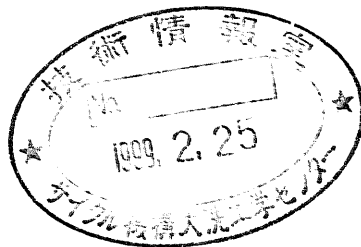


分置

高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の 熱伝導特性評価

— 照射初期用熱伝導度式の作成：その2 —

1998年11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
してください。

〒319-1194 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

Inquiries 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 319-1194,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
1998

高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の熱伝導特性評価
- 照射初期用熱伝導度式の作成：その2 -

井上賢紀*、浅賀健男*

要旨

高速炉燃料の設計評価および照射挙動評価に資するため、高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料（MOX燃料）の熱伝導特性を前報（PNC TN9410 98-014：同題その1）に引き続き検討し、照射初期段階の評価に適用する熱伝導度式を再作成することを目的とした。

熱伝導メカニズムを考慮すると、気孔を含む燃料の熱伝導度（ λ ）は、気孔率ゼロの燃料の熱伝導度（ λ_0 ）と気孔効果の補正式（F）の積で表わされる（ $\lambda = F \lambda_0$ ）。

今回の評価では、前報と同様に、気孔率ゼロの燃料に対する熱伝導度式を作成することにした。

前報に対し、熱伝導度式の作成に利用するデータベースの選定基準を見直し、複数の測定方法および測定機関による測定値が同等のデータを採用した。気孔率の影響が比較的小さいと推定される高密度燃料（相対密度～95%）の測定結果（221点）をデータベースとした。

データベースの値を気孔効果の補正式（修正Loeb式： $F = 1 - 2.5P$ （Pは気孔率））を用いて気孔率ゼロの値に換算した後に、最小自乗法プログラムを用いてフィッティングし、下式を得た。なお、高温領域のデータ不足を補う手段として、 UO_2 燃料とMOX燃料の物性が近いことに着目し、Hardingの報告した UO_2 燃料用熱伝導度式の電子伝導項をそのまま適用した。

$$\lambda_0 = \frac{1}{0.06059 + 0.2754\sqrt{2 - O/M} + 2.011 \times 10^{-4}T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right)$$

λ_0 ： 気孔率ゼロの燃料の熱伝導度（W/mK）
T： 温度（K）
O/M： O/M比（-）

フィッティングに使用したデータベースはPu富化度20～30%、O/M比1.98と2.00、相対密度94.3～96.4%、温度64～2279℃の範囲であるが、上式は高速炉用MOX燃料ペレットの一般的な製造仕様の範囲に対して常温から融点まで適用可能と考えられる。

* 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

Thermal Conductivity of Beginning-Of-Life Uranium-Plutonium Mixed Oxide Fuel for Fast Reactor (Secondary Report)

Masaki INOUE*, Takeo ASAGA*

Abstract

Thermal conductivity of uranium-plutonium mixed oxide fuel for fast reactor at beginning-of-life was re-correlated** in order to apply to the fuel design and the fuel pin performance analysis.

Thermal conductivity of actual fuel with porosity (λ), that of fully dense fuel (λ_0) and porosity correction factor (F) has theoretically the following correlation: $\lambda = F \lambda_0$. The database (221 points) were selected by adopting following criteria: "validated by different authors and methods" and "high density fuel specimens around 95% of theoretical density".

The database were corrected to fully dense condition by modified Loeb equation: $F = 1 - 2.5P$ (P: fractional porosity) and then correlated by the least square method program. The electron conduction term of uranium dioxide reported by Harding was used in order to compensate for the lack of the high temperature range data. New correlation for fully dense fuel was developed again and shown below, which the data base used in the analysis ranged from 20 to 30% for plutonium content in heavy metal atoms, 1.98 and 2.00 for oxygen to metal ratio, from 94.3 to 96.4% of theoretical density and from 64 to 2279°C for temperature.

$$\lambda_0 = \frac{1}{0.06059 + 0.2754\sqrt{2 - O/M} + 2.011 \times 10^{-4}T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right)$$

where

λ_0 : Thermal conductivity of fully dense MOX fuel for fast reactor (W/mK)

T: Temperature (K)

O/M: Oxygen-to-metal ratio (-)

The above correlation could be applied for fully dense and typical MOX fuel pellet of fast reactor ranging from room temperature up to melting point.

* Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division, Oarai Engineering Center

** Previous Report; "Thermal Conductivity of Beginning-Of-Life Uranium-Plutonium Mixed Oxide Fuel for Fast Reactor (Interim Report)", PNC TN9410 98-014

〈目次〉

1. 序論	1
1.1 課題	1
(1) PNC' 97式の適用性の問題	1
(2) PNC' 97式の作成方法	1
1.2 PNC' 97式の問題点	1
1.3 評価の目的	2
2. 定比組成のUO ₂ 燃料とMOX燃料の熱伝導特性の比較検討	3
2.1 データベース	3
(1) 対象	3
(2) 比熱(関連物性値の取扱い)	3
(3) 気孔効果の補正	3
2.2 比較検討	3
(1) UO ₂ 燃料の熱伝導度測定結果の比較	3
(2) MOX燃料の熱伝導度測定結果の比較	4
(3) UO ₂ 燃料とMOX燃料の相互比較	4
3. 高速炉用MOX燃料の熱伝導度式の作成	5
(1) 作成方法	5
(2) 作成結果	5
4. まとめ	6
4.1 熱伝導度式の作成結果	6
4.2 今後の課題	6
(1) 熱伝導度実測データに基づく検証	6
(2) 気孔効果の補正係数の設定	6
(3) 理論検討	6
5. 謝辞	7
6. 参考資料・参考文献	7
付録	18

〈表図リスト〉

図 1	UO ₂ 燃料の熱伝導度測定データ	9
図 2	Pu-Thermal用MOX燃料の熱伝導度測定データ	10
図 3	高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データ：その1	11
図 4	高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データ：その2	12
図 5	化学量論組成の高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データとUO ₂ 熱伝導度式 (Harding式とDelette式)との比較	13
図 6	高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データと新規作成式との比較：その1	14
図 7	高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データと新規作成式との比較：その2	15
図 8	PNC' 97式とPNC' 98式のO/M比依存性の比較	16
図 9	PNC' 98式・Delette式・Harding式の比較	17
表 A	UO ₂ 燃料に係わる活性化エネルギー (U：電荷担体生成、V：電荷担体移動度、W：電気伝導)	25
図 A	UO ₂ 燃料の電気伝導度	26
図 B	MOX燃料の電気抵抗率測定結果その1(温度依存性)(Berggren)	27
図 C	MOX燃料の電気抵抗率測定結果その2(温度依存性)(Schmitz)	28
図 D	MOX燃料の電気抵抗率その3(O/M比依存性)(Baily)	29
図 E	MOX燃料の電気抵抗率その4(O/M比依存性)(Aitken)	30
図 F	MOX燃料の電気抵抗率その5(Pu富化度依存性)(Baily)	31
図 G	MOX燃料の電気抵抗率その6(Pu富化度とO/M比への依存性)(Kurihara)	32
図 H	UO ₂ ・MO _{2-x} ・PuO ₂ の電気抵抗率の比較	33
図 I	MOX燃料の電荷担体の濃度と移動度(Kurihara)	34

1. 序論

1.1 課題

(1) PNC'97式の適用性の問題

高速炉燃料の照射初期段階における設計評価および照射挙動評価への適用を目的として、1997年に新しい熱伝導度式（以後、PNC'97式と略称する）を作成(ref.1)した。

PNC'97式を溶融限界線出力評価試験結果と計測線付照射試験結果に適用してギャップコンダクタンス評価を行ったところ、燃料表面温度が被覆管内面温度よりも低くなる（ギャップコンダクタンスが負になる）ケースが認められ、PNC'97式に改良の余地があることがわかった。

(2) PNC'97式の作成方法（詳細は(ref.1)参照）

PNC'97式では、気孔率Pの燃料ペレットの有効熱伝導度を、気孔率ゼロの燃料の熱伝導度式と気孔効果の補正式（修正Loeb式）の積で表わす方式（(1-1)式）を採用した。

$$\lambda = F\lambda_0 \quad (1-1)$$

$$F = 1 - \alpha P \quad (1-2)$$

ここで、(1-1)式と(1-2)式の λ 、 λ_0 、 F 、 α はそれぞれ下記のとおりである。

λ : 気孔率Pの燃料ペレットの有効熱伝導度 (W/mK)

λ_0 : 気孔率ゼロの燃料の熱伝導度 (W/mK)

F : 気孔効果の補正式 (-)

α : 補正係数

実際の燃料ペレットでは、気孔率が同じでも気孔の分布状態によって熱伝導特性に及ぼす気孔効果（(1-2)式の α ）は異なる。そこで、気孔の径と分布状態がほぼ同等と推定される高密度燃料試料の熱伝導度データを使用し、 λ_0 と高密度燃料用の α を最初に得た。気孔率と分布状態が大きく異なると判断される燃料ペレットについては、熱伝導度の実測データをもとに別途 α を設定する方針にした。

Pu富化度17～30%、O/M比1.90～2.00、相対密度90～98%、温度400～2090℃の範囲の熱伝導度データをフィッティングし、(1-3)式と高密度燃料用の補正係数 $\alpha = 2.95$ を得た。データベースは、レーザーフラッシュ法によって測定され、かつ、熱拡散率が報告されている公開資料に限定した。

$$\lambda_{PNC'97} = \frac{1}{-0.03237 + 0.8606\sqrt{2 - O/M} + 0.002998 + 2.483 \times 10^{-4} T} + 75.27 \times 10^{-12} T^3 \quad (1-3)$$

ここで、(1-3)式の $\lambda_{PNC'97}$ 、 T 、 O/M はそれぞれ下記のとおりである。

$\lambda_{PNC'97}$: 気孔率ゼロの燃料の熱伝導度（PNC'97式） (W/mK)

T : 温度 (K)

O/M : O/M比 (-)

1.2 PNC'97式の問題点

PNC'97式を溶融限界線出力評価試験結果と計測線付照射試験結果に適用して燃料表面温度を計算したところ、燃料表面温度が被覆管内面温度よりも低くなるケースが認められ、PNC'97式に改良の余地があることがわかった。

燃料表面温度が被覆管内面温度よりも低くなる現象は、PNC'97式の作成にあたって採用したデータベースと式の作成方法に起因している可能性が考えられる。

(a) 採用したデータベースに起因した問題点（データベースの偏在）

PNC'97式は、仏国CEAの公開報告書2件(ref.2,3)と原研の公開文献1件(ref.4)の計3件の公開資料に掲載されたデータをもとにFittingして作成されている。原研の公開文献はOM比=2.00・相対密度95.9%の1種類のデータのみである。PNC'97式のデータベースは、明らかに特定の研究開発機関の公開資料に偏っている。

また、測定手法をレーザーフラッシュ法に限定したため、データベースの信頼性を複数の測定手法と測定者のデータに基づき確認できていなかったとの見方もできる。

(b) 作成方法に起因した問題点（高温領域>1800℃のデータ不足）

溶融限界線出力評価試験結果を利用したギャップコンダクタンス評価には、融点まで適用可能な熱伝導度式が要求される。しかし、PNC'97式は400～2090℃の熱伝導度データをフィッティングして作成されており、フィッティングに使用した321点のうち、1800℃以上は29点、2000℃以上は5点であり、高温領域(>1800℃)のデータ点数は十分とは言えない。具体的には、1800℃超で顕著になる電子伝導の寄与（(1-3)式の $75.27 \times 10^{-12} T^3$ 項）が、適切に表わされていない可能性が考えられる。

高速炉用MOX燃料の高温領域の熱伝導度測定データは（軽）水炉用 UO_2 燃料に比較すると少なく、レーザーフラッシュ法に限定したことで高温領域のデータ点の不足を助長したとの見方もできる。

1.3 評価の目的

1.2で述べた問題点に対応し、以下の方針のもと、データベースの見直しおよび高温領域のデータ不足の解消の可能性を検討し、気孔率ゼロの高速炉用MOX燃料に対する熱伝導度式を新たに作成する。

- (a) 高速炉用MOX燃料の熱伝導特性について、 UO_2 燃料・プルサーマル用MOX燃料との比較検討を行い、高温領域のデータ不足状態の改善方策を模索する。
- (b) データの信頼性を複数の測定方法（レーザーフラッシュ法に限定することなく）と測定機関によってクロスチェックを行った上でデータベースに採用する。

2. 定比組成の UO_2 燃料とMOX燃料の熱伝導特性の比較検討

2.1 データベース

(1) 対象

UO_2 燃料・プルサーマル用MOX燃料・高速炉用MOX燃料の3種類の酸化物燃料について、公開文献を対象に熱伝導度測定データ(ref.2-13)と熱伝導度式(ref.14-17)の調査を行った。 UO_2 燃料とプルサーマル用MOX燃料については、以下の基準を設け、収集範囲を絞込んだ。また、熱伝導度測定値が表形式で報告されていない文献については、図をイメージスキャナーで読み込みデジタル値に変換した。

- ・ 定比組成 : O/M比=2.00 ($1.995 \leq \text{O/M} \leq 2.004$)
- ・ 高密度燃料 : $\rho \geq 93\% \text{TD}$ ($P \leq 0.07$)

結果として、レーザーフラッシュ法・電子線加熱法・中心加熱法の3種類の測定方法による熱伝導度測定データを収集した。

(2) 比熱 (関連物性値の取扱い)

レーザーフラッシュ法と電子線加熱法による熱伝導度測定結果は、熱拡散率に乗じた比熱と密度の精度に影響 (熱伝導度=熱拡散率×比熱×かさ密度) されるが、今回の評価では UO_2 燃料とプルサーマル用MOX燃料に対しては原著の熱伝導度の値をそのまま採用した (熱拡散率の報告値があっても独自に熱伝導度への換算は行わなかった)。

また、高速炉用MOX燃料については、熱拡散率の報告値があるデータ(ref.2-4)についてはPNC'97式作成段階で熱伝導度に換算した値を採用した。

(3) 気孔効果の補正

熱伝導度測定結果は修正Loeb式の $F=1-\alpha P$ ($\alpha=2.5$ (ref.18)) を用いて気孔率ゼロの値に換算することにした。 $\alpha=2.5$ は元々 UO_2 燃料に対して推奨されている値ではあるが、Martin(ref.19)は UO_2 燃料とMOX燃料の気孔効果は同等と考えられるので、 UO_2 燃料の気孔効果の補正係数はMOX燃料にもそのまま適用できると述べている。そのため、 UO_2 燃料の α をMOX燃料に適用しても問題ないと判断した。

