

# 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 —

1997年11月

動力炉・核燃料開発事業団  
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-chō, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-Ken, 311-13, Japan

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1997

## 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－

井上賢紀\*、水野朋保\*、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の照射初期段階の評価に適用する熱伝導度式を最新の知見をもとに作成した。

最初に、熱伝導度式作成のためのデータベースを整備した。動燃独自の測定結果が十分でないため、公開情報についても信頼性を検討した上でデータベースに加えた。また、燃焼による効果を考慮しない照射初期用熱伝導度式の作成が目的であるため、未照射燃料の測定結果のみ収集した。

熱伝導メカニズムを考慮すると、ポアを含む一般的な燃料の熱伝導度 ( $\lambda$ ) は、ポアを含まない理論密度燃料の熱伝導度 ( $\lambda_{100\%TD}$ ) に燃料密度依存性の補正係数 (F) を乗じて表わされる ( $\lambda = F \lambda_{100\%TD}$ )。

燃料密度依存性の小さい高密度燃料の測定結果を使用し、 $\lambda_{100\%TD}$ として下式を得た。下式のデータベースはPu富化度17~30%、O/M比1.90~2.00、燃料密度90~98%TD、温度400~2090℃の範囲にある。

$$\lambda_{100\%TD} = \frac{1}{-0.03237 + 0.8606\sqrt{2 - O/M} + 0.002998 + 2.483 \times 10^{-4} T} + 75.27 \times 10^{-12} T^3$$

$\lambda_{100\%TD}$  : 熱伝導度 (W/mK)  
T : 温度 (K)  
OM : OM比 (-)

採用したデータベース範囲を対象として、高密度燃料と低密度燃料（現状の「もんじゅ」炉心燃料ペレット仕様レベル）に対して2種類の燃料密度依存性の補正係数を設定した。なお、Pはポア体積比である。

- ・ 高密度燃料（製造時燃料密度>90%TD） : FHigh=1-2.95P ( $\alpha=2.95$ )
- ・ 低密度燃料（製造時燃料密度~85%TD） : FLow=1-1.4P ( $\alpha=1.4$ )

今回の評価では、広範囲の燃料密度に対する統一的な補正係数を得ることができなかつたため、次のステップ（その2）では今回得られた熱伝導度式をベースに燃料密度依存性に関する詳細評価を実施していく予定である。

---

\* 大洗工学センター 基盤技術開発部 燃料技術開発室

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

Masaki INOUE\*, Tomoyasu MIZUNO\*, Takeo ASAGA\*

### Abstract

Thermal conductivity of uranium-plutonium mixed oxide fuel for fast reactor at beginning-of-life was correlated based on the recent results in order to apply to the fuel design and the fuel performance analysis.

A number of experimental results of unirradiated fuel specimens were corrected from open literatures and PNC internal reports and examined for the database .

Thermal conductivity of actual fuel with porosity ( $\lambda$ ), that of fully dense fuel ( $\lambda_{100\%TD}$ ) and porosity correction factor (F) had theoretically the following correlation :  $\lambda = F \lambda_{100\%TD}$ .

The following correlation was developed for fully dense fuel by the results of high density fuel pellets which the effect of porosity was relatively small. The data base ranged from 17 to 30% for plutonium content in heavy metal atoms, from 1.90 to 2.00 for oxygen to metal ratio, from 90 to 98% of theoretical density and from 400 to 2090 degree C for temperature.

$$\lambda_{100\%TD} = \frac{1}{-0.03237 + 0.8606\sqrt{2 - O/M} + 0.002998 + 2.483 \times 10^{-4}T} + 75.27 \times 10^{-12}T^3$$

where

$\lambda_{100\%TD}$ : Thermal Conductivity (W/mK)

T: Temperature (K)

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

In this work two porosity correction factors were needed for high density fuel and low density fuel (around the current Monju specification).

For high density fuel (as-fabricated fuel density : > 90%TD)

$$F_{High} = 1 - 2.95P \quad (P : \text{Porosity Volume Fraction } (-))$$

For low density fuel (as-fabricated fuel density : around 85%TD)

$$F_{Low} = 1 - 1.4P \quad (P : \text{Porosity Volume Fraction } (-))$$

The universal porosity correction factor was not determined in this work. In the next step, theoretical and analytical considerations should be taken into account.

---

\* Nuclear Fuel Research Section, Advanced Technology Division, Oarai Engineering Center

## &lt;目次&gt;

1.序論 .....	1
2.熱伝導メカニズム・燃料密度依存性の補正方法・評価式の基本構成 .....	3
2.1 熱伝導メカニズム .....	3
2.2 燃料密度依存性の補正方法 .....	4
2.3 評価式の基本構成 .....	4
3.熱伝導度式作成のための試験データ .....	5
3.1 測定方法の選定 .....	5
3.2 熱伝導度式の作成用に収集した試験結果（レーザーフラッシュ法による測定） .....	6
3.3 関連する物性値 .....	7
4.熱伝導度の燃料仕様依存性 .....	9
5.評価式の作成 .....	11
5.1 評価式の作成方法 .....	11
5.2 高密度燃料データに基づく係数（F・A・B・C）の評価・設定 .....	11
5.3 「もんじゅ」型燃料に対する燃料密度依存性の補正方法の評価・設定 .....	12
5.4 新規作成式の特徴 .....	12
6.考察：新規作成式と参考データとの比較検討 .....	13
7.まとめ .....	14
7.1 情報収集および燃料仕様依存性の検討 .....	14
7.2 熱伝導度式の作成結果 .....	14
7.3 今後の課題 .....	15
8.謝辞 .....	16
9.参考文献 .....	17
付録：従来式の検討 .....	42

<図・写真リスト>

<図リスト>

図 1	従来式とPhilipponneau式との比較	19
図 2	燃料密度依存性の補正方式による違い	20
図 3	中心加熱法による熱伝導度測定 (装置概略図・計算体系・試料配置)	21
図 4	動燃独自の酸化ウラン燃料の熱伝導度測定結果を利用した中心加熱法の測定技術上の不確かさの検討	22
図 5	熱伝導度式の作成用に収集した試験データ範囲 (熱拡散率の報告値あり)	23
図 6	ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料に関するエンタルピー測定結果	24
図 7	ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値) Pu/(Pu+U)=0.20：一定、O/M比=1.95~2.00	25
図 8	ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値) O/M比=1.95,2.00：一定、Pu/(Pu+U)=0.15~0.30	26
図 9	ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値) Pu/(Pu+U)=0.20：一定、O/M比=1.90~1.95	27
図 1 0	Aに及ぼすO/M比の効果	28
図 1 1	Bに及ぼすPu富化度の効果	29
図 1 2	高速炉燃料の熱伝導特性に及ぼすPu富化度の影響および測定者による違い	30
図 1 3	高速炉燃料の熱伝導特性に及ぼす燃料密度の影響	31
図 1 4	試験データ・Philipponneau式・新規作成式との比較 (O/M比=1.90~1.93)	32
図 1 5	試験データ・Philipponneau式・新規作成式との比較 (O/M比=1.94~1.97)	33
図 1 6	試験データ・Philipponneau式・新規作成式との比較 (O/M比=1.98~2.00)	34
図 1 7	高密度燃料データベースに対する予測精度および燃料密度依存性の補正係数 $\alpha=2.95$ の妥当性確認	35
図 1 8	高密度燃料用と「もんじゅ」型燃料用の2種類の燃料密度依存性の補正係数の比較	36
図 1 9	従来式・Philipponneau式・新規作成式の比較	37
図 2 0	FTHCON-1~4・従来式・新規作成式の比較検討	38
図 2 1	動燃独自の中心加熱法による測定結果と新規作成式との比較検討：高密度燃料	39
図 2 2	動燃独自の中心加熱法による測定結果と新規作成式との比較検討：低密度燃料	40

<写真リスト>

写真 1	B8HAM燃料ペレットおよび熱遮蔽ペレットの横断面金相写真	41
------	-------------------------------	----

## 1. 序論

## (1) 熱伝導度式の重要性

原子炉燃料の熱伝導特性は運転中の燃料温度を決定し、照射挙動を支配する重要な特性である。燃料設計評価および照射挙動評価を行う場合、使用する熱伝導度式の良否は、評価結果を大きく左右する。

## (2) 「常陽」および「もんじゅ」の燃料設計評価に使用されている熱伝導度式

高速実験炉「常陽」および高速増殖原型炉「もんじゅ」の炉心燃料には、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料が使用されている。両炉の炉心燃料の燃料設計評価用熱伝導度式としては、これまで(1-1)式が共通して使用されている。

(1-1)式はGeneral Electric(GE)社の報告書(1)に出典を有し、Schmidt(2)、Gibby(3)、VanCraeynest(4)、Hetzler(5)、Baily(6)、Laskiewicz(7)の報告とよく整合していることから、設計式として採用された。なお、(1-1)式は燃焼度依存性を考慮していない。

$$\lambda = 1.169 + \frac{100}{\left\{0.06717 + \frac{0.02236P}{O/M - 1.90}\right\}(T - 273.15)} + 7.214 \times 10^{-11}(T - 273.15)^3 \quad (1-1)$$

$\lambda$  : 熱伝導度 (W/mK)  
 $T$  : 温度 (K)  
 $P$  : Fractional Prosimity (-)  
 $O/M$  : O/M比 (-)

(1-1)式の適用範囲は温度800~2800℃、燃料密度(理論密度比)84~99%TD、O/M比1.93~2.00である。以後、(1-1)式を「従来式」と略称する。

## (3) 熱伝導度式に関する最近の研究

高速炉燃料の熱伝導度式に関する最近の研究として、1992年のPhilipponneau(8)の報告がある((1-2)式)。(1-2)式の特徴は、「Reference Fuel」と呼ばれるO/M比1.98・燃料密度95%TDを対象に作成されていること、レーザーフラッシュ法で測定された試験データをベースとしていること、燃焼度依存性が組み込まれていることにある。

$$\lambda = F \left( \frac{1}{-0.0912 + 1.320\sqrt{2 - O/M + 0.00931} + 0.38\tau + 2.493 \times 10^{-4}T} + 88.40 \times 10^{-12}T^3 \right) \quad (1-2)$$

$\lambda$  : 熱伝導度 (W/mK)  
 $T$  : 温度 (K)  
 $F = \frac{1-P}{1+2P}$   
 $P$  : Fractional Prosimity (-)  
 $O/M$  : O/M比 (-)  
 $\tau$  : Fractional Burnup (-) (at%Burnupを100で除した値)

(1-2)式の適用範囲は、燃料密度とO/M比に対しては明記されていないが、温度に対しては227℃~融点である。以後、(1-2)式を「Philipponneau式」と略称する。

### (3) 従来式とPhilipponneau式による計算値の比較

「もんじゅ」型燃料ペレットの燃料密度はノミナル値85%（範囲：±2%）、OM比はノミナル値1.97（範囲：1.94～1.99）である。上記の「もんじゅ」燃料仕様に対して従来式とPhilipponneau式を用いて熱伝導度を計算すると、図1に示すように大きく異なる結果が得られる。両者の違いは、燃料設計評価および照射挙動評価に与える影響が大きい。

### (4) 従来式とPhilipponneau式の検討（概要）

従来式（1973年）とPhilipponneau式（1992年）では作成された時期に20年の隔たりがあり、式の策定に使用されたデータベース（燃料仕様範囲・温度・測定方法）は異なっている。

従来式は、原著にデータベースに関する記載はないが、中心加熱法による測定結果をもとに作成されたと推定される（付録参照）。また、Philipponneau式は、レーザーフラッシュ法による測定結果をもとに作成されている。レーザーフラッシュ法の方が信頼性が高く（ばらつきが小さく）、最近の原子炉燃料の熱伝導度はレーザーフラッシュ法によって測定されている（3章参照）。熱伝導度式の作成には、レーザーフラッシュ法による測定データを使用することが信頼性を高める上で有効である。

### (5) 試験データの拡充

レーザーフラッシュ法による「もんじゅ」型燃料ペレット（現状の「もんじゅ」燃料密度仕様程度の低密度燃料ペレット）の熱伝導度測定が最近行われ(9)、「常陽」・「もんじゅ」の炉心燃料を対象とした熱伝導度式の作成に必要な試験データが取得された。

### (6) 今回の評価の目的

図1に示したように、従来式とPhilipponneau式では、熱伝導度の計算結果に大きな違いが認められた。両者の違いは燃料設計評価および照射挙動評価に及ぼす影響が大きい。また、最近、「もんじゅ」型燃料ペレットの熱伝導度特性評価上重要な試験データが取得された。

今回の評価は、最新の知見をもとに高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の熱伝導度式を独自に作成し、「常陽」・「もんじゅ」の燃料設計評価および照射挙動評価に使用すべき熱伝導度式の選定に資することを目的とした。なお、今回の評価対象は未照射燃料の測定結果を利用できる照射初期に限定し、燃焼度依存性は今後の研究に委ねることとした。



2.熱伝導メカニズム・燃料密度依存性の補正方法・評価式の基本構成

2.1 熱伝導メカニズム(10)

(1) 低温領域

燃料の低温領域における熱伝導は、フォノン伝導と呼ばれる結晶格子の振動によるエネルギー伝達が支配的である。

フォノン伝導による熱伝導度： $\lambda_{ph}$ は、平均自由行程・伝導速度・比熱・かさ密度の積で表される(2-1式)。また、フォノンの平均自由行程： $L_{ph}$ は、(2-2)式で表される。(2-1)式と(2-2)式から、低温領域における熱伝導度式として(2-3)式が得られる。

$$\lambda_{ph} = \frac{1}{3} V_{ph} L_{ph} C_p \rho \quad (2-1)$$

$C_p$  : 比熱  
 $\rho$  : かさ密度  
 $V_{ph}$  : フォノンの伝導速度

$$L_{ph} = \frac{1}{a + bT} \quad (2-2)$$

$T$  : 温度  
 $a \cdot b$  : 定数

$$\lambda_{ph} = \frac{C_p \rho}{A' + B' T} \quad (2-3)$$

$T$  : 温度  
 $A' \cdot B'$  : 定数

(2) 高温領域

高温では電子伝導や輻射が寄与するようになる。輻射による熱伝導は3乗に比例した(2-4)式で表される。厳密には、高温領域の熱伝導は、電子伝導項と輻射伝導項の2項に分けられるが、(2-4)式で代表するのが実用的である。

$$\lambda_E = C' T^3 C_p \rho \quad (2-4)$$

$C'$  : 定数  
 $C_p$  : 比熱  
 $\rho$  : かさ密度  
 $T$  : 温度

(3) 基本式

低温領域(2-3式)と高温領域(2-4式)における熱伝導度式を組み合わせることにより、100%TD燃料の熱伝導度・基本式として(2-5)式が得られる。

$$\lambda_{100\%TD} = \left( \frac{1}{A' + B' T} + C' T^3 \right) C_p \rho = \left( \frac{1}{A + B T} + C T^3 \right) \quad (2-5)$$

$\lambda_{100\%TD}$  : 100%TD燃料の熱伝導度  
 $T$  : 温度  
 $C_p$  : 比熱  
 $\rho$  : かさ密度  
 $A' \cdot B' \cdot C' \cdot A \cdot B \cdot C$  : 定数

## 2.2 燃料密度依存性の補正方法

熱伝導度は、燃料密度（理論密度比）に依存することはよく知られている。さらには、ポアの存在状態（径・形状・数密度・分布）に依存することがわかっている。

実用的には、100%TDの熱伝導度式に補正係数：Fをかけ、燃料密度依存性を考慮する方法がよく用いられる（ $\lambda = F \lambda_{100\%TD}$ ）。Martinのレビュー(11)によると、次の3種類の補正方法がある。なお、PはFractional Porosity（ポア体積比）である。

- ・ Loeb(12) :  $F = 1 - \alpha P$
- ・ Maxwell-Eucken :  $F = \frac{1-P}{1+\beta P}$
- ・ Schultz(13) :  $F = (1-P)^\gamma$

Loeb方式の $\alpha$ については、例えば、 $0 < P < 0.1$ の範囲で $\alpha = 2.5 \pm 1.5$ (14)が推奨されている。Philipponneau式ではMaxwell-Eucken方式が用いられ、 $\beta = 2$ が推奨されている。 $\gamma$ については、最近の研究として、Bakkerの報告(15)がある。Bakkerは軽水炉燃料の横断面金相観察結果をもとに実際のポアの効果に有限要素法を適用し、80~99%TDの範囲を対象に3次元解析した結果として、 $\gamma = 1.7 \pm 0.2$ を得たと報告している。

ポアが真球かつランダムに分布している理想状態では、 $\alpha = 1$ (11)、 $\beta = 0.5$ (11)、 $\gamma = 1.5$ (13)とされている。実際の燃料が理想状態よりも大きな $\alpha \cdot \beta \cdot \gamma$ をとる理由は、実際のポアが非球形かつ非均一に分布しているためと考えられている(11)が、詳細なメカニズムは明らかになっていない。

図2は、Loeb・Maxwell-Eucken・Schultzの3方式に対し、理論値（理想状態）と推奨値（解析値）とを比較したものである。いずれの場合も燃料密度依存性はほぼ直線関係になっており、実用的にはLoeb方式が最も簡便であるといえる。

## 2.3 評価式の基本構成

100%TD燃料の熱伝導度・基本式の構成を2.1で紹介した。2.1と2.2から、熱伝導度式として(2-6)式の基本構造が得られる。

$$\lambda = F \lambda_{100\%TD} = F \left( \frac{1}{A + BT} + CT^3 \right) \quad (2-6)$$

- $\lambda$  : 実際の燃料の熱伝導度
- $\lambda_{100\%TD}$  : 100%TD燃料の熱伝導度
- T : 温度
- F : 燃料密度依存性の補正係数

(2-6)式に基づく評価式を作成する場合、燃料密度依存性、O/M比およびPu富化度への依存性を考慮し、A・B・C・Fを評価あるいは設定していく必要がある。

### 3. 熱伝導度式作成のための試験データ

#### 3.1 測定方法の選定

##### (1) 測定方法（大別）(16)

熱伝導度の測定方法は、定常法と非定常法に大別できる。定常法では、熱流束と温度勾配が一定の条件で測定が行われ、熱伝導度は熱流束と温度勾配をもとに直接計算される。一方、非定常法では、温度の時間的変化の速度が熱伝導度と単位体積あたりの熱容量との比：熱拡散率に比例することを利用する（熱伝導度＝熱拡散率×比熱×かさ密度）。非定常法の場合、測定原理上、関連する物性値（比熱、密度等）の信頼性に影響を受ける。

原子炉燃料の熱伝導度については、中心加熱法とレーザーフラッシュ法の2種類の測定方法による報告がある。中心加熱法は定常法、レーザーフラッシュ法は非定常法に分類される。最近の原子炉燃料の熱伝導度測定は、全てレーザーフラッシュ法によって測定されている。

##### (2) レーザーフラッシュ法

レーザーフラッシュ法は試料表面への過渡的な入熱と熱流を利用する。測定方法および測定原理の詳細は、参考文献(17)を参照されたい。

熱伝導度式の作成にあたっては、より信頼性の高い（不確かさの小さい）方法による測定値を使用することが望ましい。参考文献(17)（JIS R 1611：ファインセラミックスのレーザーフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量・熱伝導率試験方法、解説）によると、試験結果の不確かさは、概ね、熱拡散率で5～10%、比熱で5～7%、熱伝導度で10～15%の範囲に入ると考えられると述べられている。報告されているレーザーフラッシュ法による測定値の不確かさとして、10～15%が予想される。また、測定原理上、関連物性値である比熱の信頼性に大きく影響を受けることがわかる。

##### (3) 中心加熱法

動燃では、混合酸化物燃料および酸化ウラン燃料の計7種類の試料を中心加熱法によって測定した実績がある(18)(19)(20)。中心加熱法による測定方法を図3に解説した。中心加熱法では、中空の燃料ペレットを試料に使用する。試料中心を貫通するロッドヒーターの発熱：Qと測定穴径方向位置：r1・r2を既知として、測定穴底面の温度：T1・T2をパイロメーターで測定し、(3-1)式を用いて熱伝導度：λを計算する。

$$\lambda = \frac{Q}{2\pi(T_1 - T_2)} \ln \frac{r_2}{r_1} \quad (3-1)$$

λ： 熱伝導度 (W/mK)

r1・r2： 試料中心から測定穴底面までの距離 (m) (r1<r2)

T1・T2： 測定穴底面の温度 (K) (T1>T2)

測定した酸化ウラン燃料は、93.4%TD・OM比1.997の試料名：FTHCON-11の1種類である。酸化ウランの測定経験(18)によると、不確かさは $2\sigma=18\%$ （90%信頼限界で15%）と評価されている。

