

3 D造形燃料製造プロセスにおける実燃料仕様 との技術ギャップの評価

仕様書

第1章 一般仕様

1.1 件 名

3D造形燃料製造プロセスにおける実燃料仕様との技術ギャップの評価

1.2 概 要

日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）は、国内で唯一の高速炉用 MOX 燃料の製造主体として、模擬物質を用いて 3D 造形燃料製造プロセスを開発・評価している。

本作業では、実燃料製造プロセス仕様の検討に役立てるため、現状の模擬物質による開発・評価成果と目標とする実燃料仕様との技術的ギャップの評価を行う。

1.3 仕様範囲

「2. 技術仕様」に示す作業

1.4 貸与品および支給品

貸与品：試作試験片を貸与する。また、本作業を実施するにあたり、受注者が必要とする計算機、解析コード及びソフト、情報及び資料等のうち、原子力機構が認めたものについて、随時無償にて貸与する。作業終了時には返却すること。

支給品：セリアジルコニア混合粉末 200g

1.5 納期

令和8年3月19日（木）

1.6 提出図書

- | | |
|-------------------------------|-----|
| (1)実施計画書（契約後速やかに） | 1 部 |
| (2)作業工程表（契約後速やかに） | 1 部 |
| (3)打ち合わせ議事録（打合せの都度） | 1 部 |
| (4)委託又は下請負届（作業開始前） | 1 式 |
| ※下請負届については下請負がある場合のみ提出すること | |
| (5) 報告書（ワープロ仕上げ、CD-R を 1 部添付） | 3 部 |
| (6) 作成データ（データ容量に応じたメディアを使用） | 1 式 |

(提出場所)

茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002 番地

大洗原子力工学研究所 プラント技術イノベーション推進グループ

1.7 検収条件

「1.6 提出図書」の確認並びに、原子力機構が仕様書の定める業務が実施されたと認めた時を以て、業務完了とする。

1.8 検査員

- (1) 一般検査 管財担当課長
- (2) 技術検査 プラント技術イノベーション推進グループリーダー

1.9 グリーン購入法の推進

- (1) 本契約においてグリーン購入法に該当する環境物品が発生する場合は、調達基準を満たした物品を採用することとする。
- (2) 本仕様書に定める提出図書（納入印刷物）については、グリーン購入法に該当するため、当該基準を満たしたものであること。

1.10 その他

- ・ 受注者は、原子力機構担当者と緊密な連絡を取りつつ作業を行うこと。原子力機構担当者が必要と認めた場合には、随時技術打ち合わせを行うこと。
- ・ 受注者は、業務上知り得た情報を原子力機構の許可無く第三者に口外してはならない
- ・ 受注者は、原子力機構から提出される技術資料、情報等を第三者に提供する場合、予め書面による許可を求め、原子力機構の承認を得なければならない。
- ・ 本作業による成果に関する一切の権利は、原子力機構に帰属するものとする。
- ・ 本仕様書に関して疑義が生じた場合は、双方協議の上、原子力機構が指示する。
- ・

第2章 技術仕様

本作業では、スパークプラズマ焼結中のパルス通電の極性が焼結材料の O/M に与える影響を調べるとともに、原子力機構の現状技術と実燃料仕様の技術ギャップ評価として、以下を実施する。

2.1 スリット加工パンチ・ダイによる極性反転スパークプラズマ試験

原子力機構から、高速炉向け MOX 燃料の模擬物質として、セリアジルコニア粉末を支給する。この粉末組成は、 $\text{Ce}_{0.9}\text{Zr}_{0.1}\text{O}_2$ を目標として調製したものである。これに対して、高速炉用実用化燃料では、高燃焼度化に対応するため MO1.95 程度の O/M に調整する必要がある。一般的にセリア等の粉末をスパークプラズマ焼結すると、試料中心部が白く、中心から上下に向けて濃い灰色のグラデーションができる場合がある。セリアは O/M が低下するほど灰色が濃くなることから、試料上下面で O/M が低下する傾向があることが分かる。Prasad ら[1]によれば、この違いは試料中の酸素イオンが電場の影響によりカソードからアノードに移動する現象に起因するとしている。さらに、Watkinson ら[2]によれば、急激な O/M の変化は試料の割れを引き起こすと報告されており、O/M の変化を緩和することで試料の割れを抑制できる可能性がある。本作業では、スパークプラズマ焼結中に印可するパルス通電の極性を反転させることで酸素イオンの移動を打ち消し、試料中の O/M の変化を緩和する可能性を検証する。また、パンチ・ダイへのスリット加工を行うことで、チャンバー内雰囲気と焼結雰囲気とを同等として、酸素分圧制御の効果を高めることが期待される。

