

核燃料に関する計算組織学的な解析技術の開発

研究代表者 太田 宏一 一般財団法人電力中央研究所原子力技術研究所
参画機関 一般財団法人電力中央研究所、独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学東京大学、株式会社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

福島第一原子力発電所の事故を背景に、我国の原子力利用の将来は不透明になっている。他方、国際的には、エネルギー需要の高まりを背景にした先進核燃料技術の開発が進展している。核燃料概念の高度化にともない、取り扱いが難しいプルトニウム(Pu)やマイナーアクチニド(MA)を含む等のため、炉内挙動や燃料製造プロセスの評価を、従来の実験に基づく絨毯爆撃的な手法で実施することが難しくなってきた。このため、計算科学による現象評価に高い期待がある。第一原理や分子動力学等の精緻な解析手法は、一定条件でのマイクロ現象の理解には優れているものの、メソスケール以上の規模での実用的な解析に直接適用することは困難である。他方、フェーズフィールド法(PFM)は、熱力学データベースや炉内試験や炉外試験での燃料組織に関する観測結果を活用し、解析結果をメソスケールで可視化できる特徴を有するため、近年、実用的解析法として急速に発展している。国内にはPFMを用いて核燃料の挙動評価を行うための解析モデルや解析ツールが存在していない。そこで本事業では、核燃料において組織形成が重要となる5つの事象(温度勾配下での組織形成、金属燃料の凝固、金属燃料の燃料/被覆管相互作用(FCCI)、酸化物燃料の焼結、ウラン(U)金属の電析)を選定し、それぞれに適用できるPFMの解析モデルと解析ツールを開発することを目的とした。併せて、解析に必要な熱力学データベースの拡充と第一原理法による物性パラメータの評価を行った。

2. 研究開発成果

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

急峻な温度勾配下での組織形成は、核燃料に特徴的に現れる現象であるが、照射中の組織状態を直接観測することは困難である。PFMモデルを開発し、in situ現象の推定を試みた。

図1に、U-Pu-Zr金属燃料組織の温度勾配下での経時変化の解析結果を示す(左端:600°C、右端:650°C、領域:200x200 μ m、赤: γ 相、青: ζ 相)。図2に照射後試験による典型的な金属燃料の断面組織を示す。従来は、平衡状態図に基づき、中心が γ 単相、白色の中間領域が γ + ζ 相、外周部が ζ + δ 相と推定されていた(γ :BCC相、 ζ :Uリッチ相、 δ :Zrリッチ相)。また、Zrの中心方向への移動とUの中間領域への移動が観測されていた。図1の解析条件は、高温部と中間領域の境界に相当し、熱力学的な

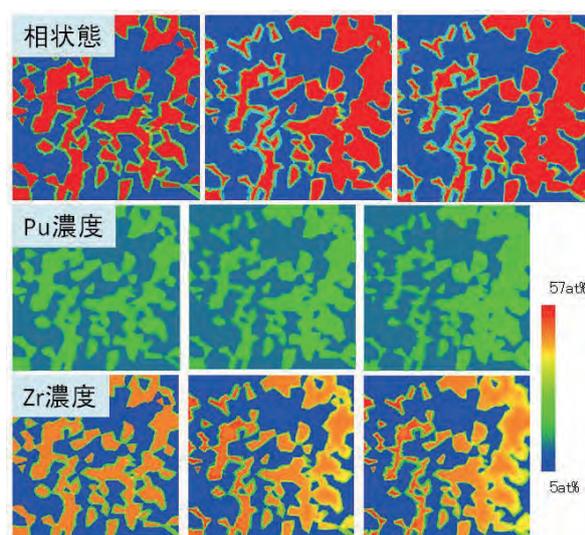


図1 U-Pu-Zr金属燃料の組織変化解析例
(600-650°C、中間温度領域)

図1の解析条件は、高温部と中間領域の境界に相当し、熱力学的な

駆動力で、照射試験で観測された組織変化が起こることを示した。さらに、温度勾配下では、熱力学的な予想を超えて、中間領域が単相にまで相変態する可能性を示唆した。これは、照射試験において、中間領域のZr濃度が平衡状態図からの予想よりさらに低い濃度(5at%以下)にまで低下したと整合した。

