

平成28年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

高効率 TRU 燃焼を可能とする革新的水冷却炉

RBWR の研究開発

成果報告書

平成29年3月

株式会社日立製作所

本報告書は、文部科学省のエネルギー対策特別会計委託事業による委託業務として、株式会社日立製作所が実施した平成27年度－28年度「高効率 TRU 燃焼を可能とする革新的水冷却炉 RBWR の研究開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	ix
1. はじめに	1-1
1.1 研究の狙い	1-1
1.2 研究構想	1-2
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.2 平成 27 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-2
2.3 平成 28 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-3
3. 業務の実施内容及び成果	3. 1. 1-1
3.1 全炉心輸送計算による炉心特性評価	3. 1. 1-1
3.1.1 RBWR の炉心成立性評価	3. 1. 1-1
3.1.2 モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発 (再委託先：原子力機構)	3. 1. 2-1
3.2 ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価	3. 2. 1-1
3.2.1 RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価	3. 2. 1-1
3.2.2 照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化 (再委託先：東京大学)	3. 2. 2-1
3.2.3 水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明 (再委託先：原子力機構)	3. 2. 3-1
3.2.4 重イオン照射試験及び材料評価 (再委託先：九州大学)	3. 2. 4-1
3.3 研究推進	3. 3-1
4. 結言	4-1
5. 付録：RBWR の開発状況	5-1
5.1 熱水力：限界出力評価	5. 1-1
5.2 炉内機器	5. 2. 1-1
5.2.1 燃料集合体の試作、流動励起振動試験	5. 2. 1-1
5.2.2 耐照射材開発	5. 2. 2-1
5.3 燃料サイクル	5. 3. 1-1
5.3.1 TRU 再処理	5. 3. 1-1
5.3.2 燃料製造	5. 3. 2-1
5.4 TRU 燃焼炉のオプション	5. 3. 2-2
5.5 最後に	5. 3. 2-2

表一覧

表 1. 1-1 RBWR の課題と対応	1-2
表 2. 1-1 2 年間の全体計画	2-1
表 3. 1. 1-1 プラント及び炉心燃料仕様	3. 1. 1-2
表 3. 1. 1-2 幾何形状模擬方法による制御棒価値の違い	3. 1. 1-4
表 3. 1. 1-3 軸方向分割数及び分割位置の検討条件	3. 1. 1-7
表 3. 1. 1-4 燃焼点の設定	3. 1. 1-10
表 3. 1. 1-5 燃焼点数のボイド反応度への影響	3. 1. 1-11
表 3. 1. 1-6 燃料集合体解析モデルのまとめ	3. 1. 1-12
表 3. 1. 1-7 SGI 社製 ICE™X のハードウェアスペック	3. 1. 1-14
表 3. 1. 1-8 炉心・燃料仕様	3. 1. 1-16
表 3. 1. 1-9 解析結果	3. 1. 1-17
表 3. 1. 1-10 装荷燃料の重金属重量・組成	3. 1. 1-18
表 3. 1. 1-11 取出 3 年後の燃料の重金属重量・組成	3. 1. 1-19
表 3. 1. 1-12 取出 3 年後の燃料の FP 重量・組成	3. 1. 1-20
表 3. 1. 2-1 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した 実効増倍率の反応度差	3. 1. 2-9
表 3. 1. 2-2 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した 実効増倍率の反応度差	3. 1. 2-10
表 3. 1. 2-3 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-235 核分裂反応率の差	3. 1. 2-11
表 3. 1. 2-4 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-235 核分裂反応率の差	3. 1. 2-12
表 3. 1. 2-5 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-238 捕獲反応率の差	3. 1. 2-13
表 3. 1. 2-6 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-238 捕獲反応率の差	3. 1. 2-14
表 3. 1. 2-7 UO ₂ ピンセル体系問題における温度設定	3. 1. 2-15
表 3. 1. 2-8 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した 燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-17
表 3. 1. 2-9 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した 燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-18
表 3. 1. 2-10 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した 燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-19
表 3. 1. 2-11 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した	

燃料温度点 : 300 K、900 K、1,800 K)	3.1.2-20
表 3.2.1-1 供試材料及びその合金組成	3.2.1-6
表 3.2.1-2 水素化物形成材の水素含有量	3.2.1-10
表 3.2.1-3 水素含有量と衝撃エネルギー	3.2.1-10
表 3.2.1-4 水素化物の格子定数	3.2.1-12
表 3.2.3-1 Zr 及び各種水素化物の劈開エネルギー	3.2.3-2
表 3.2.3-2 空孔、SIA、固溶 Fe 原子の間の相互作用 (結合) エネルギー	3.2.3-6
表 3.2.4-1 本研究の照射実験条件	3.2.4-1
表 3.3-1 成果物	3.3-1
表 5.1 RBWR の課題と対応	5-1
表 5.2 炉心・燃料仕様	5-1
表 5.3.2-1 TRU 含有燃料の製造性の調査結果	5.3.2-2

図一覧

図 1. 1-1	めざす TRU 燃焼サイクル	1-1
図 1. 1-2	RBWR の特徴と課題	1-2
図 3. 1. 1-1	RBWR 炉心構成	3. 1. 1-1
図 3. 1. 1-2	RBWR 燃料集合体構成	3. 1. 1-2
図 3. 1. 1-3	幾何形状模擬体系の比較ケース	3. 1. 1-3
図 3. 1. 1-4	格子計算体系	3. 1. 1-4
図 3. 1. 1-5	TRU 核種の燃焼チェーンの拡張	3. 1. 1-5
図 3. 1. 1-6	燃料バンドル内燃焼領域の検討体系	3. 1. 1-6
図 3. 1. 1-7	燃料バンドル内燃焼領域数の無限増倍率への影響	3. 1. 1-6
図 3. 1. 1-8	燃料バンドル内燃焼領域数の燃焼組成への影響	3. 1. 1-7
図 3. 1. 1-9	冷却材ボイド率分布	3. 1. 1-8
図 3. 1. 1-10	軸方向分割数及び分割位置の実効増倍率への影響	3. 1. 1-8
図 3. 1. 1-11	軸方向分割数及び分割位置の燃焼組成への影響	3. 1. 1-9
図 3. 1. 1-12	燃焼点数の実効増倍率への影響	3. 1. 1-11
図 3. 1. 1-13	燃焼点数の燃焼組成への影響	3. 1. 1-11
図 3. 1. 1-14	核熱練成計算のフロー	3. 1. 1-13
図 3. 1. 1-15	RBWR 炉心断面図	3. 1. 1-15
図 3. 1. 1-16	解析体系 (1/6 炉心)	3. 1. 1-15
図 3. 1. 1-17	RBWR の中性子スペクトル	3. 1. 1-17
図 3. 1. 1-18	解析体系の拡大図	3. 1. 1-21
図 3. 1. 1-19	RBWR ピンセル体系における疑似物質法の計算精度	3. 1. 1-21
図 3. 1. 1-20	TRU 領域の富化度低減効果	3. 1. 1-22
図 3. 1. 2-1	疑似物質法における断面積温度変化 (温度の平方根に比例)	3. 1. 2-5
図 3. 1. 2-2	疑似物質法における断面積温度変化 (温度に比例)	3. 1. 2-5
図 3. 1. 2-3	MVP コードで疑似物質法を用いるための入力データ	3. 1. 2-6
図 3. 1. 2-4	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した 実効増倍率の比較	3. 1. 2-9
図 3. 1. 2-5	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した 実効増倍率の比較	3. 1. 2-10
図 3. 1. 2-6	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-235 核分裂反応率の比較	3. 1. 2-11
図 3. 1. 2-7	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-235 核分裂反応率の比較	3. 1. 2-12
図 3. 1. 2-8	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-238 捕獲反応率の比較	3. 1. 2-13
図 3. 1. 2-9	Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-238 捕獲反応率の比較	3. 1. 2-14
図 3. 1. 2-10	次世代軽水炉ベンチマーク体系 (ボイド率 0%) に対して従来手法と	

疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを 用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-17
図 3. 1. 2-11 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と 疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを 用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-18
図 3. 1. 2-12 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と 疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを 用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-19
図 3. 1. 2-13 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と 疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを 用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）	3. 1. 2-20
図 3. 2-1 燃料被覆管の組織及びバースト試験による断面	3. 2. 1-6
図 3. 2-2 水素含有量の燃焼度依存性	3. 2. 1-6
図 3. 2. 1-1 供試材料の製造工程	3. 2. 1-7
図 3. 2. 1-2 作製した供試材料の外観写真	3. 2. 1-7
図 3. 2. 1-3 作製した供試材料の金属組織及び結晶粒径分布評価結果	3. 2. 1-8
図 3. 2. 1-4 供試材料の微細組織及び析出物サイズ分布の評価結果	3. 2. 1-9
図 3. 2. 1-5 水素化物形成材の外観	3. 2. 1-10
図 3. 2. 1-6 試験片形状	3. 2. 1-10
図 3. 2. 1-7 水素含有量と衝撃エネルギー	3. 2. 1-11
図 3. 2. 1-8 試験後の試験片外観	3. 2. 1-11
図 3. 2. 1-9 水素化物の結晶構造と選定	3. 2. 1-12
図 3. 2. 1-10 ジルカロイ 2 の EBSD 分析位置	3. 2. 1-13
図 3. 2. 1-11 EBSD 分析領域の電子顕微鏡観察	3. 2. 1-13
図 3. 2. 1-12 視野 1 の組織分析結果	3. 2. 1-14
図 3. 2. 1-13 視野 1 の試験片の板厚方向（TD 方向）での組織分布解析	3. 2. 1-14
図 3. 2. 1-14 視野 1 の極点図（PF）分析	3. 2. 1-15
図 3. 2. 1-15 視野 1 の母相（Zr- α ）と水素化物（ δ -ZrH _{1.5} ）の極点図（PF）分析	3. 2. 1-16
図 3. 2. 1-16 視野 2 の組織分析結果	3. 2. 1-17
図 3. 2. 1-17 視野 2 の試験片の板厚方向（TD 方向）での組織分布解析	3. 2. 1-18
図 3. 2. 1-18 視野 2 の極点図（PF）分析	3. 2. 1-18
図 3. 2. 1-19 視野 2 の母相（Zr- α ）と水素化物（ δ -ZrH _{1.5} ）の極点図（PF）分析	3. 2. 1-19
図 3. 2. 2-1 a 及び c 成分転位ループ数密度と照射損傷量の関係	3. 2. 2-1
図 3. 2. 2-2 中性子照射による析出物の変化	3. 2. 2-1
図 3. 2. 2-3 c 面上の空孔集合体の形態	3. 2. 2-2
図 3. 2. 2-4 空孔集合体形成エネルギーの空孔数依存性	3. 2. 2-3
図 3. 2. 2-5 空孔集合体と a 成分転位ループ	3. 2. 2-3
図 3. 2. 2-6 a 成分転位ループ存在下における空孔集合体形成エネルギーの MD 計算体系	3. 2. 2-3

図 3.2.2-7 a 成分転位ループ存在下における空孔集合体形成エネルギー	3.2.2-4
図 3.2.2-8 $N_V=19$ における a 成分転位ループ存在下空孔集合体形成エネルギー	3.2.2-4
図 3.2.2-9 各ステップにおけるポテンシャルエネルギー増加	3.2.2-5
図 3.2.2-10 MD-FEM 連成解析の計算体系	3.2.2-6
図 3.2.2-11 z 方向長さの時間変化	3.2.2-6
図 3.2.3-1 水素化物 γ -ZrH、 δ -ZrH _{1.5} 、 ϵ -ZrH ₂ の hcp 結晶構造と電子密度分布	3.2.3-1
図 3.2.3-2 水素化物 γ -ZrH の {011} 双晶面の模式図	3.2.3-2
図 3.2.3-3 格子空孔クラスタへの水素吸着エネルギー計算の概要	3.2.3-4
図 3.2.3-4 格子空孔クラスタ付近の母材内部への水素吸着エネルギー計算の概要	3.2.3-5
図 3.2.3-5 SIA、固溶 Fe 及びそれらが結合した格子欠陥の構造を c 軸方向から見た図	3.2.3-6
図 3.2.3-6 SIA が 3 個結合した格子欠陥の形状	3.2.3-7
図 3.2.3-7 SIA 及び空孔集合体の平均サイズ変化	3.2.3-8
図 3.2.4-1 ジルカロイ 2 中に形成される 2 種類の析出物	3.2.4-1
図 3.2.4-2 作成したイオン源コーン (a) と加速器ビーム条件 (b)	3.2.4-1
図 3.2.4-3 実験に用いたイオンの損傷分布 (a) と照射用高温チャンバー (b)	3.2.4-2
図 3.2.4-4 ジルカロイ 2 (400 °C、30 dpa) 照射後 TEM-BF 像 (a) 断面 (b) c 成分転位ループ	3.2.4-3
図 3.2.4-5 2 種類の析出物のライン分析 (a) STEM-BF 像 (b) マッピング重ね合わせ像 (c) 析出物 (1 から 5) のライン分析	3.2.4-3
図 3.2.4-6 モデル合金 (400 °C、30 dpa) 照射後 TEM-BF 像 (a) Zr-1.5Sn (b) Zr-1.5Sn-0.3Fe	3.2.4-4
図 3.2.4-7 ジルカロイ 2 (400 °C、50 dpa) 照射後 TEM 像	3.2.4-4
図 3.2.4-8 ジルカロイ 2 (400 °C、50 dpa) 照射後 STEM-EDS マッピング	3.2.4-5
図 3.2.4-9 水素イオン注入後 (左図 (a) アンダーフォーカス (b) オーバーフォーカス)、300 ppm 水素予注入後 (右図 (a) STEM-EDS マッピング像 (b) STEM-BF 像)	3.2.4-6
図 5.1.1 RBWR の仕様と限界出力試験の仕様	5.1-1
図 5.1.2 試験データと限界出力相関式の比較	5.2.1-1
図 5.2.1-1 RBWR 試作燃料集合体	5.2.1-2
図 5.2.1-2 FIV 試験結果	5.2.2-1
図 5.3.1-1 RBWR 再処理プロセス	5.3.1-1
図 5.3.1-2 MA 分離プロセスと処理条件	5.3.2-1
図 5.3.2-1 TRU 含有燃料組成	5.3.2-2

略語一覧

ABR	: Advanced Burner Reactor	TRU 燃焼ナトリウム 高速炉
ACE	: A Compact ENDF	MCNP のライブラリ形式
ADS	: Accelerator-Driven System	加速器駆動システム
BWR	: Boiling Water Reactor	沸騰水型軽水炉
CEA	: Commissariat à l' énergie atomique et aux énergies alternatives	フランス原子力・ 代替エネルギー庁
dpa	: displacements per atom	照射損傷量
DRE	: Dual Resolution Element	二重解像度要素
EDS	: Energy Dispersive x-ray Spectroscopy	エネルギー分散型 X線分析装置
ENDF	: Evaluated Nuclear Data File	評価済み核データファイル
fcc	: face centered cubic	面心立方
fct	: face centered tetragonal	面心正方
FEM	: Finite Element Method	有限要素法
FP	: Fission Product	核分裂生成物
hcp	: hexagonal close-packed	六方最密充填
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
LANL	: Los Alamos National Laboratory	米ロスアラモス国立研究所
LAMMPS	: Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator	米サンディア国立研究所で 開発された MD 計算コード
Ln	: Lanthanide	ランタニド
MA	: Minor Actinide	マイナーアクチニド
MCNP	: Monte Carlo N-Particle code	LANL で開発された モンテカルロ計算コード
MD	: Molecular Dynamics	分子動力学
MONK	: -	英国 Serco 社で開発された モンテカルロ計算コード
MOX	: Mixed Oxide Fuel	混合酸化物燃料
MVP	: Monte carlo code for Vector Processors	JAEA で開発された モンテカルロ計算コード
NJOY	: -	LANL で開発された 核データ処理コード
ODS	: Oxide Dispersion Strengthened	酸化物分散強化
pcm	: percent mille	反応度の単位、 10^{-5}
PWR	: Pressurized Water Reactor	加圧水型軽水炉
RBWR	: Resource-renewable BWR	資源再利用型 BWR

Serpent:	-	VTT で開発された モンテカルロ計算コード
STEM	: Scanning Transmission Electron Microscope	走査透過電子顕微鏡
TEM	: Transmission Electron Microscope	透過電子顕微鏡
TRU	: Transuranium element	超ウラン元素
VTT	: -	フィンランド 技術研究センター

用語の説明

- 増倍率 : 原子炉内で単位時間あたりに消滅する中性子数に対して生成する中性子数の比。
- 実効増倍率 : もれのある有限な体系においてもれを考慮したときの増倍率。
- 無限増倍率 : もれを考慮しない場合の増倍率。
- 反応度 : 原子炉が臨界状態からずれている程度。反応度 ρ は実効増倍率 k_{eff} を用いて、 $\rho = (k_{eff} - 1) / k_{eff}$ で求められる。
- ボイド : 原子炉の炉心において発生する冷却材の蒸気の泡。気泡。
- ボイド反応度 : 原子炉の炉心内において、減速材中のボイドの発生あるいはボイド量の変化を通じて生じる反応度。
- ボイド(反応度)係数 : 原子炉の炉心内において、減速材中のボイド量の変化にともなう反応度の変化率。
- 燃焼度 : 原子炉に装荷された燃料が炉内に滞在している期間中に核分裂反応で発生した熱エネルギーを単位燃料重量当たりで表示したもの。慣用的に熱エネルギーを原子炉の熱出力と炉内滞在期間の積であらわし、MWd/t または GWd/t の単位が使用される。
- 転位ループ : 照射損傷によって生成された空孔や格子間原子が移動して平板状に集まると、その縁に閉じた転位ができる。これを、転位線が円形であるので転位ループという。
- a 成分転位ループ : ジルカロイの hcp 格子の六方晶構造の柱面 $(11\bar{2}0)$ 面において、照射により形成された格子間原子型転位ループ。
- c 成分転位ループ : ジルカロイの hcp 格子の六方晶構造の底面 (0001) 面において、照射により形成された空孔型転位ループ。積層欠陥にともなう形成したフランクの不動転位である。
- dpa : 照射損傷量を現すパラメータであり、結晶中の全原子が平均 1 回の粒子衝突を経験する照射量が 1 dpa。BWR の 1 サイクル運転時に、炉内の代表的構造物が受ける照射損傷量は約 1.5 dpa と評価されている。

概略

【研究の背景】

高レベル廃棄物の有害度（放射線の量に人体影響を加味した量）が天然ウラン鉱石並みに下がるまで約 10 万年かかるとされており、長期的な安全性の担保が課題となっている。これに対し、高レベル廃棄物から TRU (Transuranium element：超ウラン元素) を除くことができれば、有害度が天然ウラン鉱石並みに減衰するまでの時間を約 300 年に短縮できるとされている。そのため、TRU を燃焼する原子炉 (TRU 燃焼炉) が国内外で検討されている。本研究は、商用炉として実績のある BWR をベースとした高効率 TRU 燃焼水冷却炉：RBWR (Resource-renewable Boiling Water Reactor：資源再利用型沸騰水型軽水炉) を TRU 燃焼炉の選択肢の 1 つとして提案し、その技術成立性の見通しを得ることを目的とするものである。

【解決すべき課題】

通常の BWR に TRU 燃料を装荷した場合は、核分裂性核種のみが先に減損してしまい、多重リサイクルできないという課題があった。このため、RBWR では、中性子減速材である冷却水の燃料に対する割合を減らし、更に BWR の特徴である沸騰を利用して水の割合を減らすことより、TRU 燃焼に有利な高速スペクトルを実現する。また、RBWR では、軸方向に中性子吸収材、TRU 燃料、劣化ウランを非均質に配置した特徴的な扁平炉心を構成することにより、冷却水の密度変化に対する中性子の炉心からの漏れの変化を大きくし、現行 BWR と同様に負のボイド反応度を実現している。一方で、出力分布の非均質性が現行 BWR より拡大するため、炉心特性を評価するための核計算の検証と、実機の中性子照射環境における局所的な照射量増加に対する材料健全性の確認が課題となる。

【本研究の目的】

以上の課題に対し、本研究では以下の研究を行う。

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

現在の最速クラスのスーパーコンピュータの能力を活用し、核定数計算での誤差を排除できる全炉心モンテカルロ計算の実現をめざす。冷却材の熱流動状態などのフィードバックを考慮した核熱結合計算を行うとともに、燃焼計算による TRU 組成変化、TRU 燃焼量を評価し、TRU の多重リサイクルと負のボイド反応度の両立が可能なことを高精度で確認する。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

RBWR における、炉内の滞在時間は BWR と同等な RBWR 環境での水素吸収及び水素脆化を評価するために、照射量と炉内滞在時間の影響を分離して評価する。第一原理計算、分子動力学、及び分子動力学-有限要素連成解析手法により、原子レベルでの水素吸収過程、水素化物形成メカニズムからマクロな割れ発生挙動を予測できる手法を開発するとともに、重イオン照射試験により開発手法を検証する。開発した手法を用いて、ジルカロイ水素脆化に対する照射量影響を明らかにし、RBWR 適用への指針を得る。

【本研究の実施内容】

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

①RBWR の炉心成立性評価

モンテカルロ法を用いた大規模炉心計算手法による試解析を行うため、現状の水冷却 TRU 燃焼炉の仕様に基づき、モンテカルロ計算コード MVP (Monte carlo code for Vector Processor) 及び MVP に燃焼計算機能を追加した計算コード MVP-BURN の入力となる解析モデルを構築した。試解析で用いる計算機資源と計算速度などを考慮して、幾何形状及び物質の模擬方法、燃料バンドル内の燃焼領域や、軸方向の分割数及び分割位置、燃焼点などを設定した。

モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法において、(1)②で開発した「疑似物質法」を実装したモンテカルロ計算コード MVP により評価した出力分布を用いて、冷却水の熱水力計算を行い、そこで得られたボイド率分布を入力として、MVP による出力分布の評価を繰り返す、核熱連成計算システムを構築した。

解析モデルを用いて核熱連成計算システムと(1)②で開発した大規模全炉心計算手法により RBWR の試解析を行い、ボイド反応度係数と TRU 燃焼特性を評価した。

試解析で得られた炉心特性を分析し、解析モデルと計算手法の妥当性を評価するとともに、解析によって得られた結果から、炉心成立性及び TRU 燃焼性能を評価し、更なる課題を抽出した。

②モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（再委託先：原子力機構）

モンテカルロ法による解析において、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮できるようにするため、現在の計算機リソース上で実現できる、断面積の温度依存性を考慮する既存の手法を調査及び評価した。プログラム開発（デバッグ）用のワークステーションを整備し、MVP コードをインストールし、並列計算ができることを確認した。

モンテカルロ法による解析において、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮するため、既存手法の調査及び評価の結果有望であると思われる「疑似物質法」をモンテカルロ計算コード MVP に実装し、その適用性を評価した。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

①RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価

機械的特性試験及び重イオン照射試験への供試材料としてジルカロイ 2 及び Zr-Sn に Fe を添加したモデル合金を作製した。作製は現行の燃料被覆管の製造条件に基づいた熱処理及び加工条件にて行った。供試材料の金相組織を観察し、結晶粒度及び析出物分布を評価した。

作製したジルカロイ 2 に対して LiOH 水溶液浸漬を実施し水素化物を形成させた。続いて、機械的特性を評価するため、シャルピー衝撃試験を実施した。衝撃試験後、変形組織を SEM により観察してき裂の進展経路を評価し、水素化物による割れ発生過程に関する解析結果を検証した。

また、照射下における微細組織の発達過程並びに水素化物形成過程に関する解析の結果に

ついて、重イオン照射試験後の微細組織評価により検証し、検証結果をもとに Zr 合金の RBWR への適用性を評価した。

②照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（再委託先：東京大学）

格子間原子型集合体である a 成分転位ループの形成・蓄積過程に着目し、ひずみ場と空孔の相互作用等の、c 成分転位ループに及ぼすミクロ的要因について分子動力学法を用いて検討した。また、c 成分転位ループ存在下における水素化物形成エネルギー障壁の減少等、水素吸収量増加に及ぼすミクロ的要因を検討した。

分子動力学法を用いて、水素と照射下における微細組織の相互作用を定量化し、照射下で水素吸収量が急増する要因を解明した。また、分子動力学法-有限要素法連成解析手法を用いて、水素化物形成時の割れ発生に関して検討し、特に、水素化物の空間分布に着目し、割れ発生モデル化を行った。

③水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明（再委託先：原子力機構）

水素化物が形成された場合に材料の破壊靱性がどの程度下がるかを評価するため、水素化物の基礎物性を第一原理計算により解析した。水素化物の内部で割れやすい面を特定するとともに、水素化物と母材の境界の原子構造を明らかにし、この境界がどの程度割れやすいかを第一原理計算により解析し、水素化物存在下での材料割れの主要モードを推定した。

水素化物形成に及ぼす c 成分転位ループの影響及び水素化物と c 成分転位ループの相互作用に及ぼす合金成分の影響を第一原理計算により推定した。空孔集合体から c 成分転位ループへの成長過程と、その各段階における水素の吸着エネルギーを計算し、水素化物の核形成における c 成分転位の役割を明らかにするとともに、合金成分がその過程に及ぼす影響を明らかにした。

④重イオン照射試験及び材料評価（再委託先：九州大学）

重イオン照射試験の準備のための予備検討として、Zr（あるいは Ni）イオン及び H イオンの発生に必要なスパッタイオン源コーンの設計・作製及びイオン源の整備を行った。また、イオン照射試料の設置に必要なジグ等の作製を行った。

作製したスパッタイオン源コーン及び試料固定ジグ等を用いて、Zr 合金に対して Zr イオン照射試験、Ni イオン照射試験を実施し、球面収差機能を有する透過型電子顕微鏡にて観察及び分析を行った。また、照射済み試験片に対して水素を注入して、照射による水素化物の形成と c 成分転位ループとの相関についての知見を得た。また、ジルカロイ 2 の変形組織について、透過型電子顕微鏡による観察・分析を行った。

【本研究の成果】

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

①RBWR の炉心成立性評価

TRU の多重リサイクルと負のボイド反応度を評価するための燃料集合体解析モデルとして、

燃焼チェーンとして Es-253 まで考慮すること、及び燃料バンドル内の燃焼領域は一領域、軸方向の分割数 27、燃焼点 9 点と比較的少数のタリー領域及び計算点で十分なことを確認した。これらの結果と、(1)②での疑似物質法の適用性に関する調査結果により、全炉心モンテカルロ計算の見通しを得た。

モンテカルロ計算の初期核分裂源分布は、過去のモンテカルロ計算で保存した核分裂源分布の中から出力分布が最も近いものを用いた。核熱連成計算では、軸方向非均一メッシュのモンテカルロ計算と等間隔メッシュの熱水力計算を連結し、出力分布とボイド率分布を相互に授受するようにした。また、モンテカルロ計算の解析モデルとして、燃料集合体格子解析モデルをベースに、燃料集合体 128 体、制御棒 45 本配置し、運転中の制御棒の挿入引き抜きによる余剰反応度制御に対応した 1/6 炉心を構築した。

RBWR の試解析の結果、サイクル初期の実効増倍率 1.0295、ボイド反応度係数 8 pcm/%ボイド、サイクル末期の実効増倍率 1.0248、ボイド反応度係数 19 pcm/%ボイド、TRU 燃焼量は 0.46 t/GWe/年となった。また、TRU 核種毎の燃焼量を評価した結果、核分裂性 TRU 核種である Pu239、Pu241 とともに、非核分裂性 TRU 核種も燃焼していることを確認した。

解析モデルについては、入力条件に問題ないことを精査し、確認した。疑似物質法については、RBWR のピンセル体系において、試解析で設定した温度点で疑似物質法を用いて求めた無限増倍率と実際の燃料温度を設定して求めた無限増倍率を比較して妥当であることを確認した。なお、モンテカルロ計算と熱水力計算は既存のコードであり妥当性を評価済みである。

試解析の結果ではボイド反応度係数は正となったが、実効増倍率がサイクル初期で 1.0295、サイクル末期で 1.0248 あり、上部 TRU 領域と下部 TRU 領域の TRU 富化度を低減することで、TRU 中の核分裂性物質が減少し炉心の実効増倍率を減少させ、ボイド反応度係数負に寄与する劣化 U の割合が増加して炉心のボイド反応度係数がより負になることが分かり、TRU 富化度を低減してボイド反応度係数負を実現できる見通しを得た。

②モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（再委託先：原子力機構）

調査により、MCNP (Monte Carlo N-Particle) コードで採用されつつあるフィッティング法や Serpent コードで採用されている確率論的ドップラー拡張法と棄却サンプリング法を組み合わせた手法は、熱中性子散乱データや非分離共鳴領域断面積についてはまだ未対応であり、実機炉心への適用は難しいことが判明した。一方、疑似物質法は、熱中性子散乱データや非分離共鳴領域断面積を含む、任意温度の断面積データセットを用意することができ、実機炉心への適用可能性があることを確認した。

疑似物質法の MVP コードへの実装では、温度内挿に関して 2 種類の手法を実装した。1 つは核種数密度を温度の平方根に対して線形に内挿する方法で、もう 1 つは核種数密度を温度に対して線形に内挿する方法である。軽水炉ピンセル体系において 2 種類の疑似物質法の適用性を評価した結果、参照解と比較して、後者の手法の方が計算精度がよいことが分かった。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

①RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価

作製したジルカロイ 2 は合金成分が規格の範囲内にあることを確認した。また、Fe が水素

吸収特性に及ぼす影響を比較評価するための Zr-1.5Sn 二元モデル合金及び、Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金の作製に関しては、いずれも成分が仕様の範囲内であることを確認した。特に、Zr-1.5Sn 二元モデル合金については、溶解原料を精選したことにより、不純物として通常 0.05%ほど含有される Fe を 0.01%に低減できた。JIS H 4751 にてジルカロイ 2 の Fe、Cr 及び Ni 濃度の総和が 0.18~0.38 wt%の範囲内に規定されているが、Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金については、Fe 濃度がその範囲内にあることを確認した。

また、金相組織については、現行材と同様に再結晶組織であり、今後の評価に問題ないことを確認した。

解析評価の結果、照射によりジルカロイ 2 に導入される空孔クラスターや c 成分転位ループは水素を吸着することで隣接する原子層への更なる水素吸着を促進し、水素化物析出の核となりうること、並びに鉄などの合金元素は材料中を高速に拡散し格子間原子や空孔と強く結びつき、c 成分転位ループの生成を助長する働きがあることが明らかとなった。加えて、照射試験により実験的検証を行った結果、鉄を含有するジルカロイ 2 及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金では、23 dpa 程度照射により c 成分転位ループが形成されることが確認された。すなわち、上記成果を勘案すると、燃料被覆管のバルク金属においては、RBWR の高照射下において、c 成分転位ループが形成するとともに、形成した c 成分転位ループが水素化物析出の核となりうるということが明らかとなった。本観点からは、RBWR の燃料被覆管への既存の Zr 合金の適用に注意が必要である。一方、今回の Zr 合金を対象とした照射試験の結果を鑑みると、c 成分転位ループは約 23 dpa の照射量より生成し、以降照射量を増加させたとしても c 成分転位ループ形成領域の微視組織に差異は認められず、組織の照射量依存性はほとんどないことが分かった。すなわち、23 dpa 以降の照射量でも c 成分転位ループは安定して存在するものと考えられ、これが水素吸収に寄与すると考えると以降の水素吸収量は照射量ではなく、炉内滞在時間に影響されるものと推察される。

以上、実炉環境中においては、燃料被覆管の表面の酸化皮膜形成過程に生じる水素のバルク金属への侵入と、照射欠陥形成が同時かつ相互に影響しながら進行することから、照射並びに水素影響を定量的に評価するためには、候補材料に対して照射と水素注入を同時に実現する評価・試験方法など、新たな手法の開発が重要であるとの知見を得た。

②照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（再委託先：東京大学）

分子動力学法により、a 成分転位ループ形成にともなうひずみ場の蓄積により、c 成分転位ループ形成エネルギーが減少することを解明した。また空孔と水素の相互作用について定量化し、c 成分転位ループにより水素吸収量が増加する過程を解明した。

水素化物形成に及ぼす c 成分転位ループの影響解明のため米国オークリッジ国立研究所にて、Zr 照射劣化のモデル化を行ってきた S. Golubov 氏らのグループを訪問し、実施に必要な計算及び実験内容について議論し具体的な方針を得た。

分子動力学法の結果、空孔集合体の形成エネルギーは、サイズによって変化することが明らかとなった。また、空孔クラスターが c 成分転位ループに変換する際に要する活性化エネルギー、及び a 成分転位ループ存在下による活性化エネルギーの変化を定量化した。この結果

と第一原理計算結果を組み合わせることで、水素の優先的蓄積箇所である空孔集合体の安定形態を明らかにした。また、分子動力学法-有限要素法連成解析手法を用いて、Zr 金属のセルを作成し、弾性応答を解析した。これにより、外部応力が印加された場合の挙動を明らかにした。

③水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による説明（再委託先：原子力機構）

第一原理計算により、ZrH、ZrH_{1.5}、ZrH₂ のいずれも (111) 面の劈開エネルギーがバルクの Zr よりも低くなることを明らかにした。また、(111) 面で接している Zr と ZrH または ZrH₂ を引き離す前後のエネルギーから界面の劈開エネルギーを評価し、更に弾性ひずみの解放にともなう効果を考慮した結果、界面の劈開エネルギーは水素化物内部でのエネルギーよりも大幅に低下し、水素脆化にともなうき裂発生の起点は母材・水素化物境界にあることを明らかにした。

水素化物の基礎物性に関する検討のため、米国オークリッジ国立研究所にて水素化物形成に関する素過程の解明に関する研究を行ってきた S. Golubov 氏らのグループを訪問し、モデル化に不可欠な欠陥拡散過程等について議論し、具体的な方針を得た。

空孔クラスターや c 成分転位ループは水素を吸着することで隣接する原子層への更なる水素吸着を促進し、水素化物析出の核となりうることを見出した。また鉄などの合金元素は材料中を高速に拡散し格子間原子や空孔と強く結びつき、平面的な欠陥クラスターの成長を促進することで c 成分転位ループの生成を助長する働きがあることが分かった。

④重イオン照射試験及び材料評価（再委託先：九州大学）

整備の結果、Ni コーンについては、所定のビーム量が確認され、50 dpa 照射量までの各種パラメータ等が取得できた。予備的に実施した試料の電解研磨により、2 種類の析出物が TEM (Transmission Electron Microscope : 透過電子顕微鏡) 及び STEM (Scanning TEM : 走査透過電子顕微鏡) -EDS (Energy Dispersive x-ray Spectroscopy : エネルギー分散型 X 線分析装置) によっても観察・分析された。続いて、ジルカロイ 2、Zr-1.5Sn 及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金を対象に、Ni³⁺イオンを用いて、400 °C で、照射量 15~50 dpa で照射試験を行った。その結果、ジルカロイ 2 及び Fe を添加した Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金に c 成分転位ループの形成が観察された。一方、Zr-1.5Sn 合金では、同一条件では確認されず、c 成分転位ループの形成には Fe 元素が大きな役割を果たしていることが分かった。透過型電子顕微鏡観察から、ジルカロイ 2 で約 23 dpa の照射量で c 成分転位ループが発生すること及びループ界面での Fe の濃縮を確認した。また、30 及び 50 dpa 照射後の透過型電子顕微鏡観察結果を比較すると、照射量の増加にともない c 成分転位ループが形成される領域が入射表面からの深さが 0.6 から 1.9 μm までの領域に拡大していた。しかし、両照射量における c 成分転位ループ形成領域の微視組織に差異は認められず、組織の照射量依存性はほとんどないことが分かった。すなわち、中性子照射により空孔が一定の濃度に達すると、一斉に空孔クラスターが c 成分転位ループに変換し、これが高照射領域では安定な組織であることが示唆される。よって、今回の Zr 合金基材を対象とした照射試験の結果を鑑みると、c 成分転位ループは約 23 dpa の照射量より生成し、以降の照射量でも安定して存在するものと考えられる。

更に、試料への水素注入は、Ni イオン照射を行った試験片に対する水素イオン (5~10 kV、 $10^{22}/\text{m}^2$) 注入、並びに水素雰囲気からの水素予注入 (60、300 ppm) の 2 つの方法により実施したが、水素化物形成並びに試料薄膜化にともなう高密度の転位組織形成のために c 成分転位ループの形成は確認されなかった。すなわち、水素化物形成にともなう高密度の転位組織が c 成分転位ループの形成を阻害していると推測された。Fe を含有する Zr 合金は、照射影響により c 成分転位ループを形成するが、実機炉内における現象を把握するためには、c 成分転位ループの形成過程に及ぼす水素影響も考慮する必要がある。この場合、照射と水素注入を同時に実現する評価・試験方法など、新たな手法の開発が重要であるとの知見を得た。

1. はじめに

1.1 研究の狙い

高レベル廃棄物の有害度（放射線の量に人体影響を加味した量）が天然ウラン鉱石並みに下がるまで約 10 万年かかるとされており、長期的な安全性の担保が課題となっている。これに対し、高レベル廃棄物から TRU を除くことができれば、有害度が天然ウラン鉱石並みに減衰するまでの時間を約 300 年に短縮できるとされている。そのため、TRU を燃焼する原子炉（TRU 燃焼炉）が国内外で検討されている。当面、現行軽水炉（BWR/PWR）がベースロードとして使われることを想定すると、TRU 燃焼炉が現行軽水炉から排出される TRU 及び自分自身から排出される TRU を全て燃焼できれば、高レベル廃棄物をほぼ FP（Fission Product：核分裂生成物）のみとし、有害度の減衰にかかる時間を大幅に低減できる（図 1.1-1）。これまで、TRU の核変換には Na 炉や、ADS（Accelerator-Driven System、加速器駆動システム）などが開発の中心となっている。これに対し、本研究は、商用炉として実績のある BWR をベースとした高効率 TRU 燃焼水冷却炉：RBWR を選択肢の 1 つとして提案し、その技術成立性の見通しを得ることを目的とするものである。

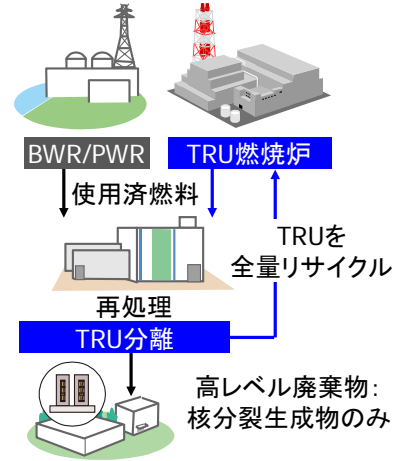


図 1.1-1 めがず TRU 燃焼サイクル

図 1.1-1 に示す TRU 燃焼サイクルが成立するためには、TRU 燃焼炉が自分自身から排出される TRU を含めて、繰り返しリサイクル(多重リサイクル)できる必要がある。しかし、通常の BWR に TRU 燃料を装荷した場合は、核分裂性核種のみが先に減損してしまい、多重リサイクルできないという課題があった。このため、RBWR では、中性子減速材である冷却水の燃料に対する割合を減らし、更に BWR の特徴である沸騰を利用して水の割合を減らすことで、多重リサイクルを可能とする高速スペクトルを実現する。

図 1.1-2 及び表 1.1-1 に RBWR の特徴と技術課題をまとめる。高速スペクトルによる多重リサイクルと、安全上重要な負のボイド反応度を両立するため、RBWR は軸方向に非均質な炉心構成としており、出力分布の非均質性も現行 BWR より拡大する。このため、炉心特性を評価するための核計算、熱水力計算を検証する必要がある。また、RBWR では燃焼度が 65 GWd/t(燃料被覆管の照射損傷量：23.4 dpa)、局所的には 100 GWd/t 以上(燃料被覆管の照射損傷量：36.0 dpa 以上)まで増加する見込みであり、本照射量環境下における材料健全性ととも、冷却水の割合を減らすために、冷却水流路を減らした構造(稠密配置構造)の成立性を確認する必要がある。更に、TRU の非均質配置を実現するためには TRU の富化度を高める必要があり、燃料の製造性や TRU 分離性能の確認が必要である。それぞれの課題に対し、表 1.1-1 に示すように、主に自社研究による解析及び要素試験で、基礎的な成立性確認を行っている。

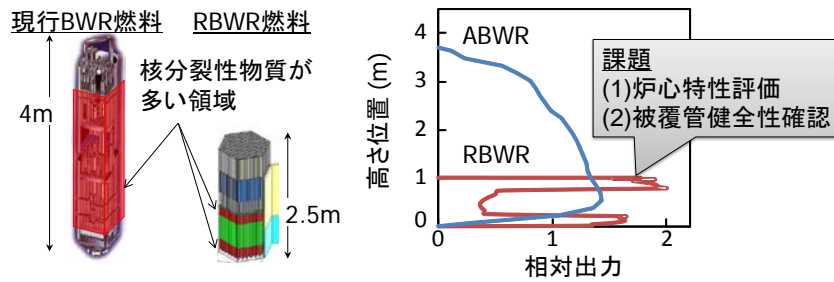


図 1.1-2 RBWR の特徴と課題

表 1.1-1 RBWR の課題と対応 (黄色 : 本研究対象)

	RBWR 特徴	課題	対応方針	解決アプローチ
炉心	出力分布の非均質性大	核計算検証	既存手法改良	核定数計算手法の高度化 ⁽¹⁾
		熱水力検証	大規模計算	核定数計算手法の排除 (全炉心輸送計算)
		熱水力検証	既存試験解析	冷却性評価相関式の改良 ⁽²⁾
機器・構造	燃料・機器の稠密配置、照射量増加	構造成立性確認	解析、要素試験	試作、流動試験による設計妥当性確認 ⁽³⁾
		構造材料健全性確認	耐照射材開発	ODS 鋼の耐食性向上による軽水炉への適用 ⁽⁴⁾
		燃料被覆管健全性確認	大規模計算 重イオン照射試験	マイクロ-マクロ解析連成による水素吸収-脆化メカニズム解明
燃料サイクル	燃料の TRU 富化度高	TRU 分離実証	ラボ試験	抽出材の分子構造最適化 ⁽⁵⁾
		ペレット製造性・健全性	解析、試作、物性測定	既存の高 MA 含有燃料の研究成果を活用 ⁽⁶⁾

1.2 研究構想

本研究では、表 1.1-1 で残された課題である、核計算の検証と燃料被覆管の健全性確認に対して、評価精度を高めて RBWR の技術成立性を評価するとともに、更なる課題の有無を確認する。

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

現在の最速クラスのスーパーコンピュータの能力をフル活用し、核定数計算での誤差を排除できる全炉心モンテカルロ計算の実現をめざす。これまで、物質組成一定の条件で全炉心をモンテカルロ計算により解析した例はあるが、本研究では、冷却材の熱流動状態などのフィードバックを考慮した核熱結合計算を行うとともに、燃焼計算による TRU 組成変化の評価までめざす。これにより、TRU の多重リサイクルと負のボイド反応度の両立が可能なことを高精度で確認する。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

RBWR においては、中性子照射量は BWR よりも局所的に増えるものの、炉内の滞在時間は BWR と同等となる。この RBWR 環境における燃料被覆管の水素吸収及び水素脆化特性を評価するために、照射量と炉内滞在時間の影響を分離して評価する必要がある。本研究では、第一原理計算、分子動力学、及び分子動力学-有限要素連成解析手法により、原子レベルでの水素吸収過程、水素化物形成メカニズムからマクロな割れ発生挙動を予測できる手法を開発する。また、開発手法の検証のため重イオン照射試験を行う。開発した手法を用いて、ジルカロイ水素脆化に対する照射量影響を明らかにし、RBWR 適用への指針を得る。

参考文献

- (1) A. Hall, et al., "Advanced Methods Development for Equilibrium Cycle Calculations of the RBWR," Proc. ICAPP2014, Charlotte, North Carolina, April 6-9 (2014).

