

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

(受託者) 株式会社日立製作所 (研究代表者) 大塚雅哉 研究開発グループ

(再委託先) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人東京大学、

国立大学法人九州大学

(研究期間) 平成 27 年度～28 年度

1. 研究の背景とねらい

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 (Transuranium element: 超ウラン元素) を除きレアアースを含む核分裂生成物のみとすることができれば(図 1)、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。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 燃焼炉の選択肢の一つとして提案し、その技術成立性を見通しを得ることを目的とするものである。

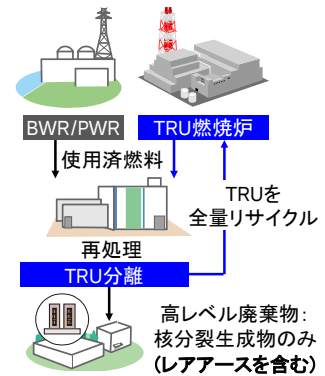


図 1 めざす TRU 燃焼サイクル

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、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。そこで、RBWR では断面六角形の燃料集合体に燃料棒を稠密に配置⁽¹⁾することにより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、さらに 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。TRU のボイド反応度は高速スペクトルでは正の傾向を示すので、RBWR では、TRU 領域(表 1)の間に劣化ウランのブランケット領域を非均質に配置した特徴的な扁平炉心(図 2)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、RBWR はブランケット領域の出力が低く、TRU 領域の出力が高いという非均質性の強い出力分布となるため(図 2)、核計算手法の高精度化と、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。

表 1 RBWR 炉心の装荷時 TRU 組成

核種	重量%
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

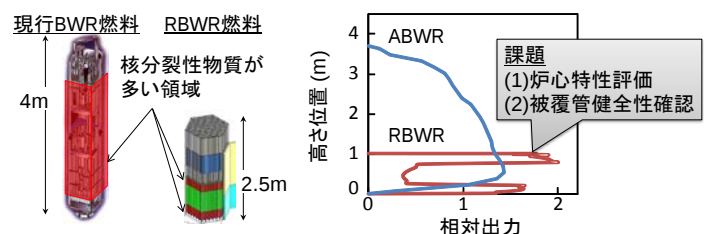


図 2 RBWR の特徴と課題

2. これまでの研究成果

2. 1 全炉心輸送計算による炉心特性評価

本研究は図 2 に示すように軸方向に非均質な RBWR を対象に、従来の核定数計算手法の誤差要因を排除できる全炉心モンテカルロ計算を実施し、炉心特性の評価精度を高めて炉心成立性を確認する。昨年度は全炉心モンテカルロ計算に必要な解析モデルの構築および炉内の温度分布を正

確に考慮できる手法を検討した。

2. 1. 1 RBWR の炉心成立性評価

全炉心モンテカルロ計算による試解析を行うため、RBWR の仕様にに基づき原子力機構で開発されたモンテカルロ計算コード MVP コード⁽²⁾および MVP に燃焼計算機能を追加した MVP-BURN コードの入力となる解析モデルを計算機資源と計算速度を考慮して構築した。

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。物量を保存して燃料集合体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制御棒価値（制御棒なしと制御棒ありの無限増倍率の逆数の差）は非対称六角格子と比較して過大評価するため、モデルを非対称六角格子とした。

②物質模擬方法：TRU が高次化する TRU 多重リサイクルを確認するため燃焼チェーンを MVP 標準の Cm-246 までから Es-253 まで拡張した。

③燃料バンドル内の燃焼領域：燃焼に伴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燃焼領域を詳細に分割する必要があるが、RBWR は燃料集合体内の出力分布が通常の BWR と比較して平坦であり、また中性子スペクトルの変化も小さいことから、燃料バンドル内の燃焼領域を一領域とした。

④軸方向の分割数および分割位置：ブランケット領域、TRU 領域毎に粗メッシュで分割した。

⑤燃焼点：自社研究の平衡炉心解析で採用している少数ステップは、燃焼初期で実効増倍率が詳細ステップより有意に小さくなったが、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適切に評価できると判断し、少数ステップを採用した。

2. 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

モンテカルロ法による解析において、実機炉心の温度分布を正確に考慮するため、現在の計算機リソース上で利用可能な断面積の温度依存性を考慮する既存の手法の調査および評価を行った。

(1) 手法調査

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、計算で必要となるすべての温度点について、事前に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。MVP コードでは、温度を指定するだけで、必要となる温度依存断面積を自動的に生成するが、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 炉心に対して、従来手法で温度依存性を考慮しようとする必要メモリは断面積データのみで約 17 TB となり、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検討した。

②代替手法：断面積温度依存性を考慮できる手法として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、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。ミシガン大学の Conlin らが提案した疑似物質法(Pseudo Material Method)⁽³⁾は、温度 T_1 と温度 T_2 において断面

積 Σ_1 と断面積 Σ_2 が用意されているものとして、それら温度間の断面積 $\Sigma(T)$ は次式で与えられる。

$$\Sigma(T) = f \Sigma_1 + (1 - f) \Sigma_2, \quad f = (\sqrt{T_2} - \sqrt{T}) / (\sqrt{T_2} - \sqrt{T_1})$$

疑似物質法は、熱中性子散乱データと非分離共鳴領域における断面積も取り扱うことができ、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。

(2) 手法評価

疑似物質法の精度評価のため、軽水炉ピンセル体系に対するベンチマーク計算を実施した。断面積データを用意する温度点の幅や体系のボイド率の影響を評価し、温度点の幅 300 K、ボイド率 0%、70% で従来手法と比べてほぼ同等の計算精度で実効増倍率を計算できることを確認した。

