

高速炉用 Am 含有ターゲット候補
選定に関する検討
(調査報告)

2003年10月



核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

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

高速炉用 Am 含有ターゲット候補選定に関する検討

(調査報告)

逢坂正彦¹⁾、吉持宏¹⁾、堂野前貴子²⁾、井上賢紀³⁾

要　旨

サイクル機構－原研融合研究の枠内で、高速実験炉「常陽」にて照射予定の Am 含有ターゲットについて、候補の選定に関する検討を文献調査に基づき行った。

ターゲットの開発状況及び選定研究に関する文献調査を実施し、母材選定基準を策定したうえで、多くの物質のなかから母材の一次候補を選定した。次に一次候補として選定した ZrO₂, Al₂O₃, MgO, SiC, Si₃N₄, MgAl₂O₄ 及び TiN について、熱伝導度、照射特性、製造性等の詳細な特性調査を行った。母材選定基準のうち、特に製造性への適合に重点を置いて、一次候補のなかから ZrO₂, MgO, SiC, Si₃N₄ 及び TiN の 5 つを Am 含有ターゲット用母材として選定した。選定した母材をベースとした Am 含有ターゲット候補形態及び製造プロセスを検討し、以下のとおり策定した。

(1) Am 酸化物粒子分散型 : Am 酸化物を粒子 ($\phi 100\text{--}300 \mu\text{m}$) とし、母材 (MgO) に分散させたもの。

- 乾式による Am 粒子製造 ; Am 酸化物粉末成型、破碎及びふるい
- Am 酸化物粒子とスプレードライにより作製した母材粒子の混合
- 一軸成型、不活性雰囲気中常圧焼結

(2) Am 酸化物粒子混合型 : Am 酸化物と母材 (SiC, Si₃N₄ 及び TiN) の均一混合型

- Am 酸化物粉末と母材粉末の混合
- 一軸成型、不活性雰囲気中常圧焼結

今後これらの製造試験、特性測定等を行い、「常陽」照射 Am 含有ターゲットを決定していく。

-
- 1) 大洗工学センター照射施設運転管理センター燃料材料試験部照射燃料試験室
 - 2) 大洗工学センター照射施設運転管理センター燃料材料試験部照射材料試験室
 - 3) 大洗工学センターシステム技術開発部核燃料工学 Gr.

Selection Study of Am-Target Candidates for the Irradiation in Fast Reactors

Masahiko Osaka¹⁾, Hiroshi Yoshimochi¹⁾, Takako Donomae²⁾, Masaki Inoue³⁾

Abstract

Selection study of Am target candidates for the irradiation in the experimental fast reactor JOYO was performed by the investigation of previously reported studies as a part of JNC-JAERI joint project.

Criteria of the selection of inert matrix for the Am target was decided and preliminary selection was carried out on the basis of the investigation results of the present status of development of target and several selection studies in the world. Detailed investigation of the properties such as thermal conductivity, irradiation behavior, fabrication technique on seven pre-selected candidates, specifically ZrO₂, Al₂O₃, MgO, SiC, Si₃N₄, MgAl₂O₄ and TiN, was then performed. Five matrices for Am target candidates, ZrO₂, MgO, SiC, Si₃N₄ and TiN, were consequently selected on considering the criteria, in particular, adaptability of the fabrication procedure. Target form and fabrication process were also designed and decided as follows:

Dispersed type of Am oxide particle (ϕ 100-300 μm) into MgO

- Am oxide particle fabrication by dry route; i.e. compacting of Am oxide powder, crushing and sieving
- Mixing of Am oxide particle with MgO particle made by spray dry
- Pelletizing by uni-axial press and sintering in one atm of inert atmosphere

Mixed type of Am oxide

- Mixing of Am oxide powder with material (SiC, Si₃N₄ or TiN) powder
- Pelletizing by uni-axial press and sintering in one atm of inert atmosphere

Fabrication test and property measurement will be conducted for the final decision of Am-containing target.

-
- 1) Alpha Gamma Section, Fuel and Material Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center
 - 2) Material Monitoring Section, Fuel and Material Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center
 - 3) Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center

(目次)

1. 緒言.....	1
2. ターゲットの開発状況.....	3
2.1. EFTTRA グループ	3
2.2. Inert Matrix Fuel ワークショップ	4
2.3. その他.....	4
3. ターゲット候補用母材の母材選定基準策定及び一次候補選定.....	6
3.1. 選定研究の概要	6
3.2. 母材選定基準策定.....	10
3.3. 一次候補選定.....	11
4. 母材の特性調査.....	15
4.1. ZrO ₂	15
4.2. Al ₂ O ₃	16
4.3. MgO.....	17
4.4. SiC.....	19
4.5. Si ₃ N ₄	20
4.6. MgAl ₂ O ₄	22
4.7. TiN	23
5. Am 含有ターゲット形態策定	25
5.1. 母材の選定.....	25
5.2. 燃料形態・基本製造プロセスの策定	26
6. 結言.....	31
7. 参考文献	32

(表一覧)

表 1 EFTTRA 照射実験シリーズ一覧	3
表 2 Burghartz らによる Am 核変換ターゲット母材選定基準	6
表 3 Kleykamp による Am/Pu 核変換用ターゲット母材選定基準	7
表 4 Matzke らによる Am 核変換ターゲット母材選定基準	8
表 5 Am 含有ターゲット候補用母材選定基準	10
表 6 予備母材選定結果	12
表 7 一次候補選定結果	14
表 8 一次候補の評価結果	25
表 9 Am 含有ターゲット候補用母材とターゲット形態の組み合わせ	27
表 10 Am 含有ターゲット候補形態	28

(図一覧)

図 1 Am 含有ターゲット候補選定の流れ	2
図 2 Am 酸化物分散型ターゲットの基本製造プロセス	29
図 3 Am 酸化物混合型ターゲットの基本製造プロセス	30

1. 緒言

マイナーアクチニド（MA: ネプツニウム Np, アメリシウム Am 及びキュリウム Cm）の使用済み燃料からの回収、炉へのリサイクル・核変換等による環境負荷低減を前提とした燃料サイクル構築に資するため、核燃料サイクル開発機構（以下、サイクル機構）と日本原子力研究所（以下、原研）の共同研究「MA 含有燃料及びターゲット試料の作製並びに照射特性評価」が平成 14 年度より開始された。本共同研究はサイクル機構／原研統合に向けた先行的取り組みである「融合研究」の一テーマとして行われるものであり、サイクル機構と原研が個別に検討してきた評価対象となる材料並びに研究手法の共有化により、両機関の有機的な協力と研究資源の有効利用を進展させることを狙いとしている。

本共同研究においては、高速炉サイクル及び軽水炉から発生する Np と Am を含有する「燃料」及び「ターゲット」を開発する。ここで言う「燃料」とは将来の高速炉もしくは加速器駆動消滅システム（ADS: Accelerator Driven System）において MA を含有する燃料として想定されているものを指す。一方「ターゲット」とは MA を高濃度で母材と組み合わせたものであり、MA の核変換効率を向上させることを主な目的としたものである。サイクル機構は Np を含有する「燃料」及び Am を含有する「ターゲット」を、原研は Np を含有する「燃料」及び「ターゲット」の開発を担当する。

本検討は Am を含有するターゲット（以下、Am 含有ターゲット）の開発に関するものである。開発においては、Am 含有ターゲットの選定、製造技術確立、「常陽」における照射及び照射後試験を実施していく。Am 含有ターゲットは、MA を含む燃料サイクル確立における Am 含有形態の最適化において、実用化戦略調査研究で考慮されている MA 含有燃料¹⁾とともに、有望なオプションとなりえるものとして期待される。

「ターゲット」の利点は、MA の親核種となる U が存在しないため新たに炉内で生成される MA が非常に少なく、「燃料」に比べて MA の核変換効率を大きくできる点にある。このためターゲットの開発においては、熱的特性、核的特性等種々の観点で U を含む化合物より良好な特性を有する「母材」の選定、及び母材と MA の組み合わせ、微細組織等のターゲット形態の策定が重要となる。

ターゲットによる MA の消滅研究は、これまでに欧州を中心に進められてきた。まず良好な特性を有する母材の選定に始まり、母材と MA を組み合わせたターゲット形態の策定、その製造技術の開発、特性測定、照射特性評価等の一連の研究が行われている。これまでにいくつかのターゲット形態が選定されてきているものの、特に照射特性情報の不足から、最適なターゲットが確定されていないのが現状である。

そこで、本 Am 含有ターゲットの開発においては、実用化戦略調査研究における MA 含有 MOX 燃料の代替または補完するものとなり得る高性能ターゲットを目標とする。

本報告は、Am 含有ターゲット開発の第一段階として、主に文献調査による情報収集をもとに、ターゲット用母材を選定し、Am 含有ターゲット候補を策定した結果について報告するものである。実用化戦略調査研究における Am 含有 MOX 燃料の製造技術開発の意義は、遠隔操作にて現行 MOX 燃料製造技術と適合する技術を開発することにある。本 Am 含有ターゲットの開発においては、前述した MA 含有 MOX 燃料の代替または補完の観点から、この製造技術の適合性に重点を置いている。

本調査研究の流れを図 1 に示す。まず高速炉における Am 含有ターゲット開発の現状を把握するため、世界のターゲット開発状況を調査した。次にターゲットの選定に関する研究を調査し、Am 含有ターゲット候補用の母材選定基準（母材選定基準）を策定した上で、多くの化合物の中から詳細な特性調査を行う母材（一次候補）を選定した。次に一次候補について特性の詳細な文献調査を行い、母材選定基準と照らし合わせて Am 含有ターゲット候補用母材を選定した。最後に選定した母材をベースとする Am 含有ターゲット形態を、基本製造プロセスとともに策定した。

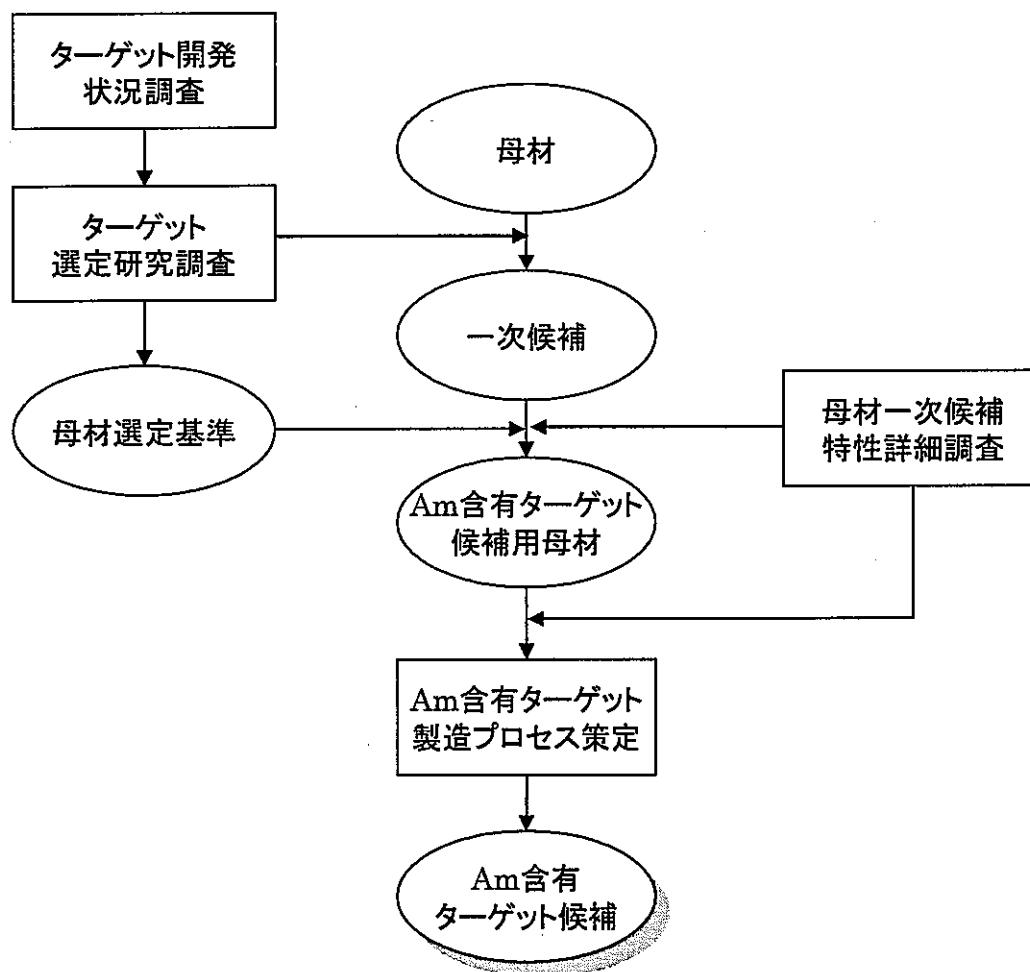


図 1 Am 含有ターゲット候補選定の流れ

2. ターゲットの開発状況

MA 及び Pu 消滅を目的としたターゲットの研究開発は、ここ 10 数年主にヨーロッパを中心に展開されている。本章においては世界のターゲット開発状況を調査することにより、Am 含有ターゲットの位置付け、課題等を把握する。

