

令和4年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

マイナーアクチニド含有低除染燃料による
高速炉リサイクルの実証研究

成果報告書

令和6年3月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（受託機関名）が実施した令和元年度－令和４年度「マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究（契約書第１条で定めた委託業務題目）」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	viii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.2 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-3
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 フィードストック原料を用いた原料粉末の調製【R2-R4】	3-1
3.2 遠隔燃料製造技術	3-7
3.2.1 模擬燃料の焼結特性に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価【R1-R4】	3-7
3.2.2 遠隔燃料製造技術の実証【R1-R4】	3-11
3.3 MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計	3-16
3.3.1 模擬低除染燃料の基礎物性評価とMA含有MOXの基礎物性データベース作成【R1-R4】	3-16
3.3.2 Cm含有MOXの相状態と熱的特性【R1-R4】	3-23
3.3.3 照射燃料の設計【R1-R4】	3-28
3.4 分析技術開発とMAの核変換評価【R1-R4】	3-36
3.5 PIE技術開発	3-39
3.5.1 非定常平面熱源法による熱伝導率測定技術開発（再委託先：福井大学）【R1-R4】	3-39
3.5.2 レーザー溶融による局所融点測定技術開発（再委託先：九州大学）【R1-R4】	3-53
3.6 TREATにおける照射済燃料の過渡照射試験【R1-R4】	3-68
3.7 研究推進【R1-R4】	3-112
4. 結言	4-1

表一覧

表 3. 1-1	MA 含有 MOX 燃料溶解液の組成	3-3
表 3. 2. 1-1	焼結ペレットの密度	3-9
表 3. 2. 2-1	Cm 含有 MOX 燃料の焼結条件	3-15
表 3. 2. 2-2	焼結ペレットの寸法、密度等一覧	3-15
表 3. 2. 2-3	Cm 含有 MOX 燃料の組成（分析値）	3-15
表 3. 3. 3-1	本照射試験燃料で想定される不純物組成	3-32
表 3. 3. 3-2	本照射試験における主要な燃料仕様・照射条件	3-33
表 3. 3. 3-3	本照射試験燃料における燃料中心温度・溶融割合の評価結果	3-33
表 3. 4-1	Np-237 含有量の比	3-38
表 3. 5. 1-1	HD 法 UO ₂ ペレットの寸法・密度	3-45
表 3. 5. 1-2	HD 法による φ10 mmUO ₂ ペレットの熱伝導率測定結果	3-45
表 3. 5. 1-3	柱の太さと空げき率の関係	3-48
表 3. 5. 1-4	HD 法で測定した単層ペレットの熱伝導率	3-48
表 3. 5. 1-5	HD 法により測定した 3 層ペレットの等方的な熱伝導率	3-49
表 3. 5. 1-6	TCi 法により測定した 3 層ペレットの軸方向の熱伝導率	3-50
表 3. 5. 1-7	3 層ペレットの半径方向の熱伝導率	3-50
表 3. 5. 1-8	カプトンと雲母の熱伝導率と電気伝導率	3-52
表 3. 5. 2-1	格子定数の評価式に用いたパラメータ	3-58
表 3. 5. 2-2	分光器法による融点測定の見誤差	3-58
表 3. 5. 2-3	二色法（+高速度カメラ）による融点測定の見誤差	3-58
表 3. 5. 2-4	核燃料取扱施設における適用性の評価シート	3-59
表 3. 6-1	最終 PIE 計画	3-71
表 3. 6-2	シスターピン(UW06024)の燃料ピン内容積測定結果	3-82
表 3. 6-3	シスターピン(UW06024)内ガス組成	3-82
表 3. 6-4	シスターピン(UW06024)の燃料ピン内容積計算結果	3-83
表 3. 6-5	シスターピン(UW06024) FP ガス放出率の評価結果	3-83
表 3. 6-6	MC-ICP-MS によるウラン同位体組成比	3-84
表 3. 6-7	MC-ICP-MS によるプルトニウム同位体組成比	3-84
表 3. 6-8	Q-ICP-MS による MA 同位体質量の分析結果	3-85
表 3. 6-9	Q-ICP-MS による FP 同位体質量の分析結果	3-85
表 3. 6-10	ECAR-5391 の核分裂割合(71% U-235/29% Pu-239)を適用した場合	3-86
表 3. 6-11	Pu-241 の寄与を含めた核分裂割合の計算結果	3-86
表 3. 6-12	MC-ICP-MS データから得られた核分裂収率(Pu-241 の寄与を含む)を適用した場合	3-86
表 3. 6-13	シスターピン(UW06024) の燃料カラム中央部における組織変化領域径	3-86

図一覧

図 1-1	MA 分離による放射性廃棄物の減容化・有害度低減効果	1-3
図 1-2	高速炉 MA リサイクルと燃料技術の課題	1-3
図 1-3	遠隔燃料製造フロー	1-4
図 2. 1-1	研究スケジュール	2-3
図 3. 1-1	脱硝・転換後の MA 含有 MOX 燃料粉末の外観	3-4
図 3. 1-2	グローブボックス内に設置した XRD 回折析装置の外観	3-4
図 3. 1-3	MOX 粉末及び MA 含有 MOX 粉末の XRD 回折ピーク	3-5
図 3. 1-4	グローブボックス内に設置した熱重量分析装置の外観	3-5
図 3. 1-5	MOX 粉末及び MA 含有 MOX 粉末の TG/DTA 曲線	3-6
図 3. 2. 1-1	焼結密度の比較	3-9
図 3. 2. 1-2	焼結中の収縮率	3-10
図 3. 2. 1-3	収縮速度	3-10
図 3. 2. 2-1	Cm 含有 MOX 燃料の製造フロー	3-13
図 3. 2. 2-2	焼結準備及び焼結後試料の様子	3-14
図 3. 3. 1-1	EPMA による模擬 FP の元素マッピング及び濃度分布	3-19
図 3. 3. 1-2	X 線回線測定結果	3-20
図 3. 3. 1-3	熱拡散率測定結果	3-20
図 3. 3. 1-4	熱伝導率評価結果	3-21
図 3. 3. 1-5	熱伝導率評価結果比較	3-21
図 3. 3. 1-6	古典的フォノン輸送モデルによる熱伝導率評価結果	3-22
図 3. 3. 2-1	Cm 含有 MOX 焼結体の光学顕微鏡観察写真	3-26
図 3. 3. 2-2	Cm 含有 MOX 焼結体の粉末 X 線回折パターン	3-26
図 3. 3. 2-3	Cm 含有 MOX の熱伝導率測定結果	3-27
図 3. 3. 3-1	不純物（固溶元素）の影響を考慮した燃料熱伝導率評価式	3-34
図 3. 3. 3-2	本照射試験燃料における燃料ペレット径方向温度分布評価結果	3-34
図 3. 3. 3-3	照射試験燃料ピンの構造（第 1～3 列装荷時）	3-35
図 3. 4-1	Np 分離後試験試料の γ 線スペクトル測定結果	3-38
図 3. 5. 1-1	照射済高速炉ペレット [1]	3-44
図 3. 5. 1-2	UO ₂ ペレット外観	3-44
図 3. 5. 1-3	フローピングデプス	3-45
図 3. 5. 1-4	HD 測定前後での UO ₂ 粉末の X 線回折パターン	3-46
図 3. 5. 1-5	3D プリンターで作成したペレット寸法	3-46
図 3. 5. 1-6	高温測定結果	3-47
図 3. 5. 1-7	メッシュ構造	3-47
図 3. 5. 1-8	3D プリンターで作成した単層ペレットおよび 3 層ペレット	3-48
図 3. 5. 1-9	単層ペレットの相対熱伝導率と空げき率の関係	3-49
図 3. 5. 1-10	3 層ペレット	3-49
図 3. 5. 1-11	半径方向熱伝導率評価の原理	3-50

図 3.5.1-12	Pt 及び Ni の電気伝導率の温度依存性	3-51
図 3.5.1-13	Pt および Ni の熱伝導率の温度依存性	3-51
図 3.5.2-1	ウラン酸化物還元システム	3-60
図 3.5.2-2	UO ₂ 、UO ₂ -Nd _{0.5} 及び UO ₂ -Dy _{0.5} 焼結体粉末の X 線回折パターン	3-60
図 3.5.2-3	UO ₂ 及び UO ₂ -Nd _{0.5} の格子定数	3-61
図 3.5.2-4	UO ₂ 及び UO ₂ -Dy _{0.5} の格子定数	3-61
図 3.5.2-5	UO ₂ (N) の熱停留点付近での放射温度計及び分光器の応答	3-62
図 3.5.2-6	分光器法による高融点金属・酸化物の融点測定結果	3-62
図 3.5.2-7	UO ₂ (N) の熱停留点付近での放射温度計及び高速度カメラの応答	3-63
図 3.5.2-8	測定法の違いによる UO ₂ の融点への影響	3-63
図 3.5.2-9	二色法による高融点金属・酸化物の融点測定結果	3-64
図 3.5.2-10	UO ₂ の温度分布の時間変化	3-64
図 3.5.2-11	UO ₂ の溶融から凝固までの相変化の様子	3-65
図 3.5.2-12	UO ₂ -Dy _{0.5} の熱停留点付近での放射温度計及び分光器の応答	3-65
図 3.5.2-13	UO ₂ -Dy _{0.5} の熱停留点付近での放射温度計及び高速度カメラの応答	3-66
図 3.5.2-14	UO ₂ -Nd _{0.5} 及び UO ₂ -Dy _{0.5} の融点	3-66
図 3.5.2-15	UO ₂ -Nd _{0.5} 状態図	3-67
図 3.6-1	TREAT での過渡照射試験 ((a) MOXTOP-1、(b) MOXTOP-2) における出力履歴条件	3-69
図 3.6-2	MOXTOP-1 及び MOXTOP-2 に対する非定常燃料挙動解析結果	3-70
図 3.6-3	下部キャプセル組立品及びキャプセル上蓋	3-73
図 3.6-4	ヒートシンク	3-73
図 3.6-5	短尺導入管及びヒートシンクスリーブ	3-74
図 3.6-6	上部フランジ組立品	3-74
図 3.6-7	タングステンシールド	3-75
図 3.6-8	フランジリード管	3-75
図 3.6-9	延長導入管及び圧着シール管	3-76
図 3.6-10	THOR キャプセル組立の様子	3-76
図 3.6-11	THOR キャプセル組立後リーク試験の状況	3-77
図 3.6-12	THOR キャプセルへの試験燃料ピンの装填	3-77
図 3.6-13	試験燃料ピン (UW02009、UW02011) の被覆管外観観察の結果	3-78
図 3.6-14	ガンマースキャン結果 (Cs-137 : 計数時間で規格化)	3-79
図 3.6-15	試験燃料ピン (UW02009) の被覆管外径測定結果	3-79
図 3.6-16	試験燃料ピン (UW02011) の被覆管外径測定結果	3-80
図 3.6-17	シスターピン (UW06024) の被覆管外径測定結果	3-80
図 3.6-18	試験燃料ピン (UW02009、UW02011) 及びシスターピン (UW06024) における被覆管周方向ひずみ計算値の比較	3-81
図 3.6-19	シスターピン (UW06024) の破壊試験片採取位置	3-81
図 3.6-20	シスターピン (UW06024) の燃料カラム中央部における横断面金相	3-87
図 3.6-21	シスターピン (UW06024) の燃料カラム中央部における径方向組織変化観察結果	

.....	3-87
図 3.6-22 ギャップ部 JOG 層の詳細観察.....	3-88
図 3.6-23 シスターピン(UW06024)の燃料カラム上端部における縦断面金相観察結果..	3-88
図 3.6-24 EPMA 定量分析部(黄色線上)及びX線マッピング位置(赤枠部).....	3-89
図 3.6-25 EPMA による(a)ウランと(b)プルトニウムの径方向濃度分布及び(c)ウランとプルトニウムの製造時平均濃度に対する相対濃度分布.....	3-90
図 3.6-26 EPMA によるアメリカシウムの径方向濃度分布.....	3-91
図 3.6-27 (a)Ba と(b)Zr の径方向定量分析マップ.....	3-91
図 3.6-28 (a)FCCI 層領域 2 箇所の走査型電子顕微鏡像(BSE)、(b)ウラン(U)、(c)プルトニウム(Pu)、(d)鉄(Fe)、(e)クロム(Cr)、(f)テルル(Te)、(g)セシウム(Cs)、(h)モリブデン(Mo)、(i)ヨウ素(I)及び(j)酸素(O)のマッピング分析画像.....	3-94
図 3.6-29 過渡照射試験用 THOR カプセルと搬出の様子.....	3-95
図 3.6-30 平均出力(4.49W/g-MW)で規格化した PCF の軸方向分布.....	3-96
図 3.6-31 平均出力(4.49W/g-MW)で規格化した PCF の径方向分布.....	3-96
図 3.6-32 MOXTOP-1A の原子炉出力履歴.....	3-97
図 3.6-33 MOXTOP-1A の線出力履歴.....	3-97
図 3.6-34 MOXTOP-1A の熱電対による温度計装値と原子炉出力履歴.....	3-98
図 3.6-35 被覆管外表面温度の軸方向分布.....	3-99
図 3.6-36 被覆管外表面最高温度履歴.....	3-99
図 3.6-37 熱電対位置における温度履歴の解析結果と計装値の比較.....	3-100
図 3.6-38 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像.....	3-101
.....	3-101
図 3.6-39 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像.....	3-101
.....	3-102
図 3.6-40 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像.....	3-102
.....	3-102
図 3.6-41 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのジスプロシウム箔中性子ラジオグラフィ画像(THOR MOXTOP-1 カプセル上部).....	3-102
図 3.6-42 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのジスプロシウム箔中性子ラジオグラフィ画像(THOR MOXTOP-1 カプセル中央部).....	3-103
図 3.6-43 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのジスプロシウム箔中性子ラジオグラフィ画像(THOR MOXTOP-1 カプセル下部).....	3-103
図 3.6-44 a) インジウム箔及び b)ジスプロシウム箔中性子画像.....	3-104
図 3.6-45 HFEF ホットセル鉛ガラス越しの燃料ピン UW02011 の高倍率画像.....	3-105
図 3.6-46 表面のナトリウムを洗浄した後の試験燃料ピン UW02011 の高倍率画像.....	3-106
図 3.6-47 MOXTOP-1A 前後の試験燃料ピン UW02011 の被覆管外径測定結果.....	3-107
図 3.6-48 MOXTOP-1A 前後の試験燃料ピン UW02011 の被覆管外径ひずみ測定結果.....	3-107
図 3.6-49 MOXTOP-1A での過渡照射後の全方位角における被覆管外径測定結果.....	3-108
図 3.6-50 MOXTOP-1A での燃料中心温度解析結果.....	3-110

図 3. 6-51	MOXTOP-1A での被覆管累積損傷和 (CDF) 解析結果	3-110
図 3. 6-52	MOXTOP-1A 後の被覆管累積損傷和 (CDF) 軸方向分布解析結果	3-111

略語一覧

AGF	: Alpha-Gamma Facility (照射燃料試験施設)
BEA	: Battelle Energy Alliance, LLC (バテール・エナジー・アライアンス合同会社)
CPF	: Chemical Processing Facility (高レベル放射性物質研究施設)
CRADA	: Cooperative Research and Development Agreement (共同研究開発契約)
DOE	: United States Department of Energy (米国エネルギー省)
EBR-II	: Experiment Breeder Reactor II (増殖実験炉 2号機)
ECAR	: Engineering Calculations and Analysis Report (工学計算解析報告書)
EPMA	: Electron Probe Micro Analyzer (電子線マイクロアナライザー)
FCCI	: Fuel-Cladding Chemical Interaction (燃料-被覆管化学的相互作用)
FCMI	: Fuel-Cladding Mechanical Interaction (燃料-被覆管機械的相互作用)
FP	: Fission Product (核分裂生成物)
HFEF	: Hot Fuels Examination Facility (照射後燃料試験施設)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer (誘導結合プラズマ質量分析計)
INL	: Idaho National Laboratory (アイダホ国立研究所)
JOG	: Joint Oxide-Gaine (酸化物充填層)
MA	: Minor Actinide (マイナーアクチニド)
MOX	: Mixed OXide (混合酸化物)
PIE	: Post Irradiation Examination (照射後試験)
RSWF	: Radioactive Scrap and Waste storage Facility (放射性廃棄物保管施設)
THOR	: Temperature Heat-sink Overpower Response (温度ヒートシンク過出力応答)
TREAT	: Transient Reactor Test Facility (過渡事象試験炉)

概略

核燃料サイクルから発生する高レベル廃棄物の減容及び環境への有害度低減を達成する方策として、高レベル廃棄物中に含まれる長半減期のマイナーアクチニド (MA : Am、Np 及び Cm) を再処理工程で分離・回収し、燃料として高速炉でリサイクルすることが提案されている。高速炉リサイクルは、放射性廃棄物の減容・有害度低減に加え、MA を燃焼させながら MA を増やすことなく核燃料サイクルに閉じ込めることができる。また、再処理工程を簡素化し、一部の核分裂生成物 (FP) も含んだ多元系の MA 含有低除染燃料として利用することにより経済性の向上や、MA 及び FP の含有によって核燃料の核兵器への転用が困難となるため核不拡散性を向上させることができる。本研究は、高速炉リサイクルにおいて放射性廃棄物減容・有害度低減を達成するために MA 含有低除染燃料に関する燃料技術を実証する。本提案の高速炉リサイクル技術を実現することによって、高レベル廃棄物処分場の体積を約 10 分の 1 に、また、潜在的な放射線有害度を約 300 年に低減できる。

高速炉は、多元系の MA 含有低除染燃料でも燃焼させることができるため、本研究で提案する MA 含有低除染燃料を用いた高速炉 MA リサイクルは、放射性廃棄物減容・有害度低減において極めて効果的な概念である。この高速炉リサイクル技術を実現するためには、MA 含有低除染燃料の定常照射試験及び過渡照射試験を通じて燃料の健全性及び安全性を検証することが不可欠である。定常照射試験を実施するための実験炉「常陽」は、現在、新規規制基準の下、再起動に向けて準備中である。一方、ナトリウム環境下で過渡試験が実施可能な試験炉は、米国の TREAT のみであるが、米国では酸化物燃料の製造可能な設備がない状況である。そこで、本研究開発では、常陽での定常照射を実施するために不可欠である燃料技術の実証と、過去に日米共同研究で実施した高速炉 EBR-II で照射・保管されていた照射済 MOX 燃料を用いて TREAT において過渡試験を実施する。燃料技術の開発は、高速実験炉「常陽」の照射済燃料から再処理して得られたフィードストック原料を用いた研究であり、原料調製、遠隔燃料製造、基礎データ取得及び照射挙動評価などのすべての燃料技術に関する研究開発を含んでいる。これらの研究開発を通して、MA 含有低除染燃料の常陽での照射試験を実施可能とすることと、将来の実用化に向けて、燃料性能の成立性を実証することを目標とする。

本研究開発における実施内容は、前述の目標を達成するために MA 含有低除染燃料に関する研究課題として①フィードストック原料を用いた原料粉末の調製、②遠隔燃料製造技術、③MA 含有 MOX 燃料の基礎物性データベースと燃料設計、④分析技術開発と MA の核変換評価、⑤PIE 技術開発及び⑥TREAT による過渡照射試験の 6 課題を設定し、これらの 6 課題の解決を行うとともに、本研究の次の研究開発ステップにて計画されている常陽による定常照射試験の基盤を構築する。

本研究（令和元年度-令和 4 年度）で得られた各課題の研究成果について以下に述べる。

① フィードストック原料を用いた原料粉末の調製

常陽の照射済み燃料を再処理することによって得られた Am 及び Cm を含む MA 溶液と MOX 硝酸溶液を目標の燃料組成になるように混合し、100 mL の溶液についてマイクロ波加熱脱硝を行い、約 2 g の粉末を得た。得られた原料粉末について結晶性及び熱特性などの基礎データを取得し、MA 含有低除染燃料のマイクロ波加熱脱硝転換技術を実証した。

② 遠隔燃料製造技術

模擬 FP 含有 MOX の焼結特性評価試験を実施し、Nd₂O₃ や SiO₂ を添加した MOX は、収縮がより高

温側で起こることがわかった。また、 SiO_2 を含むMOXは、 SiO_2 の融点付近で焼結を行うことで、液相焼結のような状態と推測される焼結挙動が見られ、焼結ペレットは約98%と高い密度が得られた。焼結試験後の模擬FP/模擬不純物含有MOXの外観は、クラック等のない健全なペレットを得ることができた。本試験によって、MA含有低除染燃料の焼結条件を提案できた。なお、 SiO_2 は、再処理・MA回収プロセスにおいて不純物として含有する。

遠隔製造試験では、Cm含有MOX燃料の製造試験に必要なMA含有溶液を得るために、常陽照射済燃料の硝酸溶解液から約20 μg のCmを含む溶液を得た。抽出したCmを用いてCm含有ペレットを遠隔製造し、カケ、割れ等の欠陥のないペレットの調製を通してCm含有MOXペレットの遠隔製造について実証した。

③ MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計

Nd、Sm、 SiO_2 を含有させたMOXについて、均質性が良好な試料調製を行い、希土類元素含有による熱伝導率及び酸素ポテンシャルに及ぼす影響を定量的に決定した。また、最大15%のAm含有MOXについて熱伝導率及び酸素ポテンシャルの評価を行いAm含有の効果も定量的に評価した。Cm含有MOXの熱伝導率及び相状態の観察結果では、Cm含有量がごく微量であるため、実験により変化を観察することができなかった。これらの熱物性試験を通して燃料設計に必要なデータを整備できた。

これらの基礎物性データを用いてMA含有低除染燃料ペレットの常陽照射での高線出力照射試験の可能性を検討し、燃料ピン内の位置について、熱的な不連続が起こらないような配置を検討した。その結果、430 W/cmの高線出力照射試験を達成できることを確認できた。

④ 分析技術開発とMAの核変換評価

HClを用いないNp分離法について、PuとNpの分離に着目し、分離条件を改良した。また、MA含有MOXの線量率の評価により、放射線防護対策として個々の分析装置に適した遮蔽を検討した。

⑤ PIE技術開発

非定常熱伝導測定について、 $\phi 10$ mmの測定試料に対して、適切なセンサーサイズを検討し、測定条件を改良することによって、高温測定についてはHD法により500°Cまでの温度範囲で測定データを取得するとともに、 UO_2 ペレットの室温測定を実施し、核燃料への適用性を確認できた。また、3Dプリンターにより径方向において密度が不均一な模擬ペレットを作成し、径方向の熱伝導率測定技術について見通しを得た。さらに、セル内測定について検討し、マニピュレータを用いて測定可能な方法を提案した。

核燃料の融点測定に向けた実験環境を整備し、核燃料の融点測定技術を確立し、 UO_2 、 $\text{UO}_2\text{-NdO}_{1.5}$ および $\text{UO}_2\text{-DyO}_{1.5}$ の融点を、高速度カメラと二色法を組み合わせた局所融点測定法を用いて解析・評価し、併せて測定精度を評価した。本測定手法のセル内またはグローブボックス内の適用性を光学的・電気的接続性、操作性等の観点から評価した。

⑥ TREATによる過渡照射試験

TREATの照射試験については、主に試験用カプセル設計、試験燃料体検査、過渡照射試験及び照射後試験(PIE)を米国側が実施し、得られた結果を用いて日本側で解析評価を行った。原子

力機構は、過渡照射試験の試験条件検討及び照射後試験（パンクチャ試験、横断面金相試験、EPMA 分析等の破壊試験）計画の立案を行うとともに、過渡照射試験結果の評価及び非定常解析モデルの開発を行った。米国側は、過渡照射試験用キャプセル・照射試験装置組立・輸送、TREAT での過渡照射試験及び上記の立案計画に基づく照射後試験を行うとともに、過渡照射試験結果の評価に必要な照射情報を含むデータ整理と評価を行った。なお、過渡照射試験及び照射後試験については、新型コロナウイルス感染症の影響等で米国側の試験が遅れたため、令和 4 年度の業務を令和 6 年 3 月まで期間延長を実施し完了した。

本研究を通して、フィードストック原料を用いて燃料開発に必要な燃料技術を実証し、常陽での照射試験が実施できることを確認できたことにより、MA 含有低除染燃料の成立性を確認できた。さらに、今後の TREAT 照射試験及び常陽照射試験を通して、燃料性能・安全性評価技術の開発を進めることが期待される。

1. はじめに

本研究では、マイナーアクチニド含有低除染燃料を用いた高速炉リサイクル技術を実証することによって放射性廃棄物減容・有害度低減を達成することを旨とする。高速炉燃料の再処理・MA回収によって得られたフィードストック原料を用いて、Np、Am、CmとFPを含む多元系燃料を研究対象とする。燃料の通常時の健全性及び過渡時の安全性を評価するために、6つの研究課題（①フィードストック原料を用いた原料粉末の調製、②遠隔燃料製造技術、③MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計、④分析技術開発とMAの核変換評価、⑤PIE技術開発及び⑥TREATによる過渡照射試験）を通して、高速炉MAリサイクルのための主要な燃料技術を実証する。高速炉MAリサイクルが実現することによって、高レベル廃棄物処分場の体積を約10分の1に、また、潜在的な放射線有害度を約300年に低減できる（図1-1参照）。

図1-2に高速炉MAリサイクルと燃料技術の関係を示す。現在の高除染の核燃料リサイクルでは、使用済み燃料に含まれるマイナーアクチニド元素は、再処理プロセスにおいて分離され、高レベル廃棄物として処理・処分される。本研究で進めるMA低除染燃料の高速炉リサイクルでは、MAを核燃料の原料に含有させ、核燃料リサイクルに閉じ込め、高速炉で燃焼することにより、放射性廃棄物減容・有害度低減を達成する。また、再処理工程を簡素化し、一部のFPを燃料側へ含有させた低除染燃料とすることにより、再処理プロセスの経済性の向上も図る。使用済み燃料に含まれるマイナーアクチニド元素は、これまでの研究開発において分離技術を開発し、すでに数グラムのMAを含む硝酸溶液を保管している。本研究開発では、MA含有低除染燃料の常陽での定常照射試験による通常運転時の健全性を確認することを目標とし、前述の燃料技術に関する課題①～⑤に関する実証研究を通して、照射試験が実現可能な燃料技術を開発する。また、過渡時の安全性を評価するために、照射済み燃料のTREATを用いた過渡試験を実施する。過渡試験を通して燃料の破損限界出力を評価するとともに、破損時の燃料挙動メカニズムの評価を行う。これらの研究を通して、MA含有低除染燃料の通常時及び過渡時の燃料性能を評価し、燃料の成立性を見通すことができる。6つの研究課題について研究構想を述べる。

① フィードストック原料を用いた原料粉末の調製

本研究では、硝酸溶液段階で燃料組成に調整を行い、マイクロ波加熱脱硝により原料粉を得る転換技術の実証研究を行う。このプロセスを採用することにより、燃料製造工程において秤量・混合工程を除くことができ、製造プロセスの簡素化を図ることができる。また、製品として得られる燃料ペレットのMA及びPuスポットの形成を防ぎ、微細構造の均質化が期待できる。

試験は、これまでに高速炉の使用済み燃料を用いたMA分離研究で得られたMA及びFPを含有した硝酸溶液を出発原料として、Pu含有率及びフィッサイル率を燃料組成調整の上、マイクロ波加熱脱硝により原料粉末の調製を行う。マイクロ波加熱脱硝は、外部加熱を併用したハイブリッド式により実施し、MA含有低除染と高除染MOX粉末の違いを評価し、原料粉末のマイクロ波加熱脱硝転換法の実証を行う。

② 遠隔燃料製造技術

MA含有低除染燃料は、高放射線及び高発熱であるため、従来のグローブボックス内での燃料製造は不可能であることから、ホットセル内で遠隔燃料製造を行う必要がある。図1-3に遠隔燃料製造のフローを示す。原子力機構におけるセル内遠隔燃料は、大洗研究所のAGFにおいて、2005年に高Am含有MOXペレットの製造を行い、常陽で照射試験を実施した経験がある。本研究では、

照射済燃料から Cm を含む原料を抽出し、試験に供するとともに、製造設備機器を、整備・調整し、燃料ペレットの製造を行うことができるようにする。また、燃料製造を行うにあたり、MA 及び FP 含有による焼結特性への影響を調べ、焼結条件を把握する。焼結条件への影響としては、主に酸素ポテンシャル変化による O/M 比の効果と、不純物の拡散挙動への影響や液相焼結の出現による焼結メカニズムへの影響が考えられる。

試験は、核燃料サイクル工学研究所のプルトニウム燃料第一開発室において、2%程度の Am と模擬 FP を含有した MOX について系統的に試験を実施することで、焼結特性を調査し、熱処理条件を評価する。AGF においては、Cm 含有 MOX の原料を調製するとともに、遠隔燃料製造設備を整備した後、プルトニウム燃料第一開発室での試験結果をベースとして、Cm を含む MOX 燃料のペレット製造試験を行う。これらの試験を通して、燃料製造技術を確立する。

③ MA 含有低除染燃料の基礎物性データベースと燃料設計

本研究では、常陽において MA 含有低除染燃料の定常照射を行うために燃料設計技術開発を行う。MA 含有低除染燃料の燃料設計で不可欠な要素は、熱物性データの整備と MA 及び FP の照射挙動への影響を評価することである。試験は、プルトニウム燃料第一開発室において、2%程度の Am と模擬 FP を含有した MOX について系統的に物性試験を実施し、AGF においては、Cm を含む MOX 燃料について基礎データ取得を行い、物性データベースを拡充するとともに、燃料設計用の物性関係式を導出する。これらの式を用いて燃料設計を行う。

④ 分析技術開発と MA の核変換評価

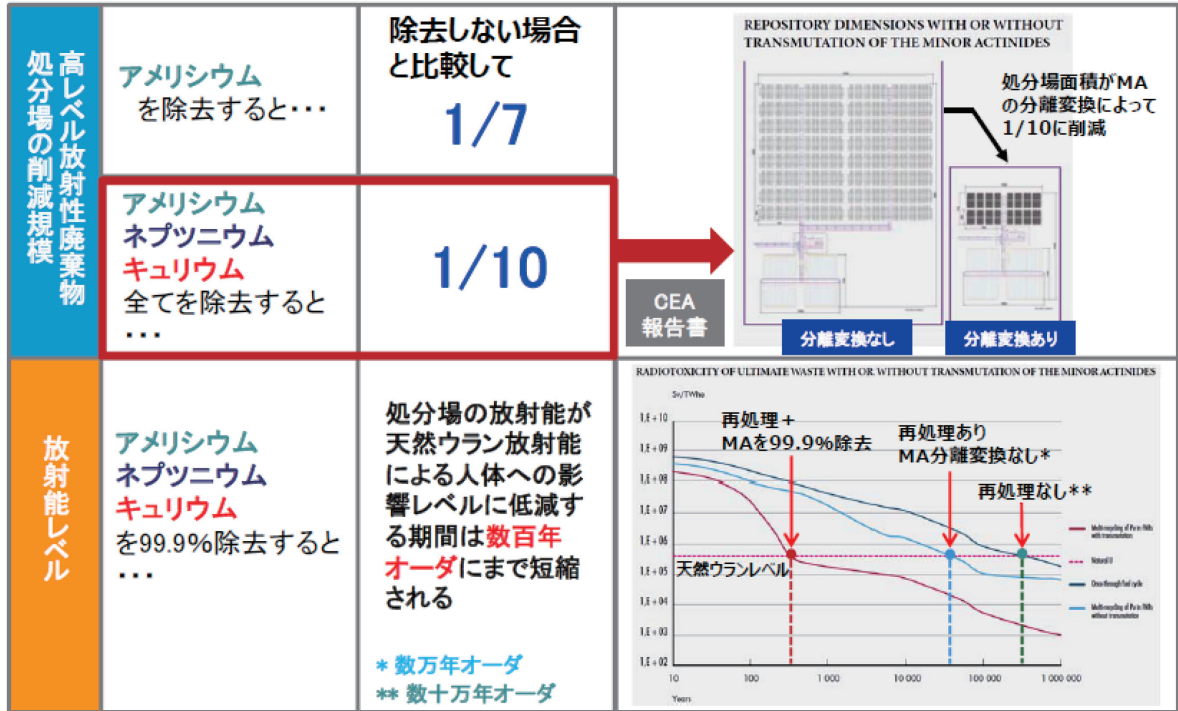
照射中の MA 核変換挙動の評価精度を向上させるために、照射前後の燃料中の MA 含有率を精度よく測定することによって核変換挙動の評価技術を開発する。従来の高除染燃料では、照射後の燃料に含まれる MA を定量することによって核変換効率を評価していたため、分析精度に影響した評価結果となっていた。MA 含有低除染燃料には、燃料製造時に様々な同位体の MA が含まれるため、照射前後の MA 分析を行うことによって MA 核変換挙動の評価精度を向上させるための分析技術を開発する。

⑤ PIE 技術開発

燃料開発において、照射中の最大許容線出力を評価することが重要であるが、熱物性の燃焼度依存性に関するデータはほとんどない。照射済燃料の高温における熱物性評価は、FP の放出によって線量が急激に上昇するなどの理由により、その物性値の測定が困難なためである。本研究では、特に重要な熱物性である熱伝導率と融点について、ホットセル内で測定する技術として改良型非定常平面熱源法を用いた TCi 装置及びレーザー溶融による局所融点測定技術の開発を行う。

⑥ TREAT による過渡照射試験

MA 含有低除染燃料は、高速炉の実用化段階において、150 GWd/t の高燃焼度を達成することを目指している。事故時の安全性評価を行い、破損線出力を評価するためには、事故を模擬した過渡照射試験を行う必要があるが、100 GWd/t を超えるような高燃焼度領域における過渡照射試験のデータはほとんどない。また、MA 含有低除染燃料は、燃料製造時から MA 及び FP を含んでいるため燃焼燃料の過渡照射試験を行うことは、燃料の許容線出力を評価する上で重要である。本研究では、EBR-II で照射した照射済燃料について TREAT を用いた過渡照射試験を行い、破損出力及び破損モードの評価を行い、得られたデータをもとに非定常照射解析コードの検証を行う。



CEA "Report on Sustainable radioactive Waste Management" (2012)より作成

出典) 一般財団法人 キヤングローバル戦略研究所「高レベル放射性廃棄物の分離・変換に関する世界の動向調査と国内の廃棄物有害度低減に向けた調査」(2014) のデータを引用

図 1-1 MA 分離による放射性廃棄物の減容化・有害度低減効果

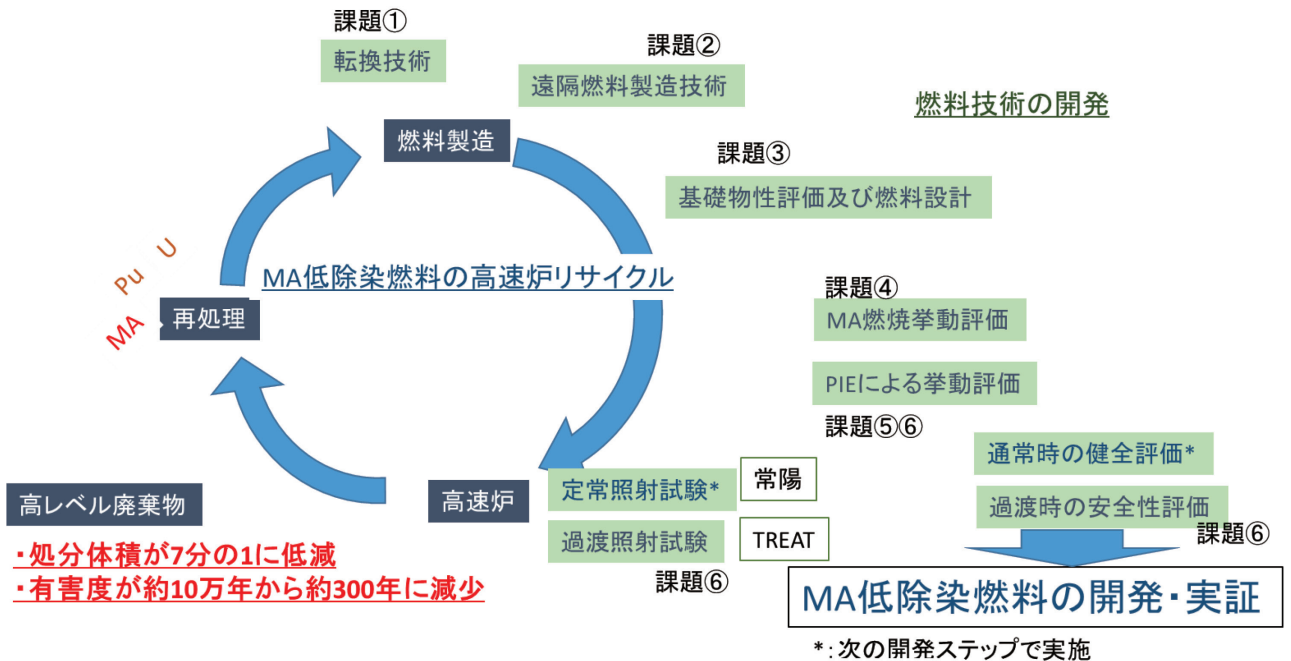


図 1-2 高速炉 MA リサイクルと燃料技術の課題

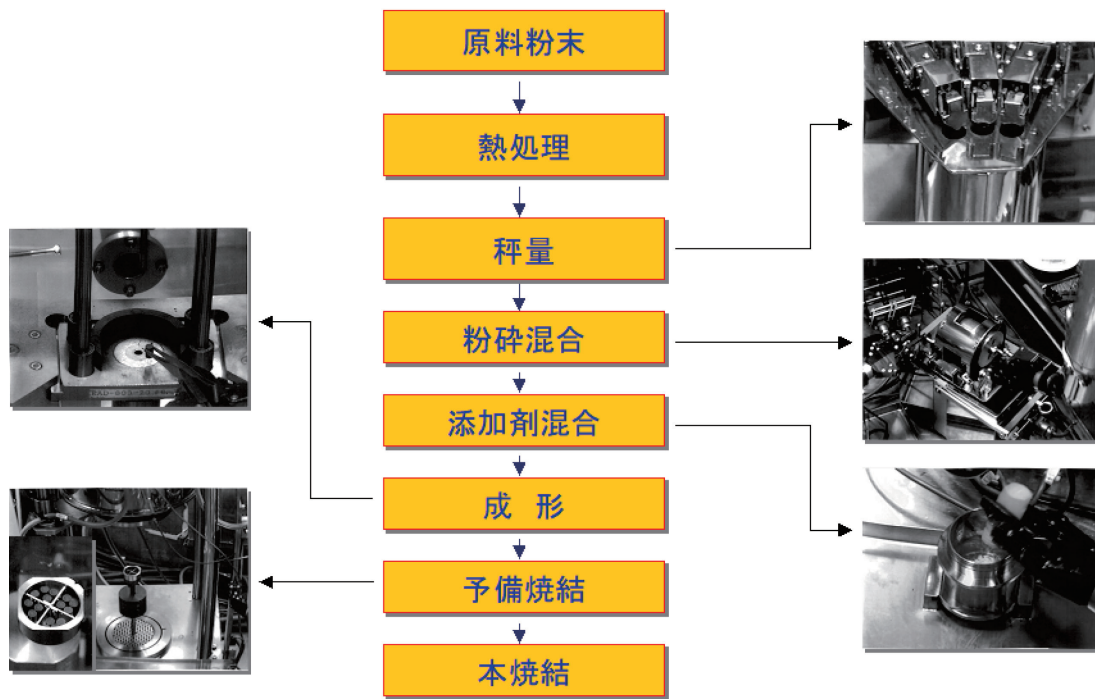


図 1-3 遠隔燃料製造フロー

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究で対象とする燃料は、常陽で照射された MOX 燃料から再処理プロセス及び MA 分離プロセスによって得られたフィードストック原料を用いた MA 含有低除染燃料である。本研究では、常陽での照射試験を想定した燃料技術に関する研究開発を進める。照射燃料の仕様は、本研究を通して原料の組成、粉末の分析結果をもとに、燃料設計等を通して決定する計画である。主要な燃料仕様の範囲を以下に示す。

Pu 含有率：20 ～ 35 %

MA 含有率：合計 ～10 % (Am+Np+Cm)

FP：RE を含む FP の除染係数として 100

O/M 比：1.93 ～ 1.98

本業務の全体計画図を図2.1-1に示す。各研究課題について以下の計画で実施する。

(1) フィードストック原料を用いた原料粉末の調製

本課題は、令和2年度から4年度で実施し、溶液調製、脱硝試験、分析・評価を通して、原料粉末の調製技術について研究を実施する。

(2) 遠隔燃料製造技術

本課題は、令和元年度に試験準備を行い、令和2年度から焼結試験及び製造条件評価を通して、MA及び不純物の焼結特性に及ぼす影響を評価する。その結果をもとに製造条件を評価し、Cm含有燃料の遠隔燃料製造へ展開する。

(3) MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計

MA及び模擬FPを含む燃料について、パラメータ試験を実施し、微量元素の影響を詳細に調査し、得られた基礎物性データを用いて常陽照射試験を想定した燃料設計を実施する。

(4) 分析技術開発とMAの核変換評価

未照射燃料及び照射済燃料のMA分析技術開発を通して、MAの核変換評価技術を開発し、常陽照射試験に備える。

(5) PIE技術開発

燃料の熱的な評価を行い、許容線出力を評価するために、照射済燃料の熱伝導率と融点を測定する技術の開発を行う。装置開発はセル内での遠隔測定が可能な技術として開発する。

(6) TREATにおける照射済燃料の過渡照射試験

令和3年度にTREATにおける過渡照射試験が実施できるように進め、令和4年度に照射後試験を通して燃料破損メカニズムの評価などを進める。

(7) 研究推進

推進会議及び DOE との技術会合を通して研究開発を推進する。最終年度では、各研究課題の成果を取りまとめ、次のステップである MA 含有低除染燃料の常陽照射試験に向けた研究開発を検討する。

すべての研究は、令和4年度までに終了する計画であったが、新型コロナウイルス感染症の世

界的なまん延により、TREAT での過渡照射試験が遅れ、令和 6 年 3 月まで研究期間を延長することとなった。

研究項目	令和元年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度
(1)フィードストック原料を用いた原料粉末の調整		設備整備・溶液調整	脱硝試験	分析・評価
(2)遠隔燃料製造技術				
①模擬燃料の焼結特性に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価	試験準備	焼結特性試験	焼結特性試験 製造条件評価	製造条件評価 不純物の影響評価
②遠隔燃料製造技術の実証	試験準備	原料粉末調製 遠隔燃料製造設備の試運転・調整	原料粉末調製 遠隔燃料製造設備の試運転・調整	Cm含有MOX燃料製造
(3)MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計				
①模擬低除染燃料の基礎物性評価とMA含有MOXの基礎物性データベース作成	試験準備	基礎物性評価試験	基礎物性データベース作成	
②Cm含有MOXの相状態と熱的特性	試験準備	Am含有MOXの物性測定	Am含有MOXの物性測定 Cm含有MOXの物性測定	Cm含有MOXの物性測定
③照射燃料の設計		燃料設計に向けた準備(文献調査、課題の把握等)	燃料設計に向けた準備(文献調査、課題の把握等)	燃料設計
(4)分析技術開発とMAの核変換評価				
	試験準備	MA含有MOXの放射線特性評価及びNp分離手法の適用性評価	QA分析装置の遮へい等の対応、Np分離手法の改良及びMA化学分析	QA分析装置の遮へい等の対応、Np分離手法の改良及びMA化学分析
(5)PIE技術開発				
①非定常平面熱源法による熱伝導率測定技術開発	セル内測定等における課題整理	セル内測定用装置開発及び径方向熱伝導率評価	セル内測定及び高温測定技術開発	セル内測定技術の整備・課題の抽出
②レーザー溶融による局所融点測定技術開発	融点測定システム構築のための環境整備	高速度カメラと二色法を組み合わせた融点測定システムの構築	レーザー加熱による局所融点測定法の有効性の模擬MAを用いた評価	セル内における測定システムの適用性評価
(6)TREATにおける照射済燃料の過渡照射試験				
	試験燃料選択・試験条件検討 試験燃料健全性検査・キャプセル設計	試験条件検討・PIE計画立案 キャプセル設計・製作・組立	PIE計画立案・試験結果評価 キャプセル組立・過渡試験・非破壊試験(DOE)	試験結果評価・解析モデル開発 破壊試験・試験データ整理
(7)研究推進				
	推進会議 DOEとの技術会合	推進会議 DOEとの技術会合	推進会議 DOEとの技術会合	まとめ

図 2.1-1 研究スケジュール

2.2 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和4年度においては、上記6つの研究課題について以下の研究開発を実施する。

(1) フィードストック原料を用いた原料粉末の調製

これまでに調製したMOX粉末及びMA含有MOX粉末を対象に、熱重量分析及びX線回折分析を行う。本分析により得られる脱硝粉の熱的挙動や結晶性の評価結果をもとに、MA含有MOX粉末の調製に際してのハイブリット脱硝技術の適用性を検討・評価する。

(2) 遠隔燃料製造技術

MA及びFPを含む燃料は、わずかしか得ることができないため、模擬燃料を用いたパラメータ試験を実施し、微量元素の影響を詳細に調べる。その上で、MA、FPを含んだ燃料を用いた製造試験を実施する。令和4年度は以下を実施する。

①模擬燃料の焼結特性に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価

焼結特性に対する微量元素の影響評価を行うために、令和2年度に確認されたフィードストックの最終製品の組成をもとに製造条件評価試験を継続し、照射試験用ペレットの仕様を満足する条件を決定する。また、添加される模擬FP含有量の範囲を広げて試料調製試験を行い、焼結等の燃料製造プロセスにおけるFPの影響について評価する。

②遠隔燃料製造技術の実証

令和3年度までに使用済燃料から分離したU、Pu及びCmを用いて、Cm含有MOXの遠隔製造を実施する。

(3) MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計

MA及びFPを含む燃料は、わずかししか得ることができないため、模擬燃料を用いたパラメータ試験を実施し、微量元素の影響を詳細に調べる。その上で、MA、FPを含んだ燃料を用いた基礎特性試験を実施する。燃料設計では、常陽における照射試験を想定した設計を実施する。令和4年度は以下の研究を実施する。

①模擬低除染燃料の基礎物性評価とMA含有MOXの基礎物性データベース作成

MOX燃料の基礎物性に対する微量元素の影響評価を行うために、令和2年度に確認されたフィードストックの最終製品の組成をもとに模擬FP及びMAを含有したMOXペレットの基礎物性測定試験を継続する。また、添加される模擬FP含有量の範囲を広げた試料を調製し、各物性値に対するFPの影響について評価する。実験で得られたデータを用いて、基礎物性データベースを拡充する。

②Cm含有MOXの相状態と熱的特性

(2)②で製造したCm含有MOXの相状態及び熱特性評価を実施する。

③照射燃料の設計

フィードストック原料を用いたMA含有低除染燃料の常陽における照射試験の具体化に向け、原料中の不純物に関するデータ及びMA含有MOX燃料の基礎物性データを燃料設計に反映し、試験燃料の仕様・構造の具体化を行う。

(4) 分析技術開発とMAの核変換評価

MA含有MOX粉末の放射線特性を考慮したQA分析機器での取扱時の対応方策の検討を継続する。HClを用いないNp分離法について、実験によりその改良の検討を継続する。保有する照射済燃料の溶解液に含まれるMAの分析を行う。

(5) PIE技術開発

①非定常平面熱源法による熱伝導率測定技術開発（再委託先：福井大学）

非定常熱源法を用いたUO₂の熱伝導率測定手法を確立するとともに、3Dプリンターを用いて模擬析出層ペレットを合成しその半径方向の熱伝導率の算出を試みる。これまでの結果よりホットセル内での照射済みペレットの半径方向の熱伝導率を室温および高温で評価する手法をとりまとめるとともにその課題を抽出する。

②レーザー溶融による局所融点測定技術開発（再委託先：九州大学）

高速度カメラと二色法を組み合わせた局所融点測定法を用いて、酸化ウランにMAの模擬元素としてランタニドを固溶させた試料の融点を解析・評価する。さらに、セル内またはグローブボックス内での本測定システムの適用性を評価する。

(6) TREATにおける照射済燃料の過渡照射試験

TREATの照射試験については、主に試験用カプセル設計、試験燃料体検査、過渡照射試験及び照射後試験（PIE）を米国側が実施し、得られた結果を用いて日本側で解析評価を行う。さらに、双方で過渡時燃料挙動評価に必要な非定常解析モデルの開発を実施する全体計画となっている。令和4年度は、原子力機構は、過渡照射試験の試験条件検討及び照射後試験

計画の立案を継続して行うとともに、過渡照射試験結果の評価及び非定常解析モデルの開発を行う。米国側は、過渡照射試験用キャプセル・照射試験装置組立・輸送、TREATでの過渡照射試験及び照射後試験を行うとともに、過渡照射試験結果の評価に必要な照射情報を含むデータ整理と評価を行う。なお、原子力機構は、米国で実施する試験燃料体検査及び過渡照射試験に立ち会う。

(7) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密に行い、情報、知見及びデータを共有しながら研究を進める。また、協力先である米国INLとは技術会合を通して進捗を確認しつつ研究推進を図る。

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 フィードストック原料を用いた原料粉末の調製【R2-R4】

【R2-R3】

本研究は、令和2年度から4年度にかけて溶液調製、脱硝試験、分析・評価を通して、原料粉末の調製技術について実施する計画である。令和2年度に「常陽」照射済燃料溶解液からU、Puを回収し、得られた高レベル放射性廃液を基に調製した溶液から抽出クロマトグラフィ法を用いてMAの回収を行った。令和3年度は、U、Pu量を調製するために、施設に保管している未照射MOX燃料溶解液をMA溶液に添加し、脱硝・転換によりMA含有MOX燃料粉末の調製を行った[1, 2]。表3.1-1に本試験により脱硝を行ったMA含有MOX燃料溶解液の組成を示す[2]。図3.1-1に脱硝・転換後のMA含有MOX燃料粉末の外観を示す[2]。約2gのMA含有MOX粉末が得られた。回収したMA含有MOX粉末はステンレス鋼缶に入れた。脱硝・転換前の溶液組成から計算すると得られたMA含有MOX粉末のPu富化度は約30%であり、MA含有率は約6.8%となる。

【R4】

令和4年度は、未照射MOX燃料溶解液に抽出クロマトグラフィ法により回収したMA溶液を添加して脱硝したMA含有MOX粉末とMAを添加していないMOX粉末を対象にX線回折分析及び熱重量分析を実施した。これらの測定は、高レベル放射性物質研究施設（CPF）のグローブボックス内に設置しているX線回折装置と熱重量分析装置を使用した。

X線回折分析は理学機械製RINT-2100H/PCを使用した。測定はCuK α 線を使用し、空気雰囲気において20kV、20mA、5°/minの条件で実施した。図3.1-2にグローブボックスに設置しているXRD回折装置を示す。

図3.1-3にMOX粉末及びMA含有MOX粉末のXRD回折ピークの結果を示す。XRD回折のピークは、MOX粉末及びMA含有MOX粉末を比較すると、異なるピークが見られた。MOX粉末は、MA含有MOX粉末に比べUO₃に起因するピークがはっきりと確認できた。これら2つの試料ともPuO₂もしくはAmO₂のリファレンスの回折ピークと一致するピークが確認された。

熱重量分析は、島津製作所製DTG-50を使用し、10°C/minで設定温度950°Cの条件で実施した。設置しているグローブボックスの関係で、Ar雰囲気中で測定を行った。図3.1-4にグローブボックスに設置している熱重量分析装置を示す。

図3.1-5にMOX粉末及びMA含有MOX粉末のTG/DTA曲線の結果を示す。両粉末とも100°C付近から重量減少が確認された。これは、DTA曲線に大きな変化が見られなかったことから水分や残留成分の除去、及びO/M比の低下によるものと思われる。MOX粉末及びMA含有MOX粉末の900°Cにおける重量減少はそれぞれ約4.8%及び約5.7%であり、大きな差はみられなかった。DTA曲線は、500°C付近から徐々に減少している傾向がみられたが、これは装置の特性によるものと思われる。

MA含有MOX粉末の転換技術として、マイクロ波加熱及び外部加熱を組合わせたハイブリッド脱硝技術を適用し、図3.1-1に示すように微細な酸化物粉末を得られたことを確認した。

参考文献

- [1] 令和2年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 “マ
イナーアクチニド含有低除染燃料による高速リサイクルの実証研究（日本原子力研究開発機
構）” 成果報告書（2021）
- [2] 令和3年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 “マ
イナーアクチニド含有低除染燃料による高速リサイクルの実証研究（日本原子力研究開発機
構）” 成果報告書（2022）

表 3.1-1 MA 含有 MOX 燃料溶解液の組成

^{54}Mn (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	B (ppm)	< 14	Zr (ppm)	< 14
^{60}Co (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Na (ppm)	16	Mo (ppm)	< 14
^{95}Zr (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Mg (ppm)	< 4.5	Tc (ppm)	< 18
^{95}Nb (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Al (ppm)	< 14	Ru (ppm)	< 9
^{103}Ru (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Si (ppm)	13	Rh (ppm)	< 4.5
^{106}Ru (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	K (ppm)	< 4.5	Pd (ppm)	< 9
^{125}Sb (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Ca (ppm)	< 14	Ba (ppm)	< 4.5
^{134}Cs (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Cr (ppm)	< 4.5	La (ppm)	< 14
^{137}Cs (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Mn (ppm)	< 14	Ce (ppm)	< 14
^{144}Ce (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Fe (ppm)	9.2	Pr (ppm)	< 4.5
^{144}Pr (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Co (ppm)	< 4.5	Nd (ppm)	36
^{154}Eu (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Ni (ppm)	< 4.5	Sm (ppm)	< 4.5
^{155}Eu (Bq/mL)	$< 3.7 \times 10^4$	Zn (ppm)	< 68	Eu (ppm)	< 4.5
^{241}Am (Bq/mL)	2.0×10^7	Rb (ppm)	< 22	U (ppm)	1500
^{242}Cm (Bq/mL)	3.0×10^5	Sr (ppm)	< 4.5	Pu (ppm)	650
^{244}Cm (Bq/mL)	4.8×10^5	Y (ppm)	< 4.5		



