2} \sum_{i=1}^{m_p} a_{pij} n_{pi} = b_j \quad (j = 1, 2, \dots, l) \quad (13)$$

ここで a_{pij} は P 相における分子 i 中の j の原子数である。(11)式と同様に、左辺第一項が気相、第二項が固溶体、混合液体、第三項が凝縮相である。l は全元素数を示す。(11)式を(13)式の境界条件で最小化するには Lagrange の未定係数法を用いる。この方法によれば(11)式について次の方程式が成立する。

$$\begin{aligned} & \sum_{p=1}^{q+1} \sum_{k=1}^l \pi_k \gamma_{pj_k} + \sum_p^m \left[\frac{N_p}{Y_p} - 1 \right] \sum_{i=1}^{m_p} a_{pij} y_{pi} + \sum_{p=q+2}^{q+s+1} a_{pij} n_{pi} \\ &= \sum_{p=1}^{q+1} \sum_{i=1}^{m_p} a_{pij} (\phi_{pi} - y_{pi}) + b_j \quad (j = 1, 2, \dots, l) \end{aligned} \quad (14)$$

ここで y_{pi} は任意の点 X_{pi} のまわりに Taylor 展開したときの中心となる点であり、 π_k は Lagrange の未定係数で γ_{pj_k} 、 ϕ_{pi} は次のようになる。

$$\gamma_{pj_k} = \sum_{i=1}^{m_p} (a_{pij} a_{pik}) y_{pi} \quad (15)$$

$$\phi_{p,i} = y_{p,i} \left[\frac{g^o}{RT_{p,i}} \right] + \ln p + \ln \left(\frac{y_{p,i}}{Y_p} \right) \quad (p=1) \quad (16)$$

$$\phi_{p,i} = y_{p,i} \left[\left(\frac{g^o}{RT} \right)_{p,i} + \ln \left(\frac{y_{p,i}}{Y_p} \right) \right] \quad (p=2, 3, \dots, q+1) \quad (17)$$

$$\sum_{j=1}^i \pi_j \sum_{i=1}^{m_p} a_{p,i,j} y_{p,i} = \sum_{i=1}^{m_p} \phi_{p,i} \quad (p=1, 2, \dots, q+s+1; i=1) \quad (18)$$

$$\sum_{j=1}^i a_{p,i,j} \pi_j = \left(\frac{g^o}{RT} \right)_{p,i} \quad (p=q+2, \dots, q+s+1; i=1) \quad (19)$$

$$Y_p = \sum_{i=1}^{m_p} y_{p,i} \quad (20)$$

計算プログラムでは、以上の方程式からGibbsの自由エネルギーの最小値を得るため、常に $n_{p,i}$ の値が負にならないように繰返し演算し、最大傾斜法によってこの解を求める。

参考文献

- (1) W.B.White et. al., J. Chem. Phys. 28 (1958) p.751.
- (2) G.Eriksson, Acta Chem. Scand. 25 (1971) p.2651.
- (3) G.Eriksson and E.Rosen, Chemica Scripta 4 (1973) p.2651.
- (4) T.M.Besmann, ORNL/TM-5775 (1977).
- (5) 小川徹、”多相化学平衡計算プログラム SOLGASMIX-PV”，原研未公開所内報 (1980).