

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

研究代表者 小無 健司 国立大学法人東北大学金属材料研究所
 参画機関 国立大学法人東北大学、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

現在、高速増殖炉（以降、高速炉と呼ぶ）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（スウェリング）を起し制御棒が破損に至る場合がある。そのため早期に制御棒を交換している。本研究では、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

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

現在、FaCT 研究で検討を進めている大型実用炉 MOX 燃料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、ハフニウム水素化物制御棒を適用した炉心の出力分布を評価し、炉心燃料集合体並びにハフニウム水素化物制御棒の温度評価を行い、それに基づき炉心流量配分の観点から炉心の熱的成立性について評価した。

その結果、 B_4C 制御棒炉心に比べ、最大線出力はほとんどの集合体において低減しており、許容線出力の観点から有利な炉心となっている。また、炉心全体の出力分布は B_4C 制御棒炉心に比べ平坦化される傾向にあり、炉心熱設計の観点から成立性が見通しが得られた。

上記の評価はヘリウムボンド型ハフニウム水素化物制御棒及びナトリウムボンド型ハフニウム水素化物制御棒の両方について実施し、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を明らかにした。

ハフニウム水素化物による制御棒の長寿命化により、プラント寿命中の制御棒集合体製作体数削減に加えて固体廃棄物処理量が削減するので運転費が低減する。また、燃料交換時の制御棒集合体交換体数削減により燃料交換期間が短縮し、これに伴いプラント稼働率の向上が期待できる。

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）。

バーナブルポイズンを 40 体装荷した革新的炉心では、径方向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が削減出来るため経済性向上が期待できる。

炉心特性について、各特性の相対比較結果から次のように傾向がまとめられた。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。一方、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。

3) 安全性評価

FaCT 炉心へハフニウム水素化物制御棒を適用した場合の炉心設計検討結果に基づき、安全性評価対象の代表事象における水素化物制御棒の温度挙動を評価した。通常運転時及び設計基準内事象における水素化物中性子吸収材の温度挙動の評価により、水素化物の安定性、健全性を確認するとともに、設計基準外事象時の安全評価シナリオへ与える影響を評価した。その結果、設計基準内事象での安全性評価では、代表的な事象である「制御棒誤引抜き」、「1次ポンプ軸固着」のいずれの事象においてもハフニウム水素化物中性子吸収材の温度は判断基準（800℃で1時間程度、900℃で10分程度）を満足し、安定性、健全性は維持されることが確認された。

また、設計基準外事象の代表的な事象である「外部電源喪失時スクラム失敗事象 (ULOF)」及び「崩壊熱除熱能力喪失時スクラム失敗事象 (ULOHS)」に対する水素化物制御棒の過渡温度変化を求め、安全評価シナリオへの影響の有無を検討した。その結果、ULOF 事象及びULOHS 事象のいずれの事象についても、安全評価シナリオへの影響はないとの見通しが得られた。

上記の解析はバーナブルポイズン集合体を用いた革新的炉心の炉心についても実施し、安全性を確認した。

4) 臨界実験装置を用いた実験

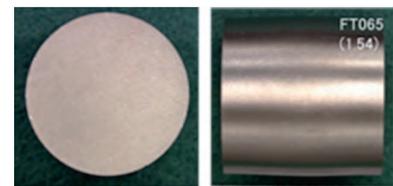
ハフニウム水素化物制御棒の制御能力に係わる核的性能の実証データを取得する実験計画を立案した。まず第1試験として、既存の板状模擬物質を用いた実験を行うとともに、解析評価を実施した。次に第2試験として、ハフニウム水素化物ペレットをステンレス鋼被覆管容器に入れたピン状試験体製作し、(株)東芝の臨界実験装置(NCA)において実験を実施した。

FCAにおいて実施した第1試験の詳細な実験解析結果およびNCAにおいて実施した第2試験の解析結果より、モンテカルロ計算コードMVPによる解析は、FCA及びNCAにおいて実施した測定的全ケースについて、10%以下の誤差で予測が可能であることを確認した。

