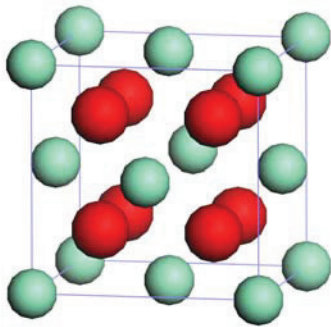


酸化物：結晶構造



蛍石型構造

	ThO ₂	UO ₂	PuO ₂
結晶構造	CaF ₂	CaF ₂	CaF ₂
格子定数 (nm)	0.5597	0.5471	0.5396
原子密度 (10 ⁻²⁶ /m ³)	2.28	2.44	2.55

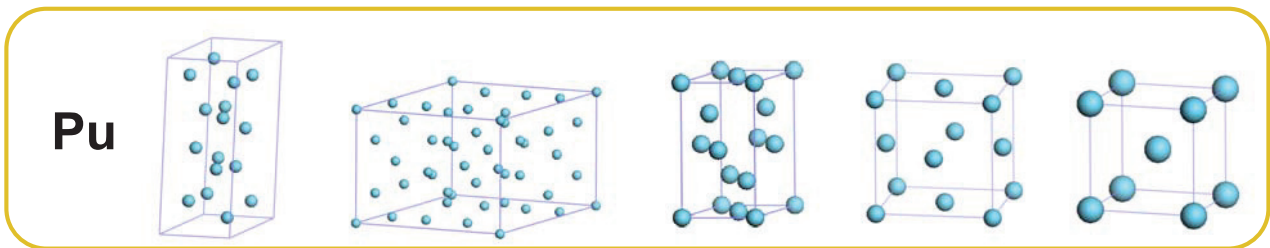
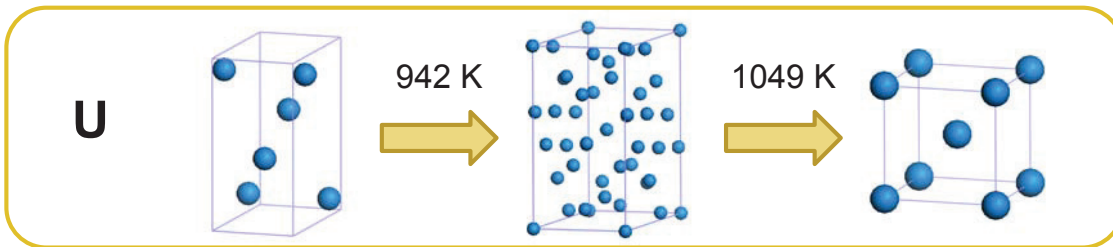
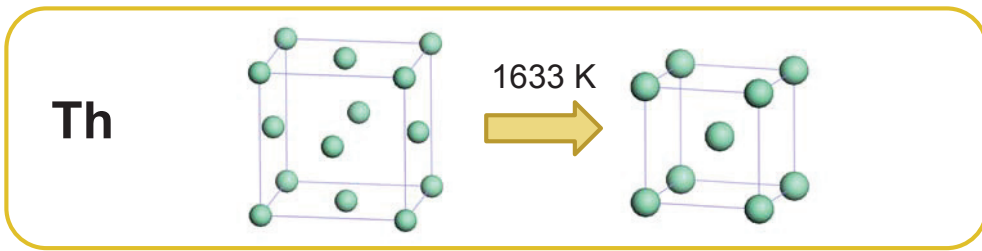
- いずれも室温から融点まで蛍石型構造をとる
- 格子定数はThO₂ >> UO₂ > PuO₂

酸化物：熱・機械的特性

	ThO ₂	UO ₂	PuO ₂
融点 (K)	3643	3123	2623
熱膨張係数 (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	9.67	10	11.4
熱伝導率 (W/m/K)	14 (300 K) 6.2 (773 K) 2.4 (1773 K)	9.8 (300 K) 4.8 (773 K) 2.4 (1773 K)	4.48 (773 K) 1.97 (1773K)
ヤング率 (GPa)	138-249	193-214	-

- ThO₂は極めて高い融点と熱伝導率、低い熱膨張係数を示す
→ 核燃料物性としていずれも好ましい

単体金属：結晶構造



単体金属：結晶構造

	Th	U	Pu
結晶構造	FCC (-1633 K) →BCC (-1960 K)	斜方晶 (-942 K) →正方晶 (-1049 K) →BCC (-1408 K)	単斜晶 (-399 K) →単斜晶 (-478 K) →斜方晶 (-591 K) →FCC (-725 K) →BCT (-749 K) →BCC (-913 K)
格子定数 (nm)	0.5084 (FCC) 0.4110 (BCC, 1723 K)	- 0.3534 (BCC, 1060 K)	0.4635 (FCC, 653 K) 0.3638 (BCC, 773 K)
原子密度 (10 ⁻²⁶ M/m ³)	3.04 (FCC) 2.88 (BCC)	- 4.57 (BCC)	4.01 (FCC) 4.16 (BCC)

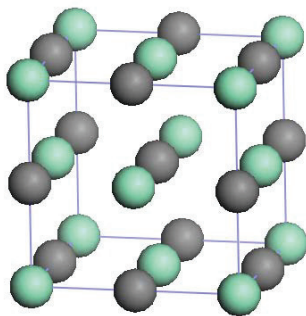
- Thは広い温度範囲でFCC構造をとる
→ 相変態を考慮する必要がなく、また異方性がないため好ましい
- BCC領域で比較すると格子定数はTh >> Pu > U

単体金属：熱・機械的特性

	Th	U	Pu
融点 (K)	1960	1408	913
熱膨張係数 ($10^{-6} K^{-1}$)	11.4 (300 K) 14.9 (1223 K)	14 (300 K) 25 (900 K)	59 (300-400 K) -8.8 (FCC) 25.6 (BCC)
熱伝導率 (W/m/K)	49.1 (300 K) 50.4 (700 K) 51.5 (1000 K) $\rho=1.3 \times 10^{-7} \Omega m$	27.6 (300 K) 36.4 (700 K) 43.9 (1000 K) $\rho=3.0 \times 10^{-7} \Omega m$	-
ヤング率 (GPa)	72.4	203	-

- Thは高い融点、低い熱膨張率、高めの熱伝導率を示す
→ 核燃料物性としていずれも好ましい

炭化物/窒化物：結晶構造



岩塩構造

- 格子定数
ThC >> PuC > UC
ThN >> PuN > UN

	ThC	UC	PuC
結晶構造	NaCl	NaCl	NaCl
格子定数 (nm)	0.5338	0.4961	0.4973
原子密度 ($10^{-26} M/m^3$)	2.63	3.28	3.25

	ThN	UN	PuN
結晶構造	NaCl	NaCl	NaCl
格子定数 (nm)	0.5159	0.4889	0.4905
原子密度 ($10^{-26} M/m^3$)	2.91	3.42	3.39

炭化物：熱・機械的特性

	ThC	UC	PuC
融点 (K)	~2773	~2673	1933
熱膨張係数 (10^{-6} K^{-1})	5.8 (300 K – 1773 K)	10-11	-
熱伝導率 (W/m/K)	35 (300 K) 37 (773 K)	32 (300 K) 7.3 (773 K) 7.6 (1273 K)	~3 (773 K) ~18 (1773 K) (不純物含有)
ヤング率 (GPa)	174 (calc)	225	-

- データが少ないものの、ThCは低い熱膨張率、高い熱伝導率を示す

窒化物：熱・機械的特性

	ThN	UN	PuN
融点 (K)	3193 (N_2 2.6 atm)	3078	~2873
熱膨張係数 (10^{-6} K^{-1})	8.2 (1073 K-1573 K)	7-8 (500 K-1000 K)	11-17 (500 K-1500 K)
熱伝導率 (W/m/K)	35-51 (300 K) 37-49 (773 K)	~14 (300 K) ~20 (773 K) ~24 (1273 K)	11-12 (700 K-1500 K)
ヤング率 (GPa)	262 (calc)	268	-

- データが少ないものの、ThNは極めて高い熱伝導率を示す

トリウム燃料物性の特徴・まとめ

ThO₂ベース酸化物燃料

- UO₂と比較して高い融点、低い熱膨張率、高い熱伝導率を有する
- (Th,U)O₂は0.9-56 GWd/tで0.1 - 5.2 %の小さいFPガス放出率を示す
- Th-O系で安定な化合物はThO₂のみであり、酸素不定比性が小さい

Thベース金属燃料

- Uと比較して高い融点を持ち、広い温度領域でFCC構造をとるほか、低い熱膨張率、高い熱伝導率を有する
- Uベース燃料で見られる照射による異方性成長がない
- Uに比べ小さいスエリング率、同程度のFPガス放出率を示す

ThC/N炭化物・窒化物燃料

- UC/Nと同定との融点、熱膨張率、高めの熱伝導率を有する
- UC/Nと比較して酸化や吸湿に対する化学的反応性が高い

トリウム酸化物燃料

濃縮UあるいはPuを2-10 at%固溶させた(Th,U/Pu)O₂が用いられる

(Th,U)O₂固溶体の物性評価

- 結晶構造: 完全固溶体を形成、格子定数は線形に変化¹
- 熱膨張率: ほぼ組成に従って線形に変化²
- 熱伝導率: 固溶により大きく減少、主にU<10 at%で報告あり³

1. J. Cohen (1966), S. Hubert(2006)など

2. K. Bakker et al., J. Nucl. Mater., 96 (1981) 305.など

3. M. Murabayashi (1975), C. G. S. Pillai (2000), C. Cozzo (2010)など



(U,Pu)O₂系と比較してデータ量は極めて少なく、幅広い組成範囲、機械的特性、またFPを含む相の研究は十分になされていない

阪大・福井大での取り組み(JST公募)

放電プラズマ焼結 (SPS) 法を用いて高密度の(U,Th)O₂ペレットおよび模擬FPを添加した(U,Th)O₂ペレットを作成し、その高温燃料物性を評価する



トリウム酸化物燃料の基礎燃料データを収集

同時に低温物性の測定および計算科学による物性評価を行い、燃料実用化に必要な安全性評価のための物性データベースを構築する



幅広い燃料物性・相状態をシミュレーションする手法の構築

これまでの実施項目

高密度(Th,U)O₂ペレットの作成

固相反応により(Th,U)O₂粉末合成

→SPS法により高密度ペレット作成

熱的特性評価

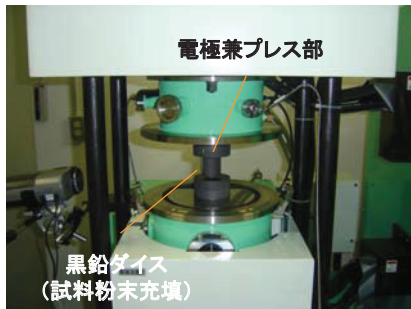
- 低温比熱容量: 緩和法 (2 K-300 K)
- 高温比熱容量: 示差走査熱量法 (400 K-1000 K)
- 熱膨張率: 示差法 (300 K-1000 K)
- 熱伝導率: レーザーフラッシュ法 (300 K-1000 K)

機械的特性評価

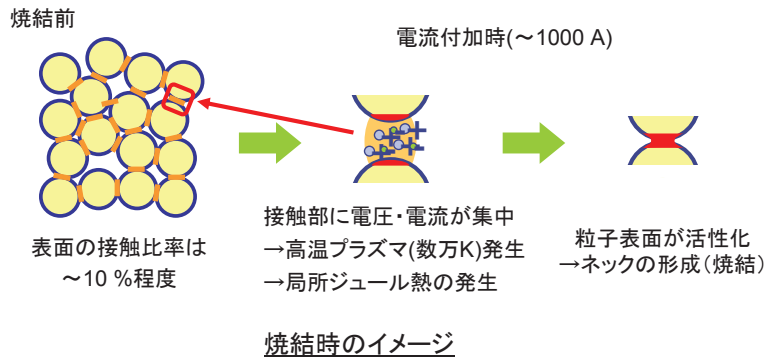
- 弾性定数: 音速から導出 (300 K)
- ビッカース硬度: ビッカース試験 (300 K)

