

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) 橋 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 研究推進室

(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。なお、日本の高温ガス炉としては、日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)に高温工学試験研究炉(High Temperature Engineering Test Reactor: HTTR)が実在する。

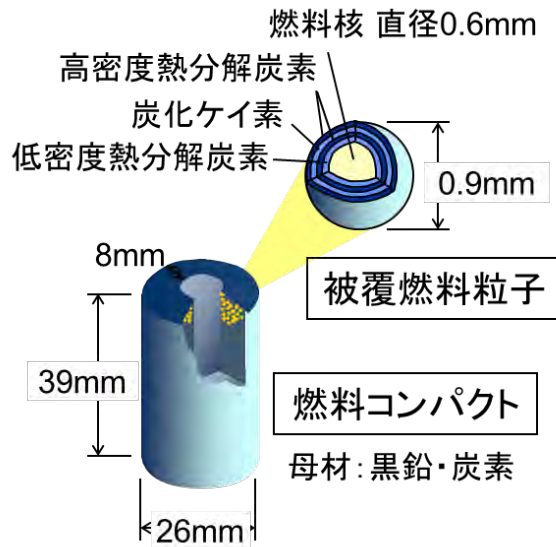


図1 現在の高温ガス炉の燃料要素

現在の高温ガス炉、例えば、HTTR 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、1970 年代に日本原子力研究所(当時、現在は原子力機構)において先行研究が行われた[1]。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、想定をはるかに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、耐酸化性能に優れる 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。

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

2.1.1 試作試験

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 Si+C 反応焼結法を適

用し、母材に SiC を含む耐酸化燃料要素の製造に係る基盤技術を確立することを目的とする。

(1) 耐酸化燃料要素(模擬)の試作方法の概要

本事業においては、耐酸化燃料要素(模擬)を以下のように試作した。

- ① 母材の原料となる粉末(Si+C+熱分解樹脂 または SiC+Si+C+熱分解樹脂)を混合し、母材原料とする。熱分解樹脂が含まれる理由については、下記②を参照のこと。
- ② 被覆燃料粒子の模擬物(アルミナ粒子)をエタノールで湿らせつつ転がし、①で製造した母材原料を少しずつまぶして乾燥させ、オーバーコート粒子とする。なお、まぶされた母材原料の層をオーバーコート層と呼ぶ。母材原料中の熱分解樹脂が糊の役割を果たし、もともと粉末状の母材原料を固めてオーバーコート層を形成させる。
- ③ オーバーコート粒子を再度エタノールで湿らせて型に詰め、オーバーコート層に十分な流動性を持たせた状態でコールドプレスし、円柱状に成型する。
- ④ 更に、ホットプレス法により焼成する。

(2) 原料粉末の混合及びオーバーコート(上記①②)

母材原料粉末の調整条件を検討したうえでオーバーコート粒子を製作した。

焼成法として本事業で適用するホットプレス法においては、母材原料に含まれる熱分解樹脂より多量のガスが脱離してホットプレス装置の部品を劣化させ、焼成が行えなくなるという問題が生じることが予測された。そこでまず、熱分解樹脂の添加割合について検討した。HTTR の燃料コンパクト用の母材原料粉末中には約 20 wt%の熱分解樹脂が含まれるが、これを可能な限り低減することを目標とした模擬オーバーコート試験を実施し、オーバーコート中及び乾燥後のオーバーコート層の剥離の有無等を評価し、熱分解樹脂の添加割合を 2 wt%まで低減可能であることが分かった。

この樹脂添加量検討結果を踏まえ、現在までに 9 種類のオーバーコート粒子を製造した。これらのオーバーコート粒子を用いて焼成に成功した(下記「(3) 焼成」参照)。

以上により、ホットプレス法による耐酸化燃料要素製造のためのオーバーコート粒子の製造(含・母材原料粉末の混合)技術を確立した。

(3) 焼成(上記③④)

上記(1)で述べたコールドプレスによる成形及びホットプレスによる焼成により、被覆燃料粒子を模擬したアルミナ粒子を含む模擬燃料要素(模擬)の試作に成功した。

なお、

- 上記(1)で述べたように、母材


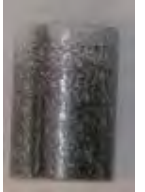

	母材原料	Si+C(+熱分解樹脂)		SiC+Si+C(+熱分解樹脂)	
結果		焼成成功	焼成成功	焼成失敗	一部欠けた。保管中の母材の剥落が著しい。 欠けた部分
					

図2 母材原料と成形性の関係

原料として SiC を含むものと含まないものの両方について試作を行ったところ、SiC を含むものの方が成形性において著しく劣っていたことから、本事業では、母材原料として Si+C(+熱分解樹脂)を採用すべきであるとの結論を得た (図 2)。

- 本事業においては、母材原料中の Si 量の C 量に対する比率を、先行研究[1]において「これ以上 Si の量を増やすと良くない」とされていた比率から 3 倍に増やしたが、成形性に問題はなく、X 線回折装置 (XRD) で調べたところ未反応 Si も検出されなかった。

2.1.2 酸化試験

酸化試験装置を製作し、試作した耐酸化燃料要素(模擬)の酸化試験を予備的に行った。20%O₂ 中で、900℃で 30 分酸化させたところ、試料の形状が維持されていた。また、アルミナ粒子が保持され母材の剥落もなかった。

