



照射試験用スフェアパック及び バイパック燃料の製造 (JNC/PSI/NRG 共同研究)

富田 豊 重留 義明 木原 義之

東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部

Fabrication of Sphere-Pac Fuel and Vipac Fuel for Irradiation Tests
(Collaboration Project among JNC, PSI and NRG)

Yutaka TOMITA Yoshiaki SHIGETOME Yoshiyuki KIHARA

Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

サイクル機構では、スイスPSI(Paul Scherrer Institut)とオランダNRG(Nuclear Research and Consultancy Group)との間で、振動充填燃料製造と照射試験データ(熱的挙動)の取得を目的とした共同研究を実施している。本プロジェクトでは、スフェアパック、バイパック、ペレットの3タイプの燃料をPSIで製造し、2004年1月からオランダ ペッテンのHFR(High Flux Reactor)で照射試験を行っている。本照射試験に用いるスフェアパック燃料として、20%Pu-MOX及び5%Np-20%Pu-MOXの球状粒子燃料を内部ゲル化法で製造し、世界的に初めてNp-MOXスフェアパック燃料の製造に成功した。また、バイパック燃料製造を通して非球状粒子燃料の充填条件の最適化の検討がさらに必要であることが分かった。

JNC has carried out the collaboration project "Research and Development of Advanced Sphere-pac Fuel" with PSI (Paul Scherrer Institut) in Switzerland and NRG (Nuclear Research and Consultancy Group) in the Netherlands. The purpose of this project is to obtain data for vibro-packed fuel fabrication and irradiation test (thermal behavior). In this project, three types of fuel segment (sphere-pac segment, vipac segment and pellet segment) were fabricated in PSI. Irradiation tests in the HFR (High Flux Reactor) were started in January 2004 and are still in progress. 20%Pu-MOX spheres and 5%Np-20%Pu-MOX spheres were fabricated by the internal gelation process for sphere-pac segments. It was the first time fabrication of Np-MOX spheres succeeded. It also showed that the optimization of the filling condition of non spherical granules should be examined further through fabrication of vipac segments.

キーワード

振動充填燃料, スフェアパック燃料, バイパック燃料, Np-MOX燃料, MOX燃料, 燃料製造, 内部ゲル化法, 粒子燃料, 振動充填, ペレット

Sphere-Pac Fuel, Vipac Fuel, Np-MOX Fuel, MOX Fuel, Fuel Fabrication, Internal Gelation Process, Sphere Fuel, Vibro-Filling, Pellet

1. はじめに

サイクル機構では、FBRサイクル実用化戦略調査研究¹⁾の一環として振動充填燃料の開発を進めている。振動充填燃料は製造工程の遠隔操作に適

していると考えられることや微粉末の発生が少ないなどの利点があることから、燃料製造コストの低減とともに製造工程における作業員の被ばく防止が大きな課題となる低除染燃料製造やマイナー



富田 豊

プルトニウム燃料開発グループ所属
粒子製造開発・ウラン試験チームリーダー 副主任研究員
振動充填燃料開発における粒子燃料開発に従事
核燃料取扱主任者, 第1種放射線取扱主任者



重留 義明*

プルトニウム燃料開発グループ所属
副主任研究員
振動充填燃料開発における充填技術開発に従事
核燃料取扱主任者, 第1種放射線取扱主任者



木原 義之

プルトニウム燃料開発グループリーダー
振動充填燃料開発, MA燃料開発, 溶接技術開発, ロシア解体核協力等の業務に従事

*現在：資源エネルギー庁に出向中

アクチニド燃料製造の有望な候補の一つとなっている。そこで、サイクル機構では、スフェアパック燃料について優れた経験・実績を持つスイスのPaul Scherrer Institut（以下「PSI」）及びHigh Flux Reactor（以下「HFR」）の運転管理を行っているオランダのNuclear Research & Consultancy Group（以下「NRG」）との間で共同研究「Research and Development of Advanced Sphere-pac Fuel」を実施している。本共同研究はスフェアパック、バイバック及びペレット燃料をオランダのペッテンにあるHFRにおいて比較照射を行うというものである。本共同研究における三研究機関の役割分担としては、サイクル機構は全体計画作成、照射条件設定、照射後試験の主導、試験結果の解析及び取りまとめ、PSIは燃料製造、試験結果の解析、NRGはリグ製作、照射試験及び照射後試験の実施である。

本共同研究の主な目的は、FBRサイクル実用化戦略調査研究に資するため、照射試験データとスフェアパック燃料及びバイバック燃料製造データを取得することにある。照射試験は、高速炉の径方向温度分布を模擬した条件でスフェアパック、バイバック及びペレットの3種類の燃料の照射初期の組織変化挙動と溶融限界線出力に関するデータを取得するために行う。

球状粒子燃料（以下「スフェア粒子」）をピンに充填するスフェアパック燃料は1960年代から米国やヨーロッパ各国で研究²⁾されたが、1980年代までに開発が相次いで中止されるなど技術開発が下火になったため、燃料製造に関する報告が少ない。さらに、FBRサイクル実用化戦略調査研究で検討しているマイナーアクチニド等を添加したMOX