放電プラズマ焼結法について

SPS; Spark Plasma Sintering, 放電プラズマ焼結



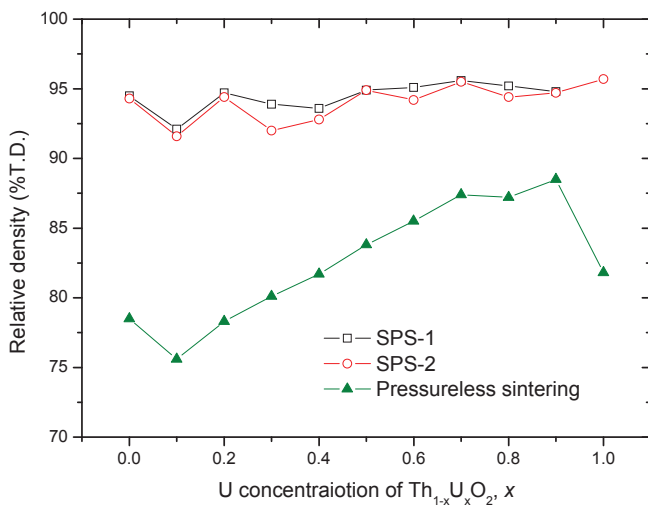
放電プラズマ焼結装置



- 試料中に電流を流して加熱することにより、粉末表面が洗浄・活性化され、その結果焼結が促進され、容易に高密度試料を得ることが可能

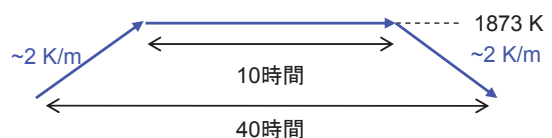
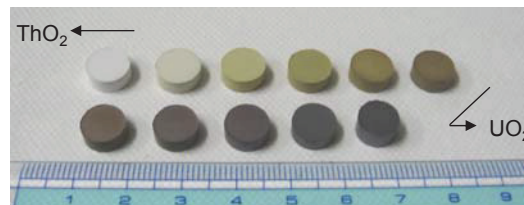
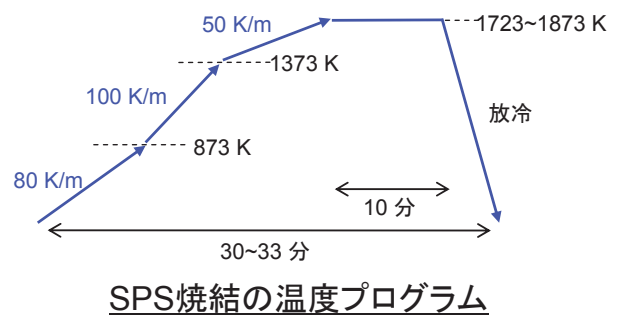
融点が非常に高く、難焼結性である ThO_2 含有試料の焼結ペレット作成に適していると考えられる

試料密度の比較



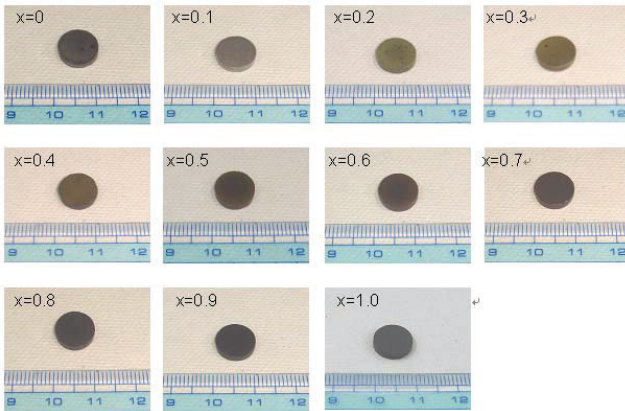
作成試料の理論密度

- 低い焼結温度、ごく短い焼結時間にも関わらず、90 %T.D.以上の高密度が得られている

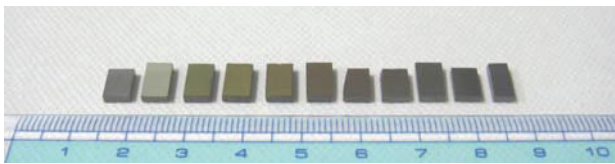


常圧焼結試料外観と温度プログラム

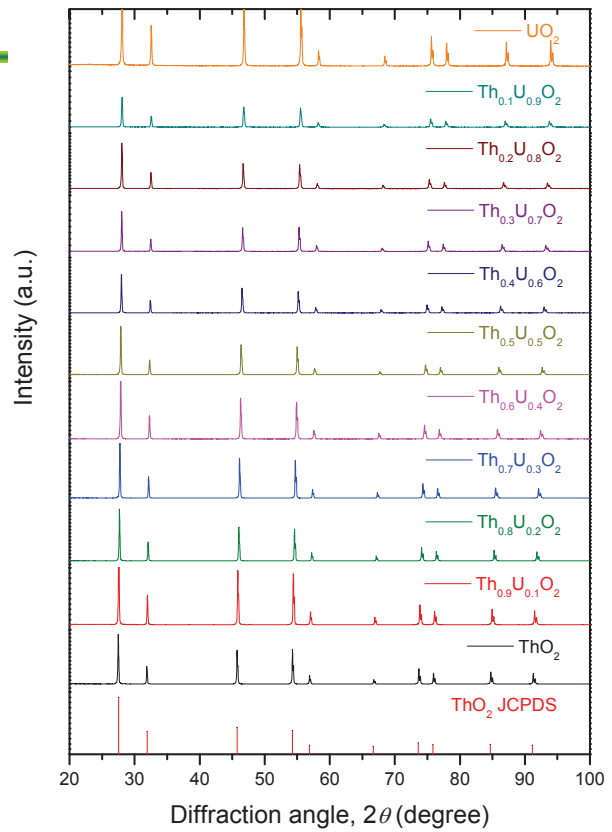
外観・XRD



SPS処理後のペレット試料の外観

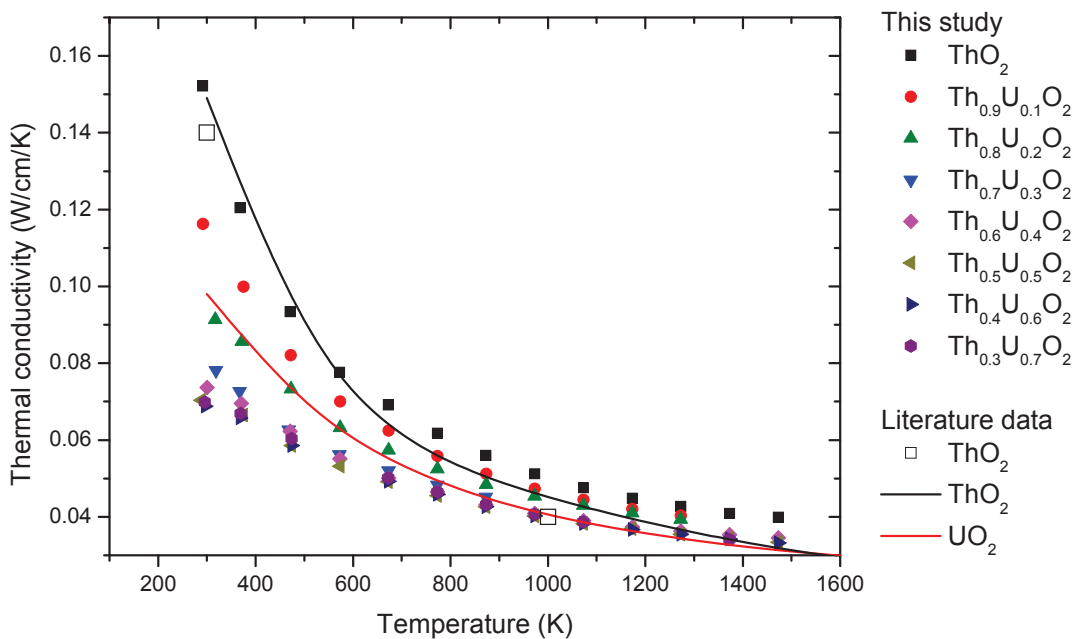


切断・研磨後試料の外観



XRDパターン

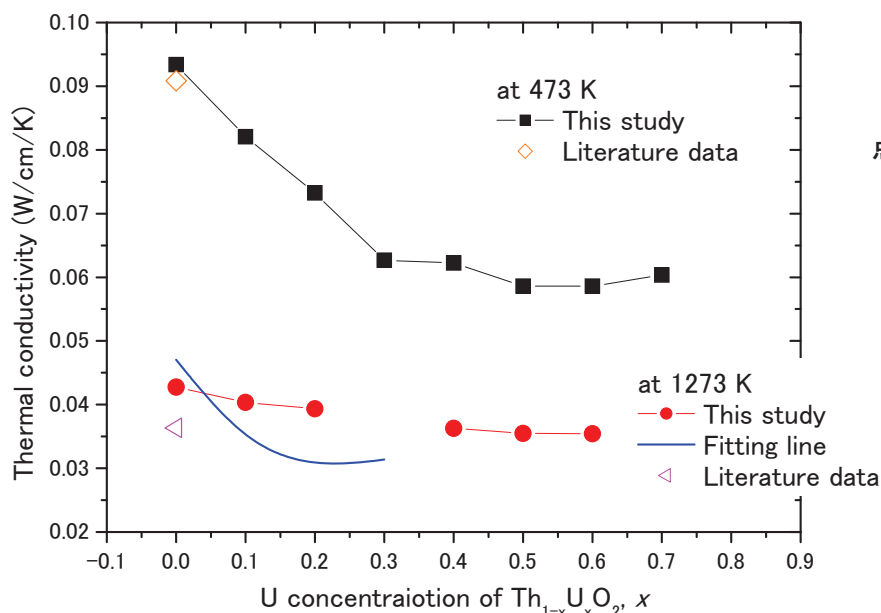
熱伝導率



密度補正後*熱伝導率の温度依存性(比熱容量は報告値を使用)

*密度補正にはMaxwell-Euckenの式を用いた($\beta=0.5$)

熱伝導率



点欠陥散乱の緩和時間:

$$\frac{1}{\tau_A} \propto x(1-x) \left\{ \left(\frac{\Delta M}{M} \right)^2 + \varepsilon_s \left(\frac{\Delta r}{r} \right)^2 \right\} \xi^4$$

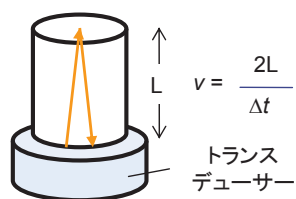
$$\propto x(1-x)$$

x=0.5近傍で最大値

熱伝導率のU濃度依存性

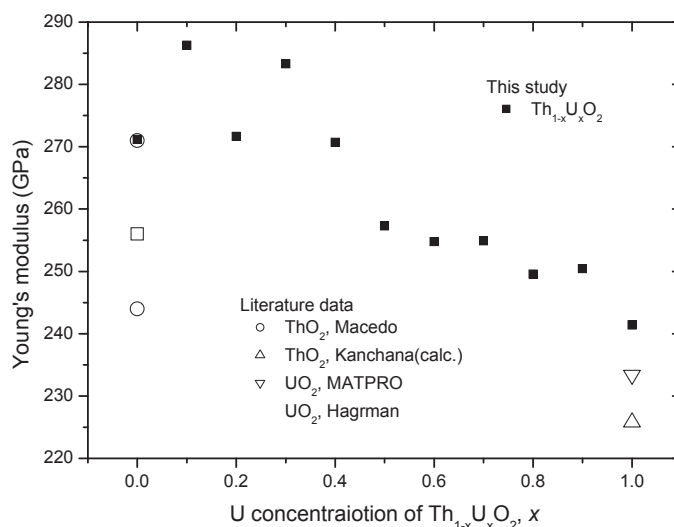
- ThO_2 、 UO_2 単体では報告値とほぼ等しく、 $x=0.5$ 程度までU濃度とともに減少した

弾性定数(ヤング率)



$$E = \frac{3\rho v_s^2 (v_L^2 - 4/3 v_s^2)}{v_L^2 - v_s^2} \quad \theta_D = \frac{h/k(9N/4\pi V_c)^{1/3}}{(1/v_L^2 + 2/v_s^2)^{1/3}}$$

