

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 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～23 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。原子炉の炉心で用いる材料を開発するためにそ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ことを確認する研究を実施している。

2. 研究開発成果

本事業で実施した項目は、設計研究と要素技術開発の 2 つである。以下にそれぞれの研究開発成果を示す。

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

「高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCT)」で検討を進めている大型実用炉 MOX 燃料炉心 (以下 FaCT 炉心という) 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 FaCT 炉心に適用した場合の出力分布特性を FaCT 炉心と同様の設計手法を用いて評価した。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。

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

水素化物の制御棒以外の高速炉炉心への応用として、バーナブルポイズンとしての利用を検討している。即ち、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できる。このバーナブルポイズン集合体は内側にジルコニウム水素化物減速材ピンを配置し、外側にガドリニウム含有ジルコニウム重水素化物ピンを配置することで、燃焼反応度を維持しつつ、局所ピーキング係数は低下し、増殖比を増大出来るよう工夫している。バーナブルポイズン集合体の適用により、バーナブルポイズン無しの炉心と比べて主炉停止系制御棒本数を 17 本削減できる。

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。その結果、設計基準内事象での安全性評価では、代表的事象である「制御棒誤引抜き」、「1次ポンプ軸固着」に対するハフニウム水素化物中性子吸収材の温度挙動を評価した結果、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）を満足することから、ハフニウム水素化物中性子吸収材の安定性、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見通しが得られた。

4) 高速炉臨界実験装置（FCA）を用いた実験

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、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。その結果、今後実施するピン状試験体を用いた第2試験と相補的な試験データを取得し、ハフニウム水素化物に対する標準解析手法を用いた解析精度の傾向を把握するとともに課題を抽出した。

2-2. 要素技術開発

1) ペレット量産化技術開発および内面コーティング被覆管量産化試験

制御棒はハフニウム水素化物ペレットをステンレス鋼被覆管に入れその両端を端栓により溶接封入した構造である。これを集めて制御棒集合体を作り原子炉に装填する。ハフニウム水素化物ペレットは、ジーベルツ型の装置を用いて、金属ペレットに高温で水素ガスを吸収させて作成する。ハフニウムは水素を吸収する際に体積膨張を起こすため、割れなどを生じやすい。水素吸収時の水素分圧や温度を調節し割れのないハフニウム水素化物ペレットを作製する必要がある。現在1バッチで約50個程度のハフニウム水素化物ペレット（直径約10mm、高さ約10mm）を作製できる装置を開発している。また、ハフニウム水素化物制御棒集合体の製作コストを下げるため大型ハフニウム水素化物ペレットの開発を進めている。図1に試作したペレット（直径約20mm、高さ約20mm）の外観写真を示す。



図1 大型 ハフニウム水素化物ペレットの試作品

ハフニウム水素化物の物性試験として、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。また、ハフニウム水素化物の相状態と物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、 δ 相ハフニウム水素化物の高温X線回折試験により、 δ 相ハフニウム水素化物は空气中673 K付近から酸化されて一部がハフニウム酸化物になること、さらに温度が上昇し973 Kでは、酸化が進行するとともに水素の脱離が生じ、 α 相の金属ハフニウムが生じることが明らかとなった。また、ジルコニウムを10 at.%まで含有したジルコニウム含有ハフニウム水素化物の相状態と物性評価試験により、ハフニウム水素化物に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を明らかにした。

原子炉でハフニウム水素化物集合体を用いる際の問題の一つは、原子炉の炉心温度（約600℃）

で長期間（6-8 年）使い続けることによる、被覆管を通したハフニウム水素化物ペレットからの水素損失である。即ち、水素は拡散により被覆管を透過し冷却材（ナトリウム）中に逃げ出し、ハフニウム水素化物ペレットの水素濃度の低下を引き起こす。水素濃度が低下すれば、高速中性子の減速が不十分となり、制御棒としての中性子吸収能力が低下する。これを避けるために、次に示す二つの対策を考慮し、原子炉内のような高温での長期間使用を可能にしている。一つ目の対策は、ハフニウム水素化物中の水素濃度を低く調節し、高温での平衡水素分圧を下げることである。現在の設計では、ハフニウム水素化物ペレットの H/Hf 比（原子組成比）を 1.3 に抑えることによって原子炉運転時の制御棒内の平衡分圧を下げている。二つ目の対策は、被覆管内面に水素透過防止コーティングを施し水素透過の抑制を図る。

被覆管内面は、まずスーパーカロライジング処理（アルミニウム拡散浸透処理）法を用いて、内面にアルミニウムをコーティングする。スーパーカロライジング処理は、Fe-Al 合金粉及び NH_4Cl 粉よりなる調整剤を被処理物（ステンレス鋼）表面で加熱することによってステンレス鋼表面に FeAl 合金層を生成する方法である。次に、これを 800°C で 2 時間以上酸化環境に保持することにより、被覆管内面に Al_2O_3 被膜を形成した。この方法によって被覆管内面の軸方向に 1m にわたって均一な水素透過防止コーティング膜を形成した。また、溶接部のコーティング処理により、高温での水素透過抑制効果の向上を確認した。

