

# 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

## Design Study on Fuel and Reactor Core for Plutonium Burner High Temperature Gas-cooled Reactor

原子力機構	後藤 実	Minoru GOTO	非会員
原子力機構	稲葉 良知	Yoshitomo INABA	非会員
原子力機構	深谷 裕司	Yuji FUKAYA	非会員
原子力機構	植田 祥平	Shohei UETA	非会員
原子力機構	相原 純	Jun AIHARA	非会員
原子力機構	橋 幸男	Yukio TACHIBANA	非会員
原子力機構	國富 一彦	Kazuhiko KUNITOMI	非会員

A concept of a plutonium burner HTGR (High Temperature Gas-cooled Reactor) with a high nuclear proliferation resistance has been proposed by Japan Atomic Energy Agency. In addition to the high nuclear proliferation resistance, in order to attain the high burn-up, we propose to introduce a PuO<sub>2</sub>-YSZ (Yttria Stabilized Zirconia) fuel kernel with ZrC coating to the plutonium burner HTGR. In this study, we conduct design of the coated fuel particle and of the reactor core to confirm the feasibility of the plutonium burner HTGR. This study was started in FY2014 and will be completed in FY2017, and the implementation is on schedule. This paper describes the implementation of the first and the second year.

**Keywords:** HTGR, Plutonium burner, ZrC, YSZ, High burn-up, Coated fuel particle

## 1. 緒言

福島第一原子力発電所事故を受けて、安全性に優れる原子炉の重要性が再認識されている。高温ガス炉は、電源が全て喪失しても、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<sup>[1]</sup>。

これまでに、主に軽水炉に装荷する Pu 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<sup>[2]</sup>。本研究では、高温ガ

ス炉に装荷する Pu 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 PuO<sub>2</sub>-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、ZrC を燃料核に被覆して燃焼に伴う内圧上昇を抑制し、燃料の内圧破損を防ぐことで高燃焼度における安全性の強化を図る。

Pu 燃焼高温ガス炉を実現するには、(1)セキュリティと安全の定量的な評価、(2)燃料の成立性評価と炉心核熱設計、(3)原子炉の安全評価、(4)燃料の試作と製造試験、(5)実燃料製造試験、(6)照射試験を実施する必要がある。これらのうち(1)~(4)を東京大学、原子力機構、富士電機及び原燃工の 4 者により、平成 26 年度から 4 年間の予定で実施している<sup>[3]</sup>。本研究の実施により、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。本報では原子力機構が実施している(2)燃料の成立性評価と炉心核熱設計について、平成 27 年度までに得られた成果を報告する。

本研究は、文部科学省原子力システム研究開発事業により実施された「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」の成果である。

連絡先: 後藤実、〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002、日本原子力研究開発機構、  
E-mail: goto.minoru@jaea.go.jp

## 2. プルトニウム燃焼高温ガス炉の概要

### 2.1 燃料

従来の高温ガス炉の燃料である TRISO (Tri-isotropic) 被覆燃料粒子は、 $UO_2$  の燃料核を 4 重に被覆 (第 1 層: 低密度熱分解炭素、第 2 層: 高密度熱分解炭素、第 3 層: SiC、第 4 層: 高密度熱分解炭素) した球状燃料 (Fig.1) であり、核分裂生成物 (Fission Product: FP) を閉じ込める機能を持つ。

