

高速炉用照射混合酸化物燃料の融点に関する研究

学位論文内容の要旨

軽水炉に替わる次世代の原子炉として高速増殖炉(FBR)の開発が行われてきた。この FBR 用混合酸化物(MOX)燃料の物性、照射挙動についても、これまで各国で研究開発が行われその研究成果、使用実績データが蓄積されているとしながら、さらに詳細な照射挙動の把握及び MOX 燃料に MA(マイナーアクチノイド)を含有させた場合の物性研究が勧告されている。

熱的性質の1つである MOX 燃料の融点により燃料ピンの限界出力が規定され、さらに安全性から定常運転はもちろん過渡事象でも燃料温度は融点を超えないことが許認可の要件となっている。軽水炉用酸化物燃料に比べて燃料線出力が高く、冷却材温度も高いために燃料中心温度は FBR 燃料がはるかに高い。UO₂に PuO₂を含有させると全率固溶体を形成しプルトニウムの添加量に伴い一様に液相線、固相線温度が低下する。このことから MOX 燃料融点と燃料中心最高温度との差がさらに小さくなり、軽水炉用 UO₂燃料に比べてその融点までのマージンは小さい。従って高速炉用照射 MOX 燃料に対しより精確な融点温度評価の知見が欠かせない。しかし、これまでに照射 MOX 燃料の融点測定結果の報告は少なくかつその温度測定誤差が大きいため、アクチノイド含有量の変化や核分裂生成物量の蓄積による融点の温度低下効果について照射燃料の融点測定結果から導かれる融点温度の低下式は得られていない。さらに高燃焼度での融点の低下、MA 含有や燃料製造時の亜化学量論組成(OM 比 < 2.0)からの変化による融点への影響等についての精度の良い測定とそれらの効果の分離に関する系統的な研究はなされていない。

本研究では、温度測定精度を向上させた改良型サーマルアレスト法を用い、未照射および照射 MOX 燃料の融点測定を行いさらに融点測定時点でのアクチノイド含有量、OM 比を求め、照射 MOX 燃料の固相線温度、液相線温度の低下をこれらのパラメータで表現される多項式として求めた。

本論文は 5 章から構成されており、各章の概要は以下の通りである。

第 1 章の序論において、最近の FBR 開発に関わる戦略研究の現状と MOX 燃料が軽水炉酸化物燃料製造技術の延長上に位置し、かつ MOX 燃料の大量生産技術を有している点から今後とも MOX 燃料は将来の FBR サイクルの基本燃料であることについて述べた。

第 2 章では、高富化度 MOX 燃料、(Pu_{0.29}U_{0.71})O₂の固相線温度を測定し(最大燃焼度: 124 GWd/t)その温度測定時点での組成を求めた。これらのデータから実験的回帰分析法を用いてその固相線温度を決定するパラメータ(Pu 比、Am 比、燃焼度)の係数を導いた。この固相線温度多項式で計算した固相線温度と測定温度との根2乗平均(RMS)誤差は $\sigma = 9.2$ K (評価数 21 件) と測定結果と良い一致が得られた。

第3章では、燃料サイクルコストの低減化から要請される高燃焼度での融点温度低下の効果を把握するために、高富化度 MOX 燃料、 $(\text{Pu}_{0.29}\text{U}_{0.71})\text{O}_2$ に固溶する可溶性核分裂生成物の非放射性酸化物を添加し高燃焼度(最大燃焼度:250 GWd/t)を模擬した試料を製作し、その固相線温度を測定した。照射 MOX 燃料の固相線温度測定結果から第2章で導いた固相線温度式の燃焼度の2次係数をわずかに変更するだけで測定値と良く一致する温度計算式が得られた。

第4章では、プールの長期貯蔵されていた高速実験炉「常陽」Mk-I 燃料集合体の低富化度照射 MOX 燃料、 $(\text{Pu}_{0.17}\text{U}_{0.83})\text{O}_2$ を取り出してその固相線温度を測定した。さらに測定誤差が若干大きいものの、AGF(照射燃料試験室)にて初期に測定され公開文献として報告された固相線温度も評価に加え、高燃焼度高富化度 MOX 燃料から求めた固相線温度式の各パラメータの係数をプルトニウム富化度(Pu比)の関数とすることにより製造時点での初期プルトニウム富化度の大きな変化にも適用できる高速炉用照射 MOX 燃料固相線温度式を求めた。この固相線温度式での計算結果と測定温度とで良い一致が得られた(評価数54件のRMS値は $\sigma = 12.5 \text{ K}$)。