図 3.1-1 脱硝・転換後の MA 含有 MOX 燃料粉末の外観



図 3.1-2 グローブボックス内に設置した XRD 回折析装置の外観

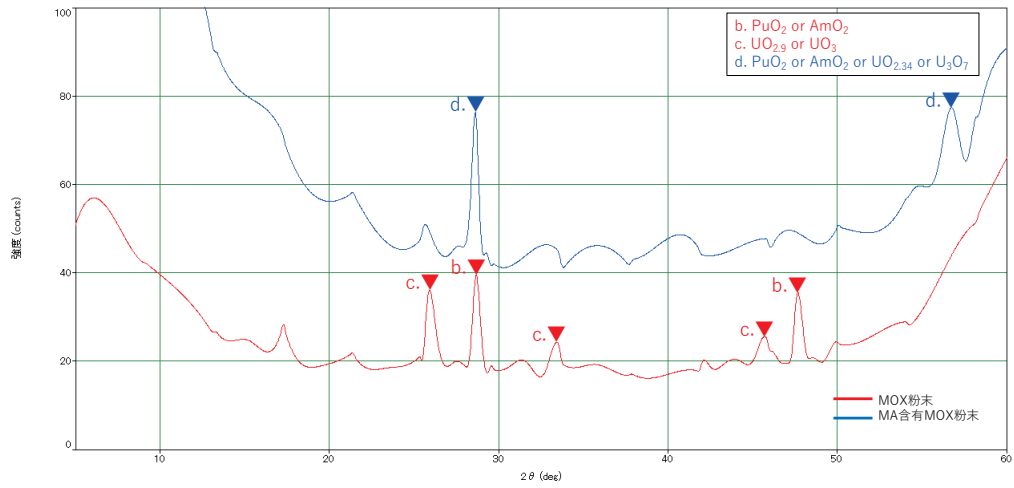


図 3.1-3 MOX 粉末及び MA 含有 MOX 粉末の XRD 回折ピーク

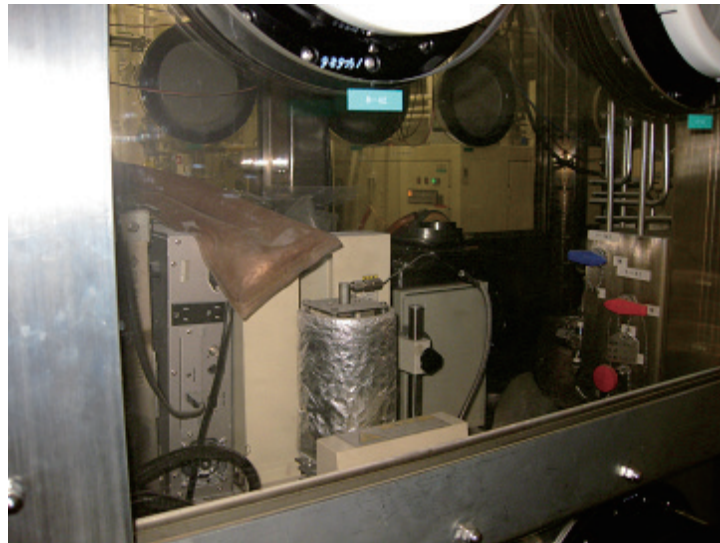


図 3.1-4 グローブボックス内に設置した熱重量分析装置の外観

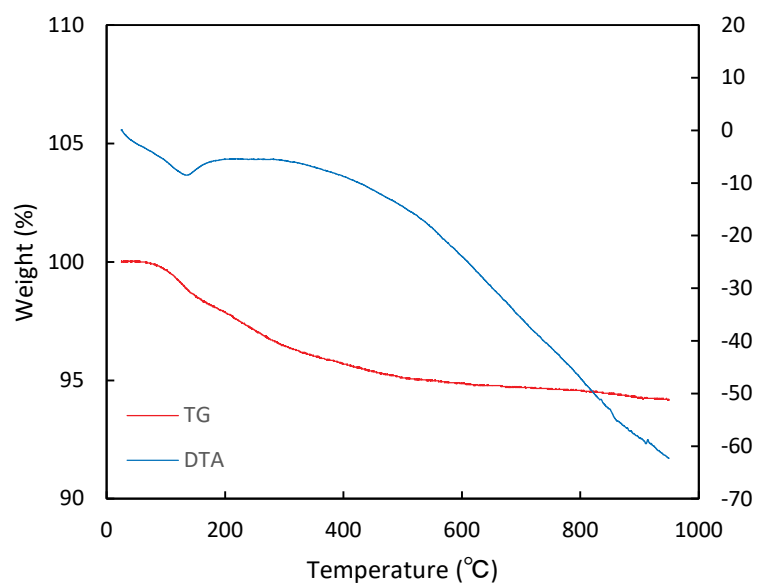
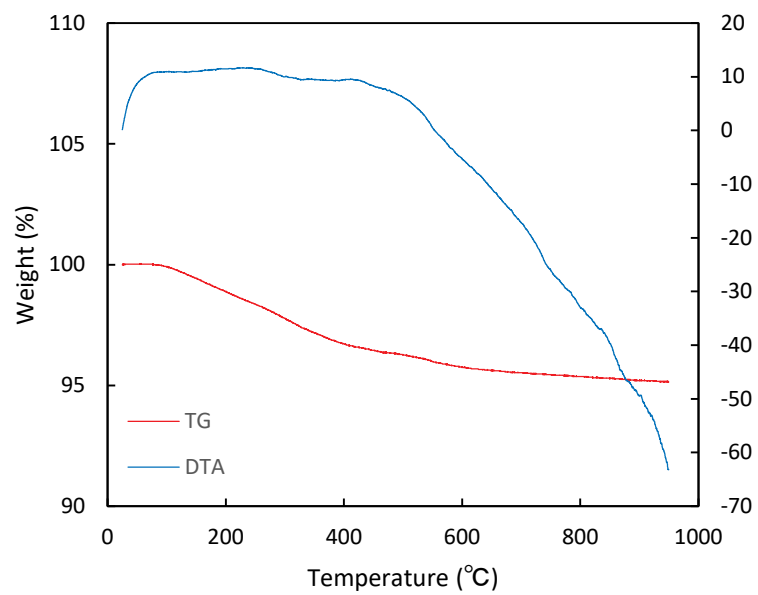


図 3.1-5 MOX 粉末及び MA 含有 MOX 粉末の TG/DTA 曲線
(上 : MOX 粉末, 下 MA 含有 MOX 粉末)

3.2 遠隔燃料製造技術

3.2.1 模擬燃料の焼結特性に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価【R1-R4】

【R1-R3】

MOX 燃料に含まれる FP や不純物元素が焼結特性に与える影響の評価を目的として、模擬 FP/模擬不純物を添加した焼結試験を行った。

令和元年度は、焼結試験に用いる熱膨張計 (Bruker AXS 製 TD5000SA) の試運転を実施した。試運転では、1973 K までの昇温と、1923 K で 3 時間の温度保持を実施した。また、酸素分圧を調整した雰囲気フローして焼結試験を行うため、酸素分圧調整装置及び酸素センサーの試運転も実施し、正常に装置が作動することを確認した。

令和 2 年度は、MA 含有低除染 MOX 燃料に多く含まれる Nd または Sm を、模擬 FP として金属比で 0.5~3 mol% 添加した MOX の収縮特性を評価した。模擬 FP の含有量の増加につれて、焼結により収縮が進む温度が高温側にシフトする傾向が見られた。最終的に得られた焼結ペレットは、模擬 FP を添加していない MOX と同程度の密度が得られた。

令和 3 年度は、添加量をさらに増加させ、模擬 FP として Nd を 10 mol%、また、MA 分離カラムの吸着剤が由来となる不純物元素として Si を 3 mol%、Al を 3 mol% 添加した MOX をそれぞれ調製して焼結特性を評価した。いずれの組成においても昇温のみでは十分に密度が高くない結果が得られたが、温度保持を行うことで、約 97%TD まで上昇した。

【R4】

令和 4 年度は、これまで模擬 FP 及び模擬不純物の影響を個別に評価してきたが、最終製品 (表 3.3-1) を模擬した $\text{Nd}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ を MOX に添加し、それらが焼結特性へ与える影響を評価した。

MOX 原料粉末として、令和 2、3 年度に引き続き、マイクロ波加熱脱硝により得られた、 $\text{Pu}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am})=18.32 \text{ mol}\%$ 、 $\text{Am}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am})=0.21 \text{ mol}\%$ を含む粉末を使用した。

混合は、約 2 g の MOX 粉末に対して模擬 FP/模擬不純物粉末を所定量添加し、メノウ乳鉢で 1 時間混合した。混合は、少量のエタノールを添加しながら行った。以下に添加率 (mol%) を示す。

① $\text{SiO}_2 : \text{Si}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Si})=0.5 \text{ mol}\%$ (0.5%Si-MOX)

② $\text{SiO}_2 : \text{Si}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Si})=1.5 \text{ mol}\%$ (1.5%Si-MOX)

③ $\text{Nd}_2\text{O}_3+\text{SiO}_2 : \text{Si}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd}+\text{Si})=0.5 \text{ mol}\%$ 、

$\text{Nd}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd}+\text{Si})=0.5 \text{ mol}\%$ (0.5%Nd-0.5%Si-MOX)

成型は、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を塗布した $\phi 5 \text{ mm}$ のダイスに混合粉末を充填し、400 MPa でプレスし、30 秒間保持した。

焼結試験は、熱膨張計 (Bruker AXS 製 TD5000SA) を用いて 1 つの試料に対して 2 回実施した。1 回目は、8 K/min で 1923 K まで昇温し、温度保持をせずに冷却して昇温時の収縮率及び焼結後の密度のデータを取得した。2 回目は 20 K/min で昇温し、1923 K で 3 時間温度保持を行い、冷却後に再度密度のデータを取得した。焼結時の雰囲気はいずれも 4.5% H_2/Ar に加湿を行い、1923 K において酸素ポテンシャルが -398.9 kJ/mol (O/M 比=1.99) となる条件とした。

表 3.2.1-1 に焼結後の密度を示す。Nd を含む MOX の理論密度は、Nd が MOX に固溶することを踏まえ、X 線回折測定結果に基づき算出した格子定数を用いて評価した。Si については、MOX に固溶しないため、 SiO_2 の添加率を考慮した SiO_2 の密度との平均値として評価した。昇温のみでも模擬 FP/模擬不純物を添加した MOX の密度は全て約 98%TD と、高い値が得られた。これは、 SiO_2

の融点が 1983 K であることから、融点付近の 1923 K まで昇温するにつれて、部分的に共晶反応が起こり、液相焼結のような状態となることで緻密化したためと考えられる。また、温度保持による密度への影響は見られなかった。焼結後のペレットの外観も、クラック等のない健全なペレットであった。

図 3.2.1-1 に令和 2 年度～令和 4 年度の焼結密度の比較を示す。模擬 FP を添加した MOX は、温度保持なしでは通常の MOX と比較して低くなる傾向が見られた一方で、3 時間の温度保持を行うことで、到達密度は MOX (93.6%TD) よりも高い値となった。

図 3.2.1-2 に熱膨張計で得られた昇温中のペレットの収縮率を、図 3.2.1-3 に収縮率を時間微分した収縮速度を示す。収縮率は熱膨張の影響を除くように補正した。通常の MOX の焼結試験では 1300 K 付近から収縮が見られたが（令和 2 年度実施結果）、模擬 FP/模擬不純物を添加した MOX は、より高温の 1500 K 付近から収縮が急速に起こる傾向が見られた。これは、MOX 中に Nd_2O_3 や SiO_2 が存在することで MOX を構成する U や Pu の拡散（固溶）が阻害されたため、通常の MOX よりも収縮開始温度が高温側にシフトしたと考えられる。収縮開始温度は、0.5%Nd-0.5%Si-MOX が最も高かった。令和 2 年度の試験結果から、0.5 mol% の Nd を添加した MOX では、収縮開始温度の高温側へのシフトはわずかであったことから、Nd と Si を同時に含有することで、U、Pu と Nd の拡散も Si により阻害されたため、より高温側にシフトしたと考えられる。0.5%Si-MOX と 1.5%Si-MOX については、収縮開始温度はほぼ同じであったが、1.5%Si-MOX の方がより早く収縮が進んだ。これは、上述の通り、 SiO_2 の添加により、液相焼結のような状態となり、緻密化が進んだためであると考えられ、より SiO_2 の添加率の高い 1.5%Si-MOX の方がその影響をより強く受けたものと考えられる。

最終的な収縮率に関して、0.5%Si-MOX 及び 1.5%Si-MOX は通常の MOX と同程度であり、0.5%Nd-0.5%Si-MOX は他と比較して小さくなる結果が得られた。

以上のとおり、 Nd_2O_3 や SiO_2 を添加した MOX は、収縮がより高温側で起こることがわかった。また、 SiO_2 を含む MOX は、 SiO_2 の融点付近で焼結することで、液相焼結と推測される焼結挙動が見られ、焼結ペレットは約 98% と高い密度が得られた。焼結試験後の模擬 FP/模擬不純物含有 MOX の外観は、クラック等のない健全なペレットであった。

模擬 FP 含有 MOX の焼結試験結果から、1650°C で O/M 比が 1.99 となる酸素分圧（Ar/ H_2 混合ガス+加湿）雰囲気下で 3 時間温度保持する条件を、MA 含有 MOX の焼結条件として提案した。

焼結特性に対する微量元素の影響評価を行うために、令和 2 年度に確認されたフィードストックの最終製品の組成をもとに製造条件評価試験を継続し、照射試験用ペレットの仕様を満足する条件を決定した。また、添加される模擬 FP 含有量の範囲を広げて試料調製試験を行い、焼結等の燃料製造プロセスにおける FP の影響について評価した。

表 3.2.1-1 焼結ペレットの密度

	温度保持なし (%TD)	3 時間温度保持 (%TD)
MOX (R2)	91.77	93.56
Si/(U+Pu+Am+Si)=0.5 mol% (R4)	98.05	98.12
Si/(U+Pu+Am+Si)=1.5 mol% (R4)	98.06	98.11
Si/(U+Pu+Am+Nd+Si)=0.5 mol% + Nd/(U+Pu+Am+Nd+Si)=0.5 mol% (R4)	98.32	98.59

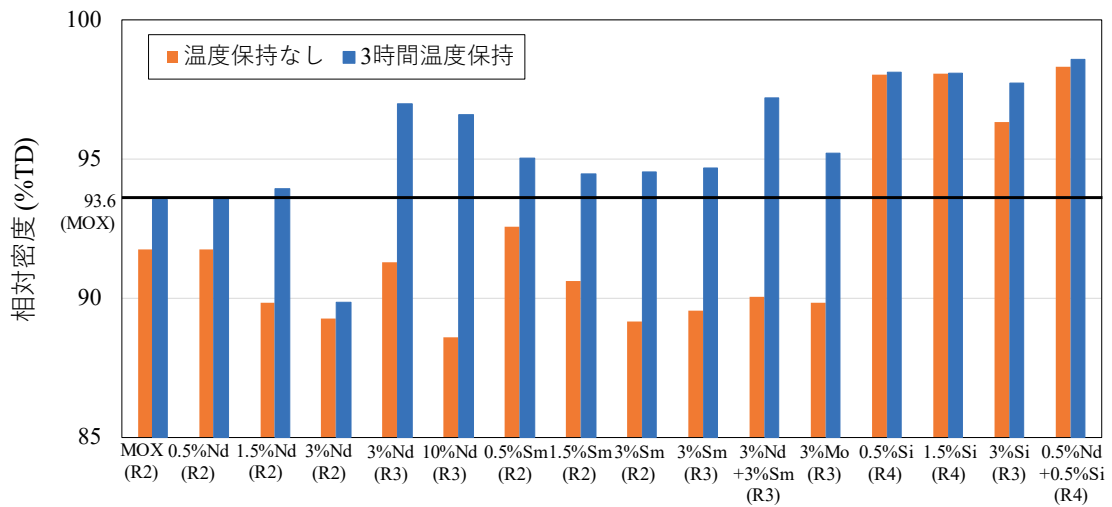


図 3.2.1-1 焼結密度の比較

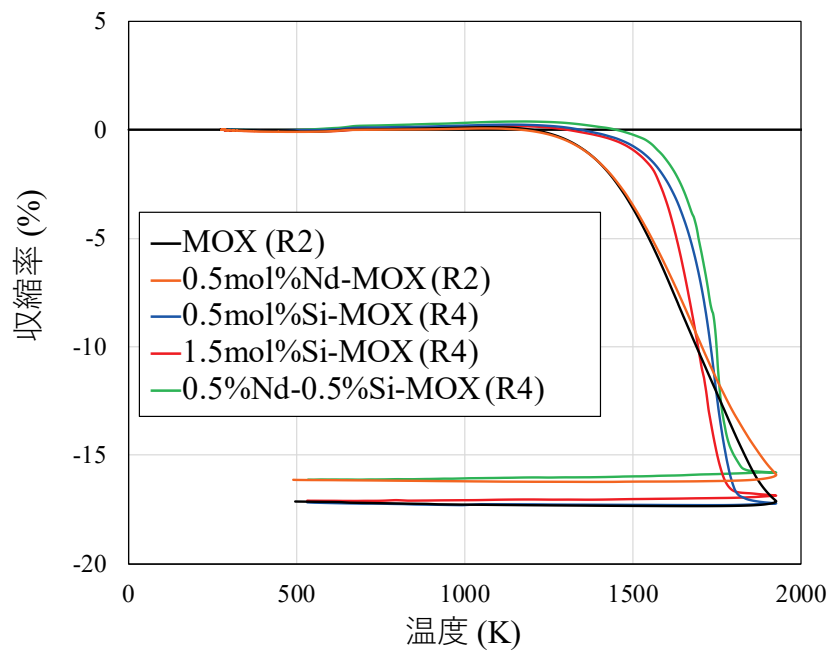


図 3. 2. 1-2 焼結中の収縮率

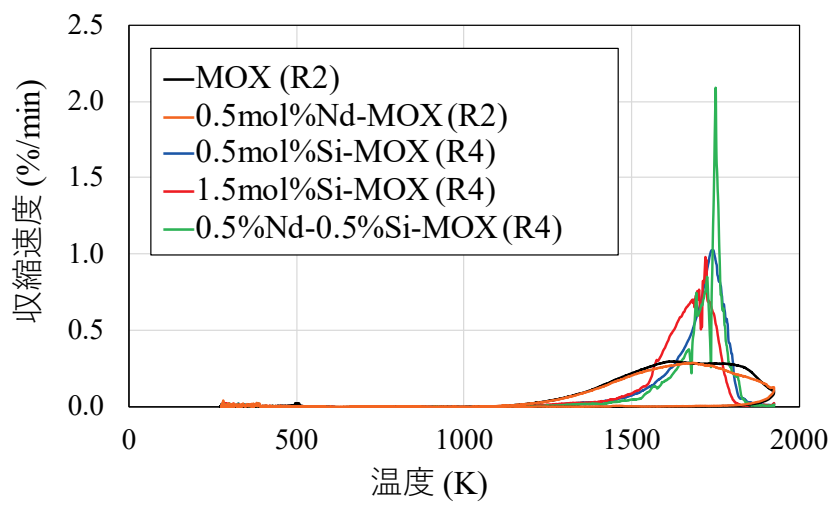


図 3. 2. 1-3 収縮速度

3.2.2 遠隔燃料製造技術の実証【R1-R4】

【R1-R3】

令和元年度は、MA 及び FP を含む燃料製造試験を行うため、原料粉末調製設備及び遠隔燃料製造に使用する装置の試運転を行い、試験に向けた準備をした。原料粉末調製設備として、燃料溶解に使用するセル内に設置されたホットプレート等の試運転を実施し、良好に動作することを確認した。遠隔燃料製造設備としてセル内に設置された予備焼結炉及び本焼結炉の試運転を行い、目的とする温度パターンで炉内温度が制御可能なことを確認した。

令和2年度は、Cm を含有した MOX 燃料の作製に向けて、溶解した照射済燃料から Cm の分離を行うため、分離プロセスで障害となる U 及び Pu を晶析によって除去することを試みた。その結果、照射済燃料の硝酸溶解液から濃縮により U、Pu 等を析出させて粗分離することで Cm 含有 MOX 燃料の製造に必要な MA 含有溶液を得ることができた。また、Cm 含有 MOX 燃料の焼結プロセスでは焼結体の高密度化を図るため、セル内の焼結炉を酸素ポテンシャル制御下で運転する必要がある。そこで、模擬核燃料物質 (CeO₂) を用いて焼結試験を実施した結果、焼結温度域で酸素ポテンシャルを制御しながら焼結炉の運転が可能なことを確認した。

令和3年度は、令和2年度に引き続き Cm 含有 MOX 燃料の作製に向けて、溶解した照射済燃料を対象にイオン交換法によって Cm 分離を行った結果、Cm-244 を約 30 μ g 含む溶液を得ることができた。MOX 燃料の O/M 比調整のための熱処理がセル内の焼結炉で適切にできることを確認するため、MOX 燃料の模擬物質 (ZrO₂-CeO₂ 固溶体) を用いて O/M 比調整試験を実施した。その結果、セル内の焼結炉において MA 含有 MOX 燃料の O/M 比調整に必要な酸素ポテンシャル制御が適切にできることを確認した。

【R4】

令和4年度は、令和2~3年度に照射済燃料から分離した Cm (硝酸塩として回収) を使用して Cm 含有 MOX 燃料の遠隔製造を実施した。分離した Cm には U 及び Pu も含まれるが、その量は非常に少ないため、原子力機構が保有する UO₂ 粉末及び PuO₂ 粉末を使用して、MOX 燃料を製造した。製造フローは図 3.2.2-1 に示す。UO₂ 及び PuO₂ 各粉末に対し、水分及び有機不純物の除去を目的として 4%H₂-Ar ガスフロー、903 K×2 時間の熱処理を行った。Cm 硝酸塩は 0.1M-HNO₃ で加熱溶解し、蒸発乾固した後、CH₃OH で再溶解した。この溶液を上述の熱処理後の UO₂ 粉末へ添加し、373 K で乾燥して Cm 添加 UO₂ 粉末とした。ここで添加した Cm は硝酸塩の化学形態である可能性が高いため、空气中で酸化熱処理し酸化物への転換を行った。この際、母材の UO₂ も酸化し U₃O₈ となるため、UO₂ へ還元するための熱処理を酸化熱処理の後段で実施した。熱処理後の Cm 添加 UO₂ 粉末と PuO₂ 粉末を秤量・混合し、混合粉末中の Pu 含有量が 29.07 wt% となるように組成を調整した。PuO₂ 粉末は長期間の保管により Am-241 が約 1.6 wt% (Am/Pu) 蓄積していたため、組成調整後の混合粉末中の Am 含有量は 0.46 wt% と計算された。組成調整後の混合粉末へバインダーとしてポリビニルアルコール (PVA)、潤滑剤としてステアリン酸亜鉛をそれぞれ少量添加した。一軸加圧成形機を用いて当該粉末をペレット状に成形し、直径 6mm、高さ 9mm 程度のグリーンペレット計 5 個を得た。グリーンペレットの平均密度は 54% であった。これらのグリーンペレットはセル内の焼結炉を用いて有機物 (主として PVA 及びステアリン酸亜鉛) の除去のための予備焼結と粉末を高温で焼き固める本焼結を実施した。焼結条件を表 3.2.2-1 に、焼結準備及び焼結後の様子を図 3.2.2-2 に示す。本焼結の条件は、令和2年度~令和3年度に実施した「模擬燃料の焼結特性

に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価」及び「遠隔燃料製造技術の実証」の各実施項目にて得られた知見をもとに、焼結密度が最も高くなると考えられる温度、昇温速度、焼結保持時間及び酸素ポテンシャルの4パラメータについて検討し、表3.2.2-1のように決定した。焼結後のペレットについて、外観確認、寸法・重量測定を行った。その結果、全ての焼結ペレットについてカケや割れ等の欠陥は見られず外観上は良好なペレットが得られた。寸法、重量及び密度の測定結果を表3.2.2-2に示す。焼結後のペレットの燃料組成を同定するため、ペレットを粉砕して得た欠片を8M-HNO₃で合計12時間加熱溶解し、溶解液のICP質量分析及び放射線計測を実施した。分析により得られた燃料組成を表3.2.2-3に示す。ペレット中重金属1gあたり2μgのCmが含まれていることを確認した。

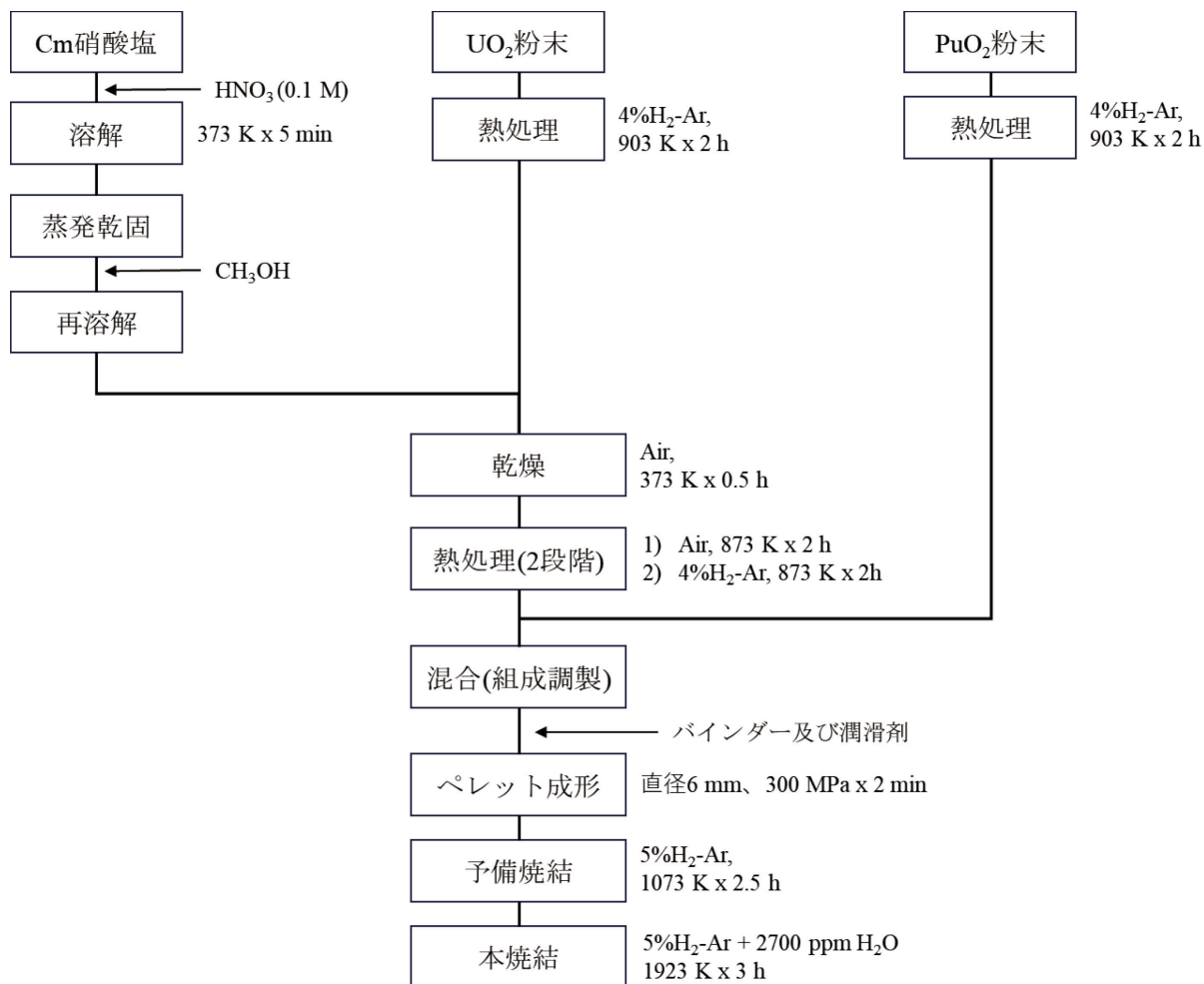


図 3. 2. 2-1 Cm 含有 MOX 燃料の製造フロー

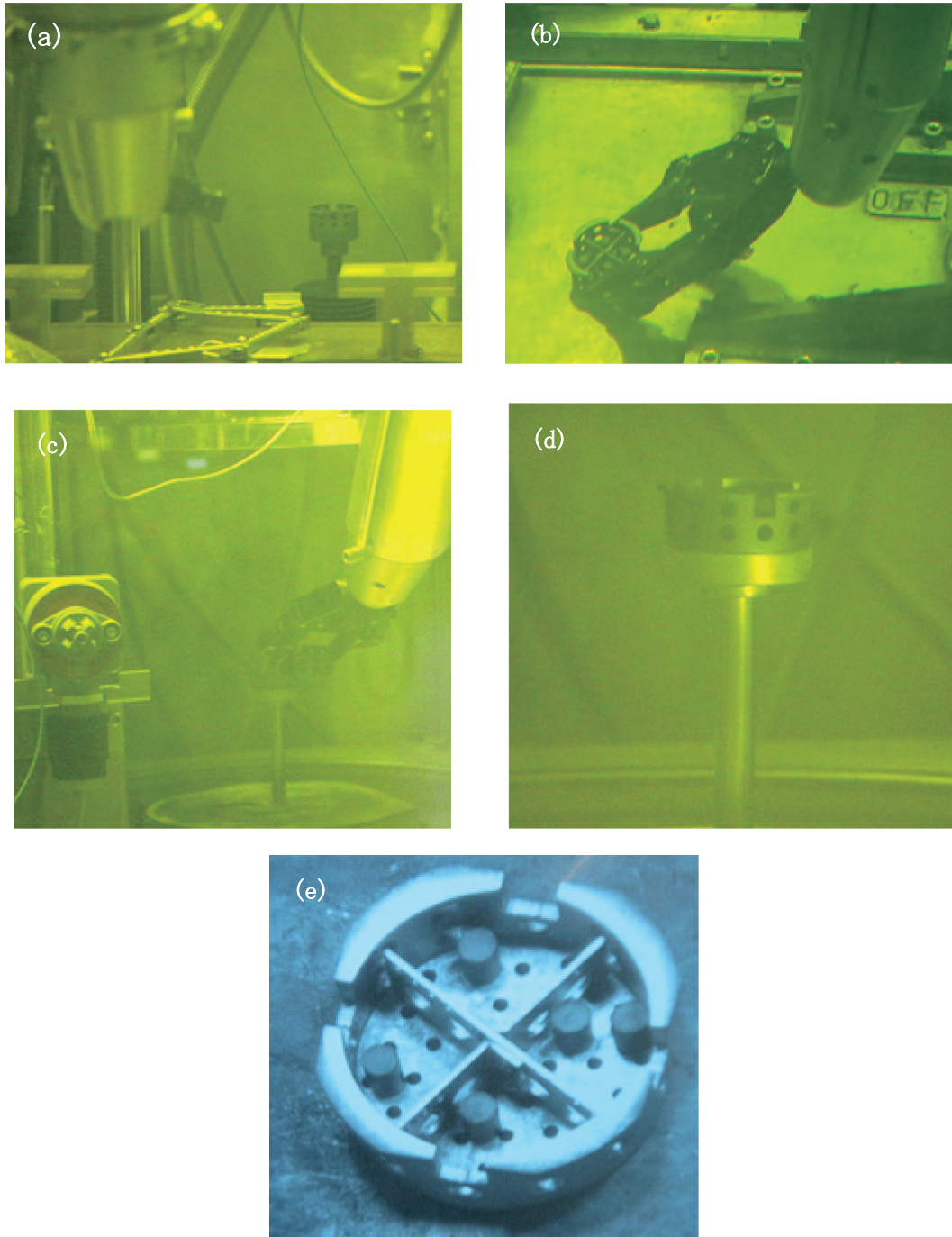


図 3.2.2-2 焼結準備及び焼結後試料の様子
(a) 予備焼結炉への試料セット、(b) 焼結皿のハンドリング、
(c)-(d) 本焼結炉への試料セット、(e) 焼結後試料の外観

表 3.2.2-1 Cm 含有 MOX 燃料の焼結条件

工程	予備焼結	本焼結
使用炉	予備焼結炉	本焼結炉
温度	1073 K	1923 K
保持時間	2.5 h	3 h
雰囲気	5%H ₂ -Ar フロー	5%H ₂ -Ar (加湿) フロー
加湿条件	—	2700 ppm
昇温速度	200 K/h	400 K/h

表 3.2.2-2 焼結ペレットの寸法、密度等一覧

試料 No.	外径 (mm)	高さ (mm)	重量 (g)	密度 (g/cm ³)	理論密度比 ^{*1} (%TD)
1	5.115	7.997	1.569	9.548	86.0
2	5.120	7.730	1.522	9.563	86.2
3	5.131	7.812	1.549	9.590	86.4
4	5.129	7.952	1.575	9.586	86.4
5	5.134	8.098	1.601	9.550	86.0

*1 理論密度 11.1 g/cm³ として計算した。

表 3.2.2-3 Cm 含有 MOX 燃料の組成 (分析値)

元素	核種	組成 (wt%)
U	U -234, 235, 236, 238	71
Pu	Pu-238, 239, 240, 241, 242	29
Np	Np-237	0.02
Am	Am-241	0.5
Cm	Cm-242, 243, 244	0.0002
Sm 等 (不純物)	—	<0.02

3.3 MA含有MOX燃料の基礎物性データベースと燃料設計

3.3.1 模擬低除染燃料の基礎物性評価とMA含有MOXの基礎物性データベース作成【R1-R4】

【R1-R3】

MA含有低除染MOX燃料に有意量含まれるFP元素は、燃料設計において最も重要な物性値の一つである熱伝導率に影響を及ぼすことから、その影響評価が必要である。

令和元年度は、熱拡散率測定装置（アルバック理工製 TV-7000UVH）の試運転を実施した。試運転では、減圧条件で2273 Kまで昇温し、773 Kから2273 Kにおいて100 Kごとにレーザー照射を行い、装置が正常に作動することを確認した。

令和2年度は、金属比で0.5～3 mol%のNd₂O₃またはSm₂O₃をMOX粉末に添加・混合し、焼結体した試料を用いて、1673 Kまでの熱伝導率を評価した。その結果、模擬FP含有MOXの熱伝導率は通常のMOXと同様の値を示した。模擬FPの添加により熱伝導率は低下すると予想していたが、逆の結果となった。これは模擬FPの添加量が過少であることや、模擬FPの均質性が不十分であることが原因と予想した。

令和3年度は、長時間のボールミル混合と長時間の熱処理を行うことで模擬FPの均質性の向上を図るとともに、Ndについては金属比で最大で10 mol%となるように調製した。熱伝導率の評価の結果、令和2年度同様、模擬FP含有MOXの熱伝導率は低下しなかった。EPMAによる元素マッピングの結果では、模擬FPの均質性は部分的には改善していたものの、MOXが造粒されたような塊状の組織が観察され、模擬FPの均質性が不十分であったことが、模擬FP含有MOXの熱伝導率が低下しない原因と考えた。

【R4】

令和4年度は、さらなる均質性の向上を目的として、模擬FP含有MOXを熔融状態まで加熱することとした。熔融後、固化した試料を測定用に調製し、模擬FP含有MOXの熱伝導率を評価した。

MOX原料粉末は、「3.2.1 模擬燃料の焼結特性に及ぼす微量元素の影響と焼結条件評価」と同様に、マイクロ波加熱脱硝により得られた、Pu/(U+Pu+Am)=18.32 mol%、Am/(U+Pu+Am)=0.21 mol%を含む粉末を使用した。

熔融・固化試料の調製にあたり、はじめに、令和3年度に実施したボールミル混合と同様の手順で粉末を混合し、焼結ペレットを作製した。MOX原料粉末と模擬FP粉末を計5 gとなるように秤量し、120 mL(φ50 mm)の円筒プラスチック容器に粉末とφ10 mmのタングステンカーバイド球を1個入れ、100 rpmで2時間混合した。その後、混合粉末を400 MPaでプレスし、30秒間保持することで成型体とし、1923 Kで3時間熱処理し、焼結ペレットを作製した。焼結雰囲気は4.5%H₂/Arに加湿を行い、1923 Kにおいて酸素ポテンシャルが-403.1 kJ/mol (O/M比=1.99)となる条件とした。

次に、得られた焼結ペレットをメノウ乳鉢で粗粉碎してタングステン容器に真空封入し、高周波加熱装置を用いて約3100Kまで加熱した。試料の冷却後、タングステン容器から固化した試料を回収し、メノウ乳鉢で2時間粉碎して粉末にした。得られた粉末を一度目の焼結ペレットの作製と同様の条件で成型、焼結を行うことで、焼結ペレットとした。

最後に、焼結ペレットを4.5%H₂/Ar雰囲気中、973 Kで2時間熱処理することでO/M比を2.00に調整し、熱拡散率測定用の試験体とした。以下に、模擬FPの添加率(mol%)を示す。

- ① $\text{Nd}_2\text{O}_3 : \text{Nd}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd})=3 \text{ mol}\%$ (3%Nd-MOX)
- ② $\text{Nd}_2\text{O}_3 : \text{Nd}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd})=10 \text{ mol}\%$ (10%Nd-MOX)
- ③ $\text{Sm}_2\text{O}_3 : \text{Sm}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Sm})=3 \text{ mol}\%$ (3%Sm-MOX)
- ④ $\text{Nd}_2\text{O}_3+\text{Sm}_2\text{O}_3 : \text{Nd}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd}+\text{Sm})=3 \text{ mol}\%$ 、
 $\text{Sm}/(\text{U}+\text{Pu}+\text{Am}+\text{Nd}+\text{Sm})=3 \text{ mol}\%$ (3%Nd-3%Sm-MOX)

熱拡散率測定は、熱拡散率測定装置（アルバック理工製 TV-7000UVH）を用いて、レーザーフラッシュ法により実施した。真空度が $9 \times 10^{-4} \sim 3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ の減圧条件で、1073 K から 1673 K まで、100 K ごとに 3 点ずつデータを取得した。得られたデータは、産業総合技術研究所が開発した熱拡散率解析プログラム（CFP32 Ver. 2.07-0）を用いてカーブフィッティング法により解析することで熱拡散率を得た。

最後に、熱拡散率測定後の焼結ペレットに対して、X 線回折測定（Rigaku 製 RINT-1100、CuK α 線を使用）及び EPMA（日本電子製 JXA-8800）を用いた元素マッピングを行った。

図 3.3.1-1 に EPMA による模擬 FP のマッピングの結果を示す。溶融・固化を行った試料はボールミル混合のみの試料と比較して均質に模擬 FP が分布していることがわかる。10%Nd-MOX においては、最大で約 10 μm の Nd スポットが一部確認された。

図 3.3.1-2 に X 線回折測定の結果を示す。いずれの模擬 FP 含有 MOX も単相の蛍石型結晶構造を有していた。3%Nd-MOX、3%Nd-3%Sm-MOX、10%Nd-MOX においては、わずかにタングステンの回折パターンが確認された。これは、溶融・固化試料の回収時に、容器として使用したタングステンが一部混入したためと考えられる。また、MOX では試料板に使用した Pt の回折パターンが確認された。試料中にタングステンの一部混入はあるものの、溶融・固化によって、均質性のよい模擬 FP 含有 MOX が調製できたことが確認できた。

図 3.3.1-3 に熱拡散率の測定結果、図 3.3.1-4 に熱伝導率の評価結果、図 3.3.1-5 に令和 4 年度と令和 2、3 年度に評価した熱伝導率との比較を示す。熱伝導率は熱拡散率の測定結果、比熱及び密度の積から評価した。比熱は、 UO_2 [2]、 PuO_2 [2]、 AmO_2 [2]、 Nd_2O_3 [3]、 Sm_2O_3 [3] の各比熱の文献値を用いて、Neumann-Kopp 則から推定した。密度は試料の寸法及び重量を測定し、幾何学的に計算した。理論密度は、X 線回折測定で得られた格子定数を用いて算出した。評価した熱伝導率は、Maxwell-Eucken の式を用いて試料の気孔率を補正し、100%理論密度における熱伝導率とした。また、タングステンが混入した試料の熱伝導率は、Lucuta により報告されている金属析出物に対する補正式[4]を用いて評価した。ボールミル混合試料は模擬 FP を添加していない MOX とほとんど同様の値であったが、溶融・固化試料はいずれも熱伝導率が低下した。これは、 Nd_2O_3 や Sm_2O_3 が MOX の蛍石型構造に固溶したために、フォノン散乱を促進したと考えられる。この影響が試料全体にわたって現れることで熱伝導率が低下するため、模擬 FP が均質に固溶した試料では熱伝導率が低下し、不均質な試料では低下しなかったと考えられる。均質に固溶した模擬 FP が与える影響について、古典的フォノン輸送モデルを用いて以下の式から評価した。

$$\lambda = (A + BT)^{-1}$$

ここで、 λ は密度補正を行った熱伝導率、 A 、 B は定数、 T は絶対温度である。定数 A 、 B については、Nd、Sm の金属含有率 (mol 比) C_{Nd} 、 C_{Sm} を用いて試験データにフィッティングすることで、以下の通り評価した。

$$A(\text{mK}/W) = 1.70 \times 10^{-2} + 0.93C_{\text{Nd}} + 1.20C_{\text{Sm}}$$

$$B(m/W) = 2.39 \times 10^{-4}$$

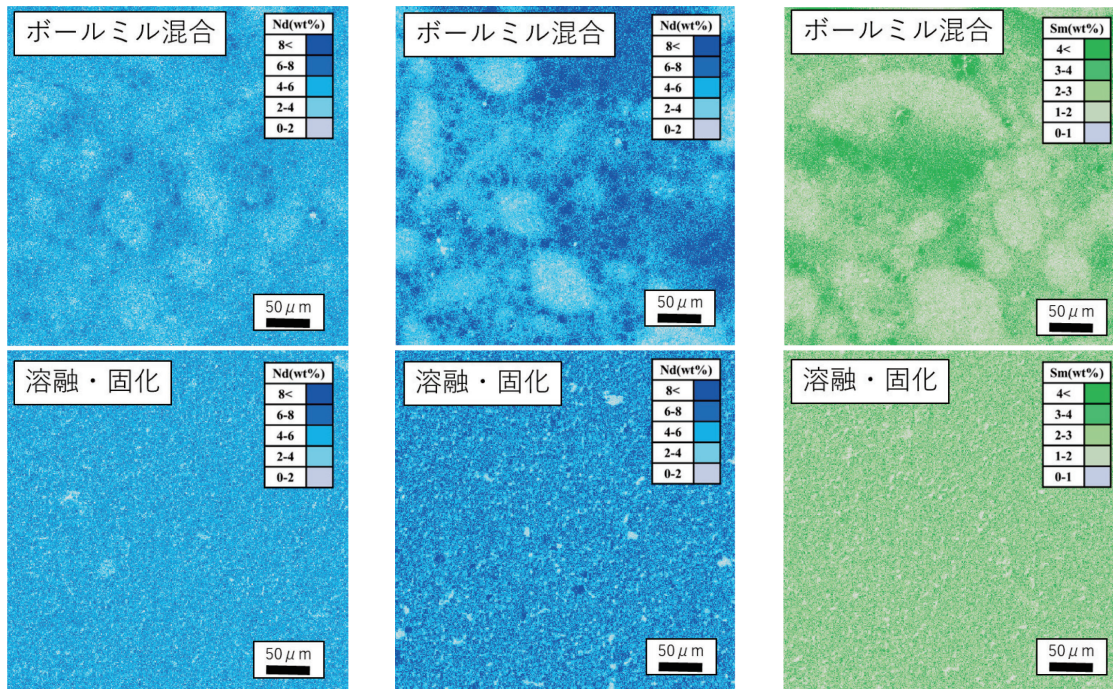
これらの値を用いて評価した熱伝導率を図 3.3.1-6 に示す。MOX、3%Nd-MOX、3%Sm-MOX 及び 3%Nd-3%Sm-MOX については、古典的フォノン輸送モデルから評価したフィッティングにより試験結果を再現できた。一方、10%Nd-MOX については試験結果を十分に再現できなかった。これについて、溶融・固化を行っても Nd の均質性が不十分であり、熱伝導率が下がりきらなかった可能性が考えられる。

実際の低除染燃料に含まれる FP は、本試験で添加した模擬 FP よりも少量であると予想されるため、得られた熱伝導率式を用いて内挿することで、Nd 及び Sm が低除染燃料に及ぼす影響を評価できる。取得したデータは、基礎物性データベースとして整理した。

以上、MOX 燃料の基礎物性に対する微量元素の影響評価を行うために、令和 2 年度に確認されたフィードストックの最終製品の組成をもとに模擬 FP 及び MA を含有した MOX ペレットの基礎物性測定試験を継続した。また、添加される模擬 FP 含有量の範囲を広げた試料を調製し、各物性値に対する FP の影響について評価した。実験で得られたデータを用いて、基礎物性データベースを拡充した。

参考文献

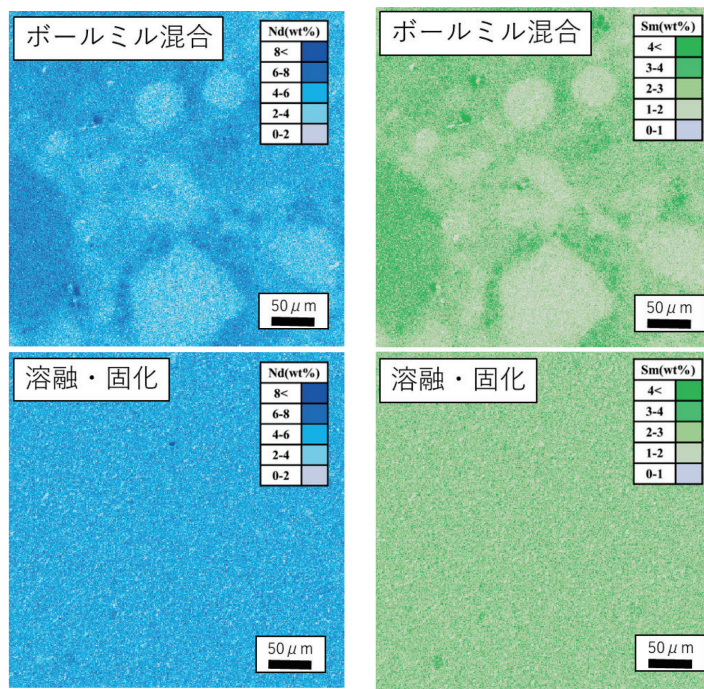
- [1] S. Nakamichi et al., The phase state at high temperatures in the MOX-SiO₂ system, Journal of Nuclear Materials 389 (2009) 191-196
- [2] J.J. Carbajo et al., A review of the thermophysical properties of MOX and UO₂ fuels, Journal of Nuclear Materials 299 (2001) 181-198.
- [3] R.J.M. Konings et al., The Thermodynamic Properties of the f-Elements and their Compounds. Part 2. The Lanthanide and Actinide Oxides, Journal of Physical and Chemical Reference Data, 43 013101 (2014)
- [4] P.G. Lucuta et al., Modelling of UO₂-based SIMFUEL thermal conductivity The effect of the burnup, Journal of Nuclear Materials 217 (1994) 279-286.
- [5] K. Morimoto et al., The influence of Pu-content on thermal conductivities of (U,Pu)O₂ solid solution, Proceeding of Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR09), Kyoto, Japan, 7-11 December 2009.



(a) 3%Nd-MOX

(b) 10%Nd-MOX

(c) 3%Sm-MOX



(d) 3%Nd-3%Sm-MOX (左 : Nd、右 : Sm)

図 3.3.1-1 EPMA による模擬 FP の元素マッピング及び濃度分布

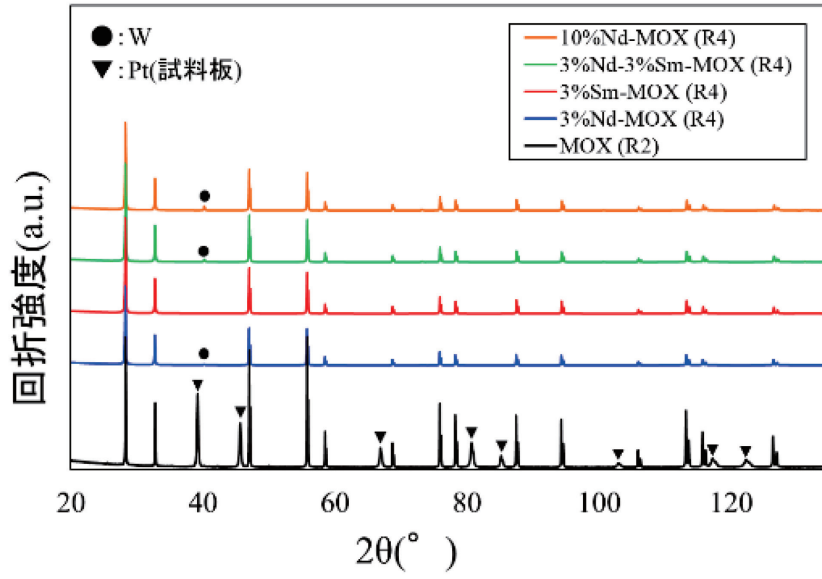


図 3. 3. 1-2 X 線回線測定結果

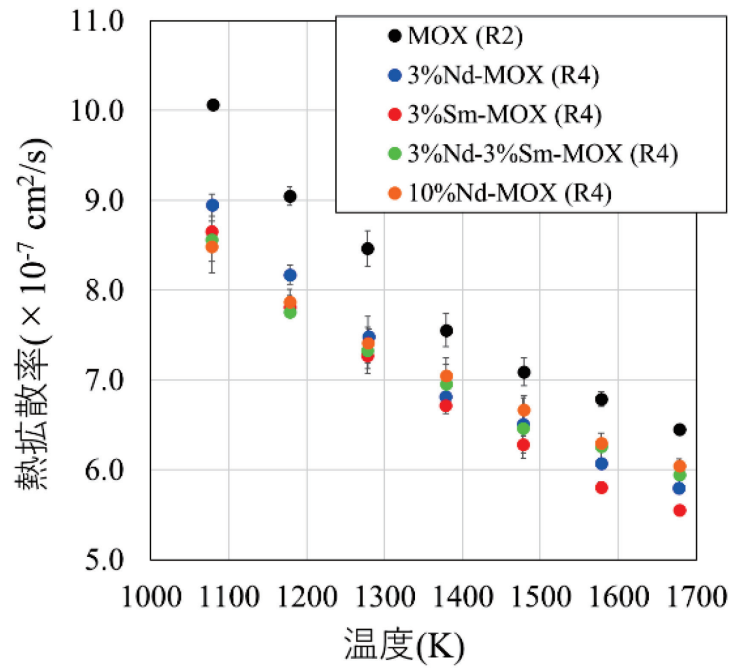


図 3. 3. 1-3 熱拡散率測定結果

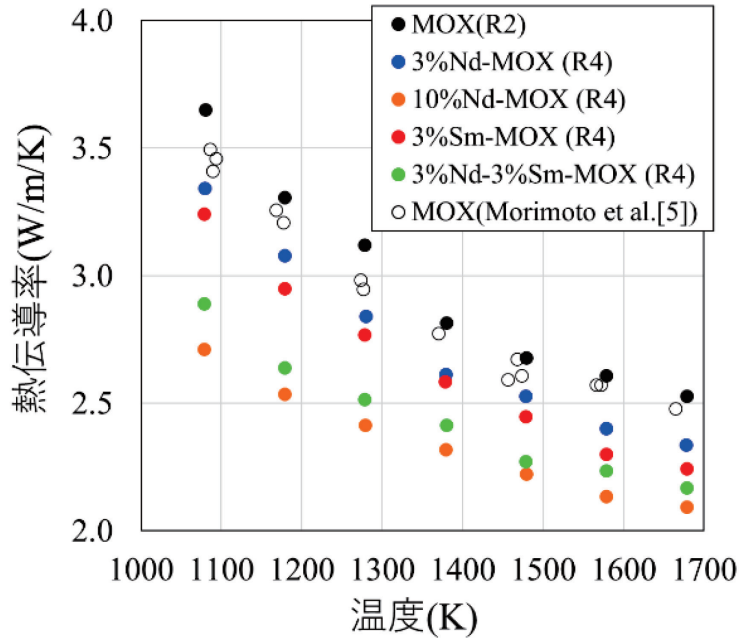
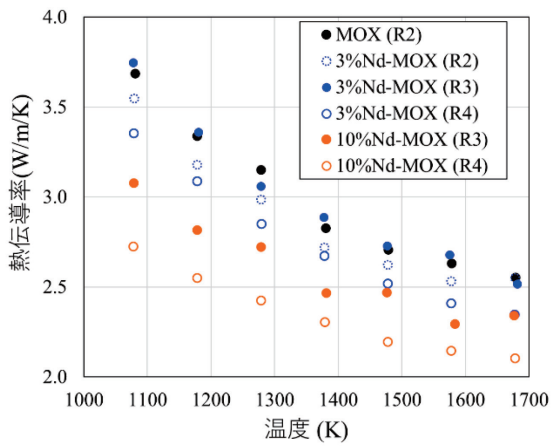
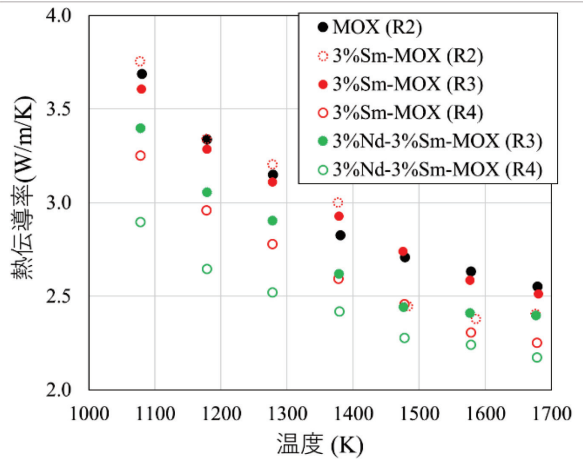


図 3. 3. 1-4 熱伝導率評価結果



(a)Nd-MOX 比較



(b)Sm-MOX 及び Nd-Sm-MOX 比較

図 3. 3. 1-5 熱伝導率評価結果比較

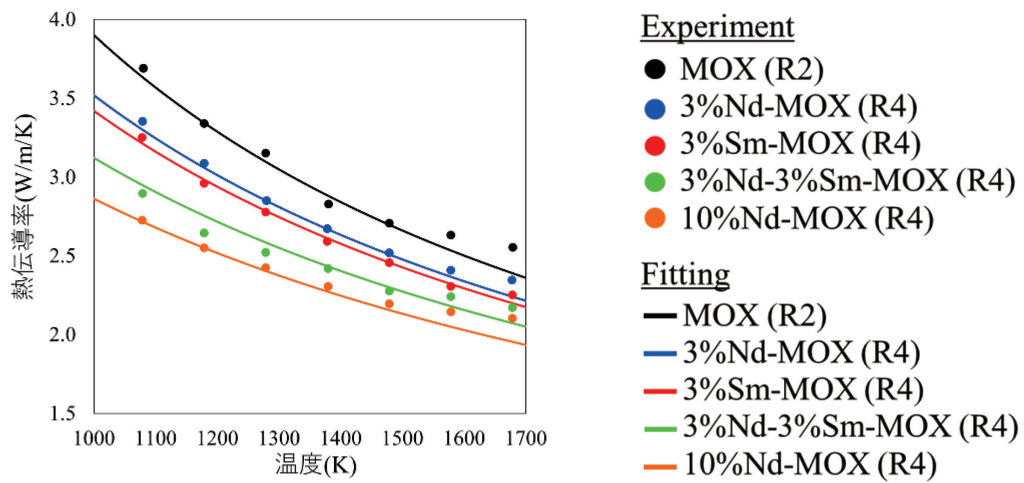


図 3. 3. 1-6 古典的フォノン輸送モデルによる熱伝導率評価結果

3.3.2 Cm含有MOXの相状態と熱的特性【R1-R4】

【R1~R3】

令和元年度は、MA含有MOXの物性測定に向けて、雰囲気制御型熱拡散率測定装置の試運転及び標準試料（黒鉛試料IG-110）の熱拡散率及び比熱容量の測定を行った。その結果、試運転で得られた標準試料の熱拡散率及び比熱容量の測定データは、最大で±0.3%のバラツキを有していたが、リファレンスデータのエラーバーの範囲内（±6%）になることから、精度良く測定できることを確認した。

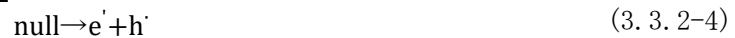
令和2年度は、令和4年度のCm含有MOXの物性測定に先立ち、Am含有MOXの熱特性評価を実施した。具体的には、原子力機構で過去に作製した10%Am含有MOXの熱伝導率を測定し、MOX燃料の熱伝導率に対するAm含有の影響を評価した。その結果、10%Am含有MOXの熱伝導率はUO₂及び2%Am含有MOXの熱伝導率よりも低い値を示すことがわかった。

令和3年度は、令和2年度から引き続き、Am含有MOXの熱特性評価を実施した。具体的には、原子力機構で過去に作製した15%Am含有MOXの酸素ポテンシャル測定を行い、MOX燃料の酸素ポテンシャルに対するAm含有の影響を評価した。15%Am含有MOXの酸素ポテンシャルは、-200 kJ/mol付近に位置し、温度の上昇と共に増加する傾向を示した。文献値との比較からAm含有量と酸素ポテンシャルの増加量は、ほぼ直線的な比例関係を有していることがわかった。定比組成からのずれ x と酸素分圧 P_{O_2} は以下の関係を有することが知られている。

$$x \propto P_{O_2}^{1/n} \quad (3.3.2-1)$$

(3.3.2-1)式の指数部の n は欠陥の種類に特有であるため、定比組成からのずれと酸素分圧を両対数プロットすると、その傾きは欠陥の種類に応じて変化する。令和3年度の結果から、15%Am含有MOXのデータを両対数プロットすると、定比組成近傍では $n=-2$ 、還元領域では $n=-6$ の傾きを有することがわかった。

15%Am含有MOXの定比組成近傍では、電子的欠陥が支配的であると仮定すると、以下の欠陥反応が成り立つ、



上記の欠陥反応における各記号は、Kröger-Vinkの表記法[1]に従っており、 O_0^x は正規格子位置の酸素イオン、 Oi'' は格子間酸素イオン、 $Vo^{\cdot\cdot}$ は有効電荷+2の酸素空孔、 e' は電子、 h' は正孔を表す。

また、各欠陥反応の平衡定数 K_m は、以下のように表される。

$$K_V = [Vo^{\cdot\cdot}][e']^2 P_{O_2}^{1/2} \quad (3.3.2-6)$$

$$K_O = [Oi''] [h']^2 P_{O_2}^{-1/2} \quad (3.3.2-7)$$

$$K_i = [e'] [h'] \quad (3.3.2-8)$$

$$K_F = [Vo^{\cdot\cdot}][Oi''] \quad (3.3.2-9)$$

定比組成近傍において電子的欠陥が支配的であるとき、 $[e']=[h']$ とすると、各欠陥濃度は次式で

与えることができる。

$$[e'] = [h'] = K_i^{1/2} \quad (3.3.2-10)$$

$$[O_i''] = (K_o/K_i) \cdot P_{O_2}^{1/2} \quad (3.3.2-11)$$

$$[Vo''] = (K_v/K_i) \cdot P_{O_2}^{-1/2} \quad (3.3.2-12)$$

また、組成 MO_{2-x} の酸化物では、定比組成からのずれと酸素空孔の濃度が

$$[Vo''] = x/2 \quad (3.3.2-13)$$

の関係を有する。これらの結果から、定比組成近傍の hypo-stoichiometry 領域では、定比組成からのずれと酸素分圧の両対数プロットは $n=-2$ の傾きを示すことがわかる。

他方、還元領域においては以下の欠陥反応が成り立つと考える。



ここで、 M_M^{\times} は正規格子位置の陽イオン、 M_M' は有効電荷-1 の正規格子位置の陽イオンを表す。

上記欠陥反応の平衡定数は以下のように表される。

$$K_{n=-6} = [Vo''] [M_M']^2 P_{O_2}^{1/2} \quad (3.3.2-15)$$

電気的中性条件は

$$[M_M'] = 2[Vo''] \quad (3.3.2-16)$$

となる。これを式(15)に代入し整理すると、

$$[Vo''] = (K_{n=-6}/4)^{1/3} \cdot P_{O_2}^{-1/6} \quad (3.3.2-17)$$

を得る。定比組成からのずれと酸素空孔の濃度には(3.3.2-13)式の関係があることを考慮すると、還元領域では、定比組成からのずれと酸素分圧に(3.3.2-17)式の関係が成り立つため、前述のように両対数プロットは $n=-6$ の傾きを示すことがわかる。

【R4】

令和4年度は、当該年度に製造した Cm 含有 MOX の相状態及び熱特性評価実施し、得られた基礎物性データは 3.3.1 で作成したデータベースへ反映した。Cm 含有 MOX 焼結体を切断・研磨し、その横断面を光学顕微鏡にて観察した。また、Cm 含有 MOX 焼結体の一部を切断・粉砕し、粉末化した後、粉末 X 線回折パターンを取得した (CuK α 線を使用)。図 3.3.2-1 にペレット横断面の代表的な金相観察写真を示す。燃料ペレット径方向に沿って金相観察を実施した結果、結晶粒径は一樣におよそ 9.5 μm であり、燃料ペレット全体にわたり均質な組織を有していた。図 3.3.2-2 に粉末 X 線回折パターンを示すが、蛍石型構造に起因するピークのみが検出されたことから、Cm 含有 MOX 焼結体は蛍石型構造単相であることがわかった。これらの結果から、今年度に製造した Cm 含有 MOX は、均一な組織を有しており、 UO_2 及び PuO_2 は固溶体を形成し、その結晶構造は蛍石型構造単相であるといえる。熱特性評価は、熱伝導率をその評価対象とした。Cm 含有 MOX 焼結体から厚さ 1 mm 程度のディスク状に試料を切り出した後、試料の O/M 比が 2.00 となるように熱処理を実施した。この際の熱処理条件は 1473 K、4 時間とし、熱処理雰囲気中の酸素ポテンシャルは -319 kJ/mol に設定した。熱処理後の試料は令和 2 年度の熱伝導率測定において使用した熱伝導率測定装置 (京都電子製) にセットし、試料の O/M 比が測定中に乖離しないように炉内の酸素ポテンシャルを調整しながら、室温から 1473 K まで熱拡散率を取得した。その後、別途計算・評価した比熱容量及び試料の幾何学密度を用いて熱伝導率を算出した。図 3.3.2-3 に本研究で得られた熱伝導率のデータを UO_2 及び Am 含有 MOX の文献値 [2-4] と共に示す。Cm 含有 MOX の熱伝導

率は UO_2 及び 2%Am-MOX よりも低い値を示した。Cm 含有 MOX の組成は Cm をごく微量に含むことを除けば、30%Pu-MOX とほぼ同じと考えられるので、その熱伝導率は文献値との比較から概ね妥当な値を有しているといえる。また、これらの結果は、MA 含有 MOX の基礎物性データベース作成にも反映すると共に、照射燃料の設計においてもフィードバックを行った。

参考文献

- [1] F. A. Kröger and H. J. Vink, Relations between the Concentrations of Imperfections in Crystalline Solids, *Solid State Physics*, 3 (1956) 307-435.
- [2] J. J. Carbajo, G. L. Yoder, S. G. Popov, and V. K. Ivanov, A review of the thermophysical properties of MOX and UO_2 fuels. *J. Nucl. Mater.* 299 (2001) 181.
- [3] K. Morimoto, M. Kato, M. Ogasawara, M. Kashimura, and T. Abe, Thermal conductivities of (U, Pu, Am) O_2 solid solutions, *J. Alloys Compd.* 452 (2008) 54-60.
- [4] K. Yokoyama, M. Watanabe, D. Tokoro, M. Sugimoto, K. Morimoto, M. Kato, and T. Hino, Measurement of thermal conductivity for near stoichiometric $(\text{U}_{0.7-z}\text{Pu}_{0.3}\text{Am}_z)\text{O}_2$ ($z = 0.05, 0.10, \text{ and } 0.15$), *Nuclear Materials and Energy* 31 (2022) 101156.

