

京都大学臨界実験装置 (KUCA)
設置変更承認申請について

【燃料について】

京都大学複合原子力科学研究所

1. ウラン・モリブデン燃料について

1. 1. 概要

研究炉で LEU を使用するためにはウラン密度を上げることが必要であり、研究炉の性能向上のためにこれまで使用されてきたウランシリサイド分散型燃料 (U_3Si_2-Al) よりさらにウラン密度が高い燃料の開発が求められるようになった。そのため、例えば U_3Si や U_6Fe などのウラン密度の高い燃料の研究が行われたが、照射特性が良くないということが判り利用するまでには至らなかった。そのような中で 1990 年代以降ウラン・モリブデン燃料 (以下、U-Mo 燃料) の研究が進み、米国、カナダ、フランス、韓国などで試験が行われた結果、照射特性が優れていることが判り、さらに研究が進められるようになった。

U-Mo 燃料は元々 1960 年代に高速炉の特にパルス炉で用いる燃料として開発が始まった燃料である。高速炉のための照射試験は高温で実施されるため、当時の照射試験に関するデータベースは研究炉で使用する U-Mo 燃料のためには一部しか利用できないが、開発研究を通じて U-Mo 燃料の相変化や物理的特性、熱的特性、機械的特性などに関する多くのデータが取得されていた。

U-Mo 燃料は U_3Si_2 と同様にアルミニウム中に分散させて使用する場合と、さらにウラン密度を高めるために U-Mo 単体 (U-Mo monolithic) で使用する場合は考えられているが、KUCA の固体減速炉心で使用を予定しているのは前者の U-Mo 分散型燃料 (Mo を 7wt% 用いた U-7Mo) である。現在使用予定の U-Mo 燃料は平均粒径約 [] の粒で、それをウランシリサイド分散型燃料の場合と同様にアルミニウムパウダー (粒径 []) と混合して整形したものである (アルミニウムとウランの原子数比は約 []、アルミニウム体積が全体の [])。

(なお、KUR のウランシリサイド分散型燃料の場合、 U_3Si_2 の粒径は []、[] の粒子は最大 []、アルミニウムパウダーは粒径 [] で、アルミニウム体積が全体の約 []。)

U-Mo の諸物理特性¹⁾

融点： 1130 °C (U-7Mo)

熱容量： 30.5 J/mol/K (U-10Mo、25°C)

熱伝導率： 14.2 W/m/K (U-8Mo、10~100°C)

(ここで、U-7Mo 中の数字は Mo の wt%)

1. 2. 照射特性

U-Mo ハンドブック¹⁾に記載された U-Mo 燃料 (U-Mo monolithic) の燃料スウェリングのデータを図 1 に示す。

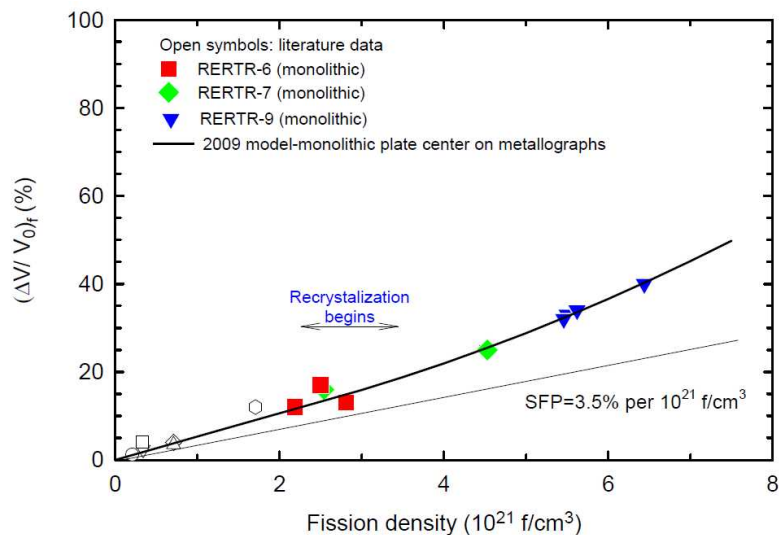


図 1 燃料スウェリングの実験値

KUCA で使用する燃料のスウェリング量を求めるために、KUCA の設置変更申請書（以下、申請書）に記載した数値から燃料の燃焼度に対応する核分裂密度（fission density、以下 F_d ）を求める。

- KUCA の年間積算出力：1 kWh （申請書 添付 2）
- 最小臨界炉心： [] (U-235) （申請書 添付 8）
- U 密度：16.3 g/cm³ （U-7Mo (Mo を 7%) の U 密度)
- 1 核分裂当たりの回収エネルギー：200MeV

KUCA で使用する燃料は U-Mo 分散型燃料であるが、個々の U-Mo 粒子の F_d は U-Mo 単体の燃料の場合と同じであるので、燃料を同じ炉心で 50 年間使用したときの F_d は以下のようになる。

$$\begin{aligned}
 \text{積算出力} &: 1 \times 10^3 \text{ (Wh)} \times 3600 \text{ (s/h)} \times 50 \text{ (year)} = 1.8 \times 10^8 \text{ (J/50-year)} \\
 \text{核分裂数} &: 1.8 \times 10^8 \text{ (J/50-year)} \div \{200 \times 10^6 \text{ (eV)} \times 1.6 \times 10^{-19} \text{ (J/eV)}\} \\
 &= 5.6 \times 10^{18} \text{ (fissions/50-year)} \\
 \text{U 体積} &: [] \text{ (g U-235)} \div [] \text{ (U-235 濃縮度)} \div 16.3 \text{ (U 密度)} = [] \text{ (cm}^3\text{)} \\
 F_d &= 5.6 \times 10^{18} \div [] = [] \text{ fissions/cm}^3
 \end{aligned}$$

(U-235 の燃焼度としては約 [redacted])

これらの照射実験データより、U-Mo 燃料の swelling についてガス以外の FP によるもの (solid swelling) とガス状の FP によるもの (gas bubble swelling) について以下のような実験式が示されている 1)。

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{total} (\%) &= \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{solid\ swelling} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{gas\ bubble\ swelling} \\ \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{solid\ swelling} (\%) &= 3.5 \times 10^{-21} F_d \\ \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{gas\ bubble\ swelling} (\%) &= 1.8 \times 10^{-21} F_d \quad (F_d \leq 3 \times 10^{21} \text{ fissions/cm}^3) \end{aligned}$$

KUCA の F_d を代入すると、total swelling (solid swelling と gas bubble swelling の和) は約 [redacted] となる。x-y-z 方向に均等に膨張すると仮定すると、各方向のサイズ変化は約 [redacted] となり、図 2 に示す燃料板の製作公差に比べても十分に小さい値であることから照射に伴うスウェリング量は無視することができる。すなわち、核分裂で生成した核分裂生成物 (FP) は U-Mo 燃料の形状に影響を与えることなく U-Mo 燃料の内部に保持されるといえる。

U-Mo 分散型燃料の場合、FP の一部は U-Mo 粒子の表面から外部に放出されることになる。その放出率 F_r は以下のように表される 2)。

$$F_r = \frac{3}{4} \left(\frac{\mu}{R}\right) - \frac{1}{16} \left(\frac{\mu}{R}\right)^3$$

ここで μ は U-Mo 中での FP の平均飛程、 R は U-Mo 粒子の平均半径である。U-7Mo について μ は $5 \mu\text{m}$ 、 R は $35 \mu\text{m}$ とすると、 F_r は約 12% となる。 μ は UAl_x の場合は $10 \mu\text{m}$ 、 U_3Si_2 の場合は $8 \mu\text{m}$ であるため、同じ粒径であれば密度が高い U-Mo のほうが F_r は小さくなる。

この放出された FP はウランシリサイド分散型燃料の場合と同様に U-Mo 周囲のアルミニウム中に保持されることになるが、その FP の保持能力については従来のウランシリサイド分散型燃料で十分に実績があり問題は無い。

1. 3. 燃料板の強度

燃料板はアルミニウム製の額縁の内部に U-Mo 分散型燃料のコンパクトを入れ、その上にアルミニウム製の板を置いて周囲を溶接しているという構造である (図 2、図 3)。また

燃料板は燃料さや管に収納されて炉心に設置されるため、燃料板自体の耐震強度は必要なく、ここでは、燃料板を積み重ねたときの圧縮荷重に対しての燃料板の強度を検討した。

荷重条件としては、燃料さや管の燃料領域（下部ポリエチレン反射体の上）に燃料板があり、その上部に KUCA で使用する物質の中で最も密度の大きなウラン金属が高さ 40cm、その上部に 50cm のポリエチレン反射体が挿入されている場合を考える。また圧縮荷重は燃料板周囲の幅約 [] のアルミ枠（図 3、P の矢印の箇所）に作用すると考える。

圧縮荷重：

$$\begin{aligned} & [] \text{ (U 面積)} \times 40 \text{ (U 高さ)} \times 18.95 \text{ (U 密度)} \\ + & [] \text{ (ポリエチ面積)} \times 50 \text{ (ポリエチ高さ)} \times 0.96 \text{ (ポリエチ密度)} = [] \text{ kg} \end{aligned}$$

圧縮応力：

$$\begin{aligned} & [] \text{ kg} / [] \text{ (mm}^2\text{、隅の R3 の箇所も考慮)} \\ & = [] \text{ kgf/mm}^2 = [] \text{ N/mm}^2 \end{aligned}$$

一方、アルミニウム合金 AG3NE 相当である A5052 は引張強さ 175 N/mm² 以上、耐力 (0.2%) 65 N/mm² 以上 (JIS H4000 A5052P-O 板) であり、圧縮強度も同じと考えれば燃料板上部からの圧縮荷重に対して燃料板は十分安全である。

なお、U-7Mo 単体での降伏点は 700 N/mm² であり¹⁾、混合するアルミニウムパウダーについては強度が弱い純アルミ系 (A1100) と同等の降伏点であるとしても耐力 (0.2%) は 25 N/mm² 以上 (JIS H4000 A1100P-O 板) であるため、仮に燃料板上部の挿入物の重量が U-Mo 燃料に直接加わったとしても圧縮応力 ([] kg / [] mm² = [] kgf/mm² = [] N/mm²) より大きく問題はない。

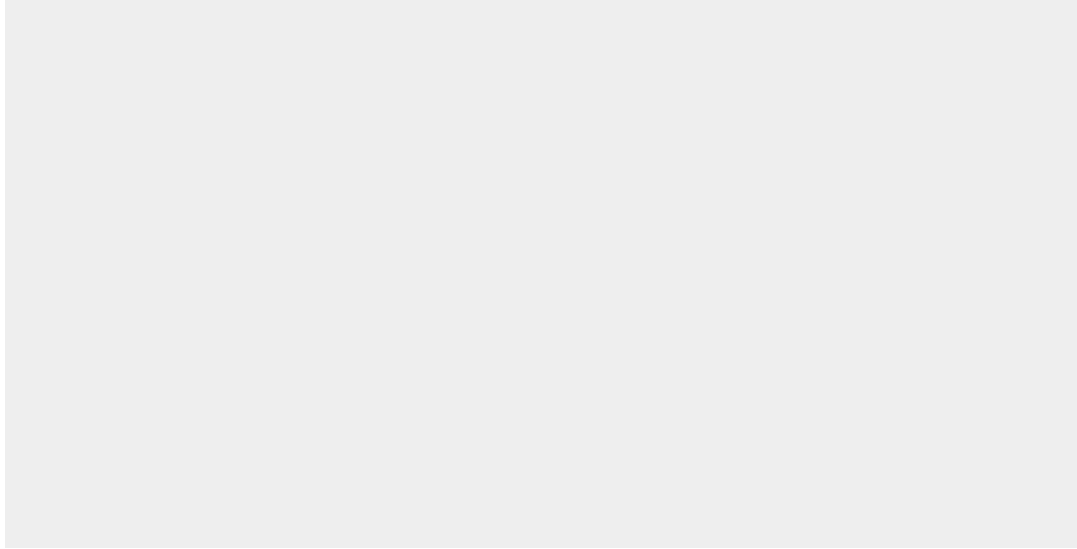


図 2 燃料板外形 (単位 : mm)