さらに、この燃料固相線温度式の構築方法を液相線温度式に拡張し高速炉用照射 MOX 燃料液相線温度式を求めた。サーマルアレスト法で照射 MOX 燃料の固相線、液相線温度を測定した Reavis らのデータとこの液相線温度式で計算した温度とを比較し、固相線温度式で得られた信頼区間 $2\sigma = 25 \text{ K}$ の範囲内で計算値と測定値は良く一致した。これまで高速炉用照射 MOX 燃料の液相線温度式が報告された例は無い。低燃焼度で MOX 燃料の固相線温度は燃焼度に依存せず一定温度を保持したとの初期の観察結果は測定誤差が大きいデータに基づくものであり、低燃焼度で O/M 比の変化により固相線温度の低下割合が緩和されるものの、燃焼に伴い固相線温度は低燃焼度でも一定温度を保持しえないことを示した。

第5章ではこの固相線温度式、液相線温度式の各パラメータの吟味を行った。化学量論組成の未照射燃料、 $(\text{Pu,U})\text{O}_{2.0}$ が理想溶液であるとの前提に基づき、測定された未照射 MOX 燃料の固相線、液相線温度に合致する固相線、液相線を導く UO_2 、 PuO_2 の溶解熱 (heat of fusion) を求めた。しかしこのようにして導いた溶解熱値と測定された UO_2 の溶解熱値とに差があるため、測定された UO_2 の溶解熱値を用い、理想溶液の第1次拡張モデルとして正則溶液を仮定し、測定された固相線、液相線温度に合致する固相線、液相線を導く PuO_2 の溶解熱値と正則係数 α の値を求めた。ここで UO_2 の融点を 3,138 K から IAEA 勧告値である 3,120 K に変えている。従来の理想溶液モデルの計算で求めた固相線、液相線温度は UO_2 の融点近傍で実測値に比べて低目であったが、正則溶液モデルを仮定して求めた固相線、液相線は測定値とよく一致した。しかし正則溶液モデル計算で UO_2 の融点を 3,120 K に下げたことから、低 Pu 富化度での液相線温度と固相線温度の差が理想溶液モデルで求めた温度間差異より小さくなり、液相線温度側での測定値との合致が悪くなった。従って UO_2 の融点は理想溶液モデル計算で採用した 3,138 K が望ましく、未照射 MOX 燃料の固相線、液相線は理想溶液モデルで充分近似できることを明らかにした。

以上の研究により、未照射および照射 MOX 燃料の融点測定とその融点測定時点での燃料組成および燃焼度からこれらのパラメータ(Pu比, Am比, O/M比, 燃焼度)を関数とする固相線温度および液相線温度の計算式を導いた。主要 MA の1つであるアメリシウム含有による温度低下、亜化学量論組成から照射による化学量論組成への変化に伴う温度変化への効果および燃焼に伴う温度低下への効果を定量的に示した。こ

の固相線、液相線温度式の適用範囲は、高速炉用 MOX 燃料の仕様をカバーする Pu 濃度:10~40 wt%, Am 濃度:0~2 wt%, O/M 比:1.94~2.00, 燃焼度:0~250 GWd/t である。固相線温度の燃焼に伴う温度低下割合は低燃焼度で小さく、ほぼ 50 GWd/t を超えると温度低下割合は大きくなり、ほぼ 200 GWd/t を超えると温度低下割合の緩和が顕著となる。この固相線および液相線温度式から、液相線温度と固相線温度の温度間隔が燃焼に伴い拡大することを明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 佐 藤 正 知
副 査 教 授 澤 村 貞 史
副 査 教 授 島 津 洋 一 郎
副 査 教 授 杉 山 憲 一 郎

学 位 論 文 題 名

高速炉用照射混合酸化物燃料の融点に関する研究

軽水炉に替わる次世代の原子炉として、これまで各国で高速増殖炉(FBR)の開発が進められてきた。この中で FBR 用混合酸化物(MOX)燃料の熱物性と照射挙動については、その研究成果、使用実績データが蓄積されているものの、さらに詳細な照射挙動の把握、MOX 燃料にマイナーアクチニド(MA)を含有させた場合の物性研究が必要とされている。

燃料棒の限界出力は、安全確保のための熱的性質の1つである MOX 燃料の融点により規定されている。定常運転時はもちろん、過渡事象でも燃料温度は融点を超えないことが許認可の要件となっている。軽水炉用酸化物燃料に比べて燃料線出力が高く冷却材温度も高いために、FBR 燃料では燃料中心温度がはるかに高い。UO₂にPuO₂を含有させると全率固溶体を形成しPuO₂の添加とともに液相線、固相線温度が一様に低下する。このことから MOX 燃料の融点と燃料中心最高温度との差がさらに狭まり、軽水炉用 UO₂燃料に比べてその融点までの裕度は小さい。従って高速炉用照射 MOX 燃料について、より正確な融点降下の知見が欠かせない。しかし、これまで照射 MOX 燃料の融点測定結果の報告は限られたものであり、かつその温度測定誤差が大きいので、アクチニド含有量の増加や核分裂生成物の蓄積に伴う融点降下式は明確な形では得られていない。さらに高燃焼度での融点の降下、MA含有や燃料製造時の亜化学量論組成(OM比 < 2.0)からの変化による融点への影響等について、精度の高い測定とそれらの効果の分離に関する系統的な研究はなされていない。