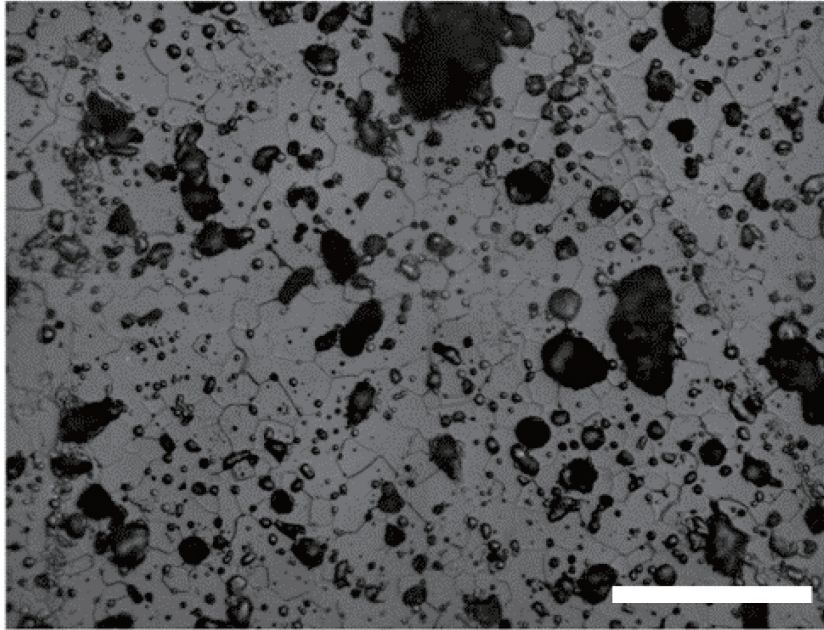


図 3.3.2-1 Cm 含有 MOX 焼結体の光学顕微鏡観察写真
(図中のスケールバーは 100 μm)

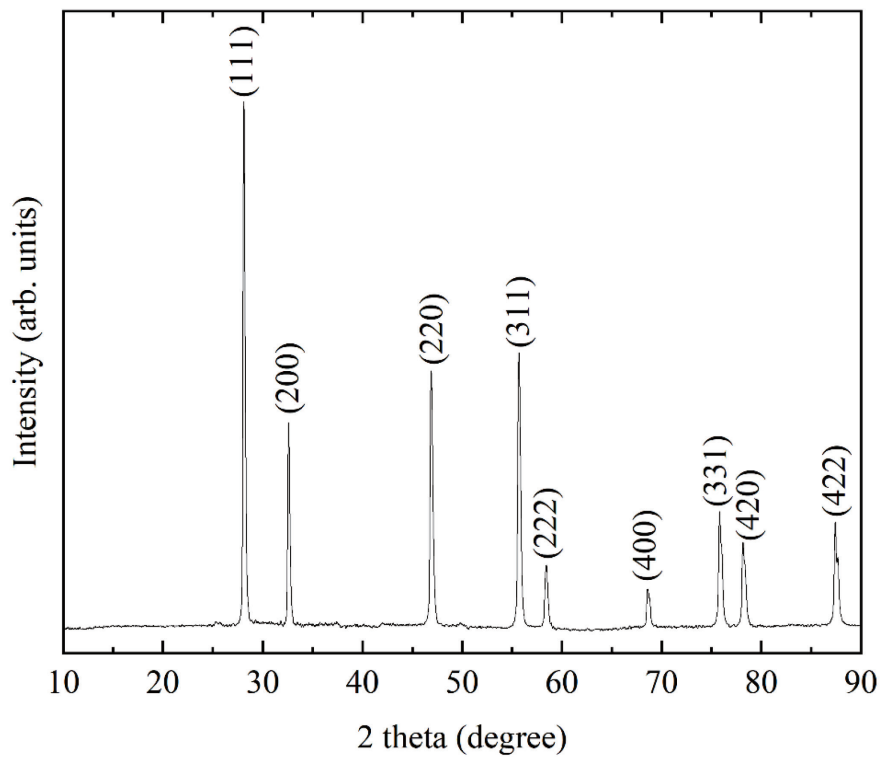


図 3.3.2-2 Cm 含有 MOX 焼結体の粉末 X 線回折パターン

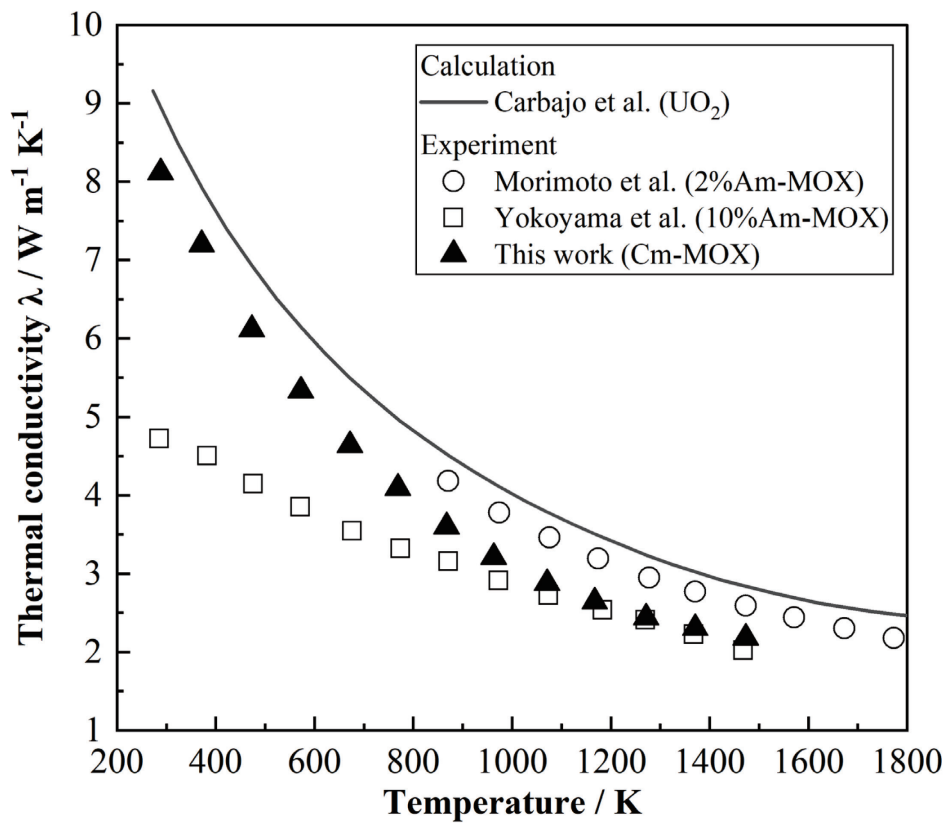


図 3.3.2-3 Cm 含有 MOX の熱伝導率測定結果

3.3.3 照射燃料の設計【R1-R4】

【R1～R3】

本照射試験燃料（MA含有低除染燃料）では、「常陽」の使用済燃料から再処理して得たフィードストック原料を用いるため、再処理過程で混入される不純物や使用済燃料からの随伴 FP など過去の試験燃料の仕様範囲を超える量の不純物が含まれることになる。不純物量が大きく増加すると、熱伝導率の低下など燃料物性に有意に影響する可能性があり、その場合、熱設計は過去の試験より厳しい方向となる。そこで、本検討では、令和元年度、まず不純物の燃料物性への影響に関する文献調査を先行して行い^[1]、令和2年度、文献調査に基づき暫定的に設定した物性モデルを用いて目標とする Am-1 試験^[2]と同程度の線出力（430 W/cm）を達成できるか検討を行った^[3]。また、令和3年度は、再処理側から提示された原料粉組成が、当初想定していた不純物量より大きい傾向であったことから、その影響について評価を行った^[4]。

【R4】

再処理側から実際の照射試験燃料で想定される不純物組成が提示されるとともに、物性評価側から不純物添加による燃料物性への影響について試験に基づき評価した物性式が提示された。本研究の最終年度である令和4年度は、これらの情報を反映して試験燃料の熱設計評価を再度行い、Am-1 試験と同等の条件で照射試験が可能か見通しを得る最終的な評価を行い、フィードストック原料を用いた MA 含有低除染燃料の常陽における照射試験の具体化に向け、原料中の不純物に関するデータ及び MA 含有 MOX 燃料の基礎物性データを燃料設計に反映し、試験燃料の仕様・構造の具体化を行った。

(1) 照射試験燃料の不純物組成について

照射試験燃料の原料粉の不純物組成について、本研究の開始当初に再処理側から提示された組成^[1]をベースに検討を進めていたが、他方、令和2年度、新たに提示された組成^[3]では不純物量（特に Nd）が当初の組成よりかなり増加するものとなっていた。最終的な不純物組成について、再処理側に確認したところ、当初に提示した組成に近づくものとなる旨の説明を受けた。そこで、当初の組成をベースに、実際の照射試験燃料の仕様（Pu含有率 30 wt.%, MA含有率 5 wt.%）となるよう再調整した不純物の組成を再提示してもらった。表 3.3.3-1 に、その不純物の組成を示す。今年度の検討では、この組成に基づき、熱伝導率に影響する不純物として燃料に固溶する元素の含有割合を考慮し使用することとした。

(2) 不純物の影響を考慮した燃料物性モデルについて

燃料の熱設計に用いる物性モデルのうち、熱伝導率について、物性評価側で不純物による影響を把握するため、不純物含有率をパラメータとした熱拡散試験が行われた。ここで、不純物としては物性への影響が大きい燃料に固溶する元素を対象としており、具体的には、再処理側から提示された組成のうち含有率が大きい Nd と Sm が対象とされた。試験結果については前述の 3.3.1 項で既に報告されているが、物性評価側で、これらの結果をベースに現行の熱伝導率モデル（「常陽」適合性審査で使用されている km09 式^[5]）に不純物の影響を考慮した式が策定された。策定された式（km09（不純物考慮）式）を以下に示すが、フォノン伝導項の分母に従来式の Am や Np と並列に Nd と Sm の影響項が追加されている。

$$\lambda = \frac{1 - p}{1 + \beta \cdot p} \cdot \lambda_0$$

$$\lambda_o = \frac{1}{0.01595 + 2.713 \cdot x + 0.3583 \cdot Am + 0.06317 \cdot Np}$$

$$+ 1.784 \cdot Nd + 2.119 \cdot Sm + (2.493 - 2.625 \cdot x) \times 10^{-4} \cdot T$$

$$+ \frac{1.541 \times 10^{11}}{T^{2.5}} \cdot \exp\left(-\frac{15220}{T}\right)$$

ここで、 λ : 気孔率 p における熱伝導率 [W/m/K]
 λ_o : 100%TD における熱伝導率 [W/m/K]
x : 2.00 - 0/M [-]
T : 温度 [K]
p : 気孔率 [-]
 β : 0.5
Am : Am 含有率 [-]
Np : Np 含有率 [-]
Nd : Nd 含有率 [-]
Sm : Sm 含有率 [-]

表 3.3.3-1 の再処理側から提示された不純物組成では、Nd・Sm 以外にも微量の固溶元素 (Ce, Eu, La, Pr, Sr, Y, Zr) が含まれている。これらについて、今回の熱設計評価では、暫定的により影響の大きい Sm と見なすこととし、不純物含有率を設定した (いずれの元素も保守的に上限値の量を想定)。結果として、Nd は 0.2 wt.%, Sm は 0.7 wt.% と見積もられた。図 3.3.3-1 に、上述の km09 (不純物考慮) 式で、この Nd・Sm 量を考慮した熱伝導率を不純物の無いものと比較して示した。不純物の影響としては、1,000℃で 4%、1,500℃で 3%、2,000℃で 2%程度低下することが認められた。

熱設計に用いる燃料物性モデルのうち、不純物による融点への影響については、今回、物性評価側から提示されなかった。そこで、融点への影響に関しては、現状のモデル (理想溶体モデル^[5]) をベースとし、令和 2 年度の検討と同様、文献調査に基づく影響をそのまま適用することとし、暫定的に 18℃低下の 2,622℃を想定することとした。

(3) 定格時最大線出力 430 W/cm の成立性について

再処理側から提示された不純物組成、物性評価側から提示された不純物の影響を考慮した熱伝導率モデルを適用し、本照射試験燃料を対象とした熱設計の解析を行い、目標とする Am-1 試験と同程度の線出力 (430 W/cm) が成立可能か評価を行った。具体的な解析条件、解析ケース、判断基準について以下に示す。

・解析条件

- 燃料物性モデルについて、熱伝導率式は km09 (不純物考慮) 式、融点は理想溶体モデルをベースに不純物の影響として 18℃低下を想定した 2,622℃とした。
- 本照射試験燃料の主要な仕様を表 3.3.3-2 に示した。この値をノミナル値として適用した。照射条件について、定格時最大線出力として 430 W/cm とし、定格時・過出力時の温度評価を行う。
- 工学的安全係数、過出力係数について、「常陽」適合性審査で使用している照射試験燃料用の値を適用した。

・解析ケース

- 燃料の製造公差の扱いに関し、以下の 3 ケースを想定した。ここでは、製造公差を全てノ

ミナルとしたケース①に加え、極端なケースとして、製造公差を全て厳しい側に重ね合わせたケース②と、O/M 比以外を厳しい側としたケース③を設定した。ここで、製造公差については、燃料寸法、O/M 比、燃料密度を対象とし、ドライバ燃料と同様の公差を想定した。

- ① ノミナルケース（製造公差：ノミナル）
- ② 公差厳しい側ケース 1（製造公差：厳しい側に重ね合わせ）
- ③ 公差厳しい側ケース 2（製造公差：厳しい側に重ね合わせ（O/M 比のみノミナル））

・判断基準

- 通常運転時：ペレット最大溶融割合 20%以下
- 運転時の異常な過渡変化時：ペレット最大溶融割合 30%以下

解析結果として、ケース①～③における燃料ペレット径方向の温度分布を図 3.3.3-2 に、令和 2 年度に実施した文献調査に基づき不純物の影響を推定した物性モデルを用いた結果と比較して示した。また、主要な燃料温度・溶融割合の値について、表 3.3.3-3 に整理して示した。

ここで、ケース①のノミナル仕様の場合、燃料中心温度は定格時で 2,385°C、過出力時でも 2,503°C と溶融に至っておらず、余裕があることが認められた。製造公差を全て厳しい側に重ね合わせた極端なケースであるケース②では、定格時・過出力時とも燃料の溶融は生じているが、溶融割合はそれぞれ 11.4%、20.5% であり、判断基準を超えることはないことが確認された。また、ケース②で感度の大きい O/M 比のみノミナル値に変更したケース③では、過出力時のみ溶融し、溶融割合は 14.0% となる結果であった。図 3.3.3-2 を見ると、今回の解析結果は令和 2 年度の解析結果と比較的よく一致しており、文献調査に基づく従来の知見と今回の不純物モデルについて大きな相違はなかったものと考えられる。

結論として、実際の照射試験燃料で想定される不純物組成を用いるとともに、物性試験により不純物の影響を考慮した熱伝導率モデルを用いて、より信頼性の高い熱設計評価を実施し、目標とする定格時最大線出力 430 W/cm を達成できる見通しが確認できた。

(4) 照射試験燃料ピンの構造について

照射試験燃料ピンの構造に関して、本照射試験では試験燃料ピンは 1 本のみであり、燃料スタック長は 20 cm 程度を想定、MA 含有 MOX 燃料ペレットは 2~3 個であり、その上下には通常の MOX 燃料ペレット（MA 含有なし）を充填することとしている。令和 2 年度、MA 含有 MOX 燃料ペレットで目標とする Am-1 試験の線出力（430 W/cm）を達成できる Pu 富化度、及び、「常陽」炉内の具体的な装荷位置の検討を行った。その結果として、Pu 富化度は Am-1 試験と同じ 30 wt.% で、装荷位置は炉心中心から軸方向上下に外れた位置に装荷することで 430 W/cm を満たすこと可能であることが確認され、具体的な装荷位置としては、第 1 列装荷では X/L^{*1} : 0.89, 0.12、第 2 列装荷では X/L : 0.86, 0.15、第 3 列装荷では X/L : 0.79, 0.22 と評価された^[3]。ここで、MA 含有 MOX 燃料ペレットの装荷位置は、上述の通り、炉心領域の上部側か下部側とする必要があるが、Am-1 試験の照射条件に近づけるには被覆管温度も高める必要があるため、発熱部を長くとれる炉心上部側に配置することとした。

また、MA 含有 MOX 燃料ペレットの上下に装荷する通常の MOX 燃料ペレットの仕様に関しては、

*1 軸方向装荷位置（炉心下端からの距離） / 炉心高さ（50 cm）

MA 含有 MOX 燃料ペレットと隣接するので、熱的な不連続をなくすため、なるべく同ペレットと同様の出力レベルとする、すなわち Pu 富化度 30 wt.% に近づけることが望ましい。また、製造性の観点からは仕様は 1 種類とする必要がある。そこで、令和 3 年度、出力が最も高くなる炉心中心に一番近い MOX 燃料ペレットで熱的健全性を満足する Pu 富化度を評価するため、「常陽」MK-IV 炉心の炉心領域 50 cm の上 20 cm に燃料スタックを装荷することとし、スタックの一番下（炉心中心から+5 cm）の MOX 燃料について Pu 富化度をパラメータとした燃料温度解析を行った^[4]。その結果、ノミナル仕様であれば Pu 富化度 30 wt.% で判断基準を満たす見通しを有するとともに、公差が厳しい仕様でも第 1 列に装荷する場合、Pu 富化度 27 wt.% 以下、第 2 列では 28 wt.% 以下、第 3 列では 30 wt.% で判断基準を満たし、30 wt.% に近い Pu 富化度で判断基準を満たす見通しがあることを示した。

以上の検討結果より、本照射試験燃料ピンの構造について、MA 含有 MOX 燃料ペレットの軸方向位置は炉心上部側で装荷列（第 1-3 列）により異なること、MA 含有 MOX 燃料ペレット以外は 30 wt.% に近い通常の Pu 富化度の燃料ペレットで成立することが確認された。具体的な構造概念については、図 3.3.3-3 に示した。実際の照射試験で装荷する列については、本試験燃料ピンと同一の試験集合体に相乗りする他の試験燃料ピンのニーズなどを考慮して決められ、最終的な構造は確定されることになる。

(5) 今後の課題

今回、物性評価側から、不純物による燃料物性への影響として、固溶元素 (Nd, Sm) を考慮した熱伝導率モデルが提示された。他方、融点への影響については提示されておらず、照射試験燃料の設工認に向けては、炉外試験により把握することが必要と考える。

また、最終的な照射試験燃料の設工認に向けては、代表的な固溶元素以外の不純物の影響が僅かであることの確認のため、実際の照射試験燃料と同等の試料について、熱伝導率、融点を測定することが望ましいものと考ええる。

参考文献

- [1] 令和元年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 成果報告書
- [2] K. Tanaka, et al., “Restructuring and redistribution of actinides in Am-MOX fuel during the first 24 h of irradiation”, J. Nucl. Mater. 440 (2013) 480-488.
- [3] 令和 2 年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 成果報告書
- [4] 令和 3 年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 成果報告書
- [5] 核燃料施設等の新規制基準適合性に係る審査会合（第 341 回）、資料 1-3 「国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 大洗研究所（南地区）高速実験炉原子炉施設（「常陽」）第 32 条（炉心等）に係る説明書（その 2：第 32 条第 4 項）」

表 3.3.3-1 本照射試験燃料で想定される不純物組成
(Pu 含有率 30 wt%、MA 含有率 5 wt%)

不純物元素	燃料中の物理・化学状態	MA-MOX 原料中に含まれる不純物濃度 [ppm]				
		MA含有量	5 wt%			
		Pu富化度	30 wt%			
		U濃縮度	6.596 %			
Al	金属析出		8051			
B			1065			
C						
Ca			370			
Cd						
Cl						
Cr			<	348		
F						
Fe			<	696		
Mg				901		
N				-		
Ni			<	348		
V				-		
Cu				-		
Si			3562			
Zn		<	5217			
Cu+Si+Zn			8779			
Ag	金属析出		-			
Mn	金属析出、酸化物析出		1060			
Mo			726			
Pb			-			
Sn			-			
Ag+Mn+Mo+Pb+Sn			1785			
Ba	酸化物析出		326	固溶不純物含有率	wt.%	
Ce	固溶	<	824	Nd	0.2	
Co		<	696	Sm	0.7	
Eu	固溶	<	348	(Ce, Eu, La Pr, Sr, Y, Zr も影響の大きいSmとみなすこととした)		
K		<	1739			
La	固溶	<	824			
Li		<	348			
Na			2319			
Nd	固溶		2029			
Pd	金属析出	<	696			
Pr	固溶	<	348			
Rh	金属析出	<	348			
Ru	金属析出	<	696			
Sm	固溶		2757			
Sr	固溶	<	348			
Tc	金属析出	<	1043			
Y	固溶	<	348			
Zr	固溶、酸化物析出	<	824			
Eu155	固溶	<	5.0E-02			
Cs137	揮発性、酸化物析出	<	2.9E-01			
Ru106	金属析出	<	1.0E-02			
Sb125		<	3.3E-02			
144Ce	固溶	<	3.8E-03			

表 3.3.3-2 本照射試験における主要な燃料仕様・照射条件

項目		本照射試験 (MA 含有低除染燃料)	備考
燃料仕様	[燃料] ・ Pu 含有率 ・ Am 含有率 ・ O/M 比 ・ U 濃縮率 ・ ペレット外径 ・ 理論密度 ・ 不純物 - Nd 含有率 - Sm 含有率	30 wt.% 5 wt.% 1.98 6.596 wt.% 6.52 mm (中実) 93 %TD 0.2 wt.% 0.7 wt.%	・ Am-1 照射試験と同等 ・ Am-1 照射試験と同等 ・ 燃料熱伝導率への影響の大きい固溶元素のみ想定、不純物中、含有率の大きい Nd と Sm で代表
	[被覆管] ・ 被覆管外径 ・ 被覆管肉厚 ・ 材料	7.5 mm 0.4 mm PNC1520 鋼	
照射条件	・ 最大線出力 ・ 燃焼度	430 W/cm 50~60 GWd/t	・ Am-1 照射試験と同等

表 3.3.3-3 本照射試験燃料における燃料中心温度・熔融割合の評価結果
(照射条件：定格時線出力 430 W/cm)

		判断基準	① ミナルケース (製造公差：ミナル)	② 公差厳しい側ケース 1 (製造公差：厳しい側重ね合わせ (O/M 比 1.95))	③ 公差厳しい側ケース 2 (製造公差：厳しい側重ね合わせ (O/M 比のみ 1.98))
			[不純物] ・ 熱伝導率：km09 (不純物考慮) 式 ・ 融点：-18°C (2622°C) [製造公差] ・ 燃料寸法：ミナル ・ O/M 比：ミナル (1.98) ・ 燃料密度：ミナル (93%TD)	[不純物] ・ 熱伝導率：km09 (不純物考慮) 式 ・ 融点：-18°C (2622°C) [製造公差] ・ 燃料寸法：公差厳しい側 ・ O/M 比：公差厳しい側 (1.95) ・ 燃料密度：公差厳しい側 (95%TD)	[不純物] ・ 熱伝導率：km09 (不純物考慮) 式 ・ 融点：-18°C (2622°C) [製造公差] ・ 燃料寸法：公差厳しい側 ・ O/M 比：ミナル (1.98) ・ 燃料密度：公差厳しい側 (95%TD)
定格時	燃料中心温度 [°C]	-	2,385	2,697	2,617
	燃料熔融割合 [%]	20	0.0	11.4	0.0
過出力時	燃料中心温度 [°C]	-	2,503	2,807	2,731
	燃料熔融割合 [%]	30	0.0	20.5	14.0

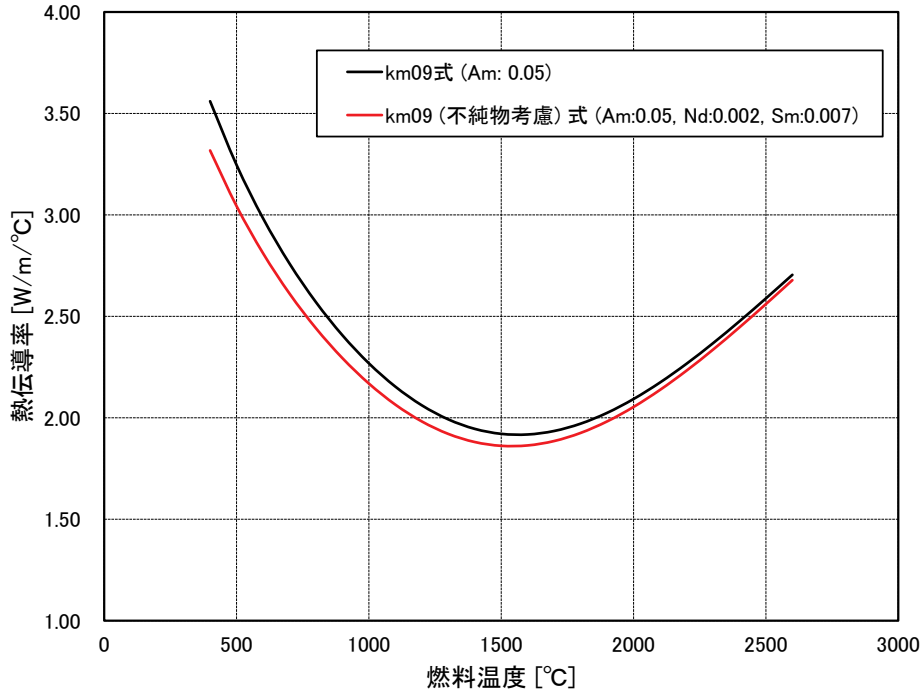


図 3.3.3-1 不純物（固溶元素）の影響を考慮した燃料熱伝導率評価式（「km09 式」と「km09（不純物考慮）式」の比較）

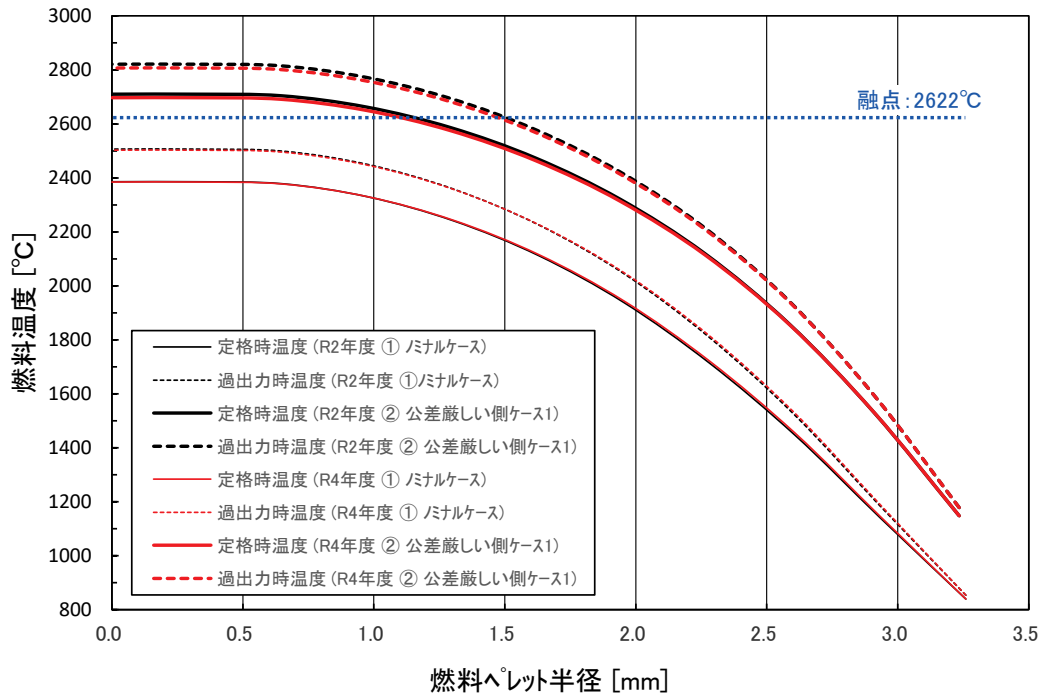


図 3.3.3-2 本照射試験燃料における燃料ペレット径方向温度分布評価結果（定格時線出力 430 W/cm、令和 2 年度結果と今年度結果の比較）

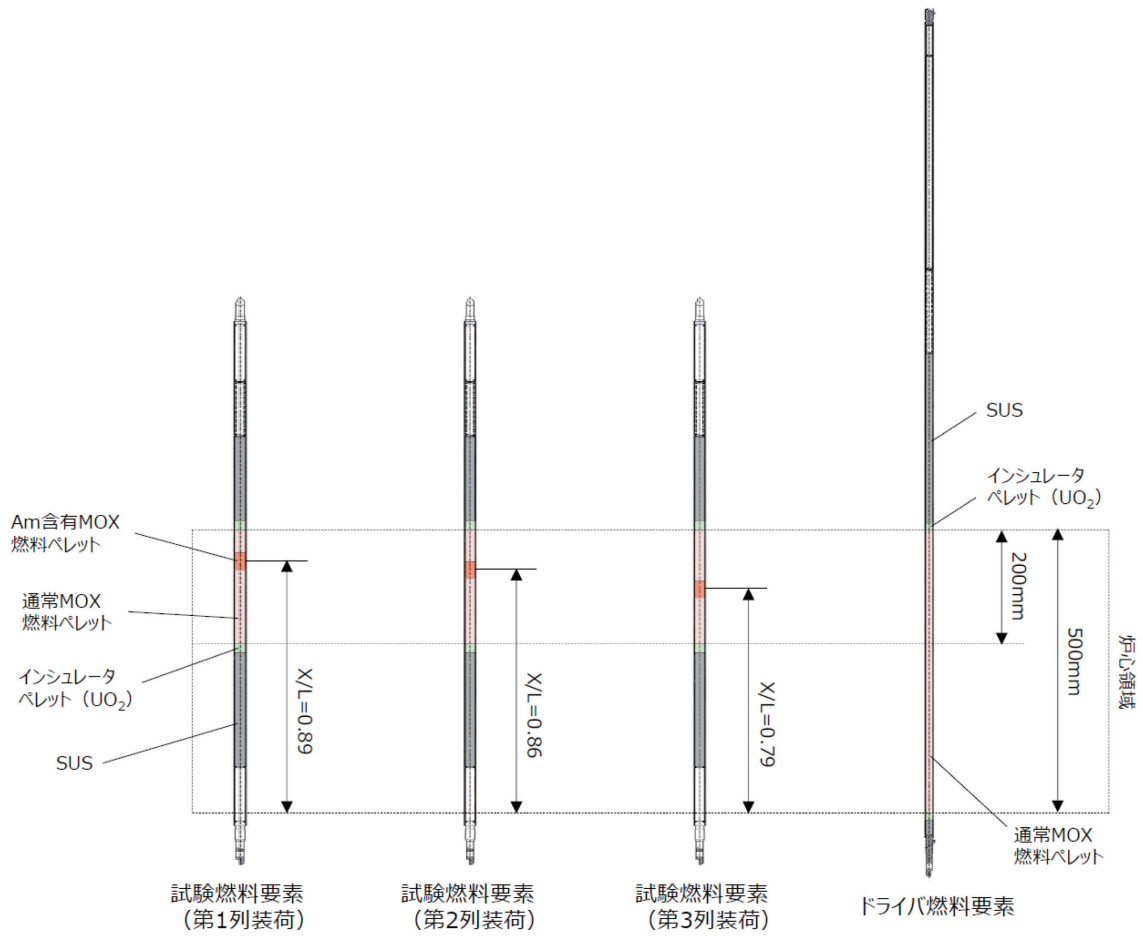


図 3. 3. 3-3 照射試験燃料ピンの構造 (第 1~3 列装荷時)

3.4 分析技術開発と MA の核変換評価【R1～R4】

【R1～R3】

令和元年度は、令和 2 年度以降の分析技術開発試験で使用する ICP 質量分析装置と放射線計測装置の試運転を行った。ICP 質量分析装置において、U-238 を含む標準溶液を用いた動作確認を行い、検量性の直線性や定量下限値から十分な性能を有することを確認した。また、放射線計測装置において、Co-60 を含む標準線源を用いて動作確認を行い、装置仕様（分解能、相対効率）を満足する性能となっていることを確認した。

令和 2 年度は、(1)MA 含有 MOX 粉末の放射線特性評価及び(2)HCl を用いない Np 分離法の開発を実施した。(1)では、MA 含有 MOX 粉末の燃料組成に基づき放射線量を評価し、主たる放射線源は Am-241 であることを確認した。(2)では、「常陽」照射済燃料の溶解液を用いて、Pu 及び Np の分離方法を検討した結果、抽出剤含浸樹脂（UTEVA 樹脂）を用いることで Np を分離可能な条件を見出した。

令和 3 年度は、(1)MA 含有 MOX 粉末の放射線特性評価に基づく品質保証分析時の対応方策、(2)HCl を用いない Np 分離法の改良及び(3)照射済燃料溶解液に含まれる MA の分析を実施した。(1)では、MA 含有 MOX 粉末中の放射線源(主に Am-241, 3.6×10^4 Bq)の遮蔽方策として、1.1 mm 厚の鉛が有効であることを確認した。(2)では、令和 2 年度に提案した分離条件の改良を行った。(3)では、MA 含有燃料中に含まれる MA の照射に伴う増減を精度よく評価するための分析手法を開発し、照射済燃料由来の試料の分析を通じて、Np-237 含有量の僅かな差異を検出することに成功した。

【R4】

令和 4 年度は、

- (1)MA 含有 MOX 粉末の放射線特性評価に基づく品質保証分析時の対応方策
- (2)HCl を用いない Np 分離法の改良
- (3)照射済燃料溶解液に含まれる MA の分析

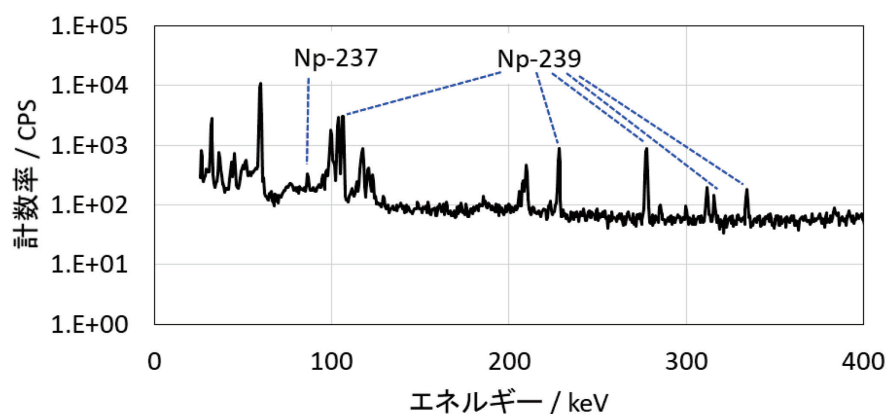
を実施した。

(1)に関する成果を次に示す。令和 3 年度までに、MA 含有 MOX 粉末中の放射線源の遮蔽に 1.1 mm 厚の鉛が有効であることを確認している。次に、グローブボックス内に設置されている品質保証分析装置のうち、もっとも寸法の大きな装置としてハロゲン不純物分析装置の前処理用加熱炉を選定し、遮蔽に必要な鉛の寸法及び重量を評価した。当該装置の寸法は、幅 370 mm、高さ 160 mm、奥行 110 mm であり、直方体の 6 面を合算した場合の表面積は 2350 cm^2 となる。ここに厚さ 1.1 mm の鉛を貼り付けることを想定した場合、鉛の密度 (11.34 g/cm^3) から、鉛の総重量は約 3 kg となり、人の手で取扱うことが容易な重量であることを確認した。他の品質保証分析用の機器は、寸法がより小さいことから、遮蔽に必要な鉛の重量も小さくなるため、人の手による取扱も可能である。これより、MA 含有 MOX ペレットについて、グローブボックス内の品質保証分析装置を用いて分析する際に、少量の鉛遮蔽を追加することで十分に被ばく量を低減可能なことを確認した。

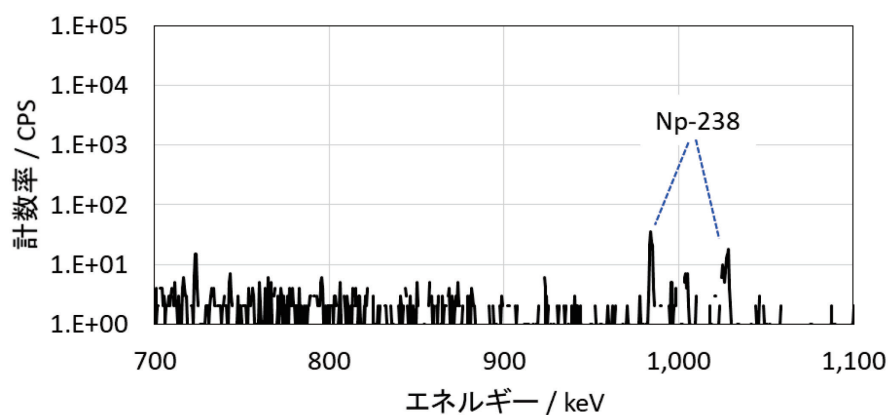
(2)に関する成果を次に示す。令和 3 年度までの成果では、Np と Pu を完全に分離することができなかつたため、Np の分離に向けて分離条件の改善を試みた結果、分離カラムのサイズを大きくする必要があるなど、多量の廃液発生が避けられないことがわかった。これまでは Np を α 線計

測により定量することを前提としていたため、Np-237の α 線スペクトルが重なるPu-239及びPu-240と完全に分離する必要があった。一方、 γ 線によるNpの定量手法を検討するため、令和3年度分離後試験試料のうちNpが最も多く含まれる試料に対して、 γ 線スペクトル測定を実施した。測定結果の一部を図3.4-1に示す。100-400 keVのエネルギー領域でNp-237及びNp-239を、700-1100 keVのエネルギー領域でNp-238を検出しており、 γ 線によりNpを定量可能なこと確認された。また、複数の核種が検出されていることから、令和3年度までに確立したNpの分離条件と令和4年度に確認したNpの定量手法(γ 線スペクトル測定)を組み合わせることで、同位体希釈法によるNpの定量が可能となることを見出した。よって、本手法を用いれば、HClを使用してホット試験施設の設備にダメージを与えることなく、MA含有MOX燃料ペレット中のNpを定量することが可能である。

(3)に関する成果を次に示す。照射に伴うMAの増減を精度よく評価するため、照射しても存在量がほとんど変化しないU-238を基準として、MAの相対的な含有量を評価する手法を考案している。これまでに、照射済MOX燃料の分析に本手法を適用し、異なるMOX燃料中におけるNp-237の僅かな含有量の差異を識別することに成功している。令和4年度においては、U-238と同様に高速炉MOX燃料中で多く含まれるPu-239を基準として、MAの相対的な含有量を評価する手法の有効性を検討した。分析試料としては、令和3年度と同じく高速実験炉常陽で照射されたMOX燃料ピンの軸方向位置が隣接する2試料から調製した燃料溶解液を対象にICP質量分析を行った。炉中心に近い方(照射量が多く、MA含有量が多い方)を試料H、炉中心から遠い方(照射量が少なく、MA含有量が少ない方)を試料Lとした。評価対象のMAについても令和3年度と同じくNp-237とした。試料Hと試料Lでは溶解に供した重量が異なるため、試料Hと試料LでPu-239の含有量は等しいと仮定し、Pu-239の計数率で規格化したNp-237の計数率により、試料Hと試料LにおけるNp-237含有量の比を評価した。評価結果を表3.4-1に示す。Pu-239で規格した場合においても、Np-237含有量の僅かな差異を識別できることが示唆された。本試験では、Np-237を一例として測定しているが、各元素を単離して同位体組成を評価すれば、いずれのMA核種にも適用可能な手法である。(2)項で示したNp-237定量方法を含め、AmやCmの各核種の定量手法はこれまでに確立されているが、その不確かさは比較的大きい。よって、単純に定量値を比較しただけでは、MA含有MOX燃料中における照射に伴うMA核種の増減を評価できない可能性がある。その場合においても、本手法に従い照射前と照射後におけるMA含有MOX燃料溶解液を同時に測定し、MA核種の含有量の比を求めることにより、MA核種のわずかな増減を評価可能となる。



(a) 100-400 keV



(b) 700-1100 keV

図 3. 4-1 Np 分離後試験試料の γ 線スペクトル測定結果

表 3. 4-1 Np-237 含有量の比

評価手法	Np-237 含有量の比 (試料 H/試料 L)
分析値(U -238 計数率で規格化(令和 3 年度実施))	1.03 \pm 0.01 (2σ)
分析値(Pu-239 計数率で規格化(今年度実施))	1.05 \pm 0.01 (2σ)
計算値(ORIGEN2)	1.04

3.5 PIE 技術開発

3.5.1 非定常平面熱源法による熱伝導率測定技術開発（再委託先：福井大学）【R1～R4】

【R1～R3】

照射済の高速炉ペレットでは図 3.5.1-1 に示すようにペレットの半径方向の中央部分に同心円状の析出層が生成する。この析出層はマトリックスである MOX と比較し熱伝導率が低いのでペレット全体として熱伝導率が低下するだけでなく、ペレット軸方向と半径方向で熱伝導率が異なる可能性がある。言うまでもなく安全上重要なのは半径方向の熱伝導率である。本研究では、ホットセル内での簡便な方法で使用済み高速炉ペレットの半径方向の熱伝導率を評価するためにペレット状試料の等方的な熱伝導率を測定するホットディスク（HD）法と軸方向の熱伝導率を測定する TCi 法の 2 つの非定常平面熱源法を用いてペレット半径方向の熱伝導率評価技術の確立を目指している。これまで、 $\phi 20$ mm の単結晶 TiO_2 について測定手法を確立したが、実際の核燃料にである $\phi 10$ mm UO_2 試料（ $\lambda=4\sim 10$ W/mk）の測定に備え、種々の $\phi 10$ mm のセラミックス試料の測定技術を行ってきた。また、実用化に向けた課題の一つであるホットセル内での測定の手法を検討し、高温測定における課題も抽出した。

【R4】

令和 4 年度はこれらの成果を踏まえ非定常熱源法を用いた $\phi 10$ mm の UO_2 ペレットの熱伝導率測定を行い、その測定手法を確立するとともに、高温測定用の課題であるセンサーの線材および被覆材について検討した。さらにこれまで半径方向の熱伝導度は単結晶試料を用いて測定手法を確立したが、実際に 3D プリンターを用いて模擬析出層ペレットを合成し、半径方向の熱伝導率の算出を試みた。また、ホットセル内での照射済みペレットの半径方向の熱伝導率を室温および高温で評価する手法をとりまとめるとともにその課題を抽出した。

(1) HD 法による $\phi 10$ mm UO_2 ペレットの熱伝導率測定

1) UO_2 ペレットの合成

可能な限り高密度の試料を得るため、粉末を 10 kN でプレスし、不活性雰囲気下 1700 °C で 2 時間焼結させた後、一度粉砕し、再度同条件で焼結させることにより $\phi 10$ mm UO_2 ペレットを 2 個作製した。得られたペレットの写真を図 3.5.1-2 に示す。2 回の焼結後のペレットの寸法・密度を表 3.5.1-1 に示す。いずれのペレットも理論密度の 93% 以上の高密度が得られている。

2) HD 測定

この 2 つのペレットを用い、HD 法による測定を行った。測定に用いた装置は、ホットディスク社製の TPS2500S である。今回は UO_2 の熱伝導率が正しく評価できる条件を探すため、

- ・センサー半径は $\phi 1$ mm、 $\phi 4$ mm
- ・出力は $\phi 1$ mm センサーに対して、10 mW、30 mW、50 mW
 $\phi 4$ mm センサーに対して、50 mW、100 mW、150 mW
- ・測定時間はいずれの場合についても 5 s、10 s、20 s

を用いた。

得られた結果のうち、フローピングデプスが試料サイズにほぼ収まるもののみを選択し、表 3.5.1-2 に示す。フローピングデプスとは、図 3.5.1-3 に示すように、解析に用いたデータがセンサーから熱が半径方向どの程度伝わった時のデータかを示している。HD 法による測定におい

て、熱伝導率測定の評価に用いることができる温度上昇データは、センサーから投入された熱が試料端に到達するまでという条件に基づいている。センサーのサイズに対して、試料サイズが倍以上という推奨値があるが、実際の測定において、解析に用いられた測定時間と得られた熱伝導率からその測定におけるプローピング深度が評価されている。理論上はそれが試料半径からセンサー半径を引いた値より小さいことが望ましい。

この表で測定時間をパラメータとしているが、この測定時間中センサーにより試料は加熱し続けられ、得られた温度上昇データの中で実際に直線近似により熱伝導率等を求める区間はそれより短くなり、それが全特性時間 ($(\sqrt{\alpha \cdot t/r^2})$ 、無次元数) となる。この値が大きい方が、場合によってはデータの解析区間が長く、理論的にはデータの精度は高くなる。なお、温度上昇幅および全特性時間にはそれぞれ 0.4-4.0 (K)、0.3-1.5 という推奨値がある。

φ1 mm センサーの場合、プローピング深度はφ4 mm センサーより長くとれるので、その分全特性時間も長くとれることになるが、実際には出力をあげられず、温度上昇幅が推奨値より小さくなる。加えて温度測定はセンサーの電気伝導率の変化より測定しているため、φ1 mm センサーはφ4 mm センサーより短く、その分電気伝導率の誤差、すなわち測定温度の誤差も大きくなる。またφ4 mm センサーで出力を大きくしすぎると熱が早く試料端に到達し、データ解析範囲に相当する全特性時間が推奨値よりかなり短くなる。従って、妥当と思われるのは、φ4 mm センサーで測定した加熱出力 50 mW および 100 mW での測定時間 5 秒および 10 秒のデータを思われる。実際のこの製法で作成した UO₂ ペレットのレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定値は、4.225 W/mK となったため、HD 法では 4.358 W/mK の値が得られた加熱出力 50 mW、測定時間 20 秒の条件が望ましいと考えられる。

なお、出発粉末とペレットで HD 法による測定後で、その X 線回折 (CuKα 線を使用) を図 3.5.1-4 に示す様に、いずれも UO₂ のピークしか見られず、純粋な UO₂ であることが確認できている。

(2) 3D プリンターを用いた模擬析出層含有ペレットの作成と HD 法および TCi 法による半径方向熱伝導率の評価

1) 模擬析出層含有ペレット

3D プリンターを用いて模擬析出層含有ペレットを作るのに際し、複数のセラミックス粉末でペレットを作るのは高価であること、1 種類のセラミックスで高密度な部分とそれより熱伝導率の低い低密度の部分を作成するのは困難なことより、Ni 合金であるハステロイ 718 を用いて、高密度の部分と空げき率の高い低密度 (メッシュ) 部分を設けることにより作成した。ペレットサイズは HD 法および TCi 法兼用で φ20 mm、高さ 20 mm のペレット 2 個ずつを、また比較のためのレーザーフラッシュ用の φ10 mm のペレットを 1 個、高さ 2 mm および HD 用のみの φ10 mm、高さ 20 mm のペレット 2 個を作成した。作成するペレットの寸法をまとめると図 3.5.1-5 のようになる。

実際の燃料ペレットにおいてはマトリックスである UO₂ や MOX と比較し、析出層である (Ba, Sr) (U, Pu)O₃、Cs₂(U, Pu)O₃ の熱伝導率は 1/4~1/8 程度低くなると考えられる。しかし図 3.5.1-6 に示す様に、メッシュ構造による空げき率の増加だけでここまで熱伝導率を下げるのは困難なので、相対的に熱伝導率が 1/3 になる空げき率 35~55% のメッシュとすることとした。

そのメッシュ構造であるが、図 3.5.1-7 に示すように、FCC 構造の Wigner-Seitz 胞の稜線を骨組みとしたメッシュ構造（図は 1 片が 2 mm として CAD ソフトで作成）とし、その柱の太さを変えることにより、空げき率 35～55% のメッシュ構造を作ることとした。柱の太さと空げき率の関係を表 3.5.1-3 に示す。

実際に 3D プリンターで作成したペレットを図 3.5.1-8 に示す。作成の都合上、中実ペレットはもちろんメッシュペレット（単層ペレット）も模擬析出層含有ペレット（3 層ペレット）も円柱の側面は中実である。また測定に際してレーザーを照射する部分はレーザーが突き抜けないように、また HD 法および TCi 法の測定ではセンサーが接触するためペレットの底面（片面）も中実である。