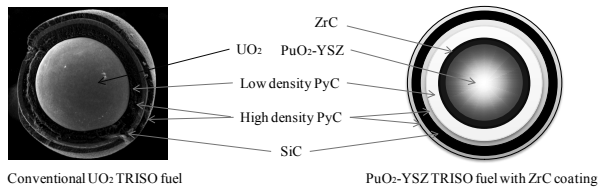


Fig.1 Coated fuel particle

現在研究を進めている Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子は、Fig.1 に示すように YSZ を母材とする  $PuO_2$  ( $PuO_2$ -YSZ) の燃料核に ZrC 及び TRISO 被覆を施したものであり、その暫定仕様を Table1 に示す。高燃焼度における従来の被覆燃料粒子の主な破損原因の一つとして、内圧の上昇が挙げられる。これは、燃焼に伴う CO ガス及び安定希ガス FP の生成によるもので、このうち CO ガスは、核分裂に伴い生成する遊離酸素と低密度熱分解炭素層の反応により生成する。ZrC は酸素ゲッターとして被覆するもので、これにより遊離酸素由来の CO ガスの生成を抑え、高燃焼度での被覆燃料粒子の内圧破損を防ぐ。なお、被覆燃料粒子の最終的な仕様は本研究での検討を通して決める。

Table1 Major specifications of fuel

Items	Values
Kernel diameter	300 $\mu$ m
ZrC thickness	10 $\mu$ m
Buffer (low density PyC) thickness	150 $\mu$ m
I-PyC (high density) thickness	35 $\mu$ m
SiC thickness	35 $\mu$ m
O-PyC (high density) thickness	40 $\mu$ m

### 2.2 炉心

Pu 燃焼高温ガス炉の炉心は、概念設計が行われた高温ガス炉ガスタービン発電システム (Gas Turbine High

Temperature Reactor: GTHTTR300) [4] をベースに設計しており、Fig.2 に示すように燃料カラム (燃料ブロック 8 体を積み上げたもの) を環状に配置した環状炉心である。Pu 高温ガス炉の暫定仕様を Table2 に示す。炉心は 3 種類の正六角柱ブロック (燃料ブロック、制御棒案内ブロック及び可動反射体ブロック) の積層構造であり、各ブロックの外寸法は、平径 40.5 cm、高さ 105 cm で同じである。燃料領域の外径 (約 5.6 m) 及び高さ (8.4 m) は GTHTTR300 と同じであるが、燃料領域は内側に 2 層分広い。なお、炉心の最終的な仕様は本研究での検討を通して決める。

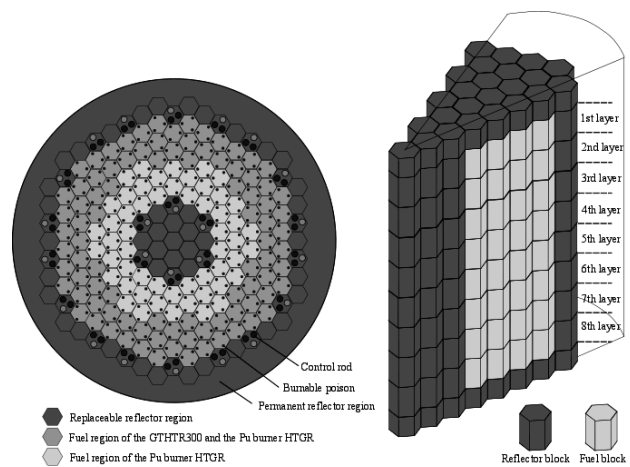


Fig.2 Schematic view of the plutonium burner HTGR

Table2 Major specifications of reactor core

Items	Values
Thermal power	600 MW
Loaded heavy metal	1.2 ton
Burn-up	500 GWd/t
Fuel column number	144
Fuel region height	8.4 m
Block height	105 cm

## 3. 燃料及び炉心の成立性評価の方法

### 3.1 燃料の成立性

燃料成立性の評価は平成 26 年度からの 3 年間で実施する計画である。これまでに、内圧計算コードの整備、ZrC 層の内圧抑制効果の熱化学平衡論に基づく評価及び燃料の成立性の予備的な評価を行った。