FTHCON-11の測定結果を(3-2)式の酸化ウラン燃料推奨式(21)と比較した結果を図4(a)に示す。推奨式に対する燃料密度依存性の補正方法としては、Loeb方式のIAEA

推奨値： $\alpha=2.5(14)$ を採用した。測定値と計算値との残差の計算値に対する比（＝（測定値－計算値）／計算値）の頻度分布を計算した結果を図4(b)に示す。

$$\lambda(UO_2) = \frac{1}{0.0375 + 2.165 \times 10^{-4} T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(\frac{-16361}{T}\right) \quad (3-2)$$

$\lambda(UO_2)$ ： 熱伝導度 (W/mK)

T： 温度 (K)

中心加熱法による測定値は、図4(a)(b)から明らかなように、大きめにばらつく傾向がある。酸化ウランの測定経験によると、高温領域では蒸発した酸化ウランによって測定穴が塞がる現象が発生し、より高温の深い位置の測定穴ほど塞がりやすくなる傾向があった。また、パイロメーターによる温度測定は、測定穴底面に焦点をあわせるため、より深い位置の測定穴ほど測定中の影響を受けやすいと考えられる。したがって、蒸発現象および温度測定手法を考慮すると、より深い位置の測定穴の測定温度を小さく測定する傾向、すなわち、熱伝導度を大きく評価する傾向があると考えられる（T2の測定誤差が比較的小さい状態でT1を過小測定する）。

#### (4) 測定方法の選定

熱伝導度式の作成に使用するデータベースは、最近の研究報告と同じく、不確かさのより小さいレーザーフラッシュ法による測定結果に限定するのが適当と考えられる。

中心加熱法は熱伝導度を直接測定できるため、関連物性値の不確かさの影響を受けない特長がある。動燃独自の中心加熱法による測定は広範囲の燃料仕様に対して行われているため、作成した熱伝導度式との比較に適している。そこで、動燃独自の中心加熱法による測定結果を参考データとして新規作成式との比較検討に使用する（6章）。

### 3.2 熱伝導度式の作成用に収集した試験結果（レーザーフラッシュ法による測定）

#### (1) 公開文献から収集した試験結果

関連物性値の不確かさの影響を排除するため、熱拡散率測定値の報告がある文献に限定した。具体的には、VanCraeynest(22)、Weilbacher(23)、Bonnerot(24)、Gibby(25)、Fukushima(26)を収集した。報告済の熱拡散率のデータは熱膨張の影響を補正済のデータとして取り扱った。Fukushimaの報告については、熱拡散率の測定結果が載った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。

#### (2) 動燃独自の試験結果：B8HAM燃料ペレット(9)

B8HAM燃料ペレットは、O/M比1.99・Pu富化度28.7%（＝Pu/(Am+Pu+U)）・Am濃度1.3%（＝Am/(Am+Pu+U)）・燃料密度86%TDの「もんじゅ」仕様に準じた燃料ペレットである。製造にはポアフォーマーが使用された。測定は、動燃・大洗工学センターの照射燃料試験施設で行われた。測定装置については、参考文献(27)を参照されたい。

#### (3) 収集した試験データ範囲

収集した試験データの燃料仕様範囲をPu富化度・O/M比・燃料密度に着目して整理した結果を図5に示す。図5から明らかなように低O/M比領域（1.90～1.96）の測定結果が少ない。熱伝導特性評価を今後も進めていく上で、低O/M比領域の測定データの拡充が望まれる。

## 3.3 関連する物性値

## (1) 比熱

Bonnerot(24)とBeauvy(28)は $UO_2$ - $PuO_2$ -O 3元固溶体を仮定し、(3-3)式をもとに比熱を算出し、熱伝導度評価値をもとめている。Philipponneauの報告(8)ではBonnerot(24)に類似した比熱を用いたと記述しており、 $UO_2$ - $PuO_2$ -Oの3元固溶体を採用したと考えられる。また、 $UO_2$ - $PuO_2$ - $PuO_{1.61}$ の3元固溶体を仮定した(3-4)式も考えられる。

$$C_p \left[ (U_{1-y}Pu_y)O_{2-x} \right] = (1-y)C_p(UO_2) + yC_p(PuO_2) - \frac{1}{2}XC_p(O_2) \quad (3-3)$$

$$C_p \left[ (U_{1-y}Pu_y)O_{2-x} \right] = (1-y)C_p(UO_2) + \left( y - \frac{X}{0.39} \right) C_p(PuO_2) + \frac{X}{0.39} PuO_{1.61} \quad (3-4)$$

Fink(29)は、Pu富化度20~25%・O/M比1.95~2.00のウラン-プルトニウム混合酸化物燃料： $MO_{2-x}$ に対するエンタルピー測定結果を図6(a)のようにまとめている。Finkが $UO_2 \cdot PuO_2 \cdot MO_{2-x}$ のエンタルピーに対してまとめた定数( $C_1, C_2, C_3, \theta, E$ )を(3-5)式に適用すると、各々の比熱式が得られる。(3-5)式はエンタルピーに対する式を温度： $T$ で微分したものである。(3-5)式の第1項は格子振動、第2項は体積(熱膨張)、第3項は格子欠陥の生成の寄与を示している。

$$C_p = C_1 \frac{\theta^2}{T^2} \frac{\exp\left(\frac{\theta}{T}\right)}{\left\{ \exp\left(\frac{\theta}{T}\right) - 1 \right\}^2} + 2C_2T + C_3k \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left( 1 + \frac{E}{kT} \right) \quad (3-5)$$

$C_p$  : 比熱 (J/molK)

$T$  : 温度 (K)

$k$  : ボルツマン係数 ( $8.6144 \times 10^{-5}$  eV)

$C_1 \cdot C_2 \cdot C_3$  : 定数

$\theta$  : アインシュタイン温度

$E$  : 格子欠陥生成の活性化エネルギー

	$UO_2$	$PuO_2$	$MO_{2-x}$
$C_1$ : (J/molK)	78.215	87.394	<b>87.104</b>
$C_2$ : (J/molK <sup>2</sup> )	0.0038609	0.0039780	<b>0.00080048</b>
$C_3$ : (J/eVmol)	$3.425 \times 10^8$	-	<b><math>2.3863 \times 10^6</math></b>
$\theta$ : (K)	516.12	587.41	<b>585.49</b>
$E$ : (eV)	1.9105	-	<b>0.75748</b>

図6(a)から、前述の燃料仕様範囲では、比熱の燃料仕様依存性はないと判断できる。また、Finkは、前述の燃料仕様範囲では、酸化ウラン燃料： $UO_2$ と酸化プルトニウム燃料： $PuO_2$ の個々のエンタルピー式をモル分率で組み合わせた場合は図6(b)に示すように適合性が悪いと指摘しており、比熱についても同様と考えられる。

Pu富化度を20%一定としてO/M比を1.95~2.00の範囲で変え、比熱の温度依存性を(3-3)式・(3-4)式・(3-5)式 $MO_{2-x}$ をもとに比較したのが図7である。約2100℃以下では、(3-3)式と(3-4)式を適用した場合は、 $MO_{2-x}$ で直に計算した場合に比較してやや低めに評価する傾向がある。図7から、Pu富化度20~25%・O/M比1.95~2.00の範囲では、

比熱式として $\text{MO}_{2-x}$ の条件を使うべきであると考えられる。(3-3)式で採用している $\text{UO}_2\text{-PuO}_2\text{-O}$ 3元固溶体の仮定は、比熱のO/M比依存性を過大に評価する傾向がある。結果として得られる熱伝導度式(Philipponneau式)はO/M比依存性を過大評価することになると言える。

不確かさについては、(3-5)式の積分式(エンタルピー)のエンタルピー測定値に対する標準偏差は1.97%と報告されている。したがって、(3-5)式と $\text{MO}_{2-x}$ の組み合わせで計算される比熱の値の不確かさ( $2\sigma$ )は、約4%と考えられる。参考文献(17)で述べられている比熱の不確かさ：5~7%に比較して十分小さい。

熱伝導度式を作成する場合、燃料仕様範囲としてはPu富化度15~30%・O/M比1.90~2.00を考慮する必要がある。しかし、比熱(エンタルピー)に関する報告は、前述の燃料仕様範囲(Pu富化度20~25%・O/M比1.95~2.00)に限られているのが現状である。そこで、(3-5)式の外挿性を検討した。図8は、O/M比1.95と2.00に固定し、(3-4)式を使用してPu富化度を15~30%の範囲で比熱の温度依存性を計算したものである。図8には(3-5)式による $\text{MO}_{2-x}$ の計算結果も付記した。図8をみるとPu富化度が15~30%の範囲では比熱の差異は小さく、O/M比が1.95~2.00の範囲では(3-5)式をそのまま適用しても影響は無視できると考えられる。また、図7と同じ手法でO/M比が1.90~1.95の範囲で比較したのが図9である。O/M比が1.95未満の試験結果がないために断定できないのが現状であるが、今回の評価ではO/M比が1.95未満の燃料に対しても適用でき、Pu富化度15~30%・O/M比1.90~2.00の燃料仕様範囲では比熱の燃料仕様依存性はないと仮定して評価を進めることにした。

熱伝導特性評価を今後も進めていく上で、低O/M比(1.90~1.96)領域の比熱データの拡充が重要と考えられる。

## (2) 理論密度(100%TD)

「もんじゅ」の燃料設計評価で使用している(3-6)式を採用した。

$$\rho_{RT} = 0.48Z + 10.96 - 2.5 \times (2.00 - O/M) \quad (3-6)$$

$\rho_{RT}$  : 室温(25°C)における理論密度( $10^3 \text{kg/m}^3$ )

O/M : O/M比

Z :  $\text{PuO}_{2-x}/(\text{PuO}_{2-x} + \text{UO}_{2-x})$  (-)

## (3) 熱膨張係数

Martin(30)による線熱膨張の推奨式：(3-7)式を採用し、測定温度における理論密度計算に使用した。化学量論組成からのずれ( $X=2-O/M$ 比)の効果は $(1+3.9X)$ を用いて補正した。

$$L_T = L_{273} \times f \quad (3-7)$$

$L_T$  : 温度T(K)における長さ

$L_{273}$  : 273Kにおける長さ

$$f = 9.9734 \times 10^{-1} + 9.802 \times 10^{-6}T - 2.705 \times 10^{-10}T^2 + 4.391 \times 10^{-13}T^3$$

$$(273 \leq T \leq 923\text{K})$$

$$f = 9.9672 \times 10^{-1} + 1.179 \times 10^{-5}T - 2.429 \times 10^{-9}T^2 + 1.219 \times 10^{-12}T^3$$

$$(923 \leq T \leq 3120\text{K})$$

#### 4. 熱伝導度の燃料仕様依存性

##### (1) O/M比依存性

O/M比の変化は格子欠陥量の変化に対応することから、フォノン伝導に影響すると考えられる。熱伝導度式の上では、(2-3)式における「A」に影響すると考えられる。

フォノン伝導が支配的な1227°C (1500K) 未満の温度領域のデータをもとに、(2-3)式に対して化学量論組成からのずれ ( $X=2-O/M$ ) によるAの変化をPhilipponneau(8)が整理した結果を図10に示す。図10をみるとAは化学量論組成からのずれ量に対して1/2乗則を示すように見える。そこで、今回の熱伝導度式の作成にあたっては、O/M比をPhilipponneau式と同様、1/2乗則を適用することにした。

##### (2) Pu富化度依存性

Pu富化度の変化は結晶格子点上のウラン原子とプルトニウム原子の存在比の変化に対応することから、フォノン伝導に影響すると考えられる。熱伝導度式の上では、(2-3)式における「B」に主に影響すると考えられる。

図11は、Pu富化度の変化にともなうBの変化をBonnerot(24)が整理した結果である。図11をみると、Pu富化度の変化にともなうBの変化は、Pu富化度が15~30%の範囲では十分小さいことがわかる。

図12は、燃料密度の異なる測定データ (3.2(1)で収集したデータ) をLoeb方式の $\alpha=2.5$ を用いて95%TDに換算し、熱伝導特性に及ぼすPu富化度の影響をみたものである。O/M比が1.98の場合 (図12(a))、Pu富化度が14~30%の範囲ではPu富化度依存性は認められない。O/M比が2.00の場合、図12(b)に示すWeilbacher(23)のデータに大きなPu富化度依存性が認められる。図12(c)に示すWeilbacher・VanCraeynest(22)・Fukushima(26)の報告値を比較すると、Weilbacherの報告値は約1000°Cを超える領域で系統的に大きい。Weilbacherと同じ仏国CEAのBeauvy(31)がウラン-プルトニウム混合酸化物固溶体の物性に及ぼすPu富化度の影響を報告しているが、Weilbacherの報告に言及しておらず、Weilbacherの測定結果に問題があったと推定される。

以上の結果から、Pu富化度が15~30%の範囲では熱伝導度に及ぼす影響は無視してよいと判断される。

##### (3) 燃料密度依存性

図13は、VanCraeynest・Bonnerot(24)・Gibby(25)・B8HAM(9)の報告をもとにO/M比 (1.99) を固定して熱伝導特性に及ぼす燃料密度の影響をみたものである。

Gibbyのデータが顕著に低いが、Washington(32)によると、Gibbyが使用した試料の密度は元文献(25)にある95.5%TDではなく、88%TDに近い挙動を示すことが記載されている (私信として挙げられている)。図13をみるとGibbyのデータは94~96%TDのVanCraeynestとBonnerotの値と比較して著しく低く、上記の記載を支持する結果となっている。以上の現象から、Gibbyのデータの信頼性に問題があり、熱伝導度式の作成には使用すべきではないと判断できる。

VanCraeynestとBonnerotの高密度燃料のデータをみると、燃料密度に従った大小関係が現れている。一方、B8HAM (86%TD) のデータはBonnerotの94%TDに近くなっており、高密度燃料から予想される熱伝導度よりもかなり高い値を示している。

B8HAM燃料ペレットの横断面金相観察結果を写真1(a)に示す。また、写真1(b)に94%TDの熱遮蔽ペレットの横断面金相観察結果を載せておいた。2つの燃料ペレットを比較して明らかのように、燃料マトリックス同士を比較すると、B8HAMは熱遮蔽ペレットよりも高密度になっているように見える。熱遮蔽ペレットでは数 $\mu\text{m}$ レベルの微細ポアが支配的なのに対し、B8HAM燃料ペレットは50 $\mu\text{m}$ を超える大径ポアが支配的になっている。ポアの形状および分布の効果は熱伝導特性に大きく影響することはよく知られている。図13は、高密度燃料で得られた燃料密度依存性の補正係数は、ポアフォーマーを使用した「もんじゅ」型の低密度燃料には適用できない可能性があることを示唆している。広範囲（ポア体積率で0~20%）の燃料密度依存性に対する補正係数については、現状では統一した値を使用することは難しい。そのため、現状あるデータベースを大きく高密度燃料と「もんじゅ」型低密度燃料に分類し、個々に燃料密度依存性の補正係数を設定するのが適当と考えられる。今後、Bakker(15)の報告を参考とした解析評価、実験データの取得等の手段によって燃料密度依存性を解明していく必要がある。



## 5. 評価式の作成

### 5.1 評価式の作成方法

#### (1) データベース範囲

データベースの範囲を、実用的な高速炉炉心燃料の燃料仕様範囲および温度条件に絞って評価式の作成を進める。

Pu富化度については17～30%、O/M比については1.90～2.00の範囲を対象にした。

原子炉冷却材入口温度は、「常陽」Mk-II炉心で370℃・Mk-III炉心で350℃・「もんじゅ」で397℃である。照射中の燃料ペレットが実用的に取りえる温度は400℃以上になるため、温度範囲は400℃以上のデータに限定した。

VanCraeynest(22)の一部の試料は他のデータ点と比較して解離が著しく、信頼性が疑われることがわかったために除外した（除外したデータを妥当性確認時の図中にマーキングした）。4章で述べたように、Weilbacher(23)とGibby(25)の試験データは信頼性に問題があると判断されたため、除外した。

#### (2) 燃料仕様依存性の考慮（基本式の構造）

4章で検討したように、O/M比依存性は1/2乗則を採用して(2-6)式のAに組み込み、Pu富化度依存性の影響は無視することにした。

高密度燃料に対するデータベースは豊富であるが、ポアフォーマーを使用した低密度燃料に対するデータベースは動燃独自のデータに限定されている。

また、同じく4章で検討したように、現状では、ポアフォーマーを使用した「もんじゅ」型燃料と高密度燃料に対しては、燃料密度依存性の補正方法を使い分ける必要があると判断される。

#### (3) 方法

最初に、90%TDを超える高密度燃料データ100%TD燃料に対する熱伝導度式を作成すると同時に、高密度燃料用の燃料密度依存性の補正係数： $F_{High}$ を設定することにした。燃料密度依存性としては、Martinが $0 < P < 0.1$ の範囲でLoeb方式を推奨していることから、Loeb方式を選定した。(2-6)式をベースに最小自乗法プログラムを適用し、 $F \cdot A \cdot B \cdot C$ を一括してフィッティングすることにした。

次に、得られた100%TD燃料に対する熱伝導度式をB8HAM燃料ペレットの測定結果に適用し、「もんじゅ」型燃料用の $F_{Low}$ を決定することにした。

### 5.2 高密度燃料データに基づく係数（ $F \cdot A \cdot B \cdot C$ ）の評価・設定

#### (1) 100%TD燃料に対する熱伝導度式

100%TD燃料に対する熱伝導度式として(5-1)式を得た。

$$\lambda_{100\%TD} = \frac{1}{-0.03237 + 0.8606\sqrt{2 - O/M} + 0.002998 + 2.483 \times 10^{-4} T} + 75.27 \times 10^{-12} T^3 \quad (5-1)$$

$\lambda_{100\%TD}$  : 100%TD燃料に対する熱伝導度 (W/mK)

T : 温度(K)

O/M : O/M比 (-)

## (2) 高密度燃料用の燃料密度依存性の補正係数

90%TDを超える高密度燃料用の燃料密度依存性の補正係数として、下記の値が得られた。

$$F_{\text{High}} = 1 - 2.95P \quad (\alpha = 2.95)$$

P: Fractional Porosity (-)

## 5.3 「もんじゅ」型燃料に対する燃料密度依存性の補正方法の評価・設定

B8HAMの試験条件 (OM比と温度) に対し、(5-1)式に基づく100%TDの熱伝導度の値と実測値との比を計算し、それらの算術平均値をもとめると0.79になる。Loeb方式を選定し、85.9%TDにおいて $F_{\text{Low}} = 0.79$ になる $\alpha$ をもとめると1.4になる。

$\alpha = 1.4$ は、Schultz方式 (図2参照) において球状のポアがランダムに分布している場合の理論値:  $\gamma = 1.5$ と同等である。写真1(a)に示したように、B8HAM燃料ペレットは、マトリックスとポアがほぼ理想的な熱伝達体系になっているためと考えられる。

## 5.4 新規作成式の特徴

## (1) データベースとの比較

図14～図16に高密度燃料について、データベースと新規作成式とを比較した結果を示す。ただし、図14～図16には $\alpha = 2.95$ を用いて95%TDに換算した熱伝導度をプロットした。新規作成式は、データベースをよく表わしている。

## (2) 実測値と新規作成式計算値との残差

高密度燃料データベース (5.1で式の作成に使用したデータ: 321点) と新規作成式による計算値との残差 (=測定値 - 計算値) の絶対値の標準偏差は、0.13W/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) の絶対値の標準偏差は、5.8%であった。不確かさを $2\sigma$ とすると、約12%となる。

図17(a)は測定値と新規作成式による計算値とを対比したものであり、データベースに対して十分フィッティングできていることがわかる。高密度燃料用に得られた $\alpha = 2.95$ も、図17(b)に示すように、十分フィッティングできていることがわかる。

図18は、高密度燃料用と「もんじゅ」型燃料用の2種類の $\alpha$ を比較したものである。現状、2種類の $\alpha$ を設定せざるを得ないのは、熱伝導特性に及ぼすポア存在形態 (径・形状・数密度・分布) の影響を十分解明できていないためであり、実験的・解析的な検討を今後行っていく必要があると考えられる。

## (3) 従来式・Philipponneau式・新規作成式の比較

新規作成式による計算結果を図1にオーバープロットした結果を図19に示す。計算にあたっては、「もんじゅ」型燃料用に設定した $\alpha = 1.4$ を使用した。また、比較のため、94%TD燃料の計算に対しては高密度燃料用の $\alpha = 2.95$ も使用した。

図19のように、新規作成式による計算結果は、燃料密度依存性の補正方法が異なるためにPhilipponneau式よりも高くなる傾向があるが、従来式よりは低い傾向がある。

新規作成式がPhilipponneau式よりも高くなる傾向があるが、Philipponneau式がOM比依存性を過大評価する傾向の比熱の値を使用しているためである。