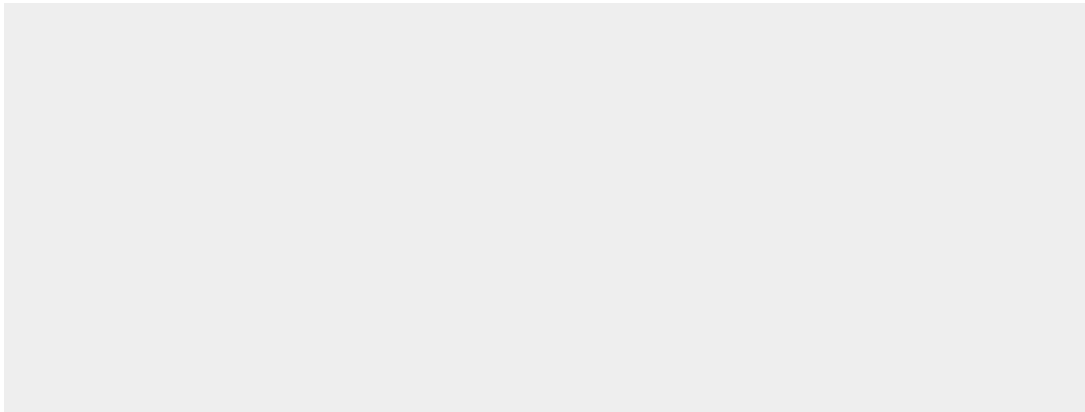


図 3 燃料板構造 (断面図) (単位 : mm)

1. 4. 燃料板の腐食

燃料板は KUCA の炉室内で使用するものであり、運転に伴う発熱は最大でも 100℃以下であるため燃料板が高温になることはない (申請書 添付 10 の解析結果より)。また使用する炉室内では昼間は空調設備が働いており (火曜日から金曜日は 9 時～20 時、それ以外の日は 9 時～12 時)、温度は夏場で最大 25℃程度、冬場で最低 15℃程度である。また除湿されているため高湿度になることはない。

このような使用環境であるので、燃料板 (表面およびレーザー溶接部) が腐食する可能性

としては上記の使用環境を超えた温度変化および湿度変化が想定される最も厳しい状況であると考えられる。

そこで KUCA で使用するものと同じ方法で作成された複数枚の燃料板サンプルの耐食性試験を実施した。試験では温度 10℃で湿度 30%の低温乾燥の環境と、温度 40℃で湿度 85%の高温多湿の環境を繰り返す温湿度サイクル試験を実施し（図 4、図 5）、試験後に表面およびレーザー溶接部に腐食が認められるか確認した。

試験の結果、試験前後で外観上の変化は無く、レーザー溶接部および母材部に腐食は認められなかった（図 6）。

KUCA の炉室内には燃料板の材質とほぼ同等のアルミニウム合金（A5052）を用いた設備が多く存在する（例えば、軽水減速炉心の炉心タンク、配管など）。1974 年の設置以来、約 45 年が経過しているが、これまでにこれらの機器の表面や溶接部に腐食が認められたことは無いので、今回使用する燃料板についても腐食の恐れはほとんど無いと考えられる。

KUCA の燃料集合体は年に数回は組み立て、解体を行っており、各燃料板についてはこれらの作業時に表面の状況を目視で確認している。また使用していない燃料板についても少なくとも年 1 回は目視で確認しており、これらの確認作業で何らかの異常が発生した場合には使用しないようにする。

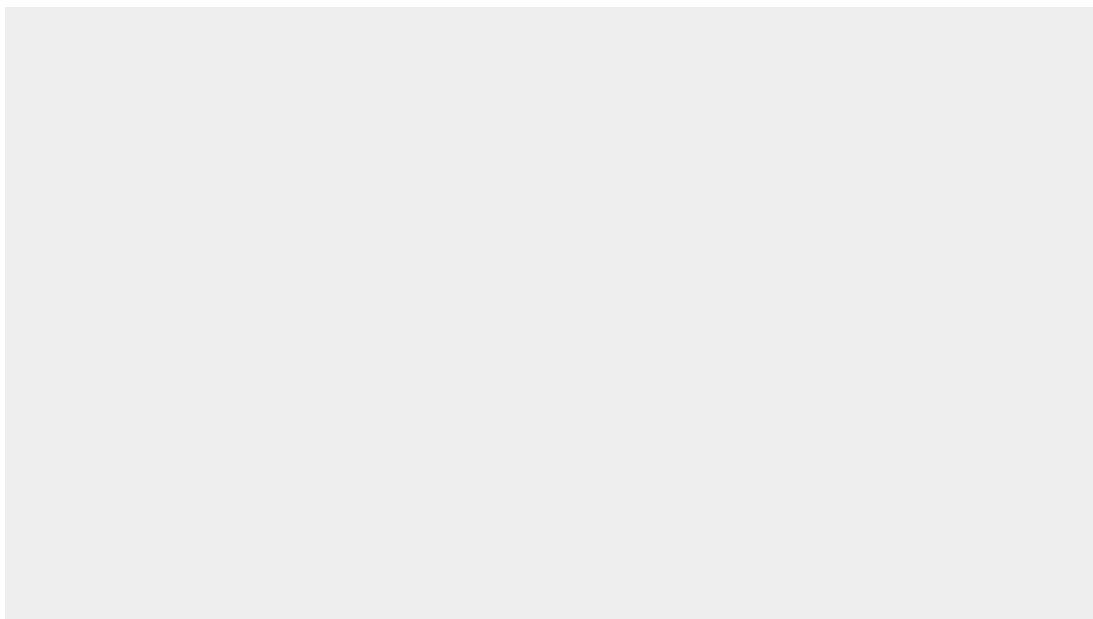


図 4 温湿度サイクル試験条件



図 5 温湿度サイクル試験

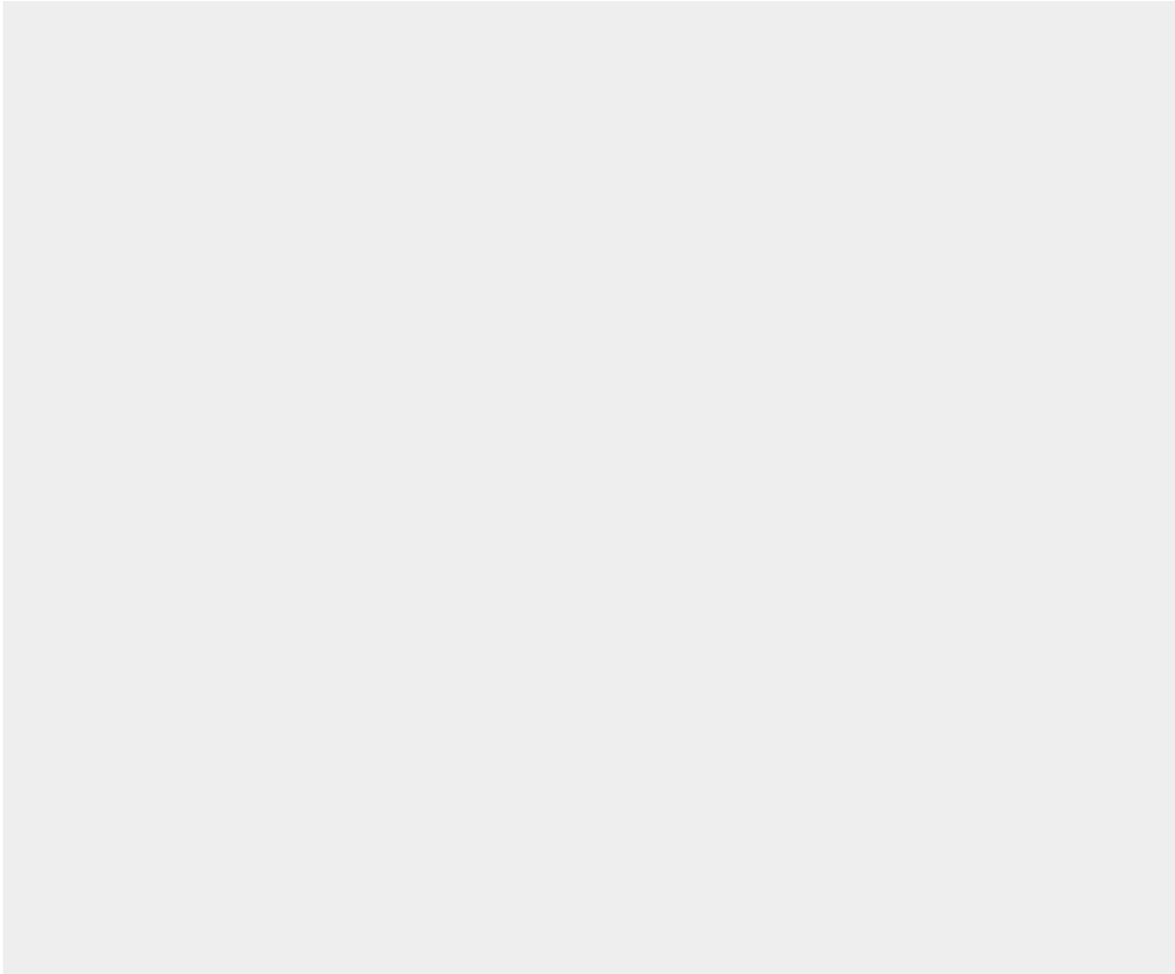


図 6 試験結果（右図は溶接部の拡大図）

1. 5. 燃料板のブリスタ

今回使用する燃料板は U-Mo 粒子をアルミニウムパウダーと混ぜて製作した燃料コンパクトを厚さ 0.4mm のアルミニウム製の被覆材中に封入した構造をしており、これまで KUCA の軽水減速炉心で使用してきた燃料平板や KUR で使用している燃料平板（共にアルミニウム製被覆材厚さ mm）と極めて類似した構造をしている。KUR 等においてブリスタの発生防止するために燃料芯材の最高温度は 400°C を超えないことを求めており、今回の U-Mo を用いた燃料板についてもブリスタの発生を防止するために燃料芯材の最高温度は 400°C を超えないことを設計基準事故時の判断基準としている。これは、U-Mo 分散燃料はウランシリサイド分散型燃料と同様にアルミニウムパウダー中に融点の高い燃料粒子が分散した構造をしており、ブリスタの発生はこれまでの基準（燃料破損閾値としてブリスタ発生温度の約 500~600°C に安全余裕を見た温度である約 400°C）と同じとして良いと考えられるからである。

U-Mo 燃料のブリスタの発生要因についてはウランシリサイド分散型燃料の場合と同様に、燃料被覆材と U-Mo の燃料コンパクトの間の密着性の低い箇所の燃料芯材が高温にな

ることにより燃料表面が変形すること、さらに燃料と燃料被覆材の隙間に気体の核分裂生成物が蓄積することなどの要因ブリストが発生すると考えられる。

今回の U-Mo を用いた燃料板についてもブリストの発生を防止するために燃料芯材の最高温度は 400°C を超えないことを設計基準事故時の判断基準としている。これは、U-Mo 分散燃料はウランシリサイド分散型燃料と同様にアルミニウムパウダー中に融点の高い燃料粒子が分散した構造をしており、ブリストの発生はこれまでの基準（燃料破損閾値としてブリスト発生温度の約 500~600°C に安全余裕を見た温度である約 400°C）と同じとして良いと考えられるからである。

しかし添付 10 の解析結果によると燃料板の最高温度は 100°C 以下であること、また U-235 の燃焼度としては最大でも約 [] % 程度であり、ほとんど燃焼は進まずに核分裂生成物の蓄積はほとんど無視できる。そのため詳細なブリスト発生要因については調べ切れていないが、KUCA の U-Mo 燃料についてはブリストの発生心配は無いと考えられる。

1. 6. 燃料の固着度、強度について

現在、固体減速炉心で使用予定の U-Mo 燃料の芯材は [] 以下の粒と [] の粒を約 [] の重量割合で混ぜて平均粒径約 [] の粉末としたものを、ウランシリサイド分散型燃料の場合と同様にアルミニウムパウダー（粒径 [] 以下）と混合し圧縮して芯材として整形したものである（アルミニウムとウランの原子数比は約 []、アルミニウム体積が全体の約 []）。

この製造方法は、現在開発中の高出力研究炉用の燃料の製造方法と同じであり、その U-Mo 燃料を照射試験で FP の閉じ込め性能などを含めた照射特性を確認しており、KUCA 用に製造する U-Mo 燃料についても同様の照射特性を有していると考えられる。

芯材の固着度についてのデータはないが、燃料製造では芯材の均一性を X 線撮影で確認（[] 以下が判定条件）、および成型した芯材の寸法、重量が基準値内であることを確認する。

