

高温ガス炉の安全性向上のための革新的燃料要素に関する研究

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 橘 幸男 原子力科学研究部門 高温ガス炉水素・熱利用研究センター

水素利用研究開発ディビジョン

(再委託先) 原子燃料工業株式会社、国立大学法人熊本大学

(研究期間) 平成 26 年度～28 年度

1. 研究の背景とねらい

東京電力福島第一原子力発電所事故を受けて、原子力施設は世界最高水準の安全性を目指し、更なる安全性・信頼性を向上することが強く求められるようになった。固有の安全性に優れた第 4 世代原子力システムである高温ガス炉（あるいは超高温ガス炉）は、エネルギー基本計画において「取り組むべき戦略的な技術開発課題」とされ、「安全性の高度化に貢献する原子力技術」と明記された。以上のような社会的背景の下で、高温ガス炉への関心が高まっている。

高温ガス炉の燃料は、耐熱性を有するセラミックス製の被覆燃料粒子（直径 1 ミリ程度）から成り、被覆燃料粒子同士を、黒鉛および炭素により構成される母材で結合し、燃料要素を構成する(図 1)。

本事業においては、燃料要素に耐酸化性能を付加し、高温ガス炉の安全性を更に向上させることを目的とする革新的な「耐酸化燃料要素」の開発をねらいとしている。耐酸化燃料要素は、従来の黒鉛及び炭素により構成される母材を、炭化ケイ素 (SiC) を含むものに置き換えたものであり、理論的な製法に関しては 1970 年代に日本原子力研究所（当時、現在は日本原子力研究開発機構）において先行研究が行われた[1, 2]。この耐酸化燃料要素が実用化されれば、高温ガス炉の特徴的な事故のひとつである空気侵入事故（配管破断事故）時に、想定を超える空気が侵入した場合においても、燃料の耐酸化性能が維持され、高温ガス炉の安全性・信頼性を向上させることができる。

本事業においては、高温ガス炉の特徴的な事故のひとつである空気侵入事故時における耐酸化性能を向上するため、革新的な燃料要素の基礎基盤技術の確立を目指し、耐酸化性能に優れた SiC を燃料要素の母材として新たに適用する技術の開発をねらいとして、非燃料のセラミックス球等を模擬の被覆燃料粒子として用いた製造技術開発、検査技術開発ならびに成形モデル構築を行う。

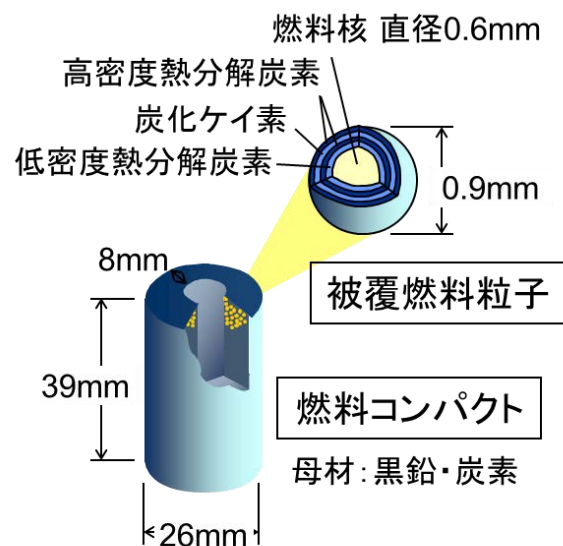


図1 現在の高温ガス炉の燃料要素

2. これまでの研究成果

2.1 耐酸化燃料要素の製造技術開発

HTTR で確立したオーバーコート法、及び 1970 年代に先行研究が行われた [1, 2]SiC 反応焼結法を適用し、母材に SiC を含む耐酸化燃料要素の基盤技術を確立することを目的とする。

