平成29年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子カシステム研究開発事業

プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現する セキュリティ強化型安全燃料開発

成果報告書

平成 30 年 3 月 国立大学法人 東京大学

本報告書は、文部科学省の原子カシステム 研究開発事業による委託業務として、国立大 学法人東京大学が実施した平成 26-29 年度 「プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセ キュリティ強化型安全燃料開発」の成果を取 りまとめたものです。 概略 xiv 1-1 1-1 1.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計 ………… 1-2 1.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価 …………………………… 1 - 21 - 21-2 1 - 21 - 2参考文献 2. 業務計画 2 - 1..... 2.1 全体計画 2-1 2.2 平成 29 年度の成果の目標及び業務の実施方法 2-1 2-2 (1) 高温ガス炉における核セキュリティ評価 2-2 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価 …………… 2-2 (2) 2.2.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計 ………… 2-2 2-2 2-2 (2) 2.2.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価 ······ 2-2 2.2.4 セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験 2-2 2-3 2-3 3.1.1-1 3.1 セキュリティと安全の定量的な評価(H26~H29) ····· 3.1.1-1 3.1.1 高温ガス炉における核セキュリティ評価(H26~H29) ····· 3.1.1-1 3.1.1-1 (1) 目的 核セキュリティ事例の調査及びデータベースサーバの構築(H26) ····· (2) 3.1.1-1 (3) Pu 燃料製造工程を対象とした核セキュリティシナリオの作成(H27) ··· 3.1.1-1 3.1.1-2 (4) (5) Pu 燃焼高温ガス炉の VAI 解析 (H29) ······ 3.1.1-2 まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1.1-8 (6) 参考文献 3.1.1-8 3.1.2 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価(H26~H29) ···· 3.1.2-1 3.1.2-1 (1) 目的

目次

(2)	高温ガス炉の PRA の調査検討(H26~H27) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 1. 2–1
(3)	炉心の輻射伝熱冷却特性の検討(H27~H28)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 1. 2–2
(4)	黒鉛の輻射伝熱特性と事故時の炉心冷却性能評価(H29)・・・・・・・・・	3. 1. 2–3
(5)	ライフサイクル全体を見通したセキュリティと	
	安全性の両立についての評価(H29)・・・・・・	3. 1. 2–8
(6)	まとめ	3. 1. 2–13
参考	文献	3. 1. 2–13
3.2 セニ	キュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計(H26~H29)	
	(再委託先:原子力機構)	3. 2. 1–1
3. 2. 1	燃料成立性評価(H26~H29) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3. 2. 1–1
(1)	目的	3. 2. 1–1
(2)	被覆燃料粒子の概要	3. 2. 1–1
(3)	内圧計算コードの整備(H26) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 1–1
(4)	内圧破損挙動及びZrC層による内圧抑制効果の評価(H27) ·····	3. 2. 1–2
(5)	被覆層の厚さの検討(H28) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 1–2
(6)	TRISO 被覆厚さの検討(H29)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 1–2
(7)	まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 1–3
参考	文献	3. 2. 1–4
3. 2. 2	炉心核熱設計(H26~H29) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3. 2. 2–1
(1)	目的	3. 2. 2–1
(2)	コード整備及び入力ファイルの作成(H26) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 2–1
(3)	核特性解析(H27)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 2–1
(4)	核熱特性解析(H28~H29) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3. 2. 2-1
(5)	導入シナリオ策定及びシステム成立性評価(H29) ・・・・・・・・・・・・	3. 2. 2–4
(6)	まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 2–5
参考	文献	3. 2. 2–6
3.3 プノ	レトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価(H26~H29)	
	(再委託先:富士電機) · · ·	3. 3–1
3. 3. 1	目的	3. 3–1
3.3.2	崩壊熱の検討(H26)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 3–1
(1)	崩壊熱の評価手法	3. 3–1
(2)	評価結果	3. 3–1
3.3.3	温度挙動解析手法整備と予備解析(H27) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 3–1
(1)	検討対象事象の摘出	3. 3–1
(2)	減圧事故時の原子炉温度挙動解析手法の整備と予備解析 ・・・・・・・・・・	3. 3–2
(3)	スクラム失敗事象時の再臨界挙動解析手法の整備と予備解析 ・・・・・・	3. 3–2
3.3.4	出力増大の検討(H28) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 3–3
(1)	検討条件	3. 3–3

(2)	検討結果	3.3–3
3.3.5	炉心動特性解析手法整備予備解析(H28) ••••••••••••••••••••••	3. 3–4
(1)	検討条件	3. 3–4
(2)	解析結果	3. 3–4
3.3.6	安全解析の実施(H29) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3.3–5
(1)	減圧事故	3.3–5
(2)	減圧事故+スクラム失敗事象	3.3–6
(3)	スタンドパイプ破断による制御棒飛び出し	3.3–6
3.3.7	まとめ	3.3–7
参考文	献	3.3–7
3.4 セギ	キュリティ強化型安全燃料の試作と製造検討(H26~H29)	
	(再委託先:原子燃料工業) · · ·	3. 4–1
3. 4. 1	CeO₂-YSZ 模擬燃料核粒子の製造試験(H26~H29)・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–1
(1)	目的	3. 4–1
(2)	試験の準備(H26)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4-1
(3)	製造パラメータの違いが模擬燃料核の物性に及ぼす影響の検討(H27)	3. 4–2
(4)	製造パラメータの最適化(H28) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–2
(5)	CeO₂-YSZ 模擬燃料核粒子の製造(H28~H29)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–2
(6)	まとめ	3. 4–2
3. 4. 2	ZrC 被覆が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いた	
	TRISO 被覆粒子の製造試験(H26~H29)・・・・・・	3. 4–2
(1)	目的	3. 4–2
(2)	試験の準備(H26)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–2
(3)	粒子流動試験(H27) ·····	3. 4–2
(4)	流動条件の検討(H28)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3.4–3
(5)	TRISO 被覆粒子の製造試験(H28~H29)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–3
(6)	まとめ	3. 4–4
3.4.3	3S-TRISO 被覆粒子を用いた	
	3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの試作試験(H29)・・・・・・	3. 4–4
(1)	目的	3. 4–4
(2)	3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの製造方法	3. 4–4
(3)	3S-TRISO 模擬燃料コンパクト製造試験	3. 4–5
(4)	3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの検査及び物性試験	3. 4–5
(5)	まとめ	3.4–5
3.4.4	被覆粒子検査技術の開発(H26~H29) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3. 4–6
(1)	目的	3. 4–6
(2)	PuO₂-YSZ 被覆粒子燃料の検査技術に関する調査検討(H26)・・・・・・・・	3. 4–6
(3)	検査技術試験(H27) ·····	3. 4–6

		(4)	公定分析法等の調査検討(H28)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–6
		(5)	被覆燃料粒子の検査技術開発(H29)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–7
		(6)	まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4–11
	参	考文	献	3. 4–11
3.	5	ZrC	層被覆試験と特性評価(H26~H29)(再委託先:原子力機構)・・・・・・・	3. 5–1
	3. !	5. 1	目的	3. 5–1
	3. !	5. 2	ZrC 被覆試験装置の点検・修理、改造及び及び動作確認(H26)・・・・・・	3. 5–1
	3. !	5.3	YSZ 模擬燃料核の流動条件(H27~H28) · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	3. 5–2
		(1)	高温下での炉内温度分布の把握(H27) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 5–2
		(2)	粒子流動特性の把握(H27~H28) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 5–2
	3. !	5.4	YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験及び特性評価(H27~H28)・・・・・・	3. 5–4
		(1)	YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験(H27~H28)・・・・・・・・・・・・・・	3. 5–4
		(2)	Zr 層及び YSZ 境界面の材料特性評価(H27~H28)・・・・・・・・・・・・・・	3. 5–4
		(3)	YSZ 模擬燃料核/ZrC 境界部分の透過型電子顕微鏡観察(H27~H28)・・・・	3. 5–6
	3. !	5.5	CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験及び特性評価(H29)・・・・・・	3. 5–6
		(1)	特性評価	3. 5–7
		(2)	特性評価を通じた ZrC 被覆層の高品質化に向けた考察 ·······	3. 5–7
	3. !	5.6	まとめ	3. 5–8
	参	考文	献	3. 5–8
3.	6	研究	8推進	3. 6–1
4.	結	言		4-1
4.	1	セキ	キュリティと安全の定量的な評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4–1
	4.	1. 1	高温ガス炉の核セキュリティ評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4–1
	4.	1. 2	深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価 ・・・・・・・・・	4–1
4.	2	セキ	テュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計 ・・・・・・・・・	4–2
	4. 2	2. 1	燃料成立性評価	4–2
	4. 2	2. 2	炉心核熱設計	4–2
4.	3	プル	レトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価	4–2
4.	4	セキ	キュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4–3
4.	5	ZrC	層被覆試験と特性評価	4–3
4.	6	研究	8推進 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4–4
4.	7	今後	その展開	4–4

付録

A1.	H29 年度までの外部発表実績		A1-1
-----	-----------------	--	------

表一覧

- 表 3.1.1-1 FT の各記号に対応する機器名称と設置エリア
- 表 3.1.1-2 妨害破壊行為の手段
- 表 3.1.1-3 Fault Tree のイベント#1~#8 の概要
- 表 3.1.1-4 妨害破壊行為の手段を考慮した場合の、防止すべき12のターゲットセット
- 表 3.1.1-5 表 3.1.1-5 妨害破壊行為の手段を考慮しない場合の、防止すべき 4 のターゲ ットセット
- 表 3.1.2-1 酸素濃度を変えた注入実験条件
- 表 3.1.2-2 酸素濃度を変えた注入実験の温度変化
- 表 3.1.2-3 Star CCM+の解析条件(950℃定常状態)
- 表 3.1.2-4 Star CCM+の解析値と実測値の比較
- 表 3.1.2-5 RELAP5 解析の境界条件
- 表 3.1.2-6 FOM の値と物質魅力度カテゴリ
- 表 3.1.2-7 E₽の値
- 表 3.1.2-8 Ogawa の実験条件
- 表 3.1.2-9 RELAP5 解析に用いたパラメータ
- 表 3.2.1-1 最大燃焼度における被覆燃料粒子内圧の計算結果
- 表 3.1.1-2 設定した燃料仕様
- 表 3.2.2-1 核熱成立性の条件
- 表 3.2.2-2 炉心の主な仕様
- 表 3.2.2-3 燃料の主な仕様
- 表 3. 2. 2-4 90 カラム炉心の反応度温度係数の計算結果
- 表 3. 2. 2-5 132 カラム炉心の反応度温度係数の計算結果
- 表 3.3-1 崩壊熱
- 表 3.3-2 予備解析で用いた動特性パラメータ・温度係数
- 表 3.3-3 最終計算での動特性パラメータ・温度係数
- 表 3.4.1-1 バッチ No.Y64 の粒子の粒度分布測定結果(投影機法)
- 表 3.4.1-2 ゲル粒子 (乾燥)の製造条件
- 表 3.4.1-3 ゲル粒子(乾燥)の熱処理条件
- 表 3. 4. 2-1 TRISO 被覆試験結果一覧
- 表 3.4.3-1 焼結後 3S-TRISO 燃料コンパクトの検査結果
- 表 3. 4. 3-2
 焼結後 3S-TRISO 燃料コンパクトの金相試料における 3S-TRISO 被覆層厚さ検査
 結果(金相-投影機法)(μm)
- 表 3.4.4-1 模擬被覆燃料粒子を用いた実施可能な検査項目の検討結果
- 表 3.4.4-2 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの構成
- 表 3.4.4-3 模擬被覆燃料粒子の被覆層厚さ測定条件(金相試験法(金相試験-投影機法))
- 表 3.4.4-4 模擬被覆燃料粒子の被覆層厚さ測定条件(金相試験法(金相試験-画像解析法))
- 表 3.4.4-5 模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件(液浸密度法)

- 表 3.4.4-6 模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件(液浸置換法)
- 表 3.4.4-7 模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件(浮遊沈降法)
- 表 3.4.4-8 模擬被覆燃料粒子の直径測定条件(投影機法)
- 表 3.4.4-9 模擬被覆燃料粒子の外観観察条件(顕微鏡法)
- 表 3.4.4-10 模擬被覆燃料粒子の断面組織観察条件(金相試験法)
- 表 3.5-1
 4 孔スパウトベッド・模擬粒子流動試験結果(ZrC-16-1003、流動床温度条件 1350°C、YSZ 模擬粒子(ZCP-04P05)、バッチ量 100 g)
- 表 3.5-2 YSZ 粒子ならびに CeO₂-YSZ 粒子上への定比 ZrC 被覆試験条件
- 表 3.5-3 投影機による ZrC 厚さ測定結果(H27~29 年度)
- 表 3.5-4 ZrC 定比性測定結果(H27~29 年度)
- 表 3.5-5 粒子密度測定結果(H27~29 年度)
- 表 3.5-6 ZrC 密度測定結果(H27~29 年度)

図一覧

- 図 1-1 被覆燃料粒子の研究開発における本研究の位置付け
- 図 1-2 従来の UO2 被覆粒子燃料とセキュリティ強化型安全燃料
- 図 3.1.1-1 Pu 燃焼高温ガス炉の模擬プラント図
- 図 3.1.1-2 高温ガス炉プラントの FP 放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為の FT
- 図 3.1.2-1 試験体及び熱電対位置
- 図 3.1.2-2 酸素濃度を変えた注入実験の内側試験片温度変化
- 図 3.1.2-3 酸素濃度を変えた注入実験の外側試験片温度変化
- 図 3.1.2-4 酸素濃度を変えた注入実験後の内側試験片質量減少
- 図 3.1.2-5 酸素注入時の過渡温度変化解析手順
- 図 3.1.2-6 Star CCM+の解析モデル
- 図 3.1.2-7 Star CCM+による温度分布解析結果と熱電対位置の温度
- 図 3.1.2-8 Star CCM+解析結果による内側黒鉛のヒートバランス
- 図 3.1.2-9 Star CCM+解析結果による外側黒鉛のヒートバランス
- 図 3.1.2-10 酸素注入実験体系の RELAP 解析モデル
- 図 3.1.2-11 窒素注入時の RELAP 解析結果と実測温度変化の比較
- 図 3.1.2-12 酸素注入時の RELAP 解析結果と実測温度変化の比較
- 図 3.1.2-13 酸素注入後の黒鉛質量減少量の RELAP 解析結果と実測値の比較
- 図 3.1.2-14 プルトニウム炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化
- 図 3.1.2-15 崩壊熱
- 図 3.1.2-16 燃料ブロック
- 図 3.1.2-17 流量喪失+空気侵入時の燃料ブロック代表温度(原子炉容器温度をパラメータ)
- 図 3.1.2-18 流量喪失+空気侵入時の燃料ブロック代表温度(酸化反応発熱をパラメータ)
- 図 3.1.2-19 FOM_{TOTAL}の推移
- 図 3.1.2-20 FOM_{TOTAL}の推移(取り出し後 500 年以降)
- 図 3.1.2-21 Q_{Pu}の推移
- 図 3.1.2-22 MNPIの推移
- 図 3.2.1-1 ZrC を PuO₂-YSZ 燃料核に直接被覆した被覆燃料粒子
- 図 3.2.1-2 Pu02-YSZ を燃料核とする被覆燃料粒子の燃焼に伴う核分裂割合の変化
- 図 3.2.1-3 FactSage による ZrC-02体系の熱化学平衡計算の結果
- 図 3.2.1-4 SiC 層破損割合と燃焼度の関係
- 図 3. 2. 2-1 Pu 燃焼高温ガス炉(144 カラム炉心)
- 図 3.2.2-2 Pu 燃焼高温ガス炉(90 カラム炉心、水平断面)
- 図 3.2.2-3 Pu 燃焼高温ガス炉(132 カラム炉心、水平断面)
- 図 3.2.2-4 燃料コンパクト(軸方向断面図)
- 図 3.2.2-5 一体型燃料棒
- 図 3.2.2-6 軸方向サンドウィッチシャッフリング
- 図 3.2.2-7 軸方向 4 バッチシャッフリング

- 図 3.2.2-8 90 カラム炉心の燃料温度計算結果
- 図 3.2.2-9 132 カラム炉心の燃料温度計算結果
- 図 3.2.2-10 発電用途時の発電容量の推移
- 図 3.2.2-11 発電用途時の Pu 消費量の推移
- 図 3.2.2-12 発電用途時の高温ガス炉導入基数
- 図 3.2.2-13 コジェネ時の発電容量の推移
- 図 3. 2. 2-14 コジェネ時の Pu 消費量の推移
- 図 3.2.2-15 コジェネ時の高温ガス炉導入基数
- 図 3.2.2-16 コジェネ時の水素製造量
- 図 3.3-1 SWAT コードの構成
- 図 3.3-2 MVP の解析モデル
- 図 3.3-3 予備解析に用いた炉心カラム配置
- 図 3.3-4 予備解析に用いた TAC-NC の解析モデル
- 図 3.3-5 予備解析に用いた定格運転時の軸方向出力分布
- 図 3.3-6 ウラン炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化
- 図 3.3-7 プルトニウム炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化
- 図 3.3-8 定格出力と事故時燃料最高温度との関係
- 図 3.3-9 「減圧事故+スクラム失敗」の再臨界挙動の解析結果
- 図 3.3-10 炉心幅を変更した場合の燃料カラムの配置
- 図 3.3-11 炉心出力、炉心幅を変化させた場合の減圧事故時の燃料最高温度時間変化
- 図 3.3-12 炉心出力と減圧事故時の燃料最高温度の関係
- 図 3.3-13 炉心燃料カラム数と事故時燃料温度条件を満足する原子炉出力の関係
- 図 3.3-14 原子炉スクラム時の制御棒挿入による反応度添加特性
- 図 3.3-15 反応度添加 0.15% Δ k/k の場合の解析結果
- 図 3.3-16 反応度添加 0.28% △ k/k の場合の解析結果
- 図 3.3-17 スクラムする場合の反応度添加量と最高出力、燃料最高温度の関係
- 図 3.3-18 TAC-NC の解析モデル
- 図 3.3-19 出力分布
- 図 3.3-20 燃焼日数と減圧事故時の燃料最高温度
- 図 3.3-21 燃料温度、圧力容器温度の時間推移
- 図 3.3-22 減圧事故+スクラム失敗時の燃料温度、出力挙動
- 図 3.3-23 減圧事故+スクラム失敗時の反応度挙動
- 図 3.3-24 応度添加量と最高出力・燃料最高温度の関係
- 図 3.4.1-1 本事業で整備した主な設備
- 図 3.4.1-2 乾燥ゲル粒子開発の状況例
- 図 3.4.1-3 乾燥ゲル粒子割れ改善の例
- 図 3.4.1-4 模擬燃料核の製造工程
- 図 3.4.1-5 粒子形状改善前後の外観比較

- 図 3.4.1-6 バッチ No. Y64 粒子の SEM/EDS 分析結果
- 図 3.4.1-7 熱処理前後の外観例
- 図 3.4.2-1 Pu02/Ce02-YSZ を燃料核/模擬燃料核とする 3S-TRISO 被覆粒子の概要
- 図 3.4.2-2 Zr02模擬粒子を用いた粒子模擬流動試験の例
- 図 3.4.2-3 粒径とガス流量の関係の整理
- 図 3.4.2-4 被覆条件検討試料(00PB17-2002)及び 3S-TRISO 被覆粒子(00PB17-2004)の金 相外観
- 図 3.4.3-1 3S-TRISO 燃料コンパクトの製造工程フローと燃料コンパクトの概念図
- 図 3.4.3-2 オーバーコート工程の概念図
- 図 3.4.3-3 コンパクトプレス工程の概念図
- 図 3.4.3-4 3S-TRISO 燃料コンパクトの外観
- 図 3. 4. 3-5 焼成後の 3S-TRISO 燃料コンパクト (17-T1001) 金相試料中の 3S-TRISO 被覆粒 子の外観
- 図 3.4.4-1 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの外観写真
- 図 3.4.4-2 金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)による被覆層厚さ測定結果(50 個)
- 図 3.4.4-3 金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)による被覆層厚さ測定結果(50 個)
- 図 3.4.4-4 従来法と新規手法の変動係数による被覆層厚さ測定結果(50 個)
- 図 3.4.4-5 従来法と新規手法の変動係数による被覆層厚さ測定結果(50 個)
- 図 3.4.4-6 液浸置換法(従来法)による被覆層厚さ測定結果
- 図 3.4.4-7 投影機法(従来法)による直径測定結果(50 個)
- 図 3.4.4-8 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの金相写真
- 図 3.5-1 ZrC 被覆試験装置
- 図 3.5-2 ZrC 被覆試験装置の構成概略図
- 図 3.5-3 温度分布測定結果
- 図 3.5-4 マルチノズル流動床(4 孔)の概略図
- 図 3.5-5 粒子流動特性の模式図
- 図 3.5-6 FactSage5.5 による熱化学平衡計算結果
- 図 3.5-7 ZrC 被覆粒子の外観写真(ZrC-16-2001)
- 図 3.5-8 ZrC 被覆粒子の断面写真(ZrC-16-2001)
- 図 3.5-9 ZrC 定比性及び密度の測定フロー
- 図 3.5-10 YSZ 模擬燃料核/ZrC 境界部分の STEM 暗視野像, (a) ZrC-06-2007, (b) ZrC-06-2016
- 図 3.5-11 ZrC 被覆粒子の外観写真(ZrC-CY-2001)
- 図 3.5-12 ZrC 被覆粒子の断面写真(ZrC-CY-2001)
- 図 3.5-13 CeO₂-YSZ 模擬燃料核上へ被覆した ZrC の X 線回折パターン
- 図 3.5-14 CeO₂-YSZ 模擬燃料核上へ被覆した ZrC 層の STEM 暗視野像(ZrC-CY-2001)
- 図 3.5-15 CeO₂-YSZ 模擬燃料核と ZrC 臭化物化学蒸着法の熱化学平衡計算結果

略語一覧		
CeO ₂	:	Cerium oxide (二酸化セリウム)
FOM	:	Figure Of Merit (性能指数)
GTHTR300	:	Gas Turbine High Temperature Reactor 300 (高温ガス炉ガスタービン発電 システム)
HTGR	:	High Temperature Gas-cooled Reactor (高温ガス冷却炉)
HTTR	:	High Temperature engineering Test Reactor (高温工学試験研究炉)
MNP I	:	Material Non-Public Information (重要な非公開情報)
PRA	:	Probabilistic Risk Assessment (確率論的リスク評価)
Pu0 ₂	:	Plutonium oxide (二酸化プルトニウム)
SEM/EDS	:	Scanning Electron Microscopy / Energy Dispersion X-ray Spectrometry (走 査型電子顕微鏡 / エネルギー分散形 X 線分析)
ROX	:	Rock Like Oxide (岩石型酸化物)
SiC	:	Silicon Carbide (炭化ケイ素)
TRISO	:	Tri-structural Isotropic (3 重 4 層等方性)
YSZ	:	Yttria Stabilized Zirconia (イットリア安定化ジルコニア)
ZrC	:	Zirconium Carbide (炭化ジルコニウム)

用語の説明

BL00ST-J2

高温ガス炉の制御棒の引抜き事象等の反応度異常事象を、一点近似動特性方程式を解く ことによって解析するコード。とくに短時間での反応度、温度挙動を解析する。

CV

Containment Vessel (格納容器)

冷却材喪失時などに圧力障壁となるとともに放射性物質の放散に対する障壁を形成する ため、燃料が収められた原子炉などの重要な機器を覆う容器。

FT

Fault Tree (フォルトツリー)

特定の望ましくないイベントから始め、それにつながる因果関係をツリー(樹)の形で 分析したもの。

MCNP

米国ロスアラモス国立研究所で開発された連続エネルギー法に基づく汎用中性子・光子 輸送計算モンテカルロコード。

MVP

原子力機構で開発された連続エネルギー法に基づく汎用中性子・光子輸送計算モンテカ ルロコード。

ORIGEN2

米国オークリッジ国立研究所で開発された放射性物質の生成、壊変及び減損を計算するコード。

PP、PPS

Physical Protection (物理的防護)、Physical Protection System (物理的防護システム)の略称で、核物質及び原子力施設を盗取や妨害破壊行為から防護するための装置やシステム。

RELAP-5

米国アイダホ国立研究所で開発された原子炉システム安全解析コード。

SR 弁

Safety Release Valve (主蒸気逃がし安全弁)

沸騰水型原子炉の主蒸気配管に設けられた弁であり、圧力上昇時に開放されて原子炉の 蒸気を圧力抑制プールに逃がす。ここでは子炉圧力の上昇を抑制する。ここでは高温ガ ス炉内の1次系圧力が上昇した時に開放されて1次冷却系の圧力を放出させる弁を指す。

Star-CCM+

米国 CD-adapco 社の汎用熱流体解析ソフトウェア。

SWAT

ー点炉燃焼計算コード ORIGEN2 と連続エネルギモンテカルロコード MVP 並びに MCNP を組 み合わせた統合化燃焼計算コード。任意の幾何形状の燃料に対し、最新の核データを使 用しつつ、詳細な中性子スペクトル計算による高精度の燃焼計算を行うことが可能である。

TAC-BLOOST

TAC-NC と BL00ST-J2 を合体した解析コード。高温ガス炉の原子炉の反応度変化と温度変化を連立させて解析を行うことで、長時間の原子炉の動特性解析に使用する。

TAC-NC

2次元原子炉温度挙動解析コード。主に、高温ガス炉の安全解析に使用し、原子炉内での冷却材の自然循環を考慮することができる。

VAI

Vital Area Identification(枢要区域同定)

防護区域の内側にあって、妨害破壊行為を受けた場合、直接・間接に受容できないよう な放射線事故に至る可能性のある施設、システム又は装置、もしくは核物質を収容して いる区域。

VAI によるミニマルカットセット

脅威者が核物質であるターゲットセット(TS)に到達することをトップ事象とした場合のミニマルカットセット。(「VIE」及び「ミニマルカットセット」については各々の項目を参照すること。)

脅威者の TS への到達を不可能にするための、物理的防護システム (PPS) の施設・システム・装置の組み合わせに相当する。

エリプソメトリー法

光学的異方性因子を測定する手法。試料へ偏光した光を照射し、入射光と反射光の偏光 の変化を観測し偏光係数等を求める。

核セキュリティ

核物質,その他の放射性物質,その関連施設及びその輸送を含む関連活動を対象にした 犯罪行為又は故意の違反行為の防止,探知及び対応。

スパウトヘッド

流動床。

下方からガスを吹き上げ、粒子を流動させながらその表面に蒸着を行うために用いるす り鉢状の反応管。

高温ガス炉燃料である被覆燃料粒子の製造プロセスのうち被覆工程においては、粒子の 表面に化学蒸着によって被覆層を生成するためにスパウトヘッドを用いる。

バーンオフファクター

酸化による黒鉛の減量割合。

バーンオフファクター = (あるバーンオフにおける酸化反応速度)

÷ (バーンオフのない初期状態における酸化反応速度)

黒鉛の酸化反応速度はバーンオフが大きくなるほど速くなることから、その影響をバー ンオフファクターとして、初期状態に対するあるバーンオフでの酸化反応速度の比とし て示している。

ピクノメータ法

少量の液体試料の比重を精密に測定するための、ガラス製の容器(比重びんともいう) を用いた測定法。

マルチノズル型スパウトヘッド

スパウトベッド底部に複数(4~9本)のガスノズルを設けたもの。ガスノズルが1本の ものをシングルノズル型スパウトヘッドという。ガスノズルを小径化できるため、ガス ノズルからの粒子の落下損失を抑制し、より小径な粒子への被覆が可能になる。また、 シングルノズル型)の場合よりも安定な粒子流動状態を得ることができる。

ミニマルカットセット

トップ事象から展開したオブジェクトツリーから導き出される、トップ事象発生のため の基本事象の最小の組合せ(最小カットセット)。

概略

研究の背景

福島第一事故を受けて、炉心溶融を起こすことが物理的に困難な本質的安全原子炉の重要性が 再認識されている。高温ガス炉は、電源などが全て喪失しても、物理現象によって「止まる」「冷 やす」「閉じ込める」を担保することができる極めて安全性の高い原子炉である。この安全な高温 ガス炉を用いて、燃焼によりプルトニウムインベントリを減らす技術の確立は、国際社会及び我 が国における核セキュリティ上も重要である。原子炉でプルトニウムを燃焼させるにあたっては、 核不拡散の観点から、燃料の製造、運転、廃棄のすべての状況において、プルトニウムが抽出で きない仕組みが必要である。また、プルトニウムを効率良く、大量に燃焼させるためには、500 GWd/t という通常のウラン燃料の 10 倍以上の燃焼度が必要である。

我が国は、高温ガス炉で用いる被覆粒子燃料の製造において、製造時の破損率を従来(米国や 独国で製造された被覆粒子燃料)の約1/100に低減する優れた製造技術を、高温工学試験研究炉 (HTTR)の燃料製造技術開発を通じて確立した。本研究では、照射時においても従来に比べて破 損率低減を可能とするとともに核セキュリティの観点からも優れる被覆粒子燃料を開発し、プル トニウム燃焼高温ガス炉システムの安全性と核セキュリティの両立を図る。

これまでに、主に軽水炉に装荷するプルトニウム燃料の母材として、直接処分時の安全性の観 点から化学的に不活性なイットリア安定化ジルコニア(Yettria Stabilized Zirconia: YSZ)に 着目した研究が行われてきた。本研究では、高温ガス炉に装荷するプルトニウム燃料の母材とし て、核不拡散の観点からYSZに着目した。被覆粒子燃料の燃料母材にYSZを用い、燃料核をPu02-YSZ とすることで不活性燃料化による核拡散抵抗性の強化を図る。さらに、照射時の燃料破損の主な 原因である CO ガスの内圧上昇を抑制する ZrC 層と不活性燃料を組み合わせ、セキュリティ強化型 安全燃料を開発し、高温ガス炉に装荷する。このプルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するには、 以下を実施する必要がある。

- (1) セキュリティと安全の定量的な評価
- (2) セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計
- (3) プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価
- (4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験
- (5) ZrC 層被覆試験と特性評価
- (6) 実燃料製造試験
- (7) 高燃焼照射試験

これらのうち、本研究では(1)~(5)を行う。本研究の実施により、セキュリティと安全性を両立 したプルトニウム燃焼高温ガス炉の実現に必要な基盤技術を確立することができる。以下に、平 成 29 年度の実施内容等について述べる。

(1) セキュリティと安全の定量的な評価

(1-1) 高温ガス炉の核セキュリティ評価

平成 28 年度の検討に基づく Pu 燃料盗取シナリオに対し、核セキュリティ上の重要度評価を行った。さらに核セキュリティ信頼性向上に必要な物理的防護システムの改良の可能性を検討した。

Pu 燃焼高温ガス炉への妨害破壊行為シナリオを対象に、枢要区域同定(Vital Area Identification: VAI)解析に基づき物理的防護システムの試評価を実施した。

(1-2) 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価

基礎的な試験及び解析により黒鉛の輻射伝熱特性を検討し、全ての強制冷却が喪失する事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対しても Pu 燃焼高温ガス炉の安全性が高いことを定量的に示した。さらに、最終年度のとりまとめとして、(1-1)と合わせて、ライフサイクル全体を見通したセキュリティと安全性の両立について評価を行った。

強制冷却が失われることに加え、空気侵入による黒鉛酸化発熱反応を伴う過渡実験を行い、デ ータを取得するとともに、解析モデルによって実験を評価できることを確認し、厳しい条件下で も輻射伝熱による冷却ができることを定量的に示した。さらに、本提案燃料の使用済み燃料特性 を数万年にわたり評価し、セキュリティ上のリスクが極めて小さいことを示した。

(2) セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計

(2-1) 燃料成立性評価

平成 28 年度に実施した内圧破損を防ぐために必要な被覆層の厚さに関する検討の結果をベースにして、Pu02-YSZ 被覆粒子燃料の設計仕様(燃料核直径、被覆層厚さ等)を決めた。

被覆燃料粒子において圧力容器の役割を持つ SiC 層について、厚さを変えた応力解析を行い、 破損確率が設計要求を満たすことを確認して仕様を決めた。

(2-2) 炉心核熱設計

平成28年度に実施した核熱的成立性評価の結果及び安全評価の結果をベースにして、プルトニウム燃焼高温ガス炉の仕様を決めるとともに、プルトニウム燃焼高温ガス炉の導入シナリオを策定してシステムの成立性を評価した。

燃料領域の広さ、シャッフリング方法、可燃性毒物直径を変えて炉心燃焼計算及び燃料温度計 算を行い、核特性値及び燃料温度計算が設計要求を満たすことを確認して仕様を決めた。また、 平成27年「長期エネルギー需要見通し」の需要予測に沿った導入基数の評価を行うとともに、プ ルトニウムの消費量及びサイクル内の蓄積量、水素製造量、CO2削減効果について評価した。

(3) プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価

炉心核熱設計により定められた原子炉/炉心諸元に対し、平成26年度に整備した崩壊熱評価手 法や平成27年度及び28年度に整備した安全解析手法を用いて安全解析を実施し、燃料温度と原 子炉圧力容器温度がいずれも安全上の判断基準を超えず、原子炉設計が成立していることを確認 した。 燃料カラム数 90、原子炉熱出力 600 MWth の炉心について、TAC-NC コードを用いて安全解析を 行い、設計基準事象である減圧事故時の燃料温度と原子炉圧力容器温度を求めた。その結果、い ずれも安全上の制限値を超えることはなく、原子炉設計が成立していることを確認した。

(4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造検討

CeO₂-YSZ 模擬燃料核の製造試験を実施する。振動滴下-ゾルゾル法によりゲル球を製造すること とし、昨年度までに実施した製造条件検討結果を元にして製造を行い ZrC 被覆試験用試料とした。 ZrC が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用い、流動床-化学蒸着法により模擬燃料球へ SiC を含 む四重被覆を形成することとし、昨年度までに実施した製造条件検討結果を元に、温度、原料ガ ス濃度・流量、処理時間等の製造条件を変更させて製造試験を行った。製造条件パラメータと物 性(外径寸法、真球度、被覆層厚さ、被覆密度等)の相関を取得し、最適な条件を選定した。

昨年度までに実施した調査検討結果を基に検査技術についても HTTR 用燃料の品質確認検査技術を基に開発を行い評価した。

ZrC 層を持つ YSZ 含有被覆粒子を成型・熱処理して高温ガス炉用模擬燃料コンパクトを試作した。試作した模擬燃料コンパクトの検査、物性値の測定を行い、被覆条件パラメータが YSZ を含む模擬燃料球へおよぼす化学的影響を調べた。

振動滴下-ゾルゾル法により原料溶液の粘度 0.12~0.18 Ps・s、滴下時の振動数 120~140 Hz の条件で CeO₂-YSZ 模擬燃料核の製造試験を行い、約 1000 g を ZrC 層被覆試験用試料として原子 力機構殿へ供給した。流動床-化学蒸着法による試作試験を継続的に実施し、被覆時ガス流量 85 ~100 L/min 等の被覆条件を選定した。この条件を基に ZrC が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を 用いて製造試験を行い、ZrC 層を含む 5 層の被覆層を持つ 3S-TRISO 被覆粒子を製造した。検査技 術については、模擬被覆粒子を用いて検査技術開発を行い、Pu を取扱う場合も含め検討・評価を 行った。化学蒸着法により製作した 3S-TRISO 被覆粒子を用いてオーバーコート法により黒鉛マト リックスをコーティングした上で温間成型及び熱処理を行い、プルトニウム燃焼高温ガス炉用燃 料である 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトを試作した。また、試作した 3S-TRISO 模擬燃料コンパク トの金相試料を作成、観察測定し、コンパクト成形後も被覆層が維持されていることを確認した。

(5) ZrC 層被覆試験と特性評価

臭化物 ZrC 化学蒸着法にもとづき、ZrC 被覆試験装置へ装荷した CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を行い、CeO₂-YSZ 模擬燃料核 ZrC 層及び CeO₂-YSZ 境界面の材料特性データ(厚さ、密度、定比性など)を取得し、ZrC 化学蒸着条件との相関について検討した。

従来よりも小径(直径約0.4mm)のCeO₂-YSZ 模擬燃料核へのZrC 層被覆に成功して材料データ を測定するとともに、蒸着条件との関係からZrC 層被覆層の成長速度を得た。また、ZrC 層被覆 の前段にて熱分解炭素層を被覆する方法でZrC 層をより高品質化できる見通しを得た。

1. はじめに

福島第一事故を受けて、炉心溶融を起こすことが物理的に困難な本質的安全原子炉の重要性が 再認識されている。高温ガス炉は、電源などが全て喪失しても、物理現象によって「止まる」「冷 やす」「閉じ込める」を担保することができる極めて安全性の高い原子炉である。この安全な高温 ガス炉を用いて、燃焼によりプルトニウムインベントリを減らす技術の確立は、国際社会及び我 が国における核セキュリティ上も重要である。原子炉でプルトニウムを燃焼させるにあたっては、 核不拡散の観点から、燃料の製造、運転、廃棄のすべての状況において、プルトニウムが抽出で きない仕組みが必要である。また、プルトニウムを効率良く、大量に燃焼させるためには、500 GWd/t という通常のウラン燃料の 10 倍以上の燃焼度が必要である⁽¹⁾。

我が国は、高温ガス炉で用いる被覆粒子燃料の製造において、製造時の破損率を従来(米国や 独国で製造された被覆粒子燃料)の約1/100に低減する優れた製造技術を、高温工学試験研究炉 (HTTR)の燃料製造技術開発を通じて確立した⁽²⁾。本研究では、照射時においても従来に比べて 破損率低減を可能とするとともに核セキュリティの観点からも優れる被覆粒子燃料を開発し、プ ルトニウム燃焼高温ガス炉システム⁽¹⁾の安全性と核セキュリティの両立を図る(図1-1)。

これまでに、主に軽水炉に装荷するプルトニウム燃料の母材として、直接処分時の安全性の観 点から化学的に不活性なイットリア安定化ジルコニア(Yttria Stabilized Zirconia: YSZ) に着 目した研究が行われてきた⁽³⁾。本研究では、高温ガス炉に装荷するプルトニウム燃料の母材とし て、核不拡散の観点から YSZ に着目した。被覆粒子燃料の燃料母材に YSZ を用い、燃料核を Pu0₂-YSZ とすることで不活性燃料化による核拡散抵抗性の強化を図る。さらに、照射時の燃料破損の 主な原因である CO ガスの内圧上昇を抑制する ZrC 層と不活性燃料を組み合わせ、セキュリティ 強化型安全燃料(図 1-2)を開発し、高温ガス炉に装荷する。このプルトニウム燃焼高温ガス炉 を実現するには、以下を実施する必要がある。

- (1) セキュリティと安全の定量的な評価
- (2) セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計
- (3) プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価
- (4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験
- (5) ZrC 層被覆試験と特性評価
- (6) 実燃料製造試験
- (7) 高燃焼照射試験

これらのうち、本研究では(1)~(5)を行う。本研究の実施により、セキュリティと安全性を両立 したプルトニウム燃焼高温ガス炉の実現に必要な基盤技術を確立することができる。以下に、本 研究の実施概要を述べる。

1.1 セキュリティと安全の定量的な評価

高温ガス炉のシビアアクシデントについて検討を進めるとともに、軽水炉で進められているセ キュリティ PRA(確率論的リスク評価、Probabilistic Risk Assessment)を参考にしてプルトニ ウム燃焼高温ガス炉のセキュリティ上の課題をまとめ、対策を考察する。

1.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計

高燃焼度(500~600 GWd/t 程度)を達成可能な Pu0₂-YSZ 被覆粒子燃料の設計仕様(燃料核直径、被覆層厚さ等)を検討する。また、プルトニウム燃焼高温ガス炉の核的(反応度温度係数、 炉停止余裕など)及び熱的(燃料最高温度)な成立性を評価する。

1.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価

プルトニウム燃焼高温ガス炉におけるマイナーアクニチド(Minor Actinide: MA)の蓄積を考慮した崩壊熱の評価手法や原子炉温度挙動等の評価手法を整備するとともに、代表的な事故事象を摘出して安全解析を実施し、燃料温度と原子炉圧力容器温度の観点から安全上の成立性を評価する。

1.4 セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験

PuO₂-YSZ の化学特性に近い CeO₂-YSZ を用いた模擬燃料核の製造試験を、添加材濃度や粘度、 滴下条件などの製造条件を変えて行い、最適な燃料核製造条件を検討する。また、ZrC を被覆し た CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いた SiC 及び熱分解炭素被覆試験を行い、ZrC/SiC 被覆粒子燃料(セ キュリティ強化型安全燃料)の最適な製造条件を検討する。

1.5 ZrC 層被覆試験と特性評価

CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いた ZrC 被覆試験を、流動条件や原料ガス組成などの蒸着条件を変え て行う。試験で得られる ZrC 層及び CeO₂-YSZ の材料特性データ(厚さ、密度など)と蒸着条件の 相関を定量的に評価して最適な被覆条件を検討する。

1.6 研究推進

研究代表者の下で研究者間の連絡を密にして研究を推進する。

参考文献

- (1) Y. Fukaya, et al., Proposal of a plutonium burner system based on HTGR with high proliferation resistance, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.51 (2014).
- (2) S. Ueta, et al., Development of high temperature gas-cooled reactor (HTGR) fuel in Japan, Prog. Nucl. Energy, Vol.53 (2011).
- (3) K. Kuramoto, et al., Durability test on irradiated rock-like fuels, J. Nucl. Mater., Vol. 319 (2003).



