

4-2 高速炉用燃料及びガス炉用燃料

1. はじめに

高速炉用燃料^{1,3)}及びガス炉用燃料^{1),4)}の特徴、製造方法、製造技術開発の今後の方向性などについて概説する。

2. 高速炉用燃料

高速炉とは、プルトニウムやウラン等の核分裂反応から発生するエネルギーの高い中性子（高速中性子）によって原子炉内の核分裂連鎖反応が維持される原子炉である。特に、核分裂反応によって核分裂性物質を消費するとともに、新たに核分裂性物質を増殖する性能を有する高速炉を高速増殖炉という。一般に高速炉燃料としてはプルトニウム、ウラン、トリウムの金属、酸化物、炭化物、窒化物などが検討されており、これまでに、わが国の他に米、英、仏、独、露、インド、中国等で燃料の研究開発が進められてきた。わが国の高速炉ではプルトニウムとウランの混合酸化物（MOX）を採用している。

ここでは、わが国の高速炉用MOX燃料開発と高速実験炉「常陽」用及び高速増殖原型炉「もんじゅ」用燃料供給を担ってきた日本原子力研究開発機構（JAEA）のプルトニウム燃料第三開発室におけるMOX燃料製造技術と今後の開発課題について述べる。

2.1 高速炉用MOX燃料の特徴

JAEAにおいて製造される高速炉用MOX燃料は、高速実験炉「常陽」用及び高速増殖原型炉「もんじゅ」用燃料の2種類である。「常陽」及び「もんじゅ」用燃料の主な仕様を第1表に、ペレット外観、燃料要素及び燃料集合体の概略を第1図に示す。これらの燃料は、軽水炉用のUO₂燃料やMOX燃料と比較すると以下の特徴を持つ。

- a) 燃料中のプルトニウムの割合（Pu含有率）が約20～30%と高い。
- b) 軽水炉に比べて高い出力密度を得るため、燃料要素が細く、ペレットのサイズも小さい。
- c) 軽水炉に比べて高い燃焼度まで使用することから、核分裂生成物（FP）の蓄積によるペレットの体積膨張やこれに伴うペレットと被覆管の相互作用を緩和するため、ペレットの密度が低い（「もんじゅ」用燃料の場合）。
- d) 高温での機械的強度や冷却材として使用する液体金属ナトリウムとの共存性に優れたステンレス鋼を被覆管等の部材に用いる。
- e) ワイヤスペーサを燃料要素に巻き付け、冷却材の流れるスペースを確保する。

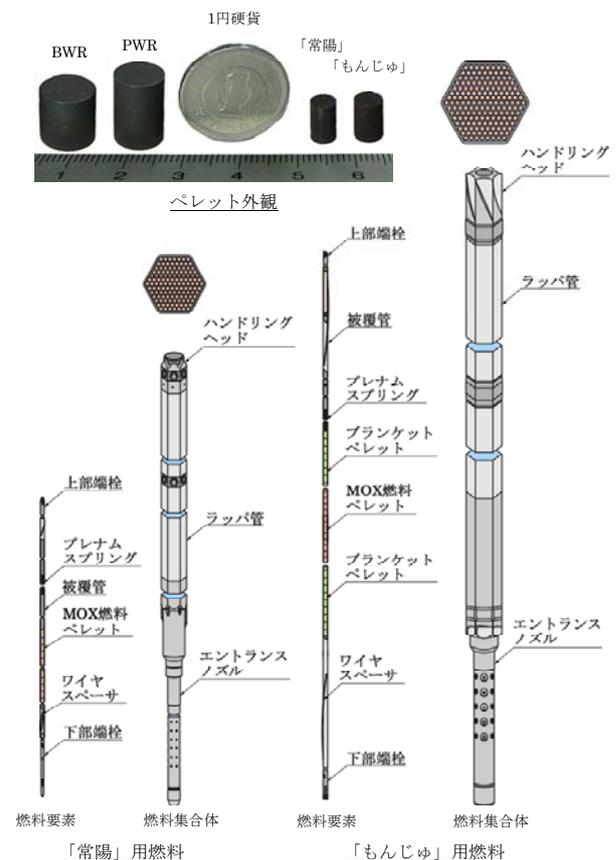
2.2 高速炉用MOX燃料の製造

プルトニウム燃料第三開発室における高速炉用MOX

第1表 「常陽」及び「もんじゅ」用燃料の主な仕様

| 仕様 | 「常陽」 | 「もんじゅ」 |
|-----------------|------------|------------|
| 集合体全長 | 2,970 mm | 4,200 mm |
| 燃料要素全長 | 1,533 mm | 2,813 mm |
| MOX燃料ペレットの占める長さ | 500 mm | 930 mm |
| MOX燃料ペレット直径 | 4.6 mm | 5.4 mm |
| MOX燃料ペレット密度* | 94.0 %T.D. | 85.0 %T.D. |
| Pu含有率 | 約20～30% | 約20～30% |
| 燃料要素本数 | 127本 | 169本 |