なお KUCA の燃料板はアルミニウム製の額縁の内部に U-Mo 分散型燃料のコンパクトを入れ、その上にアルミニウム製の板を置いて周囲を溶接するという構造であるため、その機械的強度については心材ではなく周囲のアルミニウム製被覆材（アルミニウム製の額縁）で担保している。

1. 7. 燃料板の落下試験

固体減速架台用の U-Mo 燃料のサンプルを使用しサンプルの落下試験を実施した。

KUCA での燃料取扱時には、燃料組み立ての際に誤って燃料をコンクリートの床に落とす可能性があり、その影響によって溶接部分等が破壊され、核物質の漏洩につながるものが危惧される。そこで、現在製作予定の燃料が実際の燃料取扱時の落下にも十分耐えうることを確認するため落下試験を行い、その強度と密封性能を確認した。

使用したサンプルは全て U-Mo 燃料を製作する予定のフランスの CERCA 工場において全く同じ手法で製作したもので、寸法およびアルミニウム被覆の材質は実際に製作予定のものと同じ、サンプルの内部には燃料コンパクトと密度が近いステンレス板（燃料コンパクトは約 10.5 g/cm^3 ）が梱包されている。図 7 にサンプルの概略図を示す。Front face は識別番号が刻印されている側とし、Back face は溶接が施されている側とした。各 Side face の位置は図 8 に示したとおりである。落下試験の前と数回の落下の後、さらに 100 回の落下試験後に、Front、Back、各 Side face の 6 面について写真撮影を行った。Side face 撮影時はサンプルを立て、Front face が必ず右側になるように設置して撮影を行った。

試験は KUCA 燃料室と同じコンクリート床である KUCA の総合測定室で実施した。サンプルを落下させる高さは、KUCA の燃料取扱時に使用している作業機が約 75 cm であるため、それより倍の高さである 150 cm とした。また、サンプルを落下させる際は、試験者は必ず刻印側が下となるようにサンプルを持ち落下させた。試験者は、サンプル落下後、破損等がないことを確認した後に、次の落下試験を行った。図 9 に落下試験の概略図を示す。

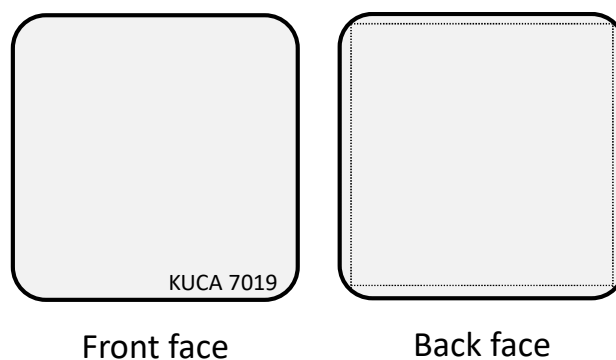


図 7 使用したサンプルの概略図

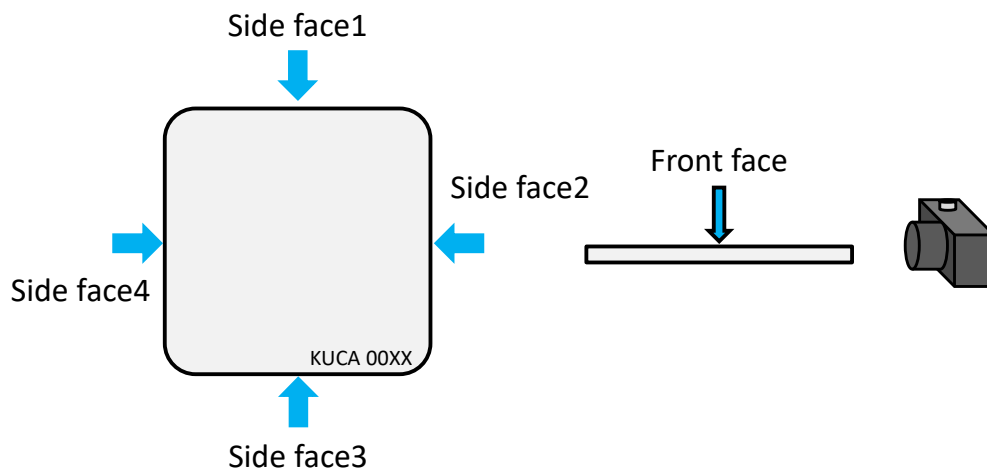


図 8 各 Side face の位置

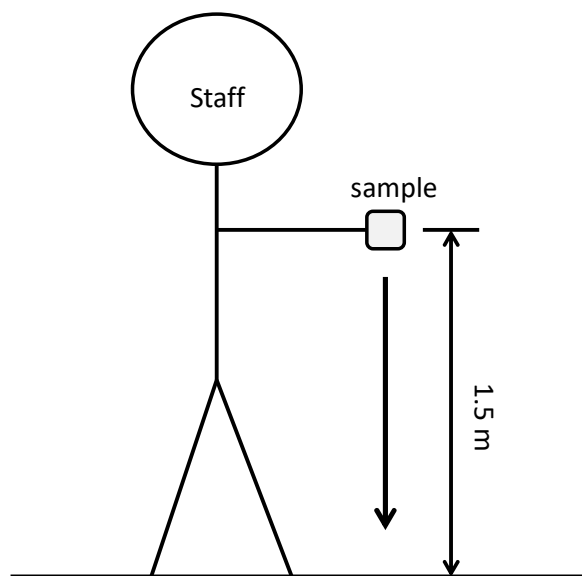
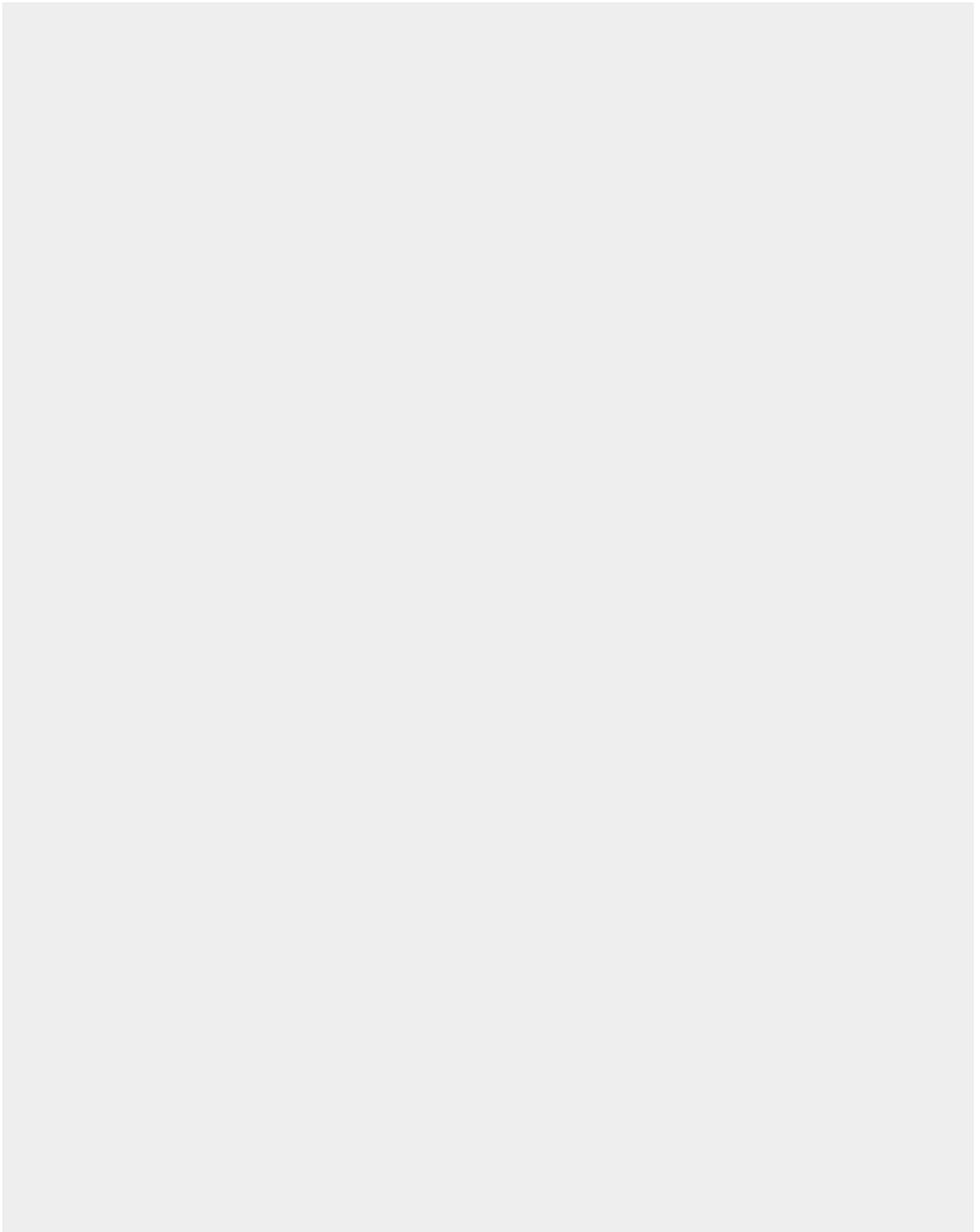
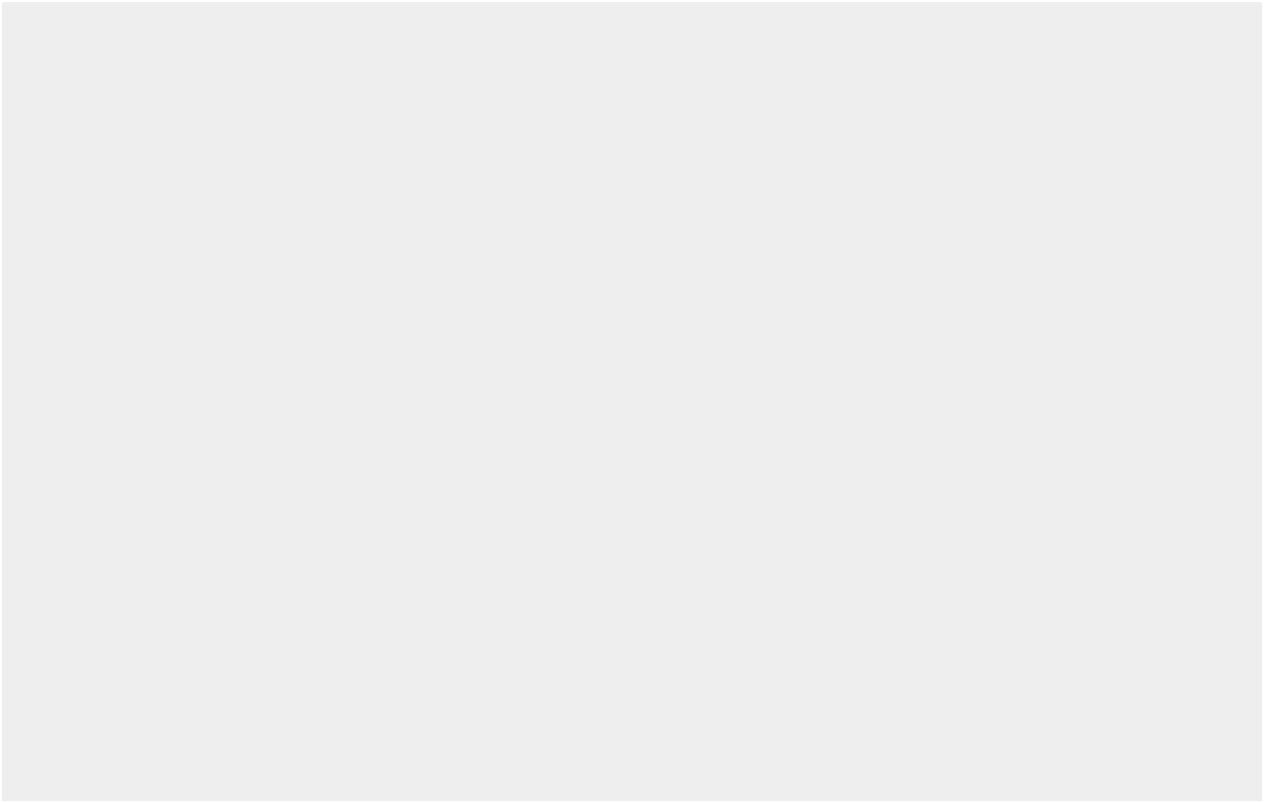


