

微細構造を制御した高 MA 含有不定比酸化物燃料の物性予測手法に関する研究

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 田中康介 大洗研究開発センター

(再委託先) 一般財団法人ファインセラミックスセンター、国立大学法人大阪大学

(研究期間) 平成 26 年度～27 年度

1. 研究の背景とねらい

高レベル放射性廃棄物に含まれる MA を分離・回収し、長寿命核種を短寿命核種あるいは安定な核種に変換する分離変換は、放射性廃棄物処分場の実効処分容量の増加（廃棄物減容）、放射性廃棄物の潜在的有害度の総量・長期リスクを大幅に低減すること（有害度低減）が期待される技術であり、将来の我が国におけるエネルギー戦略の中軸となる環境負荷低減を考慮した核燃料サイクルシステムの構築・実現に必要不可欠である。

高速炉を用いた分離変換技術としては、低濃度の MA を酸化物燃料に添加して燃焼させる高速炉均質型、比較的高濃度の MA を酸化物燃料に添加した小数の燃料体を非均質に装荷することにより集中的に燃焼させる高速炉非均質型の 2 種類が挙げられる。これらの変換形態を有する高速炉 MA リサイクルシステムの実用化には、照射に必要な品質保証基準を満たすスペックの MA 含有燃料を安定的に製造する技術の確立が不可欠であり、組成や寸法等の燃料仕様を定めるとともに、焼結温度や焼結時間等の燃料の製造条件を明らかにする必要がある。また、この MA 含有燃料の原子炉における性能や健全性を評価するためには、燃料の物性（熱的・機械的特性）についての知見が重要であり、MA の添加により燃料の物性がどのような影響を受けるかを正しく理解することが求められる。

高速炉における MA 含有燃料に関する先行研究では、5%までの Am を含有するウラン・プルトニウム混合酸化物 (MOX) 燃料の遠隔操作による製造が行われ、照射試験に必要な品質を満足する所定の仕様に焼結するとともに、O/M 比の調整技術の確立に成功している⁽¹⁾。また、この濃度範囲での各種物性に及ぼす Am 添加の影響が評価されている⁽²⁾。一方、高速炉非均質型の燃料開発としては、高濃度の Am を添加した MOX 燃料の製造技術開発が行われている⁽³⁾。この研究では、20%までの Am を添加した MOX 燃料ペレットの製造に成功しているが、従来の燃料製造手法を適用すると、Am 添加量の増加とともに焼結密度が低下する傾向が見られた。また、この燃料に対しての O/M 比の調整は行われていない。このため、高濃度 MA 添加燃料の製造技術に関しては、照射品質を満足するための燃料製造手法の改善、最適化が必要である。さらに、酸化物燃料の物性に及ぼす高濃度領域に至るまでの MA 含有の影響に関する実験データも非常に限られていることから、高濃度 MA 含有酸化物燃料を分離変換技術に利用するためには、さらなる技術開発が必要である。

