

# 核燃料の種類と性質ならびに研究開発

黒崎 健<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> 大阪大学大学院工学研究科

<sup>2</sup> JST さきがけ

<sup>3</sup> 福井大学附属国際原子力工学研究所

## 発表者略歴

大阪大学工学部原子力工学科卒業(H7.3)

大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻博士前期課程修了(H9.3)、同博士後期課程退学(H10.7)

博士(工学)(大阪大学)(H15.11)

大阪大学助手(大学院工学研究科)(H10.8)、同助教(H19.4)、同准教授(H21.4)、現在に至る。

学部四回生から現在に至るまで、核燃料・原子炉材料の基礎物性に関する研究に従事。

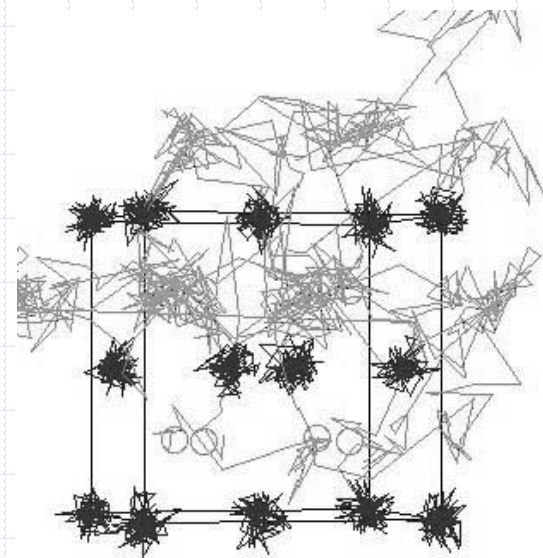
平成30年8月10日

高速炉開発会議 戦略ワーキンググループ

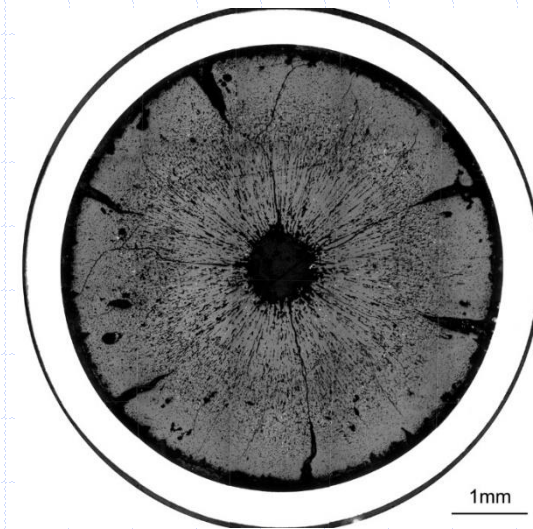
# 0. はじめに

## 本日の発表内容

1. 核燃料の種類と性質
  - 1.1. 核燃料に求められる性質
  - 1.2. 核燃料の種類
    - 1.2.1. 化学形態による分類
    - 1.2.2. 形状による分類
    - 1.2.3. 製造プロセスによる分類
  - 1.3. 国内外高速炉燃料の現状
2. 核燃料に関する研究開発
  - 2.1. 高速炉燃料開発の位置づけ
  - 2.2. 高速炉燃料開発の流れ
  - 2.3. 照射試験の重要性と展望
3. まとめにかえて



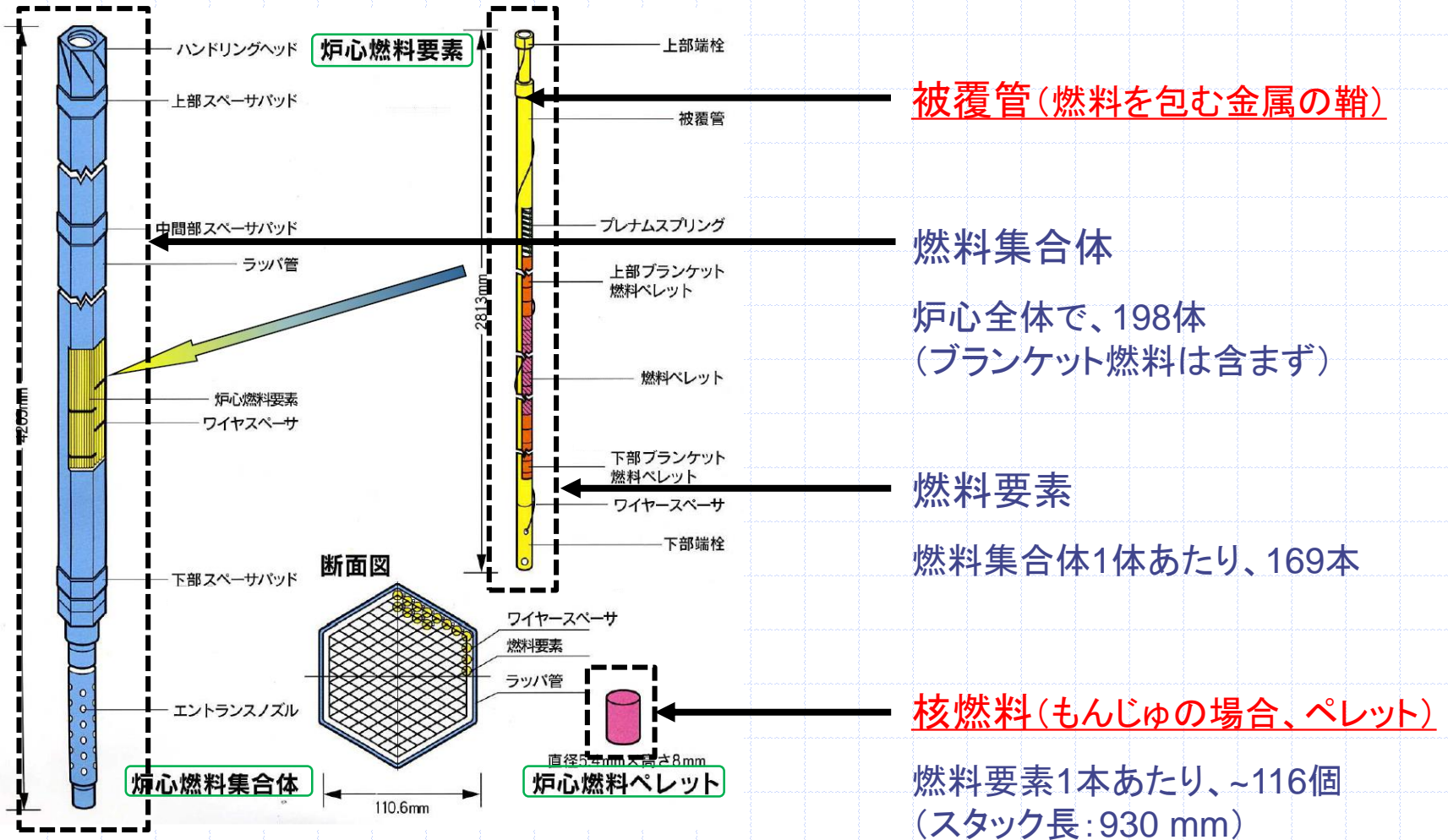
K. Kurosaki *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **294**, 160 (2001).