安全性(燃料の製造品質・照射健全性)

図 1-1 被覆燃料粒子の研究開発における本研究の位置付け



図 1-2 従来の UO2被覆粒子燃料とセキュリティ強化型安全燃料

2. 業務計画

2.1 全体計画

業務百日			実		旅	B		⊟		程		
未伪识日	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
	月	月	月	月	月	月	月	月	月	月	月	月
1. セキュリティと安全の定量的な評価 1) 高温ガス炉における核セキュリティ評			F	PPの改	良の検	;討			-	ま	とめ	
2) 深層防護に基づく核セキュリティと原 子力安全の定量的評価	高 調 3	┃ 量ガス炉 査と輻射	戸のシ 討冷却 	│ ビアア [·] 評価	クシデ	 ントに	 関する 	►	核セ 起因	 キュリ 事象の	 ティ 検討 ∷	まとめ
2. セキュリティ強化型安全燃料の成立性評												
価と炉心核熱設計												
(再委託先:原子力機構)												
1)燃料成立性評価	_	Pu	0 ₂ -YSZ	被覆粒	□ [子燃料	の設計	↓ ↓仕様の))検討			t s ≥	ສ
2)炉心核熱設計	; ↓ ;	 プルト: 	 ニウム! 	│ 然焼高注	温ガス	 炉シス	テムの	成立性	検討	→	t ₹	່ ສ ►
3. プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価			解析	 条件の [;]	検討							
(再委託先:富士電機)					•			安全	解析の	実施		まとめ ▲── ▶
4. セキュリティ強化型安全燃料の試作と製	◀		滴ヿ	「原液訓	周整試 馬	食及び 第	製造		•			まとめ ◀─ ▶
(再委託先:原燃工)				模擬	波覆粒-	子試作	試験					
							樽	」 莫擬燃≭	 	パク ト言	式作試馴	∣ ¢ ⊢►
	•				1	検査技	術試験					•
		Co	0V\$7	描场网	当なる	0.7r(日本及	 ■=式 時余			ŧ	- x5
(再委託先:原子力機構)	-	00	02 132	1天1狀//	*****			夏司以向大	►		4	→
		•	∠rC 層	および	YSZ 境	界面の	材料特	i性デー	-タの取	ζ得 ┣──►		
6. 研究推進					TT	0 ¹⁴ 11 ¹	Trim=27. 1		14			
	◀					の進捗	唯認と	11111111111111111111111111111111111111	撄			┝

2.2 平成 29 年度の成果の目標及び業務の実施方法

本業務では、プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全性を向上するため、被覆粒子燃料の主な破損 原因である核分裂反応に伴う遊離酸素の分圧上昇を抑制するための研究開発、核熱設計、安全評 価、及び原子炉システムの成立性評価を実施している。また、ライフサイクルのすべての過程に おいて、セキュリティと安全性の両立について評価を実施している。以下に4ヵ年計画の4年目 である本年の成果の目標及び業務の実施方法を述べる。

2.2.1 セキュリティと安全の定量的な評価

(1) 高温ガス炉における核セキュリティ評価

平成28年度の検討に基づくPu燃料盗取シナリオに対し、核セキュリティ上の重要度評価を行う。さらに核セキュリティ信頼性向上に必要な物理的防護システムの改良の可能性を検討する。

(2) 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価

基礎的な試験及び解析により黒鉛の輻射伝熱特性を検討し、全ての強制冷却が喪失する事故時 の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対しても Pu 燃焼高温ガス炉の安全性 が高いことを定量的に示す。

2.2.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計

(1) 燃料成立性評価

平成 28 年度に実施した内圧破損を防ぐために必要な被覆層の厚さに関する検討の結果をベースにして、PuO₂-YSZ 被覆粒子燃料の設計仕様(燃料核直径、被覆層厚さ等)を決める。

(2) 炉心核熱設計

平成 28 年度に実施した核熱的成立性評価の結果及び安全評価の結果をベースにして、プルト ニウム燃焼高温ガス炉の仕様を決めるとともに、プルトニウム燃焼高温ガス炉の導入シナリオを 策定してシステムの成立性を評価する。

2.2.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価

炉心核熱設計により定められた原子炉/炉心諸元に対し、平成26年度に整備した崩壊熱評価手 法や平成27年度及び28年度に整備した安全解析手法を用いて安全解析を実施し、燃料温度と原 子炉圧力容器温度がいずれも安全上の判断基準を超えず、原子炉設計が成立していることを確認 する。

2.2.4 セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造検討

CeO₂-YSZ 模擬燃料球の製造試験を実施する。振動滴下-ゾルゾル法によりゲル球を製造することとし、昨年度までに実施した製造条件検討結果を基にして製造を行い ZrC 被覆試験用試料とする。

ZrC が被覆された CeO₂-YSZ 燃料核を用い、流動床-化学蒸着法により模擬燃料球へ SiC を含む 四重被覆を形成することとし、昨年度までに実施した製造条件検討結果を基に、温度、原料ガス 濃度・流量、処理時間等の製造条件を変更させて製造試験を行う。製造条件パラメータと物性(外 径寸法、真球度、被覆層厚さ、被覆密度等)の相関を取得し、最適な条件を選定する。

昨年度までに実施した調査検討結果を基に検査技術についても HTTR 用燃料の品質確認検査技術を基に開発を行い評価する。

ZrC 層を持つ YSZ 含有被覆粒子を成型・熱処理して高温ガス炉用模擬燃料コンパクトを試作する。試作した模擬燃料コンパクトの検査、物性値の測定を行い、被覆条件パラメータが YSZ を含む模擬燃料球へ及ぼす化学的影響を調べる。

2.2.5 ZrC 層被覆試験と特性評価

臭化物 ZrC 化学蒸着法に基づき、ZrC 被覆試験装置へ装荷した CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層 被覆試験を行い、CeO₂-YSZ 模擬燃料核 ZrC 層及びび CeO₂-YSZ 境界面の材料特性データ(厚さ、 密度、定比性など)を取得し、ZrC 化学蒸着条件との相関について検討する。

2.2.6 研究推進

定期的にプロジェクト会議を開催して情報交換と進捗確認を行うとともに、研究代表者の下で 研究者間の連絡を密にして研究を推進する。

3. 平成 29 年度の実施内容及び成果

3.1 セキュリティと安全の定量的な評価

3.1.1 高温ガス炉における核セキュリティ評価(H26~H29)

(1) 目的

本研究では、軽水炉プラントとは異なりプルトニウム(Pu)燃焼高温ガス炉が持つ特有の核 セキュリティ対策を検討し、その評価を行うことを最終的な目的とした。平成26年度は、国 内・国外の原子力発電所、核物質取扱施設、使用済み燃料再処理施設などにおいて、①発生し た核セキュリティ事例を調査し、②データベースサーバを構築して共同研究者間で核セキュリ ティ事例などのデータを共有できるようにした。平成27年度は、平成26年度に実施した核セ キュリティ事例調査を参考に、シナリオ作成に必要な、①脅威の抽出、②ターゲットセットの 抽出、③プロテクトセットの抽出、④シナリオの構築を行い、Pu燃料製造工程における悪意あ る行為者の行動シナリオの例を作成した。平成28年度は、平成27年度に抽出したPu核燃料製 造工程におけるターゲットセットを対象に、枢要区域同定(Vital Area Identification: VAI)解析を行って接近性・脆弱性に関する評価を行うととともに、ターゲットの魅力度、接近 性、脆弱性の指標評価換算式を提案し、各ターゲットの定性的リスク評価を行った。平成29年 度は、高温ガス炉プラントの核分裂生成物(Fission Product: FP)放出に繋がる可能性のある

妨害破壊行為の Fault Tree を作成し、VAI 解析を適用してターゲットセットを抽出した。

(2) 核セキュリティ事例の調査及びデータベースサーバの構築(H26)

Pu燃料製造施設やPu燃焼高温ガス炉が持つ特有の核セキュリティ対策を検討し、その評価 を行うためには、それらに特有の核セキュリティシナリオを抽出し、深層防護の考え方から施 設の安全性への影響を考慮し、抽出されたシナリオに沿って有効な核セキュリティ対策を検討 することが必要である。また、内部脅威者による妨害破壊行為を起因事象とするシビアアクシ デントの可能性についても検討し、本研究で対象とするセキュリティ強化型安全燃料のシビア アクシデントに対する燃料の耐性を評価することが必要である。これらを検討するために、過 去から現在まで、国内・国外の原子力発電所、核物質取扱施設、使用済み燃料再処理施設など においてどのような核セキュリティ事例が発生したかを調査した。その結果、妨害破壊行為よ りも盗取の事例が多く、かつ盗取発生の共通要因として、計量システムを操作(誤情報登録な ど)できる内部脅威者の関わる場合が多いことがわかった。これらの核セキュリティ事例のデ ータは、データベースサーバを構築して共同研究者間で共有できるようにした。

(3) Pu燃料製造工程を対象とした核セキュリティシナリオの作成(H27)

平成27年度は、平成26年度に実施した核セキュリティ事例調査を参考に、シナリオ作成に必要な、①脅威の抽出、②ターゲットセット(Target Set)の抽出、③プロテクトセット(Protect Set)の抽出、④シナリオの構築を行い、Pu燃料製造工程における悪意ある行為者の行動シナリオの例を作成した。Pu燃焼高温ガス炉においては燃料製造工程におけるPu燃料盗取が最大の脅威と考えられる。このことからPu燃料製造工程案を設計し、10のターゲットセットと各々のターゲットセットに対するプロテクトセットを提案するとともに、2つのプロテクトセットについて敵対者の行動シナリオ案を作成した。

(4) Pu燃料製造工程のVAI解析(H28)

平成28年度は、平成27年度に作成したPu燃料製造工程におけるターゲットセットを対象に、 VAI 解析を行って接近性・脆弱性に関する評価を行った。この評価結果を用いた、特定の建屋 扉からの入域には入域検査装置を経由させる改造、及び各建屋を直接接続させて建屋間配管と 建屋間扉を廃する改造に基づき、Pu燃料製造工程のセキュリティ性向上のために物理的防護シ ステム再設計を行った。

(5) Pu燃焼高温ガス炉のVAI解析 (H29)

平成29年度は、高温ガス炉プラントのFP放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為のFault Tr eeを作成し、VAI解析を適用してターゲットセットを抽出した。なお、FP源としては被覆燃料粒 子の破損により漏洩するFP、及びヘリウム純化系に蓄積されるFPを想定した。また、燃料母材 に化学的に不活性なYSZ(Yttria Stabilized Zirconia)が用いられ、使用済み燃料 はターゲットとしての魅力度が低いことから、その盗取は脅威から除外した。

核セキュリティの重要性は IAEA によっても提唱されており、2011 年には従来の勧告の改訂 版である「核物質及び原子力施設の物理的防護に関する核セキュリティ勧告

(INFCIRC/255/Rev. 5)⁽¹⁾」や、「放射性物質及び関連施設に関する核セキュリティ勧告⁽²⁾」が 発行されている。それらの下位にあるのが"ガイドライン"であり、"勧告"を実施するため の具体的な取り組み方法が述べられている。原子力施設の VAI 手法は、テクニカルガイドライ ン(TG)のひとつ:

IAEA Nuclear Security Series No.16, "Identification of Vital Areas at Nuclear

<u>Facilities"</u>

の中で解説されている。この TG は、妨害破壊行為者が想定以上の FP 放出を起こさせるシナリ オを実現させるために原子力施設に侵入して機器等を損傷させる場合、最小限で何処を破壊す れば想定以上の放射性物質の放出に至らしめることができるかの分析手法を示している。この 手法を、高温ガス炉プラントの FP 放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為に対して適用して解 析する。

① Pu 燃焼高温ガス炉の模擬プラント図

図 3.1.1-1 に、今回作成した Pu 燃焼高温ガス炉の模擬プラント図を示す。軽水炉と異なり機 器構造物としての格納容器は無いが、図中の赤線の区域が格納バウンダリとしての機能を担っ ている。黒太線で区切られた各区域には格納バウンダリ内については C で始まる番号(赤字) を、格納バウンダリ外については B で始まる番号(青字)、屋外について B で始まる番号(緑 字)を付けている。またこれらとは別に、Pu 燃焼高温ガス炉の各機器構造物には A~T のアル ファベット記号(黒字)を与えている。それらの記号と機器名称及び区域(=機器設置エリ ア)の対応表を表 3.1.1-1 に示す。

勿妨害破壊行為の手段

今回の検討では、妨害破壊行為の手段として下記の5ケースを考慮した。なお、ここで 「(多量)、(少量)」とは、混入された液体爆発物の機器・構造物への到達量が多く爆発力 が直接的に燃料被覆を破損せしめるほどである場合を「(多量)」、液体爆発物の到達量が燃 料被覆を破損せしめるほど多量ではない場合を「(少量)」としている。

- ml: 爆発物の設置
- m2: He タンクへの液体爆発物混入(少量)→空気混入
- m3: He タンクへの液体爆発物混入(多量)→直接爆発力
- m4: 空気冷却系への液体爆発物混入
- m5: 圧力放出系スタックへの液体爆発物混入

m1 は、表 3.1.1-1 に挙げた各機器・構造物に時限爆弾などの爆発物を設置し、その爆発力により機器・構造物を機能喪失させることを想定している。

m2 及びm3 はヘリウム供給系(記号 P)のヘリウムタンクに混入させた液体爆発物がヘリウム 純化系に達し、その爆発力により1次冷却系にダメージを与えることを想定している。液体爆 発物の混入量が少量のm2の場合には原子炉容器には液体爆発物の爆発力が到達せず、よって核 燃料に爆発力が影響を与えないために燃料被覆破損には至らず、1次冷却系バウンダリのみが 喪失する。

一方、m3 では液体爆発物の混入量が多いために爆発力が核燃料に直接伝わり、燃料被覆破損 に至る場合を想定している。

m4 は、空気冷却スタックからの液体爆発物混入による空気冷却系のバウンダリ破損を、m5 は 圧力放出スタックからの液体爆発物混入による圧力放出系のバウンダリ破損を想定している。

これらの 5 つの妨害破壊行為手段に関するアクセスエリア、アクセス機器、及び非破壊機器 を表 3.1.1-2 に示す。

③ Fault Tree の作成

以上の条件のもとに、Pu 燃焼高温ガス炉の FP 放出に至る可能性のある妨害破壊行為の Fault Tree を図 3.1.1-2 のように作成した。図中にあるように、FP 放出に至るシナリオは大きく分け て 3 種類があり、それぞれにおいて 3~4 層の障壁が全て破られない限り FP 放出に至らない。3 種類の FP 放出シナリオと関連する障壁について以下に述べる。

第1シナリオ

第1障壁:「燃料被覆+黒鉛のバウンダリ(#1)」の破損

これが破損することにより被覆燃料中に生成された FP が 1 次冷却系中に放出される。

第2障壁:「1次系圧力バウンダリ(#2)」の破損

これが破損することで1次冷却系に放出された FP が格納バウンダリに放出される。 第3 障壁:「格納バウンダリ及び建屋(第4 障壁として)(#3)」または「空気冷却系

3.1.1-3

(#4)」または「圧力放出系(#5)」の破損

いずれも、破損することで格納バウンダリに放出された FP が大気中に放出される。

<u>第2シナリオ</u>

第1障壁:「燃料被覆+黒鉛のバウンダリ(#1)」の破損

これが破損することにより被覆燃料中に生成された FP が 1 次冷却系中に放出される。

第 2~3 障壁: 「1 次系の圧力放出系(#6)」の破損

この設計では、1 次系のタービン(記号 K)より1 次系圧力放出系配管(記号 A)、SR 弁(記号 B)、破裂板(記号 C)を通って圧力放出スタック(記号 R)まで、1 次冷却系 の圧力を放出させるための系統がある。すなわち、SR 弁(記号 B)が第2 障壁、破裂 板(記号 C)が第3 障壁となっている。この2 つが共に破られることにより、1 次冷却 系中に放出された FP が大気中に放出される。

<u>第3シナリオ</u>

ここでは、He純化系に蓄積されている FPの放出事象を想定している。

第1障壁:「He 純化系(#9)」の破損

2 系統ある純化 He 弁・配管(記号及び D~G)の片方が破壊されることで、He 純化 系に堆積されていた FP が He 供給系へ放出される。

第2障壁:「He 供給系(#8)」の破損

さらに He 供給系である He タンク(記号 P)を破壊することで、He 供給系内の FP が建屋内に放出される。

第3障壁:「建屋(#7)」の破損

以上の3つの主要シナリオの8つの障壁#1~#9について、アクセスエリアと妨害破壊行為に よる破損の実現性についても追記した表を表3.1.1-3に示す。

④ 集合理論における計算法

VAI 解析で用いる集合理論演算則を(式1)~(式8)に示す。

補集合: $\overline{A^*B} = \overline{A} + \overline{B}$, (式 1)

 $\overline{A+B} = \overline{A} * \overline{B}. \tag{$\vec{x} 2$}$

- 結合則: $(A^*B)^*C = A^*(B^*C)$, (式3)
 - $(A+B) + C = A + (B+C), \qquad (\exists 4)$
- 吸収: $(A^*B) + A = A$, (式 5)
 - $(A+B)^*A = A, \qquad ({\rm it}\, 6)$

さらに建屋壁を破壊することにより、建屋内に放出されていた FP が大気中に放出 される。

分配:
$$(A+B)*C = (A*C) + (B*C)$$
, (式7)

$$(A*B) + C = (A+C)*(B+C)$$
 (式 8)

なお、用いた記号の意味は下記のとおりである。

記号	操作
+	OR
*	AND

⑤ 枢要区域同定(VAI 解析)

頂上事象である FP の大気放出を FPR とし、③の 3 つのシナリオをそれぞれ S1、S2、S3 とすると、

FPR = S1+S2+S3

- S1 = #1*#2*(#3+#4+#5)
- S2 = #1*#6
- S3 = #7*#8*#9

#1 = C5m1 + B7m3

$$\begin{split} \#2 &= C6m1 + B7m3 + C4m1 + B7m3 + C4m1 + B7m3 + C5m1 + B7m3 + C6m1 + B7m3 + C8m1 + B7m3 \\ &+ C10m1 + B7m3 + C11m1 + B7m3 + C12m1 + B7m3 + C18m1 + B7m3 + C8m1 + B7m2 + B7m3 \\ &= C4m1 + C5m1 + C6m1 + C8m1 + C10m1 + C11m1 + C12m1 + C18m1 + B7m2 + B7m3 \\ \#3 &= B15m1*B14m1 \\ \#4 &= C5m1 + B16m4 \end{split}$$

- #5 = B17m1 + B9m5
- #6 = (B1m1+B9m5) * (B1m1+B9m5) = B1m1 + B9m5
- #7 = B14m1
- #8 = B7m1 + B7m2 + B7m3
- #9 = (B3m1+B7m2) * (B3m1+B7m2) + (B2m1+B7m2) * (B2m1+B7m2)
 - =B2m1+B3m1+B7m2

となる。なお、爆発物による破壊はその他機器に至る場合もあるが、VAI 解析では FP 放出に至 らないための必要最小限の防護区域を抽出することを目的とし、このためにそれぞれが単独で FP 放出の障壁となり得る#1, #2, #3+#4+#5, #6, #7, #8, #9 の独立結合(and)とした。これ らの補集合を取ると、

 $\underline{FPR} = \underline{S1} * \underline{S2} * \underline{S3}$

 $\underline{\#1} = \underline{C5m1} \times \underline{B7m3}$

- $\underline{\#2} = \underline{C4m1} \times \underline{C5m1} \times \underline{C6m1} \times \underline{C8m1} \times \underline{C10m1} \times \underline{C11m1} \times \underline{C12m1} \times \underline{C18m1} \times \underline{B7m2} \times \underline{B7m3}$
- =XXX*<u>C5m1</u>*<u>B7m3</u> とおく
- $\underline{\#3} = \underline{B15m1} + \underline{B14m1}$
- $\underline{\#4} = \underline{C5m1} * \underline{B16m4}$
- $\underline{\#5} = \underline{B17m1} * \underline{B9m5}$
- $\underline{\#6} = \underline{B1m1} * \underline{B9m5}$
- $\underline{\#7} = \underline{B14m1}$
- $\underline{\#8} = \underline{B7m1} * \underline{B7m2} * \underline{B7m3}$
- $\underline{\#9} = \underline{B2m1} * \underline{B3m1} * \underline{B7m2}$

$$\underline{S1} = \underline{\#1 \#2 \#4 \#4 \#5} = \underline{\#1} + \underline{\#2} + (\underline{\#3} \#4 \#4 \#5)$$

- $= \underline{C5m1} \times \underline{B7m3} + \underline{XXX} \times \underline{C5m1} \times \underline{B7m3} + (\underline{B15m1} + \underline{B14m1}) \times \underline{C5m1} \times \underline{B16m4} \times \underline{B17m1} \times \underline{B9m5}$
- $= \underline{\text{C5m1}}^{*}\underline{\text{B7m3}} + (\underline{\text{B15m1}} + \underline{\text{B14m1}}) \underbrace{\text{*}\underline{\text{C5m1}}^{*}\underline{\text{B16m4}}^{*}\underline{\text{B17m1}}^{*}\underline{\text{B9m5}} \qquad (\leftarrow \overrightarrow{\texttt{x}}(5) \downarrow \vartheta)$
- $\underline{S2} = \underline{\#1 \# 6} = \underline{\#1} + \underline{\#6}$

 $= \underline{C5m1} \underline{*B7m3} + \underline{B1m1} \underline{*B9m5}$

- $\underline{S3} = \underline{\#7*\#8*\#9} = \underline{\#7} + \underline{\#8} + \underline{\#9}$
 - $=\underline{B14m1} + \underline{B7m1} \underline{*B7m2} \underline{*B7m3} + \underline{B2m1} \underline{*B3m1} \underline{*B7m2}$

$\underline{FPR} = \underline{S1} * \underline{S2} * \underline{S3}$

となる。なお、<u>S1、S2、S3</u>の各項は#1~#9 の障壁の防護に成功することに相当する。すなわち、 3 つのシナリオの全てにおいて、いずれかの障壁の防護に成功することで FP の大気放出を防ぐ ことに成功する。

つぎに、これらを展開してターゲットセットを求める。

- $\underline{FPR} = \underline{C5m1} * \underline{B7m3} * ((\underline{B15m1} + \underline{B14m1}) * \underline{C5m1} * \underline{B16m4} * \underline{B17m1} * \underline{B9m5} + \underline{B1m1} * \underline{B9m5}) \\ * (\underline{B14m1} + \underline{B7m1} * \underline{B7m2} * \underline{B7m3} + \underline{B2m1} * \underline{B3m1} * \underline{B7m2})$
 - $= \underline{C5m1} * \underline{B7m3} * ((\underline{B15m1} + \underline{B14m1}) * \underline{C5m1} * \underline{B16m4} * \underline{B17m1} * \underline{B17m4} + \underline{B1m1}) * \underline{B9m5} \\ * (\underline{B14m1} + \underline{B7m1} * \underline{B7m2} + \underline{B2m1} * \underline{B3m1} * \underline{B7m2})$
 - $= \underline{C5m1} * \underline{B7m3} * \underline{B9m5} * \underline{B14m1} * \underline{B15m1} * \underline{B16m4} * \underline{B17m1} * \underline{B17m4}$
 - $+ \underline{\text{C5m1}} * \underline{\text{B7m1}} * \underline{\text{B7m2}} * \underline{\text{B7m3}} * \underline{\text{B9m5}} * \underline{\text{B15m1}} * \underline{\text{B16m4}} * \underline{\text{B17m1}} * \underline{\text{B17m4}}$
 - $+ \underline{\text{C5m1}} * \underline{\text{B2m1}} * \underline{\text{B3m1}} * \underline{\text{B7m2}} * \underline{\text{B7m3}} * \underline{\text{B9m5}} * \underline{\text{B15m1}} * \underline{\text{B16m4}} * \underline{\text{B17m1}} * \underline{\text{B17m4}}$
 - $+\underline{C5m1} * \underline{B7m3} * \underline{B9m5} * \underline{B14m1} * \underline{B16m4} * \underline{B17m1} * \underline{B17m4}$

 $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B14} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$

- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B7} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- + C5 * B7 * B9 * B15 * B16 * B17
- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- + <u>C5</u> * <u>B7</u> * <u>B9</u> * <u>B14</u> * <u>B16</u> * <u>B17</u> (←式(5)により消去)
- = <u>C5</u> * <u>B7</u> * <u>B14</u>
- $+ \underline{C5} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17} * \underline{B1} * \underline{B9} * (\underline{B7} + \underline{B14})$
- $+ \underline{C5} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17} * \underline{C5} * \underline{B7} * (\underline{B7} + \underline{B14})$
- $+ \underline{C5} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17} * \underline{B1} * \underline{B9} * (\underline{B7} + \underline{B14})$
- $+ \underline{C5} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17} * \underline{C5} * \underline{B7} * (\underline{B7} + \underline{B14})$
- = C5 * B7 * (C5 * B7 + B1*B9) * (B7 + B14)

- $= \underline{C5} * (\underline{B7} + \underline{B9*B14*B16*B17} + \underline{B9*B15*B16*B17}) * (\underline{C5*B7} + \underline{B1*B9}) * (\underline{B7} + \underline{B14})$
- $\underline{\text{FPR}}' = \underline{S1}' * \underline{S2}' * \underline{S3}'$
- $\underline{S2'} = \underline{C5} * \underline{B7} + \underline{B1} * \underline{B9}$

=<u>B7</u> + <u>B14</u>

= C5*B7 + (B15+B14)*C5*B16*B17*B9

 $= \underline{C5}^* (\underline{B7} + \underline{B9}^*\underline{B14}^*\underline{B16}^*\underline{B17} + \underline{B9}^*\underline{B15}^*\underline{B16}^*\underline{B17})$

S3' = B14 + B7*B7*B7 + B2*B3*B7 = B14 + B7 + B2*B3*B7

- $\underline{S1}' = \underline{C5}*\underline{B7} + \underline{C4}*\underline{C5}*\underline{C6}*\underline{C8}*\underline{C10}*\underline{C11}*\underline{C12}*\underline{C18}*\underline{B7} + (\underline{B15}+\underline{B14})*\underline{C5}*\underline{B16}*\underline{B17}*\underline{B9}$

- 以上は、エリアと妨害破壊行為手段を共に考慮した場合のターゲットセットであった。ここ ではさらに、妨害破壊行為の手段 m1~m5 を消去したエリアのみに関する VAI 式を求める。
- 以上のように、妨害破壊行為の手段を考慮した場合には12のターゲットセットが得られた。こ れを表 3.1.1-4 にまとめる。
- + C5m1 * B1m1 * B7m3 * B9m5 * B14m1 * B16m4 * B17m1 * B17m4 + C5m1 * B1m1 * B7m1 * B7m2 * B7m3 * B9m5 *B16m4 * B17m1 * B17m4 + <u>C5m1</u> * <u>B1m1</u> * <u>B2m1</u> * <u>B3m1</u> *<u>B7m2</u> * <u>B7m3</u> * <u>B9m5</u> * <u>B16m4</u> *<u>B17m1</u> * <u>B17m4</u>
- + C5m1 * B1m1 * B7m1 * B7m2 * B7m3 * B9m5 * B16m4* B17m1*B17m4 $+ \underline{\text{C5m1}} * \underline{\text{B1m1}} * \underline{\text{B2m1}} * \underline{\text{B3m1}} * \underline{\text{B7m2}} * \underline{\text{B7m3}} * \underline{\text{B9m5}} * \underline{\text{B16m4}} * \underline{\text{B17m1}} * \underline{\text{B17m4}}$

 $+ \underline{C5m1} * \underline{B7m1} * \underline{B7m2} * \underline{B7m3} * \underline{B9m5} * \underline{B14m1} * \underline{B16m4} * \underline{B17m1} * \underline{B17m4}$

+ C5m1 * B2m1 * B3m1 * B7m2 * B7m3 * B9m5 * B14m1 * B16m4 * B17m1 * B17m4

- + C5m1 * B1m1 * B7m3 * B9m5 * B16m4* B17m1 * B17m4

= <u>C5</u> * <u>B7</u> * <u>B14</u>

- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * \underline{B7} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B7} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B14} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $= \underline{C5} * \underline{B7} * \underline{B14} + \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * (\underline{B7} + \underline{B1} * \underline{B7} + \underline{B1} * \underline{B14}) * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$

 $= \underline{C5} * \underline{B7} * \underline{B14} + \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17} \\ + \underline{C5} * (\underline{B7} + \underline{B1} * \underline{B7} + \underline{B1} * \underline{B14}) * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17} \qquad (\leftarrow \overrightarrow{x}(5) \downarrow \vartheta)$

= <u>C5</u> * <u>B7</u> * <u>B14</u>

- $+ \underline{C5} * \underline{B1} * \underline{B9} * \underline{B14} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * \underline{B7} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$
- $+ \underline{C5} * \underline{B14} * \underline{B9} * \underline{B15} * \underline{B16} * \underline{B17}$

以上より、妨害破壊行為の手段を考慮しない VAI 解析ではターゲットセットは表 3.1.1-5 に 示す4セットとなる。

(6) まとめ

平成 29 年度は、高温ガス炉プラントの FP 放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為の Fault Tree を作成し、VAI 解析を適用してターゲットセットを抽出した。なお、FP 源としては Pu 燃 料からの被膜破損により漏洩する FP、及びヘリウム純化系に蓄積された FP を想定した。

燃料母材が化学的に不活性な YSZ のため、使用済み燃料はターゲットとしての魅力度が低い ことから、その盗取は脅威から除外した。

手段も考慮した VAI 解析では、3 つのシナリオの全てにおいて、1~4 層のいずれかの障壁の 防護に成功することで FP の大気放出を防げることが分かった。

手段を考慮した VAI 解析では、得られた防御すべきエリアと妨害破壊行為手段のターゲット セットは 12 セットであった。

手段を考慮せずエリアへの侵入のみを考慮した VAI 解析では、得られた防御すべきエリアの ターゲットセットは4 セットであった。

参考文献

- IAEA Nuclear Security Series No.16, "Identification of Vital Areas at Nuclear Facilities"
- (2) IAEA Nuclear Security Series No. 13, "Nuclear Security Recommendations on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (INFCIRC/225/Revision 5).

記号	機器名称	機器設置エリア
Α	SR配管	В 1
В	SR弁	B 1
С	破裂板	B 1
D	純化He配管(B)	B 2
E	純化He弁(B)	B 2
F	純化He配管(A)	В 3
G	純化He弁(A)	В 3
Н	主ヘリウム配管	C10~C12,C18
I	空気冷却系配管	C5
J	燃料被覆	原子炉容器内
К	タービン	C6
L	原子炉容器	C5
М	格納容器	C4~C6,C8,C10~C12,C18
N	熱交換器	C4
0	建屋	B14
Р	ヘリウム供給系	В7
Q	ヘリウム純化系	C8
R	圧力放出スタック	B9
S	空気冷却系スタック	B16
Т	圧力放出系 安全弁	B17

表 3.1.1-1 FT の各記号に対応する機器名称と設置エリア

表 3.1.1-2 妨害破壊行為の手段

記号	侵入エリア	アクセス機器	手段	被破壞機器		
m1	各エリア	各機器	爆弾設置	各機器		
m2	B7	ヘリウム供給系 (P)	液体爆発物混入(少量) →1 次冷却系のバウンダリ破損	ヘリウム供給系(P), ヘリウム純化系(Q)		
m3	B7	ヘリウム供給系 (P)	液体爆発物混入(多量) →炉心への直接爆発力及び1次 冷却系のバウンダリ破損	燃料被膜(J), 1 次冷却系全体 (D,E,F,G,H,J,K,L,N,P,Q)		
m4	B16	空気冷却系スタック (S)	液体爆発物混入 →空気冷却系配管破損	空気冷却系配管(I)		
m5	B9,B17	圧力放出系スタック (R)	液体爆発物混入 →SR 弁及び破裂板の破損、 または圧力放出系安全弁破損	SR 弁(B), 破裂板(C), 圧力放出系安全弁(T)		

No.	名称	内容	アクセスエリア	実現性
#1	燃料被覆、黒鉛 集合体破壊によ る 1st バウンダ リ喪失	• CV 内に侵入して圧力容器に爆弾 設置(難)、または He タンク経 由で液体爆発物の多量混入 (難)により、燃料被覆を破損	C5(炉室) U B7 (He タンク室)	葉推
#2	1 次冷却系機器 の破壊による 2nd バウンダリ 喪失	 CV内に侵入して1次冷却系機器のいずれかに爆弾設置(難)、またはHeタンク経由で液体爆発物の多量混入(難)により、1次冷却系機器を破壊 	格納バウンダリ∪ B7(He タンク室)	難
#3	CV と建屋の破 壊による 3rd 及 び 4th バウンダ リ喪失	 ・建屋内の爆弾設置による CV の 破棄 ・かつ、建屋内外への爆弾設置に よる建屋壁の破壊 	B15(格納バウンダ リ壁)∩B14(建 屋)	易
#4	空冷冷却系配管 の破壊による 3rd バウンダリ 喪失	 CV内に侵入して空冷盤に爆弾設置(難)、 または空冷系スタックに液体爆発物混入により空冷盤を破壊(易) 	格納バウンダリ内 ∪B16(空冷スタッ ク)	難易
#5	CV 圧力放出系 の破壊による 3rd バウンダリ 喪失	 建屋内にて爆弾設置による圧力 放出系の SR 弁の破壊(易) または、圧力放出系スタックか らの液体爆発物混入による圧力 放出系の SR 弁の破壊(易) 	B17∩B9	易
#6	 次冷却系の圧 力放出系の破壊 による 2nd バウ ンダリ喪失 	 ・建屋内にて爆弾設置による圧力 放出系機器の破壊(易) ・または、圧力放出系スタックからの液体爆発物混入による圧力 放出系機器の破壊(易) 	B9∪B17	易易
#7	建屋の破壊によ る 4th バウンダ リ喪失	 建屋内外への爆弾設置による建 屋壁の破壊(易) 	B14(建屋)	易
#8	He 供給系に放 出された FP の 建屋内への放出	建屋内で爆弾設置による He 供給系 機器の破壊(易) または He タンクへの液体爆発物混 入(少量)による He 供給系機器の 破壊(易)	B7	易
#9	He 純化系に蓄 積された FP の He 供給系への 放出	建屋内で爆弾設置による He 純化系 機器の破壊(易) または He タンクへの液体爆発物混 入(少量)による He 純化系の破壊 (易)	B2∪B3	易

表 3.1.1-3 Fault Tree のイベント#1~#8の概要

	防止すべき妨害破壊行為								
	m1	m2	m3	m4	m5				
	爆発物の設置	He タンク	He タンク	空気冷却スタ	圧力放出系				
		への液体	への液体爆	ックの液体爆	スタックの				
		爆発物混	発物 混入	発物混入	液体爆発物				
TS		入(少量)	(多量)		混入				
1	・原子炉室(C5),	—	He タンク	空気冷却系ス	圧力放出系				
	・外壁(B14),		室 (B7)	タック(B16),	スタック				
	・格納バウンダリ(B15),			圧力放出系配	(B9)				
	・圧力放出系配管室(上)(B17)			管室(B17)					
2	• C5, B15, B17	B7	B7	B16, B17	B9				
	・He タンク室 (B7)								
3	• C5, B15, B17	B7	B7	B16, B17	B9				
	・He 純化系配管室 A(B2),								
	・He 純化系配管室 B(B3),								
4	C5, B14, B17	—	B7	B16, B17	B9				
5	C5, B7, B14, B17	B7	B7	B17	B9				
6	• C5, B14, B17	B7	B7	B16,B17	B9				
	・He 純化系配管室 A(B2),								
	・He 純化系配管室 B(B3),								
7	• C5, B17	—	B7	B16,B17	B9				
	・圧力放出系配管室(中)(B1)								
8	C5, B1, B7, B17	B7	B7	B16,B17	B9				
9	C5, B1, B2, B3, B17	B7	B7	B16,B17	B9				
10	C5, B1, B14, B17	—	B7	B16,B17	B9				
11	C5, B1, B7, B17	B7	B7	B16,B17	B9				
12	C5, B1, B2, B3, B17	B7	B7	B16,B17	B9				

表 3.1.1-4 妨害破壊行為の手段を考慮した場合の、防止すべき 12 のターゲットセット
表 3.1.1-5	妨害破壊行為の手段を考慮しない場	湯合の、防止すべき4つのターゲットセット
-----------	------------------	-----------------------------

TS	格納バウンダリ内	屋内	屋外	屋外
1	C5	B7	B14	・ 燃料被覆の破損防止
				・ ヘリウムタンクへの接近防止
				・ 外壁への接近防止
2	C5	B1,	B9, B14,	・ 燃料被覆の破損防止
		B17	B16	・ 圧力放出系配管室(中)への接近防止
				・ 圧力放出系配管室(上)への接近防止
				・ 圧力放出スタックへの接近防止
				・ 外壁への接近防止
				・ 空気冷却系スタックへの接近防止
3	C5	B7,	B9, B16	・ 燃料被覆の破損防止
		B15,		・ ヘリウムタンクへの接近防止
		B17		・ 格納バウンダリへの接近防止
				・ 圧力放出系配管室(上)への接近防止
				・ 圧力放出スタックへの接近防止
				・ 空気冷却系スタックへの接近防止
4	C5	B15,	B9, B14,	・ 燃料被覆の破損防止
		B17	B16	・ 格納バウンダリへの接近防止
				・ 圧力放出系配管室(上)への接近防止
				・ 圧力放出スタックへの接近防止
				・ 外壁への接近防止
				・ 空気冷却系スタックへの接近防止



図 3.1.1-1 Pu 燃焼高温ガス炉の模擬プラント図 (詳細は機微情報に該当するためデフォルメされた簡易図面)



図 3.1.1-2 高温ガス炉プラントの FP 放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為の FT

3.1.2 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価(H26~H29)

(1) 目的

本研究では、プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全性向上を目的として、燃料の処分過程を含む ライフサイクルの全ての過程におけるセキュリティと安全性の両立について評価を行う。