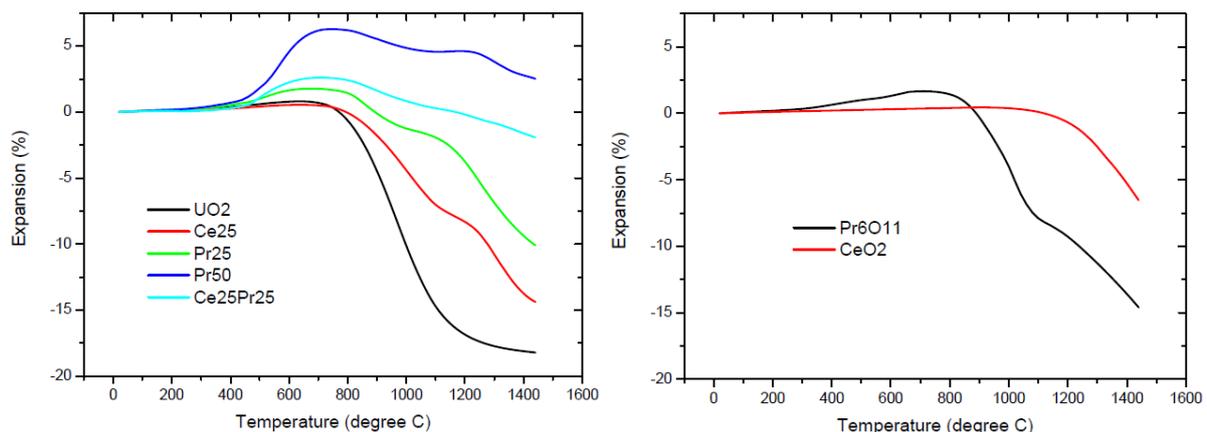
本研究の目的は、高濃度の MA を含有する酸化物燃料の最適な製造条件を確立するとともに、燃料の物性測定を実施し、物性に及ぼす MA 含有量の影響を評価することにある。高濃度 MA 含有酸化物燃料の製造標準化手法を開発し、物性評価に及ぼす MA 添加の影響を評価するため、「原料粉末性状と焼結体相状態との相関関係の解明」、「MA 燃料製造技術の最適化手法の開発」、「各種物性に及ぼす高濃度 MA 添加の影響評価」の観点で研究を進め、燃料製造技術及び物性データに及ぼす MA 含有の影響を明らかにする。広範囲にわたる MA 含有の影響を体系的に理解するため、MA の濃度範囲は最大 50%とする。その際、計算機シミュレーションにより、原料粉末特性と焼結体微細構造との関係を解析により明らかにするとともに、ウランベースの燃料に模擬 MA を添加した試料

を用いて広範な条件で原料粉末と微細構造との関係、微細構造と物性との相関関係を明らかにする。これらの結果を総合的に評価し、MA 含有実燃料における焼結特性と物性を予測評価するとともに、実際に Am を添加した酸化物燃料の試験研究により、MA 添加の影響を実験的に明らかにする。

2. これまでの研究成果

(1) 模擬 MA 含有ウラン酸化物燃料における焼結特性評価

原料粉末性状と焼結特性との関係を明らかにすることを目的として、ウランベースの模擬 MA 含有酸化物燃料の原料粉末性状評価、焼結特性評価、相状態評価を実施した。Pu、Am の模擬として Ce (CeO_2)、Pr (Pr_6O_{11}) を選定して試料を調製し、各種特性評価試験に供した。調製した試料は、 CeO_2 を 25 at% 添加した UO_2 (Ce25)、 $\text{PrO}_{11/6}$ を 25 at% または 50 at% 添加した UO_2 (Pr25 及び Pr50)、 CeO_2 と $\text{PrO}_{11/6}$ をそれぞれ 25 at% ずつ添加した UO_2 (Ce25Pr25) である。焼結特性の評価において、単相の UO_2 粉末においては一段階のみの焼結が見られた一方、Ce 含有試料では二段階の焼結が見られた。また Pr 含有試料の挙動も Pr_6O_{11} の焼結挙動との足し合わせで説明できるものの、Pr 及び U の価数の変化によると考えられる膨張などが見られた (図 1)。



(a) ウランベース模擬 MA 含有酸化物燃料

(b) Ce 及び Pr 酸化物

図 1 試料の焼結挙動図

(2) MA 含有燃料原料粉末の性状評価

MA 含有酸化物燃料の焼結特性評価及び物性評価に資する基礎データを取得するため各種原料粉末 (UO_2 粉末、9%Am 含有長期保管 PuO_2 粉末、 $\text{UO}_2 + \text{AmO}_2$ 混合粉末) の形態を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した。その結果、 UO_2 粉末は約 $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ の微細粒子からなること、9%Am 含有長期保管 PuO_2 粉末はフレーク状及び板状の粒子が凝集している形態を示すこと、 $\text{UO}_2 + \text{AmO}_2$ 混合粉末は微細構造の UO_2 と板状または矩形の AmO_2 が 1:1 で混合されている性状を示すことがわかった (図 2)。

(3) 計算機シミュレーションを用いた MA 含有酸化物燃料の焼結最適化手法評価

製造プロセス最適化の設計指針を得るため、微細組織を解析する焼結シミュレーションを実施した。まず、文献データを用いた解析により酸化物燃料の焼結挙動を再現した。このパラメーターを用いて、2 段階焼結法を適用した計算を実施した結果、粒成長を抑制することで高密度化が可