粒子燃料については、過去に製造報告はないが、今回の燃料製造においてNpを含有するMOXスフェア粒子を製造することから、Npが粒子燃料製造に与える影響に関する過去に例のない製造データの取得が可能である。

また、非球状粒子燃料（以下「バイバック顆粒」）を用いたバイバック燃料製造については、ロシアから報告³⁾されている程度である。サイクル機構では模擬バイバック顆粒等を用いた充填試験⁴⁾を行っているが、この試験で得られた充填条件をMOXバイバック顆粒で確認する点も燃料製造の重要な取得データ項目のひとつである。

本稿では照射試験用燃料製造が終了したことから、スフェアパック燃料及びバイバック燃料の製造に関して報告する。

2. 照射試験の概要

照射試験用燃料として、16本のセグメントを製造し、2本のセグメントを上下に接続して合計8本の燃料ピンを製造した。表1に照射試験マトリックスを示すが、セグメントを燃料タイプ別に分けると9本がスフェアパック燃料、2本がバイバック燃料、5本がペレット燃料である。また、燃料組成別では14本のセグメントが $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_2$ 、残りの2本のセグメントが $(U_{0.75}Pu_{0.2}Np_{0.05})O_2$ （ともにスフェアパック燃料）である。

セグメントの仕様は、長さ約450mm、被覆管外径7.5mm、内径6.7mm、燃料有効長250mmである。ただし、溶融限界線出力試験以外のペレットタイプの燃料有効長は、照射試験データ取得に必要な50mmとした。

スフェアパック及びバイバックセグメントの特

表1 照射試験マトリックス

	初期焼結評価試験 530W/cm到達		組織変化試験(1) 530W/cm, 48hr保持		組織変化試験(2) 530W/cm, 96hr保持 (<1,000MWd/t)		溶融限界線出力試験 <900W/cm	
上 部 セ グ メ ン ト								
燃 料 種 類	MOX	MOX	MOX	MOX	MOX	MOX	MOX	MOX
燃 料 タ イ プ	ペレット	スフェア パック	ペレット	スフェア パック	ペレット	スフェア パック	ペレット	スフェア パック
スミア密度(%TD)	89.3	79.2	89.3	79.5	88.8	79.5	89.0	79.5
下 部 セ グ メ ン ト								
燃 料 種 類	MOX	MOX	MOX	Np-MOX	MOX	MOX	MOX	Np-MOX
燃 料 タ イ プ	スフェア パック	バイバック	スフェア パック	スフェア パック	スフェア パック	バイバック	ペレット	スフェア パック
スミア密度(%TD)	79.1	75.9	79.3	81.3	70.6	75.8	89.8	81.5

徴としては、燃料カラムの上下に充填した断熱スフェア粒子と端栓の間にタンゲステン製の薄い円盤状のFuel Seal Disk (FSD)を挿入して細かな粒子が端栓と被覆管の隙間に入り込むのを防ぐ構造になっていることである。また、バイバックセグメントでは、非常に小さな顆粒を使用するため、バイバック顆粒と断熱スフェアの間にもFSDをはさんで両者の混合を防いでいる。

図1に燃料ピンの概略図を示す。燃料ピンはステンレス製の2重キャプセルに封入され、照射リグに2本ずつ装荷されて1回の照射試験で4セグメントずつ照射される。照射試験は初期焼結試験、組織変化試験(1)、組織変化試験(2)、溶融限界線出力試験の4回実施する。

照射後試験は、NRGのホットセルで非破壊試験、パンクチャー試験、金相観察、電子線マイクロプローブ分析が行われ、燃焼度分析のみPSIのホットセルで行われる。

3. スフェア粒子製造⁵⁾

3.1 製造方法

スフェアバック燃料は球状のスフェア粒子を直接被覆管に充填して製造した燃料であり、本共同研究では、スフェア粒子の製造を内部ゲル化法によって行った。スフェアバック燃料のプロセスフローを図2に示す。

内部ゲル化法は、オランダ電力研究所(KEMA: Keuring von Erlectrotechnische Materialenat Arhem)で開発された方法で、金属硝酸溶液にアンモニアドナーであるヘキサメチレンテトラミン(HMTA)と溶液の安定剤である尿素を混合して

調製した原料液を高温に熱したオイル中に滴下し、HMTAの熱分解で発生したアンモニアと金属硝酸溶液との反応によって液滴の内部からゲル化させてゲル粒子を製造する方法である。

本共同研究では、MOX大径粒子(800 μ m)、MOX中径粒子(190 μ m)、MOX小径粒子(70 μ m)、Np MOX大径粒子(800 μ m)、Np MOX小径粒子(70 μ m)の5種類のスフェア粒子を製造した。Np MOXスフェア粒子の製造条件は、原料液組成が異なる点以外、MOXスフェア粒子の製造条件と同じである。また、スフェアバック粒子の製造目標値は表2に示す通りである。