2.2 比較検討

(1) UO_2 燃料の熱伝導度測定結果の比較

図1は、 UO_2 燃料の熱伝導度測定結果(ref.5-8)および熱伝導度式(ref.15,16)を比較したものである。図1(a)はレーザーフラッシュ法、図1(b)(c)は中心加熱法による測定結果である。熱伝導度式は、Delette式(ref.16):(2-1)式、Harding式(ref.15):(2-2)式である。ちなみに、Delette式は図1(b)▲と(ref.20)をベースに作成されている。

$$\lambda_{\text{Delette}} = \frac{1}{0.034944 + 2.2430 \times 10^{-4} T} + \frac{6.157 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16340}{T}\right) \quad (2-1)$$

$$\lambda_{\text{Harding}} = \frac{1}{0.0375 + 2.165 \times 10^{-4} T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right) \quad (2-2)$$

ここで、(2-1)式と(2-2)式の λ_{xxx} 、 T はそれぞれ下記のとおりである。

- λ_{xxx} : 気孔率ゼロの UO_2 燃料の熱伝導度 (W/mK)
- T : 温度 (K)

1800℃未満では熱伝導度式間の一致もよく、熱伝導度式は2本ともデータ点のほぼ中心に位置しており、測定方法による違いも識別できない。しかし、1800℃超では、2式の相違が明確になる。

図1(c)は相対密度98% ($97.5 \leq \rho \leq 98.4\%$) の試料に限定し、原著の熱伝導度測定データ(気孔率ゼロの値に換算していない値)をプロットした。図1(b)(c)からは、複数の研究開発機関による試験データとの整合性は、Harding式の方が良好である。

(2) MOX燃料の熱伝導度測定結果の比較

図2は、プロサーマル用MOX燃料(Pu富化度：8～10%)のレーザーフラッシュ法による測定結果(ref.9,10)である。測定値は UO_2 燃料の熱伝導度式に近く、Pu富化度の効果はないように見える。

図3は、定比組成(O/M比=2.00)の高速炉用MOX燃料(Pu富化度：20～30%)の測定結果(ref.2,4,7,11,13)であり、図3(a)はレーザーフラッシュ法による測定結果、図3(b)は中心加熱法による測定結果である。なお、図3中にプロットしたHilbert式(現行の燃料設計用熱伝導度式)((2-3)式)(ref.14)は、気孔率ゼロの燃料の場合、式の構造上O/M比依存性がなくなっている。

$$\lambda_{Hilbert} = 1.169 + \frac{100}{\left\{0.06717 + \frac{0.02226P}{O/M - 1.90}\right\}(T - 273.15)} + 7.214 \times 10^{-11}(T - 273.15)^3 \quad (2-3)$$

ここで、(2-3)式の $\lambda_{Hilbert}$ 、P、O/M、Tはそれぞれ下記のとおりである。

$\lambda_{Hilbert}$:	熱伝導度 (Hilbert式) (W/mK)
P :	気孔率 (-)
O/M :	O/M比 (-)
T :	温度 (K)

全体として、測定方法と測定機関による差異は非常に小さい。1800℃超ではデータ点は少ないが、Philipponneau式とPNC'97式のいずれに対しても近い値を示している。

図4はO/M比をパラメータにプロットしており、(a)・(b)・(c)・(d)はそれぞれO/M比=1.96・1.97・1.98・1.99に対応する。PNC'97式は■と□をもとにフィッティングされている。レーザーフラッシュ法による測定値は、O/M比=1.96とO/M比=1.98では中心加熱法と電子線加熱法による測定値よりも低めの値を示す傾向が認められる。O/M比=1.97では、電子線加熱法による3種類の燃料ペレットロットに対する結果があるが、1ロットを除くと、O/M比=1.96とO/M比=1.98の場合と同様に、レーザーフラッシュ法による測定値は電子線加熱法による測定値よりも低めの値を示す傾向が認められる。

(3) UO_2 燃料とMOX燃料の相互比較

図5(a)(b)は、図3(a)(b)のデータに UO_2 燃料の熱伝導度式をオーバープロットしたものである。Pu富化度20%の定比組成のMOX燃料の熱伝導度は、 UO_2 燃料に比較して、Martin(ref.19)は5%・Lippens(ref.21)は8%低下すると報告しているが、図5をみると、定比組成の場合は UO_2 燃料とMOX燃料の熱伝導度は同等になっている点が注目される。図5(b)によると、1800℃超の高温領域の熱伝導特性は、Laskiewicz(ref.7)のみではあるが、Harding式に近い領域に分布している。

3. 高速炉用MOX燃料の熱伝導度式の作成

(1) 作成方法（「付録」参照）

高速炉用MOX燃料の高温領域の熱伝導メカニズムが UO_2 燃料と同じであれば、熱伝導度式の基本構造は共通になる。今回は、高速炉用MOX燃料の高温領域（ $>1800^\circ\text{C}$ ）の熱伝導特性が UO_2 燃料と同一であると仮定し、熱伝導度式を作成を試みた。

データベースは、複数の測定方法と測定機関によるデータの比較検討が可能なOM比=1.98とOM比=2.00の2レベルに限定した。OM比=1.98については、熱伝導度がほぼ同じのElbel(ref.12)とHetzler(ref.11)のデータ（図4(c)の▲と○）、OM比=2.00については図3(a)(b)の全データである。気孔効果の補正式には修正Loeb式： $F=1-\alpha P$ を採用し、 α の値には2.5を選定した（理由は2.1(3)と同じ）。

基本構造には、フォノン伝導項と電子伝導項の2項からなる(3-2)式を採用した。フォノン伝導項の基本構造はPNC'97式と同じ、電子伝導項のGとHはHarding式と同じにした。Harding式（ UO_2 燃料）の電子伝導項を高速炉用MOX燃料にそのまま適用することの妥当性については、「付録」を参照されたい。さらに、熱伝導特性に及ぼす気孔の効果は低温から高温まで同一であると仮定した。上記のデータベースと基本構造をもとに、(3-2)式のA・B・C・Dを最小自乗法プログラムを使用して決定した。

$$\lambda = (1 - 2.5P)\lambda_0 \quad (3-1)$$

$$\lambda_0 = \frac{1}{A + B\sqrt{(2 - O/M) + C + DT} + \frac{G}{T^2} \exp\left(-\frac{H}{T}\right)} \quad (3-2)$$

ここで、(3-1)式と(3-2)式の λ 、 λ_{ideal} 、 T 、 O/M はそれぞれ下記のとおりである。

λ :	気孔率Pの燃料ペレットの有効熱伝導度 (W/mK)
λ_0 :	気孔率ゼロの燃料の熱伝導度 (W/mK)
T :	温度 (K)
O/M :	OM比 (-)

(2) 作成結果

(1)の結果、気孔率ゼロの燃料の熱伝導度式として(3-3)式（以後、PNC'98式と呼ぶ）を得た。(3-3)式を得られたCの値は 2.792×10^{-12} と小さいため、式から削除した。

$$\lambda_0 = \frac{1}{0.06059 + 0.2754\sqrt{2 - O/M} + 2.011 \times 10^{-4}T + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right)} \quad (3-3)$$

PNC'98式による計算値とデータベースとを比較した結果を図6と図7に示す。図6には100%TDに換算した値をプロットした。OM比=1.96の図6(a)とOM比=1.97の図6(b)に着目すると、PNC'98式は電子線加熱法による測定値に近い値を示す。また、図8に示すように、PNC'98式のOM比依存性はPNC'97式よりも小さい特徴がある。

データベース（使用したデータ：221点）と計算値との標準偏差は0.20W/mKであった。また、残差と計算値との比（=（測定値－計算値）／計算値）の標準偏差は6.2%であった。PNC'97式の0.13W/mKと5.8%と比較するとわずかに大きい値となった。

図9は、OM比2.00の条件でPNC'98式・Delette式・Harding式を比較した結果である。PNC'98式は、低温領域でわずかにDelette式とHarding式よりも低めの値を示すが、高温領域ではHarding式とほぼ一致している。

4.まとめ

4.1 熱伝導度式の作成結果

熱伝導度式の作成に利用するデータベースの選定基準を見直し、複数の測定方法および測定機関による測定値が同等のデータを採用した。また、 UO_2 燃料とMOX燃料の物性が近いことに着目し、 UO_2 燃料の熱伝導度式における電子伝導項をそのまま適用して高温領域のデータ不足を補うことにした。

評価の結果、気孔率ゼロの高速炉用MOX燃料の熱伝導度式として(4-1)式を得た。

$$\lambda_0 = \frac{1}{0.06059 + 0.2754\sqrt{2 - O/M} + 2.011 \times 10^{-4}T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(-\frac{16361}{T}\right) \quad (4-1)$$

ここで、(4-1)式の λ_0 、 T 、 O/M はそれぞれ下記のとおりである。

λ_0 : 気孔率ゼロの高速炉用MOX燃料の熱伝導度 (W/mK)

T : 温度 (K)

O/M : O/M 比 (-)

フィッティングに使用したデータベースはPu富化度20～30%、 O/M 比1.98と2.00、相対密度94.3～96.4%、温度64～2279℃の範囲であるが、上式は高速炉用MOX燃料ペレットの一般的な製造仕様の範囲に対して常温から融点まで適用可能と考えられる。

4.2 今後の課題

(1) 熱伝導度実測データに基づく検証

今回作成した熱伝導度式 (PNC'98式) のデータベースは全て公開資料に基づいているが、未照射燃料ペレット 8種類の熱伝導度測定が大洗工学センターの照射燃料試験施設で現在進行中である。8種類の中には、ポアフォーマー無添加の高密度燃料ペレットが4ロットが含まれている。これら4ロットの測定結果をもとに今回作成した熱伝導度式の妥当性確認 (検証) を行う予定である。

また、実機燃料ペレットの熱伝導度測定を行い、熱伝導度式の検証と実測データの拡充 (特に、ばらつきの大きさ) を行う必要がある。

(2) 気孔効果の補正係数の設定

気孔率が同じでも気孔の分布状態 (径・数密度) によって熱伝導特性が大きく異なることがわかっている。(1)の実測データを利用し、ポアフォーマーが添加されている中～低密度燃料ペレットに対してPNC'98式を適用する場合の気孔効果の補正係数: F を設定する。

(3) 理論検討

今回作成した熱伝導度式には UO_2 燃料の電子伝導項を適用 (設定) したが、広範囲の O/M 比を取るMOX燃料にそのまま適用できるかどうかの妥当性を確認できていないため、代替の手段が必要な状況にある。具体的な手段としては、熱伝導特性と密接な関係にある電気伝導特性、比熱等の物性に関する調査および検討を行い、理論的考察から妥当性を検証して熱伝導特性を予測することが有効と考えられる。

5. 謝辞

評価作業の実施にあたっては、大洗工学センターシステム技術開発部炉心燃料工学グループの水野朋保研究主幹にご助言をいただきました。

熱伝導度データのフィッティング作業にあたっては、原子力システム株式会社の伊藤昌弘氏にご協力いただきました。さらに、イメージスキャナーによるデジタル値の取得にあたっては、原子力システム株式会社の安貞憲氏にご協力いただきました。

この場を借りてお礼申し上げます。

6. 参考資料・参考文献

- (1) 井上賢紀、水野朋保、浅賀健男、「高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の熱伝導特性評価－照射初期用熱伝導度式の作成：その1」：
PNC TN9410 98-014 (1997)
- (2) J.C.VanCraeynest et.al., "Etude De La Conductibilite Thermique Des Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium", Rapport CEA-R-3488, (1968)
- (3) J.M.Bonnerot, "Proprietes Thermiques Des Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium", Rapport CEA-R-5450, (1988)
- (4) S.Fukushima et.al., "Thermal Conductivity of Near-Stoichiometric (U,Pu,Nd)₂O₇ and (U,Pu,Eu)₂O₇ Solid Solutions", Journal of Nuclear Materials, 116, P.287-296, (1983)
- (5) J.B.Conway and A.D.Feith, "An Interim Report on a Round Robin Experimental Program to Measure the Thermal Conductivity of Stoichiometric Uranium Dioxide", General Electric Company Nuclear Systems Program, GEMP-715, October (1969)
- (6) J.L.Bates, "High-Temperature Thermal Conductivity of "Round Robin" Uranium Dioxide", BNWL-1431 UC-25, July (1970)
- (7) R.A.Laskiewicz et.al., "Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide", GEAP-13733, September (1971)
- (8) P.G.Lucuta et.al., "Thermal Conductivity of Hyperstoichiometric SIMFUEL", Journal of Nuclear Materials, 223, P.51-60 (1995)
- (9) L.R.Topliss et.al., "Measurement and Analysis of MOX Physical Properties", IAEA Technical Committee Meeting on Recycling of Plutonium and Uranium in Water Reactor Fuel, New Bridge Windermere UK, July 3-7 1995, (1995)
- (10) 高坂祐二ら、「MOX燃料の熱物性測定(2)－熱容量・熱伝導率測定－」、日本原子力学会「1997秋の大会」、I54
- (11) F.J.Hetzler et.al., "The Thermal Conductivity of Uranium and Uranium-Plutonium Oxides", GEAP-4879, August (1967)
- (12) H.Elbel and H.E.Schmidt, "Characterization of Mixed Oxide Fuel Pellets with respect to their Thermal Conductivity", Proceedings of the conference held in Stratford-upon-Avon on March 25-29 1985, Vol.1, P.357-361, (1985)

