# 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

(受託者) 国立大学法人東京大学

(研究代表者) 岡本孝司 大学院工学系研究科

(再委託先) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、富士電機株式会社、

原子燃料工業株式会社

(研究期間)平成26年度~29年度

#### 1. 研究の背景とねらい

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 (Pu) 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 Pu 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、Pu が抽出できない仕組みが必要である。また、Pu 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 (U) 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 <sup>1)</sup> (HTTR: High Temperature engineering Test Reactor)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、Pu燃焼高温ガス炉システム <sup>2)</sup>の安全性と核セキュリティの両立を図る(図 1)。

これまでに、直接処分時の安全性の観点から、主に軽水炉に装荷する Pu 燃料の母材として化学的に不活性な YSZ (Yttria-Stabilized Zirconia) に着目した研究が行われてきた。本研究では、核不拡散の観点から、高温ガス炉に装荷する Pu 燃料の母材として 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  $PuO_2$ -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遊離酸素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 2)を開発し、Pu燃焼高温ガス炉に装荷する。このPu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) Pu 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



安全性(燃料の製造品質・照射健全性)

図1 被覆粒子燃料の研究における本研究の位置付け

- 5) 実燃料製造試験
- 6) 高燃焼照射試験

このうち、本研究では 1)~4)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 Pu 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、本研究の具体的な実施概要を述べる。

#### 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 (Probabilistic Risk Assessment) を参考にして Pu 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。

## 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

HTTR の研究開発を通じて確立した既存の  $UO_2$  被覆粒子燃料の内圧破損挙動解析コードを改造し、高燃焼度(500~GWd/t)を達成可能な  $PuO_2$ -YSZ 被覆粒子燃料の設計仕様(燃料核直径及び被覆層厚さなど)を検討する。また、Pu 燃焼高温ガス炉の、核的(反応度温度係数及び炉停止余裕など)及び熱的(燃料温度)な成立性を評価する。

## 3) Pu 燃焼高温ガス炉の安全評価

Pu 燃焼高温ガス炉における MA (Minor Actinide) の蓄積を考慮した崩壊熱の評価手法や原子 炉温度挙動など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。

### 4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験

 $PuO_2$ -YSZ の化学特性に近い  $CeO_2$ -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、 $CeO_2$ -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い、最適な被覆条件を検討する。さらに、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。



図 2 従来の UO<sub>2</sub> 被覆粒子燃料とセキュリティ強化型安全 燃料 (ともに直径は約 1 mm)

# 2. これまでの研究成果

1) セキュリティと安全の定量的な評価

核セキュリティ事例調査・抽出結果を参考に、Pu 燃焼高温ガス炉に関わる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、の4つを実施した。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とから燃料製造工程の設計案を提示し、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。

米国で行われたモジュール型高温ガス炉の確率論的リスク評価 (PRA) を詳細調査し、セキュリティと安全性のリスク要因を検討した。PRA の重要度解析を行った結果、一次系リーク、蒸気発生器 (SG) の中規模リークがセキュリティに対する脅威となる可能性があることが分かった。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い、全ての強制冷却が喪失し輻射伝熱が主な炉心冷却となる事象が重要となることが分かった。

### 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

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 層による内圧抑制の効果を熱化学平衡論に基づき評価した。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、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。また、1600 C 以下の条件で、 $O_2$  の全量が ZrC と反応して固体の  $ZrO_2$  が生成し、ZrC が優れた内圧抑制効果を有することが分かった。

径方向燃料シャッフリングを採用した、取り出し燃焼度  $500~\mathrm{GWd/t}$  の 4 バッチ炉心を想定し、平衡炉心について核的な成立性を評価した。炉停止余裕の観点からは平衡炉心の燃焼初期において少なくとも  $13.7\%\Delta k/k$  相当の中性子吸収材を炉心に装荷する必要があることが分かった。反応度温度係数の観点からは特別な対策を施さなくても負の値を確保できる見通しを得た。

