

# 照射を目指した MA 合金燃料の製造基盤技術の開発

(受託者) 国立大学法人福井大学

(研究代表者) 有田裕二 附属国際原子力工学研究所

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、財団法人電力中央研究所

(研究開発期間) 平成 22 年度～24 年度

## 1. 研究開発の背景とねらい

本事業では、軽水炉プルサーマル発電や高速炉発電において多量に発生し、その処分負担が大きくなることが予測されるアメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)、ネプツニウム(Np)等のマイナーアクチニド(MA)について、高速炉で効果的に燃焼できる MA 合金燃料の実規模製造技術を、その製造支援技術とともに開発し、MA 合金燃料照射試験に対応可能な技術基盤を構築することを目的とする。

## 2. 研究開発成果

### 2.1 照射試験用燃料サンプルの製造に向けた均質 MA 合金製造

原子力機構にある射出成型装置を用いて模擬合金の射出成型を実施し、模擬燃料の均質性や蒸発損失に与える不純物酸素の影響を調べた。雰囲気中の不純物酸素濃度は、射出成型装置運転(加熱)時、何桁ものオーダーで低下した。雰囲気中の酸素濃度が ppm オーダーよりも低い場合には、模擬燃料の均質性に与える不純物酸素の影響は認められなかった。 casting により、図 1 に示すような外径 3mm 長さ 30mm の燃料スラグを得ることができた。



図 1 射出鋳造した U-Pu-RE-Zr 合金燃料スラグ

また、酸化ウラン、酸化プルトニウム、希土類酸化物等の模擬物質を用いた金属試料製造試験も実施した。酸化物をいったん塩化物に転換した後、リチウム還元法によって金属に還元する試験を行い、その反応条件を確認した。作製した U-Zr-Nd 模擬合金試料(図 2)では、Nd の溶解度が小さいため、図中やや黒っぽい部分で示されるように、一部偏析しているのが確認された。しかしながら、他の相は U-Zr 合金同様均質であった。

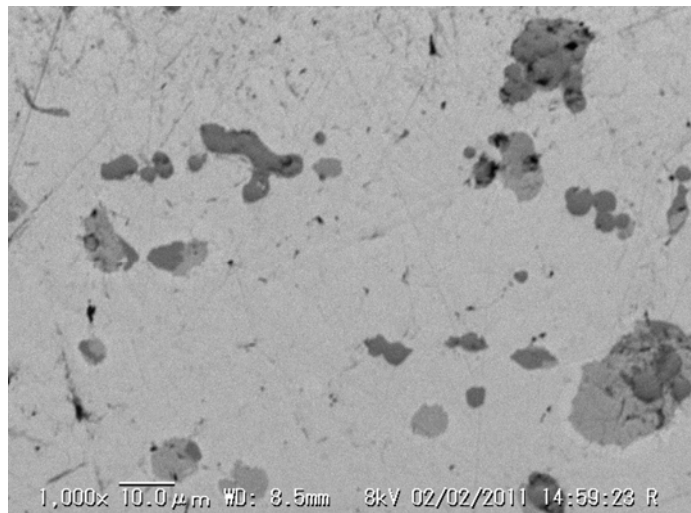


図 2 調製した U-10wt%Zr-2wt%Nd 合金ディスク周辺部の反射電子像(倍率: X1000)

一方、金属燃料の挙動解析コード(ALFUS)を用いて、MA を含有しない標準型金属燃料の挙動評価解析結果への MA 添

加の影響を評価するとともに、既存の動力学解析手法の調査を行って解析時の課題を抽出し、照射下での金属燃料中のマトリックス成分の再分布解析に適用できる動力学解析モデルを構築した。さらに、MA成分の解析における課題を抽出した。既存の動力学解析手法（フェーズフィールド法）の調査及び市販解析ツールを用いた感度解析の結果、領域、計算時間、成分数等を限定した解析には既存のツールが適用できることがわかった。また、四元系以上の成分再分布評価に活用できる解析モデルとモデルに基づく基本解析ツールを新たに構築した。この評価は現在進行中である。