- (13) H.Elbel and D.Vollath,"Experimental Correlations between Pore Structure and Thermal Conductivity", Journal of Nuclear Materials, 153, P.50-58, (1988)
- (14) R.F.Hilbert et.al,"Evaluation of Material Property Correlations Used in LIFE-II", GEAP-13967, June (1973)
- (15) J.H.Harding et.al.,"A Recommendation for the Thermal Conductivity of UO_2 ", Journal of Nuclear Materials, 166, P.223-226, (1989)
- (16) G.Delette and M.Charles,"Thermal Conductivity of Fully Dense Unirradiated UO_2 : a New Formulation from Experimental Results between 100°C and 2500°C, and Associated Fundamental Properties", IAEA Technical Meeting on "Water Reactor Fuel Element Modeling at High Burnup and Experimental Support",Bowness-on-Windermere,UK, September 18-23 1994, Paper 2.1, (1994)
- (17) Y.Philipponneau,"Thermal Conductivity of $(U,Pu)O_{2-x}$ Mixed Oxide Fuel", Journal of Nuclear Materials, 188, P.194-197, (1992)
- (18) "Thermal Conductivity of Uranium Dioxide", Report of the Panel on Thermal Conductivity of Uranium Dioxide held in Vienna in 1965, Technical Reports Series No.59, IAEA, Vienna, (1966)
- (19) D.G.Martin,"A Re-appraisal of the Thermal Conductivity of UO_2 and Mixed (U,Pu) Oxide Fuels", Journal of Nuclear Materials, 110, P.73-94, (1982)
- (20) J.P.Stora et.al."Conductibilite Thermique De L'Oxyde D'Uranium Fritte Dans Les Conditions D'Utilisation En Pile",Rapport CEA-R-2586, (1964)
- (21) M.Lippens et.al.,"Comparative Thermal Behaviour of MOX and UO_2 Fuels", OECD/NEA-IAEA International Seminar on Thermal Performance of (High Burn-up) LWR Fuel held at CEA/Cadarache on March 3-6 1998, Paper 4-3, (1998)

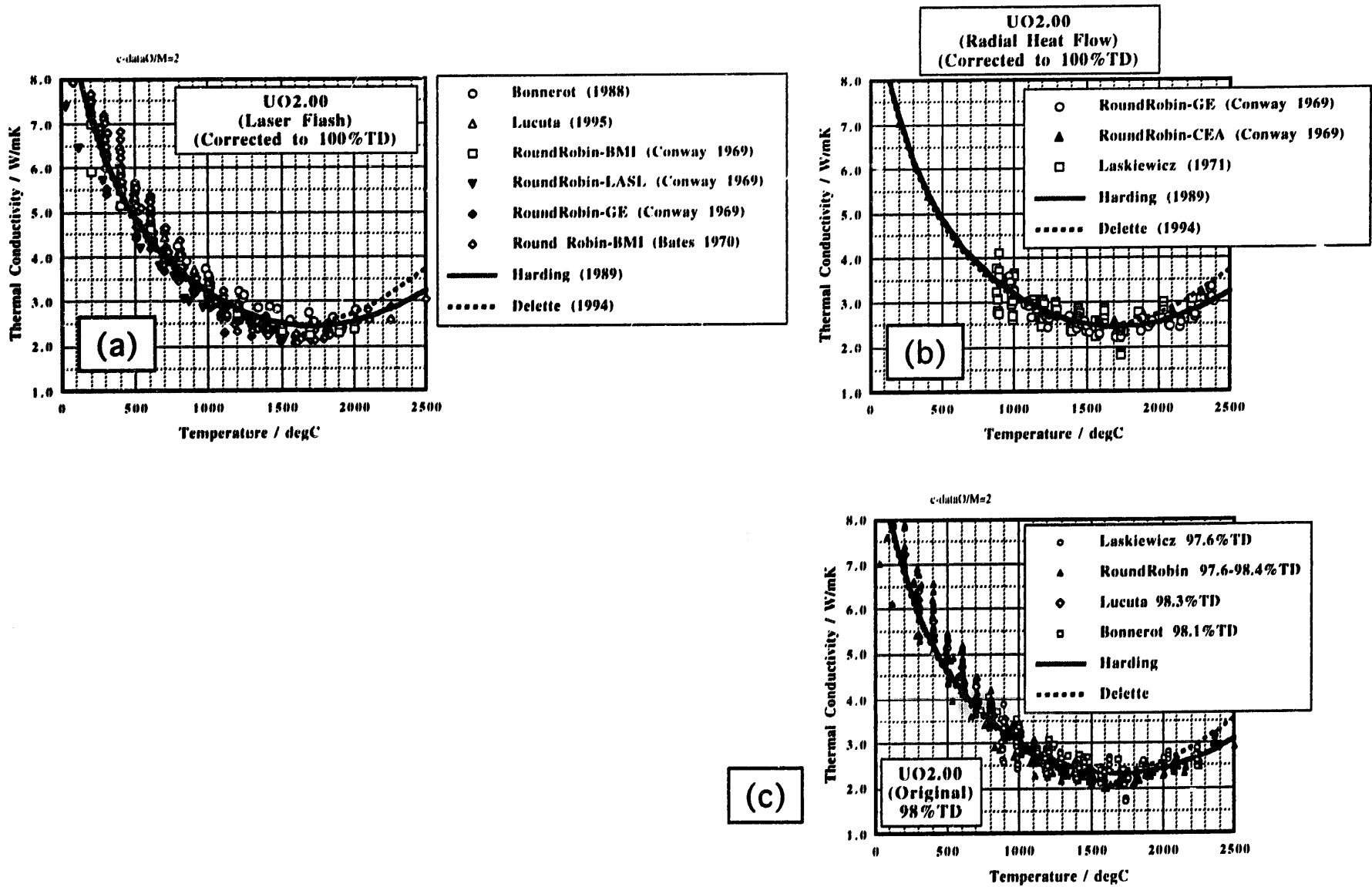


図1 UO2燃料の熱伝導度測定データ

(a) レーザーフラッシュ法 (b) 中心加熱法 (CEA,GE)
 (c) 98%TD燃料に限定した比較

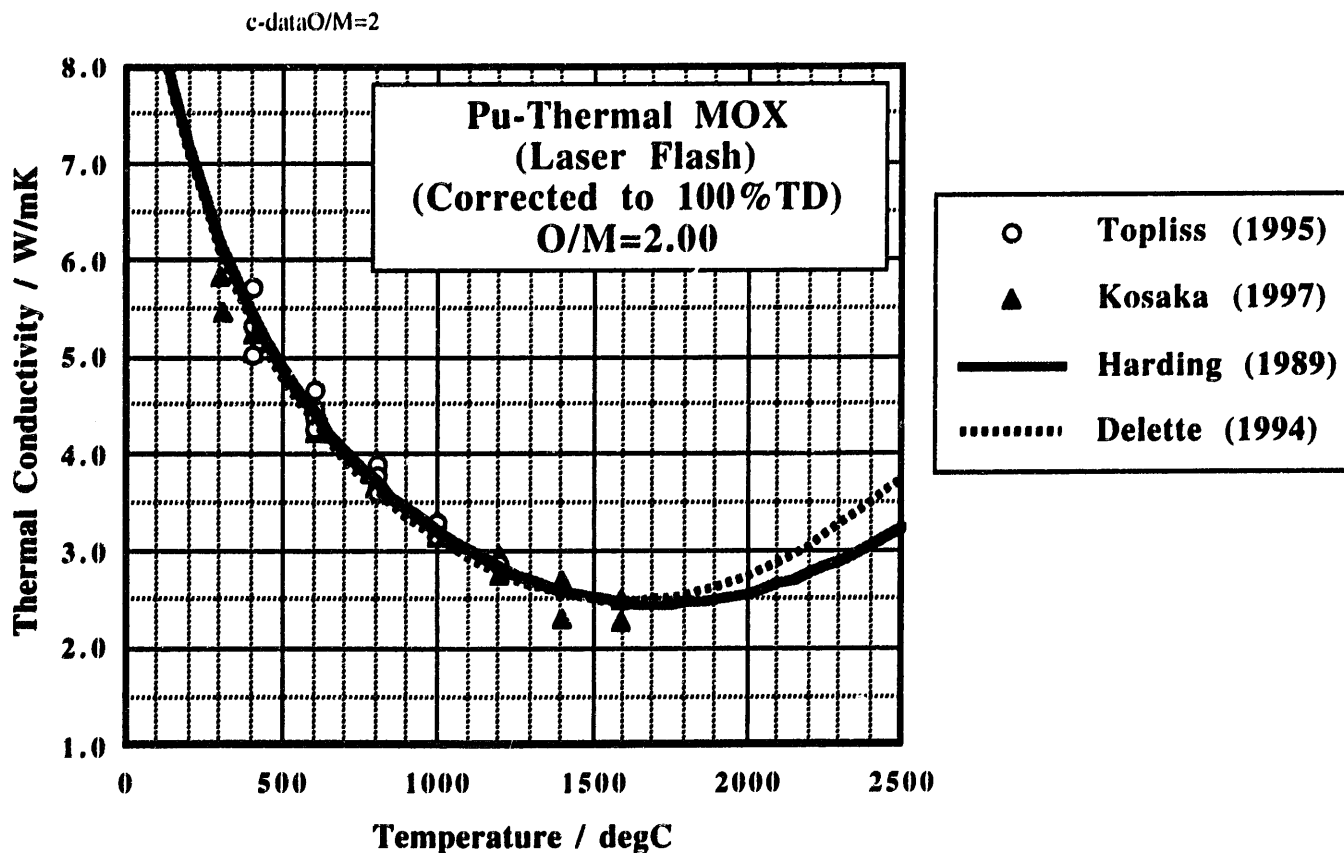


図2 Pu-Thermal用MOX燃料の熱伝導度測定データ
(ToplissとKosakaの試料のPu富化度はPu/(Pu+U)=8~10%)
(Harding式とDelette式はUO₂に対する熱伝導度式)

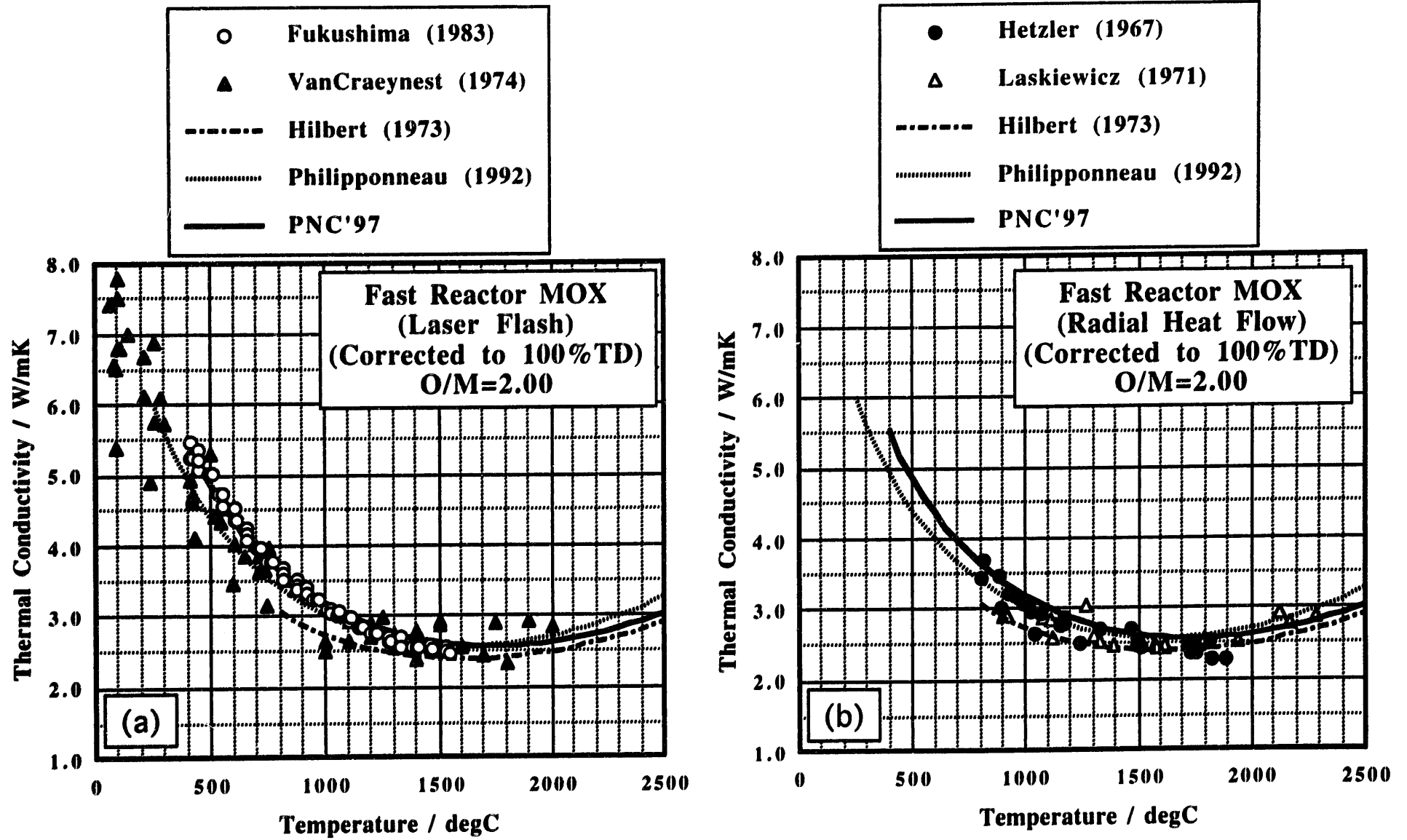


図 3 高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データ：その1
 化学量論組成：O/M比=2.00
 (a) レーザーフラッシュ法 (b) 中心加熱法

