

水素化物中性子吸収材を用いた革新的高速炉炉心の実用化研究開発

(受託者) 国立大学法人東北大学

(研究代表者) 小無健司 金属材料研究所

(再委託先) 三菱FBRシステムズ株式会社、株式会社東芝、

国立大学法人大阪大学、国立大学法人東京大学、

ニュークリア・デベロップメント株式会社、

独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究開発期間) 平成21年度～24年度

1. 研究開発の背景とねらい

原子炉の炉心は核燃料、冷却材、減速材、制御棒等で構成されている。また、原子炉の種類には、中性子のエネルギーから考えて、多くの発電に用いられている軽水炉と次世代の炉として開発が進められている高速増殖炉（以降、高速炉と呼ぶ）が有る。現在、高速炉の制御棒には炭化ホウ素（ B_4C ）が使われている。 B_4C は中性子を吸収することによりヘリウムガスを発生し、それがペレット内に蓄積するためペレットの膨張（スエリング）を起し制御棒が破損に至る場合が有る。そのため早期に制御棒を交換している。この研究では、ハフニウム水素化物を用いて、現行の炭化ホウ素（ B_4C ）に比べて長寿命の制御棒を開発し運転コストの削減と放射性廃棄物の低減を目指している。本課題では原子炉での有効性を示すとともに原子炉の炉心で安全に利用できる水素化物中性子吸収材を開発している。

2. 研究開発成果

本事業で実施した、設計研究と要素技術開発、照射試験についてそれぞれの研究開発成果を以下に示す。

2-1. 設計研究

1) FaCT 炉心へのハフニウム水素化物制御棒の適用性検討

FaCT 炉心へのハフニウム水素化物制御棒の適用性について検討するため、ナトリウムボンド型のハフニウム水素化物制御棒を適用した炉心の核熱特性を評価し、平成21～平成22年度に検討したヘリウムボンド型ハフニウム水素化物制御棒と比較検討を行った。その結果ナトリウムボンド型とヘリウムボンド型の各々の制御棒を適用した炉心の核熱特性の違いは軽微であり、どちらも炉心核熱特性の観点からはFaCT 炉心への適用性があることが明らかとなった。

2) 水素化物バーナブルポイズンを用いた革新的炉心設計

ガドリニウム含有ジルコニウム水素化物をバーナブルポイズンとして高速炉に適用することにより燃焼反応度を低減することが出来る（この炉心を革新的炉心と呼ぶ）。革新的炉心では、バーナブルポイズンによる燃焼反応度低減により制御棒本数を大きく削減できる。バーナブルポイズンを40体装荷した革新的炉心では、径ブランケット燃料と制御棒の削減により、全炉心の集合体数は一定であり、主炉停止系制御棒本数を40体から23体に、17体減少でき、全制御棒本数を57体から39体に、18体減少できる。これにより、高価な制御棒駆動機構の削減と制御棒交換本数の大幅な削減が期待され、経済性向上に大きく寄与できることが分かった。

革新的炉心は、次のような炉心特性を持っている。燃焼反応度は革新的炉心で大幅に減少するため、制御棒価値は小さくても成立見通しがあるが、増殖比は小さくなる。また、出力ピーキン

グは主に局所ピーキング係数の増大により大きくなるが、許容線出力を超える可能性はない。一方、安全性にかかわるボイド反応度及びドップラ係数は大幅に安全側にシフトする。革新的炉心の炉心設計検討結果に基づき、設計基準内事象における安全性評価対象の代表事象に対してハフニウム水素化物制御棒及びバーナブルポイズン集合体の温度挙動を評価し、安全性を確認した。

3) 臨界実験装置を用いた実験

日本原子力研究開発機構（原子力機構）の高速炉臨界実験装置（FCA）を用いたハフニウム水素化物制御棒の核的性能評価のための第1試験として、平成22年度にハフニウム金属、ポリエチレン等でハフニウム水素化物制御棒の原子数組成を模擬した板状模擬物質を用いた実験を実施した。試験について詳細解析を実施した結果、JENDL-4.0及びPEACO-Xコードを用いることにより、ハフニウム水素化物に対する過小評価が改善された。また、連続エネルギーモンテカルロコードMVPを用いた解析の結果、ナトリウム板を使用した板状試料セルに見られた10%以上の過小評価が改善され、全ケースについて10%程度の誤差で予測が可能であることを確認した。また、FCA第2試験として、ピン状試験体を用いた実験を実施する予定であったが、東北地方太平洋沖地震の影響によりFCA施設が損傷を受けて実施できなかったため、3. に記す通り計画を変更した。