2) HD 測定と TCi 測定

中実およびメッシュの単層ペレットの HD 法による熱伝導率測定値を表 3.5.1-4 に示す。空げき率 0% の中実ペレットの熱伝導率はニッケルアロイ 718 の公称値より若干小さいが、空げき率の増加とともに、熱伝導率が減少していることがわかる。これらの値を、空げき率 0% のペレットの熱伝導度を 1 とする相対値で図 3.5.1-6 でも示した空げき率と相対熱伝導率のグラフにプロットすると図 3.5.1-9 のようになる（図中の空げき率 15% 及び 65% に示した縦の点線は、3D プリンターで作製可能な単層ペレットの空げき率の最小値と最大値である。）。この図からわかるように、Landauer の理論式と一致していることがわかる。

次に 3 層ペレット（図 3.5.1-10）の HD 法による等方的な熱伝導率および TCi 法によるペレット軸方向の熱伝導率をそれぞれ表 3.5.1-5 および表 3.5.1-6 に示す。なお 3 層の中のメッシュの部分の空げき率が 35～55% であるので、ペレット全体の空げき率は 17～35% ととなる。熱伝導率が中実ペレットとそのメッシュの単層ペレットとの間の値であること、また、等方的な熱伝導率および軸方向熱伝導率それぞれで空げき率とともに減少すること、さらにマトリックスとメッシュ部分を熱伝導の抵抗と考えると、同じ空げき率では抵抗が並列につながった場合の抵抗が（軸方向の熱伝導率が）、並列に加え直列にもつながっているような場合の抵抗より小さい、（等方的な熱伝導率より大きい）ことを考えると、いずれの熱伝導率の値も妥当な大小関係にあると考えられる。

これらの値を用いてこれまで同様、図 3.5.1-11 に示す手法及び式で求めた半径方向の熱伝導率を表 3.5.1-7 に示す。導出した式より、半径方向の熱伝導率が等方的な熱伝導率や軸方向の熱伝導率より小さくなるのは当然であるが、結果として空げき率の増加とともに熱伝導率が減少しており、妥当な値が得られていると考えられる。このように本研究で作成した 3 層ペレットの場合では、その半径方向の熱伝導率と軸方向の熱伝導率の差を評価することができた。

(3) 高温測定用 HD 線材と被覆材の検討

現状、HD のセンサーの線材が Ni で、室温用センサーの被覆材はカプトンであるが、このカプトンに代わりに雲母で被覆した高温用センサーが市販されている。これを用いると 1000℃ までの高温測定が可能であるが、800℃ までの温度でセンサー（の被覆材）と試料の癒着がおこり、降温後、センサーの再利用ができず、使い捨てとなる。一方程度までの温度での測定が想定されるため高温センサーにふさわしい線材と被覆材を探してみることにした。

高温用線材としての要求事項は、使用温度まで安定で被覆材との共存性が高いことに加え、現行の線材である Ni と同程度の電気伝導率の温度依存性を持つことである。それらを考えると、熱電対の材料として用いられているため高温での電氣的性質が良く知られている Pt が最適と考えられる。図 3.5.1-12 に電気伝導率の温度依存性の Ni [5] との比較を示すが、Pt の電気伝導率の温度依存性 [6] はその値までふくめて Ni と同程度であり、現状の熱伝導率の解析モデルの変更も容易と思われる。ちなみに Ni と Pt は熱伝導率 [7, 8] の値も同程度である。(図 3.5.1-13)

次に、被覆材については電氣的な絶縁性と高温で安定性に加え試料 (UO_2) との両立性が要求される。熱伝導率に関しては試料より大きい方が望ましいが、熱伝導率が低い被覆材の場合被覆層を薄くすることでも対応でき、試料の熱伝導率の評価において被覆材の熱伝導率の補正はされている。現行の被覆材であるカプトンおよび雲母の熱伝導率および電気伝導率を表 3.5.1-8 に示す。高温まで安定で UO_2 と両立性の高い物質としてはいくつか考えられるが、その中で比較的安価な材料としてアルミナを候補にあげることができる。アルミナは熱的には $1800^{\circ}C$ 程度まで安定であり、電気抵抗も $10^{13} \Omega m$ 台である。特にその使いかたを考えると、線材を密に被覆したとしてもよほど強固に密着しない限り、昇降温過程で被覆が劣化する可能性がある。アルミナの場合、アルミナセメントとしての使用が可能で、センサーを試料に配置し、その状態でアルミナセメントを被覆し、試料と密着させた状態で一度使用温度まで昇温し、再度室温で密着性を高めた後、本測定を行うという使い方ができる。この場合、被覆厚さの制御は難しく、またある程度厚くなることが予想されるが、アルミナの熱伝導率は $20 W/mK$ 程度であり、少なくとも UO_2 と比較すれば十分高く、測定に与える影響を少なくできると考えられる。

(4) まとめ

照射済み高速炉ペレットの半径方向の熱伝導率の評価手法の確立に向けて、これまでの単結晶試料をもちいた半径方向の熱伝導率評価、 $\phi 10 \text{ mm}$ ペレットの測定、ホットセル内の取り扱いの検討に加え、令和 4 年度は以下のような研究を行った。

$\phi 4 \text{ mm}$ センサーを用いた HD 法による $\phi 10 \text{ mm}$ の UO_2 ペレットの熱伝導率測定では、加熱出力 50 mW 、測定時間 20 s の条件で LF による測定値と同等の値が得られた。

3D プリンターによる模擬析出層ペレットの HD 法および TCi 法による半径方向の熱伝導率評価では、3 層ペレットの熱伝導率は単層の中実ペレットとメッシュペレットの間にあること、空隙率とともに熱伝導率が低下すること、半径方向の熱伝導率が軸方向の熱伝導率より低いことなどから、妥当な値が評価されていると考えられる。

これまでの結果よりホットセル内での照射済みペレットの半径方向の熱伝導率を室温および高温で評価する手法をとりまとめるとともにその課題を抽出し、高温測定のセンサー線材と被覆材については、それぞれ Pt およびアルミナ (セメント) を提案した。

参考文献

- [1] K. Maeda et al., J. Nucl., Mater., Vol. 344, pp. 274-280 (2005)
- [2] D.S. Smith et al., J. Mater. Res. 28(17), 2013, pp. 2260-2272.
- [3] G. N. Dul'nev et al., J. Eng. Phys. and Therm. 14(1), 1968, pp. 15-18
- [4] 大村高弘, 周期加熱法と非定常熱線法による繊維質断熱材の面内方向熱伝導率の推定方法,

Netsu Bussei15(2), 2001

- [5] チップワンストップ, https://www.chiplstop.com/sp/knowledge/007_electric-resistance-of-metal
- [6] G.K.White, M.L.Minges, ” Thermophysical properties of some key solids: An update” (産総研, 分散型熱物性データベース, <https://tpds.db.aist.go.jp/tpds-web/index.aspx?MaterialID=101>)
- [7] C.Y.Ho, R.W.Powell, and P.E.Liley, ” Thermal conductivity of the Elements” (産総研, 分散型熱物性データベース, <https://tpds.db.aist.go.jp/tpds-web/index.aspx?MaterialID=114>)
- [8] James F. Shackelford, William Alexander, CRC Materials science and engineering handbook third edition (2001)
- [9] Makita Phillips, et al., “Enhanced Quench Protection in REBa $2\text{Cu}_3\text{O}_{8-7}$ -Based Coils by Enhancing Three-Dimensional Quench Propagation via Thermally Conducting Electrical Insulation (2015)”
- [10] 大阪マイカ工業株式会社, ” マイカとは?”, www.osakamica.co.jp/mica/
- [11] 東レ・デュポン株式会社, ” 超耐熱・超耐寒性ポリイミドフィルムカプトン”, <https://www.td-net.co.jp/kapton/data/download/documents/kapton2007.pdf>

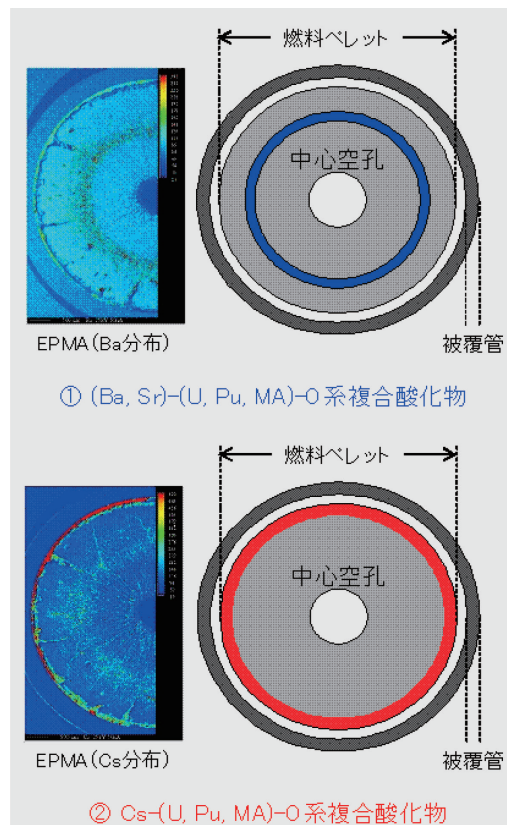


図 3. 5. 1-1 照射済高速炉ペレット[1]

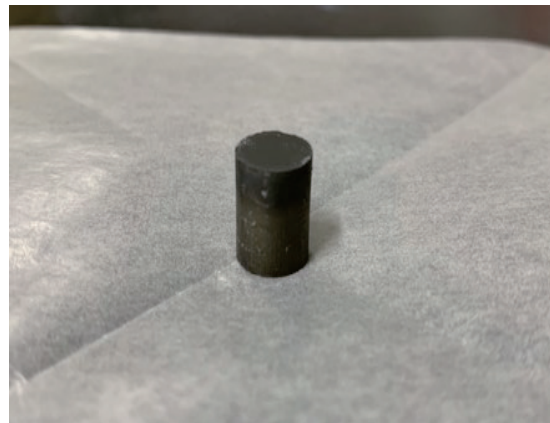


図 3. 5. 1-2 UO₂ ペレット外観

表 3.5.1-1 HD 法 UO₂ ペレットの寸法・密度

(a) ペレット 1 の密度の測定結果

	重さ (g)	密度 (g/cm ³)	密度 (%)
1 回目	6.88	10.0	91.2
2 回目	6.42	10.3	93.7

(b) ペレット 2 の密度の測定結果

	重さ (g)	密度 (g/cm ³)	密度 (%)
1 回目	6.86	10.2	92.8
2 回目	6.76	10.3	94.2

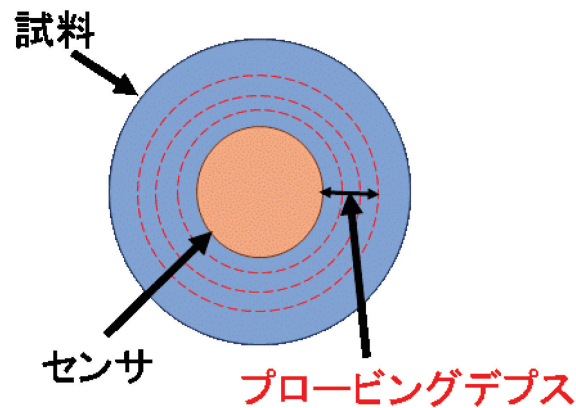


図 3.5.1-3 フローピングデプス

表 3.5.1-2 HD 法による φ10 mmUO₂ ペレットの熱伝導率測定結果

センササイズ (mm)	加熱出力 (mW)	測定時間 (s)	熱伝導率 W/mK	温度上昇 K	全特性時間
1	30	5	5.209	0.28	0.695
1	30	10	4.484	0.287	0.305
1	30	20	3.793	0.321	0.269
4	50	20	4.358	0.347	0.989
4	100	5	8.728	0.529	0.439
4	100	10	5.634	3.05	0.125
4	100	20	3.089	3.48	0.049
4	150	20	3.146	1.13	0.049

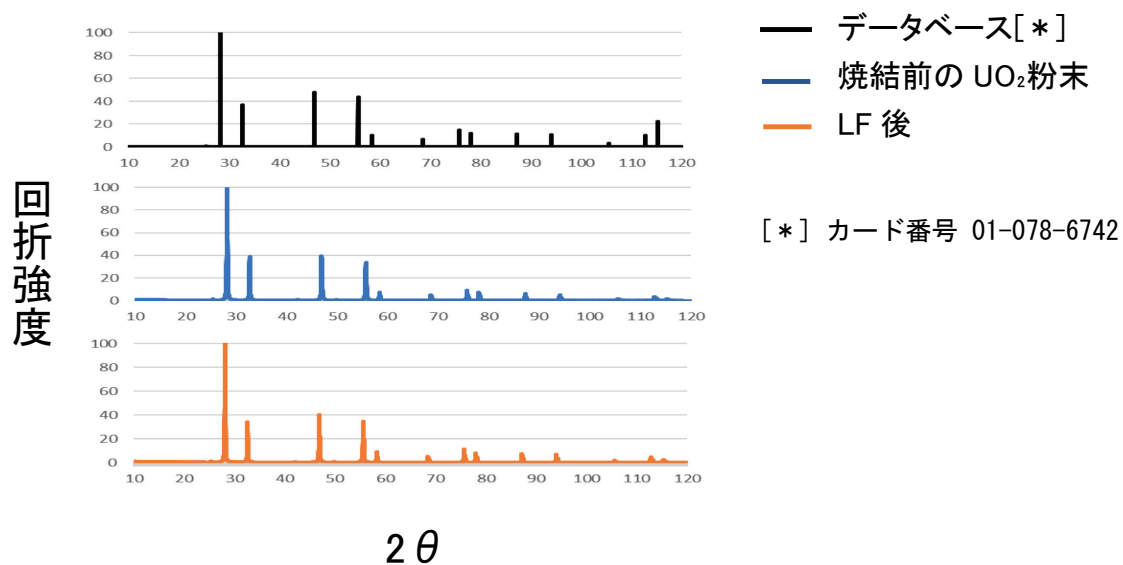


図 3.5.1-4 HD 測定前後での UO₂ 粉末の X 線回折パターン

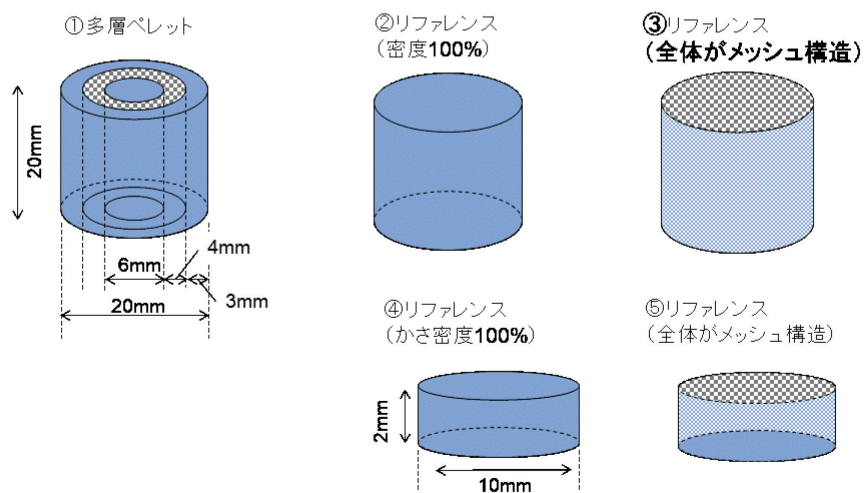
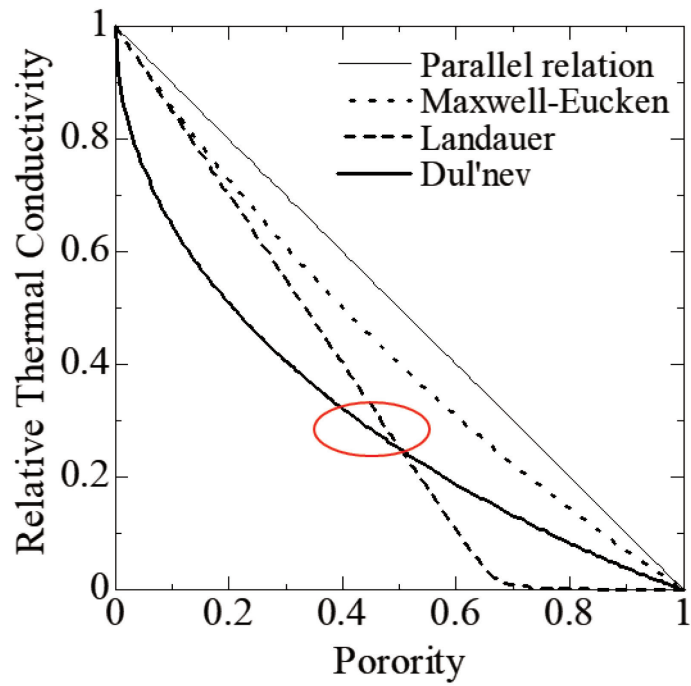
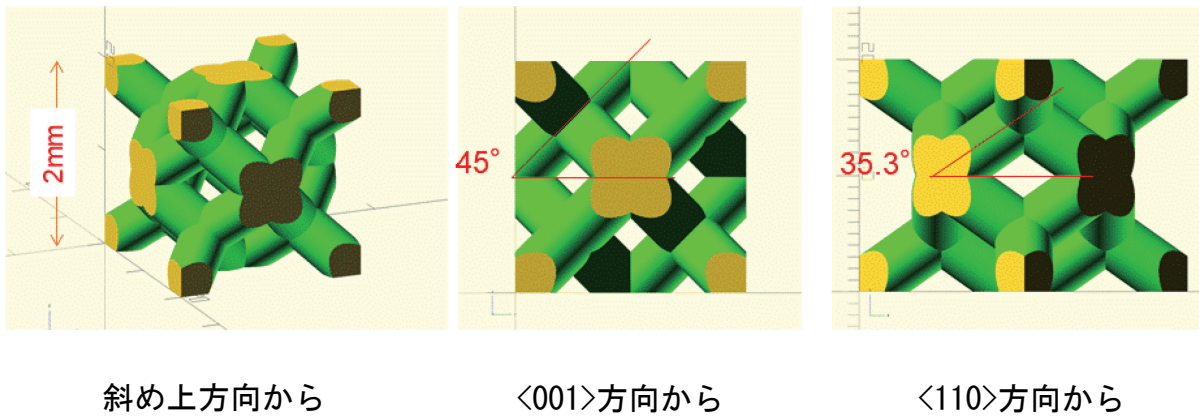


図 3.5.1-5 3D プリンターで作成したペレット寸法



Parallel relation : 単純1次近似
 Maxwell-Eucken : 球状閉空孔モデル[2]
 Landauer : 球状開空孔モデル[2]
 Dul'nev : 格子状開空孔(繊維)モデル[3]

図 3.5.1-6 高温測定結果



斜め上方向から

$\langle 001 \rangle$ 方向から

$\langle 110 \rangle$ 方向から

図 3.5.1-7 メッシュ構造

表 3.5.1-3 柱の太さと空げき率の関係

格子定数 (mm)	柱の直径 (mm)	空隙率 (%)
2	0.50	55
	0.58	45
	0.66	35

福井大学国際原子力工学研究所様 送付ワーク

2023/2/25

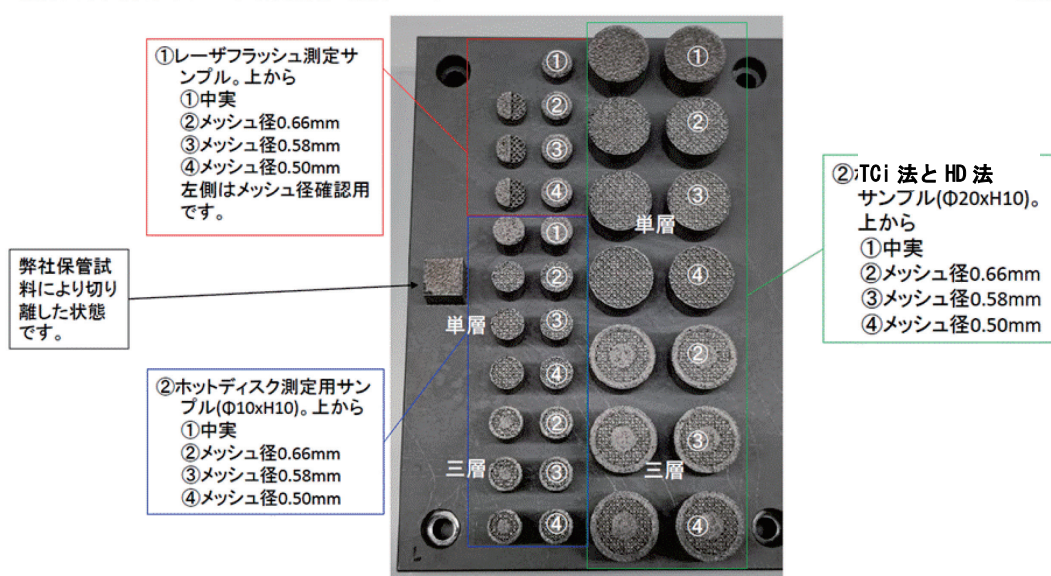


図 3.5.1-8 3D プリンターで作成した単層ペレットおよび3層ペレット

表 3.5.1-4 HD 法で測定した単層ペレットの熱伝導率

公称空隙率 (%)	熱伝導率 (W/m·K)
0.0	9.50
35	5.07
45	4.38
55	3.77

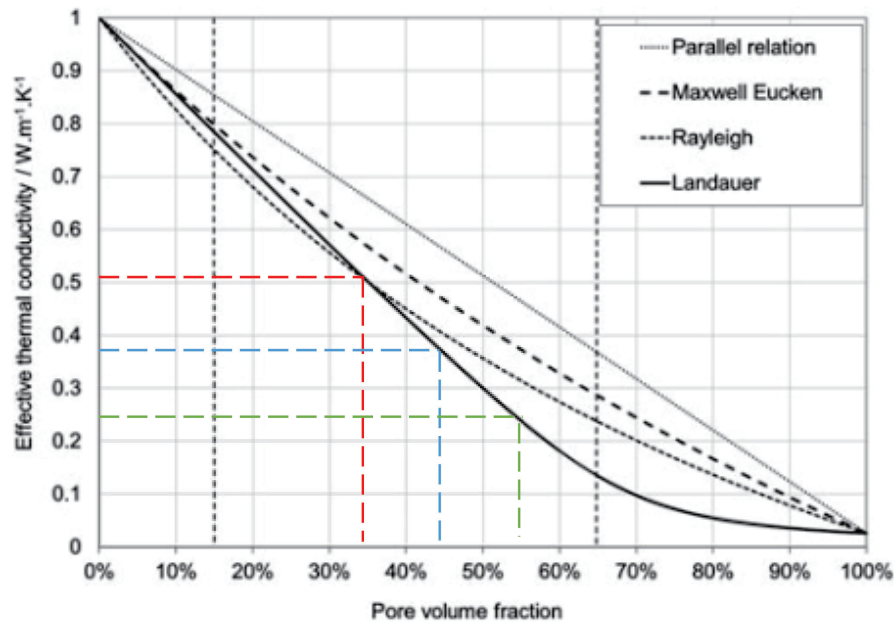
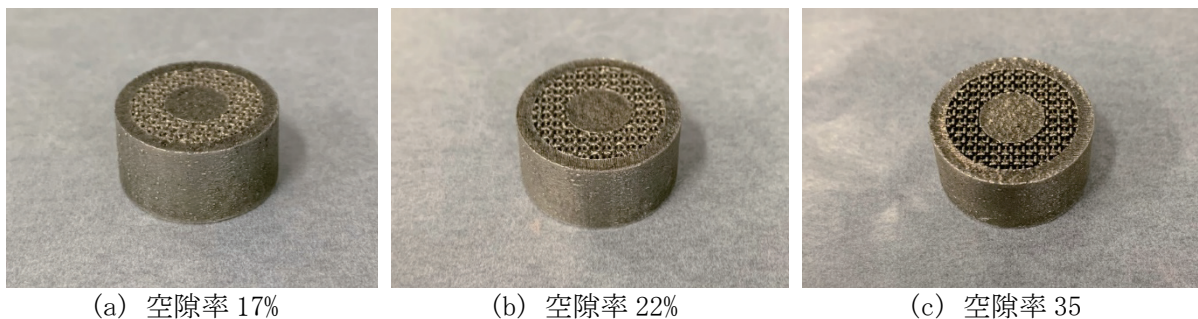


図 3.5.1-9 単層ペレットの相対熱伝導率と空げき率の関係

(赤破線：空げき率 35%の相対熱伝導率、青破線：空げき率 45%の相対熱伝導率、緑破線：空げき率 55%の相対熱伝導率)



(a) 空隙率 17%

(b) 空隙率 22%

(c) 空隙率 35%

図 3.5.1-10 3層ペレット

表 3.5.1-5 HD 法により測定した 3 層ペレットの等方的な熱伝導率

空隙率 (%)	熱伝導率 (W/m·K)
17	8.16
22	7.33
35	7.22

表 3.5.1-6 TCI 法により測定した 3 層ペレットの軸方向の熱伝導率

空隙率 (%)	熱伝導率 (W/m·K)
17	8.96
22	7.64
35	7.60

半径方向の熱伝導率の測定

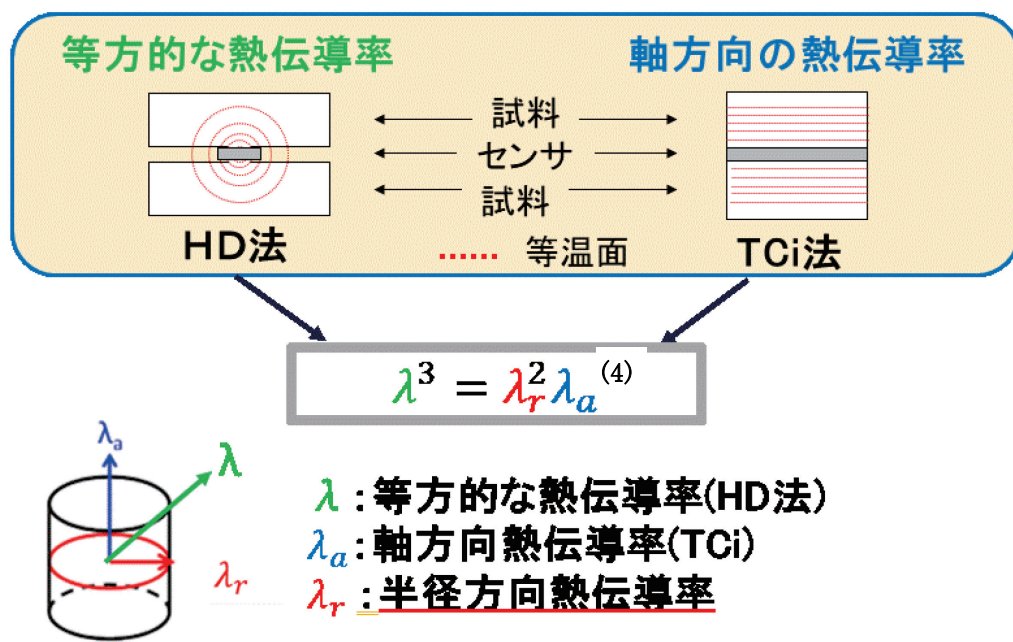


図 3.5.1-11 半径方向熱伝導率評価の手法

表 3.5.1-7 3 層ペレットの半径方向の熱伝導率

空隙率 (%)	熱伝導率 λ_r (W/m·K)
17	7.79
22	7.18
35	7.04

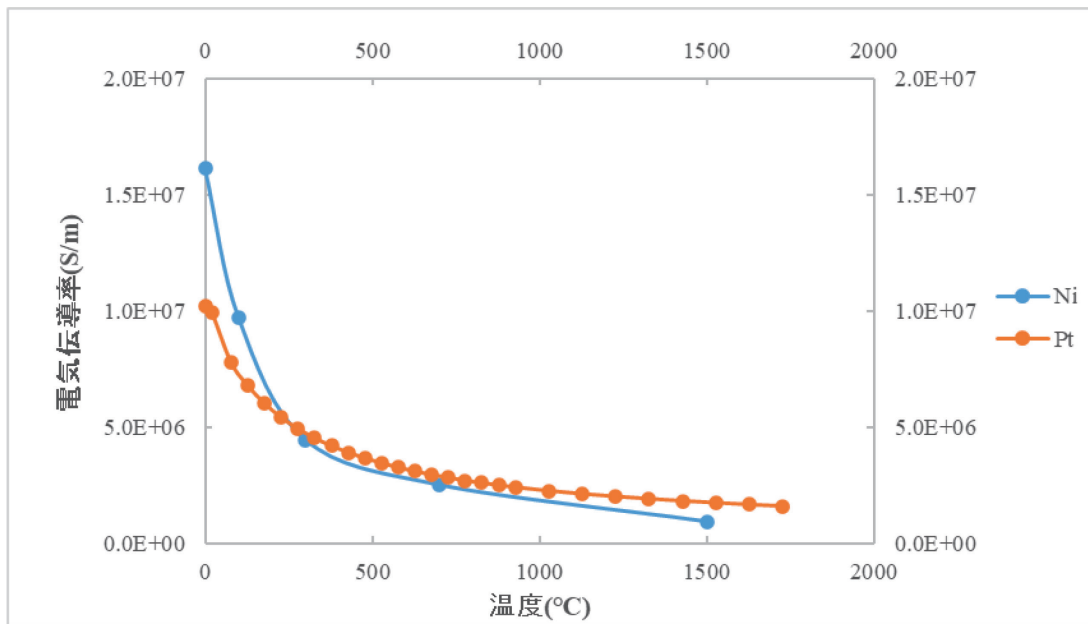


図 3.5.1-12 Pt 及び Ni の電気伝導率の温度依存性

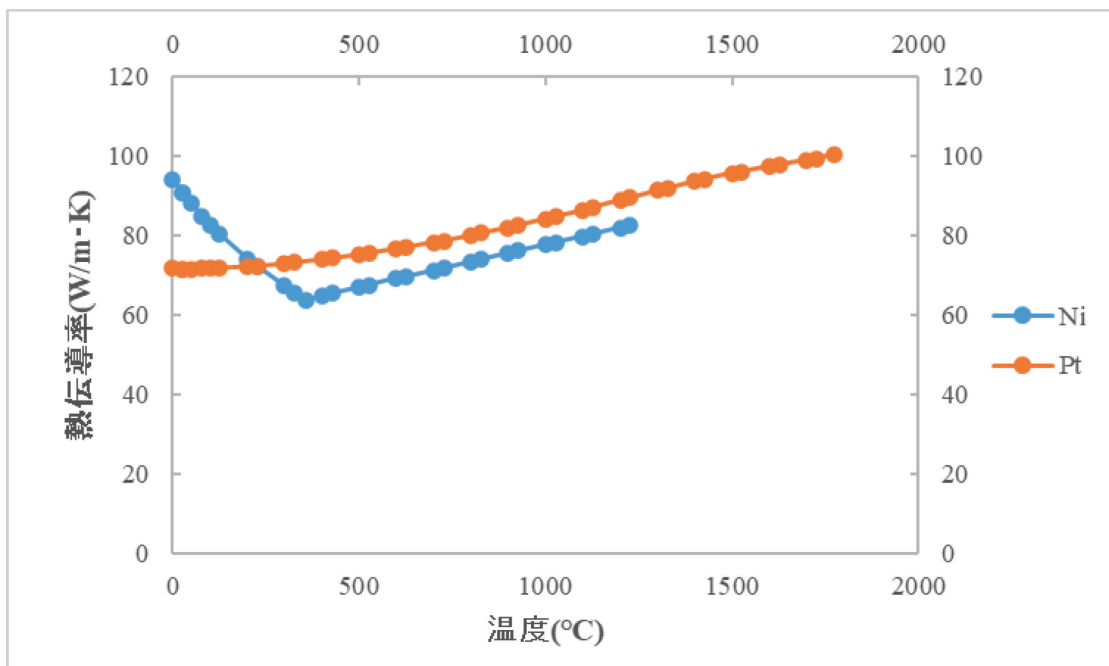


図 3.5.1-13 Pt および Ni の熱伝導率の温度依存性

表 3.5.1-8 カプトンと雲母の熱伝導率と電気伝導率

	カプトン	雲母 (マイカ)
熱伝導率 (W/m·K)	0.18 ^[9]	0.67 ^[10]
電気伝導率 (S/m)	1.0×10^{-15} ^[11]	$1.0 \times 10^{-13} \sim -10$ ^[10]

3.5.2 レーザー溶融による局所融点測定技術開発（再委託先：九州大学）【R1-R4】

【R1-R3】

令和元年度は、MA 含有酸化物燃料の相状態を計算状態図を用いて評価した。また、模擬 MA 含有燃料として、セリウム酸化物にランタニド元素を添加したものを新たに導入した還元炉を用いて焼結し、結晶構造を評価した。更に、融点測定の実験環境を整備するとともに、高温域での温度校正法として、黒体炉に加えて、タングステン(W)リボンランプを使用することを提案した。

令和2年度は、高速度カメラと二色法を組み合わせた融点評価システムを構築し、局所分析の性能を評価した。本測定法は、分光器を用いた方法よりも超高温域（2000℃以上）において融点が低く評価されるものの、直径 0.4 mm 程度の溶融領域に対して融点に対応する熱停留点が明確に捉えられることを確認した。また、模擬 MA 含有燃料として(U, Ln)₂O₃系 (Ln: Ce, Gd, Er) を異なる酸素分圧下 (Ar または Ar-10%H₂) で合成した。その結果、酸素分圧に関わらず蛍石構造を示したが、格子定数は低酸素分圧 (Ar-10%H₂) で増加した。一方、模擬 MA 含有燃料として安定化ジルコニアに CeO₂ 及び LnO_{1.5} を添加したものでは、酸素分圧が高い (Ar) 場合には蛍石構造、低酸素分圧 (Ar-10%H₂) では混合相が出現することがわかった。

令和3年度は、模擬 MA 含有燃料を MA の代わりにランタニド、Pu の代わりに Ce を用いて作製・結晶構造評価を行い、Zr_{0.6}Ce_{0.3}Ln_{0.1}O_{1.95} (Ln=Nd, Sm, Dy) に対して、Ln のイオン半径とともに蛍石構造の格子定数が増加することを確認した。併せて、高速度カメラと二色法を組み合わせた局所融点測定法の有効性を評価した。温度校正には W リボンランプを用いて、高融点金属 (Ta, Mo, W) の融点測定することで測定精度を再度評価した。その結果、模擬 MA 含有燃料の融点は、Ce_{0.9}Ln_{0.1}O_{1.95} では組成に依存せずほぼ一定、Zr_{0.6}Ce_{0.3}Ln_{0.1}O_{1.95} では Ln のイオン半径が大きくなると低下する傾向を示した。また、模擬 MA 含有燃料の融点は、プランク則 (分光器) >ウィーン近似 (分光器) >二色法 (高速度カメラ) の順で低くなり、その差は約 200℃程度であった。

【R4】

令和4年度は、高速度カメラと二色法を組み合わせた局所融点測定法を用いて、酸化ウランに MA の模擬元素としてランタニドを固溶させた試料の融点を解析・評価すること、また、セルまたはグローブボックス内での本測定システムの適用性を評価することを研究目的とした。

(1) 模擬 MA 含有燃料の融点測定

模擬 MA 含有燃料として、MA の代わりにランタニドとして Ln= Nd, Dy を選択し、UO₂-NdO_{1.5}、及び UO₂-DyO_{1.5} を測定対象とした。いずれも UO₂ に対して、LnO_{1.5} を 30 mol% 添加した。更に、測定精度の評価のために、UO₂、CeO₂、及び ZrO₂ を測定した。

令和3年度以前も UO₂ を含む試料の物性を評価していたが、全て東北大学多元物質科学研究所にて焼結まで行ったものであった。令和4年度は当研究室にて UO₂ を含む試料を作製可能とするために、原料となる U₃O₈ 粉末を還元するための熱処理装置を図 3.5.2-1 のように作製した。還元用ガスとして Ar-10%H₂ を水分・酸素除去カラムを通して、電気炉へ導入する仕様となっている。U₃O₈ の還元プロセスでは、同ガスを流しながら、1000℃で4時間加熱した。その後、UO₂ は Ar-10%H₂ ガス中にて、1400℃-4時間、2元系酸化物は 1700℃-8時間加熱し、焼結体を作製した。UO₂ の標記に関して、当研究室で作製したものを UO₂(Q)、比較のために日本核燃料開発に供与いただいた焼結体試料 UO₂(N) と表す。

焼結体の結晶構造を X 線回折法 (CuK α 線を使用) にて解析した。測定用の試料には、焼結体

を一度乳鉢で粉末状にしたものを使用した。UO₂、UO₂-Nd_{0.5}、及びUO₂-Dy_{0.5}試料は全て螢石立方晶構造の回折パターンを示しており、2元系酸化物が固溶体を形成していることがわかった(図3.5.2-2)。螢石立方晶構造の回折パターンに対して、リートベルト法を用いて、格子定数を評価した。図3.5.2-3はUO₂-Nd_{0.5}の格子定数とNd_{0.5}添加率の関係、図3.5.2-4はUO₂-Dy_{0.5}の格子定数とDy_{0.5}添加率の関係を表している。UO₂の格子定数は、5.4707 Åとなり、Leinders等によって評価された5.47127±0.00008 Åとよく一致しており[1]、本研究におけるU₃O₈からのUO₂還元・焼結過程に問題ないことがわかった。これらの図には、Lee等によって提案された評価式(3.5.2-1)から求まる予測値も示しており、固溶体の場合はO/M比が2.0に近いものとよく一致していることが判明した[2]。aは固溶体(U_{1-y}Nd_y)O_{2-x}の格子定数、xは酸素不定比性、yはNd添加率、rはそれぞれのイオン半径である[2, 3]。式(3.5.2-1)に使ったパラメータを表3.5.2-1にまとめる。

$$a = \frac{4}{\sqrt{3}} \left\{ (1 - 2y + 2x)r_{u4+} + (y - 2x)r_{u5+} + yr_{Nd3+} + \frac{(2-x)}{2}r_{O2-} + \frac{x}{2}r_{uv} \right\} \times \left(1 - \frac{y}{200} \right) \quad (3.5.2-1)$$

ランタノイドイオンは酸化物中では普通3価をとると考えられており、UO₂がそれ以上酸化されないとすれば、O/M比は2より小さい1.85になるはずである。しかしながら、U₃O₈の還元を使用したAr-10%H₂ガスを焼結に使用しても固溶体のO/M比は2に近づくことから、固溶体では、局所的な電荷を補償するように一部のUのイオン価が+4から+5と変化し、より酸化されやすくなったと考えた。

高融点金属(Mo、Ta、W)と高融点酸化物(UO₂、CeO₂、ZrO₂)を使って融点測定法の精度評価を行った。高融点金属及びUO₂は高压セルにてAr雰囲気中で測定した。一方、CeO₂とZrO₂は大気中にて測定した。

分光器法では、令和3年度と同様にウィーンの放射則を利用し、灰色体仮定が成り立つならば以下の式により、輝度温度T_{Brightness}の逆数を波長の関数としてプロットし、その直線の傾きから放射率、y切片から融点を同時に決定した[4, 5]。

$$\frac{1}{T_{\text{Brightness}}} = \frac{1}{T} - \frac{\lambda}{c_2} \ln \epsilon \quad (3.5.2-2)$$

UO₂(N)で得られた単色放射温度計と分光器(650 nmでの)出力の時間変化を図3.5.2-5に示す。溶融状態からの冷却の途中で熱停留点が明確に確認できる。熱停留点での分光器の出力を補正関数で温度に変換し、式(3.5.2-2)から融点を評価した。分光器法による測定結果を図3.5.2-6に示す。横軸を文献値、縦軸を測定値としている[4, 5]。両者が一致していれば、破線上にプロットされる。高融点金属では、文献値より高く評価された。一方、酸化物では、UO₂とCeO₂は低く、ZrO₂は文献値とよく一致した。ZrO₂では融点だけでなく、立方晶から正方晶への相転移点も評価可能であった。UO₂はAr雰囲気中で測定したにも関わらず、わずかながら揮発が観察された。CeO₂は大気中で安定であるにも関わらず、融点付近では揮発が観察された。ZrO₂は大気中で安定であり、揮発も見られなかった。したがって、酸化物については、超高温域で生じた揮発成分が測定に影響を与えたと判断した。特にCeO₂は文献値(2810°C)との差が最も大きく、文献値もばらつきが大きい、それは高温でのCeO₂の還元のされやすさが原因と考えられている。一方、本測定手法と同様の方法でManara等により測定されたCeO₂の融点(2402-2470°C)とは近い値となった[6]。

UO₂ の文献値は 2857°Cと与えられているが、測定値は 2692°Cであり、165°Cの差がある。この測定値は、全ての UO₂(Q)と UO₂(N)の融点を平均した値である。図 3.5.2-7 に試料の違いと測定法の違いが与える融点への影響を示した。実は、UO₂(N)の融点は UO₂(Q)よりも 100°C程度高く、特に分光器法で評価した融点は文献に近い値となっていることが判明した。これは、UO₂(Q)に比べて UO₂(N)では結晶粒の成長が大きく進んでおり、超高温域での揮発が抑えられたためと考えている。また、今年度は分光器法における融点測定の不確かさを評価した。不確かさの要因、及び不確かさを表 3.5.2-2 に整理した。要因として、温度校正時の標準放射温度計の不確かさ $u(T_s)$ 、補正関数の不確かさ $u(K(\lambda))$ 、測定の繰返し（統計）による不確かさ $u(T_{rep})$ が考えられる。最終的に、融点に与える不確かさ U を以下の式で評価した。

$$U = 2 \times u_c = 2 \times \sqrt{u(T_s)^2 + u(K(\lambda))^2 + u(T_{rep})^2} \quad (3.5.2-3)$$

高速度カメラを用いた融点測定法では二色法が採用されており、これは発熱体から発せられる輻射光に対して灰色体仮定（放射率が波長に依らず一定）を置くことで、温度、ここでは融点が 2 つの検出波長における放射輝度の比だけで決定されることを利用している。実際は、加熱時のカラー画像を撮影し、温度解析用ソフトウェア（Thermera）にて R: 603 nmと G: 532 nmの 2 波長での強度比から温度分布が得られる。融点は、熱停留点での温度から決定した。単色放射温度計と溶融部の中心付近での温度の時間変化を図 3.5.2-8 に示す。溶融状態からの冷却の途中に同じタイミングで熱停留点を確認できる。二色法による融点の測定結果を図 3.5.2-9 に示す。高融点金属は文献値と±2 %以内で一致した。高融点酸化物に対しては、全ての融点が低く評価された。これは、二色法の温度校正に W リボンランプを用いており、放射率の検出波長（R と G）での違いが金属と酸化物で異なるためであると考えている。Thermera で採用されている 2 つの波長は 71 nm の差しかないが、金属の方が放射率の波長依存性が大きい傾向がある[7]。Thermera では灰色体仮定を置いているにもかかわらず、W リボンランプ（放射率の波長依存性あり）で温度校正を行っており、この矛盾が酸化物の結果に反映されたと考察した。UO₂の温度分布の時間変化を図 3.5.2-10 に示す。更に、撮影用パルスレーザーを照射しながら、UO₂の溶融開始から凝固までの様子を撮影したものを図 3.5.2-11 に示す。

分光器法と同様に、二色法（高速度カメラ）における融点測定の不確かさも評価した。不確かさの要因、及び不確かさを表 3.5.2-3 に整理した。要因として、温度校正の標準放射温度計の不確かさ $u(T_s)$ 、温度校正時の近似直線の不確かさ $u(T_{approx})$ 、熱停留点の不確かさ $u(T_{arrest})$ 、測定の繰返しによる不確かさ $u(T_{rep})$ が考えられる。最終的に、融点に与える不確かさを以下の式で評価した。

$$U = 2 \times u_c = 2 \times \sqrt{u(T_s)^2 + u(T_{approx})^2 + u(T_{arrest})^2 + u(T_{rep})^2} \quad (3.5.2-4)$$

UO₂-NdO_{1.5}及び UO₂-DyO_{1.5}試料に対して、分光器法及び二色法を用いて融点を評価した。一例として UO₂-DyO_{1.5}試料で得られた熱停留点付近の温度変化を図 3.5.2-12 及び図 3.5.2-13 に示す。UO₂-NdO_{1.5}も同様に、熱停留点付近での温度変化は UO₂のものと似ており、2 元系酸化物で予想される液相線及び固相線温度が判断できような温度変化は見られなかった。したがって、ここでは融点は 1 つしかないとして評価した。それぞれの系で得られた融点を手法別に図 3.5.2-14 に整理した。2 つの系で融点の違いは小さく、手法による違いの方が大きかった。これらの系の状態

図はほとんど整備されておらず、 $UO_2-NdO_{1.5}$ 系で古いものが1件見つかるだけである[8]。そこで、本測定で得られた $UO_2-NdO_{1.5}$ 系の融点と当該状態図を合わせたものを図 3.5.2-15 に示す。固溶体になると融点が低下する傾向は一致した。

(2) ホットセルまたはグローブボックス内での局所融点測定法の適用性評価

本研究では、局所融点測定法として高速度カメラと二色法を組み合わせた方法を提案・開発すると同時に、分光器を利用した測定法の開発も行ってきた。いずれの測定法も、最終的に測定対象とするものは、MA 添加 MOX の使用済み燃料である。よく知られている通り、使用済み燃料は極めて放射能強度が高く、例えば高速炉にて Pu 富化度約 20 wt%、MA 添加率約 1 wt% の燃料を約 150 GWd/tHM 燃焼させたものは、 6.7×10^{16} Bq (FP+An の合計) にも達する[9]。本プロジェクトで想定している MA 添加率 5% 程度では、もともと全 An に対する MA の寄与は小さいので、放射能強度がこの値から大きく変化することはないと予想される。実際は、未照射/照射済み燃料はこれまでもセルまたはグローブボックス (GB) 内にて、物性測定が行われている。そこで、本研究で提案している局所融点測定法をセルまたは GB 内で測定するときに予想される課題を抽出・整理し、適用性を評価した。一般に高速炉用 MOX 燃料は α - γ タイプ (気密型) のセルのみで取り扱いが可能であるため、現状では MA 添加 MOX 燃料はセルでしか測定できないが、比較のために GB についても評価した。評価した内容を表 3.5.2-4 にまとめた。要点は、以下の通り。

- ① 加熱用レーザーは、本体をセル/GB の外側に、集光系の光学系を内側に置いて、レーザー光を試料に照射 (加熱溶融) することが可能である。
- ② 装置の光学系の調整 (焦点合わせ、位置合わせ等) は、セルでは困難であり、可能な限り装置の位置は固定し、試料の方で調整する必要がある (例えば、走査型電子顕微鏡の扱いと同じ)。GB については、GB 内に設置した光学系を調整するのは、セルよりは容易である。一方、GB の外側に設置する場合は、全く問題ない。
- ③ 高速度カメラは試料との間に距離はとれるものの集光光学系と一体になっている。そのため、セルでの使用では、カメラごとセル内に設置する必要がある。但し、照射損傷を考慮すると、現状ではその使用は難しい。GB での使用には大きな問題はない。
- ④ 分光器を利用する場合、集光光学系と光検出系を光ファイバーを通して接続可能である。そのため、本方法は、セル及び GB での使用が可能と判断できる。

(3) まとめ

核燃料の融点測定に向けた実験環境を整備し、 UO_2 、 $UO_2-NdO_{1.5}$ および $UO_2-DyO_{1.5}$ の融点を、高速度カメラと二色法を組み合わせた局所融点測定法を用いて解析・評価し、併せて測定精度を評価した。本測定手法のセル内またはグローブボックス内での適用性を光学的・電氣的接続性、操作性等の観点から評価した。

参考文献

- [1] G. Leinders, T. Cardinaels, K. Binnemans, M. Verwerft, J. Nucl. Mater. 459 (2015) 135-142.
- [2] S.M. Lee, T.W. Knight, S.L. Voit, R.I. Barabash, Nucl. Technol. 193 (2016) 287-296.

- [3] R. D. Shannon, *Acta Cryst.* A32(1976)751-767.
- [4] R. J. M. Konings, O. Benes, A. Kovacs, D. Manara, D. Sedmidubsky, L. Gorokhov, V. S. Iorish, V. Yungman, E. Shenyavskaya, E. Osina, *J. Phys. Chem. Ref. Data.* 43 (2014) 013101.
- [5] <https://webbook.nist.gov/chemistry/>.
- [6] L. Capriotti, A. Quanini, R. Bohler, K. Boboridis, L. Luzzi, D. Manara, *High Temp. High Press.* 44(2014)69-82.
- [7] Y. Touloukian, D. DeWitt, "Thermal radiative properties: nonmetallic solids," in *Thermophysical Properties of Matter* (IFI/Plenum, 1972).
- [8] W. A. Lambertson, M. H. Mueller, "Uranium oxide phase equilibrium systems: V, UO₂-Nd₂O₃; VI, U₃O₈-MgO; VII, U₃O₈-TiO₂," Sept. 14, 1954. U-Nd-O phase diagram
- [9] 再処理プロセス・化学ハンドブック検討委員会, JAEA-Review 2015-002.

