

Pu 再分布挙動評価手法の高度化
(研究報告)

2000年3月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquires about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

Pu 再分布挙動評価手法の高度化
(研究報告書)

石井 徹哉^{*1} 根本 潤一^{*2} 浅賀 健男^{*1}

要 旨

高速炉用ペレット型 MOX 燃料では、照射により、製造時とは異なる Pu 濃度分布が形成されるとの Pu 再分布挙動が生じうる。燃料内に Pu 濃度分布が形成されることとは、燃料の熱的状態を考える上で大きな影響をもたらすものであることから、Pu 再分布挙動を適切に評価可能な手法を開発する必要がある。

そこで本検討では、1992 年時に開発した Pu 再分布挙動評価用の簡易モデルを高度化することで、照射中の変化履歴も含めて、適切に Pu 再分布挙動を評価できる手法を構築することを試みた。

以下には、その概要を記す。

- 1) 92 年時に開発した Pu 再分布挙動評価用簡易モデルの高度化を行い、これを JNC にて開発し、改良を進めている燃料挙動解析コード CEDAR に組み込むことで、Pu 再分布挙動評価手法を構築した。
- 2) 構築した Pu 再分布挙動評価手法について、照射試験結果を用いた評価結果の較正を行った結果、概ね、±3wt.%程度の幅で、照射が終了した時点の燃料中心部の Pu 濃度を再現できることを確認した。
- 3) 構築した Pu 再分布挙動評価手法により、燃料に生じうる Pu 再分布挙動の傾向について検討し、照射の初期段階は、ポア移動に伴う気相輸送により Pu 濃度が変化し、以降は、燃焼に伴う U, Pu 量の変化と固相輸送との競合が状態が継続されながら、Pu 濃度が変化するとの考察が得られた。また、製造時の燃料組成のうちの O/M 比は、Pu 再分布挙動に対する影響が大きく、照射の初期段階の Pu 再分布挙動は、U-Pu 相互拡散係数が有する O/M 比依存性に強く支配されるかたちで生じるとの考察も得られた。

* 1 大洗工学センター システム技術開発部 燃料材料技術開発 Gr

* 2 原子力システム株式会社

Modification of the evaluation model for Pu redistribution phenomena

Tetsuya ISHII *¹ Junichi NEMOTO *² Takeo ASAGA *¹

ABSTRACT

During the irradiation, the Pu redistribution phenomena would occur in the FBR MOX fuel pellets. The phenomena would considerably affect on the thermal properties of the fuels, therefore, it is need to establish the evaluation method for Pu redistribution phenomena.

In JNC, the efforts for development of the evaluation model for the phenomena had been continued and the simple evaluation model was constructed in 1992.

In this work, the modification of the simple model developed in JNC has been done and the following results were obtained.

- 1) Based on the recent data of the MOX fuel irradiation tests, the evaluation model for Pu redistribution phenomena constructed in 1992 is modified. And the model is included into the fuel performance analysis code "CEDAR".
- 2) To calibrate the modified CEDAR code, it is confirmed that the uncertainty in the Pu concentration evaluation for the center of the fuel pellet at EOL is about $\pm 3\text{wt.\%}$.
- 3) Based on the results of the evaluations using the modified CEDAR code, it is found that, in the early stage of the irradiation, the Pu redistribution is controlled by the vapor transportation mechanism via pores, and after that, the Pu redistribution is kept in progress due to the thermal diffusion mechanism with the change of the Pu concentration due to the degradation of U and Pu by fissions.

And it is also found that the O/M ratio dependence of the U-Pu inter diffusion coefficients would affect on the Pu redistribution mechanisms, in especial, in the early stage of the irradiation.

*¹ Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division,
O-Arai Engineering Center

*² Nuclear Energy System Inc.

目次

| | |
|---------------------------------|----|
| 第1章 緒言 | 1 |
| 第2章 Pu再分布挙動に関する従来知見の整理 | 2 |
| 2-1. Pu再分布挙動に関する研究経緯 | 2 |
| 2-2. 提唱されているPu再分布機構のモデルの概要 | 3 |
| 2-2-1. 熱拡散モデル | 3 |
| 2-2-2. 気相輸送モデル | 4 |
| 第3章 Pu再分布挙動評価手法の構築 | 7 |
| 3-1. Pu再分布挙動評価手法の全体像 | 7 |
| 3-1-1. 評価対象とする現象の限定 | 7 |
| 3-1-2. 多種の燃料挙動を考慮する統合的な評価手法の必要性 | 7 |
| 3-1-3. CEDARコードの概要 | 7 |
| 3-2. Pu再分布挙動評価モデル | 8 |
| 3-2-1. 熱拡散モデル | 9 |
| 3-2-2. 気相輸送モデル | 9 |
| 3-2-3. U-Pu相互拡散係数の評価方法 | 10 |
| 3-3. CEDARコードの改良 | 13 |
| 3-3-1. 燃焼計算機能の追加 | 13 |
| 3-3-2. 温度評価方法の改良 | 14 |
| 3-3-3. その他の改良：O/M比再分布評価手法の改良 | 18 |
| 第4章 Pu再分布挙動評価結果の検討 | 20 |
| 4-1. 較正係数の導入 | 20 |
| 4-2. 較正用データに用いた照射試験結果 | 21 |
| 4-3. 評価結果の妥当性に関する考察 | 21 |
| 4-3-1. 温度評価結果の妥当性検討方法 | 21 |
| 4-3-2. 温度評価結果の妥当性 | 22 |
| 4-3-3. Pu再分布量評価結果の妥当性 | 23 |
| 4-4. 燃料に生じうるPu再分布挙動に関する考察 | 24 |
| 4-4-1. Pu再分布挙動の傾向に関する考察 | 24 |
| 4-4-2. 製造時組成の効果に関する考察 | 25 |
| 第5章 今後の課題 | 27 |
| 5-1. 拡散係数測定値の拡充 | 27 |
| 5-2. 温度評価手法の再構築 | 27 |
| 5-3. 較正係数の最適化 | 28 |
| 第6章 結言 | 29 |
| 謝辞 | 30 |
| 参考文献 | 31 |

図表リスト

| | |
|---|----|
| 表 3-1-1 CEDAR コード改良に関する整理(1) | 33 |
| 表 3-1-2 CEDAR コード改良に関する整理(2) | 33 |
| 表 4-1 較正に用いた照射試験結果の一覧 | 33 |
| 図 2-1 気相輸送モデルによる評価例 | 34 |
| 図 2-2 熱拡散モデルによる評価例 | 34 |
| 図 2-3 Pu 再分布挙動の例 1 | 35 |
| 図 2-4 Pu 再分布挙動の例 2 | 35 |
| 図 3-1 CEDAR コード計算フローダイヤグラム | 36 |
| 図 3-2 拡散係数の O/M 比依存性 | 37 |
| 図 3-3 想定した燃焼チェーン | 38 |
| 図 3-4 リロケーション量評価式の再現性 | 39 |
| 図 4-1 中心空孔径評価における実測値に対する再現性 | 40 |
| 図 4-2-1-a B4M A60232 試料の温度履歴評価結果 | 41 |
| 図 4-2-1-b B4M A60232 試料の照射末期温度評価結果 | 41 |
| 図 4-2-1-c B4M A60232 試料の挙動評価結果 | 41 |
| 図 4-2-1-d B4M A60232 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 41 |
| 図 4-2-2-a B4M A60244 試料の温度履歴評価結果 | 42 |
| 図 4-2-2-b B4M A60244 試料の照射末期温度評価結果 | 42 |
| 図 4-2-2-c B4M A60244 試料の挙動評価結果 | 42 |
| 図 4-2-2-d B4M A60244 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 42 |
| 図 4-2-3-a B4M A60252 試料の温度履歴評価結果 | 43 |
| 図 4-2-3-b B4M A60252 試料の照射末期温度評価結果 | 43 |
| 図 4-2-3-c B4M A60252 試料の挙動評価結果 | 43 |
| 図 4-2-3-d B4M A60252 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 43 |
| 図 4-2-4-a A2D E3B173 試料の温度履歴評価結果 | 44 |
| 図 4-2-4-b A2D E3B173 試料の照射末期温度評価結果 | 44 |
| 図 4-2-4-c A2D E3B173 試料の挙動評価結果 | 44 |
| 図 4-2-4-d A2D E3B173 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 44 |
| 図 4-2-5-a A2D E3B1911 試料の温度履歴評価結果 | 45 |
| 図 4-2-5-b A2D E3B1911 試料の照射末期温度評価結果 | 45 |
| 図 4-2-5-c A2D E3B1911 試料の挙動評価結果 | 45 |
| 図 4-2-5-d A2D E3B1911 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 45 |
| 図 4-2-6-a A2D E3B1B13 試料の温度履歴評価結果 | 46 |
| 図 4-2-6-b A2D E3B1B13 試料の照射末期温度評価結果 | 46 |
| 図 4-2-6-c A2D E3B1B13 試料の挙動評価結果 | 46 |
| 図 4-2-6-d A2D E3B1B13 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 46 |
| 図 4-2-7-a A2D E3B1B31 試料の温度履歴評価結果 | 47 |
| 図 4-2-7-b A2D E3B1B31 試料の照射末期温度評価結果 | 47 |
| 図 4-2-7-c A2D E3B1B31 試料の挙動評価結果 | 47 |
| 図 4-2-7-d A2D E3B1B31 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 47 |
| 図 4-2-8-a A2D E3B282 試料の温度履歴評価結果 | 48 |
| 図 4-2-8-b A2D E3B282 試料の照射末期温度評価結果 | 48 |
| 図 4-2-8-c A2D E3B282 試料の挙動評価結果 | 48 |
| 図 4-2-8-d A2D E3B282 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 48 |
| 図 4-2-9-a Phenix P3 XD0572 試料の温度履歴評価結果 | 49 |
| 図 4-2-9-b Phenix P3 XD0572 試料の照射末期温度評価結果 | 49 |
| 図 4-2-9-c Phenix P3 XD0572 試料の挙動評価結果 | 49 |

| | |
|---|----|
| 図 4-2-9-d Phenix P3 XD0572 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 49 |
| 図 4-2-10-a Phenix P3 XD05D2 試料の温度履歴評価結果 | 50 |
| 図 4-2-10-b Phenix P3 XD05D2 試料の照射末期温度評価結果 | 50 |
| 図 4-2-10-c Phenix P3 XD05D2 試料の挙動評価結果 | 50 |
| 図 4-2-10-d Phenix P3 XD05D2 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 50 |
| 図 4-2-11-a Phenix P3 XD0781 試料の温度履歴評価結果 | 51 |
| 図 4-2-11-b Phenix P3 XD0781 試料の照射末期温度評価結果 | 51 |
| 図 4-2-11-c Phenix P3 XD0781 試料の挙動評価結果 | 51 |
| 図 4-2-11-d Phenix P3 XD0781 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 51 |
| 図 4-2-12-a Phenix P3 XD0992 試料の温度履歴評価結果 | 52 |
| 図 4-2-12-b Phenix P3 XD0992 試料の照射末期温度評価結果 | 52 |
| 図 4-2-12-c Phenix P3 XD0992 試料の挙動評価結果 | 52 |
| 図 4-2-12-d Phenix P3 XD0992 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 52 |
| 図 4-2-13-a Phenix P3 XD09J2 試料の温度履歴評価結果 | 53 |
| 図 4-2-13-b Phenix P3 XD09J2 試料の照射末期温度評価結果 | 53 |
| 図 4-2-13-c Phenix P3 XD09J2 試料の挙動評価結果 | 53 |
| 図 4-2-13-d Phenix P3 XD09J2 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 53 |
| 図 4-2-14-a Phenix P3 XD1051 試料の温度履歴評価結果 | 54 |
| 図 4-2-14-b Phenix P3 XD1051 試料の照射末期温度評価結果 | 54 |
| 図 4-2-14-c Phenix P3 XD1051 試料の挙動評価結果 | 54 |
| 図 4-2-14-d Phenix P3 XD1051 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 54 |
| 図 4-2-15-a Phenix P3 XD1071 試料の温度履歴評価結果 | 55 |
| 図 4-2-15-b Phenix P3 XD1071 試料の照射末期温度評価結果 | 55 |
| 図 4-2-15-c Phenix P3 XD1071 試料の挙動評価結果 | 55 |
| 図 4-2-15-d Phenix P3 XD1071 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 55 |
| 図 4-2-16-a Phenix P3 XD11A1 試料の温度履歴評価結果 | 56 |
| 図 4-2-16-b Phenix P3 XD11A1 試料の照射末期温度評価結果 | 56 |
| 図 4-2-16-c Phenix P3 XD11A1 試料の挙動評価結果 | 56 |
| 図 4-2-16-d Phenix P3 XD11A1 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 56 |
| 図 4-2-17-a Phenix P3 XD11F1 試料の温度履歴評価結果 | 57 |
| 図 4-2-17-b Phenix P3 XD11F1 試料の照射末期温度評価結果 | 57 |
| 図 4-2-17-c Phenix P3 XD11F1 試料の挙動評価結果 | 57 |
| 図 4-2-17-d Phenix P3 XD11F1 試料の照射末期 Pu 再分布量評価結果 | 57 |
| 図 4-3 Pu 再分布量評価における実測値に対する再現性 | 58 |
| (中心部 Pu 濃度に関して) | |
| 図 4-4 Pu 再分布量評価における実測値に対する再現性 | 58 |
| (照射末期時の燃料中心部での製造時からの Pu 濃度増加量に関して) | |
| 図 4-5-1 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の燃料温度への影響(1) | 59 |
| 図 4-5-2 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の燃料温度への影響(2) | 59 |
| 図 4-5-3 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の燃料温度への影響(3) | 60 |
| 図 4-5-4 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の燃料温度への影響(4) | 60 |
| 図 4-5-5 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の燃料温度への影響(5) | 61 |
| 図 4-6-1 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の比較(1) | 62 |
| (照射末期の径方向 Pu 濃度分布に関して) | |
| 図 4-6-2 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の比較(2) | 62 |
| (照射末期の径方向 Pu 濃度分布に関して) | |
| 図 4-6-3 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の比較(3) | 63 |
| (燃料中心部での Pu 濃度変化履歴に関して) | |

| | |
|---|----|
| 図 4-6-4 初期 O/M 比、Pu 濃度を変化させた場合の比較(4) ----- (燃料中心部での Pu 濃度変化履歴に関して) | 63 |
| 図 5-1 ギャップ部ガスがギャップ部伝熱に寄与する割合 ----- | 64 |
| 図 5-2 FP 化合物量のギャップ幅評価への影響 ----- | 64 |
| 図 5-3 FP 化合物量の温度評価への影響 ----- | 64 |
| 図 5-4 FP 化合物量の Pu 再分布量評価への影響 ----- | 64 |

第1章 緒言

高速炉実用化時の燃料形態の候補の一つとして、ペレット型 U, Pu 混合酸化物 (MOX) 燃料が考えられている。この MOX 燃料は、U, Pu が燃料内に均一に分布するよう製造されており、多くの研究炉で燃料として用いられ、様々な条件のもとで照射^{*}されてきた。

それら照射済燃料の照射後の機器分析試験等で得られた知見の中に、製造時の Pu 濃度分布（通常、Pu 濃度は均一となるよう燃料製造が行われる）が照射とともに不均一な分布へと変化する現象が多くの燃料で生じていたとの知見がある。

この、Pu 濃度分布が照射に伴い変化する現象は、Pu 再分布挙動と呼ばれている。Pu 濃度の変化は、融点や熱伝導度等、燃料の熱的な性質に対する影響を有する。このため、燃料の性能向上の検討等を行う上で、Pu 再分布挙動の機構を明確化し照射中の Pu 濃度の変化を定量的に予測評価する手法を確立することは、重要な研究課題の一つとして位置付けられている。

そこで、1992 年時に、Pu 再分布挙動の機構を明確化することを目的として、従来知見に基づく簡素な評価モデルを構築し、Pu 再分布挙動評価用計算プログラムを試作した¹⁾。線出力や製造時燃料組成等を限定した場合ではあるが、同プログラムを用いた計算評価により、照射後試験で得られた Pu 濃度分布を概ね再現できることから、従来の、Pu 再分布挙動は固相における熱拡散と燃料内の空隙を介しての気相輸送との両者により生じるとの知見を用いることで現実的な挙動評価を行い得るとの判断を得た。ただし、用いた評価モデルが簡素であることによる経時変化評価結果の信頼性向上や定量評価精度の向上が課題として残っていた。

今回は、主として経時変化評価結果の信頼性を向上させるとの観点から、92 年時に検討した簡素な評価モデルの改善として、Pu 再分布挙動と密接な関連を有する O/M 比再分布等の他の照射中の燃料挙動も考慮した統合的な挙動評価手法を構築することを考え、同手法による評価結果の妥当性については、主として「常陽」照射燃料のデータを用いた検討を行うこととした。

本報では、Pu 再分布挙動に関する従来知見を簡単に紹介するとともに、構築した評価モデルの詳細、モデルに基づき作成した計算プログラムによる評価結果等を報告する。

* 「照射」：原子炉運転中、燃料ピンは中性子を照射され続けることとなる。そのため、燃料ピンを原子炉に装荷して原子炉を運転することを、「燃料を照射する」との言い方で表現することが多い。同様の使い方をされる表現に「燃焼」という言葉もあるが、本報告中では主として「照射」を用い、核分裂による元素量の変化が関わる場合のみ「燃焼」という表現を用いている。

第2章 Pu再分布挙動に関する従来知見の整理

2-1. Pu再分布挙動に関する研究経緯

高速炉実用化時の燃料として有力視されているペレット型MOX燃料($U_{1-y}Pu_yO_2 \pm x$ として組成を記述することが多い)に関する研究では、20~30wt.%程度のPu濃度(燃料内に均一分布)で、定比である2.0よりも低いO/M比を有したhypostoichiometricな組成のものが多く用いられてきた。そのような燃料の多くには、照射後のX線マイクロアナライザ(XMA,あるいはEPMA)等による燃料径方向の元素定量分析の結果、照射により、燃料外周部のPu濃度は製造時とほぼ変わらないが、燃料中心部のPu濃度が製造時よりも高く、燃料中央部のPu濃度は製造時よりも低くなるとの傾向のPu濃度分布変化が生じることが確認された。

このような、照射に伴い燃料内のPu濃度分布が変化する現象が、Pu再分布挙動である。このPu再分布挙動は、高速炉開発の比較的早い時期から主要な研究対象の一つとして位置づけられ、発生機構の解明や定量的挙動評価モデルの構築を目的とする挙動解明に関する研究が行われてきた。ここでは、そのような従来の研究の流れや成果について簡単に整理して記す。

挙動解明に関する研究は、Pu再分布挙動が燃料内の成分元素であるPu及びUの拡散現象であるとの前提のもとに行われてきており、概ね3つの流れに分けることができる。まず一つの流れは、以下のものである。即ち、固体(固相)内で生じる拡散現象には、Soret効果²⁾ともいわれる温度勾配を駆動力とする熱拡散などがあることが知られている。これに関し、高速炉用MOX燃料の場合には、照射中に燃料の径方向に生じる温度勾配が極めて大きくなることから、照射燃料に認められたPu再分布挙動は熱拡散に支配されていると考え、熱拡散モデルによりPu再分布挙動を表現しようとする研究の流れがある。

二つ目の流れは、以下のものである。即ち、高速炉用MOX燃料は照射中に極めて高い温度を経験するため、燃料成分の固相から気相への移行、即ち蒸发现象が、燃料の挙動に無視できない影響を及ぼすと考えられる。これに関し、気相における物質の拡散は、一般に、固相内での拡散よりもはるかに速いと考えられることから、Pu再分布挙動は気相における蒸気種の拡散に支配されていると考え、気相輸送モデルによりPu再分布挙動を表現しようとする研究の流れがある。

残る三つ目の研究の流れは、熱拡散、気相輸送の両者が燃料内で同時に生じていると考え、両者を融合させたモデルによりPu再分布挙動を表現しようとするものである。

それらの研究成果は、概ね以下のようなものである。

まず、研究の初期には熱拡散、気相輸送のいずれかのみをPu再分布挙動の要因とする考え方方が主流であったが、そのような考えのもとでは照射試験で得られるPu濃度分布を良好に再現することはできなかった。例えば、気相輸送のみをPu再分布挙動の要因とする考え方に基づくと、Clementらの研究^{3,4)}に見られるように、高温部である燃料中心部近傍にのみ濃度変化が生じるとともに、燃料中心部のPu濃度は100%に近い極めて大きなものとなるとの評価結果が得られる(図2-1)。一方、熱拡散のみをPu再分布挙動の要因とする考え方に基づくと、例えばBoberらの研究^{5,6)}に見られるように、時間経過とともに燃料中心部のPu量は徐々にではあるが常に増加し、かつ、広い領域でPu濃度が変化するとの評価結果が得られる(図2-2)。これらに対し実際には、例えば、Aitkenらの論文⁷⁾中にある中期照射燃料のPu濃度分布(図2-3)にあるように、中心部近傍の極微小な範囲のPu濃度だけが製造時から数10%も増加するとは思われないこと、あるいは、Boberらの論文⁵⁾中に掲載されている短時間の炉外加熱試験結果(図2-4)にあるように、短時間では濃度変化の領域は非常に狭い範囲に限定されると考えられることなど、熱拡散モデル、気相輸送モデルとともに、評価結果に実際の挙動と整合しない面があることがわかる。これらから、先のような発生機構を单一のものとする考え方では、Pu再分布挙動を適切に表現することはできな

いとの見解が示されるようになった。

そのようなことから、研究の進展につれ、Clement ら⁴⁾に見られるように、気相輸送と熱拡散の両者が同時に寄与しているとの考え方でPu再分布挙動を表現しようとする研究が主流となった。それらの研究では、单一の機構を仮定する考え方よりもPu再分布挙動を現実的に評価できると結論づけられており、例えば、英國UKAEAでは、その研究成果を燃料挙動解析コードであるTRAFICコードに取り入れてもいる⁸⁾。

しかしながら、いずれの研究においても、照射試験結果を十分な精度で再現できる段階には至っておらず、定量評価精度の向上が課題として残されていた。

その一方で、Pu再分布挙動の研究は、高速炉開発の主要な担い手であった独国、英國、米国の研究撤退に大きな影響を受け、80年代以後、目立った研究進展がないまま現在に至っている。即ち、機構に関する基礎的な研究はかなり精力的に行われ、挙動評価モデルの概念はほぼ確立された状況にあるといえるものの、そのモデルに基づく実用的（定量評価精度が良好）な評価手法は、現在においても確立されていない状況にある。

次節では、既存の挙動評価モデルを概説する。なお、以降の文中では、高速炉用ペレット型MOX燃料を単にMOX燃料と記述する。

2-2. 提唱されているPu再分布機構モデルの概要

2-2-1. 热拡散モデル

一般の物質中の熱拡散現象については、Fickの法則を基礎とする評価モデルが構築されている。MOX燃料に対する熱拡散の評価モデルには、そのような一般物質に対するモデルが流用されており、代表的なものとしてBober ら⁵⁾のモデルがある。このBober ら⁵⁾のモデルを以下に概説する。

Bober ら⁵⁾の熱拡散モデルでは、まず、MOX燃料中の拡散種をPuとUのみと仮定する。これは、燃料内にはU、Pu以外に酸素が存在するが、酸素の拡散は非常に早く、U、Puの拡散を考える上で酸素の拡散は収束（定常）状態にあるとみなせるとの考えに基づくものである。そのような考えのもとでは、Pu再分布挙動をPuとUの相互の拡散、即ち擬2元系における相互拡散現象として捉えればよくなる。その場合、温度勾配と濃度勾配の両者が拡散の駆動力であることを考慮することで、MOX燃料中のPuの拡散のフラックスJは

$$J = -\tilde{D} \left\{ \frac{\partial C}{\partial r} + C(1-C) \frac{Q^* dT}{RT^2 dr} \right\} \quad \text{----- (2-1)}$$

\tilde{D} ：相互拡散係数 C：Pu濃度 Q^* ：輸送熱

と得られる。これがBober ら⁵⁾が示した熱拡散モデルである。式中の輸送熱 Q^* は、PuとUの相互の拡散がどの程度起こりやすいかを表す量で、その符号は温度勾配に沿ってどちら側に動くか（正ならば温度勾配と同じ方向に、負ならば温度勾配とは逆向きに動く）を意味している（式(2-1)はPuの拡散フラックスを示すものであるので、輸送熱の符号はPuの動く方向で決まる）。輸送熱の大きさについては、実験結果を再現できるよう経験的に決められるが、一般の物質においても研究者間の相違が大きくなりやすいものであり、MOX燃料の場合も、報告されている輸送熱はおよそ35[Kcal/mol]から75[Kcal/mol]と非常にばらつきが大きいものとなっている^{1,5)}。一方、その符号については、MOX燃料では燃料中心部のPu濃度が増加する場合が多く認められていたことから、いずれの研究者も負（即ち、温度勾配とは逆にPuが拡散する）にとっている^{1,5)}。なお、一般の物質については、固体内の格子欠陥が拡散の主要な経路であることに着目して、格子欠陥生成エネルギーと関連付けることで理論的に輸送熱を評価しようと試みられたことはある。しかしながら、実験結果に対する再現性が良好なものではなく、輸送熱に関する理論評価は現在においても困難なものと考えられる。

先の式(2-1)中の相互拡散係数Dも、輸送熱同様に重要なものである。MOX燃料中のU-Pu相互拡散係数は、MOX燃料を擬2元系と取り扱っていることから、簡単には

$$\tilde{D} = C_{Pu} \times D_U + C_U \times D_{Pu} \quad \dots \quad (2-2)$$

$$C_{Pu} + C_U = 1.0$$

C: U, Pu の濃度 D: U, Pu の固有拡散係数

として評価することができる。この式(2-2)に比べると近似的な取り扱いとなるが、利便性が高いことから、以下のようにして相互拡散係数を定式化することもある。

$$\tilde{D} = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad \dots \quad (2-3)$$

D0: 振動項 Q: 活性化エネルギー T: 温度 R: 気体定数

一般には式(2-3)の形で定式化されることが多く、MOX燃料に関しても、式(2-3)の形に整理された相互拡散係数評価式が報告されている。

ただし、Matzke が行った研究⁹⁾からは、式(2-3)を用いる場合、MOX燃料におけるU-Pu相互拡散係数を良好には評価しえない可能性が考えられる。まず、Matzke はその研究の中で、U-Pu相互拡散係数にPu濃度依存性、O/M比依存性が認められるとの考察を示している⁹⁾。このため、U-Pu相互拡散係数を式(2-3)の形で表現する場合には、式中の振動項や活性化エネルギーに関しO/M比依存性やPu濃度依存性の項を導入する必要があると容易に推察できる。しかしながら、Matzke の研究を補完あるいは拡張するような研究は行われていない。このため、供しうるデータが過少なままであり、式(2-3)中へのO/M比、Pu濃度依存性の取り込みは現在でも試みられていない。そのようなことから、U-Pu相互拡散係数に関し報告されている評価式は、O/M比、Pu濃度に関し、定式化時のデータ範囲を超えて内外挿評価する場合の信頼性が低下するとの問題がある。

2-2-2. 気相輸送モデル

気相を介した物質の輸送は、高温部で蒸発した燃料成分が気相中の濃度勾配、即ち蒸気圧差を駆動力として低温部へ拡散し、低温部で凝縮する（蒸発・凝縮モデル）ことで生じると考えられている。従って、気相輸送には、輸送経路となる空隙の存在が必須となる。これに関し、MOX燃料では、クラックとポアの2種類の空隙が考えられる。このうち、クラックは、MOX燃料ペレット中に周方向ないしは径方向に発生する連続する空隙であり、ポアは、製造時からペレット内に内在する微小気泡である。そのような形態の違いから、MOX燃料の気相輸送は、経路がどちらとなるかで取扱い方を変える必要がある。

まず、輸送経路がポアの場合には、ポアが非常に微小な体積を有した空間であることから、蒸発・凝縮による燃料成分の移動（質量輸送）が生じた際にポア自身も動くことになる（燃料成分の動きとは逆に、低温側から高温側に動くことになる。便宜上、ポアの移動に伴い、燃料成分が輸送されるという見方もできる）。このことから、ポアを経路とする気相輸送量の評価に際しては、輸送経路であるポアの大きさに加え、ポアが移動する効果を考慮する必要があると考えられる。

一方、クラックが経路となる場合には、大きな体積を有していることから、質量輸送の際のクラック自身の移動は考えなくともよい。このことから、クラックを経路とする気相輸送量の評価に際しては、輸送経路であるクラックの大きさのみを考慮すればよいと考えられる。

このような経路別に気相輸送をモデル化する研究の代表例には、Olander の研究^{10,11)}が挙げられる。Olander の気相輸送モデルの概念は、気相における蒸気種をPu系、U系に弁別し、それぞれの蒸気種毎に評価した気相輸送量を比較することで、気相輸送により固相に生じるPu濃度の変化を評価できるとするものである。経路がポアである場合には、ポアの大きさと移動速度¹¹⁾を、クラックが経路の場合にはクラックの大きさ¹⁰⁾をそれぞれ考慮す

ることとしている。

ただし、上記の Olander のモデル^{10,11)}は、機構に関する理論評価に主眼が置かれていたため、輸送量の定量評価に関しては、改善の余地が残されていた。その輸送量の定量評価に主眼を置いて開発されたものには、Olander モデルの一部を修正した Clement らのポアを経路とするモデル^{3,4)}、及び、TRAFIC コードに導入されているクラックを経路とするモデル⁸⁾が挙げられる。以下には、両モデルの評価式を簡単に示す。

Clement らのモデル^{3,4)}はポアが輸送経路となる場合のものであり、このモデルでは拡散フラックス J を以下により評価できるとしている。

$$J = P \times \frac{\tilde{D}}{d} \times \frac{\bar{v}}{v} \times \delta y \times \exp\left(\frac{-\tilde{D}}{l \times v}\right) \quad \text{----- (2-4)}$$

$$\delta y = l \times \frac{dT}{dr} \times \frac{1}{20} \times y \quad \text{----- (2-5)}$$

y : Pu 濃度 v : ポア速度 \tilde{D} : 固相での相互拡散係数 P : 気孔率

l : ポアの長さ d : ポアの幅 (ポアの断面を長方形と仮定)

δy : 単位体積のポアが輸送する Pu 量 (ただし、濃度変化量)

このモデルは、Olander のモデル¹¹⁾に、ポアの高温面と低温面で、酸素ポテンシャル、Pu 濃度、O/M 比が気相輸送により変化するとの取り扱いを加えて作られたものであり、ポア表面での燃料成分の蒸発とポア周辺部からポア表面への燃料成分の固相輸送 (もしくは、ポア表面での蒸発種の凝縮とポア表面から周辺部への蒸発種の固相輸送) が平衡状態にあるとの仮定が導入されている。ただし、定量評価に関しては、式(2-4)中の δy 項に強く影響を受ける評価式となっている。この δy 項は経験的評価により式(2-5)のように定式化されたものであることから、照射試験結果等による各係数の最適化 (較正) が欠かせないモデルともいえる。

一方、クラックが輸送経路となる場合についてのモデルである TRAFIC コードのモデル⁸⁾では、以下により拡散フラックスを評価できるとしている。

$$J = \frac{\eta \Omega}{kT} \left(D_{Pu} \frac{dP_{Pu}}{dr} - D_U \frac{dP_U}{dr} \right) \quad \text{----- (2-6)}$$

k : Boltzmann 定数 Ω : 原子体積

η : クラックの歪量 (ある径方向位置における、円周に対するクラックの幅の比)

D : U、Pu 蒸気種の気相中での拡散係数 P : U、Pu の蒸気圧

これは、燃料を同心円のリング状に分割していく、リング (即ち、任意の径方向位置) 個々でクラックが占める割合に応じて気相輸送量を評価するものであり、先の Clement らのモデル^{3,4)}と同様、クラックの表面近傍部からクラック表面への燃料成分の固相輸送と、クラック表面からの燃料成分の蒸発とが平衡状態にあるとの仮定が導入されている。定量評価に関しては、式(2-6)中の η 項に強く影響を受ける評価式となっている。この η 項も、先の Clement らのモデル^{3,4)}における δy 項と同様に経験的に評価するものとなっていることから、照射試験結果等による較正が欠かせないモデルである。

ただし、クラックを経路とする気相輸送については、注目すべき考察が行われている。

まず、クラックを経路とする気相輸送の Pu 再分布挙動に対する寄与は無視しうるものであろうとの Clement らの考察⁴⁾がある。これは、以下の理由による。Clement ら⁴⁾は、照射期間中多量のクラックが継続して存在していないような場合、クラックを経路とする気相輸送による固相の Pu 濃度変化は、むしろ、固相の熱拡散に多少の寄与を与える程度に捉えた方が現実的であろうとの推論を、気相輸送モデルに基づく計算から得たとしている。また、hypostoichiometric な燃料の場合、照射中に継続的に存在していたと思われるクラックは、その存在量は極めて少ないと考察も得られたとしている。これらを踏まえ、Clement ら⁴⁾は、一般論として、クラックを介した気相輸送は Pu 再分布評価上無視して構わないと

結論づけたと思われる。

一方、式(2-6)のモデルを示した論文⁸⁾中にも、クラックを介した気相輸送の場合、蒸発しやすい蒸気種の場合には、クラックの表面での蒸発が結果的に固相での拡散に支配されることになり（バルクからクラック表面への燃料成分の供給速度が律速となる）、クラックを介した気相輸送の効果が表面上現れなくなるとの考察も付記されている。

蒸発速度と拡散速度との対比が詳細に検討されているわけではない等、考察の細部について検討の余地はあるとは思われるが、上記の2つの考察に基づくと、クラックを介しての気相輸送はあまり効果的な機構ではないと思われる。

第3章 Pu再分布挙動評価手法の構築

3-1. Pu再分布挙動評価手法の全体像

3-1-1. 評価対象とする現象の限定

Pu濃度が変化するとのPu再分布挙動は、燃料内の径方向および軸方向の両方向にわたって生じるものである。このため、厳密には、径方向、軸方向両者のPu濃度変化を統合的に評価することが必要と考えられる。

ここで、燃料内の温度勾配がPu再分布挙動の主要な駆動力であることに着目してみる。原子炉では、運転中、冷却材の入り口温度と出口温度の差に応じた温度勾配が燃料ピン軸方向に生じる。この温度勾配は、高速炉でMOX燃料が使用される場合に生じる燃料の径方向の温度勾配と比べると、非常に小さなものである。このため、温度勾配の差に応じてPu再分布挙動の駆動力に差が生じることを考慮すると、燃料内の軸方向におけるPu再分布量は、径方向に比べ十分小さなものであると考えることができ、従って、径方向のPu再分布の程度を議論する上では、軸方向のPu再分布の影響は無視し得ると思われる。また、Pu再分布挙動は、燃料の熱伝導度変化を介する等して燃料の熱的状態に影響を及ぼすものであることから評価手法確立が重要視されているが、軸方向のPu再分布挙動が不活発であれば、軸方向の挙動は、燃料の熱的状態の評価に際して考慮しなくとも支障のないものと考えることもできる。

そこで、今回の検討では、径方向のPu再分布挙動評価手法を確立することのみを考え、かつ、軸方向の挙動が径方向のPu再分布挙動に及ぼす影響を無視して手法を構築することとした。

3-1-2. 多種の燃料挙動を考慮する統合的な評価手法の必要性

Pu再分布挙動は、照射期間中、主として駆動力の変化により時刻毎に異なるPu濃度変化の様子を示しながら継続的に生じるものと考えられる。ここで、Pu再分布挙動は、2章に示した既存の再分布機構評価モデルからわかるように、その駆動力は燃料温度と密接な関連を有するものである。このことから、Pu再分布挙動の駆動力を左右する照射中の燃料温度の経時変化を適切に評価し、Pu再分布挙動評価に反映していくことが必要となる。

ただし、この照射中の燃料温度は、U, Puの燃焼に伴う出力の変動に加え、燃料や被覆管の形状変化や燃料の化学的状態変化に強く影響されるものである。そのような燃料の変化は、ここでの検討対象であるPu再分布現象に代表される、様々な燃料挙動により生じるものである。

即ち、燃料温度は、多種の燃料挙動が及ぼす影響を統合的に考慮できる手法により評価することが要求されるものである。

そこで、今回は、燃料温度に対し強い影響を及ぼすと考えられている燃料組織再編挙動(ポア移動挙動)、FPガス放出挙動、O/M比再分布挙動等を統合的に取り扱いながら、燃料温度や燃料の形状変化を評価するとの燃料挙動解析コードとして開発され、改良が進められているCEDARコード¹²⁾に、今回検討したPu再分布挙動評価モデルを組み込むこととした。

また、Pu再分布挙動評価モデルの組み込み並びに温度評価精度の向上の面で、同コードに対して改良を施した方が良い点がいくつか認められたことから、同コードの改良方策の検討もあわせて行うこととした。

次節では、簡単にCEDARコードについて説明する。

3-1-3. CEDARコードの概要^{12, 13)}

燃料挙動解析コードであるCEDARコード(*Code for Thermal and Deformation Analysis of Reactor Fuel Pin*)は、1979年に初期バージョンが作成され、以後、現在にいたるまで、導入モデルの改良や解析機能拡張等が継続して行われてきたものである。

CEDAR コードは、図 3-1 に示すように、ある時間区間に内に生じる FP ガス放出や燃料組織変化等に基づき燃料温度を評価し、同時に応力・歪み評価も行うとのもので、温度評価と応力・歪評価が連結されていることが特徴といえる。計算体系には、燃料ピンを軸方向及び径方向に分割するが、軸方向メッシュ間の物質及びエネルギーの移動は考慮しないとの R-Z 半 2 元体系が用いられている。現在は、CEDAR-III rev.0 という版が最新のものとして利用されている（以降、この版のコードを「CEDAR コード」と略称する）。コードの詳細については、文献 13) を参照されたい。

ただし、同コードに関しては、Pu 再分布挙動評価モデルを組み込む上で、以下に示す点で改良が必要と考えられる。

- ・ 燃焼による U, Pu 量の変化に関して

現在 CEDAR コードには、燃焼による元素の生成、消耗を評価する機能が組み込まれていない。Pu 再分布挙動では、燃焼に伴う U, Pu 量の変化も無視できない影響を及ぼすものであることから、ORIGEN コードのような燃焼計算機能を導入し、照射中の元素存在量の増減を評価できるよう改良することが必要と考えられる。

- ・ 温度評価方法に関して

現在 CEDAR コードでは、被覆管内表面と燃料外表面との間の温度差（ギャップ部温度上昇量と称されることが多い）を、Ross&Stoute モデル¹⁴⁾に基づき評価している。同モデルは、燃料のギャップ部がガスで充満されている状態については良好な評価精度を期待できるものである。しかしながら、ギャップ部に FP 化合物のような固体状物質が存在する場合を考慮していないことから、ギャップ部に FP 化合物が蓄積するような燃焼度の高い燃料への適用性には問題があると考えられているモデルでもある。そのため、燃焼度の高い燃料にも適用できるよう、ギャップ部温度上昇量の評価手法を改良することが必要と考えられる。

- ・ 個々の物性値に関して

燃料挙動解析においては、通常、照射試験結果を再現できるよう各種物性値の補正（評価結果の較正作業と称されることが多い）が行われる。これは、例えば中性子による照射損傷等により、照射場における物性は未照射状態のものとは異なっている可能性が高いが、そのような照射効果を十分に定式化できていないため、現在のところ、未照射時の物性値を用いて照射中の燃料挙動の解析を行わざるを得ないことによる。このような較正作業は、用いるデータにより補正值が変動してしまうことが多いことから、評価の都度、較正を行うことが必要となる。

今回は、CEDAR コードについて上述の事項に関する改良を加えた上で、Pu 再分布挙動評価モデルを組み込むこととした。なお、CEDAR コードの応力・歪解析部については、特に新しい知見を得ていないことから、CEDAR-III rev.0 のまま用いることとしている。また、表 3-1-1、表 3-1-2 に、3-3、4-1 に後述する内容も含めて今回の改良に関する一覧を示した。

