

MA 含有低除染燃料の開発 II

— Np/Am 含有低除染燃料の焼結性と相安定性 —
(研究報告)

2003年5月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2003

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

(研究報告)

加藤正人¹⁾ 森本恭一¹⁾ 河野秀作¹⁾
宇野弘樹²⁾ 田村哲也²⁾ 砂押剛雄²⁾ 羽成 章²⁾ 菅田博正²⁾

要旨

実用化戦略調査研究のもと、MA 含有低除染 MOX 燃料の開発が進められている。MA 含有低除染 MOX 燃料の開発にあたって、燃料の製造性を評価する観点から焼結特性や、焼結中の MA 及び FP の挙動を把握することが重要である。また、照射燃料の燃料設計を行うために融点や熱伝導率などの物性データを整備する必要がある。本試験では、Np/Am 含有 MOX 及び Np/Am 模擬 FP 含有 MOX ペレットについて焼結中の酸素分圧をパラメータとして、焼結特性を調べるとともに各元素の挙動について評価し、以下の結果が得られた。

- (1) 焼結雰囲気中の酸素分圧が高いほど、組成の均質性がよく、結晶粒が成長する。Ln 元素は、組成の均一化を促進するが、粒成長は抑制する。
- (2) 温度と酸素分圧を調整し、10 時間の熱処理を行うことによって、燃料仕様である O/M=1.95 のペレットを得ることができた。各試料とも MOX 燃料同様に 2 相分離が観察された。
- (3) 模擬低除染燃料では、温度と酸素分圧に関して Pu-Am-Ln 系化合物が析出した。Pu-Am-Ln 系化合物は、焼結温度と酸素分圧により析出状態が変化する。
- (4) 模擬低除染燃料では、Y と Zr は、焼結条件によらず、マトリックス中に均一に分布し、Ru、Rh、Pd は、2~3 μm の粒状で金属又はそれらの合金として存在すると考えられる。

1) 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 プルトニウム燃料開発グループ

2) 検査開発株式会社

Development of Low Decontaminated MOX Fuel containing MA

Sintering Property and Phase Stability of MOX containing Np, Am and FPs

(Research Document)

Masato Kato¹⁾ Kyoichi Morimoto¹⁾ Shusaku Kono¹⁾

Hiroki Uno²⁾ Tetsuya Tamura²⁾ Takeo Sunaoshi²⁾ Akira Hanari²⁾ Hiromasa Sugata²⁾

Abstract

JNC has been developing low decontaminated MOX fuel containing Miner Actinide (MA) for advanced FBR. It is very important for the fuel development to investigate sintering properties and physical properties of the fuel. In this paper, the influence of oxygen partial pressure during sintering on sintering behavior and migration of MA and FPs in MOX pellets containing Np/Am and simulated FP have been studied. The results of the examination are as follows.

- (1) The pellets sintered in atmosphere of high oxygen partial pressure have homogeneous composition and large grain size. Additive Ln elements promote homogenization and restrain grain growth in the pellets.
- (2) O/M ratio of the sintered pellets could be controlled to 1.95 by heat treatment of appropriate temperature, time and oxygen partial pressure. Phase separation was observed in the pellets with O/M=1.95.
- (3) Pu-Am-Ln compounds precipitated in the pellets with Ln. The form of precipitation of Pu-Am-Ln compounds changed depending on sintering conditions.
- (4) Y and Zr were distributed homogeneously in the pellet not depending on the sintering condition and it is considered that Ru, Rh and Pd are precipitated with metallic particle or alloy of this particles.

1) Plutonium Fuel Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Reserch Center

2) Inspection Development Company

目次

1. はじめに	1
2. 試料組成について	2
3. 試験方法	3
3.1 原料粉末の分析及び混合	3
3.2 試料調製	3
3.3 分析	3
4. 試験結果	4
4.1 原料粉末の分析結果 (SEM、熱分析)	4
4.2 ペレット調製結果 (酸素分圧、外観、密度、O/M、)	4
4.2.1 熱処理中の酸素分圧と密度	4
4.2.2 外観観察	4
4.2.3 分析結果(O/M、元素分析)	4
4.3 X 線測定結果	5
4.4 金相観察結果	5
4.4.1 1700 で焼結したペレットの組織	5
4.4.2 低 O/M (O/M=1.95) ペレットの組織	6
4.4.3 1500 で焼結したペレットの組織	6
4.5 EPMA	6
4.5.1 試料 1 の EPMA 観察	6
4.5.2 試料 2 の EPMA 観察	7
4.5.3 試料 3 の EPMA 観察	7
4.5.4 1500 焼結試料の EPMA 観察	8
5. 考察	9
5.1 焼結性に及ぼす酸素分圧の影響	9
5.2 低 O/M ペレットの調製と組織	9
5.3 格子定数の変化	10
5.4 (PuAmLn)系化合物の挙動	11
6. おわりに	12

参考文献	13
謝辞	14

表目次

表 1	試料の組成	15
表 2	原料粉の同位体比・組成比と不純物	16
表 3	熱処理条件リスト	17
表 4	TG 測定から得られた各原料粉の分析結果	18
表 5	ペレット調製結果	19
表 6	各試料の O/M と格子定数	20

目 次

図 1	各原料粉の SEM 写真	21
図 2	12%Np-MOX 原料粉末の熱分析測定結果	22
図 3	PuO ₂ 原料粉末の熱分析測定結果	23
図 4	UO ₂ 原料粉末の熱分析測定結果	24
図 5	原料粉末熱処理時の酸素分圧変化	25
図 6	1700 焼結中の酸素分圧変化	26
図 7	焼結中の酸素分圧と焼結密度の関係	27
図 8	1700 × 4 h、Po ₂ =1.5 × 10 ⁻⁹ atm で焼結したペレットの外観	28
図 9	1700 × 4 h、Po ₂ =1 × 10 ⁻¹² atm で焼結したペレットの外観	29
図 10	1700 × 4 h、Po ₂ =7 × 10 ⁻¹⁴ atm で焼結したペレットの外観	30
図 11	1350 × 10 h、Po ₂ =1 × 10 ⁻¹⁷ atm で熱処理したペレットの外観	31
図 12	焼結中の酸素分圧と O/M の関係	32
図 13	熱処理 1 で焼結したペレットの X 線回折パターン (低角側)	33
図 14	熱処理 2 で焼結したペレットの X 線回折パターン (低角側)	34
図 15	熱処理 3 で焼結したペレットの X 線回折パターン (低角側)	35
図 16	熱処理 1 で焼結したペレットの X 線回折パターン (高角側)	36
図 17	熱処理 2 で焼結したペレットの X 線回折パターン (高角側)	37
図 18	熱処理 3 で焼結したペレットの X 線回折パターン (高角側)	38
図 19	熱処理 4 で焼結したペレットの X 線回折パターン (低角側)	39
図 20	熱処理 4 で焼結したペレットの X 線回折パターン (高角側)	40
図 21	試料 1 の O/M の違いによる X 線回折パターン	41
図 22	試料 2 の O/M の違いによる X 線回折パターン	42
図 23	試料 3 の O/M の違いによる X 線回折パターン	43
図 24	O/M と格子定数の関係	44
図 25	試料 1 の金相観察 (研磨後)	45
図 26	試料 2 の金相観察 (研磨後)	46
図 27	試料 3 の金相観察 (研磨後)	47
図 28	試料 1 (1700 × 4 h、Po ₂ =1.5 × 10 ⁻⁹ atm) の金相観察 (CVE 後)	48
図 29	試料 1 (1700 × 4 h、Po ₂ =1 × 10 ⁻¹² atm) の金相観察 (CVE 後)	49
図 30	試料 1 (1700 × 4 h、Po ₂ =7 × 10 ⁻¹⁴ atm) の金相観察 (CVE 後)	50
図 31	試料 2 (1700 × 4 h、Po ₂ =1.5 × 10 ⁻⁹ atm) の金相観察 (CVE 後)	51
図 32	試料 2 (1700 × 4 h、Po ₂ =1 × 10 ⁻¹² atm) の金相観察 (CVE 後)	52
図 33	試料 2 (1700 × 4 h、Po ₂ =7 × 10 ⁻¹⁴ atm) の金相観察 (CVE 後)	53
図 34	試料 3 (1700 × 4 h、Po ₂ =1.5 × 10 ⁻⁹ atm) の金相観察 (CVE 後)	54

図 35	試料 3(1700 × 4 h、 $P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm)の金相観察 (CVE 後)	55
図 36	試料 3(1700 × 4 h、 $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm)の金相観察 (CVE 後)	56
図 37	試料 1 の O/M の違いによる組織変化	57
図 38	試料 2 の O/M の違いによる組織変化	58
図 39	試料 3 の O/M の違いによる組織変化	59
図 40	試料 1(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (研磨後)	60
図 41	試料 2(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (研磨後)	61
図 42	試料 3(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (研磨後)	62
図 43	試料 1(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (CVE 後)	63
図 44	試料 2(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (CVE 後)	64
図 45	試料 3(1500 × 3 h、 $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm)の金相観察 (CVE 後)	65
図 46	試料 1 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	66
図 47	試料 1 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	67
図 48	試料 1 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	68
図 49	試料 1 (1700 焼結) のペレット中心部における元素分布	69
図 50	試料 1 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	70
図 51	試料 1 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	71
図 52	試料 1 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	72
図 53	試料 1 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布	73
図 54(a)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	74
図 54(b)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	75
図 54(c)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	76
図 55(a)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	77
図 55(b)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	78
図 55(c)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	79
図 55(d)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	80
図 56(a)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	81
図 56(b)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	82
図 56(c)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	83
図 57	試料 2 (1700 焼結) のペレット中心部における元素分布	84
図 58(a)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	85
図 58(b)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	86
図 58(c)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	87
図 58(d)	試料 2 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	88
図 59(a)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	89
図 59(b)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	90

図 59(c)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	91
図 59(d)	試料 2 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	92
図 60(a)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	93
図 60(b)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	94
図 60(c)	試料 2 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	95
図 61	試料 2 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布	96
図 62(a)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	97
図 62(b)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	98
図 62(c)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	99
図 62(d)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット中心部の面分析結果	100
図 63(a)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	101
図 63(b)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	102
図 63(c)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット中心部の面分析結果	103
図 64(a)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	104
図 64(b)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	105
図 64(c)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット中心部の面分析結果	106
図 65	試料 3 (1700 焼結) のペレット中心部における元素分布	107
図 66(a)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	108
図 66(b)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	109
図 66(c)	試料 3 (熱処理条件 1) のペレット外周部の面分析結果	110
図 67(a)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	111
図 67(b)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	112
図 67(c)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	113
図 67(d)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	114
図 67(e)	試料 3 (熱処理条件 2) のペレット外周部の面分析結果	115
図 68(a)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	116
図 68(b)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	117
図 68(c)	試料 3 (熱処理条件 3) のペレット外周部の面分析結果	118
図 69	試料 3 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布	119
図 70(a)	試料 1 (熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	120
図 70(b)	試料 1 (熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	121
図 71	試料 1 (熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	122
図 72(a)	試料 2 (熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	123
図 72(b)	試料 2 (熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	124
図 72(c)	試料 2 (熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	125
図 73(a)	試料 2 (熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	126

図 73(b) 試料 2(熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	127
図 73(c) 試料 2(熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	128
図 74(a) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	129
図 74(b) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	130
図 74(c) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	131
図 74(d) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット中心部の面分析結果	132
図 75(a) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	133
図 75(b) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	134
図 75(c) 試料 3(熱処理条件 7) のペレット外周部の面分析結果	135
図 76 最大 Pu 濃度と焼結中の酸素分圧の関係	136
図 77 焼結中の酸素分圧と結晶粒径の関係	137
図 78 熱処理に用いたガスの酸素分圧と平衡となる O/M の温度依存性	138
図 79 試料 2(O/M=1.945)の酸素線分析結果	139
図 80 Pu-Am-Ln 系化合物の析出領域	140

1. はじめに

現在、実用化戦略調査研究のもと、MA 含有低除染 MOX 燃料の開発が進められている。

[1] MA 含有低除染 MOX 燃料の燃料製造を行う原料としては、乾式再処理と湿式再処理出発の原料が考えられ、燃料の形態としては、顆粒燃料とペレット燃料が候補とされている。燃料中に含まれる MA は、最大で約 5%、FP は乾式再処理で 2%程度と見積もられているが、従来的高速炉用の MOX 燃料においても、照射がある程度進んだ状態では、燃料中に MA と FP が含有した状態で照射されている。MA 含有低除染燃料の場合は、燃料製造時から MA と FP が含有しているため、燃料製造に関するデータの取得と照射初期の照射挙動を評価することが重要となる。燃料製造に関するデータでは、燃料の焼結中の MA 及び FP の挙動の把握が必要である。また、照射初期は出力が高くなるため、MA 及び FP の含有により熱設計に必要とする融点や熱伝導率などの物性データがどのように変化するか調べる必要がある。

開発が進められている MA 含有低除染燃料は、150GWd/t の燃焼度を目標としている。高燃焼度を達成するためには、燃料-被覆管化学的相互作用 (FCCI) を抑制することが大きな課題である。そのための燃料仕様として、O/M 1.95 の低 O/M 燃料となっている。燃料製造にあたっては、低 O/M 燃料を得るための焼結プロセスを決定することも燃料製造に向けた課題のひとつである。

Np を含有する MOX の焼結特性試験と物性試験は、プルトニウム第一開発室で進められており、12%Np 含有までは置換型固溶体を形成し、安定に存在することがわかっている。

[2,3] また、Am 含有 MOX に関する試験が大洗工学センターAGS で進められている。[4,5] Am の燃料製造及び照射中の懸念として、Am は他の燃料の構成元素に比べ蒸気圧が高く、燃料中のマイグレーションが大きい可能性があることである。[6] 燃料製造上の観点から、焼結中の Am の挙動について評価する必要がある。

本試験の目的は、焼結中の酸素分圧をパラメータとして、焼結特性を調べるとともに燃料の相安定性及び各元素の挙動について評価することを目標とする。

2. 試料組成について

MA 含有低除染燃料の再処理として、乾式再処理と湿式再処理の2種類が考えられているが、湿式再処理から得られる原料中に含まれるFPは数千ppmオーダーであり、乾式再処理から得られる原料には、1.8%程度のFPが含まれると見積もられている [7]。また、乾式再処理として、金属電解法と酸化物電解法が検討されているが、金属電解法から得られる原料は、希土類元素が含まれ、酸化物電解法から得られる原料には希土類に加えてRu、Rh、Pdなどの金属が含まれる。

MAの含有については、Am, Np, Cmが検討され、高速炉の平衡サイクルにおいて合計で1%程度と見積もられている。また、軽水炉燃料を再処理した場合には、5%程度までMA含有率が上がることも予想されている。

本試験では、燃料設計上、より安全側の評価を行うことができる物性データを取得し、各元素の挙動評価をおこなうために、表1に示すように、MAと模擬FPが比較的高い含有率の3種類の組成とした。試料1はMOXに2%Npおよび2%Amを含有させる。さらに試料2及び試料3にはNp及びAmに加え模擬FPを2%含有させる。模擬FPは、試料2及び試料3について、それぞれ金属電解と酸化物電解を模擬し、0.1%以上(小数点2桁目を四捨五入)含有すると考えられる元素を加えた。また、湿式再処理から得られる低除染燃料に含まれるFPは、数千ppmであるが、FPの種類は希土類元素が主である。

3. 試験方法

3.1 原料粉末の分析及び混合

原料粉末は、マイクロ波脱硝で得られた 12%Np-30%Pu-58%U 酸化物と、高次化 Pu 原料粉末 (7%Am 含有 PuO_2) 及び UO_2 (劣化ウラン) を用いた。原料の同位体組成比及び不純物分析結果を表 2 に示す。各原料を混合するために U、Pu 含有率の評価を行った。各原料は、O/Me=2.00 になる条件で熱分析を行い、重金属元素の含有率を評価した。原料粉末中の Am、Pu、U の含有率と同位体組成比は、保管中の O/M 上昇と水分の吸着を考慮するために、熱分析結果と原料粉末製造時の質量分析結果から評価した。

各原料粉は $(\text{Np}_{0.2}\text{Am}_{0.2}\text{Pu}_{0.3}\text{U}_{0.66})\text{O}_2$ が 100 g となるように秤量し、ボールミル混合を施した。ボールミルは、均一混合を目的として、180cc のポットに 40cc (かさ体積) のアルミナボール (10) を入れ、100rpm で 4 時間行った。得られた混合粉末は、吸着水分の除去及び各原料粉末の O/M の調整の目的で、850 ℃、Ar/5%H₂ 気流中で 4 時間の熱処理を施した。熱処理中のオフガスは、酸素分圧計により 735 ℃ で酸素分圧の測定を行った。

3.2 試料調製

混合粉末は、1 バッチ約 30g の 3 分割にし、表 1 に示す試料 1、2、3 の 3 種類の組成の試料を調製した。模擬 FP として含有させる元素は、総量で (Pu+U+Am+Np) に対して 2wt% の金属元素量を含むさせた。各元素は、 Y_2O_3 、 La_2O_3 、 CeO_2 、 Pr_6O_{11} 、 Nd_2O_3 、 Sm_2O_3 、 ZrO_2 、 RuO_2 、 Rh_2O_3 、 PdO の酸化物で混合した。各原料粉末は、180cc のボールミルポットを用いて、40cc (かさ体積) の WC ボール (13) を入れ、100rpm で 4 時間の混合粉砕を行った。得られた混合粉末は、ステアリン酸亜鉛アルコール溶液を成型ダイスに塗布し、成型後、粉砕し造粒した。造粒粉を用いて成型を行い、グリーンペレットを得た。各試料は、表 3 に示す 8 種類の条件で熱処理を施した。焼結温度は、1700 ℃ と 1500 ℃ で行い、雰囲気は、Ar/H₂ 気流中で酸素分圧を変化させた。アニール 1 とアニール 2 の熱処理は、O/M を調整するための熱処理である。

3.3 分析

原料粉末は、SEM 観察及び熱分析を行った。成型後のグリーンペレット及び焼結ペレットについて寸法と重量測定から密度を算出した。得られた焼結ペレットは、O/M 測定、X 線回折測定、金相観察及び EPMA 測定を行った。O/M 測定は、O/M を 2.00 に調整した場合の重量変化より求めた。また、焼結後のペレットについて化学分析を行った。

4. 試験結果

4.1 原料粉末の分析結果 (SEM、熱分析)

図 1 に各原料粉の SEM 観察結果を示す。Np 含有 MOX の粉末は、PuO₂ 及び UO₂ に比べ、粒子径がとても小さいことがわかる。

図 2 ~ 4 に熱分析結果を示した。測定は、UO₂ は Ar/5%H₂ ガス中、PuO₂ は Ar/20%O₂ 中、Np-MOX は Ar/5%H₂/2000ppmH₂O 中で行なった。図 2 の Np-MOX 原料粉は、約 100 から重量減少が起こり、さらに 400 ~ で 2 段目の重量減少が観察される。これらの変化は、それぞれ、吸着水分の蒸発と酸化した試料の O/M が 2.00 に変化するためと考えられる。図 3 に示す PuO₂ の結果は、約 100 から重量減少が 1 段階で起こり、吸着水分の蒸発が主な変化と考えられる。図 4 に UO₂ の測定結果を示すが、UO₂ の変化は、3 段階で変化する。UO₂ の酸化は、UO₂ → U₃O₇ → U₃O₈ の 2 段階で進むことが報告[8]されているため、図 4 の 1 段目の変化が吸着水分の蒸発による減少、2 段目と 3 段目の変化が UO₂ へ 2 段階で還元が起こっていると考えられる。各原料は O/M = 2.00 と平衡になる条件で測定しているため、測定終了時には O/M = 2.00 として評価した。表 4 に熱分析結果から得た HM (Pu+U+Np+Am) の含有率、水分量及び O/M を示した。

4.2 ペレット調製結果 (酸素分圧、外観、密度、O/M、)

4.2.1 熱処理中の酸素分圧と密度

図 5 に 1 回目のボールミル混合後に行った混合原料の熱処理時の酸素分圧変化を示す。酸素分圧は 4×10^{-19} atm から 1×10^{-22} atm に変化している。いずれの原料も O/M = 2.00 ± 0.005 に調整できる条件である。

図 6 に 1700 °C での焼結中の酸素分圧の変化を示す。焼結は酸素分圧の条件を変えて 3 種類で実施した。各熱処理を表 3 に示すように熱処理 1、2、3 とする。各熱処理の酸素分圧、熱処理終了時にそれぞれ、およそ 1.5×10^{-9} atm、 1.0×10^{-12} atm、 7×10^{-14} atm に到達している。また、1500 °C で焼結した試料は、 4×10^{-10} atm で実施した。表 5 にグリーンペレットと焼結ペレットの密度と焼結による収縮率を示す。図 7 に焼結中の酸素分圧と焼結密度の関係を示す。試料 2 は、酸素分圧によらずほぼ同じ密度であるが、試料 1、3 は、低酸素分圧下での焼結で密度が低くなる傾向にある。

4.2.2 外観観察

図 8 ~ 10 に各焼結で得られたペレットの外観写真を示す。図 9 は、焼結ペレットを半分に切断した後の写真である。模擬 FP を添加した試料 2、3 は、ペレット表面に付着物が観察できる。表面の付着物は、高酸素分圧 ($P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-9}$ atm) で熱処理したペレットの方が大量に観察される。図 11 は、熱処理 8 の条件で熱処理を行った試料である。

4.2.3 分析結果(O/M、元素分析)

各熱処理条件のO/Mを表6に示す。図12に焼結中の酸素分圧と焼結後O/Mの関係を示す。試料2、3は、酸素分圧が低くなるほど、O/Mが低い傾向にある。試料1は、酸素分圧に対する依存性が現れていない。各酸素分圧にO/Mが平衡になるとすると、MOXの場合は、 1.5×10^{-9} atm、 1×10^{-12} atm、 7×10^{-14} atmの条件で、それぞれ1.98、1.87、1.85に到達する。[9,10]しかし、焼結時間は、4時間とO/Mが平衡に到達するには短いため、O/M変化の小さい 1.5×10^{-9} atmの条件以外は、O/Mが変化している途中の非平衡状態であると考えられる。

4.3 X線測定結果

1700℃で焼結した試料のX線回折パターンを示す。図13~15は、 $2\theta = 10 \sim 90^\circ$ 、図16~18は $2\theta = 110 \sim 145^\circ$ のX線回折パターンである。各試料ともfcc相以外には、回折ピークは観察されない。熱処理条件2および3の試料の回折ピークは、強度が低く、ブロードであり、O/Mが低下していることが予想される。これは、酸素サイトの空孔の増加により、格子ひずみがより大きくなることと、O/Mの低下により高O/M相と低O/M相に相分離しているためである。図19、20に1500℃で焼結したペレットのX線回折パターンを示す。測定は、ペレットを粉砕せず、ペレット表面を測定した結果である。図19の低角側のデータでは、 $2\theta = 10 \sim 15^\circ$ の範囲にブロードのピークが現れ、外観観察でペレット表面に観察された物質であると考えられる。図21~23にO/M 1.95(熱処理1)と1.98(熱処理1)のX線回折ピークを比較する。O/Mが低い方がピークが低角側にシフトし、ブロードになることが観察できる。

表6に各試料の格子定数を示す。また、格子定数から理論密度を算出し、焼結ペレットの理論密度比を求めた。その結果を表5に示す。図24に、O/Mと格子定数の関係を示す。O/Mが低くなるほど格子定数が大きくなる傾向にある。定比組成の格子定数は、試料1に比べ、試料2は大きく、試料3は小さい。

4.4 金相観察結果

4.4.1 1700℃で焼結したペレットの組織

図25~27に研磨後の光学顕微鏡観察結果を示す。いずれの試料も、高い酸素分圧(熱処理条件1)で焼結した試料は細かいポアが分散しており、同じようなポアの形状である。低酸素分圧で焼結した試料1及び3は、比較的大きな丸いポアが分散している。低酸素分圧で焼結した試料2のポア分布は他のものと比べ大きく異なっている。

図28~36にエッチング後の写真を示すが、各試料とも熱処理条件1で焼結した試料は、 $10 \sim 30 \mu\text{m}$ の粒径であるが、低酸素分圧で焼結した試料は、粒径が数 μm と小さく、結晶粒が観察できなかった。図23の試料2外周部の観察($P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-9}$ atm)では、ペレット表面と結晶粒界に沿ってグレーの相が存在し、その場所でペレットが膨らんでいる。試料2と3ペレット表面にグレーの相が存在することである。このような相は、試料3(図34:

$P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9} \text{atm}$)でも観察でき、表面に約 $10 \mu\text{m}$ の層を形成している。また、試料 3 には、図 35 に矢印で示すような白色相が点在して存在している。

4.4.2 低 O/M (O/M=1.95) ペレットの組織

図 37、38、39 に各試料の O/M 1.98 と O/M 1.95 の組織を比較した。O/M 1.95 は、1350 で 10 時間の熱処理 (熱処理 8) を行い O/M を調整した試料である。試料 2 の O/M 1.95 組織は、結晶粒内でひび割れがあるように観察できるが、これは、O/M が下がったことによる相分離によるものである。このような組織は、試料 1、2 でもわずかであるが観察できる。また、MOX や Np 含有 MOX の状態図に関する試験でも同様な組織が観察できることが報告されている[2,3,11]。

4.4.3 1500 で焼結したペレットの組織

図 40~42 に研磨後の写真を、図 43~45 にエッチング後の写真を示す。1500 の低温での焼結であるが、結晶粒径は $10 \mu\text{m}$ 程度に成長しており、ポア分布も 1700 で焼結したペレットと同様である。また、1700 での焼結ペレットの外周部で観察されたグレーの相は明確には観察できなかった。

4.5 EPMA

EPMA による分析は、ペレット中心部と外周部で面分析を行った。分析結果を見るにあたって、エッジ効果を注意する必要がある。Sm 及び Ce と、Nd の一部のデータは、ポアの右側及びペレット端部の右側で必ず濃度が高くなっている分析結果がある。これは、試料と検出器の位置関係から生じるエッジ効果であり、実際に濃度が高くなっているためではない。その他の元素については、用いた検出器が異なるため、エッジ効果はない。

4.5.1 試料 1 の EPMA 観察

図 46~48 に試料 1 のペレット断面の面分析結果を示す。図 49 には、面分析結果を濃度分布で示した。図 46 の熱処理 1 の高い酸素分圧で焼結した試料は、U と Pu は均一に分布しているが、Np は $5 \mu\text{m}$ 程度のスポットで存在しており、Am は、結晶粒界において 6% 程度の高い濃度で存在する箇所がある。これらの場所では、U や Pu の濃度は高くなっていない。図 47 の熱処理 2 では、各元素とも $5 \mu\text{m}$ 以下のスポットが分散している。Pu スポットの Pu 濃度は、40~50% である。Am スポットは Pu と、Np スポットは U 及び Pu と存在している。図 48 の熱処理 3 は、図 47 と同様な分布を示しているが、 $5 \mu\text{m}$ 以上の Pu スポットが存在している。また、各スポットの中心部の組成は、原料粉末である UO_2 、Np 含有 MOX 及び PuO_2 の組成とほぼ同じある。図 49 の各元素の濃度分布、酸素分圧が低いほど広がっており、特に、Am の濃度分布は、Pu スポットの分布に起因して高濃度側に広がって分布している。

図 50～52 にペレット外周部の面分析結果を示す。図 53 には、面分析結果を濃度分布で示した。各元素の分布は、中心部とほぼ同じである。

4.5.2 試料 2 の EPMA 観察

図 54～55 に試料 2 の面分析結果を示す。図 54 に示した熱処理 1 の試料は、各元素ともほぼ均一な分布である。図 55(a)の熱処理 2 の試料では、約 5 μm の Pu と Am が濃縮した領域が観察される。この領域では、La、Ce、Pr、Nd も高濃度で存在し、反射電子像では、マトリックスに比べ黒く写っていることから、ホタル石構造とは異なる (Pu,Am,La,Ce,Pr,Nd)酸化物として析出していると考えられる。Sm,Y は、マトリックスと析出物の間で大きな濃度変化はない。図 56 に熱処理 3 の分析結果を示す。U、Pu、Np の 5～10 μm のスポットが存在する。図 57 に Pu,Np,Am の分布を示すが、熱処理 2 の Pu 及び Am において高濃度側に広がる分布は析出物によるものである。

図 58～60 にペレット外周部の面分析結果を示す。図 58 に示した熱処理 1 の SEM 写真では、ペレット表面に厚さ約 20 μm の白色の層が存在し、さらに表面近傍の結晶粒界では、グレーの組織が存在する。グレーの組織は、図 31 の光学顕微鏡写真でも観察できる。これらの領域は、U と Pu は存在せず、(Pu,Am,Pr,Nd,Sm,Ce,La)酸化物である。Sm については、マトリックス部及び析出物において同程度である。図 58 に示した熱処理 2 では、U スポットと (Pu,Np)スポットが観察できる。希土類元素は、各元素とも均一に分布している。図 60 に熱処理 3 の分析結果を示す。内部と同様に U、Pu、Np のスポットが観察できる。希土類元素は均一に分布している。図 61 に Pu、Np、Am の濃度分布を示す。Pu 及び Np は、酸素分圧が低くなるほど分布が広がる傾向にあり、スポットの濃度に影響している。Am の分布は、熱処理 1 で 10～20%の濃度の分布が現れているが、これは、ペレット表面の層に起因する分布である。

4.5.3 試料 3 の EPMA 観察

図 62～64 にペレット中心部の濃度分布を示す。図 62 に熱処理 1 の分析結果を示す。Ru、Rh、Pd の白金族元素は、2 μm 程度で析出しており、(Ru,Rh)、(Ru,Pd)、Pd の 3 種類で存在する。それ以外の元素とも均一に分布している。図 63 の熱処理 2 の試料では、10 μm 程度の Np スポットが存在する。また、5～10 μm の (Pu,Am,Nd,Pr,La)酸化物が析出している。白金族元素は、(Ru,Rh,Pd)と(Ru,Pd)の約 2 μm の粒が観察できる。図 64 の熱処理 3 の試料では、5 μm 程度の U、(Pu,Am)、(Pu,Np)のスポットが観察できる。白金族元素は他の熱処理条件と同様に析出している。Zr については、各熱処理条件においても均一に存在している。図 65 に元素分布を示すが、熱処理 2 の Pu と Am の分布が広がっているが、これは、希土類元素との化合物によるものである。

図 66～68 に外周部の面分析結果を示す。図 66 の熱処理 1 の試料は、ペレット表面に (Pu,Am,Nd,Ce,Pr,La)酸化物が約 10 μm の層状に存在する。マトリックス中は、各元素と

も均一である。図 67 の熱処理 2 の試料は、Pu、Np のスポットが存在しているが、希土類元素は、均一に分布している。白金族元素は、他の場所と同じように析出し、(Ru,Rh)と Pd の粒子が観察できる。図 68 の熱処理 3 の試料の元素分布は、試料 2 とほぼ同じ分布状態である。図 69 に Pu、Np、Am の元素分布を示すが、熱処理 1 の試料は、ペレット表面の析出相に起因して、Pu と Am が高濃度側に分布しているが、熱処理 2、3 はほとんど同じである。

4.5.4 1500 焼結試料の EPMA 観察

図 70～75 に熱処理 7 の分析結果を示す。図 70、71 は、試料 1 の測定結果である。ペレット中心部では、Am が結晶粒界に蓄積しているのと Np スポットの存在が確認できる。外周部には、5 μm 以下の(Pu,Am)スポットが観察できる。図 72、図 73 に示す試料 2 は、ペレット中心部及び外周部で 5 μm 程度の(Am,Pu,Ce,La,Pr,Nd)酸化物が観察できる。図 74、75 の試料 3 の面分析結果では、外周部に(Am,Pu,La,Pr,Nd)酸化物が存在し、Ce と Sm は存在しないようである。中心部では、均一に分布している。また、白金族は、1700 の試料と同様に粒子状に析出している。

5. 考察

5.1 焼結性に及ぼす酸素分圧の影響

密度、Pu スポット及び O/M は重要な燃料仕様であり、結晶粒径もまた、照射挙動に影響する因子である。これらのパラメータは、焼結条件によって変化する。本試験では、焼結中の雰囲気パラメータとして焼結を行った。焼結雰囲気の酸素分圧は、低いほど燃料の O/M が低下すると予想される。O/M の変化は、拡散係数を大きく変化させるため、焼結挙動も大きく変わることになる。本試験で実施した焼結は、1700 で $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9} \text{atm}$ 、 $1 \times 10^{-12} \text{atm}$ 、 $7 \times 10^{-14} \text{atm}$ の 3 種類の酸素分圧で行った。これらの条件では、30%Pu - MOX の場合であれば、それぞれ O/M=1.98、1.88、1.85 に到達する条件である。[9] 焼結ペレットの O/M は、図 12 に示すように、 $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9} \text{atm}$ の雰囲気焼結した試料については、よく一致するが、低い酸素分圧で焼結した試料の O/M は高い値である。焼結中の O/M の変化は、焼結前は O/M 2.0 であり、焼結中に O/M が低下する反応となる。本試験で行った焼結時間は、4 時間という比較的短時間であるため、熱処理 2 及び 3 の低酸素分圧での焼結では、O/M は雰囲気と平衡になっていないと予想される。

図 76 に EPMA のペレット中心部の面分析結果から求めた最大 Pu 濃度を示す。 $1 \times 10^{-12} \text{atm}$ の雰囲気焼結した試料 2 及び 3 には、(Pu,Am,Ln)酸化物が析出しているための、析出物を除いたマトリックス中の最大 Pu 濃度を示した。図を見ると、酸素分圧が低いほど Pu 濃度が高くなっており、組成が不均一である。模擬 FP を含有させた試料 2 及び 3 は、試料 1 に比べ Pu 濃度が低く、組成が均一であり模擬 FP が固溶性を促進する効果があると考えられる。試料 1 は、酸素分圧に依存して大きな Pu 濃度の変化を示しており、熱処理 3 の低酸素分圧下での焼結では、原料粉である PuO_2 の組成となっている。図 48 の面分析結果を見ると、 UO_2 のマトリックス中に PuO_2 と Np 含有 MOX の原料とほぼおなじ組成のスポットが分散している。また、この試料は低酸素分圧で焼結したにもかかわらず、O/M が 1.97 程度であり、組成の不均一性が O/M の低下を妨げていると考えられる。

図 77 に酸素分圧と結晶粒径の関係を示す。各試料とも酸素分圧が低いほど結晶粒径が小さく、酸素分圧が低いほど粒成長速度が遅いことがわかる。Sari ら[12]は、O/M=1.98 と 2.00 の粒成長速度を測定し、O/M が高いほど粒成長速度が速いことを報告しており、本試験結果と一致する。

1500 で高酸素分圧の条件で焼結した試料の光学顕微鏡観察写真を図 42 ~ 44 に、面分析結果を図 70 ~ 75 に示した。平均結晶粒径は $5 \mu\text{m}$ 程度であり、組成も比較的均一である。通常、燃料製造で行われる焼結は、約 1700 であり、200 低い温度でも高い酸素分圧であれば、高密度の焼結ペレットを得られる可能性がある。

5.2 低 O/M ペレットの調製と組織

燃料の経済性を向上させるため、100GWd/t 以上の高燃焼度化が検討されており、高燃焼度化を達成するために燃料に求められる仕様として、O/M を 1.95 程度まで下げることが要

求されている。[1] 本試験では、焼結ペレットを低酸素分圧下において 10 時間熱処理することによって O/M を調製した。熱処理に用いた Ar/5% H_2 ガスの酸素分圧は、熱処理炉のオフガスを酸素センサーにより測定し、735 °C で 5×10^{-26} atm の酸素分圧であった。このガスの酸素分圧の温度依存性を図 78 に示す。また、図中には、ガスの酸素分圧と平衡になる 30% - MOX の O/M の変化を格子欠陥モデルにより計算した。[9] 図を見ると、O/M=1.95 に平衡となるのは 1350 °C で、このときのガスの酸素分圧は、 2.4×10^{-24} atm である。図 36 ~ 38 に 1350 °C × 10 時間の熱処理を行った試料の光学顕微鏡写真を示す。O/M は、各試料とも 1.95 ± 0.005 に調整することができた。写真を見ると、O/M=1.95 の組織は、結晶粒内にひび状に見える組織が観察できる。各試料とも観察できるが、試料 2 が最もはっきりと現れている。このような組織は、MOX や Np 含有 MOX でも観察でき、O/M の異なる 2 相に相分離を起こしたためである。図 21 ~ 23 に X 線回折パターンを示すが、2 相分離のピークは明確には観察されないが、各ピークは強度が下がりブロードなピークとなっている。そのため、はっきり現れていないと考えられる。図 79 に試料 2 の酸素の線分析結果を示す。相分離は、O/M の異なる 2 相に分離されることが報告されているが、線分析結果では、明確に酸素含有量の変化を観察することはできなかった。

5.3 格子定数の変化

蛍石構造の PuO_2 と UO_2 は全率固溶し、その格子定数はペガード則に従うことが知られている。Np 及び Am も固溶すると予想され、本試験においても O/M=2.00 に調製した試料 1 は、図 21 に示すようにシャープな単相の fcc の回折ピークを示している。格子定数は、5.4461 ~ 5.4478 を得た。また、 UO_2 、 PuO_2 、 NpO_2 、 AmO_2 の格子定数は、それぞれ、5.4702、5.3952、5.4339 及び 5.3772 と報告されている。[13-16] 格子定数がペガード則に従うとして組成平均を計算すると 5.4451 となり、測定結果より若干小さい。しかし、これらの違いは、 NpO_2 及び AmO_2 の格子定数のデータはほとんど無く、これらの格子定数の不確かさが大きいことや試料の組成の誤差に起因していると考えられる。

表 6 に示すように O/M=2.00 に調製した試料 1、2、3 の格子定数は、それぞれ、5.4478 ~ 5.4466、5.4448 ~ 5.4461、5.4436 ~ 5.4445 であり、模擬 FP を添加した燃料の方が、格子定数が小さくなっている。模擬 FP として添加した Ln 元素は、+3 価で固溶していると予想されるが、 Ln^{3+} のイオン半径は、U や Pu の +4 価のイオン半径に比べ大きく、格子定数を大きくする効果である。 Ln^{3+} が固溶した場合、電気的中性条件が満足するためには、U の価数が大きくなる必要がある。 U^{6+} のイオン半径は、 U^{4+} に比べ小さく、Ln 元素が固溶する効果より、U のイオン価数が大きくなる効果の方が大きいため、格子定数が小さくなると考えられる。試料 3 は、試料 2 に比べると Ln 元素の添加量は少ないが、Zr が 0.4% と比較的多く、 Zr^{4+} のイオン半径が小さいために、試料 2 より格子定数が小さくなると予想される。

図 24 に格子定数の O/M 依存性を示した。格子定数は、O/M が小さいほど大きくなって

おり、MOX の傾向とよくあっている。O/M が低い領域では、図 37～39 に示したように、O/M が異なる 2 相が観察されるが、X 線回折では、ピークがブロードであるため、はっきりと 2 相の回折は観察できなかった。得られた格子定数は、2 相の回折ピークを 1 相として計算しているため、誤差が大きくなっていると考えられる。

5.4 (PuAmLn)系化合物の挙動

試料 2 及び試料 3 は、焼結後のペレットに(PuAmLn)系化合物が観察された。図 80 に(PuAmLn)系化合物の観察状況を示す。(PuAmLn)系化合物は、試料 2 及び 3 で同様に観察でき、1700 ℃、高酸素分圧下で焼結した試料では、ペレット表面に層状に観察された。(PuAmLn)系化合物は温度の低下及び酸素分圧の低下で、ペレット内部において、5 μm 程度の粒状に析出し、1700 ℃、 $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm では観察されなかった。(PuAmLn)系化合物の組成は、EPMA 分析結果より見積もると、ペレット内部に析出する化合物は $(Pu_{0.6-0.7}Am_{0.1-0.2}Ln_{0.1-0.2})O_y$ 、表面の化合物は $(Pu_{0.4-0.5}Am_{0.2-0.3}Ln_{0.2-0.3})O_y$ である。ペレット表面に析出する酸化物の方が、Am と Ln 元素が高濃度に存在する。希土類元素については Sm と Ce が他の元素に比べ異なった挙動を示している。試料 2 では、析出物とマトリックス中に同様に存在するが、試料 3 ではマトリックスの方が高濃度で存在する。これは、試料 3 には、0.1%程度含有しているが試料 2 では、0.2%以上含有しているため、マトリックス中の固溶限界に関係していると考えられる。

(PuAmLn)系化合物の析出は、照射挙動の観点から FCI が懸念されるため、燃料製造上、析出を防ぎたい。今回の試験では、焼結中の酸素分圧と焼結温度を低くすることと、Ln 元素の含有率を低くすることにより、化合物の析出を抑えられる可能性がある。また、化合物は、酸化物と予想されるが、今回の試験では Si などの不純物の影響がはっきりとできないため、化合物とした。

6. おわりに

Am/Np 含有 MOX 及び Am/Np/模擬 FP について、焼結特性に関するデータ取得を行い、以下の結果を得た。

- (1) 焼結雰囲気中の酸素分圧が高いほど、組成の均質性がよく、結晶粒が成長する。Ln 元素は、組成の均一化を促進するが、粒成長は抑制する。また、1500 °C の低温でも、焼結中の酸素分圧を高く維持することによって、高密度のペレットを調製できる可能性がある。
- (2) 温度と酸素分圧を調整し、10 時間の熱処理を行うことによって、燃料仕様である O/M=1.95 のペレットを得ることができた。各試料とも MOX 燃料同様に 2 相分離が観察できた。
- (3) 模擬低除染燃料では、温度と酸素分圧に関して Pu-Am-Ln 系化合物が析出した。Pu-Am-Ln 系化合物は、高酸素分圧下では、ペレット表面に層状に観察でき、焼結温度の低下及び酸素分圧の低下に伴い内部で析出する。
- (4) 模擬低除染燃料では、Y と Zr は、焼結条件によらず、マトリックス中に均一に分布し、Ru、Rh、Pd は、2~3 µm の粒状で金属の又はそれらの合金として存在すると考えられる。

模擬低除染燃料で観察された、Pu-Am-Ln 系化合物は、Pu 含有率が高いため、析出状態によっては照射挙動上、FCI などの問題が起こると予想される。MA 含有低除染燃料の開発に向けて、Pu-Am-Ln 系化合物について結晶構造や、析出する条件を調べるとともに、均質なペレットを得ることのできる焼結条件を把握することが重要である。また、Np/Am 含有 MOX は、平成 17 年より常陽での照射試験が検討されている。照射試験では、照射初期の再分布挙動を評価することと、高燃焼度における FCCI を抑制することが目的である。照射試験に向けて、均質性が高く、O/M が低い燃料を製造する必要がある。今回の試験では、高酸素分圧下で焼結を行い、その後、O/M の調製のための熱処理を施すことにより、目標とするペレットを得られることがわかった。今後、ペレット寸法、密度の制御を含めて、ペレット調製を実証する必要がある。

参考文献

- [1]相澤清人 他、“特集 高速増殖炉サイクル実用化戦略調査研究フェーズ ”, サイクル機構技報、Vol.12 別冊、p1 (2001)
- [2] 加藤正人 他、“Np 含有 MOX の焼結特性と相分離挙動”, サイクル機構技報、Vol.10, p4、(2001)
- [3]K.Morimoto, et.al., “Influence of Np on Sintering Behavior and Phase Separation for (Pu,Np,U)O_{2-x}”, Global 2001, Vol.1,p038,(2001)
- [4] 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()”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集、 、B1(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()”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集、 、B2(2003)
- [6]R.J.Ackerman, et. al., J.Chem.Phys., Vol.118,p3698(1966)
- [7] “H11 年度電力共研「FBR リサイクルシステムに関する研究(その4)」”,(1999)
- [8]Y.Saito,“Oxidation Process and Reactivity of Uranium Dioxide”, Proc.US-Japan Joint Seminar on Defects and Diffusion in Solids, Tokyo,Oct.4-6,(1976)
- [9]加藤正人 他、“(Pu,U)O₂の酸素ポテンシャルI” JNC TN8400 2002-020, (2003)
- [10]長井修一郎、“UO₂,PuO₂及び MOX 燃料の酸素分圧”, JNC TN8410 99-019(1999)
- [11]C.Sari, et.al., “A Study of the Ternary System UO₂-PuO₂-Pu₂O₃”, J.Nucl.Mater. Vol.35, p267(1970)
- [12]C.Sari, “Grain Growth Kinetics in Uranium-Plutonium Mixed Oxide”, J.Nucl.Mater. Vol.137, p100(1986)
- [13]加藤正人 他、“プルトニウム-ウラン混合酸化物の自己照射欠陥”, JNC TN8400 2002-019,(2003)
- [14]W.L.Lyon, W.E.Baily, “The Solid Liquid diagram, for the UO₂-PuO₂ System”, J.Nucl.Mater.,Vol.22, p332(1967)
- [15]K.Richer, C.Sari, “Phase Relationships in the Neptunium-Oxygen System”, J.Nucl.Matr., Vol148, p266(1987)
- [16]T.D.Chikalla, et.al., “Phase Relationships in the Americium-Oxygen System”, J.Inorg.Nucl.Chem.,Vol.30, p133,(1968)

謝辞

試験実施にあたり、プルトニウム燃料センター製造加工部技術開発室の遠藤室長及び室員の方から、技術的な指導、助言及び多大なるご協力を頂いたことに感謝いたします。

表 1 試料の組成 ; % (Metal 中の割合)

	Pu	U	Am	Np	Y	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Zr	Ru	Rh	Pd
試料 1	30	66	2	2										
試料 2	30	64	2	2	0.1	0.2	0.4	0.2	0.7	0.2				
試料 3	30	64	2	2		0.1	0.1	0.1	0.2	0.1	0.4	0.5	0.1	0.4

表2 原料粉の同位体比・組成比と不純物

原料名	PuO ₂	Np-MOX	UO ₂
組成 M/(Pu+U+Am+Np)			
Pu	93.3 %	29.3 %	100 %
U		57.7 %	
Np		11.7 %	
Am	6.7 %	2.3 %	
同位体組成			
Pu-238	0.758 %	1.221%	
Pu-239	70.235 %	61.97%	
Pu-240	23.324 %	24.91%	
Pu-241	2.462 %	7.482%	
Pu242	3.221 %	4.415%	
U-234		0.007 %	0.001 %
U-235		0.192 %	0.193 %
U-236		0.001 %	0.00 %
U-238		99.8 %	99.806 %
不純物 (ppm)			
Ag	< 5	< 2	< 0.2
Al	100	< 50	11
B	< 5	< 2	< 0.3
Cd	< 5	< 2	< 0.6
Cr	50	< 20	< 10
Cu	10	< 2	< 1
Fe	< 100	170	< 10
Mg	< 15	< 20	< 2
Mn	< 20	< 10	8
Ni	< 50	< 20	< 10
Si	330	< 20	< 10
V	< 50	< 50	< 10
Zn	< 100	< 50	< 50
Ca	205	< 50	32
Mo	< 50	< 20	< 10
Sn	< 30	< 20	< 10
Pb	90	< 10	< 10

表 3 熱処理条件リスト

	焼結条件	アニール 1 (O/M = 2.00)	アニール 2 (O/M 調整)
熱処理 1	1700 × 4h, $P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-9}$ atm		
熱処理 2	1700 × 4h, $P_{O_2} = 8 \times 10^{-12} \sim 1 \times 10^{-12}$ atm		
熱処理 3	1700 × 4h, $P_{O_2} = 1 \times 10^{-12} \sim 7 \times 10^{-14}$ atm		
熱処理 4	1500 × 3 h, $P_{O_2} = 4 \times 10^{-10}$ atm		
熱処理 5	1700 × 4h, $P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-9}$ atm	850 × 5h, $P_{O_2} = 2 \times 10^{-18}$	
熱処理 6	1700 × 4h, $P_{O_2} = 8 \times 10^{-12} \sim 1 \times 10^{-12}$ atm	850 × 5h, $P_{O_2} = 2 \times 10^{-18}$	
熱処理 7	1500 × 3 h, $P_{O_2} = 4 \times 10^{-10}$ atm	850 × 5h, $P_{O_2} = 2 \times 10^{-18}$	
熱処理 8	1700 × 4h, $P_{O_2} = 1.5 \times 10^{-9}$ atm	850 × 5h, $P_{O_2} = 2 \times 10^{-18}$	1350 × 10h, $P_{O_2} = 1 \times 10^{-17}$
熱処理 9	1700 × 4h, $P_{O_2} = 8 \times 10^{-12} \sim 1 \times 10^{-12}$ atm		1350 × 10h, $P_{O_2} = 1 \times 10^{-17}$

表4 TG測定から得られた各原料粉の分析結果

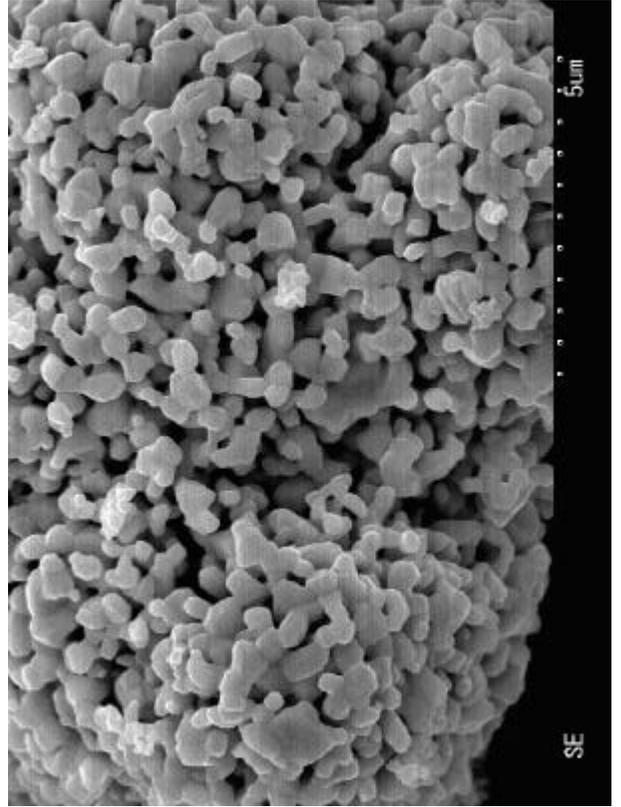
	TG変化率 (%)	HM割合 (%)	水分量 (%)	O/M
Np-MOX	3.146%	86.123	0.65	2.40
PuO ₂	2.269%	86.333	2.07	2.00
UO ₂	1.954%	86.937	0.39	2.24

表5 ペレット調整データ

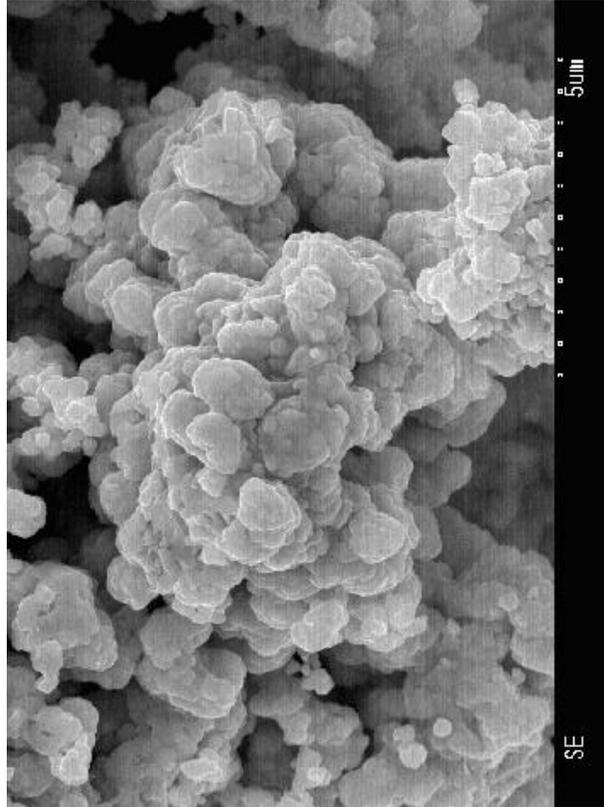
熱処理条件		グリーンペレット		焼結ペレット		収縮率		
		密度 (g/cm ³)	%T.D	密度 (g/cm ³)	%T.D	直径 (%)	高さ (%)	体積 (%)
試料 - 1	熱処理 1 (P _{O2} =1.5 × 10 ⁻⁹)	6.60	59.47	9.96	89.62	13.43	12.57	34.49
	熱処理 2 (P _{O2} =1 × 10 ⁻¹²)	6.44	58.03	10.00	90.35	14.83	12.50	36.53
	熱処理 3 (P _{O2} =7 × 10 ⁻¹⁴)	6.56	59.19	9.57	86.28	12.99	10.67	32.37
試料 - 2	熱処理 1 (P _{O2} =1.5 × 10 ⁻⁹)	6.60	59.55	10.04	90.35	13.59	12.99	35.03
	熱処理 2 (P _{O2} =1 × 10 ⁻¹²)	6.56	59.13	9.98	89.88	14.76	10.77	35.16
	熱処理 3 (P _{O2} =7 × 10 ⁻¹⁴)	6.22	56.12	10.01	89.99	14.00	17.13	38.71
試料 - 3	熱処理 1 (P _{O2} =1.5 × 10 ⁻⁹)	6.37	57.47	9.84	88.43	14.22	13.36	36.25
	熱処理 2 (P _{O2} =1 × 10 ⁻¹²)	6.44	58.08	9.84	89.28	13.62	13.70	35.61
	熱処理 3 (P _{O2} =7 × 10 ⁻¹⁴)	6.43	58.02	9.69	87.96	13.29	13.19	34.73

表 6 各試料の O/M と格子定数

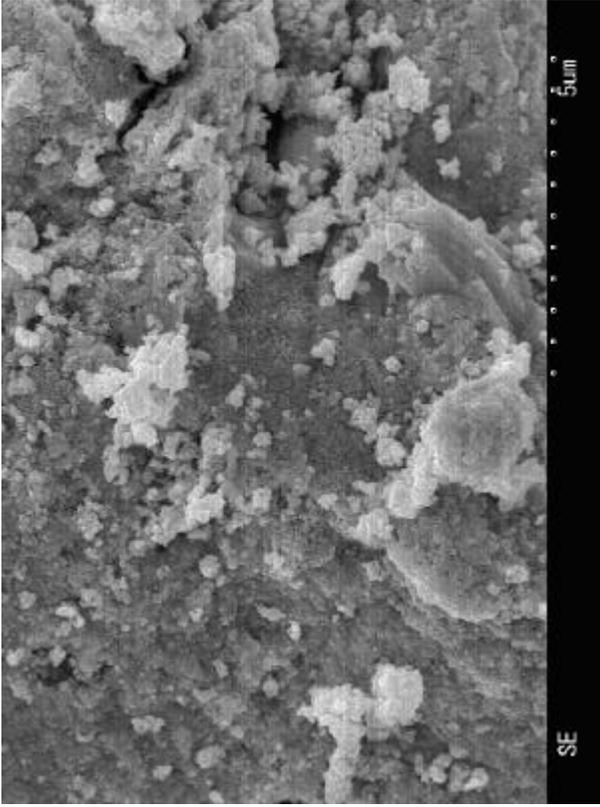
試料 No.	熱処理条件	O/M	格子定数
試料 1	熱処理 1	1.983	5.4470
	熱処理 2	1.923	5.4536
	熱処理 3	1.976	5.4491
	熱処理 4	2.00	
	熱処理 5	2.00	5.4478
	熱処理 6	2.00	5.4461
	熱処理 7	2.00	5.4466
	熱処理 8	1.954	5.4515
	熱処理 9		
試料 2	熱処理 1	1.979	5.4460
	熱処理 2	1.977	5.4481
	熱処理 3	1.970	5.4470
	熱処理 4	2.00	
	熱処理 5	2.00	5.4454
	熱処理 6	2.00	5.4448
	熱処理 7	2.00	5.4461
	熱処理 8	1.945	5.4515
	熱処理 9		
試料 3	熱処理 1	1.987	5.4434
	熱処理 2	1.933	5.4609
	熱処理 3	1.926	5.4619
	熱処理 4	2.00	
	熱処理 5	2.00	5.4436
	熱処理 6	2.00	5.4440
	熱処理 7	2.00	5.4445
	熱処理 8	1.947	5.4539
	熱処理 9		