- (2) 日本原子力学会 2015 秋の大会予稿集 A04 「長寿命超ウラン元素を燃焼可能な軽水炉 RBWR の開発； (5) 全体概要及び炉心特性」
- (3) 日本原子力学会 2016 春の年会予稿集 3C02 「(11) 燃料集合体機器の流動健全性の検討」
- (4) 日本原子力学会 2015 秋の大会予稿集 A07 「(7) 制御棒用高耐照射下耐食材料の開発」
- (5) 日本原子力学会 2016 春の年会予稿集 2F21 「(13) RBWR 使用済燃料からの MA 回収向け抽出剤の性能評価」
- (6) 文科省公募研究「微細構造を制御した高 MA 含有不定比酸化物燃料の物性予測手法に関する研究」(平成 26-27 年度)

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画を表 2.1-1 に示す。

全炉心輸送計算による炉心特性評価では、モンテカルロ法を用いた大規模全炉心解析手法を国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下「原子力機構」）が開発し、その手法を用いた解析に用いる解析モデルを株式会社日立製作所（以下「日立製作所」）が構築する。それらの解析手法と解析モデルを用いて日立製作所と原子力機構が RBWR の炉心成立性を評価する。

ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価では、日立製作所が、Zr 合金を作製するとともに、それらの Zr 合金を対象に、重イオン照射試験及び機械的特性試験を実施し、後述する解析評価と重イオン照射試験の結果を踏まえて RBWR への適用性を評価する。国立大学法人東京大学（以下「東京大学」）は分子動力学法及び有限要素法を用いて、照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化を行う。原子力機構は第一原理計算を用いて、水素化物形成過程及び基礎物性の解明を行う。国立大学法人九州大学（以下「九州大学」）は日立製作所が作成した Zr 合金を用いて重イオン照射試験と微細組織評価を行う。

表 2.1-1 2 年間の全体計画

項目	年度	
	平成 27 年度	平成 28 年度
(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価		
①RBWR の炉心成立性評価（日立製作所、原子力機構）	解析モデル構築	解析モデル評価、炉心成立性評価
②モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（原子力機構）	既存技術評価	計算手法構築、解析
(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価		
①RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価（日立製作所）	Zr 合金作製	機械試験、適用性評価
②照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（東京大学）	解析モデル構築	解析、解析モデル検証
③水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明（原子力機構）	解析モデル構築	解析、解析モデル検証
④重イオン照射試験及び材料評価（九州大学）	照射試験準備	照射試験、微細組織評価
(3) 研究推進	まとめ・評価	まとめ・評価

2.2 平成 27 年度の成果の目標及び業務の実施方法

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

① RBWR の炉心成立性評価（日立製作所）

モンテカルロ法を用いた大規模炉心計算手法による試解析を行うため、現状の水冷却 TRU 燃焼炉の仕様に基づき、モンテカルロ計算コード MVP 及び MVP に燃焼計算機能を追加した計算コード MVP-BURN の入力となる解析モデルを構築する。試解析で用いる計算機資源と計算速度などを考慮して、幾何形状及び物質の模擬方法、燃料バンドル内の燃焼領域や、軸方向の分割数及び分割位置、燃焼点などを設定する。

② モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（原子力機構）

モンテカルロ法による解析において、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮できるようにするため、現在の計算機リソース上で実現できる、断面積の温度依存性を考慮する既存の手法を調査及び評価する。プログラム開発（デバッグ）用のワークステーションを整備し、MVP コードをインストールし、並列計算ができることを確認する。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

① RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価（日立製作所）

機械的特性試験及び重イオン照射試験への供試材料としてジルカロイ 2 及び Zr-Sn に Fe を添加したモデル合金を作製する。作製は現行の燃料被覆管の製造条件に基づいた熱処理及び加工条件にて行う。供試材料の金相組織を観察し、結晶粒度及び析出物分布を評価する。

② 照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（東京大学）

既往研究により、ある一定以上の中性子照射量で空孔型集合体である c 成分転位ループの数密度が増加することが明らかとなっている。分子動力学法を用いて、特に格子間原子型集合体である a 成分転位ループの形成・蓄積過程に着目し、ひずみ場と空孔の相互作用等、c 成分転位ループに及ぼすミクロ的要因を検討する。また、分子動力学法を用いて、c 成分転位ループ存在下における水素化物形成エネルギー障壁の減少等、水素吸収量増加に及ぼすミクロ的要因を検討する。

③ 水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明（原子力機構）

水素化物が形成された場合に材料の破壊靱性がどの程度下がるかを評価するため、水素化物の基礎物性を第一原理計算により解析する。水素化物の内部で割れやすい面を特定するとともに、水素化物と母材の境界の原子構造を明らかにし、この境界がどの程度割れやすいかを第一原理計算により解析し、水素化物存在下での材料割れの主要モードを推定する。

④重イオン照射試験及び材料評価（九州大学）

中性子照射を模擬した金属イオン照射試験の準備のための予備検討として、Zr（あるいはNi）イオン及びHイオンの発生に必要なスパッタイオン源コーンの設計・作製及びイオン源の整備を行う。また、イオン照射試料の設置に必要なジグ等の作製を行う。

(3) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進める。

2.3 平成 28 年度の成果の目標及び業務の実施方法

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

①RBWR の炉心成立性評価（日立製作所、原子力機構）

モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法において、(1)②で開発する「疑似物質法」を実装したモンテカルロ計算コード MVP により評価した出力分布を用いて、冷却水の熱水力計算を行い、そこで得られたボイド率分布を入力として、MVP による出力分布の評価を繰り返す、核熱連成計算システムを構築する。

平成 27 年度に構築した解析モデルを用いて核熱連成計算システムと(1)②で開発した大規模全炉心計算手法により RBWR の試解析を行い、ボイド反応度係数と TRU 燃焼特性を評価する。

試解析で得られた炉心特性を分析し、解析モデルと計算手法の妥当性を評価するとともに、解析によって得られた結果から、炉心成立性及び TRU 燃焼性能を評価し、更なる課題を抽出する。

②モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（原子力機構）

モンテカルロ法による解析において、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮するため、平成 27 年度に実施した既存手法の調査及び評価の結果有望であると思われる「疑似物質法」をモンテカルロ計算コード MVP に実装し、その適用性を評価する。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

①RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価（日立製作所）

平成 27 年度に作製したジルカロイ 2 に対して LiOH 水溶液浸漬を実施し水素化物を形成させた。続いて、機械的特性試験を実施した後、変形組織を SEM により観察してき裂の進展経路を評価し、水素化物による割れ発生過程に関する解析結果を検証する。

また、照射下における微細組織の発達過程並びに水素化物の形成過程に関する解析の結果について、重イオン照射試験後の微細組織の評価により検証し、検証結果をもとに Zr 合金の RBWR への適用性を評価する。

②照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（東京大学）

分子動力学法を用いて、水素と照射下における微細組織の相互作用を定量化し、照射下

で水素吸収量が急増する要因を解明する。また、分子動力学法-有限要素法連成解析手法を用いて、水素化物形成時の割れ発生に関して検討する。特に、水素化物の空間分布に着目し、割れ発生モデル化を行う。

③水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明（原子力機構）

水素化物形成に及ぼす c 成分転位ループの影響及び水素化物と c 成分転位ループの相互作用に及ぼす合金成分の影響を第一原理計算により推定する。空孔集合体から c 成分転位ループへの成長過程と、その各段階における水素の吸着エネルギーを計算し、水素化物の核形成における c 成分転位の役割を明らかにするとともに、合金成分がその過程に及ぼす影響を明らかにする。

④重イオン照射試験及び材料評価（九州大学）

平成 27 年度に作製したスパッタイオン源コーン及び試料固定ジグ等を用いて、Zr 合金に対して Zr（または Ni）イオン照射試験を実施し、球面収差機能を有する透過型電子顕微鏡にて観察及び分析を行う。また、照射済み試験片に対して水素を注入して、照射による水素化物の形成と c 成分転位ループとの相関についての知見を得る。ジルカロイ 2 の変形組織について、必要に応じて、TEM による観察・分析を行う。

(3) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進める。

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 全炉心輸送計算による炉心特性評価

3.1.1 RBWR の炉心成立性評価

モンテカルロ法を用いた大規模炉心計算手法による試解析を行うため、現状の RBWR 仕様に基づき、モンテカルロ計算コード MVP 及び MVP-BURN の入力となる解析モデルを構築した。試解析で用いる計算機資源と計算速度などを考慮して、幾何形状及び物質の模擬方法、燃料バンドル内の燃焼領域や、軸方向の分割数及び分割位置、燃焼点などを設定した。以下、RBWR の仕様と、それぞれの検討結果について述べる。

(1) RBWR 仕様 (H27)

図 3.1.1-1 に RBWR 炉心構成を示す。炉心は断面六角形の燃料集合体 720 体と、燃料集合体間に挿入される Y 字型制御棒 223 体で構成される⁽¹⁾。図 3.1.1-2 に燃料集合体構成を示す。上からプレナム、炉心、下部中性子吸収材の順に配置される。炉心は TRU 領域の間に劣化ウランのブランケット領域を設置した構成である。表 3.1.1-1(a) に炉心・燃料仕様を示す。

図 3.1.1-2 の上部、内部ブランケットの燃料棒は U235 の割合が 0.2 wt% の劣化ウラン燃料を、TRU 領域の燃料棒は劣化ウランに TRU を富化した混合酸化物燃料を充填している。TRU の組成を表 3.1.1-1(b) に示す。本研究で取り扱う TRU は、多重リサイクル時の組成であり、既存の軽水炉取出 TRU 組成と大きく異なることが考えられるために、計算高速化のために予め TRU 組成を予測し、マルチリサイクル計算で組成を評価した。

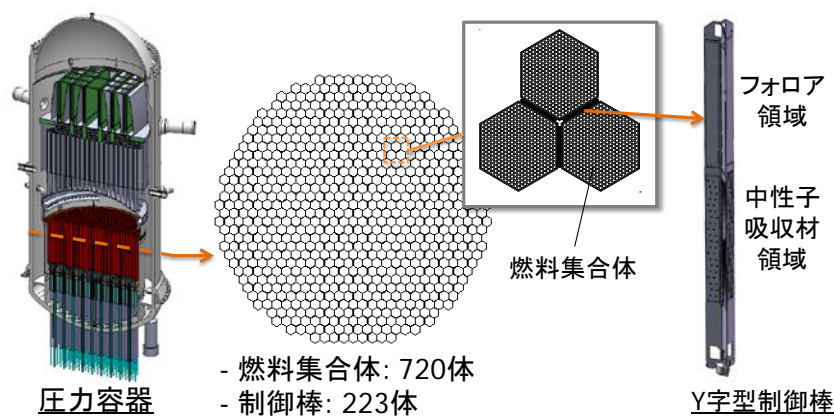


図 3.1.1-1 RBWR 炉心構成⁽¹⁾

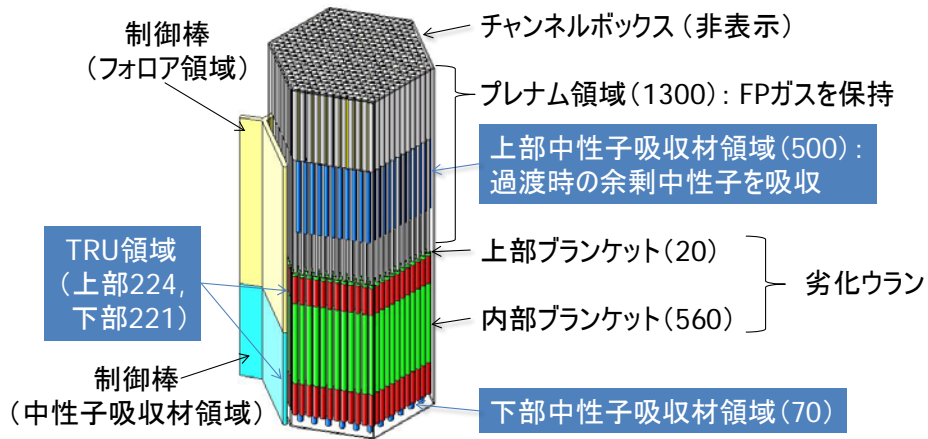


図 3. 1. 1-2 RBWR 燃料集合体構成 (括弧内は高さ (mm)) ⁽¹⁾

表 3. 1. 1-1 プラント及び炉心燃料仕様

(a) 炉心・燃料仕様⁽¹⁾

項目	値
熱出力 (MW)	3926
炉心圧力 (MPa)	7.1
燃料集合体体数 (体)	720
制御棒本数 (本)	223
燃料棒外径 (mm)	7.2
燃料棒間隙 (mm)	2.2
ペレット外径 (mm)	6.0
燃料棒本数 (本)	397
取り換え集合体数 (体)	240
バッチ数	4

(b) 装荷燃料 TRU 組成

核種	重量割合 (wt%)
Np237	1.7
Pu238	7.2
Pu239	25.5
Pu240	37.5
Pu241	5.5
Pu242	10.9
Am241	5.3
Am242M	0.2
Am243	2.9
Cm244	2.2
Cm245	0.7
Cm246	0.4

(2) 燃料集合体解析モデルの構築 (H27)

①幾何形状模擬方法

RBWR では燃料集合体間の間隙が、制御棒が挿入される部分とそれ以外の部分で異なるため、単位格子は非対称な六角格子となる。一方で、正六角格子でモデル化できれば MVP の繰り返し形状機能を用いて、計算入力の簡略化や中性子の追跡計算高速化が可能となる。このため、燃料形状を厳密に模擬した非対称六角格子と、物量を保存して燃料集合体周囲を取り囲むように制御棒をモデル化した等価正六角格子での核特性を、2次元格子計算により比較した。図 3.1.1-3 に検討体系を示す。また、図 3.1.1-4 に MVP の格子計算体系を示す。非対称六角格子は燃料集合体 1.5 体分の正三角形格子を単位格子として表現した。また、以下の検討で用いる 3次元格子体系では、図 3.1.1-2 に示した燃料集合体の軸方向構成を模擬し、上部プレナムの上端及び下部反射体の下端は真空境界条件とした。

非対称六角格子と等価正六角格子の比較結果を表 3.1.1-2 に示す、等価正六角格子では制御棒価値（制御棒なしと制御棒ありの無限増倍率の差）を過大評価するため、非対称六角格子によるモデル化が必要なが分かった。

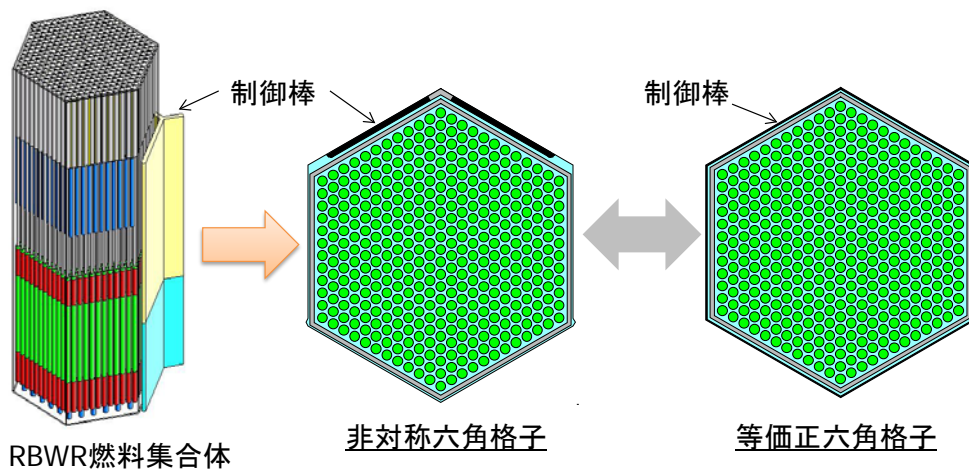


図 3.1.1-3 幾何形状模擬体系の比較ケース

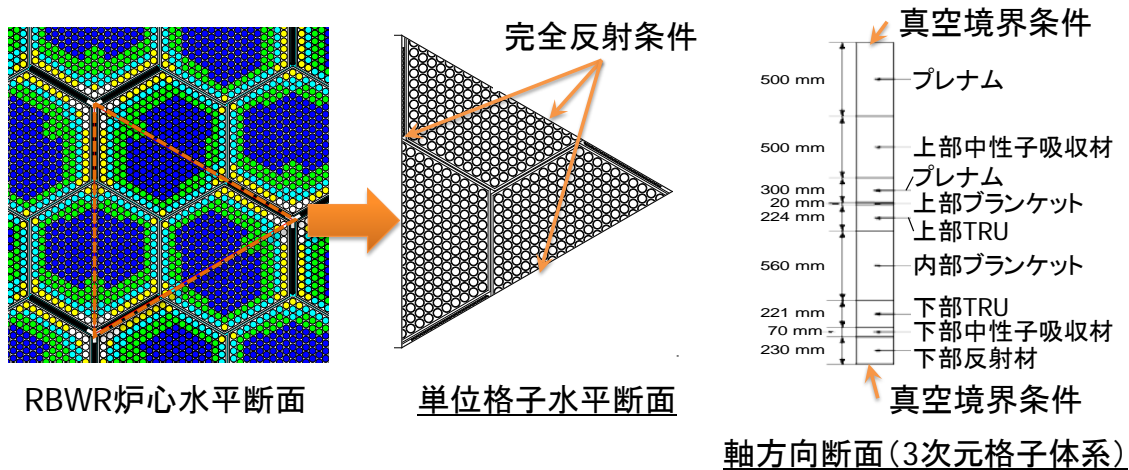


図 3. 1. 1-4 格子計算体系

表 3. 1. 1-2 幾何形状模擬方法による制御棒価値の違い

	非対称六角格子 (厳密模擬)	等価正六角格子
制御棒価値 (% $\Delta k/k$)	6. 4	11. 1

②物質模擬方法

一般的に TRU を多重リサイクルすると TRU の高次化が進むため、多重リサイクルの成立性を確認するためには高次の重核種まで考慮する必要がある。一方で、MVP では中性子と物質の反応を模擬する際、その物質に含まれる核種の中から反応する核種をサンプリングするため、含まれる核種数が増加するとサンプリングにかかる時間が長くなり、計算時間が長くなる。考慮すべき重核種の範囲を必要最小限に設定するため、MVP 標準の燃焼チェーンを拡張して 3 次元燃料集合体格子体系で燃焼計算を行い、高次核種の生成量を評価した。図 3. 1. 1-5 に拡張した燃焼チェーンと評価結果を示す。燃焼初期の組成は表 3. 1. 1-1 (b) の組成とした。

図に示すように、拡張した範囲では Cf-252 が増加する傾向がみられるが、それ以外は減少するか、無視できる量であることを確認した。このため、本研究では Es-253 ままで考慮する拡張チェーンで評価する。

なお、図 3. 1. 1-5 に示した結果は、燃焼チェーン評価のため、集合体格子体系で燃料装荷から取出燃焼度相当までの燃焼計算から得られたものであり、RBWR の核種毎の燃焼量は頁 3. 1. 1-12 の (4) で報告する。また、本研究では、TRU をロスなく全核種リサイクルする条件で炉心解析を精度よく評価できるように燃焼チェーンの拡張したものであり、実炉の設計段階では再処理におけるロス等を考慮して燃料組成を評価する。

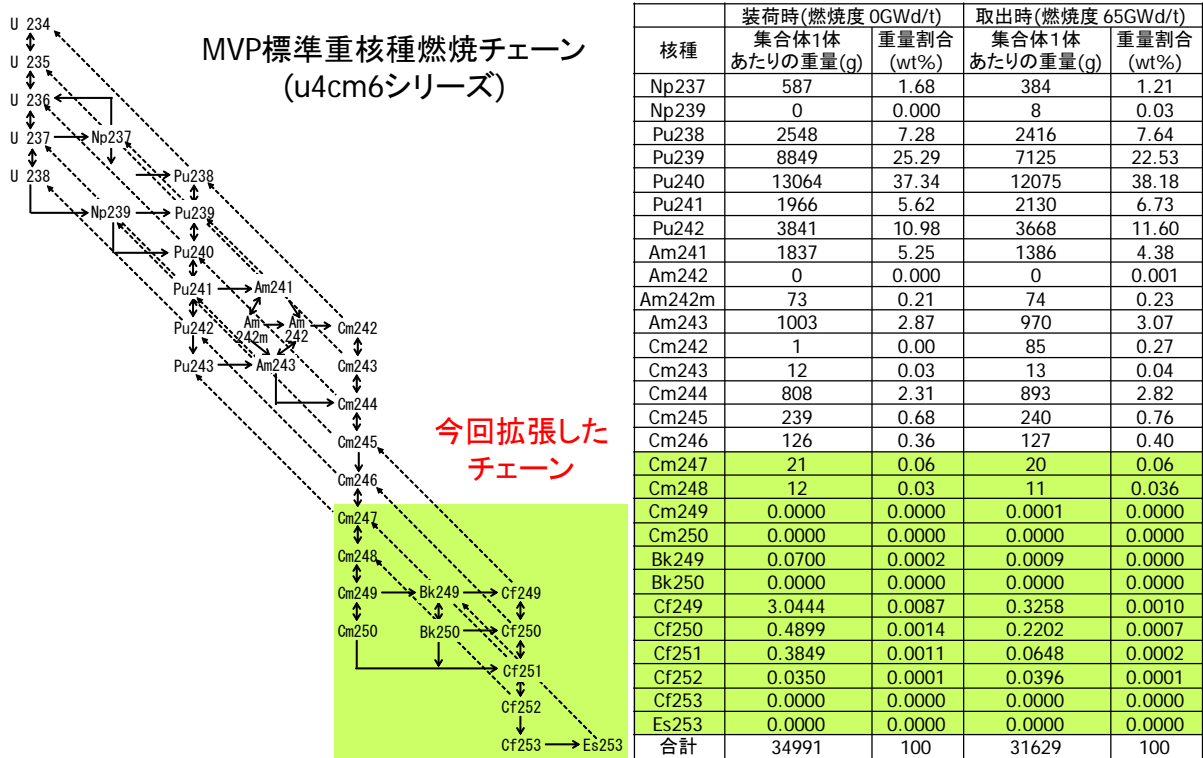


図 3. 1. 1-5 TRU 核種の燃焼チェーンの拡張

③燃料バンドル内の燃焼領域

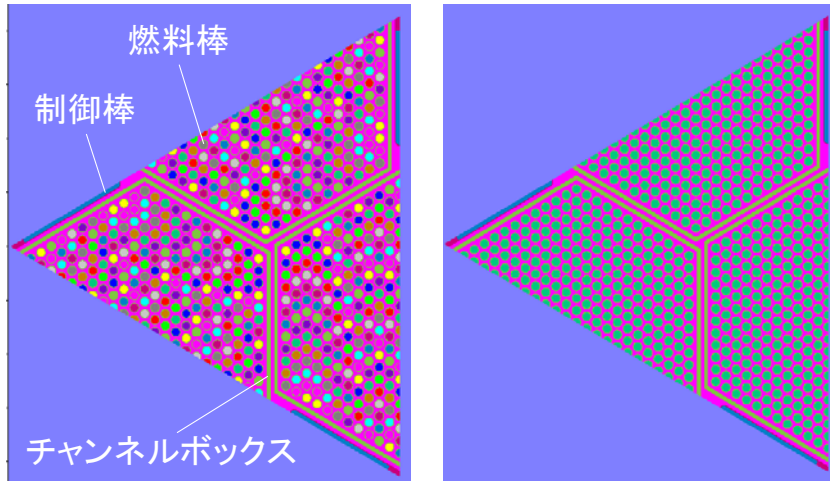
燃焼にともなって変化する組成を詳細に評価するためには、中性子束や各種反応率を評価する単位であるタリー領域（燃焼領域）を詳細に分割する必要があるが、必要なメモリ量も増加する。一方で、低減速炉である RBWR はバンドル内の減速材が少ないため、中性子の平均自由行程が通常の BWR より長いので、燃料集合体(バンドル)内の燃料棒毎の中性子束の変化が小さく出力分布が BWR と比較して平坦であり、また、通常の BWR では水ロッドやチャンネルボックス間のギャップ水に隣接する燃料棒の中性子スペクトルが、その他の領域の燃料棒の中性子スペクトルと大きく異なり、その結果、燃焼による組成変化が燃料棒の場所により異なるが、RBWR ではそのような燃料棒毎の中性子スペクトルの変化も小さいことから、燃料バンドル内位置の違いによる燃焼組成の差も小さく、本研究の目的であるボイド反応度及び多重リサイクル性の評価に必要な燃焼領域分割数を小さくできる可能性がある。このため、図 3. 1. 1-6 に示す 2 次元格子計算で燃焼領域分割数の無限増倍率及び燃焼組成への感度を評価した。燃焼初期の組成は表 3. 1. 1-1 (b) の組成とした。

図 3. 1. 1-7 に燃料棒毎に燃焼領域を設定した場合と、燃料バンドル内を 1 領域とした場合の無限増倍率の差を示す。誤差は、それぞれの場合の無限増倍率の統計誤差 (1 σ の MVP 出力値) の二乗平均である。図に示すように、両者の差はほぼ統計誤差以内となった。

図 3. 1. 1-8 に燃料棒毎に燃焼領域を設定した場合と、燃料バンドル内を 1 領域とした場合の、燃焼度 150 GWd/t での主要な TRU 核種組成を比較して示す。図に示すように、

組成の差はほとんどないことを確認した。

以上から燃料バンドル内の燃焼領域は1領域でも、ボイド反応度及び多重リサイクル性の評価への影響が小さいことを確認した。



(a) 燃料棒毎に燃焼領域を設定 (b) 燃料バンドル内を一領域で近似

図 3.1.1-6 燃料バンドル内燃焼領域の検討体系

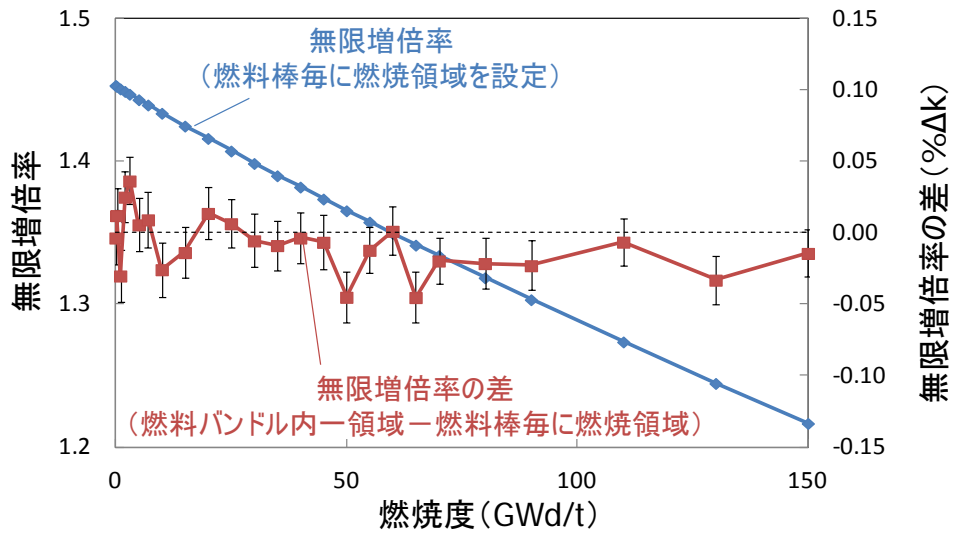


図 3.1.1-7 燃料バンドル内燃焼領域数の無限増倍率への影響

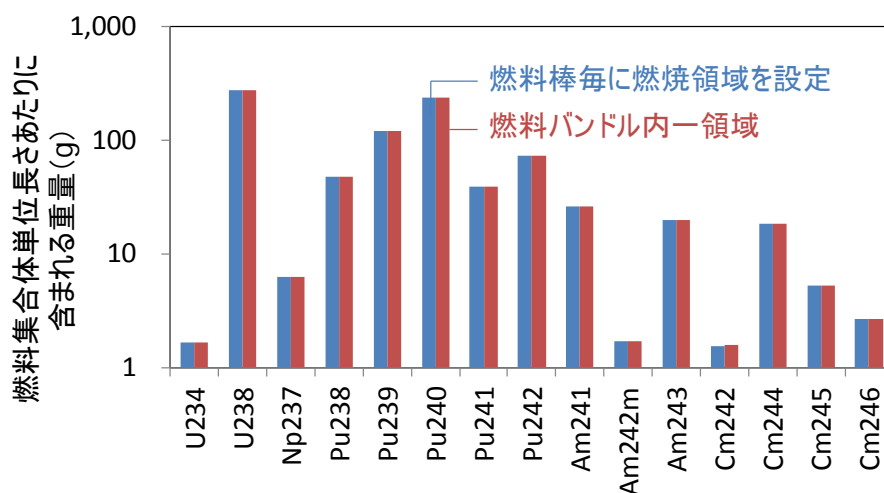


図 3.1.1-8 燃料バンドル内燃焼領域数の燃焼組成への影響

④軸方向の分割数及び分割位置

軸方向の燃焼領域の分割数及び分割位置については、図 3.1.1-4 に示した 3 次元の格子計算体系で、上部及び内部ブランケット、上部及び下部 TRU 領域の分割数を、表 3.1.1-3 に示すように変えて燃焼計算を行い検討した。燃料バンドル内の燃焼領域は上記③での検討結果を踏まえて 1 領域とした。また、燃焼初期の組成は表 3.1.1-1(b) の組成とし、冷却材ボイド率分布は既往研究の冷却材ボイド率分布⁽¹⁾を用いた。図 3.1.1-9 に冷却材ボイド率分布を示す。

図 3.1.1-10 に軸方向詳細メッシュと粗メッシュでの実効増倍率の差を示す。誤差は、それぞれの場合の実効増倍率の統計誤差 (1σ の MVP 出力値) の二乗平均である。図に示すように、両者の差はほぼ統計誤差以内となった。

図 3.1.1-11 に燃焼度 65GWd/t における軸方向詳細メッシュと粗メッシュでの主要な重核種組成を比較して示す。図に示すように、両者で組成の差は小さいことを確認した。

表 3.1.1-3 軸方向分割数及び分割位置の検討条件

ケース	詳細メッシュ	粗メッシュ
上部ブランケット	0.2 cm × 10	0.6、0.8、0.6 cm
上部 TRU	1.4 cm × 16	2.8 cm × 8
内部ブランケット	1.4 cm × 40	7 cm × 8
下部 TRU	1.38125 cm × 16	2.7625 cm × 8
合計	82 分割	27 分割

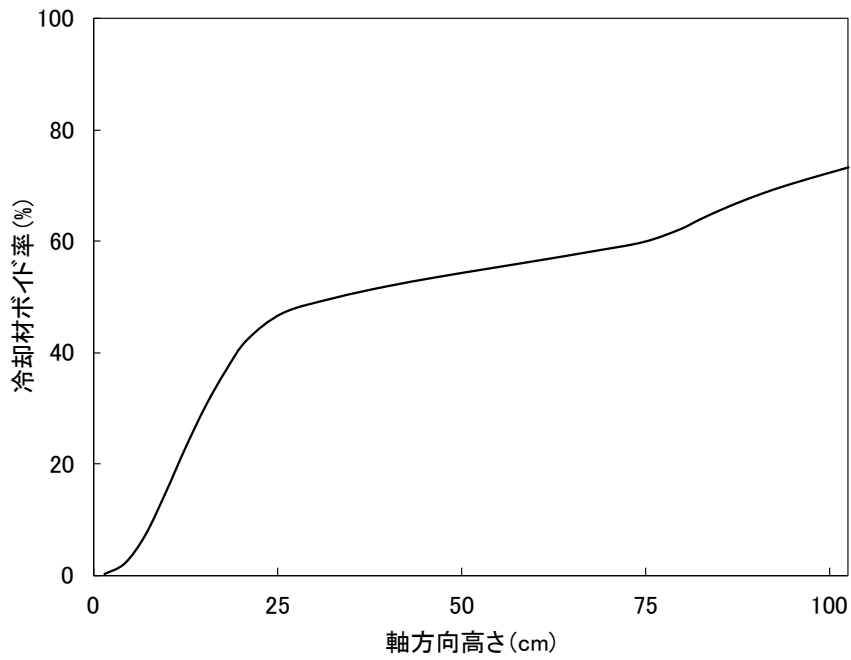


図 3. 1. 1-9 冷却材ボイド率分布

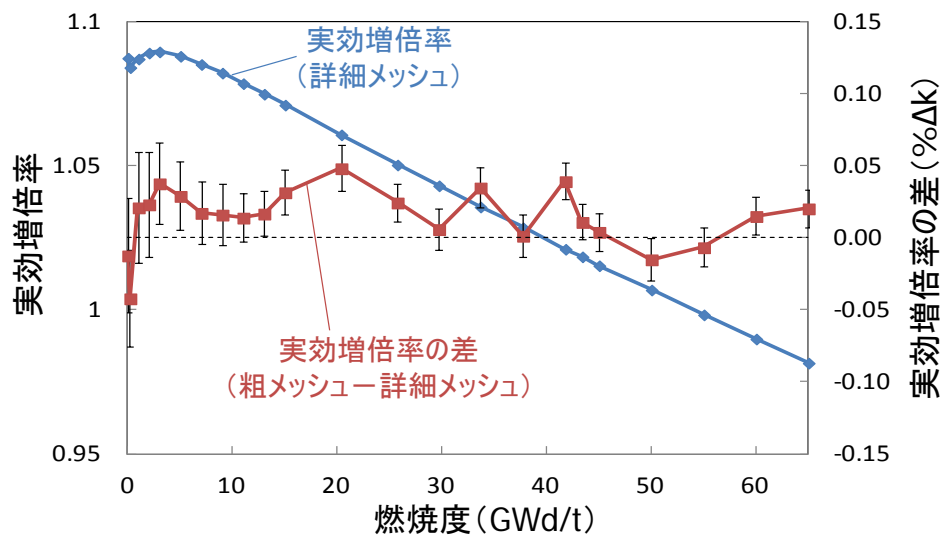


図 3. 1. 1-10 軸方向分割数及び分割位置の実効増倍率への影響

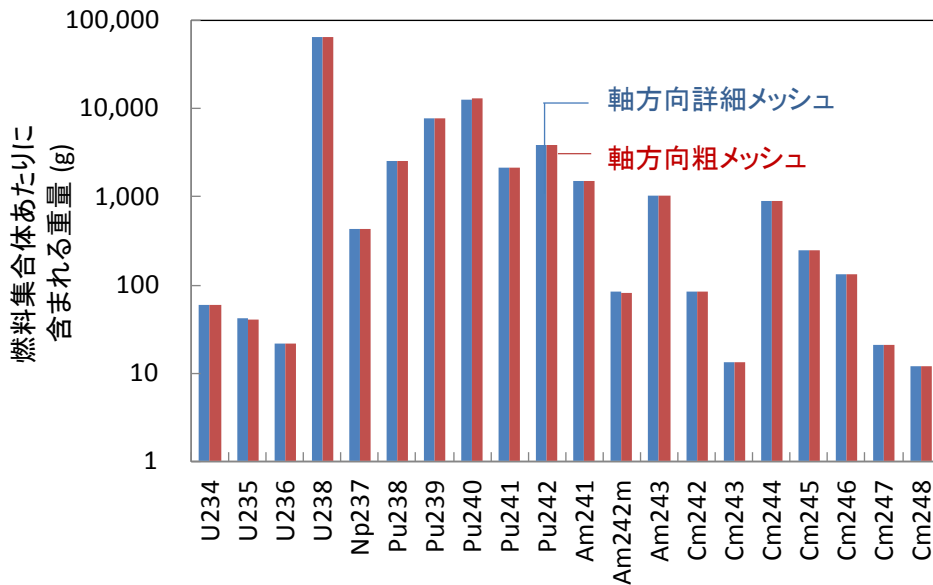


図 3. 1. 1-11 軸方向分割数及び分割位置の燃焼組成への影響

以上から軸方向の燃焼領域の分割数及び分割位置については、表 3. 1. 1-3 に示す粗メッシュでも詳細メッシュとほぼ同等の精度で実効増倍率を評価でき、したがって、実効増倍率の差分であるボイド反応度も粗メッシュで十分な精度で評価できることを確認した。また、同様に、図 3. 1. 1-11 に示すように重核種組成の評価結果も粗メッシュと詳細メッシュで差が小さく、多重リサイクル性の評価も粗メッシュで十分なことを確認した。

⑤燃焼点

燃焼組成の変化にともなう中性子スペクトルの変化を詳細に考慮するためには、燃焼ステップを小さくするのが望ましいが、燃焼点が増え計算時間が増加する。そのため、④と同じ 3 次元の格子計算体系を用いて、詳細な燃焼ステップによる燃焼計算と、燃焼ステップ数を減らした少数ステップによる燃焼計算を比較し、ボイド反応度及び多重リサイクル性の評価の観点から必要な燃焼点数を検討した。表 3. 1. 1-4 に検討した燃焼点を示す。詳細燃焼ステップは、ブランケットでの Pu 生成への感度が大きい燃焼初期での燃焼ステップを詳細にした。少数ステップケースは、表 3. 1. 1-1(a) より 4 バッチ炉心、すなわち、炉内に燃料が 4 サイクル滞在することを考慮して、1 サイクルで燃焼初期+8 点の合計 9 燃焼ステップとし、格子体系での燃焼計算では燃焼初期+8 点×4 サイクルの合計 33 点と設定した。

図 3. 1. 1-12 に詳細ステップと少数ステップでの実効増倍率の差を示す。詳細ステップと少数ステップで同じ燃焼度のものを示している。誤差は、それぞれの場合の実効増倍率の統計誤差 (1 σ の MVP 出力値) の二乗平均である。図に示すように、燃焼初期で少数ステップの方が有意に小さくなった。

図 3. 1. 1-13 に燃焼度 65Gwd/t における詳細ステップと少数ステップでの主要な重核種組成を比較して示す。図に示すように、両者で組成の差はほとんどないことを確認し

た。

以上から詳細ステップと少数ステップでは燃焼組成の差はほとんど無視できるが、燃焼初期での実効増倍率を少数ステップでは過小評価する傾向があることが分かった。ボイド反応度に対する影響を評価するため、詳細ステップと少数ステップの差が最大となる燃焼度 3GWd/t でのブランケット領域の組成を用いて、2次元格子計算によりボイド率を増加させて無限増倍率の変化を評価した。評価条件と結果を表 3.1.1-5 に示す。なお、RBWR ではボイド率変化にともなう中性子の炉心からの漏れの変化を考慮してボイド反応度を評価するため、3次元の炉心解析で冷却水流量を任意に変化させて実効増倍率の変化を評価する。本評価では、モンテカルロ計算においてボイド率の変化させたときの無限増倍率の差が統計誤差を考慮しても有意に評価できるようにボイド率を設定した。表に示すように、ボイド率増加時の無限増倍率の減少量の詳細ステップと少数ステップの差は統計誤差の範囲内である。

以上より、詳細ステップと少数ステップで実効増倍率の評価結果には有意な差があるものの、表 3.1.1-5 に示すように実効増倍率の差分であるボイド反応度の詳細ステップと少数ステップの評価結果の違いは統計誤差の範囲内であり、また特に実効増倍率の差が大きい燃焼初期の燃料集合体は炉心全体の 1/4 であるので、現時点で少数ステップでもボイド反応度を適切に評価できると判断した。

表 3.1.1-4 燃焼点の設定

少数ステップNo.	1	2		3					4
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)	0.00	0.20		1.00					3.00
詳細ステップNo.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	0.00	0.20	0.60	1.00	1.40	1.80	2.20	2.60	3.00
少数ステップNo.					5				6
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)					5.00				7.00
詳細ステップNo.	10	11	12	13	14	15	16	17	18
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	3.40	3.80	4.20	4.60	5.00	5.50	6.00	6.50	7.00
少数ステップNo.						7			
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)						10.00			
詳細ステップNo.	19	20	21	22	23	24	25	26	27
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	7.50	8.00	8.50	9.00	9.50	10.00	10.50	11.00	12.00
少数ステップNo.	8		9	10	11	12	13	14	15
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)	13.13		16.25	16.45	17.25	19.25	21.25	23.25	26.25
詳細ステップNo.	28	29	30	31	32	33	34	35	36
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	13.13	14.63	16.25	16.45	17.25	19.25	21.25	23.25	26.25
少数ステップNo.	16	17	18	19	20	21	22	23	24
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)	29.38	32.50	32.70	33.50	35.50	37.50	39.50	42.50	45.63
詳細ステップNo.	37	38	39	40	41	42	43	44	45
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	29.38	32.50	32.70	33.50	35.50	37.50	39.50	42.50	45.63
少数ステップNo.	25	26	27	28	29	30	31	32	33
少数ステップ燃焼度 (GWd/t)	48.75	48.95	49.75	51.75	53.75	55.75	58.75	61.88	65.00
詳細ステップNo.	46	47	48	49	50	51	52	53	54
詳細ステップ燃焼度 (GWd/t)	48.75	48.95	49.75	51.75	53.75	55.75	58.75	61.88	65.00

(数字の色は図 3.1.1-11 のプロットに対応)

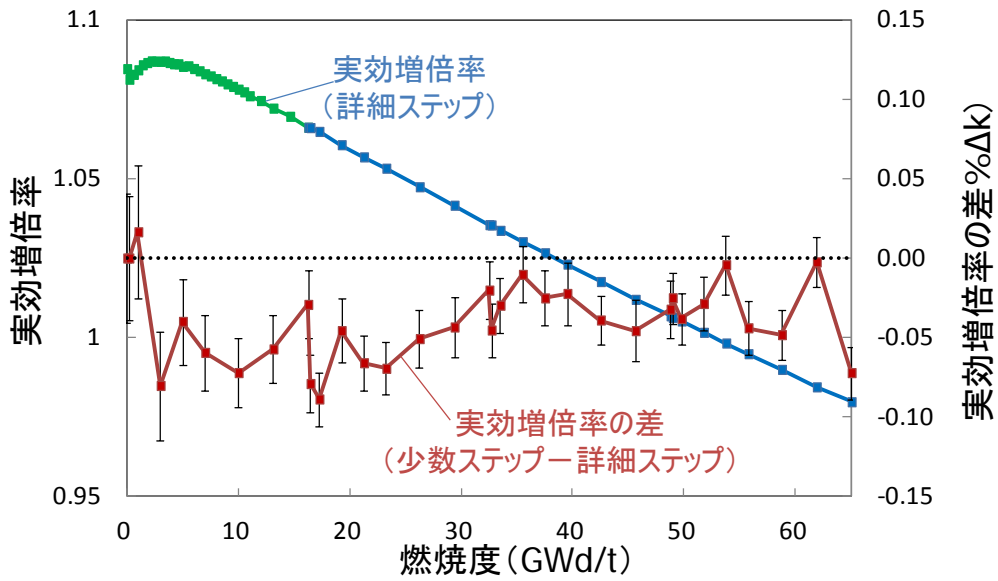


図 3.1.1-12 燃焼点数の実効増倍率への影響

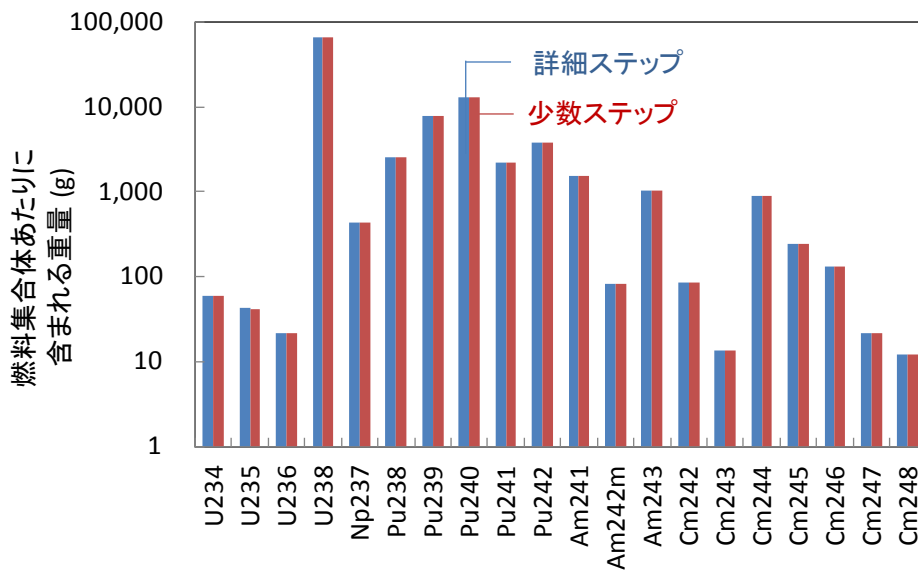


図 3.1.1-13 燃焼点数の燃焼組成への影響

表 3.1.1-5 燃焼点数のボイド反応度への影響

平均ボイド率 (%)	ブランケット領域の無限増倍率	
	詳細ステップ	少数ステップ
47.4	0.64707±0.00009	0.64163±0.00010
55.6	0.62604±0.00011	0.62072±0.00009
差 (%Δk)	-2.10±0.01	-2.09±0.01

⑥燃料集合体解析モデル

燃料集合体解析モデルを表 3. 1. 1-6 にまとめる。制御棒価値に影響する幾何形状以外は、ボイド反応度及び多重リサイクル性の評価の観点では、燃料バンドル内及び軸方向の燃焼領域分割数及び燃焼点は比較的少ない値で十分であることを確認した。

表 3. 1. 1-6 燃料集合体解析モデルのまとめ

項目	設定
幾何形状	非対称六角格子（形状を厳密に模擬）
燃料バンドル内燃焼領域	1 領域
軸方向の分割数及び分割位置	粗メッシュ（27 分割）
燃焼点	少数ステップ（全 9 点）

(3)核熱連成計算システム（H28）

RBWR 炉心設計用の核熱練成計算システムは、炉心解析コードとして MVP コード、熱水力計算コードとして MVP-Hydro コード、燃焼計算コードとして MVP-Burn コードを組み合わせたシステムである。MVP-Burn コードは内部から MVP コードを呼び出して燃焼計算を行うことができるが、RBWR 炉心設計解析では、核熱結合計算が必要であり、更に疑似物質法を取り扱う必要があるため、上記の 3 つのコードを単体として動作させ、シェルスクリプトでそれらを結合するという仕組みにしている。図 3. 1. 1-14 に核熱練成計算のフローを示す。1 燃焼ステップは、3 つのサブステップで構成される。最初のサブステップで燃焼度を増加させる（第 2 サイクル以降は燃料交換をする）。続く 2 つのサブステップでボイド反復を行う。現在のシステムでは、2 回ボイド反復を行うことに固定している。

