超高燃焼度燃料研究に対する取り組み

東京工業大学 革新的原子力研究センター 中江 延男

東京工業大学 原子炉工学研究所 2010年8月20日

革新的原子力研究の目標

原子力に求められる 5つの特性	解決方策	判断の目安 となる指標	最終的な 目標値
● 持続可能性	資源の有効利用	天然U利用効率	100%
● 環境負荷低減性	放射性廃棄物の低減 (安定化)	放出量 放射性毒性	ゼロ・リリース 天然Uと等価
● 核拡散抵抗性	高濃縮U、兵器級Pu の非生産、消滅、 防御(スパイク)	炉外での取扱量 取扱方法	ゼロ・ユース U濃縮、再処理の ない燃料サイクル
● 安全性	高信頼性PS、MSの 導入(自然現象による動作)	CDAの有無	CDA回避
● 経済性	設計の合理化 システムの簡素化	発電コスト 建設コスト サイクルコスト	現行LWRより低く 20万円/KWe 4円/KWh

天然ウランをワンス・スルーで超高燃焼度まで安全で経済的に 燃焼させる方式(概念)の創出・実現

革新的原子力研究例

CANDLE 東エ大	炉心での燃料の燃焼を軸方向に移動させる。これを軸方向に見れば新燃料領域、燃焼燃料領域、燃焼後燃料領域となる。新燃料領域を順次燃焼燃料領域に、燃焼燃料領域を燃焼後燃料領域とする。そして、燃焼後燃料領域を軸方向にずらし空いたところに新燃料領域を設けることによって連続して運転することが可能となる。この燃焼法では、ウラン利用効率を40%程度にまで向上させることが可能となる。この方式をガス冷却高温ガス炉やPb-Bi冷却高速炉に適用した革新炉が提案されている。 <u>Constant Axial Shape of Neutron Flux, Nuclide Densities and Power Shape During Life of Energy Production</u>
TWRP TerraPower	炉心での燃料の燃焼を水平方向に移動させる。炉心のいずれかの端に濃縮ウランをそれ 以外に天然ウランを装荷した炉心を構成する。最初は濃縮ウラン部分で燃焼が進むと同時 に周辺の天然ウランがプルトニウムに変換される。燃焼は炉心の一方から順に天然ウラン の装荷部分に移動する。このように燃焼する部分が移動していくことから <u>Traveling Wave</u> <u>Reactor Plants</u> と名づけられている。この炉心の利点は使用済燃料の再処理を必要としな いオープンサイクルであるが、ウラン利用効率が40-50%に達するところにある。
PBRS 動燃/阪大	天然ウランの利用効率100%を目指した加速器駆動型高速炉概念である。加速器からの陽 子をPbターゲットに照射することにより中性子を得る。これを天然ウランに照射することに よってプルトニウムに核変換し燃料を製造するとともに燃焼させる。天然ウランが燃え尽き、 かつMAやLLFPについても核破砕中性子により消滅させる。概念検討の段階であるが、完 全燃焼に近づく可能性が示された。しかし、中性子経済(パランス)に問題がある。 <u>Perfect Burning Reactor System</u>
4S 電中研/東芝	<u>Super-Safe, Small and Simple</u> と名付けられた小型高速炉で米国アラスカ州に設置が計 画されている。現在東芝によるNRCへの説明が進められている。 U-10%Zr合金燃料を使用する熱出力30MWt(135MWtについても検討)のナトリウム冷却 炉である。

これらの原子炉に使用される燃料に対する設計評価がなされていない。

超高燃焼度燃料研究の背景

革新的原子カシステム(原子炉)に対し、

- □ 核的、熱的成立性に関する研究は実施されている。
- □ 燃料健全性に関する研究はほとんど実施されていない。 (革新的原子力研究における1つの課題)

革新的原子カシステムにおいて想定される燃料の燃焼度は 従来経験しているものを大きく上回る。 超高燃焼度燃料となる。 限界燃焼度とその制限因子(破損を支配する因子)を把握し、 燃焼度伸長のための課題を解決する必要がある。

燃料設計とは(何を確認することか?) 安全設計として

- 通常運転時、運転時の異常な過渡変化時、輸送取扱時に燃料健全性 が維持されることを確認する。
- ② 通常運転時、運転時の異常な過渡変化時、事故時、地震時に制御棒 挿入経路が維持されることを確認する。
- ③ 通常運転時、運転時の異常な過渡変化時、事故時、地震時に冷却可能形状が維持されることを確認する。