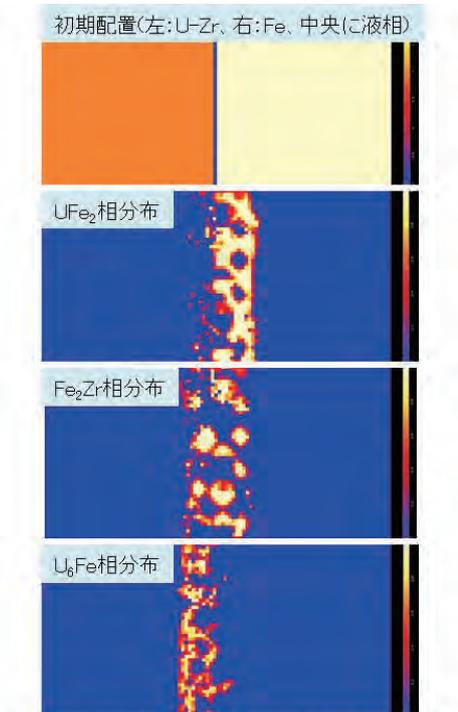


2) 金属燃料の凝固解析

金属燃料は、高温の金属燃料溶湯を石英モールドに射出し、急速に冷却させて製造する(射出鋳造法)。冷却速度や燃料サイズによっては、冷却過程において局所的に別相が析出し、成分の非均質化が起こる可能性がある。1)で開発した金属燃料の組織変化モデルに、経験則的な核発生モデルを組み込み、U-Pu-Zr金属燃料の液相からの凝固解析モデルを整備した。これにより、固相の結晶粒成長と、結晶粒界へのZr凝集をモデル化した。

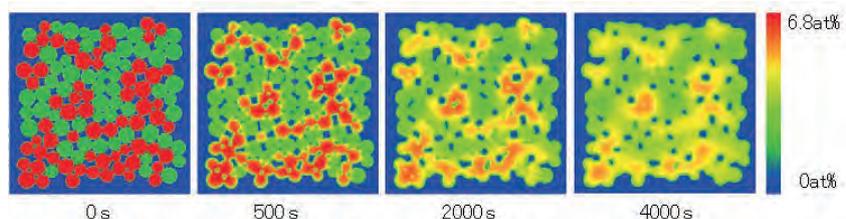
3) 金属燃料のFCCI解析

金属燃料では、照射中に金属燃料成分とステンレス被覆管成分が相互拡散し、両者の間に、低温で液相化する層が形成される。従来、炉外試験による液相化条件の解明が進められている。相互拡散のPFMモデルを開発し、様々な条件での液相化条件の判定を試みた。液相の核発生のモデル化は、既存のPFMでは困難であるため、逆に、仮想的な液相を初期配置し、その消失を解析するモデルを開発した。図3に923Kでの解析例を示す。この温度では、液相が消滅し、金属間化合物相が形成されることを示した。解析で得られた相状態は実際の観測結果と定性的に整合した。これにより、本解析モデルにより、液相出現条件を判定できることがわかった。



4) 酸化物燃料の焼結解析

UとPuの混合酸化物(MOX)燃料では、焼結過程で、UとPuの酸化物一次粉が凝集し、二次粒に成長する。その過程でPuスポットが形成される。Puスポットをなるべく形成させない焼結条件最適化に適用できるPFM解析モデルを開発した。図4に、焼結過程でのPu濃度変化の解析例を示す。一次粉として20%-Pu粉(赤)と5%-Pu粉(緑)を与え、焼結過程での濃度変化を得た。部分的にPuの高濃度域が維持されることがわかる。本解析により、MOXのような多成



分系では、焼結過程で逆拡散が起こり得るため、原理的に、単純な組成均質化が進まないことを示した。しかし、焼結で考慮する必要のある気相移送はモデル化できなかった。

5) 金属燃料の電析解析

金属燃料の再処理では、熔融塩電解により、U金属を固体陰極上にデンドライト形状(樹状)で析出させ、回収する。実用プロセスに向けて、析出状態の最適化が重要である。水溶液系での陰極析出PFMモデルを高度化し、熔融塩電解でのU析出モデルを開発した。

図5に、電析に影響する因子を変化させ析出形態の変化を調べた感度解析の例を示す。印加電圧と熔融塩中の不純物濃度をパラメータとすると、U析出物形態の層状⇒樹状転移に閾条件があることがわかる。

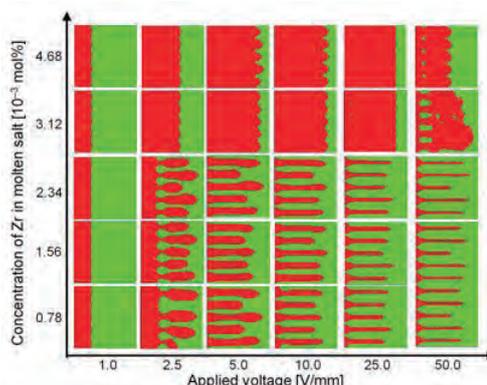


図5 熔融塩中からのU金属析出の状態図

これは、実験による観測結果と一致した。さらに、電解初期の印加電圧を制御して初期析出物の形状を変化させると、その後の析出物の形状変化に大きく影響する解析結果が得られた。これは、実機での析出物形態制御に適用できる可能性がある。

6) 汎用計算プログラム構築

本事業で開発した5個のPFMモデルを統合し、一般的に活用できるような解析ツールとして整備した。GUI統合システムとし、開始画面から、各モジュールに移行できるようにした。