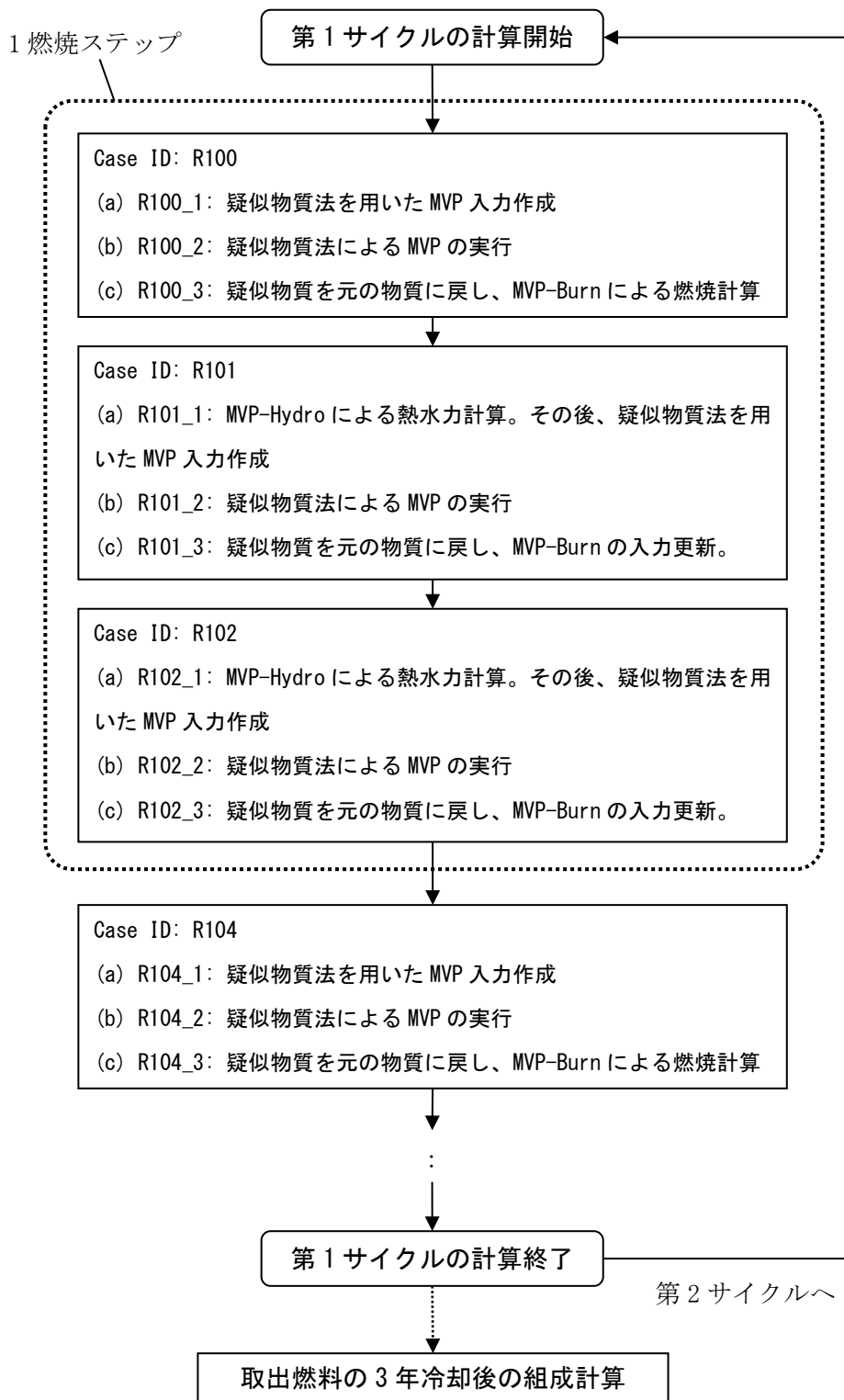


図 3. 1. 1-14 核熱練成計算のフロー

各サブステップは3つのタスクから構成される。タスク(a)では、MVP-Burnをdebugモードで実行し、MVPの入力データを作成する。このとき、数密度データを疑似物質データに置き換える。更に、1つの燃焼ステップ内の第2サブステップと第3サブステップにお

けるタスク(a)では、MVP-Hydro コードを用いた熱水力計算を行い、数密度データを更新する。核熱連成計算では、(1)④に記述の軸方向非均一メッシュの MVP 計算と等間隔メッシュの MVP- MVP-Hydro を連結し、出力分布とボイド率分布を相互に授受するようにした。タスク(b)では、疑似物質法を用いた MVP コードによる臨界計算を行い、燃焼計算用の微視的反応率を計算し(第1サブステップ)、また核熱計算用の出力分布を計算する(第2、第3サブステップ)。タスク(c)では、疑似物質毎の微視的反応率を元の温度の微視的反応率に変換して、燃焼計算を行う。

以上のような計算を繰り返し、燃焼ステップを進めていく。第1サイクルの燃焼ステップが完了すると、取出燃料の3年冷却後の燃料組成計算を行う。その後、燃料交換を行い、第1サイクルと同様に、第2サイクルの計算を行う。燃料交換は取出直後の燃料組成を用いて行い、取出燃料の3年冷却後の燃料組成は、TRU 燃焼量評価に用いた。

核熱練成計算システムは原子力機構に導入されている大型計算機(SGI 社製の ICE™X)で実行した。大型計算機のハードウェアスペックを表 3.1.1-7 に示す。

表 3.1.1-7 SGI 社製 ICE™ X のハードウェアスペック

機種名	SGI ICE™ X	
ノード数	2,510	
ノード構成 (1ノード当り)	CPU 種別 メモリ	Intel Xeon E5-2680 v3 12 core 2.5 GHz×2 CPU 64 GB
総理論演算性能	2,409.6 TFlops	
総主記憶容量	156.8 TBytes	

(4)RBWR の試解析による炉心特性評価 (H28)

(3)で述べた大型計算機 ICE™ X 上にインストールした核熱連成計算システムと 3.1.2 の大規模炉心解析手法を用いて、RBWR 炉心の試解析を行った。解析条件として、炉心・燃料仕様を表 3.1.1-8 である。表 3.1.1-8 の上部、内部ブランケットの燃料棒は U235 の割合が 0.2 wt%の劣化ウラン燃料を、TRU 領域の燃料棒は劣化ウランに TRU を富化した混合酸化燃料を充填している。TRU の組成は表 3.1.1-1(b)である。図 3.1.1-15 に RBWR の炉心断面図を示すが、核熱練成計算は炉心の対称性により図 3.1.16 の 1/6 炉心を用いた。図 3.1.1-16 は燃料集合体 128 体、制御棒 45 本配置し、運転中の制御棒の挿入引き抜きによる余剰反応度制御に対応した 1/6 炉心である。

各燃焼ステップにおける MVP の計算は、総ヒストリー数 54,984,600、バッチサイズ 499,860、スキップバッチ数 10 で、180 並列 (MPI 並列) で計算を行った。スキップバッチ数を小さくするため、各 MVP の計算では、過去の MVP 計算で保存した核分裂源ファイルの中から計算結果が最も近い核分裂源ファイルを用いた。評価済み核データは JENDL-4.0 を用いた。また、燃焼計算においては、MVP-Burn の標準燃焼チェーンを(1)②の Es-253 まで拡張した燃焼チェーンを用いた。

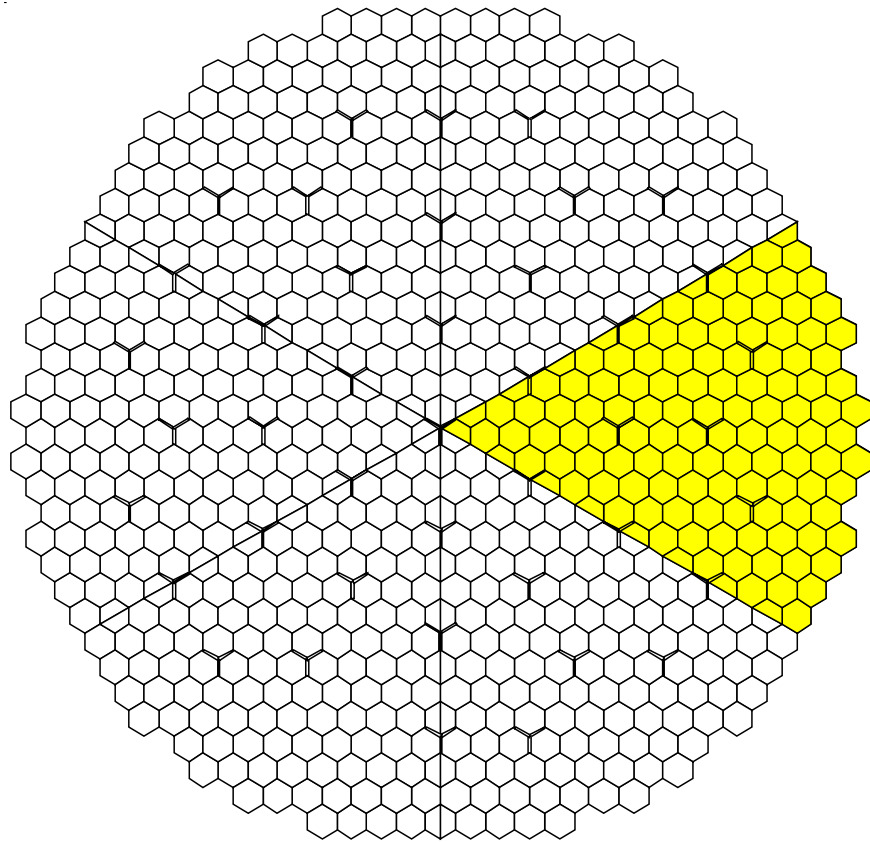


图 3. 1. 1-15 RBWR 炉心断面图

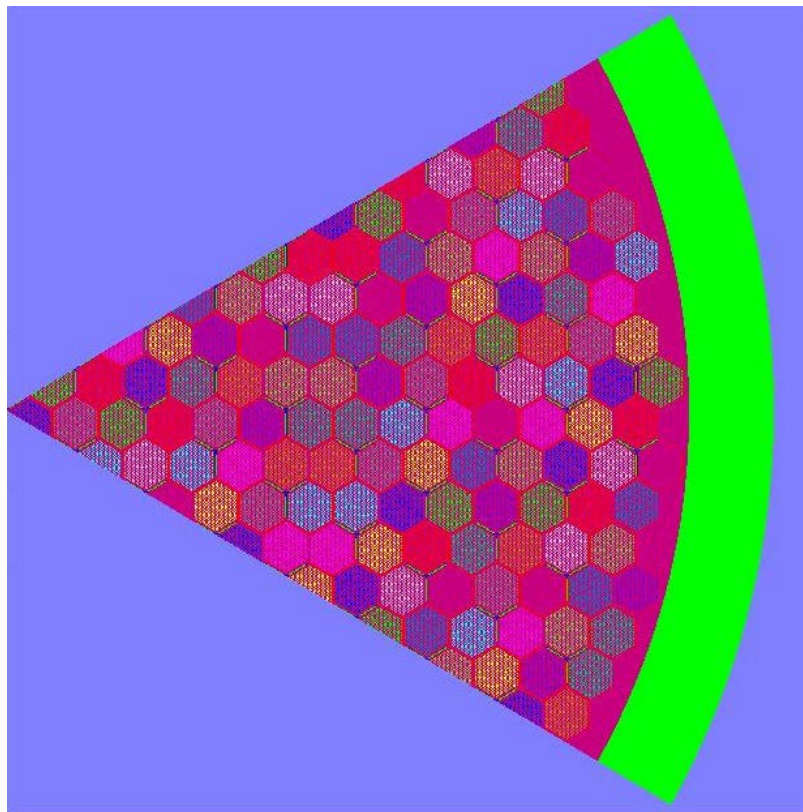


图 3. 1. 1-16 解析体系 (1/6 炉心)

表 3. 1. 1-8 炉心・燃料仕様

炉心仕様	RBWR	
熱出力 (MWt)	3926	
電気出力 (MWe)	1356	
炉心圧力 (MPa)	7.1	
炉心流量 (kt/hr)	33	
燃料集合体数 (体)	720	
制御棒本数 (本)	233	
燃料有効長 (cm)	102.5	
取出燃焼度 (GWd/t)	65	
燃料棒外径 (mm)	7.2	
燃料棒本数/集合体数	397	
取り換え集合体数 (体)	240	
バッチ数	4	
運転サイクル	1年	
軸方向構成	TRU 富化度* (wt%)	領域高さ (cm)
上部ブランケット	劣化ウラン	2.0
上部 TRU	70.6	22.4
内部ブランケット	劣化ウラン	56.0
下部 TRU	80.7	22.1

*:TRU は劣化ウラン (U235 : 0.2wt%) に富化

図 3. 1. 1-17 に RBWR 炉心のサイクル末期の中性子スペクトルを示す。RBWR の中性子スペクトルは現行の BWR とは異なり、熱中性子がほとんどなく高速中性子が多くなっており、TRU 燃焼に有利な高速スペクトルを実現していることを確認した。

表 3. 1. 1-9 に RBWR 炉心のサイクル初期、サイクル末期のそれぞれについて、炉心平均ボイド率、実効増倍率、炉心流量、定格流量 33 kt/hr から 30 kt/hr へ炉心流量を 90%減らしたときの炉心平均ボイド率、実効増倍率を示す。表 3. 1. 1-9 のボイド反応度係数は以下の式で計算した。

$$\text{ボイド反応度係数} = \frac{k_{\text{eff}2} - k_{\text{eff}1}}{k_{\text{eff}2} \cdot k_{\text{eff}1}} \cdot \frac{1}{V_2 - V_1}$$

ここで、 $k_{\text{eff}1}$ は定格流量時の実効増倍率、 V_1 は定格流量時の炉心平均ボイド率、 $k_{\text{eff}2}$ は 90%流量時の実効増倍率、 V_2 は 90%流量時の炉心平均ボイド率である。

表 3. 1. 1-10 は炉心装荷時の軸方向領域と装荷燃料全体の重金属核種重量及び組成である。表 3. 1. 1-11 は炉心取出 3 年冷却後燃料の軸方向領域と取出燃料全体の重金属、核種毎の燃焼量(装荷重量と取出 3 年後の重量の差分)と燃焼効率(装荷重量に対する燃焼量の割合)も示す。表 3. 1. 1-12 は炉心取出 3 年冷却後燃料の軸方向領域と取出燃料全体の核分裂

生成物の核種重量、組成である。燃焼計算では、核反応断面積が小さく重要度の低い核種は疑似(Pseudo)核分裂生成物としている。

表 3.1.1-11(a)より核分裂性 TRU 核種である Pu239、Pu241 とともに、非核分裂性 TRU 核種も燃焼していることが確認できた。Cm245、Cm247 が 0.26%、0.25%ずつ僅かに増加しているが、表 3.1.1-11(a)の TRU をリサイクルして再び炉心に装荷することで燃焼すると考えられる。RBWR は表運転サイクル 1 年、電気出力 1356 GWe なので TRU 燃焼量は 0.46 t/GWe/年となった。

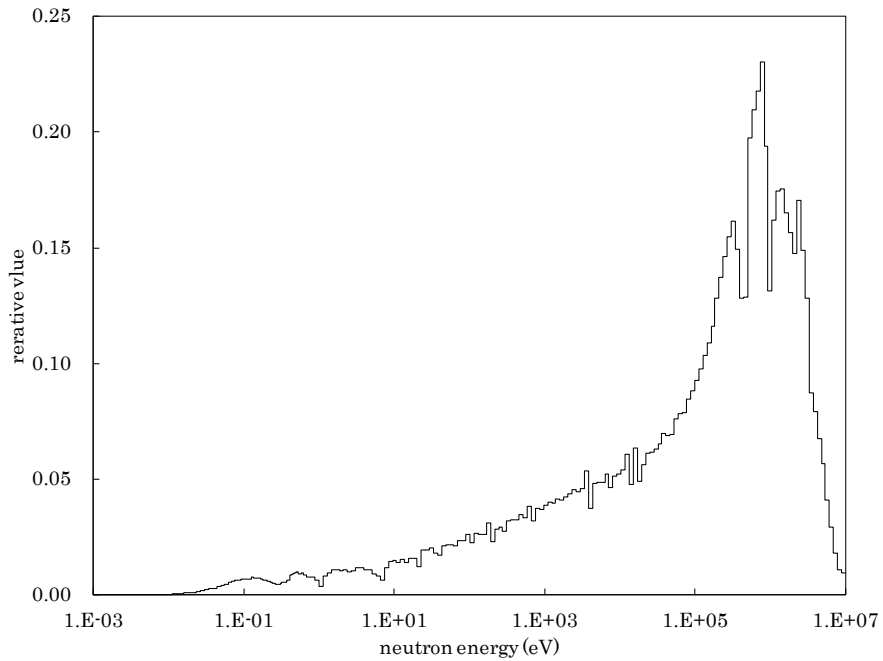


図 3.1.1-17 RBWR の中性子スペクトル

表 3.1.1-9 解析結果

		サイクル初期	サイクル末期
定格	炉心平均ボイド (%)	45.4	53.0
流量	実効増倍率	1.02947±0.00004	1.02478±0.00004
90%	炉心平均ボイド (%)	49.3	55.7
流量	実効増倍率	1.02978±0.00004	1.02532±0.00004
ボイド反応度係数 (pcm/%void)		8	19

表 3. 1. 1-10 装荷燃料の重金属重量・組成

重量 (kg)	装荷時					TRU領域合計	装荷燃料合計
	下部TRU	内部ブランク	上部TRU	上部ブランク	ブランク合計		
U234	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
U235	1.27	20.45	2.12	0.73	21.18	3.40	24.57
U236	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
U237	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
U238	635.34	10201.90	1060.17	364.35	10566.25	1695.51	12261.76
Np237	61.34	0.00	54.58	0.00	0.00	115.91	115.91
Np239	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Pu238	253.61	0.00	225.67	0.00	0.00	479.27	479.27
Pu239	898.78	0.00	799.76	0.00	0.00	1698.54	1698.54
Pu240	1319.26	0.00	1173.85	0.00	0.00	2493.11	2493.11
Pu241	194.61	0.00	173.16	0.00	0.00	367.77	367.77
Pu242	383.12	0.00	340.91	0.00	0.00	724.03	724.03
Am241	187.44	0.00	166.78	0.00	0.00	354.22	354.22
Am242	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Am242M	7.53	0.00	6.70	0.00	0.00	14.23	14.23
Am243	100.44	0.00	89.37	0.00	0.00	189.81	189.81
Cm242	0.09	0.00	0.08	0.00	0.00	0.18	0.18
Cm243	1.18	0.00	1.05	0.00	0.00	2.23	2.23
Cm244	78.92	0.00	70.22	0.00	0.00	149.14	149.14
Cm245	23.01	0.00	20.48	0.00	0.00	43.49	43.49
Cm246	12.42	0.00	11.05	0.00	0.00	23.47	23.47
Cm247	2.08	0.00	1.85	0.00	0.00	3.94	3.94
Cm248	1.18	0.00	1.05	0.00	0.00	2.24	2.24
Cm249	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Cm250	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Bk249	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.01
Bk250	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Cf249	0.31	0.00	0.28	0.00	0.00	0.59	0.59
Cf250	0.05	0.00	0.05	0.00	0.00	0.10	0.10
Cf251	0.04	0.00	0.03	0.00	0.00	0.07	0.07
Cf252	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01
Cf253	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Es253	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
TRU	3525.43	0.00	3136.94	0.00	0.00	6662.37	6662.37
重金属	4162.05	10222.34	4199.23	365.08	10587.42	8361.28	18948.70
TRU組成 (wt%)	下部TRU	内部ブランク	上部TRU	上部ブランク	ブランク合計	TRU領域合計	装荷燃料合計
Np237	1.740	-	1.740	-	-	1.740	1.740
Pu238	7.194	-	7.194	-	-	7.194	7.194
Pu239	25.494	-	25.495	-	-	25.494	25.494
Pu240	37.421	-	37.420	-	-	37.421	37.421
Pu241	5.520	-	5.520	-	-	5.520	5.520
Pu242	10.867	-	10.868	-	-	10.868	10.868
Am241	5.317	-	5.317	-	-	5.317	5.317
Am242	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Am242M	0.214	-	0.214	-	-	0.214	0.214
Am243	2.849	-	2.849	-	-	2.849	2.849
Cm242	0.003	-	0.003	-	-	0.003	0.003
Cm243	0.033	-	0.033	-	-	0.033	0.033
Cm244	2.239	-	2.238	-	-	2.239	2.239
Cm245	0.653	-	0.653	-	-	0.653	0.653
Cm246	0.352	-	0.352	-	-	0.352	0.352
Cm247	0.059	-	0.059	-	-	0.059	0.059
Cm248	0.034	-	0.034	-	-	0.034	0.034
Cm249	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Cm250	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Bk249	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Bk250	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Cf249	0.009	-	0.009	-	-	0.009	0.009
Cf250	0.002	-	0.002	-	-	0.002	0.002
Cf251	0.001	-	0.001	-	-	0.001	0.001
Cf252	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Cf253	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Es253	0.000	-	0.000	-	-	0.000	0.000
Total TRU	100.000	0.000	100.000	0.000	0.000	100.000	100.000

表 3. 1. 1-11 取出 3 年後の燃料の重金属重量・組成

重量 (kg)	取出3年後						取出3年後燃料	燃焼量 (kg)	燃焼効率 (%)
	下部TRU	内部ブランケット	上部TRU	上部ブランケット	ブランケット合計	TRU領域合計			
U234	11.57	0.06	11.31	0.02	0.08	22.88	22.96	-22.96	-
U235	1.55	3.47	2.06	0.02	3.49	3.61	7.10	17.48	71.13
U236	0.62	2.54	0.70	0.07	2.61	1.33	3.94	-3.94	-
U237	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
U238	600.89	9727.86	978.17	309.63	10037.49	1579.06	11616.55	645.21	5.26
Np237	44.10	1.62	31.67	0.11	1.72	75.77	77.50	38.42	33.14
Np239	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Pu238	251.24	1.94	207.04	0.43	2.37	458.27	460.64	18.63	3.89
Pu239	704.33	126.72	544.38	6.30	133.02	1248.71	1381.74	316.80	18.65
Pu240	1252.40	36.24	1060.47	4.63	40.87	2312.87	2353.74	139.37	5.59
Pu241	163.13	21.80	135.75	1.38	23.18	298.89	322.07	45.71	12.43
Pu242	369.26	7.68	315.17	1.07	8.75	684.42	693.17	30.87	4.26
Am241	181.97	4.65	142.97	0.38	5.03	324.93	329.96	24.26	6.85
Am242	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Am242M	7.45	0.03	6.54	0.00	0.03	13.99	14.02	0.21	1.46
Am243	95.60	2.29	82.59	0.31	2.60	178.19	180.79	9.02	4.75
Cm242	0.08	0.00	0.08	0.00	0.00	0.16	0.16	0.02	11.05
Cm243	1.06	0.02	1.10	0.00	0.02	2.16	2.18	0.05	2.25
Cm244	75.37	1.46	66.35	0.34	1.80	141.72	143.53	5.61	3.76
Cm245	23.37	0.25	19.93	0.05	0.31	43.30	43.61	-0.11	-0.26
Cm246	12.46	0.02	10.92	0.03	0.05	23.38	23.43	0.04	0.18
Cm247	2.09	0.00	1.85	0.00	0.00	3.94	3.94	-0.01	-0.25
Cm248	1.19	0.00	1.04	0.00	0.00	2.22	2.22	0.01	0.65
Cm249	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Cm250	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Bk249	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	100.00
Bk250	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Cf249	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.59	99.94
Cf250	0.04	0.00	0.04	0.00	0.00	0.08	0.08	0.02	15.97
Cf251	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07	94.54
Cf252	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	5.52
Cf253	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
Es253	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-
TRU	3185.14	204.73	2627.89	15.03	219.75	5813.03	6032.78	629.59	9.45
重金属	3799.77	9938.66	3620.13	324.76	10263.43	7419.90	17683.33	1265.37	6.68
TRU組成 (wt%)	下部TRU	内部ブランケット	上部TRU	上部ブランケット	ブランケット合計	TRU領域合計	取出3年後燃料		
Np237	1.384	0.790	1.205	0.703	0.784	1.303	1.285		
Pu238	7.888	0.950	7.878	2.844	1.079	7.884	7.636		
Pu239	22.113	61.898	20.716	41.914	60.532	21.481	22.904		
Pu240	39.320	17.701	40.354	30.809	18.597	39.788	39.016		
Pu241	5.122	10.648	5.166	9.185	10.548	5.142	5.339		
Pu242	11.593	3.751	11.993	7.103	3.980	11.774	11.490		
Am241	5.713	2.271	5.440	2.537	2.289	5.590	5.469		
Am242	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Am242M	0.234	0.015	0.249	0.018	0.015	0.241	0.232		
Am243	3.001	1.118	3.143	2.054	1.182	3.065	2.997		
Cm242	0.002	0.001	0.003	0.004	0.002	0.003	0.003		
Cm243	0.033	0.008	0.042	0.025	0.009	0.037	0.036		
Cm244	2.366	0.714	2.525	2.256	0.819	2.438	2.379		
Cm245	0.734	0.123	0.758	0.357	0.139	0.745	0.723		
Cm246	0.391	0.011	0.416	0.180	0.023	0.402	0.388		
Cm247	0.066	0.000	0.070	0.009	0.001	0.068	0.065		
Cm248	0.037	0.000	0.039	0.002	0.000	0.038	0.037		
Cm249	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cm250	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Bk249	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Bk250	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cf249	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cf250	0.001	0.000	0.002	0.000	0.000	0.001	0.001		
Cf251	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cf252	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cf253	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Es253	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Total TRU	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000		

表 3. 1. 1-12 取出3年後の燃料のFP重量・組成

重量 (kg)	取出3年後						取出3年後燃料
	下部TRU	内部ブランケット	上部TRU	上部ブランケット	ブランケット合計	TRU領域合計	
Kr83	0.37	0.23	0.54	0.01	0.24	0.91	1.15
Mo95	7.14	4.65	10.40	0.35	5.00	17.54	22.54
Tc99	9.57	5.59	13.88	0.42	6.01	23.45	29.47
Ru101	9.72	5.85	13.98	0.46	6.31	23.70	30.01
Rh103	10.98	4.88	15.79	0.32	5.20	26.76	31.96
Pd105	9.09	4.77	12.88	0.34	5.11	21.97	27.08
Pd107	6.56	3.13	9.20	0.25	3.38	15.77	19.15
Pd108	4.95	2.19	7.40	0.19	2.38	12.36	14.74
Ag109	3.28	1.29	4.85	0.09	1.38	8.13	9.52
Xe131	6.79	3.22	9.93	0.22	3.43	16.72	20.16
Cs133	14.25	8.02	20.76	0.59	8.61	35.01	43.62
Cs134	0.29	0.39	0.46	0.03	0.42	0.75	1.17
Cs135	16.20	4.45	23.00	0.13	4.58	39.21	43.79
Cs137	13.80	8.61	20.19	0.68	9.29	33.98	43.28
Nd143	10.57	5.63	15.25	0.28	5.91	25.82	31.72
Nd145	7.40	4.24	10.76	0.31	4.55	18.17	22.72
Nd148	4.55	2.74	6.70	0.22	2.96	11.24	14.20
Pm147	1.24	0.58	1.82	0.04	0.61	3.06	3.67
Sm147	2.91	1.15	4.25	0.08	1.23	7.16	8.39
Sm148	1.26	1.14	1.88	0.09	1.23	3.14	4.37
Sm149	1.24	0.06	1.73	0.00	0.06	2.96	3.02
Sm150	2.29	2.28	3.52	0.18	2.46	5.81	8.26
Sm151	1.29	0.19	1.65	0.00	0.20	2.94	3.14
Sm152	1.82	0.81	2.97	0.07	0.88	4.79	5.68
Eu153	1.45	1.07	1.98	0.08	1.15	3.43	4.57
Eu154	0.29	0.29	0.47	0.01	0.31	0.76	1.07
Eu155	0.21	0.06	0.34	0.00	0.06	0.56	0.62
Gd154	0.12	0.11	0.19	0.01	0.12	0.31	0.43
Gd155	0.19	0.04	0.29	0.00	0.04	0.49	0.53
Gd156	0.58	0.78	0.89	0.09	0.87	1.47	2.34
Gd157	0.11	0.01	0.17	0.00	0.01	0.28	0.29
Gd158	0.34	0.32	0.50	0.06	0.38	0.83	1.21
Gd160	0.04	0.02	0.05	0.00	0.02	0.09	0.11
Pseudo	255.46	166.28	370.13	11.87	178.15	625.58	803.73
Total FP	406.34	245.06	588.81	17.48	262.54	995.15	1257.69
FP組成 (wt%)	下部TRU	内部ブランケット	上部TRU	上部ブランケット	ブランケット合計	TRU領域合計	取出3年後燃料
Kr83	0.091	0.094	0.092	0.073	0.092	0.091	0.092
Mo95	1.757	1.895	1.766	2.022	1.904	1.762	1.792
Tc99	2.356	2.283	2.358	2.406	2.291	2.357	2.343
Ru101	2.393	2.388	2.374	2.613	2.403	2.382	2.386
Rh103	2.701	1.990	2.681	1.837	1.979	2.689	2.541
Pd105	2.237	1.948	2.188	1.927	1.946	2.208	2.153
Pd107	1.615	1.276	1.563	1.457	1.288	1.584	1.523
Pd108	1.219	0.895	1.257	1.080	0.907	1.242	1.172
Ag109	0.808	0.526	0.824	0.541	0.527	0.817	0.757
Xe131	1.671	1.313	1.687	1.242	1.308	1.681	1.603
Cs133	3.506	3.272	3.526	3.396	3.280	3.518	3.468
Cs134	0.071	0.160	0.078	0.189	0.162	0.075	0.093
Cs135	3.988	1.816	3.907	0.753	1.745	3.940	3.482
Cs137	3.396	3.515	3.428	3.887	3.540	3.415	3.441
Nd143	2.601	2.296	2.590	1.594	2.250	2.594	2.522
Nd145	1.822	1.731	1.828	1.755	1.733	1.826	1.806
Nd148	1.119	1.117	1.137	1.254	1.126	1.130	1.129
Pm147	0.305	0.236	0.308	0.211	0.234	0.307	0.292
Sm147	0.717	0.469	0.722	0.436	0.467	0.720	0.667
Sm148	0.310	0.466	0.319	0.498	0.468	0.316	0.347
Sm149	0.304	0.024	0.293	0.007	0.023	0.298	0.240
Sm150	0.563	0.929	0.598	1.026	0.936	0.583	0.657
Sm151	0.318	0.078	0.280	0.026	0.074	0.296	0.249
Sm152	0.448	0.331	0.505	0.412	0.337	0.482	0.451
Eu153	0.356	0.435	0.336	0.460	0.437	0.344	0.364
Eu154	0.071	0.120	0.080	0.070	0.116	0.076	0.085
Eu155	0.053	0.024	0.058	0.025	0.024	0.056	0.049
Gd154	0.029	0.047	0.033	0.029	0.046	0.031	0.034
Gd155	0.047	0.015	0.050	0.014	0.014	0.049	0.042
Gd156	0.143	0.320	0.150	0.519	0.333	0.147	0.186
Gd157	0.027	0.002	0.029	0.001	0.002	0.029	0.023
Gd158	0.082	0.129	0.084	0.362	0.145	0.083	0.096
Gd160	0.009	0.006	0.009	0.007	0.006	0.009	0.008
Pseudo	62.868	67.854	62.860	67.869	67.855	62.863	63.905
Total FP	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000	100.000

(5) 解析モデルと計算手法の妥当性評価 (H28)

解析モデルについては、入力条件に問題ないことを精査し、確認した。図 3.1.1-18 に解析体系の拡大図を示す。図より Y 字型制御棒、正六角形チャンネルボックスが正確にモデル化されている。図 3.1.1-19 に RBWR のピンセル体系において、試解析で設定した温度点で疑似物質法を用いて求めた無限増倍率と実際の燃料温度を設定して求めた詳細計算の無限増倍率の差を示す。図により、疑似物質法による無限増倍率と詳細計算の無限増倍率差は $0.5\% \Delta k$ 以下であり、疑似物質法が妥当であることを確認した。なお、モンテカルロ計算と熱水力計算は既存のコードであり妥当性を評価済みである。

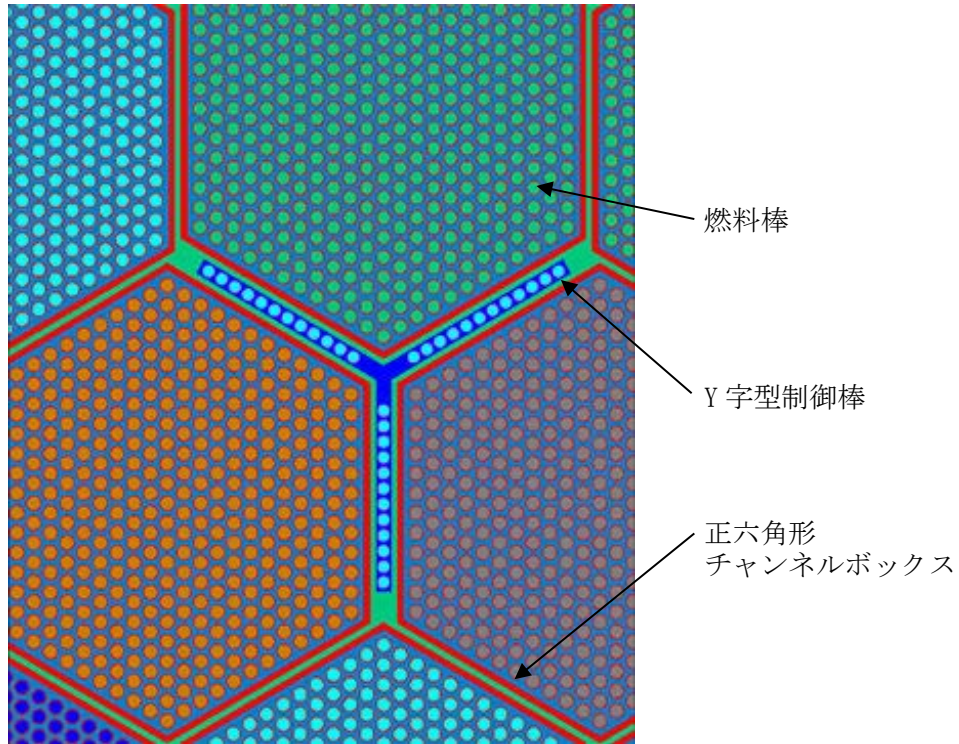


図 3.1.1-18 解析体系の拡大図

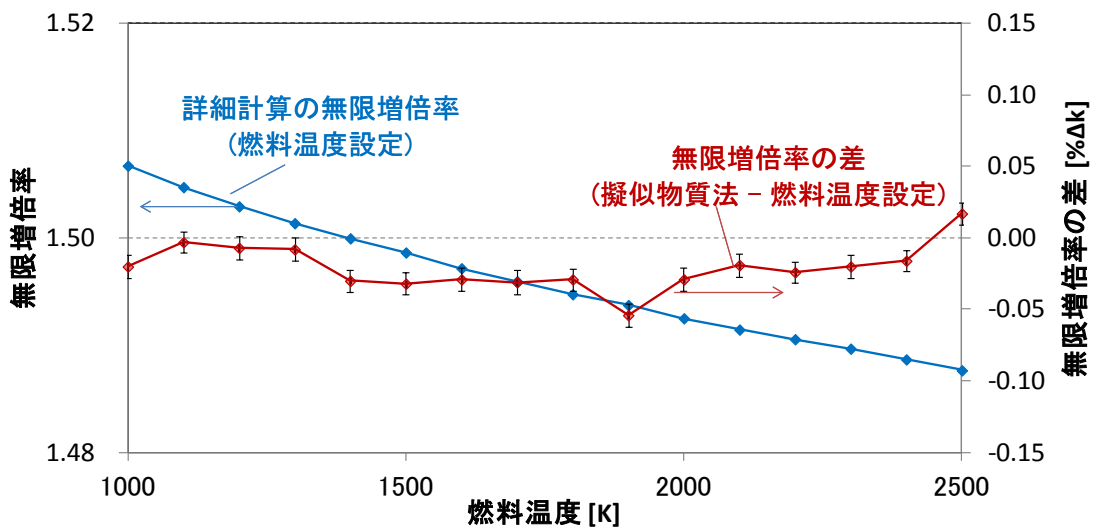


図 3.1.1-19 RBWR ピンセル体系における疑似物質法の計算精度

(6) 炉心成立性及び TRU 燃焼性能の評価及び課題抽出 (H28)

試解析ではボイド反応度係数は正となったが、実効増倍率がサイクル初期で 1.02947、サイクル末期で 1.02478 となった。そこで、実効増倍率とボイド反応度係数の関係性を評価した。

図 3.1.1-20 に表 3.1.1-8 の燃料仕様の上部 TRU、下部 TRU の TRU 富化度を 1 wt%低減したケースと更に 2.5 wt%低減したケースについて解析で得られた実効増倍率の変化量と、ボイド反応度係数の変化量の関係性を示す。TRU 富化度低減することで、TRU 中の核分裂性物質が減少し炉心の実効増倍率が減少し、ボイド反応度係数負に寄与する劣化 U の割合が増加して炉心のボイド反応度係数がより負になった。劣化 U のボイド反応度係数が負であることは表 3.1.1-5 の劣化 U で構成したブランケットのボイド反応度係数からも確認している。

図 3.1.1-20 より表 3.1.1-8 の燃料仕様の上部 TRU、下部 TRU の TRU 富化度 70.6 wt%、80.7 wt%をそれぞれ 64.8 wt%、74.9 wt%とすることで、サイクル末期の実効増倍率 1.025 から 2.5%低減して 1.000、サイクル末期のボイド反応度係数 19 pcm/%void から 25 pcm/%void 低減して $19 - 25 = -9$ pcm/%void となりサイクル末期のボイド反応度係数負を実現できる見通しを得た。また、TRU 燃焼量は TRU 富化度低減により 0.46 t/GWe/年から 0.42 t/GWe/年となる見通しである。

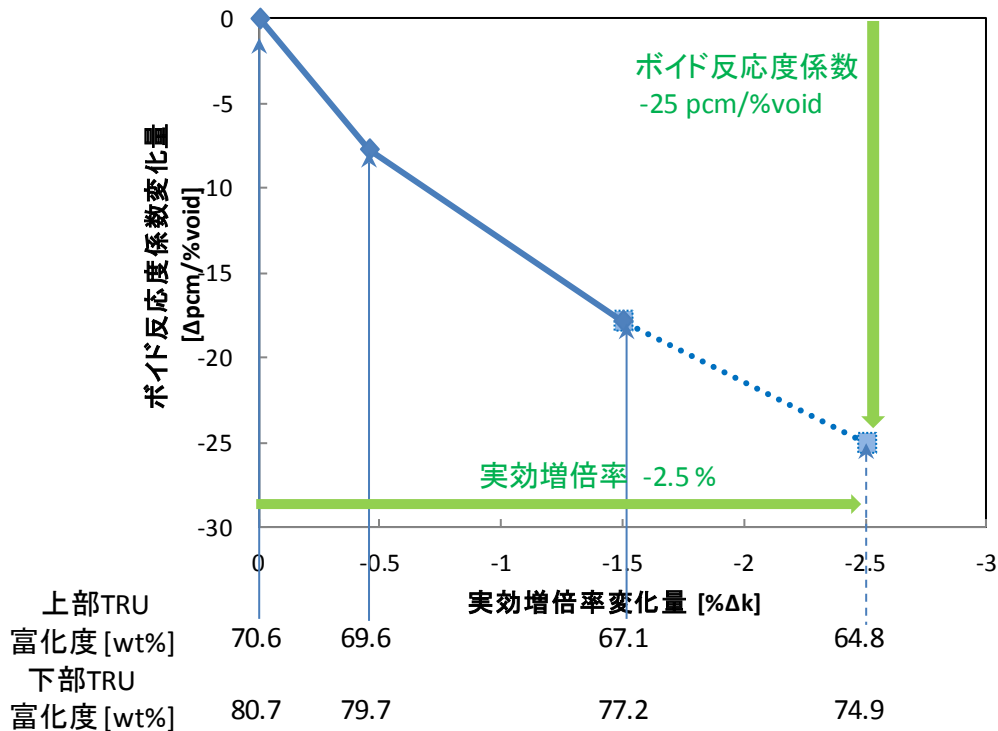


図 3.1.1-20 TRU 領域の富化度低減効果

参考文献

- (1) T. Hino, et al., “Core Designs of RBWR (Resource-renewable BWR) for Recycling and Transmutation of Transuranium Elements - an Overview,” Proc. ICAPP2014, Charlotte, North Carolina, April 6-9 (2014).

