

Fabrication Technology for MOX Fuel Containing AmO₂ by an In-Cell Remote Process

Hiroshi YOSHIMOCHI Yohei ISHI Takayuki SEKI* Kenji MONDO Shinichi SEKINE*1 Shinichi KOYAMA

Fuels and Materials Division, Irradiation Center, O-ari Engineering Center * Inspection Development Co., Ltd. * Nuclear Technology & Engineering Co., Ltd.

照射燃料試験室 (AGS) では、ホットセル内に遠隔で燃料製造を行うための機器を設置し、アメリシウム (Am) を3%及び5%含む混合酸化物燃料 (Am-MOX)の製造試験を進めてきた。本製造技術開発にあたっては、さ まざまな課題に直面した。例えば、5%Am-MOXペレットの製造において、固溶が十分でなく2相に近い条件 であったことである。この問題については、加湿条件を最適化することにより解決した。本稿では、直面した課 題とその解決策を中心に、これまでのAm-MOX製造技術開発の状況を報告する。なお、製造された3%、5% Am-MOX燃料は、2005年11月から高速実験炉「常陽」において照射される予定である。

A series of apparatus to make fuel pellets and fuel pins remotely were systematically installed in the hot cells of Alpha-Gamma Facility (AGF), O-arai Engineering Center. Using these fabrication apparatuses, an in-cell remote fabrication technique has been developed in order to make 3% and 5% Americium contained mixed oxide (Am-MOX) fuel. In the process of this development, various difficulties were confronted. For instance, dissolution was not enough in 5% Am-MOX fuel pellets that were initially fabricated. This problem was solved by optimizing the sintering condition with moisture. This report describes the details of the manufacturing development of Am-MOX fuel mainly on the problems and their solutions. It is scheduled that fuel pins containing 3% and 5% Am-MOX fuel pellets fabricated in AGF are irradiated in the experimental fast reactor "JOYO" from November 2005.

キーワード

マイナーアクチニド, TRU, アメリシウム, 混合酸化物燃料, FBR, 粉末冶金, O/M比, 遠隔製造, シュウ酸, AGF, ペレット

Minor Actinide, Trans-Uranium, Americium, Mixed Oxide Fuel, Fast Reactor, Powder Metallurgy, Oxygen to Metal Ratio, In-Cell Remote Fabrication, Oxalate, AGF, Pellet



技術報告

1. はじめに

高速増殖炉(FBR)サイクルの実用化概念のひ とつとして,環境に対する負荷の低減,経済性向 上などの観点から,「低除染TRUリサイクルシス テム」が検討されている^{1),2)}。

このシステムは、現状の再処理工程を大幅に簡 素化し、除染係数の低い燃料原料に、高レベル廃 棄物中に移行していたマイナーアクチニド(MA) 核種を加えて、FBRでリサイクルする将来の実用 化燃料の概念である。このシステムの課題のひと つは、MAに加え低除染のために少量の核分裂生 成物(FP)が含まれる結果、燃料が高い放射線量 を有することである。このため、作業者の被ばく 防止の観点から、従来のグローブボックスに代わ りセルなどの使用による遮へい対策が必要とな る。その場合、燃料製造などにおいて、遠隔・自 動化を進めることが重要である。

大洗工学センター照射燃料試験施設(AGF)に は、照射後試験施設として原子炉で照射した燃料 に対する遮へい性能を有する各種設備が整ってお り、また30年を超える遠隔取扱技術の経験も蓄積 されている。そこで、これらの設備、技術を活用 し、低除染TRU酸化物(MOX)燃料の研究開発 に取り組むこととした。その一環として、MA核 種の1つであるアメリシウム(Am)を含有した 混合酸化物燃料(Am-MOX燃料)の遠隔製造に関 する研究開発を進めている。

