

RREP-2018-1003

安全研究成果報告

混合酸化物燃料特性に関する研究

Research on the Performance of Mixed Oxide Fuel

北野 剛司 秋山 英俊

Koji KITANO and Hidetoshi AKIYAMA

システム安全研究部門

Division of Research for Reactor System Safety

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

平成 30 年 11 月

November 2018

本報告は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループが行った安全研究プロジェクトの活動内容・成果をとりまとめたものです。

なお、本報告の内容を規制基準、評価ガイド等として審査や検査に活用する場合には、別途原子力規制委員会の判断が行われることとなります。

本レポートの内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ システム安全研究部門
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル
電 話：03-5114-2223
ファックス：03-5114-2233

混合酸化物燃料特性に関する研究

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

システム安全研究部門

北野 剛司 秋山 英俊

要 旨

MOX (Mixed Oxide : 混合酸化物) 燃料に関する技術的知見の拡充のために、許認可範囲を十分に包絡する燃焼度と Pu (プルトニウム) 濃度の範囲に対し、燃料の健全性を示す指標である燃料棒温度や内圧の評価に必要な MOX 燃料ペレットの熱特性や FP (Fission Product : 核分裂生成物) ガスの挙動に関するデータを取得した。

燃焼度に着目した試験では、高燃焼度 MOX 燃料 (Pu 濃度 8.4wt%、最高燃焼度約 74GWd/t) をハルデン炉にて照射し、照射中に燃料要素の中心温度等を測定した。Pu 濃度に着目した試験では、高富化度 MOX 燃料 (Pu 濃度 14.3wt%、最高燃焼度約 57GWd/t) を BR3 炉及び BR2 炉にて照射し、照射後に FP ガス放出率等を測定した。また、燃料ペレットの熱伝導率測定や燃料ペレット径方向の Xe (キセノン) 濃度分布の詳細分析を行った。

MOX 燃料の熱伝導率は、未照射においては UO_2 (二酸化ウラン) 燃料より低い、照射が進むことによる低下の程度は UO_2 燃料より小さく、高燃焼度では UO_2 燃料と同程度になるとの示唆が得られた。照射後試験で取得した FP ガスの燃料ペレットからの放出及び燃料ペレット径方向の濃度分布に関する知見を用いて、FP ガスの原子拡散、粒内気泡中濃度、粒界での再固溶及び保持の観点で、公開の燃料挙動解析コードである FEMAXI-7 の FP ガス解析モデルを見直した。

本研究により、熱特性や照射挙動の Pu 濃度や燃焼度に対する変化は連続的であり、調べた範囲において大きな燃料挙動の変化は生じないことが確認できた。

Research on the Performance of Mixed Oxide Fuel

Koji KITANO and Hidetoshi AKIYAMA

Division of Research for Reactor System Safety
Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

Abstract

In order to enhance technical knowledge on MOX (Mixed Oxide) fuel, data related to the thermal characteristics and FP (Fission Product) gas behavior of MOX fuel, of which burnup and Pu content sufficiently cover the licensing limits, were obtained to evaluate fuel temperature and fuel internal pressure which are indicators of fuel integrity.

Focusing on the burnup, high burnup MOX fuel (Pu content 8.4 wt%, Maximum burnup about 74 GWd/t) was irradiated at the Halden reactor and the centerline temperatures, etc. of the fuel rods were measured during irradiation. Focusing on the Pu content, high Pu content MOX fuel (Pu content 14.3 wt%, Maximum burnup about 56 GWd/t) was irradiated at the BR3 and BR2 reactors and the FP gas release ratio, etc. were measured after irradiation. As well, the thermal conductivities of fuel pellets were measured and the Xe content along the fuel pellet radius were analyzed in detail.

It is suggested that the thermal conductivity of MOX fuel is lower than that of UO₂ fuel before irradiation, but its decrease due to irradiation is smaller than that of UO₂ fuel, and it becomes the same level as that of UO₂ fuel at high burnup.

Based on the knowledge on the FP gas release from fuel pellets and the FP gas distribution along the pellet radius which were acquired in the post-irradiation examinations, the FP gas analysis model in FEMAXI-7, which is an open code, was improved from the viewpoints of the diffusion of FP gas atoms, the content of FP gas in intra-granular bubbles, and the re-resolution and retention of FP gas at grain boundaries.

Through this research, it was confirmed that the changes in the thermal characteristics and irradiation behavior due to Pu content and burnup are

continuous and fuel behavior should not significantly change in the examined range.

目次

| | 頁 |
|-----------------------------------|-----|
| 1. 序論 | 1 |
| 1. 1 背景 | 1 |
| 1. 2 目的 | 2 |
| 1. 3 全体工程 | 2 |
| 2. 本論 | 4 |
| 2. 1 概要 | 4 |
| 2. 2 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 (燃料仕様、照射条件等) | 6 |
| 2. 3 高富化度 MOX 燃料照射試験 (燃料仕様、照射条件等) | 9 |
| 2. 4 MOX 燃料の熱特性に関する評価 | 1 1 |
| 2. 4. 1 燃料棒中心温度の測定結果の評価 | 1 1 |
| 2. 4. 2 熱伝導率測定結果の評価 | 1 2 |
| 2. 5 FP ガス挙動に関する検討 | 1 6 |
| 2. 6 FP ガス解析モデルの見直し | 2 1 |
| 3. 結論 | 2 5 |
| 3. 1 成果の要点 | 2 5 |
| 3. 2 目的の達成状況 | 2 6 |
| 3. 3 成果の活用等 | 2 6 |
| 参考文献一覧 | 2 7 |
| 主な執筆者一覧 | 2 9 |

表目次

| | 頁 |
|---|-----|
| 表 1 MOX 燃料特性評価のために実施した試験の概要 | 4 |
| 表 2 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の燃料要素の仕様 | 7 |
| 表 3 追加照射試験終了時の燃焼度 | 7 |
| 表 4 高富化度 MOX 燃料照射試験の燃料要素の仕様 | 9 |
| 表 5 照射試験終了時の燃焼度 | 9 |
| 表 6 熱伝導率評価対象試料 | 1 2 |
| 表 7 パンクチャー試験から評価した FP ガス放出率 | 1 7 |
| 表 8 試験燃料要素の燃焼度 | 2 1 |
| 表 9 高燃焼度 MIMAS-MOX 燃料の FP ガス放出率の比較 | 2 5 |
| 表 10 Pu スポット、中間相、劣化 U スポットにおける Nd 含有割合の半径方向分布と平均値 | 2 5 |

図目次

| | 頁 |
|--|-----|
| 図 1 研究の全体工程 | 3 |
| 図 2 MOX 燃料許認可範囲と試験条件の関係 | 4 |
| 図 3 MOX 燃料ペレット断面の EPMA 面分析結果 | 5 |
| 図 4 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の出力履歴 (燃料要素 : MIMAS-MOX) | 8 |
| 図 5 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の出力履歴 (追加照射) | 8 |
| 図 6 高富化度 MOX 燃料照射試験の出力履歴 | 1 0 |
| 図 7 燃料要素の線出力密度と燃料中心温度の関係 (ハルデン炉照射、平均燃焼度約 70Gwd/t) | 1 1 |
| 図 8 未照射燃料の熱伝導率 (95%理論密度に補正) | 1 3 |
| 図 9 高燃焼度燃料 (ハルデン炉照射、約 70Gwd/t) の熱伝導率 の評価結果 | 1 5 |
| 図 10 高燃焼度燃料 (ハルデン炉照射、約 70Gwd/t) の熱伝導率 の評価結果 (95%理論密度に補正) | 1 5 |
| 図 11 高富化度 MOX 燃料 (BR2 炉照射、MIMAS-MOX) の熱伝導率 の評価結果 (95%理論密度に補正) | 1 6 |
| 図 12 MIMAS-MOX 燃料ペレットの Pu 濃度平面分布 (試料位置燃焼度約 64Gwd/t、初期 Pu 濃度 8.4wt%) | 1 7 |
| 図 13 SIMS により測定した高燃焼度 MIMAS-MOX 燃料 (ハルデン炉照射、約 64Gwd/t) の径方向 Xe 濃度分布 | 1 8 |
| 図 14 SIMS により測定した高富化度 MIMAS-MOX 燃料 (BR2 炉照射) の径方向 Xe 濃度分布 | 2 0 |
| 図 15 FP ガス解析モデルの見直し点 | 2 3 |
| 図 16 MIMAS-MOX 燃料の径方向 Xe 濃度分布に関する SIMS 分析 結果と解析結果の比較 | 2 3 |

略語表

| | | |
|-------|---------------------------------|-------------|
| BR2 | Belgium Reactor-2 | |
| BR3 | Belgium Reactor-3 | |
| EPMA | Electron Probe Micro Analyzer | 電子線微小分析装置 |
| FP | Fission Product | 核分裂生成物 |
| MIMAS | Micronized Master Blend | |
| MOX | Mixed Oxide (Fuel) | 混合酸化物 (燃料) |
| SBR | Short Binderless Route | |
| SIMS | Secondary Ion Mass Spectrometer | 2次イオン質量分析装置 |

1. 序論

1. 1 背景

MOX (Mixed Oxide : 混合酸化物) 燃料については、旧原子力安全委員会に設置された原子炉安全基準専門部会が「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」(平成7年6月19日、原子力安全委員会了承)^(参1)及び「改良型沸騰水型原子炉における混合酸化物燃料の全炉心装荷について」(平成11年6月28日、原子力安全委員会了承)^(参2)を取りまとめ、旧原子力安全委員会がその報告書の内容を妥当なものと認めている。MOX 燃料の軽水炉での利用については、これらの報告書に基づいて許認可審査が行なわれている。これらの報告書のうち「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」では、取替燃料の一部として軽水炉に MOX 燃料を装荷することに係る安全審査の際の指標を作成する観点から、核的特性、物性や照射挙動、熱・機械設計、核設計における MOX 燃料の特徴を踏まえ、安全設計、安全評価及びその他関連事項について検討が行なわれた^(参1)。検討範囲は、MOX 燃料の炉心装荷率を 1/3 程度とした場合、核分裂性 Pu (プルトニウム) 富化度^(注1) 約 8% (Pu 含有率^(注1) 約 13%)、燃料集合体最高燃焼度 45GWd/t (ペレット最高燃焼度約 62GWd/t) までであり、全炉心装荷の場合、集合体最高燃焼度は 40GWd/t (ペレット最高燃焼度約 58GWd/t) である。検討の結果、Pu 含有に伴う UO₂ (二酸化ウラン) 燃料から MOX 燃料への変化は、上記の検討範囲では Pu 含有量に対して特異な変化はなく連続的であり、MOX 燃料の特性を適切に取り込むことにより、従来の UO₂ 燃料炉心に用いている判断基準並びに安全設計手法、安全評価手法を適用することは差し支えない、すなわち、MOX 燃料の特性、Pu の組成変動及び MOX 燃料の装荷率等を評価モデルや入力値等に適切に取り入れることにより、安全設計及び安全評価ができるとの判断がなされている。一方、同報告は、「今回の検討は現在の知見に照らし安全上十分妥当なものと考えますが、今後の MOX 燃料の使用及び研究、設計の改良等によって、より多くの知見が蓄積されていくものとする。したがって、このような状況を踏まえ、今後より充実したものとなるよう、MOX 燃料の拡大使用に先立って更なる知見や実績等の蓄積に基づいて見直しが必要とされるものとする。」と述べている。

本研究は、事業者により UO₂ 燃料と同程度まで MOX 燃料の燃焼度を延伸させることが検討された動きに対応し、更なる知見を蓄積すべく旧原子力安全基盤機構が着手し、原子力規制庁が引き継いだものである。

注 1 : 核分裂性 Pu 富化度 : $(^{239}\text{Pu}+^{241}\text{Pu})/(\text{全 Pu}+^{241}\text{Am}+\text{全 U}) \times 100\text{wt}\%$

Pu 含有率 : $(\text{全 Pu}+^{241}\text{Am})/(\text{全 Pu}+^{241}\text{Am}+\text{全 U}) \times 100\text{wt}\%$

以下、ここでは「Pu 含有率」のことを「Pu 濃度」と言う。

燃料棒温度や内圧の評価に影響する熱伝導率やFP (Fission Product : 核分裂生成物) ガス放出については、以下の①、②に示すように、燃焼度依存性等が UO_2 燃料と異なる可能性がある。このため、軽水炉で使用される MOX 燃料の通常運転時及び運転時の異常な過渡変化時の燃料健全性を確認するためには、これらの MOX 燃料固有のふるまいに関する技術的知見が必要である。