図 9 落下試験の概略図

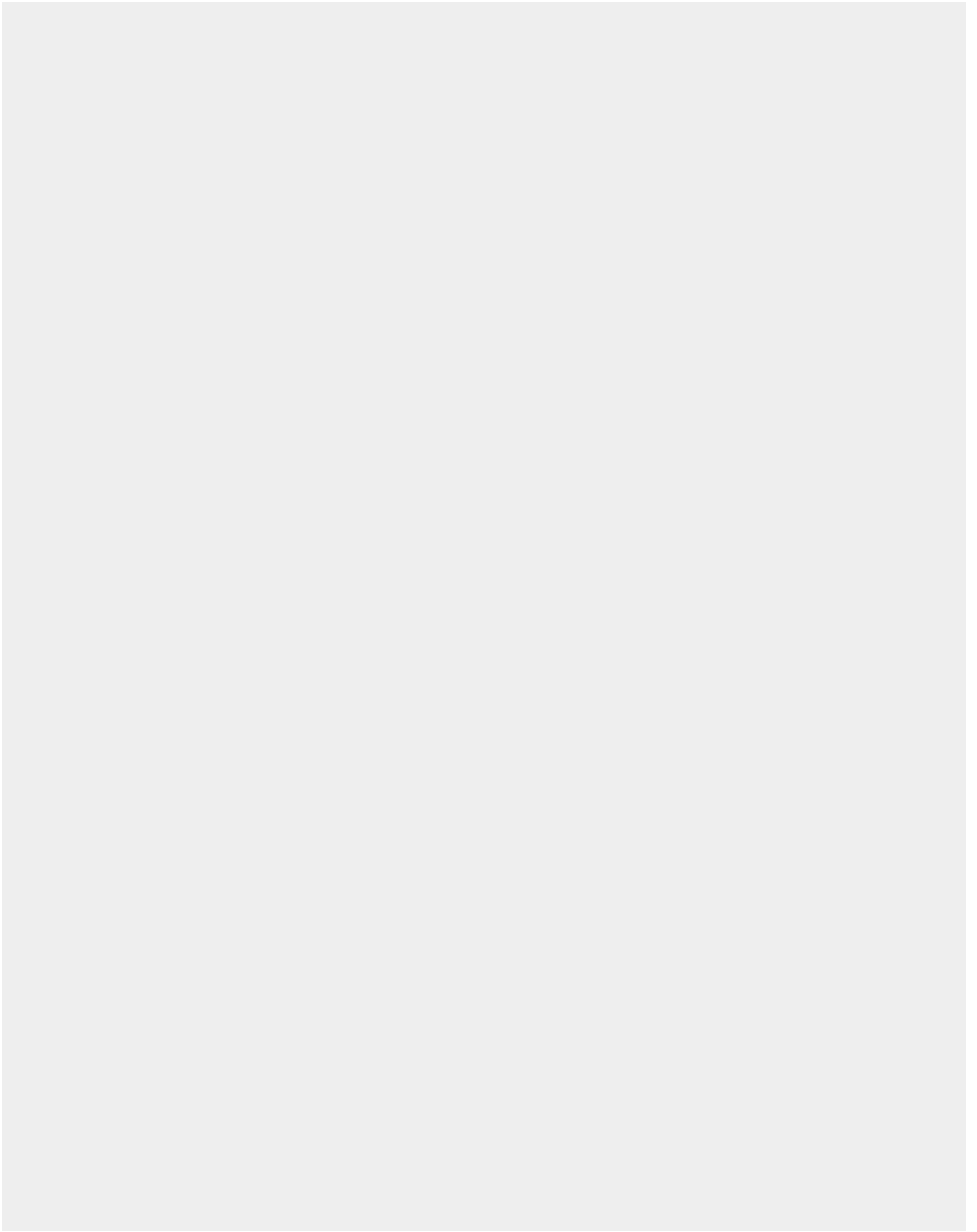
図 10-1～図 10-7 に試験前、1 回落下後、9 回落下後、20 回落下後、50 回落下後、75 回落下後、100 回落下後の各面の写真撮影結果を示す。1 回落下後は特に大きな変化は見られなかったが、9 回落下後にサンプル角に大きな曲がり確認できたが、燃料板の溶接箇所には異常は見られず密封性能に影響を与えるものではなかった。その後、落下を繰り返していくに連れて角の傷や角の曲がり等は多くなっていたが、100 回の落下試験後も燃料の大きな破損はなく、溶接箇所には異常は見られず密封性能に影響を与えるものではなかった。

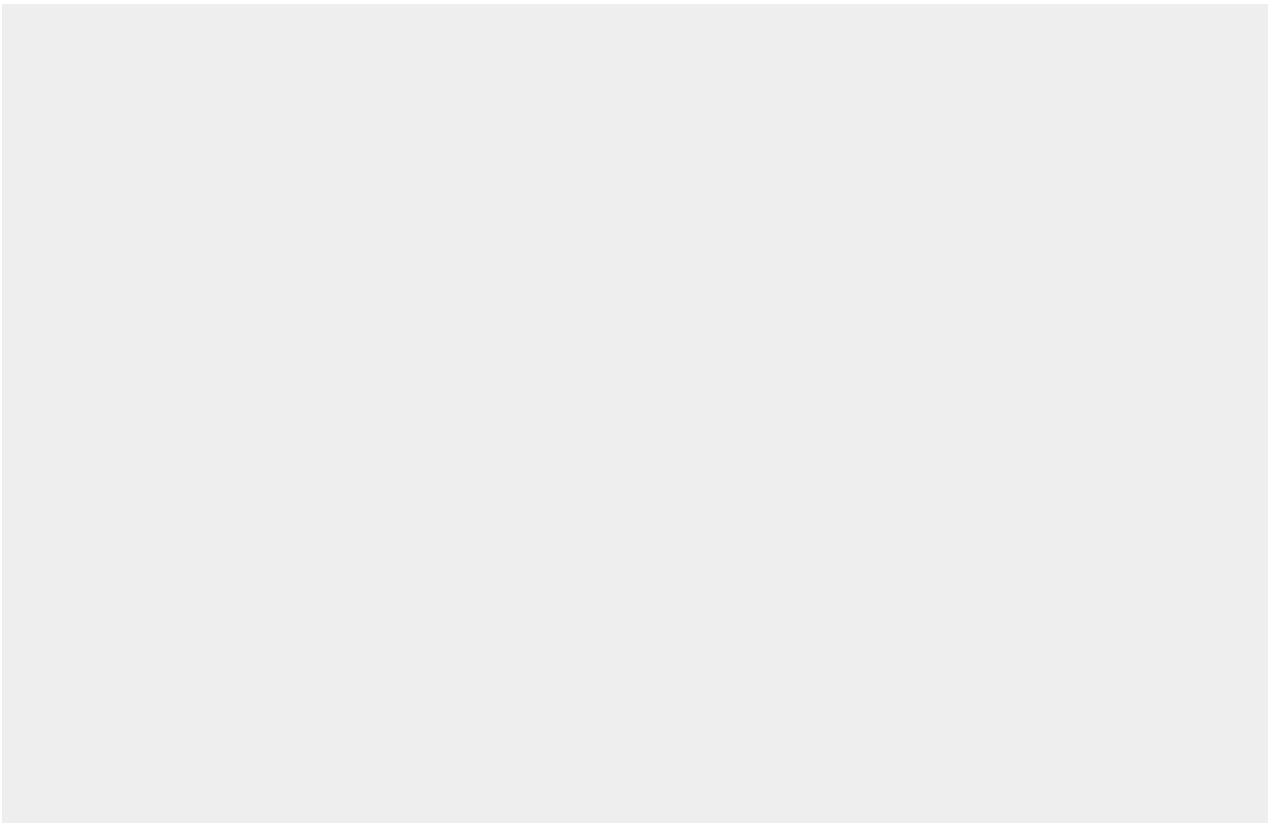
なお、これまでの高濃縮ウラン燃料板の使用時に燃料板に変形が見つかった場合にはそれ以降は炉心で使用しないような措置を取ってきたので、低濃縮ウラン燃料の場合でも同様の対応を行う予定である。