K. Kurosaki *et al.*, *Prog. Nucl. Sci. Technol.* **2**, 5 (2011).

# 0. はじめに

## 本日の対象(核燃料とは何か?)



高速炉の炉心燃料(もんじゅの場合)

# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.1. 核燃料に求められる性質

### ✓ 燃料としての性能

- 熱的性能：融点が高いこと、熱伝導率が高いこと
- 核的性能：重金属(U, Pu)密度が高いこと、適切な軽元素(O, N, C)を用いること
- 照射挙動：組織の安定性が高いこと
- 化学的反応性：ボンド材、被覆材、冷却材との共存性が高いこと

### ✓ 核燃料サイクルの視点

- 燃料製造が容易であること(安全性を含む)
- 再処理プロセスとの整合性が高いこと
- 経済性が良いこと
  - 製造プロセスが複雑でないこと、高コストの原材料を要しないこと
  - 高燃焼度化が可能であること(サイクルコストの観点)
- 廃棄物発生量が小さいこと、廃棄物を減容できること
  - 燃料製造や再処理時に処理が困難な廃棄物を生じないこと、発生量が少ないこと
  - MAの効率的な燃焼が可能であること(高レベル廃棄物の処分・毒性低減の観点)

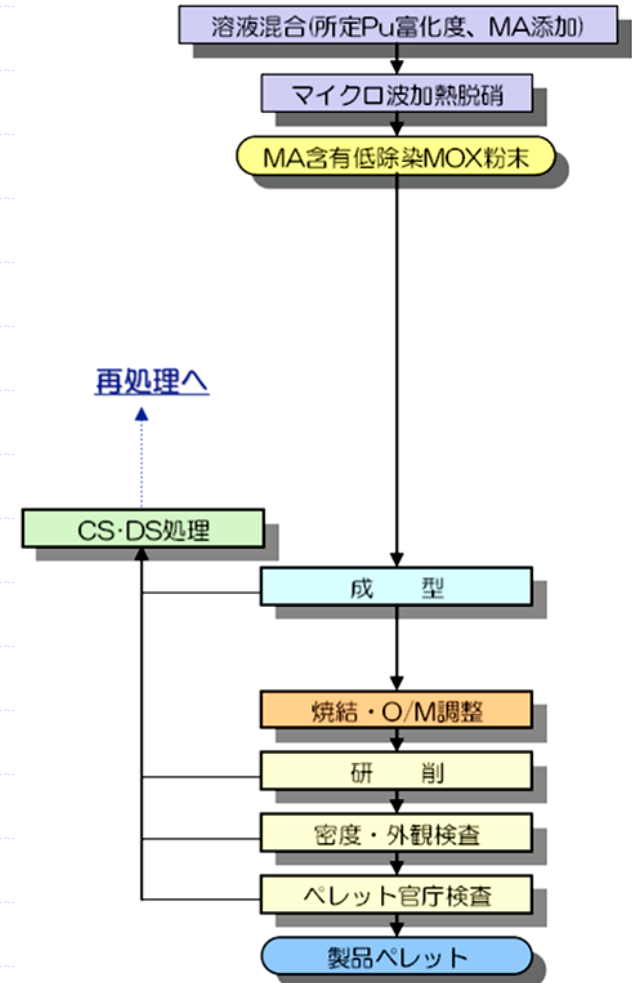
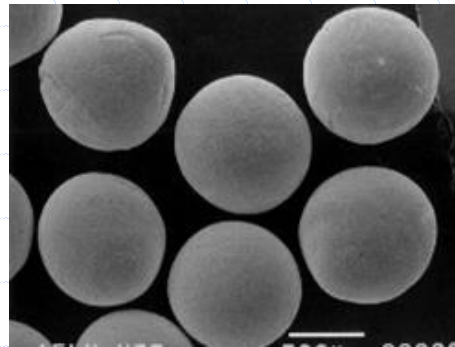
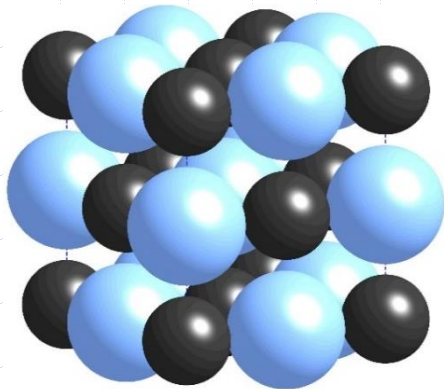
# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2. 核燃料の種類

1.2.1. 化学形態による分類

1.2.2. 形状による分類

1.2.3. 製造プロセスによる分類



# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.1. 化学形態による分類 #1

核燃料の代表的な化学形態

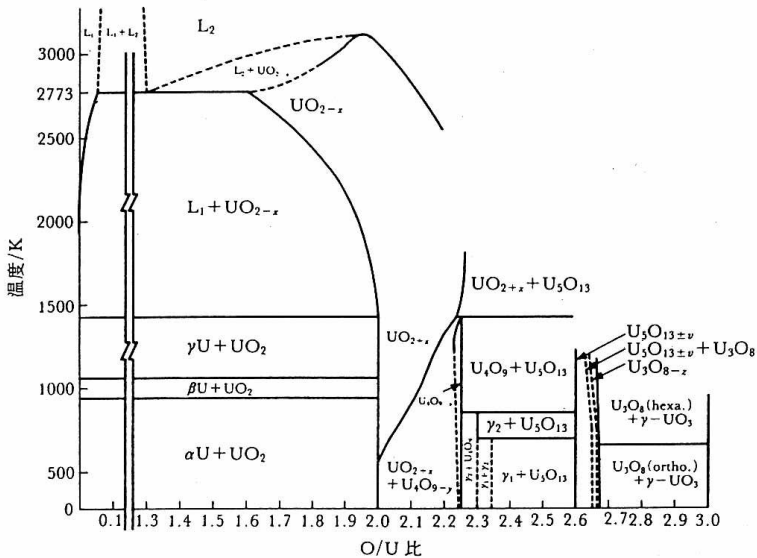
酸化物 : (U, Pu)O<sub>2</sub> (MOX:mixed oxide)