- ① MOX 燃料では核分裂によって生成される FP の組成が UO_2 燃料と異なることなどから^(参3、4)、熱伝導率の燃焼度依存性が UO_2 燃料と異なり、燃料棒温度等に影響する可能性がある。
- ② MOX 燃料では Pu 濃度の高い領域 (Pu スポット部) が存在し、この領域では他の領域より多くの核分裂が生じる。このようなことなどから、FP ガスの挙動が UO_2 燃料と異なるとの報告があり^(参5、6、7)、燃料棒内圧等に影響する可能性がある。

旧原子炉安全基準専門部会の報告書における判断は、国内での少数体装荷 (燃料集合体燃焼度約 26GWd/t) 及び国外での使用実績 (同約 58GWd/t まで) 並びに関連する研究結果を参考に、工学的判断が加えられたものである。

東京電力(株)福島第一原子力発電所事故以降、高燃焼度化を含む軽水炉燃料の高度利用に関する事業者等の動きは見られないものの、将来的に UO_2 燃料と同程度まで MOX 燃料の高燃焼度化が進められる可能性が考えられることから、上記報告書において検討されている燃焼度と Pu 濃度の範囲を十分に包絡した範囲について、MOX 燃料固有のふるまいに関する知見を拡充し、上記報告書の内容の妥当性を確認しておくことは重要である。

1. 2 目的

本研究は、MOX 燃料の技術的知見の拡充を目的に、燃料の健全性を示す指標である燃料棒温度や内圧の評価に必要な MOX 燃料ペレットの熱特性や FP ガスの挙動に関するデータを取得するとともに、燃料挙動解析コードで使用されている FP ガス解析モデルの見直しを行うためのものである。

なお、本研究は平成 19 年度から平成 28 年度にかけて実施したものである。

1. 3 全体工程

本研究の全体工程を図 1 に示す。

高燃焼度 MOX 燃料照射試験では、ハルデン炉 (ノルウェー) において平成 7 年 (1995 年) から平成 18 年 (2006 年) にかけてベース照射され、燃料要素平均燃焼度約 65GWd/t に達した燃料要素を使用して、平成 20 年 11 月から平成 21 年 4 月までハルデン炉で追加照射を行った。照射中には燃料棒の中心温度測定等を行い、照射した燃料要素に対し後述の照射後試験及び熱特性評価試験等を行った。

高富化度 MOX 燃料照射試験では、材料試験炉である BR3 (Belgium Reactor-3) 炉及び PWR プロトタイプ炉である BR2 (Belgium Reactor-2) 炉 (いずれもベルギー原子力研究所内に

設置)において、昭和61年(1986年)から平成13年(2001年)までベース照射され、燃料要素平均燃焼度約25GWd/tに達した燃料要素を使用して、平成19年12月から平成27年2月までBR2炉で追加照射を行った。照射サイクル間及び照射後にFPガス放出率の測定等を行った後、高燃焼度MOX燃料照射試験と同様、照射後試験及び燃料ペレットの熱伝導率測定等を行った。また、燃焼度の違いによる影響を調査するため、ベース照射のみを行った燃料要素に対しても照射後試験及び熱特性評価試験等を行った。

平成24年度から平成28年度には、ベース照射のみの燃料要素及び追加照射した燃料要素から採取した試験片を用い、照射後試験の一環として、EPMA(Electron Probe Micro Analyzer:電子線微小分析装置)やSIMS(Secondary Ion Mass Spectrometer:2次イオン質量分析装置)による微細組織分析を行った。また、熱特性評価試験として熱伝導率の測定を行った。

これらの試験と並行し、取得データを用いて国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が開発した公開の燃料挙動解析コードであるFEMAXI-7の解析モデル^(参8)の見直し、高度化を行った。

| 年度 (平成) | 19 | 20 | 21 | ... | 24 | 25 | 26 | 27 | 28 |
|------------|----|-----------------------|-----------------------|-----|----|-----------|----|----|----|
| 実施項目 | | □ | 追加照射(高燃焼度 MOX 燃料照射試験) | | | | | | |
| | | 追加照射(高富化度 MOX 燃料照射試験) | | | | | | | |
| | | | | | | 照射後試験 | | | |
| | | | | | | 熱特性評価試験 | | | |
| | | | | | | 解析モデルの高度化 | | | |

図1 研究の全体工程

Fig. 1 Overall schedule of research project

2. 本論

2. 1 概要

MOX 燃料に関する技術的知見の拡充のために、燃焼度に着目した試験と Pu 富化度に着目した試験を実施した。表 1 に 2 つの試験の概要を示す。高燃焼度に着目した試験では局所燃焼度約 74GWd/t まで、Pu 富化度に着目した試験では Pu 濃度 14.3wt%までの照射挙動に関する知見を取得した。2 つの試験で調べる試験条件と旧原子炉安全基準専門部会の報告書「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」^(参1)での検討範囲を図 2 に示す。なお、燃焼度については軸方向ピーク燃焼度で比較を行っている。本研究の範囲は、上記報告書での検討範囲を包絡しており、MOX 燃料に関する技術的知見を拡充するものである。

表 1 MOX 燃料特性評価のために実施した試験の概要
Table 1 Outline of the tests for characterization of MOX fuel

| 試験名 | Pu 濃度 (wt%) | 追加照射終了時の最高燃焼度 (GWd/t) | | 照射炉 | 主な試験 |
|-----------------|-------------|-----------------------|--------|----------------|---|
| | | 燃料要素平均 | 軸方向ピーク | | |
| 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 | 8.4 | 70 | 74 | ハルデン炉 | <ul style="list-style-type: none"> 照射試験 (中心温度測定等) 照射後試験 (微細組織分析等) 熱伝導率測定評価 |
| 高富化度 MOX 燃料照射試験 | 14.3 | 36 | 57 | BR3 炉 BR2 炉 | <ul style="list-style-type: none"> 照射試験 (FP ガス放出率測定等) 照射後試験 (微細組織分析等) 熱伝導率測定評価 |

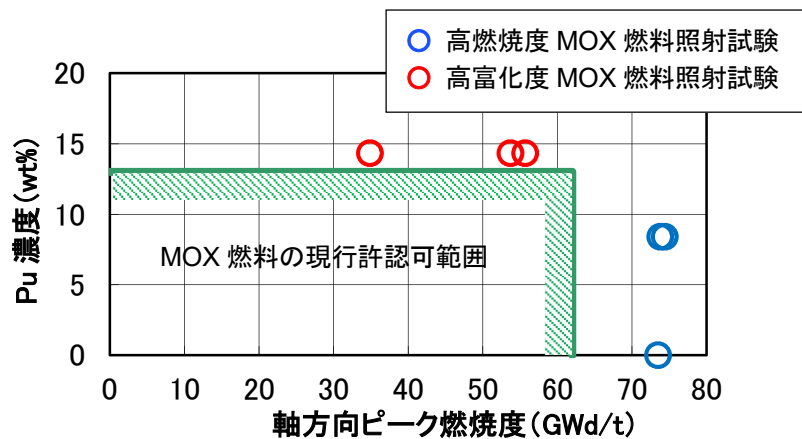


図 2 MOX 燃料許認可範囲と試験条件の関係^(参9)

Fig. 2 Relationship between license region and test condition of MOX fuel

高燃焼度 MOX 燃料照射試験では、ハルデン炉にて燃料要素平均燃焼度で約 65GWd/t まで照射された MOX 燃料要素 2 本及び UO₂ 燃料要素 1 本を用いて追加照射を実施し、照射中の燃料要素の中心温度等を測定した。また照射後試験として、非破壊試験及び破壊試験を実施した。本照射試験では MOX 燃料製造方法の照射挙動への影響を調べるた

めに、MIMAS (Micronized Master Blend) 法^(注2)により製造された MOX 燃料及び SBR (Short Binderless Route) 法^(注3)によって製造された MOX 燃料を用いた。2つの製造方法による最も大きな相違は Pu 濃度の均一性であり、一般に MIMAS 法に比べ SBR 法で製造した燃料ペレットの方が均一性が高いとされ、本研究で用いた燃料ペレットにおいても Pu の均一性に差が見られる (図3^(参10) 参照)。

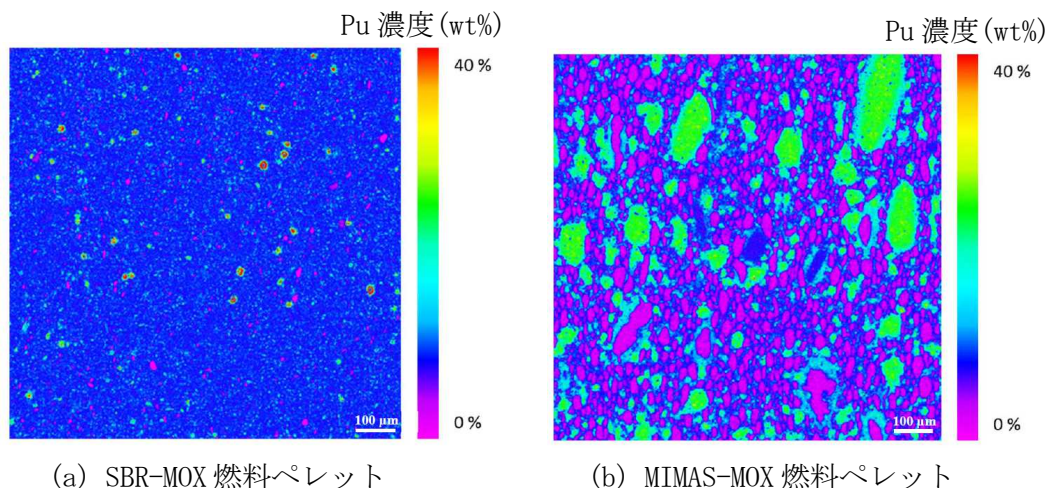


図3 MOX 燃料ペレット断面の EPMA 面分析結果^(参10)

Fig. 3 EPMA mapping results of cross section of MOX fuel pellets

高富化度 MOX 燃料照射試験では、燃料要素平均で 25GWd/t 程度までベルギーの商業炉 BR3 炉及び試験炉 BR2 炉にてベース照射された Pu 濃度 14.3wt% の高富化度 MIMAS-MOX 燃料を用い、BR2 炉にて追加照射を行った。照射サイクル間の中間試験及び照射後試験から高富化度 MIMAS-MOX 燃料の照射挙動に関するデータを取得した。

注2：PuO₂ 粉末と UO₂ 粉末をボールミルで粉碎混合（第1段階混合）して Pu 濃度 30wt% 程度の MOX 粉末（母材粉末）を製造する。この母材粉末と UO₂ 粉末を更に混合（第2段階混合）して、所定の Pu 濃度の MOX 粉末を製造する。

母材粉末は全てボールミルを使用して製造するため、Pu 濃度はほぼ均一となるが、2回目の混合はボールミルを使用しない単純な混合であり、焼結後の MOX 燃料ペレットには母材粉末と同程度の濃度 (Pu 濃度 30wt% 程度) の Pu スポットが残留する。このため、図3に示すように Pu 濃度に非均一を生じる。

注3：PuO₂ 粉末と UO₂ 粉末を、所定の Pu 濃度になるような割合でアトリターミル（ボールミルの一種）に投入し粉碎混合して MOX 粉末を製造する。必要な MOX 粉末全量が粉碎混合して製造されるため、Pu 濃度はほぼ均一となる。

これらの照射済燃料要素から採取した試験片を用いて、FP ガスの挙動を把握するため、EPMA により固溶 Xe (キセノン) を、SIMS により固溶 Xe 及び微小気泡中の Xe をフランスの原子力・代替エネルギー庁で分析した。

また、MOX 燃料の熱伝導率の燃焼度依存性や製法による相違を調べるために、未照射燃料及び照射済燃料の熱伝導率をドイツのカールスルーエ共同研究センターで測定した。

これらの照射試験及び照射後試験から得られたデータを用いて、MOX 燃料の挙動解析技術の高度化を図り、公開の燃料挙動解析コードである FEMAXI-7 で使用されている FP ガス解析モデルの見直しを行った。この解析モデルの見直しについては、2. 6 に示す。

2. 2 高燃焼度 MOX 燃料照射試験 (燃料仕様、照射条件等)

