

微細構造を制御した高 MA 含有不定比酸化物燃料の物性予測手法に関する研究

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 田中康介 大洗研究開発センター

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

(研究期間) 平成 26 年度～27 年度

1. 研究の背景とねらい

高レベル放射性廃棄物に含まれる MA を分離・回収し、長寿命核種を短寿命核種あるいは安定な核種に変換する分離変換は、放射性廃棄物処分場の実効処分容量の増加（廃棄物減容）、放射性廃棄物の潜在的有害度の総量・長期リスクを大幅に低減すること（有害度低減）が期待される技術であり、将来の我が国におけるエネルギー戦略の中軸となる環境負荷低減を考慮した核燃料サイクルシステムの構築・実現に必要不可欠である。高速炉を用いた分離変換技術としては、低濃度の MA を酸化物燃料に添加して燃焼させる高速炉均質型、比較的高濃度の MA を酸化物燃料に添加した小数の燃料体を非均質に装荷することにより集中的に燃焼させる高速炉非均質型の 2 種類が挙げられる。これらの変換形態を有する高速炉 MA リサイクルシステムの実用化には、照射に必要となる品質保証基準を満たすスペックの MA 含有燃料を安定的に製造する技術の確立が不可欠である。また、この MA 含有燃料の原子炉における性能や健全性を評価するためには、燃料の熱的・機械的特性についての知見が重要である。

本研究の目的は、高濃度の MA を含有する酸化物燃料の最適な製造条件を確立するとともに、燃料の物性測定を実施し、各種物性に及ぼす MA 含有量の影響を評価することにある。「原料粉末性状と焼結体相状態との相関関係の解明」、「MA 燃料製造技術の最適化手法の開発」、「各種物性に及ぼす高濃度 MA 添加の影響評価」の観点で研究を進め、燃料製造技術及び物性データに及ぼす MA 含有の影響を明らかにする。その際、計算機シミュレーションにより原料粉末特性と焼結体微細構造との関係を理解するとともに、ウランベースの燃料に模擬 MA を添加した試料を用いて広範な条件で原料粉末と微細構造との相関、微細構造と物性との関係を把握する。これらの結果を総合的に評価し、MA 含有実燃料における焼結特性と物性を予測評価するとともに、実際に Am を添加した酸化物燃料の試験研究により、MA 添加の影響を実験的に明らかにする。

2. これまでの研究成果

(1) 模擬 MA 含有ウラン酸化物燃料における焼結特性評価

模擬 MA (Am, Cm)/FP 元素として Nd を使用し、出発物質における固溶の有無の影響及び添加量依存性を評価した結果、混合させただけの粉末と比較して、あらかじめ固溶させた粉末では同じ焼結温度でより高い相対密度が得られた (図 1)。さらに、固溶粉末における添加量依存性試験では、20 at% までは相対密度の低下が見られた (図 2)。これは、実 Am の添加の影響と類似していることから、Cm 及び随伴希土類 FP の添加においても酸化物燃料の焼結密度は低下する傾向にあると考えられる。本結果から、Am や Cm 及び随伴希土類 FP (MA 等) を酸化物燃料に添加する場合、各元素の総量を 10% 以下に抑えることで、低密度燃料 (理論密度比: 85%) の基準を達成できる可能性が見出された。一方で、高密度燃料 (理論密度比: 92% 以上等) を得るためには、MA 等の含有量をさらに少なく抑えることが好ましいことがわかった。

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

文献データを用いた解析により酸化物燃料の焼結挙動を再現した。このパラメータを用いて二段焼結法を適用した計算を実施した結果、粒成長を抑制した高密度化が可能であることがわかった。一連のモンテカルロ法を用いたシミュレーションにより、昇温速度の向上、二段焼結法の適用、二段焼結法後の再昇温を経る熱処理により、従来法に比べ緻密化が可能であることを示した(図3~4)。また、焼結体の緻密化に最適と予想される温度プロファイルを提案した(図5)。

