

8-4 FR酸化物燃料

1. はじめに

高速炉サイクルの開発では、高速中性子の特性を利用し、プルトニウム (Pu) の増殖、Puの燃焼、マイナーアクチニド (MA) の燃焼等の自由度を有するシステム開発が可能である。特に分離変換・廃棄物対策の視点から、高速炉システムには以下の特徴がある。

(1) 燃料製造の合理化、遠隔化等によりフィッサイルの低下したPu及びMAの燃料としての利用など、Pu及MAをシステム内で柔軟にリサイクルでき、システム外に排出するPu、MAの量を最小化できる。

(2) 炉心の変更によりPuの増殖にも、Pu、MAの燃焼にも利用でき、システム内のPu及びMAインベントリを調整できる。

このような特徴を有するシステムを成立させるためのFR酸化物燃料の概念と燃料開発の状況を概説する。

2. FR酸化物燃料の概念

高速炉でMAを燃焼させるため、炉心燃料として低濃度のMAを含有するMOX燃料を用いる概念がある。この概念では、炉に装荷する新燃料のMA含有率は一種類であり均質サイクルとなる。高速増殖炉サイクル実用化研究開発における検討では、MA濃度を炉心設計等に大きな影響を与えない範囲に設定でき (最大5%)、それが均質サイクルの特徴であるとされている¹⁾。また、MAのサイクルに対応する技術 (分離、燃料設計、燃料製造、燃料物性、照射挙動等) の開発は、従来のMOX関連の技術をベースに進めることができ、比較的早期に技術的見通しを得ることができることも特徴の一つである。均質サイクルに関する研究開発は広範囲で、物性研究をはじめ、製造プロセス、製造システム、照射試験及び照射後試験などが行われている。

一方、MA濃度を高めたターゲット燃料を炉心に装荷しMAを燃焼させる概念がある。これは、炉心に供給する燃料集合体にMAを含むターゲット燃料とMAを含まない炉心燃料集合体があり、非均質サイクルとなる。この非均質サイクルの特徴は、炉心燃料のサイクルとターゲット燃料のサイクルを独立させ、MAの影響をマスマフローが小さい (集合体数の少ない) のターゲット燃料サイクルに限定できることである。すなわち、MAの影響として高発熱性及び高放射能の燃料の製造となり、ホットセル構造の完全遠隔の燃料製造施設が必須となる。ターゲット燃料サイクルは燃料のマスマフローが小さく、コンパクトな製造施設で対応可能となり、均質サイクルの大型ホットセル完全遠隔燃料製造施設に比べて有利となる。

この燃料に係る研究には、母材として不活性母材 (MgO等)、UO₂あるいはMOX等を用いたターゲットの物性研究等がある。

以下に、主に均質サイクル用の低濃度MA含有MOX燃料について、現状の知見を整理する。

3. 燃料設計及びサイクル技術に係る課題

高速炉燃料の設計では、燃料溶融の防止、被覆管のクリープ破損の防止、被覆管の歪制限、各部応力の制限及び設計疲労寿命を設計方針としている。

燃料溶融の防止は、燃料線出力、燃焼度、冷却材温度等の燃料設計条件に基づき実施する燃料温度の評価により担保する。このため、評価の前提となるMA含有MOX燃料の融点及び、燃料温度計算の基本物性である熱伝導度へのMA含有率の影響の把握が重要である。また、燃料の照射挙動として、燃料ペレット内の径方向の温度勾配に基づく燃料組織の変化 (中心空孔の形成等) に対するMA添加の影響、Pu及びMAの燃料ペレットの中心部 (中心空孔周辺部) への移動に伴うそれらの濃度の上昇等を把握する必要がある。

