

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 (米国や独国内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¹⁾ (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²⁾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 を使い、燃料核を PuO₂-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
- 5) 実燃料製造試験
- 6) 高燃焼照射試験

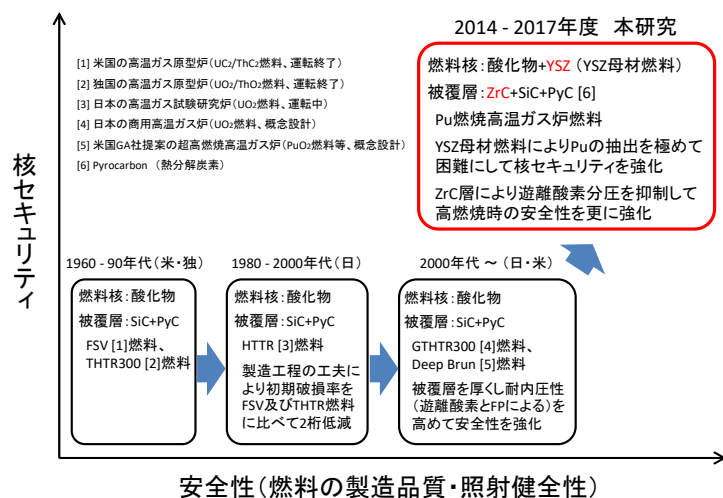


図 1 被覆粒子燃料の研究における本研究の位置付け

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 $\text{PuO}_2\text{-YSZ}$ 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行い、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

$\text{PuO}_2\text{-YSZ}$ の化学特性に近い $\text{CeO}_2\text{-YSZ}$ 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、 $\text{CeO}_2\text{-YSZ}$ 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 $\text{CeO}_2\text{-YSZ}$ 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。

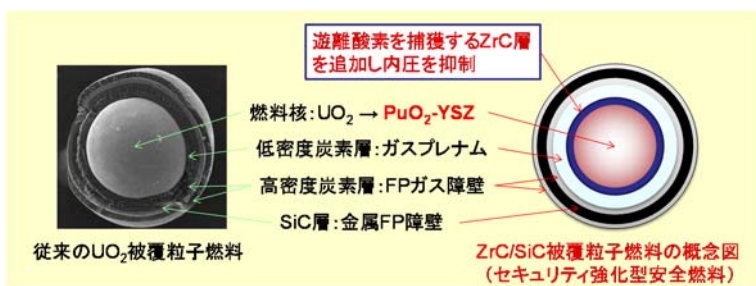


図 2 従来の UO_2 被覆粒子燃料とセキュリティ強化型安全燃料 (ともに直径は約 1 mm)

2. 研究成果

1) セキュリティと安全の定量的な評価

過去に世界で発生した核セキュリティ事例を調査し、データベースサーバに保管した。提案した Pu 燃料製造工程プロセスに対して (a)脅威の抽出、(b)ターゲットセットの抽出、(c)プロテクトセットの抽出、(d)悪意ある行動シナリオ例構築を行い、枢要区域同定 (VAI: Vital Area Identification) 解析により接近性・脆弱性に関する評価をしさらに評価指標換算式を提案した。高温ガス炉プラン

トの妨害破壊行為の **Fault Tree** 作成と **VAI** 解析により 12 のターゲットセットを抽出した。

過去に行われたリスク評価結果を評価し、早期の空気侵入事故などがより厳しい事象となる事を示した。これらの結果をもとに、全ての強制冷却が喪失する事故時に空気侵入を重ね合わせた場合の炉心冷却性能を評価し、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ことを示した。使用済燃料の物質魅力度と **Pu** 存在量の積で示される統合評価値は、使用済燃料中の **Pu** の核拡散リスクの上昇により、取り出し後数百年以降に上昇するが、**3S-TRISO** 燃料粒子（図 2）を用いる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を定量的に示した。これにより **3S-TRISO** 燃料粒子は運転中だけではなく、廃棄物処分時においても安全性や核不拡散性が確保されることが分かった。

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

3S-TRISO 燃料粒子（図 2）の内圧を計算するために必要な、安定 **FP** 希ガスの **Pu** 核分裂収率データ及び内圧計算コードを整備した。内圧抑制（酸素ゲッター）のために燃料核に被覆する **ZrC** について、 $\text{ZrC} + \text{O}_2 \rightarrow \text{ZrO}_2 + \text{C}$ 反応が高温ガス炉の温度条件下で不可逆反応であり、内圧抑制に非常に有効であることが分かった。被覆燃料粒子の設計において、遊離酸素を全量捕獲するように **ZrC** 層厚さを設定した。内側 **PyC** 層、**SiC** 層及び外側 **PyC** 層の厚さは、これまでに設計が行われた被覆燃料粒子と同じ値に設定した。内圧計算コードを用いた被覆層の破損割合の計算結果は、取出し燃焼度において許容値以下であり、高燃焼度が可能な被覆燃料粒子の設計の成立性を示した。