2.1. EFTTRA グループ

1992 年に結成され、アクチニド及び長寿命核分裂生成物 (LLFP) 核変換の研究を目的としている。仏 CEA, EdF、独 FZK、蘭 NRG 及び European Commission から ITU が参加し、製造、照射、PIE を含めた幅広い研究活動が行われている。

Warin ら²⁾は EFTTRA グループの 10 年間の成果概要を報告している。表 1 に EFTTRA 照射実験シリーズの一覧を示す。³⁾⁴⁾⁵⁾’90 年代半ばまでは、有望なターゲット用母材として良好な熱的特性を有するスピネル ($MgAl_2O_4$) が注目され、主に照射特性研究に力が注がれた。しかし Am を含有した実際のターゲットを照射した場合、多量の放出 He ガスによるスエリング増大、スピネル母材のアモルファス化、スピネル母材と Am 酸化物の反応等が観察され、照射特性は期待したほど良好ではなく³⁾⁴⁾⁵⁾、最近の興味は照射による特性劣化が少ない Zr 系の母材にシフトしている。しかしながら、一連のスピネル関連研究で多くの知見・情報を得ることができた。

EFTTRA グループについては、近年、グループ以外の研究者との情報交換を目的としたセミナーが開催されている。第二回目のセミナーが日本からの参加者も含めて今年ドイツ ITU にて開催され、プロシーディングが J. Nucl. Mater., 320 として発行されている。

表 1 EFTTRA 照射実験シリーズ一覧

シリーズ	照射炉	内容	状況 (01.9 現在)
T1	HFR	Tc 及び I	完了
T2	HFR	Tc IM の中性子照射	完了 完了
T2 bis	HFR	IM の中性子照射	完了
T3	HFR	IM の中性子照射 UO ₂ の IM への分散	PIE 実施中 PIE 実施中
T4	HFR	Am のスピネルへの分散	完了
T4 bis	HFR	Am のスピネルへの分散	PIE 実施中
T4 ter	HFR	UO ₂ のスピネルへの分散、中心温度	PIE 実施中
F1	PHENIX	IM の中性子照射 UO ₂ の IM への分散	照射継続 PIE 実施中
F1A	PHENIX	IM の中性子照射 UO ₂ の IM への分散	照射継続 照射継続
T5	HFR	Am 新化合物	照射検討中

2.2. Inert Matrix Fuel ワークショップ

Inert Matrix Fuel (IMF) とは、主に軽水炉使用済燃料及び解体核兵器から発生する余剰 Pu (MA を含む) の処分問題解決を、不活性母材を用いた燃料により行うこととした燃料・ターゲットの総称を意味する⁶⁾。OECD/NEA のフォローを受けて 1995 年よりほぼ毎年ワークショップが開催されている。使用済燃料の環境影響評価を含めて、燃料製造、炉内における特性及び照射試験に焦点をあてている。またその際の安全性にも考慮した炉心核特性評価も行われている。

基本的には既存の原子炉（軽水炉 LWR 及び CANDU 炉）を用いた Once-Through での余剰 Pu 消滅による環境負荷低減が目的である。しかしながら、Once-Through によっては消滅率を高くできない場合等は、再処理を前提としたリサイクルオプションも考慮されている。炉型についても、最近では既存の原子炉に特にこだわらず、液体／ガス冷却高速炉、高温ガス炉等も視野に入れたものとなっている。

燃料形態は処分における安定性も考慮したものとなっており、均質／非均質を問わない。形態としては様々なものが検討されているが、母材として MgO, MgAl₂O₄, (Ca,Zr)O₂, (Y,Zr)O₂, ZrSiO₄, ZrN, SiC, ¹¹B₄C, AlSi, Mo, Zr 等（母材／Fissile 含有固溶体としての使用）を挙げることができる。主なワークショップのプロシーディングが以下の Jounal の Special Issue として発行されている。

4th workshop : J. Nucl. Mater 274, 1-2, Villigen, Switzerland, October, 1998.

6th worksyop : Prog. Nucl Energy 38, 3-4, Strasbourg, France, May-June, 2000.

8th workshop : J. Nucl. Mater 319, Tokai, Japan, October, 2002.

2.3. その他

フランスにおいては'91 廃棄物法に基づき、長寿命放射性核種の分離・核変換研究が行われてきた。ターゲットの開発に関しては、U,Pu をベースとして Np,Am を固溶させた燃料の照射試験 Superfact1 の結果から、Am についてはターゲット形態にして Once-Through で核変換させる方針が取られ、このための研究が続けられてきた⁷⁾。

ターゲット用母材としては、Am を含有する MgAl₂O₄ の研究が EFTTRA-T4 として行われた。その後、母材照射試験 MATINA1 において MgO の特性が良好であったことから、高速炉におけるスピネルに代わる母材として有力視された⁸⁾。そのため、Am 酸化物を含有したターゲットの高速炉照射試験である ECRIX 計画⁸⁾、CAMIX-COCHIX 計画⁹⁾において MgO が母材として使用されている。その他、照射耐性が高いことから安定化 Zr の母材としての優位性がクローズアップされ、CAMIX-COCHIX 試験においては、Am とイットリア安定化ジルコニア (YSZ: Yttrium Stabilized Zirconia) の固溶体が選定されている。

日本におけるターゲット型燃料の開発としては、軽水炉における Once-Through での核兵器解体 Pu 消滅を主な目的とした岩石型燃料¹⁰⁾が挙げられる。燃料形態として

は、Pu と安定化ジルコニアの固溶体、またはこの固溶体を粒子形状にしてアルミナ、スピネル等の母材に分散させた分散型燃料等がある。その他、Zr 酸化物をベースとした余剰 Pu 消滅用ターゲットの Once-Through による消滅・直接処分の研究が PSI, KAERI により行われている¹¹⁾。

3. ターゲット候補用母材の母材選定基準策定及び一次候補選定

3.1. 選定研究の概要

第2章に示したように、MAまたはPuの核変換を目的としたMA/Puターゲットに関する世界的多くの研究がなされており、ターゲット用母材の選定に関しても数報告されている。Am含有ターゲット候補策定にあたっては、これら先行研究¹²⁾¹³⁾¹⁴⁾¹⁵⁾¹⁶⁾¹⁷⁾を調査した上で母材選定基準を策定し、多くの化合物からAm含有ターゲット用の母材を一次候補として絞り込むこととした。

3.1.1. Burghartz et al.¹²⁾

MA(主にAm)の核変換のための母材選定・評価として、表2に示す基準を設けてMgAl₂O₄、ZrSiO₄、CeO₂、SiC、Si₃N₄の5つの母材を選定した。

表2 BurghartzらによるAm核変換ターゲット母材選定基準

項目	基準
中性子経済	中性子吸収体(<2.7 barn)でないこと
融点 or 相転移点	>2173 K
良好な冷却材との共存性	773 Kまで
被覆管との共存性	良好であること
熱伝導度	UO ₂ より高いこと
毒性	毒性が無いこと
良好な耐照射性	適した弾性定数、硬さ
再処理への適合性	現在or開発中の再処理方式に適合すること

選択された5つの母材について、浸出法¹⁸⁾等を用いて非放射性母材にAmをドープする(約50%TDの成型体をAm/HNO₃溶液に浸す)ことによりターゲット試料を作製し、熱容量、熱伝導度、X線回折等の物性測定、イオン照射によるFP・ α 粒子損傷特性、計算コードによる相状態評価を行い、Am含有ターゲットとしての適性を評価した。

試験の結果、現段階で最適と言えるものは無く今後の試験・評価を必要とするものの、CeO₂はNaとの共存性がよくないため使用はLWRに限定されること、ZrSiO₄は分解しやすいこと等が分かった。総合的な評価の結果、MgAl₂O₄、CeO₂は全体的に良好な特性を有しており有望であること等の結論が得られた。

3.1.2. Kleykamp¹⁹⁾

Pu/アクチニドの軽水炉/高速炉での核変換において、炉外試験により得られる特性

に重点を置いて固溶体もしくは二相ターゲット用の母材選定を実施した。基準は表 3 のとおり。

表 3 Kleykamp による Am/Pu 核変換用ターゲット母材選定基準

基準
高い融点、転移点もしくは共晶点
低蒸気圧
高い熱伝導度
良好な被覆管及び冷却材との共存性
良好な硝酸への溶解性
燃料と母材との共存性

事前選定において、B₄C/SiC、ZrSiO₄、CePO₄ 及び ¹¹BN は、それぞれ被覆管構成元素 Fe との反応、高温での分解、低い熱伝導度及び高蒸気圧という理由により除外された。

Pu 酸化物用の母材としては、PuO₂ の問題点である Na との反応、被覆管との反応及び硝酸への不溶解を厳密に考慮しないという前提で Al₂O₃、MgO、MgAl₂O₄、Ce₂O₃、Y₂O₃ 及び安定化 ZrO₂ が選定された。Pu 窒化物については、SiC/B₄C、TiN、CrN、V/Nb、Mg₃N₂、希土類窒化物等が候補として挙げられているが、それぞれホットスポット生成 (SiC/B₄C)、固溶率が低いこと (TiN)、窒素分圧が高いこと (CrN)、三相化合物の生成 (V)、低熱伝導度 (Nb)、低酸素不純物化合物調整の困難性 (Mg₃N₂) の問題により除外された。このため非均質用母材として AlN、均質用母材として ZrN を選定し、これら 2 つについては硝酸への溶解性試験を実施した。

溶解性試験結果を含めた総合的な評価により、Pu 酸化物非均質ターゲット用母材として Mo、W、Al₂O₃、MgO、MgAl₂O₄、安定化 ZrO₂ が、Pu 窒化物用には AlN 及び ZrN が有望な候補として推薦された。ZrN は PuO₂ との系において熱力学的に安定であり、Pu 酸化物用の母材としても推薦されている。

3.1.3. Matzke et al.¹⁴⁾

Am 核変換のための母材選定・評価として、以下の 2 つの形態を中心として、表 4 に示す基準を設けて母材または Am 化合物の形態を選定した。

- 酸化物系で Am を含有する固溶体 (例 : (Ce,Am)O₂)
- Am 酸化物の酸化物母材への分散型 (例 : AmO₂ in MgAl₂O₄)

表 4 Matzke らによる Am 核変換ターゲット母材選定基準

項目	基準
中性子経済	中性子吸収体でないこと、放射化生成物
製造性、原料粉	簡便、低コスト、広汎用性であること
良好な熱的特性	高融点、良好な熱伝導度、高温での相安定性
良好な材料との共存性	被覆管及び冷却材
耐照射性	中性子、 α 線、核分裂生成物
良好な機械的特性	適した弾性定数、硬さ

文献サーベイに基づいて $MgAl_2O_4$ 、 $ZrSiO_4$ 、 CeO_2 、 SiC 、 Si_3N_4 、 $CePO_4$ 、 $(Zr,Y)O_{2-x}$ (YSZ)及び $(Zr,Ca)O_{2-x}$ (CSZ: Calcia Stabilized Zirconia)が母材として選定された。これらの母材に浸出法¹⁹⁾等を用いて Am をドープすることにより実際のターゲット試料を作製し、熱伝導度、酸素ポテンシャル、硬さ等の物性測定、イオン照射による FP・ α 粒子損傷特性、水への浸漬試験等を行い、Am 含有ターゲットとしての適性を評価した。

試験は特に Am の核特性に起因する α 粒子 (^{241}Am 及び ^{242}Cm の α 崩壊) 及び FP による母材照射損傷評価に重点をおいて行われた。試験の結果、 CeO_{2-x} については酸素ポテンシャルが高いため、被覆管内面酸化の観点からは O/M 比=1.9 程度のものが良いことが分かった。 $MgAl_2O_4$ については Am と Al の反応によりアモルファス化した化合物 ($AmAlO_3$) が生成し、これがイオン照射において観察された高スエーリングの原因である可能性があること、単体では不溶性であるが Am を含有することにより多量に水中に溶け出すこと ($MgAl_2O_4$ の MgO と Al_2O_3 への分解が原因と推定) が分かった。また $ZrSiO_4$ については容易に欠けが生じることが判明した。

これらの試験結果及び特性の詳細調査結果から、 Al_2O_3 、 $ZrSiO_4$ 及び $CePO_4$ が候補から除外された。 $MgAl_2O_4$ 、 $(Zr,Y)O_{2-x}$ については有望であるが、より適した形態として両者の良い点を組み合わせて最適化すること、例えば Am の $(Zr,Y)O_{2-x}$ との固溶体を母材 $MgAl_2O_4$ へ分散する形態等が提案された。

