

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：

MAリサイクルのための燃料挙動評価に関する共通基盤技術開発

（独立行政法人日本原子力研究開発機構）

機関名：独立行政法人日本原子力研究開発機構

代表者氏名：荒井康夫

機関名：ニュークリア・デベロップメント株式会社

代表者氏名：高阪裕二

機関名：国立大学法人大阪大学

代表者氏名：牟田浩明

研究期間及び予算額：平成19年度～平成21年度（3年計画） 274,388千円

平成19年度 96,174千円

平成20年度 94,838千円

平成21年度 83,376千円

項目	内容
1. 目的・目標	<p>高レベル放射性廃棄物（HLW）の地層処分への負担軽減、ウラン資源の有効利用及び燃料サイクルの核拡散抵抗性向上を目的として、現在は HLW に区分されているマイナーアクチノイド（MA）をリサイクルするための MA 含有燃料の開発が国内外で行われている。国内では低濃度 MA 含有 MOX 燃料を中心として、照射試験を含む研究開発が進行中であるが、その実用化のためには、従来の燃料技術からは外挿できない MA 含有燃料に特有な挙動を理解し、制御することが不可欠である。本研究開発では、燃料健全性評価上重要でありながらこれまで検討が十分に進んでいない、MA（特に Am、Cm）含有によって生成量が大幅に増加する燃料中の He 挙動とそれらの含有による燃料物性への影響を解明することにより、MA リサイクルの実現性を高めるために必要な基盤技術を開発する。以下に、設定した研究開発項目ごとに、具体的課題の革新性と事業としての全体計画を記述する。</p> <p>【研究開発項目1：He 挙動の解明とモデルの構築】</p> <p>MA 含有燃料では従来の U・Pu 燃料に比較して He の生成量が大幅に増加することは従来から指摘されていたが、燃料中の He 挙動に関する研究は、これまで断片的なものに限定されていた。本研究開発では、UO₂ や MOX 中の He の拡散係数評価、He の蓄積に伴う寸法変化測定、He 放出前後の微細組織観察などからなる基礎試験と、He 挙動に着目した約 0.5% の Am を含有した MOX 燃料の照射後試験、さらに、燃料中の He 挙動のモデル化と作成したモデルを用いた照射シミュレーションによる挙動予測などを組み合わせることにより、原理的理解に基づく MA 含有燃料中の He 挙動の解明を行う。</p> <p>(1) UO₂ 中 He 挙動基礎試験</p> <p>高温高圧下で He を吸蔵させた単結晶及び多結晶 UO₂、ならびに ²³⁸Pu のアルファ崩壊で蓄積した He を含む MOX の高温質量分析測定を行い、放出された He のイオン強度から UO₂ 及び MOX 中の He の拡散係数を評価する。さらに、He 放出前後の単結晶及び多結晶 UO₂ 中の微細組織観察を行い、He により形成された気泡の性状などを調べる。</p> <p>(2) ²³⁸Pu/²⁴⁴Cm 含有酸化物試料による He 挙動試験</p> <p>短半減期のアルファ崩壊核種である ²³⁸Pu (T_{1/2}=約 88 年) 含有酸化物ならびに ²⁴⁴Cm (T_{1/2}=約 18 年) 含有酸化物ペレットを調製して、アルファ崩壊で蓄積した He がペレットの寸法変化及び酸化物相の格子定数変化に及ぼす</p>

影響を評価する。また、He が蓄積した長期保管後のペレットの焼鈍試験を行い、寸法及び格子定数の回復挙動と組織変化を調べる。

(3) 照射済み MOX 燃料の照射後試験

Am を約 0.5%含有した「常陽」照射済み MOX 燃料の He 挙動に着目した照射後試験を行う。まず、燃料ピンのパンクチャ試験を行い、照射中に燃料ペレットから放出された He を定量する。さらに、同じ燃料ピンから採取した燃料ペレットの一部を約 2500°Cまで加熱して燃料ペレット中に残留していた He を定量することにより、燃料中の He 挙動を評価する。