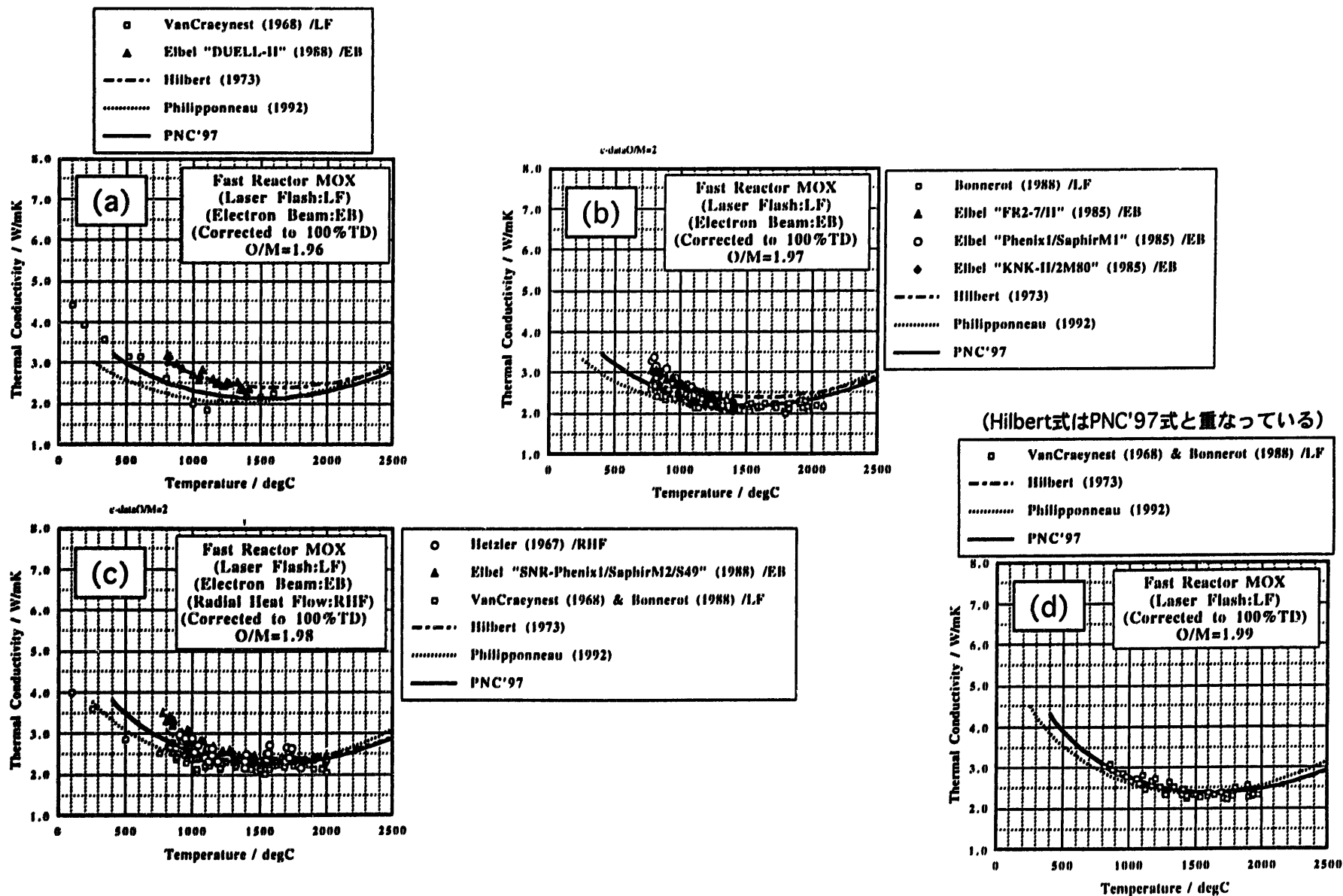


図 4 高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データ：その2

- (a) O/M比=1.96 (b) O/M比=1.97
 (c) O/M比=1.98 (d) O/M比=1.99

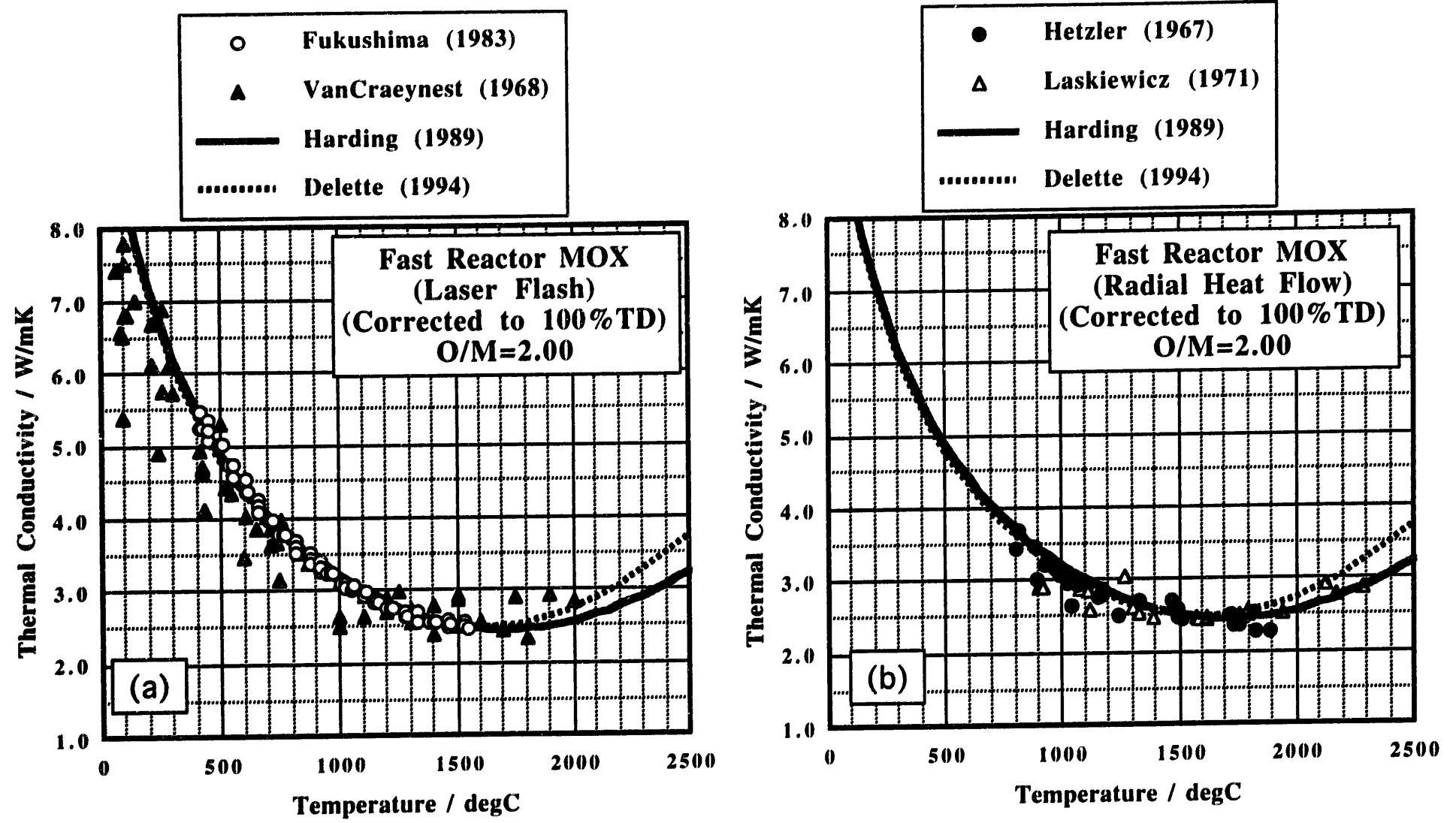


図5 化学量論組成の高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データとUO₂熱伝導度式（Harding式とDelette式）との比較

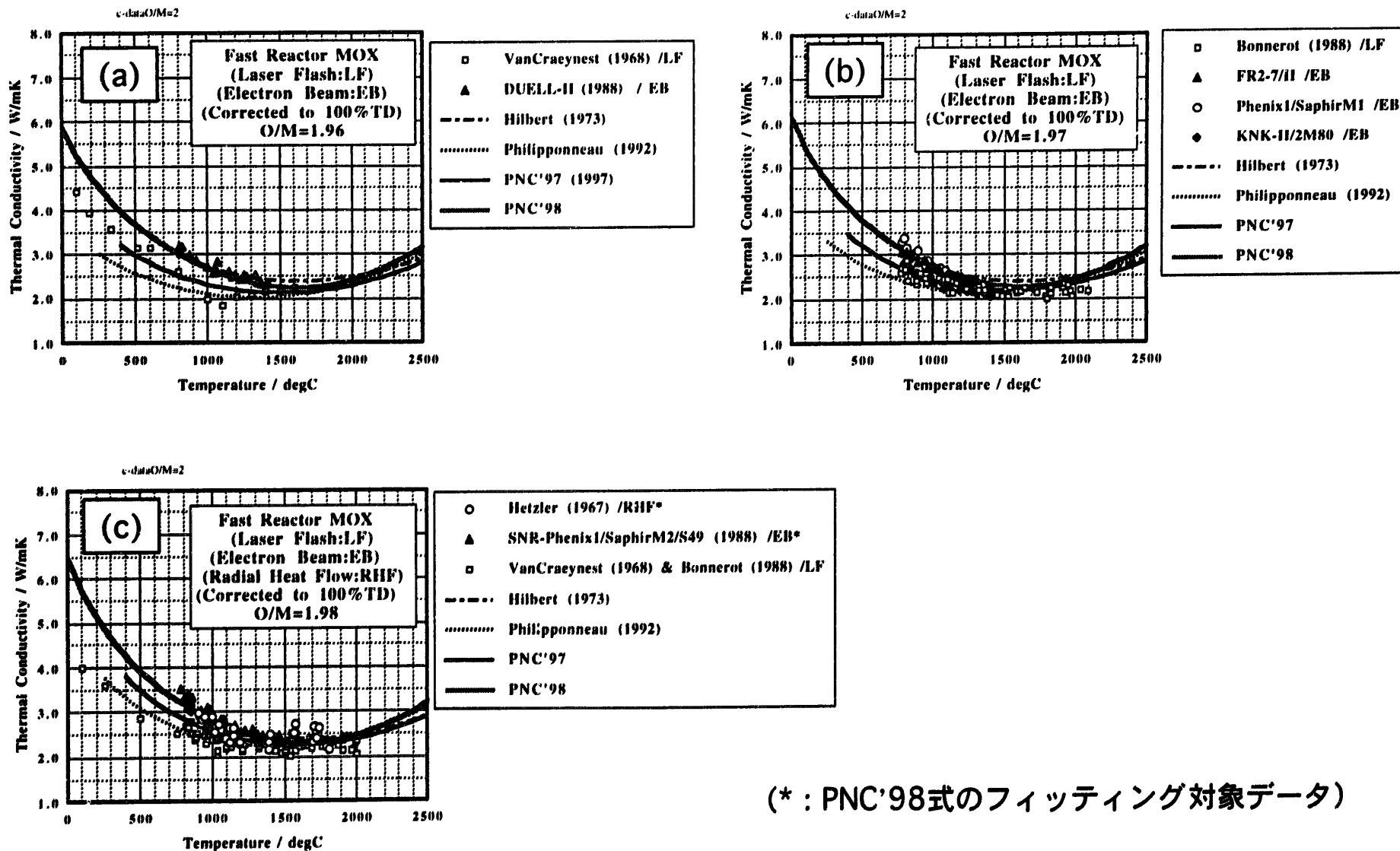


図 6 高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データと新規作成式との比較：その 1

(a) O/M比=1.96、(b) O/M比=1.97、(c) O/M比=1.98

(* : PNC'98式のフィッティング対象データ)