内圧計算コードの整備については、Pu-239 及び Pu-241 の核分裂時における安定希ガス FP 収率データ及び核分

裂割合を調べ、それらを U 燃料用に開発された内圧計算コード Code-B-2<sup>[5]</sup> に組み、Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子の内圧を計算できるようにした。ZrC 層の内圧抑制効果の熱化学平衡論に基づく評価については、ZrC-O<sub>2</sub> 反応後の平衡組成を FactSage<sup>[6]</sup> を用いて計算した。燃料の成立性の予備的な評価については、燃焼末期における被覆燃料粒子の内圧を、GTHTR300 と Pu 燃焼高温ガス炉の間で比較した。

### 3.2 炉心の成立性

核的及び熱的な観点からの炉心の成立性の評価は平成 26 年度からの 3 年間で実施する計画である。これまでに、炉心の成立性の予備的な評価を行った。具体的には、燃料の暫定仕様及び炉心の暫定仕様に基づいて、3 次元全炉心計算及び燃料温度計算を行い、炉停止余裕及び反応度温度係数等の核特性値を算出し、設計要求と比較する等して核的な成立性を評価した。また、燃料最高温度を算出するとともに高温工学試験研究炉 (High Temperature Engineering Test Reactor: HTTR)<sup>[7]</sup> における燃料温度の制限値 1495°C を目安に熱的な成立性を評価した。炉心燃焼計算は、高温ガス炉用に改良したセル燃焼計算コード SRAC/PIJ<sup>[8,9]</sup>、多次元炉心燃焼計算コード SRAC/COREBN<sup>[8]</sup> 及び履歴ファイル管理コード HIST<sup>[8]</sup> を用いて行った。燃料温度の計算は、炉心燃焼計算の出力分布の計算結果を入力とし、高温ガス炉用燃料温度計算コードを用いて行った。

## 4. 計算条件及び結果

### 4.1 燃料の成立性

#### 4.1.1 ZrC 層による内圧抑制効果

ZrC-O<sub>2</sub> 反応後の平衡組成の計算は、ZrC と O<sub>2</sub> のモル比を 1:1 に設定し、体系温度を 500 °C から 2000 °C まで 100 °C 刻みに変えて行った。

Fig.3 に示すように 1600°C 以下においては平衡状態で ZrO<sub>2</sub> (固体) と C (固体) のみが存在し、気体は存在しない。Pu 燃焼高温ガス炉は、従来の高温ガス炉の燃料設計と同じように被覆燃料粒子の FP 閉じこめ機能の健全性を確保するために、事故時においても燃料温度が 1600°C を超えないように炉心の核熱設計を行う。したがって、十分な量の ZrC を被覆することで、事故時を含めた全ての温度条件下で遊離酸素由来の CO ガス生成量をゼロにできる可能性があり、ZrC 層による内圧抑制効果

は非常に大きい。なお、被覆する ZrC の全てが遊離酸素と反応すると仮定した場合、必要な ZrC 被覆層の厚さは、燃料核直径 300~550 μm に対して 2~5 μm であり TRISO 被覆層に比べて数 10 分の 1 程度に薄いことから、十分な量の ZrC を被覆することに大きな問題はない。