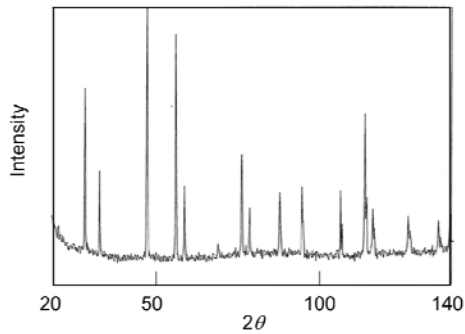
被覆管のクリープ破損防止は燃料要素の炉内滞在中の被覆管温度、被覆管応力及び滞在時間に基づき算出されるクリープ寿命分数和が基準値を下回るにより担保する。被覆管応力を算出するベースとなる被覆管肉厚及び内圧の評価が重要となる。このため、被覆管肉厚の減少に影響する被覆管内面の腐食 (FCCI) に及ぼすMA添加の影響を把握することが重要である。特にFCCIの緩和のためのO/M比を評価するために、MA添加MOXの酸素ポテンシャル測定が必要である。内圧はFPガスに加えて、MA添加に伴い発生するHeガスが寄与するため、その影響を評価する手法が必要である。その他の設計方針でMA添加MOX燃料に対し考慮すべき項目は、クリープ破損防止と同様、被覆管肉厚の減少と内圧の増加である。

サイクル技術の開発では、特に燃料製造システムにおいてMAの利用に伴い、高放射能、高発熱性の原料を遠隔で取扱うための合理的な製造フローが必要である。また、再処理システムでは、MAを回収する技術として所定の回収率、除染係数を達成するための抽出クロマトグラフ法等の検討が必要である。

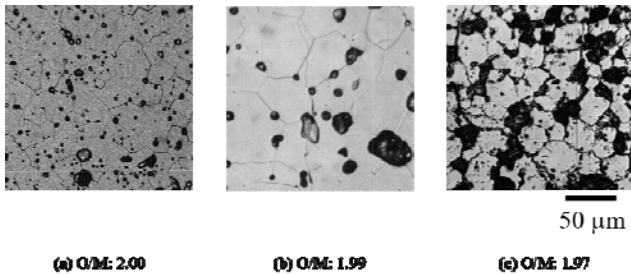
4. 燃料物性

(27Pu,68U,5Am) O_{2-x}焼結体 (以下「5%Am-MOX」という) を対象に、燃料組織とO/M比の関係や、Amの含有率と格子定数の関係等の相状態に関する研究成果がある²⁾。用いられた試料は遠隔操作技術により調製されたもの

であるが、燃料ペレットが蛍石型結晶構造を有する均一な固溶体であることを示している。(第1図、第2図参照)



第1図 5%Am-MOX燃料ペレットのXRDパターン²⁾

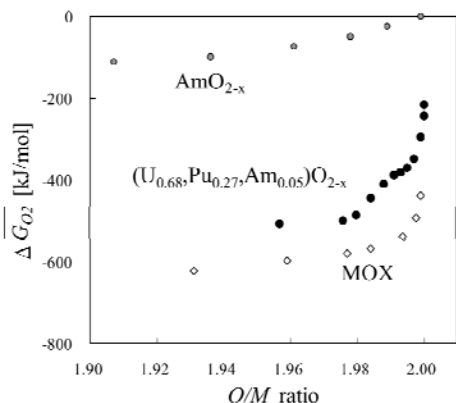


(a) O/M: 2.00 (b) O/M: 1.99 (c) O/M: 1.97

第2図 5%Am-MOX燃料におけるO/M比と燃料組成の関係

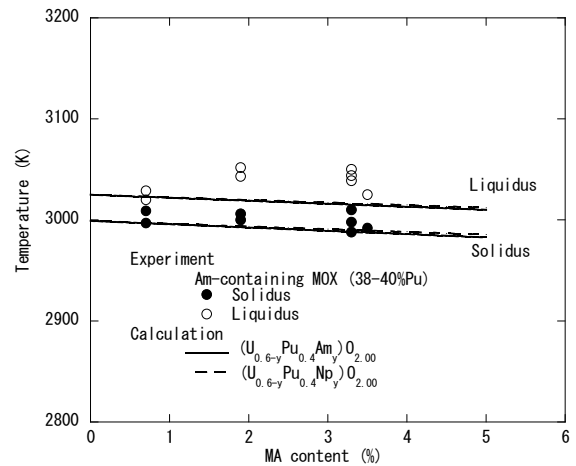
また、5%Am-MOXの組織状態はO/M比により大きく変化することが示された。(4-2③ 参照)

第3図に示した結果は、Amの添加に伴いMOX燃料の酸素ポテンシャルが増加することを示唆する。高速炉MOX燃料の照射挙動において、被覆管内面の腐食(FCCI)の量は、MOX燃料ペレットの製造時のO/M比が大きい(酸素ポテンシャルが高い)ほど、大きい。5%Am-MOX燃料の酸素ポテンシャルは同じO/M比のMOX燃料のそれと比べるとより高いため、MOX燃料の内面腐食環境と同等にするためには、Am-MOXより低いO/M比にする必要がある。



