

核燃料に関する計算組織学的な解析技術の開発

(受託者)一般財団法人電力中央研究所

(研究代表者)太田宏一 原子力技術研究所 燃料・炉心領域

(再委託先)独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人東京大学、
(株)伊藤忠テクノソリューションズ、一般財団法人ファインセラミックスセンター

(研究開発期間)平成22年度～24年度

1. 研究開発の背景とねらい

本事業では、核燃料の製造技術開発や挙動評価に適用できるフェーズフィールド法(PFM)に基づく実用的な組織形成シミュレーション手法の構築を目指す。核燃料において組織形成が重要となる事象をいくつか選定し、解析モデルと解析ツールの開発を進めている。併せて、古典論での解析に不可欠な熱力学データベースの整備を実験と解析により進めている。

2. 研究開発成果

組織形成が重要となる典型事象を選定し、これまでに基本解析モデルの構築、解析精度の概略評価を行った。H24年度は解析精度向上のための改良と、汎用解析ツールの構築を進めている。

2. 1 計算組織学的な解析手法の構築と評価

(1) 温度勾配下での組織形成解析

高速炉金属燃料は温度勾配下で使用される結果、径方向にリング状の組織が形成され、主要成分の再分布が起こる。高速炉 MOX 燃料では、中心空孔の発生や Pu 再分布等が起こる。これまでに金属燃料用の基本 PFM を構築し、高温部分における相変態を再現できた。現在、酸化物燃料モデルの開発を進めている。

(2) 金属燃料の FCCI 解析

高速炉金属燃料では、燃料とステンレス被覆管の間で固相拡散が起こると、比較的低温で液相が出現する懸念があり、被覆管温度の上限が規定されている。これまでに、金属燃料成分と Fe 等の炉外拡散対試験で観測されている層構造の形成を再現できる基本モデルを構築した。しかし、層構造の形成過程で新たな相の成長を十分に解析できず、現在、モデルの改良を進めている。

(3) 酸化物燃料の焼結解析

MOX 燃料の焼結解析で不可欠な気相を取扱える基本モデルを構築した。酸化物燃料では、カチオンと酸素の拡散係数が数桁異なるため、酸素の拡散を古典論に基づく時間発展で解くと、カチオン移動解析に膨大な計算時間を要する。そこで酸素の移動は、カチオンの再分布にともないパラ平衡が成立しているとする解析モデルを構築した。現在、実用レベルの大粒径解析モデルの構築を進めている。図1にその解析例を示す。一次粉が連結しつつ空孔が消滅していく様子や、その過程での酸素の分布が解析できていることがわかる。

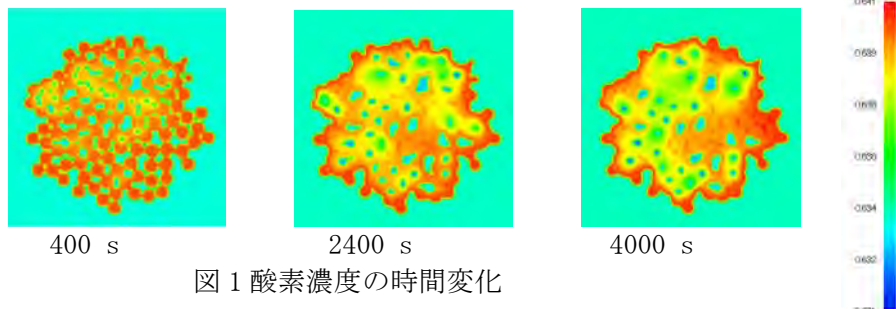


図1 酸素濃度の時間変化

(4) 金属燃料の電析解析

高速炉用金属燃料の再処理には溶融塩電解技術が用いられる(乾式再処理)。この方法では、使用済み金属燃料を陽極に装荷し、これを電解で溶融塩中に溶解すると同時に、固体陰極でUを、液体Cd陰極でU, Pu混合物を回収する。固体陰極上ではUの析出形態の制御が実用技術開発で重要となる。溶融塩電解におけるデンドライト析出を解析するPFMでは、熱力学的な駆動力や表面エネルギー等のパラメータに加え、電場のモデル化が必要である。本事業では、水溶液中の電解モデルを、溶融塩電解の解析に適用できるよう改良を進めている。これまでに、最も重要な因子の一つである層状構造→樹状構造の転移条件を解析できるモデルを整備した。現在、Uを用いた実測データを用いて解析精度の向上を進めている。

(5) 汎用計算プログラム構築

事業内で開発している複数のPFMモデルを統括操作するシステム開発を併せて進めている。これまでに、GUI(Graphical User Interface)の骨格を構築した。GUIにより用いるPFMを起動し、計算はバックグラウンドで行えるようにした。

