

高速炉 MOX燃料用酸素ゲッターの開発 (2)

－装荷方法の検討、候補材の酸化挙動及び共存性評価－

Feasibility Study of Oxygen Getter Materials for FBR MOX Fuel (2)

- Investigation of Loading Options, Evaluation of
Oxidation Behavior and Compatibilities of the Candidate Materials -

森平 正之

Masayuki MORIHIRA

次世代原子力システム研究開発部門

燃料製造技術開発ユニット

Fast Reactor Fuel Fabrication Technology Development Unit
Advanced Nuclear System Research and Development Directorate

July 2011

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

高速炉 MOX 燃料用酸素ゲッターの開発 (2) —装荷方法の検討、候補材の酸化挙動及び共存性評価—

日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門

燃料製造技術開発ユニット

森平 正之

(2011 年 5 月 11 日 受理)

高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCT プロジェクト。以下、「FaCT」) では、集合体平均 150GWd/t (集合体ピーク 250GWd/t) の高燃焼度を目指している。このような高燃焼度域では被覆管の内面腐食が従来以上に厳しくなることが予想されることから、FaCT では照射中の燃料要素内における酸素ポテンシャルの上昇を抑制することにより内面腐食を抑える方策として低 O/M 比ペレットの採用を検討してきたが、量産工程における実現には課題が多いことがわかってきた。このため、照射中に生じる余剰酸素を吸収させる酸素ゲッターの利用について検討を進めている。

本研究では、実用期の燃料概念である MOX ペレット燃料に適用する酸素ゲッターオプションについて、燃料ピンへの装荷方法の他、候補材としたチタン、ジルコニウムの酸素吸収挙動及び FMS 材、 UO_2 との共存性の評価を行い、チタンロールペレット装荷方式が最も有望であるとの見通しを得た。

Feasibility Study of Oxygen Getter Materials for FBR MOX Fuel (2)
- Investigation of Loading Options, Evaluation of Oxidation Behavior
and Compatibilities of the Candidate Materials -

Masayuki MORIHIRA

Fast Reactor Fuel Fabrication Technology Development Unit,
Advanced Nuclear System Research and Development Directorate,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 11, 2011)

In the FaCT project (Fast reactor Cycle Technology development) proceeded by JAEA since 2006, high bundle peak burn-up to 250 GWd/t is targeted. Cladding inner corrosion is one of the life control factors of FBR MOX fuels. Because it increases with extension of burn-up, significant corrosion is expected in the high burn-up. Considering the excess oxygen during fission is the cause of corrosion, reduction of initial O/M ratio of MOX fuel pellets is one of the solutions. But it is not always easy to obtain low O/M ratio pellets especially in mass production. Oxygen getter option is an idea to coexistence of oxidizable metal fragments in a fuel element as an excess oxygen absorber. In this case extremely low O/M ratio pellet is not necessary anymore.

A feasibility study for oxygen getter options which was focused on pellet type MOX fuel was conducted. This report describes latest evaluation result for the loading options of oxygen getter materials and the oxidation behavior of the candidates such as Ti and Zr as well as their compatibilities with FMS cladding material and UO_2 .

Keywords : MOX, O/M, Getter, Cladding, Corrosion, FCCI, High Burn up

目 次

1. 序論	1
2. 装荷方法の検討	2
2.1 装荷オプション	2
2.1.1 スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）	2
2.1.2 スリーブ挿入方式（上部軸方向ブランケット領域）	3
2.1.3 低密度ペレット装荷方式	3
2.1.4 金属ウラン装荷方式	4
2.2 製造・製作性評価	5
2.2.1 スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）	5
2.2.2 スリーブ挿入方式（上部軸方向ブランケット領域）	5
2.2.3 チタンロールペレット装荷方式	6
2.2.4 金属ウラン粒子装荷方式	6
2.3 まとめ	7
3. 酸素ゲッターの温度評価	8
3.1 目的	8
3.2 評価方法	8
3.3 結果	8
3.4 考察	8
3.5 まとめ	9
4. 候補材の酸化挙動評価	10
4.1 目的	10
4.2 試験方法	10
4.3 試験結果	10
4.3.1 1300～1600℃	10
4.3.2 580～700℃	11
4.4 考察	11
4.5 まとめ	12
5. 被覆材及び燃料との共存性評価	13
5.1 目的	13
5.2 試験方法	13
5.2.1 Ti, Zr と FMS の共存性試験	13
5.2.2 Ti, Zr と UO ₂ の共存性試験	13

5.3 試験結果	13
5.4 考察	14
5.4.1 Ti, Zr と FMS の共存性	14
5.4.2 Ti, Zr と UO ₂ の共存性	14
5.5 まとめ	15
6. 総合評価	16
6.1 候補材の選定	16
6.2 装荷方法の選定	16
7. 結言	18
謝辞	19
参考文献	19

Contents

1. Introduction	1
2. Discussion of getter material loading	2
2.1 Loading option	2
2.1.1 Sleeve option (Full length of a fuel pin)	2
2.1.2 Sleeve option (Upper axial blanket region)	3
2.1.3 Low density pellet option	3
2.1.4 Uranium metal option	4
2.2 Fabrication of getter material pieces	5
2.2.1 Sleeve option (Full length of a fuel pin)	5
2.2.2 Sleeve option (Upper axial blanket region)	5
2.2.3 Titanium roll pellet option	6
2.2.4 Uranium metal particle option	6
2.3 Conclusion	7
3. Evaluation of expected temperature of getter materials	8
3.1 Objective	8
3.2 Evaluation procedure	8
3.3 Results	8
3.4 Discussion	8
3.5 Conclusion	9
4. Evaluation of oxidation behavior	10
4.1 Objective	10
4.2 Test procedure	10
4.3 Results	10
4.3.1 1300~1600°C	10
4.3.2 580~700°C	11
4.4 Discussion	11
4.5 Conclusion	12
5. Evaluation of compatibility with cladding material and fuel pellet	13
5.1 Objective	13
5.2 Test procedure	13
5.2.1 Compatibility test between Ti, Zr and FMS	13
5.2.2 Compatibility test between Ti, Zr and UO ₂	13

5.3 Results	13
5.4 Discussion	14
5.4.1 Compatibility between Ti, Zr and FMS	14
5.4.2 Compatibility between Ti, Zr and UO_2	14
5.5 Conclusion	15
6. Comprehensive evaluation	16
6.1 Selection of oxygen getter material	16
6.2 Selection of installment option	16
7. Concluding remarks	18
Acknowledgement	19
Reference	19

表リスト

Table 3.1	燃料ピン各部の温度分布評価結果 (BOL)	20
-----------	-----------------------	----

図リスト

Fig.2.1	チタンスリーブ挿入方式の概念① (ピン全域装荷)	21
Fig.2.2	チタンスリーブ挿入方式の概念② (上部軸ブラ領域限定装荷)	21
Fig.2.3	チタンロールペレット方式の概念	22
Fig.2.4	金属ウラン粒子装荷方式の概念	22
Fig.2.5	チタンスリーブの試作結果① (燃料ピン全域装荷用)	23
Fig.2.6	チタンスリーブの試作結果② (上部軸ブラ領域限定装荷用)	23
Fig.2.7	チタンロールペレットの試作結果	24
Fig.3.1	燃焼初期の軸方向温度分布評価結果	25
Fig.4.1	チタンディスクの酸化挙動 (1300℃)	26
Fig.4.2	ジルコニウムディスクの酸化挙動 (1300℃)	26
Fig.4.3	チタンディスクの酸化層の SEM/EDX 分析結果 (700℃×200h)	27
Fig.4.4	チタンディスクの酸化層の変化 (700/580℃)	27
Fig.4.5	チタンディスクの重量増加率の変化 (1300℃×3h)	28
Fig.5.1	FMS 共存性試験の試料セッティング状況	28
Fig.5.2	Ti-FMS 界面付近の SEM/EDX 分析結果 (700℃×200h)	29
Fig.5.3	Ti と FMS の界面反応相の変化 (700℃×200h)	30
Fig.5.4	Ti,Zr と FMS の界面反応相の変化 (700℃×100h)	30
Fig.5.5	Ti-UO ₂ 界面の反応相 (1300℃×2h)	31
Fig.5.6	Ti-FMS 界面における構成元素の分布状態 (700℃×200h)	32

This is a blank page.

1. 序 論

高速増殖炉サイクル実用化研究開発（以下、「FaCT」）では集合体平均 150GWd/t（集合体ピーク 250GWd/t）の燃焼度を目指しているが、このような高燃焼度を達成するためには被覆管内面腐食対策が不可欠である。内面腐食は燃料の酸素ポテンシャルと密接な関係があり、亜化学量論組成（O/M 比<2.00）ではほとんど生じないことが知られている[1]。このため FaCT では、燃料の初期 O/M 比を 1.95 程度に下げた低 O/M 比ペレットを用いることにより、内面腐食の開始を遅延させる方法を目指してきた[2]。しかし、低 O/M 比のペレットを得るためには長時間の熱処理が必要であり、量産規模の大型電気炉において高精度の酸素ポテンシャル制御を行うことが要求される。一方、低 O/M 比のペレットは酸素感受性が高く、自己発熱量の大きい高次化 Pu や低除染 MA 含有燃料では焼結後の再酸化防止も大きな課題となる。これらの点を勘案すると、ペレットの O/M 比を大幅に下げて所定の仕様に収めることは必ずしも容易なことではなく、技術的に対応できたとしても燃料製造コストへの影響は避けられないと考えられるようになった。このような背景から酸素ゲッター法についての検討が開始された。

酸素ゲッター法は、照射中に生じる余剰酸素を燃料ピン内に装荷した吸収材によって除去することにより酸素ポテンシャルの上昇を抑える方法であり、概念としては古くからあるもので、最近ではロシアがバイバック燃料に適用して 32.3%の高燃焼度を達成した例があるが[3]、ペレット燃料における決定的な概念は報告されていない。

そこで、平成 19 年度に酸素ゲッター候補材のサーベイと被覆管装荷方法の検討を行い、ジルコニウム、チタンを穴開きディスクとしてペレット-ペレット間に装荷するオプションを提案した[4]。平成 20 年度から 22 年度にかけては、酸素ゲッターをペレット-被覆管ギャップ部や上部軸方向ブランケット領域に装荷する方式について検討するとともに、候補材としたジルコニウム及びチタンの酸素吸収挙動並びに FMS 材及び UO_2 との共存性評価を行い、ペレット燃料用酸素ゲッターの概念の具体化を図った。