3.1.2 モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法の開発（再委託先：原子力機構）

近年、計算機の高速化や計算機資源の大容量化とともに、実機炉心に対する全炉心モンテカルロ計算が行われるようになりつつあるが、熱水力との連成計算のために更なる高速化が必要であり、断面積データやタリーデータのためのメモリ使用量を低減化する必要がある。本年度は、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮できるようにするため、現在の計算機リソース上で実現できる、断面積の温度依存性を考慮する既存の手法の調査及び適用性評価を行った。

(1) 手法調査 (H27)

① 従来手法

連続エネルギーモンテカルロコードで物質の温度依存性を考慮するためには、モンテカルロコード用断面積データの温度依存性を考慮する必要がある。炉心計算でよく用いられるモンテカルロコード用の断面積データ形式として、MCNP コード⁽¹⁾が採用している ACE 形式の断面積データが用いられることが多いが、温度依存性を考慮することになると、計算で必要となる全ての温度点について、ACE 形式の断面積データライブラリを予め用意しておく必要がある。ACE (A Compact Evaluated nuclear data file: MCNP コード向け核データファイル) 形式の断面積データライブラリは、通常、室温である 293 K か 300 K の 1 点で与えられていることが多く、それ以外の温度については、ユーザが自ら核データ処理コード NJOY⁽²⁾を用いて ACE 形式の断面積データライブラリを作成する必要がある。この手法を実機炉心解析に適用しようとする、温度依存断面積ライブラリを用意する手間と莫大なメモリ容量が必要となる。

原子力機構で開発された MVP コード⁽³⁾では、入力データにおいて物質または核種毎に温度を指定するだけで、温度依存断面積を考慮することができる。MVP コードでは、ユーザ入力データから計算で必要となる温度依存断面積を自動的に生成するが、モンテカルロ計算のランダムウォーク前に、計算で必要となる全ての温度点と核種に対する断面積データを用意するので、MCNP コードと同様に莫大なメモリ容量が必要となる。

本事業で対象としている RBWR 炉心⁽⁴⁾に対して、従来手法で温度依存性を考慮しようとする、どれくらいのメモリ容量が必要となるかを概算してみる。計算対象を RBWR 1/6 炉心とし、集合体が 129 体で燃料棒本数が 397 本/1 集合体であるとする。燃焼領域として軸方向に 34 分割することになると、全燃焼領域数は、 $397 \times 129 \times 34 = 1,741,242$ となる。MVP の断面積データサイズは、U-235 で約 7 MB、U-238 で約 12 MB であるので、1 温度点当たり 10 MB であるとする必要となるメモリ容量は、 $1,741,242 \times 10 \approx 17$ TB となる。このメモリ容量は断面積データのみを考慮した場合であり、実際には、出力分布を計算するために、これと同じぐらいの領域においてタリーを取る必要があり、タリーデータに対するメモリも必要になる。したがって、現在の計算機リソースで詳細な断面積温度依存性を考慮できる現実的な手法を開発する必要がある。

② 代替手法

前節における議論から分かるように、従来手法では現状 100 のオーダーの物質数を考

慮するのが限度であり、それ以上の物質数を考慮しようとするとなつた新たな手法を開発する必要がある。既にいくつかの手法が提案されており、それらを調査した結果を以下にまとめる。

1) フィッティング法

ミシガン大学の Yesilyurt らは、Adler-Adler 共鳴公式に基づいて、温度依存断面積を解析式で表現し、ランダムウォーク中 (on the fly) にこの解析式から任意温度の断面積を計算することを提案した⁽⁵⁾。解析式は次式で表現される。

$$\sigma(T) = \sum_{k=1}^n \frac{a_k}{T^{k/2}} + \sum_{k=1}^n b_k T^{k/2} + c \quad (3.1.2-1)$$

ここで、 T は温度で、 a_k 、 b_k 、 c はフィッティング係数、 k はフィッティングオーダーを表す。右辺第 1 項、第 2 項、第 3 項はそれぞれ、共鳴ピーク、共鳴ピークと共鳴の裾の中間、共鳴の裾を表現する項となっている。この手法は、1 温度点における断面積セットを用意しておけばよく、ランダムウォーク前にフィッティング係数を用意する。断面積の温度依存性を解析式で表現しているため、必要となるメモリ容量も小さく、計算コストも従来法と比べてあまり変わらない。計算精度についても、実効増倍率に対して、従来法と比べてよい精度で計算できることが示されている。本手法は、現在 MCNP コードでテストされており、将来 MCNP コードに標準的に取り込まれる可能性がある。欠点としては、熱中性子散乱データと非分離共鳴データに関する手法が開発されておらず、今後の検討課題となっている点である。

2) Serpent コードで採用されている手法

フィンランド技術研究センター (VTT) の Vittanen らは、Becker らが提案した確率論的ドップラー拡張法 (Stochastic Doppler Broadening Method) をランダムウォーク中に行うことを提案した⁽⁶⁾。更に、物質の温度が 0 K から T K まで変化したときに取り得る断面積の最大値 (majorant 断面積) と 0 K 断面積を比較した棄却サンプリング法 (rejection sampling technique) を用いている。この手法は、Serpent コードで採用されており、0 K における断面積ライブラリのみを用意しておけばよいという利点がある。一方、棄却サンプリング法は、棄却されるサンプリング値が多くなると、計算効率が悪くなるという欠点がある。また、majorant 断面積をサンプリング毎に用意しなければならず、そのための計算コストがかかる。Vittanen らのテスト計算によると、計算精度については、従来手法と変わらないが、計算時間については、従来手法の 2 倍から 4 倍程度かかることが示されている。また、フィッティング法と同様に、熱中性子散乱データと非分離共鳴データに関する手法が開発されておらず、今後の検討課題となっている。

3) MONK コードで採用されている手法

英国 Serco 社で開発されているモンテカルロ計算コード MONK も、“run-time Doppler broadening” と称して、ランダムウォーク中に任意温度断面積を生成する機

能を有している⁽⁷⁾。MONK コードの任意温度断面積生成機能では、分離共鳴断面積の他に、非分離共鳴断面積と熱中性子散乱データもランダムウォーク中に生成できるようになっている。分離共鳴断面積は、ガウス・エルミート求積法 (Gauss-Hermite quadrature) を用いて、ドップラー広がり を考慮した断面積を生成する。ドップラー広がり を考慮した断面積は次式で表現される。

$$\sigma(y, T) = \frac{1}{y^2} \sqrt{\frac{1}{\pi}} \int_0^{\infty} dx x^2 \sigma(x, 0) [e^{-(x-y)^2} - e^{-(x+y)^2}], \quad (3.1.2-2)$$

$$y = \sqrt{\beta} v, \quad (3.1.2-3)$$

$$x = \sqrt{\beta} v_r, \quad (3.1.2-4)$$

$$\beta = \frac{M}{2kT} \quad (3.1.2-5)$$

ここで、 $\sigma(y, T)$ は中性子速度 v に関するパラメータ y 、温度 T K における断面積、 $\sigma(x, 0)$ は標的核に対する中性子相対速度 v_r に関するパラメータ x 、温度 0 K における断面積である。また、 M は標的核質量、 k はボルツマン定数である。従来手法で用いられているカーネル拡張法 (kernel broadening method) では、 $\sigma(x, 0)$ が線形化されているとして、以下の積分式を正確に計算する。

$$H^n(a, b) = F^n(a) - F^n(b) \quad \text{for } n = 0, \dots, 4 \quad (3.1.2-6)$$

$$F^n(a) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^a z^n e^{-z^2} dz \quad (3.1.2-7)$$

一方、MONK が採用している手法は、ドップラー広がり を考慮した断面積をガウス・エルミート求積法で直接数値積分する。この手法は、カーネル拡張法に比べて計算が高速であるが、近似手法であるために、温度が室温から大きく離れたところでは、数値積分誤差が大きくなるようである。その場合には、温度点をいくつか区切って、ドップラー拡張を繰り返し、数値計算誤差を抑える必要があるようである。

MONK コードでは、非分離共鳴断面積も任意温度でランダムウォーク中に生成することができる。MONK コードでは、非分離共鳴断面積の取り扱いに、確率テーブル法ではなく、超詳細多群データを用いている⁽⁸⁾。MONK コードが用いている DICE ライブラリは、13, 193 群の断面積データである。非分離共鳴領域では、更に細かくエネルギー群を分割するサブグループ法を採用している。非分離共鳴領域における自己遮へい断面積は、バックグラウンド法を用いて、U-235、U-238、Pu-239 のみ考慮している。U-238 に対しては 10 barn のバックグラウンド断面積、U-235 と Pu-239 に対しては 100 barn のバックグラウンド断面積を決め打ちで与えている。また、無限希釈断面積と自己遮蔽断面積の 2 つのサブグループ断面積を用意し、その差が 1% 以内であれば、自己遮へい断面積を用いるという手法を採用している。上記のような多群形式であれば、ある決まった温度点でいくつかの断面積データを用意すれば、温度内挿は容易である。MONK コードでは、温度に対して対数-線形内挿によって温度内挿を行っている。

熱中性子散乱断面積についても温度内挿法を用いて、任意温度断面積を生成している。非分離共鳴断面積と同様、対数-線形内挿によって温度内挿を行っている。

4) 疑似物質法

ミシガン大学の Conlin らは、核熱結合で必要となる膨大な数の温度点に対する断面積データ容量を削減するために、疑似物質法(Pseudo Material Method)を提案した⁹⁾。この手法は、温度点 2 点の断面積データを用意し、その間の温度の断面積は、2 点の断面積データから確率的に表現するというものである。

図 3.1.2-1 は、疑似物質法における断面積の温度変化を示しており、温度 T_L と温度 T_H において断面積セットが用意されているものとする。温度 T_L における断面積 Σ_L と温度 T_H における断面積 Σ_H を用いて、それら温度間の断面積は次式で与えられるものとする。

$$\Sigma(T) = f\Sigma_L + (1-f)\Sigma_H \quad (3.1.2-8)$$

$$f = \frac{\sqrt{T_H} - \sqrt{T}}{\sqrt{T_H} - \sqrt{T_L}} \quad (3.1.2-9)$$

温度 T のとき f の確率で Σ_L を採用し、 $(1-f)$ の確率で Σ_H を採用すれば、平均値として $\Sigma(T)$ を使用していることになる。ただし、この手法では、温度 T_L と温度 T_H の間で、断面積が \sqrt{T} に比例すると仮定していることになる。Conlin らの論文では、共鳴積分の温度依存性に基づいて、断面積が \sqrt{T} に比例すると仮定したと思われるが、 \sqrt{T} でなくても適切な解析関数を仮定すれば本手法を適用することが可能である。例えば、図 3.1.2-2 のように断面積が温度 T に比例するとしてもよい。このとき、断面積 Σ_L を取る確率 f は(3.1.2-10)式のようになる。

$$f = \frac{T_H - T}{T_H - T_L} \quad (3.1.2-10)$$

本適用性評価においては、元々の疑似物質法で用いられていた、断面積が温度の平方根に比例する手法を疑似物質法 A とし、新たに提案する断面積が温度に比例する手法を疑似物質法 B として、2 つの疑似物質法の計算精度を評価する。

疑似物質法は、1 温度点だけの断面積データセットを用意しておけばよいという訳にはいかないが、いくつかの温度点について断面積データセットを用意すれば任意の温度点を指定して計算することができる。また、熱中性子散乱則 $S(\alpha, \beta)$ による熱中性子散乱データと非分離共鳴領域における断面積についても、同様に取り扱うことができるという利点がある。

疑似物質法は、モンテカルロ法による核計算と熱水力計算を結合した計算において、既に多くの使用実績がある⁽¹⁰⁻¹⁶⁾。

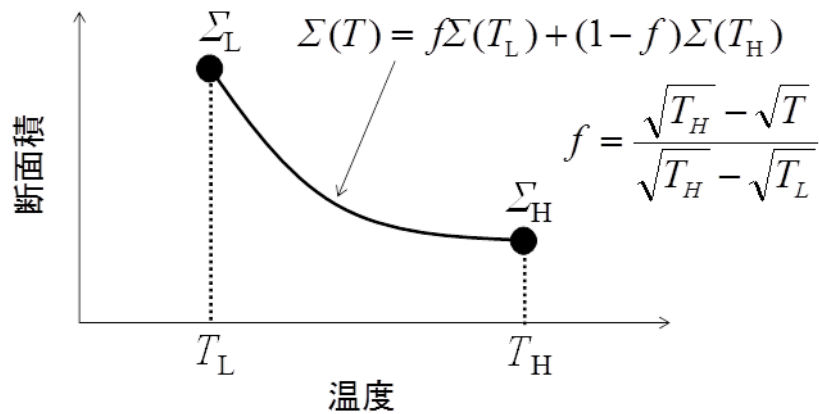


図 3.1.2-1 疑似物質法における断面積温度変化（温度の平方根に比例）

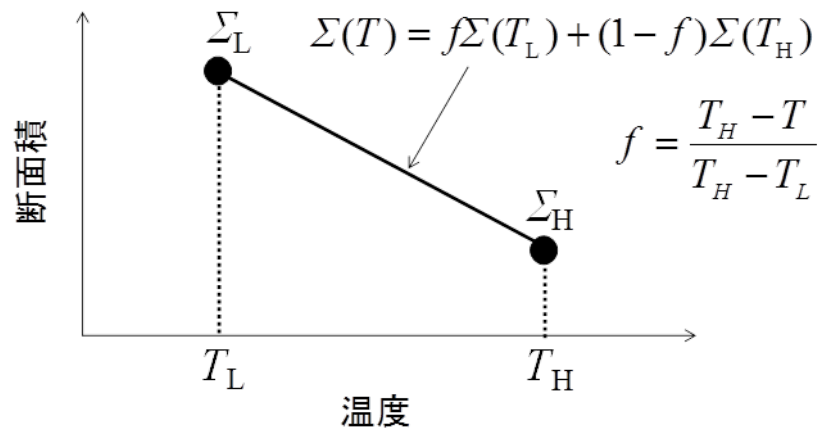


図 3.1.2-2 疑似物質法における断面積温度変化（温度に比例）

(2) MVP コードへの実装 (H28)

前項目(1)において断面積の温度依存性を考慮する既存の手法の調査を行ったところ、疑似物質法が最も有力な手法であることが分かった。本項目では、疑似物質法を連続エネルギーモンテカルロコード MVP に実装し、この手法の有効性を評価する。MVP の実装では、MVP の計算オプション“PSEUDO-MATERIAL”と温度入力パラメータ“TEMPPM”で簡単に疑似物質法の計算ができるようにした。図 3.1.2-3 は、疑似物質法を用いる場合の入力例である。“PSEUDO-MATERIAL”は、MVP のオプション入力部に指定する。“TEMPPM”は、各物質毎に指定する。これを指定せずに、“TEMPMT”が指定されていれば、通常の MVP の任意温度断面積が使用され、“TEMPPM”も“TEMPMT”も指定されていなければ、MVP の固定温度断面積が使用される。核種 ID の指定は、“U023400700”のようにになっているが、コード内では、疑似物質下限温度として“U023400600”が用いられ、疑似物質上限温度として“U023400900”が用いられることになる。すなわち、核種 ID の 1 から 6 文字目“U02340”のみ意味があり、実際にはそれ以降の文字は何でもよい。

```

NO-RESTART
FISSION  EIGEN-VALUE
PSEUDO-MATERIAL ← 疑似物質法を用いるオプション
...
& IDMAT(1) /* 3.9% FUEL
TEMPPM(600.0 700.0 900.0)
U023400700 (7.31651E-6)
U023500700 (9.10661E-4)
U023800700 (2.21490E-2)
0001600700 (4.61339E-2)

```

疑似物質法で使用する温度

600.0: $T_L = 600$ K (疑似物質下限温度)

700.0: T (物質の温度)

800.0: $T_H = 900$ K (疑似物質上限温度)

図 3.1.2-3 MVP コードで疑似物質法を用いるための入力データ

疑似物質法でユーザが用意しておかなければならない MVP の断面積データは固定温度断面積データである。(固定温度断面積データは I/O ユニット 25 番で指定される断面積データである。) 上記の例の場合、疑似物質下限温度の固定温度断面積データ “U023400600” と疑似物質上限温度の固定温度断面積データ “U023400900” が I/O ユニット 25 番から入力されるインデックスファイル “neutron.index” に指定されていなければならない。

(3) 手法評価 (H28)

① Mosteller ベンチマーク

疑似物質法の精度を検証するために、LANL (Los Alamos National Laboratory : ロスアラモス国立研究所) によって提案されたドップラー反応度価値ベンチマーク問題⁽¹⁷⁾の軽水炉ピンセル体系に対して疑似物質法を適用する。ベンチマーク問題では、UO₂ 燃料、原子炉リサイクル Pu を含む MOX 燃料、兵器級 Pu を含む MOX 燃料の 3 種類のベンチマークが提案されているが、ここでは UO₂ 燃料体系を取り扱う。また、濃縮度もいくつか提案されているが、濃縮度 3.9% のものを採用する。

燃料体系は燃料ペレット、被覆管、ボロンを含む軽水から構成されており、燃料ペレットと被覆管の間にはギャップが存在する。燃料ペレット半径は 0.39398 cm、被覆管内径は 0.40226 cm、被覆管外径は 0.45972 cm、ピンピッチは 1.26678 cm である。低温零出力 (H2P) の温度は全ての領域で 600 K、高温フル出力 (H2F) の温度は燃料温度だけが 900 K になるとしている。ベンチマーク問題では、被覆管の膨張効果も考慮されているが、ここでは燃料温度によるドップラー効果のみの影響を調べるため、燃料温度のみを 600 K から 900 K まで 100 K 毎に変化させ、従来手法と疑似物質法で実効増倍率を計算する。

参照解となる従来手法では、MVP コードの物質指定において、TEMPMT パラメータを用いて温度を指定し、実効増倍率を計算した。疑似物質法では、MVP-ART コードを用いて、

まず 600 K と 900 K の固定温度断面積データを作成した。その後、疑似物質法を用いる MVP の入力データでは、オプション部で “PSEUDO-MATERIAL” を指定し、燃料物質の定義において疑似物質法温度入力パラメータ “TEMPPM(600.0 <TFUEL> 900.0)” と指定した。

図 3.1.2-4 は Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A (オリジナルの疑似物質法=温度の平方根に比例) で計算した実効増倍率の比較したものである。また、表 3.1.2-1 に実効増倍率の差を反応度差として比較した値を示す。600 K と 900 K については、断面積データが用意されている温度点であり、700 K と 800 K が疑似物質法の精度を比較する温度点である。どちらも 41 pcm 以内の精度で従来手法と一致することが分かる。この検証計算では、300 K の温度幅で固定温度断面積データを用意したが、疑似物質法を用いた場合においても 40 pcm 程度の差異で実効増倍率を再現できる。

図 3.1.2-5 は Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B (疑似物質法=温度に比例) で計算した実効増倍率の比較したものである。また、表 3.1.2-2 に実効増倍率の差を反応度差として比較した値を示す。600 K と 900 K については、断面積データが用意されている温度点であり、疑似物質法 A と同じである。700 K と 800 K では、どちらも 30 pcm 以内の精度で従来手法と一致し、疑似物質法 A よりも若干計算精度がよいことが分かる。

疑似物質法は、実効増倍率だけでなく、微視的反応率を介して燃焼計算にも影響を与える。そこで、ピンセル体系において微視的反応率に対する疑似物質法の適用性についても調べた。

疑似物質法を用いて計算したときの微視的反応率は 1 つの核種に対して 2 つの微視的反応率が計算されることになる。例えば、本ベンチマーク計算で U-235 の核分裂反応率に対する微視的反応率を計算した場合、700 K での U-235 核分裂反応率を計算するのであるが、疑似物質法を用いた場合 600 K と 900 K での U-235 核分裂反応率が計算されることになる。この微視的反応率を用いて燃焼計算をする場合は、700 K の U-235 核分裂反応率 1 つで表現する必要がある。これは、微視的反応率から巨視的断面積を計算する場合と同様に、核種数密度を重みにして平均化することが妥当である。すなわち、

$$R = \frac{\int_V \sigma_L N_L \phi dV + \int_V \sigma_H N_H \phi dV}{(N_L + N_H)V} \quad (3.1.2-11)$$

として計算する。ここで、 R は温度 T K における微視的反応率、 σ_L と σ_H はそれぞれ疑似物質下限と上限温度の微視的断面積、 N_L と N_H はそれぞれ疑似物質下限と上限温度の核種に対する数密度、 V はタリー領域である。 N_L と N_H は、(3.1.2-9)式と(3.1.2-10)式で定義される f を使って以下のように表すことができる。

$$N_L = fN, \quad (3.1.2-12)$$

$$N_H = (1-f)N \quad (3.1.2-13)$$

ここで、 N は温度 T K における核種数密度である。(3.1.2-12)式と(3.1.2-13)式を(3.1.2-11)式に代入すると

$$R = \frac{1}{V} \left[f \int_V \sigma_L \phi dV + (1-f) \int_V \sigma_H \phi dV \right] \quad (3.1.2-14)$$

$$= fR_L + (1 - f)R_H$$

となる。ここで、

$$R_L = \frac{1}{V} \int_V \sigma_L \phi dV, \quad (3.1.2-15)$$

$$R_H = \frac{1}{V} \int_V \sigma_H \phi dV \quad (3.1.2-16)$$

と定義した。(3.1.2-15)式と(3.1.2-16)式はそれぞれ疑似物質下限と上限温度の微視的
反応率を表している。結局、温度割合 f を重みとして疑似物質下限と上限温度の微視的
反応率を平均化してやればよいことになる。MVP の微視的反応率の出力では、(3.1.2-
15)式と(3.1.2-16)式のような形で出力しておらず、核種数密度がかけられた形式で出
力されている。すなわち、

$$N_L R_L = \frac{1}{V} \int_V \sigma_L N_L \phi dV, \quad (3.1.2-17)$$

$$N_H R_H = \frac{1}{V} \int_V \sigma_H N_H \phi dV \quad (3.1.2-18)$$

の値が出力されている。よって、(3.1.2-11)式を用いて、(3.1.2-17)式と(3.1.2-18)式
で単純に和を取り、その値を NV で割るだけでよいことになる。

以上に示した方法で、疑似物質法による U-235 核分裂反応率と U-238 捕獲反応率を計
算し、従来の手法による反応率 (700 K の断面積を用いた参照解) を比較した。図
3.1.2-6 は疑似物質法 A を用いて U-235 核分裂反応率を計算したときの参照解との比較
である。表 3.1.2-3 は図 3.1.2-6 の数値と疑似物質法 A と参照解の相対差を示している。
800 K のときに 1 標準偏差を超える差異がみられるが、相対差は -0.07% と非常に小さい
差であり、2 標準偏差の範囲内では一致している。図 3.1.2-7 は疑似物質法 B を用いて
U-235 核分裂反応率を計算したときの参照解との比較である。表 3.1.2-4 は図 3.1.2-7
の数値と疑似物質法 B と参照解の相対差を示している。疑似物質法 B の結果は、700 K
と 800 K どちらの場合も 1 標準偏差の統計誤差の範囲内で一致しており、相対差も疑似
物質法 A の結果よりもよいことが分かる。

図 3.1.2-8 は疑似物質法 A を用いて U-238 捕獲反応率を計算したときの参照解との比
較である。表 3.1.2-5 は図 3.1.2-8 の数値と疑似物質法 A と参照解の相対差を示してい
る。U-238 捕獲反応率の場合も、800 K のときに 1 標準偏差を超える差異がみられるが、
相対差は 0.11% と非常に小さい差であり、2 標準偏差の範囲内では一致している。図
3.1.2-9 は疑似物質法 B を用いて U-238 捕獲反応率を計算したときの参照解との比較で
ある。表 3.1.2-6 は図 3.1.2-9 の数値と疑似物質法 B と参照解の相対差を示している。
U-238 捕獲反応率の場合は、疑似物質法 B は疑似物質法 A とほとんど変わらない結果が
得られることが分かった。

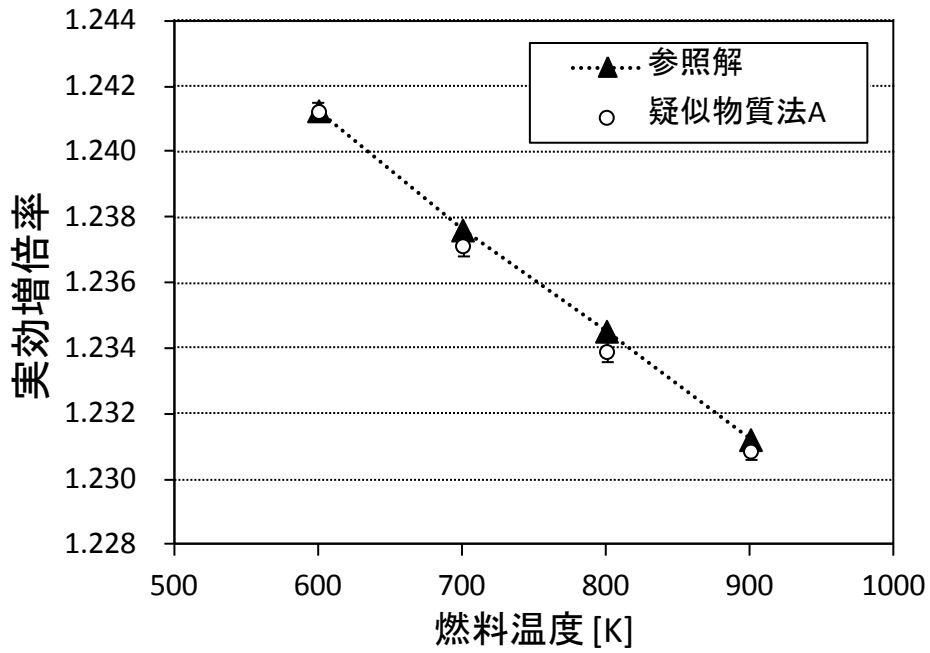


図 3.1.2-4 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較

表 3.1.2-1 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の反応度差

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 A)	反応度差 [pcm]
600	1.24126 (14)	1.24124 (14)	1 (13)
700	1.23762 (14)	1.23714 (14)	31 (13)
800	1.23453 (14)	1.23391 (14)	41 (13)
900	1.23122 (14)	1.23087 (14)	23 (13)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.24126 (14) は、 1.24126 ± 0.00014 を表す。

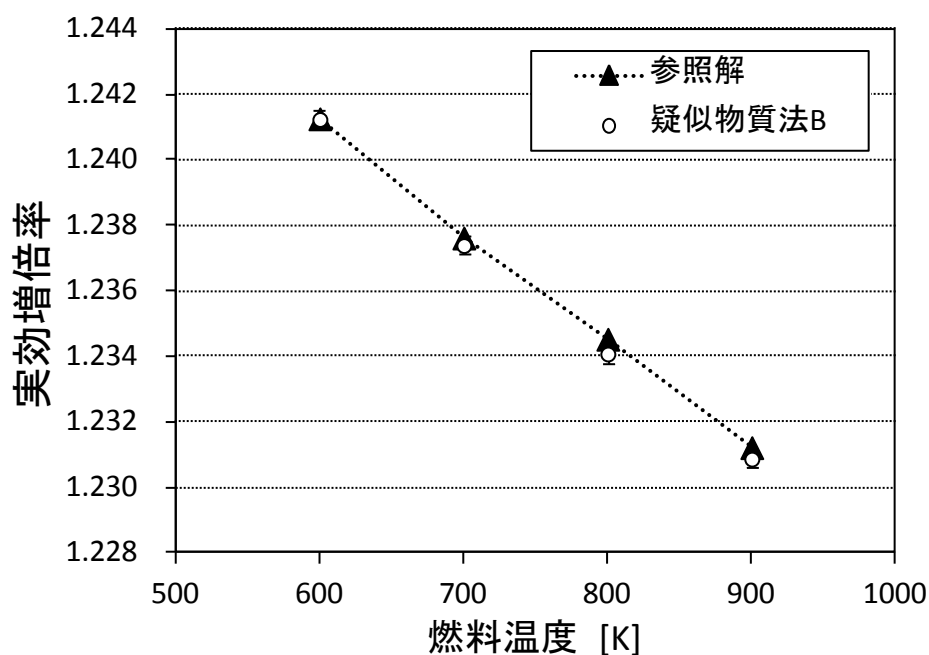


図 3.1.2-5 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較

表 3.1.2-2 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の反応度差

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 B)	反応度差 [pcm]
600	1.24126 (14)	1.24124 (14)	1 (13)
700	1.23762 (14)	1.23739 (13)	15 (13)
800	1.23453 (14)	1.23408 (14)	30 (13)
900	1.23122 (14)	1.23087 (14)	23 (13)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.24126 (14) は、 1.24126 ± 0.00014 を表す。

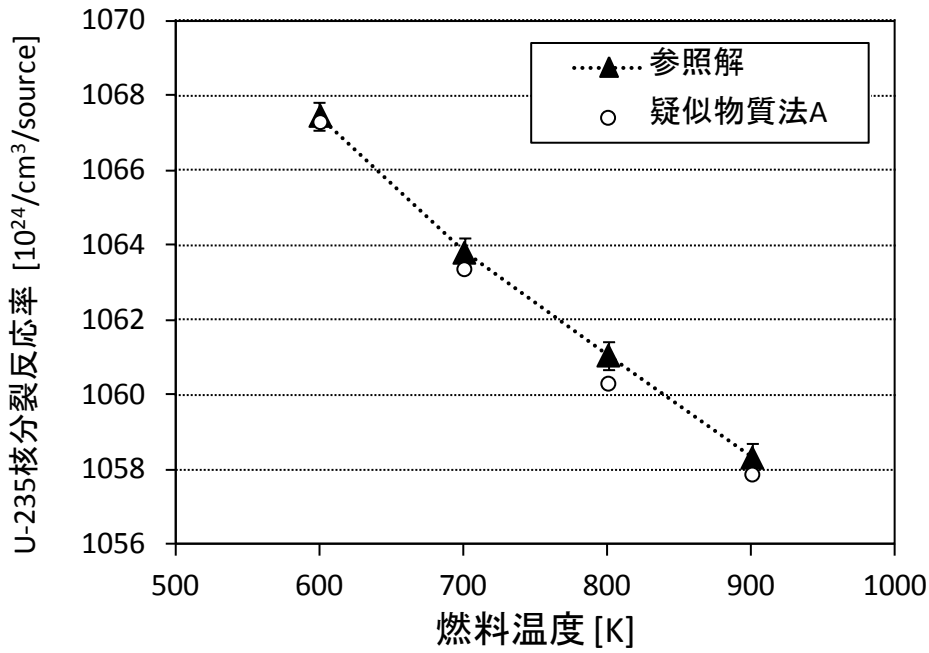


図 3.1.2-6 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-235 核分裂反応率の比較

表 3.1.2-3 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-235 核分裂反応率の差

燃料温度 (K)	U-235 核分裂反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (従来手法)	U-235 核分裂反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (疑似物質法 A)	相対差= (疑似物質法-従来法) /従来法 [%]
600	1067.5(4)	1067.3(4)	-0.02
700	1063.8(4)	1063.4(3)	-0.04
800	1061.1(4)	1060.3(3)	-0.07
900	1058.3(4)	1057.9(4)	-0.04

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1067.5(4)は、1067.5±0.4を表す。

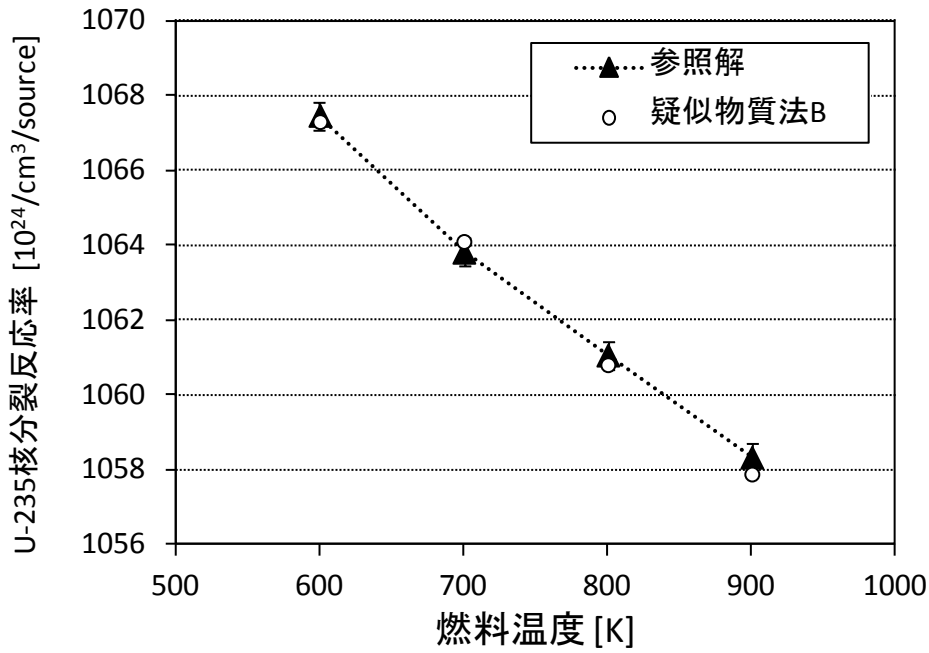


図 3. 1. 2-7 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-235 核分裂反応率の比較

表 3. 1. 2-4 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-235 核分裂反応率の差

燃料温度 (K)	U-235 核分裂反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (従来手法)	U-235 核分裂反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (疑似物質法 B)	相対差= (疑似物質法-従来法) /従来法 [%]
600	1067. 5 (4)	1067. 3 (4)	-0. 02
700	1063. 8 (4)	1064. 1 (3)	0. 03
800	1061. 1 (4)	1060. 8 (3)	-0. 02
900	1058. 3 (4)	1057. 9 (4)	-0. 04

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1067. 5(4)は、1067. 5±0. 4 を表す。

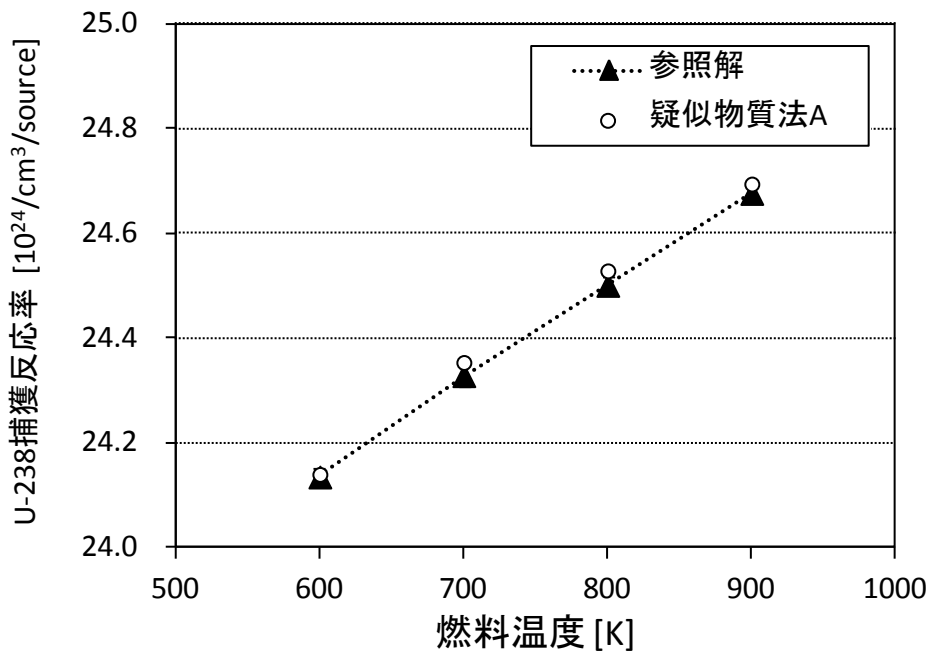


図 3.1.2-8 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-238 捕獲反応率の比較

表 3.1.2-5 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した U-238 捕獲反応率の差

燃料温度 (K)	U-238 捕獲反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (従来手法)	U-238 捕獲反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (疑似物質法 A)	相対差= (疑似物質法-従来法) /従来法 [%]
600	24.14(1)	24.14(1)	0.02
700	24.33(1)	24.35(1)	0.10
800	24.50(1)	24.53(1)	0.11
900	24.68(1)	24.69(1)	0.07

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。24.14(1)は、24.14±0.01 を表す。

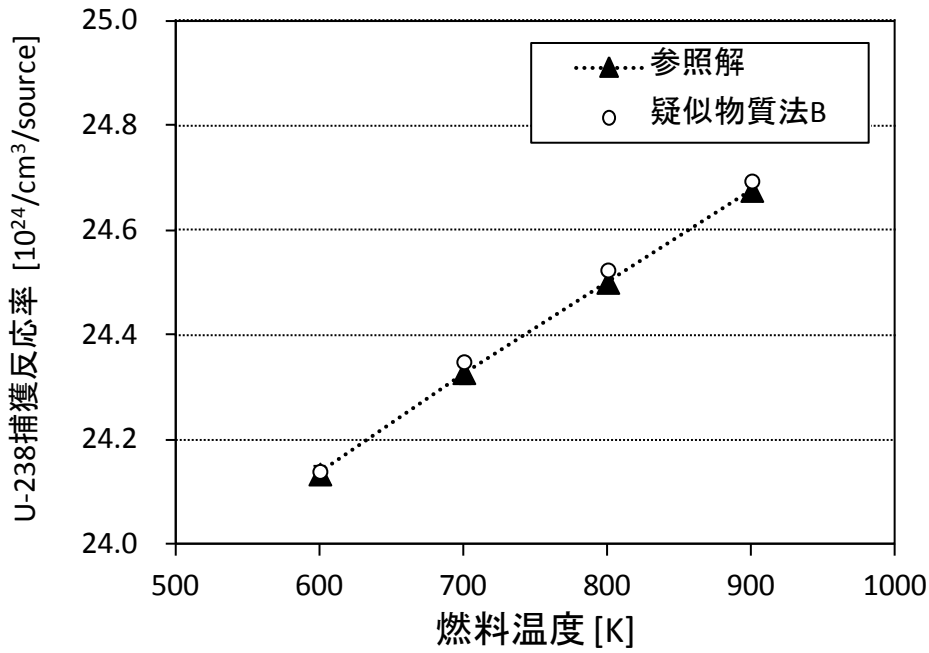


図 3.1.2-9 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-238 捕獲反応率の比較

表 3.1.2-6 Mosteller ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した U-238 捕獲反応率の差

燃料温度 (K)	U-238 捕獲反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (従来手法)	U-238 捕獲反応率 [10 ²⁴ /cm ³ /source] (疑似物質法 B)	相対差= (疑似物質法-従来法) /従来法 [%]
600	24.14(1)	24.14(1)	0.02
700	24.33(1)	24.35(1)	0.09
800	24.50(1)	24.53(1)	0.10
900	24.68(1)	24.69(1)	0.07

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。24.14(1)は、24.14±0.01 を表す。

②次世代軽水炉燃料ベンチマーク

前項目では、標準的な軽水炉のピンセル体系と標準的な原子炉の運転条件に対し、300 K の温度幅で断面積データを用意した場合について精度を評価した。また、燃料温度のみを変化させただけであった。本項目では、範囲を広げて疑似物質法の精度を検証するために、次世代軽水炉燃料ベンチマーク問題⁽¹⁸⁾のピンセル体系に対する実効増倍率を計算する。このベンチマーク問題では、ドップラー反応度値を計算するために、燃料温度を 1,800 K まで上昇させ、低温状態で減速材温度も変化させるように設定されており、幅広い精度検証が可能である。更に、高温状態の BWR ボイド率 70%相当の状態についての問題が設定されており、RBWR で想定しているようなスペクトルが硬い体系についての検証も行うことができる。

本ベンチマーク問題も UO₂ 燃料、MOX 燃料のものがあるが、UO₂ 燃料のピンセル体系に限って検証を行うこととした。UO₂ ピンセル体系は、燃料ペレット、被覆管、水の 3 領域で構成される。燃料ペレットの直径は 0.832 cm、被覆管外径は 0.952 cm、ピンピッチは 1.265 cm である。燃料ペレットと被覆管の間のギャップはスミアされて簡略化されている。被覆管は天然 Zr で、温度変化による原子数密度変化はないと仮定している。各領域の温度設定は、表 3.1.2-7 のようになっている。高温状態については、ボイド率 0%、BWR ボイド率 40%、BWR ボイド率 70%の状態の問題が設定されている。

表 3.1.2-7 UO₂ ピンセル体系問題における温度設定

領域	計算条件	温度
燃料ペレット	ドップラー	1,800 K
	高温状態	900 K
	低温状態	300 K
被覆管と水	ドップラー	600 K
	高温状態	600 K
	低温状態	300 K

本来のベンチマーク問題では、低温状態、高温状態、ドップラーの 3 点のみで温度が設定されており、その間の状態については規定されていない。そこで本解析では、燃料ペレット領域の温度 T_f をパラメータとし、被覆管と水の温度 T_m は、燃料ペレット温度に応じて以下のように変化すると仮定した。

$$T_m(T_f) = \begin{cases} \frac{1}{2}(T_f - 300) + 300 & \text{for } 300 \leq T_f \leq 600 \\ 600 & \text{for } T_f > 600 \end{cases} \quad (3.1.2-11)$$

燃料ペレット温度が線形に変化するとともに、被覆管と水の温度も線形に変化している。

まず、高温状態でボイド率 0%である体系について、実効増倍率の計算を行った。温度点については、ベンチマーク問題で設定された通りの燃料ペレットの温度点 (300 K、

900 K、1,800 K) と、燃料ペレットの温度が 600 K、1,200 K、1,500 K となる状態で計算を行った。従来手法については、TEMPMT パラメータで温度を入力データで指定して計算した。疑似物質法で用意する断面積データの温度点は、燃料ペレット核種に対して 300 K、900 K、1,800 K とし、被覆管と水の核種に対して 300 K、600 K とし、前もって MVP-ART コードで用意しておき、Mosteller ベンチマーク体系と同様、“PSEUDO-MATERIAL” オプションを指定し、各物質の指定毎に“TEMPPM”パラメータで疑似物質下限温度と物質温度と疑似物質上限温度を指定し、実効増倍率を計算した。

図 3.1.2-10 は、ボイド率 0%の次世代軽水炉ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較したものである。また、表 3.1.2-8 に実効増倍率の差を反応度差として比較した値を示す。燃料温度が 300 K、900 K、1,800 K の結果については、予め MVP-ART コードで断面積データを用意した温度点であり、統計誤差の範囲内で一致する。600 K、1,200 K、1,500 K については、断面積データが用意されていない温度点であり、これらの結果が疑似物質法の精度を表している。表 3.1.2-8 から分かるように、これらの温度点における反応度差は、100 pcm を超える差となっており、Mosteller ベンチマークの結果と比べると大きな差異となっている。これは、燃料ペレット領域で用意する断面積データの温度点間を、600 K と 900 K と大きくしたことが原因である。

図 3.1.2-11 はボイド率 0%の次世代軽水炉ベンチマーク体系に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較したものである。表 3.1.2-9 に実効増倍率の差を反応度差として比較した値を示す。燃料温度が 600 K のときの反応度差は 113 pcm であるが、燃料温度が 900 K、1,800 K の結果については反応度差がそれぞれ 70 pcm と 60 pcm となっており、疑似物質法 B を用いた場合は、断面積データ温度区間を 600 K と大きくしてもほぼ 100 pcm 程度の差で実効増倍率を計算できることが分かる。

高温状態でボイド率が 70%相当になった場合の体系についても、疑似物質法の計算精度を調べた。疑似物質法で予め用意する断面積データの温度点は、0%ボイドのケースと同様に 300 K、900 K、1,800 K とした。図 3.1.2-12 に従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較、表 3.1.2-10 に図 3.1.2-12 の実効増倍率の反応度差として比較した結果を示す。また、図 3.1.2-13 に従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較、表 3.1.2-11 に図 3.1.2-13 の実効増倍率の反応度差として比較した結果を示す。疑似物質法 A を用いた場合の反応度差は、600 K、1200 K、1500 K 全ての温度点において 100 pcm を超えているが、疑似物質法 B を用いた場合の反応度差は、100 pcm 以下となり、反応度差は約半分ぐらいに減少する。

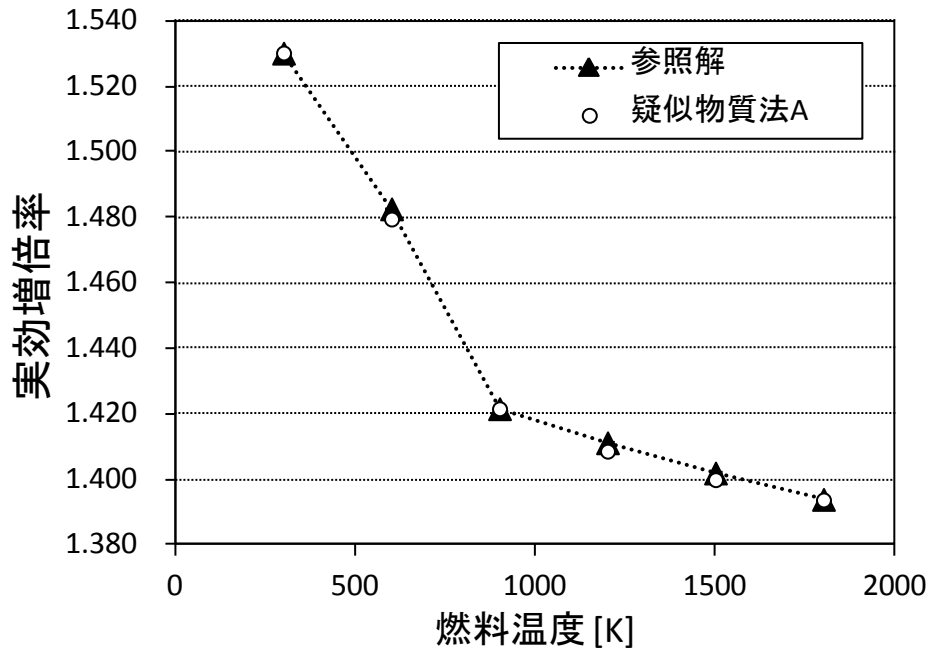


図 3.1.2-10 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

表 3.1.2-8 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 A)	反応度差 [pcm]
300	1.53021 (15)	1.53027 (15)	3 (9)
600	1.48266 (16)	1.47956 (15)	141 (10)
900	1.42164 (17)	1.42164 (17)	0 (12)
1200	1.41124 (17)	1.40868 (16)	129 (12)
1500	1.40201 (17)	1.39998 (17)	103 (12)
1800	1.39396 (18)	1.39379 (17)	9 (13)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.53021 (15) は、 1.53021 ± 0.00015 を表す。

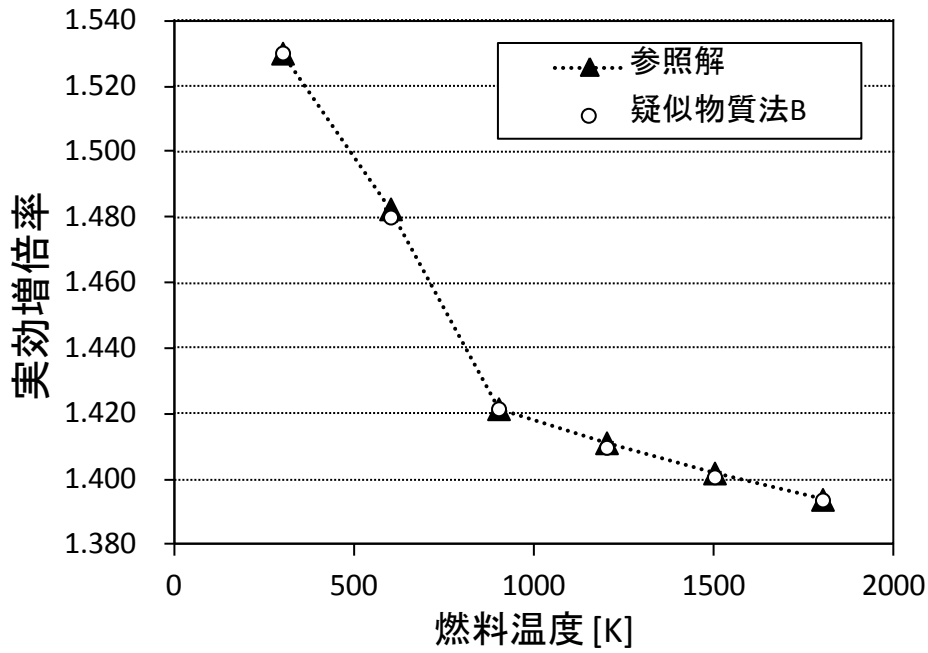


図 3.1.2-11 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

表 3.1.2-9 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 0%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 B)	反応度差 [pcm]
300	1.53021 (15)	1.53027 (15)	3 (9)
600	1.48266 (16)	1.48017 (16)	113 (10)
900	1.42164 (17)	1.42164 (17)	0 (12)
1200	1.41124 (17)	1.40985 (17)	70 (12)
1500	1.40201 (17)	1.40084 (17)	60 (12)
1800	1.39396 (18)	1.39379 (17)	9 (13)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.53021 (15) は、 1.53021 ± 0.00015 を表す。

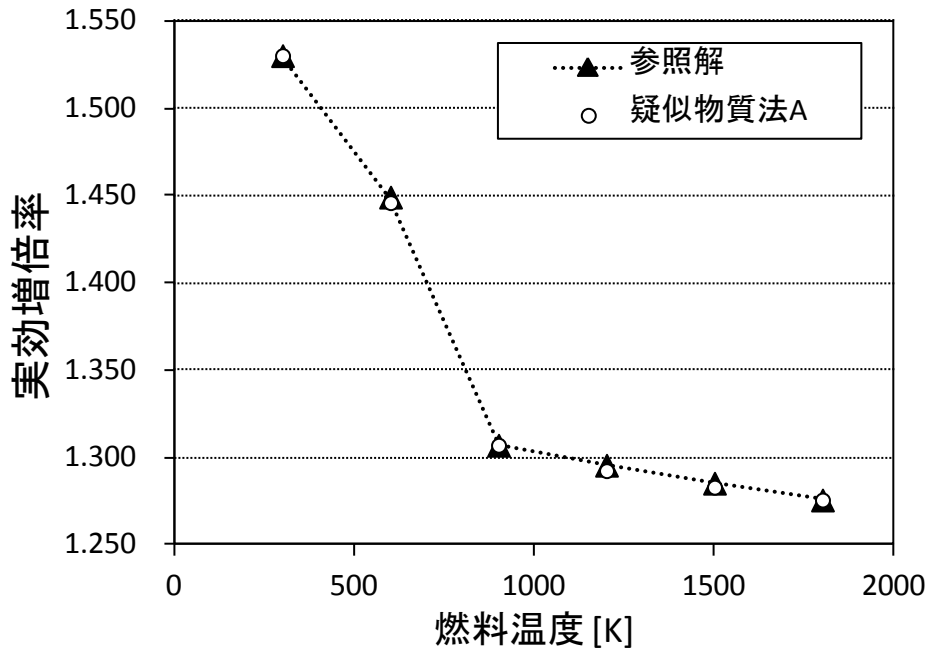


図 3.1.2-12 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

表 3.1.2-10 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 A で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 A)	反応度差 [pcm]
300	1.53021 (15)	1.53021 (15)	0 (9)
600	1.44922 (16)	1.44605 (16)	151 (11)
900	1.30717 (16)	1.30717 (16)	0 (14)
1200	1.29573 (18)	1.29262 (17)	186 (15)
1500	1.28544 (17)	1.28315 (17)	139 (15)
1800	1.27581 (17)	1.27581 (17)	0 (15)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.53021 (15) は、 1.53021 ± 0.00015 を表す。

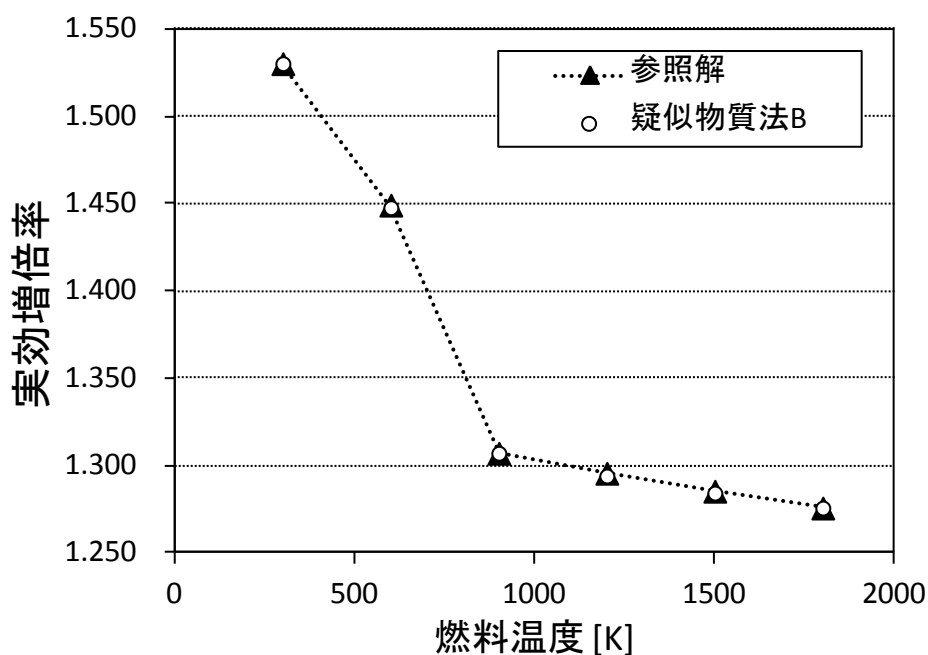


図 3.1.2-13 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の比較（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

表 3.1.2-11 次世代軽水炉ベンチマーク体系（ボイド率 70%）に対して従来手法と疑似物質法 B で計算した実効増倍率の反応度差（疑似物質法で断面積データを用意した燃料温度点：300 K、900 K、1,800 K）

燃料温度 (K)	実効増倍率 (従来手法)	実効増倍率 (疑似物質法 B)	反応度差 [pcm]
300	1.53021 (15)	1.53021 (15)	0 (9)
600	1.44922 (16)	1.44774 (16)	71 (11)
900	1.30717 (16)	1.30717 (16)	0 (14)
1200	1.29573 (18)	1.29415 (18)	94 (15)
1500	1.28544 (17)	1.28438 (17)	64 (15)
1800	1.27581 (17)	1.27581 (17)	0 (15)

*括弧内の値は、1 標準偏差の誤差を表す。1.53021 (15) は、1.53021 ± 0.00015 を表す。

(4)まとめ (H28)

モンテカルロ法による解析において、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮できるようにするため、現在の計算機リソース上で実現できる、断面積の温度依存性を考慮する既存の手法を調査した。その結果、MCNP コードで採用予定であるフィッティング法や Serpent コードで採用されている確率論的ドップラー拡張法と棄却サンプリング法を組み合わせた手法は、1 温度点における断面積データセットを用意するだけで任意の温度点における計算が可能となるが、熱中性子散乱データや非分離共鳴領域断面積についてはまだ未対応であり、実機炉心への適用は難しいことが判明した。また、MONK コードで採用されている手法は、分離共鳴断面積のドップラー拡張にガウス・エルミート求積法を用い、熱中性子散乱データと非分離共鳴領域断面積については、予め決められた温度点でデータを用意しておき、温度に対して対数-線形内挿によって温度内挿を行う手法である。しかし、非分離共鳴断面積は超詳細多群データとして取り扱っており、確率テーブル法を用いているモンテカルロコードへの実装は、断面積表現形式から変更する必要があるため、困難であることが判明した。

一方、疑似物質法は、いくつかの温度点における断面積データセットを用意するだけで、熱中性子散乱データや非分離共鳴領域断面積を含む、任意温度の断面積データセットを用意することができ、実機炉心への適用可能性があることが分かった。疑似物質法の適用性を評価するため、2 種類の疑似物質法を MVP コードに実装した。疑似物質法の 1 つは断面積が温度の平方根に比例すると仮定するオリジナルの疑似物質法（疑似物質法 A）であり、疑似物質法の 1 つは断面積が温度に比例すると仮定する新しい疑似物質法（疑似物質法 B）である。

適用性評価として、軽水炉ピンセル体系に対する Mosteller ベンチマーク問題と次世代軽水炉ピンセル体系において 2 種類の疑似物質法を適用し、それらの計算精度を比較した。Mosteller ベンチマーク問題の計算結果では、断面積データを用意する温度点の幅は 300 K であり、疑似物質法 A でも疑似物質法 B でも 100 pcm 以内の反応度差で参照解の実効増倍率を再現できることが分かった。また、疑似物質法 B の方が、疑似物質法 A よりも計算精度が若干良いことも分かった。更に、疑似物質法の燃焼計算への影響を調べるために、代表的な微視的反応率である U-235 核分裂反応率と U-238 捕獲反応率に対しても、従来手法（参照解）と疑似物質法でどの程度の差異が生じるかを調べた。その結果、疑似物質法 A と疑似物質法 B とも 0.1%程度の相対差以内で、参照解を再現できることが分かった。

次世代軽水炉ピンセル体系では、断面積を用意する温度点を 300 K、900 K、1,800 K とし、温度点幅を大きくしたケースに対して適用性を評価した。その結果、実効増倍率について、疑似物質法 A は参照解と比較して 100 pcm を超える反応度差を生じたが、疑似物質法 B ではほぼ 100 pcm 以内の反応度差で参照解を再現できることが分かった。

参考文献

- (1) X-5 Monte Carlo Team, “MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5,” LA-UR-03-1987 (2003).