次に、MA照射等に対して検証された最新の評価済み核データである JENDL-4.0 に基づいて、MA合金燃料の燃焼組成評価に必要な、燃焼チェーン、断面積、崩壊データ等を整備し、計算手法が異なる複数の燃焼計算コード（ORIGEN2 や MOSRA コード等）に適用して試解析を行い、それらの結果のばらつきから、核種ごとの計算精度を確認するとともに、誤差原因を検討した。主要核種の生成量については、コード間で良く一致することが確認されたが、図3に示すXe-129の他、Xe-130、Mo-94などの一部核種については、燃焼チェーンの簡素化手法や崩壊データの不整合などに起因して、大きな差異が発生していることが判明した（図3左図）。図4に示すようなチェーンモデルの修正等、データの見直しにより、コード間の差異を改善した（図3右図）。

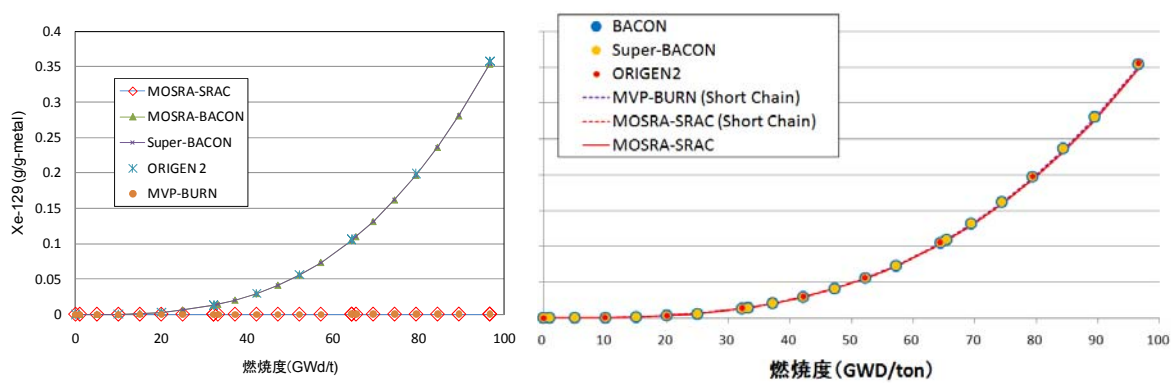


図3 Xe-129生成量のコード間比較（左図：チェーンモデル修正前、右図：修正後）

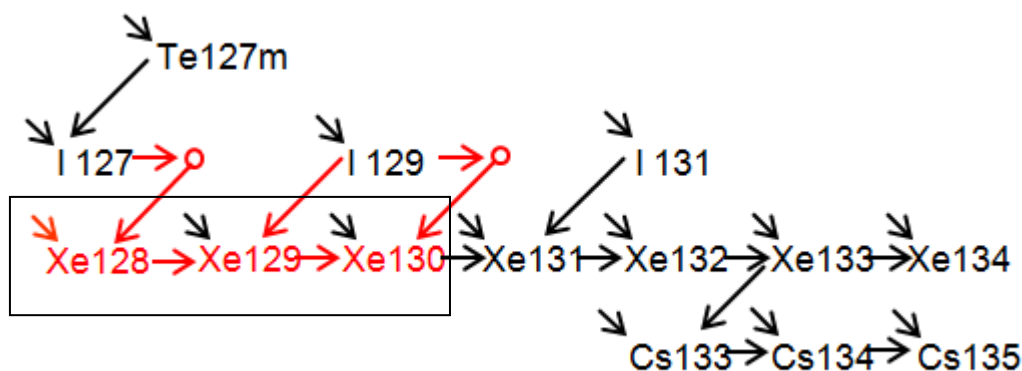


図4 Xe-129生成のチェーンモデル修正 ( $^{127}\text{I} \rightarrow ^{128}\text{Xe} (n, \gamma) ^{129}\text{Xe}$  のパスを追加)

## 2.2 MA 合金燃料の実用規模製造のための基盤技術の開発

準工学規模の多相溶湯における均質混合、蒸発抑制、蒸発物回収手法の効果を検証するため、図 5 に示すようなレーザー誘起ブレイクダウン発光分析法（LIBS 分析法）によるその場（in situ）元素分析システムを接続できる溶湯製造用チャンバーを設計・