2. 装荷方法の検討

酸素ゲッターの検討においては、ゲッターを燃料ピン内のどの部分に装荷するかが極めて重要になる。ゲッターの役割が照射中に生じる余剰酸素の吸収にあることを考えれば、余剰酸素が発生する炉心燃料ペレットの直近に装荷することが最も望ましい。ロシアのバイバック燃料では、MOX 燃料粒子に金属ウランゲッター粒子を混合することにより内面腐食を抑制して 32.3% の高燃焼度を達成しているが[3]、ペレット燃料の場合は燃料とゲッターを分離して装荷せざるを得ない。次善の策として被覆管内面を酸素ゲッター材でライニングする方法が有望と考えられるが、SUS 被覆管のチタンライニングには技術的な課題があり、低コストでの量産は困難であると考えられる。[5],[6] そこで、平成 19 年度の検討に際しては、ジルコニウムやチタンの穴あきディスクをペレット-ペレット間に装荷する方式を提案したが、ペレット端面は外周部でも相当の高温になるため共存性における裕度が少なく、ピン加工工程の複雑化も避けられない。このため今回は、ライニングに準じる方法と軸方向ブランケット領域（以下、「軸ブラ」）にゲッターを装荷する方法について検討を行った。

ところで、このように高温部を避けてゲッターを装荷する場合ジルコニウムを用いる利点は低下する。すなわち、ジルコニウムとチタンの約 180℃ の融点の差は MOX ペレットの端面との接触を考慮する場合は大きな違いになるが、1000℃ 以下で使用する場合はほとんど意味を為さなくなる。また、ジルコニウムは箔材の入手が困難であることや、被覆材以外の用途での加工経験を有するメーカーがほとんどなく情報に乏しいといった問題もあることから、以下の検討はチタンのみについて行うことにした。

2.1 装荷オプション

2.1.1 スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）

被覆管ライニングに準じた装荷方式として、ペレットと被覆管の間にゲッター材のスリーブを挿入する方式が考えられる。（Fig.2.1）

スリーブの厚さは、燃料径方向の伝熱設計上なるべく薄い方が望ましいが、実用燃料ピン 1 本中に装荷するチタンの量は 0.08 モル（計 0.9cm³）程度と考えられるので、スリーブをピン全長に渡って装荷すれば肉厚は 10μm 程度でよいことになる。これは家庭用アルミ箔の半分の厚さに過ぎないが、チタン箔の剛性はアルミ箔より遥かに高いためハンドリングに耐えられる可能性がある。もちろん、長尺物の製作やハンドリングは困難と考えられるが、スリーブは被覆管内面のバリアではないため一体物である必要はなく、数十 cm 長のセグメントを複数挿入する方式を用いれば問題にはならない。

スリーブは、箔材を曲げ加工して製作するため背割れ構造になるが、これは箔を展張力によって被覆管に密着させたり、照射中のペレットや被覆管の熱膨張に追従させる上で有用である。背割れ部においても被覆管内面が露出することになるが、前記のとおりスリーブは FP に対するバリアではないため問題はないと考えられる。

もし、10μm 厚では薄過ぎて実現が困難な場合は、30μm 厚程度のスリーブを炉心燃料領域に限定的に装荷する方法が考えられる。

2.1.2 スリーブ挿入方式（上部軸方向ブランケット領域）

ペレットと被覆管の間にチタンスリーブを挿入する場合、多かれ少なかれギャップ幅の拡大が必要であり、チタンの熱伝導度はヘリウムより二桁高いものの、酸化物になれば MOX と同程度まで低下する。また、スリーブの装荷により気・固相間の伝熱ギャップが追加されるためギャップコンダクタンスが低下し、熱設計に余裕のない炉心燃料領域では線出力の引き下げ等が避けられなくなる。これらを勘案すると、スリーブは炉心燃料領域を外して装荷することが望ましい。

ここで、燃料と被覆管の化学的相互作用（FCCI）は被覆管温度 480°C にしきい値を持ち、被覆管温度が高いピン上部で顕著になることが知られている[7]。ピン上部は被覆管温度が高くなる一方、ペレット温度が低いため Cs 等の腐食性 FP が蓄積し易く、加えて UO₂ ペレットの存在によりローカルな酸素ポテンシャルも高いことから腐蝕条件としては最も厳しくなる。このことから、内面腐食対策をピン上部に限定的に施しても一定の効果が得られる可能性がある。この場合は、炉心燃料領域の配置は従来と同じであるので、前記のような熱設計上の問題は回避することができる。

スリーブの長さはピン全体に装荷する場合に比べてかなり短くなるため、肉厚を 100μm 程度に増やさなければならず、それに対応して上部軸ブラペレットの外径を一回り小さくする必要があるが、軸ブラは設計の自由度が高いため対応は可能と考えられる。炉心燃料ペレットと下部軸ブラペレットの仕様については変更の必要はない。

課題として、MOX ペレットを充填した後でないとスリーブを挿入できないことや、スリーブを押し込んだだけでは正確な位置決めができないことが挙げられる。これについては Fig.2.2 に示すようにスリーブに UO₂ ペレットにはめ込んでカートリッジ化する方法により対応することができる。1つのカートリッジ中のペレット数は 4～5 個以上が想定され、ピン加工工程にはカートリッジ化済みの UO₂ ペレットを持ち込むことになる。

2.1.3 低密度ペレット装荷方式

軸ブラ領域の発熱量は炉心燃料領域に比べて大きく低下するため、燃料温度は燃料ピンの上下端に向かって急激に低下する。このため、上部軸ブラ領域にチタンスリーブを挿入しても、軸方向位置によっては温度が低過ぎて十分な酸素の吸収が見込めない可能性がある。このような場合は、ゲッターを炉心燃料寄りの高温域に集中的に装荷する必要がある。

ただし、その場合、ゲッターが酸化する際の体積膨張の吸収代を設けておかないと被覆管との間に機械的相互作用を生じ、特に被覆管温度が高い燃料ピン上方では破損を生じる可能性がある。すなわち、スリーブの場合はペレット-スリーブ-被覆管のギャップが体積膨張の吸収代になるが、ゲッターをひと塊りにして装荷する場合は当該領域のスミア密度を下げて吸収代を設ける必要があり、具体的には粒子充填、多孔質の低密度ペレットなどが考えられる。これらはゲッターが酸化膨張する際にクリープ変形して粒子間の隙間やポアが潰れることに期待するものであるが、装荷領域の温度が低い場合、狙い通りの効果が得られないことも予想される。

そこで、多孔質体以外の低密度ペレットとして、リボン状のチタン箔をペレット状に巻いたチタンロールペレット方式を提案した。(Fig.2.3)

ロールペレット方式の利点として以下が挙げられる。

- ・ 酸化時の体積膨張が箔の厚さを増す形で現れるため、箔と箔のギャップに容易に吸収できる。
- ・ チタン箔の巻き加減によってスミア密度を任意に調整できる。
- ・ 比表面積が大きいいため酸素吸収効率が低い。
- ・ ハンドリング性に優れ、ピン横置き状態での被覆管装荷が可能である。

2.1.4 金属ウラン装荷方式

他方、チタンでは軸ブラ領域のどの位置に装荷しても十分な酸素吸収が期待できない場合は、想定される温度域においても確実な酸化が見込まれる材料を使用する以外にない。そのような材料として金属ウランが挙げられる。

U/VO₂の酸素ポテンシャルは Ti/TiO₂ と大差ないが、チタンのように不動態皮膜の形成により酸化が表面のごく一部に留まることがないため酸化速度は急速であり、低い温度においても十分な酸素吸収が期待できる。また、金属ウランは再処理時に燃料中のウランとともにリサイクルでき廃棄物にならないという利点がある。

ただし、金属ウランは融点が 1132°C であるので炉心燃料ペレットと接触すれば溶融するため、断熱ペレットを介して軸ブラ領域に装荷する必要がある。ロシアのバイパック燃料で金属ウランゲッターの溶融が問題とならないのは、安全審査の考え方の違いもあるが、数百 μmφ 以下の金属ウラン粒子と MOX 粒子が混合している場合両者の接触面積が非常に大きく、金属ウラン粒子が出力上昇中に急速に酸化されるためと考えられる。しかし、ペレット燃料の場合はそこまで急速な金属ウランの酸化を前提とすることはできないと思われる。金属ウランと鉄は 725°C に共晶点を持つため被覆管健全性についても注意が必要である。

酸化に伴う体積膨張を吸収するためにスミア密度を下げる必要がある点は金属ウランも同じである。ただし、金属ウランの箔材を入手するは現状困難であり、不動態皮膜によって保護されるチタンと異なり、圧延や曲げ加工における酸化防止措置が必要であるなど製造上の課題も予想され、スリーブやロールペレット方式の実現見通しを早期に得ることは困難である。しかし、金属ウラン粒子であれば振動充填燃料の評価の一環として製造実証が行われており [8]、製造性については確認済みであることから、その利用について検討することにした。

金属ウラン粒子を充填する場合は燃料ピンを直立させる必要があり、セルの天井高さが必要になるだけでなく、工程の前後に位置する MOX ペレット充填と上部軸ブラペレット充填をピン横置きで行うことから起倒操作を行う必要が生じるなどプラント設計上好ましくない部分がある。しかし、この問題については金属ウラン粒子をバスケット状のホルダーに収納することにより解決可能である。(Fig.2.4(b))

なお、スミア密度を下げる方法として低密度ペレットを用いる方法も考えられ、金属ウラン粒子を軽く焼結してネック成長させたネッキングさせる方法が提案されるが、この方法で極端に低い密度を得ることは困難であり量産化の困難さも予想される。

このように、金属ウラン装荷方式の中で比較的实现性が高いのは金属ウラン粒子利用法であると考えられる。

2.2 製造・製作性評価

2.2.1 スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）

肉厚が数十 μm のスリーブを引抜き等によって製造することはできないため、箔材を曲げ加工して得る必要がある。そこで、薄い箔から折れ目や皺を生じることなく目的とする製品が得られるかどうかを確認するために、肉厚 10 μm 及び 30 μm 、長さ 100mm 又は 300mm のチタン箔を用いた試作試験を行うとともに、得られたスリーブを模擬被覆管に挿入して樹脂固定後に断面金相試験を行い、箔の状態や被覆管への内接状態を調べた。模擬被覆管には内径 9mm ϕ の汎用 SUS 管を用いた。

チタンの箔材は加工硬化によって大きなスプリングバックを有しており、所定の曲率の円筒形状に曲げ加工することは難しい。本オプションはスプリングバックを利用して箔を被覆管内面に密着させることを狙ったものであるが、いずれの肉厚についてもスリーブの大部分が被覆管内面に接することを確認できた。ただし、完全な円筒形ではなく、特に箔の両端が直線的になることにより挿入後の突合せ部付近に浮き上がりが生じた。浮き上がりは最大 200~300 μm あり、ペレットを押し込めばスリーブは容易に広がるが、セグメント方式の場合は押し込んだペレットがスリーブ間の段差に引っ掛かる可能性があるため、改善が必要である。30 μm 厚の箔は折れ目、波打ち、ヨレが生じることはなかったが、10 μm 厚の箔のハンドリングは相対的にハードルが高いことがわかった。30 μm 厚については、長さ 100mm と 300mm の試験を行ったが、仕上がりに大きな違いは見られなかった。

