

第1図 核燃料サイクル

2. 軽水炉用燃料の製造

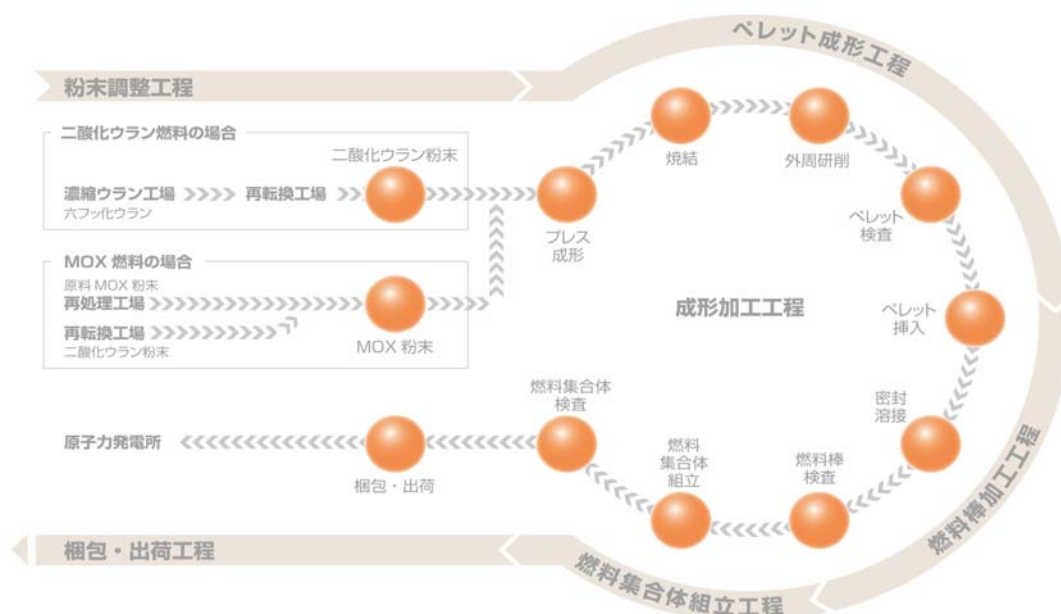
濃縮されたガス状の六フッ化ウラン (UF_6) は、化学処理されて粉末状の二酸化ウラン (UO_2) に再転換される。再転換法には湿式法と乾式法があり、湿式法には重ウラン酸アンモニウム (Ammonium Diuranate: ADU) 法と炭酸ウラニルアンモニウム (Ammonium Uranyl Carbonate: AUC) 法がある。乾式法には総合乾式法とフレイムリアクタ法がある。ここでは我が国の再処理工場において採用されているADUについて説明する。再転換後、粉末状の UO_2 をペレットに成型し、燃料棒に封入したうえで、燃料棒を組み合わせる燃料集合体に成型加工する。その種々の工程において、品質を保証するための検査工程が付随する。これが核燃料の成型加工である。再転換から成型加工のプロセスは、概ね、以下の通りである。

- ① UF_6 を加水分解して UO_2F_2 とし、さらにアンモニアを加えてADUとする。得られたADUをろ過、乾燥、ばい焼、還元して、粉末の UO_2 を得る。この手法をADU法という。ADUの生成反応式は以下の通りである。

$$2\text{UO}_2\text{F}_2 + 6\text{NH}_4\text{OH} \rightarrow (\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7 + 4\text{NH}_4\text{F} + 3\text{H}_2\text{O}$$
- ② UO_2 粉末をプレス機によって円柱状に押し固めて直径、高さともに約1 cmのグリーンペレットを作製する。この際、焼結時に人為的に気孔を形成させて燃料ペレットの密度を所定の範囲内でコントロールするため、あるいは焼結特性を良くするために、それぞれ、ポアフォーマやバインダと呼ばれる添加物を添加する。グリーンペレットの大きさは、炉型によって多少異なる。

