1

金属燃料の研究開発の現状と革新概念

東京工業大学 革新的原子力研究センター CRINESセミナー

(財)電力中央研究所 原子力技術研究所 次世代サイクル領域

尾形 孝成



発表内容

- 1. はじめに
- 2. 金属燃料開発の経緯と現状

米国における開発の経緯 照射挙動の概要 照射試験の現状

炉心検討、安全性評価は 今回はスコープ外

3. 電中研における開発の進展

課題と取組みの概要

挙動解析、合金特性評価、被覆管との共存性、設計手法の検討、 「常陽」照射試験計画、MA含有金属燃料の照射試験、 工学規模射出鋳造試験、小規模射出鋳造試験、射出鋳造解析、 MA含有金属燃料製造

- 4. まとめと今後の展開
- 5. 金属燃料の革新概念

Zr濃度低減、被覆管ライニング、Heボンド粒子型金属燃料



8/20/2010

1. はじめに

RIFP

8/20/2010

> 金属燃料の使用によって・・・・

- ・高速増殖炉(FBR)の炉心性能向上:
 高増殖率の達成
 核分裂性物質の炉内装荷量削減
 炉心平均燃焼度の向上
 ・乾式再処理法と射出鋳造法の適用
 小規模でも高い経済性
- ⇒ 種々のFBR導入シナリオに柔軟に 適合する燃料サイクルの実現が可能
- 「FBRサイクル実用化研究開発(FaCT)」においては
 「副概念」との位置付け



2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 米国で豊富な開発実績

・FBR開発初期の実験炉の炉心燃料に採用:

U, U-Zr (EBR-I), U-Mo (Fermi, 英国DFR), U-Fs (EBR-II)

・1960年~1970年代には、Pu燃料の組成の最適化に向けた研究: 各種燃料合金の物性測定、照射試験、U-Pu-Zr合金の選定など

 ・1984年~1994年のIFR (Integral Fast Reactor) プログラム:
 EBR-II照射、FFTF照射、TREAT炉での過出力試験、炉外加熱試験など約1万本のU-Zr燃料、約600本のU-Pu-Zr燃料の照射実績 最高燃焼度約20at.%(200,000MWd/t)

 ・1999年から開始されたAFCI (Advanced Fuel Cycle Initiative) プログラム:
 マイナーアクチニド(MA: Np, Am, Cm)を添加した金属燃料の開発 物性測定、燃料製造、照射試験など



2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 照射挙動の概要



8/20/2010

T. Ogata, Doctoral Dissertation, Kyoto Univ. March (2000)

2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 照射挙動の概要~再組織化と燃料成分再分布



 ✓外周部はポーラスな組織
 ✓高密度(に見える)の領域ではZr濃度が低くU濃度が高い
 ✓温度条件によっては中央部には球形のポアを 多く含む領域が形成(恐らくγ-固溶体相)
 ✓UおよびZrの移動は熱拡散によるものと考えられ、 いくつかのモデルが提案

照射後の燃料スラグ断面(燃焼度約3at%)

R.G. Pahl, et al, Metallurgical Trans. A, vol. 21A, (1990) 1863.



8/20/2010

2. 金属燃料開発の経緯と現状

CRINESセミナー

> 照射挙動の概要~燃料スラグ温度の変化



2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 照射挙動の概要~被覆管の内面侵食



実験值:A.B.Cohen et al., J. Nucl. Mater. vol.204 (1993) 244.



2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 照射挙動の概要~FPガス放出



1) R.G. Pahl, et al, Proc. Int. Fast Reactor Safety Mtg., Snowbird, Utah, Aug.12-16, 1990, vol.IV, pp.129.

2) H. Tsai, et al, Proc. 3rd Int. Conf. Nuclear Engineering, Kyoto, Japan, Apr.23-27, 1995, vol.2, pp.849.

3) R.G. Pahl, et al, J. Nucl. Mater., 204 (1993) 141.