2.1.3 解析評価

耐酸化燃料要素の標準設計を決めるため、①耐酸化燃料要素の暫定仕様を定め、②その仕様に基づき、高温ガス炉の核熱設計を行い、③その核熱設計に基づき通常運転時の被覆燃料粒子の健全性評価を行い、通常運転時の被覆燃料粒子の健全性が保持される評価結果を得た。④以上により、耐酸化燃料要素の標準設計は、上記①で定めた暫定仕様とすることとした。

2.2 耐酸化燃料要素の検査技術開発

耐酸化燃料要素の検査技術開発を目的として母材の解砕試験等を実施した。

被覆燃料粒子は、それ自体の製造時に加え、燃料要素製造時にもプレス圧等により破損する可能性がある。従って、燃料要素になった状態における破損率を評価する必要がある。その前処理として、被覆燃料粒子に影響を与えずに(=機械的方法に依らず)燃料要素を解砕する必要がある。黒鉛/炭素のみから成る母材を持つ HTTR の燃料要素(燃料コンパクト)用には、そのための技術が確立されているが、本事業における SiC を含む母材については、解砕手法を新たに開発する必要がある。

そこで、SiC 焼結体を用い、以下の 3 つの方法により、SiC の溶解を試みた。

- ① KOH 法：約 500℃に加熱して溶融させた KOH の中に試料を浸す。
- ② 弗酸法：硫酸・硝酸・弗酸を混合して約 120℃に熱し、試料を浸す。
- ③ 密封加圧酸分解法：硫酸・硝酸・弗酸を混合して(混合比は上記②とは異なる)試料と共に専用容器に密封し、230℃に加熱する。

これら 3 つの方法による試料の溶解量を試験時間に対してプロットしたものを図 3 に示す。KOH 法及び密封加圧酸分解法は、耐酸化燃料要素の解砕手法として適用できる可能性があることが分かった。現段階では溶融 KOH 法の方が短時間で溶解できる見通しであるが、溶解後の KOH 除去の手間の問題があるため、これらの手法については今後も検討が必要である。

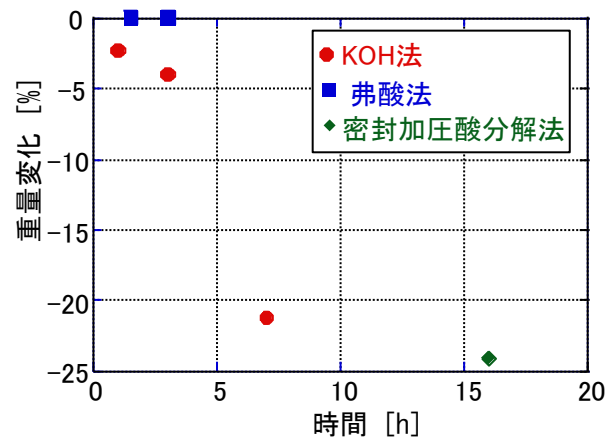


図3 SiC焼結体試料の溶解量の時間依存性

2.3 耐酸化燃料要素の成形モデルの構築

高強度の耐酸化燃料要素の最適な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 成形モデルの構築

まず、耐酸化燃料要素の機械特性が依存すると考えられる因子として、ホットプレス時の温度及び時間の2つを抽出した。次に、ホットプレス装置の性能及びホットプレス工程に要する現実的な時間の観点から定めた範囲において、2因子に対する中心複合計画法に基づき、成形モデルの構築に必要な13個の耐酸化燃料要素(模擬)の焼成条件を設定した(上記「2.1.1 試作試験(3) 焼成」参照)。

さらに、下記「2.3.2 特性評価試験」において取得したヤング率のデータを用い、2因子におけるヤング率の応答曲面モデルを作成し、ヤング率が最大となる焼成条件を予測した。

2.3.2 特性評価試験

モデル構築のために設定した条件(上記「2.3.1 成形モデルの構築」参照)において焼成された13個の耐酸化燃料要素(模擬)(上記「2.1.1 試作試験(3) 焼成」参照)に対し、超音波パルス法による測定を行い、ヤング率を取得した。

3. 今後の展望

3.1 耐酸化燃料要素の製造技術開発

母材原料の一つであるC粉末の粒サイズを変更した母材原料を用いた耐酸化燃料要素(模擬)の試作を行い、Si+C反応焼結法に関する基礎的知見を得る。また、これまでに試作した耐酸化燃料要素(模擬)の酸化試験を行い、酸化速度を取得する。

3.2 耐酸化燃料要素の検査技術開発

試作した耐酸化燃料要素(模擬)を用い、溶KOH法及び密封加圧酸分解法によるSiCを含む母材の解砕試験を行い、粒子破損率検査手法の確立を目指す。また、金相試験ならびにX線透過試験を行い、SiCを含む母材の均質性ならびに粒子分散状態等の把握を試み検査技術の確立を試みる。

3.3 耐酸化燃料要素の成形モデルの構築

今までにヤング率を取得した試料を用いて更に圧縮試験を行い、圧縮強度データを得る。更に、取得した強度データを用いて、耐酸化燃料要素の機械特性と成形パラメータとの相関を評価し、成形モデルを構築する。

4. 参考文献

- [1]井川勝市、他：レジソ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)。