金属 : U-Pu-Zr合金 (例:U-13%Pu-10%Zr)

窒化物 : (U, Pu)N

炭化物 : (U, Pu)C, (U, Pu)<sub>2</sub>C<sub>3</sub>

フッ化物 : U, Th, Puのフッ化物を、LiF-BeF<sub>2</sub>に混合したもの



1																	2
H																	He
3	4											5	6	7	8	9	10
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
11	12											13	14	15	16	17	18
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
55	56	57~71	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86
Cs	Ba	La-Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
87	88	89~103	104	105	106	107	108	109	110	111	112						
Fr	Ra	Ac-Lr	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn						

57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71
La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

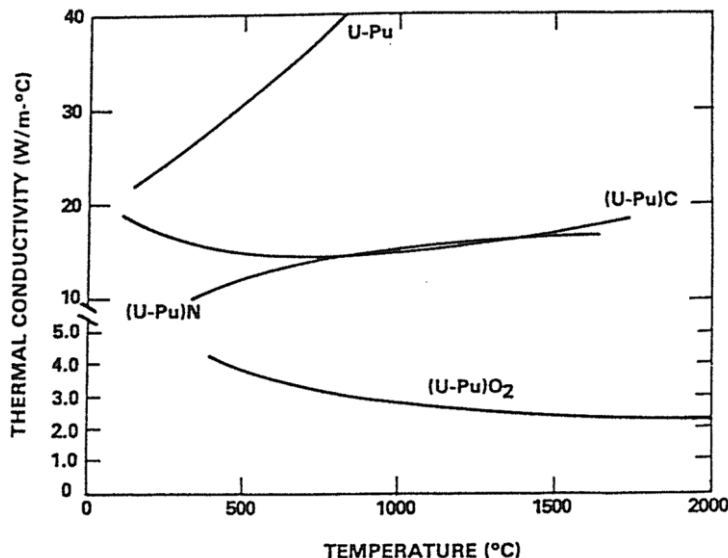
# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.1. 化学形態による分類 #2

核燃料の性質(化学形態が異なると性質(物性値)も異なる)

	酸化物	金属	窒化物	炭化物
融点(°C)	2750	1100	2750	2490(UC) 1603(PuC)
熱伝導率(W/cm K)	0.03	0.26	0.18	0.22(UC)
重金属密度(g/cm <sup>3</sup> )	9.5	14.3	13.5	13.6
線膨張係数(×10 <sup>-5</sup> /K)	1.5~2.5	20	0.6~0.9	1.1~1.2

※ 代表的組成(Pu富化度~20%前後)の概略値



酸化物、金属、窒化物、炭化物燃料の  
熱伝導率の温度依存性  
(各性質には温度依存性がある)

# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.1. 化学形態による分類 #3

### 燃料としての特徴

	酸化物	金属	窒化物	炭化物
Naとの共存性	× (Heボンドのみ可)	○ (Naボンドが適)	○ (Naボンド可)	○ (Naボンド可)
燃料中心温度(定常運転時)	2200 °C	800 °C	800 °C	窒化物と同程度
被覆管との共存性	O/M調整により 腐食量の制御が可能	共晶反応 (650~675 °C)	○	浸炭反応
設計線出力(代表値)	450 W/cm (中空ペレット)	450 W/cm	450 W/cm (最大1500 W/cm)	450 W/cm
増殖ポテンシャル	△	○	○	○



# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.1. 化学形態による分類 #4

### 化学形態別、燃料としての長所と短所一覧

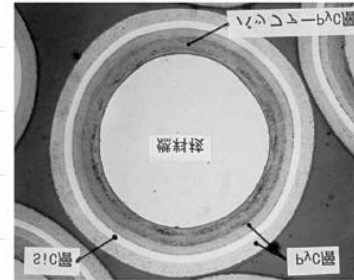
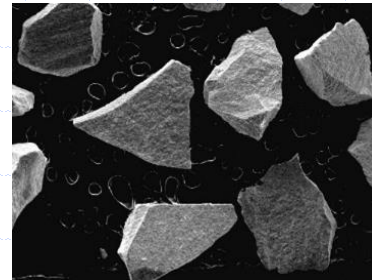
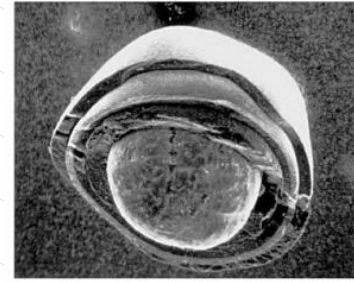
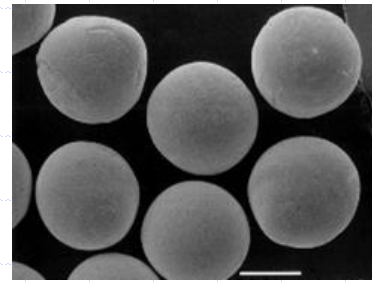
	長 所	短 所	評 価
酸化物	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 融点が高い</li> <li>○ 燃料製造、再処理における課題（技術的困難性、安全性）が少ない</li> <li>○ 25万MWd/tまでの照射実績</li> <li>○ プルサーマルも含めた豊富な製造実績</li> <li>○ スミア密度の引き下げによるFCMI制御が可能</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 熱伝導度の低さによる高い燃料温度 ⇒ 融点に対する裕度の少なさ</li> <li>○ 重金属密度の低さ ⇒ 増殖比の低さ ⇒ 炉心のコンパクト化の制約</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 金属や窒化物に比べて突出した特徴はないが、短所が少なく、特に安全上の不安要素が少ないことから、トータルバランスに優れている。</li> </ul>
金 属	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ Naと共存性があるためNaボンドとすることにより、スウェリング対策やギャップコンダクタンスの向上が可能</li> <li>○ EBR-I, IIにおける実績</li> <li>○ 燃料サイクル技術が確立しており、製造については粉末工程がないことが汚染管理上の、再処理については乾式であることが臨界管理上の利点</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 被覆管との共晶反応回避のため運転温度の制限が必要（熱伝導率の高さを活かしきれない。）</li> <li>○ 融点が高い</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ JAEAのFSでは、スケールメリットが期待できず大型施設の経済性が酸化物に劣ると評価</li> </ul>
窒化物	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 高い重金属密度により、高増殖比、炉心のコンパクト化、長期運転サイクルの実現が可能</li> <li>○ 高い熱伝導度により高線出力化が可能。（もしくは同線出力の酸化物よりも燃料温度を低くすることが可能）</li> <li>○ 熱伝導度と融点が高いため、燃料温度を融点より十分に低くすることが可能</li> <li>○ 照射実績としては10万MWd/t程度</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 照射実績が少なく、高温下での窒化物の解離等、未知の課題が少なくない。</li> <li>○ 天然窒素を用いた場合<sup>14</sup>Cが生成し、再処理工程での回収、処分が必要</li> <li>○ <sup>15</sup>N濃縮窒素の使用による経済性の低下。窒素雰囲気や再処理時の硝酸中の窒素との同位体交換の考慮も必要</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ わが国における高速炉の導入シナリオ上、それほど高い増殖比は要さず、商業用発電においては極端に高い線出力は要しないことから、ポテンシャルを十分に生かすことが困難。このため<sup>15</sup>Nの濃縮コスト等のデメリットの方が大きくなる。</li> </ul>
炭化物	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 窒化物と共通する長所を有しながら、窒化物における<sup>14</sup>Cの生成や、<sup>15</sup>N濃縮窒素の使用といった課題がない。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ PuCの分解温度が低い</li> <li>○ 化学的に活性（酸素、水分との反応性が大）で、燃料製造時の安全管理や品質管理上大きな課題</li> <li>○ 硝酸溶解性に起因する再処理上の課題</li> <li>○ 照射例が少なく、被覆材の浸炭等不明確な課題がある。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ サイクル全体的に課題が多く、高増殖比を求めらるのであれば金属燃料があり、炭化物を選定する積極的な理由に欠ける。</li> </ul>

# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.2. 形状による分類

核燃料の形状(化学形態が異なると優位な形状も異なる)

	ペレット(焼結体)	燃料スラグ(棒状)	粒子	被覆粒子
酸化物	○		○	○
金属		○		
窒化物	○		○	○



# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.3. 製造プロセスによる分類 #1

核燃料の製造プロセス(形状が異なると製造プロセスも異なる)

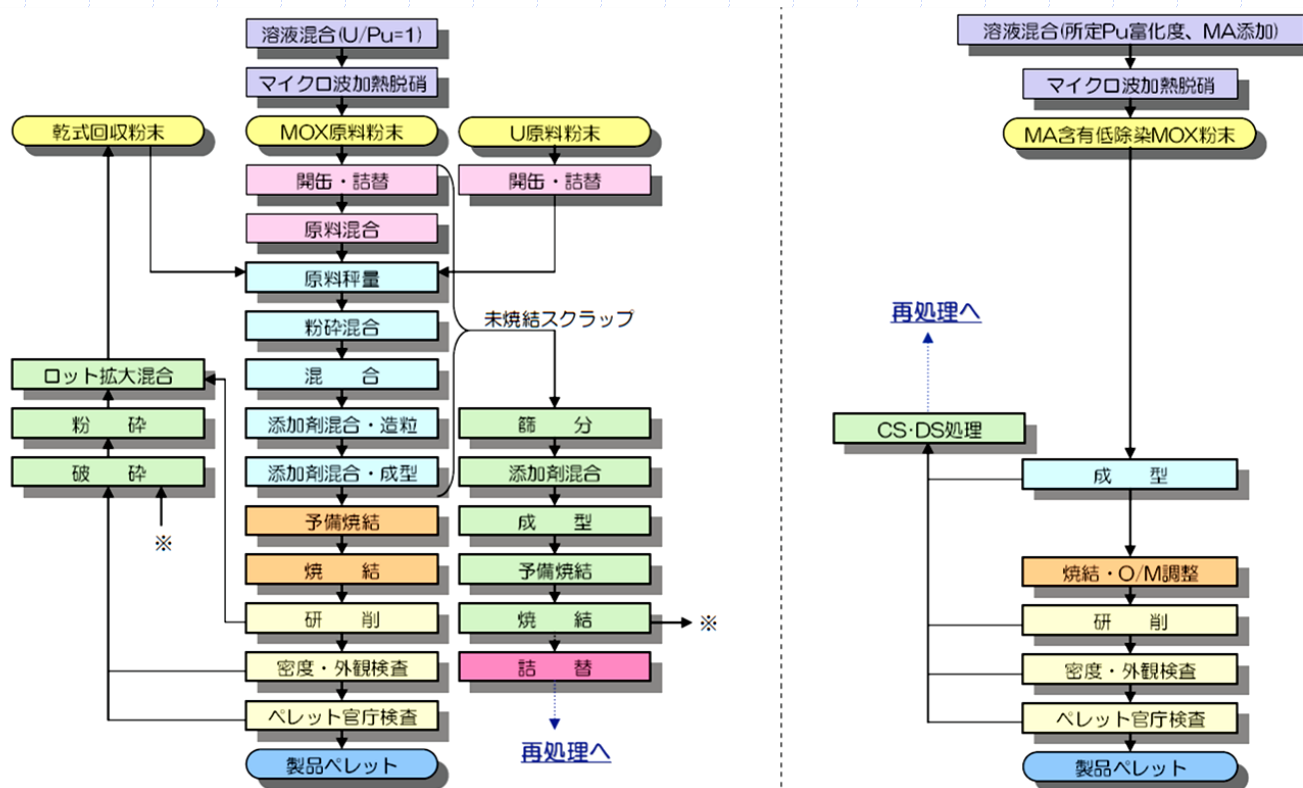
- ① 粉末冶金法 … 原料粉末を圧縮成型、焼結する手法  
→ 酸化物燃料ペレット、窒化物燃料ペレット
- ② 射出鑄造法 … 溶融体を細長い管(石英製)に圧入した後に凝固させる手法  
→ 金属燃料スラグ
- ③ ゲル化法 … 滴下した重金属硝酸溶液をアンモニアと反応させて得たゲル状粒子を乾燥、焼結する手法(その後、コーティングを施す場合もある)  
→ 酸化物粒子燃料、窒化物被覆粒子燃料

# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.3. 製造プロセスによる分類 #2

① 粉末冶金法 … 原料粉末を圧縮成型、焼結する手法

→ 酸化物燃料ペレット、窒化物燃料ペレット



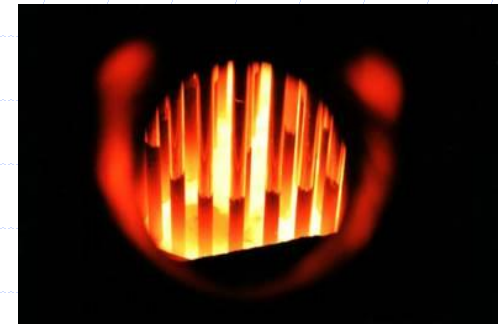
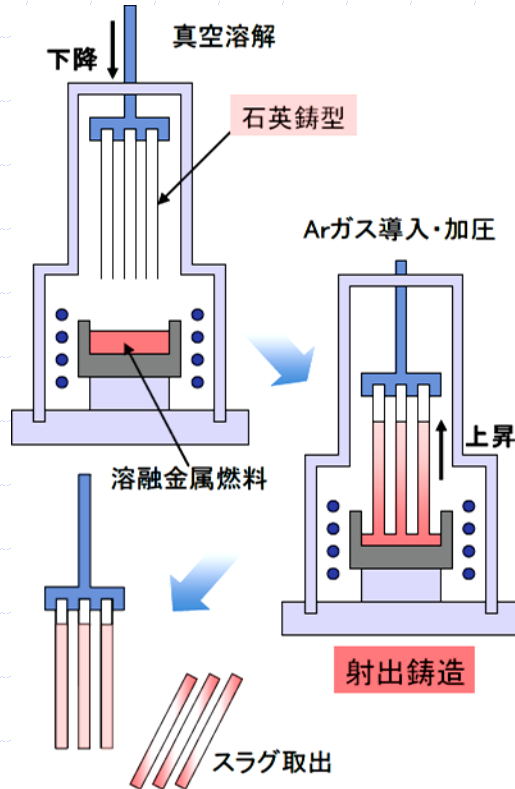
酸化物燃料ペレット製造プロセス、(左)現行プロセス、(右)簡素化プロセス

# 1. 核燃料の種類と性質

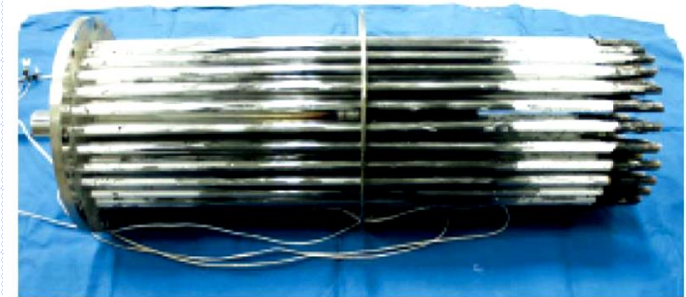
## 1.2.3. 製造プロセスによる分類 #3

② 射出鋳造法 … 溶融体を管状の石英管に圧入した後に凝固させる手法

→ 金属燃料スラグ



射出中の炉内の様子



射出鋳造後の石英管の束の外観

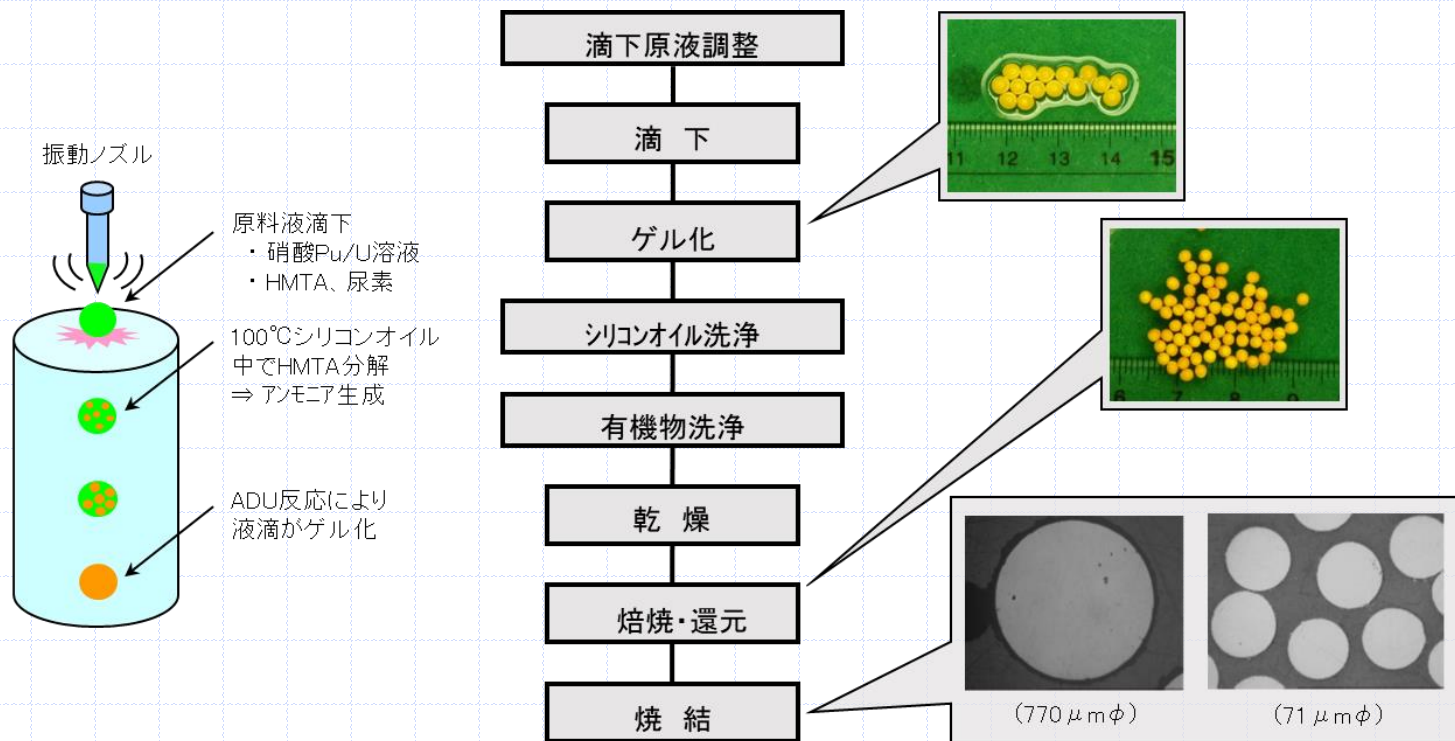
U-Pu-Zr三元系金属燃料スラグ製造プロセス

# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.2.3. 製造プロセスによる分類 #4

- ③ ゲル化法 … 滴下した重金属硝酸溶液をアンモニアと反応させて得たゲル状粒子を乾燥、焼結する手法(その後、コーティングを施す場合もある)

→ 酸化物粒子燃料、窒化物被覆粒子燃料



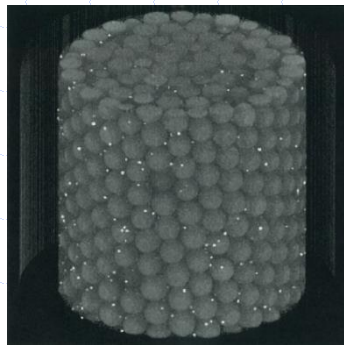
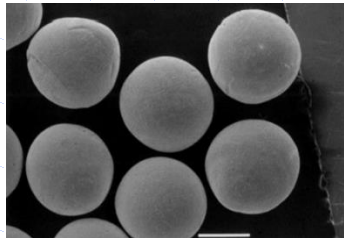
代表的な粒子燃料製造プロセス