(4) He 挙動評価モデルの構築

MA 含有 MOX 燃料の照射中及び保管中の He 生成量を、アルファ崩壊、酸素の (n, α) 反応及び三体核分裂の寄与を合わせて詳細計算するとともに、生成量評価のための簡易式を作成する。その上で、燃料内での He 生成、外部気相との平衡、粒内及び粒界拡散、外部気相への放出などの素過程を考慮して作成した He 挙動モデルを用いた高速炉照射シミュレーションを行い、MA 含有 MOX 燃料中の He 挙動を予測する。

【研究開発項目 2 : Cm 酸化物等の基礎特性の解明と特性評価】

MA の中でも Am と Cm は、酸化物中で 3 価のイオンの安定性が増すことなどから、それらの含有は酸化物燃料の挙動に影響を及ぼすことが予想される。しかし、主に取扱い上の困難さにより、これまで Am 含有酸化物の特性評価は一部の組成に限定され、Cm 含有酸化物に至っては実測データが皆無に近いのが現状である。本研究開発では Am 含有酸化物及び Cm 含有酸化物を対象として種々の燃料物性を実測するほか、挙動評価上重要な熱伝導度に着目して、計算科学的手法を応用してこれらを含む酸化物燃料の熱伝導度を評価する。さらに、革新的な手法として、これまで核燃料分野では用いられていなかったインデンテーション法による熱クリープ測定やホットディスク法による熱物性測定も実施する。

(1) MA 酸化物の特性データの取得

Am-Pu 系混合酸化物及び Cm-Pu 系混合酸化物を対象として、酸素ポテンシャル、比熱、熱伝導度、熱膨張率などの熱物性値を新たに取得するとともに、これらの系の高温の相状態を評価する。また、MA の含有に加えて、酸化物中の O/M 比や Cm 同位体のアルファ崩壊による欠陥の蓄積が、MA 含有酸化物の熱物性値に与える影響を評価する。

(2) MA 模擬酸化物の熱クリープデータの取得

MA の模擬物質として Nd を添加した Nd 含有 UO_2 固溶体試料を調製し、これを用いてインデンテーション法により MA 模擬酸化物の熱クリープデータを取得する。測定結果と有限要素法による解析結果を併せて、クリープ速度、応力指数、活性化エネルギーの Nd 添加量依存性や密度依存性など、取得した熱クリープデータを体系的に評価する。

(3) MA 含有燃料の特性評価

マトリックスを Mo、燃料粒子を CeO_2 で模擬した模擬サーメット燃料及びマトリックスを MgO とした模擬サーサー燃料の熱伝導度を実測するとともに、有限要素法解析による分散型燃料の熱伝導度の予測手法を確立する。これを基に、MA 含有酸化物の実測値と計算科学的手法を組合せて、分散型及び均質型 MA 含有燃料の熱伝導度を評価する。さらに、ホットディスク法の MA 含有燃料の特性評価への適用性について検討する。

