

高速炉の安全性向上のための高次構造制御セラミック制御材の開発

(受託者) 国立大学法人東京工業大学

(研究代表者) 吉田克己 科学技術創成研究院 先導原子力研究所

(再委託先) 国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 28 年度～31 年度

1. 研究の背景とねらい

1.1 背景

高速炉は、エネルギーの安定確保と資源の有効利用の両立を目指した核燃料サイクルの中に位置づけられ、次世代の原子炉として研究開発が進められている。原子炉の安全性を確保する上で炉心構成要素の1つである制御棒は高い性能と信頼性が要求され、出力制御や炉停止には制御棒が主要な役割を担っている。そのため、将来的に高速炉を商用炉として運転する場合には、制御棒の信頼性、安全性の向上が重要となる。現在、高速炉用制御材として、高温まで安定であり、工業的製法が確立されている炭化ホウ素 (B_4C) ペレットが用いられているが、ホウ素の中性子吸収反応により生成したヘリウムが B_4C ペレットの結晶粒内に保持されることにより著しい体積膨張 (スエリング) を起こす。また、中性子吸収により大きな発熱を伴うため、不均一な温度分布により B_4C ペレット内に熱応力が発生し、ペレットの割れや欠けが生じる。その結果、被覆管に対して機械的な相互作用をし、被覆管が破損する原因となる。現状、核特性や高温安定性、製造性、実績、取扱やすさ等を考慮すると B_4C 以外の優れた候補材はないといえるが、上記課題を克服する B_4C ペレット型制御材の開発に関する研究例はない。

高速炉用 B_4C 制御材の割れの抑制には、多孔化及び異種物質との複合化が考えられる。高性能制御材開発のポイントは、①従来材の気孔率 (5-10%) を維持する、②熱的・機械的特性の向上により熱応力を緩和し、耐熱衝撃抵抗を高める、③ヘリウム放出機能を付与する、④異種物質の添加量を少なくする、であり、単なる多孔化や複合化では上記課題の克服は困難である。本研究では、 B_4C の粒子径や配向性などの粒子自体の微構造制御と同時に気孔径、気孔形状、気孔配向等を同時に制御する (高次構造制御) ことで、熱的・機械的特性に優れ、中性子吸収時に生成するヘリウムを過剰に蓄積せずに放出し体積膨張を抑制する、高速炉の安全性の向上を目指した B_4C 基セラミック制御材 (多孔体) の開発を目的とする。

1.2 ねらい

高次構造制御プロセスとして、鑄込み型面に平行な面内に気孔形成材 (造孔材) を配向させるスリップキャスト法及び 10 テスラ以上の強磁場下で結晶及び造孔材を配向させる強磁場配向プロセスを用い、貫通型気孔を有する高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材を創製する。気孔率を 5-10% で制御可能であり、従来材の気孔率を維持し、中性子吸収能を低下させることなくヘリウム放出機能による割れの抑制が期待できる。また、カーボンナノチューブ (CNT) の添加・配向制御による熱的・機械的特性の向上により、熱応力の緩和及び耐熱衝撃性の向上による割れの抑制も期待できる。また、高速炉用制御材製造メーカーと共同し、 B_4C 基セラミック制御材について既存の検査技術の適用性の検討及び技術継承を行うとともに、最新の検査技術の適用性等を評価することで高度化を検討し、将来の高速炉制御材に関する安全基盤技術を維持・発展させることを目標とする。本研究の高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材が創成できれば、こ

れまでに課題とされていた高速炉用制御材の安全性及び信頼性が顕著に向上し、高速炉の安全基盤技術の進展及び今後の原子力基盤技術の向上に大きく寄与することが期待できる。

2. これまでの研究成果

(1) 高次構造制御による B_4C 基セラミック制御材の創製に向けた基礎的研究及び B_4C 基セラミック制御材の作製

a. スリップキャスト法の基礎的研究及び B_4C 基セラミック制御材の創製

スリップキャスト法による高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材に関して、原料組成及び焼結プロセスや焼結条件の予備的検討を行った。実機制御材としての適用を考慮し、天然組成 B_4C 粉末に加えて ^{10}B 高濃縮 B_4C 粉末を原料として用いた。また、(1) c. の成果をフィードバックし、スリップキャスト法を用いた高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材の作製プロセスの目処付けを行った。天然組成 B_4C において、スリップキャストに用いるスラリーの調製条件を検討し、スリップキャストにより得られた成形体を放電プラズマ焼結 (SPS) することにより $1800^{\circ}C$ の比較的低い温度で相対密度が 97% 程度の焼結体を得られた。 ^{10}B 高濃縮 B_4C 粉末においては入手可能な粉末が限定されており、粒度が大きいために粉砕が必要であり、 ^{10}B 高濃縮 B_4C 粉末の粉砕を試行してみたところ、遊星型ボールミルの使用では粉砕メディアからの不純物の混入が考えられたため、使用粉砕メディアの選定と粉砕条件の更なる検討が必要となった。また、CNT の分散手法及び分散条件について検討した。

