酸化物燃料のモデリング

(日本原子力研究所) 森 島 淳 好

酸化物燃料は、一般の軽水動力炉を初めとして幅広く使用されている。UO₂ ペレットを用いた燃料棒は、全世界ですでに数 100 万本の製造実績があるにもかかわらず、炉内での照射挙動は未だ完全に解明されているとはいえない現状である。これは燃料の設計、製造パラメータが多様化しており、また原子炉の運転履歴によって照射挙動が大きく支配されることによる。

照射挙動を推定するために、多くのモデルが提唱されているが、本稿では軽水炉用燃料棒内の温度分布を算出するコードに用いられているモデルを主として、モデリングの現状を説明する。

I. はじめに

軽水炉燃料は、モデリングが発達する前に実用化が進み、多くの使用実績から半ば経験的に設計基準或使用条件が順次固められていった。これに対して高速炉燃料では、軽水炉ほどの使用実績も経験も持たず、しかも温度条件が厳しく高燃焼度に耐えねばならないため、モデルによって照射挙動を推定する必要に迫られた。このような背景があって燃料のモデリングは高速炉から進められたといってもよいであろう。軽水炉では冷却材喪失事故(LOCA)時の燃料棒の挙動が問題視されるようになって、にわかに軽水炉燃料のモデリングが見直されるようになった。すなわち、燃料の焼きしまりによって燃料棒内の熱的蓄積エネルギーが増大し、LOCA時の被覆管最高温度の制限値を超えるおそれがあると指摘されたからである。

II. 燃料棒の設計、製造パラメータと運転条件

軽水炉で使用する酸化物燃料は主としてUO₂で、これをペレット状に焼結して使用する場合が多い。以前にはバイバック燃料、スウェージ燃料なども試作されたが、現在実用炉に使用されている例はほとんどないものと思われる。

燃料被覆管としては、少数の実用炉でステンレス鋼が用いられているが、そのほかはすべてジルカロイである。計算ならびにモデル内に使用される設計、製造パラメータについては、燃料ペレットに関するものとして、その寸法(外径、高さ、ペレット上下端面のディッシュの有無、表面あらさ)、濃縮度、蒸発性不純物の量、UO₂-PuO₂の比、密度、焼結温度、燃結時間、気孔分

布、結晶粒径などがその主なものである。被覆管に関するパラメータは、材質、寸法(外径、肉厚、内面のあらさ)、機械強度(熱処理条件)などである。

燃料棒としては上記のほか、燃料ペレットのスタック長、プレナム部(燃料棒内には、ペレットの軸方向の熱膨脹ならびにスウェリングを逃がし、さらに核分裂生成ガスによる内圧上昇を防ぐための自由空間が設けられており、これをプレナムと呼んでいる)の容積などがパラメータとなる。

1. 運転条件

燃料棒は原子炉内で種々の運転条件で使用されるが、燃料棒の挙動に大きな影響を与えるものは、出力密度(一般に燃料棒の単位長さ当りの出力W/cm(線出力密度)で表わされる)とその履歴である。このほか、冷却材の温度、圧力、流速、燃料棒の配列なども影響するが、典型的な商用軽水動力炉ではPWR, BWR とともに、それぞれ冷却材の温度、圧力は定まっているため、PWR, BWR の間の相違はあっても、炉型が定まれば冷却条件が燃料の挙動に差をもたらす因子とはならないであろう。

線出力密度とその履歴は、燃料の炉内挙動に支配的な影響を与えることはいうまでもない。したがって、出力密度とその履歴は直接あるいは温度、燃焼度の形となってモデルの中に組み込まれる。出力変動が少なく準定常状態とみなされる場合は、現在までに開発されたモデルによって炉内における燃料の実態をかなり把握しようところまでに達しているが、出力変動幅ならびに変動速度がかなり大きい場合には、まだモデル

Modelling for Oxide Fuel, Atsuyoshi MORISHIMA.