## 6. 考察：新規作成式と参考データとの比較検討

### (1) 動燃独自の中心加熱法試験結果の利用

中心加熱法は熱伝導度を直接測定できるため、関連物性値（特に比熱）の不確かさの影響を受けない特長がある。動燃独自の中心加熱法による測定(18)(19)(20)は広範囲の燃料仕様に対して行われたため、新規作成式との比較検討に適している。特に、実際の測定例の少ない「もんじゅ」型燃料に設定した燃料密度依存性の補正係数の妥当性を検討する上で重要である。

### (2) 高密度燃料データ（高密度燃料用の燃料密度依存性の補正係数）

Pu富化度29%・燃料密度95%TDに対して、O/M比1.993：FTHCON-1、O/M比1.98：FTHCON-2、O/M比1.96：FTHCON-3、O/M比1.94：FTHCON-4の4種類の測定が行われた。

FTHCON-1～4の測定結果に新規作成式による計算値をオーバープロットした結果を図20に示す。新規作成式は測定値のばらつきの範囲にあるが、測定値のばらつきが大きいため、図20をもとに比較検討を行うことは難しい。そこで、測定点が多いことを利用し、「測定値と計算値との残差と計算値との比(%)」の頻度分布を調査したのが図21である。酸化ウラン燃料の推奨式の信頼性は高く、頻度分布挙動が酸化ウラン燃料に近いほど熱伝導度式としての信頼度は高いと言える。図21から明らかのように、新規作成式の頻度分布挙動は酸化ウラン燃料とよく一致している。

### (3) 低密度燃料データ（「もんじゅ」型燃料用の燃料密度依存性の補正係数）

Pu富化度30%・O/M比1.98に対して、89%TD：FTHCON-5、85%TD：FTHCON-6の2種類の測定が行われた。製造にはポアフォーマーが使用されている。

FTHCON-5～6の測定結果に新規作成式による計算値をオーバープロットした結果を図22(a)(b)に示す。また、「測定値と計算値との残差と計算値との比(%)」の頻度分布を調査したのが図22(c)(d)である。図22のFTHCON-5,6との比較結果をみると、85%TDのFTHCON-6に対してよく一致しているが、89%TDのFTHCON-5に対してはやや劣る結果になっている。そのため、 $\alpha=1.4$ の適用範囲としては、製造時燃料密度：ノミナル85%TDの「もんじゅ」仕様燃料に限定すべきと考えられる。

## 7.まとめ

### 7.1 情報収集および燃料仕様依存性の検討

#### (1) 情報収集

測定方法による不確かさを比較した結果、レーザーフラッシュ法による測定結果をデータベースにするのが適当と判断した。熱伝導度評価値が関連物性値の比熱の信頼性に大きく影響されることから、熱拡散率が報告されている公開文献および動燃独自の試験結果に限定した情報収集を行った。

比熱式を検討した結果、Philipponneau式が採用した $\text{UO}_2\text{-PuO}_2\text{-O}$  3元固溶体の設定は不適当と判断され、Finkによる $\text{MO}_{2X}$ の比熱式（エンタルピー式の微分形）を採用した。

熱拡散率測定値および比熱式をもとに熱伝導度評価値を算出し、熱伝導度式作成のためのデータベースとした。

#### (2) 燃料仕様依存性の検討

公開文献をもとに熱伝導度式における燃料仕様（O/M比・Pu富化度・燃料密度）依存性の取り扱い方法を検討した。

熱伝導度に及ぼすPu富化度の影響は15～30%の範囲では無視できると判断されたため、Pu富化度依存性を考慮しないことにした。

現状ある知見では、高密度燃料用と「もんじゅ」型燃料用（現状の「もんじゅ」燃料密度仕様程度の低密度燃料用を指す）に2種類の燃料密度依存性の補正係数を設定する必要があることがわかった。

### 7.2 熱伝導度式の作成結果

#### (1) 高速炉用ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料に対する熱伝導度式の作成結果

100%TD燃料に対する熱伝導度式として下式を得た。なお、データベースの範囲は、Pu富化度17～30%、O/M比1.90～2.00、燃料密度90～98%TD、温度400～2090℃である。

$$\lambda_{100\%TD} = \frac{1}{-0.03237 + 0.8606\sqrt{2 - O/M} + 0.002998 + 2.483 \times 10^{-4} T} + 75.27 \times 10^{-12} T^3$$

$\lambda_{100\%TD}$  : 100%TD燃料に対する熱伝導度 (W/mK)

T : 温度 (K)

O/M : O/M比 (-)

#### (2) 燃料密度依存性の補正係数

採用したデータベース範囲を対象に燃料密度依存性の補正係数を設定した。

高密度燃料と「もんじゅ」型燃料では、燃料密度依存性の補正方法としては異なる補正係数：Fを設定した。なお、Pはポア体積比であり、 $\lambda = F \lambda_{100\%TD}$  の関係を用いて燃料密度依存性を補正する。

・ 高密度燃料（製造時燃料密度 > 90%TD） :  $F_{\text{High}} = 1 - 2.95P$  ( $\alpha = 2.95$ )

・ 「もんじゅ」型燃料（製造時燃料密度 ~ 85%TD） :  $F_{\text{Low}} = 1 - 1.4P$  ( $\alpha = 1.4$ )

今回の評価では燃料密度依存性の補正係数を経験的に設定している。そこで、次のステップ（その2）として、得られた100%TD燃料に対する熱伝導度式をベースに燃料密度依存性に関する詳細評価を実施していく必要がある。

### 7.3 今後の課題

#### (1) 実験データの取得

低OM比領域（1.90～1.96）の熱拡散率および比熱のデータが不足しており、測定データの拡充を図る必要がある。同時に、Pu富化度依存性（15～40%）および燃料密度依存性（80～100%TD）についても把握していく必要がある。

#### (2) ポア効果

今回の評価では、高密度燃料用と「もんじゅ」型燃料用に2種類の燃料密度依存性の補正係数を設定する必要があった。熱伝導度に及ぼすポアの効果は十分に解明されているとは言えない。特に、溶融限界線出力評価のための照射試験では、90～92%TDの燃料ペレットでもポアフォーマーを使用して製造されている例がある。また、照射にともない燃料ペレット径方向に燃料密度の変化が生じる。そのため、例えば、マトリクス-ポア2相混合物質の伝熱解析および炉外実験による検証（(1)）を組み合わせた評価を行い、熱伝導特性に及ぼすポア効果の理論的・解析的・実験的検討を継続する必要がある。

#### (3) 燃焼度依存性

軽水炉燃料の研究開発分野では、熱伝導度の燃焼度依存性に関する多くの研究成果が最近報告されている。また、ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料に模擬FPあるいは希土類元素を添加して物性を測定した報告例もある（例えば、Fukushima(26)）。既存の研究開発成果を参考に高速炉用燃料における理論的検討および実験計画の検討を行っていく必要がある。

## 8.謝辞

評価作業の実施にあたっては、大洗工学センター燃料材料開発部照射燃料試験室の阿部和幸研究員と大洗工学センター基盤技術開発部燃料技術開発室の石井徹哉研究員にご助言をいただきました。

熱伝導特性に及ぼすPu富化度およびOM比の影響については、大洗工学センター燃料材料開発部照射燃料集合体試験室の前田宏治研究員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。

## 9. 参考文献

- (1) R.F.Hilbert et.al,"Evaluation of Material Property Correlations Used in LIFE-II", GEAP-13967, June (1973)
- (2) H.E.Schmidt and J.Richter,"The Influence of Stoichiometry on the Thermal Conductivity of  $(U_{0.8},Pu_{0.2})O_{2\pm x}$ ", Oxide Fuel Thermal Conductivity Symposium, Stockholm Sweden, June 1 (1967)
- (3) R.L.Gibby,"The Effect of Plutonium Content on Thermal Conductivity of  $(U,Pu)O_2$  Solid Solutions", Journal of Nuclear Materials, 38, 163-177, (1971)
- (4) J.C.VanCraeynest et.al.,"Etude De La Conductibilite Thermique Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium", Journal of Nuclear Materials, 26, 132-136, (1968)
- (5) F.J.Hetzler et.al.,"The Thermal Conductivity of Uranium and Uranium-Plutonium Oxides", GEAP-4879, August (1967)
- (6) W.E.Baily et.al.,"Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide Fuels", Nuclear Metallurgy, Volume 13, International Symposium on Plutonium Fuels Technology, Proceedings of the 1967 Nuclear Metallurgy Symposium (AIME), Scottsdale, Arizona, October 4-6, (1967)
- (7) R.A.Laskiewicz et.al.,"Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide", GEAP-13733, September (1971)
- (8) Y.Philipponneau,"Thermal Conductivity of  $(U,Pu)O_{2-x}$  Mixed Oxide Fuel", Journal of Nuclear Materials, 188, 194-197, (1992)
- (9) To Be Reported and/or Published
- (10) W.D.Kingeryら、「セラミック材料科学入門（応用編）：Introduction to Ceramics」、内田老鶴圃新社、(1981)
- (11) D.G.Martin,"A Re-appraisal of the Thermal Conductivity of  $UO_2$  and Mixed  $(U,Pu)$  Oxide Fuels", Journal of Nuclear Materials, 110, 73-94, (1982)
- (12) A.L.Loeb,"A Theory of Thermal Conductivity of Porous Materials", Journal of the American Ceramic Society, 37, 96, (1954)
- (13) B.Schultz,"Thermal Conductivity of Porous and Highly Porous Material", High Temperature-High Pressure, 13, 649-660, (1981)
- (14) "Thermal Conductivity of Uranium Dioxide", Report of the Panel on Thermal Conductivity of Uranium Dioxide held in Vienna, 1965, Technical Reports Series No.59, IAEA, Vienna, (1966)
- (15) K.Bakker et.al.,"Determination of a Porosity Correction Factor for the Thermal Conductivity of Irradiated  $UO_2$  Fuel by Means of the Finite Element Method", Journal of Nuclear Materials, 226, 128-143, (1995)
- (16) 丸山忠司、ファインセラミックス評価技術集成、リアライズ社刊、「熱的性質」、(1984)
- (17) 日本工業規格JIS R 1611「ファインセラミックスのレーザーフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量・熱伝導率試験方法」

- (18) 畠山二三男、山口俊弘、金子洋光、本田裕、「混合酸化物燃料の熱伝導率測定試験」、日本原子力学会、昭和53年秋の分科会、予稿集第II分冊、F9
- (19) 山口俊弘、金子洋光、本田裕、「混合酸化物燃料の熱伝導率測定試験(II)」、日本原子力学会、昭和54年秋の分科会、予稿集第II分冊、E9
- (20) 山口俊弘、小無健司、上村勝一郎、金子洋光、「混合酸化物燃料の熱伝導率測定試験」、日本原子力学会、昭和58年秋の分科会、予稿集第II分冊、H35
- (21) J.H.Harding et.al., "A Recommendation for the Thermal Conductivity of  $UO_2$ ", Journal of Nuclear Materials, 166, 223-226, (1989)
- (22) J.C.VanCraeynest et.al., "Etude De La Conductibilite Thermique Des Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium", Rapport CEA-R-3488, (1968)
- (23) J.C.Weilbacher, "Mesure De La Diffusivite Thermique De Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium, Influence De La Stoechiometrie Et De La Teneur En Plutonium", Rapport CEA-R-4572, (1974)
- (24) J.M.Bonnerot, "Proprietes Thermiques Des Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium", Rapport CEA-R-5450, (1988)
- (25) R.L.Gibby, "The Effect of Oxygen Stoichiometry on the Thermal Diffusivity and Conductivity of  $U_{0.75}Pu_{0.25}O_{2-x}$ ", BNFL-927, January (1969)
- (26) S.Fukushima et.al., "Thermal Conductivity of Near-Stoichiometric (U,Pu,Nd) $O_2$  and (U,Pu,Eu) $O_2$  Solid Solutions", Journal of Nuclear Materials, 116, 287-296, (1983)
- (27) Kazuya Yamamoto, Takashi Hirose, Katsunori Yoshikawa, Katsufumi Morozumi, Shigeo Nomura, "Melting Temperature and Thermal Conductivity of Irradiated Mixed Oxide Fuel", Journal of Nuclear Materials, 204, 85-92, (1993)
- (28) M.Beauvy et.al., "Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of  $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$  Mixed Oxide Fuel at High Temperature", High Temperature-High Pressure, 19, 389-395, (1987)
- (29) J.K.Fink, "Enthalpy and Heat Capacity of the Actinide Oxides", International Journal of Thermophysics, Vol.3, No.2, 165-200, (1982)
- (30) D.G.Martin, "The Thermal Expansion of Solid  $UO_2$  and (U,Pu) Mixed Oxides -A Review and Recommendations-", Journal of Nuclear Materials, 152, 94-101, (1988)
- (31) M.Beauvy, "Nonideality of the Solid Solution in (U,Pu) $O_2$  Nuclear Fuels", Journal of Nuclear Materials, 188, 232-238, (1992)
- (32) A.B.G.Washington, "Preferred Values for the Thermal Conductivity of Sintered Ceramic Fuel for Fast Reactor Use", TRG-Report-2236, September (1973)



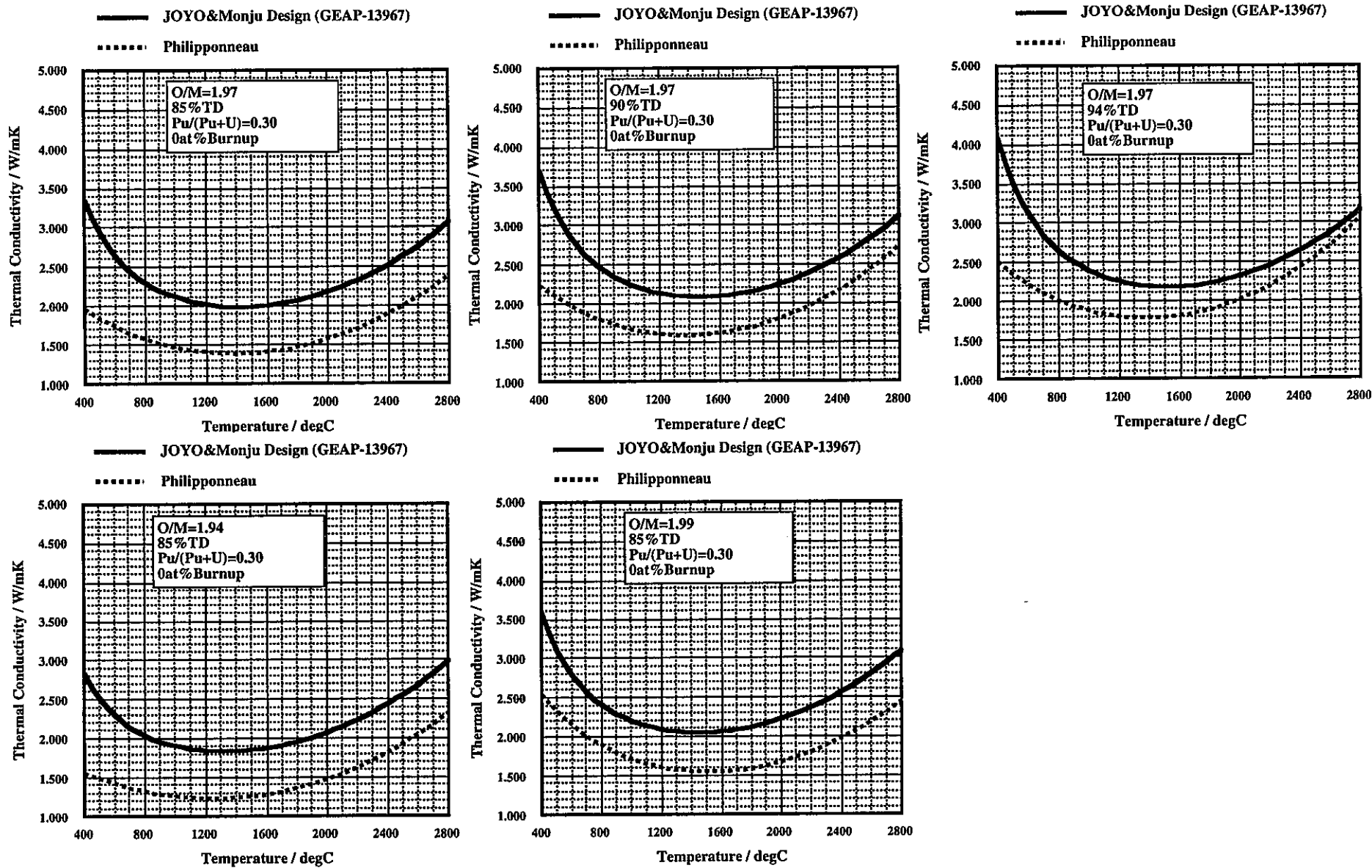
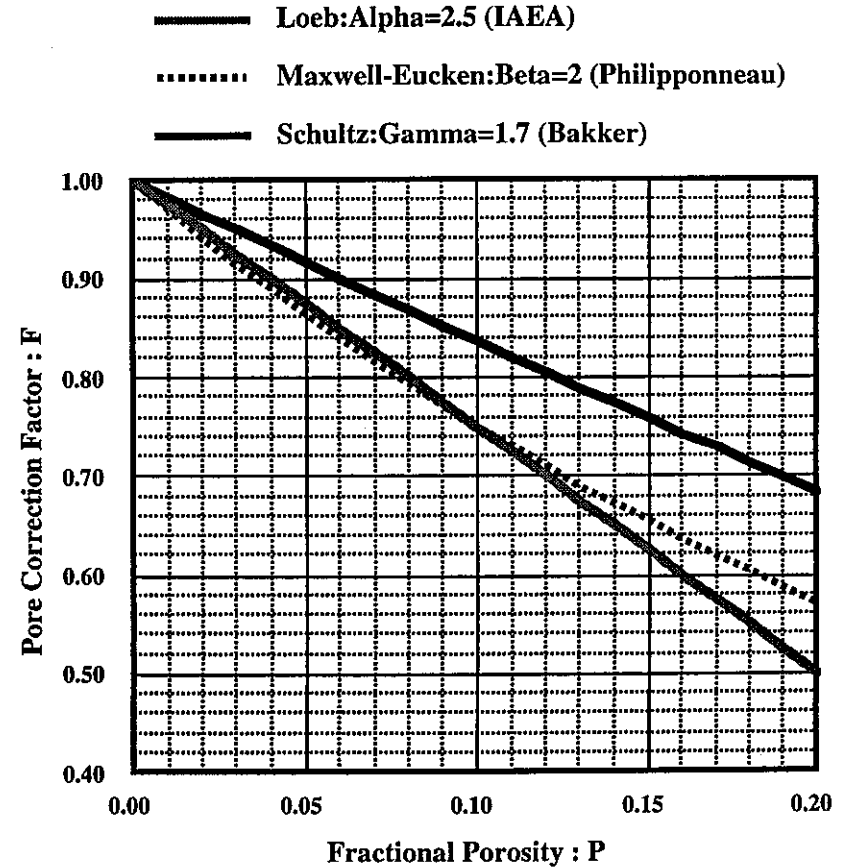
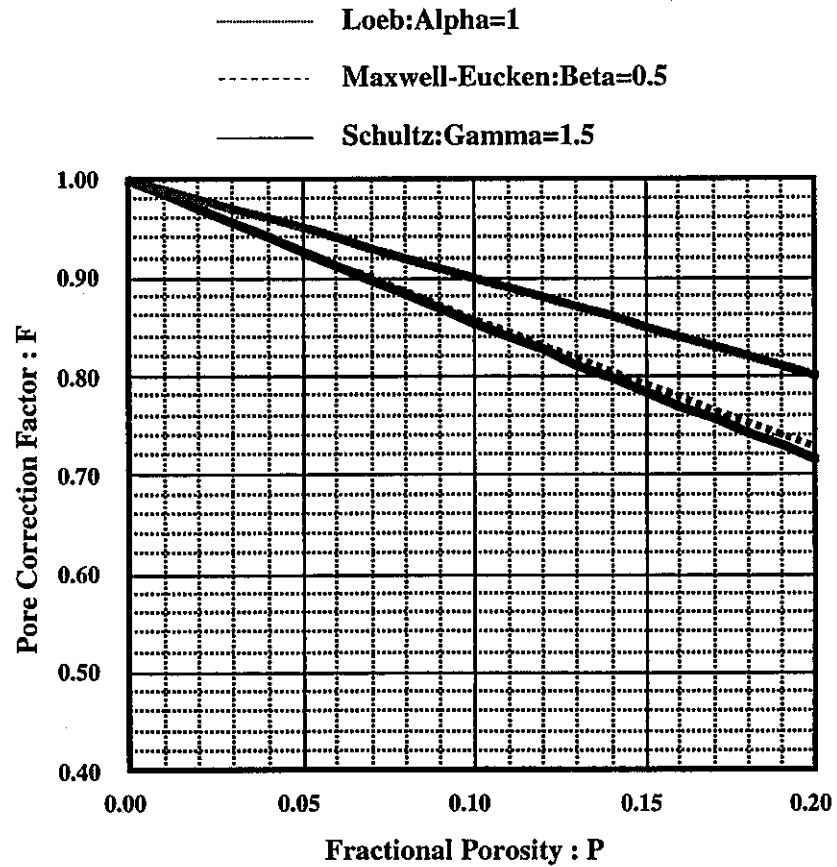