2. 2要素技術開発

1) ペレット量産化技術開発

水素化物ペレットは、金属ペレットに高温で水素ガスを吸収させることにより作製する。水素ガス吸収過程で起こる体積張



によりペレットの変形や割れが予想されるため、温度、水素ガス圧、吸収時間の各パラメータを制御して仕様を満足する水素化物ペレット作成方法を開発した。この方法により1バッチ50個程度の量産化が可能となった。また、製造コストの削減と吸収材性能の向上を目指して太径ペレット（直径約20mm）を開発した（図1）。

2) ペレット燃焼試験

水素ガスの燃焼試験は多く行われているが、水素化物ペレットがどのように燃焼するかについては、これまで報告が無かった。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挙動を研究した。まず高温での水素化物ペレットからの水素放出実験を実施した結果、1000℃での水素放出試験では多くの水素が放出されるが、800℃の水素放出実験では一部の水素が

放出されるのみであった。次にペレットを戸外においてベンゼンバーナー火炎で加熱し、燃焼挙動を観察した。その結果、水素化物ペレットは水素ガスの燃焼とは異なり爆発を起こさず 1000℃を越える高温になってはじめてゆっくりと燃焼することが分かった (図 2)。高温まで安定である理由は、水素化物ペレット表面の酸化反応が燃焼を抑制しているためと考えられる。

3) 内面コーティング被覆管量産化検討

水素化物ピン開発の主要課題の一つは、高温での被覆管を透過しての水素の損失抑制である。水素化物ペレットの水素濃度が下がると制御棒価値が減少するので被覆管の水素透過を抑制する必要がある。

水素化物ピンからの水素透過を抑制するためには、被覆管の内面に水素透過防止コーティングを行う方法が有効である。アルミカロライジング処理後に処理膜を研磨した上で、800℃で2時間以上の酸化処理によって、良好な水素透過抑制効果が得られることを見出した。量産化への適用の観点から検査方法および溶接手法について整理した。

4) ナトリウム充填試験

ハフニウム水素化物は熱伝導度が高いためにペレット内の温度勾配は小さい。被覆管-ペレットギャップの熱伝達 (ギャップコンダクタンス) を良くできれば、原子炉運転中のハフニウム水素化物の温度を低く保つことができる。そのため、被覆管-ペレットギャップ中にナトリウムを充填したナトリウムボンド型制御棒を開発した。ペレットと被覆管のギャップ部における残留ボイドを X 線透過装置で確認したところ、気泡は残留しておらず、被覆管とペレットの間隙部にナトリウムが良好な状態で充填されていることを確認した。また、ナトリウム充填後の長尺ピンを用いて被覆管端栓溶接を実施し制御棒を最終形状まで仕上げられることを確認した。

5) 水素化物の高温相状態・安定性評価試験

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、必ず不純物としてジルコニウムを含有する。これはハフニウムとジルコニウムは周期律表上同じ族 (IVb 族) であり化学的性質が類似しており分離することが難しいためである。そこで、高温における相状態と安定性に及ぼす不純物ジルコニウムの影響を評価した。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、不純物ジルコニウムの含有は、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。

また、ジルコニウム不純物の物性値に及ぼす影響について評価した結果、ジルコニウムが含有することにより、密度、硬度、熱伝導率が減少することが明らかになった。そのため、原料であるハフニウム金属中に含まれる不純物ジルコニウム量は数%以内とすることが望ましい。

6) 両立性試験

水素化物ピン内の各構成材料 (内面コーティング済み被覆管、ハフニウム水素化物、ナトリウム) の高温両立性試験を、表面研磨した平面試料による全面密着試験、10cm に切断した被覆管材内部に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 3 種類の試験により実施した。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