3.1.4. Chauvin et al.¹⁶⁾

主に高速炉における、Once-Through による Am の核変換のための最適な燃料形態について考察されている。核変換率 90 %以上を達成するためには、照射期間を通して良好な機械的・熱的特性が保持される必要がある。10 % AmO_2 を含有し、 $MgAl_2O_4$ を母材とするターゲット照射試験 EFTTRA-T4 においては、約 18 %という大きなスエーリングが観察された。これは FP 片、 α 粒子による母材の損傷、アモルファス化及び He 蓄積によりスエーリングが加速されたためであり、これらの結果をもとにして最適な

ターゲット微細構造について検討した。

ターゲット形態としては、Am 化合物の母材への分散型を考慮した。照射中の母材の損傷は主に α 粒子・FP 片によるものであり、これらによる損傷距離を考慮して Am 化合物を粒径 $\sim 100 \mu\text{m}$ として損傷を Am 化合物粒子内に留め、母材の損傷を低減することにより熱的特性等の低下を抑制することを考えた。

Am 化合物形態については、 AmO_2 or Am_2O_3 は熱的特性が好ましくない。また、 AmO_2 は酸素ボテンシャルが高すぎるため被覆管酸化の可能性がある。この酸素ボテンシャルの観点からは中間相、例えば $\text{AmO}_{1.62}$ 等が良好であると考えられるが、その調製が困難である。このため AmO_2 と ZrO_2 を固溶体として Am を安定化した化合物が適している。

母材については基本的特性、照射特性等の観点から、 MgO , MgAl_2O_4 , $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, Y_2O_3 , TiN 及び ZrN を選択し、MATINA の枠内で照射試験を実施している。Am の特性を考慮した場合、Am と MgAl_2O_4 の反応生成物 (AmAlO_3) の特性、多量に生成される He の処理（母材に保持するか放出させるか）を考慮する必要があり、例えば He を放出させる場合は、熱伝導度低下とのバランスを考え 10 %程度のポロシティが必要となるであろう。

現時点での Am 消滅における高速炉での最適なターゲット形態として、Am/Zr 酸化物固溶体を MgO 母材に大粒径 ($\sim 100 \mu\text{m}$) で分散させたものが提案されている。今後の課題としては Am/Zr/Y 酸化物系の相状態、基本的特性評価、製造技術の確立、照射試験の実施が挙げられている。

3.1.5. Chawla et al.¹⁷⁾

Inert Matrix Fuel 6th ワークショップにおける総合討論のまとめとして、IMF コンセプトを以下の 3 つに分類して、それぞれのカテゴリーにおいて推薦される燃料形態及び今後の開発課題を抽出した。

① 既存の LWR における Pu 燃焼

照射耐性、現 MOX 施設への適合性の観点から $(\text{Pu}, \text{Zr}, \text{Y}, \text{Er})\text{O}_{2-x}$ の研究が最も進んでいるが、熱伝導度が低いことから、安全性の観点におけるより正確な裕度評価が必要である。 MgAl_2O_4 , CeO_2 , $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, SiC もしくは Cermet も魅力的であるが、各々欠点を有する。今後技術的・経済的観点から現 MOX 路線と完全に整合することを条件とした場合、照射挙動解析、詳細な安全解析及び貯蔵コンディション評価が課題である。

② 高速炉における Pu 燃焼

より多くの Pu を燃焼するのであれば IMF コンセプトは魅力的である。共通認識としては MgO が唯一の母材候補であり、課題としては MgO ベース燃料の詳細設計及び安全評価が挙げられる。将来開発される再処理方法を考慮すれば必ずし

も PUREX との適合性は必要要件ではない。

③ MA の核変換

MA 混入による影響は製造工程における高線量化（遠隔操作が必要）、多量の He 生成（設計変更が必要）等である。また、核的特性の観点からは、少量でも Am, Cm を燃料に添加した場合、特に LWR において炉心特性及び燃料製造に与える影響が大きいため²⁰⁾、IMF コンセプトは魅力的である。このため、当初既存の LWR による核変換を中心に開発が進められたが、前述の影響と本質的な燃焼（核分裂）が必要であることを考えると、核分裂／捕獲比が高い高速スペクトル（高速炉、ADS）が必要との共通認識がある。現段階では、Am は AmO_x もしくは (Am,Zr,Y)O_{2-x} とし、MgO 母材を用いるターゲット形態が最も有望である。今後の課題としては異なる IMF コンセプトの提示、He 生成への対応の優先度が高い。

3.2. 母材選定基準策定

前節のターゲット選定に関する先行研究において述べられた選定基準を参考として、Am 含有ターゲット候補用母材の母材選定基準を表 5 のとおり策定した。

表 5 Am 含有ターゲット候補用母材選定基準

基準	優先度・重要度
高融点、転移点もしくは共晶点	2
良好な核的特性（母材の捕獲断面積が小さいこと）	2
高熱伝導度	2
良好な被覆管及び冷却材との共存性	2
良好な硝酸への溶解性	3
Am 化合物と母材との共存性	2
良好な照射耐性（ex. 熱伝導度低下が小さい）	2
良好な製造性（簡便、現 MOX 設備への適合等）	1

1: 高い、2: 必要要件、3: 好ましい

表 5 に示す基準は、前節において各研究者が示した基準にほぼ準拠している。本 Am 含有ターゲットの特色は、実用化戦略調査研究における高速炉サイクルへの適合である。すなわち、この高速炉サイクルにおいて主流となると考えられる低除染燃料²¹⁾を基本とした燃料サイクルへの適合であり、そのなかでも特に遠隔操作による現行 MOX 燃料の製造（乾式粉末冶法）への適合性に重点が置かれる。そこでこの良好な製造性を最も重要度が高いものとして位置づけた。

その他の基準のうち、高融点、良好な核的特性、高熱伝導度、良好な被覆管及び冷却材との共存性、Am 化合物と母材との共存性は、炉型を問わず、ターゲットとしての基本要件である。また良好な硝酸への溶解性は好ましい特性ではあるものの、将来の PUREX 以外の再処理方法の開発を見据えた場合、絶対的な条件とはならない。このため前節にて示された種々の選定結果からは除外されている母材・燃料形態についても、ターゲット候補用母材選択肢として再度候補に加え、調査・評価を実施した。

3.3. 一次候補選定

ターゲット候補用母材を選定するための詳細特性調査に先立ち、前節の各研究者による選定研究の結果を参考にして、Am 含有ターゲット候補用母材選定のために詳細に特性調査すべき母材（一次候補）を選定する。

3.3.1. 予備母材選定

これまでの先行研究においては、原則的に Am 化合物と母材の化合物形態は同一のもの、すなわち Am 酸化物の場合は母材も酸化物、Am 窒化物の場合は母材も窒化物ということが前提となっている。これは主に異種化合物間の熱力学的・化学的な安定性（Am 化合物と母材の反応による第三相の形成が無いこと等）の観点からである。しかしながら Am 化合物と母材が同じ化合物の場合でも、両者が反応することにより第三相が形成される場合が報告されており (AmO_x と MgAl_2O_4 の反応による AmAlO_3 の生成⁵⁾、また逆に Am 酸化物と窒化物母材においても、両相が反応せずに熱力学的に安定に存在する場合もあり得る。例えば Kleykamp はこの安定性の観点から、ZrN を Pu 酸化物用母材としても使用できるものとして推薦している¹³⁾。

以上から、本研究においてはこの Am 酸化物と窒化物／炭化物母材の熱力学的・化学的な安定性を条件として、Am 含有ターゲット用母材候補として酸化物に加えて窒化物・炭化物も考慮することとした。

数多くの化合物のなかから一次候補選定に供する母材を絞り込むために、主にこれまでの先行研究において推薦されている母材のなかから予備母材選定を行った。さらに、先行研究において主に特性データが少ない等の理由により推薦されていないもししくは除外されているものについても、優先基準である製造への適合性を条件として、予備母材に加えた。表 6 に予備母材選定結果を各先行研究における評価結果とともに示す。

表 6 予備母材選定結果

Support matrix	Burghartz et al.	Kleykamp	Matzke et al.	Chauvin et al.	Chawla et al.
MgAl ₂ O ₄	1	1	1	1	2
CeO ₂	1	2	2	-	2
Al ₂ O ₃	-	1	3	-	-
MgO	-	1	-	1	1
ZrO ₂	-	1	1	1	1
AlN	-	1*	-	-	-
ZrN	-	1	-	1*	-
SiC	2	3	2	-	2
Si ₃ N ₄	2	3	2	-	-

1: Recommended, 2: Reserved, 3: Excluded, -: Not noted

* Recommended as a support matrix for nitride fuel

3.3.2. 一次候補選定

表 6 の中で多くの研究者が推薦または保留している MgAl₂O₄, MgO, ZrO₂ は、PUREX への適合性を除いて表 5 に示す母材選定基準に適合する。さらに実際に Am を含有するターゲットの製造・照射試験等が行われており、データが豊富である。このためこれらの母材は有望と考えられ、一次候補に含めた。

同じく多くの研究者が推薦、または保留している CeO₂ については、熱伝導度が 1.2W/Km 程度と極端に低い。しかも酸素ポテンシャルが非常に高く²²⁾、被覆管酸化等の問題が考えられる。これらのことから、母材としての利点は少ないと考え除外した。

SiC 及び Si₃N₄ は各先行研究にて候補として検討されているものの、推薦はされていない。これは、これらの化合物は高温において高強度を有すること等から、例えば SiC は核融合炉の第一隔壁、Si₃N₄ は自動車用タービン等として研究されてきたものであり、原子炉用燃料もしくは母材としての応用という観点からの研究は少なく、データが不足しているためである。しかしながら高融点、高熱伝導度等、母材としての基本的な特性が優れていることに加えて、核融合炉への応用のための高速中性子による照射損傷メカニズム解明の研究が行われており²³⁾²⁴⁾、今後のデータ拡充が期待できる。さらに製造性への適合という基準を満たす²⁵⁾ことから一次候補に加えた。

AlN については、熱伝導度が非常に高く PUREX に適合するという利点を有するものの、高速中性子照射下で大きなスエリングを起こして破損すること、照射による熱拡散率の低下が大きいこと²⁶⁾²⁷⁾から除外した。

次に、主に特性データ不足により先行研究において取り上げられていない母材のなかで、一次候補として加えるべきものについて検討した。表 5 に示す母材選定基準のうち熱的特性に着目し、表 6 に取り上げられている母材以上に良好な熱的特性を有するものとして、高温での使用が考えられている TiC, ZrC, HfC, TiN, WC 等のファインセラミックス²⁸⁾について検討した。これらはいずれも融点が 3,000 °C 以上、熱伝導度が 20~60 W/mK と非常に高く²⁹⁾³⁰⁾、母材としてのポテンシャルが高いと考えられる。このなかで、模擬物質を用いた試作・評価試験において良好な結果を得ていること³¹⁾、照射特性のデータは少ないが高速炉 PHENIX において照射中であり³²⁾今後照射特性のデータが得られると考えられることなどから TiN を選択し、一次候補として加えた。以上の評価の結果、Am 含有ターゲット用母材の一次候補を選定した。表 7 に一次候補を主な特性とともに示す。尚、核的特性についてはいずれも母材選定基準を満たしている。

表 7 一次候補選定結果

Criteria	ZrO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	α -SiC	β -Si ₃ N ₄	MgAl ₂ O ₄	TiN
Melting point (°C) * ¹	2,710	2,054	2,827	2,830	1,900	2,105	2,950
Thermal conductivity (W/Km) * ²	2.2	8.2	13	47	9	7.7	60
Adaptability to MOX fabrication process	Good	Good	Good	Good	Good	Good	Good
Compatibility to SUS cladding	Good (<1200°C)	Good (<900°C)	Good (<1100°C)	Good (<700°C)	Good (<900°C)	Good	unknown
Compatibility to sodium coolant	Good	Good	Good	Good (<500°C)	Good	Good	unknown
Adaptability to PUREX process	N.G.	N.G.	Good	N.G.	N.G.	N.G.	Good
Swelling under irradiation (Neutron fluences)	<2 % $4.4 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$	28 % $1.7 \times 10^{27} \text{ n/m}^2$	<10 % $2.8 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$	0.5 % $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	0.3 % $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	20 % $1.4 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	unknown
Degradation of thermal conductivity (Neutron fluences)	Small $4.4 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$	50 % $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	70 % $\sim 2 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$	88 % $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	82 % $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$	-	unknown
Chemical/Physical stability	Good	Amorphi-zation	Good	Good	Good	Amorphi-zation	unknown
Recommendation order in previous screening studies	1	2	1	3	2	2	2

1: Recommended, 2: Reserved, 3: Excluded

*1 Sublimation point for Si₃N₄

*2 Values at 1,000 °C

4. 母材の特性調査

前節で選定した母材一次候補について、最終的な Am 含有ターゲット候補用母材を選定するために、熱・機械的特性、照射挙動、製造性等についての詳細な文献調査を行った。