- ③ グリーンペレットを電気炉を用いて適切な温度、時間、雰囲気のもと焼結する。焼結は、水素ガスを含む還元雰囲気下で、1700℃以上という高温下において行われる。還元雰囲気下で焼結を行う理由は、通常粉末状態で超化学量論組成となっている二酸化ウラン (UO_{2+x}) を、化学量論組成の $\text{UO}_{2.00}$ にするためである。なお、焼結後のペレットは、グリーンペレットよりもひとまわり小さくなり、密度は向上する。なお、焼結されたペレットは完全な円筒形をしていないので、センタレスグラインダーによって焼結ペレットを研削し、所定の直径の円筒形に仕上げる。
- ④ ジルコニウム合金製の管に UO_2 焼結ペレットを詰め、所定圧力のヘリウムガスを封入したうえで管の上下を端栓溶接する。被覆管内部に熱伝導率の良いヘリウムガスを加圧・封入することで、燃料ペレットから生じる熱を効率良く被覆管に伝達できるようになる。封入圧力は、沸騰水型原子炉 (BWR) 用燃料の場合約0.5～1MPa、加圧水型原子炉 (PWR) 用燃料の場合約3MPaである。運転圧力の高いPWRの方が、被覆管中のヘリウム封入圧力も高くしてある。
- ⑤ 所定の数の燃料棒を、燃料棒の間隔を保持するための支持格子に挿入して正形状に組み立て、上下両側にタイプレートあるいはノズルと呼ばれる板で固定して、燃料集合体を組み立てる。

以上をまとめた軽水炉用燃料の製造工程を第2図に示す。



第2図 軽水炉用燃料及びMOX燃料の製造工程

燃料集合体の大きさや形状は、炉型によって大きく異なる。ここでは、BWRとPWRの燃料集合体について、概説する。

BWR用燃料集合体の概略を、第3図に示す。BWR用燃料集合体は、主として8×8の正方配列を形成する。燃料集合体の中央部には、燃料棒と並行して、ウォーターロッドと呼ばれる中空の管が設けられている。ウォーターロッド内部に水を通すことにより、燃料集合体内部の出力の最適化を図ることができる。燃料棒とウォーターロッドは、7個のスペーサと上部及び下部タイプレート各1個によって支持されている。燃料集合体は、チャンネルボックスと呼ばれるボックスに装荷されて、原子炉内で使用される。

PWR用燃料集合体の概略を、第4図に示す。PWR用燃料集合体は、主として17×17の正方配列を形成する燃料棒264本、制御棒案内シンプル24本、炉内計装用案内シンプル1本より成り立っており、それらは9個の支持格子と上部及び下部ノズル各1個によって支持されている。PWR用燃料には、BWR用燃料で用いられているチャンネルボックスは用いられていない。BWRにおける上部及び下部タイプレートやスペーサ、PWRにおける上部及び下部ノズルや支持格子といった各種部材は、直径が1cm強で長さが約4mという極めて細長い形状の燃料棒を、間隔を保持した状態で格子配列に支持する役割を担う。

BWR用燃料では、サイクル初期の余剰反応度を抑えるため、熱中性子吸収断面積の大きいガドリニウム（いわゆる可燃性毒物）の酸化物（ Gd_2O_3 ）を添加した Gd_2O_3 入り UO_2 ペレット入り燃料棒が燃料集合体あたり数本用いられている。また、近年PWR用燃料でも、一部に Gd_2O_3 入り燃料棒を組み込んだ燃料集合体も使用されることがある（通常、PWRでは、一次冷却材中にホウ酸を添加することによって反応度が制御されている）。なお、 Gd_2O_3 入り UO_2 ペレットを作製するにあたっては、成型加工工程の概要として記述した上記①から②に移る際に、所定の量の Gd_2O_3 粉末が UO_2 粉末に添加される。