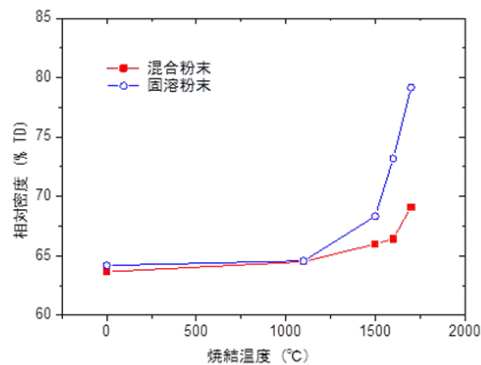


図1 焼結体相対密度の焼結温度依存性

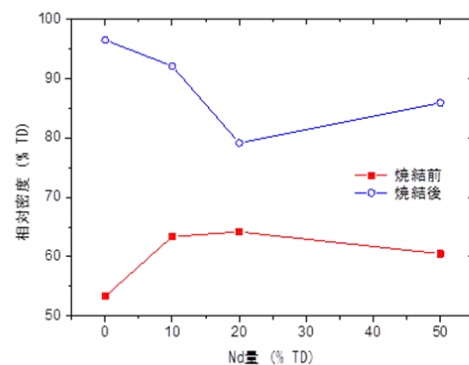


図2 焼結体相対密度のNd量依存性

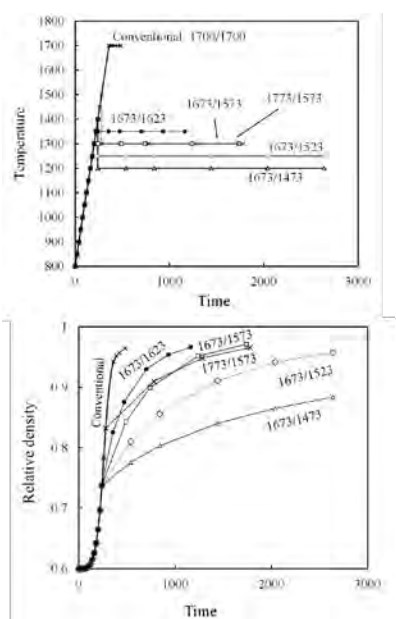


図3 二段焼結法の解析

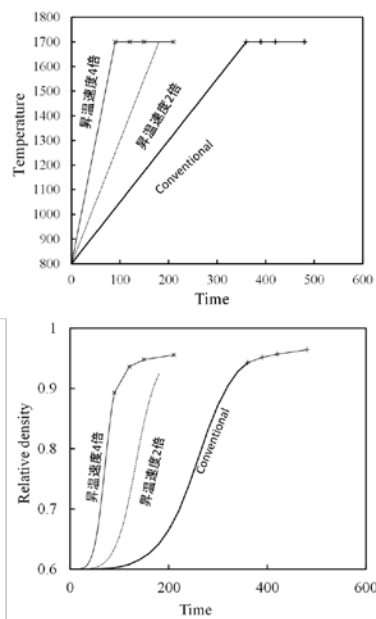


図4 昇温速度の影響解析

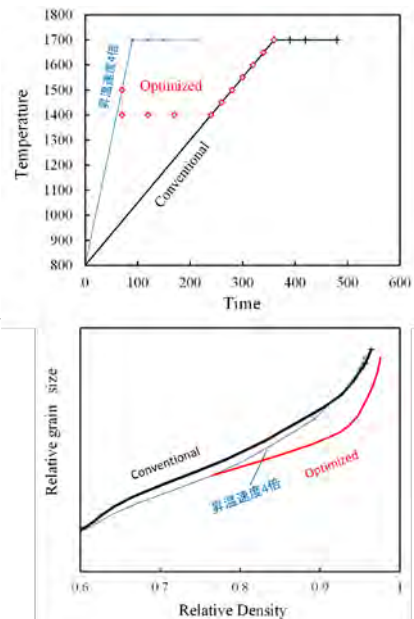


図5 最適昇温プロファイル

(3) MA 含有酸化物燃料における焼結特性評価

Am 含有酸化物燃料 (10%Am-MOX、20%Am-MOX、10%Am-UO₂、20%Am-UO₂、50%Am-UO₂) を対象として焼結特性を評価した結果、昇温速度の向上、二段焼結法の適用、二段焼結法後の再昇温を経る多段温度パターンからなる熱処理を適用することで、従来の一段温度パターンでの熱処理よりも焼結体の密度が向上する結果が得られた。また、あらかじめ固溶体を作製して熱処理することで、従来の反応焼結よりも MA 含有燃料の焼結特性が改善されることを実験的に明らかにした(図6~8)。さらに、広い範囲で酸素分圧が制御できる装置と TG-DTA を組み合わせる技術を開発することにより、高い酸素ポテンシャルを有する MA 含有酸化物燃料の O/M 比が調整できる見通しを得た。