UO₂



PuO₂



12%Np-MOX

5 μm

図1 各原料粉のSEM写真

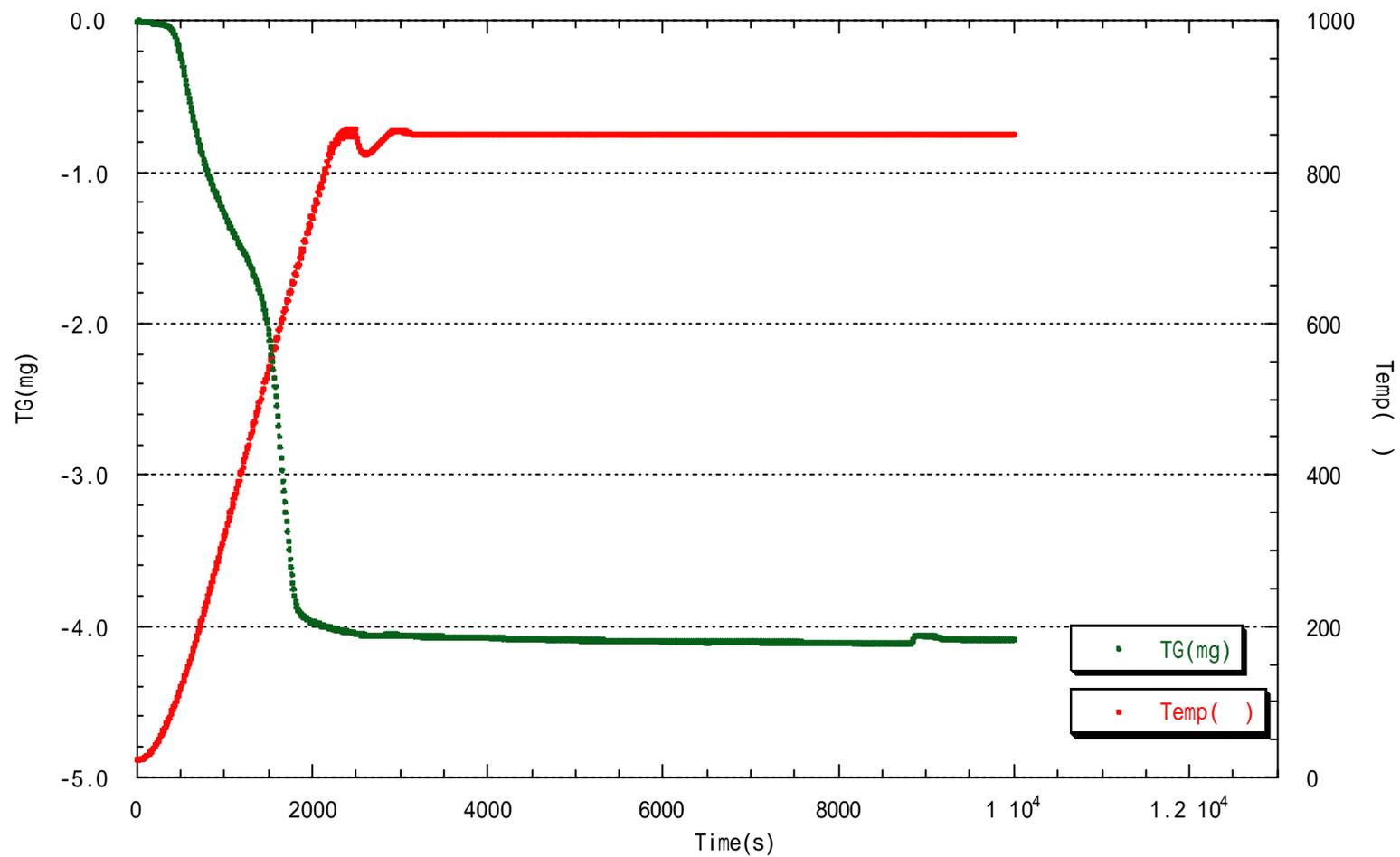


図2 12%Np-MOX原料粉末の熱分析測定結果

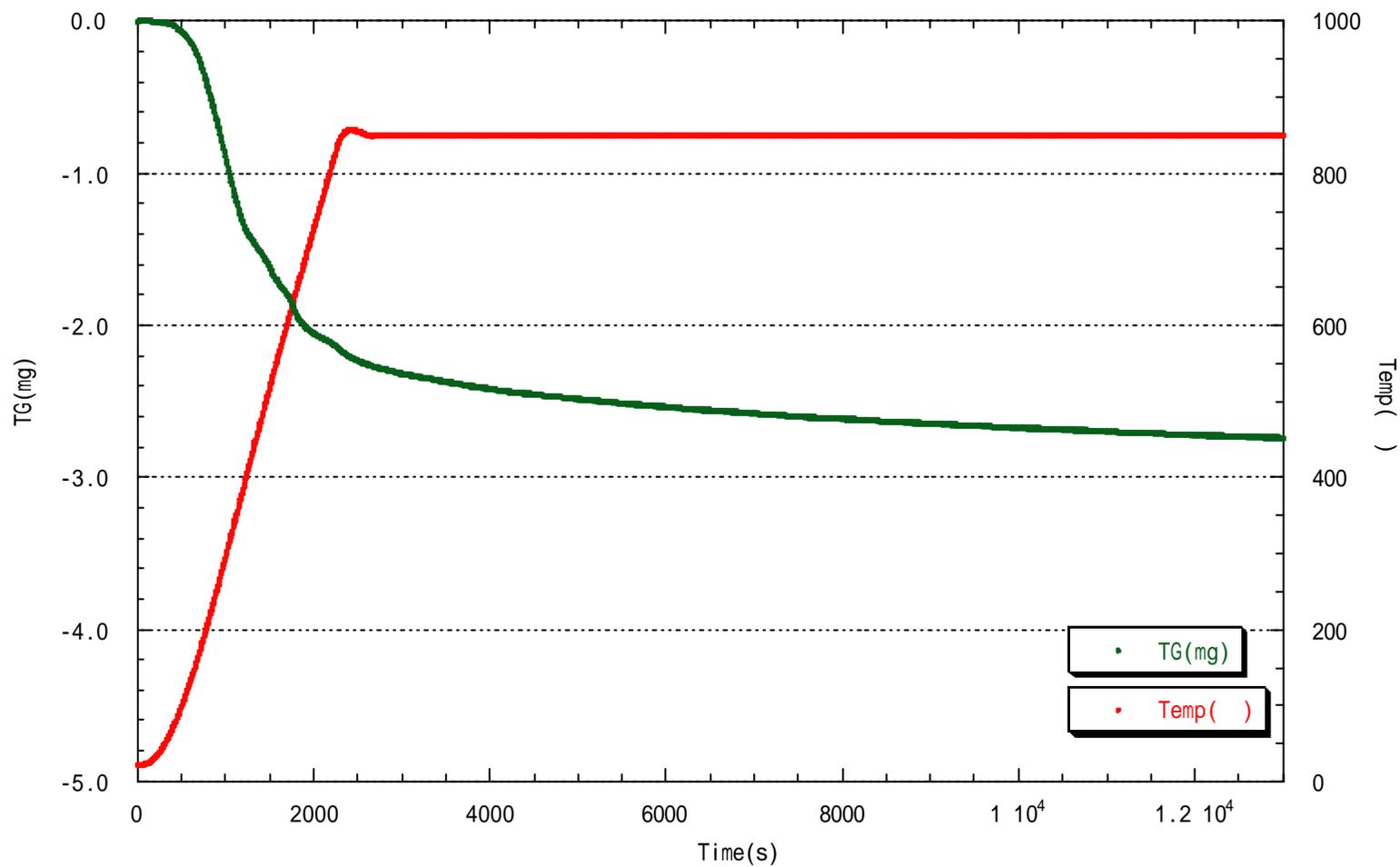


図3 PuO₂原料粉末の熱分析測定結果

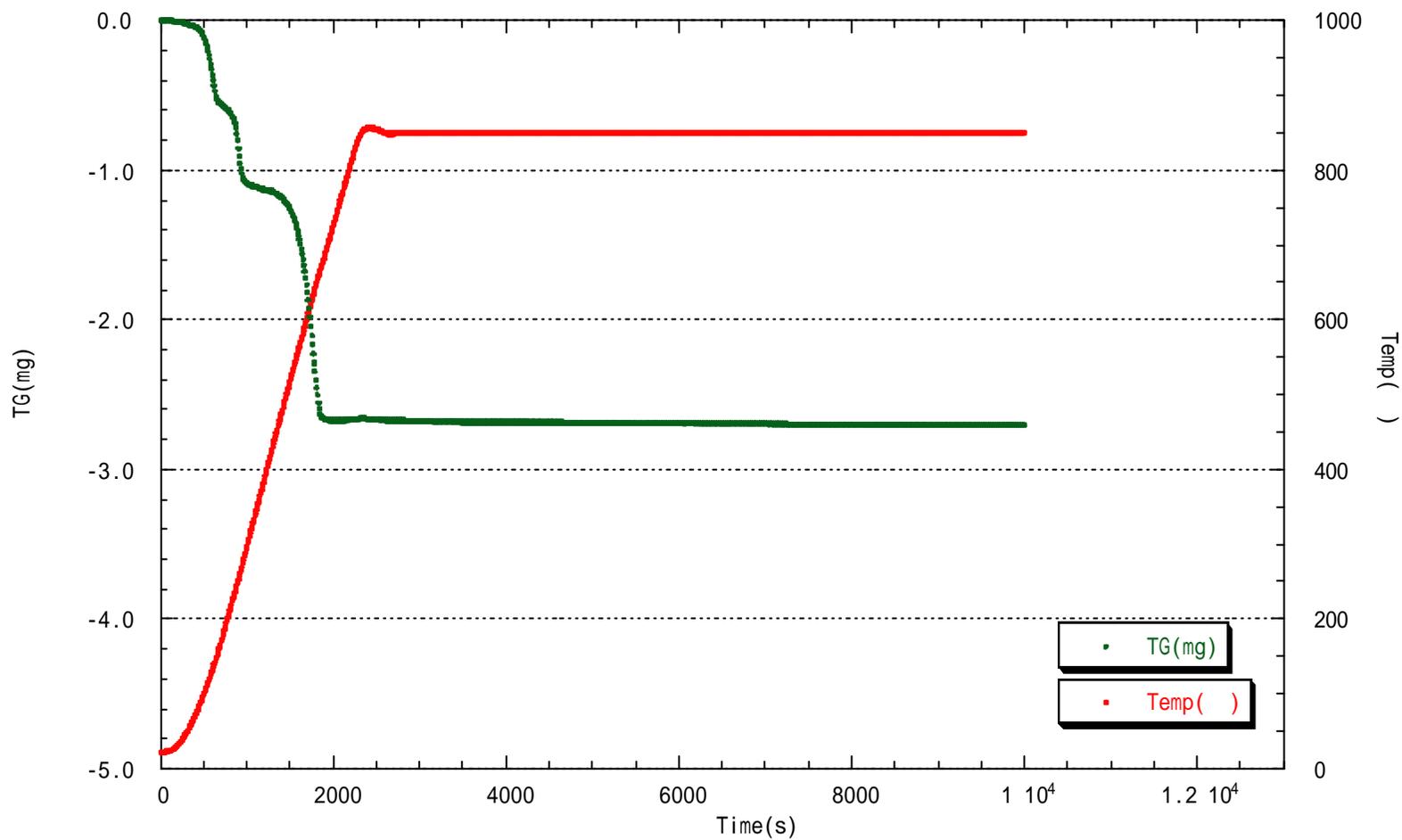


図4 UO₂原料粉末の熱分析測定結果

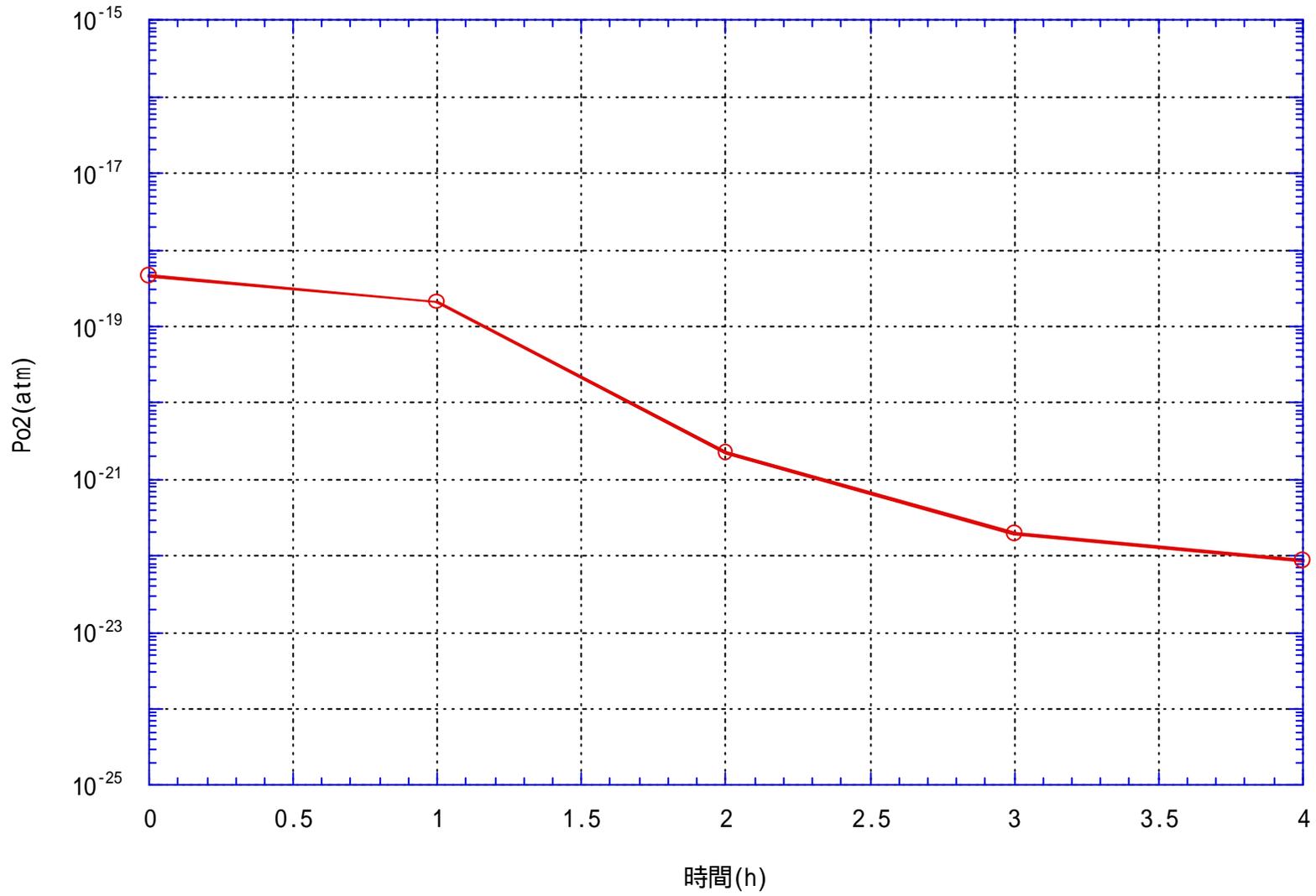


図5 原料粉末熱処理時の酸素分圧変化

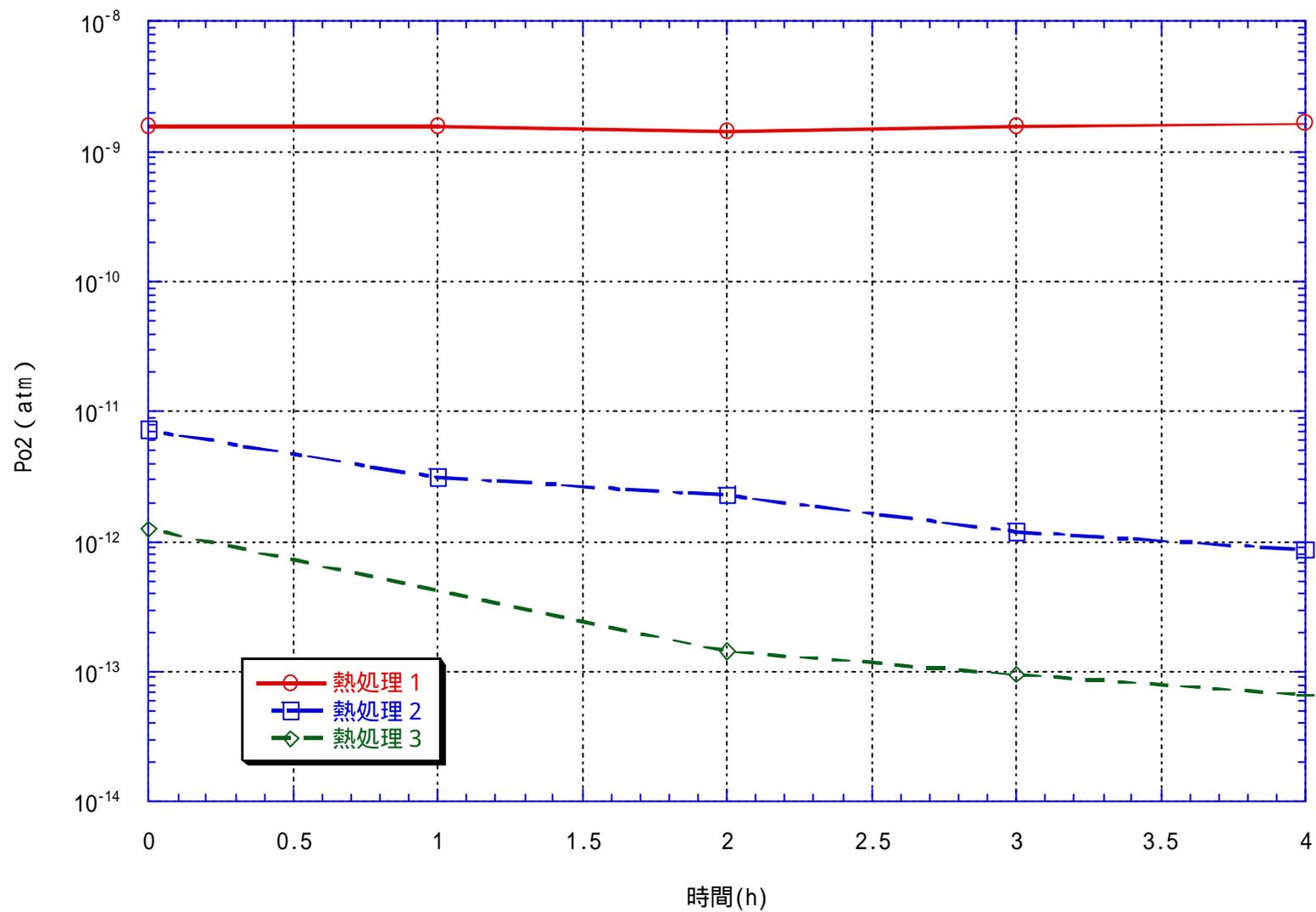


図6 1700 焼結中の酸素分圧変化

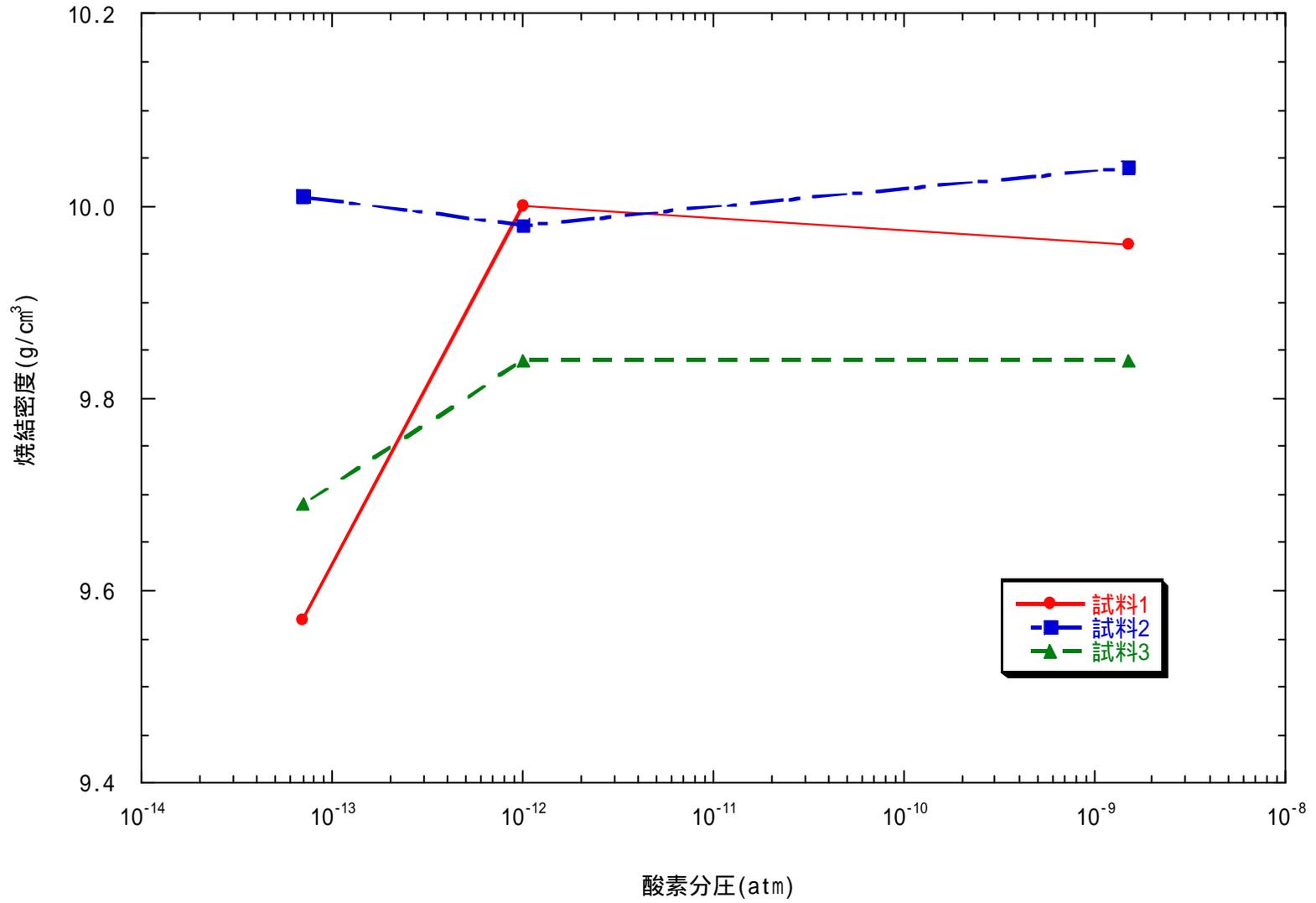
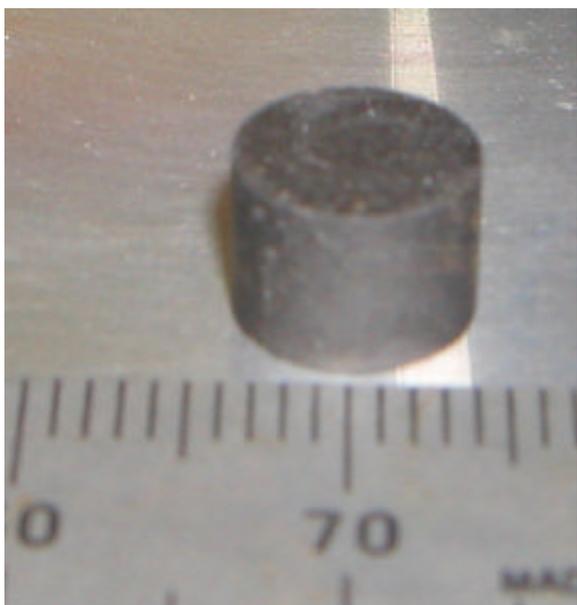


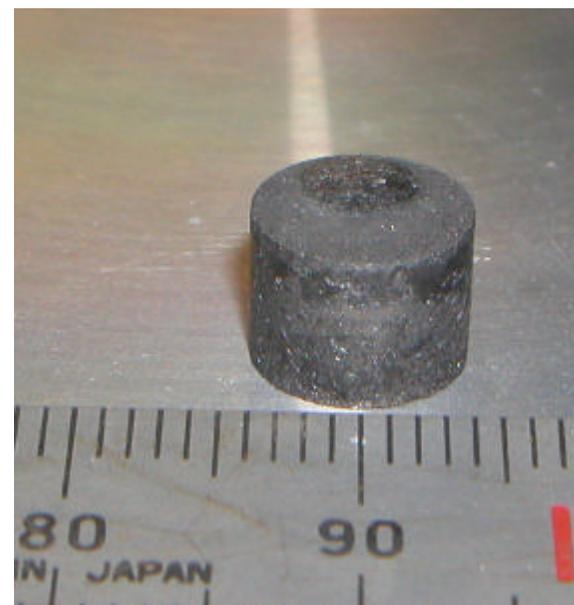
図7 焼結中の酸素分圧と焼結密度の関係



試料-1

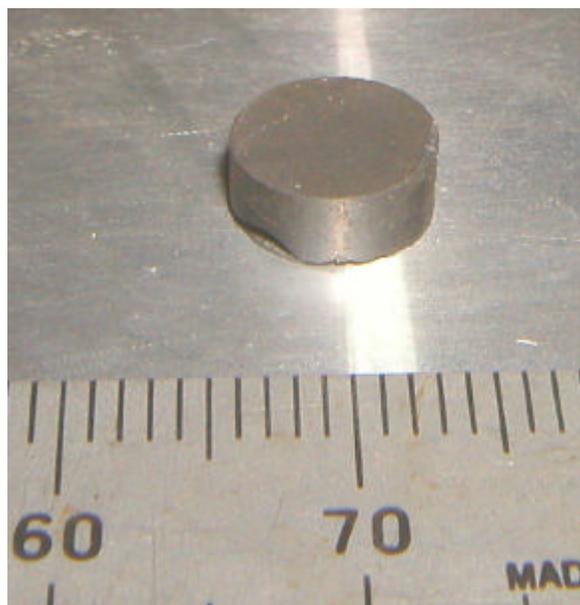


試料-2

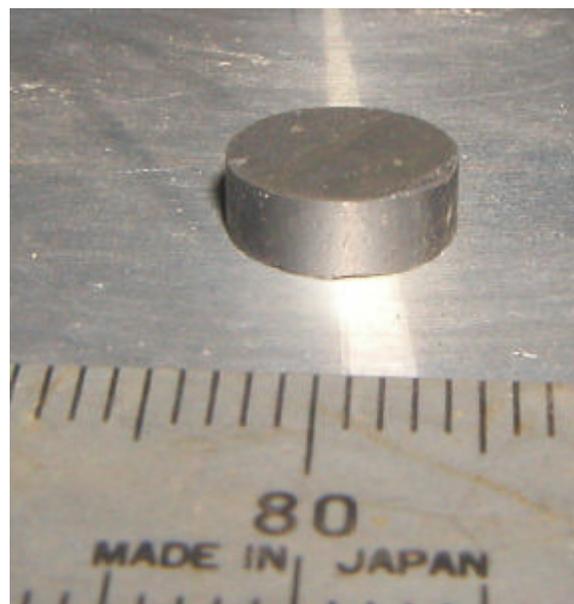


試料-3

図8 1700 °C × 4h, $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm で焼結したペレットの外観



試料-1

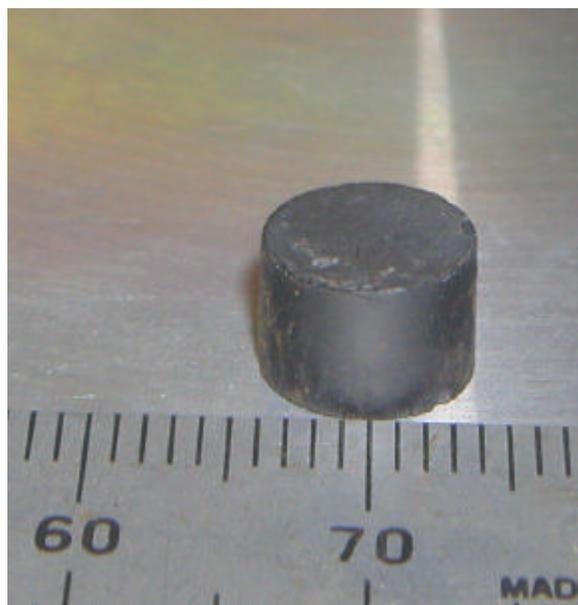


試料-2



試料-3

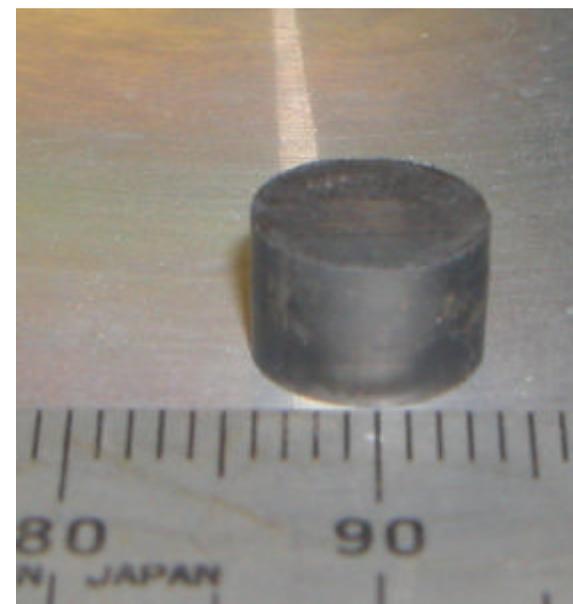
図9 1700 °C × 4h, $P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm で焼結したペレットの外観



試料-1

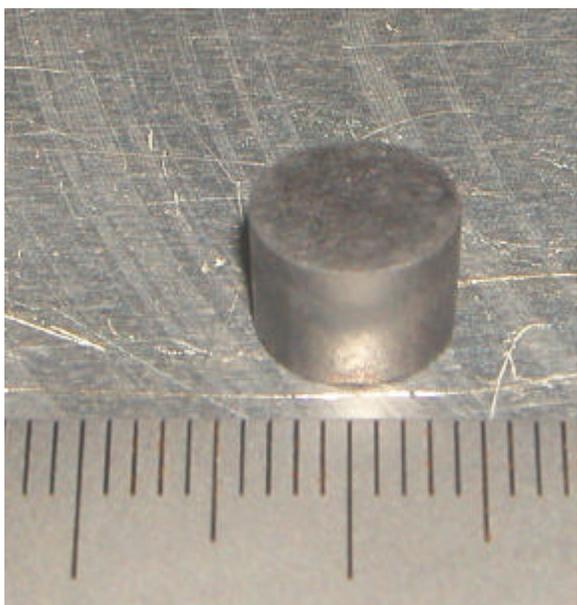


試料-2

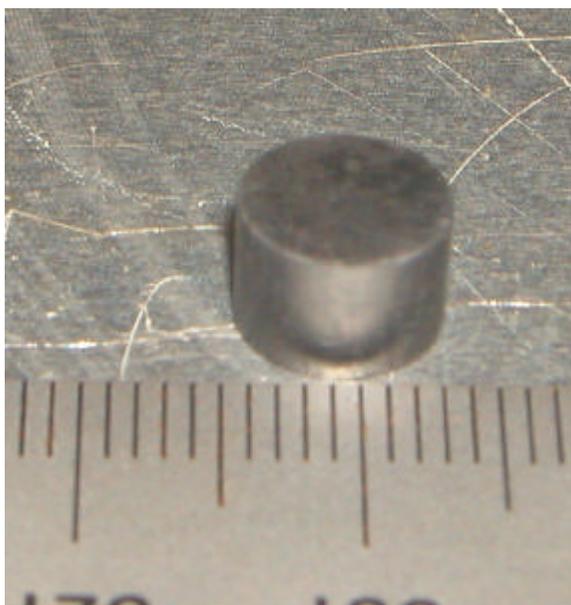


試料-3

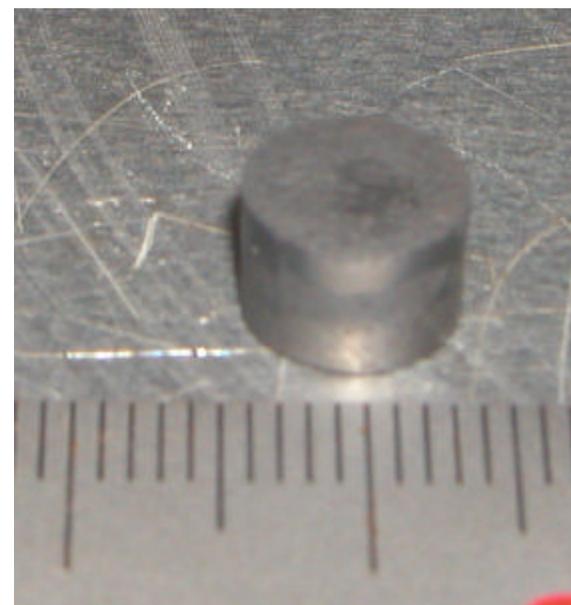
図10 1700 °C × 4h, $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atmで焼結したペレットの外観



試料-1



試料-2



試料-3

図11 1350 × 10h , $P_{O_2}=1 \times 10^{-17}$ atmで熱処理したペレットの外観

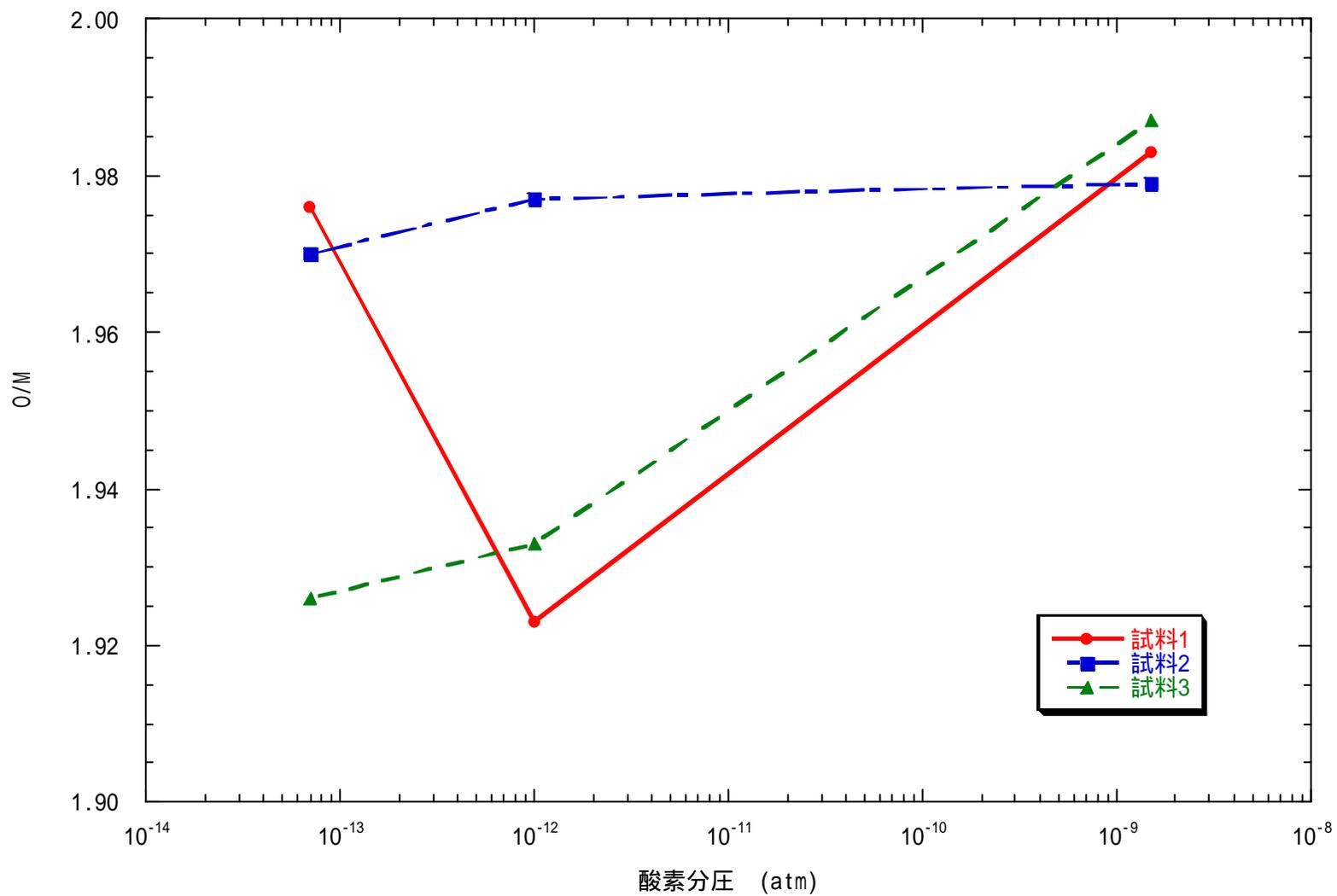


図12 焼結中の酸素分圧とO/M

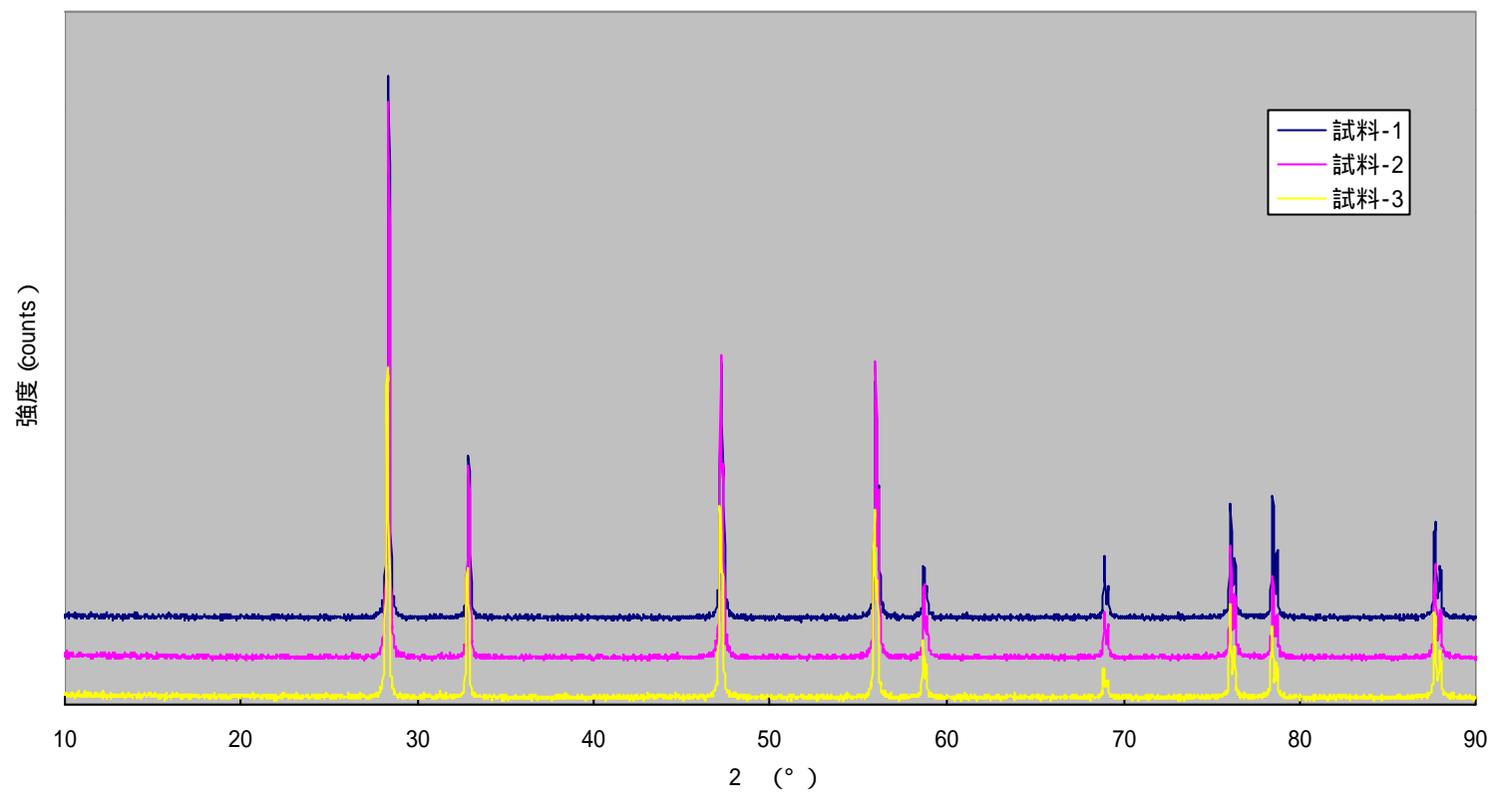


図13 熱処理 1 ($P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(低角側)

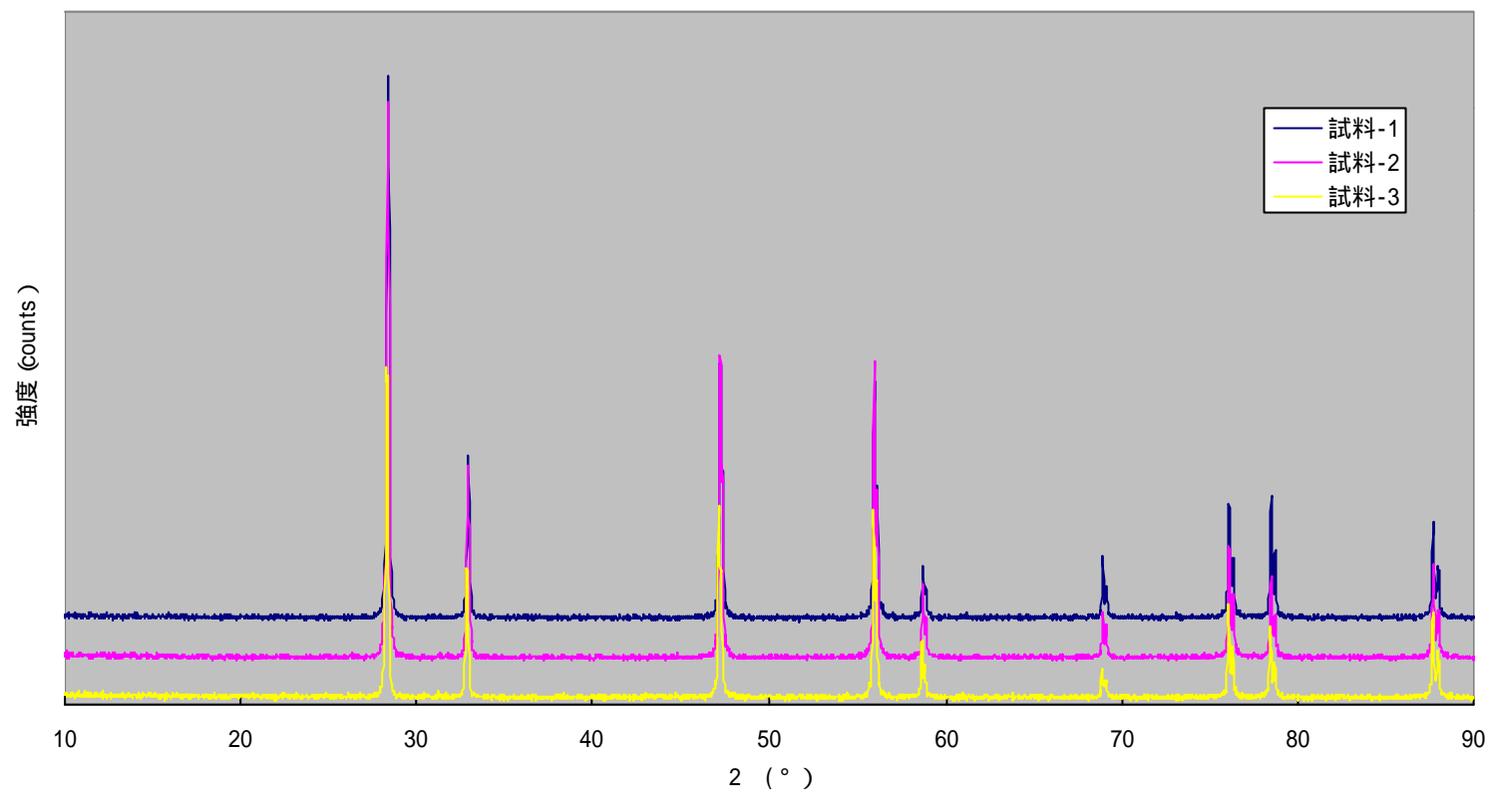


図14 熱処理 2 ($P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(低角側)

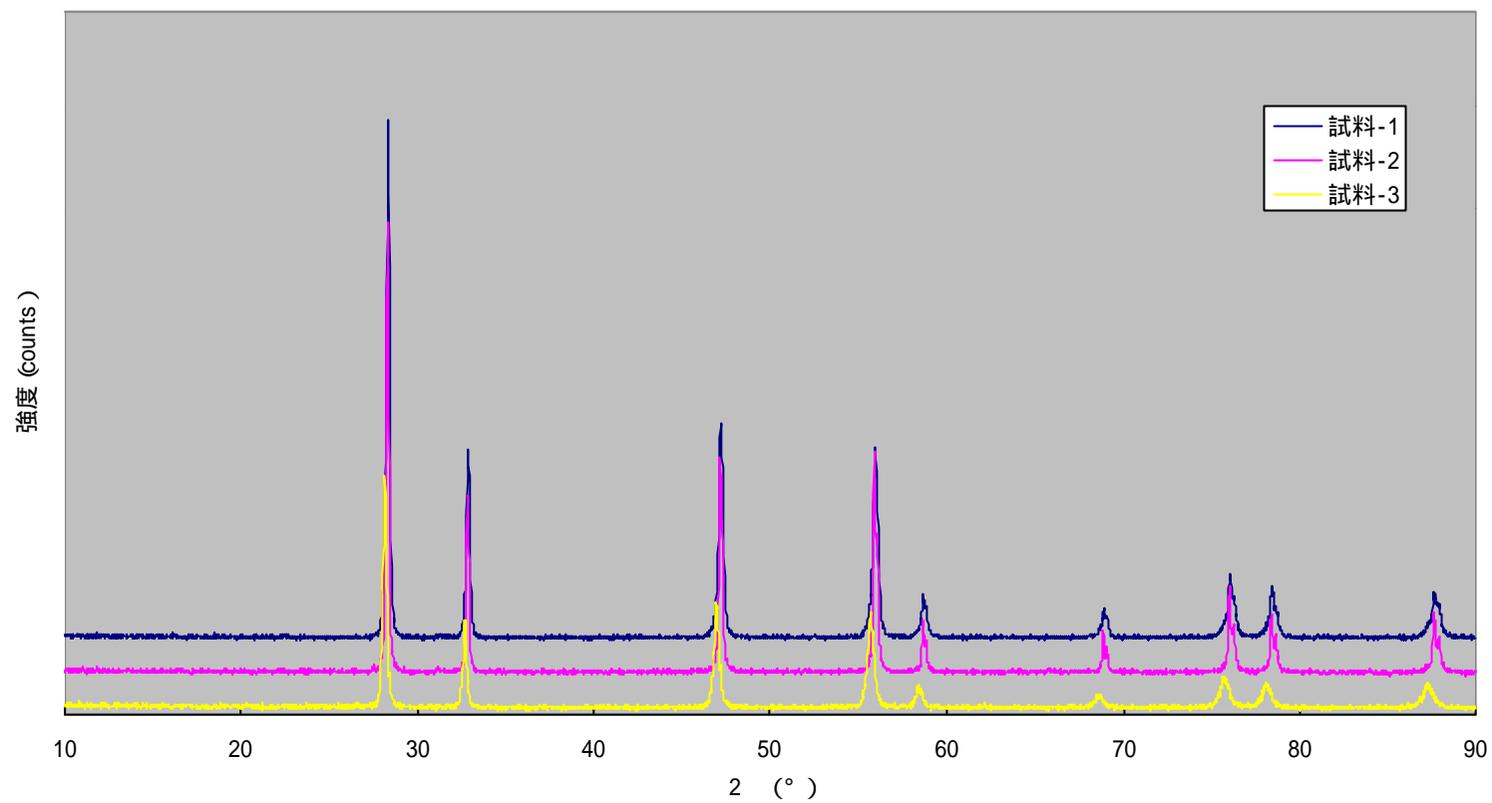


図15 熱処理 3 ($P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(低角側)

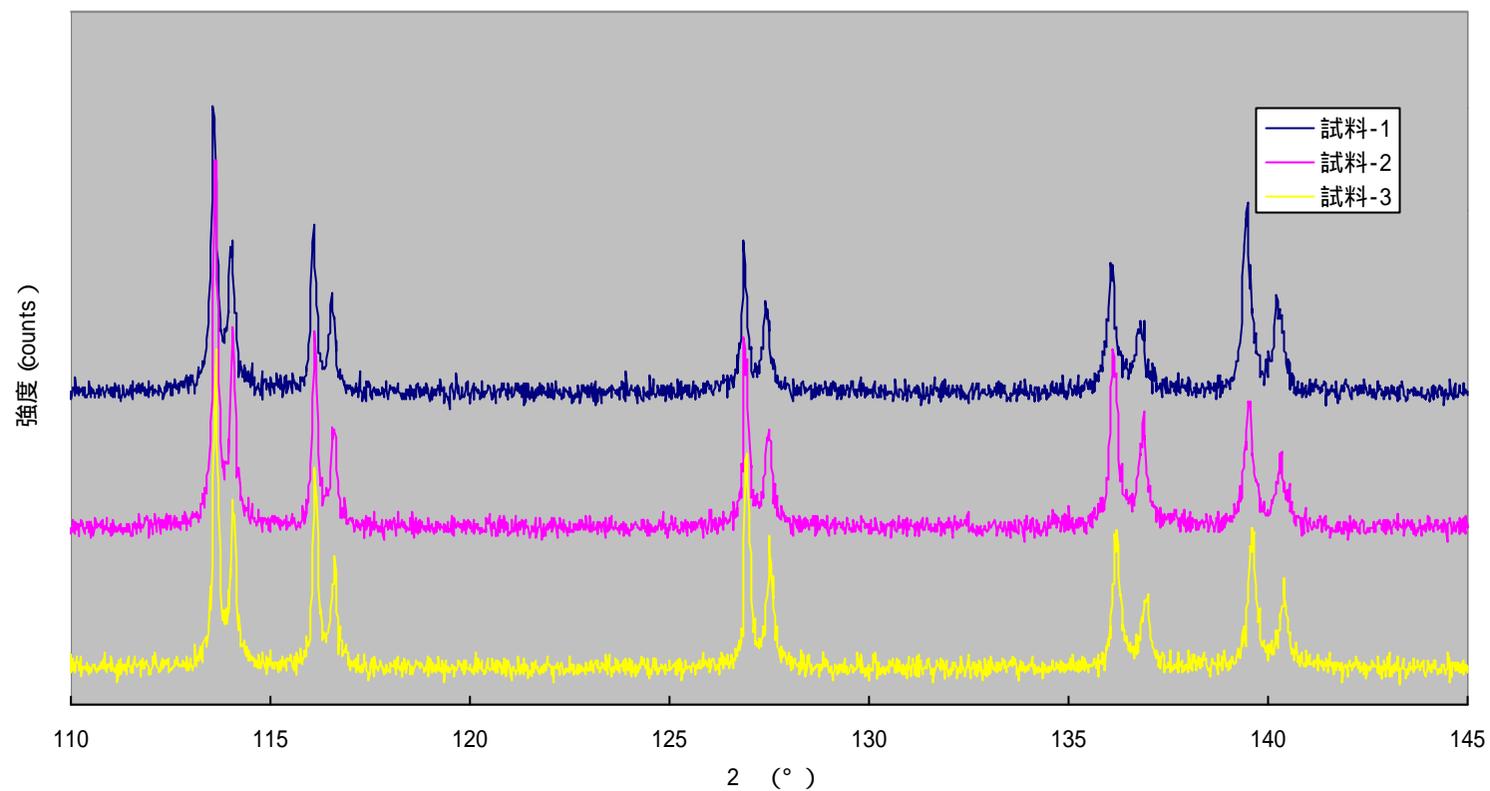


図16 熱処理 1 ($P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(高角側)

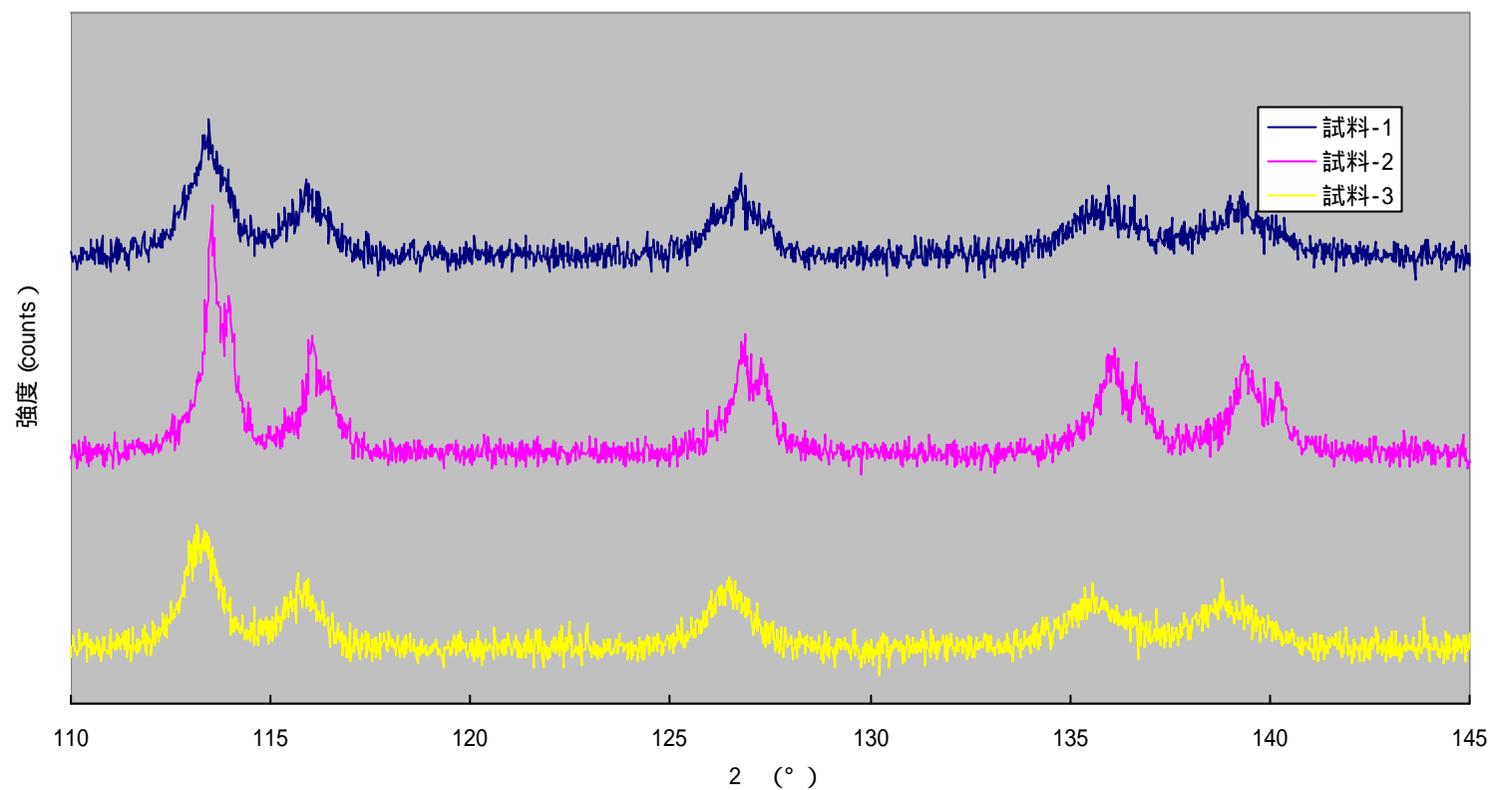


図17 熱処理 2 ($P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(高角側)

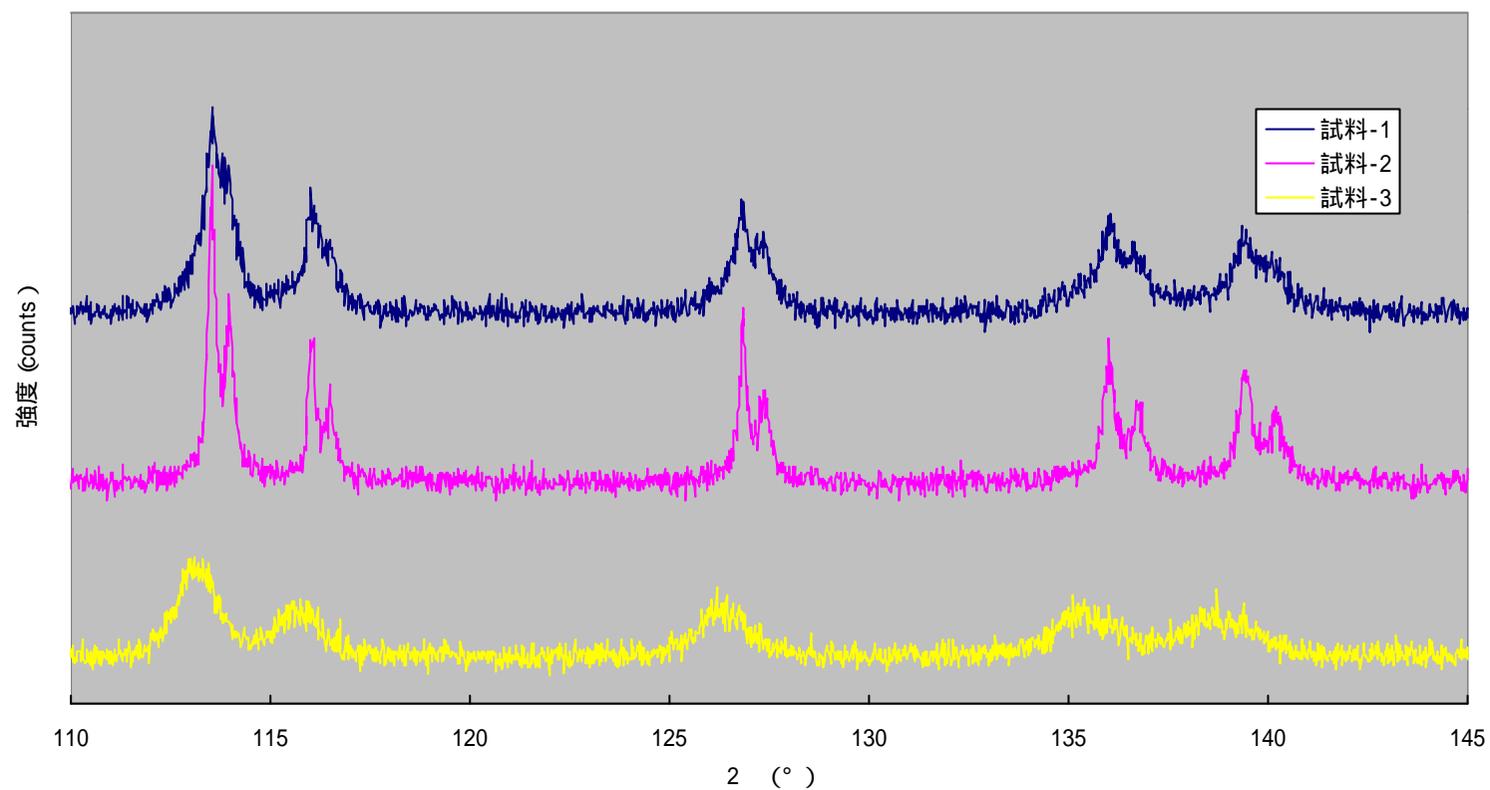


図18 熱処理 3 ($P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン
(高角側)

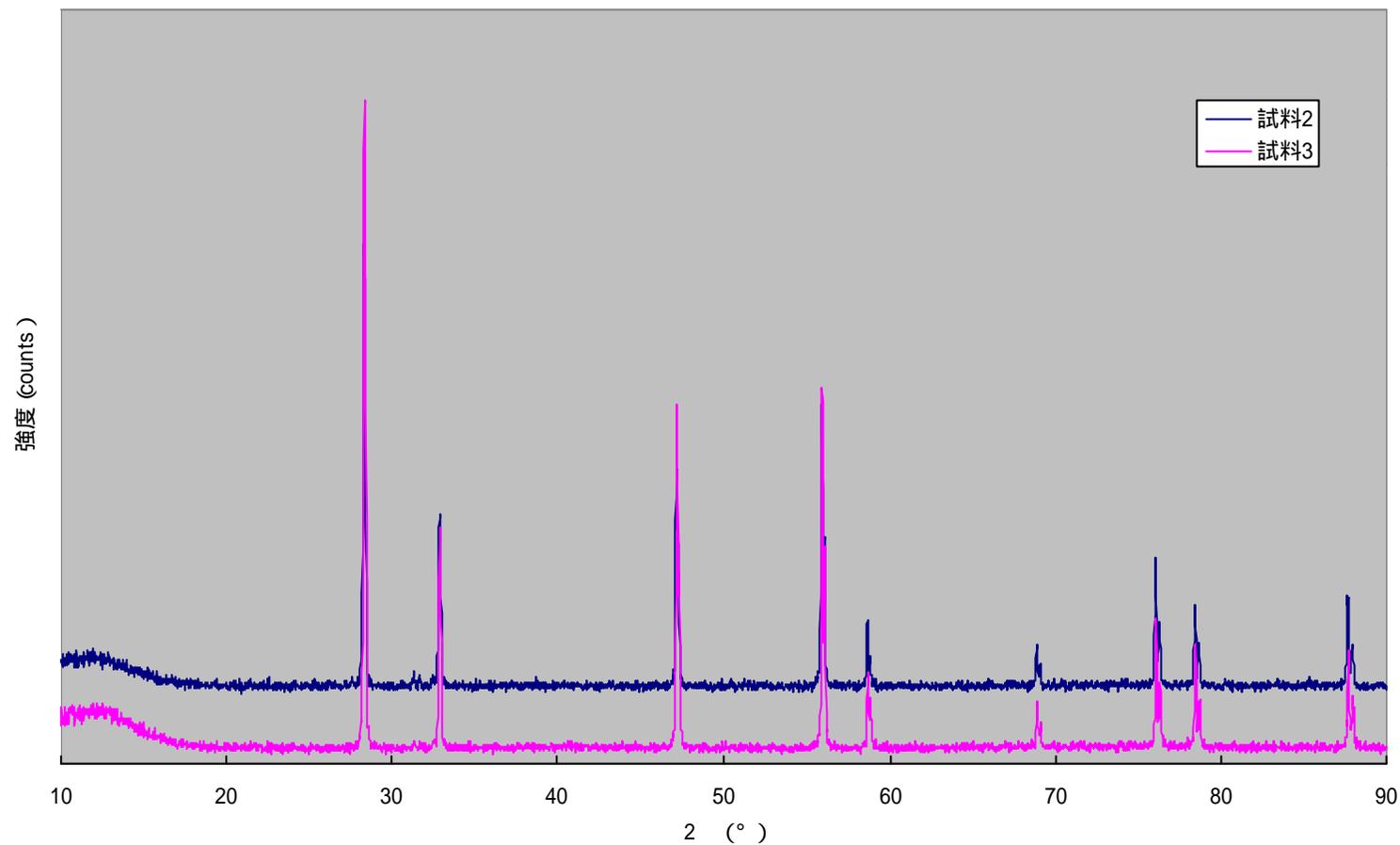


図19 熱処理4 (1500 °C × 3h , $P_{O_2} = 4 \times 10^{-10}$ atm) で焼結したペレットのX線回折パターン (低角側)