次に、スリーブと被覆管内面の密着性を向上させるために、30 μm 厚の箔を曲げ加工したのち型枠に入れて 800 $^{\circ}\text{C}$ の熱処理を行ったところ、ほぼ真円のスリーブが得られ、箔両端の直線性や挿入後の突合せ部付近の浮き上がりも改善された。突合せ部の浮き上がりは 107 μm 、最大ギャップ 49 μm に収まり、必要な加工精度が得られることがわかった。(Fig.2.5)

本試作試験は一般的な加工機械を用いて手作業により行ったものであるが、自動化した専用機を製作して量産化を図ることに特段の困難はないと考えられる。また、手作業ではセッティングに際しての平行出し等の調整精度から長尺物の製作は困難であったが、この点についても専用装置を用いればある程度までの対応は可能と考えられる。

以上の結果から、肉厚 30 μm 以上であればチタンスリーブは製作面の実現性はあるものと判断される。

2.2.2 スリーブ挿入方式（上部軸方向ブランケット領域）

肉厚 100 μm 、長さ 50mm のチタン箔をスリーブ加工し、模擬ペレットの詰め込み試験を行った。試験は、実証炉燃料ピン（8.98mmID, 10.4mmOD）に 100 μm 厚のスリーブを装荷する場合を想定し模擬ペレット外径を 8.6mm ϕ 、スリーブ外径を 8.8mm ϕ として行った。模擬被覆管には内径 9mm ϕ の汎用 SUS 管を用いた。

曲げ加工を行ったのちに型枠に入れた状態で 800 $^{\circ}\text{C}$ の熱処理による応力除去を行ったところ、ほぼ真円のスリーブが得られた。スリーブと詰め込んだ模擬ペレットとの隙間は最大 124 μm となり、その反対側は接していたことから、片側平均では 64 μm となり、被覆管とペレットのギャップ幅（半径あたり）をスリーブの肉厚プラス 100 μm に設定することにより、ス

リーブをスムーズに挿入できることがわかった。(Fig.2.6)

このように、上部軸ブラ領域装荷用のチタンスリーブについても製作面の実現性があるものと判断される。

2.2.3 チタンロールペレット装荷方式

Ti が TiO_2 に変じる際の体積膨張率は 180vol% であるので、被覆管との過度の機械的相互作用を回避するにはチタンロールペレットの初期スミア密度を 50%TD 程度にする必要がある。内径 8.98mm の被覆管の場合、厚さ $100\mu\text{m}$ ×幅 10mm×長さ 317mm のリボン状チタンを巻いたものがこれに相当するが、実用燃料ピン 1 本あたりのチタン装荷量の 0.9cm^3 (0.08 モル) に対しロール 1 個あたりのチタンの正味体積は 0.32cm^3 であるので、各燃料ピンに 3 個を装荷する必要があることになる。

製作性に関しては、スプリングバックの強いチタン箔をロール状にしても巻き戻ってしまう懸念があるが、箔材の溶接は困難であり銀ロウ等の使用は不純物管理上問題がある。したがって、端留めをせずにロールを所定の外径に収めることができるかどうか大きな課題となる。そこで、内径 9mm の被覆管を想定し、 $100\mu\text{m}$ ×10mm×284mm 及び $50\mu\text{m}$ ×10mm×568mm のチタン箔を用いたロールペレットの試作を行った。

その結果、 $100\mu\text{m}$ 厚の場合は目標外径 8.5mm (最大 8.8mm) に対して 9.4mm のロールが得られたが、 $50\mu\text{m}$ 厚の場合は巻き戻りが生じ、ロールの外径は 24.5mm となった。そこで、これらのロールを内径 8.8mm の治具に入れて 800°C の熱処理を行ったところ、 $100\mu\text{m}$ 、 $50\mu\text{m}$ についてそれぞれ 8.6mm、8.8mm の外径のロールが得られ、治具サイズの選定によってロールの外径を制御できることがわかった。

ロールペレットの断面観察の結果、 $100\mu\text{m}$ の場合は箔同士の上に隙間が認められたが、 $50\mu\text{m}$ の場合は全体的に外周部に偏在し箔同士が密着していた。これは両者のスプリングバックの差によるものであり、 $50\mu\text{m}$ の方が加工硬化が進んでいたことが理由と考えられる。 $50\mu\text{m}$ の箔はより比表面積の大きいペレットを得ることを期待したものであるが、箔同士の密着によって実効的な比表面積が低下することから、いたずらに薄い箔を使用してもメリットはないことがわかった。Fig.2.7 に模擬被覆管に挿入し樹脂固定したロールペレットの金相写真を示す。

以上より、肉厚 $100\mu\text{m}$ のチタン箔を巻き、端留めせずに所定の外径のロールペレットを製作することが可能であることがわかった。

2.2.4 金属ウラン粒子装荷方式

実用燃料に装荷する金属ウラン粒子の量は 0.08 モル (計 1.1cm^3) 程度であり、金属ウランが UO_2 に酸化する際の体積膨張率は 174vol% であるので、ゲッター装荷部の初期スミア密度はチタンの場合と同様に 50%TD 程度とすればよいことになるが、金属ウラン粒子は 100%TD の製品として得られるため、充填率そのものを 50%程度にしなければならないことがわかる。

ここで、振動充填燃料についての Ayer の式[9]を用いると、細管に粒子を投入したときの充填率 (理想条件下での最大値) は、粒子径/管内径 = 1/10 の一成分の場合 62.2% であり、充填率を 50% とするにはかなりの隙間を設けなければならないことがわかる。(Fig.2.4(a)) しか

し、プレナムスプリングによって軸方向に圧縮されている燃料ピン内でこのような充填率を得ることは困難であり、この点からもホルダー方式 (Fig.2.4(b)) が適していることがわかる。金属ウラン粒子をホルダーに緻密充填し、ホルダーと被覆管のギャップ幅でスミア密度を調節する場合、内径 8.98mm の被覆管に対して直径あたり 0.93mm のギャップを設ければよく、これは現実的な値であると言える。

ホルダーの材質には、高融点であるとともに金属ウラン、被覆材、 UO_2 ペレット及び FP との共存性が求められる。鋼の場合はホルダー底部が断熱 UO_2 ペレットの端部と接し、接触面中央が Fe-U の共晶温度の 725°C を超えることから使用できない。

ホルダーは、プレナムスプリングのバネ力に耐える機械的強度とともに、プレナムガスの通気性の確保や、金属ウラン粒子の体積膨張をホルダー-被覆管ギャップに逃がせるようにしておくことが必要となる。このため Fig.2.4(b)に示すようなメッシュ張り支柱構造が推奨される。

2.3 まとめ

MOX ペレット燃料に適用する酸素ゲッターの装荷方法として、スリーブ挿入、チタンロールペレット装荷、金属ウラン粒子装荷の各方式を提案し、いずれの方式についても製作面からの実現性があることを確認した。このため、次章においては各方式の酸素ゲッターの温度を評価し、当該温度において必要な酸素吸収性能が得られるかどうかを確認する。

3. 酸素ゲッターの温度評価

3.1 目的

一般に燃料ピンには軸方向の温度分布が生じるが、特に軸ブラ領域の発熱量は炉心燃料領域に比べて大幅に低下するため、上部軸ブラ領域に装荷した酸素ゲッターは温度が上がらず十分な酸素吸収性能が得られない可能性がある。そこで、各装荷オプションにおけるゲッターの酸素吸収性能の評価に資するため、上部軸ブラ領域を含む燃料ピン各部の温度評価を行った。

3.2 評価方法

FaCT レファレンス炉心条件(燃料ピン外径 10.4mm、炉心高さ 100cm、軸ブラ厚さ 40+40cm、最大線出力 403W/cm、増殖比 1.10)における燃料ピンの被覆管内面、ペレット表面、ペレット中心の各温度を SIMPLE-HETERO コードを用いて評価した。

酸素ゲッターの検討では照射初期にどれだけの余剰酸素を吸収できるかが重要であるが、ここでは照射初期及び照射末期の両方について評価を行った。

3.3 結果

燃焼初期における燃料ピン各部の温度分布評価の結果を Table 3.1 及び Fig.3.1 示す。

(1) 炉心燃料領域の温度分布

炉心燃料領域内の温度分布は、ペレット表面温度については下端の 654°C に対し上端では 760°C、被覆管内面温度は下端の 426°C に対し上端では 567°C であった。

(2) 上部軸ブラ領域の燃料中心温度

上部軸ブラ領域下端の燃料中心温度は 728°C で、炉心燃料領域上端より 553°C 低かった。上部軸ブラ領域上端の温度は 579°C であった。

(3) 上部軸ブラ領域の被覆管内面温度

被覆管内面温度の軸方向温度分布は小さく、炉心燃料領域上端と上部軸ブラ領域下端の差は 13°C であった。軸ブラ領域内の温度分布はほとんどなく 554~551°C の範囲であった。

(4) 上部軸ブラ領域の燃料ペレット表面温度

上部軸ブラ領域下端の燃料中心温度は約 554°C であり、炉心燃料領域上端より 139°C 低かった。上部軸ブラ領域内の温度分布は 621~563°C であった。

3.4 考察

(1) スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）

酸素吸収能力について保守側の評価をするために酸素ゲッターの温度が被覆管内面温度に支配されると仮定すると、下部軸ブラ領域のゲッターは 400°C 前後に留まることから、十分な酸素吸収効率が期待できない可能性がある。この場合、ピン下方における吸収量の不足を補うためにピン上方の装荷量を増やさなければならなくなることや、ピン下方のゲッターが長期に渡って反応性に富む金属状態に留まる点が課題となる。

(2) スリーブ挿入方式（上部軸ブラ）

チタンスリーブを上部軸ブラ UO_2 ペレットに外接させた時の温度はペレット表面温度に支配され、領域下方では 621°C 、上方では 563°C 程度になると考えられる。このスリーブが被覆管内面に接触すると温度が低下するが、チタンと UO_2 では後者の方が熱膨張率が大きいため、両者の接触を常時保つことでペレット表面温度支配とすることは可能と思われる。

(3) チタンロールペレット及び金属ウラン粒子装荷方式

チタンロールペレット又は金属ウラン粒子方式の場合は、 UO_2 ペレットの端面と接触させることができるため、上部軸ブラ領域の下端付近に装荷することにより 728°C 前後の温度とすることが可能であり、スリーブ挿入方式より高い温度を得ることができる。

3.5 まとめ

酸素ゲッターの各装荷オプションのうち、燃料ピン全体にスリーブを装荷する方式では、下部軸ブラ領域付近のゲッターが温度上がらず酸素吸収材として有効に機能しない可能性があるが、上部軸ブラ領域に装荷するオプションであれば、位置依存性はあるものの $600\sim 700^\circ\text{C}$ の温度を確保できることがわかった。