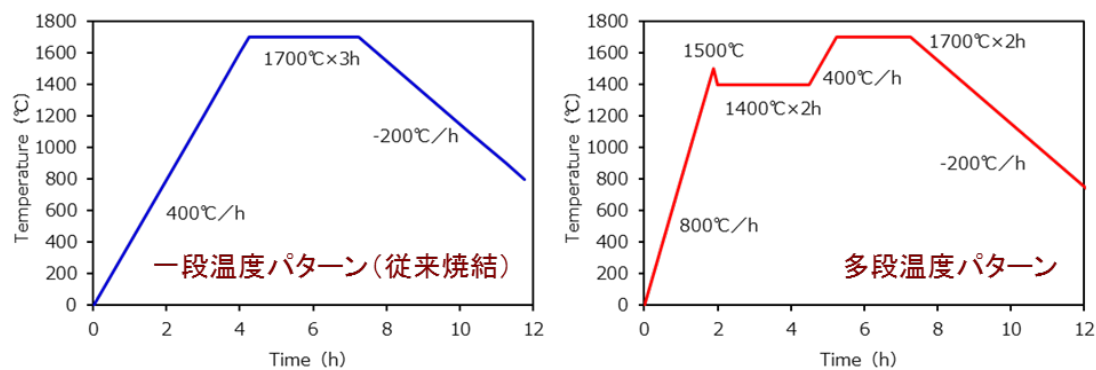


図 6 焼結温度パターン

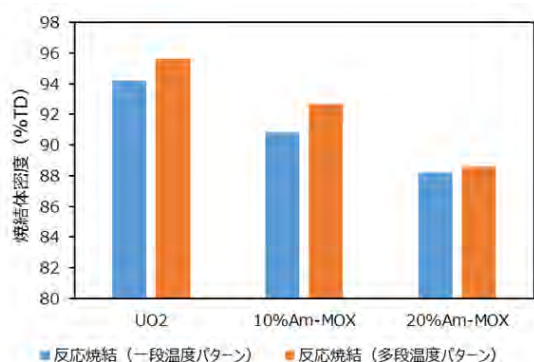


図 7 焼結体密度 (温度パターンの影響)

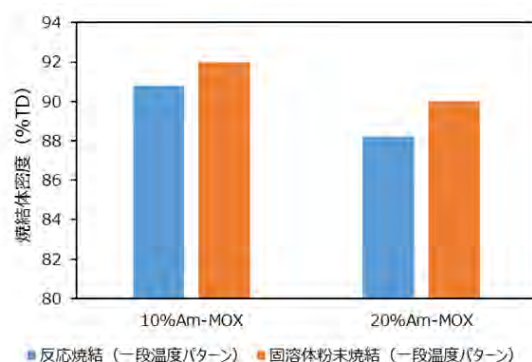


図 8 焼結体密度 (反応焼結及び固溶体粉末焼結)

(4) 模擬 MA 含有ウラン酸化物燃料における物性評価

模擬 MA、模擬 FP 元素として Y, Zr, Nd, Gd, Er, Th を含む高密度 UO₂ 試料を作製し、その音速及び弾性率、熱伝導率を測定した (図 9~11)。音速及び弾性率の変化は小さく、5 at% 程度までの含有率では過去に報告されている気孔率依存性の式から評価できるものと予測された。一方、熱伝導率については緩和時間近似による解析を行い、MA 及び FP 元素、また酸素欠陥を含むときの熱伝導率を評価した。測定結果から決定したパラメータより、Np, Am など既知の原子量・イオン半径を含む UO₂ の熱伝導率を予測できることを確かめ、Cm とともに、希土類 FP の添加の影響まで拡張可能な解析モデルを開発した。

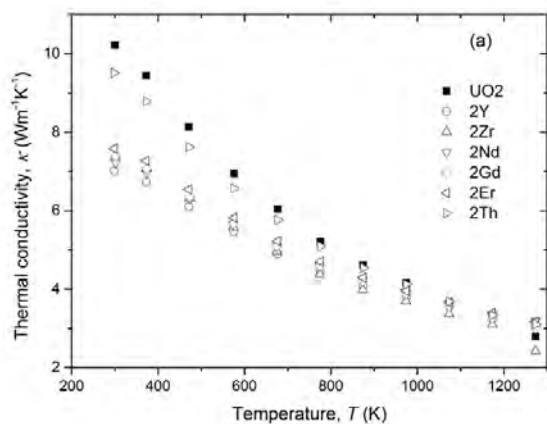


図 9 熱伝導率の温度依存性 (2%置換試料)