4.1. ZrO₂

① 一般的特性

ジルコニア (ZrO_2) はジルコニウム唯一の安定酸化物であり、破壊韌性が高く、各種高機能セラミックス部品を作ることが可能である。ジルコニアの結晶構造は 1170 °C 付近（降温過程では 900°C 付近）で单斜晶から正方晶へ変わり、2370 °C で正方晶から立方晶へ、2680 - 2710 °C で液体へ変化する³²⁾。熱伝導度は U の 3.9 W/mK と比べて 2.2 W/mK と低い。無添加の ZrO_2 は、この相転移により温度の上昇につれて体積変化による崩壊が生じる現象があるが、イットリア (Y_2O_3) やカルシア (CaO) を添加することにより固溶させると、高温相である立方晶 ZrO_2 が、常温領域まで安定して存在するようになる。これを安定化ジルコニア (FSZ: Fully-stabilized Zirconia) と呼び、立方晶が室温のみで存在するものを部分安定化ジルコニア (PSZ: Partially-stabilized Zirconia) と呼ぶ。これは純 ZrO_2 では不安定な萤石型構造に、 Ca^{2+} 、 Ce^{4+} 、 Y^{3+} などの Zr^{4+} よりもイオン半径の大きなものを添加して構造を安定化するもので、その量が十分に多ければ室温相として現れるものである。

ジルコニアは、硝酸に溶解しないため PUREX には適合しない。また一般的に Na との共存性は良好であり、部分安定化 ZrO_2 を用いた Na 共存性試験 (10 時間及び 100 時間浸漬) においては、Na の拡散はごく表面に留まり、表面において ZrO_2 と Na の反応生成物が生成されていることが示唆された³³⁾。

② 照射特性

Bleiberg ら³⁴⁾は UO_2 を最大 46 wt% 含有する ZrO_2 を 10^{20} fissions/cm³ まで照射し、熱伝導度の低下は最大でも未照射時の値の 10 % 程度であることを報告している。またスエリングについては 0.7 vol% であった。一方、Clinard ら³⁵⁾は核分裂性物質を含まない FSZ を高速炉 (EBR-II) で 4.4×10^{25} n/m² まで照射し、温度をパラメータとしてスエリングを測定した結果、最大で 1.76 vol% であったことを報告している。また、Berman ら³⁶⁾は、熱中性子炉で照射した UO_2 を含有するカルシア安定化ジルコニア (CSZ) の X 線回折及びスエリング測定を行い、未照射試料と比べて変化がなかったと報告している。

また FP による損傷を模擬した FSZ のイオン照射実験³⁷⁾によると、 $10^{20}/cm^3$ の 72 MeV の I⁺イオンによる照射においてアモルファス化は観察されなかった。

③ 製造性

近年、既存の LWR における解体核 Pu のインベントリーコントロール用燃料形態として、Pu と CSZ の固溶体燃料の研究が DOE において実施されている³⁸⁾³⁹⁾。PuO₂ の模擬物質としての CeO₂ を用いた製造試験において、CaO, CeO₂ 及び ZrO₂ 原料粉末（一般市販品）のボールミル混合、一軸成型、Ar/6 %H₂ 中 1700 °C での常圧焼結により、95 %TD のペレットが製造された。また、X 線回折測定により Ca, Ce, Zr の 3 者はすべて固溶し、CSZ が生成していることを確認した。しかしながら、PuO₂ を用いた製造試験では、PuO₂ 原料粉末の凝集により焼結密度は 89.7 %TD に留まり、高密度達成のためには原料粉末の破碎によるさらなる活性化が必要であると結論されている。

岩石型燃料研究においては U-YSZ 固溶体粒子の母材への分散型及び U-YSZ 固溶体ペレットが作製されている⁴⁰⁾。固溶体ペレットは、Y₂O₃, UO₂ 及び ZrO₂ 原料粉末のメノウ乳鉢混合、200 MPa 成型、N₂/75 %H₂ 中 1750 °C での 5 時間の常圧焼結により製造され、密度は 91 %TD であった。ペレットの X 線回折測定の結果、完全に固溶した U-YSZ 相が同定された。また、U-YSZ 固溶体粒子分散型は、SOL-GEL 法により作製した粒子をスラリー状にした母材粉末と混合し、前述の固溶体ペレットと同条件で成型、焼結することにより製造された。粒子の分布は均一であり、また粒子と母材との反応は観察されなかった。

4.2. Al₂O₃

① 一般的特性

酸化アルミニウムは旧称をアルミナとよび、天然にはコランダム、ルビー、サファイアなどとして産出する。約 9 個の相転移が報告されているが、代表的なものは α -Al₂O₃ (三方晶系コランダム型) と γ -Al₂O₃ (立方晶スピネル型) である。 γ 相は水酸化アルミニウムを加水分解する際にできる中間相で、1000°C以上では α 相になる。 α -Al₂O₃ は熱的に極めて安定であり、融点 2050°C の無色固体である。比誘電率は 9.34(c 軸に直角)、11.54 (平行)、熱伝導度は 8.2 W/Km と比較的高い。酸、アルカリにはほとんど溶けないが、融解アルカリとは反応する。 γ -Al₂O₃ の格子定数は製法によって異なり、0.77~0.81 nm の間にある。格子欠陥のあるスピネル構造で、化学反応性が高く、水に溶けて両性を示す。なお、 β アルミナとよばれたものは Na₂O·11Al₂O₃ を基本とした物質で酸化アルミニウムではない。このほか、気体分子として Al₂O₃、AlO などの存在が確認されている³²⁾³³⁾⁴¹⁾。

② 照射特性

矢野らは、Al₂O₃ に加え AlN、SiC、Si₃N₄ のセラミックスを「常陽」において 4.2×10^{26} n/m² まで照射した結果を報告している²⁶⁾²⁷⁾。それによれば、Al₂O₃ の熱拡散率は、非照射時には他の 3 試料と比べて 0.1 cm²/s と低いものの、照射後は 0.05 cm²/s

程度と他と大差ない結果となった。また、スエリングに関しては他の3試料に比べて高温高照射量時の値が大きかった。通常セラミックスでは、ボイドスエリングが500～700℃付近では起こらないことから、重照射での特異な挙動の存在が示唆されている。SANTENAY実験においては、 $1.7 \times 10^{27} \text{ n/m}^2$ の高速中性子照射量において28vol%のスエリングを示したと報告されている⁴⁾。

Yamashitaら⁴²⁾は、YSZまたはThO₂、Al₂O₃及びMgO混合物を母材とし、PuO₂を含有した岩石型燃料を製造し、JRR-3において照射試験を実施している。製造された燃料の相状態分析の結果、Pu-YSZ、Al₂O₃、MgAl₂O₄の他にPuを含むhibonite相(PuMgAl₁₁O₁₉)の生成が観察された。照射によりアモルファス化すると言われているAl₂O₃について³⁶⁾、結晶状態のAl₂O₃相が検出されているが、これは高燃料温度によりアモルファス化が抑制されたことが原因であろうと報告されている。

また、照射の結果ペレット直径が10%増加した。主な要因はガスバブルの蓄積であるが、Al₂O₃の相転移の繰り返しも要因のうちのひとつである。結論として、Al₂O₃は過剰量存在すると低融点のPu-hibonite相を生成し、スエリングの要因ともなることが報告されている。

Nitaniら⁴³⁾はU-YSZ固溶体のAl₂O₃、MgAl₂O₄への分散(微細粒径、大粒径)岩石型燃料を製造し、JRR-3において照射した結果を報告している。Al₂O₃をベースとした燃料においては、燃料微細組織は照射前と大きく変化しなかった。これは燃料温度が高いことによりアモルファス化したAl₂O₃が再結晶化したためと結論されている。

③ 製造性

Al₂O₃は岩石型燃料のU-YSZ粒子分散型燃料母材として使用されている。粒子とAl₂O₃原料粉末を混合し、200Mpaで成型した後、N₂/75%H₂雰囲気中、1750℃で5時間常圧焼結を行い、98%TDのペレットが製造された⁴⁰⁾。

4.3. MgO

① 一般的特性

マグネシア(MgO:酸化マグネシウム)は、その耐火性から19世紀以来主に鉄冶金におけるライニング材としての利用などで工業的に重要な位置を占めてきた。融点2827℃、沸点3600℃と報告されているが³²⁾³³⁾、高蒸気圧、半透明という光学的特性及び融点と沸点が近接していること等からいまだに不確定性を残している。また多くの熱・機械的特性について、その値は報告されているものの、比較的古いデータが多い。

融点に関しては、近年Ronchiら⁴⁴⁾がレーザー加熱による降温時のサーマルアレストを利用して測定し、これまでの推奨データより高い2977±20℃のデータを得ている。機械的特性については、近年芹沢ら⁴⁵⁾が音波測定により温度依存のヤング率等の系統

的なデータを取得している。

マグネシアは、耐熱性および耐アルカリ性は良好であるものの、高温になるほど蒸発による損傷が著しく現れる。しかしながら、高温下における電気絶縁性に優れ、熱膨張係数および熱伝導率が大きい(13 W/Km)という利点を有する。空気中に放置すると水や二酸化炭素を吸収し、徐々に水酸化炭酸マグネシウムになる。不純物の少ない高密度焼結体は空気中で安定であるが、水和しやすい不純物が多くなると焼結体は水分と反応し崩壊する。

MgO と核物質との相状態については、UO₂との固溶状態の研究が Serizawa らにより行われている⁴⁶⁾。MgO-UO₂ 固溶体ペレットを作製するため、酸素気流中比較的高い圧力下において、中間生成物である MgU₃O₁₀ 及び MgUO₄ と UO₂ の混合体を用いて焼結体を作製した。その結果、MgO の UO₂への固溶率は 33 %まで上昇した。一方、低酸素ポテンシャル雰囲気焼結では、MgO の UO₂への固溶率は数%程度に留まった。

また、Hengzhong Zhang ら⁴⁷⁾によると、Mg-AmO 系は共晶を生じ、酸素ポテンシャルに応じて融点(共晶点)が 1930~2220 K まで変化すると評価している。

② 照射特性

EFTTRA-T3 照射試験において、MgO 単体及び UO₂ または(U,Y)O_{2-x} 粒子を MgO に分散したターゲット試料が、HFR にて 1000 K 以下で約 20 GWd/t まで照射されている⁴⁸⁾。PIE の結果、高速中性子照射量 7.2×10^{25} n/m²においてスエリングは 1 vol% 以下、ガス放出率は 10 %以下であり、クラックが観察されたものの概ね良好な照射挙動であった。UO₂粒子分散型 MgO においては、FP ガス(Xe)が UO₂粒子と MgO マトリクス境界に蓄積し、UO₂粒子内にはほとんど残留していない様子が観察された。一方、(U,Y)O_{2-x} 粒子分散型においては UO₂粒子で見られた境界への Xe ガス蓄積は観察されなかった。

PHENIX における母材照射試験 MATINA1 においては MgO 単体及び UO₂ 粒子の MgO への分散型ターゲットが照射されているが、非破壊試験結果は良好であったと報告されている⁴⁹⁾。

Fujino ら⁴⁹⁾は、燃焼に伴う O/M 比增加を抑制するための MgO-UO₂ 固溶体型低酸素ポテンシャル燃料を提案している。Mg 固溶率約 2 %の UO₂ 燃料を最大 94 GWd/t まで照射し、スエリングは 60 GWd/t 以下では UO₂ 燃料と変わらないこと、熱伝導度は UO₂ 燃料に比べて照射期間を通じて高かったこと等を報告している。

③ 製造性

製作はアルミナ(Al₂O₃)より難しく、融点が高いために焼結温度も高くなる。さらに粉末が湿気に触れると焼成が困難になる⁵⁰⁾⁵¹⁾。加藤らが実施した試作試験³¹⁾では、冷間等圧成型(CIP: Cold Isostatic Press)後の常圧焼結において、金相観察では MgO

系試料 (MgO 、 MgO/CeO_2 、 $\text{MgO}/\text{Nd}_2\text{O}_3$) の中で MgO が最もポアが多く $10\text{-}30 \mu\text{m}$ のものが全面に分散して存在しており、結晶粒径は約 $30 \mu\text{m}$ との結果が得られている。

また EFTTRA-T3 照射試験用 $\text{UO}_2/(U,Y)\text{O}_{2-x}$ 粒子 MgO 分散型燃料の製造では、SOL-GEL 法で製造した粒子が成型時に破損したこと（成型圧力最大 640 Mpa ）、還元雰囲気焼結（ $\text{Ar}/5\%\text{H}_2$ 中、 1600°C で 5 時間）においては MgO と粒子の固溶は無かつたことが報告されている。