平成26年度は、高温ガス炉において、過去に実施されていた確率論的リスク評価 (Probabilistic Safety Assessment: PRA)を調査検討するとともに、福島第一原子力発電所事 故調査報告書を調査し、高温ガス炉に適用すべき教訓を検討した。また、海外におけるプルトニ ウム燃焼高温ガス炉研究について調査した。平成27年度及び平成28年度はは平成26年度に調 査した結果をもとに、高温ガス炉におけるシビアアクシデント事象について検討を進めた。特 に、核セキュリティで弱点となる可能性が高いと考えられる、炉心の輻射伝熱冷却性能に着目し て検討を行った。平成29年度は、基礎的な試験及び解析により黒鉛の輻射伝熱特性を検討し、 全ての強制冷却が 喪失する事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対 してもPu燃焼高温ガス炉の安全性が高いことを定量的に示した。さらに、最終年度のとりまと めとして、3.1.1と合わせて、ライフサイクル全体を見通したセキュリティと安全性の両立につ いて評価を行った。

(2) 高温ガス炉の PRA の調査検討(H26~H27)

高温ガス炉において、過去に実施されていた PRA を調査検討するとともに、福島第一原子力発 電所事故調査報告書を調査し、高温ガス炉に適用すべき教訓を検討した。また、海外におけるプ ルトニウム燃焼高温ガス炉研究について調査した。

主な調査検討内容を次に示す。

- ① 米国では高温ガス炉へ PRA を適用するための白書が纏められている。高温ガス炉においては、 本質的かつ受動的な安全特性のため、軽水炉における炉心損傷に相当するプラント状態が存 在せず、レベル 3 相当の PRA を行う。PRA の方法は軽水炉と同様で、イベントシーケンスの 作成と定量化を行い、事故の頻度と放射能影響を評価する。
- ② 米国、ドイツで高温ガス炉概念設計の PRA が行われ、リスクはきわめて低いが、その中で敷 地外放射能影響のある事象は水浸入事故、空気浸入事故である。外部ハザードに対しても評 価されており、考慮すべき事象が見出された。
- ③ PRA においては、起因事象について、プラントの熱流体変化を解析し、事象の進展を評価する。輻射と対流熱伝達の組み合わせである高温ガス炉の炉心の除熱に関して、商用の数値流体力学解析コードの輻射計算モジュールを調査した。
- ④ 福島第一原子力発電所事故調査報告書を調査し、多くの教訓の中から本研究に関連したキー ワードに着目し、高温ガス炉に適用すべき教訓を抽出した。さまざまな外的事象に対し PRA を活用したリスク評価、安全と核セキュリティの総合的な対策等が提言されている。
- ⑤ 海外において余剰核兵器のプルトニウム燃焼炉として開発が進められた超高温ガス炉研究について調査した。また、米国 UC Berkeley 安教授より、再処理後のプルトニウム処分やバックエンドの観点から高温ガス炉の位置づけについて講演頂くとともに、本研究について、レビュー頂いた。
- ⑥ 米国で行われたモジュール型高温ガス炉 (Modular High Temperature Gas-cooled Reactor:

MHTGR)のPRA について詳細を調査し、セキュリティと安全性のリスク要因を検討した。起因 事象源として、クリティカルシステム故障、補助システム故障、構造的な故障及び外部事象 から7つの起因事象が選定され、各起因事象について論理的なイベンツリーを作成し、環境 への放射性物質の放出有無や放出の状況により収束状態を区分してその発生頻度が定量評価 された。各放出カテゴリーについて、炉心・プラントの熱流動解析により事象の進展が評価 され、個人被ばく実効線量とその発生頻度からリスクが算出・評価された。その結果 NRC の 安全目標を十分な余裕を持って満たすとともに、非居住区域境界における防護対策指針 (Protective Action Guide: PAG)線量以下であることが示された。

- ⑦ この PRA 結果について、放射能放出による公衆へのリスクへの寄与が大きい因子を同定し、 PRA の活用に有用な定量的情報を得るため、FV (Fusel1-Vesely)重要度及びリスク増加価値 (RAW: Risk Achievement Worth)を算出した。FV 重要度は一次系リークが最大であり、公衆 リスクの寄与の大半を占めている。RAWでは、一次系リーク、SG (Steam Generator)の中規 模リークが必ず起こるとした場合に、リスクが増大することを示している。すなわち、セキ ュリティに対する脅威となる可能性がある。
- ⑧ また、セキュリティの観点からは、発生確率が小さくとも万一発生した場合の影響が大きな 事象に注目することも重要である。実効線量の大きな事象は、全ての強制冷却が喪失し炉心 冷却は輻射伝熱が主となる事象(DC-1、DC-2、WC-1)であることが分かる。これらの事象で は、炉心が高温状態で保持されるため、蒸気により一次系に沈着した放射能の気化・循環、 高温の加水分解による初期破損燃料から燃料インベントリーの一部放出、酸化により黒鉛に 溶出した FP 放出等に至り、環境に放出される。

(3) 炉心の輻射伝熱冷却特性の検討(H27~H28)

核セキュリティで弱点となる可能性が高いと考えられる炉心の輻射伝熱冷却性能に着目し、基礎的な実験及び解析による検討を行った。グラファイト試験片をタングステンヒータで加熱し、 温度上昇過程及び定常状態における試験片温度を計測した。また、グラファイト試験片部分に空 気を注入した際の温度変化について計測し、空気注入時にわずかながら試験片温度が上昇するこ とが確認された。

高温ガス炉用微粒等方性黒鉛 IG-110 の酸化前及び酸化後の輻射率を 550℃から 1000℃の範囲 で測定した。550℃から 1000℃の範囲で測定した黒鉛の輻射率は温度に対し線形で、温度ととも に低下する傾向があり、酸化した方が酸化前より高い値となることが分かった。測定データを 1500℃に外挿しても 0.8 以上であり、高温ガス炉の設計・安全評価で用いられている輻射率 0.8 は安全側の値であると言える。

同心円上に配置した2つの円筒状の黒鉛試験片を用いて、内側の黒鉛試験片を加熱し、2つの 円筒間の隙間に空気や蒸気を注入し、内側及び外側の黒鉛試験片の温度を測定することにより、 空気・蒸気侵入時の過渡温度変化を計測する実験装置を考案した。この実験装置により、空気及 び蒸気侵入による過渡温度変化を測定し、空気侵入時は黒鉛の酸化発熱により試験片温度が上昇 する一方、蒸気侵入時には黒鉛の酸化吸熱により温度が低下することを確認した。空気及び蒸気 侵入による過渡温度変化時のヒートバランスを検討し、化学反応熱、熱伝導・輻射・対流による 放熱の寄与を評価した。空気侵入の方が炉心温度にとってより厳しい熱負荷となることから、酸 素濃度をパラメータとして過渡温度変動データ及び黒鉛の質量減少データを取得した。原子炉過 渡事象解析コード RELAP5 に黒鉛の酸化反応モデルを導入し、長時間の黒鉛酸化減量及び 600~ 1030℃の温度範囲で黒鉛と酸素の化学反応により生成されるガス成分割合について既存の実験デ ータとの検証を行い、空気侵入時の酸化挙動を安全側に評価できることがわかった。酸素濃度の 異なるガス侵入実験を RELAP5 でシミュレーションし、RELAP5 は実験データとよい一致を示し、 実験データよりも保守的な酸化量を示すことがわかった。

(4) 黒鉛の輻射伝熱特性と事故時の炉心冷却性能評価(H29)

① 検討内容

前年度では、高温ガス炉におけるシビアアクシデント事象について検討を進めた。インサイダ ーを考慮した場合、核セキュリティで弱点となる可能性が高いと考えられる、炉心の輻射伝熱冷 却性能に対する評価を行った。具体的には、輻射率の測定を行い、現行の0.8 が安全側であるこ とを確認するとともに、空気侵入過渡実験装置を考案し、酸素濃度をパラメータとして黒鉛の過 渡温度変動データ及び質量減少データを取得した。RELAP5 に黒鉛の酸化反応モデルを導入し既 存の実験データとの検証を行い、酸化挙動を安全側に評価できることを確認した後、酸素濃度の 異なるガス侵入実験を RELAP5 でシミュレーションし、酸化量の実験データを保守的に予測する ことができた。

平成 29 年度は、前年度に引き続き基礎的な試験により試験温度及び酸素濃度を変えたガス注 入実験を行い過渡温度変動データ及び黒鉛の質量減少データを取得するとともに、前年度開発し た黒鉛の酸化反応モデルを導入した RELAP5 コードで、実験モデル体系について過渡温度変化の シミュレーションを行い、実験データとの比較評価を行った。さらに、全ての強制冷却が喪失す る事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対しても Pu 燃焼高温ガス炉 の安全性が高いことを定量的に示した。

② 実験評価

1) 過渡温度変化測定システム及び実験条件

本研究で用いた試験体を図 3.1.2-1 に示す。同心円上に配置した 2 つの円筒状の黒鉛試験片を 用いて、内側の黒鉛試験片を加熱し、内側及び外側の黒鉛試験片の温度を測定することにより、 内側の黒鉛試験片から外側の黒鉛試験片への輻射伝熱を評価することを想定したものである。試 験片はステンレス鋼製の試験容器に収納し、内部を不活性ガス (アルゴンガス)雰囲気として試験 片の酸化を防止するとともに、内側/外側黒鉛の間隙部に所定の酸素濃度のガスを注入するライ ンを設けている。加熱は、直流電源(定格電圧 8 V、電流 500 A)によるジュール加熱で行った。 黒鉛試験片は高温ガス炉用微粒等方性黒鉛 IG-110 を加工して製作し、図 3.1.2-1 に示すよう に、内側黒鉛(発熱部)については、中心部及び上端から 5 mm、外側黒鉛についても中心部及 び上端から 5 mm の位置に温度測定用孔を設け、K タイプ熱電対を差込み温度変化を測定した。

実験条件を表 3.1.2-1 に示す。実験は内側試験片を直流電源で加熱し温度分布が所定の定常温度に達した後、所定の酸素濃度に設定したガスを 5 分間注入し過渡温度変化を記録した。ガス注入前の定常温度は 950℃と 1150℃の 2 条件で行い、酸素濃度は 21% (空気)、15、10、5、0%

(窒素)と変えて行った。試験前後に内側試験片の質量を測定し、酸化による質量減少を算出した。

2) 酸素濃度を変えた注入実験の過渡温度変化結果

図 3.1.2-2、図 3.1.2-3 に酸素濃度を変えた注入実験の内側試験片温度変化、外側試験片の温 度変化を示す。左側の図が 950℃、右側が 1150℃における注入試験結果を示す。これらの図から 酸素注入により試験片温度が変化し、その変化は酸素濃度に依存していることがわかる。内側試 験片中央及び外側試験片中央の温度変化量と酸素濃度との関係を表 3.1.2-2 に示す。試験温度 950℃、1150℃いずれにおいても、酸素濃度が 21、15%においては注入後に温度が上昇している が、それより低い酸素濃度では注入後に温度は低下している。これは、酸素注入による黒鉛の酸 化発熱とガスの強制対流による除熱効果に依存していることを示している。

3) 酸素濃度を変えた注入実験後の内側試験片の質量減少量

図 3.1.2-4 に酸素濃度を変えた注入実験後の内側試験片の質量減少量を示す。酸素濃度が高い ほど、また試験温度が高いほど質量減少量が大きい結果を示している。

③ 酸素注入時の過渡温度変化の解析評価

1) 解析方法

黒鉛の空気注入時の過渡温度変化を解析評価するため、昨年度は原子炉の過渡事象解析に広く 用いられている RELAP5 コードの改良を行い、黒鉛と酸素の化学反応により生成されるガス成分 割合について既存の実験データとの検証を行った。その上で本研究で得られた酸素濃度の異なる ガス侵入実験を RELAP5 でシミュレーションし、酸化による黒鉛の質量減量の RELAP5 解析値は実 験データとよい一致を示し、実験データよりも保守的な傾向を示すことがわかった。

本年度は、この改良 RELAP5 により酸素注入時の黒鉛の過渡温度変化を解析評価した。本研究 で用いた図 3.1.2-1 に示す試験体では、酸素注入実験における黒鉛の過渡温度変化挙動は、酸素 注入における全ての熱の出入りを考慮したヒートバランスで生じている。ここで発熱源は内側黒 鉛からのジュール発熱、酸素と黒鉛の化学反応発熱であり、吸熱源はガス流の対流熱伝達による 除熱、黒鉛境界からの熱伝導による放熱、黒鉛表面からの輻射による放熱である。空気注入時の 過渡温度変化について、これらの熱量について昨年度報告書で考察したが、ピンから上下電極へ の熱伝導による放熱量(ヒートロス)が非常に大きいことがわかる。この放熱量を精度良く推定 し、酸素注入時の過渡温度変化を評価するために、図 3.1.2-5 に示すように次の手順でシニュレ ーションを行った。

- ・ステップ1;3次元数値流体力学解析コードStar CCM+を用いて、黒鉛境界からの熱伝導による放熱量を仮定して窒素注入実験体系の定常温度分布を求め、実測データと 比較することで黒鉛境界からの熱伝導による放熱量を逆算する。
- ・ステップ2; Star CCM+で求めた黒鉛境界からの熱伝導による放熱量を RELAP5 モデルではヒートシンクとして入力し、酸素注入時の化学反応発熱を含めた過渡温度変化を求める。

2) Star CCM+による定常温度分布解析と熱伝導放熱量の推定

図 3.1.2-6 に実験体系の Star CCM+解析モデルを示す。試験体を構成する内側黒鉛、外側黒 鉛、上下セラミックプレート、銅ピン、及び内側外側黒鉛の間の流体をメッシュ分割しモデル化 した。固体要素は 116908 ケ、流体要素は 71100 ケである。表 3.1.2-3 に Star CCM+の 950℃定常 温度分布解析の解析条件を示す。境界条件は実験と同じく 1 Lr/min の窒素ガスが内側外側黒鉛 の間隙を流れ、外側黒鉛及び上下セラミックプレートの外面はアルゴンガス雰囲気で放熱するも のとした。銅ピンからの熱伝導放熱量をパラメータとして温度分布解析を行い、実測温度と比較 した。

図 3.1.2-7 に Star CCM+による温度分布解析結果と熱電対位置の温度を示す。熱電対位置にお ける Star CCM+の解析値と実測温度の比較を表 3.1.2-4 に示すが、両者はよく合致しているとい える。このようにして黒鉛境界からの熱伝導による放熱量とヒートバランスを求めた。その結果 を図 3.1.2-8 の Star CCM+解析結果による内側黒鉛のヒートバランス、図 3.1.2-9 の Star CCM+ 解析結果による外側黒鉛のヒートバランスに示す。

3) RELAP5 による酸素注入時の過渡温度変化解析

図 3.1.2-10 に酸素注入実験体系の RELAP5 解析モデルを示す。内側黒鉛、外側黒鉛、上下セラ ミックプレート、試験容器と、内側外側黒鉛間の酸素流及び試験容器内のアルゴンガス流をモデ ル化した。内側黒鉛、外側黒鉛、上下セラミックプレート間及び外側黒鉛と試験容器間には輻射 伝熱を考慮した。黒鉛の輻射率は昨年度の実測結果により 0.832 を用いた。表 3.1.2-5 に RELAP5 解析の境界条件を示す。*を付した数値は、前述した Star CCM+の解析結果から得られた ものである。

まず、化学反応発熱のない窒素注入時の過渡温度変化を解析した。図 3.1.2-11 に窒素注入時の RELAP5 解析結果と実測温度変化の比較を示す。実験と同様に、窒素注入の強制冷却効果による内側黒鉛の温度低下が RELAP5 のシミュレーションで示されている。ただ温度低下量は実測値が 10~15℃であるのに対し、RELAP5 では約8℃と小さい。これは、注入流量が少なく代表長さも小さいため解析上は低レイノルズ数の熱伝達係数となっているが、実験では間隙部への入口の流路拡大による乱れや渦等により熱伝達が促進されているためと考えられる。

図 3.1.2-12 に濃度の異なる酸素注入時の RELAP5 解析結果と実測温度変化の比較を示す。酸素 注入により高温の内側黒鉛との酸化発熱が生じ窒素注入と異なり温度が上昇する傾向となり、全 般的には実験の温度変化と同様な傾向となっている。温度上昇は酸素濃度が高いほど大きく、濃 度低下とともに小さくなっている。酸素濃度 21、15%では実験、解析とも温度は上昇している が、10%では実験値は温度低下しているのに解析では上昇する結果となっている。酸素濃度 21、15、10、5%いずれにおいても解析値の方が実験値よりも高い温度となっている。この原因 としては、窒素注入時と同じく実験の方が流入ガスの熱伝達率が大きく対流冷却効果が大きいこ と、次の酸化減量データで明らかなように解析の方が黒鉛の酸化(発熱)を大きめに評価してい ることがあげられる。また、実験では発熱量の増加に伴い銅ピンからの熱伝導放熱も増えている が、解析では一定としていることも寄与している。

これより黒鉛の酸化発熱を組み込んだ RELAP5 コードは、酸素注入時の過渡温度上昇をやや大きめに保守的に評価していると言える。

4) RELAP5 による酸素注入後の黒鉛質量減少量解析

図 3.1.2-13 に酸素注入後の黒鉛質量減少量の RELAP5 解析結果と実測値の比較を示す。酸素濃度、温度を変えたときの黒鉛質量減少量の RELAP5 解析結果は、実験データとよく傾向が合致している。酸素濃度が21、15%と高いケースでは解析値の方が実験値よりも大きくなっているが、酸素濃度が低いケースでは解析値の方が小さくなる傾向を示している。解析と実験の誤差は6.3~20.7%の範囲となっており、黒鉛の酸化発熱を組み込んだ RELAP5 コードは、酸素注入による黒鉛酸化減量をやや大きめに保守的に評価していると言える。

④ 事故時の炉心冷却性能評価と安全性評価

1) 評価対象

本研究では、高温ガス炉におけるシビアアクシデント事象について米国で行われた MHTGR の PRA について詳細を調査し、セキュリティと安全性のリスク要因を検討した。

この PRA 結果について、放射能放出による公衆へのリスクへの寄与が大きい因子を同定し、 PRA の活用に有用な定量的情報を得るため、FV (Fusel1-Vesely)重要度及びリスク増加価値

(Risk Achievement Worth: RAW)を算出した。FV 重要度は一次系リークが最大であり、公衆リ スクの寄与の大半を占めている。RAW では、一次系リーク、SG の中規模リークが必ず起こるとし た場合に、リスクが増大することを示している。すなわち、セキュリティに対する脅威となる可 能性がある。

また、セキュリティの観点からは、発生確率が小さくとも万一発生した場合の影響(実効線 量)が大きな事象に注目することも重要である。実効線量の大きな事象は、全ての強制冷却が喪 失し炉心冷却は輻射伝熱が主となる事象である。これらの事象では、炉心が高温状態で保持され るため、一次系に沈着した放射能の気化・循環、高温の加水分解による初期破損燃料から燃料イ ンベントリーの一部放出、酸化により黒鉛に溶出した FP 放出等に至り、環境に放出される。

全ての強制冷却が喪失する事故の中で厳しくなる典型的な事象は「減圧事故」である。減圧事 故は一次冷却系の配管破断等により発生し、一次冷却材が破断口より噴出し一次冷却材圧力が急 激に減少する事象である。このため全ての強制冷却が喪失し炉心の冷却能力が低下して燃料の温 度が上昇するとともに、破断部から侵入する空気により炉心の黒鉛が酸化される可能性がある。

減圧事故時の原子炉温度挙動については、すでに本研究の平成26年度に予備解析を行い、燃料最高温度の時間変化が示されている(平成27年度報告書3.3)。この解析においては、空気侵入による黒鉛の酸化発熱や輻射率の変化は含まれていないため、基礎的な試験及び解析により得られた黒鉛の輻射伝熱特性を元に、全ての強制冷却が喪失する減圧事故時の炉心冷却性能を評価する。

2) 評価方法

本研究平成27年度報告書では、予備解析を行い燃料最高温度の時間変化が図3.1.2-14のよう に示されている。この解析においては、炉心の水平断面のカラム配置を2次元円筒体系にモデル 化して、図3.1.2-15に示す崩壊熱に対する原子炉各部の温度挙動を求めている。

全ての強制冷却が喪失する減圧事故時の炉心冷却性能への空気侵入による黒鉛の酸化発熱や輻射率の影響について、次のように評価する。燃料最高温度の時間変化を示した図 3.1.2-14 にお

いて、出力 350 MWth で燃料温度が最も高くなるスクラム後 100 hr に空気が侵入した場合の燃料 温度の変化を評価する。

具体的には、図 3.1.2-16 に示す燃料ブロックにおいて、発熱量と除熱量のつり合いから、燃料温度を求める。この時発熱量としては、崩壊熱及び、空気侵入に伴う酸化反応を評価する。前項で評価したように、酸化反応による発熱量は、表面積に比例するが、ここでは簡単のため、崩壊熱に対する割合として定義する。前項の評価結果からは、発熱量は最大 10%程度を見込めばよいと考えられる。一方、除熱量については、前項の評価結果からは、輻射伝熱の他に、対流及び熱伝導による除熱が考えられる。実験装置においては、熱伝導による除熱が無視できなかったが、実機においては、熱伝導除熱は燃料ブロックの構造に大きく依存する。ここでは、保守的に考えて、熱伝導による除熱を考慮しない。また、前項によれば、酸素分圧が小さく、酸化反応があまり大きくない条件においては、空気侵入による対流除熱が大きく効いて、温度が下がる現象もみられている。しかしながら、熱伝導と同様に、ここでは保守性を確保するため、対流除熱も考慮しない事とする。空気侵入は、酸化反応としての発熱のみを考慮し、侵入した空気による除熱を考慮しないことで保守性を確保する。実際には、空気による除熱が無視できないため、本評価は保守的な評価となっている。

以上をまとめると、熱バランスとして発熱と除熱のつり合いを下記の様に考える。

 $Q_{source} = Q_{sink}$ $Q_{source} = Q_{decay} + Q_{oxy}$ $Q_{sink} = Q_{rad} + Q_{conv} + Q_{cond}$ $Q_{oxy} = kQ_{decay}$ $Q_{conv} = Q_{cond} = 0$ $Q_{rad} = A\varepsilon(T_s^4 - T_{\infty}^4)$

ここで、 T_s は燃料ブロック表面の代表温度とし、 T_∞ は原子炉容器の代表温度とする。Aは、表面 積やビューファクターなどを含む定数と考える。初期条件として、 $T_s = 1527^\circ \mathbb{C}$ 、 $T_\infty = 227^\circ \mathbb{C}$ 、 $\varepsilon=0.8$ として上記式を解く事によって、燃料ブロック表面の代表温度を評価する。

3) 解析結果

図 3.1.2-17 に、横軸に輻射率εをとり、原子炉容器代表温度T_∞をパラメータとして、燃料ブロ ック表面の代表温度T_sを求めた結果を示す。実験においては、酸化する事によって、輻射率は 0.8 よりも大きくなる。ここでは、輻射率が 0.7 に減少する場合についても考慮した。原子炉容 器には、受動的安全設備として自然対流による炉壁冷却システムが考えられているため、温度は あまり高くなることは想定しにくいが、ここでは、仮想的に 800℃まで温度上昇が行われたと想 定して計算を行っている。炉壁温度がたとえ 800℃になったとしても、1600℃以下が保たれてお り、テロにより想定される、万一の厳しい事故状態に対しても十分な余裕を持っていることがわ かる。なお、もし輻射率が減少したような条件においても、炉壁温度が 600℃以下であれば、 1600℃以下が担保される。温度が高くなることによって輻射伝熱が大きくなるために、十分な安 全性が確保されている。 図 3.1.2-18 には、炉壁温度を 600℃と厳しい条件を想定した場合の、酸化発熱による発熱増 分を考慮した計算結果を載せる。ここでは、崩壊熱に対する割合で示しているが、非常に保守的 に考えた 10%の場合においても、1600℃を超えることはない。なお、10%の酸化発熱量は、大き な発熱反応である。前項の実験では酸化発熱による温度上昇は、1150℃から 1160℃とわずかに 10℃程度であり、発熱量としても十分に小さい。本検討においては、10%の発熱量で 50℃程度の 温度上昇が計算されており、十分に保守的であると考えられる。

以上の検討の結果、テロにより最も厳しいと考えられる、全流量喪失事象に加えて、さらに空 気侵入による酸化発熱反応を考慮したとしても、温度上昇は高々50℃程度となり、燃料の損傷が 発生すると考えられる1800℃に比較して十分に小さいことがわかる。なお、テロリズムの想定 は、安全設計ではなく、セキュリティ事象としての想定であり、十分な余裕をもって安全が確保 されることを示せば十分である。保守的解析条件においては、1600℃を超える計算結果も得られ ているが、実際の燃料破損温度である2000℃に対して余裕を持った1800℃に対しても、十分な 余裕が確保されており、高温ガス炉はセキュリティ事象に対しても高い安全性及びセキュリティ 耐性がある事を示すことができた。

4) まとめ

全ての強制冷却が喪失する減圧事故時の炉心冷却性能への空気侵入による黒鉛の酸化発熱や輻射率の影響について評価した。その結果、保守的な評価により、1600℃程度までしか温度が上昇しない事を示すことができた。

これより、核セキュリティ起因の事象に対しても Pu 燃焼高温ガス炉の安全性が高いことが定 量的に示された。

(5) ライフサイクル全体を見通したセキュリティと安全性の両立についての評価(H29)

検討内容

本研究の平成26年度報告書において、講演会「今こそ高温ガス炉」(「高温ガス炉プラント研究会」第9回定期講演会)でUC Berkeley 安俊弘教授に講演いただいた「高温ガス炉の役割と戦略」の内容を報告した。その要点は、Pu 燃焼炉としての高温ガス炉(High Temperature Gascooled Reactor: HTGR)では(1)²³⁹Puを高燃焼することで、使用済みTRISO(Tri-isotropic) 燃料に残存するPuの量は少なくなり、(2)グラファイトTRISO燃料体は多様な地層条件におい て高度の頑健性を示し、ベントナイトを主体とする地層処分人工バリアシステムに比べて温度制 約条件が緩和され、これらからプルトニウム処分やバックエンドの観点からも有望なオプション となりうるというものであった。

核セキュリティについては、過去の事例データを参考に高温ガス炉に関わる核セキュリティ脅 威が相対的に高い Pu 核燃料製造工程における悪意ある行為者の行動シナリオの例を作成し、シナ リオに対抗するための物理的防護システムの設計・評価と定性的リスク評価を行った。

安全性については、高温ガス炉において過去に実施されていた PRA を詳細に調査検討し、本質 的かつ受動的な安全特性のため軽水炉における炉心損傷状態は存在せず、レベル3相当の PRA を 行い敷地外放射能影響が許容値を十分下回ると評価されていることを確認した。さらに核セキュ リティで弱点となる可能性が高いと考えられる炉心の輻射伝熱冷却性能に着目し、基礎的な実験 及び解析による検討を行い、空気侵入事故時の黒鉛酸化反応を評価できる RELAP5 解析コードを開発した。

このように、これまで Pu 核燃料製造工程から高温ガス炉の運転中について核セキュリティと安 全の評価を行ってきたが、最終年度として燃料の処分過程におけるセキュリティと安全性の検討 を行い、ライフサイクルのすべての過程におけるセキュリティと安全性の両立について評価を行 う。

② 検討方法

核拡散リスクの高い²³⁹Puの半減期は約24000年であり、数万年という長期間にわたる核不拡 散性評価を行うことが重要である。このような長期的な核不拡散性を評価する場合、半永久的に 核拡散に対する障壁となり得る物質障壁に着目することが有効である。物質障壁とは、放射線量 等の物質特性がもたらす核拡散に対する障壁である。また、より客観的な結果を得るために定量 的な評価を行うことも重要である。

このため、(1)既存研究で考案された手法をベースにしつつ、物質障壁の観点から Pu 蓄積を回 避するための処分方法の核不拡散性を定量的、長期的に評価する手法を構築し、(2)構築した手 法を用いて、種々の Pu 処分方法の核拡散抵抗性を比較評価し、高温ガス炉の位置付けを考察し た田中の論文⁽¹⁾を引用し、その要点を述べる。

③ 物質障壁に関する既存研究

Mladineo ら⁽²⁾は、「核兵器製造に対する核物質の望ましさ」を表す指標として、「物質魅力 度」を提唱した。物質魅力度は、核物質が敵対者にとってどの程度魅力的であるかを示し、物質 魅力度が高いほど物質障壁が小さい。

Bathke ら⁽³⁾は、処理済の金属状態の核物質が持つ物質魅力度を計算する手法として、式(1) に示す Figure Of Merit (FOM) を考案した。

$$FOM = 1 - \log_{10} \left(\frac{M}{800} + \frac{Mh}{4500} + \frac{MS}{6.8 \times 10^6} + \left(\frac{M}{50} \right) \cdot \left(\frac{D}{500} \right)^{\frac{1}{\log_{10} 2}} \right)$$
(1)

M は核物質の裸の球状臨界質量(kg)、h は核物質の発熱量(W/kg)、D は 0.2M(kg)の球状核物質の 表面から 1m の地点における放射線量(rad/h)、S は自発核分裂中性子発生率(n/s/kg)を表す。

FOM は、DOE Graded Safeguards Table⁽⁴⁾に対応するように設計されており、FOM の値と DOE Table における物質魅力度カテゴリの関係性を表 3.1.2-6 に示す。Bathke らは、FOM の値が 1 以上である核物質は、実効性のある核兵器の設計や製造に用いることが可能であるとしている。

Bathke らの FOM は、多数の専門家によるレビューを受けており、信頼性、有用性ともに高い と考えられるが、Wayne ら⁽⁵⁾は、物質魅力度は「核拡散過程」に沿って評価されるべきだと主張 した。核拡散過程とは、Cleary ら⁽⁶⁾によって提唱された概念で、核拡散過程は、核物質の転用 / 盗取、核物質の輸送、核物質の転換、核兵器の製造の4段階に渡るとして段階毎に核物質の物 質魅力度を評価することを提唱した。

④ 評価手法

使用済燃料とその中に含まれる Pu の核不拡散性を長期的に評価するために、本研究では、核 物質の質や量に関するパラメータの経時変化を求め、物質魅力度を時間の関数として得た。ま た、Bathke らの FOM 数式では、臨界質量など物質の質的要素のみが評価されており、物質の存 在量は考慮されていない。しかし、Pu 存在量は核不拡散性の観点から極めて重要な要素である ため、本研究では Pu 存在量という視点を統合した評価手法を構築した。

1) 経時変化を考慮した物質魅力度

核拡散過程の各段階における物質魅力度の評価式として、核物質入手段階については FOM_{AC}、 核物質処理段階については FOM_P、核兵器製造段階については FOM_wと定義し、それらをもとに総 合的な物質魅力度 FOM_{TOTAL}を求めた。その後、Pu 存在量に関する評価関数を Q_{Pu}と定義し、 FOM_{TOTAL}と Q_{Pu}をもとに Pu 消費シナリオの核不拡散性を Pu の質と量の観点から評価する指標 MNPI を定義した。

核物質の入手段階では、Puを含む使用済燃料を入手する際に伴う困難性を評価する。困難性 が大きいほど核物質の入手段階における物質魅力度は低い。文献調査によって考慮すべき要素を 抽出し、FOM_{AC}を式(2)のように定義した。M_{AC}は裸の臨界質量に相当する Pu を含む核物質の重量 (kg)、D_{AC}はM_{AC}(kg)の核物質から生じる放射線量(rad/h)である。

$$FOM_{AC} = 1 - \log_{10} \left(\frac{M_{AC}}{1000} + \left(\frac{D_{AC}}{500} \right)^{1/\log_{10} 2} \right)$$
(2)

核物質の処理段階では、入手した使用済燃料を処理し、純粋な金属 Pu を得る際の困難性を評価する。困難性が大きいほど核物質の処理段階における物質魅力度は低い。文献調査によって考慮すべき要素を抽出し、FOM_Pを式(3)のように定義した。E_Pは Pu を含む核物質の化学形態に関するパラメータであり、表 3.1.2-7 のように値を決定する。D_Pは M_{AC} (kg)の核物質から生じる放射線量(rad/h)である。

$$FOM_P = 1 - \log_{10} \left(10^{1-E_P} + \left(\frac{D_P}{500} \right)^{1/\log_{10} 2} \right)$$
(3)

核兵器製造段階では、純粋な金属 Pu から核兵器を製造する際に伴う困難性を評価する。困難 性が大きいほど核兵器製造段階における物質魅力度が低い。

Bathke らの FOM 数式をベースに、Choi ら⁽⁷⁾、久野ら⁽⁸⁾の指摘をもとに FOM_Wを式(4)のように 定義した。 M_W は裸の球状臨界質量(kg)、 h_W は核物質の発熱量(W/kg)、 S_W は自発核分裂中性子発生 率(n/s/kg)である。Pr [M_WS_W / 7.6×10⁵]はTrinityデバイスをもとにしたフィズルの発生確 率⁽⁷⁾である。D_Wは 0.2M_W(kg)の核物質から生じる放射線量(rad/h)である。

$$FOM_W = 1 - \log_{10} \left(\frac{M_W}{800} + \frac{M_W h_W}{4500} + Pr \left[\frac{M_W S_W}{7.6 \times 10^5} \right] + \left(\frac{M_W}{50} \right) \cdot \left(\frac{D_W}{500} \right)^{1/\log_{10} 2} \right)$$
(4)

核拡散過程全体を通した物質魅力度 FOM_{TOTAL}は核拡散過程の各段階における物質魅力度の積、あるいはそれに準ずる形で表現されるべきである。また、FOM_{TOTAL}についても、Bathke らの FOM

3. 1. 2 - 10

と同様に、2以上で物質魅力度が高い、0以下で物質魅力度が低いことを表すべきである。以上の議論から、FOM_{TOTOAL}を式(5)のように定義した。

$$FOM_{TOTAL} = \log_{10} \left[\sqrt[3]{10^{FOM_{AC}} \cdot 10^{FOM_{P}} \cdot 10^{FOM_{W}}} \right]$$
(5)

本研究で構築した物質魅力度評価手法の妥当性を検証するために、金属 Pu、使用済燃料中の Pu、MOX (Mixed oxide) 燃料中の Pu について、DOE Table での魅力度レベルと FOM_{TOTAL}による評 価値を、表1をもとに比較した。その結果、上記で挙げた全ての核物質について FOM_{TOTAL}の値と DOE Table における評価がよく一致し、本研究で構築した物質魅力度評価手法の妥当性が確認さ れた。

2) Pu存在量に関する評価

Pu 存在量評価式 Q_{Pu}を式(6)のように定義した。N_{Pu}は日本が有する 152 t の使用済燃料中の Pu⁽⁹⁾を各 Pu 消費シナリオに沿って地層処分した場合に、地層処分される Pu から製造可能な核兵 器数を示す。N_{Pu, Present}は、現時点で先述の 152 t の Pu から製造可能な核兵器数を示す。製造可 能な核兵器数は Pu の質量を Pu の臨界質量で割ることによって求めた。

$$Q_{Pu} = \frac{N_{Pu}}{N_{Pu,Present}} \tag{6}$$

3) 経時変化を考慮した物質魅力度と Pu 存在量の統合評価指標

FOM_{TOTAL}と Q_{Pu}の積を用いて、MNPI という指標を式(7)のように定義した。MNPI の値が大きいほ ど、その時点の使用済燃料に含まれる Pu の核拡散リスクが高いことを表す。MNPI の値自体が特 定の意味を持つわけではなく、MNPI は値の大小を通した比較に適した指標である。

$$MNPI = Q_{Pu} \times FOM_{TOTAL} [if: FOM_{TOTAL} > 0]$$

= 0 [if: FOM_{TOTAL} \le 0] (7)

⑤ 評価結果

1) 評価対象と計算方法

高温ガス炉との比較評価を行うため、(1)加圧水型軽水炉(PWR)におけるウラン燃料の燃焼から 生じる使用済 PWR 燃料を直接地層処分する「直接処分シナリオ」、(2)使用済 PWR 燃料を再処理 し、抽出 Pu から製造した MOX 燃料を PWR で燃焼させる「軽水炉 MOX シナリオ」、(3)使用済 PWR 燃料を再処理し、抽出 Pu から製造した TRISO 燃料を高温ガス炉で燃焼させる「HTGR シナリ オ」、(4)使用済 PWR 燃料を再処理し、抽出 Pu から製造した ROX (Rock-like oxide) 燃料を PWR で燃焼させる「軽水炉 ROX シナリオ」の4シナリオを評価対象とした。

PWR におけるウラン燃料、MOX 燃料の燃焼計算は ORIGEN2 コード⁽¹⁰⁾、ROX 燃料、TRISO 燃料の 燃焼計算は SERPENT コード⁽¹¹⁾を用いた。臨界質量及び放射線量は MCNP6 コード⁽¹²⁾を用いて計算 した。発熱量及び自発核分裂中性子発生率は ORIGEN2 コードを用いて算出した。

2) 評価結果

図 3.1.2-19 に FOM_{TOTAL}の計算結果を、図 3.1.2-20 に取り出し後 500 年以降の FOM_{TOTAL}の推移を 示す。図 3.1.2-19 が示すように、全シナリオで取り出し直後 FOM_{TOTAL}の値は負であり、使用済燃 料中の Pu の物質魅力度は非常に低い。これは、使用済燃料中の多量の FP によって、使用済燃料 の放射線レベルが非常に高く、FOM_{AC}、FOM_Pの値が非常に小さいためである。しかし、取り出し後 の時間の経過とともに FP が崩壊し、使用済燃料の放射線レベルが低下するため、FOM_{TOTAL}は上昇 し、取り出し後およそ数百年経過した後には FOM_{TOTAL}は正の値をとる。また、全てのシナリオで FOM_{TOTAL}は 2000 年から 20000 年にかけて最大値をとる。

図 3.1.2-20 が示すように、FP が消滅した取り出し後 500 年から 50000 年にかけては、軽水炉 MOX シナリオ、直接処分シナリオ、軽水炉 ROX シナリオ、HTGR シナリオの順に FOM_{TOTAL}の値が大き い。特に、軽水炉 MOX シナリオと直接処分シナリオでは、FOM_{TOTAL}の値が 1 を上回り、物質魅力度 が中程度となる期間が存在する。取り出し後 50 万年以降は、²³⁹Pu の崩壊により使用済燃料中の Pu 濃度が減少し、入手すべき使用済燃料の重量が増加するため、全シナリオで FOM_{AC}が低下する。

図 3.1.2-21 に Q_{Pu}の計算結果を示す。図 3.1.2-21 から、Q_{Pu}は HTGR シナリオ、軽水炉 ROX シ ナリオ、軽水炉 MOX シナリオ、直接処分シナリオの順に小さい。最終的に地層処分される使用済 燃料の燃焼度が大きいシナリオほど、Q_{Pu}の値は小さい。

図 3.1.2-22 に、MNPI の計算結果を示す。取り出し後 100~500 年以降には MNPI の値は上昇 し、取り出し後 1000~2000 年にかけて最大値をとる。この期間における Pu 同位体組成は半減期 の長い²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴²Pu の割合が高く、Pu 量、Q_{Pu}の減少がゆるやかな一方で、FOM_{TOTAL}の値は著 しく増加するためである。しかし、取り出し後 5000 年以降にかけては、半減期が 6561 年である ²⁴⁰Pu の崩壊により、Q_{Pu}の値が著しく低下し、MNPI は減少する。さらに、取り出し後 20000 年以 降は、半減期が 24000 年である²³⁹Pu の崩壊によって Q_{Pu}の値が低下すること、FOM_{TOTAL}の値が低下 することの 2 点によって MNPI はさらに低下していく。