- (2) A. C. Kahler (Ed), “The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 2012,” LA-UR-12-27079 (2012).
- (3) Y. Nagaya, et al., “MVP/GMVP II : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods,” JAERI 1348 (2005).
- (4) T. Hino, et al., “Core Designs of RBWR (Resource-renewable BWR) for Recycling and Transmutation of Transuranium Elements - an Overview,” Proc. of ICAPP 2014, Paper 14271 (2014).
- (5) G. Yesilyurt, W. R. Martin and F. B. Brown, “On-the-Fly Doppler Broadening for Monte Carlo Codes,” Nucl. Sci. Eng., 171, pp.239-257 (2012).
- (6) T. Viitanen and J. Leppänen, “Explicit Treatment of Thermal Motion in Continuous-Energy Monte Carlo Tracking Routines,” Nucl. Sci. Eng., 171, pp.165-173 (2012).
- (7) C. Dean, et al., “Validation of Run-time Doppler Broadening in MONK with JEFF3.1,” J. Korean Phys. Soc., 59, pp.1162-1165 (2011).
- (8) K. N. Vignitchouk, “Generating a new BING pre-processor library,” a dissertation submitted to the Department of Physics, University of Surrey, UK (2008).
- (9) J. L. Conlin et al., “Pseudo Material Construct for Coupled Neutronic-Thermal-Hydraulic Analysis of VHTGR,” Tran. Am. Nucl. Soc., 92, pp.225-227 (2005).
- (10) C. L. Waata, “Coupled Neutronics/Thermal-hydraulics Analysis of a High-Performance Light-Water Reactor Fuel Assmbly,” FXKA 7233 (2006).
- (11) V. Sanchez, et al., “Development of a coupling scheme between MCNP and COBRA-TF for the prediction of the pin power of a PWR fuel assembly,” Proc. M&C 2009, Saratoga Springs, New York, USA (2009).
- (12) J. Shan, et al., “Coupled neutronics/thermal-hydraulics analysis of CANDU-SCWR fuel channel,” Ann. Nucl. Energy, 37, 58, (2010).
- (13) J. E. Hoogenboom, “A Flexible Coupling Scheme for Monte Carlo and Thermal-hydraulics Codes,” Proc. M&C 2011, (2011).
- (14) A. Ivanov, et al., Proc. M&C 2011, (2011); Nucl. Eng. Des., 262, 264 (2013); Ann. Nucl. Energy, 66, 104 (2014).
- (15) D. Kotlyar, et al., “Coupled neutronic thermo-hydraulic analysis of full PWR core with Monte-Carlo based BGCore system,” Nucl. Eng. Des., 241 3777 (2011).
- (16) M. Vazquez, et al., “Coupled neutronics thermal-hydraulics analysis using Monte Carlo and sub-channel codes,” Nucl. Eng. Des., 250, 403 (2012).
- (17) R. D. Mosteller, “Computational Benchmarks for the Doppler Reactivity Defect,” LA-UR-06-2968 (2006).
- (18) 炉物理研究委員会, “軽水炉次世代燃料の炉物理に関するベンチマーク問題の提案及び解析結果,” JAERI-Research 2001-046 (2001).

3.2 ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

現行 BWR の燃料被覆管に用いられるジルカロイ 2 では、燃焼度約 40 GWd/t 付近からの水素含有量の急激な増加が報告されている⁽¹⁾。40 GWd/t 付近からの水素含有量の増加は、それより低い燃焼度とは別のミクロ的要因により、燃料被覆管への水素蓄積が発生すると考えられる。40 GWd/t 以上の燃焼度では、水素含有量が燃焼度とともに増加し、最大で数 100 ppm にも達する。固溶限以上の水素を含有した燃料被覆管では、水素化物が多数形成し、これにより脆性破壊が誘起されることが懸念される（図 3.2-1⁽²⁾）。一方、RBWR の燃焼度は、図 3.2-2 で示した軸方向出力分布に相当する 65 GWd/t (燃料被覆管の照射損傷量：23.4 dpa)、局所的には 100 GWd/t 以上 (燃料被覆管の照射損傷量：36.0 dpa 以上) と見込まれる。よって、水素含有量の増加にともなう水素脆化発生の有無は、炉の実現のため、特に検討すべき重要な課題である。このため、現行 BWR で得られた水素含有量のデータ⁽¹⁾をもとに、ミクロ的要因に基づいて RBWR 環境における水素含有量を定量評価し、脆性割れ発生を防止する設計を構築することが望まれる。

水素吸収過程には、炉水中から燃料被覆管への水素侵入、燃料被覆管内での水素の拡散等炉内滞在時間に依存する過程と、照射欠陥形成にともなう水素の蓄積等照射量に依存する過程の 2 つが影響を及ぼすと考えられる。しかし、これまで水素含有量の評価に関しては、主に現行 BWR における高燃焼度化を念頭に、燃焼度を指標とした評価が行われてきた。これは、中性子フラックスがほぼ同程度である場合には、有効な指標である。一方、RBWR における燃料被覆管では、現行 BWR よりも中性子フラックスが約 4 倍程度高く、同等の中性子照射量に達するまでの炉内滞在時間は約 1/4 である。このため、現行 BWR で得られた水素含有量から RBWR における水素含有量の予測を行うにあたっては、そのミクロメカニズムを明らかにし、中性子照射量の影響と炉内滞在時間の影響を分離して評価することが望まれる。

本研究では、RBWR へのジルカロイ製燃料被覆管の適用性評価のため、第一原理計算、分子動力学、及び分子動力学-有限要素連成解析手法による、原子レベルでの照射欠陥形成挙動並びに水素吸収過程に及ぼす照射欠陥形態・合金元素影響を評価した。加えて、ジルカロイ及びジルカロイを模擬した Zr 基合金を対象とした重イオン照射試験並びに水素注入試験により、照射欠陥形成挙動並びに水素化物形成・脆化挙動評価を行い、解析結果を検証した。

3.2.1 RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価

Fe が水素吸収に及ぼす影響を比較評価するため、機械的特性試験及び重イオン照射試験への供試材料としてジルカロイ 2 に加え、Zr-Sn に Fe を添加した三元モデル合金並びに Zr-Sn 二元モデル合金を作製した。作製は現行の燃料被覆管の製造条件に基づいた熱処理及び加工条件にて行った。供試材料の金属組織を観察し、結晶粒度及び析出物分布を評価した。

続いて、作製したジルカロイ 2 に対して LiOH 水溶液浸漬を実施して水素化物を形成させ、機械的特性を評価するため、衝撃試験を実施した。衝撃試験後の変形組織を SEM により観察してき裂の進展経路を評価し、水素化物による割れ発生過程に関する解析結果を検証した。更に、照射下における微細組織の発達過程並びに水素化物形成過程に関する解析結果について、重イオン照射試験後の微細組織の評価結果を用いて検証した。検証結果をもとに Zr 合金の RBWR への適用性を評価した。

(1) 供試材料の作製 (H27)

表 3.2.1-1 の作製合金一覧及び図 3.2.1-1 に示す作製手順に従い、衝撃試験及び重イオン照射試験への供試材料としてジルカロイ 2 及び Zr-Sn に Fe を添加した三元モデル合金、並びに Zr-Sn 二元モデル合金を作製した。いずれの合金においても成分は目標値の範囲内であることを確認した。また、図 3.2.1-2 に作製した合金の外観を示す。いずれの合金も一様な厚さに作製できていることを確認し、ひび割れ及び酸化膜の巻き込み等の欠陥は認められなかった。

続いて、供試材料の金属組織を観察し、結晶粒径を評価した。図 3.2.1-3 に作製した供試材料の金属組織及び結晶粒径分布評価結果を示す。いずれの合金も均一な結晶粒の再結晶組織であり、クラック、介在物等の欠陥は確認されなかった。ジルカロイ 2、Zr-1.5Sn 二元モデル合金及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金の結晶粒径の平均値はそれぞれ $6.12 \mu\text{m}$ 、 $8.46 \mu\text{m}$ 及び $9.52 \mu\text{m}$ であった。ジルカロイ 2 の結晶粒径は、他の合金と比較して若干小さくなる傾向がみられたものの、顕著な差異はなかった。

更に、供試材料の微細組織を観察し、析出物サイズを評価した。図 3.2.1-4 に供試材料の微細組織及び析出物サイズ分布の評価結果を示す。ジルカロイ 2 では球状でサイズが数十 nm～百数十 nm の析出物が観察され、析出物サイズの平均値は 75.1 nm であった。Zr-1.5Sn 二元モデル合金では球状でサイズが数十 nm の析出物が僅かに観察された。Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金では、ジルカロイ 2 と同様に、球状でサイズが数十 nm～百数十 nm の析出物が観察され、析出物サイズの平均値は 83.5 nm であった。ジルカロイ 2 及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金では析出物サイズに顕著な差異はみられなかった。

(2) 水素化物形成させたジルカロイ 2 の機械的特性試験 (H28)

ジルカロイ 2 の供試材より形状が $80 \text{ mm} \times 24 \text{ mm} \times 2.8 \text{ mm}$ の短冊状試験片を採取し、 $288 \text{ }^\circ\text{C}$ の 1 mol/l の LiOH 水溶液に浸漬して水素を含有させた。浸漬時間は 15 日間及び 30 日間とした。

図 3.2.1-5 に浸漬後の短冊状試験片外観を示す。また、表 3.2.1-2 に浸漬後の水素含有量を示す。ジルカロイ 2 供試材、浸漬 15 日後及び浸漬 30 日後のジルカロイ 2 における水素含有量は、それぞれ 46 wtpm 、 177 wtpm 及び 347 wtpm であり、水素含有量の異なるジルカロイ 2 の水素化物形成材を作製できた。以下、浸漬 15 日後及び浸漬 30 日後のジルカロイより採取した試験片を、それぞれ低濃度水素化物形成材及び高濃度水素化物形成材と称する。

機械的特性を評価するため、作製した水素化物形成材よりシャルピー衝撃試験片を採取し、シャルピー衝撃試験を室温にて実施した。図 3.2.1-6 に試験片形状を示す。試験片は JIS Z 2242 に準拠した厚さ 2.5 mm のサブサイズ試験片とし、V ノッチの向きと圧延方向が平行になるようにした。

表 3.2.1-3 及び図 3.2.1-7 に衝撃試験の結果を示す。衝撃吸収エネルギーは、ジルカロイ 2 供試材では 178 J/cm^2 であったが、水素含有量の増加とともに減少した。

図 3.2.1-8 に試験後の試験片外観を示す。ジルカロイ 2 供試材料の破面の横幅はもとの横幅より減少しており延性破断が示唆された。一方、低濃度水素化物形成材での横幅の減

少は、ジルカロイ 2 供試材料に比べて小さかった。更に、高濃度水素化物形成材では板厚方向に垂直な方向に沿って筋状の様子が観察された。

(3) 水素化物とジルカロイ 2 母相の結晶学的相関 (H28)

水素化物の形成は、脆性破壊の 1 つの重要な要因と考えられるため、照射環境での水素化物の形成メカニズムの解明が必要になる。一方、水素化物は、中性子照射後の焼鈍試験にて、ジルカロイの c 成分転位ループのひずみ場での水素化物形成が報告されている⁽³⁾。本研究は、更に電子線後方散乱回折法 (Electron Backscatter Diffraction、以下「EBSD」) を用いて、水素化物とジルカロイ 2 母相の結晶学的相関性を検討した。

ジルカロイ母相の結晶構造は、六方最密充填構造 (hexagonal close-packed、以下「hcp」) を有する Zr- α 相である。水素化物の結晶構造は、図 3.2.1-9(1)に示すように、 γ -ZrH 相、 δ -ZrH_{1.5} 相と ϵ -ZrH₂ の 3 通りに分類される⁽⁴⁾。一方、図 3.2.1-9(2)に示した Zr-H 相態図⁽⁵⁾より、面心立方 (face-centered cubic、以下「fcc」) の結晶構造を有する δ -ZrH_{1.5} は主な水素化物であることが分かる。そこで、表 3.2.1-4 に示した δ -ZrH_{1.5} の格子定数を、EBSD 分析に用いた。

図 3.2.1-10 に EBSD の分析位置を示す。水素含有量の高い (203 wtppm) ジルカロイ 2 衝撃試験片において、破面に垂直する断面を切り出し、その断面において破面に隣接する部位をイオンミリング仕上げ後、EBSD 分析に供した。図 3.2.1-11 に観察断面の電子顕微鏡写真を示す。図中の空孔は、脆性破壊の可能性があると考えられるため、空孔を含めた 2 箇所を対象に、EBSD 分析を行った。

視野 1 の EBSD 分析結果を図 3.2.1-12~15 に示す。EBSD 測定点間の間隔は 20 nm とした。分析精度を考慮して、Confidence Index (以下「CI」) が 0.1 以上のデータのみを評価に用いた。図 3.2.1-12(1)には、試験片の板厚方向 (TD 方向) での逆極点図 (Inverse Pole Figure、以下「IPF」) と相分布図を示す。図 3.2.1-12(1)の TD 方向の IPF 及び図 3.2.1-13 に示した観察面法線方向 (ND 方向) の IPF における関数近似による組織分布解析の結果から、板厚方向に母相 Zr- α 相 (hcp) の回折面 (0001)、すなわち、c 軸近傍の集合組織が確認された。また、図 3.2.1-12(2)から、1 つの Zr- α 相 (hcp) の結晶粒内に水素化物である δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) が分散している様子が検出された。更に、結晶方位分析により、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) は 2 つの Partition に分けることができる。図 3.2.1-14 に、上述の Zr- α 相 (hcp) 結晶の回折面 (0001) 及び δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の Partition 1 と Partition 2 の回折面 (111) の極点図 (Pole Figure、以下「PF」) における関数近似による組織分析結果を示す。図 3.2.1-14 (2) と (3) の破線で示したように、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の 2 つの Partition は、対称性を持つ 4 つの回折面 (111) のうち、1 つの共有する回折面 (111) を有し、2 つの Partition 間には双晶関係があることが判明した。PF を対象に、離散のデータをプロットして、Zr- α 相 (hcp) 結晶の回折面 (0001) と δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の回折面 (111) の位置関係を調べた。その結果を図 3.2.1-15 に示す。図中、Zr- α 相 (hcp) 結晶の回折面 (0001) は、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の 1 つの回折面 (111) と完全に重なっていることから、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の回折面 (111) は母相 Zr- α 相 (hcp) 結晶の回折面 (0001) と平行することが判明した。

視野 2 の EBSD 分析結果を図 3.2.1-16~19 に示す。EBSD 測定点間の間隔は 30 nm とした。分析精度を考慮して、CI 値 が 0.1 以上のデータのみを評価に用いた。図 3.2.1-16 には、試験片の板厚方向 (TD 方向) での IPF と相分布図を示す。図 3.2.1-16(1) の TD 方向の IPF 及び図 3.2.1-17 に示した IPF における関数近似による組織分布解析の結果から、視野 1 と同様に、板厚方向に母相 Zr- α 相 (hcp) の回折面 (0001)、すなわち、c 軸の集合組織が確認された。また、図 3.2.1-16(2) から、Zr- α 相 (hcp) の結晶粒界で水素化物が検出されたことが分かる。そこで、図 3.2.1-16(2) に示した評価領域を抽出して、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) が検出された粒界両側の Zr- α 相 (hcp) 結晶の ND 方向の IPF 分析を行い、更に PF におけるこれらの結晶の回折面 (0001) の関数近似による組織分布解析を行った。その結果を図 3.2.1-18(1) に示す。また、同様に δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の ND 方向の IPF と PF における回折面 (111) の関数近似による組織分布の解析結果を図 3.2.1-18(2) に示す。図 3.2.1-18 に示した全ての Zr- α 相 (hcp) の結晶の回折面 (0001) の法線と δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の回折面 (111) を、PF に離散のデータをプロットして図 3.2.1-19 に示す。その結果、図 3.2.1-15 と同様に、Zr- α 相 (hcp) 結晶の回折面 (0001) は、 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の 1 つの回折面 (111) と完全に重なっている。

以上の EBSD 分析で得られた、非照射環境で形成した水素化物の微細組織の特徴を以下に示す。

- ・ 作製したジルカロイ 2 板材では、母相である Zr- α 相 (hcp) の結晶の回折面 (0001) の法線、すなわち、c 軸が板厚方向に向いている集合組織が認められた。
- ・ 水素化物 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) は、母相の Zr- α 相 (hcp) の粒内と粒界のいずれにおいても検出された。
- ・ 水素化物には、双晶関係の結晶構造を有する 2 種が確認された。
- ・ 水素化物 δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の回折面 (111) は、母相の Zr- α 相 (hcp) の回折面 (0001) と平行することから、両相は同一原子配列を共有することが示唆された。

照射環境で c 成分転位ループが形成された面は Zr- α 相 (hcp) の回折面 (0001) であるため、以上の EBSD 分析結果から、c 成分転位ループにより水素化物の形成が更に促進される可能性がある。

(4) 適用性評価 (H28)

照射下における微細組織の発達過程並びに水素化物の形成過程に関する解析結果について、重イオン照射試験後の微細組織の評価結果を用いて検証し、検証結果をもとに Zr 合金の RBWR への適用性を評価した。

その結果、分子動力学計算 (3.2.2) 及び第一原理計算 (3.2.3) の結果から、中性子照射により析出物からマトリクスへ固溶した鉄などの合金元素は材料中を高速に拡散し格子間原子や空孔と強く結びつき、c 成分転位ループの生成を助長する働きがあることが明らかとなった。加えて、照射試験による実験的検証 (3.2.4) の結果、鉄を含有するジルカロイ 2 及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金では、23 dpa 程度の照射により c 成分転位ループが形成することが確認された。これらの成果を勘案すると、燃料被覆管のバルク金属においては、RBWR の高照射環境下において、c 成分転位ループが形成しやすくなることが明らかとなっ

た。また、c成分転位ループは約 23 dpa の照射量より生成し、その組織形態には以降の照射量でも変化は認められなかった。これが水素吸収に寄与すると考えると照射量 23dpa 以降の水素吸収量は照射量ではなく、炉内滞在時間に影響されるものと推察される。

水素と合金成分との相互作用については、第一原理計算の結果 (3.2.3) から、固溶水素、固溶 Fe 原子はともに母材中を高速に拡散するが互いに相互作用せず、固溶 Fe 原子は空孔集合体の成長を促進することで間接的に水素吸収並びに水素化物形成に影響を与えることが分かった。また、合金成分の Cr 及び Ni も同様にふるまうと考えられる。一方、これらの合金成分は耐食性の保持に不可欠であり、本観点からは、RBWR への Zr 合金製被覆管の適用にあたっては、合金成分の適正化が必要であると考えられる。

一方で、実炉環境中においては、燃料被覆管の表面の酸化皮膜形成過程に生じる水素のバルク金属への侵入と、照射欠陥形成が同時かつ相互に影響しながら進行することから、照射並びに水素影響を定量的に評価するためには、候補材料に対して照射と水素注入を同時に実現する評価・試験方法など、新たな手法の開発が重要であるとの知見を得た。

参考文献

- (1) F. Gararolli, et al., J. ASTM Intl., Vol.7, No.7 (2010) p711-728.
- (2) 宮下他, 日本原子力学会誌 vol.7 No.4 (2008) 380.
- (3) R. A. Holt, and R. W. Gilbert, <c> Component Dislocations in Annealed Zircaloy Irradiated at about 570 K, Journal of Nuclear Materials 137(1986)185-189
- (4) J. Blomqvist, J. Olofsson, A. M. Alvarez and C. Bjerken, Structure and Thermodynamical Properties of Zirconium Hydrides from First-principle, 15th Int. Conf. Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-water reactors (2012)
- (5) 沼倉宏, 小岩昌宏, γ -チタン水素化物の結晶構造, 水曜会誌, 20(7), pp. 443-447(1986).

表 3. 2. 1-1 供試材料及びその合金組成

供試材		Sn	Fe	Cr	Ni
ジルカロイ 2	目標値	1.2~1.7	0.07~0.20	0.05~0.15	0.03~0.08
	分析値	1.38	0.15	0.09	0.05
Zr-1.5Sn 二元モデル合金	目標値	1.2~1.7	-	-	-
	分析値	1.41	0.01	<0.01	<0.01
Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金	目標値	1.2~1.7	0.20~0.3	-	-
	分析値	1.40	0.24	<0.01	<0.01

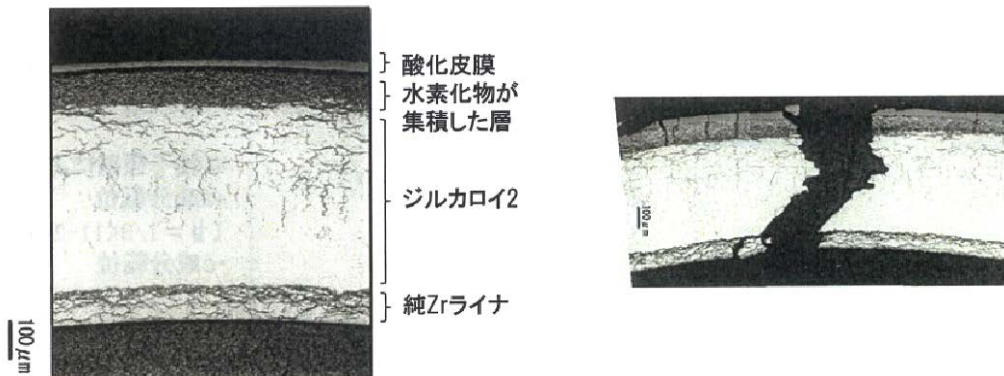


図 3. 2-1 燃料被覆管の組織及びバースト試験による断面⁽²⁾

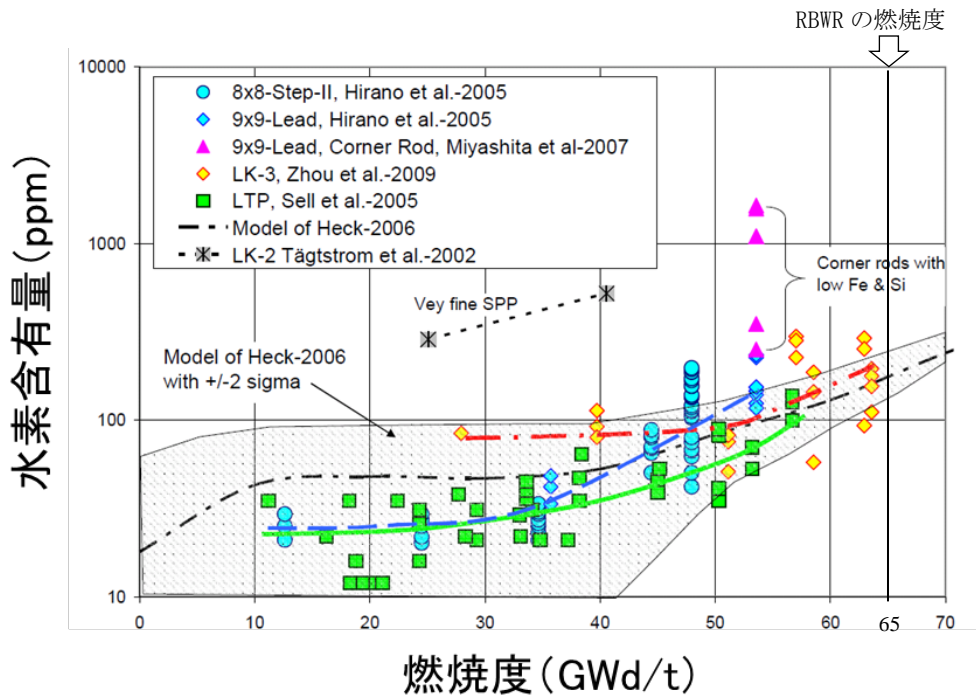


図 3. 2-2 水素含有量の燃焼度依存性⁽¹⁾

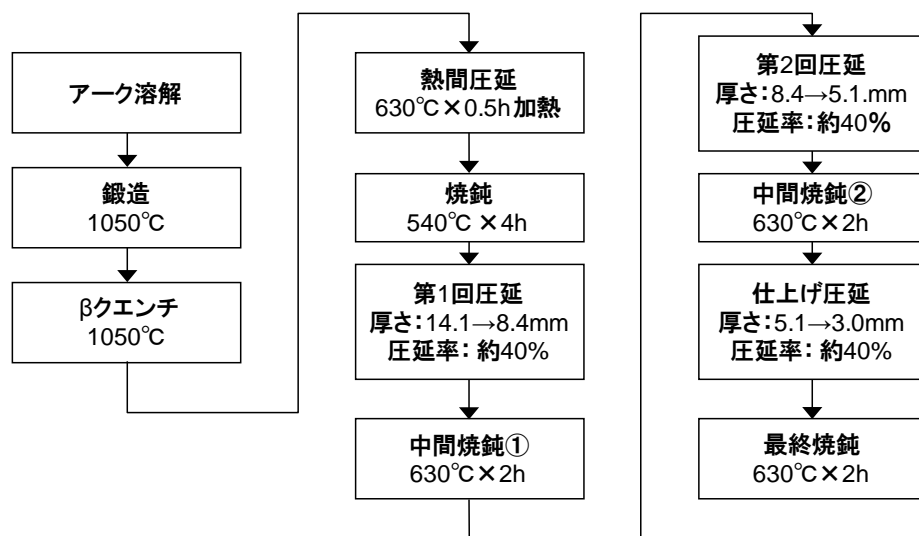


図 3. 2. 1-1 供試材料の製造工程



(1) ジルカロイ 2

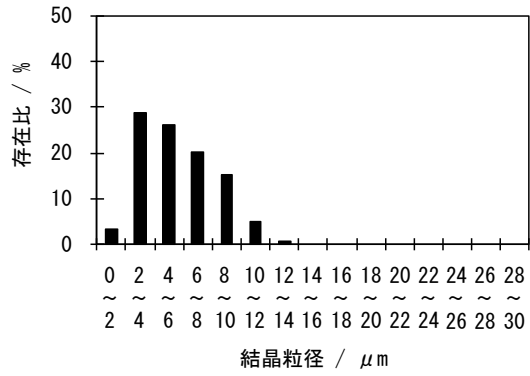
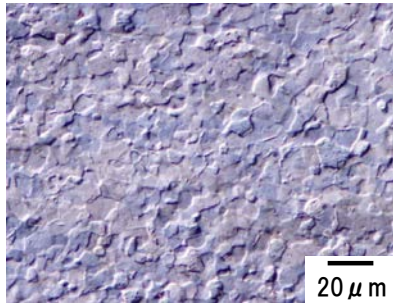


(2) Zr-1.5Sn 二元モデル合金



(3) Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金

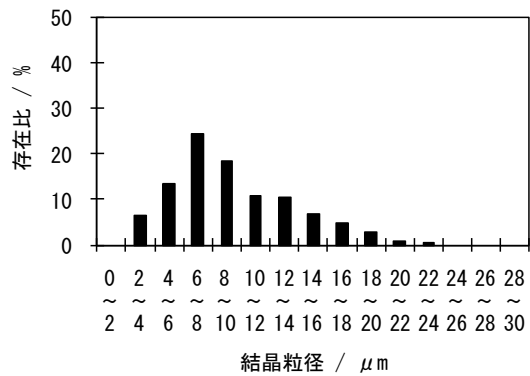
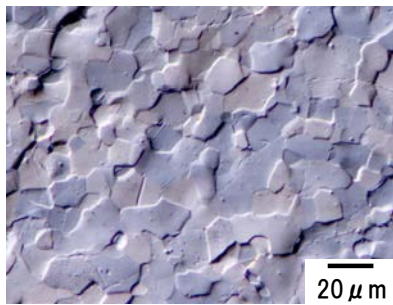
図 3. 2. 1-2 作製した供試材料の外観写真



① 金属組織

② 結晶粒径分布

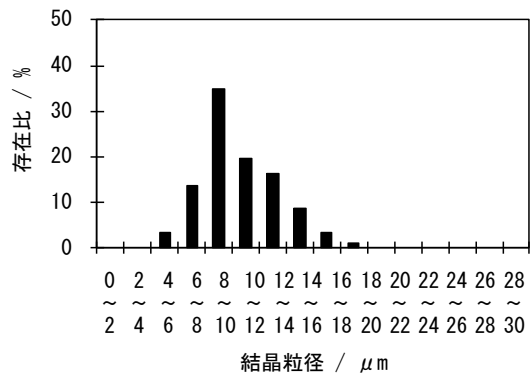
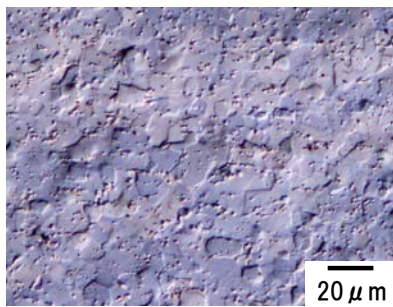
(1) ジルカロイ 2



① 金属組織

② 結晶粒径分布

(2) Zr-1.5Sn 二元モデル合金

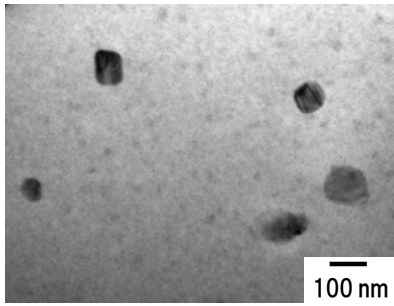


① 金属組織

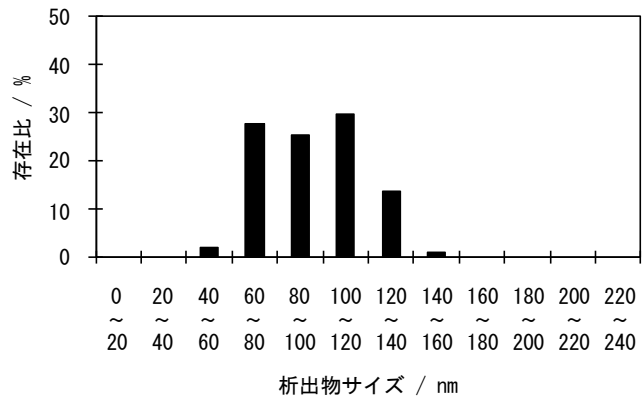
② 結晶粒径分布

(3) Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金

図 3. 2. 1-3 作製した供試材料の金属組織及び結晶粒径分布評価結果

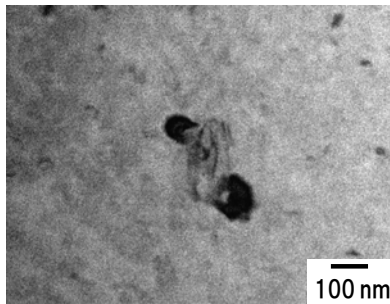


① 微細組織



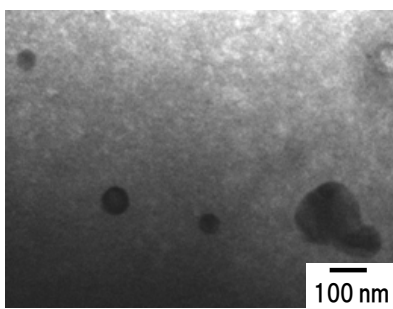
② 析出物サイズ分布

(1) ジルカロイ 2

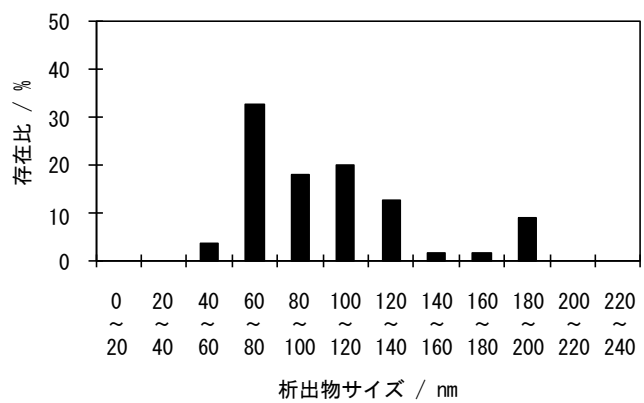


① 微細組織

(2) Zr-1.5Sn 二元モデル合金



① 微細組織



② 析出物サイズ分布

(3) Zr-1.5Sn-0.25Fe 三元モデル合金

図 3. 2. 1-4 供試材料の微細組織及び析出物サイズ分布の評価結果

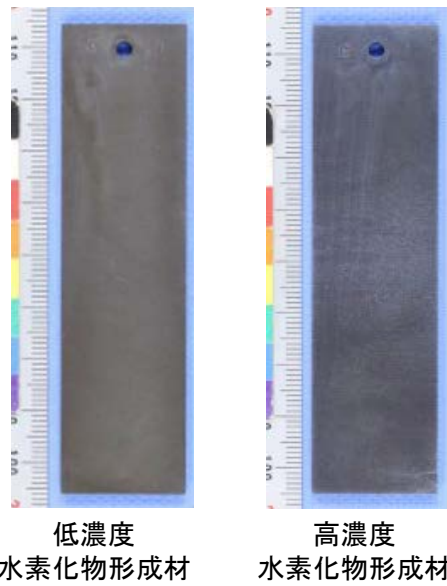


図 3. 2. 1-5 水素化物形成材の外観

表 3. 2. 1-2 水素化物形成材の水素含有量

水素含有量レベル	水素含有量 (wtppm)	備考
ジルカロイ 2 供試材	46	LiOH 水溶液未浸漬
低濃度水素化物形成材	177	LiOH 水溶液浸漬 15 日
高濃度水素化物形成材	347	LiOH 水溶液浸漬 30 日

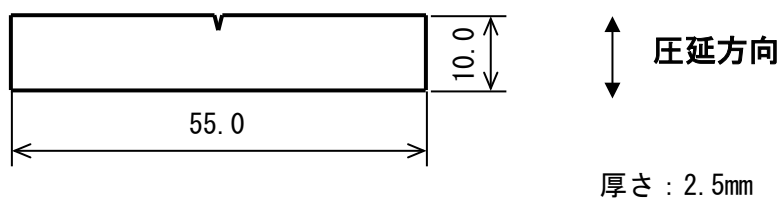


図 3. 2. 1-6 試験片形状

表 3. 2. 1-3 水素含有量と衝撃エネルギー

	水素含有量 (wtppm)
ジルカロイ 2 供試材	178
低濃度水素化物形成材	105
高濃度水素化物形成材	50

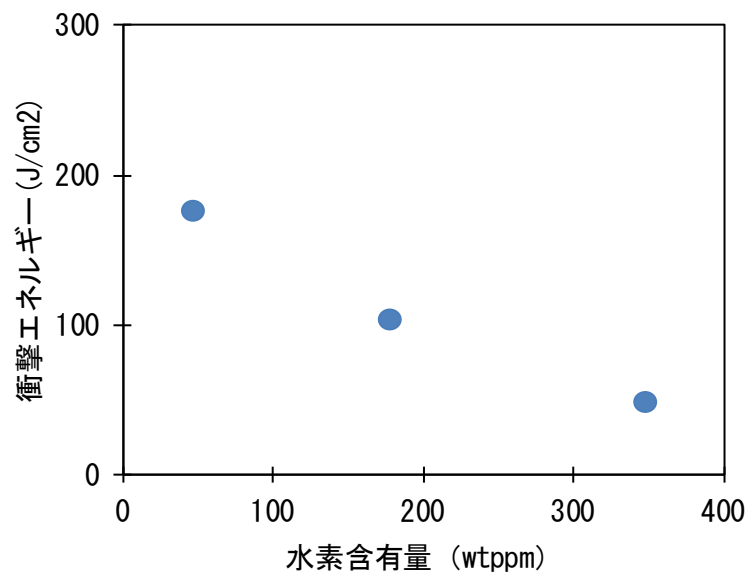


図 3. 2. 1-7 水素含有量と衝撃エネルギー

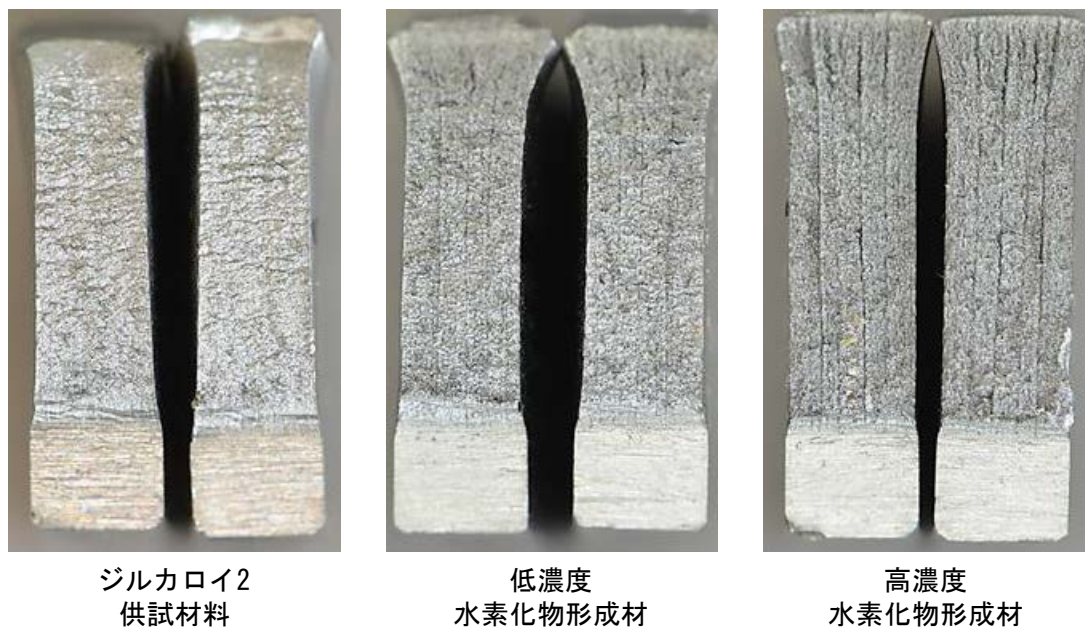
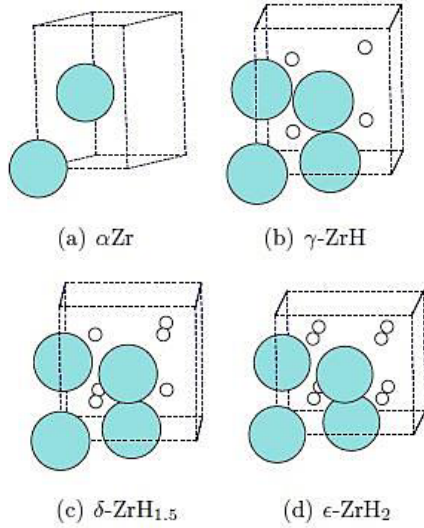
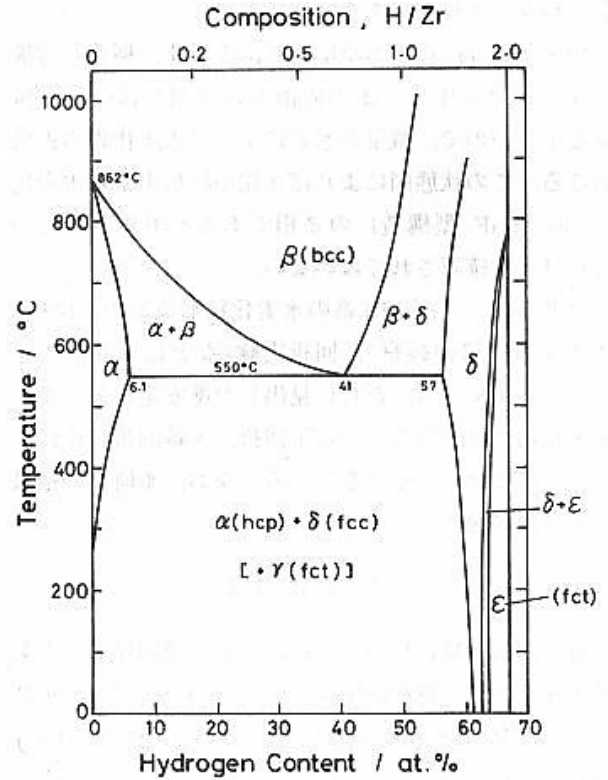


図 3. 2. 1-8 試験後の試験片外観



(1) The unit cells for Zr and the different hydrides used in the calculations ⁽⁴⁾