音速測定 of 概略(室温のみ)

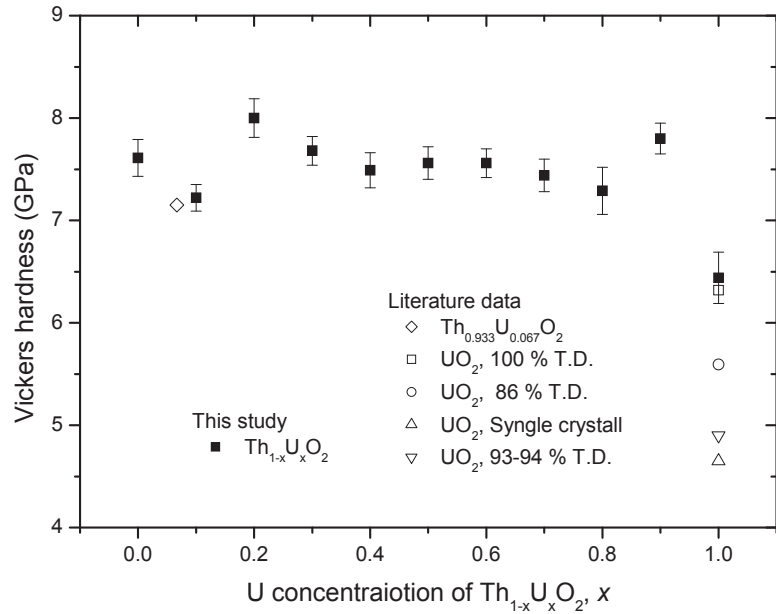
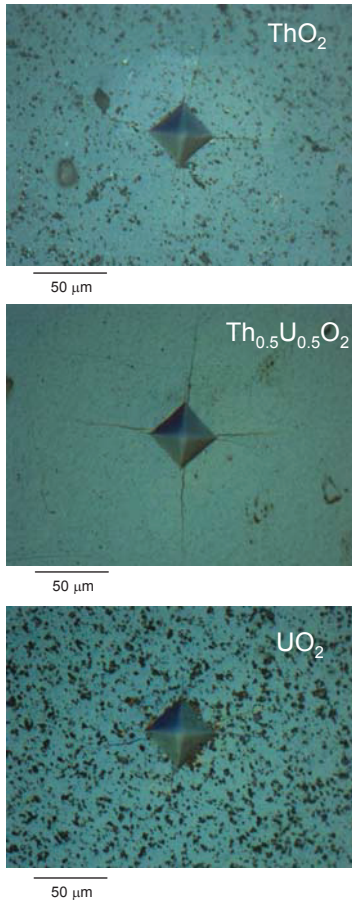


密度補正後*ヤング率のU濃度依存性

*密度補正には UO_2 で用いられている式、係数を用いた

- ヤング率は報告値より高め of 値を示し、ばらつきが大きいものの、U濃度とともに減少する傾向が見られた

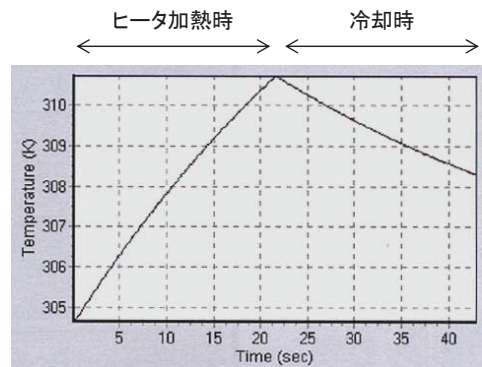
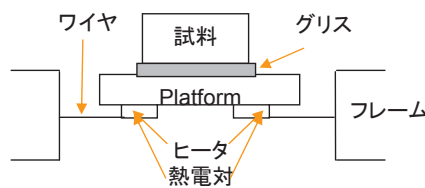
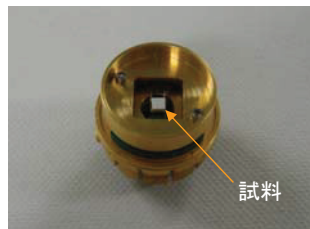
ビッカース硬度



ビッカース硬度のU濃度依存性

- UO_2 は粒径が小さいためか報告値より高めの値を示し、Th含有試料は硬度が大きい傾向を示した

低温比熱容量



加熱・冷却時の緩和時間を評価

$$C_p \frac{dT}{dt} = -K_w(T - T_b) + P(t)$$

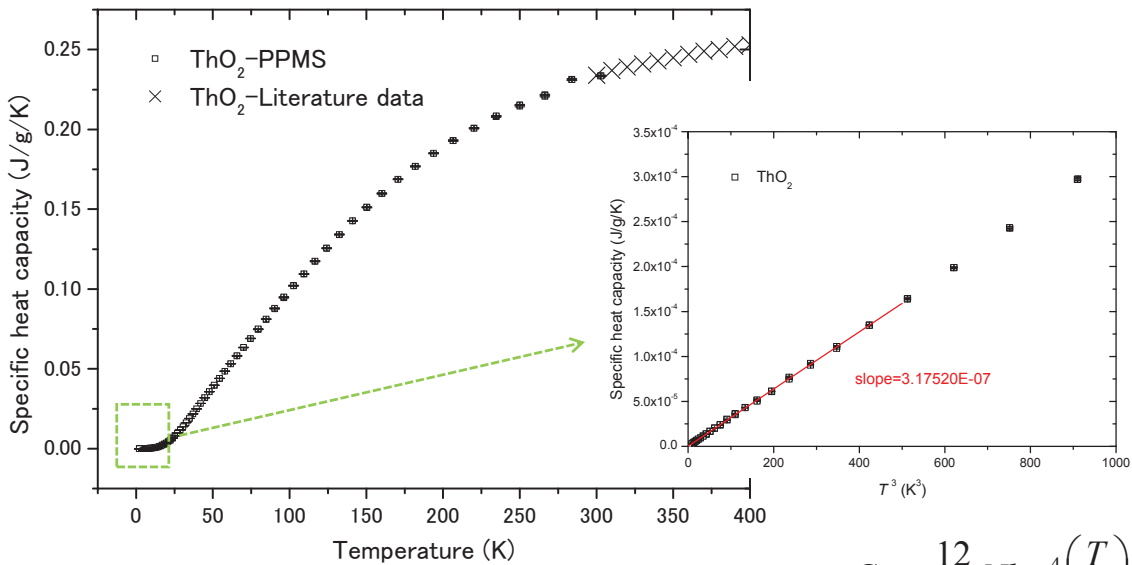
$$\tau = C_p / K_w$$

比熱容量測定の概略

(左)PPMS装置* (右)試料設置部外観

*日本カンタム・デザイン社製

低温比熱容量



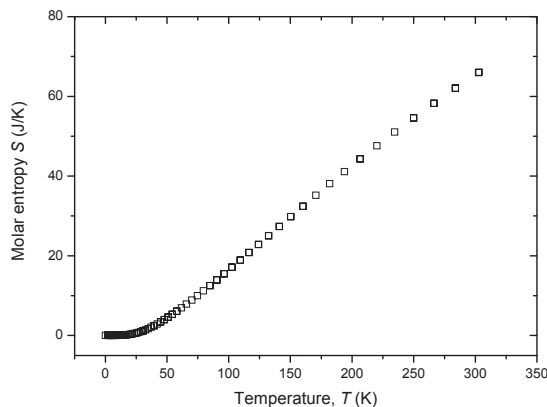
低温比熱容量の温度依存性

$$C_V = \frac{12}{5} Nk\pi^4 \left(\frac{T}{\theta}\right)^3$$

→ $\theta = 411 \text{ K}$

低温比熱からの熱力学データ算出

S_0 (298.15 K)
= 65.25 J/K ⇔ 64.94 J/K (10 Kからの測定)



モルエントロピーの温度依存性

$$\Delta G = V \Delta P - S_{298} \Delta T$$

→ 熱力学データの導出
わずかなずれが相状態に大きく影響する

化学平衡計算

高温環境下での相状態評価

- ThO_2 の低温域における比熱データから熱力学データを導出できた
→ 報告例の少ない(Th,U) O_2 系燃料の高温における相状態の評価が可能

(Th,U)O₂の合成と評価：まとめ

- (U,Th)₂粉末を合成し、SPS法による焼結体の作成を試みたところ、焼結温度1873 K、焼結時間40分以内とごく低温・短時間の条件で90 %T.D.以上の高密度焼結体を得られた
- 得られた試料について熱・機械物性を測定したところ、概ね過去の報告値と近い値が得られた

SPS法による高密度試料の作成および幅広い組成の(U,Th)O₂試料についての燃料物性データの取得ができた

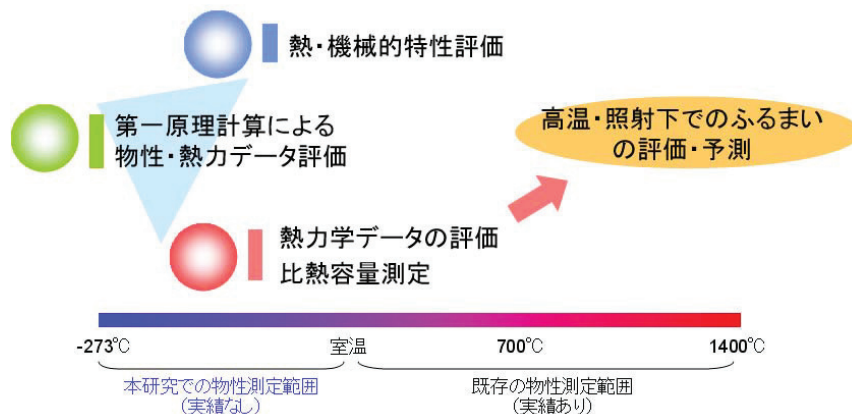
- ThO₂についてはじめて10 K以下の比熱容量を測定し、またここから熱力学データの算出を行なった

低温比熱容量の測定および熱力学データの実験からの導出方法が確立できた

今後の予定：データベースの拡充

安全性評価のためのデータベース：広範囲におよぶ温度、FP依存性が必要
→本事業のみで全てのデータの取得は難しい

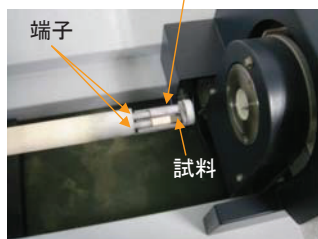
- (U,Th,Nd)O₂, (Th,Ce)O₂, FP(Th化合物)の合成と物性測定
- 第一原理計算による熱力学データの算出(計算科学の適用)