高燃焼度 MOX 燃料照射試験に供した MOX 燃料要素の仕様を表 2 に示す。また、ハルデン炉での追加照射により到達した燃焼度を表 3 に示す。

すでに述べたように、本照射試験では、ハルデン炉にて燃料要素平均燃焼度で約 65GWd/t までベース照射された MOX 燃料要素 2 本及び UO₂ 燃料要素 1 本を用いて追加照射を実施し、照射中の燃料要素の中心温度等を測定した。MOX 燃料要素 2 本は、それぞれ MIMAS 法及び SBR 法によって製造されたものである。燃料要素寸法は、17×17 型の PWR 燃料に近いものであるが、全長は約 330mm であり燃料スタック長さは約 250mm である。燃料要素は照射リグと呼ばれる照射容器に入れられ、ハルデン炉の炉心に装荷された。

上記のベース照射及び追加照射時の出力履歴を図 4 及び図 5 に示す^(参10)。ベース照射時の出力履歴は燃料要素 3 本ともほぼ同等であり、図 4 は MIMAS-MOX 燃料要素の例である。また、追加照射時の冷却材温度はほぼ 233~235°C の範囲、冷却材圧力はほぼ 2.8~2.9MPa の範囲であり、軸方向平均高速中性子束 (1MeV 以上) は最大約 $2.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ であった。

ハルデン炉での追加照射時には、燃料の熱伝導特性について調査するため、照射中の燃料要素の中心温度を測定した。この結果を 2. 4. 1 に示す。また、中心温度測定値から評価される熱伝導特性を検証するために、照射後の燃料要素から取り出した試料についてレーザーフラッシュ法による熱拡散率測定を行った。この結果を 2. 4. 2 に示す。

FP ガス挙動の調査については、燃料要素のパンクチャー試験を行うとともに、燃料要素から取り出した試料について EPMA 分析及び SIMS 分析を行った。これらの結果に基づく FP ガス挙動に関する検討結果を 2. 5 に示す。

表2 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の燃料要素の仕様 (参9)

Table 2 Specification of MOX fuel rods for high burnup irradiation test

| 燃料要素種類 | | SBR-MOX | MIMAS-MOX | UO ₂ |
|--------|----------------------|-----------|-----------|-----------------|
| 燃料ペレット | 製造者 | BNFL * | CEA * | IFE * |
| | 製造方法 | SBR | MIMAS | — |
| | Pu-fissile 富化度 (wt%) | 6.1 | 6.1 | — |
| | Pu-total 濃度 (wt%) | 8.4 | 8.4 | — |
| | U-235 濃縮度 (wt%) | (劣化) | (劣化) | 8.0 |
| | 直径 (mm) | 8.19 | 8.05 | 8.19 |
| | 密度 (%TD) | 95 | 95 | 95 |
| 被覆管 | 材質 | ジルカロイ-4 | ジルカロイ-4 | ジルカロイ-4 |
| | 外径/内径 (mm) | 9.50/8.36 | 9.50/8.22 | 9.50/8.36 |
| 燃料要素 | スタック長さ (mm) | 243.9 | 242.5 | 245.2 |
| | 封入ガス | ヘリウム | ヘリウム | ヘリウム |
| | 封入ガス圧 (MPa) | 0.5 | 0.5 | 0.5 |

*: BNFL (British Nuclear Fuels Limited: 英国核燃料会社)
 CEA (Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives: 原子力・代替エネルギー庁、フランス)
 IFE (Institute for Energy Technology: エネルギー技術研究所、ノルウェー)

表3 追加照射試験終了時の燃焼度 (参9)

Table 3 Burnup of MOX fuel rods at the end of extended irradiation test

| 燃料要素種類 | SBR-MOX | MIMAS-MOX | UO ₂ |
|-------------------|---------|-----------|-----------------|
| 燃料要素平均燃焼度 (Gwd/t) | 70.0 | 69.4 | 69.1 |
| 軸方向ピーク燃焼度 (Gwd/t) | 74.4 | 73.8 | 73.5 |

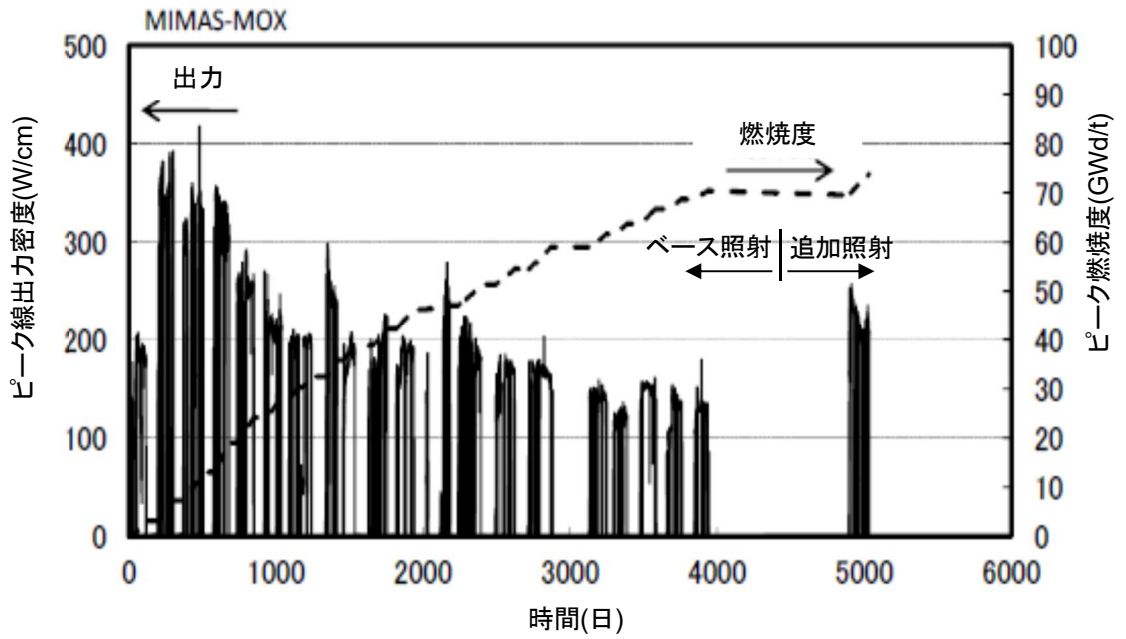


図 4 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の出力履歴 (燃料要素: MIMAS-MOX) (参10)
 Fig. 4 Power history of high burnup MOX irradiation test (Fuel rod: MIMAS-MOX)

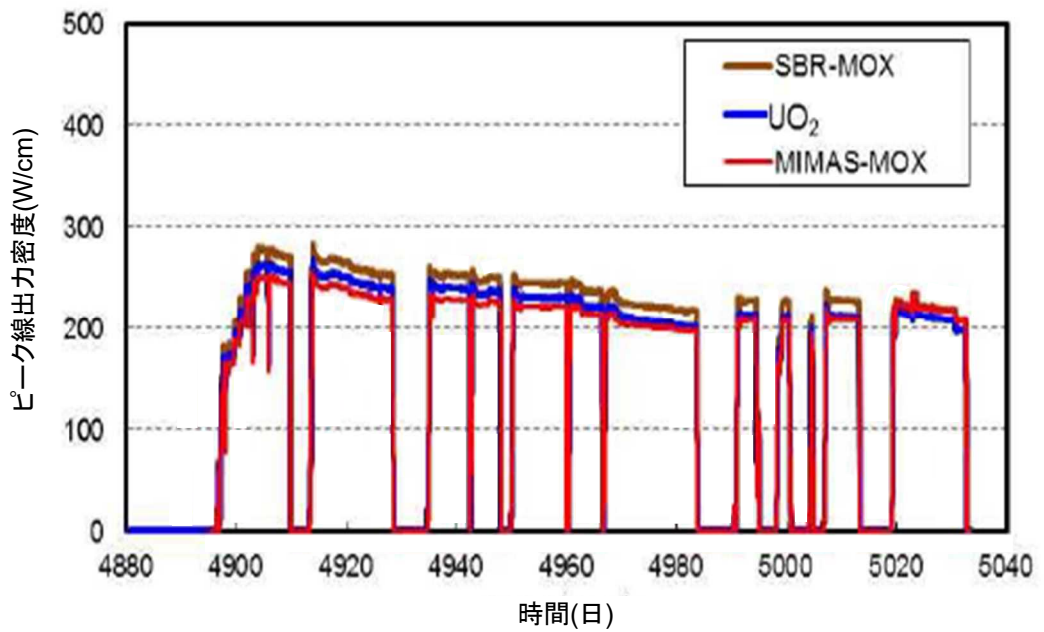


図 5 高燃焼度 MOX 燃料照射試験の出力履歴 (追加照射) (参10)
 Fig. 5 Power history of high burnup MOX irradiation test (Extension irradiation)

2. 3 高富化度 MOX 燃料照射試験 (燃料仕様、照射条件等)

高富化度 MOX 燃料照射試験に供された MOX 燃料要素の仕様を表 4 に示す。本試験では、BR3 炉及び BR2 炉でベース照射を終了した 3 本の燃料要素 (F6673、F6677、F6678) を用いて試験を実施した。ここで、燃焼度の異なるデータを取得するため、F6677、F6678 は BR2 炉で追加照射を行ったが、F6673 は追加照射を行わなかった。表 5 にベース照射完了時及び追加照射完了時の燃焼度を示す。

また、燃料要素 3 本の出力履歴を図 6 に示す。BR3 炉の平均冷却材温度は 255°C (入口) ~270°C (出口)、冷却材圧力は約 14.2MPa、軸方向平均高速中性子束は最大約 $5.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 、また BR2 炉の平均冷却材温度は 289°C (入口) ~303°C (出口)、冷却材圧力は約 15.5MPa、軸方向平均高速中性子束は最大約 $3.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ であった。

BR2 炉で照射した燃料要素については、熱特性について調査するため、照射後の燃料要素から取り出した試料についてレーザーフラッシュ法による熱拡散率測定を行った。この結果を 2. 4. 2 に示す。

また、FP ガス挙動について調査するため、燃料要素から取り出した試料について EPMA 分析及び SIMS 分析を行った。これらの結果に基づく FP ガス挙動に関する検討結果を 2. 5 に示す。

表 4 高富化度 MOX 燃料照射試験の燃料要素の仕様 (参9)

Table 4 Specification of MOX fuel rods for high Pu content irradiation test

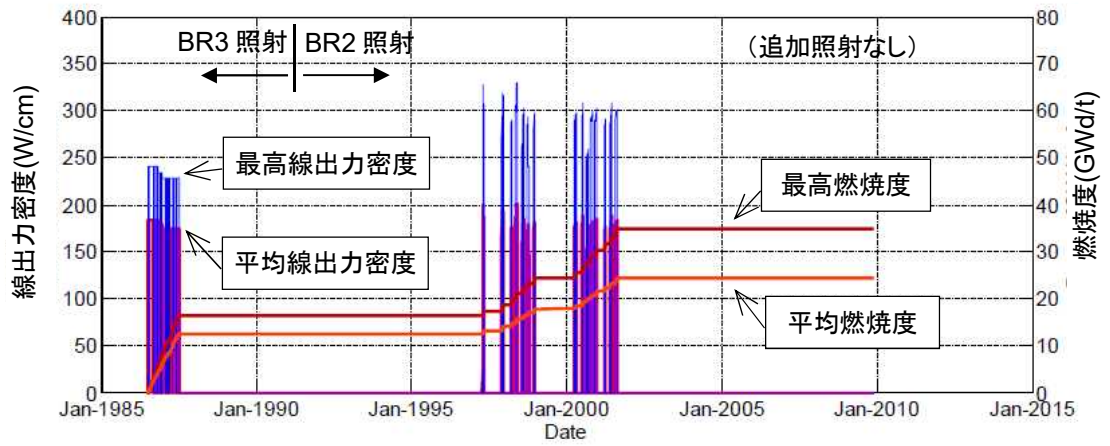
| 燃料要素種類 | | MIMAS-MOX |
|--------|----------------------|-----------|
| 燃料ペレット | 製造者 | BN* |
| | 製造方法 | MIMAS |
| | Pu-fissile 富化度 (wt%) | 10.1 |
| | Pu-total 濃度 (wt%) | 14.3 |
| | U-235 濃縮度 (wt%) | (劣化) |
| | 直径 (mm) | 8.23 |
| | 密度 (%TD) | 93.5 |
| 被覆管 | 材質 | ジルカロイ-4 |
| | 外径/内径 (mm) | 9.63/8.43 |
| 燃料要素 | スタック長さ (mm) | 1004 |
| | 封入ガス | ヘリウム |
| | 封入ガス圧 (MPa) | 2.1 |