4.4. SiC

① 一般的特性

炭化ケイ素 (SiC) は六方晶系結晶であり、菱面体ウルツ鉱構造の α 型と立方晶系閃亜鉛鉱構造の β 型および非晶質纖維状のものがある。 α 型には c 軸の長周期構造に伴う多数の多形が存在し、それが I 型、II 型、…と名づけられている。これはウルツ鉱構造の中に一部閃亜鉛鉱構造の層が入り混じったために生じた現象で、結晶の成長速度や温度、不純物などによって影響された結果である。

α -SiC の融点は 2830°C とされているが 2200°C 以上で昇華が始まる。熱伝導度は 47 W/Km と非常に高い。酸には侵されないが、熱アルカリにより分解する。硬度はダイヤモンドについて高く、さらに熱衝撃に比較的強く高温の韌性が高い。 β -SiC は 2100°C 以上の加熱で α -SiC となる。

非晶質 SiC 繊維は、纖維状有機ケイ素化合物を熱分解することによって作られ、高温構造材料などに用いる³²⁾⁵²⁾。近年、SiC 繊維強化 SiC の核融合炉炉壁材料への適用のための研究が幅広く行われている⁵³⁾。また、SiC の割れに対する耐性を改良するために、TiC を添加した強化材の研究が行われている⁵⁴⁾。

SiC の熱力学的安定性について、Pan ら⁵⁵⁾は Co, Ni, Fe の共存下においては、これら金属のシリサイドが形成され、遊離炭素が放出されるため不安定になると報告している。また、SiC は高酸素分圧領域 ($>1 \text{ mmHg}$) においては表面に SiO_2 層が形成されるため 1200°C 以下においては安定であるが、低酸素分圧下では SiO_2 が還元された SiO が蒸発し、SiC が露出するため不安定になることが知られている。

また、Geib ら⁵⁶⁾は β -SiC と Fe の反応について、 800°C において反応面に炭化鉄の層が観察され、それ以上の反応を防ぐ役割を持つが、 800°C 以上では激しい反応が生じることを報告している。

② 照射特性

原子炉への利用としては、照射温度をオフラインにて計測する際の温度モニターとして使用されている。しかしながら、中性子照射した SiC の実際の照射温度と欠陥回復開始温度の一致性については研究者により意見が分かれている。丸山らは⁵⁷⁾、加速器を用いたイオン照射により SiC 中に格子欠陥を導入し、生成する欠陥の状態と回復

メカニズムを明らかにすることにより、SiC の照射温度モニターとしての有用性の基礎的検討を行っている。それによれば、炭素イオン照射 (25 MeV C⁺、413~760 °C、 $0.08 \sim 2.25 \times 10^{15}$ ion/cm²) では大きな組織変化は見られず、非晶質化も生じなかった。また、600 °Cでのアニール実験では、顕著な組織変化が見られず、SiC は安定な組織を保っていたとの結果が得られている。

Yano ら²⁴⁾²⁶⁾²⁷⁾は、高速実験炉「常陽」において照射された SiC の寸法変化、熱拡散率変化とそれらのアニーリングによる回復挙動を評価している。熱拡散率は 1.4×10^{26} n/m² の照射量において未照射時の 12 %程度まで低下したものの（照射温度 731 °C）、1500 °Cのアニーリングにより未照射時の 58 %程度まで回復したことが報告されている。またスエリングについては、約 3.9×10^{26} n/m² の照射量において最大 0.43 %程度であり、1300 °Cのアニーリングにより初期値の 0.15 %程度まで回復すると報告されている。

Snead らは 60 °Cにおいて SiC を高速中性子下で 2.6×10^{25} n/m² まで照射することによりアモルファス化させ、機械的特性の低下とともに、密度が 10 %程度低下したことを報告している⁵⁸⁾。

③ 製造性

SiC は共有結合性が非常に強いため焼結が困難である。このため高密度焼結体を作製する際には酸化物焼結助剤を添加した液相焼結法が用いられている。焼結助剤としては Al₂O₃ 等の酸化物のほか、B₄C 等も効果的なものとして知られている⁵⁹⁾。他の製法としては、Si+C→SiC の反応を利用して作られる反応焼結法もある。

Verrall ら⁶⁰⁾⁶¹⁾は解体核 Pu の CANDU 炉における消滅用燃料形態として SiC をベースとした燃料を提案している。Al₂O₃, Y₂O₃ を焼結助剤とし、Pu の模擬材として CeO₂ を最大 30 wt% 添加した原料を湿式ボールミルにより SiC 粉末と混合し、一軸金型成型 (50 MPa)、Ar 雰囲気 1 MPa 加圧焼結により、焼結温度 1700~1900 °C で理論密度 95 %以上の高密度焼結体を作製した。CeO₂ 添加率が上昇するにつれて焼結密度の上昇が見られたが、これは CeO₂ 自体が焼結助剤として作用し高密度化を促進したものと思われる。焼結ペレットの X 線回折及び金相観察の結果、Y-Al ガーネット及び CeAlO₃ が生成し、SiC 結晶空隙を充填するように配置されていた。

Burghartz らは UO₂ をドープした SiC 焼結体を作製し、X 線回折測定で相同定を実施したところ U(C,O) 相が生成していたことを報告している¹²⁾。

4.5. Si₃N₄

① 一般的の特性

窒化ケイ素 (Si₃N₄) は、六方晶系結晶の α 型から 1400~1600 °C で三方晶系の β 型へ非可逆的に転移し、 β 型は 1800~1900 °C で分解する。 β 型は高温まで極めて安定

である。原子間の共有結合性が強いため耐熱性、耐磨耗性、耐熱衝撃性に優れしており、800～1000 °Cに加熱した後、冷水に投下しても破壊しない。また熱膨張係数が小さく、比重が小さい。一方、1000°C以上の高温では焼結体中に残存しているガラス相の軟化に伴い強度が低下する、空気中高温で使用すると酸化のため表面付近が変質するという欠点を有している³²⁾³³⁾⁵⁰⁾⁵²⁾。一般産業用途としては、高温における強度を活かしてエンジン材料（例えばターピン）への使用が挙げられる。

Si_3N_4 のステンレス鋼との反応性の試験が Bennett らにより実施されている⁶²⁾。SUS316 ディスク両端を加圧せずに Si_3N_4 ディスクと接触させ、精製された Xe 雰囲気中 800-1000 °Cで最大 5161 h 保持した後、蛍光 X 線分析装置及び金相観察による表面分析が行われた。試験の結果、 Si_3N_4 ディスク表面は 1000 °C以下では Fe が観察されず、また Cr, Ni の付着量も 1000 °C以上で急増するものの、それ以下の温度では微量であった。

Si_3N_4 と Na の反応性については、Singh により Na 中の熱力学的安定性が評価されており⁶³⁾、 Si_3N_4 は酸素を 10³ ppm を含有する Na 中で 1700 K まで安定であると報告されている。また CVD 法により合成された Si_3N_4 と焼結法を用いた Si_3N_4 のナトリウム浸漬試験が加納らにより実施されている³³⁾。CVD 材料は焼結材と比べて含有する不純物が少なく、焼結助剤の影響を考えなくて良いという点から、材料の劣化が少ないと考えられているものである。この結果、ナトリウム浸漬による重量減少量は CVD 法を用いたほうが焼結法のものよりも少ない。これは粒界に焼結助剤、安定化剤および不純物がないためと結論されている。

さらに、FBR 冷却系構造材への適用検討を目的とした Na 共存性試験では、試料表面にわずかなくぼみが観察されるだけで、良好な結果が得られている。また試料表面近傍の EDX 分析では Na は非晶質結晶粒界相に存在するものの結晶粒内には存在せず、非晶質成分であるシリケートガラスと Na の共存性が問題となる可能性が示唆されている。

② 照射特性

β - Si_3N_4 が「常陽」において照射されている。照射条件は $3.9 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ (585 °C)、 $3.7 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ (735 °C)、 $2.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ (482 °C)、 $4.2 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ (731 °C) である。ここでは、透過型電子顕微鏡による組織観察、レーザーフラッシュ法による熱拡散率の測定、スエリングの回復挙動の測定、等時アニールによるスエリングの回復挙動および熱拡散率の回復挙動の測定が実施されている。これらの結果、いずれの照射条件においてもスエリングは 0.3 %程度、アニーリングによる長さ変化は極めてわずかであり、800 °C以上でやや収縮する傾向が認められたものの、1300 °Cでもほとんど回復は見られないという結果が得られている。また熱拡散率については $5.0 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ (377 °C) の照射において初期値の 15 %まで低下するものの、1300 °Cのアニーリン

グにより初期値の 40 %まで回復している²⁴⁾²⁶⁾²⁷⁾。

③ 製造性

Si_3N_4 は難焼結物質のため、それのみでは焼結せず、酸化物を中心とした焼結助剤が必要である。製法としては常圧焼結、反応焼結やホットプレス法が用いられる。焼結助剤の多くは Si_3N_4 に固溶せず粒界に残るが、 Al_2O_3 を助剤として使用した場合は焼結後に粒内に固溶しサイアロンを生成する。また常圧焼結における Si と N の解離を防ぐため、焼結助剤を添加したガス圧（10 気圧）焼結法も開発され、エンジン部品等に使用されている²⁸⁾。

常圧焼結法として、近年硝酸塩を焼結助剤として用いた Si_3N_4 または $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiC}$ 複合材の製造及び特性評価が矢野らにより実施されている²⁵⁾⁶⁴⁾⁶⁵⁾。硝酸塩を焼結助剤として使用し、焼結を低温化することにより、焼結助剤として酸化物を使用した場合に比べて理論密度が最大 89 %から 95 %まで上昇した。また、常圧焼結においては、 SiC の添加量とも関連するが、強度は一般的に密度の低下とともに低下する傾向が認められた。

Burghartz らは、 UO_2 をドープした Si_3N_4 焼結体を作製し X 線回折測定で相同定を実施したところ、 UO_2 は Si_3N_4 と反応せずこれら二相のみが存在することを報告している¹²⁾。

4.6. MgAl_2O_4

① 一般的特性

尖晶石を指し、理想化学組成は^VMg^{VI} Al_2O_4 （ローマ数字は酸素に対する配位数）であり立方晶系をとる。この結晶構造を正スピネル構造と呼ぶ³²⁾。スピネル構造とは XY_2O_4 の化学式を有する酸化物に見られるもので、単位格子は XY_2O_4 の 8 倍の原子を含む。スピネル構造は、イオン分布の型により、正スピネル構造（正スピネル型イオン分布；distribution of normal spinel type）である^VX^{VI} Y_2O_4 と逆スピネル構造（逆スピネル型イオン分布；inverse spinel type distribution）である^VY^{VI}(XY) O_4 の 2 つに分類できるが、2 つの型は漸移的である。この構造で左半分を右半分に等しいように変えると、対称性は低下し斜方晶系となり、 A_2X_7 原子団が形成される。この構造を変型スピネル構造（modified spinel structure）と呼ぶ。また、スピネルでは照射によって秩序-無秩序相転移が観察され、解明研究が進められている⁶⁶⁾⁶⁷⁾⁶⁸⁾⁶⁹⁾⁷⁰⁾。

また、単結晶スピネル（試料主成分； $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{MgO} = 3:1$ ）を用いた Li 浸漬試験では、組成の影響で試料中の Al_2O_3 成分がかなり激しく Li に腐食されたが、等モル組成のスピネル試料であれば腐食速度は遅くなり、Li に対して良好な耐食性を示すものと推察されている⁷¹⁾。

融点は 2105 ℃、熱伝導度は 7.7 W/Km であり Al_2O_3 と同等の値である。また SUS,

Na との共存性も良好である。

② 照射特性

Nitani ら⁴³⁾は U-YSZ 固溶体粒子（微細粒子及び大粒径粒子）の MgAl₂O₄への分散岩石型燃料を製造し、JRR-3において照射した結果を報告している。燃料温度が高いことに起因する MgAl₂O₄の分解-MgO の蒸発に伴う照射後燃料微細構造の変化、すなわち中心部への U-YSZ 粒子の移動、中間部における MgO の蒸発による Al₂O₃相の出現、ギャップ部への MgO の蓄積が観察された。

EFTTRA-T4 照射試験においては AmO_{2-x} と MgAl₂O₄ の均一混合型燃料が HFR にて最大 3.5×10^{26} n/m² まで照射され、一連の PIE が実施された⁵⁾。本試験においては ²⁴¹Am の核変換率は 96 % に達し、多くの知見が得られている。その際の特記事項として、He ガスの蓄積及び FP 片による母材損傷を原因とするスエリング増大が挙げられ、その値は最大 18 % に達した。従来 MgAl₂O₄ は、高温による照射欠陥の回復等により、中性子及び低エネルギーイオン照射によってもスエリングは観察されていなかった。これは MgAl₂O₄ の優れた特性として認められていたが、本試験結果を反映して Am 含有粒子径を 50-300 μm と大径化して母材の損傷を抑制すること、適度なポアを導入し He, FP ガス蓄積と共に存させることの最適化案が提案された。