BWR用燃料では、被覆管として、延性の大きなジルコニウムを内張りしたジルカロイ-2被覆管（ライナー管）が使用されている。ジルコニウムを被覆管内面に内張りすることで、燃料ペレットと被覆管の相互作用、とりわけ、応力腐食割れに対する耐性を高めることができる。一方、PWRでは、一次冷却水に水素を添加することで酸素濃度が抑制されていることから、ジルカロイ-2よりも水素吸収の小さいジルカロイ-4が被覆管材料として使用されている。ジルカロイ-2もジルカロイ-4も、どちらも原子炉級ジルコニウム（ハフニウム含有量が極めて少ない超高純度ジルコニウム）を主成分とし、そこにスズ、クロム、鉄が少量添加された合金であるが、ジルカロイ-2には、これらに加えてニッケルも添加されている。PWRにおいては、高燃焼度化に対応するために、従来のジル

カロイ-4に代わり、ニオブを含有するジルコニウム新合金を使用することも検討されている。

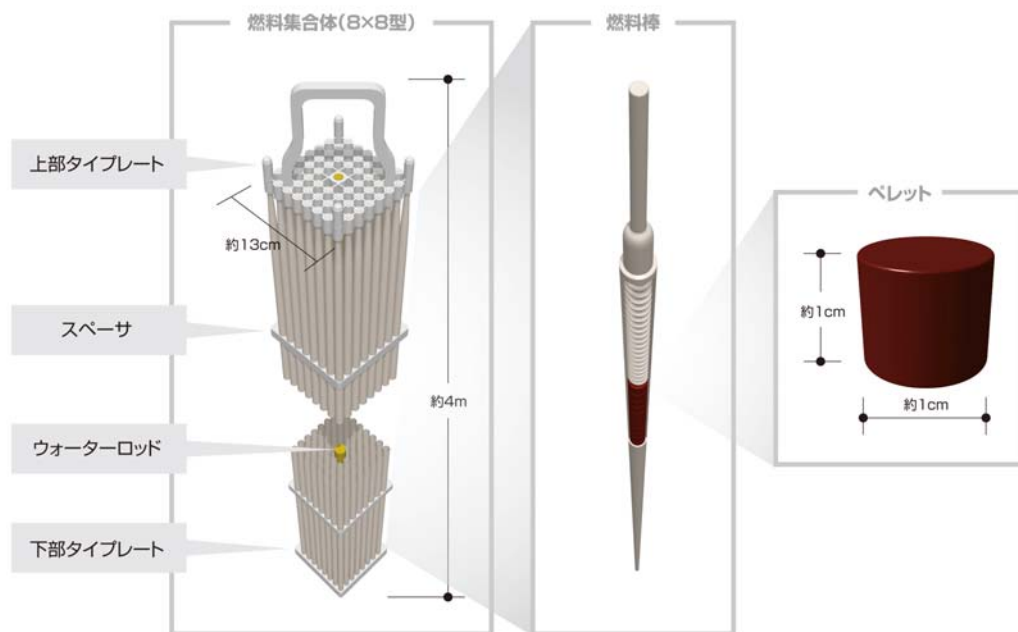
成型加工工程を経て組み立てられた燃料集合体の品質管理及び製品確認のため、各成型加工工程に対応するようにして検査工程が設けられている。

燃料の検査工程における検査項目を、第1表に示す。再転換により得られた UO_2 粉末は、濃縮度、 O/M 比（ UO_2 粉末中の金属と酸素の比。化学量論組成の UO_2 の場合、 $O/M = 2.00$ となる。）、不純物の種類と含有量、比表面積、粒度等を検査する。 UO_2 粉末を燃料ペレットに成型するにあたっては、特に水分と水素の含有量を少なくするように厳しく管理する。作製された燃料ペレットに対しては、外観、寸法、密度等を検査する。また、 UO_2 粉末の場合と同様に、ペレット成型後も濃縮度、 O/M 比、不純物の種類と含有量等を検査する。さらに、燃料ペレット表面に空気中の湿分が吸着することを極力防ぐため、燃料ペレットを燃料棒中に密封する前に十分に乾燥させることも重要となる。このため、燃料ペレット中の水分量の評価も重要な検査項目となっている。燃料棒加工工程においては、溶接不良は核分裂生成物の漏れの原因となるため、特に燃料棒の上下端栓の溶接部について、X線透過検査等により健全性を確認する。その他、燃料棒の重量、外観、寸法、表面汚染の程度、スタック長さ、プレナム長さ、ヘリウムガスの漏えいを検査する。燃料集合体組立工程では、燃料集合体の外観や寸法に加えて、燃料棒相互間隔、曲り、制御棒はめ合いなどを検査する。また、完成した燃料集合体を搬出したあとでも、輸送先の原子力発電所において使用前検査を実施し、燃料集合体に異常のないことを確認する。