能であることが明らかとなった (図 3)。また、ウランベースの模擬 MA 含有酸化物燃料の焼結特性評価の一環で実施した焼結実験の結果を用いて、 UO_2 及び CeO_2 のシミュレーションパラメータを最適化した。さらに、MA 添加の効果を把握するため、MA 含有酸化物燃料の形態観察結果に基づき、2 相からなる粉末の焼結初期組織を作成した。

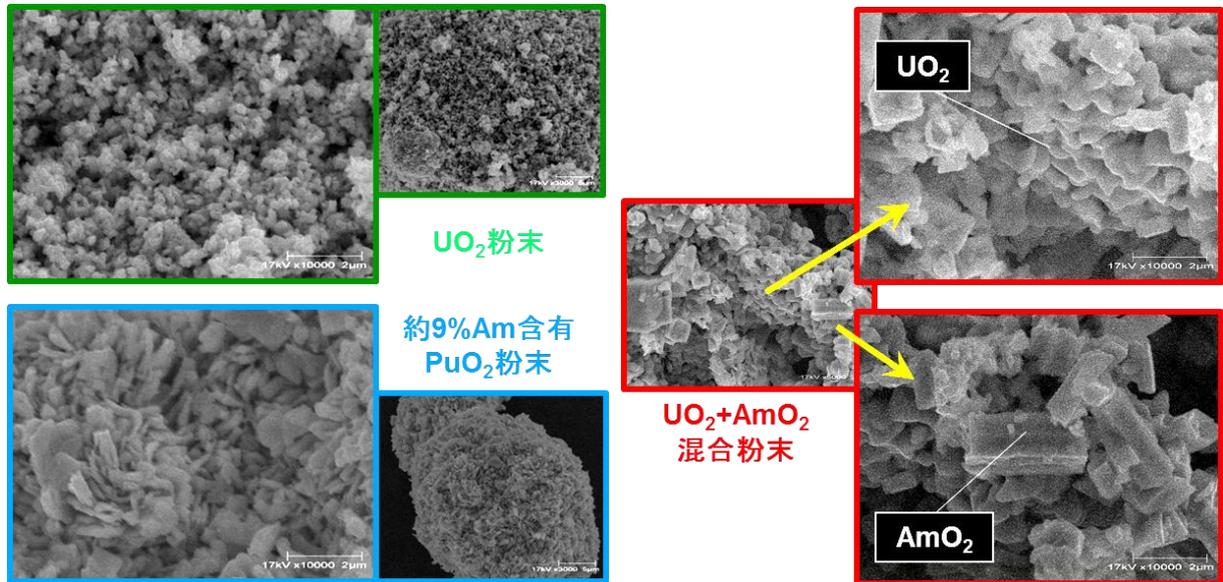


図 2 原料粉末性状

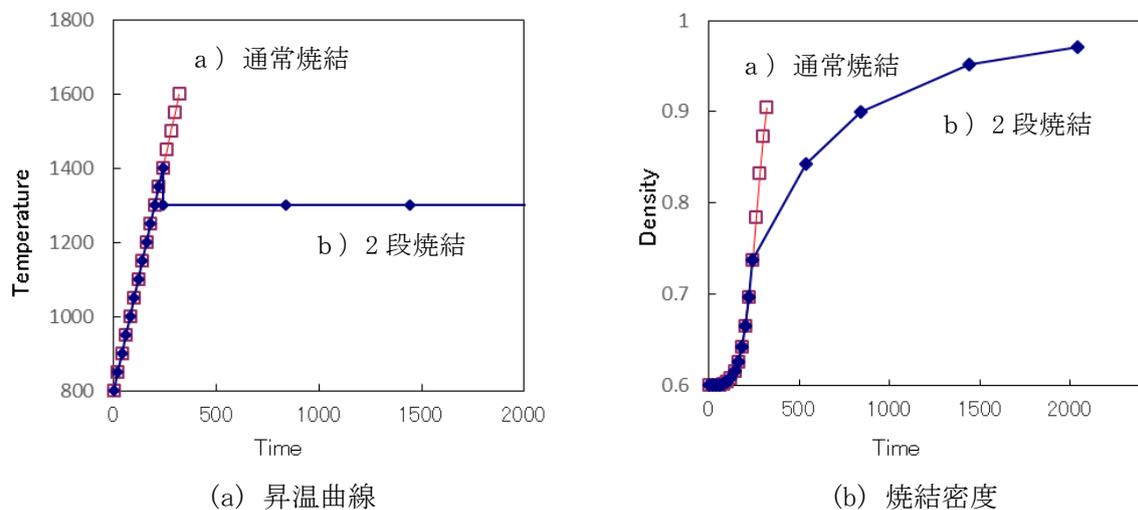


図 3 焼結シミュレーション結果

(4) MA 含有酸化物燃料における焼結特性評価

酸素ポテンシャルの高い Am 含有燃料の O/M 比調整技術の確立を目指した高酸素分圧雰囲気制御装置 (図 4) を製作し、基本性能を確認した。

(5) 模擬 MA 含有ウラン酸化物燃料における物性評価

各種測定データに及ぼす模擬 MA 添加の影響を定量的に評価し、定式化するため、ウランベースの模擬 MA 含有酸化物燃料の焼結体における熱伝導率や弾性率等の物性測定を実施した。Am の模

擬物質として Pr を採用した。UO₂ 及び (U_{0.75}Pr_{0.25})O_{1.875}、(U_{0.5}Pr_{0.5})O_{1.75} 固溶体粉末を作製し、放電プラズマ焼結 (SPS) 法により 90 %TD 以上の高密度試料を得た。これらの試料に対する音速測定結果から、弾性率、Debye 温度といった特性を評価した。いずれの値も Pr 量とともに線形に減少する傾向が見られ、ここから物性の変化を一次式で近似することができた (図 5)。



図 4 酸素分圧制御装置

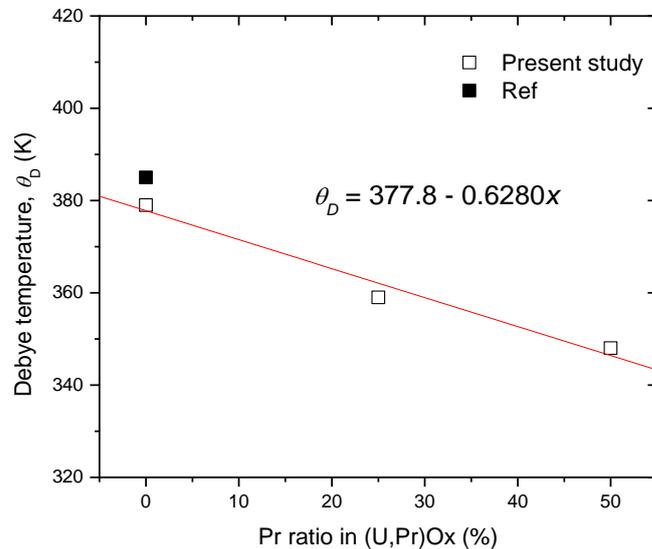