(2) The Zr-H phase diagram ⁽⁵⁾

図 3.2.1-9 水素化物の結晶構造と選定

表 3.2.1-4 水素化物の格子定数 ⁽³⁾

Table 1: The resulting equilibrium structures for αZr and the different zirconium hydrides together with experimental data and the results from previous calculations

	present work		experiment		previous work	
	a	c	a	c	a	c
$\alpha\text{-Zr}$	3.237	5.157	3.232 ^a 3.232 ^c	5.147 ^a 5.148 ^c	3.223 ^b 3.23 ^d	5.175 ^b 5.18 ^d
$\gamma\text{-ZrH}$	4.592	4.998	4.596 ^c	4.969 ^c	4.586 ^b 4.58 ^d	4.9 ^b 5.04 ^d
$\delta\text{-ZrH}_{1.5}$	4.775	-	4.771 ^a	-	4.67 ^b 4.79 ^d	-
$\epsilon\text{-ZrH}_2$	4.999	4.433	4.975 ^c 4.975 ^e	4.451 ^c 4.47 ^e	4.72 ^b 5.01 ^d	4.21 ^b 4.44 ^d

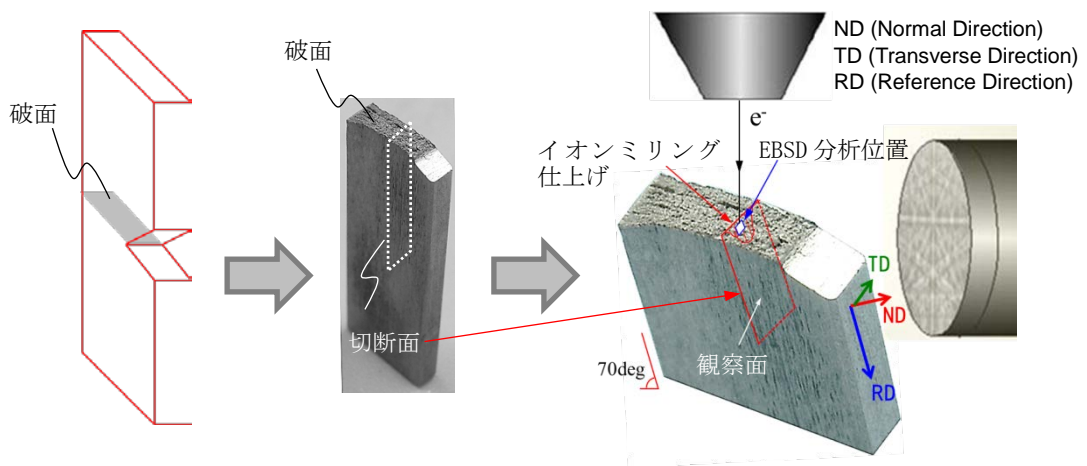


図 3. 2. 1-10 ジルカロイ 2 の EBSD 分析位置

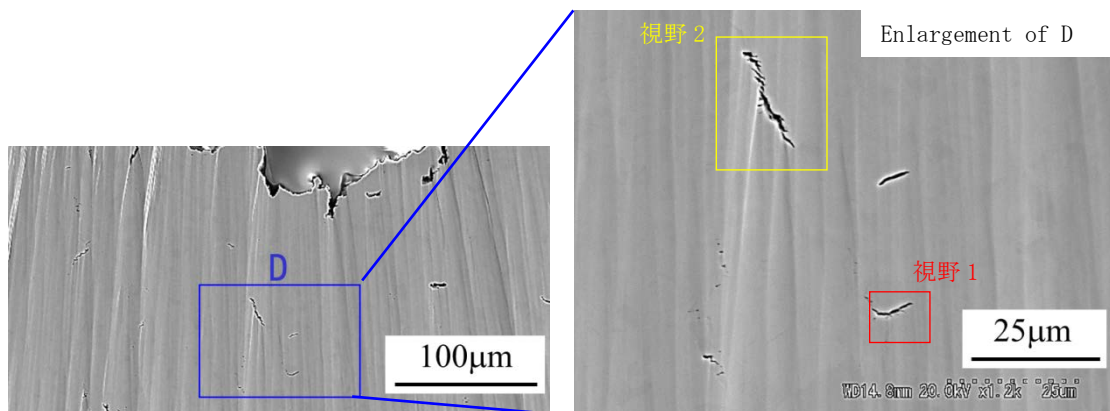
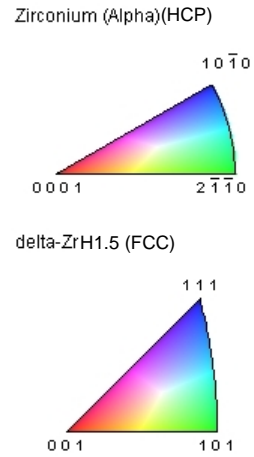
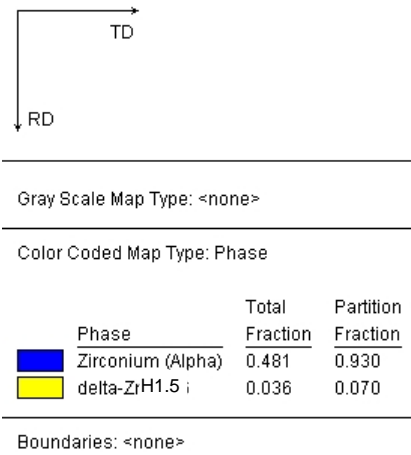
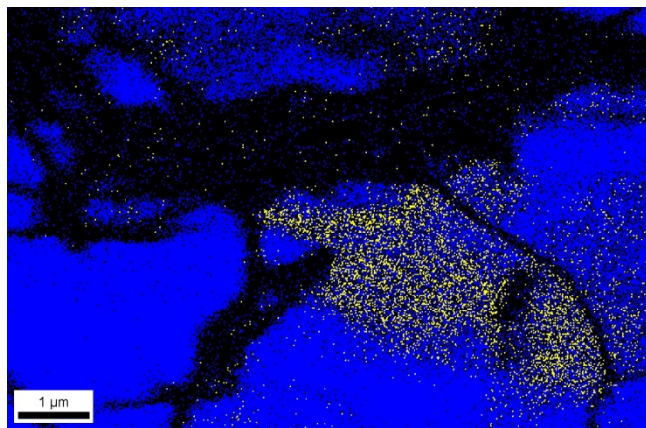


図 3. 2. 1-11 EBSD 分析領域の電子顕微鏡観察

step=20nm, CI>0.1



(1) 試験片の板厚方向 (TD 方向) での逆極点図 (IPF)



(2) 相分布図

図 3. 2. 1-12 視野 1 の組織分析結果

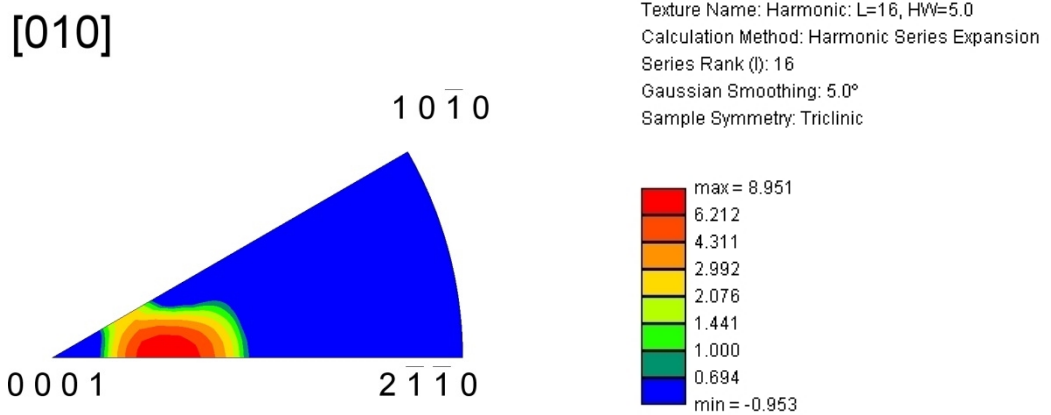
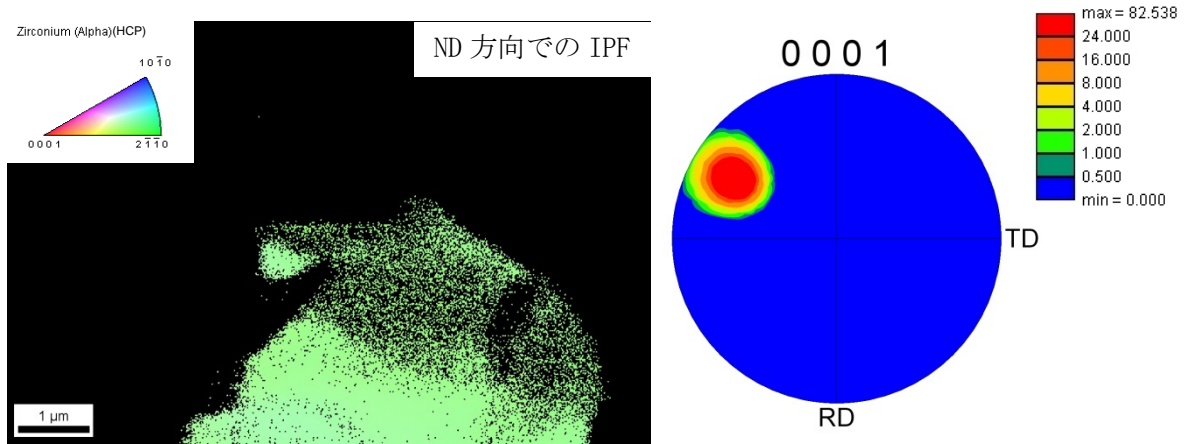
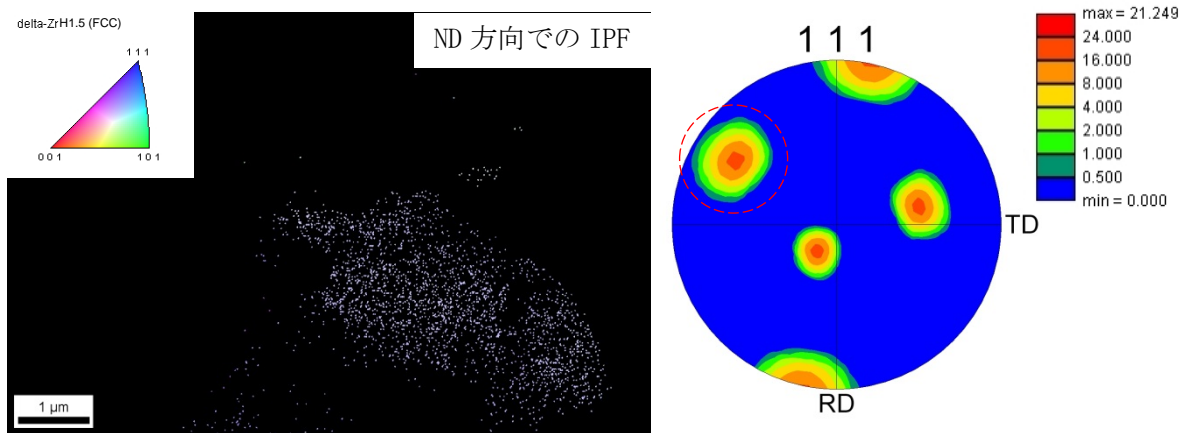


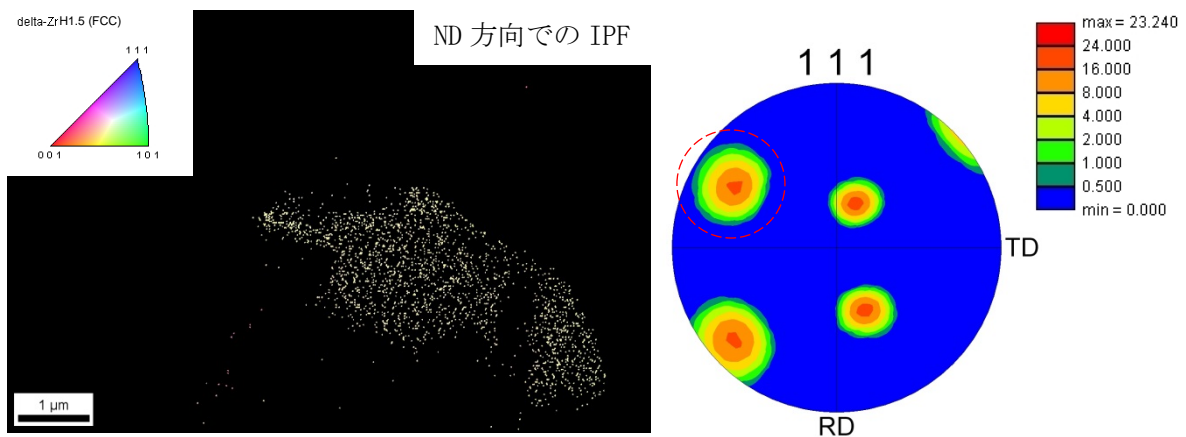
図 3. 2. 1-13 視野 1 の試験片の板厚方向 (TD 方向) での組織分布解析



(1) Zr- α (hcp) 結晶の回折面(0001)極点図 (PF) 分析



(2) δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の Partition 1 の極点図 (PF) 分析



(3) δ -ZrH_{1.5} 相 (fcc) の Partition 2 の極点図 (PF) 分析

図 3.2.1-14 視野 1 の極点図 (PF) 分析

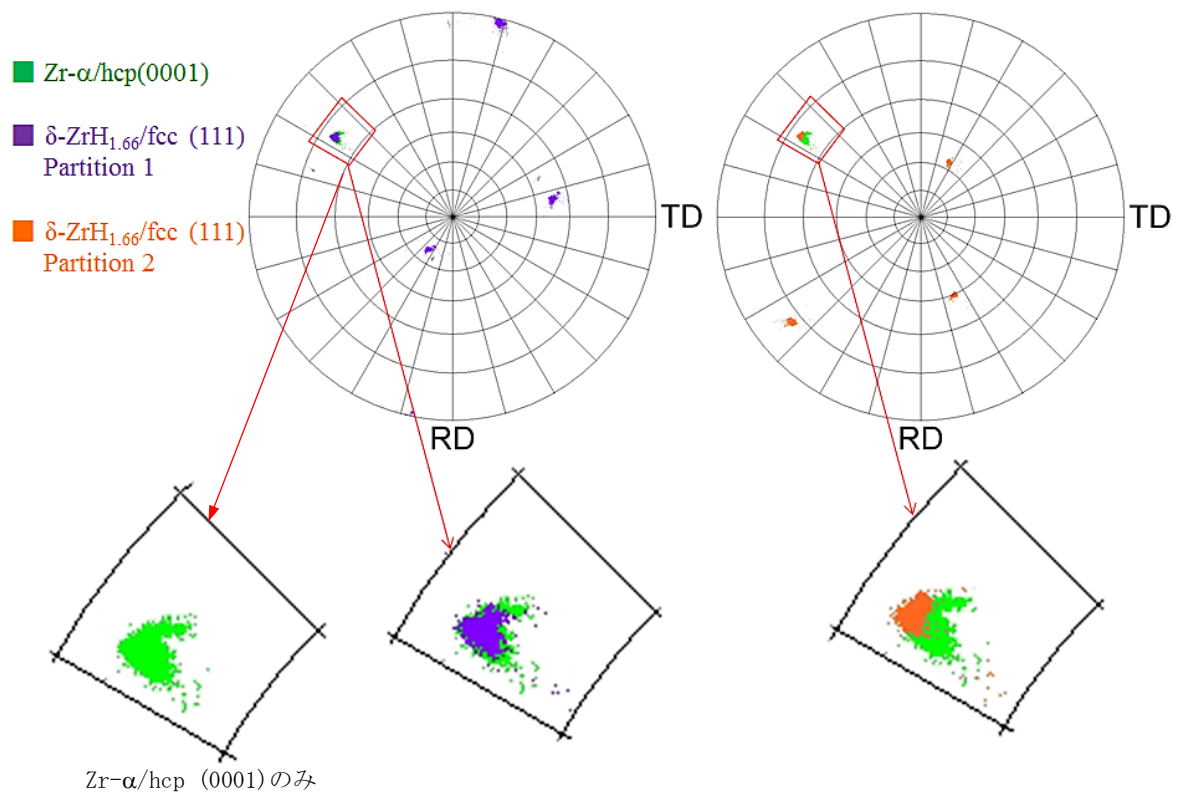
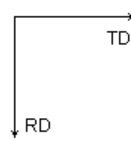
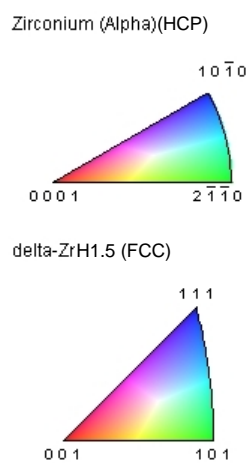
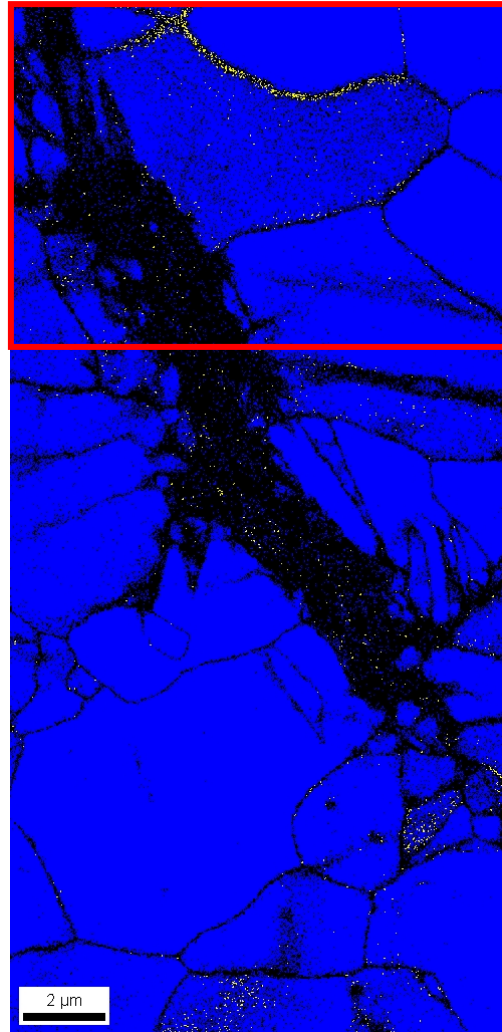


図 3. 2. 1-15 視野 1 の母相 (Zr- α) と水素化物 (δ -ZrH_{1.5}) の極点図 (PF) 分析

評価領域

step=30nm, CI>0.1



Gray Scale Map Type: <none>

Color Coded Map Type: Phase

Phase	Total Fraction	Partition Fraction
Zirconium (Alpha)	0.754	0.995
delta-ZrH1.5	0.004	0.005

Boundaries: <none>

(1) 1) 試験片の板厚方向 (TD 方向) での逆極点図 (IPF)

(2) 相分布図

図 3. 2. 1-16 視野 2 の組織分析結果

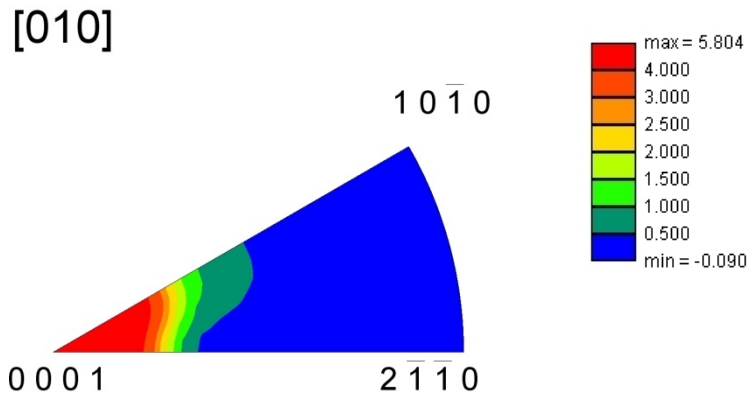
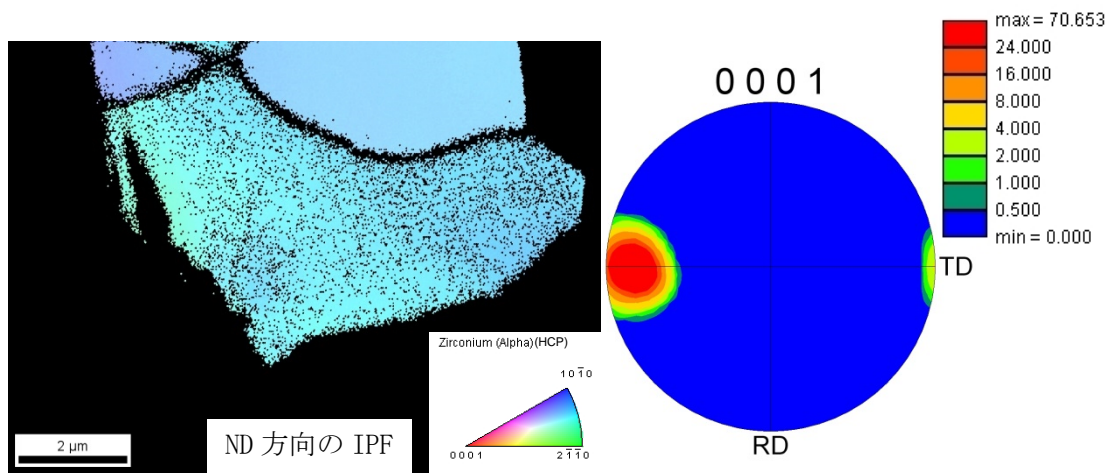
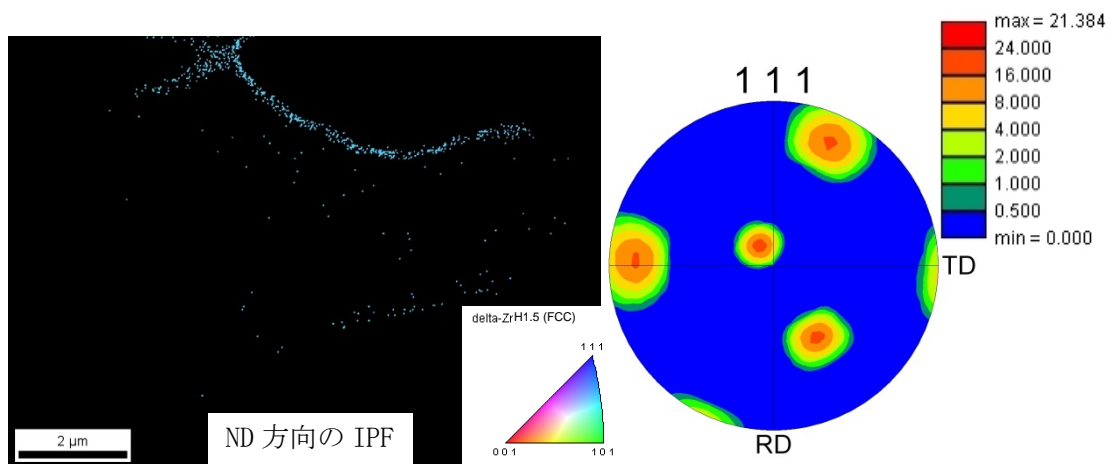


図 3. 2. 1-17 視野 2 の試験片の板厚方向 (TD 方向) での組織分布解析



(1) $Zr-\alpha$ (hcp) 結晶の回折面(0001)極点図 (PF) 分析



(2) $\delta-ZrH_{1.5}$ 相 (fcc) の極点図 (PF) 分析

図 3. 2. 1-18 視野 2 の極点図 (PF) 分析

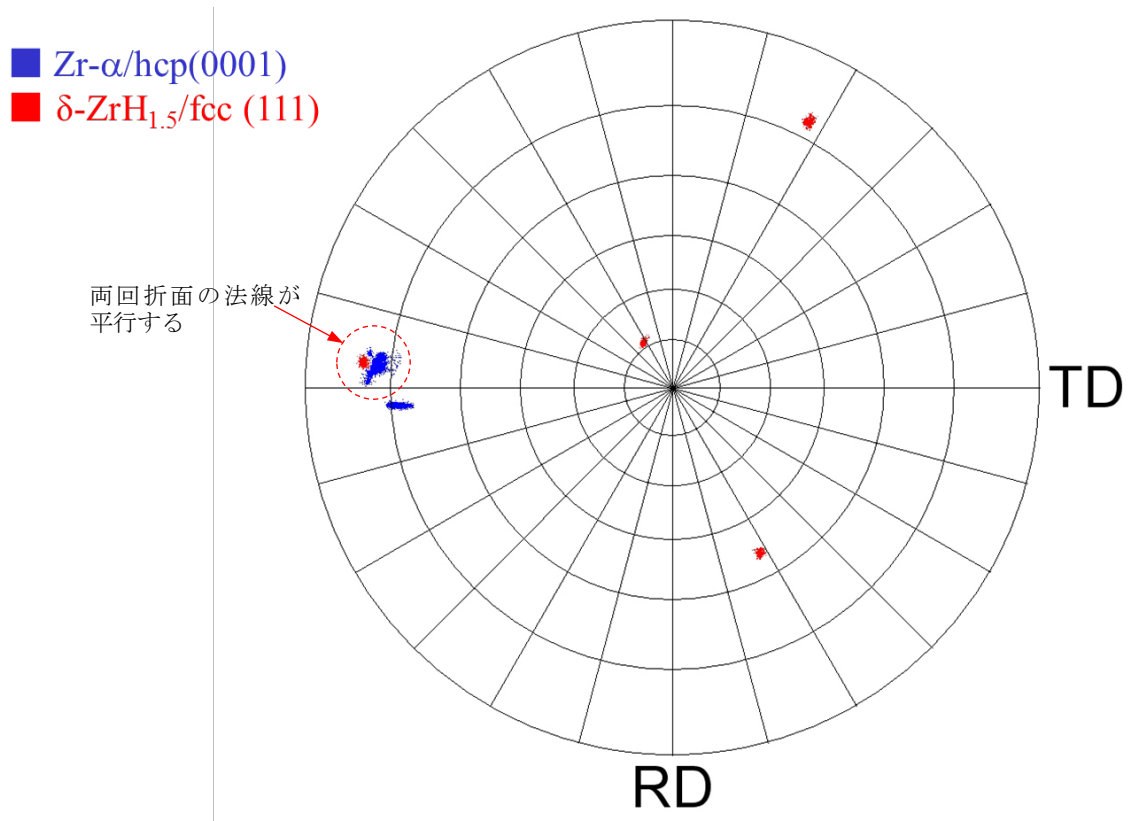


図 3. 2. 1-19 視野 2 の母相 (Zr- α) と水素化物 (δ -ZrH_{1.5}) の極点図 (PF) 分析

3.2.2 照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化（再委託先：東京大学）

(1) c 成分転位ループ形成過程に関する検討（H27～H28）

40GWd/t 付近における顕著な微細組織変化として、c 成分転位ループの形成（図 3.2.2-1⁽¹⁾）、及び析出物中の Fe 濃度の減少（図 3.2.2-2⁽²⁾）が挙げられる。特に、c 成分転位ループは原子空孔集合体（以降、空孔クラスタと呼ぶ）が潰れたものであるため、水素化物形成過程に大きな影響を及ぼすことが考えられる。そのため、c 成分転位ループ形成を誘起するマイクロ因子を解明することが、水素含有量の急激な増加を把握する上で、重要な過程の 1 つである。この過程としては、格子間原子集合体である a 成分転位ループの影響、及び析出物から溶解した Fe 原子と原子空孔の相互作用が考えられる。本研究では、特に前者に着目し、a 成分転位ループ存在下における空孔クラスタと c 成分転位ループの形成エネルギーの安定性の相違、及び空孔クラスタが潰れて c 成分転位ループに変換する際に必要な活性化エネルギーを MD (Molecular Dynamics：分子動力学) 法にて定量化した。

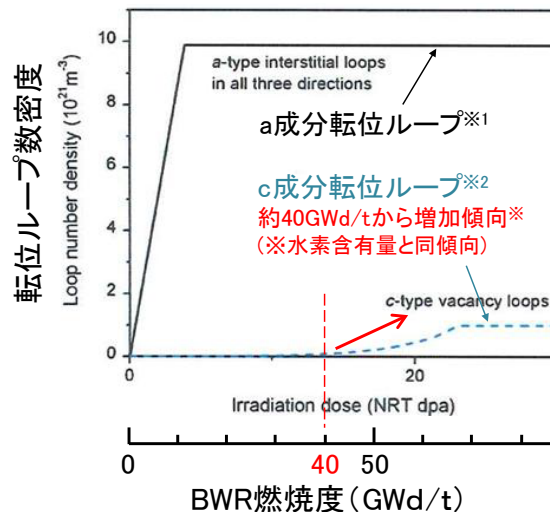
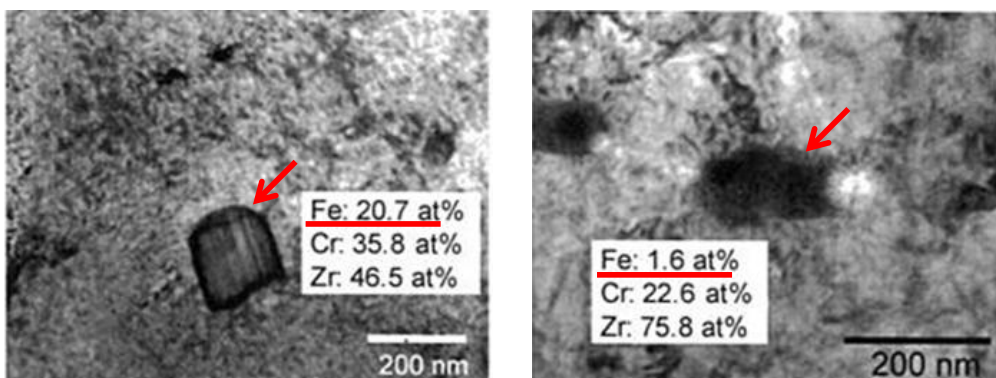


図 3.2.2-1 a 及び c 成分転位ループ数密度と照射損傷量の関係⁽¹⁾

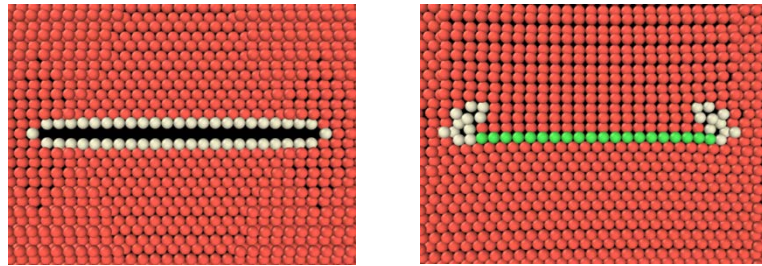


(a) 中性子照射量： 3×10^{24} n/m²、
燃焼度約 5 GWd/t に相当

(b) 中性子照射量： 2×10^{25} n/m²、
燃焼度約 35 GWd/t に相当

図 3.2.2-2 中性子照射による析出物の変化⁽²⁾

本 MD 計算は、原子間ポテンシャルとして Sheng らが開発したものを用い、全て LAMMPS により行った⁽³⁾。まず、a 成分転位ループが存在しない条件下での安定形態を評価するため、同数の空孔を含む空孔クラスタと c 成分転位ループの形成エネルギーを求めた (図 3.2.2-3)。計算セルサイズは x 方向 [1, -1, 0, 0] 30 nm、y 方向 [1, 1, -2, 0] 30nm、z 方向 [0, 0, 0, 1] 30nm、3 方向とも周期境界を設定した。また、温度は 0 K で、1 タイムステップを 1.0×10^{-15} s とし 64,000 ステップまでの計算を行った。



(a) 空孔クラスタ (b) c 成分転位ループ

図 3.2.2-3 c 面上の空孔集合体の形態

図 3.2.2-4 に、式(3.2.2-1)で算出される形成エネルギーの含有空孔数 (N_V) 依存性を示す。c 成分転位ループの形成エネルギーは、空孔数のほぼ 0.7 乗に比例することが分かる。転位論に基づく、c 成分転位ループの形成エネルギーは、空孔数の 1 乗に比例する積層欠陥エネルギー項と空孔数の 1/2 乗に比例する転位エネルギー項の和として記述される⁽⁴⁾。MD 計算による形成エネルギーの空孔数依存性は、この両項の依存性を反映したものであると考えられる。空孔数が多い場合 ($N_V \geq 37$)、c 成分転位ループの形成エネルギーは空孔クラスタの形成エネルギーよりも低く、 N_V の増加とともにその相違はより大きくなっていく一方、 $N_V = 19$ における形成エネルギーはほぼ同程度であることが明らかとなった。これらの結果から、集合体が小さい場合には空孔クラスタが安定であるが、集合体の成長とともに c 成分転位ループがより安定になっていくことが分かった。

$$E_f(N_V) = E(N_V)' - \frac{N_0 - N_V}{N_0} \cdot E_0(N_0) \quad \text{式(3.2.2-1)}$$

$E_f(N_V)$: 集合体形成エネルギー

$E(N_V)'$: N_V の空孔を含む系における系のポテンシャルエネルギー

$E_0(N_0)$: 原子数 N_0 の完全結晶 (空孔を含まない系) でのポテンシャルエネルギー

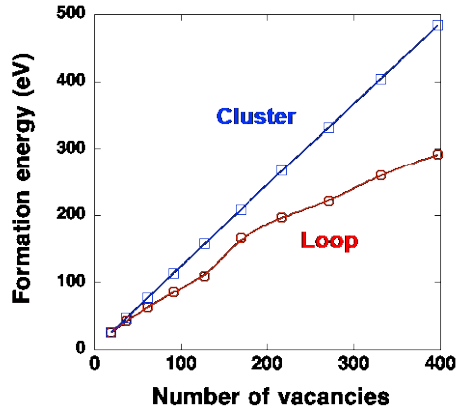
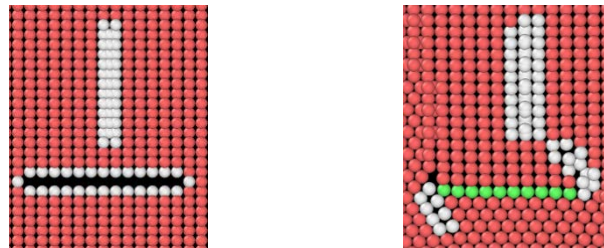


図 3.2.2-4 空孔集合体形成エネルギーの空孔数依存性

この結果に基づいて、特に小さい集合体 ($N_V = 19, 37, 61$) に関して、a 成分転位ループ存在下における形成エネルギーの変化について解析した (図 3.2.2-5)。計算体系を図 3.2.2-6 に示す。a 成分転位ループの重心が存在する c 面上に空孔集合体を配置し、その距離を変化させて式(3.2.2-2)で形成エネルギーを算出した⁽⁵⁾。なお、 $N_V = 19$ 以外に関しては、a 成分転位ループに含まれる格子間原子数(N_A)は N_V と同数とした。結果を図 3.2.2-7、図 3.2.2-8 に示す。

$$E'_f = E(N + N_A - N_V) - \frac{N - N_V}{N} E(N + N_A) \quad \text{式(3.2.2-2)}$$



(a) 空孔クラスタ (b) a 成分転位ループ

図 3.2.2-5 空孔集合体と a 成分転位ループ

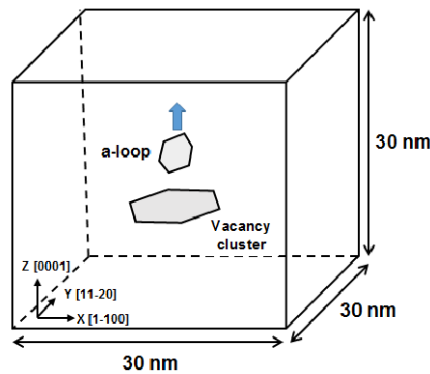


図 3.2.2-6 a 成分転位ループ存在下における空孔集合体形成エネルギーの MD 計算体系

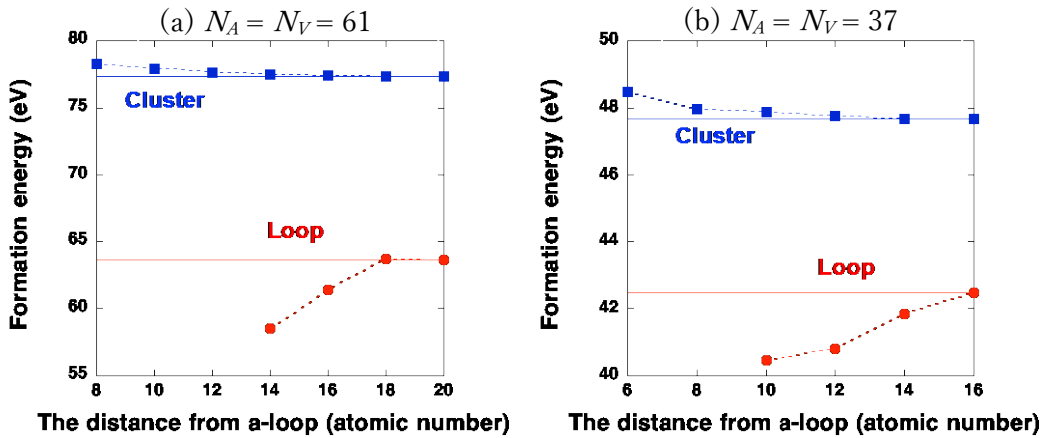


図 3.2.2-7 a 成分転位ループ存在下における空孔集合体形成エネルギー

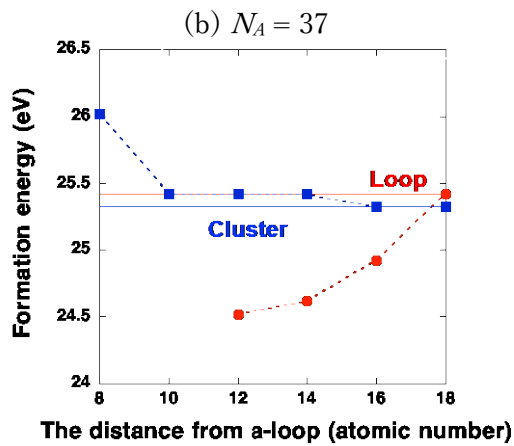
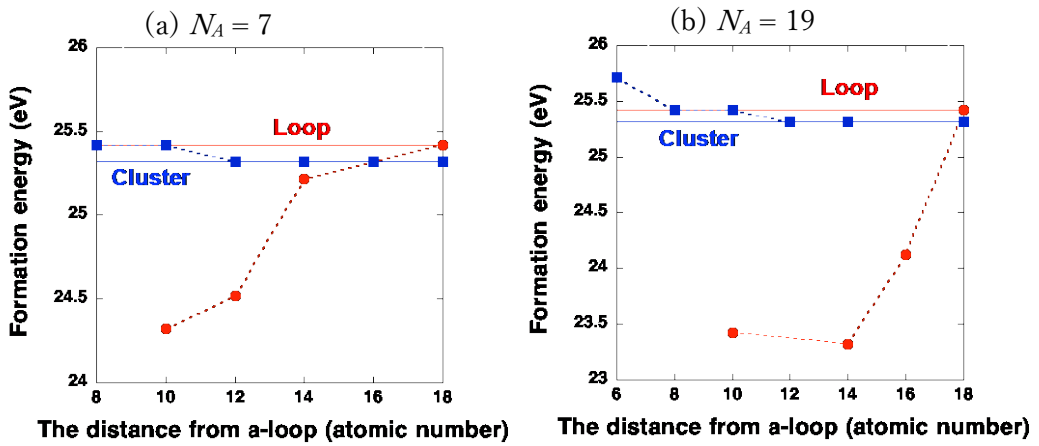


図 3.2.2-8 $N_V = 19$ における a 成分転位ループ存在下空孔集合体形成エネルギー

a 成分転位ループの存在により空孔クラスタの形成エネルギーは僅かながら増加する一方、c 成分転位ループの形成エネルギーは減少する。更に a 成分転位ループと c 成分転位ループの距離が小さくなる程、その減少は大きくなる事が分かる。なお、 $N_V = 19$ の空孔集合体においては、a 成分転位ループの存在により形成エネルギーの大小が若干ではあるが逆転し、空孔クラスタよりも c 成分転位ループが安定となる。この結果より、空孔ク

ラスタから c 成分転位ループへの転換は、 $N_V \sim 19$ 付近で発生すると推測されるため、 $N_V = 19$ における転換の活性化エネルギーを算出した。

まず、 $N_V = 19$ の空孔クラスタを含む計算系に関して、c 成分転位ループに変換した際の原子の変位を記録する。1 計算ステップあたり、この変位の $1/10$ を各々の原子に与え、エネルギー最小化処理後のポテンシャルエネルギー増加を求める。この過程を 10 段階繰り返すことにより、c 成分転位ループ変換に要する活性化エネルギーを算出した。計算セルサイズは x 方向 $[1, -1, 0, 0]$ 10 nm、y 方向 $[1, 1, -2, 0]$ 10 nm、z 方向 $[0, 0, 0, 1]$ 10 nm、3 方向とも周期境界を設定した。また、温度は 0 K で、1 タイムステップを 5.0×10^{-15} s とした。各ステップにおける計算系全体のポテンシャルエネルギー増分を図 3.2.2-9 に示す。空孔クラスタの上下に位置する原子を近づけていくと、ポテンシャルエネルギーが徐々に増加することが分かる。ステップ数 6 (すなわち、c 成分転位ループ変換に必要な変位の $3/5$) でポテンシャルエネルギーは最大値 3.07 eV となり、その後僅かに減少する。この結果から、 $N_V = 19$ の空孔クラスタが c 成分転位ループに変換するために必要な活性化エネルギーは約 3.0 eV であることが明らかとなった。

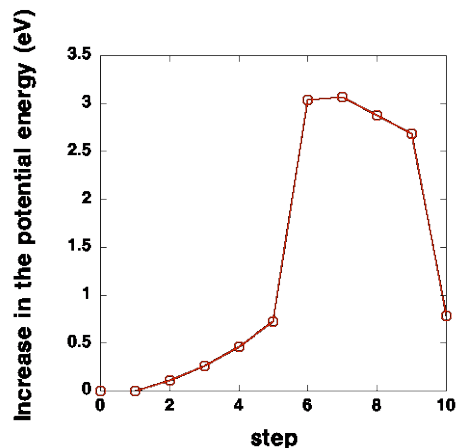


図 3.2.2-9 各ステップにおけるポテンシャルエネルギー増加

(2) 分子動力学法—有限要素法連成解析による割れ発生モデル化のための検討 (H28)

本研究では、水素化物形成時の割れ発生過程をモデル化するため、当グループでこれまで開発してきた MD 法-有限要素法 (FEM) 連成解析手法を用いて⁽⁶⁾、Zr 金属のセルに対する弾性応答を解析した。本手法の特徴は、MD 領域と FEM 領域の境界に二重解像度要素 (DRE) を配置することである。DRE の配置により、力学的整合性を保ちつつかつ不要な制約条件を排除した計算が可能となる。本研究の計算体系を図 3.2.2-10 に示す。x 方向 $[1, -1, 0, 0]$ 、y 方向 $[1, 1, -2, 0]$ 、z 方向 $[0, 0, 0, 1]$ とし、MD 領域は $2.0 \text{ nm} \times 2.0 \text{ nm} \times 5.0 \text{ nm}$ 、DRE 領域と FEM 領域はそれぞれ $2.0 \text{ nm} \times 2.0 \text{ nm} \times 2.0 \text{ nm}$ とした。また、原子間ポテンシャルとして Mendeleev らが開発したものを選定し⁽⁷⁾、更に短波長フォノン制御温度を 100 K とした計算を行った。

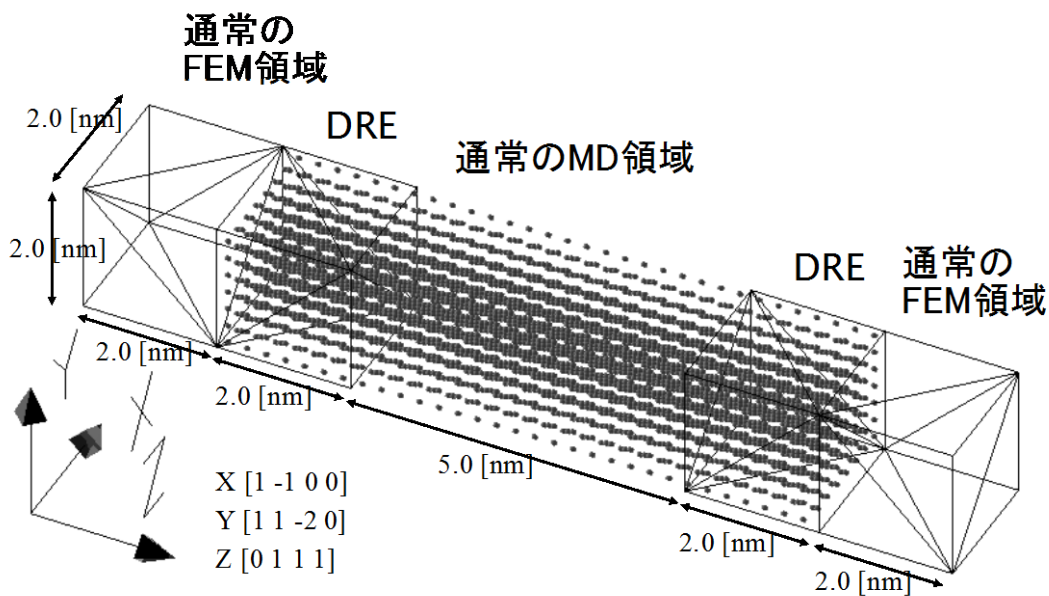


図 3.2.2-10 MD-FEM 連成解析の計算体系

図 3.2.2-11 には、z 方向長さの時間変化を示す。図には、比較のため、全て MD 領域とした計算結果も併せて示す。系は z 方向に単振動に近い運動を行っていることが分かる。同様の結果は、MD のみの計算でも得られている。両手法を比較すると、周期には数 ps の相違があるが、z 方向の平均長さ変化、伸び、振幅等に関しては良い一致を示すことが分かる。これらの結果から、Zr 金属に関しても MD-FEM 連成解析を用いて弾性応答を適切に再現できることが分かった。これにより、水素化物形成時の力学特性変化を記述するモデルを構築することができた。

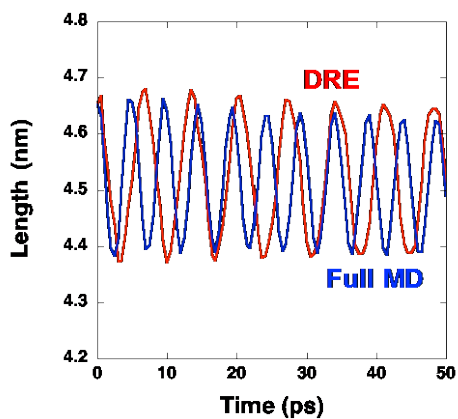


図 3.2.2-11 z 方向長さの時間変化

(3) 照射下における微細組織の発達過程及び水素化物による割れ発生過程のモデル化に関するまとめ (H28)

本研究でMD法、及びMD-FEM連成解析により判明したことを以下にまとめる。

- (1) a成分転位ループが存在しない場合、原子空孔を19以上含む場合はc成分転位ループが、それ以下では空孔クラスタが安定である。
- (2) a成分転位ループの存在により、c成分転位ループの形成エネルギーは減少し、原子空孔数がより少ないものから安定形態となる。
- (3) 形成エネルギーが同程度の空孔集合体（原子空孔数19）において、空孔クラスタがc成分転位ループに変換するための活性化エネルギーは3.0 eV程度である。
- (4) Zr金属に対しても、MD-FEM連成解析によりメゾスケールで弾性応答が精緻に再現でき、水素化物形成時の力学特性変化を記述し得る。

参考文献

- (1) A. V. Barashev et al., J. Nucl. Mater., vol. 461, (2015) 85-94
- (2) 澤部ら, 電力中央研究所報告, L11021(2012).
- (3) LAMMPS Molecular Dynamics Simulator <http://lammps.sandia.gov/>
- (4) C. Varvenne et al., Acta Mater. Vol. 78 (2014) 65-77
- (5) C. Dai et al., J. Nucl. Mater. 478 (2016) 125-134
- (6) 藤田智, 東京大学博士論文, 2012.3
- (7) M. I. Mendeleev et al, Philo. Mag. Lett 87 (2007) 349.