③ 製造性

CIP 及び常圧焼結による試作試験の結果³¹⁾、金相観察では MgAl₂O₄ 系試料 (MgAl₂O₄, MgAl₂O₄/CeO₂, MgAl₂O₄/Nd₂O₃) の中で MgAl₂O₄ のポアが最も多く 100 μm 程度のものまで観察されている。

EFTTRA-T4 照射試験用試料作製においては、Ar/H₂ 雰囲気中 1650 °C の焼結において 96 % の高密度ペレットが得られている。しかし、AmO_{2-x} と MgAl₂O₄ が反応し低融点の AmAlO₃ を生じており、この化合物を Am ホスト相として受容可能かどうかが今後の課題として挙げられている。

4.7. TiN

① 一般特性

TiN は公開されているデータが非常に少ない。表 7 に示す母材の中では融点が 2950°C と最も高く、高温安定性に優れ、高強度という特性を有する。そのため、ガス冷却高速炉用材料として有望と考えられており、特性評価試験等が実施されている⁷²⁾。また TiN は加速器駆動消滅炉における母材としても考えられている⁷³⁾。熱中性子炉照射のため、PuN+TiN 混合型ペレットが PuO₂ の炭素熱還元、機械混合・プレスにより製造されたが、PuN の TiN への固溶率は低く、これは主にイオン半径の違いに起因するとされている。

② 照射特性

照射特性データは非常に少ない。母材照射試験 MATINA1において TiN が照射中である⁴⁾。

③ 製造性

CIP 成型及び常圧焼結により TiN、TiN/Nd₂O₃ 混合焼結体が製作された³¹⁾。 TiN/Nd₂O₃ 混合体の金相観察、EPMA 分析の結果、TiN 結晶空隙を Nd₂O₃ が充填するように均一に分散・配置され、互いに固溶はしていないように見受けられた。

5. Am 含有ターゲット形態策定

5.1. 母材の選定

表 8 に母材特性調査結果を元に母材選定基準に照らした一次候補の評価結果を示す。

表 8 一次候補の評価結果

母材	利点	問題点	評価
ZrO ₂	<ul style="list-style-type: none"> • 照射による特性劣化が小さい • 熱・機械・化学的安定性が高い • 热的特性良好 	<ul style="list-style-type: none"> • 热伝導度が低い • 酸に不溶 • 照射スエリングが大きい 	1 2
Al ₂ O ₃		<ul style="list-style-type: none"> • アモルファス化 • ターゲット内他の構成元素との反応 	
MgO	<ul style="list-style-type: none"> • 热的特性良好 • 硝酸に可溶 • 化学的に安定 • 照射による特性変化が比較的小さい 	<ul style="list-style-type: none"> • Am 酸化物との共晶により融点低下 	1
SiC	<ul style="list-style-type: none"> • 照射スエリングが小さい 	<ul style="list-style-type: none"> • 高温における被覆管との反応 • 照射による熱伝導度低下が大きい 	1
Si ₃ N ₄	<ul style="list-style-type: none"> • 高温特性良好 • 被覆管、Na との共存性良好 • 照射スエリングが小さい 	<ul style="list-style-type: none"> • 照射による熱伝導度低下が大きい 	1
MgAl ₂ O ₄	<ul style="list-style-type: none"> • 热的特性良好 	<ul style="list-style-type: none"> • ターゲット内他の構成元素との反応 • 高温における安定性（分解） 	2
TiN	<ul style="list-style-type: none"> • 高温特性良好 	<ul style="list-style-type: none"> • 照射データの不足 	1

1: Am 含有ターゲット候補用母材として選定、2: 除外

ZrO₂は硝酸に不溶であり、現時点ではOnce-Throughの使用に限定されることから、実用化戦略調査研究における高速炉リサイクルをベースとした燃料サイクルとの整合性が乏しい。また熱伝導度が低く燃料温度が高くなることから、その使用は低線出力に限定され、Am 以外のホスト相、例えば低除染 MOX 等の使用は困難である。しかしながら照射による特性劣化、スエリングが小さく、照射耐性が非常に高い。このこ

とは、炉内で長期間照射することにより Am の核変換率を高くすることができるこことを意味している。さらに硝酸に不溶、熱・機械的安定性が高いこと等から照射済燃料の直接処分用燃料形態として有望なものと考えられており、Am/Pu 核変換用の母材として世界的にも研究例が多い。このため Am 含有ターゲット用母材として選定する。

Al_2O_3 についてであるが、一般的な特性は表 7 に示すように MgAl_2O_4 と類似している。照射挙動としてアモルファス化すること、スエリングが大きいことが問題点であり、また Pu との反応により低融点・高スエリングの hibonite 相を生成する可能性が報告されている。これらは高線出力を特徴とする高速炉には適合しないため候補から除外した。

MgO は熱的特性が良好、硝酸へ可溶等多くの利点を有しており、高速炉リサイクル、高線出力への適合性を有するため Am 含有ターゲット候補用母材として選定した。

SiC は高温における被覆管との反応、 $\text{U}(\text{C},\text{O})$ 相の生成、高速炉環境下における熱力学的安定性の面で問題点を有している。しかしながら熱的特性が良好であり、照射スエリングが小さい等いくつかの優れた特性を有している。さらに製造性への適合を満たすため、Am 含有ターゲット用母材として選定した。

Si_3N_4 は SiC と同様の利点を有するのに加えて、高温における被覆管・冷却材との共存性を有する。また SiC と異なり UO_2 をドープした場合 UN 相等の第二相の生成が無く、熱力学的にも安定である。問題点は熱伝導度低下が大きいことであるが、アニーリングにより熱伝導度が回復することを考慮すると、 Al_2O_3 において観察された場合と同様に、核分裂性物質を含有する場合はアニーリング効果により熱伝導度が回復することが期待される。また照射欠陥のメカニズム解明研究も進展しており⁷⁴⁾、ターゲット用母材としての研究は少ないものの、今後のデータ拡充を主な目的として Am 含有ターゲット候補用母材として選定した。

MgAl_2O_4 は実際に核分裂性物質を含有した照射試験が豊富であり、その結果から、燃料成分との反応、分解などの問題点が明らかとなっているため、除外した。

TiN については照射データがほとんど存在しないが、本質的な特性は良好であり、現在高速炉にて照射されていることなどから、Am 含有ターゲット候補用母材として選定した。

5.2. 燃料形態・基本製造プロセスの策定

前節で選定した母材候補について、Am を含有したターゲットとしての形態及び製造プロセスについて検討した。

5.2.1. ターゲット形態

高速炉用 Am 含有ターゲット形態としては以下が考えられる。

① Am 酸化物分散型

母材の損傷を低減させるために、Am 化合物を大粒径 ($\sim 300 \mu\text{m}$) 粒子とし、母

材に均一に分散させた形態

② Am 酸化物混合型

Am 化合物粉末または粒子 ($< 5 \mu\text{m}$) と母材粉末または粒子を混合した形態

③ 固溶体型

Am が母材と固溶体を形成した形態。①②と異なり単相となる。

Am 含有ターゲット用母材として選定した ZrO_2 , MgO , SiC , Si_3N_4 及び TiN と上記ターゲット形態の組み合わせは、表 9 のようになる。

表 9 Am 含有ターゲット候補用母材とターゲット形態の組み合わせ

	Am 酸化物分散型	Am 化酸化物混合型	固溶体型
ZrO_2	×	×	○
MgO	○	○	×
SiC	△	○	×
Si_3N_4	△	○	×
TiN	△	○	×

○：適している、△：製造困難、×：製造不可

ZrO_2 は Am と固溶体を生成するため、例えば $(\text{Zr}, \text{Am})\text{O}_x$ と MgO の混合型のように、他の母材を組み合わせない限り、その使用は固溶体型に限定される。しかしながら ZrO_2 の Am との固溶体は熱伝導度が低く、固溶体型での使用は低線出力における使用に限定されるため、Am のみならず Pu を含む場合を考慮した場合、魅力は乏しい。このため ZrO_2 と Am の固溶体はターゲット形態としては除外し、後述の Am 化合物形態の候補として考慮する。

MgO , SiC , Si_3N_4 及び TiN については、Am はこれらの母材へ全く固溶しない、もしくは固溶率は非常に低いため固溶体型の作製は不可能である。さらに SiC , Si_3N_4 及び TiN については難焼結性物質であり、製造性への適合から考えると、酸化物粉末焼結助剤を用いた液相焼結のみが唯一の製造方法となる。この場合 Am 化合物を大粒径粒子形状にすると、これら母材の液相焼結が阻害され高密度ペレットの作製が困難になると考えられるため、Am 酸化物混合型に限定される。

以上から、Am 含有ターゲット形態としては、Am 酸化物分散型用母材として MgO を、Am 酸化物混合型母材として SiC , Si_3N_4 及び TiN を選定し、目標仕様を表 10 のように策定した。

表 10 Am 含有ターゲット候補形態

	Am 酸化物分散型	Am 酸化物混合型
Am 化合物形態	Am 酸化物粒子	Am 酸化物粉末
Am 化合物粒子径	100-300 μm	-
Am 含有率		最大約 30 wt%
母材	MgO	SiC, Si ₃ N ₄ , TiN
ペレット径		5-7 mm
ペレット高さ		最大 6 mm (L/D<1)
理論密度		90 %TD 以上

Am 酸化物分散型ターゲットについては、既に UO₂、AmO_{2-x} を粒径 100 μm 程度の粒子とした分散型燃料が製造されており、製造性への適合も良好である。

SiC, Si₃N₄, TiN を母材とした Am 酸化物混合型ターゲットの製造は焼結助剤を用いた液相焼結となる。この場合、用いる焼結助剤によっては Am との化合物が生成する可能性がある（例えば、Al₂O₃ を焼結助剤に用いた場合は低融点の AmAlO₃ が生成する）。また焼結助剤は Na との共存性に影響を与えるため、最適な焼結助剤の種類について今後検討していく必要がある。

5.2.2. Am 酸化物形態

Am 化合物形態は、Am 酸化物または Am と安定化 ZrO₂ の固溶体酸化物とする。

AmO₂ は酸素ポテンシャルが非常に高いため、被覆管酸化防止の観点から、中間相である AmO_{1.62} の使用が推奨されている¹⁶⁾。本 Am 含有ターゲットに用いる Am は、Pu 酸化物粉末中に崩壊した ²⁴¹Am が 10~50 % 程度蓄積したものと考えており、AmO_{2-x} と比べて酸素ポテンシャルは低いと考えられる。このため Am (Am/Pu) 化合物形態として、(Am,Pu)O_{2-x} を用い、今後酸素ポテンシャル測定を行って最適な O/M 比を設定していくこととする。

5.2.3. 製造プロセス

Am 粒子の製造は、SOL-GEL 法にて行うのが現在の主流となっている。しかしながら、SOL-GEL 法は湿式プロセスであり、製造性への適合条件である乾式法では無い。このため、乾式での粒子製造法を採用する必要がある。

乾式にて粒子を製造する方法としては、高温ガス炉の被覆粒子燃料の製造が乾式焼結法で行われていたことがある⁷⁵⁾。他の方法として、Munoz-Viallard ら⁷⁶⁾は UO₂ 粒子の MgAl₂O₄ への分散型燃料の製造において、125-160 μm の粒子を成型・造粒・ふるいの工程により作製している。本方法の利点は、既存の粉末冶金設備を用いて粒

子を製造可能なことであるが、粒子形状が一定しない等の問題点を有する（母材損傷を抑制するために一番効果的な形状は真球である）。

Am 含有ターゲットの製造においては、製造手順が乾式手法に合致するこが条件であるため、上記 Munoz-Villard らの乾式による粒子製造法を参考とした製造プロセスを策定した。図 2 及び図 3 にそれぞれ Am 酸化物分散型ターゲット及び Am 酸化物混合型ターゲットの基本製造プロセスを示す。