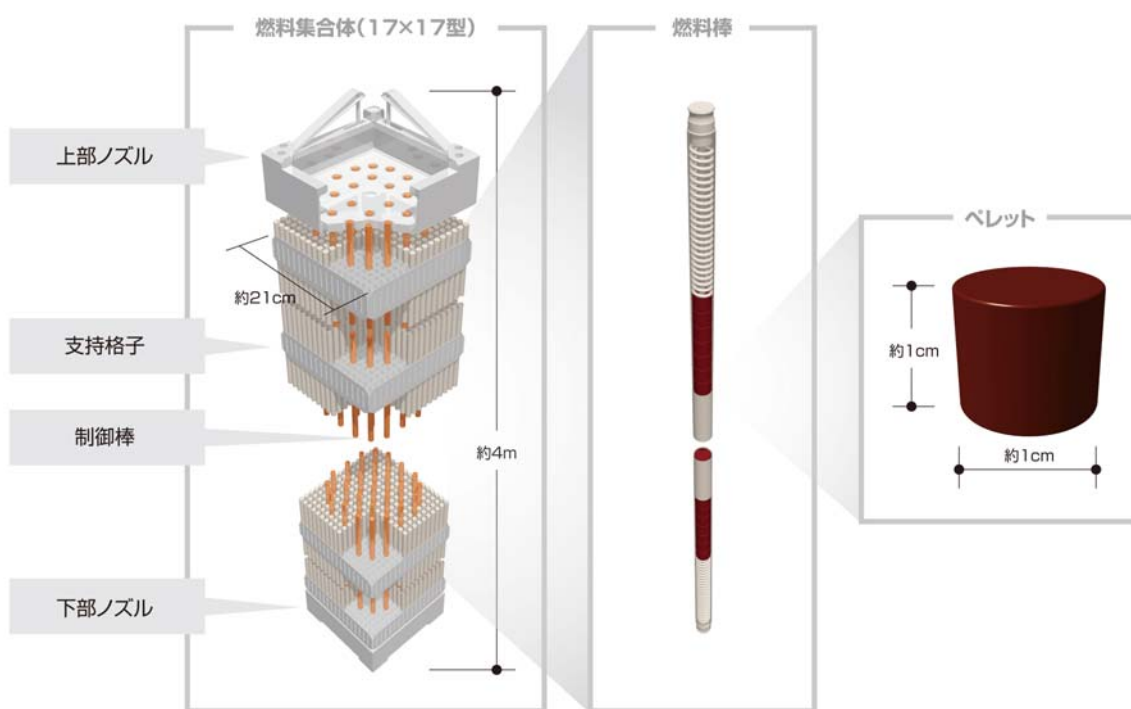
以上のような検査工程を経て品質が保証されることになるが、日本における軽水炉用燃料の品質保証活動の特徴は、燃料加工メーカー、原子炉メーカー、電力会社、規制当局が緊密な連携を保ち、品質保証活動を行なっていることにある。この品質保証活動を制定した品質保証プログラムは、国際的にみても非常に高い水準にあり、世界各国から高く評価されている。

第1表 成型加工工程における主要な検査項目

対 象	検 査 項 目
UO_2 粉末	濃縮度、 O/M 比、不純物の種類と含有量
燃料ペレット	外観、寸法、密度、濃縮度、 O/M 比、不純物の種類と含有量、水分
燃料棒	重量、外観、寸法、表面汚染の程度、スタック長さ、プレナム長さ、ヘリウムガスの漏えい、溶接部の健全性
燃料集合体	外観、寸法、燃料棒相互間隔、曲り、制御棒はめ合い