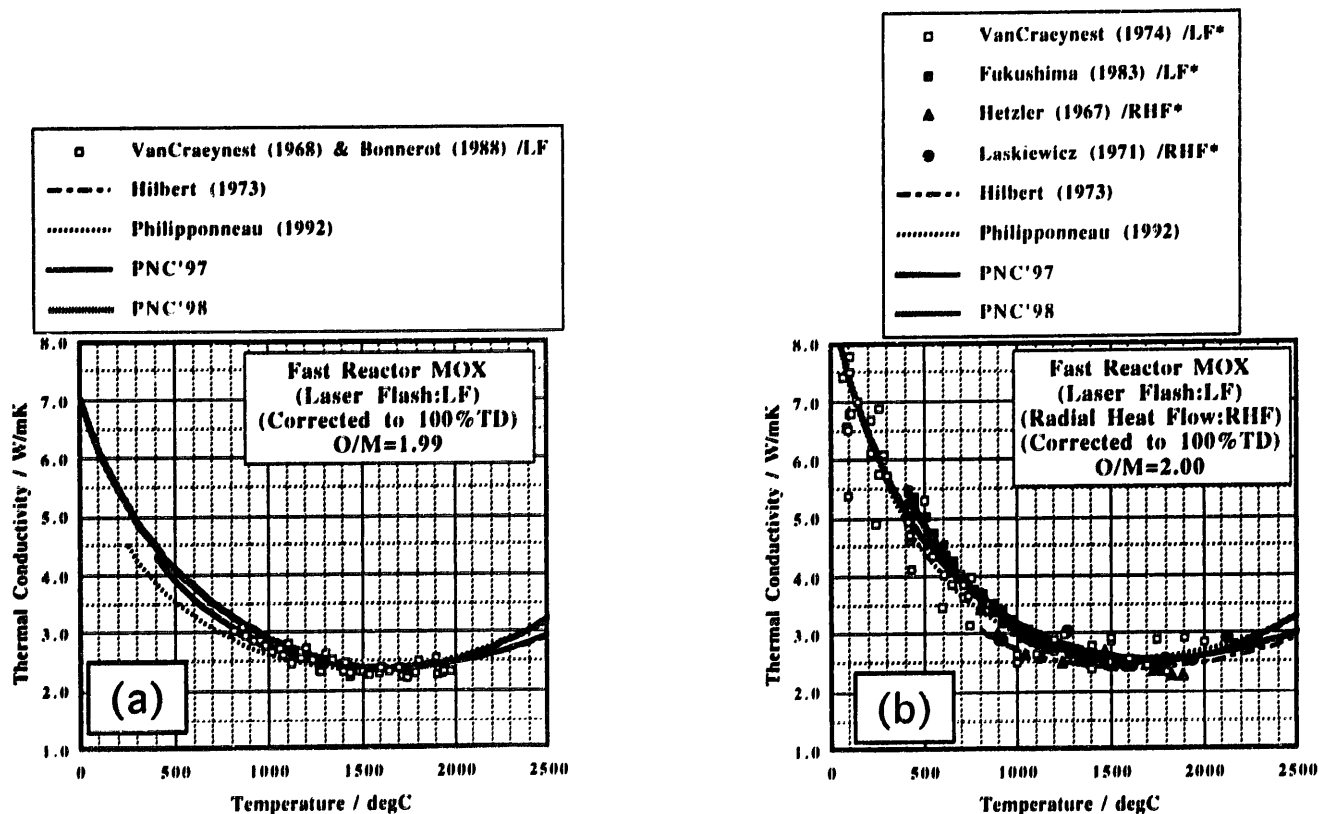


図7 高速炉用MOX燃料の熱伝導度測定データと新規作成式との比較：その2

(a) O/M比=1.99、(b) O/M比=2.00

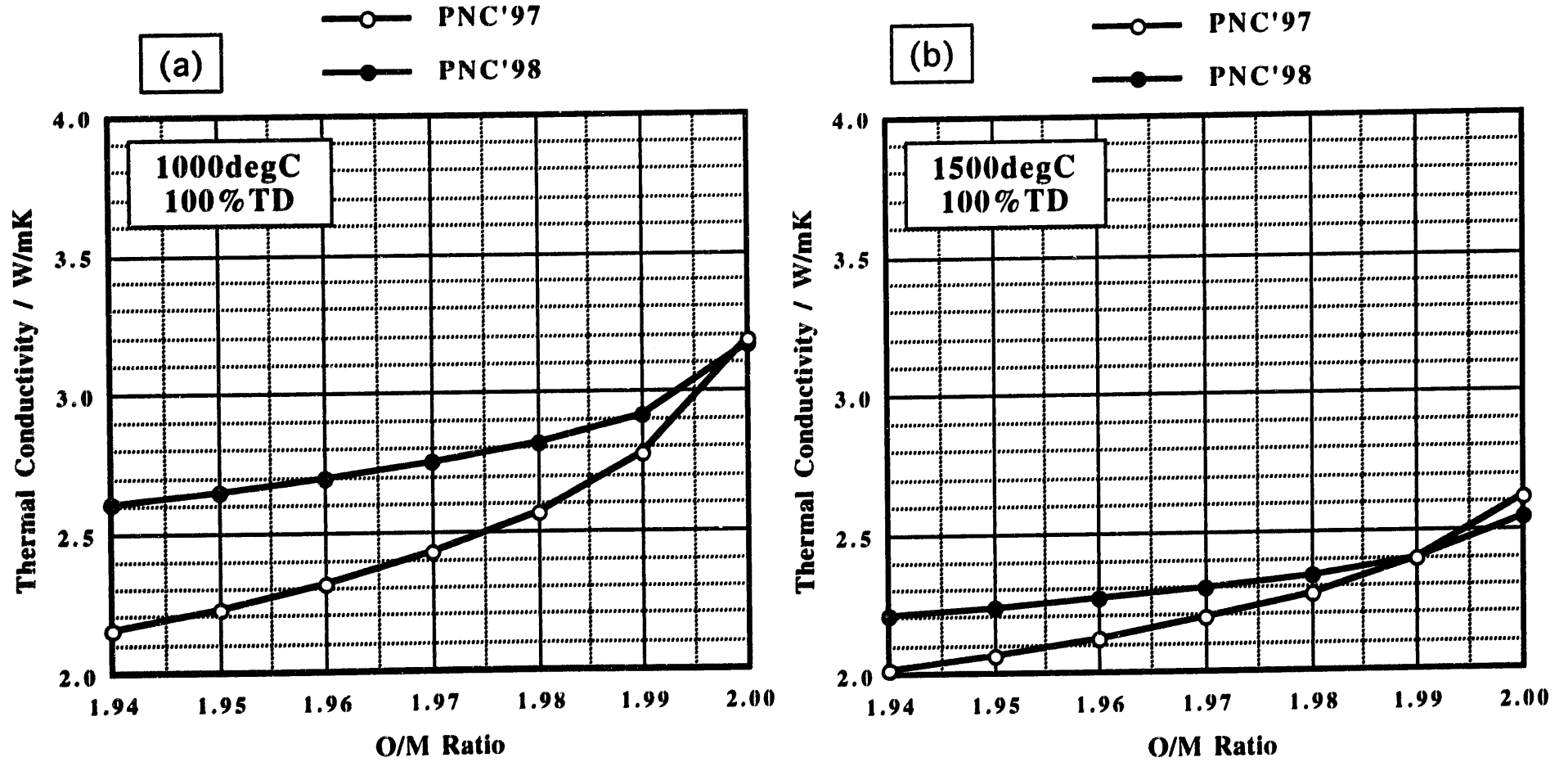


図 8 PNC'97式とPNC'98式のO/M比依存性の比較

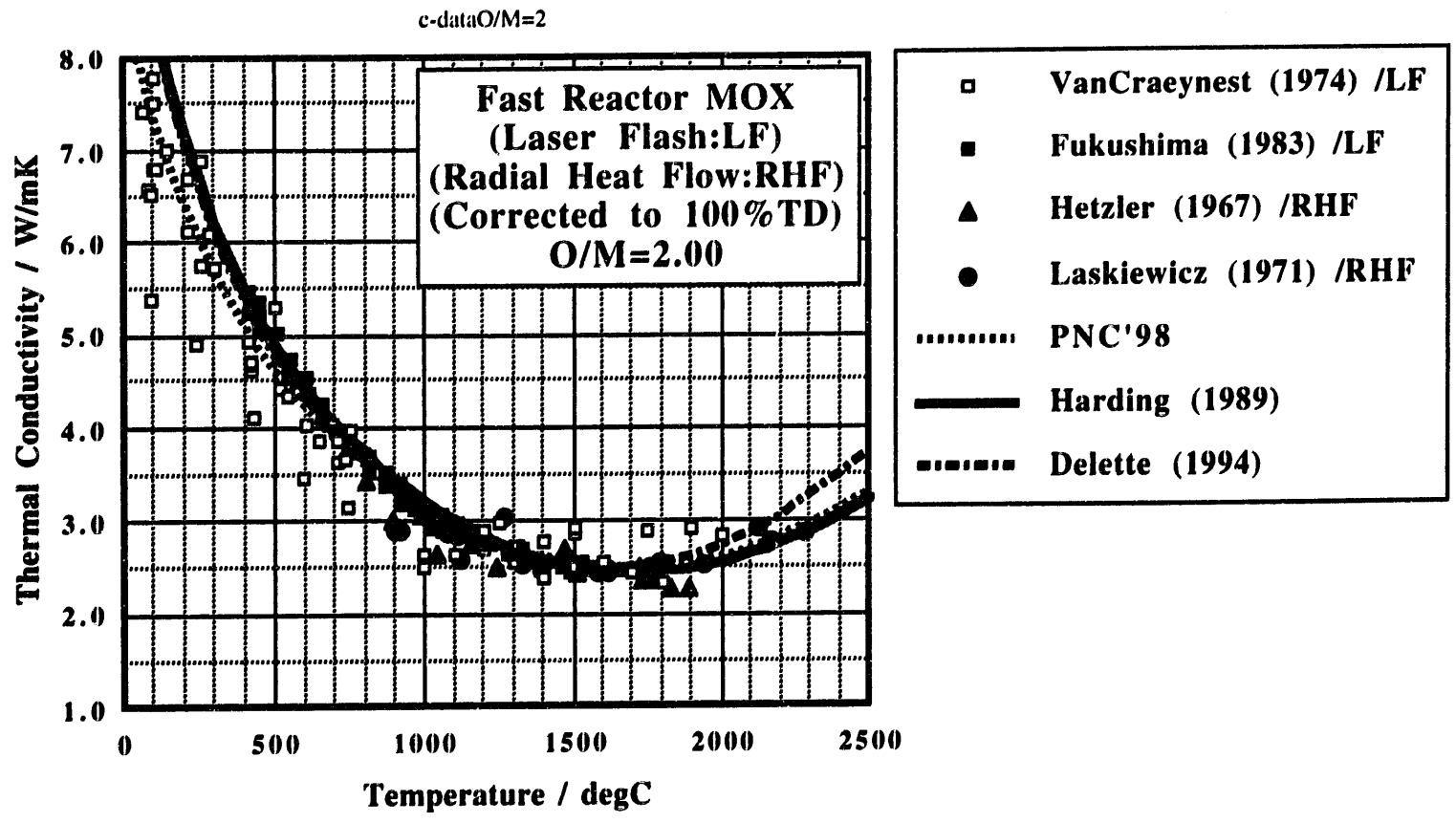


図 9 PNC'98式・Delette式・Harding式の比較
(Harding式とDelette式はUO₂燃料の熱伝導度式)

付録：酸化物燃料の熱伝導メカニズムに関する調査および検討（考察）

A-1. 序論

(1) 背景

UO₂燃料とMOX燃料の物性は似ており、その熱伝導メカニズムは共通していると考えられる。低温領域ではフォノン伝導が支配的であること、高温領域ではフォノン伝導は飽和して電子伝導の寄与が大きくなっていくこと、輻射伝導の寄与は無視できることの3点から、UO₂燃料とMOX燃料の熱伝導度式はフォノン伝導項と電子伝導項の和で表わされるのが一般的である。

MOX燃料の熱伝導度測定結果はUO₂燃料に比較して少なく、特に高温領域（>1800℃）の不足が著しい。そのため、本文では高温領域の実測データの不足を補う手段として、UO₂燃料の熱伝導度式の電子伝導項をそのまま適用し、高速炉用MOX燃料の熱伝導度式を試作した。しかし、UO₂燃料の電子伝導項を高速炉用MOX燃料に適用することの妥当性は確認されていない。

(2) 目的

付録では、下記の2つの検討作業を行い、本文の内容を補足することを目的としている。

UO₂燃料の熱伝導メカニズム（特に電子伝導）の詳細レビューとMOX燃料の熱伝導メカニズムを考察し、続く検討の助けとした。

電子伝導による熱伝導特性は電気伝導特性と密接な関係にあることから、UO₂燃料とMOX燃料の電気伝導特性の実測データを比較検討し、UO₂燃料の電子伝導項を高速炉用MOX燃料に適用することの妥当性確認を試みた。

A-2. UO_2 燃料の熱伝導メカニズムのレビュー

(1) 要素メカニズム

UO_2 燃料の熱伝導メカニズムについては、Delette(ref.A1)のレビューが詳しい。以下にDeletteのレビューを翻訳するとともに説明を一部追加して紹介する。酸化物燃料の熱伝導メカニズムにはフォノン伝導・輻射伝導・電子伝導の3種類があるが、フォノン伝導はよく知られたメカニズムであること、輻射伝導の寄与は無視できる大きさであることを考慮し、両者についての詳細な解説は省略する。

(2) フォノン伝導

フォノン伝導は結晶格子の振動によるエネルギー伝達であり、低温領域 (<1800℃) で支配的である。フォノン伝導による熱伝導度は温度の上昇とともに低下する傾向がある。

(3) 輻射伝導

輻射伝導は単結晶の場合は顕著 (熱伝導度全体に対して数十%) になるが、実際の燃料ペレットでは燃料マトリックス中の気孔と結晶粒界の影響を受けるため、その寄与は融点においても0.1%未満である。

(4) 電子伝導

UO_2 は電気伝導特性の観点からは、古典的半導体ではなく、Mott-Hubbard型絶縁体の区分に入る。1400℃未満では外因性 (Extrinsic) の電気伝導を示し、1400℃超では真性 (Intrinsic) の電気伝導を示す (図A(ref.A2)参照)。1400℃超では熱活性化過程によって電荷担体 (Charge Carriers) が生成 ((A-1)式) され、電気伝導に寄与する。絶縁体状態からの励起に必要な活性化エネルギーをMott-Hubbardエネルギーと呼ぶ。



生成した電荷担体 (電子: U^{3+} 、正孔: U^{5+}) はスモールポーラロン (Small Polaron) を形成し、温度勾配に沿って高温領域から低温領域に移動 (Hopping) して熱エネルギーを伝達する。 UO_2 の電子伝導による熱伝導度は(A-2)式で表わされる。

$$\lambda_e = \left(\frac{k}{e}\right)^2 T \frac{\sigma_n \sigma_p}{\sigma_n + \sigma_p} \left(\frac{U}{kT}\right)^2 \quad (\text{A-2})$$

λ_e	:	電子伝導による熱伝導度
k	:	ボルツマン係数
e	:	電荷
T	:	温度
σ_n	:	電子による電気伝導度
σ_p	:	正孔による電気伝導度
U	:	Mott-Hubbardエネルギー

(A-3)式と(A-4)式の関係をもとに(A-2)式を書き直すと、(A-5)式が得られる。

$$\xi = \frac{\sigma_n}{\sigma_p} \quad (\text{A-3})$$

$$\sigma = \sigma_n + \sigma_p \quad (\text{A-4})$$

$$\lambda_e = \left(\frac{k}{e}\right)^2 T \frac{\sigma \xi}{(1+\xi)^2} \left(\frac{U}{kT}\right)^2 \quad (\text{A-5})$$

UO₂では $\xi=1$ と仮定してよいので、(A-5)式は(A-6)式のように簡略化できる。

$$\lambda_e = \frac{1}{4} \left(\frac{U}{e}\right)^2 \frac{\sigma}{T} \quad (\text{A-6})$$

UO₂では電子：nと正孔：pの濃度、電子の移動度 (Mobility) : μ_n と正孔の移動度 : μ_p との間に(A-7)式と(A-8)式の関係が成り立つ。移動度は温度に依存し、(A-9)式のように書ける。

$$n=p \quad (\text{A-7})$$

$$\mu_n = \mu_p \quad (\text{A-8})$$

$$\mu_n(T) = \mu_p(T) = \mu(T) \quad (\text{A-9})$$

(A-7)式と(A-8)式が成立すれば、電気伝導度についても(A-10)式が成立する。

$$\sigma_n = \sigma_p \quad (\sigma_n(T) = \sigma_p(T)) \quad (\text{A-10})$$

(A-4)式の電気伝導度 σ は温度に依存し、(A-11)式で表わされる。

$$\sigma = \sigma(T) = 2eN_u n \mu(T) \quad (\text{A-11})$$

Nu : ウラン原子数密度

nに質量作用の法則を適用して、(A-12)式が得られる。

$$n = a \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \quad (\text{A-12})$$

a : 定数

移動度 μ は(A-13)式で表わされる。

$$\mu(T) = \frac{F}{T} \exp\left(-\frac{V}{kT}\right) \quad (\text{A-13})$$

F : 定数

V : 移動度に対する活性化エネルギー

(A-13)式を(A-11)式に代入すると、(A-14)式が得られる。

$$\sigma(T) = \frac{2eN_u a F}{T} \exp\left(-\frac{W}{kT}\right) \quad (\text{A-14})$$

$$W = \frac{U}{2} + V \quad (\text{A-15})$$

(A-14)式の定数部分を(A-16)式と置くと、(A-17)式のように整理できる。U・V・Wの値は表Aのようにまとめられている。

$$D = 2eN_u a F \quad (\text{A-16})$$

$$\sigma(T) = \frac{D}{T} \exp\left(-\frac{W}{kT}\right) \quad (\text{A-17})$$

(A-6)式と(A-17)式を組合せることによって、(A-18)式が得られる ((A-18)式は、本文の(3-2)式の第2項と同じである)。また、(A-18)式のCは(A-19)式の関係がある。

$$\lambda_e = \frac{C}{T^2} \exp\left(-\frac{W}{kT}\right) \quad (\text{A-18})$$

$$C = \frac{1}{4} \left(\frac{U}{e}\right)^2 D \quad (\text{A-19})$$

A-3 .MOX燃料の熱伝導特性に関する検討

A-3.1 MOX燃料における電子伝導による熱伝導特性

(1) UO_2 燃料との相違

UO_2 燃料とMOX燃料の物性を比較する場合、次の2点に留意する必要がある。

・Puの固溶効果

・非化学量論組成の効果（高速炉燃料では一般に亜化学量論組成：OM比<2）

(2) 定比組成（OM比=2.00）のMOX燃料の電子伝導による熱伝導特性

定比組成の場合、UとPuは+4価（ U^{4+} , Pu^{4+} ）、Oは-2価（ O^{2-} ）のイオンを形成していると予想され、基本的には UO_2 の場合と同様である。したがって、MOXも UO_2 の場合と同様に、高温では熱活性化過程によって(A-20)の反応式で表わされる電子と正孔の対（スモールポーラロン）が生成され、温度勾配に沿って高温領域から低温領域に移動して熱エネルギーを伝達すると考えられる。



