

論文審査の結果の要旨

氏名 賈 軍軍

安全で効率的な核燃料サイクルの確立は将来のエネルギー・環境問題の改善にとっては極めて重要な課題である。その中で、プルトニウムの平和利用に関しては、3S (Safety, Security, Safeguards) の観点から、ウラン酸化物とプルトニウム酸化物とを混合して軽水炉で利用することが要請されている。本論文は、計算機シミュレーションを系統的に実施することによりプルトニウム酸化物とウラン酸化物を均質に混合し信頼性の高い混合酸化物燃料を製造するための新規プロセスを設計し、従来の粉末混合方法を改善するための手法を提案することを目的とした研究であり、7章から構成される。

第1章では、混合酸化物燃料の製造プロセスの現状と課題についての調査結果をまとめ、遠隔操作、被曝低減、信頼性向上の可能性のある混合酸化物燃料製造プロセスとしてコロイド混合を選定し、本研究の目的を新規のコロイド混合プロセス設計の基礎的検討としている。

第2章では、二成分コロイド系粒子の凝集について、DLVOポテンシャルで粒子間の相互作用を近似し、ランジュバン方程式、スモルコフスキー方程式に基づくブラウン運動のシミュレーション手法についての総括し、粒子凝集の速度論と構造制御の可能性を調べ、計算パラメータの設定手順について説明している。

第3章では、二成分コロイド系で急速凝集の速度論を調べた。粒子間の作用と拡散作用を考えて、Smoluchowski方程式に基づいて二成分系での衝突kernelを導き、選択凝集を理解した。また、シミュレーションから初期安定性が一番不安定な成分から決まるということを明らかにした。シミュレーション結果によって、急速凝集でも遅速凝集でも、二成分コロイド混合溶液の初期の凝集は一番不安定な成分から決まるということが理解した。長い時間後で、凝集構造の平均配位数が変わらなく、凝集の始めから最後まで、各体積率で凝集構造の平均配位数が同じです。非常に薄い溶液で拡散凝集より集合体はチェーンの場合が多いので、平均配位数の理論値はこの式で表すことができます。シミュレーションの値と比べると、はじめ時は大体同じで、長い時間で比較すると、理論値より大きくなります。可能な原因はclusterのgeometric効果です。二成分系で、最も重要なパラメータは各粒子半径の比率と各粒子数の比率である。今研究で、違う粒子半径の比率と粒子数の比率で、違う体積率下で凝集構造を分析し、mechanism mapを作成した。半径比率による長距離構造の変化はフラクタル次元を使って分析した。最後の凝集構造中で、小さい粒子のサイズが小さくなると、小さい粒子を考えなくて大きい粒子にのみ着目した場合のフラクタル次元が大きくなることがわかった。即ちサイズの差が大きくなると、大きい粒子の構造と単成分の構造が類似になる。この現象は大きい粒子のパーコレーションと繋がりがあると考えた。また、各体積比と粒子数の比率mechanism mapから、数の比が大きいとき、大きい粒子が小さい粒子の中に良く分散して、数の比が低いときに、パーコレーションになる。平均配位数より得たものですが、フラ

クタルという指標から凝集構造を分析します。面白い結果は、二成分系で、大きい粒子の総体積が小さい粒子の総体積より小さい時に、最後の凝集構造で大きい粒子のフラクタル現象がなくなる。

第4章では、二成分コロイド系での遅速凝集の速度論の検討で、初期安定性が一番不安定な成分から決まること、塩分の調整によって、選択凝集や非均質凝集を制御することができ、最後の混合構造に影響することを示し、均一な混合酸化物燃料の製造が可能であるとの評価を行っている。

第5章では、凝集構造を動径分布関数と散乱因子、構造の比較にはフラクタル分析が有効であることを示し、二成分系の混合に関して体積比を制御することによりフラクタル構造を消滅させ空間相関性のない均一の混合状態が実現する事を示している。