スフェア粒子製造は、大きく(1)原料液調製工程、(2)転換工程、(3)熱処理工程の3つに分けることができる。各工程について以下に述べる。

(1) 原料液調製工程

ウラン、プルトニウム、ネプツニウムの酸化物粉末を硝酸に溶解し、硝酸ウラニル溶液、硝酸プルトニウム溶液、硝酸ネプツニウム溶液を調製し、これらを混合して金属硝酸溶液を調製した。また、HMTAと尿素を溶解した溶液を調製した。この両者を混合し、組成としてメタル濃度:0.8mol/kg、HMTA/メタル比:1.3、尿素/メタル比:1.3となるように原料液を調製した。

(2) 転換工程

1) 液滴形成

原料液槽からノズルまでの原料液の送液には圧縮空気をを用いた。原料液温度が上がるとゲル化が生じるために、原料液槽を冷却し、原料液槽からノズルまでの液温を4℃以下に保つように制御した。

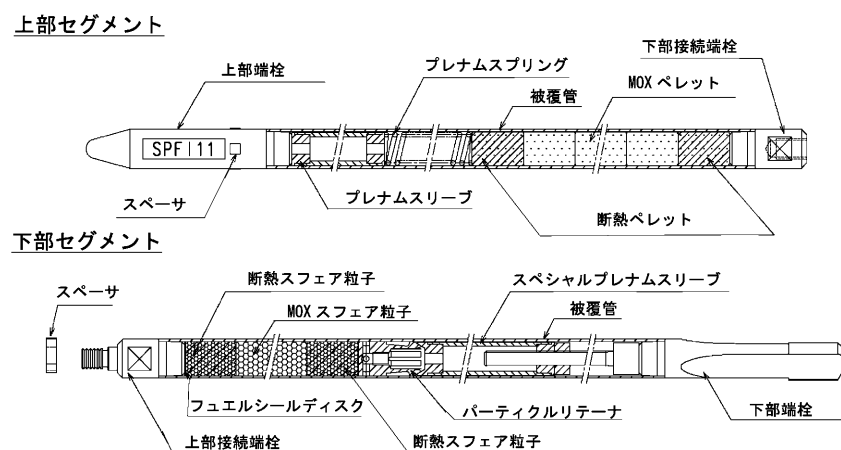


図1 燃料ピンの概略図

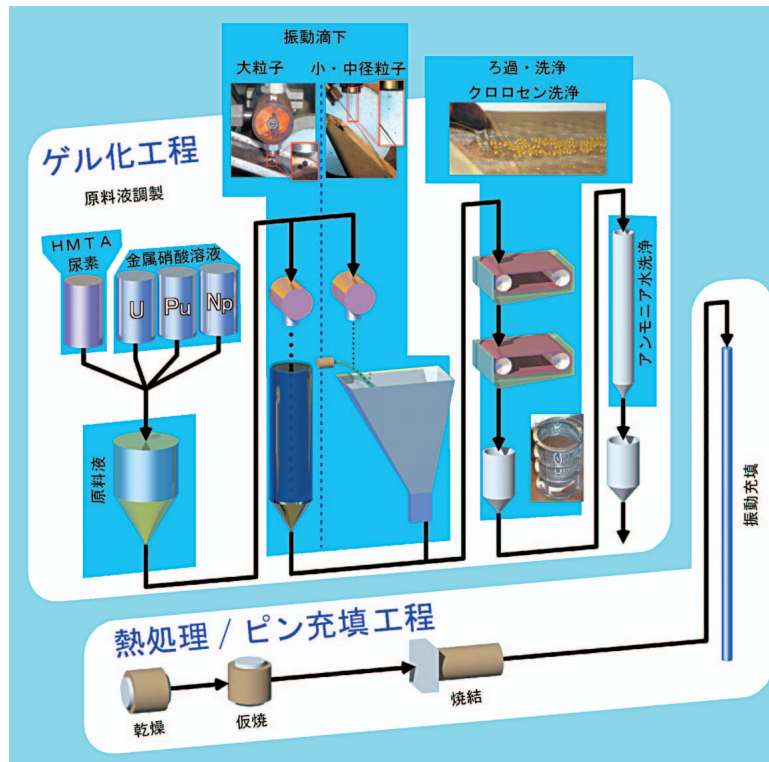


図2 スフェアバック燃料のプロセスフロー

表2 スフェア粒子の製造目標値

項目	目標値
1. Pu 富化度 (MOX, Np-MOX とも)	20wt%
2. Np / (Pu+U+Np) (Np-MOX のみ)	5 wt%
3. O/M 比	1.97 + 0.02, - 0.03
4. Pu スポット	100 μm
5. 不純物量	
Al	< 700 ppm
B	< 20 ppm
C	< 300 ppm
Ca	< 750 ppm
Cd	< 20 ppm
Cr	< 500 ppm
F	< 25 ppm
Mg	< 150 ppm
N	< 200 ppm
Ni	< 500 ppm
V	< 500 ppm
Cu+ Zn	< 1,400 ppm
Mn+Mo+Pb+Sn	< 400 ppm
全不純物	< 4,000 ppm
6. 蒸発性不純物量	< 180 ppm
7. 水分含有量	< 150 ppm
8. 粒子径	
大径粒子	800 μm
中径粒子	190 μm
小径粒子	70 μm
9. 粒子密度	
大径粒子	96%TD
中径粒子	97%TD
小径粒子	98%TD
10. 真球度	1.1