b. 強磁場配向プロセスの基礎的研究及び B_4C 基セラミック制御材の創製

強磁場配向プロセスによる高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材に関して、原料組成及び焼結プロセスや焼結条件の予備的検討を行った。実機制御材としての適用を考慮し、天然組成 B_4C 粉末に加えて ^{10}B 高濃縮 B_4C 粉末を原料として用いた。また、(1) c. の成果をフィードバックし、強磁場配向プロセスを用いた高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材の作製プロセスの目処付けを行った。図 1 より、Ar 雰囲気中 $1850^{\circ}C \times 10min$ で緻密化を行ったバルク焼結体は RT 面 (回転磁場平行面) と RS 面 (回転磁場垂直面) でそれぞれ異なる回折強度を示しており、RS 面内では c 面が垂直に配向していることから、(1) a. において最適化を行った天然組成 B_4C スラリーを用いて、強磁場配向が可能であることを確認した。また、強磁場配向プロセスにより得られた成形体を放電プラズマ焼結することにより $1800^{\circ}C$ の比較的低い温度で相対密度が 97% 程度の焼結体を得られた。また、 ^{10}B 高濃縮 B_4C 粉末の粉砕においては (1) a. と同様に粉砕メディアからの不純物の混入が考えられたため、使用粉砕メディアの選定と粉砕条件の更なる検討が必要となった。

c. 多孔化プロセスの基礎的研究

スリップキャスト法及び強磁場配向プロセスによる B_4C 基セラミック制御材の気孔制御

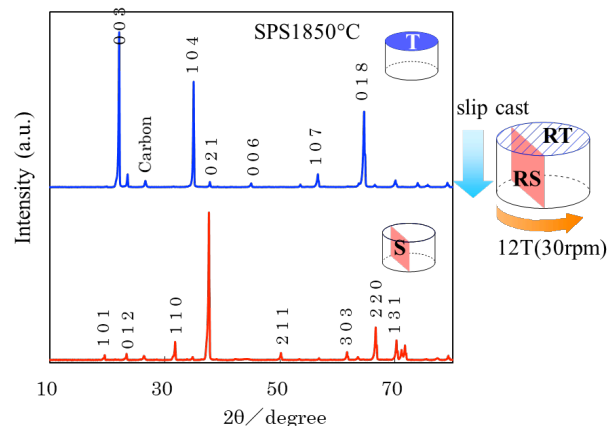


図 1 回転磁場中スリップキャスト後 SPS 緻密化試料の RT、RS 面での XRD 測定結果

プロセスについて、気孔形成材の種類、気孔形成手法等の観点から予備的検討を行った。気孔形成材として、長さや径が異なるセルロース繊維、ナイロン繊維及びカーボン繊維を入手し、気孔形成材としての可能性を検討した。これらの繊維について、TG-DTA（熱重量・示差熱分析装置）による大気中での酸化燃焼温度の評価及びこれらの繊維により形成される気孔形態を評価した。また、強磁場配向プロセスについて、セルロース繊維とナイロン繊維の長さや径による強磁場での強磁場配向および磁場応答性を検討した（図2）。

ナイロン(N66 6.7T 0.3m)

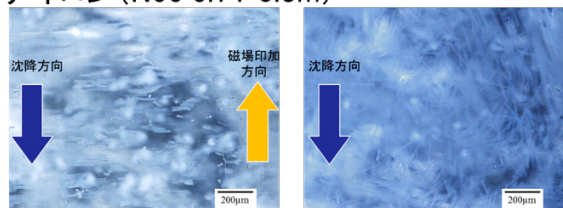


図2 ナイロン繊維の強磁場配向

d. B₄C 制御材の反応度評価

高性能 B₄C 基セラミック制御材の創製に向けて、制御材の組成をパラメータとした制御棒反応度値への影響評価を計算により行った。また、高次構造制御 B₄C 基セラミック制御材の組成の最適化を図った。図3より、制御材の組成をパラメータとした制御棒反応度値への影響を評価し、アルミニウム、カーボンナノチューブの添加による反応度への影響がないことを確認した。気孔率、外径等で ¹⁰B の充填量を確保することで反応度値低下を低減できることを確認した。