## 3) Pu 燃焼高温ガス炉の安全評価

設計基準事象として「減圧事故」、設計基準外事象として「減圧事故+スクラム失敗」を摘出した。原子炉温度挙動の解析手法の整備を行い、予備解析を実施した結果、ウラン燃料を用いた高温ガス炉(GTHTR300)3よりも炉心幅が大きくなったことにより、事故時に自然冷却により燃料温度制限を満足するためには、原子炉出力を低くする必要があることが分かった。

再臨界挙動の解析手法の整備を行い予備解析を実施し、ウラン燃料を用いた原子炉に比べて再 臨界時刻は遅くなり、運転員の対応等の時間余裕が大きくなる傾向であることが分かった。

#### 4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験

CeO<sub>2</sub>-YSZ 模擬燃料核の製造試験を行い、製造条件パラメータと模擬燃料核の物性の相関を調べて PuO<sub>2</sub>-YSZ 燃料核の適切な製造条件を検討し、乾燥ゲル粒子割れがほぼ解消できる製造条件を取得した。また、割れの少ない焼結粒子を得るための基準となる温度プロファイルを取得した。

TRISO 被覆試験を行い、当初見込みに近い厚さの被覆に成功した。また、小粒径粒子(Φ 0.34 mm)の流動試験を行い最適な被覆条件の設定に必要なガス流量などのデータを取得した。

HTTR 燃料検査手法の適用性試験として、試作した  $CeO_2$ -YSZ 模擬燃料核を用いた密度及び圧縮破壊強度に関わる試験を実施し、適用性を確認した。

ZrC 層被覆製造時においてガス流量 12~43 L/min の範囲で被覆層の破損が生じにくい安定流

動状態が得られることが分かった。また、化学蒸着条件の最適化の検討に必要な流動床における 均熱域温度  $1350^{\circ}$ C及び  $1430^{\circ}$ Cでの軸方向の温度分布を取得した。さらに、YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆試験を実施し、被覆層厚さ約  $18~\mu m$  の ZrC 層の被覆に成功した。

## 3. 今後の研究

## 1) セキュリティと安全の定量的な評価

提案するプロテクトセットに対する物理的防護システムの核セキュリティ堅牢性向上を目的と し、設計・評価・再設計の案を作成する。

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) 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

整備した解析コードを用いた遊離酸素由来の CO ガスや FP ガスによる内圧破損挙動の評価結果、ZrC 層の内圧抑制効果の評価結果をベースにして被覆層の厚さを検討する。

暫定仕様のセキュリティ強化型安全燃料を装荷した高温ガス炉について、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など)及び燃料温度を算出し、 核的及び熱的な成立性を評価する。

#### 3) Pu 燃焼高温ガス炉の安全

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るとともに、 炉心動特性解析手法の整備を図り予備解析を行う。さらに、これまでの成果を用いて安全解析を 実施し、燃料及び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ないことを確認する。

#### 4) セキュリティ強化型安全燃料の試作と製造試験

滴下条件及び熱処理条件など、適切な製造条件を検討して CeO<sub>2</sub>-YSZ 模擬燃料核の製造試験を継続実施するとともに、ZrC 被覆試験用模擬燃料核を製作する。HTTR 燃料に比べ小粒径である PuO<sub>2</sub>-YSZ 燃料核を想定した TRISO 被覆試験を行い、最適な運転条件を検討する。PuO<sub>2</sub>-YSZ 被覆社子燃料の検査技術に関する調査検討結果をもとに検査技術試験と評価を行う。

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 (原料ガス流量など) 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 (密度など) を取得し、ZrC 化学蒸着条件との相関について検討する。

## 4. 参考文献

- 1) S. Saito, et al., JAERI 1332 (1994).
- 2) Y. Fukaya, et al., J. Nucl. Sci. Technol., vol.51, No.6 (2014).
- 3) 中田, 他, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.2, No.4 (2003)