

照射を目指した MA 合金燃料の製造基盤技術の開発

研究代表者 有田 裕二 国立大学法人福井大学附属国際原子力工学研究所
 参画機関 国立大学法人福井大学、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

燃料照射試験に供することの出来る十分な長さの MA 含有燃料スラグ(図1)の製造ができ、その均質性も確認できた。蒸発しやすい Am の蒸発を抑制するための条件として、 casting 時の雰囲気圧力を下げすぎないこと(模擬合金試験では 4kPa 以上であること)が効果的であることがわかった。



図1 射出鋳造した U-Pu-Zr-1.4Am スラグ

2.2 MA 合金の特性試験

燃料性能評価に必要となる MA 合金の熱物性として、熱容量および熱拡散率を測定し、熱伝導率を評価した。Am 濃度による明確な差はないこと、相変態に伴う影響の存在も明らかとなった(図2)。一連の測定により、U-Pu-Zr-Am 合金燃料は高い熱伝導率を有することが明らかとなり、高速炉の安全性評価に良好な傾向になるデータが得られた。

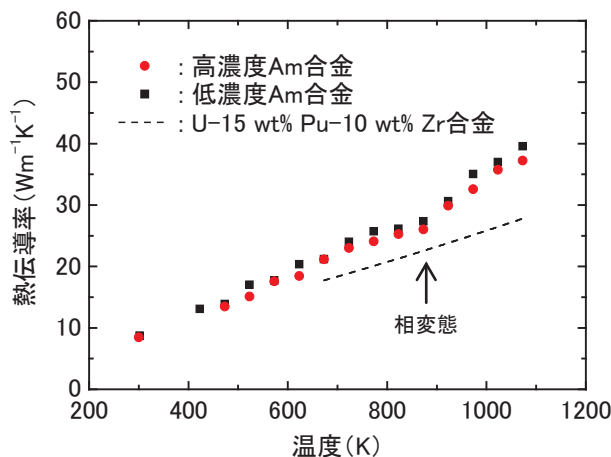


図2 高濃度 Am 合金と低濃度 Am 合金の熱伝導率

2.3 MA 合金燃料の照射特性解析

公開されている MA 合金燃料の照射試験結果(PheniX および EBR-II)および燃料挙動解析コードによる解析結果に基づくと、照射試験条件では、5wt.%以下の MA および 5wt.%以下の希土類元素(RE)添加によるマクロな照射挙動への影響は見られないことを確認した。

また温度勾配下において MA と RE を含む 6 成分 4 相系の成分再分布評価ツールを開発し、照射試験結果に観測される金属燃料に典型的な三層構造の形成、U と Zr の逆転する濃度分布プロファイル、外周部へ向けた緩やかな Pu 濃度の減少等の傾向を再現するとともに、5wt.%以下の MA および RE の添加は母相の再分布挙動に有意な影響を及ぼさないことを示した。図

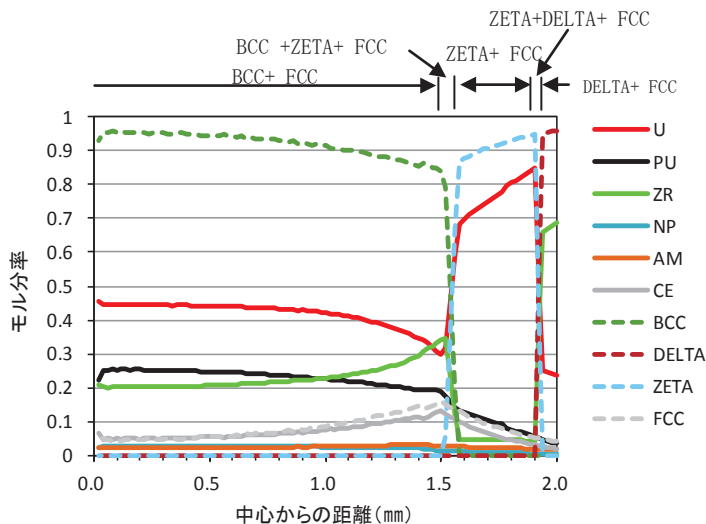


図 3 MA 合金燃料の成分再分布解析結果：
U-20Pu-10Zr-2Np-3Am-5Ce (wt. %)

3 に示すように MA および RE の再分布解析も可能となり、今後の照射試験による詳細な観測結果によって解析精度を向上させることができる。

2.4 MA 合金燃料の燃焼解析

使用済燃料中の元素量や再処理工程における物量管理に資するため、核分裂生成物と重核種組成との相関データによる燃焼燃料組成の予測手法を構築することが必要であり、FP ガス同位体比に対する分析誤差が燃料組成予測値に及ぼす影響を評価した。その結果、Kr 比と Xe 比の分析誤差が同程度の場合、Xe 比を用いた方が Kr 比を用いた場合よりも 20% 程度良い予測精度を与えることができ、Xe 比の分析誤差が約 10% 以下であれば、主要な重核種組成を 10% 以内で予測できる見通しを得た (図 4)。