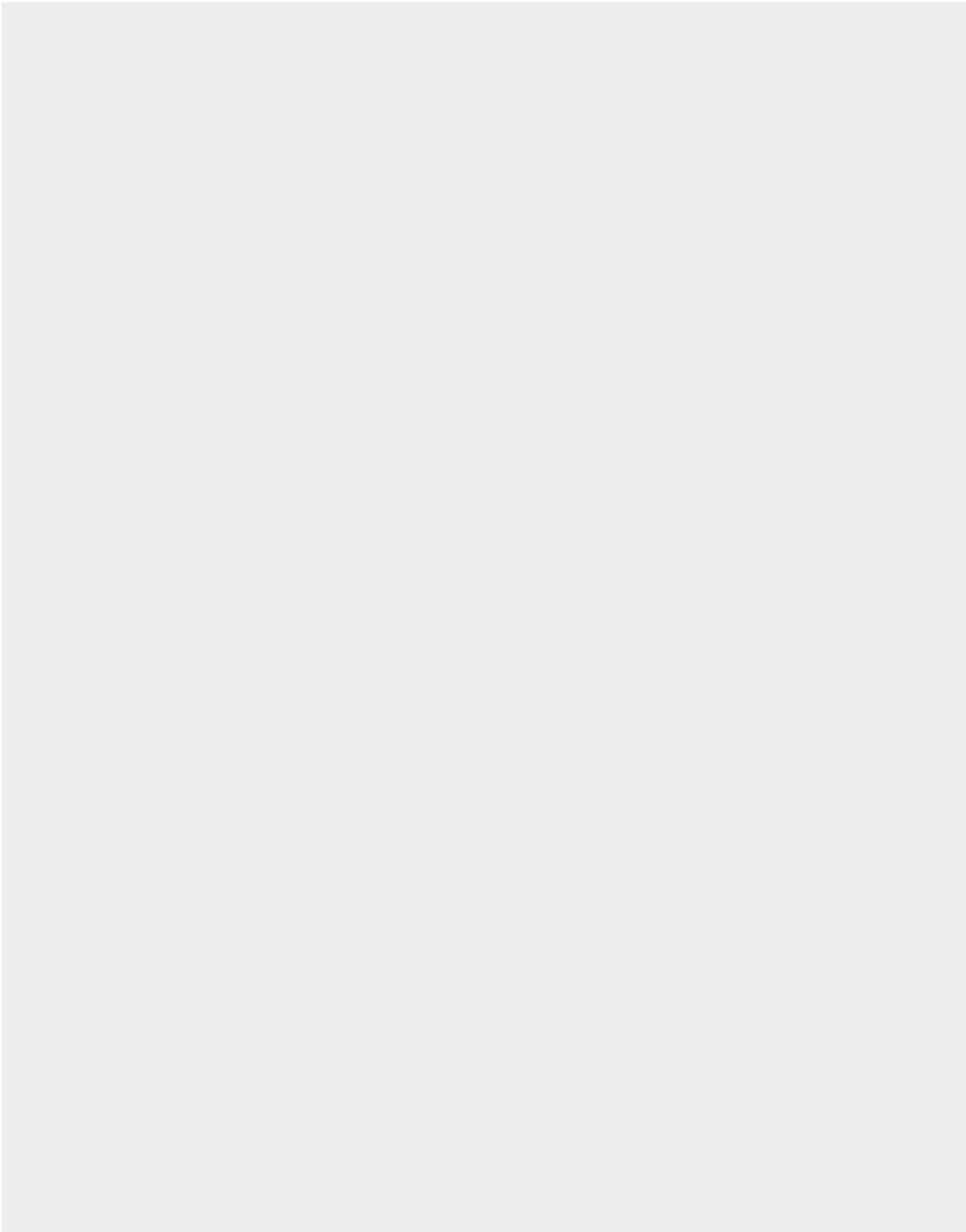


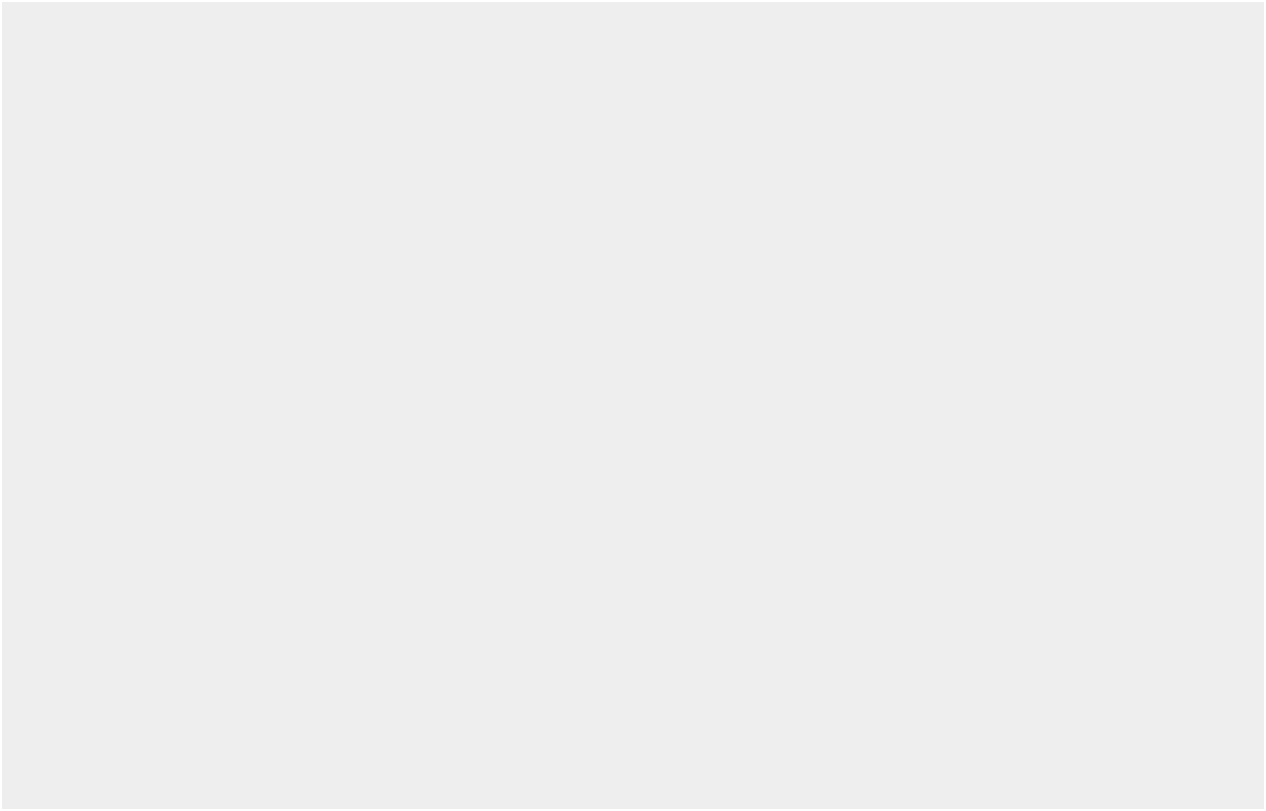
☒ 1 0 – 1 Photos of sample before the test



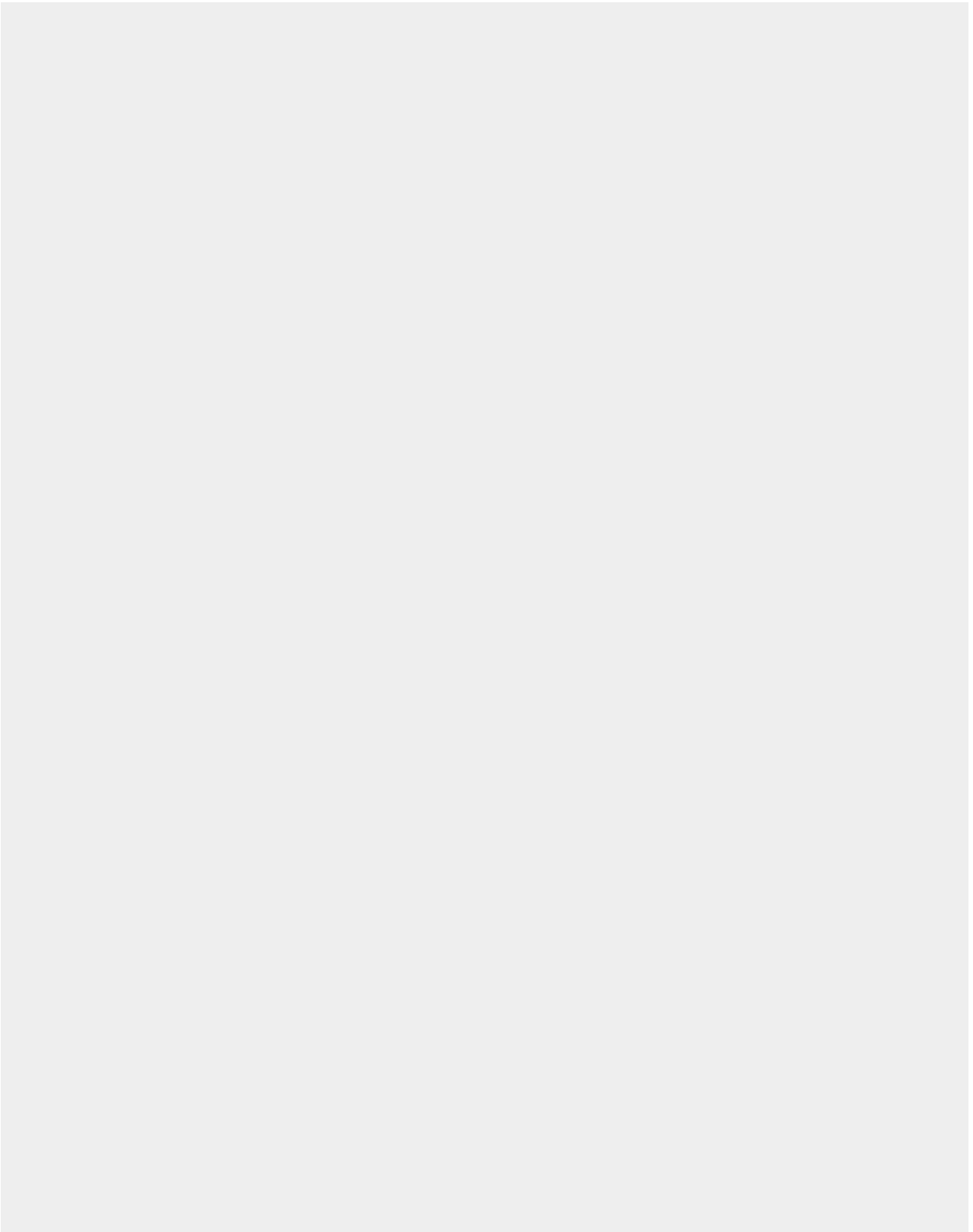


☒ 1 0—2 Photos of sample after 1st drop





☒ 10-3 Photos of sample after 9th drop



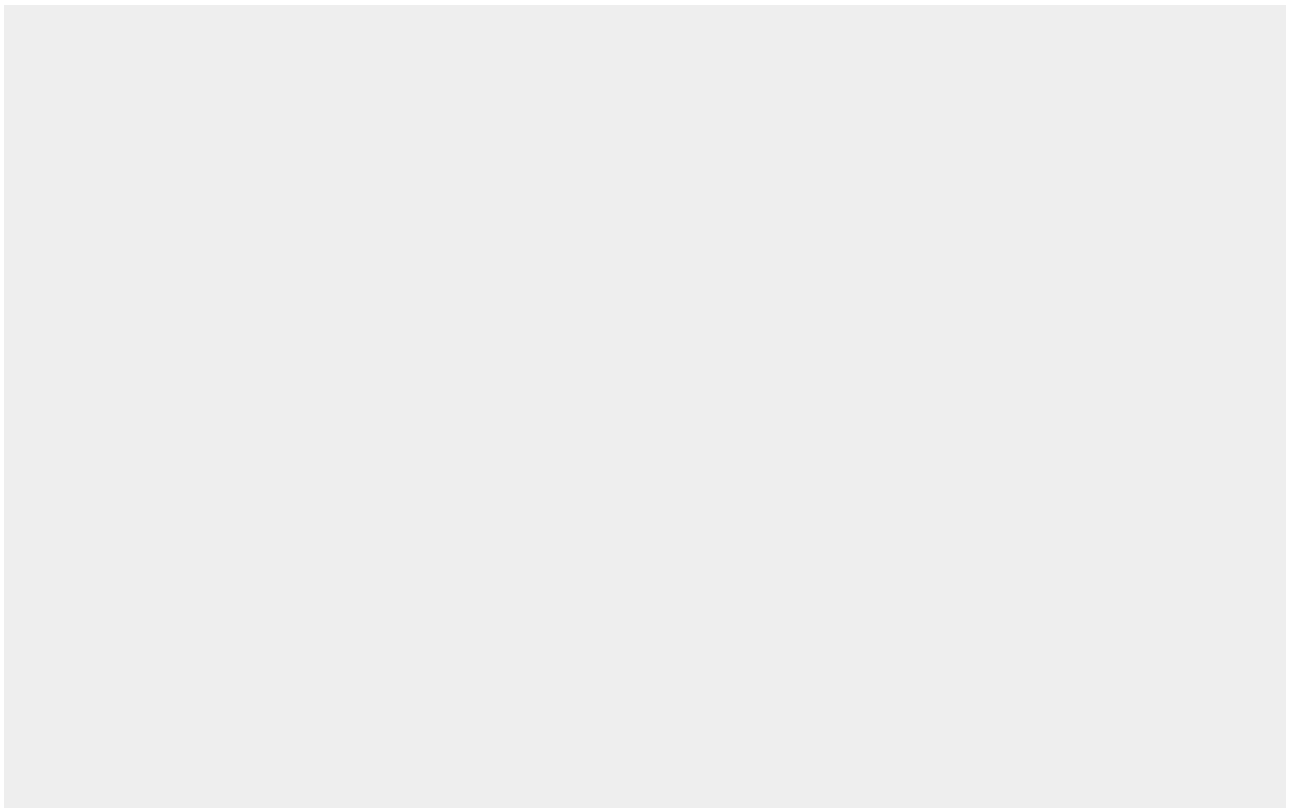
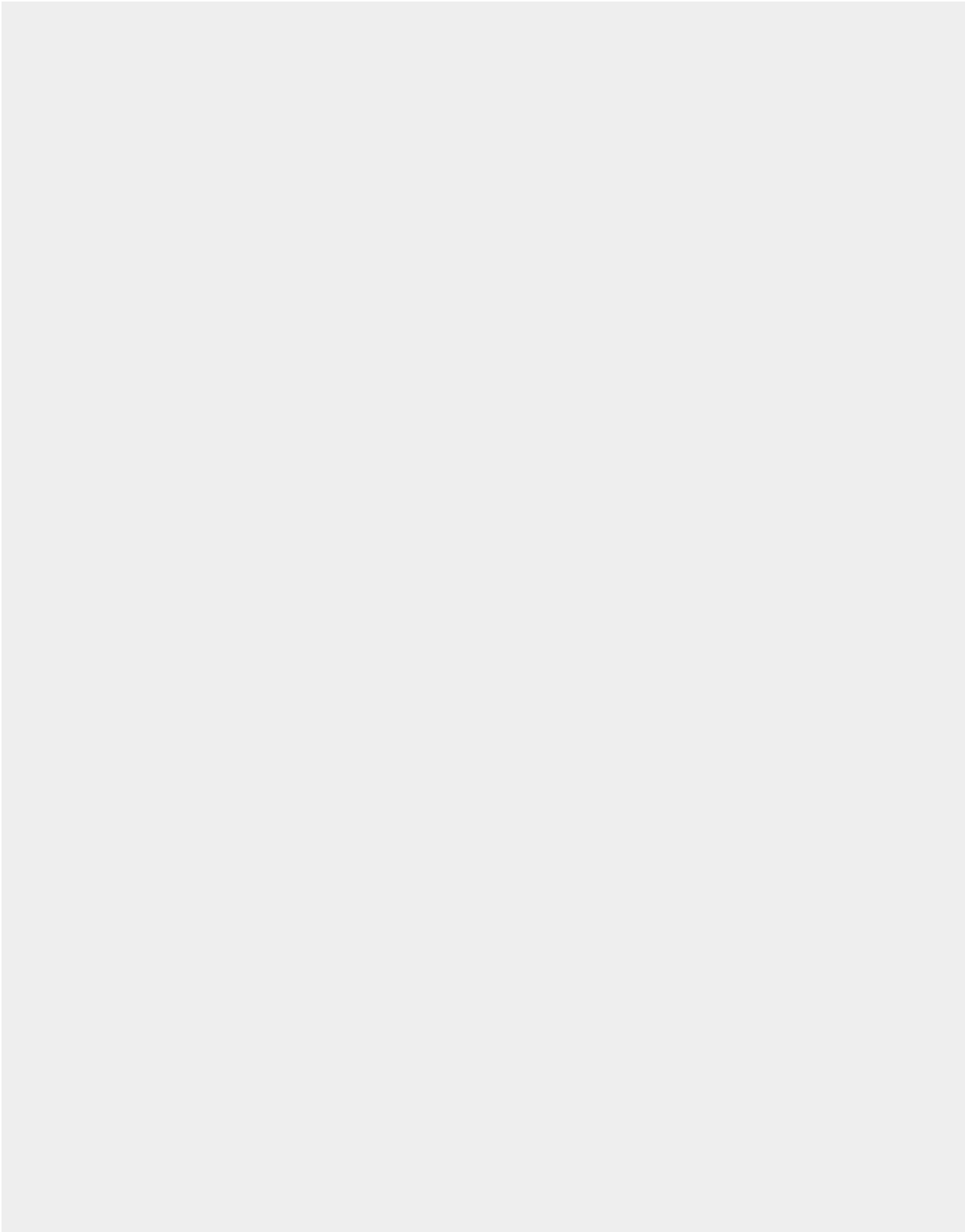


