



|              |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
|--------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title        | Study on the physico-chemical properties of mixed oxide fuels                                                                                                                                                                                                                                                                               |
| Author(s)    | 山田, 和弘                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |
| Citation     | 大阪大学, 2000, 博士論文                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |
| Version Type |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/42047">https://hdl.handle.net/11094/42047</a>                                                                                                                                                                                                                                                         |
| rights       |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">＜a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"&gt;https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> >大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">&lt;/a&gt;</a> をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

|               |                                                                                      |
|---------------|--------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏 名           | やま だ かず ひろ<br>山 田 和 弘                                                                |
| 博士の専攻分野の名称    | 博 士 (工 学)                                                                            |
| 学 位 記 番 号     | 第 1 5 4 6 5 号                                                                        |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成12年 3 月 24 日                                                                       |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第4条第1項該当<br>工学研究科原子力工学専攻                                                         |
| 学 位 論 文 名     | Study on the physico-chemical properties of mixed oxide fuels<br>(混合酸化物燃料の熱物性に関する研究) |
| 論 文 審 査 委 員   | (主査)<br>教 授 山中 伸介<br><br>(副査)<br>教 授 桂 正弘 助教授 宇埜 正美                                  |

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は模擬高燃焼度燃料として (U、Ce、FP)  $O_2$  を用い、熱物性・機械的性質の測定を行い FP (Fission Products、核分裂生成物) 蓄積の効果を調べるとともに、分子動力学 (Molecular Dynamics : MD) 法によるシミュレーションを行い、 $UO_2$ 、 $CeO_2$ 、 $PuO_2$ 、(U、Ce)  $O_2$ 、(U、Pu)  $O_2$ 、(U、Pu、FP)  $O_2$  等の熱物性・機械的性質の推定を試みている。本論文は以下の五章により構成されている。

第一章では序論として、MOX 燃料 (Mixed Oxide Fuel) の熱物性・機械的性質及び FP 蓄積による物性の変化についての研究の現状について述べ、本研究の目的と意義を述べている。プルサーマルや高速増殖炉などへの利用をふまえ、MOX 燃料及び FP が多量に蓄積した場合の MOX の種々の物性を把握しておく必要があるが、実燃料を用いての物性測定はその取り扱い上の制限のため様々な物性の測定にすべて実燃料を用いることは困難であることを指摘し、それ故ある程度の基礎的なデータ (熱力学データ、格子定数など) をもとに模擬高燃焼度燃料の利用や計算科学的手法など種々の方法を駆使して種々の物性を推定・評価する何らかの手法の開発が必要であると強調している。

第二章では模擬高燃焼度燃料 (U、Ce、FP)  $O_2$  の熱物性・機械的性質測定を行い、(U、Ce)  $O_2$  の弾性率、ポワソン比、硬度及び降伏応力は Ce 濃度の増加に応じて減少することを示し、Ce 濃度の増加と共に燃料の破壊強度が減少する事を述べている。これらの機械的性質について得られた結果は MOX 固溶体の文献値と定性的に一致し、(U、Ce)  $O_2$  は機械的性質において MOX 燃料と類似した傾向にあることを示している。また (U、Ce、FP)  $O_2$  についても物性評価を行い、Ce、Nd、Zr 等の添加により燃料の熱伝導率・弾性率が低下することを示し、同時に燃料の熱物性・機械的性質に与える固溶 FP の影響は Zr の方が Nd よりも大きいことを明らかにしている。

第三章では分子動力学法を用い、 $UO_2$ 、 $CeO_2$  及び (U、Ce)  $O_2$  の基礎的な物性を入力情報として、比熱や熱伝導率など種々の物性を推定することができることを述べている。 $UO_2$ 、 $CeO_2$  の比熱・熱伝導率の温度依存性の計算値は文献値とよい一致を示し、さらに本研究で得られた  $UO_2$  の熱伝導率の計算結果は MD 法を用いた他の報告例よりも広い温度範囲にわたって良い結果を示すことを述べている。また  $UO_2$  の高温における Bredig 転移がシミュレーション上でも再現できることを示し、この転移に伴う圧縮率の増加、比熱のピークなども MD 法により評価できることを明らかにしている。更に (U、Ce)  $O_2$  固溶体についても計算を行い、Vegard 則、ノイマンコップ則がシミュレーション上でも成立することを示している。また熱伝導率の計算値は Klemens の理論と同様の傾向にあることを示し、これがシミュレーション上で不純物イオンがフォノンの散乱中心として働く事によるものと述べている。

第四章では、分子動力学（MD）法による  $\text{PuO}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu}, \text{FP})\text{O}_2$  [FP=Nd] の物性推定の結果を示している。 $\text{PuO}_2$  の比熱・熱伝導率の計算値は文献値と良い一致を示し、分子動力学法により膨張率などの基礎的な物性からこれらの熱物性を推定する事ができると述べている。また計算の結果、 $\text{PuO}_2$  では融点以下では Bredig 転移は起きなかったことから、 $\text{UO}_2$  と異なり  $\text{PuO}_2$  では Bredig 転移が起こる前に融点に達してしまう可能性がある」と指摘している。また MOX 固溶体の計算では格子定数、比熱及び熱伝導率は実験値と非常に良く一致し、MD 法により  $\text{UO}_2$ 、 $\text{PuO}_2$  の基礎的な物性から MOX の種々の物性を推定できると述べている。さらに MOX でも  $\text{UO}_2$  と同様にシミュレーション上で Bredig 転移が起こることを示し、同時に高温における MOX 中の O イオンの拡散係数は  $\text{UO}_2$  の時より低くなると推定している。また高燃焼度 MOX 燃料  $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Nd})\text{O}_2$  についての計算では、定量的な熱伝導率の推定には若干改良が必要であるものの、高温における各イオン種ごとの拡散係数の結果から FP 拡散挙動の推定等も可能であることを示し、MD 法が将来有効なツールとなり得ると述べている。