図1 従来式とPhilipponneau式との比較



(a) 理想条件

(b) 実際の燃料

図 2 燃料密度依存性の補正方式による違い

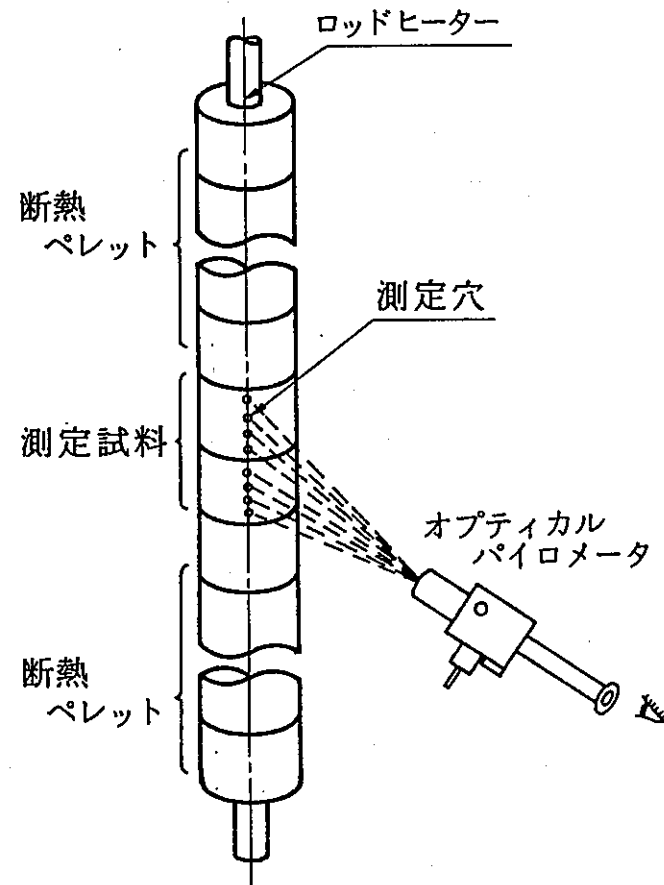
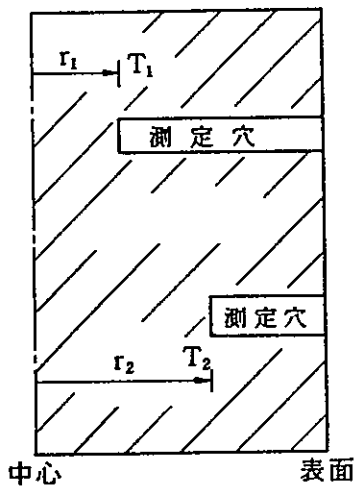
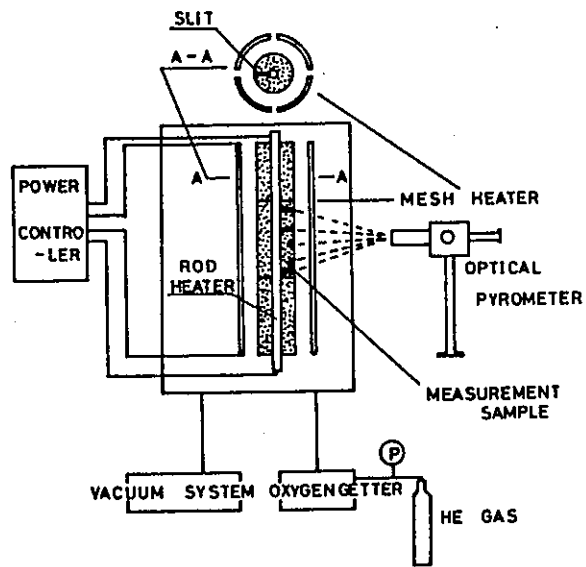
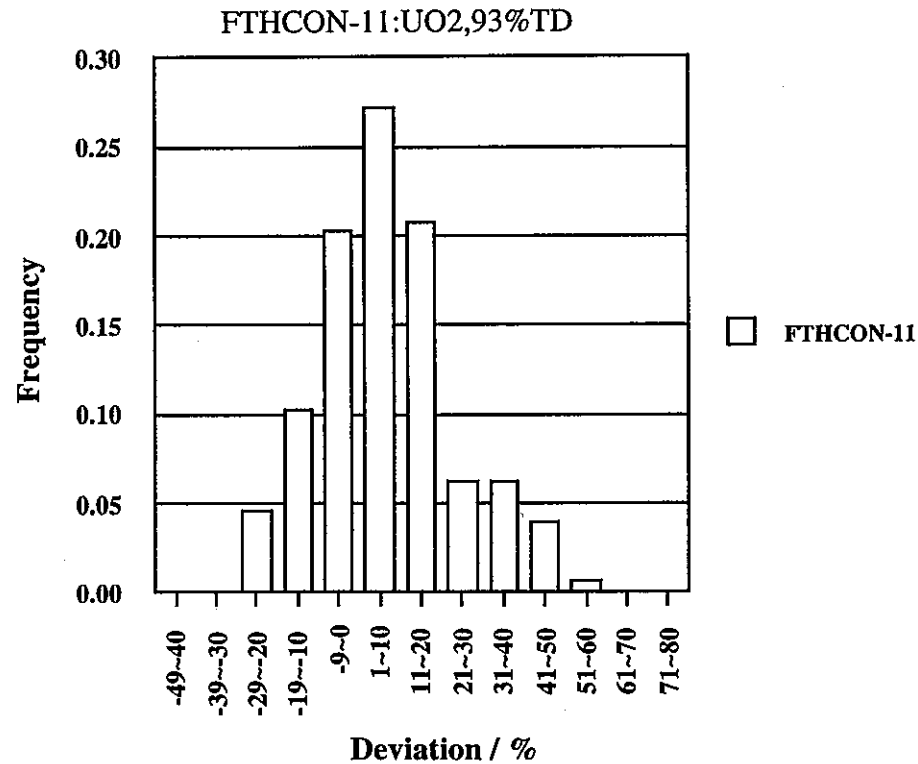
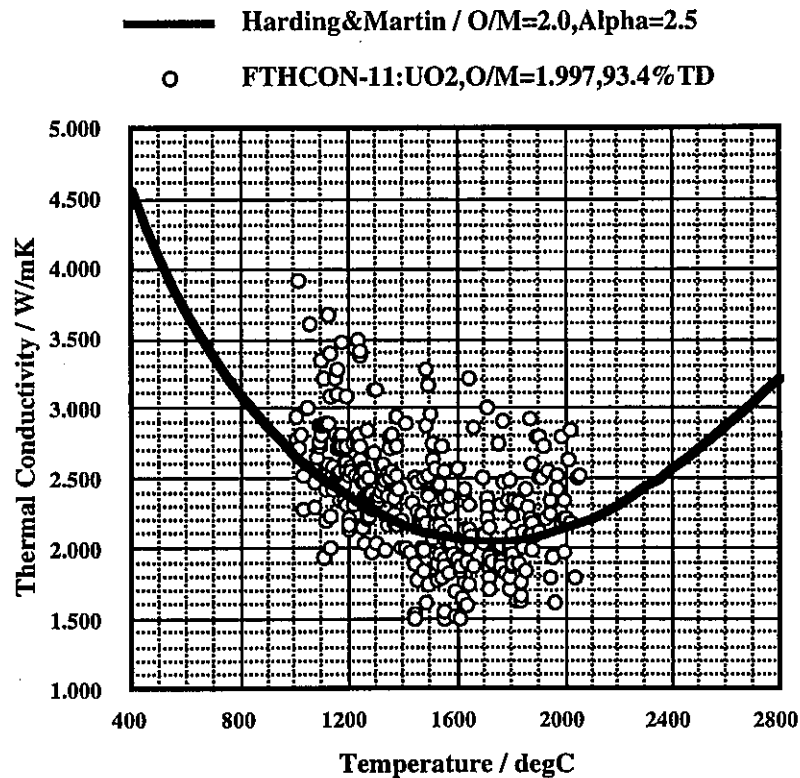


図3 中心加熱法による熱伝導度測定 (装置概略図・計算体系・試料配置)



Deviation = (測定値 - 計算値) / 計算値 × 100 (%)

Frequency : 全測定数に対する割合 (-)

図4 動燃独自の酸化ウラン燃料の熱伝導度測定結果を利用した中心加熱法の測定技術上の不確かさの検討

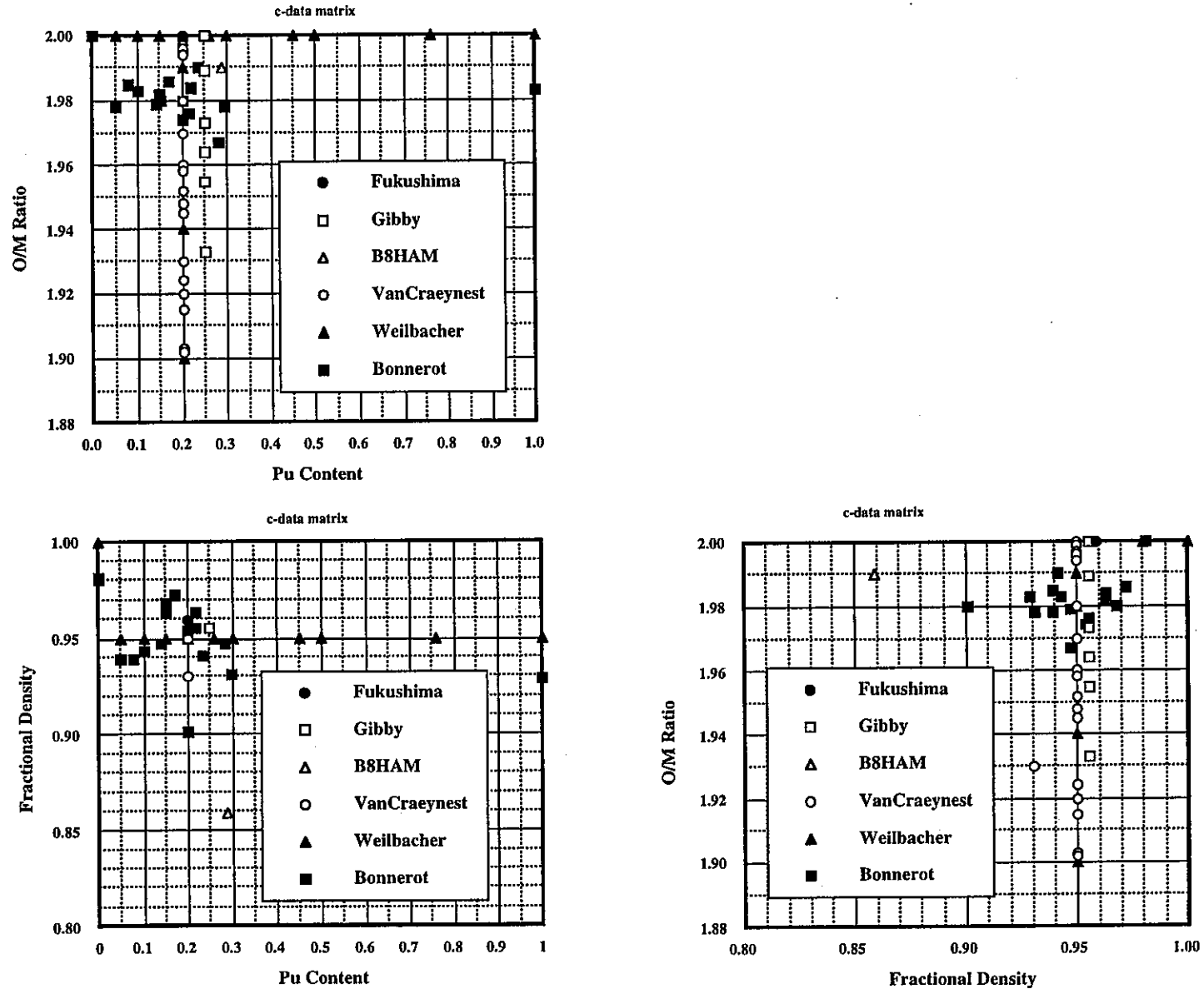
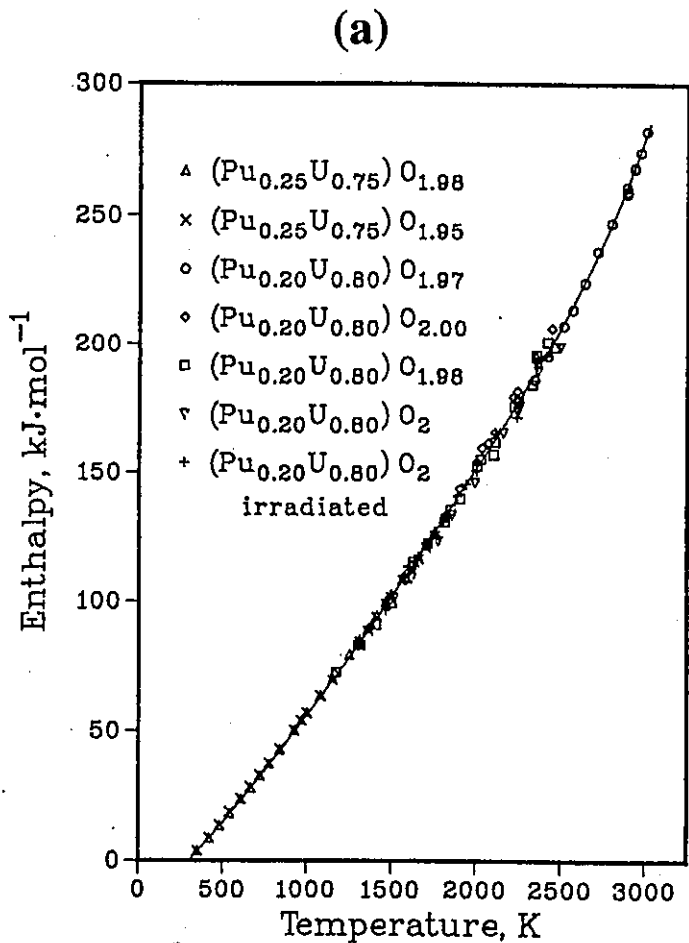
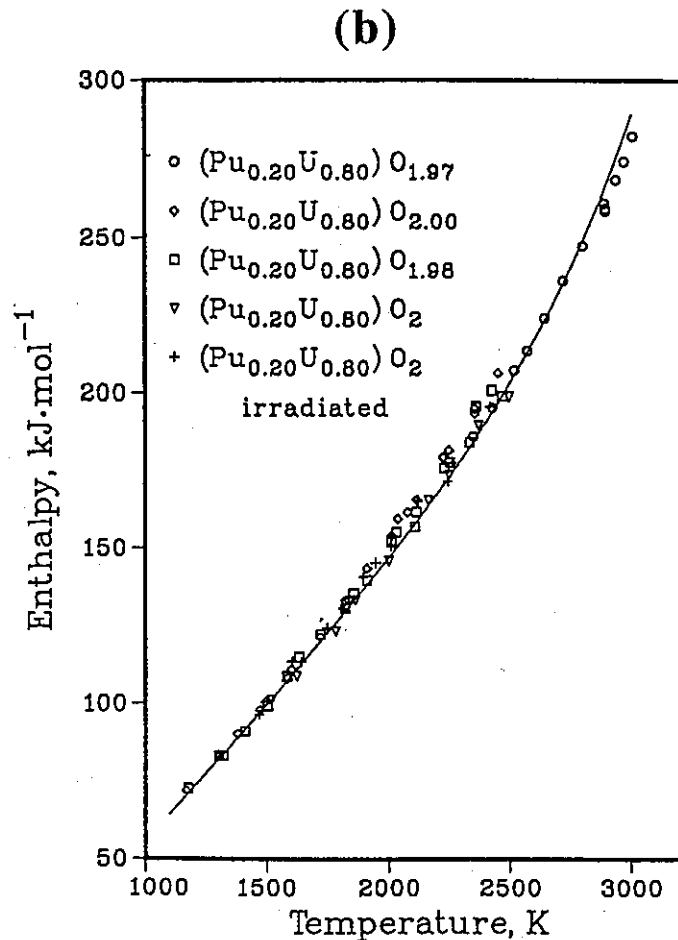


図5 熱伝導度式の作成用に収集した試験データ範囲  
(熱拡散率の報告値あり)



Experimental enthalpy data of  $(\text{Pu}, \text{U})\text{O}_{2-x}$  and fit to those data



Mole average of the equations that fit the  $\text{UO}_2$  and  $\text{PuO}_2$  enthalpy data compared with the  $(\text{Pu}_{0.20}\text{U}_{0.80})\text{O}_{2-x}$  enthalpy data.

図6 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料に関するエンタルピー測定結果

出典：J.K.Fink, "Enthalpy and Heat Capacity of the Actinide Oxides", International Journal of Thermophysics,

Vol.3, No.2, (1982), 165-200

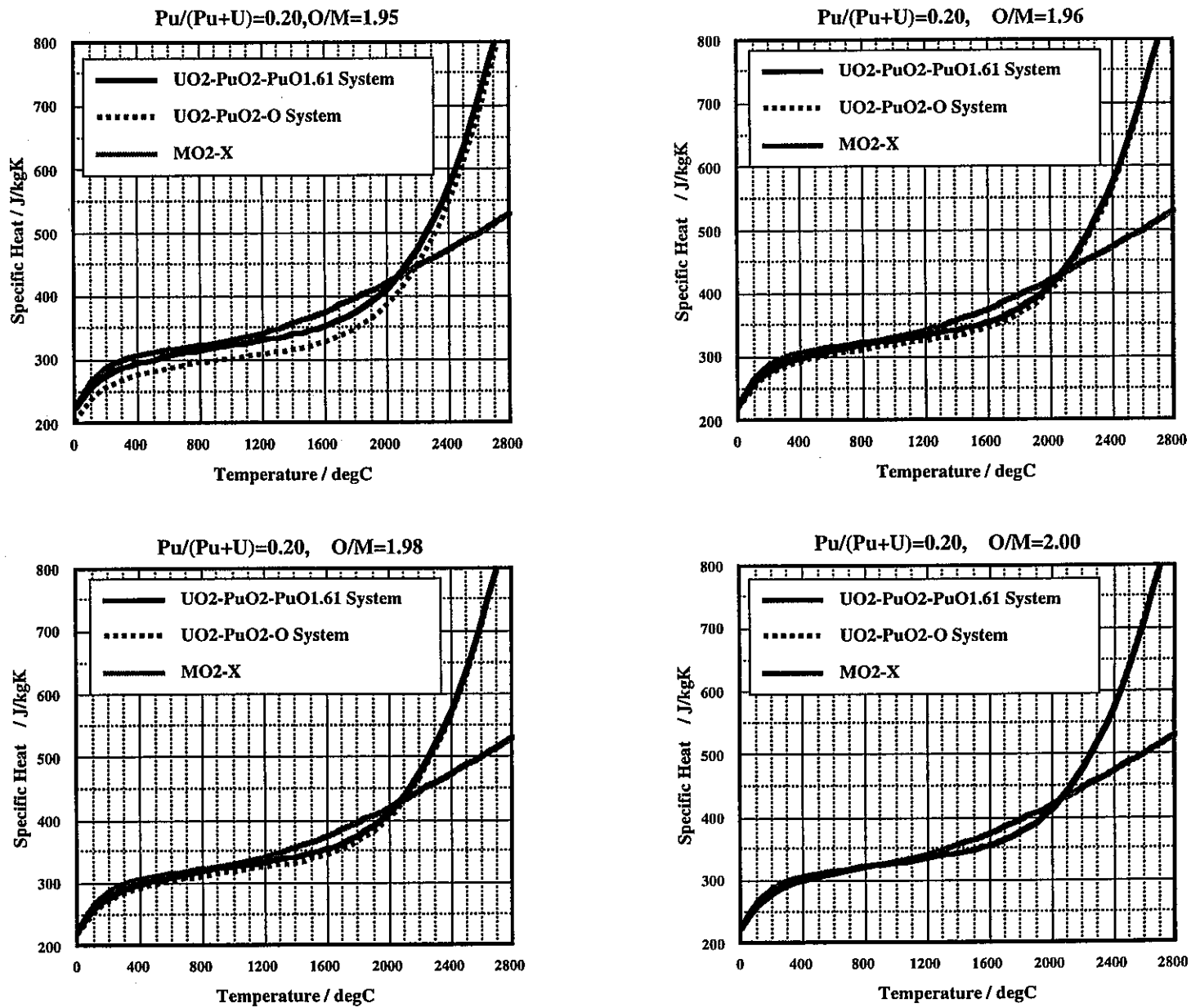


図7 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値)  
 Pu/(Pu+U)=0.20 : 一定、O/M比=1.95~2.00