表 3.5.2-1 格子定数の評価式に用いたパラメータ

イオン	酸素配位数(CN)	イオン半径 [Å]
U ⁴⁺	8	1.001
U ⁵⁺	8	0.880
U ⁶⁺	8	0.860
Nd ³⁺	8	1.109
Dy ³⁺	8	1.027
O ²⁻	4	1.368
V ₀		1.090

表 3.5.2-2 分光器法による融点測定 of 誤差

記号	不確かさ要因	標準不確かさ	感度係数	標準不確かさ [K]	備考
u(T _s)	標準放射温度計の校正の不確かさ	8 K (@ 2654-2687 K)	0.713	5.7 K	標準放射温度計の校正書より
u(K(λ))	補正関数の反復測定による不確かさ	1915822 count	3.7 × 10 ⁻⁶ K/count	7.1 K	繰り返し回数は3回
u(T _{rep})	測定の繰り返しによる標準不確かさ	9.8 K	1	9.8 K	繰り返し回数は24回 (昇温時と降温時)
u _c	合成標準不確かさ		--	13.4 K	
U	拡張不確かさ	-	-	27 K	包含係数 k=2

表 3.5.2-3 二色法 (+高速度カメラ) による融点測定 of 誤差

記号	不確かさ要因	標準不確かさ	感度係数	標準不確かさ [K]	備考
u(T _s)*	標準放射温度計の校正の不確かさ	4.6 K (@ 2687 K)	1	4.6 K	標準放射温度計の校正書より
u(T _{approx})	温度校正直線の近似による不確かさ	14.6 K	1	14.5 K	1576 Kにおける最大差 25.1 K より計算
u(T _{arrest})	熱停留点における温度のばらつきによる標準不確かさ	5.4 K	1	5.4 K	6 フレームの標準偏差
u(T _{rep})	測定の繰り返しによる標準不確かさ	10.6 K	1	10.6 K	繰り返し回数は24回 (昇温時と降温時)
u _c	合成標準不確かさ	-	-	19.3 K	
U	拡張不確かさ	-	-	39 K	包含係数 k=2

表 3.5.2-4 核燃料取扱施設における適用性の評価シート

装置	評価項目	セル	グローブボックス (GB)
	放射線量	高	低
	雰囲気	Ar または空気	同左
	窓材	鉛ガラス (低光透過性)	石英ガラス、サファイアガラスが使用可 (可視光の透過性に問題なし)
	操作	マニピュレータ	グローブ装着による手動
加熱用レーザー	光学的接続性	照射光学系のみセル内に設置し、光ファイバーでセル外と接続可能	GB の内側及び外側から照射することが可能
	電氣的接続性	-	-
	光学系調整	マニピュレータによる微調整は難しい	GB の内側に設置する場合は、グローブ越しに操作可能/GB の外側での調整は全く問題なし
	照射損傷	照射光学系のみセル内に設置するため、大きな問題はない	GB の内側に設置する場合は同左、GB の外側に設置する場合は全く問題なし
高速度カメラ及び分光器	光学的接続性	装置は全てセル内に設置する必要がある	<ul style="list-style-type: none"> ・高速度カメラの焦点距離は約 300 mm であり、ガラス窓を隔てて GB の外側に設置することが可能 ・分光器の焦点距離は約 100 mm であり、GB の外側に設置する場合、窓材の厚さ、試料の設置場所に考慮が必要
	電氣的接続性	電源ケーブル、データ転送等、問題なし	同左
	光学系調整	<ul style="list-style-type: none"> ・高速度カメラのマニピュレータによる調整は難しい ・分光器の調整は更に難しい 	<ul style="list-style-type: none"> ・高速度カメラは GB の外側/内側に設置するのに関係なく調整可能 ・分光器を GB の外側に置く場合、全く問題なし 内側に置く場合、調整はかなり制限される
	照射損傷	<ul style="list-style-type: none"> ・高速度カメラは受光素子 (CMOS)、電気回路等への影響が大きい ・分光器は光検出器と試料間を光ファイバーで接続しており、検出器をセルの外側に設置できるため、受光素子への直接の影響を受けにくい 	<ul style="list-style-type: none"> ・高速度カメラ及び分光器とも、影響は小さい

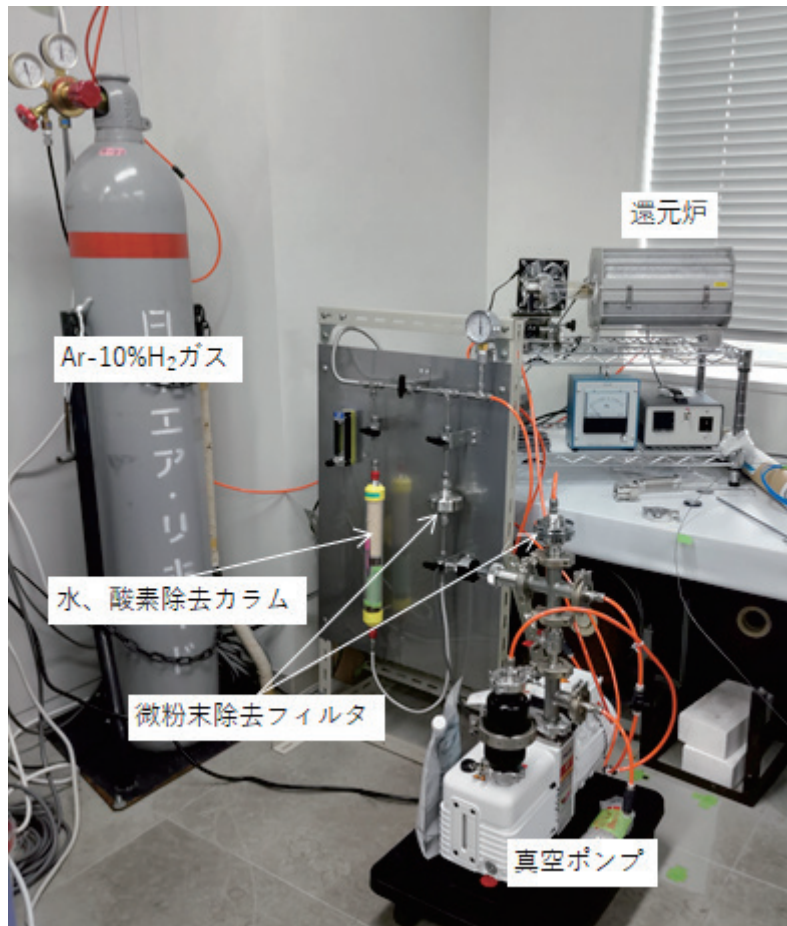


図 3. 5. 2-1 ウラン酸化物還元システム

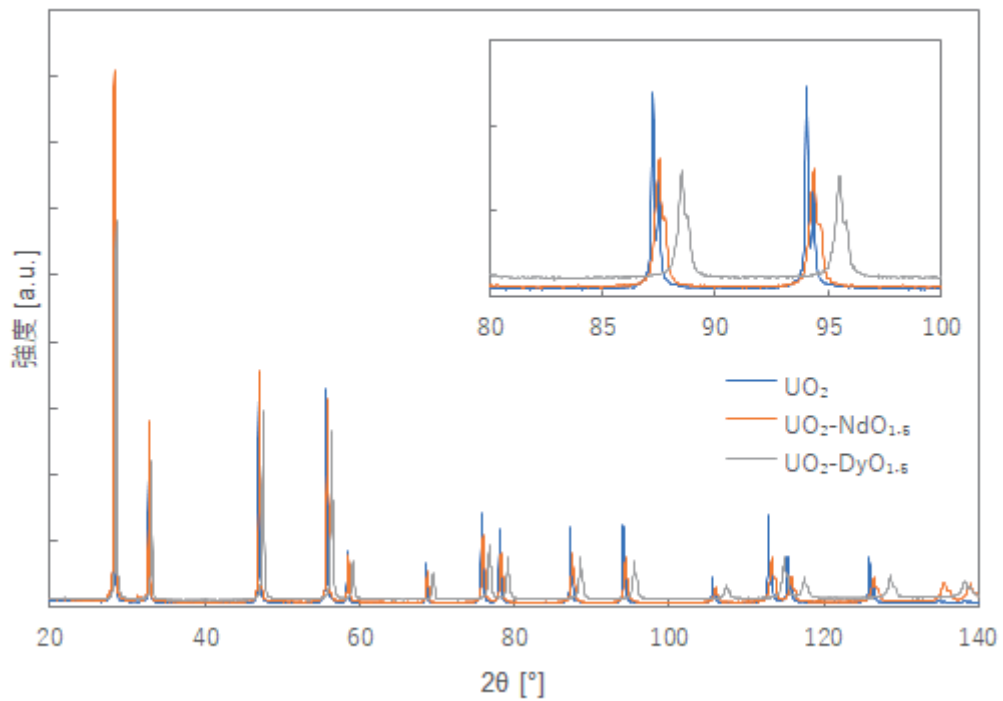


図 3. 5. 2-2 UO_2 、 $\text{UO}_2\text{-Nd}_{0.5}$ 及び $\text{UO}_2\text{-Dy}_{0.5}$ 焼結体粉末の X 線回折パターン

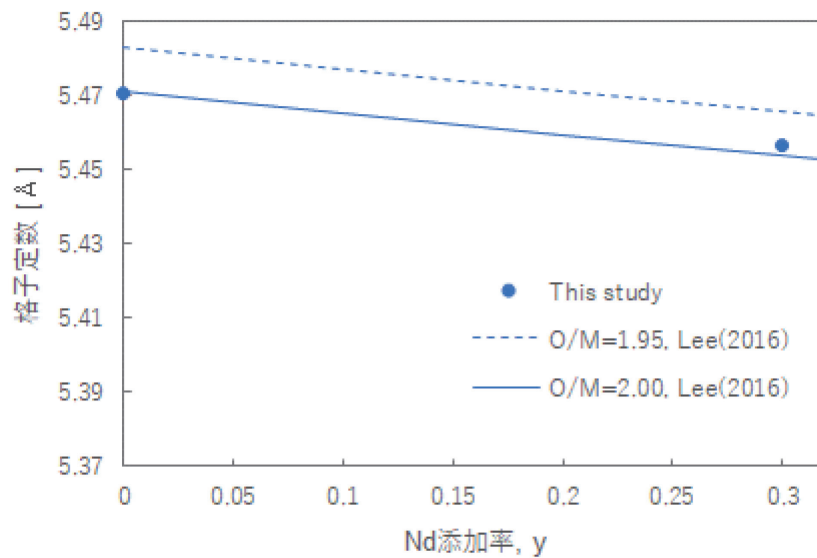


図 3. 5. 2-3 UO_2 及び $\text{UO}_2\text{-Nd}_{0.5}$ の格子定数

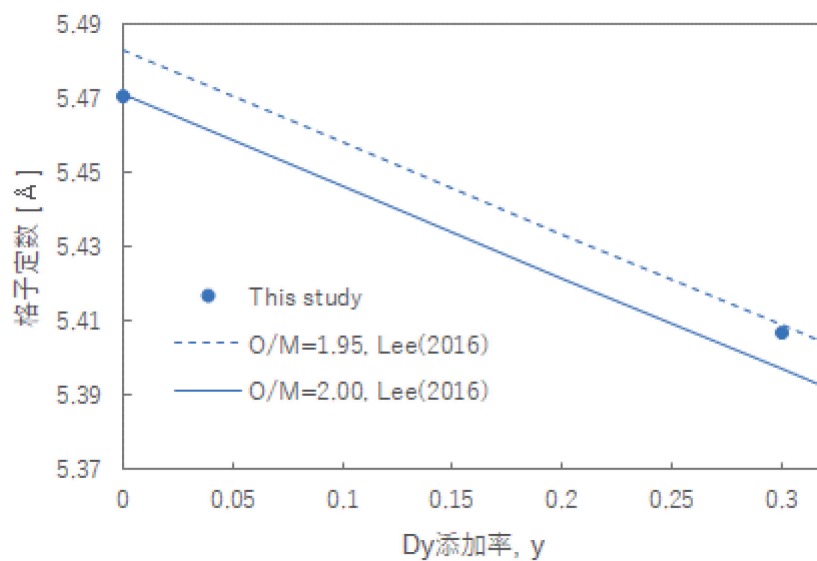


図 3. 5. 2-4 UO_2 及び $\text{UO}_2\text{-Dy}_{0.5}$ の格子定数

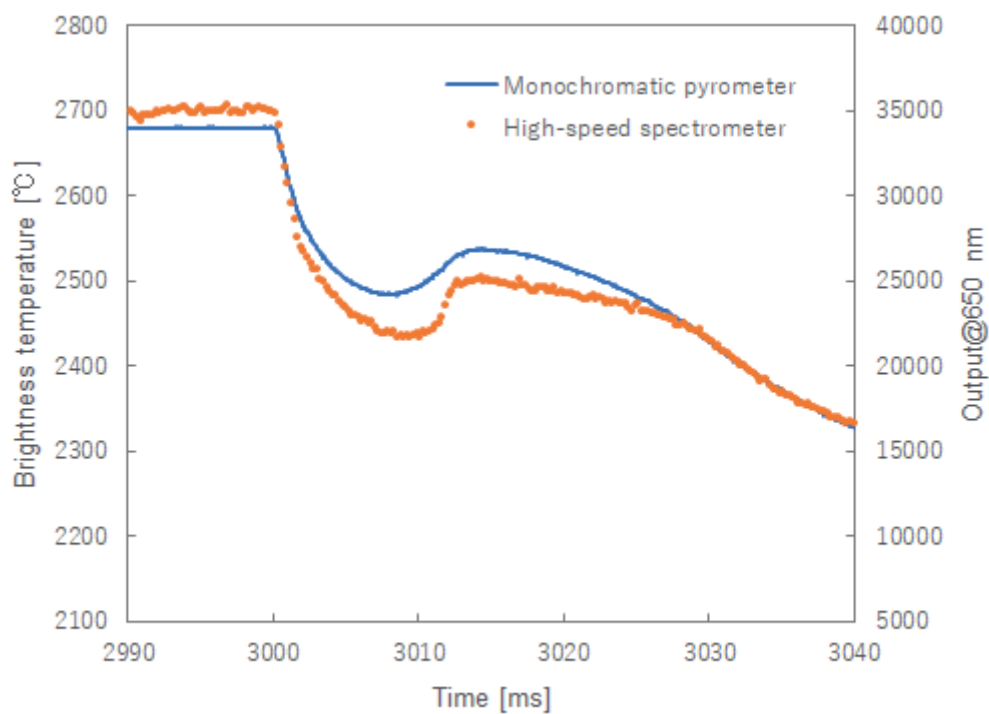


図 3.5.2-5 $\text{UO}_2(\text{N})$ の熱停留点付近での放射温度計及び分光器の応答

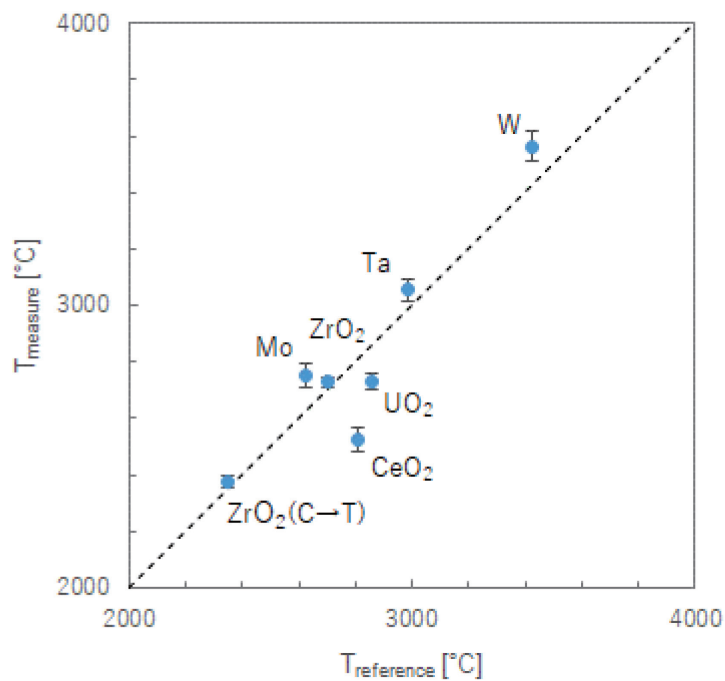


図 3.5.2-6 分光器法による高融点金属・酸化物の融点測定結果

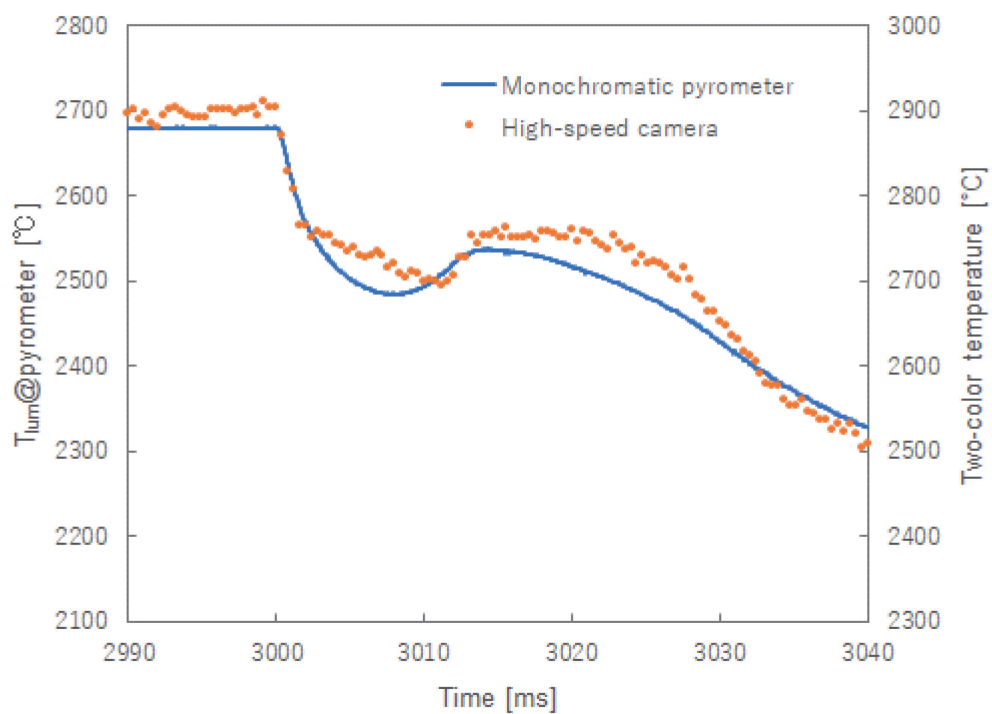


図 3.5.2-7 UO₂(N) の熱停留点付近での放射温度計及び高速度カメラの応答

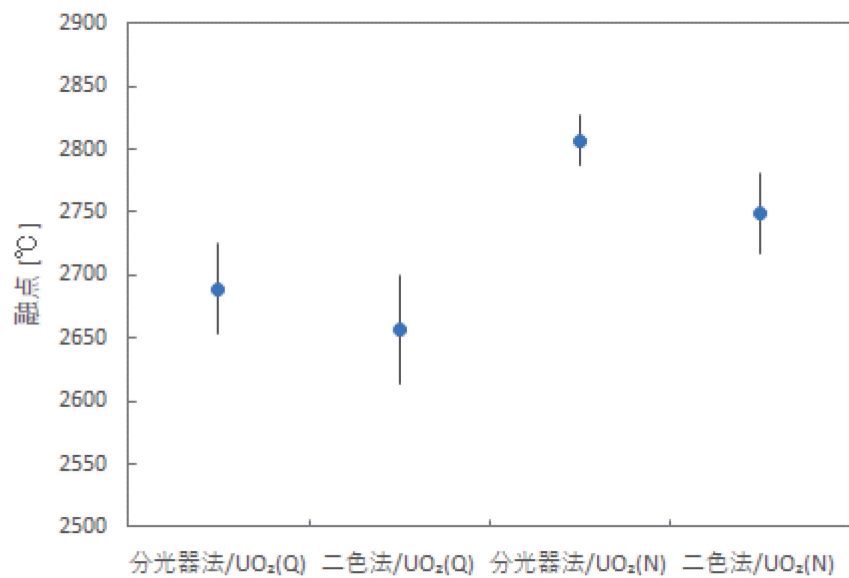


図 3.5.2-8 測定法の違いによる UO₂ の融点への影響

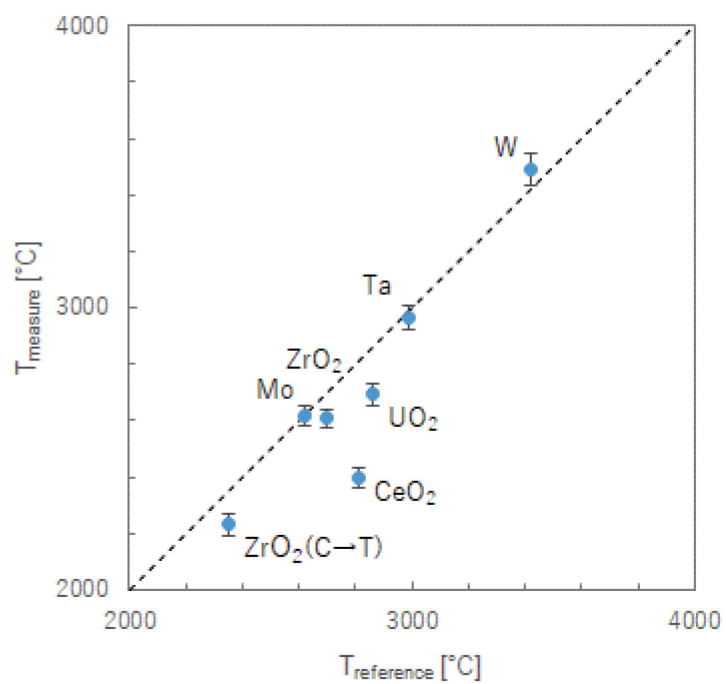


図 3.5.2-9 二色法による高融点金属・酸化物の融点測定結果

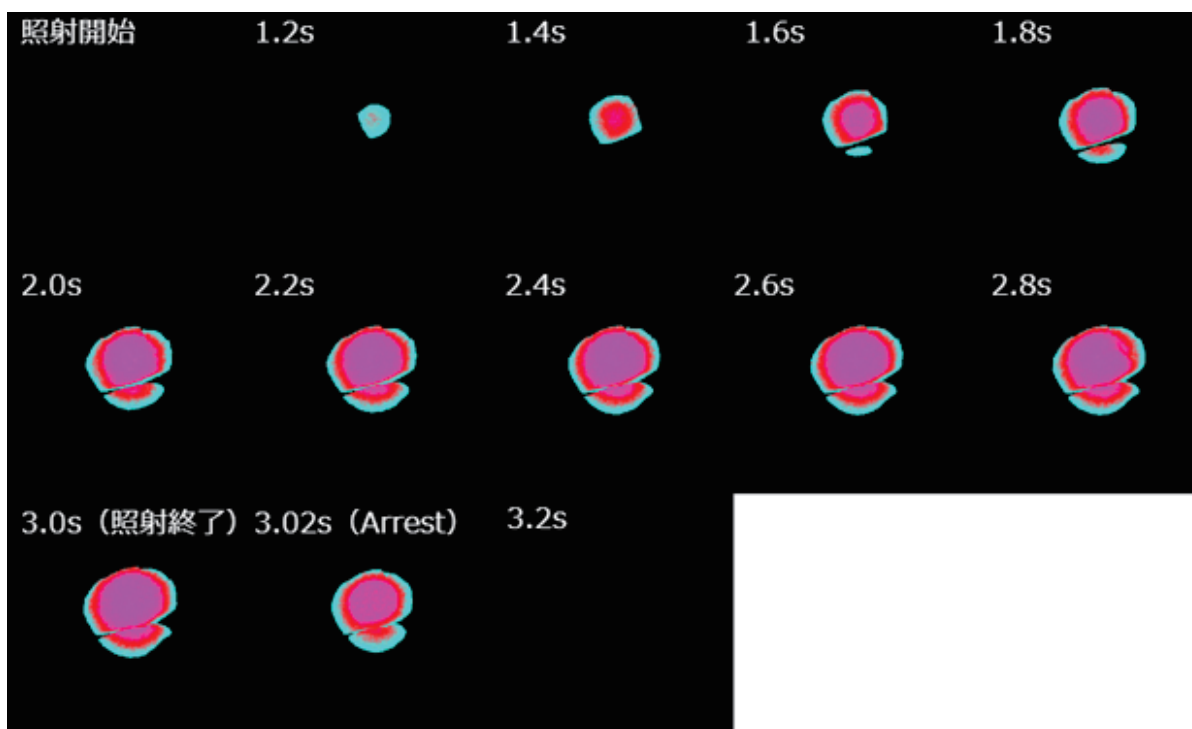


図 3.5.2-10 UO₂ の温度分布の時間変化

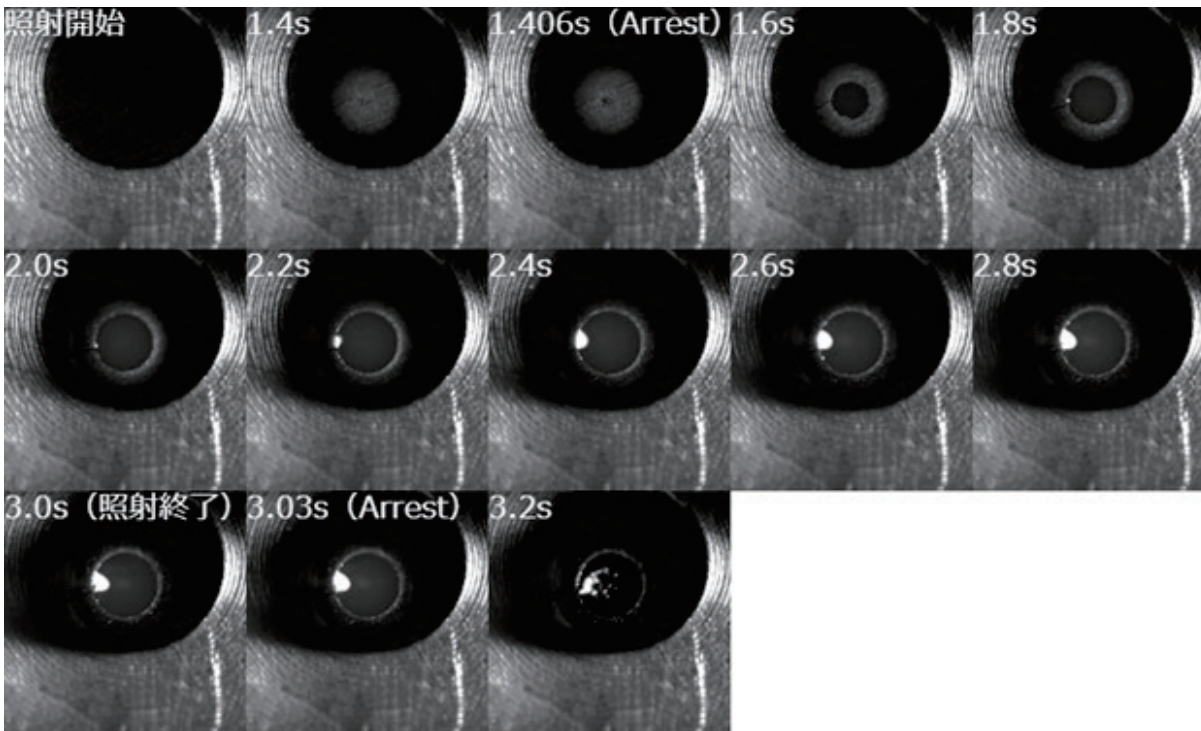


図 3.5.2-11 UO_2 の溶融から凝固までの相変化の様子

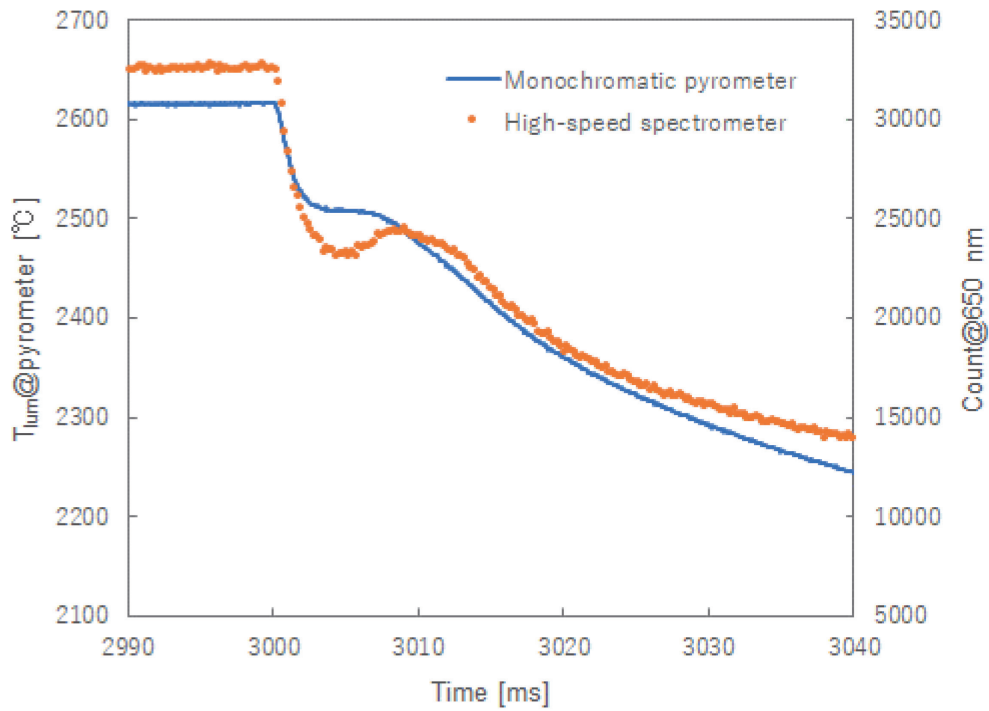


図 3.5.2-12 $UO_2-Dy_{0.5}$ の熱停留点付近での放射温度計及び分光器の応答

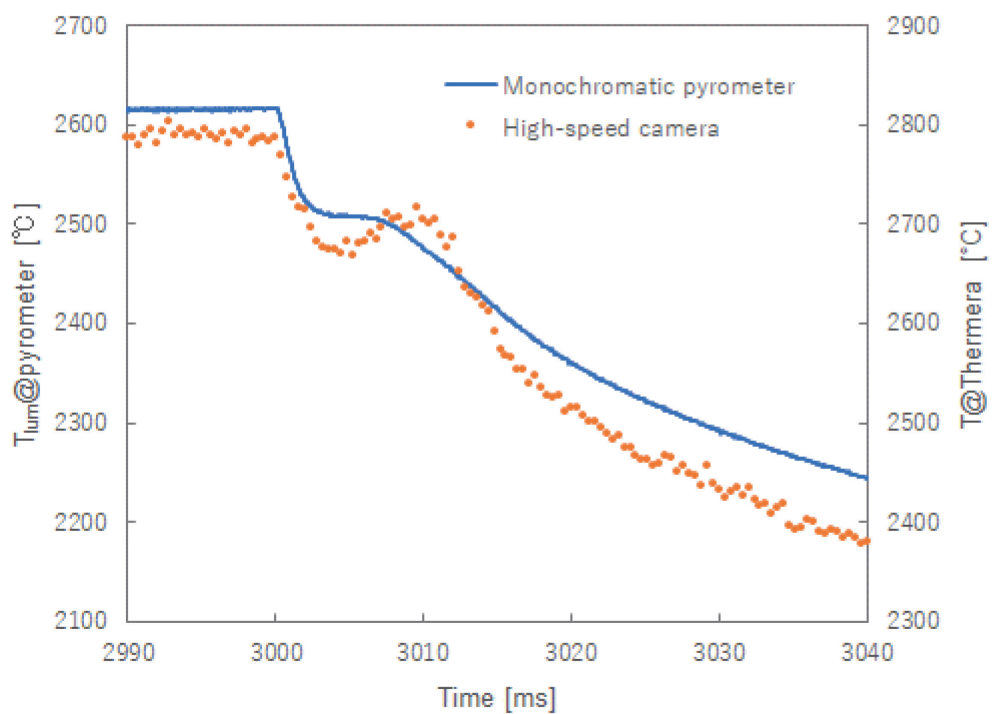


図 3.5.2-13 $UO_2-DyO_{1.5}$ の熱停留点付近での放射温度計及び高速度カメラの応答

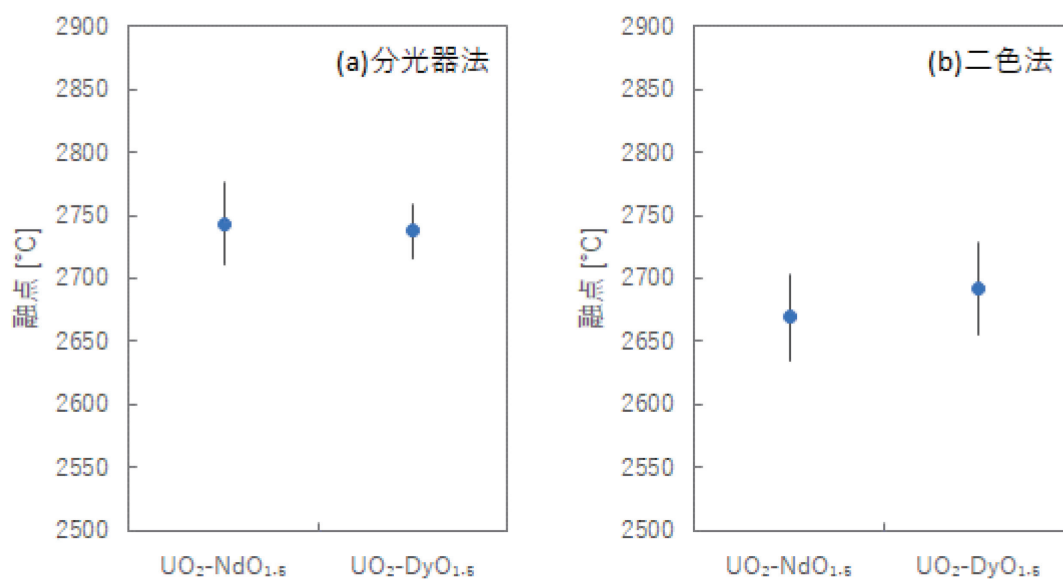


図 3.5.2-14 $UO_2-NdO_{1.5}$ 及び $UO_2-DyO_{1.5}$ の融点
(a)分光器法、(b)二色法

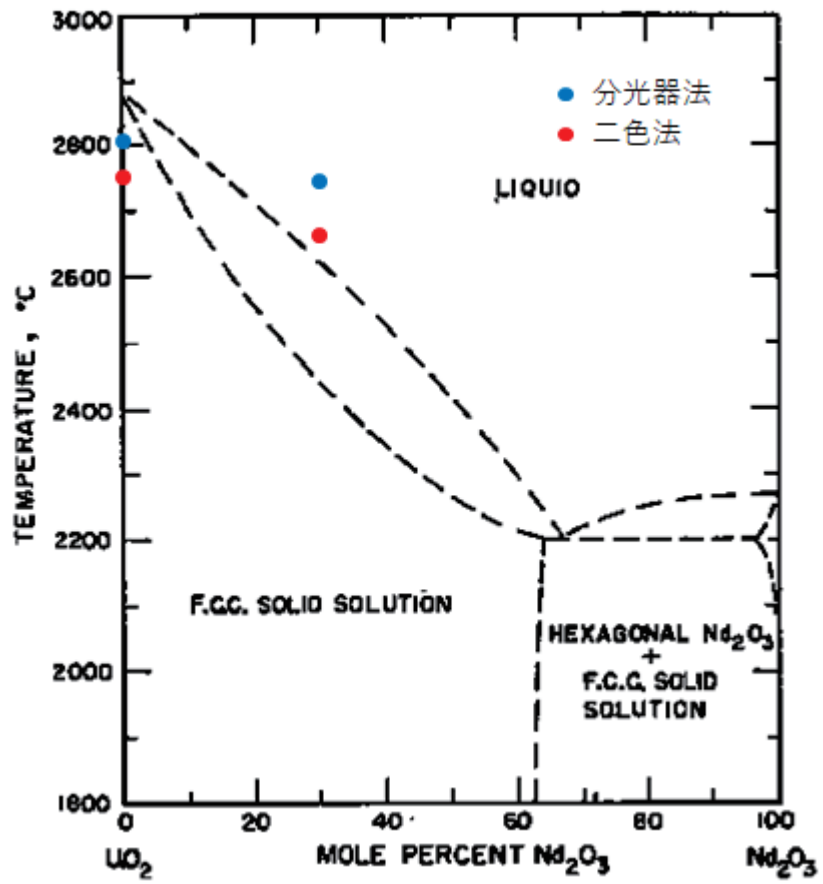


图 3.5.2-15 UO_2 - $\text{NdO}_{1.5}$ 状态图

3.6 TREATにおける照射済燃料の過渡照射試験【R1～R4】

【R1～R3】

米国 DOE との契約に基づきアイダホ国立研究所(INL)の運営・管理を担うバテル・エナジー・アライアンス社(BEA)と原子力機構の間で共同研究契約(CRADA 20-CR-01)を2020年3月17日に締結し、令和元年度は定常照射時の照射履歴調査及び過渡照射試験用キャプセルの概念設計を実施した。令和2年度は、EBR-IIでの照射済燃料ピンから過渡試験用燃料ピンを選定し、定常照射時における照射条件、照射後試験(PIE)結果等を調査・整理した。また、選定した試験燃料ピンを対象にEBR-IIでの定常照射時燃料挙動解析を行い、過渡照射試験条件を策定した。米国 INL では過渡照射試験用 THOR キャプセル設計を実施した。令和3年度は過渡時燃料挙動解析を行うとともに、PIE基本計画を策定した。米国 INL では、試験燃料ピンを廃棄物保管施設(RSWF)からホット試験施設(HFEF)に輸送し、EBR-II照射済試験燃料ピンの外観観察、ガンマースキャン及び被覆管外径測定を完了した。また、過渡照射試験用キャプセル部材製作を完了し、過渡照射試験装置の組立準備を進めた。

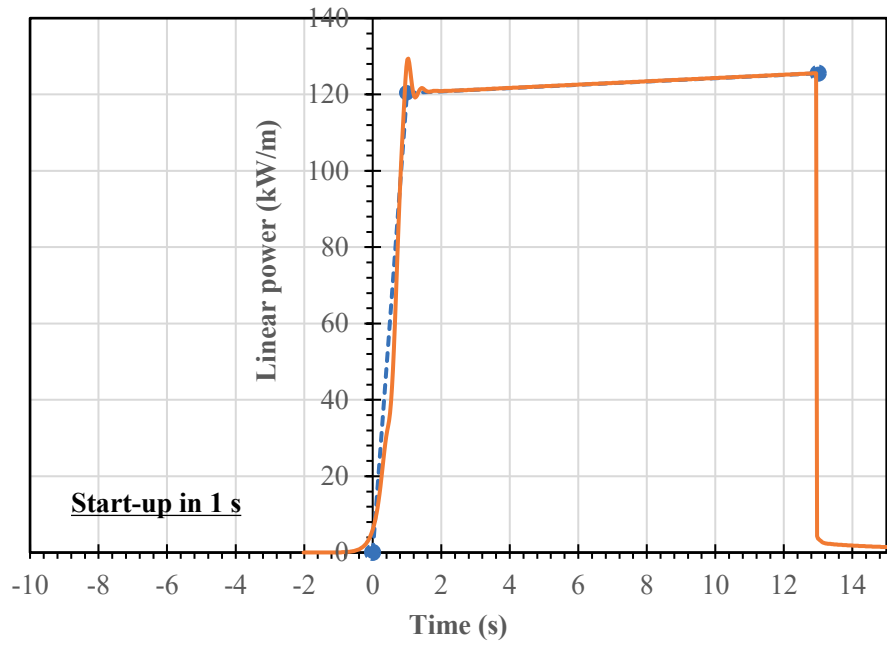
【R4】

EBR-II照射済試験燃料ピンの過渡照射試験前健全性を現地立ち合いにおいて確認し、計画どおりの過渡照射試験条件で実施することを決定した。令和4年度は(1)非定常燃料挙動解析による過渡照射試験条件の設定、(2)照射後試験計画の策定、(3)過渡照射試験用 THOR キャプセル製作、過渡照射試験装置組立、(4)過渡照射前非破壊試験(立会検査)、(5)シスターピン(UW06024)の破壊試験、(6)TREATへの搬出、(7)過渡照射試験(低出力)データ評価、(8)過渡照射後照射後試験及び(9)非定常解析モデルによる過渡照射時燃料挙動の解析評価を実施した。

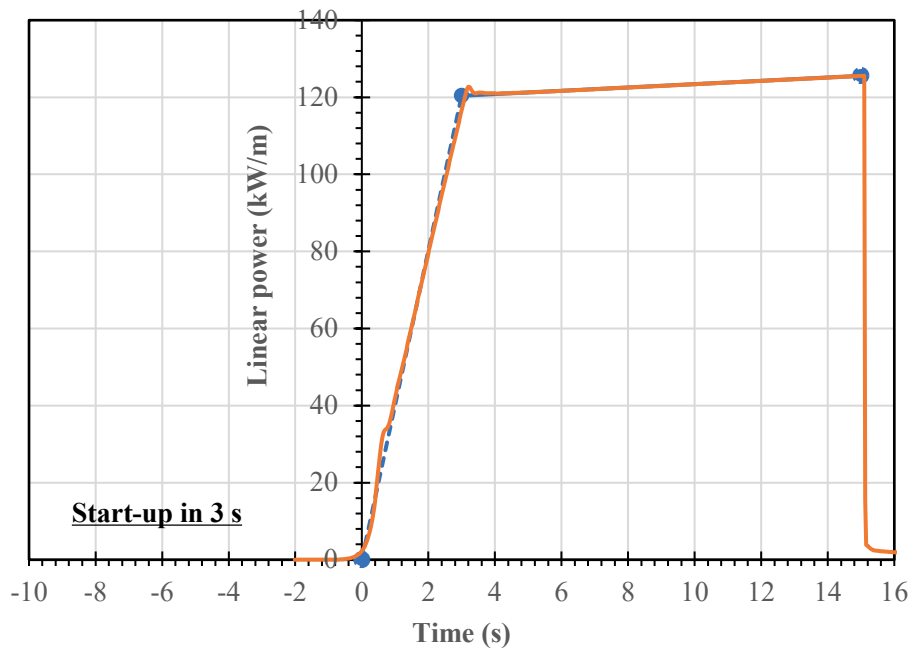
(1) 非定常燃料挙動解析による過渡照射試験条件の設定

図3.6-1に過渡照射試験条件として設定した出力履歴を示す。今回の過渡照射試験で用いる THOR キャプセルではヒートシンクによる熱蓄積の影響で、短時間での温度上昇が可能な反面、出力上昇過程において被覆管が過熱状態となる。このため、加熱時間を短くし、初期出力からの出力上昇を模擬する出力条件として、線出力120.4～125.56 kW/m間において出力上昇速度0.1%P0/s(P0=43 kW/m)での過出力事象を模擬し、初期の出力上昇時間を MOXTOP-1 では1秒、MOXTOP-2 では3秒とする試験計画(WINDOW照射)を考案した。

EBR-II照射済試験燃料ピンを用いた過渡照射試験では、高燃焼度中空燃料のFCMI破損耐性を示すため、燃料溶融面積割合約50%でも被覆管未破損のデータを取得することを目指している。図3.6-1に示した過渡出力条件での非定常燃料挙動解析結果を図3.6-2に示す。この結果から、MOXTOP-1、MOXTOP2ともに燃料中心温度はMOXの融点を超えるが、被覆管周方向応力は引張強度を十分下回り、過渡照射試験で被覆管破損は生じないことが予想される。

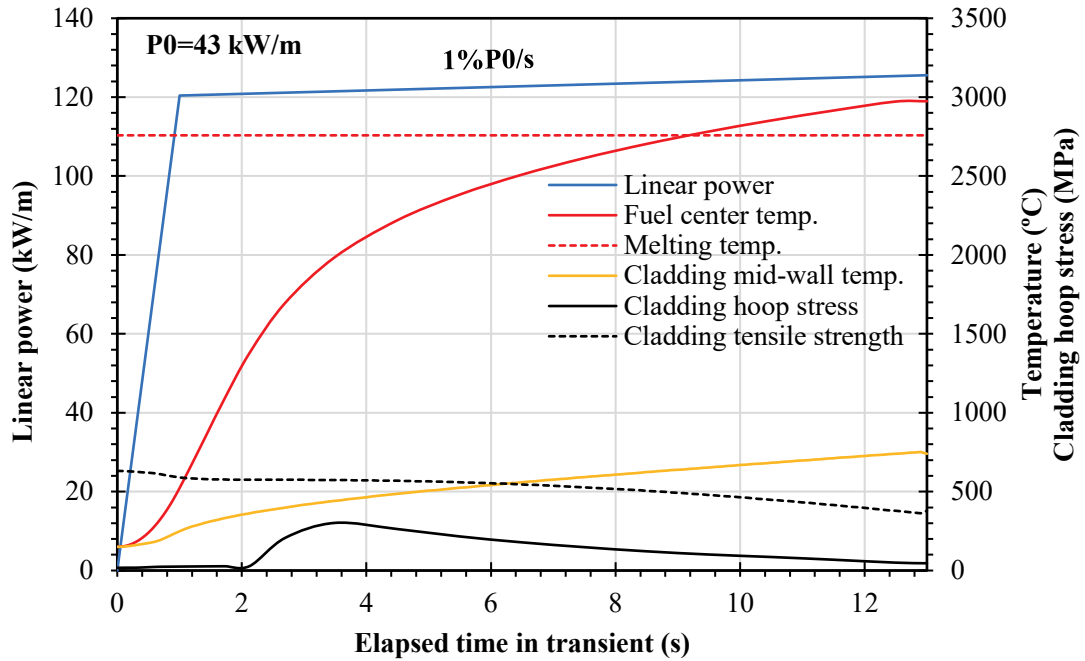


(a) MOXTOP-1 における過渡出力条件

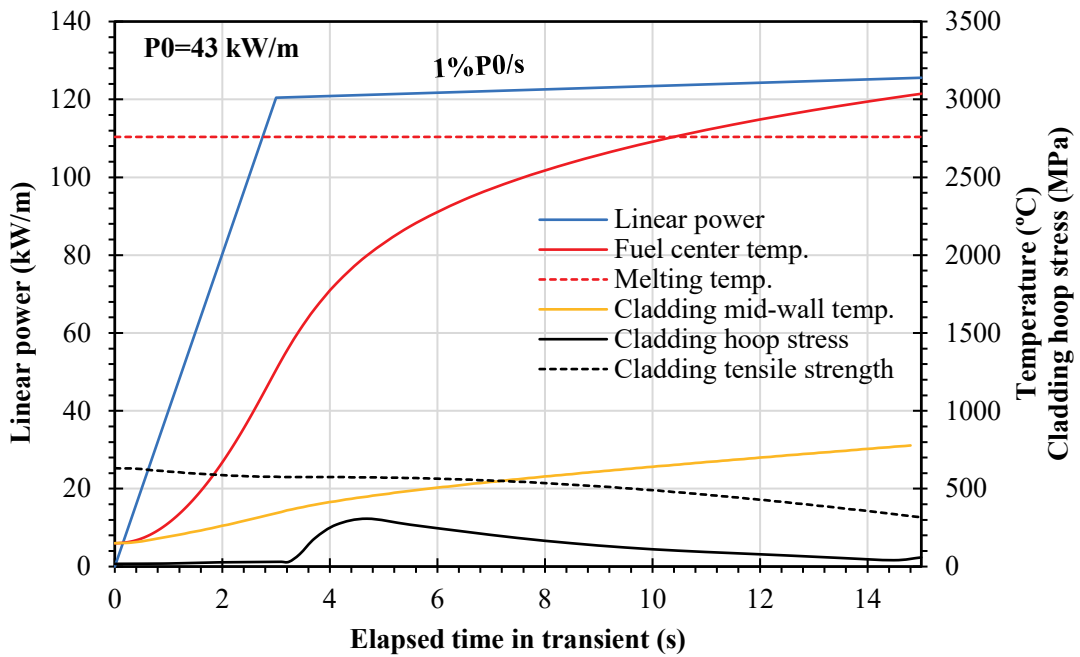


(b) MOXTOP-2 におかる過渡出力条件

図 3.6-1 TREAT での過渡照射試験 ((a)MOXTOP-1、(b)MOXTOP-2) における出力履歴条件



(a) MOXTOP-1 における燃料温度及び被覆管応力解析結果



(b) MOXTOP-2 における燃料温度及び被覆管応力解析結果

図 3.6-2 MOXTOP-1 及び MOXTOP-2 に対する非定常燃料挙動解析結果

(2) 照射後試験計画の策定

表 3.6-1 に示す最終 PIE 計画を策定した。主な PIE 項目は以下のとおりである。

① 過渡照射前非破壊試験

試験燃料ピン(UW02009、UW02011)及びシスターピン(UW06024)に対し、ガンマースキャ

ン、外観観察及び被覆管外径測定を実施する。

② 過渡照射後非破壊試験

試験燃料ピン(UW02009、UW02011)に対し、中性子ラジオグラフィ(2D)、ガンマースキャン、外観観察及び被覆管外径測定を実施する。

③ 破壊試験

試験燃料ピン(UW02009、UW02011)及びシスターピン(UW06024)に対し、FP ガス分析、燃焼率分析、金相試験を実施する。また、高度の破壊試験として、横断面金相のEPMAを実施する。

表 3.6-1 最終PIE計画

Stage	Exam/Task	UW06024 Sister pin	UW02009 MOXTOP-1	UW02011 MOXTOP-2
Pre-transient NDE	N radiography (2D)	n/a	n/a	n/a
	Gamma Scan	X	X	X
	Visual	X	X	X
	Profilometry	X	X	X
Pre-transient assembly	Pre-transient assembly	No	Yes	Yes
Post-transient NDE	N radiography (2D)	n/a	X	X
	Gamma Scan	n/a	X	X
	Visual	n/a	X	X
	Profilometry	n/a	X	X
DE	Fission Gas (GASR)	X	X	X
	Section, Mount, Polish	X	X	X
	Optical Microscopy	X	X	X
	Burnup (mass spectrometry)	X	X	X
	Microhardness	n/a	n/a	n/a
	Density (gas pycnometer)	n/a	n/a	n/a
Advanced DE	Facility transfer*	X	X	X
	SEM	n/a	n/a	n/a
	FIB	n/a	n/a	n/a
	TEM	n/a	n/a	n/a
	EPMA*	X	X	X
	Thermal Prop	n/a	n/a	n/a
Misc.	Disposal	n/a	X	X
	Disassembly	n/a	X	X
	Final Report	X	X	X
* Planned and budgeted outside of this SOW				

(3) 過渡照射試験用キャプセル製作、照射試験装置組立

① キャプセル本体(Capsule Body)

インコネル 625 でキャプセル本体部品を製作した。各部品の製作後、溶接前に直径の寸法検査を行った。図 3.6-3 に製作した下部キャプセル組立品及び上蓋を示す。下部キャプセル組立品は部品を溶接にて組立て、溶接部に対して目視検査を実施した。キャプセル

上蓋は、最終組立工程で下部キャプセル組立品に取付け、溶接固定した。

② ヒートシンク (Heat Sink)

ARMC0 グレード 4 鉄(高純度鉄)で製作した 3 分割型 MOXTOP ヒートシンク組立品を図 3.6-4 に示す。これらのヒートシンク部品は、最終組立プロセスにおいてドリルで穴を開け、ピンで固定される。ヒートシンク部品は INL にて機械加工し、放電加工で 0.5mm の穴を 12 個開けた。

③ 内装構成部品 (Insert Assembly Components)

製作した一次内装構成部品を図 3.6-5 に示す。右図に示す長いヒートシンクスリーブはチタン製で、ヒートシンクアセンブリを囲む機器類を覆うカバーである。また、短尺導入管は、試験燃料ピンを収納するためのヒートシンクアセンブリの延長管である。

④ 外容器 (Outer Containment Vessel)

外容器は、板金缶が収められた BUSTER パイプと呼ばれるもので、このパイプは ASME BPVC Section III 圧力容器であり、適用されるすべての規格規則に適合したものとなっている。組立後の THOR-MOXTOP モジュールは、このパイプに装荷され、次節で飲める上部フランジを溶接し、密閉される。

⑤ 上部フランジ (Top Flange Weldment)

THOR-MOXTOP モジュール上部のフランジ溶接部は、BUSTER の一次格納容器を構成し、ASME BPVC Section III の圧力格納機能が要求される。そのため、製作には ASME Section III で定められる材料を用いた。上部フランジ製作後、液体浸透探傷検査を各部品に実施し、材料に欠陥がないことを確認した。上部フランジ組立溶接後、溶接部を目視と液体浸透探傷剤で検査し、溶接部に欠陥がないことを確認した。その後、上部フランジのヘリウムリーク試験を実施し、リーク率が 1×10^{-6} STD CC/SEC を超えないことを確認した。図 3.6-6 に製作した上部フランジ組立品を示す。

⑥ タングステンシールド (Tungsten Shield)

THOR-MOXTOP モジュールの上方には放射線遮蔽のためのタングステンシールドを配置する。遮蔽体の外径には螺旋状の溝加工が施されており、遮蔽体の周囲に計測器を配線することができる構造となっている。図 3.6-7 に製作したタングステンシールドを示す。

⑦ その他上部構成部品

上部フランジを通す計測機器のリード線を導くフランジリード管を図 3.6-8 に示す。図 3.6-9 には延長管と圧着シール管を示すが、これらは THOR キャプセルの上部に取り付けられ、試験燃料ピン挿入後にキャプセルの密封に用いた。

⑧ THOR キャプセル組立

THOR キャプセル組立の様子を図 3.6-10 に、THOR キャプセル組立後のリーク試験の状況を図 3.6-11 に示す。また、ホットセル内での THOR キャプセルへの試験燃料ピンの装填の様子を図 3.6-12 に示す。