この研究開発では,遠隔操作による製造技術開発に加え,製造した燃料の品質保証技術開発及び物性評価を行っている^{3)~12)}。

本稿では,

・セル内に設置したペレット製造設備の概要

・設備の機能を確認するために行ったウラン試験

・AmをMOX燃料中に含有することによるペレッ

トの製造性を確認するためのプルトニウム試験

・照射用Am含有MOXペレットの製造条件を最終 確認するための総合確認試験

についての技術成果を報告する。

2. 遠隔ペレット製造設備の機能及び構成

図1にピン加工設備を含めた遠隔燃料製造設備 の配置構成を示す。ペレット製造するための主要 な設備は、その機能に対応してホットセル内に設 置されている3つのインナーボックス内に分けて 配置している。配置構成は、原料粉末を取り扱う 装置群、ペレット焼結を行う装置群及びペレット 検査を行う装置群となっている。目標とする製造 能力は、1バッチ当たり35~60g(「もんじゅ」サ イズでペレット約15~30個に相当)の小規模な燃 料取扱設備である。

ペレット製造は,まず原料粉末中の水分などを 除去するため熱処理から始める。次に各原料粉末 を秤量後,Amを含有したMOX粉末を機械混合法 により粉末調製する。それを冷間成形法にてペ レット成形体とする。その後,ペレット成形体を 高温で焼き固め,焼結後のペレット寸法,密度検 査までを行う。ペレット製造工程では,その各段 階において原料である核燃料物質は,性状及び形 状が変化するため,各セルにおいて重量測定に基 づく質量管理を行っている。

遠隔操作による燃料ペレットの製造状況を写真 1に示す。以下に,写真に示す①~⑧の工程につ いて,主要な機器の外観及び機能に関する説明を 行う。

(1)粉末供給装置(写真1中の①振動切出し フィーダによる粉末調製)

マニピュレータによりUO₂, PuO₂, AmO₂原料 粉末を3つのホッパ内にそれぞれ投入する。その 後,振動フィーダと電子天秤との組合せにより, 全自動でホッパ中の粉末を粉砕混合容器(ボール



サイクル機構技報 No.28 2005.9

技術報告



写真1 セル内での燃料ペレット製造状況

ミルポット)内に指定の混合割合で切り出す。粉 末の切出し制御は,振動の強弱で行われ,粗秤量 モードと精密秤量モードにより,燃料組成を任意 にミリグラムオーダの精度で配合設定することが 可能である。

(2) 粉砕混合機(写真1中の②ボールミルよる回転粉砕混合,③粉砕混合後の容器内の状態,④ 潤滑材の添加)

本装置は,1台で回転運動により粉末を粉砕す るボールミル機能及び粉末をスライディングさせ ながら混合する揺動機能を兼ね備えている。

原料粉末の粉砕は,凝集している粒子を分解し, 微細化するために行うものであり,容器の回転運 動によって粉砕ボールに発生するエネルギーによ り行われる。それと同時に揺動運動が加わる結果, 結集・分離を繰り返すことで粉末が均一に混合さ れる。

粉砕混合容器は、内壁からの不純物混入防止の 観点からシリコンゴムでライニングしている。粉 砕に用いたボールと粉末の分離は、特殊なアダプ タを容器に接続し、密閉した状態で振動を与えな がらふるいにより分離する。

その後,ペレット成形する際の粉末の結合及び 潤滑剤として,粉砕混合した粉末中にステアリン 酸亜鉛を添加し,揺動運動で混合する。

(3) 成形プレス機(写真1中の⑤成形プレス機金 型への粉末投入,⑥成形体のハンドリング) 本装置は,粉砕混合処理した粉末を自動的にプ レス成形機ダイス金型(以下「ダイス金型」という。)に充填する粉末投入装置及び圧縮成形を行う プレス機本体から構成される。プレス能力は,全 油圧方式により最高49MNである。

プレス機本体の特徴は,基本的に一軸プレス成 形機であるが,ペレットを圧縮成形する際,上パ ンチ下降時にダイスがフローティングする機能を 備えているため,両軸成形の効果を有することで ある。ダイス金型への粉末充填は,粉末供給装置 の粉末の切り出しと同一方式を採用している。こ こでは,ペレット1個分(約2~3g)の粉末量 を秤量しながらダイス金型へ投入するため,寸法 及び密度のバラツキが少ない一様な成形体(グ リーンペレット)の製造が可能である。