第3図 5%Am-MOX燃料の酸素ポテンシャル³⁾

第4図に、Am含有率の増加に伴いMOX燃料の融点が低下することを表す実測データを示す。融点は、前述のように燃料溶融防止の判断基準となるので、測定誤差の評価が重要であり、高温での測定中における燃料と燃料を封入するカプセル材料との反応の影響の評価等が測定技術上の課題である。



第4図 Am-MOX燃料融点のAm含有率依存性⁴⁾

4. MA酸化物燃料の製造

4.1 MA含有MOX燃料の製造プロセスの概念¹⁾

MA含有MOX燃料の製造では、高放射能で高発熱性の原料を大量に扱う。現行のMOX燃料製造システムの原料粉末の取り扱い工程は多くの機器で構成され、ホットセル内の工程の遠隔自動化、粉末取扱い機器のメンテナンス性の悪化への対策、高温になる原料粉末への有機潤滑剤添加の制限等の重大な課題が生じる。このため、現行の原料粉末の機械混合による製造工程を改良し、粉末を取り扱う工程の大幅な削減等のために簡素化ペレット法と呼ばれる新たなペレット製造プロセスの開発が進められている。

簡素化ペレット法の概念を現行プロセスと比較して第5図に示す。現行の混合転換工程では、PuとUが等量となるように硝酸プルトニウムと硝酸ウラニルの溶液を混合するが、簡素化ペレット法では、Pu、U及びMAの混合比を燃料仕様に調整した硝酸溶液をマイクロ波加熱脱硝、焙焼還元工程によりMOX粉末とし、このMA-MOX粉末をそのまま成型、焼結してMA含有MOXペレットを得る。

4.2 簡素化ペレット法の主要技術¹⁾

簡素化ペレット法の開発のために、日本原子力研究開発機構が進めている技術開発の現状を概説する。主要な開発課題は、①脱硝・転換・造粒一元処理技術、②ダイ潤滑成型技術、③焼結・O/M調整技術、及び④セル内遠隔技術の開発である。

① 脱硝・転換・造粒一元処理技術

粉末飛散を防止するため、マイクロ波脱硝、焙焼・還元及び造粒を同一容器で処理する方法を開発する。窒化珪素製の脱硝容器が焙焼・還元環境下での耐久性を有することを確認。

② ダイ潤滑成型技術

潤滑剤をペレットの成型金型の内面に直接塗布し成型するダイ潤滑成型技術により、潤滑剤混合工程、脱脂工程等を削除できる。工学規模(約40kgMOX/バッチ)で同法によるMOXペレット製造試験を実施し、運転条件の検討、連続成型の可否、及びペレット品質への影響の評価を実施。焼結ペレットの密度、外観等に問題がないことを確認。

