

課題目標・目的及び研究成果

<p>1. 当初の目的・目標</p>	<p>次世代の高速増殖炉サイクルシステムの有力な候補の一つに、低除染酸化燃料をナトリウム冷却高速炉で使用する概念が考えられるが、概念検討を行うための燃料基礎物性データが圧倒的に不足しているという問題がある。そこで本業務では、低除染酸化燃料の基礎物性を詳細かつ系統的に研究することで、温度や組成をパラメータとした物性評価式を構築することを目標とし、これを達成するために、以下の三つの研究を計画した。</p> <p>①模擬燃料の作製と相状態・物性評価 ②実燃料の作製と相状態・物性評価（再委託先：原子力機構） ③まとめと評価</p> <p>①においては、非放射性元素を用いて様々な組成の模擬低除染燃料を作製し、その熱伝導率や弾性定数といった燃料の挙動を論じるうえで必要不可欠な物性を評価する。</p> <p>②においては、プルトニウムやマイナーアクチニドを含む代表的な組成の実燃料について物性評価をすすめるとともに、高速炉照射済燃料の照射後試験を実施する。</p> <p>③においては、①と②で得られた結果をとりまとめ、燃料の組成や温度等をパラメータとした物性評価式を構築するとともに、3年間の業務の成果とその評価をまとめる。</p>
<p>2. 研究成果</p>	<p>【事業項目1】</p> <p>低除染燃料マトリックス相の模擬物質として、$(U_{0.65-x}Ce_{0.3}Pr_{0.05}Nd_x)O_2$ ($x = 0.08, 0.12$)を作製し、その相状態を評価するとともに各種物性計測を実施した。</p> <p>その結果、模擬燃料は結晶構造が蛍石型構造の単相試料であり、添加した希土類元素は全て固溶していることを確認した。また、模擬燃料の熱伝導率は、温度上昇に伴い減少し、かつNd添加量が多いほど低下することがわかった。一方で、模擬燃料のヤング率は、Nd添加量が多いほど減少するが、硬度はほぼ一定の値をとることがわかった。</p> <p>以上の通り、本事業項目において、当初想定していた通りの成果を得ることができた。</p> <p>一方で、硬度を測定するために実施した押し込み試験の前後において、模擬燃料の気孔や粒界等の微細組織と相状態をレーザー顕微鏡等を用いて観察した結果、高荷重での押し込み試験後に得られた圧痕の多くは、結晶粒界をまたいで記されていることが明らかとなった。圧子が結晶粒界をまたぐほど荷重が大きい場合、得られる機械的特性が粒界や気孔といった微細組織の影響を受けるため、押し込み試験による機械的特性の評価にあたっては、荷重をできるだけ小さくし、圧痕が一つの粒内に留まるようにすることが重要であることが明らかとなった。これは、本事業項目において副次的に得られた成果である。ここで得られた圧子と微細組織の相互作用に関する重要な知見は、押し込み試験による機械的特性の評価において、原子力材料のみならず様々な工業材料に応用できる</p>

非常に発展性の高い特筆すべき成果であるといえる。

【事業項目 2】

ウラン、プルトニウム、アメリシウム、さらに非放射性の FP 元素を含む代表的な組成のマイナーアクチニド含有模擬低除染燃料（模擬燃焼度：0、150 及び 250 GWd/t に相当）を作製し、その相状態評価と物性測定を実施するとともに、少量のアメリシウムを含有し、かつ高燃焼度まで照射した高速炉 MOX 燃料について、FP 析出相の形態に着目した組織観察試験を実施した。

その結果、模擬燃料の相状態として、高燃焼度燃料に見られるものと類似形態、類似組成の FP 析出相の存在が観察された。また、物性評価に関しては、燃焼度の伸長に伴い弾性率が増加すること、150 GWd/t の燃焼度に相当する模擬燃料の酸素ポテンシャルが未照射燃料に比べて大きいこと、150 GWd/t の燃焼度に相当する模擬燃料の融点は、従来の照射済燃料で得られた燃焼度依存性の外挿線に近い値を示すことが、それぞれ実験的に明らかになった。