安全評価として

- ④ 運転時の異常な過渡変化が起きても炉心が通常運転状態に復帰できることを確認する。このため、代表事象について燃料許容設計限界を超えないことを確認する。
- ⑤ 事故時には燃料破損は許容されるが、燃料破損本数や破損モードを 被曝評価をする上で過小評価とならないことを確認する。

最終的は上記①~⑤までを確認する必要があるが、超高燃焼度燃料 研究では①に着目した検討を進めるものとする。

超高燃焼度燃料研究の取り組み (原子力機構及び電中研との共同研究として実施)

- □ 設計条件(核・熱条件)はCANDLEをベースに設定
- ロ 燃料材として以下の燃料タイプを想定 金属燃料 【U-20Pu-10Zr】
 窒化物燃料【(U,Pu_{0.2})N】
 酸化物燃料【(U,Pu_{0.2})O_{2-x}】(CANDLEでは想定していない)
- ロ 被覆管材料としてフェライト鋼及びオーステナイト鋼を想定
- ロ 燃焼度をパラメータとした燃料挙動解析
- □ 限界燃焼度とその制限因子(燃料寿命支配因子)の把握
- ロ 燃焼度伸長のための課題解決策の検討
- **ロ** 必要なR&D項目の摘出(できれば、ロードマップ作成) ⁶

CANDLEにおける燃料燃焼概念



CANDLEにおける 燃料 燃焼 概念



燃料無交換で100年間運転するケースでの燃焼の様子

CANDLEにおける 燃料 燃焼 概念



50年ごとに燃料交換するとしたケースでの燃焼の様子

超高燃焼度燃料研究での設計条件

$$LHR = \frac{P}{V_{Fuel}} \times \pi \times R^2$$

$$BU = \frac{LHR \times T}{\pi \times R^2 \times \rho \times 1000}$$

$$BU = \frac{P \times T}{V_{Fuel} \times \rho \times 1000}$$

LHR	線出力	W/cm		
Р	出力密度	W/cm ³		
R	燃料ペレット半径	cm		
V_{Fuel}	燃料体積比	-		
ρ	燃料ペレット重金属密度	g/cm ³		
BU	燃焼度	GWd/t		
Т	照射時間	day		
(出力密度け炬心全体での値であるとしている)				

照射時間50年で燃焼度400GWd/tを達成するための出力密度を第3式から算出可能。 すると第1式から線出力が算出可能。

超高燃焼度燃料研究での設計条件

前提条件

項目	数值	備考	
燃焼期間	50年	CANDLEの結果	
燃焼度	40 at%(400 GWd/t)	CANDLEの結果	
出力ピーキング (時刻歴)*	3	CANDLEの結果	
最大高速中性子束	$3.6 \times 10^{15} \mathrm{n/cm^2 \cdot sec}$	CANDLEの結果	
燃料ペレット径	7.8 mm	燃料側で設定	
燃料理論密度比	100 / 90 / 90 % (金属 / 窒化物 / 酸化物)	燃料側で設定、 <mark>酸化物は参考</mark>	

* CANDLEではある軸方向位置を考えた場合、出力は時間に依存して変化するため時刻歴とした。

設計条件

項目	金属燃料	窒化物燃料	酸化物燃料(参考)
線出力 (W/cm)	450	400	300
燃焼期間 (年)**	16	16	16
到達燃焼度 (GWd/t)	390	400	420
高速中性子束 (n/cm ² •sec)	$3.6 imes 10^{15}$	$3.6 imes10^{15}$	$3.6 imes 10^{15}$
高速中性子照射量 (n/cm²)	$1.8 imes 10^{24}$	$1.8 imes 10^{24}$	$1.8 imes 10^{24}$
損傷量 (dpa)	900	900	900

** 燃焼期間50年をピーキング係数(3)で除した数値(16.7年)を16年と設定

超高燃焼度燃料研究での燃料仕様

	金属燃料	窒化物燃料	酸化物燃料(参考)
被覆管外径(mm)	10.2	9.2	9.2
被覆管内径(mm)	9.0	8.1	8.1
被覆管肉厚 (mm) ^{*1}	0.6	0.55	0.55
ギャップ巾 (mm)	1.2	0.3	0.3
ペレット径 (mm)	7.8	7.8	7.8
ペレット密度 (%TD)	100	90	90
スミア密度 (%TD)	75	83	83
ボンド材	ナトリウム	ヘリウム	ヘリウム
プレナム長 (cm) *2	850	900	650