2-2. 要素技術開発

1) 水素化物ペレットおよび内面コーティング被覆管開発

水素化物ペレット作成時の割れ、欠け発生を抑制するには、材料の観点からはハフニウム原材料の微細組織および不純物酸素濃度を調節することが有効であることが分かった。また、製作条件の観点からは水素供給速度と降温速度の適切化が有効であることが分かった。この知見をもとに従来のペレットの直径および高さをそれぞれ2倍にした太径ペレット（直径20mm、高さ20mm）の作成を実施し、1バッチで4試料のペレット作成に成功した。また、作成したペレットの検査方法として、渦電流法を用いたペレット表面のクラック検出が有効であることを確認した。

ハフニウム水素化物の原料であるハフニウム金属中には、不純物としてジルコニウムが含有されている。そこで、ジルコニウムを含有するハフニウム水素化物の高温域における相状態と安定性を高温X線回折試験により評価した。その結果、不純物ジルコニウムの含有量が10at.%までの範囲であれば、ハフニウム水素化物の高温相状態に殆ど影響を及ぼさないことがわかった。

ペレット製造工程での安全性を確保するため空気中でのペレット燃焼試験を実施した。水素化物ペレットをバーナー火炎で加熱し、放出された水素が燃焼する際に発生するヒドロキシラジカル（OHラジカル）の光を捉えることで燃焼の有無を観察した。燃焼実験の結果、ペレットからの水素放出及び燃焼は、単位重量あたりの入熱量に支配されることが分かった。空気中ではペレットの表面に酸化膜が形成されるため、水素の放出が大幅に抑制され、燃焼は穏やかであることが分かった。また、ペレット製造工程での建物への影響評価を行った結果、ペレットの着火による水素放出量は、極わずかであり、水素火炎による延焼もほとんどなく、水素が滞留して爆発する危険性も考えられないことから、建物に対する特段の配慮は必要ないことが分かった。

水素化物ハフニウム制御棒からの水素の損失を抑制するため水素透過抑制内面コーティング技術開発を実施した。平成22年度の研究から水素透過抑制効果を高めるためカロライジング処理をした被覆管の内面研磨が有効であることが分かっている。平成23年度は内面研磨条件と研磨量の関係を調べ、初段の研磨条件により寸法がほぼ決定されることを確認した。また、研磨したカロ

ライジング処理膜を 800℃程度で酸化処理することよりの水素透過抑制効果を高める事が出来ることが分かった。

2) ナトリウム充填試験と両立性試験

運転中の水素化物の安定性を向上させるためには水素化物ペレットの温度を低く抑えることが有効である。そこで、図1に示す方法で燃料-被覆管ギャップにナトリウムを充填しギャップ熱伝導度を向上させたナトリウムボンド制御棒を開発した。また、図2に示す充填後のギャップにペレットの熱設計に影響を及ぼすような気泡が残留していないことを確認するためのナトリウム充填検査方法を合わせて開発した。ペレット径 19mmΦ、ペレット-被覆管ギャップ 0.25mm の太径体系において、ペレットスタック長 1000mmL の長尺ピンへの充填試験を実施したところ気泡は残留しておらず、良好な充填性を確認した。次にペレット径 10mmΦ、ペレット-被覆管ギャップ 0.25mm の細径体系では、ナトリウム充填温度条件を 300℃に設定することにより気泡の残留がない良好なナトリウム充填が可能であることを確認した。