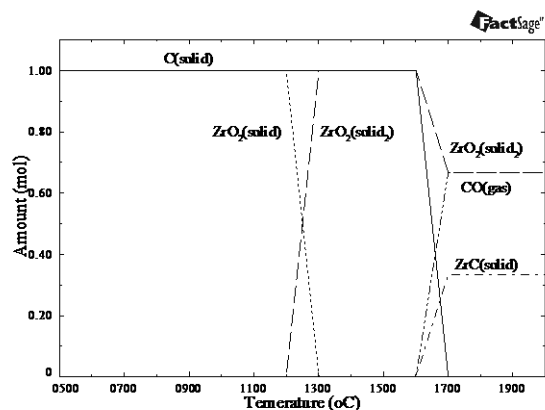


Fig.3 Thermochemical equilibrium calculation result

#### 4.1.2 燃料の成立性の予備的評価

被覆燃料粒子の内圧計算において、Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子の燃料核の大きさ、被覆層の厚さ及び被覆層の材質は GTHTR300 の被覆燃料粒子と同じにした。Pu 燃焼高温ガス炉及び GTHTR300 の燃料核の材質は、それぞれ PuO<sub>2</sub>-YSZ 及び UO<sub>2</sub> とし、燃料温度は、GTHTR300 の燃料最高温度である 1440°C に設定した。Pu 燃焼高温ガス炉及び GTHTR300 の被覆燃料粒子の燃焼度は、それぞれ 500 GWd/t 及び 139 GWd/t<sup>[4]</sup> に設定した。GTHTR300 の燃料の U と Pu の核分裂割合は、燃焼に伴い生成される Pu の核分裂反応への寄与を考慮して 6:4 に設定した<sup>[5]</sup>。U 及び Pu の核分裂あたりの遊離酸素生成率は、それぞれ 0.4 及び 0.85 に設定した<sup>[5]</sup>。また、U 及び Pu の核分裂あたりの安定希ガス FP 発生数は、それぞれ 0.31<sup>[5]</sup> 及び 0.28 に設定した。ここで、Pu の安定希ガス FP 発生数は、セル燃焼計算を行って算出した Pu-239 と Pu-241 の核分裂割合及びこれらの核種の安定希ガス FP の累積収率<sup>[10]</sup> を用いて計算し (Fig.4)、その最大値とした。安定希ガス FP の燃料核からの放出は、反跳放出及び拡散放出によるものとし、計算式は Code-B-2 と同じにした<sup>[5]</sup>。

Table3 に示すように、取り出し時における Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子の内圧は 277 MPa であり、その内訳は CO 分圧が 220 MPa、FP 分圧が 57 MPa である。GTHTR300 の被覆燃料粒子の内圧は 60 MPa であり、その内訳は CO 分圧が 42 MPa、FP 分圧が 18 MPa である。Pu 燃

焼高温ガス炉の被覆燃料粒子において、ZrC を燃料核に被覆して遊離酸素由来の CO 生成量をゼロにできれば、内圧は 57 MPa となり、GTHT300 の被覆燃料粒子の内圧とほぼ同じである。したがって、GTHT300 の被覆燃料粒子と同じ寸法の PuO<sub>2</sub>-YSZ を燃料核とする被覆燃料粒子は、ZrC を燃料核に被覆することで内圧破損の観点からは 500 GWd/t の燃焼度を達成できる見込みが十分ある。

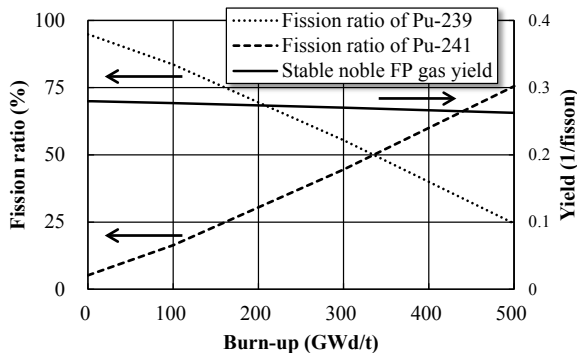


Fig.4 Fission ratio and stable noble FP gas yield of Pu fuel

Table3 Calculation results of internal pressure of discharged fuel

Items	Pu burner HTGR (PuO <sub>2</sub> -YSZ)	GTHT300 (UO <sub>2</sub> )
Total pressure	227 MPa	60 MPa
CO partial pressure	220 MPa	42 MPa
FP total pressure	57 MPa	18 MPa

#### 4.2 炉心の成立性の予備的評価

評価対象の炉心は、取り出し時の燃焼度 500 GWd/t 及び炉心径方向の出力分布の均一化を達成できるように径方向に燃料シャッフリングを行った場合の平衡炉心とした。燃料シャッフリングは、Fig.5 に示すように、中性子束の低い炉心外側に新燃料を装荷した燃料ブロックを配置し、250 日燃焼した後、IV、III、II、I の順に炉心内側に移動させることとした。炉心燃焼計算では、制御棒位置は燃焼期間にわたり燃料領域上部に設定し、炉心温度は出力運転時の平均的な温度で炉心均一に設定した。可燃性毒物は装荷しない条件の下、4 バッチ目までの炉心燃焼計算を行った。