取り出し後数百年以降に見られる MNPI の上昇は、使用済燃料中の Pu の核拡散リスクの上昇を 意味する「Pu 鉱山」の出現を示している。MNPI の値は直接処分シナリオ、軽水炉 MOX シナリ オ、軽水炉 ROX シナリオ、HTGR シナリオの順に大きい。再処理を伴わないために Q_{Pu}の値が大き く、FOM_{TOTAL}の値も比較的大きな直接処分シナリオにおける MNPI の値が特に大きい。

3) 考察

Pu 消費シナリオ間の FOM_{TOTAL}、Q_{Pu}、MNPI の差異を分析し、Pu 消費シナリオの核拡散抵抗性を 高めるために重要な要素を考察した。FOM_{TOTAL}の値が最大となる取り出し後 2000 年から 20000 年 における FOM_{TOTAL}の値を低下させるために、入手すべき使用済燃料の重量 M_{AC}を増加させる、E_Pの 値を小さくする、つまり使用済燃料の化学形態を Pu 抽出が困難なものにする、Pu から生じる自 発核分裂中性子発生量 M_WS_Wを増加させることが重要であると分かった。M_{AC}を増加させるために は、初期装荷燃料の Pu 濃度を低くする、あるいは燃焼度を大きくし、Pu 燃焼量を増加させるこ とが有効である。E_Pを小さくするためには、酸やアルカリに強い耐性を持つ不活性母材を伴う燃 料を用いるべきである。M_WS_Wを増加させるためには、燃焼度を高くし、Pu 同位体組成における ²⁴⁰Pu、²⁴²Pu の割合を増加させることが重要である。また、Q_{Pu}の値を減少させるために、燃焼度 を高くとり、Pu 燃焼量を多くすること、同位体組成における²⁴⁰Pu や²⁴²Pu の割合を増加させ、Pu の臨界質量を大きくすることが重要である。

以上より、Pu 消費シナリオを物質障壁の観点から核拡散抵抗性を高めるために、初期装荷燃料のPu 濃度を低くする、燃焼度を大きくする、Pu 抽出が困難である不活性母材等を用いた燃料 形態を採用することが重要である。この点において、TRIS0 燃料を非常に高い燃焼度で燃焼させる HTGR シナリオは有効なオプションである。

(6) まとめ

本研究では、プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全性向上を目的として、燃料の処分過程を含む ライフサイクルの全ての過程におけるセキュリティと安全性の両立について評価を行う。

平成 29 年度は、基礎的な試験及び解析により黒鉛の輻射伝熱特性を検討し、全ての強制冷却 が喪失する事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対しても Pu 燃焼高 温ガス炉の安全性が高いことを定量的に示した。さらに、最終年度のとりまとめとして、3.1.1 と合わせて、ライフサイクル全体を見通したセキュリティと安全性の両立について評価を行っ た。

主な検討内容を次に示す。

- 同心円上に配置した2つの円筒状の黒鉛試験片を用いて、酸素濃度をパラメータとして空気・窒素混合ガス侵入時の黒鉛の過渡温度変動データ及び質量減少データを取得した。
- ② 黒鉛の酸化反応モデルを導入した RELAP5 で酸素濃度の異なるガス侵入実験をシミュレーションし、黒鉛の過渡温度変化及び酸化による黒鉛の質量減量を実験値と比較評価した。いずれについても RELAP5 解析値は実験データとよい一致を示し、実験データよりもやや保守的な傾向を示すことがわかった。
- ③ 全ての強制冷却が喪失する事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に 対してもPu燃焼高温ガス炉の安全性が高いことを定量的に示した。具体的には、冷却喪失 後に、空気侵入による酸化発熱が加わった場合を想定し、酸化発熱量及び輻射率をパラメー タとして評価した結果、1600℃を大きく超えないことを示した。通常の冷却喪失事故に加え て、より厳しくなる酸化反応を加えたセキュリティ起因の事故であっても、炉心損傷には大 きな余裕がある事がわかった。
- ④ Pu燃焼高温ガス炉のライフサイクル全体を見通したセキュリティと安全性の両立について評価するため、数万年という長期間にわたる核不拡散性評価を行った。長期的な核不拡散性を評価するため、半永久的に核拡散に対する障壁となり得る物質障壁に着目し、核物質の質や量に関するパラメータの経時変化を求め、物質魅力度を時間の関数として評価するとともに、Pu存在量の経時変化を統合した評価手法を構築した。
- ⑤ Pu 燃焼高温ガス炉との比較評価を行うため、使用済 PWR 燃料の「直接処分シナリオ」、「軽水炉 MOX シナリオ」、「軽水炉 ROX シナリオ」の4シナリオを評価対象とした。核拡散過程全体を通した物質魅力度と Pu 存在量の積で示される統合評価値は、取り出し後数百年以降に4シナリオともに上昇し、使用済燃料中の Pu の核拡散リスクの上昇を意味するが、HTGR シナリオは他のケースに比べリスクははるかに小さいことが定量的に示された。これにより Pu

燃焼炉としての HTGR は、プルトニウム処分やバックエンドの観点からも有望なオプション となりうることが示された。

参考文献

- (1) 田中毅、物質魅力度指標を用いた Pu 消費シナリオの核不拡散性評価、東京大学修士論文 (2015)
- (2) S.V. Mladineo et al., "Guidelines for the performance of nonproliferation assessments", PNNL-14294 (2003)
- (3) Charles G. Bathke et al, "The attractiveness of materials in advanced nuclear fuel cycles for various proliferation and theft scenarios", Nuclear Technology 179 (2012).
- (4) "Nuclear Materials Control and Accountability", DOE-STD-1194-2011
- (5) Wayne E. K. et al, "The application of a figure of merit for nuclear explosive utility as a metric for material attractiveness in a nuclear material theft scenario", Nuclear Engineering and Design 240 (2010) 3699-3707.
- (6) V.D. Cleary et al, "Strengthening the Foundations of Proliferation Assessment Tools," Sandia Report SAND2007-6158 (2007)
- J.-S. Choi, "Nuclear Energy and Security Risks", Rajesh M. Basrur, Koh Swee Lean Collin (Eds), "Nuclear Power and Energy Security in Asia", 134 - 137, Routledge (2012).
- (8) Y. Kuno et al., "Quantitative Comparison Study on Nuclear Nonproliferation for Plutonium in Spent Fuel Direct Disposal and Recycle Use", INMM 55th Annual Meeting, Atlanta, Institute of Nuclear Material Management (2014).
- (9) 2012 年第 39 回原子力委員会資料第 2 号
- (10) A. G. Croff et al., "A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code" (1980).
- (11) D.B. Pelowitz, ed., "MCNP6 USER' S MANUAL, version 1.0," LA-CP-12-00634, (2013)
- (12) Leppänen, J., VTT Techncal Research Centre of Finland, "Serpent a Continuousenergy Monte Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code" (2013).

Case No.	Temperature (°C)	O ₂ mole fraction (%)	Injection period (mins)
1		21%	
2	0.50	15%	
3	950	10%	
4		5%	5
5		21%	
6	1150	15%	
7		10%	
		N2 injection	
8	950	0%	-
9	1150	0%	5

表 3.1.2-1 酸素濃度を変えた注入実験条件

表 3.1.2-2 酸素濃度を変えた注入実験の温度変化

Town eventure (°C)	Casa Na		Temperature change		
Temperature (C)	Case No	02 (%)	IC(°C)	(°C)	
	1	21	+13.45	+3.0	
	2	15	+4.7	+2.0	
950	3	10	-9.75	0.0	
	4	5	-14.9	-1.25	
	8	0	-12.4	-3.0	
	5	21	+12.05	+3.5	
1150	6	15	+9.1	+3.65	
1150	7	10	-14.5	+0.25	
	9	0	-15.9	-6.55	

			Boundary conditions		
Initial conditions		Location	Parameter	Value	
Location Parameter Value		Elerer in let	Temperature	300 K	
	Temperature	300 K	1 IOW IIIICt	Mass flow	$1.8908 \times 10^{-5} kg/s$
Flow	Mass flow	$1.8908 \times 10^{-5} kg/s$	Flow outlet	Pressure	0.101 MPa
Inner graphite		1223 K		h	$2.0 M/m^2 K$
Outer graphite	E .	773 K	Outer graphite (outer surface)	n _{conv}	5.0 W / M ⁻ K
Ceramic plate	Temperature	773 K		Environment	200 V
Pins		773 K		temperature	309 K
			D .	Conduction	Parameter for adjusting
			Pins	heat loss	temperature field

表 3.1.2-3 Star CCM+の解析条件(950℃定常状態)

表 3.1.2-4 Star CCM+の解析値と実測値の比較

	Location	Experiment (°C)	Star CCM+ (°C)
	Inner Graphite center	937.1~940.3	941.0
950 °C case	Inner Graphite Top	855.6~868.5	873.0
	Outer Graphite Center	391.6~399.25	382.2
	Inner Graphite center	1134.8~1137.4	1142.6
1150°C case	Inner Graphite Top	1032.3~1052.4	1036.1
	Outer Graphite Center	475.0~505.8	470.0

表 3.1.2-5 RELAP5 解析の境界条件

				1			
Parameter		Val	Par	ameter	Va	lue	
Inlet mass flow	Annulus channel		$0.5908 \times 10^{-5} kg/s$	Oute	r graphite	950°C case	-10.0W *
rate	Argon channel		$6.74 \times 10^{-4} kg/s$	condu loss	conduction heat		
Inlet pressure		0.101	MPa	di	rection	1150°C case	-21.1W *
Inlet gas composition	Annulu	s channel	O ₂ : 5%, 10%,15%,21%	Top ce	Top ceramic plate	950°C case	451°C *
	Argon channel		Ar: 100%	tem	temperature	1150°C 2020 54	542°C 🗤
Outlet pressure		0.101	MPa			1150 C case	J42 C 🔻
Inner graphite power	950°C case	(Joul	69W * e heating: 215.0W	Botto	Bottom ceramic	950°C case	443°C 🜟
	Conductio	Conduction	heat losses: -146.0W *)	plate to	emperature	1150°C case	533°C *
	1150°C case	1150°C case (Joule heating: 331.0W Conduction heat loss: -204.0W*)		* Indicates the values were derived fro		erived from	
				the results of star CCM+			

FOM	Attractiveness	DOE Table Category
> 2	High	\sim B
1 to 2	Medium	~C
0 to 1	Low	~D
< 0	Very Low	~E

表 3.1.2-6 FOM の値と物質魅力度カテゴリ⁽⁴⁾

表 3.1.2-7 Epの値

化学形態	Erの値
純粋な金属	2.5
単一化合物	2
混合化合物	1.5
従来型の使用済燃料	0.5
非従来型の使用済燃料	0



図 3.1.2-1 試験体及び熱電対位置



図 3.1.2-2 酸素濃度を変えた注入実験の内側試験片温度変化



図 3.1.2-3 酸素濃度を変えた注入実験の外側試験片温度変化



図 3.1.2-4 酸素濃度を変えた注入実験後の内側試験片質量減少

3.1.2-18



図 3.1.2-5 酸素注入時の過渡温度変化解析手順



図 3.1.2-6 Star CCM+の解析モデル



図 3.1.2-7 Star CCM+による温度分布解析結果と熱電対位置の温度



図 3.1.2-8 Star CCM+解析結果による内側黒鉛のヒートバランス



図 3.1.2-9 Star CCM+解析結果による外側黒鉛のヒートバランス



図 3.1.2-10 酸素注入実験体系の RELAP5 解析モデル



図 3.1.2-11 窒素注入時の RELAP5 解析結果と実測温度変化の比較



図 3.1.2-12 酸素注入時の RELAP5 解析結果と実測温度変化の比較



図 3.1.2-13 酸素注入後の黒鉛質量減少量の RELAP5 解析結果と実測値の比較



図 3.1.2-14 プルトニウム炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化



図 3.1.2-16 燃料ブロック

3.1.2-24







(酸化反応発熱をパラメータ)



図 3.1.2-19 FOM_{TOTAL}の推移



図 3.1.2-20 FOM_{TOTAL}の推移(取り出し後 500 年以降)



図 3.1.2-21 Q_{Pu}の推移



3.1.2-27

3.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計(再委託先:原子力機構)

3.2.1 燃料成立性評価(H26~H29)

(1) 目的

プルトニウム (Pu) 燃焼高温ガス炉⁽¹⁾を実現するためには、高燃焼度(500~600 GWd/t 程度) における被覆燃料粒子の健全性確保は重要な課題の1つである。高燃焼度における被覆燃料粒子 の主な破損機構として、核分裂反応に伴う一酸化炭素(CO)ガスや核分裂生成物(Fission Product: FP) ガスの分圧上昇による内圧破損が挙げられる。CO ガスは核分裂反応に伴い生成する遊離酸素 と被覆燃料粒子の低密度熱分解炭素層の反応により生成される。本研究では、酸素ゲッターの機 能を持つ炭化ジルコニウム (ZrC)の燃料核への直接被覆(図3.2.1-1)により、高燃焼度におけ る被覆燃料粒子の健全性確保を図る。具体的には、ZrC-0反応を考慮した被覆燃料粒子内のCO ガ ス分圧を FP ガス分圧と併せて計算し、内圧破損の観点から燃料の成立性を評価して ZrC 層の厚さ など被覆燃料粒子の仕様を決める。

平成 26 年度は、ZrC 層を PuO₂-YSZ 燃料核に直接被覆した被覆燃料粒子の CO ガス分圧及び FP ガス分圧の評価手法を検討するとともに、評価に必要な内圧計算コードを整備した。平成 27 年度 は、整備した計算コードを用いて遊離酸素由来の CO ガスや FP ガスによる内圧破損挙動を評価す るとともに、ZrC 層における ZrC-O₂反応による内圧抑制の効果を熱化学平衡論に基づき評価した。 平成 28 年度は、これらの評価結果をベースにして ZrC 被覆層の厚さを検討した。平成 29 年度は、 ZrC 層による内圧抑制効果を考慮した上で、SiC-TRISO (Tri-isotropic、以下 TRISO とする) 被 覆厚さを検討した。

(2) 被覆燃料粒子の概要

既存の高温ガス炉の燃料である TRISO (Tri-isotropic) 被覆燃料粒子は、二酸化ウラン (UO₂) の燃料核を4重のセラミック被覆層(第1層:低密度熱分解炭素/第2層:内側高密度熱分解炭 素/第3層:炭化ケイ素(SiC)/第4層:外側高密度熱分解炭素で被覆した球状燃料(図3.2.1-1) であり、FP ガスを閉じ込める機能を持つ。

本研究で対象とする Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子は、図 3.2.1-1 に示すように、イットリ ア安定化ジルコニア(Yttria Stabilized Zirconia: YSZ)を母材とする二酸化プルトニウム (Pu0₂-YSZ)の燃料核に ZrC 及び TRISO 被覆を施したものである(ZrC/SiC 被覆燃料粒子)。

(3) 内圧計算コードの整備(H26)

PuO₂-YSZ 被覆燃料粒子の内圧評価は、整備する内圧破損解析コード Code-B2⁽²⁾及び市販の熱力 学平衡計算ソフトウェア FactSage⁽³⁾などを用い、ZrC 層における遊離酸素と ZrC の化学反応を考 慮して行うこととした。また、PuO₂-YSZ 被覆燃料粒子の内圧計算に必要な PuO₂からの遊離酸素生 成率、Pu-239 及び Pu-241 の核分裂割合や安定希ガス FP の収率を入力で設定できるように Code-B-2 を整備し、PC (Windows) 上で正常に動作することを確認した。

Code-B-2 を用いて PuO₂-YSZ を燃料核とする被覆燃料粒子の内圧計算を行うにあたっては、 Pu-239 と Pu-241 の核分裂割合、及び Pu-239 と Pu-241 の安定希ガス FP の収率を、入力で設定す る必要がある。そこで、核分裂割合と安定希ガス FP の収率を調べた。核分裂割合については、セ ル燃焼計算を行って 500 GWd/t までの Pu-239 と Pu-241 の核分裂の割合を算出した。図 3.2.1-2 に示すように、Pu-239の核分裂割合は燃焼に伴い 0.95 から 0.25 まで減少し、Pu-241 は 0.05 か ら 0.75 まで増加する。安定希ガス FP の収率については、以下の核種を安定希ガス FP と定義し⁽⁴⁾、 これらの累積収率の積算値にデータの不確かさを考慮した値を安定希ガス FP の収率とした。具体 的には、JENDL-4.0⁽⁵⁾に格納されている熱中性子(0.0253 eV)による核分裂時の累積収率及びそ の不確かさ(1o)のデータを Pu-239 及び Pu-241 について調べ、Pu-239 の核分裂による安定希ガ スの収率は 0.28、Pu-241 の安定希ガスの収率は 0.26 とした。

He-3, He-4

Ne-20, Ne-21, Ne-22

Ar-36, Ar-38, Ar-40

Kr-78、Kr-80、Kr-82、Kr-83、Kr-84、Kr-86

Xe-124, Xr-126, Xe-128, Xe-129, Xe-130, Xe-131, Xe-132, Xe-134, Xe-136

(4) 内圧破損挙動及び ZrC 層による内圧抑制効果の評価(H27)

Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子(燃料核:Pu02-YSZ)を、概念設計が行われた高温ガス炉 GTHTR300⁽⁶⁾の被覆燃料粒子と燃料核以外の材質及び寸法を同じに仮定して 500 GWd/t での内圧を 計算した。その結果、ZrC 層を燃料核に直接被覆して CO 分圧を十分に抑制できれば、燃焼度 500 GWd/t における内圧は、GTHTR300 の被覆燃料粒子の取出し時の内圧と同程度となることが分かっ た(表 3. 2. 1-1)。これにより、内圧破損の観点からは 500 GWd/t の燃焼度を達成できる見通しを 得た。

ZrC-02の平衡状態を、熱化学平衡計算ソフトウェア FactSage⁽⁴⁾を用いて調べた。ZrCと02のモル比を 1:1 に設定した場合の計算結果を図 3.2.1-3 に示す。500℃から 1600℃においては、ZrO2 (固体)と C(固体)のみが存在し気体は存在しない。高温ガス炉は事故時においても燃料温度が 1600℃を超えないように設計が行われる。したがって、遊離酸素分子と当モル数の ZrC 層を燃料核に被覆することで、事故時を含めた全ての温度条件下で遊離酸素分圧をゼロ、すなわち CO 分 圧をゼロにできることが期待でき、ZrC 層被覆による内圧抑制効果は非常に大きいことが分かった。

(5) 被覆層の厚さの検討(H28)

核分裂反応に伴い燃料核から放出される遊離酸素の捕獲に必要な ZrC 層の厚さを検討した。検討は、平成 27 年度の検討結果に基づき高温ガス炉の温度条件下において ZrC+0₂→ZrO₂+C 反応は不可逆反応とし、ZrC と 0₂が過不足無く反応するとして行った。その結果、検討した燃料核の大きさの範囲(150 μ m~300 μ m)及び 500~600 GWd/t の燃焼度において、燃料核から放出される遊離酸素の全量を捕獲するための ZrC 層厚さは 3 μ m~8 μ m であることが分かった。

(6) TRISO 被覆厚さの検討(H29)

検討方法

内圧破損を抑制する観点からは、燃料核の直径は小さい方がよい。米国 Deep Burn 炉⁽⁷⁾の検討 結果を参考にして、Pu 燃焼高温ガス炉の燃料核の直径は 300 μm を暫定値としてきた。本事業の 中で原子燃料工業が実施した CeO₂-YSZ 模擬燃料核製造試験において、直径 300 μm の模擬燃料核 の製造は現状技術では困難であること、直径 400 µm の模擬燃料核であれば現状技術で製造できる ことが分かった。そこで、本検討においては、燃料核の直径は製造性の観点から 400 µm に設定し た。取出し燃焼度は、平成 29 年度の炉心核熱設計の検討結果から 625 GWd/t に設定した。発生す る遊離酸素の全量を捕獲するために必要な ZrC 層の厚さは、平成 28 年度の検討結果から 10 µm に設定した。バッファ層、I-PyC 層、SiC 層及び 0-PyC 層の厚さは、国内で製造実績がある高燃焼 度被覆燃料粒子⁽⁸⁾ と同じに設定した(表 3.2.1-1)。

TRISO 被覆の中で SiC 層の強度が最も高く、FP ガスを被覆燃料粒子内に閉じ込める圧力容器と しての役割を持つ。米国 Deep Burn 炉の被覆燃料粒子の設計では、内圧上昇に起因する SiC 層の 破損割合の許容値は 3.33×10⁻³とされている⁽⁹⁾。本検討では、この値を SiC 層の破損割合の許容 値として用いることとし、取出し時の SiC 層の破損割合が 3.33×10⁻³以下の場合に燃料設計が成 立すると判断することとした。

SiC層の破損割合の計算式を式(1)に示す⁽¹⁰⁾。SiC層に加わる応力は、内圧及びPyC層の照射収縮による締め付けを考慮した。内圧の計算にはプルトニウム燃料の内圧を計算できるように整備した Code-B-2を用い、核分裂に伴い生成し燃料核から放出される遊離酸素は全て ZrC に捕獲されることとした。内圧及びPyC層の照射収縮を考慮した応力は、汎用計算コード ABUQUS を用いて計算した。SiC層の強度は、高速中性子の照射による劣化を考慮し、高速中性子の照射量は SRAC による炉心燃焼計算結果の値を用いた。また、式(1)のワイブル係数は8 に設定した⁽¹⁰⁾。

$$f(t) = 1 - \exp\left(-\ln 2 \times \left(\frac{\sigma(t)}{\sigma_0(t)}\right)^m\right)$$
(1)

f(t): 燃焼度 t における SiC 層の破損確率 σ(t): 燃焼度 t における SiC 層に加わる応力 σ0(t): 燃焼度 t における SiC 層の強度 m: 被覆層のワイブル係数

2 結果

SiC 層の破損割合の計算結果を図 3.2.1-4 に示す。ZrC 層を被覆しない場合の SiC 層の破損割合 は、約 220 GWd/t で許容値を超える。ZrC 層を被覆する場合の SiC 層の破損割合は、燃焼度 625 GWd/t において許容値以下であり燃料設計が成立する。

(7) まとめ

Pu 燃焼高温ガス炉を実現するためには、高燃焼度における被覆燃料粒子の健全性確保は重要な 課題である。被覆燃料粒子の内圧破損は、高燃焼度における被覆燃料粒子の主な破損機構の1つ であり、本研究では高燃焼度においても内圧破損を起こさない被覆燃料粒子の設計を行った。設 計の参考にした Deep Burn 炉の被覆燃料粒子の燃料直径は300 μm 程度であるが、本研究では、 Pu0₂-YSZ 燃料核の製造性の観点から400 μm に設定した。核分裂に伴い燃料核から放出される遊 離酸素量を計算し、それを捕獲するために必要な ZrC 層の厚さを10 μm に設定した。その外側の バッファ層、0-PyC 層、SiC 層、I-SiC 層の厚さは、国内で製造実績がある高燃焼度被覆燃料粒子 の値と同じに設定し、ワイブル関数を用いて燃焼度に対する SiC 層の破損割合を計算した。その 結果、炉心燃焼計算を行った得た取出し燃焼度 625 GWd/t での SiC 層の破損割合は許容値以下で あり、高燃焼度で内圧破損を起こさない被覆燃料粒子の設計を提示することができた。

参考文献

- Yuji Fukaya, Minoru Goto, Hirofumi Ohashi, Yukio Tachibana, Kazuhiko Kunitomi and Satoshi Chiba, "Proposal of a plutonium burner system based on HTGR with high proliferation resistance", J. Nucl. Sci. Technol., 51(6), 818-831 (2014).
- (2)相原純,大橋弘史,沢和弘,橘幸男, "SiC-TRISO 燃料粒子の横領計算のための Code-B-2", JAEA-Data/Code 2012-030 (2013).
- (3)株式会社計算力学研究センター、"熱力学平衡計算ソフトウェア&熱力学データベース FactSage",http://www.rccm.co.jp/product/thermodynamics/factsage/(閲覧日:2015年3 月2日).
- (4) 日本原子力研究開発機構, "WWW Chart of the Nuclides 2010", http://wwwndc.jaea.go.jp/CN10/index.html/(閲覧日:2015年3月2日).
- (5) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura: "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol. 48(1), 1-30 (2011).
- (6) 中田哲夫, 片西昌司, 高田昌二, Xing YAN, 國富一彦, "高温ガス炉ガスタービン発電システム (GTHTR300)の核設計", JAERI-Tech 2002-066 (2002).
- (7) T. Kim, T. Taiwo, R. Hill, and W. Yang, "A Feasibility Study of Reactor-Based Deep-Burn Concepts", ANL-AFCI-155 (2005).
- (8) 相原純,植田祥平,柴田大受,沢和弘,"日本製高品質高温ガス炉燃料の破損陸計算法の提案", 日本原子力学会和文論文誌, Vol. 11, No. 2, p.158-163 (2012).
- (9) Matther B. Richards, "Deployment of FBR/VHTR Systems for Japan's Future Energy Demands", GA-A25934 (2007).
- (10)沢和弘,角田淳弥,渡部隆,"高温ガス炉運転中の被覆燃料粒子挙動及び核分裂生成物ガス挙 動解析コード", JAERI-Data/Code 99-034 (1999).

百日	用任	Pu02-YSZ 燃料核 按要燃料转子	UO2燃料核 独要燃料核子
供日	甲世	恢復燃料杠子 (500 GWd/t)	恢復燃料杠子 (139 GWd/t)
内圧	MPa	277	60
C0 分圧	MPa	220	42
FP 分圧	MPa	57	18

表 3.2.1-1 最大燃焼度における被覆燃料粒子内圧の計算結果

表 3.2.1-2 設定した燃料仕様

燃料核直径	400 µm
ZrC 層厚さ	10 µm
バッファ層厚さ	95 μm
I-PyC 層厚さ	40 µm
SiC 層厚さ	35 µm
0-PyC 層厚さ	40 µm



図 3.2.1-1 ZrC を Pu02-YSZ 燃料核に直接被覆した被覆燃料粒子



図 3.2.1-2 Pu02-YSZ を燃料核とする被覆燃料粒子の燃焼に伴う核分裂割合の変化



図 3.2.1-3 FactSage による ZrC-0₂体系の熱化学平衡計算の結果 (s 及び s2 は固体、g は気体を表す)


3.2.2 炉心核熱設計(H26~H29)

(1) 目的

セキュリティ強化型安全燃料を装荷したプルトニウム(Pu)燃焼高温ガス炉の炉心核熱設計の 提示を目的として、3次元全炉心計算及び燃料温度計算を行って核特性値(反応度温度係数及び 炉停止余裕)及び通常運転時の燃料温度を算出し核熱成立性を評価するとともに、システムの成 立性を評価した。なお、初装荷燃料のPu富化度は100%でUを含まない。

平成 26 年度は、Pu 燃焼高温ガス炉の炉心燃焼計算を行うために必要な核計算コードシステム を Linux 計算機上に整備するとともに、入力ファイルを作成した。平成 27 年度は、整備した計算 コードシステム及び作成した入力ファイルを用いて、Pu 燃焼高温ガス炉の予備的な核特性解析を 行った。平成 28 年度及び 29 年度は、安全解析結果を反映させた炉心核熱設計を行った。また、 平成 29 年度には、平成 27 年「長期エネルギー需要見通し」の需要予測に基づき、Pu 高温ガス炉 の導入シナリオを策定し、導入基数やプルトニウムの消費量等を評価した。

(2) コード整備及び入力ファイルの作成(H26)

Pu 燃焼高温ガス炉の炉心燃焼計算を行うために、SRAC2006EX コードシステムを Linux 計算機上 に整備した。SRAC2006EX コードシステムは、SRAC2006 コードシステム⁽¹⁾に格納されているセル 燃焼計算コード PIJ⁽¹⁾を、被覆燃料粒子に起因する二重非均質性を考慮した計算ができるように 改良したものである⁽²⁾。SRAC2006EX コードシステムに付属するサンプル入力等を用いたテスト計 算を行い、SRAC2006EX コードシステムが Linux 計算機上に整備されたことを確認した。

炉心核熱設計は、米国 Deep Burn 炉⁽³⁾を参考にして検討を開始した。Deep Burn 炉と同様に 144 燃料カラムで構成される Pu 燃焼高温ガス炉(144 カラム炉心)の炉心燃焼計算を行うために必要 な、高温ガス炉用に改良したセル燃焼計算コード PIJ、多次元炉心燃焼計算コード COREBN⁽¹⁾及び 履歴ファイル管理コード HIST⁽¹⁾の入力ファイルを作成した。

(3) 核特性解析 (H27)

Pu 燃焼高温ガス炉の核熱特性を把握することを目的とした予備的な検討を行った。H26 年度に 整備した計算コード及び入力ファイルを用いて 144 カラム炉心の 3 次元全炉心計算を行い、炉停 止余裕及び反応度温度係数を算出して核的な成立性を評価した。その結果、炉停止余裕 1%Δk/k 以上を確保するためには、少なくとも 13.7%Δk/k 相当の中性子吸収材を制御棒または反応度調整 材 (Burnable Poison: BP)として炉心に追加装荷する必要があることが分かった。反応度温度係 数については、燃焼期間にわたり負の値を確保できる見通しを得た。

(4) 核熱特性解析(H28~H29)

H27 年度に検討した 144 カラム炉心を対象にして、本事業の中で減圧事故時の予備検討が行われ、事故時の燃料温度が制限値1600℃を超える結果が示された。この問題を解決する方法として、以下の2つの案が提案された。

- 減圧事故時の崩壊熱除去を促進するために、原子炉出力は変えずに燃料カラム数を減らし、燃料領域の径方向の幅を小さくする。
- ② 崩壊熱を減らすために、燃料カラム数は変えずに原子炉出力を低くする。

平成 28 年度は、燃料領域の径方向の幅を小さくし、燃料領域が 90 燃料カラムで構成される出力 600 MWth の炉心 (90 カラム炉心、図 3.2.2-2) について核熱成立性を検討した。その結果、H27 年度の検討結果と同様に炉停止余裕を確保するためには中性子吸収材を追加装荷する必要がある こと、燃料最高温度を下げるために出力分布を調整する必要があることが分かった。反応度温度 係数については燃焼期間にわたり負の値を確保できることが分かった。

H28年度の検討結果をベースに BP の仕様を調整し、原子炉出力 600 MWth の 90 カラム炉心について核熱成立性を検討した。また、H27年度に検討した出力 600 MWth の 144 カラム炉心をベースにし、出力を 400 MWth に下げるとともに、炉停止余裕を確保するために燃料カラムを 12本減らした炉心(132カラム炉心、図 3.2.2-3)についても核熱成立性を検討した。Pu-239の残存率を小さくするためには燃焼度を高くする必要がある。そこで、90カラム炉心及び 132カラム炉心ともに、高燃焼度を達成するために燃料シャッフリングを採用し、核熱成立性の検討は平衡炉心について行った。核熱成立性の条件は、炉停止余裕、反応度温度係数及び燃料最高温度が、表 3.2.2-1に示す設計要求を満たすこととした。

① 検討した Pu 燃焼高温ガス炉の概要

1) 炉心

90 カラム炉心の炉心形状は、H27 年度に検討した 144 カラム炉心に比べて燃料領域が径方向に 2 層分狭く設定した。132 カラム炉心は、144 カラム炉心をベースにして、炉停止余裕を確保する ために燃料カラム 12 本を制御棒案内カラムに置き換えたものである。炉心の主な仕様を表 3.2.2-2 に示す。

2) 燃料

Pu 燃焼高温ガス炉では、イットリア安定化ジルコニア(Yttria Stabilized Zirconia: YSZ) を母材とする二酸化プルトニウム(PuO₂)の燃料核に ZrC を直接被覆した SiC-TRISO 被覆燃料粒 子を用いる。炉心核熱計算で設定した燃料の主な仕様を表 3.2.2-3 に示す。また、燃料コンパク ト及び燃料棒の概略図を図 3.2.2-4 及び図 3.2.2-5 に示す。

3) 反応度制御機構

反応度制御は、制御棒と BP を用いて行う。制御棒は、制御棒案内カラムに施された制御棒挿入 孔を通して炉心上部から炉心に挿入される。90 カラム炉心は、燃料領域の内側に 24 本、燃料領 域の外側に 36 本の制御棒を装荷する。132 カラム炉心は、燃料領域の内側に 12 本、燃料領域に 24 本、燃料領域の外側に 36 本の制御棒を装荷する。BP は GTHTR300⁽⁴⁾や HTTR⁽⁵⁾の場合と同様に、 炭化ホウ素と黒鉛を混合して焼き固めたペレットで、それらを各燃料ブロックのダウエルピンの 下に棒状に装荷する。

4) 燃料シャッフリング

GTHTR300 の炉心はウランを燃料とする燃料カラム 90 本で構成され、軸方向サンドウィッチシャッフリングを採用し高燃焼度の達成が図られている。そこで、炉心形状がほぼ同じ 90 カラム炉心には GTHTR300 と同じ軸方向サンドウィッチシャッフリング(図 3.2.2-6)を採用する。サンド

ウィッチシャッフリングでは、新燃料を炉心の奇数レイヤに装荷し、300 日燃焼後1 レイヤ下に 移動させて更に 300 日燃焼させた後、炉心から取り出す。132 カラム炉心には、軸方向シャッフ リング及び径方向シャッフリングに関する予備検討の結果から、図 3.2.2-7 に示す軸方向4 バッ チシャッフリングを採用する。軸方向4 バッチシャッフリングでは、新燃料をレイヤ1及びレイ ヤ2に装荷し、430 日燃焼後それぞれ2 レイヤ下に移動させる。これを計4回繰り返して1720 日 燃焼させた後、炉心から取り出す。

② 計算方法

炉心燃焼計算は、SRAC2006EX コードシステムに格納されている高温ガス炉用に改良したセル燃焼計算コード PIJ、多次元炉心燃焼計算コード COREBN、及び履歴ファイル管理コード HIST を用い て行う。炉心燃焼計算は、制御棒位置を各燃焼ステップで臨界位置に設定して行う。炉心燃焼計 算に必要な少数群断面積は PIJ を用いたセル燃焼計算を行って作成する。

炉停止余裕は、炉心温度 300 K 均一、反応度価値が最大の制御棒 1 対(2本)を全引抜(ワン ロッドスタック)、その他の制御棒を全挿入の条件で実効増倍率を計算し、以下の式により算出す る。

$$\rho = \frac{1-k}{k}$$

 ρ : 炉停止余裕

k: 実効増倍率

反応度温度係数は、出力運転の炉心温度条件をベースにして、温度を変えた+100 K) ブランチ オフ計算を行って実効増倍率を計算し、以下の式により反応度温度係数を燃焼初期、燃焼中期、 燃焼末期について算出する。

$$TC = \frac{(k_1 - k_0)/(k_0 \times k_1)}{\Delta T}$$

TC:反応度温度係数

ko:温度を変化させる前の実効増倍率

k₁:温度をΔT変化させた後の実効増倍率

燃料温度は、炉心燃焼計算で算出される炉心の出力分布の結果を用い、高温ガス炉用燃料温度 計算コード FTCC⁽⁶⁾により各燃焼ステップについて算出する。

③ 計算結果

1) 炉停止余裕

90 カラム炉心の炉停止余裕の計算結果は 9.95%Δk/k、132 カラム炉心は 13.0%Δk/k であり、設計要求 1%Δk/k 以上を満たす。

2) 反応度温度係数

90 カラム炉心及び 132 カラム炉心の反応度温度係数の計算結果を表 3.2.2-4 及び表 3.2.2-5 に

それぞれ示す。90カラム炉心及び132カラム炉心ともに、反応度温度係数は燃焼期間を通して負であり、設計要求を満たす。

3) 燃料温度

90 カラム炉心の炉内軸方向燃料温度分布の計算結果を、径方向の燃料領域別に図 3.2.2-8 に示 す。90 カラム炉心の径方向燃料領域は、炉心中央からの距離の違いにより 9 領域に分けることが できる。燃焼期間中の燃料最高温度は 1356°C で 1400°C 以下であり、設計要求を満たす。132 カ ラム炉心の炉内軸方向燃料温度分布の計算結果を、径方向の燃料領域別に図 3.2.2-9 に示す。132 カラム炉心の径方向燃料領域は、炉心中央からの距離の違いにより 14 領域に分けることができる。 燃焼期間中の燃料最高温度は燃焼期間中の燃料最高温度は 1367°C で 1400°C 以下であり、設計要 求を満たす。

以上より、炉停止余裕、反応度温度係数及び燃料最高温度は設計要求を満たすことから、90カ ラム炉心及び132カラム炉心の核熱成立性を確認した。

4) Pu-239の残存率

90 カラム炉心の取出し時(480 GWd/t)の Pu-239 残存率(=取出し時 Pu-239 重量/装荷時 Pu-239 重量)は14.4%となった。132 カラム炉心の取出し時(625 GWd/t)の Pu-239 残存率は3.1%であ り、目標とした5%よりも残存率を低くすることができた。132 カラム炉心の取出し時の燃焼度が 90 カラム炉心に比べて高い理由は、132 カラム炉心の燃料領域が90 カラム炉心に比べて広いため、 炉心からの中性子の漏れが相対的に少なく、臨界性が高いためである。

(5) 導入シナリオ策定及びシステム成立性評価(H29)

① はじめに

最終年度の平成29年度には、本研究を通して検討したプルトニウム燃焼高温ガス炉の成立性を 確認するため、平成27年「長期エネルギー需要見通し」の需要予測に基づき、国内への導入基数 の評価を行うとともに、プルトニウムの消費量及びサイクル内の蓄積量、さらに、水素製造量と それを利用した際のCO2削減効果について評価した。

② 導入シナリオ策定

「長期エネルギー需要見通し」では、2030年の発電容量を30 GWe と予測し、それ以降もその 値を維持するとされている。そのためには、2025年から軽水炉新設により発電容量を維持しなけ ればならない。高温ガス炉の導入は2030年から始まるものと想定する。

導入する高温ガス炉の炉型は、発電用途を目的とした GTHTR300 と発電及び水素製造(コジェネ) を目的とした GTHTR300C の 2 つがある。炉心の温度条件が若干異なるが、核特性の観点から大き な影響を与える要因は無く、プルトニウム燃焼高温ガス炉はこれらのどちらの用途に対しても用 いられるものとする。なお、ウラン燃料炉心、プルトニウム燃焼高温ガス炉は燃料交換のみで炉 型の変更を可能とする。ウラン燃料炉心の主な諸元は、熱出力 600 MWth、バッチ数 2、サイクル 長 730 日、HM インベントリ 7.09 t、濃縮度 14wt%、取り出し燃焼度 120 GWd/t、稼働率 90%であ り、プルトニウム燃焼高温ガス炉の諸元は熱出力 600 MWth、バッチ数 2、サイクル長 300 日、HM インベントリ 0.75 t、取り出し燃焼度 480 GWd/t、稼働率 79%とした。プルトニウム燃焼高温ガ ス炉の稼働率は、ウラン燃料炉心の停止期間と運転予備日と同じと仮定して算出した。GTHTR300 の諸元は、発電容量 274 MWe、GTHTR300C の諸元は、発電容量 174 MWe、水素製造容量 0.65 Mm³/d とした。新設される軽水炉は発電容量 1,206 MWe、稼働率 80%の ABWR で代表させるものとした。 なお、原子炉の耐用年数は 40 年とした。

③ システム成立性評価

初めに、高温ガス炉を発電用途のみとした GTHTR300 ベースの評価結果を示す。図 2.3.2-9 に発 電容量の推移を示す。2025 年から導入された新設軽水炉は 2068 年にはすべて廃炉となる。2075 年にはウラン燃料炉心、プルトニウム燃焼高温ガス炉が、ほぼ平衡状態となる。図 2.3.2-10 に Pu 消費用の推移を示す。2030 年から稼働する再処理施設(処理容量 800 tU/y)は、2074 年から処 理容量 250 tU/y の施設に置き換わると想定している。現在の余剰 Pu に相当する 46 t をプルトニ ウム燃焼高温ガス炉が導入されてから 6 年で消費できる。2040 年で余剰 Pu を完全に消費できる。 評価上では、余剰分は 1 t 未満であるが、その余剰分も転用不可能な Pu0₂-YSZ 燃料の状態で保管 されるため、完全に余剰 Pu が消費されたといえる。図 2.3.2-11 に高温ガス炉導入基数を示す。 プルトニウム燃焼高温ガス炉はウラン燃料高温ガス炉に優先して導入され、最大で 56 基導入され る。最終的には、ウラン燃料炉心 101 基、プルトニウム燃焼高温ガス炉 8 基、計 109 基が導入さ れる。

次に、コジェネ時を対象に、同様の評価及び水素製造量を評価し、結果を図 2.3.2-12 から図 2.3.2-15 に示す。GTHTR300C⁽⁸⁾は水素製造に熱出力を消費するため、発電容量が下がり、目標と する発電容量を満たすためには、より多くの原子炉を導入する必要がある。現在の余剰 Pu に相当 する 46 t をプルトニウム燃焼高温ガス炉が導入されてから 5 年で消費できる。プルトニウム燃焼 高温ガス炉は最大で 72 基導入される。最終的には、ウラン燃料炉心 161 基、プルトニウム燃焼高 温ガス炉 12 基、計 173 基が導入される。最終的な水素製造量は 3.7×10¹⁰ Nm³/y となる。これを、 運輸、工業・住宅に用いる場合⁽⁷⁾、それぞれ、8.1x10⁷ tco₂, 3.1 x10⁷ tco₂の CO₂削減効果が期待 でき、日本の削減目標(80%)の 9.13x10⁸ tco₂に対し、それぞれ、8.9%, 3.4%にあたる。

このように、効果的な Pu 燃焼によるシステムの成立性及び、水素製造時の CO₂削減効果につい て確認できた。

(5) まとめ

Pu 燃焼高温ガス炉の核熱成立性を 90 カラム炉心(出力:600 MWth)及び 132 カラム炉心(出 力:400 MWth)について検討した。90 カラム炉心にはサンドウィッチシャッフリング(300 日×2 バッチ)、132 カラム炉心には軸方向 4 バッチシャッフリング(430 日×2 バッチ)を導入し、そ れぞれ炉心燃焼計算及び燃料温度計算を行って、核熱成立性を評価した。その結果、90 カラム炉 心については、炉停止余裕、反応度温度係数、及び燃料温度は設計要求を満たし、炉心の核熱成 立性を確認した。また、取出し時の Pu-239 残存率は炉心装荷時の 14.4%となった。132 カラム炉 心についても、炉停止余裕、反応度温度係数、及び燃料温度は設計要求を満たし、炉心の核熱成 立性を確認した。取出し時の Pu-239 残存率は装荷時の 3.1%であり、当初目標としていた 5%より

も残存率を低くすることができた。

平成 27 年「長期エネルギー需要見通し」と整合するように、2025 年から軽水炉新設により発 電容量を維持し、高温ガス炉の導入は 2030 年から始まる導入シナリオを策定した。高温ガス炉の 炉型は、GTHR300 または GTHR300C とし、燃料交換によりそれぞれウラン燃料炉心及びプルトニウ ム燃料炉心 (Pu 燃焼高温ガス炉)を構成することができる。導入する高温ガス炉の炉型が GTHTR300 の場合、最大で 56 基の Pu 燃焼高温ガス炉が導入され、最終的には、ウラン燃料炉心 101 基、Pu 燃焼高温ガス炉 8 基が導入される。導入する高温ガス炉の炉型がコジェネを目的とした GTHTR300C の場合、Pu 燃焼高温ガス炉は最大で 72 基導入され、最終的には、ウラン燃料炉心 161 基、Pu 燃 焼高温ガス炉 12 基が導入される。また、製造する水素を運輸に用いることで日本の CO₂削減目標 値の 8.9%、工業・住宅に用いることで 3.4%に相当する量の削減が期待できる。

参考文献

- K. Okumura, T. Kugo, K. Kaneko, K. Tsuchihashi, SRAC2006 : A comprehensive Neutronics Calculation Code System, JAEA-Data/Code2007-004 (2007).
- (2)後藤実、武田哲明、"高温ガス炉の炉特性・安全性解析手法の開発検証(3) 核特性-"、日本原子力学会 2006 年春の年会予稿集 N52.
- (3) T. Kim, T. Taiwo, R. Hill, and W. Yang, "A Feasibility Study of Reactor-Based Deep-Burn Concepts", ANL-AFCI-155 (2005).
- (4) 中田哲夫、片西昌司、高田昌二、Xing YAN、國富一彦、"高温ガス炉タービン発電システム (GTHTR300)の核熱流動設計"、日本原子力学会和文論文誌、Vol.2、No.4 (2003).
- (5) S. Saito, T. Tanaka, Y. Sudo, et al. Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), JAERI 1332 (1994).
- (6) 稲葉良知、井坂和義、柴田大受、"高温ガス炉用燃料温度計算コード FTCC の開発"、 JAEA-Data/Code 2017-002 (2017).
- (7) Y. Kamiji, et al., "Study of HTGR Contribution to Japan's CO₂ Emission Reduction Goal in 2050," JAEA-Technology 2016-010 (2016).
- (8) K. Kunitomi, X. Yan, S. Shiozawa, et al., "GTHTR300C for hydrogen cogeneration," Proceedings of 2nd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, Beiging, China (2004).