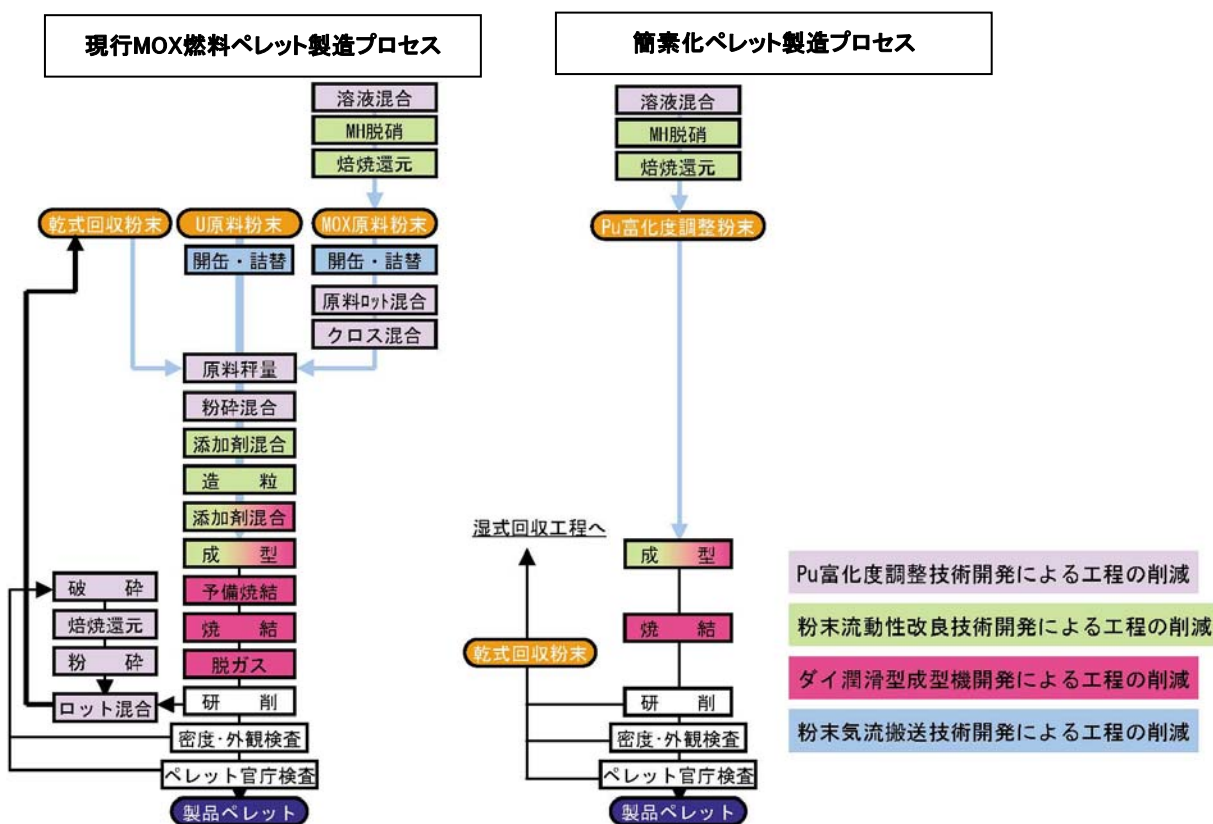
③ 焼結・O/M調整技術

均質な低O/M燃料を調製するために、焼結挙動とO/M調整のための熱処理の挙動を把握している。焼結工程では、適切な酸素ポテンシャルの雰囲気中で熱処理をすることにより、均質な高密度ペレットの調製が可能であることを確認。また、O/M調整の熱処理では、急激にO/M変化をさせるとペレット内にポアの成長とクラックが発生するため、徐々にO/Mを下げる必要があることを確認。

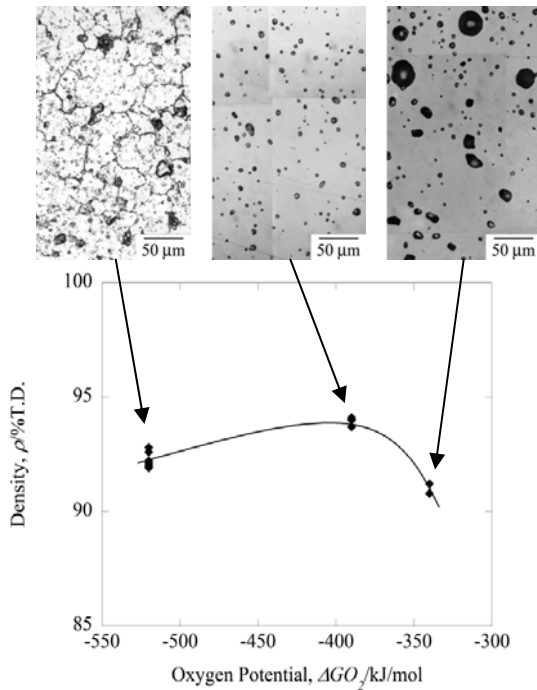
5%Am含有MOX燃料の焼結試験において、高酸素ポテンシャルの雰囲気中で焼結密度が低下した。(第6図)これと類似した挙動が、高い酸素ポテンシャルを有する(U,Gd)O₂の焼結密度の酸素ポテンシャル依存性においても観察されている。熱安定性に優れ、高密度で均質なAm-MOX 焼結体を作製するため、酸素ポテンシャルの影響の評価等を実施中。