第五章は結論であり、第二章から第四章までの研究成果を総括している。

### 論文審査の結果の要旨

核燃料の核分裂生成物（FP）蓄積による熱物性・機械的性質の変化は PCI（Pellet-cladding interaction、燃料－被覆管相互作用）挙動や燃料の安全性を調べる上で特に重要な物性である。近年、軽水炉燃料の高燃焼度化やブルサーマル・高速増殖炉など混合酸化物（MOX）燃料  $[(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2]$  の利用が本格化されようとしていることもあり、MOX 燃料及び核分裂生成物（Fission Products、FP）が多量に蓄積した場合の燃料の種々の物性変化を把握しておく必要がある。しかし実燃料を用いての測定には、法律上取り扱いに制限があること、TRU 元素の使用量に制限があること等の理由から  $(\text{U}_{1-y-z}, \text{Pu}_y, \text{FP}_z)\text{O}_{2+x}$  のような複雑な組成を持った系に対し、全ての組成について全ての物性を測定していくことは大変困難であり、MOX 燃料を用いた場合の核分裂生成物蓄積による熱物性・機械的性質の変化などの基礎データは、 $\text{UO}_2$  燃料の場合と比較して非常に不足しているのが現状である。それ故、様々な物性を推定・評価する何らかの手法の開発が望まれている。またこのような物性推定の手法は将来、燃料リサイクルや消滅炉での使用で燃料組成が複雑になるにつれ、重要性を増して行くと考えられる。

本研究では模擬高燃焼度燃料として  $(\text{U}, \text{Ce}, \text{FP})\text{O}_2$  を用い、熱物性・機械的性質の測定を行い FP 蓄積の効果を調べている。さらに本研究では計算科学的手法に着目し、分子動力学（MD）法によるシミュレーションを行い、 $\text{UO}_2$ 、 $\text{PuO}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$  等の熱物性・機械的性質のシミュレーションによる推定を試みている。主な成果は以下のように要約できる。

- (1) 模擬 MOX 燃料  $(\text{U}, \text{Ce})\text{O}_2$  及び  $(\text{U}, \text{Ce}, \text{FP})\text{O}_2$  [FP=Nd, Zr] を用い、種々の熱物性・機械的性質を系統的に測定した上で、固溶 FP が燃料の物性に与える影響を評価している。測定結果から、Ce、Nd、Zr の固溶により燃料の弾性率や熱伝導率等は低下することを示すと同時に、熱物性・機械的性質に与える固溶 FP の影響は Zr の方が Nd よりも大きいことを明らかにしている。
- (2) 従来用いられてきた原子間ポテンシャルモデルとは異なったモデルを用いて  $\text{UO}_2$  の分子動力学計算を行い、膨張率などの基礎的物性を入力情報として比熱や熱伝導率などをシミュレーションにより評価できることを実証している。特に本研究で得られた  $\text{UO}_2$  の熱伝導率の結果は、MD 法を用いた他の研究結果よりも広い温度範囲にわたって良い結果を示している。また高温における Bredig 転移もこのポテンシャルモデルで再現できることを示している。他の MD 法による研究でも  $\text{UO}_2$  の Bredig 転移の再現は報告されているが、転移に伴う圧縮率・比熱への影響まで MD 計算により評価し得た例は本研究が初めてである。
- (3) これまでにほとんど報告例の無い  $\text{CeO}_2$ 、 $\text{PuO}_2$  及び  $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$  系の分子動力学計算を行い、基礎的な物性データのみを入力情報として熱伝導率など種々の熱物性・機械的性質を MD により推定し得ることを実証している。また Ce と Pu のポテンシャルが非常に類似していることを明らかにすると共に、 $\text{PuO}_2$  中では Bredig 転移が起こる前に融点に達してしまう可能性を指摘している。さらにこれまでに実験による報告例の無い 2500K における  $\text{UO}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Ce})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Nd})\text{O}_2$  中の各イオン種毎の拡散係数を MD 計算によって推定し、

MOX 燃料中では Bredig 転移による O イオンの拡散系数が低下すること、U イオンの拡散系数が  $\text{UO}_2$  中に比べて MOX 中では増加すること、高収率の FP である Ce、Nd の拡散係数は U、Pu イオンの約 1.7 倍であること等を推定している。

以上のように本論文は高燃焼度燃料中の FP 蓄積による熱物性・機械的性質の変化に関する有益な知見と、計算科学的手法による燃料の物性推定に関する非常に有益な知見を提供している。本研究で得られた知見は、原子力工学の発展に重要な寄与を付するものであり、加えて材料科学の進展にも寄与するものであると評価される。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。