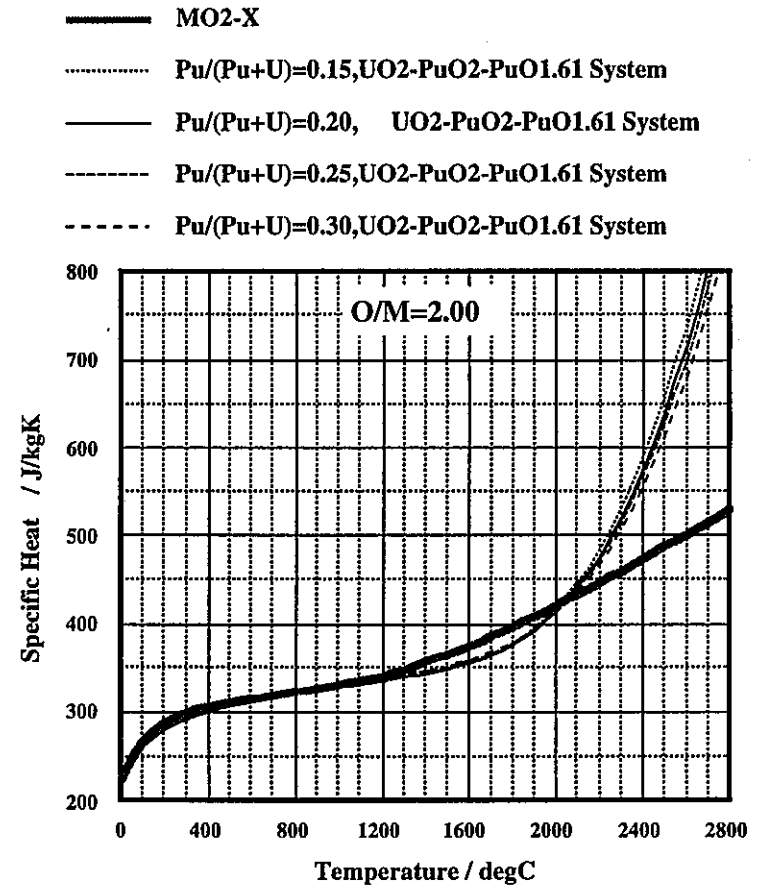
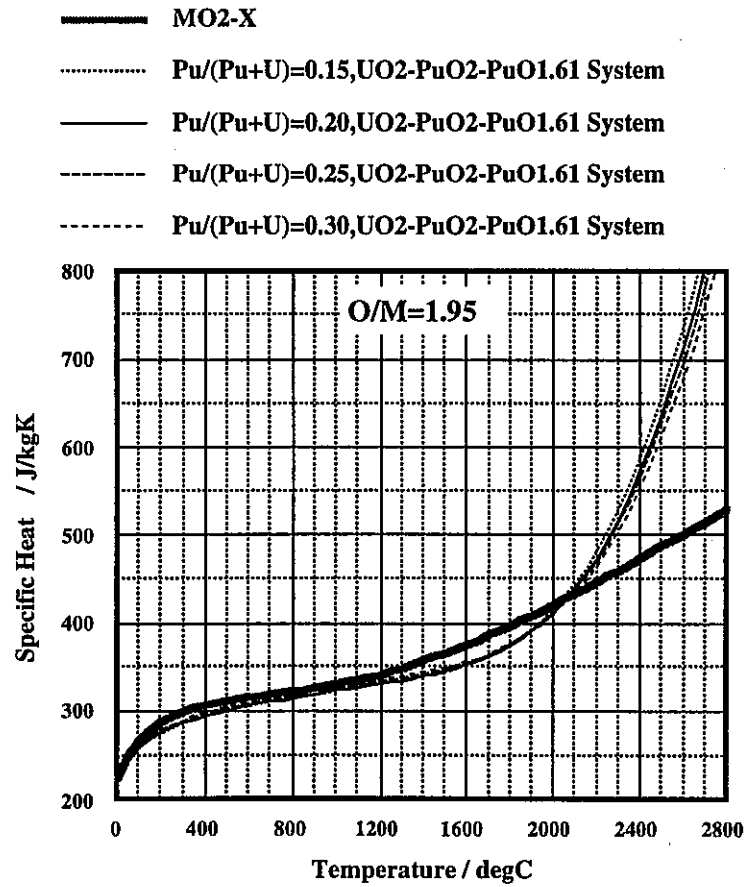


図 8 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値)  
 O/M比=1.95,2.00 : 一定、Pu/(Pu+U)=0.15~0.30



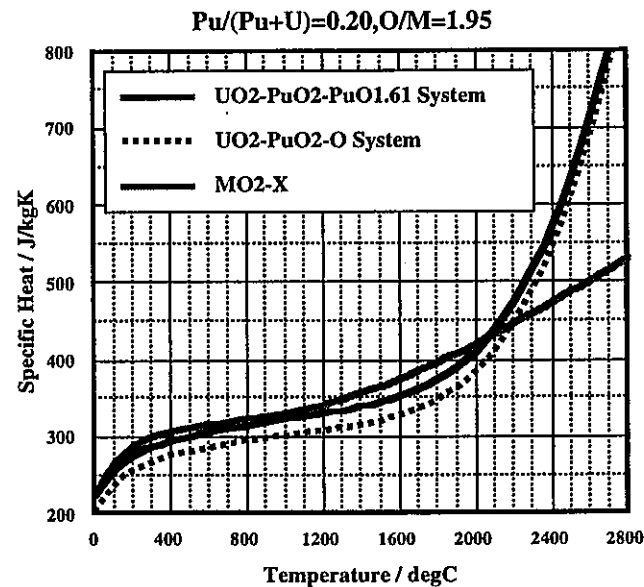
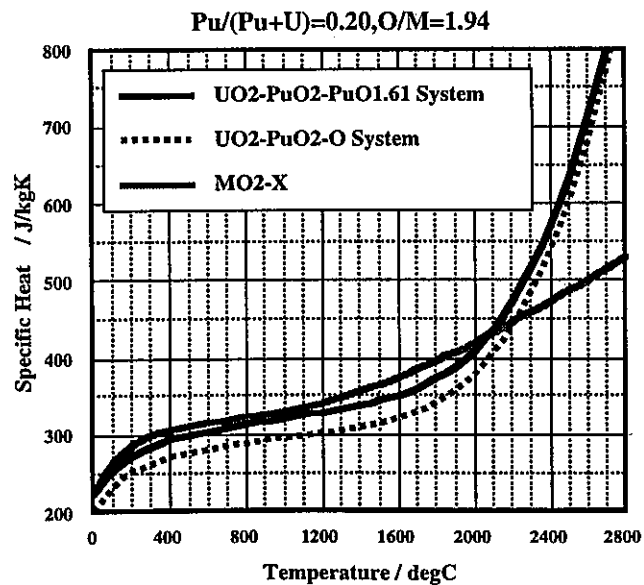
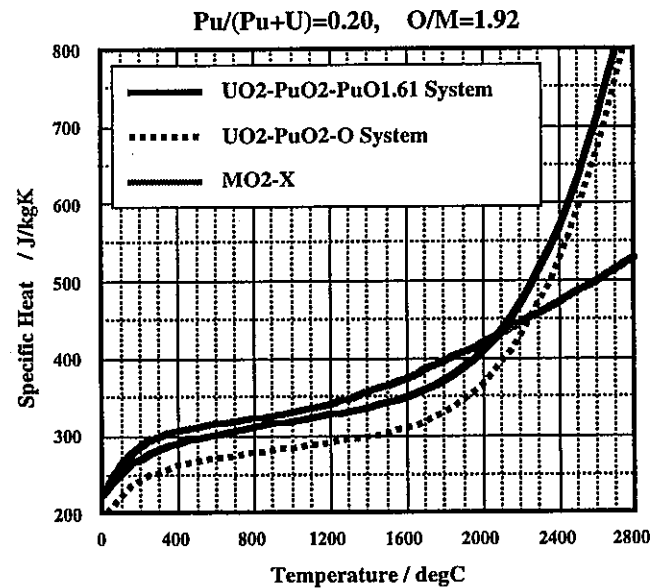
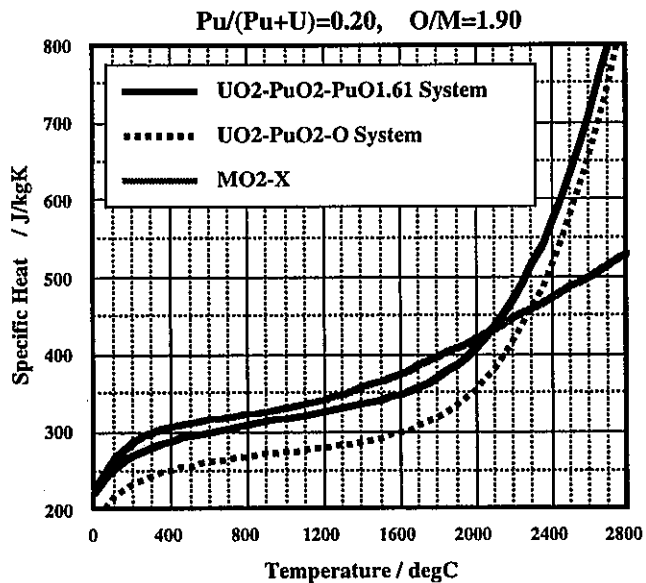


図9 ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の比熱 (計算値)

Pu/(Pu+U)=0.20 : 一定、O/M比=1.90~1.95

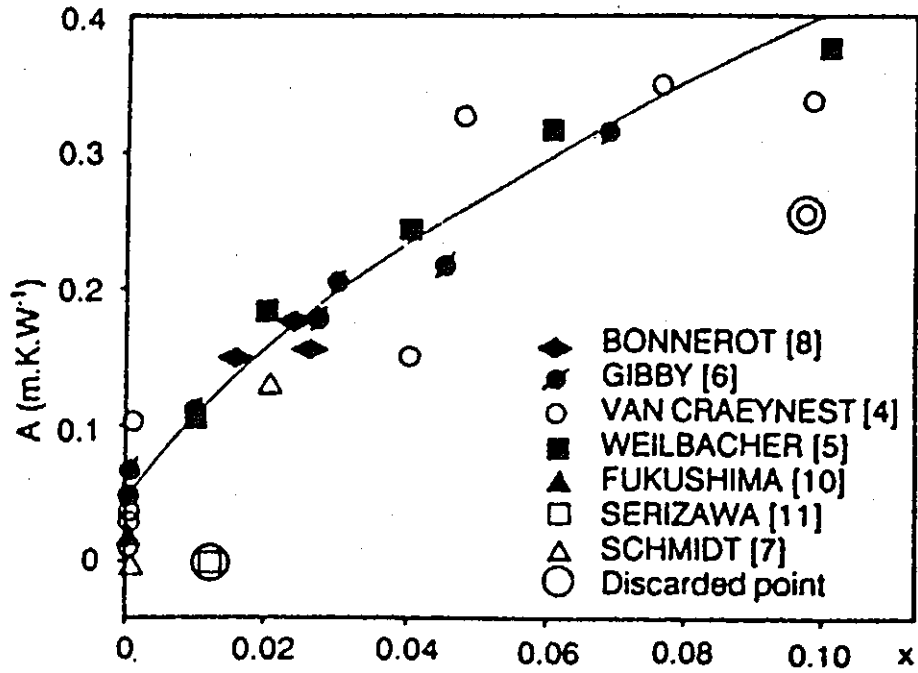


Fig. 3. Coefficient  $A$  versus deviation from stoichiometry.

$$\lambda = F\lambda_{100\%TD} = F\left(\frac{1}{A+BT} + CT^3\right)$$

図 10 Aに及ぼすO/M比の効果

出典：Y.Philipponneau, "Thermal Conductivity of (U,Pu)O<sub>2-x</sub> Mixed Oxide Fuel",  
Journal of Nuclear Materials, 188, 194-197, (1992)

$$\lambda = F\lambda_{100\%TD} = F\left(\frac{1}{A+BT} + CT^3\right)$$

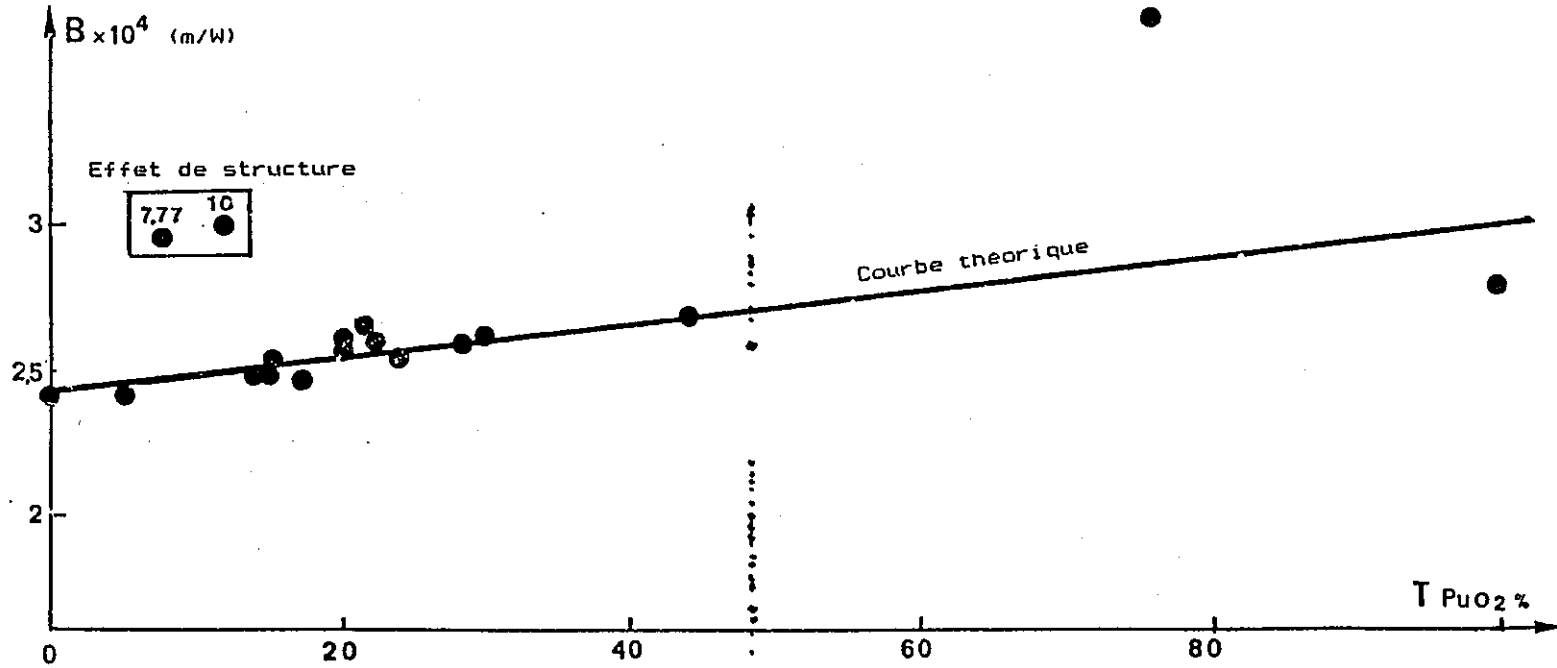
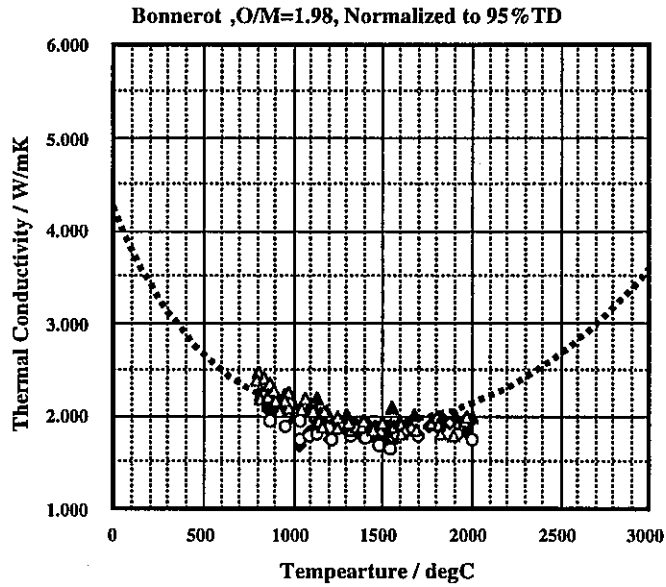


Fig.6.7:Variation de B en fonction de la teneur en PuO<sub>2</sub>, pour des oxydes stoechiometriques de densité ramenee à 95 % d.th.

### 図 1 1 Bに及ぼすPu富化度の効果

出典：J.M.Bonnerot, "Proprietes Thermiques Des Oxydes Mixtes D'Uranium Et De Plutonium",  
Rapport CEA-R-5450, (1988)

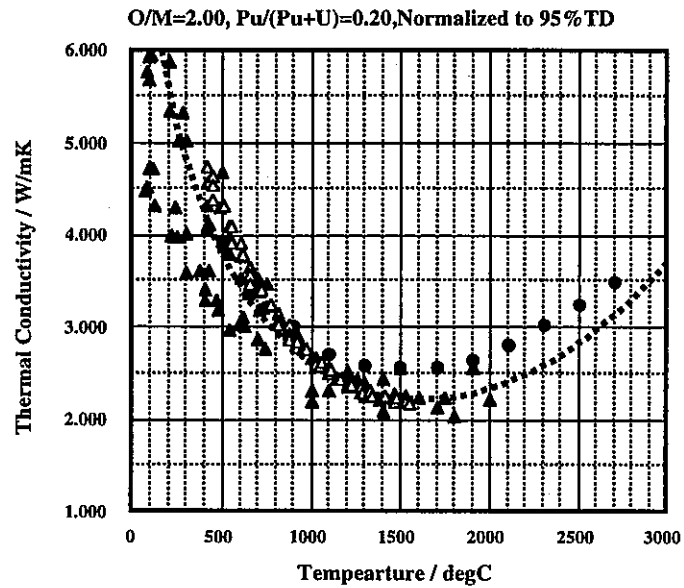


- △ Pu/(Pu+U)=0.14,O/M=1.979,94.7%TD
- △ Pu/(Pu+U)=0.15,O/M=1.980-1.982,96.3-96.8%TD
- Pu/(Pu+U)=0.20, O/M=1.980,90.1%TD
- ◆ Pu/(Pu+U)=0.22,O/M=1.976,95.5%TD
- ◇ Pu/(Pu+U)=0.22,O/M=1.984,96.3%TD
- ▲ Pu/(Pu+U)=0.30,O/M=1.978,93.1%TD
- ..... Philipponneau

(a)

- △ Pu/(Pu+U)=0.15
- Pu/(Pu+U)=0.20
- Pu/(Pu+U)=0.26
- ▲ Pu/(Pu+U)=0.30
- Pu/(Pu+U)=0.45
- Pu/(Pu+U)=0.50
- ..... Philipponneau

(b)



- △ Fukushima: 95.9%TD
- ▲ VanCraeynest: 95%TD
- Weillbacher : 95%TD
- ..... Philipponneau

(c)