4) H. Tsai and L.A. Neimark, Proc. Int. Conf. Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants, Kyoto, Japan, Oct.25-29, 1992pp.28.2-1



RIEPI

9

2. 金属燃料開発の経緯と現状

CRINESセミナー

> 照射挙動の概要~過熱時の燃料と被覆管との液相形成反応





2. 金属燃料開発の経緯と現状

> 現在実施中または準備中の世界の主要な燃料照射試験

| 照射炉 | 実施機関 | 特徴 | 燃料形態 | 組成 | 現状 |
|----------------------------|-----------|-------------------|-------|--------------------------|------|
| 常陽 (日) [*] | JAEA | MA含有MOX | 酸化物 | (U,Pu,MA) O ₂ | 照射中 |
| | JAEA | もんじゅ燃料 | 酸化物 | (U,Pu,Am) O ₂ | 照射終了 |
| | JAEA | ODS被覆管燃料 | 酸化物 | (U,Pu) O ₂ | 準備中 |
| | 電中研-JAEA | 金属燃料 | 金属 | U–Pu–Zr | 準備中 |
| ATR(米)** | INL | MA含有燃料 (AFC-2) | 酸化物 | (U,Pu,MA) O ₂ | 照射中 |
| | | | 金属 | U-Pu-Zr-MA-RE | 照射中 |
| Phenix(1 4)** | 電中研−ITU | MA含有金属燃料 | 金属 | U-Pu-Zr-MA-RE | 照射終了 |
| BOR-60(露) | JAEA-RIAR | ODS被覆管燃料 | 酸化物顆粒 | $(U,Pu) O_2 - U$ | 照射中 |

*現在トラブル停止中 **上記の他、ターゲット燃料の照射試験など実施中



3. 電中研における開発の進展

CRINESセミナー

> 金属燃料の実用炉への適用に際しての開発課題

✓米国照射実績では、実用炉用のU-Pu-Zr燃料に望まれる高温照射 (被覆管最高温度>650℃)およびMA含有燃料の試験実績が乏しい。



3. 電中研における開発の進展

CRINESセミナー

> 金属燃料の実用性の実証に向けた課題と当所の取組み



取組み

RIFP

①高燃焼度までの照射挙動の理解
 ②高温での使用を制限する挙動の確認
 ③MA含有燃料の照射挙動の確認
 ④燃料製造および⑤照射試験による国内開発の実績

燃料性能評価·実証

- 照射挙動解析技術の開発①
- ・燃料合金の特性評価23
- ・燃料合金と被覆管との共存性評価②
- ・金属燃料設計手法の検討125
- •「常陽」照射試験計画①②⑤
- ・MA含有金属燃料の照射試験③

燃料製造技術開発

- U-Zr工学規模射出鋳造試験④
- U-Pu-Zr小規模射出鋳造試験④⑤
- ・射出鋳造解析コード開発④
- MA含有金属燃料製造③④

8/20/2010

3.1. 照射挙動解析技術の開発

RIEP

8/20/2010

CRINESセミナー



3.2. 燃料合金の特性評価



・U-Zr合金の高温変形速度(クリープ歪速度)の測定 →燃料スラグの変形挙動の基礎





図9 今回の測定試験の結果とU金属のクリープひずみ速度の実験値[8]および U-Pu-Zr合金に対する評価式[6]との比較

8/20/2010

T. Ogata, et al, JAERI-Tech 96-052 (1996).

3.2. 燃料合金の特性評価

CRINESセミナー

照射挙動モデル構築の基礎となる燃料合金特性データの取得 \succ

旧原研との共研

・U-Zr合金の相互拡散係数 →燃料成分再分布

・U-Zr合金中のCeの拡散係数 →希土類FPによる被覆管内面腐食(FCCI)



3.2. 燃料合金の特性評価

 \succ

CRINESセミナー

- 照射挙動モデル構築の基礎となる燃料合金特性データの取得 旧原研との共研 ・U-Zr合金中のCeの拡散挙動 750°C 750°C U-952r U-23Zr-1.3Ce U-23**Zr** U-23Zr-1.3Ce Measured data 0 Theoretical solution: $C_b = 0.013$ 100 Theoretical solution: $C_b = 0.010$ CONTRACTOR OF THE OWNER 0.7 90 0.9 0.6 80 .0.8 answere and a second Concentration of U or Zr (mol%) οU Concentration of Ce (mol%) (mol) 0.7 70 ∆ Zr 0.5 Ce 8 60 0.6 0.4 itration of 50 0.5 0.3 40 0.4 0.2 Conce 30 0.3 0.1 0.2 20 10 0.1 0.0 0 0 0 -0.4 -0.3 -0.2 -0.1 0.0 0.1 0.2 0.3 -0.8 -0.6 -0.4 -0.2 0 0.2 0.4 0.6 0.8 Distance from the Initial Interface, x / mm Distance from the Matano Interface, x / mm
- Fig. 6 Concentration profiles of Ce in the U-23mol%Zr / U-23mol%Zr-1.3mol%Ce couple annealed at 1023K.