2.5 実用的な製造手法の開発

準工学規模 (1kg 程度) 溶湯の最適な製造プロセスと製造条件を明らかにするため、蒸発物質の可視化試験等を実施した。その結果、原料金属が熔融し始めると、蒸発物質の浮遊拡散が激しくなることがわかった。図 5 に示すように、蒸発物はミストとなって坩堝上方

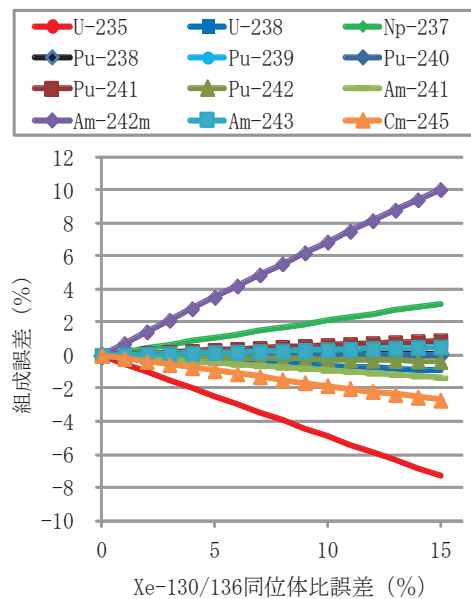


図 4 同位体比 ($^{130}\text{Xe}/^{136}\text{Xe}$) の分析誤差が
重核種組成予測値に与える影響

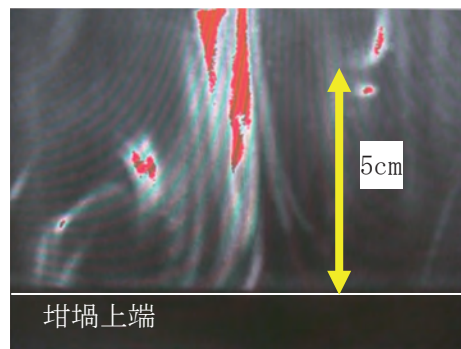


図 5 加熱昇温時の蒸発挙動 (1200°C)
(図中赤い部分が蒸発物の濃いところを示している。)

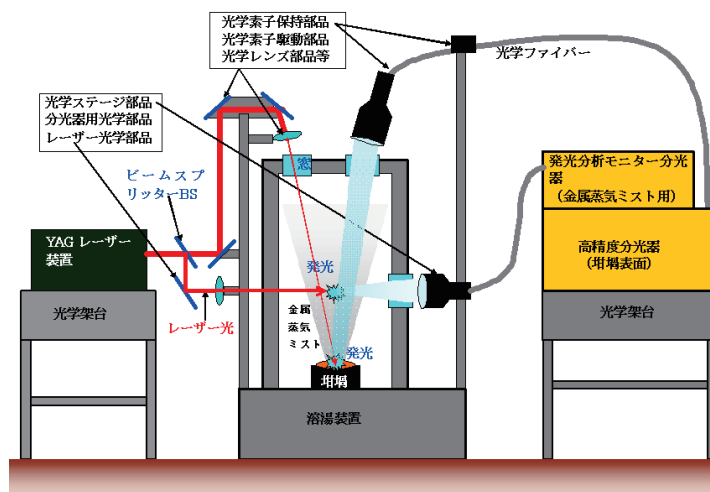


図 6 LIBS による in situ モニタリング装置概略

へ舞い上がる。その様子は一様ではなく短い時間で濃淡の場所が変化する。蒸発物質量は、溶湯温度が高くなるにつれて多くなり、保持時間中も一定量の放出が継続していることから、蒸発量を抑制する製造条件としては、合金が溶けきった温度より若干高い温度で、短時間保持であることが望ましい。また、均質に攪拌混合するため、保持時間は1分程度でよいことも確認した。

2.6 in situ モニタリング技術の開発

レーザー誘起ブレイクダウン発光分析法 (LIBS 法) を用いた in situ モニタリング技術開発を行い (図 6)、溶湯表面と蒸気ミストの同時スペクトル観察 (図 7) によって、熔融過程における溶湯表面と蒸気ミストの元素組成の相関関係を求めることができるようになった。また、図 5 に示したように、金属蒸気ミストを可視化することにも成功し、溶湯からの蒸発の様子をとらえることが出来るようになった。