<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 成果 ・ 副次的な成果 ・ 論文、特許等 	<p>【研究開発項目 1：He 挙動の解明とモデルの構築】</p> <p>1) 「UO₂ 中 He 挙動基礎試験」では、He 吸蔵後の単結晶及び多結晶 UO₂、ならびに ²³⁸Pu 含有 MOX の高温質量分析測定により、酸化物燃料中の He 挙動評価の基礎データとなる、He の粒内拡散係数を取得した。また、拡散の活性化エネルギーから、He の粒内拡散は空孔機構による拡散が支配的であることを示唆した。He 放出前後の UO₂ 試料の微細組織観察からは、He により形成された気泡の性状とともに、粒界を自由表面とみなせるほど He の粒界拡散係数が大きいことを明らかにした。</p> <p>2) 「²³⁸Pu/²⁴⁴Cm 含有酸化物試料による He 挙動試験」では、²³⁸Pu 含有酸化物及び ²⁴⁴Cm 含有酸化物試料の保管中のペレット寸法及び格子定数の経時変化から、室温での寸法変化は自己照射損傷による欠陥蓄積に伴う格子膨張に起因することを明らかにした。また、長期保管後の ²⁴⁴Cm 含有酸化物試料の焼鈍試験では、約 800℃までは寸法と格子定数の回復挙動が類似するのに対し、1160℃では格子定数はほぼ 100%回復するが、He による気泡が成長して寸法は再び増加することを示した。</p> <p>3) 「照射済み MOX 燃料の照射後試験」では、「常陽」で照射した Am を約 0.5%含有した MOX 燃料の He に着目した照射後試験を実施し、燃料ピンのパンクチャ試験から、従来の MOX 燃料より増加した単位重量当たりの He を定量した。また、同じ燃料ピンから採取した燃料ペレットの加熱試験で放出された He の大半は照射後保管中のアルファ崩壊で生成したものであり、照射中に生成した He の大半は燃料ペレットから放出されていたことを明らかにした。</p> <p>4) 「He 挙動評価モデルの構築」では、MA 含有 MOX 燃料の照射中及び保管中の He 生成量を詳細計算するとともに、生成量評価のための簡易式を作成した。また、作成した簡易式と燃料ペレット内の素過程を基に作成した He 挙動モデルを既存の燃料挙動解析コードのサブルーチンに組み込み、MA 含有 MOX 燃料の「常陽」及び「もんじゅ」での照射シミュレーションを実施し、He 放出率などについては照射後試験結果と合致する結果を得た。</p> <p>このほか、当初想定していなかった成果として、Heの拡散係数評価を目的として調製したHe吸蔵UO₂試料の破面を電子顕微鏡で詳細観察した結果、そこで観測された気泡の性状は照射後試験などで見られるFPガス気泡とは異なり、異なる方位の結晶面群で囲まれた多面体構造であることが分かった。また、高温質量分析と照射後試験の結果を合わせて、燃料ペレットからのHeとFPガスの放出率の差を両者の拡散係数で説明するとともに、拡散によるHe放出が顕著になるしきい温度は850～900℃にあると推定することができた。</p> <p>【研究開発項目 2：Cm 酸化物等の基礎特性の解明と特性評価】</p> <p>Cm 酸化物等の基礎特性の解明と特性評価に係る主な成果を、以下にまとめて示す。</p> <p>1) 「MA 酸化物の特性データの取得」では、これまで特性データが極めて乏しかった Am 含有酸化物及び Cm 含有酸化物を対象として、酸素ポテンシャル、比熱、熱伝導度、熱膨張率、高温相状態の温度依存性や組成依存性など、今後の燃料設計や照射挙動評価の基礎となるデータを多数取得した。MA 含有酸化物では Am、Cm の添加により酸素ポテンシャルが急激に上昇すること、酸素欠陥による化学量論組成からの僅かな逸脱により熱伝導度は大きく低下し、相状態も変化することなどを明らかにした。</p> <p>2) 「MA 模擬酸化物の熱クリーブデータの取得」では、MA 含有酸化物を模擬</p>
---	---

した Nd 含有 UO_2 試料のインデンテーション法による熱クリープ測定結果と有限要素法解析により作成したクリープ速度式から、Nd 添加率の増加に伴いクリープ速度、応力指数及び活性化エネルギーが低下することを明らかにした。解析結果から Nd 含有 UO_2 試料のクリープ機構を検討するとともに、同一 Nd 添加率試料では密度の増加とともにクリープ速度が低下することを示した。

3) 「MA 含有燃料の特性評価」では、有限要素法解析を用いた分散型燃料の熱伝導度評価手法を確立した上で、熱伝導度を実測した Pu-Am 二元系酸化物及び Np-Pu-Am-Cm 四元系酸化物を燃料粒子として、Mo 及び MgO を母材とする MA 含有サーメット及びサーサー燃料の熱伝導度を評価した。また、均質型燃料である MA 含有 MOX 燃料の熱伝導度を分子動力学法で計算し、報告例のある低 MA 含有率では報告値と合致する結果を得たほか、MA 含有率を最高 20%まで増加させても熱伝導度への影響は小さいことを示した。