これまでの原子力機構における経験では、スパークプラズマ焼結法を用いる場合、1300℃未満の試験温度にてセリアジルコニアの焼結体を得ることは難しいことから、酸素分圧を制御した上で、パルス通電の極性反転を制御したセリアジルコニア粉末のスパークプラズマ焼結を実施する。試験手順は以下のように行うこと。

- ① 支給セリアジルコニア粉末 2g を $\Phi 10\text{mm}$ の非黒鉛製焼結型に充填し、一軸加圧法で 50MPa の予備プレスを行う。
- ② 非黒鉛製焼結型をスパークプラズマ焼結装置のチャンバーに入れ、適宜昇温して脱ガスの上、5Pa 未満となるまで真空引きを行う。
- ③ 試験片周辺の雰囲気が表 1 に提示する目標酸素分圧となるように、チャンバー内雰囲気を置換する。10Pa 以下の酸素分圧においては、水素を置換ガスに添加するなどして、酸素分圧の調整を行うこと。
- ④ 各目標酸素分圧にて、昇温速度 100/min, 加圧力 50MPa、焼結保持温度 1400℃にてパルス通電の極性反転を制御したスパークプラズマ焼結を行う。スパークプラズマ焼結際には、スリット加工を施したパンチまたはダイ

を用いること。極性反転の制御は、表 2 パルス通電制御条件に示した通り実施すること。焼結温度の保持時間は 3 分とする。チャンバー内雰囲気は排出せず、自然冷却すること。

- ⑤ 自然冷却後、チャンバー内雰囲気を排出し、酸素濃度計にて酸素濃度を記録すること。

焼結中における加圧力、ピストン位置、焼結型外側温度等の試験データを保存し、焼結試験片と共に提出物品として提出すること。

表 1 目標酸素分圧

No.	雰囲気制御
1	Ar のみ(酸素分圧制御なし)
2	No.3 の 1/2 の酸素分圧
3	原子力機構から提示する酸素分圧

表 2 パルス通電制御条件

No.	パルス保持時間	パルス間無通電時間	極性反転
1	40msec	7msec	パルス 10 回毎
2	40msec	7msec	パルス 5 回毎
3	33msec	14msec	パルス 10 回毎
4	33msec	14msec	パルス 5 回毎

2.2 3D 造形燃料製造プロセスの技術ギャップの評価

原子力機構では、模擬物質（SiC、黒鉛、セリアジルコニア）を用いて 3D 造形燃料製造プロセスを開発・評価するため、以下の研究項目 1 から 4 を実施している。

研究項目 1：製造プロセス設計支援ツールの拡張

研究項目 2：積層技術

研究項目 3：スパークプラズマ焼結（SPS）技術

研究項目 4：燃料製造装置の概念検討

上記の成果を実燃料製造プロセス仕様の検討に役立てるため、模擬物質で試作する造形物を貸与し、受注者にて各種測定の上、目標とする実燃料仕様の技術ギャップを明らかにする。

貸与する造形物は、模擬物質である SiC、黒鉛、セリアジルコニアのいずれか 1 種類の主成分とする。さらに、プロセスの段階に応じて、積層造形によるグリーン体、グリーン体を脱脂後に SPS による焼結を行った模擬燃料ペレットの 2

種類を原子力機構において作製する。受注者において納期までに測定を行う試料数は、3つの主成分のグリーン体および焼結体をそれぞれ2個ずつ、合計12個とする。測定項目を以下に示す。