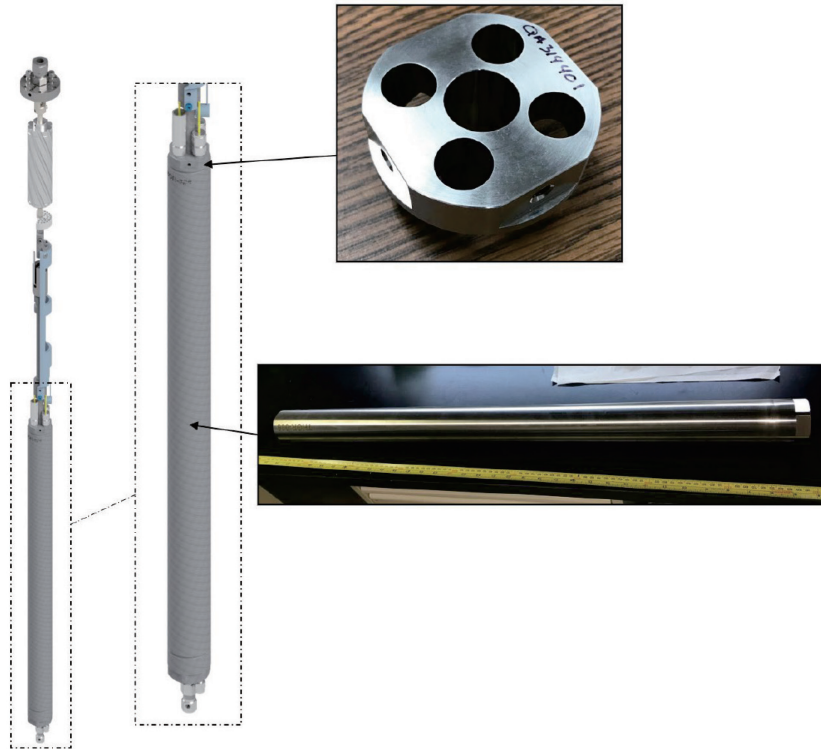


図 3.6-3 下部キャプセル組立品及びキャプセル上蓋

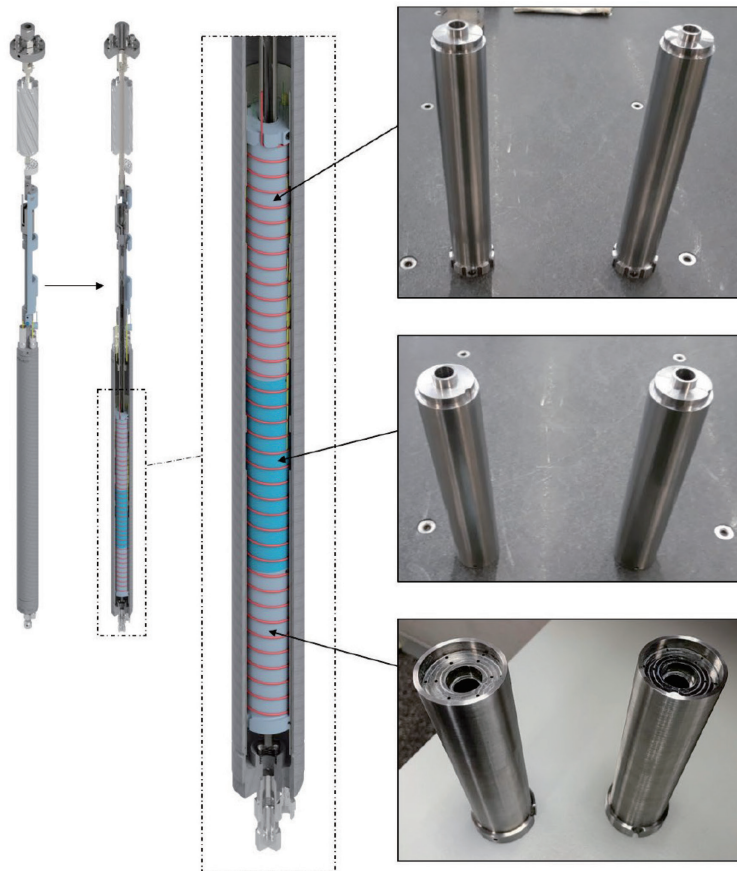


図 3.6-4 ヒートシンク

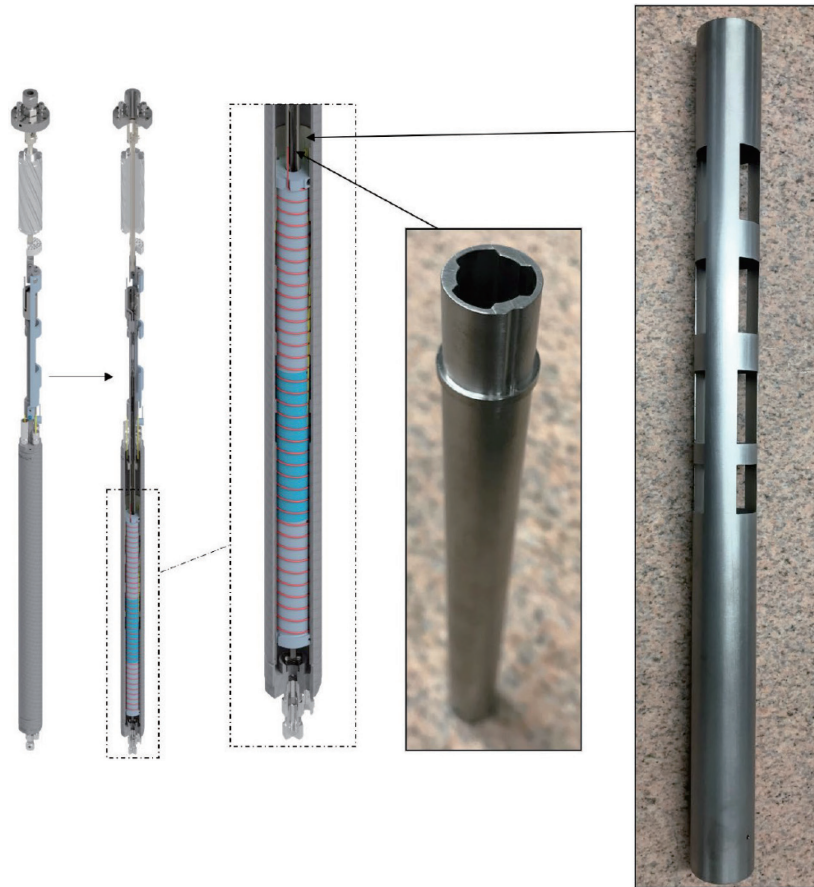


図 3.6-5 短尺導入管及びヒートシンクスリーブ

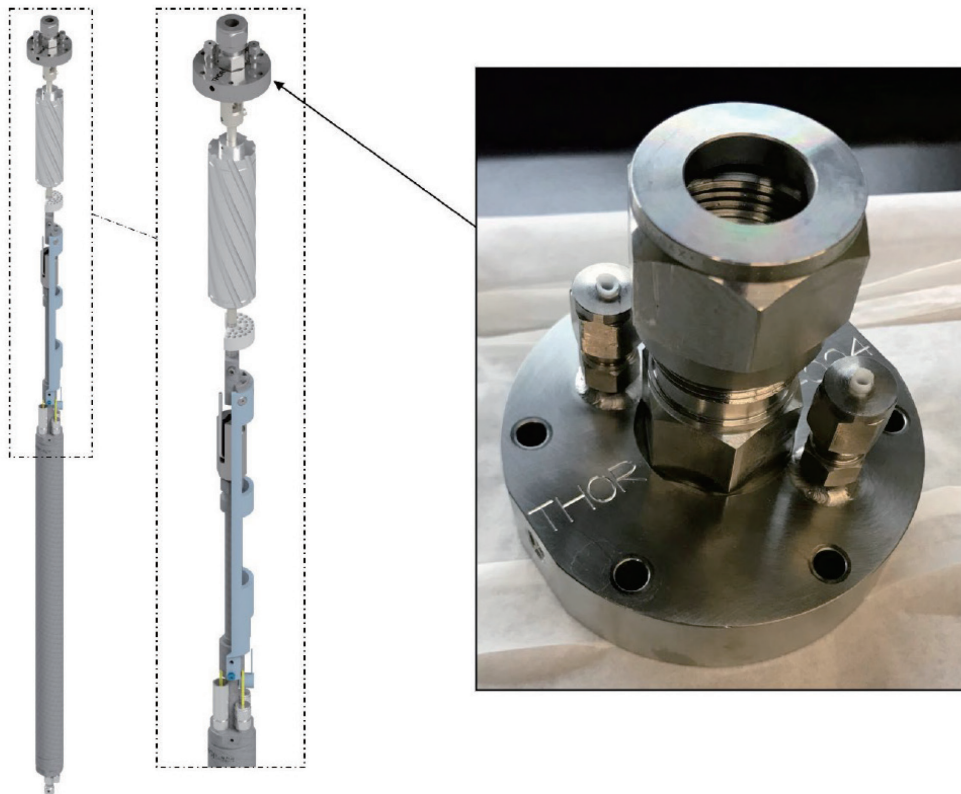


図 3.6-6 上部フランジ組立品

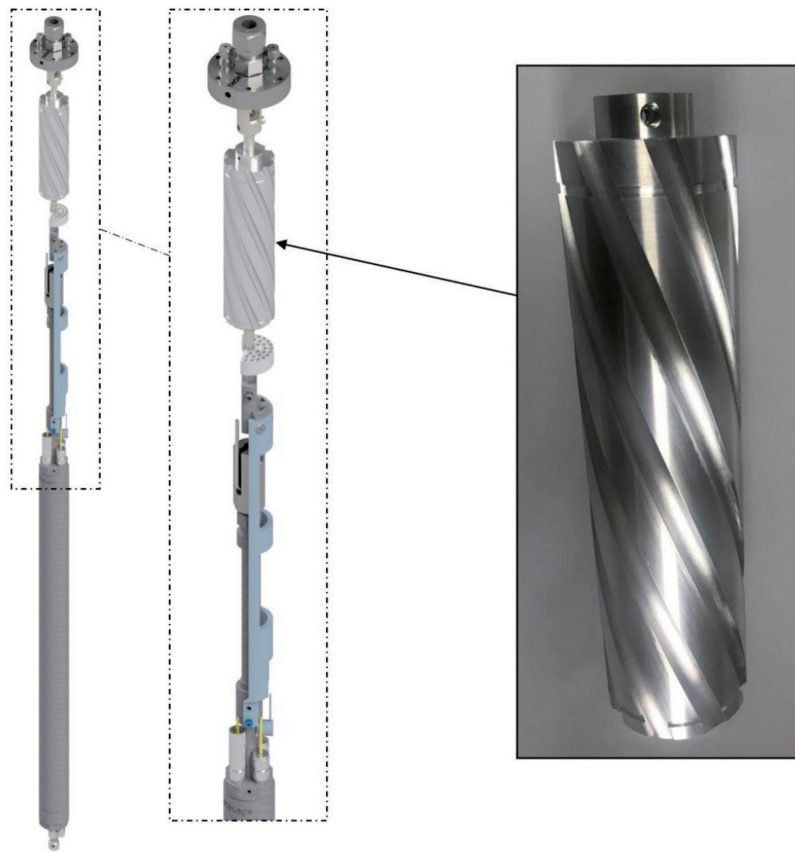


図 3.6-7 タングステンシールド

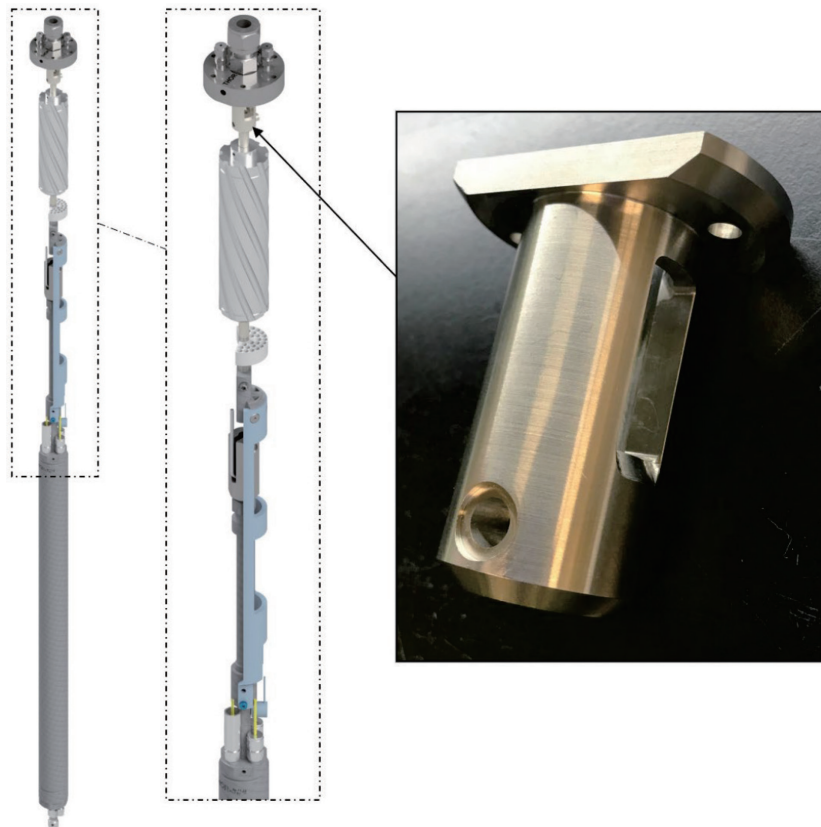


図 3.6-8 フランジリード管

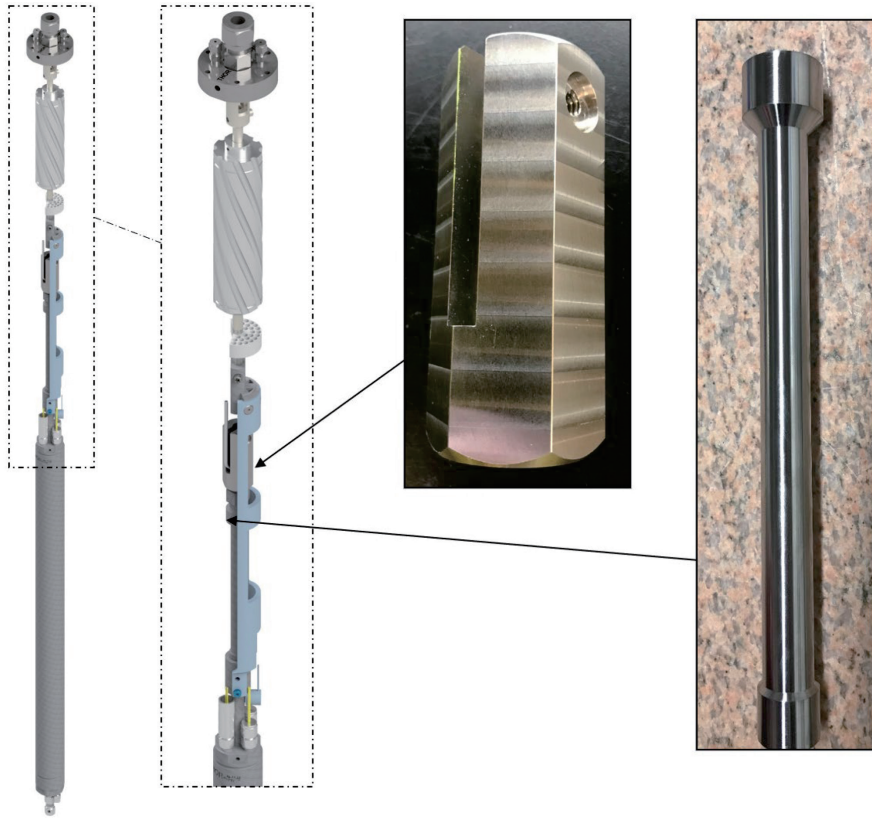


図 3.6-9 延長導入管及び圧着シール管

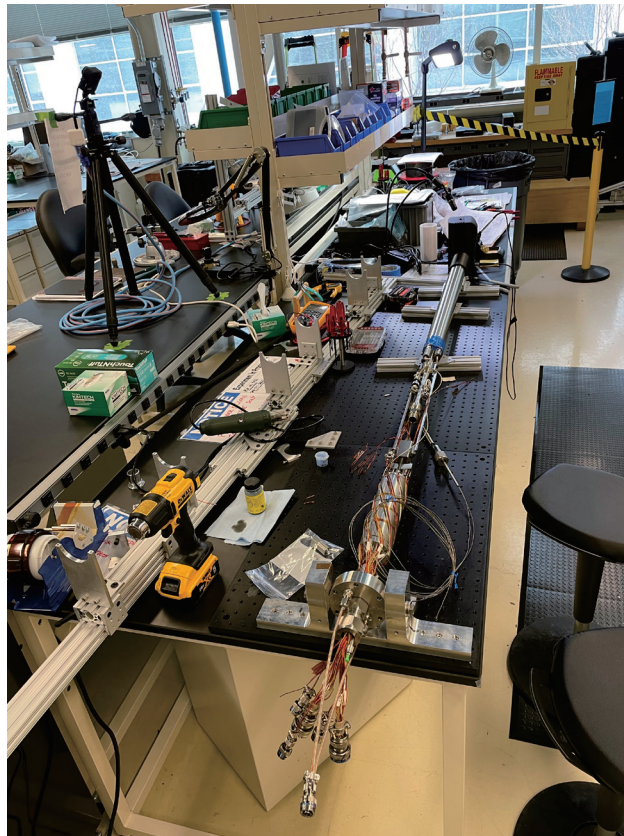


図 3.6-10 THOR キャプセル組立の様子

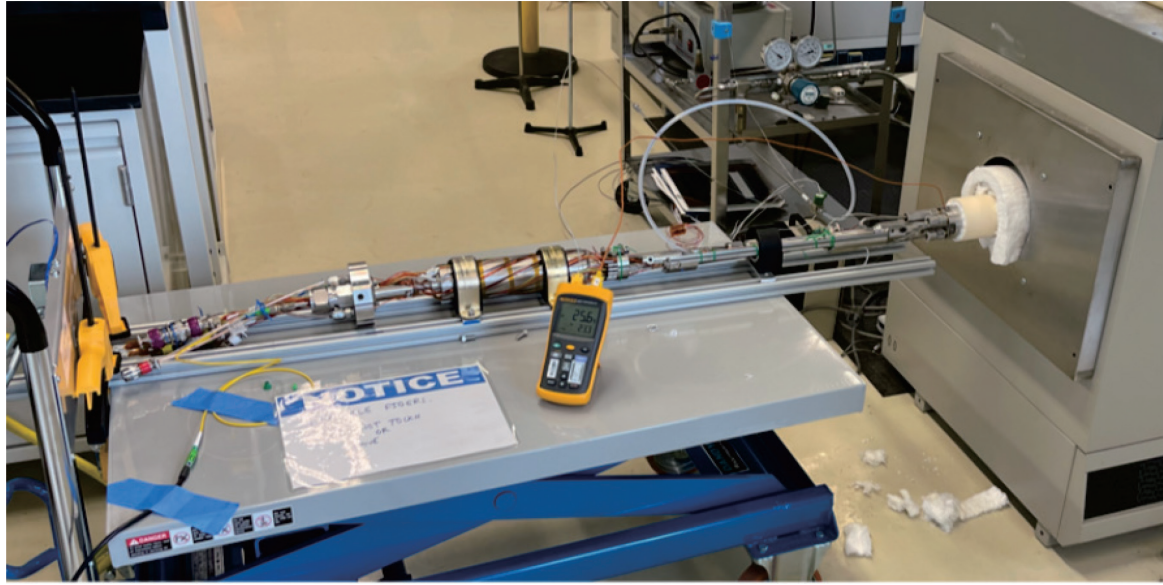


図 3.6-11 THOR キャプセル組立後リーク試験の状況

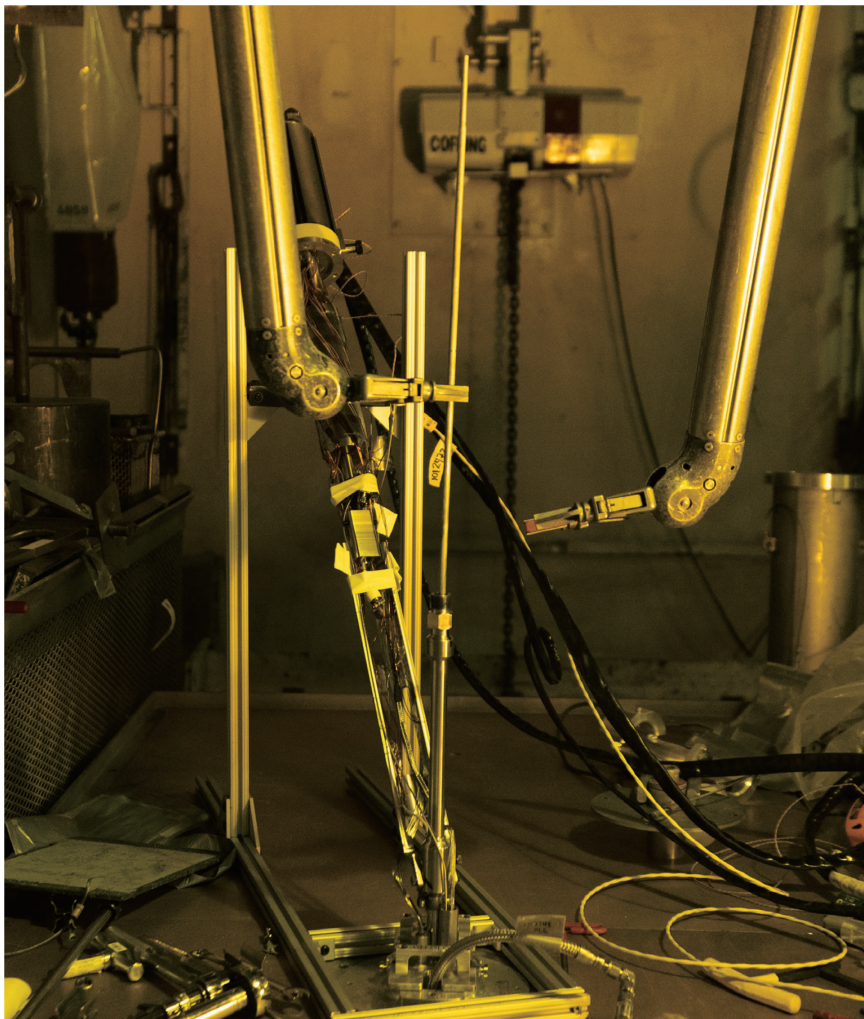


図 3.6-12 THOR キャプセルへの試験燃料ピンの装填

(4) 過渡照射前非破壊試験(立会検査)

試験燃料ピン(UW02009、UW02011)及びシスターピン(UW06024)に対する非破壊試験を実施した。

試験燃料ピン(UW02009、UW02011)の被覆管外観観察の結果を図 3.6-13 に示す。常陽の照射済燃料ピンに比べ、全般的に清浄であるが、過渡照射試験に先立ち、①ワイヤスペーサ接触痕において被覆管減肉を伴う傷の有無、②被覆管表面の擦り傷の深さや大きさの確認、③被覆管腐食の有無、付着物除去の可否の観点で現地確認した結果、過渡照射試験で被覆管の健全性に及ぼすような欠陥のないことを確認した。ガンマースキャン結果(Cs-137)を図 3.6-14 に示す。試験燃料ピン(UW02009、UW02011)及び過渡前破壊試験に供するシスターピン(UW06024)の軸方向 Cs-137 分布はほぼ一致しており、燃料カラム上下端での Cs 蓄積を確認した。この結果は日米協力で実施した同一仕様の UW02010 ピンのガンマースキャン結果と一致するものであった。被覆管外径測定結果を図 3.6-15、図 3.6-16 及び図 3.6-17 に示す。健全性に影響するような特異な被覆管外径増加は認められなかったが、図 3.6-18 に示すようにシスターピン(UW06024)の燃料ピン上方(高温部)において被覆管材である PNC-FMS のクリープ強度低下を反映した被覆管外径増加が確認された。

以上の非破壊試験結果を踏まえ、BBR-II 照射済試験燃料ピンである UW02009 及び UW02011 ピンを TREAT での過渡照射試験に使用しても燃料健全性に支障のないことを確認した。

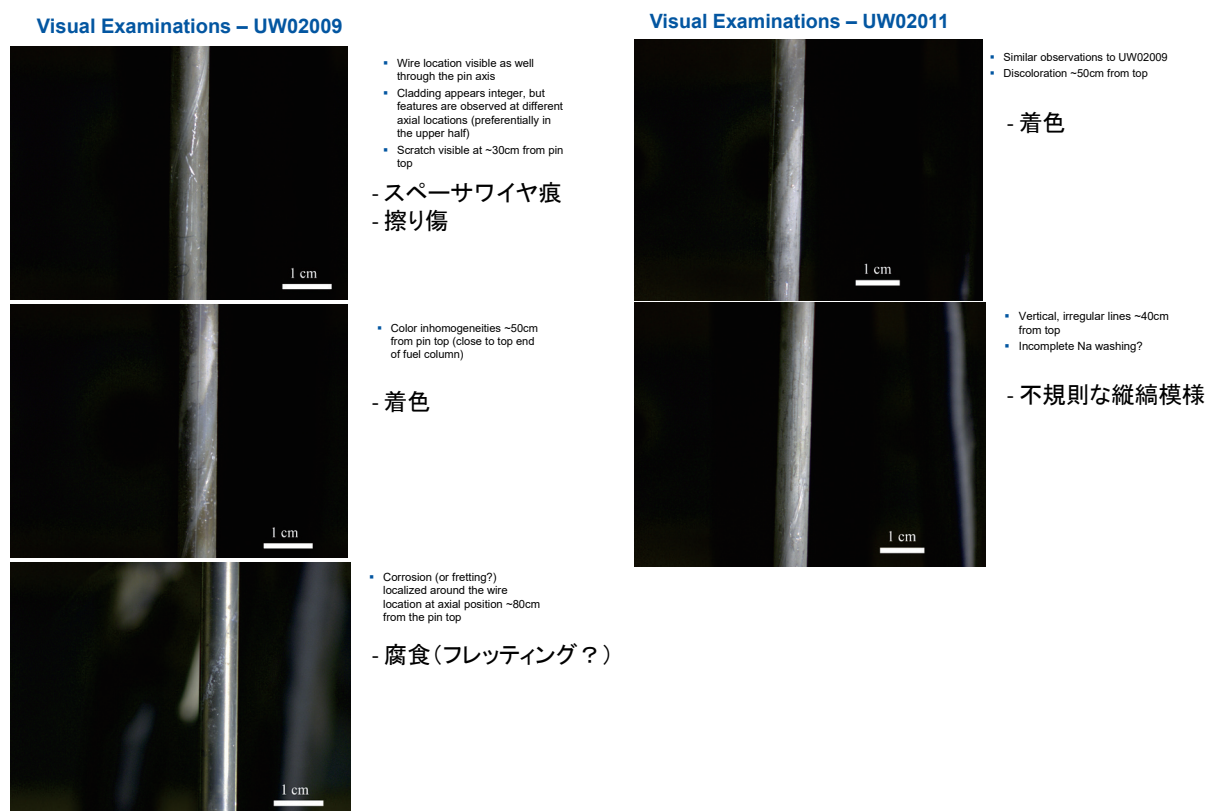


図 3.6-13 試験燃料ピン (UW02009、UW02011) の被覆管外観観察の結果

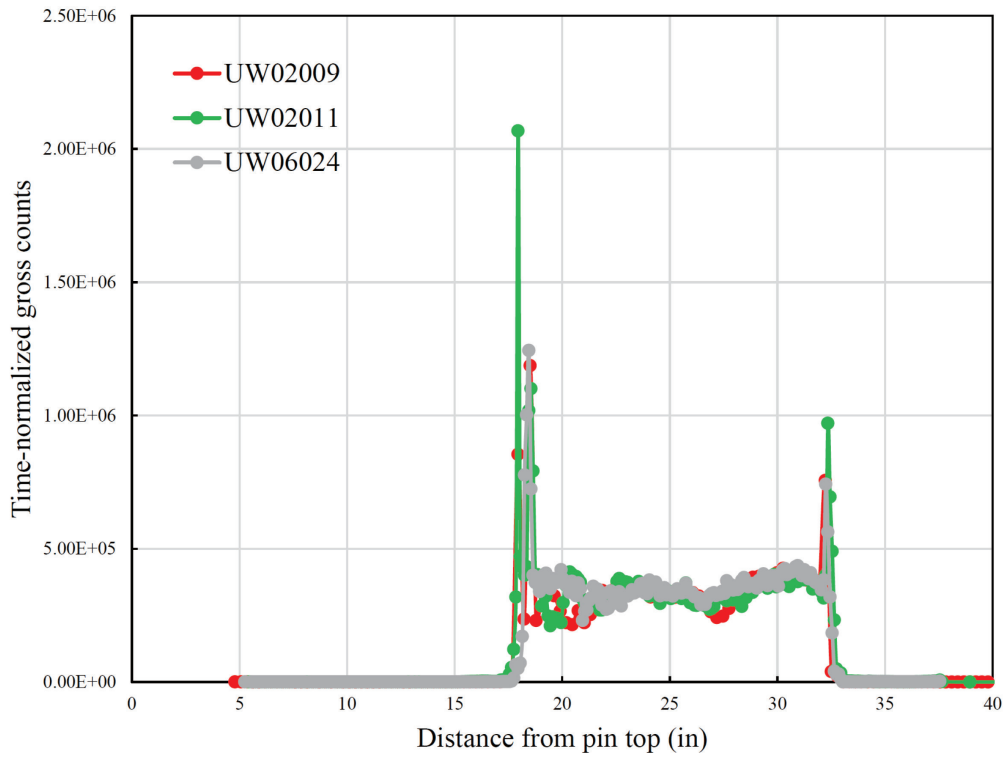


図 3.6-14 ガンマースキャン結果(Cs-137 : 計数時間で規格化)

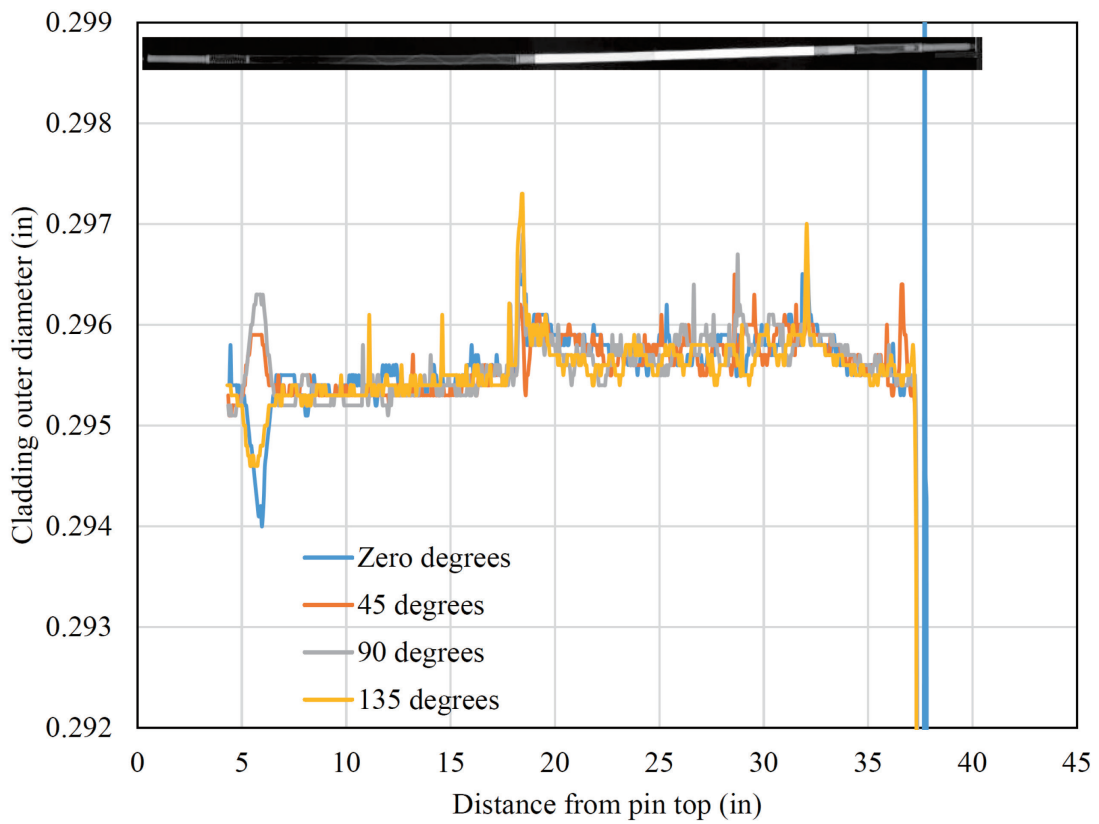


図 3.6-15 試験燃料ピン(UW02009)の被覆管外径測定結果

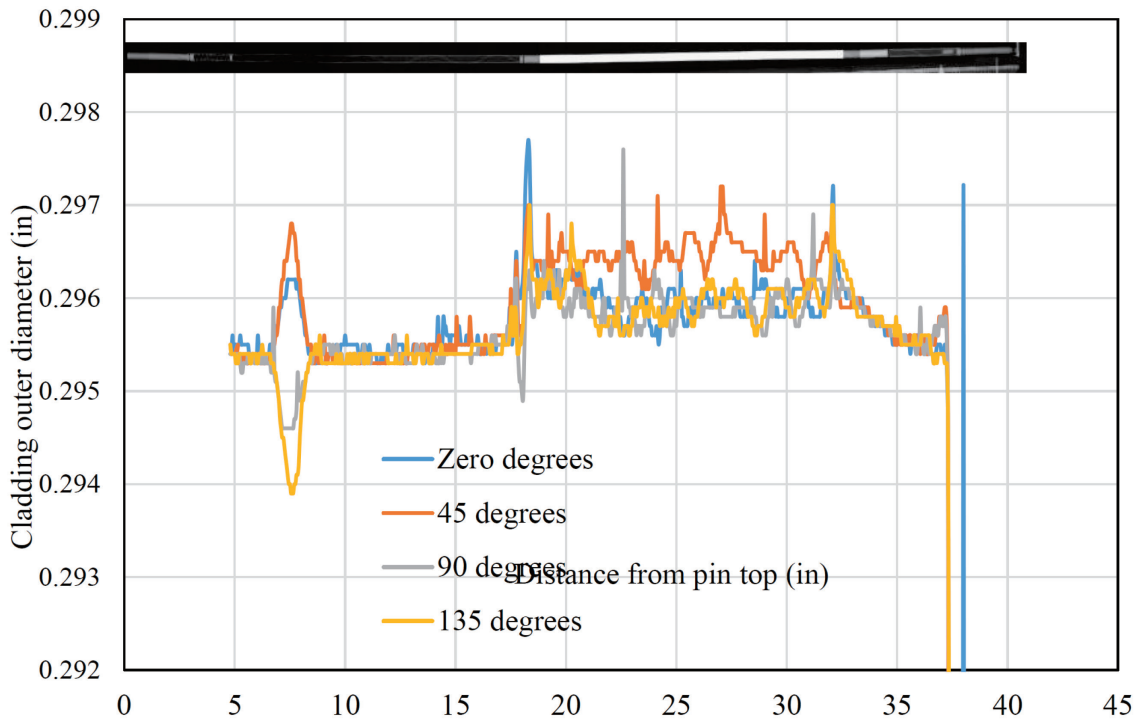


図 3.6-16 試験燃料ピン(UW02011)の被覆管外径測定結果

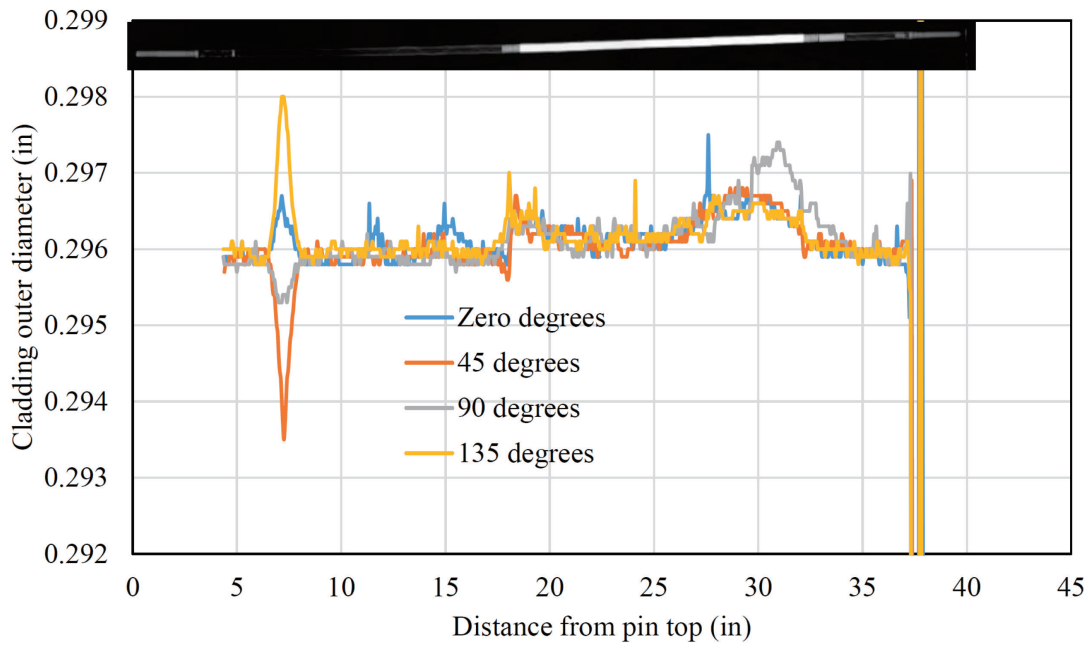


図 3.6-17 シスターピン(UW06024)の被覆管外径測定結果

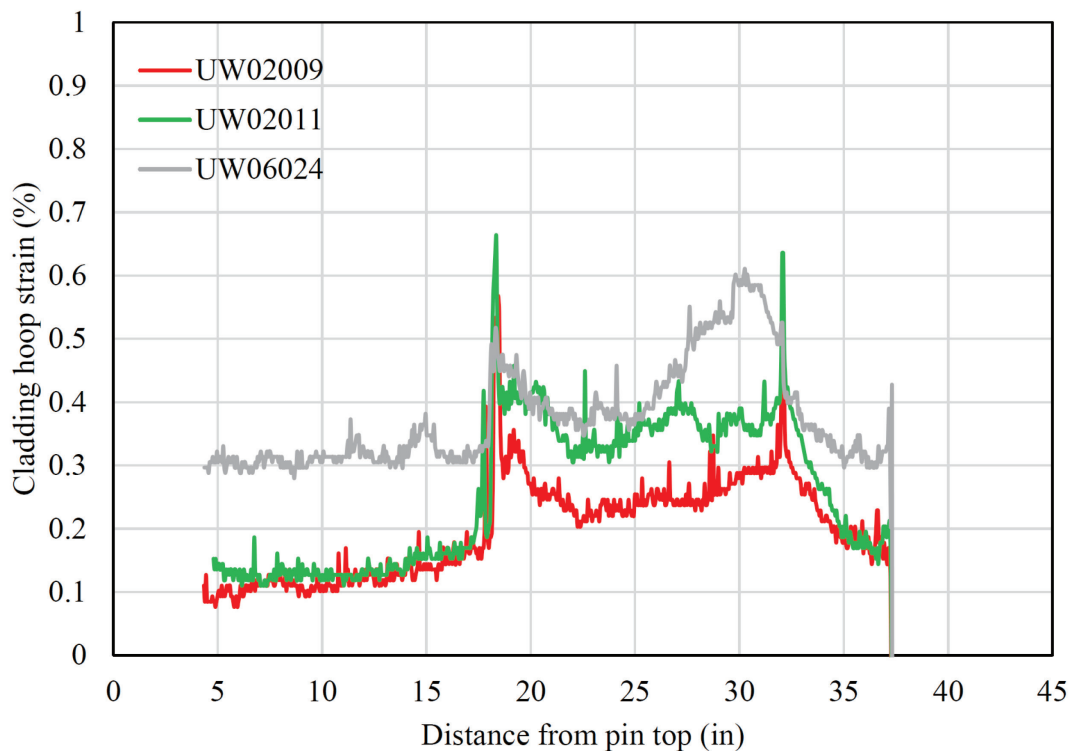


図 3.6-18 試験燃料ピン(UW02009、UW02011)及びシスターピン(UW06024)における被覆管周方向ひずみ計算値の比較

(5) シスターピン(UW06024)の破壊試験

破壊試験片採取位置を図 3.6-19 に示す。燃料カラム中央部から燃焼率測定用試料と横断面金相(EPMA)試料の2試料採取し、燃料カラム上端部から縦断面金相試料を1試料採取した。

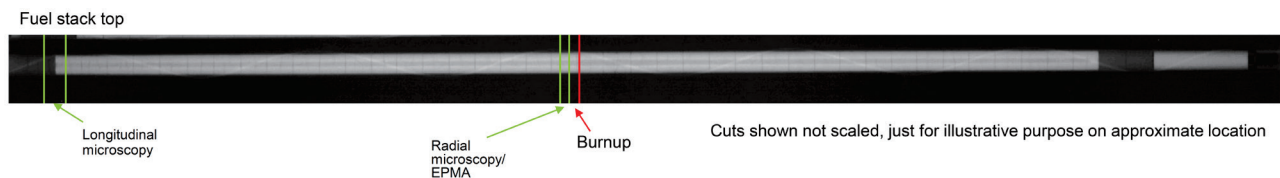


図 3.6-19 シスターピン(UW06024)の破壊試験片採取位置

① FP ガス分析(FP ガス放出率)

シスターピン(UW06024)のレーザーによる穿刺後、平衡最終圧力は 38.89 psia(0.2681 MPa)であった。

燃料ピン内容積は、自動膨張システムを用いて、まず Ne で、次に He で測定した。各充填ガスで 20 サイクル行った。燃料ピンの内部形状が複雑なため、十分にガスが充填される前にシステムが平衡を記録する可能性があった。そのため、手動で追加充填を行った。Ne で 8 サイクル、He でさらに 5 サイクル、平衡化時間を長くして実施した。結果を表 3.6-2 に示す。手動で得られた内容積(5.36 cm³)に基づき、燃料ピン内圧力として 433.680 psia(2.99 MPa)が得られた。

ピン内ガス組成を表 3.6-3 に示す。アルゴンと炭化水素はそれぞれ、セル内 Ar 雰囲気とシールヘッドの O リングの気化による汚染の可能性がある。水素の混入源は今のところ不明であ

る。CO₂ はもともとタグガスとして含まれていたもので、混合ガスに含まれていた理由を説明している。表 3.6-3 に示したガス組成、ピン内圧とピン内容積を用いて、放出された Xe と Kr のモル数を計算し、生成ガス量計算値に基づきガス放出率を求めた。これらの計算には、穿刺中に記録されたシールヘッドの温度(24.53°C)を用い、理想気体の法則を用いた。

タグガスのモル数(Xe:4.28E-05 mol と Kr:1.76E-08 mol の合計)を差し引いた放出ガス量計算値は、5.36 cm³、2.99 MPa の圧力下で 4.38E-03 mol となり、生成ガス量計算値(8.78E-03 mol)の 50%に相当する。この燃焼度での SFR 混合酸化物(MOX)ピンの FP ガス放出率は通常 70%~80%以上と予想されることから、スペーサの穴が部分的に塞がれ、充填ガスが充填されなかったため、燃料ピン内部の自由体積が過小評価された疑いがある。そこで、表 3.6-4 に示すように、図面に記載されている公称寸法、もしくは、X 線写真から得られる寸法に基づき、燃料ピン内容積を推定した。

このように、FP ガス放出率の評価として、測定値そのものに基づく評価、燃料ピン内容積にスペーサ公称体積を加えた内容積に基づく評価、また、製造時の燃料ピン内容積のみに基づく評価が考えられる。

これら 3 種類の燃料ピン内容積に対する仮定に基づいて算出された燃料ピン内圧と FP ガス放出率の比較を表 3.6-5 に示すが、スペーサの体積を加えることで、より良い推定値が得られるものと思われ、シスターピン(UW06024)の FP ガス放出率は 57~58%と評価された。

表 3.6-2 シスターピン(UW06024)の燃料ピン内容積測定結果

Method used	Average pin volume (cm ³)	Standard deviation (cm ³)
Automatic backfill – 20 cycles Ne	3.96	1.03
Automatic backfill – 20 cycles He	3.89	0.77
Manual backfill – 13 cycles mixed gas	5.36	0.04

表 3.6-3 シスターピン(UW06024)内ガス組成

	mol%
Hydrogen	0.33±0.04
3-Helium	<0.001
Helium	30.30±0.6
Tritium	<0.001
Neon	<0.001
Methane	<0.001
Nitrogen	<0.001
Nitric Oxide	<0.001
Ethane	<0.001
Oxygen	Traces
Argon	0.051±0.004
Carbon Dioxide	0.88±0.002

CxHy	0.69±0.01
Krypton (total)	7.7±0.2
Xenon (total)	59.9±0.6
Xe/Kr ratio	7.78

表 3. 6-4 シスターピン(UW06024)の燃料ピン内容積計算結果

Component	Dimensions	Reference
Clad tube internal volume (in³)	1.870882	–
clad tube length (in)	34.23	Drawings
clad ID (in)	0.2638	Drawings
Spring plug volume (in³)	0.006136	Radiography
Total spring volume (in³)	0.008372	–
spring diameter (in)	0.03	Radiography
projected spring length (in)	0.188	Radiography
number of rounds of the spring	63	Radiography
Spacer plugs volume (in³)	0.012517	–
Spacer top plug volume (in ³)	0.006136	Radiography
Spacer bottom plug volume (in ³)	0.006381	Radiography
Spacer body volume (in³)	0.125837	–
length of spacer (in)	13.108	Drawings
spacer wall thickness (in)	0.01	Drawings
spacer OD (in)	0.25	Drawings
Fuel stack volume (in³)	0.626662	Drawings
Depleted pellets volume (in³)	0.072674	Drawings
reflector volume (in³)	0.06365	Drawings
Gas tag volume (in³)	1.04E-02	As-fabricated data
Bottom sleeve plug (in³)	0.008099	Drawings
Sleeve body volume (in³)	0.043354	–
length of sleeve (in)	3	Drawings
sleeve wall thickness (in)	0.02	Drawings
sleeve OD (in)	0.25	Drawings
Spacer plugs volume (in³)	0.012517	–
Spacer top plug volume (in ³)	0.006136	–
Total free internal volume (in ³)	8.93E-01	–
Total free internal volume (cm ³)	14.64	–

表 3. 6-5 シスターピン(UW06024)FP ガス放出率の評価結果

	Pin internal volume (cm ³)	Pin pressure (MPa)	Calculated released gas (mol)	FGR (%)
Using GASR* data	5.36	2.99	4.38E-03	50

Using GASR* data and nominal internal spacer volume	14.08	1.30	5.03E-03	57
Using nominal pin internal volume	14.64	1.26	5.083E-03	58

*GASR : Gas Assay, Sample and Recharge System

② 燃焼率分析

MC-ICP-MS(マルチコレクター誘導結合プラズマ質量分析)によるウランとプルトニウムの同位体組成比を表 3.6-6 及び表 3.6-7 にそれぞれ示す。また、Q-ICP-MS(四重極マスフィルター誘導結合プラズマ質量分析)による MA 及び FP の同位体質量を

表 3.6-8 及び表 3.6-9 に示す。

燃焼率は次式で計算される。

$$Burnup (\%FIMA) = 100 \times \frac{A/Y}{H + A/Y}$$

ここで、 A (atoms/g)は特定核分裂生成物の原子濃度測定値、 Y (atoms/fission)は核分裂生成物 A の実効収率、 H (atoms/g)は残留重原子の数である。

ECAR-5391[1]では、核分裂核種を U-235 と Pu-239 と仮定し、U-235 の核分裂から 71%、Pu-239 の核分裂から 29%として核分裂収率を計算している。この核分裂収率から、燃焼度は La-139、Ce-140、Nd-143 の濃度(表 3.6-9)から(3.6-1)式で計算され、全残留重原子は表 3.6-6 と表 3.6-7 の U と Pu の濃度の合計に、無視できない Am-241 を加えたものと仮定される。Np-237 は濃度が限定的であるため省略する(表 3.6-8)。これらの仮定を用いた、燃焼率の計算結果を表 3.6-10 に示す。

また、ECAR-5391 で使用されたオリジナルのモル質量に基づいて、MC-ICP-MS で測定された U と Pu の同位体濃度から各核種の核分裂割合を推定することができ、その結果を表 3.6-11 に示す。表 3.6-7 の同位体組成比からも、Pu-241 の核分裂への寄与は無視できないと考えられ、Pu-241 の寄与を考慮した核分裂割合を用いて計算した燃焼度を表 3.6-12 に示す。

いずれも過去の日米協力での評価値 13.41 at.%と良く一致する結果であった。

表 3.6-6 MC-ICP-MS によるウラン同位体組成比

Analyte	Result	RSD
234U (wt%)	0.73	±2%
235U (wt%)	60.79	±0.5%
236U (wt%)	2.936	±0.5%
238U (wt%)	35.54	±0.5%
U total (ug/g)	672500	±0.5%

表 3.6-7 MC-ICP-MS によるプルトニウム同位体組成比

Analyte	Result	RSD
238Pu (wt%)	0.103	±2%
239Pu (wt%)	84.24	±0.5%
240Pu (wt%)	15.1	±0.5%
241Pu (wt%)	0.251	±2%
242Pu (wt%)	0.303	±2%
Pu total (ug/g)	207700	±0.5%

表 3.6-8 Q-ICP-MS による MA 同位体質量の分析結果

Analyte	Fuel sample		Cladding sample	
	Result (ug/g)	RSD	Result (ug/g)	RSD
Th-232	70.3	±10%	<0.3	N/A
U-233	<5	N/A	<2	N/A
U-234	4670	±10%	<7	N/A
U-235	389000	±10%	194	±10%
U-236	18900	±10%	11.0	±15%
Np-237	480	±10%	0.297	±15%
U-238	227000	±10%	130	±10%
Pu-239	184000	±10%	74.0	±5%
Pu-240	33200	±10%	13.0	±5%
M/Z-241	3170	±10%	1.55	±10%
M/Z-242	365	±10%	0.175	±5%
M/Z-243	9.00	±15%	<0.007	N/A
M/Z-244	0.121	±20%	<0.002	N/A
M/Z-245	<0.004	N/A	<0.002	N/A
M/Z-246	<0.02	N/A	<0.009	N/A
M/Z-247	<0.004	N/A	<0.002	N/A
M/Z-248	<0.09	N/A	<0.006	N/A

表 3.6-9 Q-ICP-MS による FP 同位体質量の分析結果

Lower fission products			Upper fission products		
Analyte	Result (ug/g)	RSD	Analyte	Result (ug/g)	RSD
Rb-85	144	±10%	M/Z-125	46.1	±10%
Sr-86	1.80	±15%	M/Z-126	549	±10%
M/Z-87	336	±10%	Te-128	248	±10%
Sr-88	1300	±10%	Te-130	903	±10%
Y-89	1770	±10%	Ba-132	<1	N/A
M/Z-90	2520	±10%	Cs-133	1290	±10%
Zr-91	2190	±10%	Ba-134	53.1	±10%
M/Z-92	2380	±10%	M/Z-135	1390	±10%
M/Z-93	2630	±10%	Ba-136	45.9	±5%
M/Z-94	2810	±10%	M/Z-137	2610	±10%
M/Z-95	1750	±10%	M/Z-138	4280	±15%
M/Z-96	2980	±10%	La-139	5180	±10%
Mo-97	1740	±10%	Ce-140	4540	±10%
M/Z-98	1780	±10%	Pr-141	4190	±10%
Tc-99	183	±10%	M/Z-142	4360	±10%
M/Z-100	1970	±10%	Nd-143	3910	±10%
Ru-101	153	±10%	M/Z-144	3550	±10%
M/Z-102	143	±10%	Nd-145	2660	±10%
M/Z-103	125	±10%	Nd-146	2310	±10%
M/Z-104	111	±10%	M/Z-147	1820	±10%
Pd-105	567	±5%	M/Z-148	1460	±10%
M/Z-106	333	±10%	Sm-149	948	±10%
M/Z-107	301	±5%	M/Z-150	750	±15%
M/Z-108	229	±10%	M/Z-151	489	±15%
Ag-109	57.2	±5%	M/Z-152	377	±10%
M/Z-110	122	±5%	Eu-153	215	±10%
Cd-111	92.2	±10%	M/Z-154	157	±10%
Cd-112	131	±15%	-	-	-

表 3.6-10 ECAR-5391 の核分裂割合 (71% U-235/29% Pu-239) を適用した場合

Burnup monitor	Burnup (FIMA%)
La-139	14.74
Ce-140	13.40
Nd-143	13.23
Average	13.79

表 3.6-11 Pu-241 の寄与を含めた核分裂割合の計算結果

Isotope	Initial atomic composition (g/g oxide)	Final atoms (atoms/g oxide)	Fission contribution
U-235	1.14E+21	1.05E+21	0.56
U-238	5.53E+20	6.05E+20	–
Pu-239	4.70E+20	4.41E+20	0.20
Pu-240	6.37E+19	7.87E+19	–
Pu-241	1.78E+19	1.31E+18	0.24

表 3.6-12 MC-ICP-MS データから得られた核分裂収率 (Pu-241 の寄与を含む) を適用した場合

Burnup monitor	Burnup (FIMA%)
La-139	14.44
Ce-140	13.38
Nd-143	13.23
Average	13.68

③ 金相試験

燃料カラム中央部における横断面金相観察結果を図 3.6-20、図 3.6-21 及び表 3.6-13 に示す。これらの結果から、高燃焼度中空燃料において中空径の縮小挙動及びギャップ部での JOG 形成挙動が確認された。図 3.6-22 にギャップ部における JOG 層の詳細観察の結果を示すが、JOG 内に金属析出物が確認され、Pd の蓄積か被覆管成分のどちらかと思われる。

また、燃料カラム上端部における縦断面金相観察結果を図 3.6-23 に示す。この部位は図 3.6-14 に示したガンマースキャン結果で Cs-137 の蓄積が示された箇所に対応し、広範囲にわたる被覆管内面腐食層が観察された。

表 3.6-13 シスターピン (UW06024) の燃料カラム中央部における組織変化領域径

	As-fabricated nominal value (cm)	Measured from ceramography images (cm)
Pellet inner diameter	0.218	0.198
Pellet outer diameter	0.655	0.653
Columnar grains region diameter	N/A	0.463
Equiaxed grains region diameter	N/A	0.560

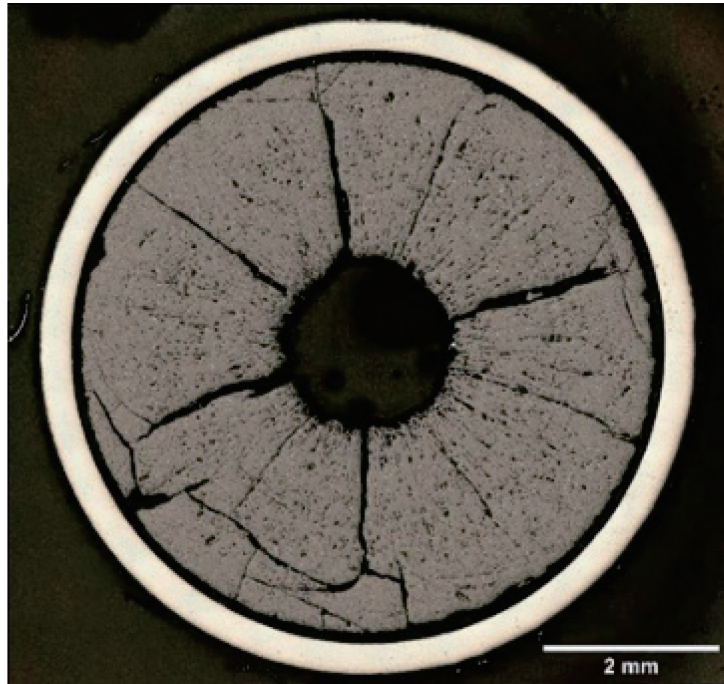


図 3.6-20 シスターピン(UW06024)の燃料カラム中央部における横断面金相

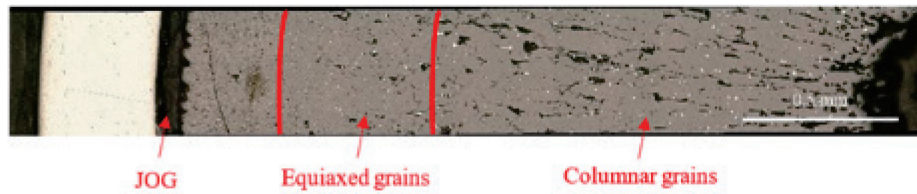


図 3.6-21 シスターピン(UW06024)の燃料カラム中央部における径方向組織変化観察結果

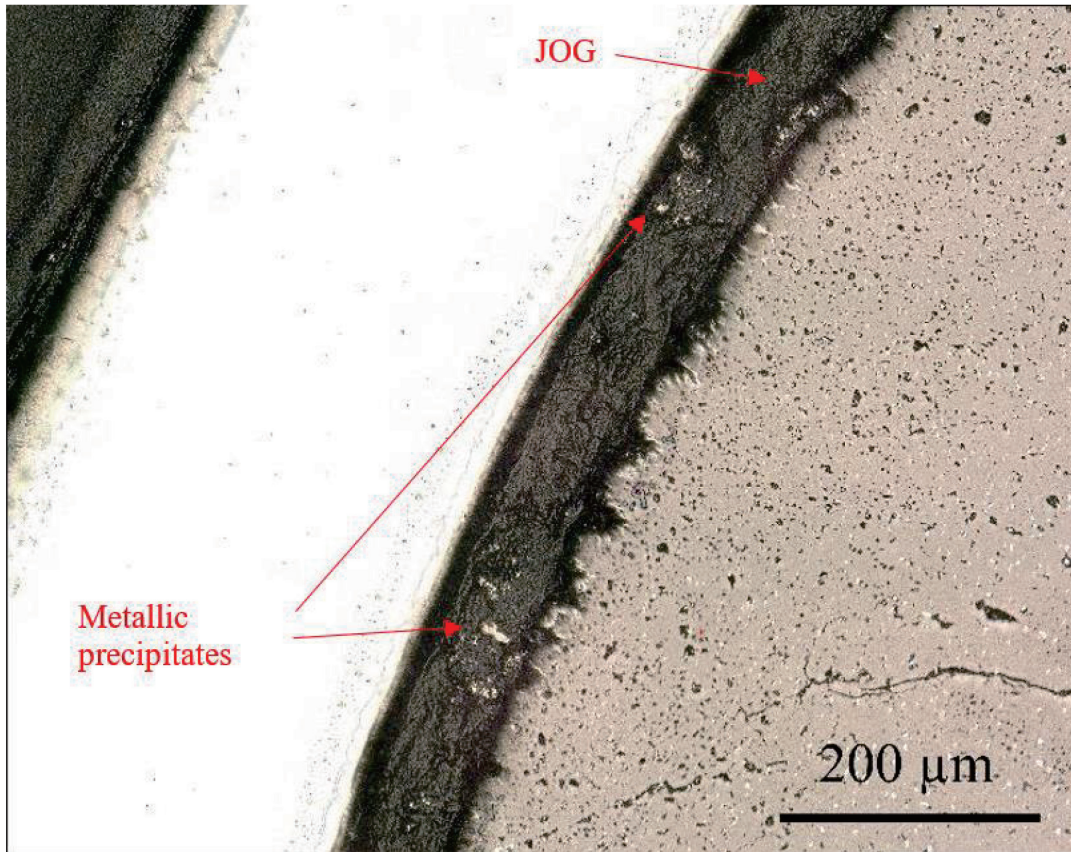


図 3.6-22 ギャップ部 JOG 層の詳細観察

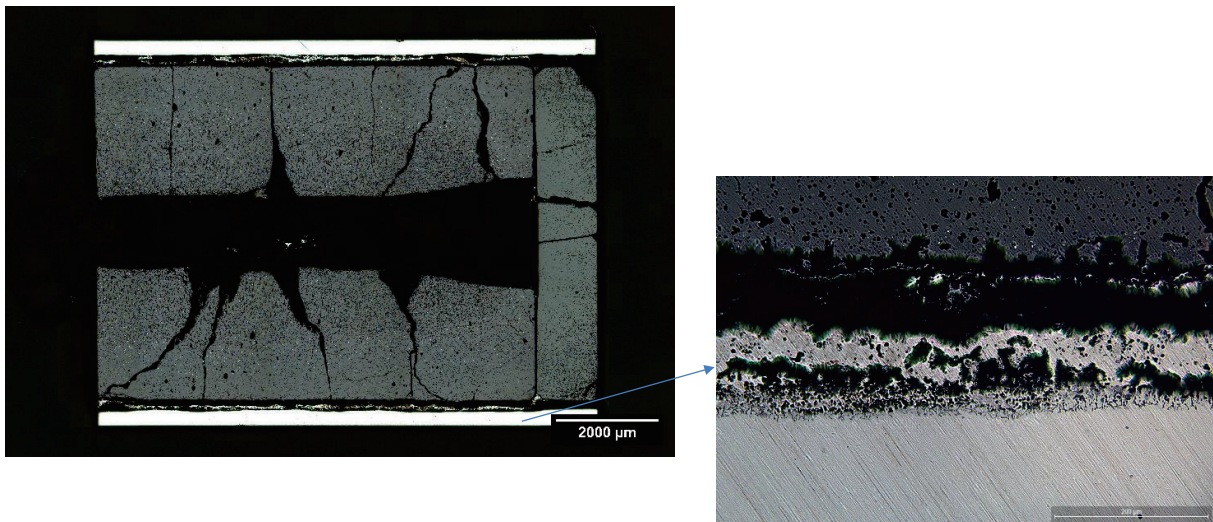


図 3.6-23 シスターピン(UW06024)の燃料カラム上端部における縦断面金相観察結果

④ EPMA

EPMA 分析の位置を図 3.6-24 に示す。黄色の線は半径方向の定量分析位置を示し、赤色の四角形は X 線マッピング位置を示す。EPMA による (a) ウランと (b) プルトニウムの径方向濃度分布

及び(c)ウランとプルトニウムの製造時平均濃度に対する相対濃度分布を図 3.6-25 に示す。また、図 3.6-26 に EPMA によるアメリシウムの径方向濃度分布を示す。プルトニウムは、固体と蒸気の再分布により中心に向かって濃縮する典型的な傾向を示し、ウランの場合はその逆である。アメリシウムの径方向濃度分布にはプルトニウムと同様の傾向がみられた。

高燃焼度の高速炉 MOX 燃料では、柱状晶領域の外周部に灰色相(Ba と Zr で表される)の形成がみられるが、図 3.6-27 に示す半径方向マップにおいても灰色相の形成が確認された。ギャップへの Ba の蓄積は Cs-137 の崩壊によるものであるものと考えられる。