*: BN (Belgonucleaire N. V. : ベルゴニュークリア社、ベルギー)

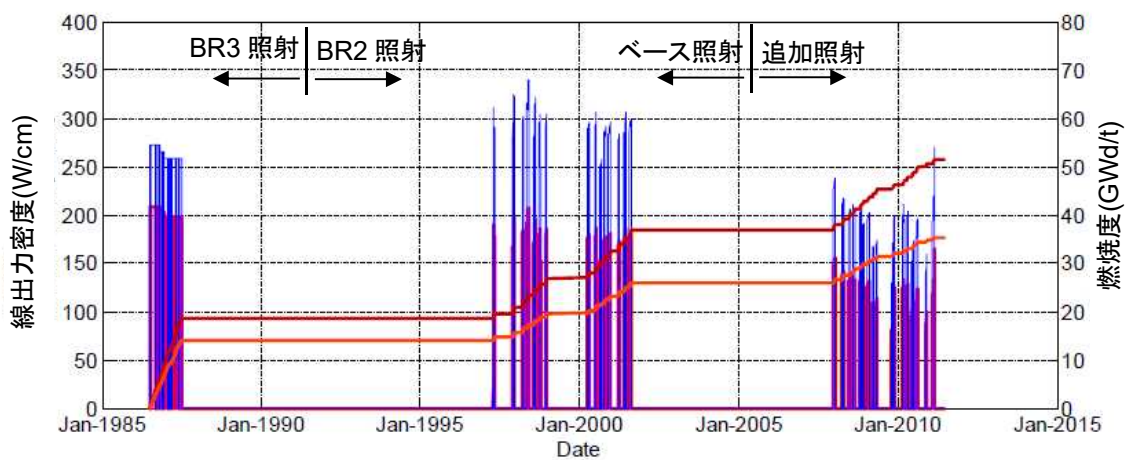
表 5 照射試験終了時の燃焼度

Table 5 Burnup of MOX fuel rods at the end of irradiation test

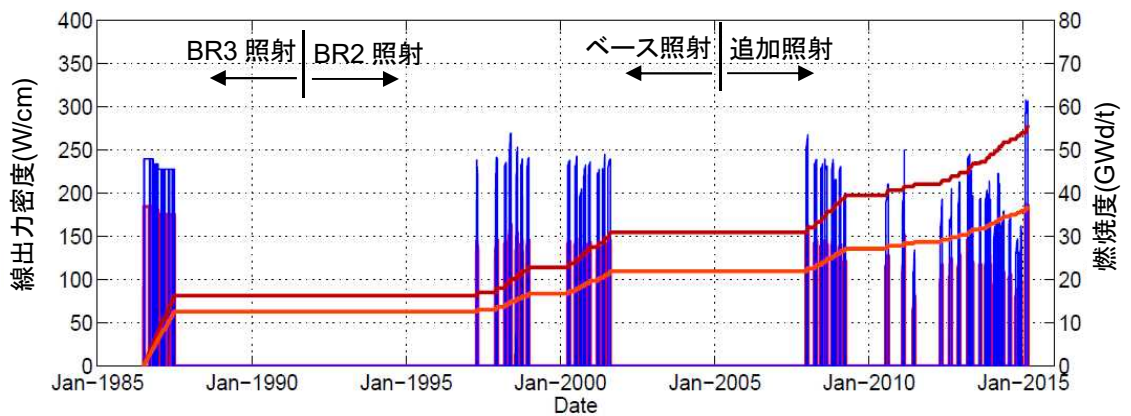
| 燃料要素 | BR3/BR2 ベース照射終了時 燃焼度 (Gwd/t) | | BR2 追加照射終了時 燃焼度 (Gwd/t) | |
|-------|---------------------------------|--------|----------------------------|--------|
| | 燃料要素平均 | 軸方向ピーク | 燃料要素平均 | 軸方向ピーク |
| F6673 | 24.3 | 34.9 | — | — |
| F6677 | 26.0 | 37.0 | 35.7 | 53.7 |
| F6678 | 21.9 | 30.9 | 36.4 | 56.7 |



(a) 燃料要素 F6673



(b) 燃料要素 F6677



(c) 燃料要素 F6678

図6 高富化度 MOX 燃料照射試験の出力履歴

Fig. 6 Power history of high Pu content MOX irradiation test

2. 4 MOX 燃料の熱特性に関する評価

2. 4. 1 燃料棒中心温度の測定結果の評価

高燃焼度 MOX 燃料照射試験においては、照射中の燃料棒の中心温度を熱電対で測定し、中心温度の線出力密度依存性から燃料ペレットの熱伝導特性を評価した。MOX 燃料要素 2 本 (SBR-MOX 及び MIMAS-MOX) と UO_2 燃料要素 1 本について、平均燃焼度約 70Gwd/t において測定された中心温度と温度測定位置の線出力密度との関係を図 7 に示す^(参11)。

同図より、線出力密度に対する中心温度のプロットの傾きは MOX 燃料ペレットの方が UO_2 燃料ペレットより小さいことが分かる。これは、MOX 燃料ペレットの方が UO_2 燃料ペレットより熱抵抗が小さいことを示唆している。主な熱抵抗要素としては、被覆管外面酸化膜、燃料ペレット-被覆管間ギャップ、燃料ペレット熱伝導がある。3 本の燃料要素の照射後試験における断面観察結果によれば、燃料ペレット-被覆管間ギャップは照射中においては 3 本とも閉塞していたと考えられ、ギャップ熱伝達率はほぼ同等だったと推定される。また、被覆管外面酸化膜厚さも同等であった。従って、傾きの違いは、主に燃料ペレットの熱伝導の差によるものと推定される。この場合、線出力密度に対する温度の傾きが小さい方が熱抵抗は小さい、すなわち燃料ペレットの熱伝導率が高いことになるため、MOX 燃料ペレットの熱伝導率の方が UO_2 燃料ペレットより高く、その差は 5%程度と評価される。

文献^(参12)によると、高燃焼度 (75Gwd/t 以上) では MIMAS-MOX 燃料の熱伝導率が UO_2 燃料と同等になることが示唆されているが、本研究の結果は、MIMAS-MOX 燃料と SBR-MOX 燃料の熱伝導率は UO_2 燃料より若干高くなることを示唆している。

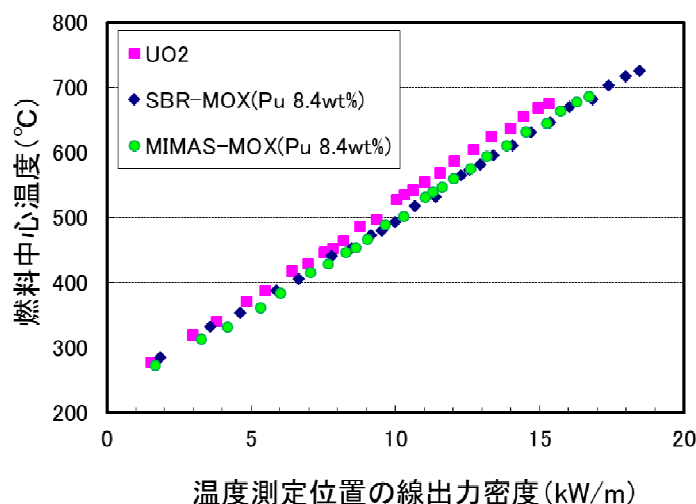


図 7 燃料要素の線出力密度と燃料中心温度の関係^(参11)
(ハルデン炉照射、平均燃焼度約 70Gwd/t)

Fig. 7 Relationship between linear heat generation rate and fuel rod center temperature (about 70Gwd/t average, irradiated at Halden reactor)

2. 4. 2 熱伝導率測定結果の評価

燃料ペレットの熱伝導率に対する、Pu濃度、燃焼度、MOX燃料ペレットの製法の影響を比較検討するため、未照射のUO₂及びMOX燃料ペレット並びに高燃焼度及び高富化度MOX燃料から採取した試料の熱伝導率をレーザーフラッシュ法^(注4)による熱拡散率測定結果から評価した。

測定試料としては、表6に示すとおり、未照射燃料から4試料 (UO₂、SBR-MOX : 各1試料、MIMAS-MOX : 2試料)、ハルデン炉で高燃焼度まで照射した燃料から3試料 (UO₂、SBR-MOX、MIMAS-MOX : 各1試料)、BR2炉で照射した高富化度MOX燃料から2試料 (MIMAS-MOX : 2試料)の計9試料を採取した。

表 6 熱伝導率評価対象試料

Table 6 Samples for thermal conductivity evaluation

| 試料 No. | 種類 | Pu 濃度 (wt%) | 照射 | 燃焼度 (GWd/t) | 密度 (g/cm ³) |
|--------|-----------------|-------------|-------|-------------|-------------------------|
| 1 | UO ₂ | 0 | 未照射 | 0 | 10.52 |
| 2 | SBR-MOX | 8.4 | 未照射 | 0 | 10.40 |
| 3 | MIMAS-MOX | 8.4 | 未照射 | 0 | 10.41 |
| 4 | MIMAS-MOX | 14.3 | 未照射 | 0 | 10.28 |
| 5 | UO ₂ | 0 | ハルデン炉 | 72 | 9.99 |
| 6 | SBR-MOX | 8.4 | ハルデン炉 | 68 | 9.79 |
| 7 | MIMAS-MOX | 8.4 | ハルデン炉 | 68 | 9.86 |
| 8 | MIMAS-MOX | 14.3 | BR2 炉 | 34 | 10.50 |
| 9 | MIMAS-MOX | 14.3 | BR2 炉 | 50 | 10.38 |

未照射燃料ペレットの試料1～4について温度をパラメータとして熱伝導率を測定評価した結果を図8に示す。同図の値は、試料の密度を95%理論密度に補正した結果である。

いずれの試料も温度の上昇に伴い熱伝導率が低下した。また、Pu濃度の増加に伴い熱伝導率が低下する傾向が確認でき、これは従来^(参13、14)の知見と同様である。

なお、試料2 (SBR-MOX) と試料3 (MIMAS-MOX) では、Pu濃度は等しい (8.4wt%) もの、製法が異なるためPu濃度の均一性が異なるが、それによる影響は熱伝導率には現れていない。

注 4 : 平板状試料の一面にレーザー光を瞬間的に照射して加熱し、試料の反対側の面の温度変化 (温度上昇の速さ) を観測することにより熱拡散率を測定する方法。

熱伝導率は、熱拡散率に、試料の密度及び比熱を乗じて算出。

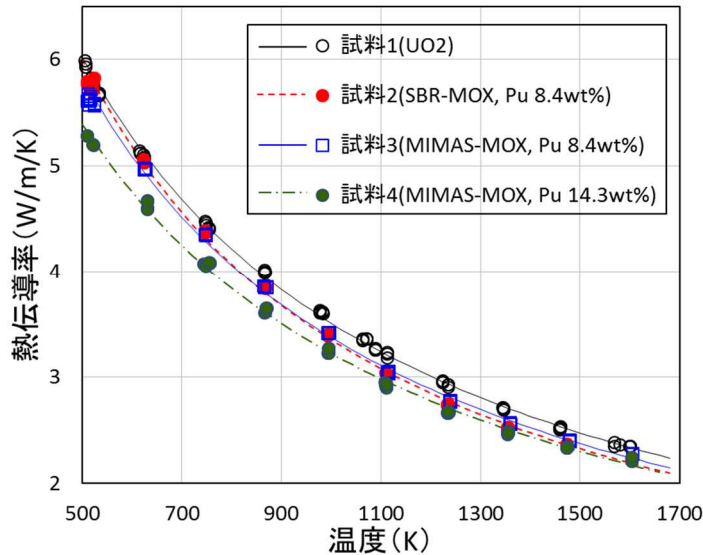


図8 未照射燃料の熱伝導率 (95%理論密度に補正) (参⁹)

Fig. 8 Thermal conductivity of un-irradiated fuel pellets (corrected to 95%TD)

高燃焼度 (約70Gwd/t) までハルデン炉で照射した試料5 (U₂O₃)、試料6 (SBR-MOX) 及び試料7 (MIMAS-MOX) の熱伝導率の測定評価結果を図9に示す。照射燃料ペレットの場合、高温時に試料が破損する可能性があるため、1回の昇温で最高温度までの測定を行うのではなく、到達温度を100K程度ずつ上げながら、昇温と降温を繰り返しつつ段階的に高温までの測定を行った。また、試料の温度を上げる昇温時と、温度を下げる降温時のそれぞれの過程において測定を行った。ここでは、この昇温と降温の繰り返し測定を「サイクル」と呼ぶ。