写真2に示すようにダイス金型と上下パンチ は,遠隔交換可能な一体型のモジュールである。 そのため,交換時の上下パンチ,ダイス金型の微 調整は一切不要である。

(4) 予備焼結炉(写真1中の⑦焼結炉へセッティング)

ペレット成形時における粉末の結合及び潤滑剤 として使用した有機物(ステアリン酸亜鉛など) を除去するため,還元雰囲気中(5% H₂-Ar)で 約800℃の予備焼結を行う。予備焼結炉は,ペレッ ト径が5.4mmの場合,1バッチ当たり最大16個 のペレットを装荷でき,最高1,000℃までの昇温 が可能である。現在では,焼結皿を改良し2段に 積み重ねることにより,6.5mm径のペレットを最



写真2 成形プレス機のモジュール

大24個まで装荷可能である。また、炉体は外熱式 であるため、酸化炉としても使用可能である。こ の酸化炉としての役割は、製造時に発生した不良 ペレットに対し空気雰囲気で焙焼を行い、ペレッ トの酸化による相変化を利用して破砕させるもの で,原料の有効利用を図るための回収手段である。 (5)本焼結炉(写真1中の⑧焼結前後のペレット 外観)

本焼結炉は,予備焼結が終了した燃料ペレット(グ リーンペレット)を高密度のセラミック体として 焼き固めるため使用する。本装置へのペレット装 荷量は予備焼結と同一である。焼結は還元雰囲気 中(5%H₂-Ar)において,1,600~1,800℃の高 温で行う。炉体には内熱式のタングステンヒータ を使用し,最高2,000℃までの昇温が可能である。 焼結に際しては,ペレットのO/M比の調整が必要 となることから,炉内の酸素分圧を制御するため の加湿器及び露点計が配置されている。

(6) ペレット寸法検査装置

本装置は、ペレット成形体及び焼結ペレットの 直径、高さをレーザ測長器により計測するととも に、電子天秤にて重量を量ることにより、ペレッ ト密度を求めることが可能である。測定は、ペレッ ト10個をトレイに整列させた後は、マテリアルハ ンドリング機構により、全自動にて行う。測定点 は、ペレット周方向最大20ポイント(9°毎)、高 さ方向最大20ポイント (0.5mm毎) のデータが取 得可能である。

3. 機能確認のためのウラン試験

本試験は,セル内に設置したペレット製造設備 の機能,性能確認及び遠隔での粉末取扱い操作の 習熟を目的として行った。

3.1 試験内容

始めにUO₂粉末を使用して,現行 MOX 燃料製造 と同じ乾式製造法で粉末の秤量から粉砕混合,造 粒,成形,予備焼結及び本焼結の各工程を経て, UO₂ペレットを製造した。なお,本試験では,以 下の点に着目した。 ①ホッパからフィーダへの粉末の流動 ②粉砕混合後の粉砕ボールと粉末との分離性 ③成形密度の制御

④粉末取扱い設備の粉末移行状況

⑤ペレット焼結密度の制御

3.2 試験結果

- (1) 設備の機能,性能確認
- 1) ホッパからフィーダへの粉末の流動

試験に供した粒径0.5µmのUO₂粉末は,微粉末 であるため、ホッパ内下部に架橋(ブリッジ)が 形成した。これによりホッパ下部出口で粉末の詰 まりが生じ、振動フィーダへの円滑な粉末供給が 困難となった。この処置対策として、写真3に示 すように詰まった粉末を砕く機能をホッパ内に設 けることにより、この問題を解消した。



写真3 ホッパ内の粉末をほぐすための治具

13

2) 粉砕ボールと粉末の分離性

粉砕混合後の粉砕ボール(∮10mmアルミナ製 またはタングステン製)と粉末の分離は、セル内 での粉末飛散防止対策のため、特殊なアダプタを 粉砕混合容器と容器の間に接続し、密閉状態で振 動を与えながらふるいにより分離した。図2に粉 砕混合容器に接続するアダプタの構造図を示す。 容器とアダプタはボールロック方式により固定さ れ、Oリングで密閉性を担保している。最初に使 用した容器内壁には、重量で約3%相当の粉末が 付着したが,現在では付着によるロスは0.3%以下 であり問題はない。なお、粉砕ボール及びアダプ タには、ほとんど粉末の付着は認められず、分離 性は良好であった。