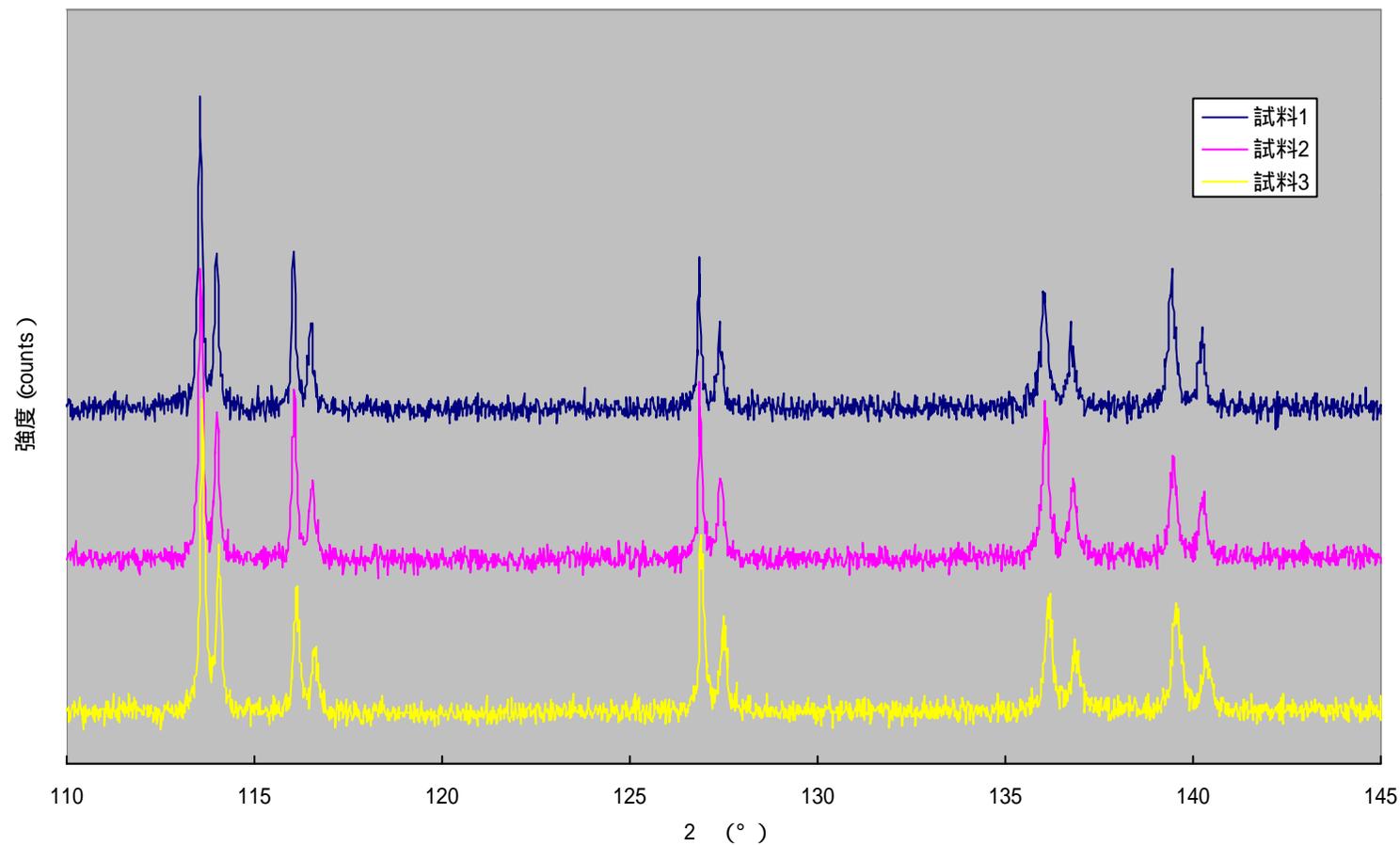


図20 熱処理4 ($1500 \times 3\text{h}$, $P_{\text{O}_2} = 4 \times 10^{-10} \text{ atm}$) で焼結したペレットのX線回折パターン (高角側)

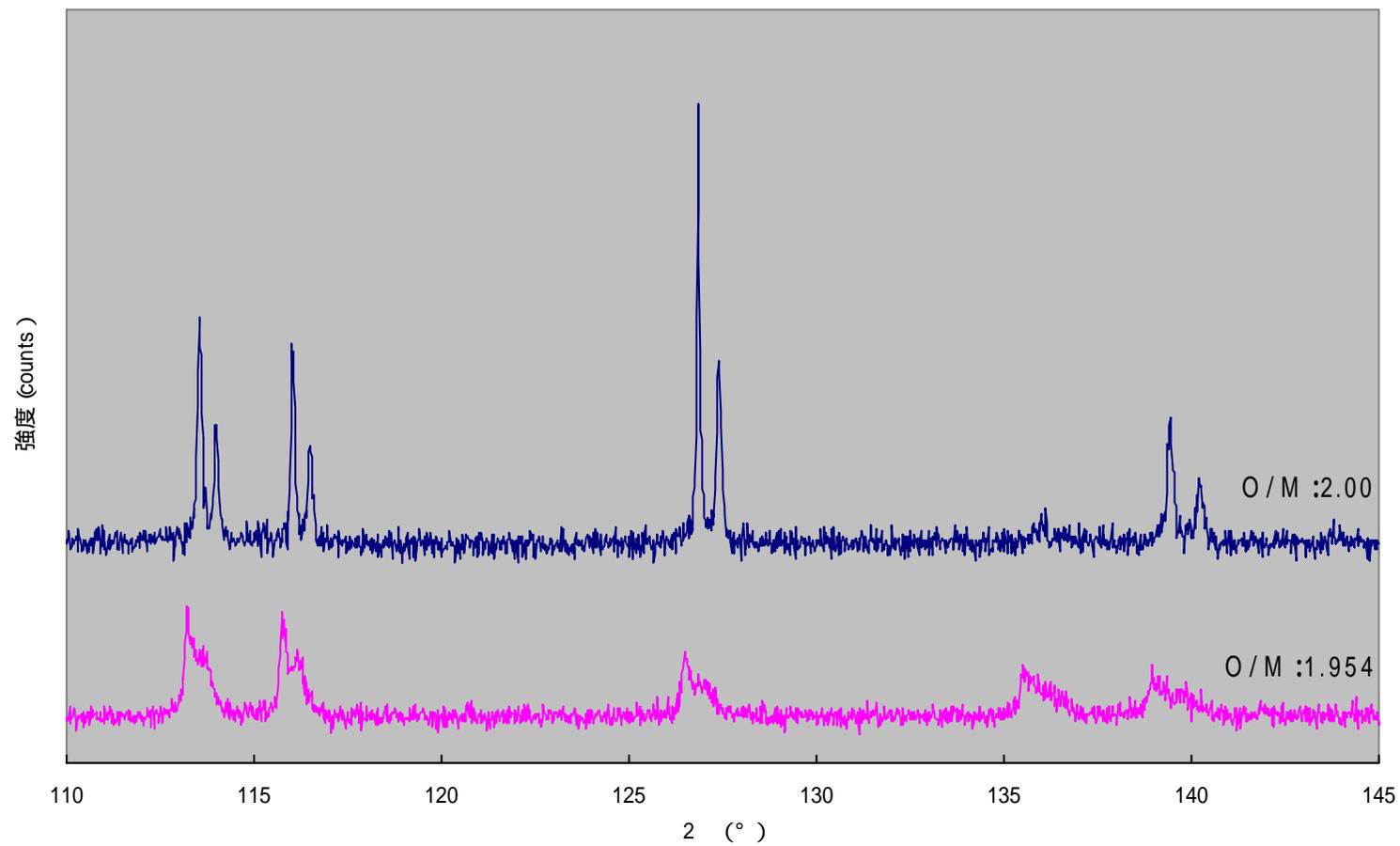


図21 試料1のO/Mの違いによるX線回折パターン
(高角側)

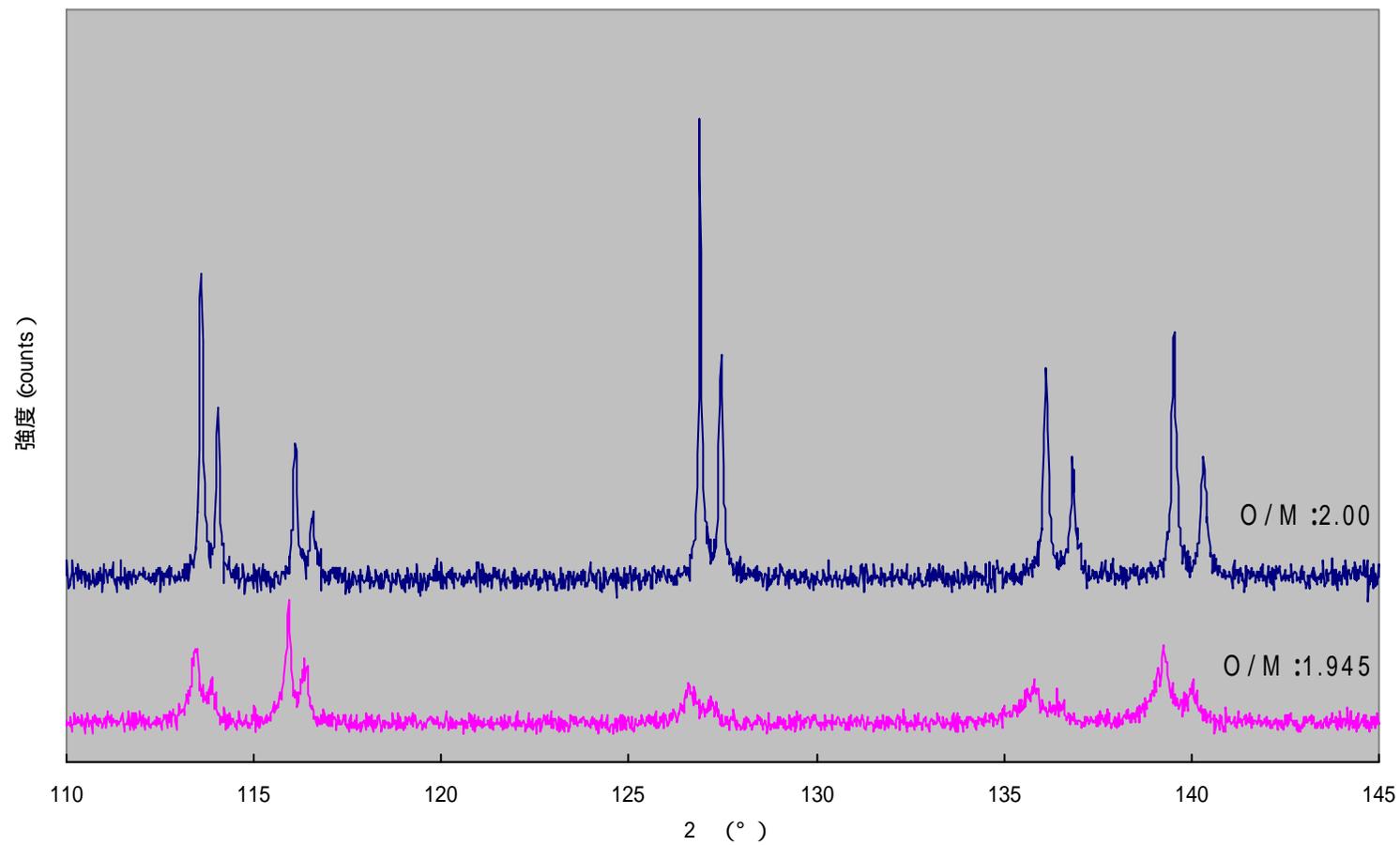


図22 試料2のO/Mの違いによるX線回折パターン
(高角側)

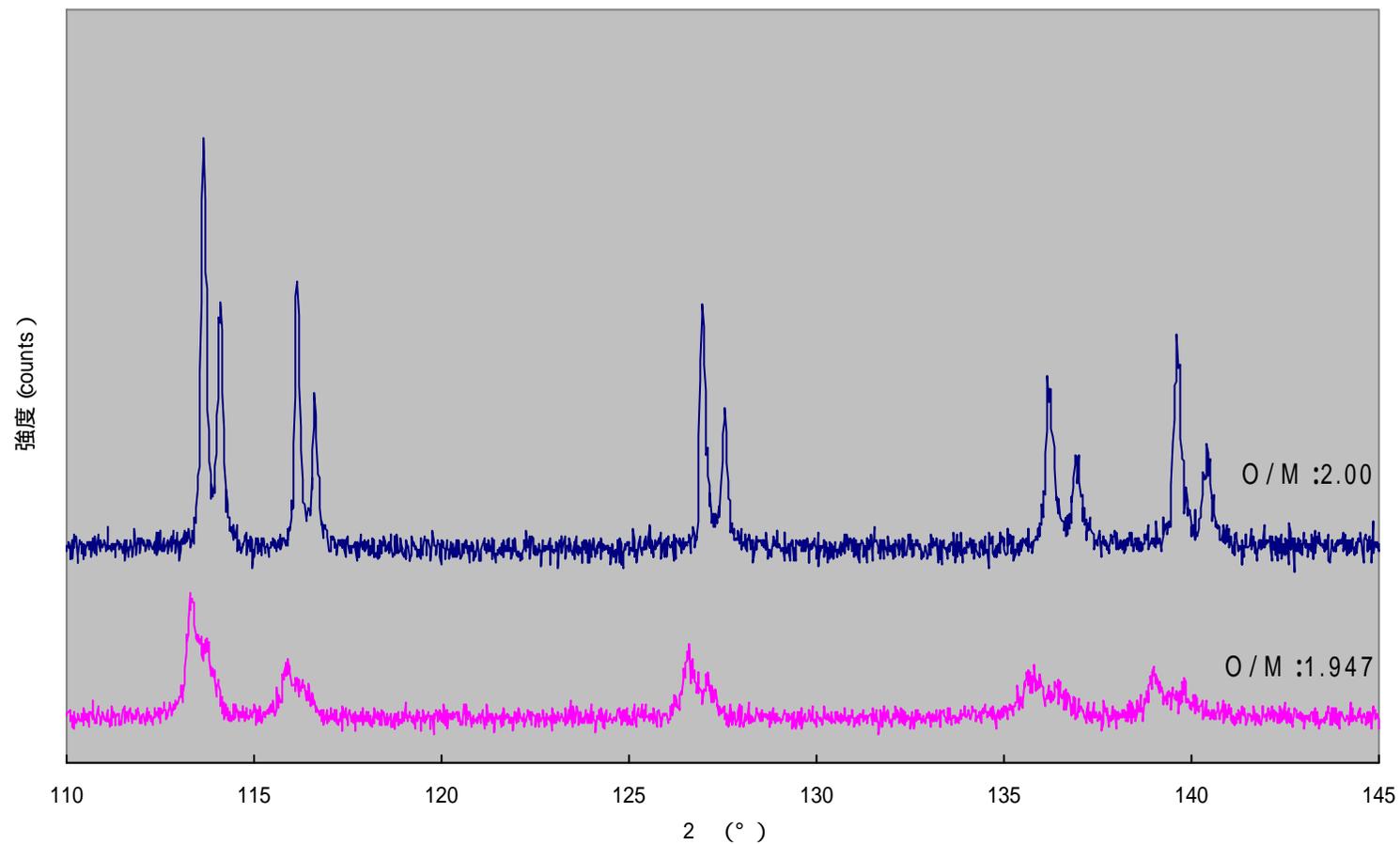


図23 試料3のO/Mの違いによるX線回折パターン
(高角側)

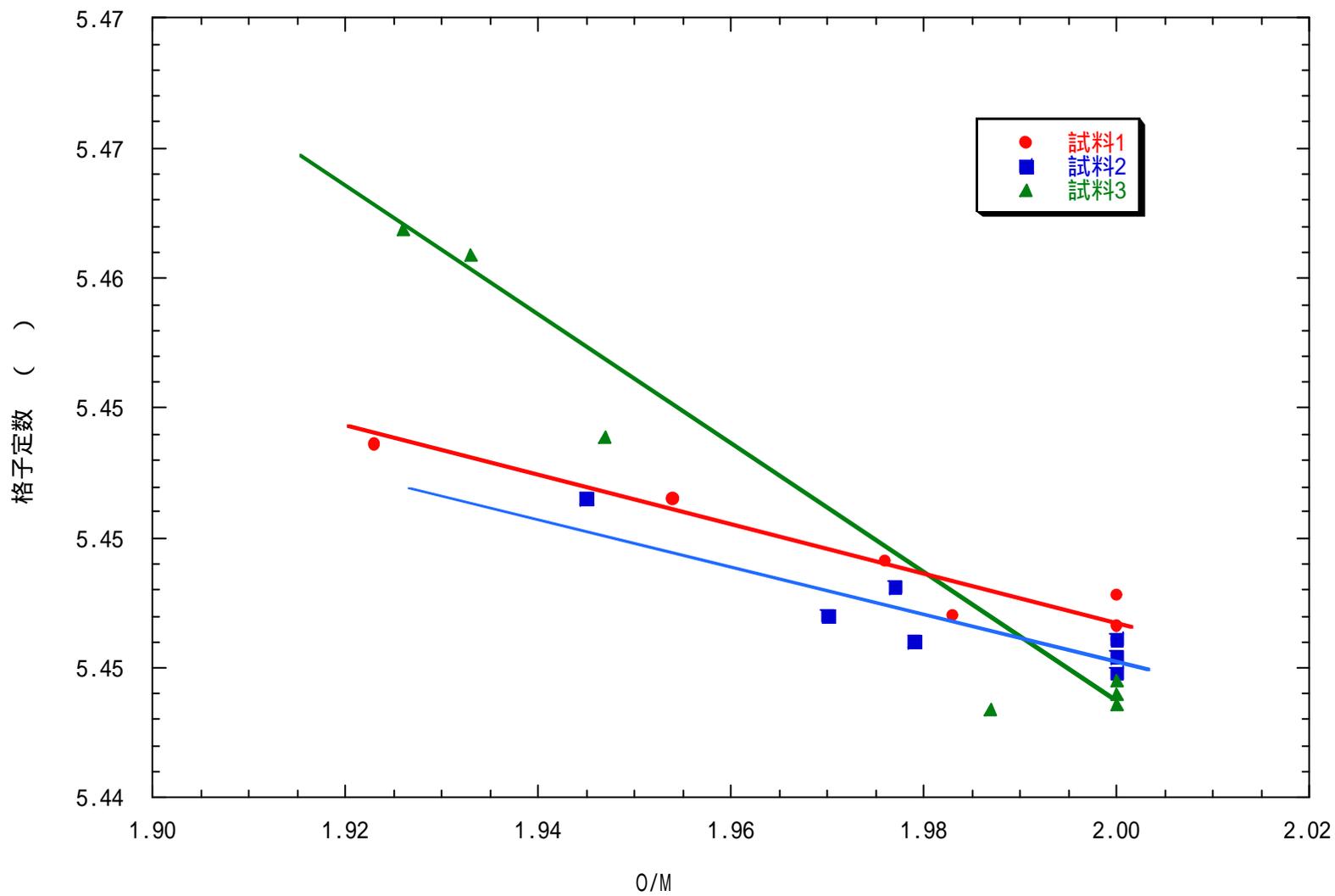
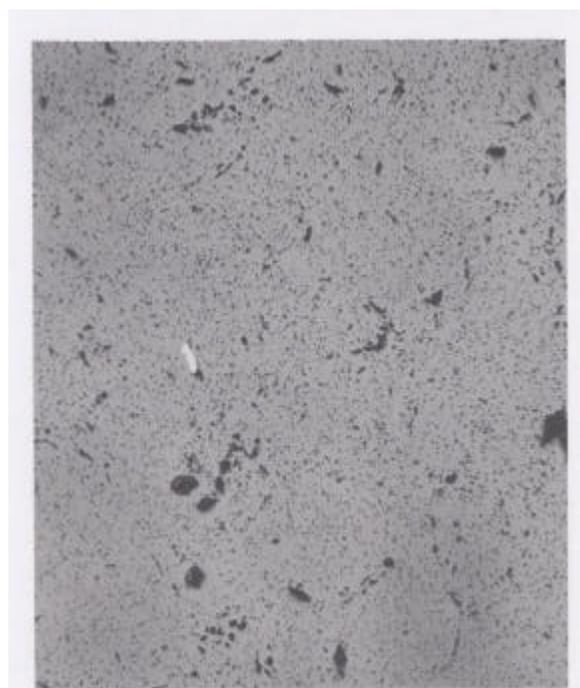
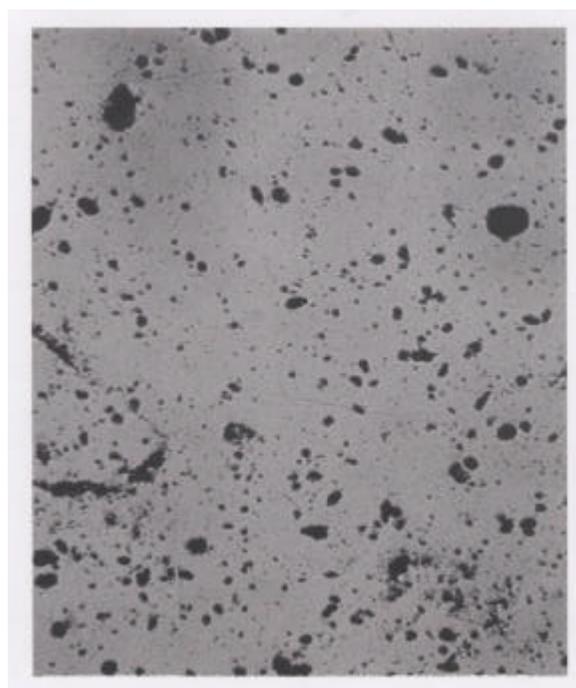


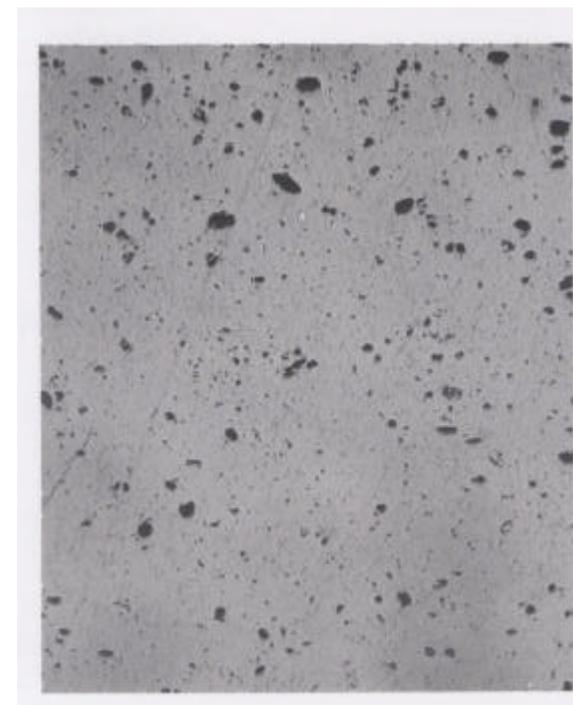
図24 O/Mと格子定数の関係



熱処理 1
($P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm)



熱処理 2
($P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm)



熱処理 3
($P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm)

└── 200 μm

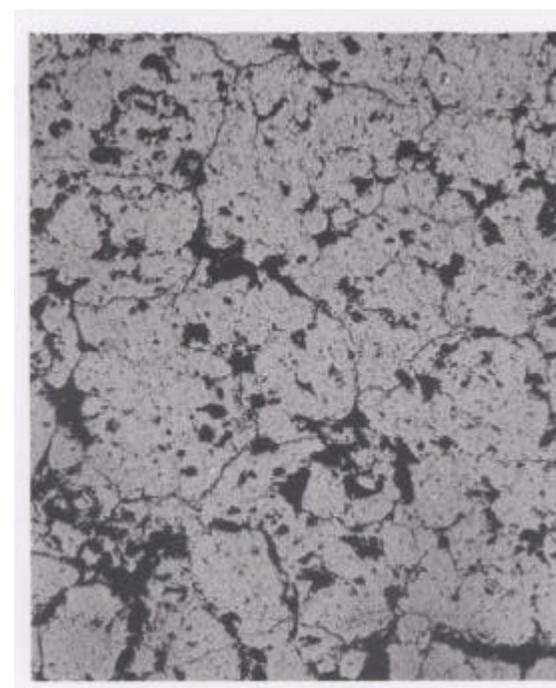
図25 試料 1 の金相観察 (研磨後)



熱処理 1
($P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm)



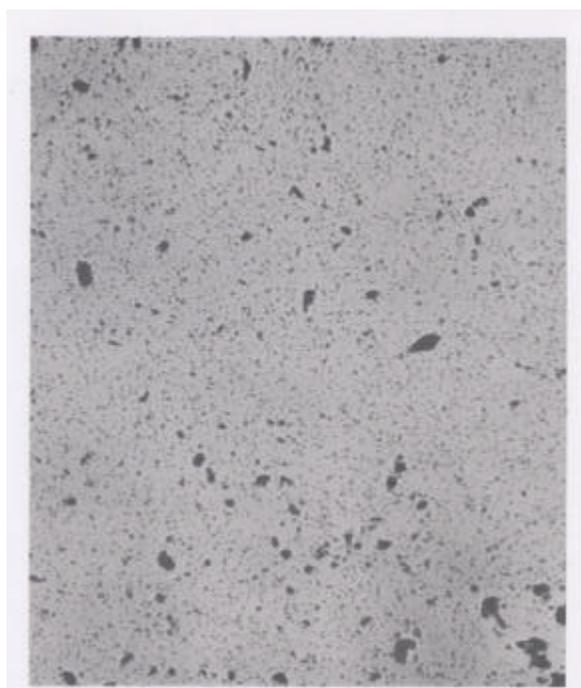
熱処理 2
($P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm)



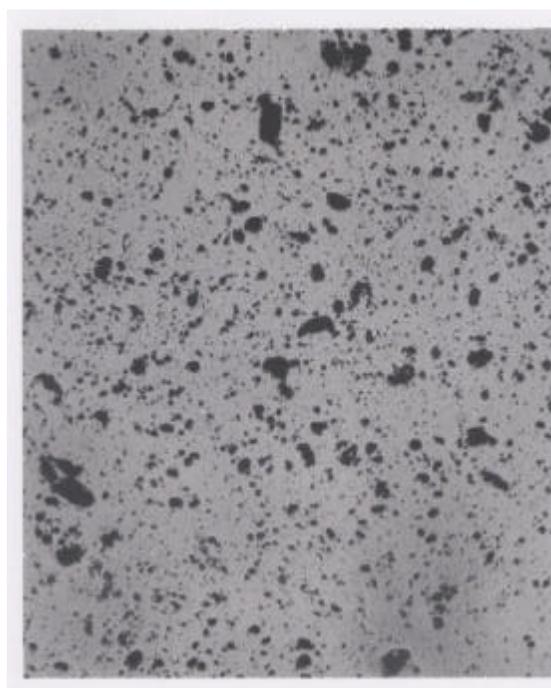
熱処理 3
($P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm)

┌───┐ 200 μm

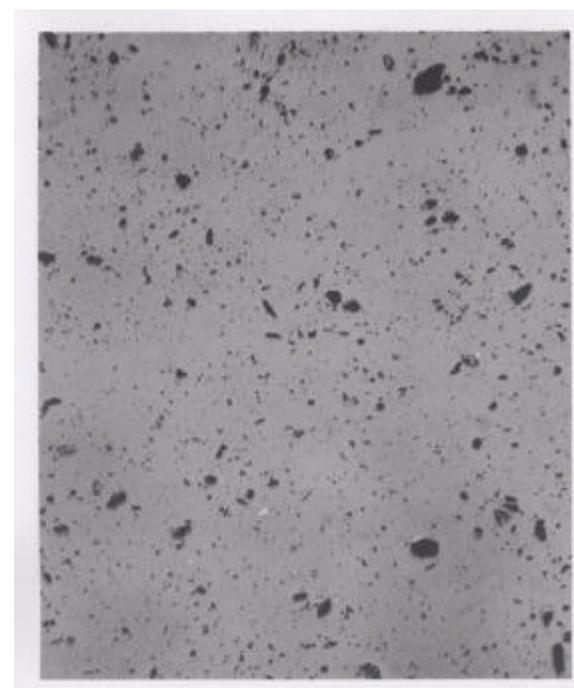
図26 試料 2 の金相観察 (研磨後)



熱処理 1
($P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm)



熱処理 2
($P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm)



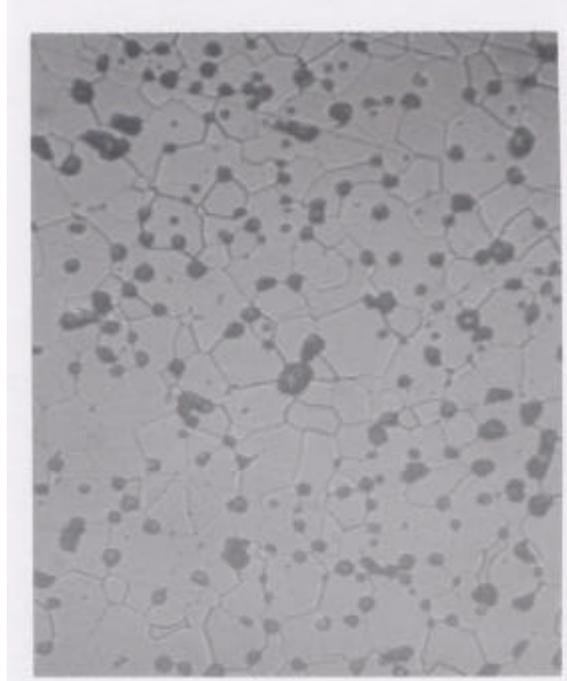
熱処理 3
($P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm)

┌ 200 μm

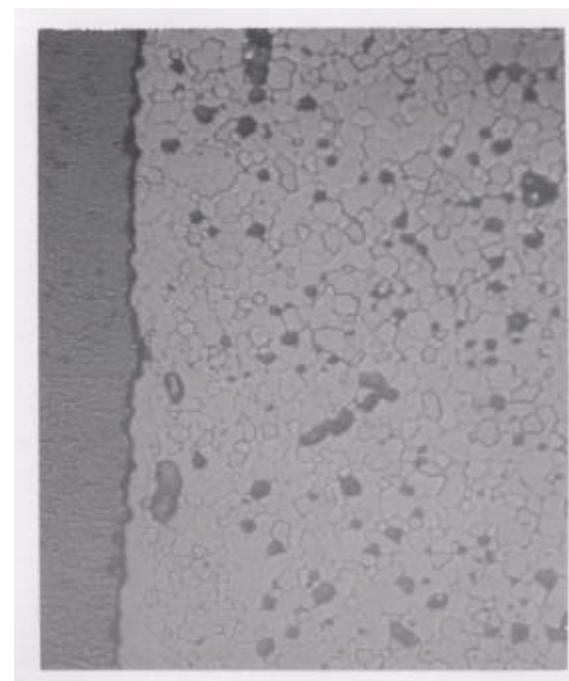
図27 試料3の金相観察（研磨後）



中心部



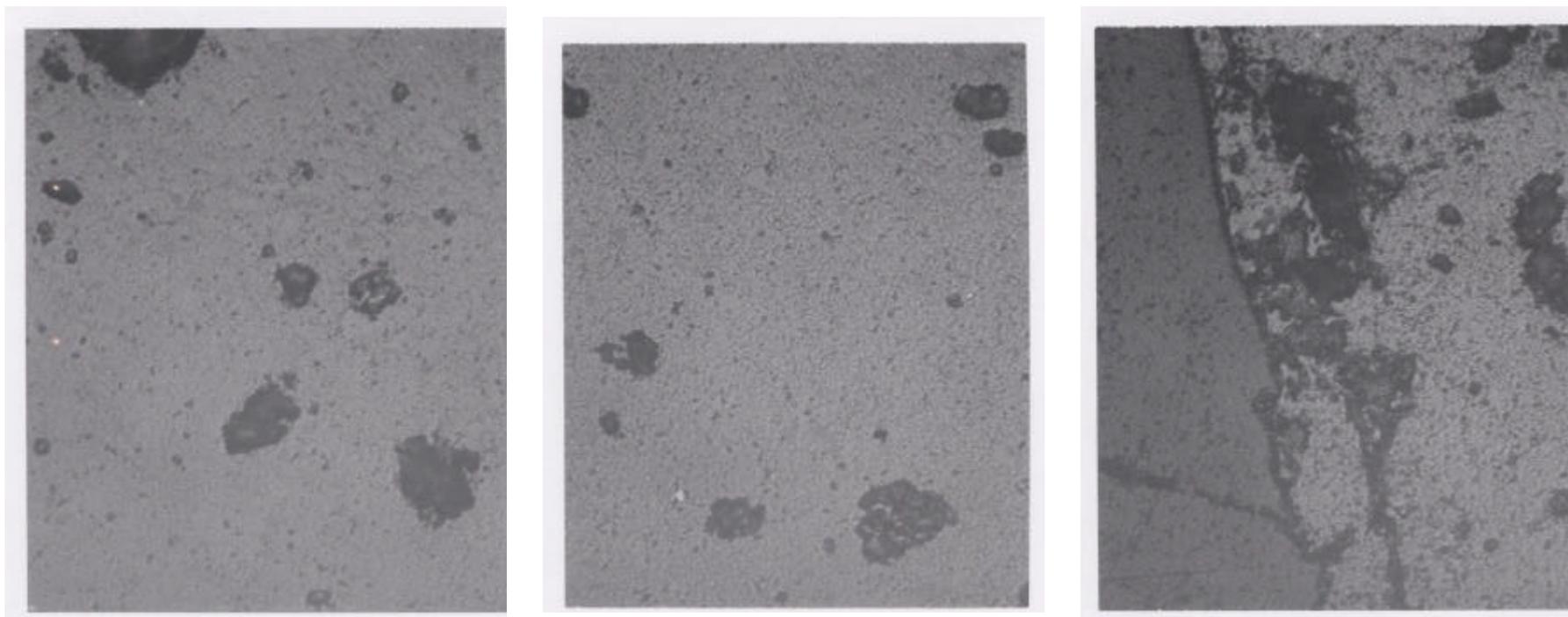
中間部



端部

└── 30 μm

図28 試料1 (1700 × 4h , $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm) の金相観察 (CVE後)



中心部

中間部

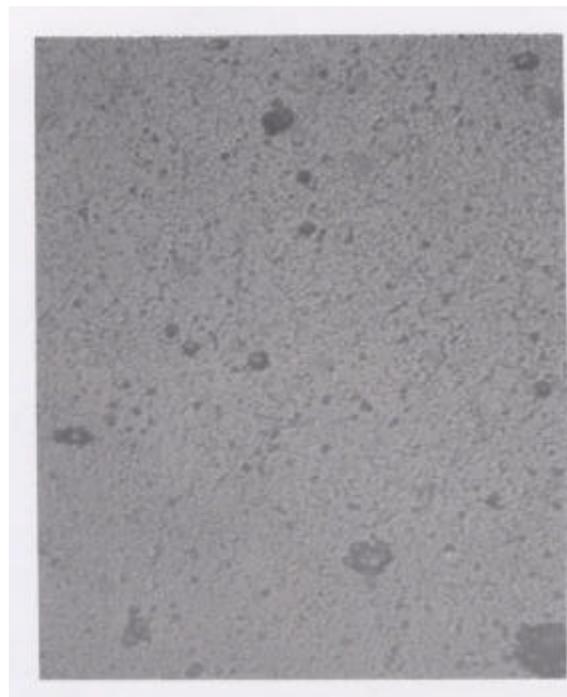
端部

30 μm

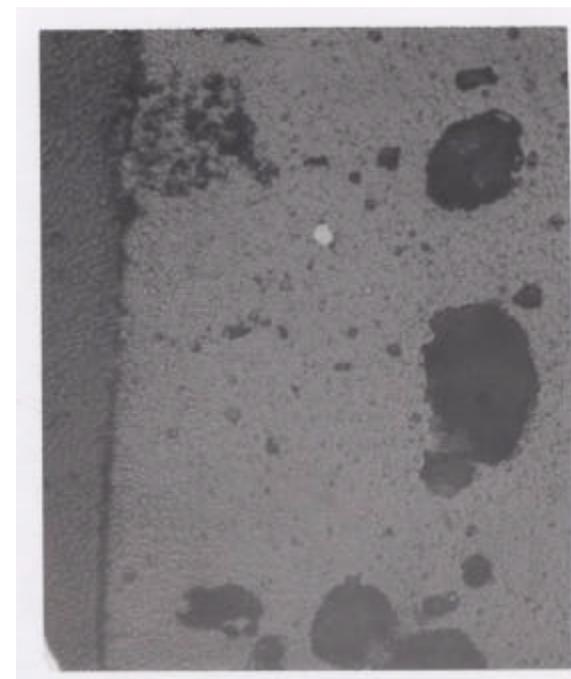
図29 試料1 (1700 × 4h, $P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm) の金相観察(CVE後)



中心部



中間部



端部

└── 30 μm

図30 試料1 (1700 × 4h, $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm) の金相観察(CVE後)

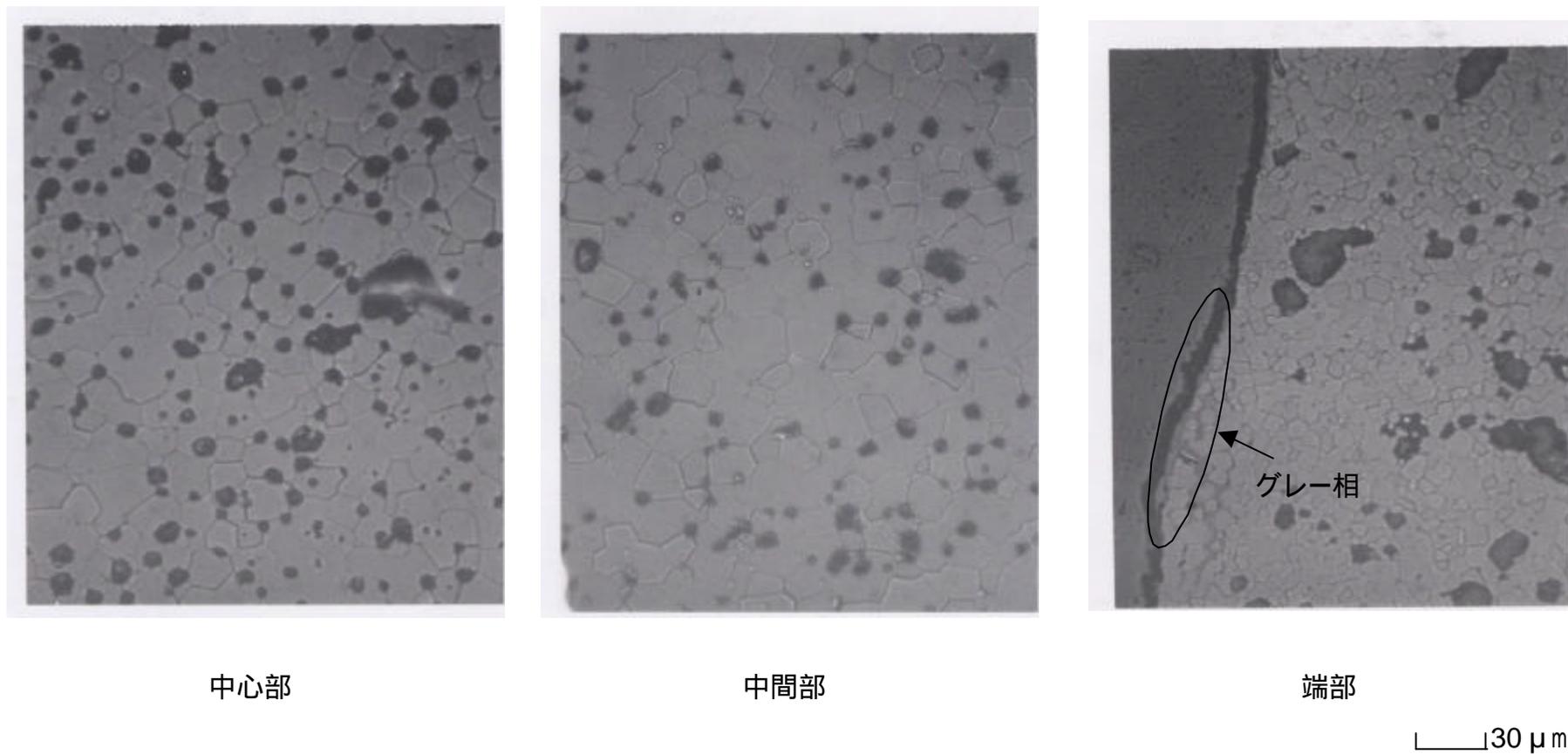
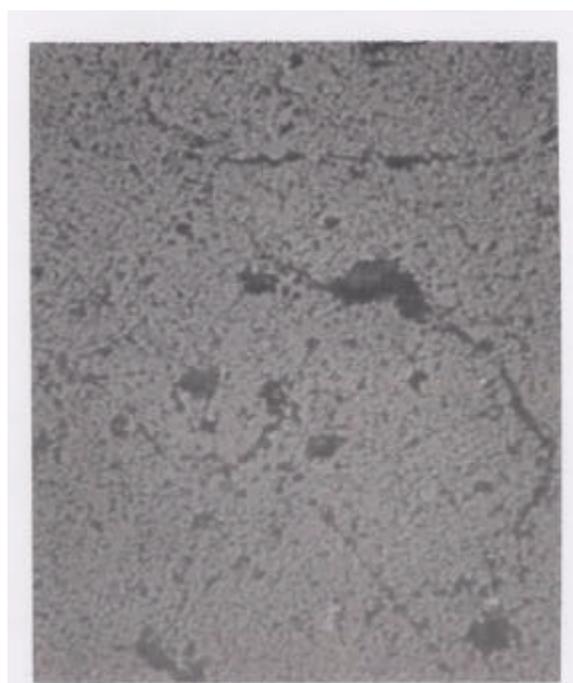
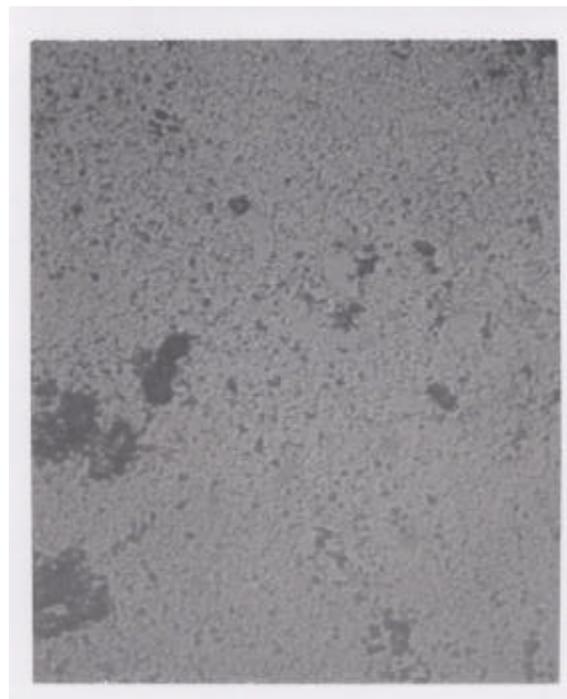


図31 試料2 (1700 × 4h , $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm) の金相観察 (CVE後)



中心部



中間部



端部

└───┘ 30 μm

図32 試料2 (1700 × 4h , $P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm) の金相観察(CVE後)

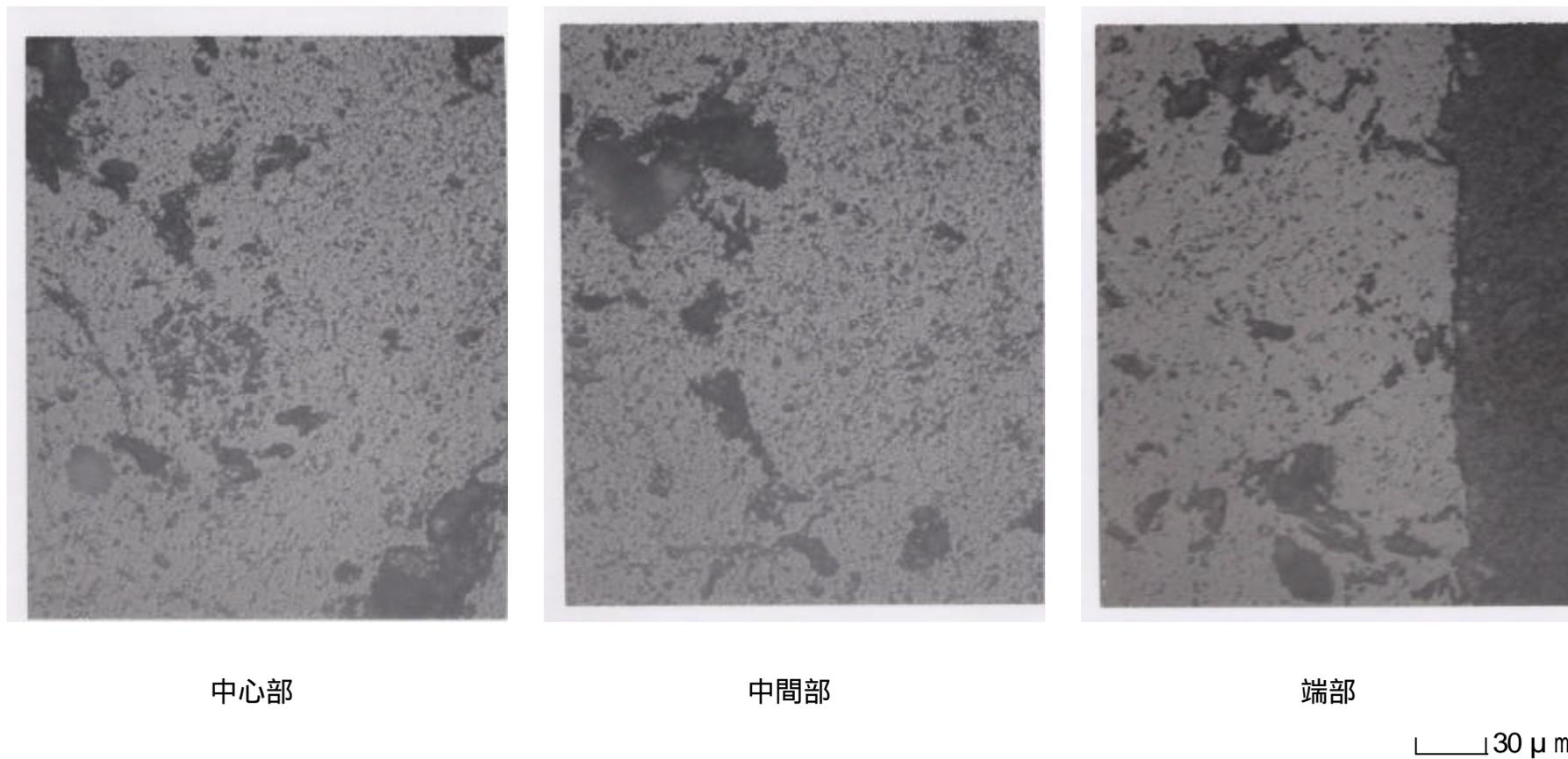


図33 試料2 (1700 × 4h , $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm) の金相観察(CVE後)

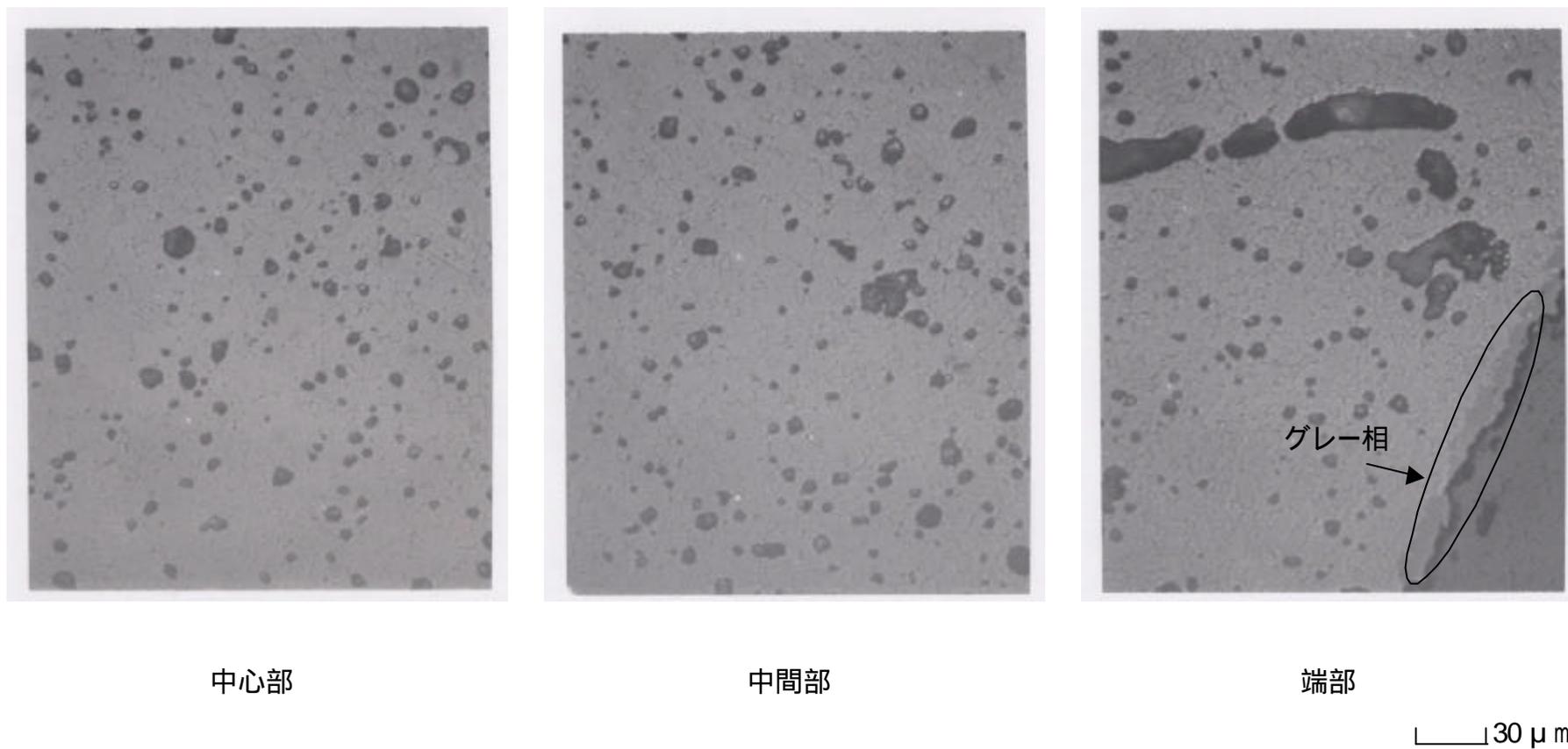


図34 試料3 (1700 × 4h , $P_{O_2}=1.5 \times 10^{-9}$ atm) の金相観察 (CVE後)

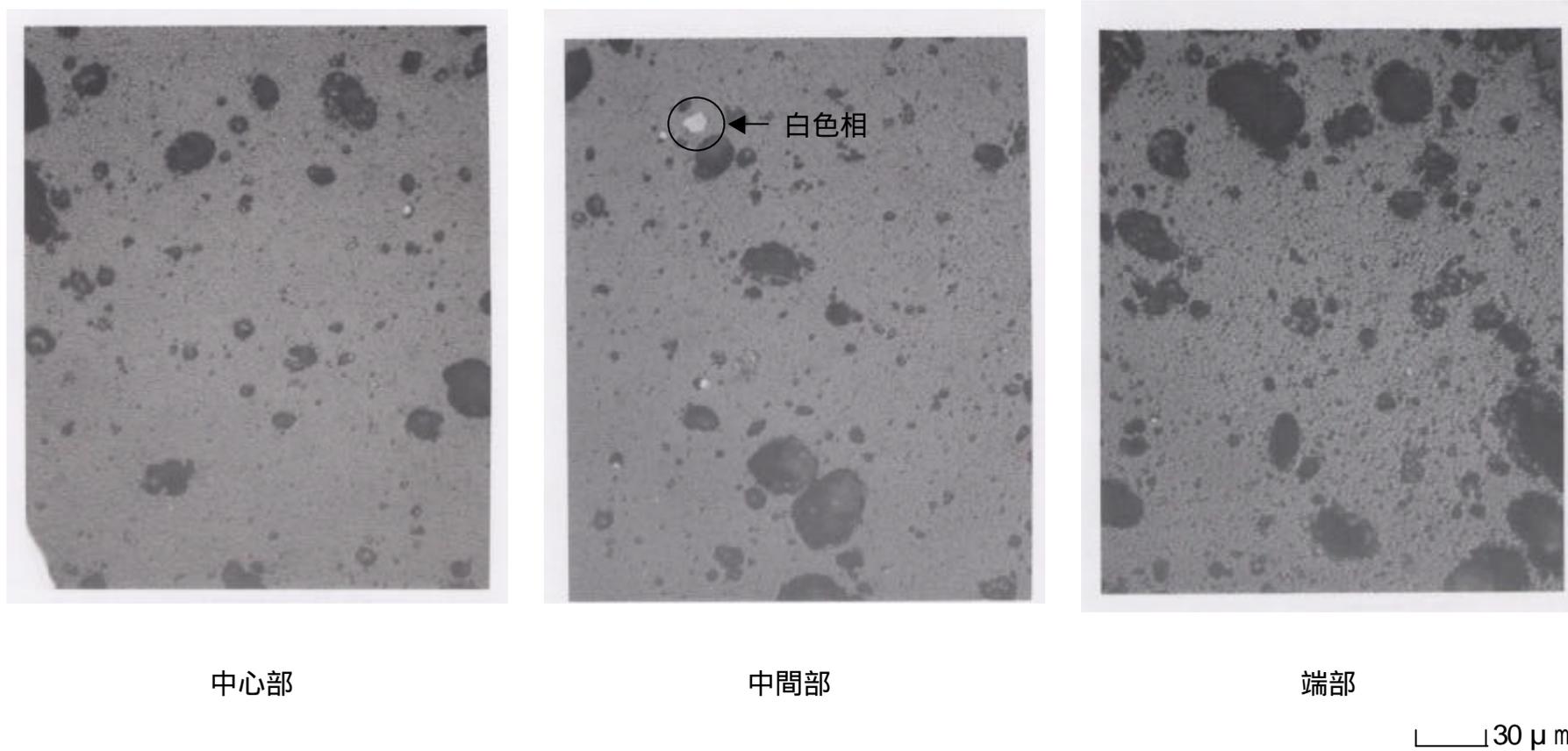
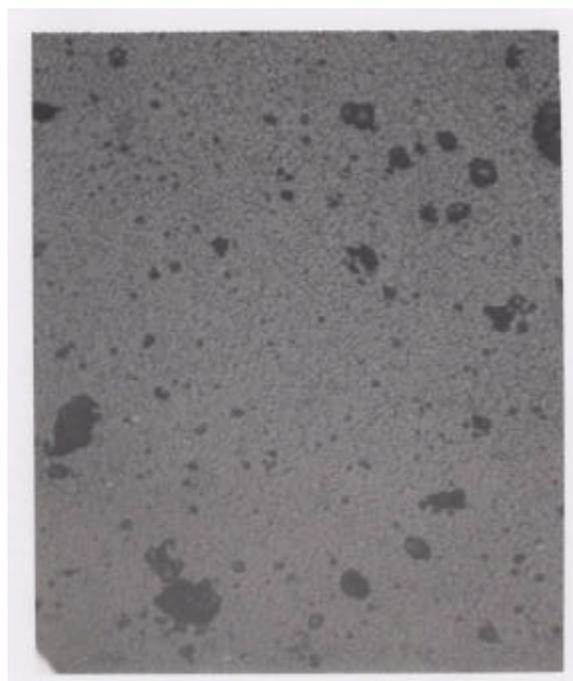
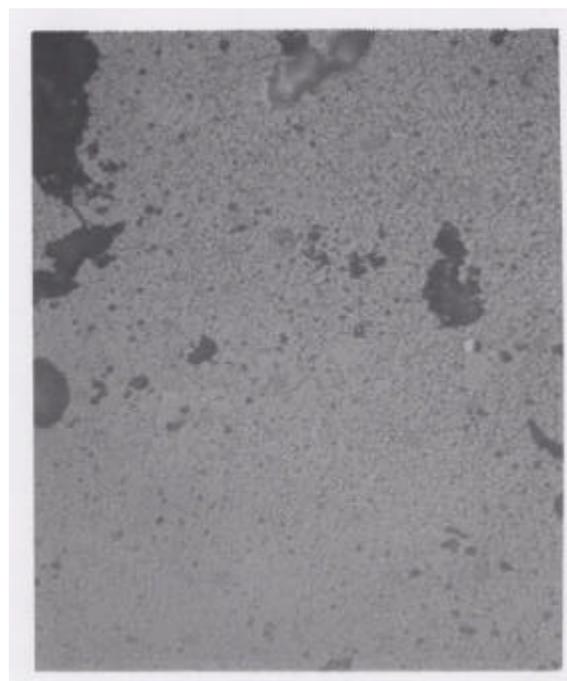


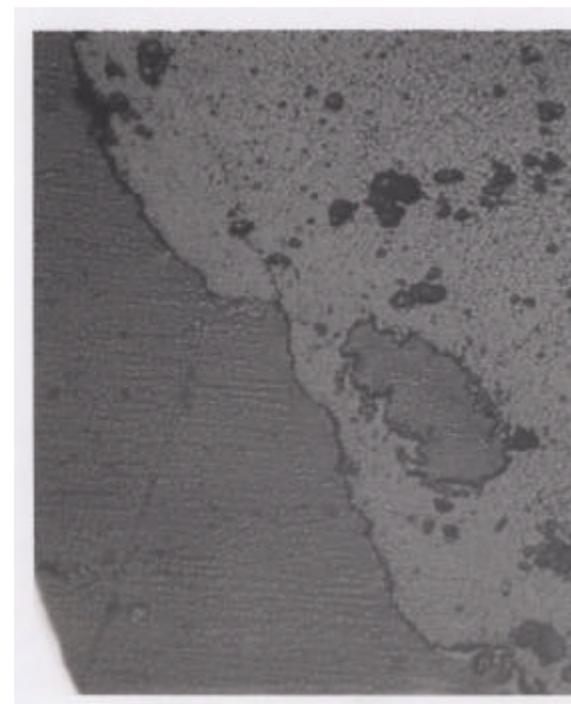
図35 試料3 (1700 × 4h , $P_{O_2}=1 \times 10^{-12}$ atm) の金相観察(CVE後)



中心部



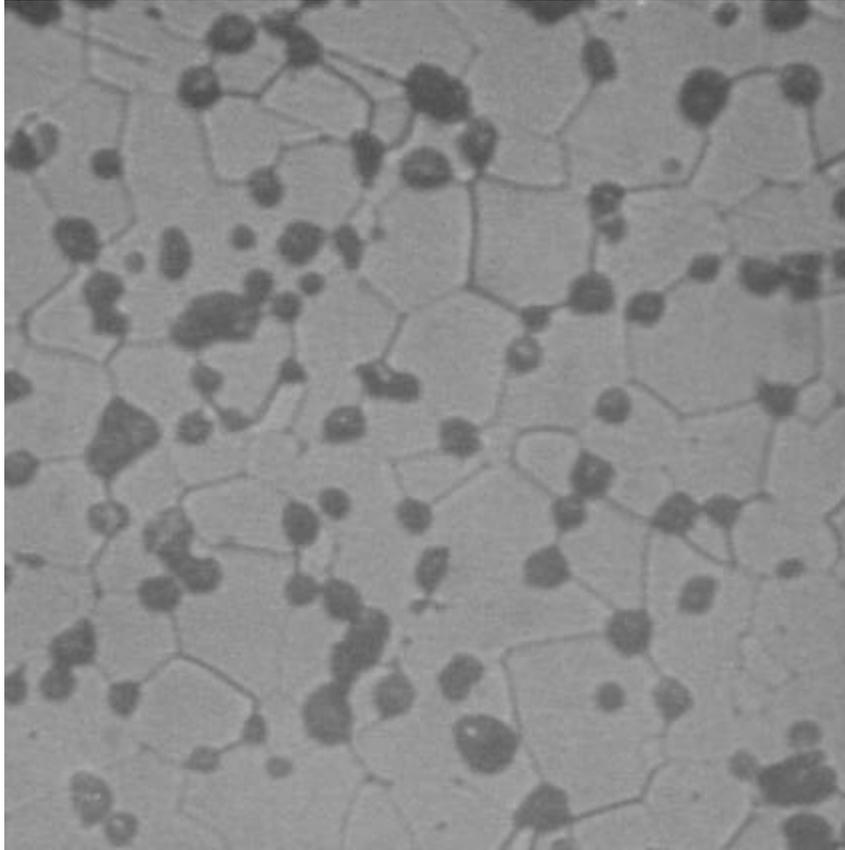
中間部



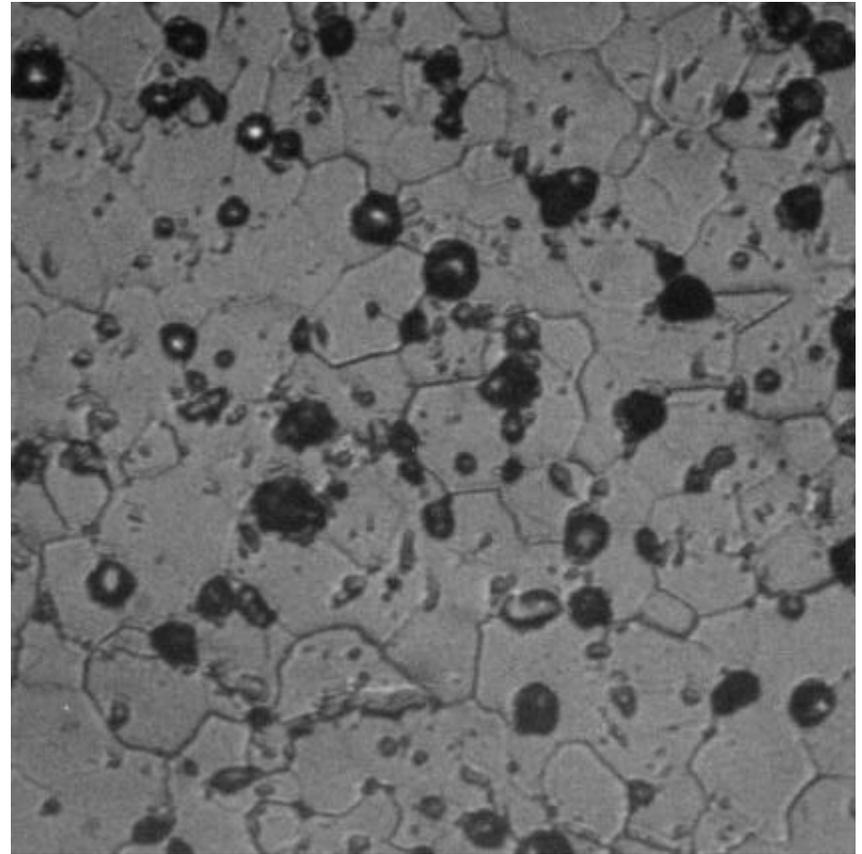
端部

└── 30 μm

図36 試料3 (1700 × 4h , $P_{O_2}=7 \times 10^{-14}$ atm) の金相観察 (CVE後)