図 5 (U, Pr)O_x における Debye 温度の変化

3. 今後の展望

今後も継続して「原料粉末性状と焼結体相状態との相関関係の解明」、「MA 燃料製造技術の最適化手法の開発」、「各種物性に及ぼす高濃度 MA 添加の影響評価」の観点で研究を進め、それぞれの項目でのデータを蓄積する。MA 含有酸化物燃料の焼結挙動を評価する計算機シミュレーション、ウランベース模擬 MA 含有燃料を用いた広範な実験条件における試験研究、MA 含有燃料を用いた実証試験のそれぞれで得られる知見を密接に相互フィードバックさせ、より効果的に融合させる。これにより MA 含有酸化物燃料に対する「原料粉末特性－焼結体の微細構造－物性」の相関関係を明らかにし、高濃度 MA 含有酸化物燃料における焼結最適化手法の確立と物性予測評価手法の開発を目指す。

4. 参考文献

- (1) Yoshimochi, H., et al., “Fabrication Technology for MOX Fuel Containing AmO₂ by an In-cell Remote Process,” J. Nucl. Sci. Technol. 41, p. 850 (2004)
- (2) K. Tanaka et al., “Research and development of americium-containing mixed oxide fuel for fast reactors” Proc. Global 2007, pp. 897-902, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13, 2007.
- (3) 文部科学省原子力システム研究開発事業 成果報告書 (H17～H21 年度「効果的環境負荷低減策創出の為の高性能 Am 含有酸化物燃料の研究」) .