- Fig. 12 Concentration profiles of U, Zr and Ce in the U-95mol%Zr / U-23mol%Zr-1.3mol%Ce couple annealed at 1023K.
 - T. Ogata, et al, Mater. Trans. vol. 44, No. 1 (2003) 47.

3.2. 燃料合金の特性評価

> 測定データを補完する状態図評価

・U-Pu-Zr-Fe系等の状態図評価 →固相線温度(融点)、被覆管との共存性検討





K. Nakamura, et al, J. Phase Equilibria, vol. 22, No. 3 (2001) 259.

➢ MA添加の効果を把握するための物性値測定

ITUとの共研

・U-Pu-Zr-MA合金の混和性、熱伝導率、ヤング率、被覆管との共存性など →MA含有金属燃料の挙動評価の基礎





M. Kurata, et al, CRIEPI Report T92005 (1992).



8/20/2010

CRINESセミナー



3.3. 燃料合金と被覆管との共存性評価

CRINESセミナー



3.4. 金属燃料設計手法の検討

CRINESセミナー



3.5.「常陽」照射試験計画

CRINESセミナー

> 海外データでは不足している次のデータを得るための照射試験を計画

JAEAとの共研

- ・燃料スラグと被覆管との間で650℃では液相形成が起きないことの確認
- ・被覆管温度600℃以上における希土類FPによる被覆管内面腐食(FCCI)データの取得
- ・15 at.%相当以上における燃料-被覆管機械的相互作用(FCMI)データの取得

・国産金属燃料の照射実績の蓄積

試験燃料要素の「設計および工事の方法の認可」を取得、2010年7月燃料製造完了





T. Ogata, et al, CRIEPI Report L08006 (2008).

3.5.「常陽」照射試験計画

CRINESセミナー

JAEAとの共研

≻試験目的、燃料ピンの仕様、照射条件

| 要素 番号 | 被覆管肉厚 中心温度 | スミア密度 (公称値) | ピーク 燃焼度 | 目的 |
|-------------------|---------------|----------------|------------|----------------|
| (1) | 640℃ | 77.4 % | 3 at.% | ・液相形成が生じない |
| (2) | 640℃ | 74.4 % | | 上限温度の確認 |
| (3) | 620℃ | 77.4 % | 8 at.% | ・被覆管最高温度(ホット |
| (4) | 620℃ | 74.4 % | | トレント Ala してのいる |
| (5) ^{*1} | 620℃ | 77.4 % | 15 at.% | ・海外データとの比較 |
| (6) *1 | 620°C | 74.4 % | | *「しいコスミア 密度取得性 |

いずれのピンもピーク線出力は500W/cm *1 計画検討中



T. Ogata, et al, CRIEPI Report L08006 (2008).



3.6. MA含有金属燃料の照射試験

CRINESセミナー

8/20/2010

25

ITUとの共研

- > 1994年までに試験燃料製造、2003年に仏国Phenix炉にて照射開始
- > 2008年6月に照射を終了、最高燃焼度約10at.%を達成、燃料破損なし
- 低燃焼度(2.5at%)および中燃焼度(7at%)の集合体:

 METAPHIX-1およびMETAPHIX-2の照射後試験を超ウラン元素研で実施中



H. Ohta, et al, CRIEPI Report L09011 (2010).

3.6. MA含有金属燃料の照射試験

CRINESセミナー

ITUとの共研

> これまでのところ、MA添加が照射挙動に及ぼす顕著な影響は見出されていない



ITUとの共研

> これまでのところ、MA添加が照射挙動に及ぼす顕著な影響は見出されていない





H. Ohta, et al, CRIEPI Report L09011 (2010).

3.7. 工学規模射出鋳造試験

CRINESセミナー

> 射出鋳造法による燃料スラグの製造



3.7. 工学規模射出鋳造試験

- > 実用規模に近い20kg/バッチの射出鋳造試験装置によって、直径約6mm、長さ 400mmのU-Zr合金スラグを約500本以上製造
- > 実用上十分な製造効率、実用的な炉心設計に概ね適合する品質などを達成



工学規模U-Zr射出鋳造試験装置

8/20/2010



工学規模試験における鋳造後の 鋳型の外観とU-Zr合金スラグ

旧電源開発促進対策特別会計法に基づく文部科学省からの委託事業として財団法人電力中央研究所が実施した 平成14-18年度「金属燃料の乾式再処理プロセスの合理化に関する技術開発」の成果です。