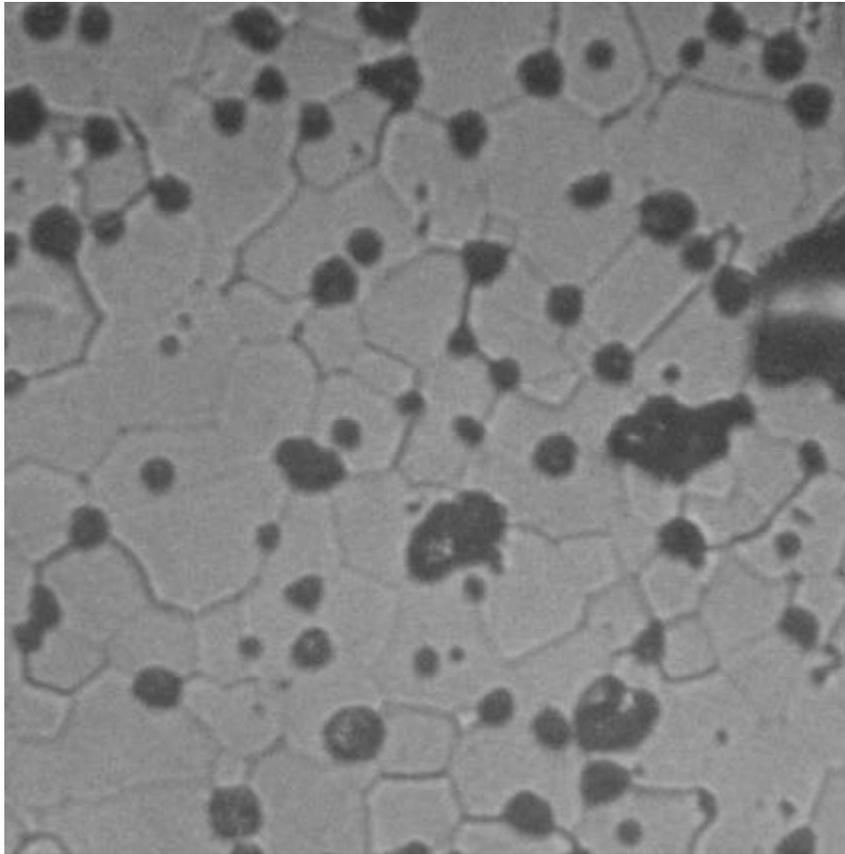
O/M: 2.00



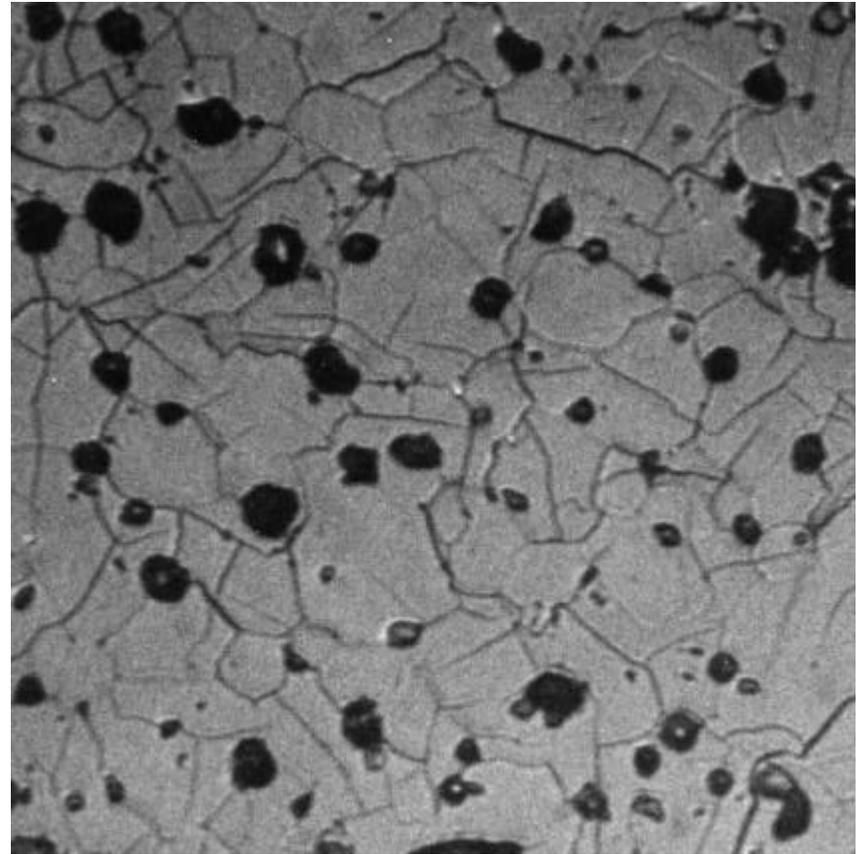
O/M: 1.954

┌──────────┐ 20 μm

図37 試料1のO/Mの違いによる組織変化



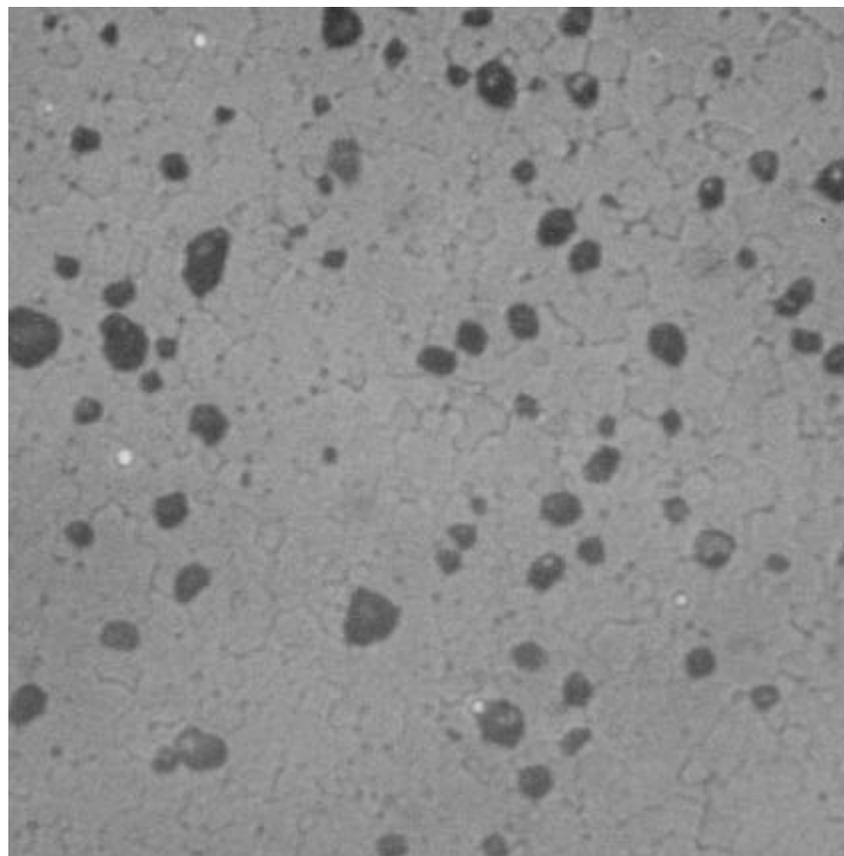
O/M: 2.00



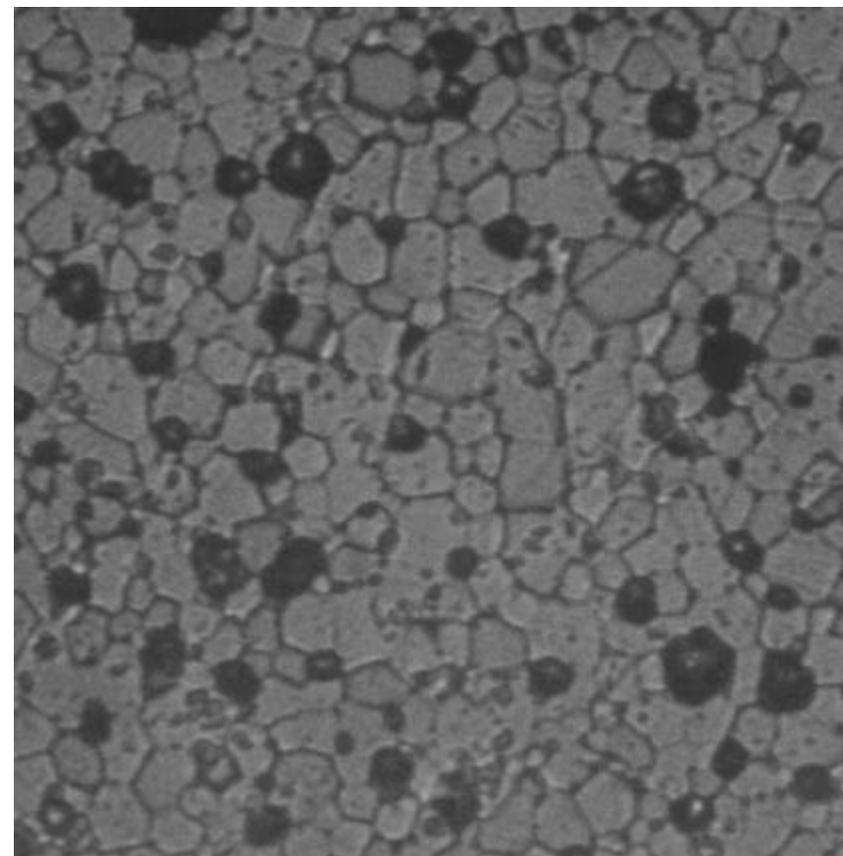
O/M: 1.945

┌──────────┐ 20 μm

図38 試料2のO/Mの違いによる組織変化



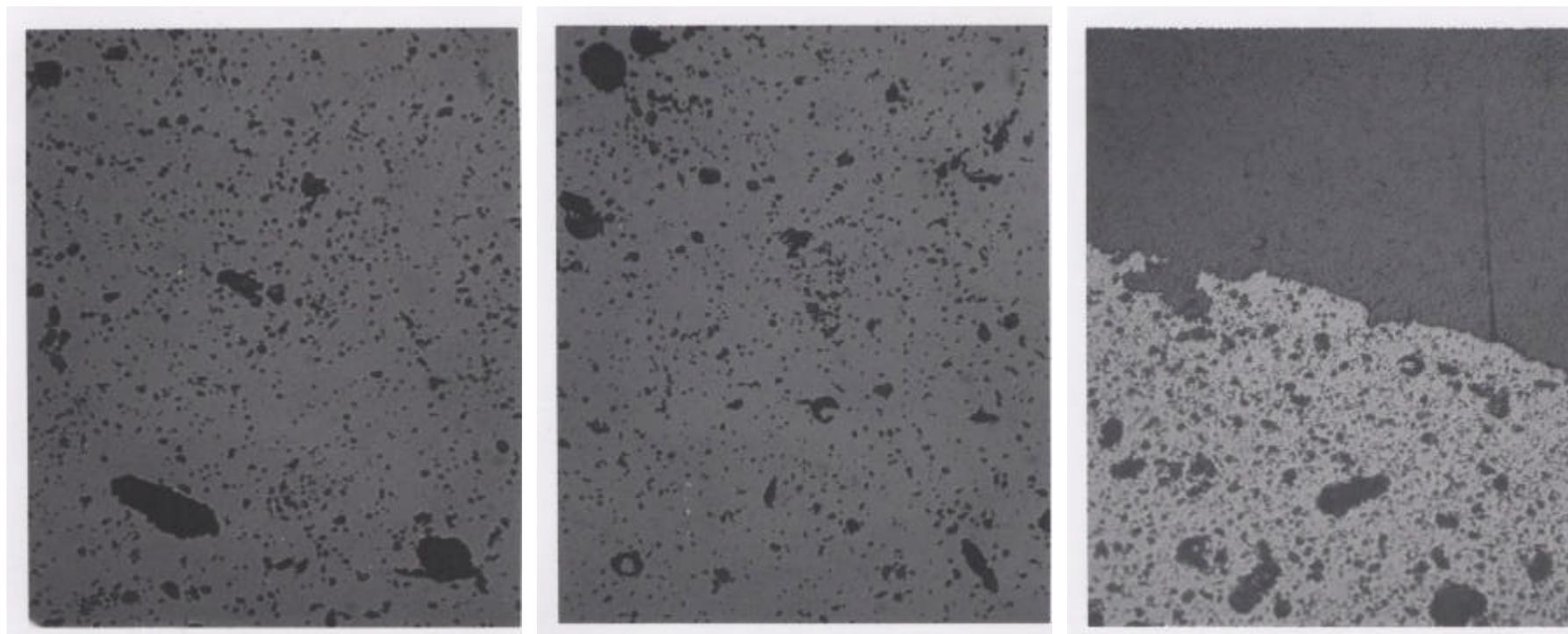
O/M: 2.00



O/M: 1.947

┌──────────┐ 20 μm

図39 試料3のO/Mの違いによる組織変化



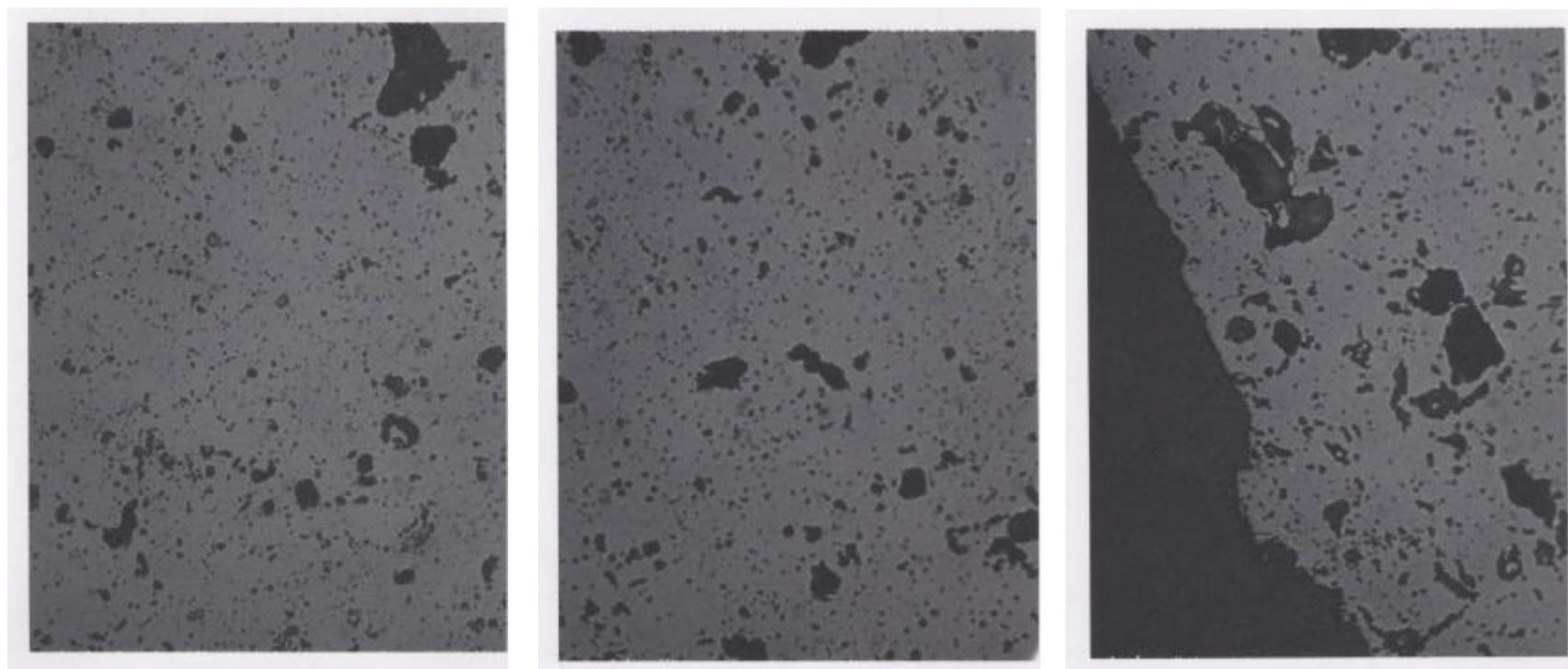
中心部

中間部

端部

┌───┐ 200 μm

図40 試料1 (1500 × 3h , $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) の金相観察 (研磨後)



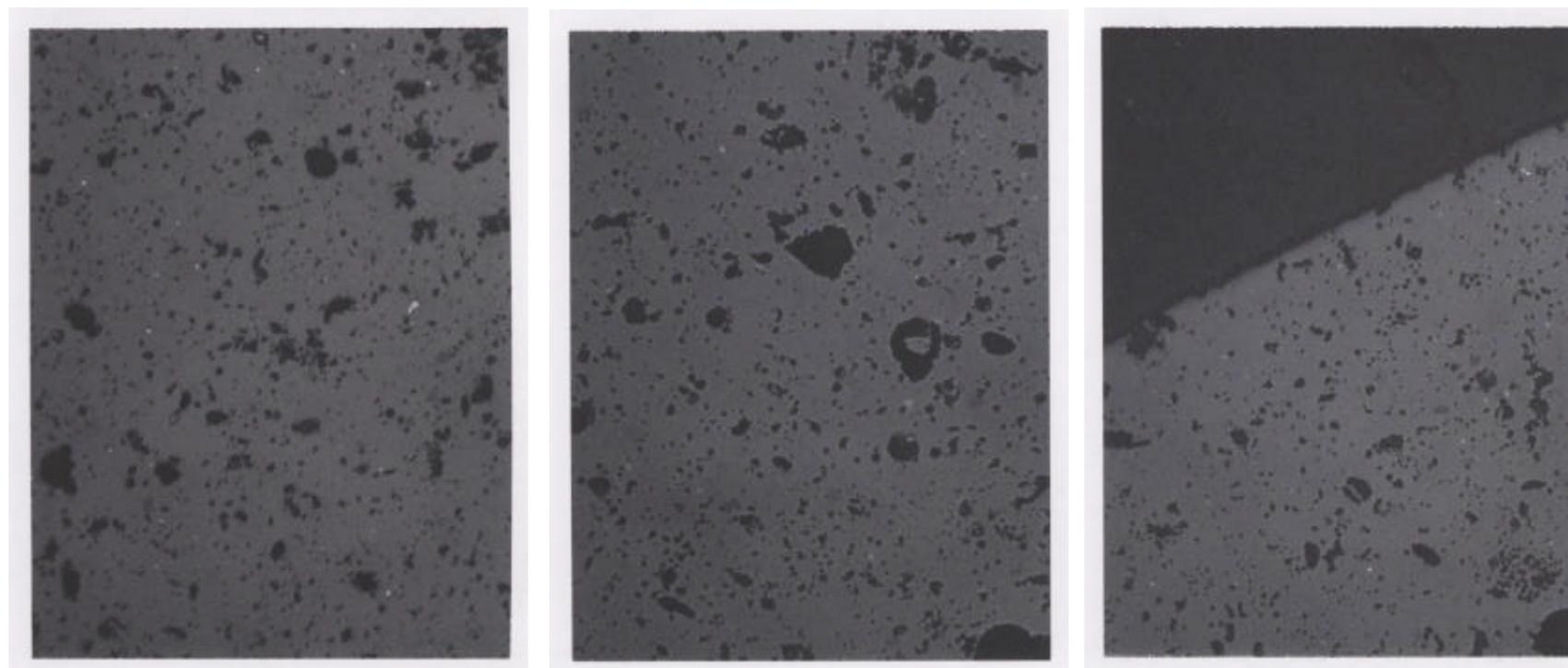
中心部

中間部

端部

└──┘ 200 μ m

図41 試料 2 (1500 × 3h , $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) の金相観察 (研磨後)



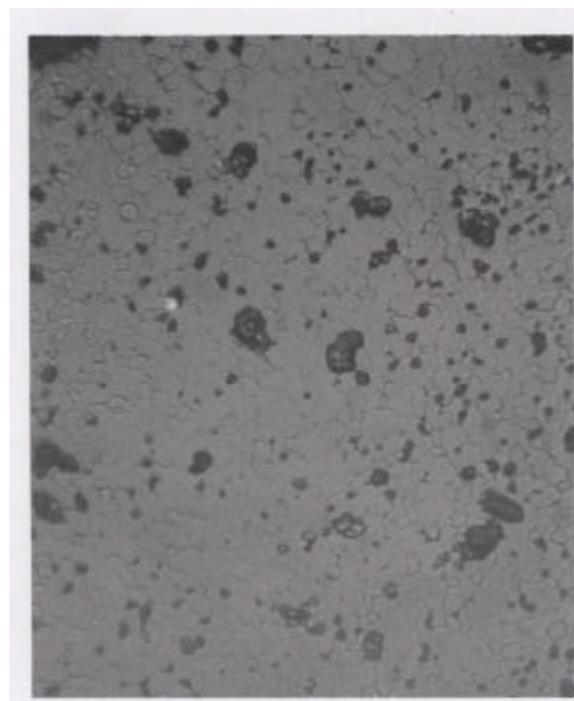
中心部

中間部

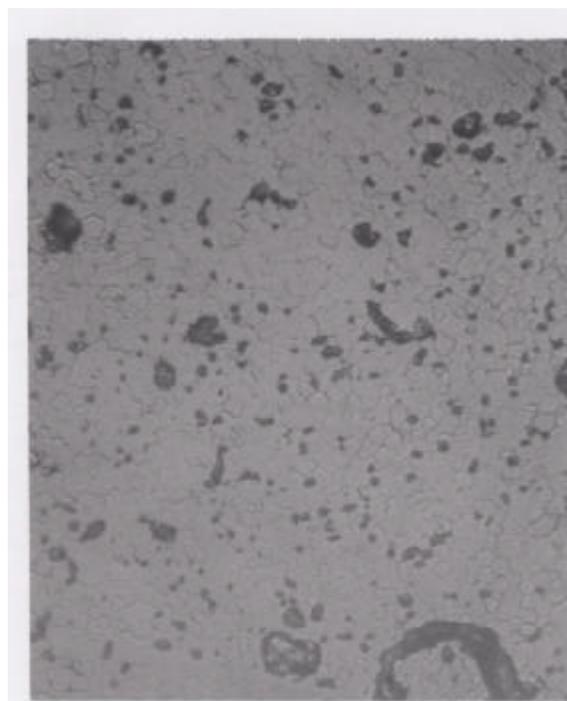
端部

┌┐ 200 μ m

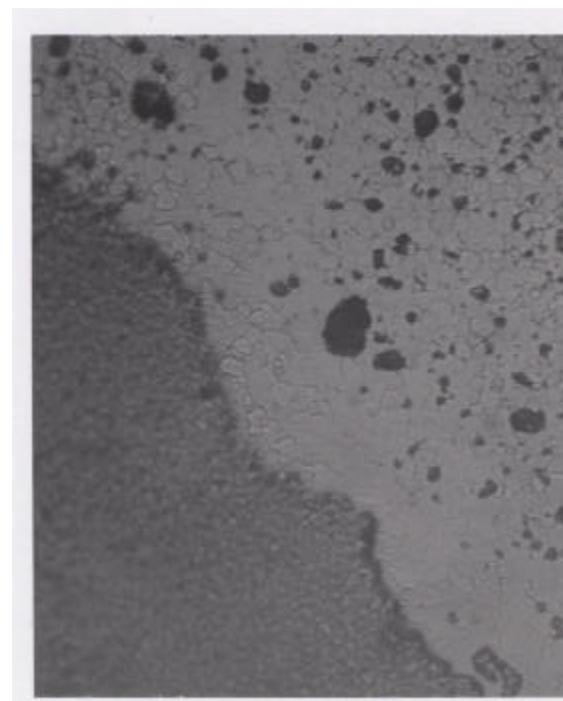
図42 試料3 (1500 × 3h , $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) の金相観察 (研磨後)



中心部



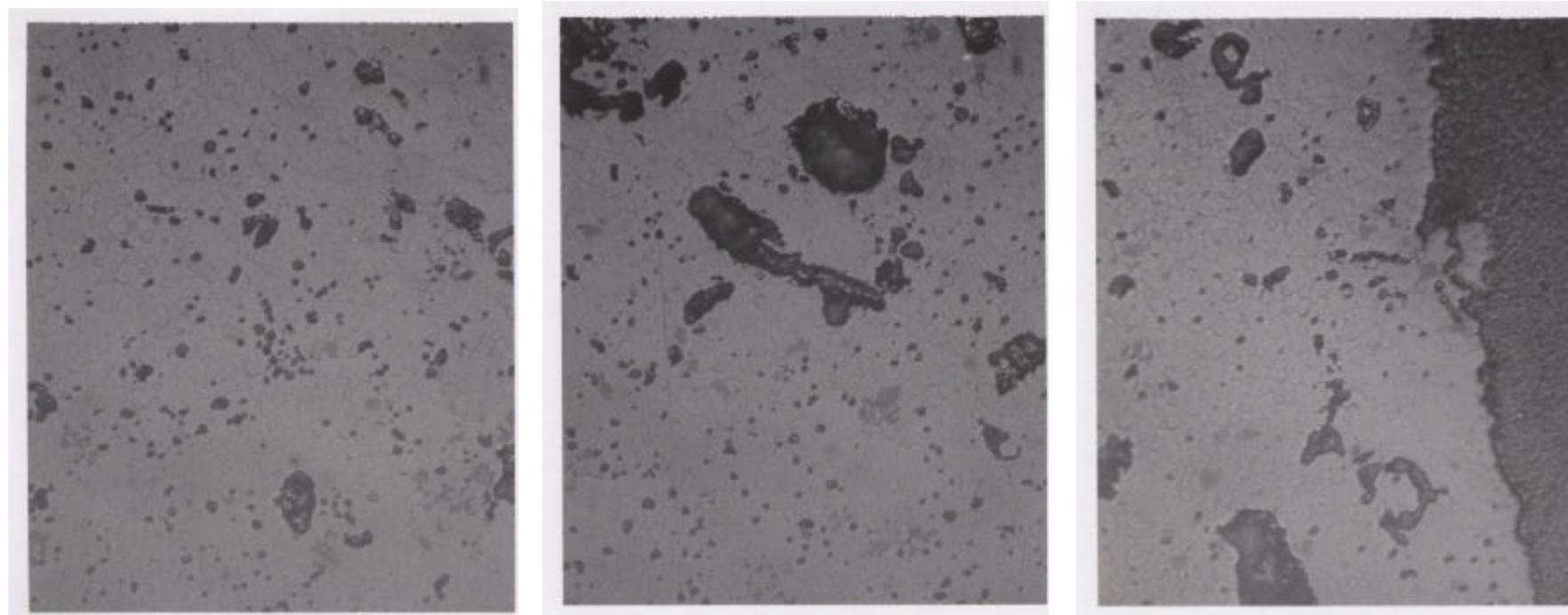
中間部



端部

└───┘ 30 μm

図43 試料1 (1500 × 3h, $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) での金相観察 (CVE後)



中心部

中間部

端部

└── 30 μm

図44 試料2 (1500 × 3h , $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) の金相観察 (CVE後)

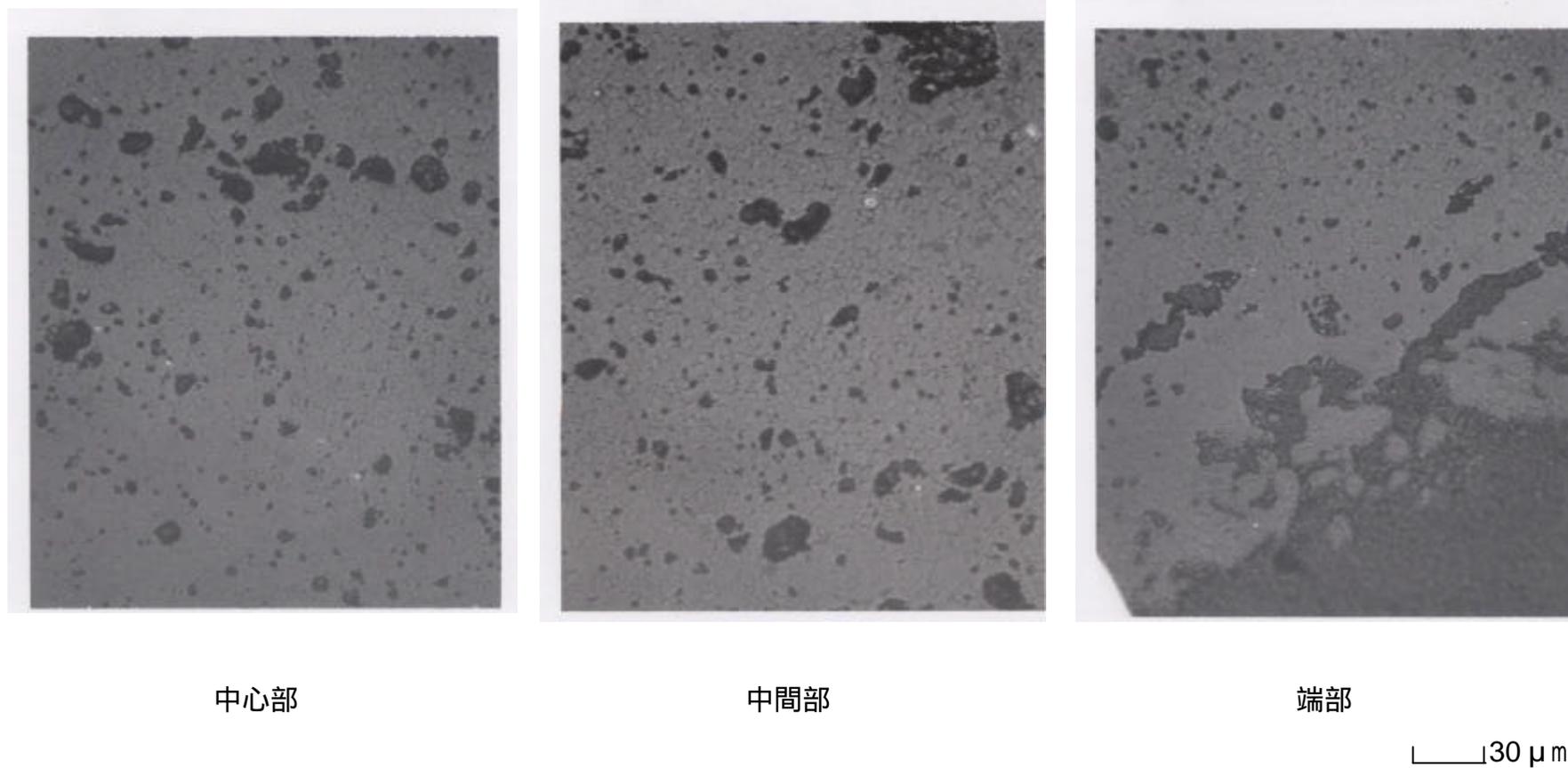


図45 試料3 (1500 × 3h , $P_{O_2}=4 \times 10^{-10}$ atm) の金相観察 (CVE後)

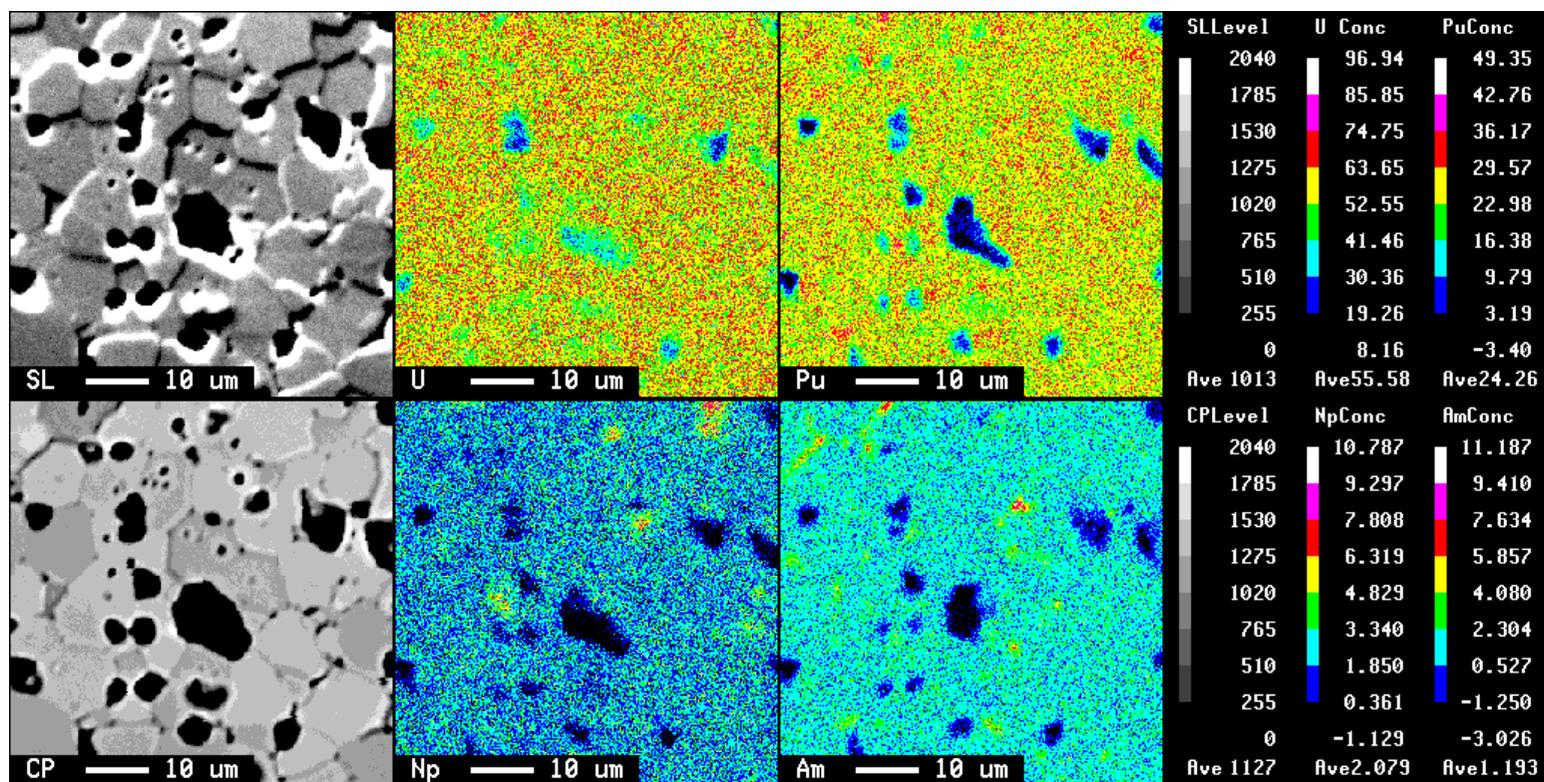


図46 試料1（熱処理条件1）のペレット中心部の面分析結果
（SEM、反射電子線像、U、Pu、Np、Am）

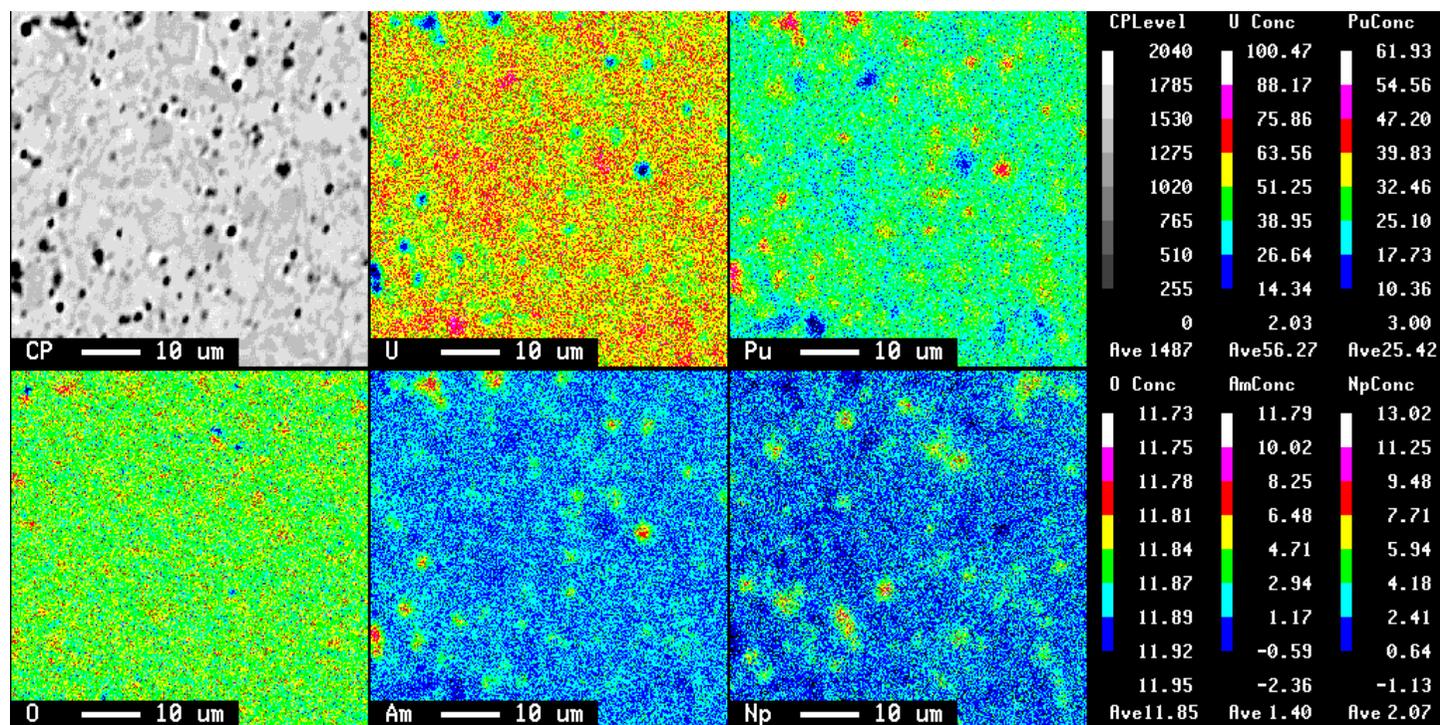


図47 試料1 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果
(反射電子線像、U Pu Q Am Np)

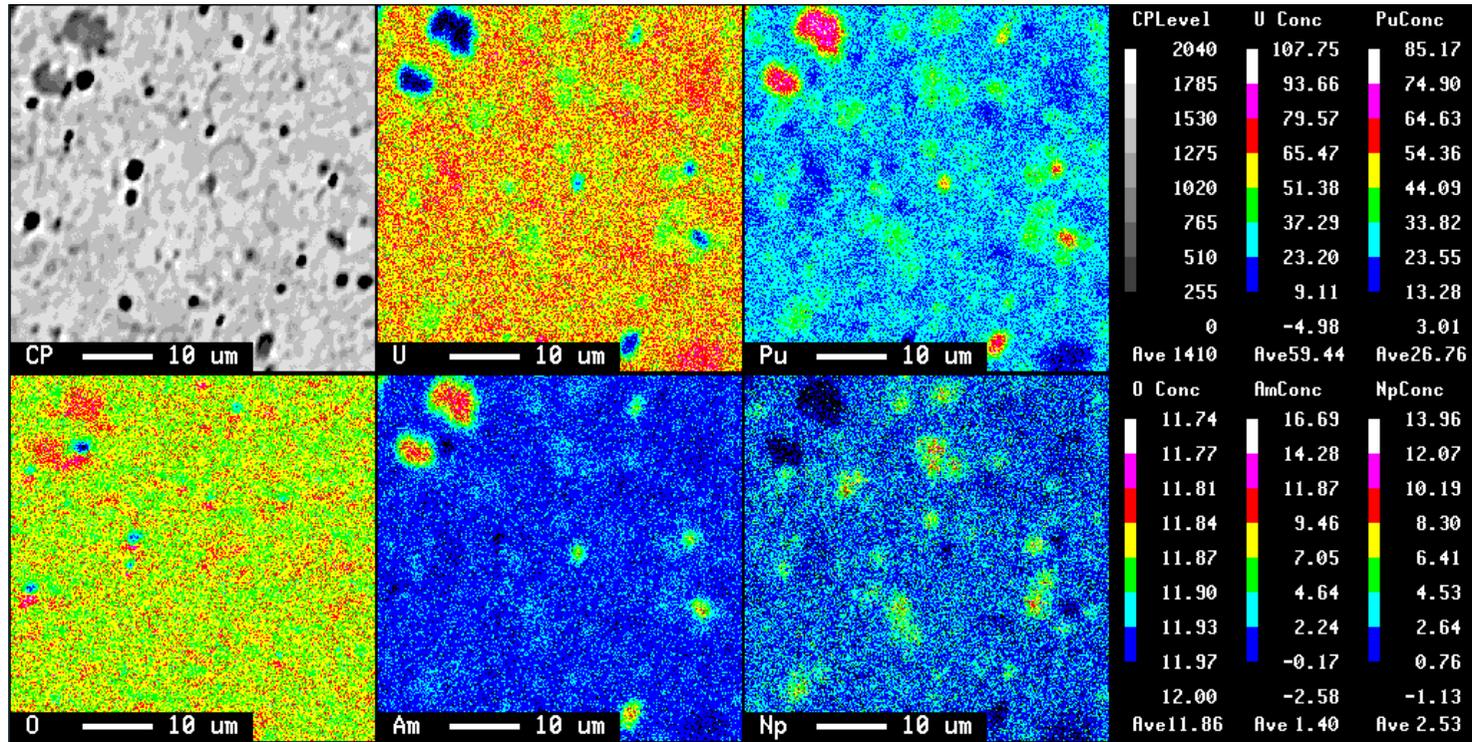
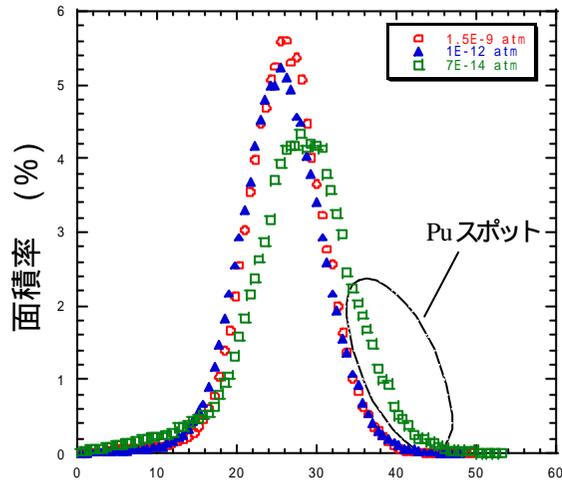
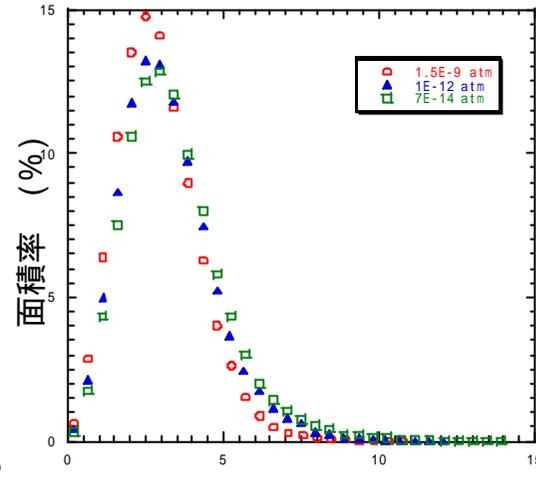


図48 試料1 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果
(反射電子線像、U Pu Q Am Np)



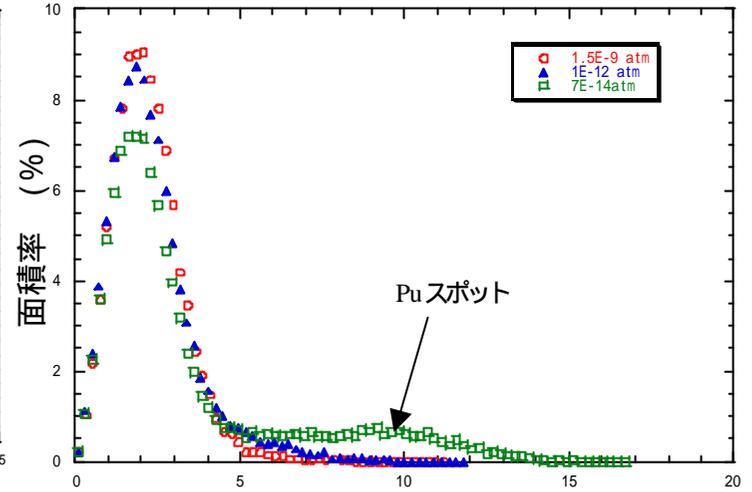
Pu濃度 (Pu/MOX %)

(a) Pu濃度分布



Np濃度 (Np/MOX%)

(b) Np濃度分布



Am濃度 (Am/MOX%)

(c) Am濃度分布

図49 試料1(1700 焼結)のペレット中心部における元素分布

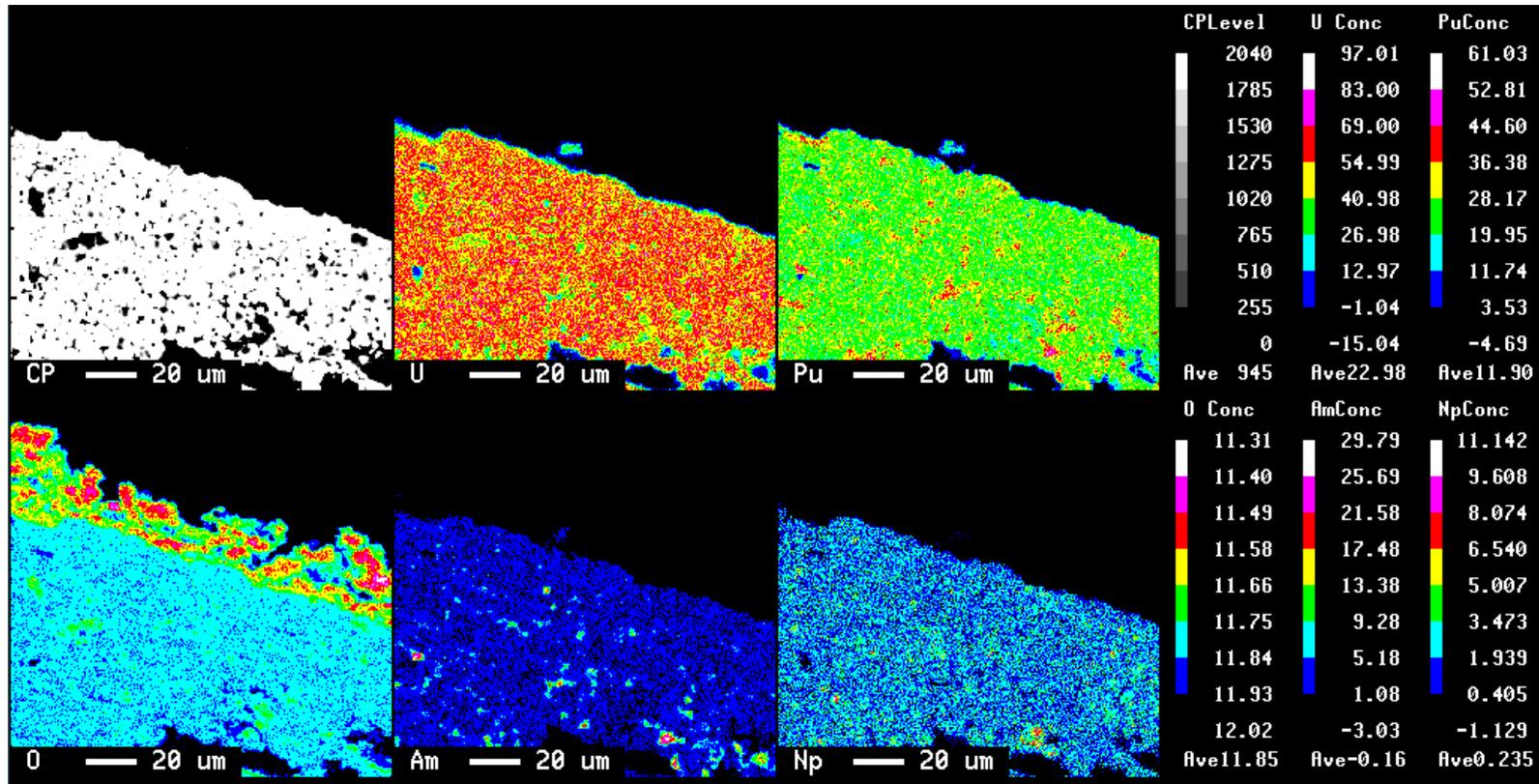


図50 試料1 (熱処理条件1) のペレット外周部の面分析結果 (反射電子線像 U Pu Q Am、Np)

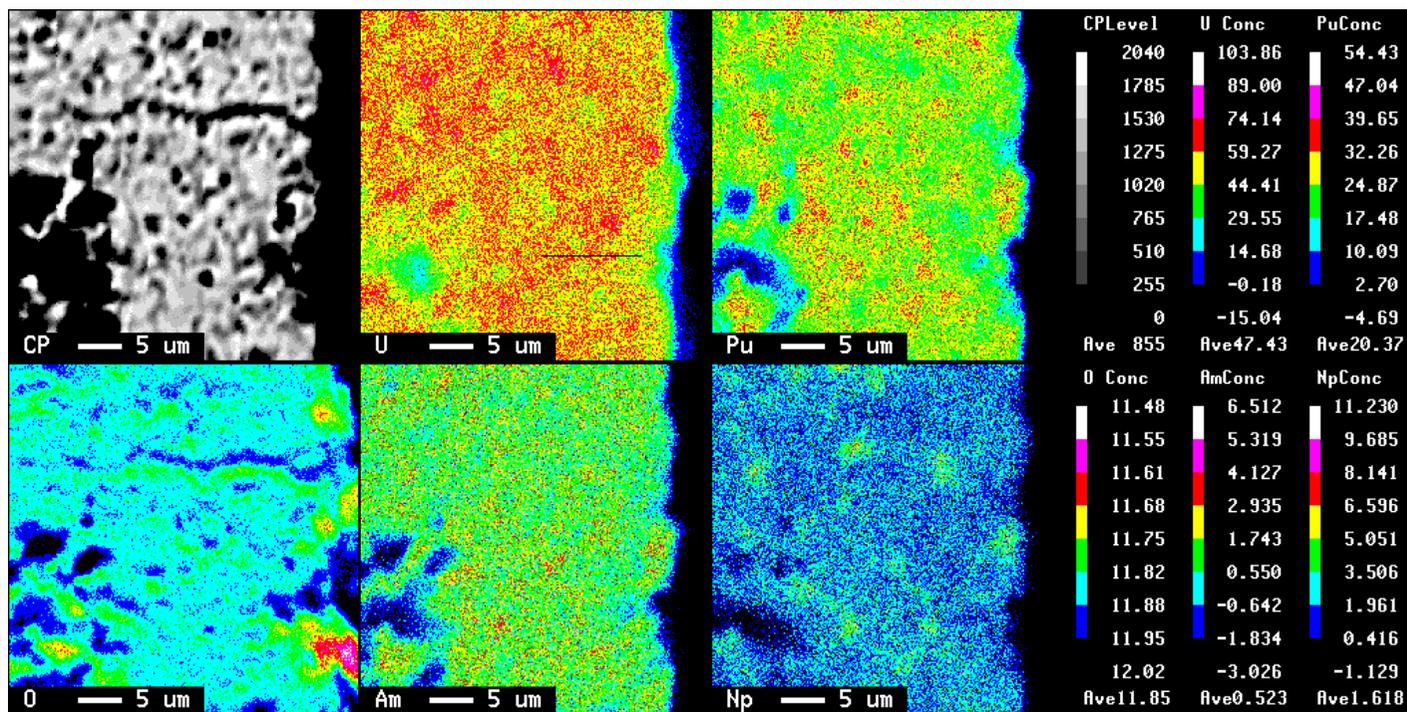


図51 試料1 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果
(反射電子線像、U Pu Q Am Np)

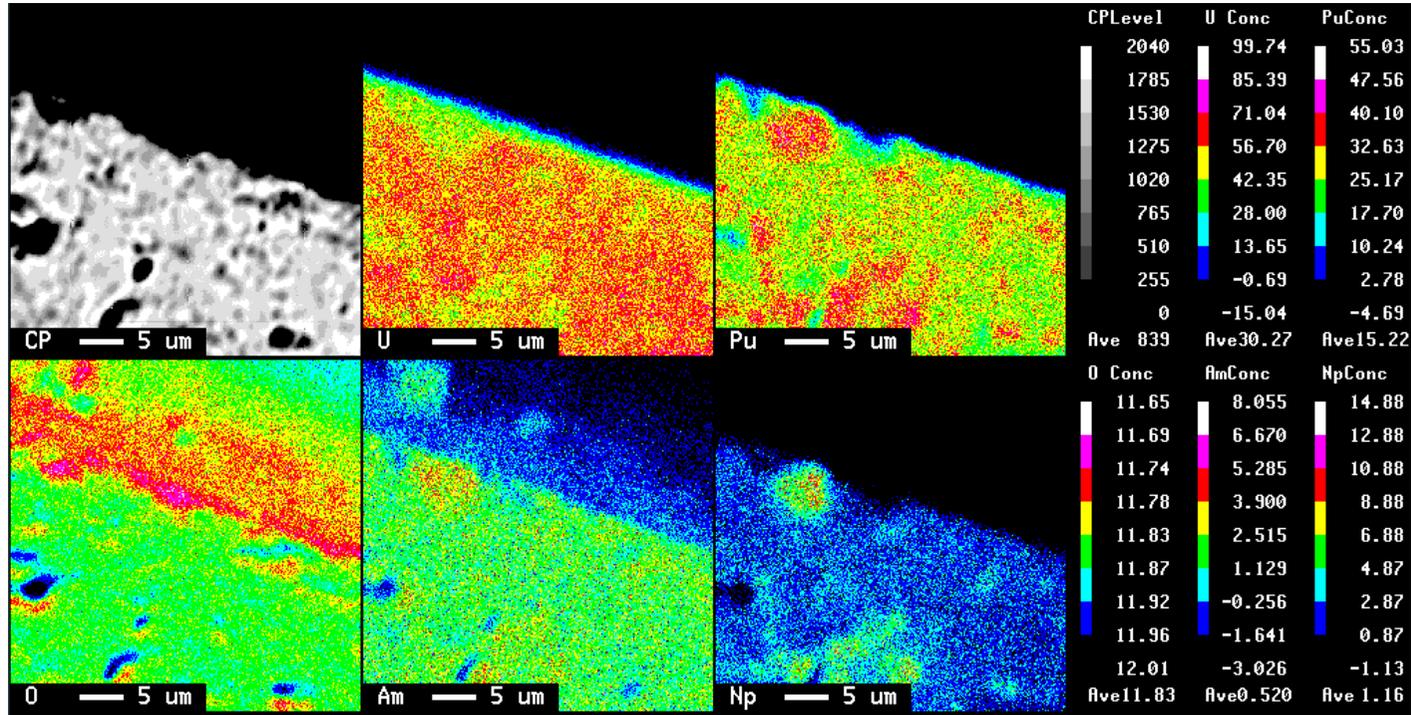
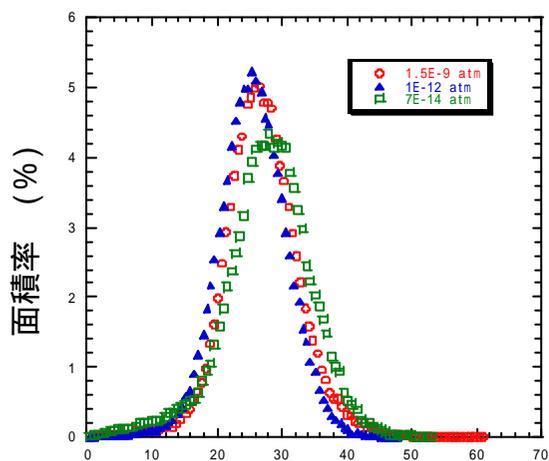
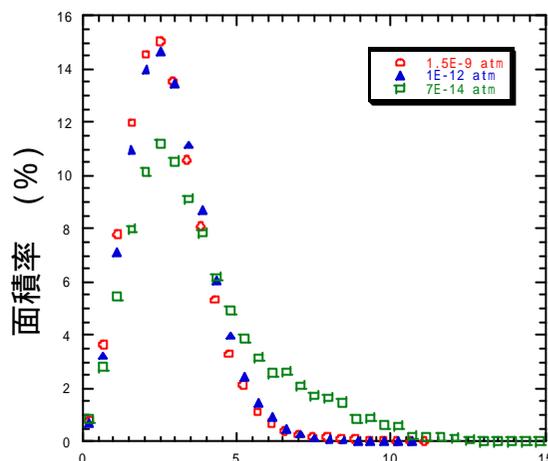


図52 試料1 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果
(反射電子線像、U、Pu、Q、Am、Np)



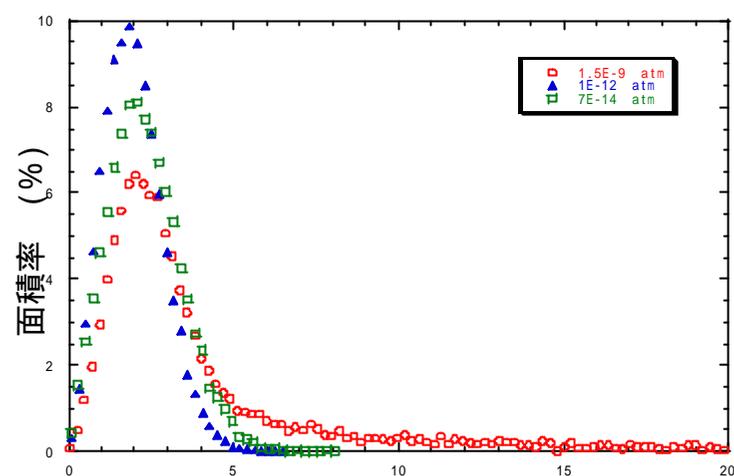
Pu濃度 (Pu/MOX %)

(a) Pu濃度分布



Np濃度 (Np/MOX%)

(b) Np濃度分布



Am濃度 (Am/MOX%)