製作し、模擬多相溶湯製造試験によって、LIBS 分析の適用条件を調査した。まず、多相溶湯製造時の発光スペクトル光を計測し、溶湯製造時のその場分析のためのレーザー分光システムの適用条件を明らかにした。その結果、レーザー光の光軸調整を確実に実施することで、その場分析が可能であることが明らかとなった。また、LIBS 分析で用いる母材合金試料（Cu、Zr）中に添加される元素（Sm、Ce）の濃度（%）を示す検量線データを取得し（図 6）、高い精度で濃度分析ができることを確認した。また、多相溶湯製造装置内のルツボ表面や金属ミストの計測のためのレイアウトを工夫し、その場分光計側できるような装置を開発した。

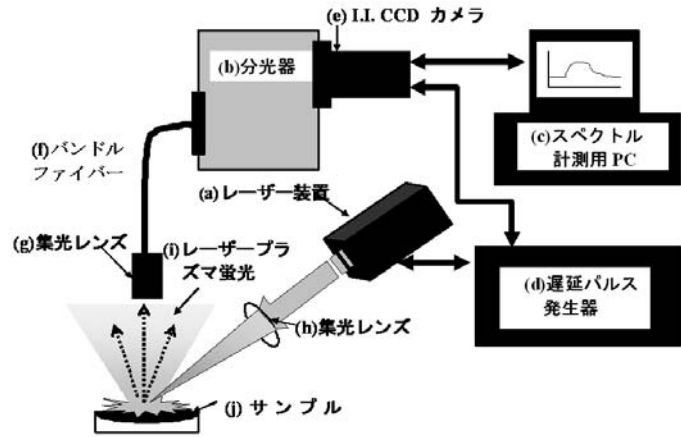


図 5 LIBS 分析模式図

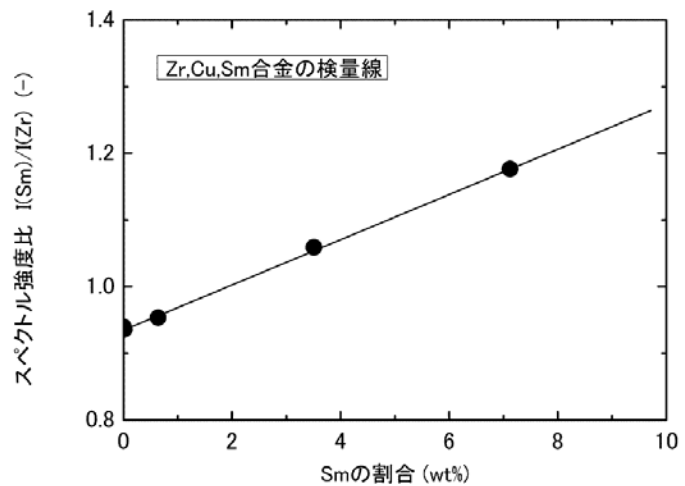


図 6 Zr-Cu-Sm 合金での検量線

## 2.3 MA 合金燃料製造支援技術開発

誘導加熱ルツボ内における溶湯の流動挙動を解析するために、有

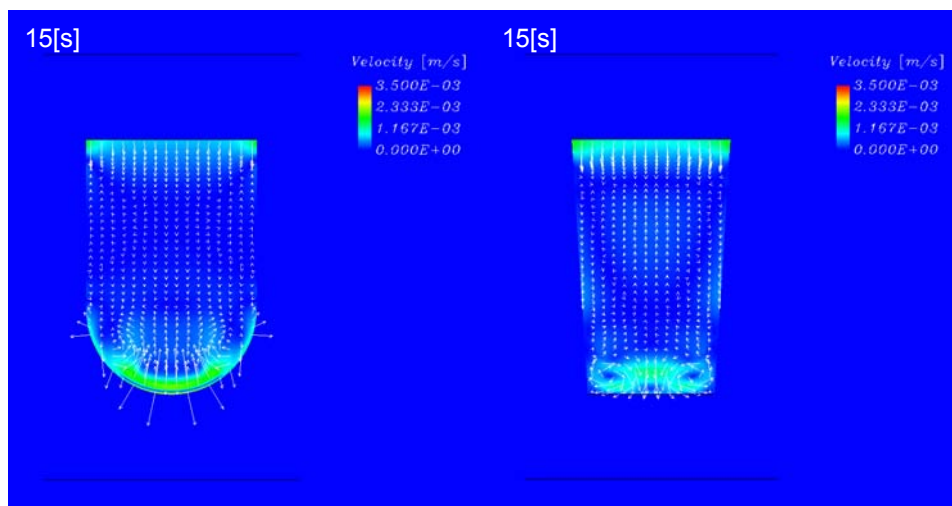


図 7 速度分布履歴（左：丸底るつぼ、右：テーパ型るつぼ）

限要素法による解析体系を構築し、流動の様子を計算した。溶湯の流動はルツボ形状によって若干差があるが、図 7 に示すように溶湯内の温度分布と電磁場によってルツボ中心が盛り上がるような挙動を示すことが確認された。