液滴は、大径粒子の場合は自然滴下により、中径粒子と小径粒子は振動機で液流にくびれを作り微小液滴に分割することで形成した。液滴径は目標粒子径（焼結粒子径）の約3倍の直径となるようにノズルの内径、原料液の供給速度及びノズルの振動数を調整した。滴下条件を表3に示す。

2) ゲル化

液滴を約104 に加熱したシリコンオイル中に滴下し、ゲル化させた。シリコンオイルの温度が低くゲル化に時間がかかると粒子形状は楕円形に歪み、逆に温度が高すぎるとゲル球中のポアが増加する傾向にあるため、シリコンオイルの温度制御はゲル球の品質管理上重要である。

3) 洗浄

ゲル球の回収

シリコンオイル中でゲル化した粒子は、シリコンオイルと共にベルトコンベアのメッシュ上に吐

表3 滴下条件

	ノズル内径 (μm)	原料液供給流量 (g/min)	振動数 (Hz)
大径粒子	700	5	自然滴下
中径粒子	350	30	2,500
小径粒子	120	4	8,000

出されて回収されるシステムになっている。メッシュを通ったシリコンオイルはトレイに集められ、フィルターを通してオイル槽に戻されて再使用される。

シリコンオイルの除去

シリコンオイルを除去するためにクロロセン (CCl_3CH_3) でゲル球の洗浄を行った。このクロロセンは蒸留によって精製した後に再利用される。

硝安等の除去

クロロセンによる洗浄後、ゲル球中の硝安、尿素、HMTAの除去のため、約2.5 mol/lのアモニア水でゲル球を洗浄した。爆発性を有する硝安の多量の残存は安全上問題となるが、本製造においてはむしろ粒子のクラック発生原因防止の観点から重要であり、確実に除去する必要がある。PSIでは硝安の除去を洗浄液の電気伝導度測定で判断している。

(3) 熱処理工程

1) 乾燥

小径粒子と中径粒子の場合、ゲル球中に水分が含まれると乾燥中に粒子同士が凝集するため、予備乾燥として洗浄後にエタノールに浸けて脱水した。

ゲル球の乾燥はロータリードライヤーを用いて窒素雰囲気中50 ~ 75 °Cでゲル球を回転させながら行なった。

2) 仮焼

仮焼はAr 7% H_2 中600 °Cで3時間保持して行なった。

3) 焼結

焼結はAr 7% H_2 中1400 °Cで3時間保持して行なった。

3.2 製造結果及び評価

製造したスフェア粒子の粒径、真球度、密度及びO/M比の分析結果を表4に示す。密度についてはMOX大径粒子の密度が目標値をわずかに下回ったが、MOX小径粒子の密度が目標値を上回ったため、両者を混合した際の平均粒子密度は目標値どおりの97.4% TDとなった。Np MOXの密度は大径粒子、小径粒子とも目標値以上の高密度であった。写真1にNp MOX大径粒子の金相写真を示す。また真球度(長径/短径)についても約1.1と良好であった。O/M比は、いずれの粒子も目標値を満足していた。プルトニウムスポットの有無は、大径粒子断面のアルファオートラジオグラフの画

表4 スフェア粒子の分析結果

	MOX			Np MOX	
	大径粒子	中径粒子	小径粒子	大径粒子	小径粒子
粒径 (μm)	776	195	67	770	71
標準偏差 (μm)	20	10	3	24	3
真球度	1.09	1.07	1.09	1.09	1.11
密度 (%TD)	96.6	100	99.7	100	98.1
O/M比	1.96	1.96	1.98	1.95	1.98

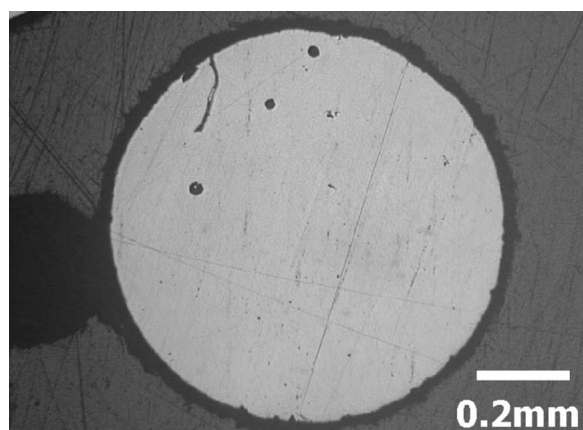


写真1 5%Np-MOX大径粒子の金相写真

像解析により確認した。画像解析を行い色の濃淡を3Dヒストグラムにしてプルトニウムスポットの有無を確認した結果、直径100 μm 以上の大きさのものは観察されなかった。3Dヒストグラムの例を図3に示す。

Np MOX粒子製造はMOX粒子の製造条件と同じ条件で行ったが、製造した粒子の性状はNpを含まないMOX粒子と比べても良好であったことから、5%のNpの添加では粒子製造に悪影響を与えないことが分かった。