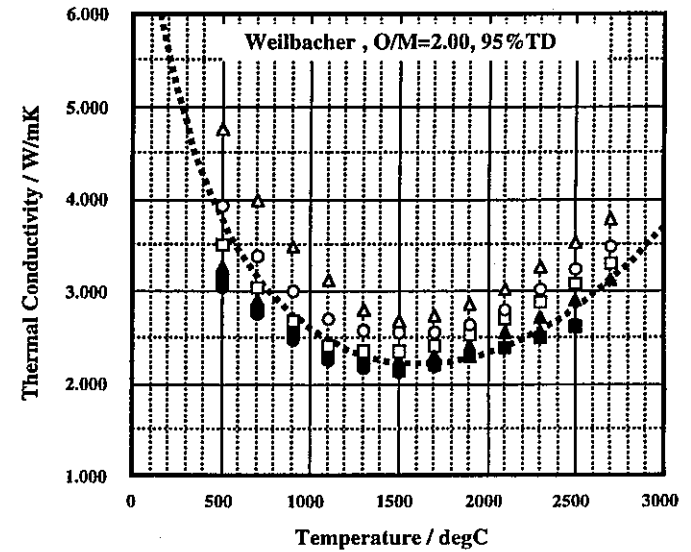


図 1 2 高速炉燃料の熱伝導特性に及ぼすPu富化度の影響および測定者による違い

- ▲ Bonnerot: Pu/(Pu+U)=0.17,O/M=1.986,97.2% TD
- Bonnerot: Pu/(Pu+U)=0.24,O/M=1.990,94.1% TD
- VanCraeynest : Pu/(Pu+U)=0.20,O/M=1.994,95% TD
- B8HAM: Pu/(Pu+U)=0.29,O/M=1.99,86% TD
- ◆ Gibby: Pu/(Pu+U)=0.25,O/M=1.989,95.5% TD

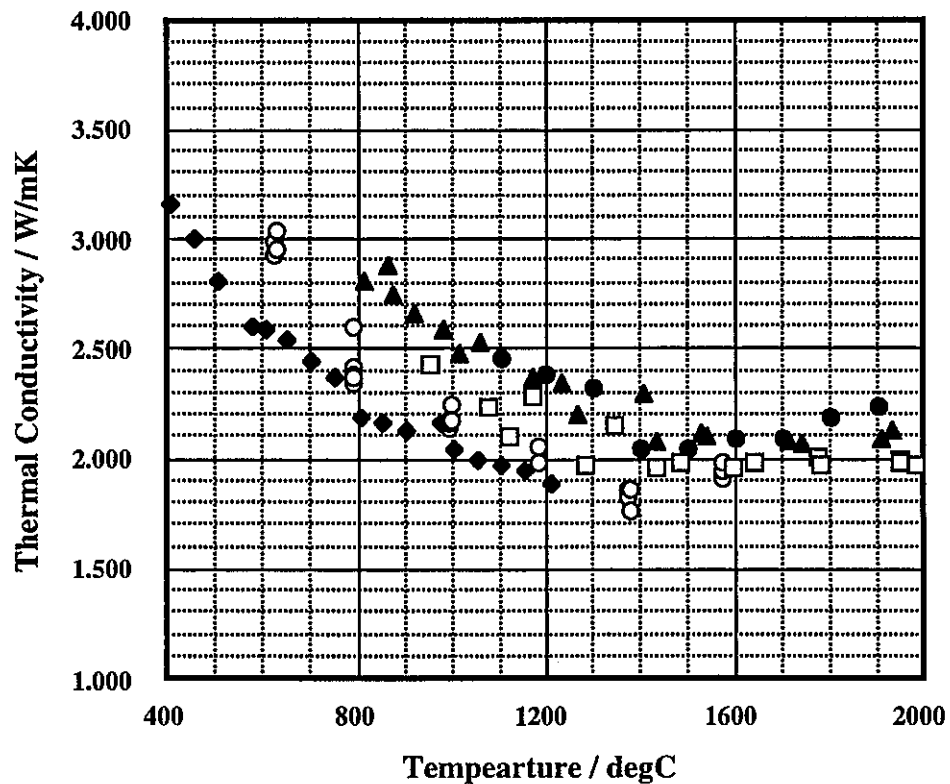
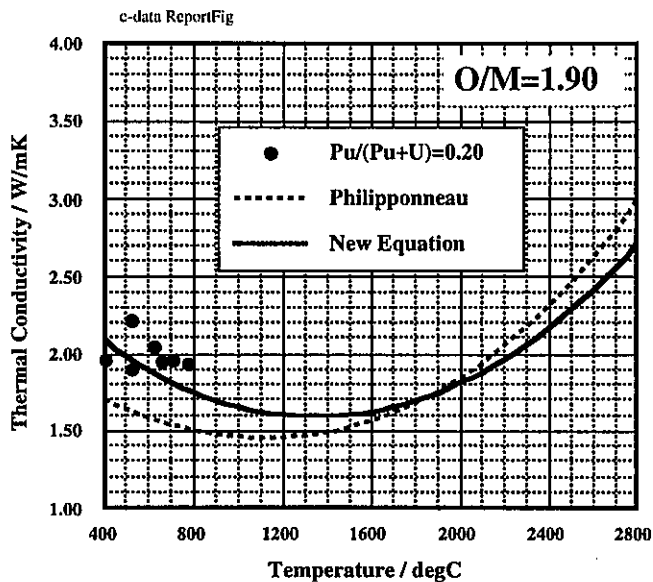


図 1 3 高速炉燃料の熱伝導特性に及ぼす燃料密度の影響



- ・ 図中の熱伝導度値は95%TDに規格化した値
- ・ 高密度燃料データ (>90%TD) のみプロット

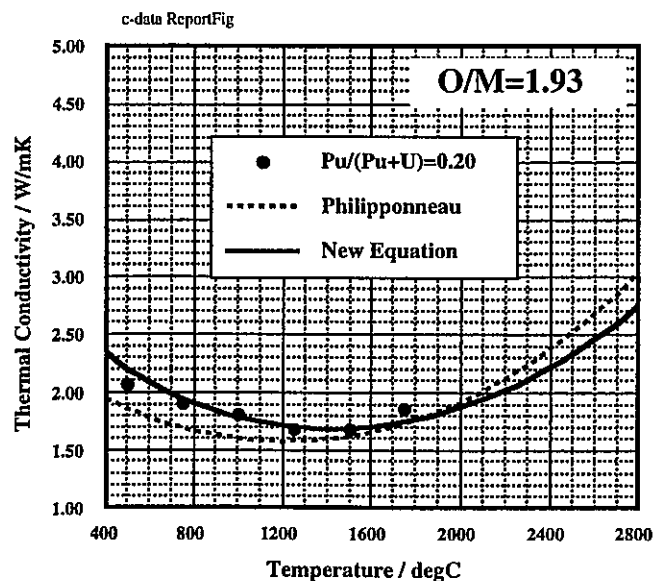
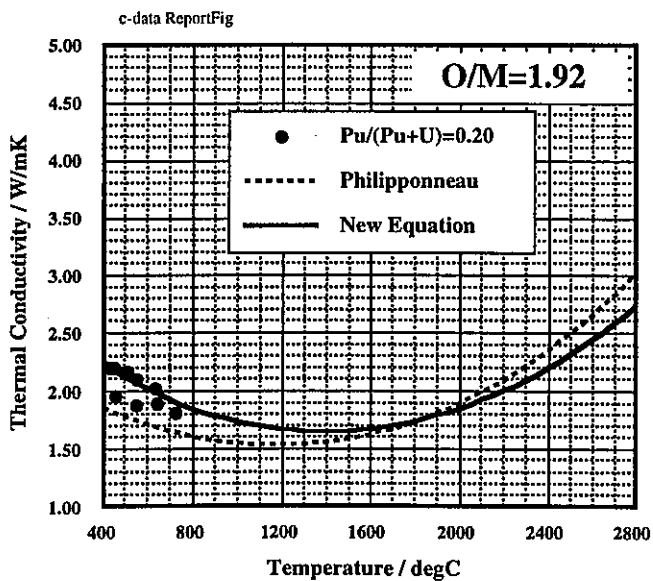


図 1 4 試験データ・Philipponneau式・新規作成式の比較 (O/M比=1.90~1.93)

- ・ 図中の熱伝導度値は95%TDに規格化した値
- ・ 高密度燃料データ (>90%TD) のみプロット

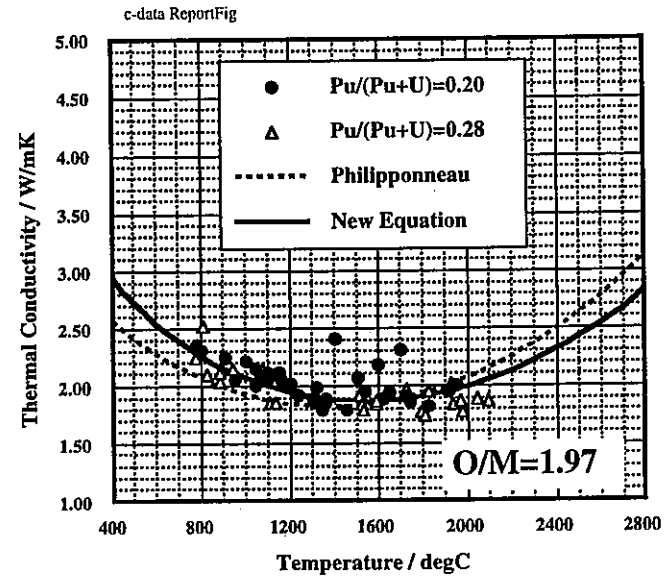
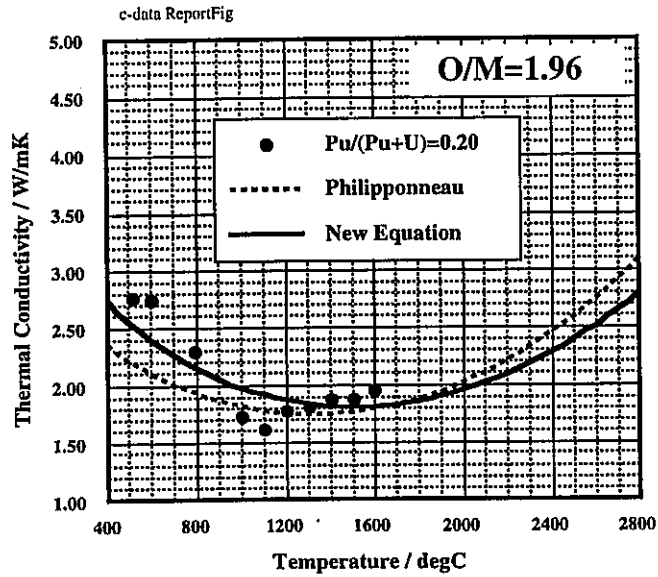
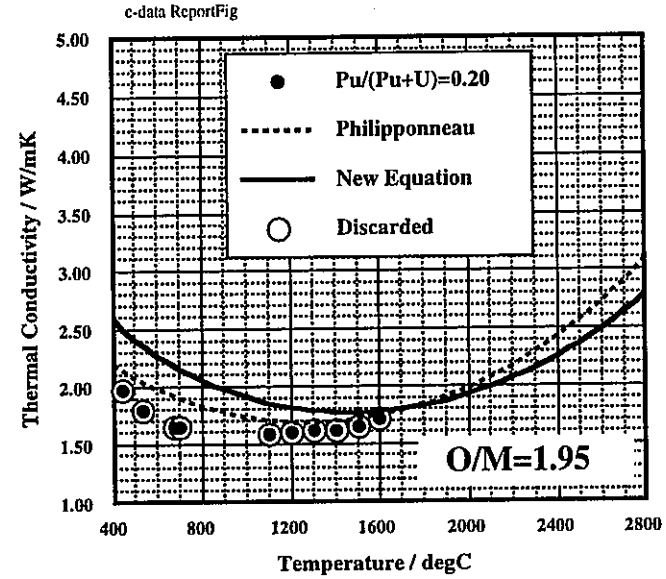
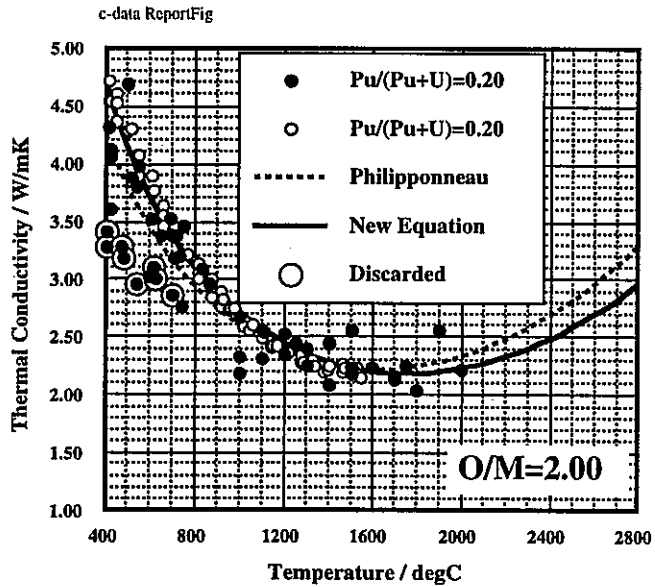
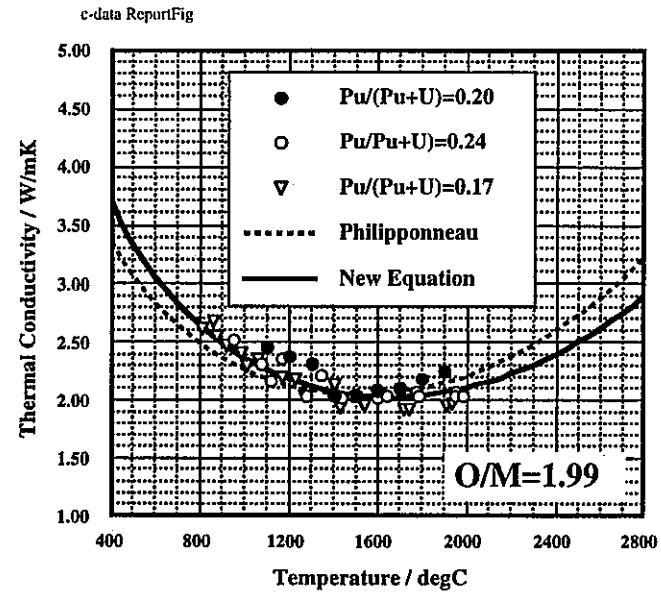
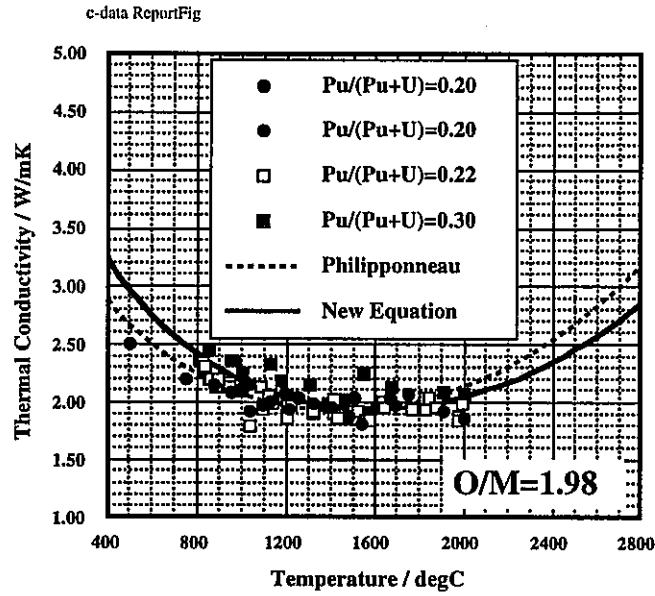


図 1 5 試験データ・Philipponneau式・新規作成式の比較 (O/M比=1.94~1.97)

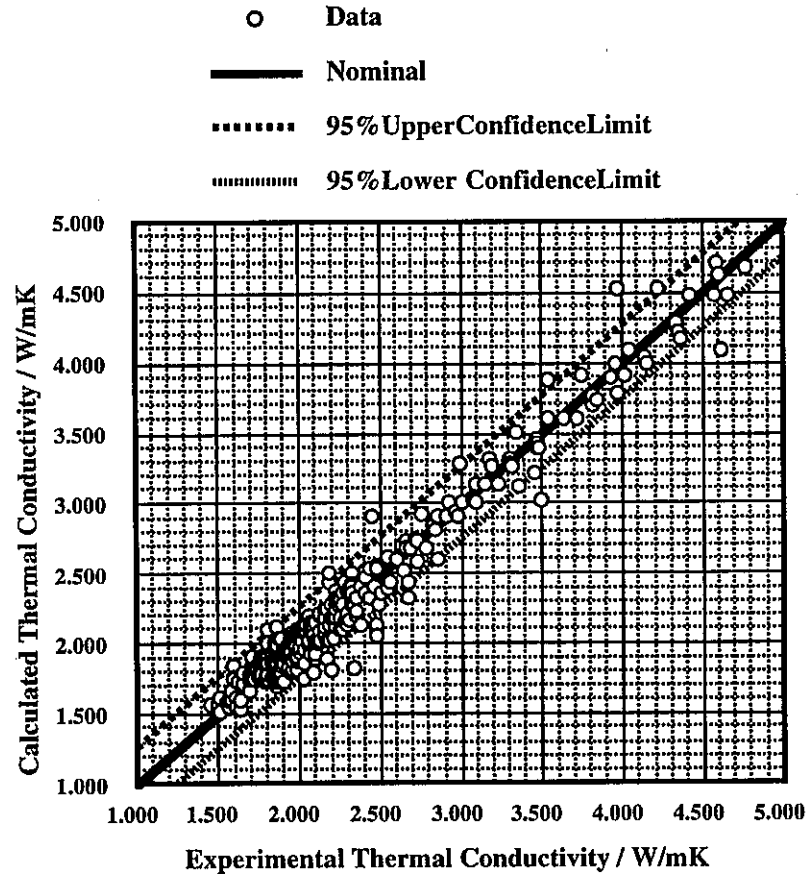


- ・ 図中の熱伝導度値は95%TDに規格化した値
- ・ 高密度燃料データ (>90%TD) のみプロット

図 1 6 試験データ・Philipponneau式・新規作成式の比較 (O/M比=1.98~2.00)