項目	值
炉停止余裕 (ワンロッドスタック)	> 1.0%∆k/k
反応度温度係数	$< 0.0\%\Delta k/k/^{o}C$
燃料最高温度 (通常運転時)	< 1400°C

表 3.2.2-1 核熱成立性の条件

表 3.2.2-2 炉心の主な仕様

項目	単位	90 カラム炉心	132 カラム炉心
熱出力	MWth	600	400
冷却材入口温度	°C	587	587
冷却材出口温度	°C	850	850
燃焼日数	day	300×2	430×4
取出し燃焼度	GWd/t	480	625
燃料カラム数	カラム	90	132
燃料領域段数	段	8	8
燃料領域高さ	cm	840	840
ブロック高さ	cm	105	105
ブロック平径	cm	40.5	40.5
重金属装荷量	ton	0. 75	1.1

項目	単位	値
燃料核直径	μm	300
バッファ層厚さ	μm	150
内側高密度熱分解炭素層厚さ	μm	35
SiC 層厚さ	μm	35
外側高密度熱分解炭素層厚さ	μm	40
燃料コンパクト内径(無燃料部含む)	mm	26
燃料コンパクト外径(無燃料部含む)	mm	7
燃料コンパクト高さ(無燃料部含む)	mm	84
燃料ピン数	本/ブロック	57
燃料核原子個数密度		
Pu-238	$1E+24/cm^2$	1.4199E-04
Pu-239	$1E+24/cm^2$	7.1432E-03
Pu-240	$1E+24/cm^2$	3.1297E-03
Pu-241	$1E+24/cm^2$	2.9184E-04
Pu-242	$1E+24/cm^2$	7.3338E-04
Am-241	$1E+24/cm^2$	2.9640E-05
Y-89	$1E+24/cm^2$	3.1291E-03
Zr-90	$1E+24/cm^2$	5.9046E-03
Zr-91	$1E+24/cm^2$	1.2877E-03
Zr-92	$1E+24/cm^2$	1.9682E-03
Zr-94	$1E+24/cm^2$	1.9946E-03
Zr-96	$1E+24/cm^2$	3.2134E-04
0-16	$1E+24/cm^2$	5.0599E-03

表 3.2.2-3 燃料の主な仕様

表 3.2.2-4 90 カラム炉心の反応度温度係数の計算結果(%Δk/k/°C)

項目	燃焼初期	燃焼中期	燃焼末期
	(14 日)	(180 日)	(300日)
全温度係数	-7.7E-03	-4.7E-03	-3.2E-03
燃料温度係数	-1.9E-03	-6.9E-04	-2.1E-04
減速材温度係数	-5.8E-03	-4.0E-03	-3.0E-03

表 3.2.2-5 132 カラム炉心の反応度温度係数の計算結果(%Δk/k/°C)

項目	燃焼初期	燃焼中期	燃焼末期
	(10 日)	(250 日)	(430日)
全温度係数	-1.1E-02	-1.3E-02	-1.2E-02
燃料温度係数	-2.6E-03	-3.3E-03	-3.0E-03
減速材温度係数	-8.5E-03	-1.0E-02	-9.4E-03



図 3.2.2-1 Pu 燃焼高温ガス炉(144 カラム炉心)



図 3.2.2-2 Pu 燃焼高温ガス炉(90 カラム炉心、水平断面)



図 3.2.2-3 Pu 燃焼高温ガス炉(132 カラム炉心、水平断面)







図 3.2.2-5 一体型燃料棒

レイヤ1	照射燃料①		新燃料
レイヤ2	照射燃料②	\searrow	照射燃料①
レイヤ3	照射燃料①		新燃料
レイヤ4	照射燃料②	\searrow	照射燃料①
レイヤ5	照射燃料①		新燃料
レイヤ6	照射燃料②	\searrow	照射燃料①
レイヤ7	照射燃料①		新燃料
レイヤ8	照射燃料②	\searrow	照射燃料①

図 3.2.2-6 軸方向サンドウィッチシャッフリング

サイクルN末期 サイクルN+1 初期

レイヤ1	照射燃料①		新燃料
レイヤ2	照射燃料①	\backslash	新燃料
レイヤ3	照射燃料②		照射燃料①
レイヤ4	照射燃料②		照射燃料①
レイヤ5	照射燃料③		照射燃料②
レイヤ6	照射燃料③		照射燃料②
レイヤ7	照射燃料④		照射燃料③
レイヤ8	照射燃料④		照射燃料③

サイクルN 末期 サイクルN+1 初期

図 3.2.2-7 軸方向 4 バッチシャッフリング







図 3.2.2-8 90 カラム炉心の燃料温度計算結果

3.2.2-14



図 3.2.2-9 132 カラム炉心の燃料温度計算結果(1/2)



図 3.2.2-9 132 カラム炉心の燃料温度計算結果(2/2)



図 3.2.2-10 発電用途時の発電容量の推移



図 3.2.2-11 発電用途時の Pu 消費量の推移



図 3.2.2-12 発電用途時の高温ガス炉導入基数



図 3.2.2-13 コジェネ時の発電容量の推移



図 3.2.2-14 コジェネ時の Pu 消費量の推移



図 3.2.2-15 コジェネ時の高温ガス炉導入基数



図 2.3.2-16 コジェネ時の水素製造量

3.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価(H26~H29)(再委託先:富士電機)

3.3.1 目的

プルトニウム燃焼高温ガス炉のプルトニウム燃料を対象に、崩壊熱の予備評価を実施し、安全 解析の条件となる崩壊熱の評価手法の整備を行った。次に、プルトニウム燃焼高温ガス炉におけ る代表的な事故事象として、減圧事故やスクラム失敗事象等を対象にした原子炉温度挙動や再臨 界挙動を解析する手法の整備を図り、予備解析を実施した。また、反応度投入事象を対象に、ド ップラー反応度効果や減速材温度効果をより正確に扱えるような炉心動特性解析手法の整備を図 り、予備解析を実施した。最後に、炉心核熱設計により定められた原子炉/炉心諸元に対し、こ れまで検討してきた崩壊熱評価手法や安全解析手法を用いて安全解析を実施し、燃料温度と原子 炉圧力容器温度がいずれも安全上の判断基準を超えず、原子炉設計が成立していることを確認し た。

3.3.2 崩壊熱の検討(H26)

(1) 崩壊熱の評価手法

崩壊熱の計算では、燃料である重金属核種の核分裂による核分裂生成物(Fission Product: F P)の生成や中性子捕獲によるアクチニドの生成を適切に計算する必要があり、多数の核種を扱 う必要があるため、ORIGEN⁽¹⁾が用いられることが多い。しかし、ORIGENに付属している核データ ライブラリには、高温ガス炉の核種変換計算に使用できるものは含まれていない。したがって、 新たに高温ガス炉用、特に、プルトニウム炉心を用いた高温ガス炉用の断面積を作成する必要が ある。

SWATコード(SWAT3.1)は、中性子スペクトルの計算に連続エネルギーモンテカルロ法であるM VP^(2,3)またはMCNP⁽⁴⁾を用いている。SWATコードの構成を図3.3-1に示す。SWATコードは、MVPやMCN Pにより中性子スペクトルを考慮して作成した実効断面積を、燃焼・核種変換や崩壊熱を計算す るORIGENに受け渡す。MVPまたはMCNPとORIGENを繰り返して計算し、核種組成や崩壊熱を計算す る。ここでの崩壊熱の評価には、このSWATコードを用いることとした。中性子束計算コードとし ては、MVPとMCNPのどちらか選択する必要があるが、多数の被覆燃料粒子を適切に取り扱うこと ができる確率論的幾何形状モデルの機能があるMVPを採用した。MVPの解析モデルを図3.3-2に示 す。

(2) 評価結果

表3.3-1に、初期定常時の出力に対する崩壊熱の割合(単位:%)の時間変化を示す。検討対象のプルトニウム燃焼高温ガス炉の崩壊熱は、原子炉停止後100時間程度まではウラン燃料炉心と 比べて小さい結果となっている。

3.3.3 温度挙動解析手法整備と予備解析(H27)

(1) 検討対象事象の摘出

プルトニウム燃焼高温ガス炉における代表的な事故事象として、

①設計基準事象 減圧事故
 ②設計基準外事象 減圧事故+スクラム失敗

を検討対象とした。減圧事故は、軽水炉での冷却材喪失事故に相当する事象であり、事故時の冷 却を原子炉の外側からの冷却に頼る高温ガス炉では、炉心の寸法や出力を決める原子炉設計上重 要な事象である。これらの事象を対象に、原子炉温度挙動や再臨界挙動を解析する手法の整備を 行い、予備解析を実施した。

(2) 減圧事故時の原子炉温度挙動解析手法の整備と予備解析

解析手法の整備

1) 解析コード

解析コードは高温工学試験研究炉 (High Temperature engineering Test Reactor: HTTR⁽⁵⁾) の安全審査で用いられた TAC-NC⁽⁶⁾を使用することとした。

2) 崩壊熱

プルトニウム燃焼高温ガス炉の崩壊熱として、3.3.2節に示す値を用いた。

3) 解析モデルの整備

予備解析に用いた燃料カラム数 144 カラムの炉心の水平断面のカラム配置を図 3.3-3 に示す。 TAC-NC では 2 次元円筒体系にモデル化する。TAC-NC の解析モデルを図 3.3-4 に示す。

4) 出力分布

ウラン炉心(GTHTR300⁽⁷⁾)及びプルトニウム炉心の出力分布については、核計算結果で得られた出力密度をブロック単位で入力した。軸方向出力分布を図 3.3-5 に示す。

2 解析結果

燃料最高温度の時間変化を図 3.3-6、図 3.3-7 に示す。事故時の燃料温度制限は 1600℃である が、約 70℃の評価誤差を想定してノミナル計算結果の制限を 1530℃であるとした。

原子炉の定格出力と燃料最高温度の関係を図 3.3-8 に示す。この図から、出力分布の相違によって結果は異なるが、燃料最高温度制限(ノミナルで 1530℃)を満足するためには、定格出力は 350 MWth~420 MWth 以下に制限する必要があることがわかった。

(3) スクラム失敗事象時の再臨界挙動解析手法の整備と予備解析

解析手法の検討

設計基準外事象である減圧事故+スクラム失敗時に、再臨界挙動への炉心の動特性パラメータ (即発中性子寿命 1、遅発中性子割合β)、温度係数の影響を検討するため、解析手法の整備を 行い、予備解析を実施した。

2 解析コード

前節(2)で用いた減圧事故時の原子炉の温度挙動を解析する TAC-NC コードに、一点炉近似動特 性解析コード BLOOST-J2⁽⁸⁾を結合したコード TAC-BLOOST⁽⁹⁾を用いた。TAC-NC 部で温度分布を計算 し、炉心領域の温度(平均温度)を BLOOST 部に与え、BLOOST 部で反応度を計算して動特性方程 式により原子炉出力を計算する。BLOOST 部により求められた出力は TAC-NC 部に与えられて、炉 心の温度分布計算を行う。これらを繰り返すことで、炉心の動特性を計算する。

③ 予備解析の実施

1) 解析条件

<u>動特性パラメータ</u>

表 3.3-2 に示す。燃焼初期(Beginning Of Cycle: BOC)、燃焼中期(Middle Of Cycle: MOC)、燃焼末期(End Of Cycle: EOC)の計算結果の内、遅発中性子割合βが最も小さい BOCの 値を用いた。

<u>温度係数</u>

表 3.3-2 に示す。BOC、MOC、EOC の計算結果の内、反応度フィードバックが効きにくい(ゼロ に近い) EOC の値を用いた。

2) 解析結果

図 3.3-9 に、プルトニウム燃焼高温ガス炉の減圧事故+スクラム失敗時の再臨界挙動を示す。 参考にウラン炉心の例(GTHTR300)についても示す。ウラン炉心に比べて、再臨界時刻は遅くな り、また、再臨界時の出力ピークはウラン炉心に比べて小さい結果となった。

3.3.4 出力増大の検討(H28)

(1) 検討条件

プルトニウム燃焼高温ガス炉の固有安全特性を確保しつつ、炉出力増加の可能性があるかを調 査するために、原子炉温度挙動解析により炉心の寸法形状等が設計基準事象である減圧事故時の 燃料温度に与える影響を求め、燃料温度制限を満たす寸法形状等を検討した。

以下のケースについて定格時の原子炉出力及び炉心幅を変化させて、減圧事故時の燃料温度解 析を行った。

定格時の原子炉出力:

- 300 MWth
- 400 MWth
- ・600 MWth (GTHTR300と同じ)

炉心幅(図3.3-10参照):

- ・これまでのプルトニウム燃焼高温ガス炉の炉心(燃料144カラム)
- ・1列細くした炉心(燃料126カラム炉心)
- ・2列細くした炉心(燃料90カラム炉心、GTHTR300と同じ)

(2) 検討結果

炉心出力、炉心幅を変化させた場合の、減圧事故時の燃料最高温度の時間変化を図3.3-11に示 す。この結果から、炉心出力と減圧事故時の燃料最高温度の関係を求めたものを図3.3-12 に示す。この図中には、事故時燃料温度制限を破線で示している。それぞれの燃料カ ラム数の炉心に対して事故時燃料温度制限を満足する定格原子炉出力を求めたものを 図3.3-13に示す。燃料カラム数を減らして炉心幅を小さくすることにより、事故時燃 料温度制限を満足した条件で、定格時の原子炉出力を大きくすることができることが わかった。

3.3.5 炉心動特性解析手法整備予備解析(H28)

(1) 検討条件

① 検討対象事象

スタンドパイプ破断による制御棒飛び出し事象の予備解析を行い、プルトニウム燃料を用いた 場合の、動特性パラメータ・温度係数が炉心の動特性への影響を検討することとした。

② 事象推移

単一のスタンドパイプ破断を想定し、スタンドパイプの破断とともに、当該スタンドパイプに ある制御棒が飛び出し、炉心に正の反応度が添加されることを想定した。また、同時に瞬時に減 圧し冷却機能が喪失するとした。

3 解析コード

本事象の解析には、GTHTR300の設計検討で用いたBL00ST-J2コード⁽⁹⁾を使用した。本コードは、 単チャンネルの伝熱計算を行うとともに、1点炉動特性方程式を解く計算コードである。

④ 解析モデル

BL00ST-J2で扱うモデルは単チャンネルモデルであり、外側境界は断熱とした。従って、事故 が発生し冷却機能が喪失すると温度は上がり続けるため、長時間の解析には適しておらず、短時 間の出力上昇過程を計算するものである。

⑤ 動特性パラメータ・温度係数

動特性パラメータ及び温度係数を表3.3-2に示す。動特性パラメータについては実効遅発中性 子割合が小さいBOCの値、温度係数については温度フィードバックが効きにくい正に近いEOCの値 を用いた。

⑥ 原子炉スクラム特性

HTTRの安全解析で設定されている以下の条件も用いた⁽¹⁰⁾。 出力高スクラムレベル:114% スクラム遅れ:0.6秒 スクラム反応度曲線:図3.3-14

(2) 解析結果

原子炉がスクラムする場合について、制御棒飛び出しによる反応度添加量が0.15%Δk/k、0.2 8%Δk/kのときの、出力、燃料最高温度及び反応度変化を図3.3-15及び図3.3-16に示す。同図に は、ウラン炉心の場合の結果も併記した。ここで、反応度添加量0.15%Δk/kは、GTHTR300での制 御棒飛び出し時の反応度添加量である。また、反応度添加量0.28%Δk/kは、プルトニウム炉心に ついて、即発臨界にならない程度の反応度添加量として、暫定的に設定したものである。

反応度添加量が0.15%Δk/kの場合には、プルトニウム炉心の方が、同じ反応度添加に対して事 象発生直後(約2秒まで)の出力上昇、温度上昇は大きくなるが、スクラムによる負の反応度添 加と負の温度反応度により、出力上昇、温度上昇ともウラン炉心の場合と大きな相違は無い。反 応度添加量が0.28%Δk/kの場合では、ウラン炉心とプルトニウム炉心の相違が大きくなる。

図3.3-17に反応度添加量と最高出力・燃料最高温度の関係を示す。反応度添加量が大きくなる ほど、プルトニウム炉心とウラン炉心の挙動の相違が大きくなることが分かる。

3.3.6 安全解析の実施(H29)

(1) 減圧事故

① 目的

3.3.4節により、事故時の放熱特性の優れた90カラム炉心を対象とすることとした。また、原 子炉出力は600 MWth炉心とした。この炉心を対象として、原子炉の安全設計の基本となる減圧事 故での温度挙動解析を行い、安全上の基準を満足し、原子炉設計が成立していることを確認した。

② 解析条件

1) 解析モデル

炉心の水平断面のカラム配置は図3.3-10(c)のとおりである。TAC-NCの解析モデルを図3.3-18 に示す。

2) 出力分布

ウラン炉心(GTHTR300)及びプルトニウム炉心の出力分布については、核計算結果で得られた 出力密度をブロック単位で入力した。軸方向出力分布を図3.3-19に示す。

③ 解析結果

燃焼日数ごとの燃料最高温度を図3.3-20に示す。最大出力密度を小さくできたことから、減圧 事故時の燃料最高温度は、燃焼期間を通して制限値1600℃(誤差を除くと約1530℃)を下回る結 果となった。燃料最高温度が発生する燃焼180日時点での事故時の燃料温度変化を図3.3-20に示 す。

圧力容器温度は、炉内の熱伝導率が大きい(黒鉛が照射を受けていない)状態が最も高くなる ので燃焼初期を対象とした。圧力容器温度の時間変化を図3.3-20に示す。圧力容器最高温度は47 5℃であり、制限値537℃以下を十分満足する結果となった。

燃料温度、圧力容器温度が制限値を満足しており、90カラム、600 MWth炉心は成立することが わかった。

(2) 減圧事故+スクラム失敗事象

① 解析条件

1) 検討対象事象

(1)の事象に、スクラム失敗を重ねた設計基準外事象の解析を行い、プルトニウム燃料を用いることが原子炉の反応度挙動に与える影響を検討した。

2) 解析コード

TAC-BLOOSTを用いた。

3) 温度係数

表3.3-3に示す温度係数から、温度フィードバックが効きにくいEOCの温度係数を使用した。

4) 動特性パラメータ

表3.3-3に示す動特性パラメータとして、遅発中性子割合が小さく反応度に対する出力変化が 大きくなるBOCの遅発中性子割合、即発中性子寿命を使用した。

② 解析結果

図3.3-22に出力及び燃料温度挙動、図3.3-23に反応度変化を示す。温度係数が小さい(ゼロに 近い)のでフィードバック効果が小さく、再臨界時の燃料温度がウラン炉心に比べて高くなる傾 向である。

(3) スタンドパイプ破断による制御棒飛び出し

① 解析条件

1) 検討対象事象

スタンドパイプ破断により制御棒が飛び出す際の反応度異常事象について、出力挙動及び燃料 温度挙動を解析した。

単一のスタンドパイプ破断を想定し、スタンドパイプの破断とともに、当該スタンドパイプに ある制御棒が飛び出し、炉心に正の反応度が添加されることを想定する。また、同時に瞬時に減 圧し冷却機能が喪失するとする。

2) 解析コード

BLOOST-J2コードを使用した。

3) 動特性パラメータ・温度係数

動特性パラメータ及び温度係数を表3.3-3に示す。動特性パラメータについては実効遅発中性 子割合が小さいBOCの値、温度係数については温度フィードバックが効きにくい正に近いEOCの値 を用いた。

② 解析結果

図 3.3-24 に反応度添加量、最高出力及び燃料最高温度の関係を示す。反応度添加量が大きく なるほど、プルトニウム炉心とウラン炉心の挙動の相違が大きくなることが分かる。反応度添加 量 0.28% Δk/k 以下であれば、燃料最高温度は制限値 1600℃を下回る結果となっている。ウラン 炉心では、制御棒飛び出しによる反応度添加量は約 0.15% Δk/k であり、プルトニウム燃焼高温 ガス炉でも、同様の制御棒本数・制御棒配置にすることにより、反応度添加量を 0.28% Δk/k 以 下にするは可能であると考えられ、HTTR のように反応度添加量を制限する装置を設けることも 可能である。また、予備解析(図 3.3-17)に比べて、ここでは実効値発中性子束が小さく、温 度係数がゼロに近い値の解析条件であるため、出力上昇が大きくなり、その結果、温度上昇も大 きくなっている。

このように、制御棒飛び出しによる反応度添加量を制限することにより燃料温度制限を満足す ることができることがわかった。

3.3.7 まとめ

90カラム、600 MWth炉心について、安全解析手法の整備を図るとともに、炉心核熱設計により 定められた原子炉/炉心諸元に対して減圧事故を対象に安全解析を実施し、燃料温度、圧力容器 温度が制限値を満足していることを示した。90カラム、600 MWthの原子炉設計は安全評価上成立 することを確認した。

参考文献

- A. G. Croff, "ORIGEN2 -- A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621, Oak Ridge National Laboratory (1980).
- (2) 須山,他,"連続エネルギーモンテカルロコード MVP 及び MCNP を使用する統合化燃焼計算
 コードシステム -SWAT3.1", JAERI-Data/Code 2009-002, (2009).
- (3) 森,他, "MVP/GMVP:連続エネルギー法及び多群法に基づく汎用中性子・格子輸送計算モン テカルロコード", JAERI-Data/Code 94-007 (1994).
- (4) J. F. Briesmeister, "MCNP A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4B", LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory (1997).
- (5) S. Saito, et al. "Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), JAERI 1332 (1994).
- (6) 國富,中川,鈴木,和田,平野, "高温工学試験研究炉の炉内 2 次元温度分布解析コード; TAC-NC とその検証", JAERI-M 89-001 (1989)
- (7) 中田, 片西, 高田, Yan, 國富, "高温ガス炉ガスタービン発電システム (GTHTR300)の
 核熱流動設計",日本原子力学会和文論文誌, Vol.2, No.4, p.478-489 (2003)
- (8) 中川,三竹,大橋,平野, "高温ガス炉の炉心動特性解析コード; BLOOST-J2", JAERI-M 89-013 (1989)
- (9) 高松, 中川, "TAC/BLOOST コードの検証(受託研究)", JAERI-Data/Code 2005-003 (2005)
- (10) HTTR 設置許可申請書添付書類十

	定格出力に対する崩壊熱の割合(%)	
时间(h)	プルトニウム炉心	ウラン炉心
0.00E+00	5.780	6.077
2.40E-01	1.738	2.017
4.80E-01	1.441	1.681
7.20E-01	1.275	1.488
9.60E-01	1.166	1.361
1.20E+00	1.089	1.271
1.44E+00	1.031	1.203
1.68E+00	0.985	1.150
1.92E+00	0.948	1.107
2.16E+00	0.917	1.071
2.40E+00	0.891	1.040
4.56E+00	0.755	0.882
6.72E+00	0.689	0.803
8.88E+00	0.647	0.750
1.10E+01	0.615	0.711
1.32E+01	0.590	0.680
1.54E+01	0.569	0.654
1.75E+01	0.552	0.631
1.97E+01	0.537	0.612
2.18E+01	0.524	0.595
2.40E+01	0.512	0.580
4.56E+01	0.441	0.480
6.72E+01	0.404	0.423
8.88E+01	0.380	0.383
1.10E+02	0.361	0.352
1.32E+02	0.346	0.328
1.54E+02	0.333	0.308
1.75E+02	0.322	0.292
1.97E+02	0.312	0.278
2.18E+02	0.304	0.266
2.40E+02	0.296	0.256

表 3.3-1 崩壊熱

	実効遅発中性子割合	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	2.98E-03	7.76E-03
MOC	3.30E-03	7.11E-03
EOC	3.42E-03	7.11E-03

表 3.3-2 予備解析で用いた動特性パラメータ・温度係数 (a) 遅発中性子割合

(b) 即発中性子寿命

	即発中性子寿命(s)	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	3.12E-04	6.49E-04
MOC	3.38E-04	6.70E-04
EOC	3.53E-04	7.48E-04

(c) 燃料温度係数

	燃料温度係数(Δk/k/℃)	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	-1.08E-05	-4.21E-05
MOC	-6.61E-06	-2.61E-05
EOC	-3.81E-06	-3.16E-05

(d) 減速材温度係数

	減速材温度係数(Δk/k/℃)	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	-7.44E-05	-7.60E-05
MOC	-7.84E-05	-4.91E-05
EOC	-8.08E-05	-3.18E-05

表 3.3-3 最終計算での動特性パラメータ・温度係数

	実効遅発中性子割合	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	2.82E-03	7.76E-03
MOC	3.36E-03	7.11E-03
EOC	3.67E-03	7.11E-03

(a) 遅発中性子割合

(b) 即発中性子寿命

	即発中性子寿命(s)		
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾	
BOC	5.65E-04	6.49E-04	
MOC	6.18E-04	6.70E-04	
EOC	6.82E-04	7.48E-04	

(c) 燃料温度係数

	燃料温度係数(Δk/k/°C)		
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾	
BOC	-1.94E-05	-4.21E-05	
MOC	-6.92E-06	-2.61E-05	
EOC	-2.03E-06	-3.16E-05	

(d) 減速材温度係数

	減速材温度係数(Δk/k/℃)	
	プルトニウム炉心	ウラン炉心 ⁽¹⁾
BOC	-5.79E-05	-7.60E-05
MOC	-4.02E-05	-4.91E-05
EOC	-2.96E-05	-3.18E-05



図 3.3-1 SWAT コードの構成



図 3.3-2 MVP の解析モデル



図 3.3-3 予備解析に用いた炉心カラム配置



図 3.3-4 予備解析に用いた TAC-NC の解析モデル





図 3.3-6 ウラン炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化



図 3.3-7 プルトニウム炉心の出力分布での減圧事故時の燃料温度変化



図 3.3-8 定格出力と事故時燃料最高温度との関係



図 3.3-9 「減圧事故+スクラム失敗」の再臨界挙動の解析結果


注:斜線のカラムが燃料を示す。

図 3.3-10 炉心幅を変更した場合の燃料カラムの配置



図 3.3-11 炉心出力、炉心幅を変化させた場合の減圧事故時の燃料最高温度時間変化



図 3.3-12 炉心出力と減圧事故時の燃料最高温度の関係



図 3.3-13 炉心燃料カラム数と事故時燃料温度条件を満足する原子炉出力の関係



図 3.3-14 原子炉スクラム時の制御棒挿入による反応度添加特性



図 3.3-15 反応度添加 0.15% Δk/k の場合の解析結果



(b) 反応度変化図 3. 3-16 反応度添加 0.28% Δk/k の場合の解析結果



図 3.3-17 スクラムする場合の反応度添加量と最高出力、燃料最高温度の関係



図 3.3-18 TAC-NC の解析モデル



図3.3-19 出力分布



図3.3-20 燃焼日数と減圧事故時の燃料最高温度



図3.3-21 燃料温度、圧力容器温度の時間推移



図3.3-22 減圧事故+スクラム失敗時の燃料温度、出力挙動



図3.3-23 減圧事故+スクラム失敗時の反応度挙動



図 3.3-24 スタンドパイプ破断時の反応度添加量と最高出力・燃料最高温度の関係

3.4 セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造検討(H26~H29)(再委託先:原子燃料工業)

3.4.1 CeO2-YSZ 模擬燃料核粒子の製造試験(H26~H29)

(1) 目的

プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料では、イットリア安定化ジルコニア(Yttria Stabilized Zirconia: YSZ)を母材とする二酸化プルトニウム(PuO₂)の燃料核(PuO₂-YSZ)を燃料核として採用している。本試験では、Puの模擬物質として Ce を用いる模擬 3S (Securiy, Safety, Safeguard) -TRISO (Tri-isotropic)燃料の製造試験等に供するため、CeO₂-YSZ 模擬燃料核粒子(以下、「模擬燃料核」と記す。)の製造を行い JAEA (Japan Atomic Energy Agency)で実施する ZrC 層被覆試験、及び原燃工で実施する Buffer~O-PyC 層被覆試験に供する 必要量の粒子を供した。

(2) 試験の準備 (H26)

模擬燃料核の製造試験を実施するための準備として、滴下装置、熟成装置、チューブ炉等の必要な設備の整備を行い、整備した設備の動作試験等を実施した。また、Puの模擬物質として用いる Ce がゲル化することを確認するために、試験管レベルの小規模先行試作試験を実施、ゲル化することを確認した。図 3.4.1-1 に本研究で整備した主な設備の外観を示す。

(3) 製造パラメータの違いが模擬燃料核の物性に及ぼす影響の調査(H27)

模擬燃料核の製造条件をパラメータとした製造試験を行い、各条件が与える模擬燃料核の物性、 すなわち、寸法・密度、結晶構造等への影響を整理した。これらを整理した結果を反映し、模擬 燃料核の適切な製造条件を設定、割れの無い乾燥ゲル粒子を得ることが出来た。また、大気雰囲 気中における焙焼及び還元雰囲気における還元・焼結工程について試作試験を行い、熱処理条件 についても検討を行った。図 3.4.1-2 に滴下試験の状況を、図 3.4.1-3 に平成 27 年度成果の一部 を示す。

(4) 製造パラメータの最適化(H28)

平成27年度までに得た成果を元に、いくつかの製造パラメータを調整し、表面状態、粒度分布 等の観点において、より良好な粒子を得られる条件について検討を行った。CeO₂-YSZ 模擬燃料核 の作製工程について概略を図 3.4.1-4 に示す。基本的な手順は、外部ゲル化法を採用しており、 本年度は、粒子の真球度、及び真球度の調整に対して、影響の大きい滴下、及び洗浄工程につい て、最適化を検討した。試作した粒子は過去に試作した粒子と比較して、各段階とも、真球度、 表面割れの観点から大幅に改善されていることが確認された。また、投影機法による粒度分布を 測定した結果、焼結後粒子の平均粒径は 0.427 mm であり、また、真球度のばらつきは非常に小さ い傾向であることが分かった。表 3.4.1-1 に投影機法により確認した粒子の粒度分布測定結果を 示す。その他の各種特性としては、外表面、内部ともに、有意なクラックはなく、元素の分布状 態も均一であることが確認された。改善前後の粒子外観を図 3.4.1-5 に、電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)によるエネルギー分散型 X 線分析 (Energy Dispersive X-ray Specrtroscopy: EDS)による焼結粒子中の元素の分散状態について、マッピングした結果を図 3.4.1-6 に示す。これらの条件を基に酸素ゲッターとなる ZrC 層の被覆試験に供するための模擬 燃料核の製造を開始した。

(5) CeO2-YSZ 模擬燃料核粒子の製造(H28~H29)

CeO₂-YSZ 模擬燃料核の製造条件は、平成 28 年度までの成果として得られた条件を用いた。ゲル 粒子(乾燥)の製造条件及びその後の熱処理条件をそれぞれ表 3.4.1-2 及び表 3.4.1-3 に示す。 本条件にて、後述の酸素ゲッターである ZrC 層被覆用として必要となる約1 kgの模擬燃料核を製 造した。製造は、滴下原液調整から大気雰囲気中における焙焼工程までを本公募で整備した各種 設備で実施した。焼結工程は、一度に多量の粒子を熱処理可能な外注先の還元・焼結炉を使用し て実施した。熱処理前後における代表的な外観を図 3.4.1-7 に示す。

(6) まとめ

Puの模擬物質として Ce を用いた模擬 3S-TRISO 燃料の製造試験等に供するため、平成 28 年度 までの成果として得られた製造条件を適用した模擬燃料核の製造を行った。

製造量は、後述の試験において必要となる約1 kg を製造し、酸素ゲッターである ZrC 層被覆のための試料として供給、CeO₂-YSZ 模擬燃料核粒子の製造を完了した。

3.4.2 ZrC 被覆が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いた TRISO 被覆粒子の製造試験(H26~H29)

(1) 目的

PuO₂/CeO₂-YSZ を燃料核/模擬燃料核とする 3S-TRISO 被覆粒子の概要を図 3.4.2-1 に示す。3S-TRISO 燃料は、PuO₂-YSZ を模擬した CeO₂-YSZ 模擬燃料核へ酸素ゲッターである ZrC 被覆層と 4 層 の TRISO 被覆を行う必要がある。そこで、前年度までに検討した小粒径少量バッチにおける製造 条件パラメータ等を基に、ZrC 層が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いて TRISO 被覆を行い 3S-TRISO 被覆粒子を試作した。

(2) 試験の準備(H26)

CeO₂-YSZ 模擬燃料核に被覆層を蒸着する流動装置(以下、流動床と言う)の稼働準備として整 備及び試運転調整を行った。また、3S-TRISO 被覆粒子製造時に流動床へ投入する、ZrC 層が被覆 された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を製造する ZrC 被覆装置はバッチ量が約 100 g/バッチと小型である ことから、高温工学試験研究炉(High Temperature Engineering Test Reactor: HTTR)⁽¹⁾用被覆 燃料のバッチあたりの投入量(約 3000 g)と比較して極少量(数百 g)となる可能性があった。 被覆対象物を流動させて化学的に蒸着する流動床において、粒子の流動状態は非常に重要なパラ メータであり流動状態に直結するバッチ投入量が大きく変わる可能性が高いことから、平均直径 0.7 mmの ZrO₂模擬粒子を使用して粒子投入量をパラメータとした粒子模擬流動試験を行い、粒子 投入量が 100 g から 4000 g における被覆可能ガス流量範囲のデータを得た。なお、ZrO₂模擬粒子 は、正確にはイットリア安定化ジルコニア(YSZ)の粒子であるが、本稿では CeO₂-YSZ 模擬燃料核 と紛らわしいことから、これ以降、通称として ZrO₂と表記する。

(3) 粒子流動試験(H27)

平成 27 年度は、直径約 0.7 mm の ZrO₂模擬粒子約 4000 g 用いて、既知の HTTR 用燃料製造条件 を基準として温度、原料ガス濃度・流量、処理時間等の運転条件を変えて、SiC を含む TRISO 被覆 試験を行い、最適な運転条件の検討に用いるデータを取得した。また、3S-TRISO 用燃料核の直径 は HTTR 用燃料核に比べて小粒径であること及び前述のとおり、酸素ゲッターとなる ZrC 層を被覆 する ZrC 被覆装置は試作試験設備であり、極少量バッチしか被覆出来ないことから、小粒径粒子 を少量バッチで TRISO 被覆を行う必要がある。そこで、模擬燃料核として平均直径 0.34 mm の ZrO₂ 模擬粒子を使用して粒子流動試験を行い、小粒径・少量バッチ装荷状態における粒子流動データ を取得、前年度結果も合わせて評価検討した。図 3.4.2-2 に模擬粒子流動試験時の状況として、 平成 26 年度に実施した粒径 0.7 mm、バッチ投入量 2000 g の状況及び粒径 0.34 mm、バッチ投入 量 100 g の状況を示す。

