



	<p>ラメータ解析を行い、効率的なTRU燃焼に適した炉心形態を選定し、TRU燃焼効率を評価する。実測データに基づき、TRU装荷炉心と燃料挙動について評価を行う。</p> <p>② TRU合金燃料の設計と挙動評価：TRU添加合金燃料について、文献値及び本事業で取得する熱力学データに基づく解析を行い、TRU合金燃料として成立する組成範囲を明らかにする。併せて、選定した燃料の性能や挙動を評価する。</p> <p>③ TRU燃焼の総合評価：①と②で選定した炉心と燃料を用いたTRU燃焼における総合評価を行う。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 成果</li> <li>・ 副次的な成果</li> <li>・ 論文、特許等</li> </ul>	<p><b>【研究開発項目 1】TRU 合金燃料設計のための相安定性／熱物性データベースの構築</b></p> <p>①TRU 合金試料の調製</p> <p>TRU 合金試料の調製では、別途実施した熱力学データベースによる解析の結果に基づいて選定した組成について、TRU 混合酸化物試薬から電解還元法やリチウム (Li) 還元法を用いてグラムオーダーの TRU 合金を調製した。なお、PuO<sub>2</sub> 単体の電解還元では試料表面のみしか金属まで還元されないことが判明し、TRU 高濃度含有合金試料の調製については、Li 還元法を適用することが有効であるという成果が得られた。</p> <p>②TRU 合金の相安定性の評価</p> <p>管理区域内に TRU 合金の微小组織観察や元素分析 (EDS 分析) が可能となる SEM/EDS 及び試料導入用グローブボックスを整備するなど試験環境を向上させた。また、熱処理を Li 塩中で実施することで、酸素不純物の少ない合金試料 (1000ppm 以下) を調製できることが分かった。20 種類以上の合金試料の SEM 観察及び EDS 分析を実施し、熱物性データベースの構築のために必要な存在相の組成に関するデータを取得した。なお、EDS 分析では、TRU 元素の X 線強度から元素定量するため、TRU の補正データ (ZAF パラメータ) の評価や TRU 用の標準試料も作製した。EDS 分析による TRU 元素の定量については、概ね化学分析結果と一致し、今後の定量分析においても使用できる ZAF 補正パラメータが整備された。</p> <p>③ TRU 合金の熱物性の評価</p> <p>U-Pu-Am 試料では、U-Pu 二元系合金に数%の Am を添加することで、固相線温度と液相線温度が最大で約 30 K 上昇すること、固相変態温度は大きく変化しないこと、を明らかにした。Np-Pu-Am 試料では、U-Np 二元系合金に数%の Am を添加することで、固相線温度が約 30 K、液相線温度が約 70 K 上昇すること、固相変態温度は大きく変化しないこと、を明らかにした。これらの結果から、U-Pu 合金の液相には若干量の Am が溶解し、Np-Pu 合金の液相には数%以上の Am が溶解すること、また、これらの合金系の固相には Am がほとんど溶解しないことを解明した。この結果は、データベース解析の予測とよく一致した。</p> <p>熱分析の結果と、相安定試験の結果から U-Zr を母相とする TRU 高濃度含有合金の相変態温度や融解温度を評価し、Np では、U-Zr 状態図と Np-Zr 状態図の間で対応する各相間の相変態温度や融解温度を、U:Np の比率に基づいて評価できること、評価精度向上には実測値の精度が不十分な Np-Zr 状態図のデータの充実が必要であることを示した。Am に関しては、燃料中に形成される各相に対し、Am の存在が</p>

Am の溶解度限以内であれば、Np と同様に評価できることを示した。溶解度限を超える場合には、Pu-Am の二元素を主成分とする別相を母相とは別に形成するため、固相変態温度や融解温度も母相とは別に評価することが妥当であることを示した。また、別相の相安定性はPu-Am 二元系状態図から評価できることを示した。