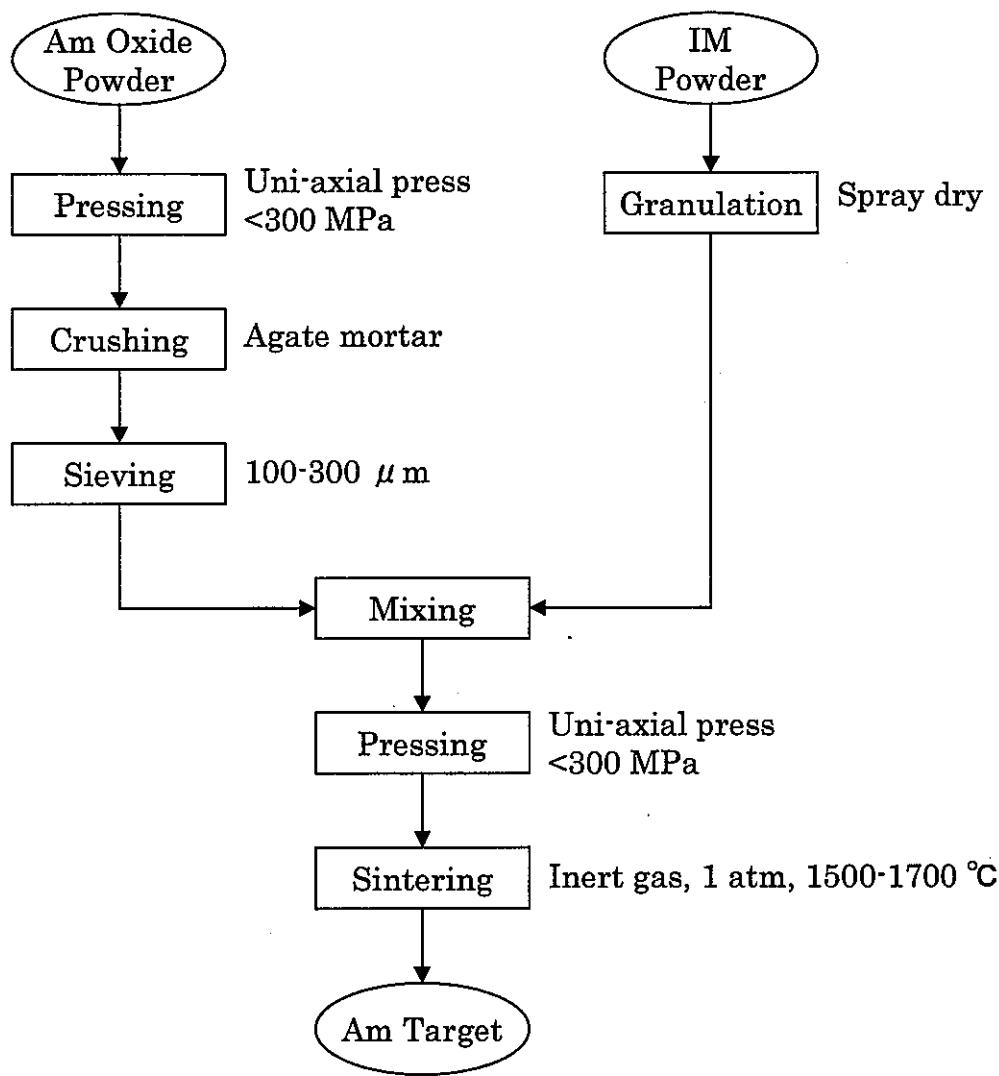


図 2 Am 酸化物分散型ターゲットの基本製造プロセス

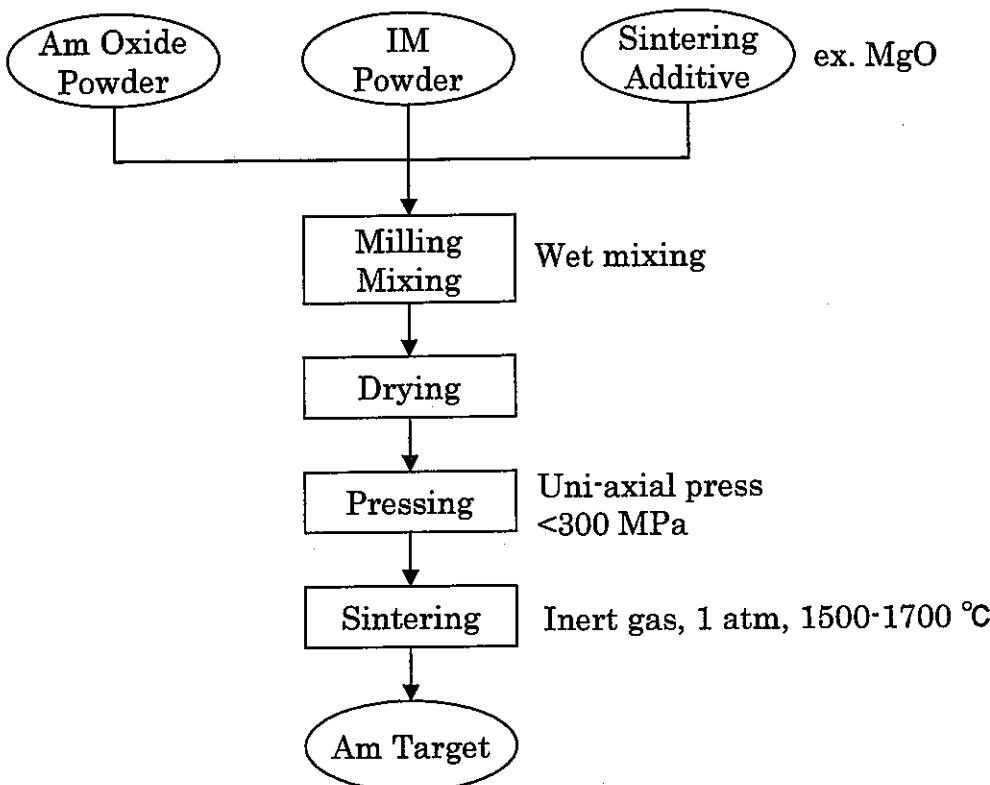


図 3 Am 酸化物混合型ターゲットの基本製造プロセス

Am 酸化物分散型ターゲットについては、Am 化合物を成型・破碎造粒した後ふるいにかけ、粒子径を 100~300 μm に揃える。その後、異径粒子間の混合状態を良好にするため、スプレードライにより造粒した母材粉末と混合する。混合粉末を一軸成型し、不活性雰囲気中で焼結してペレットを作製する。ただしこの方法では粒子の真球度は低く、形状はむしろ顆粒に近くなると考えられる。

Am 酸化物混合型ターゲットについては、Am 化合物粉末を母材粉末・焼結助剤と混合し（湿式混合）、成型後不活性雰囲気で常圧焼結してペレットを作製する。焼結助剤としては Am との反応を防止するため MgO を添加するか、もしくは Am 酸化物自身が焼結助剤として作用すると考えられるため、焼結助剤を添加しない場合についても検討を行っていく。

6. 結言

「常陽」にて照射予定の高速炉用 Am 含有ターゲット候補の選定及び基本製造プロセスの策定を行った。

ターゲットの開発状況及び選定研究に関する文献調査を行うことにより、母材選定基準を策定した上で、Am 含有ターゲット候補用母材選定のための一次候補を選定した。一次候補について、文献調査により一般特性、照射特性及び製造性の詳細な特性調査を行った。特性調査結果を母材選定基準に照らして一次候補の評価を行い、Am 含有ターゲット候補用母材として ZrO₂, MgO, SiC, Si₃N₄ 及び TiN を選定した。これら母材をベースとしたターゲット形態について、製造適合性を含めて検討し、以下の 2 つを Am 含有ターゲット候補として選定するとともに、基本製造プロセスを策定した。

① Am 酸化物分散型

Am 酸化物を粒子 ($\phi 100\text{-}300 \mu\text{m}$) とし、母材 (MgO) に分散させたもの。製造プロセスは以下のとおり。

- 乾式による Am 粒子製造；Am 酸化物粉末成型、破碎及びふるい
- Am 酸化物粒子とスプレードライにより作製した母材粒子の混合
- 一軸成型、不活性雰囲気中常圧焼結

② Am 酸化物混合型

Am 酸化物と母材 (SiC, Si₃N₄ 及び TiN) を均一に混合させたもの。製造プロセスは以下のとおり。

- Am 酸化物粉末と母材粉末の混合
- 一軸成型、不活性雰囲気中常圧焼結

今後は非放射性の Am 模擬物質を用いて、上記のターゲットの製造特性を評価するための試験を行う。また、照射のための物性値等を取得し、最終的な Am 含有ターゲットを選定していく。

7. 参考文献

- 1) 池上哲雄、小澤正基、“分離各変換技術開発基本計画”, JNC TN9410 2003-001, (2003).
- 2) D. Warin, R. Conrad, D. Haas, G. Heusener, P. Martin, R. J. M. Konings, R. P. C. Schram and G. Vambenepe, “10 YEARS EFTTRA: 1992-2001”, in Proc. of GLOBAL2001, pp. 204-210, (2001).
- 3) N. Chauvin, C. Dodane, J. Noirot, R. J. M. Konings, Hj. Matzke, T. Wiss, R. Schram, K. Bakker, E. Neeft and R. Conrad, “Synthesis of the Behavior of MgAl₂O₄ under Irradiation”, in Proc. of GLOBAL2001, pp. 135-146, (2001).
- 4) N. Chauvin, T. Albiol, R. Mazoyer, J. Noirot, D. Lespiaux, J. C. Dumas, C. Weingerg, J. C. Menard, J. P. Ottaviani, “In-pile Studies of Inert Matrices with Emphasis on Magnesia and Magnesium Aluminate Spinel”, J. Nucl. Mater., 274, pp. 91-97, (1999).
- 5) R. J. M. Konings, R. Conrad, G. Dassel, B. J. Pijlgroms, J. Somers, E. Toscano, “The EFTTRA-T4 experiment on Am Transmutation”, J. Nucl. Mater., 282, pp. 159-170, (2000).
- 6) C. Degueldre, T. Yamashita, “Inert Matrix Fuel Strategies in the nuclear fuel cycle: the status of the initiative efforts at the 8th Inert Matrix Fuel Workshop”, J. Nucl. Mat., 319, pp. 1-5, (2003).
- 7) J. Rouault, JC. Garnier, N. Chauvin and S. Pillon, “Program on Fuels for Transmutation: Present Status and Prospects”, in Proc. of GLOBAL2001, pp. 133-139, (2001).
- 8) J. Garnier, et al., “The ECRIX Experiments”, in Proc. of GLOBAL’99, pp. (1999).
- 9) Y. Croixmarie, E. Abonneau, A. Fernandez, R. J. M. Konings, F. Desmouliere, L. Donnet, “Fabrication of Transmutation Fuels and Targets: the ECRIX and CAMIX-COCHIX experience”, J. Nucl. Mater., 320, pp. 11-17, (2003).
- 10) H. Akie, T. Muromura, H. Takano, S. Matsuura, “A New Fuel Material for Once-Through Weapons Plutonium Burning”, Nucl. Technol., 107, 1, pp. 182-192, (1994).
- 11) Y.-W. Lee, H. S. Kim, S. H. Kim, C. Y. Joung, S. H. Na, G. Ledergerber, P. Heimgartner, M. Pouchon and M. Burghartz, “Preparation of Simulated Inert Matrix Fuel with different powders by dry milling method”, J. Nucl. Mater. 274, pp. 7-14, (1999).
- 12) M. Burghartz, Hj. Matzke, C. Leger, G. Vambenepe and M. Rome, “Inert Matrices for the transmutation of actinides: fabrication, thermal properties and radiation stability of ceramic materials”, J. Alloy. Comp. 271-273, pp. 544-548, (1998).
- 13) H. Kleykamp, “Selection of Materials as Diluents for Burning of Plutonium Fuels in Nuclear Reactors”, J. Nucl. Mater., 275, pp. 1-11, (1999).
- 14) Hj. Matzke, V. V. Rondinella and T. Wiss, “Materials Research on Inert Matrices: a Screening Study”, J. Nucl. Mater. 274, pp. 47-53, (1999).
- 15) R. J. M. Konings, K. Bakker, J. G. Boshoven, H. Hein, M. E. Huntelaar, R. R. van der Laan, “Transmutation of Actinides in Inert-Matrix Fuels: Fabrication Studies and Modelling of Fuel Behavior”, J. Nucl. Mater., 274, pp. 84-90, (1999).
- 16) N. Chauvin, R. J. M. Konings, Hj. Matzke, “Optimisation of Inert Matrix Fuel Concepts for Americium Transmutation”, J. Nucl. Mater., 274, pp. 105-111, (1999).
- 17) R. Chawla and R. J. M. Konings, “Categorisation and priorities for future research on inert matrix fuels: An extended synthesis of the panel discussions”, Prog. Nucl. Energy, 38[3-4], pp. 455-458, (2001).
- 18) Hj. Matzke, E. Toscano, C. T. Walker, A. G. Solomah, “Neptunium Doping of the Crystalline Ceramic Waste Form Synroc B”, Adv. Ceram. Mater., 3, pp. 285-288, (1988).
- 19) A. Fernandez, K. Richter, J. Somers, “Fabrication of Transmutation and Incineration Targets by Infiltration of Porous Pellets by Radioactive Solutions”, J. Alloy Comp.,