熱膨張率

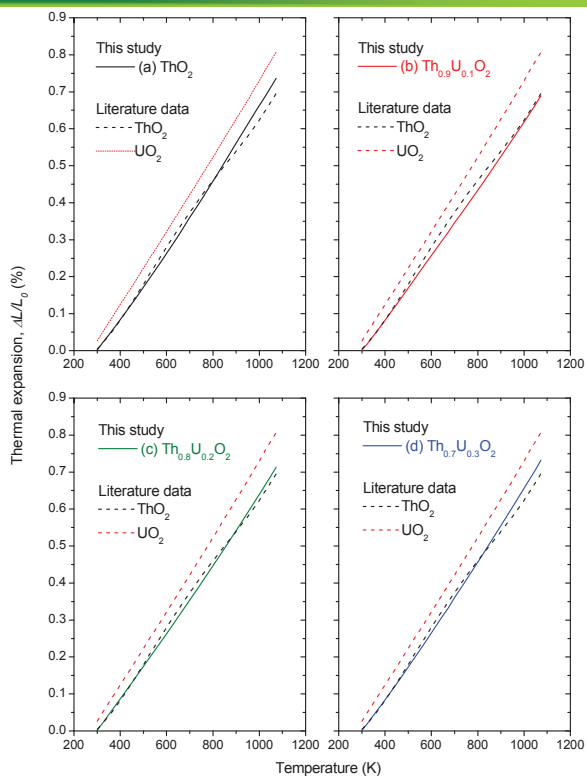


アルミナ標準試料



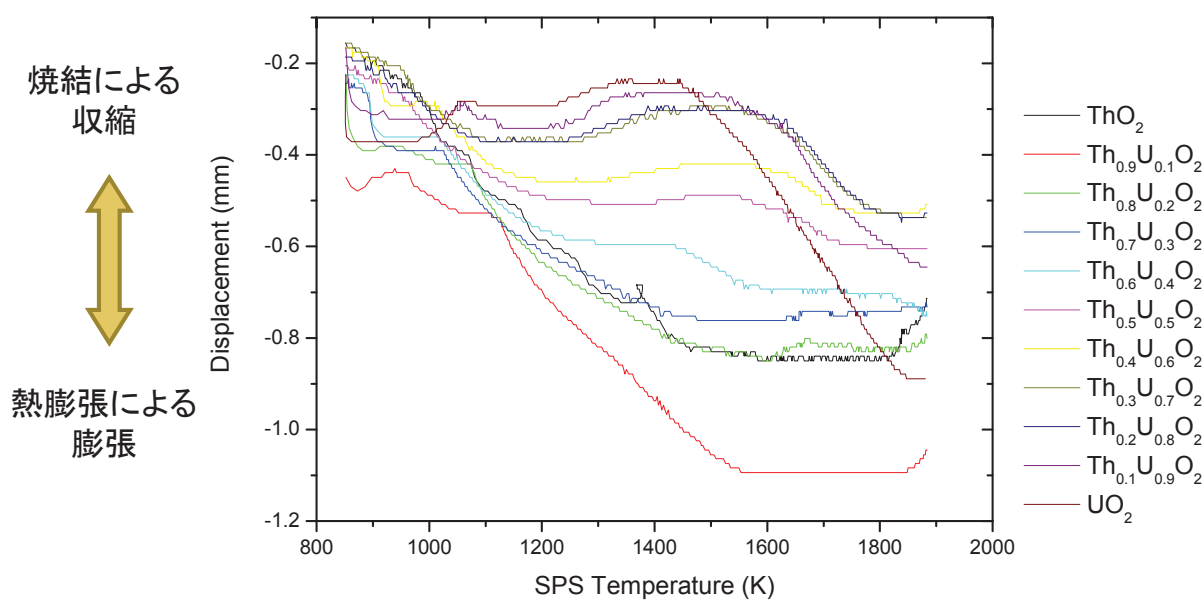
熱膨張率既知のアルミナと試料の伸びを示差法で測定する

熱膨張計外観



線熱膨張係数の温度依存性

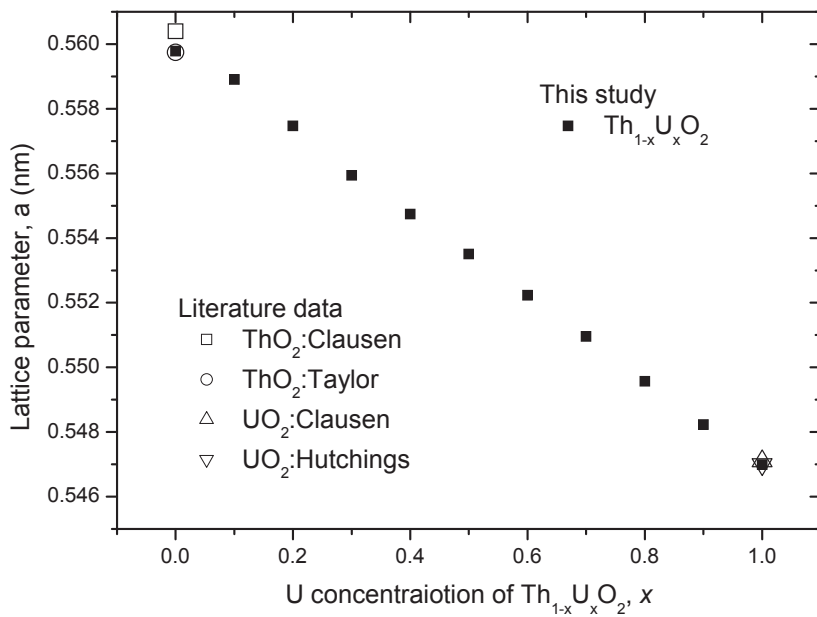
焼結時の挙動



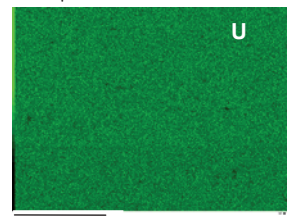
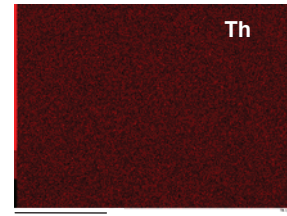
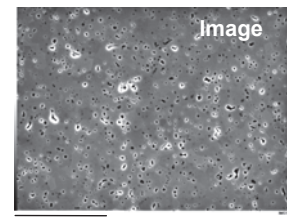
SPS焼結時の温度-電極部変位関係

- Th量の増加に従って焼結開始温度が増加

格子定数と元素分布



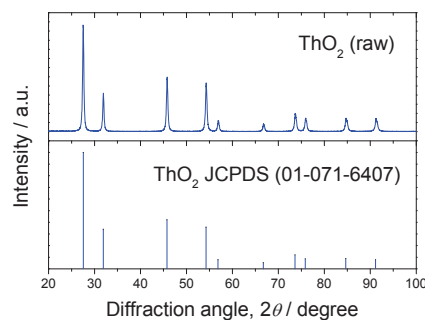
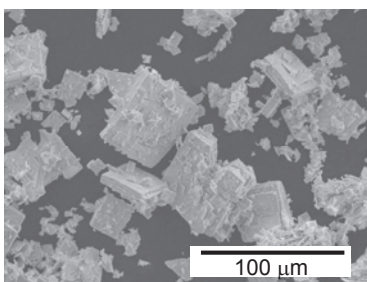
作成試料の格子定数



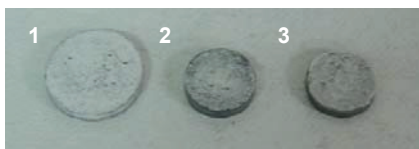
Th_{0.5}U_{0.5}O₂の元素マッピング

- 過去の報告と同様にVegard則に従い、元素マッピングからも均質な試料が得られている

ボールミル未処理粉末の焼結



阪大所有のThO₂粉末とそのXRDパターン



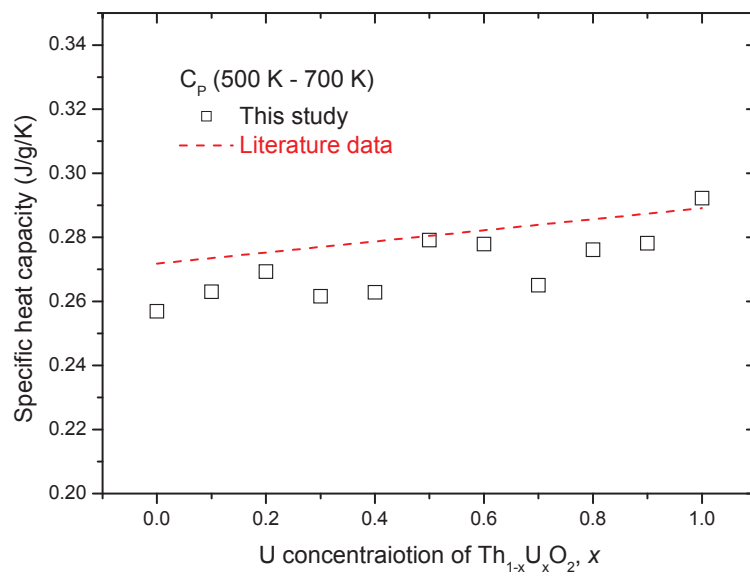
ThO₂焼結ペレット外観

試料	ダイス径	焼結圧力	焼結温度	試料密度
1	20 mm	50 MPa	~1600	85 %T.D.
2	15 mm	30 MPa	~1723	84 %T.D.
3	15 mm	50 MPa	~1723	93 %T.D.

- ThO₂粉末について、ボールミル処理を行わなくても高密度試料が得られた

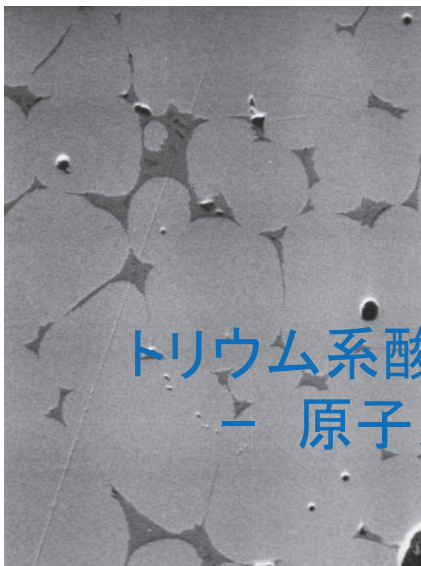
造粒等の前処理なしに高密度(Th,U)O₂焼結体を得られる

高温比熱容量



比熱容量のU濃度依存性

- ほぼ組成に比例する傾向を示し、また高温で報告値とのずれが見られた



トリウム系酸化物燃料の調製と照射挙動 — 原子力機構の成果の紹介 —

平成22年11月18日

独立行政法人 日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究部門
再処理残渣・ガラス基礎化学研究グループ

赤堀 光雄

原子力機構(旧原研)におけるトリウム燃料研究

○トリウム燃料を取り巻く環境の変化

- 多目的高温ガス炉の研究開発(S44~)
- 米国新原子力政策(カーター大統領、核不拡散の強化)(S52)
- INFCEの発足



○トリウム燃料研究室(S52~S62)

- 高温ガス炉用燃料の調製
 - ゼルゲル法
 - 被覆粒子燃料
- トリウム系酸化物燃料の特性研究
 - FP化学形
 - 酸素ポテンシャル
- トリウム系酸化物燃料の照射挙動
 - FP放出(希ガス、金属FP)
 - 寸法変化
 - 被覆粒子燃料のキャプセル照射試験

トリウム燃料の動力炉への利用

炉型と化学形

Th-²³³U、²³⁵U又はPu

- 水炉(軽水炉、重水炉) * 軽水増殖炉(LWBR)

- ThO₂-UO₂

- 高速炉

- ThO₂-PuO₂、ThC₂-PuC₂、ThN-PuN、Th-Pu

- ThO₂、ThC₂(ブランケットとして)

- 高温ガス炉

- ThO₂-UO₂、ThC₂-UC₂

- 水均質炉

- ThO₂-UO₂懸濁液

- 熔融塩炉

- ThF₄-UF₄(-LiF-BeF₂)

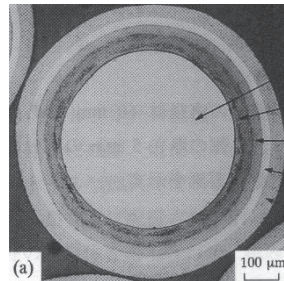


表 高温ガス炉の主要目と特徴

項目	原子炉		
	フォートセント・ブレイン炉(米田)	AVR (西独)	THTTR-300 (西独)
目的	原型炉(発電)	実験炉(発電)	原型炉(発電)
炉形式	一体型	一体型(ウライ)	一体型
定積運転開始時期(年)	1979.7.1	1988.5.9	1987.6.1
熱出力/電気出力(MW)	842/330	46/15	750/300
プラント効率(%)	39.2	28.7	41.8
原子炉入口/出口温度(℃)	400/782	275/950	250/750
一次系冷却材圧力(MPa)	4.9	1.08	3.9
燃料の種類	ブロック型 UC ₂ -ThC ₂	球型 UO ₂ -ThO ₂	球型 UO ₂ -ThO ₂
炉心径/高さ(m)	5.9/4.7	3.0/2.8	-
燃焼層(MWd/l)	1.0×10 ⁴	1.37×10 ⁴	1.1×10 ⁴
出力密度(MW/m ³)	8.3	2.8	8.0
原子炉容器の種類	PCRV	鋼製	PCRV
原子炉容器内径/高さ(m)	-	5.8/24.9	24.8/25.5
特徴	・ブロック型の発電用原型炉 *1988年8月18日閉鎖	・20年間の運転実績 ・出口温度950℃で5年間の運転実績-核熱利用の可能性の実証 ・高稼働率、低放射線被曝の実証 ・高い固有の安全性の実証 ・1988年安全性実証試験を完了した *1988年12月閉鎖	・ベブルベットの発電用原型炉 *1988年8月29日閉鎖
メーカー	ゼネラル・アトムックス(GA)	BBC/HRB	BBC/HRB

