

# 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、一般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、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

U-Sm(Am 模擬)合金を用いた試験により、不純物酸素による蒸発抑制効果が働いていると考えられたことから、ppm オーダーの酸素濃度雰囲気中で低濃度 Am 合金の鋳造試験を実施した。ほぼ 30mm の U-Pu-Zr-Am 合金の鋳造棒が得られた (図 1)。鋳造した Am 合金スラグの上端および下端について化学分析した結果、全ての構成元素において差異は±1%の範囲内に入っていた。また、微細組織観察の結果、Am 濃度の高い析出相はほとんどなく、Ce 模擬合金で見られたスラグ表面への偏析もないことを確認した。一方、蒸発損失量については、約 1700K、約 5000Pa の減圧下で 10 分近く保持した加熱条件において、数 mg 程度の重量損失が生じ、Am 合金の理想溶体を仮定して予想される蒸発損失量とほぼ一致することを確認した。

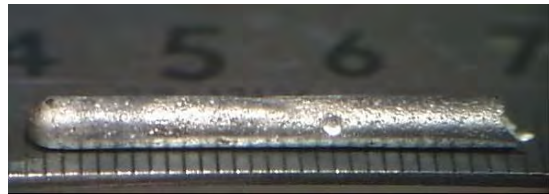


図 1 U-Pu-Zr-Am 合金鋳造棒

### 3.1.2 MA 合金の特性試験

低濃度 Am 合金 (U-20wt%Pu-1.6wt%Am-10wt%Zr) の熱伝導率を評価するため、投下型熱量法により比熱を、レーザフラッシュ法により熱拡散率を測定した。低濃度 Am 合金の比熱は U 及び  $U_{0.80}Zr_{0.20}$  の文献値とほぼ一致しており、Pu 及び Am による影響を大きく受けないことが明らかとなった。また、熱拡散率は温度に伴い増加する傾向が確認されたが、873 K 付近で温度依存性に変化が見られた (図 2)。U-Zr の二元系状態図では、885 K から 993 K までの温度領域において相変態することから、相変態により熱を吸収したことにより生じたものと推測される。

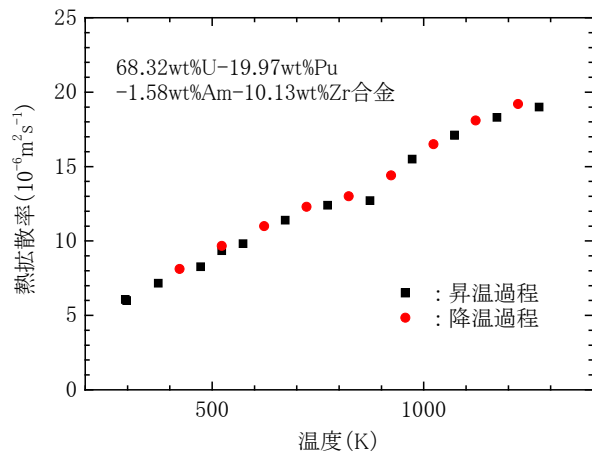


図 2 低濃度 Am 合金の熱拡散率の温度依存性

### 3.1.3 MA 合金燃料の照射特性解析

MA 合金燃料の照射特性解析を行うため、想定される燃料の組成範囲を評価した。また、燃焼度や冷却期間に応じたMA組成比やMA/Pu比等についても評価し、Pu、MA および付随する RE 濃度の上限を明らかにした。昨年度構築した合金燃料のマトリックス成分の再分布モデルについて、実用的な計算ができるように改善した。U-Pu-Zr 合金について 3 相系 (図 3) や単相系のモデル計算を実施した結果、熱力学データベースの精度に課題がある部分を指摘した。