#### ④ TRU 合金の熱力学データベースの構築

データベースの精度を効率的に向上できる試料の組成を選定し、試料作製に反映した。また、最適な熱処理温度も指定できた。最終的には、U-Pu-Zr-Np-Am-Fe六元系データベースを整備し、準安定相の出現等に関し各元素の組み合わせにおいて矛盾が発生しないようデータベースの精度が向上した。構築した熱力学データベースを用いて、低濃度MA含有合金で最も重要となる $\gamma$ 相周辺に関する実測値と解析値を詳細に検証し、Np濃度が約4wt%を超えると融解温度の低い別相が形成されるが、MA濃度5wt%まではU-Pu-Zr合金母相とほぼ同等の特性が維持されることを示した。高濃度MA含有合金についても、MA濃度30wt%までの相安定性が評価できる様に整備し、存在相に矛盾がないことを確認した。

### 【研究開発項目 2】TRU 合金燃料製造のための多相溶湯の基礎物性評価と応用

#### ① 多相溶湯の基礎物性の評価

組成の異なるウラン-模擬 TRU-ジルコニウム三元合金の溶湯について、急冷試料の断面顕微鏡組織を観察し、各相の分布等から組成変化による液相の混合性の変化について評価した。U-10Zr 合金に Sm (Am 模擬) 加えた模擬試料においては、Sm 相は U-Zr 相と大きく分離し、U-Zr 相中に Sm はほとんど混ざらないことが確認された。また、固溶しなかった Sm の蒸気圧や蒸発速度は組成に応じて減少するという結果であった。その他、溶湯作成時に使用する黒鉛るつぼの保護材についても検討を行い、酸化イットリウムが保護材として妥当であることも示した。

一方、TRU 実試料を用いた多相溶湯の基礎物性の評価では、高温質量分析計を用いて U-Pu 合金や Pu-Am 合金の平衡蒸気圧測定を実施し、金属 Pu や Am の蒸気圧と比較することで合金中の Pu や Am の活量を評価した。その結果、U-Pu 合金中の Pu 活量については、温度が上昇するとともに Raoult 則に近づく傾向は示しているものの負側にずれることが分かった (理想性から負の偏倚を示した)。一方、Pu-Am 合金については、理想溶体に近いふるまいを示したが、一部、不純物酸素の影響と考えられる蒸気圧低下の現象が見られた。この結果から、Am 含有合金における Am の蒸発抑制には酸素の含有が効果的であることが示唆され、今後の Am 蒸発問題の解決に対する大きな発見となった。

#### ② 多相溶湯の基礎特性の評価と応用

TRU 合金組成の特徴である構成元素間の高い密度差や相互の固溶性を凝固合金の組織観察等で実施した結果、加熱溶融時の温度設定や高周波周波数よりも構成元素の相互の固溶性が多相溶湯の製造を通して凝固合金の均質な組織形成に大きな影響を及ぼすことが明らかになった。また、相互の固溶性の無い元素を含む組成の場合、その両者と固溶する第 3 元素の存在によって、均質な分散組織を形成できることが明らかとなった。高蒸気圧元素が含まれる場合、加熱時の原料配置が溶湯製造時の蒸発挙動に影響するため、蒸発損失の無い均質合

金組織の形成には原料金属を U-Pu-Zr、Pu-Am のように予備調製することが有効であるとの結果を得た。さらに、高蒸気圧元素の蒸発挙動は雰囲気ガスの圧力や熱伝導特性によっても異なり、圧力が高いほど、また熱伝導を最適化することによって蒸発損失を抑制できる可能性を明らかにした。

模擬試験によって蒸発物質の挙動を調査した結果、蒸発量は高蒸気圧元素の含有量に相関して増加する傾向があること、蒸発物質は雰囲気中で凝縮粒子となり溶湯製造装置内の低温部に優先的に付着すること、凝縮粒子の付着力はあまり高くないことが明らかになった。この蒸発挙動に基づき、溶湯製造時の蒸発拡散抑制と蒸発物質の回収に対する方法を検討し、設計、機能評価を行った。その結果を基に、高い蒸発抑制機能を有する鑄造装置の原型モデルの設計が完了した。