(a) 高密度燃料データベースに対するC/Eの検討



高密度燃料用燃料密度依存性の補正係数  $\alpha=2.95$ の妥当性確認

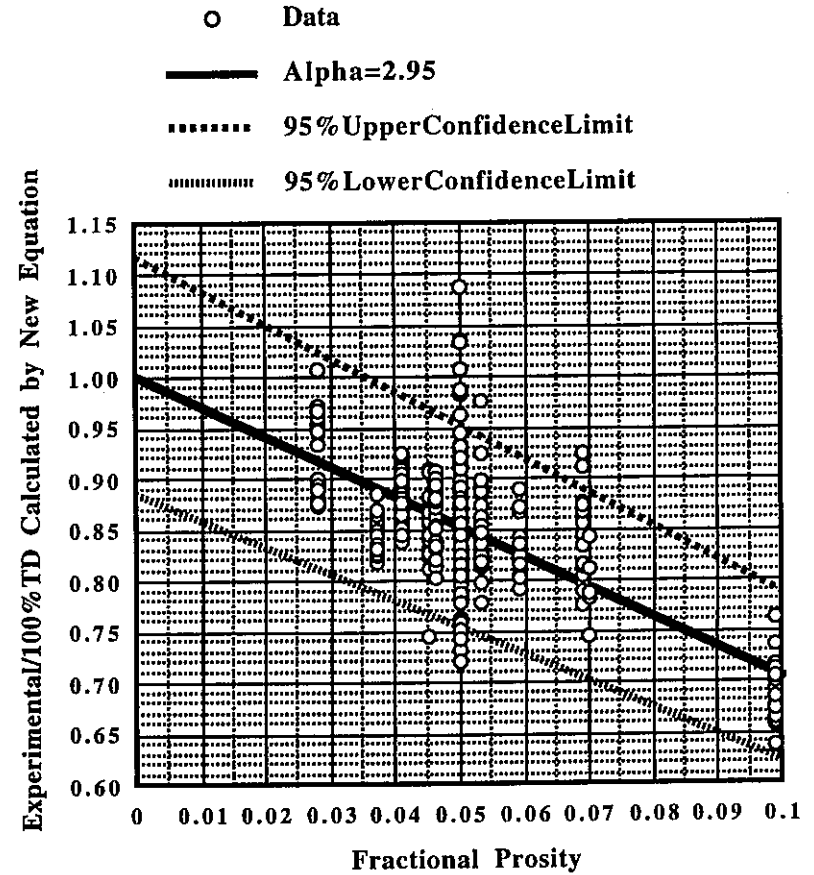


図 1 7 高密度燃料データベースに対する予測精度および燃料密度依存性の補正係数  $\alpha=2.95$ の妥当性確認

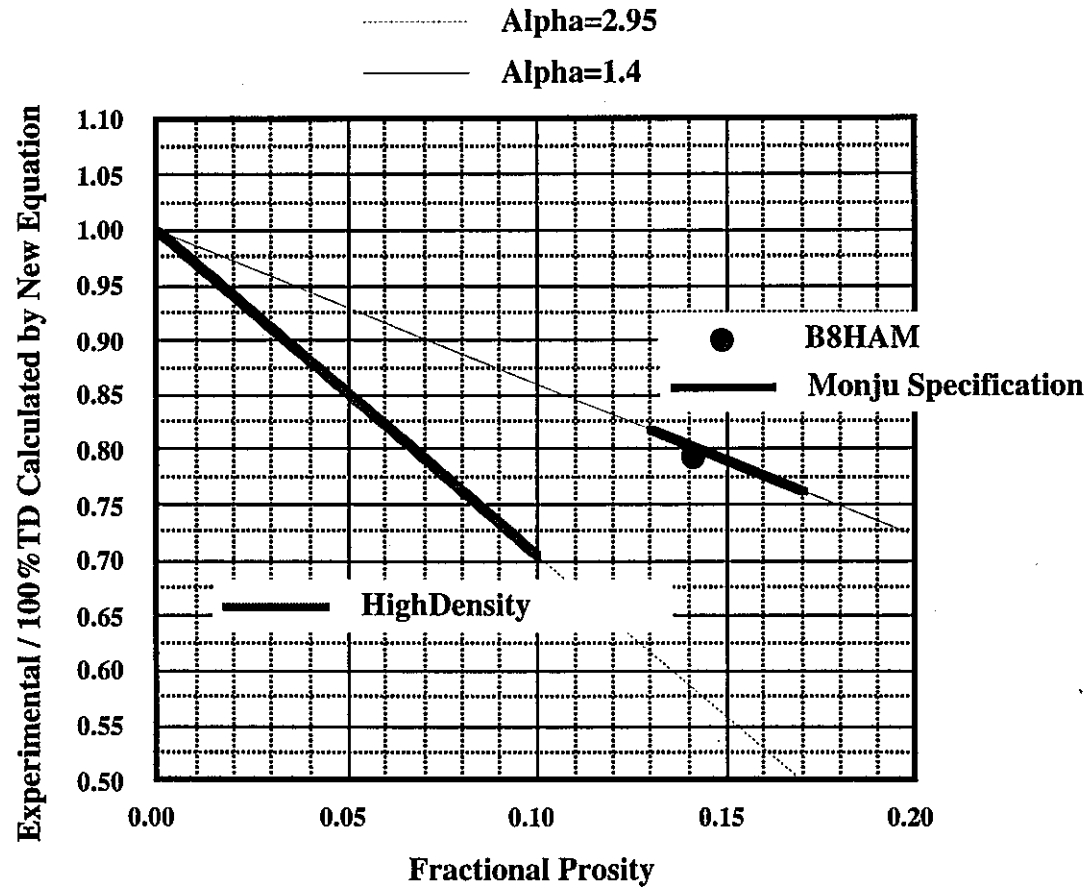


図 1 8 高密度燃料用と「もんじゅ」型燃料用の 2 種類の燃料密度依存性の補正係数の比較

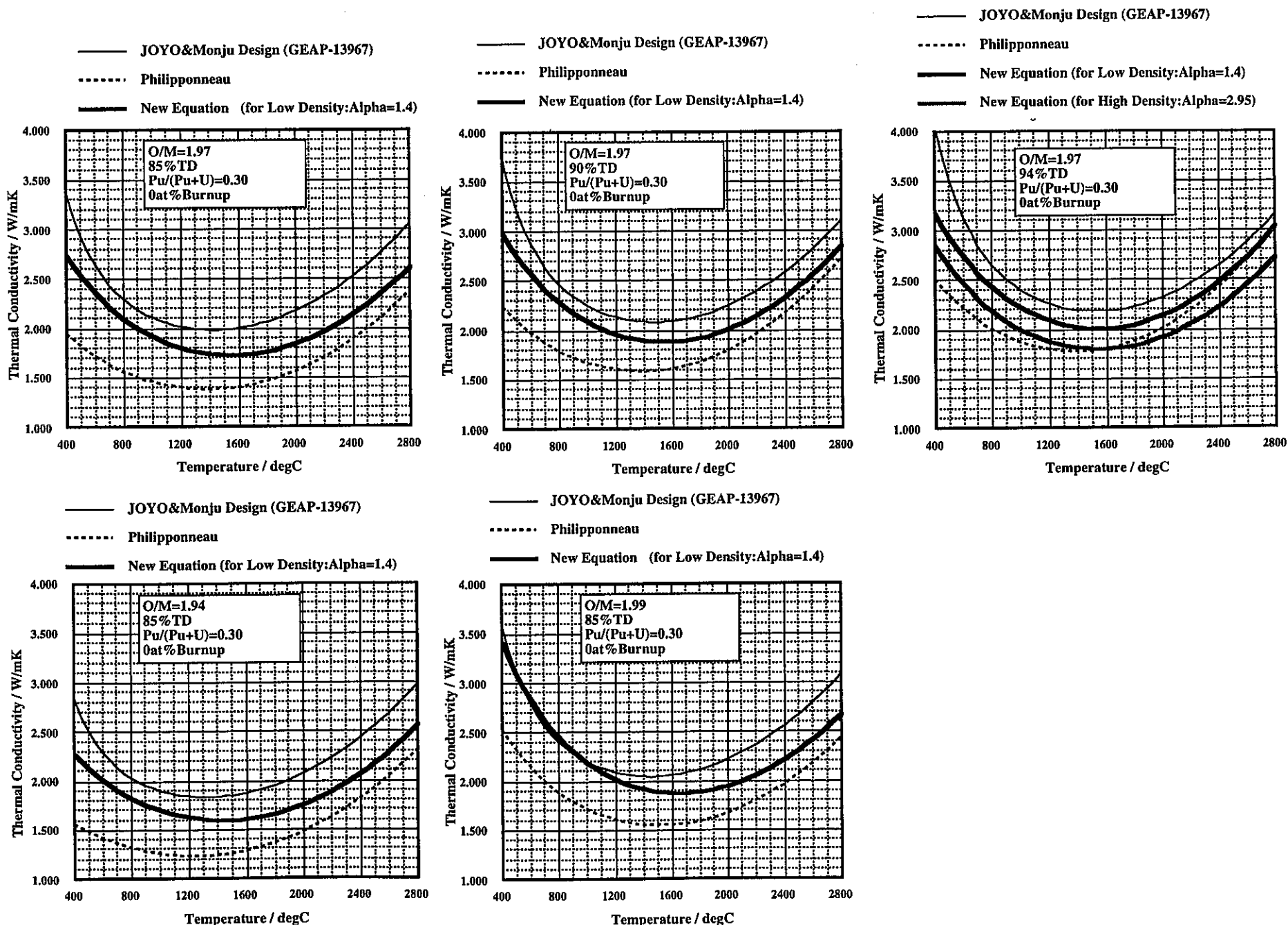


図 1 9 従来式・Philipponneau式・新規作成式の比較

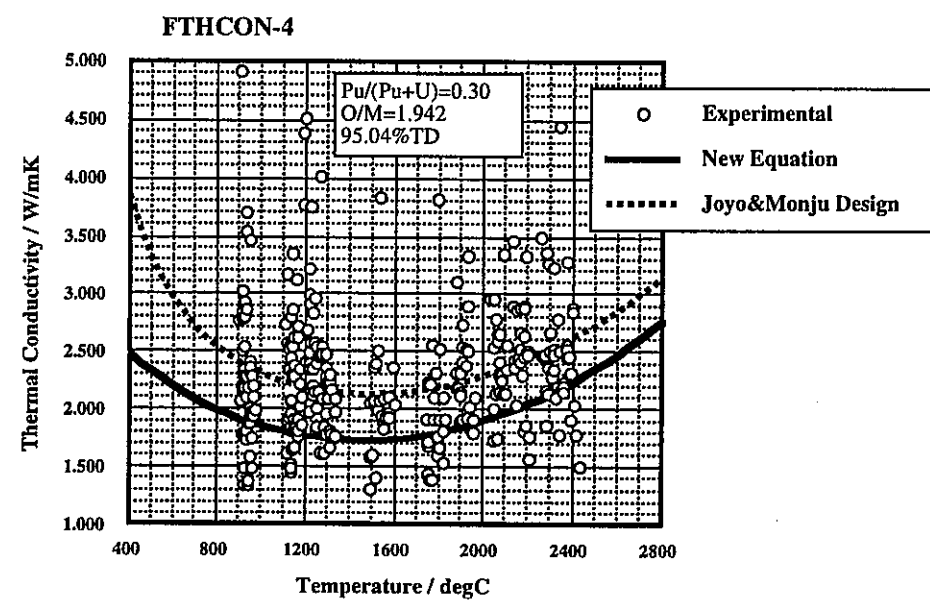
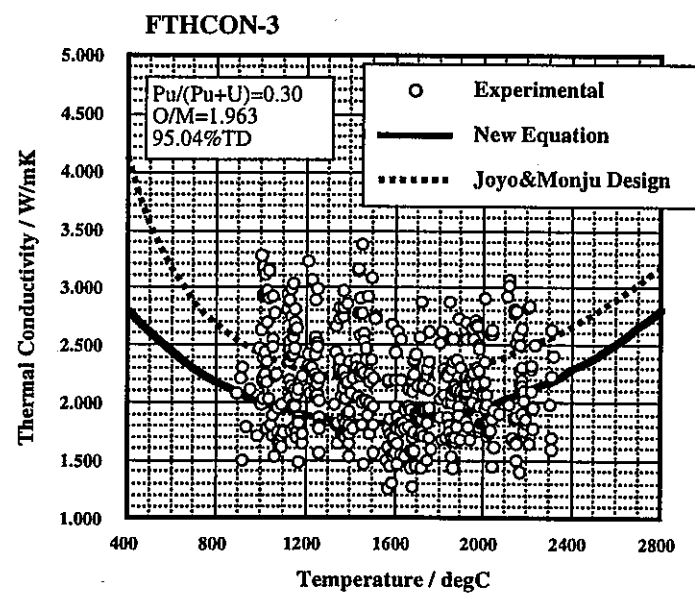
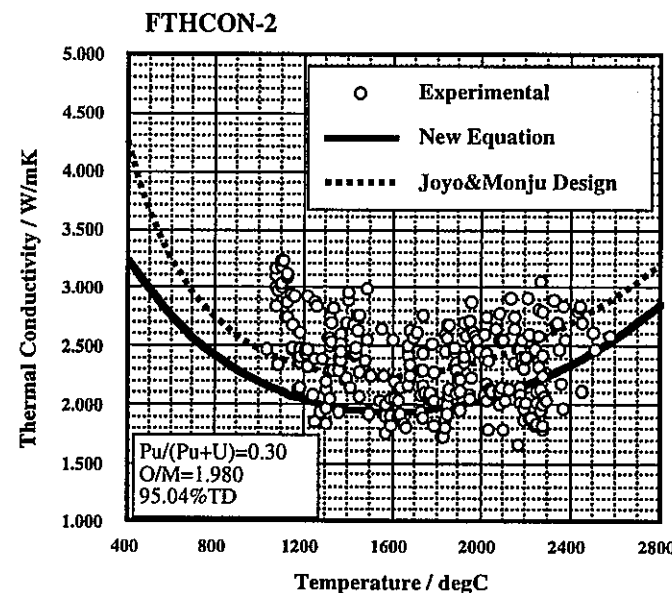
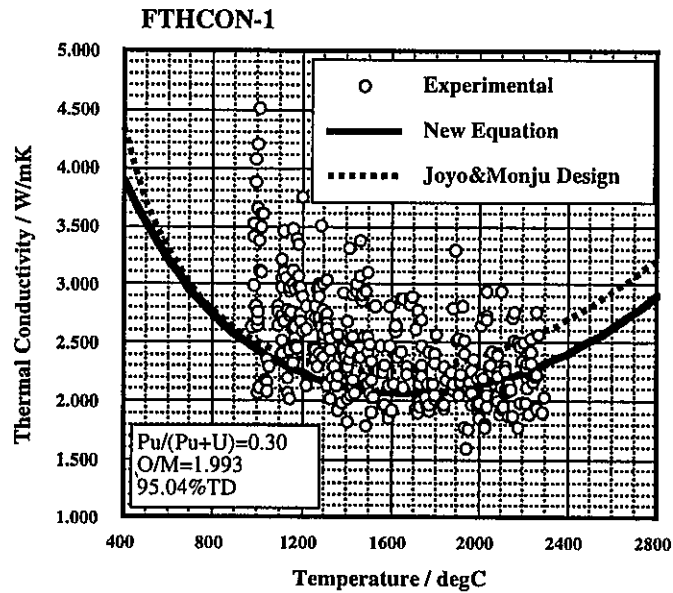


図 2 0 FTHCON-1~4・従来式・新規作成式の比較検討

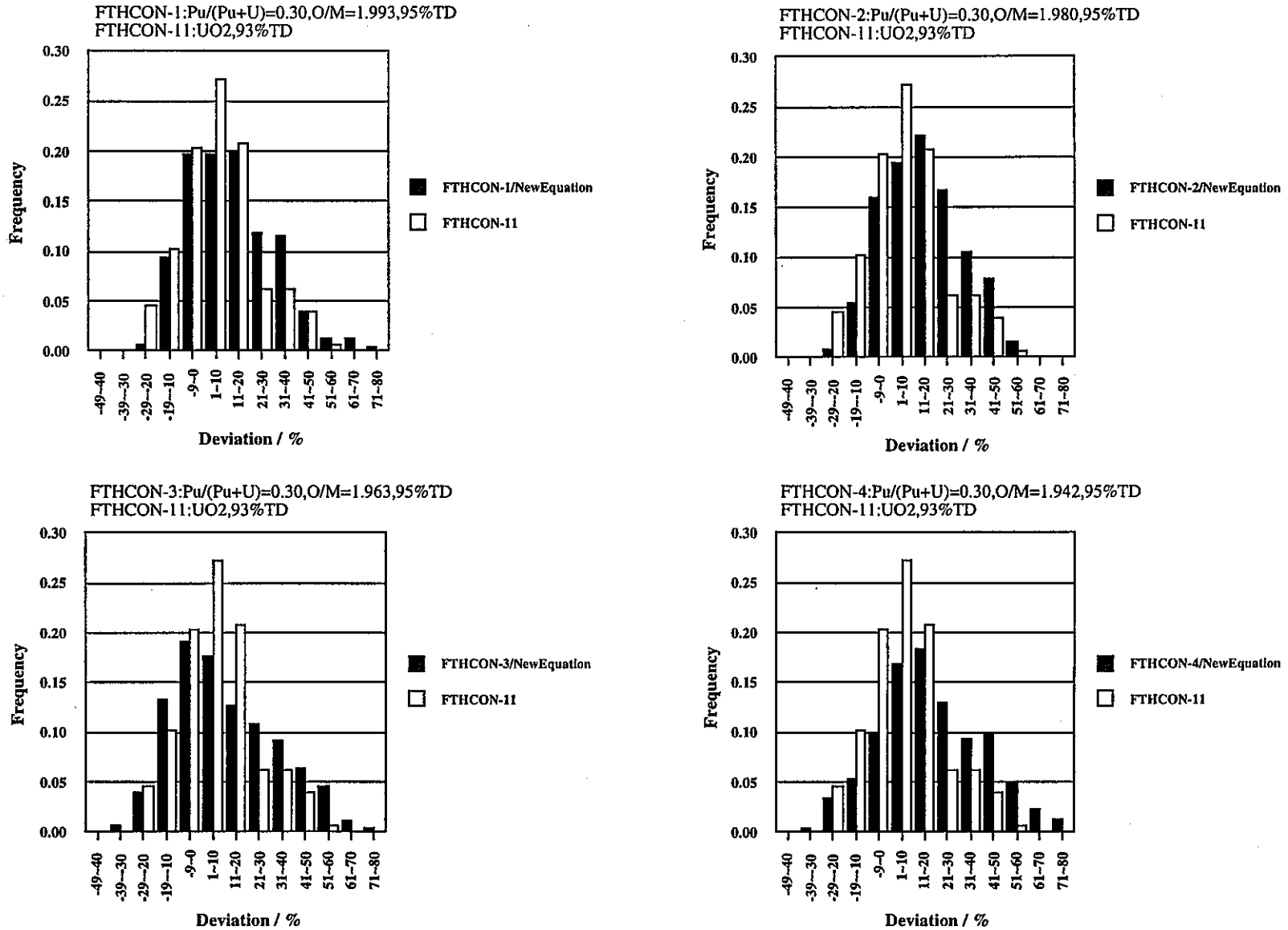


図 2 1 動燃独自の中心加熱法による測定結果と新規作成式との比較検討：高密度燃料  
中心加熱法測定値と計算値との残差 (%) の頻度分布

Deviation = (測定値 - 計算値) / 計算値 × 100 (%)

Frequency : 全測定数に対する割合 (-)

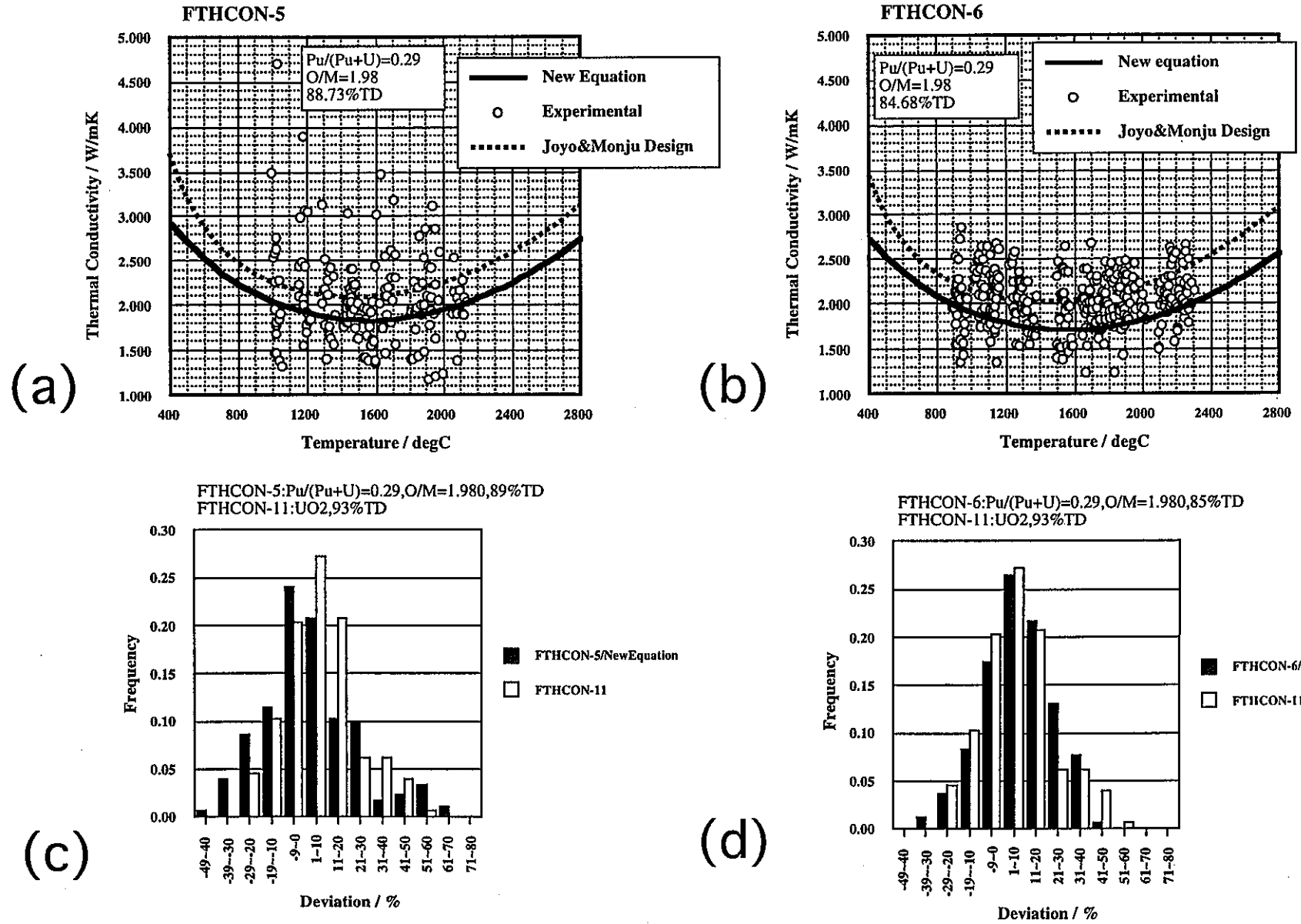
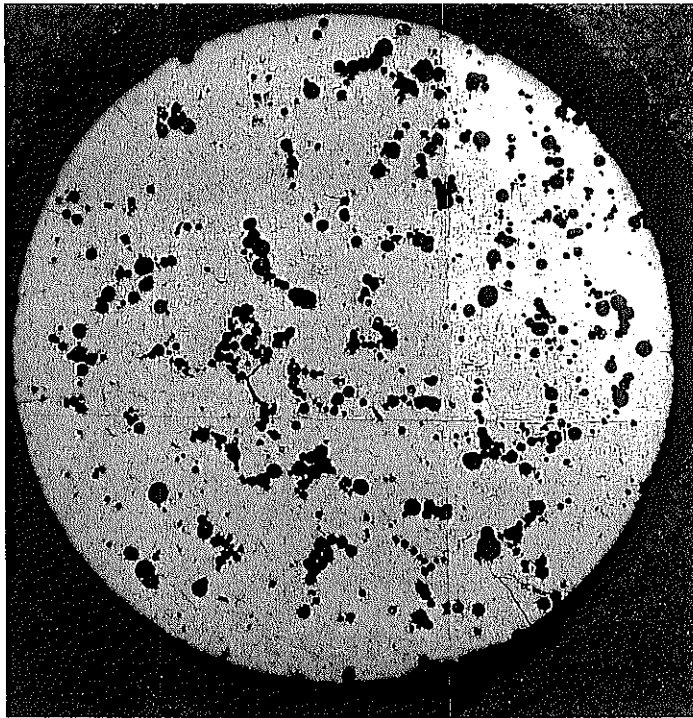