3) 成形密度の制御

3 種類の造粒粉 (0.61 mm, 0.84 mm及び 1.14 mm)にそれぞれ0.2wt%のステアリン酸亜鉛 を添加混合した後,成形密度をパラメータとして 約 ϕ 6 mm×10 mm高さのUO₂ペレットを製造し た。図3に粒径0.84 mm,粉末密度5.0g/ccの造 粒粉から成形密度5.75~6.15g/ccの範囲で成形 したペレットの密度分布を示す。このようにすべ ての成形密度は,ばらつきもなく設定した目標密 度を満足した。また,成形密度が5.75g/cc,6.0g /cc及び6.15g/ccにおいて,それぞれ10µmずつ直 径が増加し,成形密度に対するスプリングバック は,明確な傾向が現れていることがわかった。 4)粉末取扱い設備における粉末移行状況

粉末取扱いセル (No.3-1セル) 内での原料粉末 の移行状況を把握するため,400gのUO₂粉末を用 いて確認した。図4は,全装置をクリーンナップ して初期状態とし,秤量からペレット成形体まで の物質収支を表したものである。成形体及び回収 分は初期投入分の97%となり,回収不可能分は 3%と推定される。

5)ペレット焼結密度の制御

成形密度5.75~6.15g/ccに調製したペレット 成形体を1,650℃,1,700℃及び1,750℃の温度で それぞれ2時間加熱保持し焼結した。焼結雰囲気 は,5%H₂-Arガス気流中とした。図5に示すよう にペレット焼結密度は,最高96%T.Dまで達し, 焼結温度の上昇及び焼結時間の伸長に伴いペレッ ト密度も上昇することを確認した。

一方,成形密度の違いに対しては,焼結密度に それほど大きな差が認められなかった。これは, 供したUO₂粉末が高い焼結性能を有する活性粉末 であったこと,設定焼結温度が高かったことが原 因と推測される。



図2 粉末空替え用アダプタの構造



図3 UO₂ペレットの成形密度分布



図4 原料粉からペレット成形体作製までの物質収支



図5 UO₂ペレットの焼結密度

前述の試験結果からAm含有MOXペレットの焼 結に反映できる基本的なデータを取得することが できた。

4. Am含有MOXペレットの製造性確認のための プルトニウム試験

本試験は,3%及び5%Am含有MOXペレット (以下「Am-MOXペレット」という。)の製造試験 を通して,Amを含有するMOXペレットの焼結性, 均質性などの最適な製造条件を確認した。

4.1 試験内容

3 %Am-MOXペレット

シュウ酸沈殿法にて製造されたPuO₂粉末及び ADU法(硝酸ウラニウム溶液にアンモニアを加え 沈殿物を生成させ,焙焼還元を行う方法)で製造 されたUO₂粉末を使用して,約3%のAmを含有す るPu富化度30%のMOXペレットを製造した。こ のPuO₂粉末は,約30年前に海外より購入したもの で,Pu-241の崩壊によって生成したAm-241を約 9 wt%含んでいる。

Am-MOXペレット製造基本フローを図6に示 す。参考に現行MOX燃料ペレットの製造フローも 合わせて示す¹³⁾。Am-MOXペレットの製造フロー



図6 Am-MOXペレット製造基本フロー

は,MOXペレットの製造と基本的には同じであ る。原料粉入手からの期間などを考慮して,粉末 中に含有する水分などを除去するための熱処理の 工程を追加している。

この熱処理条件は、5%H₂-Arガスの還元雰囲気 下約600°C×2 h である。この粉末を粉砕混合後直 接ペレット成形した。粉砕混合,成形,焼結など の試験条件は、 UO_2 ペレットの製造結果を反映した。 (2) 5%Am-MOXペレット

