

Title	Application of Yttria-Stabilized Zirconia Solid Solution to TRU Waste Form and Inert Matrix Fuel
Author(s)	木下, 肇
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/42395">https://hdl.handle.net/11094/42395</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	木下肇
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第16247号
学位授与年月日	平成13年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科原子力工学専攻
学位論文名	Application of Yttria-Stabilized Zirconia Solid Solution to TRU Waste Form and Inert Matrix Fuel (TRU 廃棄物固化体と不活性マトリクス燃料へのイットリア安定化ジルコニア固溶体の適用性)
論文審査委員	(主査) 教授 山中 伸介  (副査) 教授 桂 正弘 助教授 宇埜 正美

## 論文内容の要旨

本論文は、高濃度超ウラン元素 (TRU) 廃棄物固化体及び不活性マトリクス燃料としての、イットリア安定化ジルコニア (YSZ) 固溶体の適用性を評価することを目的としている。本論文は以下の四章から構成されている。

第一章では、研究の背景と目的について述べている。使用済み核燃料や解体核より分離・回収される高濃度 TRU 元素やプルトニウム (Pu) の処理・処分的重要性を述べ、天然鉱物を基礎とする YSZ 固溶体がこれらの廃棄物の固化に適用可能であることを指摘している。

第二章では、高濃度 TRU 廃棄物固化体への YSZ 固溶体の適用性に関する研究について述べている。安定化材としてイットリア ( $Y_2O_3$ ) を、TRU 元素としてネプツニウム (Np) を選択し、以下の三点に関して実験的に評価を行っている。(1)Np 添加 YSZ の結晶構造に及ぼす焼結雰囲気の影響と相安定性とを X線回折を用いて評価し、YSZ は高濃度の Np を安定に固化可能であることを示している。(2)脱イオン水中、150°C、84日間の浸出試験を行い、試料からの Np や Zr の浸出率が、既存の廃棄物固化体からの浸出率よりも低いこと、また、Np の添加量によって元素の浸出率に大きな変化がないことを示している。(3)圧子圧入試験を行い、硬度、ヤング率、破壊靱性値を求め、YSZ 固溶体は既存の廃棄物固化体よりも硬く、弾性変形や亀裂の成長に対し高い耐性を有することを示している。

第三章では、不活性マトリクス燃料への YSZ 固溶体の適用性に関する研究について述べている。以下の三点に関して解析的に評価を行っている。(1)Zr-Pu-O 三元系状態図を CALPHAD 法により作製し、螢石型構造を低温で維持するためには安定化材が必要であることを指摘している。(2)格子定数の理論計算により  $ZrO_2-Y_2O_3-PuO_2-Gd_2O_3$  系の相安定性の評価を行い、還元雰囲気中で YSZ 中の Pu が一部還元されても、YSZ は Pu を高濃度で安定に固定可能であることを示している。(3)YSZ-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 系の岩石型燃料の熱伝導率を有限要素法解析により評価し、YSZ 分散相濃度が一定の場合でも、分散相粒子径の増加に伴い岩石型燃料の熱伝導率は減少し、従って熱伝導率を高くするためには、YSZ 分散相粒子径が小さいほど良いことを示している。

第四章は結論であり、本研究で得られた成果を要約している。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、高濃度超ウラン元素 (TRU) 廃棄物固化体及び不活性マトリクス燃料としての、イットリア安定化ジルコニア (YSZ) 固溶体の適用性を評価することを目的としている。使用済み核燃料の再処理や解体核より得られる高濃度の TRU 元素及びプルトニウム (Pu) は、化学的毒性や長い半減期のため、また核不拡散の観点からも、その処理、処分方法が国際的な問題となっている。しかしながら、政治的、経済的、技術的制約のため、その処理、処分方法は国際的に統一されていないのが現状である。本論文は、これらの廃棄物の処理、処分方法に関して、地層処分及び燃料としての再利用を仮定し、その両方に適用可能な材料として YSZ を提案し、その適用性を研究した成果をまとめたものである。

主な成果は以下のように要約できる。

高濃度 TRU 廃棄物固化体としてネプツニウム (Np) 添加 YSZ を作製し、(1)Np 添加 YSZ の結晶構造に及ぼす焼結雰囲気の影響と相安定性を X 線回折を用いて評価し、YSZ は高濃度の Np を安定に固化可能であること、(2)浸出試験を行い、試料からの Np や Zr の浸出率が、既存の廃棄物固化体からの浸出率よりも低く、また、Np の添加量によって元素の浸出率に大きな変化がないこと、及び(3)圧子圧入試験を行い、硬度、ヤング率、破壊靱性値を求め、YSZ 固溶体は既存の廃棄物固化体よりも硬く、弾性変形や亀裂の成長に対し高い耐性を有することを明らかにしている。

不活性マトリクス燃料としては、(1)Zr-Pu-O 三元系状態図を CALPHAD 法により作製し、螢石型構造を低温で維持するためには安定化材が必要であること、(2)格子定数の理論計算により  $ZrO_2-Y_2O_3-PuO_2-Gd_2O_3$  系の相安定性の評価を行い、還元雰囲気中で YSZ 中の Pu が一部還元されても、YSZ は Pu を高濃度で安定に固定可能であること、及び(3)YSZ-MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>系の岩石型燃料の熱伝導率を有限要素法解析により評価し、YSZ 分散相濃度が一定の場合でも、分散相粒子径の増加に伴い岩石型燃料の熱伝導率は減少し、従って熱伝導率を高くするためには、YSZ 分散相粒子径が小さいほど良いことを明らかにしている。

以上の様に、高濃度超 TRU 廃棄物固化体及び不活性マトリクス燃料としての、YSZ 固溶体の適用性に関して、本論文は重要な知見を与えている。さらに、Np、Pu 等のアクチノイド元素を含む酸化物固溶体に関する数多くの基礎的知見を提供している。これらの知見は、原子力工学、セラミクス工学の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。