第3図 BWR用燃料集合体の概略



第4図 PWR用燃料集合体の概略

(図の注釈) 第3図、第4図は、上から見た俯瞰図なので、下が小さくなるように描かれているが、これらは図のデザインであって、実際に燃料棒が円錐形であったり燃料ペレットが台形状であったりというわけではない。また、この図では燃料棒の中央部が省略されており、燃料棒の色もグレーで描かれているが、これらは図のデザインであって、実際に燃料棒が中央部で切れているわけではなく、また、燃料棒の色もここで示した色と完全に一致するものではない。

3. MOX燃料の製造

限りある核燃料資源を有効に利用するとともに燃料供給の安定性向上をはかるため、使用済燃料から取り出したプルトニウムとウランからMOX燃料を製造し、軽水炉において再利用しようとするプルサーマル計画は、エネルギー資源の少ない我が国の重要なエネルギー政策の一つである。この計画が安定に実施されることになれば、ウラン資源の利用効率が高まり、エネルギー自給率の向上にも大きく貢献できる。核燃料サイクルの様々な工程の中でもMOX燃料製造工程は、プルサーマル計画を推進するうえで極めて重要な役割を担う。

プルサーマルは、国外では既に相当数の実績があり、フランスやイギリスには軽水炉用MOX燃料加工工場がある。具体的には、フランスでは、AREVA社がマルクール地区にMELOXと呼ばれるMOX燃料工場（設備能力：195 t-HM/年）を、イギリスでは、NDA（Nuclear Decommissioning Authority）がセラフィールドにSMP（Sellafield MOX Plant）と呼ばれるMOX燃料工場（設備能力：72 t-HM/年）を、それぞれ設置している。MELOXは2012年12月時点で稼働中であるが、SMPは2011年8月以降閉鎖されている。なお、t-HMとはton of heavy metalの略であり、ウランとプルトニウムをあわせた金属換算のトン重量を示す。一方、日本においては、日本原燃株式会社が事業主体となってMOX燃料加工工場（設備能力：130 t-HM/年）を建設・操業することとなっている。日本原燃株式会社は、2010年に国からMOX燃料加工事業の許可を受け、同年10月に青森県六ヶ所村にてMOX燃料加工工場の建設工事に着工している。ここからは、MOX燃料製造工程の概要を説明する。

第2図に、日本原燃株式会社において準備が進められているMOX燃料の製造工程を示す。UO₂燃料の成型加工工程と大きく異なる点は、燃料がUO₂ではなくUO₂とPuO₂の混合物であるという点である。具体的には、再処理工場から送られてきた原料MOX粉末（ウランとプルトニウムの比は1:1）と再転換工場から送られてきたUO₂粉末を所定の比で混合したものを出発物質として利用する。この出発物質をプレス成型してグリーンペレットを作製し、それを所定の条件下で焼結することでMOX燃料ペレットを得る。もちろん、燃料ペレットの外周の研削加工や外観、寸法検査等が実施される。これらの検査に合格したMOX燃料ペレットは被覆管に詰められ、上下を端栓溶接することでMOX燃料棒を得る。燃料棒の外観、寸法、表面汚染の程度等の検査を経たうえで、燃料集合体に組み立てられ、最終的に原子力発電所に梱包・出荷される。

このように、MOX燃料の製造は、基本的にUO₂燃料の製造と同様の工程をとる。つまり、大きな流れとしては、核燃料物質の酸化物の粉末を押し固めたものを焼結してペレットとし、ペレットを燃料棒に挿入・封入したうえで、燃料棒を組み合わせる燃料集合体とする。しかも、

得られる各製品の外観や寸法は、基本的にはUO₂燃料についてのもと同じである。ところが、MOX燃料の製造においては、核燃料物質として、ウランに加えてプルトニウムを取り扱うことになる。プルトニウムは、ウランに比べて放射能が高く、また化学的な毒性も高い。さらに、プルトニウム中の核分裂性核種（プルトニウム239等）の含有率も一般的なUO₂燃料で用いられている低濃縮ウランと比べて格段に大きい。このため、MOX燃料の製造工程においては、プルトニウムを安全に取り扱うための様々な対策を取る必要がある。具体的には、プルトニウムを限られた空間内に閉じ込め安全に作業するための「閉じ込め対策」や、放射線の影響を防止するための「しゃへい対策」、核分裂連鎖反応が生じないようにするための「臨界対策」等が、それにあたる。