-
- 271-273, pp. 616-619, (1998).
- 20) J. L. Kloosterman, E. Kieghaber, M. Rome, J. Tommasi, "Strategies for the Transmutation of Americium", Proc. of Intnl. Conf. on Back-End of the Fuel Cycle, GLOBAL1997, pp. 338-348, Yokohama, (1997).
- 21) K. Tanaka, S. Kono, K. Ono, "Conceptual Design Study of Advanced Fuel Fabrication Systems", Proc. of Intnl. Conf. on Back-End of the Fuel Cycle, GLOBAL2001, pp. 58-65, Paris, (2001).
- 22) T. Fujino, C. Miyake, "Phase Relations, Thermodynamic and Magnetic Properties of Fluorite-Type Solid Solutions $M_yU_{1-y}O_{2+x}$ as a Modification of UO_2 by the Addition of M Metal Ions", HANDBOOK ON THE PHYSICS AND CHEMISTRY OF THE ACTINIDES, vol. 6, pp. 155, NORTH-HOLLAND, (1991).
- 23) T. Suzuki, T. Yano, T. Mori, H. Miyazaki, T. Iseki, "Neutron Irradiation Damage of Silicon Carbide", Fus. Techno. 27, pp. 314-325, (1995).
- 24) T. Yano, M. Akiyoshi, K. Ichikawa, Y. Tachi, T. Iseki, "Physical Property Change of Heavily Neutron-Irradiated Si_3N_4 and SiC by Thermal Annealing", J. Nucl. Mater., 289, pp. 102-109, (2001).
- 25) J. Y. Kim, T. Iseki, T. Yano, "Fabrication of Si_3N_4 and Si_3N_4/SiC Composites by Pressureless Sintering Using Nitrate as Sintering Additives", J. Ceram. Soc. Jpn. Inter. Ed., 105, pp. 158-163, (1997).
- 26) 矢野豊彦, "中性子照射セラミックスの照射後試験研究", JNC TJ9607 98-002, (1998).
- 27) 矢野豊彦, "中性子照射セラミックスの照射後試験研究(II)", JNC TJ9400 99-012, (1999).
- 28) 例えば、山内俊吉監修, "ファインセラミックス新素材", 日刊工業, (1985).
- 29) セラミック技術集成、産業技術センター, (1979)
- 30) 土井英和, "技術予測シリーズ「第5巻 新素材編」", pp. 180-195, (1985).
- 31) 加藤正人、高橋邦明、上村勝一郎、"MA ターゲット燃料に関する研究 不活性母材及び模擬ターゲット燃料の試作・評価", JNC TN8410 96-247, (1996).
- 32) 例えば、長倉三郎、井口洋夫、江沢洋、岩村秀、佐藤文隆、久保亮五 編集, "岩波 理化学辞典 第5版", 岩波書店, (2000).
- 33) 動燃技報 No.91 別刷 加納茂機、井上賢紀、木村好男、平川康、原田誠、西田敏雄、館義昭、吉田英一、"原子力用新素材の創製に関する研究", PNC TN9410 94-207, (1994).
- 34) M. L. Bleiberg, R. M. Berman, B. Lustman, "Effects of High Burnup on Oxide Ceramic Fuels", in Proc. of the symposium on radiation damage in solids and reactor material, IAEA, Venice, (1962).
- 35) F. W. Clinard, D. L. Rohr, W. A. Ranken, "Neutron-Irradiation Damage in Stabilized ZrO_2 ", J. Am. Ceram. Soc., 60, pp. 287, (1977).
- 36) R. M. Berman, M. L. Bleiberg, W. Yeniscavich, "Fission Fragment Damage to Crystal Structures", J. Nucl. Mater., 2, pp. 129-140, (1960).
- 37) K. E. Sickafus, Hj. Matzke, Th. Hartmann, K. Yasuda, J. A. Valdez, P. Chodak III, M. Nastasi, R. A. Verrall, "Radiation Damage Effects in Zirconia", J. Nucl. Mater., 274, pp. 66-77, (1999).
- 38) K. B. Ramsey, H. T. Blair, "Fabrication of a Non-fertile Fuel for the Disposition of Weapons Plutonium in Water Reactors", LA-UR-96-6, (1996).
- 39) S. Eaton, C. Beard, K. Ramsey, J. Buksa, K. Chidester, "Development of Nonfertile and Evolutionary Mixed-Oxide Nuclear Fuels for Use in Existing Water Reactors", Nucl. Sci. Eng., 136, pp. 151-176, (2000).
- 40) T. Shiratori, T. Yamashita, T. Ohmichi, A. Yasuda, K. Watarumi, "Preparation of Rock-Like Fuels for the Irradiation test in the Japan Research Reactor No.3", J. Nucl. Mater., 274, pp. 40-46, (1999).

- 41) 矢野豊彦、"セラミックスの構造特性とその中性子照射効果"、までりあ 第33巻、第11号、pp. 1369-1376, (1994).
- 42) T. Yamashita, N. Nitani, H. Kanazawa, M. Magara, T. Ohmichi, H. Takano, T. Muomura, "In-pile Irradiation of Plutonium Rock-Like Oxide Fuels with Yttria Stabilized Zirconia or Thoria, Spinel and Corundum", J. Nucl. Mater., 274, pp. 98-104, (1999).
- 43) N. Nitani, K. Kuramoto, T. Yamashita, Y. Nihei, Y. Kimura, "In-pile Irradiation of Rock-Like Oxide Fuels", J. Nucl. Mater., 319, pp. 102-107, (2003).
- 44) C. Ronchi, M. Sheindlin, "Melting Point of MgO", J. Appl. Physics, 90, 7, pp. 3325-3331, (2001).
- 45) 芹沢弘幸、岩井孝、荒井康夫、福原幹夫、出川智久、馬場比路志、"高温音波測定法によるセラミックスの物性評価 (MgO)"、日本原子力学会2003年秋の大会H43, (2003).
- 46) H. Serizawa, T. Shiratori, K. Fukuda, T. Fujino, N. Sato, "Study on the Development of the Lattice Strain in (Mg,U)O_{2+x} Solid Solution", J. Alloy Comp., 218, pp. 149-156, (1995).
- 47) Hengzhong Zhang, R. J. M. Konings, M. E. Huntelaar, E. H. P. Cordfunke, "Melting Behavior of Oxide Systems for Heterogeneous Transmutation of Actinides. III. The System Am-Mg-O", J. Nucl. Mater., 250, pp. 88-95, (1997).
- 48) E. A. C. Neeft, K. Bakker, R. P. C. Schram, R. Conrad, R. J. M. Konings, "The EFTTRA-T3 Irradiation Experiment on Inert Matrix Fuel", J. Nucl. Mater., 320, pp. 106-116, (2003).
- 49) T. Fujino, T. Shiratori, N. Sato, K. Fukuda, K. Yamada, H. Serizawa, "Post-Irradiation Examination of High Burnup Mg Doped UO₂ in Comparison with Undoped UO₂, Mg-Nb Doped UO₂ and Ti Doped UO₂", J. Nucl. Mater., 297, pp. 176-205, (2001).
- 50) 平川康、佐々木克教、吉田英一、青木昌典、加納茂機、今津彰、"セラミックスのナトリウム中浸漬試験(予備試験Ⅱ)", PNC ZN9410 90-188, (1989).
- 51) 館義昭、加納茂機、平川康、吉田英一、"高温ナトリウムによるセラミックスの腐食特性-焼結助剤成分の耐Na腐食特性-", PNC TN9410 98-054, (1998).
- 52) 宮島信夫、"ニューセラミックス"、日本技術士会 監修、地人書館, (1994).
- 53) 例えば、K. Yoshida, Budiyanto, M. Imai, T. Yano, "Processing and Microstructure of Silicon Carbide Fiber-Reinforced Silicon Carbide Composite by Hot-Pressing", J. Nucl. Mater., pp. 1960-1965, (1998).
- 54) X. Tong, T. Yano, T. Iseki, "Sintering Behavior of TiC Reinforced SiC Composites Doped with Ti and C", J. Ceram. Soc. Japan, 104, pp. 594-598, (1996).
- 55) Yi Pan, J. L. Baptista, "Chemical Instability of Silicon Carbide in the Presence of Transition Metals", J. Am. Ceram. Soc., 79, pp. 2017-2026, (1996).
- 56) K. M. Geib, C. W. Wilmsen, J. E. Mahan, M. C. Bost, "Fe reaction with β -SiC", J. Appl. Phys., 61, pp. 5299-5302, (1987).
- 57) 丸山忠司、"セラミックスの照射影響に関する基礎調査(その2)"、JNC TJ4420 2001-012, (2001).
- 58) L. L. Snead, J. C. Hay, "Neutron Irradiation Induced Amorphization of Silicon Carbide", J. Nucl. Mater., 273, pp. 213-220, (1999).
- 59) 一ノ瀬昇 編著、"図解 ファインセラミクス読本"、オーム社, (1983).
- 60) R. A. Verrall, M. D. Vlajic and V. D. Krstic, "Silicon carbide as an inert-matrix for a thermal reactor fuel", J. Nucl. Mater. 274, pp. 54-60, (1999).
- 61) R. A. Verrall, H. R. Andrews, P. S. W. Chan, I. M. Geroge, P. J. Hayward, P. G. Lucuta, S. Sunder, M. D. Vlajic and V. D. Krstic, "CANDU Inert-Matrix Fuel", IAEA-TECDOC-1122, (1999).

-
- 62) M. J. Bennett, M. R. Houlton, "The Interaction between Silicon Nitride and Several Iron, Nickel and Molybdenum-Based Alloys", *J. Mat. Sci.*, 14, pp. 184-196, (1979).
- 63) R. N. Singh, "Compatibility of Ceramics with Liquid Na and Li", *J. Am. Ceram. Soc.*, 59, pp. 112-115, (1975).
- 64) T. Yano, J. Y. Kim, H. Miyazaki and T. Iseki, "Effect of Sintering Method on Densification and Mechanical Properties of Si_3N_4 and $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiC}$ Composites with Nitrates as Sintering Additives", *J. Ceram. Soc.* 106 [6], pp. 559-564, (1998).
- 65) J. Y. Kim, T. Iseki and T. Yano, "Effects of Nitrate Sintering Additives on Pressureless Sintering of Monolithic Si_3N_4 and $\text{Si}_3\text{N}_4/10\text{-}30$ mass% SiC Composites and Their Mechanical Properties", *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 105[10], pp. 837-841, (1997).
- 66) T. Yano, "Effects of Neutron Irradiation on the Mechanical Properties of magnesium Aluminate Spinel Crystals and Polycrystals Spinel Compounds:Structure and Property Relations", *J. Am. Ceram. Soc.*, 82, pp. 3355-3364, (1999).
- 67) Y. Fukushima, T. Yano, T. Maruyama, T. Iseki, "Swelling, Thermal Diffusivity and Microstructural Investigation of Neutron-Irradiated Single Crystals of Nonstoichiometric Spinel", *J. Nucl. Mater.*, 175, pp. 203-208, (1990).
- 68) T. Yano, H. Sawada, A. Insani, H. Miyazaki, T. Iseki, "Recovery of Neutron-Induced Defects in Near-Stoichiometric Spinel Ceramics Irradiated at around 500°C", *Nucl. Inst. Methods in Phys. Res. B* 116, pp. 131-135, (1996).
- 69) T. Yano, A. Insani, H. Sawada, T. Iseki, "Neutron-Induced Damage in Near-Stoichiometric Spinel Ceramics Irradiated below 200°C and Its Recovery Due to Annealing", *J. Nucl. Mater.*, 258-263, pp. 1836-1841, (1998).
- 70) D. Simeone, C. Dodane-Thiriet, D. Gosset, P. Daniel, M. Beauvy, "Order-disorder phase transition induced by swift ions in MgAl_2O_4 and ZnAl_2O_4 spinels", *J. Nucl. Mater.*, 300, pp. 151-160, (2002).
- 71) 寺井隆幸, “複合環境下におけるセラミックス材料の特性変化と組織変化(Ⅱ)”, PNC TJ9602 97-002, (1997).
- 72) 永沼正行、水野朋保, “高速炉用被覆粒子燃料の被覆層材特性に関する検討(その1)”, JNC TN9400 2002-032, (2002).
- 73) K. Minato, M. Akabori, M. Takano, Y. Arai, K. Nakajima, A. Itoh, T. Ogawa, "Fabrication of Nitride Fuels for Transmutation of Minor Actinides", *J. Nucl. Mater.*, 320, pp. 18-24, (2003).
- 74) T. Yano, "Structures of Dislocation Loops in Some Ceramics Induced by Fast Neutron Irradiation", *J. Ceram. Soc. Japan*, 111, pp. 155-161, (2003).
- 75) 「極限燃料技術」研究専門委員会, “核燃料工学－現状と展望－”, 日本原子力学会, pp. 265, (1993).
- 76) I. Munoz-Viallard, M. Bauer, J.-M. Bonnerot, "Modeling, Manufacturing and Thermomechanical Characterization of Spinel-Uranium Dioxide Composite Fuels", *J. Nucl. Mater.*, 274, pp. 34-39, (1999).