(1977年 2月17日 受理)

化が充分に進んでいるとはいえない状態である。

Ⅲ. 燃料棒内の温度分布計算モデル

照射挙動の解析, モデルの作成, 燃料棒の応力変位解析などを行うに当って, 温度を正しく把握しておく必要があることはいうまでもない。燃料の設計諸元, 冷却条件, 線出力密度を入力して, 燃料棒内の温度分布が精度よく求められるようにモデル化された計算コードが第1に必要となる。以下, 温度分布の算出に用いられるモデルについて説明する。

1. 燃料被覆管内の温度分布

冷却材と被覆管の熱伝達係数は, 沸騰領域では Jens-Lottes の式⁽¹⁾, サブクール領域では Dittus-Boelter の式⁽²⁾などで計算される。燃料ペレットが偏心しているとか, 半径方向の出力分布が中心軸対称でない場合, または被覆管の軸方向の熱の移動を考慮する必要がある場合にはこれらをモデル化して取り扱うこともあるが, 一般には被覆管の温度分布を求めるための特別なモデルを必要としない。

ジルカロイ被覆管の熱伝導率は一般に温度の関数として扱われる。また, 被覆管表面に付着するクラッド, あるいは酸化膜による温度上昇を考えたものもあるが, その多くはクラッドの熱伝導率(経験的な値)と, 炉内での単位滞留時間当たりもしくは燃焼度当りの付着率とを経験的に求めて入力している。酸化膜の生成については, 腐食による重量増加のデータと, 冷却材温度および保持時間とからモデル化することは容易であるが, ペレットの温度計算に及ぼす効果は少ないため, 実際に用いられている例は少ない。

2. ペレット表面の温度(ギャップ・コンダクタンスの計算)

被覆管の内面とペレット表面との温度差を求めるために, ギャップ・コンダクタンスのモデルを使用する。ギャップ・コンダクタンスのモデルとしては, Ross & Stoute⁽³⁾ ならびにその変形モデル, RESAR-4I⁽⁴⁾ のモデル, Halden のモデルなど種々のモデルが提唱されている。燃料棒内温度分布を算出する計算コードの中には, GAPCON⁽⁵⁾, GAPCON-THERMAL-I⁽⁶⁾, II⁽⁷⁾ 等のように, コードの名称そのものにギャップ・コンダクタンスの略称が用いられるほど, ギャップ・コンダクタンスの計算は燃料棒内温度分布の計算に支配的な影響を与える。モデル相互間にもかなりの差があり, 製造時のギャップ幅が広いとか, ペレットの初期密度が低くて炉内での焼きしまりが大きいと予想される場合には, それぞれのモデルによる推定値の間に大

幅な開きが生じ, 燃焼度が進むとその差はさらに著しくなる傾向を示す。これに対して初期ギャップが比較的狭く, He を加圧封入した燃料棒ではモデルによる差は小さい。Ross & Stoute のモデルを基本にしたものが燃料棒内の温度分布の安全評価用プログラムに使用されている例が多いので, 以下このモデルについて述べることにする。

3. Ross & Stoute のモデル

燃料ペレットから被覆管へのギャップ・コンダクタンス H_{gap} は, 燃料被覆管の固体接触部分の H_s とギャップガスが存在する部分の H_{gas} ならびに輻射による H_r との和として表わされる。 H_s は接触圧, 表面あらさ, 燃料被覆管の硬度, 被覆管と燃料ペレットの接触部の熱伝導率の調和平均の関数として, H_g はギャップガスの熱伝導率(k_{gas}), ペレット・被覆管の表面あらさ, 温度飛程距離(temperature jump distance), ギャップ幅(ホット・ギャップという Δ_{gap})の関数として, H_r はそれぞれの表面の絶対温度の4乗の差ならびにステファン・ボルツマン定数, 輻射率で表わされる。出力の上昇とともにペレットと被覆管の熱膨張の差によりギャップ幅は狭くなっていく。しかしながら初期ギャップが広い場合には, 熱膨張の差のみを考慮しただけでは定格出力に達しても, なおかなりのギャップが残ることになる。ギャップが存在すれば $H_s = 0$ となり, H_{gap} は H_{gas} と H_r の和となる。一般に H_r は H_{gap} の数%に過ぎないので $H_{gap} \approx H_{gas}$ と考えてよい。 Δ_{gap} が大きい場合には $H_{gap} \approx k_{gas} / \Delta_{gap}$ となる。