*1 被覆管平均半径と肉厚の比は金属燃料で8.0、窒化物燃料と酸化物燃料で7.9となっている。 *2 プレナム部温度650℃、照射末期内圧が100kg/cm²となるように設定した。

超高燃焼度燃料と米国照射試験燃料との 燃料仕様の比較

パラメータ	金属燃料 (CRINES)	金属燃料 (米国)	窒化物燃料 (CRINES)	炭化物燃料 (米国)	酸化物燃料 (参考)	酸化物燃料 (米国)
ペレット密度 (%TD)	100	100	90	80-82	90	92
スミア密度 (%TD)	75	75	83	78-79	83	80-85
燃料対プレナム体積比	4.25	1.4	4.5	1.0	3.25	1.0
燃料スタック長 (cm)	200	91	200	91	200	91
ペレット外径 (cm)	0.78	0.5	0.78	TBD	0.78	0.56
ペレット内径 (cm)	n/a	n/a	n/a	n/a	0	0.15
ボンド材	Na	Na	He	He	He	He
被覆管外径 (cm)	1.02	0.69	0.92	0.94	0.92	0.69
被覆管内径 (cm)	0.9	0.57	0.81	TBD	0.81	0.57
最大線出力 (kW/m)	45	49-52	40	66-80	30	44-46
被覆管内面温度 (℃)	650	620	650	620	650	620

窒化物燃料ペレット密度・スミア密度、燃料スタック長、燃料対プレナム体積比、ペレット外径、最大線出力に 相異が見られる。

しかし、東工大が設定した燃料仕様を米国が推奨する燃料仕様と比較した結果、CANDLE炉の特性(超長寿 命炉心であるため、長い燃料スタック長、長いプレナム等)を考慮すれば問題あると指摘される点はない。13

超高燃焼度燃料の設計用物性値・モデル





超高燃焼度、超高照射下での物性値・モデルの整備が必要である。

被覆管照射スエリング特性



S. J. Zinkle, "Advanced materials for future nuclear plants" Fission Energy Workshop: Opportunities for Fundamental Research and Breakthrough in Fission, Global Climate & Energy Project, MIT, Cambridge, MA, November 29-30, 2007

超高燃焼度燃料研究での被覆管特性式



簡易的に使用するスエリング特性パラメータ値 (参考)

	R	D_0	$T_{\rm max}$	ΔT_h
オーステナイト鋼	0.2 - 0.6	80 - 100	480	80
フェライト鋼	0.002 - 0.01	0		

超高燃焼度燃料研究での被覆管特性式

$$\frac{\dot{\varepsilon}}{\sigma} = B_0 + D_0 \dot{S}$$

 $\dot{arepsilon}$: irradiation creep rate (1/dpa)

 σ : hydrostatic stress (MPa)

 B_0 : creep compliance (1/MPa) (暫定的に 10⁻⁶ とする。 WISCONSIN 大報告)

 D_0 : swelling enhanced creep coefficient (1/MPa) (暫定的に 0.01 とする。)

 \dot{S} : total swelling rate (10⁻²%/dpa=1/dpa)

 $LMP = (T + 273.15)(1.521224 \times 10^{1} + \log_{10} t_{R})$

 $= 2.228424 \times 10^{4} + 6.593335 \times 10^{2} \log_{10} \sigma - 1.172748 \times 10^{3} (\log_{10} \sigma)^{2}$

- T : 温度(K)
- t_R : 破断時間(hr)
- σ : 周方向応力(Mpa)

上記の特性式はオーステナイト鋼に適用可能、フェライト鋼に関しては別途設定する必要がある。

燃焼度をパラメータとした燃料挙動解析

燃料タイプ	実施機関	解析コード
金属燃料	電中研	ALFUS
窒化物燃料	JAEA	SIMPLE
酸化物燃料(参考)	JAEA	SIMPLE

限界燃焼度とその制限因子(燃料寿命支配因子) 着目する燃料挙動

特徴	燃料挙動	破損メカニズム
高燃焼度	熱特性(熱伝導度、ギャップ熱伝達率)の低下	燃料溶融破損
	FPガス放出による内圧上昇	クリープ破断(クリープ寿命分数和)
	固体FPスエリングによるPCMI	PCMI破損
		(引張破断またはクリープ破断)
高照射量	ボイドスエリングによる外径増加	冷却能力低下による破損
		(材料強度低下とクリープ破断促進)
	照射クリープによる外径増加	冷却能力低下による破損
		(材料強度低下とクリープ破断促進)
	材料の照射による延性低下(照射硬化)	脆性破壊