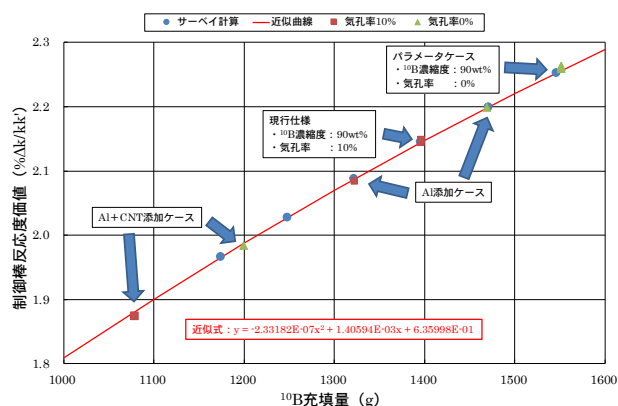


図3 ¹⁰B 充填量と制御棒反応度値の関係

(2) 高次構造制御による B₄C 基セラミック制御材の特性評価

a. 微構造評価

(1) a.及びb.で得られた B₄C 焼結体の微構造組織観察により、組織粒は等軸晶であることが確認された。特に強磁場配向プロセスで得られた試料は結晶配向制御されていることを確認した。また、焼結体内部に気孔が残っている箇所が見られたことから、B₄C 水系スラリーの調製条件及び焼結条件の最適化を図る必要があると考えられた。得られた成果をフィードバックし、スリップキャスト法及び強磁場配向プロセスの最適化を図った。

b. 熱的特性評価

小型高周波誘導加熱装置を用いた熱衝撃試験について、試験装置の設計、試験方法及び試験条件を確立した。また、得られた試料の熱伝導率を測定した。小型高周波誘導加熱装置を用いた熱衝撃試験について、加熱に関しては高速昇温、冷却に関してはガス急冷及び水中投下急冷可能な装置設計とし、熱衝撃試験方法及び試験条件の目処付けができた。B₄C 試料の熱伝導率については、既存のレーザーフラッシュ装置による熱拡散率測定、昨年度導入した高温示差走査熱量計により比熱を測定することにより評価した。

c. B₄C 制御材へのヘリウム照射実験

得られた B₄C 基セラミック制御材について、高速イオンビーム照射装置を用いたヘリウム照射実験条件の検討を行った（東北大学施設で実施した）。今回の照射実験で、高速イオンビーム照射

装置を用いたヘリウム照射を行い、 B_4C セラミック試料に問題なくヘリウム照射が行えることを確認した。

d. 中性子照射 B_4C 制御材の特性評価

(1)で得られたCNT含有 B_4C 試料について、研究炉において中性子照射を行った（東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター共同利用研究で実施した）。CNT含有 B_4C 試料(ランダム材)を作製し、東北大共同利用研究で研究炉（BR2）における中性子照射に向けて試料を送付し、中性子照射を実施した。

(3) 実機 B_4C 制御材の特性評価

a. 実機 B_4C 制御材の特性評価

高速実験炉「常陽」で使用されている実機制御材（未使用材）のキャラクタリゼーション及び熱的・機械的特性を評価した。実機 B_4C ペレット型制御材（未使用材）について、過去に実施した試験条件をもとに、熱的特性及び機械的特性を評価し、実機 B_4C ペレット型制御材（未使用材）の基礎データを取得した。

b. 実機 B_4C 制御材の中性子照射挙動評価

高速実験炉「常陽」で使用された B_4C 制御材の微細組織観察を行い、中性子照射挙動を評価し、スエリング、微構造変化、燃焼度との関係を解析した。実機 B_4C 制御材の微構造を観察するために、意図した場所の微細組織観察用試料の作製が可能な集束イオンビーム加工観察装置（FIB）を整備し、観察用試料の調製条件を検討した。また、実機 B_4C 制御材の微構造観察を行った。 B_4C 制御材の燃焼度については、質量分析によるホウ素同位体比測定手法により評価した。

(4) B_4C ペレット型制御材の製造・検査技術の継承及び高度化

B_4C ペレット型制御材の検査技術に関して、実機制御材の検査等で培ってきた技術を整理するとともに最新の検査技術の適用性などを検討した。 B_4C ペレット型制御材を国内で製造し実績を有するメーカであるデンカ（株）との技術会議を行い、メーカでの課題や基本的な製造・検査技術の情報を収集した。また、今後、高度化すべき製造・検査技術の基本的な仕様等を整理した。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進めた。実施担当者打合せを定期的に行い、各研究項目について進捗状況及び今後の進め方について確認した。

3. 今後の研究

高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材の開発に関しては、微構造と特性との関係を明らかにし、実機 B_4C 制御材の特性評価及び中性子照射挙動評価の結果を合わせて、得られた結果をフィードバックし、スリップキャスト法及び強磁場配向プロセスを用いた高次構造制御 B_4C 基セラミック制御材の作製プロセスの最適化を図り、実機 B_4C 基セラミック制御材への適用を目指した材料設計指針及び組成を検討する。また、 B_4C ペレット型制御材の製造・検査技術の継承及び高度化については、高度な成形技術を要する B_4C ペレット型制御材の検査技術について、実機制御材の検査等で培ってきた技術を整理するとともに最新の検査技術の適用性などを検討する。