3 - 2. Pu 再分布挙動評価モデル

すでに 2 章に示したが、Pu 再分布の発生機構と考えられている以下の 2 機構については

- ① U と Pu との固相における相互拡散（熱拡散）
- ② 燃料中に存在する微小な気泡（ポア）が温度勾配に沿って燃料内を移動する際の、ポア高温側面から低温側面への U, Pu の蒸発・凝縮移動時に固相に引き起こされる濃度変化（気相輸送）

それぞれ評価モデルが提唱されている。ただし、それらモデルは、定量評価精度を向上させる必要があると考えられるものである。

そこで今回は、提唱されたモデルの概念はそのまま流用し、定量評価に関わる部分について改良を施すとの方法で、Pu 再分布挙動評価モデルを構築することとした。

以下に、熱拡散、気相輸送両者の評価モデルの概略を示す。なお、両評価モデルとも、

すでに2章で紹介したものであるため、説明内容には一部、重複する部分がある。

3-2-1. 热拡散モデル

過去の研究の結果から、固相輸送によるPu濃度変化は、照射中のMOX燃料内に生じる温度勾配及び濃度勾配を駆動力としてUとPuが相互に拡散するとの擬2元系相互拡散として評価できると考えられている。今回は、そのような考えに基づく評価モデルの代表例であるBoberら⁵⁾のモデル、即ち、以下に示す式により固相におけるPuの輸送量を評価することとした。なお、以下に示す評価式は一般に広く用いられているものであることから、評価式の導出に関する説明は割愛する。詳細は文献5)を参照されたい。

$$J_{Pu} = -\rho_s \tilde{D} \left\{ \frac{\partial y}{\partial r} + y(1-y) \frac{Q^* dT}{RT^2 dr} \right\} \quad \text{----- (3-1)}$$

J_{Pu} : Puの輸送フラックス、 \tilde{D} : 相互拡散係数、 Q^* : 輸送熱、
 ρ_s : 数密度、 y : Pu濃度、 T : 燃料温度、 R : 気体定数

式(3-1)からわかるように、Boberらのモデルでは、Puの輸送量は式(3-1)中の相互拡散係数 \tilde{D} 及び輸送熱 Q^* 値に依存することとなる。これら両者については、すでに2章にて述べたが、炉外試験等で得られた物性値を適用するか、あるいは、照射試験結果を再現できるよう、数値解析的に最適値を求めることが必要である。輸送熱については、数値解析的に検討した以下の値¹⁾があることから、

$$Q^{**} = -75000 \text{ [cal / mol] }$$

今回も同値を用いることとした。一方、相互拡散係数については、Matzkeが指摘⁹⁾したように、O/M依存性及びPu濃度依存性を導入することが必要と考えられる。そこで、今回は、拡散係数のO/M依存性及びPu濃度依存性を定式化することとした。これに関しては、3-2-3に後述する。

3-2-2. 気相輸送モデル

過去の研究の結果から、照射中に、燃料内に存在する微小気泡のポアが燃料中心部に向かって移動することが経験的に得られている。これは、ポアの高温側表面と低温側表面との間の蒸気圧差に応じ、高温側表面で蒸発した燃料成分が気相中を移動し低温側表面で凝縮することによるものであるが、この時、燃料成分間での気相移動量の差に応じて固相に濃度変化が生じる。この現象が気相輸送によるPu濃度変化として考えられている。

上記の考えに基づく気相輸送評価モデルとして、今回は、Clementら^{3,4)}のモデルを用いることとした。同モデルは、ポア表面での蒸発とポア周辺部からポア表面への固相拡散（あるいは、蒸気種のポア表面への凝縮とポア表面から周辺部への固相拡散）とが平衡状態にあるとの仮定のもとで、固相の濃度変化と気相での輸送量とを関連づけたものである。ポアに関しては、長さ l 、幅(厚み) d を有する平板状のものとして取り扱っており、燃料の径方向と等しい向きに厚み方向をとっている。

簡単ではあるが、導出方法も含め、評価式の概略を以下に示す^{3,4)}。まず、モデルに仮定として組み入れているポア表面でのPuの蒸発と蒸発面へのPuの固相拡散との平衡条件を以下のように表す。

$$\frac{d}{dr} \left(\tilde{D} \frac{dy}{dr} \right) + v \frac{dy}{dr} = 0 \quad \text{----- (3-2)}$$

\tilde{D} : 固相拡散係数、 v : ポア速度、 y : Pu濃度、

(ポアの厚み方向に気相輸送が生じるとし、その方向を r 方向と示している)

ただし式(3-2)は、ポアの長さ方向の状態分布（温度分布等）を考慮していないことから、ポアの長さ l に比べ、 r が十分に小さな範囲でのみ成立するものである。式(3-2)を r に関して積分すると以下の式が得られる。

$$\tilde{D} \frac{d}{dr}(y - y_1) + v(y - y_1) = 0 \quad \text{----- (3-3)}$$

y_1 : ポア低温側表面での Pu 濃度

この式(3-3)を解けば、Pu 濃度の変化量 Δy として以下の式が得られる。

$$\Delta y = \int_0^{\infty} dr(y - y_1) = \frac{\tilde{D}}{v} (y_2 - y_1) \quad \text{----- (3-4)}$$

y_2 : 気相輸送による濃度変化が生じるポア高温側表面での、輸送が定常状態に到達した時点での Pu 濃度

ここで式(3-4)からは、ポアを経路とする気相輸送により輸送される Pu は、ポア表面から \tilde{D}/v に相当する距離内に蓄積されると考えることができる。あるいは、ポアを経路とする気相輸送により濃度変化が生じる領域は、ポア表面から \tilde{D}/v に相当する厚みのところまでと考えができる。式(3-4)は、式(3-2)と同じく、濃度変化を生じる領域の厚み \tilde{D}/v がポアの長さ l より十分に薄い場合に成立するものである。一方、ポアの長さに対する \tilde{D}/v 値の比が大きい、即ち、濃度変化が生じる領域が広い場合には、濃度変化が定常状態に達するまでに時間がかかることから、式(3-4)を導出する過程で無視したポアの長さ方向の固相拡散による領域内からの Pu の抜けが多くなり、領域内の Pu の濃度変化量は式(3-4)で表されるものより小さくなると予想される。そこで Clement ら⁴⁾のモデルでは、式(3-4)に対し、 \tilde{D}/v とポアの長さ l の比である $\tilde{D}/l/v$ 値を用いた指数関数を乗じ、ポアの長さに対する \tilde{D}/v 値の比が大きくなるほど Pu の濃度変化量は小さくなるとの補正が加えられている。

また、式(3-4)は、厚み d を有するポアについてのものであるため、単位体積を有するポア 1 個による変化量を求めるためには、 $\tilde{D}/v/l$ 比に応じて式(3-4)より得られる値を補正した後、ポアの厚み d で除すことが必要となる。即ち、ポア 1 個による変化量 (Apore) は、以下の式で示されるものとなる。

$$Apore = \left(\frac{\tilde{D}}{dv} \right) \delta y \cdot \exp\left(-\frac{\tilde{D}}{l|v|} \right) \quad \text{----- (3-5)}$$

ここで、式(3-5)中の、Pu の気相輸送量と固相に生じる Pu 濃度変化量との換算係数的意味を持つ δy (式(3-4)中の $y_2 - y_1$ を書き直したもの) は、Clement ら⁴⁾のモデル中で、ポアによる輸送が生じる前の低温面側 Pu 濃度 y_1 に依存するとして取り扱われており、経験的であるが以下の式にて評価されている。

$$\delta y = \left(\gamma \cdot l \cdot \left| \frac{dT}{dr} \right| \right) \cdot y_1 \quad \text{----- (3-6)}$$

γ : 補正係数 = 1/20, dT/dr : ポア内の温度勾配

今回は、ここに示した Clement ら⁴⁾のモデルに対し、 δy を求めるための式(3-6)中の補正係数 γ を、実際の照射試験結果を再現できるように調整することとし、他の部分はそのまま流用することとした。なお、ポアの大きさについては、Clement らが示した $l=80 \mu m$ 、 $d=8 \mu m$ ⁴⁾ を用いることとした。

3 - 2 - 3. U-Pu 相互拡散係数の評価方法

式(3-1)及び式(3-5)から、熱拡散、気相輸送とともに、固相の U-Pu 相互拡散係数に強く依存するものであることがわかる。すでに 2 章で示したが、Matzke の研究の結果⁹⁾からは、Pu 濃度依存性、O/M 比依存性の両者を考慮して U-Pu 相互拡散係数を評価する必要性が示されている。そこで、今回、これらの依存性を明示的に取り扱える U-Pu 相互拡散係数評価方法について検討することとした。

一般に 2 成分系の相互拡散係数 \tilde{D} は、簡単には、以下の式にて評価できると考えられている。

$$\tilde{D} = C_1 \times D_2 + C_2 \times D_1 \quad \text{----- (3-7)}$$

C_1, C_2 : 各々の濃度 $C_1+C_2=1.0$ 、 D_1, D_2 : 各々の固有拡散係数

式(3-7)中の固有拡散係数 D は、厳密には、拡散する母材の組成に応じて変化するものとして扱われる。そのため、MOX 燃料の場合、例えば 20%Pu 含有 MOX であれば $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_x$ 中の U, Pu の拡散係数を各々の固有拡散係数として用いて U-Pu 相互拡散係数を評価することが要求される。しかしながら、そのような厳密な取扱いには、組成をパラメータとする多種、多数の拡散係数実測値が必要とされる等、あまり実用的ではない面がある。そのため、近似的な取り扱いではあるが、通常、以下のような形で相互拡散係数を定式化するとの考え方方が多用される状況にある。

$$D = D_0 \times \exp\left(\frac{\Delta H}{RT}\right) \quad \text{----- (3-8)}$$

D_0 : 振動項と呼ばれる定数項、 ΔH : 拡散の活性化エネルギー、 R : 気体定数、
 T : 温度

しかしながら、式(3-8)のような評価式では、相互拡散係数の濃度依存性を取り扱うことに支障が生じてしまう。

そこで、今回は、Pu 濃度依存性を考慮する必要があると考えられる U-Pu 相互拡散係数評価に際して、式(3-7)のような、厳密な評価に近い評価式を用いることを考えた。以下に概略を記す。

まず、MOX 中の原子の拡散における母材を UO_2 と仮定する。この場合、固有拡散係数には、 UO_2 中の Pu の拡散係数、 UO_2 中の U の拡散係数をとればよく、これらは既に実測値が報告されている¹⁵⁾。今回は、 UO_2 を拡散における母材とみなすことの妥当性は、最終的に照射試験で得られた Pu 再分布量を再現できることによって担保することとし、 UO_2 中の Pu の拡散係数、 UO_2 中の U の拡散係数を用いて MOX 中の U-Pu 相互拡散係数を評価することとした。以下に評価式を示す。

$$\tilde{D} = C \times D_{U \text{ in } UO_2} + (1 - C) \times D_{Pu \text{ in } UO_2} \quad \text{----- (3-9)}$$

$D_{U \text{ in } UO_2}$: UO_2 中の U の拡散係数、 $= 0.9 \times \exp(-104000/1.987/T) [\text{cm}^2/\text{s}]^{15)}$

$D_{Pu \text{ in } UO_2}$: UO_2 中の Pu の拡散係数、 $= 0.2 \times \exp(-98000/1.987/T) [\text{cm}^2/\text{s}]^{15)}$

C : Pu 濃度 [-]、 T : 温度 [K]

続いて、U-Pu 相互拡散係数評価への O/M 比依存性の導入方法について考える。

MOX 中の元素の拡散の O/M 比依存性は、わずかに、Matzke が報告した $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_x$ に関する 1400°C、1500°C、1600°C の 3 温度点での Pu の拡散係数測定結果があるのみである⁹⁾。しかしながら、原子の拡散の経路には結晶中の格子欠陥が考えられ、MOX における不定比性、即ち O/M 比の定比 2.00 からのずれは結晶中の格子欠陥の量を代表するものとして捉えうることを考慮すると、Pu の拡散係数、ひいては相互拡散係数に O/M 比依存性が生じることは定性的にみて妥当な見方と考えられる。

そこで、実験データが不足しているため十分な検証はできないが、Matzke が示した実験結果と考察内容にもとづき、相互拡散係数の O/M 比依存性の定式化を試みることとした。

まず、Matzke の実験結果⁹⁾からは、O/M 比が定比から hypostoichiometry (亜定比) 側へ変化した場合、一旦、 $(U_{0.8}, Pu_{0.2})O_x$ 中の Pu の拡散係数は減少するが、その後、増加するとの傾向が得られている。

これに関し Matzke は、概ね以下のようないいえから、MOX 中の格子欠陥濃度との関連を指摘している⁹⁾。

今、MOX における原子の拡散の経路として、金属原子位置（陽イオンサイト）での空孔と格子間金属原子とを考え、両者のいずれか存在量の多い方が主要な経路として機能するも

のと考える。

この場合、各々の格子欠陥の熱平衡状態下での濃度を比較すれば、主要な経路を判定することが可能となる。MOXにおける格子欠陥の平衡濃度は、以下の式から評価できる。

$$N_{V_M} = \frac{4}{x^2} \exp\left(-\frac{\Delta G_S}{kT}\right) \quad \text{----- (3-10)}$$

$$N_{M_i} = \frac{x^2}{4} \exp\left(-\frac{\Delta G_{FM} - \Delta G_S}{kT}\right) \quad \text{----- (3-11)}$$

N_{V_M} ：金属原子位置での空孔濃度、 N_{M_i} ：金属原子の格子間原子濃度、

k ：ボルツマン定数、

ΔG_S ：ショットキー欠陥形成エネルギー = 6.4 [eV]⁹⁾、

ΔG_{FM} ：フレンケル欠陥生成エネルギー = 9.5 [eV]⁹⁾

これらからは、hypostoichiometricな領域の特定のO/M比において、空孔と格子間位置原子の濃度の大小関係が逆転し、より hypostoichiometricな領域では格子間位置原子が、逆に定比側では空孔が主体的な拡散経路となると評価される。また、式(3-10)からは、定比に近づくにつれ欠陥濃度が増加、式(3-11)からは、定比から離れるにつれ欠陥濃度が増加することがわかる。従って、仮に、主体的な拡散経路となる格子欠陥濃度にのみ支配されて拡散が起こるとすると、定比からO/M比が低下するにつれて、拡散係数が一旦減少、のち、増加するとの傾向が現れると考えることができる。この傾向は、Matzkeの実験結果と整合するものであることから、拡散係数と格子欠陥濃度との間には密接な関連があると考えができる。

ただし、Matzkeの実験結果は、O/M比が1.95よりも低くなると、O/M比に関わらず拡散係数が一定となるとの傾向を示している。式(3-11)からわかるように、格子欠陥濃度(N_{M_i})はO/M比低下に伴い増加することから、拡散係数の飽和傾向に対して不整合が認められることとなる。しかしながら、例えば融点にみられるように、ある程度欠陥濃度が増加した場合、各種の物性に対する欠陥の効果が飽和してしまうことは、一般には多く認められるものもある。これを踏まえると、格子欠陥濃度と拡散係数のO/M比依存性を関連づけられる可能性は高いと考えられる。

そこで今回は、格子欠陥濃度を関数としてMOX中のU-Pu相互拡散係数のO/M比依存性を定式化することを考えた。定式化に際しては、格子欠陥濃度と拡散係数との相関の考え方が、MOX中のPuの拡散係数だけでなく、MOX中のUの拡散係数にも適用できると考えられることから、MOX中のPuの拡散係数に認められたO/M比依存性と同様のものが相互拡散係数にも現れるものとした。

以下には、上述してきたMOX中のU-Pu相互拡散係数評価方法をまとめて示す。なお、実験で認められたO/M比依存性に対する再現性を高めるため、まず、空孔と格子間原子数濃度が等しくなるO/M比(OM_{eq})を求め、O/M比=1.95(これより低いO/M比では拡散係数は変化しないとする)、 OM_{eq} 、定比(2.00)の3点における、拡散に寄与する格子欠陥濃度(空孔、格子間原子数のいずれか大きい方をとる)を常用対数として求める。これを直線補間することで、任意のO/M比における拡散に寄与する格子欠陥濃度を常用対数值として算出する。これを正数に戻した後、定比における格子欠陥(空孔)濃度との比をとり、その値を定比における相互拡散係数に乘じる方法にて評価することとした。

$$D = D_{sto} \times F(OM) \quad \text{----- (3-12-1)}$$

$$D_{sto} = C \times D_U + (1-C)D_{Pu} \quad \text{----- (3-12-2)}$$

D_{sto} : 定比における相互拡散係数、 D_U, D_{Pu} : UO_2 中の U, Pu の拡散係数、C : Pu 濃度 [-]

F(OM) : O/M 比 OM における係数

$$= 10^{\{N_{LD}(x)-N_{LD,sto}\}} \quad \text{----- (3-12-3)}$$

$$N_{LD,sto} = \log_{10} \left\{ 2 \times \exp \left[- \frac{4.2 \times (1.60 \times 10^{-19})}{(1.38 \times 10^{-23}) \times T} \right] \right\} \quad \text{--- (3-12-4)}$$

$$N_{LD}(OM) = \frac{N_{LD,OMeq} - N_{LD,I}}{OM_{eq} - 1.95} \times (OM - 1.95) \quad OM \leq OM_{eq} \quad \text{--- (3-12-5)}$$

$$= \frac{N_{LD,st0} - N_{LD,OMeq}}{2.00 - OM_{eq}} \times (OM - OM_{eq}) \quad OM > OM_{eq} \quad \text{--- (3-12-6)}$$

$$N_{LD,I} = \log_{10} \left\{ \frac{0.05^2}{4} \times \exp \left[- \frac{3.1 \times (1.60 \times 10^{-19})}{(1.38 \times 10^{-23}) \times T} \right] \right\} \quad \text{--- (3-12-7)}$$

$$N_{LD,OMeq} = \log_{10} \left\{ \frac{4}{(2.00 - OM_{eq})^2} \times \exp \left[- \frac{6.4 \times (1.60 \times 10^{-19})}{(1.38 \times 10^{-23}) \times T} \right] \right\} \quad \text{--- (3-12-8)}$$

$$OM_{eq} = 2.00 - \left\{ 16 \times \exp \left[- \frac{3.3 \times (1.60 \times 10^{-19})}{(1.38 \times 10^{-23}) \times T} \right] \right\}^{1/4} \quad \text{--- (3-12-9)}$$

式中 1.38×10^{-23} : ボルツマン定数、 1.60×10^{-19} : 電気素量、 1.987 : 気体定数

この評価結果は図 3-2 に示しているように、概ね Matzke の拡散係数測定値に認められた O/M 比依存性を再現しているものと考えられる。なお、式(3-12-4)中の $4.2 \times 1.60 \times 10^{-19}$ (= 4.2eV) は、今回、数値解析的に得た値である。

3-3. CEDAR コードの改良

3-3-1. 燃焼計算機能の追加

照射中の燃料内では、核分裂による U, Pu の減量、核転換による Pu の增量、及び各種の核分裂生成物 (FP) の発生等が生じ、燃料内の元素量は時間とともに変化する。そのような変化のうち、U, Pu 量の変化は、Pu 濃度を変化させる要因となることから、拡散による物質移動とは異なるものの、Pu 再分布挙動評価上、考慮を要するものといえる。

照射中の U, Pu 量の変化は、U, Pu 核種とそれらに関する燃焼チェーンを想定し、核分裂、核転換及び放射性崩壊による核種毎の存在量の変化を計算することで評価できる。以下には、概略の評価式を示す。

$$\frac{dN}{dt} = \phi \sigma_{c,s} N_s - \phi \sigma_a N - \lambda N \quad \text{----- (3-13)}$$

λ : 崩壊定数、 ϕ : 中性子フランクス、 N : 核種の存在量、

N_s : 計算対象核種を (n, γ) 反応により生成する先行核種の存在量、

σ_c : 中性子捕獲断面積、 σ_a : 中性子吸収断面積 = $\sigma_c + \sigma_f$ 、

σ_f : 核分裂断面積、

一般には、ORIGEN コード¹⁶⁾を用いてこの種の燃焼計算が行われるが、今回は、Pu 再分布挙動評価手法の中に燃焼計算機能を組み込むことを考え、ORIGEN コード¹⁶⁾で想定されているものより簡素な燃焼チェーンのもとで、式(3-13)に基づき核種毎に変化量を計算する機

能を CEDAR コード中に導入することとした。

まず、燃焼チェーンであるが、図 3-3 に示すものを想定した。即ち、核種には、U235、U238、Pu239、Pu240、Pu241、Pu242 の 6 核種を想定し、Pu241 についてのみ放射性崩壊による減少を考慮するとのものである。各核種の存在量は以下の一連の評価式を連立させて解くことで得られる。

$$\frac{dN_{235}}{dt} = -\phi \sigma_{a,235} N_{235} \quad \text{----- (3-14-1)}$$

$$\frac{dN_{238}}{dt} = \phi \sigma_{c,235} N_{235} - \phi \sigma_{a,238} N_{238} \quad \text{----- (3-14-2)}$$

$$\frac{dN_{239}}{dt} = \phi \sigma_{c,238} N_{238} - \phi \sigma_{a,239} N_{239} \quad \text{----- (3-14-3)}$$

$$\frac{dN_{240}}{dt} = \phi \sigma_{c,239} N_{239} - \phi \sigma_{a,240} N_{240} \quad \text{----- (3-14-4)}$$

$$\frac{dN_{241}}{dt} = \phi \sigma_{c,240} N_{240} - \phi \sigma_{a,241} N_{241} - \lambda_{241} N_{241} \quad \text{----- (3-14-5)}$$

$$\frac{dN_{242}}{dt} = \phi \sigma_{c,241} N_{241} - \phi \sigma_{a,242} N_{242} \quad \text{----- (3-14-6)}$$

N：存在量、 σc ：中性子捕獲断面積、 σa ：中性子吸収断面積、

ϕ ：中性子フラックス、t：時間、

添え字：235=U235 / 238=U238 / 239=Pu239 / 240=Pu240 / 241=Pu241 / 242=Pu242 を意味する

なお、各反応の断面積等については、ORIGEN コードに準備されている断面積ライブラリー中の米国 FFTF 炉用のもの¹⁶⁾を引用することとした。

上記の計算を行うことで得られる核種毎の存在量を U、Pu 元素毎に集約すれば、照射中の燃焼による Pu 濃度変化を評価することができる。実際の計算評価に際しては、計算時間幅 Δt 内における燃焼計算を行い、その結果得られる Pu 濃度を、その計算時間幅内における計算開始濃度として以降の温度評価や Pu 再分布挙動評価に用いていくこととした。

また、U、Pu の核種毎の存在量変化が得られることから、燃焼度を算出することが可能である。後述するが、O/M 比再分布挙動を考える上で燃焼度は重要な因子の一つとなることから、以下の式にて燃焼度を算出することとした。ただし実際の計算においては、予め入力値として与えることとなる照射中の線出力変化履歴と、燃焼計算により算出される燃焼度との間で整合性をとることがあることから、線出力変化履歴と計算時間幅 Δt から求まる燃焼度と燃焼計算で得られる燃焼度とが一致するよう、計算の中で中性子フラックスを補正することとしている。

$$BU = \frac{\Delta N_{235} + \Delta N_{239}}{N_{U,Fab} + N_{Pu,Fab}} \quad \text{----- (3-15)}$$

BU：時間 T から Δt 時間経過する間の燃焼量、 N_{Fab} ：製造時の U、Pu 量、

$$\Delta N = (N(T) - N(T + \Delta t)) \times \frac{\sigma_f}{\sigma_a} \quad \text{----- (3-16)}$$

$N(T)$ 、 $N(T + \Delta t)$ ：時間 T 及び時間 T から Δt 経過後における存在量

3 - 3 - 2. 温度評価方法の改良

燃料温度に関しては、燃料・被覆管ギャップ部の熱伝達率を H_{fc} とおくと径方向 1 次元伝熱計算を用いることで

$$T_s = T_{ci} + \frac{W}{2\pi R_{ci} H_{FC}} \quad \text{----- (3-17)}$$

$$\int_{r_c}^R \frac{dr}{r} \int_{r_c}^r q(r) r dr = \int_{T_s}^{T(R)} k(T) dT \quad \text{----- (3-18)}$$

$T(R)$: 径方向位置 R における温度、 T_s : 燃料外表面温度、 T_{ci} : 被覆管内表面温度、

W : 線出力、 R_{ci} : 被覆管内径、 q : 発熱密度、 k : 熱伝導度、 r_c : 中心空孔径

として求めることができる¹⁷⁾。式(3-17)中の右辺第2項は、燃料ペレットと被覆管とのギャップ部における温度変化量を表したものであり、ギャップ部温度上昇量と呼ばれるものである。式(3-17)のギャップ部温度上昇量評価項中に含まれるギャップ熱伝達率 H_{FC} については、Ross らにより評価モデルが示されているが¹⁴⁾、現在のところ、Ross らのモデル¹⁴⁾を一部修正した以下の形のモデルが現実的なものと考えられている¹⁷⁾。

$$H_{FC} = H_G + H_S + H_R \quad \text{----- (3-19)}$$

式(3-19)中の H_S 項は固体接触による熱伝達を表すものであり、 H_R は熱輻射による熱伝達を表すものである。残る H_G はガスによる熱伝達を表すもので、以下のような評価式で表されることが多い^{17, 18)}。

$$H_G = \frac{K_G}{C_1(R_f + R_c) + C_2(g_f + g_c) + G} \quad [\text{W/cm}^2/\text{K}] \quad \text{----- (3-20)}$$

R_f, R_c : 燃料、被覆管の表面粗さ、 K_G : ガス熱伝導率、

G : オンパワー時のギャップ幅、 C_1, C_2 : 係数、

g_f, g_c : 燃料-ガス層、及びガス層-被覆管との間の急激な温度差を表す指標
(温度ジャンプ距離)

今回利用している CEDAR コードの燃料温度評価方法は、上記の手法によるものである。

ここで式(3-20)中のオンパワー時ギャップ幅 G は、燃料と被覆管の熱膨張量に応じて変化するとともに、燃焼開始直後の出力上昇時の熱応力等により燃料に欠け割れが生じることで燃料の一部がギャップ部を閉塞するように再配置される(リロケーションと呼ばれる)効果も考慮して推定する必要があると考えられる¹⁷⁾。

また、式(3-20)は、ギャップ部はガスで充満されている(ガスギャップ)との仮定のもとで用いられるものである。最近の高燃焼度燃料に関する研究からは、ギャップ部には初期封入ガス(He)、U, Pu の核分裂により生成されギャップ部に放出される FP ガス(Xe, Kr)に加え、固体状の FP や FP 化合物が存在するとの考察が得られている¹⁹⁾。そのようなガス以外の固体状物質がギャップ部に存在している場合、式(3-20)では固体状物質の伝熱の寄与を考慮できていないため、式(3-20)に基づく温度評価方法を燃焼度の高い燃料へ適用することに問題が生じることとなる。

そのため、先のリロケーションとあわせて、CEDAR コード中の該当する箇所について、改良を施すこととした。

(1) リロケーション評価に関する改良

リロケーション量については、CEDAR コードにはすでに評価用モデルが組み込まれている。ただし同モデルは、製造時のギャップ幅にのみ依存してリロケーション量が決まるとのものである。

現在のところ、リロケーションの機構についてはまだ十分に解明していない点が残されているものの、概ね、温度の急昇に伴う熱応力に関連した燃料ペレットの割れが主たる要因と考えられている。そのようなことから、前述の評価方法に対し、初期の燃料の形状以外に、温度に関連する因子も考慮した評価手法にてリロケーション量を評価することも考えられている¹⁷⁾。

そこで、今回は、初期の燃料形状を代表するものとして製造時ギャップ幅と製造時ペレ

ット径を、温度を代表するものとして線出力を因子として定式化された評価モデル²⁰⁾を CEDAR コード中の既存モデルに置き換えることとし、サイクル機構にて製造された燃料についてのリロケーション量実測評価値（ただし、いずれも製造時ギャップ幅と照射後残留ギャップ幅との差を、すべてリロケーションによるものと仮定）により評価式中の係数の最適化を行った。その結果得られた評価式²⁰⁾を以下に示す。

$$R_{rel} = 0.6G_0 + (-44 + 0.06W)R_f \quad \text{----- (3-21)}$$

R_{rel} : リロケーション量（直径値）[μm]、G₀ : 製造時直径ギャップ幅[μm]、

W : EOL 時線出力 [W/cm]、R_f : 製造時燃料ペレット半径[μm]

図 3-4 には、式(3-21)作成に用いたデータに対する再現性を示した。なお、式(3-21)で得られるリロケーション量を燃料・被覆管の熱膨張を考慮して得られるオンパワー時ギャップ幅推定値から差し引くとの方法で、リロケーションの効果を温度評価に取り込むこととした。

(2) ギャップ部温度上昇量評価に関する改良

高燃焼度燃料に関する照射試験から、燃焼度の高い燃料のギャップ部には FP や FP 化合物が多量に蓄積され、FP 化合物の主要な成分には Cs、Mo が含まれることが確認¹⁹⁾されている。一般に、固体状物質は気体に比べ良好な熱伝導度を有することから、先に示した式(3-20)のようなガスギャップ仮定に基づく評価では、燃料温度を実際よりも過大に評価することとなる。

そこで今回は、ギャップ部温度上昇量の評価に際して、ギャップ部に存在する固体状物質の効果を考慮する手法を検討し、CEDAR コードに導入することとした。ただし、そのような物質の存在形態等に関する知見は十分に取得、整理できていないことから、今回は、存在形態等に関する知見が整理されつつある FP 化合物の存在のみを考えることとし、存在が確実視されているものの知見が不足している Te のような FP については考慮しないこととした。以降ではそのようなことから、固体状化合物を「FP 化合物」と称している。

ギャップ部での FP 化合物の蓄積量の推移（時間変化）については、炉外での模擬試験を行っていない等のため、現在のところ明らかにされていない。ただし、化合物の主成分と考えられる Cs や Mo は、FP ガスである Xe や Kr と同様に、燃焼度が低い段階からギャップ部に継続的に放出されると考えられることから、照射中、Cs、Mo のギャップ部蓄積量は徐々に増加するものと予想される。

そこで、今回は、ギャップ部 FP 化合物量を過大に評価、即ち、燃料温度を過小に評価する可能性はあるが、以下に示すような仮定のもとでギャップ部 FP 化合物量を評価することとした。

まず、FP 化合物を Cs₂MoO₄ と仮定する。同時に、ギャップ部に放出された FP すべてが化合物を形成すると仮定する。この場合、収率を考慮すると、ギャップ部の FP 化合物量は Cs の放出量に支配されることとなる。一方、Cs の放出量に関しては、形成される Cs の全量がギャップ部に放出されると仮定する。

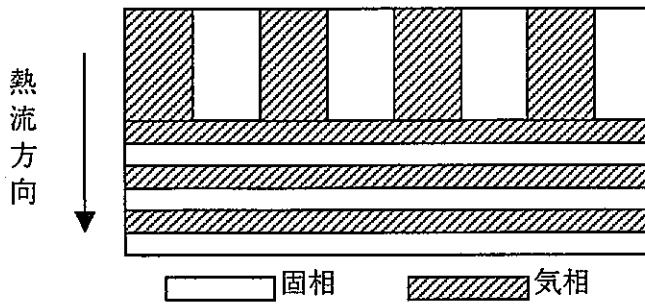
このような仮定のもとでは、ギャップ部に存在する FP 化合物量を、燃焼中に生成される Cs 量の 1/2 に相当する量として評価することができる。

次に、FP 化合物を介する伝熱の寄与の定式化を考える。

まず、ギャップ部に存在するものは、FP 化合物、及び、FP ガスと初期封入ガスの混成ガスであることから、燃焼中の燃料のギャップ部では、気体と固体状物質とが混在した中で伝熱が生じていることとなる。

このような混成状態での伝熱については、粉体の充填体に関する研究のなかで示された伝熱モデルが適用できると考えられる。そのようなモデルの中で、比較的簡略ではあるが利便性の高いものとして以下に示すものがある²¹⁾。即ち、まず、粉体の充填体中には、粉状粒子即ち固相と呼べる部分と、空隙、即ち気相と呼べる部分が混在することとなる。こ

のため、簡単には、下図に示すような形で伝熱状態を模式化することが考えられる。



これは、Krischer ら²¹⁾が示したモデルであり、固相・気相が熱流に平行（図中の上部）、即ち、両者が組み合わされて熱が伝わる部分と、固相・気相が熱流に垂直（図中の下部）、即ち、重なり合う両者を順に通過しながら熱が伝わる部分との2層から伝熱を考えるものである。空隙率を ϵ とすると、平行

な部分については

$$K_A = (1 - \epsilon) \times K_s + \epsilon \times K_g \quad \text{----- (3-22)}$$

K_s ：固相の熱伝導度、 K_g ：気相の熱伝導度
垂直な部分については

$$K_B = \frac{1}{(1 - \epsilon)/K_s + \epsilon/K_g} \quad \text{----- (3-23)}$$

より混成熱伝導度を評価できることから、最終的には、垂直部（伝熱抵抗が高い部分）の伝熱への寄与率を a とおくことで

$$K_{eff} = \frac{1}{(1 - a)/K_A + a/K_B} \quad \text{----- (3-24)}$$

にて評価できる。伝熱に対する寄与率 a については、砂や土等の充填物によって異なるが、概ね 0.2 程度が用いられている。

FP 化合物が存在するギャップ部の伝熱特性評価にこのモデルを適用する場合には、 K_s として FP 化合物、今回のモデルでは Cs_2MoO_4 の熱伝導度を、 K_g として初期封入ガスと FP ガスとの混合ガス熱伝導度をそれぞれ与えればよく、 a 値については一般物質と同様に 0.2 を与えることが考えられる。残る空隙率 ϵ については、FP 化合物の体積とギャップ部の体積との比を用いることが考えられる。

以下には、上述してきた今回のギャップ部温度上昇量評価方法をまとめると

$$\Delta T_{GAP} = \frac{W}{2\pi R_{CI} H} \quad \text{----- (3-25-1)}$$

ΔT_{GAP} ：ギャップ部温度上昇量、 W ：線出力、 R_{CI} ：被覆管内半径、

H ：ギャップ部熱伝達率

$$= H_{JOG} + H_s + H_R \quad \text{----- (3-25-2)}$$

H_s ：燃料ペレット・被覆管接触時熱伝達率、 H_R ：輻射による熱伝達率

$$H_{JOG} = \frac{K_{eff}}{G + TJD + RFC} \quad \text{----- (3-25-3)}$$

G ：ギャップ幅半径値、 TJD ：温度ジャンプ距離*

RFC ：燃料ペレット・被覆管表面粗さ*

$$K_{eff} = \frac{1}{(1 - a)/K_A + a/K_B} \quad \text{----- (3-25-4)}$$

$$K_A = (1 - \epsilon) \times K_s + \epsilon \times K_g \quad \text{----- (3-25-5)}$$

$$K_B = \frac{1}{(1 - \epsilon)/K_s + \epsilon/K_g} \quad \text{----- (3-25-6)}$$

K_s : FP 化合物の熱伝導度*、 K_g : ギャップ部ガス熱伝導度*

$$\varepsilon = \frac{V_{FP}}{V_{GAP}} \quad \text{--- (3-25-7)}$$

V_{GAP} : ギャップ部体積

$$V_{FP} = \frac{0.5 \times Y_{Cs} \times BU}{\rho_{Cs_2MoO_4}} \quad \text{--- (3-25-8)}$$

Y_{Cs} : Cs の単位燃焼度あたりのモル収量、BU: 燃焼度、

$\rho_{Cs_2MoO_4}$: Cs_2MoO_4 モル体積

なお、FP 化合物の熱伝導度については、約 94%TD における Cs_2MoO_4 熱伝導度実測値があることから、この値を K_s として用いることとし、ギャップ部 FP 化合物として同様の密度のものが形成されると仮定し、 $\rho_{Cs_2MoO_4}$ には 104[cc/mol] を用いることとした。以下には K_s 値を示す²²⁾。

$$K_s = 1.0 \times 10^{-2} \times \left(78.24 \Big/ T + 0.15 + 1.7 \times 10^{-10} \times T^3 \right) \quad T < 845[K] \quad \text{--- (3-26-1)}$$

$$= 1.0 \times 10^{-2} \times \left(132.56 \Big/ T + 0.03 + 3.2 \times 10^{-10} \times T^3 \right) \quad T \geq 845[K] \quad \text{--- (3-26-2)}$$

K_s : ギャップ部 FP 化合物熱伝導度 [W/cm/K]、T: ギャップ部平均温度

また、先の式(3-25-1)から式(3-25-8)までの式中で、*を付記した項目の評価式については、文献 20)を参照されたい。

3-3-3. その他の改良：O/M 比再分布評価手法の改良

3-3-1 に示した燃焼計算機能の導入により、照射中の U, Pu 等の元素量を評価可能となる。このことは、従来の CEDAR コード中では行えていなかった核種の存在量に依存する挙動の評価が可能となることを意味する。

そこで、そのような挙動の中で燃料温度評価上の影響が大きい O/M 比再分布挙動の評価手法を改良することとした。

まず、O/M 比再分布挙動について簡単に説明する。

照射中の燃料では、核分裂により、U, Pu 元素の増減、及び FP の生成が生じる。この際、FP の一部は酸化物を形成して燃料中に固溶するが、一部は析出するため、燃料ペレット内の平均値としてみた場合、製造時の金属元素と酸素元素の比、即ち O/M 比は変化することとなる。また、燃料内の化学状態に応じて U, Pu 酸化物中から解離する酸素原子や、核分裂した U, Pu と酸化物を形成していた酸素原子といった自由に動き得る酸素原子が生じることで酸素の拡散が発生し、その結果として燃料内の局所的な O/M 比分布にも変化が生じる。

このような照射中の O/M 比分布の変化が O/M 比再分布挙動と呼ばれるものである。燃料の熱伝導度は、O/M 比に対し依存性を有していることから、燃料温度評価上は、無視できない影響をもつものである。また、Pu 再分布挙動上も、固相での U-Pu 相互拡散係数に O/M 比依存性があること等から、無視できないものもある。

この挙動については、Pu 再分布挙動と同様、過去に多くの研究が行われてきており、一般には、Aitken ら²³⁾が提唱するモデルで挙動を評価できると考えられている。以下に評価式を示す。

$$\ln x_2 - \ln x_1 = \frac{Q}{R} \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \quad \text{--- (3-27)}$$

x: O/M 比の定比からのずれ T: 温度

(添え字 1, 2 は異なる径方向位置であることを意味する)

Q: 輸送熱 R: 気体定数

式(3-27)中の輸送熱 Q は、O/M 比評価結果を強く支配する物性値であり、Aitken は、以下

の評価式を示している²³⁾。

$$\begin{aligned} Q &= -30 \text{ [Kcal/mol]} \quad (0/M \geq 1.98) \\ &= -22.5 / x^2 \text{ [cal/mol]} \quad (0/M < 1.98) \quad --- (3-28) \end{aligned}$$

(ただし、-30[Kcal/mol]を下回らないものとする)

このモデルを用いると、温度分布とある位置での0/M比が決まれば、燃料ペレット内の0/M比分布を評価することができる。ただし、実際の0/M比再分布現象は、酸素のマスバランスを保ちつつ起こるものと考えられる。このため、式(3-27)にて得られる分布を平均化して得られる再分布後の燃料内平均0/M比と、分布変化を計算する前の平均0/M比とが一致するよう繰り返し計算を行って0/M比分布を確定することが要求される²⁴⁾。

これに対し、CEDARコードには、すでに同モデルが組み込まれているものの、照射中の燃料ペレット内平均0/M比の変化を評価する機能が導入されていなかったことから、燃料内の平均0/M比は製造時から不变とせざるを得ず、0/M比再分布評価機能が完全には機能していない状態にあった。

そこで今回は、既存の評価手法に、照射中の燃料内平均0/M比の変化を評価する機能を追加することで、CEDARコードの0/M比再分布挙動評価機能を改良することとした。

この照射中の平均0/M比の変化についてはJohnsonらが以下の評価式を示している²⁵⁾。

$$OM(B) = \frac{OM_I - K_1 \times B}{1 - B + K_2 \times B} \quad --- (3-29)$$

OM : 0/M比 (添え字Iは製造時を意味する)