一方、模擬物質がその模擬性能をどの程度有しているかについて明らかにするため、U-Pu 合金に、Am 模擬候補元素である Sm (サマリウム) や Sc (スカンジウム) 金属を添加した模擬合金を調製し、その性状を比較した。

Sc 模擬合金の燃料製造試験では、Sc がルツボ材や Zr と反応し、合金の母相中にはほとんど溶解せず、表面に分布していることが分かった。また、Sm を模擬元素として用いた蒸発速度と平衡蒸気圧との関係性 (図 8) の試験結果からは、自然対流における輸送モデルを用いて予想される蒸発速度の平衡蒸気圧に対する依存性が解析誤差の範囲内で一致した。

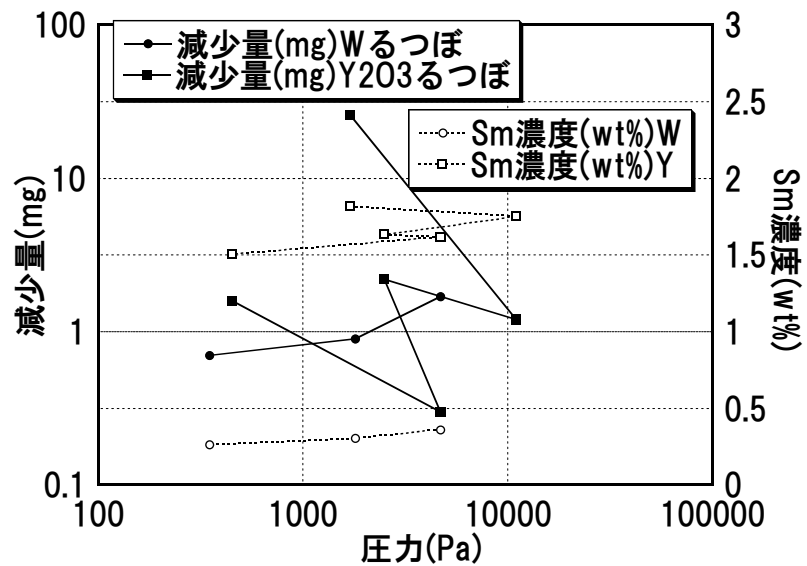


図 8 U-Sm 合金の蒸発損失量圧力依存性

### 3. 今後の展望

MA 含有合金の基礎物性、模擬合金との差異の評価手法、計算による燃料挙動解析手法の開発についてはデータが整備されてきており、模擬試験による実合金の挙動予測に資する成果が期待できる。今後は小規模な実 MA 合金の製造試験と大規模な模擬合金製造試験の結果を用いた解析によって実用的な模擬試験条件を整備していく予定である。

また、射出鋳造による燃料製造装置開発についても、Am 等の蒸発損失を抑えるとともに、その場成分分析機能や Am 等の蒸発の様子を可視化する機能を持った装置開発が一層進展するものと期待している。

以上