3. 2. 3 水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明（再委託先：原子力機構）

(1) 水素化物の基礎物性 (H27)

水素化物が形成された場合に材料の破壊靱性がどの程度下がるかを評価するため、水素化物の基礎物性を第一原理計算により解析した。水素化物の内部で割れやすい面を特定するとともに、水素化物と母材の境界の原子構造を明らかにし、この境界がどの程度割れやすいかを第一原理計算により解析し、水素化物存在下での材料割れの主要モードを推定した。

水素化物の主な組成としては γ -ZrH、 δ -ZrH_{1.5}、 ϵ -ZrH₂が挙げられる。このうち δ 相は面心立方格子構造となり、基本物性については過去に第一原理計算が行われている⁽¹⁾がその他について既往研究はない。 γ 、 ϵ 相ともにface centered tetragonal (fct) 構造となり面心立方格子のc軸方向の長さが他と違う結晶構造になることが知られている。図3.2.3-1にそれぞれの結晶構造と第一原理計算で得た電子密度分布を示す。いずれの場合も原子周辺での電子密度に異方性はみられず、共有結合性はないことが分かる。

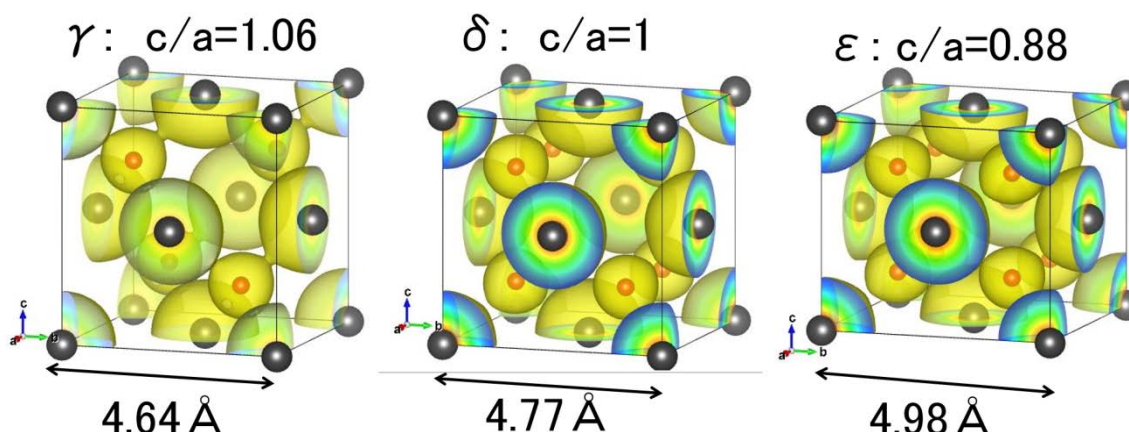


図 3. 2. 3-1 水素化物 γ -ZrH、 δ -ZrH_{1.5}、 ϵ -ZrH₂の hcp 結晶構造と電子密度分布
(Zr 原子と H 原子はそれぞれ黒と赤で示す)

まずは ZrH について、様々な結晶面の劈開エネルギーを計算し、どの面が割れやすいかを評価した。計算した面は(100)、(001)、(110)、(011)、(111)面である。ZrHにおいてはab方向とc方向で格子定数が異なるため、例えば(100)面と(001)面は等価でなく劈開エネルギーも異なる。これらの面を計算した結果、最も劈開エネルギーが低いのは(111)面で、その劈開エネルギーは 1.37 J/m²と計算された。ZrH_{1.5}に関する既往研究では同様に(111)面が最も劈開エネルギーが低く、1.28 J/m²であった。これらの結果から一般的に水素化物は(111)面が割れやすいとすることができる。また ZrH においては{011}双晶面が多数観察されることがあり、一般に格子欠陥はバルクより低い劈開エネルギーを持つため、この面での劈開エネルギーも評価した。図 3. 2. 3-2 にこの双晶面の模式図を示す。面状の格子欠陥において劈開が起こった場合、劈開後のそれぞれの表面は完全結晶の場合と同じ構造になるため、その劈開エネルギーは通常の劈開エネルギーから面状格子欠陥の面エネルギーを引いたものとなる。{011}双晶面のエネルギーは計算の結果 0.002 J/m²と非常に小さ

ということが分かった。劈開エネルギーはバルクの(011)面とほぼ同じで、特に割れやすいという傾向はみられなかった。また双晶面のエネルギーが低いという計算結果は実際の水素化物においてこの双晶面が多数観察されるという事実と整合する。双晶面が多数ある場合、格子定数の異方性が平均化されて全体としては fcc 構造となり、母材の Zr と接する場合に整合性が向上しひずみが減少すると考えられる。他にも様々な面状欠陥が考えられるが、その面エネルギーが高い場合、劈開エネルギーは低下して割れやすいことになるが生成エネルギーが高いため材料中で生成しにくいということになるため、ほかの面欠陥については計算の必要はないと判断した。

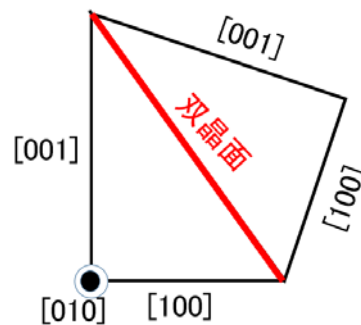


図 3. 2. 3-2 水素化物 γ -ZrH の {011} 双晶面の模式図

ZrH₂ については上記の結果を踏まえ、(111)面の劈開エネルギーのみを計算した結果、1.26 J/m² という値が得られた。比較のために Zr に関して、fcc 格子の(111)面に等価である六方細密格子 (hcp) 構造の底面 (0001) について劈開エネルギーを計算した結果、1.59 J/m² という結果が得られた。また(0001)面に近い構造を持つ第一錐面 (1-101)の劈開エネルギーは 1.56 J/m² で、底面に近い値が得られた。錐面については過去に計算された例はない。従来 Zr においては底面の表面エネルギーに比較して他の表面エネルギーが高いため照射材料中でボイド成長が起こりにくく平面的な空孔ループが生成されると考えられていたが、この錐面の計算結果からボイド成長が起こりにくい理由はそのような単純なメカニズムではないことが示唆される。以上の結果を表 3. 2. 3-1 にまとめる。

表 3. 2. 3-1 Zr 及び各種水素化物の劈開エネルギー (単位は J/m²)

物質/面	(100)	(001)	(110)	(011)	(111)	(011) twin	(1-101)
Zr					1.59		1.56
ZrH	1.75	1.75	1.59	1.58	1.37	1.58	
ZrH _{1.5}	1.83		1.57		1.28		
ZrH ₂					1.26		

(2) 水素化物/母材界面の劈開エネルギー評価 (H27)

次に水素化物と Zr 母材界面の劈開エネルギーを評価した。水素化物については、ほとんどの実験において Zr の底面(0001)に広がった板状の水素化物が観察されており、その界面において水素化物は(111)面で接していると考えられている。この界面の劈開エネルギーを ZrH と ZrH₂ について評価した。ただし Zr と水素化物では格子定数が異なるため、実際の界面は転位やひずみの影響で複雑な構造を持つと考えられ、その具体的な原子配列は水素化物の生成プロセスにも依存すると考えられる。このため本研究では構造を単純化し、水素化物が母材の Zr と同じ格子定数で整合的に析出している状態での界面劈開エネルギーを評価した。これは水素化物の析出物が十分小さい状況に対応している。計算においては系の半分を Zr、残りの半分を ZrH または ZrH₂ としてそれぞれ(0001)面と(111)面で接しているような原子配置を作成し、その界面で双方を引き離すことを行い前後のエネルギーを比較して劈開エネルギーを評価した。その結果、ZrH では 1.08 J/m²、ZrH₂ では 0.67 J/m² という結果が得られた。

実際に水素化物と母材の境界が割れる場合には双方に加わっていた弾性ひずみが解放されるため、劈開エネルギーは更に下がると考えられる。水素化物において界面にある原子 1 層だけが緩和しひずみエネルギーを解放した場合、劈開エネルギーは ZrH において 0.4 J/m²、ZrH₂ において 0.8 J/m² だけ低下する。この緩和によって界面の劈開エネルギーは大幅に低下し、場合によっては表面生成のエネルギー増加を完全に相殺することも考えられる。したがって、き裂発生の起点はこの母材・水素化物境界と考えてよい。析出水素化物の効果としては劈開エネルギーを低下させる効果とともに、転位の運動を阻害して降伏応力を上昇させる効果もあり、脆化にはこの 2 つの現象が寄与している。

(3) 平面状格子空孔クラスタへの水素吸着及び水素化物核生成 (H28)

水素化物が析出する過程を明らかにするため、母材中で水素を強くかつ多く吸着するような格子欠陥がその核となると仮定し、そのような欠陥として最も可能性が高いと考えられる平面的格子空孔集合体について計算を行った。水素化物と母材は Zr の底面を共通の結晶学的な面として共有しており、たとえば Zr 原子で構成される底面と H 原子で構成される底面を交互に重ねると水素化物 ZrH に近い構造となり、これにせん断変形を加えて ABAB と並んでいる原子面を ABCABC と変形することで水素化物と同じ原子構造となる。既往研究としては参考文献 2 において、実験で観察される底面 c 成分転位ループの内側の積層欠陥に対する水素の吸着エネルギーが計算されているが、このエネルギーは 0.15 eV 程度と報告されており、高温で水素を十分吸着するには弱いエネルギーである。空孔集合体にはこれより強いエネルギーで水素が吸着されることが推測される。

第一原理計算においては、近似として無限に大きい空孔集合体を想定し、ab 方向それぞれに周期境界条件を課して底面原子層を 1 層取り除いた系でこれを模擬した。水素の吸着エネルギーは、最初に空孔集合体表面に 1 個だけ水素が吸着する場合、及び吸着サイトが 100%水素によって占有された状態についてそれぞれ計算した。実際には ab 方向に 3×3 格子を用いて水素が周期境界条件の影響を受けないと考えられるケースで前者を、1×1 格子

を用いて全てのサイトが水素で占有されているケースで後者を計算した。計算の概要を図 3.2.3-3 に示す。空孔集合体の表面に水素が単独で吸着する場合のエネルギーは 0.5 eV で、積層欠陥の場合よりもはるかに大きいことが分かった。この値は 300 °C 程度の高温においても表面が水素で飽和するのに十分なエネルギーである。更に表面が水素で飽和した場合、水素一原子あたりの吸着エネルギーはより強くなり 0.6 eV となった。これらの結果から、水素化物は c 成分転位ループを核として生成するよりも平面的空孔集合体を核とした方が生成しやすいことが分かった。

続いて空孔集合体表面が水素で飽和した状態で原子層が 1 つ内側の母材側の原子面に更に水素が吸着した場合のエネルギーを計算したところ 0.3 eV であった。この場所は、空孔集合体表面に水素が全くないときに水素が来た場合、母材中に溶存しているときより 0.1 eV 高いエネルギーとなり吸着サイトとならない。つまり隣接する原子面で水素が飽和することにより局所的に原子構造が水素化物に近くなり、更に水素を吸着することで水素化物に近い構造を持つ領域が大きくなりエネルギーが下がるという現象が起こることが分かった。この計算の概要を図 3.2.3-4 に示す。このような、水素の吸着が更なる水素の吸着を促進するプロセスは母材側のいくつかの原子層まで継続して起こり、Zr 原子層の上下の両側で水素が飽和し ZrH_2 に近い原子構造が成長していくようなプロセスでは 4 原子層まで十分大きな吸着エネルギーがあることを確認した。このようなプロセスで生成した領域は ZrH_2 としては準安定な HCP 構造を有しており、十分成長した後ではより安定な FCT 構造へ相転移することにより水素化物の核が生成すると考えられる。

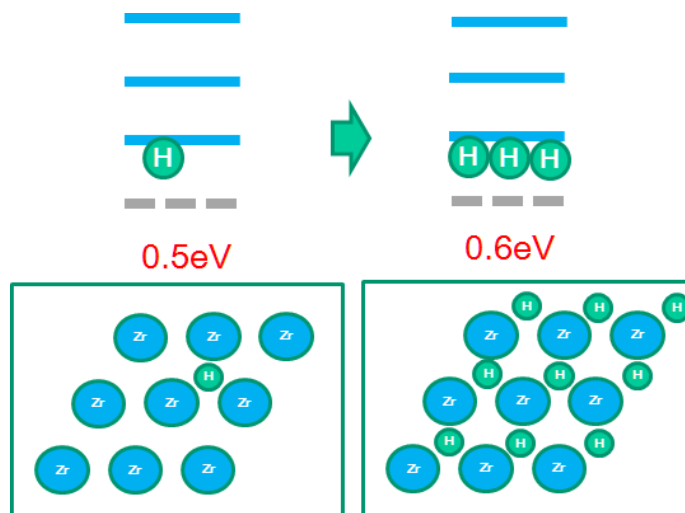


図 3.2.3-3 格子空孔クラスターへの水素吸着エネルギー計算の概要

(上側の図で水色の線が Zr の底面原子層、破線は取り除いた原子層をそれぞれ表す。下側の図は<c>軸から見た配置で、水色と緑はそれぞれ Zr と H 原子を表す。)

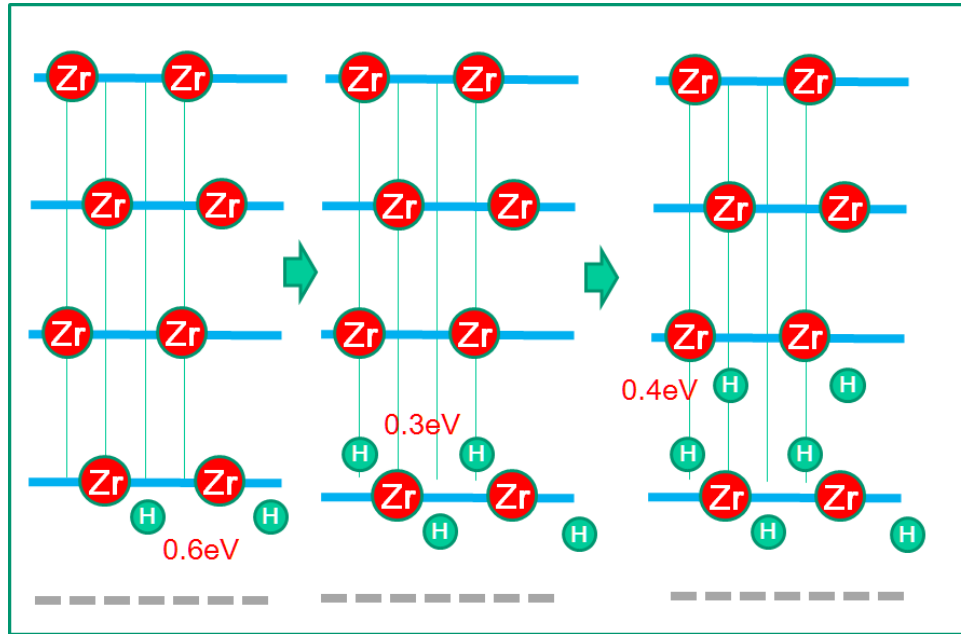


図 3. 2. 3-4 格子空孔クラスタ付近の母材内部への水素吸着エネルギー計算の概要
(水色の線が Zr の底面原子層、破線は取り除いた原子層をそれぞれ表す)

(4) 固溶 Fe 原子の性質及び水素との相互作用 (H28)

合金元素である Fe 原子が水素化物形成に及ぼす影響を調べるため、固溶 Fe 原子と水素の相互作用を第一原理計算で評価した。ジルカロイ中においては析出物として存在している Fe や Cr 原子が照射量の増加とともに徐々に溶出し、母材中で単独の原子として存在していることが分かっている。またこれらの原子は Zr の HCP 格子の中で格子間原子として存在し、八面体サイトの中心に配置していることが分かっている⁽³⁾。またこうした原子は Zr 中を比較的高速に拡散することが知られているため、まずは固溶 Fe 原子の Zr 中での移動障壁を計算し拡散速度を見積もることとした。面内方向及び c 軸方向それぞれについて移動障壁を第一原理計算で評価したところ、面内が 0.45 eV、c 軸方向が 0.3 eV であった。この値は Zr の自己格子間原子(SIA)よりも大きく、原子空孔よりも小さい。したがって、照射材料中では Fe 原子は比較的高速に拡散していることが分かった。固溶水素については既往研究があり、移動障壁は面内、c 軸方向ともに 0.42 eV である⁽¹⁾。次に固溶 Fe 原子と固溶水素原子が隣接した場合の相互作用エネルギーを第一原理計算で評価したところ、相対的な位置に応じて相互作用が非常に小さいかあるいは反発するかのどちらかであることが分かった。これは固溶 Fe 原子が水素の挙動には直接は影響を及ぼさないことを示唆している。しかし固溶 Fe 原子は照射で生じた SIA や空孔などの格子欠陥と強く相互作用すると考えられ、それによって水素化物生成の核となる空孔集合体の成長に大きな影響を及ぼす可能性がある。

(5) 固溶 Fe 原子と照射欠陥の相互作用 (H28)

固溶 Fe 原子が空孔集合体などの照射による微細組織形成に及ぼす影響を調べるため、固溶 Fe 原子と Zr の SIA 及び空孔との相互作用 (結合) エネルギーを第一原理計算で評価

した。その結果を表 3.2.3-2 に示す。固溶 Fe 原子同士や空孔同士はそれほど強く結合しないのに対し、固溶 Fe と SIA、固溶 Fe と空孔、また SIA 同士は強く結合することが分かった。SIA 同士、または SIA と固溶 Fe 原子が結合すると、図 3.2.3-5 に示すように 1 つの原子位置を 3 つの原子が共有するような配置となり安定化するのが原因である。このような結合は立方晶の金属ではみられない。また固溶 Fe と空孔が結合すると Zr 原子を Fe が置換した状態となり安定化する。

表 3.2.3-2 空孔、SIA、固溶 Fe 原子の間の相互作用（結合）エネルギー

欠陥種	空孔	SIA	固溶 Fe
空孔	0.2 eV		
SIA	5.0 eV (消滅)	0.8 eV	
固溶 Fe	1.8 eV	0.9 eV	0.3 eV

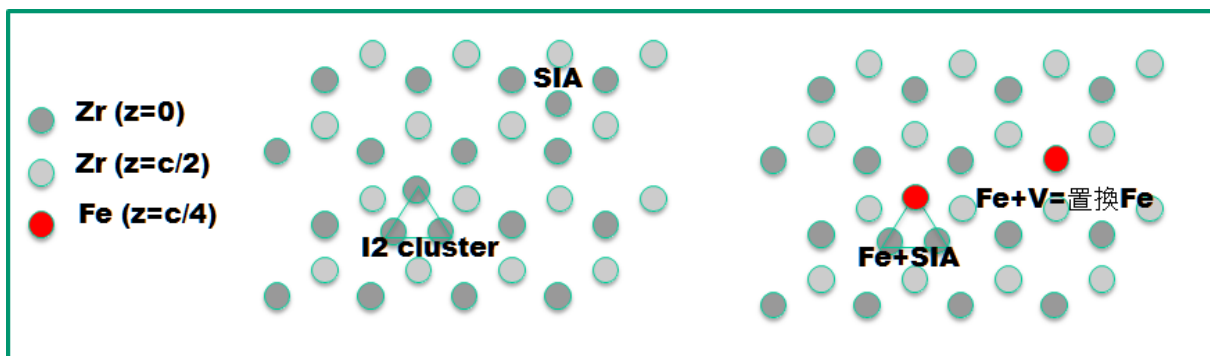


図 3.2.3-5 SIA、固溶 Fe 及びそれらが結合した格子欠陥の構造を c 軸方向から見た図
(記号の色は c 軸方向の高さを表す)

更に SIA が 3 個結合した欠陥の安定構造を第一原理計算により求めた結果を図 3.2.3-6 に示す。SIA と同一底面にあり、2 つの SIA に隣接した原子は SIA と反対側へ押し出され、もともとの原子位置を 3 個の Zr 原子が共有する配置になり安定化するが、このように押し出された原子が 2 つ以上あると、同様の現象が繰り返されて更に別の原子が押し出されることで最終的には三角形のクラスタを形成することが分かった。この三角形をなす Zr 原子は母材中の底面の積層が ABAB の順になっているとすると C に対応する原子位置にあり、積層欠陥を形成していることになる。この結果から、母材中を拡散する SIA 同士が結合していくと底面上に広がった集合体を形成すると推測されるが、実験観察では照射の初期から柱面に水平で $\langle a \rangle$ 成分のひずみを持つ転位ループが主に観察されている。したがって、このような柱面転位ループは単純な SIA 原子の結合で生成されるのではなく別の機構により生成されると考えられる。既往研究では、初期カスケードの分子動力学計算により可動な柱面転位ループが生成される場合があることが分かっており⁽⁴⁾、そうした転位ループが単独の SIA を吸収し不動な柱面転位ループに変化するという機構が考えられる。

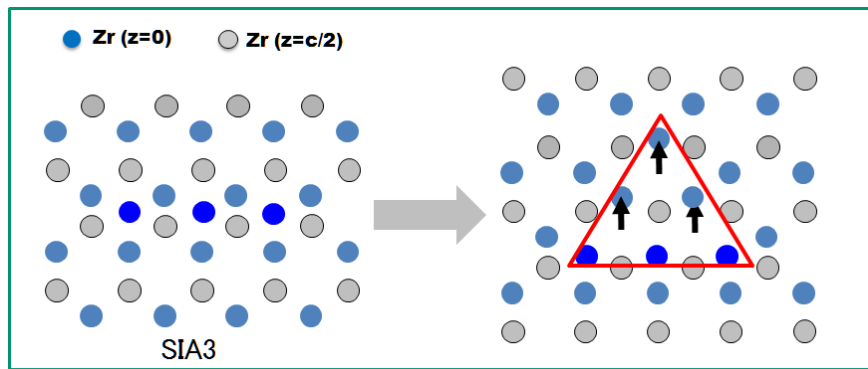


図 3. 2. 3-6 SIA が 3 個結合した格子欠陥の形状
(面上で 6 原子からなる三角形の積層欠陥を形成)

(6) 照射欠陥成長に対する Fe 原子の影響 (H28)

固溶 Fe 原子の照射欠陥成長に対する影響を評価するため、SIA 集合体、空孔集合体及び固溶 Fe の数密度及び平均サイズの時間発展を反応速度論モデルで計算した。拡散定数は既往研究及び本研究で第一原理計算を用いて得られた値を使った。また集合体が熱的に分解する過程は結合エネルギーの小さい空孔集合体についてのみ考え、更に既往研究により空孔 1 個につき Fe 原子が 2 個強く吸着されることが分かっている⁽³⁾、空孔集合体を構成する空孔の数が内部に吸着された Fe 原子の数の半分になったらそれ以上は分解が起きないと仮定した。200 °C、0.1 dpa/day の条件で計算した SIA 及び空孔の集合体のサイズの時間変化を図 3. 2. 3-7 に示す。照射の初期には SIA の集合体が成長するが、その後で空孔を吸収して収縮し代わって空孔集合体が成長していくことが分かる。また成長する空孔集合体には空孔の数の 2 倍の Fe 原子が吸着され、通常では分解過程により収縮する空孔集合体が Fe により分解されず成長していくことが計算結果から分かる。この計算では空孔集合体のサイズとして 10 までしか方程式に取り入れていないためサイズが 10 に近くなると成長が鈍る結果が得られているが、これは計算の限界を示すものであり、実際は更に成長を続けると考えられる。ジルカロイ合金に含まれる Fe 以外の Cr、 Ni なども文献 3 によると Zr 中で Fe と同様にふるまうことが分かっており、これらの合金元素は特に空孔集合体の形成に大きな影響を与えると推測される。

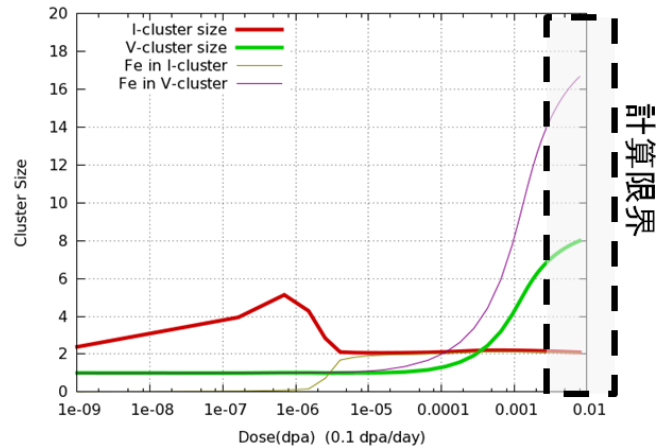


図 3.2.3-7 SIA 及び空孔集合体の平均サイズ変化

(点線で囲んだ領域は集合体のサイズが計算の上限を超えて評価できない部分を示す。
紫の線は1つの空孔集合体に吸着されたFe原子の数を示す。)

(7) 水素化物形成過程及び基礎物性の第一原理計算による解明：まとめ (H27～H28)

第一原理計算及び反応速度論モデルにより判明したことを以下にまとめる。

- ① 水素化物が生成した場合、水素化物と母材の界面である hcp 格子底面が最も割れやすい。
- ② Zr 母材中に平面的な空孔集合体があると、水素が強く吸着し飽和することで水素化物生成の核となる。
- ③ 固溶水素、固溶Fe原子はともに母材中を高速に拡散するが互いに相互作用しない。
- ④ 固溶Fe原子は照射欠陥集合体の成長に大きな影響を及ぼし、特に空孔集合体の成長を促進することで間接的に水素化物生成に影響を与える。

参考文献

- (1) Y. Udagawa, M. Yamaguchi, H. Abe, N. Sekimura, and T. Fuketa, "Ab initio study on plane defects in zirconium-hydrogen solid solution and zirconium hydride." *Acta Materialia* 58, 3927-3938 (2010).
- (2) C. Varvenne, O. Mackain, L. Proville, and E. Clouet, "Hydrogen and vacancy clustering in zirconium", *Acta Materialia* 102, 56-69 (2016).
- (3) P. A. Burr et al., *Journal of Nuclear Materials*, 467, 320-331 (2015).
- (4) F. Gao, D. J. Bacon, L. M. Howe, C. B. So, *Journal of nuclear materials*, 294(3), 288-298 (2001).

3.2.4 重イオン照射試験及び材料評価（再委託先：九州大学）

(1) 照射試験準備及び照射条件設定（H27）

RBWRの高照射環境による高燃焼度領域(65 GWd/t(燃料被覆管の照射損傷量：23.4 dpa)のうち、特に局所的に100 GWd/t以上(燃料被覆管の照射損傷量：36.0 dpa以上))に達する部位の燃料被覆管の健全性は、形成される空孔型のc成分転位ループと水素化物との関連性が指摘されている。c成分転位ループの形成には、ジルカロイ2中に析出している2種類の析出物($Zr(Fe, Cr)_2$ 、 $Zr_2(Fe, Ni)$)の照射環境下での相安定性を考慮する必要がある(図3.2.4-1参照)^(1, 2)。本研究では、c成分転位ループの形成と密接な関連があるFe元素の効果に注目して、ジルカロイ2、Zr-1.5Sn-0.5Fe、Zr-1.5Snを用いた。照射温度は、観察例がある400℃とした。各種イオンの発生に必要なスパッタイオン源コーン及びイオン照射試料の設置用ジグ等を用いて、最大50 dpaまでの照射試験を実施した。2種類(Ni, Zr)のコーンを作製したが、照射には Ni^{3+} イオンを用いた。また、水素化物の形成と照射欠陥や既存転位との相互作用を検討する目的で、水素添加は2種類(水素予注入と水素イオン照射)の方法で実施した。本研究で実施した50 dpaまでの加速器パラメータを図3.2.4-2に示す。本研究の照射条件と各材料での検討項目を表3.2.4-1にまとめている。

表3.2.4-1 本研究の照射実験条件

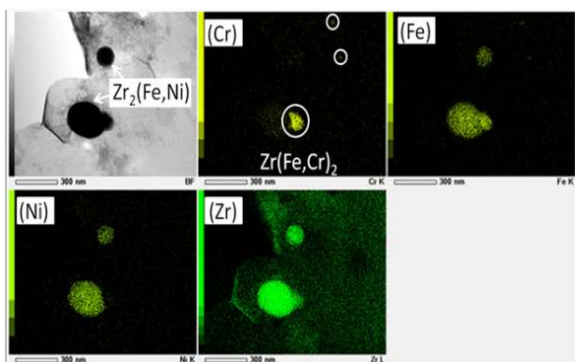


図3.2.4-1 ジルカロイ2中に形成される2種類の析出物

	温度(°C)	Zr(またはNi)イオン照射(dpa)	水素注入(2種類)	微細組織観察	検討項目
①	400	30	-	有	c成分転位ループ形成再現
②		50	-	有	照射量影響評価(c成分転位ループ数密度・サイズ)
③		15, 30	有	有	水素化物形成再現
④		30	-	有	水素化物形成に及ぼすFe影響④の比較
⑤		30	-	有	照射量影響評価(c成分転位ループ数密度・サイズ)



(b)		イオン源	
		Zr	Ni
イオン源	カソード電圧(kV)	7.0	7.0
	イオナイザー電流値(A)	22	2
	リザーバ温度(°C)	127	127
コントロールシステム	リトラクト部電流値(μA)	0.15	1.75
	ターミナル電圧(kV)	800	800
最終ビーム電流値(nA)		検出されず	6.0nA

図3.2.4-2 作成したイオン源コーン(a)と加速器ビーム条件(b)

(2) タンデム加速器による照射と照射後の組織観察（H28）

試料は、低速カッターで切り出した後、機械研磨の後、1.0 μから0.5 μまでのアルミナ粒子を用いたバフ研磨にて照射表面を鏡面に仕上げた。その後、九州大学応用化学研究

所に設置されたタンデム型加速器を用いて重イオンを照射した。重イオンのエネルギー及びイオン種は 3.2 MeV の Ni イオン、試料温度は 400 °C、ピーク照射量は最大 50 dpa である (図 3.2.4-3 参照)。重イオンを照射された試料は、集束イオンビーム (Focused Ion Beam; FIB) 装置 (FB-2100、HITACHI) を用いて薄膜化し、TEM (Transmission Electron Microscopy) 観察に供した。試料の微細組織の観察には加速電圧 200 kV の球面収差補正機能を有する原子能分析電子顕微鏡 (ARM200FC、JEOL) 及び加速電圧 300 kV の電子顕微鏡 (JEM-3000F、JEOL) を使い、TEM、STEM (Scanning Transmission Electron Microscopy) 及び STEM-EDS (Energy Dispersive Spectroscopy) による組織観察及び元素分析を行った。

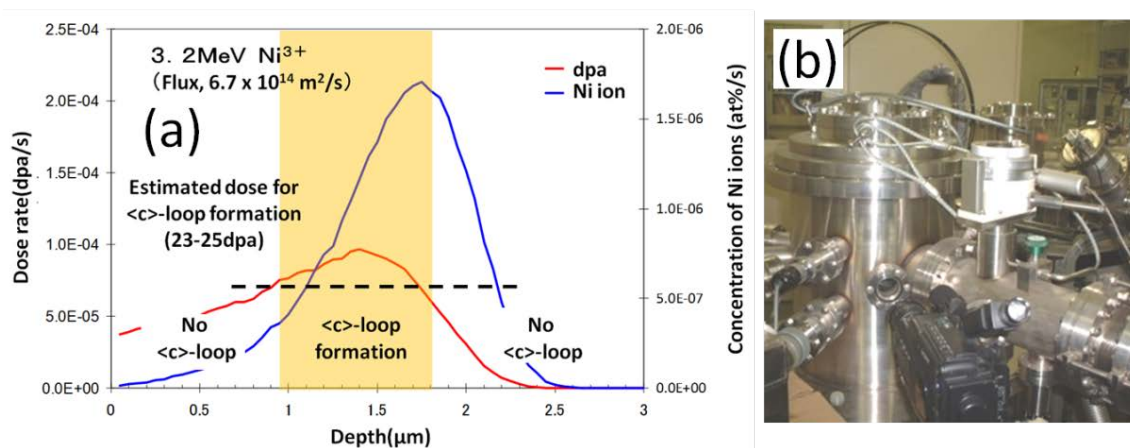


図 3.2.4-3 実験に用いたイオンの損傷分布 (a) と照射用高温チャンバー (b)

(3) ジルカロイ 2 における c 成分転位ループの形成 (H28)

図 3.2.4-4 はジルカロイ 2 (400 °C、30 dpa) 照射後の TEM による組織断面観察の結果である。入射表面から深さが 1.0 から 1.8 μm までの領域に c 成分転位ループが確認されたが、それ以外の領域には c 成分転位ループが形成されなかった。(0001) 面に平行なコントラストの幅は 30 から 40 nm であり先行研究とほぼ同一である⁽¹⁾。図 3.2.4-3 で得られたイオンの損傷分布と比較するとこの領域は、照射量が 23 dpa 以上の領域に相当することが分かる。また、同一条件で 15 dpa までの照射を行い、c 成分転位ループが形成されていないことを確認した。

図 3.2.4-5 (a) に照射領域の STEM-BF 像を示す。左上に試料表面が存在しており、2本の白い点線の内側に c 成分転位ループが観察される。(b) は、同じ領域の STEM-EDS マッピング像であり、Fe は緑、Cr は赤、Ni は青で表示し STEM-BF 像に重ね合わせたものである。(c) は重ね合わせ像中に記号を付した析出物の元素分析結果であり、両端に母相を含み析出物を横切るようにして元素プロファイルを得た。縦軸は元素の特性 X 線のカウント数、横軸は距離 (μm) である。比較的大きな析出物 (3-5) は、Zr-Ni-Fe 系の析出物で、Fe と Ni の濃度がほぼ同一であることから Zr₂(Fe, Ni) と考えられるものである。一方、析出物 (赤色, 1-2) は粒径が小さく Zr-Cr-Fe 系の析出物である。赤色の析出物は、重イオン照射による弾き出しの影響を受けて Zr(Fe, Cr)₂ から Fe 元素が減少している。すなわち、試料表面からダメージピーク近傍では顕著に Fe 元素の減少がみられる。

以上より、重イオン照射による Zr-Cr-Fe 系の析出物からの Fe 元素の減少の程度が高く、照射下での析出物の相安定性が Zr-Ni-Fe 系と Zr-Cr-Fe 系で異なる可能性がある。既存析出物の照射下での相安定は、後述するように c 成分転位ループの形成と密接に関連し、詳細な検討が今後必要となる。

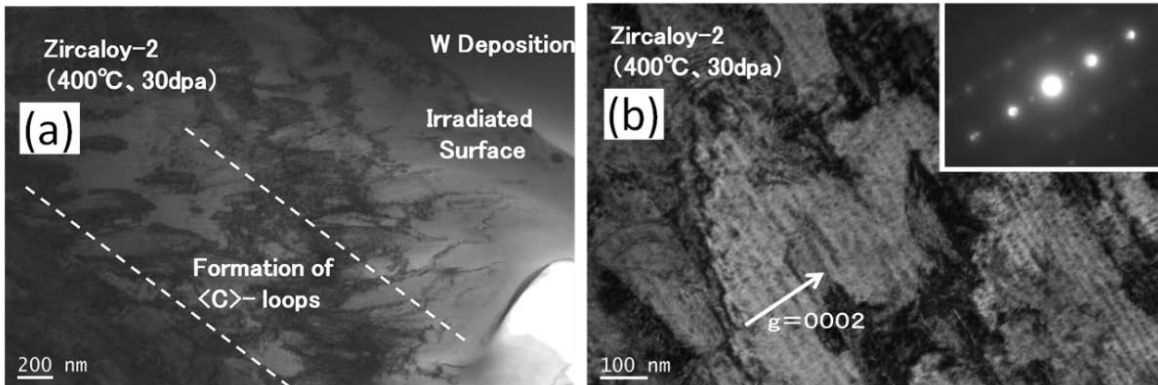


図 3.2.4-4 ジルカロイ 2(400 °C、30 dpa)照射後 TEM-BF 像 (a)断面 (b)c 成分転位ループ

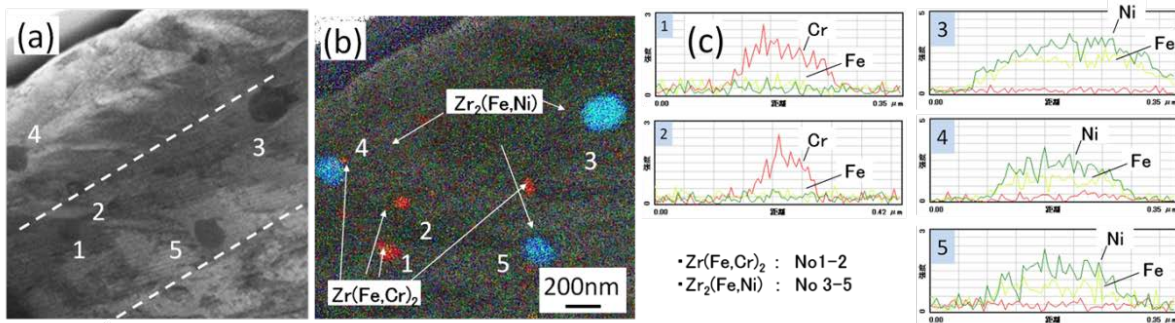


図 3.2.4-5 2 種類の析出物のライン分析 (a) STEM-BF 像 (b) マッピング重ね合わせ像 (c) 析出物 (1 から 5) のライン分析

(4) モデル合金における c 成分転位ループの形成と Fe 添加効果 (H28)

図 3.2.4-6 に 2 種類のモデル合金 (Zr-1.5Sn, Zr-1.5Sn-0.3Fe) の 400 °C、30 dpa 照射後の内部組織の観察結果を示す。Fe を 0.3%含む Zr-1.5Sn-0.3Fe 合金では、上記に示したジルカロイ 2 と同様に、ダメージピーク近傍に c 成分転位ループが確認されたが、非添加合金 (Zr-1.5Sn) では、確認されなかった。以上のことから、c 成分転位ループの核形成に及ぼす Fe 元素の寄与が指摘される (3)。

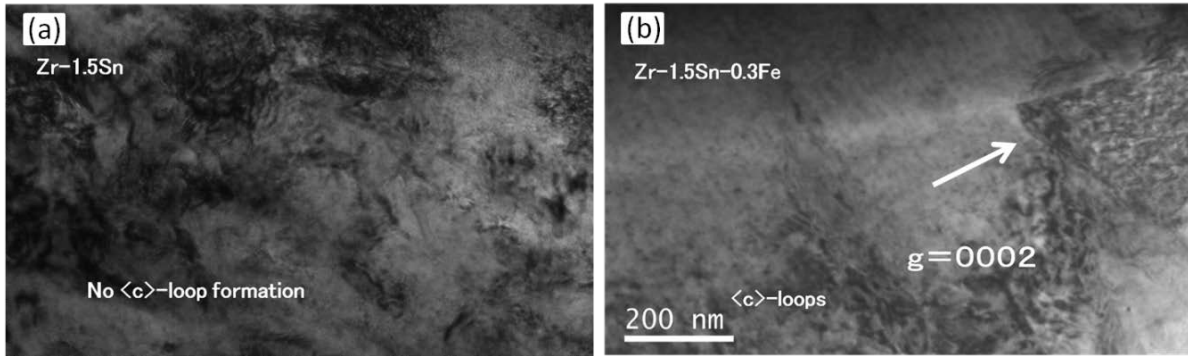


図 3.2.4-6 モデル合金 (400 °C、30 dpa)照射後 TEM-BF 像 (a)Zr-1.5Sn (b)Zr-1.5Sn-0.3Fe

(5) ジルカロイ 2 における組織組成変化の照射量依存性と Fe のシンクでの偏析 (H28)

図 3.2.4-7 に 400 °C、50 dpa 照射後の組織観察結果を示す。照射量の増加に従い、(左図) に示すように 30dpa 照射結果に比べ、 c 成分転位ループが形成される領域が入射表面から深さ 0.6 から 1.9 μm までの領域に拡大していることが分かる。右図 (b) は、(a) 中の白カッコ領域の HRTEM (High Resolution Transmission Electron Microscopy) 像を示すが、 c 面の原子配列を示す像は、矢印で示すように局所的に歪んでいることが判る。これは、 c 面上での局所的な偏析・析出等の影響を反映したものである。図 3.2.4-8 に、同一試料の STEM-EDS による元素マッピングの結果を示す。(a) に示すように照射領域に存在した Zr-Cr-Fe 系の析出物から Fe は既に消失していることが分かる。また、(b) により析出物から消失した Fe は c 成分転位ループ上に濃縮していることから、照射環境下では移動エネルギーの小さい格子間原子と結合して拡散していることが推測される。また、 c 成分転位ループは形成される領域が拡大するが、400 °C、30 dpa と比べて組織の照射量依存性はほとんどない。これは、ジルカロイ 2 の場合、不溶性ガスが少なくポイド (空孔型) が不安定で、一定の空孔濃度に達すると一斉に空孔クラスタが c 成分転位ループに変換し、これが高照射領域では安定な組織であることを示している。

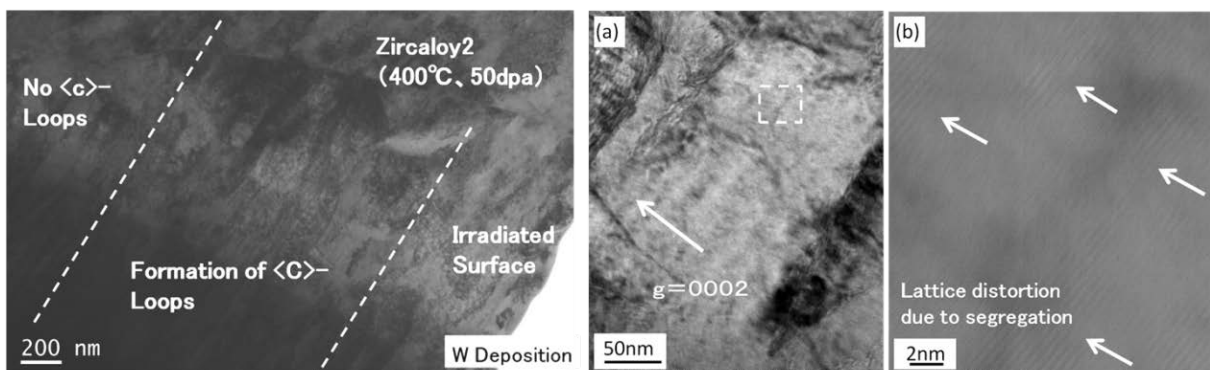


図 3.2.4-7 ジルカロイ 2 (400 °C、50 dpa) 照射後 TEM 像 (左図) 試料断面組織 (右図) (a) c 成分転位ループの形成 (b) HRTEM 像 (a) 中の囲い領域