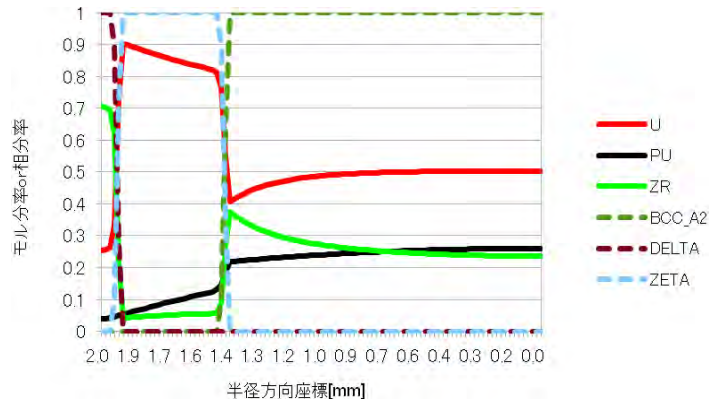


図 3 U-Pu-Zr 合金燃料のモデル計算結果

### 3.1.4 MA 合金燃料の燃焼解析

核分裂生成物の生成量から使用済み燃料の主要な重核種組成を精度よく予測できるようにするため、平成 22 年度に整備した燃焼計算コード及びデータを用いて、FaCT 設計炉心の燃料仕様をベースに多様な燃料仕様と運転条件を想定した燃焼計算を実施し、核分裂生成物 (FP) と重核種組成の相関関係を明らかにした。燃焼計算の結果に基づき、装荷燃料のプルトニウム富化度 ( $p$ ) をパラメータとし、燃焼度 ( $E$ ) の指標となる FP 核種の同位体比 ( $r$ ) から、使用済み燃料中の着目核種インベントリ ( $I$ ) を予測する以下の相関式を作成した。

$$I(E,p)=(a_1p^2+a_2p+a_3)E^2+(a_4p^2+a_5p+a_6)E+(a_7p^2+a_8p+a_9)$$

$$E(r,p)=(b_1p^2+b_2p+b_3)r^2+(b_4p^2+b_5p+b_6)r+(b_7p^2+b_8p+b_9)$$

ここで、 $a_1 \sim a_9$ 、 $b_1 \sim b_9$  は、指標核種と着目核種に依存するフィッティング係数である。

同位体比 (重量比) Kr-82/-86 及び Xe-130/-136 を指標として採用した場合、図 4 に示すように、主要な約 20 の核分裂生成物と重核種の組成について、作成した相関式 (図中の実線) は燃焼計算による結果 (○印) を良く再現することがわかった。

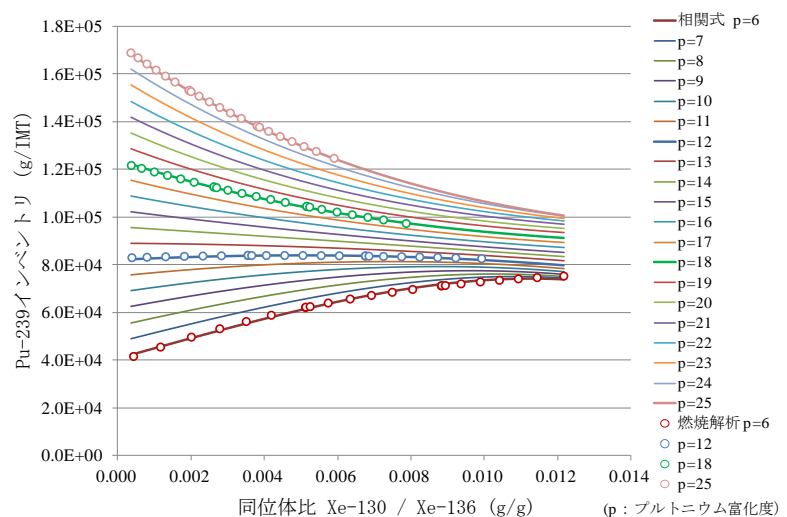


図 4 指標同位体比  $^{130}\text{Xe}/^{136}\text{Xe}$  と  $^{239}\text{Pu}$  インベントリとの相関関係

