

多様な原子燃料の概念と基礎設計 —将来の原子炉のための燃料開発—**Concepts and Basic Design of Diverse Nuclear Fuels****- Development of Nuclear Fuels for Future Reactors -***黒崎 健¹, *宇埜 正美², *前田 誠一郎³, *尾形 孝成⁴*高野 公秀³, *植田 祥平³, *有田 裕二²¹ 京都大学, ² 福井大学, ³ 日本原子力研究開発機構, ⁴ 電力中央研究所**1. はじめに**

多様な原子燃料の概念と基礎設計として、特に、将来の原子炉のための燃料開発について議論する。この企画は、現在、日本原子力学会誌で連載中の連載講座『多様な原子燃料の概念と基礎設計』と連動している。本企画セッションの内容は、連載講座の最後のまとめの記事の一部となる。企画セッションでは、核燃料の種類と将来に向けた研究開発の展望を述べたのち、軽水炉燃料、MOX 燃料、金属燃料、窒化物燃料、高温ガス炉燃料、熔融塩燃料の六つの燃料形態について、燃料の基本設計と研究開発の現状と課題について概説する。六つの燃料形態ごとにその特徴や研究開発の現状を概説した後、研究開発、特に、照射試験に的を絞り、発表者と会場出席者による総合討論を行う。

2. 多様な原子燃料の概念と基礎設計 —将来の原子炉のための燃料開発—**(1) 多様な燃料形態と研究開発の展望（京都大学・黒崎 健）**

ウランやプルトニウムを主成分として、様々な化学組成・形状の物質が、核燃料になりうる。化学組成だと、酸化物、金属、窒化物、炭化物、フッ化物、形状だと、ペレット、スラグ、被覆粒子、熔融物などの種類がある。燃料形態ごとに特徴があり、その特徴をうまくいかすように使用される炉型が定まる。例えば、酸化物であれば、軽水炉や高速炉用燃料として、二酸化ウランやウラン-プルトニウム混合酸化物（MOX）の粉末を焼き固めたペレット状の燃料が開発されている。金属であれば、高速炉用燃料として、ウラン-プルトニウム-ジルコニウム三元系の金属スラグ状の燃料が開発されている。また、フッ化物は融点が低く、それゆえ、熔融物の形状で使用される。これらの燃料の研究開発には、いくつかの段階がある。例えば、燃料製造試験、基礎物性試験、照射・照射後試験などである。このような段階を経て実用化につながっていくが、それぞれの燃料形態ごとに、研究開発の段階は異なる。現行の軽水炉で既に豊富な使用実績のある酸化物から、今後かなり基礎的なところからの研究開発が求められるフッ化物まで、その幅は広い。以降、化学組成、形状ならびに使用される炉型の観点から分類した六つの燃料形態について、主に研究開発の展望を概説する。

(2) 軽水炉燃料（福井大学・宇埜正美）

軽水炉燃料は国内外で豊富な運用実績があり、そのふるまいについても多くの知見が得られている。現在は、今後のさらなる使用済燃料発生量の低減や安全性を含む性能向上を目指し、被覆材の改良等に取り組んでいる。また、既存の軽水炉に装荷可能で過酷事故時においても熔融しにくく、損傷しにくい燃料である事故耐性燃料（ATF: Accident Tolerant Fuel）についても燃料の被覆材、燃料材等の検討、研究がなされている。これらの新たな材料を軽水炉に適用するにあたり、同環境を模擬する試験炉あるいは実炉での照射試験データを取得する必要がある。

(3) MOX 燃料（日本原子力研究開発機構・前田 誠一郎）

MOX 燃料は、既にプルサーマルとして軽水炉において利用されており、更に、ウラン資源を究極的に利用できる高速炉のドライバー燃料として、高速実験炉「常陽」の長期に亘る運転に利用されると共に高速増殖原型炉「もんじゅ」の性能試験に供された。高速炉では、高速中性子の照射量が大幅に高いことから、被覆管の照射損傷による膨れ（スエリング）が生じる。これを抑制する材料として PNC316 鋼を開発しており、