トリウム系酸化物燃料の調製

トリウム系酸化物燃料

- ThO₂、(Th,U)O₂、(Th,Pu)O₂

- 高温安定性(高融点、化学的安定性)
- 反面、焼結性が悪い



高温ガス炉、軽水炉、高速炉用燃料

- 高温ガス炉

- ゾルゲル法による粒子燃料の製造
 - ThO₂、(Th,²³⁵U)O₂燃料核

- 軽水炉、高速炉

- 粉末冶金法によるペレット燃料の製造
 - ThO₂、(Th,U)O₂、(CaO、Nb₂O₅、Y₂O₃)-ThO₂

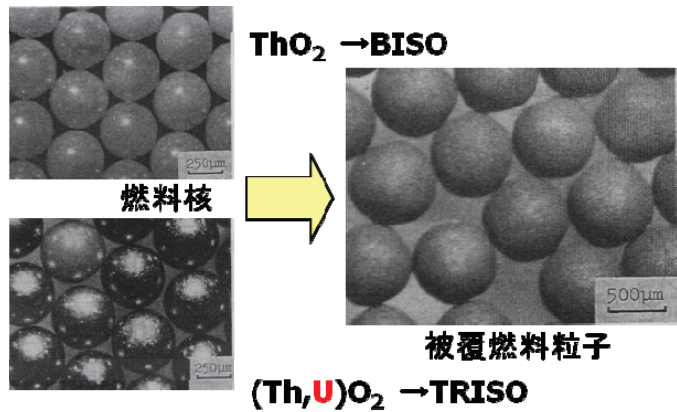
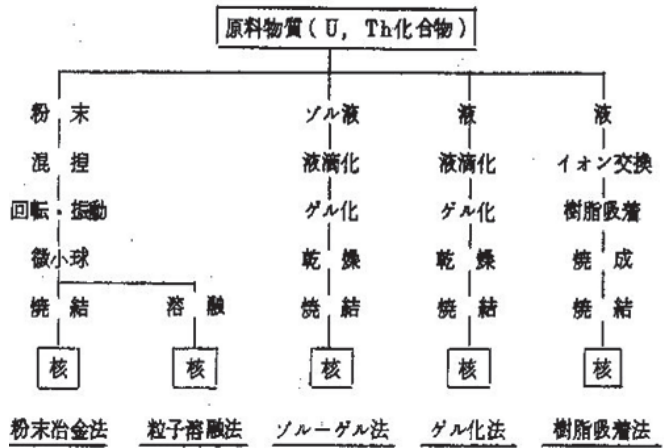
高温ガス炉用トリウム系酸化物燃料の調製

燃料核の製法

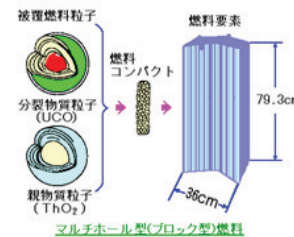
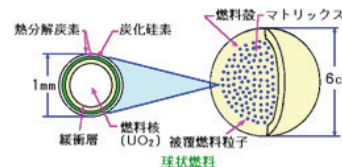
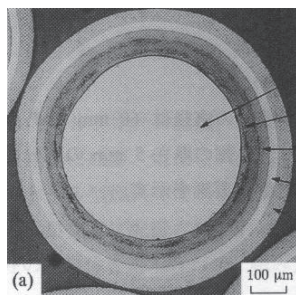
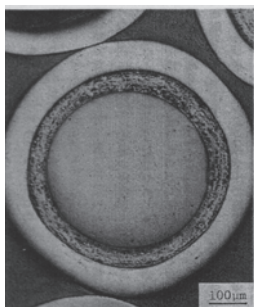
- 粉末冶金法
 - DRAGON (UC_2, UO_2)
- 熔融法
 - FSVR ($UC_2, 2450^\circ C$)



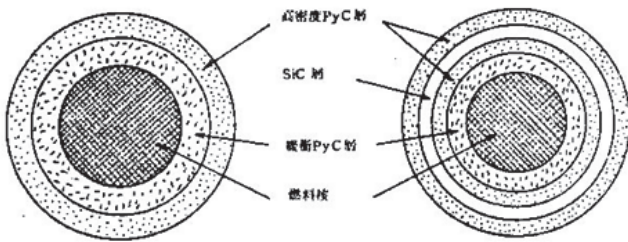
- ゲル化法
 - 外部ゲル化法
 - SNAM法
 - 内部ゲル化法
 - H-法 (HMTA添加)
- ゾル-ゲル化法



高温ガス炉用トリウム系酸化物燃料



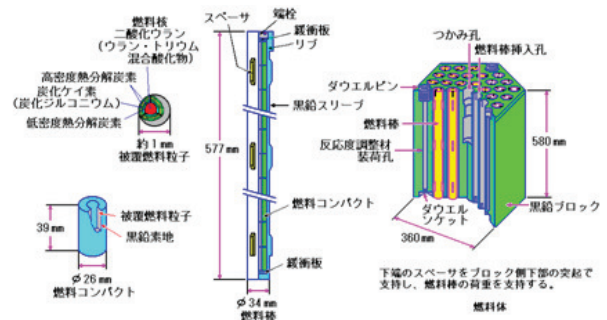
高温ガス炉用の球状燃料とマルチホール型(ブロック型)燃料



BISO 被覆粒子

TRISO 被覆粒子

実用されている被覆燃料粒子

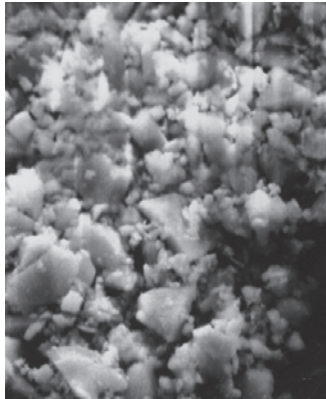


高温ガス炉燃料の構造(3) ピンイン・ブロック型燃料

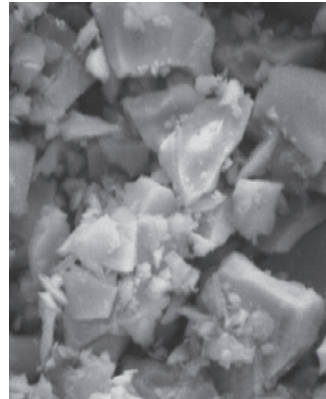
【出典】 日本原子力研究所高温工学試験研究開発部 (編) : 高温工学試験研究の現状1996年、日本原子力研究所 (1996年10月) . p.12

トリウム系酸化物燃料の調製(ペレット燃料)

- 焼結性が悪い(高密度なペレット燃料の調製が困難)
 - 焼結性の良い粉末の調製
 - 微細であること
 - 活性であること
 - シュウ酸塩沈殿法
 - $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 + 2\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \rightarrow \text{Th}(\text{C}_2\text{O}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$
 - $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \rightarrow \text{UO}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$
 - ↓
 - ゾル NH_4OH 共沈法
 - $\text{ThO}_2\text{-UO}_3$ 混合ゾル + $\text{NH}_4\text{OH} \rightarrow \text{Th}(\text{OH})_4 + \text{UO}_3 \cdot n\text{NH}_3 \cdot m\text{H}_2\text{O}$



(Th,U) O_2 粉末
原料: $\text{ThO}_2\text{-UO}_3$ ゾル

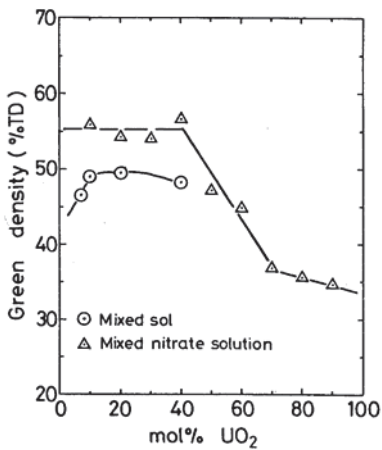


(Th,U) O_2 粉末
原料: Th,U硝酸混合溶液

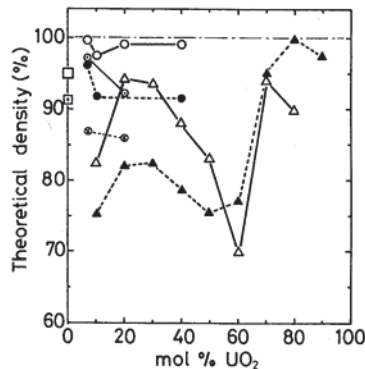
10 μm

トリウム系酸化物燃料の調製(ペレット燃料)

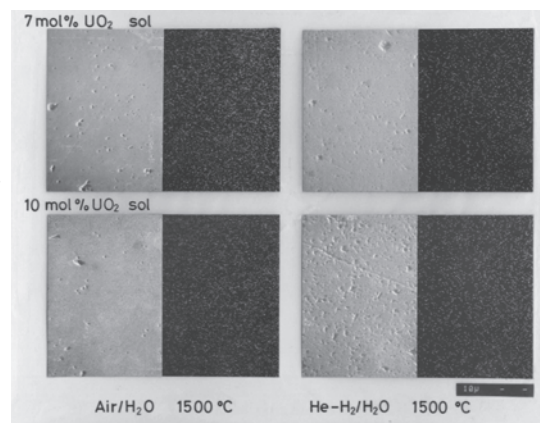
- シュウ酸塩共沈粉末
 - 不均一(ウランスポット)
 - $\text{UO}_2\text{C}_2\text{O}_4$ の水溶解度が大きい
 - ThO_2 ペレットの調製には有効
- ゾル NH_4OH 共沈粉末
 - 酸化性雰囲気焼結(Air/ H_2O)で99%TDの高密度ペレット製造が可能



ゾル及び硝酸溶液の共沈粉末をプレスしたグリーンペレットの密度



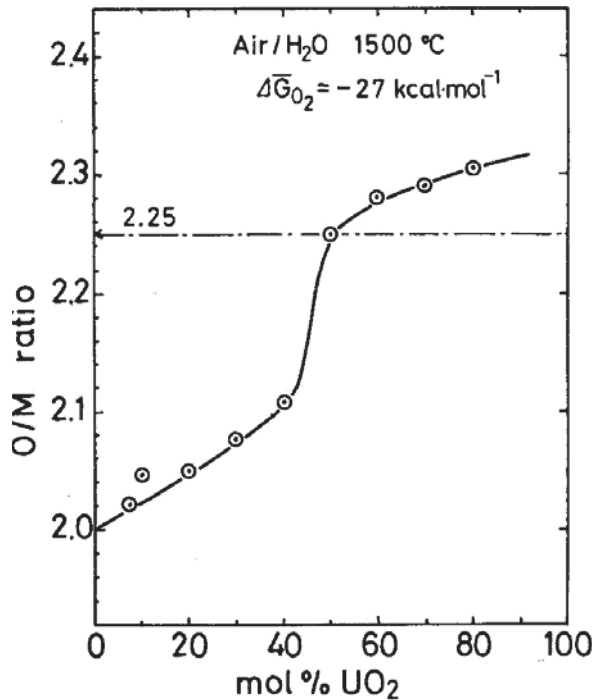
焼結ペレット密度の組成依存性



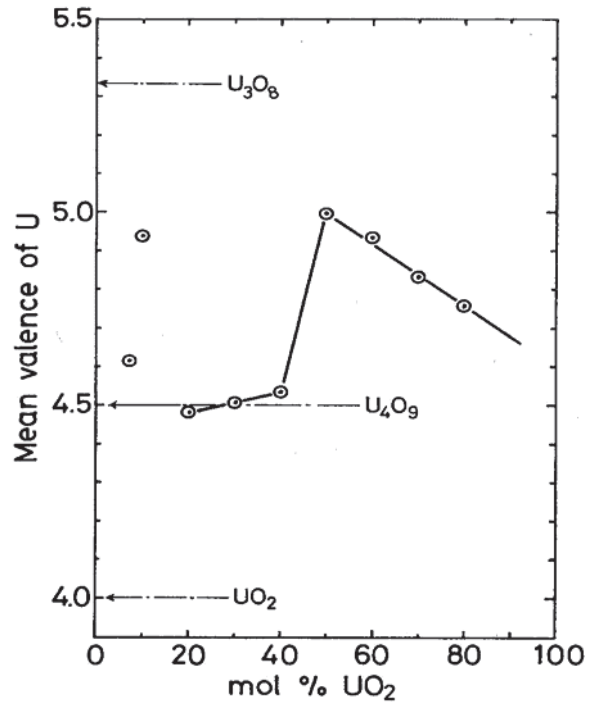
混合ゾル粉末から調製した(Th,U) O_2 ペレットのEPMA観察(SEM&U-X線像)