T. Ogata & T. Tsukada, Global 2007, Boise, ID (2007).

3.7. 工学規模射出鋳造試験

CRINESセミナー

> 燃料スラグ外径は鋳型の内径精度の管理によって調整可能



Mold inner diameter at the bottom end (mm)

旧電源開発促進対策特別会計法に基づく文部科学省からの委託事業として財団法人電力中央研究所が実施した 平成14-18年度「金属燃料の乾式再処理プロセスの合理化に関する技術開発」の成果です。



8/20/2010

T. Ogata & T. Tsukada, Global 2007, Boise, ID (2007).

3.8. 小規模射出鋳造試験

CRINESセミナー

- > 常陽照射試験に向けて、約200g/バッチの小規模射出鋳造試験装置に よって、直径約5mm、長さ200mmのU-Pu-Zr合金スラグを製造
- > 組成の均一性、直径のばらつきなどの目標仕様を満足する燃料スラグの製造に成功



金属燃料製造設備と小規模射出鋳造装置の外観



U-20wt%Pu-10wt%Zr合金スラグ

8/20/2010

CRIEP

測定項目 測定結果 目標仕様 長さ(mm) 200.3 200 ± 1 4.95 ± 0.05 **直径**(mm) 5.02 ± 0.04 5.05 ± 0.05 密度 (g/cm³) 15.6 15.3~16.1 位置 F 中 下 69.0 U 69.2 68.2 balance 組成 Zr 10.2 10.0 11.0 10.0 ± 1.0 (wt%) Pu 20.5 20.5 20.5 20.0 ± 1.0 (合計) 0.31 0.31 0.32 Am

U-20wt%Pu-10wt%Zr合金スラグ検査結果の一例

K. Nakamura, et al, CRIEPI Report L06005 (2007).

3.9. 射出鋳造解析技術の開発

8/20/2010

CRINESセミナー

·部神鋼との共研

- > 燃料スラグの仕様(長さ、直径、組成など)と鋳造条件の関係を 把握するため射出鋳造シミュレーションコード ICAST を開発
- > 石英製鋳型内面コーティングの断熱効果が射出長さに大きく影響することなどを解明



3.10. MA含有金属燃料製造

CRINESセミナー

- > Phenix照射試験用のMA含有金属燃料はアーク溶解-重力鋳造によって製造注1)
- 合金の組織観察および状態図評価によって、U-Pu-Zr-Np-Am合金において、NpはUと 類似した挙動を示すこと、Puが共存するとU-Amの混合性が向上することなどを解明





ITUとの共研







4. まとめと今後の展開

- 米国による過去の物性値測定や照射試験等の結果、金属燃料の照射挙動の 概略が把握でき、公開データによって試験燃料の設計が可能である。
- しかし、物性値データの拡充、照射挙動のメカニズムの解明とモデル化など、 設計合理化や高性能化に向けた課題は多い。
- 電中研では、金属燃料の実用性の実証に向けて、高燃焼度までの照射挙動の 理解、高温での使用を制限する挙動の確認、MA含有燃料の照射挙動の確認、 燃料製造および照射試験による国内開発実績の蓄積の課題に取り組んできた。
- 米国や韓国など国外において金属燃料への注目が高まる中、将来の基幹電源の 確保に向けた基盤研究として、今後も、金属燃料の実用性の実証に向けた研究 開発を着実に進めて行く予定。



4. まとめと今後の展開

> 今後の研究が望まれる点(例)

√物性値データの拡充

•熱伝導率や固相線・液相線温度の測定、状態図評価など

・クリープ等機械的物性値の測定・評価

√機械的挙動

•多孔質物体のクリープによる圧縮挙動

•固体FPの性状と固体FPスエリング量の定量評価

•機械的挙動

√化学的(金属学的)挙動

•燃料成分やFPの移動

•被覆管との反応(希土類による侵食、液相形成)

•事故時の溶融燃料の挙動(被覆管、集合体部材との反応進展、凝固/分散挙動)

✓MA添加の影響

✓燃料製造技術の改良、革新

✓燃料概念の改良、革新



8/20/2010

CRINESセミナー

【特徴】

√燃料合金中のZr濃度を3wt.%まで低減

✓U-Pu-3wt.%Zr燃料(Zrシース付)の照射試験実績有り、U-2wt.%燃料は非等方的照射成長

【期待される特長】

✓ 炉内のフィッサイル装荷量の増大 → 炉心特性の一層向上
 ✓ 液相線温度・固相線温度の低下 → 射出鋳造時の燃料溶融温度低減、Am蒸発抑制
 ✓ 電解精製工程におけるZr処理の負荷を低減

