

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。

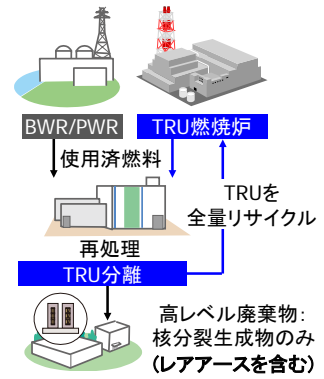


図 1 めざす TRU 燃焼サイクル

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 左)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 右)、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

(LLFP:装荷せず)

配置した特徴的な扁平炉心(図 2 左)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 右)、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。

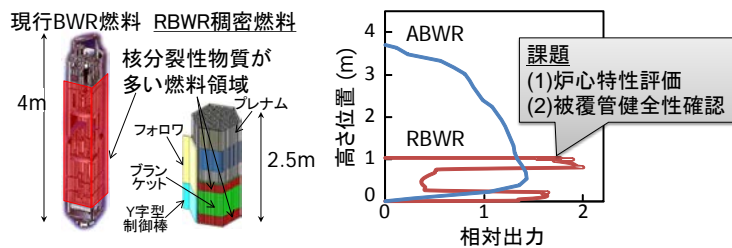


図 2 RBWR の特徴と課題

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

本研究では図 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した。

2. 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全炉心計算手法において、2. 1. 2 で開発した「擬似物質法」を実装したモンテカルロ計算コード MVP⁽²⁾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。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、平成 27 年度に構築した燃料集合体格子の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。

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. 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 (Pseudo Material Method)⁽³⁾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。

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。一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、もう一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。

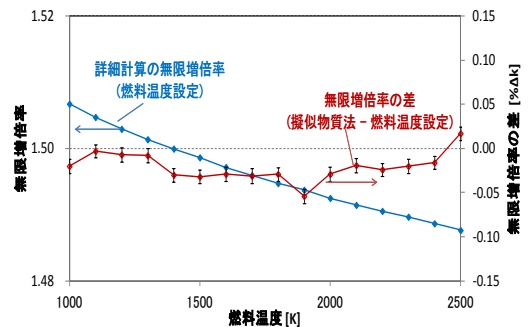


図 3 RBWR ピンセル体系における疑似物質法の計算精度

図 3 に RBWR のピンセル体系において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%Δk 以下であり、疑似物質法が妥当であることを確認した。

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、炉内滞在時間が 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。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とともに、重イオン照射試験により開発手法を検証した。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 適用への指針を得た。

2. 2. 1 RBWR 燃料被覆管への Zr 合金適用性評価

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。作製した試験片に対し機械試験として衝撃試験を実施した結果、水素含有量350 wtppmのジルカロイ2において衝撃エネルギーが浸漬前の3分の1に低下した。衝撃試験後の変形組織に対し、走査型電子顕微鏡及び電子線後方散乱回折装置により、き裂の進展経路を評価した。その結果、水素化物による割れ発生過程において、面心立方構造の水素化物の(111)面と六方最密充填構造の母相の(0001)面が平行であることを結晶学的に検証した。この分析結果と、c軸配向の解析結果、き裂進展経路が観察結果と一致した。

また、照射下微細組織発達過程並びに水素化物形成過程に関する解析結果を、イオン照射試験後の微細組織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、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さら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。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RBWRの高照射下(23 dpa以上)では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. 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

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、ジルコニウム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。

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説明

第一原理計算の結果、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さら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。

2. 2. 4 イオン照射試験および材料評価

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。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(図4)。

その結果、ジルカロイ2及びFeを添加したZr-1.5Sn-0.25Fe合金において400℃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った。さらに、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伴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、水素化物形成に伴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る。

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。本検討から、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影響を明確化するためには、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。

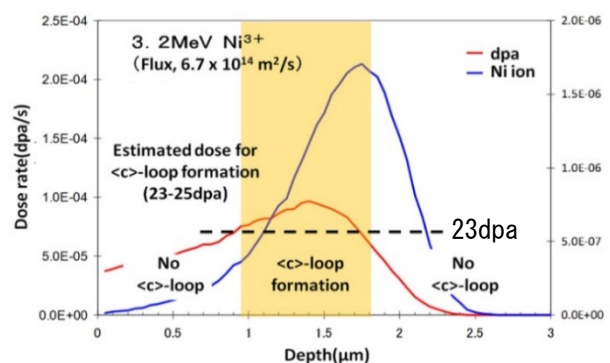


図4 Niイオンによる損傷分布

3. 今後の展望

3. 1 炉心・燃料サイクル全体の成立性評価

本研究で構築した全炉心モンテカルロ計算を用いた核熱連成計算システムを用いて、燃料サイクルにおける燃料組成変化に対する炉心特性の感度解析を実施し、燃料サイクル全体についてTRUリサイクル時に想定される燃料組成変動に対しての炉心成立性を評価する。

3. 2 Zr合金燃料被覆管の水素吸収総合評価

本研究で見出したZr合金における水素吸収挙動と照射欠陥との相互作用に関する知見に基づき、水素・重イオン共存場および表面酸化膜の影響下での水素吸収挙動を実験的に検討する。これにより、実機の炉水中での被覆管の酸化膜形成・水素吸収と中性子照射の相互の影響を考慮し、被覆管

材料の水素脆化に対する高温水中で形成された表面酸化膜の影響を評価し、TRU 燃焼水冷却炉に対する Zr 合金製燃料被覆管の適用性を総合的に評価し、炉心設計に反映させる。

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).