ここで, このモデルと実際との間に大きな差が生じる。すなわち, 実炉の場合では熱応力によって割れたペレットのかげらがリロケーションを起し, 熱膨張モデルによって計算された Δ_{gap} よりはるかに小さなギャップ幅になるか, 接触している部分もあると考えられる。そこで, このモデルによるペレット中心温度の推定値は, 実炉での測定結果より著しく高くなる場合が多い。ただし, Δ_{gap} がほとんどゼロになるような設計諸元に対しては, モデルによる計算と実測との差は比較的わずかである。

燃料棒内温度分布の最良推定値を得ることが燃料モデリングの基本になるため, 初期ギャップが広い場合にも実際データとよく合うモデルが必要となり, 種類のモデルが提案されている。 H_{gap} の最良推定値を得る方法として2つの方法が考えられている。その1つは, ギャップ・コンダクタンスのモデルは Ross & Stoute のモデルを基本として, Δ_{gap} の算出に熱膨張のほかリロケーション, スウェリングの効果を統計的に

入れて Δ_{gap} を補正する方法である。他の 1 つは Ross & Stoute のモデルから離れて経験的に H_{gap} を算出するモデルであり、これらは k_{gas} , Δ_{gap} , 燃焼度などの関数としているが、 Δ_{gap} の効果を殺して式の中に組み込んでいる。例えば、RESAR-41⁽⁴⁾ では

$$H_{gap} = \text{Max} \left\{ \begin{array}{l} 1,500 k_{gas} + 4.0 / (0.006 + 128) \\ k_{gas} / (\delta / 2 + 14.4 \times 10^{-6}) \end{array} \right.$$

ここで、 $H_{gap} = (\text{Btu/hr} \cdot \text{ft}^2 \cdot \text{F})$

$$k_{gas} = (\text{Btu/hr} \cdot \text{ft} \cdot \text{F})$$

δ : 直径ギャップ(ft)

また、MacDonald⁽⁶⁾ はベレットのかけらのうち約 30% がリロケーションによって燃焼の初期から接触しているものとし、燃焼の進展につれて接触する割合が増加していくとするモデルを提案している。このモデルは MATPRO⁽⁶⁾ に用いられている。いずれのモデルを使用するにしても、 H_{gas} と Δ_{gap} が支配的因子であることに変わりはない。

4. ギャップ・ガスの熱伝導率 k_{gas}

現在実用に供されている燃料棒中には He が密封されており、封入圧力は BWR では常圧、PWR では 30 atm 前後である。F.P. ガス (Xe, Kr) の熱伝導率は He より約 1 桁低いため燃焼に伴って k_{gas} は低下する。ベレットからギャップへの F.P. ガスの放出率は、ベレット温度に依存し温度が高いほど放出率は増大する。放出率を温度の関数としたモデルは種々あるが、その中でも Lewis⁽⁹⁾ のモデルは高い放出率を与える。F.P. ガス放出のモデリングに際して、温度に対する放出率を高くとり過ぎると燃料ベレット温度を高めに算出する結果を与える。すなわち、仮定したベレット温度に対して F.P. ガスの放出が増加し、 k_{gas} が低下して H_{gap} も低下し、ベレットの温度が仮定値より上昇して F.P. ガスの放出率がさらに増加するという循環が繰り返されるからである。ベレットの温度上昇によってギャップ幅が狭められるため上記の循環の繰返しによって発散することはないが、F.P. ガスの放出率は H_{gap} の計算にかなり影響する。

5. ホット・ギャップ (Δ_{gap})

Δ_{gap} はベレットと被覆管の初期ギャップと出力上昇による相対的変形量とから求められる。被覆管の変形は、熱膨脹、内外圧の差による弾性変形と長期的なクリープ変形、照射成長などが考えられる。一般の軽水炉では、燃料棒内のガス圧は外圧より低くなるように設計されているので、ギャップ幅を広げる方向に作用するのは被覆管の熱膨脹である。燃料ベレットの中心温度を安全側(高め)に算出することを目的とした簡単な

モデルでは、被覆管の熱膨脹と内外圧の差による弾性変形を考慮し、クリープ変形を省略しているものが多い。このほか、ベレットのスウェリングによって内側から機械的に押し広げられるような変形もするが、この場合には H_{gap} の値がすでに大きくなっているもので、ベレット温度の評価用コードでは温度評価に大きな影響を与えない。