(3) 亜化学量論組成のMOX燃料の電子伝導による熱伝導特性

亜化学量論組成（OM比<2.00）の場合は酸素不足のため、Oは全て O^{2-} を形成しているが、UとPuの一部は M^{4+} から還元され、 M^{3+} として存在すると予想される。通常は、Uは U^{4+} を保ち、Puの一部が Pu^{4+} から Pu^{3+} に還元された状態（(A-21)式）にあると考えられる。+3価に還元された金属原子（ M^{3+} ）の全金属原子（M）に対する割合（ M^{3+}/M ）は、(A-22)式で表わされる（Xは定比組成からのずれ=2-OM比）。



OM比が小さくなると、(A-21)式で生成される「e」濃度は増大するが、結晶格子のひずみの効果が大きくなって「e」の移動度を減少させる効果も同時に発生すると予想される。つまり、OM比が低下にともない、単調に電気伝導度（電気抵抗率の逆数）が増大することはないと考えられる。

また、高温領域ではExtrinsic分（(A-21)式の「e」による電気伝導特性）にIntrinsic分が加わると予想される（亜化学量論組成の場合も(A-20)式によって電子と正孔の対が生成され、温度勾配に沿って高温領域から低温領域に移動して熱エネルギーを伝達すると考えられる）。

A-3.2 電気伝導特性の実測データ調査と検討

(1) 収集したデータの整理

A-3.1で述べたように、MOX燃料の電子伝導による熱伝導特性を検討する場合、電気伝導特性を把握しておくことが望ましい。しかし、MOX燃料の電気伝導特性に関する報告例は非常に少なく、現在までのところ、Kurihara(ref.A3)・Schmitz(ref.A4)・Baily(ref.A5)・Aitken(ref.A6)・Berggren(ref.A7)の5件を入手できたに過ぎない。測定された温度範囲は(ref.A3-A6)が約800℃まで、(ref.A7)が約1700℃までである。

図Bは定比組成の試料に対する測定結果である。また、図C～図GはPu富化度とOM比が異なる試料に対する測定結果である。

図Hは UO_2 燃料に対する測定結果（図Aの電気伝導度の逆数=電気抵抗率）をプロットしてある。図Hには、図B・図C・図Gから読み取った値、Berggren(ref.A7)が PuO_2 に対して測定した値もオーバープロットした。

(2) 定比組成 (OM比=2.00) の場合

図Hをみると、定比組成のMOX燃料に対するBerggrenの報告値は UO_2 燃料に近い値を示している。特に注目されるのは、Berggrenの測定結果は 800°C ($0.9 \times 10^3 \text{K}^{-1}$) 付近で電気抵抗率が飽和する傾向を示している点である。BerggrenはExtrinsicからIntrinsicな電気伝導特性への遷移の可能性を指摘している(ref.A7)。

Berggrenの指摘が正しければ、 $0.5 \times 10^3 \text{K}^{-1}$ を超える高温領域では「Intrinsic」分の付加による電気抵抗率の低下が生じ、 UO_2 の0.3~0.8のような直線的な電気抵抗率の低下現象が現れると予想される（ PuO_2 の $0.55 \sim 0.71 \times 10^3 \text{K}^{-1}$ にその傾向が現れている?）。この予想が正しければ、定比組成のMOX燃料の熱伝導特性が UO_2 燃料と良く一致している現象（本文図5）とよく整合していることになる（逆もまた真か?）。

(3) OM比依存性

図Hに示すように、亜化学量論組成のKuriharaの測定結果は UO_2 燃料の傾向とは異なっており、 UO_2 燃料では $0.7 \times 10^3 \text{K}^{-1}$ (1400°C) 付近に現れているExtrinsicからIntrinsicな電気伝導特性への遷移（屈曲）は認められない。

また、図C(ref.A4)・図G(ref.A3)に示すように、室温から約 800°C の範囲では、電気抵抗率はOM比に大きく依存している。

図D(ref.A5)と図E(ref.A6)は常温で同一機関 (GE) で測定されているにもかかわらず、OM比依存性が大きく異なっているが、原因は不明である（報告書に言及が全くない）。図Eにおいて定比組成から1.992程度までの範囲で電気抵抗率が急激（3桁近い）に増大する現象は、定比組成でも $\text{U}5+$ が安定に存在して電気伝導に寄与しているため、OM比の減少にともなう $\text{Pu}3+$ が生成して $\text{U}5+$ の効果を打ち消し、電気抵抗率を増大させると説明されている(ref.A6)。 UO_2 燃料の場合、電荷担体は(A-1)式で示した $\text{U}3+$ と $\text{U}5+$ であるが、MOX燃料では(A-21)式による電荷担体の生成が生じ、「 $\text{U}5+$ 」と「e」の再結合が促進されて電気抵抗率を増大させると説明されている。

(4) Pu富化度依存性

図F(ref.A5)はPu富化度依存性を示したものであるが、測定者間の違いが大きい。図FのBailyの測定値（図の×印）を見るかぎり、定比組成と常温の条件付きではあるが、高速炉燃料で一般的なPu富化度の範囲（15~30%）では、電気伝導特性に及ぼすPu富化度の効果は小さいようである。

(5) OM比とPu富化度への依存性

図Gには、OM比が1.97でPu富化度が28%と40%の2種類の試料に対する電荷担体の濃度 (Carrier Concentration) と移動度 (Mobility) の測定結果が示されている。図Gを詳細に比較すると、電荷担体の濃度の差は非常に小さい ($28\% > 40\%$) が、移動度の差は大きい ($28\% < 40\%$)。また、電気伝導度は、Pu富化度が40%の試料を除くと、Pu富化度19~33%・OM比1.97~1.99の3試料の電気伝導度は同レベルになっている。

図Gにおいて、 $2.0 \times 10^3 \text{K}^{-1}$ 付近で顕著に現れている電荷担体濃度の急激な増大は、ExtrinsicからIntrinsicな電気伝導特性への遷移に起因すると指摘されている(ref.A3)。この指摘が正しければ、亜化学量論組成のMOX燃料は定比組成の場合よりもかなりの低温度でExtrinsicからIntrinsicな電気伝導特性に遷移することになる。しかも、Intrinsicな領域の「電気抵抗率の対数と温度の逆数との傾き」は、Schmitzのデータも同様に、 UO_2 燃料に近いように見える。

以上のように、「Pu富化度19～33%・O/M比1.97～1.99の3試料の電気伝導度がほぼ同レベルになっていること」、「低温度でのExtrinsicからIntrinsicへの遷移が生じる可能性があること」の2つの傾向が高温領域まで保持されれば、MOX燃料の電子伝導による熱伝導特性は亜化学量論組成でも UO_2 燃料に近く、かつ、O/M比依存性は顕著ではない可能性がある。

A-3.3 総合評価

(1) 電気伝導特性の実測データに基づく検討結果

MOX燃料の電気伝導特性に関する実測データは熱伝導特性の場合と同様に少なく、MOX燃料と UO_2 燃料の電子伝導による熱伝導特性を高温領域($>1800^\circ\text{C}$)の電気伝導特性の実測データをもとに検討することはできなかった。しかし、現状利用可能な電気伝導特性の実測データからは、実際の亜化学量論組成のMOX燃料の電子伝導による熱伝導度は、 UO_2 燃料と同等かやや大きいレベルにとどまる可能性が考えられた。

(2) 傍証としての中心加熱法測定結果

図C・図D・図Eに示すように、O/M比の変化(1.94～2.00)によって電気伝導度は数倍～数桁の変化を示す。電子伝導による熱伝導度は単純には電気伝導度に比例するので、電気伝導度が数倍～数桁変化すれば、熱伝導度も数倍～数桁変化することになる。しかし、O/M比1.942～1.993で測定したFTHCON1-6の試験データ(図10～図12)には電子伝導の寄与を示唆する熱伝導度の増大傾向が明確に認められるが、増大傾向のO/M比依存性は顕著ではないと考えられる(同じ温度条件では、電子伝導による寄与分が数倍も変化することはない)。熱伝導度の実測データからは、実際の亜化学量論組成のMOX燃料の電子伝導による熱伝導度は、 UO_2 燃料と同等かやや大きいレベルにとどまると推定される。

(3) まとめ

「高速炉用MOX燃料の高温領域($>1800^\circ\text{C}$)における熱伝導特性が UO_2 燃料と同一である」との本文3.1(1)の仮定について、電子伝導による熱伝導メカニズムの観点から電気伝導特性の実測データに基づき確認することを試みたが、MOX燃料の電気伝導特性に関する実測データは熱伝導特性の場合と同様に少なく、仮定の妥当性を確認することはできなかった。しかし、現状利用可能な熱伝導特性と電気伝導特性の実測データからは、断定はできないが、実際の亜化学量論組成のMOX燃料の電子伝導による熱伝導度は、 UO_2 燃料と同等かやや大きいレベルにとどまると期待される。

A-4. 参考資料

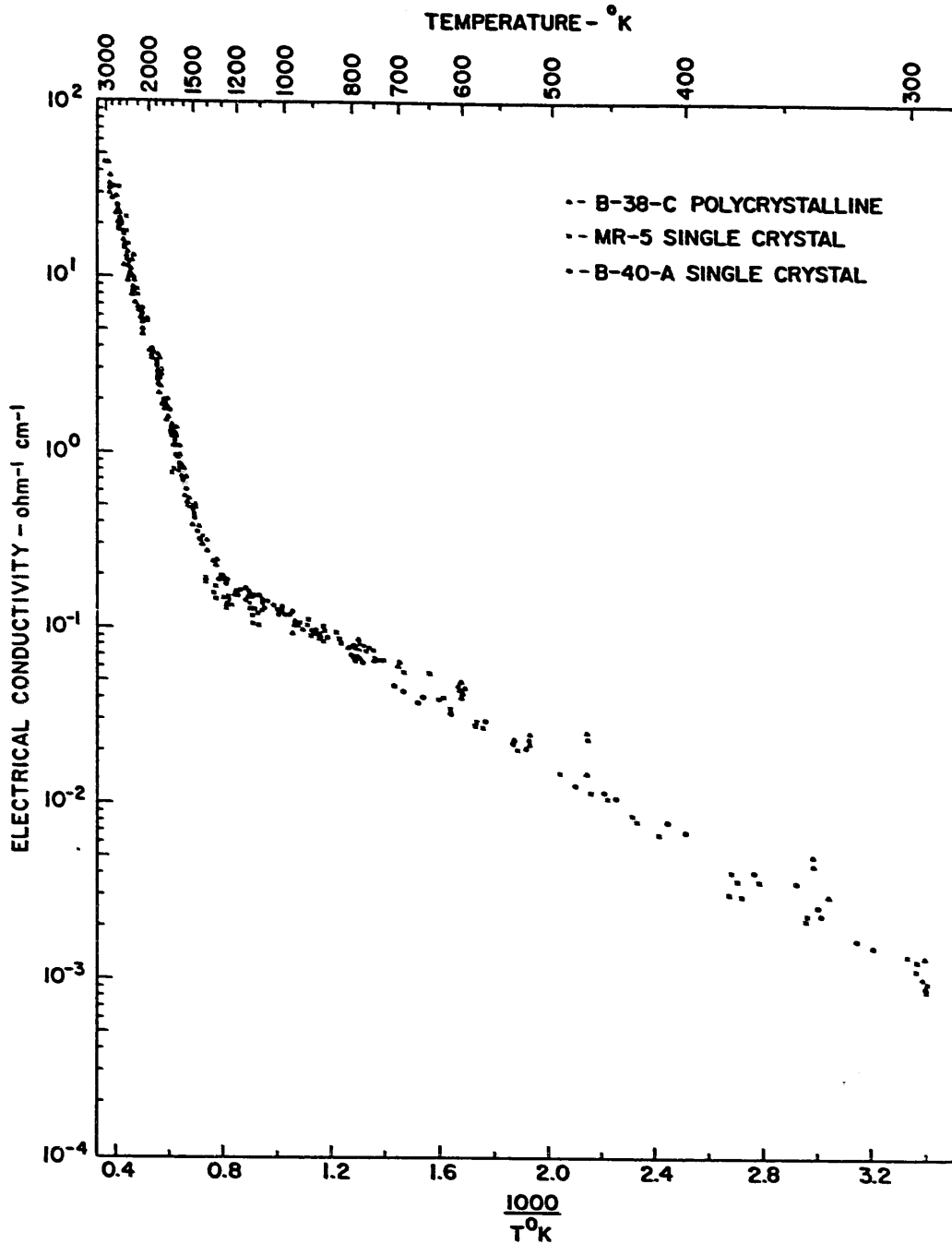
- (A1) G.Delette and M.Charles, "Thermal Conductivity of Fully Dense Unirradiated UO_2 : a New Formulation from Experimental Results between 100°C and 2500°C, and Associated Fundamental Properties", IAEA Technical Meeting on "Water Reactor Fuel Element Modeling at High Burnup and Experimental Support", Bowness-on-Windermere, UK, September 18-23 1994, Paper 2.1, (1994)
- (A2) J.L.Bates, "Electrical Conductivity of UO_2 : Part II. Final Report", BNWL-296 PT2, November 1967
- (A3) M.Kurihara et.al., "Some Electrical Properties of the Uranium-Plutonium Mixed Oxides", Proceedings of 4th International Conference on Plutonium and Other Actinides, SantaFe, New MexicoUSA, Vol.VI, P.84-94, (1970)
- (A4) F.Schmitz et.al., "Electrical Conductivity of $(UPu)O_{2 \pm x}$ in the Pure State and with Addition of Molybdenum", Plutonium and Other Actinides, Eds H.Blank and R.Lindner, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, Netherlands, P.165-170, (1976)
- (A5) W.E.Baily and W.L.Lyon, "Some Electrical Properties of the Plutonium-Uranium Mixed Oxide System", GEAP-4675, September 1965
- (A6) E.A.Aitken et.al., "A Thermodynamic Data Program Involving Plutonia and Urania at High Temperatures", Quarterly Report No.23 February 1, 1973-April 30, 1973, GEAP-12418, UC-79b, May 1973
- (A7) G.Berggren et.al., "Studies of the Electrical Properties of Mixed Oxides at High Temperatures", Proceedings of Third Nordic High Temperature Symposium 1972, Norway P.3-17, (1973)

表A UO₂燃料に係わる活性化エネルギー
(U：電荷担体生成、V：電荷担体移動度、W：電気伝導)

Tableau 1 : creation energy of charged carriers U, migration energy V, and activation energy of electrical conductivity W (various authors).