④ セル内遠隔製造技術

セル内遠隔設備に必要な2つの機能(自動運転、遠隔保守)に係る技術開発が必要である。代表設備として重量部品(プレスヘッド)を有し、設備内物流が複雑で精密保守が必要なペレット成型設備を対象にセル内の操作性及び遠隔保守性の評価を実施。成型設備の保守項目(70項目)をモジュール交換で対応する設備概念を作成(37モジュール)。コンピュータグラフィックによるシミュレーションにより設備の操作性及び保守時間の見通しを得た。



第5図 燃料製造フロー

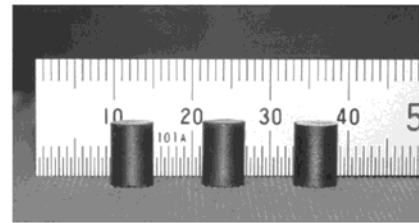


第6図 5%Am-MOXの焼結密度の酸素ポテンシャル依存性⁵⁾

5.2 照射試験用燃料の製造

セル内に設置した燃料ペレット製造設備、燃料ピン加工設備および検査機器等を用いて、照射試験用のAm-MOX燃料を製造した。(第8図、第9図) Am-MOX燃料の品質保証検査のため、セル内およびグローブボックス内に分析機器、検査機器を整備するとともに、分析精度評価を行った(第1表)。

約300個(総重量約0.8kg)の燃料ペレットを準工学的規模で製造した結果、照射試験に要求される品質(不純物含有率制限を満たし、割れや欠けなどがなく、均一な組成を有する燃料ペレット、欠陥のない端栓溶接、燃料ピン表面の低汚染密度維持)を全て満たした。



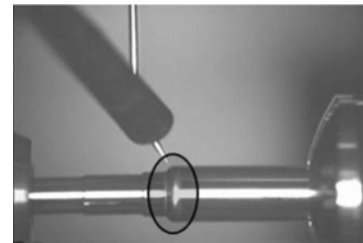
第8図 焼結ペレット (5%Am-MOX)

5. MA-MOX燃料常陽照射試験⁶⁾

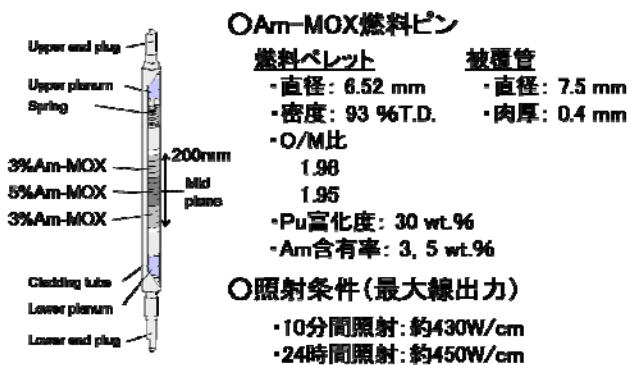
5.1 照射試験燃料及び照射条件

高速実験炉「常陽」において、5%Am-MOX燃料、3%Am-MOX燃料の照射試験を実施した。ここで、照射挙動へのO/M比の影響を確認するため、O/M比をパラメータ(1.95及び1.98)とした。なお、高線出力条件下での燃料ペレット中の組織変化や元素の移動等の照射挙動評価のため、高い線出力(約430W/cm)を達成した。

最大出力保持時間として、高出力の照射燃料ピンの健全性確認(燃料溶融の有無)のための10分間と、Am再分布挙動を評価するための24時間の2種類とした。



第9図 ホットセル内における端栓溶接



第7図 照射試験用Am-MOX燃料仕様及び照射条件

第1表 Am-MOX燃料の品質保証分析項目と分析手法

分析項目	分析手法
核分裂性物質濃度	
Pu含有率	▶α線スペクトロスコピー
²³⁵ U濃縮度	▶γ線スペクトロスコピー
Am含有率	▶質量分析法
O/M比	酸化還元質量分析法
蒸発性不純物含有量	真空加熱定容加熱法
水分不純物	電量滴定法
金属不純物	ICP発光分光法
密度	寸法重量測定法
Puスポット径	αオートラジオグラフ