これらの結果に基づき当該温度下における酸化挙動評価を行い、各ゲッター装荷オプションの酸素吸収性能について評価する。

4. 候補材の酸化挙動評価

4.1 目的

酸素ゲッターの代表的な使用条件下における候補材の酸素吸収性能や酸化時の形態変化の把握を目的としてジルコニウム及びチタンの酸化挙動評価を行った。

前者は、これらの候補材が酸素吸収材として有効に機能するかどうかについて、短時間に二酸化物に到達するか否か、酸化皮膜の形成により酸素吸収が阻害されることがないか、といった点が評価事項となる。もし、ゲッターの酸化が限定的であれば、装荷時の厚さに制限を設けるか、酸素吸収に寄与しない分を上乗せする必要があるが生じる。後者については、酸化時の体積膨張の状態や形状安定性の把握を目的として行った。

4.2 試験方法

試験は 1300～1600°C と 580～700°C の二つの領域について行った。

前者は穴あきディスク状ゲッターをペレット間に挟んで装荷する場合を想定したもので、チタンやジルコニウムの融点に近い温度である。後者は、ペレットと被覆管のギャップ部や軸方向ブランケット領域に装荷する場合を想定したものである。

1300、1600°C の試験は、ディスク試料 (10mmφ×3mm t) を管状電気炉に装荷し、1、10h 加熱保持することにより行った。酸素ポテンシャルは、CO/CO₂ 混合ガス (CO : CO₂=91.16 : 8.84) を用いて O/U=2.00 平衡相当 (-299kJ/mol 於 1600°C、-342 kJ/mol 於 1294°C) に調整し、オフガスの酸素ポテンシャルをジルコニアセンサー式酸素分圧計で測定した。

700°C の試験データは、5 章に述べる共存性評価試験の中で取得したもので、加熱時間を 10、100h としたが、チタンについては 50、200h のデータを追加取得した。酸素ポテンシャルは、CO/CO₂ 混合ガス (CO : CO₂=10.4 : 89.6) を用いて O/U 比 2.00 平衡相当の -347～-348kJ/mol に調整した。580°C の試験はチタンについてのみ実施し 200h の加熱を行った。酸素ポテンシャルは約 -386kJ/mol であった。

加熱試験後の試料は、寸法・重量測定、外観観察、断面金相観察、断面 SEM/BSE 観察を行った。

4.3 試験結果

4.3.1 1300～1600°C

Ti が TiO₂ まで酸化すると O/Ti 比は 2.0 になるが、1300°C×1h、10h 加熱後の O/Ti 比はそれぞれ 0.27、0.80 であり、最大酸化量の 4 割止まりであった。試料の変形はジルコニウムに比べて軽微で、断面組織には表面層とそこから母相中に吹き出すように成長する相が見られた。

(Fig.4.1) 前者の厚さは 1h 後に 110～120μm、10h 後に 400～460μm であり、後者は 1h 後に 55～265μm、10h 後に 75～360μm であった。1600°C のデータは取得できなかった。

ジルコニウムディスクを 1300°C×1h、10h 加熱した後の O/Zr 比はそれぞれ 0.42、2.03 であり、数時間で ZrO₂ まで酸化されることがわかった。加熱 1h 後の酸化は表面層に留まっていたが、酸化した部分の膨張が大であった。10h 後には、試料内部まで顕著なクラックが入り外形

は原型を留めないほど膨張していた。SEM 像では、クラックに挟まれた島状組織の周囲から酸化が進む様子が見られた。(Fig.4.2) 1600°C では 1h の加熱で O/Zr 比 1.98 に達し、ほぼ ZrO_2 に酸化されていたが、加熱前の原型を相当程度留めており、断面金相には表面層の微細な結晶粒とその内側の柱状晶に類似した粗大な結晶粒が観察された。

4.3.2 580～700°C

700°C 加熱試料では、チタン、ジルコニウムディスクともに層状の酸化相が形成されており、クラックや吹き出し状の組織は見られなかった。酸化層の厚さは、チタン、ジルコニウムともに FMS ディスクと接していた面（非開放面）と炉内雰囲気中に曝露されていた面（開放面）とで大きく異なっており、酸素ポテンシャルが O/U 比 2.00 平衡相当のときの 100h 加熱後の酸化層の厚さは、チタンの 77 μm （開放面）、44 μm （非開放面）に対し、ジルコニウムはそれぞれ 28 μm 、14 μm と 1/3 程度であった。

200h 加熱後のチタンの酸化層の厚さは、酸素ポテンシャルが -349kJ/mol (O/U 比 2.00 相当) のとき開放面で 209 μm に達したが (Fig.4.3)、-629kJ/mol (O/M 比 < 1.99 相当) のときは 2 μm に留まった。

4.4 考察

酸化速度の比較では、1300°C においてはチタンよりジルコニウムの方が速く、700°C ではチタンの方が速いという結果になった。

ここで、700°C におけるチタンの酸化は、Fig.4.4 に示すように酸化層の成長が直線則に従うことから反応律速であると推定される。これに対し 1300°C では、Fig.4.5 に示すように酸化に伴う重量増加率が放物線則に従うことから拡散律速であると考えられ、金相組織に見られる吹き出し状の組織とも一致する。このように、チタンの酸化反応のメカニズムは 700°C と 1300°C で異なることがわかった。

ジルコニウムについても 700°C における酸化は反応律速であると推定される。1300°C については、短時間の間に酸化が進んだことや体積膨張が著しかったことから経時変化の評価は困難であるが、クラックが細かく入り試料の比表面積が急増した結果、酸化が加速されたことが推定される。

上記の結果から、チタンを酸素ゲッター材として利用する場合、700°C 以上であればモル比 2 の酸素吸収容量をもつ酸素吸収材として利用可能であり、100 μm 厚の箔の両面から酸化が進んだ場合数十 h 程度で全体が TiO_2 まで酸化すると考えられる。

一方、580°C ではほとんど酸化が進まなかったことから、580°C と 700°C の間にしきい温度が存在することが考えられ、当該温度以上で使用する必要があることがわかる。1300°C 以上の温度域で使用する場合は、700°C よりも短時間で TiO_2 まで酸化が進むと考えられ、ジルコニウムに比べて形態の変化は穏やかであることから酸素吸収材として有効と考えられるが、高温下における共存性についての確認が必要である。

ジルコニウムは、1300°C における酸化はチタンより急速であったが、クラックの発生による著しい体積膨張と碎片化は燃料部材としてマイナス因子であり、700°C では形態変化は穏や

かであったが酸化速度はチタンよりも遅いものとなった。

4.5 まとめ

酸素ゲッターの代表的な使用条件下に酸素吸収性能や酸化時の形態変化の把握を目的としてジルコニウム及びチタンの酸化挙動を評価し、ゲッターを 1300°C 付近で使用する場合は形態安定性の観点から、また、700°C 付近で使用する場合は酸化速度の速さからチタンが優れていると考えられる。

5. 被覆材及び燃料との共存性評価

5.1 目的

酸素ゲッター装荷時の被覆管、燃料ペレットの健全性について評価するために、チタン、ジルコニウムと SUS、 UO_2 の反応性について調べた。

このうち SUS については、実用期の高速炉燃料用被覆材として想定されるフェライト・マルテンサイト系の ODS 鋼や FMS 鋼を代表するものとして FMS 鋼を試験材に用いた。

後者については、ゲッターと接触する可能性があるのは UO_2 と MOX ペレットであるが、ゲッターを軸方向ブランケット領域に装荷する場合は後者との接触は考えられないことから、ここでは UO_2 のみについて試験を行った。

5.2 試験方法

5.2.1 Ti, Zr と FMS の共存性試験

試験は、チタン及びジルコニウムのディスク試料 ($10\text{mm}\phi \times 3\text{mm t}$) を FMS ディスク試料 ($7.5\text{mm}\phi \times 3\text{mm t}$) でサンドイッチしたものを管状電気炉に装荷し、チタンは $700^\circ\text{C} \times 10$ 、50、100、200h、ジルコニウムについては $700^\circ\text{C} \times 10$ 、100h の加熱を行った。(Fig.5.1)

試験温度の 700°C は ODS 鋼被覆管の設計上限温度を考慮したもので、実用炉燃料の定常照射時の被覆管温度は 570°C 未満となることから共存性についての保守側データを得ることができる。酸素ポテンシャルは、 CO/CO_2 混合ガス ($\text{CO} : \text{CO}_2 = 90 : 10$) を用いて O/U 比 2.00 平衡相当 (-347 kJ/mol 於 700°C) に調整し、オフガスの酸素ポテンシャルをジルコニアセンサー式酸素分圧計により測定した。

5.2.2 Ti, Zr と UO_2 の共存性試験

試験は、チタン及びジルコニウムのディスク試料 ($10\text{mm}\phi \times 3\text{mm t}$) と UO_2 ペレット試料 ($12\text{mm}\phi \times 6\text{mm H}$) を重ね合わせてモリブデンの錘を載せたものを管状電気炉に装荷し、 $1300^\circ\text{C} \times 2\text{h}$ 加熱保持することにより行った。

試験温度は当初 1600°C を計画したが、酸化挙動評価試験の際にチタンディスクと Y_2O_3 容器の反応が生じたことから、共晶のおそれのない 1300°C に変更した。酸素ポテンシャルは、 CO/CO_2 混合ガス ($\text{CO} : \text{CO}_2 = 91.16 : 8.84$) を用いて O/U 比 2.00 平衡相当 (-342 kJ/mol 於 1294°C) に調整し、オフガスの酸素ポテンシャルをジルコニアセンサー式酸素分圧計により測定した。

5.3 試験結果

(1) Ti-FMS の共存性

SEM/EDX 分析の結果、FMS ディスク中への Ti の拡散は生じていなかった。他方、FMS ディスクからチタンディスク側には Fe の拡散が生じ、Fe-Ti-O 相を生成した。反応相の厚さは 200h で $46\mu\text{m}$ であった。(Fig.5.2、Fig.5.3)

FMS ディスクの酸化相は 50h までに最大 $30\mu\text{m}$ の厚さで飽和していた。Zr-FMS のディ

スク対に見られた Fe_2O_3 相は、50h では確認できたが 200h では確認できなかった。

(2) Zr-FMS の共存性

Zr-FMS 間の反応は、ジルコニウムディスク側、FMS ディスク側のいずれにおいても認められなかった。両ディスクの界面には明瞭な Fe_2O_3 相が生成した。(Fig.5.4)

(3) Ti- UO_2 の共存性

チタンディスクの表面近くに僅かなピークが観察されたが (Fig.5.5)、 UO_2 ペレット側に Ti は認められなかった。

(4) Zr- UO_2 の共存性

Zr- UO_2 の反応は、ジルコニウムディスク側、 UO_2 ペレット側のいずれにも見られなかった。

5.4 考察

5.4.1 Ti, Zr と FMS の共存性

50h の Ti-FMS 試料に見られた Fe_2O_3 相が 200h では確認できず、同じ領域に Ti-Fe-O 相が観察されたことから、Ti-Fe-O 相は Fe_2O_3 相中に Ti が拡散して生成したものであると推定される。一方、SEM/EDX 面分析の結果 (Fig.5.6) は、加熱中に Cr の移動がなかったことを示しており、Cr の外側に分布する Fe は FMS ディスクから滲み出すように移動したものであると考えられる。このように、Ti-Fe-O 相は、まず Fe が FMS ディスクの外側に拡散して酸化物となり、そこに Ti が侵入して形成されたものであり、反応による FMS 材の減肉はなかったと考えることができる。また、SEM/EDX 線分析の結果 FMS ディスクの初期表面 10 μm 付近に不動態相と見られる Cr の高濃度領域が観察されることから、FMS 材の耐蝕性は確保されていると考えられる。一方、 Fe_2O_3 相が 200h では観察されないことは、Ti-Fe-O 相がさらに成長することがなく、今回の 46 μm 程度で飽和することを示すものと考えられる。