5%Am-MOXペレットの製造は,前述の9wt% のAmを含有するPuO₂粉末及びUO₂粉末に加え, (Pu, Am)O₂(Pu:Am=1:1)原料粉末を用い て行った。(Pu, Am)O₂原料粉末は,東海事業所 保有のMOXスクラップからPUREX法によりPu, Uを回収する際に発生した抽出廃液から,更に TRUEX法によって回収したAmを使用し,これを Puの硝酸溶液と混合した後,シュウ酸沈殿したも のである。沈殿後は,焙焼・還元が行われ,ボー ルミルで粉末調製されている¹⁴。

4.2 試験結果

3%Am-MOXペレット

粉砕効果の違いをパラメータとした成形密度の 代表例を表1に示す。ここでは、粉砕混合時間に 対するペレット密度の効果を確認するため、その 他の条件をすべて同一にしてペレット成形体を製 造した。表に示すように粉砕混合時間と成形体密 度に相関関係が見られ、最も粉砕効果の低い条件 である15 min が6.07 g/cc(54.7% T.D)であるの に対し、最も粉砕効果の高い720 min (12 h)では、

粉砕時間	15 min	240 min	480 min	720 min	
粉砕エネルギー	2.08J/g	33.2J/g	66.5J/g	99.7J/g	
成形体密度	6.07g/cc (54.7%T.D)	6.25g/cc (56.3%T.D)	6.31g/cc (56.8%T.D)	6.40g/cc (57.7%T.D)	

6.40g/cc (57.7%T.D) であった。このように粉 砕時間の増加に伴い,成形体密度の上昇する結果 が得られた。粉砕による粉末の微細化が、成形体 密度に影響することを成形密度の観点から確認す ることができた。

次に図7には、粉砕混合時間とペレット焼結密 度の関係を示す。焼結条件は,5%H₂-Ar還元ガス 雰囲気下の1,700℃ ×2hの焼結である。成形密 度と同様に、粉砕効果が高まるにつれ焼結したペ レット密度も約95% T.Dまで達した。しかし, 粉砕混合8時間以上ではその上昇率は緩やかで あった。

光学顕微鏡で観察した結果, 3% Am-MOXペ レットは、同様な密度のMOXペレットと同じよう な組織であった。

(2) 5%Am-MOXペレット

5%Am-MOXペレットの製造開始当初は,前述 の3%Am-MOXペレットと同様の条件で行った。 その結果、ペレット焼結密度は、図8に示すよう に、3%Am-MOXと同様に高密度であり、また写 真4に示すように外観及び寸法にも特に問題はな かった。しかしながら,写真5のAs-Polishedで の高倍率光学顕微鏡観察結果により、燃料マト

リックス中に結晶粒界が顕著に観察された。また, 結晶粒界に沿って小さな気孔が多く観察されたた め、5%Am-MOXペレットは、粒界が脆化して結 晶粒の結合力が低下している可能性及び固溶が十 分でなく2相に近い状態が示唆されたことから、 焼結条件を見直す必要が生じた。

そこでAm-MOXペレットの焼結性を改善する







3%Am-MOXペレットの焼結密度

サイクル機構技報 No.28 2005.9

16



写真4 5%Am-MOXペレットの外観



1700℃×2h 5%H2-Ar(加湿なし)

写真 5 5 %Am-MOXペレットの光学顕微鏡写真 (製造条件変更前) 方策として,水分加湿による焼結試験を行った。 この試験では,焼結炉内の酸素分圧などをパラ メータとした。表2に加湿焼結条件を示す。

表に示す条件1は、3%Am-MOX製造時と同じ 5%H₂-Arドライガスの条件(-520kJ/mol)であ る。条件2,条件3及び条件4は,1,700℃×3h の加湿焼結(水分加湿量:約2,000ppm,-390 kJ/mol)後、降温時に焼結炉内の酸素分圧を変化 させるために加湿停止温度をそれぞれ1,700℃, 150℃及び800℃に設定したものである。また、条 件5における水分加湿量は、前述の1/4(水分 加湿量:約500ppm,-430kJ/mol)とした。条件 6は水分加湿量を増やし、高酸素分圧下(水分加 湿量:約10,000ppm,-340kJ/mol)とした。す べての条件において水分加湿の停止以降は、5% H₂-Arドライガスに切替えて炉冷却した。