5.3 照射後試験

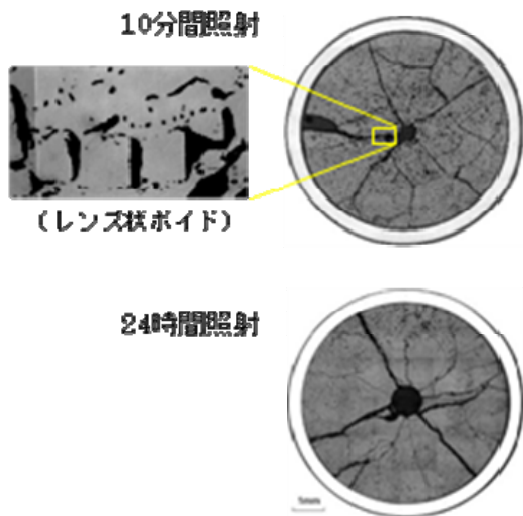
Am-MOX燃料を「常陽」で照射した後、Pu-241からのβ壊変に起因するAm-241の蓄積が無視できる短期間内に照射後試験を実施した。その際、燃料ピンの複数の軸位置から試料を採取し、照射条件と照射挙動に関するデータを取得した。

その結果、高線出力下で短時間（10分間および24時間）照射した際のAm-MOX燃料には燃料溶融が発生しなかったことを確認した。また、AmはPuと同様に、線出力条件に応じて再分布し燃料中心部で高濃度化することを定量的に把握した。さらに、Am再分布挙動におよぼすO/M比の影響を明らかにし、最大5%のMAを含有するMOX燃料の熱設計上重要となる基礎データを取得した。

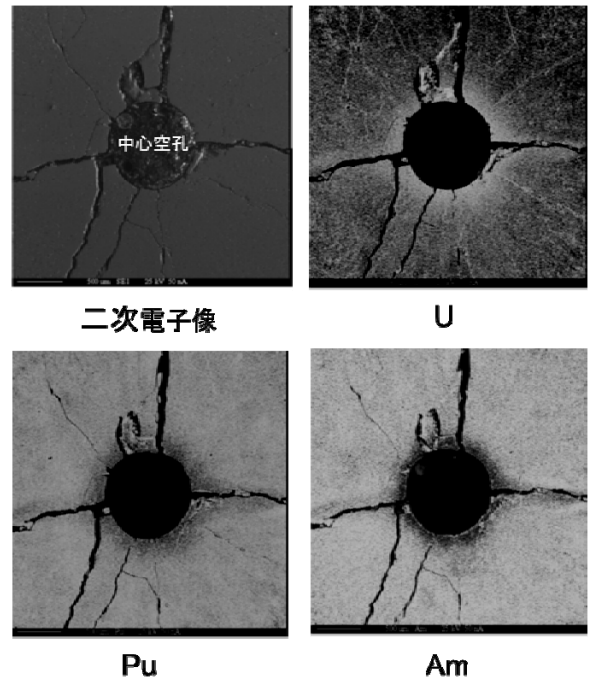
第10図に10分間照射及び24時間照射の燃料組織の写真を示す。10分間照射において、組織変化が観察され、レンズ状ボイドの掃引に起因する中心空孔の形成が認められた。24時間照射すると中心空孔が拡大し、組織変化はほぼ終了することを確認した。24時間照射燃料の元素分布を調べることによって、短期照射時の代表的な再分布挙動に関するデータを得られることがわかった。