# 1. 核燃料の種類と性質

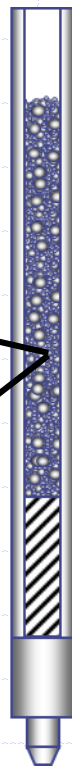
## 1.2.3. 製造プロセスによる分類 #5

粒子燃料の振動充填 …… 粒子燃料を被覆管にうまく詰める手法

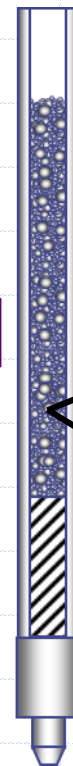
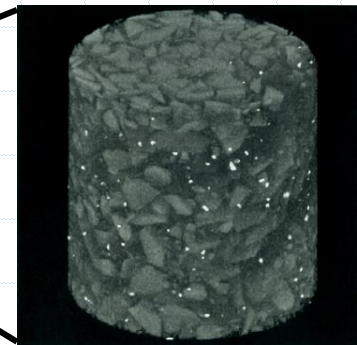
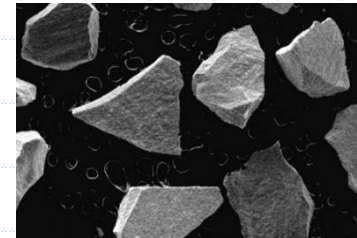
球状の粒子燃料の場合  
(スフェアパック燃料)



振動を与えながら充填していく



球状でない粒子燃料の場合  
(バイパック燃料)



# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.3. 国内外高速炉燃料の現状 #1

注意書きがない限り、形状は、  
酸化物、窒化物、炭化物はペレット  
金属はスラグ

国名	炉名	出力(kWe)	運転時期	酸化物	金属	窒化物	炭化物
米	EBR- I	200	1951-1964		○		
	EBR- II	2万	1964-1994		○		
	FFTF	40万kWt	1980-1992	○			
英	DFR	1.5万	1959-1977		○		
	PFR	25万	1974-1994	○			
仏	Rapsodie	4万kWt	1967-1983	○			
	Phenix	25万	1973-2009	○			
	Superphenix	124万	1985-1998	○			
露	BN-600 (原型炉)	60万	1981-	○			
	BN-800 (実証炉)	80万	2016-	○			
	BN-1200 (実用炉)	122万	-2030 <sup>*2</sup>	○		○	
	BREST-300 (鉛冷却原型炉)	30万	2025 <sup>*2</sup>			○	
	MBIR (多目的研究炉)	15万	2020 <sup>*2</sup>	○ <sup>*1</sup>	(○)	(○)	

\*1 振動充填MOX燃料を採用するが、MOXペレット、窒化物、金属も想定

\*2 計画中



# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.3. 国内外高速炉燃料の現状 #2

注意書きがない限り、形状は、  
酸化物、窒化物、炭化物はペレット  
金属はスラグ

国名	炉名	出力(kWe)	運転時期	酸化物	金属	窒化物	炭化物
印*1	FBTR (実験炉)	1.3万	1985-	(○)			○*3
	PFBR (原型炉)	50万	2017-	○			
	FBR1&2 (実用炉)	60万×2	2024-2025*5	○*2			
	MFTR (実験炉)	11.5万	2025*5		○		
	MDFR (実証炉)	60万	2028*5		○		
中	CEFR (実験炉)	2万	2011-	○			
	CFR600 (実証炉)	60万	-2023*5	○*4	(○)		
	CFR1000 (実用炉)	100~120万	>2030*5		○		

\*1 インドは、3段階の開発ステップを経て最終的にU-Thサイクルを目指す計画(現在は第2段階)

第1段階: 重水減速加圧重水冷却炉(PHWR)を用いた発電と239Puの生産

第2段階: FBRを用いた発電と239Puの生産。後期には232Thから233Uを生産

第3段階: 新型重水炉(AHWR)を用いた発電とU-Thサイクル

\*2 FBR1~6はMOX燃料とし、エネルギー需要の急速な伸びに対応するため以降は高増殖の金属燃料に切り替える計画

\*3 核実験のため高濃縮ウランが禁輸され、酸化物燃料による炉心構成が不可能となったため、70%PuC-30%UCを採用、のちに外側炉心をMOXとするハイブリッド化を実施