Pu 燃焼高温ガス炉の核熱成立性を 90 カラム炉心（出力：600 MWt）について検討した。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、炉心核熱設計の成立性を示した。平成 27 年「長期エネルギー需要見通し」と整合するように、2030 年からの高温ガス炉の導入シナリオを検討し、**Pu** を削減するとともに高温ガス炉を用いた水素製造により、日本の CO_2 削減目標値の 8.9%に相当する量の削減を可能とする導入シナリオを策定した。

3) **Pu** 燃焼高温ガス炉の安全評価

燃料燃焼後の **Pu** 組成や **MA** の寄与を考慮した崩壊熱の評価をするために、崩壊熱を計算するコードを整備し、崩壊熱の予備評価を行った。その結果、崩壊熱の大きさは、**MA** 含有の有無や **Pu** 組成に影響を受けるものの、想定した組成では、**U** 炉心と比べて小さくなることが分かった。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」を抽出し、原子炉温度挙動や再臨界挙動を解析する手法の整備した。また、反応度異常事象として、スタンドパイプ破断による制御棒飛び出し事故時の予備解析を行い、**Pu** 炉心は **U** 炉心に比べて出力上昇、燃料温度上昇が大きくなる傾向であることが分かった。燃料カラム数 90、原子炉出力 600 MWt の **Pu** 炉心につ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压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試験

ゾルゾル法による模擬燃料核製造試験を行い、原料溶液の粘度及び滴下時の振動数を調整して $\text{CeO}_2\text{-YSZ}$ 模擬燃料核の製造に成功した。化学蒸着法による被覆層試作試験を行い、ガス流量等の

被覆条件を調整して ZrC 層が被覆された CeO₂-YSZ 模擬燃料核に、バッファ層、内側 PyC 層、SiC 層、外側 PyC 層を被覆し、ZrC 層を含む 5 層の被覆層を持つ 3S-TRISO 模擬燃料粒子の製造に成功した。製造した 3S-TRISO 模擬燃料粒子を用い検査技術開発を行い、3S-TRISO 燃料粒子の検査への適用性を評価した。また、オーバーコート法により 3S-TRISO 模擬燃料粒子に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-TRISO 模擬燃料コンパクトの金相試料を作成し、コンパクト成形後も 3S-TRISO 模擬燃料粒子の被覆層の健全性が維持されていることを確認した。

YSZ 模擬燃料核、ならびに 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、製造時の被覆層の破損が生じにくい安定流動条件を得た。また、CeO₂-YSZ 模擬燃料核上へ ZrC 被覆試験を行い、厚さ 8~18 μm の ZrC 層と被覆時間の相関から被覆速度約 0.13 μm/min を取得した。これにより、YSZ 模擬核（直径約 700 μm）で最適化した定比 ZrC 被覆条件（温度、ガス流量（Ar、H₂、CH₄、Br₂）、CH₄/Br₂ 比、被覆時間）の中から、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 CeO₂-YSZ 模擬燃料核への ZrC 層被覆に成功し、PuO₂-YSZ 燃料核への ZrC 被覆が可能なことを実証した。

3. 今後の展望

1) ZrC 被覆層による内圧抑制効果の実証

本事業において、ZrC 被覆が被覆燃料粒子の内圧抑制に非常に有効であることを熱化学平衡論に基づく検討を行って示した。今後、その効果を実証するために、まずはコールド実験による評価が必要である。

2) 実燃料を用いた燃料の製造性の実証

本事業において、模擬核燃料物質を用いた不活性母材燃料核製造技術、小径燃料核への ZrC 被覆技術及び TRISO 被覆技術を実証した。今後、実燃料を用いた燃料の製造性を実証するために、核燃料物質を用いた評価が必要である。

3) 実燃料を用いた ZrC 被覆層の内圧抑制効果の実証

実燃料での ZrC 被覆層の内圧抑制効果を実証するために、実炉での照射試験（高燃焼度の実証）が必要である。

Pu 燃焼高温ガス炉の実用化に向け、1)~3)の実証試験を含めた取り組みを国際協力を活用して推進し、日本初の技術で世界中の Pu の有効活用を目指す。

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)