Auteurs	U (eV) (Mott-Hubbard energy)	V (eV) (carrier migration energy)	W (eV) ($=\frac{U}{2}+V$)
Hyland [1]	1.86	0.24	1.17
Young [9]	2.30	-	-
Winter [15]	2.00	0.30	1.30
Dudney [17]	2.40	0.20	1.40
Harding [18]	2.52	0.15	1.41
Weilbacher [19]	2.26	-	-
Killeen [20]	2.30	0.14	1.29
Hampton [21]	2.40	0.12	1.32
Aronson [22]	-	0.30	-

出典： G.Delette and M.Charles, "Thermal Conductivity of Fully Dense Unirradiated UO₂: a New Formulation from Experimental Results between 100°C and 2500°C, and Associated Fundamental Properties", IAEA Technical Meeting on "Water Reactor Fuel Element Modeling at High Burnup and Experimental Support", Bowness-on-Windermere, UK, September 18-23 1994, Paper 2.1, (1994)

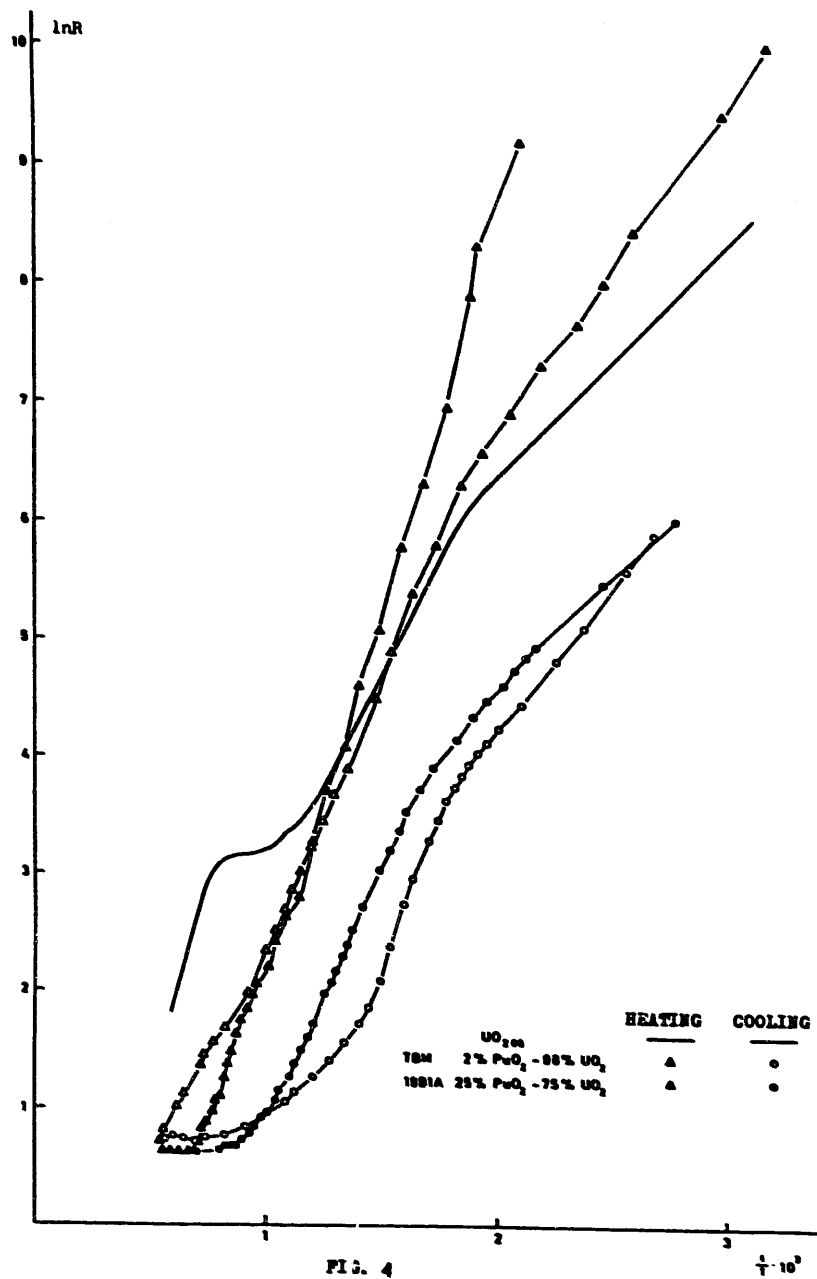


Neg 0670767-1

FIGURE 4. *The Electrical Conductivity of Polycrystalline and Single Crystal Uranium Dioxide Including Both ac and dc Measurements*

図A UO₂燃料の電気伝導度

出典： J.L.Bates, "Electrical Conductivity of UO₂ : Part II. Final Report". BNWL-296 PT2, November 1967



RESISTIVITY OF MIXED OXIDES

図B MOX燃料の電気抵抗率測定結果その1 (温度依存性) (Berggren)

出典： G.Berggren et.al., "Studies of the Electrical Properties of Mixed Oxides at High Temperatures", Proceedings of Third Nordic High Temperature Symposium 1972, P.3-17, (1973)

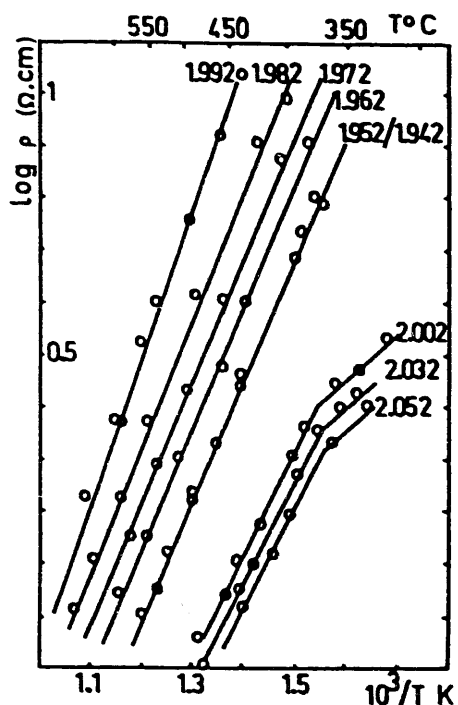


Fig. 1 : Electrical resistivity of $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2\pm x}$ as a function of temperature

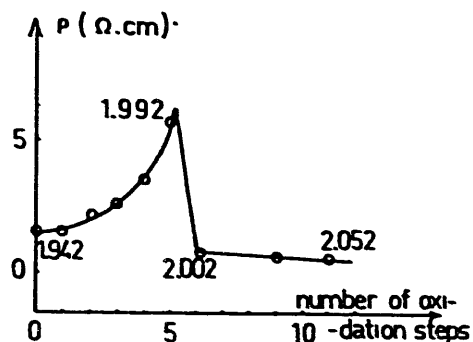


Fig. 2 : Electrical resistivity as a function of oxygen to metal ratio at 500°C for $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2\pm x}$

図C MOX燃料の電気抵抗率測定結果その2 (温度依存性) (Schmitz)

出典： F.Schmitz et al., "Electrical Conductivity of $(UPu)O_{2\pm x}$ in the Pure State and with Addition of Molybdenum", Plutonium and Other Actinides, Eds H.Blank and R.Lindner, North-Holland Publishing Company, Amsterdam, P.165-170, (1976)

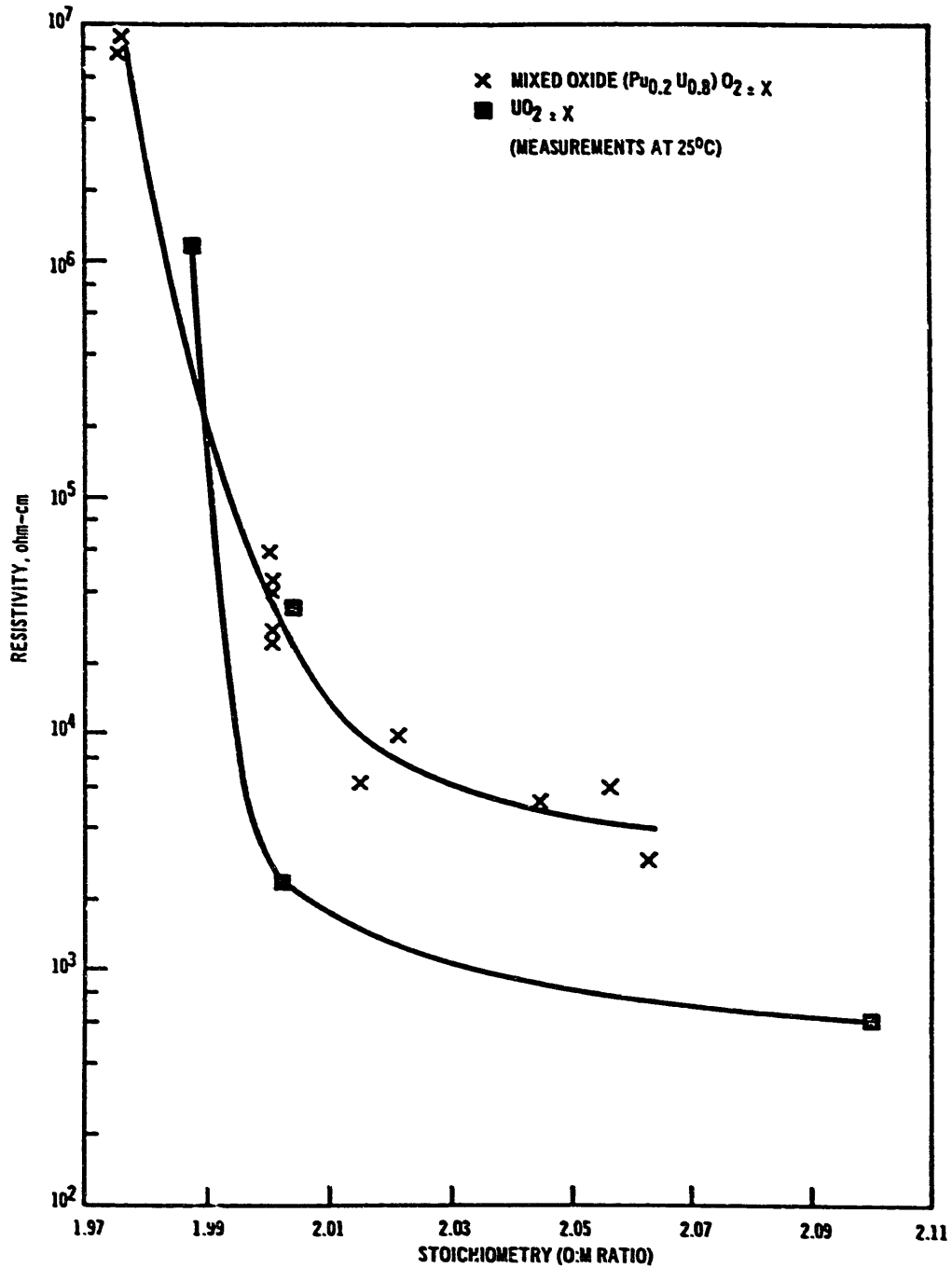


Figure 5. Resistivity of (Pu_{0.2}U_{0.8})O₂ and UO₂ as a Function of Stoichiometry

5-2

図D MOX燃料の電気抵抗率その3 (O/M比依存性) (Baily)

出典： W.E.Baily and W.L.Lyon, "Some Electrical Properties of the Plutonium-Uranium Mixed Oxide System", GEAP-4675, September 1965