B : 燃焼度[at. fraction] K₁, K₂ : 定数

式(3-29)は、FP元素を2種類に大別した上で用いられるものである。

まず、式(3-29)右辺の分子は、化合物を形成して燃料内から析出する酸素を除いた燃料内酸素量を意味する。分母は、酸化物を形成して燃料内に固溶するFPと、燃料内に残留しているU、Puの合計量、即ち燃料内の金属元素量を意味する。係数K₁、K₂は、Y・RE、Zrに代表される固溶型FP、Sr・Ba及びCsに代表される析出型FPそれぞれの収率に基づき

$$K_1 = 3 \times (Y_{Ba} + Y_{Sr}) + \frac{1}{5} \times 2 \times Y_{Cs} \quad --- (3-31)$$

$$K_2 = Y_Y + Y_{RE} + (Y_{Zr} - Y_{Sr} - Y_{Ba}) \quad ---- (3-32)$$

Y_{Ba}, Y_{Sr} : Ba, Srの収率 (これらはBaZrO₃, SrZrO₃を形成し、析出すると仮定)

Y_{Cs} : Csの収率

(全量の4/5は非酸化物、残りは酸化物を形成し析出すると仮定)

Y_Y, Y_{RE} : Y及び希土類元素の収率

Y_{Zr} : Zrの収率 (Ba, Srと反応していないZrが燃料内にZrO₂の形で固溶と仮定)

として得られる。FP収率は、燃料中のPu239, U235の量（核分裂性物質の組成）や照射時の中性子スペクトル分布等により変化することから、K₁, K₂の2値は燃料組成や炉型によって変化するものであり、例えば米国EBR-II炉の典型的な照射条件の場合、K₁=0.427, K₂=0.655と評価されている²⁴⁾。今回は、概略の燃焼チェーンを想定し、そのもとでU、Puの燃焼計算を行うこととしていることから、CEDARコードに導入した燃焼計算にて得られるFP生成量を用いてK₁, K₂の2値を評価することとした。

なお、核分裂で生成される元素は、以下の種類に類別し、各種類毎に収率を算出している。

Xe/Kr/I/Te/Rb+Cs/Sr/Ba/Y/RE/Mo/Ru+Rh+Pd+Ag

第4章 Pu再分布挙動評価結果の検討

4-1. 較正係数の導入

炉内の燃料の挙動を評価する場合、熱伝導度等の燃料の基礎物性に関しては、通常、炉外試験結果に基づく値（未照射時物性値）が用いられる。しかしながら、例えば、照射損傷等を要因とする照射場での物性の変化や、炉外試験の試験範囲が限定的であることにより各種の依存性を十分には把握、定式化できていない等のことから、未照射時の物性値をそのまま使用した場合には、照射挙動評価結果の、実測値に対する定量的な再現性が得られない可能性が考えられる。

そのため、炉内の挙動を計算評価する際には、各種の挙動評価モデル中に較正係数と呼ばれる補正項を導入し、較正係数値を最適化することにより定量的な再現性を確保することが行われている。

今回は、未照射時の物性値を用いているもののうち、各種評価値の定量評価精度への影響が大きいと思われる MOX 中の U-Pu 相互拡散係数、熱伝導度、及びポア移動速度について較正係数を導入することとした。導入理由を以下に示す。

まず、一般的に拡散係数は、試料調整方法等の実験条件により測定値がばらつきやすくなると考えられている。そのため、Pu再分布挙動の定量評価精度は、使用する物性値の不確かさに影響されると考えられる。そこで、2章に示した方法で得られる U-Pu 相互拡散係数値に係数を乗じて補正することが必要と判断した。

一方、燃料の温度評価においては、直接的には熱伝導度が、間接的には組織変化が重要な因子となっている。このうち熱伝導度については、先の拡散係数と同様に、ばらつきが大きい等、定量的な面で、使用する物性値の不確かさに影響されると考えられる。ポア移動速度については、この値自体を実験で取得することが困難であり、理論評価値が用いられることが多い。今回利用する CEDAR コードにも、理論的なモデルに基づく値が導入されている。しかしながら、理論評価値はいずれも燃料中の U, Pu の蒸気圧を基にして評価されるものであり、それら蒸気圧の実測値は、先の熱伝導度等と同様、不確かさが大きなものである。即ち、ポア移動速度も、先の 2 者と同様に、使用する物性値の不確かさに影響されると考えられる。

そこで、熱伝導度、ポア移動速度にも係数を乗じて補正することが必要と判断した。

以下には、簡略に各々の補正式を示しておく。

・相互拡散係数

$$\tilde{D}_{\text{eff}} = \bar{D}_{\text{cal}} \times C_{\text{Diff}} \quad \text{----- (4-1)}$$

\tilde{D}_{eff} ：補正後の値、 \bar{D}_{cal} ：補正前の値、 C_{Diff} ：較正係数

・熱伝導度

$$\lambda_{\text{eff}} = \left[\frac{1}{\lambda} + C_{\text{Te1}} \times \frac{B/T}{1} \right]^{-1} \quad \text{----- (4-2-1)}$$

$$\lambda = \lambda_{\text{ref}} \times \left[\frac{D}{1 + C_{\text{Te2}} \times (1 - D)} \right] \quad \text{----- (4-2-2)}$$

λ_{eff} ：補正後の値、 λ_{ref} ：理論密度の場合の値、 D ：理論密度比 [-]、 B ：燃焼度 [MWd/MTM]

T ：温度 [K]、 C_{Te1} 、 C_{Te2} ：較正係数

・ポア移動速度

$$V_{\text{P,eff}} = V_{\text{P,cal}} \times C_{\text{VP}} \quad \text{----- (4-3)}$$

$V_{\text{P,eff}}$ ：補正後の値、 $V_{\text{P,cal}}$ ：補正前の値、 C_{VP} ：較正係数

なお、上記のうち式(4-2-1)、(4-2-2)及び(4-3)は改良前の CEDAR-III rev.0 にて用いられていたものであり、今回の較正作業は、 C_{Te1} 、 C_{Te2} 、 C_{VP} について値の見直しを意味する。

4-2. 較正用データに用いた照射試験結果

4-1 に示した各較正係数の最適化に際しては、線出力等の照射条件が明確なものうち、燃焼度が 0.1Gwd/MTM にも満たない極短期の照射試験、燃焼度が約 70Gwd/MTM 程度に達している中期照射試験、燃焼度が 100Gwd/MTM を超えた長期照射試験の 3 種の照射試験結果を利用することとした。

以下に、それら照射試験を簡単に紹介する。

まず、短期照射については、目標最高線出力約 400W/cm、照射期間約 0.4EFPD の照射試験（通称 B4M 試験）の結果を用いることとした。この試験は、「もんじゅ」仕様の低密度燃料ペレットを「常陽」にて照射したもので、照射後組織観察に際し、燃料ピン中の燃料部の軸方向中央部で、比較的明瞭な組織変化の発生が認められるとともに、燃料ペレット中心部（中心空孔端）で Pu 濃度が製造時よりも最大で 3 %程度増加していることが確認されている。

中期照射については、軸非均質燃料を用いた照射試験（通称 A2D 試験）の結果を用いることとした。軸非均質燃料は、燃料ピン中の燃料部の軸方向中央部に UO₂ペレットを挿入することで燃料ピン軸方向の中性子フラックス分布を平坦化したものであり、A2D 試験は、軸方向非均質化の有益性の把握を目指したものである。燃料には、高密度、高 O/M 比だが約 17wt. %と低い Pu 濃度のものが用いられ、「常陽」にて約 360EFPD の期間照射されている。なお、燃料ピン最高線出力が 400W/cm 超となるよう U 濃縮度が高めに調整されている。照射後組織観察に際し、燃料ピン中の燃料部の軸方向中央部近傍においては、比較的明確な組織変化が観察されたが、燃料中心部の Pu 濃度変化は、最大でも +4% 弱程度と先の B4M 試験とあまり変わらない程度であった。

長期照射については、JNC の東海事業所で製造した燃料ピンを仏国 Phenix 炉にて照射した試験（通称 Phenix P-3 試験）の結果を用いることとした。この試験は、密度、O/M 比が燃料挙動に及ぼす効果を把握することを目的とし、仏国 Phenix 炉で約 560EFPD と長期にわたり燃料ピンを照射したもので、製造時密度は約 85% TD、93% TD の 2 水準、製造時 O/M 比は 1.95, 1.955, 1.98, 1.99 の 4 水準設定された。照射は、最高約 440W/cm だった線出力が照射末期には 300W/cm 程度まで下がるとの履歴にて行われている。照射後組織観察では、製造時と同程度と極めて広いギャップが確認されるとともに、燃料中心部の Pu 濃度変化が +10% 程度に達したものも確認されている。

なお、今回は、局所（軸方向である特定の部位）における照射試験結果を較正に用いることとし、燃料ピン全体を対象とする評価は行っていない。較正に用いた各局所データは、表 4-1 に示した。また、較正係数は、表 4-1 中のすべての試料に同一の値を適用するものとして最適化している。

4-3. 評価結果の妥当性に関する考察

4-3-1. 温度評価結果の妥当性検討方法

2 章で既に述べたように、Pu 再分布挙動は、温度と密接に関連するものであり、3 章に述べた方法による Pu 再分布挙動評価結果の妥当性を検討する前に、まず、照射中の燃料温度評価結果の妥当性を検討することが必要と考えられる。

現在のところ、数十 Gwd/MTM に達するような燃焼燃料の照射期間全体を通じての温度履歴については、オンラインで測定する等の直接測定結果が得られていない。

このため、燃焼燃料の温度履歴評価結果については、間接的に妥当性を検討せざるを得ず、その手段として、照射後組織を利用する考えられる。

過去の照射試験等から、燃料には、照射中に経験した温度に応じて組織変化が生じることが判明しており、多くの場合、温度が高い燃料中心部側から順に中心空孔、柱状晶領域、

等軸晶領域が形成され、外周部には結晶粒が顕著には成長していない製造時と同様の組織が残置する（外周部組織と称しておく）こととなる²⁶⁾。

上述の組織変化の要因として考えられている機構には、主として、製造時に燃料ペレット内に内包された気泡（ポア）が温度勾配に沿って移動すること、及び、蒸発・凝縮のような機構を介して結晶粒が成長することの2つが考えられている。

そのような機構から類推される事項として、例えば、外周部組織から等軸晶への変化に関しては、粒成長の顕在化がその条件と考えられることから、粒成長速度を考慮すると、およそ1200℃から1400℃程度の温度を経験することが変化の条件と考えられる²⁶⁾。一方、柱状晶組織に関しては、柱状晶がポアの移動に伴い形成される組織と考えられることから、ポアの移動が顕在化するおよそ1700℃程度を超える温度を経験することが形成の条件と考えられる²⁶⁾。ただし、いずれについてもどの程度の期間、特定の温度を超えていることが必要とされるかは明白となっていない。

以上のことから、等軸晶や柱状晶の形成状態は、燃料の特定の領域が照射中にどの程度の温度域を経験していたかという推測に利用可能と考えられる。

一方、燃料の中心部に形成される中心空孔は、ペレット内のポアが移動することにより形成されるものであり、ポアの移動速度は温度に強く依存するものである。このことから、中心空孔の形成量から温度を推測することが可能と考えられる。ただし、ポアが顕著に移動する温度域はきわめて高温であり、「常陽」のように線出力が燃焼とともに低下する出力履歴を有する場合には、燃料温度が照射期間を通じて最も高温となる照射開始後数時間から数日程度の期間で中心空孔形成が飽和すると考えられる。

以上のことから、線出力が燃焼とともに低下するような出力履歴で照射された燃料における中心空孔形成量は、照射初期に燃料がどの程度の温度を経験していたかという推測に利用可能と考えられる。

そこで今回は、中心空孔形成量評価値の照射後の実測値に対する再現性と、照射後組織観察で等軸晶領域の低温側境界と判定された位置における温度評価値とから、照射期間を通じての温度履歴評価のおおよその妥当性を検討することとした。

4-3-2. 温度評価結果の妥当性

まず、図4-1に中心空孔形成量に関する評価結果（半径値）をまとめて示す。図4-1からは、概ね±0.2mmの幅で実測された中心空孔半径値を再現できていることがわかる。ここで、中心空孔形成量はポア移動速度に強く影響されるものである。このポア移動速度に関しては、移動速度評価上重要な因子であるU、Puの蒸気圧が不確かさの大きなものであること等の定量評価の面で課題が残されており、これを考慮すると、図4-1に示した実測値とのずれ幅の±0.2mmは、著しく再現性を欠いた結果とは考えにくい。即ち、照射初期については、組織変化から類推される温度履歴と矛盾しない評価結果が得られていると考えることができる。

次に、照射後の等軸晶領域の低温側境界位置に関する評価結果について考える。図4-2-1から図4-2-17には、較正に用いた試料毎の評価結果を示したが、それらのうち、図番-aとして燃料中心部および外表面部の温度履歴評価結果を、図番-bとして照射末期時の径方向温度分布評価結果を示している。なお、照射後組織観察の際、A2D試験試料については、検討から除外した。また、図番-bは、燃料中心部から被覆管内表面までの温度分布を示したものである。

まず、Phenix P3試験試料では、図4-2-9-bから図4-2-17-b中に付記したように、いずれについても、照射後の等軸晶領域の低温側境界位置は、照射末期に概ね1200℃程度を下回るような温度であったと評価される。一方、燃料中心部や外表面の温度履歴評価結果からわかるように、おおよそ100日を越えて以降は、燃料の温度は、照射末期とほとんど変わらぬ温度であったと評価される。このことから、今回の温度履歴評価は、照射期間中に、

照射後の等軸晶領域の低温側境界位置で、等軸晶領域の形成条件と考えられる温度域を越える高温を長期にわたり経験していないことを示したものである。即ち、組織変化から類推される温度履歴と矛盾しない評価結果が得られていると考えることができる。

一方、B4M 試験試料については、1500°Cを超えるような高温部に、等軸晶領域の低温側境界が位置していたとの評価結果となっている。しかしながら、B4M 試験は、一日にも満たないごく短期の照射のものであることから、等軸晶領域であると識別できるだけの粒成長が生じる部位は、粒成長速度から考えると、先に示した形成条件をはるかに超える高温域であったと考えられる。即ち、B4M 試験試料についても、組織変化から類推される温度履歴と矛盾しない評価結果が得られていると考えることができる。

以上のことから、今回の手法で得られる燃料温度履歴評価値は、燃料の照射後組織と矛盾しないものと考えられ、温度評価は概ね妥当なものと判断した。

そこで、続いて、Pu 再分布挙動評価結果の妥当性について検討することとした。

なお、Phenix P3 試験試料については、照射末期に燃料温度が上昇するとの評価結果となっている。これは、燃焼度が高くなると被覆管に顕著なスエーリング変形が生じ、その結果、高燃焼度燃料では、ギャップ幅が燃焼に伴い拡大することをモデル化していることによる。ギャップ部に FP 化合物が存在するとの今回のギャップ部温度上昇量評価手法では、FP 化合物がギャップ部ガスに比べ良好な伝熱特性を示すことから燃焼に伴う温度上昇は抑制されるものの、FP 化合物の熱伝導度は燃料よりも低いものであることから、ギャップ幅が拡大することで、急激ではないもののギャップ部温度上昇量が増加することとなる。このような、燃焼に伴うギャップ幅拡大により燃料温度が上昇するとのモデルの妥当性については、今後の高燃焼度の照射試験を待って検証することとなる。

4-3-3. Pu 再分布量評価結果の妥当性

まず、評価結果の定性的な妥当性を検討するため、先に示した各試料個々の評価結果図 4-2-1 から図 4-2-17 のうち、図番-d を見していく。

図番-d は、照射末期の径方向 Pu 濃度分布評価結果を示したものであり、図中には、Pu 濃度実測値を○印で示している。いずれの試料についても、評価結果は、中心部で Pu 濃度が高く、燃料の中央部では、Pu 濃度が低いとの傾向となっている。このような傾向は、実測結果と整合するものであることが、各図からわかる。なお、A2D 試験のうちの E3B282 試料や Phenix P3 試験のうちの XD11A1 試料、XD11F1 試料については、燃料中央部の濃度極小点から外周部へと濃度分布を見ていった場合、他の試料とは異なり、単調には濃度が増加していないという評価結果となっている。これは、燃料の分割数の制限という計算手法上の制約から生じたものである。まず、今回の Pu 再分布挙動評価手法は、計算に際して燃料ペレットを最大でも 10 分割しかできないものである。このような粗い分割では、例えば、ポアの移動量を評価する際に、燃料内の温度分布評価結果によっては、隣り合う領域でポア移動速度に大きな差が生じ、その結果、U や Pu の移動量評価結果に不連続性が現れ得る等の、計算手法から生じる影響を無視できなくなる場合が生じうこととなる。このため、今後、より細かい分割が可能となるよう、計算手法を改善する必要が考えられる。

続いて、定量的な面を検討する。

図 4-3、4-4 には、Pu 再分布挙動評価結果として、燃料中心部（中心空孔端）における Pu 濃度を示した。このうち図 4-3 は、照射後の Pu 濃度実測値と対比したものであり、図 4-4 は、製造時からの Pu 濃度増加量として整理しなおしたものである。

ここで、まず、今回の評価では、燃焼に伴って生じる U、Pu 量の変化を考慮するため、燃焼計算を導入している。この燃焼計算に際して仮定した燃焼チェーン（U については質量数 235、238 のみ、Pu については 239 から 242 までの質量数の同位体のみを考えるとのもの）は簡略なものであり、また、燃焼計算で必要とされる各種の断面積データには、評価対象試料個々に最適化した値ではなく、一律の値を用いている。このため、燃焼計算結果は、

照射後の U、Pu の燃料内残存量を完全に再現したものではない。

これに加え、先にも記したが、燃料ペレットの分割制限という、計算手法上の制約から生じる定量的な影響を無視することはできない。

それらを踏まえて考えると、±3wt.%程度で実測値を再現できていることは、比較的良好な定量評価精度であると考えることができる。

以上のことから、今回の評価手法は、定性的にも定量的にも、実際の現象と矛盾しない Pu 濃度分布評価値が得られるものだと判断できる。

従って、今回報告した Pu 再分布挙動評価手法は、概ね妥当なものだと判断した。

4-4. 燃料に生じうる Pu 再分布挙動に関する考察

評価結果の妥当性を確認できたことから、今回報告した Pu 再分布挙動評価手法による評価結果に基づき、燃料に生じ得る照射中の Pu 再分布挙動を考察することとした。以下、4-4-1 には一般的傾向について、4-4-2 には製造時の燃料組成との関係についての考察結果を示す。

4-4-1. Pu 再分布挙動の傾向に関する考察

4-3 で示した較正用試料に関する評価結果を用いて検討する。

まず、短期照射の B4M 試験試料に関する評価では、燃料中心部について見た場合、Pu 濃度が単調に増加する傾向となっている。ここで、Pu 再分布挙動の要因には、固相輸送と気相輸送の 2 者が考えられるが、前者の固相輸送は、時間を要するものである。一方、後者の気相輸送は、主として、中心空孔が形成される要因であるポアの移動に伴って生じるものである。図 4-2-1-c から図 4-2-3-c に示すように、B4M 試験試料については、中心空孔が形成途上にあることから、ポアの移動、即ち、気相輸送による Pu の輸送も継続して生じている。現在までの経験からは、ポアの移動方向と Pu の輸送方向は等しい、即ち、ポアが移動する燃料中心側に向って Pu も輸送されると考えられることから、燃料中心部における Pu 濃度は、時間とともに増加することとなる。

これらから、B4M 試験のような数時間から数日程度と、中心空孔形成が進行している期間においては、燃料中心部で時間とともに Pu 濃度が増加するように、Pu 再分布挙動が生じるものと考えられる。

一方、A2D 試験試料や Phenix P3 試験試料からは、照射時間が数十から 100 日程度になると、中心部の Pu 濃度は漸増もしくは一定傾向に移るとの評価結果となっている。これについては、まず、図 4-2-4-c から図 4-2-17-c に示すように中心空孔形成は飽和、即ちポアの移動は収束状態となっており、その結果、気相輸送による Pu の輸送も収束することとなる。このため、燃料中心部での Pu 濃度変化は、速度の遅い固相輸送により生じることとなる。一方、核分裂等による燃焼に伴う U, Pu 量の変化が生じるが、A2D 試験や Phenix P3 試験のような場合には、燃焼に伴う Pu 濃度が減少することとなる。固相輸送による Pu の移動は、現在までの経験からは、先のポア移動に伴う気相輸送と同様に、燃料中心側に向うものと考えられることから、燃焼に伴う Pu 濃度減少を補償することとなり、燃料中心部の Pu 濃度は一定もしくは漸増することとなる。

これらから、燃焼に伴う U, Pu 量の変化により燃料内平均 Pu 濃度が減少する (Pu が U よりも多く減量する) ような組成の燃料では、数十から 100 日程度の期間においては、燃料中心部で、Pu 濃度が漸増もしくはほとんど変化しないように、Pu 再分布挙動が生じるものと考えられる。

さらに照射時間が長くなると、燃焼に伴う Pu 濃度変化（減少）と固相輸送による Pu 濃度変化との競合が継続するが、図 4-2-4-c から図 4-2-17-c に示すように試料個々に相違が生じ、ほぼ一定のまま Pu 濃度が推移する場合、漸減していく場合とが生じることとなる。この相違は、主として線出力履歴や初期の核分裂性物質の組成に依存すると考えられる。

また、例えば、Phenix P3 試験の XD09J2 (図 4-2-13) や XD11F1 試料 (図 4-2-17) のように、被覆管のスエリング歪によりギャップ幅が拡大することで燃料温度が上昇するような状況となった場合には、固相輸送が促進されることになるため、燃焼に伴う濃度減少以上に固相輸送による濃度増加が生じて中心部の Pu 濃度が照射後期に増加する場合も生じうる。

これらから、数 100 日程度と極めて長い照射期間においては、燃料中心部の Pu 濃度が一定もしくは漸減傾向となるように、Pu 再分布挙動が生じるものと考えられる。

以上を簡単にまとめると、燃焼に伴い線出力が減少していくような出力履歴の場合、

- ・数日程度までの短期間：中心空孔形成が飽和するまで、中心空孔形成の駆動力である
ポア移動に伴う気相輸送により、Pu 濃度が変化する
- ・数十日から 100 日程度：ポア移動に伴う気相輸送は収束し、燃焼に伴う U, Pu 量の変化と
固相輸送との競合により、Pu 濃度が変化する
- ・より長い期間
：燃焼に伴う U, Pu 量の変化と固相輸送との競合が状態が継続され
ながら、Pu 濃度が変化する

と考えられる。なお、出力履歴が照射期間中一定となるような場合には、上記とは異なる状況となることが予想されるが、Pu 再分布機構上の差異はないことから、今回の評価手法でその挙動を予測することが可能と考えられる。

4-4-2. 製造時組成の効果に関する考察

Pu 再分布挙動に強い影響を及ぼす MOX 中の U-Pu 相互拡散係数は O/M 比、Pu 濃度に対する依存性を有している。また、燃料温度に強い影響を及ぼす熱伝導度も同様の依存性を有している。このことから、同一の条件で照射された場合でも、製造時の燃料の O/M 比や Pu 濃度（以下、簡略に「組成」という表現で表す）が異なると、照射中の燃料の状態に差異が生じると予想される。

そこで、4-4-1 と同様に、今回の較正に用いた試料を利用して燃料組成の効果を検討することを考え、Phenix P3 試験中の XD0781 試料について組成を変化させることを試みた。

まず、計算ケースは以下の 6 ケースとした。

- ・基準ケース：組成を変化させない（製造時 O/M 比は 1.955、Pu 濃度は 29.78wt.%）
- ・ケース A：製造時 O/M 比を 1.990 に変化させるが、Pu 濃度は 29.78wt.% のままでする
- ・ケース B：製造時 O/M 比を 1.970 に変化させるが、Pu 濃度は 29.78wt.% のままでする
- ・ケース C：製造時 O/M 比は 1.955 のままでし、Pu 濃度を 25.0wt.% に変化させる
- ・ケース D：製造時 O/M 比を 1.990、Pu 濃度を 25.0wt.% にそれぞれ変化させる
- ・ケース E：製造時 O/M 比を 1.970、Pu 濃度を 25.0wt.% にそれぞれ変化させる

これらのケース毎の評価結果は図 4-5-1 から図 4-5-5 に示した。図には、温度評価に及ぼされる効果を見るため、それぞれ、基準ケースと対比する形で燃料中心温度、外表面温度の変化履歴を示している。これら図からは、6 ケース間の組成の差では、温度評価上あまり大きな違いは生まれないことがわかる。なお、中心空孔径に関しては、照射期間中の変化履歴上の差異がほとんど認められなかったことから図示していない。

一方、図 4-6-1、図 4-6-2 には照射末期における燃料内径方向 Pu 濃度分布を示している。これらの図からは、O/M 比が 1.955 から 1.990 へと高くなるにつれ、照射末期の燃料中心部 Pu 濃度増加量が増加することがわかる。また、図 4-6-3、図 4-6-4 には、燃料中心部の Pu 濃度の変化履歴を示したが、これらの図からは、照射の初期段階の Pu 増加量が大きいほど、照射末期の燃料中心部 Pu 濃度が高く維持されることがわかる。一方で、O/M 比が大きい方が照射末期の燃料中心部 Pu 濃度が高くなるものの、照射期間が 100 日に満たないような初期段階においては、O/M 比が小さい方が中心部 Pu 濃度増加量が大きい場合があることもわかる。

ここで、燃料温度評価上の差が顕著でないことを考慮すると、上述のような差は、以下に示すような理由から、Pu 再分布機構に対する燃料組成の効果が現れたものと考えることができる。即ち、Pu 再分布量を支配する要因の中で特に効果が大きなものである U-Pu 相互

拡散係数は、O/M 比に対して強い依存性を有している。照射中の燃焼による U, Pu 量変化により、燃焼度増加に伴い燃料内の平均 O/M 比は定比へと近づくため、U-Pu 相互拡散係数に及ぼされる製造時 O/M 比の効果は、照射期間中、徐々に消失すると考えられる。しかしながら、製造時 O/M 比が U-Pu 相互拡散係数に強い影響を及ぼす照射の初期段階では、相互拡散係数の O/M 比依存性を介して Pu 再分布挙動が製造時 O/M 比に強く依存すると考えられる。ここで、U-Pu 相互拡散係数の O/M 比依存性は、Pu 濃度や温度により違いはあるが概ね 1.98 程度で拡散係数値が極小値をとる傾向にある。このため、照射中の平均 O/M 比の増加を加味すると、製造時 O/M 比が 1.97 の場合には期間中の平均的な拡散係数値が小さくなり、O/M 比が 1.955、1.990 の場合よりも照射の初期段階の Pu 再分布挙動が不活発となると考えられる。

このようなことから、照射の初期段階の Pu 再分布挙動は、U-Pu 相互拡散係数が有する O/M 比依存性に支配されるかたちで、製造時の O/M 比に影響されると考えられる。

なお、O/M 比 1.990 の場合には Pu 再分布量評価値が大きくなるため、径方向濃度分布評価結果が不連続的に変化するとの、径方向メッシュ分割数が少ないとによる影響が現れてしまっているが、とりあえず、考察の材料として用いた。

このような O/M 比の効果に対し、図 4-6-1 から図 4-6-4 より得られる Pu 濃度変化による効果は、O/M 比変化の際に比べあまり顕著でなく、製造時 Pu 濃度と Pu 濃度変化量の関係も顕在化していないことがわかる。これは、今回の相互拡散係数評価に用いた U, Pu の UO_2 中の拡散係数値の差があまり大きなものではないことから、製造時の O/M 比が 1.955 から 1.99 まで変化する場合の効果に比べ、製造時の Pu 濃度が 25.0wt.% から 29.78wt.% まで変化する場合の効果が小さくなつたためと考えられる。

以上を踏まえて、製造時の組成が Pu 再分布挙動に及ぼす影響を考えると、U, Pu の UO_2 中の拡散係数に大きな差がないような場合には、以下のように Pu 再分布挙動が生じると考えられる。

- ・ 照射の初期段階：U-Pu 相互拡散係数が有する O/M 比依存性に強く支配されるかたちで、製造時の O/M 比に影響を受けながら Pu 再分布挙動が生じる。
- ・ 100 日を越えるような長期照射：初期段階に生じる Pu 再分布量に依存するかたちで、Pu 再分布挙動が継続して生じる。

ここでの検討に用いた XD0781 試料のような高燃焼度燃料の場合には、上記のことから、U-Pu 相互拡散係数が照射期間を通じて大きなものとなる、製造時 O/M 比が 1.99 のような場合に照射末期の燃料中心部 Pu 濃度が高くなると考えられる。また、照射期間が長くなるような場合、XD0781 の例からは、製造時 O/M 比を 1.97 程度にして照射の初期段階の Pu 再分布挙動を不活発化することで、照射期間中の燃料中心部の Pu 濃度増加を抑制できる可能性があるとも考えられる。

第5章 今後の課題

今回の検討の結果、変化履歴を概ね適切に評価できるPu再分布挙動評価手法を得ることができたものの、Pu再分布挙動の定量評価精度については、本文中に示したように、導入している物性値や評価方法等の改善をはかれれば、更に向上させうる余地があると考えられる。

そのためには、主として

- ・長期的展開：照射試験によるPu再分布挙動データベースの拡充
- ・短期的展開：定量的な不確かさの多い物性値や物性等評価式の改善

をはかることが考えられる。

以下には、短期的な課題の中でも特に重要なと思われる事項について、簡単に触れておく。

5-1. 拡散係数測定値の拡充

MOXの拡散係数の実測は、1970年代以降、実施されておらず、実測値が不足している状況にある。これに加え、従来から懸念されていることであるが、1970年代以前の実測値のうち、トレーサー核種の動きを核種固有の α 線量の変化から評価することで拡散係数を得ているものでは、拡散アニール時間が短く、表面拡散の影響が生じている可能性がある。従って、既存の実測値のみでは、拡散係数の真値を評価することが困難である。

このため、拡散係数値の定量的な精度に非常に大きな影響を受けるPu再分布挙動評価結果の精度向上をはかるためには、改めてMOXの拡散係数を実測していく必要がある。

一概に拡散係数と言っても、自己拡散係数や固有拡散係数、相互拡散係数と多岐にわたるが、現在、JNCの既存設備で、UO₂中のPu、及びUO₂中のUの拡散係数を測定し、その結果からU-Pu相互拡散係数を評価することができないか検討することを予定している。

5-2. 温度評価手法の再構築

Pu再分布挙動に限らず、燃料の照射挙動を精度良く評価するためには、燃料の照射中の温度の評価精度向上が必須である。

今回は、ギャップ部温度上昇量評価についての改善を試みている。図5-1から図5-4には、ギャップ部に存在するFP化合物量の評価値を変動させ、その結果が温度、Pu再分布量にどのような影響を与えるかを示した。評価対象とした試料は、PHENIX P3試験のXD0781試料であり、ギャップ部のFP化合物量を単純に2倍、0.5倍した結果をそれぞれ「基準ケース」、「2倍ケース」、「0.5倍ケース」と標記して示している。

図5-3からは、温度評価上は、温度の変化傾向には影響がほとんど現れず、絶対値について影響が現れていることがわかる。Pu再分布量に対しては、温度の絶対値に生じる影響が無視できないことから、量的影響は小さなものではないと考えられ、図5-4からもその状況がわかる。なお、ギャップ幅については、燃料の熱膨張を介して燃料温度と関連していることから、図5-2のように、温度の絶対値への影響が強く現れている200日程度までの評価に関し、変化傾向及び量的両面の影響が生じている。

現時点では、このようなギャップ部のFP化合物量についての実験的な知見が欠けているため、FP化合物によりいったんギャップが充満されて以降はギャップが拡大しようともガスによる伝熱は無視する等、ギャップ部温度評価上改善を要すると思われる点が残されている。

このため、先の5-1に加え、今後、炉外試験等の利用によるギャップ部へのFP化合物量蓄積の時間変化に関する知見を取得していくことも必要と考えられる。ただし、現在、データ取得方策等に関する検討を行うことは予定していない。

また、今回は、ギャップ部の固体状物質をCs₂MoO₄に限定してギャップ部温度上昇量評価

手法を改良することを試みている。しかしながら、過去の経験やFPの収率等をもとにすると、実際のギャップ部には、Cs₂MoO₄だけでなく、Cs-U-O系化合物やCs₂Iのような化合物、あるいは単体のTe等も存在している可能性が考えられる。これらは、ギャップ部の化学的条件によってその存在形態を変化させると考えられることから、存在形態を規定して熱的効果を評価するとの方法を逐一適用することは非現実的といえ、工学的判断とはなるが、今回のように、ある程度存在物を限定するような形を探らざるを得ないと考えられる。

ただし、そのような方法は、できるだけ多くの照射試験結果により検証、ならびに改良していくことが必要と考えられる。また、今回は、Cs₂MoO₄に限定したことで、Cs₂MoO₄の持つ熱伝導度を用いてギャップ部固体状物質の熱伝導度に温度依存性を与えたが、多岐にわたる物質を考慮し、より実際的な評価へと改良していく際には、温度によらず特定の値を有するとの考えのもとにギャップ部固体状物質の熱伝導度を評価する方法も検討していくことが必要と考えられる。

5-3. 較正係数の最適化

4-1に述べたように、今回構築した挙動評価手法中には、評価結果の定量的な再現性を高めるために各種の較正係数を導入している。以下には、それら較正係数を再掲する。

- ・相互拡散係数

$$\tilde{D}_{\text{eff}} = \tilde{D}_{\text{cal}} \times C_{\text{Diff}} \quad \text{----- (4-1)}$$

\tilde{D}_{eff} ：補正後の値、 \tilde{D}_{cal} ：補正前の値、 C_{Diff} ：較正係数

- ・熱伝導度

$$\lambda_{\text{eff}} = \left[\frac{1}{\lambda} + C_{\text{Tc1}} \times \frac{B/T}{T} \right]^{-1} \quad \text{----- (4-2-1)}$$

$$\lambda = \lambda_{\text{ref}} \times \left[\frac{D}{1 + C_{\text{Tc2}} \times (1 - D)} \right] \quad \text{----- (4-2-2)}$$

λ_{eff} ：補正後の値、 λ_{ref} ：理論密度の場合の値、D：理論密度比[-]、B：燃焼度[MWd/MTM]、

T：温度[K]、 C_{Tc1} 、 C_{Tc2} ：較正係数

- ・ポア移動速度

$$V_{\text{P,eff}} = V_{\text{P,cal}} \times C_{\text{vp}} \quad \text{----- (4-3)}$$

$V_{\text{P,eff}}$ ：補正後の値、 $V_{\text{P,cal}}$ ：補正前の値、 C_{vp} ：較正係数

これら較正係数に関し、今回は、熱伝導度評価式中の C_{Tc1} 、 C_{Tc2} 、及びポア移動速度式中の C_{vp} については、表4-1に示した各試料の中心空孔径を良好に再現できるよう、例えば文献17や文献20中にまとめられている従来知見を踏まえた上で3者を関連づけながら数値解析的に最適化して得ている。一方、相互拡散係数評価式中の C_{Diff} については、先の3種類の較正係数を最適化した上で得られるPu再分布量評価結果が、表4-1に示した各試料に認められた量を良好に再現できるよう、単独に数値解析的に最適化して得ている。

このような較正係数は、現在のところ、挙動評価の際に用いる各種の物性値の不確かさ等を補正するために不可欠なものであるが、較正に用いる照射試験結果の量だけでなく、データとしての質にも依存して値が変動するものである。

従って、挙動評価手法の定量評価精度向上のためには、今後継続して、線出力変動履歴等の照射条件や照射後試験結果が明確に把握されている照射試験結果を多数蓄積していくとともに、適宜、それらを用いた較正係数の最適化を図っていくことが必要である。

第6章 結言

照射中にPu濃度分布が不均一化するとのPu再分布現象を定量的に評価するため、JNCの燃料挙動解析コードCEDARをベースとするPu再分布評価手法を構築した。

その結果を以下に列記する。

1) 92年時に開発したPu再分布挙動評価用簡易モデルの高度化を行い、これをJNCにて開発し、改良を進めている燃料挙動解析コードCEDARに組み込むことで、Pu再分布挙動評価手法を構築した。

2) 構築したPu再分布挙動評価手法について、照射試験結果を用いた評価結果の較正を行った結果、概ね、±3wt.%程度の幅で、照射が終了した時点の燃料中心部のPu濃度を再現できることを確認した。また、評価結果は、実測されたPu濃度分布の傾向を良く再現するものであることも確認した。従って、構築した手法は、妥当なものであると判断した。

3) 構築したPu再分布挙動評価手法による評価結果から、「常陽」、「もんじゅ」のように、燃焼に伴い線出力がほぼ単調に低下していくような出力履歴を有する燃料については、Pu再分布挙動の発生により、以下のようにPu濃度が変化するとの考察を得た。

- ・数日程度までの短期間：中心空孔形成が飽和するまで、中心空孔形成の駆動力であるポア移動に伴う気相輸送により、Pu濃度が変化する
 - ・数十日から100日程度：ポア移動に伴う気相輸送は収束し、燃焼に伴うU,Pu量の変化と固相輸送との競合により、Pu濃度が変化する
 - ・より長い期間：燃焼に伴うU,Pu量の変化と固相輸送との競合が状態が継続されながら、Pu濃度が変化する
- また、製造時の燃料組成のうちのO/M比は、Pu再分布挙動に対する影響が大きく、以下のようない効果をもたらすとの考察も得た。
- ・照射の初期段階：U-Pu相互拡散係数が有するO/M比依存性に強く支配されるかたちで、製造時のO/M比に影響を受けながらPu再分布挙動が生じる。
 - ・100日を越えるような長期照射：初期段階に生じるPu再分布量に依存するかたちで、Pu再分布挙動が継続して生じる。

謝辞

本検討を行うにあたって、CEDAR コードの実行や改良のためのコーディング等で原子力システム株式会社 伊藤 昌弘氏（大洗工学センター システム技術開発部 燃料材料技術開発グループ 駐）に協力頂いた。また、モデル化に関しては、大洗工学センター システム技術開発部 燃料材料技術開発グループの鶴飼 重治 研究主幹に助言等を頂いた。
両氏の協力に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 石井 徹哉、水野 朋保、浅賀 健男、鹿倉 栄、「Pu再分布挙動評価」、PNC ZN9410 93-055 (1992).
- 2) P.G. Shewmon, "Diffusion in solids", (笛木和雄、北澤宏一訳 「固体内の拡散」) コロナ社(1989).
- 3) C.F.Clement and M.W.Finnis, "The movement of lenticular pores in mixed oxide $(U,Pu)O_2$ nuclear fuel elements", J.Nucl.Mat., 75 (1978) 115-124.
- 4) C.F.Clement and M.W.Finnis, "Plutonium redistribution in mixed oxide $(U,Pu)O_2$ nuclear fuel elements", J.Nucl.Mat., 75 (1978) 193-200.
- 5) M.Bober and G.Schumacher, "Material transport in the temperature gradient of fast reactor fuels", Advances in Nucl.Sci.and Tech., vol.7 (1973) 121-179.
- 6) M.Bober, C.Sari and G.Schumacher, "Redistribution of plutonium and uranium in mixed (U,Pu) oxide fuel materials in a thermal gradient", J.Nucl.Mat., 39 (1971) 265-284.
- 7) E.A.Aitken and M.G.Adamson, "A thermodynamical data program involving plutonia and urania at high temperatures", GEAP-12229(1971).
- 8) R.Thetford, "Segregation in oxide fast reactor fuel", Transactions of two international seminars on the mathematical/mechanical modeling of reactor fuel elements 3.0 (1987) 35-54.
- 9) Hj.Matzke, "Diffusion in Nonstoichiometric oxides", in Non-Stoichiometric Oxides, ed.T.Sørensen, chap.4, p.156-232, Academic Press, New York (1981).
- 10) D.R.Olander, "The kinetics of actinide redistribution by vapor migration in mixed oxide fuels (I) By cracks", J.Nucl.Mat., 49 (1973/74) 21-34.
- 11) D.R.Olander, "The kinetics of actinide redistribution by vapor migration in mixed oxide fuels (II) By pores", J.Nucl.Mat., 49 (1973/74) 35-44.
- 12) 水野 朋保、鹿倉 栄 「燃料挙動解析コード CEDAR の開発」 動燃技報 No.76(1990)37-44.
- 13) 例えば 水野 朋保、浅賀 健男、鹿倉 栄、「高速炉燃料ピン挙動解析コード "CEDAR-3(Rev.0)" ユーザーズ マニュアル」、PNC ZN9460 93-001 (1993).
- 14) A.M.Ross and R.L.Stoute, "Heat transfer coefficient between UO₂ and zircaloy-2", AECL-1552 (1962).
- 15) F.Schmitz and R.Lindner, "Diffusion of heavy elements in nuclear fuels : Actinides in UO₂", J.Nucl.Mat., 17 (1965) 259-269.