*）理論密度に対する割合（%T.D.）を示す

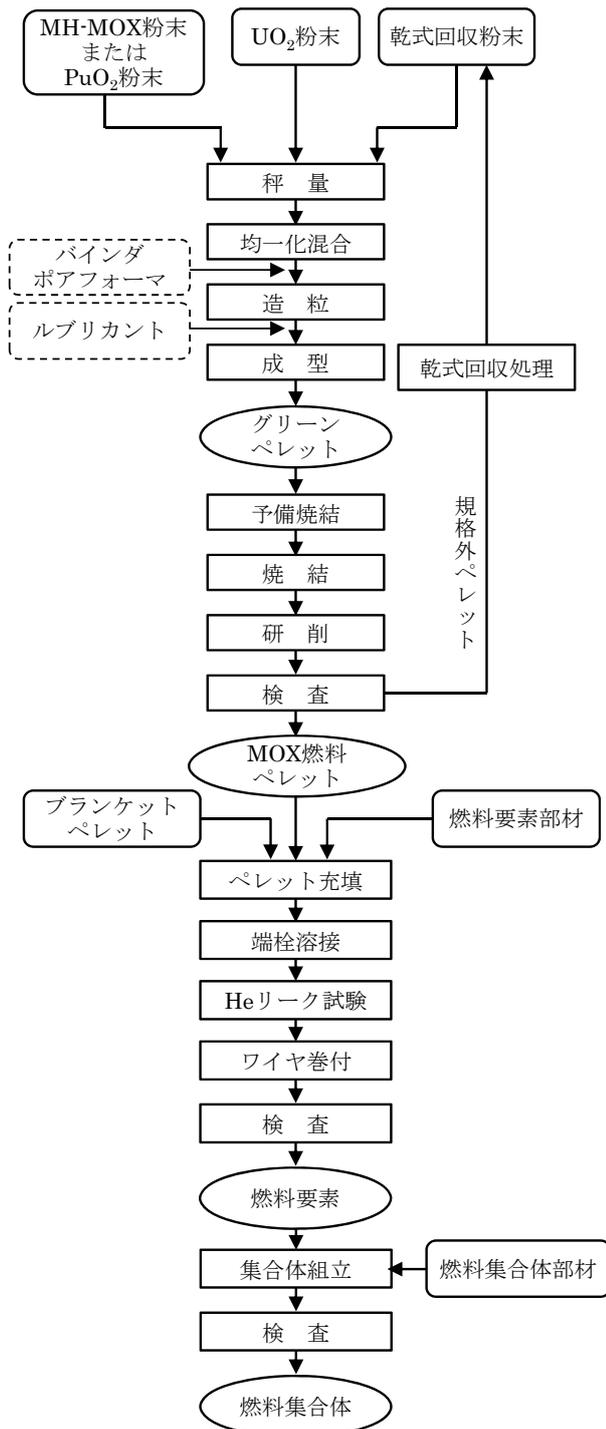


第1図 ペレット外観及び燃料要素／燃料集合体の概略

燃料製造フローを第2図に示す。

(1) 原料粉末

プルトニウム燃料第三開発室では原料粉末として、MH-MOX粉末（またはPuO₂粉末）、UO₂粉末及びペレット製造工程で発生するスクラップを乾式回収した粉末



第2図 高速炉用MOX燃料の製造フロー

(乾式回収粉末)の3種類を使用する。

MH-MOX粉末は、JAEAの東海再処理工場において使用済燃料から分離精製した硝酸プルトニウム溶液と硝酸ウラン溶液を1:1の割合で混合し、マイクロ波加熱直接脱硝法(MH法)により脱硝した後、焙焼還元処理を経て得られる50%PuO₂-50%UO₂の粉末である。MH法は、わが国が独自に開発した転換法であり、プルトニウムを単独で取り扱わないことから、核不拡散性に優れるという特徴を持つ。PuO₂粉末は、仏国においてシュウ酸

沈殿法によるプルトニウム単体での転換を行って得られたもので、これまでのわが国における高速炉用MOX燃料の製造では、MH-MOX粉末/PuO₂粉末のいずれも原料として使用した実績がある。