トリウム系酸化物燃料の調製(ペレット燃料)

- 高密度なペレット燃料の調製
 - Air/H₂O中での焼結が有効(40%以下UO₂)



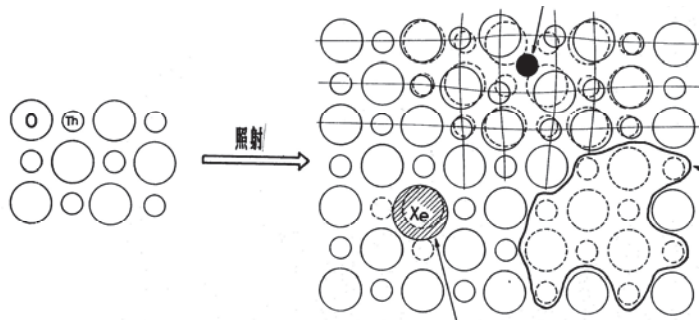
O/M比の組成依存性



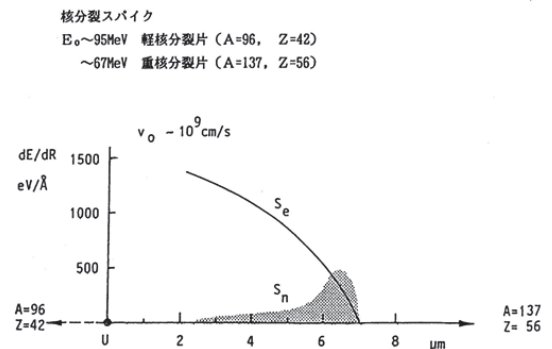
平均U原子価の組成依存性

トリウム系酸化物燃料の照射挙動

- 微小試料を用いた軽照射試験
 - 高温ガス炉用燃料核 ThO₂、(Th,²³⁵U)O₂
 - 格子常数変化 ($\Delta a/a$)
 - ThO₂: 反跳照射(U-Al箔)
 - 燃焼度依存性、結晶粒径効果、添加物、照射温度
 - FP放出
 - 希ガス放出(照射後加熱)
 - 金属FP放出(照射後加熱、照射下放出)
 - 微小ペレット試料 (Th,²³⁵U)O₂
 - 密度変化 ($\Delta V/V$)
 - 組織変化(気泡など)



核分裂片のエネルギー減衰及び核分裂片損傷の物理的性質



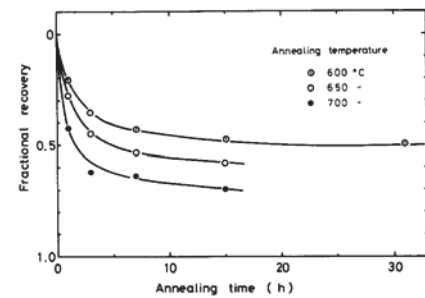
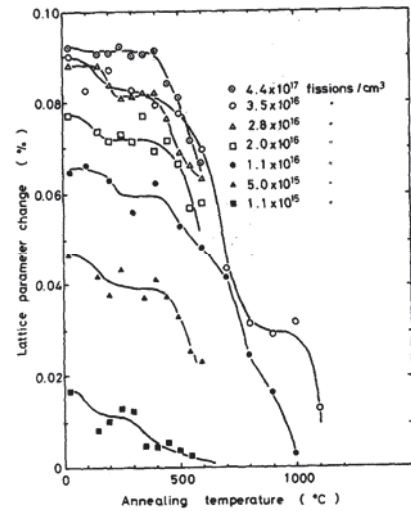
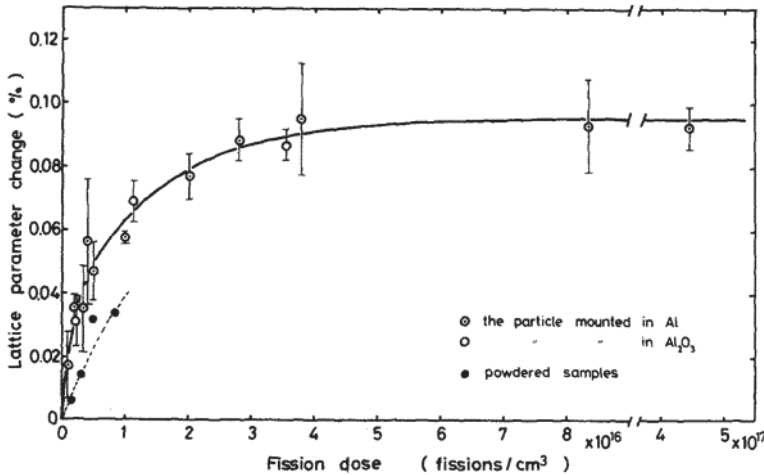
核分裂片の電子動起 (S_e) 及び核的衝突 (S_n) による阻止能

飛程	~8 μm
核分裂当り生成されるUフレンケル欠陥対の数	~1.5 x 10 ⁴
核分裂当り生成されるUフレンケル欠陥対の実効的数	~5 x 10 ³
変位カスケードの寿命	~10 ⁻¹¹ s

核分裂により影響される体積		
温度体積, V _T	T ≥ T̄ = 1500°C	3.7 x 10 ⁻¹⁶
	T ≥ T̄ = 2000°C	1.4 x 10 ⁻¹⁶
圧力体積, V _p	p ≥ 10 ⁴ atm	1 x 10 ⁻¹⁶
変位体積, V _d	格子定数変化から	3~6 x 10 ⁻¹⁸
	FPガス放出から	5 x 10 ⁻¹⁷

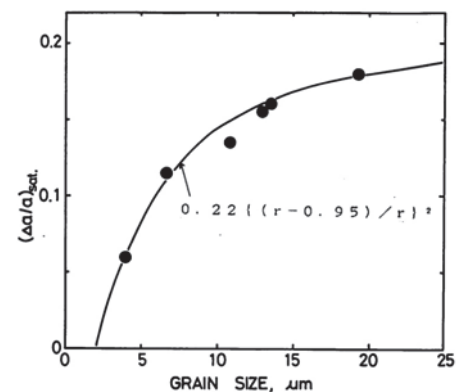
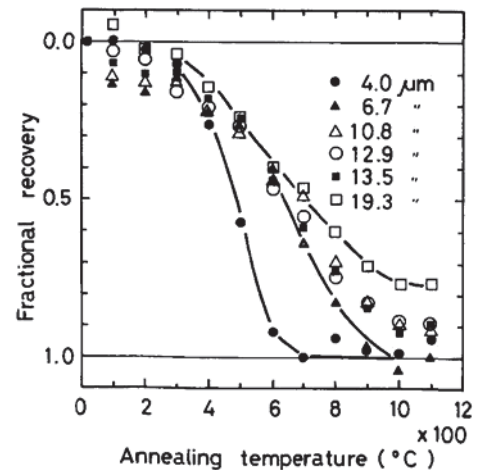
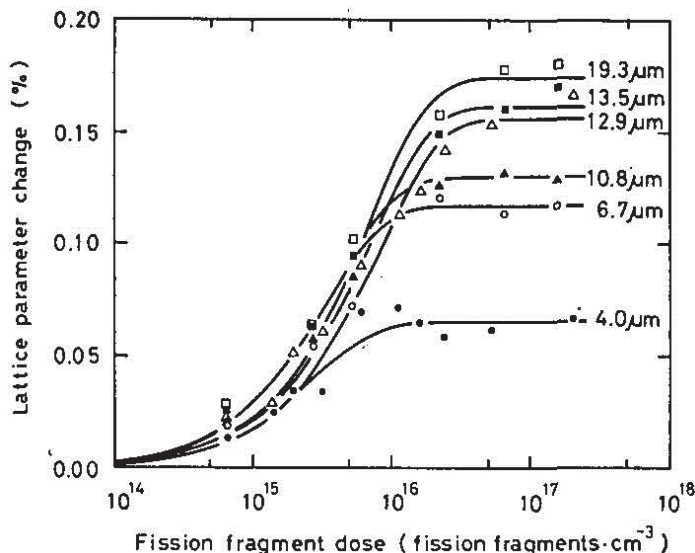
トリウム系酸化物燃料の照射挙動(格子定数変化)

- (Th,U)O₂燃料核
 - 格子定数変化
 - 損傷関数を用いた欠陥挙動評価
 $\Delta a/a \sim N/V_d \cdot \Omega \{1 - \exp(-V_d Ft)\}$
 - 損傷体積 V_d はUO₂とほぼ同じ
 - 回復挙動
 - 欠陥の回復に対応
 - ○格子間原子→○フレンケル→金属空孔



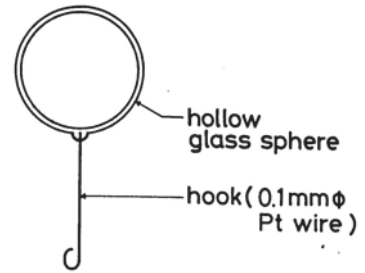
トリウム系酸化物燃料の照射挙動(格子定数変化)

- 結晶粒径の影響
 - ThO₂燃料核格子定数変化(反跳照射による)
 - 格子定数変化の飽和値
 $(\Delta a/a)_{sat.} \propto \text{結晶粒径}$
 - 結晶粒径は欠陥の消滅源
 - 結晶粒界の影響領域(欠陥欠乏)
 - 約1μm



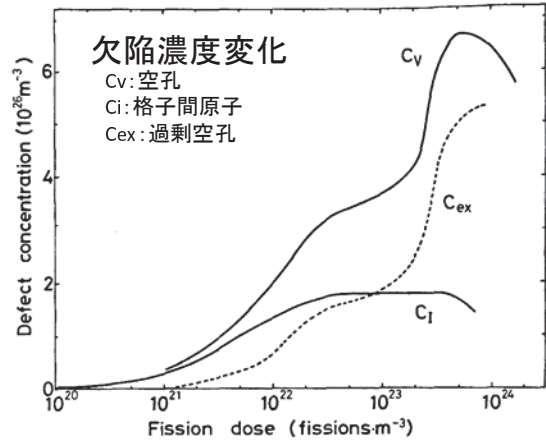
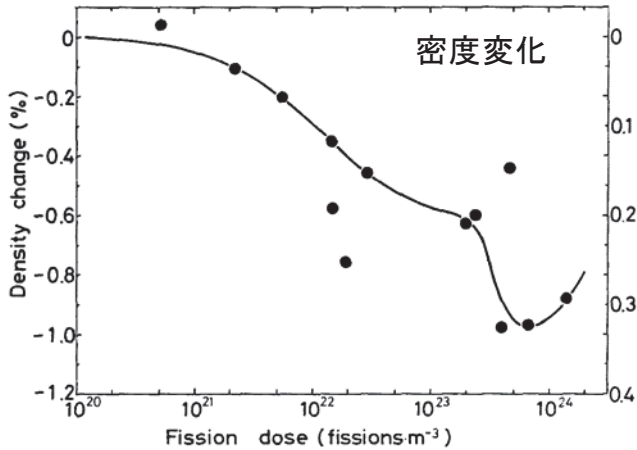
トリウム系酸化物燃料の照射挙動(密度変化)