- 16) 例えば A.G.Croff, "A User's manual for the ORIGEN2 computer code", ORNL/TM-7175 (1980).
- 17) 細川 隆徳、柴原 格、榎戸 裕二、「燃焼初期における燃料温度評価手法の検討」、PNC SN9410 88-125 (1988).
- 18) 石井 徹哉、水野 朋保、浅賀 健男、鹿倉 栄、「炉内照射中燃料温度評価手法の検討」、PNC ZN9410 94-103 (1994).
- 19) Tourasse, M.Boidron, and B.Pasquet, "Fission product behaviour in Phenix fuel pins at high burnup", J.Nucl.Mat., 188 (1992) 49-57.
- 20) 石井 徹哉、根本 潤一、浅賀 健男、「照射初期燃料温度評価手法の検討」、JNC TN9400 99-055 (1999).
- 21) 川北公夫ら、「粉体工学(基礎編)」 横書店 (1992).
- 22) T.Ishii and T.Mizuno, "An investigation of the thermal conductivity of Cs_2MoO_4 ", J.Nucl.Mat., 247 (1997) 82-85.
- 23) S.K.Evans and E.A.Aitken, "Oxygen redistribution in $(\text{U},\text{Pu})\text{O}_{2-x}$ fuels", GEAP-14036 (1975).
- 24) 鵜飼 重治、杉山 忠夫、柴原 格、甲野 啓一、「照射燃料の酸素ポテンシャルと O/M 比の評価」、PNC SN941 85-108 (1985).
- 25) C.E.Johnson, I.Johnson, P.E.Blackburn, and C.E.Crouthamel, "Effects of oxygen concentration on properties of fast reactor mixed-oxide fuel", Reactor Technology, vol.15(1972/73)303-338.
- 26) 日本金属学会編、「原子力材料」、日本金属学会(1989).

表3-1-1 CEDARコード改良に関する整理(1)

| 大別 | 詳細種別 | 現状の課題と対応策 | | |
|-----------|--------|-----------|---------------------------------------|---|
| | | 項目 | 改良前(CEDAR-III rev.0) | 改良後 |
| コード計算機能関連 | 熱解析部 | 状況／対策 | U,Pu量の燃焼に伴う変動計算機能なし | 簡素な燃焼計算機能を追加 |
| | | 問題点／改善点 | 照射中のPu濃度変化の要因の一つを考慮できない | 燃焼に伴うU,Pu量の変化で生じるPu濃度変化を評価できる |
| | 温度計算機能 | 状況／対策 | ガスギャップを前提とする評価方法 | ギャップ部に固体状物質が存在することを前提とする評価方法 (固体状物質の種類は仮定しているが)固体状物質が存在することによるギャップ部伝熱特性の向上を評価できる |
| | | 問題点／改善点 | ギャップ部にFP化合物等の固体状物質が存在する場合の熱的効果を考慮できない | |
| 応力・歪み解析部 | | 改良せず | | |

表3-1-2 CEDARコード改良に関する整理(2)

| コード導入物理量 関連(物性値等) | 較正係数の新規 導入・再調整 | 改良策 | 種別 | 該当個所 | 該当個所詳細 |
|----------------------|-------------------|----------|---------|-----------|------------------------|
| | | 既存係数の再調整 | 熱伝導度評価部 | 密度依存性 | |
| | | | 組織変化評価部 | 燃焼度依存性 | |
| | | | 新規導入個所 | Pu再分布量評価部 | ポア移動速度評価値 固相拡散係数評価値 |

表 4-1 較正に用いた照射試験結果の一覧

| 試験体名 | 試料名 | 製造時実績等 | | | | | 照射条件 | | | | | 照射後試験結果 | | | | |
|------------|---------|--------|-------|---------|-------|-------|------|------|-----------|------|--------|-------------|-----------------|--------|------|------|
| | | 密度 | ピン内直徑 | ペレット外直徑 | O/M比 | Pu濃度 | 線出力 | | 被覆管肉厚中心温度 | | 到達燃焼度 | 中心部 Pu濃度 | 製造時から のPu変化量 | 中心空孔直徑 | X/L値 | DFCB |
| | | | | | | | 最大値 | EOL時 | 最大値 | EOL時 | | | | | | |
| B4M | A60232 | 85.98 | 5.560 | 5.396 | 1.95 | 29.88 | 387 | 387 | 562 | 562 | 76 | 32.42 | 2.54 | 0.785 | 0.50 | 276 |
| | A60244 | 86.47 | 5.560 | 5.408 | 1.95 | 29.88 | 368 | 368 | 609 | 609 | 72 | 30.94 | 1.06 | 0.548 | 0.65 | 355 |
| | A60252 | 85.8 | 5.560 | 5.390 | 1.95 | 29.88 | 347 | 347 | 630 | 630 | 67 | 31.11 | 1.23 | 0.326 | 0.72 | 395 |
| A2D | E3B173 | 93.3 | 5.560 | 5.410 | 1.99 | 17.64 | 431 | 357 | 544 | 520 | 69600 | 21.40 | 3.80 | 0.837 | 0.61 | 334 |
| | E3B1911 | 92.86 | 5.560 | 5.428 | 1.99 | 17.64 | 447 | 368 | 515 | 496 | 71900 | 18.20 | 0.60 | 0.672 | 0.47 | 256 |
| | E3B1B31 | 92.64 | 5.560 | 5.404 | 1.99 | 17.64 | 423 | 350 | 465 | 455 | 68000 | 20.60 | 3.00 | 0.834 | 0.31 | 168 |
| | E3B1B13 | 92.57 | 5.560 | 5.432 | 1.99 | 17.64 | 369 | 313 | 441 | 435 | 60100 | 17.50 | 0.00 | 0.904 | 0.17 | 92 |
| | E3B282 | 92.6 | 5.560 | 5.394 | 1.99 | 17.64 | 441 | 364 | 508 | 490 | 71000 | 20.60 | 3.00 | 0.932 | 0.45 | 249 |
| PHENIX P-3 | XD0572 | 93 | 5.600 | 5.440 | 1.95 | 26.77 | 440 | 297 | 511 | 477 | 106300 | 30.84 | 4.07 | 1.390 | 0.34 | 242 |
| | XD0502 | 93 | 5.600 | 5.440 | 1.95 | 26.77 | 399 | 270 | 579 | 544 | 96500 | 28.03 | 1.26 | 1.320 | 0.66 | 472 |
| | XD0992 | 93 | 5.600 | 5.440 | 1.99 | 26.97 | 440 | 297 | 514 | 480 | 106300 | 37.79 | 10.82 | 1.310 | 0.34 | 242 |
| | XD0912 | 93 | 5.600 | 5.440 | 1.99 | 26.97 | 386 | 261 | 598 | 563 | 93600 | 35.97 | 9.00 | 0.990 | 0.67 | 494 |
| | XD0781 | 85 | 5.600 | 5.440 | 1.955 | 29.78 | 441 | 298 | 511 | 477 | 106900 | 35.09 | 5.31 | 1.620 | 0.35 | 252 |
| | XD1051 | 85 | 5.600 | 5.440 | 1.955 | 29.78 | 438 | 296 | 504 | 470 | 108400 | 30.20 | 0.42 | 1.524 | 0.32 | 233 |
| | XD1071 | 85 | 5.600 | 5.440 | 1.955 | 29.78 | 444 | 300 | 539 | 505 | 110000 | 33.95 | 4.17 | 1.856 | 0.47 | 335 |
| | XD11A1 | 85 | 5.600 | 5.440 | 1.980 | 29.38 | 438 | 296 | 500 | 466 | 108400 | 38.75 | 9.37 | 1.779 | 0.32 | 233 |
| | XD11F1 | 85 | 5.600 | 5.440 | 1.980 | 29.38 | 391 | 264 | 591 | 556 | 96900 | 36.13 | 6.75 | 1.678 | 0.47 | 335 |

注) 太枠線で囲んだPHENIX P-3の製造時情報は、製造時実績値のノミナル値を意味する。
他はいずれも実績値である。

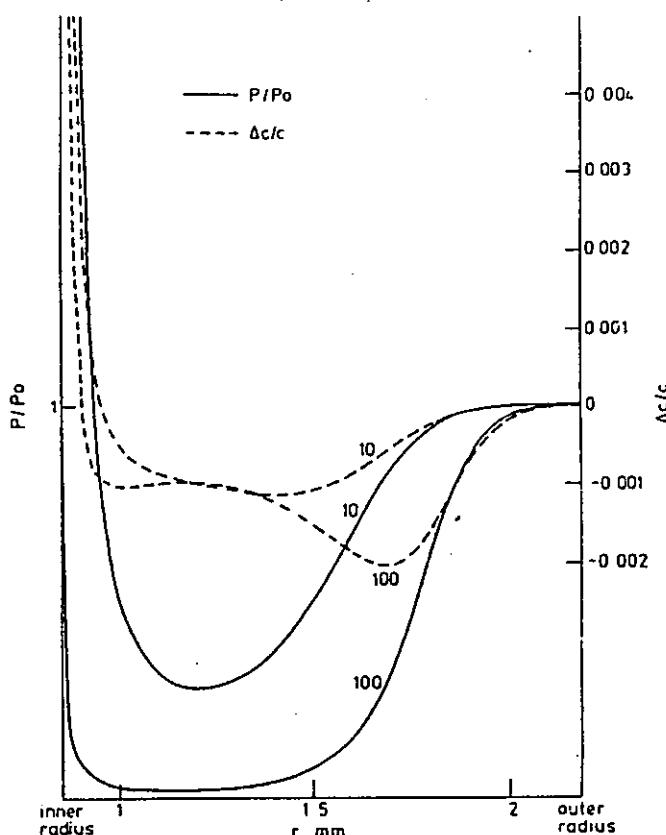


図 2-1 気相輸送モデルによる評価例 Calculated porosity redistribution, P/P_0 and associated redistribution of plutonium, $\Delta c/c$, as a function of radius, r , for a nuclear fuel pin. The curves are labelled by the time in days and were obtained using the pore dimensions, $l = 80 \mu\text{m}$, $d = 8 \mu\text{m}$.

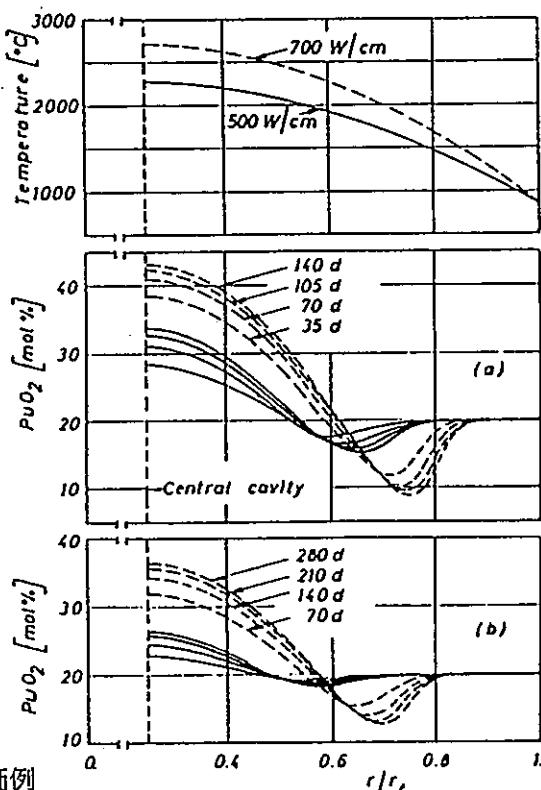


図 2-2 热拡散モデルによる評価例

Plutonium distribution in mixed oxide fuel calculated from thermal diffusion with (a) $D_{\text{Pu}}^* = 0.34 \exp(-97300/RT) \text{ cm}^2/\text{s}$ for 35, 70, 105, and 140 days and (b) $D_{\text{Pu}}^* = 0.34 (-110000/RT) \text{ cm}^2/\text{s}$ for 70, 100, 140, 210, and 280 days. The solid lines are related to a power rating of 500 W/cm, the dashed lines to 700 W/cm. The corresponding temperatures are given above. Fuel radius $r_f = 0.3 \text{ cm}$.

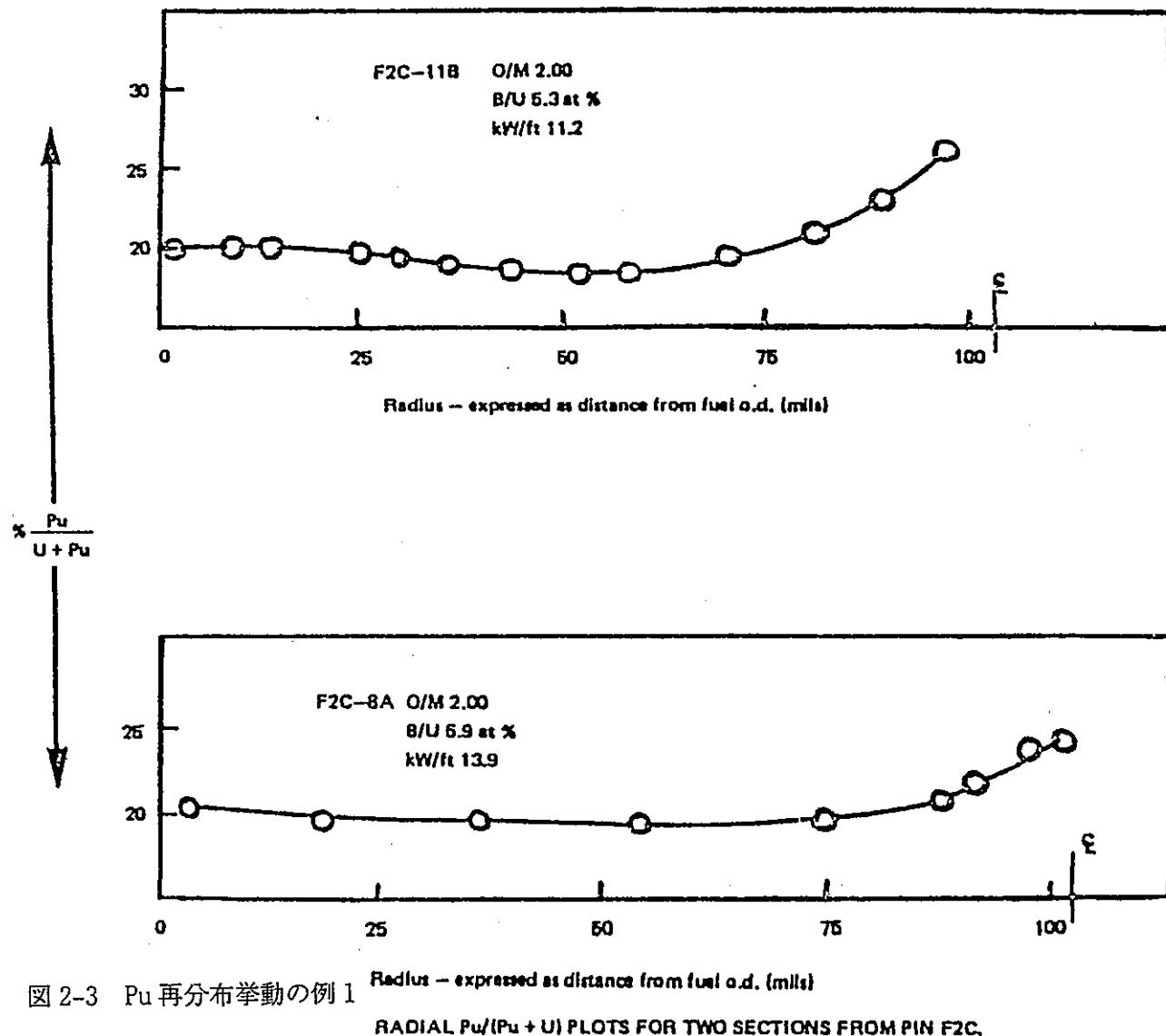


図 2-3 Pu 再分布挙動の例 1

RADIAL $Pu/(Pu + U)$ PLOTS FOR TWO SECTIONS FROM PIN F2C.

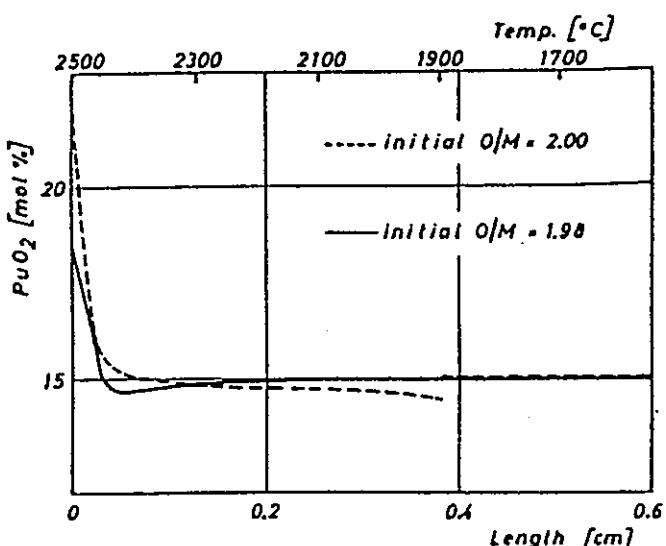
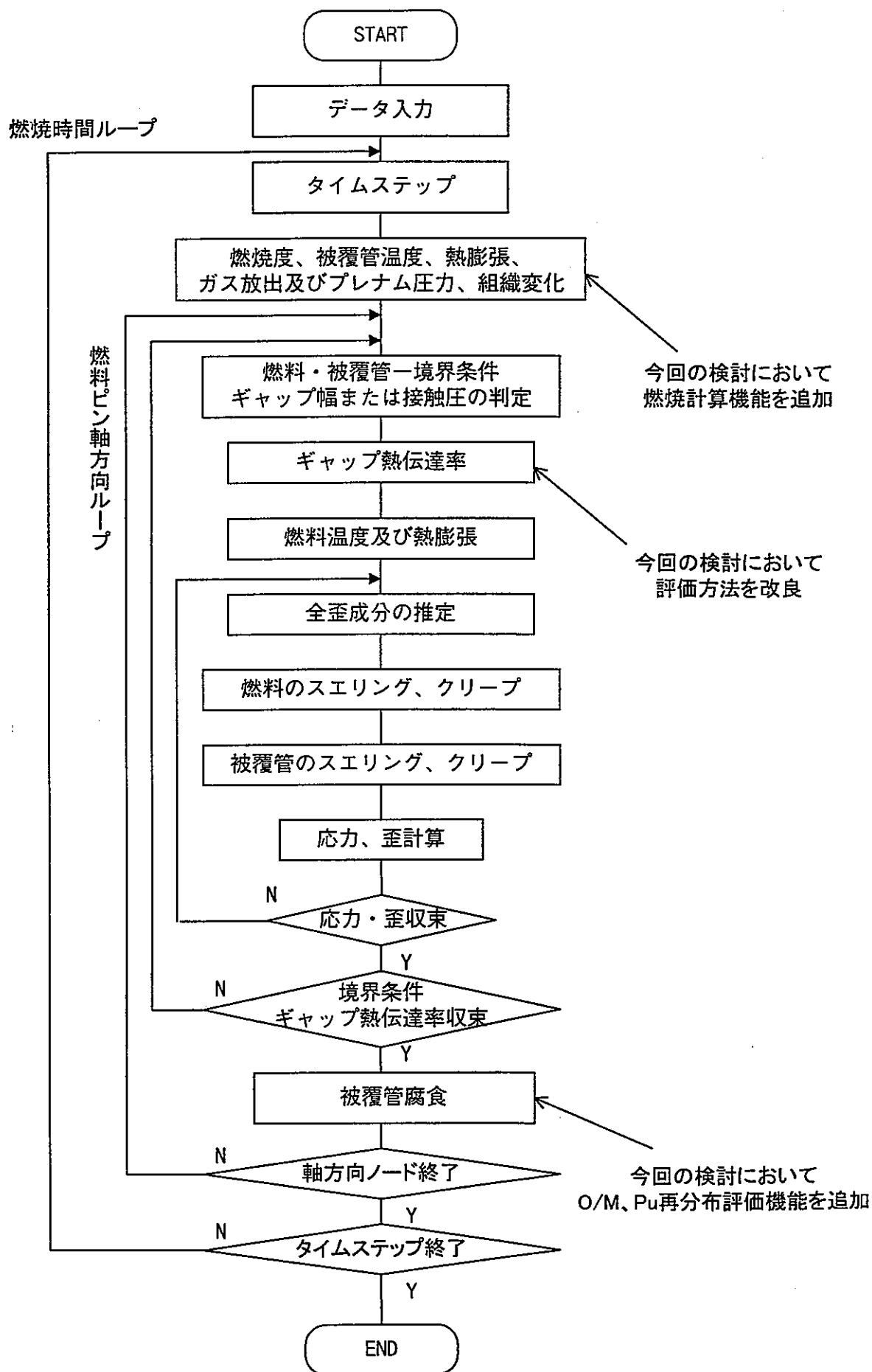


図 2-4 Pu 再分布挙動の例 2

Axial plutonium distribution in two mixed oxide specimens after heat treatment in a thermal gradient for 2 h (dashed line) and 48 h (solid line).

図3-1 CEDARコード計算フローダイヤグラム¹²⁾

定比における拡散係数に対する比 [-]

-87-

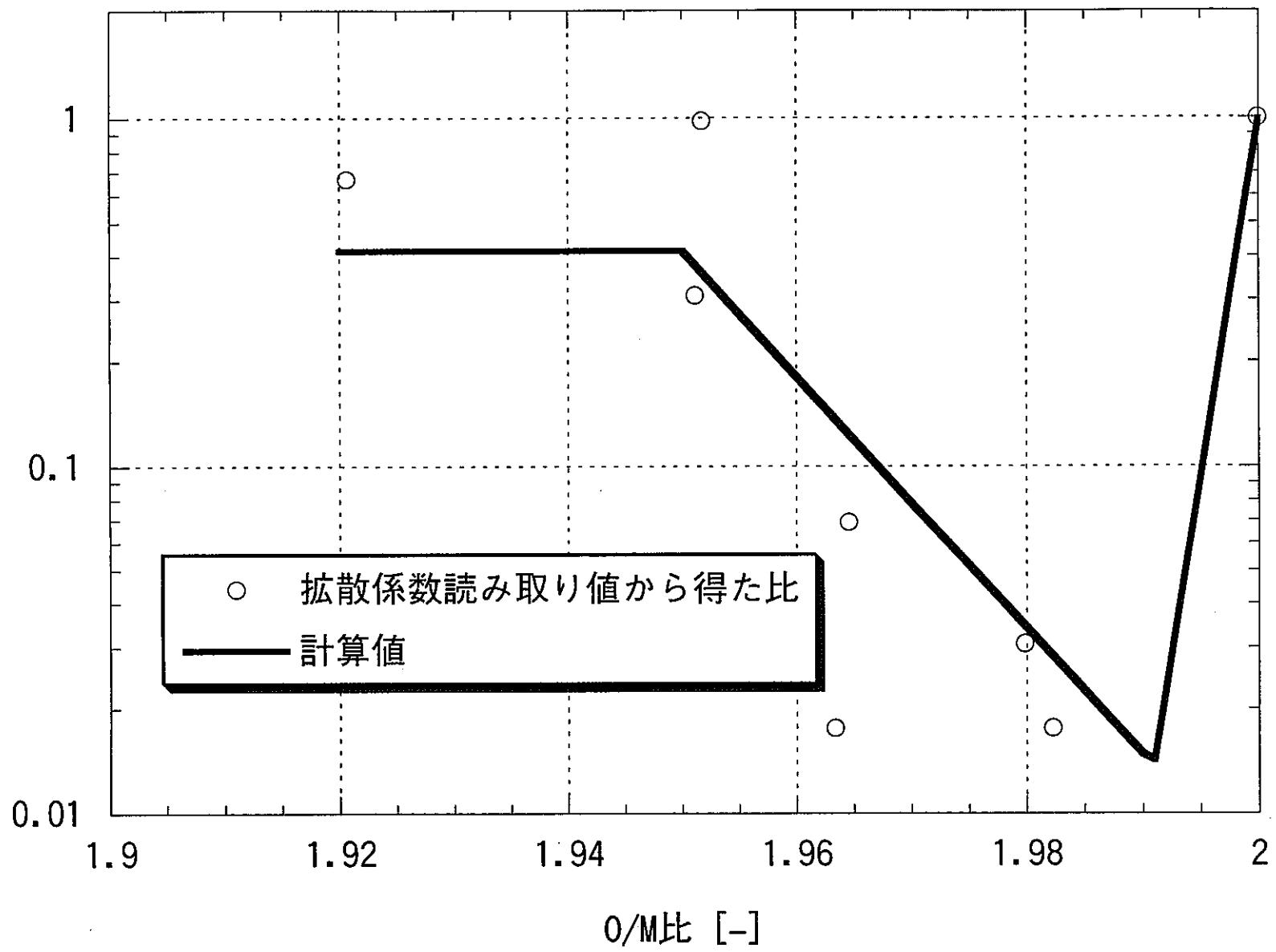


図 3-2 拡散係数のO/M比依存性

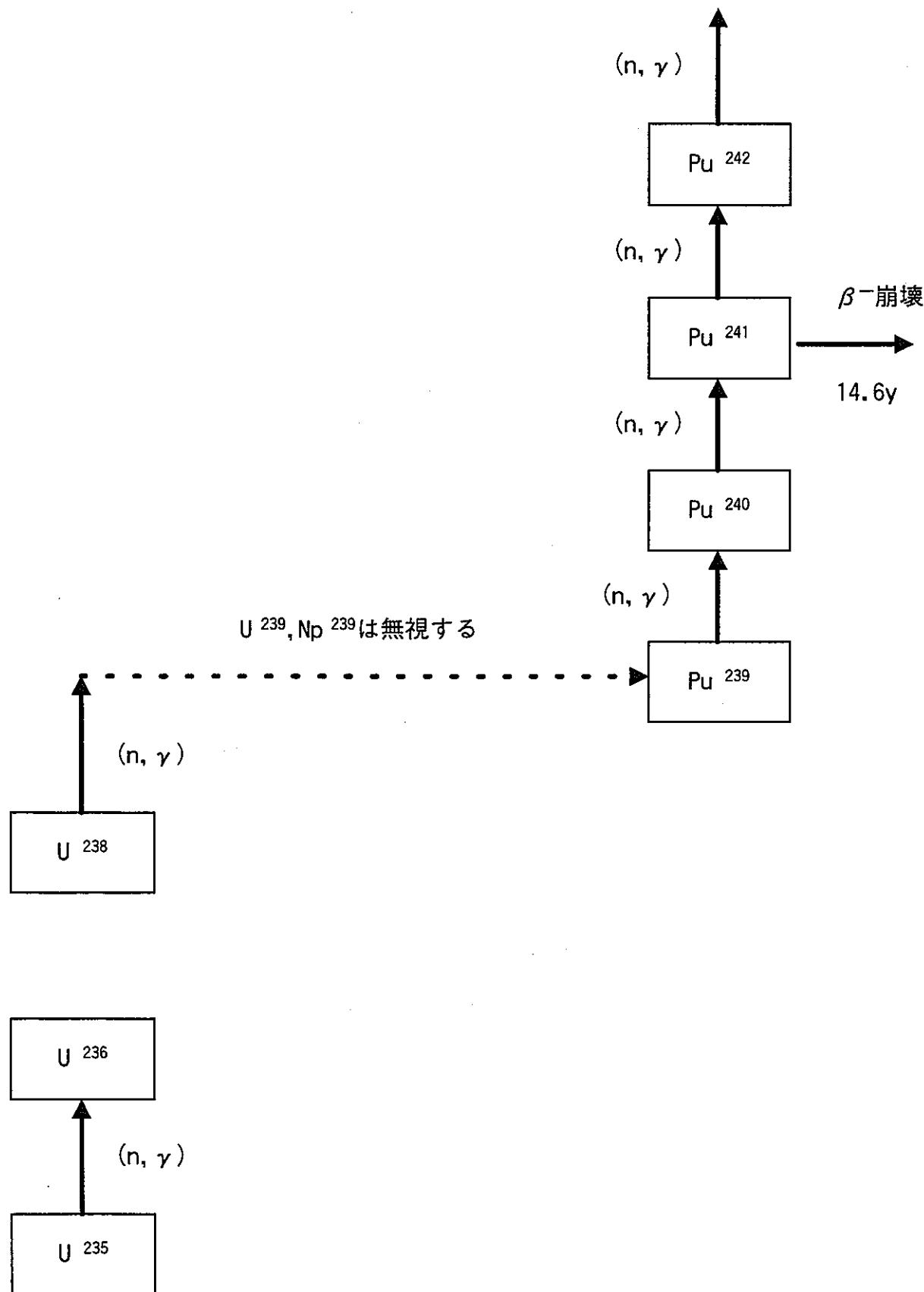


図 3-3 想定した燃焼チェーン

計算評価値 [μm]

-68-

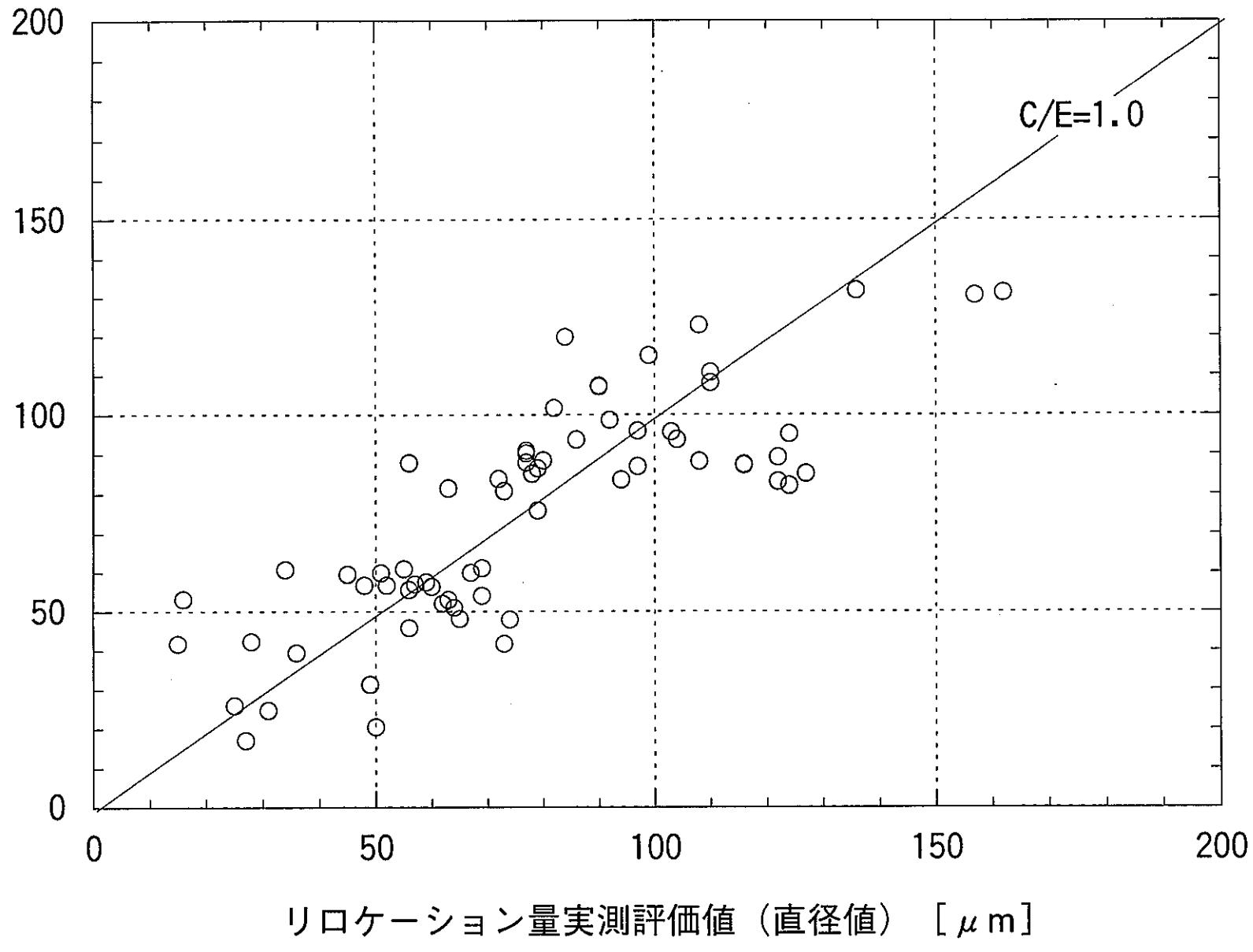


図 3-4 リロケーション量評価式の再現性

中心空孔半径計算値 [mm]