第6章では、以上のシミュレーション結果の混合酸化物燃料製造プロセスへの応用を検討している。MOX燃料の生産に関し、溶液からの簡略化混合プロセスの設計支援ツールを開発しました。Case Studyで、PuO₂粒子のサイズがUO₂粒子より小さい時に、PuO₂粒子のSpotsが少ないということがわかった。次に以上の研究結果が展開して、実際のMOX材料設計への道筋を明らかにした。現存粉末混合で生産過程が長く、生産システムでは極めて厳しいTQCが実施されている。混合状態の判断ですが容易ではない。実に、MOX燃料の生産過程で不可測因子が多く、粉末の形やサイズ、粘着材と潤滑材などによって混合状態は大きく左右する。また焼結体を作るまでのプロセスDBのデータモデル化は極めて複雑である。本研究で、コロイド混合の概念を利用し、粘着材や潤滑材全部なくして混合し、造粒過程も省略した。粉末混合による生産流れを比べると、生産過程の情報化が可能になる。このため、本研究で情報化コンピュータ・システムを構築した。システム・ソフトウェアはデータベースとシミュレーション・モデリングから構成した。(具体的には論文を参考してください。)

実際のMOX燃料が原子炉の型によってPuの含有量が変わることで、改良したシステムは、生産の最初の段階で、プラントに要求されるPuの量を入力し、コンピュータ・システムで以前成功した例をさがし、ない時に、データベースから近いデータを提供し、シミュレーションしてmechanism mapを提供する。作業員がこのmapを従って、実験や生産をすることである。最後に、実験データを取って、シミュレーション手法から確かめ、シミュレーションの結果によって、実験条件を探して、実験結果よりシミュレーション・モデリング中の仮説などを改良し、両方flexibleに組み合わせして、いい材料をつくるまでメカニズムmapを提案するという戦略である。

MOX燃料の材料設計は、三つの目標がある。ひとつはPuO₂が混合体中にhomogeneous分布である。Puコロイド分布の均一さを示すため、Homogeneous Indexを定義した。二番目はPuO₂のspotsが少ないである。PuO₂コロイド集合体のサイズからspotsを表すことができる。三番目は放射性液体排出を少なくなるため溶液の体積が少ないことです。この三つの要求により目的関数を作ります。この関数の係数は実験から決定します。

最後に、一つをCase Studyを計算した。結果からみると、PuO₂が低い相対濃度と高い体積率の条件でPuO₂分布の均一さがよいである。また、PuO₂コロイドがUO₂コロイドより小さいサイズになると、PuO₂コロイド同士が凝集する確率は小さいである。MOX燃料生産として、溶液の量が少ない時に、PuO₂のspotsが少なく、混合体中に均一な分布

になる。この結論は生産過程の効率化の指針となる。

第7章は結論で、二成分コロイド混合溶液中で凝集混合については初期安定性が一番不安定な成分が支配的で、体積比や塩分の調整によって凝集過程と混合構造を制御できることを示し、

MOX燃料の生産に関して、溶液からの簡略化混合プロセスの設計支援ツールを開発した。Case Studyで、PuO₂粒子のサイズがUO₂粒子より小さい時に、PuO₂粒子のSpotsが少ないという特長がある。この方法の利点としては、混合を溶液で行い、遠距離操作ができ、作業員の放射性被爆が少なくなる。さらに、粘着剤や潤滑剤もなく、予備加熱が不要になり、工程は短くなる。

材料開発のための本格的な仮想実験システムでは、広い時空間スケールをカバーする必要があります。現象の時間スケールと空間スケールとに応じて、適切なモデルかを行い、それらを組み合わせてマイクロ世界とマクロ世界とをつないでいくという戦略が必要です。将来、集合体の乾燥、焼結についての過程を取り扱う mesoscopic simulation と流動に関する数値解析を加えれば、将来、MOX燃料の computer-aided design を実現することが期待できる。