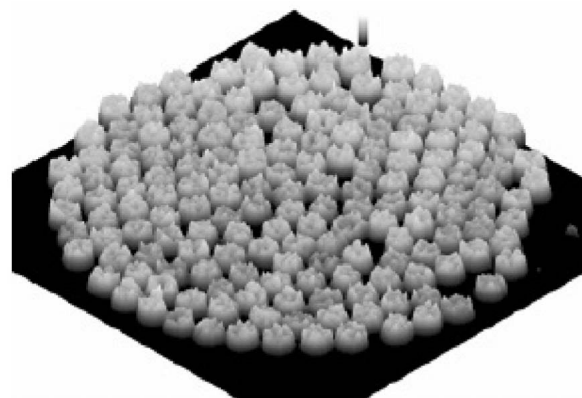


図3 MOX大径粒子のプルトニウムスポット分析

4. バイバック顆粒製造⁶⁾

4.1 製造方法

バイバック燃料は非球状のバイバック顆粒を直接被覆管に充填した燃料である。サイクル機構ではバイバック顆粒の製造方法として、熔融塩電解法による乾式再処理⁷⁾と組み合わせたプロセスを有力候補の一つとして検討している。しかし、PSIでは熔融塩電解法による顆粒製造設備がないため、代替法としてMOXグリーンペレットを破碎・焼結するプロセスで製造した。バイバック顆粒のプロセスフローを図4に示す。バイバック顆粒の目標値のうち、プルトニウム富化度、O/M比、プルトニウムスポット、不純物量、蒸発性不純物量、水分含有量については表2のスフェアパック粒子の製造目標値と同じである。バイバック燃料固有の製造目標値を表5に示す。また、バイバック顆粒製造の各工程の概要を以下に記す。

(1) 原料粉混合

PSIがイナートマトリックス燃料製造⁸⁾に用い

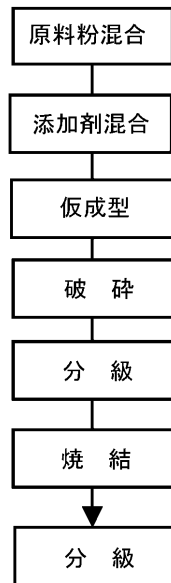


図4 バイバック顆粒のプロセスフロー

表5 バイバック顆粒の製造目標値

	重量比	密度
850 600 μm	50.00 (wt%)	99%TD
600 425 μm	9.90 (wt%)	
425 250 μm	4.55 (wt%)	
250 106 μm	4.55 (wt%)	
106 45 μm	18.00 (wt%)	
45 25 μm	13.00 (wt%)	

たアトリッションミル (two stage advanced attrition mill) を使用して、秤量したPuO₂粉末とUO₂粉末を粉碎混合し均一化した。

(2) 添加剤混合

MOX粉末に潤滑剤、結合剤としてステアリン酸亜鉛を0.2wt%添加して混合した。

(3) 仮成型

MOX粉末を単軸型油圧プレスで約550MPaの成型圧力でグリーンペレットに仮成型した。

(4) 破碎

グリーンペレットをグラニュータに投入し、破碎することで非球状顆粒を製造した。

(5) 分級

グラニュータで粉碎して得たグリーン顆粒を、電動篩いで分級した。篩いの目のサイズは、850 μm、600 μm、425 μm、250 μm、106 μm、45 μm、25 μmを用いた。

(6) 焼結

N₂+8%H₂雰囲気中800℃で2時間保持し、潤滑剤を加熱分解して除去した後、1,600℃で20時間保持して焼結を行った。

(7) 分級

焼結顆粒を電動篩いで分級し、分級した粒子の成分毎の重量を測定した。

4.2 バイバック顆粒製造結果

製造したバイバック顆粒の密度及びO/M比の分析結果を表6に示す。いずれもほぼ目標値を満足していた。写真2にバイバック顆粒の顕微鏡写真を示す。プルトニウムスポットの有無は、スフェア粒子と同様にアルファオートラジオグラフの画像解析により行った。その結果、直径100 μm以上の大きさのプルトニウムスポットは観察されなかった。

表6 バイバック顆粒の分析結果

	密度 (%TD)	O/M比
850 600 μm	99.4	1.97
600 425 μm	98.8	1.97
425 250 μm	99.1	1.97
250 106 μm	99.2	1.97
106 45 μm	99.7	1.98
45 25 μm	100	1.98