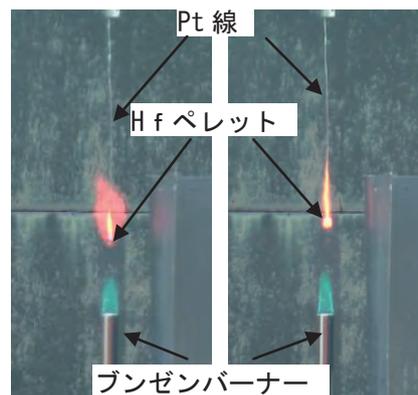


図 2 ペレット燃焼試験
左図 (燃焼中) 右図 (燃焼終了時)

ンレスとの両立性を調べた。

その結果、構成材料間の大きな反応は認められず、両立性を有することが確認された。また、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が存在下であっても長時間にわたり安定であることが確認された。これより、制御棒ピン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。ヘリウムボンド型水素化物照射試験用キャプセル 8 体、ナトリウムボンド型水素化物照射試験用キャプセル 4 体をそれぞれ、国内で製作、検査した。照射試験用キャプセルを RIAR へ輸送し、それを装荷した照射集合体を RIAR で製作し照射を実施した (中性子照射量(15dpa)、被覆管温度 (500℃、600℃))。照射終了後、非破壊試験 (外観検査、寸法検査、X 線透過試験) により照射中のキャプセルの健全性を確認した。破壊試験では寸法測定、密度測定、顕微鏡観察 (光学顕微鏡、SEM)、X 線回折試験、硬度試験を実施した。密度測定データに基づいて、照射によるスエリング量を計算したところ、これまでに報告されていた文献値 ($\Delta L/L=2.2\%$ 、 $2.5 \times 10^{22} \text{cm}^{-2}$ 、 $E_n > 0.1 \text{MeV}$) に比べて小さな値 ($\Delta L/L < 1\%$ 、 $2.6 \times 10^{22} \text{cm}^{-2}$ 、 $E_n > 0.1 \text{MeV}$) となった。

水素化物ペレットとキャプセル被覆管材の詳細な分析を行った結果、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し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。水素化物照射挙動解析コードによりデータを解析した結果、図 3 に示すようにヘリウムボンドキャプセルでは初期のコーティング膜の品質が悪くクラックを発生していたため水素透過の抑制効果が予測を下回っているが、ナトリウムボンドキャプセルの場合は、当初想定していなかったナトリウムによる水素損失抑制効果が働き水素がキャプセルの中に閉じ込められていることが分かった。尚、コーティング法は、改良により問題点は解決されている。

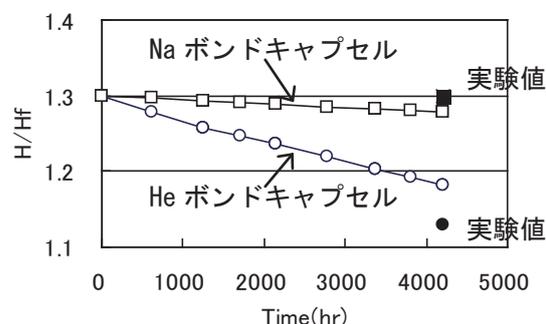


図 3 照射中の水素透過による水素化物ペレットの水素濃度 (H/Hf) の減少のコード予測と実験値

3. 今後の展望

水素化物ピンを設計しその有効性、健全性が照射試験によって確かめた。実用化のためには、本課題の成果をもとに集合体を設計し、もんじゅまたは他の炉で、その有効性と健全性を実証する必要がある。また、今回は、実施期間が 4 年間であったため照射試験の期間が 1 年間であったが、より長い照射期間の照射試験データが必要である。今回開発した原子炉用水素化物は、「中性子吸収材料や燃料」と「中性子減速材」の 2 つの役割を併せ持った機能性材料である。この材料をもとにした新しい炉心のアイデア生み出す可能性が期待できる。

4. 参考文献

(1) K. Konashi, K. Itoh, T. Kido, Y. Kosaka, S. Seino, "Development of Hydride Neutron Absorber for Fast Reactor, - Irradiation Experiment on Hydride Neutron Absorber in BOR-60 -" Proceedings of ICAPP 2013, Jeju Island, Korea, April 14-18, 2013, Paper No. FA232.