(c) Am濃度分布

図53 試料1 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布

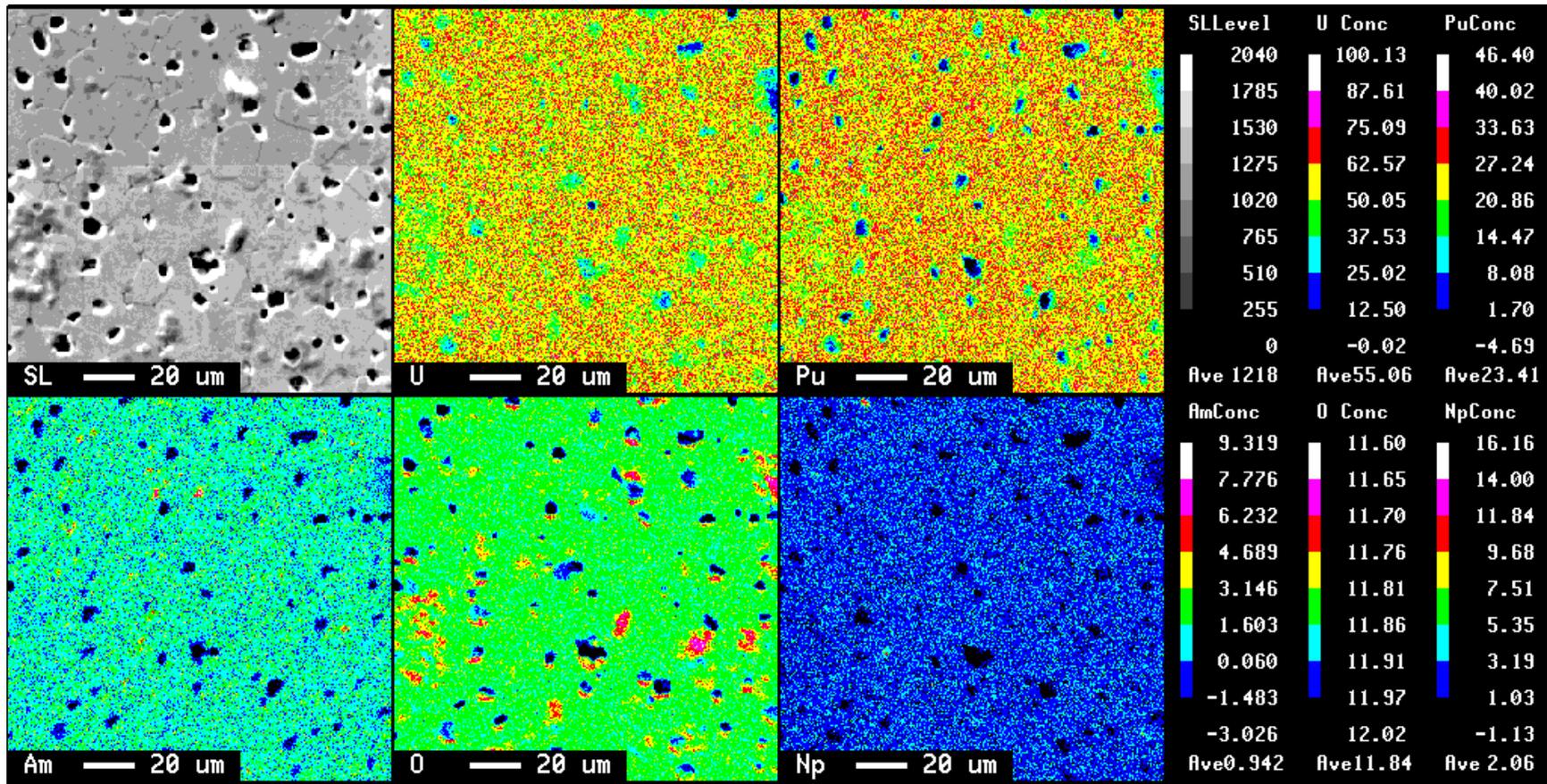


図54(a) 試料2 (熱処理条件1) のペレット中心部の面分析結果 (SEM, U, Pu, Am, Q, Np)

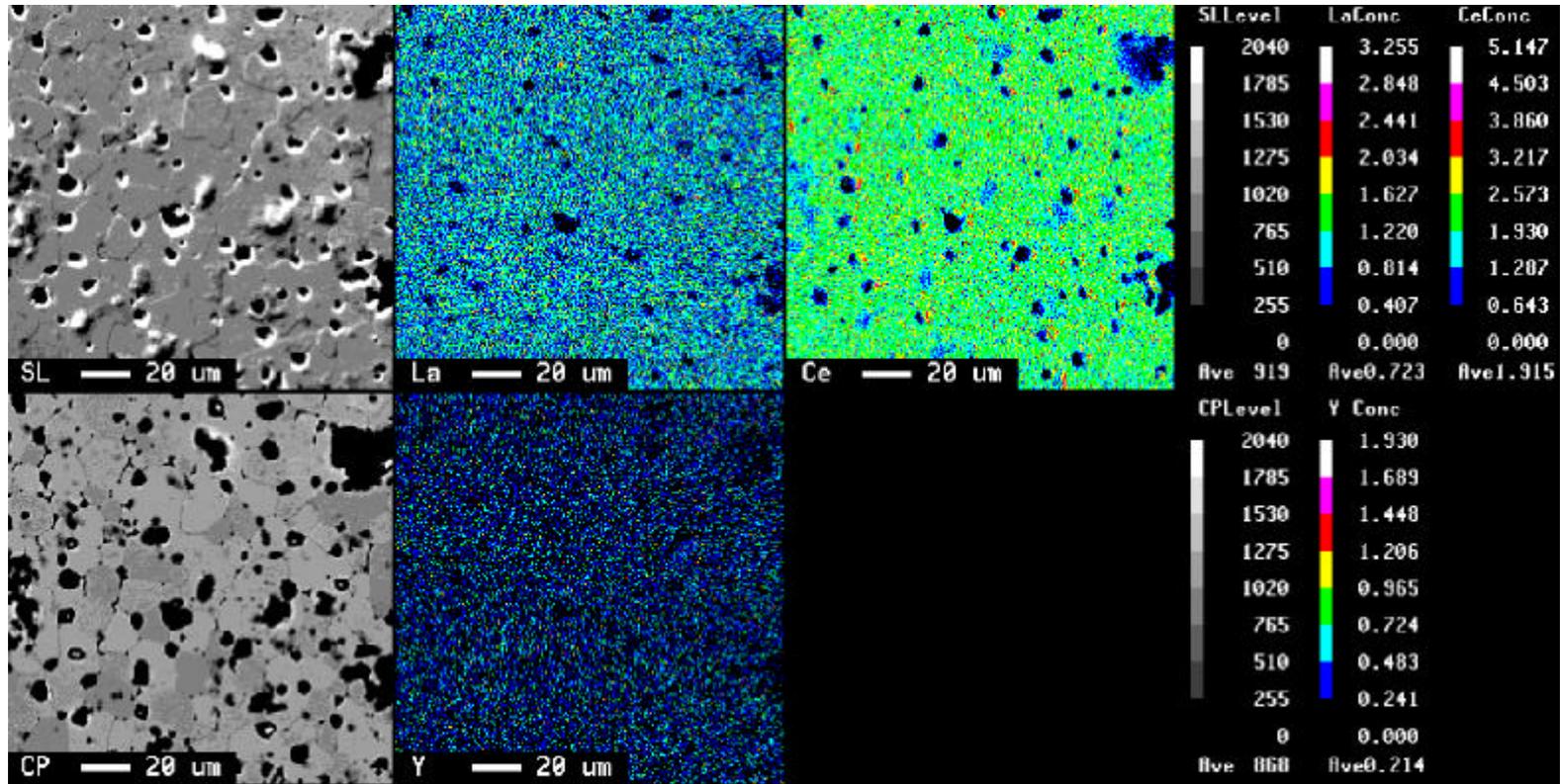


図54(b) 試料2 (熱処理条件1) のペレット中心部の面分析結果 (SEM, 反射電子線像, La, Ce, Y)

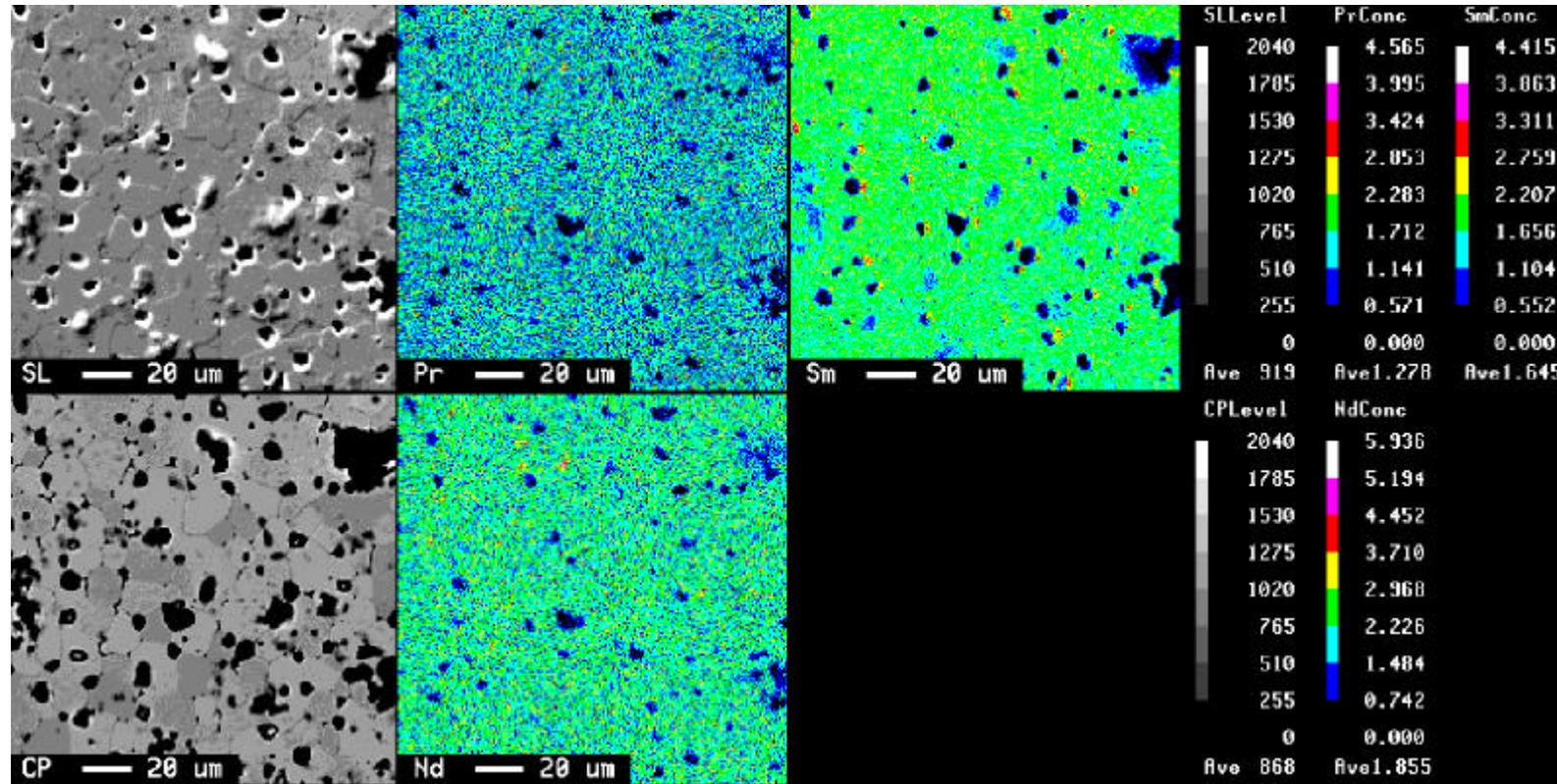


図54(c) 試料2 (熱処理条件1) のペレット中心部の面分析結果
(SEM、反射電子線像 Pr、Sm、Nd)

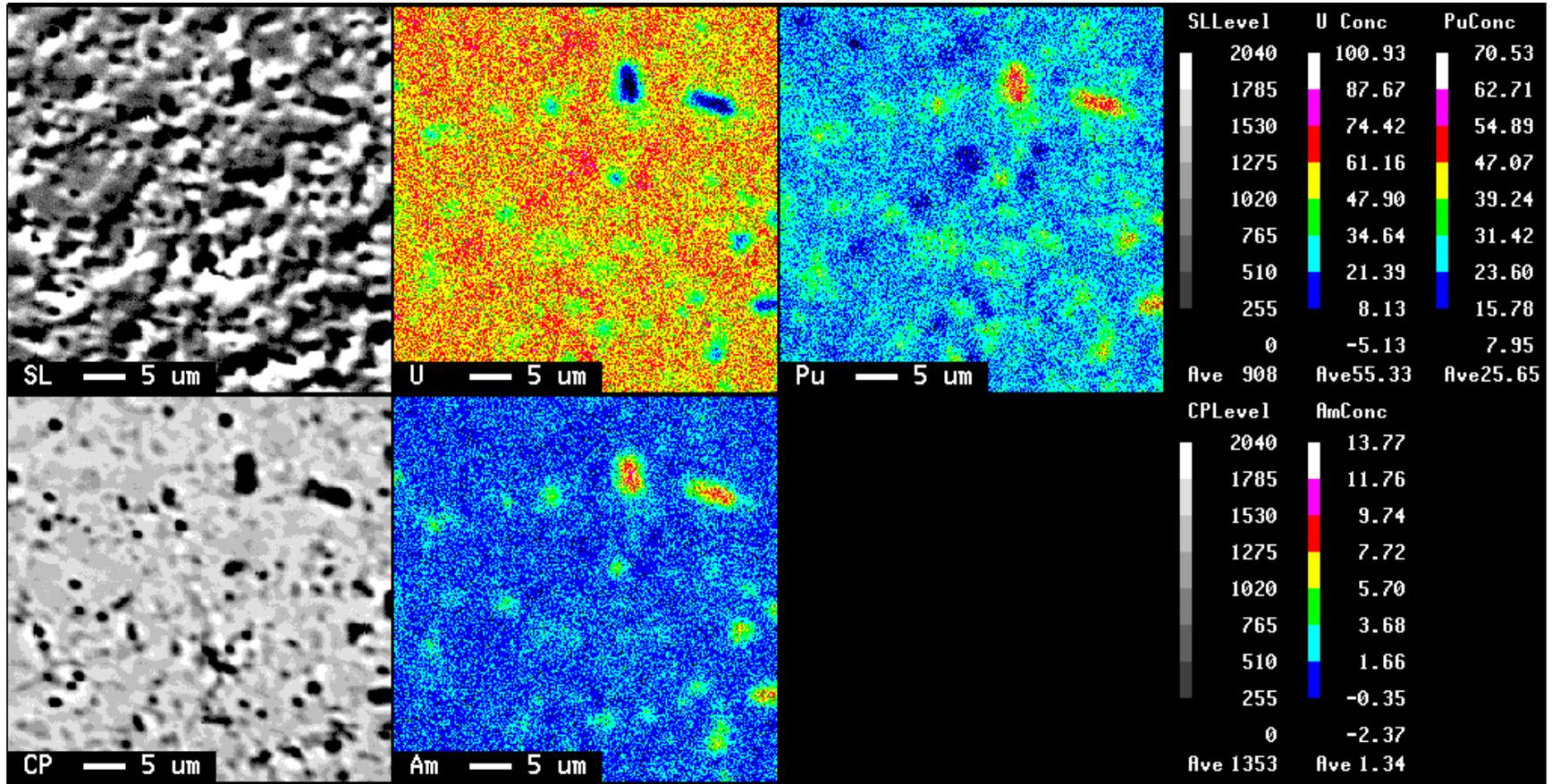


図55(a) 試料2 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、U Pu Am)

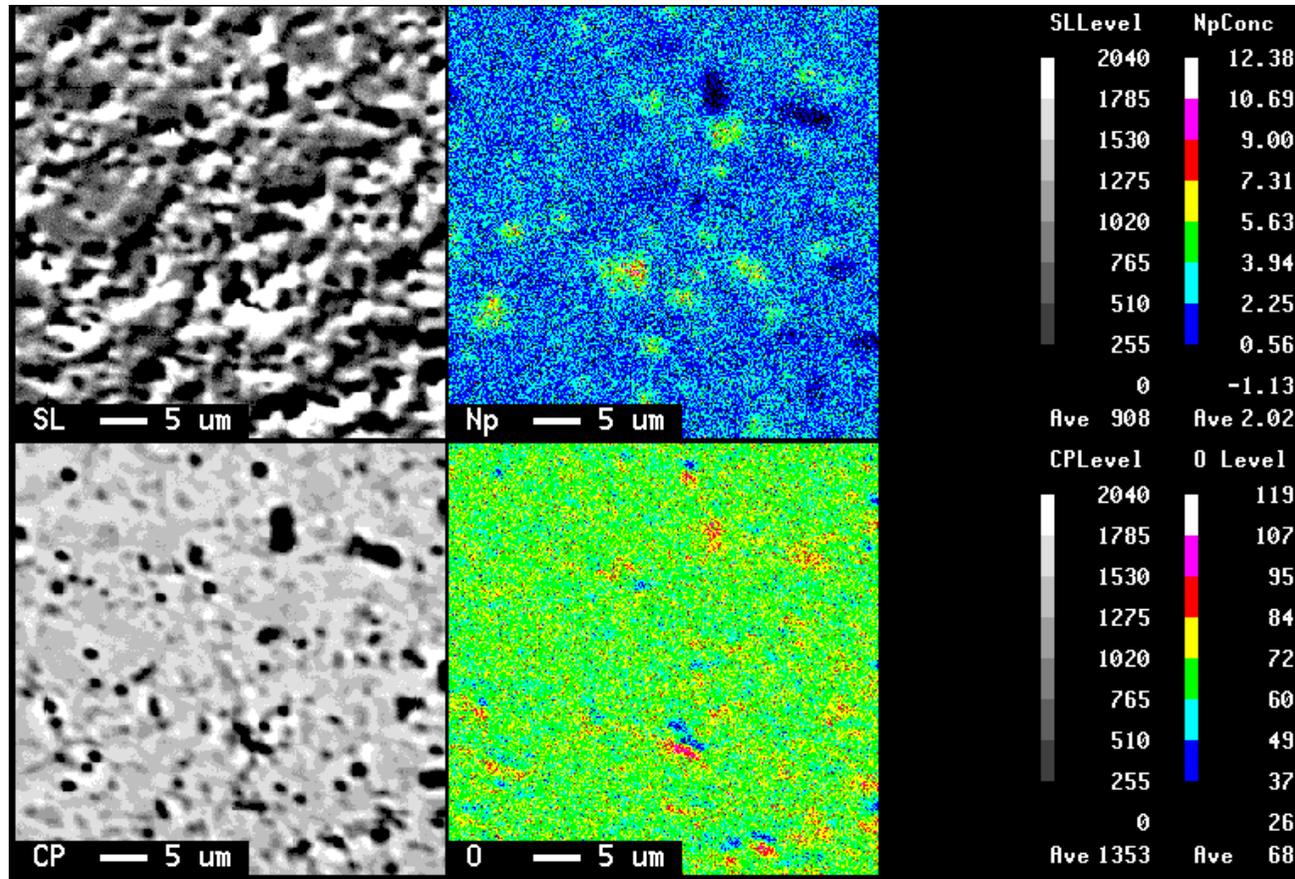


図55(b) 試料2 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Np、O)

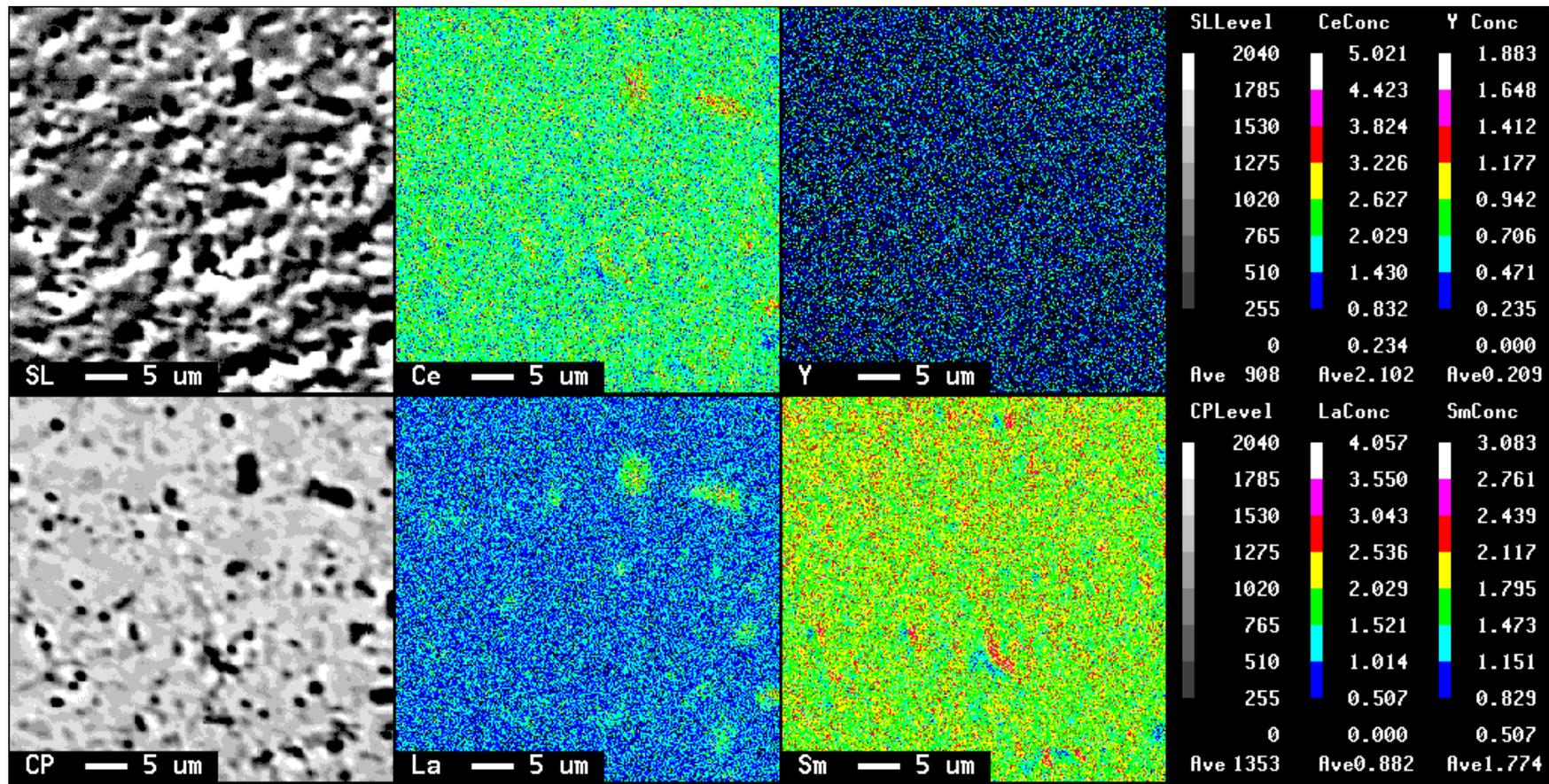


図55(c) 試料2 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Ce、Y、La、Sm)

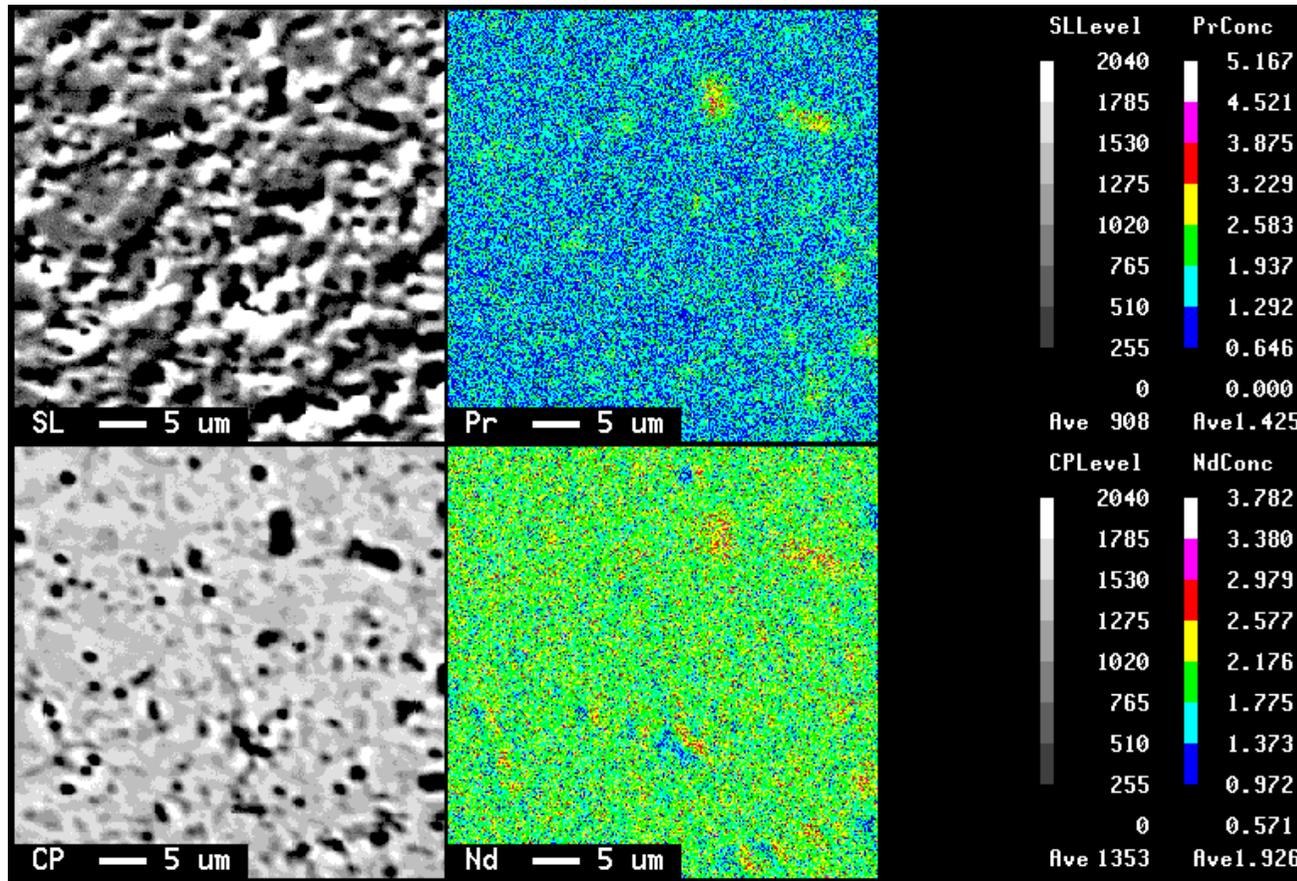


図55(d) 試料2 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Pr, Nd)

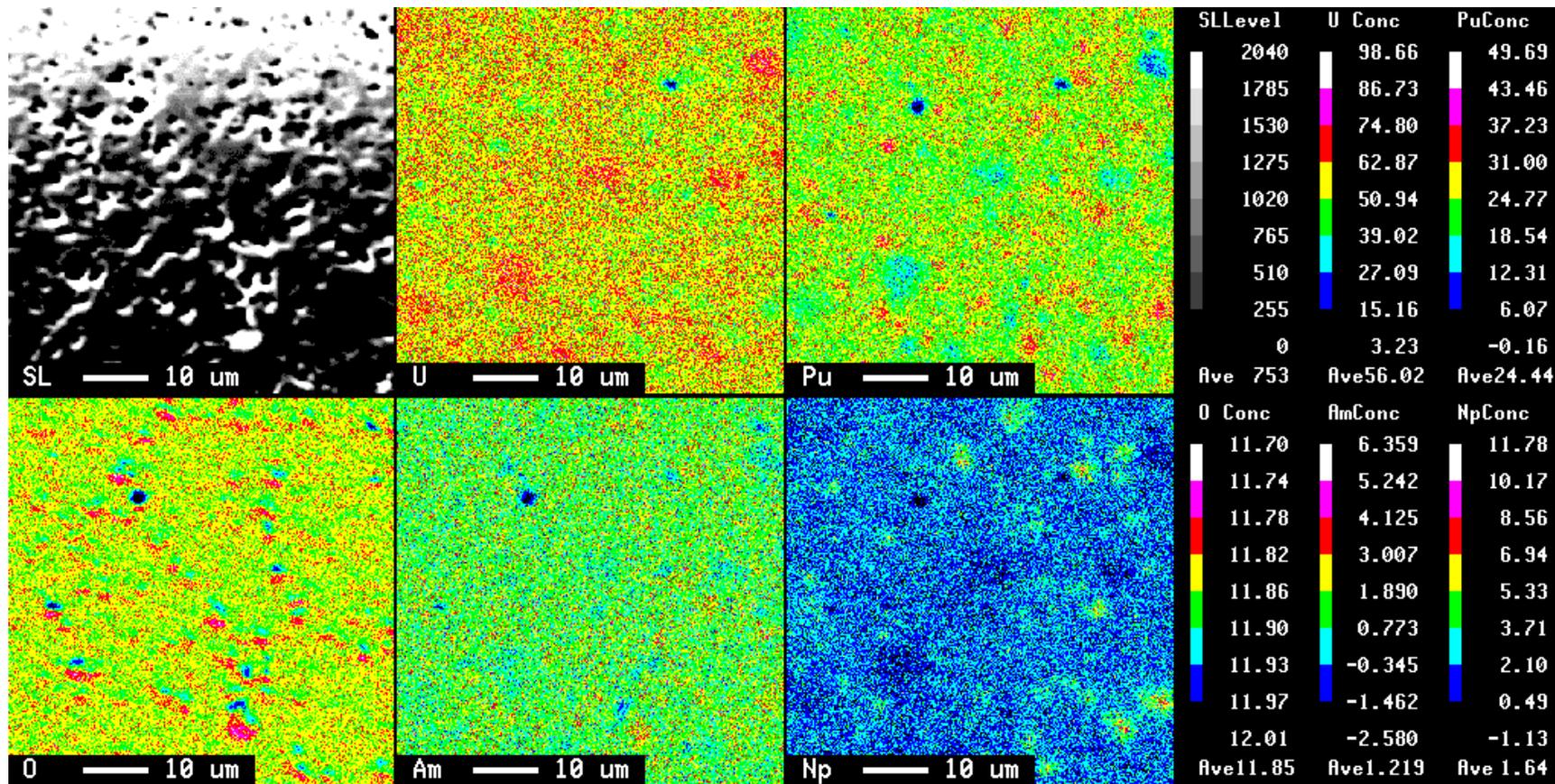


図56(a) 試料2 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像 U Pu Q Am Np)

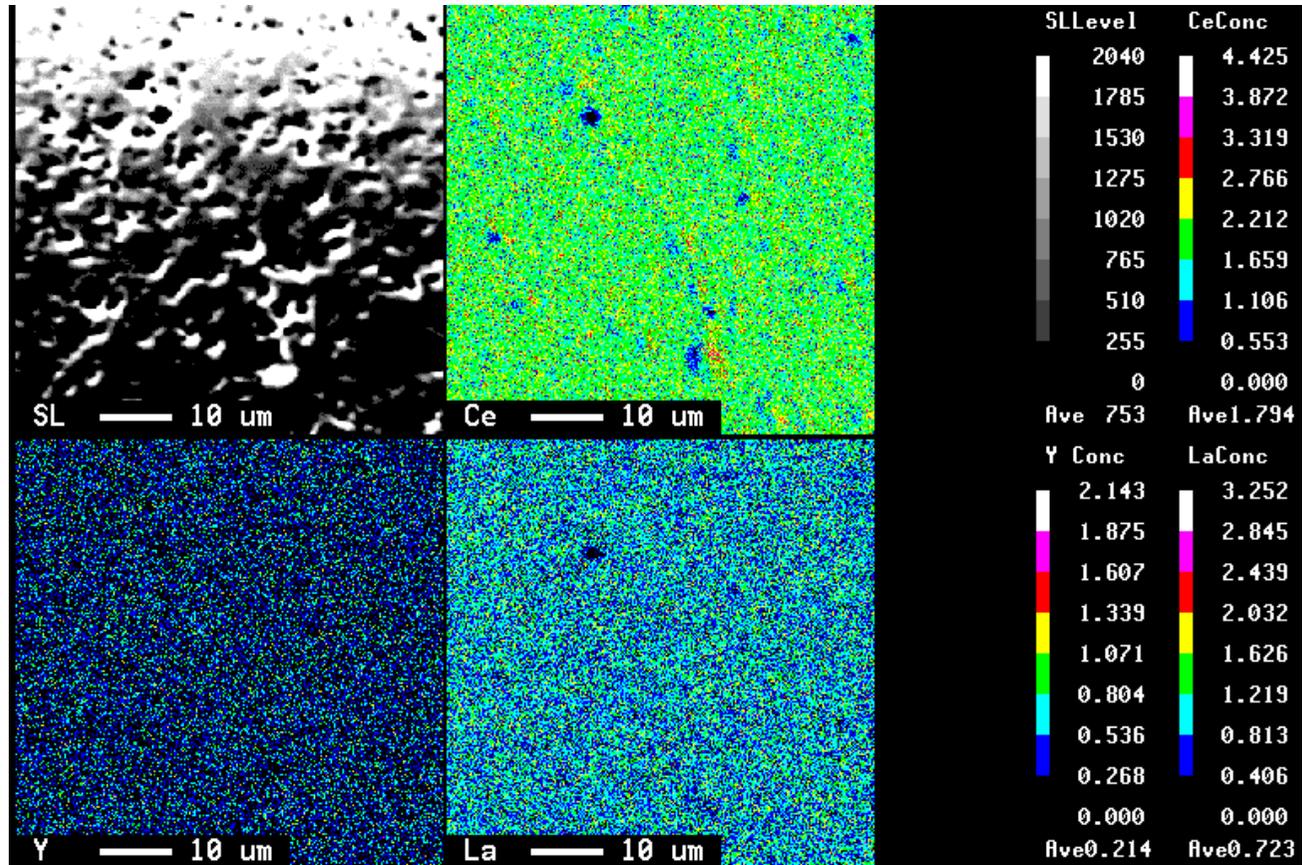


図56(b) 試料2 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像 Ce, Y, La)

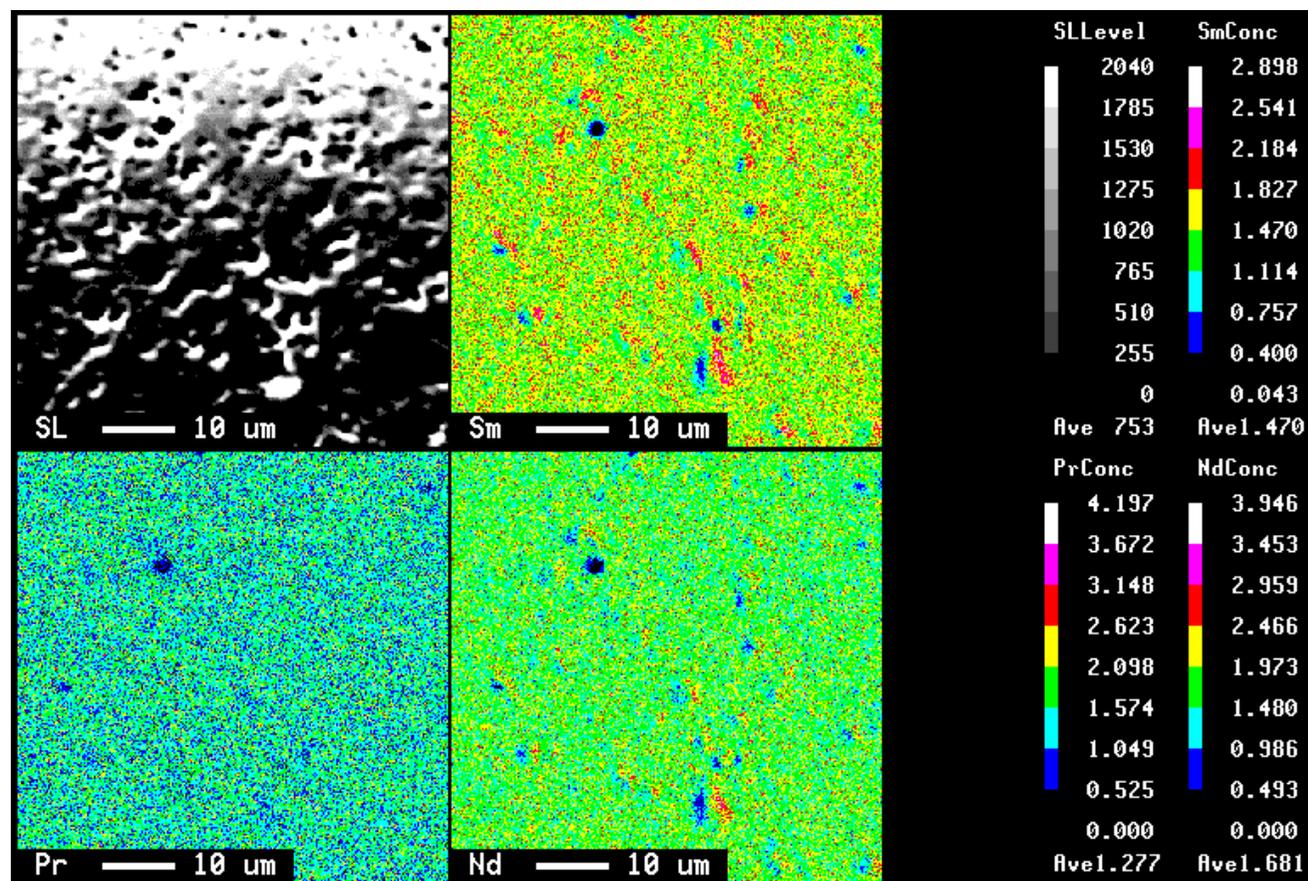
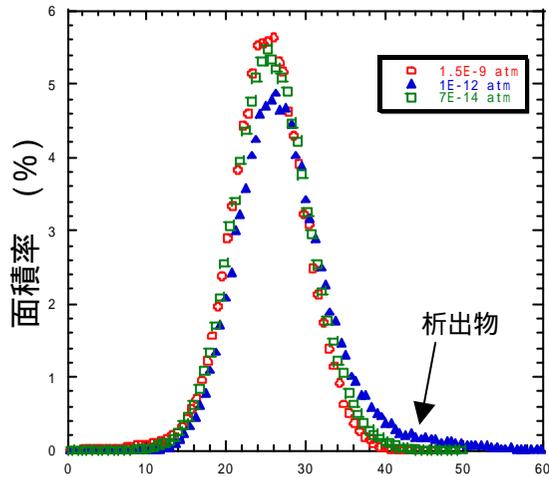
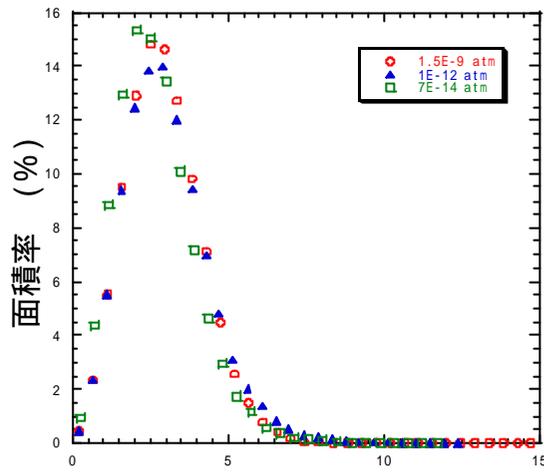


図56(c) 試料2 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果
(SEM像 Sm Pr Nd)



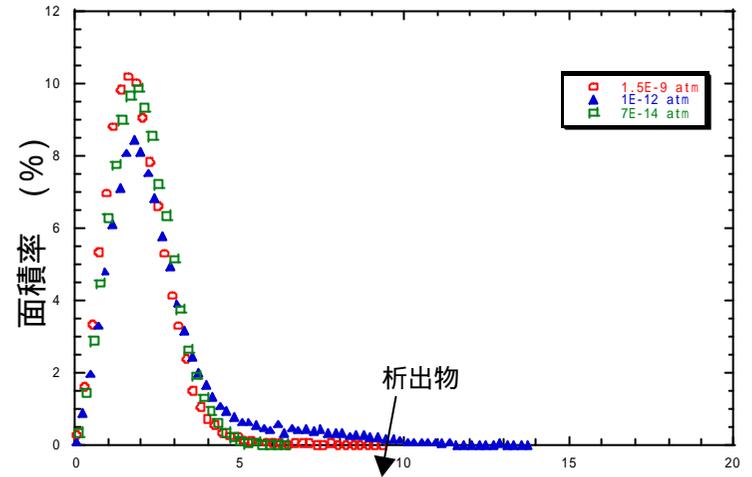
Pu濃度 (Pu/MOX %)

(a) Pu濃度分布



Np濃度 (Np/MOX%)

(b) Np濃度分布



Am濃度 (Am/MOX%)

(c) Am濃度分布

図57 試料2 (1700 焼結) のペレット中心部における元素分布

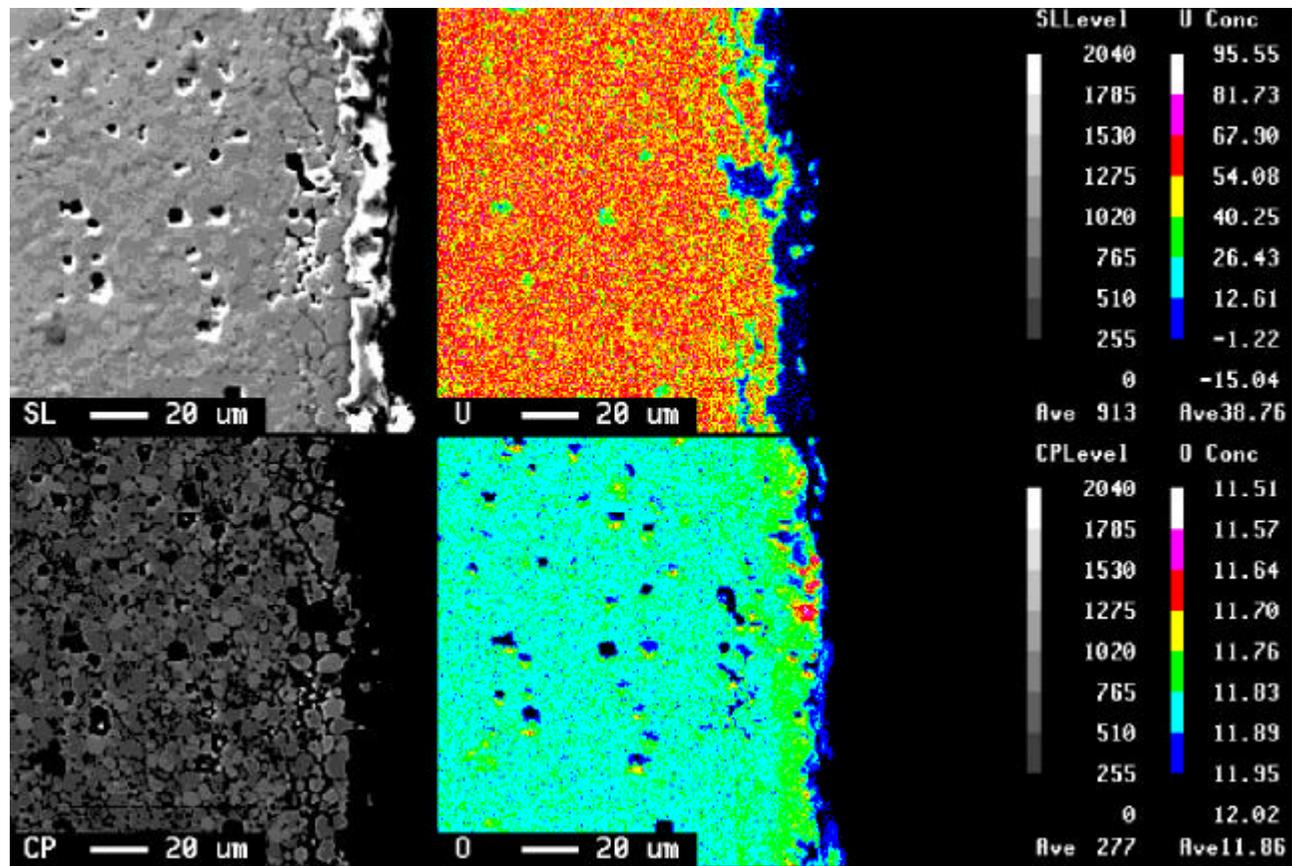


図58(a) 試料2(熱処理条件1)のペレット外周部の面分析結果
(SEM 反射電子線像 U O)

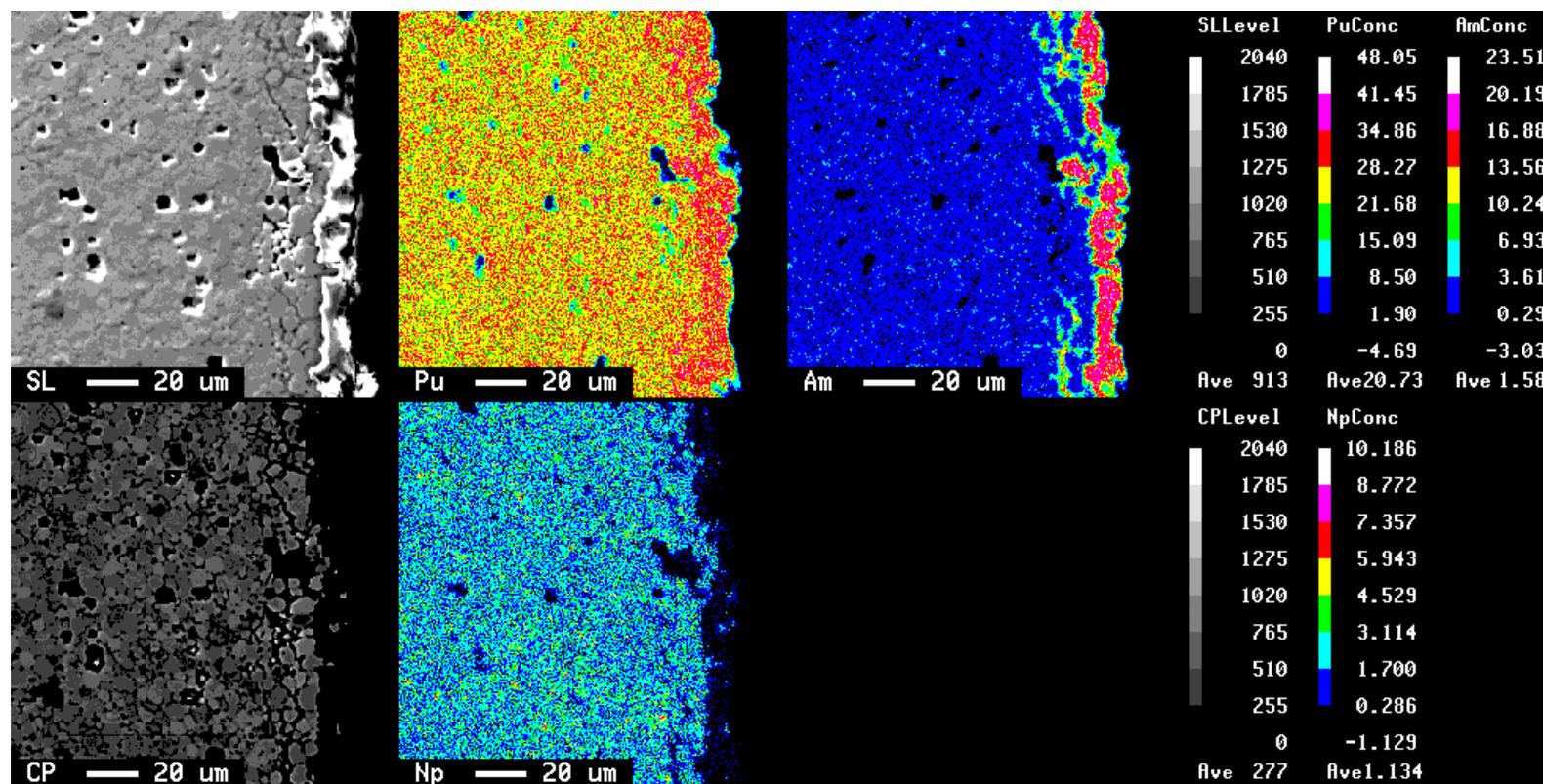


図58(b) 試料2 (熱処理条件1) のペレット外周部の面分析結果 (SEM 反射電子線像, Pu, Am, Np)

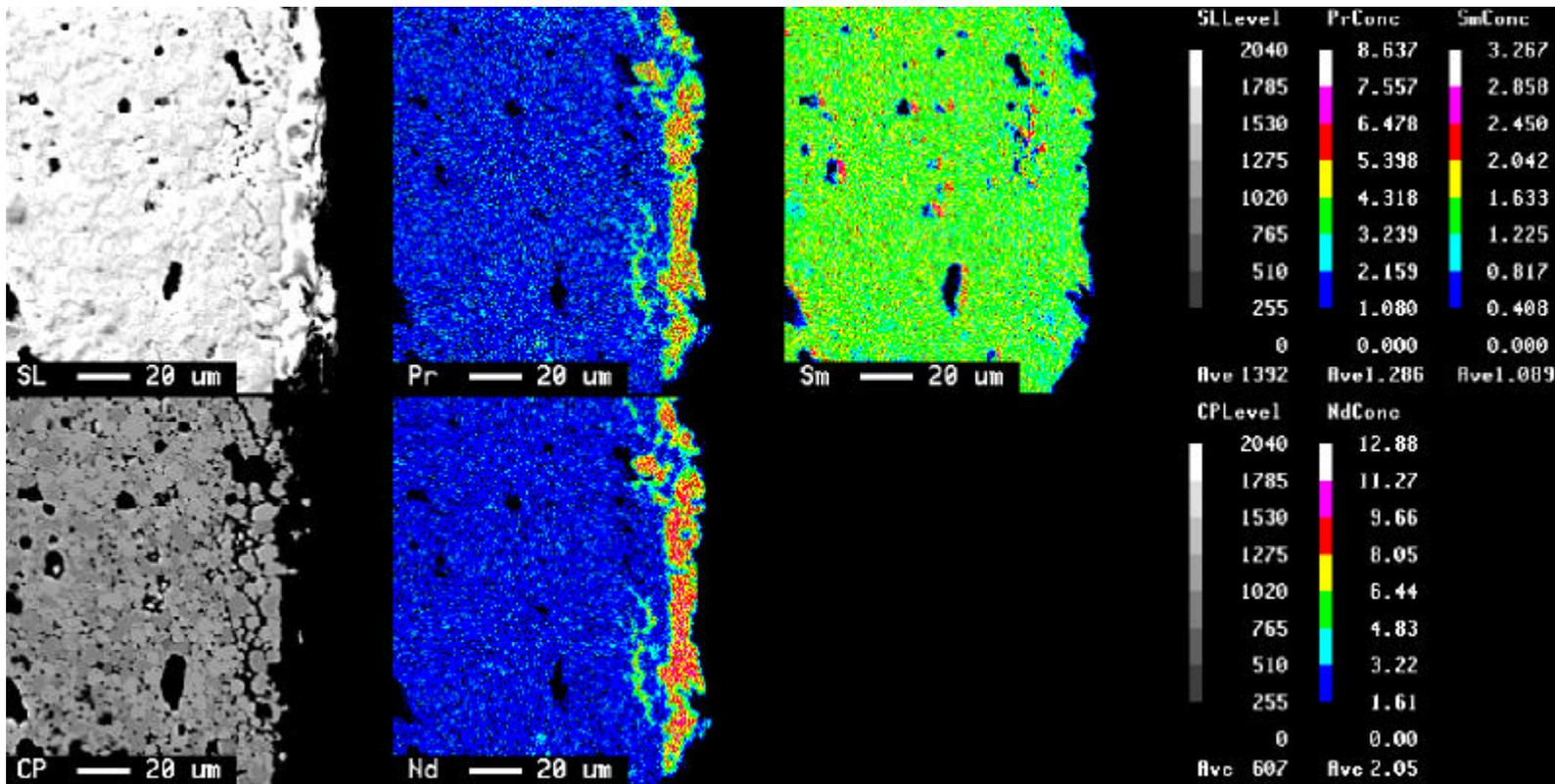


図58(c) 試料2 (熱処理条件1) のペレット外周部の面分析結果 (SEM, 反射電子線像, Pr, Sm, Nd)

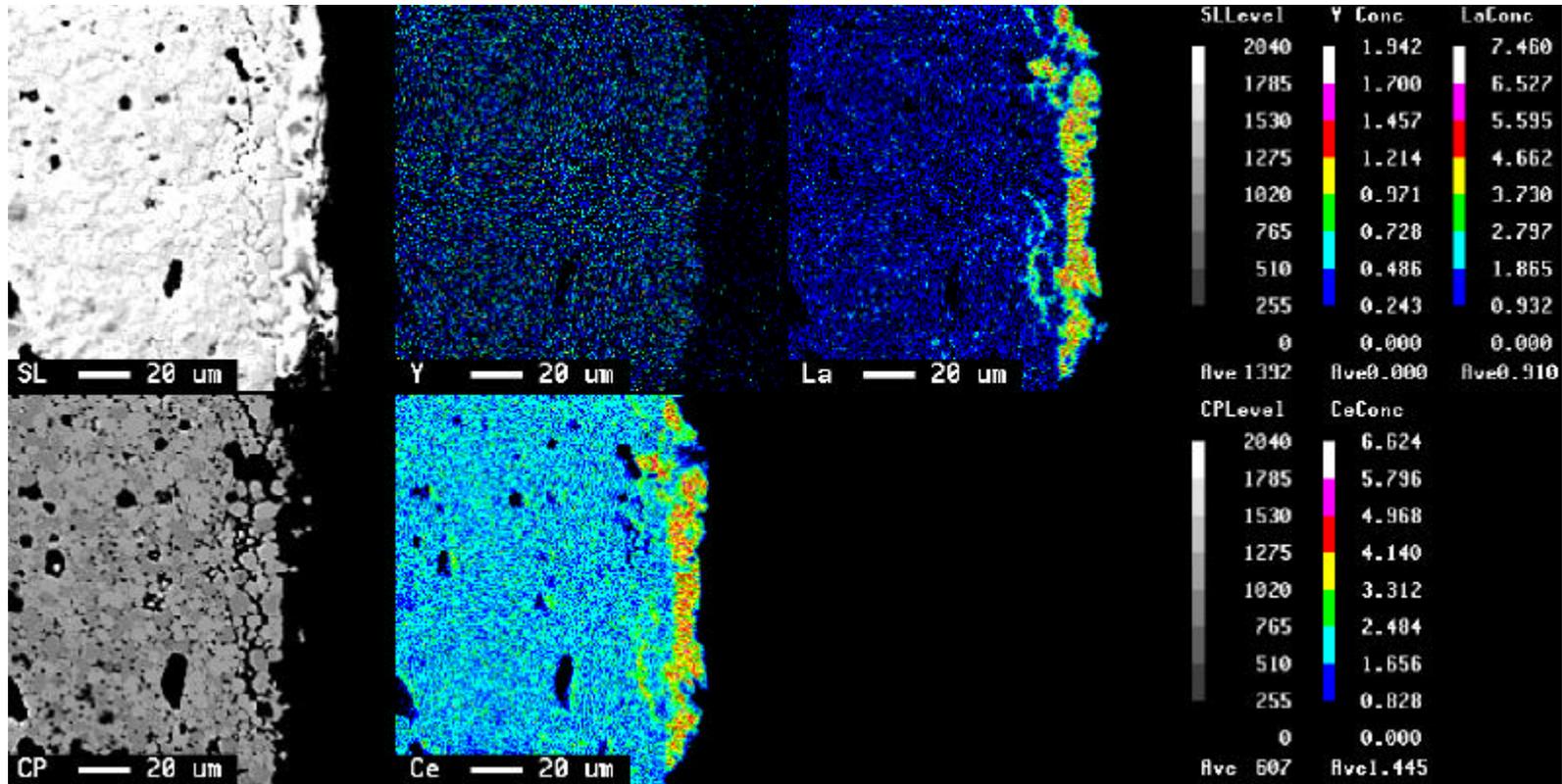


図58(d) 試料2(熱処理条件1)のペレット外周部の面分析結果
(SEM、反射電子線像、Y、La、Ce)

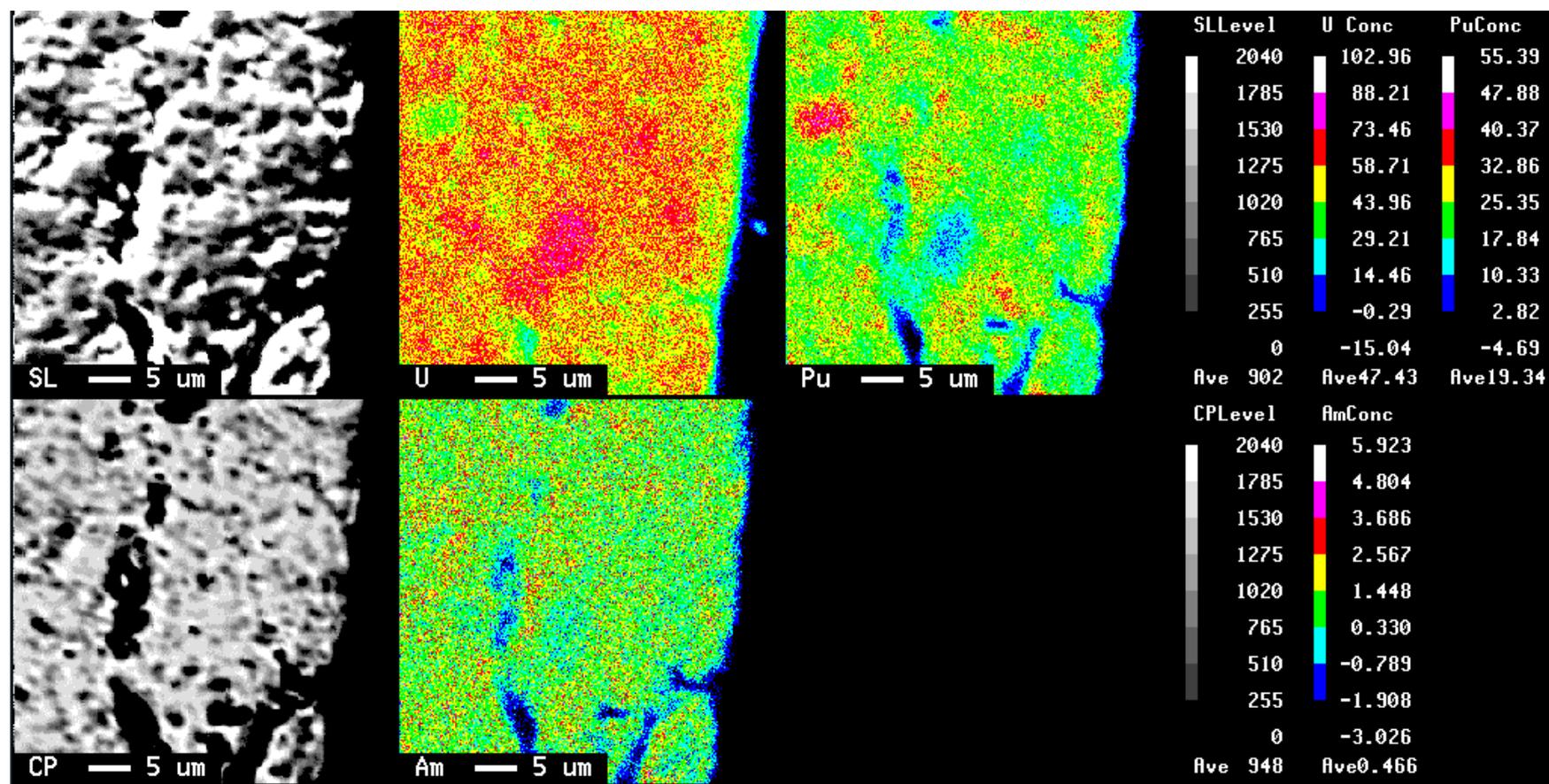


図59(a) 試料2 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、U Pu Am)

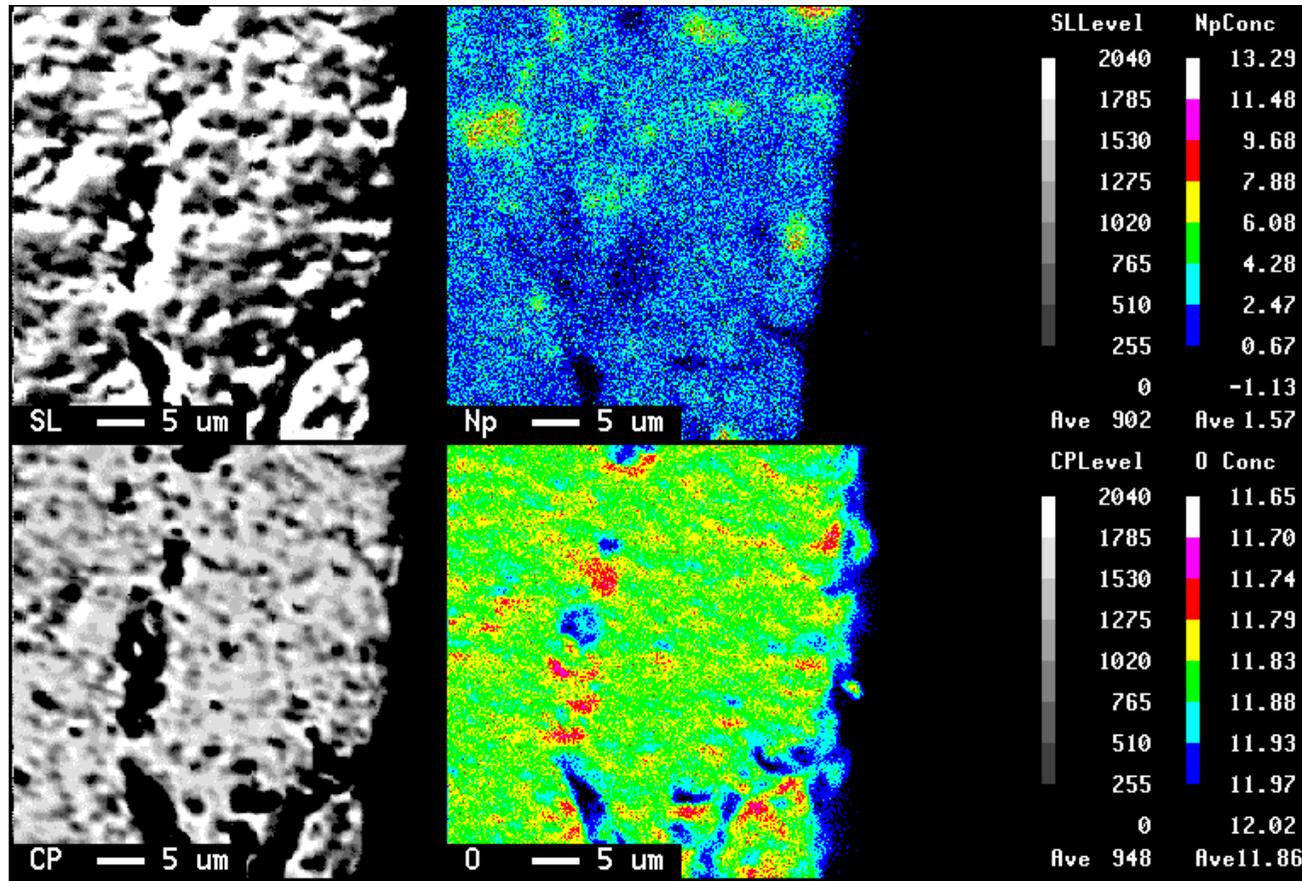


図59(b) 試料2 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Np、O)