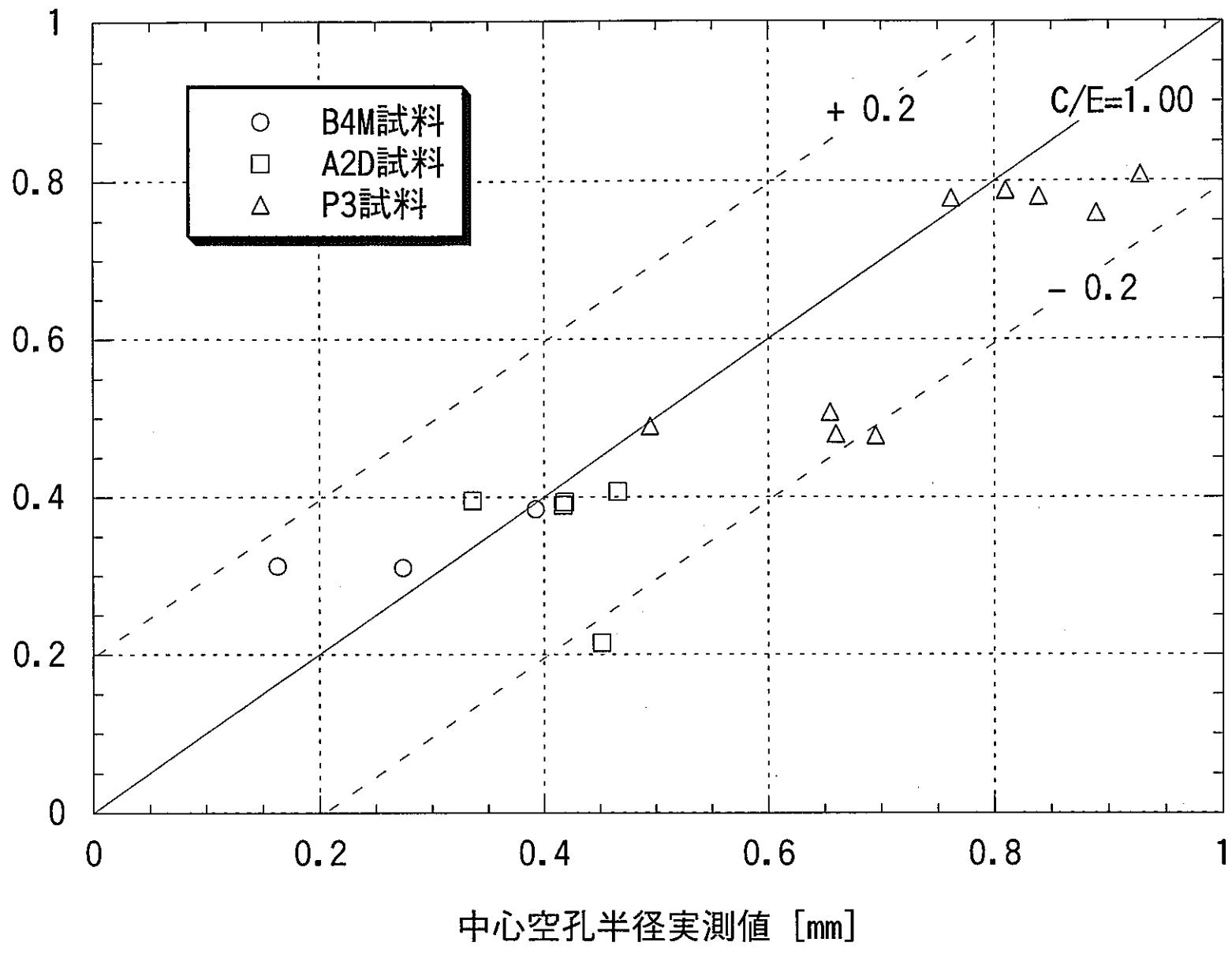


図 4-1 中心空孔径評価における実測値に対する再現性

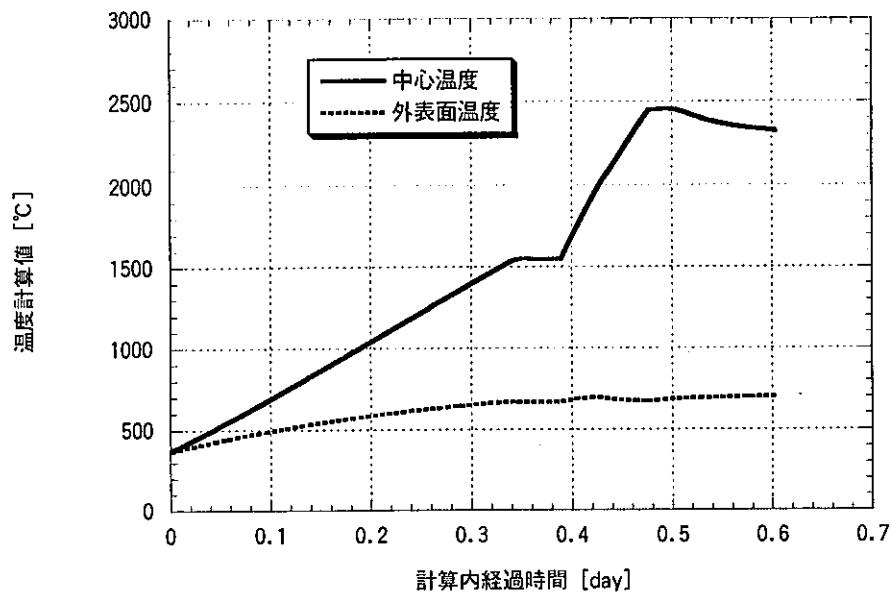


図 4-2-1-a B4M A60232試料の温度履歴評価結果

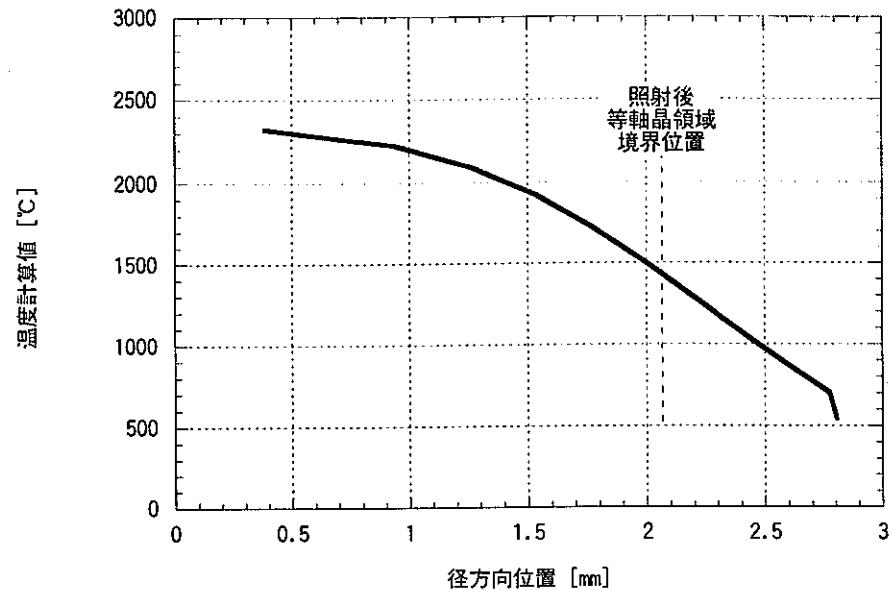


図 4-2-1-b B4M A60232試料の照射末期温度評価結果

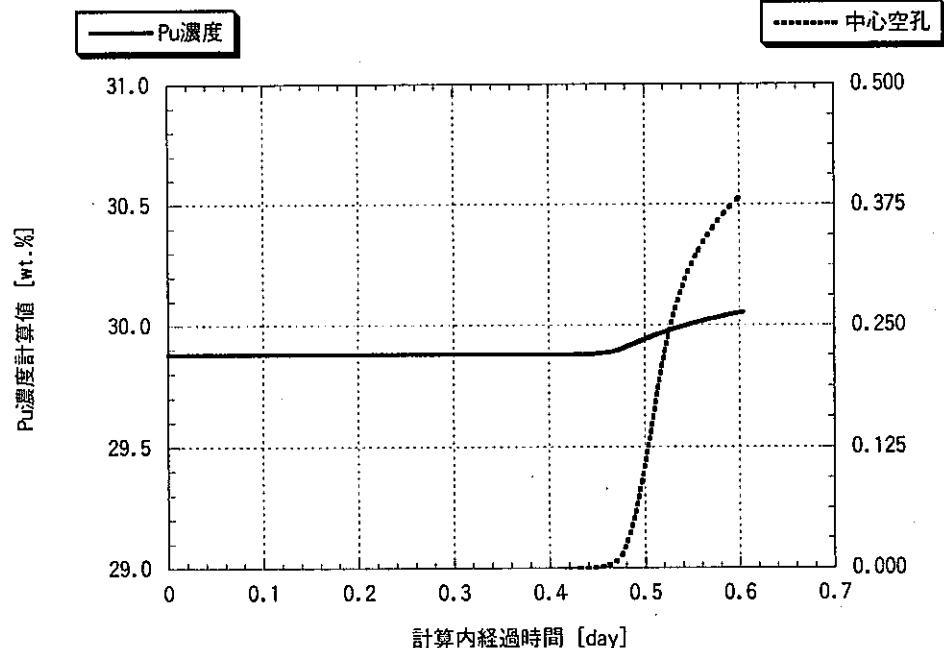


図 4-2-1-c B4M A60232試料の挙動評価結果

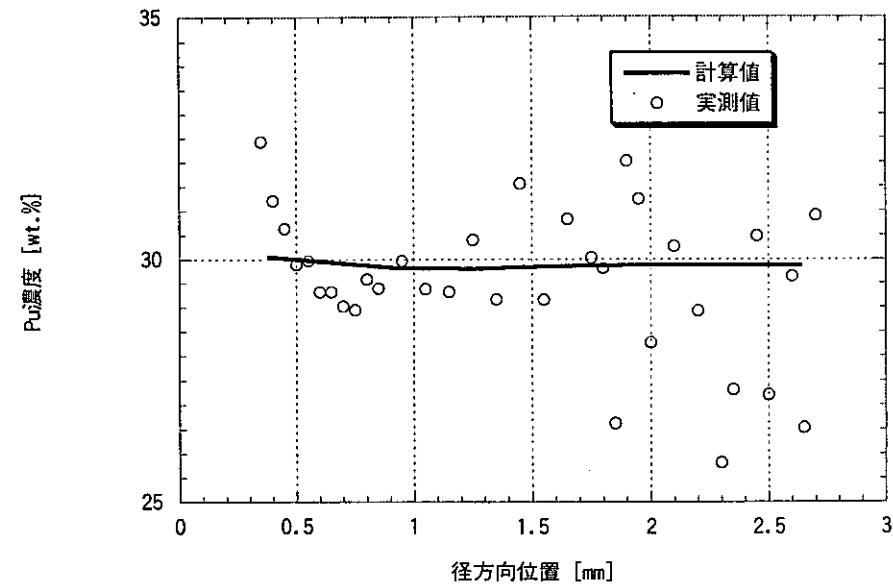


図 4-2-1-d B4M A60232試料の照射末期Pu再分布量評価結果

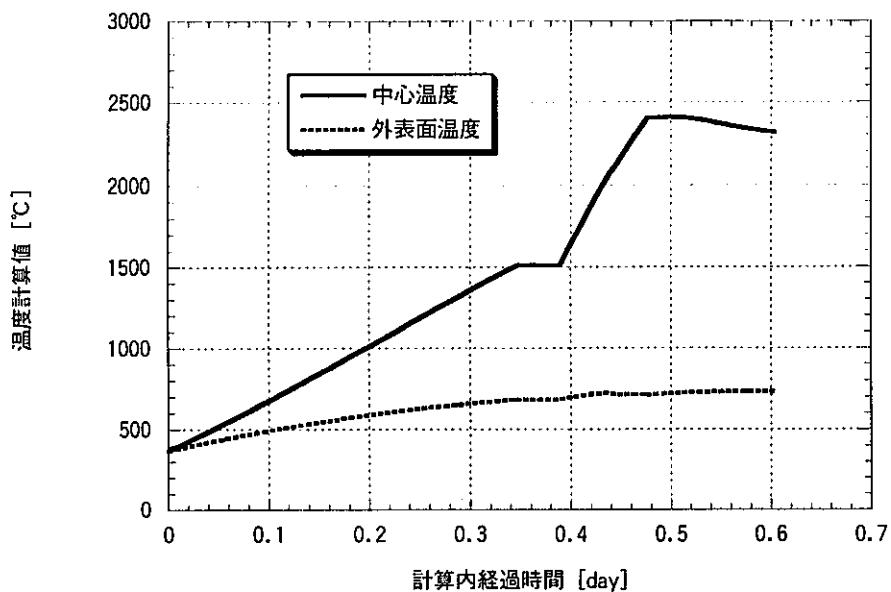


図 4-2-2-a B4M A60244試料の温度履歴評価結果

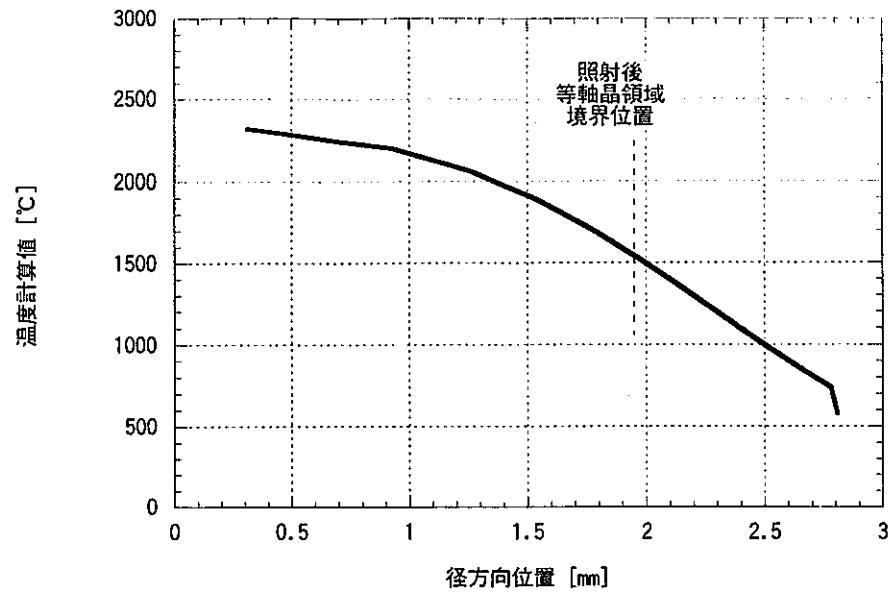


図 4-2-2-b B4M A60244試料の照射末期温度評価結果

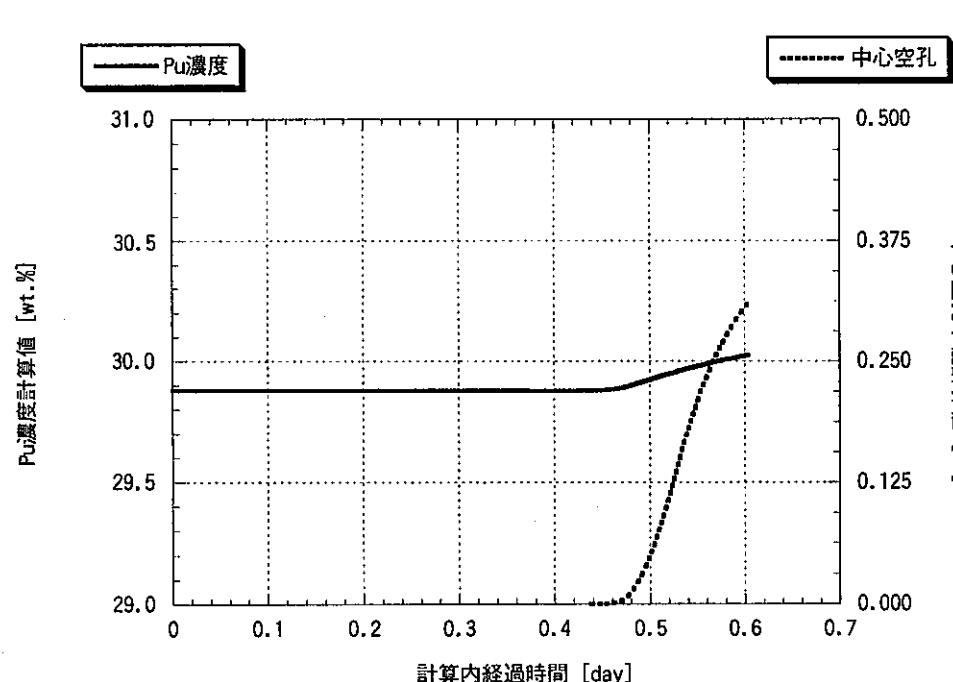


図 4-2-2-c B4M A60244試料の挙動評価結果

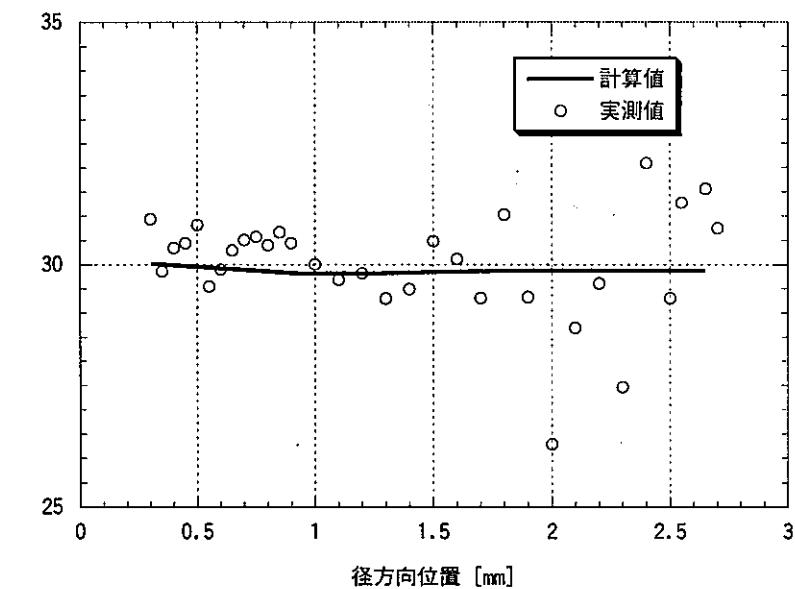


図 4-2-2-d B4M A60244試料の照射末期Pu再分布量評価結果

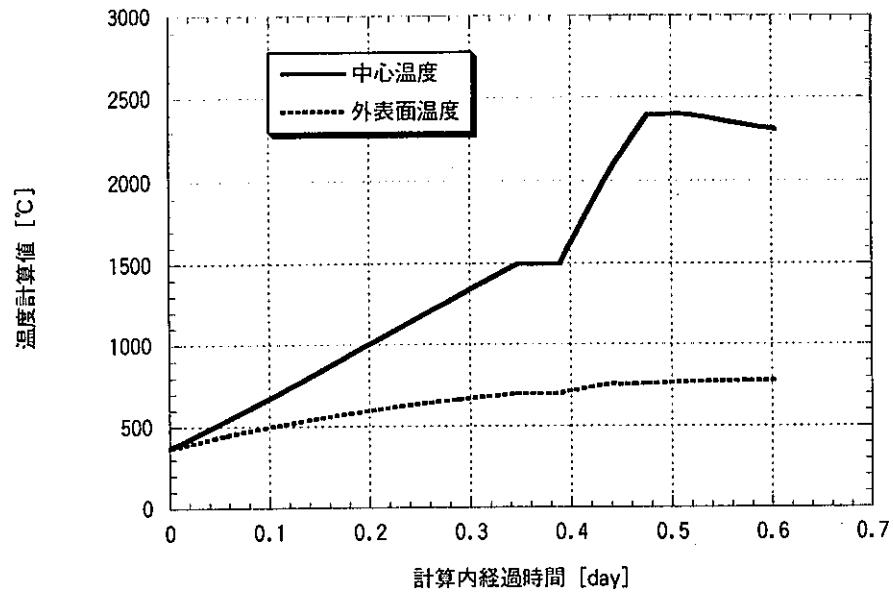


図 4-2-3-a B4M A60252試料の温度履歴評価結果

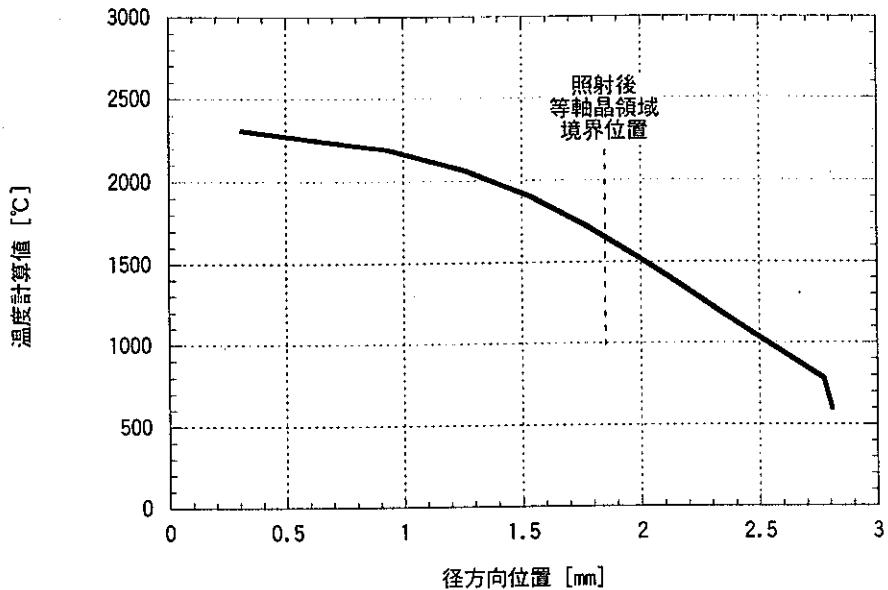


図 4-2-3-b B4M A60252試料の照射末期温度評価結果

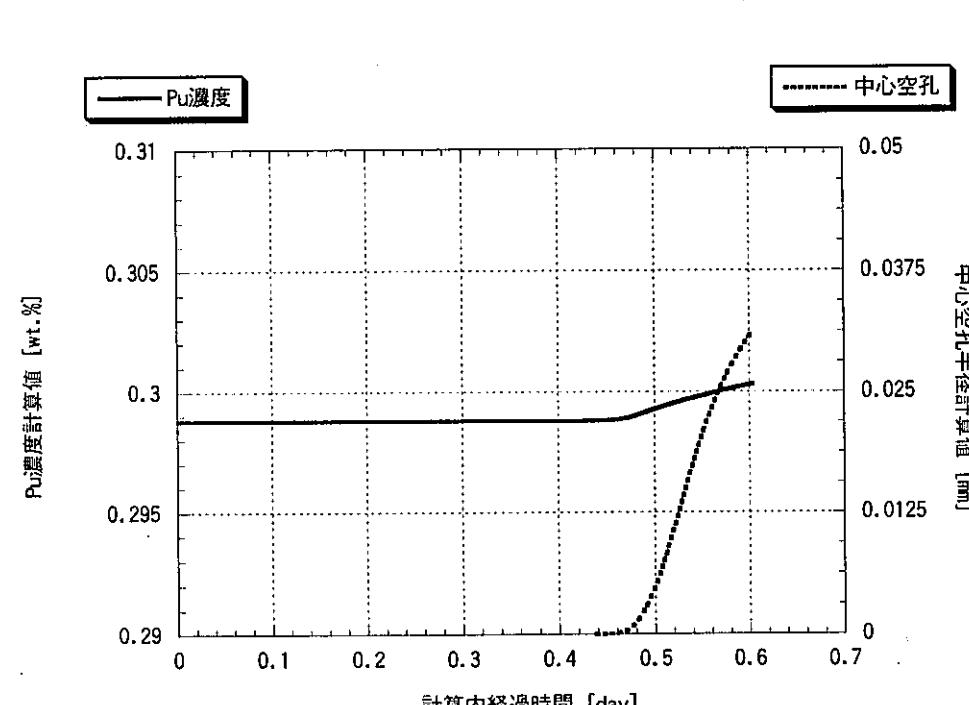


図 4-2-3-c B4M A60252試料の挙動評価結果

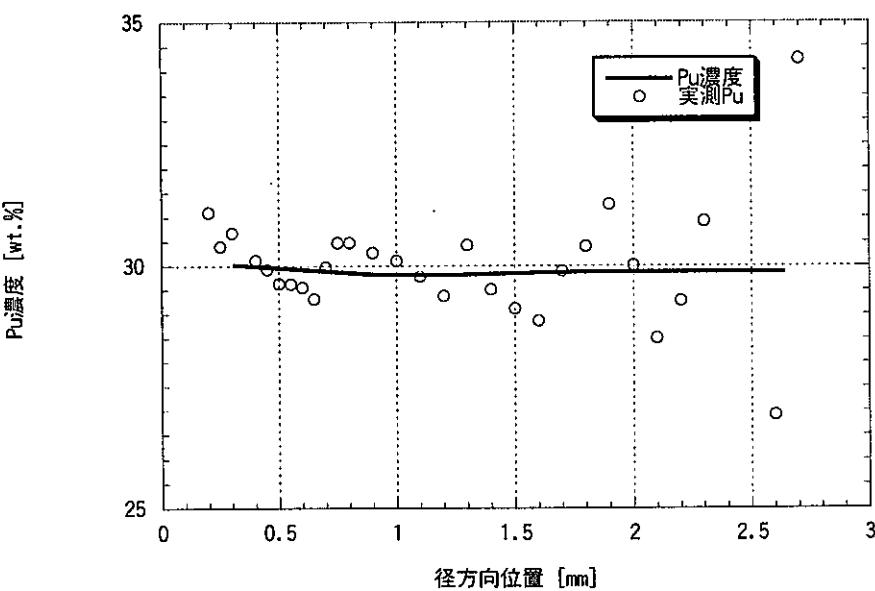


図 4-2-3-d B4M A60252試料の照射末期Pu再分布量評価結果

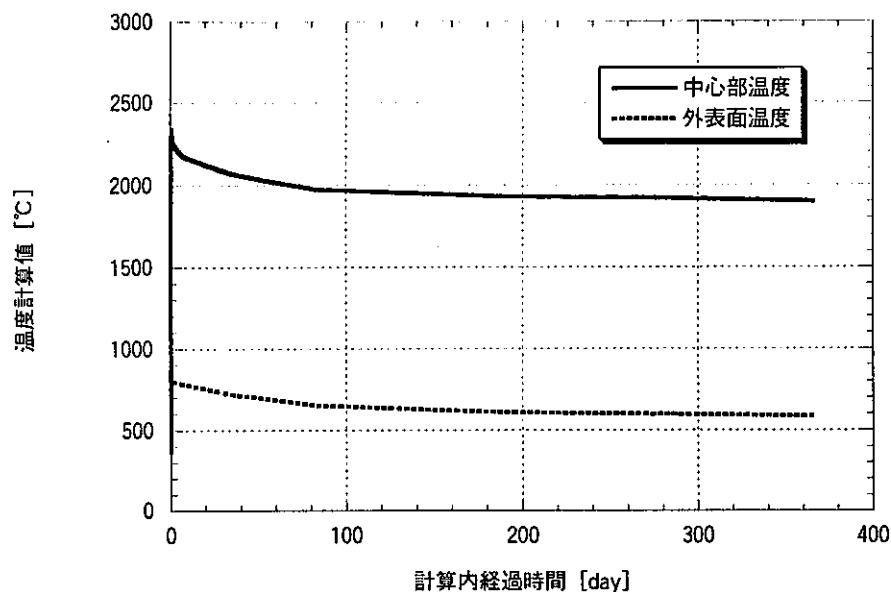


図 4-2-4-a A2D E3B173試料の温度履歴評価結果

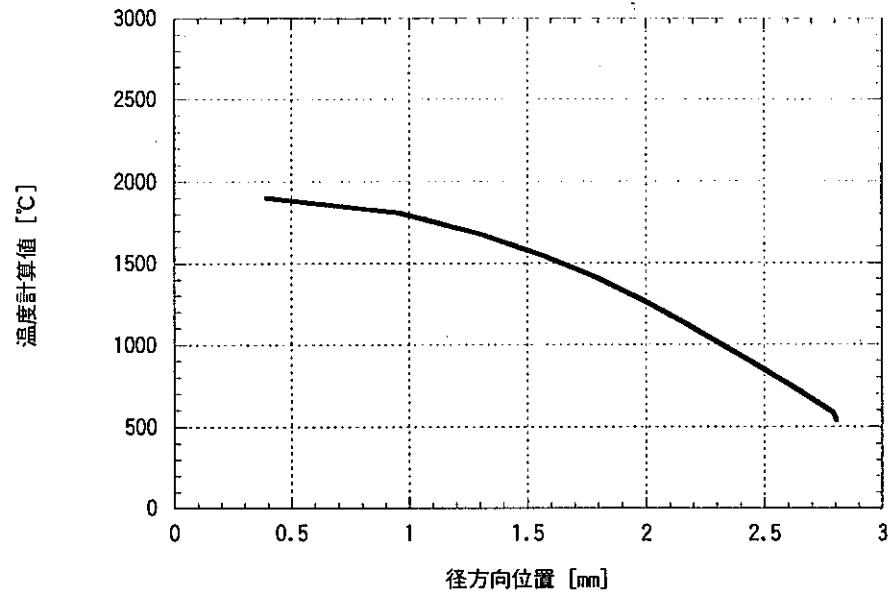


図 4-2-4-b A2D E3B173試料の照射末期温度評価結果

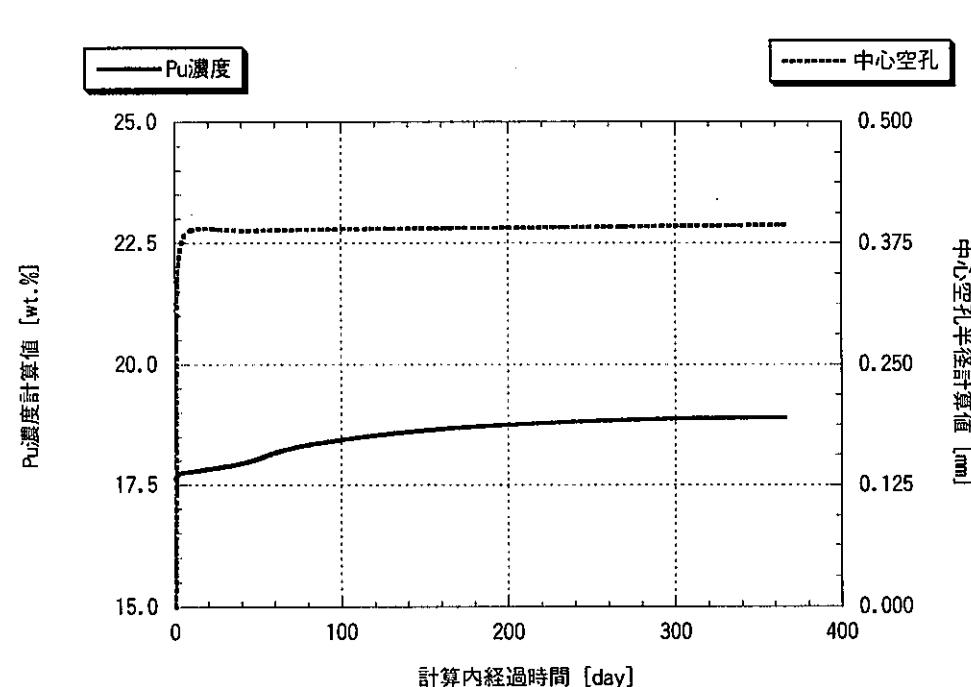


図 4-2-4-c A2D E3B173試料の挙動評価結果

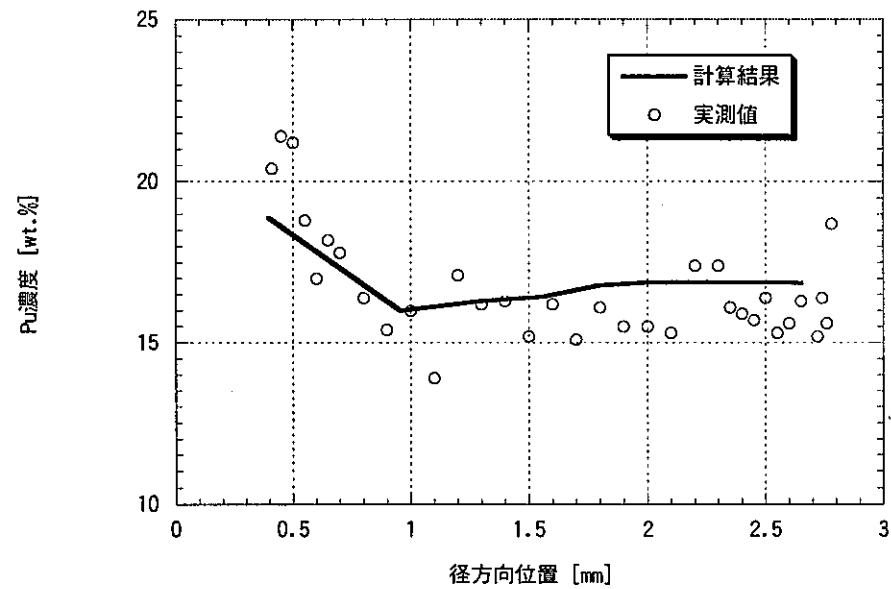


図 4-2-4-d A2D E3B173試料の照射末期Pu再分布量評価結果

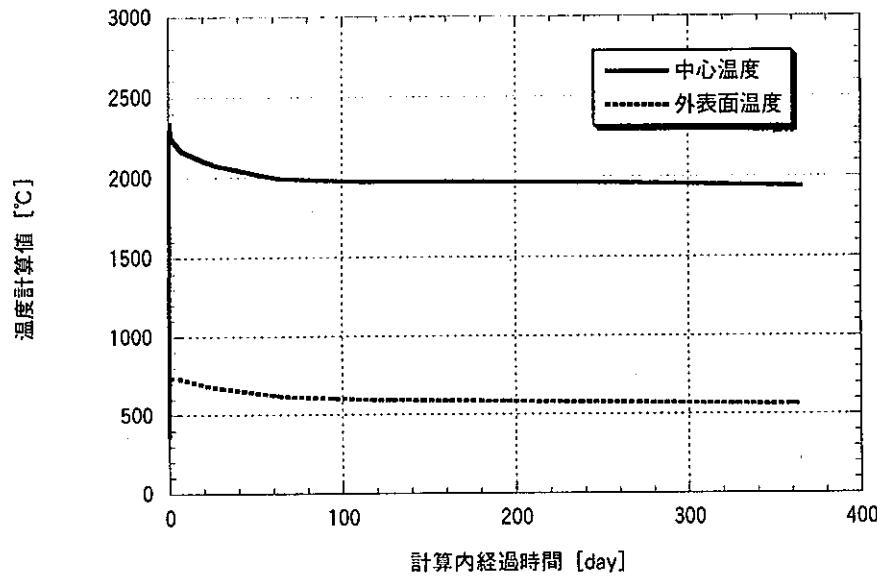


図 4-2-5-a A2D E3B1911試料の温度履歴評価結果

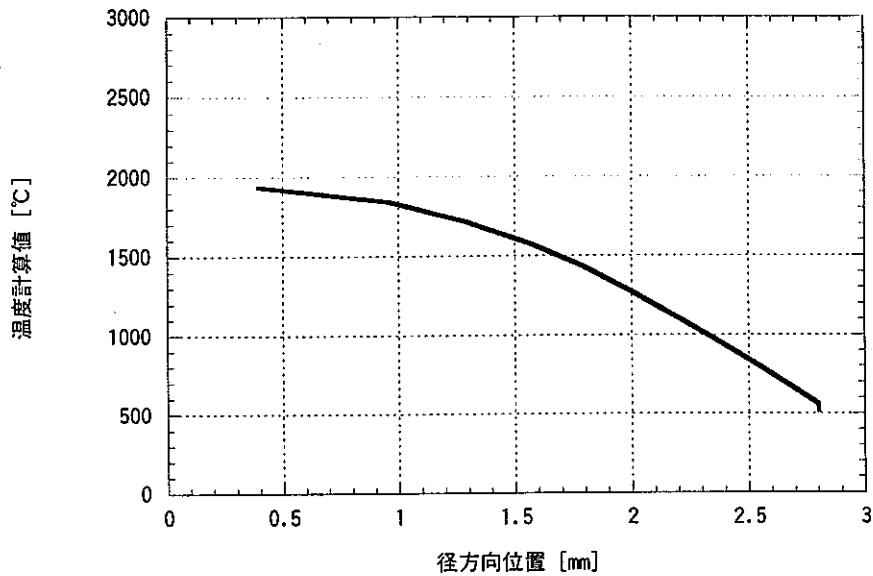


図 4-2-5-b A2D E3B1911試料の照射末期温度評価結果

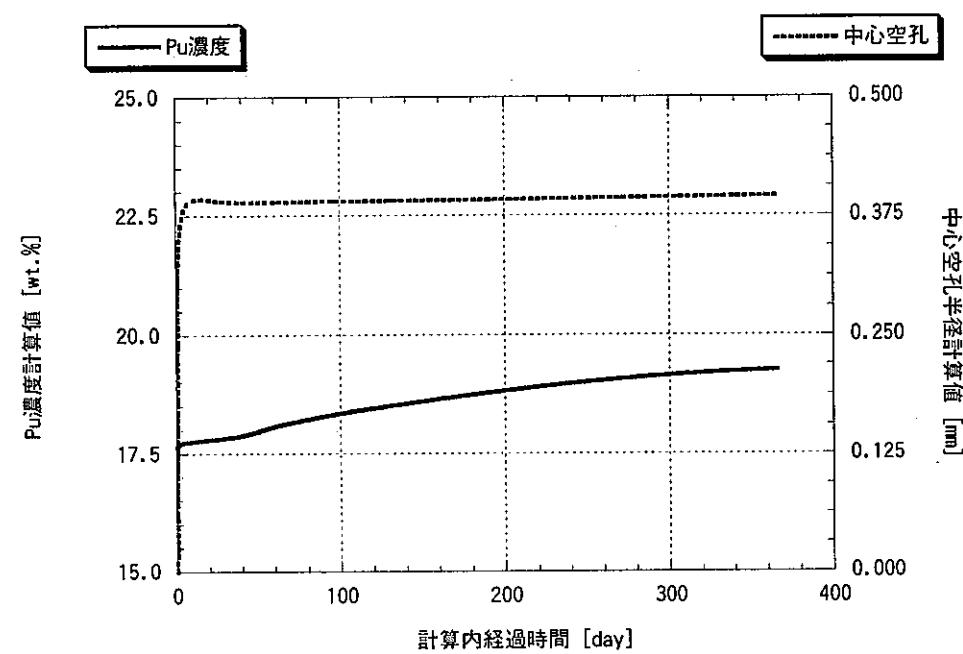


図 4-2-5-c A2D E3B1911試料の挙動評価結果

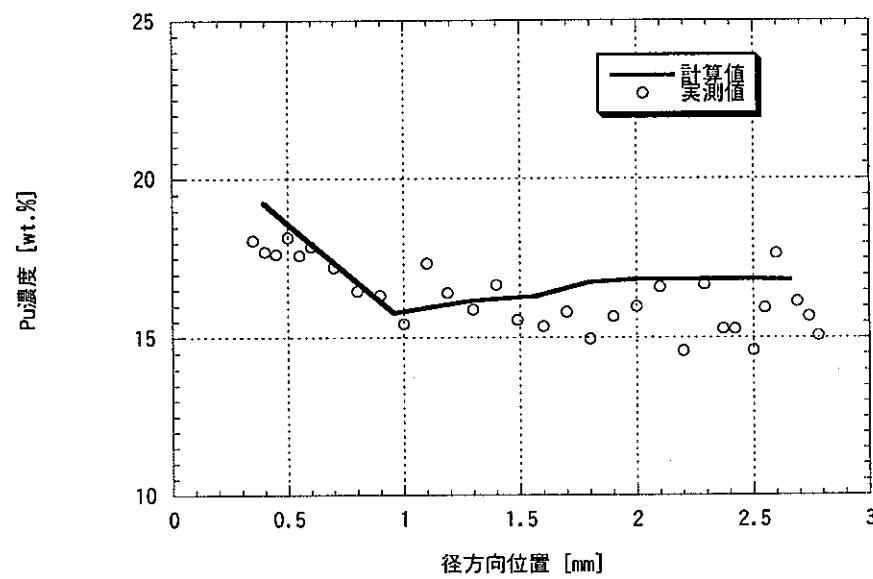
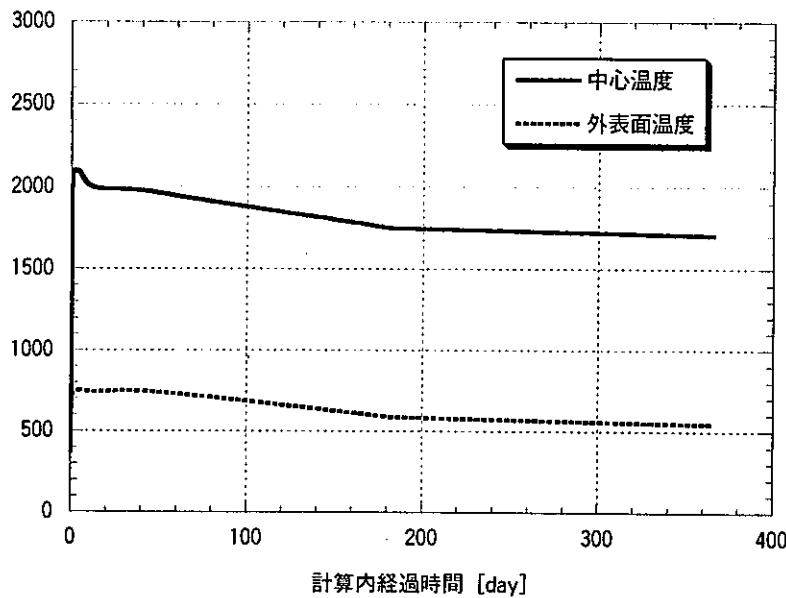


図 4-2-5-d A2D E3B1911試料の照射末期Pu再分布量評価結果

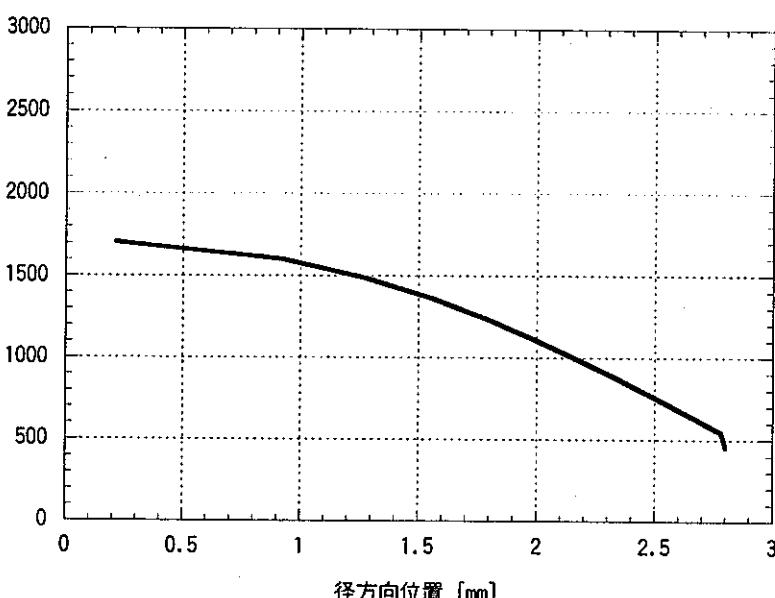
温度計算値 [°C]



計算内経過時間 [day]

図 4-2-6-a A2D E3B1B13試料の温度履歴評価結果

温度計算値 [°C]

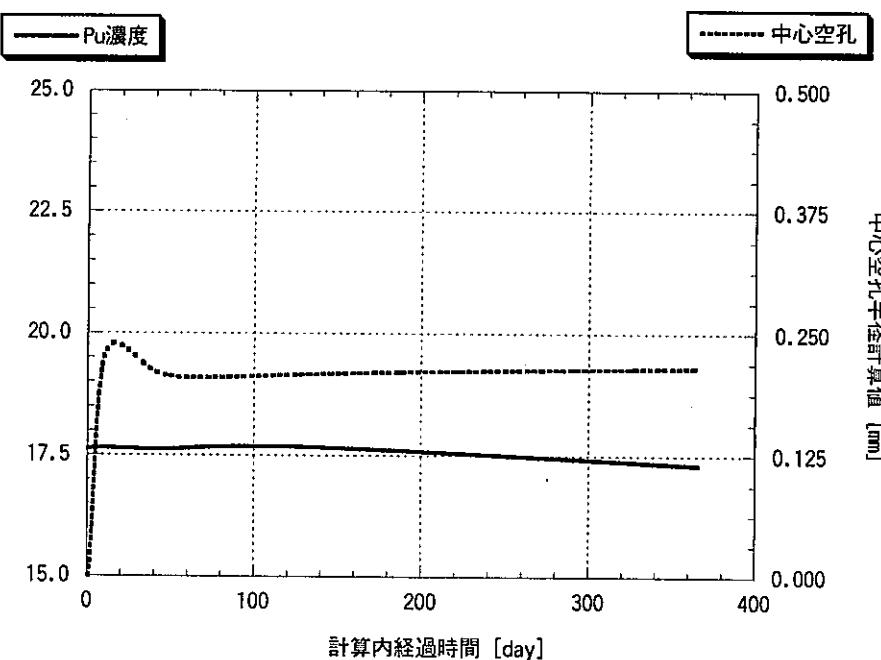


径方向位置 [mm]