ギャップ部の FCCI 層領域への FP 蓄積や被覆管腐食層の成分分析のため、走査型電子顕微鏡像と定量分析マップを図 3.6-28 に示す。この結果、Mo、Cs、O が多く存在する JOG が確認され、偏析しているものの Te も確認できた。I は JOG 内に局所的に存在する程度であった。高燃焼度にもかかわらず、腐食性核分裂生成物 (Cs、Te、I) の被覆管への深い侵入がみられないことから、被覆管腐食は限定的であった。また、FP である Cs と Mo((f)と(g))は燃料ペレットの外周部で濃度が高く、一方で、被覆管材料成分である Cr と Fe((d)と(e))は燃料ペレットの外周部まで移行しているのがわかる。酸素については(j)の左図では被覆管内に浸透していないが、(j)の右図では被覆管内に酸素が分布しており、被覆管脆化の進行が確認された。

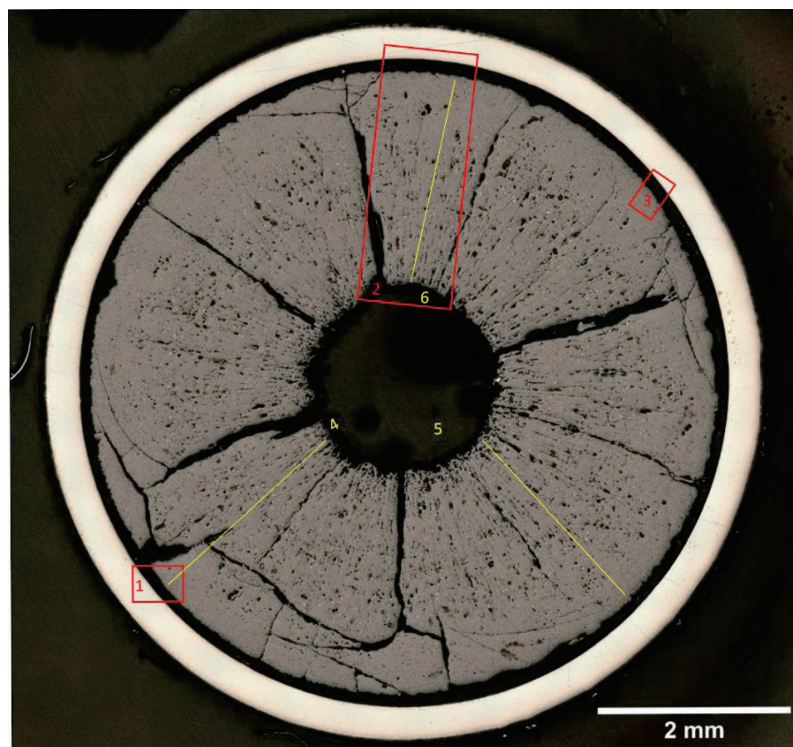
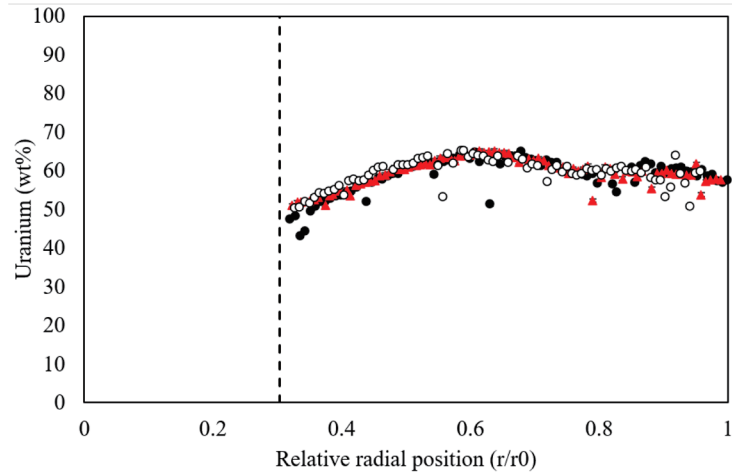
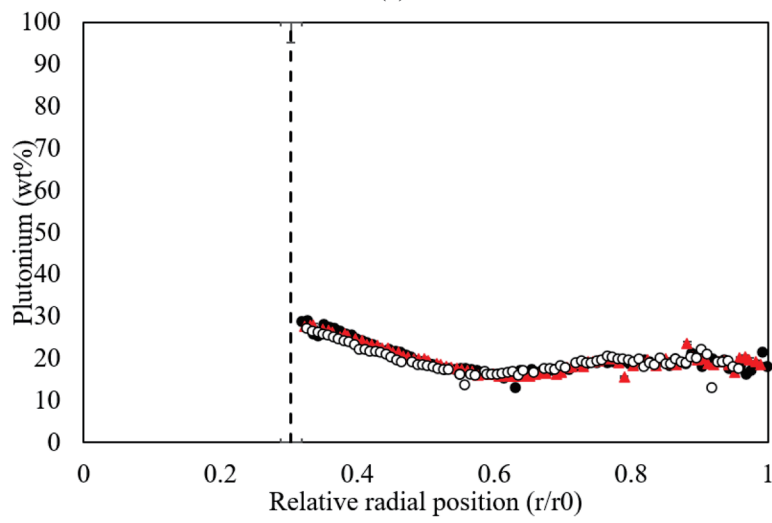


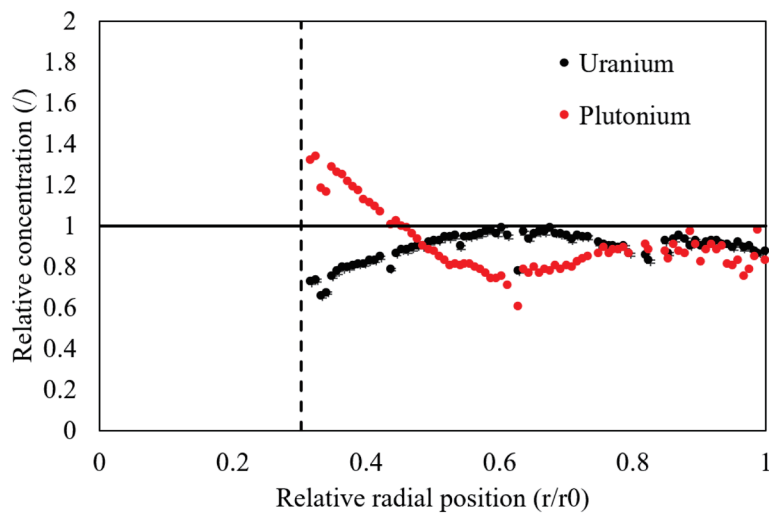
図 3.6-24 EPMA 定量分析部 (黄色線上) 及び X 線マッピング位置 (赤枠部)



(a)



(b)



(c)

図 3.6-25 EPMA による (a)ウランと (b)プルトニウムの径方向濃度分布及び(c)ウランとプルトニウムの製造時平均濃度に対する相対濃度分布

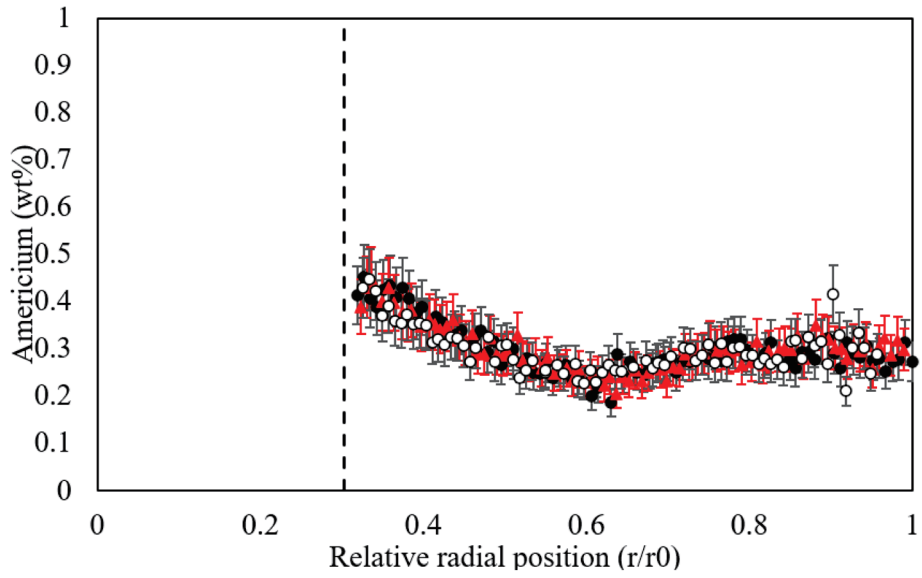


図 3.6-26 EPMA によるアメリシウム の径方向濃度分布

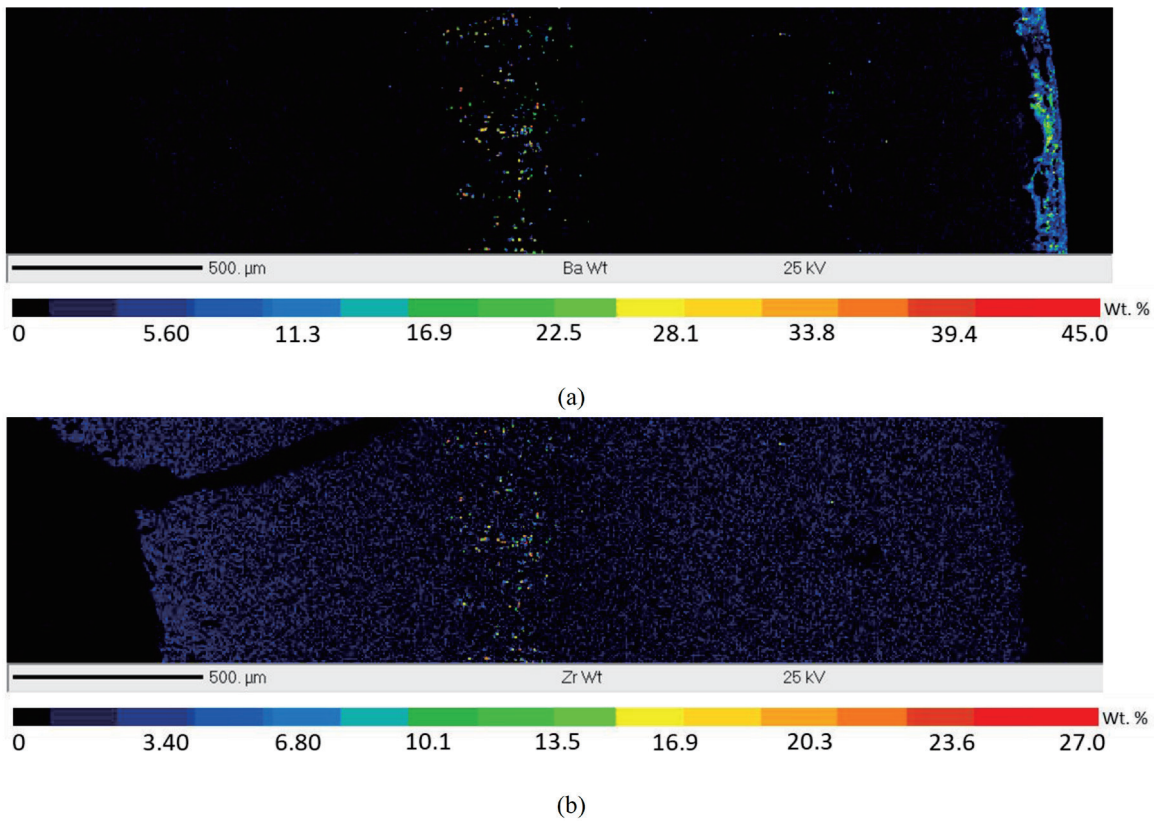
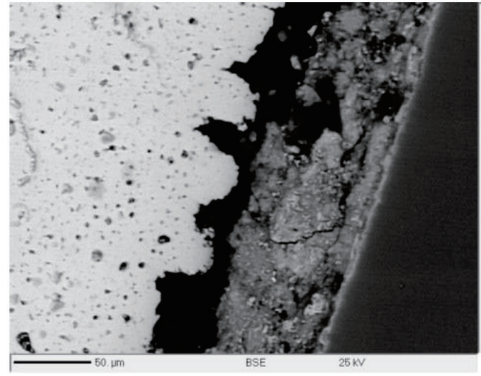
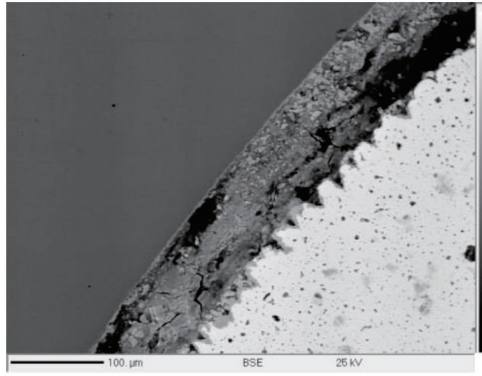
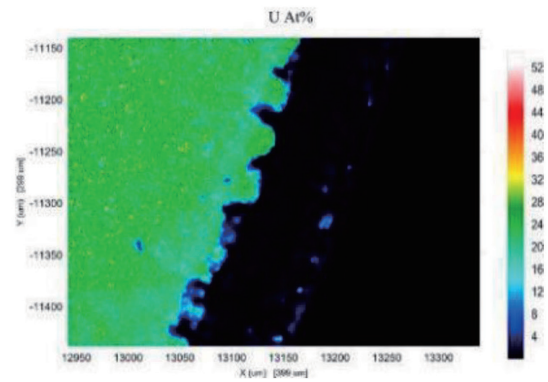
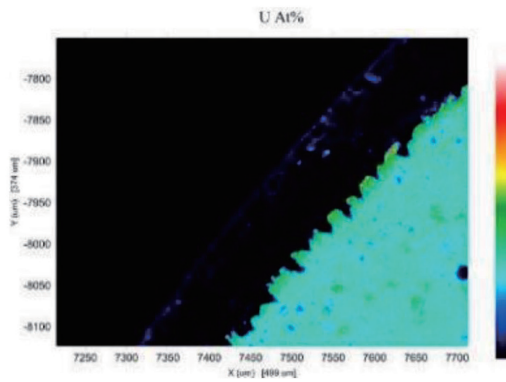


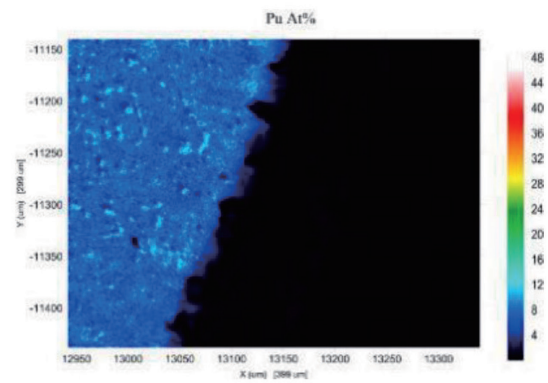
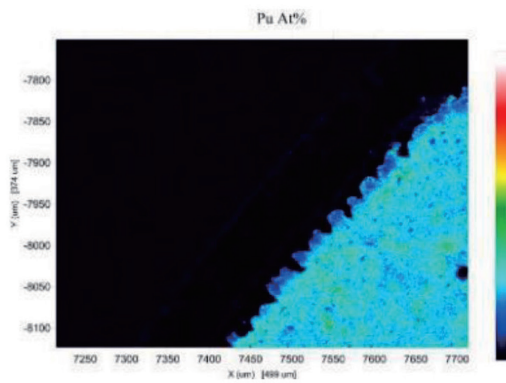
図 3.6-27 (a)Ba と (b)Zr の径方向定量分析マップ



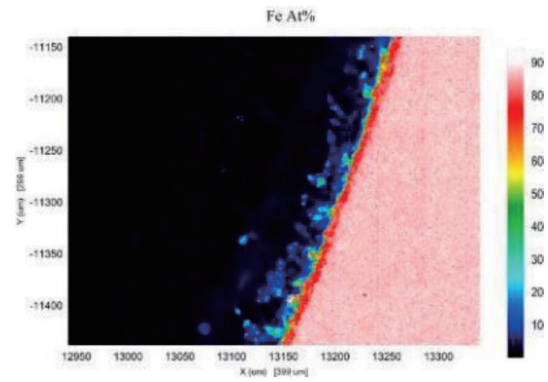
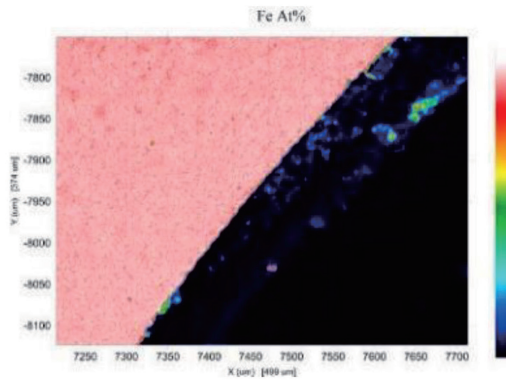
(a)



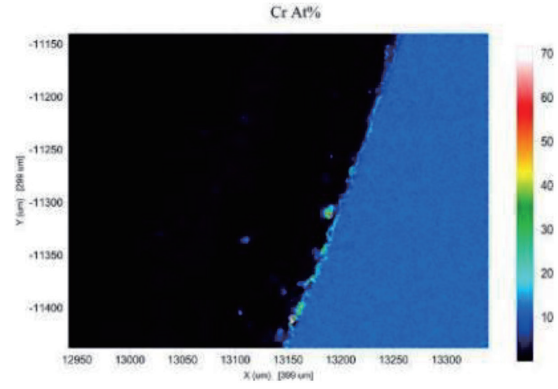
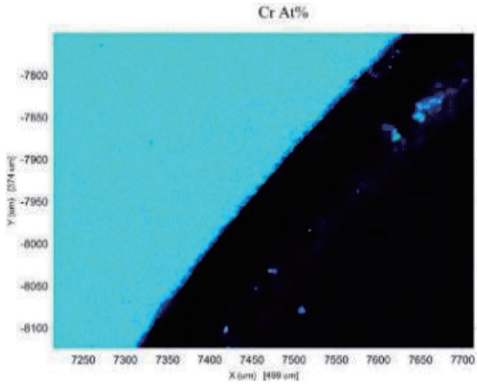
(b)



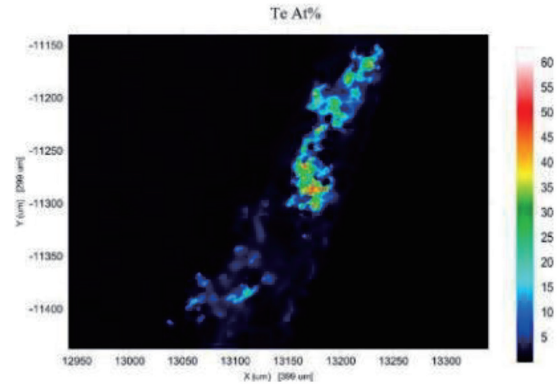
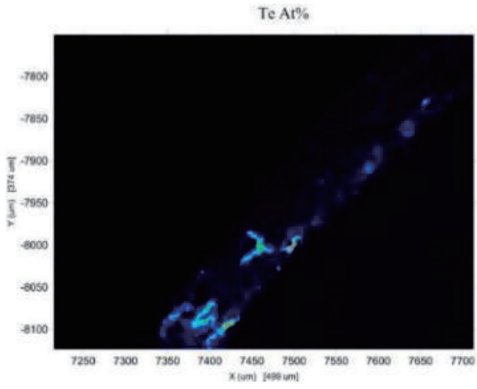
(c)



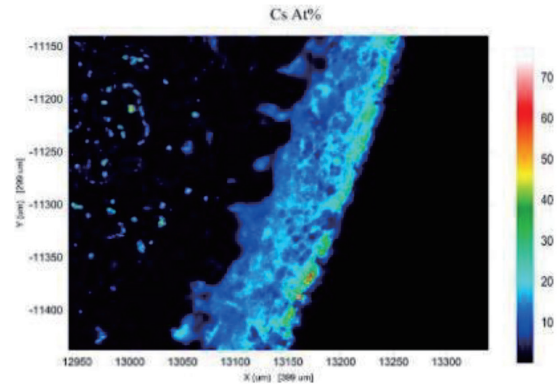
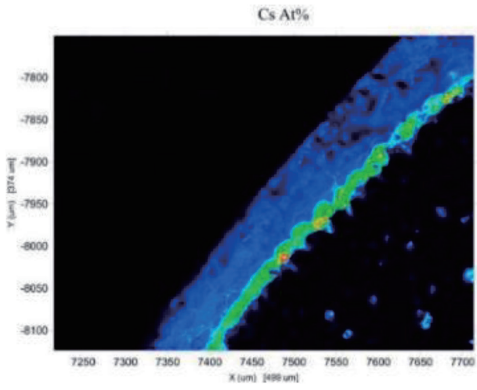
(d)



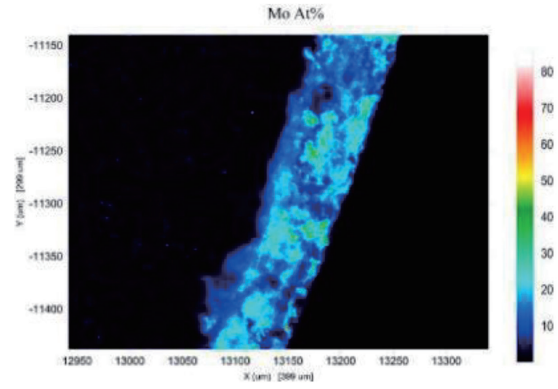
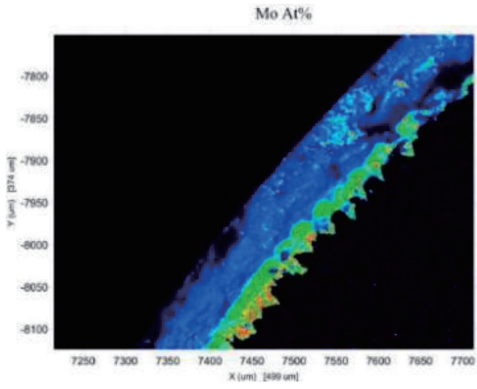
(e)



(f)



(g)



(h)

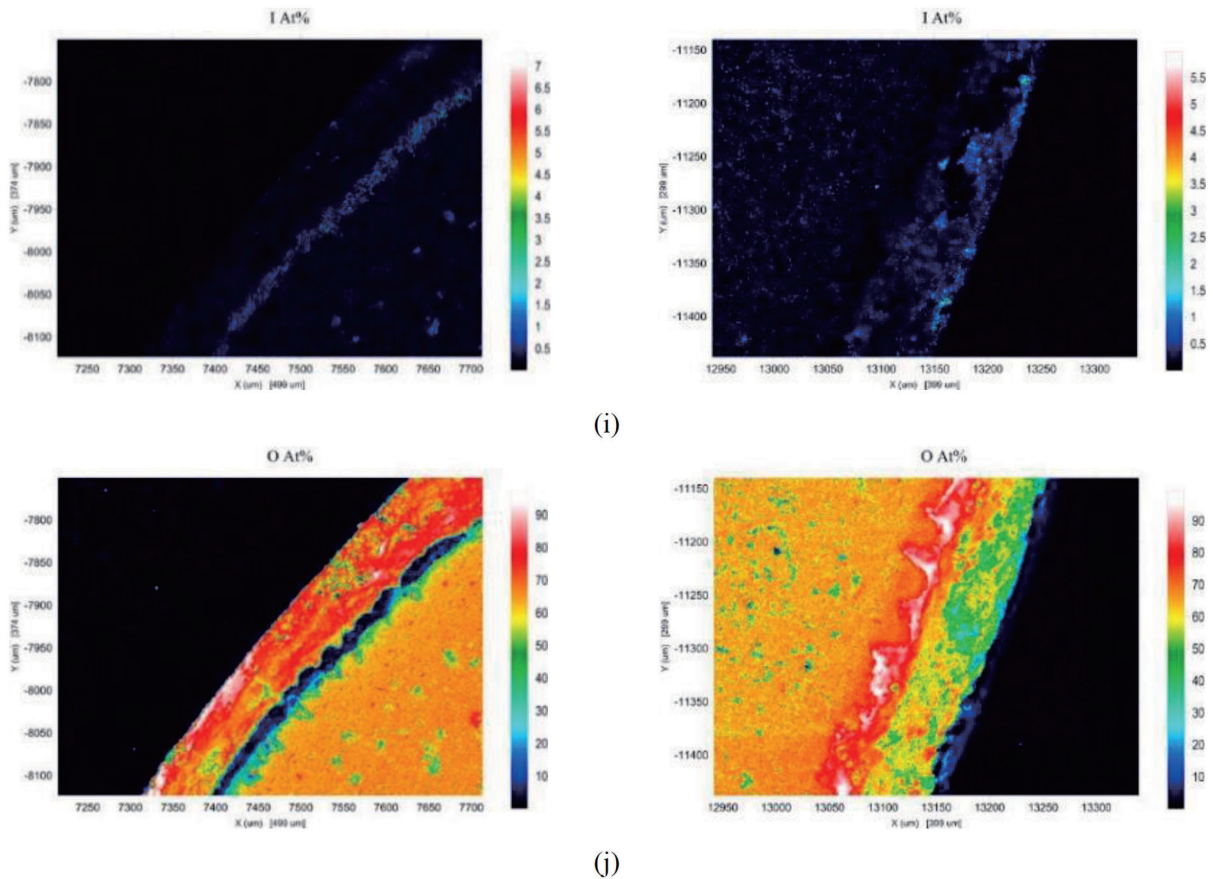


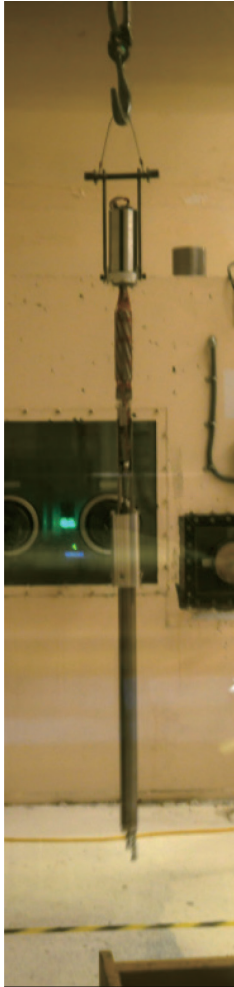
図 3.6-28 (a)FCCI 層領域 2 箇所 の走査型電子顕微鏡像(BSE)、(b)ウラン(U)、(c)プルトニウム(Pu)、(d)鉄(Fe)、(e)クロム(Cr)、(f)テルル(Te)、(g)セシウム(Cs)、(h)モリブデン(Mo)、(i)ヨウ素(I)及び(j)酸素(O)のマッピング分析画像

(6) TREAT への搬出・輸送

図 3.6-29 に TREAT に装荷された過渡照射試験用 THOR キャプセルと搬出の様子を示す。

コールドで組み立てた THOR キャプセルを HFEF の Ar 雰囲気ホットセル内に搬入し、ヒートシンク内へのナトリウム充填後、EBR-II 照射済試験燃料ピンの UW02009 及び UW02011 をそれぞれヒートシンク内に装填し、圧着シールにて密封した。

HEFE と TREAT の往復に使用する専用の輸送容器は唯一であるため、ホットセル内での THOR キャプセルの組立は試験燃料ピン毎に行い、TREAT での過渡照射試験の都度、輸送する計画で進めた。



過渡試験用
THOR カプセル



ホット試験施設 (HFEF) から TREAT への搬出

図 3.6-29 過渡照射試験用 THOR カプセルと搬出の様子

(7) 過渡試験(低出力)データ評価

① 出力履歴

TREAT 試験での中性子特性評価には、温度や幾何学形状を考慮したモンテカルロコードを用いた。

MOXTOP-1A は、ヒートシンク内で試験燃料ピンを取り囲むナトリウムが存在しない状態で照射されたため、試験燃料-原子炉出力結合係数(PCF)は、この条件を考慮して計算した(任意の軸方向節点におけるすべてのばらつきの平均値との差は5%未満)。

MOXTOP-1A 過渡照射試験における試験燃料ピンの軸方向及び径方向出力分布をそれぞれ図 3.6-30 及び図 3.6-31 に示す。径方向の変動は各軸方向位置間で小さいため、各半径位置の全軸方向データの平均値としとして評価した径方向の出力分布で単純化されるものと仮定した。

MOXTOP-1A の過渡照射は TREAT 過渡#3135 として実施した。MOXTOP-1A の TREAT 原子炉出力履歴は、試験時の熱収支に基づき校正した 3 つの線形出力チャンネルで測定した。3 チャンネル平均出力を図 3.6-32 に示す。また、線出力履歴を図 3.6-33 に示す。

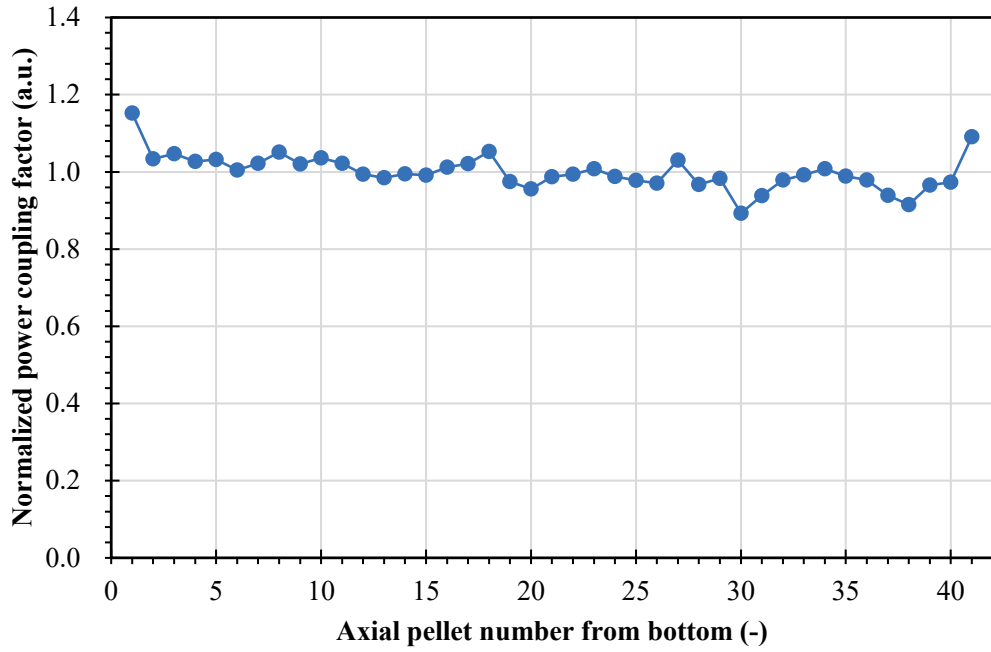


図 3.6-30 平均出力 (4.49W/g-MW) で規格化した PCF の軸方向分布

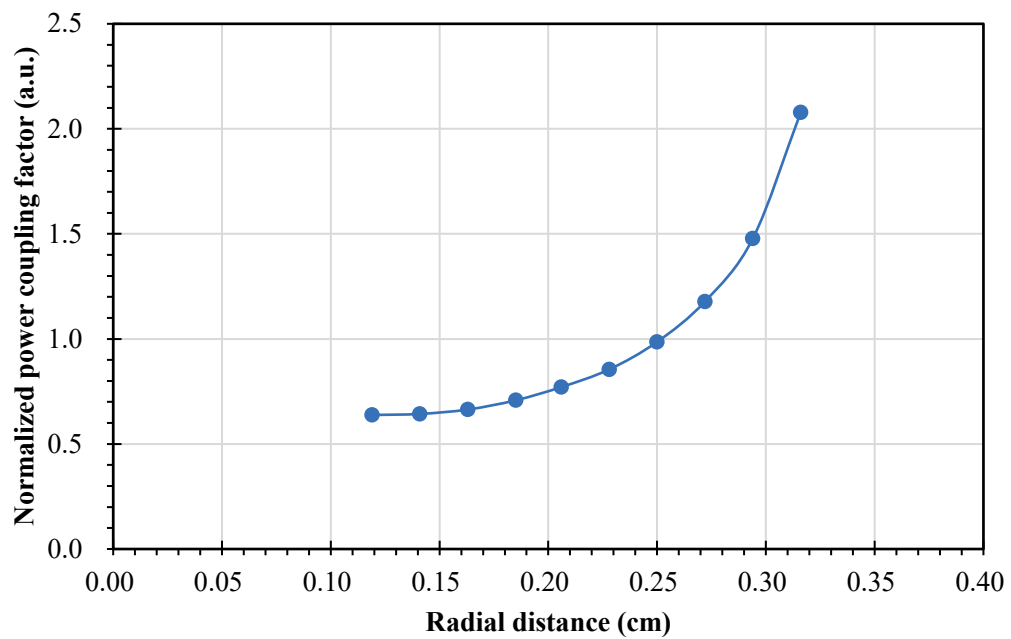


図 3.6-31 平均出力 (4.49W/g-MW) で規格化した PCF の径方向分布

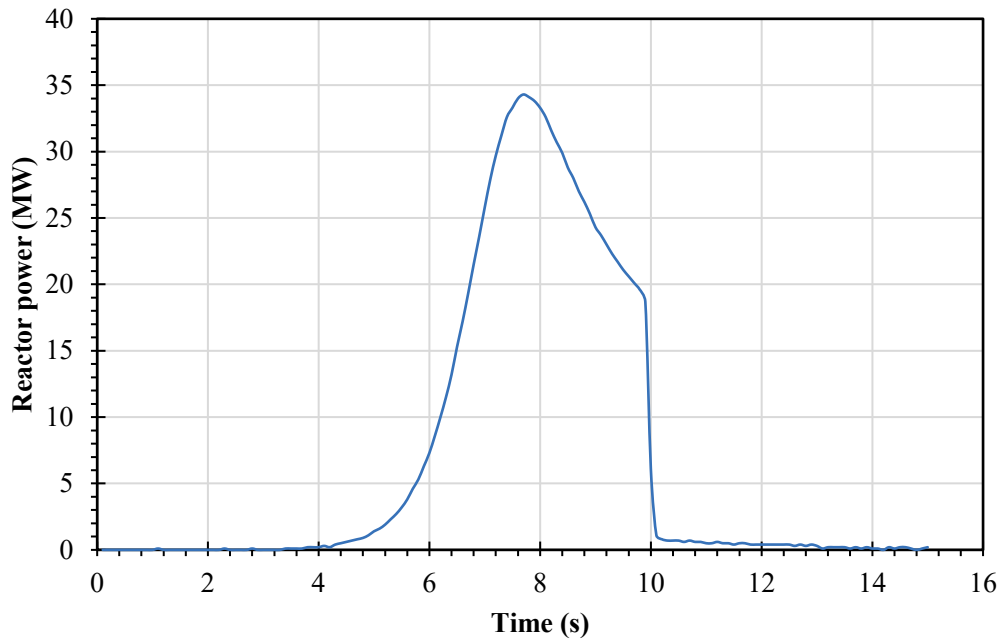


図 3.6-32 MOXTOP-1A の原子炉出力履歴

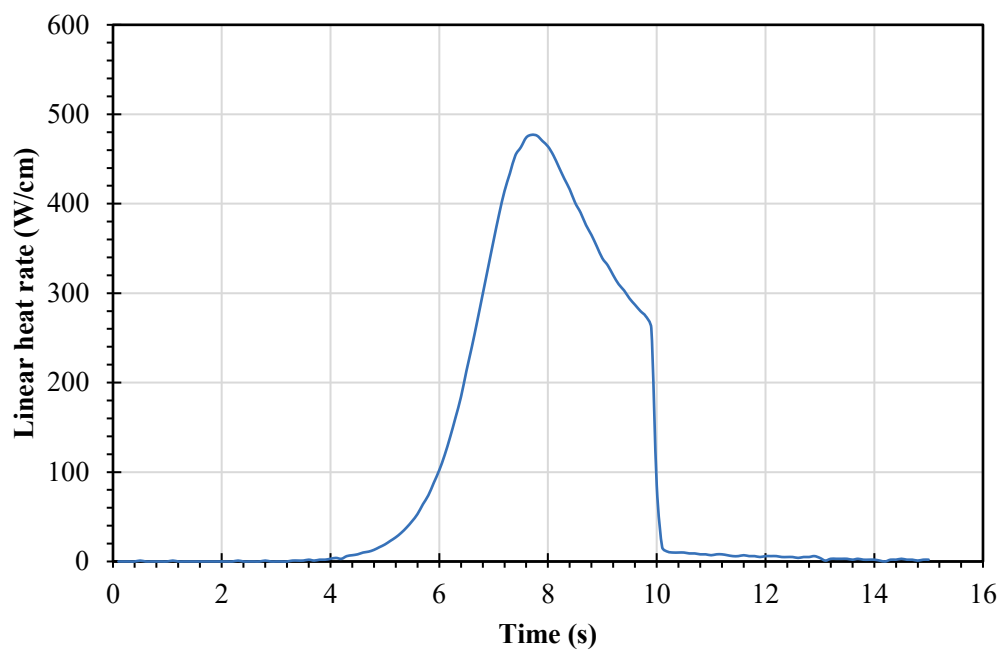


図 3.6-33 MOXTOP-1A の線出力履歴

② 温度履歴

MOXTOP-1A の熱電対による温度計装値と原子炉出力履歴を図 3.6-34 に示す。ヒートシンク内部に配置した熱電対の温度計装値は試験燃料ピンの出力上昇とともに上昇し始めたが、ヒートシンク内温度は十分に上昇しきれず、時間経過とともに緩やかに上昇する結果となった。これ

は、後述するように、ヒートシンクと試験燃料ピンの間に存在するナトリウムが失われたためと推測される。(なお、先行して実施した金属燃料を用いた THOR-C 試験では問題なかったが、MOXTOP-2 のキャプセル組立の際の予熱時に 3 分割ヒートシンク接合部からのナトリウム漏れが発生した。MOXTOP-1 ではヒートシンク接合部に改良が施され、キャプセル組立時には問題なかったが、低出力パルス試験では同様の事象が発生した可能性がある。ヒートシンク材質が THOR-C では Ti なのに対して、MOXTOP 用は Fe であることに起因しているのかもしれない。)

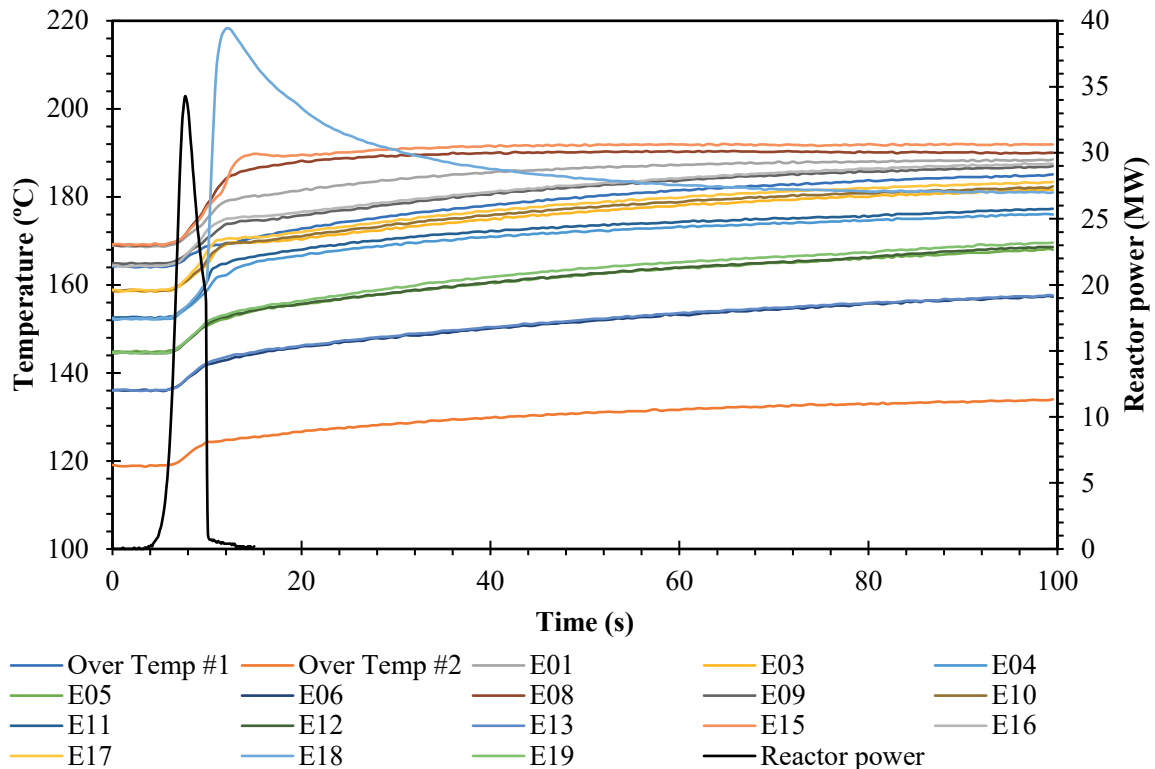


図 3.6-34 MOXTOP-1A の熱電対による温度計装値と原子炉出力履歴

③ 試験燃料ピン温度評価

MOXTOP-1A における被覆管外表面温度の軸方向分布と被覆管外表面最高温度の履歴をそれぞれ図 3.6-35 及び図 3.6-36 に示す。被覆管外表面温度は 9.6 秒後には 1,000°C を超え、約 10 秒後に最高温度に達した。被覆管外表面最高温度は約 1,150°C に達し、約 5 秒間 1,000°C 以上を経験したものと評価された。

熱電対位置における温度履歴の解析結果と計装値の比較を図 3.6-37 に示す。ここでは、ヒートシンクの熱応答をより良くするため、ガスギャップ幅を狭くした場合での温度解析結果と熱電対計装値の比較を示している。E3 と E5 の位置では熱電対の温度計装値と Na なしの条件での解析温度はよく一致し、E8 と E13 の位置では温度計装値と傾向はよく一致しているが、最終的な温度は、ずれた結果となった。E18 の位置では、Na が存在する場合の温度変化の傾向を示しているが、温度計装値に時間遅れがあるため、試験燃料ピンがヒートシンク内壁に接触していた可能性も考えられる。

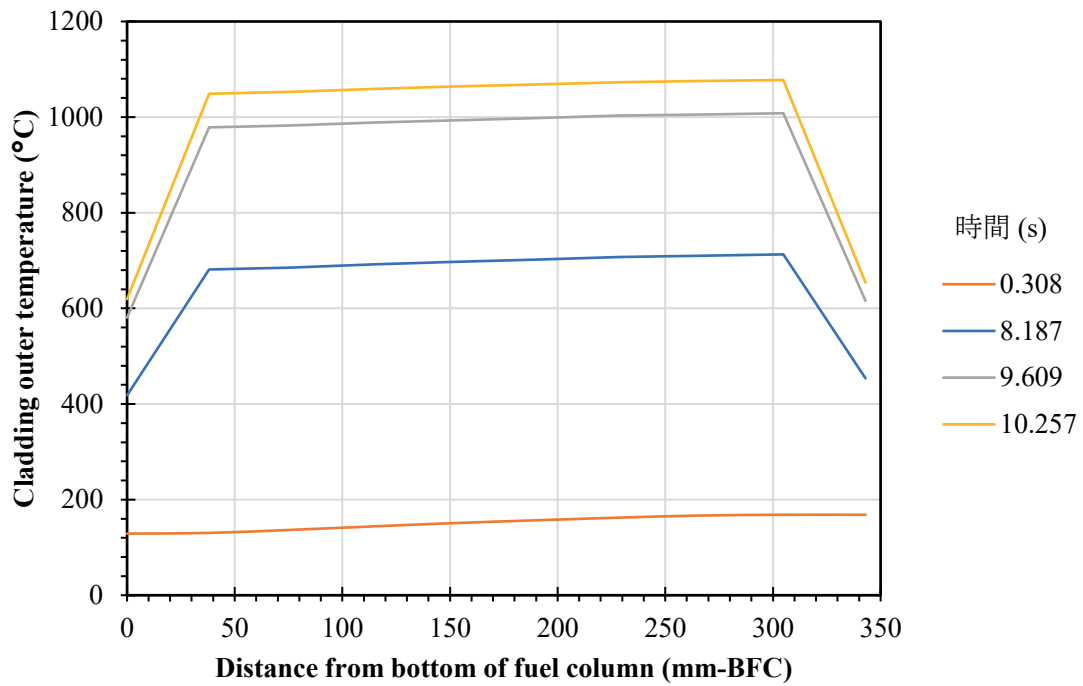


図 3.6-35 被覆管外表面温度の軸方向分布

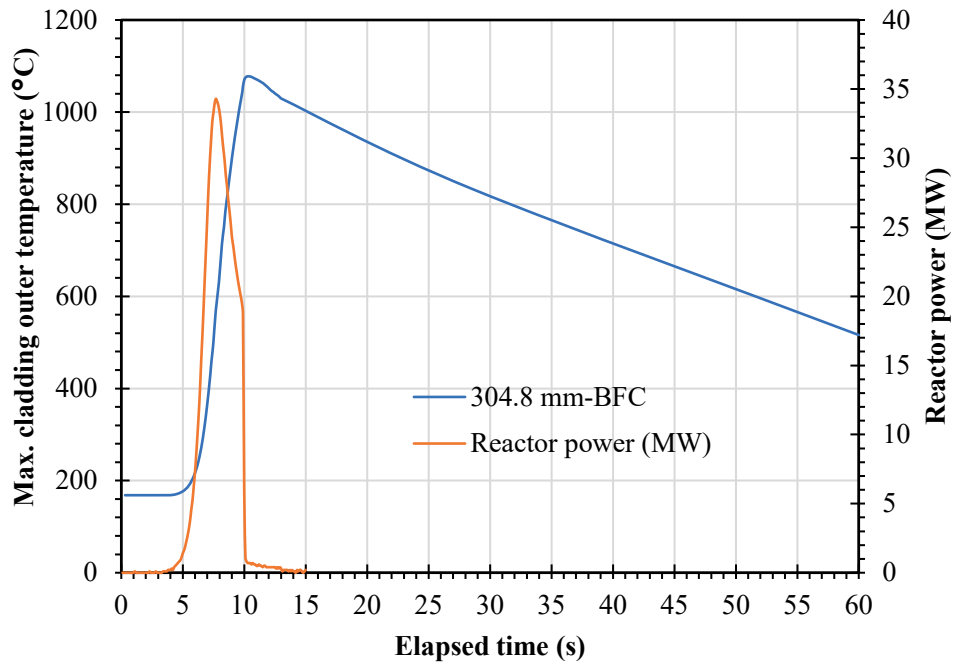


図 3.6-36 被覆管外表面最高温度履歴

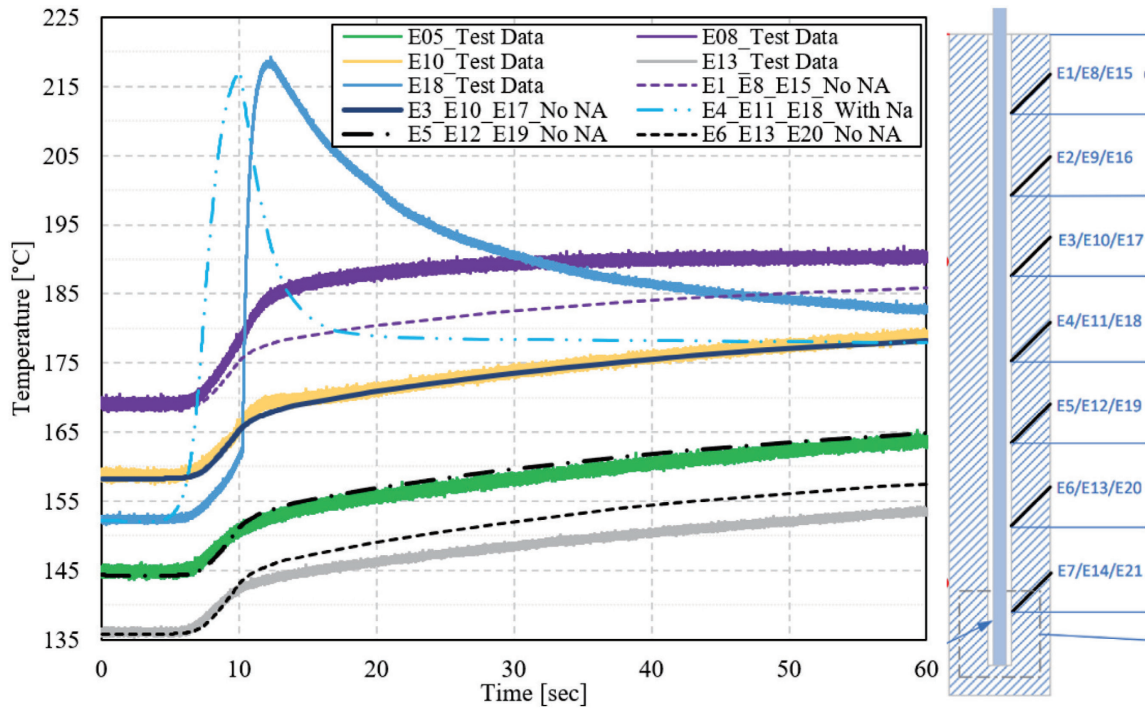


図 3.6-37 熱電対位置における温度履歴の解析結果と計装値の比較

(8) 過渡後照射後試験

① 中性子ラジオグラフィ

THOR キャプセル解体前に試験燃料ピンの状態を確認するため、中性子ラジオグラフィを実施した。ジスプロシウム(熱中性子ラジオグラフィ用)とインジウム(熱外および高速中性子ラジオグラフィ用)の箔を用いて、試験燃料ピンの上部、中央部、下部において、 0° 、 30° 、 60° 及び 90° 回転した画像を撮影した。これらの画像では、長さ対直径(L/D)比を125に設定し、露出時間を22分とした。空間分解能は $200 \mu\text{m}/\text{ピクセル}$ である。高い中性子散乱断面積を有する鉄製のヒートシンクのため、試験燃料ピンの識別が困難であった。コントラストを調整したインジウム箔を用いた画像を図3.6-38、図3.6-39及び図3.6-40に示す。ジスプロシウム箔を用いた画像を図3.6-41、図3.6-42及び図3.6-43に示す。

試験燃料ピンの状態を確認するため、露出時間を180分に長くし、L/D比を300に大きくした、インジウム箔及びジスプロシウム箔でのTHORキャプセル中央部の中性子ラジオグラフィ画像を図3.6-44に示す。ヒートシンク内の試験燃料ピンの可視性は改善されたが、試験燃料ピンの状態を完全に識別することは依然として困難であり、燃料カラムの健全性に問題はないように見えるが、被覆管の状態は確認できなかった。

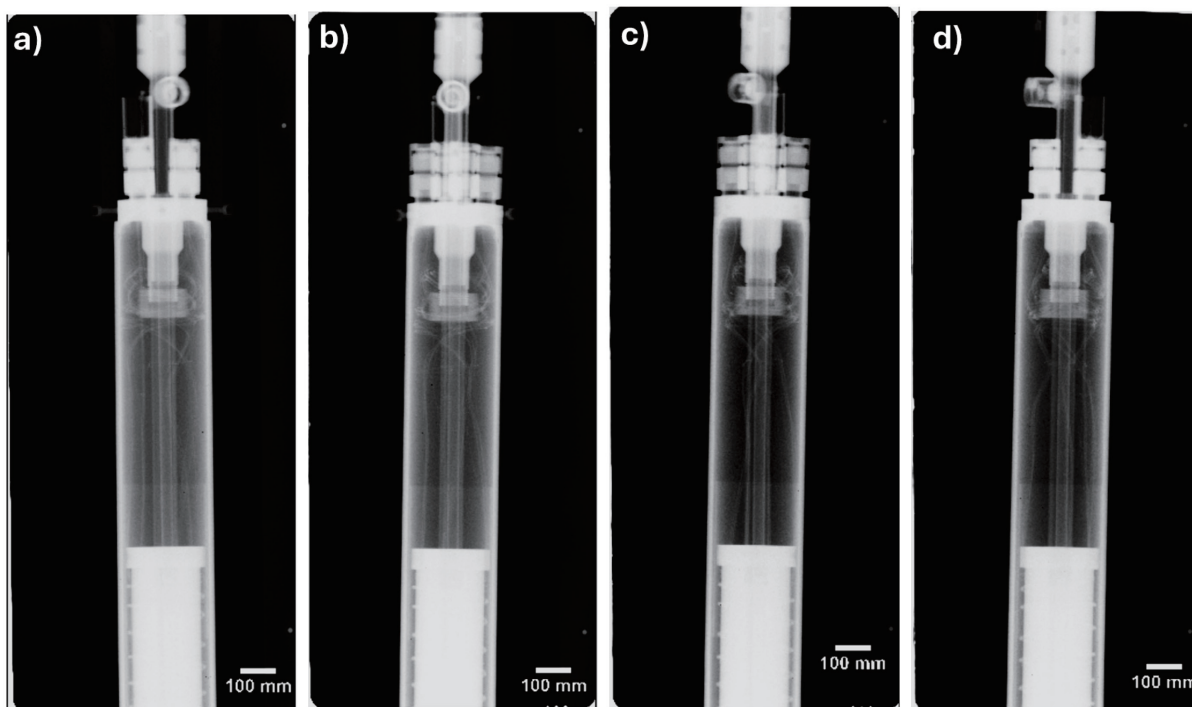


図 3.6-38 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル上部)

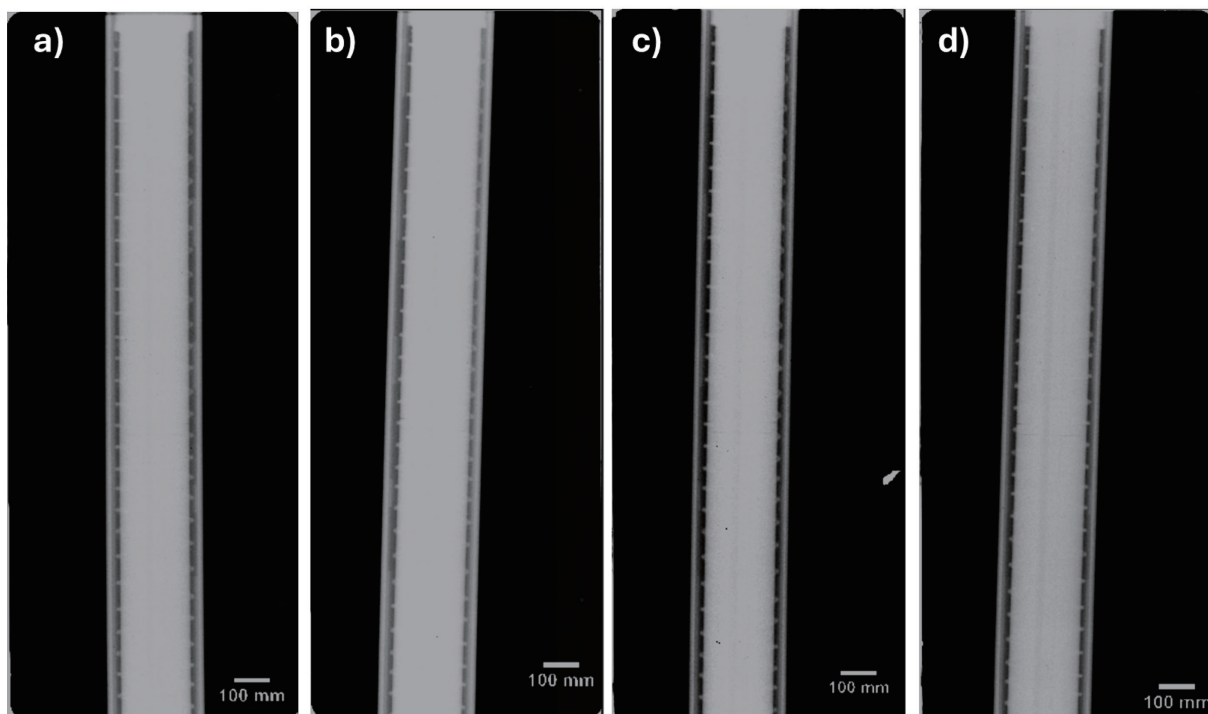


図 3.6-39 a)0°、b)30° c)60° 及び d)90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル中央部)