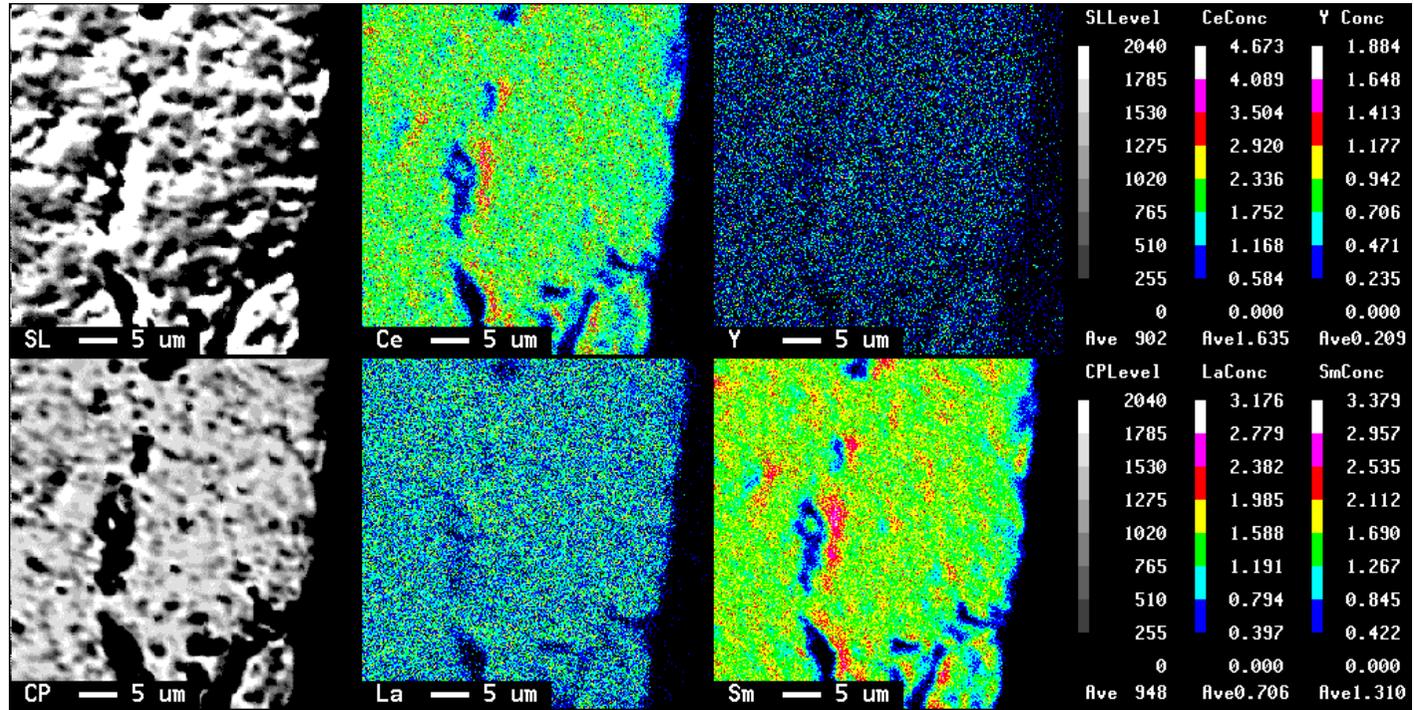


図59(c) 試料2 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Ce、Y、La、Sm)

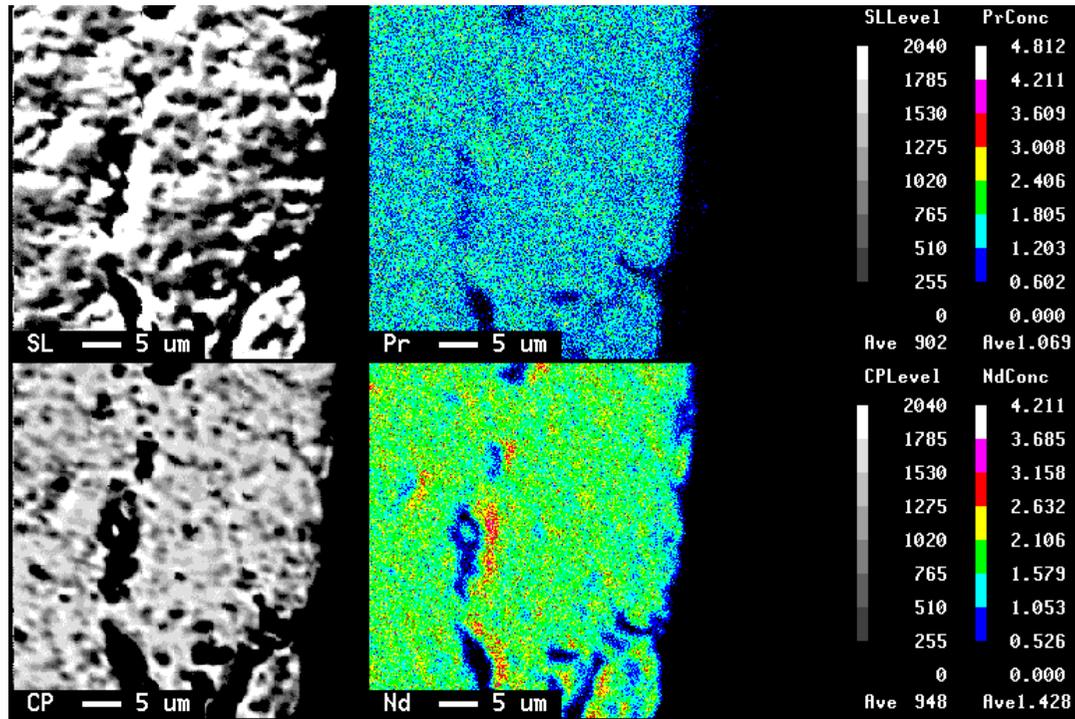


図59(d) 試料2 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Pr、Nd)

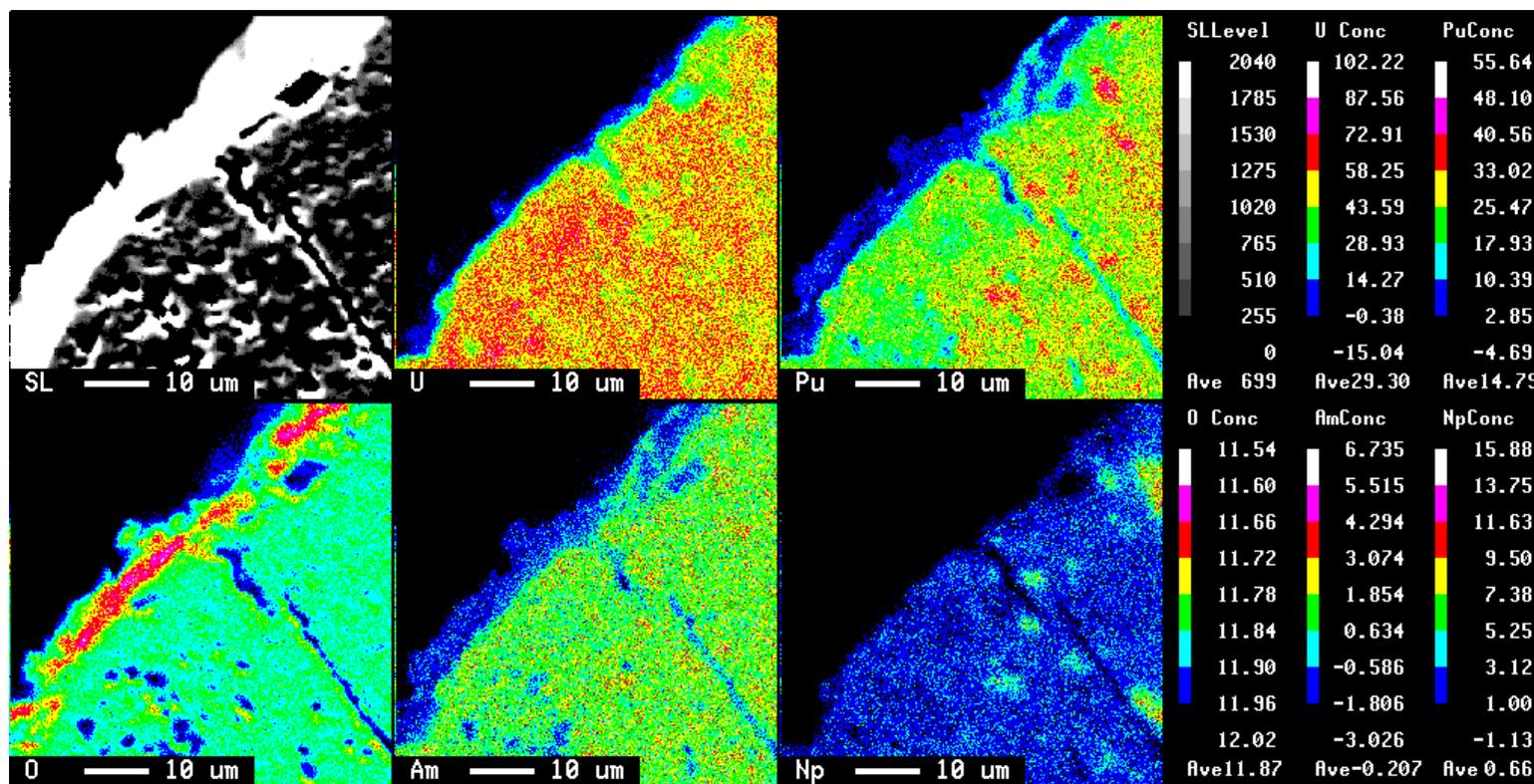


図60(a) 試料2 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像 U Pu Q Am Np)

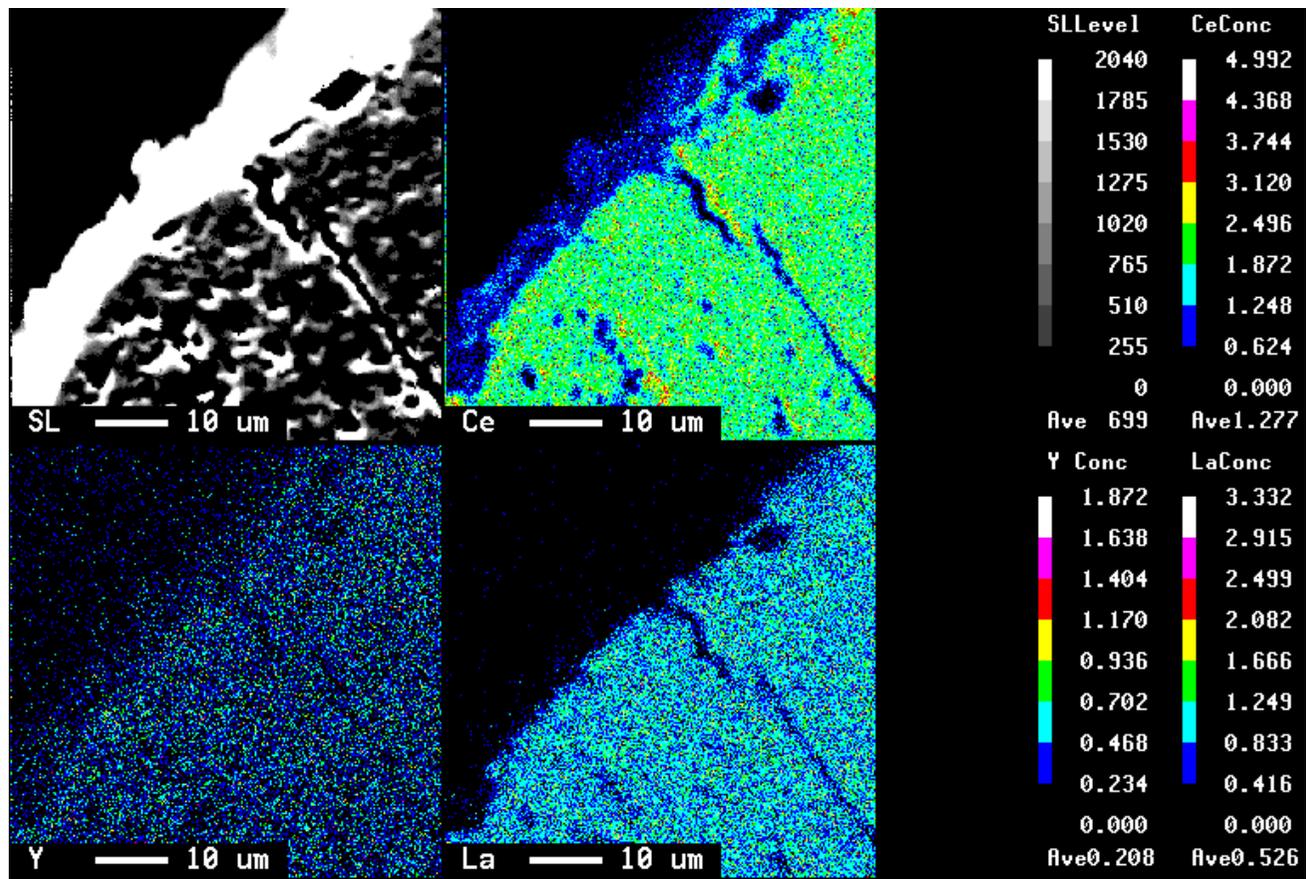


図60(b) 試料2 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、Ce、Y、La)

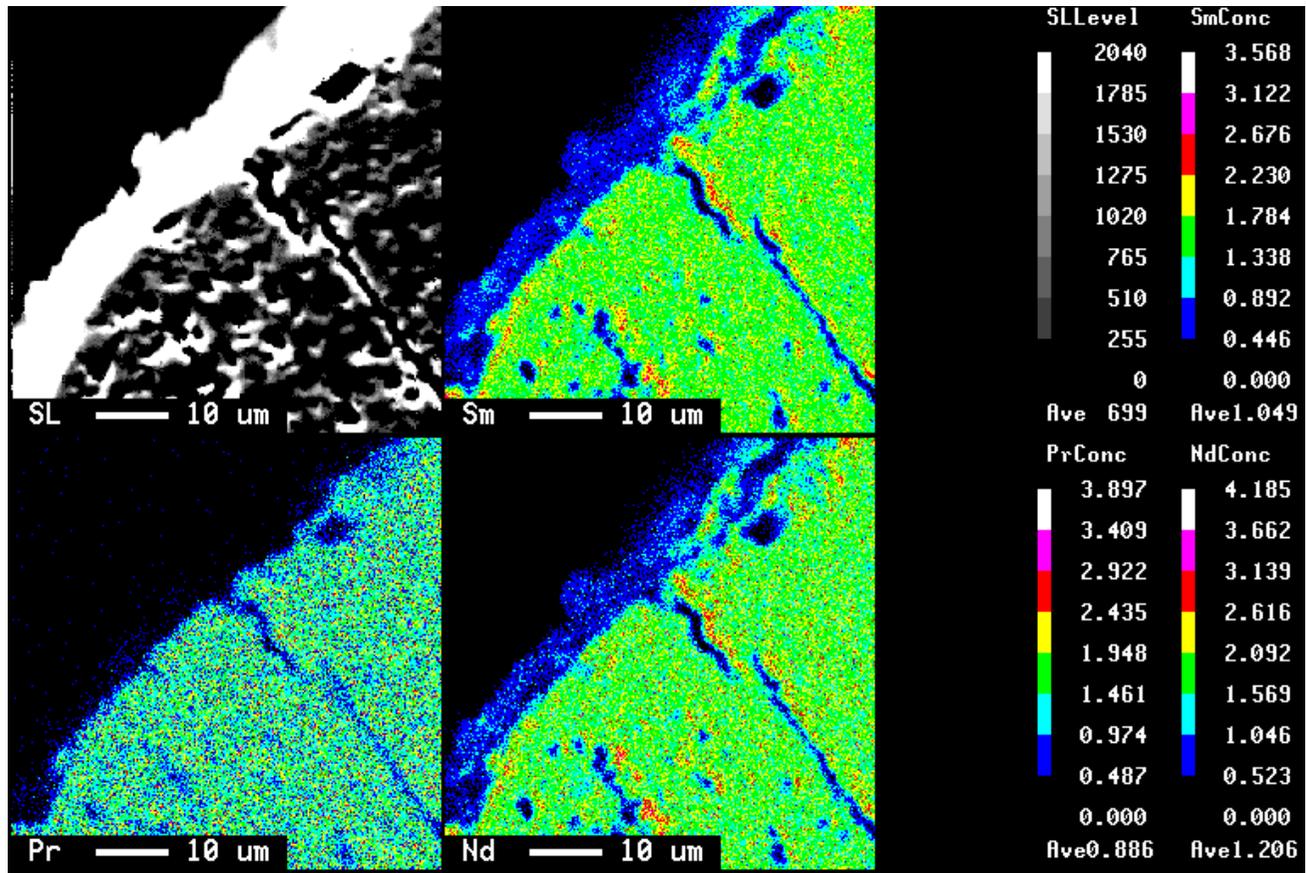
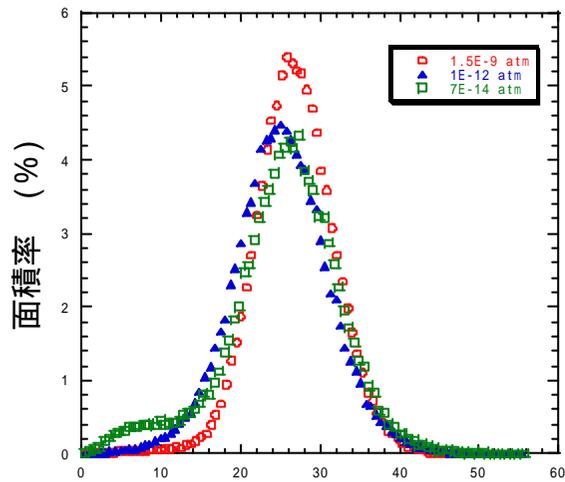
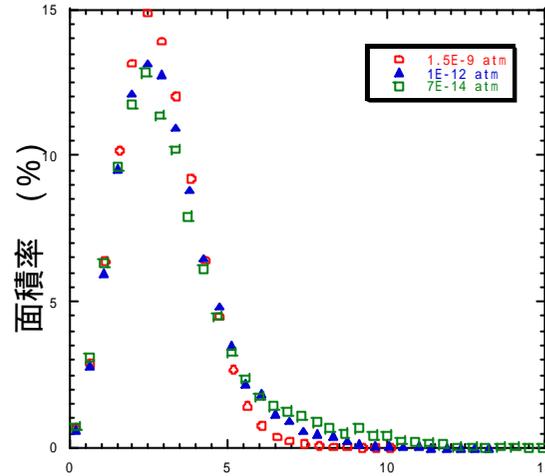


図60(c) 試料2 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像, Sm, Pr, Nd)



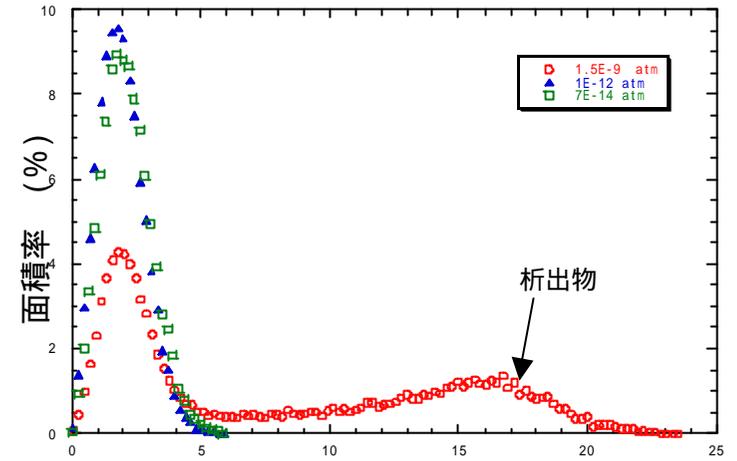
Pu濃度 (Pu/MOX %)

(a) Pu濃度分布



Np濃度 (Np/MOX%)

(b) Np濃度分布



Am濃度 (Am/MOX%)

(c) Am濃度分布

図61 試料2 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布

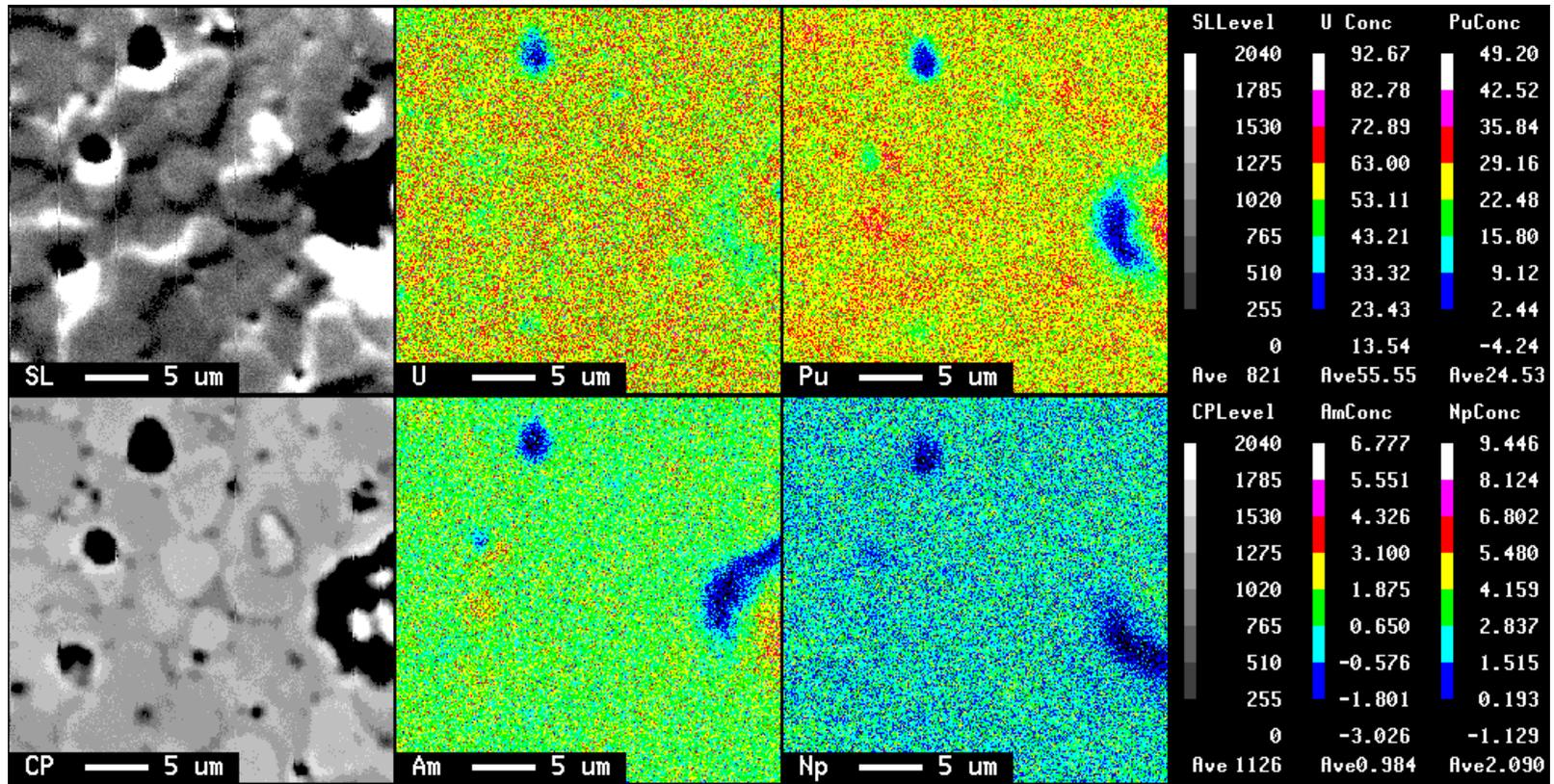


図62(a) 試料3 (熱処理条件1) のペレット中心部の面分析結果
(SEM、反射電子線像、U、Pu、Am、Np)

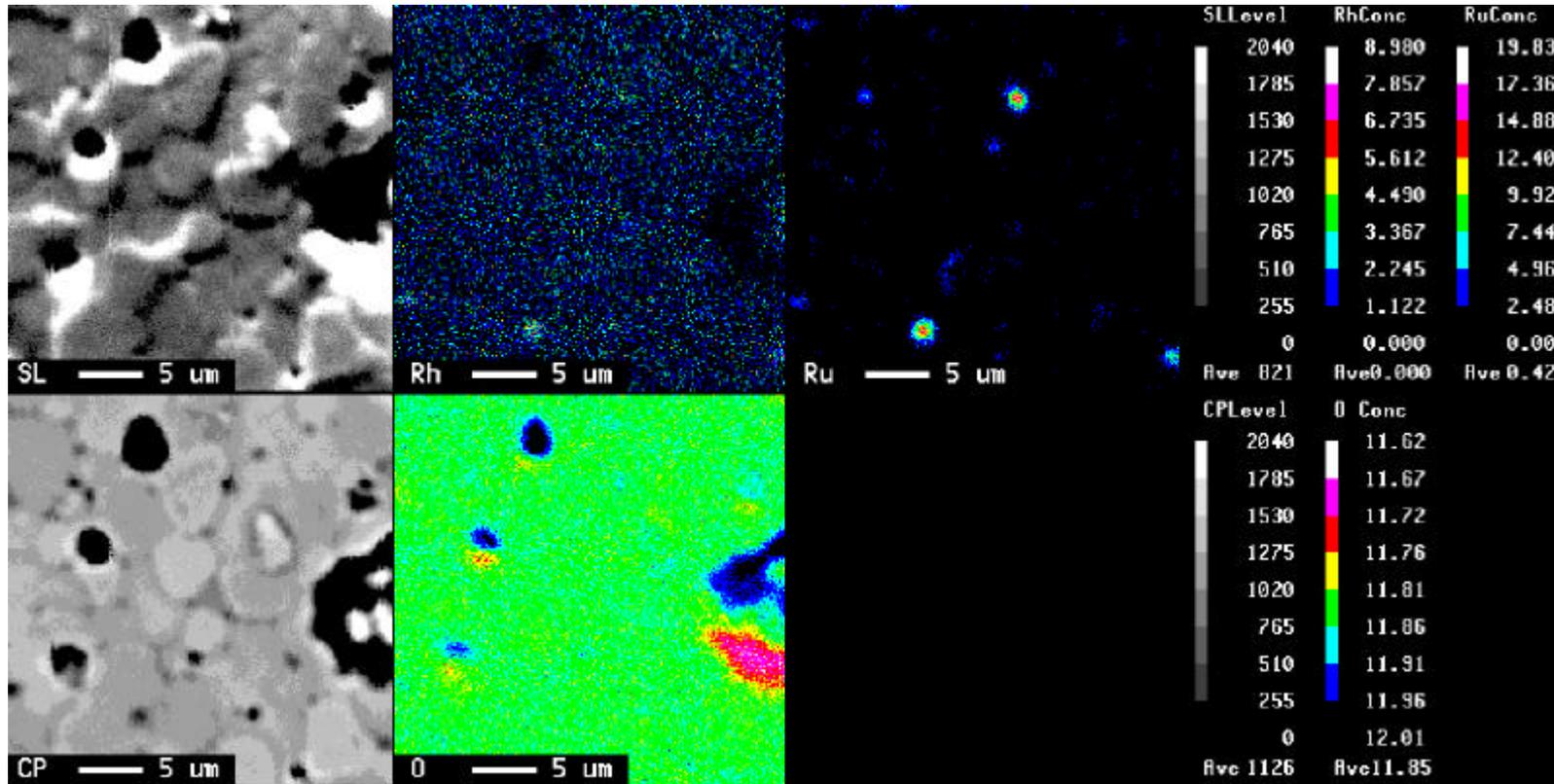


図62(b) 試料3(熱処理条件1)のペレット中心部の面分析結果
(SEM、反射電子線像、Rh、Ru、O)

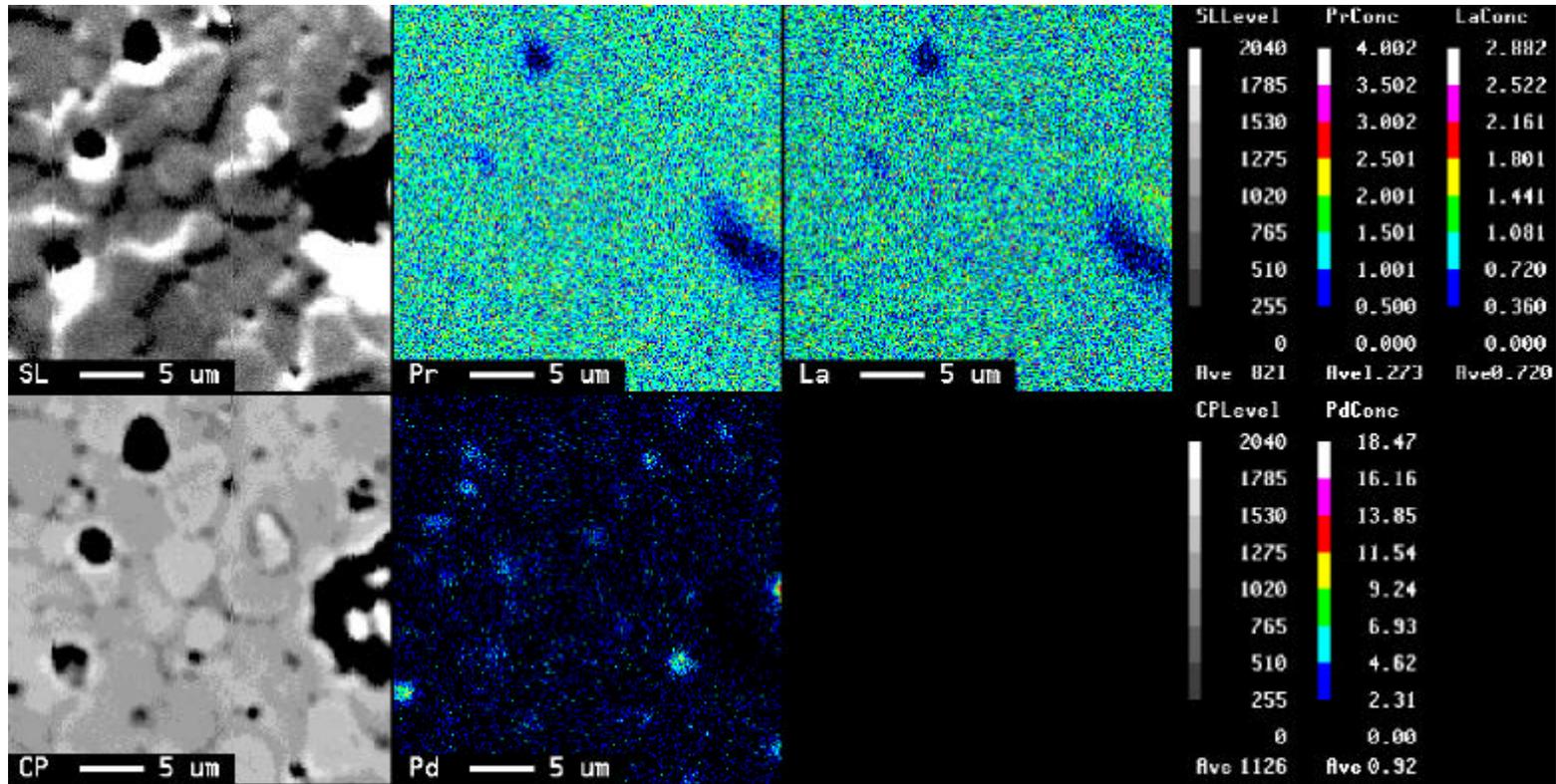


図62(c) 試料3 (熱処理条件1) のペレット中心部の面分析結果 (SEM 反射電子線像 Pr, La, Pd)

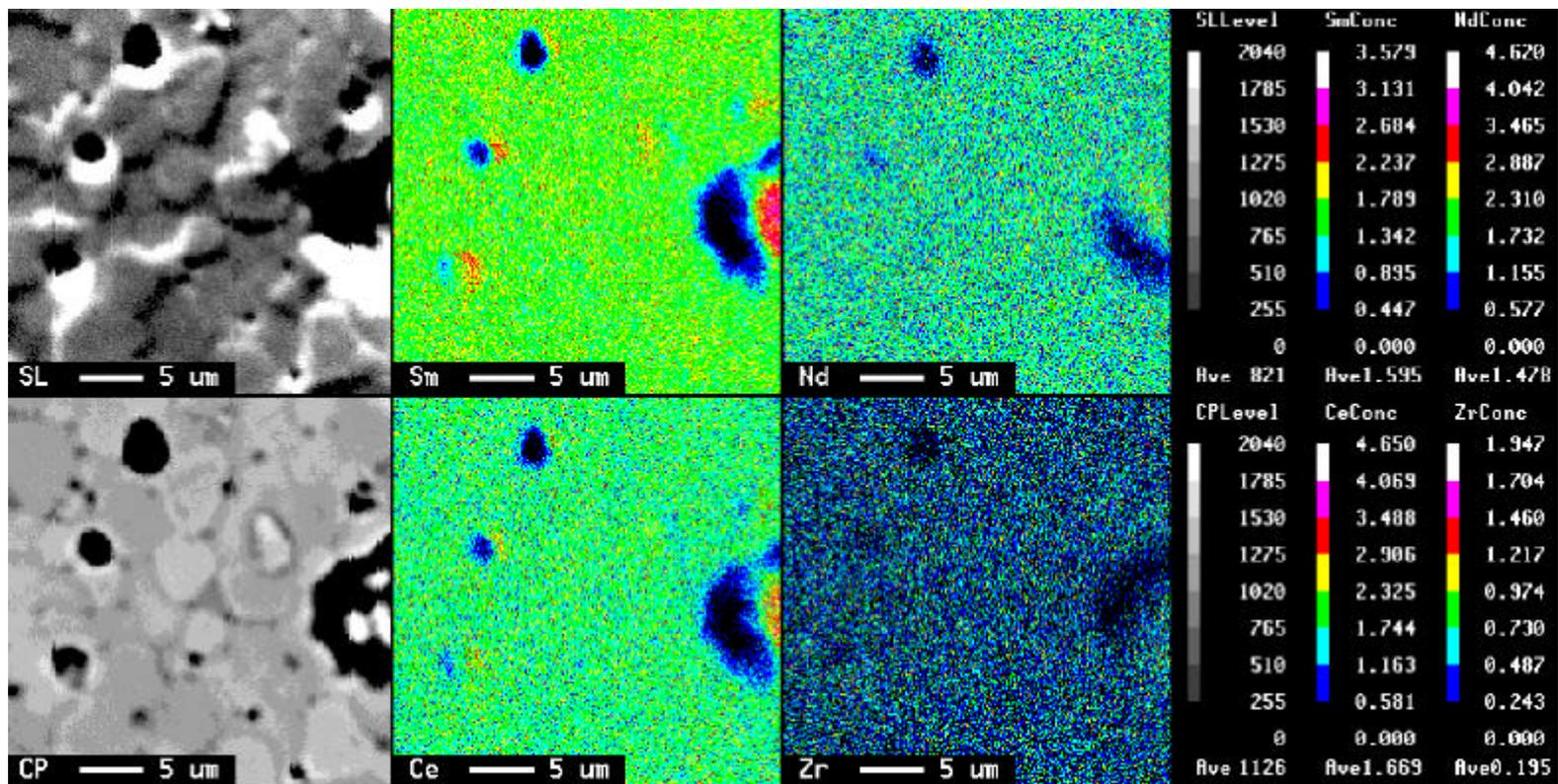


図62(d) 試料3(熱処理条件1)のペレット中心部の面分析結果
(SEM 反射電子線像 Sm, Nd, Ce, Zr)

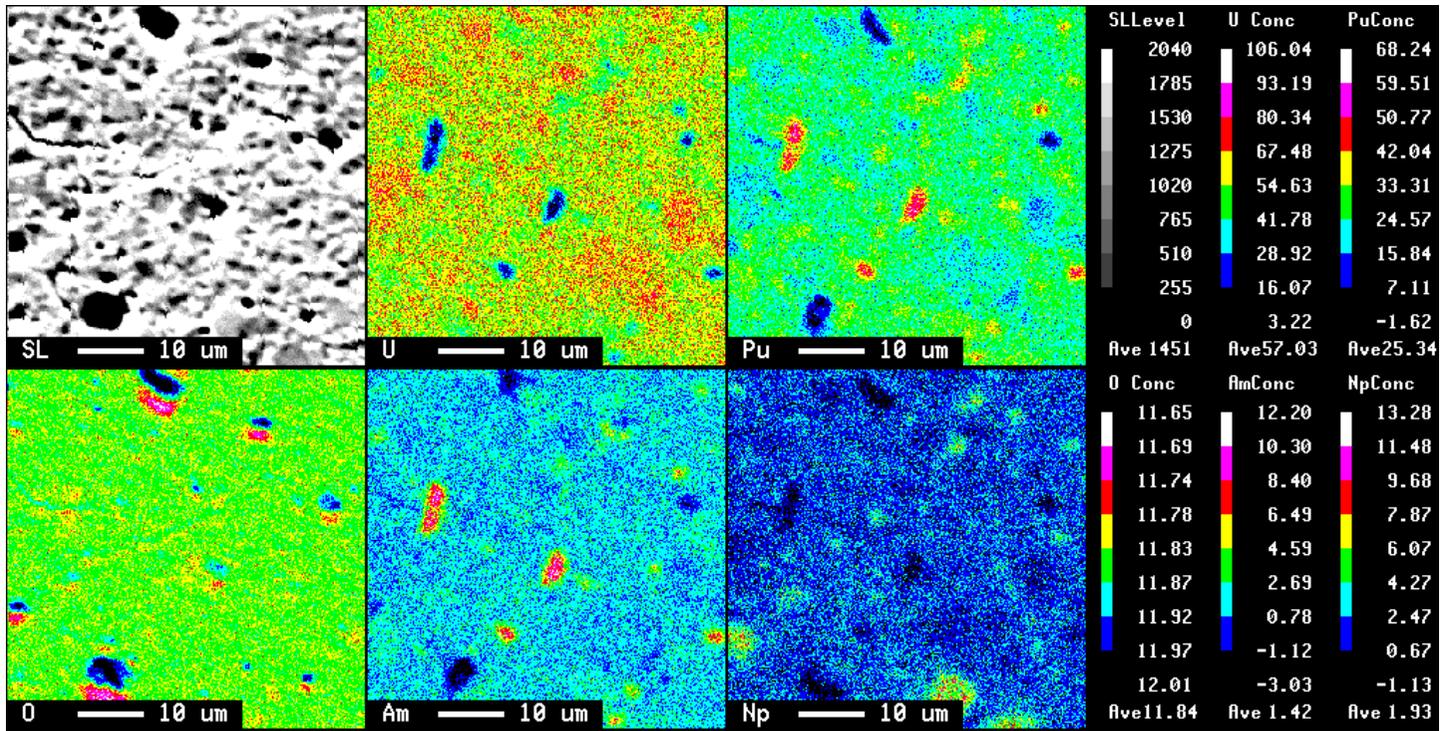


図63(a) 試料3 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像 U Pu Q Am Np)

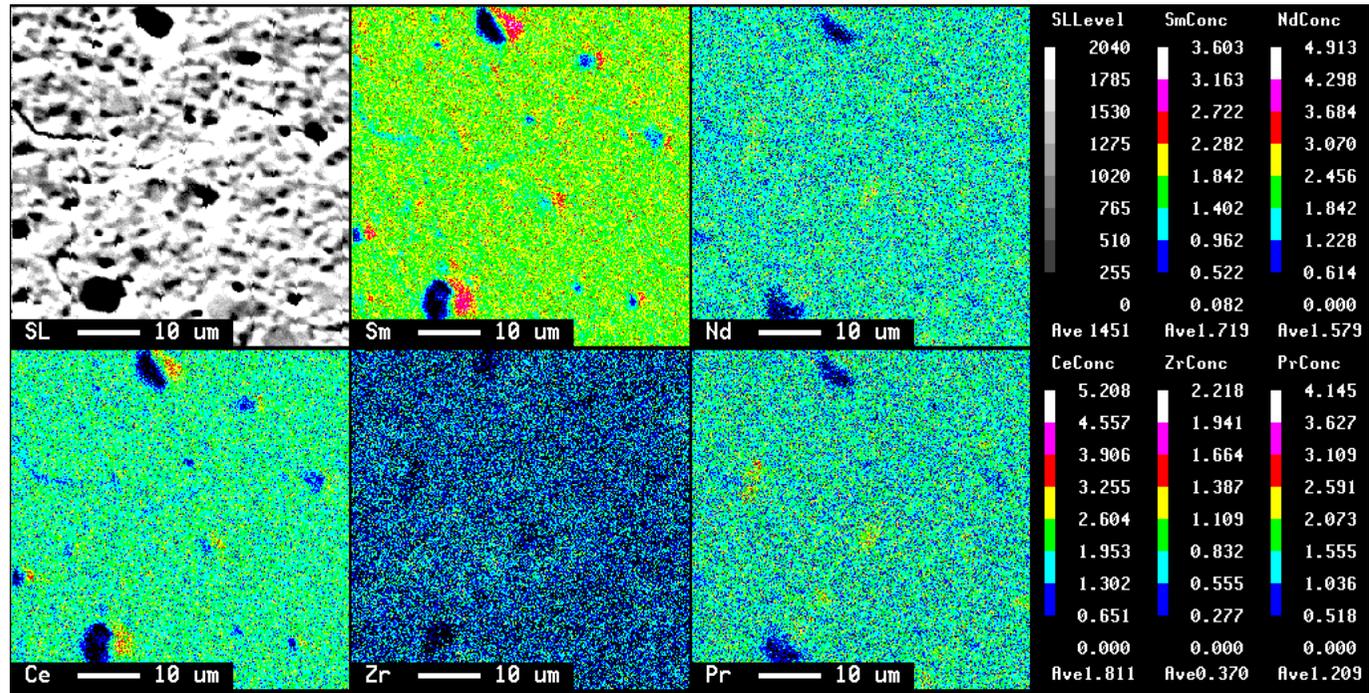


図63(b) 試料3 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像, Sm, Nd, Ce, Zr, Pr)

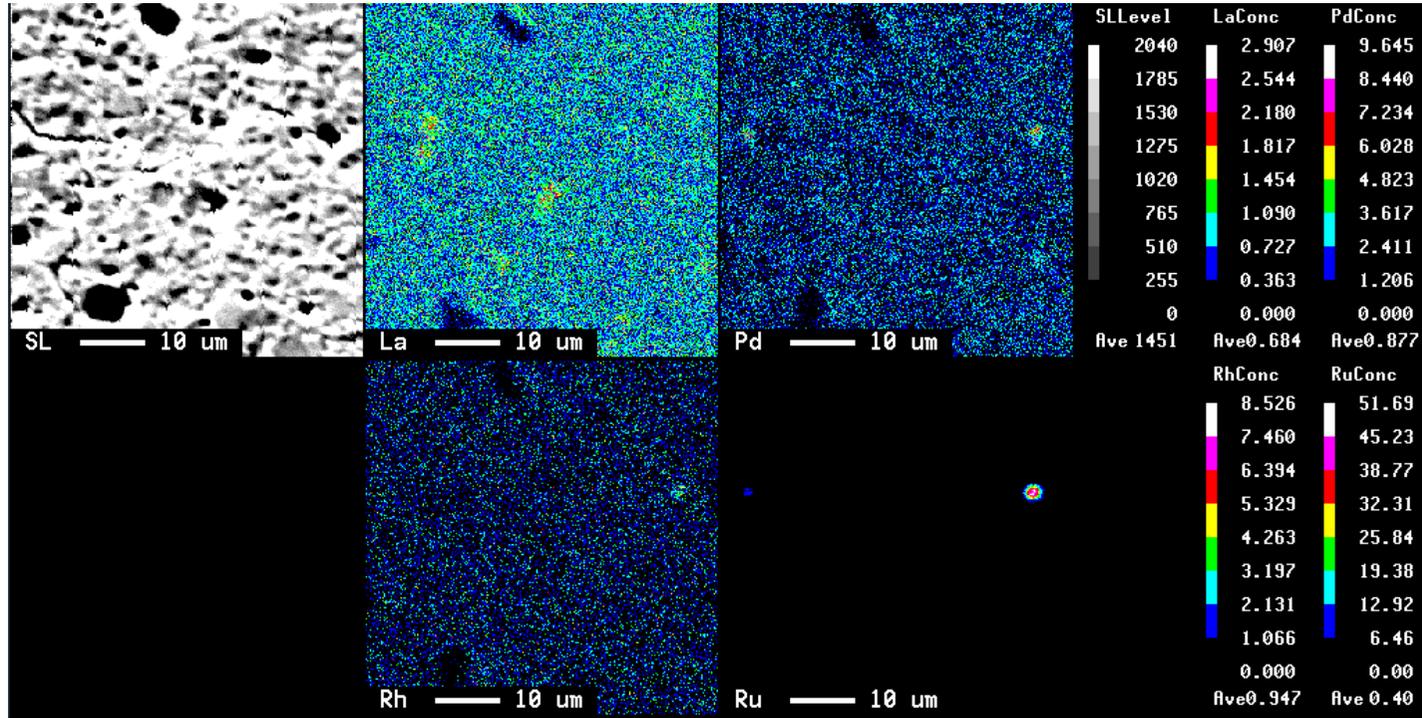


図63(c) 試料3 (熱処理条件2) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像 La Pd Rh Ru)

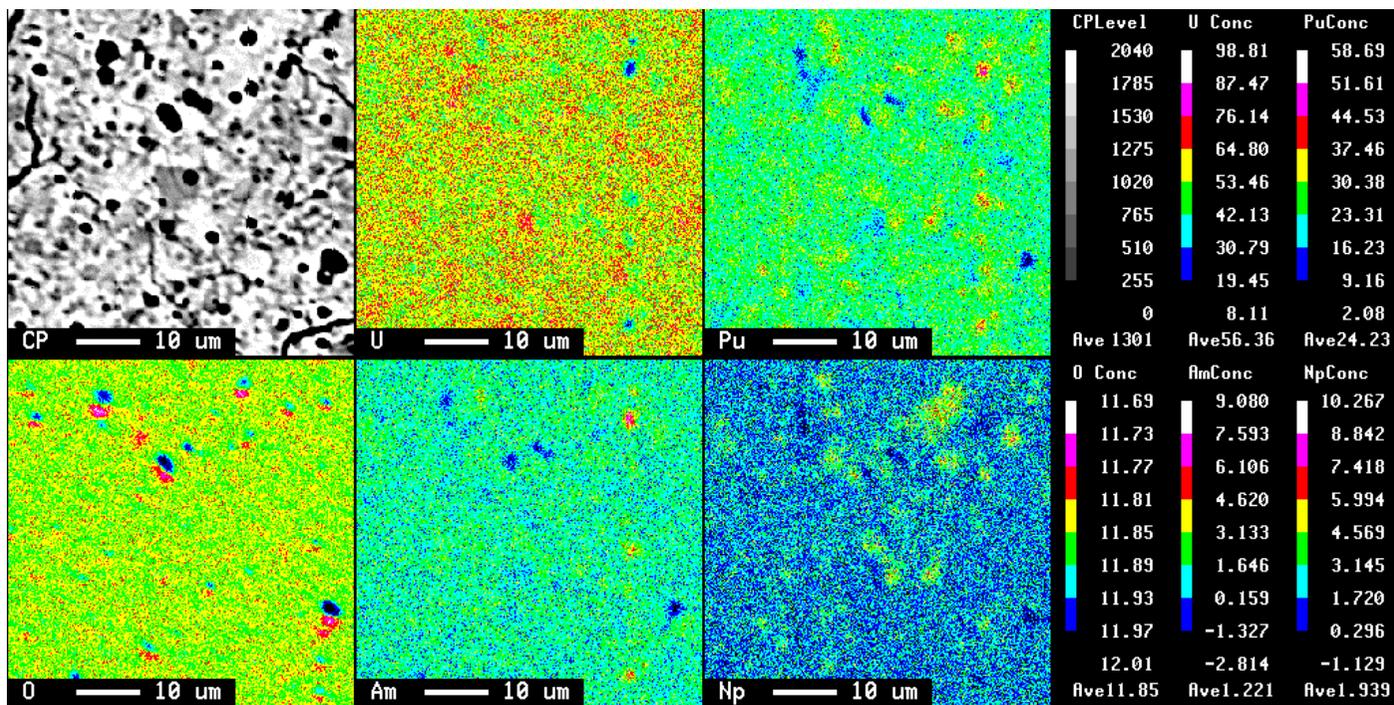


図64(a) 試料3 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果
(反射電子線像、U Pu Q Am Np)

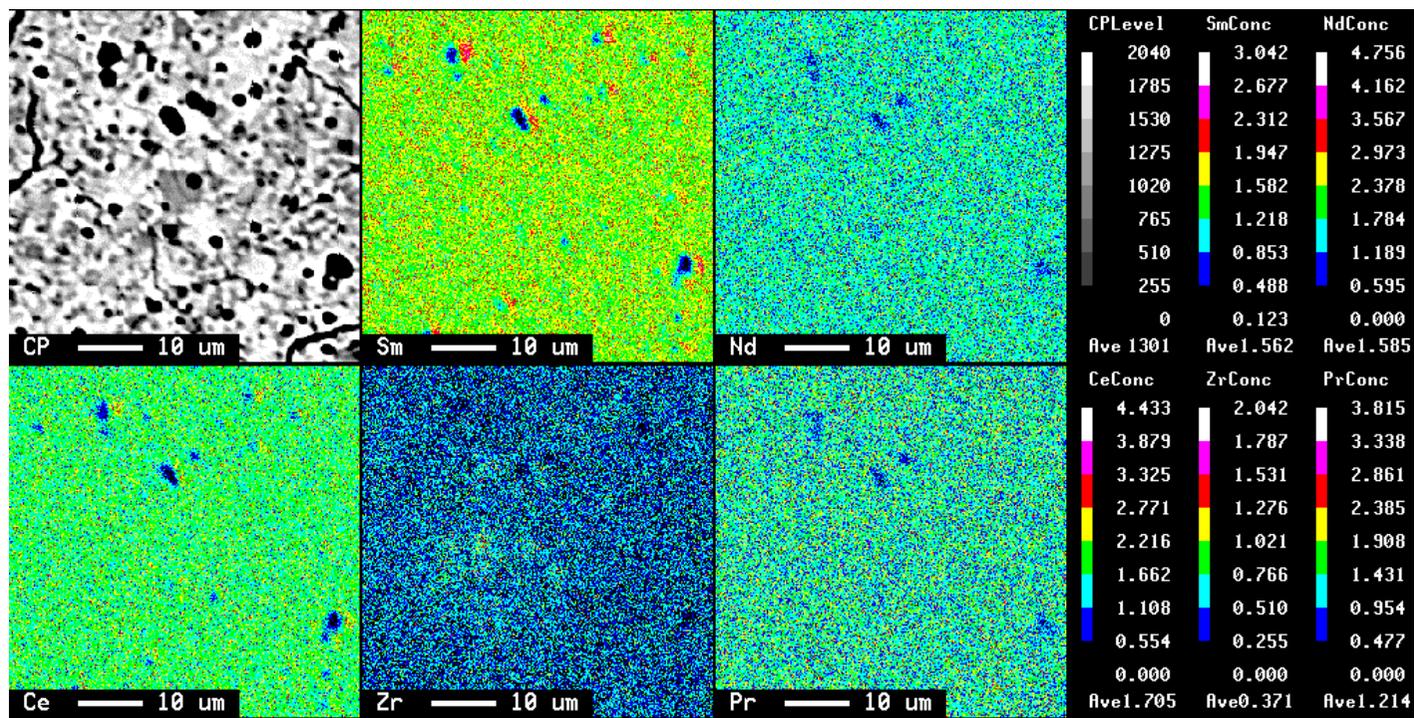


図64(b) 試料3 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果
(反射電子線像、Sm, Nd, Ce, Zr, Pr)

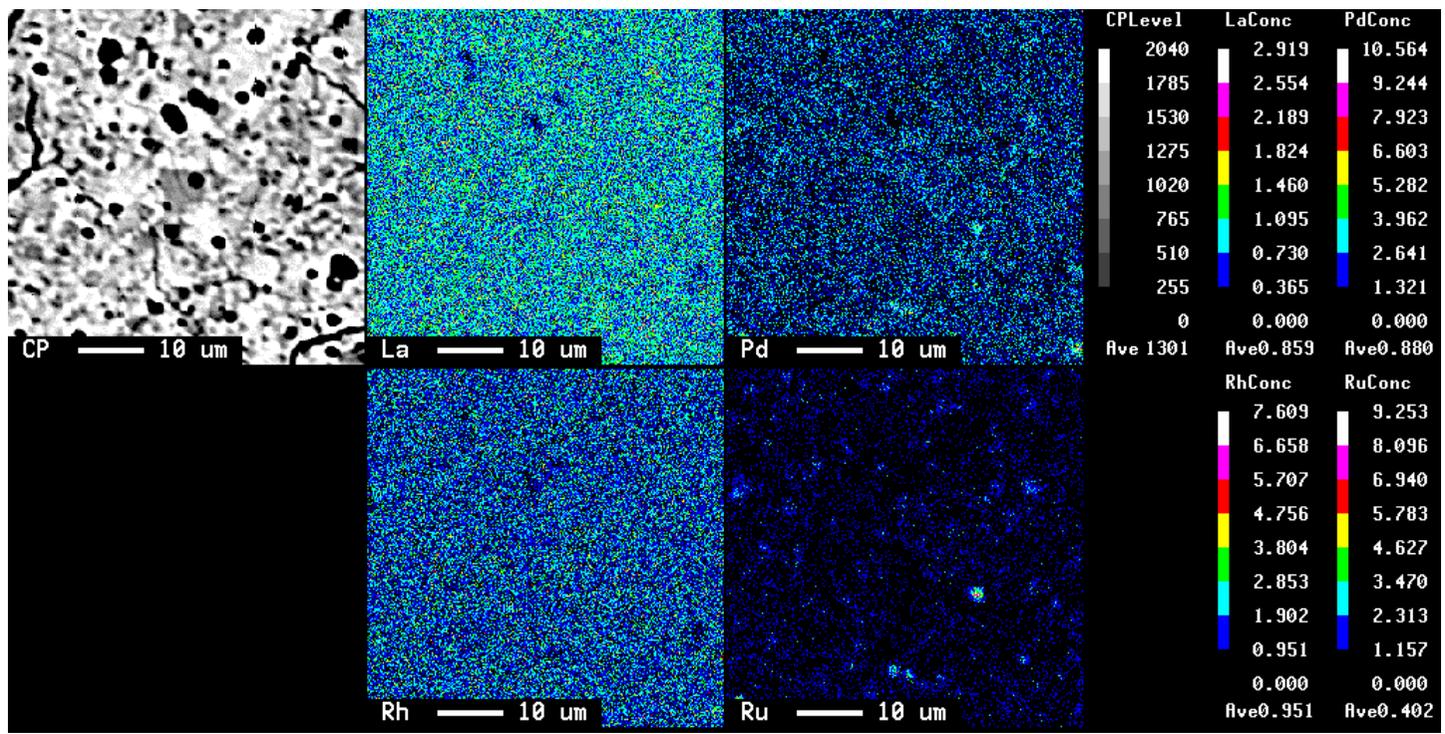
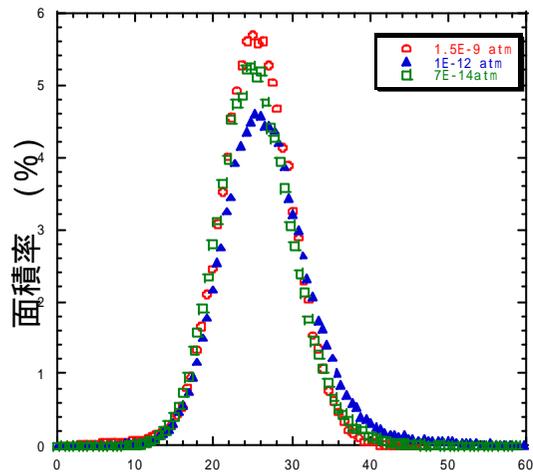
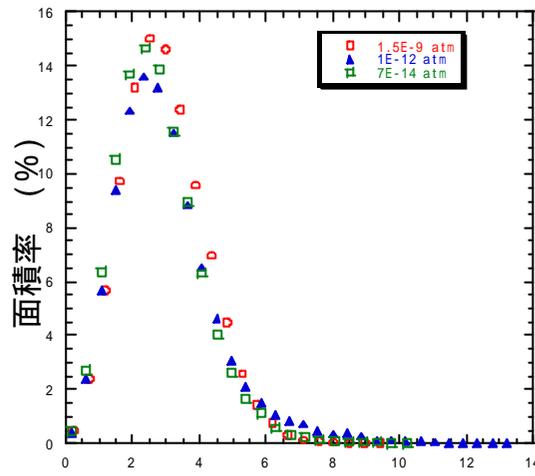


図64(c) 試料3 (熱処理条件3) のペレット中心部の面分析結果 (反射電子線像、La Pd Rh Ru)



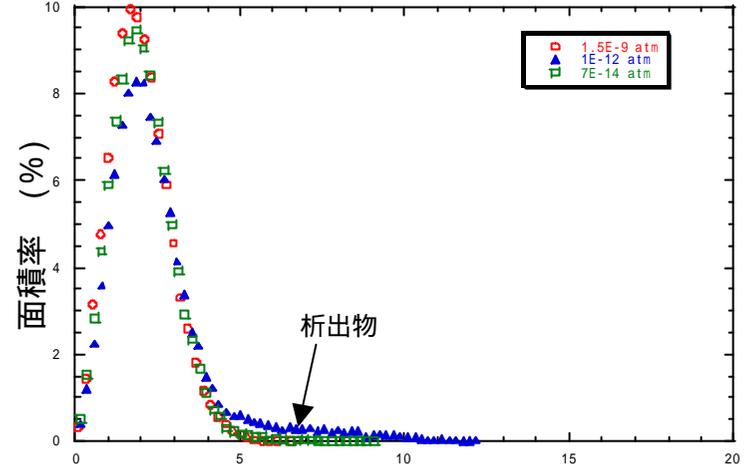
Pu濃度 (Pu/MOX %)

(a) Pu濃度分布



Np濃度 (Np/MOX%)

(b) Np濃度分布



Am濃度 (Am/MOX%)