図 4-2-6-b A2D E3B1B13試料の照射末期温度評価結果

- 94 -

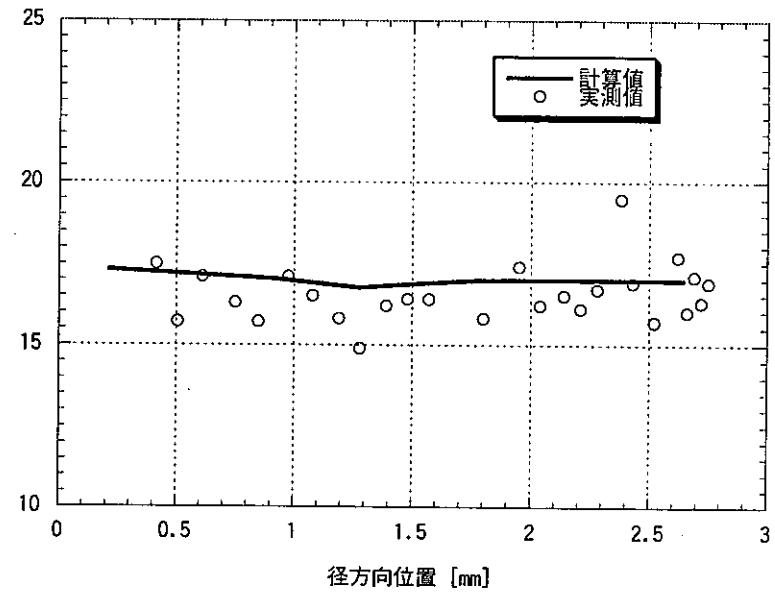
Pu濃度計算値 [wt.%]



計算内経過時間 [day]

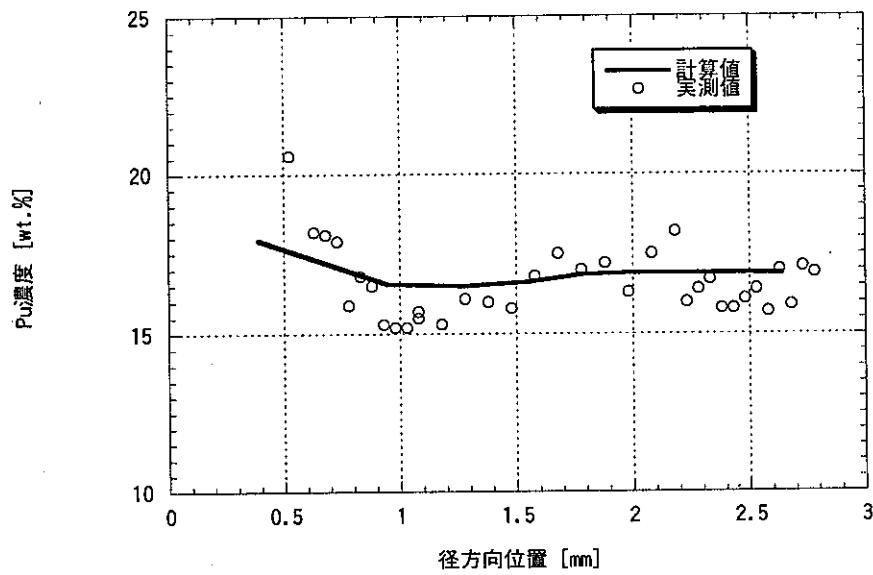
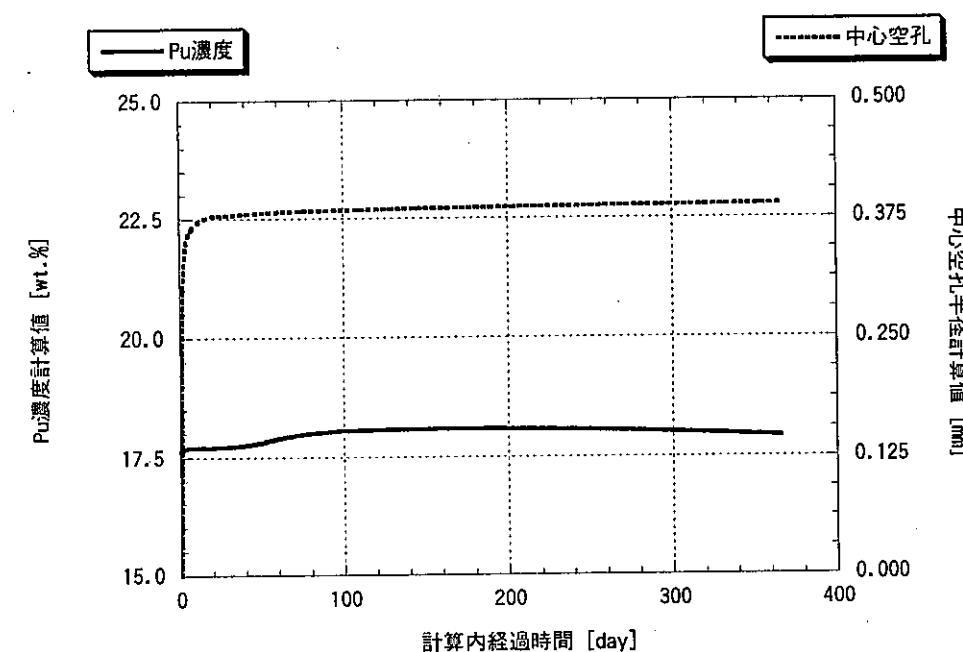
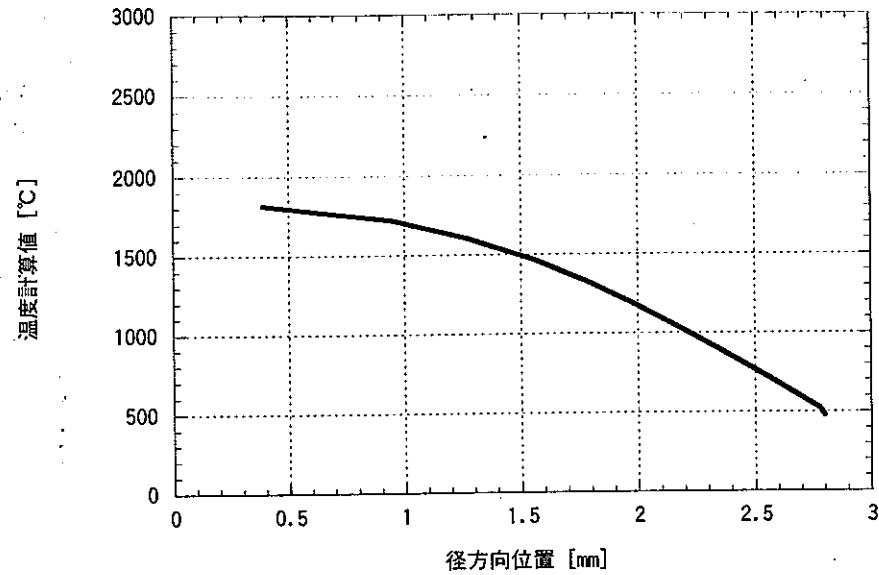
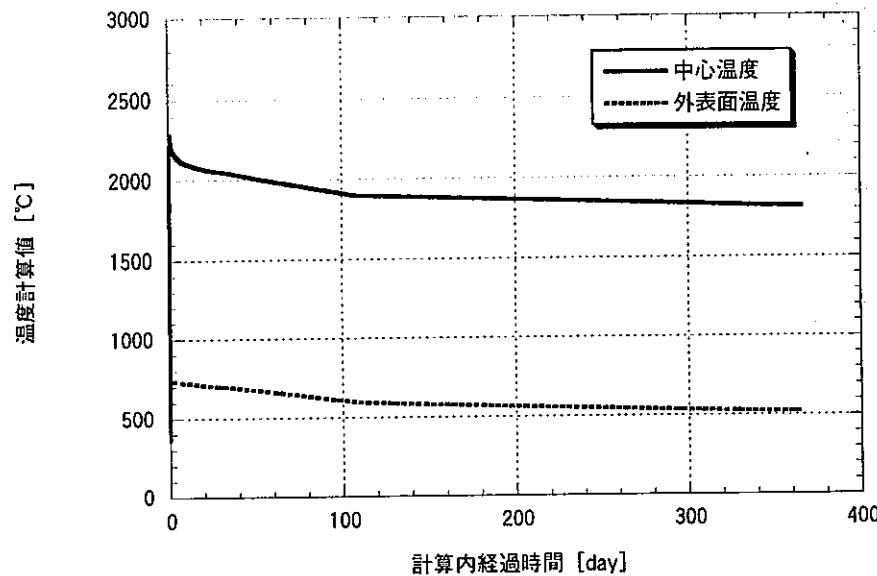
図 4-2-6-c A2D E3B1B13試料の挙動評価結果

Pu濃度 [wt.%]



径方向位置 [mm]

図 4-2-6-d A2D E3B1B13試料の照射末期Pu再分布量評価結果



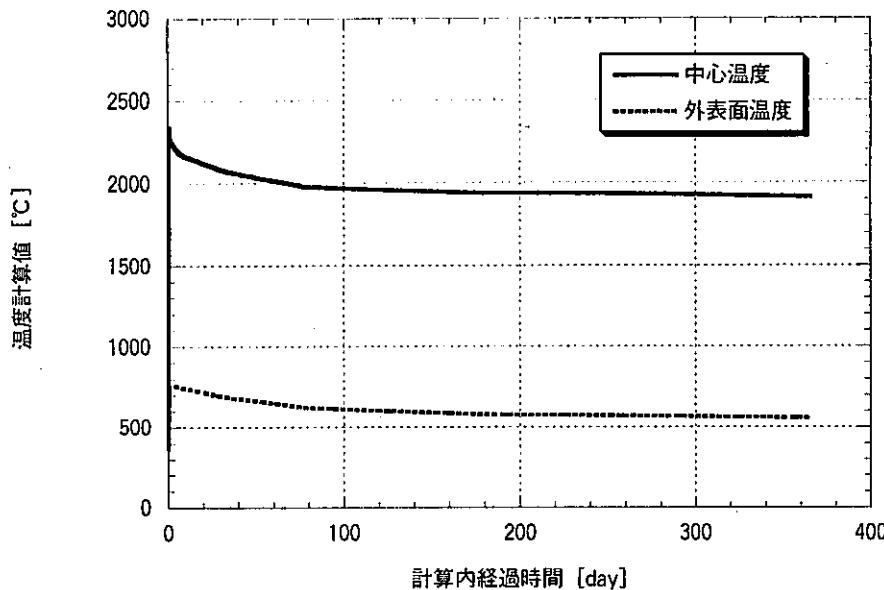


図 4-2-8-a A2D E3B282試料の温度履歴評価結果

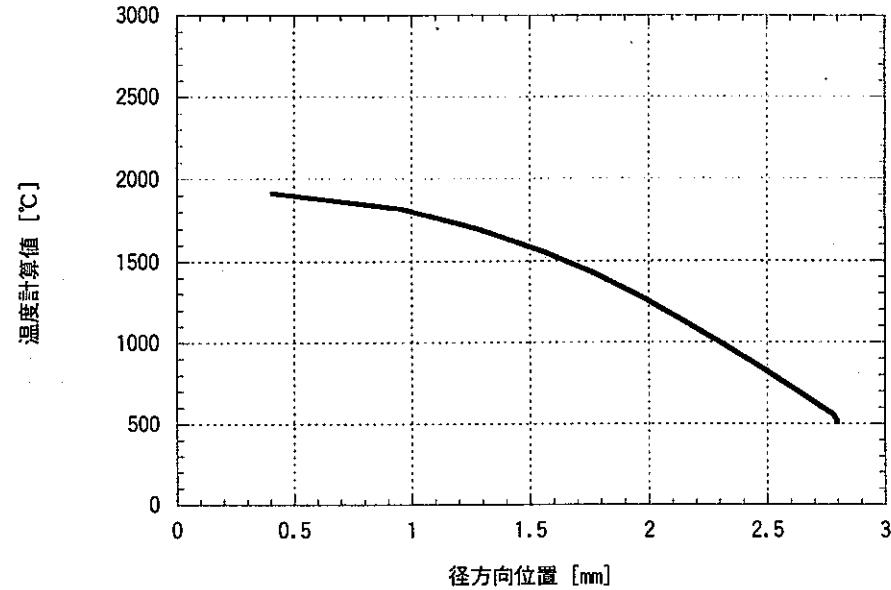


図 4-2-8-b A2D E3B282試料の照射末期温度評価結果

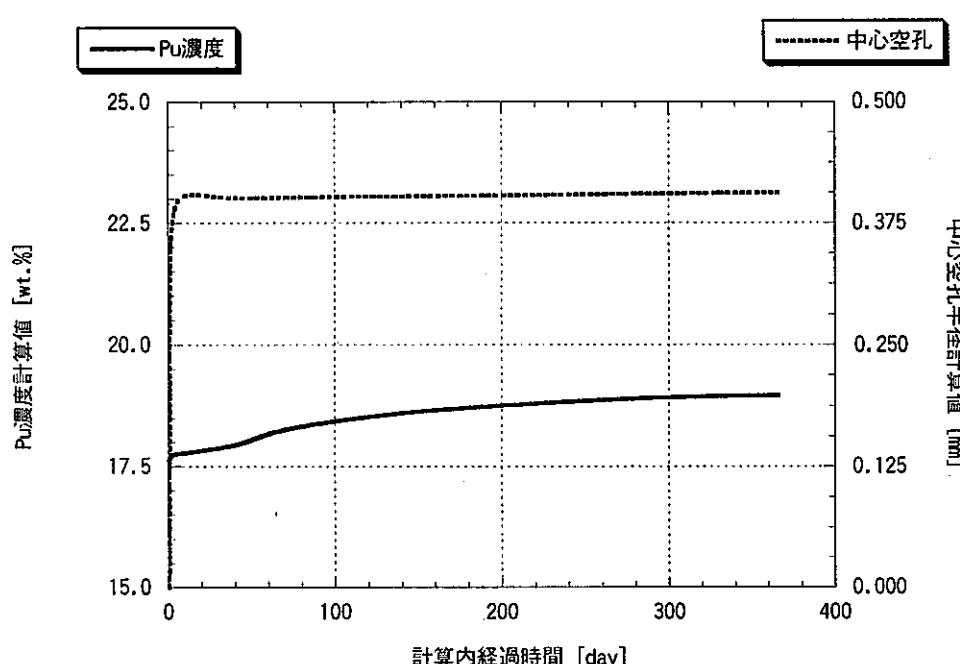


図 4-2-8-c A2D E3B282試料の挙動評価結果

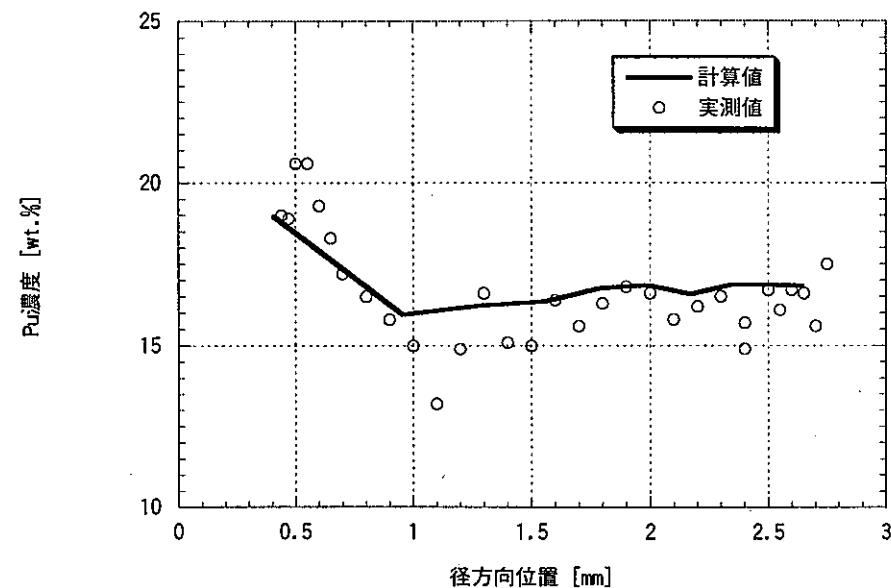


図 4-2-8-d A2D E3B282試料の照射末期Pu再分布量評価結果

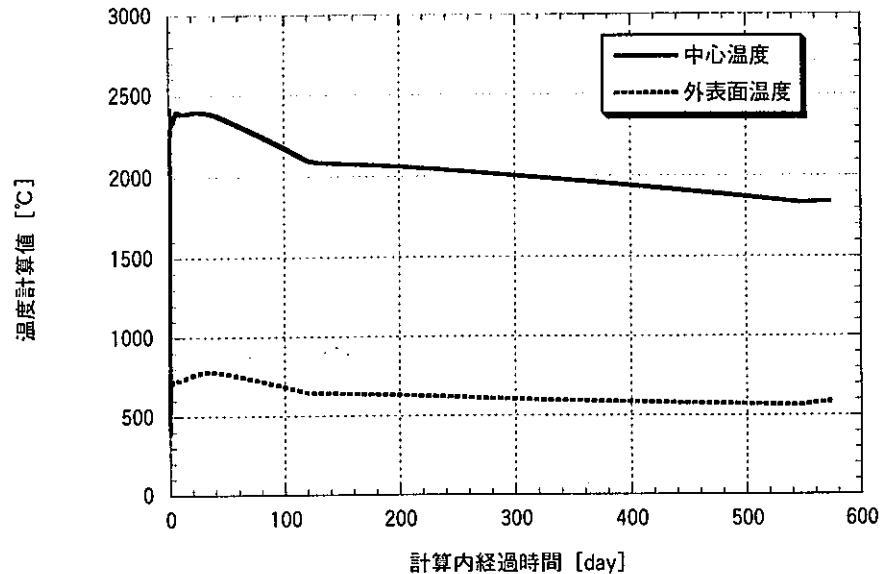


図 4-2-9-a Phenix P3 XD0572試料の温度履歴評価結果

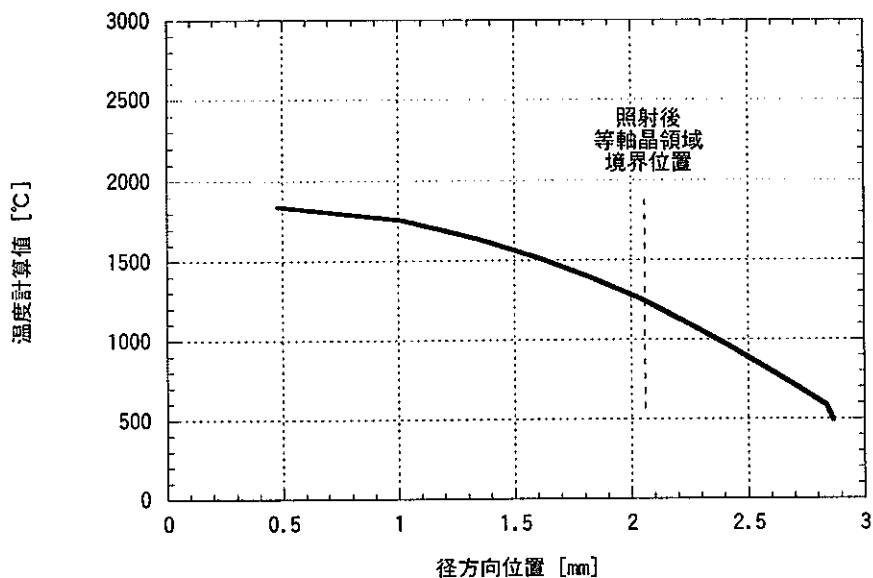


図 4-2-9-b Phenix P3 XD0572試料の照射末期温度評価結果

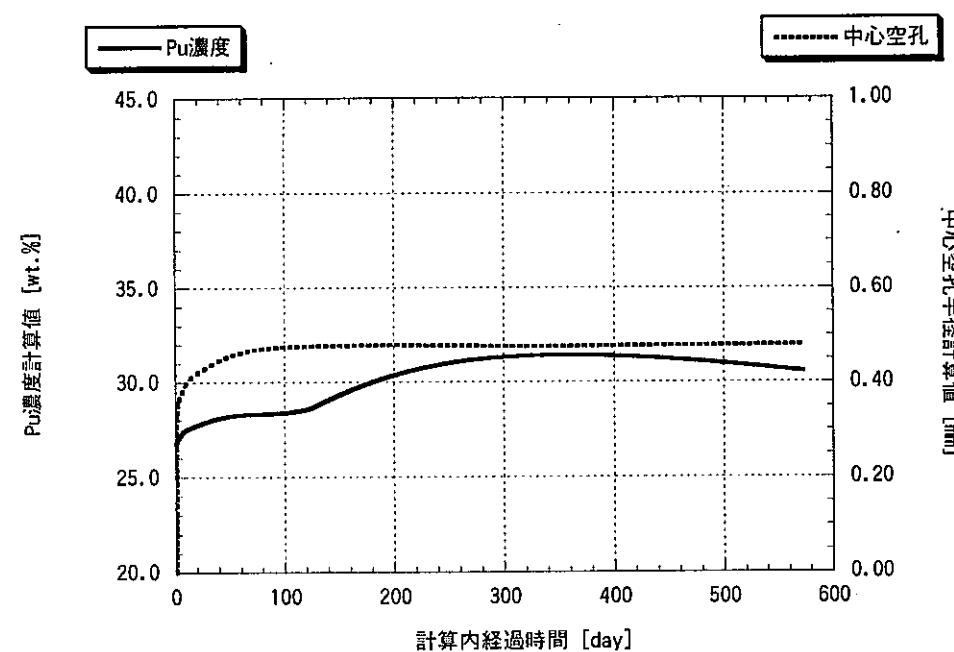


図 4-2-9-c Phenix P3 XD0572試料の挙動評価結果

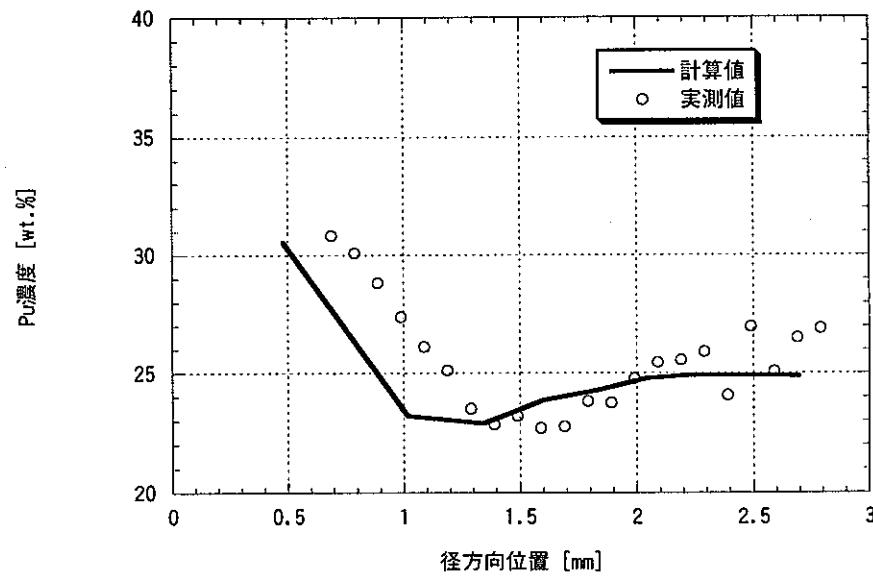
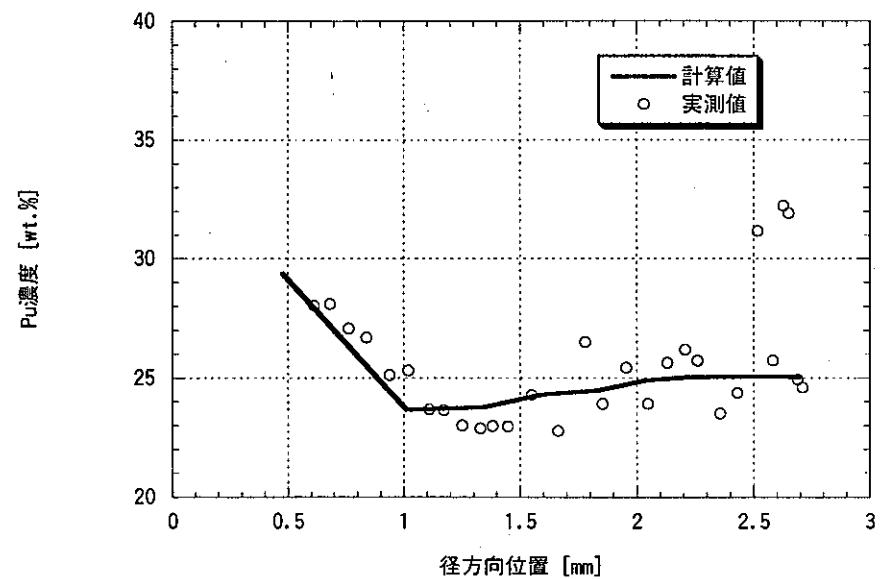
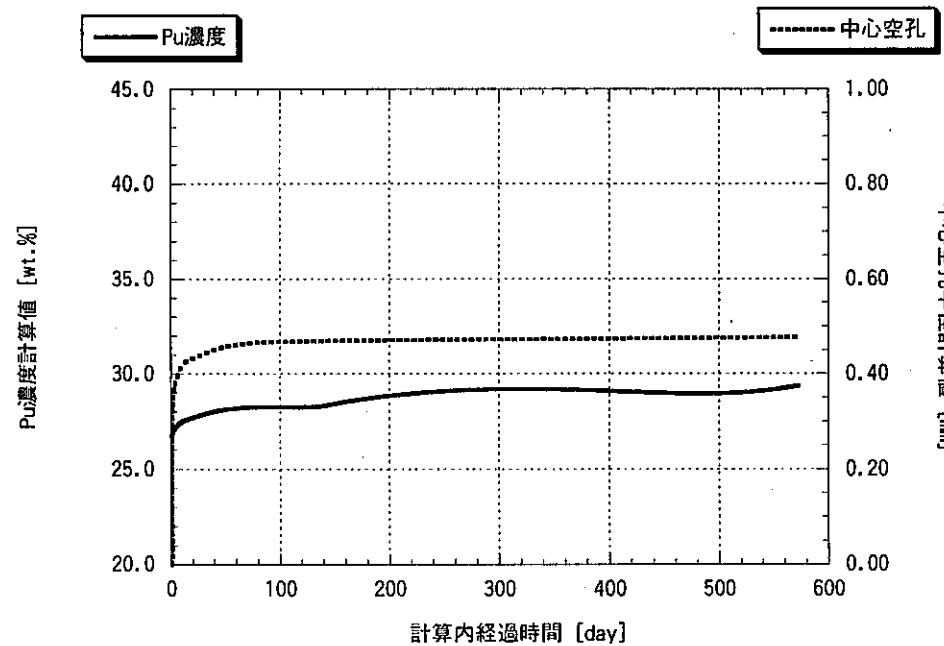
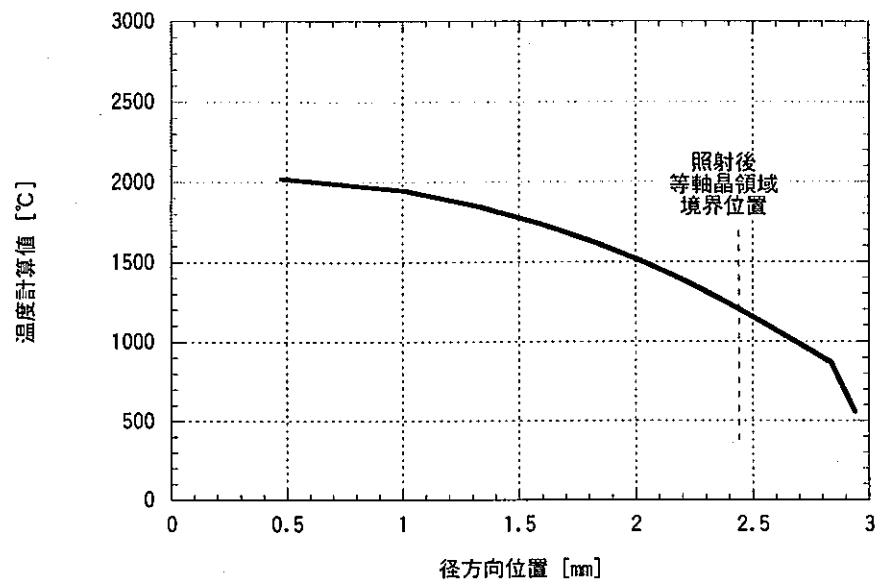
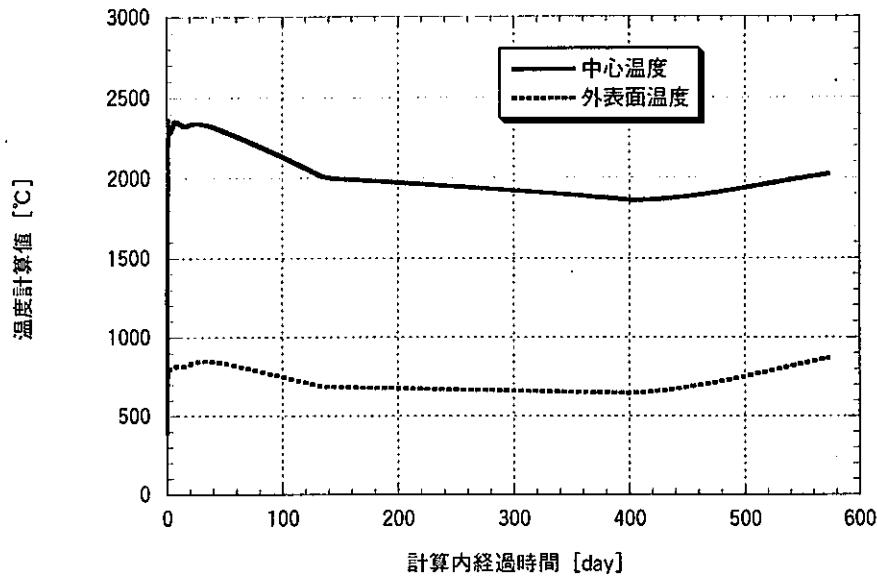