ジルコニウムの場合は 100h 後も Fe_2O_3 相が明瞭に見られ、Zr と Fe_2O_3 相が反応しなかったことは明らかである。

ここで、Ti-FMS、Zr-FMS の各ディスク対は、接触面において酸素を巡る競合関係にあると考えられ、Fig.5.4 に示す結果から、FMS よりチタンの方が、ジルコニウムよりは FMS の方が酸化速度が速かったと考えることができる。ただしジルコニウムの場合も、 Fe_2O_3 相の成長が飽和すると、以降にディスク間に侵入した酸素はジルコニウムの酸化のみに費やされるようになったと考えられる。

5.4.2 Ti, Zr と UO_2 の共存性

山中ら[10]は、1000～1400°C の真空中における UO_2 と Ti の共存性について調べ、1300°C×2h で厚さ約 100 μm の Ti-U 合金相が生成したことを報告しているが、本試験で生じた反応は僅かであった。これは、山中らの試験は真空中で行ったものであるためチタンが反応性に富む金属状態であったのに対し、酸化雰囲気中で行われた本試験ではチタンの酸化が急速に進み反応性が急速に低下したためと考えられる。

また、三宅ら[11]は、 $\alpha\text{-Zr(O)}$ の初期酸素量をパラメータとする Zr と UO_2 の共存性について

調べ、初期酸素量 0at% のとき $1200^{\circ}\text{C}\times 60\text{min}$ の真空加熱で $30\mu\text{m}$ 程度の U-Zr 反応相が生成したが、初期酸素量 6.6at% では大幅に減少する等、反応相の生成が界面の酸素濃度に大きく依存することを報告している。このことから、本試験は酸化雰囲気中で行われたため、ジルコニウムが速やかに酸化されて U-Zr 相が生成しなかったと解釈することができる。

燃料要素内のプレナムガスは酸化物ペレットとの平衡反応により相当量の酸素分圧を有することから、装荷されたチタンまたはジルコニウムの環境は上記文献報告よりも本試験に近いと考えられ、 1300°C 以下ではほとんど反応を生じないと考えるのが妥当である。特に、酸素ゲッターを軸方向ブランケット領域に装荷する場合は、ブランケットペレットの温度は最高でも 728°C 前後に過ぎないことから両者の共存性は十分に得られると考えられる。

5.5 まとめ

Ti-FMS の接触面には $700^{\circ}\text{C}\times 200\text{h}$ の加熱後に Ti-Fe-O 相が生じたが、反応相は FMS ディスクの外部に生成したものであり、FMS 材そのものの物性や耐蝕性に大きく影響することはないと考えられ、定常照射時の被覆管温度は最高 567°C に留まることを勘案すると、被覆材として使用した FMS 材の健全性が損なわれることはなく、同じフェライト・マルテンサイト系 ODS 鋼についても同様であると考えられる。

同様に、Ti-UO₂ の接触面では $1300^{\circ}\text{C}\times 2\text{h}$ の加熱後に若干の Ti の UO₂ 側への移行が認められたが、軸方向ブランケット領域にペレット状のチタンを装荷する場合も、MOX ペレットの間に断熱ペレットを挟むことにより接触面の温度を適切な制御できることから、両者の共存性は確保できると考えられる。

ジルコニウムについては、Zr-FMS、Zr-UO₂ ともに反応は見られず共存性を有することがわかった。

6. 総合評価

6.1 候補材の選定

酸素ゲッター候補材としてのチタンとジルコニウムの優劣について検討すると、被覆管や燃料ペレットとの共存性の観点においては今回の試験で反応を生じなかったジルコニウムの方が優れていると言えるが、チタンの反応についても、被覆管あるいは燃料ペレットの健全性に影響するレベルではなく、温度の低い軸方向ブランケット領域に装荷する場合は問題ないと考えられる。また、このように 1000°C を大きく下回る温度で使用する場合は、チタンに対するジルコニウムの融点の高さは意味を為さないことになる。

酸素吸収材としての特性においては、ゲッターの使用温度が 1300°C 付近の場合は形態安定性の観点において、また、700°C 付近の場合は酸化速度の速さからチタンの方が優れていると言える。

コスト面においても、工業用に幅広く利用されているチタンに比べて需要が限られるジルコニウムは高価であり体積あたりの単価は 4～5 倍になる。特に、被覆管用途以外のジルコニウム材が米国からの輸入に依存しており、チタンのように箔材その他の多様な形態の製品を入手できないことは開発段階における少量の材料入手に際して大きな問題となる。

以上の理由により、ゲッター材としてはジルコニウムよりチタンが推奨される。

6.2 装荷方法の選定

2 章で検討した各装荷方法について、酸素吸収挙動、共存性評価の結果、さらに燃料設計上の要求を考慮すると以下と言える。

(1) スリーブ挿入方式（燃料ピン全体）

燃料ピン全体に装荷したスリーブの温度は下部軸ブラ付近では 400°C 前後に留まり、それより上方においても被覆管内面温度に等しいと仮定すれば 567°C が最高となり、いずれも 580°C を下回るためチタンの酸化を期待することはできない。剛性の高いチタン箔を用いて 30 μ m 厚のスリーブを製作することは可能であるが、ペレット・被覆管ギャップへの装荷による熱伝達の低下を勘案すると、伝熱設計に余裕のない炉心燃料領域への適用は線出力の引き下げ等を要することになる。

このように燃料ピン全体に渡ってチタンスリーブを挿入する方式は実現が困難であると考えられる。

(2) スリーブ挿入方式（上部軸ブラ領域）

スリーブを上部軸ブラ領域に限定的に装荷する場合、領域中央より上半分では 581°C 以下の温度になりチタンの酸化は期待できない。581～621°C の温度になる領域下半分については判断材料がないが、700°C を大きく下回ることから高い酸素吸収効率を期待できない可能性が少なくない。一方、チタン箔を用いて 100 μ m 厚のスリーブを製作することは可能であり、発熱量の低い上部軸ブラ領域のみの装荷であれば、炉心燃料設計に大きな影響を及ぼすことはないと考えられる。

このように、上部軸ブラ領域全体にチタンスリーブを挿入する方式についても実現は困難

であると考えられる。

(3) チタンロールペレット装荷方式

上部軸ブラ領域中のスリーブの厚さを増やして領域下方に集中させたものが低密度ペレット方式であると考えることができ、 UO_2 断熱ペレットの端面と接することにより 720°C 以上の温度になるため余剰酸素の吸収条件を満たすことができる。また、照射中の余剰酸素や腐食性 FP が炉心燃料ペレット中で発生することを考えれば、酸素ゲッターは軸ブラ領域の炉心燃料寄りに装荷することが望ましく、この点においても有利になる。

製作性については、2 章の検討により実現性があるものと判断でき、炉心燃料領域の設計への影響を回避できる点も上部軸ブラ領域へのスリーブ挿入方式と同様である。

これらのことから、現状においてはペレット燃料用の酸素ゲッターとしてはチタンロールペレット装荷方式が最も有望であると考えられる。

(4) 金属ウラン粒子装荷方式

金属ウランを使用する場合は、粒子の状態でホルダーに収納して装荷する必要があるが、ホルダーが再処理時に廃棄物になるなどの問題がある。すなわち、金属ウランの利点として再処理時にリサイクルでき廃棄物を生じないことが挙げられるが、ホルダーを使うことによりその利点が損なわれ、金属ウラン粒子の酸化挙動によってはスミア密度をさらに下げなければならないことやチタンに比べてコスト高になる点も課題である。

したがって、金属ウラン粒子装荷方式は技術的には実現可能と思われるが、現段階で積極的に推奨できる選択肢であるとは言えず、上記のチタンロールペレット方式等で要求を満たすことができない場合のバックアップと位置付けるべきである。

なお、ホルダーの材質にチタンを用いる場合は、4 章の試験結果から UO_2 ペレットとの接触面の反応は問題なく、チタンホルダー自体が余剰酸素の吸収を担う点も利点であると言えるが、金属ウランとチタンの共存性については確認が必要である。

7. 結 言

高速炉 MOX 燃料の高燃焼度化に伴う被覆管内面腐食対策として、酸素ゲッター法をペレット燃料に適用した概念について検討するとともに、その技術的成立性について評価を行い、チタンロールペレット方式が有望であるとの見通しを得た。

ここで、今回の検討における酸素吸収材としての成立性とは、想定温度下におけるチタンの酸素吸収挙動に基づくものであるが、酸素ゲッターを上部軸ブラ領域に装荷する場合は、余剰酸素が発生する炉心燃料ペレットから酸素ゲッターまでの距離が被覆管内面までの距離に比べて大きいことが懸念材料となる。これは、炉心燃料領域上部の被覆管内面は直近に酸素ゲッターを伴わない状態で高温化し、下方から移動してくる腐食性 FP と余剰酸素に曝されるためである。

一方、MOX の酸素ポテンシャルはチタンより高いため、腐食性 FP や余剰酸素が蓄積、移動を開始する前に、高温化した MOX からゲッターへの酸素移動が生じることも考えられる。これは照射開始直後に MOX ペレットが低 O/M 比化することを意味し、その場合は MOX ペレットと酸素ゲッターの物理的な距離は問題にならなくなる。

このように、酸素ゲッターの装荷による内面腐食の抑制効果についてはまだ不確実な部分が多い。このため、今回、酸素ゲッターの概念を具体化したことを受けて、前記の点を中心にさらに詳細な検討を進めて行くことが必要である。

謝 辞

本研究における候補材の酸素吸収性能、被覆材との共存性評価については、(株)東芝の松山慎一郎、坪井靖両氏並びに日本核燃料開発(株)の水迫文樹、油田良一、檜部信司各氏のご協力を、また、チタン材の加工性評価に際しては(株)昭和の新井照男、松岡亮介両氏のご協力をいただきました。この場を借りて御礼を申し上げます。

参考文献

- 1) O. Goetzman, P. Hofmann and F. Thuemmler, J. Nucl. Mater, 52, 33 (1974).
- 2) JAEA-Research 2006-043: “高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究 フェーズⅡ 技術検討書 - (2) 燃料サイクルシステム -”, (2006).
- 3) A. A. Mayorshin, O. V. Skiba, A. V. Bychkov, et. al, “RIAR Experience in the Field of Vibropac Fuel Use in Fast Reactors”, Proc.of GLOBAL 2005, Paper No.582, Tsukuba, Japan (2005).
- 4) JAEA-Research 2007-085: “高速炉 MOX 燃料用酸素ゲッターの開発－候補材の選定と被覆管装荷方法の検討－”, (2007)
- 5) PNC TJ9058 88-008: “被覆管内面コーティング法の開発(A)”, (1988).
- 6) PNC TJ9009 88-008: “被覆管内面コーティング法の開発(B)”, (1988).
- 7) PNC TN241 83-16: “FCCI 関連研究のまとめ (57 年度まで) ”, (1983).
- 8) T. Ishii, R. Yuda, M. Hirai, et. al, J. Nucl. Science and Tech., vol.41, No.12, 1204 (2004).
- 9) J. E. Ayer, F. E. Soppet, J. Am. Ceramic Society, vol.48, No.4, 180 (1965).
- 10) S. Yamanaka, J. Shimizu, M. Miyake, J. Nucl. Mater, 201, 27 (1993).
- 11) M. Miyake, M. Katsura, S. Yamanaka, J. Nucl. Mater, 154, 123 (1988).