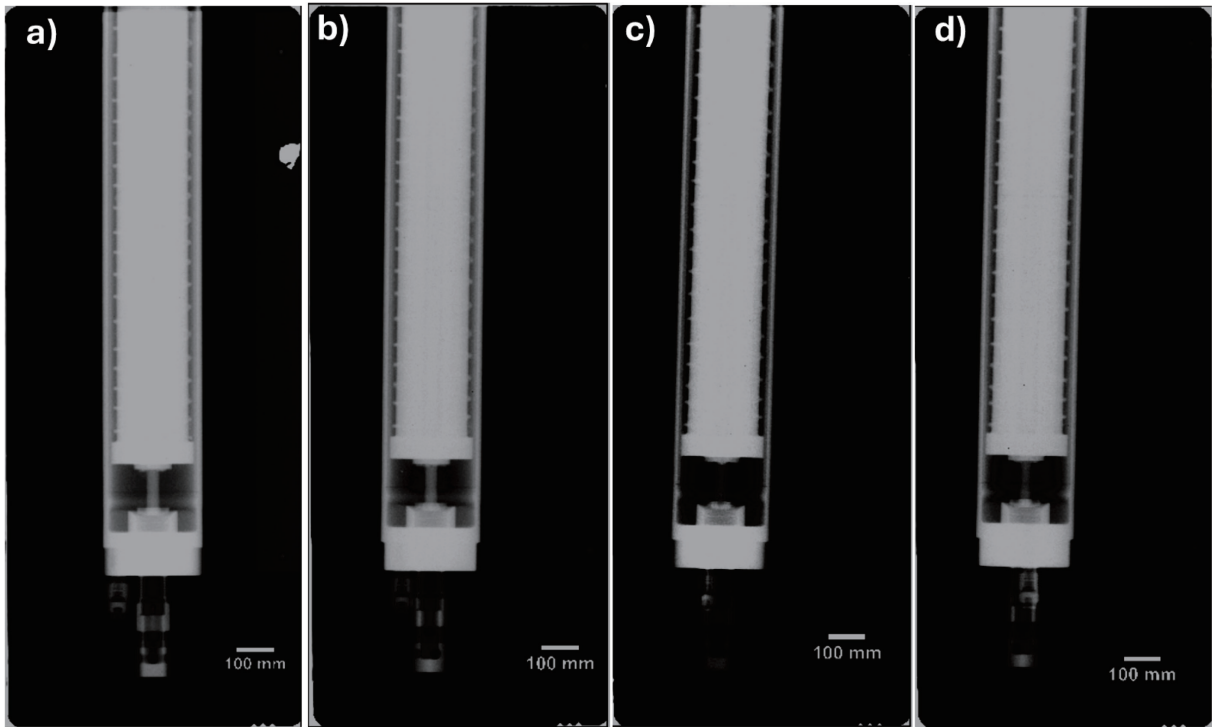


図 3.6-40 a) 0° 、b) 30° c) 60° 及び d) 90° でのインジウム箔中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル下部)

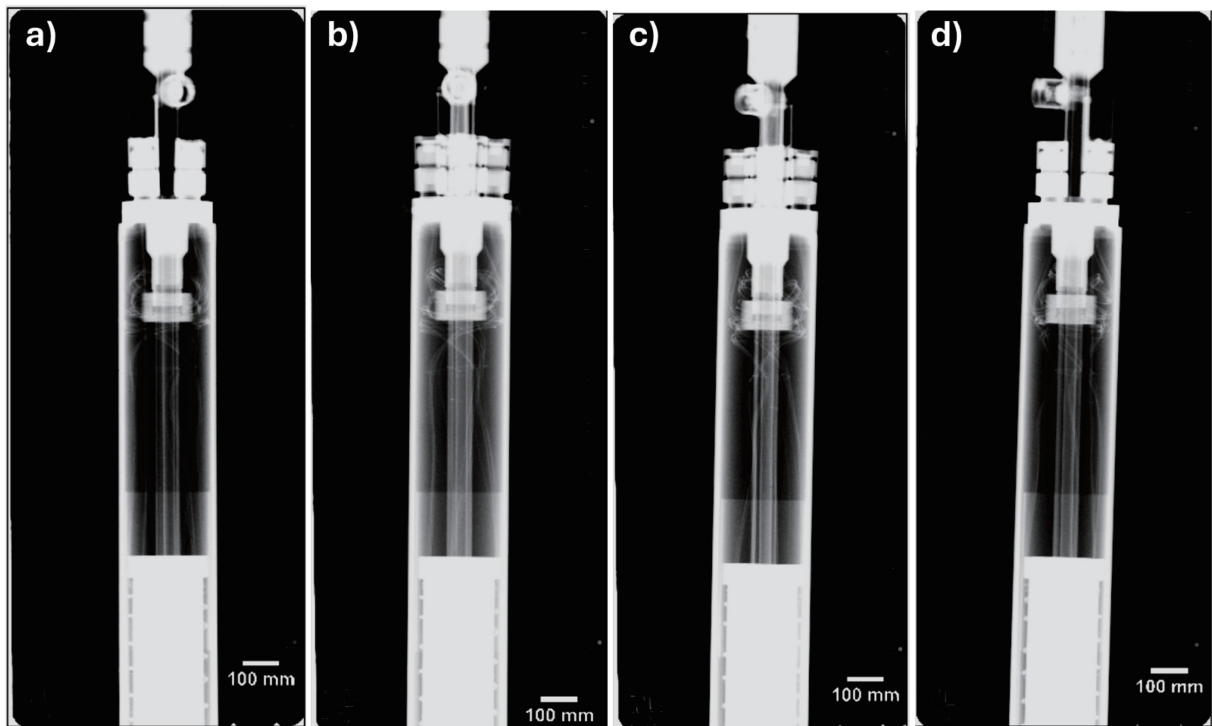


図 3.6-41 a) 0° 、b) 30° c) 60° 及び d) 90° でのジスプロシウム箔中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル上部)

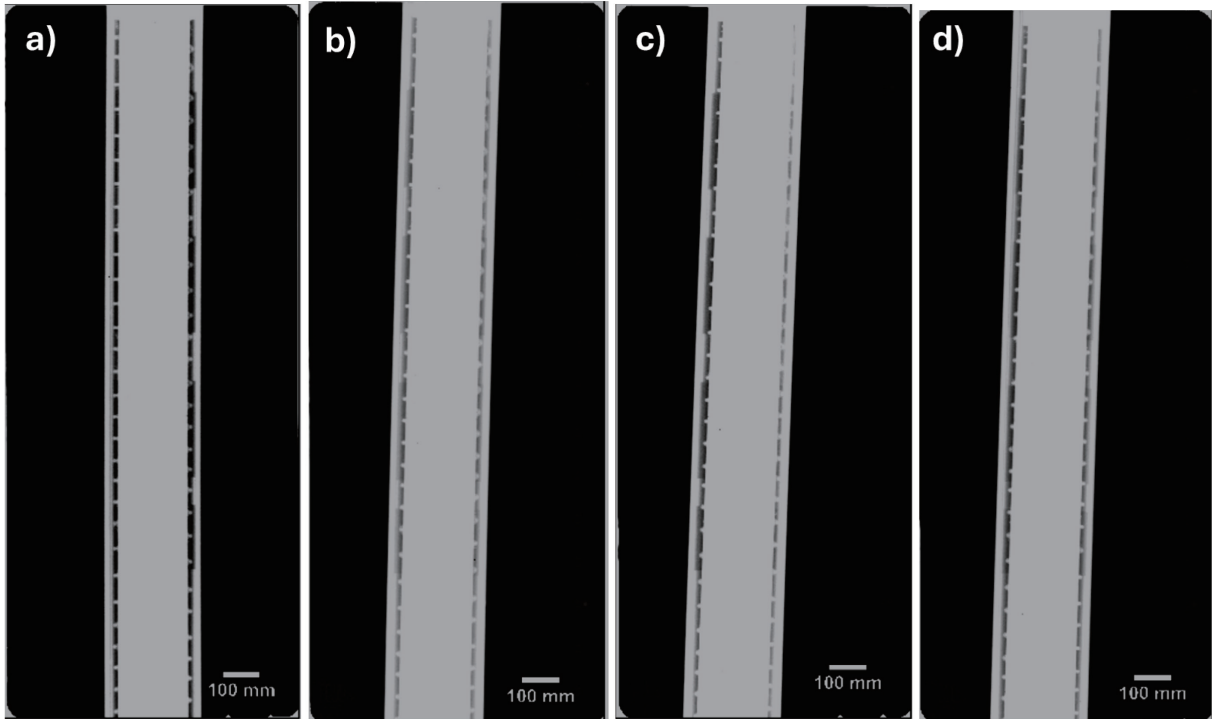


図 3.6-42 a) 0°、b) 30° c) 60° 及び d) 90° でのジスプロシウム箱中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル中央部)

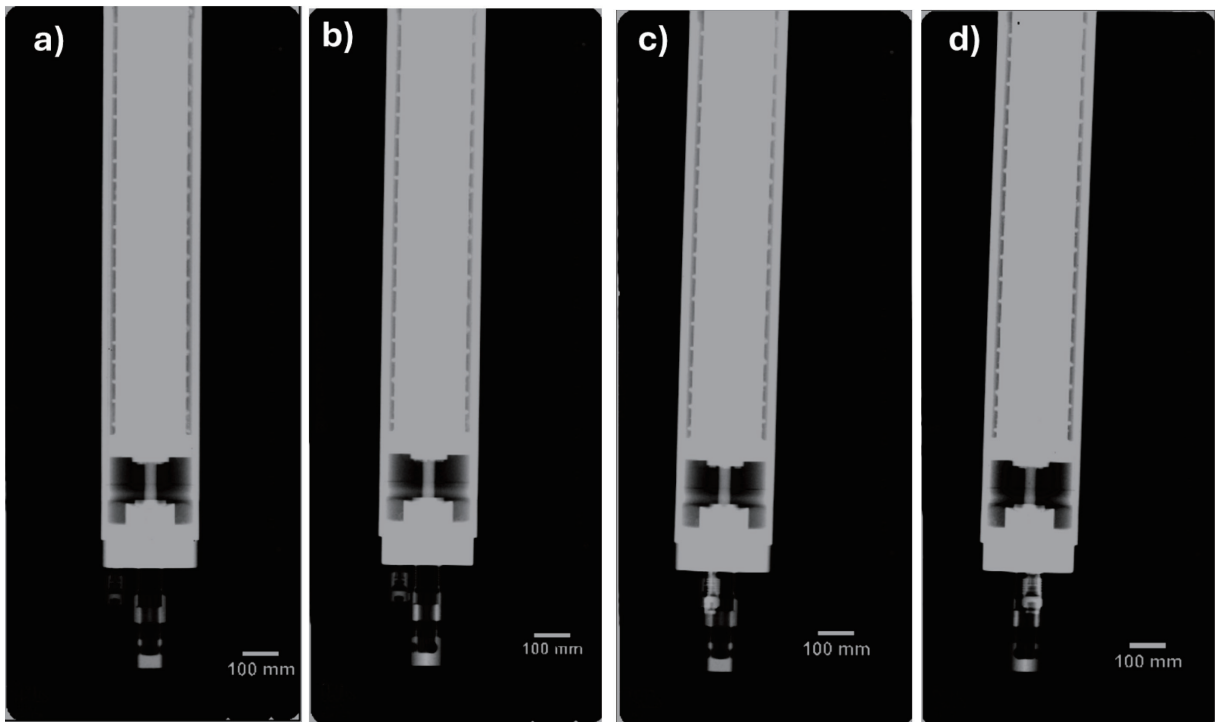


図 3.6-43 a) 0°、b) 30° c) 60° 及び d) 90° でのジスプロシウム箱中性子ラジオグラフィ画像
(THOR MOXTOP-1 カプセル下部)

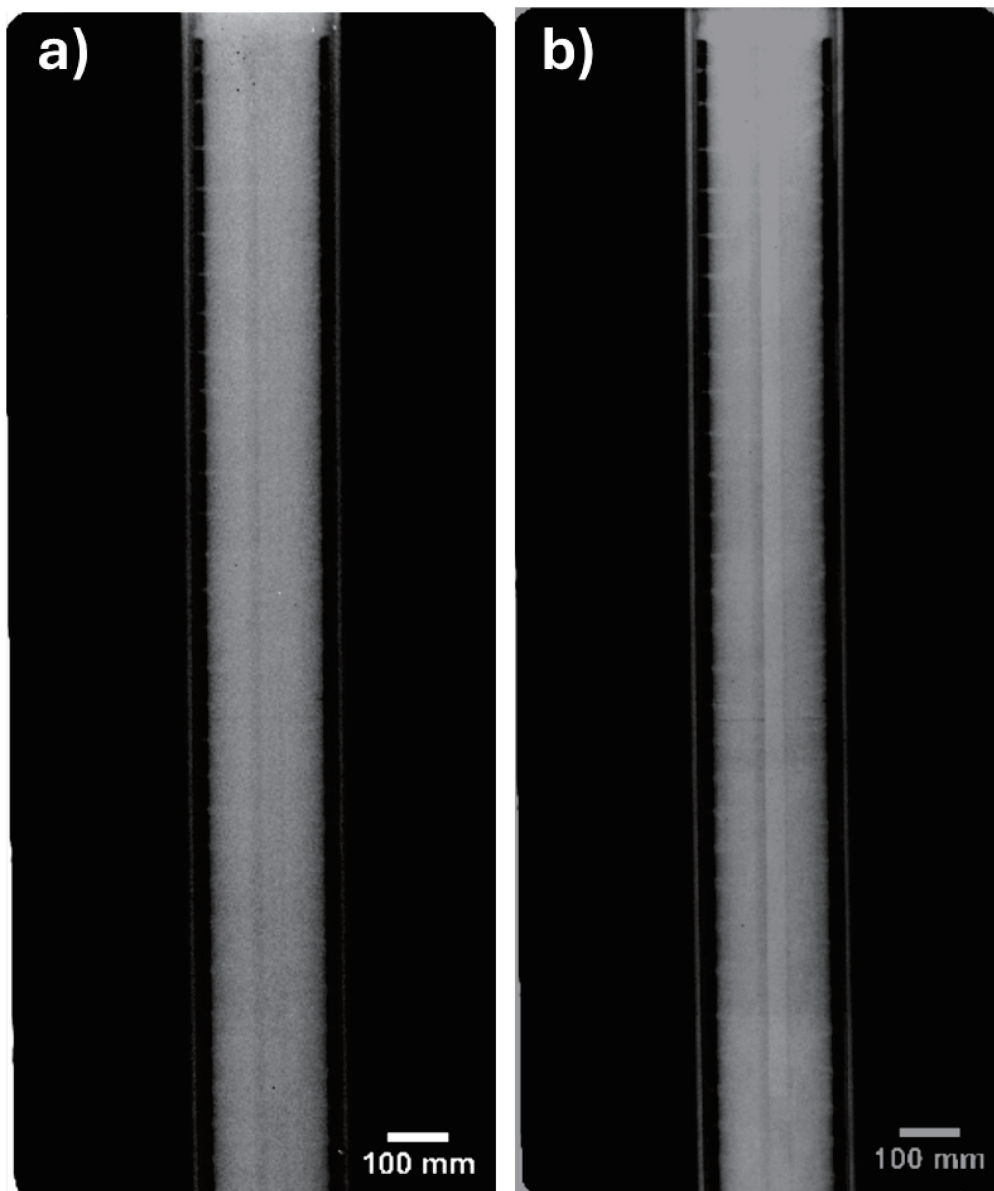


図 3.6-44 a) インジウム箔及びb)ジスプロシウム箔中性子画像
(0°での THOR MOXTOP-1 カプセル中央部)

② 試験燃料ピン外観観察

TREAT での過渡照射試験後に THOR キャプセルから試験燃料ピンとナトリウムを取り出すため、HFEF ホットセル内に専用の加熱装置を設置した。

THOR キャプセルの延長導入管にあるシール用コナックスフィッティングを取り外し、THOR カプセルを反転させて加熱装置に入れ、THOR キャプセルの本体を加熱し、加熱帯で延長導入管を加熱した。液体ナトリウムの受け皿を設置し、加熱前に三つ折り棒で試験燃料ピンを所定の位置に保持した。ナトリウムの液相線温度(約 98°C)を超える加熱の後、試験燃料ピンは THOR キャプセルから取り出された。

THOR キャプセルから取り出した試験燃料ピン UW02011 の画像を図 3.6-45 及び図 3.6-46 に示す。図 3.6-45 は、キャプセルから取り出した直後の試験燃料ピンを撮影したもので、被覆管

表面にナトリウムが残存しており、試験燃料ピンの中央部にわずかな変色が見られた。図 3.6-46 は、ナトリウム洗浄後の試験燃料ピンの下部、中央部、上部の高倍率画像である。いずれの画像でも、試験燃料ピンの表面にナトリウムが残存しているのがわかるが、中央の画像では被覆管の変色も確認できた。また、画像 A) と B) には、ナトリウム液面の高さとして推定される線がみられ、燃料カラムに相当すると考えられる領域で変色が画像 C) と D) にみられる。これらの画像は試験燃料ピンの上下逆転した状態で撮影した。

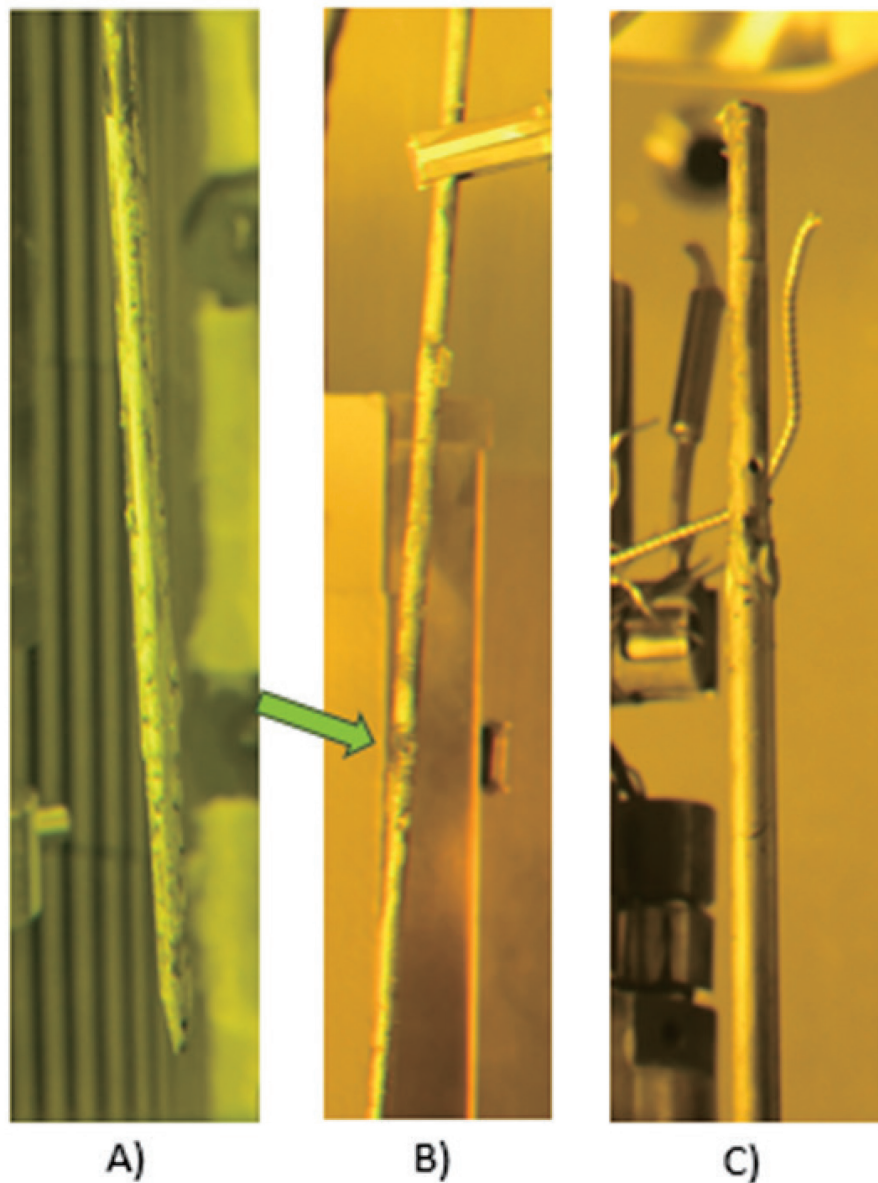


図 3.6-45 HFEF ホットセル鉛ガラス越しの燃料ピン UW02011 の高倍率画像
(A) 燃料ピンの下部、B) 中央部、C) 上部。画像 B) の緑色の矢印は変色した領域を示す。)

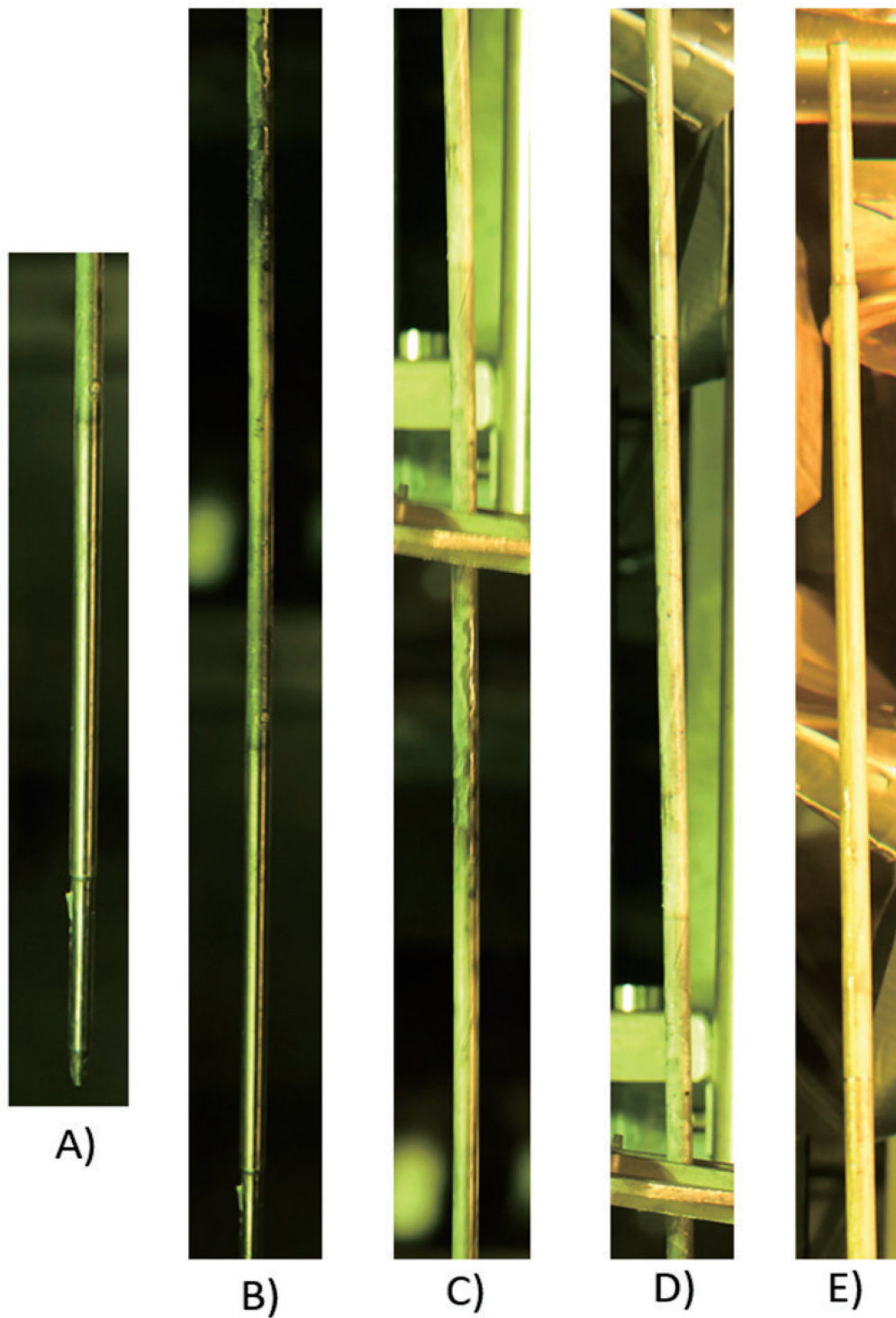


図 3.6-46 表面のナトリウムを洗浄した後の試験燃料ピン UW02011 の高倍率画像 (左から、A) 上部端栓部、B) から E) は順に上方に向かって撮影、E) 下部端栓部。)

③ 被覆管外径測定

試験燃料ピン UW02011 に対して、過渡試験の前と後の両方で、HFEP の素子接触式プロフィロメータを用いて軸方向被覆管外径測定を実施した。プロフィロメータは測定前に寸法が既知の標準試料で校正し、今回使用した標準試料には試験燃料ピンの直径に相当する 0.290 インチ (7.366 mm) と 0.300 インチ (7.620 mm) のものを用いた。プロフィロメトリ測定誤差は、

直径に対して±0.0002 インチ (0.00508 mm)、軸方向位置に対しては±0.015 インチ (0.381 mm) と評価された。

過渡照射試験の前に EBR-II 照射済試験燃料ピンの被覆管外径を軸方向に 4 つの方位角と約 0.05 インチ刻みで測定した。過渡照射試験後には、残留ナトリウムの洗浄後、軸方向に 5 つの方位角と約 0.02 インチ刻みで被覆管外径を測定した。被覆管外径測定値の平均と平均ひずみをそれぞれ図 3.6-47 と図 3.6-48 に示す。

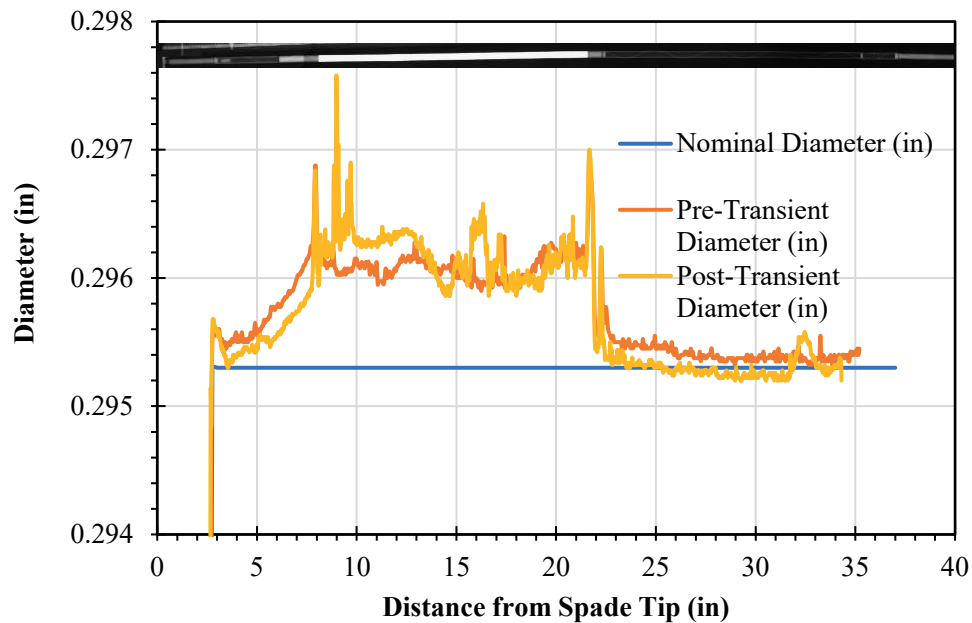


図 3.6-47 MOXTOP-1A 前後の試験燃料ピン UW02011 の被覆管外径測定結果

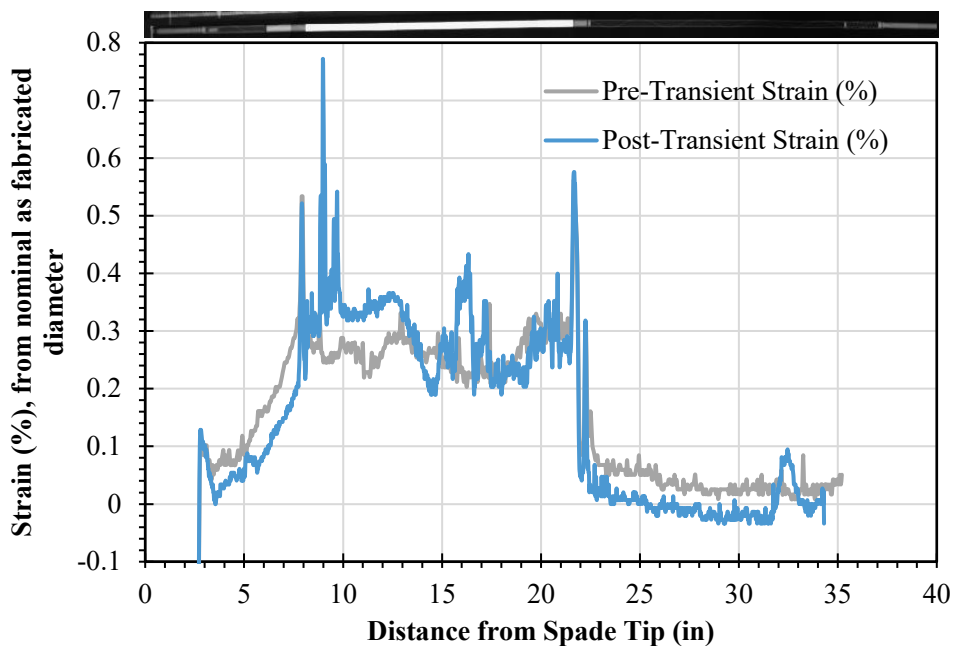


図 3.6-48 MOXTOP-1A 前後の試験燃料ピン UW02011 の被覆管外径ひずみ測定結果

燃料カラム領域は試験燃料ピンの下端から約 7.812～21.312 インチ (198.4～541.3 mm) の間であることから、軸方向位置約 8.98 インチ (228 mm) にみられる局所的な外径増加は燃料カラム領域の下端付近に相当し、この位置で測定された被覆管外径及びひずみの平均値は、それぞれ 0.2976 インチ (7.559 mm) 及び 0.77%であった。また、試験燃料ピン下端から約 8.5～13.0 インチ (216～330 mm) までの過渡照射試験後の平均ひずみは 0.36%であるのに対し、同じ領域における過渡照射試験前の平均ひずみは約 0.27%であった。このことは、MOXTOP-1A での過渡照射中に被覆管に何らかの追加的なひずみが発生した可能性が高いことを示している。

MOXTOP-1A での過渡照射試験後に得られた方位角毎のプロフィロメトリースキャンデータを図 3.6-49 に示す。下部端栓の先端から約 9～15 インチの燃料カラム領域の下部では、全方位角での測定結果はほぼ一致しているが、15～21 インチの間では、測定した方位角で多少のばらつきが見られ、試験燃料ピンが真円ではなく楕円形である可能性があることを示している。

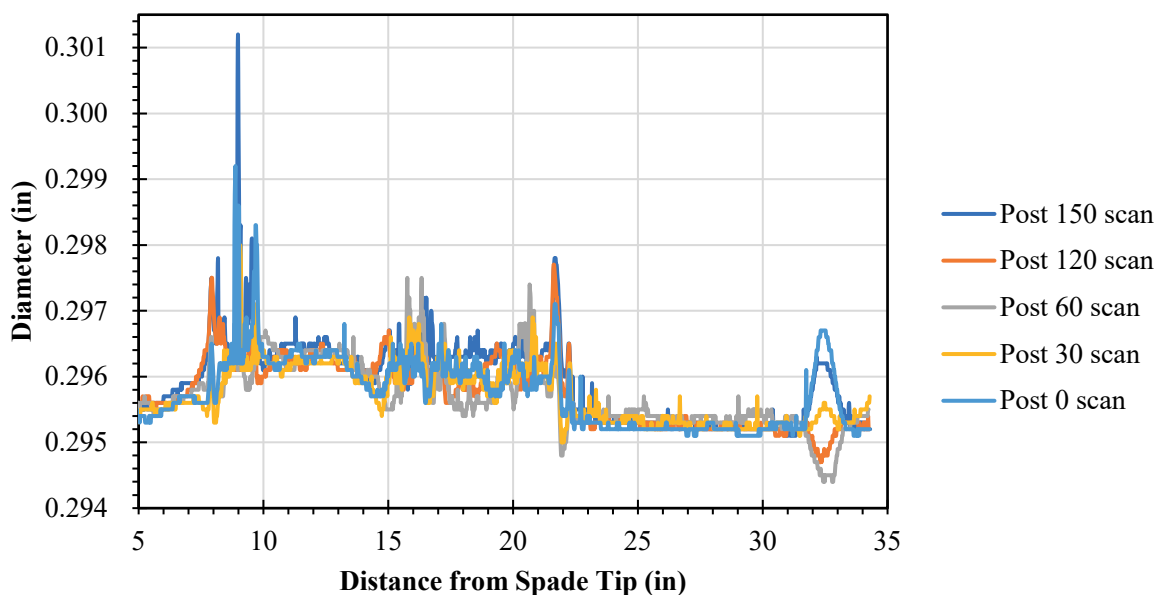


図 3.6-49 MOXTOP-1A での過渡照射後の全方位角における被覆管外径測定結果

(9) 非定常解析モデルによる過渡照射時燃料挙動の解析評価

MOX 燃料の比熱には、次式の Neumann-Kopp 則を用いた比熱モデルを開発し、MOXTOP-1A の非定常燃料温度解析に適用した。

$$C_p = \sum_i^N (C_{p,i} \cdot f_i)$$

- UO_2 比熱 (<3100K)

$$C_p(UO_2)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1})$$

$$= 247.1735 + 1.5976 \cdot 10^{-1}T - 1.3199 \cdot 10^{-4}T^2 + 4.3162 \cdot 10^{-8}T^3 - 4.3278 \cdot 10^6 T^{-2}$$

- UO₂ 比熱 (融点~5000K)

$$C_p(UO_2, l)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) = 5056.8723 - 3.1799 \cdot T + 7.0846 \cdot 10^{-4}T^2 - 5.2442 \cdot 10^{-8}T^3$$

- PuO₂ 比熱 (<2500K)

$$\begin{aligned} C_p(PuO_2)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) \\ = 127.8532 + 5.5151 \cdot 10^{-1}T - 4.6097 \cdot 10^{-4}T^2 + 1.3145 \cdot 10^{-7}T^3 \\ - 1.2591 \cdot 10^6T^{-2} \end{aligned}$$

- AmO₂ 比熱 (<1200K)

$$C_p(AmO_2)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) = 287.1073 + 1.3948 \cdot 10^{-2}T - 5.1113 \cdot 10^6T^{-2}$$

- NpO₂ 比熱 (<2500K)

$$\begin{aligned} C_p(NpO_2)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) \\ = 240.7431 + 1.6301 \cdot 10^{-1}T - 1.3035 \cdot 10^{-4}T^2 + 4.9031 \cdot 10^{-8}T^3 \\ - 2.9338 \cdot 10^6T^{-2} \end{aligned}$$

- O₂ 比熱 (<2100K)

$$C_p(O_2)(J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}) = 27.849 + 8.53 \cdot 10^{-3}T - 2.0454 \cdot 10^{-6}T^2 + 1.932 \cdot 10^{-10}T^3$$

ここで、Tは温度 (K) である。

MOXTOP-1A での線出力及び被覆管外表面温度を用いて、CEPTAR コードで燃料温度の非定常解析を実施した。図 3.6-50 に軸方向に 20 分割した各ノードにおける MOXTOP-1A での燃料中心温度解析結果を示す。燃料最高温度は 1,250°C に達したが、燃料溶融に対しては融点を十分に下回る結果となった。今回の低出力パルス試験では燃料温度が低いため、比熱の効果は限定的であったことが考えられ、今後実施を計画している高出力での過渡照射試験結果を用いて比熱の効果を評価する。一方、MOXTOP-1A においては、高燃焼度の試験燃料ピンで前述のように被覆管温度が 1,000°C 以上に達したため、被覆管累積損傷和 (CDF) を評価した。図 3.6-51 に各軸方向ノードの被覆管 CDF 値の評価結果を示す。このように、MOXTOP-1A の低出力パルス試験中に被覆管 CDF 値は急激に増加しており、また、過渡照射後の軸方向被覆管 CDF 分布を図 3.6-52 に示すが、軸方向全体で被覆管 CDF 値は 0.001~0.01 まで増加する評価となった。さらに、照射中に 1,000°C 以上を経験したステンレス鋼では Ni の (n, α) 反応で生成する He が粒界に移行することによる He 脆化が一般に知られており、今回の被覆管材料である PNC1520 のように Ni を多く含むステンレス鋼ではより顕著となる。これらのことから、徐熱が十分ではない環境で過渡的に出力上昇を経験した被覆管では、その健全性に大きな影響があるものと考えられる。

以上のことから、MOXTOP-1A では被覆管破損に達しなかったものの、同じ試験燃料ピンで高出力での過渡照射試験を行った場合、FCMI とは異なる要因での被覆管破損の可能性が十分に考えられる。

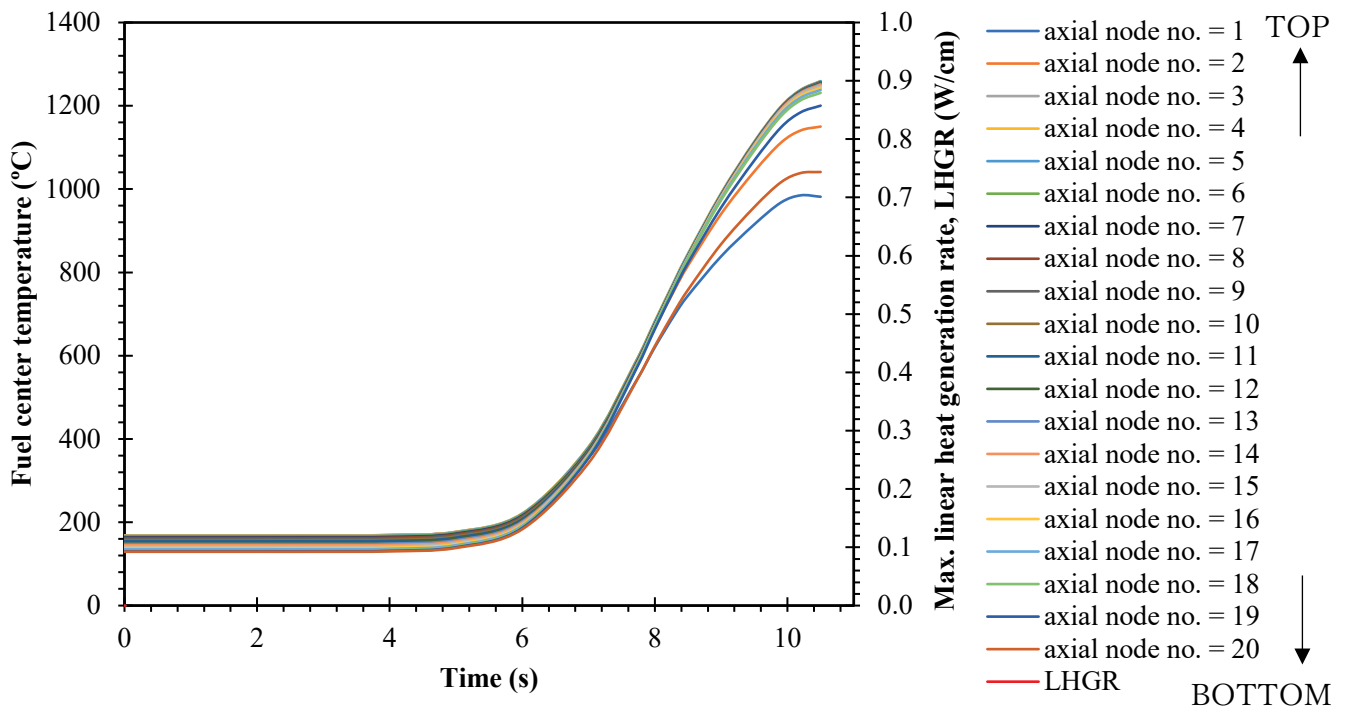


図 3.6-50 MOXTOP-1A での燃料中心温度解析結果

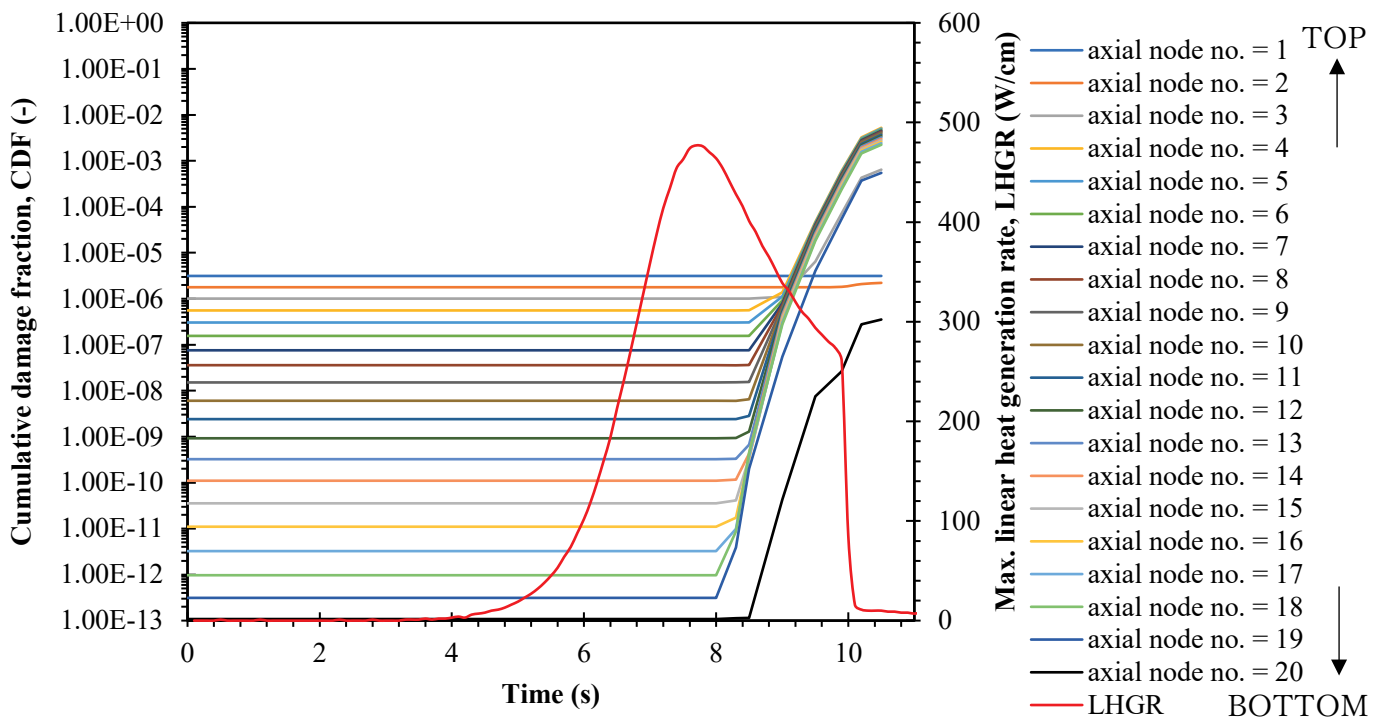


図 3.6-51 MOXTOP-1A での被覆管累積損傷和 (CDF) 解析結果

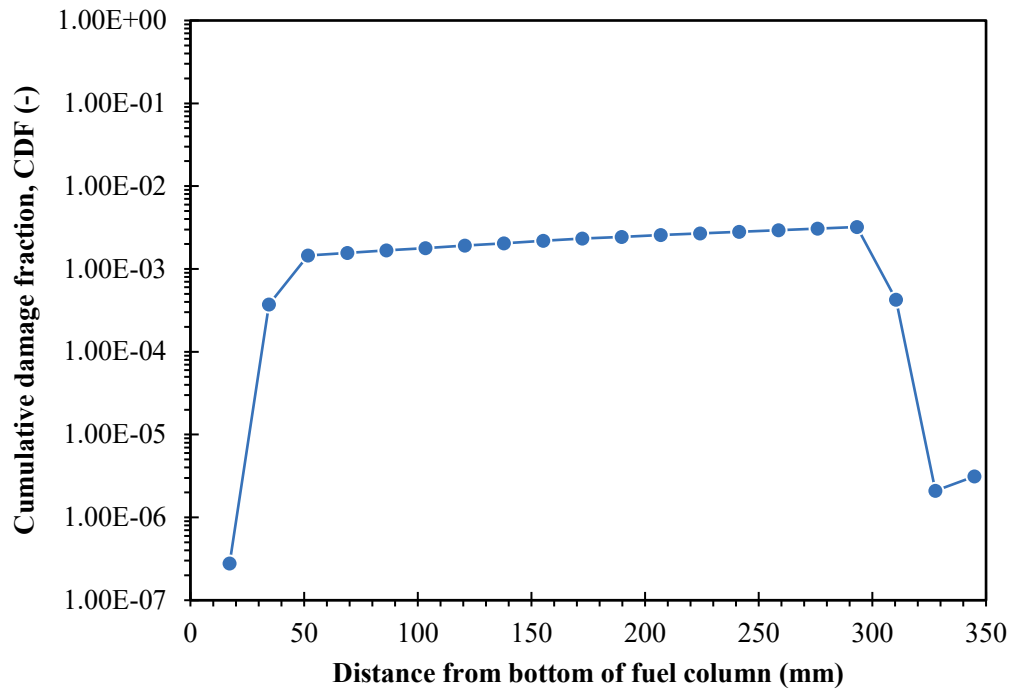


図 3.6-52 MOXTOP-1A 後の被覆管累積損傷和 (CDF) 軸方向分布解析結果

参考文献

[1] J. D. Bess, “Neutronics Characterization of EBR-II X462/X462A Test Fuel Pins UW02009, UW02011, and UW06024”, ECAR-5391, Idaho National Laboratory (2021).

3.7 研究推進【R1～R4】

本研究を実施するにあたっては、研究代表者の下で以下に示す推進会議及び INL との技術会合を実施し、各研究項目間における連携を密に行い、情報、知見及びデータを共有しながら研究を進めた。

- ・令和2年1月30日：INL 技術会合
- ・令和2年2月28日：推進会議(個別会合) 九州大学、原子力機構
- ・令和2年3月18日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年3月25日：推進会議(全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和2年4月14日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年5月21日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年6月22日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和2年6月23日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年7月28日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年9月1日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年9月29日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年10月16日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和2年11月5日：INL 技術会合(web)
- ・令和2年12月1日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年1月12日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年2月2日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年3月2日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年4月6日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年5月11日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年6月8日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年7月13日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年8月17日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年9月21日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年9月29日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和3年10月21日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年11月9日：INL 技術会合(web)
- ・令和3年12月7日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年1月11日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年2月17日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年3月29日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年3月30日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和4年4月27日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年5月25日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年6月29日：INL 技術会合/現地 (web/対面)※現地立会検査
- ・令和4年7月27日：INL 技術会合(web)

- ・令和4年9月1日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年10月6日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年11月2日：INL 技術会合(web)
- ・令和4年11月2日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和4年12月7日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年1月25日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年2月15日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年4月5日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年4月26日：推進会議(web 全体会合) 福井大学、九州大学、原子力機構
- ・令和5年5月17日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年6月16日：INL 技術会合/現地 (web/対面)※現地試験立会
- ・令和5年7月11日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年7月19日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年8月9日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年9月15日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年10月18日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年11月15日：INL 技術会合(web)
- ・令和5年12月13日：INL 技術会合(web)
- ・令和6年1月24日：INL 技術会合(web)
- ・令和6年2月28日：INL 技術会合(web)
- ・令和6年3月11-13日：INL 技術会合/現地 (web/対面)※現地試験立会

また、本研究開発に関わる外部発表リストを以下に示す。

【国内学会】

- ① マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクル (1)研究計画、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ② マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (2) 模擬 FP(Nd₂O₃, Sm₂O₃) 含有 MOX の焼結試験、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ③ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (3) 10%Am 含有 MOX の熱伝導率、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ④ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (4) 非定常平面熱源法におけるペレット半径方向の熱伝導率測定技術の開発、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ⑤ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (5) レーザー加熱を利用した局所融点測定技術の開発、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ⑥ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (6) 照射済 MOX 燃料を用いた TREAT での ARES-MOX 過渡照射試験計画、2021 年春の年会、日本原子力学会
- ⑦ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (7) レーザー加熱を用いた局所融点測定法の精度評価、2021 秋の大会、日本原子力学会

- ⑧ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (8) 模擬 FP 及び不純物含有 MOX の熱伝導率測定、2022 年春の年会、日本原子力学会
- ⑨ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (9) 模擬 FP 含有 MOX の微細組織及び熱伝導、2023 年春の年会、日本原子力学会
- ⑩ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (10) MA 含有 MOX 燃料ペレットの作製、2023 年秋の大会、日本原子力学会
- ⑪ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (11) MA 含有 MOX 燃料ペレットの相状態及び熱物性評価、2023 年秋の大会、日本原子力学会
- ⑫ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (12) 3D プリンターを用いて作成した多層ペレットの Hot Disk 法による半径方向の熱伝導率評価、2023 年秋の大会、日本原子力学会
- ⑬ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (13) レーザー局所加熱法を用いた UO_2 の融点測定、2023 年秋の大会、日本原子力学会
- ⑭ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (14) レーザー加熱型無容器法を用いたウラン酸化物固溶体の融点測定、2023 年秋の大会
- ⑮ マイナーアクチニド含有低除染燃料による高速炉リサイクルの実証研究 (15) 研究の総括と今後の展開、2023 年秋の大会、日本原子力学会
- ⑯ レーザー加熱を用いた非接触式融点測定手法の開発および性能評価、第 43 回日本熱物性シンポジウム 2022 年 10 月 25-27 日
- ⑰ レーザー加熱を用いた非接触式高速融点測定手法の開発、日本原子力学会九州支部、第 40 回研究発表講演会 2021 年 12 月 1 日

【国際会議】

- ① Thermal conductivity of MOX with simulated fission products, Nuclear Materials Conference 2022 (NuMat 2022), 2022.Oct., Belgium

【論文】

- ① Crystal structure of $U_{1-y}Ln_yO_{2-x}$ ($Ln = Gd, Er$) solid solution, Journal of Nuclear Materials, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153189>
- ② Measurements of thermal conductivity for near stoichiometric $(U_{0.7-z}Pu_{0.3}Am_z)O_2$ ($z = 0.05, 0.10, \text{ and } 0.15$), Nuclear Materials and Energy, <https://doi.org/10.1016/j.nme.2022.101156>
- ③ Sintering and microstructural behaviors of mechanically blended Nd/Sm-doped MOX, Journal of Nuclear Science and Technology, <https://doi.org/10.1080/00223131.2023.2192725>
- ④ Oxygen potential of neodymium-doped $U_{0.817}Pu_{0.180}Am_{0.003}O_{2-x}$ uranium-plutonium-amerium mixed oxides at 1573, 1773, and 1873 K, Journal of Nuclear Materials, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2023.154416>
- ⑤ Thermal conductivity measurement of uranium-plutonium mixed oxide doped with Nd/Sm as simulated fission products, Journal of Nuclear Materials, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2023.154799>

4. 結言

本研究を通して MA 含有低除染燃料の燃料技術に関する研究成果を得て、TREAT 過渡試験を通じた過渡照射解析技術を整備するとともに、常陽での高線出力照射試験に向けた準備を整えることができた。本研究で得られた研究成果を以下に述べる。

- 常陽の照射済燃料から簡素化再処理プロセスにより得られたプルトニウム溶液、MA 含有溶液等を用いて、燃料組成の調整、及びマイクロ波脱硝を行い、原料粉末を調製し、原料粉の結晶性や熱特性について確認することができた。本研究により、MA 含有低除染燃料のマイクロ波脱硝による原料調製を実証することができた。
- MA 含有低除染燃料中に含まれる希土類及び Cm 等の焼結特性への影響を評価し、燃料製造工程における焼結条件を決定することができた。また、Cm 含有 MOX ペレットを用いた遠隔燃料製造を行い、照射燃料製造に向けてペレット製造技術を実証した。
- MA 含有低除染燃料中に含まれる希土類、Am 及び Cm 等の熱物性に与える影響について定量的に評価し、燃料設計へ適用可能とした。また、取得したデータを用いて照射燃料の設計を実証した。本研究により、燃料物性式を従来の 5%Am から最大 15%Am まで拡張し、希土類元素の効果も定量的に評価することができるようになった。広範囲の燃料組成について燃料設計を行うことが可能となった。
- MA 含有 MOX ペレットのグローブボックス内品質保証分析について、少量の鉛遮蔽を追加することで作業員の被ばく量を十分に低減可能なことを確認した。HCl を用いない Np 分離条件及びγ線スペクトル測定を用いた Np 定量手法を組み合わせることで、ホット試験施設の設備にダメージを与えることなく Np が定量できることを見いだした。照射前後における MA 含有燃料溶解液を同時に測定し MA 核種の含有量の比を求めることで、MA 核種のわずかな増減を評価可能とする手法を開発した。
- 照射済み燃料の PIE 技術として、ペレット径方向の評価が可能な非定常熱伝導率測定、及び高速度カメラによるその場観察・測定が可能なレーザー加熱融点測定技術を開発し、UO₂ による測定を実施し、核燃料への適用性を確認することができた。

本研究により、世界で初めて非定常熱伝導率測定によって UO₂ の熱伝導率を直接測定することができた。また、レーザー加熱融点測定では、高速度カメラによる極微小部の融点測定を達成し、試料ホルダーとの反応がない環境での新しい融点測定技術として期待される。

- 100GWd/t を超える高燃焼度の MOX 燃料について世界で初めての過渡照射試験の準備を進めた。高燃焼度燃料のうち 1 本は PIE を実施し、高燃焼度における照射挙動解析を行った。また、過渡照射における燃料温度解析技術を確立することができた。過渡照射試験(低出力)のデータ及び過渡照射後 PIE 結果を用いて非定常解析モデルによる過渡照射時燃料挙動の解析に成功した。

本研究開発を通して MA 含有低除染燃料について、マイクロ波加熱脱硝技術による原料調整、ホットセル内の遠隔燃料製造技術、燃料物性データの整備、照射燃料ピンの設計、高精度 MA 分析技術を実証し、PIE 技術として熱伝導率及び融点測定技術の開発、高燃焼度 MOX 燃料の PIE データ取得、及び TREAT 過渡照射試験によって高燃焼度燃料の燃料破損限界出力の評価を可能とし

た。これらの試験結果から、MA 含有低除染燃料の性能・安全評価を可能とした。常陽は、2026 年度半ばの再稼働を目指して準備が進められている。MA 含有低除染燃料の照射試験は、再稼働後に実施できるように計画されており、核燃料サイクル工学研究所の CPF において原料粉への転換を行い、大洗研究所 AGF での燃料ペレット製造及びピン加工後に常陽において照射試験を実施する計画である。