このほか、熱クリープ測定に用いたマイクロインデンテーション法は、これまでセラミックスへの応用が限られていたが、測定結果の再現性や UO_2 の低応力領域での軸圧縮クリープ測定結果からの外挿性も良好で、試料量が制限される MA 含有燃料の熱クリープ測定手段として有望であることが分かった。また、比較的短時間で、且つ簡便に比熱、熱拡散率、熱伝導度の同時測定が可能なホットディスク法は、MA 含有酸化物などの低熱伝導度試料に対して適した手法である一方、特に高温での測定のためには小型化や材質などホットディスクセンサー部の改良が課題である点を示した。

【事業全体】を通して

MA 含有酸化物燃料中の He 挙動評価に関する成果により、燃料中の He の拡散係数や形成された気泡による燃料の組織変化などの基礎データ、及び He に着目した MOX 燃料の照射後試験データを取得したほか、燃料ペレット内の素過程を基に作成した He 挙動モデルを用いて、MA 含有酸化物燃料中の He 挙動予測を可能とした。また、Am 含有酸化物、Cm 含有酸化物を対象とした物性測定と計算科学的手法を用いた燃料の物性評価に関する成果により、これまで報告例が極めて少なかった Am 含有酸化物、Cm 含有酸化物の物性データを多数取得するとともに、燃料設計や照射挙動評価を行う上で重要な物性値である MA 含有酸化物燃料の熱伝導度を、実測値と計算科学的手法の組合せにより評価した。これらの成果は、今後の MA 含有燃料開発を進める上で貴重な技術基盤となるものである。さらに、MA リサイクルを工学規模で実現するために必要な今後の開発課題の中から、MA 含有燃料中の He 挙動や燃料物性に関連した課題を抽出した。

【論文発表】

- H. Otake, et al., Oxygen potential measurements of $Am_{0.5}Pu_{0.5}O_{2-x}$ by EMF method, J. Nucl. Mater., **389**, (2009) 68.
- H. Otake, et al., Oxygen potential measurements of $Cm_{0.09}Pu_{0.91}O_{2-x}$ by EMF method, IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng., **9**, (2010) 012015.
- I. Sato, et al., Fission gases and helium gas behavior in irradiated mixed oxide fuel pin, J. Nucl. Mater. (査読中) .
- H. Serizawa, et al., A unique property of helium gas bubble precipitated in UO_2 matrix, J. Nucl. Mater. (査読中) .