一連の実験結果に基づき、高蒸気圧元素を含む TRU 合金について、均質な組織を形成し、合金製造時の蒸発損失を低減する製造プロセスとそのための製造装置の原型を明らかにし、TRU 合金燃料の射出鑄造による製造方法に見通しをつけることができた。また、本試験研究を通じて、核燃料や放射性同位元素を含む合金製造に対して、その特徴を効果的に模擬する代替元素を使用することにより、被ばくリスクが無く、また経済的に安価で試験評価できることを示した。

### 【研究開発項目 3】 TRU 合金燃料の炉内性能評価、燃料挙動評価

#### ① TRU 合金燃料の炉心性能の評価

U-Pu-Zr を母相とする合金燃料に、低濃度で TRU を均質に含有させる場合、炉心性能の観点からは、Pu 以外の TRU (以下 MA) 濃度の上限は高々 5% であることを示した。これ以上の MA 濃度では、MA の添加により冷却材ボイド反応度等の炉心安全性パラメータは単調に悪化し、現行の炉心設計では MA 5% 程度が上限となることを示した。また、乾式再処理のリサイクル燃料では不純物として希土類元素が若干同伴すると推定されており、その濃度が 5% 未満であれば U-Pu-Zr 合金をマトリックスとする炉心の設計に大きく影響を与えないことを確認した。一方、非均質体系では、炉心性能の観点からは 30% 程度まで MA を添加できる可能性があることを示した。

炉心に関しては、富化度 2 領域均質炉心と径方向非均質炉心を対象に、300 MWe 級炉心による U-TRU-Zr 燃料の燃焼特性解析を行った。解析結果を、従来の 1,500 MWe 級炉心の解析結果と比較検討し、TRU 変換率の観点からは均質炉心に 2-5wt% の低濃度で TRU を添加した燃料において、燃焼性能が最も効率的 (MA 変換効率が 43% 程度) になることが分かった。これ以上の高濃度で TRU を添加した燃料を非均質に炉心に装荷した場合にも、出力ピーキングが過大となることはないが、燃料中心溶融までの温度余裕が約 150 K 低減するため、安全性の尤度を犠牲にすることが分かった。

#### ② TRU 合金燃料の設計と挙動評価

U-Pu-Zr を母相とする合金燃料に、低濃度で TRU を均質に含有させる場合、燃料挙動の観点から、Pu 以外の TRU (以下 MA) 濃度の上限は高々 5% であることを示した。これ以上の MA 濃度では、Am 等を主成分とする母相と化学的性質の異なる析出相による諸物性への影響が無視できなくなる。一方、非均質体系では、燃料挙動の観点からは 25% 程度まで MA を添加できる可能性があることを示した。しかし、燃料の諸物性が U-Pu-Zr と大きく異なるため、燃料の再設計が必要とな

る。固相線温度については、TRU 割合の増加と共に母相の固相線温度は漸減し、析出相ではそれよりさらに 16~66 K 低くなると評価した。熱伝導率については、小規模出力(30 MWe)で TRU 割合 30 wt%の高濃度 TRU 含有金属燃料では、TRU 濃度 0 %に比べ、熱伝導率が約 60 %に低下することが推察された。

### ③ TRU 燃焼の総合評価

従来知見及び本事業で取得された知見に基づき、効率的なTRU燃焼方法の総合評価を行った。低濃度MA含有燃料であっても、我が国で導入する全ての高速炉で均質に燃焼すれば、実用的な期間内(30~70年程度)にMA核変換が完了できることを示した。また、高濃度MA含有燃料を用いると、MAの取扱い範囲を核燃料サイクルの一部に限定できることも示した。

### 【事業全体】を通して

酸化物試料から合金試料を得る方法について、二種類のを使い分けることで実施できることが明らかとなった。また、合金試料の酸化を最小限に抑えることのできる方法も新たに考案した。

質のよい測定試料を用いることと、熱力学予備解析を駆使した試験条件の設定により、グラム規模と少量で、効率的な試験方法の実施が可能となり、効率的なデータ収集とその結果を熱力学データベースへフィードバックする方法を確立できた。できあがった熱力学データベースのパラメーター充実によって、評価できる合金系の状態図(U-Pu-Zr-Np-Am-Fe 六元系)がこれまでの三元系ベースから六元系へと飛躍的に増大するとともに、実験結果とよくあうような精度向上ができた。その結果、世界的に非常に注目度の高いデータベース構築が行われた。

