

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。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。

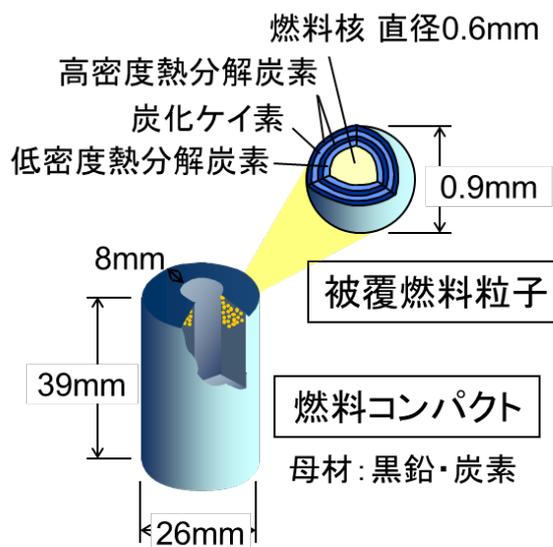


図1 現在の高温ガス炉の燃料要素

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)。

本事業では、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⁾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。

本事業では、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った。

2. これまでの研究成果

2.1 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)を混合し、母材原料とする。なお、熱分解樹脂は下記②の過程で糊の役割を果たす。
- 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。
- 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) 母材の Si/C 比の増加

耐酸化性の観点から母材中の未反応 C の割合は小さい方が望ましい。即ち、もしも混合粉末中の Si がすべて C と結合して SiC に変化するならば、混合粉末中の Si/C 比は 1 に近いことが望ましい。本事業では、母材原料中の Si 量の C 量に対する比を、先行研究⁽¹⁾における比から 3 倍(約 0.551)まで増やしたが、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。これは、本事業では比表面積が大きい C 粉末を母材原料として用いたためと考えられる。

(3) 耐酸化試験

上記(2)において試作した、母材の Si/C 比が約 0.551 である耐酸化燃料要素(模擬)の酸化試験を行った。20 %O₂ 中 900℃で 30 分酸化させたところ、試料の形状が維持されて、アルミナ粒子が保持され母材の剥落もなかった(図 2)。この結果は、過去に別の方法により試作された耐酸化燃料要素(模擬)の酸化試験結果⁽²⁾よりも良好であった。過去の試験では、耐酸化燃料要素(模擬)を同等の条件で酸化させたところ、模擬 CFP のすべては保持できず、一部が落剥した⁽²⁾。また、酸化速度は約 1.38×10^{-3} [g/cm²/min]であった。



図2 酸化試験後の耐酸化燃料要素(模擬)

(4) 圧縮破壊強度

下記「2.2 成形モデルの構築」のための耐酸化燃料要素(模擬)を試作し、構築された応答曲面モデル(下記「2.2 成形モデルの構築」参照)により、上記(3)で用いた試料の圧縮破壊強度は、HTTR 燃料コンパクトの規格⁽³⁾を十分上回ると予測された。なお、後日、同等の試料を用い実測を行ったところ、HTTR 燃料コンパクトの規格の約 3.8 倍(40.8 MPa)であった。

(5) 結論

上記(3)及び(4)より、上記(3)で用いた試料の母材原料粉末及び製造条件を適切であると追認した。以上により、耐酸化燃料要素の製造に関する基盤技術を確立した。

2.2 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。

(1) 準備

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2因子に対する中心複合計画法⁽⁴⁾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。

(2) 成形モデルの構築

上記(1)で設定した焼成条件に基づき上記「2.1(4) 圧縮破壊強度」において試作された13個の耐酸化燃料要素(模擬)の圧縮破壊試験を行った。その試験結果を、2次の応答曲面モデル⁽⁴⁾に適合させ、応答曲面モデル(図3)を構築し、「2.1 製造技術開発」へフィードバックした(上記「2.1(4) 圧縮破壊強度」参照)。

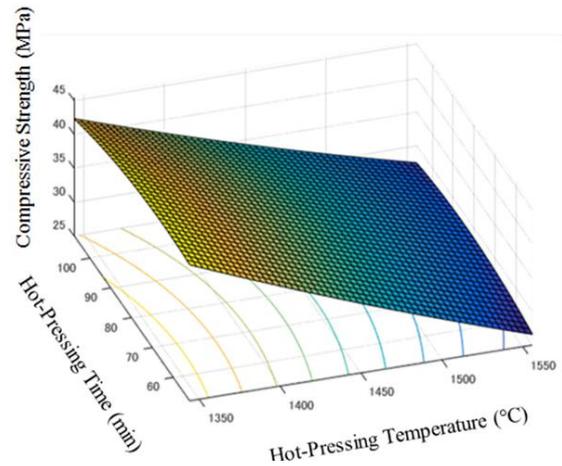


図3 応答曲面法によってモデル化した圧縮破壊強度と成形パラメータの関係

2.3 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、粒子の被覆時のみならず、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、被覆燃料粒子を新たに破損させずに燃料要素を解砕し、被覆燃料粒子を取り出す必要がある。黒鉛/炭素のみから成る母材を持つ燃料要素用にはそのための技術が確立されているが、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。