過剰反応度の計算結果を Fig.6 に示す。3 バッチ目と 4 バッチ目の計算結果がほぼ同じであることから、4 バッチ目の炉心を平衡炉心として炉心の成立性の予備的評価を行った。

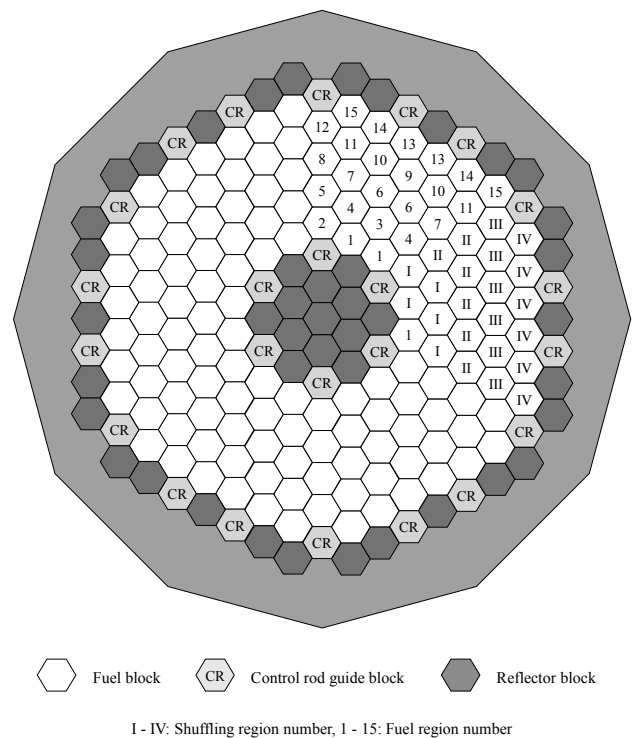


Fig.5 Fuel shuffling pattern for radial direction

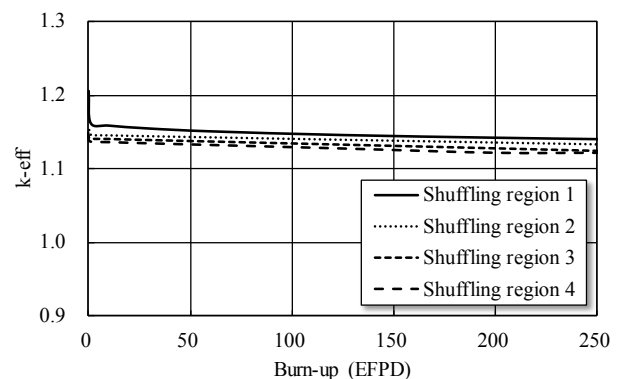


Fig.6 Calculation results of k-eff value

##### 4.2.1 炉停止余裕

炉心温度 300 K 均一、全制御棒を全挿入の条件の下、炉心計算を行って燃焼初期の過剰反応度を計算した。具体的には、温度を 300 K 均一に設定して作成した少数群断面積を用いて炉心計算（ブランチオフ計算）を行い実効増倍率を求め、以下の式により過剰反応度を算出した。

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

$\rho$  : 過剰反応度

$k$  : 実効増倍率

過剰反応度は 12.7%Δk/k で正の値であることから、炉停止余裕 1%Δk/k 以上を確保するためには、平衡炉心の燃焼初期において、少なくとも 13.7%Δk/k 相当の中性子吸収材を炉心に装荷する必要がある。これを実現する方法として可燃性毒物の装荷及び制御棒の追加装荷が考えられ、今後実施予定の詳細計算に反映させる。