【口頭発表】

- 荒井康夫ほか、MA リサイクルのための燃料挙動評価に関する共通基盤技

	<p>術開発; (1) 全体概要、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月、高知。</p> <ul style="list-style-type: none"> • 秋江拓志ほか、同上; (2) 高速炉燃料内でのヘリウム生成量計算と定式化、同上。 • 西剛史ほか、同上; (3) アメリシウム・プルトニウム混合酸化物の熱伝導度、同上。 • 野瀧友博ほか、同上; (4) マイクロインデンテーション法による MA 模擬酸化物の熱クリープ特性測定、同上。 • 宇埜正美ほか、同上; (5) 模擬 MA 含有燃料の熱物性評価、同上。 • 荒井康夫ほか、同上; (6) 平成 20 年度の進捗概要、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月、仙台。 • 中島邦久ほか、同上; (7) 高温質量分析による UO_2 および MOX からの He 放出挙動、同上。 • 高野公秀ほか、同上; (8) ^{244}Cm 含有酸化物の格子定数及びペレット寸法変化、同上。 • 勝山幸三ほか、同上; (9) 照射済み MOX 燃料からの He 放出挙動、同上。 • 西剛史ほか、同上; (10) $Pu_{0.91}Cm_{0.09}O_{2-x}$ の熱伝導度、同上。 • 野瀧友博ほか、同上; (11) マイクロインデンテーション法による MA 模擬酸化物の熱クリープ特性測定、同上。 • 宇埜正美ほか、同上; (12) 有限要素法を用いた模擬サーメット、サーサー燃料の熱伝導度評価、同上。 • 中島邦久ほか、同上; (13) UO_2 および $(U_{0.3}, ^{238}Pu_{0.7})O_2$ 中の He 拡散係数、日本原子力学会 2010 年春の年会、2010 年 3 月、水戸。 • 荒井康夫ほか、同上; (14) 平成 21 年度の進捗概要と 3 年間のまとめ、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010 年 9 月、札幌 (発表予定、予稿提出済)。 • 芹澤弘幸ほか、同上; (15) ヘリウム吸蔵及び放出試験後の UO_2 試料に見られる多面体欠陥形成の平衡論的解釈、同上。 • 高野公秀ほか、同上; (16) ^{244}Cm 含有酸化物の焼鈍による格子定数及びペレット寸法回復挙動、同上。 • 音部治幹ほか、同上; (17) Pu が +3 と +4 の混合原子価状態である場合の $Cm_{0.09}Pu_{0.91}O_{2-x}$ の酸素ポテンシャル、同上。 • 西剛史ほか、同上; (18) $(Am_{0.25}Pu_{0.75})O_{2-x}$ の熱伝導度、同上。 • 野瀧友博ほか、同上; (19) マイクロインデンテーション法による MA 模擬酸化物の熱クリープ特性測定、同上。 • 牟田浩明ほか、同上; (20) FEM によるサーサー、サーメット燃料の熱伝導度評価、同上。 • H. Otobe, et al., Oxygen potential measurements of $Am_{0.5}Pu_{0.5}O_{2-x}$ by EMF method, 12th Symposium on Thermo-chemistry and Thermo-physics of Nuclear Materials, August 30-September 3, 2008, Portschach, Austria. • H. Otobe, et al., Oxygen potential measurements of $Cm_{0.09}Pu_{0.91}O_{2-x}$ by EMF method, Actinides 2009, July 12-17, 2009, San Francisco, USA. • I. Sato, et al., Fission gases and helium gas behavior in irradiated mixed oxide fuel pin, E-MRS 2010 Spring Meeting, June 7-11, 2010, Strasbourg, France. • M. Takano, et al., Annealing behavior of $(Pu, Cm)O_2$ lattice and bulk expanded by self-irradiation damage, Nuclear Materials 2010, October 4-7, 2010, Karlsruhe, Germany (発表予定、予稿提出済)。
--	--

<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 研究開発の進捗 ・ 研究開発の成果 ・ ブレイクスルー 	<p>【研究開発の進捗】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 計画は全体として、また個別項目ごとにも計画通り遂行されたと評価する。 ・ 限られた量の Am と Cm を計画的かつ有効に使って成果を出した、ということは大きく評価できる。 <p>【研究開発の成果】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 熱物性、He 挙動、クリープ特性等に関して、それぞれ計画どおりの新しい知見を得ており想定範囲の優れた成果が得られた。 ・ He 拡散実験や多面体バブルの観察と考察は、学術的に興味深い内容を含んでおり、核燃料基礎科学の観点から今後の研究の進展が期待されるものである。 ・ 軽水炉から高速炉へと移行していく中で、高速炉の利点と言われている MA の焼却というオプションの足元を固める有意義な研究であり、全体的に今後の MA 添加燃料の設計、製造、管理面で必要となる有益な結果が数多く示されたことは、高く評価できる。 <p>【ブレイクスルー】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 本研究で得られた多くの知見は、熱物性やクリープ特性の評価から MA 添加は燃料設計への悪影響は限定的であること、また、He の拡散係数の評価から燃料製造における悪影響も小さいと推察させることから、MA リサイクル燃料の設計成立性に一定の目処を与えている。 ・ MA 燃料実用化に向けての技術基盤を確立するためには、今後とも、モデルやデータの追加が必要となることから、研究ニーズと優先順位を定義して着実に研究を進めることを期待する。
<p>4. その他</p>	