(4) 流動条件の検討(H28)

平成 27 年度までに得られた粒子模擬流動試験結果を整理し適正な流動条件を検討した。この結果を基に 0.34 mm の ZrO₂模擬粒子 500 g を使用した、Buffer 層及び I-PyC 層のみの被覆試験を行い粒径少量バッチへ対応する被覆ガス流量条件の目安を得ることができた。

CeO₂-YSZ 模擬燃料核製造試験の結果、直径が 0.427 mm であることが分かったため、平均粒径 0.43 mm の ZrO₂模擬粒子 500 g を用いて Buffer 層、I-PyC 層、SiC 層、O-PyC 層の連続被覆試験 (以下、TRISO 被覆試験と称する。)及びあらかじめ ZrC 被覆された模擬粒子を用いた TRISO 被覆 試験を行い、ZrC 被覆層の外側に TRISO 被覆しても ZrC 層が消失等することが無いことを確認で きたことから、3S-TRISO 用被覆粒子製造条件としてこれまで試験を行ってきた TRISO 被覆条件が 適用可能であることを確認した。

平成 27 年度までに得られた被覆条件を基に、Buffer 層、I-PyC 層、SiC 層、0-PyC 層の各被覆 層厚さの微調整を目的として直径 0.43 mm の ZrO₂模擬粒子 500 g を用いた連続被覆試験を行っ た。その結果、平成 28 年度試験で若干不安定であった第4層である 0-PyC 層の厚さを改善するこ とができた。その際の被覆ガス流量条件として 85~105 L/min の条件を得た。00PB17-2003 の実 績をこれまでの成果を整理して得た被覆可能流量範囲図である、図 3.4.2-3 上にプロットすると、 ほぼバッチ投入量 500 g における被覆可能範囲内に分布しており、本図が被覆対象粒子の粒径及 びバッチサイズのおける流動条件の目安とできる可能性が示唆された。

表 3.4.2-1 に平成 28 年度成果を含めて本年度の成果である 00PB17-2002 及び 00PB17-2003 の 結果を示す。なお、表中の被覆層厚さはいずれも金相法-投影機法により 50 粒子の厚さを測定し た平均値である。

(5) TRISO 被覆粒子の製造試験(H28~H29)

得られた被覆条件に基づき、あらかじめ JAEA において ZrC 層が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料 核を用いて TRISO 被覆し、3S-TRISO 被覆粒子の試作を行った。その結果、それぞれの被覆層厚さ は Buffer 層 78 μ m、I-PyC 層 30 μ m、SiC 層 26 μ m、O-PyC 層 51 μ m であった。前述の表 3.4.2-1 に 00PB17-2004 の結果の一覧を示す。

被覆後の 3S-TRISO 粒子の金相試料を作成し観察した。 その結果、 CeO₂-YSZ 模擬燃料核であって

も特に変質等は見られず正常に TRISO 被覆されていることが分かった。また、バッファ層である ZrC 被覆層についてもこれまでの被覆条件試験結果と同様に消失等は見られないことを確認した。 図 3.4.2-4 に被覆試験条件の微調整として実施した 00PB17-2002 と ZrC 層が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いた 3S-TRISO 被覆粒子である 00PB17-2004 の金相写真を示す。

(6) まとめ

平成 28 年度までの模擬流動試験データ及び本年度実施した被覆層厚さ微調整のための被覆条件試験の結果を基に ZrC 層が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核を用いて TRISO 被覆し、3S-TRISO 被 覆粒子を得ることができた。

これまで実施した模擬流動試験及び各種被覆試験の結果より、粒径及び投入バッチ量の異なる場合における被覆ガス流量条件の目安を得ることができた。

3.4.3 3S-TRISO 被覆粒子を用いた 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの試作試験(H29)

(1) 目的

本研究で得られた CeO₂-YSZ を模擬燃料核とした 3S-TRISO 被覆粒子を用いた模擬高温ガス炉用 燃料コンパクトを試作し、プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料 燃料の成立性を確認するとともに、試作した模擬燃料コンパクトの検査及び物性測定を通して YSZ を含む模擬燃料球へおよぼす化学的影響を調べた。

(2) 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの製造方法

プルトニウム燃焼高温ガス炉は、HTTR と同様のピンインブロック型燃料を念頭としていること から、本試作試験においても HTTR 用燃料に準じた製造方法及び形状とした。燃料コンパクトの製 造工程フローと HTTR 用燃料コンパクトの概念を図 3.4.3-1 に示す。HTTR 用燃料コンパクトは、 被覆燃料粒子約 13000 個を黒鉛マトリックスをつなぎとして中空円柱形状に成型したものである。

3S-TRISO 被覆粒子は、黒鉛粉末とバインダーを混合し調整した調整黒鉛粉末を用いて図 3.4.3-2 に概念を示したオーバーコート法によりコーディングされる。

オーバーコート法では、3S-TRISO 被覆粒子は回転容器内でアルコール等により湿らせながら転 動する。そこに、前述の調整黒鉛粉末を投入すると、湿り気により 3S-TRISO 被覆粒子表面に調整 黒鉛粉末がオーバーコーティングされてゆく。コーティングされて湿った状態の 3S-TRISO 被覆粒 子は乾燥機内でアルコールを蒸発乾燥しオーバーコート粒子となる。HTTR 用燃料コンパクトでは、 被覆粒子表面にオーバーコートされた調整黒鉛粉末のみで黒鉛マトリックスを形成する。高温ガ ス炉用の燃料コンパクト性能においてこの黒鉛マトリックスの密度が被覆燃料粒子からの除熱性 能に直接影響することから HTTR 用燃料コンパクトにおいて、オーバーコート粒子中に含まれる黒 鉛粉末の量は厳密に品質管理される必要がある。

オーバーコート粒子を必要量秤量し、図 3.4.3-3 に概念図を示したような温間成型プレス内に 投入、適切に温度管理された条件でゆっくりとプレス成型されグリーンコンパクトとなる。温度 管理されることで、調整黒鉛粉末に含まれるバインダーが軟化流動し、加圧成形時に被覆燃料粒 子を隙間なく包みこみコンパクト形状となる。そのため、温度条件が適切でない場合及び成型加 工速度が急激であるなどの場合、被覆粒子の被覆層へ機械的な負荷が生じて被覆層破損の原因と なる。

グリーンコンパクトに含まれるバインダーは予備焼工程において脱ガスする。脱ガスを確実に 行うため、予備焼成工程は約800℃程度の温度ではあるが、きわめてゆっくりと昇温及び降温され る。こうして脱ガスされた後のコンパクトは真空中で約1800℃の高温で熱処理することで完全に 脱ガスするとともに、HTTRにおける事故時の燃料温度上限(1600℃)超える熱履歴を経た上で燃 料コンパクトとして完成する。

HTTR 燃料においては、完成後の燃料コンパクトの被覆粒子の破損割合を検査しており、基準を 超える被覆層破損を有する燃料コンパクトが検出されれば、その熱処理バッチごと不合格品とな る。

本研究において試作した 3S-TRISO 燃料コンパクトは、前述のとおり、HTTR 燃料に準じた製造 工程及び製造方法をとった。

(3) 3S-TRISO 模擬燃料コンパクト製造試験

燃料コンパクト製造にあたっては、HTTR 用燃料コンパクトの基準寸法である、外径 26 mm、高 さ 39 mm、内径 10 mm を目標とし、その体積中に占める 3S-TRISO 被覆粒子の体積割合である被覆 粒子充填率は 30%、且つ、被覆粒子の隙間を埋める黒鉛マトリックスの密度が 1.7 g/cm³となる ように設計した上で製造を行った。そのうえで、3S-TRISO 被覆粒子をオーバーコートした上で温 間プレス成型し、グリーンコンパクトを作成した。その後、予備焼成工程及び焼成工程を経て燃 料コンパクトを製造した。その結果、HTTR 燃料製造と比べ 3S-TRISO 被覆粒子であることによる 製造工程上の差異は認められなかった。

(4) 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトの検査及び物性試験

試作した 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトについて、検査及び物性試験を行った。検査項目として は、外観及び寸法検査を実施した。物性試験としては、金相試料を作成し観察及びコンパクト製 造後の被覆粒子を観察及び被覆層厚さを測定した。

図 3.4.3-4 に今回製造したグリーンコンパクトの外観及び焼成後、完成した燃料コンパクトの 外観を示す。外観品質上はHTTR 用燃料コンパクトとなんら変わることは無いことが分かった。

焼成後の燃料コンパクトの外形寸法等の測定結果を表 3.4.3-1 に示す。表に参考値として示した HTTR 用燃料規格を満足する結果を得た。

図 3.4.3-5 に焼成後燃料コンパクト金相試料における 3S-TRISO 被覆粒子の金相断面写真を示 す。また、同様の金相断面写真より測定した各被覆層の厚さを表 3.4.3-2 に示す。

3S-TRISO 被覆粒子はプレス成型及び予備焼成及び焼成工程後も CeO₂-YSZ 模擬燃料核の変質や、 バッファ層である ZrC 被覆層の消失等は見られないことを確認した。なお、焼成後の被覆層厚さ 測定結果は他の被覆層厚さ結果とはことなり、ある 1 粒子の測定結果であることから参考値であ る。

(5) まとめ

3S-TRISO 被覆粒子を用いて HTTR 用燃料コンパクトに準じた形状の 3S-TRISO 模擬燃料コンパクトを試作し、検査及び物性試験を行った。

その結果、本研究の結果えられた被覆条件パラメータにより製造した 3S-TRISO 被覆粒子には、 HTTR 用燃料コンパクト製造工程の影響は見られず、3S-TRISO 用燃料コンパクトは製造可能であ ることを確認した。

3.4.4 被覆粒子検査技術の開発(H26~H29)

(1) 目的

高温ガス炉用燃料は、燃料の健全性や耐照射性能等を確認するため、燃料の各段階において、 直径,真球度,密度等の検査を実施する必要があり、HTTRにおいてはウラン燃料に関する燃料 検査基準⁽²⁾があるが、プルトニウム燃料に関する燃料検査基準は作成されていない状況にあ る。そこで、本事業において開発する PuO₂-YSZ 燃料核に ZrC 被覆及び TRISO 被覆を施した 3S-TRISO 被覆粒子の特性を念頭に検査技術も開発検討を行った。

(2) Pu02-YSZ 被覆粒子燃料の検査技術に関する調査検討(H26)

平成26年度は、3S-TRISO被覆粒子の検査項目及び検査手法について、従来のHTTR燃料検査 手法⁽²⁾や文献⁽³⁾を元に、従来のHTTR燃料検査手法が流用可能であるか、または新たに検査手法 の開発が必要かなどについて調査行った。検討の結果、ZrC層に関する検査項目であるZrC層厚 さ、ZrC層密度、ZrC定比性(C/Zr比)の検査手法としては、ZrC層厚さについては金相法が適 用できる可能性があり、ZrC層密度については焙焼-差分法等が適用できる可能性がある。さら に、ZrC定比性(C/Zr比)についてはICP-AES・赤外吸収法が適用できる可能性がある。なお、 ZrC層破損率は、酸素ゲッターとしての機能上、検査の要否も含めた検討が必要である。3S-TRISO被覆層のSiC層破損率はPuO₂-YSZ燃料核であることから従来とは異なる検査手法を適用し なければならず、焙焼してSiC層が露出した所へ水銀を含浸させ観察するなど、新たな検査手法 を検討する必要がある。なお、破損率以外の3S-TRISO検査項目(厚さ及び密度)については基 本的に従来法を適用できる可能性が高いことが分かった。

(3) 検査技術試験(H27)

平成26年度に実施したPu02-YSZ 被覆粒子燃料の検査技術に関する調査検討結果を用いて検査 技術試験を行い、被覆粒子開発の基礎となる燃料核検査技術開発として水銀密度測定及び圧縮破 壊強度測定を実施、適用性を評価した。CeO2-YSZ 模擬燃料核の試作試験の特性試験として寸法検 査(直径、真球度)及び SEM/EDS 等による面分析、XRD による結晶構造分析等を行い、それぞれ 特性を得ることが出来た。また、模擬 ZrC 粒子を用いた被覆試験においても、追加で TRISO 被覆 した層についての特性試験として寸法検査(直径、真球度)及び SEM/EDS 等による面分析を行 い、それぞれ特性を得ることが出来たことから検査技術としての適用性は問題ないことが分かっ た。また、CeO2-YSZ 模擬燃料核密度及び圧縮破壊強度について試験を実施し適用性を評価し、検 査技術試験として、CeO2-YSZ 模擬燃料核密度及び圧縮破壊強度について試験を実施し適用性があ ることを確認した。

(4) 公定分析法等の調査検討(H28)

平成 28 年度は、PuO₂-YSZ 燃料核、被覆燃料粒子のそれぞれに対して必要と考えられる検査項

目、検査手法を詳細に検討する目的で上記燃料検査基準だけでなくプルトニウム燃料に関する文 献、公定分析法(ASTM 規格、ISO 規格)等にわたる詳細な調査検討を実施した。次いで、本技術開 発で試作した CeO₂-YSZ 模擬燃料核に対して、実施可能な検査項目を検討し、具体的な検査技術開 発を行った。CeO₂-YSZ 模擬燃料核に関して、直径,真球度,密度の検査技術開発を行い、従来法 だけでなく新規手法として検討した画像解析法、レーザー回折・散乱法、ピクノメータ法も適用 可能であることを確認した。また、被覆燃料粒子に関しては、光学的異方性因子 OPTAF の新知見 として米国オークリッジ国立研究所(Oak Ridge National Laboratory: ORNL)で開発されたエリ プソメトリー法に基づく装置が製品化されており、適用可能な有力な候補となりえることを確認 した。

(5) 被覆燃料粒子の検査技術開発(H29)

平成29年度は、本技術開発で試作した模擬被覆燃料粒子に対して、実施可能な検査項目を検 討し、具体的な検査技術開発を行った。模擬被覆燃料粒子に関しては、被覆層厚さ,被覆層密 度,外観,直径,断面金相の検査技術開発を行い、従来法だけでなく被覆層厚さの新規手法とし て検討した金相試験法(金相試験-画像解析法)も適用可能であることを確認した。また、被覆層 密度については液浸置換法が適していると考えられることを確認した。

平成 29 年度の被覆燃料粒子の検査技術開発は、次のとおりである。

① 模擬被覆燃料粒子を用いた検査技術開発対象の決定

平成28年度の調査結果を元に製造した模擬被覆燃料粒子を用いて実施可能な検査項目の検討 を実施した。検討結果を表3.4.4-1に示す。表3.4.4-1の検討結果に基づき、模擬被覆燃料粒子 を用いた検査技術開発は、「被覆層厚さ」、「被覆層密度」、「外観」、「直径」、「断面金相」を対象 とすることに決定した。

・「被覆層厚さ」:従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)、新規手法として金相試験 法(金相試験-画像解析法)を用いる。

- ・「被覆層密度」:従来法として液浸置換法を用いる。
- ・「外観」:従来法として顕微鏡法を用いる。
- ・「直径」:従来法として投影機法を用いる。
- ・「断面金相」:従来法として金相試験法を用いる。

また、模擬被覆燃料粒子は ZrC 層有り,無しに着目して試作した2バッチの試料を使用した。 各模擬被覆燃料粒子2バッチの構成を表3.4.4-2に示す。

② 模擬被覆燃料粒子を用いた「被覆層厚さ」の検査技術開発

1) 被覆層厚さ測定手法の選定

被覆層厚さ測定手法は、従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)と新規手法として金相 試験法(金相試験-画像解析法)の2種類を選定した。従来法として金相試験法(金相試験-投影 機法)は、HTTRのウラン型燃料で採用実績のある被覆層厚さ測定手法⁽²⁾である。一方、新規手法 としての金相試験法(金相試験-画像解析法)は、ORNLにおいて、高温ガス炉燃料のウラン型燃 料の検査技術開発で検討された被覆層厚さ測定手法^{(4),(5)}である。

2) 被覆層厚さ測定条件及び被覆層厚さ測定結果

金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)及び金相試験法(金相試験-画像解析法)による模擬 被覆燃料粒子の被覆層厚さ測定条件を表 3.4.4-3~表 3.4.4-4 に示す。また、模擬被覆燃料粒子 2 バッチの外観写真を図 3.4.4-1 に示す。

金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)による模擬被覆燃料粒子2バッチの被覆層厚さ測定 結果(50個)を図3.4.4-2~図3.4.4-3に示す。金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)と金相 試験法(金相試験-画像解析法)(新規手法)の変動係数を比較した模擬被覆燃料粒子2バッチの結 果(50個)を図3.4.4-4~図3.4.4-5に示す。

3) 被覆層厚さ測定に関する考察

a 被覆層厚さ測定結果の比較

模擬被覆燃料粒子2バッチは、各被覆層の厚さが平均値で20~220 μm程度の範囲であった。 そして、金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)と金相試験法(金相試験-画像解析法)(新規 手法)の被覆層厚さ測定結果を変動係数に換算して比較すると、概ね一致した。

本検査技術開発では、従来法として HTTR のウラン型燃料で採用実績のある被覆層厚さ測定手 法を元に測定データのばらつきを考慮した被覆層厚さ測定の測定数(50 個)を2つの手法に適用 した。その上で、従来法と新規手法の被覆層厚さ測定結果のばらつきを評価する尺度として変動 係数を用いて比較したところ、両者に著しい差異は確認されなかった。また、使用した模擬被覆 燃料粒子は ZrC 層有り、無しの影響も特に観察されなかった。このことから、2つの手法(従来 法と新規手法)を比較評価する際に従来法の測定数を適用することには、特に問題はないと考え られる。

b プルトニウム燃料の取扱いに対する考慮

ウランと比べて危険度の高い放射性物質としてプルトニウム燃料を取扱う場合は、一般的に非 密封の放射性物質を閉じ込めるための設備としてゴムグローブが装着された箱型の構造物である グローブボックス⁽⁶⁾を用いる。また、内部被ばくを防止する対策として、作業員がプルトニウ ムを吸い込むことがないようにこのグローブボックス内に各種検査装置を設置して取り扱う必要 がある。さらに、外部被ばくを防ぐ対策として、作業員がプルトニウムからの放射線を低減でき るように各種検査装置の自動化,効率化等も考慮する必要がある。そういった観点で考えると、 金相試験法(金相試験一投影機法)(従来法)は粒子1個毎に作業者が測定するので自動化されてい るとはいいがたく、且つ作業時間もかかる。一方で、金相試験法(金相試験一画像解析法)(新規 手法)も同様に1個毎に画像を撮影後、画像解析を行う。しかし、従来法と異なり全ての作業を グローブボックスで実施する必要性はなく、画像撮影後の画像解析作業を別の場所で実施するこ とが可能である。このことから、金相試験法(金相試験一画像解析法)(新規手法)は、作業員の外 部被ばく低減を考慮すれば、金相試験法(金相試験一投影機法)(従来法)より適した被覆層厚さ測 定手法になると考えられる。

また、画像解析自身の自動化については、ORNLにおいて高温ガス炉燃料のウラン型燃料の検 査技術開発で検討された被覆層厚さ測定手法として画像解析ソフトウェアを搭載したデータ処理 システムの報告があることから、作業時間の短縮についても実現性が高いと考えられる。

後擬被覆燃料粒子を用いた「被覆層密度」の検査技術開発

1) 被覆層密度測定手法の選定

被覆層密度測定手法は、従来法として液浸置換法を選定した(ただし、高密度熱分解炭素層 0-PyCのみ)。従来法として液浸置換法は、HTTRのウラン型燃料で採用実績のある被覆層密度測定 手法である。

2) 被覆層密度測定条件及び被覆層密度測定結果

液浸置換法(従来法)による模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件及び被覆層厚さ測定結果を それぞれ表 3.4.4-5、図 3.4.4-6 に示す。1 バッチの 0-PyC 層密度の平均値は、1.9757 g/cm³で あり、大きなばらつきはなかった。

3) 被覆層密度測定に関する考察

a プルトニウム燃料の取扱いに対する考慮

ウランと比べて危険度の高い放射性物質としてプルトニウム燃料を取扱う観点で考えると、液 浸置換法(従来法)は表 3.4.4-6 に示すとおり被覆燃料粒子の高温酸化、重量測定、体積測定から 被覆層密度を求めるため、比較的手間がかからない。また、平成 28 年度の検査技術開発として CeO₂-YSZ 模擬燃料核に用いたピクノメータ法(新規手法)を適用すれば高温酸化処理以外を自動処 理できる可能性があるため、より適した被覆層密度測定手法になると考えられる。さらに PuO₂ 燃料核を使用した被覆燃料粒子(PuO₂燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/O-PyC等)の被覆層密度測定方法 ⁽⁷⁾では、各被覆層は全て重量と体積増加から計算する方法の適用が報告されている。よって、被 覆層密度測定については被覆工程毎に中間サンプリングした試料を用いて、液浸置換法による各 被覆層密度測定を行うことが最も適していると考えられる。

この他、HTTR のウラン型燃料で採用実績のある被覆層密度測定手法として、SiC 層密度測定等 においては浮遊沈降法が従来法として採用されている。浮遊沈降法(従来法)は表 3.4.4-7 に示す とおり破砕、焙焼、酸洗浄といった前処理後に微小な被覆層を作業者が採取し、重液(有機溶媒) で密度測定する必要があることから全て手作業となり、且つ作業時間も液浸置換法より必要とな ることが予想される。したがって、浮遊沈降法による各被覆層密度測定は液浸置換法よりも適し ていないと考えられる。

④ 模擬被覆燃料粒子を用いた「直径」の検査技術開発

1) 直径測定手法の選定

直径測定手法は、従来法として投影機法を選定した。従来法として投影機法は、HTTRのウラン型燃料で採用実績のある直径測定手法である。

2) 直径測定条件及び直径測定結果

投影機法(従来法)による模擬被覆燃料粒子の直径測定条件を表 3.4.8 に示す。投影機法(従来法)による模擬被覆燃料粒子 2 バッチの直径測定結果(50 個)を図 3.4.4-7 に示す。2 バッチの直

径の平均値は、それぞれ 0.680 mm、1.435 mm であった。

3) 直径測定に関する考察

a 直径測定結果

本検査技術開発では、従来法として HTTR のウラン型燃料で採用実績のある被覆層厚さ測定手 法を元に測定データのばらつきを考慮した直径測定の測定数(50個)を適用した。その上で、模 擬被覆燃料粒子 2 バッチの投影機法(従来法)の直径測定結果のばらつきを評価する尺度として変 動係数を用いて比較すると、概ねよい一致を示した。また、使用した模擬被覆燃料粒子は ZrC 層 有り、無しの影響も特に観察されなかった。

b プルトニウム燃料の取扱いに対する考慮

ウランと比べて危険度の高い放射性物質としてプルトニウム燃料を取扱う観点で考えると、投 影機法(従来法)は粒子1個毎に作業者が測定するので自動化されているとはいいがたく、且つ作 業時間もかかる。一方で、平成28年度の検査技術開発としてCeO2-YSZ模擬燃料核に用いた画像 解析法(新規手法)及びレーザー回折・散乱法(新規手法)は、直径測定手法及び装置能力として模 擬被覆燃料粒子にも適用可能であると考えられる。また、前者の画像解析法(新規手法)は1個毎 に測定測定するものの試料投入後は自動測定であることから、投影機法(従来法)より適した直径 測定手法になると考えられる。後者のレーザー回折・散乱法(新規手法)は、試料投入後は自動測 定であり、且つ従来と比べて大量の粒子を一度にまとめて直径測定できることから、投影機法 (従来法)より適した直径測定手法になると考えられる。

⑤ 模擬被覆燃料粒子を用いた「外観」の検査技術開発

1) 外観検査手法の選定

外観検査手法は、従来法として顕微鏡法を選定した。従来法として顕微鏡法は、HTTRのウラン型燃料で採用実績のある外観検査手法である。

2) 外観検査条件及び外観検査結果

顕微鏡法(従来法)による模擬被覆燃料粒子の外観検査条件を表 3.4.4-9 に示す。また、模擬被 覆燃料粒子 2 バッチの外観写真を図 3.4.4-1 に示す。

3) 外観検査に関する考察

a プルトニウム燃料の取扱いに対する考慮

ウランと比べて危険度の高い放射性物質としてプルトニウム燃料を取扱う観点で考えると、顕 微鏡法(従来法)は粒子を作業者が画像を撮影するので自動化されているとはいいがたいが、被覆 層厚さ測定で用いた金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)のように粒子1個毎に作業者が画 像を撮影する必要性はなく、一度にまとめて撮影すればよいので短時間作業で済むと考えられ る。

⑥ 模擬被覆燃料粒子を用いた「断面金相」の検査技術開発

1) 断面金相検査手法の選定

断面金相検査手法は、従来法として金相試験法を選定した。従来法として金相試験法は、HTTR のウラン型燃料で採用実績のある断面金相検査手法⁽²⁾である。

2) 断面金相検査条件及び断面金相検査結果

金相試験法(従来法)による模擬被覆燃料粒子の金相試験条件を表 3.4.4-10 に示す。また、模擬 被覆燃料粒子 2 バッチの金相写真を図 3.4.4-8 に示す。

3) 断面金相検査に関する考察

a 断面金相検査結果

HTTR のウラン型燃料は、燃料核の表面に低密度熱分解炭素層(Buffer)、高密度熱分解炭素層(I-PyC)、炭化ケイ素層(SiC)、高密度熱分解炭素層(0-PyC)の4つの被覆層が存在する。4つの被覆層 を有する被覆燃料粒子で最適化された金相試験法(従来法)の研磨条件が非常に硬い炭化ジルコニ ウム層(ZrC)を含むような5つ以上の被覆層を有する被覆燃料粒子に適用した例がなく、そのまま 適用できるかどうか検討した。その結果、本検査技術開発では、使用した模擬被覆燃料粒子のZrC 層有り、無しの影響は特に観察されず、金相試験法(従来法)の研磨条件で正常に金相試料を作製 できることを確認した。

b プルトニウム燃料の取扱いに対する考慮

ウランと比べて危険度の高い放射性物質としてプルトニウム燃料を取扱う観点で考えると、金 相試験法(従来法)は微小な粒子を樹脂埋込し、作業者が研磨するため、作業がやや複雑である。 しかし、PuO₂燃料核を使用した被覆燃料粒子(PuO₂燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/O-PyC等)の金相試料 の報告⁽⁷⁾があること、熱中性子炉向け MOX 燃料ペレットの金相研磨作業として、グローブボック ス内で MOX ペレットを樹脂埋込し、金相研磨を行う報告⁽⁸⁾があることを考慮すれば、あまり大き な影響はないものと考えられる。

(6) まとめ

Pu 燃焼高温ガス炉用燃料において実施可能な検査項目を検討し、本技術開発で試作した模擬 燃料核及び模擬被覆燃料粒子を用いて具体的な検査技術開発を行った。

その結果、模擬燃料核に関しては、直径,真球度,密度の検査技術開発を行い、従来法だけでな く新規手法である画像解析法、レーザー回折・散乱法、ピクノメータ法も適用可能であることを 確認した。模擬被覆燃料粒子に関しては、被覆層厚さ,被覆層密度,外観,直径,断面金相の検 査技術開発を行い、従来法だけでなく被覆層厚さの新規手法として検討した金相試験法(金相試 験ー画像解析法)も適用可能であることを確認した。また、被覆層密度については液浸置換法が 適していると考えられることを確認した。

参考文献

 S. Saito, T. Tanaka, Y. Sudo, et al. Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), JAERI 1332 (1994).

- (2) 小林紀昭,他 「高温工学試験研究炉の燃料検査基準」JAERI-M 92-079(1992).
- (3) 高山智生,他 「ZrC 被覆燃料粒子検査手法の検討」JAERI-Research 2007-061 (2007).
- (4) J.D. Hunn, J.R. Price, and G.E. Jellison Jr, New Characterization Techniques for Coated Particle Fuel, ORNL, 2004
- (5) A.K. Kercher, J.D. Hunn, J.R. Price, G.E. Jellison, F.C. Montgomery, R.N. Morris, J.M. Giaquinto, D.L. Denton, Advanced characterization methods for TRISO fuels, ORNL, 2005
- (6) 原子力百科事典 ATOMICA 「フード・グローブボックス(09-04-10-05)」
- (7) J.Baier, H.Bairiot, J.Vangeel, R.Van Sinay, Irradiation of Plutoniun Fueled Coated Particles in FRJ2, EUR 5066, 1974
- (8) TAYLOR, N. e TAYLOR, W. The Metallography of Mixed Oxide Fuel (M. O. X. Fuel) and Canning Materials for Thermal Reactors. Struers Journal of Materialography. 11/2006.

		単位	乾燥粒子	焙焼粒子	焼結粒子
粒径	平均	mm	0.827	0.556	0.427
	標準偏差	mm	0.018	0.014	0.007
真球度	平均	_	1.013	1.021	1.019
	標準偏差	_	0.009	0.017	0.013

表 3.4.1-1 バッチ No. Y64 の粒子の粒度分布測定結果(投影機法) 平成 28 年度成果

大項目	小項目	単位	数值
原液調製	$Ce(NO_3)_4$	g	17.6
	$ZrO(NO_3)_3$	g	$20.9 \sim 21.0$
	$Y(NO_3)_3$	g	5.8
	7.3%-PVA 溶液	g	55.0
	THFA	g	$84.1 \sim 84.2$
振動滴下	振動数	Hz	$110 \sim 140$
	送液圧力	kg/cm ²	$0.65{\sim}0.90$
熟成(アンモニア)	温度	°C	85
	時間	min	90
洗浄(純水)	温度	°C	85
	時間	min	30
	回数	旦	3
洗浄(エタノール)	温度	°C	常温
	時間	min	30
	回数	旦	3
乾燥(真空)	温度	°C	60
	時間	min	240

表 3.4.1-2 ゲル粒子(乾燥)の製造条件

表 3.4.1-3 ゲル粒子(乾燥)の熱処理条件

大項目	小項目	単位	数值
焙焼	雰囲気	—	大気
	温度	°C	500
	時間	min	60
焼結	雰囲気	—	還元
	温度	°C	1550
	時間	min	180

表 3.4.2-1 TRISO 被覆試験結果一覧

バッチ No.	試験内容 (粒径,バッチg)	被覆時 ガス流量 (L/min)	Buffer 層 厚さ (µm) (低密度炭素)	I-PyC 層 厚さ (µm) (高密度炭素)	SiC 層 厚さ (µm) (SiC)	O-PyC 層 厚さ (µm) (高密度炭素)
00PB16-2001	ZrO2模擬核 φ0.34,500g	50	14.0	3.3	未実施	未実施
00PB16-2002	ZrO₂模擬核 φ0.34,500g	70	12.7	6.4	未実施	未実施
00PB16-2006	ZrO2模擬核 φ0.43,500g	60~100	63.9	7.5	12.0	17.3
00PB16-2007	ZrO2模擬核 φ0.43,500g	60~105	70.5	35.0	24.2	流動不良で 測定不可能
00PB16-2008	ZrO2模擬核 φ0.43,500g	$60 \sim 85$	70.8	25.5	19.4	26.0
00PB16-2009	ZrO₂模擬核 (ZrC 層付き) φ0.84,500g	180~236	116.6	162.9	41.7	流動不良で 測定不可能
00PB17-2002	ZrO2模擬核 φ0.43,500g	85~100	83	32	22	33
00PB17-2003	ZrO2模擬核 φ0.43,500g	85~105	74	33	18	40
00PB17-2004	CeO ₂ -YSZ (ZrC 層付き) φ0.43,500g	85~105	78	30	26	51

(00PB16 : 平成 28 年度成果)

(金相-投影機法 50 粒子の平均値)

	外径 (mm)	高さ (mm)	被覆粒子 充填率(%)	マトリックス 密度(g/cm³)
17-T1001 (コンパクト)	26.1	38.6	29.2	1.71
(参考) HTTR 規格	26.0±0.1	39.0±0.5	30±3	1.70±0.05

表 3.4.3-1 焼結後 3S-TRISO 燃料コンパクトの検査結果

表 3.4.3-2 焼結後 3S-TRISO 燃料コンパクトの金相試料における 3S-TRISO 被覆層厚さ検査結果(金相-投影機法)(μm)

	1層	2層	3層	4層
17-2004 (被覆粒子) n =50 平均	78	30	26	51
17-T1001 (コンパクト) n=1 [※]	95	33	30	67

※ 本結果は、n=1 であるため参考とする。

検	查項目	検査方法	検討結果	備考(理由等)
炭化ジ	被覆層厚さ	金相試験法(金相試	可(比較試験)	従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)を
ルコニ		験-投影機法)		選定した。
ウム層		金相試験法(金相試		新規手法として、金相試験法(金相試験-画像解
ZrC		験-画像解析法)		析法)を選定した。
		X線ラジオグラフ法	-(対象外)	対象外とする **注1
	被覆層密度	液浸置換法	- (対象外)	平成 17 年度~平成 20 年度文部科学省革新的原子
		定容積気体圧縮法		カシステム技術開発公募事業 革新的高温ガス炉
	ZrC 定比	焙焼重量法	- (対象外)	燃料・黒鉛に関する技術開発にて既に実施済であ
	性(C/Zr	ICP-AES+酸化燃焼		るため対象外とする。
	比)	-赤外吸収法		
低密度	被覆層厚さ	金相試験法(金相試	可(比較試験)	従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)を
熱分解		験-投影機法)		選定した。
炭素層		金相試験法(金相試		新規手法として、金相試験法(金相試験-画像解
Buffer		験-画像解析法)		析法)を選定した。
		X線ラジオグラフ法	- (対象外)	対象外とした *注1
		二次元測定及び金	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		相観察結果のクロ		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
		スチェック		ないが、
				金相試験法(金相試験ー投影機法)及び金相試験法
				(金相試験-画像解析法)と大差のない手法と判断
				し、対象外とした。
	被覆層密度	液浸置換法	- (対象外)	低密度熱分解炭素層(Buffer層)被覆後にサンプリ
				ングした試料がないと検査できないため、対象外
				とした ^{※注2} 。
		重量と体積増加か	- (対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		ら計算		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
				ない。
				また、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後にサ
				ンプリングした試料がないと検査できないため、
				対象外とした **注2。

表 3.4.4-1 榠擬般復燃料粒子を用いた実施可能な検査項目の検討結果	$\frac{1}{5}$	5)
--	---------------	----

- 注1:高温工学試験研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC)は、軟X線透過装置を用いてX線写真を撮影してX線ラジ オグラフ法⁽²⁾を実施していた。しかし、ZrC層が存在する被覆燃料粒子ではX線透過能力が不十分なため軟X線透過装置によるZrC層付近のX 線写真撮影が困難であり、新たにX線透過能力が非常に大きな大型X線透過装置も使用する必要があることが平成17年度~平成20年度文部科 学省革新的原子力システム技術開発公募事業革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発の成果として判明している。この大型X線透過装置 は非常に高価であるだけでなく、Puを取り扱うグローブボックス内に収納するにはあまりに大きすぎ、且つ外部漏えいX線も考慮しなければな らないため、グローブボックス設計の成立性(コスト,閉じ込め,遮蔽等)に大きな課題を与えてしまう可能性が非常に高い。また、Pu02燃料核 を使用した被覆燃料粒子(Pu02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC等)の被覆層厚さの検査方法⁽⁶⁾は、X線ラジオグラフ法を適用していない(二次元 測定及び金相観察結果のクロスチェックである)。したがって、X線ラジオグラフ法は対象外とする。
- 注 2:使用する被覆試験用の装置に対して模擬燃料核の絶対量が少ないため、製造上の問題で後工程の被覆層への被覆条件の決定に非常に大きな影響 がある中間サンプリングを避ける必要性があった。したがって、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後,高密度熱分解炭素層(I-PyC 層)被覆後 及び炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリングした試料はない。

検	查項目	検査方法	検討結果	備考(理由等)
高密度	被覆層厚さ	金相試験法(金相試	可(比較試験)	従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)を
熱分解		験-投影機法)		選定した。
炭素層		金相試験法(金相試		新規手法として、金相試験法(金相試験-画像解
I-PyC		験-画像解析法)		析法)を選定した。
		X線ラジオグラフ法	-(対象外)	対象外とした *注1
		二次元測定及び金	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		相観察結果のクロ		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
		スチェック		ないが、
				金相試験法(金相試験-投影機法)及び金相試験法
				(金相試験-画像解析法)と大差のない手法と判断
				し、対象外とした。
	被覆層密度	浮遊沈降法	-(対象外)	高密度熱分解炭素層(I-PyC層)被覆後にサンプリ
				ングした試料がないと検査できないため、対象外
				とした ^{※注2} 。
		重量と体積増加か	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		ら計算		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
				ない。
				また、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後及び
				高密度熱分解炭素層(I-PyC層)被覆後にサンプリ
				ングした試料がないと検査できないため、対象外
				とした ^{※注2} 。
	光学的異方	BAF 法	- (対象外)	BAF 法は、経験がなく、且つ具体的な検査方法も
	性因子	OPTAF 法		わからず実施できないため、対象外とした。
	OPTAF	エリプソメトリー		OPTAF 法は、旧日本原子力研究所で確立した手法
		法		²² であるが装置が老朽化している。また、グロー
				ブボックス用の光学的異方性因子測定装置の設計
				に対応するためのベテラン経験者がいない状況か
				ら適用自身が困難な状況であるため、対象外とし
				た。
				エリプソメトリー法は、グローブボックスへの適
				用を考慮済みである。また、被覆燃料粒子向けに
				確立・最適化され装置が製品化されているこた
				め、検査技術開発を行う必要性のない手法と判断
				し、対象外とした。

注1:高温工学試験研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC)は、軟X線透過装置を用いてX線写真を撮影してX線ラジ オグラフ法⁽²⁾を実施していた。しかし、ZrC層が存在する被覆燃料粒子ではX線透過能力が不十分なため軟X線透過装置によるZrC層付近のX 線写真撮影が困難であり、新たにX線透過能力が非常に大きな大型X線透過装置も使用する必要があることが平成17年度~平成20年度文部科 学省革新的原子力システム技術開発公募事業革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発の成果として判明している。この大型X線透過装置 は非常に高価であるだけでなく、Puを取り扱うグローブボックス内に収納するにはあまりに大きすぎ、且つ外部漏えいX線も考慮しなければな らないため、グローブボックス設計の成立性(コスト,閉じ込め,遮蔽等)に大きな課題を与えてしまう可能性が非常に高い。また、Pu02燃料核 を使用した被覆燃料粒子(Pu02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC等)の被覆層厚さの検査方法⁽⁶⁾は、X線ラジオグラフ法を適用していない(二次元 測定及び金相観察結果のクロスチェックである)。したがって、X線ラジオグラフ法は対象外とする。

注 2:使用する被覆試験用の装置に対して模擬燃料核の絶対量が少ないため、製造上の問題で後工程の被覆層への被覆条件の決定に非常に大きな影響 がある中間サンプリングを避ける必要性があった。したがって、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後,高密度熱分解炭素層(I-PyC 層)被覆後 及び炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリングした試料はない。

|--|

検	查項目	検査方法	検討結果	備考 (理由等)
炭化ケ	被覆層厚さ	金相試験法(金相試	可(比較試験)	従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)を
イ素層		験-投影機法)		選定した。
SiC		金相試験法(金相試		新規手法として、金相試験法(金相試験-画像解
		験-画像解析法)		析法)を選定した。
		X線ラジオグラフ法	-(対象外)	対象外とした ^{※注1}
		二次元測定及び金	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		相観察結果のクロ		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
		スチェック		ないが、
				金相試験法(金相試験-投影機法)及び金相試験法
				(金相試験-画像解析法)と大差のない手法と判断
				し、対象外とした。
	被覆層密度	浮遊沈降法	可(検討のみ)	従来法として浮遊沈降法は、破砕、焙焼、酸洗浄
				といった前処理後に微小な被覆層を作業者が採取
				し、重液(有機溶媒)で密度測定するので全て手作
				業となり、且つ作業時間もかかる。したがって、
				液浸置換法との比較検討のみを行う。
		重量と体積増加か	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		ら計算		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
				ない。
				また、高密度熱分解炭素層(I-PyC層)被覆後及び
				炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリングした試
				料がないと検査できないため、対象外とした** ^注
				2 0