IV. ベレットの変形モデル

Δ_{gap} の算出に最も大きく影響するのはベレットの変形である。ベレットの変形は、熱膨脹、焼きしまり、スウェリング、リロケーションなどである。この中で焼きしまりとスウェリングは燃焼度依存性が大きく個々の現象を切り離して定量化することがむずかしいため、最近では両者を合わせて 1 つのモデルとして扱ったものもある。さらに焼きしまり、スウェリング、リロケーションを合わせて広義のリロケーションと解釈したものもある。以下、ベレットの変形について代表的なモデルを述べよう。

1. 熱膨脹モデル

出力上昇によってベレットの半径方向に温度勾配を生じ、熱応力によってクラックが発生する。照射後試験の結果、ほぼ 100 W/cm 以上の出力ではクラックが発生し、400~600 W/cm に達すれば 5~9 個程度の放射状のクラックが認められるのが普通である。クラックの発生によって、ベレットの円周方向の応力はかなり解放されるので、ベレット中心から外周まで半径方向に自由膨脹するものとしてモデル化したものが多く、これを完全クラック・モデルと仮称する。これに対して半クラック・モデル(仮称)というのがある。これは、ある温度(例えば 1,800°C)以下では、クラック・モデルを使用してこの領域の半径増加 ΔR_c を求め、これ以上の温度領域では、面積バランス型の熱膨脹を仮定するものである。面積バランス型というのは、同心円状に分割した個々のリング内では温度を均一とし、個々のリングが自由膨脹するものと仮定してリングの横断面積の増加分を求め、増加分の総和に相当する面積だけ断面積が増加するものとしてこの領域の半径増加 ΔR_d を算出する。したがって、半クラック・モデルではベレットの半径増加を $\Delta R_c + \Delta R_d$ とする。一般の軽水動力炉の寸法諸元に対しては、少なくとも燃焼の初期には完全クラック・モデルを使用してもなおホット・ギャップが残る計算となるのが普通であり、このモデルを使用するのが妥当であろう。これに対して特殊な実験目的で初期ギャップを極端に狭くした場合には、半クラ

ック・モデルを使用した方がよい場合もある。すなわち、このモデルでは、ペレットの外周が被覆管に接触してペレットの中心に向う外力を受けることによって、中心に近い高温部のクラックが消失するというクリーブ挙動を、半クラック・モデルという形で熱膨張モデルに組み込んだものと考えることができる。

2. 焼きしまり・モデル

1971年にスイスの Beznau 1 号炉で燃料棒につぶれが発見されたことから焼きしまりが問題化した。焼きしまりは、照射によって焼結 UO_2 ペレットの密度が上昇することである。この現象は炉外では予想できない低温度でも起る。現在ではペレット製造時の焼結温度を高くしたり焼結時間を長くすることなどによってペレットを安定化し、初期密度も高くしたので実用上問題となるほどの焼きしまりは起らなくなった。また、PWR では加圧型燃料棒を採用して被覆管のつぶれを抑制した。したがって、焼きしまりのモデルがホット・ギャップの算出に大きく影響するのは低密度で不安定なペレットの場合であって、最近の高密度の安定化したペレットではその影響は比較的少ない。焼きしまりのモデルとしては、Marlowe の拡散モデル¹⁰⁾、Assman-Stehle のスパイク・モデル⁽¹¹⁾、Freshley⁽¹²⁾ のモデルなどが発表されているが、ここでは Halden の Rolstad の例⁽¹³⁾を示す。Halden では初期密度87～95%、焼結温度 1,300～1,600°C、焼結時間 1～5 hr で12種類のペレットを製作し、炉内におけるペレット・スタック長の縮みから焼きしまり量を経験的に定量化した。

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{22.2 \times (100 - TD)}{TS - 1180}, \quad (1)$$

$$\frac{\Delta L}{L} = 3 - 0.93e^{-BU} - 0.07e^{-35BU}, \quad (2)$$

ここで、 $\Delta L/L$: 軸方向のペレット・スタック長の縮み量 (%)

TS : 焼結温度 (°C)

TD : 理論密度に対する相対密度 (%)

BU : 燃焼度 (MWD/kg UO_2)