燃料設計評価項目

- ① 燃料中心温度
- ② 被覆管応力
- ③ クリープ寿命分数和(CDF)
- ④ 被覆管外径增加

予想される制限因子とその対応策(案)

	予想される制限因子	その対応策(案)
1.	内圧上昇に起因するクリープ破断	 高クリープ強度材料の開発 内圧低減化のためのベント型燃料採用 燃料交換方式の採用
2.	燃料スエリングに起因するPCMIに よる引張破断またはクリープ破断	 ● 高強度材料の開発 ● 高クリープペレットの開発 ● 燃料交換方式の採用
3.	被覆管スエリング及び照射クリープ に起因する外径増加による冷却能 力低下に伴う材料強度低下による クリープ破断または脆性破断	 耐照射スエリング材料の開発 延性材料の開発 燃料交換方式の採用
4.	その他超高燃焼度下での未知の現 象による破損	 超高燃焼度下でのペレット微細組織の 変化に伴う熱特性の低下による溶融 被覆管内面でのFCCI促進による破損

超高燃焼度までの燃料照射試験は必要不可欠である。

米国での燃料照射実績

	燃料組成	被覆材	スミア密度 (%TD)	<mark>最大線出力</mark> (kW/m)	<mark>燃焼度</mark> (at%)	高速中性子照射量 (×10 ²² n/cm ²)
金属 燃料	U-10Zr U-Pu-10Zr (Pu:8-28)	D9 HT9 316SS ^{*1}	75-85	63	20	23
酸化物 燃料	(U,Pu)O ₂ (Pu:15-21)	$\begin{array}{c} \mathrm{HT9} \\ \mathrm{316SS^{*1}} \end{array}$	85-92	52.5 (72.2) *2	19.5	19.4
炭化物 燃料	(U,Pu)C	D9		86	8	13

*1: 20%CW材

*2: PTM試験

金属燃料、酸化物燃料ともに約20at%まで燃焼度実績が得られている。 目標値に比べ半分の燃焼度実績である。(米国の場合)

Reference: D. C. Crawford, D. L. Porter, S. L. Hayes, "Fuels for sodium-cooled fast reactors: US perspective", J. Nucl. Mater., 371 (2007) 202-231

各国での被覆管照射実績

材	料名	組成	最大照射量 (dpa)
オーステナイト系	PNC-316 (PNC)	17Cr-14Ni-Mo	107
	PNC1520 (PNC)	14Cr-20Ni	118
	15-15Ti (France)	15Cr-15Ni-Mo-Mn	148
	D9 (US)	14Cr-15Ni-Mn	140
	Nimonic PE16 (UK)	17Cr-44Ni-Mo-Ti	155
フェライト系	PNC-FMS (PNC)	11Cr-Mo-Ni	45
	JNC-ODS (JNC)	11Cr-2W-0.3Ti-0.23Y ₂ O ₃	21
	EM-10 (France)	9Cr-Mo	146
	HT-9 (US)	12Cr-Mo	200

オーステナイト系では約150dpaまで照射実績が得られている。 フェライト系では約200dpaまで照射実績が得られている。 目標値に比べ半分の照射実績である。

燃焼度40at%まで燃料は健全に燃えるのか (最高燃料燃焼実績)

- 1. MOX振動充填燃料をBOR-60で照射し、燃料ピン燃焼度32%までの燃焼実績が得られた。
- 2. 燃料仕様は、ピン径6.0/6.9mm、肉厚0.3/0.4mm、スミア密度8.3-9.5g/cm³、燃料スタック長450mm、プレナム長273mm、プルトニウム富化度15-30%、ウラン濃縮度45-90%である。特徴は、もんじゅ並みのピン径、スミア密度、また薄肉、低プレナム容積であり応力的には厳しい仕様である。
- 3. 照射条件は、最大線出力510W/cm、最高被覆管温度722℃であり、非常に厳しい条件となっている。

4. 照射後観察結果を下図に示す。燃料を構成する重金属の32%が核分裂しているため、多くの白色の固体状の核分裂生成物が観察される。バイパック燃料であるため、照射前の燃料は粒子状であったが、照射によって粒子同士が合体し(焼結)高密度化している。高密度化と合わせて中心空孔が生成されている。さらに、熱応力による径方向クラックが見られる。



Reference : A. A. Mayorshin, et al., "RIAR Experience in the Field of Vibropac Fuel Use in Fast Reactor", Pro. of GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13, 2005, Paper No.585.