Table 3.1 燃料ピン各部の温度分布評価結果 (BOL)

対象部位 軸方向位置*	被覆管内面温度 (°C)	ペレット表面温度 (°C)	ペレット中心温度 (°C)
+ 166.6mm	551	563	579
+ 100.0mm	552	581	622
+ 33.3mm	554	621	728

*上部軸ブラ下端を 0mm とする。

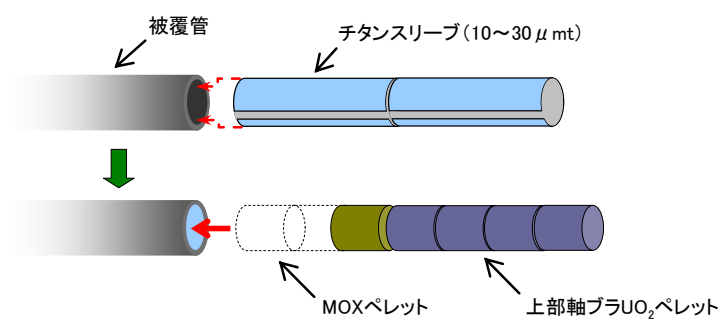


Fig. 2.1 チタンスリーブ挿入方式の概念①（ピン全域装荷）

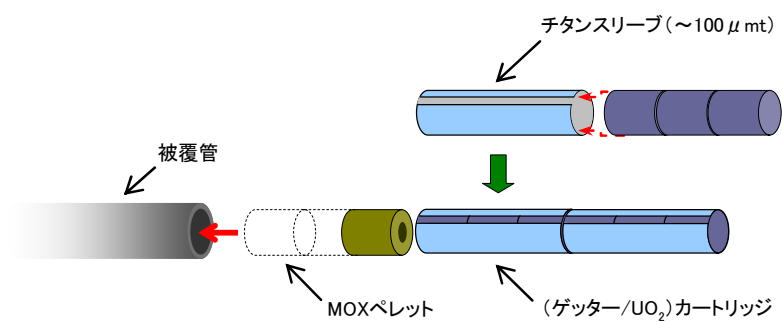


Fig. 2.2 チタンスリーブ挿入方式の概念②（上部軸ブラ領域限定装荷）

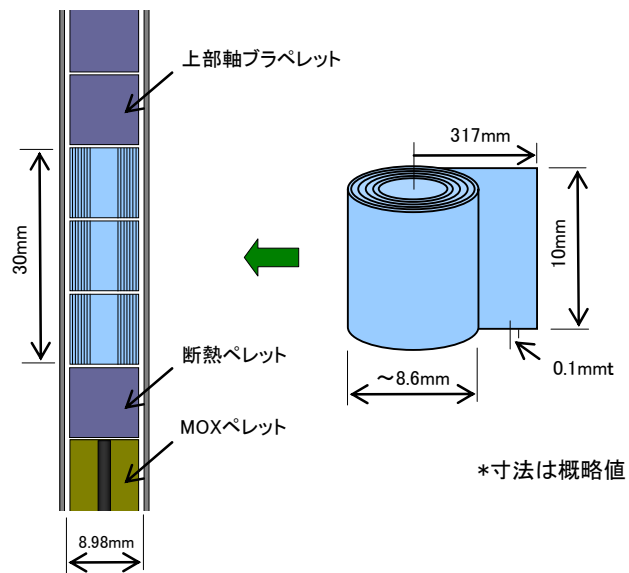


Fig. 2.3 チタンロールペレット方式の概念

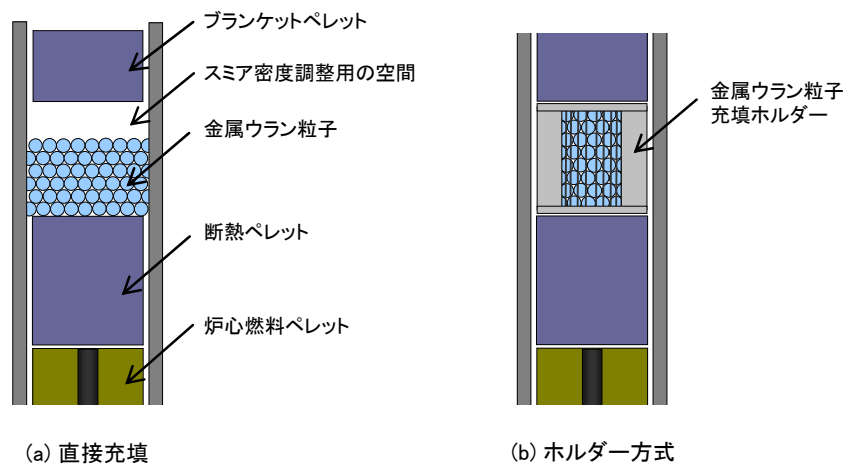
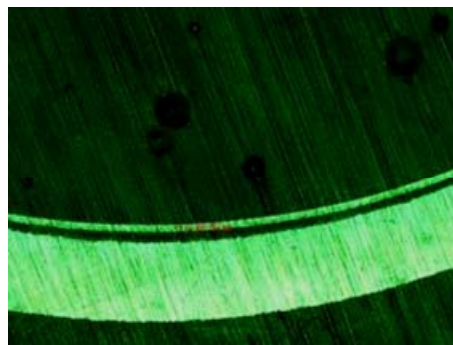