熱伝導率の測定結果は、図9に示すように温度を上昇させる過程で測定した結果より、目標となる温度に到達した後に温度を下降させる過程で測定した結果の方が高くなっている。これは昇温によって照射欠陥等が回復するためと考えられる。

U₂O₃燃料の場合、9サイクル目の測定時に1400K近くで試料が一部破砕したが、その後の降温時にも測定を行うことができた。しかし、MOX燃料は、試料6、試料7とも5サイクル目 (約920~950K) で完全に破砕したため、それ以降の測定を行うことはできなかった。

ここでは、U₂O₃燃料は第1、5、9サイクル、MOX燃料は第1、3、5サイクルの結果を抽出して示す。これら3つのサンプルの第4サイクルにおける到達温度は、どれも約890Kであった (U₂O₃: 885K、SBR-MOX: 892K、MIMAS-MOX: 886K)。したがって、第5サイクル開始前の照射欠陥の回復程度はどれも同等だったと考え、5サイクル目の昇温時の結果について、データの比較を行った。比較の結果を図10に示す。ここでは、未照射燃料の場合と同様、試料の密度を95%理論密度に補正している。

U₂O₃燃料ペレットとMOX燃料ペレットの熱伝導率を比較すると、未照射燃料ペレットは図8に示すように下記の大小関係になっている。

$$\text{MIMAS-MOX} \cong \text{SBR-MOX} < \text{UO}_2$$

一方、図7の燃料中心温度の測定結果からは、約70GWd/tの照射燃料ペレットの熱伝導率は700°C (973K) 以下では下記のようにになっていることが示唆された。

$$\text{MIMAS-MOX} \approx \text{SBR-MOX} > \text{UO}_2$$

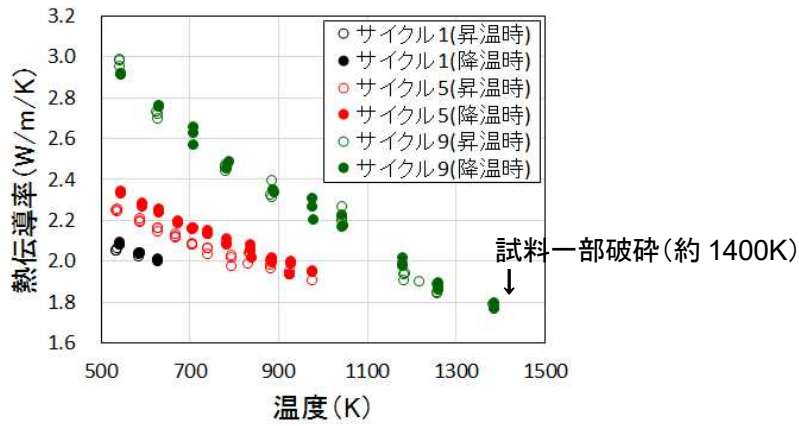
また、約890Kまで照射欠陥を回復させた照射燃料ペレットの熱伝導率の測定評価結果からは、図10に示すように下記のようになった。

$$\text{MIMAS-MOX} > \text{SBR-MOX} \geq \text{UO}_2$$

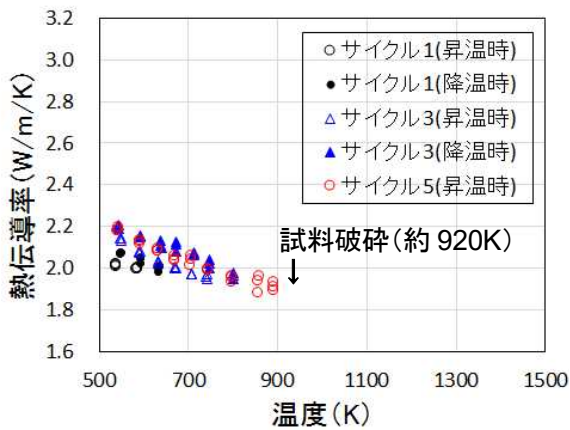
以上の結果は、比較した条件において、照射による熱伝導率の低下の程度が、MOXペレットよりUO₂ペレットで大きいことを示唆している。この理由としては以下のようなことが考えられるが^(参11)、今後、更に検討が必要である。

- ・照射に伴うPu濃度の変化：照射に伴い、MOX燃料は製造時のPu濃度が低下するのに対し、UO₂燃料はPuが生成されるため、両者の差が小さくなる。
- ・固溶性FPの生成量の違い：熱伝導率の低下要因となる固溶性FPの生成量が、UO₂燃料中でMOX燃料中より多い^(参3、4)。
- ・照射欠陥の消滅速度の違い：Pu原子の方がU原子より拡散定数が大きいことなどから^(参15)、熱伝導率の低下要因となる照射欠陥の消滅速度が、MOX燃料において比較的大きい。

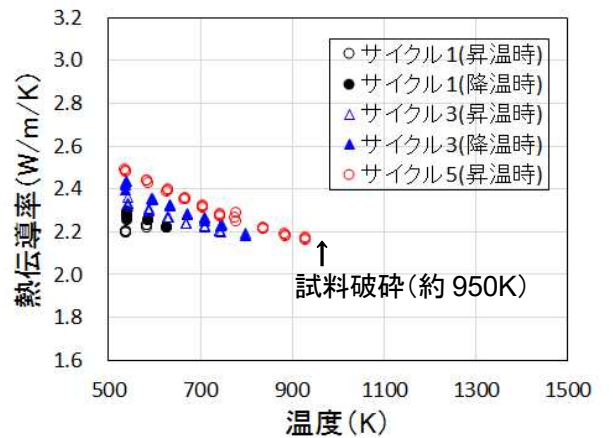
高富化度MOX燃料の試料8 (MIMAS-MOX、34GWd/t) 及び試料9 (MIMAS-MOX、50GWd/t) の熱伝導率を95%理論密度に補正した評価結果を図11に示す。本図の元になる熱伝導率は、図10の場合と同様、5サイクル目の測定の昇温時の結果である。試料9の熱伝導率の方が試料8より800K以下では低くなっていることから、この温度範囲においては高富化度MOX燃料ペレットにおいても、照射と共に熱伝導率は低下する傾向にあると考えられる。



(1) 試料5 (UO₂)



(2) 試料6 (SBR-MOX、Pu 8.4wt%)



(3) 試料7 (MIMAS-MOX、Pu 8.4wt%)

図9 高燃焼度燃料 (ハルデン炉照射、約 70Gwd/t) の熱伝導率の評価結果 (参⁹)
 Fig. 9 Evaluation results of thermal conductivity of high burnup fuel (about 70Gwd/t, irradiated at Halden reactor)

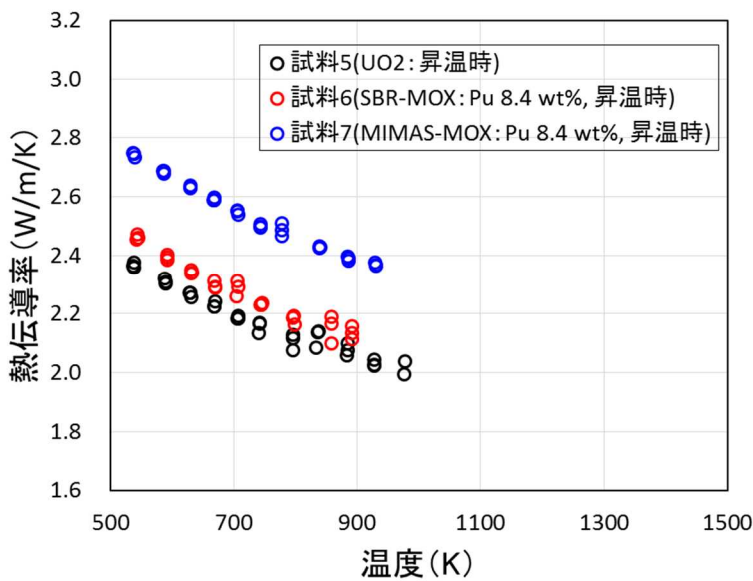


図10 高燃焼度燃料 (ハルデン炉照射、約 70Gwd/t) の熱伝導率の評価結果 (95%理論密度に補正) (参⁹)
 Fig. 10 Evaluation results of thermal conductivity of high burnup fuel (about 70Gwd/t, irradiated at Halden reactor, corrected to 95%TD)

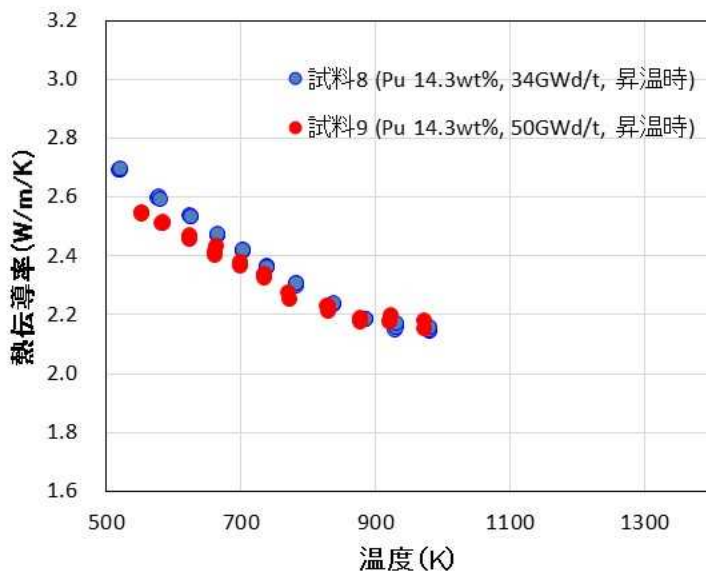


図 11 高富化度 MOX 燃料 (BR2 炉照射、MIMAS-MOX) の熱伝導率の評価結果 (参9)
(95%理論密度に補正)

Fig. 11 Evaluation results of thermal conductivity of high Pu content MOX fuel (MIMAS-MOX, irradiated at BR2 reactor, corrected to 95%TD)

今回、未照射及び照射済みの燃料ペレットを用いてレーザーフラッシュ法によって熱伝導率の測定を行った。この結果、照射欠陥等により、熱伝導率は照射によって大きく低下するが、その程度はMOX燃料よりUO₂燃料の方が大きいとの示唆が得られた。

この結果及び他の類似研究の結果 (参16、17、18) 等に基づいて、燃料挙動解析コードの熱伝導率モデルへの反映について検討を進める。その際、今回の測定結果については、熱伝導率を測定した燃料ペレットの径方向位置 (レーザーの照射位置) を特定し、当該位置の照射量等についてより詳細な評価を行うこととする。

2. 5 FP ガス挙動に関する検討

Pu濃度が非均一なMIMAS-MOX燃料ペレットでは、局所的にPu濃度が高い部分で燃焼度が高くなり、燃焼に伴う組織変化等も非均一になる。そのため、燃焼に伴う燃料ペレットの照射挙動変化もUO₂燃料ペレットとは異なると考えられることから (参19)、特にPuの非均一性の影響を受けやすく燃料棒の健全性評価で重要なFPガス放出挙動について検討した。

MIMAS-MOX燃料ペレットの非均一Pu濃度分布の例として、高燃焼度MOX燃料照射試験においてハルデン炉にて照射したMIMAS-MOX燃料ペレットのEPMA面分析結果を図12に示す。MIMAS-MOX燃料ペレットは、Pu濃度の高いPuスポット、劣化U (ウラン) を主成分とし、Pu濃度が低くUO₂の組成に近い領域 (以下「劣化Uスポット」という。) 及びそれらの中間的なPu濃度の中間相から形成されていることが分かる。ここでは、Pu濃度が7wt%以上の領域をPuスポット、2wt%以下を劣化Uスポット、それらの間を中間相とした。

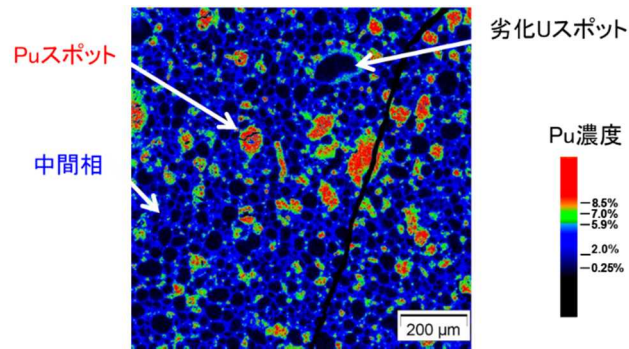


図 12 MIMAS-MOX 燃料ペレットの Pu 濃度平面分布 (参²⁰)
 (試料位置燃焼度約 64GWd/t、初期 Pu 濃度 8.4wt%)