- ・ 寸法測定

測定器の校正を実施後に造形物の寸法を測定すること。寸法測定を行う項目は、試料上面の直径、試料側面の高さとする。直径及び高さについては、120° 毎の3か所につき5回測定すること。

- ・ 重量密度

アルキメデス法にて重量密度を測定すること。溶液はメタキシレンとする。寸法測定にてえた各試料のかさ密度と理論密度から、相対密度を求めて示すこと。

- ・ SEM/EDS 分析

試料を室温硬化型の2液混合樹脂を用いて室温で樹脂埋めし、樹脂硬化後に切断、研磨する。EDS 元素分析を実施するため、試料の表面コーティングは行わないこと。SEM 観察においては、50倍で観察し、有意なサイズの孔の有無を確認すること。特に、本作業において提供する造形物は、球状粉末を原料として造形したものであるため、原料粉末の形状が残存しているかに注意を払って観察すること。EDS 分析は、試料埋込樹脂が分析視野に入らない倍率にて面分析を行う。取得したスペクトルをデータとして提出するとともに、半定量的に得た元素組成分析値を示すこと。また、造形にはバインダー素材として光硬化性樹脂を用いていることから、焼結後に樹脂が残存した場合にはCの成分が検出されと考えられる。特に、セリアジルコニア粉末およびSiC粉末を主成分とする造形物においては、脱脂が完全に進行した場合に想定されるCの組成からの乖離に着目して、樹脂の残存の有無を検討すること。

- ・ 微小硬さ測定

焼結体のみ、SEM/EDS 分析後の試料に対して、微小硬さ試験を実施する。試験荷重は焼結体の方さに応じて適切に決定すること。なお、これまでの分析では、セリアジルコニア粉末を主成分とする造形物に対して300gf、黒鉛粉末を主成分とする造形物に対して10gf、SiC粉末を主成分とする造形物に対して1000gfが、正確な圧痕の対角線長さを計測できる荷重であった。さらに、鋼の微小硬さに対する近似的換算値[3]を参考に、測定した微小硬さを引張強度に変換すること。変換には以下の式を用いることができる。

$$TS \text{ (引張強度 : MPa)} \div 3.12 \times HV \text{ (ビッカース硬さ : kgf/mm}^2\text{)} + 16$$

- ・ O/M 測定

セリアジルコニア粉末を主成分とした焼結体に対しては、セリウムおよびジルコニウムの酸化価数を測定する。測定方法については、原子力機構と協議して決定し、実行すること。

受注後、実燃料仕様および模擬物質試作の目標仕様それぞれについて、以下の機械的特性等を原子力機構から提示する。

- ・材料組成
- ・重量密度
- ・強度
- ・寸法精度等

技術ギャップの内容として、3D 造形燃料製造プロセスにおいて実燃料仕様の製造時の特性(寸法精度、重量密度等)を得るための主な技術課題を整理して提示すること。

2.3 報告書の作成

2.1 で検討した結果をまとめ報告書を作成する。

2.4 参考文献

- [1] Anil Prasad, Linu Malakkal, Lukas Bichler, Jerzy Szpunar, "Challenges in Spark Plasma Sintering of Cerium (IV) Oxide", Processing, Properties, and Design of Advanced Ceramics and Composites II: Ceramic Transactions, Volume 261, Chapter 19, <https://doi.org/10.1002/9781119423829.ch19>
- [2] E. J. Watkinson, R. M. Ambrosi, D. P. Kramer, H. R. Williams, M. J. Reece, K. Chen, M. J. Sarsfield, C. D. Barklay, H. Fenwick, D. P. Weston, K. Stephenson, "Sintering trials of analogues of americium oxides for radioisotope power systems", Journal of Nuclear Materials, Volume 491, 1 August 2017, Pages 18-30, <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.04.028>
- [3] 例えば、ASTM A 370-07a, Table2 に、鋼のビッカース硬さに対する引張強度の近似値が掲載されている。
<https://cdn.standards.iteh.ai/samples/54338/65986a2314f0421a96614884fd9bd5a8/ASTM-A370-07a.pdf>

以上