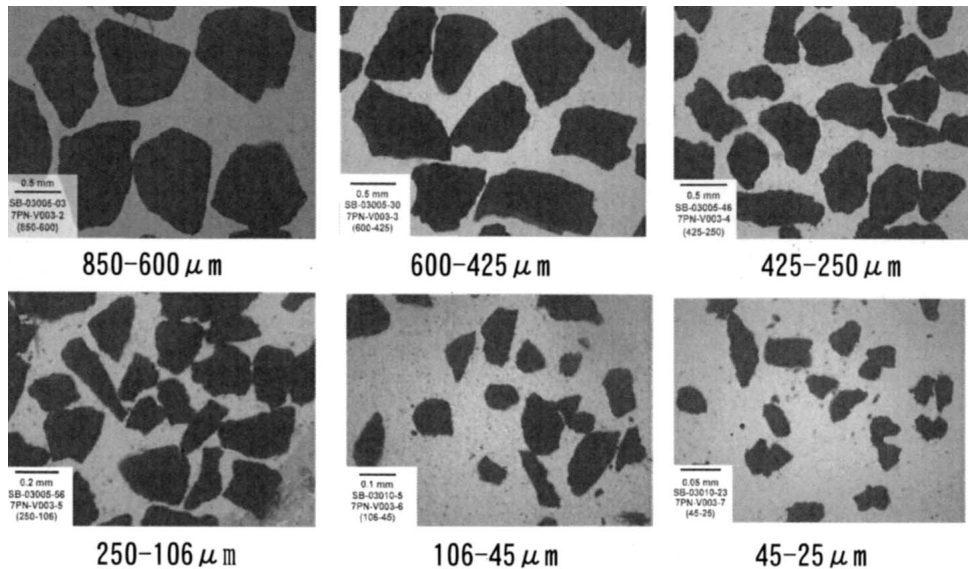


写真2 MOXパイバック顆粒の顕微鏡写真

5. 被覆管への充填

5.1 充填方法

(1) スフェア粒子の充填⁹⁾

被覆管へのスフェア粒子の充填は、充填用の特殊なグローブボックスで行った。このグローブボックスは、底面が床から約3 m高さとなるように天井からつり下げられている。セグメントをプロテクションチューブに入れ、これをグローブボックス底面に接続した後に下記に示す浸透法または同時充填法で被覆管内にスフェア粒子を充填した。図5に振動充填装置の概略図を示す。

1) 浸透法

浸透法はあらかじめ充填してある大径粒子層の上部に小径粒子を装荷し、振動を与えることで小

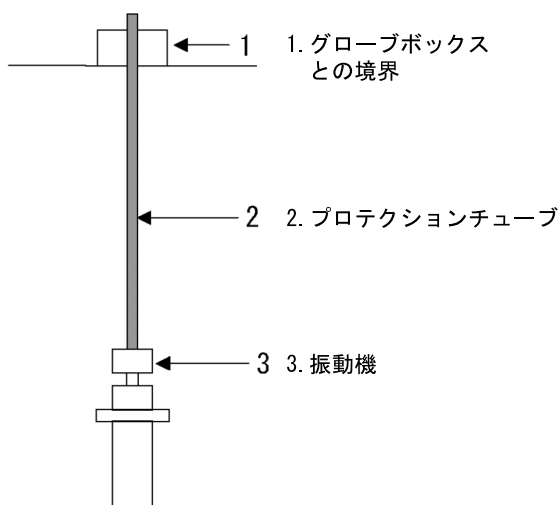


図5 振動充填装置の概略図

径粒子を大径粒子層の中に浸透させる方法で、後述する同時充填法に比べ軸方向の密度分布のばらつきが少ない。効果的に浸透を行うためには、少なくとも大径粒子径と小径粒子径の比が7倍以上必要である¹⁰⁾。今回の燃料製造では大径粒子径 / 小径粒子径比が11.4であることから浸透法を用いて充填を行った。

PSIにおけるスフェアパック燃料の充填実績から目標値としてスミア密度78 - 81%TD、軸方向の密度分布の許容値を $\pm 2\%$ に設定した。実際の充填は、あらかじめ被覆管に充填した直径約800 μm の大径粒子層の上に直径約70 μm の小径粒子を投入し、振動機でセグメントに50Hzの振動を与えることで小径粒子を大径粒子層の中に浸透させた。燃料組成としてはMOX燃料セグメント6本、Np MOX燃料セグメント2本である。

2) 同時充填法

同時充填法は、大径粒子と小径粒子が適正な割合でピンに投入されるようにフィーダを調整し、ピンに振動を与えながら同時に充填する方法である。この方法は、大径粒子径と小径粒子径の比が7に満たない場合に有効である。今回同時充填法で充填するセグメントは、低スミア密度領域における組織変化挙動に関するデータを取得するのが目的である。そのため、スミア密度の目標値としては、浸透法によって充填したセグメント(78 - 81%TD)との違いが観察できるように72 - 73%TDとした。また、低スミア密度にするために充填する粒子は大径粒子(800 μm)と中径粒子(190

μm)の組み合わせとし、大径粒子径/中径粒子径比が4.2であることから、充填方法として同時充填法を用いた。同時充填法で充填した場合、軸方向の密度分布は浸透法に比べばらつきが大きいことから、PSIにおける充填実績を参考に許容値を $\pm 4\%$ に設定した。

大径粒子と中径粒子をそれぞれ別のフィーダに装荷し、フィーダから大径粒子、中径粒子を同時に被覆管に投入した。粒子の投入の際、被覆管に50Hzの振動を与え、MOXセグメント1本を製造した。

(2) バイバック顆粒の充填(同時充填法)

被覆管へのバイバック顆粒の充填は、スフェアパック充填と同じ充填用グローブボックスで行った。PSIではバイバック充填の経験がないため、サイクル機構の試験結果¹¹⁾をもとにスミア密度75-78%TDを目標値とした。軸方向の密度分布の許容値については、スフェアの同時充填法と同じく $\pm 4\%$ に設定した。振動機についてはPSIがスフェアパック充填に用いている振動機では加振力が足りないことが判明し、バイバック充填用の振動機を別に用意した。