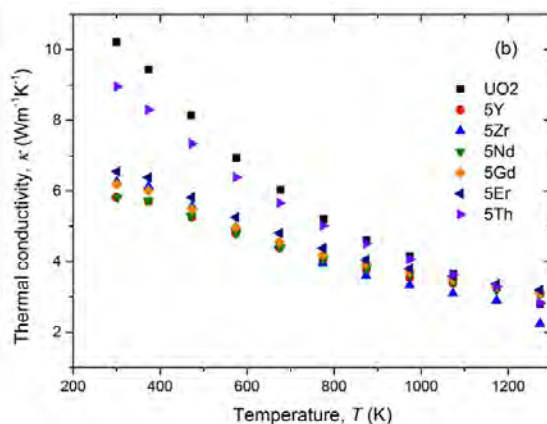


図 10 熱伝導率の温度依存性 (5%置換試料)

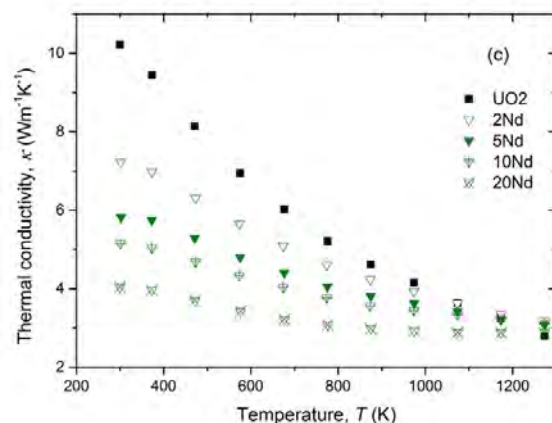


図 11 Nd 添加試料の熱伝導率

(5) MA 含有酸化物燃料における物性評価

実 Am を含有する酸化物燃料（10%Am-UO₂及び 20%Am-UO₂）焼結体を音速測定及び熱伝導率測定に供した。測定した音速からヤング率、剛性率を評価した結果、いずれの値も Am 含有量とともに線形に減少する傾向が見られた（図 12）。また、UO₂に Am を添加することにより、主に低温側で熱伝導率が低下することがわかった。

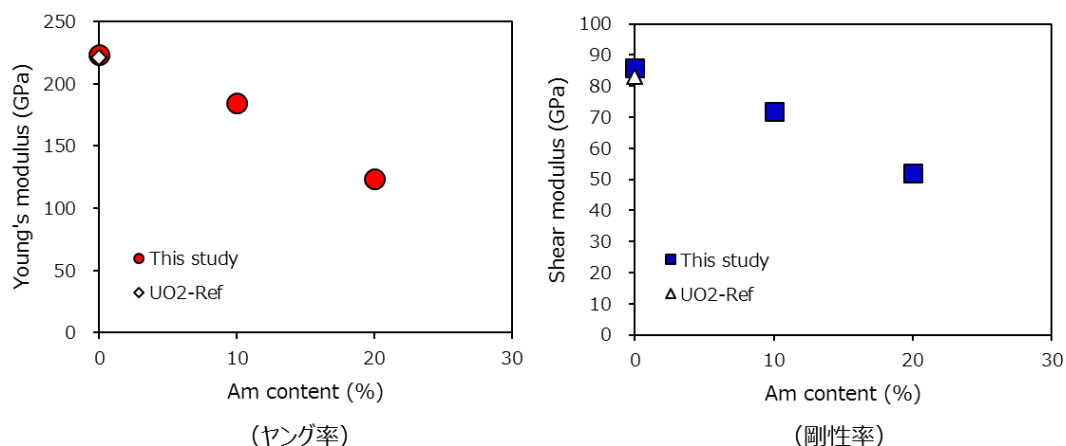


図 12 弾性率の Am 濃度依存性

3. 今後の展望

本研究の結果から、高 MA 添加酸化物燃料の熱機械的特性は、従来の酸化物燃料に比べて低下する傾向を示すことが実験的に明らかになった。本成果が、今後実施される高 MA 含有酸化物燃料を用いた炉心設計、燃料設計、照射挙動評価等に反映されることが期待される。

また本研究は、意図的に MA を添加した（ストックパイル）原料粉を用いることにより、高濃度まで MA を含有する酸化物燃料の焼結特性を改善する手法を開発し、各種物性に及ぼす MA 含有の影響を評価したものである。この結果は、再処理された MA（フィードストック）原料粉を用いた燃料に対しても、焼結特性や物性に及ぼす異種元素含有の影響の観点で反映可能と考えられる。本研究で得られた成果は、各種 MA 分離変換技術の確立に必要な共通基盤的な知見であり、MA リサイクルシステムの実現性を検討する際に不可欠な基礎データとしての活用が期待される。