【課題】

✓溶融線出力の低下

✓ 被覆管の液相侵食速度の増大? ←反応層における高融点のFe₂Zr相等の形成量の低下



T. Ogata & T. Mizuno, Global 2009, Paris, France (2009).

【研究開発の現状】

 ✓照射挙動の不確かさを含んだ保守側の評価の 結果、U-Pu-3wt.%Zr燃料の溶融線出力は Pu濃度15wt.%以下の場合、>550W/cmで 燃料溶融に対して十分な余裕
 ✓燃料と被覆管との共存性については 炉外試験や照射試験が必要



T. Ogata & T. Mizuno, Global 2009, Paris, France (2009).



5. 金属燃料の革新概念 (2) 被覆管ライニング

CRINESセミナー

【特徴】

✓希土類FPによる被覆管内面腐食や過渡時の液相浸食を 低減するため、被覆管の内側にバリア材(ライナー)を設置

【期待される特長】

✓被覆管内面腐食や液相浸食の防止・抑制 →高被覆管温度(>600℃)や高燃焼度(>15at%)における 金属燃料の使用を容易にする

【課題】

- √ライナー材の信頼性
- √ライニング方法、端栓溶接方法の工夫、開発
- ✓頑健な被覆管が金属燃料炉心の安全性に及ぼす影響の評価 (仮想的な炉心崩壊事象に至るシナリオにおいて、 溶融燃料の分散-6の反応度印加のタイミングが遅れる?)

【研究開発の現状】

W、V、Zr、Ti、Cr、ZrNなど種々のライナー材が日本、米国、韓国で試験 これまでの炉外加熱試験の結果では、Vが最も良好



T. Ogata & T. Mizuno, Global 2009, Paris, France (2009).



5. 金属燃料の革新概念 (3) Heボンド粒子型金属燃料

CRINESセミナー



5. 金属燃料の革新概念 (3) Heボンド粒子型金属燃料 (

CRINESセミナー

【研究開発の現状】

✓U-2Mo, U-10Mo, U-5Nb-3Zr, U-9Nb-3Zr (wt.%)の合金粒子を遠心アトマイズ法で製造。(KAERI) 平均粒径50µm前後の球形粒子。1バッチ約4kg、RERTRプログラムの一環。

K.H. Kim, et al, J. Nucl. Mater. 245 (1997) 179. J.M. Park, et al, J. Nucl. Mater. 265 (1999) 38.

- ✓U-10Zr, U-30Zr, U-70Zr (at.%)の合金粒子を融体滴下法で製造。(旧原研) 粒径0.4~1.0mmの球形粒子。
 - JRR-2で約1.2at.%まで照射。

T. Ogawa, et al, J. Alloys & Compounds, 271-273 (1998) 670.

✓U-15Pu-10Fz (wt.%)のガスアトマイズおよび粉砕 (pulverizing) によって製造。(旧ANL) 粒径80~400µmの球形粒子。(ガスアトマイズで粒子状とならなかったスポンジ状の合金 をhammer millで粉砕、球状化)

篩分で粒子径をそろえてNb-1Zr合金製被覆管に約60%スミア密度で充填、ボンドNaを充填。 CP-5で3.8at.%まで照射。被覆管最高温度560~600℃。6本の試験燃料の被覆管の全てに 小さなクラックや検知できない欠陥が発生。(原因不明)

> Annual Progress Report for 1965: Metallurgical Division, ANL-7155. W.N. Beck et al, ANL-7388 (1968).

✓米国ベンチャーARC社のARC(Advanced Reactor Concept:燃料寿命20年、燃料交換期間7年、 電気出力100MWe)の燃料概念として採用

L. Walters, et al, Proc. ICAPP'10, San Diego, CA, USA, Jun.13-17, 2010.



✓Zr濃度低減、被覆管ライニング、Heボンド粒子型金属燃料の組み合わせ概念も可能

- ✓実用化されれば、金属燃料・炉心の性能は一層向上し、燃料サイクルプロセスにも好影響
- ✓いずれの革新概念も今後の確認試験が必要だが、高速炉の実用化(~2050年?)までに 間に合う可能性