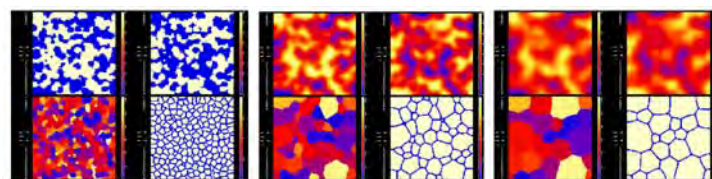
(6) 酸化物焼結におけるMC法とPF法の比較

モンテカルロ法(MCM)と有限要素法(FEM)を組み合わせた実用スケールでの酸化物焼結解析技術の開発が進められている。しかし、MCMでは成分の均質化解析を行うことができない。MCMとPFMの特徴を整理しPFM-FEM技術開発に向けた課題抽出を進めている。図2に両手法での解析例を比較して示す。ほとんど相互溶解しないアルミナ-ジルコニア系では、MCM解析により、結晶成長の阻害効果が再現されている。他方、相互溶解度を有するアルミナ-イットリア系では、PFM解析により、相互拡散と結晶成長が再現されている。



a) アルミナの焼結組織 b) アルミナ-ジルコニア焼結組織

図 2.1 MCMによる単相および2相焼結解析(緑：アルミナ粒子、赤：ジルコニア粒子)



(a) 初期状態 (b) 焼結中期 (c) 焼結後期

図 2.2 PFMによる2相焼結解析

(左上：Al濃度、右上：Y濃度、左下：結晶粒の様子、右下：フェーズフィールド)

2. 2 多様な核燃料に適用できる熱力学データベースの構築

(1) アクチノイド物性データの取得

金属燃料のFCCI解析では、燃料成分と被覆管成分の間で形成される合金の熱力学データが重要となる。上述した共晶の観点からは、燃料主成分のアクチノイドや核分裂生成物のランタニドと被覆管主成分の鉄との反応が最も重要である。本事業では、電気化学的な手法により、Ce-Fe系合金の熱力学データを取得した。一例として、773Kでの Ce_2Fe_{17} の生成ギブスエネルギーは

-211.9kJ/mol であった。

酸化燃料の焼結解析では、様々な混合酸化物の酸素ポテンシャルが重要となる。本手法は軽水炉の過酷事故解析にも適用できる可能性がある。本事業では、ジルコニアセンサーを用いた熱電力測定及びX線回折により、Pu-Zr-O系化合物の酸素ポテンシャルと相状態を評価した。酸素ポテンシャル-490kJ/molで放置した試料ではパイロクロア相が、-220kJ/molで放置した試料では蛍石相が観測された。これらの系統的な測定により、パイロクロアの分解条件を得ることができた。

データの報告例がない Am 合金系の熱力学データ測定のため、Am 試薬を購入し、これを塩化物に転換することに成功した。

電気化学測定により、U-Zr 合金、U-Ru 合金などの生成自由エネルギーを測定した。U-Zr 合金 (δ 相) と U 純物質との起電力差の例を図 3 に示す。

現在、Am 合金のデータ測定及び U 合金の系統的評価等を継続している。

(2) 陰極反応機構基礎試験

金属燃料の電析解析では、電解初期の結晶成長データが不可欠となる。本事業では、模擬物質のプラセオジウムとウランを用いて、初晶の析出形態を金属元素濃度や電流密度の関数として系統的に観察した。図 4 に観測結果をまとめた電析形態状態図の暫定版を示す。現在、この拡充を進めている。