Fig. 12 Planar distribution of Pu content of MIMAS-MOX fuel pellet
 (sample burnup about 64GWd/t, initial Pu content 8.4wt%)

高燃焼度 MOX 燃料照射試験においてハルデン炉で照射された MIMAS-MOX 燃料要素と高富化度 MOX 燃料照射試験において BR3 炉及び BR2 炉で照射された燃料要素 F6677 (MIMAS-MOX) の FP ガス放出率を表 7 に示す。ハルデン炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素については、ベース照射後のパンクチャー試験結果と追加照射後のパンクチャー試験結果から、それぞれの燃焼度を考慮して、照射期間全体の FP ガス放出率を評価したものである。BR2 炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素については、照射終了後のパンクチャー試験結果から評価されたものである。FP ガス放出率はハルデン炉照射燃料要素の方が高くなっている。

表 7 パンクチャー試験から評価した FP ガス放出率

Table 7 FP gas release ratio evaluated by the results of rod-puncture test

| 燃料要素 | FP ガス放出率 (%) | 燃料要素平均燃焼度 (GWd/t) |
|--------------------------------|--------------|-------------------|
| ハルデン炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素 | 16.5 | 69.4 |
| BR2 炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素 (F6677) | 13.0 | 35.7 |

更に、MIMAS-MOX燃料ペレットのFPガス放出挙動を調べるため、SIMSを用いてFPガス元素であるXeの分析を行った。ここでは、燃料ペレット中の分析箇所を区別して、Puスポット部と中間相に分けて分析を行った。図13に、高燃焼度MOX燃料照射試験においてハルデン炉で照射されたMIMAS-MOX燃料ペレット（試料位置燃焼度約64GWd/t）の径方向Xe濃度分布を中間相及び Puスポットに分けて示す。Nd（ネオジウム）から評価したXe生成量もあわせて示す。

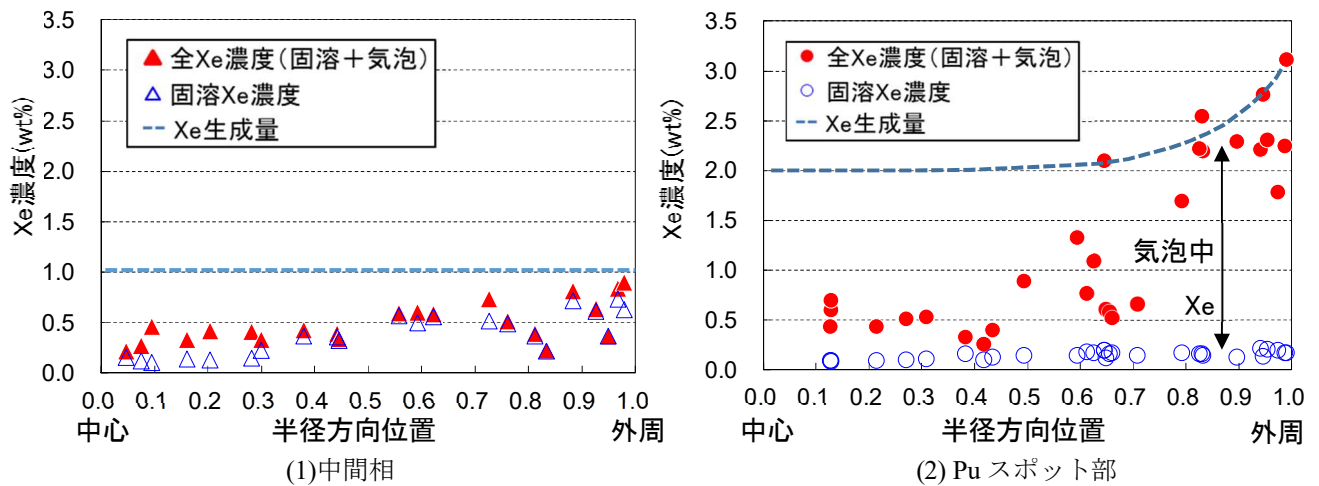


図 13 SIMS により測定した高燃焼度 MIMAS-MOX 燃料^(参20)
(ハルデン炉照射、約 64Gwd/t) の径方向 Xe 濃度分布

Fig. 13 Radial distribution of Xe content measured by SIMS for high burnup MIMAS-MOX fuel irradiated up to about 64Gwd/t at Halden reactor

燃料ペレット中に存在するXe（以下「全Xe」という。）は、FPガスが集合して形成された微小気泡中に存在するもの（以下「気泡中Xe」という。）及び結晶粒内の格子中と結晶粒界に存在するもの（以下、便宜上「固溶Xe」という。）から成る。従来、燃料ペレット中の元素分析にはEPMAが多く用いられてきたが、EPMAは表面付近の元素の特性X線を測定するため、試料内部の気泡内に保持されたFPガス濃度を正確に測定することができなかった。SIMSは、試料表面からある程度の深さまでスパッタリングし、放出された原子（イオン）を質量分析器で測定するため、試料内部に存在する気泡内のFPガスも測定できる。結晶部分でのスパッタリングでは、固溶しているFPガス原子がその固溶濃度に対応して一定量、継続して検出される。一方、スパッタリングが気泡に到達した場合、気泡全体から瞬時に多量のFPガス原子が放出されるため、一時的に検出量が非常に多くなる。ここでは、検出量が多くなった部分及び検出量が一定の部分の合計総検出量（Xe質量）をスパッタリングされた部分の燃料質量で除した値を全Xe濃度と評価し、図13に赤プロットで示した。また、検出量が一定の部分のみの総検出量（Xe質量）をスパッタリングされた部分の燃料質量で除した値を固溶Xe濃度と評価し、青プロットで示した。全Xe濃度と固溶Xe濃度の差は、燃料単位質量に含まれる気泡中Xe量に相当する。

FPガスであるXeの生成量は、燃焼度に比例するために、Pu濃度の低い中間相ではXe生成量は少なく、Pu濃度の高いPuスポット部ではXe生成量が多くなる。また、燃料ペレット内にも燃焼度分布があり、中心部付近から半径方向位置0.7程度まで一定となるが、半径方向位置0.7から外周へかけて燃焼度が増加する。そのため、Xe生成量も中心部付近では半径方向位置に対して一定となり、外周部で多くなる。燃料ペレット外への放出があった場合、測定されるXe濃度分布はこの傾向からずれると予測できる。

図13(1)の中間相のSIMS分析結果を見ると、中心部から外周部へ向けて、その傾きは小さいものの全Xe濃度が増加しており、中心部では燃料ペレット外へのXe放出が進んでいると考えられる。中心部では、僅かであるが、全Xe濃度と固溶Xe濃度に差が認められ、気泡中Xeが存在する。一方、径方向相対位置0.4から外周部までは、全Xe濃度と固溶Xe濃度に差がほとんどないことから、Xeは結晶粒内の格子中及び結晶粒界に存在していると考えられる。中間相の外周部において、気泡中Xeが観測されないのは、中間相はPuスポット部に比べて燃焼度が低く、気泡を含む高燃焼度組織が形成されていないためと考えられる。

図13(2)のPuスポット部のSIMS分析結果に注目すると、全Xe濃度は中心部近傍で小さく、径方向相対位置0.5から外周部へかけて増加している。試料の燃焼度から、燃料ペレットの中心付近では2wt%程度のXe生成量があると評価されるので、燃料ペレット中心部は温度が高くFPガス原子の拡散が活発であり、また、燃料ペレットには熱応力による割れが存在するため、中心部から割れを通じて燃料ペレット外へ多くのFPガス(Xe等)が放出されたと考えられる。一方、固溶Xe濃度は全体にわたって非常に小さいことから、Puスポット部に存在するXeのほとんどは気泡中に保持されていると考えられる。特に、径方向相対位置0.6から外周部の領域では、燃焼度が高く、気泡を含む高燃焼度組織が形成されているため、気泡中にXeが多く存在している。

次に、高富化度MOX燃料照射試験においてBR2炉で照射された燃料要素F6677の異なる軸方向位置2か所から採取されたMIMAS-MOX燃料ペレット試料(燃焼度約53GWd/t及び約42GWd/t)について実施した径方向Xe濃度分析の結果を図14に示す。ここでは、燃焼度の影響を観察するため、Puスポット部の分析結果のみを示し、それらを比較する。図14(1)に示す燃焼度約53GWd/tの試料では、外周部においても全Xe濃度と固溶Xe濃度との差が小さく、燃料ペレット外周部の気泡中に保持されているXeは少ない。また、Xe生成量は燃焼度に比例するため、図13に示す試料(燃焼度約64GWd/t)の8割程度、つまり1.6wt%程度のXe生成量はあると考えられるが、図13(2)と比較して、中心部から外周部まで全体にわたって全Xe濃度が小さく、生成したほとんどのXeが燃料ペレット外に放出されていると考えられる。

一方、図14(2)に示す燃焼度約42GWd/tの試料では、径方向相対位置0.7から外周部において、全Xe濃度と固溶Xe濃度との差が観察でき、この領域では気泡中にあるXeが比較的多いと考えられる。

図14に示す2つの試料は同一燃料要素F6677から採取されており照射期間が同じであることから、局所出力は平均的には燃焼度に比例し、図14(1)の試料(約53GWd/t)の位置の出力は図14(2)の試料(約42GWd/t)より25%程度高かったと考えられる。従って、図14(1)の試料(約53GWd/t)の方が、照射中の温度も高く、燃料ペレット外周部においてもXeの拡散が進み、気泡中から燃料ペレット外への放出も進んだものと考えられる。

図13(2)のPuスポット部測定結果と図14(1)及び(2)の測定結果とを比較すると、図13(2)のハルデン炉照射試料の方が、外周部でより多くの気泡中Xeが存在している。これは、ハルデン炉照射試料の方が1.2倍程度燃焼度は高く、それに応じてXe生成量が多いことに加え

て、次の条件により外周部からの燃料ペレット外への放出量が少なくなったためと考えられる。

ハルデン炉とBR2炉のCALLISTO Loop^(注5)の冷却材温度は、それぞれ235℃及び290℃であり、ハルデン炉の方が冷却材温度は低かった。

また、最終照射サイクルにおける試料位置の出力は、ハルデン炉照射試料で約200W/cm、BR2炉照射試料のうち燃焼度約53GWd/tの試料が約260W/cm、燃焼度約42GWd/tの試料が約206W/cmであった。

したがって、最終サイクルにおける燃料ペレット温度は、ハルデン炉照射試料が最も低く、このため、燃料ペレット外周部での拡散が比較的抑えられて放出量が少なくなり、その結果、保持量が多くなっているものと考えられる。

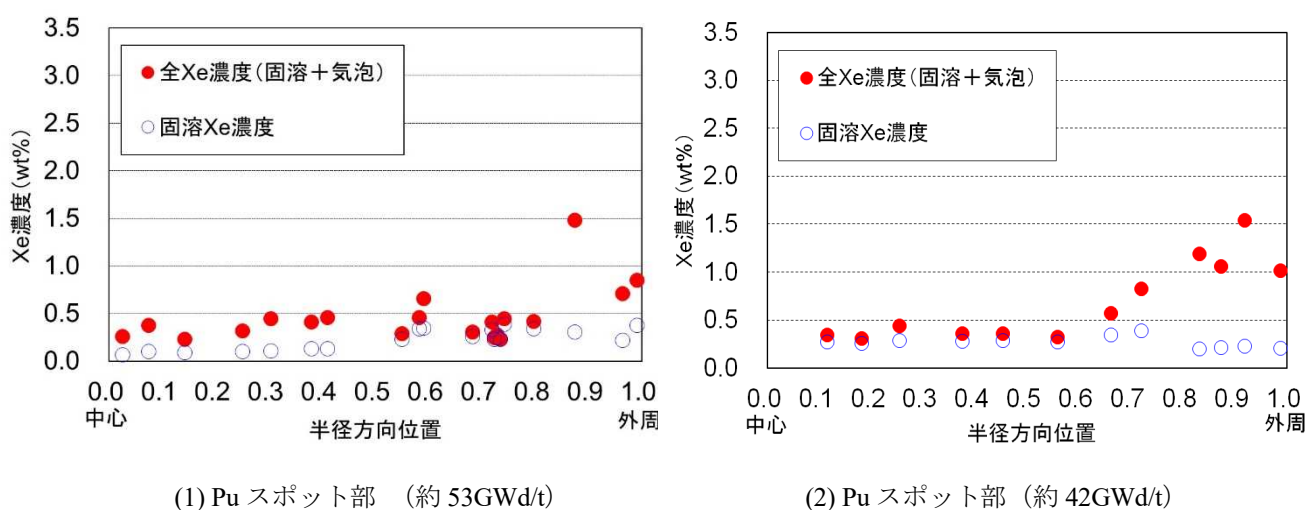


図14 SIMSにより測定した高富化度MIMAS-MOX燃料(BR2炉照射)の径方向Xe濃度分布^(参9)
 Fig. 14 Radial distribution of Xe content measured by SIMS for MIMAS-MOX fuel irradiated at BR2