\*4 増殖性の観点から、将来的に金属燃料に移行する計画

\*5 計画中

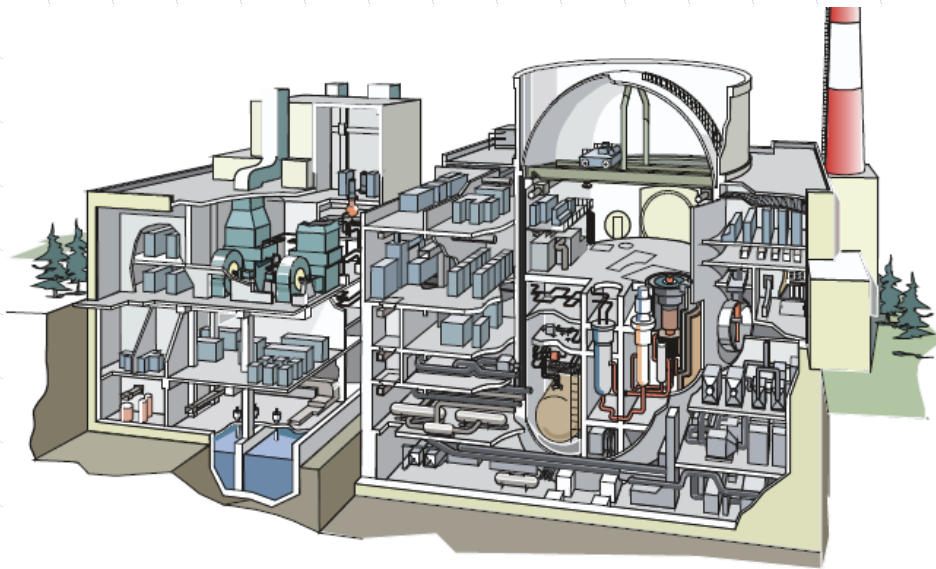
# 1. 核燃料の種類と性質

## 1.3. 国内外高速炉燃料の現状 #3

注意書きがない限り、形状は、  
酸化物、窒化物、炭化物はペレット  
金属はスラグ

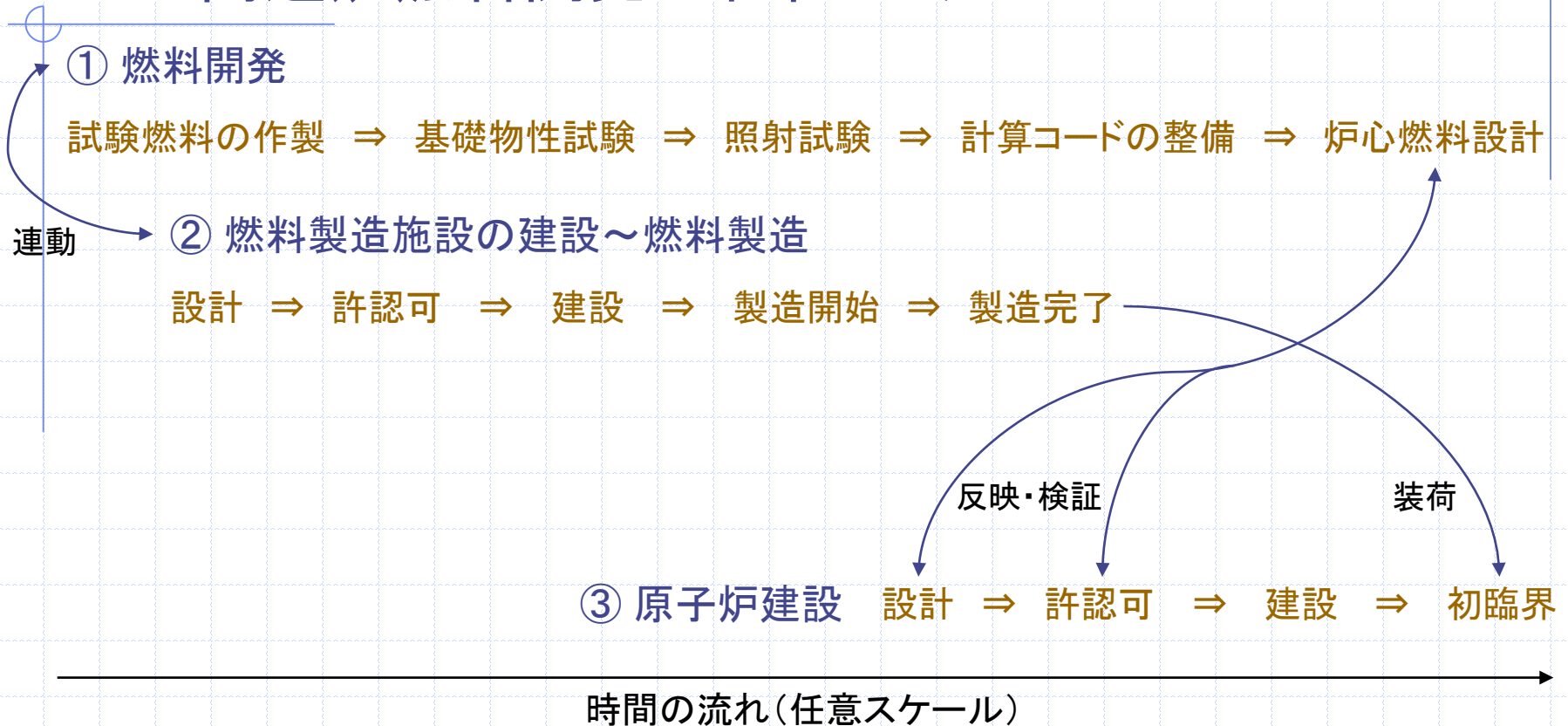
国名	炉名	出力(kWe)	運転時期	酸化物	金属	窒化物	炭化物
日	高速実験炉「常陽」	10万kWt*1	1977-	○			
	高速増殖原型炉もんじゅ	28万	1994-2016	○			