加湿焼結条件をパラメータとして,燃料ペレットの組織状態を光学顕微鏡観察した結果を図9に示す。条件1で焼結したペレットにおいて粒界の 析出が見られた。粒界には比較的大きな気孔が析出し,また粒内で微細な気孔の形成が見られた。 条件2及び条件5では,条件1と同様にともに粒 界が析出し組織も不均質で,水分加湿量の違いによる差は見られなかった。条件3,条件4及び条件6で焼結したペレットは,粒界は析出せず,均 ーな組織であったが,条件3では,径方向に微細 なクラックが発生した。なお,条件6は,組織は 均一であるが,気孔は粗大化していた。

以上の結果から,5%Am-MOXペレットの焼結 においては,焼結中の雰囲気ガスに約2,000ppm (-390kJ/mol)の水分加湿を行い,降温時更に 800℃でのドライガスの切替えを行うことで焼結 密度が最高95.9% T.Dまで達することを確認し た。一方,写真6に示すように製造条件を最適化

焼結No.	焼結温度 ×保持時間	雰囲気ガス	水分加湿量 (ppm)	焼結温度での 酸素ポテンシャル (kJ/mol)	加 湿 停止温度 (℃)	焼結密度 (%T.D)
条件1*1	- - 1,700℃ × 3 h	5 %H₂−Ar	加湿なし	-520	—	92.1
条件 2 *1			2,000	-390	1,700	91.4
条件 3 *1			2,000	-390	150	93.9
条件 4 *1			2,000	-390	800	95.9
条件 5 *1			500	-430	1,700	90.9
条件 6 *1			10,000	-340	800	91.2

表2 加湿焼結におけるペレット焼結条件及び焼結密度

*1 粉砕混合時間:8h

*2 粉砕混合時間:10h



図9 焼結条件の違いによる5%Am-MOXペレットの焼結挙動



1700℃×3h 5%H2-Ar(2,000ppm水分加湿)

写真 6 5 %Am-MOXペレットの光学顕微鏡写真 (製造条件最適化) したペレットは、気孔も均一に分散し均質な燃料 組織が得られ、問題となった粒界の脆化及び2相 分離に近い状態を解決した。このようにして,5% Am-MOXペレット製造に関する最適条件を把握 することができた。

5. 総合確認試験

「常陽」MK-IIIで照射するAm-MOX燃料の基本 仕様は,Am含有量3wt%及び5wt%,Pu富化度 30wt%,O/M比(酸素原子数と重金属元素原子数 の比)1.95及び1.98,ペレット直径6.5mm,初期 密度93%T.Dである。これらの仕様を満たすため のペレット製造条件を決定するために総合確認試 験を行った。本試験では,主にAm-MOXペレッ トのO/M比調整のための熱処理条件を把握した。

燃料のO/M比は,燃料設計において重要な因子 であり,燃料融点,熱伝導度などの燃料物性に影 響を与えるだけでなく,ペレット内に存在する元 素の照射中の再分布,被覆管内面腐食など照射挙 動へも影響する。このため,精度よく仕様に合致 したO/M比を有する燃料製造技術を開発する必

Am-MOXペレットのO/M比の調整は、第1ス テップとして焼結したペレットを熱処理によって 二酸化物の量論比である2.00へ酸化する。第2ス テップとして熱処理条件(還元雰囲気と加熱条件) とO/Mの関係を把握するため, 1,200℃及び 1,300℃において7時間保持で実施した。また、 定比である2.00の調整には、0.05%H₂-Arガス(加 湿量2,000ppm)を,不定比の調整には5%H₂-Ar ガス(加湿量63~400 ppm)を使用した。図10に 熱処理時の水分加湿量,加熱条件と0/M比の関係 を示す。図に示されるように5%Am-MOXペレッ トは、3% Am-MOXペレットと比べ僅かながら 低めのO/M比となる傾向を示した。なお,酸化還 元重量法で測定したO/M比は,X線回折測定での 格子定数から求めたO/M比と一致することを確 認している。本結果から熱処理によるO/M比調整 の条件を把握でき、3%及び5% Am-MOXペ レットのO/M比は±0.02の範囲で調整出来る見