一方で、実際の照射済 MOX 燃料を用いての組織観察試験の結果、照射中における燃料の組織変化に対応したプルトニウム及びアメリシウムの分布状況が明らかになった。また、酸化物析出相を構成するバリウム、ジルコニウムや白色金属析出相を形成するモリブデン、パラジウムなどの重要 FP について、径方向の存在分布を把握することに成功した。プルトニウム及びアメリシウムの分布及び FP 析出相の存在形態は、照射中における燃料ペレット径方向の温度分布に強く依存していることが明らかとなった。具体的には、温度の高い燃料ペレット中心部でプルトニウム及びアメリシウムの濃度が増加する一方でウラン濃度が低下すること、セシウムは温度の低い燃料ペレットと被覆管のギャップ部に高い濃度で存在すること、バリウム及びジルコニウムについては燃料半径の中間部に高濃度で存在することなどが明らかとなった。

以上の通り、本事業項目において、当初想定していた通りの成果を得ることができた。

なお、前述の通り、本事業において、模擬燃料の融点が実際の照射済燃料の融点とほぼ同等であることが明らかとなった。言い換えると、模擬燃料を用いることで照射済燃料の融点を高確度で評価できることが示された。つまり、模擬燃料を構成する成分と化学組成が実燃料と同等であれば、たとえ両者の微細組織が異なっても、測定される融点の値は同等になることが示されたといえる。一般に、照射済燃料はその取り扱いが極めて困難であり、物性測定に際しては量的にも時間的にも大きな制限を受ける。照射済燃料の融点を評価するうえで模擬燃料使用の有効性を示した本研究成果は、高速炉燃料のみならず軽水炉燃料開発においても有用な知見を与える特筆すべきものであるといえる。

【事業項目 3】

模擬燃料ならびに模擬酸化物析出相の熱伝導率データを用いて、それらの相が混在する系の熱伝導率を有限要素解析により評価した。有限要素解析により得られた結果と、模擬燃料ならびに実燃料の物性測定結

果・相状態評価結果をもとに、低除染酸化燃料の物性データを取りまとめ、燃料の組成や温度等をパラメータとした物性評価式を構築した。また、本業務の最終年度として3年間の業務の成果とその評価をまとめた。

その結果、各種酸化物析出相が存在する低除染燃料について、有限要素解析による熱伝導率評価手法を確立することができた。得られたすべての結果をもとに、模擬燃料あるいは実燃料の熱伝導率、ヤング率といった基礎物性の燃焼度や温度依存性をあらかず物性評価モデルを構築することに成功した。また、実燃料の融点と酸素ポテンシャルに関しては、150 GWd/t の燃焼度に相当する組成の試料についての実験結果を表現する数式が提案できた。例えば、本事業において、以下のような物性評価式を構築することに成功している。

- ・ 低除染燃料のヤング率： $E(GPa) = 0.0859 \cdot Bu + 200$ (Bu : GWd/t)
- ・ 低除染燃料の融点低下： $\Delta T_m(^{\circ}C) = 0.6 \cdot Bu$ (Bu : GWd/t)

今回得られた低除染酸化燃料の物性データと相状態は、過去に報告されている高速炉用通常 MOX 燃料のそれらと同等あるいは外挿等により評価可能であることがわかった。

以上の通り、本事業項目において、当初想定していた通りの成果を得ることができた。

なお、事業開始当初(平成18年度)においては、本項目では単に得られた物性データを取りまとめ適宜フィッティングを行うことで、温度や組成をパラメータとした物性評価式を導出することのみを予定していた。しかしながら、19年度、20年度と研究を実施していくうえで、担当POからいただいた助言をもとに共同研究者と意見交換を重ねたことで、物性評価式を構築するにあたっては、単なるフィッティングに留まることなく、より学術的にデータを評価することを目指し有限要素解析を取り入れることとなった。この結果、マトリックス相中に第二相が析出しているような複合相について、有限要素解析による熱伝導率解析手法を確立することができた。これは、事業開始当初は予想していなかったものであり、特筆すべき成果であるといえる。また、本解析手法は、当然のことながら核燃料や原子力材料においてのみ有効なものではなく、多種多様な材料系に適用可能なものであり、その発展性も極めて大きい。