2.1.1 試作試験

HTTR で確立したオーバーコート成形法を適用し、試作試験を行うため、粒子に母材となる原料粉末をコーティングするためのオーバーコート装置を製作した(図 2)。また、原料粉末である SiC、ケイ素 (Si)、黒鉛/炭素の混合方法及びオーバーコート方法を検討し、HTTR 燃料製造技術にもとづき、予めアルコールに溶解した熱分解性樹脂中に、黒鉛に Si や SiC を加えて混合しつつアルコールを加熱して除去することで、均一に分散させる方法を選定した。実用段階の被覆燃料粒子の密度 4.3 [g/cm³] に近づけるため、オーバーコートに用いる高純度アルミナ粒子を模擬被覆燃料粒子として調達するなどのオーバーコートの準備を行った。さらに、焼成過程においてホットプレス時の揮発性ガス生成の問題を抑制するため、樹脂(原料粉末のバインダーとして混合)の量を重量割合で 20%以下に低減したオーバーコート粒子を作製した。試作したオーバーコート粒子を用いて、プレス荷重を加えながら熱処理を行うホットプレス法により成型・焼成する方法で、耐酸化燃料要素の試作を開始し、成形モデルの構築において策定する焼成条件にもとづき、Si+C 法による SiC 反応焼結により耐酸化燃料要素の焼成を開始した。焼成した模擬耐酸化燃料要素の一つを図 3 に示す。



図2 オーバーコート装置

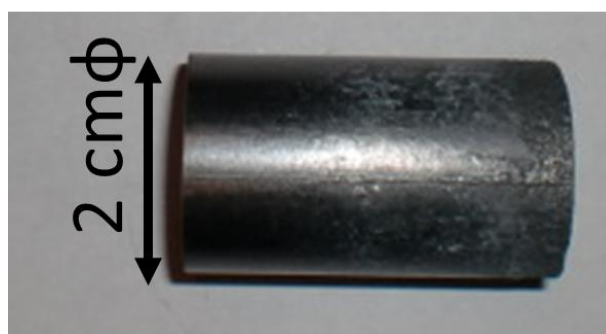


図3 焼成した耐酸化燃料要素(模擬)

2.1.2 酸化試験

高温酸化雰囲気下での耐酸化燃料要素の耐酸化性能を把握するため、被覆燃料粒子の設計限界温度 1600℃への昇温が可能な環状炉型の酸化試験装置を製作した(図 4)。



図4 酸化試験装置

2.1.3 解析評価

耐酸化燃料要素の標準設計を確定する。その暫定仕様の検討において、燃料温度の低減を図るために HTTR（高温工学試験研究炉）の燃料コンパクトと同様に中空円筒形状（外径 ϕ 34mm、内径 ϕ 8mm、高さ 38.5mm、粒子充填率 30vol%）とするとともに、被覆燃料粒子を保護するために燃料コンパクトの全表面を母材のみの無燃料部（厚さ 2mm）で覆う構造とした。以上の暫定仕様にもとづき、核熱的に成立する実用高温ガス炉の炉心設計を開始した。

2.2 耐酸化燃料要素の検査技術開発

従来の黒鉛母材とは異なる SiC を含む母材に対して新たに必要になる検査技術を開発することを目的とする。耐酸化材料である SiC と黒鉛等の混合母材の均質性及び粒子分散状態等を把握するための金相試験について、SiC 模擬品を用いた切断方法、研磨方法、エッチング方法の 3 点についてそれぞれ、ダイヤモンドカッター法、ダイヤモンド研磨法、高温溶融塩法を検討し、確認試験を開始した。また、耐酸化燃料要素内部の粒子分散状態等の把握を非破壊で実施することを目的とした検査手法として、X 線透過装置とイメージインテンシファイアで構成される装置を用いた試験方法の検討を開始した。