图 10-4 Photos of sample after 20th drop



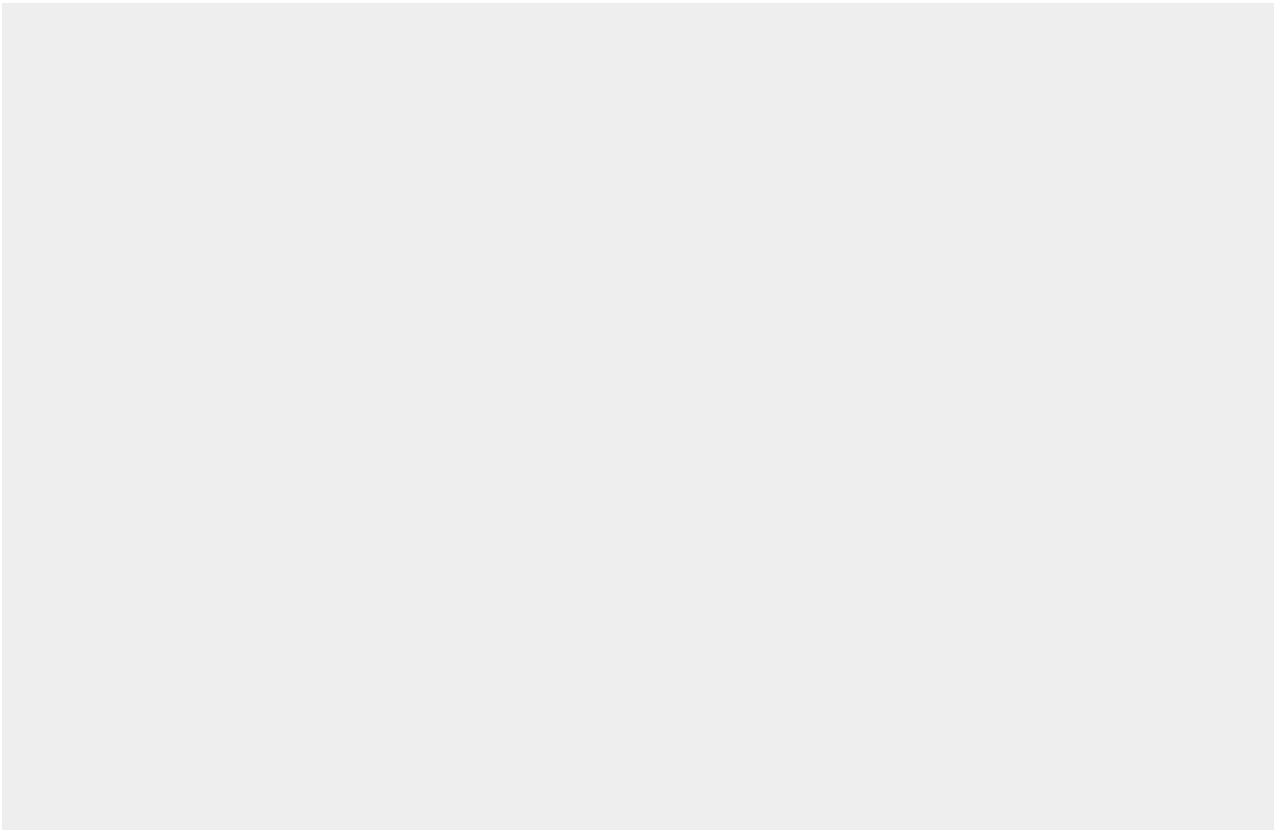
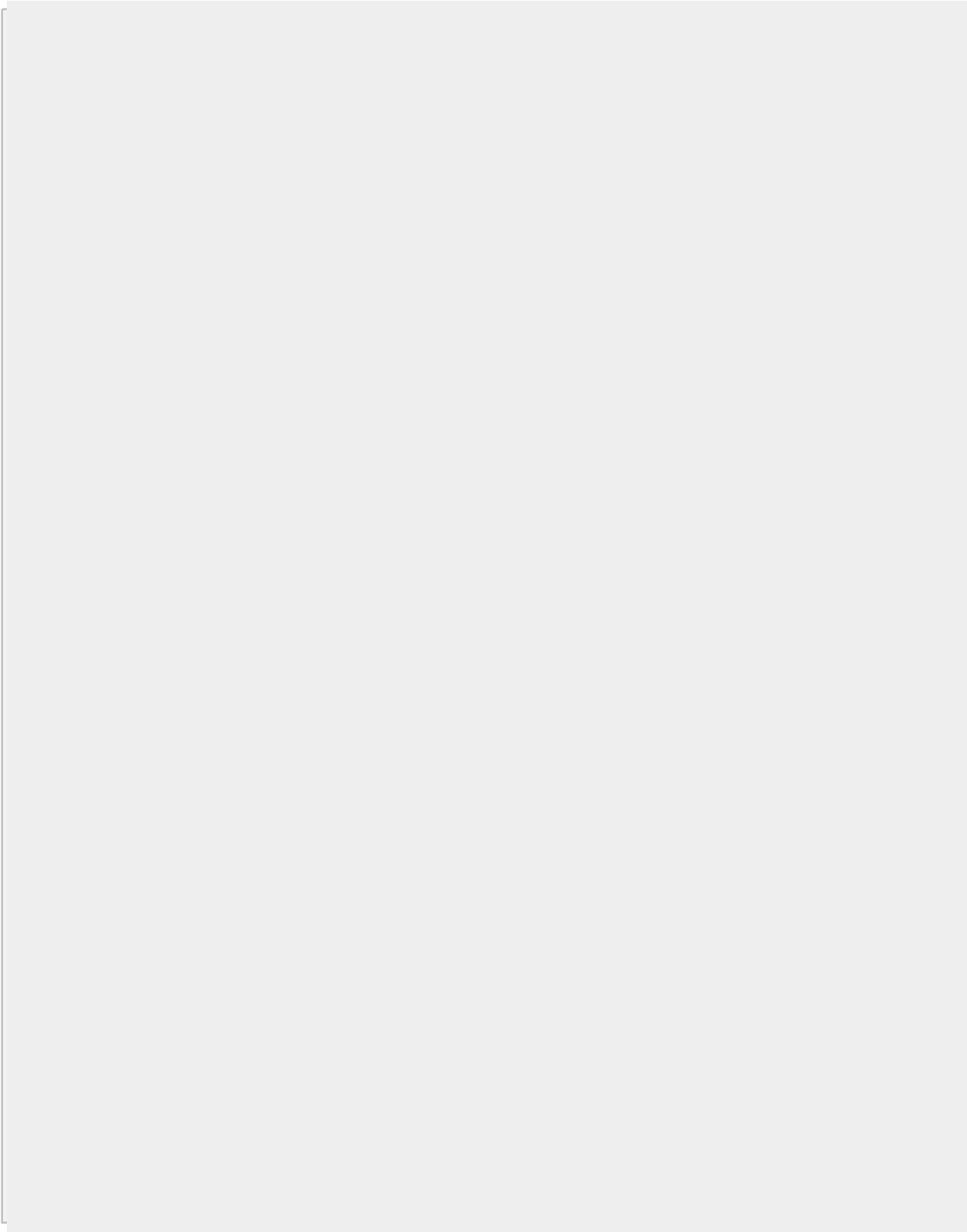
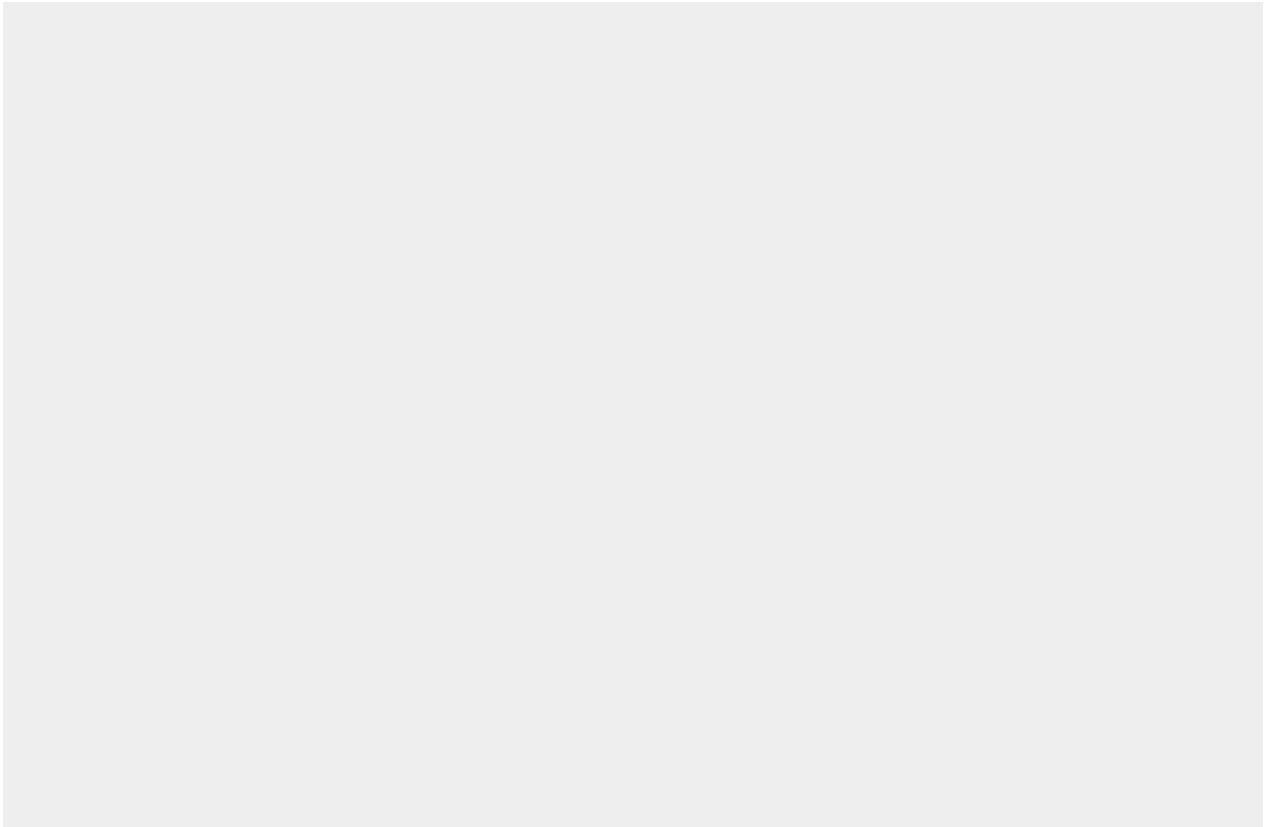
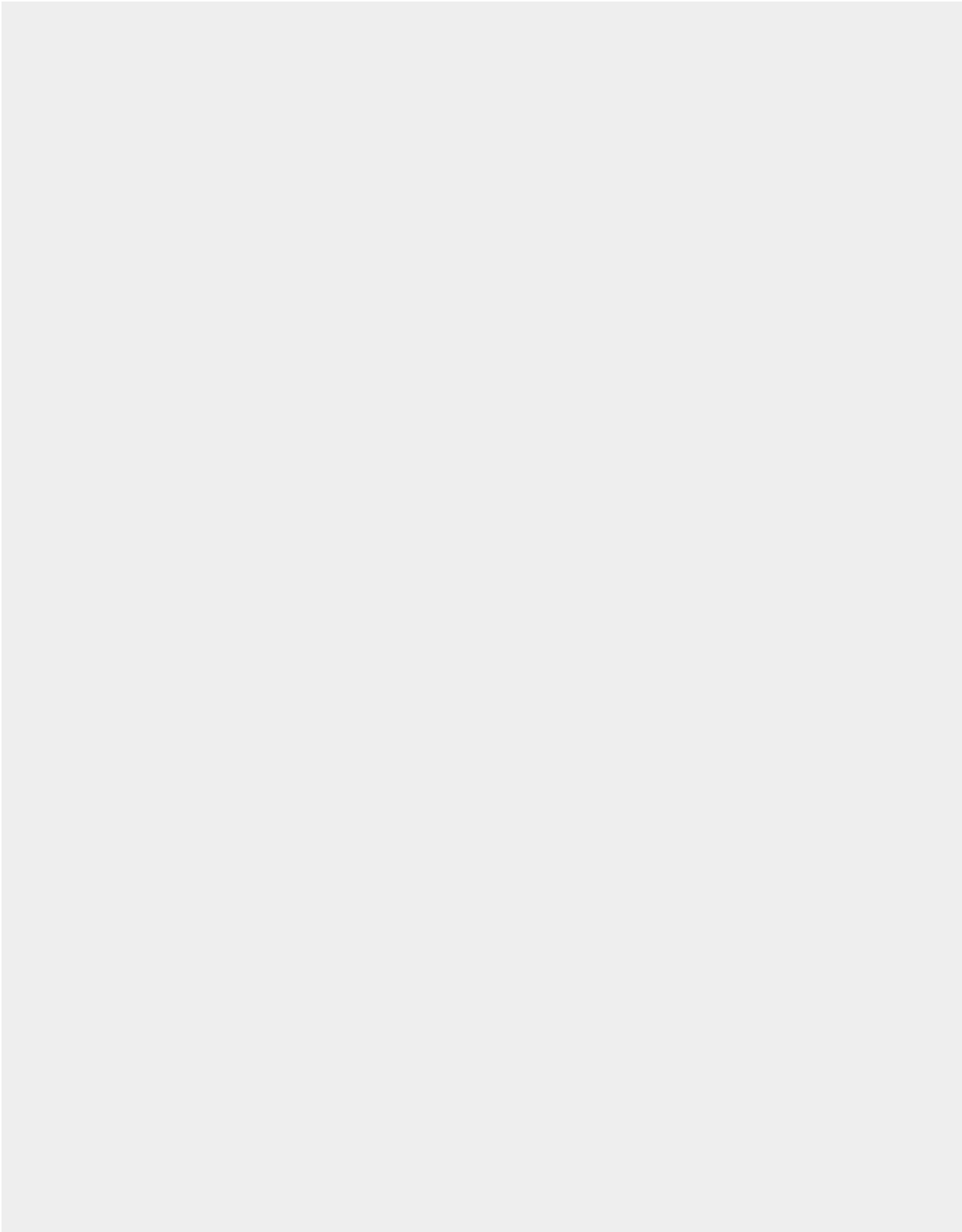