一方、ウラン原料粉末は、軽水炉用UO₂燃料の原料粉末と同様に、UF₆のガスをUO₂粉末に再転換したものをを用いている。再転換法には、湿式法と乾式法があるが、プルトニウム燃料第三開発室では、湿式法により再転換した粉末を利用している。

(2) MOX燃料ペレット製造工程

秤量工程では、MOX燃料ペレットのPu含有率が製品の仕様に定められた約20~30%となるように、前述の3種類の原料粉末を秤量したのち、プルトニウムとウランの濃度分布が均一になるように均一化混合工程においてボールミルを用いて粉碎・混合する。

均一化混合後のMOX粉末は、流動性を向上するために造粒工程において顆粒状にしたのち、成型工程においてペレット形状に加圧成型してグリーンペレットを得る。

グリーンペレットは、アルゴン-水素混合ガス(Ar-5%H₂)中で約800℃、2時間の予備焼結を行い、グリーンペレット中に含まれるバインダ(結合剤)、ポアフォーマ(密度降下剤)、ルブリカント(潤滑剤)等の添加剤(有機化合物)を除去する。予備焼結後のペレットは、Ar-5%H₂混合ガス中で約1700℃、4時間の焼結を行い、所定の密度まで焼き固めた焼結ペレットとする。焼結ペレットのうち、直径が製品の仕様よりも大きなものは、センタレスグラインダを用いてペレット外周(側面)の研削を行う。

研削後のペレットは、寸法(直径、高さ)、密度、外観等の各検査を行い、仕様を満たすものが製品ペレットとして燃料要素加工工程に送られる。また、検査工程において規格外品となったペレットは、乾式回収処理を経て原料粉末の一部としてリサイクルされる。

(3) 燃料要素加工及び集合体組立工程

燃料要素は被覆管、端栓、ワイヤスペーサといった各種部材、MOX燃料ペレット及びブランケットペレットから構成され、以下の工程で組み立てられる。

ペレット充填工程では、所定の長さに並べたMOX燃料ペレットを、ブランケットペレット(プルトニウムを増殖するための劣化UO₂のペレット)やプレナムスプリング等の部材とともに、あらかじめ下部端栓を溶接したオーステナイト系ステンレス製の被覆管に充填する。次に、ペレット及び各部材を充填した被覆管に、端栓溶接工程において上部端栓を溶接する。高速炉用MOX燃料では、熱を伝えやすいヘリウム(He)ガスを燃料要素中に充填するため、ペレット充填工程及び端栓溶接工程の作業は大気圧のHeガスを満たしたグローブボックス内で行う。加工した燃料要素は、表面に汚染のないことを確認した後、グローブボックスから取り出し、ヘリウムリーク試験、

X線検査により溶接部の健全性や燃料要素内部の構成品の確認を行った後、ワイヤスペーサの巻き付けを行う。

最後に、燃料要素の全長、重量、外観、曲がり、被覆管とワイヤスペーサの隙間等の各検査を行い、合格したものが製品として集合体組立工程に送られる。

燃料集合体は燃料要素、ラッパ管、エントランスノズル、ハンドリングヘッドといった各種部材から構成され、以下の工程で組み立てられる。

1体の燃料集合体の組立てに必要な本数の燃料要素（「常陽」；127本、「もんじゅ」；169本）を、燃料集合体の形状である六角形に合わせて並べ、エントランスノズルに固定して1つの束にする。この束を、あらかじめハンドリングヘッドを溶接したラッパ管に挿入し、ラッパ管とエントランスノズルの接合部を溶接する。

完成した燃料集合体は、全長、外観、ねじれ、曲がり等の検査を行い、合格品を製品として集合体貯蔵庫に保管する。

2.3 MOX燃料製造工程における安全管理

MOX燃料製造工程においては、取り扱うプルトニウムの特性から以下に述べる管理を行うことが重要になる。

(1) 臨界管理

プルトニウムやウランは一定以上の量が一ヶ所に集まると核分裂連鎖反応を起こして臨界状態に達する。MOX燃料製造工程では、核燃料物質の工程設備内への過剰な装荷や電気炉の冷却水漏えいによる核燃料物質の水没といった状況が積み重なると、条件によっては臨界事故に至る可能性がある。従って、臨界事故を防止するために、各工程設備において取り扱うMOX中の核分裂性物質の重量または燃料要素の本数を制限するとともに、中性子の減速材として作用する水等の取り扱いについても制限する必要がある。