本事業において試作した耐酸化燃料要素(模擬)を用い、市販のSiC焼結体を用いた予備試験により有望であることがわかったKOH法(加熱融解させたKOH中に試料を浸す)及び密封加圧酸分解法(硫酸・硝酸・弗酸を混合し、試料と共に専用容器に密封し、加熱)にて母材の解砕試験を行った。密封加圧酸分解法については、加熱のためマッフル炉を用いる方法とマイクロ波を用いる方法を試みた。その結果、どの方法によっても母材が解砕されて模擬被覆燃料粒子が取り出され(図4)、耐酸化燃料要素の母材解砕技術として適用可能であることが確認された。



図4 取り出された模擬被覆燃料粒子の例(KOH法)

2.4 解析評価

Siは熱中性子捕獲断面積が黒鉛に比べて約40倍大きく、また、そのため、従来の燃料要素を耐酸化燃料要素に換えた場合、同等の炉心性能(同じ出力に対する燃焼日数)は確保できない。従って、耐酸化燃料要素の導入を検討するにあたり、従来と同等の性能を持つ炉心が核熱的に成立することを示した。

(1) 準備

ベースとする原子炉は、過去に概念設計を行った開発途上国向け実用高温ガス炉HTR50S⁽⁵⁾とした。燃料要素の母材のSiCとCの比は1:1、密度は 2.2 g/cm^3 と設定した。被覆燃料粒子の仕様及び充填率は本来のHTR50Sと同じとした。

(2) 核熱設計

燃料の配置(炉心のどの領域にどの濃縮度の燃料を配置するか)について、次のような制限を設けた。燃料の製造性の観点から国内で製造実績のある 10 wt%以下に抑えることとした。また、経済性の観点から、濃縮度の種類は本来の HTR50S と同様に 3 種類以下とした。また、過剰反応度について等、4 つの要件を設定した。

そして、①:燃料の配置の仮定、②:燃料の炉心燃焼計算、③:燃料温度計算、④:②③の結果が上記の 4 つの要件を満たしているかどうかの評価(核熱成立性の評価)、の試行錯誤を繰り返し、上記の制限の範囲内で、耐酸化燃料要素を装荷した従来と同程度の炉心性能を持つ HTR50S の核熱設計を提示した。なお、同じ出力と燃焼日数を維持するために、平均濃縮度を、6.1 wt%から 7.2 wt%に増加させる必要があった。

(3) 燃料の健全性評価

上記(1)で提示された核熱設計に基づき、通常運転時の被覆燃料粒子の内圧破損確率の評価を行ったところ、十分小さく(3.2×10^{-7} 未満)、通常運転時の被覆燃料粒子の健全性は保たれると評価された。

(4) 結論

以上により、耐酸化燃料要素を用いた炉心の核熱設計の成立性を見通しを得た。

3. 今後の展望

本事業では被覆燃料粒子の模擬材としてアルミナ粒子を用いたが、今後の研究においては、被覆層を持った粒子を用いて耐酸化燃料要素の製造を行い、炭素から成る最外層(OPyC層)がどの程度まで SiC に変化するか調べる必要がある。また、SiC を含む母材の照射効果を調べる必要がある。さらに、ホットプレス法は大量生産に向かず、実用化のためには一度に大量に焼成すること(及び/または製造時間の短縮)が重要な課題である。

最終的には被覆燃料粒子の破損率を実用に耐える程度に抑えられる製造技術を確立しなければならない。破損率を評価するためには、現在のところ実燃料を用いるほかない。その上で、耐酸化燃料要素を用いた原子炉システムの設計のため、詳細な酸化データ及び照射データを取得する必要がある。

今後、本事業において蓄積した技術を用い実用化に向けた研究開発を進めることが重要である。

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)。
- (2) 沢和弘、他：高温ガス炉用耐酸化燃料コンパクトの概念検討、JAERI-Tech 99-007(1999)。
- (3) 植田祥平、他：高温工学試験研究炉の第 2 次燃料製造データベース(その 1)、JAEA-Data/Code 2006-009, (2006)。
- (4) D. C. Montgomery, Design and analysis of experiments -6th Edition-, John Wiley & Sons, Inc., (2005)。
- (5) 後藤実、他：小型高温ガス炉システムの概念設計(Ⅱ)－核設計－、JAEA-Technology 2012-017 (2012)。