一方、模擬物質による三元系合金の相状態及び蒸発挙動の試験については、模擬元素の選定や評価方法について多くの知見が得られた。また、高蒸気圧元素の蒸発挙動を把握するための評価試験を実施することで、溶湯製造から射出鋳造までの一連のプロセスで蒸発を抑制できる多相溶湯製造機の原型を設計し、TRU 合金燃料製造の技術基盤を確立できた。

さらに、TRU 含有燃料の燃料特性や炉心での燃焼に関して総合的に評価し、低濃度 MA 含有燃料であっても、我が国で導入する全ての高速炉で均質に燃焼すれば、実用的な期間内(30~70年程度)にMA核変換が完了できることを示した。また、高濃度 MA 含有燃料を用いると、MA の取扱い範囲を核燃料サイクルの一部に限定できることを示した。

以上、六元系データベースが大きな矛盾無く構築できたこと、低濃度MA(5wt%程度)燃料が効率的であると示せたこと、MAの蒸発を抑制できる製造技術が示されたことなど、当初計画で目標としたTRU合金の相安定性評価と熱物性のデータベース構築、高いTRU燃焼効率を可能とする合金燃料組成の選定、射出成型法を応用した実用技術に基づいたTRU燃料の製造技術基盤の確立について、それぞれ想定通りの成果が達成された。さらには、新しい試料処理法や、Amの蒸発を抑制する新たなアイデアとそれに伴う燃料-被覆管の化学的相互作用(FCCI)低減の方法の可能性なども新たに明らかとなり想定以上の成果も一部得られた。

【論文、特許等】

	<p>[特許出願]：  特願 2009-035249 「TRU 合金燃料の製造方法、TRU 合金燃料製造工程の模擬方法」  その他 2 件の特許の申請準備中</p> <p>[データベース]：  U-Pu-Zr-Np-Am-Fe 六元系の熱力学データベース</p> <p>[口頭発表]  日本原子力学会 2007 年秋の大会 (2007. 9. 27-29)  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (1) 全体計画と TRU 燃料・炉心の検討」  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (2) アクチニド合金の熱力学データベースの基礎構築」  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (3) TRU 低濃度合金調製と相安定性試験」  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (4) 多相溶湯の混合性に及ぼす加熱溶融条件の影響」  日本原子力学会 2008 年春の年会 (2008. 3. 26-28)  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (5) Am 模擬元素の混合性と蒸発抑制手法の検討」  日本原子力学会 2008 年秋の大会 (2008. 9. 4-6)  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (6) TRU 高濃度合金調製と相安定性試験」  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (7) TRU 合金中の Np と Am の混合性の解析」  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発 I (8) 多相溶湯における高蒸気圧元素の挙動調査」  原子力システム研究開発事業 平成 20 年度成果報告会 (2009. 1. 28)  「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発」</p>
<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 実施計画の進捗</li> <li>・ 革新的なブレイクスルー</li> <li>・ 成果及び発展性</li> </ul>	<p><b>【実施計画の進捗】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 計画通りに進捗したと認められる。</li> </ul> <p><b>【革新的なブレイクスルー】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 得られた成果はFBRの金属燃料の設計に不可欠な合金元素のデータベースの拡充に大きく貢献したと言える。</li> </ul> <p><b>【成果及び発展性】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 今後の研究開発に欠かせないMAを含む合金の特性が少しずつ明らかになりつつあり評価できる。</li> <li>・ 金属燃料を採用するFBRの炉心設計や燃料設計において必要になる物性値等のデータベースの拡充や金属燃料製造の技術的問題点とその克服策の提供、MA燃焼の炉心設計情報の提供という、本事業が意図して情報を提供しようとした項目について十分な成果が得られた、と評価できる。</li> <li>・ Amの蒸発速度のデータは貴重なので、Amの蒸発はどのような現象なのか、あるいはどのような速度で蒸発するのかという解析をしっかりと行ってもらいたい。</li> </ul>

4. その他	・ TRU燃料の製造の技術基盤は燃料設計技術であり、具体的な燃料製造技術との整合性を持つことが必要と思われる。
--------	---