プルトニウム燃料第三開発室におけるMOXペレット製造工程での臨界管理を例にとると、臨界状態となるために必要な核燃料物質の最小量（最小臨界量）は23.2 kgPu*（Pu*= $^{239}\text{Pu}+^{241}\text{Pu}+^{235}\text{U}$ ）である。これに対して、実際の工程では最小臨界量に安全係数を乗じて核的制限値を16.2kgPu*に設定し、各工程設備内で取り扱う核燃料物質の量を核的制限値以下にするとともに、水分含有率の管理を行うことで臨界管理を行っている。

(2) 内部被ばく防止

プルトニウムを体内に取り込むと α 線による内部被ばくを引き起こすため、体内への摂取を防止することが極めて重要である。MOX燃料製造工程では、原料粉末の受入れから燃料要素の端栓を溶接するまでのプルトニウムを取り扱う工程を、気密構造のグローブボックス中に収納することで閉じ込め性を確保するとともに、グローブボックス内を減圧に保つことにより、万が一グローブ

ボックスの気密構造が破れた場合においても、プルトニウムがグローブボックス外に漏洩しないようにしている。

(3) 外部被ばく管理

MOX燃料製造工程で取り扱う核物質は、 ^{241}Pu の放射性壊変によって生成する ^{241}Am や ^{237}U からの γ 線及び ^{238}Pu 等の偶数核種の自発核分裂や (α, n) 反応による中性子線を放出するため、これらの放射線による外部被ばくを十分に低減する必要がある。このため、各グローブボックスには、 γ 線及び中性子線を遮蔽するための鉛ガラス板や含鉛アクリル板を設置する。また、設備・機器の運転の自動化や遠隔操作化により、作業者が核物質の近くで作業する時間の短縮を図っている。

2.4 高速炉MOX燃料製造技術の今後の方向性

JAEAにおける高速炉用MOX燃料製造の今後の技術開発として、製造コストの低減（経済性向上）等を実現するため、簡素化ペレット法の開発が進められている。簡素化ペレット法では、(a)溶液段階でのプルトニウム含有率調整、(b)脱硝工程での原料粉末の造粒、(c)ダイ潤滑法によるペレット成型の三つの主要技術を導入することにより、第2図に示した現在のMOX燃料製造フローの大幅な削減が可能となる。

(a)は硝酸プルトニウム溶液と硝酸ウラニル溶液を混合する段階でプルトニウム含有率を製品の仕様に調整する技術である。また、(b)は原料粉末に少量の水を加えて攪拌することにより、バインダを添加することなく一つの工程で造粒粉末を得る技術、(c)は成型機金型に微量のルブリカントを塗布することにより、原料粉末にルブリカントを添加せずにそのまま成型する技術である。これらの主要技術の導入により粉末調製（秤量～造粒）工程及び予備焼結工程を削減することが可能になる。

本開発では、これまでに実験室規模（数百gMOX）の基礎試験を実施し、技術的に成立することを確認した。現在は、小規模（数kgMOX）のMOXペレット製造試験を通じて工学規模（数十kgMOX）でのMOX燃料ペレット製造の成立性について評価が進められている。

3. ガス炉用燃料

ガス炉とは、冷却材にガスを、減速材に黒鉛を使用する原子炉であり、炭酸ガスを冷却材に使用するマグノックス型炉及び改良型ガス冷却炉とヘリウムガスを冷却材に使用する高温ガス炉に大別される。前者は英国で開発され、発電炉として導入されたが、その後は軽水炉が主流になったことから、同タイプの原子炉の建設は原子力エネルギー開発の創成期に限られている。後者は、米、独、日本などで研究開発が進められてきたものである。

高温ガス炉は、高温のガスを利用したガスタービンによる高効率発電や石炭のガス化・液化、水素製造等の工

業利用への関心から近年研究開発が進められており、南アフリカ、中国等の国々でも導入が計画されている。本節では、高温ガス炉の燃料製造について述べる。

3.1 高温ガス炉用燃料の特徴

高温ガス炉用燃料は、軽水炉用燃料と比較すると以下の特徴を持つ。

- a) 燃料中の²³⁵Uの割合（U濃縮度）が数～十数%と軽水炉に比べて高い。
- b) 軽水炉と比べて高い冷却材温度（700～1000℃）下で使用するため、耐熱性に優れたセラミックスで被覆した UO_2 燃料粒子（被覆燃料粒子）を使用する。
- c) 耐熱性の高いセラミックス被覆は、事故時に燃料温度が上昇しても殆ど破損せず、被覆燃料粒子内にFPを保持することが可能である。