バイバック顆粒を6成分に分級し、表5に示した粒径ごとの重量比となるように秤量し、850-106 μm の粗粒と106-25 μm の細粒に分けてそれぞれフィーダから被覆管内に同時に投入した後、500-700Hz(加速度は600Hzのときに35G)で周波数掃引しながら2本のセグメントへの充填を行った。

5.2 充填結果

スフェアパック充填及びバイバック充填結果について以下に記すが、いずれのセグメントも目標値をほぼ満足する値であった。

(1) スフェアパック充填結果

1) 浸透法

浸透法によって充填した8本のスフェアパックセグメントの充填率は81.4%~82.3%で、平均充填率は81.8%であった。図6にスキャン装置で測定したMOXスフェアパックセグメントの軸方向密度分布測定結果の一例を示すが、 $\pm 2\%$ の許容値以内であり良好であった。Np MOX粒子の充填率はMOX粒子の充填率より約0.5%高いことに加え、Np MOX大径粒子の密度がMOX大径粒子よりも高いため、充填率と粒子密度の積で表される

スミア密度は、MOXセグメント6本の平均スミア密度79.4%TDに対しNp MOXセグメント2本の平均スミア密度は81.4%TDとやや高い値となった。Np MOX大径粒子の密度が高くなった原因としては、Npの添加によりゲル粒子中のガス発生が抑制されたためではないかと思われるが、そのメカニズムについては今後検討が必要である。

MOX及びNp MOXとも、良好なセグメントが製造できた。

2) 同時充填法

同時充填法で充填した1本のMOXスフェアパックセグメント充填率は72.6%で、スミア密度は70.6%TDであった。目標値よりも若干スミア密度は低いが、低スミア密度領域における組織変化挙動についてのデータを取得するという目的には影響しない程度であるため照射試験に用いた。図7に軸方向密度分布測定結果を示す。浸透法で充填した図6と比較すると、軸方向の密度分布のばらつきが大きいことが分かる。これは、大径粒子と

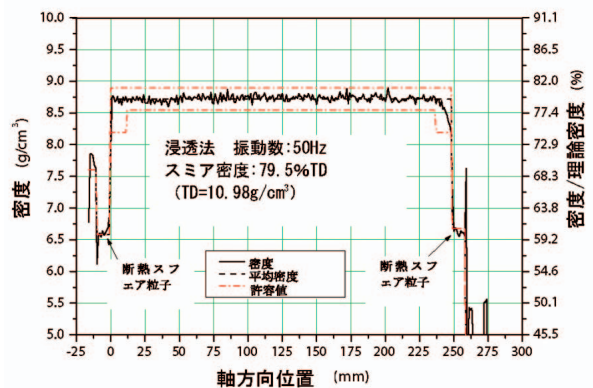


図6 MOXスフェアパックセグメント(浸透法)の軸方向密度分布

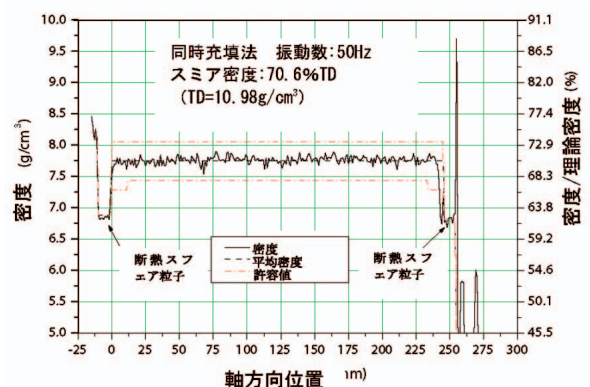


図7 MOXスフェアパックセグメント(同時充填法)の軸方向密度分布

中径粒子をフィードから投入した際に、両者の割合にばらつきがあったためと思われる。同時充填法では、このように均一に投入する方法が課題となるため、実際に採用した例¹²⁾は多くない。

(2) バイバック充填結果

2本のバイバックセグメントの平均充填率は76.3%で、スミア密度の平均値は75.9%TDであった。模擬バイバック顆粒としてジルコニアを用いた充填試験では、スミア密度78.5%TDであったのに比較して、MOXバイバック顆粒を用いた場合、スミア密度は低くなった。これは、MOXの比重はジルコニアの比重に比べ高いため、同じ充填率を得るためにはもっと加振力が必要であったことが考えられ、今後の検討課題の一つである。

スキャン装置で測定した軸方向の密度分布測定結果の一例を図8に示す。図6、7のスフェアの場合と比較して、軸方向密度のばらつきが大きいことがバイバック燃料の特徴である。バイバックセグメントの軸方向密度分布の許容値は $\pm 4\%$ であるが、セグメント上部に数ミリの低密度領域で許容値を超えていた。照射試験の解析評価は高速炉の径方向の温度分布を模擬できた一点について行うために、セグメント上部に数ミリの低密度領域が存在しても試験には影響しないため照射試験に用いた。