2) ナトリウム充填試験と両立性試験

制御棒製造時にハフニウム水素化物ペレットと被覆管のギャップにナトリウムを充填することによりギャップの熱伝導を良くする改良型ハフニウム水素化物制御棒の開発を進めている。ペレット-被覆管のギャップに熱伝導度の良いナトリウムを充填するための Na 充填装置を作成した。これを用いて 400mm 長のハフニウム水素化物ピンに被覆管とペレットの間隙部にボイドを残留させることなく、Na を良好な状態で充填することができた。また、ペレットと被覆管の間隙部における残留ボイドを X 線により直接観察する技術を開発した。

水素化物ピン内の各構成材料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、及び 10cm に切断した被覆管材内部に封入したピン内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 Na 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との両立性を調べた。各試験で得られた試料については、表面・断面の観察を行い、反応相の有無を調べた。その結果、全面密着試験ではハフニウム水素化物と密着した内面コーティング膜の表面に反応物の生成は認められたが、EPMA 観察によりその量及び侵入深さは微少であることが確認された。ピン内試験においても、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。

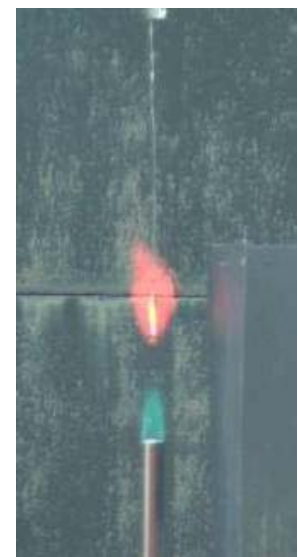


図 2 ハフニウム水素化物の空気中での燃焼

3) ペレット燃焼試験

水素は大気中では、温度や濃度の条件によっては爆発的に燃焼する危険性がある。水素ガスの燃焼については実験が行われているが、水素化物の燃焼については報

告が見当たらない。そこで、水素化物ペレットの製造過程での火災の安全対策を念頭にハフニウム水素化物の燃焼試験を実施している。まず、水素放出特性を調べるため、ハフニウム水素化物を高周波加熱炉を用いて真空真空中で急速に加熱した。その結果水素の放出は 800°C ぐらいから始まり 1000°C になると急激な放出が起きることが分かった。次に大気中でブンゼンバーナーの炎の約 1000°C の部分で燃焼させた。図 2 にハフニウム水素化物の燃焼に伴う炎の写真を示す。写真の炎の色（赤）から判断すると水素の燃焼による直接の光では無く不純物の燃焼と考えられる。また、比較的ゆっくりとした燃焼速度であった。その理由としては、大気中ではハフニウム水素化物は大気中の酸素と反応し表面に薄い膜を生じるため水素の放出速度が遅くなり結果として燃焼がゆっくり進むのではないかと考えられる。燃焼過程をさらに詳細に調べるための実験を進めている。

2-3. 水素化物照射試験

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。照射は計装付き照射孔において照射し、原子炉出力と熱電対による温度のオンライン計測を行った。計装つき照射後、集合体は一度キャプセルを装荷したセグメントまで解体された。この際の外観検査によりセグメントに異常が無いことが確認された (図 3)。その後照射集合体を計装付き照射孔から通常の照射孔へ移動し照射を継続した。照射中測定データを基に、供試体ハフニウム水素化物の中性子照射量及び温度を解析評価した。その結果、キャプセルの照射温度が目標の 500°C、600°C に近く、中性子照射量もほぼ計画通りであり、照射後試験に供しうることを確認した。

また、照射試験データを解析するため照射挙動解析コードを開発した。照射キャプセルに合わせた計算モデルを作成した。水素の温度勾配による移動モデルを整備するとともに BOR-60 照射データをもとに照射挙動解析を実施した。その結果、ペレット-被覆管のギャップ中の水素の移動はこれまで半径方向のみを計算していたが、軸方向の移動も計算出来るようになった。これにより 3 次元的水素分布の解析が可能となった。

3. 今後の展望

現在高速炉で通常利用されている B_4C 制御棒に対するハフニウム水素化物制御棒の持っている 2 つの優位性 (①ヘリウムガススエリングが起らないこと、および②核的に長寿命で有ること) を生かしてナトリウム冷却 FBR 炉心を対象とし、経済性に優れた制御棒の開発を目指す。

4. 参考文献

[1] 小無、「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-」、アグネ技術センター「金属」 Vol. 81 (3) (2011) 45-50



図 3 計装付き照射後のセグメントの外観写真