3.2 高温ガス炉用燃料の製造

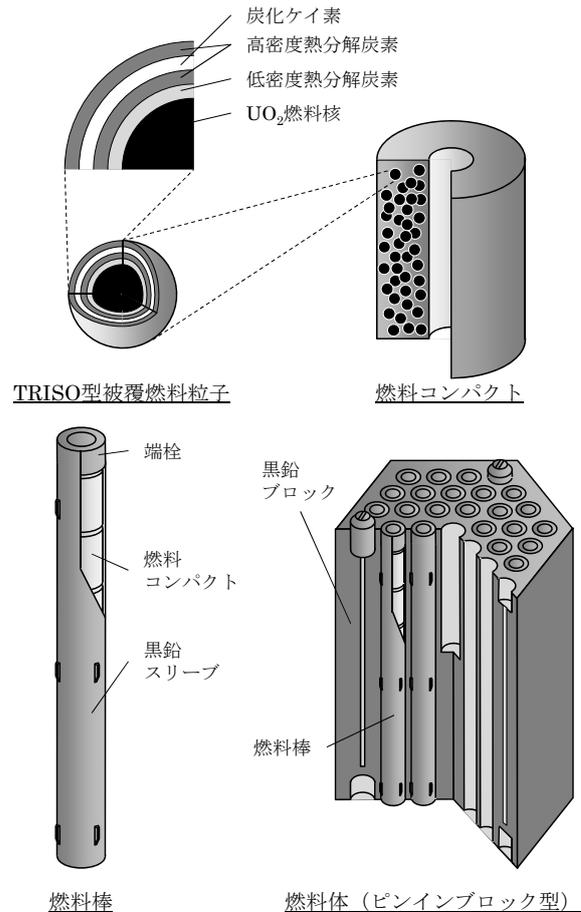
高温ガス炉用燃料には、ウラン酸化物の粒子（燃料核）をセラミックスで被覆し、黒鉛粉末と混合して焼き固めたものを使用する。燃料体の形状は独国で開発された球状燃料（ペブルベット型燃料）や米国で開発されたブロック型燃料、さらには日本で開発され、JAEAの高温工学試験研究炉（HTTR）に採用されているピンインブロック型燃料など様々である。第3図にHTTR用燃料の概略を示す。

HTTR用燃料の製造プロセスの概要を以下に述べる。最初に硝酸ウラニル溶液の液滴をアンモニア溶液中に滴下して得られる粒子を乾燥した後、焙焼・還元・焼結して UO_2 粒子の燃料核を得る。この燃料核に、低密度熱分解炭素層、高密度熱分解炭素層、炭化ケイ素（SiC）層、高密度熱分解炭素層の順に4層の薄いセラミックスの被覆を施すことにより、直径1mm弱のTRISO型被覆燃料粒子とする。これらの被覆層は、FPの被覆燃料粒子内への閉じ込め、燃料核の体積膨張による被覆の破損防止、被覆層の強度維持などの役割を担う。

次に被覆燃料粒子を黒鉛粉末と混合して中空円筒形状に成型した後、予備焼結及び焼結して燃料コンパクトに加工する。これを黒鉛スリーブに封入して燃料棒とし、さらに六角柱黒鉛ブロックに装荷して燃料体とする。

3.3 高温ガス炉技術開発の今後の方向性

今後の高温ガス炉の技術開発では、冷却材の炉出口温度のさらなる高温化や燃料の高燃焼度化が目標となる。このため、SiCよりも耐熱性や化学的安定性に優れた炭化ジルコニウム（ZrC）を用いた被覆燃料粒子の開発や低密度熱分解炭素層及びSiC層の厚さの増加による被覆燃料粒子の改良が進められている。また、得られる熱エ



第3図 HTTR用燃料の概略

ネルギーを産業用熱源として利用する石炭のガス化や液化、水の熱化学分解による水素ガス製造や製鉄など、発電以外の分野についても研究開発が進められている。

参考文献

- 1) 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/>）
- 2) T. Abe and K. Asakura, “Comprehensive Nuclear Materials” Elsevier, (2012), vol. 2, pp. 393-422
- 3) 日本原子力学会「次世代燃料」研究専門委員会：プルトニウム燃料工学,(1998)
- 4) 日本原子力学会「高度燃料技術」研究専門委員会：最新核燃料工学—高度化の現状と展望—,(2001)

日本原子力研究開発機構 武内健太郎
(2013年2月5日)