6. おわりに

照射試験用スフェアバック燃料製造として、内部ゲル化法によって20% Pu MOX及び5% Np 20%Pu MOXスフェア粒子の製造を行った。5% Np 20%Pu MOX粒子燃料製造は、今まで例のない試みであったが、5%のNpの添加は内部ゲル

化法による粒子製造に悪影響を与えないことが明らかになった。マイナーアクチニドを含むMOX粒子燃料製造の技術的見通しを得るために、今後Am等がゲル化に与える影響を調べるのが課題である。また、製造したスフェア粒子を浸透法によって被覆管に充填し、スミア密度約80%TDでかつ軸方向密度のばらつきが少ない良好なセグメントを製造する条件をMOX粒子を用いて確認できた。

照射試験用バイバック燃料製造については、グリーンペレットの粉碎・焼結によってバイバック顆粒を製造し、同時充填法によりスミア密度約76%TDのMOXセグメントを製造したが、実用化するためには少なくともスミア密度は80%TD程度まで上げる必要があり、充填条件の最適化が今後の課題であることが分かった。

これらのスフェアバック燃料、バイバック燃料そしてペレット燃料の3種類の燃料は、既にHFRに輸送され、初期焼結試験、組織化試験(1)の2つの照射試験が終了している。平成16年度内に全ての照射試験及び照射後試験が終了し、試験データをFBRサイクル実用化戦略調査研究フェーズのとりまとめに反映させる。

謝 辞

本共同研究の照射試験燃料製造はスイスPSIで行われ、PSIのDr.Ch.Hellwigを始めとする多くの研究者、技術者の方々のご協力を頂いた。また、東海事業所 プルトニウム燃料センター 製造加工部 設計評価グループの小澤隆之副主任研究員を始めとするプルトニウム燃料センターの方々には、燃料設計、部材供給等に関して全面的なご協力を頂いた。ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 鈎孝幸, 佐藤和二郎他, “高速増殖炉サイクル実用化戦略調査研究の概要”, サイクル機構技報 No.12 別冊 p.5 18(2001)
- 2) Hugh M. MacLeod, Geoffrey Yates, “Development of Mixed Oxide Fuel Manufacture in The Influence of Fuel Characteristics on Irradiation Performance”, Nuclear Technology, vol.102, p3 17(1993)
- 3) R.Herbig, K.Rudolph et al., “Vibrocompacted fuel for the liquid metal reactor BOR 60”, Journal of Nuclear Materials, Vol.204 p.93 101(1993)
- 4) 比内浩, 石井克典 他, “バイバック燃料の振動充填試験(1)”, 日本原子力学会 2002年春の年会 要旨集 N45, p.776(2002)
- 5) M.A.Pouchon, F.Ingold, et al., “Fabrication and Char-

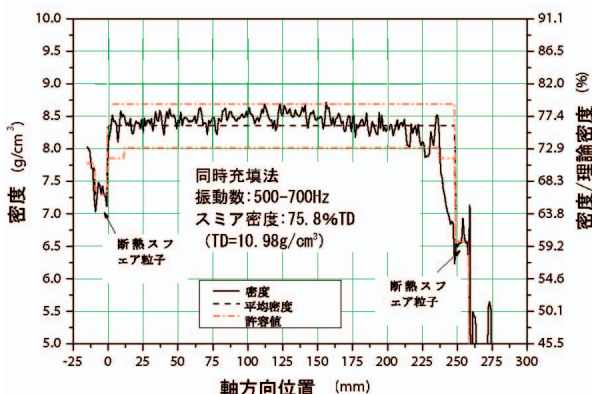


図8 MOXバイバックセグメントの軸方向密度分布

acterization of MOX Microspheres for the FUJI Project ”; GLOBAL 2003, 16 20 November 2003, p.653 657 (2003)

- 6) Y.Shigetome, S.Kono, et al., “ Vipac Fuel Fabrication for Irradiation Tests of the FUJI Project ”GLOBAL 2003, 16 20 November 2003, p.1343 1347 (2003)
- 7) 福島峰夫 小林嗣幸 他, “ 乾式プロセス開発の展開と試験基盤の整備 ”, 日本原子力学会 2003年春の年会 要旨集, N40, p. 815(2003)
- 8) Y.W.Lee, H.S.Kim, et al, “ Preparation of simulated inert matrix fuel with different powders by dry milling method ”, Journal of Nuclear Materials, Vol.274 p.7 14(1999)
- 9) Ch.Hellwig, P.Heimgartner, et al, “ Sphere pac Filling

for Irradiation Tests of the FUJI Project ”; GLOBAL 2003, p.16 20 November 2003, p.1348 1353 (2003)

- 10) R.K.McGeary, “ Mechanical Packing of Spherical Particles ”; J.Am.Ceramic Society, vol.44, No.10, p.513 (1961)
- 11) Masahiro Suzuki, Yoshiaki Shigetome, “ Comparison of the fuel performance for advanced FBR cycle systems(FUJI project)(4) ”, 日本原子力学会 2003年秋の大会 予稿集, H22 p.455(2003)
- 12) R.W.Stratton et al., “ A comparative irradiation test of UO₂ Sphere-pac and pellet fuel in the Goesgen PWR ”; ANS/ENS International topical meeting on LWR fuel performance, Avignon France p.174 183(1991)