Fig. 2.4 金属ウラン粒子装荷方式の概念



熱処理後の状態

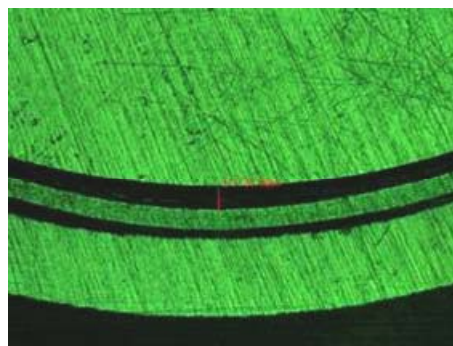


最大ギャップ部

Fig. 2.5 チタンスリーブの試作結果①（燃料ピン全域装荷用）

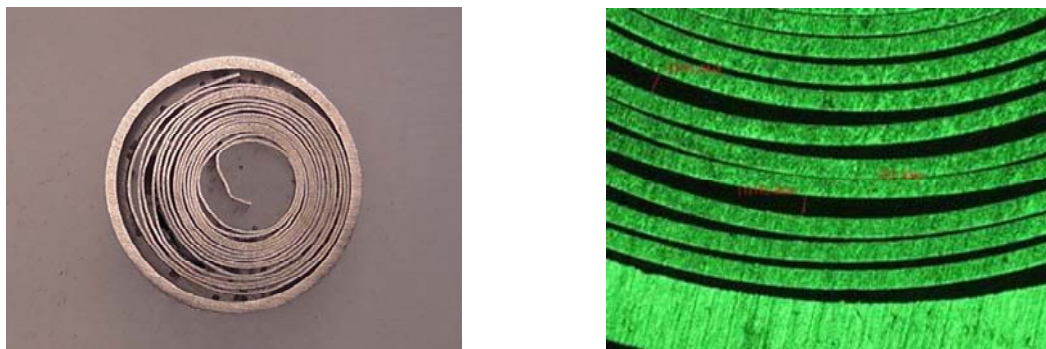


熱処理後の状態

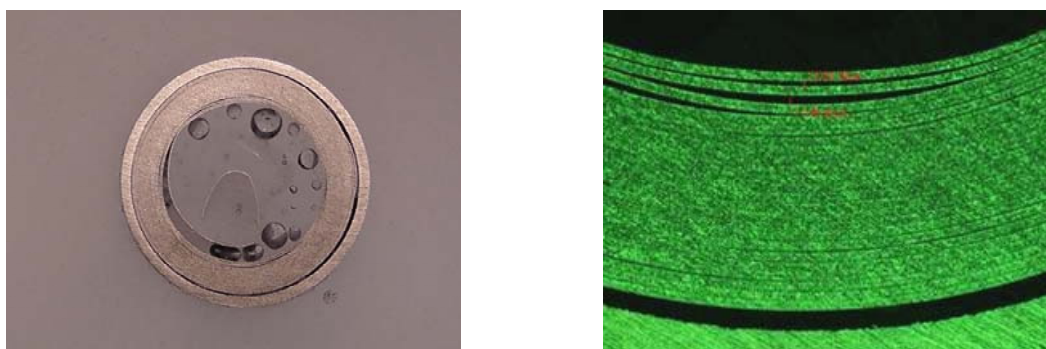


最大ギャップ部

Fig. 2.6 チタンスリーブの試作結果②（上部軸ブラ領域限定装荷用）



(a) 肉厚 $100\mu\text{m}$ $\times$ 284mmの箔を巻いたロール



(b) 肉厚 $50\mu\text{m}$ $\times$ 568mmの箔を巻いたロール

Fig. 2.7 チタンロールペレットの試作結果

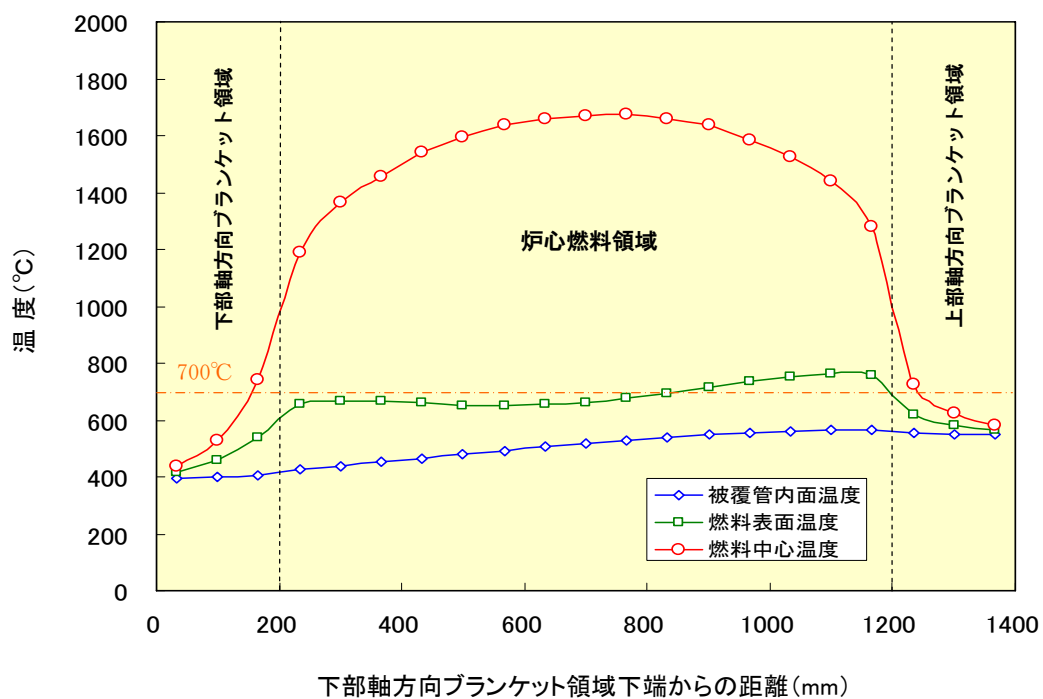
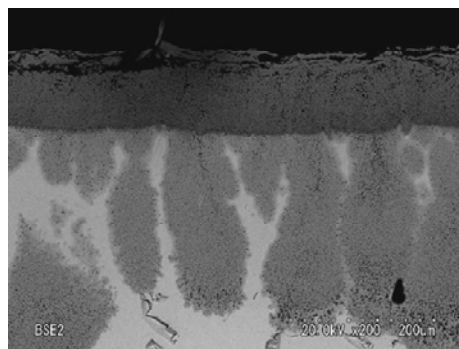


Fig. 3.1 燃焼初期の軸方向温度分布評価結果



(a) ディスク外観 (10h)

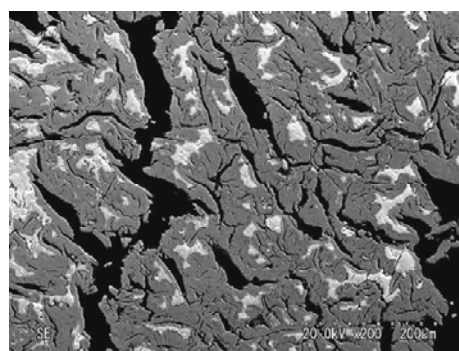


(b) 断面BSE像 (1h)

Fig. 4.1 チタンディスクの酸化挙動 (1300°C)



(a) ディスク外観 (10h)



(b) 断面SEM像 (10h)

Fig. 4.2 ジルコニウムディスクの酸化挙動 (1300°C)

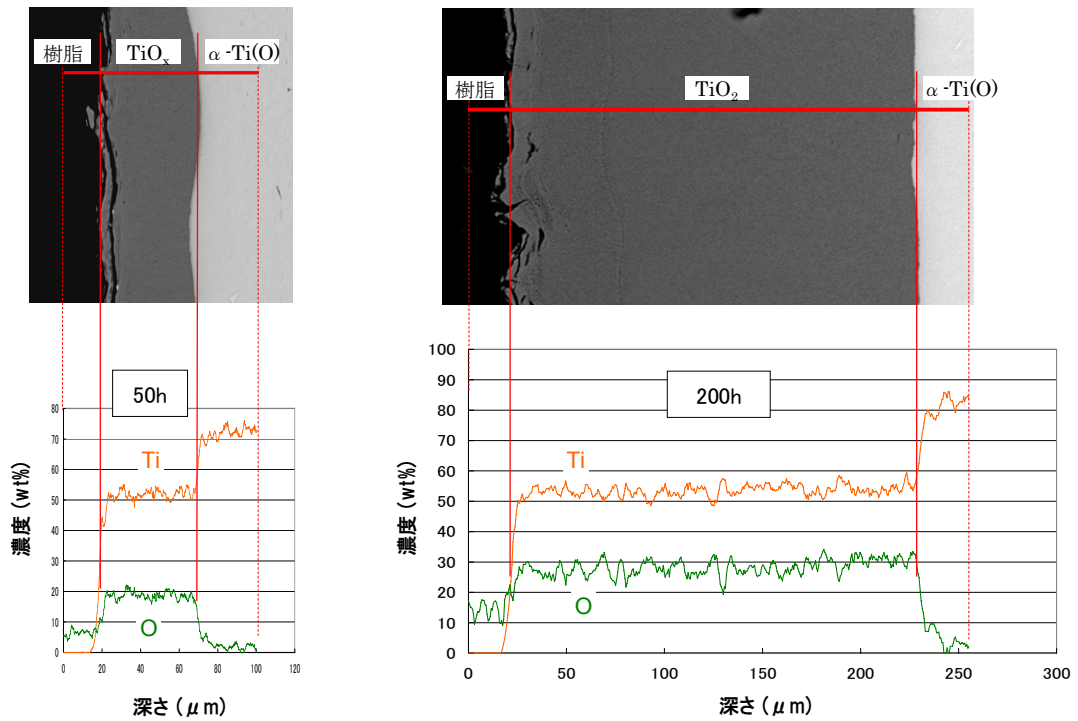


Fig. 4.3 チタンディスクの酸化層のSEM/EDX分析結果 (700°C×200h)

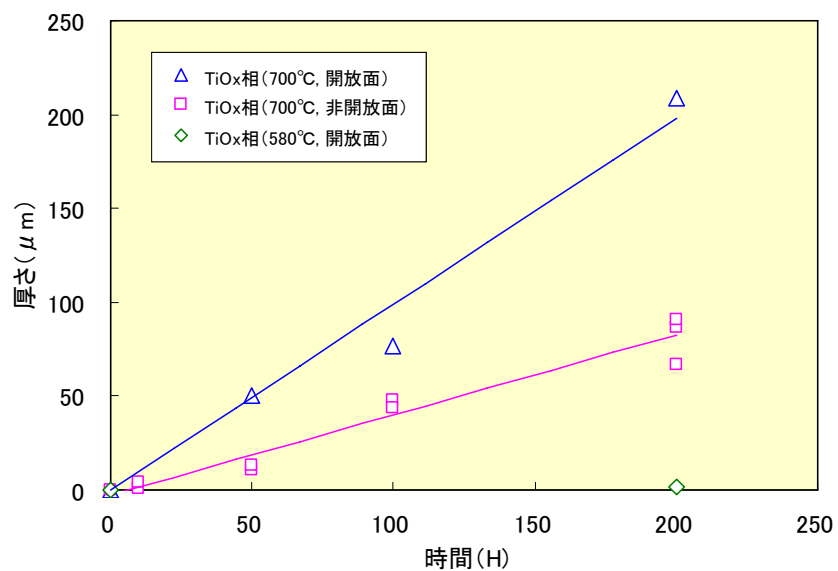


Fig. 4.4 チタンディスクの酸化層の変化 (700/580°C)

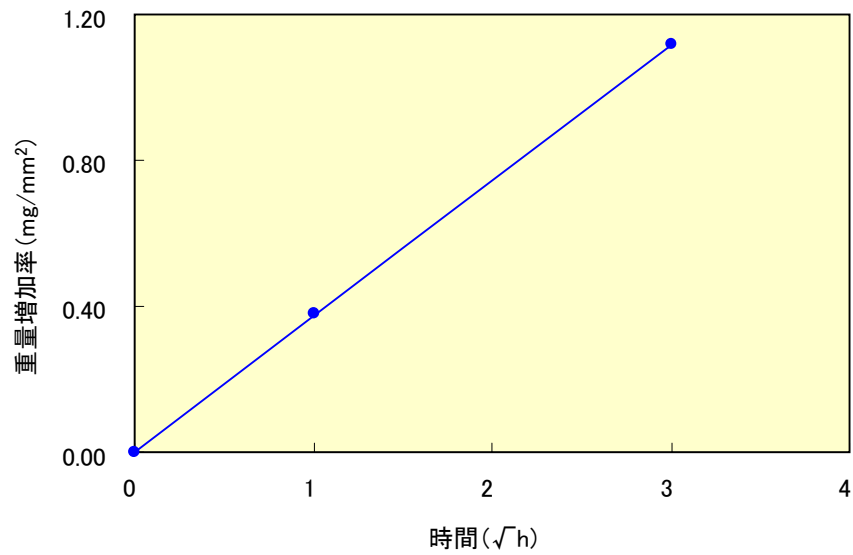


Fig. 4.5 チタンディスクの重量増加率の変化 ($1300^{\circ}\text{C} \times 3\text{h}$)

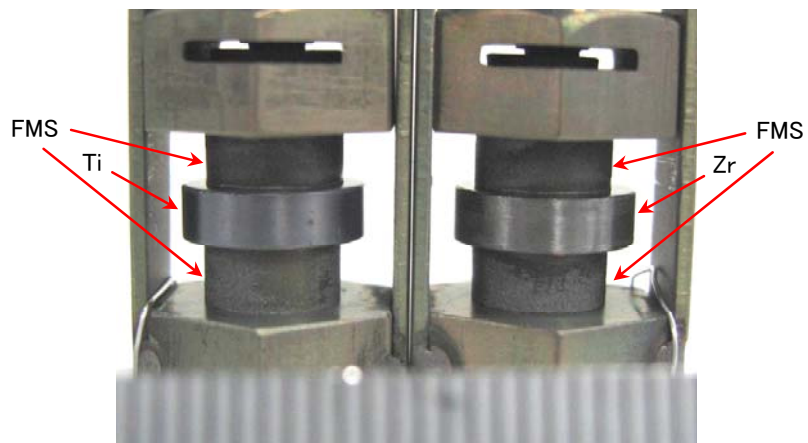


Fig. 5.1 FMS共存性試験の試料セッティング状況

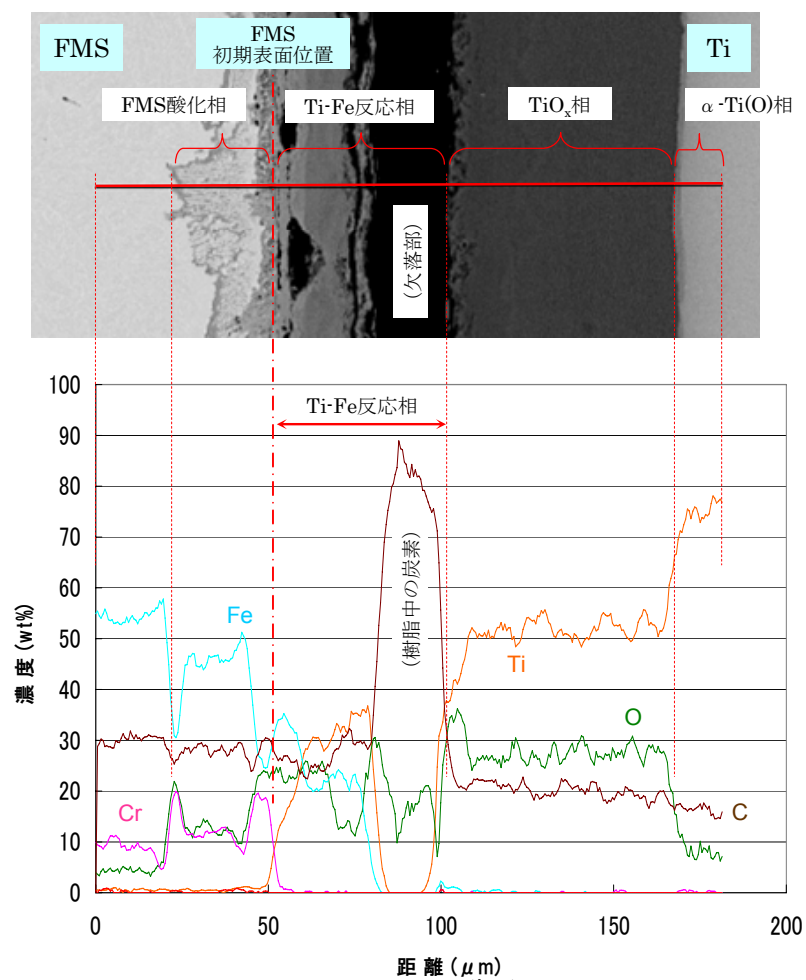


Fig. 5.2 Ti-FMS界面付近のSEM/EDX分析結果 (700℃×200h)