更に、炉心取出平均燃焼度 150 GWd/t に相当する照射量 250 dpa に耐え、高温での機械的強度を高めた酸化物分散強化型フェライト鋼（ODS 鋼）の開発を進めており、図 1 に示すように高温での優れたクリープ強度特性が示されている。また、中性子スペクトルが硬い高速炉では長半減期核種であるネプツニウム、アメリシウム、キュリウムのマイナーアクチノイド（MA）及びプルトニウム（Pu）-240 等の偶数核の Pu 同位体核種に対しても高い核分裂断面積を有する。高レベル放射性廃棄物の減容化・有害度の低減を目指すために、MA を高速炉で消滅させるための MA 含有 MOX 燃料の開発を進めている。

実際に「常陽」使用済燃料から回収された数グラムの MA を原料とした燃料を用いた照射試験を運転再開後の「常陽」で実施することを計画している。また、今後、プルサーマルの進展に伴って使用済 MOX 燃料の取扱いが問題になり、使用済 MOX 燃料を再処理した場合に回収される高次化（同位体組成として Pu-240 等の割合が高い）した Pu の利用が課題となる。高速炉サイクルでは高次化 Pu をも繰り返して利用することができる。余剰 Pu を持たず、Pu をマネジメントする観点から、高速炉の多様な特徴をいかして、Pu を燃焼させることが当面のターゲットとなる。これらのため、従来 Pu 含有率として約 30 wt% が上限と考えられてきたが、これを超える高 Pu 含有 MOX 燃料の開発が期待されている。具体的には、再処理時の硝酸溶液への溶解性を高める技術開発、高発熱原料粉に対応した高度化製造技術開発、燃料／被覆管化学的相互作用（FCCI）等の炉内挙動を把握するための照射試験、燃料物性・照射挙動のシミュレーション技術開発等を行うことを目指している。ここで、「常陽」は世界でも極めて限られた高速中性子照射場であり、MOX 燃料に限らず高速炉用燃料の開発を進めるためには不可欠な研究開発インフラであり、早期の運転再開が期待される。

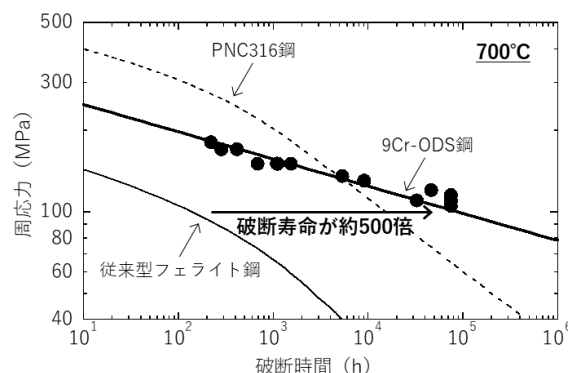


図 1 ODS フェライト鋼被覆管のクリープ破断強度

(4) 金属燃料（電力中央研究所・尾形 孝成）

高速炉用燃料として考えられている金属燃料には U-Pu-10 wt.%Zr 合金が用いられる。中性子の減速に有効な酸素や窒素等の軽元素を燃料成分として含まないため、金属燃料炉心では中性子の平均エネルギーが高くなる。しかも炉心の核燃料物質の密度が高くなるため、増殖比の向上や核分裂性物質の炉心装荷量の低減など高性能の炉心の設計が可能となる。米国の IFR プログラム (1984～1994 年) における金属燃料開発の結果、19 at.% 以上の高燃焼度の達成など金属燃料の高い性能が明らかとなった。