図13(2)のSIMS測定結果は、ハルデン炉照射試料の外周部では生成量と同程度のXeが存在していることを示している。これに対し、図14(1)に示すBR2炉照射試料については、その燃焼度と図13(2)に示すXe生成量から、中心付近で1.6wt%程度、外周部で2.4wt%程度のXe生成量があると評価されるが、全体にわたり生成量より少ないXeしか存在していない。つまり、燃料ペレット中のXe保持量はハルデン炉照射試料の方が多く、Xe放出率が小さいことを示唆している。

一方、表7に示すように、パンクチャー試験から評価したFPガス放出率はハルデン炉照射燃料要素の方が高くなっている。表8に燃料要素平均燃焼度及び軸方向ピーク燃焼度を示す。ハルデン炉照射燃料要素は燃料スタック長さが約25cmと短く、燃焼度のピーク/平均の

注5： BR2 炉内に設けられた PWR 冷却材条件を模擬した試験ループ。本研究の試験用燃料要素は、このループ内で照射された。

比が 1.06 である。これに対し、BR2 炉照射燃料要素の長さは約 100cm と比較的長く、燃焼度のピーク/平均の比は 1.51 である。このことから、BR2 炉照射燃料要素の軸方向位置における出力の差、つまり燃料ペレット温度の差は、ハルデン炉照射燃料要素に比べて大きいと言える。このため、BR2 炉照射燃料要素のピーク出力位置付近（図 14）では燃料ペレット温度が高く FP ガスの放出は進んでいるが、出力の低い位置では燃料ペレット温度が低く FP ガスの放出は進んでいないと考えられる。一方、ハルデン炉照射燃料要素の軸方向の出力分布、つまり温度分布は比較的フラットであり、燃料スタック全体から FP ガスが放出されたと考えられる。

以上のように、ピーク出力付近の局所では、燃料ペレット温度の高い BR2 炉照射試料の方が FP ガス放出は進んでいると考えられるが、燃料スタック全体を見た場合、燃焼度の高いハルデン炉照射燃料要素の方が FP ガス放出は進んでおり、その結果、パンクチャー試験から得られた FP ガス放出率はハルデン炉照射燃料要素の方が高くなったものと考えられる。

表 8 試験燃料要素の燃焼度^(参9)
Table 8 Burnup of the test fuel rods

| 燃料要素 | 燃料要素平均燃焼度 (GWd/t) | 軸方向ピーク燃焼度 (GWd/t) | ピーキング係数 (ピーク/平均) |
|--------------------------------|-------------------|-------------------|------------------|
| ハルデン炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素 | 69.4 | 73.8 | 1.06 |
| BR2 炉照射 MIMAS-MOX 燃料要素 (F6677) | 35.7 | 53.7 | 1.51 |

2. 6 FP ガス解析モデルの見直し

上述のように、FP ガスの放出挙動は燃料の温度分布や燃料ペレット組織等多くの因子に依存するため、FP ガスの放出率を予測するためにはこれらを考慮した燃料挙動解析コードによる解析が必要である。そこで、MIMAS-MOX 燃料の FP ガス放出率の予測精度を向上させることを目的として、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が開発した燃料挙動解析コード FEMAXI-7 で使用されている FP ガス解析モデルの検証及び見直しを行った。以下にその内容を示す。

入力に用いる燃料仕様は表 2 に示す値を用いた。燃料ペレット全てが Pu スポット部組織（粒径約 $1\ \mu\text{m}$ ）と仮定したケースと中間相組織（粒径約 $7\ \mu\text{m}$ ）と仮定したケースの 2 つの解析を実施した。粒径については、金相観察結果に基づき設定した^(参20)。なお、燃料ペレット全体が Pu スポット部組織と仮定した解析では、照射後の Nd 分析結果に基づき、FP ガス挙動に関わる計算式（サブルーチン）のみ、核分裂密度を 2 倍とした^(参20)。その他、燃料ペレットの熱伝導率等も燃焼度依存性を持つが、それらについては、全体が Pu スポット部組織と仮定した解析でもサブルーチンの修正は行わず、そのまま計算した。以上のように、粒径と FP ガス挙動に関わる核分裂密度依存性（燃焼度依存性）のみを変更し、図 13 に示す中間相と Pu スポット部の SIMS 分析結果の再現を試みた。

当初の解析では、Pu スポット部及び中間相とも、燃料ペレット中心部付近の Xe 放出量と気泡中 Xe 濃度が過小評価であり、また Pu スポット部では、燃料ペレット外周における気泡

中Xe濃度も過小評価となった^(参21)。過小評価の原因として、FPガス原子の拡散や気泡生成及び気泡中FPガス保持の模擬が不十分であることが考えられた。そこで、FEMAXI-7のFPガス挙動に関係するモデルを見直した。見直した点は以下のとおりであり、これらの調整点のイメージを図15に示す。

① FPガス原子拡散モデルの見直し

結晶粒内で生成したFPガスは粒内を拡散し、粒内及び粒界で集積することにより気泡として析出する。また、粒界気泡中のFPガスは気泡の連結トンネルや割れを通じて燃料ペレット外へ放出される。そのため、FPガスの拡散定数を増加させることにより、FPガス気泡量や放出量を増加させることができる。そこで、FPガス原子拡散モデルの温度依存性を調整し、FPガスの拡散定数を増加させた。

② 粒内気泡モデルの見直し

拡散定数を増加させることにより、燃料ペレット中心部の放出量は模擬できるようになったものの、中心部の気泡中Xe濃度を十分に模擬できなかつたため、気泡中Xe保持量を増加させるために、粒内気泡数密度を増加させた。

③ 粒界ガス再固溶モデルの見直し

燃料ペレット外周部での気泡中Xe濃度を増加させるために、外周部での粒界ガスの粒内への再固溶率を減少させた。再固溶率の減少については、その効果が燃料ペレット中心部に及ぶとFPガス放出の抑制に作用するため、外周部のみに適用されるように、リム効果と呼ばれる結晶粒細粒化の割合に応じて作用するよう再固溶率の計算式に細粒化割合の項を追加し、細粒化しきい温度を調整した。

④ 粒界ガス保持モデルの見直し

上記③の再固溶率を減少させても、燃料ペレット外周部での気泡中Xe濃度の増加が不十分だったので、粒界気泡内に保持されているFPガスの気泡外への放出しきい圧力を増加させ、気泡中Xe濃度を増加させた。ここでも、上記③と同様に、外周部のみに適用されるように、FPガス放出しきい圧力の計算式に細粒化割合の項を追加した。しきい圧力については、文献^(参22)を参考にし、合理的な値となることを確認した。

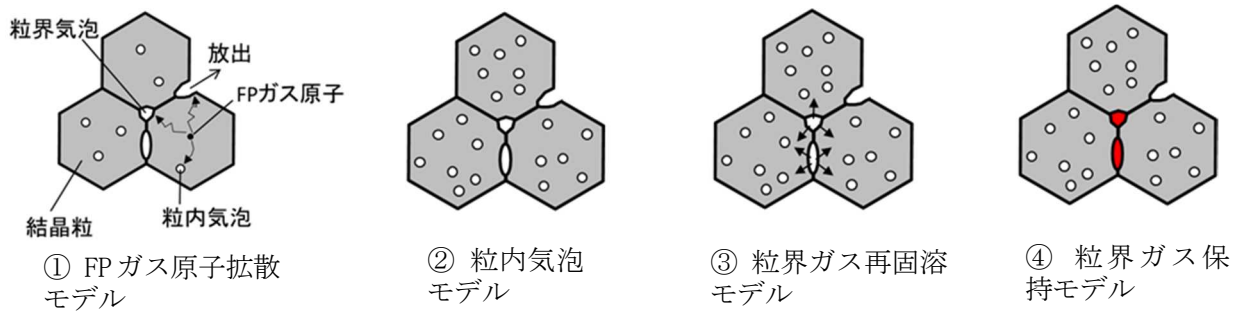


図 15 FPガス解析モデルの見直し点^(参9)

Fig. 15 Schematic illustration of the modification of FP gas analysis models

以上の見直しを行ったFEMAXI-7を用いて解析した結果を図16に示す。図16の縦軸は生成Xeに対して規格化した相対Xe濃度である。ここに示すように、上記の調整を行うことにより、中間相、Puスポット部とも、分析結果をおおよそ模擬できるようになった。

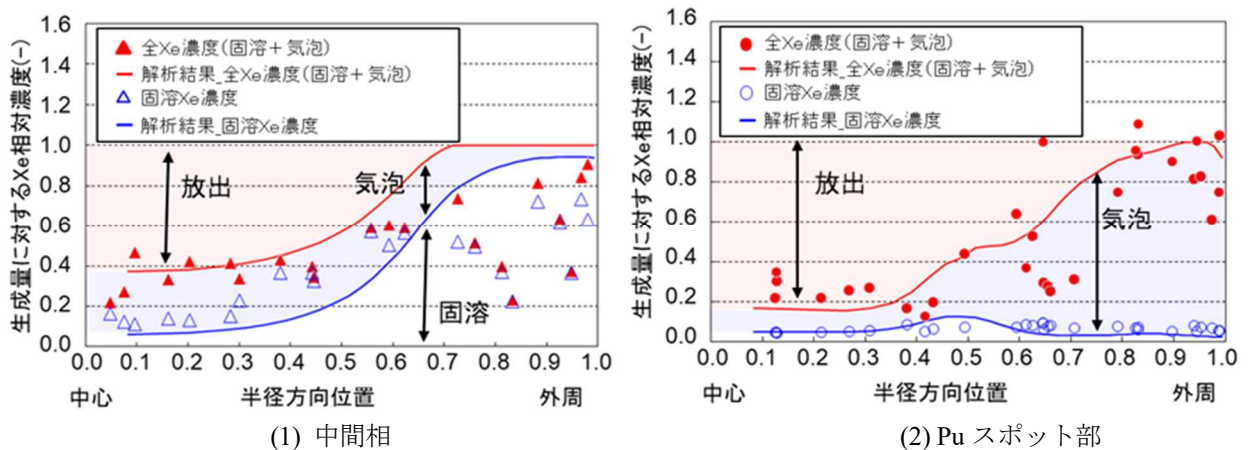


図 16 MIMAS-MOX 燃料の径方向 Xe 濃度分布に関する SIMS 分析結果と解析結果の比較^(参20)

Fig. 16 Comparison between SIMS analysis and numerical analysis for radial distribution of Xe in MIMAS-MOX fuel

表9に、パンクチャー試験から得られたハルデン炉照射高燃焼度MIMAS-MOX燃料要素のFPガス放出率及びFEMAXI-7解析から得られたFPガス放出率を示す。FEMAXI-7を用いた解析では、燃料ペレット全てがPuスポット部組織（粒径約 $1\mu\text{m}$ ）と仮定したケースと中間相組織（粒径約 $7\mu\text{m}$ ）と仮定したケースの2つの解析を実施しているため、Puスポット部と中間相が混在している実際のMIMAS-MOX燃料ペレットのFPガス放出率を評価する場合は、Puスポット部と中間相でのFPガス生成割合を考慮して、2つの解析結果の加重平均を求める必要がある。

そこで、以下のように加重平均を行った。FPガスの生成量をG、FPガスの放出量をRとして、添え字p、i、uをそれぞれPuスポット部、中間相、劣化Uスポット部とすると、燃料ペ