#### 4.2.2 反応度温度係数

出力運転時の炉心温度条件を基準にして、炉心全体及び燃料温度を+100 K に設定した炉心計算をそれぞれ行い、全温度係数及び燃料温度係数を算出した。具体的には、温度を+100 K に設定して作成した少数群断面積を用いた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算出した。なお、減速材温度係数は、全温度係数と燃料温度係数の差分とした。

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

TC : 反応度温度係数

k<sub>0</sub> : 温度を変化させる前の実効増倍率

k<sub>1</sub> : 温度をΔT変化させた後の実効増倍率

全温度係数は、Fig.7 に示すように設計要求である燃焼期間にわたり負であることを満たしている。安全評価において特に重要な燃料温度係数は、燃焼に伴い大きくなるが燃焼期間にわたり負である。また、減速材温度係数は、燃焼に伴い小さくなり、燃焼期間にわたり負である。

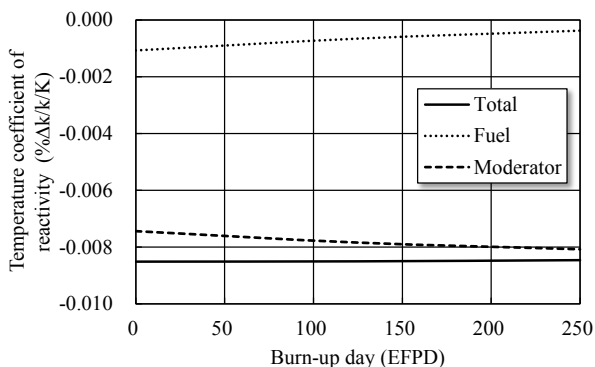


Fig.7 Calculation results of temperature coefficient of reactivity

中性子吸収材の中性子吸収効果は燃料温度にほとんど影響されないこと及び炉内に中性子吸収材がない状態の方が減速材温度係数が正側の評価になることが報告され

ている<sup>[1]</sup>。したがって、今後実施予定の可燃性毒物や制御棒が炉心に装荷あるいは挿入された状態の詳細計算においても、全温度係数、燃料温度係数及び減速材温度係数は、燃焼期間にわたり負であると考えられる。

#### 4.2.3 燃料温度

平衡炉心の燃料温度計算を各燃料領域について行った。燃料領域はFig.5に示すように炉心中央からの距離により15領域(15カラム)に分けることができる。

燃料温度の計算結果を、Fig.5に示したシャッフリング領域に分けてFig.9に示す。燃料領域1~4、5~8、9~12及び13~15が、それぞれ、シャッフリング領域IV、III、II及びIであり、各シャッフリング領域で燃料温度が最高となる燃料領域の計算結果を図示した。燃料最高温度は1480°Cであり、被覆燃料粒子の健全性を確保するための目安とした1495°C以下である。しかし、今後実施予定の詳細計算では、制御棒が燃料領域に挿入された状態の炉心燃焼計算を行うため軸方向の出力分布が歪み、その結果、燃料最高温度が1495°Cを超えることが予想されるため、燃料温度の低減化に向けた何らかの対策が必要になると考えられる。