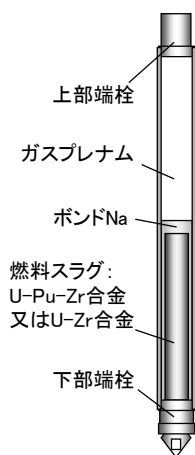


図 2 金属燃料ピン

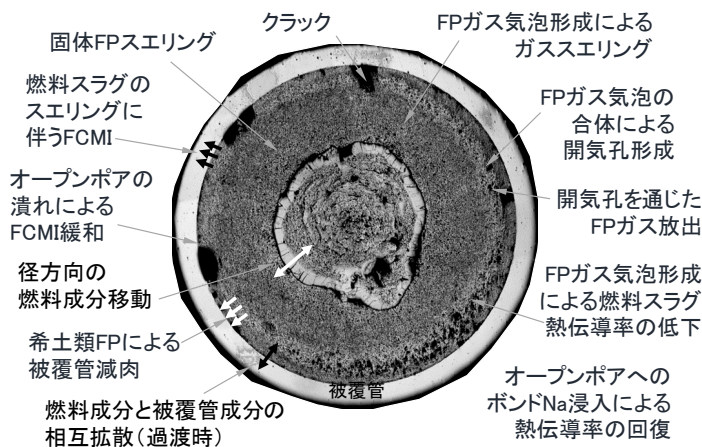


図 3 金属燃料の照射挙動

金属燃料ピンの概念図を図 2 に示す。棒状の燃料合金は燃料スラグと呼ばれ、射出鋳造法によって成型される。燃料スラグと被覆管の隙間は、熱伝達を促進するため Na で充填される。燃料集合体および高速炉システムの概念や構造は、高速炉用 MOX 燃料と同様である。U-Pu-Zr 合金の融点は MOX 燃料より低い、熱伝導率が高いため、燃料中心溶融に対する余裕は MOX 燃料より大きくなる。図 3 には金属燃料の照射挙動をまとめている。金属燃料ピンの設計方針は MOX 燃料と同じものが適用でき、設計評価においては金属燃料特有の物性値と照射挙動が考慮される。

金属燃料の研究開発としては、現在、電力中央研究所や米国アイダホ国立研究所 (INL) 他において、MA 含有金属燃料の照射後試験 (METAPHIX 他)、金属燃料挙動解析コードのベンチマーク解析、U-Pu-Zr 合金物性の基礎研究などが進められている。

(5) 窒化物燃料 (日本原子力研究開発機構・高野 公秀)

加速器駆動システム (ADS) による MA 核変換のため、日本原子力研究開発機構原子力科学研究所では MA 高含有窒化物燃料の研究開発を進めている。MA 生成源となる U を含まず、TRU (MA と Pu) 窒化物を ZrN あるいは TiN で希釈した不活性母材型の窒化物燃料であり、前者の場合は単相固溶体ペレット、後者の場合は TRU 窒化物粒子を TiN 母材に分散させた粒子分散型ペレットとする。現状の熱出力 800 MW の ADS 炉心設計では、約 8 トンの (MA, Pu, Zr)N 燃料が装荷され、TRU 窒化物/ZrN 母材混合比は平均で 40/60 mol% 程度であり、年間 250 kg の MA 核変換が可能である。実際の燃料製造に使用する窒素ガスは、燃焼中の (n, p) 反応による ^{14}N からの ^{14}C 生成・蓄積を避けるため、天然窒素中の ^{15}N を高濃度に同位体濃縮したものを使用する必要がある。

核変換用窒化物燃料の照射実績は金属燃料や MOX 燃料に比べて少なく、MA 無添加の (Pu, Zr)N ペレットの照射実績が 2000 年代に国内外で数例ある他、MA を含有したものは Am を低濃度で添加した (Pu, Am, Zr)N ペレットの照射実績が一例あるのみで、高燃焼度までの詳細な照射後試験 (PIE) データはまだ得られていない。これを補い、照射試験用燃料及び実燃料の仕様検討に活用するため、燃料ふるまい解析コードの開発を進めている。軽水炉で実績のある FEMAXI 上で計算可能な窒化物燃料解析用のモジュールを作成し、ADS 炉心に合わせた物性データや現象記述モデルを組み込み、燃料組成や密度、線出力をパラメータとしてペレット温度分布や寸法変化、被覆管接触圧・周方向応力、ピン内圧等の燃焼度依存性が解析可能となっている。現状で予測される高燃焼度領域での課題の一つは、ペレットの熱クリープ速度が非常に小さいことから、スエリングによるペレット・被覆管力学的相互作用 (PCMI) が懸念されることである。

燃料製造技術開発の現状は、小規模ながら Np から Cm までの炭素熱還元による窒化技術の実証と、種々の TRU-ZrN 系焼結体作製による物性データ取得・データベース化が行われている。また、実燃料製造で必要となるゾルゲル法による窒化物粒子作製や、上述のスエリングに対処すべく気孔形成材を用いた気孔率制御にも取り組んでいる。大きな課題の一つである $^{15}\text{N}_2$ ガスの入手に関しては、国内ですでに商業プラントが稼働している ^{18}O 濃縮の技術が N_2 低温蒸留プラントに流用可能であり、年間 1 トンの 99% 濃縮 $^{15}\text{N}_2$ ガスが技術的にも経済的にも入手可能な見通しが得られている。また、このガスを無駄なく閉じた系で循環精製利用する技術に関しても実験室規模の実証試験が行われている。今後、照射試験に向けて準備を進めていく段階にあるが、従前より燃料照射試験が困難な状況にあり、燃料ふるまい解析コードの精度・実用性を向上して少ない照射試験で効率よく PIE データを取得することが重要となっている。