研究実施工程

年度	平成22年度								
項目	7	8	9	10	11	12	1	2	3
1. 設計仕様の検討・整理									
2. 物性値・モデルの収集・評価									
3. 燃料挙動解析の実施									
4. 到達燃焼度と課題の相関検討									
5. 解決策の検討									
6. 研究開発計画作成									

燃料特性 (参考)

Pu/(U+Pu)=0.2	炭化物 (U,Pu)C	窒化物 (U,Pu)N	酸化物 (U,Pu)O ₂	金属 (U-Pu-Zr)
重金属密度 (g/cm ³)	12.9	13.5	9.7	14.1
融点 (°C)	2305	2720	2730	1070
熱伝導度 (W/m・K)	12.8 (at 1000 °C)	13.5 (at 1000 °C)	2.1 (at 1000 °C)	17.5 (at 1000 °C)
熱的裕度	高い	高い	低い	低い
中性子スペクトル	中間	中間	ソフト	ハード
ナトリウムボイドワース	酸化物より大	酸化物より大		
ドップラー反応度	-1.3\$	-1.1\$	-1.5\$	
燃焼度 (GWd/t)	~100	~100	100以上	100以下
燃料-被ふく管のボンド	Na/He	Na/He	He	Na
¹⁵ Nの濃縮	必要なし	必要	必要なし	必要なし
使用実績	EFBR(インド)	実績なし	豊富な実績	EBR-II(米国)

燃料特性(参考)

炭窒化物

- ◆ 炭化物は熱的裕度が高く、安全性も酸化物とほぼ同等である。 使用実績は 乏しくインドのEFBRのみである。
- ◆ 窒化物は熱的裕度が高く、安全性も酸化物とほぼ同等である。しかし、使用 実績はなく、¹⁵N濃縮のペナルティーが課せられる。
- ◆ 炭化物、窒化物の再処理は困難との評価がある。

金属

- ◆ 金属の熱的裕度は低いが、安全性は酸化物よりも高いと評価されている。 使用実績は米国EBR-IIであるが、U-TRU-Zr型の金属燃料は照射試験の レベルである。高燃焼度の達成が困難との評価がある。
- ◆ 金属の再処理は溶融塩電解(乾式)法による実績がある。

酸化物

- ◆ 酸化物は熱的裕度が低いが、高速炉先進国で豊富な使用実績がある。また、 高燃焼度の達成が可能である。
- ◆ 酸化物の再処理は軽水炉用酸化物燃料に対してではあるが商業規模での 実績がある。

安全性 (参考)

安全目標: 『全ての運転及び事故モードにおいて、固有の安全性を有すること。』 → 常に、反応度係数は負であり、熱バランスが保たれていること。

研究例	概要
安全とリスクレベルの評価手法に関 する研究(GIF高速炉安全研究)	5つの手法を提案 ①Gen IVの安全目標の達成実証、②個 別安全要求への適合性証明、③代替設計の利点の定量評 価、④既存知識と必要研究開発とのギャップ評価、⑤簡単で 経済性の高い手法の活用
仮想事故解析における不確定因子 の影響評価(ANLでの研究)	SFRでのULOHS、ULOF、UTOP解析に使用される各パラ メータが持つ不確定因子をそれぞれに適した関数形で表現 しそれらを用いて解析する。その影響を分布形で評価する。
固有の安全性に関する研究(IPPE での研究)	BN800を対象にUTOP時に反応度係数が負となるよう炉心 設計する。また、ULOF時の固有安全性について検討する。

【未来への挑戦】
 (1) PS、MSの動作を全て自然現象(物理現象)依存とするための検討

 → 制御棒駆動機構に関する研究、自然循環に関する研究
 → CDA回避に関する研究
 (2) Na-水反応回避に関する研究

経済性 (参考)

達成目標: 建設コスト(20-30万円/KWe) サイクルコスト(4-5円/KWh)



(1) 経済性と安全性及び核拡散抵抗性とのトレードオフに関する検討

- → 高性能炉心材料に関する研究、プラント簡素化に関する研究
- (2) 高速炉導入戦略に関する検討
 - → 小型モジュール炉導入戦略研究(立地場所、時期、規模)
- (3) 小型モジュール炉に関する設計研究