- $(\text{Th}, ^{235}\text{U})\text{O}_2$ ペレット試料の密度変化
 - シュウ酸塩共沈殿法
 - 0.5mol%U, 95%TD, 結晶粒径 $23\ \mu\text{m}$
 - $0.3\text{mm} \times 3\text{mm} \times 10\text{mm}$ (穴つき)
 - 浮遊沈降法による密度測定
 - ベンゼン/ヨウ化メチレン混合溶液 + 中空浮子



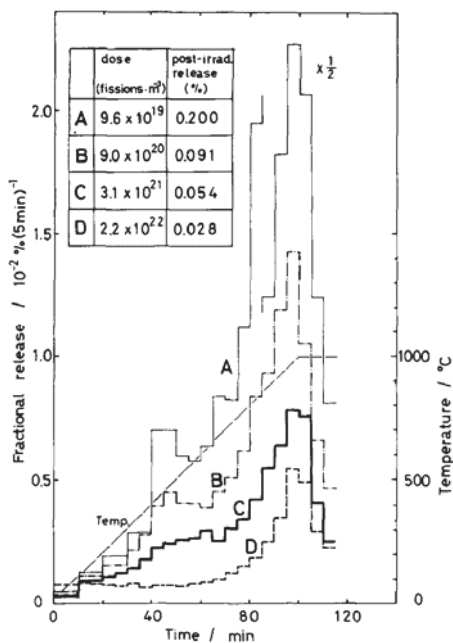
$$\Delta \rho / \rho = -3(\Delta L/L)$$

$$\Delta L/L = \Delta a/a + (3/\Omega)(C_V - C_I)$$

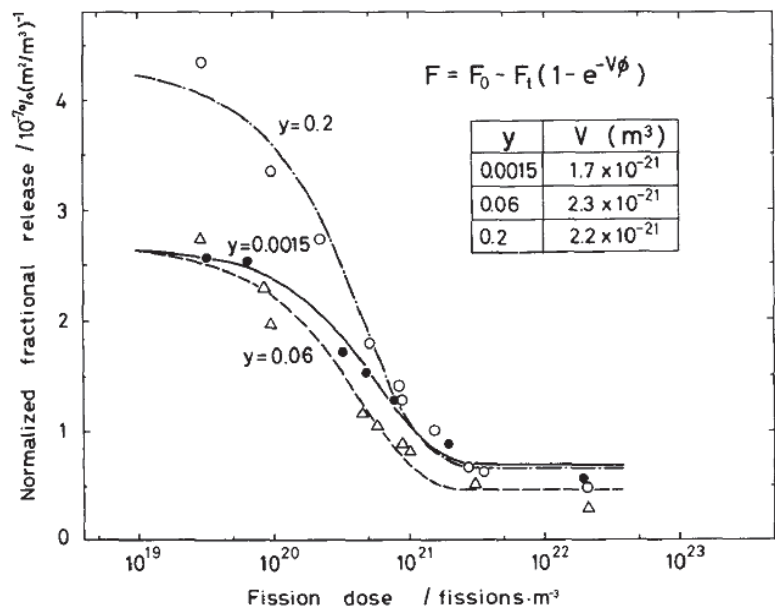


トリウム系酸化物燃料の照射挙動(FPガス放出)

- $(\text{Th}, ^{235}\text{U})\text{O}_2$ 粉末試料からの希ガス(^{133}Xe)放出
 - 放出率の減少 → 欠陥による希ガス捕獲
 - 捕獲に寄与する欠陥～空孔又は空孔クラスター



(Th,U)O₂からのXe放出



(Th,U)O₂からのXe放出の照射量依存性

トリウム系酸化物燃料の照射挙動(損傷体積)

各種セラミック燃料の格子定数変化から求めた
核分裂片損傷体積の比較

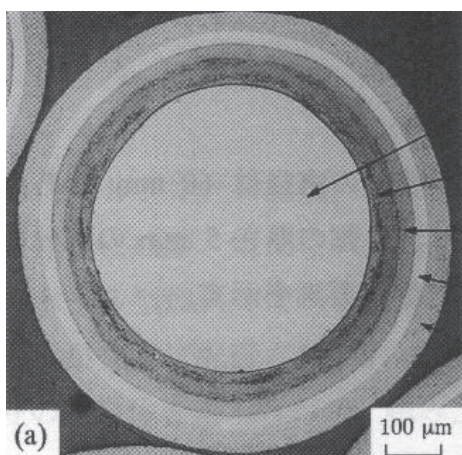
燃料化学形	損傷体積(m ³)
UC	4.0×10^{-23}
UN	4.8×10^{-23}
UO ₂	$3 \sim 6 \times 10^{-22}$
ThO ₂ 、(Th,U)O ₂ 、doped-ThO ₂	$1 \sim 6 \times 10^{-22}$

各種測定から得られたTh系酸化物とUO₂の
核分裂片損傷体積の比較

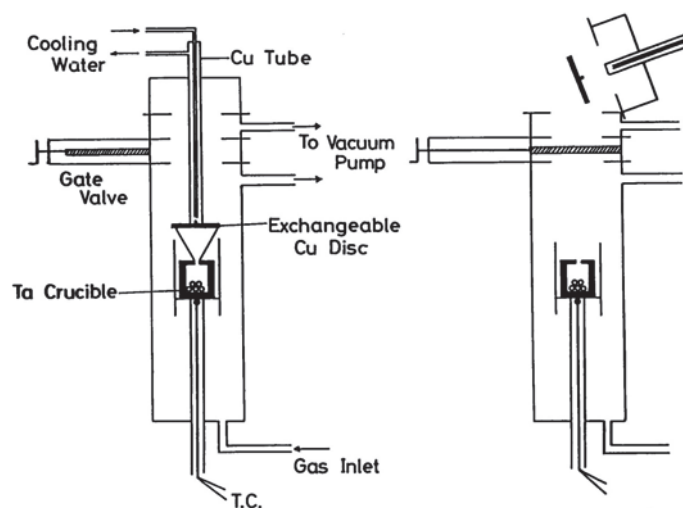
測定物理量	損傷体積(m ³) ThO ₂ 系	損傷体積(m ³) UO ₂	欠陥種類
格子定数変化	$1 \sim 6 \times 10^{-22}$ $5 \sim 7 \times 10^{-23}$	$3 \sim 6 \times 10^{-22}$ $1 \sim 3 \times 10^{-23}$	格子間原子 格子間原子クラスタ
FPガス放出	$3 \sim 4 \times 10^{-23}$	5×10^{-23}	空孔クラスタ
密度変化	1.4×10^{-22}	4×10^{-22}	空孔
理論計算		$\sim 2 \times 10^{-21}$	

トリウム系酸化物燃料の照射挙動(金属FP放出)

- (Th,²³⁵U)O₂試料からの照射後加熱による金属FP放出
 - 被覆燃料粒子
 - 内部放出(燃料核→被覆層)
 - 粒子
 - コールドトラップ法によるCs放出



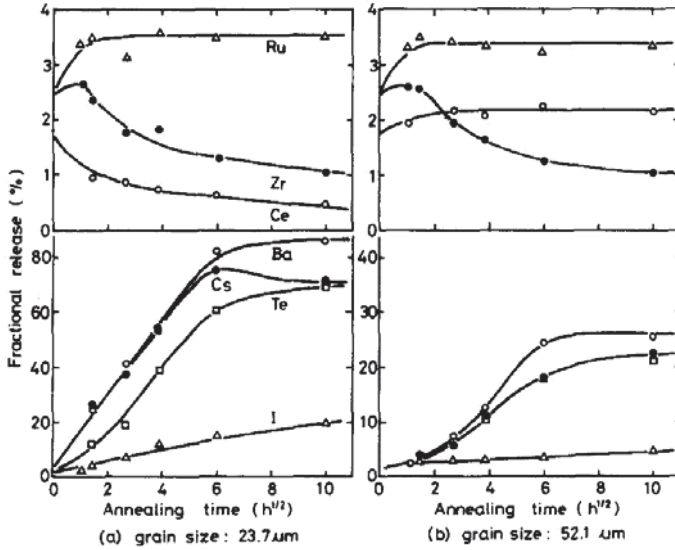
(Th,U)O₂四重被覆燃料粒子



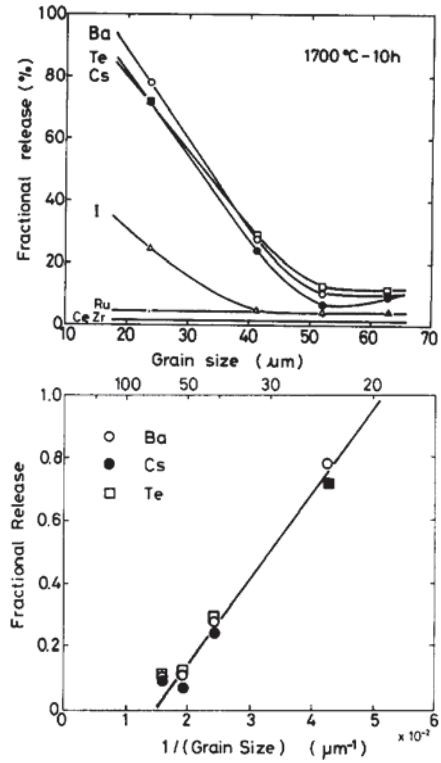
コールドトラップ法によるCs放出

トリウム系酸化物燃料の照射挙動(金属FP放出)

- 金属FPの内部放出
 - $\text{Th}_{0.94}\text{U}_{0.06}\text{O}_2$ の四重被覆 (PyC3層、SiC1層) 燃料粒子
 - 結晶粒径依存性
 - 揮発性金属FP (Cs、Te、Ba、I) の放出率
 - 結晶粒径が大きいほど放出率は低い

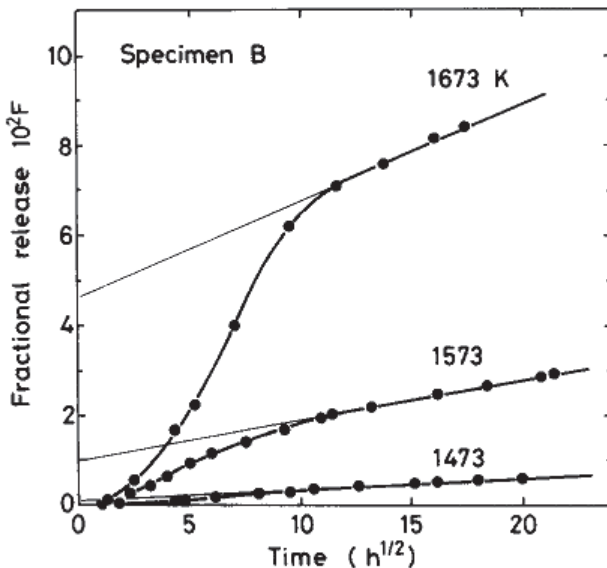


放出率の時間依存性(1500°C)

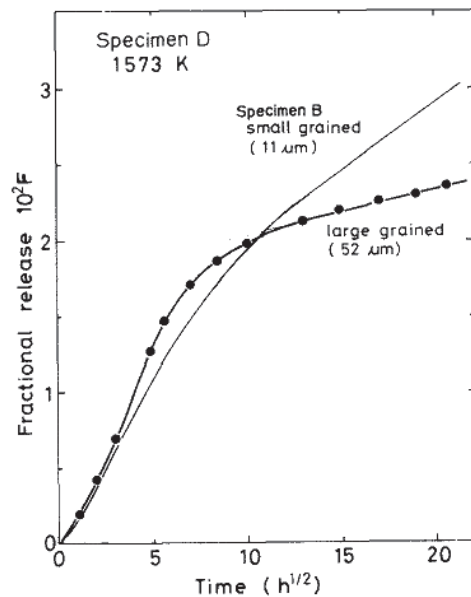


トリウム系酸化物燃料の照射挙動(金属FP放出)

- Cs放出(軽照射)
 - $\text{Th}_{0.94}\text{U}_{0.06}\text{O}_2$ 粒子、直径506 μm 、0.005~0.15%FIMA
 - 結晶粒径依存性
 - 結晶粒径が大きいほどCs放出率は低い