注1:高温工学試験研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC)は、軟X線透過装置を用いてX線写真を撮影してX線ラジ オグラフ法⁽²⁾を実施していた。しかし、ZrC層が存在する被覆燃料粒子ではX線透過能力が不十分なため軟X線透過装置によるZrC層付近のX 線写真撮影が困難であり、新たにX線透過能力が非常に大きな大型X線透過装置も使用する必要があることが平成17年度~平成20年度文部科 学省革新的原子力システム技術開発公募事業革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発の成果として判明している。この大型X線透過装置 は非常に高価であるだけでなく、Puを取り扱うグローブボックス内に収納するにはあまりに大きすぎ、且つ外部漏えいX線も考慮しなければな らないため、グローブボックス設計の成立性(コスト,閉じ込め,遮蔽等)に大きな課題を与えてしまう可能性が非常に高い。また、Pu02燃料核 を使用した被覆燃料粒子(Pu02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC等)の被覆層厚さの検査方法⁽⁶⁾は、X線ラジオグラフ法を適用していない(二次元 測定及び金相観察結果のクロスチェックである)。したがって、X線ラジオグラフ法は対象外とする。

注 2:使用する被覆試験用の装置に対して模擬燃料核の絶対量が少ないため、製造上の問題で後工程の被覆層への被覆条件の決定に非常に大きな影響 がある中間サンプリングを避ける必要性があった。したがって、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後,高密度熱分解炭素層(I-PyC 層)被覆後 及び炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリングした試料はない。

表 3.4.4-1	模擬被覆燃料粒子を用いた実施可能な検査項目の検討結果(4/5))

検査項目		検査方法	検討結果	備考(理由等)
高密度	被覆層厚さ	金相試験法(金相試	可(比較試験)	従来法として金相試験法(金相試験-投影機法)を
熱分解		験-投影機法)		選定した。
炭素層		金相試験法(金相試		新規手法として、金相試験法(金相試験-画像解
0-PyC		験-画像解析法)		析法)を選定した。
		X線ラジオグラフ法	-(対象外)	対象外とした ^{※注1}
		二次元測定及び金	- (対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		相観察結果のクロ		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
		スチェック		ないが、
				金相試験法(金相試験-投影機法)及び金相試験法
				(金相試験-画像解析法)と大差のない手法と判断
				し、対象外とした。
	被覆層密度	液浸置換法	可	従来法として液浸置換法を選定した。
		重量と体積増加か	-(対象外)	経験がなく、参考文献(6)に詳細が記載されてい
		ら計算		ないため、具体的な検査方法もわからず実施でき
				ない。
				また、炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリング
				した試料がないと検査できないため、対象外とし
				た ※注2。
	光学的異方	BAF 法	- (対象外)	BAF 法は、経験がなく、且つ具体的な検査方法も
	性因子	OPTAF 法		わからず実施できないため、対象外とした。
	OPTAF	エリプソメトリー		OPTAF 法は、旧日本原子力研究所で確立した手法
		法		⁽¹⁾ であるが装置が老朽化している。また、グロー
				ブボックス用の光学的異方性因子測定装置の設計
				に対応するためのベテラン経験者がいない状況か
				ら適用自身が困難な状況であるため、対象外とし
				teo
				エリプソメトリー法は、グローブボックスへの適
				用を考慮済みである。また、被覆燃料粒子向けに
				確立・最適化され装置が製品化されているこた
				め、検査技術開発を行う必要性のない手法と判断
				し、対象外とした。

注1:高温工学試験研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC)は、軟X線透過装置を用いてX線写真を撮影してX線ラジ オグラフ法⁽²⁾を実施していた。しかし、ZrC層が存在する被覆燃料粒子ではX線透過能力が不十分なため軟X線透過装置によるZrC層付近のX 線写真撮影が困難であり、新たにX線透過能力が非常に大きな大型X線透過装置も使用する必要があることが平成17年度~平成20年度文部科 学省革新的原子力システム技術開発公募事業革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発の成果として判明している。この大型X線透過装置 は非常に高価であるだけでなく、Puを取り扱うグローブボックス内に収納するにはあまりに大きすぎ、且つ外部漏えいX線も考慮しなければな らないため、グローブボックス設計の成立性(コスト,閉じ込め,遮蔽等)に大きな課題を与えてしまう可能性が非常に高い。また、Pu02燃料核 を使用した被覆燃料粒子(Pu02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC等)の被覆層厚さの検査方法⁽⁶⁾は、X線ラジオグラフ法を適用していない(二次元 測定及び金相観察結果のクロスチェックである)。したがって、X線ラジオグラフ法は対象外とする。

注 2:使用する被覆試験用の装置に対して模擬燃料核の絶対量が少ないため、製造上の問題で後工程の被覆層への被覆条件の決定に非常に大きな影響 がある中間サンプリングを避ける必要性があった。したがって、低密度熱分解炭素層(Buffer 層)被覆後,高密度熱分解炭素層(I-PyC 層)被覆後 及び炭化ケイ素層(SiC)被覆後にサンプリングした試料はない。

表 3.4.4-1	模擬被覆燃料粒子を用いた実施可	能な検査項目の検討結果(5/5)

検	查項目	検査方法	検討結果	備考(理由等)
被覆燃	外観	顕微鏡法	可	従来法として顕微鏡法を選定した。
料粒子	直径	PSA 法	可(投影機法)	従来法として投影機法を選定した。
		投影機法		PSA 法は、模擬被覆燃料粒子の直径が高温工学試験
		X線ラジオグラフ法		研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子よりも大きく装置
				の調整が容易に出来ないこと、製造した粒子形状が
				いびつだと装置内で詰まる可能性があることを考慮
				し、選定から除外した。
				X線ラジオグラフ法は直径と被覆層厚さの両方に適
				用すると検査手法の共用化の観点で利点が大きい
				が、後者の被覆層厚さへの適用性については問題が
				ある ^{※注1} 。したがって、検査手法の共用化が出来な
				いことから、選定から除外した。
		X線写真	- (対象外)	参考文献(6)に詳細が記載されていないが、X 線ラジ
				オグラフ法と類似の手法と判断し、対象外とした。
	断面金相	金相試験法	可	従来法として金相試験法を選定した。

注1:高温工学試験研究炉(HTTR)向けの被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/O-PyC)は、軟X線透過装置を用いてX線写真を撮影してX線ラジ オグラフ法⁽²⁾を実施していた。しかし、ZrC層が存在する被覆燃料粒子ではX線透過能力が不十分なため軟X線透過装置によるZrC層付近のX 線写真撮影が困難であり、新たにX線透過能力が非常に大きな大型X線透過装置も使用する必要があることが平成17年度~平成20年度文部科 学省革新的原子力システム技術開発公募事業革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発の成果として判明している。この大型X線透過装置 は非常に高価であるだけでなく、Puを取り扱うグローブボックス内に収納するにはあまりに大きすぎ、且つ外部漏えいX線も考慮しなければな らないため、グローブボックス設計の成立性(コスト,閉じ込め,遮蔽等)に大きな課題を与えてしまう可能性が非常に高い。また、Pu02燃料核 を使用した被覆燃料粒子(Pu02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/O-PyC等)の被覆層厚さの検査方法⁽⁶⁾は、X線ラジオグラフ法を適用していない(二次元 測定及び金相観察結果のクロスチェックである)。したがって、X線ラジオグラフ法は対象外とする。

構成 ※注1	模式図(ZrC 層無し)	模式図(ZrC 層有り)
模擬燃料核 ※注2	YSZ 直径0.4mm	YSZ -I-PyC ZrC
炭化ジルコニウム層 ZrC		210
低密度熱分解炭素層 Buffer	Buffer	Buffer
高密度熱分解炭素層 I-PyC	I-PyC	I-PyC
炭化ケイ素層 SiC	Sic	SiC
高密度熱分解炭素層 0-PyC	О-РуС	О-РуС
模擬被覆燃料粒子	YSZ Buffer I-PyC SiC O-PyC	I-PyC VSZ ZrC Buffer I-PyC SiC O-PyC

表 3.4.4-2 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの構成

注1:文中で模擬被覆燃料粒子の構成を表す場合は次のように記載する。 模擬被覆燃料粒子(ZrC 層無し)の場合、YSZ/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC 模擬被覆燃料粒子(ZrC 層有り)の場合、YSZ/I-PyC/ZrC/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC

注2: 模擬燃料核が真球に近い形態でないと被覆工程での被覆層厚さのバラツキが大きくなり、検査技術開発の評価が困難になることから、模擬燃料核は真球に近い形態として YSZ または YSZ を含む粒子を選定した(CeO₂-YSZ 模擬燃料 核は使用しない)。

項目	内容
検査手法	金相試験法(金相試験-投影機法)※注1
使用装置	 メーカー名:(株)リファインテック 装置名:試料研磨機(プレス機を含む) 装置外観:右写真を参照 メーカー名:(株)ヤマト科学 装置名:検査乾燥機 装置外観:右下(左側)の写真を参照 メーカー名:(株)オリンパス 装置名:顕微鏡 No.4 装置外観:右下(右側)の写真を参照
	メーカー名:(株)ニコン 装置名 :投影機 型式 :V-12 装置外観:右写真を参照
検査手順の概要	 ・プレス機に試料と金相埋込樹脂を加え、金相埋込試料を作製する。 ・試料研磨機本体に金相埋込試料をセットし、金相研磨(研磨紙,ダイヤモンドペーストを使用)を行う。 ・検査乾燥機に金相研磨試料をセットし、乾燥(約90℃)を行う。 ・顕微鏡に金相研磨試料をセットし、金相研磨面を確認する。 ・投影機に金相研磨試料をセットし、各被覆層の厚さを測定する。
被覆層厚さ測定条件	 ・試料 : 2 バッチ ・測定数: 50 個/バッチ
取得データ	・各測定値・平均値、標準偏差

表 3.4.4-3 模擬被覆燃料粒子の被覆層厚さ測定条件(金相試験法(金相試験-投影機法))

注1:参考文献(2)では、「金相試験」に分類されるが、ここでは便宜上、金相試験法(金相試験-投影機法)と記載した。

表 3.4.4-4 模擬被覆燃料粒子の被覆層厚さ測定条件(金相試験法(金相試験-画像解析法))

項目	内容		
検査手法	金相試験法(金相試験-画像解析法)※注1		
使用装置	 メーカー名:(株)リファインテック 装置名:試料研磨機(プレス機を含む) 装置外観:右写真を参照 メーカー名:(株)ヤマト科学 装置名:検査乾燥機 装置外観:右下(左側)の写真を参照 		
	メーカー名:(株)オリンパス 装置名 :顕微鏡 No.4 装置外観:右下(右側)の写真を参照		
	画像解析ソフトウェア名:Leafareacounter Plus		
検査手順の概要	 ・ブレス機に試料と金相埋込樹脂を加え、金相埋込試料を作製する。 ・試料研磨機本体に金相埋込試料をセットし、金相研磨(研磨紙,ダイヤモンドペーストを使用)を行う。 ・検査乾燥機に金相研磨試料をセットし、乾燥(約90℃)を行う。 ・顕微鏡に金相研磨試料をセットし、金相研磨面を確認後、画像データを取得する。 ・画像解析ソフトウェアに画像データを読み込み、各被覆層の厚さを測定する^{※注2}。 		
被覆層厚さ測定条件	 ・試料 : 2 バッチ ・測定数: 50 個/バッチ 		
取得データ	・各測定値・・平均値、標準偏差		

注1:参考文献(3)(4)

注2:本検査技術開発の画像解析は、あくまで手動測定である(画像解析自身の自動化は適用対象外)。

項目	内容
検査手法	液浸密度法 *注1
使用装置	 メーカー名:(株)ヤマト科学 装置名:マッフル炉 装置外観:右写真(左側)を参照 メーカー名:- 装置名:検査作業台 装置外観:右写真(右側)を参照
検査手順の概要	 ・白金ルツボ、試料重量を測定する(高温酸化前)。 ・比重瓶(ピクノメータ)にブチルアルコール,試料を入れ重量を測定する(高温酸化前)。 ・マッフル炉に試料を入れ、900℃で高温酸化させ、試料の高密度熱分解炭素層 0-PyCを除去する。 ・白金ルツボ、試料重量を測定する(高温酸化後)。 ・比重瓶(ピクノメータ)にブチルアルコール,試料を入れ重量を測定する(高温酸化後)。 ・比重瓶(ピクノメータ)にブチルアルコール,試料を入れ重量を測定する(高温酸化後)。 ・高温酸化前・後の各測定値,比重瓶(ピクノメータ)の容積、重量から被覆層密度を求める。
被覆密度測定条件	・試料 :1バッチ ^{※注2} ・測定数 : n=2/バッチ
取得データ	・測定値 ・平均値、標準偏差

表 3.4.4-5 模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件(液浸密度法)

注1:参考文献(2)

注2:高密度熱分解炭素層 0-PyC 用。模擬被覆燃料粒子は2バッチあるが、一方の高密度熱分解炭素層 0-PyC は十分な被覆層厚さがなく、被覆層密度 を測定するには不十分であるため測定対象から除外した。

項目	内容
検査手法	液浸置換法(従来法) ^{※注1}
概略手順	 高密度熱分解炭素層 0-PyC 用の液浸置換法(従来法)の概略手順は、次のとおり。 高密度熱分解炭素層 0-PyC まで被覆した被覆燃料粒子(U02燃料核/Buffer/I-PyC/SiC/0-PyC)の体積を比重瓶(ピクノメータ)、重量を天秤で測定する。この試料を空気中、高温酸化し、高密度熱分解炭素層 0-PyC を除去する。酸化後の重量を測定し、その体積を比重瓶で測定する。上記の測定結果を元に 0-PyC 層密度を求める。 第1度 第1度 第4層密度 【4(Mg/m³)= <u>W4-W3</u> (Mg/m³)= <u>W4-W3</u> (Mg/m³) (Mg

表 3.4.4-6 模擬被覆燃料粒子の被覆層密度測定条件(液浸置換法)
注1:出典は、JAERI-M-92-079 高温工学試験研究炉の燃料検査基準

なお、図中の第1層、第2層、第3層、第4層は、それぞれ Buffer、I-PyC、SiC、O-PyCを指す。

表 3.4.4-7 模擬被復燃料粒子の被復層密度測定条件(浮遊沈降法)	表 3.4.4-7 模	子の被覆層密度測定条件(浮遊沈降法)
-------------------------------------	-------------	--------------------

注1:出典は、JAERI-M-92-079 高温工学試験研究炉の燃料検査基準

-

-

なお、図中の第1層、第2層、第3層、第4層は、それぞれ Buffer、I-PyC、SiC、O-PyC を指す。

項目	内容
検査手法	投影機法(従来法) ^{※注1}
使用装置	 メーカー名:(株)ニコン 装置名 :投影機 型式 :V-20B 装置外観:右写真を参照
検査手順の概要	・投影機の試料ステージに試料をセットし、投影機法により直径測定を行う ^{※注2} 。
直径測定条件	・試料 : 2 バッチ ・測定数: 50 個/バッチ
取得データ	 ・各測定値 ・平均値、標準偏差

表 3.4.4-8	模擬被覆燃料粒子の直径測定条件	(投影機法)

注1:参考文献(2)では、「金相試験」に分類されるが、ここでは便宜上、投影機法と記載した。

注2:参考文献(2)の「金相試験」では金相試料作製後の金相断面に対して投影機法により直径測定を行うが、金相試料作製段階で研磨し過ぎると正確な直径の取得が困難となること、また他の新規手法との比較する際に測定対象の試料の同一性を考慮し、本試験ではあえて試料研磨は実施しないこととした。

項目	内容
検査手法	顕微鏡法(従来法) ^{※注1}
使用装置	メーカー名:(株)ニコン 装置名 :顕微鏡 装置外観:右写真を参照
検査手順の概要	・顕微鏡の試料ステージに試料をセットし、顕微鏡法により外観観察を行う。
外観観察条件	 ・試料 :2バッチ
取得データ	・外観写真

表 3.4.4-9 模擬被覆燃料粒子の外観観察条件(顕微鏡法)

注1:参考文献(2)では、「目視」に分類されるが、著しい割れ、欠け、付着物等が認められないことを拡大鏡等を用いて確認することからここでは便 宜上、顕微鏡法と記載した。

項目	内容
検査手法	金相試験法(従来法)※注1
使用装置	 メーカー名:(株)リファインテック 装置名:試料研磨機(プレス機を含む) 装置外観:右写真を参照 メーカー名:(株)ヤマト科学 装置名:検査乾燥機 装置外観:右下(左側)の写真を参照 メーカー名:(株)オリンパス 装置名:顕微鏡 No. 4 装置外観:右下(右側)の写真を参照
検査手順の概要	 ・プレス機に試料と金相埋込樹脂を加え、金相埋込試料を作製する。 ・試料研磨機本体に金相埋込試料をセットし、金相研磨(研磨紙,ダイヤモンドペーストを使用)を行う。 ・検査乾燥機に金相研磨試料をセットし、乾燥(約90℃)を行う。 ・顕微鏡に金相研磨試料をセットし、金相研磨面の観察を行う。
取得データ	・被覆層が正常に被覆されていることを確認する(実用上、差し支えないこと)。

表 3.4.4-10 模擬被覆燃料粒子の断面組織観察条件(金相試験法)

注1:参考文献(2)



a)滴下·熟成装置

も)装置全面に設置したフードカバー(a)滴下・熟成装置の外観



(b) チューブ炉の外観

図 3.4.1-1 本事業で整備した主な設備



a)アンモニア水中を沈降する滴下原液



b)アンモニア水中で流動するゲル粒子



c)エバポレータ中で乾燥中のゲル粒子(右:拡大)

図 3.4.1-2 乾燥ゲル粒子開発の状況例(平成 27 年度)



a)割れた乾燥ゲル粒子(Y01)の例

b)割れなかった乾燥ゲル粒子の例(Y05)



c)表面ヒビが見られた乾燥ゲル粒子の例(Y25) d)小粒径化した乾燥ゲル粒子の例(Y30)

図 3.4.1-3 乾燥ゲル粒子割れ改善の例(平成 27 年度成果)







図 3.4.1-5 粒子形状改善前後の外観比較 (平成 27 年度成果(バッチ No. Y31)と平成 28 年度成果(バッチ No. Y64))





図 3.4.1-6 バッチ No. Y64 粒子の SEM/EDS 分析結果(平成 28 年度成果)



(焼結前の例)



(焼結後の例)

図 3.4.1-7 熱処理前後の外観例



図 3.4.2-1 PuO₂/CeO₂-YSZ を燃料核/模擬燃料核とした 3S-TRISO 被覆粒子の概要



a) ZrO₂(0.34mm)100 g 投入 50L/min 時の流動状態(平成 27 年度)



b) ZrO₂(0.7 mm)2000 g 投入、200L/min 時流動状態(平成 26 年度)

図 3.4.2-2 ZrO2模擬粒子を用いた粒子模擬流動試験の例



図 3.4.2-3 粒径とガス流量の関係の整理



b)<u>00PB17-2004</u> ざわた佐告号 500 c)

a)00PB17-2002

(いずれも装荷量 500 g)

図 3.4.2-4 被覆条件検討試料(00PB17-2002) 及び 3S-TRISO 被覆粒子(00PB17-2004)の金相外観



図 3.4.3-1 3S-TRISO 燃料コンパクトの製造工程フローと燃料コンパクトの概念図



図 3.4.3-2 オーバーコート工程の概念図



図 3.4.3-3 コンパクトプレス工程の概念図



プレス後のグリーンコンパクト (17-T1001)



焼成後の 3S-TRISO 燃料コンパクト (17-T1001)

図 3.4.3-4 3S-TRISO 燃料コンパクトの外観



図 3.4.3-5 焼成後の 3S-TRISO 燃料コンパクト (17-T1001) 金相試料中の 3S-TRISO 被覆粒子の外観



図 3.4.4-1 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの外観写真



図 3.4.4-2 金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)による被覆層厚さ測定結果(50 個) (模擬被覆燃料粒子は ZrC 層無し、バッチ No. 00PB16-2008)



図 3.4.4-3 金相試験法(金相試験-投影機法)(従来法)による被覆層厚さ測定結果(50 個) (模擬被覆燃料粒子は ZrC 層有り、バッチ No. 00PB16-2009)



図 3.4.4-4 従来法と新規手法の変動係数による被覆層厚さ測定結果(50 個) (模擬被覆燃料粒子は ZrC 層無し、バッチ No. 00PB16-2008)



被覆層厚さ測定手法

図 3.4.4-5 従来法と新規手法の変動係数による被覆層厚さ測定結果(50 個) (模擬被覆燃料粒子は ZrC 層有り、バッチ No. 00PB16-2009)



図 3.4.4-6 液浸置換法(従来法)による被覆層厚さ測定結果 (模擬被覆燃料粒子は ZrC 層無し、バッチ No. 00PB16-2008)



図 3.4.4-7 投影機法(従来法)による直径測定結果(50 個) (上:バッチ No.00PB16-2008,下:バッチ No.00PB16-2009)



図 3.4.4-8 模擬被覆燃料粒子 2 バッチの金相写真

3.5 ZrC 層被覆試験と特性評価(H26~H29) (再委託先:原子力機構)

3.5.1 目的

セキュリティ強化型安全燃料における炭化ジルコニウム(Zirconium carbide: ZrC)層の最適 な被覆条件を検討するため、CeO₂-イットリア安定化ジルコニア(Yttria stabilized zirconia: YSZ)模擬燃料核を用いた ZrC 被覆試験を、流動条件や原料ガス組成などの蒸着条件を変えて行 うとともに、試験で得られる ZrC 層及び CeO₂-YSZ の材料特性データ(厚さ、密度など)と蒸着 条件の相関を定量的に評価した。

平成 26 年度は、既存の ZrC 被覆試験装置^(1,2)を安全に運転する準備のため、ガス検知器等インターロック装置、電気炉、臭化物ガス供給装置及び排気ガス処理装置を整備し、装置の試運転 を行った。

平成 27 年度は、臭化物 ZrC 化学蒸着法にもとづき、ZrC 被覆試験装置へ装荷した YSZ 模擬燃料核の流動条件(原料ガス流量、流動床温度分布など)を取得するとともに、YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を開始し、ZrC 層及び YSZ 境界面の材料特性データ(厚さ、密度、定比性など)を取得した。

平成 28 年度は、臭化物 ZrC 化学蒸着法にもとづき、ZrC 被覆試験装置へ装荷した YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を引き続き行い、ZrC 化学蒸着条件データ(粒子装荷量、原料ガス流量、流動床温度分布など)を取得するとともに、YSZ 模擬燃料核 ZrC 層及び YSZ 境界面の材料特性デ ータ(厚さ、密度、定比性など)を取得し、ZrC 化学蒸着条件との相関について検討した。

平成 29 年度は、臭化物 ZrC 化学蒸着法にもとづき、ZrC 被覆試験装置へ装荷した CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を行い、CeO₂-YSZ 模擬燃料核 ZrC 層及び CeO₂-YSZ 境界面の材料特 性データ(厚さ、密度、定比性など)を取得し、ZrC 化学蒸着条件との相関について検討した。

3.5.2 ZrC 被覆試験装置の点検・修理、改造及び動作確認(H26)

ZrC 被覆試験装置及び構成概略図を図 3.5-1、3.5-2 にそれぞれ示す。臭化物化学蒸着法(臭 化物法)による ZrC 被覆プロセスはバッチ式で、1 バッチの処理に約 8 時間程度を必要とする。 原料となる模擬粒子を安定にガス中で流動させた状態を保持しつつ高温下で被覆ガスを導入し、 模擬粒子表面に被覆層を化学蒸着させることにより行う。そのため装置は、アルゴン(Ar)、臭 素(Br₂)、メタン(CH₄)、水素(H₂)の各種ガスを調整し流動床本体へ供給することができる ガス調整装置(ガスパネル+Br₂ガス発生装置)、模擬粒子に化学蒸着を行う流動床本体、化学 蒸着反応により発生した副生成物質であるスス、臭化水素(HBr)、H₂ガス等を取り除く廃ガス処 理装置(バグフィルター、HBr 吸収塔、廃ガス燃焼装置)で構成されている。

本装置が採用する臭化物法の主な化学蒸着反応は、約 600℃にて臭素と金属ジルコニウム(Zr) を反応させ臭化ジルコニウム(ZrBr_n(n=2, 3, 4))を生成する反応:

$Br_2 + Zr \rightarrow aZrBr_4 + bZrBr_3 + cZrBr_2$

上記反応により生成した四臭化ジルコニウム (ZrBr₄) とメタンにより温度 1350~1500℃で ZrC を生成する反応:

 $ZrBr_{4} + CH_{4} \rightarrow ZrC + 4HBr$

に大別され、これらにより ZrC を粒子表面に化学蒸着させる。

平成 26 年度は、原子力機構大洗研究開発センター応用工学建屋に設置された既存の ZrC 被覆 試験装置を運転可能な状態とするため、当該装置の点検・修理を実施した。本作業においては、 ZrC 被覆層試験装置を点検して、部品交換が必要な箇所を洗い出した。部品交換などを行って試 験装置を整備した後、試運転を行って正常に動作することを確認した。以上により、ZrC 被覆試 験装置の長期間にわたる休止状態から運転可能な状態にすることができた。

3.5.3 YSZ 模擬燃料核の流動条件(H27~H28)

ZrC 被覆試験装置へ装荷した YSZ 模擬燃料核の流動条件のうち、流動床温度分布、及び、ガス 流量に対する粒子流動状態の取得を行った。

(1) 高温下での炉内温度分布の把握(H27)

被覆前の基礎データの1つとして、粒子が流動する領域における制御温度に対する炉内温度分 布を確認することは重要である。粒子が流動しているベッド部(スパウトベッド内の粒子部分) は、原料・流動ガスを導入するノズルが単一(シングルノズル、ノズルロ径φ3 mm)のタイプを 用いて、温度分布の中心として高さ方向の温度分布を測定した。温度制御方式は、高周波コイル の出力(kW)を一定に保持し、Ar 雰囲気中で、定比 ZrC(Zr と C の原子数比が 1)を得られる温 度条件である 1350℃⁽¹⁾及びこれより 100℃程度高い温度領域についてそれぞれ測定した。温度測 定には熱電対を使用した。図 3.5-3 に温度分布測定結果を示す。本試験の結果として、中心温度 約 1350℃及び約 1430℃が得られ、スパウトベッド内で流動中の粒子の温度変化は各々の中心温 度で最大 120℃程度であることがわかった。

(2) 粒子流動特性の把握(H27~H28)

粒子の流動状態が不安定な状態で被覆を行うと ZrC 層の健全性に悪影響を与えるため、被覆前 の基礎データの1つとして粒子流動特性を把握することは重要である。ZrC 化学蒸着条件につい ては、特に、YSZ 模擬燃料核の小径化(700 μm→500~300 μm)に対応したデータを取得して いく必要がある。そこで、ZrC 被覆試験装置へ装荷した YSZ 模擬燃料核の流動条件のうち、製造 時の ZrC 被覆層の破損が生じにくい安定流動状態におけるガス流量等データの取得を目的として、 粒子流動試験を行った。

平成 27 年度は、YSZ 模擬燃料核直径が 300 μ m または 500 μ m、装荷バッチ量が 50 g (300 μ m のみ)、100 g、150 g、200 g の条件において、原料・流動ガスを導入するノズルが単一 (シングルノズル、ノズル口径 ϕ 3 mm)のスパウトベッドを用いて粒子流動特性を把握した。その結果、500 μ m 直径の粒子では安定状態が得られたが、300 μ m では得られず、ノズルから粒子が落下する事象が観察された。

そこで、平成 28 年度は、従来よりも小径化した YSZ 模擬燃料核を用いて流動特性を把握する ために、以下を実施した。

まず、粒子脱落を防止する対策として、ノズルロ径を小径化することとした。そのため、多孔 ノズル(マルチノズル)を採用した新型のスパウトベッドを設計・製作し、ZrC 被覆試験装置に 導入した。小径化したノズルロ径ならびにノズルロ数を決定する上で、スパウトベッドにおいて ノズルから噴出するガス流量条件が、従来型シングルノズルの条件と理論上同一となるよう留意 した。そこで、マルチノズルの合計断面積が、口径 φ 3 mm のシングルノズルにおける断面積 (約 0.071 cm²) と同一となるよう、ノズルの口径と口数を決定することとした。また、マルチ ノズルの口数と配置を決定する上で、粒子の流動状態の安定性ならびに粒子上への被覆層の化学 蒸着の均一性を考慮し、流動ガスの流れ方向に対して軸対称となる口数及び配置となるように設 計することとした。また、定比 ZrC (Zr と C の原子数比が 1) を得られる被覆温度である 1350℃ ⁽¹⁾を確実に得られるように、粒子が流動しているベッド部 (スパウトベッド内の粒子部分)を中 心とする高さ方向の温度分布が、平成 27 年度に取得した温度分布測定データ (図 3.5-3) と同 等となるようにするため、マルチノズル型スパウトベッドの傾斜角度 (60°)、最大口径 (φ 42.0 mm)、ならびに素材 (メカニカルカーボン(株)製等方性黒鉛 MC-4333) は、従来のシング ルノズル型スパウトベッドと同一に設定した。以上の方針に従って、マルチノズル型スパウトベ ッドを設計した結果、ノズルロ数及び口径が、φ1.5 mm 及び 4 孔のノズルを設定できた。以上 のように設計した新型スパウトベッドのうち、4 孔タイプの概略図を、図 3.5-4 に示す。

また、新型の4孔マルチノズル型スパウトベッドを用いた粒子流動試験を実施し、常温非加熱ならびに実際のZrC被覆温度(1350℃)の両方において、流動ガス(Ar、又はZrC被覆温度においてH2 ガス)を用いて、ノズルからの粒子落下がないこと、ならびに、粒子流動状態を把握した。常温非加熱下におけるArによる流動試験においては、YSZ模擬燃料核として、ニッカトー 社製YTZボール(直径 ϕ 400 μ m、ロット No. ZCP-04P05)を用いて、1バッチの重量は実際のZrC被覆試験と同一の100gに設定した。その結果、いずれのスパウトベッドにおいても、被覆試験の昇温前におけるYSZ模擬燃料核の投入時点において、Ar流動ガスの流量を8~12 L/minの範囲に設定すればよいことを把握できた。

次に、実際の ZrC 被覆温度(1350℃)に昇温した条件下での流動試験においては、流動ガスに Ar、又は ZrC 被覆工程における流動ガスである H₂を使用した。YSZ 模擬燃料核は同じく、ニッカ トー社製 YTZ ボールを用いて、直径は ϕ 400 μ m (ロット No. ZCP-04P05)に設定した。1 バッチ の重量は同じく 100 g に設定した。本試験においては、高温下における粒子の流動状態を可視化 するため、ZrC 被覆試験装置上部へ CCD カメラを設置した。

図 3.5-5 に粒子流動特性の模式図を示す。流動ガス流量の上昇に伴い、粒子の流動状態として 大きく 2 つの状態;①安定:粒子流動が安定した状態(Normal Spouting)、②激しい流動:壁 面衝突を伴い激しく流動(Violent Spouting)あるいはピストン運動(Slagging)した状態、に 分類した。また、YSZ 模擬燃料核投入時における流動ガスは Ar とし、昇温前の開始流量は、非 加熱における試験で得られた 8 L/min に設定した。また、昇温時においては、スパウトベッド内 温度が最終的に定比 ZrC 被覆条件である約 1350℃で一定となるように調整した。粒子流動状態 の観察は、スパウトベッド内温度が 1350℃に到達後において実施すると共に、流動ガスを Ar か ら H₂へ切り替え、継続して観察を実施した。

新型のマルチノズル型スパウトベッドのうち、4 孔ノズルを用いた流動試験の結果を表 3.5-1 に示す。その結果、定常被覆温度においては、Ar ガス流量 8 L/min においては、激しい (Violent spouting または slugging の)流動状態であることが分かった。また、ガス流量を 8 L/min に維持したまま、流動ガスを Ar から H₂へ切り替えた場合においては、(切り替え直後よ り H₂ガスのより大きい吸熱によって炉内温度が一時的に低下するものの、その後、定常被覆温 度に回復した後に、)安定な流動状態が得られることを確認した。また、H₂ガスによる流動にお いて、流量を9 L/min に増加させる方向においては、安定な流動状態からやや激しい状態に移行 を開始し、さらに、流量 10 L/min 以上においては、激しい流動状態となることが分かった。ま た、H₂ガス流量を8 L/min から減少させる方向においては、安定な流動が得られる最低流量は6 L/min と分かった。なお、本試験の実施中ならびに流動ガスの切り替え操作の前後において、ノ ズルからの粒子の落下、あるいは流動しない状態はいずれも観察されなかった。以上の結果から、 定常被覆温度下においては、いずれのスパウトベッドを用いる場合においても、安定な流動状態 を得るには H₂流動ガスの流量を8 L/min に設定すればよいことを把握できた。

3.5.4 YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験及び特性評価(H27~H28)

平成 27 年度から 28 年度にかけて、臭化物 ZrC 化学蒸着法にもとづき、ZrC 被覆試験装置へ装 荷した YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を実施した。ZrC 層被覆試験で得られた ZrC 層及び YSZ 模擬燃料核境界面の特性評価として、厚さ、密度、定比性のデータを取得した。また、平成 28 年度は、ZrC 被覆粒子の走査透過型電子顕微鏡 (Scanning Transmission Electron Microscope: STEM))観察を実施した。

YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験(H27~H28)

YSZ 模擬燃料核表面が被覆ガスにより暴露されることにより、YSZ 組成成分(Zr, 0)が ZrC 被 覆に影響する可能性が考えられる。これについて、熱化学平衡計算(FactSage5.5)による検討 を行った。解析においては、基材として YSZ 模擬燃料核、被覆ガス及び温度の条件として定比 ZrC 被覆条件を以下のように設定した。

基材:10%Y₂O₃ + 90%ZrO₂(1 mol) 被覆ガス: ZrBr₄ + CH₄ + H₂(10 : 10 : 1600 mol) 被覆温度・圧力: 1000 ~ 1600℃、1 atm

解析の結果を横軸に被覆温度、縦軸にモル数として図 3.5-6 に示す。ZrC 以外の副生成物として ZrBrx(x=2,3)、Brx(x=1,2)、H₂0、HBr が認められるものの、YSZ の主成分である ZrO₂のモル 数はほとんど減少しないことが分かった。以上のことから、YSZ は ZrC 被覆ガスの暴露下においても殆ど分解せず、ZrC 生成への影響は小さいと考えられる。

上記にもとづき、YSZ 模擬燃料核上への定比 ZrC 層の被覆試験を実施した。本研究で実施した ZrC 被覆試験条件を表 3.5-2 に示す。本試験では、設定した定比 ZrC 被覆条件により定比性の良 い ZrC 層を取得可能であることの再現性を確認することを目的とした。そのため、被覆温度を定 比 ZrC が得られる 1350[°]C⁽¹⁾に設定するとともに、これまでに実績のあるシングルノズル型スパ ウトベッドを適用し、YSZ 模擬燃料核直径を 700 μ m に設定して試験を実施した。その結果、取 得した ZrC 被覆粒子の外観写真及び断面写真を図 3.5-7 及び図 3.5-8 にそれぞれ示す。

(2) ZrC 層及び YSZ 境界面の材料特性評価(H27~H28)

ZrC 層被覆試験で得られた ZrC 層及び YSZ 境界面の材料特性として、厚さ、密度、定比性のデータを取得するとともに、ZrC 被覆粒子の STEM 観察を実施した。

① ZrC厚さ

従来の SiC 被覆燃料粒子においては、SiC 層の厚さを測定する方法として非破壊的な X 線透過 法とその他の方法として投影機により測定する方法が用いられてきた⁽²⁾。X 線透過法と投影機に よる測定結果は、ZrC 層定比性の影響によらず非常によく一致することが分かっている⁽³⁾。そこ で本研究では、投影機(プロジェクター、Nikon V-12)を使用して ZrC 被覆粒子 50 個あたりの ZrC 層厚さ測定を行った。ZrC 厚さは、x 方向及び y 方向の ZrC 被覆粒子直径の平均値(n=50) と、同様に求めた YSZ 模擬燃料核直径の平均値(n=50)の差より算出した。測定結果を表 3.5-3 に示す。その結果、YSZ 模擬核上において取得した ZrC 層の厚さは、約 14~21 μ m であった。

ZrC 密度及び定比性

ZrC を YSZ 模擬燃料核に直接被覆した ZrC 層の定比性を求める方法として、焙焼重量法を適用 した。焙焼重量法は、ZrC 層を焙焼することにより酸化ジルコニウム ZrO₂とし、試験前後の重量 変化から Zr 及び C の含有量を算出する方法である。C の含有量は焙焼前後の ZrC 層の重量変化 から算出されるため、YSZ 模擬燃料核に直接 ZrC 層を被覆した(熱分解炭素(Pyrolitic carbon: PyC)を含まない) 粒子を用いることができる。なお、焙焼重量法による ZrC 定比性測定値の誤差 の見積もりについては、先行研究⁽²⁾で実施していた誘導結合プラズマ-発光分光分析法(Ion coupling plasma-atomic emission spectroscopy: ICP-AES) +酸化燃焼-赤外吸収法との比較試 験を平成 27 年度に実施し、95%信頼区間における精度(±0.015)が同程度であることを確認し ている。

焙焼重量法における、ZrC 被覆粒子試料の ZrC 定比性及び ZrC 密度の測定は、以下の手順で行った。まず、加熱酸化処理として、ZrC 被覆粒子試料、ならびに基材試料である YSZ 模擬燃料核を用いて、焙焼重量法にもとづき、加熱炉により加熱酸化処理し、得られた数値から ZrC 定比性を算出した。測定の繰り返し回数は3回とした。次に、重量・体積測定として、加熱酸化処理した ZrC 被覆粒子試料、ならびに基材試料について、天秤、ピクノメータにより、重量ならびに体積をそれぞれ測定し、得られた数値から ZrC 密度を算出した。測定の繰り返し回数は3回とした。 測定フローを図 3.5-9 に示す。

測定機器として、電気炉(ヤマト科学 F030)、天秤(A&D GH-202)、ピクノメータ三商 ゲーリュサック型 3 ml)を使用した。また、測定条件として、試料量 4 g、加熱条件として温度 850°C、3 時間を設定した。加熱酸化処理後の ZrC 層の除去においては、角に 2 mm 程度の穴の開 いたバットを用いて、焙焼後の ZrC 被覆粒子試料から ZrC 層を除去した。脆くなった ZrC 層と基 材試料を分離し、基材試料のみバットの穴を通過させ捕集した。

粒子密度、ZrC 密度、定比性(C/Zr 比)の計算式は、以下を用いた。

粒子密度(g/cm³) = <u>ZrC 被覆粒子重量(g)</u> <u>ZrC 被覆粒子体積(cm³)</u>

ZrC 密度(g/cm³) = <u>ZrC 被覆粒子重量(g)</u> - 基材試料重量(g) ZrC 被覆粒子体積(cm³) - 基材試料体積(cm³)