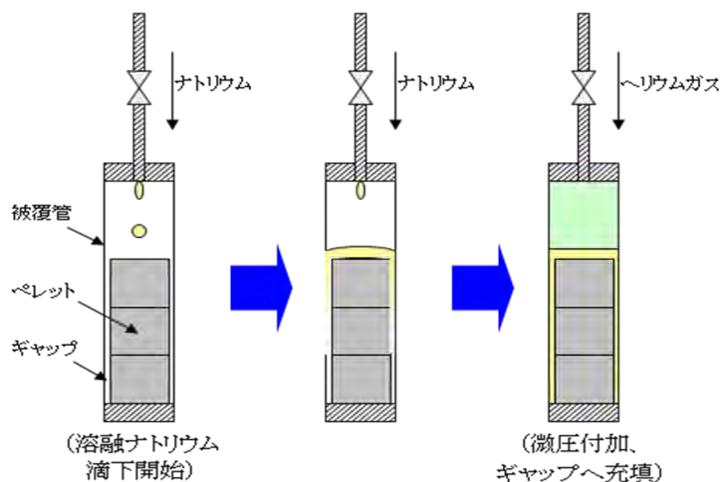


図1 ナトリウム充填方法

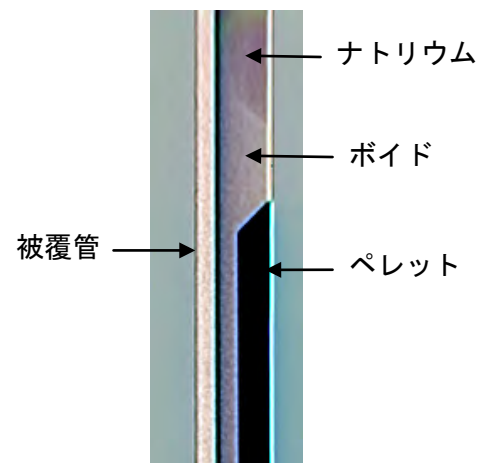


図2 ナトリウム充填検査方法

ハフニウム水素化物制御棒の構成材料間の両立性を調べた。被覆管材内部に各構成材料を封入したピン内試験および、ピンを液体ナトリウム中に設置するナトリウム中試験の二つの方法によって高温両立性試験を実施した。それぞれの試験では、水素透過抑制内面コーティング膜と液体ナトリウムの両立性、内面コーティング膜と水素化物ペレットの両立性、及び水素化物ペレットとステンレス鋼との両立性を調べた。その結果、コーティングは長時間にわたりクラックや剥離を起こすことなく健全に存在し、また水素化物ペレットはボンディングナトリウムの存在下であっても長時間にわたり安定することが確認された。これより、ハフニウム水素化物制御棒の構成材料間の両立性に起因する実用化への障害はないことが分かった。

2-3. 照射試験

ハフニウム水素化物ペレットのスエリング等の照射挙動を調べることを目的として、ロシア連邦国立科学センター 原子炉科学研究所 (RIAR) の高速炉 BOR-60 で照射試験を実施した。平成 21 年度に製作されたハフニウム水素化物キャプセルを 2 本または 4 本を一組として照射セグメントを作成し、それを縦方向に 4 段重ねて照射集合体(照射リグ)に組み込み平成 22 年度に BOR-60

に装荷し照射した。

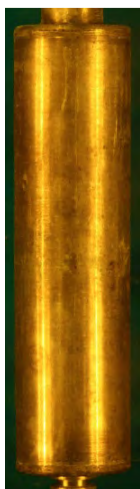


図3 照射済みリグの外観写真



図4 照射済みキャプセルのX線透過写真

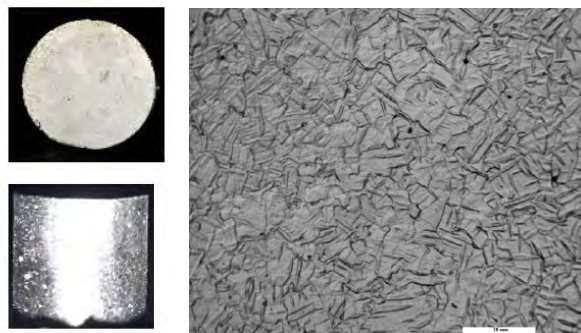


図5 照射済みペレット (500°C、13.2dpa) の(a)外観写真と(b)断面の光学顕微鏡写真

照射はまず1サイクル(52日間)を照射中の温度を熱電対で測ることが出来る計装付き照射孔で照射し、照射試験の熱設計が妥当であることを確認した。その後、常照射孔に移動し3サイクル(124日間)継続照射を実施した。各キャプセルの照射温度は500°Cまたは600°Cに制御され、照射量は最も高い試料で高速中性子照射量 $26.4 \pm 0.5 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ (ステンレス鋼の照射量に換算して $13.2 \pm 0.3 \text{ dpa}$) を達成した。照射終了後BOR-60 建屋内で照射リグを解体し照射セグメントを取り出した。図3に照射後のセグメントの外観写真を示す。損傷等の異常は見られなく健全に照射が終了したことを確認した。その後照射セグメントを解体しハフニウム水素化物キャプセルを取り出し照射中の健全性を、外観検査、寸法検査、X線透過試験(図4)により評価した。次にハフニウム水素化物キャプセルを切断し水素化物ペレットの寸法測定、密度測定、顕微鏡観察(光学顕微鏡、SEM)(図5)、X線回折試験、硬度試験を実施した。これらの照射後試験の結果、照射キャプセルが照射期間中健全に照射されたことを確認するとともに、水素化物ペレットが照射期間中に特異な変化が無く健全であったことを確認した。照射挙動を把握する貴重なデータを取得し、目標とした高速炉用制御材としての機能が達成できる見通しを得た。

3. 今後の展望

原子力機構のFCAを利用した核特性評価は東日本大震災の影響により実施できなかったが、実施場所を東芝の臨界実験装置(NCA)に変更することにより一年間延長し実施する。これにより、平成23年度までの設計研究、要素技術開発、照射試験の結果と合わせてハフニウム水素化物制御棒の実用化への見通しが得られる予定である。

4. 参考文献

- [1]小無健司他、'高速炉水素化物中性子吸収材の開発' 日本原子力学会「2012 秋の大会」予稿集、F12-F19(シリーズ発表)。
- [2]小無健司、'原子炉用材料としての金属水素化物' —ハフニウム水素化物制御棒の開発—「金属」81, 3(2011)235-240。