## 3.2 MA 合金燃料の実用規模製造のための基盤技術の開発

### 3.2.1 実用的な製造手法の開発

溶湯製造条件による攪拌混合性及び高蒸気圧元素の蒸発性の基礎的挙動をレーザー分析で把

握するため、100～200g 規模での多相溶湯製造試験を実施した（図 5）。100～200g 規模での多相溶湯製造試験時のレーザー誘起ブレイクダウン分光分析（LIBS）の結果、溶湯組成は溶解直後から均質となっており、高蒸気圧元素の蒸発は融点付近から生じていることが示唆された。1 kg 程度の準工学規模の溶湯製造時の攪拌混合性と高蒸気圧元素の蒸発挙動を調査した結果、攪拌混合性は溶解直後から活発に起こり、溶湯組成は均質化され、高蒸気圧元素の蒸発も当該元素の融点付近から発生し、100～200g 規模での溶湯製造時とほぼ同じ挙動を示し、加熱温度は 1200℃、保持時間は 1 分間が最適な製造条件であると判断した。

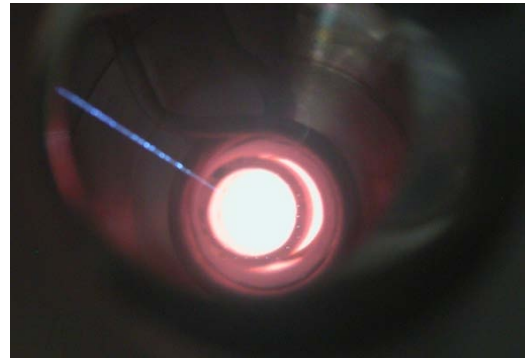
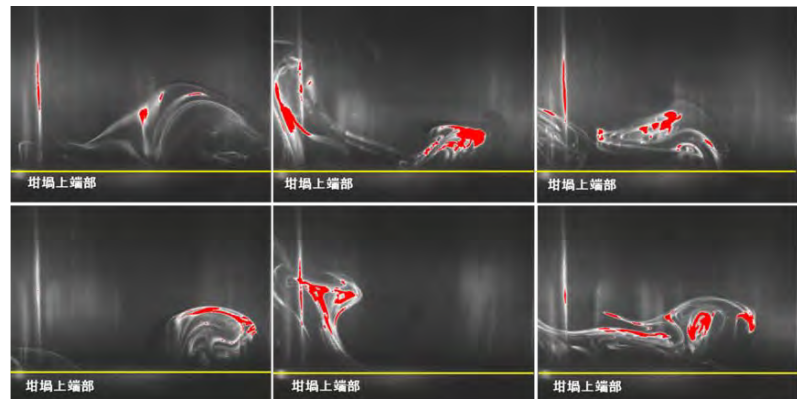


図 5 溶湯液面に照射したレーザー光

### 3.2.2 in situ モニタリング技術の開発

溶湯製造用チャンバー内の元素分析をするため、溶湯製造用チャンバーに高精度分光器と発光分析モニター器を設置して、チャンバー内のルツボ表面の元素分析とルツボから発生する金属蒸気ミストの可視化試験を実施した。これらの試験の結果、溶湯製造用チャンバー内のルツボ表面及び蒸気ミストのリアルタイム元素分析とルツボ表面から発生する金属蒸気ミストの可視化画像取得を実証することができた（図 6）。高精度分光器によって精度の良い分光スペクトル計測が可能となり、合金組成の分析精度を向上させることができた。可視化試験では、黒鉛坩堝内で高温加熱された溶湯からの蒸発物質は雰囲気ガスの対流の影響を強く受けて浮遊することが鮮明に観測された。