\*1 申請中



## 2. 核燃料に関する研究開発

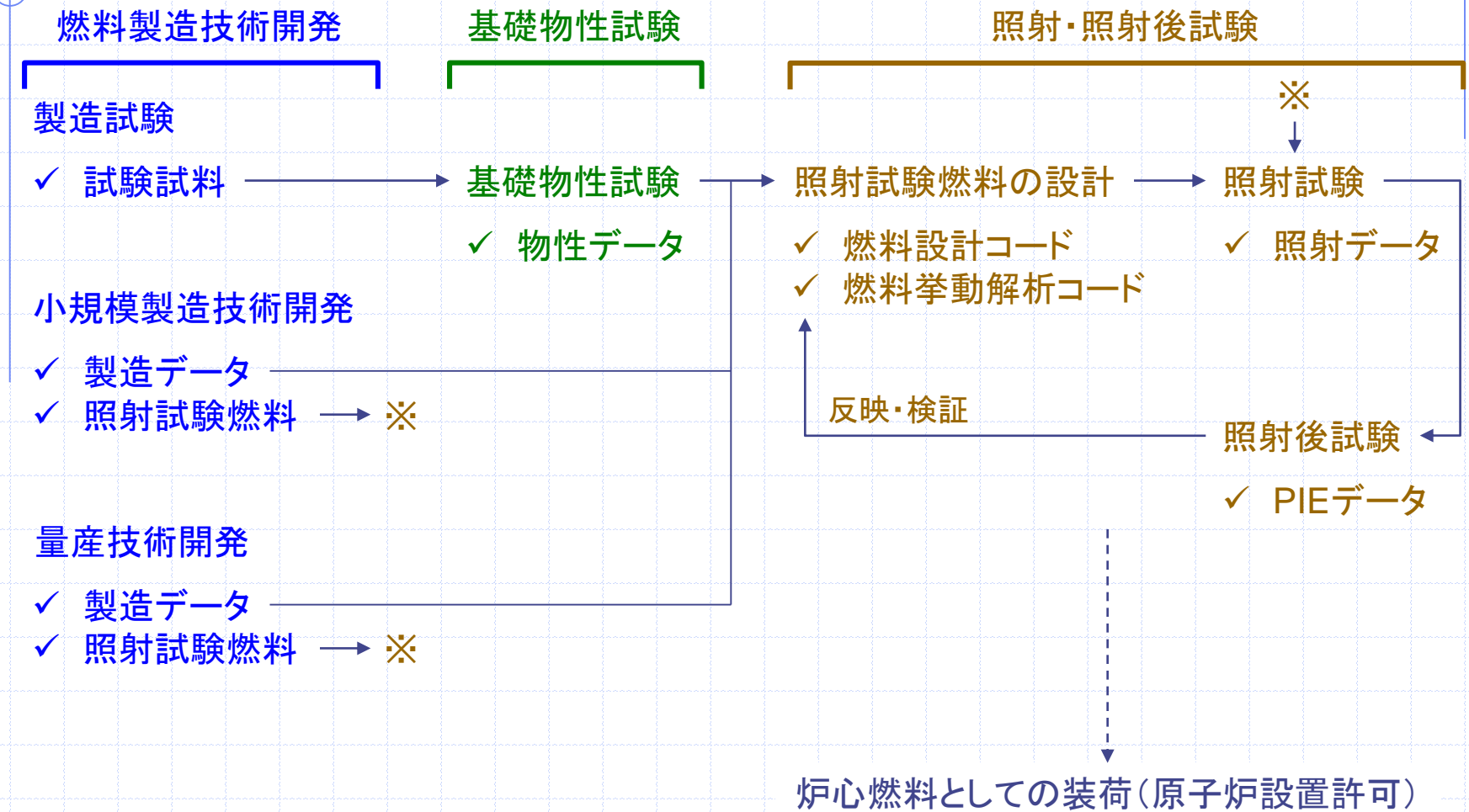
### 2.1. 高速炉燃料開発の位置づけ



- ✓ それぞれの項目でそれぞれの流れがあり、得られる成果物は互いに関連する。
- ✓ 燃料開発とそれに連動する燃料製造は、原子炉建設より先行して行われなければならない。(そしてここで成功しなければ次にすすめない。)

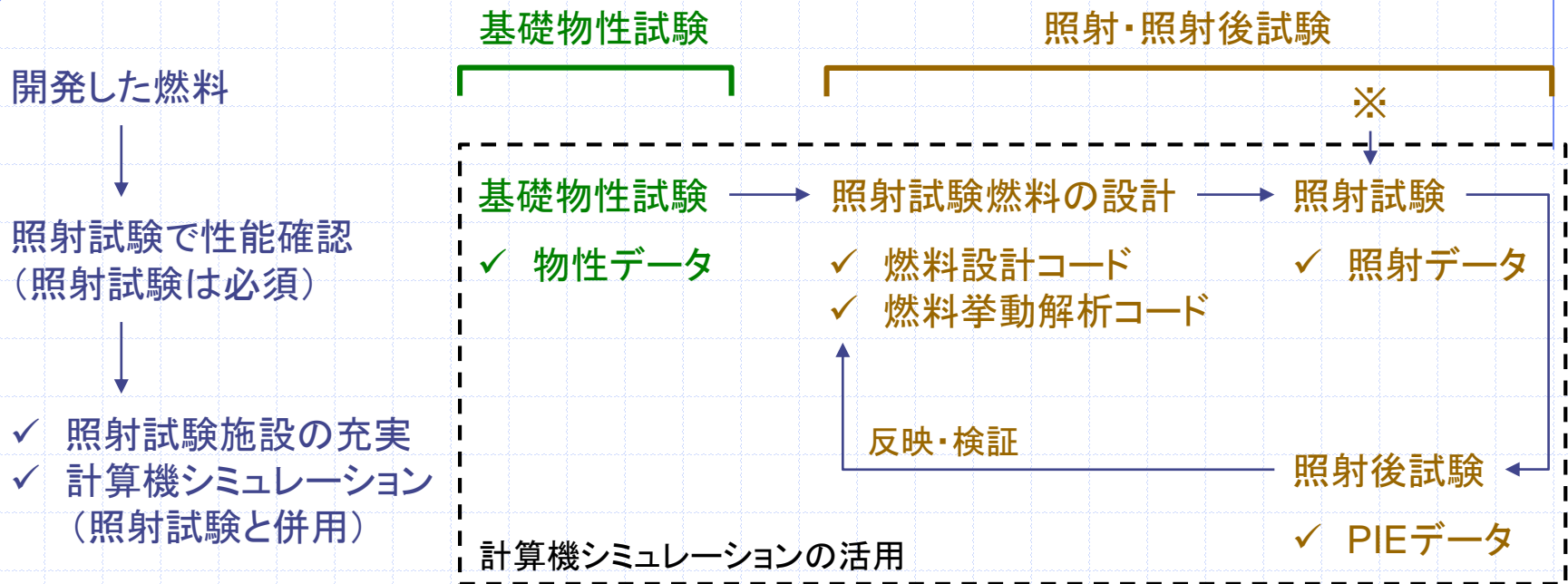
# 2. 核燃料に関する研究開発

## 2.2. 高速炉燃料開発の流れ



## 2. 核燃料に関する研究開発

### 2.3. 照射試験の重要性と展望



#### 高速実験炉「常陽」

型式: ナトリウム冷却型高速炉

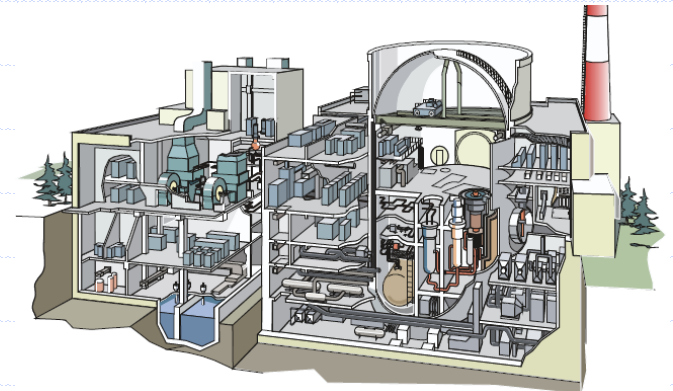
初臨界: 1977年4月

定格熱出力: 10万kWt(申請中)

最大高速中性子束 ( $E \geq 0.1$  MeV):  $3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

炉心寸法: 等価直径0.8 m、高さ0.5 m

燃料要素: MOXペレット ( $^{235}\text{U}$ 濃縮度~18%、Pu富化度<30%)



# 3. まとめにかえて

## 核燃料の種類と性質ならびに研究開発

我が国の核燃料に関する研究開発に求められること(大学からの視点)

### 1. 工学規模での着実な技術開発推進

- ⇔ 燃料製造技術開発、基礎物性試験、照射・照射後試験ができる施設
- ⇔ 目標とそれを達成するための計画

### 2. 基礎研究を通じての研究力強化

- ⇔ 単なる伝統芸能からの脱却
- ⇔ 新しい分野の積極的な取り込み

### 3. 持続と発展

- ⇔ 技能・技術・知見の確実な伝承と優秀な人材の確保・育成
- ⇔ 大学における原子力教育(例:核燃料を実際に扱った研究指導)

これらをすることで、高速炉開発において、すくなくとも燃料分野で、我が国が世界をリードすることは十分可能だと考える。ただし、そのためには、時勢を見極め、適切な対応をとることが重要であろう。