図 2 2 動燃独自の中心加熱法による測定結果と新規作成式との比較検討：低密度燃料

Deviation = (測定値 - 計算値) / 計算値 × 100 (%)

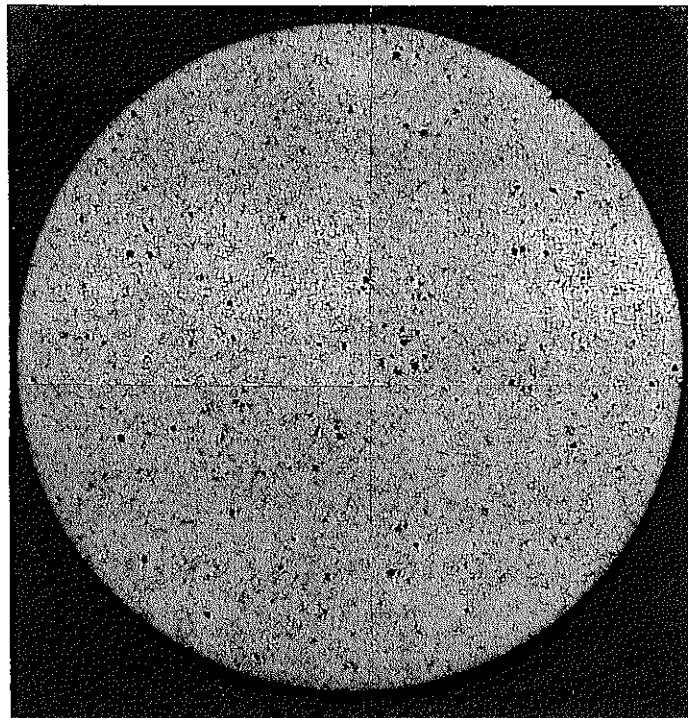
Frequency : 全測定数に対する割合 (-)



(a)  
B8HAM  
 $\text{Pu}/(\text{Pu}+\text{U})=0.287$   
 $\text{O}/\text{M}=1.99$   
85.9%TD

500  $\mu\text{m}$   
×20

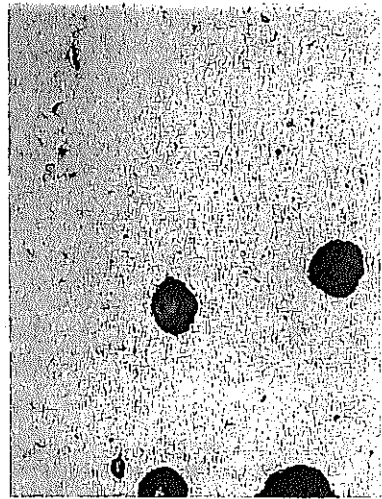
MACRO



(b)  
熱遮蔽ペレット  
(劣化ウラン酸化物)  
 $\text{O}/\text{U}=2.01$   
93.68%TD

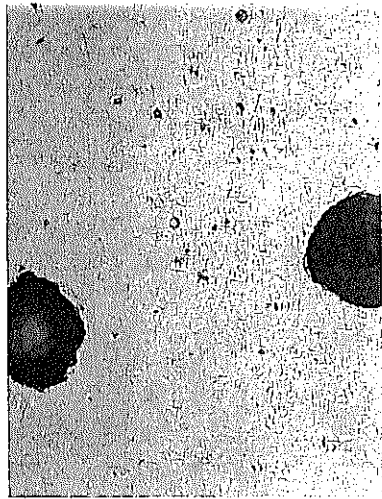
500  $\mu\text{m}$   
×20

MACRO

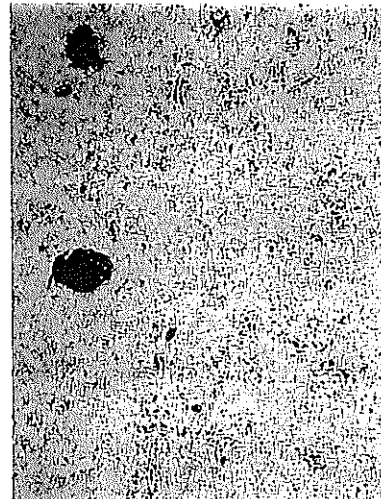


MICRO

50  $\mu\text{m}$   
×200

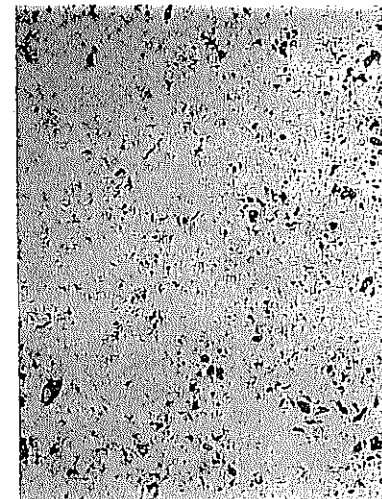


25  $\mu\text{m}$   
×400



MICRO

50  $\mu\text{m}$   
×200



25  $\mu\text{m}$   
×400

写真1 B8HAM燃料ペレットおよび熱遮蔽ペレットの横断面金相写真

## 付録：従来式の検討

## 1. 従来式の作成に使用したデータベースの検討

「常陽」および「もんじゅ」の炉心燃料炉心燃料の燃料設計評価用熱伝導度式としては、これまで下式が共通して使用されてきている。

従来式はGeneral Electric(GE)社の報告書(1)に出典を有しており、Schmidt(2)、Gibby(3)、VanCraeynest(4)、Hetzler(5)、Baily(6)、Laskiewicz(7)の報告とよく整合していることから、設計式として採用された。

$$\lambda = 1.169 + \frac{100}{\left\{ 0.06717 + \frac{0.02236P}{O/M - 1.90} \right\} (T - 273.15)} + 7.214 \times 10^{-11} (T - 273.15)^3$$

$\lambda$  : 熱伝導度 (W/mK)  
 $T$  : 温度 (K)  
 $P$  : Fractional Prosimity (-)  
 $O/M$  : O/M比 (-)

従来式の適用範囲は温度800～2800℃、燃料密度（理論密度比）84～99%TD、O/M比1.93～2.00である。

従来式は原著(1)にはデータベースの記載がないが、中心加熱法単独あるいは中心加熱法とレーザーフラッシュ法の両方を採用したと推定される。そこで、GE社の中心加熱法による測定結果（Hetzler(5)・Laskiewicz(7)）・従来式・新規作成式とを比較した結果を図Aと図Bに示す。GE社の中心加熱法による測定結果は、O/M比：1.94～2.00・燃料密度：84～95%TDと範囲が広いが、従来式は報告値とよく整合しており、従来式が中心加熱法による試験結果をもとに作成されたことを示唆している。

## 2. GE社の測定データの検討

図Bにレーザーフラッシュ法による測定結果(22)(24)をオーバープロットしたのが、図Cである。O/M比が2.00の場合、測定方法による違いは認められない。O/M比が1.98と2.00の場合、中心加熱法による測定結果が91%TDと94～96%TDで差がないのは、燃料ペレットの製造方法に起因している可能性がある。燃料密度依存性の補正係数を変化させて100%密度の値との比を計算すると、91%TDに $\alpha=1.4$ を適用した場合0.874、95%TDに $\alpha=2.95$ を適用した場合0.855になり、同レベルになっても矛盾はない。

O/M比が1.98以下になると測定方法による違いが大きくなり、中心加熱法による測定値はレーザーフラッシュ法による測定値よりも大きい傾向が認められる。O/M比が1.94・1.96-1.97・1.98では、GE社の中心加熱法による測定結果は、広範囲の燃料密度：84～95%TDにもかかわらず、測定値はほぼ同レベルになっていることがわかる。この現象は、熱伝導特性はO/M比が小さくなるほど低くなるとの一般的傾向と合致しない。

O/M比が1.97未満（1.94・1.96）あるいは低燃料密度（89%TD・85%TD）についても図20と図22から明らかのように、従来式は過大評価の傾向がある。

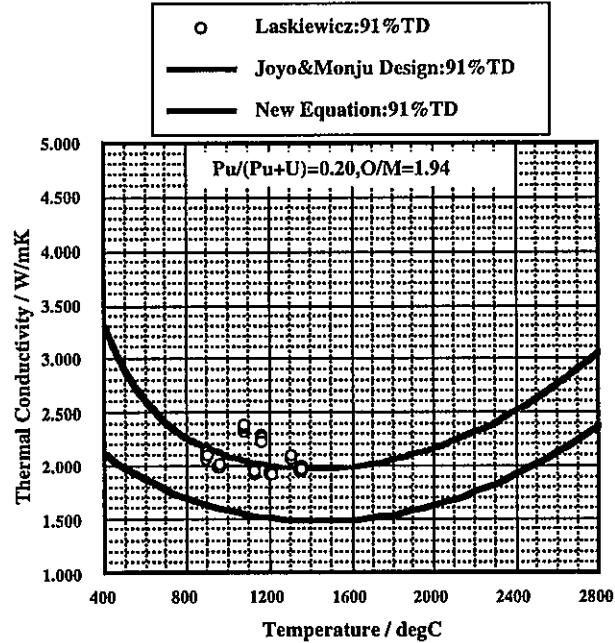


### 3. 結論

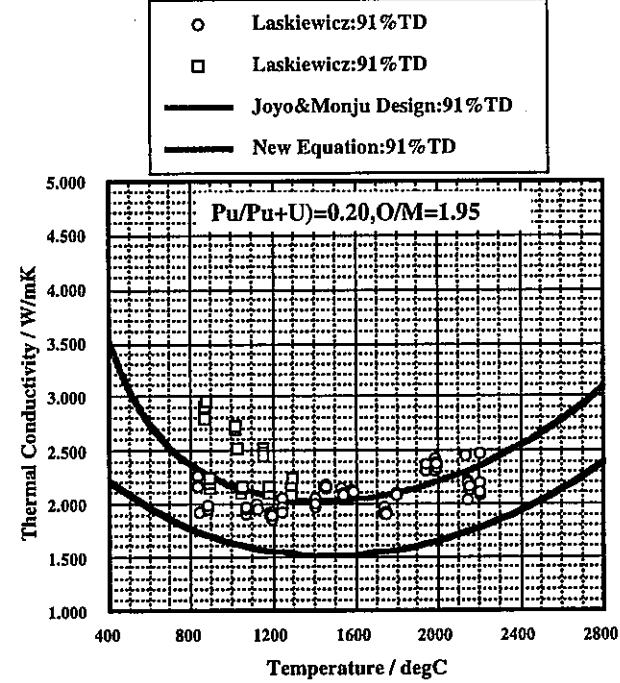
以上のように、従来式は、1973年当時に得られていた中心加熱法による熱伝導度測定結果をフィッティングしたものと考えられる。

従来式では、採用したデータベースのうちの比較的低OM比（1.94～1.98）・低燃料密度領域の測定値に問題があったため、従来式の信頼性を損ねている可能性が考えられる。

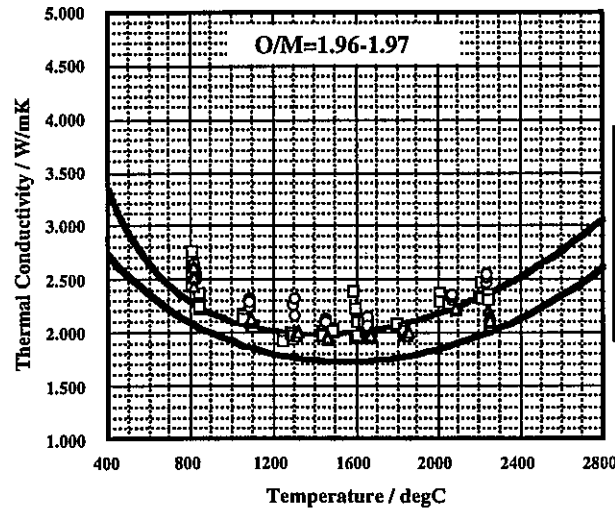
新規作成式による計算には  $\alpha=2.95$  を使用



新規作成式による計算には  $\alpha=2.95$  を使用



c-data GEAP



新規作成式による計算には  $\alpha=1.4$  を使用

図A GEによる中心加熱法測定データ・従来式・新規作成式の比較  
 O/M比=1.94~1.97

新規作成式による計算には  $\alpha=2.95$  を使用

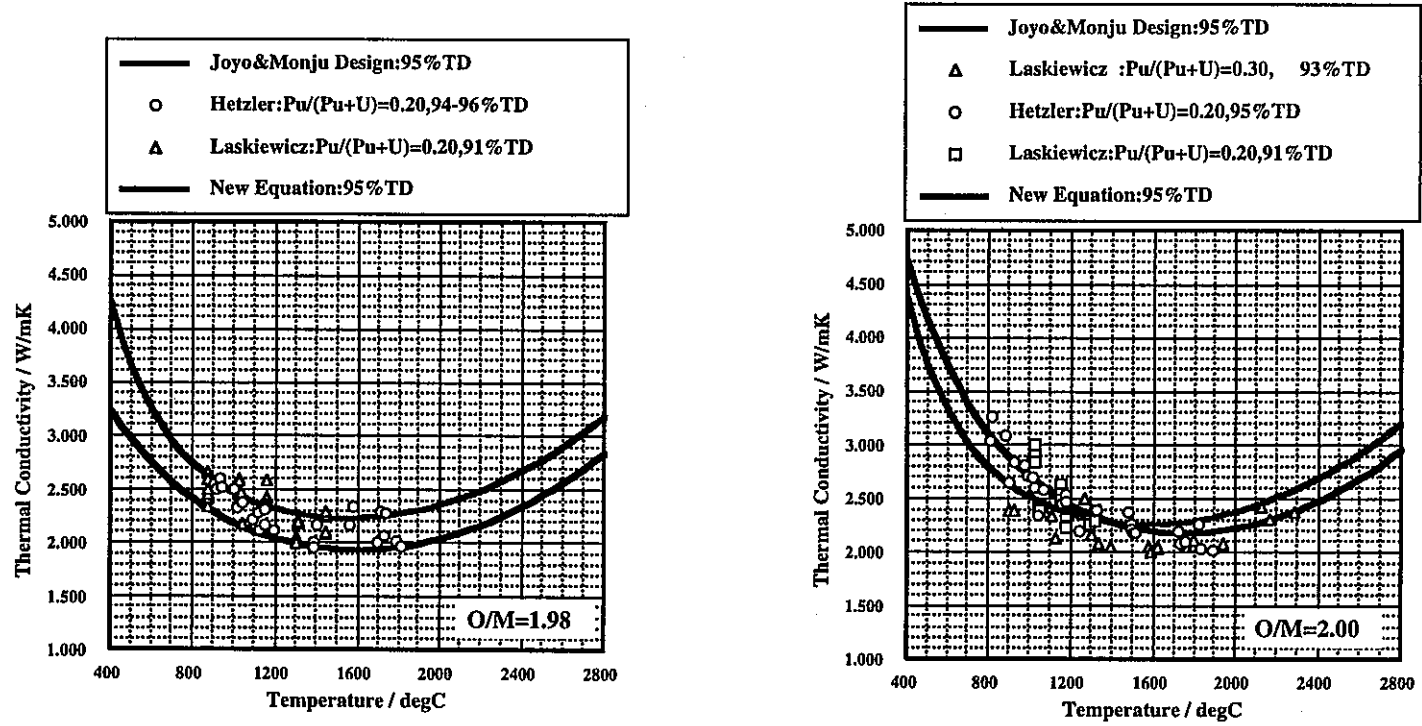
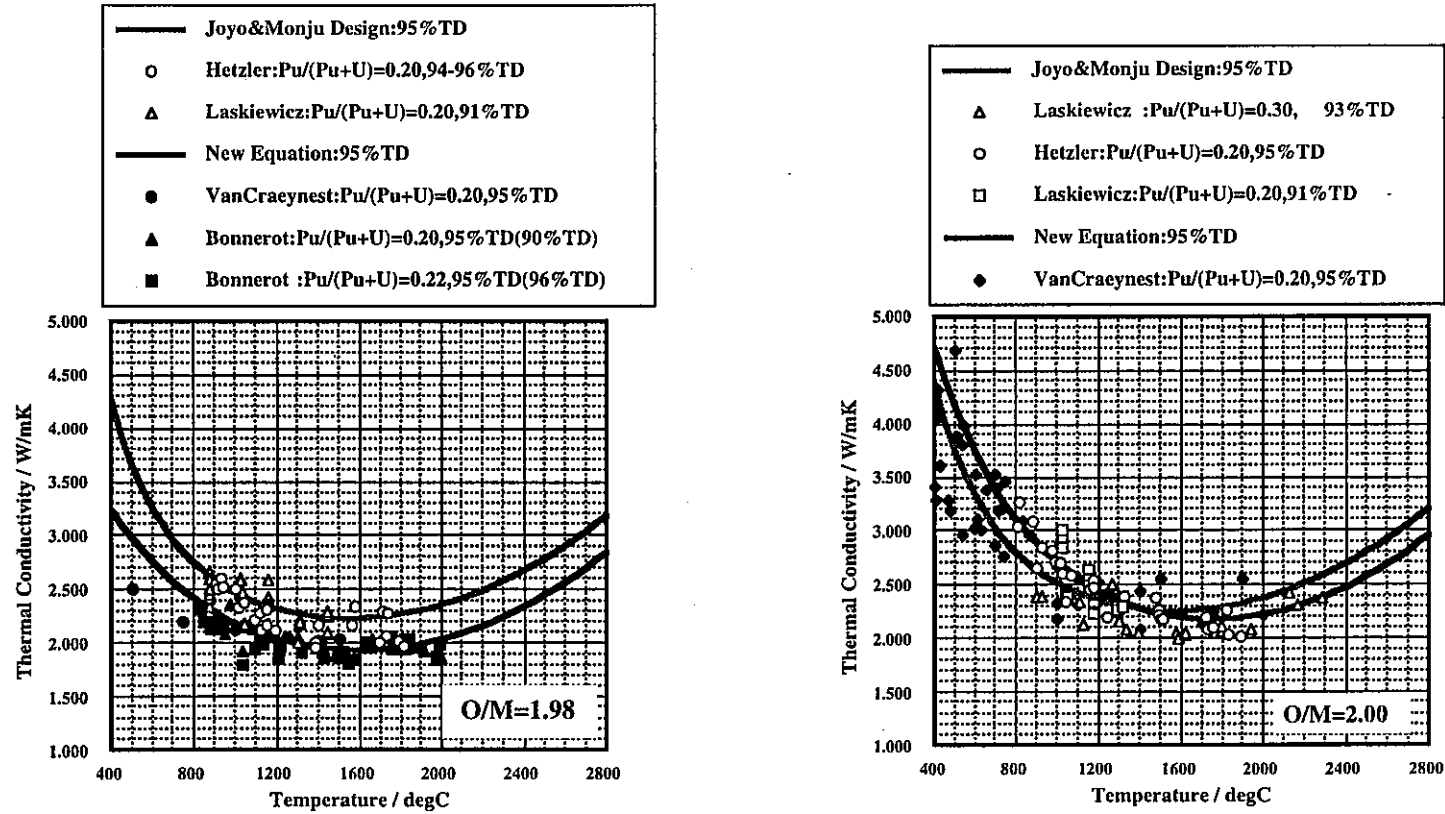


図 B GEによる中心加熱法測定データ・従来式・新規作成式の比較  
O/M比=1.98~2.00



図C GEによる中心加熱法測定データとレーザーフラッシュ法による測定結果との比較 O/M比=1.98~2.00

(O/M比=1.98のBonnerotのプロットは $\alpha=2.95$ を用いて95%TDに規格化した値)  
 ( )内の数字が試料密度