(c) Am濃度分布

図65 試料3 (1700 焼結) のペレット中心部における元素分布

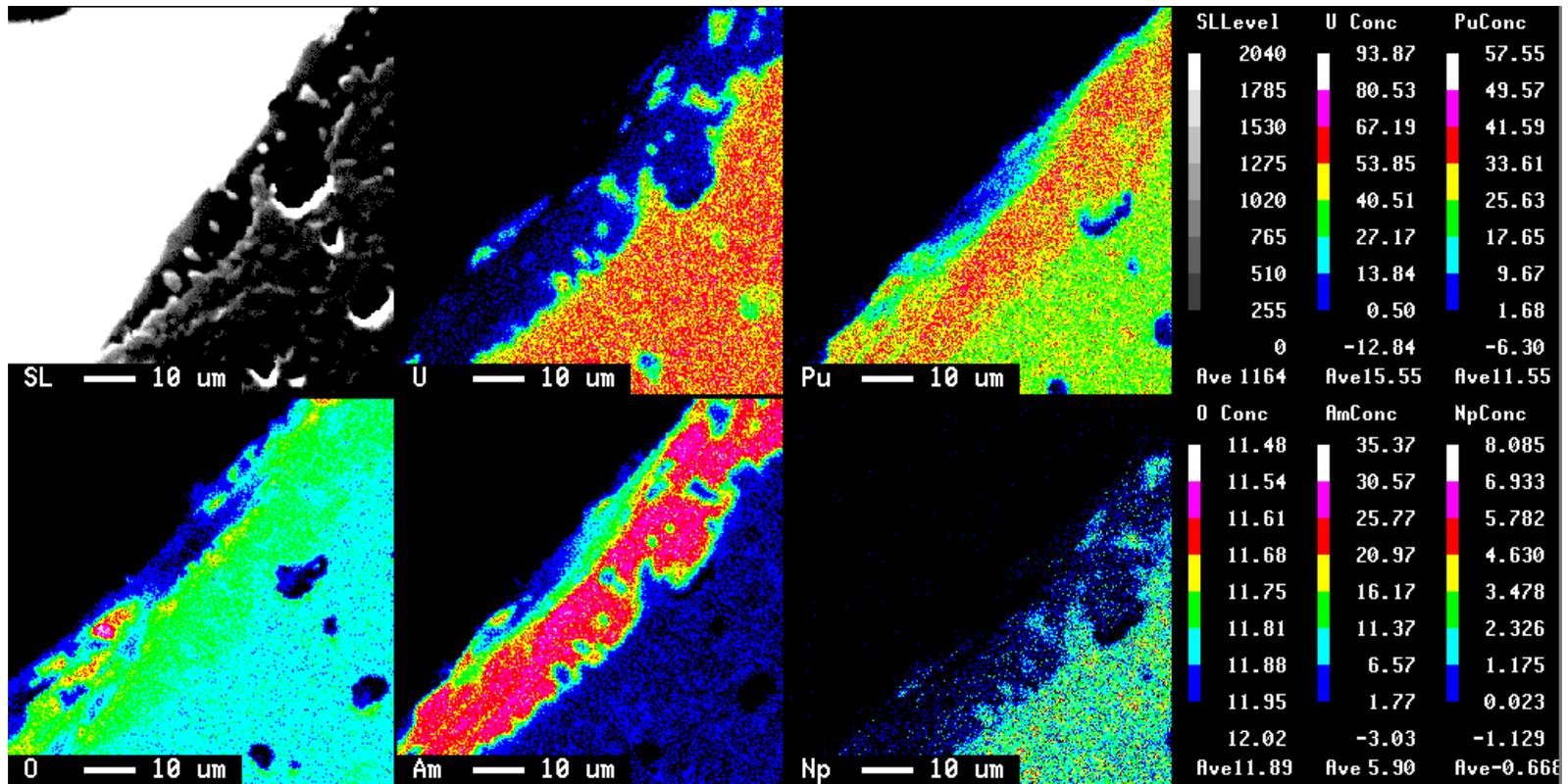


図66(a) 試料3 (熱処理条件1) のペレット外周部の面分析結果
(SEM, U, Pu, Q, Am, Np)

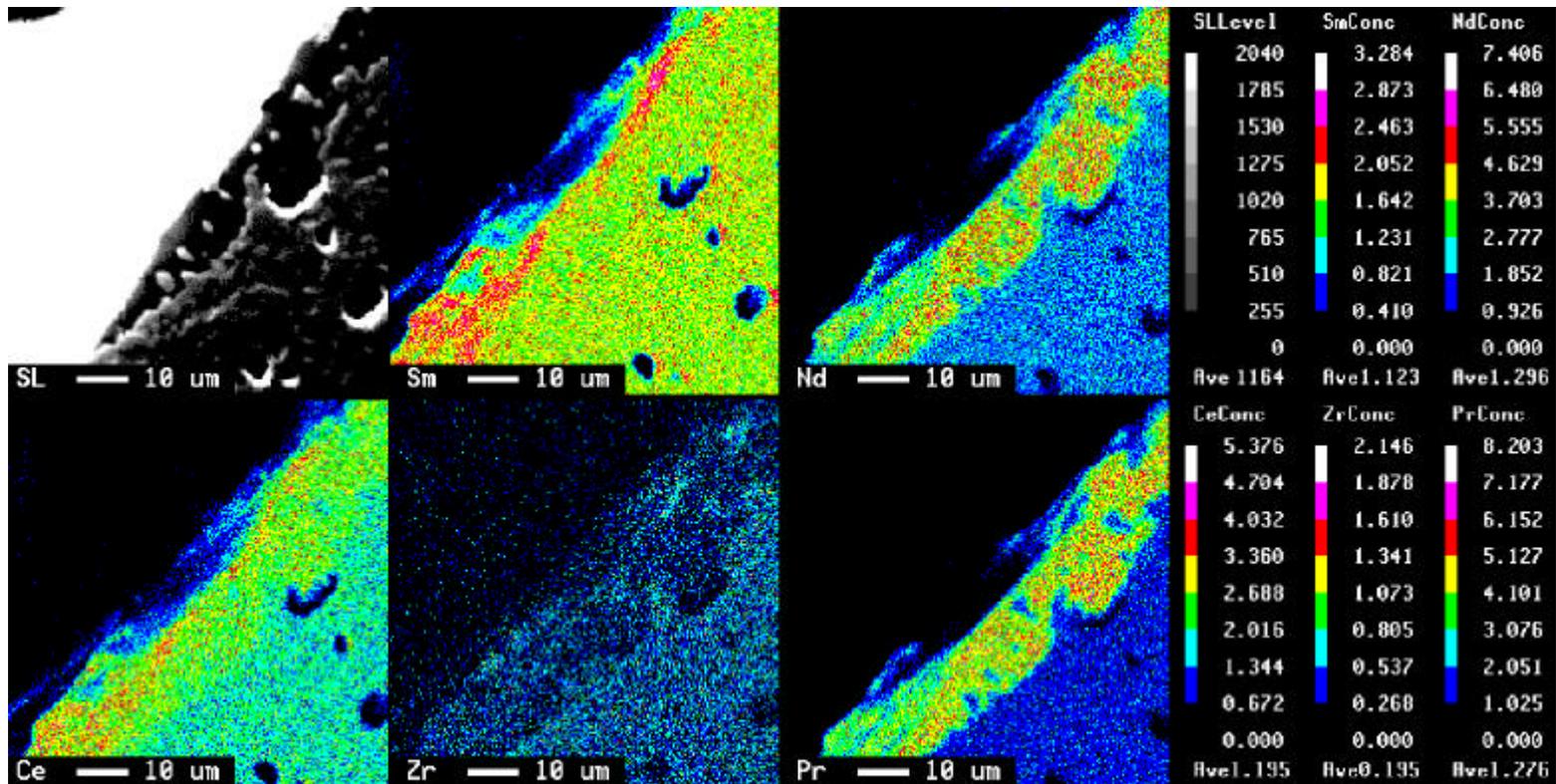


図66(b) 試料3(熱処理条件1)のペレット外周部の面分析結果
(SEM, Sm, Nd, Ce, Zr, Pr)

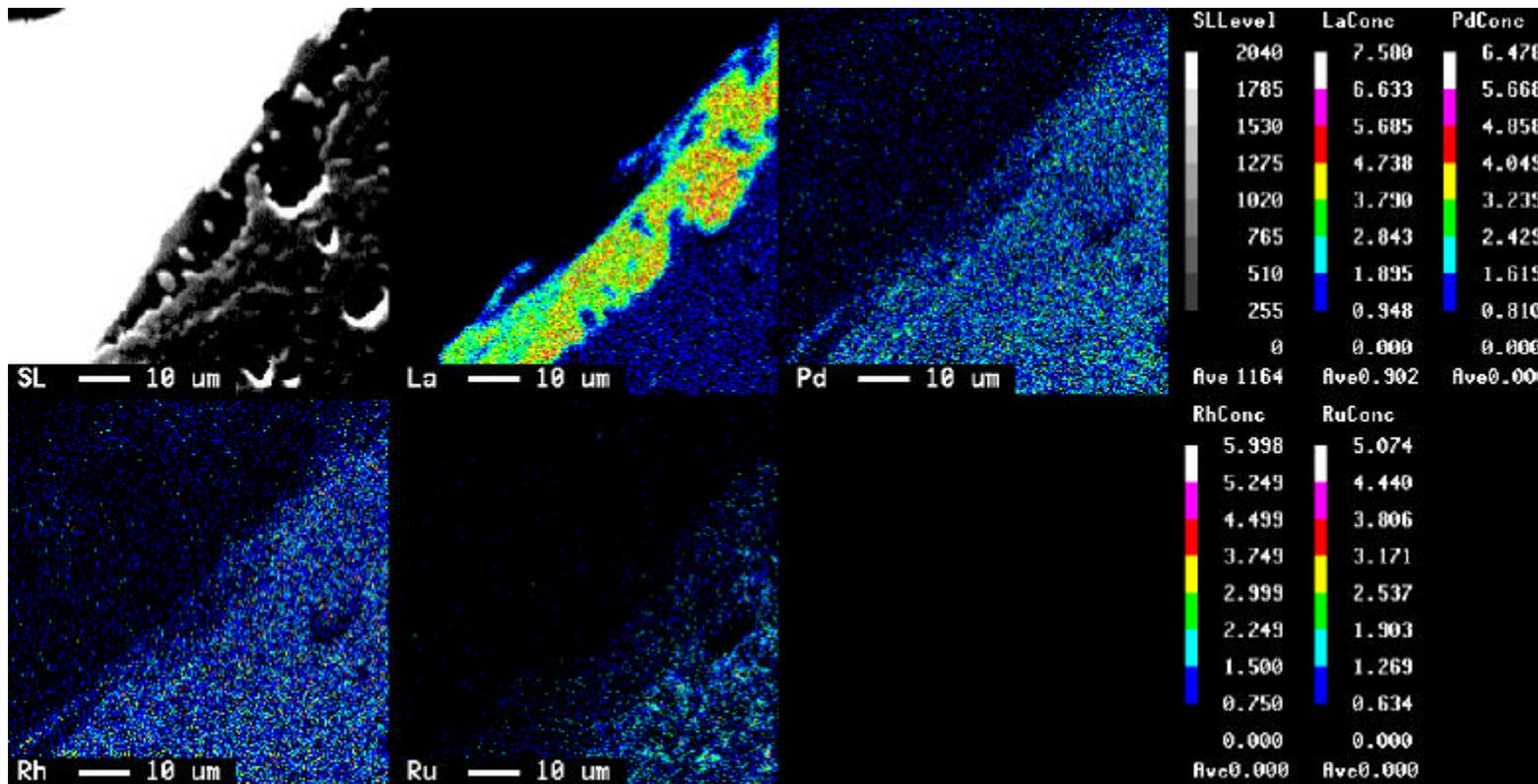


図66(c) 試料3 (熱処理条件1) のペレット外周部の面分析結果 (SEM, La, Pd, Rh, Ru)

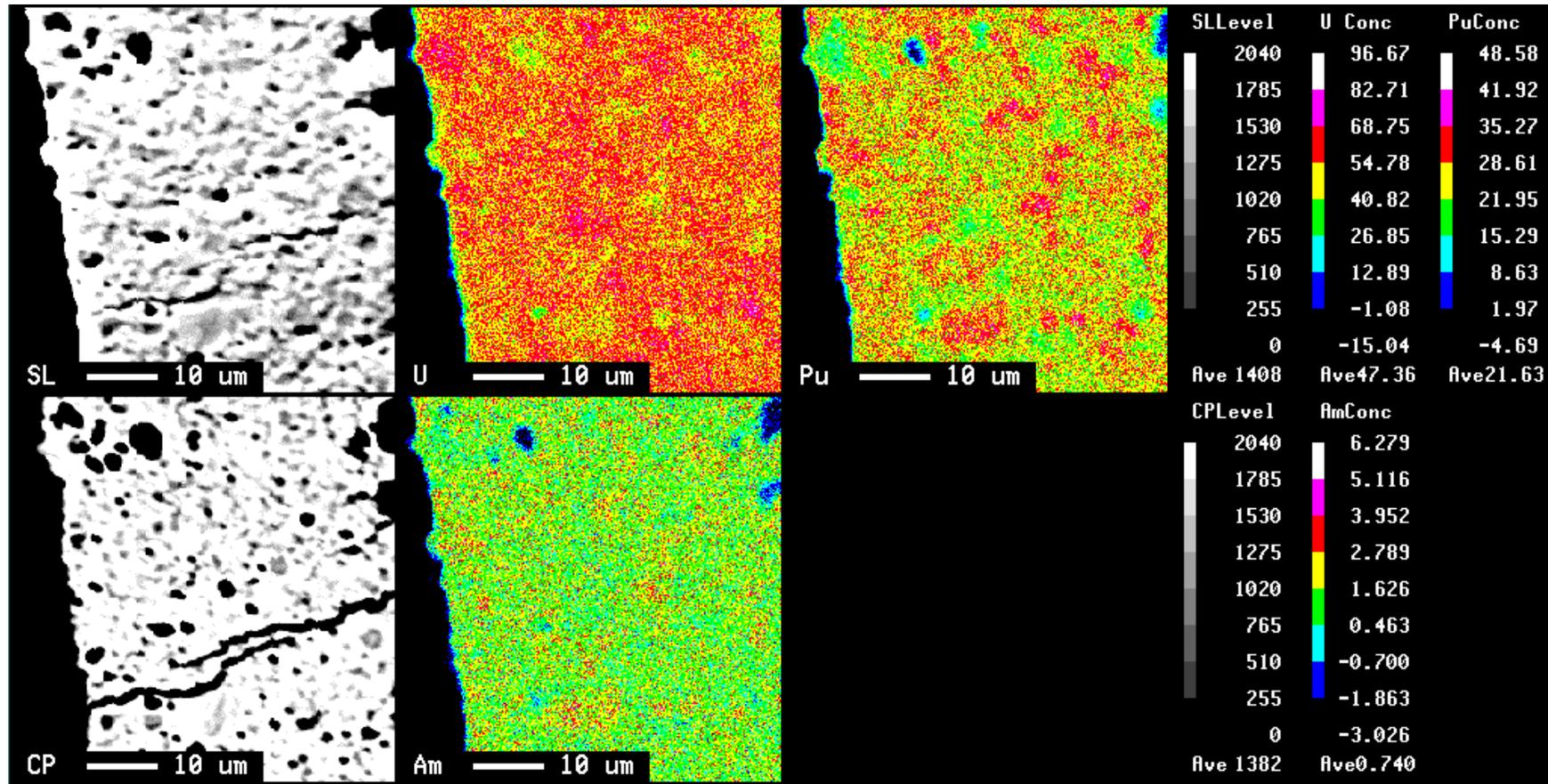


図67(a) 試料3 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、U Pu Am)

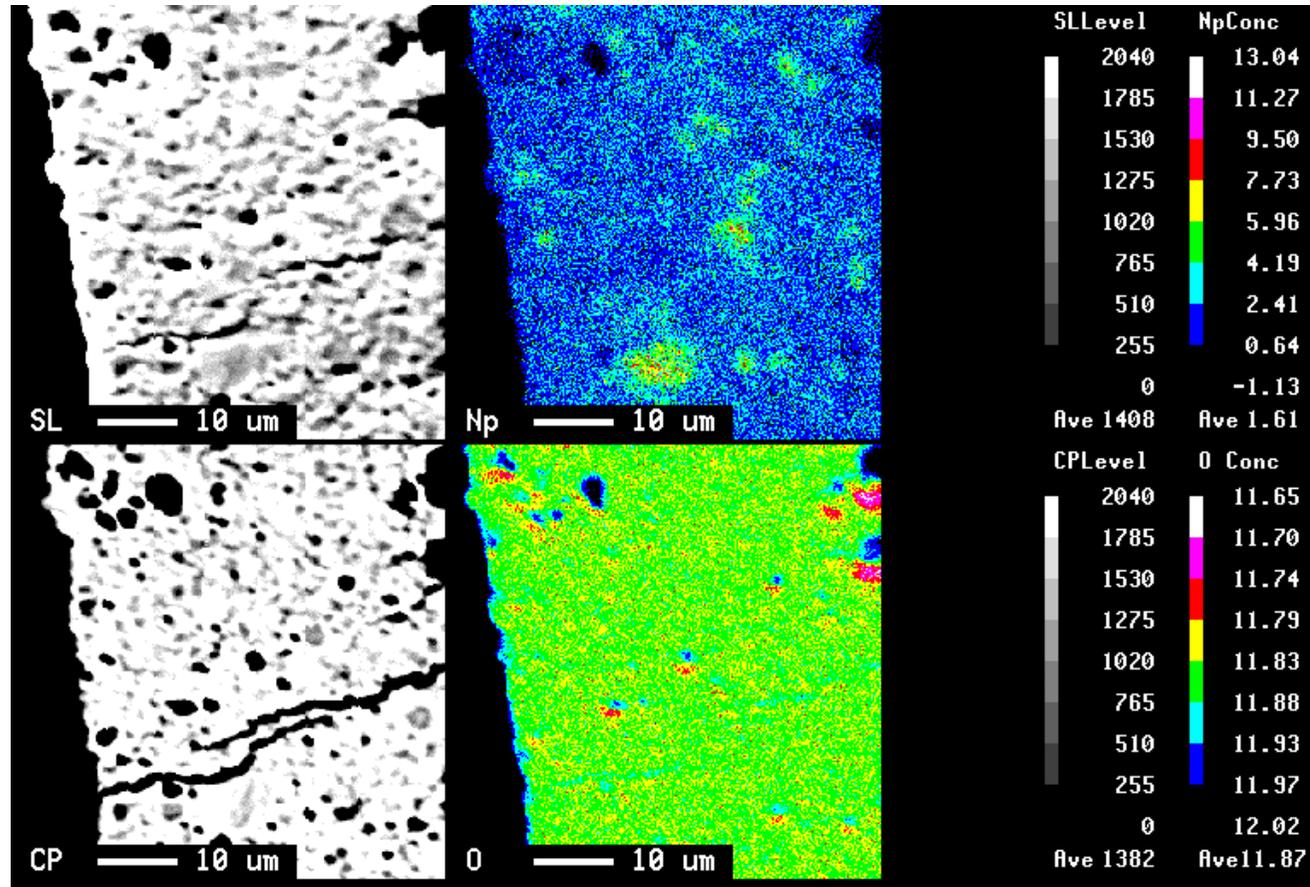


図67(b) 試料3 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Np、O)

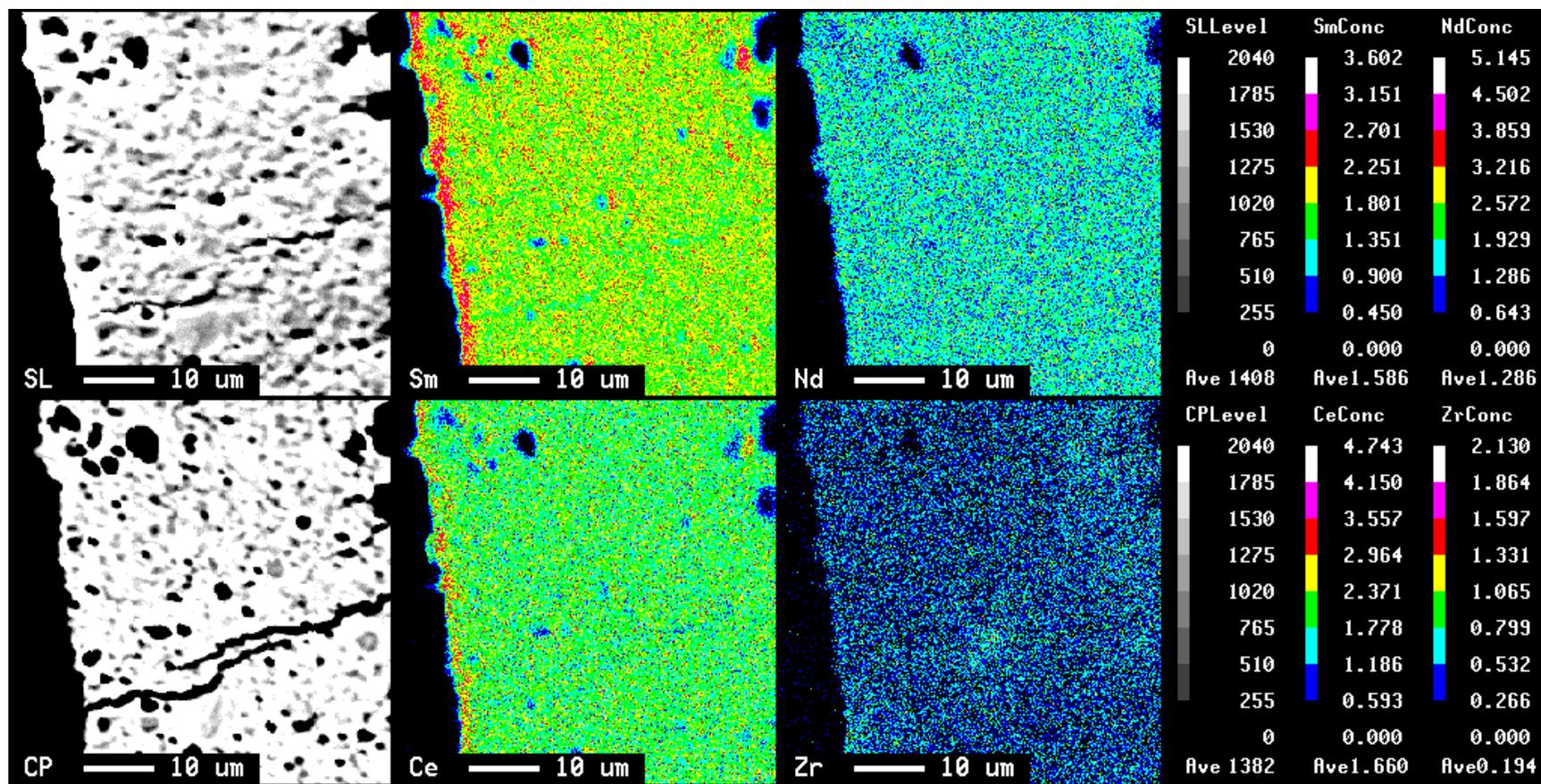


図67(c) 試料3 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、Sm、Nd、Ce、Zr)

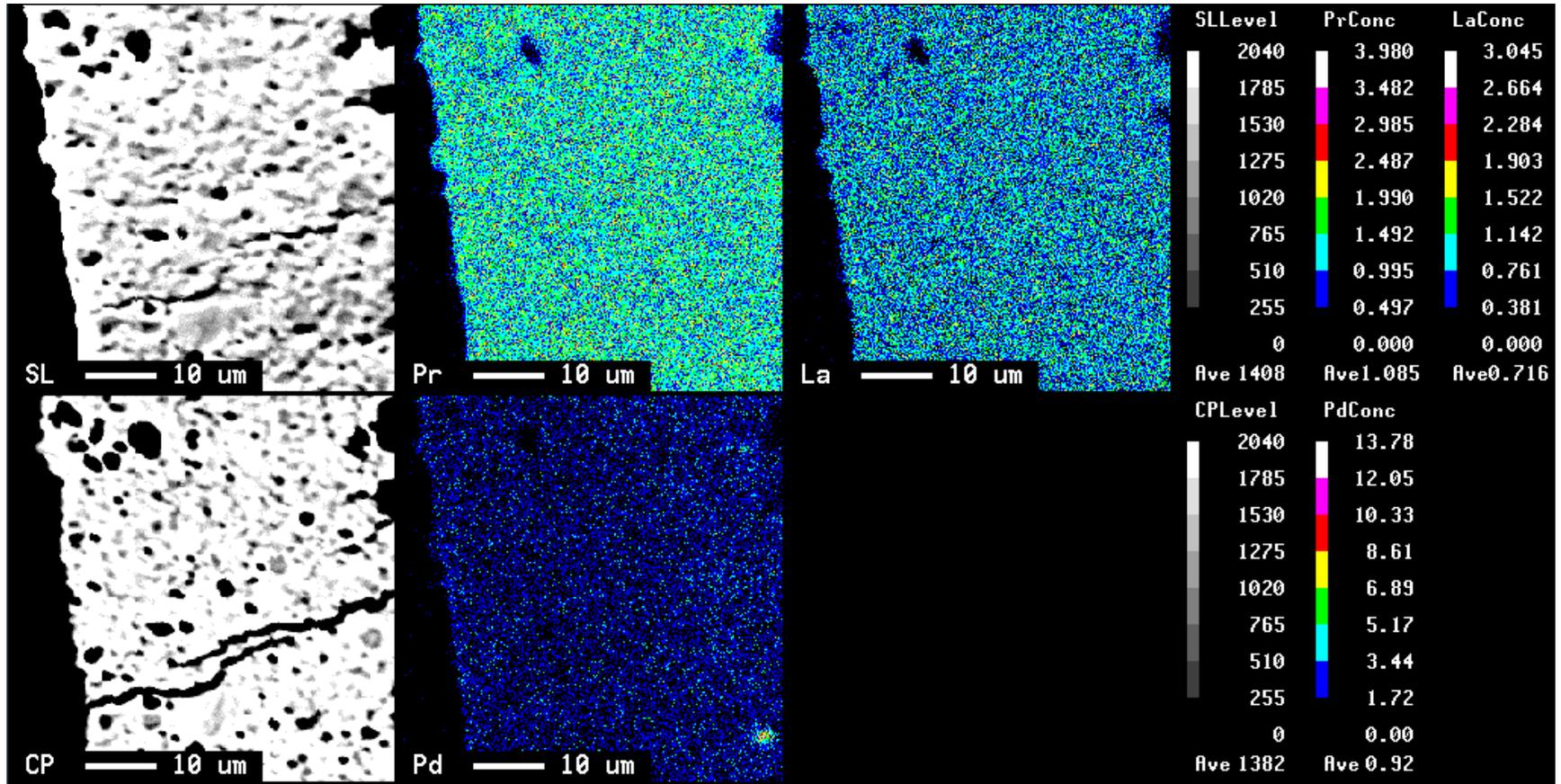


図67(d) 試料3 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Pr, La, Pd)

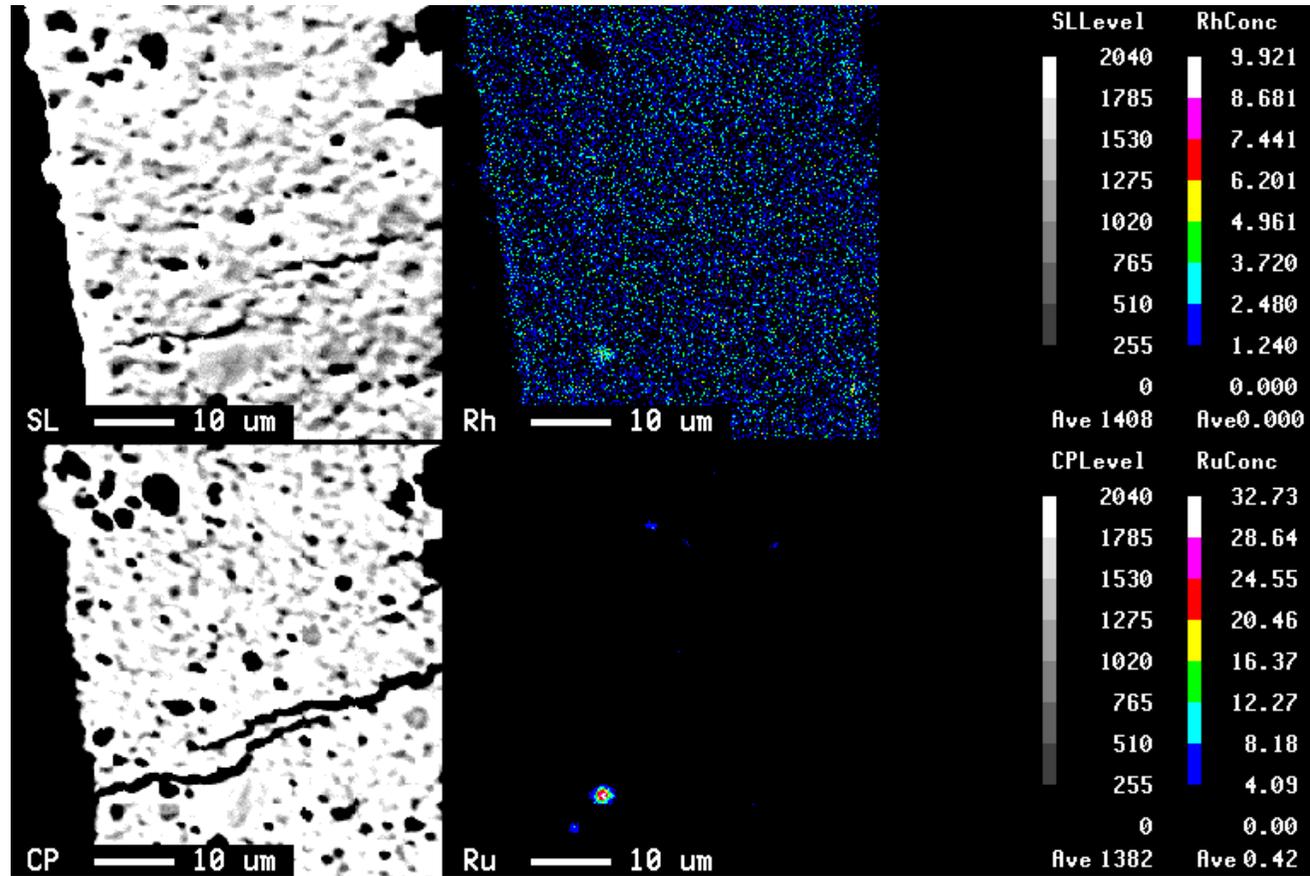


図67(e) 試料3 (熱処理条件2) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Rh、Ru)

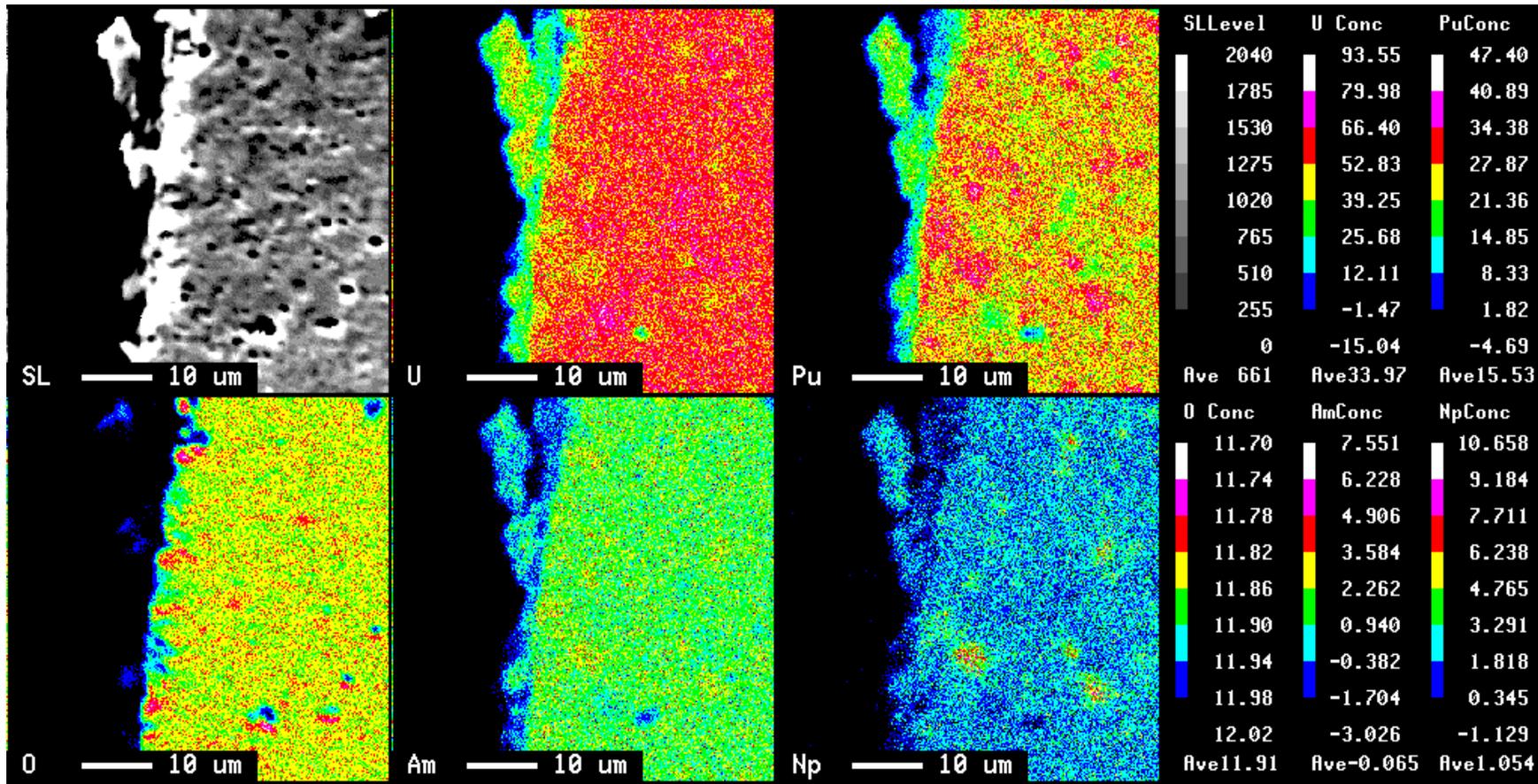


図68(a) 試料3 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像 U Pu Q Am Np)

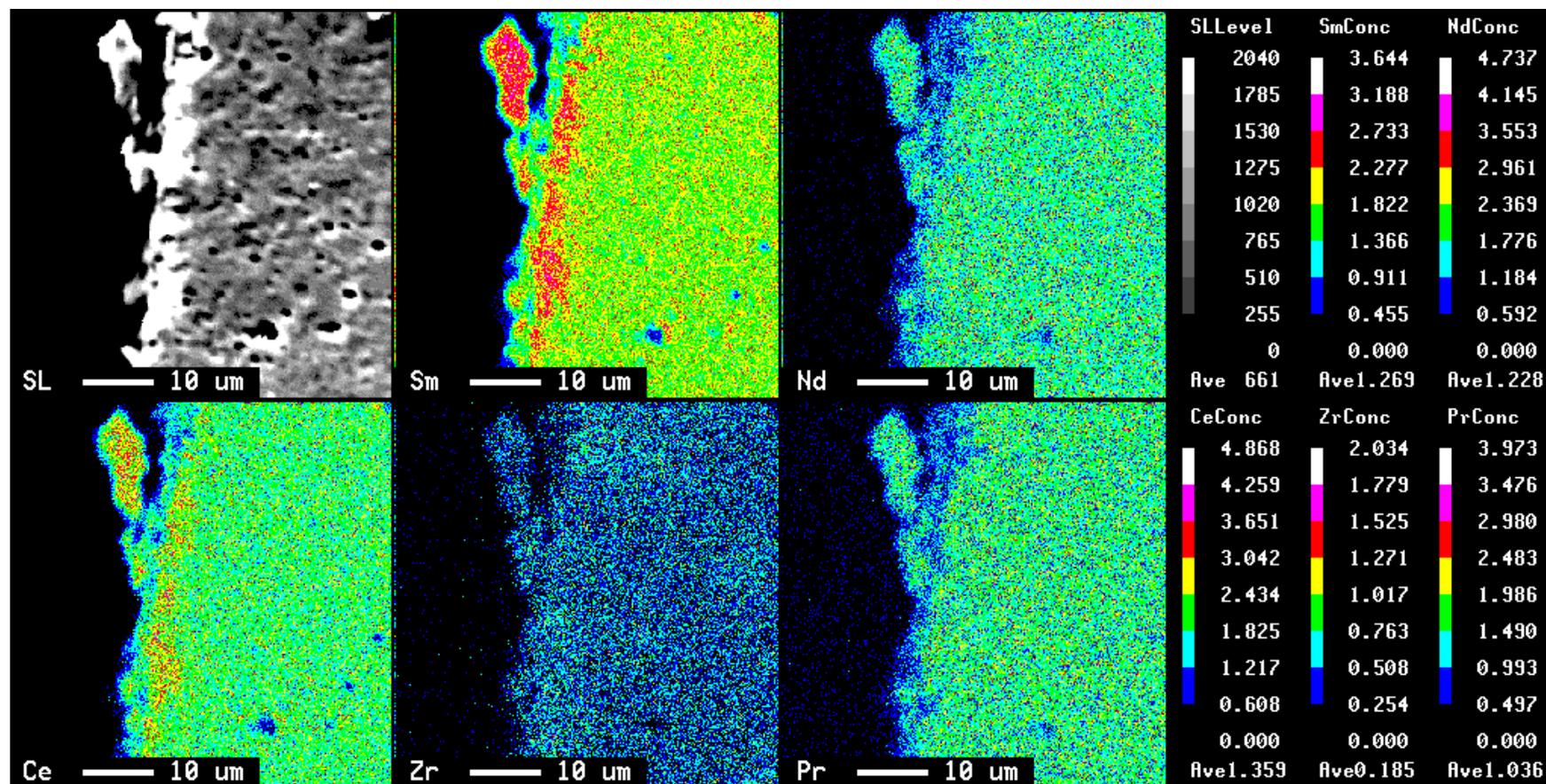


図68(b) 試料3 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像 Sm, Nd, Ce, Zr, Pr)

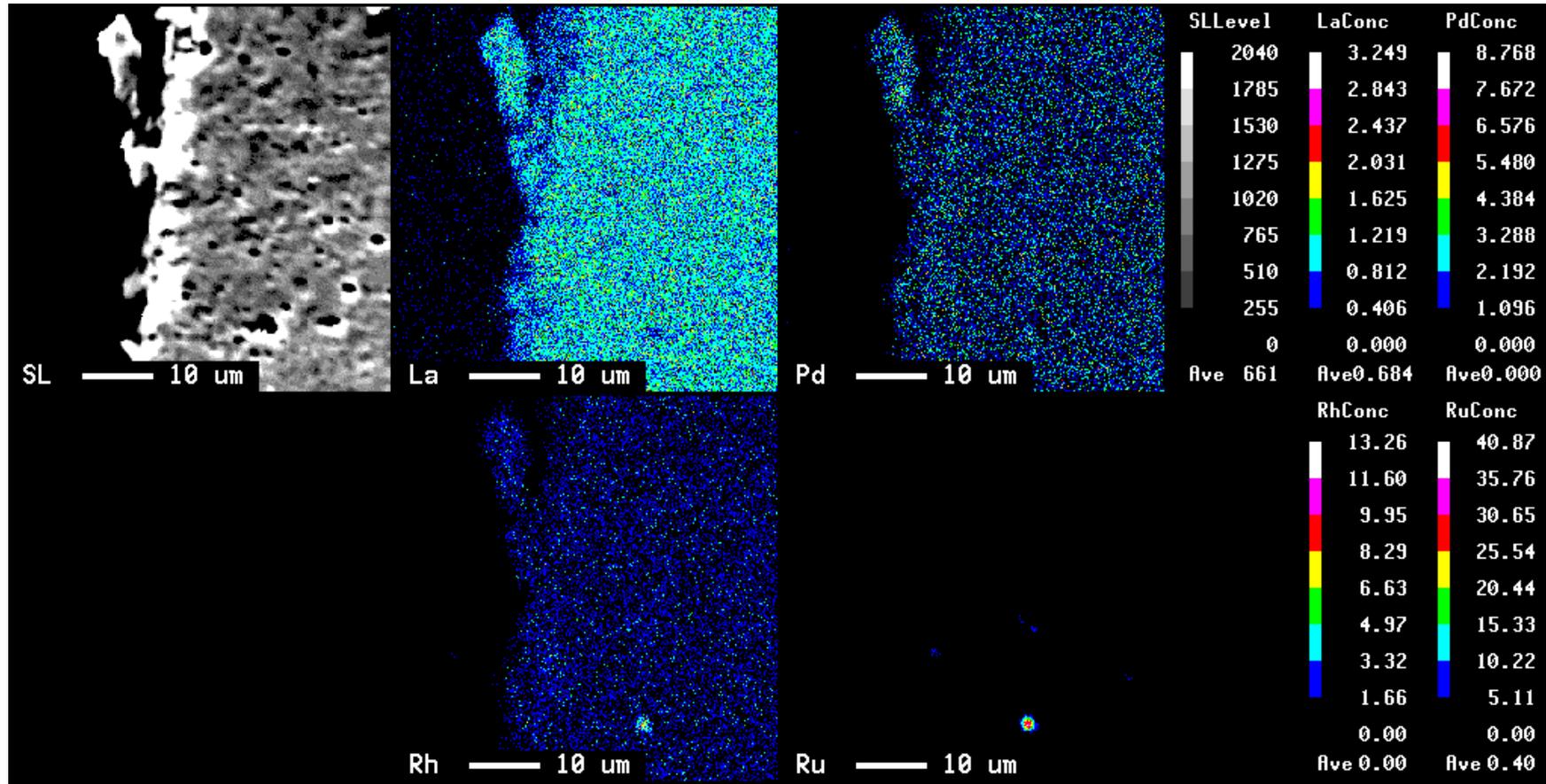


図68(c) 試料3 (熱処理条件3) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像 La Pd Rh Ru)

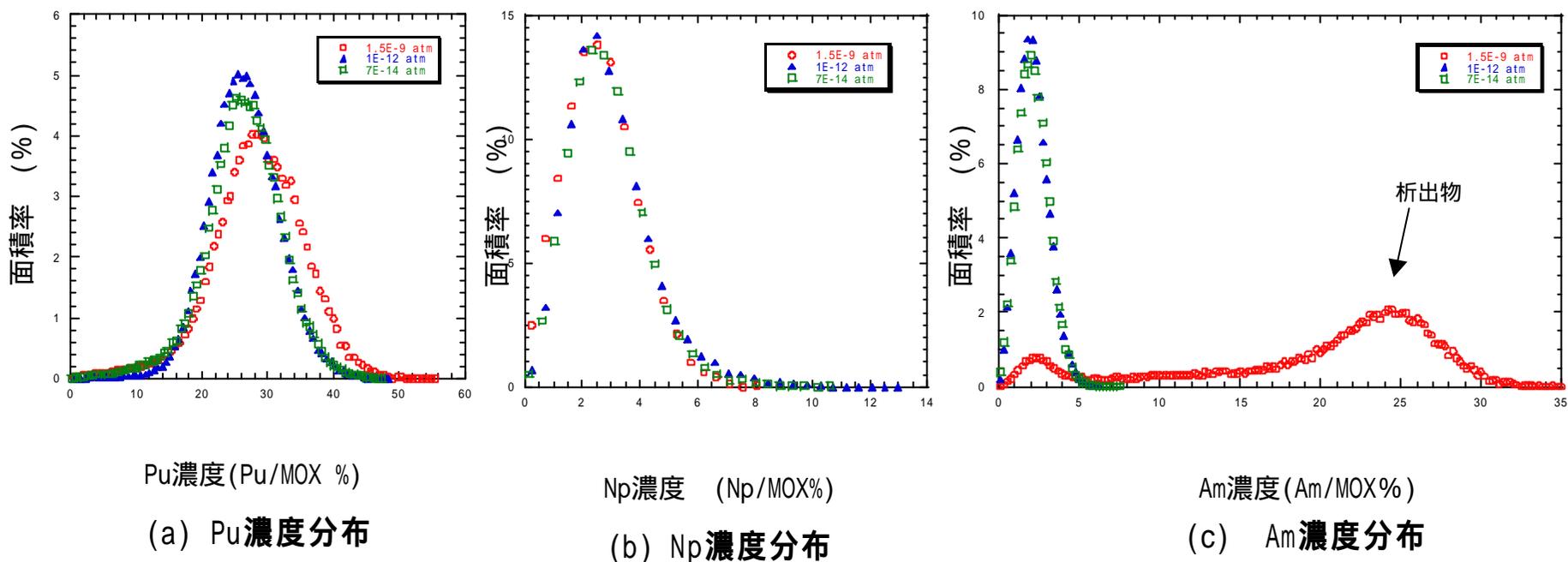


図69 試料3 (1700 焼結) のペレット外周部における元素分布

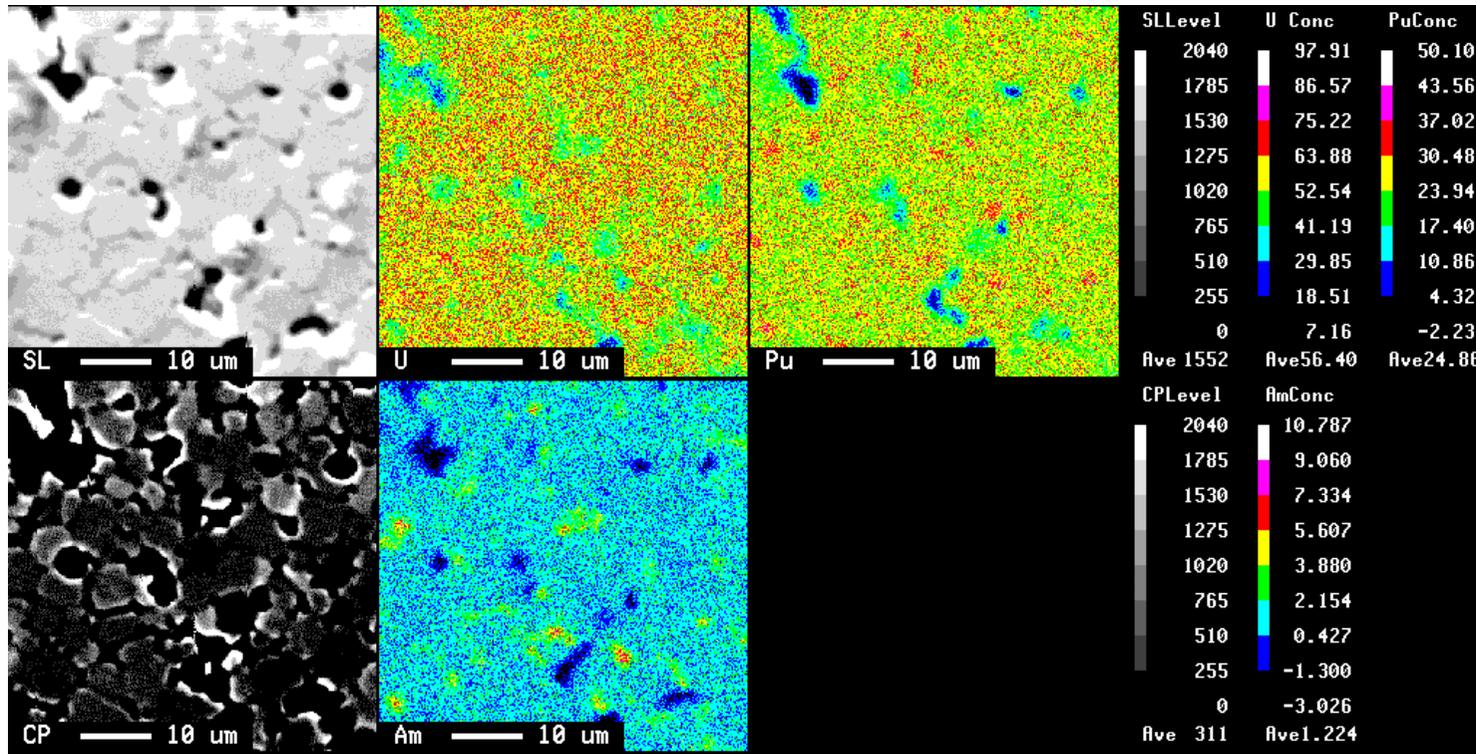


図70(a) 試料1 (熱処理条件7) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、U Pu Am)

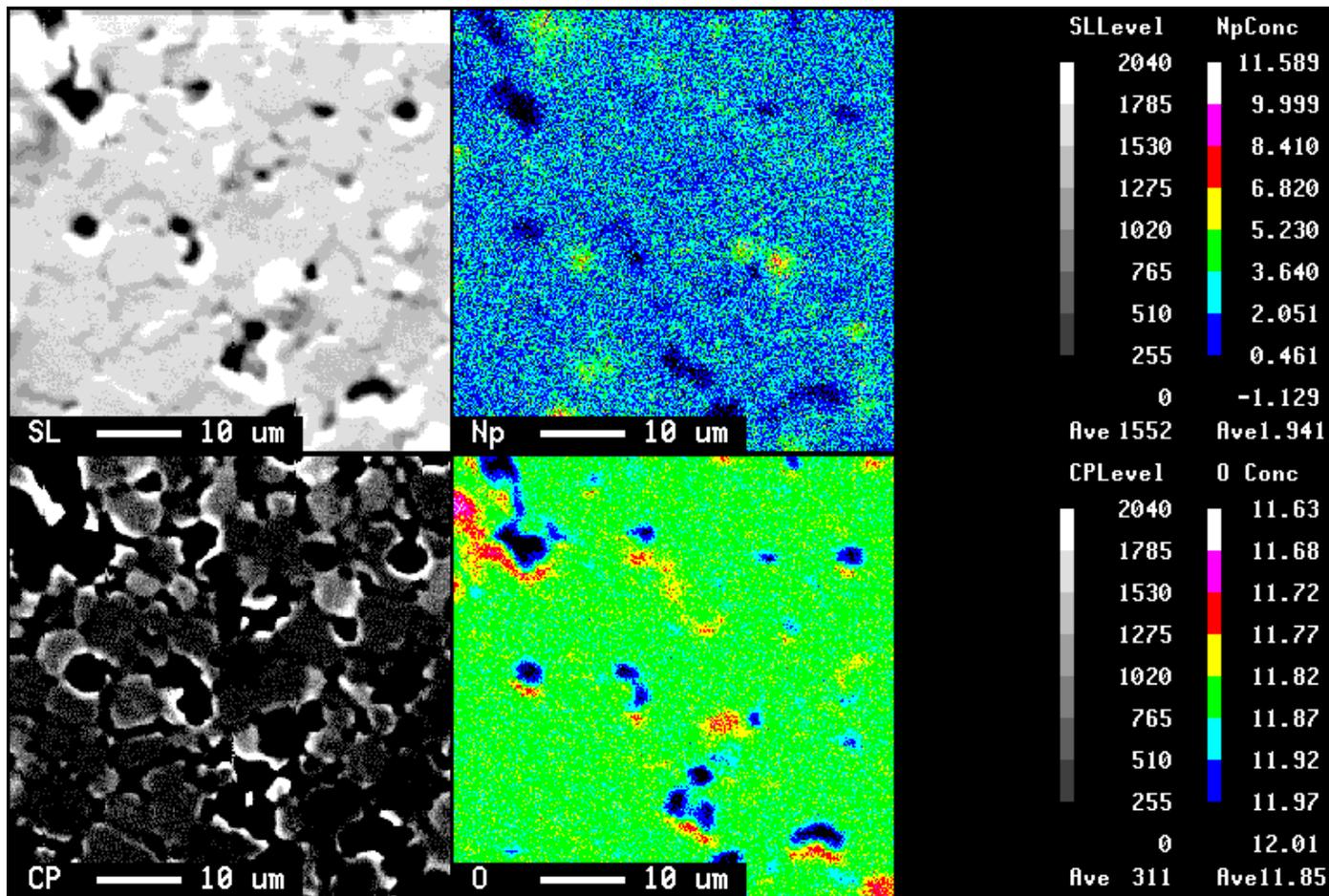


図70(b) 試料1 (熱処理条件7) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Np、O)

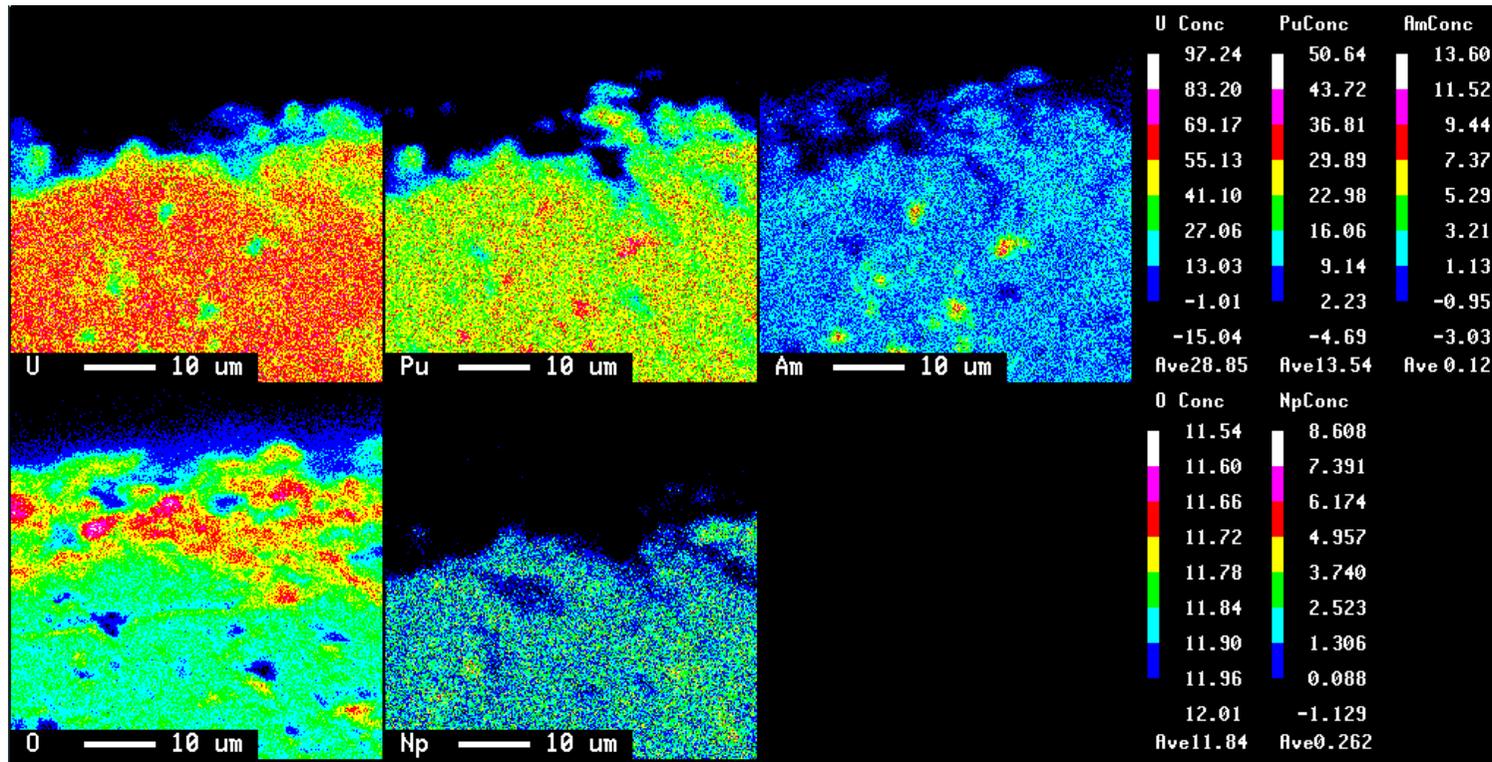


図71 試料1 (熱処理条件7) のペレット外周部の面分析結果
(U Pu Am Q Np)

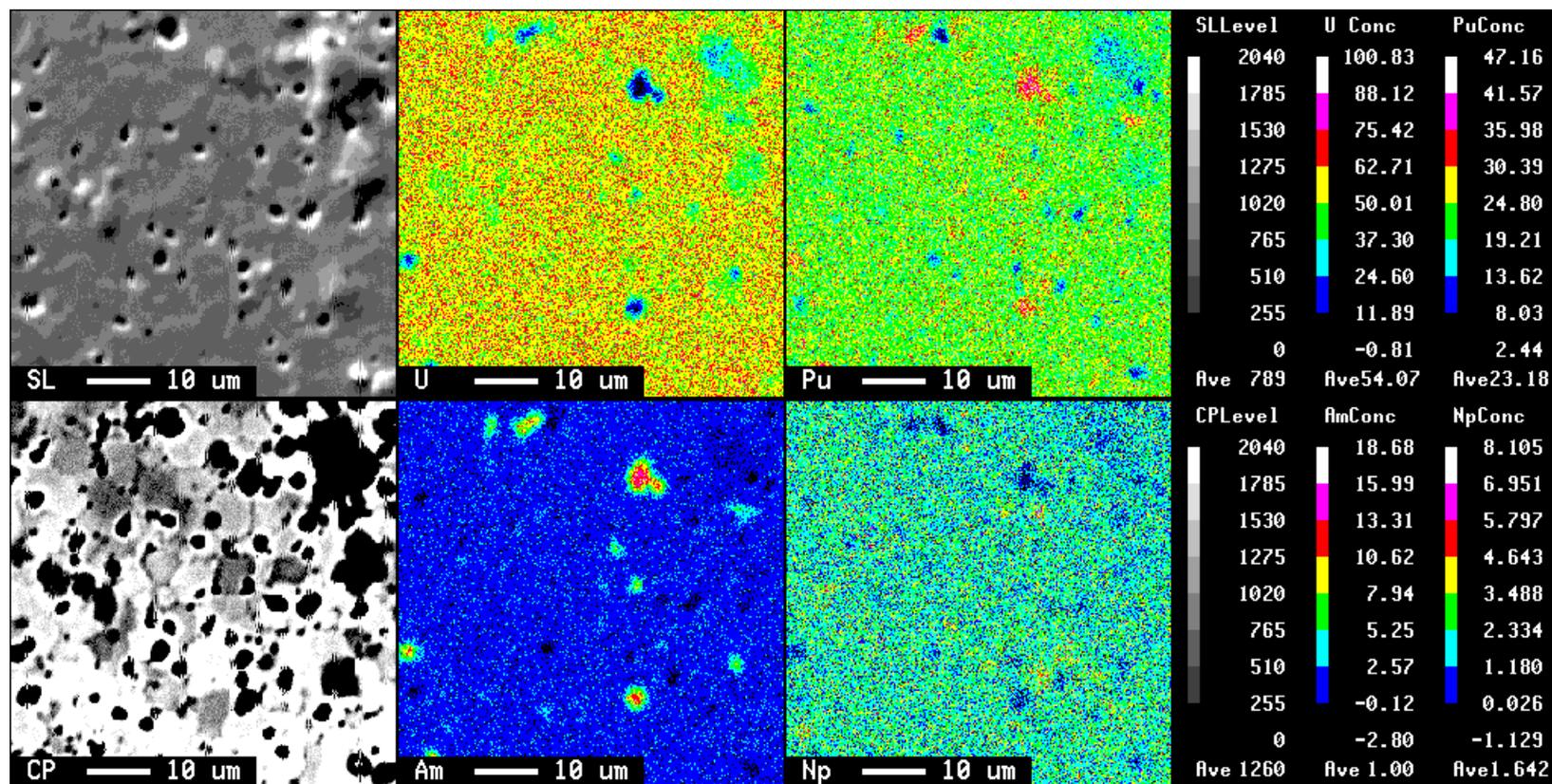


図72(a) 試料2 (熱処理条件7) のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、U、Pu、Am、Np)

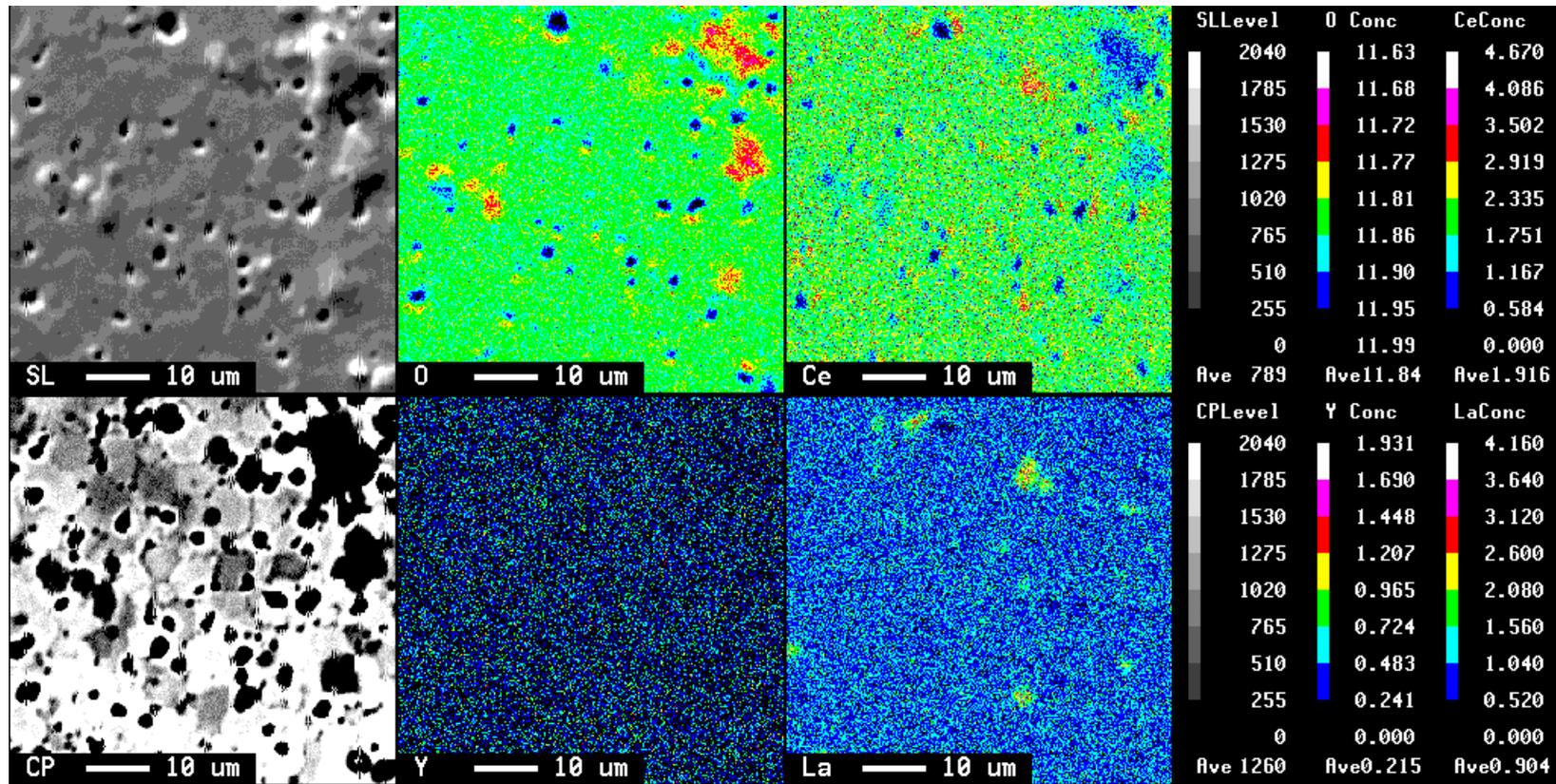


図72(b) 試料2 (熱処理条件7) のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、O、Ce、Y、La)