通しを得た。

6. 考察

6.1 遠隔操作によるペレット製造について

既存のホットセルを利用し、遠隔操作性を有す ることが必要とされる前提条件のもと、小型で多 機能性を有する試験装置を開発することにより、 限られたスペースに燃料製造からピン加工設備に 至る全システムを配置した。これにより、実験室 規模で高線量のMA、FP核種などが含まれる燃料 の製造が可能となった。

これまでのウラン試験,プルトニウム試験及び 総合確認試験を通じ,約400個のペレットを製造し た。この試験を進める過程において,原料粉末の 特性に応じた最適な製造プロセス条件を把握し, 加えてセル内機器,設備の保守を進めてきた。幸 いにも製造試験において,長期間試験を中断する ような大きなトラブルは生じていない。本報告で 言及すべき不具合として,プレス機モジュールの 不具合について述べることとする。

ペレット成形時にパンチとダイスが焼き付き, 上下パンチが抜けない事象が発生したことがあ る。写真7にパンチの焼き付き状況を示す。ペレッ





写真7 プレス成形機モジュールの不具合事象例

ト成形時では、セル外の操作室よりマニプレータ を介して、約2m先の機器を操作しているため、 事象が発生するまでは不具合の事前検知は困難で あった。原因を検討した結果、ペレット成形は微 粉末を使用して成形体を作製していることから、 粉末中の潤滑剤不足やセル内湿度の上昇が影響す ることがわかった。この防止策として、ペレット 成形する際は、定期的にパンチ及びダイスをク リーニングすることとした。

一方,粉砕混合後の粉末は,凝集している粒子 が解され,1次粒子として微粉化されている状態に ある。粉末取扱い工程において,セル内湿度の影 響で極端に流動性が悪くなり,工程内での詰まり や再凝集が発生し,取扱いが困難をきたす場合が しばしば発生した。粉末取扱い時においては,セ ル内の湿度を上昇させない管理が重要であること がわかった。

現在では,粉末取扱い時に際しセル内湿度の管 理を行っており,粉末の焼き付きなどを改善する ことが可能となっている。

6.2 Am-MOXペレットの加湿焼結の有効性について

焼結雰囲気は、ペレットの焼結性に影響を及ぼ す。一般にUO2燃料及びMOX燃料とも還元雰囲気 ガス中に水蒸気を含むと拡散が進み焼結性は向上 する。

表2及び図9に示した結果から,5% Am-MOXペレットの場合,加湿焼結を実施してもその 加湿条件の設定により、ペレット密度及び組織に 大きな影響を与えることがわかった。1,700℃×3h 焼結、2,000ppmの加湿条件下において、降温時 800℃で加湿を停止した場合は,高密度かつ均質な 組織が得られた。しかし、同条件で1,700℃ 加熱 保持直後に加湿停止した場合は、不均質な組織及 び約5%T.Dの密度低下が生じた。これは、 1,700℃の3時間保持直後では、緻密化及び結晶 粒の成長段階で未だ不安定な状態と推定される。 この時点で加湿を停止してドライガスに切り換え ることで、焼結炉内の酸素分圧が急激に低下する ため、結晶粒界の脆化、相分離などが起こったも のと示唆される。

一方,焼結の全期間中にわたり水分加湿を実施 した場合にクラックが発生した点については,過 剰な水分加湿によりペレット中の酸素濃度に局部 的な勾配が生まれ,体積変化が生じるためクラッ クが発生したと推測される。H. ELBELらは,水 分加湿によるMOXペレットの焼結では,ペレット の急激な酸化が避けられればクラックの発生は抑 制されると報告している¹⁷⁰。すなわち,表2に示 す加湿条件4では,ペレットの酸素分圧と焼結炉 内の酸素分圧が平衡状態に達した後,冷却時にド ライガスを供給することで,局所的なO/M比勾配 の発生が抑制されクラックが生じない均質なペ レットになったものと判断される。