2. 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 の燃料被覆管は、炉内滞在時間は BWR と同等であるものの、中性子照射量は BWR よりも局所的に増加する(図 2)。RBWR 環境での水素吸収を評価するには、照射量と炉内滞在時間の影響を分離する必要がある。しかし、従来は照射量と炉内滞在時間の影響を分離せずに燃焼度と水素吸収量測定結果の相関を評価した例のみである⁽⁴⁾。また、RBWR 実機相当の中性子照射量を試験で模擬するのは困難なため、解析アプローチが必要となる。そこで本研究では、第一原理計算、分子動力学、および分子動力学-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ための検討を行った。また、検証のために実施するイオン照射試験の準備を行った。

2. 2. 1 RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価

イオン照射試験、脆化評価試験等に用いる供試材料として、ジルカロイ 2、Zr-Sn モデル合金および Zr-Sn に Fe を添加したモデル合金を作製した。供試材料の金相組織の観察、結晶粒度および析出物サイズ分布の測定を行ない、今後の評価に問題の無いことを確認した。

2. 2. 2 照射下微細組織発達過程および水素化物による割れ発生過程のモデル化

格子間原子型欠陥集合体である a 成分転位ループの形成・蓄積過程に着目し、分子動力学法を用いて、c 成分転位ループ形成に及ぼすひずみ場と空孔の相互作用によるミクロ要因を検討した。含有する空孔が 17 個および 37 個である集合体について評価した結果、37 個の空孔を含有する集合体では、c 成分転位ループへの変換が発生することがわかった。さらに、1%の圧縮ひずみを印加した場合、含有する空孔が 17 個の集合体であっても転位ループとして存在する方が安定であることが分かった。続いて、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による、水素吸収量増加に及ぼすミクロ要因を検討した。分子動力学法を用いて、空孔 1 個当たり蓄積される水素数を定量化した結果、最大 6 個であることが分かった。

これらの結果を参照に、c 成分転位ループへの水素蓄積過程を検討した結果、水素含有量は、約 400 ppm と計算された。これは 40GWd/t 以上の燃焼度に於ける水素含有量⁽⁴⁾と良い一致を示した。これらから、c 成分転位ループを構成する空孔に水素が蓄えられることで、水素含有量を予測できる可能性があることが分かった。

2. 2. 3 水素化物形成過程および基礎物性の第一原理計算による解明

水素化物が形成された場合の破壊靱性低下について検討するため、水素化物の基礎物性を第一原理計算により解析すると共に、様々な結晶面の劈開エネルギーの計算を行ない、割れやすい面として(111)を特定した。続いて、Zr-水素化物界面の劈開エネルギーを評価した。ジルカロイではZrの底面(0001)に広がった板状の水素化物が観察され、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。そこで、この界面の劈開エネルギーをZrHとZrH₂について求めた。その結果、Zr-ZrHでは1.08J/m²、Zr-ZrH₂では0.67J/m²という結果が得られた。実際には、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、劈開エネルギーはさらに下がると考えられる。よって、き裂発生の起点はこの母材・水素化物境界と考えられる。水素化物の効果としては、劈開エネルギーの低下と共に、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、2つの現象が脆化に寄与していると考えられる。

2. 2. 4 イオン照射試験および材料評価

イオン照射試験の準備として、NiイオンおよびHイオンの発生に必要なイオン源コーンおよびイオン照射試料の設置に必要なジグ等の作製をすると共に、ジルカロイ2（非照射試料）の微細組織を観察した。ジルカロイ2焼鈍材では、通常観察されるZr₂(Fe, Ni)およびZr(Fe, Cr)₂析出物に加えて、高密度で微細な析出物も確認された。現時点では析出物を構成する元素は未同定であるが、中性子照射後のジルカロイ2にて、サイズが約10 nmの微小析出物が3次元アトムプローブ分析により確認されており、FeおよびCrクラスタと同定されている⁽⁵⁾。これらの析出物は照射により数密度・サイズが変化し、照射下での組織・組成変化に影響を与える可能性がある。

3. 今後の研究

3. 1 全炉心輸送計算による炉心特性評価

擬似物質法を実装したモンテカルロ計算コードMVPと冷却水の熱水力計算による核熱連成計算システムを構築し、解析モデルを用いてTRUの多重リサイクルと負のボイド反応度を評価する。

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

水素吸収量増加過程の知見をもとに、第一原理計算および分子動力学計算により水素化物形成過程を解明するとともに、分子動力学-有限要素法連成解析により水素化物形成時の割れ発生に関して検討する。作製したジルカロイ2を用いて、機械試験およびイオン照射試験を行い、c型転位ループの核形成に及ぼすFe元素の影響、上記2種類の析出物の照射による消失とc型転位面上でのFe, Ni元素の偏析挙動、水素化物による割れ発生過程に関する解析結果等を検証する。

以上から、ジルカロイ燃料被覆管の水素吸収メカニズム並びに水素脆化挙動評価を行い、これらの劣化の主因を把握する。本検討により、燃料被覆管の劣化の主因が中性子照射によるものであると判明した場合には、本検討で得られる劣化メカニズムに基づき、耐中性子照射特性並びに耐水素脆化特性を向上させた新合金・新材料の適用も検討する。

4. 参考文献

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

- (2) 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).
- (3) 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).
- (4) F. Garzarolli, et al., “Optimization of Zry-2 for High Burnups” , ASTM STP 1529, p711-728(2010).
- (5) 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.