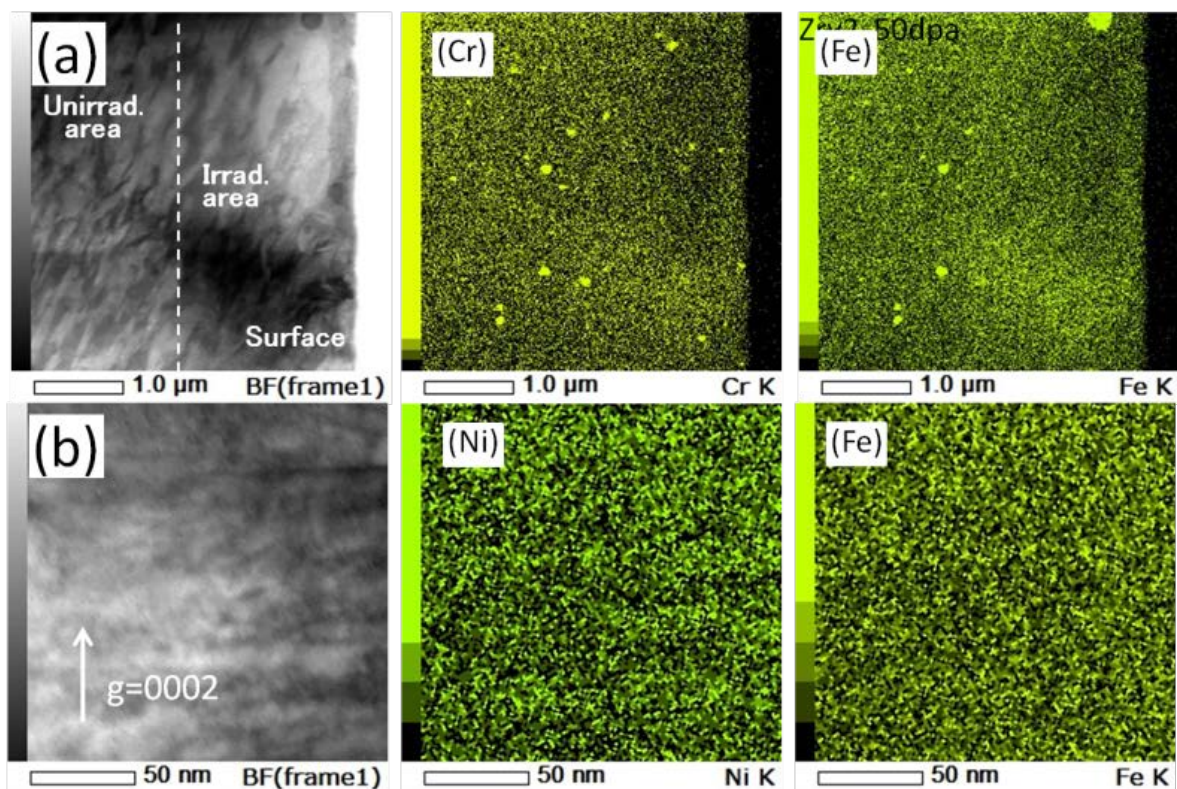


図 3.2.4-8 ジルカロイ 2(400 °C、50 dpa)照射後 STEM-EDS マッピング
 (a) 照射領域と非照射領域 (b) c 成分転位ループ (照射領域)

(6) 水素注入効果について (H28)

ジルカロイ 2 への水素注入は、Ni イオン照射を行った試験片に対して水素イオン (400 °C、10 kV、 10^{22} / m^2) 注入並びに水素雰囲気からの水素予注入 (60、300 ppm) の 2 つの方法により実施した。表面近傍のイオン照射領域は、試料表面からの注入にともなう局所変形から組織観察が不可能であったが、試料深部 (照射領域外) では、図 3.2.4-9 (左図) に示すように転位近傍において水素バブルが多数観察された。(右図) (a)、(b) は 300 ppm 水素注入後の内部組織の元素マッピング像及び STEM-BF 像を示す。矢印で示すように一方向に成長した板状水素化物は主に Zr-Cr-Fe 系の析出物の界面上で優先的に形成され ((a) 参照)、析出物周辺には転位組織が発達している ((b) 矢印参照)。析出物周辺の転位は水素化物の成長にともなって発生することがその場観察実験から既に明らかになっている⁽⁴⁾。この試料に対して、400 °C、30 dpa までの照射を実施し内部組織を観察したが、60、300 ppm の何れの試料においても c 成分転位ループの形成は確認されなかった。

以上のことから、RBWR 照射環境下で Fe の供給源である Zr-Cr-Fe 系の析出物は、水素化物形成においても形成場所としても重要な役割を果たすこと。水素化物の成長にともなう転位や水素化物は、マトリクス中の Fe のトラップサイトとして作用することにより、c 成分転位ループの核形成を抑制する機構が存在すること、また、水素化物の形成は、試料内の微小歪場の影響により大きな影響を受けることが明らかとなった。原子炉燃料被覆管では、多軸応力が働くことが多く、水素化物は外部応力や試料内の微小歪場の存在により、その形態が大きく変化することが予測される。今後は、実機中性子照射試験片を用いた研究や

より実機炉内環境に近い水素導入法の開発が求められる。

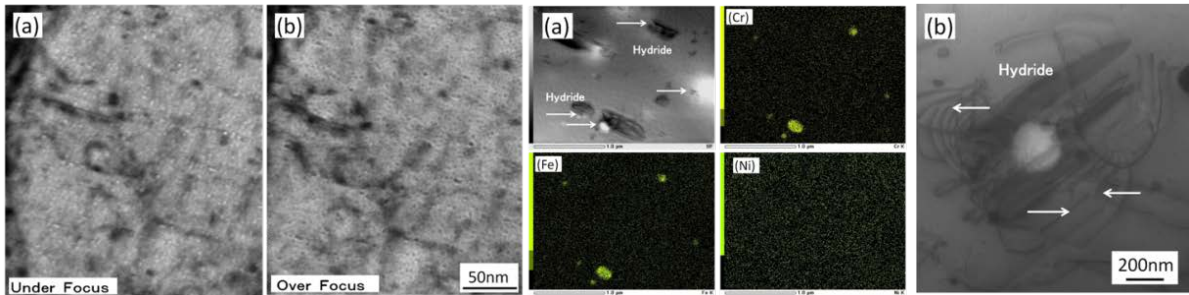


図 3.2.4-9 水素イオン注入後(左図(a)アンダーフォーカス(b)オーバーフォーカス)、300 ppm 水素予注入後 (右図(a) STEM-EDS マッピング像(b) STEM-BF 像)

(7)まとめ (H28)

九大・タンデム照射場を利用した重・軽イオン照射並びにその後の収差補正機能を有する高分解能顕微鏡を活用した TEM、STEM-EDS 観察により、以下のことが明らかになった。

- ① ジルカロイ 2 及び Fe を添加した Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金を対象とした 400 °C 照射において c 成分転位ループが観察された。一方、Zr-1.5Sn 合金では、同一条件では確認されず、c 成分転位ループの形成には Fe 元素が大きな役割を果たしていることが分かる。
- ② ジルカロイ 2 への約 23 dpa の照射量で c 成分転位ループが発生すること及び、照射環境下では Zr-Cr-Fe 系の析出物からの Fe の消失が顕著となり、Fe は c 成分転位ループ界面で濃集していることが明らかとなった。
- ③ 試料への水素注入の結果、水素と Zr-Cr-Fe 系の析出物や転位との相互作用は確認されたが、c 成分転位ループの形成は確認されなかった。予注入による水素化物やその形成にともなう転位が c 成分転位ループの核形成を阻害していると推測される。
- ④ 本研究から、Fe を含有する Zr 合金は、照射影響により c 成分転位ループを形成するが、その形成過程に及ぼす水素の影響を明確化するためには、より実機炉内環境に近い水素導入法の開発が求められる。

参考文献

- (1) 澤部孝史、園田健、亀山高範、北島庄一、「電力中央研究所報告書」 L11021, 2011.
- (2) 園田健、澤部孝史、西田憲二、亀山高範、北島庄一、土肥謙次、「電力中央研究所報告書」 L10015, 2011
- (3) H. Watanabe, K. Takahashi, Y. Aono, Y. Maruno, “Effects of alloying element in Zr alloys during ion irradiation”, Numat 2016 (Nov, 2016, Monperiller, France).
- (4) Y. Shinohara, H. Abe, T. Iwai, N. Sekimura, T. Kido, H. Yamamoto, T. Taguchi, Journal of Nuclear Science and Technology, 46, 6, p. 564-571 (2009)

3.3 研究推進 (H27~H28)

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めた。

全体会議を3回(2015年11月6日、2016年6月13日、11月22日)、各研究項目間での会議を8回(2015年12月14日、2016年2月26日、3月8日、3月24日、5月15日、6月7日、2017年1月23日、2月22日)開催した。会議では活発な議論が行われ、全炉心輸送計算による炉心特性評価の進め方と、水素吸収メカニズム解明に向けた計算及び実験方針について参加者全体で確認した。表3.3-1に成果物をまとめて示す。

表 3.3-1 成果物

【学会等における発表】

発表した成果 (発表題目)	口頭・ ポスター 発表の別	発表者 氏名	発表した 学会等名	発表月日等	国内・ 外 の別
MD法によるFCC金属を対象とした刃状転位-Frank loop相互作用に及ぼす積層欠陥エネルギーの影響 (1)相互作用形態に及ぼす積層欠陥エネルギーの影響	口頭	沖田泰良 林祐二郎 早川頌 板倉充洋	日本原子力学会 2016年春の年会	2016/3/27	国内
MD法によるFCC金属を対象とした刃状転位-Frank loop相互作用に及ぼす積層欠陥エネルギーの影響 (2)ループサイズによる相互作用形態の変化	口頭	林祐二郎 沖田泰良 板倉充洋	日本原子力学会 2016年春の年会	2016/3/27	国内
BCC鉄における格子間原子集合体の刃状転位への保存的上昇運動のモデル化	口頭	早川頌 沖田泰良 板倉充洋 愛知正温	日本原子力学会 2016年春の年会	2016/3/27	国内
Zr中水素化物の第一原理計算	口頭	板倉充洋 沖田泰良	日本原子力学会 2016年春の年会	2016/3/27	国内
Zr中溶質元素の第一原理計算	口頭	板倉充洋 沖田泰良	日本原子力学会 2016年秋の年会	2016/9/8	国内
Effects of alloying element in Zr alloys during ion irradiation	ポスター 発表	渡辺英雄 高橋克仁 青野泰久 丸野祐策	Nuclear Materials Conference2016	2016/11/9	国外
First-principles calculation of hydrogen absorption to a planar vacancy cluster in zirconium	ポスター 発表	板倉充洋 沖田泰良	2016 MRS Fall Meeting & Exhibit	2016/11/30	国外
高効率TRU燃焼を可能とする革新的水冷却炉RBWRの研究開発 (1)全炉心輸送計算による炉心特性評価	口頭	三輪順一 大塚雅哉 長家康展	日本原子力学会 2017年春の年会	2017/3/29	国内
高効率TRU燃焼を可能とする革新的水冷却炉RBWRの研究開発 (2)Zr合金の重イオン照射試験	口頭	渡辺英雄 高橋克仁 丸野祐策	日本原子力学会 2017年春の年会	2017/3/29	国内
高効率TRU燃焼を可能とする革新的水冷却炉RBWRの研究開発 (3)Zr中溶質元素・照射欠陥相互作用の第一原理計算	口頭	板倉充洋 沖田泰良	日本原子力学会 2017年春の年会	2017/3/29	国内

【学会誌・雑誌等における論文掲載】

掲載した論文 (タイトル)	発表者氏名	発表媒体 (学会誌・ 雑誌等名 巻号ペー ジ、発表日時 等)	発表した 月	国内・ 外の別	査読の 有無
Effects of stacking fault energy on defect formation process in face-centered cubic metals	T. Okita, Y. Yang, J. Hirabayashi, M. Itakura, K. Suzuki	Philosophical magazine Vol. 96(2016) p. 1579-1597	2016/4	国外	有

4. 結言

(1) 全炉心輸送計算による炉心特性評価

核定数計算での誤差を排除できるモンテカルロ法を用いた大規模炉心計算手法による試解析を行うため、現状の水冷却 TRU 燃焼炉の仕様にに基づき、モンテカルロ計算コード MVP 及び MVP に燃焼計算機能を追加した計算コード MVP-BURN の入力となる燃料集合体・炉心解析モデルを構築した。試解析で用いる計算機資源と計算速度などを考慮して、燃料集合体解析モデルは、幾何形状及び物質の模擬方法、燃料バンドル内の燃焼領域や、軸方向の分割数及び分割位置を設定し、炉心解析モデルは、炉心の対称性により 1/6 炉心を設定し、運転中の制御棒の挿入引き抜きによる余剰反応度制御に対応した。

モンテカルロ法を用いた大規模全炉心計算手法においては、実機炉心に対する温度分布を正確に考慮できるようにするため、現在の計算機リソース上で実現できる疑似物質法をモンテカルロ計算コード MVP に実装した。モンテカルロ計算コード MVP により評価した出力分布を用いて、冷却水の熱水力計算を行い、そこで得られたボイド率分布を入力として、MVP による出力分布の評価を繰り返す、核熱連成計算システムを構築した。

燃料集合体・炉心解析モデルを用いて核熱連成計算システムにより RBWR の試解析を行った結果、サイクル初期、サイクル末期のそれぞれ実効増倍率は 1.0295、1.0248、TRU 燃焼量は 0.46 t/GWe/年となった。炉心流量を定格流量から 90%減らしたときのボイド反応度係数はサイクル初期で 8 pcm/%void、サイクル末期で 19 pcm/%void と正となったが、上部 TRU 領域と下部 TRU 領域の TRU 富化度を低減することで、TRU 中の核分裂性物質が減少し炉心の実効増倍率を減少させ、ボイド反応度係数負に寄与する劣化 U の割合が増加して炉心のボイド反応度係数がより負になることが分かり、TRU 富化度を低減してボイド反応度係数負を実現できる見通しを得た。また、TRU 燃焼量は TRU 富化度低減により 0.46 t/GWe/年から 0.42 t/GWe/年となる見通しである。

炉心設計における厳密解を得るために、計算誤差を排除した解析手法を構築した。一方、炉心設計の誤差には計算手法による誤差とともに、核計算に用いている核データに起因する誤差が存在する。今後、炉心設計における固有値や安全余裕を適切に設定するためには、全炉心モンテカルロ計算により核データの誤差評価を高精度に評価する必要がある。

(2) ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム解明と水素脆化挙動評価

RBWR の燃焼度は 65 GWd/t(燃料被覆管の照射損傷量：23.4 dpa)であり、局所的には 100 GWd/t 以上(燃料被覆管の照射損傷量：36.0 dpa 以上)と BWR よりもその中性子照射量は局所的に増えるものの、炉内の滞在時間は BWR と同等である。本研究では RBWR 環境におけるジルカロイ燃料被覆管の水素吸収及び水素脆化特性を評価するために、照射量と炉内滞在時間の影響を分離評価し、Zr 合金の RBWR への適用性を評価した。

分子動力学計算及び第一原理計算では、中性子照射により析出物からマトリクスへ固溶した鉄などの合金元素は、材料中を高速に拡散し格子間原子や空孔と強く結びつき、c 成分転位ループの生成を助長する働きがあることが明らかとなった。更に固溶 Fe 原子は照射欠陥集合体の成長に大きな影響を及ぼし、特に空孔集合体の成長を促進することで間接的に水素化物生成

に影響を与えることが分かった。また、Zr 合金を対象とした MD-FEM 連成解析を用いて弾性応答を適切に再現できることが分かった。これにより、水素化物形成時の力学特性変化を記述するモデルを構築することができた。

照射試験による実験的検証の結果、鉄を含有するジルカロイ 2 及び Zr-1.5Sn-0.25Fe 合金では、23 dpa 程度の照射により c 成分転位ループが形成されることが確認されたとともに、形成した c 成分転位ループが水素化物析出の核となりうることが明らかとなった。しかし 23dpa 以上に照射量が増加しても、c 成分転位ループ形成領域の微視組織に差異は認められず、組織の照射量依存性はほとんどないことが分かった。

以上の検討結果から、照射量が 23 dpa 程度以上となる RBWR の高照射量環境では、Fe 等の固溶合金成分の影響で、燃料被覆管における c 成分転位ループ形成が促進され、水素化物形成とそれにもなう水素脆化の発生が予測される。しかし、c 成分転位ループは約 23 dpa の照射量より生成し、その組織形態は以降の照射量でも変化は認められなかった。これが水素吸収に寄与すると考えると照射量 23 dpa 以降の水素吸収量は照射量ではなく、炉内滞在時間に影響されるものと推察される。

一方で、実炉環境中においては、燃料被覆管の表面の酸化皮膜形成過程に生じる水素のバルク金属への侵入と、照射欠陥形成が同時かつ相互に影響しながら進行する。本研究の成果から、照射並びに水素影響を定量的に評価するためには、候補材料に対して照射と水素注入を同時に実現する評価・試験方法など、新たな手法の開発が重要であるとの知見を得た。更には、実炉環境中において形成した酸化皮膜の性状の経時あるいは照射による変化が、水素透過性に及ぼす影響を把握する必要性が考えられた。今後、RBWR へのジルカロイ製燃料被覆管の適用可否の判断には、上記の検討・評価を進めていく必要がある。加えて、Zr 合金の水素吸収と水素化物形成を低減させるために、高温高圧水環境下、高照射量環境下における水素化物の生成挙動を考慮した合金成分適正化が必要との指針を得た。

5. 付録:RBWR の開発状況

TRU 燃焼を可能とする軽水炉である RBWR の開発では 1.1 で述べたように、本研究で対象とした項目以外についても表 5.1 に示すように、自社研究による解析及び要素試験で、基礎的な成立性確認を行っている。表 5.2 に評価の前提とする RBWR の炉心・燃料仕様を示し、以下の節で開発状況の概要を述べる。

表 5.1 RBWR の課題と対応 (: 本研究対象、 : 付録で説明)

	RBWR 特徴	課題	対応方針	説明箇所
炉心	出力分布の非均質性大	核計算検証	既存手法改良	-
			大規模計算	3.1
		熱水力検証	既存試験解析	5.1
機器・構造	燃料・機器の稠密配置、照射量増加	構造成立性確認	解析、要素試験	5.2.1
		構造材料健全性確認	耐照射材開発	5.2.2
		燃料被覆管健全性確認	大規模計算 重イオン照射試験	3.2
燃料サイクル	燃料の TRU 富化度高	TRU 分離実証	ラボ試験	5.3.1
		燃料製造	解析、試作、物性測定	5.3.2

表 5.2 炉心・燃料仕様

炉心仕様	RBWR	
熱出力 (MWt)	3926	
炉心流量 (kt/hr)	33	
燃料有効長 (cm)	102.5	
取出燃焼度 (GWd/t)	65	
燃料棒外径 (mm)	7.2	
燃焼集棒本数/集合体数	397	
燃料集合体格子	六角格子	
燃料棒配列	三角稠密配列	
燃料	酸化物燃料	
燃料被覆管	ジルカロイ 2	
軸方向構成	TRU 富化度* (wt%)	領域高さ (cm)
上部ブランケット	劣化ウラン	2.0
上部 TRU	70.6	22.4
内部ブランケット	劣化ウラン	56.0
下部 TRU	80.7	22.1

*:TRU は劣化ウラン (U235 : 0.2wt%) に富化

5.1 熱水力：限界出力評価

BWR 燃料の健全性を確保するためには、燃料棒表面の熱伝達様式が核沸騰から遷移沸騰の状態へと移行して燃料棒の焼損（バーンアウト）が生じることを防ぐ必要があり、そのためには遷移沸騰へ移行するときの出力である限界出力を評価する必要がある。限界出力評価には限界出力試験データから求めた限界出力相関式を用いる。稠密配置の RBWR では燃料仕様パラメータ全てを包絡した限界出力試験データはないが、パラメータ毎に近い条件の試験データは存在する。図 5.1-1 に RBWR の仕様と限界出力試験データの試験体系の仕様を示す。RBWR 開発では、燃料仕様によらないロバストな限界出力相関式を構築中であり、サブチャンネル解析と限界出力の基本項を組み合わせることで燃料仕様に依存せず同等の精度で評価できることを確認している。図 5.1-2 に試験データと構築した限界出力相関式の比較を示す。

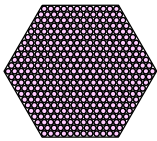
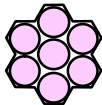
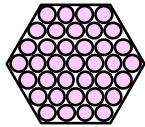
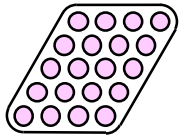
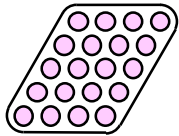
燃料	RBWR	JAEA 7本 ⁽¹⁾		JAEA 37本 ⁽²⁾		Bettis 20本 ⁽³⁾
断面形状						
燃料棒外径(mm)	7.2	12.3	13.0	13.0	13.0	6.4, 7.1
燃料棒間ギャップ(mm)	2.2	1.0	1.3	1.3	1.0	1.5-2.3
水力等価直径(mm)	5.6	2.4	2.8	4.4	3.7	4.2-6.5
加熱長さ(m)	1.03	1.80	1.26	1.26	1.26	1.37
軸方向出力分布	二重ピーク	一様	二重ピーク	二重ピーク	二重ピーク	一様

図 5.1.1 RBWR の仕様と限界出力試験の仕様

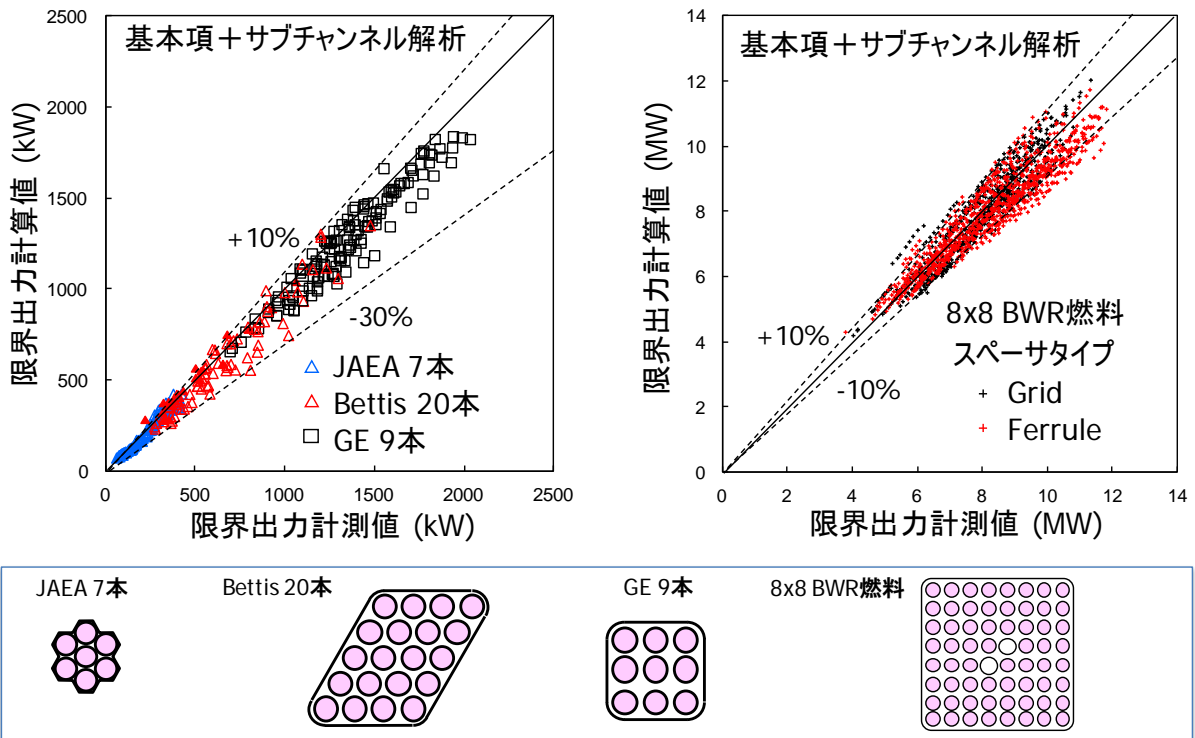


図 5.1.2 試験データと限界出力相関式の比較

5.2 炉内機器

5.2.1 燃料集合体の試作、流動励起振動試験

RBWR の機器構造は、ABWR をベースに設計が進められているが、炉心燃料が六角稠密構造になるため、上部タイプレート、スペーサ、下部タイプレート、チャンネルボックス等を新たに設計する必要がある。流動振動の観点からは、燃料棒の外径が ABWR (9×9 格子燃料) より細い 7.2 mm となることや下部タイプレートの流路が三角形状で燃料集合体内部への噴き出し部において複雑な流れ場となることで、燃料棒の振動変位が ABWR よりも大きくなる懸念される。そのため、下部タイプレート、スペーサ及び模擬燃料棒で構成される模擬燃料集合体を試作し、燃料棒の流動励起振動 (FIV) 試験を行った。図 5.2.1-1 に試作した燃料集合体を、図 5.2.1-2 に FIV 試験結果を示す。変位の振動振幅は小さく、現行炉の 9×9 格子燃料の 12 μm 以下であることを確認した。

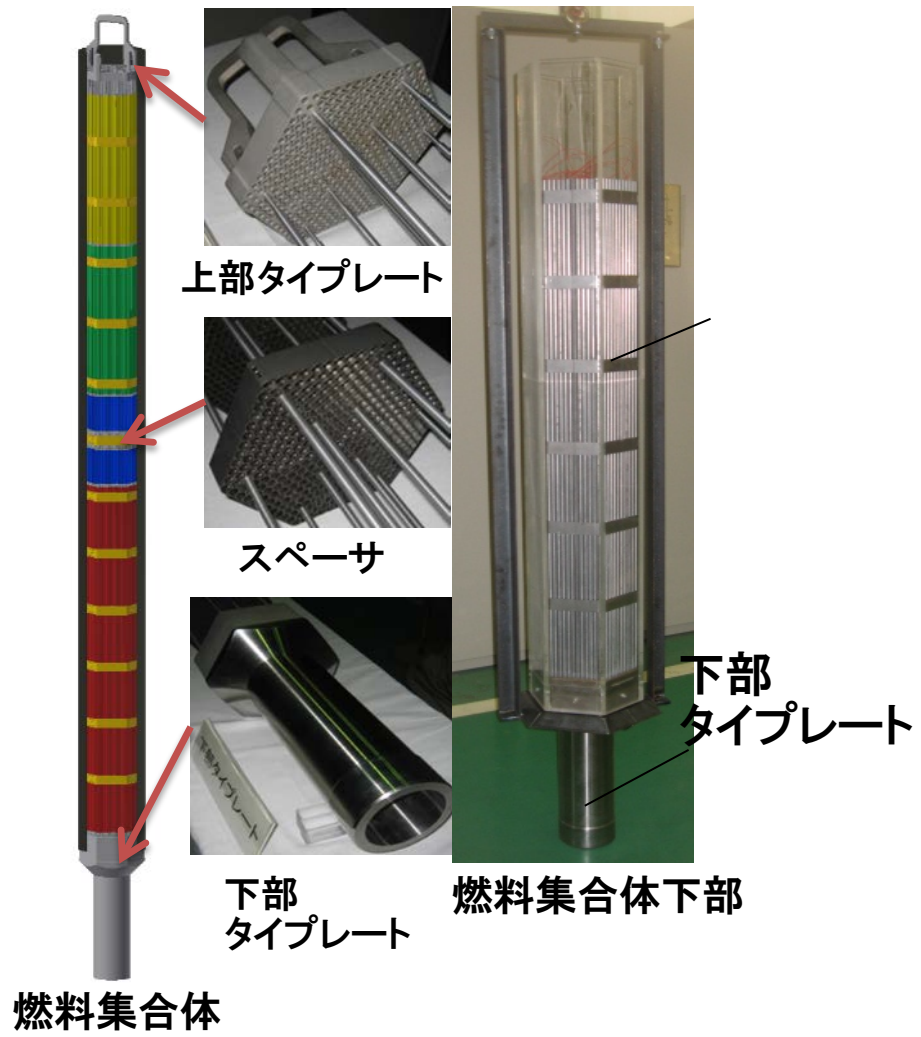


図 5. 2. 1-1 RBWR 試作燃料集合体

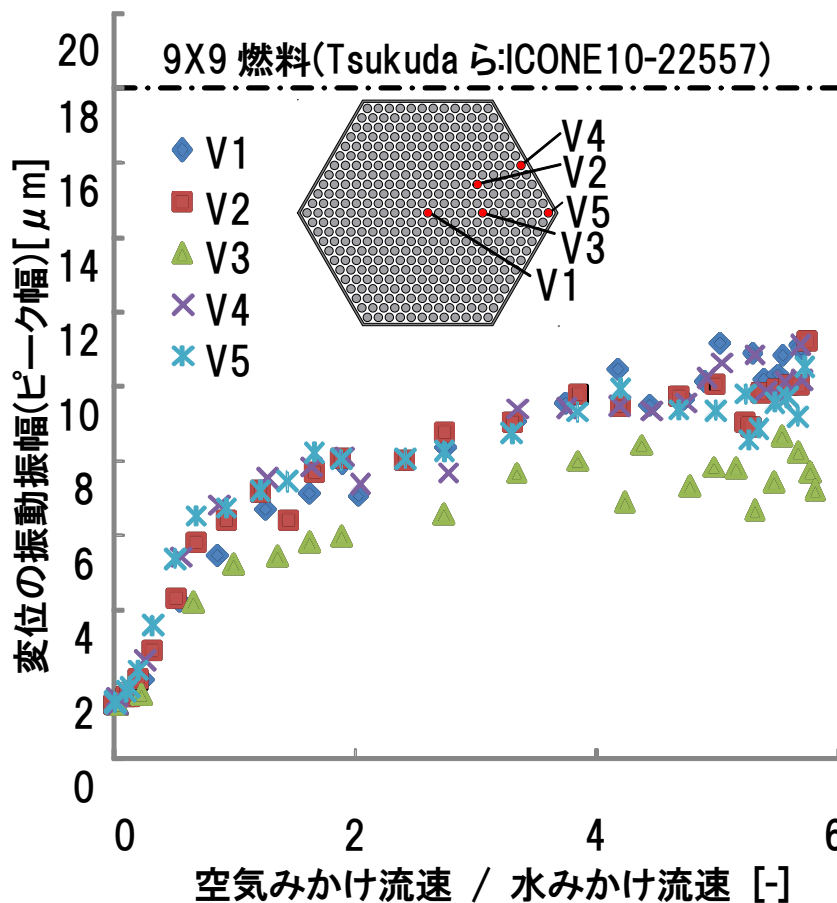


図 5.2.1-2 FIV 試験結果

5.2.2 耐照射材開発

BWR の高照射環境に適応可能な制御棒用耐照射材料については、結晶粒径を微細化し多量の粒界を導入する超微細結晶粒材料の開発を進めてきた。結晶粒径を小さくすることによって、粒界偏析を低減して粒界腐食を軽減する効果や、照射欠陥シンクサイトの増加により耐照射性が高まること、強度向上などが期待される⁽⁴⁾⁽⁵⁾。これにより、高照射下で生じると予想される照射誘起応力腐食割れの抑制効果が期待される。そこで、酸化物分散強化型オーステナイト系ステンレス(Oxide Dispersion Strengthened Austenitic Stainless Steels; ODS-ASUS)の研究開発を行った。本材料は、軽水炉環境中において耐食性に優れるオーステナイト系ステンレス鋼の SUS304L をベースとし、SUS304L 粉末と Zr 粉末を機械的合金化(Mechanical Alloying; MA)処理を施した MA 粉末とし、熱間等方圧プレス(Hot Isostatic Pressing; HIP)処理により固化成形することで作製した。この材料ではガス不純物と親和性の高い Zr を添加することで鋼中の不純物元素である酸素、炭素を安定化させ母相内を高純度化し、それと同時に生成する析出物を微細分散粒子として活用し、粒界移動をピン止めすることにより微細結晶粒を維持することを狙いとしている。その結果として、軽水炉環境中において、耐応力腐食割れ発生特性が従来材の 2 倍以上と優れることが確認された。更には、金属イオンによる中性子模擬照射試験において、照射硬化特性が従来材の 1/2 以下、照射後の粒界 Cr 濃度が 15%以上を確保できることが確認され、従来材よりも優れることを実証した。

5.3 燃料サイクル

5.3.1 TRU 再処理

RBWR の使用済み燃料では現行炉と比較してマイナーアクチニドの濃度は約 30 倍である。図 5.3.1-1 に RBWR の使用済み燃料の再処理プロセスを示す。再処理プロセスとしては湿式再処理、乾式再処理が考えられるが、RBWR では現行の湿式再処理法を検討している。

これまでの溶媒抽出によるマイナーアクチニド(以下、MA)とランタニド(以下、Ln)の分離プロセスを検討してきた。RBWR 特有の高 MA 濃度に対応した高溶解度型抽出剤(BTBP、BTPhen)を用いて代表的な MA である Am と代表的な Ln である Eu の分配比の硝酸濃度依存性を評価し、 $D_{Am} \gg D_{Eu}$ となることを確認した。抽出工程で想定される硝酸濃度 (2~4 mol/l) では、 $D_{Am} > 10$ かつ $D_{Eu} < 1$ となり、Ln の移行を抑制しつつ MA を抽出できる見通しを得た。また、洗浄工程を設け、硝酸濃度を調整することで洗浄液に Ln を選択的に分離できる見通しを得ている。図 5.3.1-2 に MA 分離プロセスと処理条件を示す。

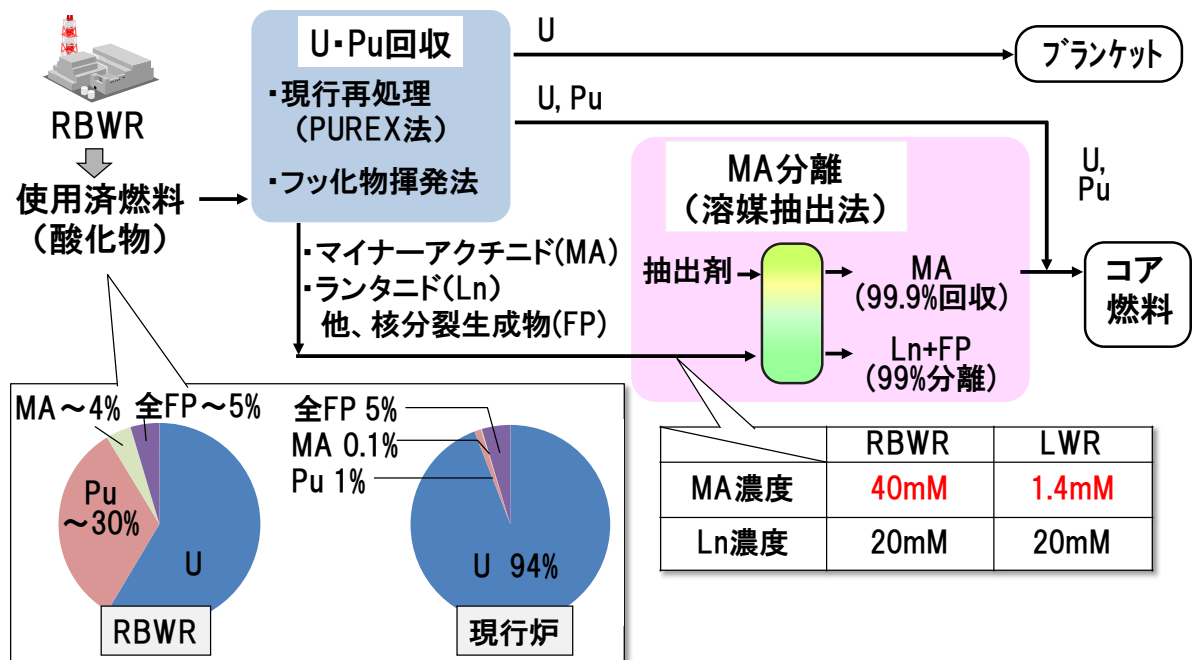


図 5.3.1-1 RBWR 再処理プロセス

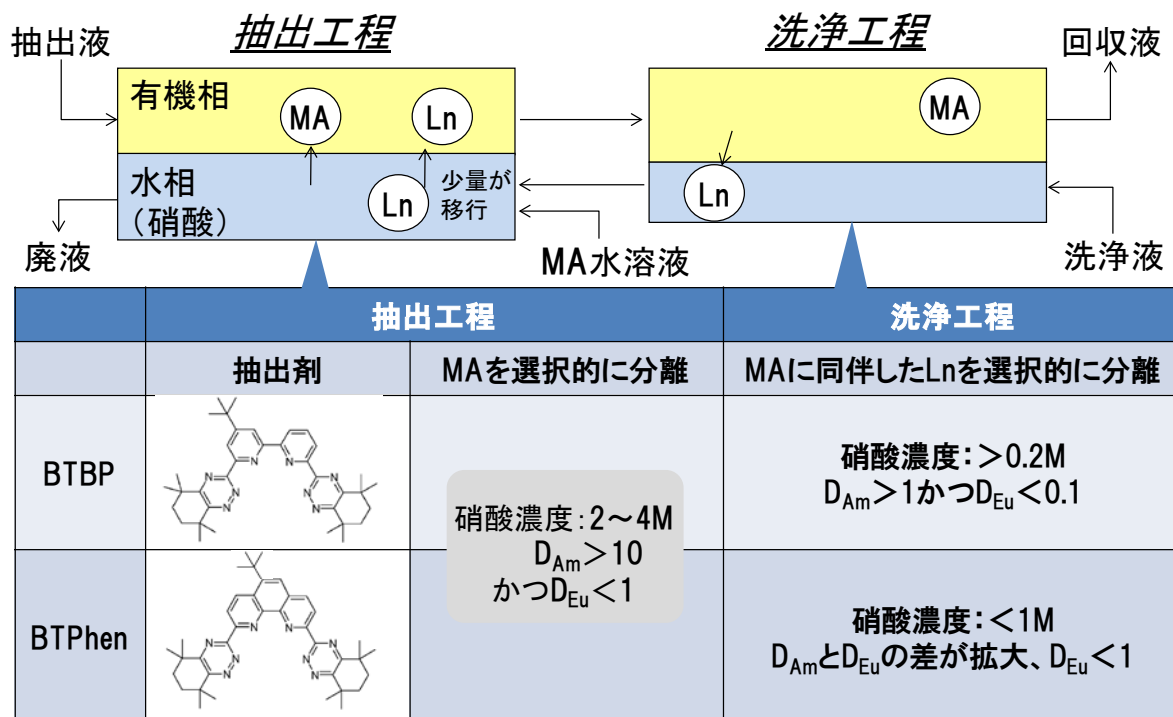


図 5.3.1-2 MA 分離プロセスと処理条件

5.3.2 燃料製造

燃料製造に関する課題は、RBWR 燃料のペレット燃料製造性と燃料としての成り立ち性が挙げられる。

表 5.3.2-1 に TRU 燃料の製造性の調査結果を示す。ここでは、TRU (MA) 含有率の高い酸化燃料燃料に関して、製造実績を調査した。TRU 酸化燃料は、JAEA と CEA を中心に、主に FBR 向け燃料の研究が進行中である。図 5.3.2-1 には Pu/HM 比と MA/HM 比を、また Pu/HM 比と TRU/HM 比をプロットした図を示した。図には RBWR 燃料組成を合わせてプロットした。この図より、RBWR 燃料組成は既往研究例の組成の範囲内にあり、このことより RBWR 燃料は製造の可能性はあると評価している。一方、RBWR 燃料は複数種類の MA 核種を含有するが、これまでの研究例は一種類の MA 核種を含有したものであった。複数種類の MA 核種を含有する場合のペレット製造性、及びそれぞれの含有率が燃料製造性に与える影響の評価は今後の課題である。また、製造方法に関しては、既往研究は実験室レベルでの検討が主であり、工学的な燃料製造、燃料集合体製作方法についても今後検討が必要である。

表 5.3.2-1 TRU 含有燃料の製造性の調査結果

研究機関	日立 (RBWR)	JAEA ⁽⁶⁾	JAEA ⁽⁷⁾	JAEA ⁽⁸⁾	CEA ⁽⁹⁾	
組成	概要	Pu+U+MA (MA:Np, Am, Cm)	MOX+3%Am MOX+5%Am Pu 富化度 30wt%	MOX- (5-12wt%)Np (U0.58Pu0.30 Np0.12)O1.92	Pu+Am+Nd (Pu0.81 Am0.08 Nd0.11)O2-x	U(1-y) Am(y)O(2-x) y=0.10; 0.15
	Pu/HM	73	30	30	81	0
	TRU/HM	84	35	42	89	15
	MA/HM	11	5	12	8	15
	(MA 元素)	(Np, Am, Cm)	(Am)	(Np)	(Am)	(Am)

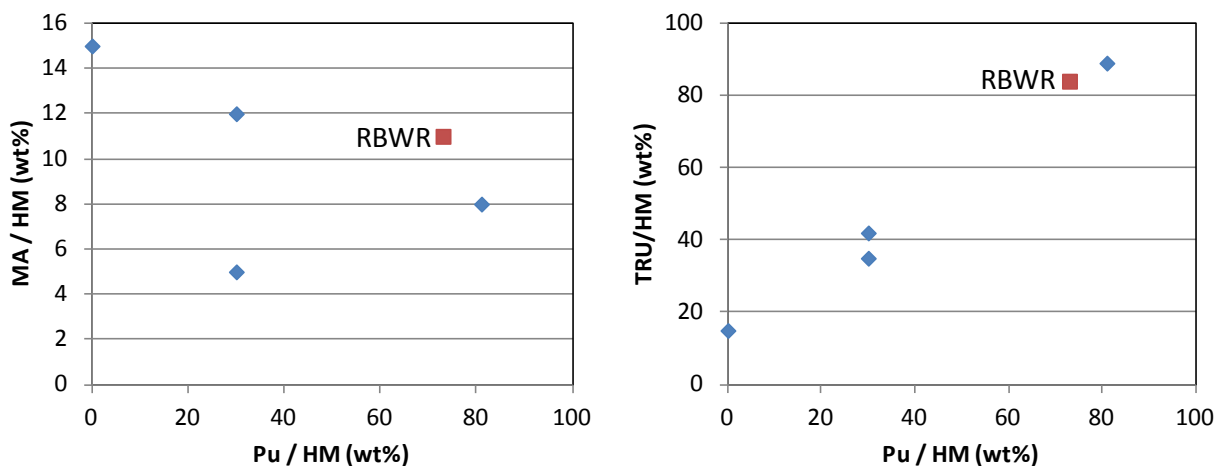


図 5.3.2-1 TRU 含有燃料組成

5.4 TRU 燃焼炉のオプション

TRU 燃焼炉のオプションとして、六角格子、Y 字型制御棒により BWR で水対燃料体積比を減少させて中性子減速効果を低減し TRU を燃焼させる RBWR のコンセプトを現行炉の正方格子にバックフィットした RBWR バックフィット炉⁽¹⁰⁾を開発している。RBWR バックフィット炉は現行 ABWR のチャンネルボックス形状は変えずに、燃料集合体の燃料棒格子を RBWR と同様に三角稠密配列し、チャンネルボックスとチャンネルボックスの間のギャップ水領域に水排除板を設置することで、四角格子の現行炉でも低減速炉として TRU を燃焼可能とした炉であり、早期の実用化が期待できる。

5.5 最後に

以上のように、本研究も含めて、軽水炉による TRU 燃焼を否定する研究結果は得られていない。また、RBWR の TRU 燃焼量 0.46 t/GWe/年は TRU 燃焼ナトリウム高速炉である Advanced Burner Reactor (ABR)⁽¹¹⁾の燃焼量 0.20 t/GWe/年より大きく高効率に TRU を燃焼できる。今後、各研究項目について成立性確度の更なる向上が必要である。

参考文献

- (1) W. LIU, et al., “An Improved Critical Power Correlation for Tight-Lattice Rod Bundles,” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 44, pp. 558-571 (2007).
- (2) M. KURETA, et al., “Data Report of a Tight-lattice Rod Bundle Thermal-hydraulic Test (I),” JAEA-Data/Code 2006-007 (2006).
- (3) B. W. LETOURNEAU, et al., “Critical Heat Flux and Pressure Drop Tests with Parallel Upflow of High Pressure Water in Bundles of Twenty 0.25- and 0.28-inch Diameter Rods,” U. S. Atomic Energy Commission, WAPD-TM-1013 (1975).
- (4) 鹿野文寿、土屋由美子 他, “超臨界圧水冷却炉の材料開発”, 東芝レビュー, 59-12, (2004), 60
- (5) 鹿野文寿、土屋由美子 他, “耐照射・耐食性を向上させた結晶粒微細化ステンレス鋼による原子炉材料の開発”, まてりあ, 45-3, (2006), 219
- (6) 吉持他, ” 遠隔操作による Am 含有 MOX 燃料製造技術の開発”, サイクル機構技報, 28, 9-20 (2005).
- (7) M. Osaka 他, ” Research and development of minor actinide-containing fuel and target future integrated closed cycle system”, J. Nucl. Sci. Technol., 44(3), 309-316 (2007).
- (8) S. Miwa and M. Osaka, “Oxygen potential of (Pu, Am, Nd)O_{2-x}”, IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 9, 012013 (2010).
- (9) D. Prieur 他, ” Influence of the microstructure on the U(1-y)AmO(2-x) (y=0.1; 0.15) pellet macroscopic swelling”, Advances in Science and Technology, 73, 104-108 (2010).
- (10) T. Mitsuyasu 他, ” RBWR (Resource-renewable Boiling Water Reactor) for Transmutation of Transuranium Elements Based on BWR Experiences”, Asian Nuclear Prospects International Conference 2016 (ANUP2016), Sendai, Japan (2016)
- (11) W. S. YANG 他, ” Performance Characteristics of Metal and Oxide Fuel Cores for a 1000 MWt Advanced Burner Reactor,” Proc. ARWIF2008, Fukui, Japan (2008).