図 4-2-9-d Phenix P3 XD0572試料の照射末期Pu再分布量評価結果



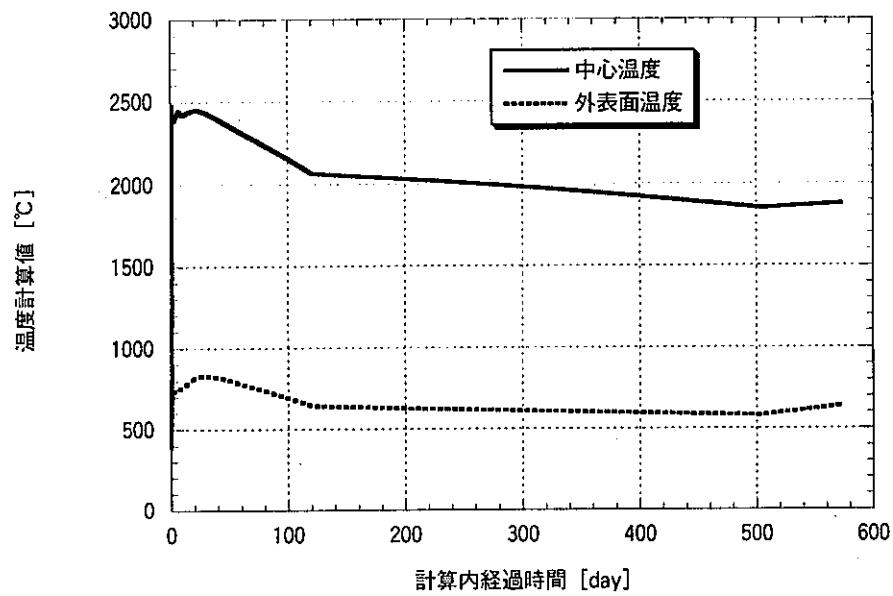


図 4-2-11-a Phenix P3 XD0781試料の温度履歴評価結果

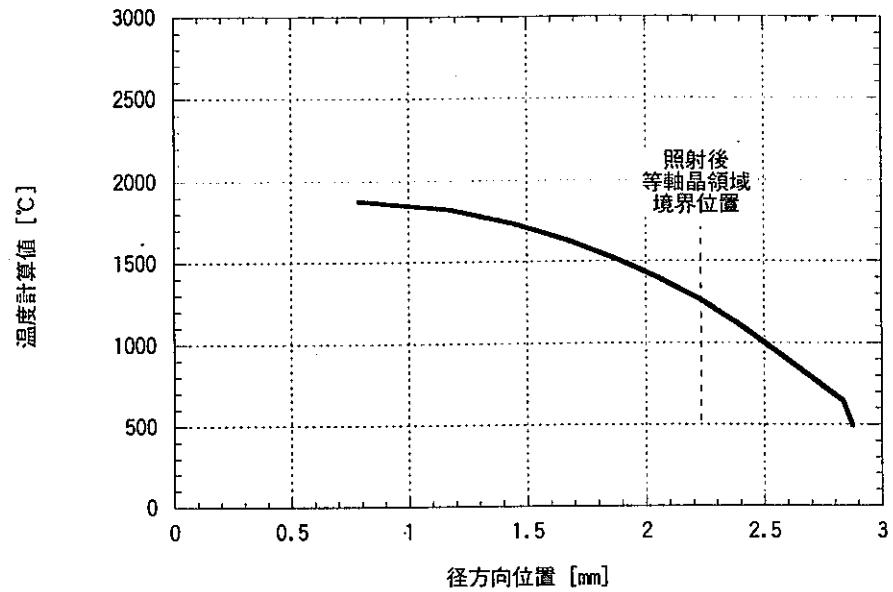


図 4-2-11-b Phenix P3 XD0781試料の照射末期温度評価結果

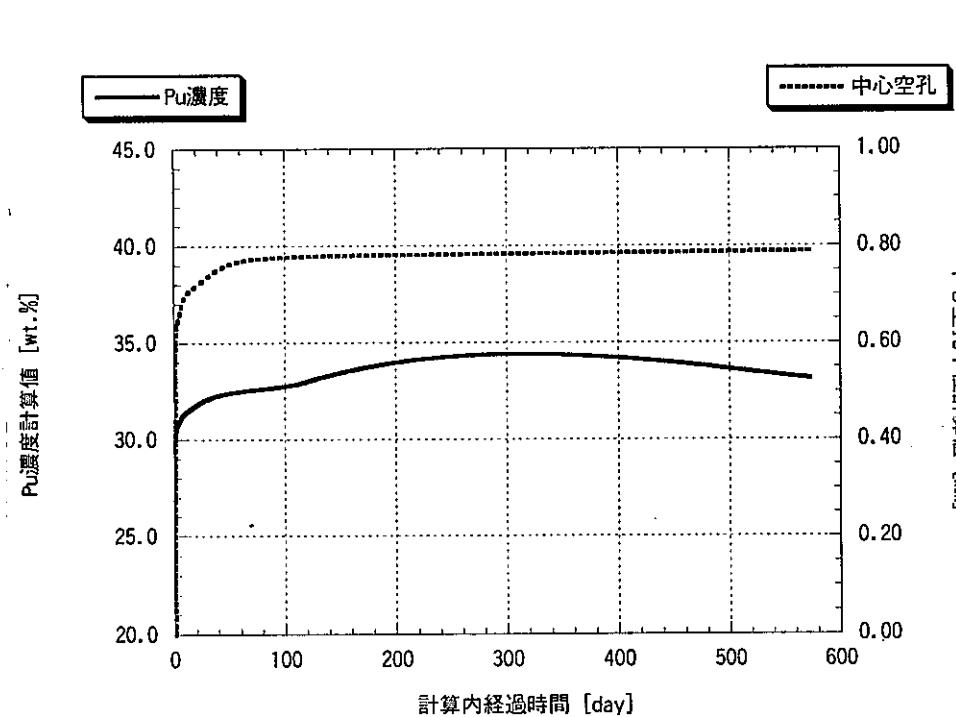


図 4-2-11-c Phenix P3 XD0781試料の挙動評価結果

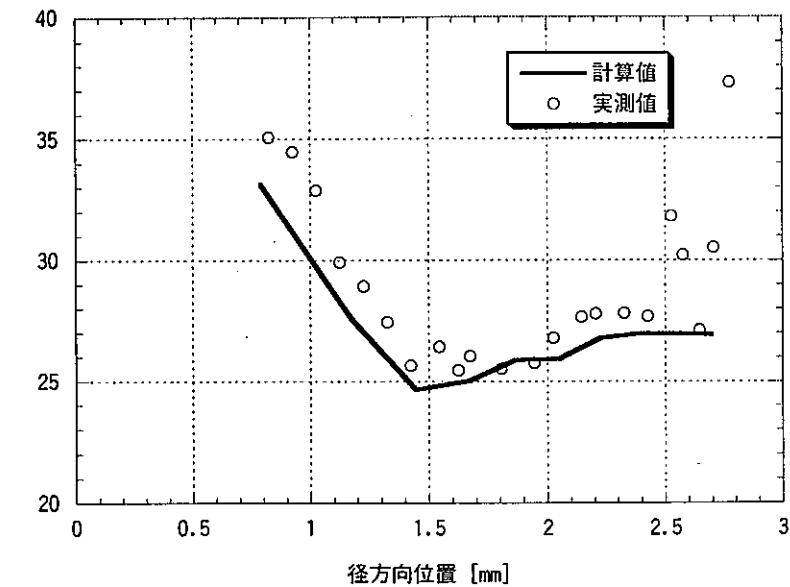


図 4-2-11-d Phenix P3 XD0781試料の照射末期Pu再分布量評価結果

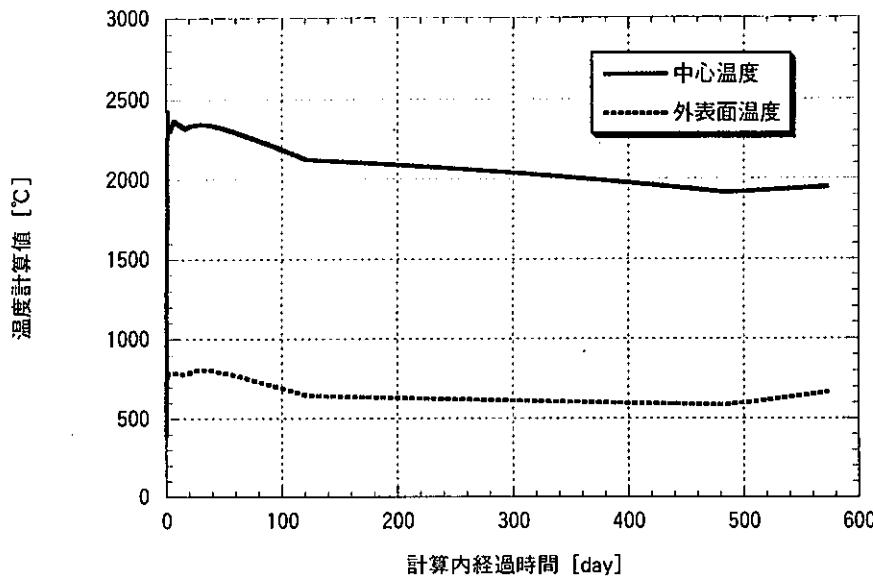


図 4-2-12-a Phenix P3 XD0992試料の温度履歴評価結果

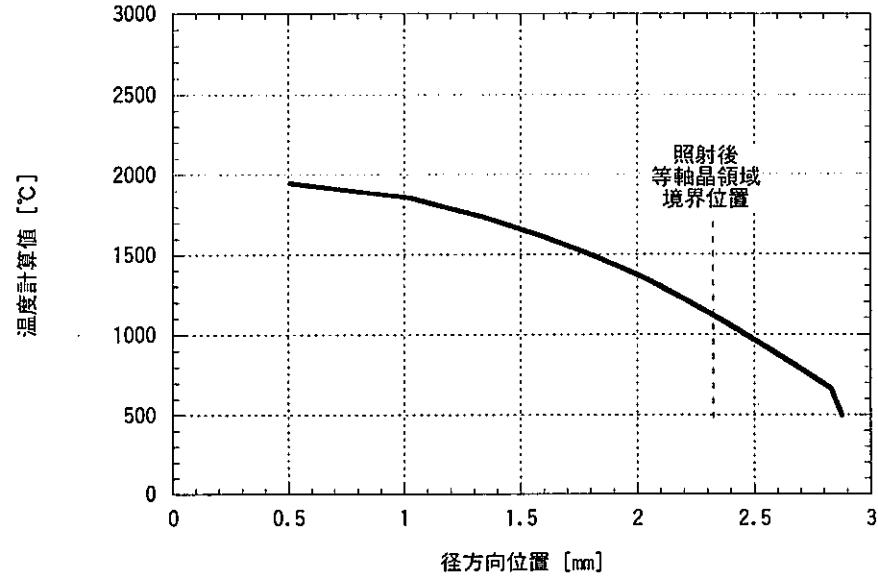


図 4-2-12-b Phenix P3 XD0992試料の照射末期温度評価結果

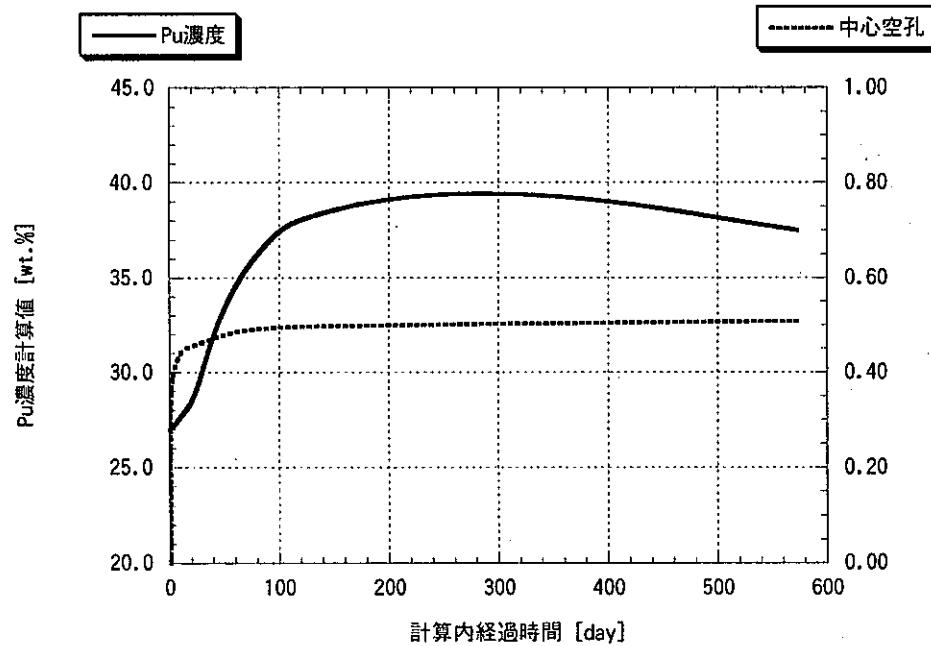


図 4-2-12-c Phenix P3 XD0992試料の挙動評価結果

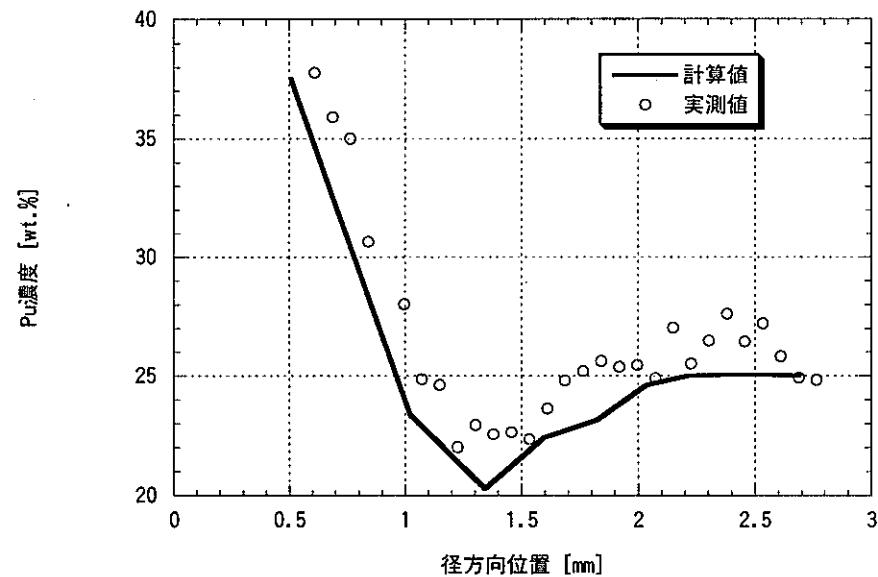


図 4-2-12-d Phenix P3 XD0992試料の照射末期Pu再分布量評価結果

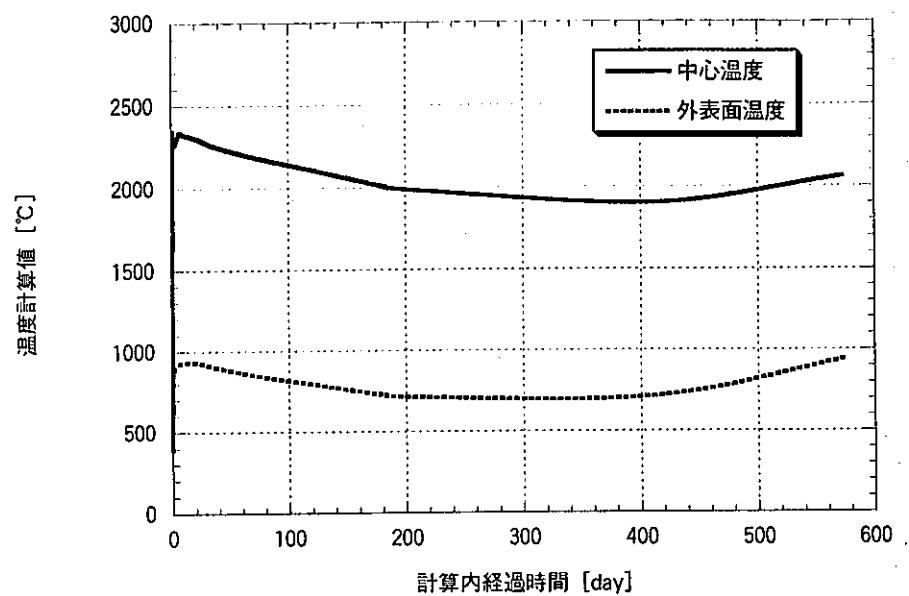


図 4-2-13-a Phenix P3 XD09J2試料の温度履歴評価結果

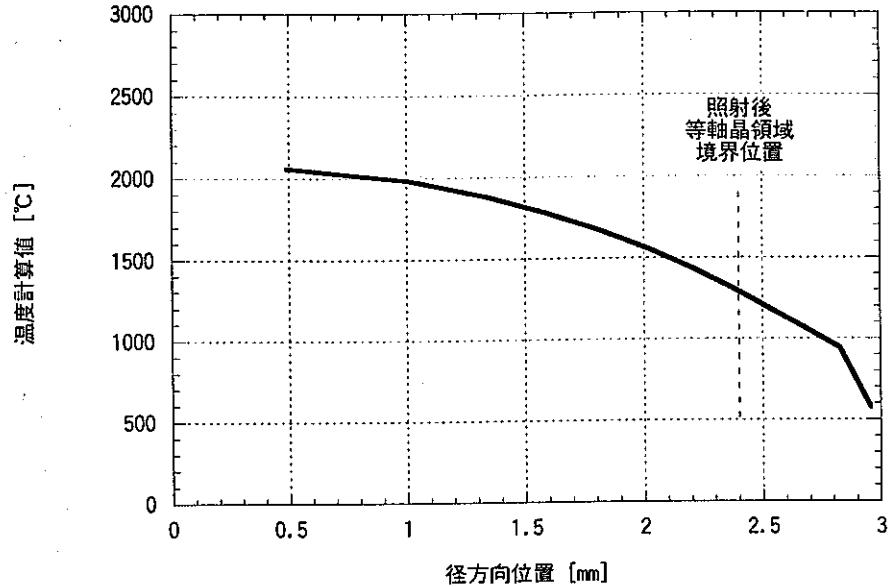


図 4-2-13-b Phenix P3 XD09J2試料の照射末期温度評価結果

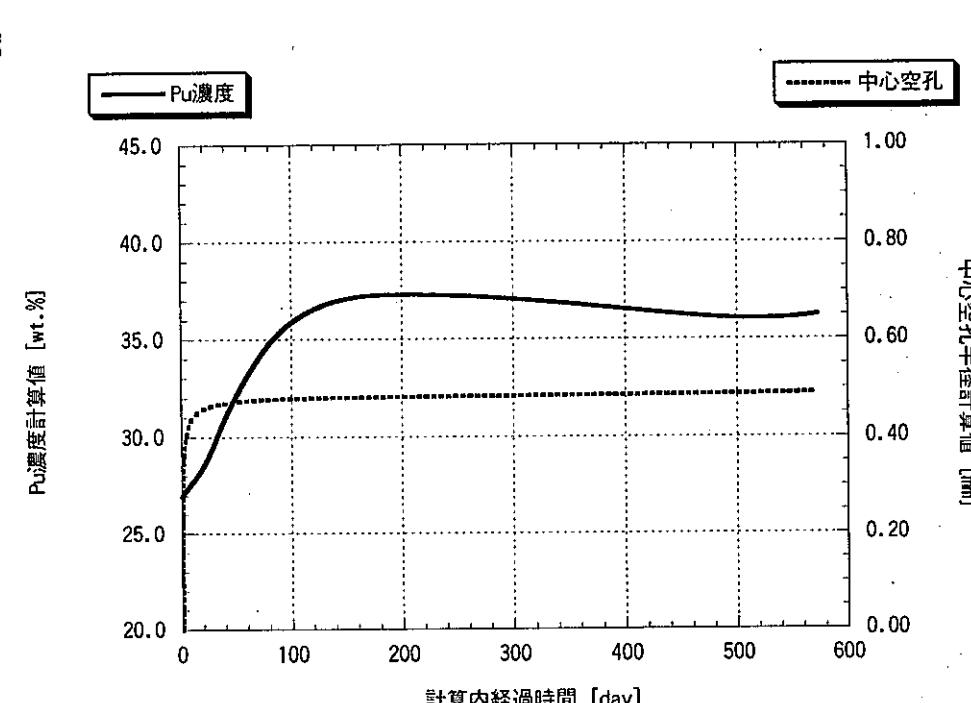


図 4-2-13-c Phenix P3 XD09J2試料の挙動評価結果

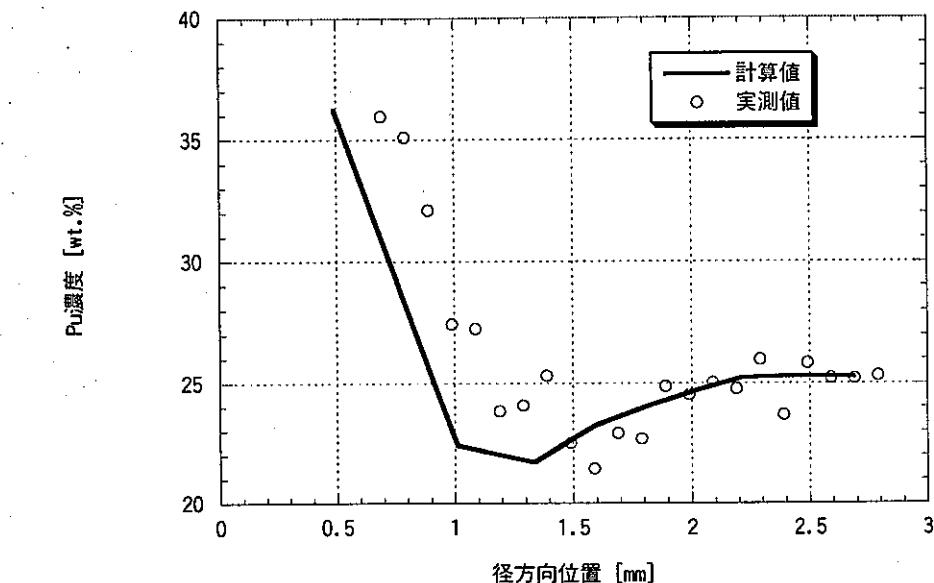


図 4-2-13-d Phenix P3 XD09J2試料の照射末期Pu再分布量評価結果

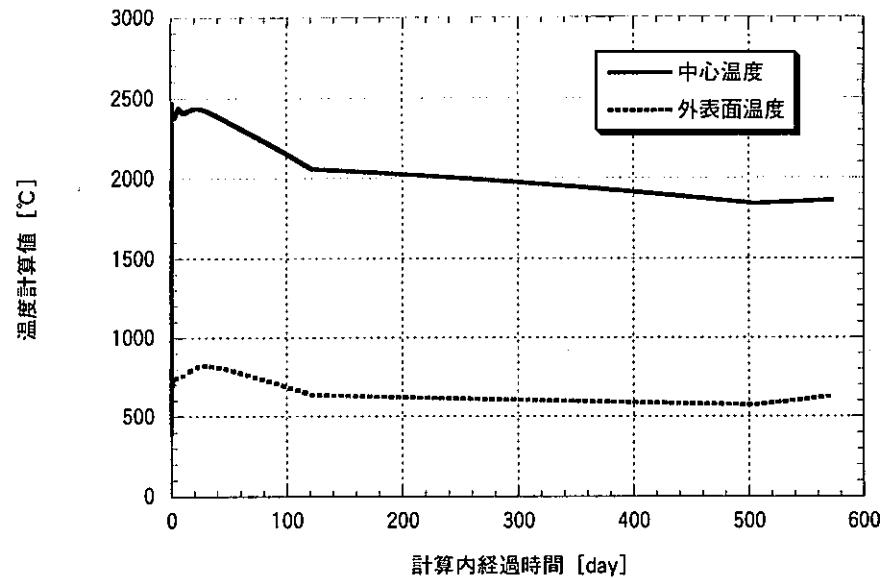


図 4-2-14-a Phenix P3 XD1051試料の温度履歴評価結果

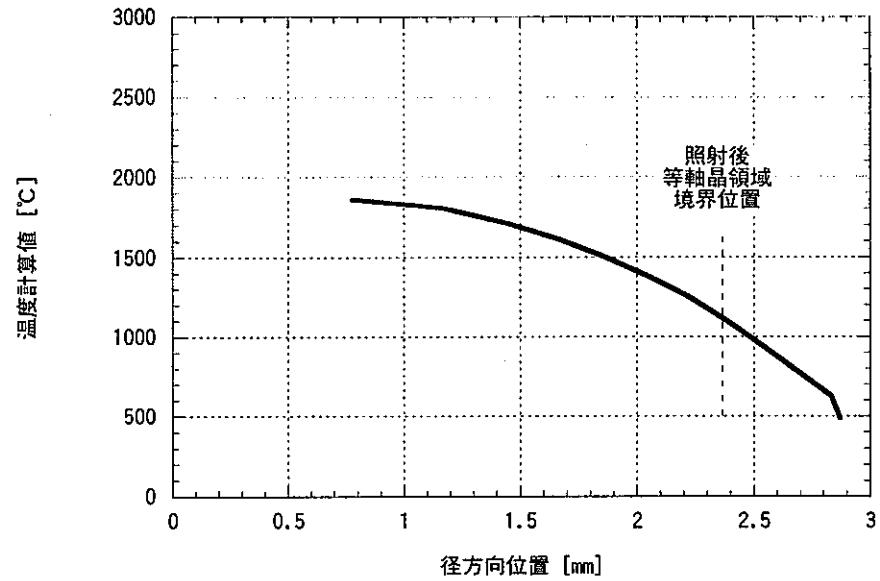


図 4-2-14-b Phenix P3 XD1051試料の照射末期温度評価結果

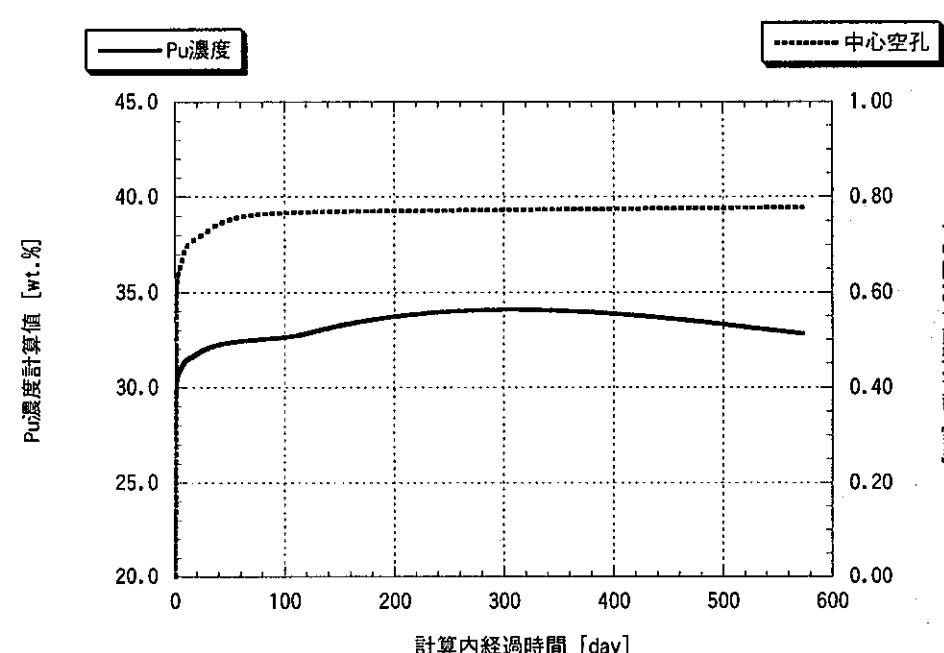


図 4-2-14-c Phenix P3 XD1051試料の挙動評価結果

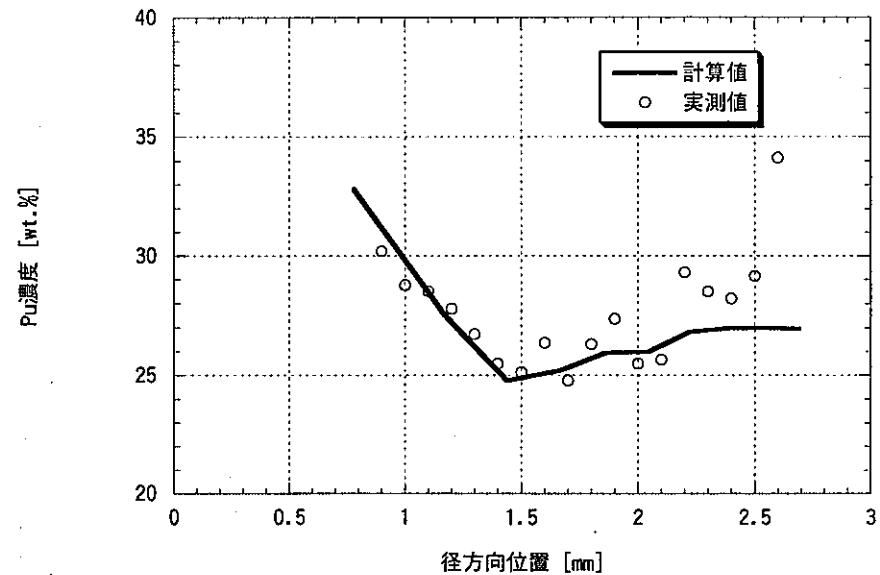


図 4-2-14-d Phenix P3 XD1051試料の照射末期Pu再分布量評価結果

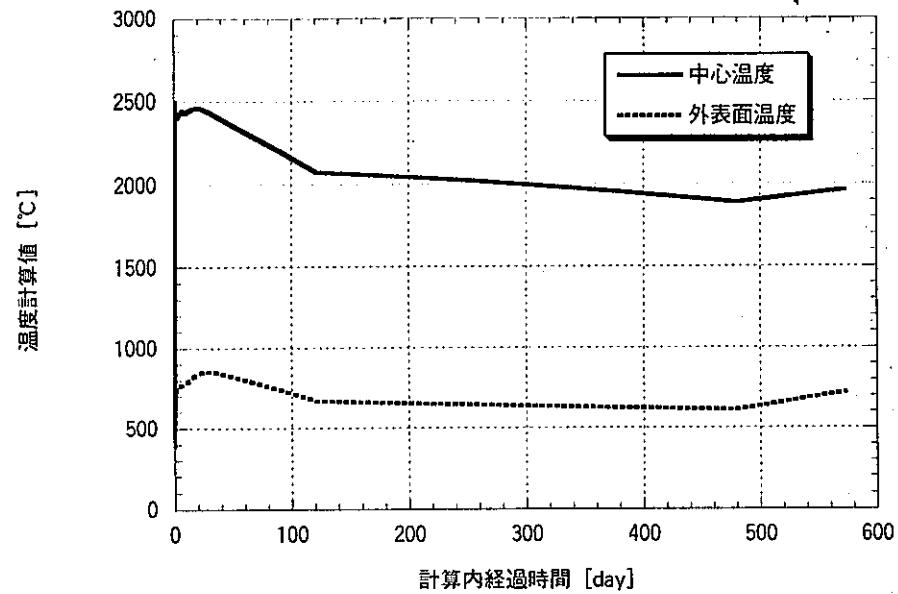


図 4-2-15-a Phenix P3 XD1071試料の温度履歴評価結果

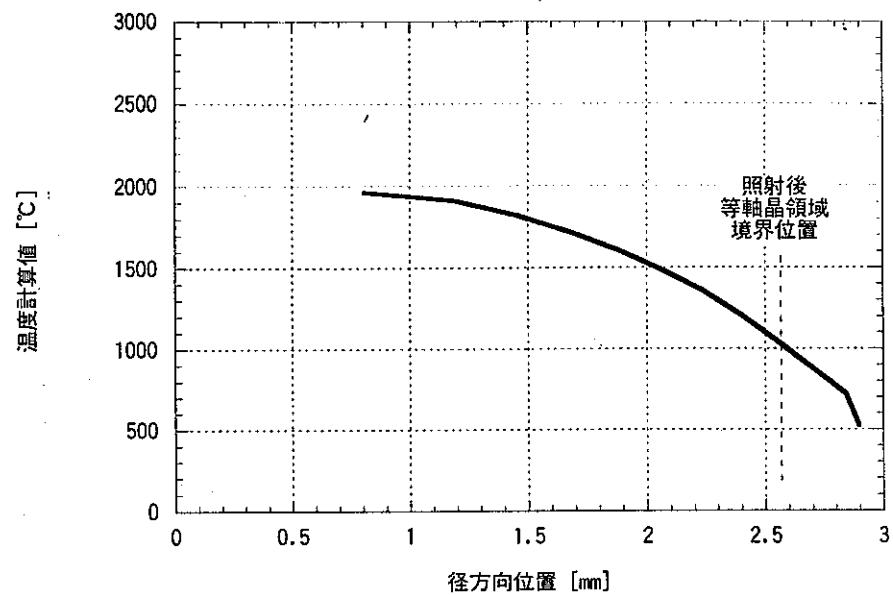


図 4-2-15-b Phenix P3 XD1071試料の照射末期温度評価結果

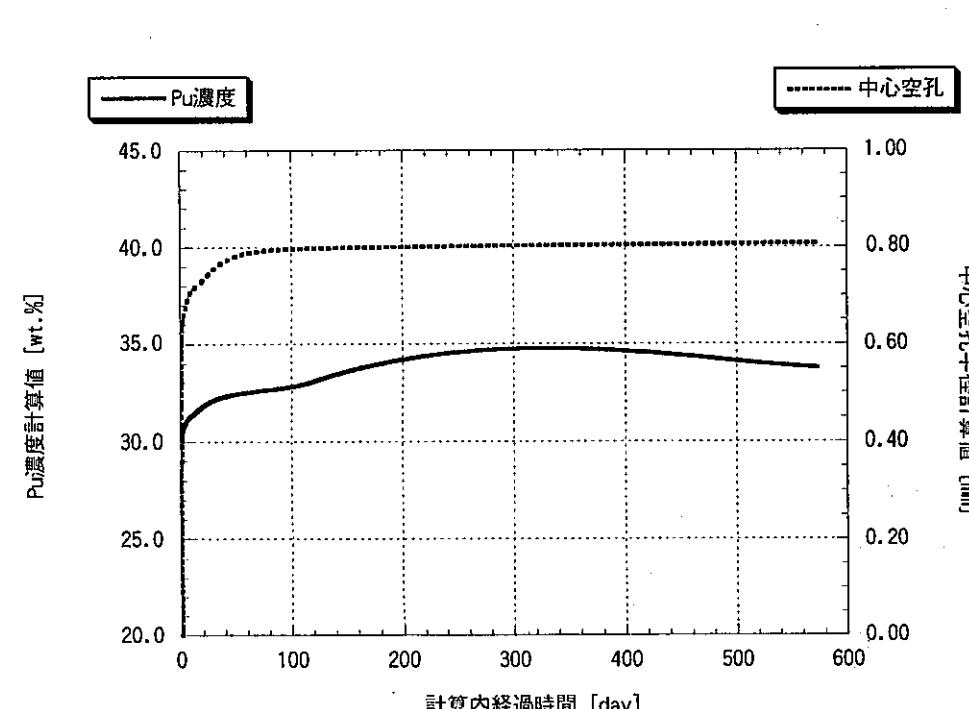


図 4-2-15-c Phenix P3 XD1071試料の挙動評価結果

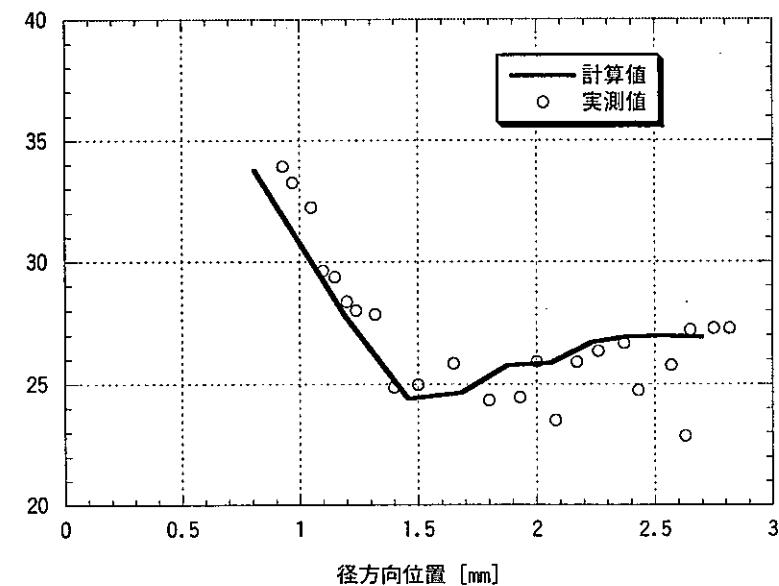


図 4-2-15-d Phenix P3 XD1071試料の照射末期Pu再分布量評価結果

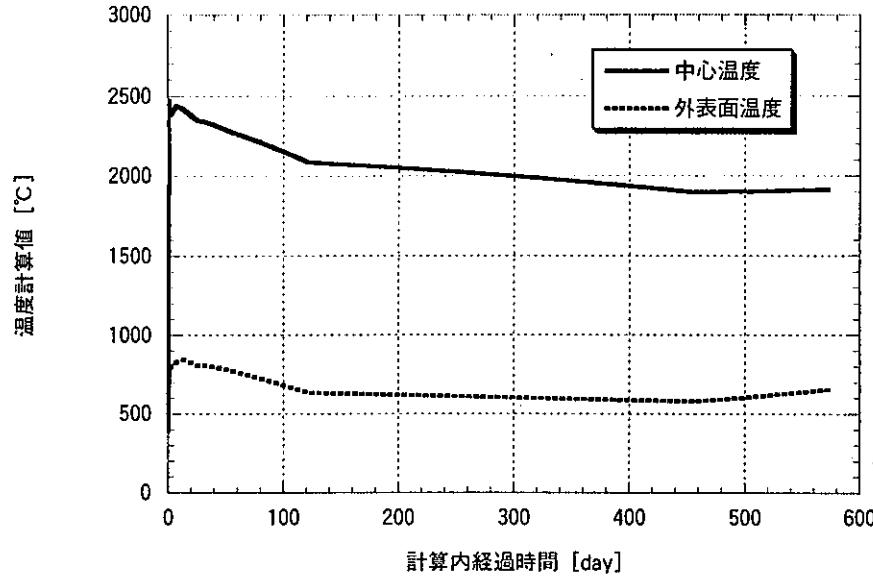


図 4-2-16-a Phenix P3 XD11A1試料の温度履歴評価結果

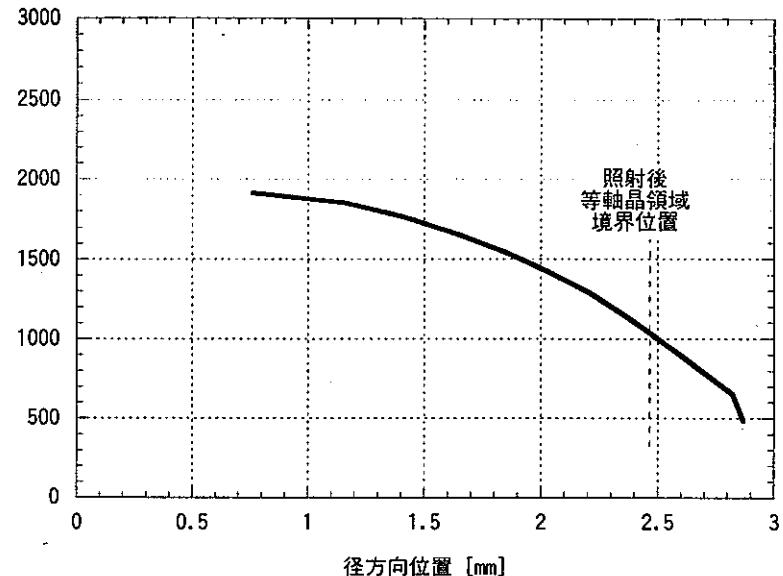


図 4-2-16-b Phenix P3 XD11A1試料の照射末期温度評価結果

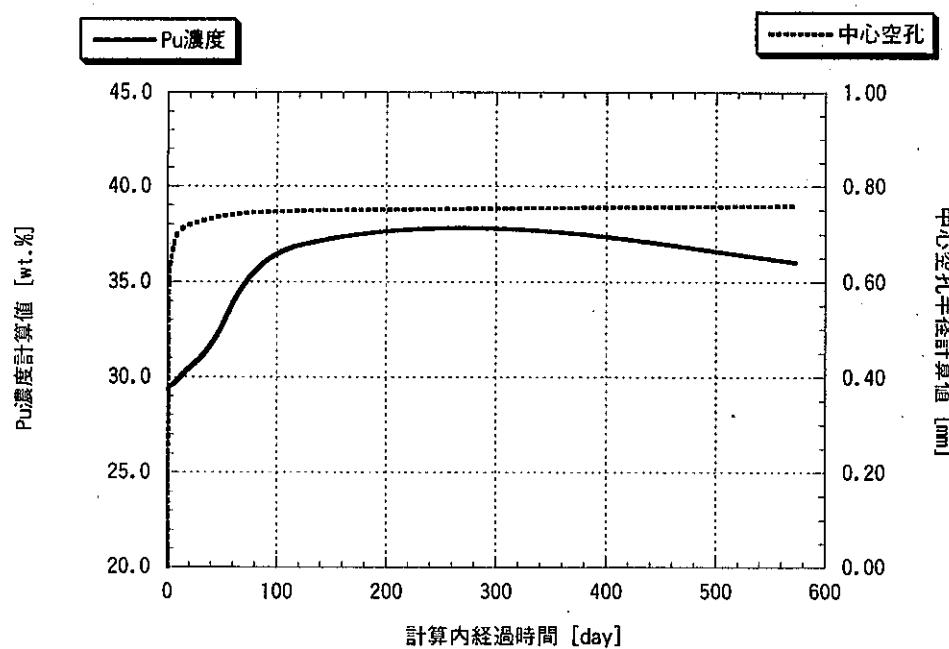


図 4-2-16-c Phenix P3 XD11A1試料の挙動評価結果

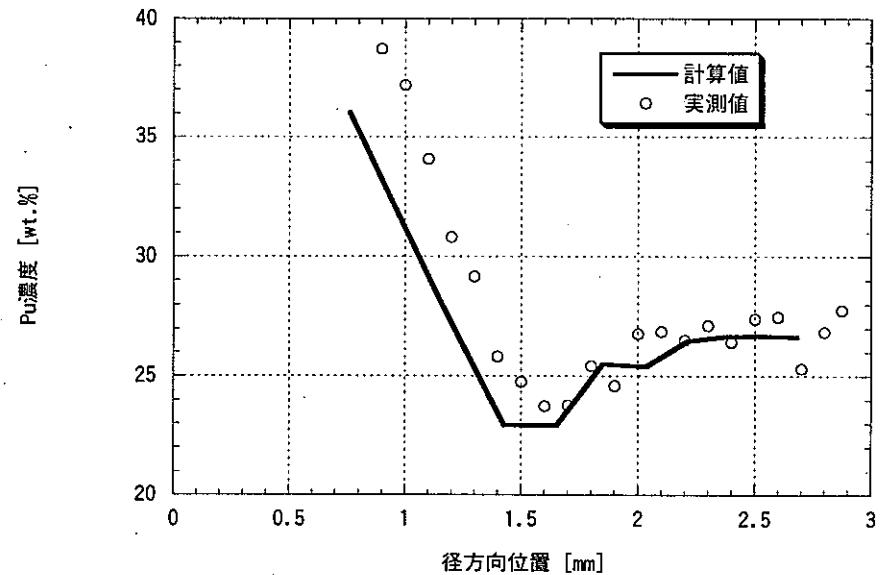


図 4-2-16-d Phenix P3 XD11A1試料の照射末期Pu再分布量評価結果

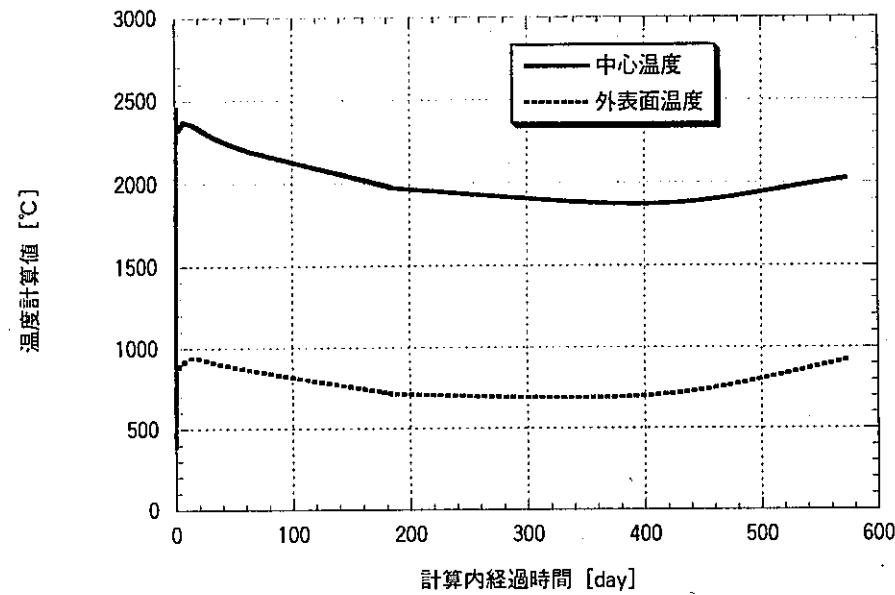


図 4-2-17-a Phenix P3 XD11F1試料の温度履歴評価結果

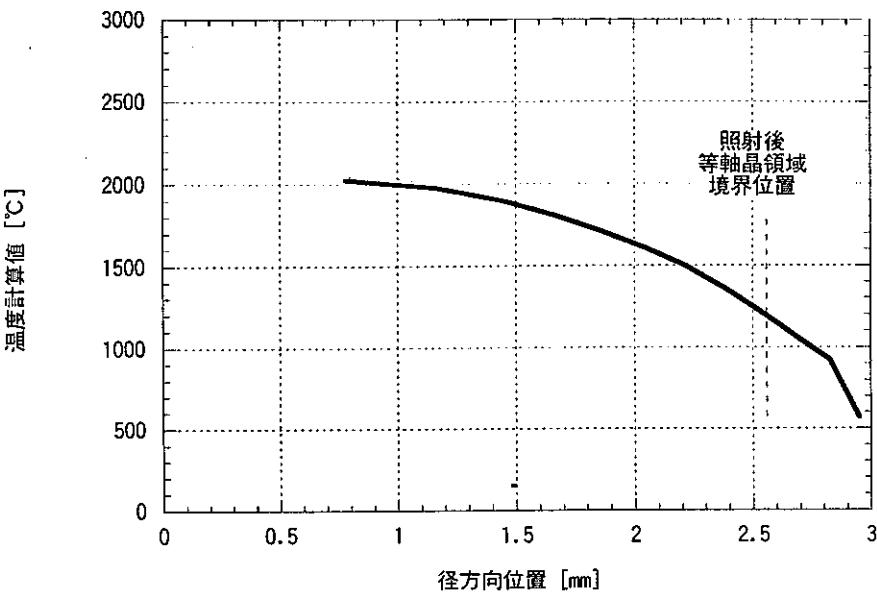


図 4-2-17-b Phenix P3 XD11F1試料の照射末期温度評価結果

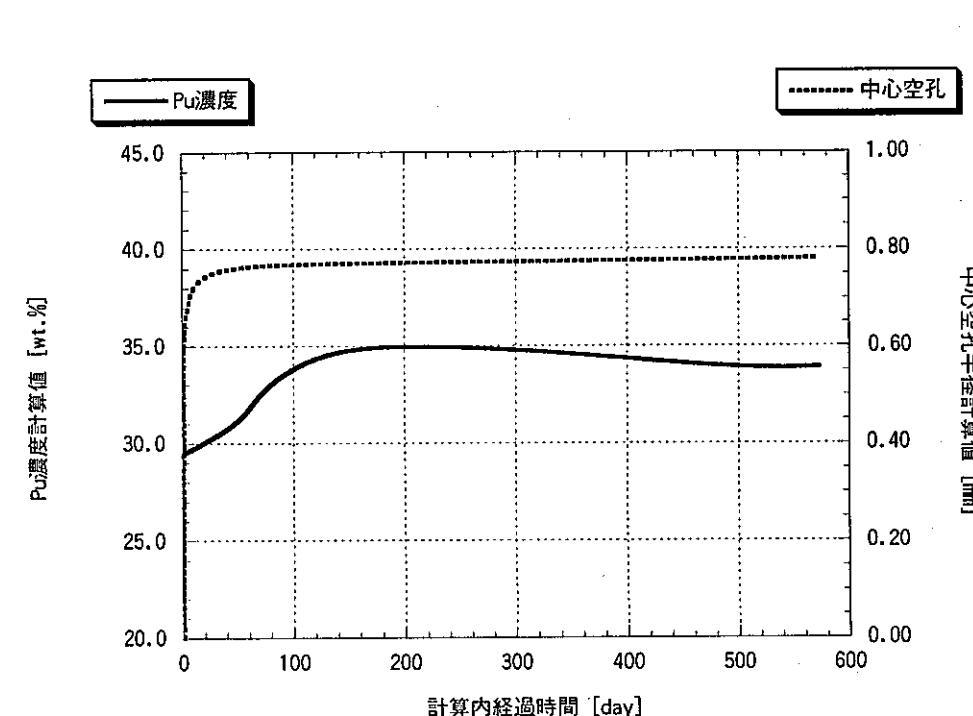


図 4-2-17-c Phenix P3 XD11F1試料の挙動評価結果

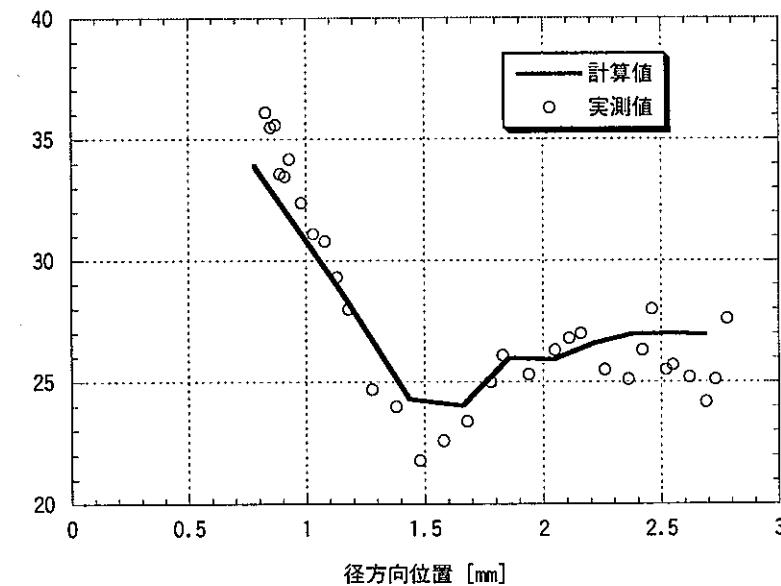


図 4-2-17-d Phenix P3 XD11F1試料の照射末期Pu再分布量評価結果

中心部Pu濃度計算値 [wt.%]