ZrC層試料重量(g) × (91.22 + 32) 加熱酸化処理後ZrO2重量(g) C/Zr = 12.01

なお、Zrの質量数を91.22、02の質量数を32、Cの質量数を12.01とした。

焙焼重量法を適用した ZrC 定比性測定結果を表 3.5-4 に、粒子密度の測定結果を表 3.5-5 に、 ZrC 密度の測定結果を表 3.5-6 にそれぞれ示す。ZrC 被覆バッチ No. ZrC-15-2003 及び ZrC-16-2001 については、同一バッチについて n-3 の試験を 2 回実施した。

以上により、YSZ 模擬燃料核を用いた試験では、定比性約 0.94~0.95、密度約 6.23~6.63 g/cm³の定比性の良い ZrC 層を取得することができ、設定した定比 ZrC 被覆条件についての再現 性を確認することができた。

(3) YSZ 模擬燃料核/ZrC 境界部分の透過型電子顕微鏡観察(H27~H28)

YSZ 模擬燃料核に ZrC 被覆したバッチ(ZrC-16-2001)及び、それにコンパクト焼成を模擬した 熱処理(1800℃1 時間保持)を施したもの(ZrC-16-2001HT)の計 2 バッチ、各々1 粒子から透過型電 子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) 試料を 1 個ずつ作製し、TEM/STEM 観察・ 分析を行った。

TEM 試料の作製においては、被覆粒子を機械研磨にて赤道面まで削り、機械研磨面を Ar イオ ンでミリングし、最終的には収束イオンビーム (Focused ion beam: FIB)加工により断面 TEM 試 料を作成した⁽⁴⁾。ZrC-16-2001 については ZrC 層と YSZ 模擬燃料核は結合していたため、YSZ 模 擬燃料核/ZrC 層の界面を含む領域の TEM 試料を作製することができたが、ZrC-16-2001HT につい ては、YSZ 模擬燃料核/ZrC 層は全周に渡って剥離しており、その間隙も全周に渡って大きかった ため、YSZ 模擬燃料核を含む TEM 試料の作製はできなかった。ただし、ZrC 層の内表面は含めた。 STEM 観察に用いた装置は、HD-2700 Cs-STEM(日立ハイテク製)である。観察時の温度は室温、加 速電圧は 200 kV で実施した。

図 3.5-10 に STEM 明視野像を示す。図 3.5-10(a)に示すように、熱処理前(ZrC-16-2001)の界 面及び YSZ 模擬燃料核・ZrC 層の微細構造は、平成 27 年度に観察を行った ZrC-06-2007 とほぼ 同じであった。即ち、YSZ 模擬燃料核/ZrC 層境界にはポアが存在するものの結合しており、ZrC 層は極めて微細な(50-200 nm 程度)結晶から成っていた。一方、熱処理後(ZrC-16-2001HT)は上 記のように YSZ 模擬燃料核と ZrC 層は完全に剥離していた。また、図 3.5-10(b)に示すように、 ZrC 結晶は数 μ m 程度まで成長していた。

3.5.5 CeO2-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験及び特性評価(H29)

CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 被覆試験条件を表 3.5-2 に示す。本試験では、平成 28 年度まで に YSZ 模擬燃料核で再現性を確認した定比 ZrC 被覆条件において、CeO₂-YSZ 模擬燃料核上へ定比 性の良い ZrC 層を取得可能であることを確認することを目的とした。そのため、被覆温度を定比 ZrC が得られる 1350[°]C⁽¹⁾に設定するとともに、4 孔マルチノズル型スパウトベッドを適用し、 YSZ 模擬燃料核直径を 400~440 μ m に設定して試験を実施した。目標被覆厚さを 10 μ m に設定 するため、目標被覆時間を 75 分に設定した。取得した ZrC 被覆粒子の外観写真及び断面写真を 図 3.5-11 及び図 3.5-12 にそれぞれ示す。また、得られた ZrC 被覆粒子について、X 線回折を行った。その結果を図 3.5-13 に示す。ZrC の回折ピークが得られたことから、ZrC の蒸着を確認することができた。その一方で、基材の成分である Ce と Zr の混合酸化物の回折ピークも同時に得られた。

(1) 特性評価

ZrC 層厚さ

ZrC 層厚さは、YSZ 模擬粒子と同一の方法で、投影機を使用して行った。その測定結果を表 3.5-3 に示す。ZrC 層の厚さ目標値 10 μ m に対して得られた結果は、約 3~18 μ m であった。以 上により、蒸着条件のうち被覆時間との関係から ZrC 層被覆層の成長速度は、最高で約 0.13 μ m/min と分かった。

② ZrC密度及び定比性

ZrC 密度及び定比性についても、YSZ 模擬粒子と同一の方法である焙焼重量法により測定した。 ZrC 定比性測定結果を表 3.5-4 に、粒子密度の測定結果を表 3.5-5 に、ZrC 密度の測定結果を表 3.5-6 にそれぞれ示す。C/Zr 比は、n=3 の平均値として約 0.97 (ZrC-CY-2009) であることが分 かった。また、ZrC 密度については、n=3 の測定値として 5.07 g/cm3(ZrC-CY-2009) であること が分かった。

以上により、ばらつきは大きいものの、定比性の良い ZrC 層を取得することができ、設定した 定比 ZrC 被覆条件についての再現性を確認することができた。

③ 透過型電子顕微鏡観察

CeO₂-YSZ 模擬燃料核に ZrC 被覆したバッチ(ZrC-CY-2001)の STEM 観察・分析を行った。図 3.5-14 に示すように、ZrC 層は基板である CeO₂-YSZ 模擬燃料核と結合していた。ただし、CeO₂-YSZ 模擬燃料核の最表面は剥離していた。また、ZrC 層/CeO₂-YSZ 模擬燃料核境界に隙間・ボイド が多い。図 3.5-14 に示すように、ZrC 層中には CeO₂-YSZ 模擬燃料核の破片が巻き込まれたと思 われる領域が存在し、その領域ではボイドが多いが、遊離炭素が多い ZrC 層に特徴的な黒い層状 の構造は観察されなかった(図 3.5-10(a)参照)。従って、ZrC 層自体は C/Zr 比が 1 に近い高品質 のものであると推測される。

上記バッチにコンパクト焼成を模擬した熱処理(1800℃、1 時間保持)を真空中で施したところ、 ZrC 被覆粒子は黒鉛容器に強く固着した。ピンセットで摘出したが、ZrC 層を含む領域を見つけ 出すことができなかった。

なお、平成 29 年度に行った透過型電子顕微鏡観察のすべてのデータを付録「A2. ZrC 被覆粒 子の微細構造観察及び分析」に収録する。

(2) 特性評価を通じた ZrC 被覆層の高品質化に向けた考察

本研究では、基材の成分である Ce と Zr の混合酸化物の回折ピークも同時に得られた。CeO₂-YSZ 模擬燃料核表面が被覆ガスにより暴露されることにより、組成成分のうち Ce が ZrC 被覆に 影響した可能性が考えられる。これについて、熱化学平衡計算(FactSage5.5)による検討を行 った。解析においては、基材として YSZ 模擬燃料核、被覆ガス及び温度の条件として定比 ZrC 被 覆条件を以下のように設定した。

基材:37%CeO₂+14%Y₂O₃ + 49%ZrO₂ (1 mol) 被覆ガス: ZrBr₄ + CH₄ + H₂ (10 : 10 : 1600 mol) 被覆温度・圧力: 1000 ~ 1600°C、1 atm

解析の結果を横軸に被覆温度、縦軸にモル数として図 3.5-15 に示す。低温域から被覆温度領 域 (1300℃) において、ZrC 以外の副生成物として CeBr₃が認められる。以上のことから、Ce の 一部が ZrC 被覆層内に含まれてしまった可能性がある。これを防止する有効な対策として、燃料 核への ZrC 直接被覆の前段に、熱分解炭素 (PyC) 層を被覆する方法が考えられる。PyC 層は化 学的に安定で、燃料核と臭化物法の成分の直接的な接触を防止できる。また、ZrC は、遊離酸素 に起因する CO ガスと化合 (ZrC(s)+2CO(g)→ZrO₂(s)+3C(s)) する特性も有しており⁽⁵⁾、ZrC 層 の内側に PyC 層が存在しても、ZrC 層の遊離酸素ゲッターとしての機能に影響しないと考えられ る。以上の方法を採用することで、燃料核へ直接被覆した ZrC 層をより高品質化できると見込ま れる。

3.5.6 まとめ

Pu0₂-YSZ 燃料核を模擬した Ce0₂-YSZ 模擬燃料核上へ ZrC 被覆試験を実施し、厚さ 8~18 μm の ZrC 層と被覆時間の相関から被覆速度を取得できた。これにより、厚さの ZrC 層と被覆時間の 相関から被覆速度を取得できたことで、これまで YSZ 模擬核 (700 μm) で最適化してきた定比 ZrC 被覆条件(温度、ガス流量、CH₄/Br₂比、被覆速度)の中でも、小径化核に対応した被覆速度 を見出すことに成功した。その結果、従来よりも小径(直径約 400 μm)の Ce0₂-YSZ 模擬燃料核 への ZrC 層被覆に成功した。また、ZrC 層被覆の前段にて熱分解炭素層を被覆する方法で ZrC 層 をより高品質化できる見通しを得た。

参考文献

- S. Ueta, et al., "Fabrication of uniform ZrC coating layer for the Very High Temperature Reactor Fuel", J. Nucl. Mater. 376, 146-151 (2008).
- (2) 植田祥平,相原純,安田淳,石橋英春,茂住泰寛,沢和弘,湊和生, "革新的高温ガス炉燃料としての ZrC 被覆燃料粒子の製造及び検査技術開発",表面,46(4),222-232 (2008).
- (3) 平成 18 年度文部科学省 革新的原子力システム技術開発公募事業「革新的高温ガス炉燃料・黒鉛に関する技術開発」成果報告書、平成 19 年 3 月、日本原子力研究開発機構
- (4) J. Aihara, S. Ueta, A. Yasuda, H. Ishibashi, T. Takayama, K. Sawa and Y. Motohashi, "TEM/STEM Observation of ZrC-Coating Layer for Advanced High-Temperature Gas-Cooled Reactor Fuel" J. Am. Ceram. Soc. 90 (2007) 3968-3972.
- (5) Minato et al., J. Nucl. Mater. 252, 13(1998).

	1~5		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
流動用	ガス流量	Ar 流量	Total 流量	
ガス種類	(流動用 FI-	(パーシ用 FI-	(流動用+パ	流動具合
(FI-103)	103)	106)	ージ用)	
-	L/min	L/min	L/min	-
Ar	6	2	8	激しい流動、流動中心がずれている
H_2	6	2	8	安定流動
H_2	6	2	8	安定流動
H_2	6	2	8	安定流動
H_2	6	2	8	安定流動
H_2	7	2	9	安定流動、流動が激しくなっている
H_2	8	2	10	激しい流動、流動中心がずれている
H_2	9	2	11	激しい流動、流動中心がずれている
H_2	10	2	12	激しい流動、流動中心がずれている
H_2	5	2	7	安定流動
H_2	4	2	6	安定流動

表 3.5-1 4 孔スパウトベッド・模擬粒子流動試験結果(ZrC-16-1003、流動床温度条件 1350℃、 YSZ 模擬燃料核(ZCP-04P05)、バッチ量 100 g)

表 3.5-2 YSZ 模擬燃料核ならびに CeO₂-YSZ 模擬燃料核上への定比 ZrC 被覆試験条件

模擬核基材の材質	YSZ 模擬燃料核	CeO ₂ -YSZ
高周波コイル高さ	130 mm	130 mm
(下部ヒータ上面から)		
スパウトベッド	シングルノズルタイプ	マルチノズルタイプ
	内径 41.9 mm、開き角 60°、	内径 41.9 mm、開き角 60°、
	深さ26.8 mm	深さ 26.8 mm
	ノズル内径3 mm、孔数1	ノズル内径 1.5 mm、孔数 4
基材粒子	ニッカトー YTZ ボール	原燃工製作 CeO2-YSZ
	ϕ 0.7 mm	$\phi 0.4 - 0.44 \text{ mm}$
	装荷量100 g	装荷量100 g
被覆温度	1350°C	1350°C
ガス流量	流動用 Ar:6 L/min	流動用 Ar:6 L/min
	被覆用 Ar:2 L/min	被覆用 Ar:2 L/min
	被覆用 H ₂ :4.5 L/min	被覆用 H ₂ :4.5 L/min
	被覆用 CH4:0.1 L/min	被覆用 CH4:0.1 L/min
	被覆用 Br ₂ (Ar キャリア):	被覆用 Br ₂ (Ar キャリア):
	1.5 L/min	1.5 L/min
被覆時間	90 min	75 min

バッチ No.	粒子直径の平均	粒子直径の標準	基材粒子直径の	被覆層の平均値
	值(n=50)	偏差	平均值 (投影器	LT (Dav
	(D1+D2)/2		1・2 回目)	dav.)/2
	(D1, D2 は直			
	径)			
ZrC-15-2003	0.753 mm	0.056 mm	0.724 mm	0.014 mm
ZrC-16-2001	0.767 mm	0.030 mm	0.724 mm	0.021 mm
ZrC-CY-2001	0.443 mm	0.019 mm	0.426 mm	0.008 mm
ZrC-CY-2002	0.481 mm	0.036 mm	0.445 mm	0.018 mm
ZrC-CY-2003	0.477 mm	0.023 mm	0.454 mm	0.012 mm
ZrC-CY-2006	0.465 mm	0.019 mm	0.451 mm	0.007 mm
ZrC-CY-2007	0.450 mm	0.015 mm	0.434 mm	0.008 mm
ZrC-CY-2009	0.471 mm	0.015 mm	0.461 mm	0.005 mm
ZrC-CY-2010	0.460 mm	0.024 mm	0.454 mm	0.003 mm

表 3.5-3 投影機による ZrC 厚さ測定結果(H27~29 年度)

表 3.5-4 ZrC 定比性測定結果(H27~29 年度)

N 7 1	焙焼温度	n1	n2	n3	平均	範囲R
ハッナ No.				(C/Zr)		
ZrC-15-2003①	850°C	0.93	0.94	0.95	0.94	0.02
ZrC-15-2003②	850°C	0.92	0.94	0.96	0.94	0.04
ZrC-16-2001①	850°C	0.96	0.95	0.96	0.96	0.01
ZrC-16-2001②	850°C	0.95	0.95	0.95	0.95	0.01
ZrC-CY-2001	850°C	-0.22	-0.32	-0.16	-0.23	0.16
ZrC-CY-2002	850°C	1.21	1.45	1.14	1.27	0.31
ZrC-CY-2003	600°C	0.66	0.67	0.61	0.64	0.05
ZrC-CY-2006	850°C	0.85	0.76	0.74	0.79	0.11
ZrC-CY-2007	700°C	0.87	0.87	0.89	0.88	0.02
ZrC-CY-2009	850°C	1.08	0.94	0.89	0.97	0.19
ZrC-CY-2010	850°C	0.30	0.30	0.32	0.31	0.01

※消し線を付した数値については、測定不良につき無効と判断し除外した。

バッチNo	焙焼温度	n1	n2	n3	平均	範囲R	
バック No.		(g/cm ³)					
ZrC-15-2003①	850°C	6. 08	6. 11	6.09	6.09	0. 03	
ZrC-15-2003②	850°C	6.13	6.11	6.11	6.12	0.02	
ZrC-16-2001①	850°C	6.03	6.09	6.09	6.07	0.06	
ZrC-16-2001②	850°C	6.11	6.11	6.09	6.10	0.02	
ZrC-CY-2001	850°C	5.96	5.91	5.89	5.92	0.07	
ZrC-CY-2002	850°C	5.53	5.47	5.54	5.51	0.07	
ZrC-CY-2003	600°C	5.67	5.69	5.70	5.69	0.03	
ZrC-CY-2006	850°C	5.62	5.70	5.71	5.68	0.09	
ZrC-CY-2007	700°C	5.89	5.86	5.85	5.87	0.05	
ZrC-CY-2009	850°C	5.95	5.96	5.97	5.96	0.02	
ZrC-CY-2010	850°C	5.90	5.92	5.93	5.92	0.02	
被覆前 CeO2-YSZ 模	-	6.01	6.03	6.02	6.02	0.02	
擬燃料核							
被覆前 CeO2-YSZ 模	850°C	6.21	6.28	6.28	6.26	0.07	
擬燃料核							

表 3.5-5 粒子密度測定結果(H27~29年度)

焙焼温度 平均 n2 範囲 R n1 n3 バッチ No. (g/cm^3) ZrC-15-2003① 850°C 6.75 6.63 0.23 6.62 6.52 ZrC-15-2003② 850°C 7.17 6.94 (-)6.69 (6.69)ZrC-16-2001① $850^{\circ}C$ 6.25 6.08 5.77 6.240.48 ZrC-16-2001② 850°C 6.25 6.30 0.25 6.44 6.19 ZrC-CY-2001 850°C 3.57 3.65 3.33 3.52 0.33 ZrC-CY-2002 $850^{\circ}C$ 3.92 4.053.81 3.93 0.24 ZrC-CY-2003 600°C 3.87 3.81 3.73 3.80 0.14 ZrC-CY-2006 850°C 3.95 4.01 3.99 3.98 0.06 ZrC-CY-2007 700°C 4.67 4.73 0.24 4.89 4.64 ZrC-CY-2009 850°C 4.99 5.07 5.19 5.05 0.20 ZrC-CY-2010 850°C 0.06 3.67 3.66 3.72 3.68

表 3.5-6 ZrC 密度測定結果(H27~29 年度)

※ZrC 理論密度(6.73 g/cm3)より高い測定値は除外し、平均値と範囲に括弧を付す。

※消し線を付した数値については、測定不良につき無効と判断し除外した。



図 3.5-1 ZrC 被覆試験装置



図 3.5-2 ZrC 被覆試験装置の構成概略図







図 3.5-4 マルチノズル流動床(4 孔)の概略図







図 3.5-6 FactSage5.5 による熱化学平衡計算結果



(a)20倍



(b)40倍

図 3.5-7(1/2) ZrC 被覆粒子の外観写真(ZrC-16-2001)



(c)80倍 図 3.5-7(2/2) ZrC 被覆粒子の外観写真(ZrC-16-2001)



(a)100 倍 図 3.5-8(1/2) ZrC 被覆粒子の断面写真(ZrC-16-2001)


(b)400倍



(c)1000 倍 図 3.5-8(2/2) ZrC 被覆粒子の断面写真(ZrC-16-2001)



図 3.5-9 ZrC 定比性及び密度の測定フロー



図 3.5-10 YSZ 模擬燃料核/ZrC 境界部分の STEM 暗視野像, (a) ZrC-06-2007, (b) ZrC-06-2016



図 3.5-11 ZrC 被覆粒子の外観写真(ZrC-CY-2001)



図 3.5-12 ZrC 被覆粒子の断面写真(ZrC-CY-2001)



図 3.5-13 CeO₂-YSZ 模擬核上へ被覆した ZrCの X 線回折パターン



CeO₂-YSZ核の破片が巻き込まれていると思われる領域。 (EDX元素マッピングより)

図 3.5-14 CeO₂-YSZ 模擬核上へ被覆した ZrC 層の STEM 暗視野像(ZrC-CY-2001)



図 3.5-15 CeO2-YSZ 模擬核と ZrC 臭化物化学蒸着法の熱化学平衡計算結果

3.6 研究推進

定期的にプロジェクト会議を開催して情報交換と進捗確認を行うとともに、研究代表者の下で 研究者間の連絡を密にして研究を推進した。

● 第1回プロジェクト会議

開催日平成 29 年 7 月 3 日(月) 10-12 時場所ICONE25 会場ラウンジ(上海国際コンベンションセンター)出席者10 名主な議題各テーマ進捗状況、学会発表内容

● 第2回プロジェクト会議

開催日 平成 29 年 8 月 30 日(水) 10-12 時
場所 JAEA 東京事務所第 2 会議室(富国生命ビル 26 階)
出席者 10 名
主な議題 各テーマ進捗状況、学会発表内容

● 第3回プロジェクト会議

開催日 平成 29 年 12 月 8 日(金) 13-15 時
場所 JAEA 東京事務所第 2 会議室(富国生命ビル 26 階)
出席者 10 名
主な議題 各テーマ進捗状況、報告書作成について

● メール審議

上記以外にも適宜メールにての審議を実施した。

4.結言

4.1 セキュリティと安全の定量的な評価

4.1.1 高温ガス炉の核セキュリティ評価

Pu 燃焼高温ガス炉においては燃料製造工程における Pu 燃料盗取が最大の脅威と考えられる。 このことから Pu 燃料製造工程案を設計し、10 のターゲットセットと各々のターゲットセットに 対するプロテクトセットを提案するとともに、2 つのプロテクトセットについて敵対者の行動シ ナリオ案を作成した。作成した Pu 燃料製造工程におけるターゲットセットを対象に、VAI 解析を 行って接近性・脆弱性に関する評価を行った。この評価結果を用いた、特定の建屋扉からの入域 には入域検査装置を経由させる改造、及び各建屋を直接接続させて建屋間配管と建屋間扉を廃す る改造に基づき、Pu 燃料製造工程のセキュリティ性向上のために物理的防護システム再設計を行 った。

高温ガス炉プラントの FP 放出に繋がる可能性のある妨害破壊行為の Fault Tree を作成し、VAI 解析を適用してターゲットセットを抽出した。なお、FP 源としては Pu 燃料からの被膜破損によ り漏洩する FP、及びヘリウム純化系に蓄積された FP を想定した。燃料母材が化学的に不活性な YSZ のため、使用済み燃料はターゲットとしての魅力度が低いことから、その盗取は脅威から除 外した。手段も考慮した VAI 解析では、3 つのシナリオの全てにおいて、1~4 層のいずれかの障 壁の防護に成功することで FP の大気放出を防げることが分かった。手段を考慮した VAI 解析で は、得られた防御すべきエリアと妨害破壊行為手段のターゲットセットは 12 セットであった。 手段を考慮せずエリアへの侵入のみを考慮した VAI 解析では、得られた防御すべきエリアのター ゲットセットは4 セットであった。

4.1.2 深層防護に基づく核セキュリティと安全の定量的評価

全ての強制冷却が喪失する事故時の炉心冷却性能を評価して、核セキュリティ起因の事象に対 しても Pu 燃焼高温ガス炉の安全性が高いことを定量的に示した。具体的には、冷却喪失後に、 空気侵入による酸化発熱が加わった場合を想定し、酸化発熱量及び輻射率をパラメータとして評 価した結果、1600℃を大きく超えないことを示した。通常の冷却喪失事故に加えて、より厳しく なる酸化反応を加えたセキュリティ起因の事故であっても、炉心損傷には大きな余裕がある事が わかった。

Pu 燃焼高温ガス炉との比較評価を行うため、使用済 PWR 燃料の「直接処分シナリオ」、「軽水炉 MOX シナリオ」、「軽水炉 ROX シナリオ」の4シナリオを評価対象とした。核拡散過程全体を通し た物質魅力度と Pu 存在量の積で示される統合評価値は、取り出し後数百年以降に4シナリオと もに上昇し、使用済燃料中の Pu の核拡散リスクの上昇を意味するが、HTGR シナリオは他のケー スに比べリスクははるかに小さいことが定量的に示された。これにより Pu 燃焼炉としての HTGR は、Pu 処分やバックエンドの観点からも有望なオプションとなりうることが示された。

4.2 セキュリティ強化型安全燃料の成立性評価と炉心核熱設計

4.2.1 燃料成立性評価

Pu 燃焼高温ガス炉を実現するためには、高燃焼度における被覆燃料粒子の健全性確保は重要な 課題である。被覆燃料粒子の内圧破損は、高燃焼度における被覆燃料粒子の主な破損機構の1つ であり、本研究では高燃焼度においても内圧破損を起こさない被覆燃料粒子の設計を行った。設 計の参考にした Deep Burn 炉の被覆燃料粒子の燃料直径は300 µm 程度であるが、本研究では、 Pu02-YSZ 燃料核の製造性の観点から400 µm に設定した。核分裂に伴い燃料核から放出される遊 離酸素量を計算し、それを捕獲するために必要な2rC 層の厚さを10 µm に設定した。その外側の バッファ層、0-PyC 層、SiC 層、I-SiC 層の厚さは、国内で製造実績がある高燃焼度被覆燃料粒子 の厚さと同じに設定し、ワイブル関数を用いて燃焼度に対するSiC 層の破損割合を計算した。そ の結果、炉心燃焼計算を行って得た取出し燃焼度625 GWd/t において、SiC 層の破損割合は許容 値以下であり、高燃焼度で内圧破損を起こさない被覆燃料粒子の設計を提示することができた。

4.2.2 炉心核熱設計

Pu 燃焼高温ガス炉の核熱成立性を 90 カラム炉心(出力:600 MWth)及び 132 カラム炉心(出 力:400 MWth)について検討した。90 カラム炉心にはサンドウィッチシャッフリング(300 日× 2バッチ)、132 カラム炉心には軸方向4 バッチシャッフリング(430 日×2 バッチ)を導入し、そ れぞれ炉心燃焼計算及び燃料温度計算を行って、核熱成立性を評価した。その結果、90 カラム炉 心については、炉停止余裕、反応度温度係数、及び燃料温度は設計要求を満たし、炉心の核熱成 立性を確認した。また、取出し時の Pu-239 残存率は炉心装荷時の 14.4%となった。132 カラム炉 心についても、炉停止余裕、反応度温度係数、及び燃料温度は設計要求を満たし、炉心の核熱成 立性を確認した。取出し時の Pu-239 残存率は装荷時の 3.1%であり、当初目標としていた 5%より も残存率を低くすることができた。

平成 27 年「長期エネルギー需要見通し」と整合するように、2025 年から軽水炉新設により発 電容量を維持し、高温ガス炉の導入は 2030 年から始まる導入シナリオを策定した。高温ガス炉の 炉型は、燃料交換によりそれぞれウラン燃料炉心及びプルトニウム燃料炉心 (Pu 燃焼高温ガス炉) を構成することができる。導入する高温ガス炉の炉型が GTHTR300 の場合、最大で 56 基の Pu 燃 焼高温ガス炉が導入され、最終的には、ウラン燃料炉心 101 基、Pu 燃焼高温ガス炉 8 基が導入さ れる。導入する高温ガス炉の炉型がコジェネを目的とした GTHTR300C の場合、Pu 燃焼高温ガス炉 は最大で 72 基導入され、最終的には、ウラン燃料炉心 161 基、Pu 燃焼高温ガス炉 12 基が導入さ れる。また、製造する水素を運輸に用いることで日本の CO₂削減目標値の 8.9%、工業・住宅に用 いることで 3.4%に相当する量の削減が期待できる。

4.3 プルトニウム燃焼高温ガス炉の安全評価

Pu 燃焼高温ガス炉の崩壊熱の評価を SWAT コードを用い手行った。その結果、Pu 燃焼高温ガス 炉の崩壊熱は、従来のウランを燃料とする高温ガス炉と比べて、原子炉停止後 100 時間程度まで は小さいことが分かった。Pu 燃焼高温ガス炉のための安全解析手法の整備を図り、90 カラム、熱 出力 600 MWth のプルトニウム燃焼高温ガス炉について、炉心核熱設計により定められた原子炉/ 炉心諸元に対して減圧事故を対象に安全解析を実施し、燃料温度及び圧力容器温度を評価した。 その結果、燃料温度及び圧力容器温度が制限値を満足していることが示され、600 MWthの原子炉 設計が安全評価上成立していることが確認できた。

4.4 セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造検討

Puの模擬物質として Ce を用いた模擬 3S-TRISO 燃料の製造試験等に供するため、CeO₂-YSZ 模擬燃料核の試作試験を継続して実施し、目標を満足する製造条件を得た。得られた製造条件により、CeO₂-YSZ 模擬燃料核製造試験を実施し、約1 kg の CeO₂-YSZ 模擬燃料核粒子の製造を完了し、PuO₂-YSZ 燃料核製造が可能であることを示した。

TRISO粒子の各被覆層の厚さの微調整を目的とした試作試験を継続的に実施した。被覆時のガス流量等、最適な被覆条件を見出し、ZrCが被覆されたCeO₂-YSZ模擬燃料核を用いてTRISO被覆粒子製造試験を実施し、ZrC層を含む5層の被覆層を持つ3S-TRISO被覆粒子の製造が可能なことを実証した。

試作した 3S-TRISO 被覆粒子を用いてオーバーコート法により黒鉛マトリックスをコーティン グした上で温間成型及び熱処理を行い、3S-TRISO 模擬燃料コンパクトを試作した。試作した 3S-TRIS 模擬燃料コンパクトの金相試料を作成、観察測定し、コンパクト成形後も被覆層が維持さ れていることを確認した。

検査技術については、Pu02-YSZ燃料核及び3S-TRISO被覆粒子の検査手法を検討し、従来法だけ ではなく例えば光学的異方性因子OPTAFへのエリプソメトリー法などの新規手法も適用可能であ ることを確認した。また、3S-TRISO被覆粒子の具体的な検査技術開発として、被覆層厚さ,被覆 層密度,外観,直径,断面金相の検査技術開発を行い、従来法だけでなく被覆層厚さの新規手法 として検討した金相試験法(金相試験-画像解析法)も適用可能であることを確認した。また、被 覆層密度については液浸置換法が適していると考えられる。

4.5 ZrC 層被覆試験と特性評価

流動条件のうち、定比 ZrC 定常被覆温度下の流動状態について、流動ガスに Ar ならびに H₂ガ スを用いて、YSZ 粒子直径 400 μ m、粒子装荷量 100 g の条件で、ガス流量 8 L/min において製 造時の被覆層の破損が生じにくい安定流動状態を得た。また、YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試 験について、被覆温度約 1350℃、粒子装荷量 100 g の条件において実施し、被覆層厚さ約 21 μ m の ZrC 層の取得に成功し、定比 ZrC 被覆条件の再現性を確認した

Pu0₂-YSZ 燃料核を模擬した Ce0₂-YSZ 模擬燃料核上へ ZrC 被覆試験を実施し、厚さ 8~18µm の ZrC 層と被覆時間の相関から被覆速度を取得した。これにより、厚さの ZrC 層と被覆時間の相関 から被覆速度を取得できたことで、これまで YSZ 模擬核(直径約 700 µm)で最適化してきた定 比 ZrC 被覆条件(温度、ガス流量、CH₄/Br₂比、被覆速度)の中でも、小径化核に対応した被覆速 度を見出すことに成功した。その結果、従来よりも小径(直径約 400 µm)の Ce0₂-YSZ 模擬燃料 核への ZrC 層被覆に成功し、Pu0₂-YSZ 燃料核への ZrC 被覆が可能なことを実証した。

4.6 研究推進

定期的にプロジェクト会議を開催して情報交換と進捗確認を行うとともに、研究代表者の下で 研究者間の連絡を密にして研究を推進した。

4.7 今後の展開

今後、本事業で実証した不活性母材を用いた模擬燃料核製造技術、従来に比べて小径の模擬燃料核に対する ZrC 被覆技術、並びに TRISO 被覆技術をベースとし、実燃料を用いた PuO₂-YSZ 燃料 核 ZrC/TRISO 被覆燃料粒子の製造、製造した燃料を用いた照射試験及び照射後試験の実施により、Pu 燃焼高温ガス炉の燃料製造技術を確立することができる。

PuO₂-YSZ 被覆燃料粒子については、内圧破損の観点からは 600 GWd/t を超える燃焼度の達成に 見込みを得たが、内圧破損以外の被覆燃料粒子の破損機構である、Pd 腐食及び燃料核移動につい ても、検討を行う必要がある。

核分裂に伴い燃料核から放出される遊離酸素分圧は、酸素分子と同モル数の ZrC を燃料核に被 覆することでゼロにできることが、本事業で行った熱化学平衡論に基づく検討で示された。ZrC 被 覆は被覆燃料粒子の内圧抑制に非常に有効な方法であると見込まれるが、実験を行って確認する 必要がある。

模擬燃料核への被覆に成功した ZrC 被覆は、Pu 燃料だけではなく U 燃料の高燃焼度化にも内圧 破損防止の観点から有効である。そこで、比較的近い将来に実現できる可能性のある、U 燃料や MOX 燃料を装荷する高燃焼高温ガス炉についても、ZrC 被覆燃料粒子の導入による高燃焼度炉心 の検討を行いたい。

A1. 平成 29 年度までの外部発表実績

- M Goto, K. Demachi, S. Ueta, M. Nakano, M. Honda, Y. Tachibana, Y. Inaba, J. Aihara, Y. Fukaya, N. Tsuji, M. Takahashi, Y. Saiki, K. Hayato, K. Kunitomi, K. Ohashi, K. Kitagawa, K. Okamoto, Conceptual Study of a Plutonium Burner High Temperature Gascooled Reactor with High Nuclear Proliferation Resistance, Proceedings of Global 2015, pp. 507-513, Paris, September 2015.
- (2) 出町和之,宮野廣,荒井滋喜,木村祥紀,寺尾憲親,鈴木美寿,成宮祥介,西田誠志,原子 力安全からみた核セキュリティ,日本原子力学会2015年春の年会,茨城大学,2015年3月.
- (3) 岡本孝司,國富一彦,大橋一孝,北川健一,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュ リティ強化型安全燃料開発(1)全体概要,日本原子力学会2015年秋の大会,静岡大学, 2015年9月.
- (4) 出町和之, Jonathan POLI, 岡本孝司, プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(2)高温ガス炉における核セキュリティ評価,日本原子力学会2015
 年秋の大会,静岡大学,2015年9月.
- (5) 後藤実,植田祥平,相原純,深谷祐司,稲葉良知,橘幸男,國富一彦,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(3)燃料設計と炉心核熱設計,日本原子力学会2015年秋の大会,静岡大学,2015年9月.
- (6) 中野正明,大橋一孝,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化 型安全燃料開発(4)安全解析のための崩壊熱の検討,日本原子力学会2015年秋の大会,静 岡大学,2015年9月.
- (7) 本田真樹,齋木洋平,北川健一,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュ リティ強化型安全燃料開発(5) 模擬燃料の試作と製造検討,日本原子力学会2015年秋の 大会,静岡大学,2015年9月.
- (8) 後藤実,稲葉良知,深谷裕司,植田祥平,相原純,橘幸男,國富一彦,プルトニウム燃焼高 温ガス炉の燃料設計及び炉心核熱設計,日本保全学会第13回学術講演会,神奈川県立かな がわ労働プラザ,2015年7月.
- (9) 岡本孝司,國富一彦,大橋一孝,木下英昭,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュ リティ強化型安全燃料開発(7)開発目標と進捗,日本原子力学会2016年秋の大会,久留米 シティプラザ,2016年9月.
- (10) 出町和之,ポリ ジョナサン,佐川渉,近藤雅裕,エルカン ネジェット,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(8)セキュリティと安全の定量的な評価,日本原子力学会2016年秋の大会,久留米シティプラザ,2016年9月.
- (11) 近藤雅裕, 佐川渉, Chai, Penghui, Wu, Yang, 岡本孝司, プルトニウム燃焼高温ガス炉を 実現するセキュリティ強化型安全燃料開発 (9)グラファイトの輻射特性に関する実験的評 価開発目標と進捗, 日本原子力学会 2016 年秋の大会, 久留米シティプラザ, 2016 年 9 月.
- (12)後藤実,植田祥平,稲葉良知,相原純,深谷祐司,橘幸男,國富一彦,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(10)燃料内圧及び炉心核特性の評価,日本原子力学会2016年秋の大会,久留米シティプラザ,2016年9月.
- (13) 中野正明, 大橋一孝, 岡本孝司, プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化

型安全燃料開発(11)減圧事故時の原子炉温度挙動解析,日本原子力学会2016年秋の大会, 久留米シティプラザ,2016年9月.

- (14)本田真樹,齋木洋平,木下英昭,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュ リティ強化型安全燃料開発(12)3S-TRIS0燃料の試作と製造検討,日本原子力学会2016年 秋の大会,久留米シティプラザ,2016年9月.
- (15) 植田祥平,相原純,橘幸男,國富一彦,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現する セキュリティ強化型安全燃料開発(13)ZrC被覆試験と特性評価,日本原子力学会2016年秋 の大会,久留米シティプラザ,2016年9月.
- (16) Yang Wu, Penghui Chai, Wataru Sagawa, Masahiro Kondo, Koji Okamoto, Investigation of nuclear Graphite Emissivity Behaviors at Various Temperatures and Oxidation degrees, Proceedings of HTR 2016, pp. 308-314, Las Vegas, November, 2016.
- (17) Penghui Chai, Yang Wu, Wataru Sagawa, Masahiro Kondo, Koji Okamoto, Experimental Research of Graphite Behavior Under the Air Ingress Accident Condition of High Temperature Gas-cooled Reactor, Proceedings of HTR 2016, pp. 308-314, Las Vegas, November, 2016.
- (18) 中野正明, プルトニウム燃焼高温ガス炉の研究開発状況, 日本原子力学会中部支部第64回 原子力エネルギーシステム研究委員会, 富士電機株式会社本社, 2017年2月.
- (19) Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR Concept of Pu-burner HTGR, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (20) Minoru Goto, Shohei Ueta, Jun Aihara, Yoshitomo Inaba, Yuji Fukaya, Yukio Tachibana, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR - Design Study of Fuel and Reactor Core, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (21) Masaaki Nakano, Kazutaka Ohashi, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR - Preliminary Reactor Safety Analyses under Depressurization Accidents, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (22) Yohei Saiki, Masaki Honda, Masashi Takahashi, Koichi Ohira, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR - Study on 3S-TRISO Fuel Fabrication, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (23) Shohei Ueta, Jun Aihara, Minoru Goto, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR - Test and Characterization for ZrC Coating, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (24) Kazuyuki Demachi, Jonathan Poli, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-Burner HTGR - Evaluation on Security and Safety, The 25th International Conference On Nuclear Engineering, Shanghai, July 2017.
- (25) 岡本孝司, プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(14)目

的、進捗と今後の展開,日本原子力学会2017年秋の大会,北海道大学,2017年9月.

- (26)出町和之,ポリジョナサン,佐川渉,近藤雅裕,エルカンネジェット,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(15)プルトニウム高温ガス炉に係る枢要区域同定解析,日本原子力学会2017年秋の大会,北海道大学,2017年9月.
- (27)佐川渉, Wu Yang, Chai Penghui, 岡本孝司, 近藤雅裕, 岡本孝司, プルトニウム燃焼高温ガ ス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(16)グラファイトの空気侵入時過渡事象 に関する実験的評価, 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 北海道大学, 2017 年 9 月.
- (28)Yang Wu, Wataru Sagawa, Penghui Chai, Masahiro Kondo, Koji Okamoto, Development of Security and Safety Fuel for Pu-burner HTGR (17)Numerical Study on the Transient Oxidation of Nuclear Graphite under Air Ingress Conditions, 日本原子力学会 2017年 秋の大会, 北海道大学, 2017年9月.
- (29)後藤実,稲葉良知,植田祥平,相原純,深谷祐司,橘幸男,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温 ガス炉を実現するセキュリティ強化型安全燃料開発(18)燃料設計および炉心設計,日本原子 力学会 2017 年秋の大会,北海道大学,2017 年 9 月.
- (30)中野正明,大橋一孝,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現するセキュリティ強化 型安全燃料開発(19)反応度異常事象の予備解析,日本原子力学会2017年秋の大会,北海道 大学,2017年9月.
- (31)齋木洋平,本田真樹,高橋昌史,大平幸一,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現 するセキュリティ強化型安全燃料開発(20)3S-TRIS0燃料の試作と製造検討,日本原子力学 会2017年秋の大会,北海道大学,2017年9月.
- (32) 植田祥平,相原純,橘幸男,國富一彦,岡本孝司,プルトニウム燃焼高温ガス炉を実現する セキュリティ強化型安全燃料開発 (21) ZrC 層被覆試験と特性評価,日本原子力学会 2017 年 秋の大会,北海道大学,2017 年 9 月.