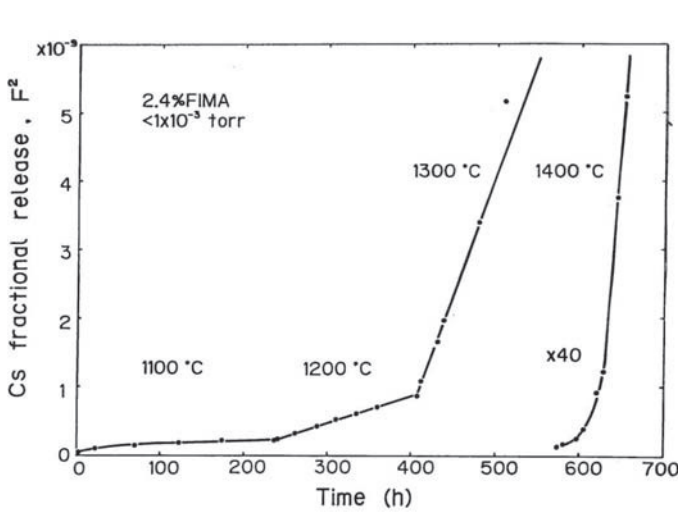
Cs放出率の時間依存性



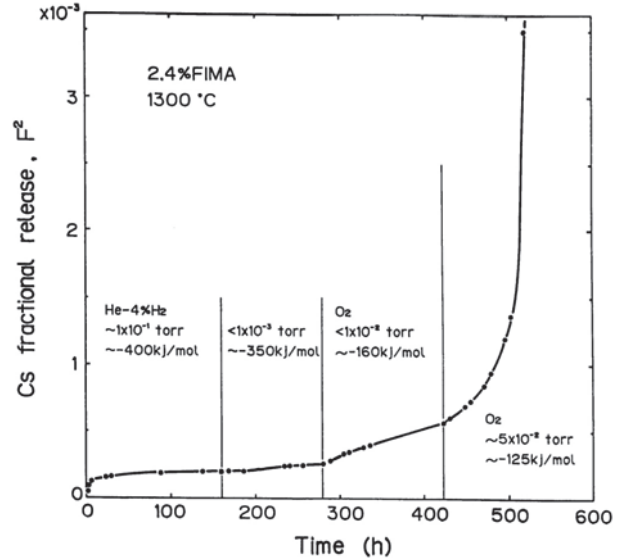
Cs放出率の時間依存性(粒径効果)

トリウム系酸化物燃料の照射挙動(金属FP放出)

- Cs放出(重照射)
 - $\text{Th}_{0.94}\text{U}_{0.06}\text{O}_2$ 粒子、直径 $506\ \mu\text{m}$ 、1%FIMA以上
 - 雰囲気の影響
 - 酸化性雰囲気ほどCs放出率は高くなる



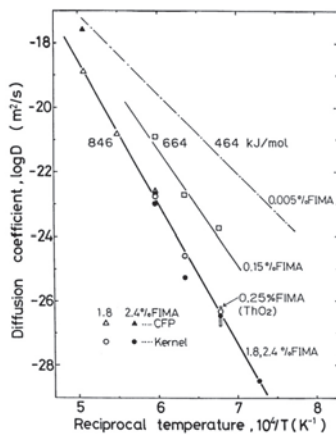
Cs放出率の時間依存性



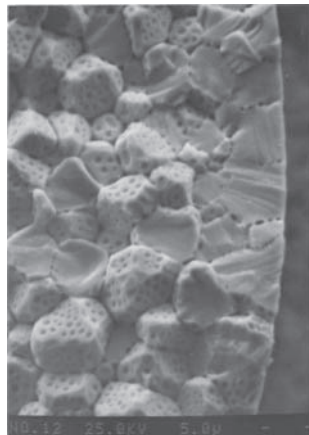
Cs放出率の時間依存性(雰囲気効果)

トリウム系酸化物燃料の照射挙動(金属FP放出)

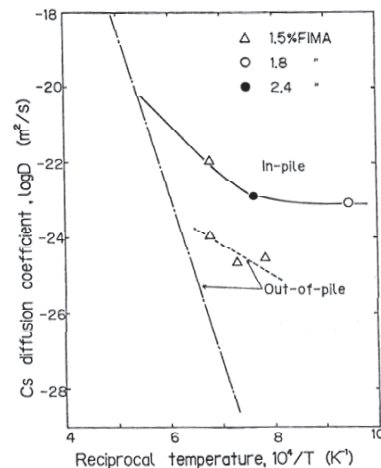
- Cs放出
 - 燃焼度依存性
 - 高燃焼度ほど拡散係数は減少し、活性化エネルギーは増大する。
 - $D_{\text{eff}} = [b/(b+g)]D$ b : 再溶解確率、 g : 捕獲確率(粒界気泡など)
 - $Q_{\text{eff}} = Q + Q'$ Q' : 再溶解するための活性化エネルギー
 - * 高燃焼度 UO_2 中のCs放出の活性化エネルギー $\rightarrow 330\text{kJ/mol}$
 - 照射下拡散係数(CFPの内部放出率から評価)
 - 照射によりCs拡散が促進



Cs拡散係数の温度依存性(燃焼度効果)



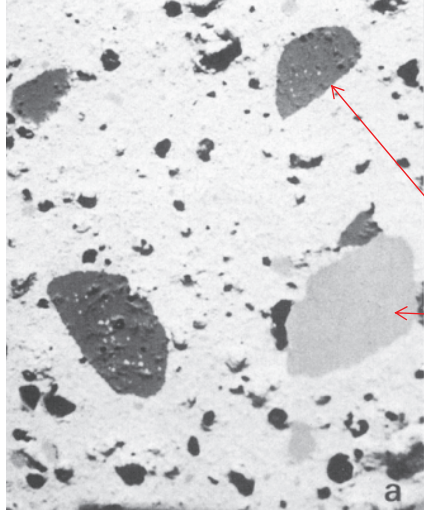
1550°C照射後加熱した粒子の破面(1.8%FIMA)



Cs照射下拡散係数の温度依存性

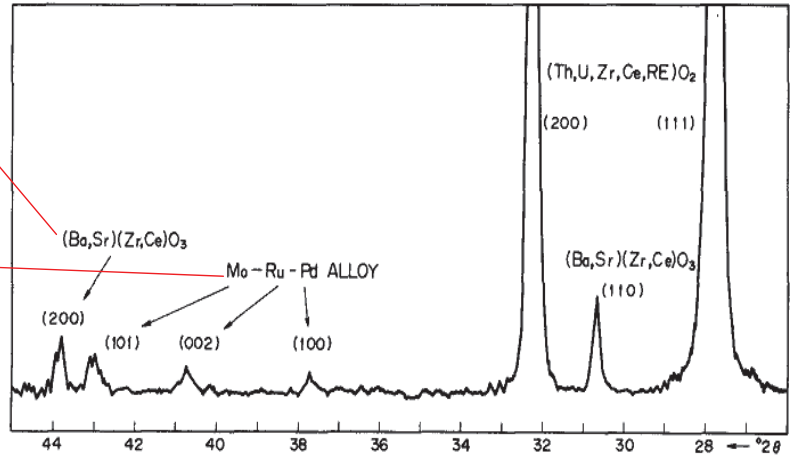
トリウム系酸化物燃料のFP化学形

- 模擬照射済み (Th,U)O₂ 燃料
 - HTGR 高燃焼度模擬
 - Th_{0.81}U_{0.19}O₂ (93.1%濃縮)、21.5%FIMA、ΔG(O₂) ~ -310kJ/mol
 - Mo-Ru-Pd合金、ペロブスカイト型(Ba,Sr)(Zr,Ce)O₃酸化物
 - 高酸素ポテンシャル下 (~-122kJ/mol)
 - Mo-Ru-Pd → Ru-Pd : Moの酸化
 - (Ba,Sr)(Zr,Ce)O₃ → (Ba,Sr)MoO₄, Nd₂(Zr,Ce)₂O₇



50 μm

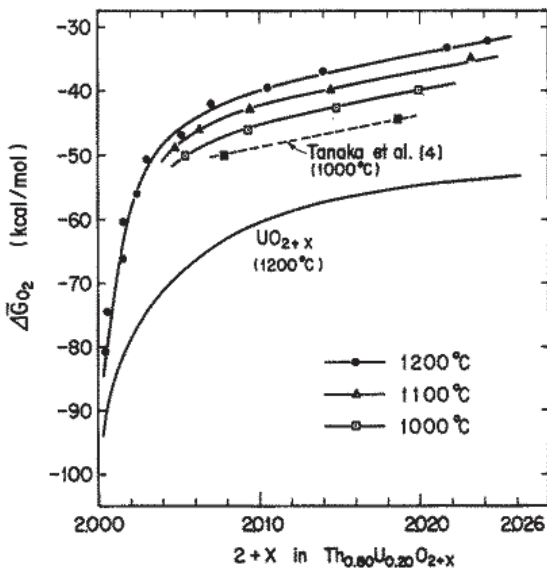
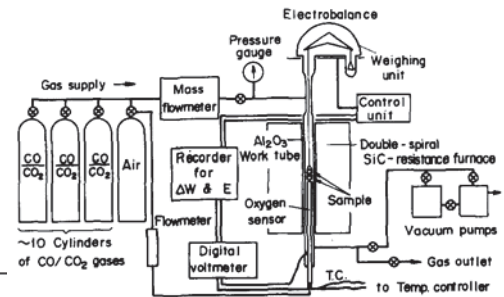
高燃焼度模擬 (Th,U)O₂ のEPMA観察



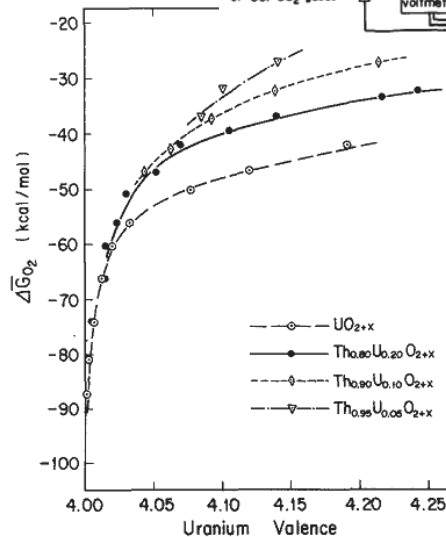
高燃焼度模擬 (Th,U)O₂ のXRD結果
Mo-Ru-Pd合金、(Ba,Sr)(Zr,Ce)O₃

トリウム系酸化物燃料の酸素ポテンシャル

- (Th,U)O_{2+x} 酸素ポテンシャル測定
 - 1000~1200°C、U:0.05~0.20
 - 熱重量法
 - U原子価、Th組成に依存して変化



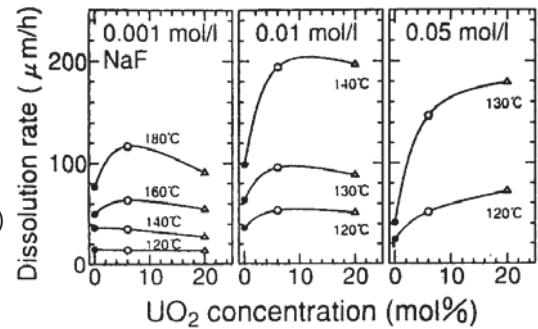
(Th,U)O_{2+x} の酸素ポテンシャル



(Th,U)O_{2+x} の酸素ポテンシャルのU原子価依存性

その他の研究及び現状

- 被覆粒子燃料の照射健全性試験
 - JRR-2、JMTR 高燃焼度キャプセル照射試験
 - (Th,U)O₂-TRISO&BISO、ThO₂-BISO、燃焼度最高7.3%FIMA、1400°C以下
- 溶解挙動
 - HNO₃-NaF系、100~200°C
- 機械的性質
 - 燃料核の破壊強度(ヘルツィアン試験)
- 拡散挙動
 - 酸素拡散(酸素同位体を用いた自己拡散)



- 原子力機構基礎工におけるトリウム燃料研究の現状
 - 具体的な研究計画は無い
 - MA-MOX等酸化物燃料の標準試料としての利用
 - Th保有量
 - ThO₂粉末 数kg
 - Th(NO₃)₄ 10~20kg
 - Th金属 ~1g