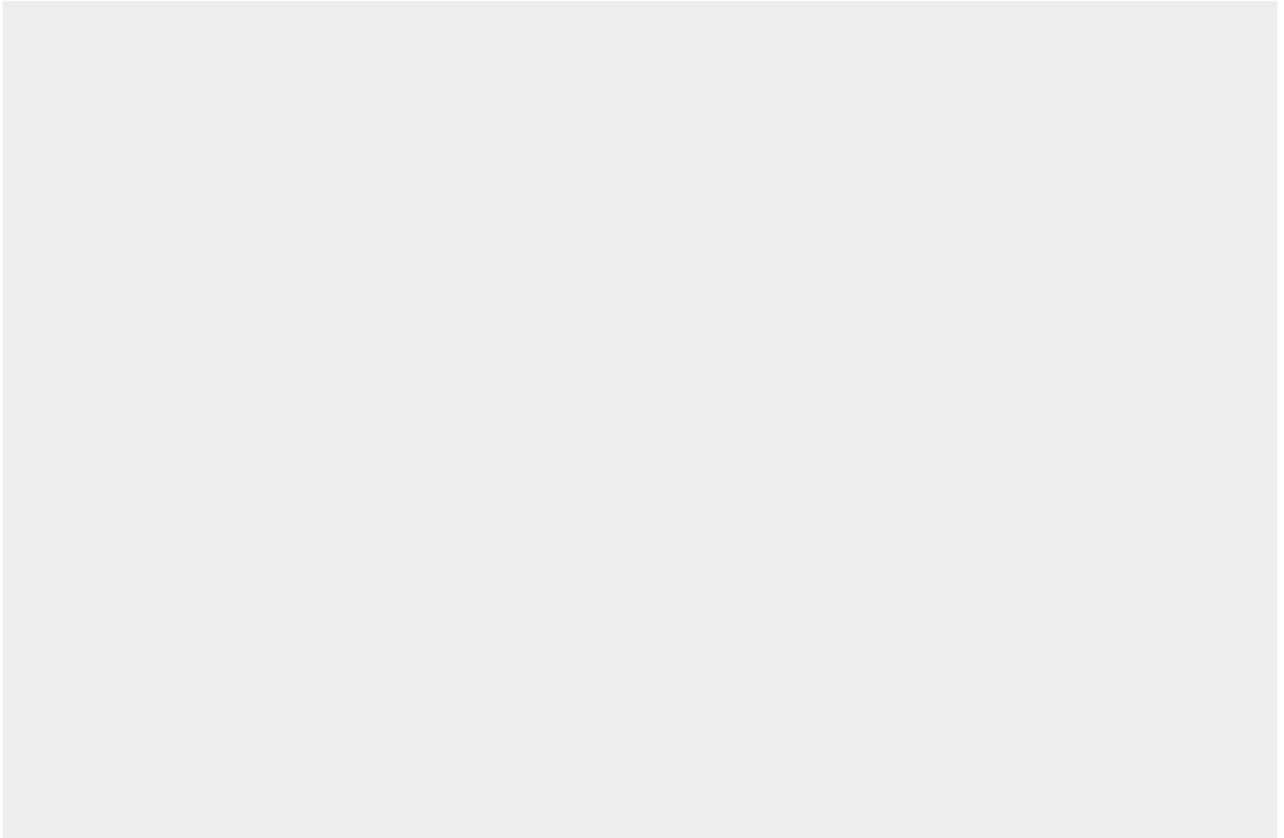
图 10—5 Photos of sample after 50th drop





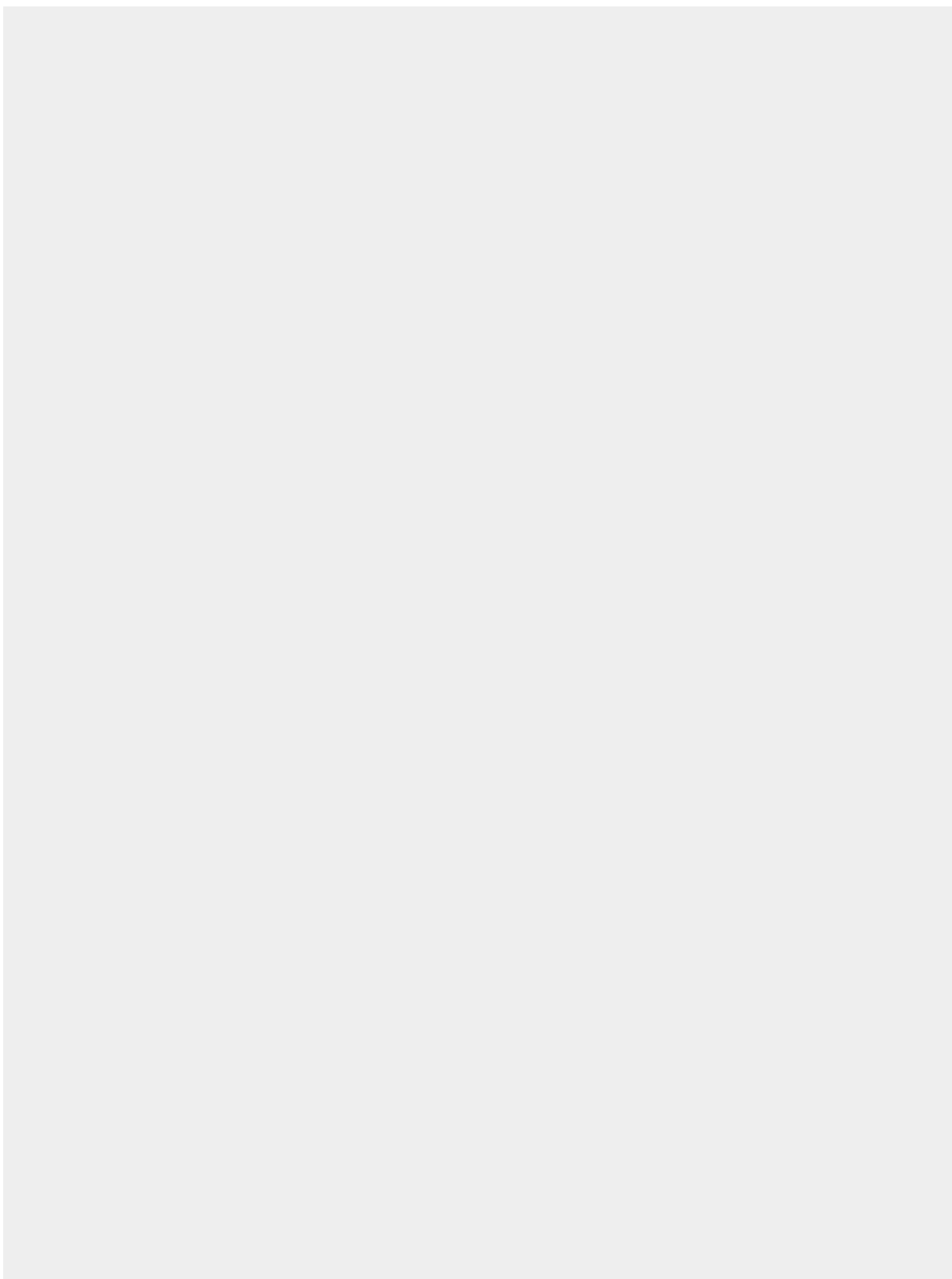
☒ 10—6 Photos of sample after 75th drop

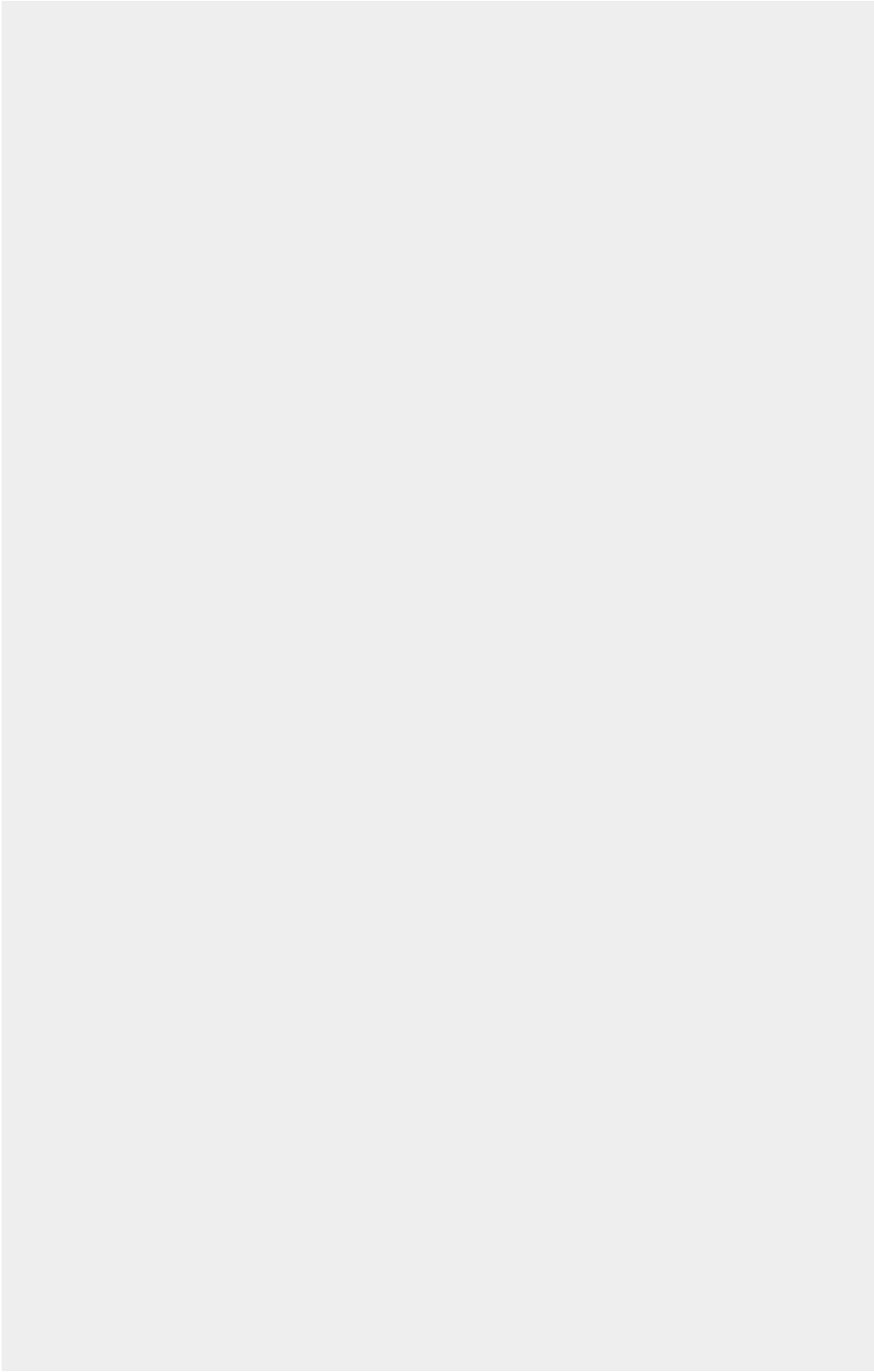


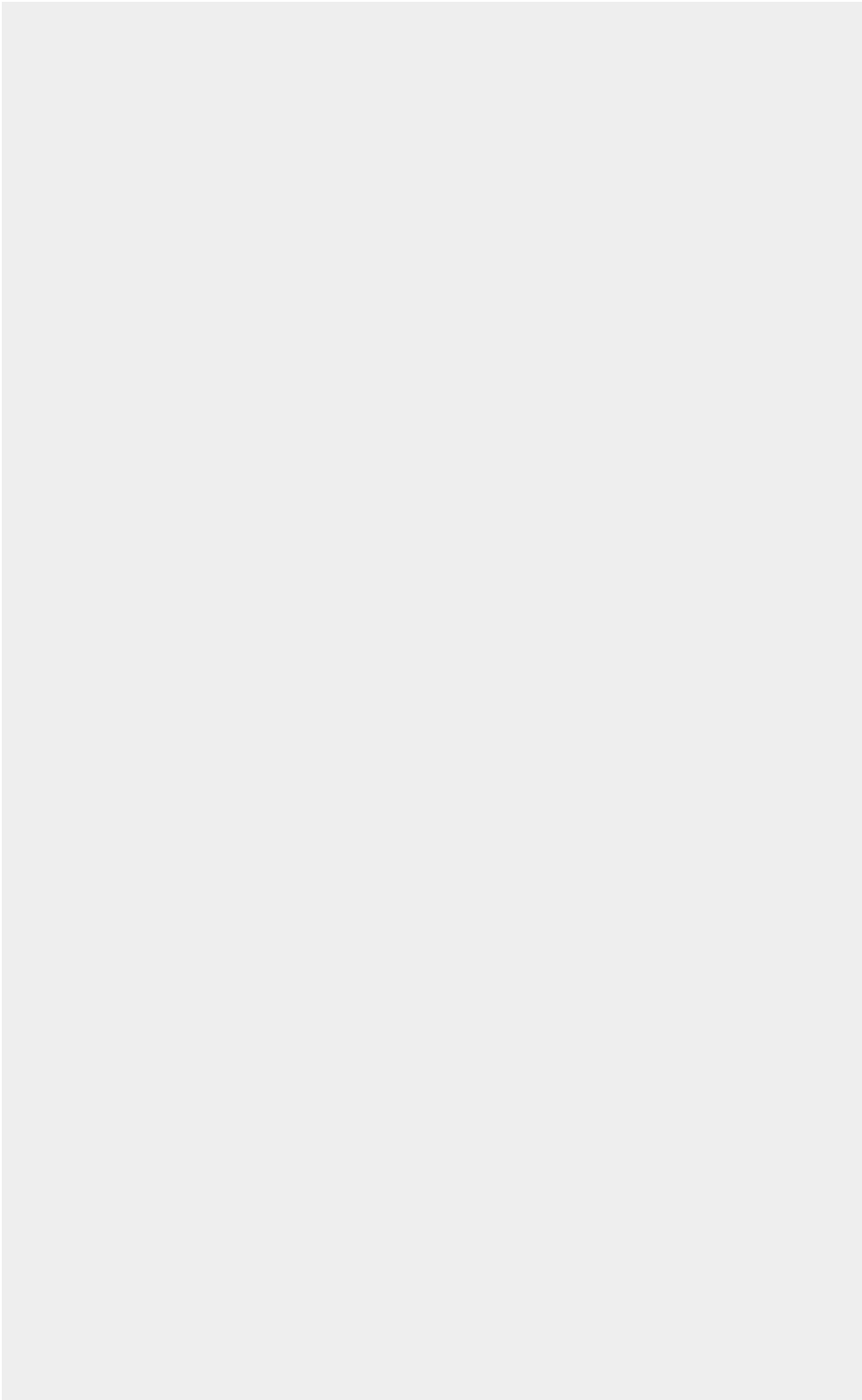


☒ 10-7 Photos of sample after 100th drop

1. 8. 燃料体の組み立て方法について







2. 軽水減速炉心の燃料

2. 1. ウランシリサイド分散型燃料

軽水減速炉心では KUR、JRR-3 などの研究用原子炉で使用されているものと同じウランシリサイド分散型燃料 (U_3Si_2-Al) を使用する。形状は現在 KUCA の軽水減速炉心で使用している燃料平板と同じで、 U_3Si_2-Al の燃料ミート部を KUR と同じ厚さ [] のアルミニウムで被覆した構造をしている(図 11)。燃料ミート部の U 密度は JRR-3 と同じ約 [] / cm^3 である。

ウランシリサイド分散型燃料はこれまでに世界各国の多くの研究用原子炉において使用実績があり、高い燃焼度まで使用することができるが示されている (KUR では最大燃焼度 35%)。

2. 2. 照射特性

KUCA で使用する燃料のスウェリング量を求めるために、申請書に記載した数値から燃料の燃焼度に対応する F_d を求める。全核分裂数は 1.2. で示した結果と同じである。

最小臨界炉心 : [] kg (U-235) (申請書 添付 8)

U 密度 : [] g/cm^3

$$U \text{ 体積} : [] (g \text{ U-235}) \div [] (U-235 \text{ 濃縮度}) \div [] (U \text{ 密度}) = [] (cm^3)$$
$$F_d = [] (\text{全核分裂数}) \div [] = [] \text{ fissions/cm}^3$$

スウェリングによる体積増加率 $dV/V(\%)$ は、次式によって計算される³⁾。

$$dV/V (\%) = (6.3 \times 10^{-21}) F_d - V_0$$

V_0 : 初期ボイド率 [%]

ボイド率 V_0 を 0 とし、体積増加率を求めると次のようになる。

$$dV/V (\%) = (6.3 \times 10^{-21}) \times [] = [] (\%)$$

スウェリング量は固体減速炉心の燃料より小さい値であり、照射に伴うスウェリング量は無視することができる。すなわち、核分裂で生成した FP は燃板の形状に影響を与えることなく内部に保持されるといえる。

2. 3. 燃料板の応力

燃料板は燃料フレームの溝に挿入して使用しており、他の箇所からの応力が係る可能性は無い。