2.3 耐酸化燃料要素の成形モデル構築

耐酸化性に優れる高強度の耐酸化燃料要素の製作条件を予測するための成形モデルを構築することを目的とする。

2.3.1 原料の選定

母材の原料粉末については、Si と黒鉛の粉末同士の接触箇所より結合反応が起こると考えられることから、Si と黒鉛の原料粉末の表面積をなるべく大きく確保する観点で、粉末の粒径が各 5 [μ m] と HTTR 燃料黒鉛母材の粒径よりも小さいものをそれぞれ選定した。また、バインダーは HTTR 燃料コンパクトにも使用され照射実績も有するフェノール樹脂 CS-217 を選定した。さらに、高強度の母材を得るために、原料粉末への添加材として結晶粒の小さい粒径 2-3 [μ m] の SiC 粉末を選定した。Si+C 法ならびに SiC+Si+C 法による試作試験を通じて、原料粉末を最終的に選定していく。

2.3.2 成形モデルの構築

SiC を母材とした耐酸化燃料の成形体の強度に影響する成形パラメータ（粒度分布、黒鉛密度、バインダー粘性、予熱温度、プレス圧力、時間など）を抽出し、高強度の成形体を製作する条件を評価することを目的とする。

耐酸化燃料の最適な成形条件を検討するため、実験計画法のうち応答曲面法などの統計解析手法を適用することとした。また、ホットプレス工程において成形体の強度に強く影響すると予想される成形パラメータとして、温度、圧力、時間の 3 種類を抽出した。さらに、検討した統計解析手法に基づき、平成 27 年度から試作する耐酸化燃料要素焼成体の成形条件の事前評価を行い、温度：1300 ~1500 [$^{\circ}$ C]、圧力：20~40 [MPa]、時間：40~120 [min] の範囲で条件を設定した。

3. 今後の展望

3.1 耐酸化燃料要素の製造技術開発

Si+C 法によるホットプレス工程で成形・焼成した結果を反映し、組成を検討したうえで母材を混合・調整するとともに、Si+C 法と SiC+Si+C 法の二つの方法で焼成を行い、成形性を比較し、平成 28 年度に最適な SiC 反応焼結法を確定する。また、酸化試験前後の SiC 母材の微細構造を調べるとともに、Si+C 法と SiC+Si+C 法について、成形性と耐酸化性能の観点から優れた方法を選択する。さらに、検討した暫定仕様実用高温ガス炉に要求される燃料及び炉心の性能に関する条件にもとづき、核熱設計及び被覆燃料粒子の通常運転時の健全性評価を行い、燃料要素の標準設計を確定する。

3.2 耐酸化燃料要素の検査技術開発

焼成した耐酸化燃料要素を用いて、平成 26 年度に検討した研磨等前処理法ならびに X 線透過法等の試験条件にもとづき、金相試験ならびに X 線透過試験を行い、SiC 母材の均質性ならびに粒子分散状態等の把握を試み、問題点を摘出し対処法を検討する。また、HTTR で確立した硝酸浸出法にもとづく粒子破損率検査に不可欠な前処理技術を開発するため、弗酸触媒酸化法ならびに化学エッチング法により SiC 母材を解砕する試験を行う。さらに、金相試験の研磨等前処理法及び X 線透過法等の最適条件を取得し、検査技術を確立する。

3.3 耐酸化燃料要素の成形モデル構築

耐酸化燃料要素の成形性および耐酸化性能の観点から、原料を決定する。また、平成 26 年度の成形パラメータの評価結果に基づき、実験計画法により焼成条件を策定するとともに、試作試験、酸化試験および特性評価試験の結果と、成形パラメータとの相関を定量的に評価し、耐酸化燃料要素成形モデルを構築する。さらに、焼成された耐酸化燃料要素を用いて機械特性データを取得する。

4. 参考文献

- [1]井川勝市、他：レジンボンド黒鉛成形体と SiC ボンド黒鉛成形体の水蒸気腐食の比較、JAERI-M7477(1978).
- [2]K. Ikawa, et al., “Reaction hot press of graphite-silicon”, High Temperature-High Pressures 9 (1977) 431-435.