【事業全体】

本事業において得られた成果の中で最も重要なものは、低除染燃料の相状態や基礎物性に関する知見、具体的には、燃料中のFPの存在状態に関する情報や各種物性評価式である。これらを取得することは、平成18年度の事業開始時の成果目標であり、三年間の事業において、当初目標は順調に達成することができた。また、ここで得られた成果は、将来の高速炉サイクルの実用化に際し、有用な基礎データとなりうるものであり、発展性・将来性いずれも極めて高い。一方で、前述の通り、本事業を計画通り進めていくうえで、副次的にもいくつかの成果が得られた。大阪大学と原子力機構が密接に協力することで、当初目標としていた成

果はもちろん、副次的にも多くの成果が得られたことは、特筆に価する。

【得られた成果の外部発表】

論文発表

1. 黒崎 健、革新的原子力システムの実現へ、成果が出始めた文科省の研究開発事業（最終回）低除染酸化燃料サイクルの成立を指向した多元系燃料の物性研究、原子力 eye、54, 50-53 (2008).
2. K. Kurosaki, K. Tanaka, M. Osaka, H. Muta, M. Uno, and S. Yamanaka, "Effect of Nd and Pr addition on the thermal and mechanical properties of (U,Ce)O₂", *J. Nucl. Mater.* **389**, 85-88, (2009).
3. K. Kurosaki, H. Muta, M. Uno, S. Yamanaka, K. Tanaka, and M. Osaka, "Characterization of oxide precipitates observed as a gray phase in high-burnup mixed oxide fuels for fast reactor", The Materials Science & Technology 2008 Conference and Exhibition proceedings, pp. 313-318 (2008).
4. アルカリ金属またはアルカリ土類金属とモリブデンからなる複合酸化物の熱伝導率解析、黒崎健、田中康介、逢坂正彦、徳島二之、儀間大充、牟田浩明、宇埜正美、山中伸介、日本原子力学会和文論文誌（投稿中）。

口頭発表（国際会議）（いずれもオーラル発表）

5. Characterization of oxide precipitates observed as a gray phase in high-burnup mixed oxide fuels for fast reactors, MS&T08, Materials Science & Technology Conference and Exhibition 2008, David L. Lawrence Convention Center, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, October 5-9, 2008.
6. Effect of Nd and Pr addition on the thermal and mechanical properties of (U,Ce)O₂, 12th Symposium on Thermo-chemistry and Thermo-physics of Nuclear Materials (ST2NM-12), Pörschach, Austria, August 30-September 3, 2008.
7. Effect of americium and simulated fission products addition on oxygen potential of uranium-plutonium mixed oxide fuels, 2009 MRS Fall Meeting, Hynes Convention Center and Sheraton Boston Hotel, Boston, Massachusetts, USA, November 30-December 4, 2009.

口頭発表（国内学会）（いずれも口頭発表）

8. 低除染酸化燃料サイクルの成立を指向した多元系燃料の物性研究
(1) (U,Ce)O₂ の熱的・機械的特性におよぼす Nd と Pr の添加効果、日本原子力学会「2008 年秋の大会」（2008 年 9 月 4 日～6 日、高知工科大学）。
9. 低除染酸化燃料サイクルの成立を指向した多元系燃料の物性研究
(2) (Sr,Ba)-Mo-O 系複合酸化物の熱伝導率解析、日本原子力学会「2009 年春の年会」（2009 年 3 月 23 日～25 日、東京工業大学）。

	<p>10. 低除染酸化物燃料サイクルの成立を指向した多元系燃料の物性研究 (3) 高燃焼度低除染酸化物燃料の熱伝導率解析、日本原子力学会「2009年秋の大会」(2009年9月16日～18日, 東北大学) .</p> <p>11. 低除染酸化物燃料サイクルの成立を指向した多元系燃料の物性研究 (4) 模擬低除染酸化物燃料の調製と物性測定、日本原子力学会「2009年秋の大会」(2009年9月16日～18日, 東北大学) .</p>
--	--