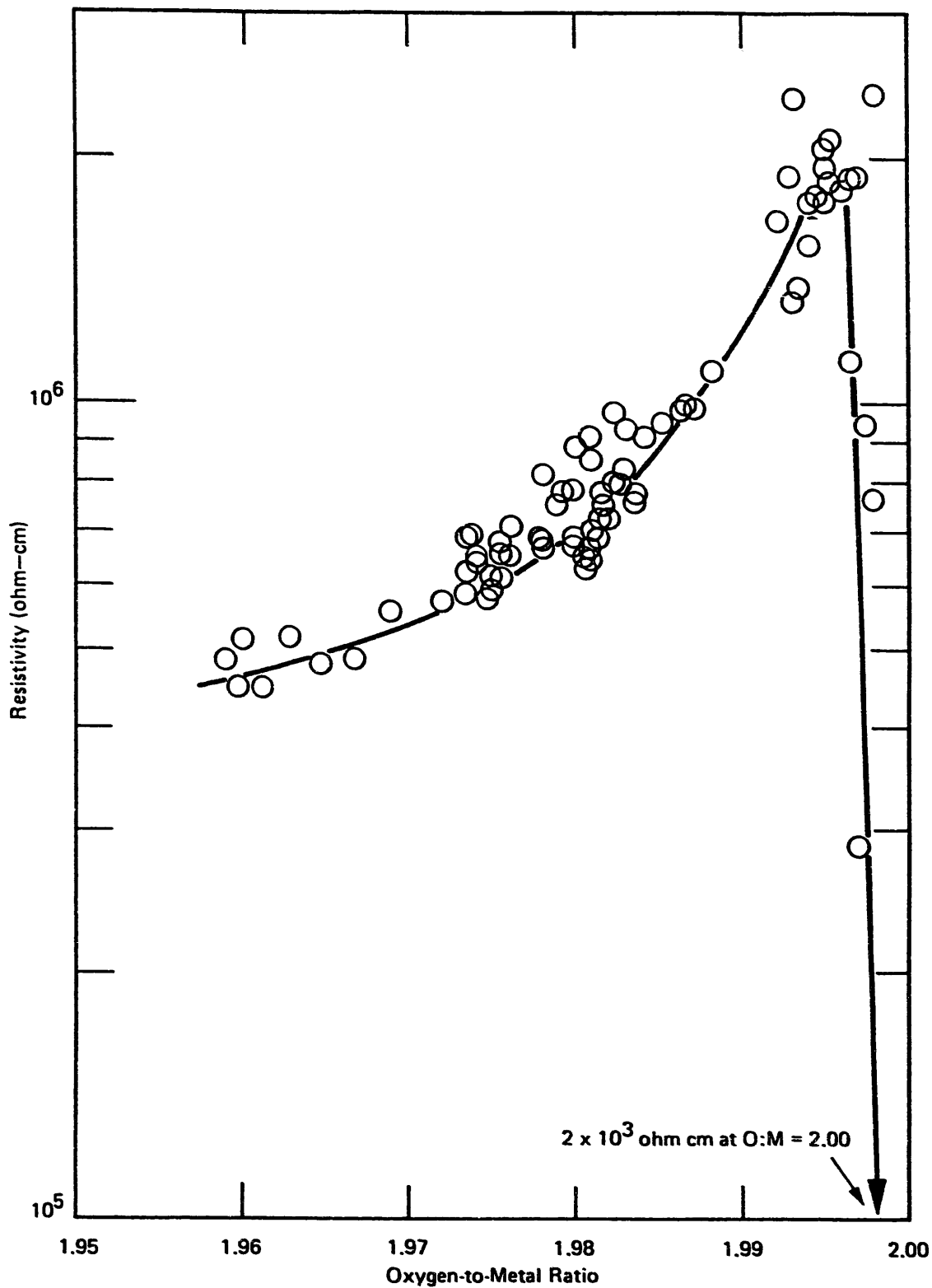


FIGURE 1. RESISTIVITY MEASUREMENTS ON $(U_{0.75}Pu_{1.75})O_{2-x}$

図E MOX燃料の電気抵抗率その4 (O/M比依存性) (Aitken)

出典： E.A.Aitken et.al., "A Thermodynamic Data Program Involving Plutonia and Urania at High Temperatures", Quarterly Report No.23 February 1, 1973-April 30, 1973, GEAP-12418, UC-79b, May 1973

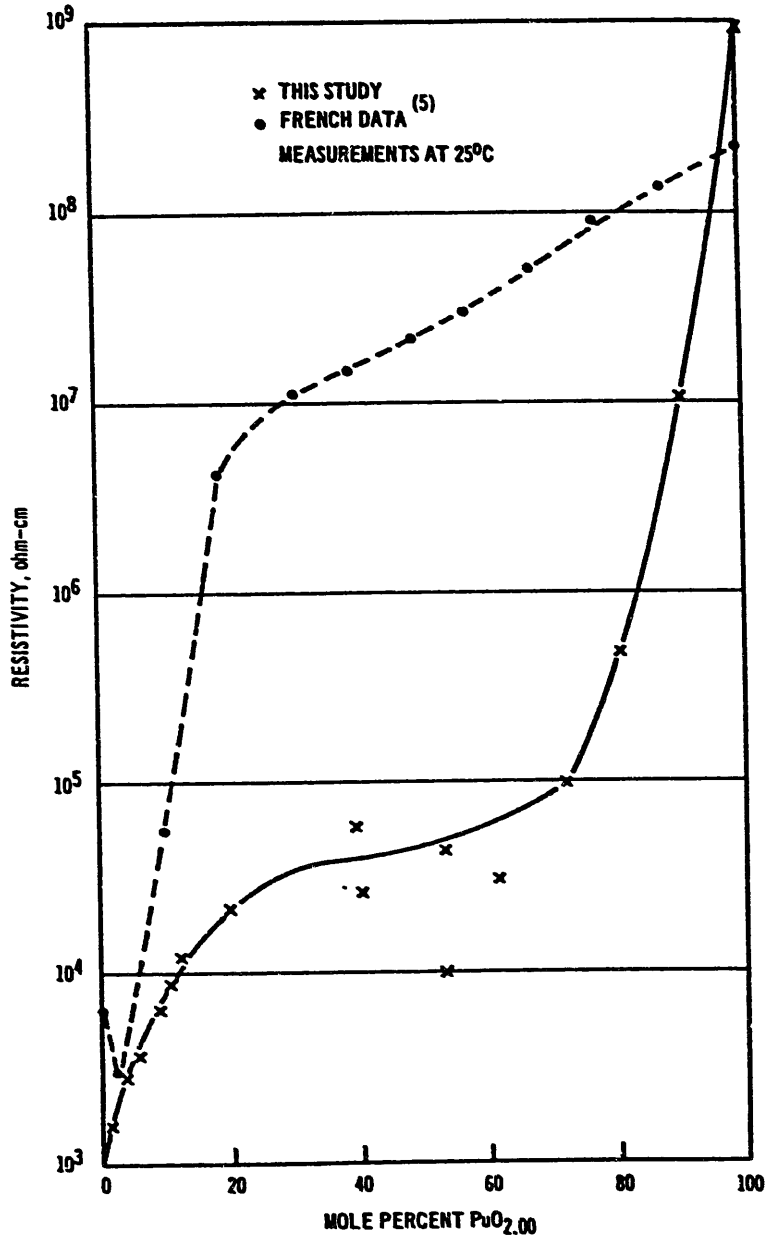


Figure 6. Electrical Resistivity of Stoichiometric PuO₂-UO₂ Solid Solutions

5-3

図F MOX燃料の電気抵抗率その5 (Pu富化度依存性) (Baily)

出典： W.E.Baily and W.L.Lyon, "Some Electrical Properties of the Plutonium-Uranium Mixed Oxide System", GEAP-4675, September 1965

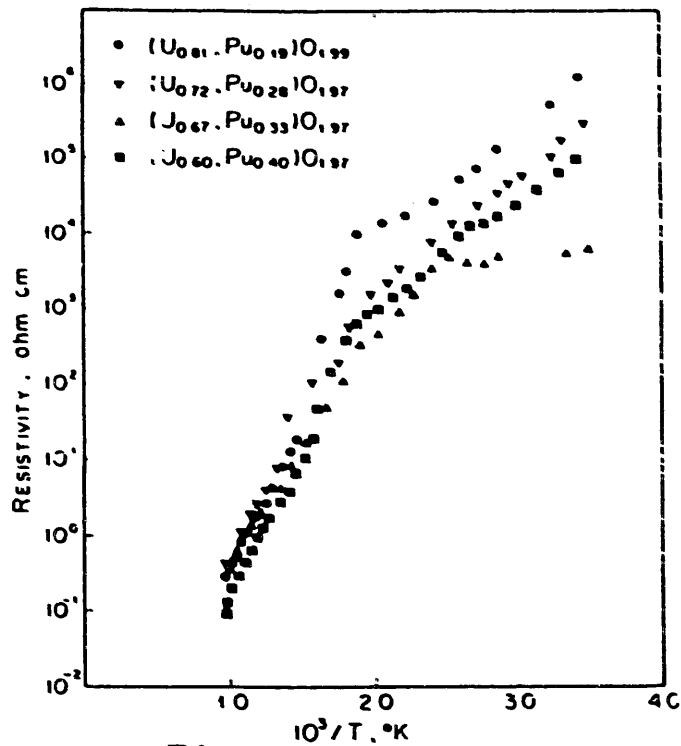
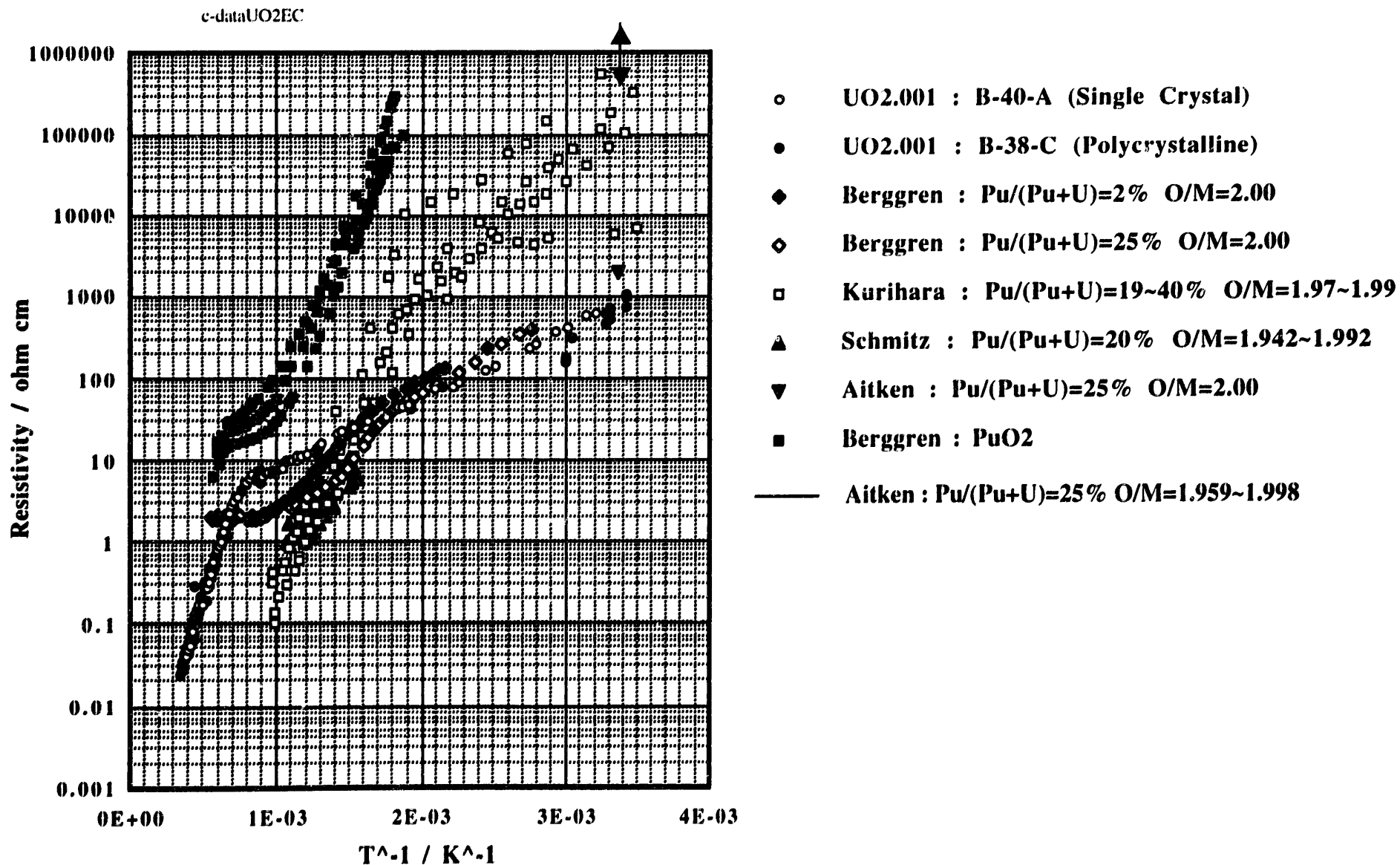


Figure 6

図G MOX燃料の電気抵抗率その6 (Pu富化度とOM比への依存性) (Kurihara)

出典： M.Kurihara et.al., "Some Electrical Properties of the Uranium-Plutonium Mixed Oxides",
 Proceedings of 4th International Conference on Plutonium and Other Actinides,
 SantaFe, P.84-94, (1970)



図H UO₂・MO_{2-x}・PuO₂の電気抵抗率の比較

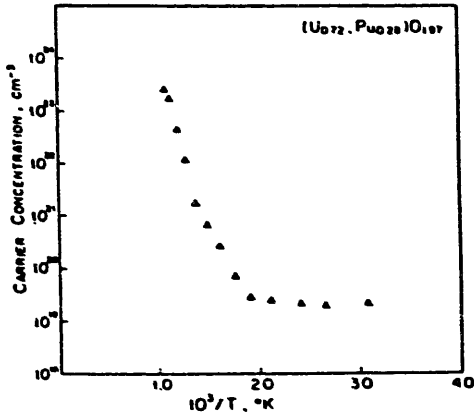


Figure 7-(a)

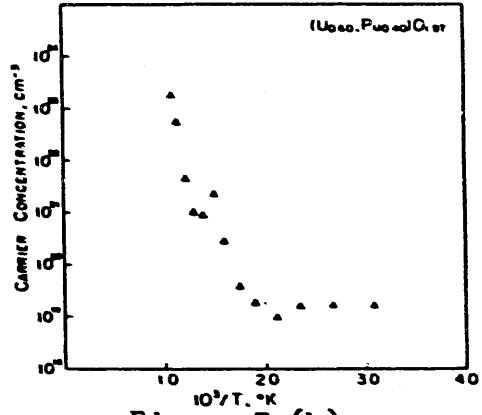


Figure 7-(b)

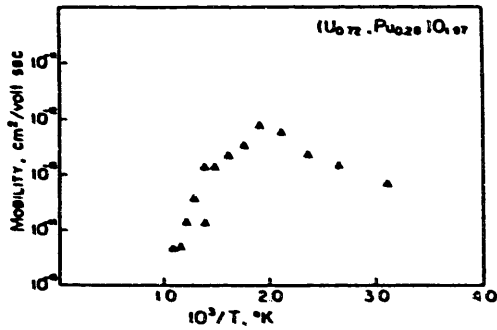


Figure 8-(a)

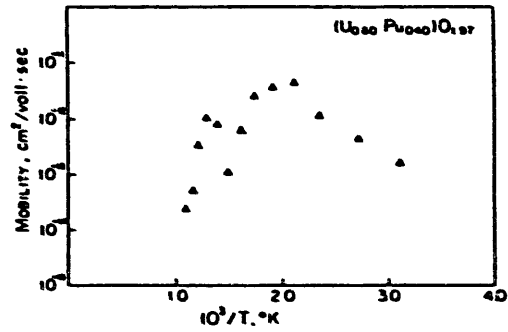


Figure 8-(b)

図 I MOX燃料の電荷担体の濃度と移動度 (Kurihara)

出典： M.Kurihara et.al., "Some Electrical Properties of the Uranium-Plutonium Mixed Oxides",
 Proceedings of 4th International Conference on Plutonium and Other Actinides,
 SantaFe, P.84-94, (1970)