第11図に元素の二次元分布の測定結果を示す。中心空孔の周辺でU濃度が低下し、PuとAmの濃度が上昇する再分布挙動を示している（図中の黒い部分ほど濃度が高い）。

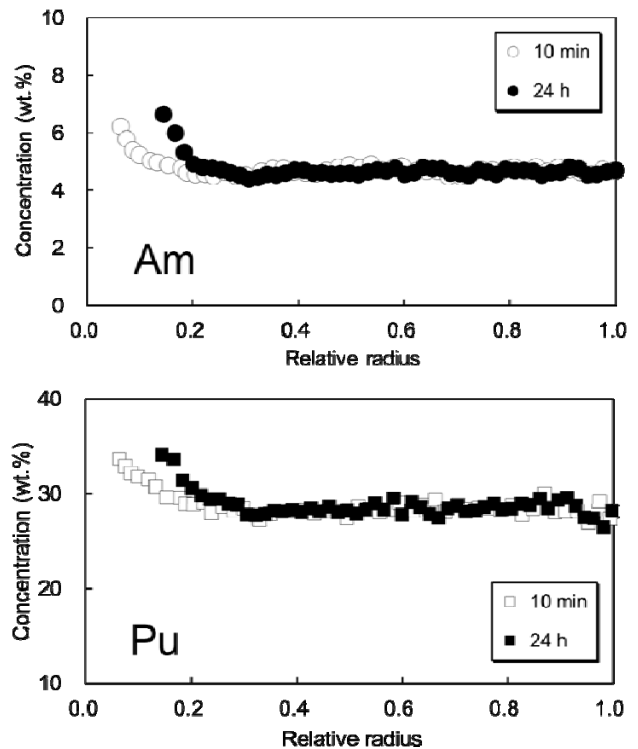
第12図に再分布挙動の照射時間依存性を示す。10分間照射した5%Am-MOX燃料の中心空孔周辺部においてAmおよびPuの濃度上昇が認められ、再分布が始まっていることを確認した。24時間照射するとさらにAmとPuの高濃度化が進んでいることを定量的に把握できた。



第10図 5%Am-MOX燃料の組織変化

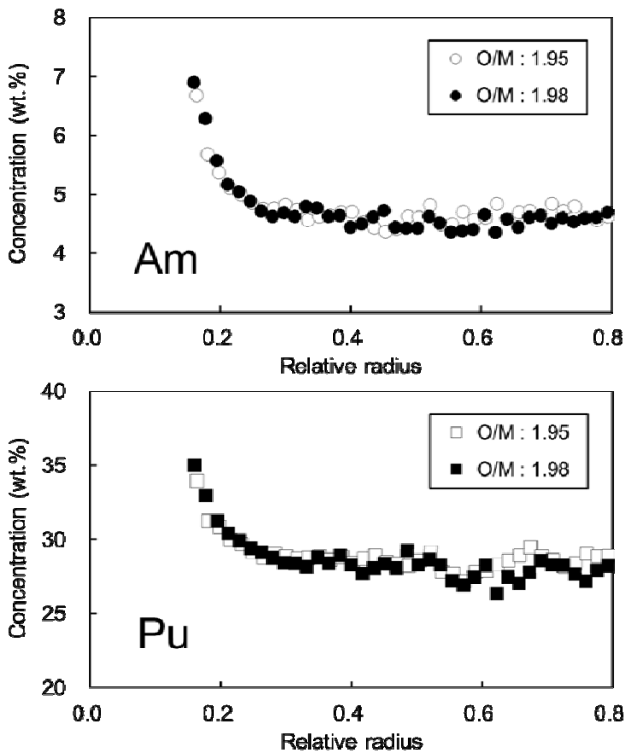


第11図 中心空孔周辺の元素分析
(24時間照射、O/M=1.98)



第12図 再分布挙動の照射期間依存性
(5%Am-MOX, O/M=1.98)

第13図には、再分布挙動のO/M依存性を示す。O/M比が1.98の試料における中心空孔周辺のAm及びPuの到達濃度は、O/M比が1.95の試料よりも高い値を示した。Am再分布挙動はPuのそれと類似しており、O/M比が高いほど再分布が顕著となることを示している。



第13図 再分布挙動のO/M依存性
(5%Am-MOX, 24時間照射)

6. まとめ

高速炉を用いた分離変換のためのFR酸化物燃料の燃料形態のうち、検討が進んでいる均質サイクルシステムに対応する低濃度MA含有MOX燃料に関する開発課題、その課題解決に向けての物性研究、燃料製造システム及びプロセス開発、並びに照射試験/照射後試験の現況についてまとめた。

参考文献

- 1) 高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCTプロジェクト) フェーズ I 報告書JAEA-Evaluation2011-003
- 2) H. Yoshimochi, *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 41, (8), 2004, 850-856.
- 3) M. Osaka, *et al.*, J. Alloys and Comp., 397(2005)110-114.
- 4) M. Kato, Proceedings of ICAPP'09, paper 9415 Tokyo, Japan, May 10-14, 2009
- 5) 三輪、他、Am含有MOX燃料の焼結に及ぼす酸素ポテンシャル (研究報告) JNCTN9400 2005-023
- 6) K. Tanaka, *et al.*, J. Nucl. Mater., 449 (2013) 480-488.

日本原子力研究開発機構 田中健哉
(2015年1月22日)