加湿条件2において,低密度な焼結体となった ペレットを条件4で再焼結した結果,約1.5%T.D の密度上昇が確認された点からも,加湿停止温度 加湿条件6(約10,000 ppm)のように過加湿条件では,焼結性能が加速されペレット中に包蔵されているガスが抜けきらない段階で焼結が終了したものと推測される。

これまでの試験を通じ,Am-MOXペレットの製造におけるペレットの焼結条件(昇温,降温,焼 結炉内の雰囲気)と均質性の関係を把握した。現 行のMOX燃料製造で行われている5%H₂-Arドラ イガス雰囲気では不均一な燃料組織となるが,高 酸素ポテンシャルを有するAm-MOX燃料では,約 2,000ppmの水分加湿雰囲気での焼結条件下にお いて均質になることを実験的に確認した。

7.おわりに

本研究開発は,将来の低除染高速炉燃料に対し て考えられているホットセルでの遠隔製造システ ムの先駆けとなるものである。ここで得られた技 術成果は,低除染燃料製造の設計評価に反映され るものと期待される。

今後の当面の目標は,2005年11月から計画され ている「常陽」MK-ⅢでのAm含有 MOX燃料の照 射試験である。それに向けて,照射用試料の準備 を進めるとともに,照射特性を含めた燃料性能評 価を行う予定である。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構: "高速増殖炉サイクル実用化調査戦略研究 フェーズ I",サイクル機構技報, JNC TN1340 2001-008(2001).
- 小山真一,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(I)-遠隔燃料作製設備の概要と 照射計画一",日本原子力学会2003春の年会, B1(2003).
- 4) 吉持宏,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料製 造技術の開発(Ⅱ)-3%Am含有MOXペレット作 製試験の結果-",日本原子力学会2003春の年会,

B2(2003).

- 5) 吉持宏,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料製 造技術の開発(Ⅲ)-5%Am含有MOXペレット作 製試験の結果-",日本原子力学会2004春の年会, D10(2004).
- 6)大林弘,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料製造技術の開発(Ⅳ)-Am含有MOXペレットの品質保証検査-",日本原子力学会2004春の年会, D11(2004).
- 7)逢坂正彦,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(V) – Am含有MOX燃料の酸素ポ テンシャル測定および解析-",日本原子力学会2004 秋の大会,G33(2004).
- 小崎葉子,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(N)ー焼結体中の残留ハロゲン不 純物に関する考察-",日本原子力学会2004秋の大 会,G34(2004).
- 9)廣沢孝志,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(Ⅲ)ー改良型融点測定装置の概要 とAm含有MOX燃料の融点測定一",日本原子力学会 2004秋の大会,G35(2004).
- 金坂正彦,他:"遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(Ⅲ) − Am含有MOXの相状態−", 日本原子力学会2005春の年会,C16(2005).
- 三輪周平,他: "遠隔操作によるAm含有MOX燃料 製造技術の開発(II) – Am含有MOX燃料焼結に及 ぼす酸素ポテンシャルの影響-",日本原子力学会 2005春の年会,C17(2005).
- 12) H. Yoshimochi,et al., "Fabrication Technology for MOX Fuel Containing AmO₂ by an In-cell Remote Process", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 41, No. 8, p. 850-856(2004).
- 河田東海夫,他:"プルトニウム燃料の開発",動燃 技報, PNC TN 1340 96-004, p. 159(1996).
- 14) 川口浩一,他:"MOX燃料スクラップ中の微量Am 分離回収試験",サイクル機構技報,JNC TN1340 2000-003(2000).
- 15)加藤正人,他:"MA含有低除染燃料の開発 -Np/Am含有低除染燃料の焼結性と相安定性-", JNC TN8400 2003-014(2003).
- 16)加藤正人,他:"MA含有低除染燃料の開発 -Np/Am含有低除染MOXペレットの組織制御-", JNC TN8400 2003-054(2004).
- H.ELBEL,et.al.: "Dependence of the UO₂-PuO₂ pellet structure on fabrication parameters", J. Nucl.M ater., vol. 153, p160(1988).