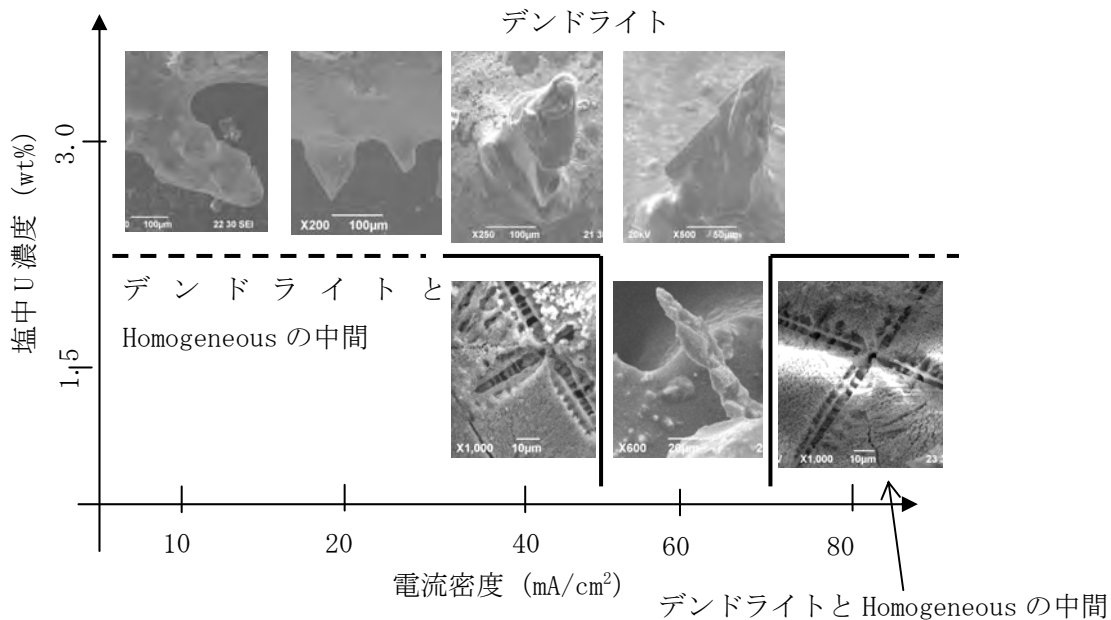


図 4 ウランの電析形態状態図

(3) CALPHAD 法による熱力学データベース構築

酸化燃料焼結解析のための熱力学データベースは十分に整備されていないため、CALPHAD 法による U-Pu-Zr-O 系熱力学データベースの整備を進めている。これまでに、4 つの 3 元系 (U-Pu-Zr, U-Pu-O, U-Zr-O, Pu-Zr-O) の解析ができるようにデータベースを整備した。図 5 に一例として、 ZrO_2 - $PuO_{1.5}$ - PuO_2 の疑似三元系の解析例を示す。

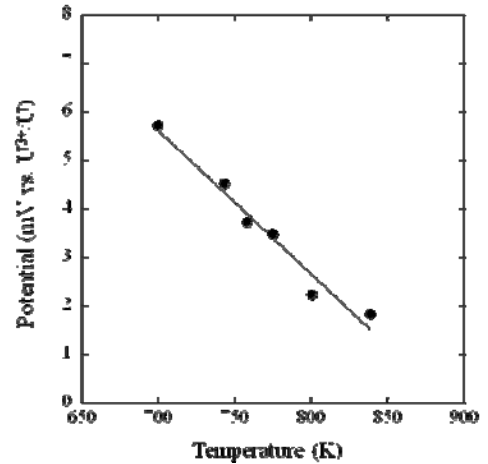


図 3 U-Zr 合金と U の電位差

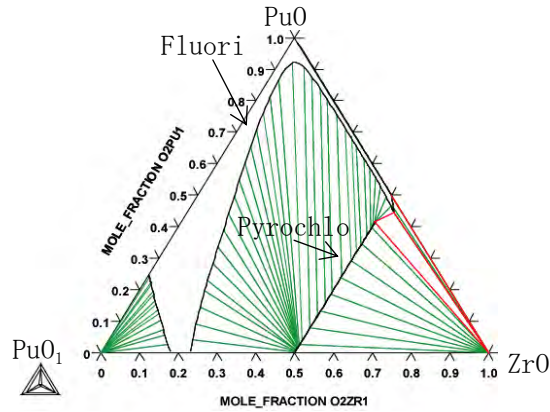


図 5 ZrO₂-PuO_{1.5}-PuO₂ の疑似三元系状態図 (1373K)

(4) ab-initio 法による熱力学的仮想状態の評価

CALPHAD 法の解析では、熱力学的な仮想状態を評価する必要があり、本事業では、ab-initio 法を用いた解析を進めている。表 1 にこれまでに得られたデータをまとめて示す。

表 1 第一原理計算による格子エネルギー評価

	α -U 構造	β -U 構造	bcc	hcp	fcc
U	0	3.8 kJ	17.8 kJ	13.8 kJ (仮想状態)	25.8 kJ (仮想状態)
Zr	14.5 kJ (仮想状態)	12.3 kJ (仮想状態)	8.2 kJ	0	3.8 kJ
Fe(常磁性)	44.9 kJ	27.1 kJ	46.2 kJ	7.6 kJ	15.2 kJ
(強磁性)	<u>24.7 kJ</u>	<u>9.4 kJ</u>	0		<u>13.4 kJ</u>
(反強磁性)	35.8 kJ (仮想状態)	(仮想状態)	42.5 kJ		14.6 kJ

(5) 界面エネルギー評価

PFM では界面エネルギー評価が重要となるため分子動力学法を用いて、その評価を進めている。表 2 にこれまでの評価結果をまとめる。

表 2 金属 U- δ 層の界面エネルギー

Σ value	GB energy (J/m ²)
Σ 11A	0.36
Σ 3A	0.25
Σ 3B	0.41
Σ 11B	0.32

3. 今後の展望

これまでに PFM の基本解析モデルの構築と解析精度の評価を実施した。H24 年度は、事業の最終年度として、抽出された課題の解決とモデルの高度化を実施し、解析モデルを完成する予定である。また、汎用的に解析モデルを活用できるようにするため、解析ツール(GUI)を構築する。熱力学データベースに関しては、Am 合金データなど、これまで取得されていないデータの取得と、そのデータベース化を進める。