※ 縦の輝線は内筒管でのレーザー光の反射によるもの

図 6 準工学規模溶湯製造時の蒸発ミストの可視化

### 3.3 MA 合金燃料製造支援技術開発

#### 3.3.1 模擬 MA 合金による溶湯挙動解析

溶湯流動解析の結果、周方向の誘導電流と上から下への磁束密度によってローレンツ力がルツボ中心部に向かって作用することがわかった（図 7）。その結果、ルツボ中央部で溶湯が盛り上がる挙動を示すことがわかった。一方で、ルツボ下部ではルツボ中央部で下向きの流れを形成することも示された。これらの流れによってルツボ内の攪拌が効率的に行

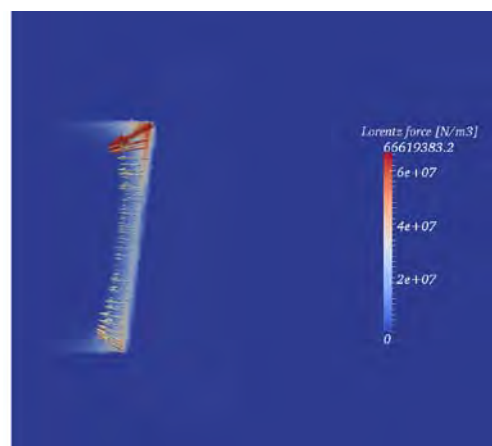


図 7 ローレンツ力分布

われることが期待できる。

### 3.3.2 適切な模擬物質の選定・評価

Am合金の蒸発損失量は、理想溶体を仮定し、自然対流における物質移動モデルを用いて解析した結果とほぼ一致した。しかし、U-Sm模擬合金の蒸発損失量は、自然対流における物質移動モデルから予想されるような雰囲気ガスの圧力の低下と共に蒸発損失量（重量減少量）が増大するといった現象は必ずしも見られなかった。SmのX線強度と酸素のX線強度との間に良い相関性が見られ、蒸発抑制効果が現れた原因の一つに不純物酸素の影響が考えられた。

## 3. 今後の展望

照射試験用燃料サンプルの製造に向けた均質MA合金製造に関しては、ppmオーダーの酸素濃度雰囲気中で铸造することで均質な燃料スラグが得られる見通しを得た。

また、Am合金の熱物性は今後高濃度Am含有合金の測定を行うことで充実することが可能である。

MAをリサイクルする燃料や冷却期間に応じて、回収燃料のRE/MA比（0.7以下から0.4以下）やMA/Pu比（約2倍）が様々に変化することが分かったが、今回評価した結果と、既往の照射挙動研究結果から、MA含有合金燃料の照射挙動はU-Pu-Zr合金燃料と大きな差異がないと考えられる。また、照射時の燃料成分・相状態評価ツールは改良が進み、今後さらに評価精度をあげていく予定である。

同位体組成比Kr-82/-86及びXe-130/-136を指標として採用した場合、主要な約20の核分裂生成物と重核種の組成について、作成した相関式は燃焼計算による結果を良く再現することがわかった。今後、測定精度の与える影響なども評価し実用的な評価指標として整備していく。

in situ モニタリング技術の開発では、レーザーを用いた表面組成分析と蒸発物挙動モニタリングが精度よく測定できることが示され、今後さらなる铸造パラメーター制御に必要な情報を得ることが期待される。また、準工学規模溶湯製造装置についても製造条件が示され、in situ モニタリング装置と蒸発抑制機構を活用した製造装置の基盤が構築される見込みである。

MA合金燃料製造支援技術開発では、高周波加熱した溶湯中の流れの評価が可能となり、今後の実試験による確証を経て流動の挙動評価ができるようになることが期待される。

また、模擬物質によるAm挙動評価のための基礎データ蓄積が進み、最終年度の試験によって適切な模擬試験条件が可能となる知見が得られることが期待される。そのほか、製造に用いるルツボ材料などの適切な選択に資する知見も得られる。