例えば、第2図のMOX燃料製造工程においては、燃料棒の中にプルトニウムを含む核燃料物質を完全に封じ込めるまでは、基本的にはグローブボックス中での遠隔・自動操作により作業がなされる。なお、グローブボックスとは、グローブを装着した密封の実験用容器のことであり、実験者はグローブを通じてボックス中に手を挿入して種々の作業をする。グローブボックス内では、周辺と隔離してアルゴン等の不活性雰囲気下での各種作業が可能となる。このことから、酸化しやすい物質や放射性物質などの周辺への拡散を防止すべき物質の取扱いに適している。しゃへい対策としては、一般公衆の被ばく防止対策として、核燃料物質を地下階で取り扱い、かつ、建物構造壁（コンクリート）によるしゃへいが徹底されている。また、放射線業務従事者の被ばく防止対策としては、作業の遠隔操作・自動化並びに設備・機器のしゃへいが徹底されている。一方、臨界対策としては、製造工程で水を排除する乾式工程が採用されており、かつ、臨界質量よりもはるかに少ない量を取り扱う質量管理やMOX粉末を保管する際に一定以上に距離を保って配置するような管理がなされている。

このように、MOX燃料の製造工程においては、プルトニウムを含有するMOX粉末の漏えい防止や従事者の被ばく低減、臨界を決して起こさないための質量管理といった、UO₂燃料の場合と比べてより一層の安全確保を第一に考えた設計がなされている。

なお、MOX燃料ペレット中には、ウランとプルトニウムが均一に混ざらず極微細な領域でプルトニウムの濃度が局所的に高いプルトニウムスポットと呼ばれる部分が存在する場合がある。プルトニウムはウランより反応率が高いので、プルトニウムスポットでは局所的に出力が大きくなることが懸念される。これを防ぐため、プルトニウムスポットの大きさに制限を設け、その大きさ以下になるようにMOX燃料製造時に様々な工夫がなされている。UO₂燃料にはプルトニウムスポットは存在しないので、こ

こでなされる工夫はMOX燃料製造に特有のものである。具体的には、ウラン酸化物とプルトニウム酸化物を混合する際に、均一な分散と焼結後におけるプルトニウムスポットの大きさを小さくするための様々な方式が採用されている。例えば、ボールミルによる一次混合でプルトニウム含有率の高いMOX粉末を調整し、それに UO_2 粉末を加えて二次混合することで所定のプルトニウム含有率のMOX粉末を得るMIMAS (Micronized Master) 法や、MOX粉末の混合粉碎方式をボールミルから高エネルギーのアトリターミルに変えて時間の短縮及び混合の均質性を図るSBR (Short Binder-less Route) 法等がある。

4 まとめ

本稿では、核燃料サイクルの様々な工程中の、再転換から成型加工工程と、MOX燃料製造工程について概説した。成型加工工程においては、品質を保証するために実施されている検査工程についても概説した。また、プルサーマル計画を推進するうえで極めて重要な役割を担うMOX燃料製造においては、青森県六ヶ所村における日本原燃株式会社のMOX燃料加工事業を中心に概説した。軽水炉用燃料製造における我が国の技術レベル、品質保証は、世界的にみても高い水準にある。この高い水準を維持し続けるためにも、将来にわたって継続的に事業を推進することが重要であると考えている。

参考文献

- 1) 日本原子力安全研究協会、軽水炉燃料のふるまい、平成10年7月.
- 2) 日本原燃株式会社ホームページ
(<http://www.jnfl.co.jp/>)
- 3) 高度情報科学技術研究機構：原子力百科事典ATOMICA
(HP：<http://www.rist.or.jp/atomica/>)

大阪大学 黒崎 健

(2013年2月5日)