燃料板の被覆材には、アルミニウム合金である AG3NE (JIS A5052 相当)を使用する。燃料板の中心温度が高く被覆材表面温度が低い場合には燃料板には熱応力が生じる可能性があるが、申請書の添付 10 に記載された運転時の異常な過渡変化の解析の結果によると燃料板の中心の温度上昇は最大でも 2℃以下と非常に低い値であるため、燃料板に異常をもたらすような応力は発生しない。

2. 4. 燃料板の腐食

燃料板の被覆材には、耐食性の高いアルミニウム合金である AG3NE (JIS A5052 相当)を使用する。KUCA では A5052 の被覆材用いた燃料板を 1974 年の設置以来、約 45 年間使用しているが、これまでに燃料板の表面に腐食が認められたことは無いので、今回使用する燃料板についても腐食の恐れはほとんど無いと考えられる。

2. 5. 燃料板のブリスタ

ウランシリサイド燃料のブリスタ発生温度に関しては米国 ORR 炉 (30MW) において照射したフルサイズ燃料要素を照射後に昇温してブリスタ発生温度を確かめた結果があり、そのデータでは、ブリスタ発生温度は 550℃以上であるとしている³⁾。また他にミニプレートによる他の実験結果をも参考にして、ブリスタ発生の下限温度を 515℃と評価している実験結果もある⁴⁾。そのためブリスタ発生を防止するため、運転時の異常な過渡変化が発生した場合においても燃料最高温度は 400℃を超えないこととしている。

申請書の添付 10 に記載された解析の結果によると燃料板の中心の温度上昇は最大でも 0.3℃以下と非常に低い値であるため、ブリスタが発生する恐れはない。

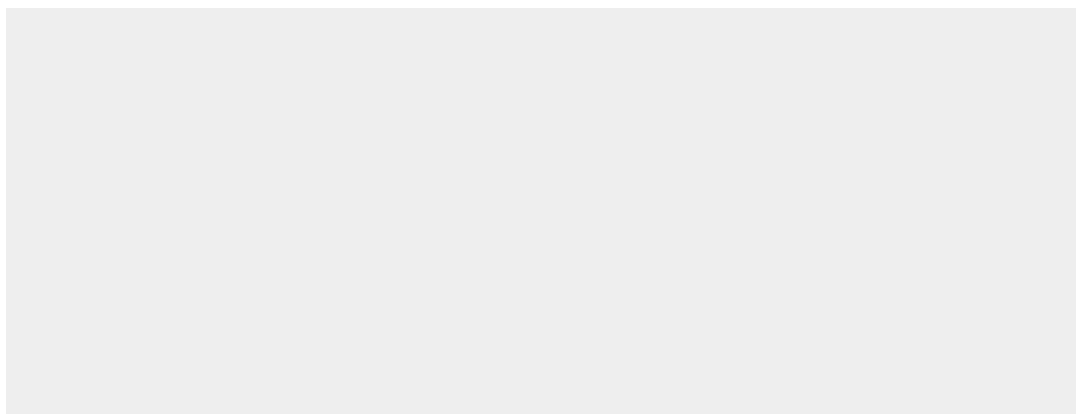


図 11 軽水減速炉心の燃料平板

参考文献

- 1) “U-Mo Fuels Handbook”, ANL-09/31, Argonne National Laboratory (2006).
- 2) D.W. White, A.P. Beard, A.H. Willis, Irradiation behavior of Dispersion fuels, USAEC Report KAPL-P-1849, Knolls Atomic Power Laboratory, 1957.
- 3) U. S. Nuclear Regulatory Commission, "Safety Evaluation Report related to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide-Aluminum Dispersion Fuel for Use in Non-Power Reactors, NYREG-1313 (1988).
- 4) G. H. Hansen et al., "ATR-ETR Rates of Oxide Film Formation on Alminum Fuel Plates," ANS Transaction, Vol.18, p.127 (1974).

(以上)