式の使用法としては(1)式に TS , TD を入れて $(\Delta L/L)_0$ を算出する。 $(\Delta L/L)_0$ は焼きしまりの飽和値である。次に、焼きしまり量が燃焼とともにどのように飽和値に近づくかを(2)式で計算する。すなわち、(1)式で求めた $(\Delta L/L)_0$ を(2)式に入れて BU を算出し、これを BU_0 とする。 BU_0 を基準として燃焼が進むものとする、 BU_1 だけ燃焼が進めば $(BU_0 + BU_1)$ を(2)式の BU に代入して $(\Delta L/L)_1$ を求める。 $(\Delta L/L)_0 - (\Delta L/L)_1$ を燃焼初期から BU_1 までの焼きしまり量とする。Halden のモデルでは焼きしまり量を、ペレ

ットの製造パラメータ(焼結温度、時間、密度)と燃焼度から求めているが、一般に結晶粒度、照射温度、核分裂速度(fission/cc·sec)、燃焼度の関数としてモデル化している。実炉における焼きしまりは 4,000 MWD/t までにはほとんど飽和し、初期密度が高く安定なペレットほど焼きしまりは小さいが、スウェリングに転ずる燃焼度は低くなるといわれている。

3. スウェリング・モデル

F.P. の蓄積によって生じる気体ならびに固体状の生成物によって燃料ペレットはスウェリングを起す。とくに高燃焼度に達した場合のスウェリングを逃がすため、ペレットの初期密度を下げたり、ディッシュを設けたり、初期ギャップを大きくするなどの対策が施されてきた。焼きしまりによる被覆管のつぶれは、この対策が裏目に出たものと解釈できる。酸化物燃料のスウェリング率は、0.3～0.7% ($\Delta v/v$) / (10^{20} fissions/cm³) と報告⁽¹⁴⁾されている。スウェリング率は温度依存性が大きく、約1,400°C以下の比較的低温では気泡の成長が充分でなく、また1,700～1,800°C以上の高温ではF.P. ガスの放出が盛んになって、ともにスウェリング率が低下し、1,400～1,700°C の中間的な温度でのスウェリング率が比較的大きいとされている。GAPCON に使用されている Geithoff⁽¹⁵⁾ のモデルを1例として述べると、

$$\Delta v_B = [(h_f)(v_f)(f) + (h_c)(v_c)] \frac{BU}{10,000} - (1-f)(0.8v_B + 0.5v_C + 0.3v_L) \quad (3)$$

ここで、 Δv_B : 燃焼度 (F.P. によるスウェリング) による体積変化

f : 理論密度に対する相対密度

h_f : 燃料ペレットの全領域についてのスウェリング率で、10,000 MWD/MTM 当りの $\Delta v/v$ を 1.6% とする。

v_f : 燃料の単位長さ当りの体積

h_c : 1,300～1,700°C の領域にある燃料の付加のスウェリングで、10,000 MWD/MTM 当りの $\Delta v/v$ を 0.4% と仮定する。

v_L : 1,300°C 以下の温度領域にある燃料の体積

v_C : 1,300～1,700°C の温度領域にある燃料の体積

v_B : 1,700°C 以上の温度領域にある燃料の体積

BU : 燃焼度 MWD/MTM

(3)式で右辺の第1項はスウェリングによる体積増加であり、第2項はペレット内の空孔が第1項で求められた体積増加分をどの程度吸収できるかを示したものである。これによると、1,700°C以上の領域ではその領域内の80%まで、1,300~1,700°Cでは50%まで、1,300°C以下では30%まで体積膨脹を吸収し得ることになる。このモデルは、被覆管による拘束が大きい場合には妥当かも知れないが、無拘束の場合には妥当ではない。すなわち、被覆管による拘束がない場合には、高温領域では組織変化(restructuring)によって柱状晶が発達して空孔がペレットの中心に向かって移動して中央に孔ができるが、直径方向に縮んで中心孔を消滅させるような現象は起らない。したがって、ホット・ギャップがある場合には右辺の第1項のみを使用し、1,300~1,700°Cの領域ならびに1,300°C以下の領域の体積膨脹率から半径方向の増加率(等方的にスウェリングするものとする)をそれぞれ求めて、これを各領域のリング幅に乗じたものを半径増加とした方がよいと思われる。