(6) 高温ガス炉燃料 (日本原子力研究開発機構・植田 祥平)

高温ガス炉燃料の特徴の一つは、燃料からの核分裂生成物 (FP) の放出を防ぐ機能を主に被覆燃料粒子に持たせていることである。被覆燃料粒子の製造技術は、直径数百 μm の二酸化ウラン (UO_2) の燃料核に、厚さ数十 μm の熱分解炭素 (PyC) 層及び炭化ケイ素 (SiC) 層を被覆した、いわゆる TRISO (Tri-structural isotropic) 構造の 4 重被覆層を持ち、高温ガス炉の高温の熱供給や優れた固有の安全性を支える鍵となる技術の一つである。

日本原子力研究開発機構 (JAEA) は、熱出力 30 MW の高温ガス実験炉である高温工学試験研究炉 (HTTR)

の設計・建設を通して、被覆燃料粒子の設計・製造に係わる研究開発を進めるとともに、原子燃料工業(株)(原燃工)と共同で量産製造技術・検査技術の研究開発を進めてきた。その中で、1992年には商用規模の被覆燃料粒子製造プラントが原燃工東海事業所に建設され、ウラン総量約2トンのHTTR用燃料の製造に成功した。製造した被覆燃料粒子の被覆層には破損がほとんどなく、世界最高レベルの品質を得られる量産技術を、HTTR用燃料の製造を通して確立した。また、HTTRの設計・建設を通して培った被覆燃料粒子の製造技術をベースにして、高燃焼度化やプルトニウム(Pu)燃焼といった、実用化・高度化のための研究開発がJAEAにより進められてきた。本報では、被覆燃料粒子の概要、設計方針、製造技術、照射性能及び実用化・高度化開発について解説する。

(7) 熔融塩燃料(福井大学・有田 裕二)

熔融塩燃料はフッ化物や塩化物の共晶塩にウラン・プルトニウムやトリウムなどの塩を溶解させた形で使用する液体燃料である。融点を下げるために共晶系を利用することから、燃料塩の組成はある程度限定されることが多くその組成域も塩の組み合わせによって様々である。核特性などの条件によってフッ化物であればLi、Be、K、Na系の塩が、塩化物であればNa、Ca系の塩などに絞り込まれてきている。しかしながら炉設計に必要な物性値(密度、熱伝導率、熱容量など)や、核反応生成物の評価に用いるF、Clなどの詳細な核断面積など基礎的な情報の整備が途上である。さらに、材料腐食などの知見も限られており、照射による影響も限定的な情報しかない。現在、第4世代原子力に関する国際フォーラムの枠組みや私企業による熔融塩炉開発が盛んになってきているが、計算による評価がやりやすい炉設計が先行しており、高温作動機器の開発とともに、再処理まで含んだ燃料・材料分野の研究の進展が強く求められる。

3. 結言

核燃料や原子炉材料は、照射によってその性状や特性が大きく変化する。例えば、核燃料を照射すると、数十を超える元素が核分裂により生成する。これら核分裂生成物は、照射燃料の温度や雰囲気といった環境に応じて相互に化学反応したり移動したりする。その結果、照射燃料の相状態や組織は大変複雑なものとなる。また、照射に伴い、すなわち時間経過に伴い、その状態は常に変化する。さらに、相状態や組織の変化に起因して、熱伝導率をはじめとする基礎物性も変化する。従って、新しい核燃料や原子炉材料を開発するためには、照射下における挙動をしっかりと把握することが重要となる。そのためには照射試験とそれに続く照射後試験が必須であり、それら試験を実施するためには、関連する施設(燃料製造施設、照射炉、照射後試験施設等)が必要となる。

今回は、六つの燃料形態についてその特徴が概説されるが、それぞれの燃料形態における開発フェーズは異なる。企画セッション後半では、照射試験に的を絞り、発表者と会場出席者による総合討論を通じて、課題の共有と議論の集約を図る。

*Ken Kurosaki¹, Masayoshi Uno², Seiichiro Maeda³, Takanari Ogata⁴, Masahide Takano³, Shohei Ueta³, and Yuji Arita²

¹Kyoto Univ., ²Univ. of Fukui, ³JAEA, ⁴CRIEPI