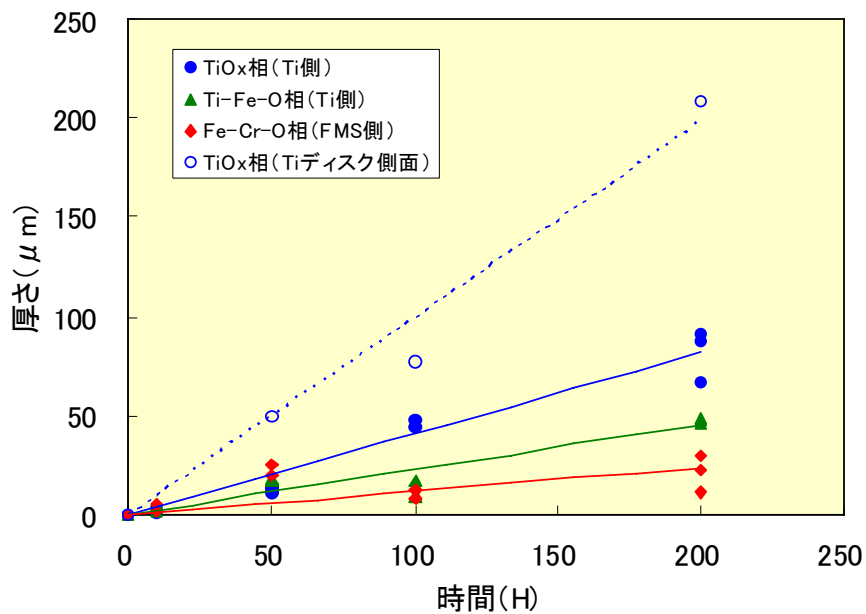


Fig. 5.3 TiとFMSの界面反応相の変化 (700°C×200h)

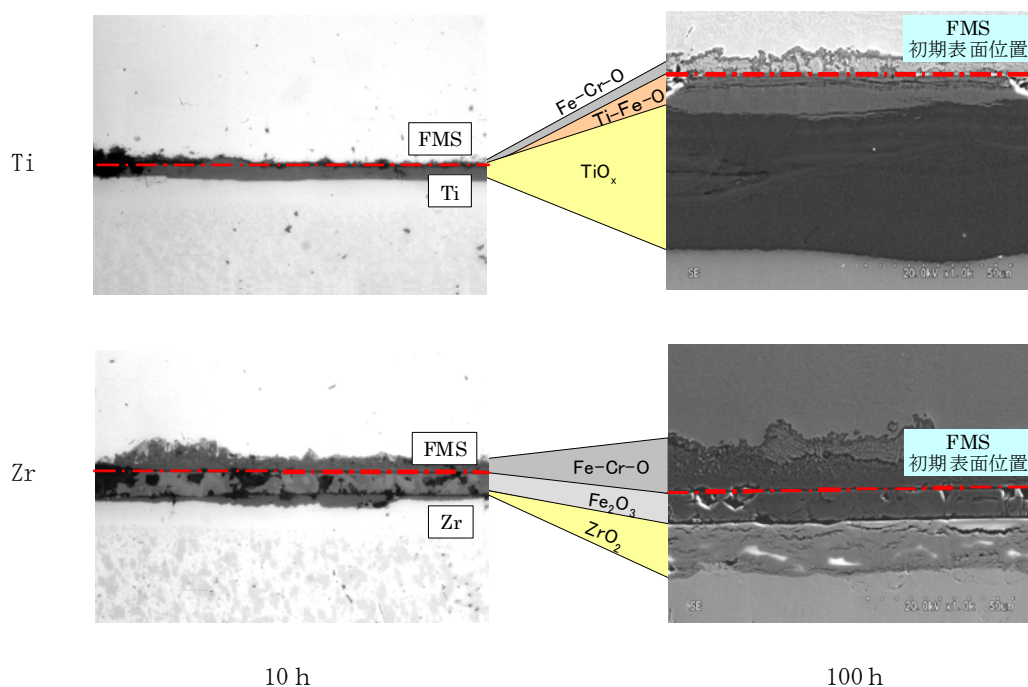


Fig. 5.4 Ti,ZrとFMSの界面反応相の変化 (700°C×100h)

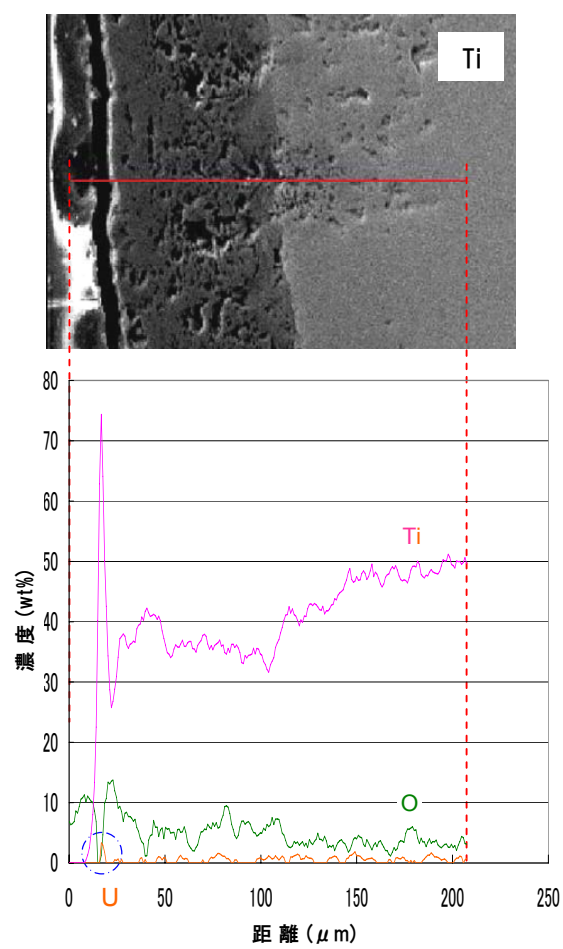


Fig. 5.5 Ti-UO₂界面の反応相 (1300°C×2h)

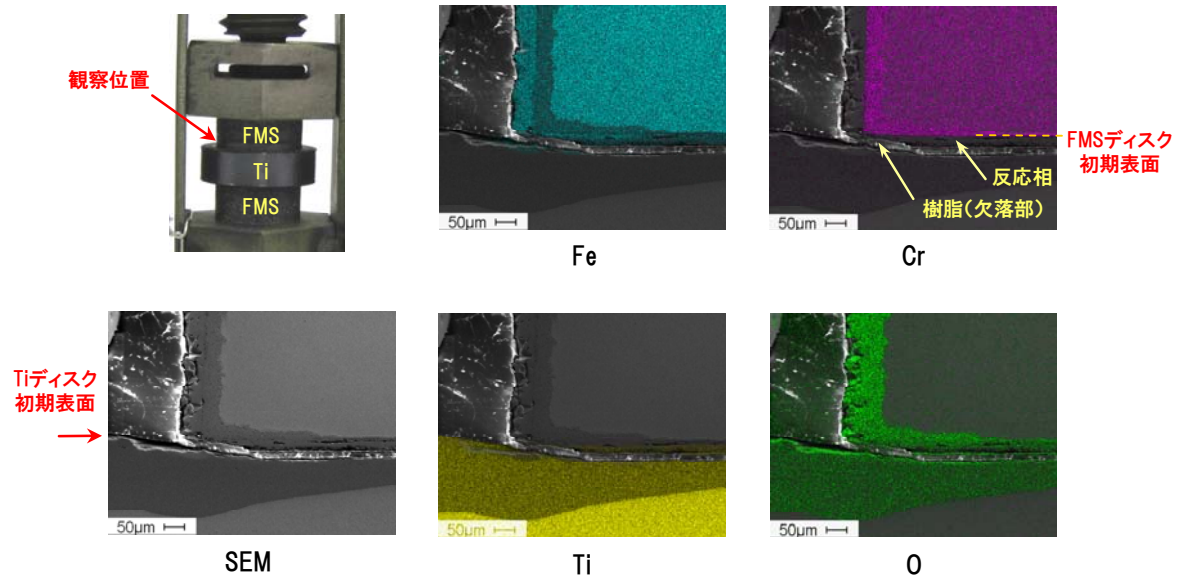


Fig. 5.6 Ti-FMS界面における構成元素の分布状態 (700°C×200h)

国際単位系（SI）

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立法メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	1
比透磁率 ^(b)	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス度 ^(e)	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。
(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d) ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。
(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g) 単位シーベルト (PV.2002,20,705) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎平方メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨ	Y	10 ⁻¹	デ	d
10 ²¹	ゼ	Z	10 ⁻²	セ	c
10 ¹⁸	エ	E	10 ⁻³	ミ	m
10 ¹⁵	ペ	P	10 ⁻⁶	マイ	μ
10 ¹²	テ	T	10 ⁻⁹	ナ	n
10 ⁹	ギ	G	10 ⁻¹²	ピ	p
10 ⁶	メ	M	10 ⁻¹⁵	フェ	f
10 ³	キ	k	10 ⁻¹⁸	ア	a
10 ²	ヘ	h	10 ⁻²¹	ゼ	z
10 ¹	デ	da	10 ⁻²⁴	ヨ	y

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=11=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ⁻¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デジベール	dB	

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオット	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≡ (10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表 10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリー), 4.1868 J (「IT」カロリー) 4.184 J (「熱化学」カロリー)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