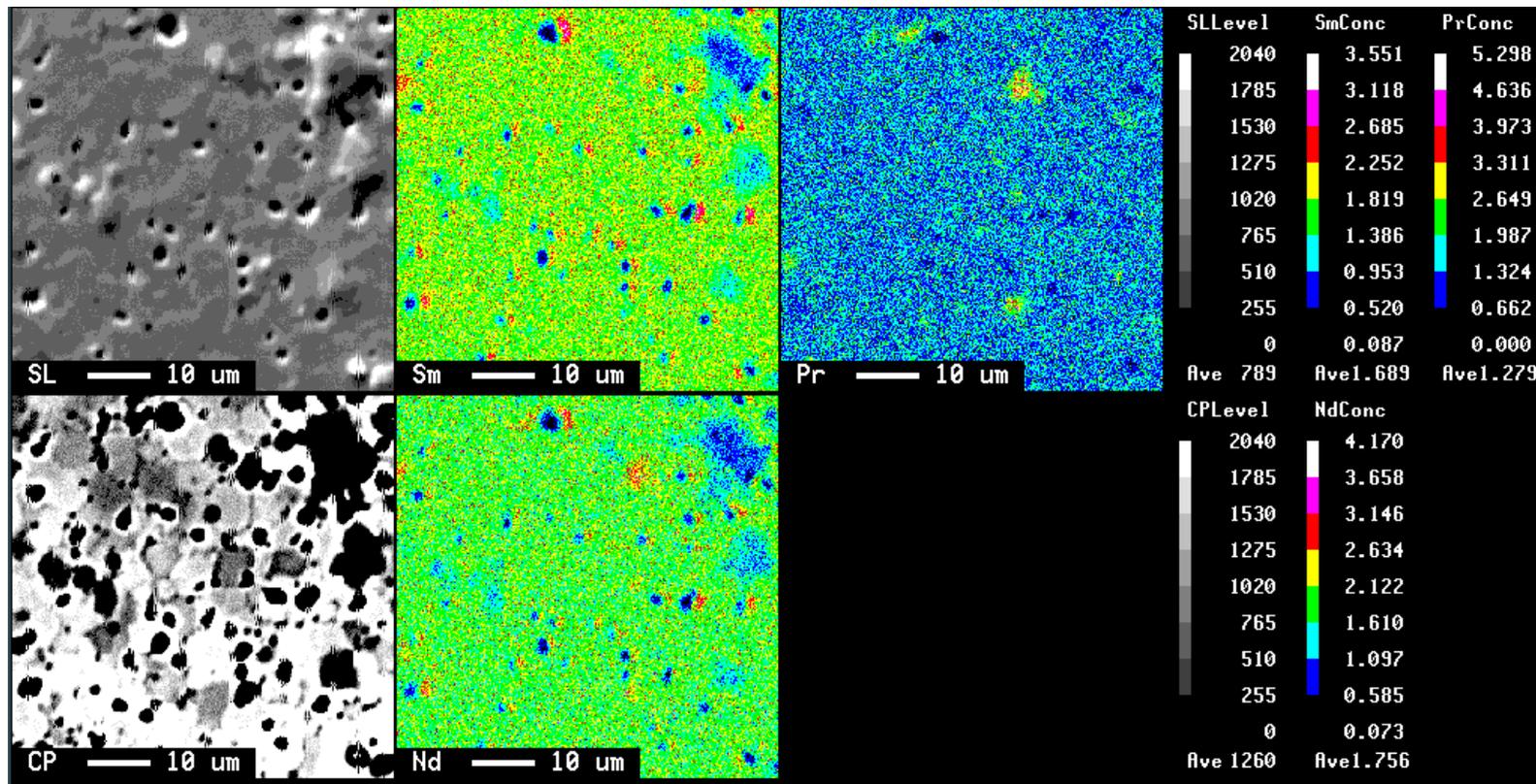


図72(c) 試料2 (熱処理条件7) のペレット中心部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Sm、Pr、Nd)

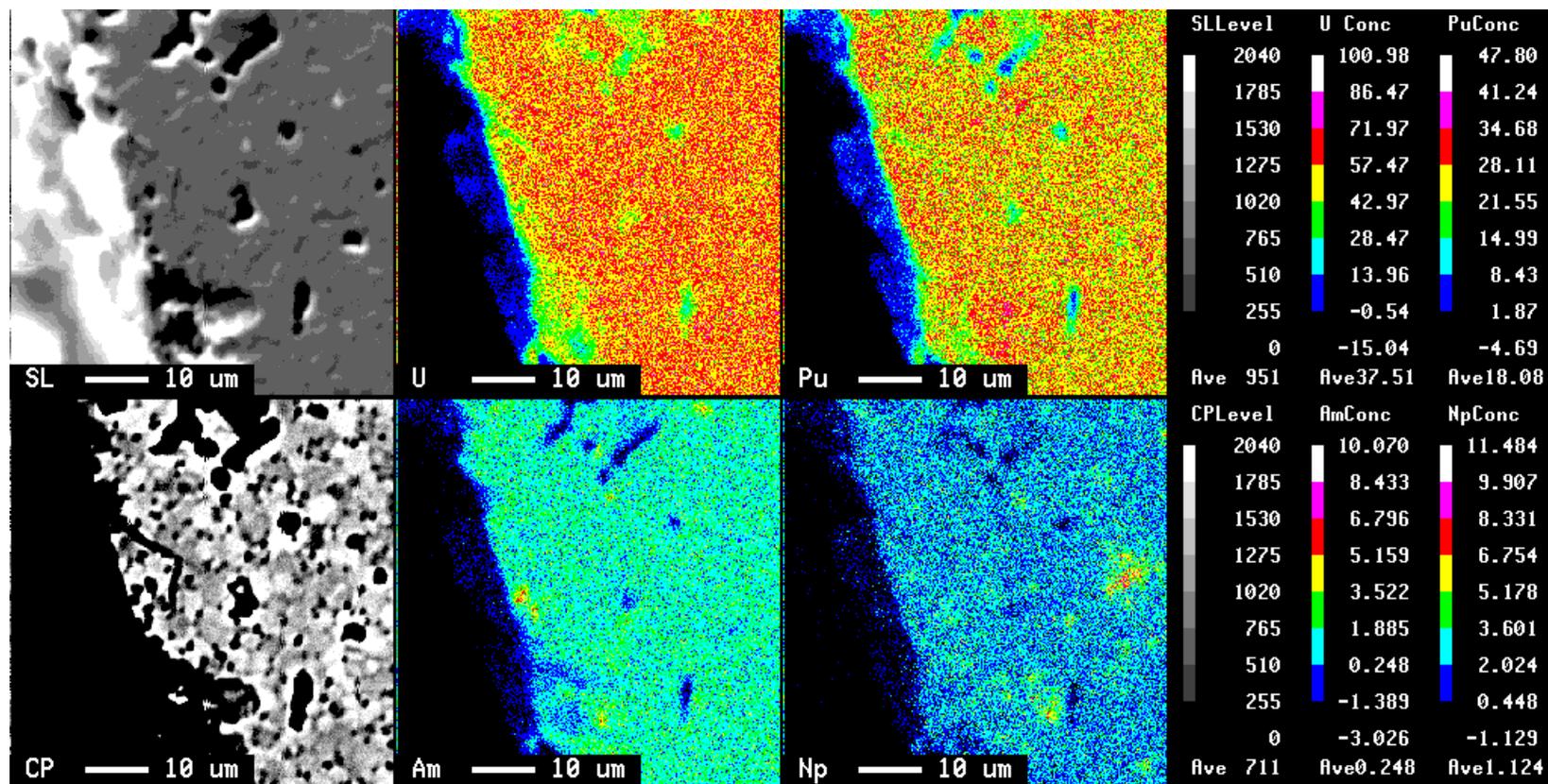


図73(a) 試料2 (熱処理条件7) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、U、Pu、Am、Np)

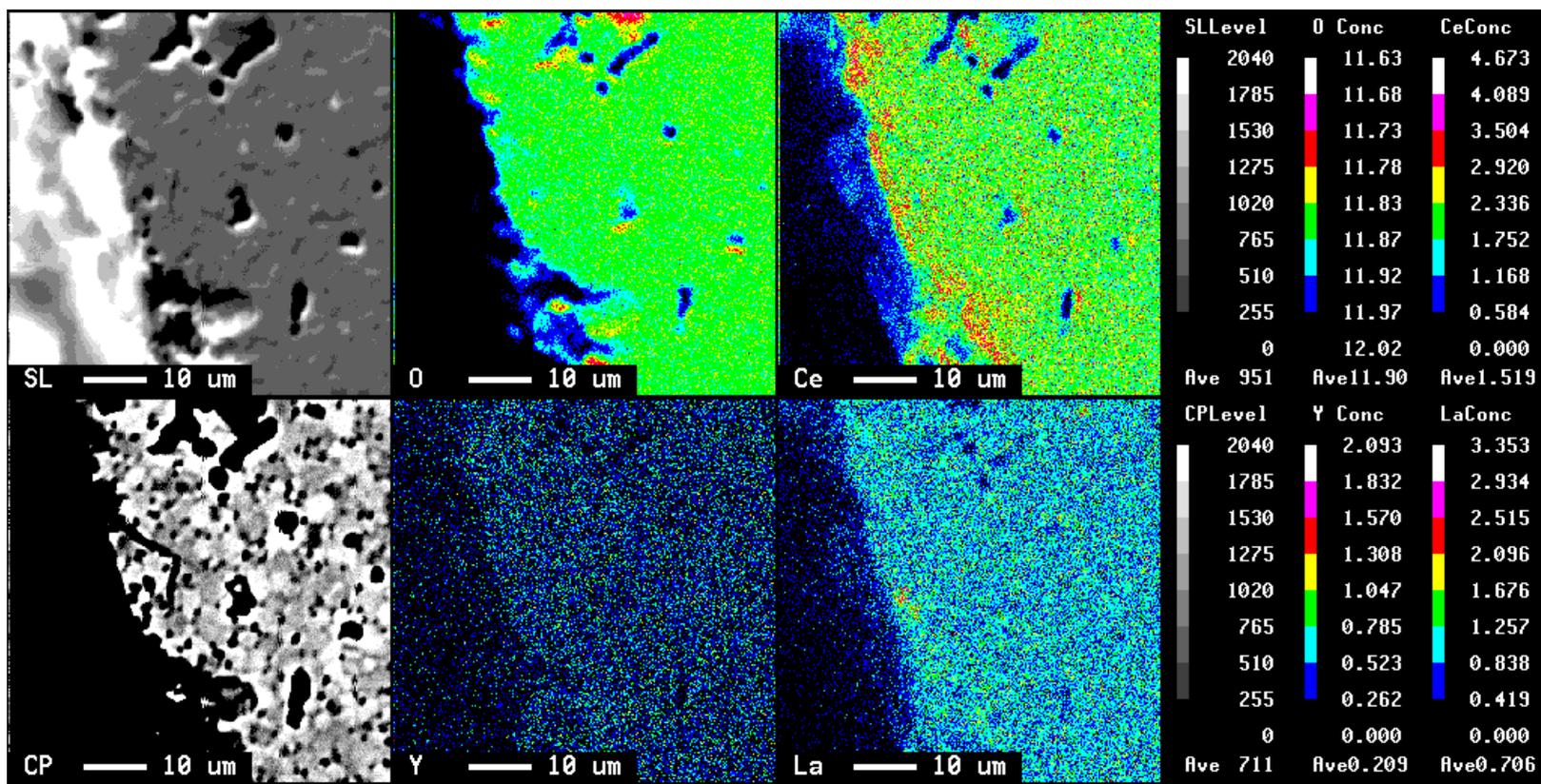


図73(b) 試料2 (熱処理条件7) のペレット外周部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、Q、Ce、Y、La)

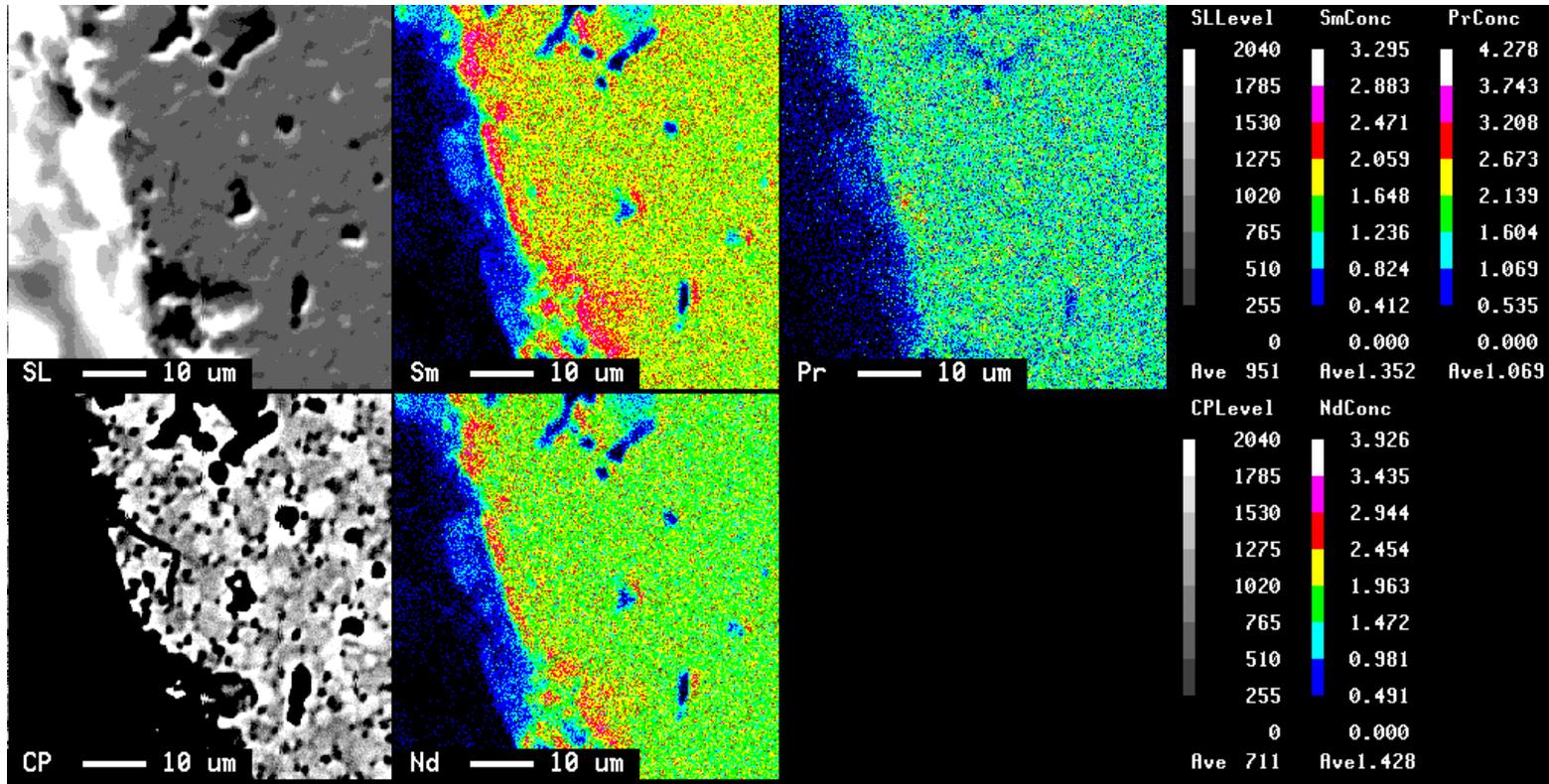


図73(c) 試料2 (熱処理条件7) のペレット外周部の面分析結果 (SEM像、反射電子線像、Sm、Pr、Nd)

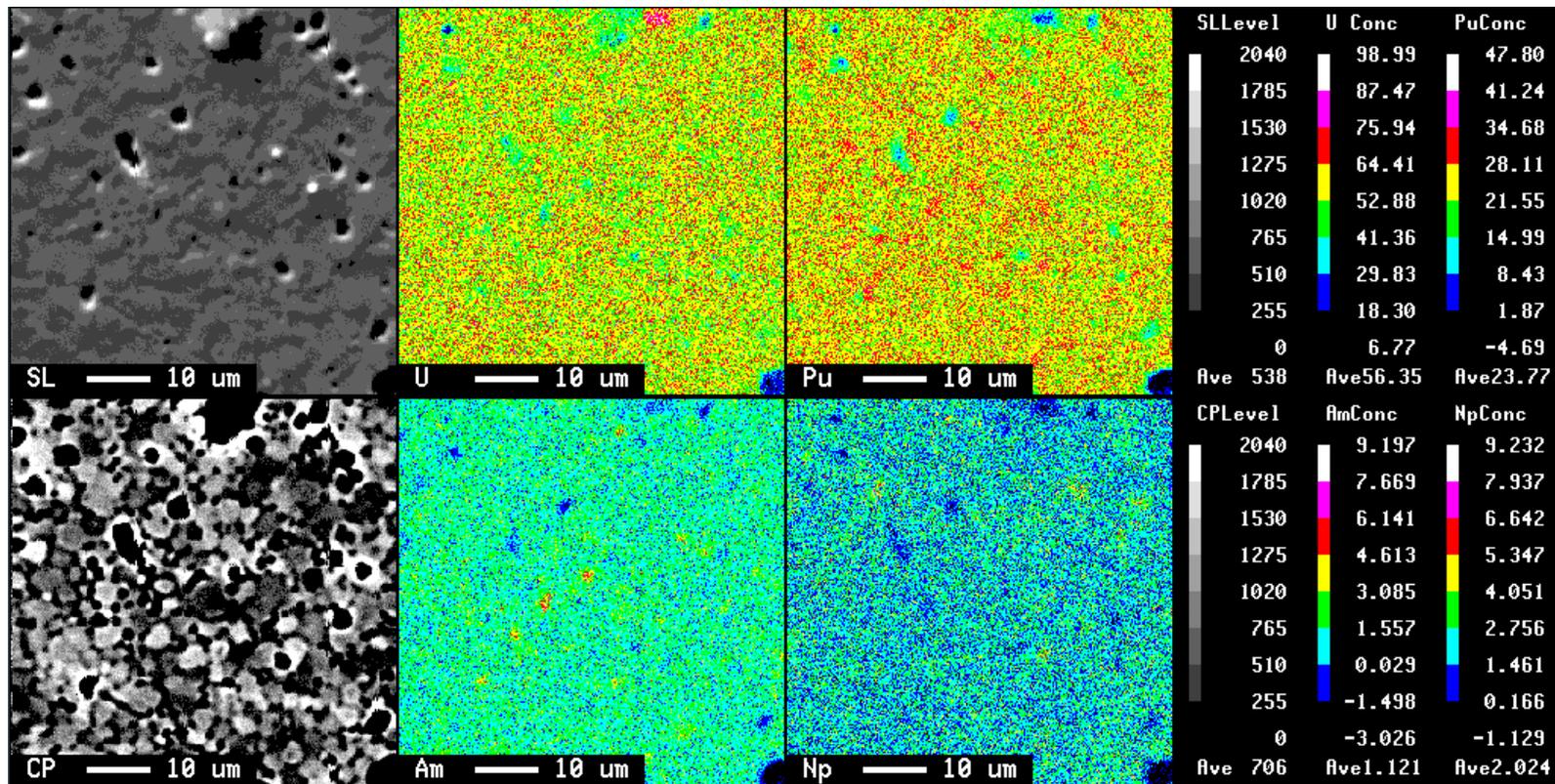


図74(a) 試料3(熱処理条件7)のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、U、Pu、Am、Np)

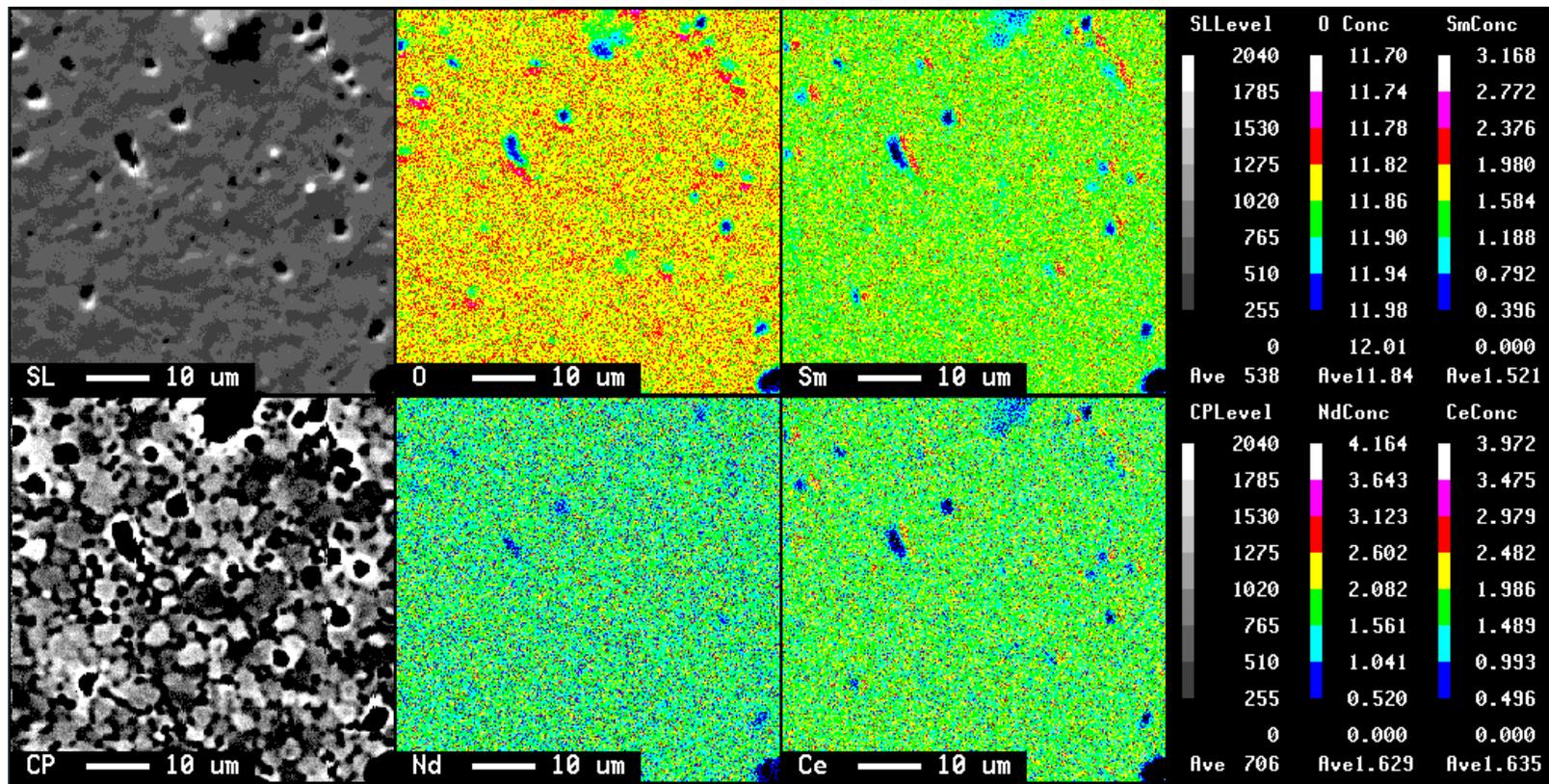


図74(b) 試料3(熱処理条件7)のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、O、Sm、Nd、Ce)

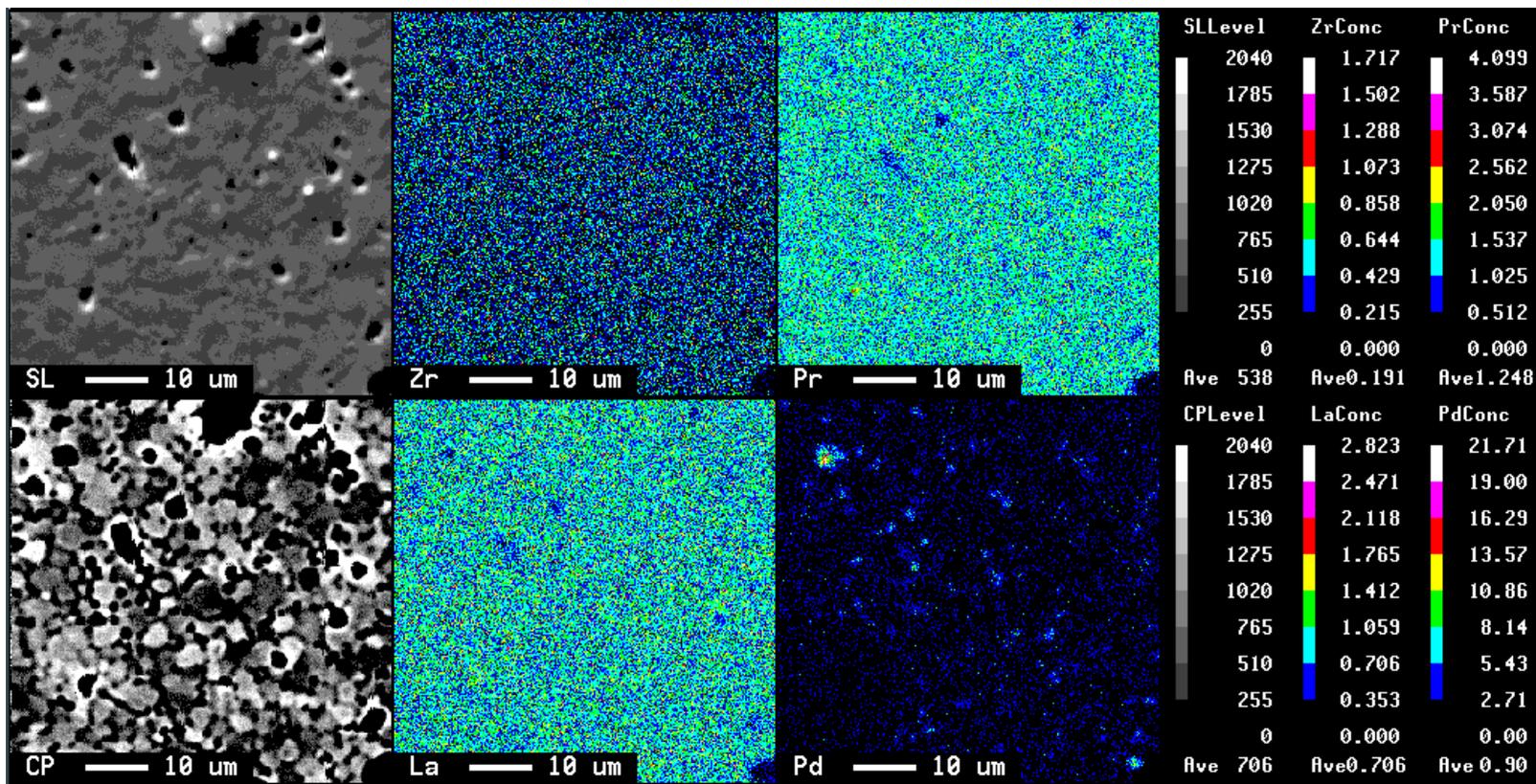


図74(c) 試料3(熱処理条件7)のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、Zr、Pr、La、Pd)

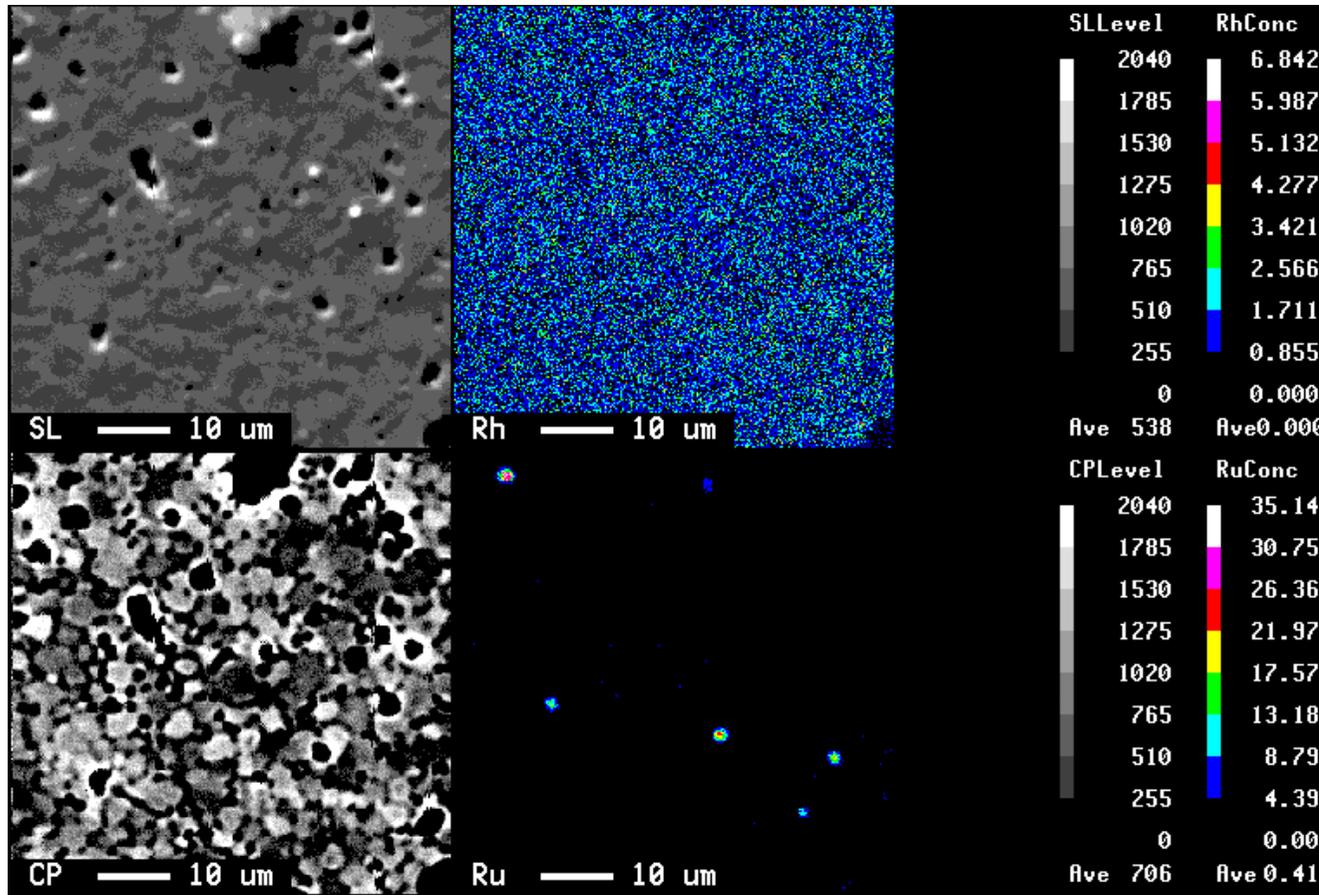


図74(d) 試料3(熱処理条件7)のペレット中心部の面分析結果
(SEM像、反射電子線像、Rh、Ru)

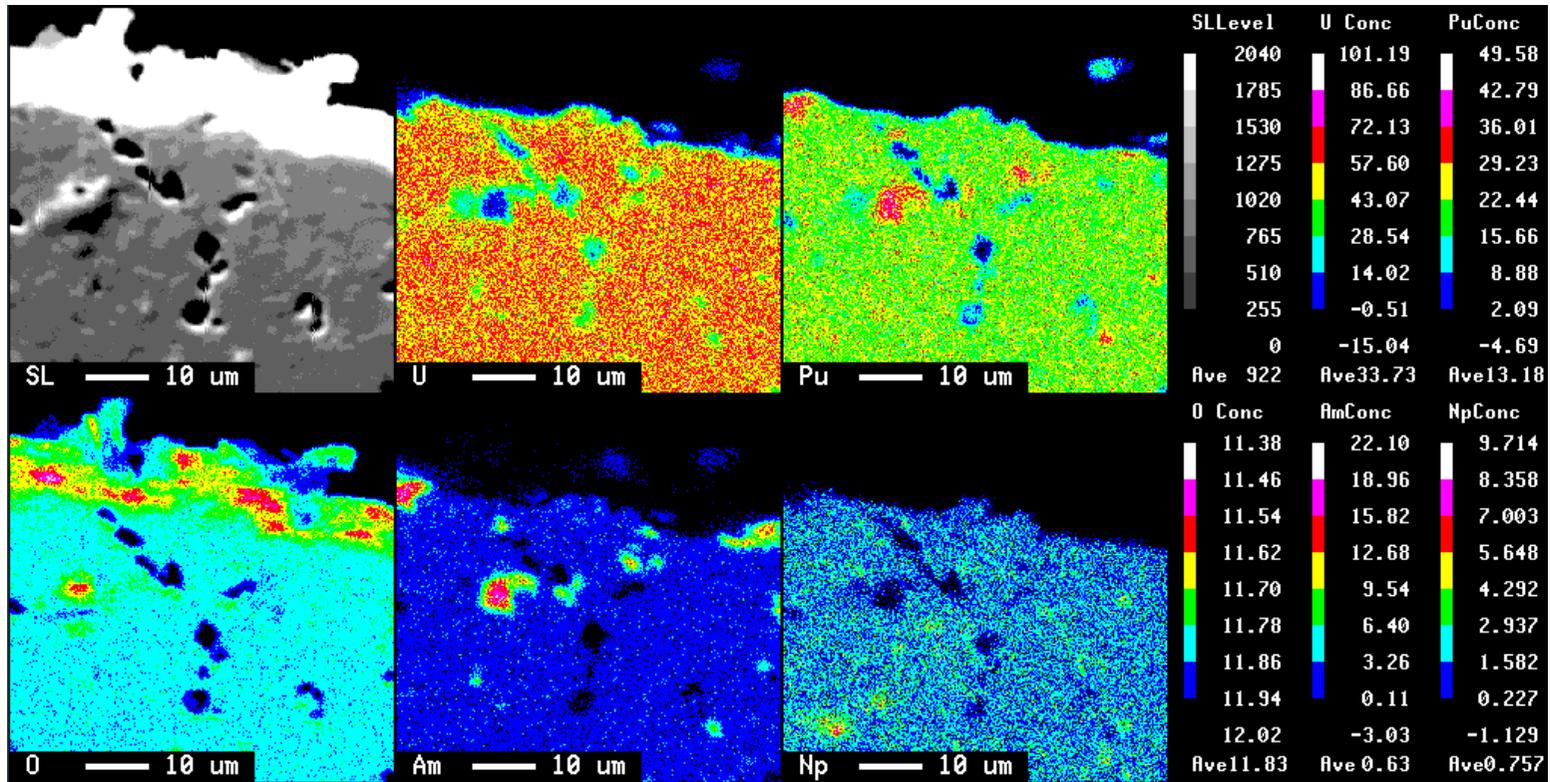


図75(a) 試料3(熱処理条件7)のペレット外周部の面分析結果
(SEM像 U Pu Q Am Np)

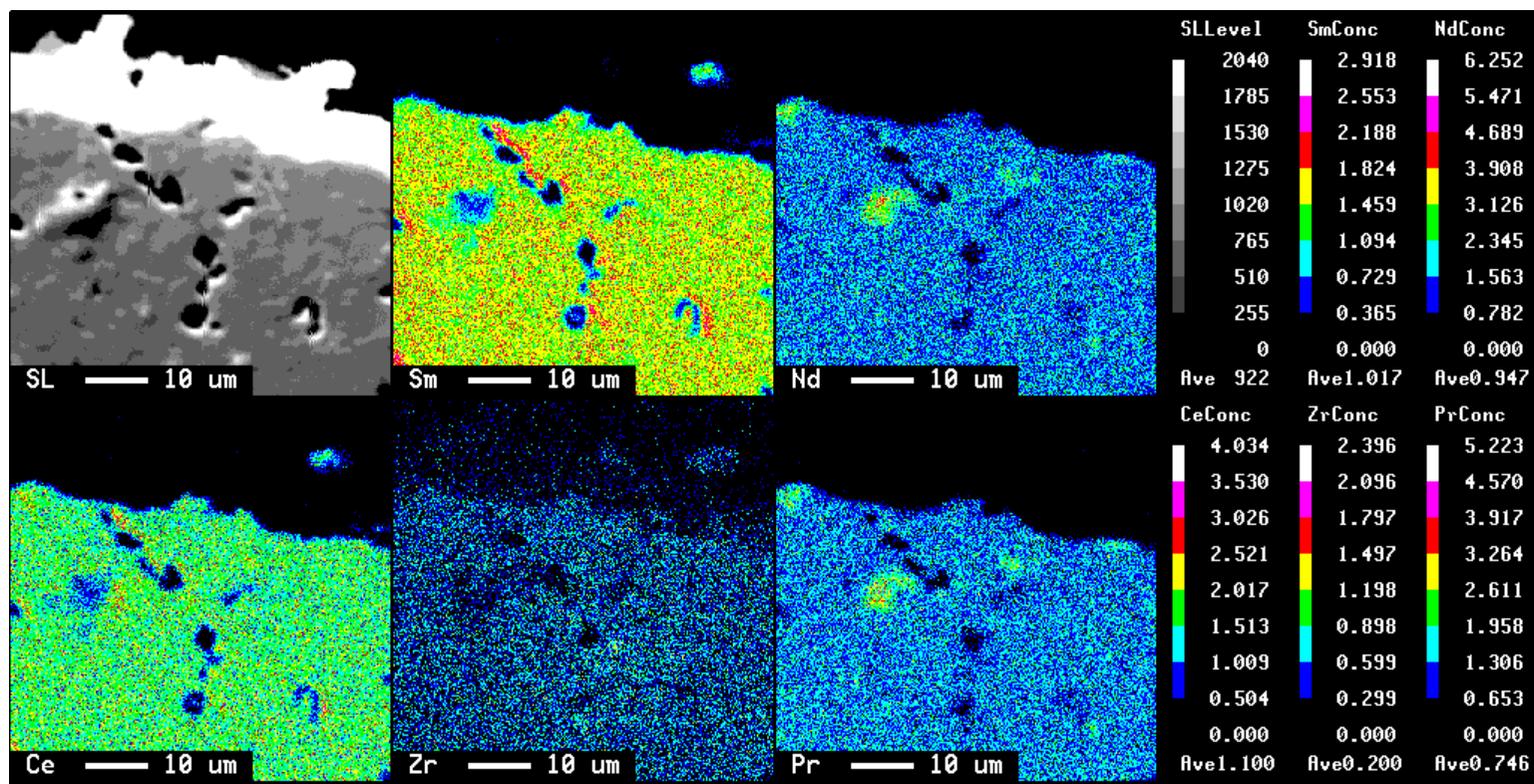


図75(b) 試料3(熱処理条件7)のペレット外周部の面分析結果
(SEM像 Sm Nd Ce Zr Pr)

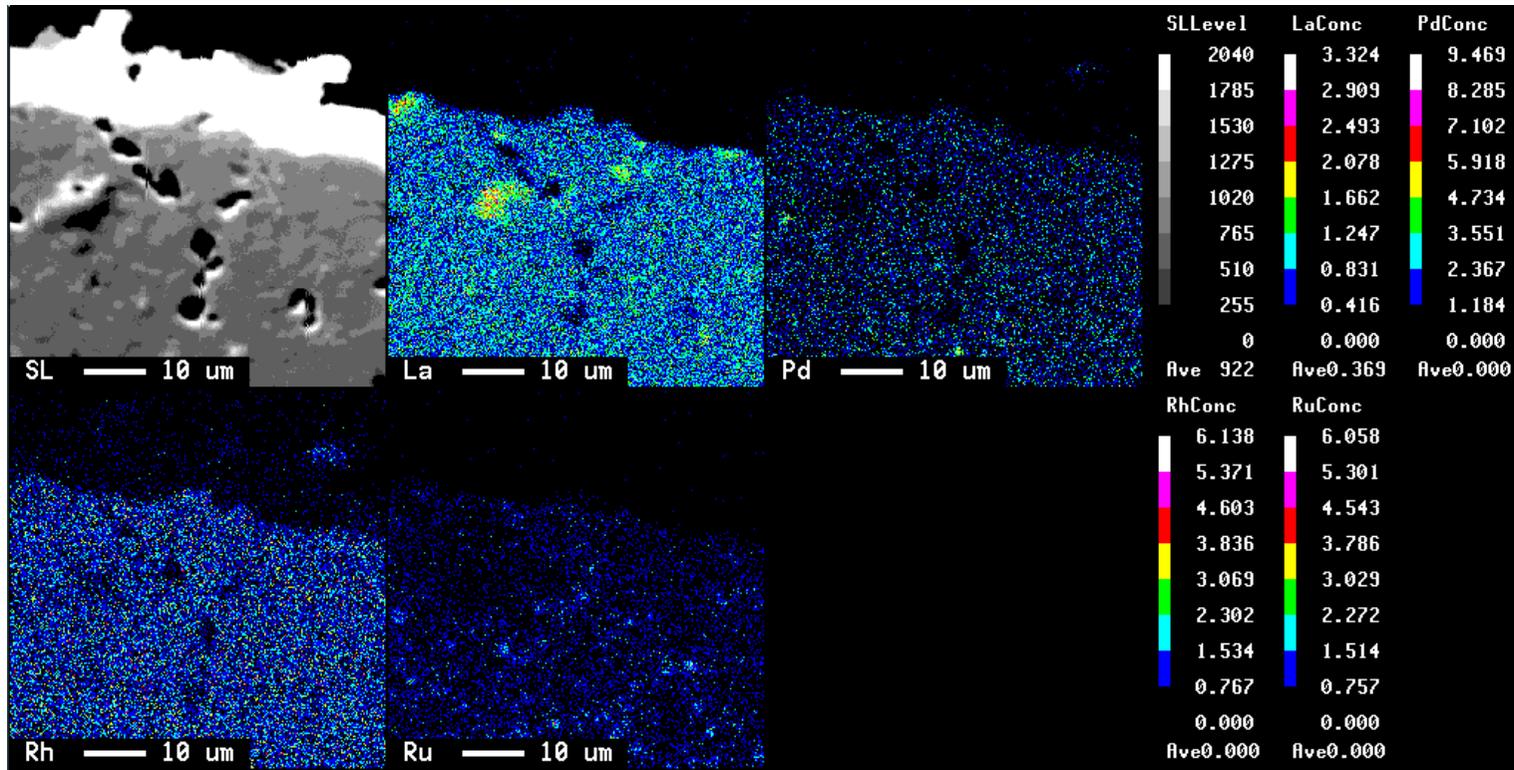


図75(c) 試料3(熱処理条件7)のペレット外周部の面分析結果
(SEM像 La Pd Rh Ru)

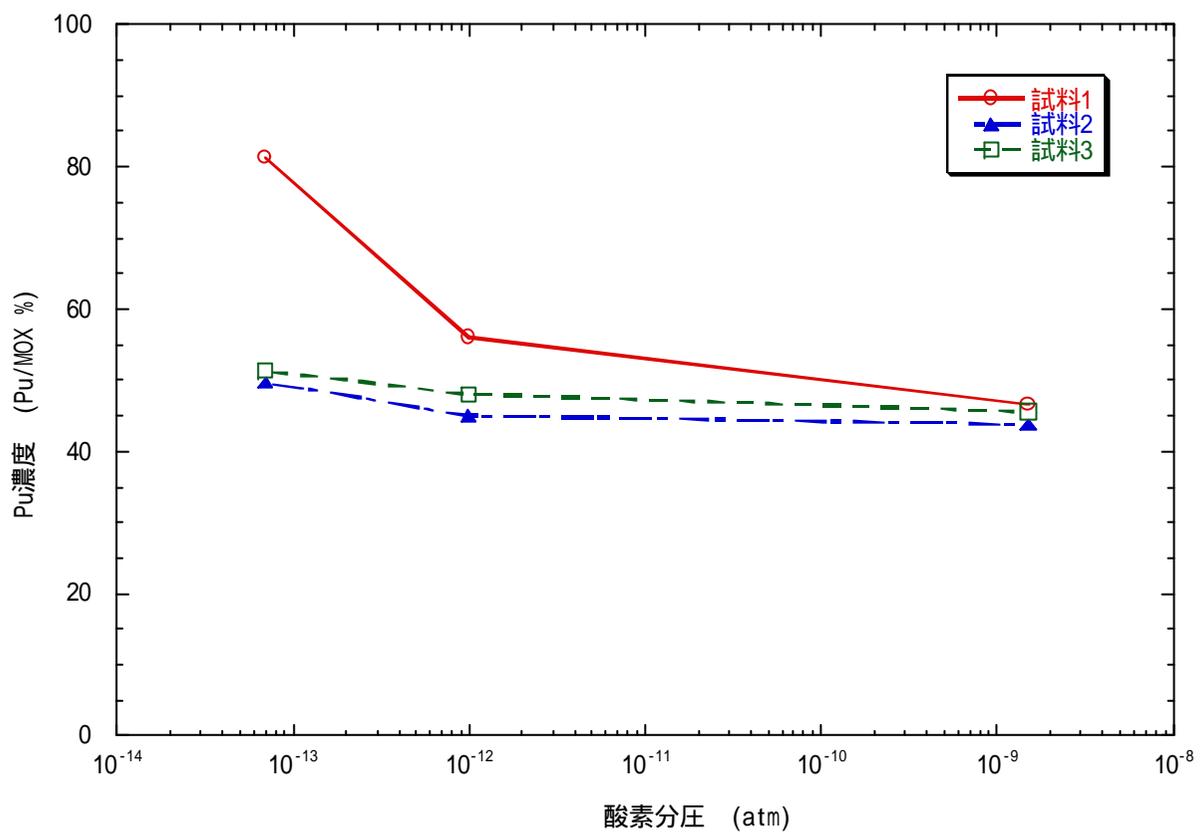


図76 最大Pu濃度と焼結中の酸素分圧の関係

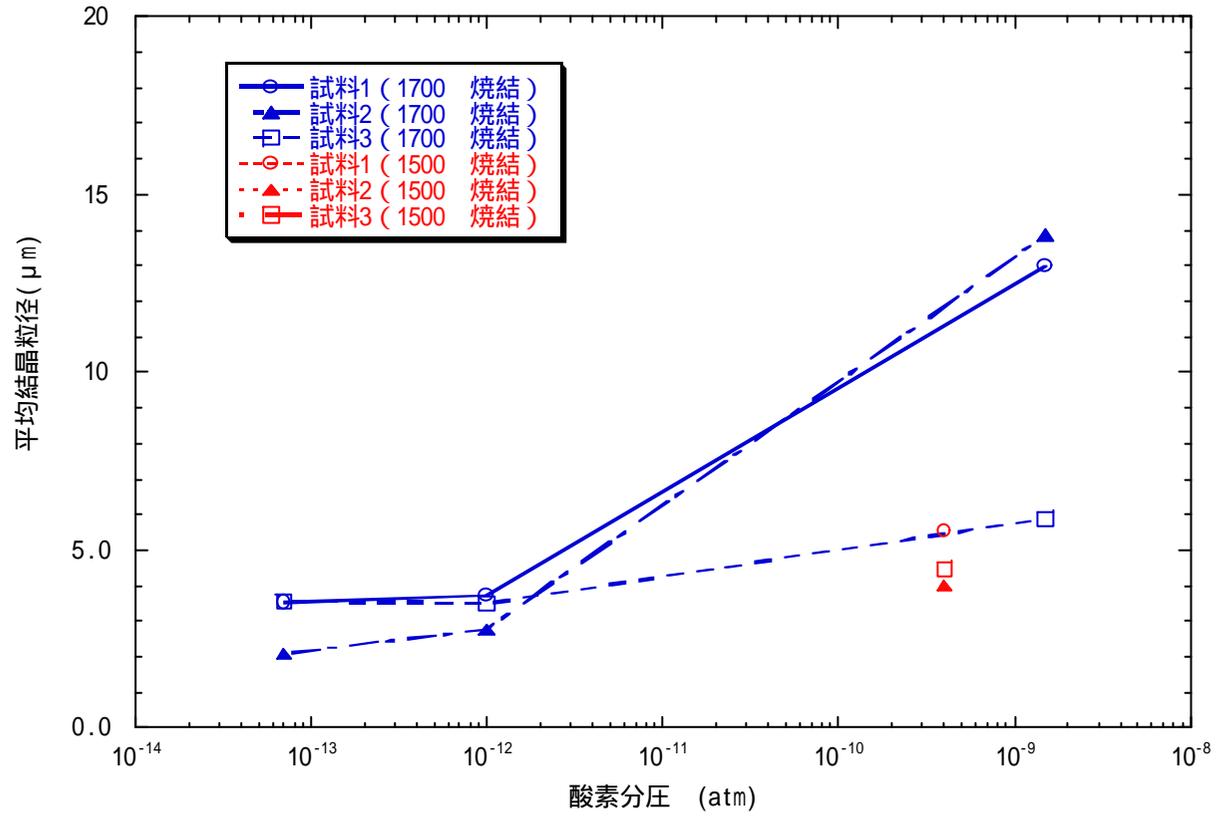


図77 焼結中の酸素分圧と結晶粒径の関係

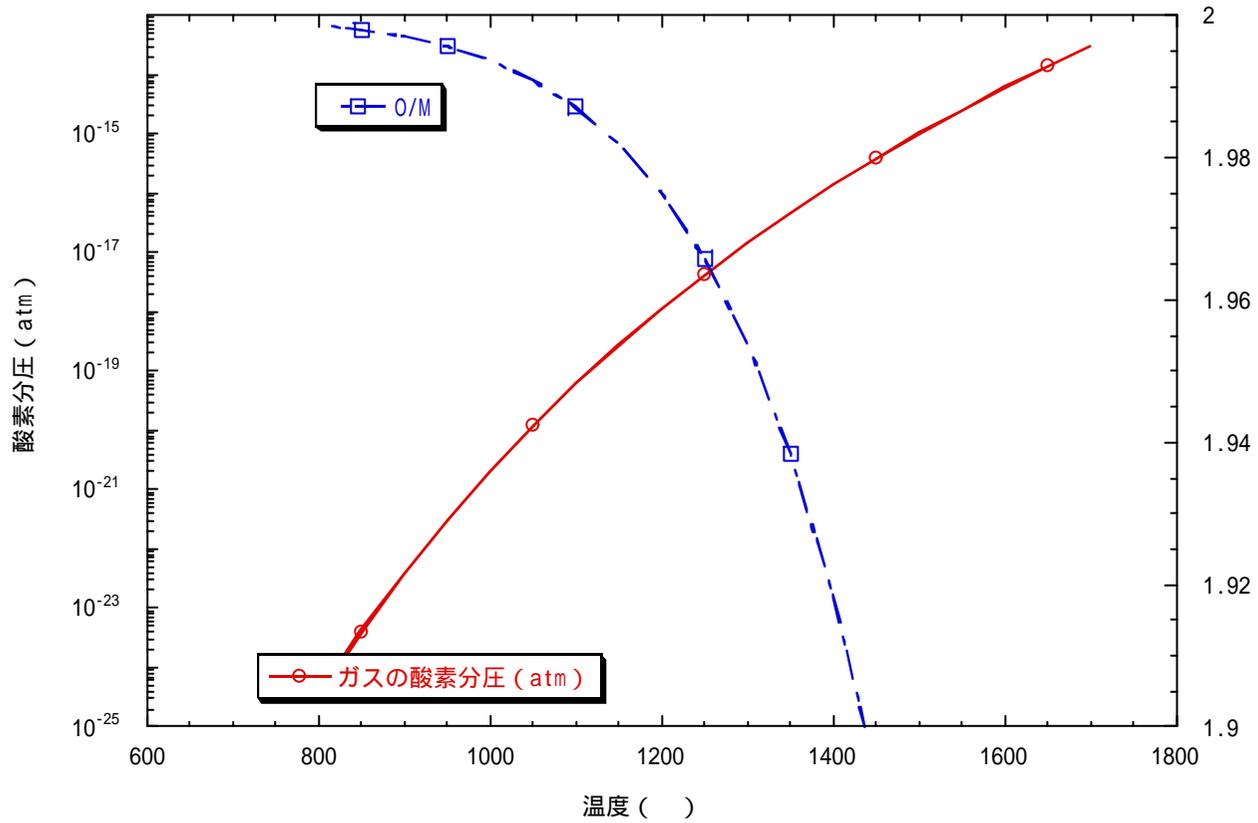


図78 熱処理に用いたガスの酸素分圧と平衡となるO/Mの温度依存性

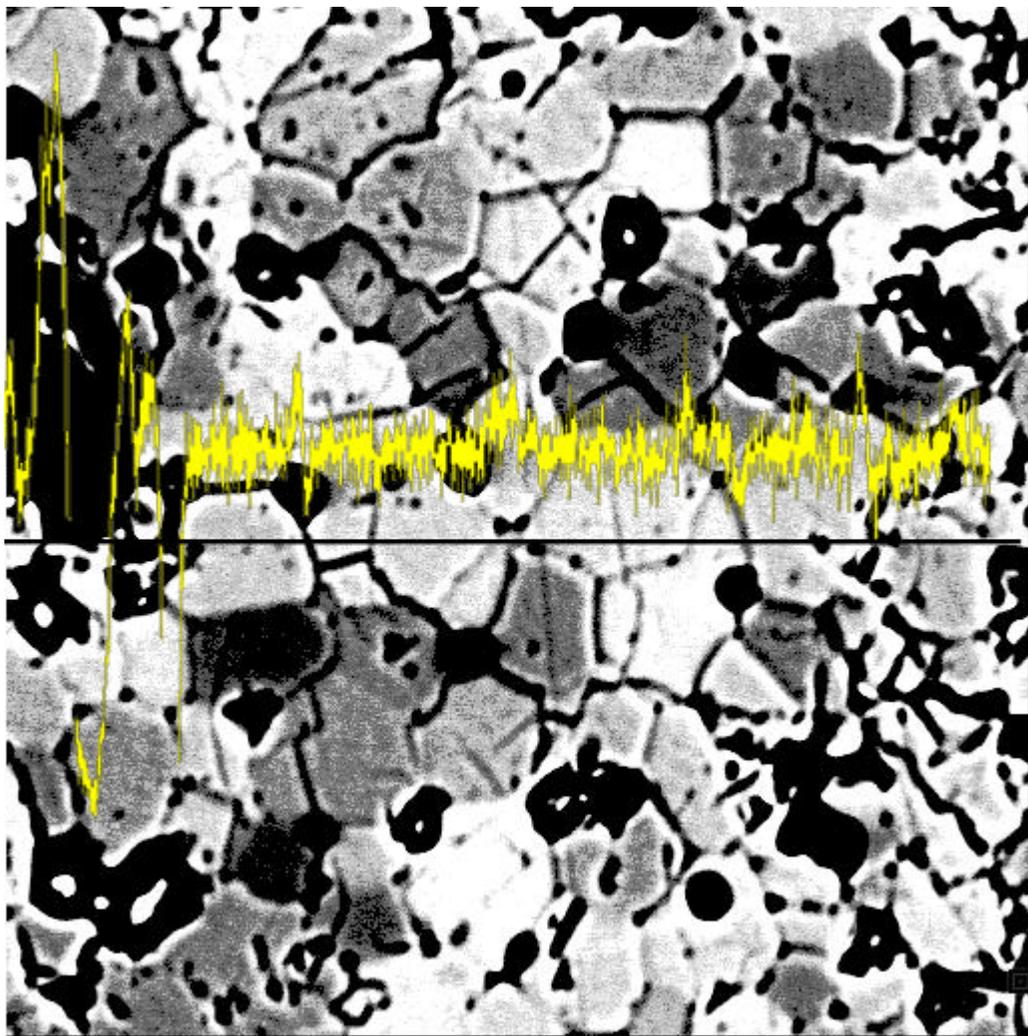


図79 試料2 (O/M=1.945) の酸素線分析結果

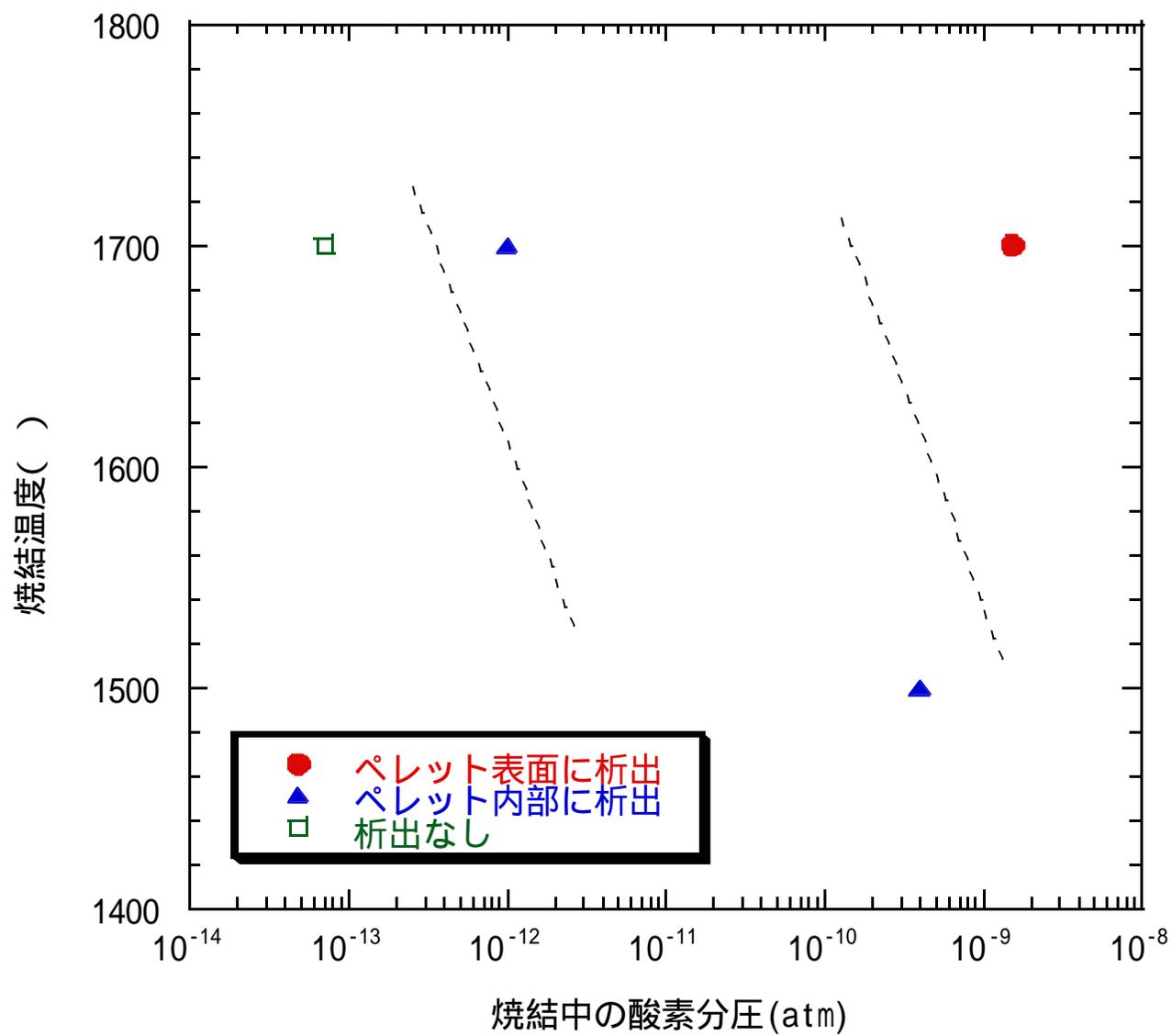


図80 Pu-Am-Ln系化合物の析出領域