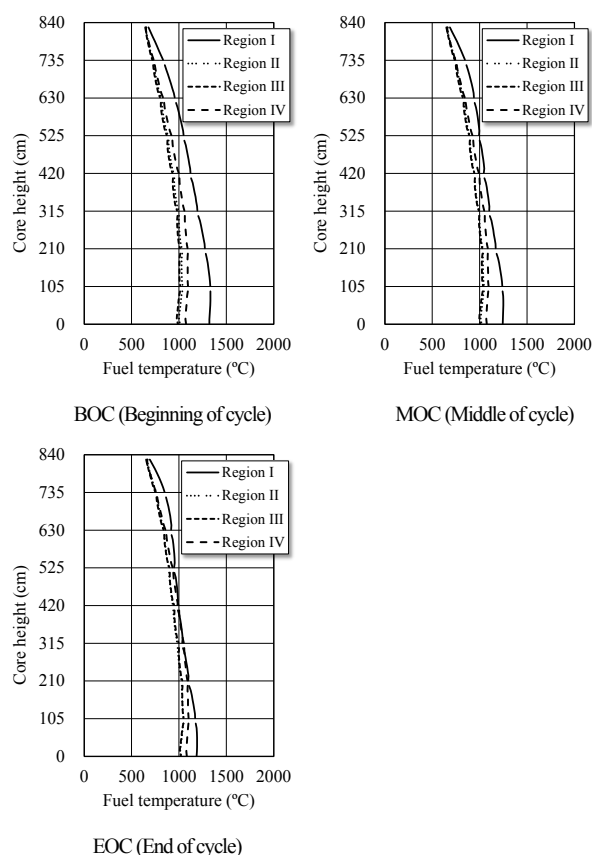


Fig.9 Calculation results of fuel temperature

## 5. 結言

熱化学平衡論に基づく評価の結果、ZrC の被覆により内圧を抑制する方法は、高温ガス炉の全ての温度条件下において非常に有効であることが分かった。

Pu 燃焼高温ガス炉の被覆燃料粒子において、ZrC を燃料核に被覆し遊離酸素由来の CO 生成量をゼロにできれば、取り出し時の内圧は、概念設計が行われた GTHTR300 の被覆燃料粒子の内圧とほぼ同じであることから、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。

炉停止余裕  $1\% \Delta k/k$  以上を確保するためには、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。

反応度温度係数は、熱領域にある Pu-239 の核分裂共鳴の影響で正の値となり何らかの対策が必要と予想していたが、対策を施さなくても燃焼期間に渡って負の値を維持できる見通しを得た。

通常運転時の燃料最高温度は  $1480^{\circ}\text{C}$  であり、燃焼期間にわたって燃料の健全性確保の目安とした  $1495^{\circ}\text{C}$  以下となった。しかし、今後実施予定の詳細計算では、制御棒が燃料領域に挿入された状態の炉心燃焼計算を行うため、今回の予備的な評価結果と比較して軸方向の出力分布が歪み、その結果、燃料最高温度が  $1495^{\circ}\text{C}$  を超えることが予想される。したがって、燃料温度の低減化に向けた何らかの対策が必要になると考えられる。

## 参考文献

- [1] Yuji Fukaya, et al., Proposal of a plutonium burner system based on HTGR with high proliferation resistance, J. Nucl. Sci. Technol., 51(6), 818-831 (2014).
- [2] K. Kuramoto, et al., Durability test of irradiated rock-like fuels, J. Nucl. Mater., Vol.319 (2003).
- [3] Minoru Goto et al., Conceptual Study of a Plutonium Burner High Temperature Gas-cooled Reactor with High Nuclear Proliferation Resistance, Proceedings of Global2015, Paris, France, September 20-24, 2015.
- [4] 中田哲夫, 他, 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] 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.rcem.co.jp/product/thermodynamics/factsage/>  
(閲覧日: 2016 年 3 月 2 日).

- [6] 相原純, 他, SiC-TRISO 燃料粒子の応力計算のための Code-B-2, JAEA-Data/Code 2012-030 (2013).
- [7] S. Saito, et al., Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), JAERI 1332 (1994).
- [8] K. Okumura, et al., SRAC2006 : A comprehensive Neutronics Calculation Code System, JAEA-Data/Code 2007-004 (2007).
- [9] 後藤実, 他, 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.
- [10] 日本原子力研究開発機構, WWW Chart of the Nuclides 2010 , <http://www.ndc.jaea.go.jp/CN10/index.html/> (閲覧日: 2015 年 3 月 2 日).
- [11] 山下清信, 他, 高温工学試験研究炉の反応度温度係数の評価, JAERI-M 90-008 (1990).