4. リロケーション

リロケーションは最もモデル化しにくいものである。現在のところ照射データと計算結果を合わせるため種々のモデルが提案されているが、広く認められているものはないようであり、その多くは非公開である。先に述べた MacDonald のモデルはリロケーションのモデルをギャップ・コンダクタンスのモデルに組み込んだものと考えることができる。

以上述べた熱膨脹、焼きしまり、スウェリング、リロケーションの諸量を計算してホット・ギャップを算出するが、熱膨脹を除けば、モデルによって定量化にかなりの開きがあるため、個々のモデルについての妥当性を論じることはむずかしく、総合的にバランスのとれたモデルの組合せを選ばなければ実炉との照合結果はよくならない。

5. 組織変化モデル

組織変化を起す温度を求めるモデルとしては GAPCON に報告されたものがある。これは Christensen⁽¹⁸⁾ が提示したデータからモデル化されたもので、組織変化を起す温度は出力状態に置かれた時間の関数として表わされている。これによると、組織変化を開始する温度は燃焼初期で約1,800°C、1年後に1,650°C、3年後に約1,600°Cと算出される。組織変化によってペレット中心に孔ができるため、中心温度は低下する傾向を示す。

V. おわりに

これらのモデルを使用して燃料棒全長にわたってその挙動を推定する場合の問題点を述べる。燃料棒を軸方向に数分割して、それぞれのセグメント内では同一の挙動をするものとして計算するが、この場合、低出力から高出力レベルまでよく合うモデルを使用しなければならぬことである。例えば、ギャップ部に放出された F.P. ガスはそのセグメント内に止まらずプレナム部を含めて均一に混合されるので、もし低出力部での放出率が実際より高くなるようなモデルと、低出力での燃料温度が比較的に高く算出されるようなモデルなどを使用すると、低出力部での F.P. ガスの放出率が実際よりも高くなって高出力部の計算結果に影響を与えることがある。多くの計算項目の中で注目されるのは燃料棒の最高出力部であり、低出力部は見逃されやすいが、低出力部についても注意する必要がある。

以上酸化燃料について、 UO_2 のペレットの場合を主としてその代表的なものを述べた。このほか有限要素法を用いて、クラックの発生メカニズムやクラック部の変形を局所的に詳細に解析して、被覆管に生じるリッジの形状を詳しく把握しようとするモデル等も開発されている⁽¹⁷⁾。とくに出力変動時のペレット-被覆管の相互作用を解析する試みがあり、この場合は被覆管とペレットのクリープ特性を照射依存性も考慮して詳細にモデル化する必要がある。

— 参考文献 —

- (1) JENS, W.H., LOTTES, P.A.: ANL-4627, (1972).
- (2) DITTUS, F.W., BOELTER, L.M.K.: *Univ. of California Publications in Engineering*, 2443 (1930).
- (3) ROSS, A.M., STOUTE, R.L.: CRFD-1075, (1962).
- (4) Reference Safety Analysis Rep. Docket-STN-50480, Vol. II, RESAR-41, 4.4~10, (1973).
- (5) HORN, G.R., et al.: HEDL-TME 72-128, (1972).
- (6) HANN, C.R., et al.: GAPCON-THERMAL-1: BNWL-1778, (1973).
- (7) BEYER, C.E., et al.: BNWL-1898, (1975).
- (8) MACDONALD, P.E., et al.: ANCR-1263, p. 170 (1976).
- (9) LEWIS, W.B.: *Nucl. Appl.*, 2, 171 (1966).
- (10) MARLOWE, M.O.: NEDO-12440, (1973).
- (11) STEHLE, H., et al.: *J. Nucl. Mater.*, 52, 303 (1974).
- (12) FRESHLEY, M.D., et al.: *ibid.*, 62, 138~166 (1976).
- (13) OECD Halden Reactor Project: 40th Annu. Report, p. 62 (1973).
- (14) SKAVDAHL, R.E., et al.: *Nucl. Met.*, 13, 457 (1967).
- (15) GEITHOFF, D., et al.: *ibid.*, 13, 396 (1968).
- (16) CHRISTENSEN, J.A.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, 15, 1 (1972).
- (17) 市川達生: 本誌, 18 [6], 331 (1976).