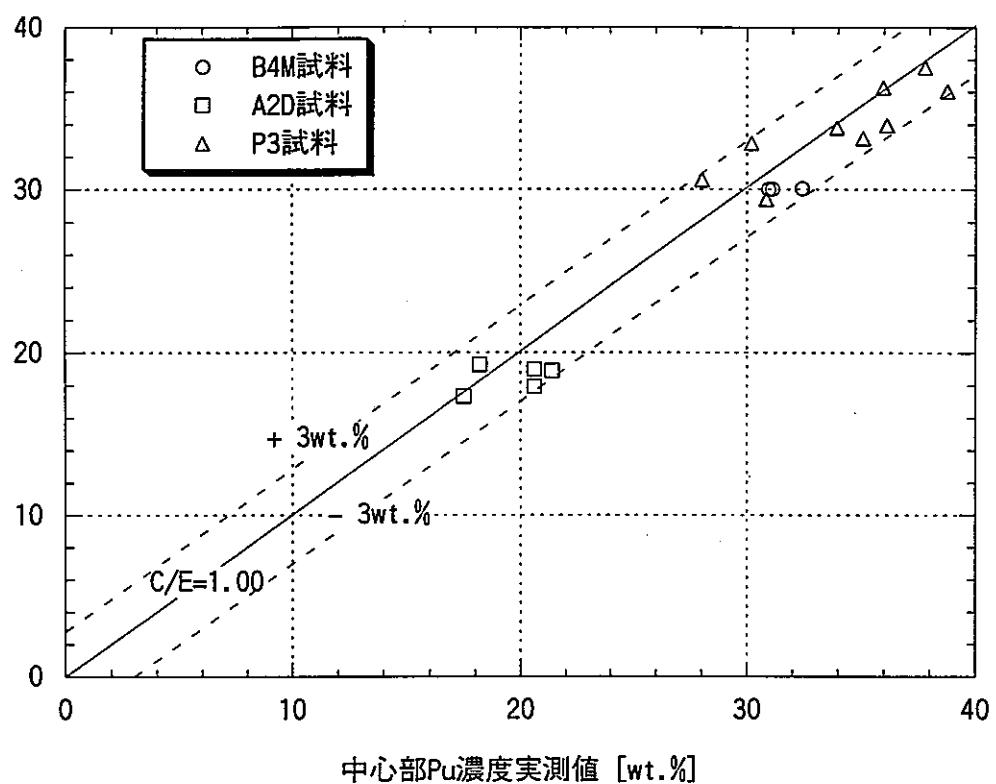


図 4-3 Pu再分布量評価における実測値に対する再現性
(中心部Pu濃度に関して)

製造時からの中心部Pu濃度増加量計算値 [wt.%]

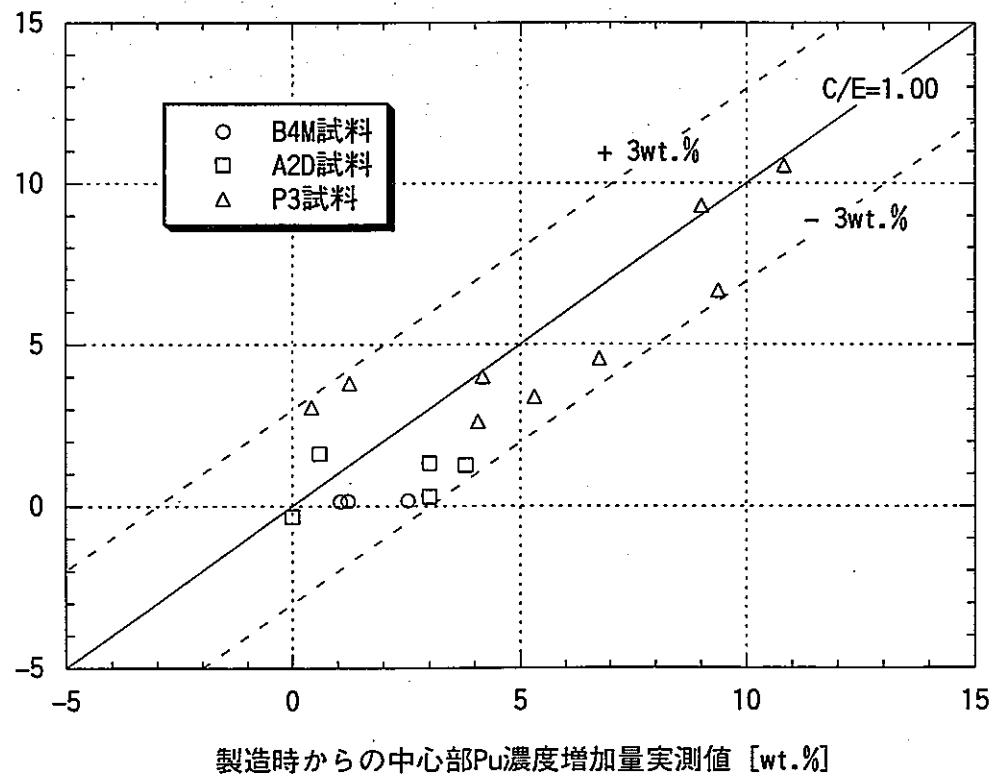


図 4-4 Pu再分布量評価における実測値に対する再現性
(照射末期時の燃料中心部での製造時からのPu濃度増加量に関して)

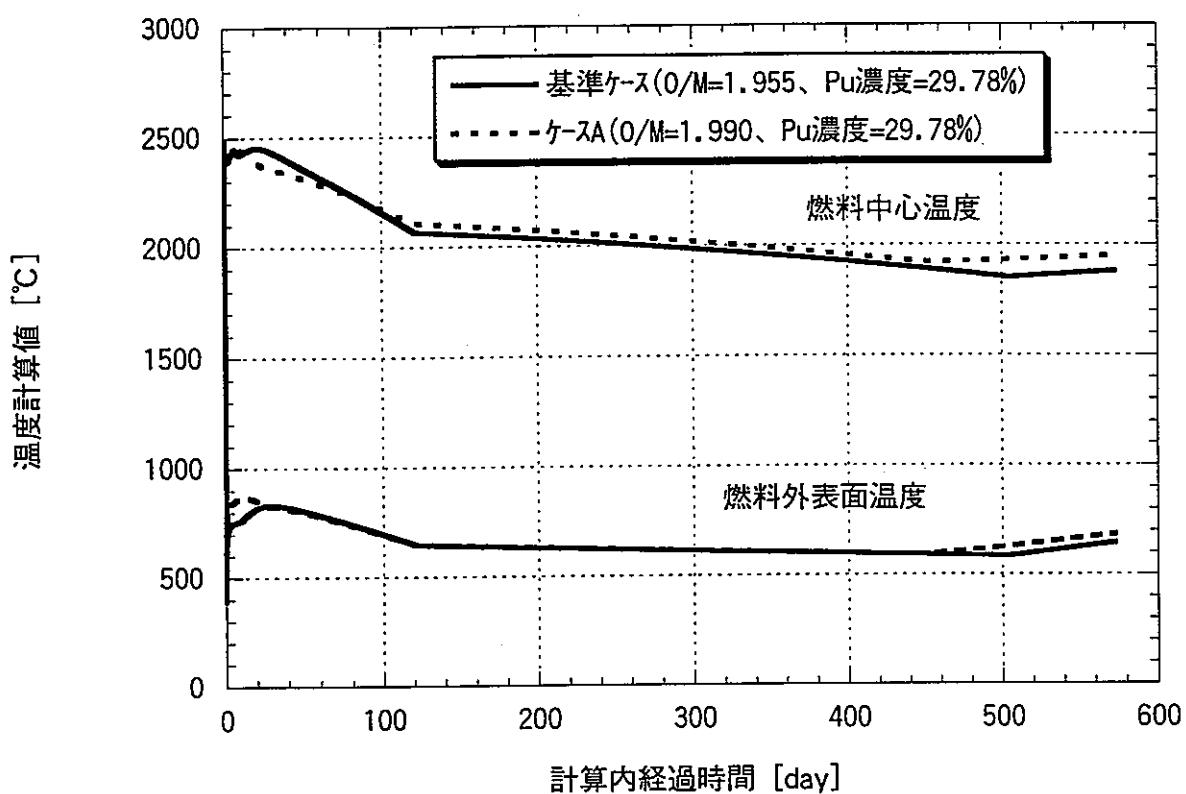


図 4-5-1 初期O/M比、Pu濃度を変化させた場合の燃料温度への影響（1）

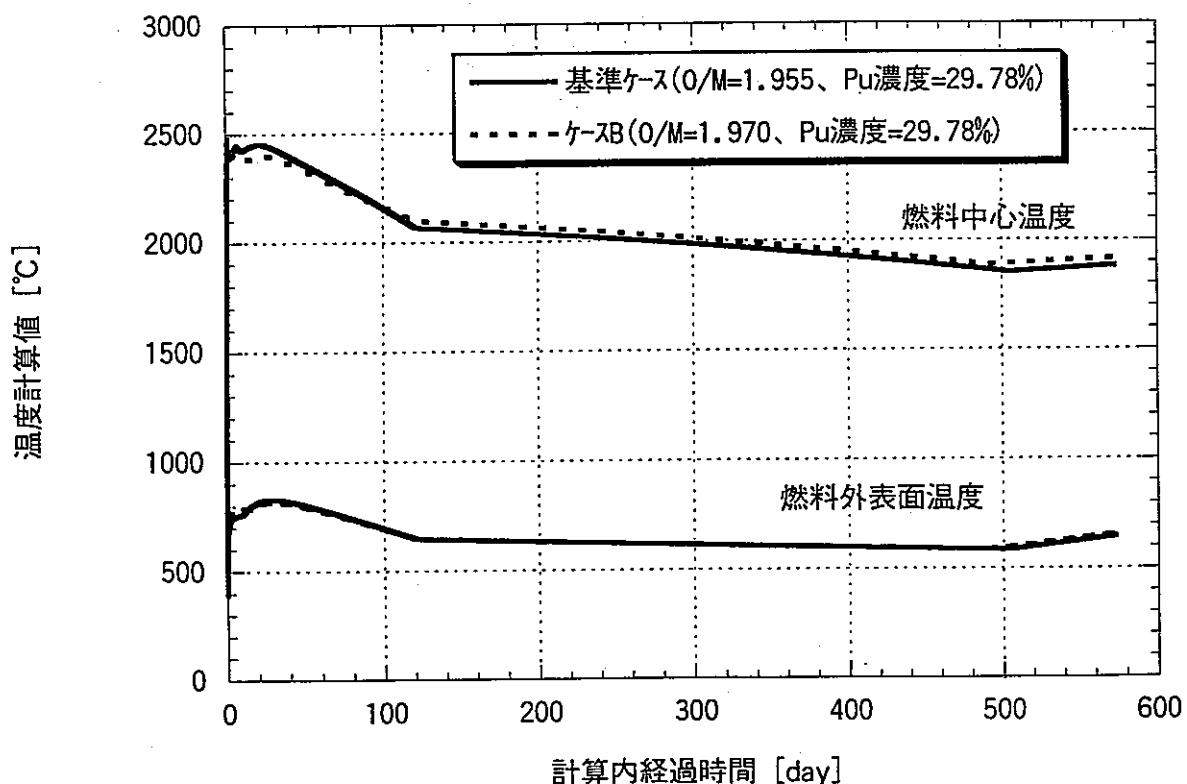


図 4-5-2 初期O/M比、Pu濃度を変化させた場合の燃料温度への影響（2）

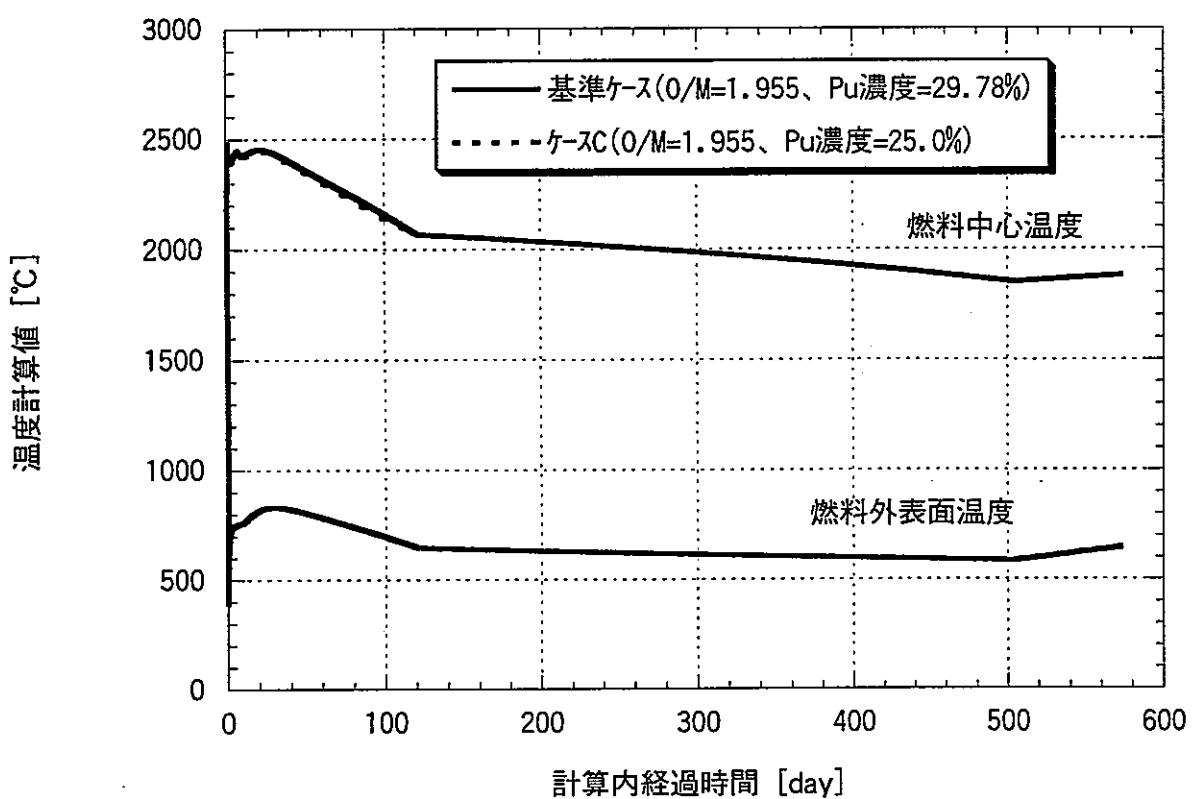


図 4-5-3 初期0/M比、Pu濃度を変化させた場合の燃料温度への影響（3）

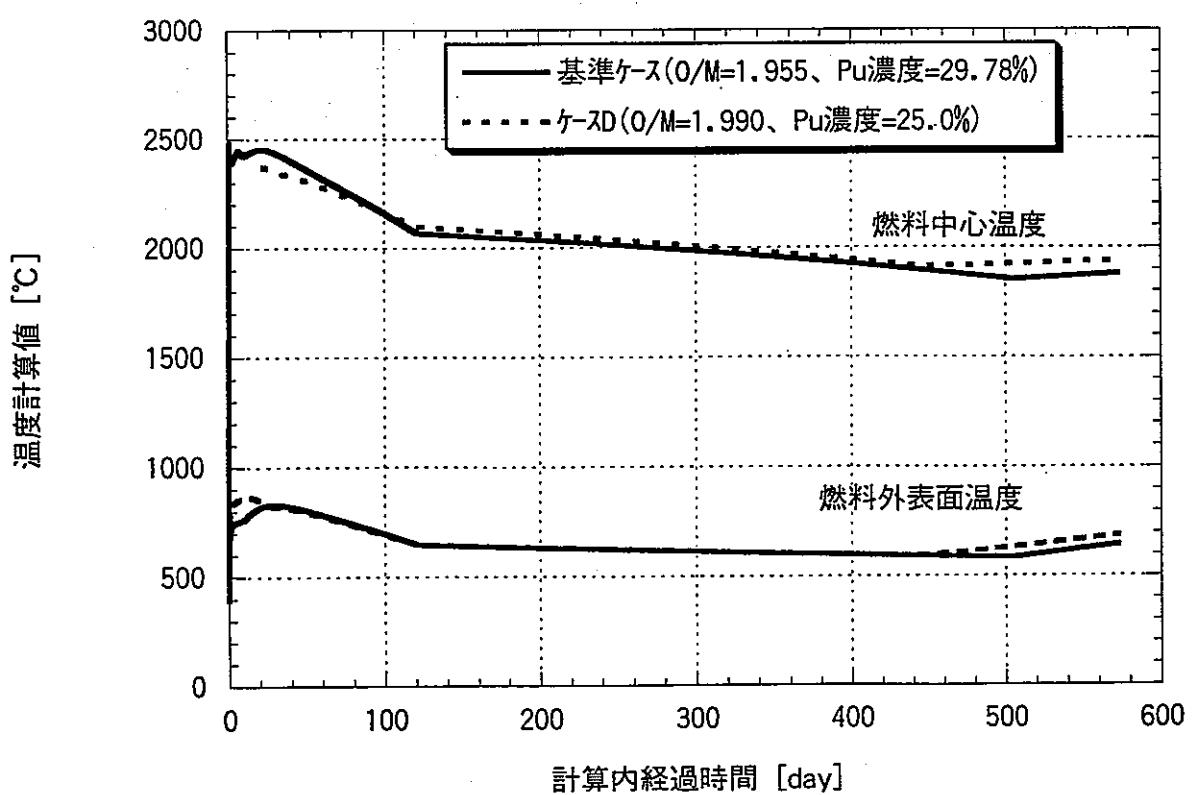


図 4-5-4 初期0/M比、Pu濃度を変化させた場合の燃料温度への影響（4）

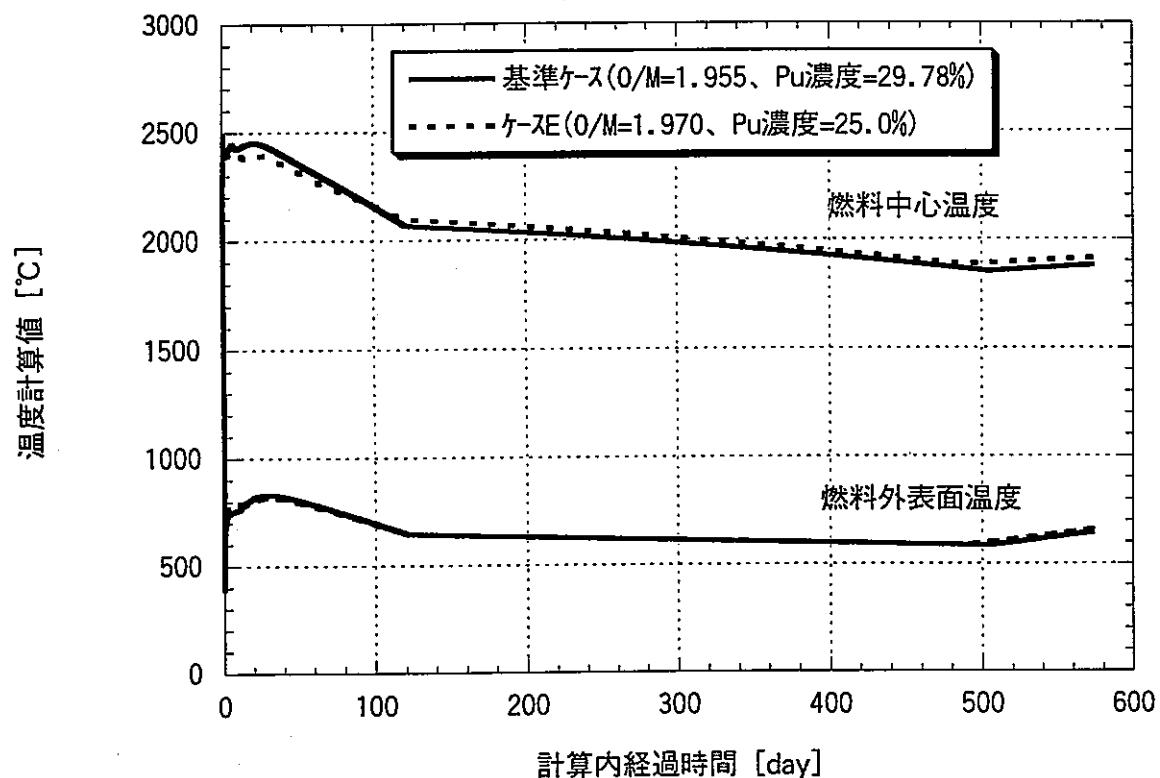


図 4-5-5 初期O/M比、Pu濃度を変化させた場合の燃料温度への影響（5）

Pu濃度の製造時からの変化量 [wt.%]

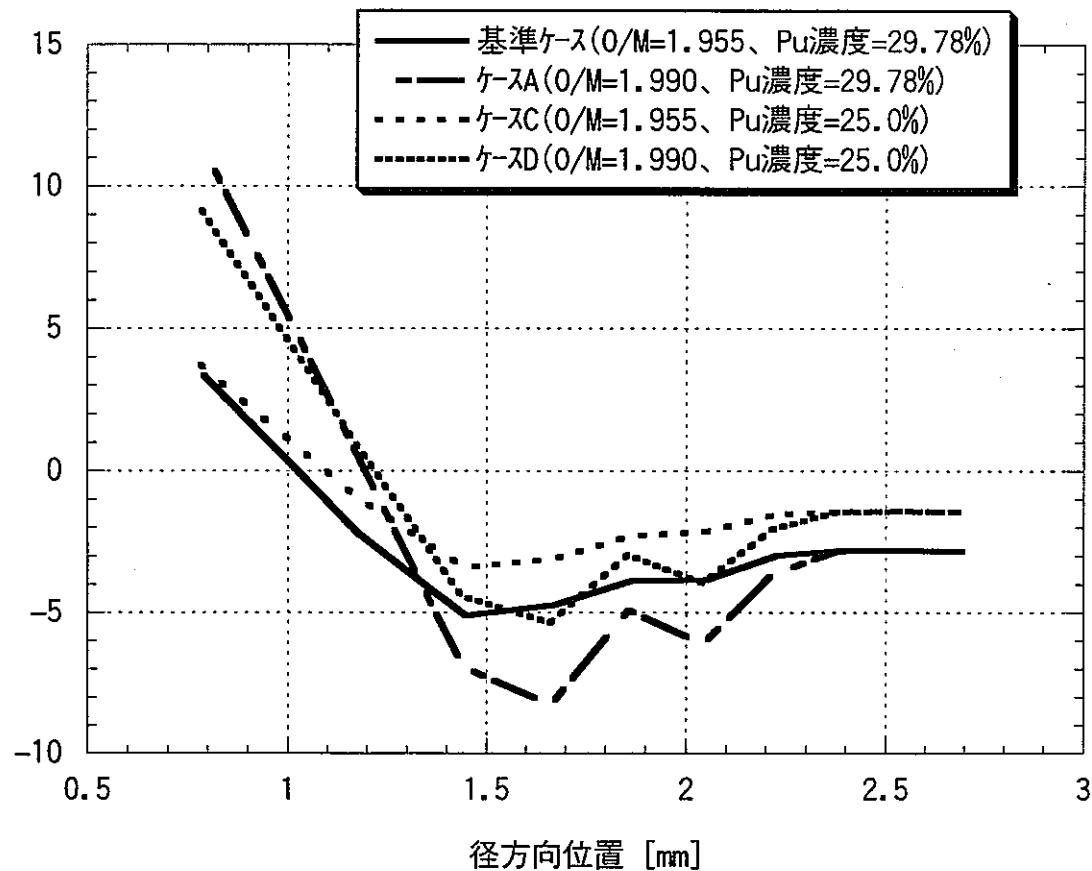


図 4-6-1 初期 O/M 比、Pu濃度を変化させた場合の比較(1)
(照射末期の径方向Pu濃度分布に関して)

Pu濃度の製造時からの変化量 [wt.%]

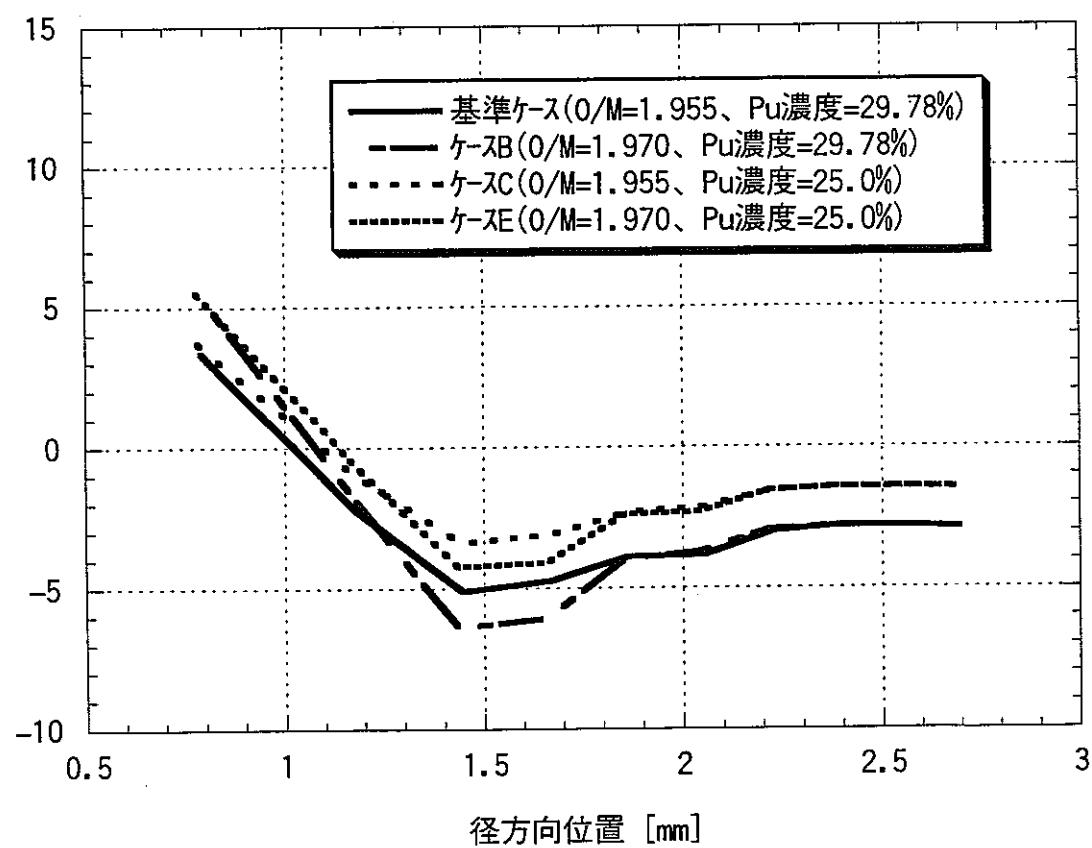


図 4-6-2 初期 O/M 比、Pu濃度を変化させた場合の比較(2)
(照射末期の径方向Pu濃度分布に関して)

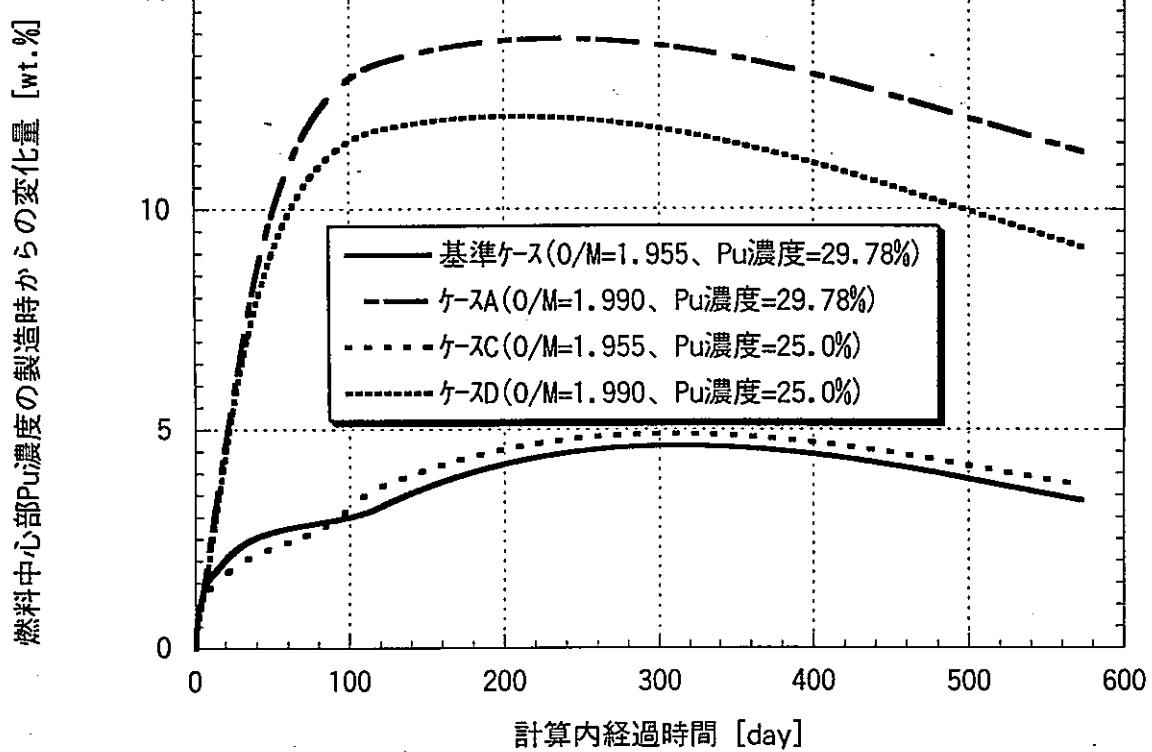


図 4-6-3 初期O/M比、Pu濃度を変化させた場合の比較(3)
(燃料中心部でのPu濃度変化履歴に関して)

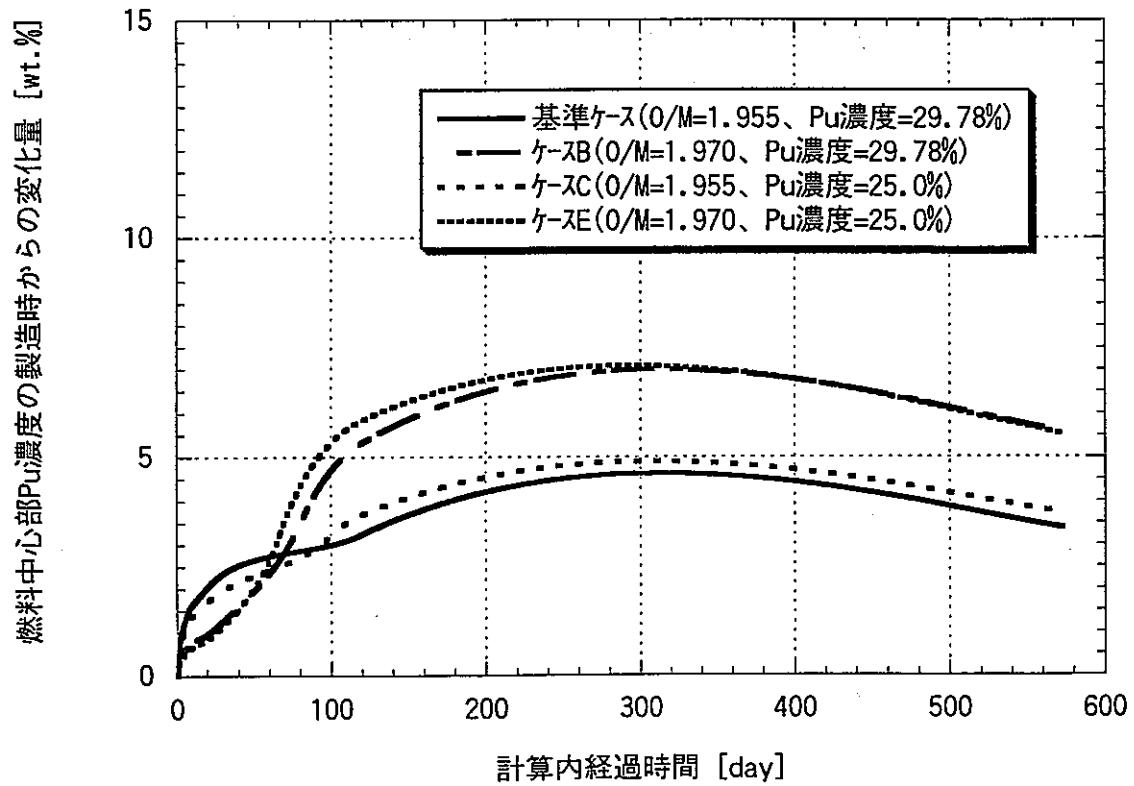


図 4-6-4 初期O/M比、Pu濃度を変化させた場合の比較(4)
(燃料中心部でのPu濃度変化履歴に関して)

ギャップ部ガスがギャップ部伝熱に寄与する割合 [-]

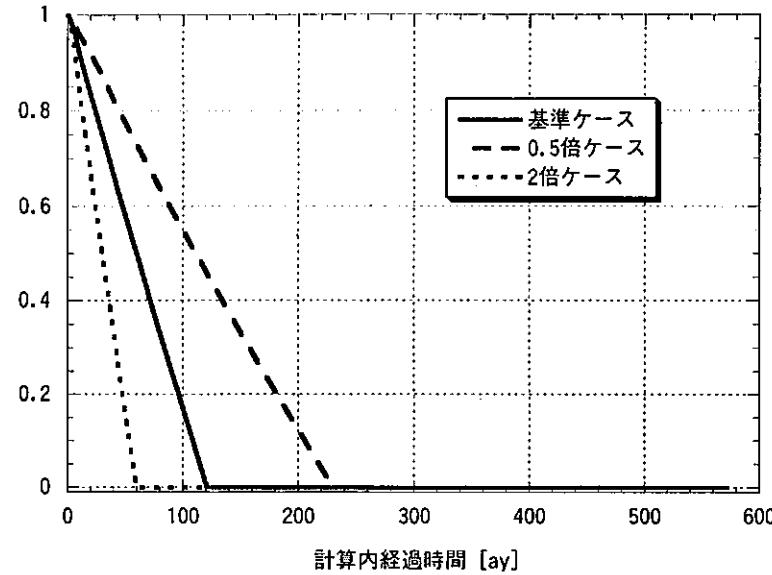


図 5-1 ギャップ部ガスがギャップ部伝熱に寄与する割合

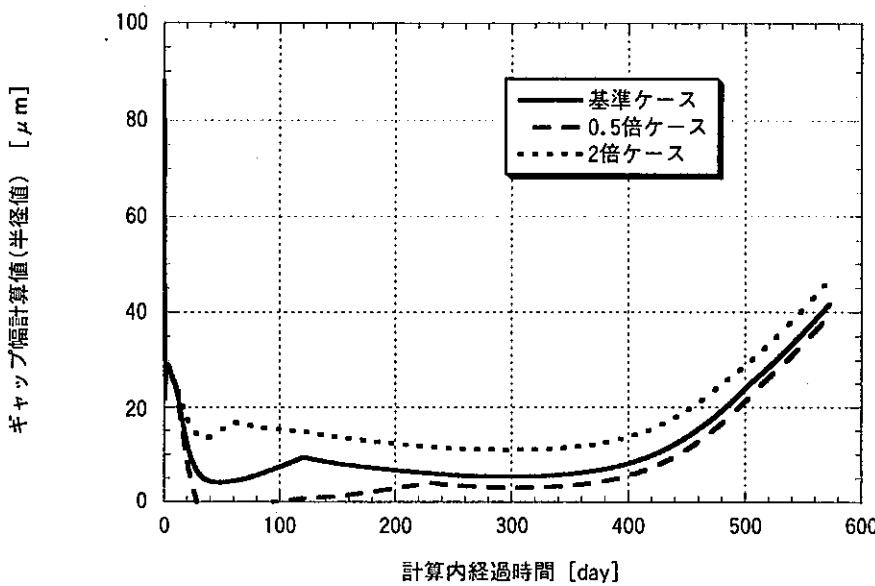


図 5-2 FP化合物量のギャップ幅評価への影響

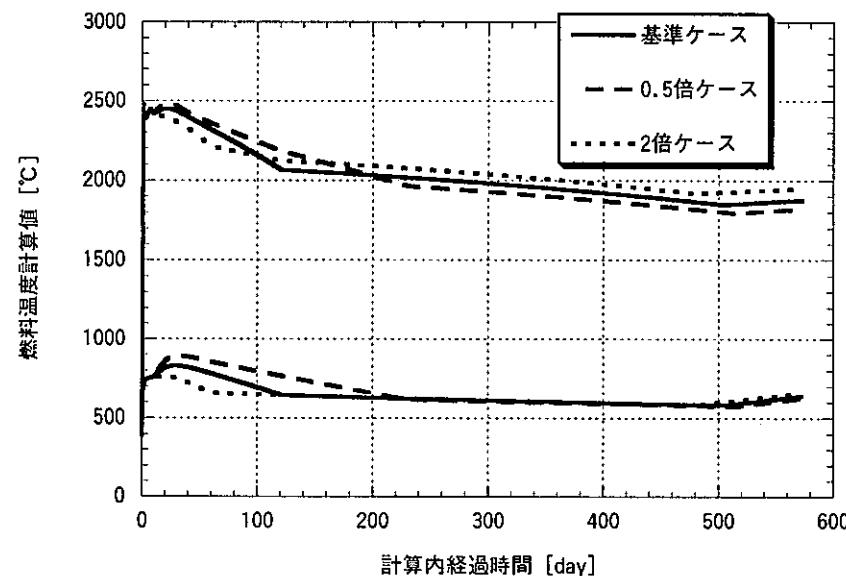


図 5-3 FP化合物量の温度評価への影響

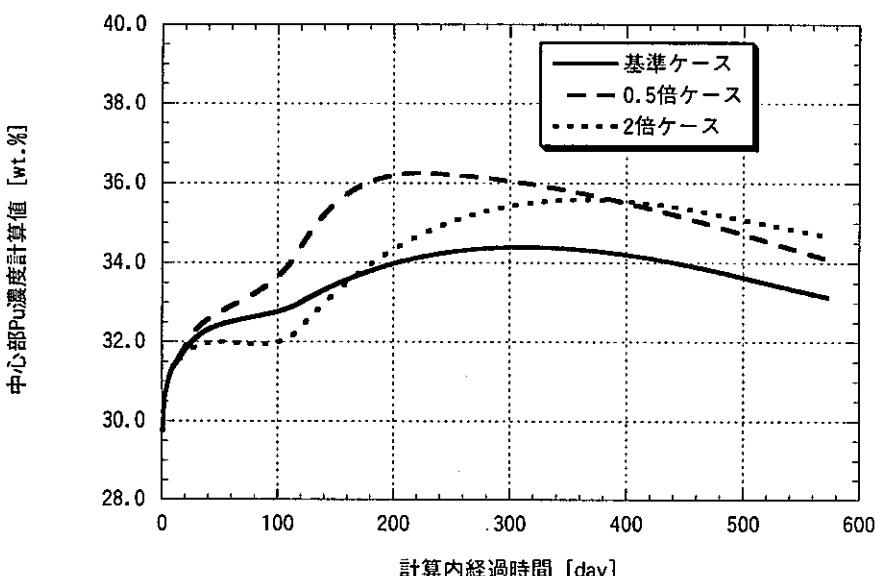


図 5-4 FP化合物量のPu再分布量評価への影響