レット全体からのFPガス放出率FGRは以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned} \text{FGR} &= \frac{R_p + R_i + R_u}{G_p + G_i + G_u} = \frac{R_p}{G_p + G_i + G_u} + \frac{R_i}{G_p + G_i + G_u} + \frac{R_u}{G_p + G_i + G_u} \\ &= \frac{G_p}{G_p + G_i + G_u} \times \frac{R_p}{G_p} + \frac{G_i}{G_p + G_i + G_u} \times \frac{R_i}{G_i} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、劣化Uから成る劣化Uスポットの燃焼度は低く、FPガス放出量は十分小さいとして、 $R_u=0$ とする。 R_p/G_p と R_i/G_i は、それぞれ燃料ペレット全てがPuスポット部組織と仮定した場合のFPガス放出率と燃料ペレット全てが中間相組織と仮定した場合のFPガス放出率であり、表9に示す解析値に相当する。 $G_p/(G_p+G_i+G_u)$ 、 $G_i/(G_p+G_i+G_u)$ は、それぞれPuスポット部と中間相でのFPガス生成量の割合である。FPガス生成量の割合はFP生成量の割合と同等と見なせるので、当該MIMAS-MOX燃料ペレットのEPMA面分析を実施し、照射中に燃料ペレット中をほとんど移動しないFP元素であるNdの濃度測定値と、Puスポット、中間相及び劣化Uスポットの面積割合から、Puスポット部、中間相、劣化Uスポット部のそれぞれのNd含有割合を評価し、FP生成量の割合とした。その結果を表10に示す。

表10に示すように、Puスポット部、中間相、劣化Uスポット部におけるそれぞれのNd含有割合は、燃料ペレット半径方向位置によらずほぼ同等であり、その平均値は、Puスポット部、中間相、劣化Uスポット部それぞれで、0.19、0.60、0.22となった。

ここで、これらの平均値を用いて、 $G_p/(G_p+G_i+G_u)=0.19$ 及び $G_i/(G_p+G_i+G_u)=0.60$ と仮定した。上記の式(1)にこれらの値を代入することにより、 $\text{FGR}=0.19 \times 35.5 + 0.60 \times 12.1 = 14.0$ となり、FPガス生成割合を考慮した当該MIMAS-MOX燃料のFPガス放出率の加重平均は14.0%となった。これは、パンクチャー試験による測定値16.5%に比べて若干小さいものの、FPガス放出率の値をおおよそ予測できたと考えられる。

SIMS分析は燃料スタックのある一断面について行ったものであるが、そのSIMS分析結果を用いて見直したFEMAXI-7によって燃料スタック全体についてFPガス放出量を評価し、妥当なFPガス放出率が求められたことは、SIMS分析結果等に基づく前述の①～④の調整が妥当なものであることを示すと考えられる。

今後、更に検討が必要であるが、Puスポット、中間相及び劣化Uスポット中の製造時Pu濃度比とFP生成量割合の関係を明らかにすることにより、製造時にPu濃度分布に関するEPMA分析を行い、Puスポット、中間相及び劣化Uスポット中のPu濃度とそれらの面積割合を測定すれば、 $G_p/(G_p+G_i+G_u)$ 及び $G_i/(G_p+G_i+G_u)$ に相当するFP生成割合を評価できると考えられる。更に、本研究で実施したように、燃料ペレット全てがPuスポット部組織と仮定したケースと中間相組織と仮定したケースの2つのケースの解析を実施し、FP生成割合を考慮した加重平均をとることにより、MIMAS-MOX燃料ペレットの非均一性を考慮したFPガス放出率の

評価を実施することができ、製造工程の新設や変更及びPu濃度の変更等に対応して、解析によりFPガス放出率に対する非均一性の影響の程度を評価できる可能性があると考えられる^(参20)。

表9 高燃焼度 MIMAS-MOX 燃料の FP ガス放出率の比較^(参20)

Table 9 Comparison of fission gas release rate of high burnup MIMAS-MOX fuel

| | FP ガス放出率 (%) |
|--------------------|--------------|
| Pu スポット部 (解析値) | 35.5 |
| 中間相 (解析値) | 12.1 |
| 加重平均 (FP ガス生成割合考慮) | 14.0 |
| パンクチャー試験測定値 | 16.5 |

表10 Pu スポット、中間相、劣化U スポットにおけるNd 含有割合の半径方向分布と平均値^(参20)

Table 10 Ratios of Nd content in Pu agglomerate, intermediate phase and depleted U agglomerate in different radial sections and the average values

| | 中心～0.16R* | 0.32R ～ 0.57R | 0.75R～1R | 平均値** |
|----------|-----------|---------------|----------|-------|
| Pu スポット | 0.17 | 0.17 | 0.20 | 0.19 |
| 中間相 | 0.57 | 0.58 | 0.61 | 0.60 |
| 劣化U スポット | 0.26 | 0.25 | 0.19 | 0.22 |

* R:ペレット半径 ** 端数処理のため、平均値の合計は1になっていない。

3. 結論

3. 1 成果の要点

本研究では、MOX燃料に関する技術的知見の拡充のために、燃料の健全性を示す指標である燃料温度や燃料棒内圧の評価に必要なMOX燃料ペレットの熱特性やFPガスの挙動に関するデータを取得した。また、燃料挙動解析コードで使用されているFPガス解析モデルの見直しを行った。

MOX燃料の熱特性に関しては、照射中のMOX燃料の中心温度を測定するとともに、レーザーフラッシュ法によって燃料試験片の熱伝導率の測定評価を行った。この結果、未照射燃料ペレットについては、Pu濃度の増加とともに熱伝導率が低下するが、MOX燃料ペレットの製法（MIMAS法、SBR法）による差は認められなかった。

照射による影響については、MOX燃料、UO₂燃料とも照射に伴って熱伝導率が低下するが、低下の程度はMOX燃料の方が小さく、照射が進んだMOX燃料ペレットの熱伝導率はUO₂燃料ペレットと同程度になることが示唆された。

MOX燃料のFPガス挙動を調べるために、照射済MOX燃料についてパンクチャー試験及びSIMS分析を行った。パンクチャー試験からはFPガス放出率に関する知見を得た。また、SIMS分析からはMIMAS-MOX燃料ペレット中の固溶Xeと気泡中Xeの濃度分布に関する知見を得ることができ、MIMAS-MOX燃料ペレット外周部に存在するPuスポットには気泡中にXeが多く保持される傾向にあることが分かった。

また、FPガス挙動について考察を行い、燃料温度分布の違いから、試験燃料要素間のFPガス放出率及びSIMS分析結果の違いについて考察した。

燃料挙動解析コードFEMAXI-7によるMIMAS-MOX燃料のPuスポット部と中間相を仮定した解析では、SIMS分析結果を再現できなかったため、FEMAXI-7のFPガス解析モデルを見直した。その結果、Xe濃度分布に関するSIMS分析結果をおおよそ再現でき、FPガス放出率についてもパンクチャー試験による結果と同等の値を得ることができた。

3. 2 目的の達成状況

本研究の目的は、MOX燃料ペレットの熱特性やFPガスの挙動に関するデータを取得して、Pu濃度や燃焼度に対する照射挙動や特性変化の連続性について確認するとともに、燃料挙動解析コードで使用されているFPガス挙動解析モデルの見直しを行うことである。

MOX燃料ペレットの熱特性及びFPガスの挙動に関するデータの取得に関しては、計画通りにデータを取得することができ、MOX燃料の熱特性や照射挙動のPu濃度や燃焼度に対する変化は連続的であり、調べた範囲において大きな燃料挙動の変化は生じないことが確認できた。また、燃料挙動解析コードで使用されているFPガス解析モデルの見直しに関しては、FEMAXI-7のFPガス放出モデルを見直すことにより、Xe濃度分布に関するSIMS分析結果及びFPガス放出率に関するパンクチャー試験結果をおおよそ再現することができた。

3. 3 成果の活用等

軽水炉に装荷されているMOX燃料の健全性に関しては、UO₂燃料と同様、「実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則の解釈」で引用されている旧原子力安全委員会によって了承された指針類に基づいて評価されている。指針類のうち、MOX燃料については、旧原子炉安全基準専門部会の報告書「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」^(参1)に具体的な要求事項等が記載されているが、その結論では、知見の蓄積に基づいて見直しがなされるものと考えたと記載されている。

本研究の成果は、旧原子炉安全基準専門部会の報告書が求めている知見の拡充に対応するものであり、本研究から得られた熱特性や照射挙動のPu濃度や燃焼度による影響に関する知見は、上記報告書に示されている要求事項等が妥当であることを確認するものであった。

参考文献一覧

- (参 1) 原子炉安全基準専門部会報告書「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」, 平成 7 年 6 月 19 日, 原子力安全委員会了承.
- (参 2) 原子炉安全基準専門部会報告書「改良型沸騰水型原子炉における混合酸化物燃料の全炉心装荷について」, 平成 11 年 6 月 28 日, 原子力安全委員会了承.
- (参 3) K. Tasaka, J. Katakura, et al., "JNDC nuclear data library of fission products - Second version", JAERI 1320, 1990.
- (参 4) CEA, Edited by H. Bailly et al. "The nuclear fuel of pressurized water reactors and fast reactors design and behaviour", 1999.
- (参 5) S. Abeta, et al., "The reliability and innovation of Mitsubishi PWR fuel", Top Fuel 1997, Manchester, 9-11 June, 1997.
- (参 6) Y. Gurin, et al., "Microstructure evolution and in-reactor behavior of MOX fuel", International meeting on LWR fuel performance, Park City, 10-13 April, 2000.
- (参 7) P. Blanpain, et al., "MOX fuel experience: current status and future improvement", International meeting on LWR fuel performance, Orlando, 19-22 September, 2004.
- (参 8) 鈴木 元衛, 齊藤 裕明, 宇田川 豊, 天谷 政樹, 「軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造[改訂版]」, JAEA-Data/Code 2013-014, 2014.
- (参 9) 原子力規制庁「混合酸化物燃料特性評価に関する研究」, 平成 28 年度事後評価調査票, 別紙 3-3.
<https://www.nsr.go.jp/data/000218117.pdf>
- (参 10) N. Nakae, et al., "MOX irradiation test up to high burnup", Topfuel 2015, Zurich, Switzerland, Sep. 13-17, 2015.
- (参 11) N. Nakae, et al., "Thermal Property Change of MOX and UO₂ Irradiated up to High Burnup of 74 GWd/t", J. Nucl. Mater. 440, 515-523, 2013.
- (参 12) J. Nakamura, et al., "Thermal conductivity change in high burnup MOX fuel pellet", J. Nucl. Sci. Technol. 46, 944-952, 2009.
- (参 13) R. L. Gibby, "The effect of plutonium content on the thermal conductivity of (U, Pu)O₂ solid solutions", J. Nucl. Mater. 38, 163-177, 1971.
- (参 14) S. Doi, et al., "High burnup MOX fuel and fuel rod design improvement", ANS International topical meeting on light water reactor fuel performance, Portland, 1997.
- (参 15) F. Schmitz, R. Lindner, "Diffusion of heavy elements in nuclear fuels: actinides in UO₂", J. Nucl. Mater. 17, 259-269, 1965.

- (参 1 6) C. Cozzo et al., "Thermal diffusivity of homogeneous SBR MOX fuel with a burn-up of 35MWd/kgHM", J. Nucl. Mater. 400, 213-217, 2010.
- (参 1 7) D. Staicu et al., "Thermal conductivity of homogeneous and heterogeneous MOX fuel with up to 44 MWd/kgHM burn-up", J. Nucl. Mater. 412, 129-137, 2011.
- (参 1 8) D. Staicu, M. Barker, "Thermal conductivity of heterogeneous LWR MOX fuels", J. Nucl. Mater. 442, 46-52, 2013.
- (参 1 9) 「軽水炉燃料のふるまい (改訂第 5 版)」, 公益財団法人原子力安全研究協会, 平成 25 年 3 月.
- (参 2 0) K. Kitano, et al., "A methodology to predict a fission gas release ratio of MOX fuel with heterogeneous microstructure", J. Nucl. Sci. Technol. 54, 1190-1200, 2017.
- (参 2 1) N. Nakae, et al., "Fission gas release mechanism of MOX and UO₂ fuel", Topfuel 2013, Charlotte, USA, Sep. 15-19, 2013.
- (参 2 2) M. Verwerft, "Multiple voltage electron probe microanalysis of fission gas bubbles in irradiated nuclear fuel", J. Nucl. Mater. 282, 97-111, 2000.

「混合酸化物燃料特性に関する研究」の主な執筆者一覧

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ

システム安全研究部門

北野 剛司 主任技術研究調査官

秋山 英俊 技術研究調査官