7) 酸化物焼結解析におけるMC法とPF法の比較

単成分の酸化物焼結では、モンテカルロ(MC)法と有限要素法(FEM)を組合せた実用的なマルチスケール解析手法(MC-FEM)が開発されている。MC法の代わりにPFMを用いることで、多成分系の焼結に適用できる可能性がある。その基礎検討を行った。図6に、MC法で計算したUO₂の焼結曲線を示す。焼結曲線を得ることで、MC-FEM法により、セグメント規模以上の実用解析に適用できることが確認できた。これより、PFMを用いて多成分系の焼結曲線を評価することで、PF-FEM法によるセグメント規模以上の解析に適用できる可能性が示された。

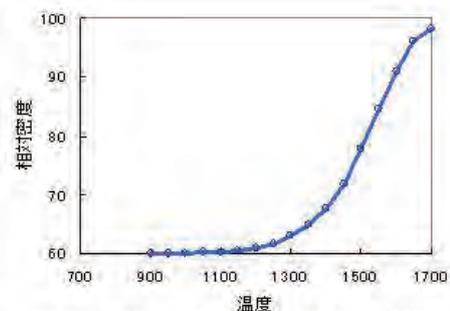


図6 MC法によるUO₂焼結曲線の解析例

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) 多様な事象を評価できるアクチニド物性データの実測

既存の熱力学データベースではデータが不足するMAを中心とした熱力学物性値を取得した。併せて、金属燃料の電析モデルに必要な陰極析出形状に関する基礎試験を行った。また、陰極析出試験を行い、5)の解析モデルに用いる基礎データを取得した。ここでは具体例を省略する。

2) アクチニド熱力学データベースの統合

電中研が開発した金属燃料データベースに、本事業で取得した酸化物の熱力学的な物性値や文献から取得したデータベースを取り入れ、酸化物燃料のPFMにも適用できる熱力学データベースを拡充した。図7にデータ整備の一例として、U-Fe-O三元系状態図を示す。さらに、第一

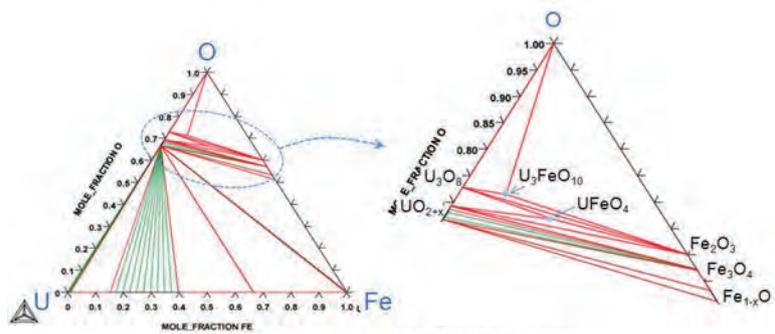


図7 U-Fe-O三元系状態図 (1173K)

原理法により、従来、経験則的な値を用いていた、熱力学的な仮想状態のギブス自由エネルギーの評価と、 UO_2 の液相と固相の界面エネルギーの概略評価を行った。得られたデータは、①で開発した各モデルのデータベースとして活用した。

③ 核燃料の計算組織学研究委員会

様々な分野の研究者、技術者からなら研究委員会を開催し、開発した解析モデルや解析ツールの実用化に向けた情報交換を行った。

3. 今後の展望

本事業では、計算科学を専門としない研究者や技術者が利用しやすい実用的な組織形成解析手法の構築を目標とし、古典的な組織形成理論に基づくPFMを採用した。また、PFMの市販解析ツールは、我国での核燃料開発への応用が禁じられているため、開発したモデルに基づく解析ツールも整備した。具体的には、5つの事象を選定し、それぞれの解析に適用できる基本モデルと解析ツールを開発した。これにより、それぞれの事象進展メカニズムの理解の進展には貢献できた。しかし、温度勾配モデルで熱流束のモデル化を達成できなかったこと、 castingモデルやFCCIモデルでは核発生モデルの恣意性が高く、パラメータの調整に向けた実験データの拡充が必要であること、酸化物焼結モデルでは気相移送が扱えないこと、電析モデルでは、計算時間の問題で、二次樹解析まで高度化できなかったこと等の、個別課題が残された。現象論的な解析モデルの高性能化にあたっては、解析ツールを公開し、具体的な検討課題について、ユーザーと協力して解決していくことが効率的である。本研究の途上で、福島第一原子力発電所の過酷事故が発生した。過酷事故条件での核燃料破損現象の理解は、先進燃料の開発以上に、実験に基づく網羅的なデータ蓄積が困難な場合があり、開発した解析ツールを用いた検討に着手したところである。具体的には、 UO_2 燃料とジルカロイ被覆管の相互拡散と液相化、 B_4C 制御材と被覆管の相互拡散と液相化、固液混合物の形態変化、等への応用を進めている。