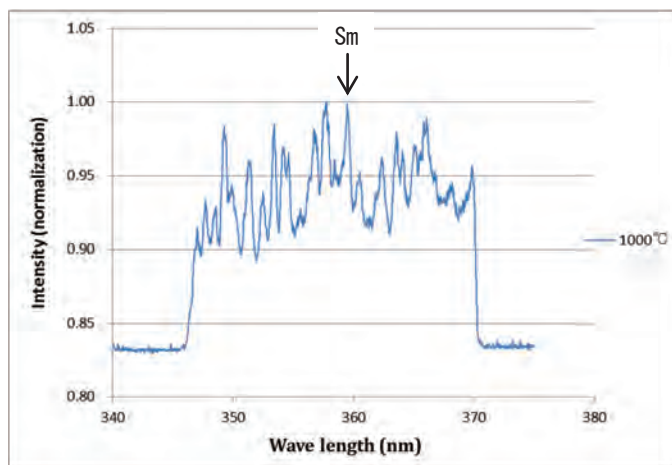


図 7 1000°Cでの坩堝直上気中での LIBS スペクトル

2.6 模擬 MA 合金による溶湯挙動解析

模擬 MA 合金の均一混合を確認するため、実規模での模擬燃料製造試験を既存の射出鑄造装置を使って実施した。その結果、射出スラグ中の元素分布は一様で燃料として問題ないものであった。一方、残ったヒール部分では上部に軽い元素が濃縮されることがわかった。また、流動計算によって得られた結果 (図 8) から、溶湯は数 cm/秒の速さで坩堝内を流動していることが

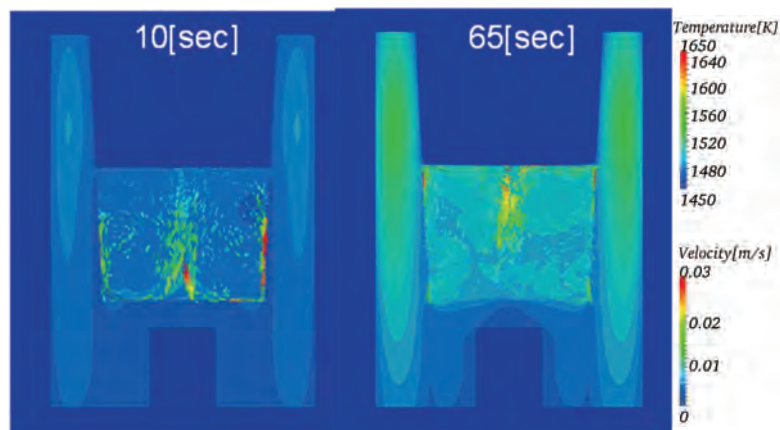


図 8 坩堝内対流の様子

示された。これらシミュレーション計算、元素分析結果、2.5 節での溶湯流動目視観察から、坩堝内の溶湯は 1 分程度の短い時間で十分攪拌され、均一になることがわかった。

2.7 適切な模擬物質の選定・評価

通常の確認試験において多量の MA を取り扱うことは設備的にも廃棄物の点からも困難であることから、MA 元素の挙動を模擬する非放射性元素の選定を行った。特に、燃料製造時に蒸発しやすい Am の模擬となるものと、燃料中の Am 均一性を模擬する元素について検討した。

模擬合金および実合金を用いた蒸発損失試験の結果から蒸発損失量については、自然対流における物質移動モデルを適用することで概ね評価できることが確認で

きた。一方、Amを含んだU-Pu-Zr合金試験の結果から、AmはU-Pu-Zr合金のマトリックス中に溶解し、Amリッチな析出相は形成しないことが分かり、均質な燃料を製造するための技術開発において、Amは問題にならず、むしろ、燃料の構成元素であるZrや核分裂生成物として含まれることになるCeやNdなどのレアアースを如何にして均質混合させることの方が重要であることが分かった。

3. 今後の展望

本事業によって、数cmの照射用サンプルを製造することが出来ることが示され、今後の照射試験によって、燃料の健全性等の確認、今回構築した再分布評価モデルの高度化やFP同位元素の評価手法の適用性を確認していくことが目指される。

また、ベンチスケール規模（数cm規模）ではMA合金燃料を製造することができるようになったが、実用化に当たっては、数100gスケールのMA原料を確保するとともにラボスケール試験規模（燃料ピン規模）で扱えるMA取扱い施設（ホットセル）を設けることが課題となる。スケールアップした製造条件においては、今回構築した蒸発挙動モデルや溶湯流動モデルなどの評価の妥当性や、蒸発抑制機構およびLIBS測定の有効性についての検証も必要となる。

さらに、今回世界で初めて実測・評価した熱物性データについては、核燃料物性データベースに上手く適用できるよう評価し、使えるデータベースとする必要がある。

以上、照射試験と実規模製造技術の基盤についての開発を行ってきたが、照射試験を行うための原子炉のめどが立たないという課題も有り、本事業の成果を風化させない方策を検討していく必要がある。

4. 参考文献

(1) M. K. Meyer et al., “The EBR-II X501 minor actinide burning experiment.”, J. Nucl. Mater., 392 (2009) 176-183.

(2) H. Ohta et al., “Irradiation Experiment of Minor Actinides-Containing Metal Fuels to ~10at.% Burnup.”, Proc. Global 2011, 391616, Makuhari, Chiba, Japan, 11-16, Dec. 2011.