本研究では、温度測定精度を向上させた改良型サーマルアレスト法を用い、MOX 燃料の融点の照射量依存性、アクチニド含有量とOM比依存性を求め、照射MOX燃料の固相線温度と、液相線温度の低下をこれらのパラメータを用いて表現できる多項式を求めている。また、融点降下挙動のパラメータ依存性について溶液論的な意味づけを行っている。

本論文は5章から構成されており、各章の概要は以下の通りである。

MOX 燃料の融点の正確な知見が必要なものの初期の融点測定に適用された V 型フィラメント

法は、その測定誤差の大きさと少量の非密封試料を加熱することにより生じる組成変化という根本的な問題を抱えていた。これまで密封キャプセルを用いたサーマルアレスト法による信頼性の高い測定結果報告例は極めて少ない。第1章の序論において、サーマルアレスト法によるMOX燃料の融点に関する研究の足取りと現況を整理するとともに本研究の目的について述べている。

第2章では、高Pu富化度MOX燃料、 $(U_{0.71}Pu_{0.29})O_2$ の固相線温度を測定し(最大燃焼度:124 GWd/t)その温度測定時点での組成を求めた。これらのデータから多変数逐次近似法にてその固相線温度を決定するパラメータ(Pu比, Am比, 燃焼度)の係数を導き、これらの係数についての考察している。この固相線温度多項式で計算した固相線温度は測定温度を良く再現している。

第3章では、燃料サイクルコストの低減化から要請される高燃焼度での融点の低下を把握するために、高Pu富化度MOX燃料に可溶性核分裂生成物の非放射性酸化物を固溶させ、高燃焼度(最大燃焼度:250 GWd/t)模擬試料を製作してその固相線温度を測定した。照射MOX燃料の固相線温度測定結果から第2章で導いた固相線温度式の燃焼度の2次係数をわずかに変更するだけで測定値と良く一致する温度計算式を得ている。

第4章では、プールに長期貯蔵されていた高速実験炉「常陽」Mk-I燃料集合体の低Pu富化度照射MOX燃料、 $(U_{0.83}Pu_{0.17})O_2$ の固相線温度を測定した。これらの測定結果に合致するよう、高燃焼度高富化度MOX燃料から求めた固相線温度式の各パラメータの係数をプルトニウム富化度の関数とする固相線温度式を求めている。この結果、製造時点での初期プルトニウム富化度の大きな変化にも適用できる高速炉用照射MOX燃料固相線温度式を得ることに成功している。

さらに、この燃料固相線温度式の構築方法を液相線温度式に拡張し高速炉用照射MOX燃料液相線温度式を求めた。サーマルアレスト法で照射MOX燃料の固相線、液相線温度を測定したReavisらのデータとこの液相線温度式で計算した温度とを比較し、計算値は測定値を良く再現できることを示した。これまで高速炉用照射MOX燃料の液相線温度式が報告された例は無い。低燃焼度でMOX燃料の固相線温度は燃焼度に依存せず一定温度を保持したとの初期の実験結果は測定誤差が大きいものであり、O/M比に依存して固相線温度の低下が緩やかになるものの、固相線温度の燃焼度依存性は低燃焼度でも一定温度を保持し得ないことを示した。

第5章ではこの固相線温度式、液相線温度式の各パラメータ依存性の吟味を行った。化学量論組成の未照射燃料、 $(U, Pu)O_{2.0}$ が理想溶液であるとの前提に基づき、測定された未照射MOX燃料の固相線、液相線温度に合致する固相線、液相線を導く UO_2 、 PuO_2 の融解熱を求めた。しかし導いた融解熱と測定された UO_2 のものとの差異があるため、次に正則溶液を仮定し、測定された固相線、液相線温度に合致する固相線、液相線を導く PuO_2 の融解熱と正則係数を求めた。従来の理想溶液モデルの計算で求めた固相線、液相線温度は UO_2 の融点近傍で実測値に比べて低目であったが、正則溶液モデルを仮定して求めた固相線、液相線は測定値とよく一致した。

これを要するに著者は、高速炉用MOX燃料の融点を詳細に測定し、そのPu富化度、照射によるAmや核分裂生成元素濃度、O/M比依存性を明らかにした。この成果は核燃料工学の発展に寄与するところが大きいと評価でき、博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。