

超高温ガス炉(VHTR)のための 燃料の照射挙動に関する研究

学位論文内容の要旨

高温ガス炉 (HTGR) は、高温のガスを発電用に供給することが可能で、固有の安全性にも優れた原子炉であり、海外でも 950 °C 以上の高温のガスを取り出すことを目標とした超高温ガス炉 (VHTR) は第四世代原子炉システム (GEN-IV) の一つとして、高い優先度で開発が進められている。我が国では、日本原子力研究開発機構の高温工学試験研究炉 (HTTR) を用いて高温ガス炉の研究開発が進められている。VHTR では、炉心の出力や出力密度が大きく、温度条件が HTTR より厳しいため、炉心で使用される燃料に関して、より高照射量、高温における挙動を確認する必要があるとともに、従来型燃料よりもより耐高温性、化学的安定性に優れた燃料の開発が望まれる。

本研究では、VHTR で使用される燃料の開発に資することを目的とし、従来の高温ガス炉燃料である SiC 被覆燃料粒子について、原子炉運転中の燃料及び核分裂生成物挙動に関するデータの取得・分析、並びに照射済燃料の照射特性データの取得・評価等を行い、高温ガス炉燃料の健全性及び核分裂生成物挙動に関する評価モデルを開発した。また、VHTR 用燃料として期待されている ZrC 被覆燃料粒子の高品質製造条件に関するデータの取得・分析・評価を行った。

本論文は 5 章から構成されている。

第 1 章では、超高温ガス炉開発のための燃料の照射挙動に関する研究の背景、研究の目的、従来の研究の概要と本研究の位置付けと研究方針について述べた。

第 2 章では、原子炉出力 30MW までの HTTR 出力上昇試験において得られた原子炉保護設備の 1 次冷却材放射能計装、燃料破損検出装置 (FFD) 及び 1 次冷却材サンプリング設備により取得したデータを用いて、燃料及び 1 次冷却材中の核分裂生成物挙動の評価を行った。原子炉保護設備の 1 次冷却材放射能計装による電離箱の測定値は、核分裂生成物濃度が極めて低く、全信号は検出限界値の 10^{-3} MBq/cc 以下であった。また、検出器信号を対数スケールで処理した結果も全て検出限界 (約 10^{-5} MBq/cc) 以下であった。また、1 次冷却材サンプリングによる核種分析により検出された核分裂生成物ガスは、Kr-85m、Kr-87、Kr-88、Xe-133、Xe-135、Xe-135m、Xe-137、Xe-138 であった。Kr 及び Xe の濃度は全て 10^{-2} Bq/cc 以下であり、電離箱の検出限界よりも 3~5 桁低いことが示された。1 次冷却材中の Kr-88 濃度と FFD 計数率はほぼ比例関係にあり、FFD では設計どおり希ガスの娘核種の崩壊を測定していることを確認した。Kr-88 測定値を放出率 (R/B) 値により評価し、希ガス放出モデルによる予測値と比較した結果、定格出力において測定値 6×10^{-9} であり、汚染ウランからの放出レベルであることが分かった。事前解析により求めた Kr-88 の放出率 (R/B) 値は、定格出力時では測定値に対して約 3 倍の過大評価であったが、材料試験炉 (JMTR) による HTTR 初装荷燃料の先行照射試験の結果と比較した結果、事前解析値は測定値に近づく方向となった。

第3章では、高温ガス炉用燃料の高燃焼度化に資することを目的として、HTTRの燃料の照射特性を把握するため、HTTR初装荷燃料仕様の被覆燃料粒子について、材料試験炉(JMTR)において約1,300℃の定常温度でHTTR設計値(燃焼度最大33GWd/t)を超える約70GWd/tの高燃焼度まで照射した試料の照射後試験として、外観、寸法、重量、破損率、X線ラジオグラフ、金相等の測定を実施した。その結果、燃料コンパクトの寸法測定により、これまでの照射試験と同様にマトリックス材の高速中性子照射による収縮挙動を観察した。また、ガンマ線スペクトロスコーピー及びFPインベントリ測定によりコンパクト軸方向のCs-137等強度分布から燃焼度を最大60GWd/tと評価した。また、電気解砕・酸浸出後の浸出液中FP核種量と被覆燃料粒子のFPインベントリ測定の結果から、燃料コンパクト1個(被覆燃料粒子数7,000~8,000粒子)当たり3粒子相当の破損と評価した。破損粒子の検出に成功し、HTTR設計の倍近い燃焼度の燃料について、先行研究に示される破損確率や照射試験データの評価結果から予想された通り、燃料破損率は低く、商用規模で製造された高温ガス炉燃料の品質が極めて高いことが確認できた。

第4章では、炭化ジルコニウム(ZrC)被覆燃料粒子の実用化のため、ZrC被覆装置の大型化を可能とするZrC被覆条件の確立を目的として、先行研究の数10gバッチ規模から200gバッチ規模へ拡大したZrC被覆実験装置を用いて、実際の燃料核を模擬した模擬被覆粒子を使用し、ZrC層及びPyC層の連続被覆法によるZrC被覆実験を実施した。模擬粒子50gを投入したZrC層被覆試験において、得られたZrC層の表面は、いずれも金属光沢を持ち、ZrC被覆粒子からのX線回折からはZrC(fcc)のピークのみ検出された。しかし、断面金相写真にはZrC層部に周方向の縞が観察された。そこで、このバッチのZrC層の微細構造を詳細に観察した。ZrC層断面のSTEM(走査透過型電子顕微鏡)暗視野像による観察及びSTEM/EDXの結果、ZrC層中に堆積方向に垂直にCピークが大きい縞模様が観察され、余剰な遊離炭素であることが示唆された。ZrC層の定比性(C/Zr比)は被覆温度に大きく依存するため、遊離炭素相の不均一分布は被覆温度の不安定性に起因するものと考え、被覆温度を安定させ均一で定比性の良いZrC層を被覆するため、温度制御方式を改善し、流動床内部の均熱領域を最適化した。その結果、公称温度の振動はほぼ抑えられ、断面金相試料をフッ化水素(HF)と硝酸(HNO₃)の混酸によりエッチングしても縞模様のない、均一なZrC層で被覆することに成功した。

第5章では、本研究で得られた成果を総括するとともに、今後の展望を示した。

以上、本研究により従来の高温ガス炉燃料であるSiC被覆燃料粒子について、原子炉運転中の燃料及び核分裂生成物挙動に関するデータの取得・分析、並びに照射済燃料の照射特性データの取得・評価を通じた高温ガス炉燃料の健全性及び核分裂生成物挙動に関する評価モデルの開発、及びVHTR用燃料として期待されているZrC被覆燃料粒子の高品質製造条件に関するデータの取得・分析・評価を達成できた。本研究で得られた成果は、VHTRで使用される燃料の開発に資するものである。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 住 吉 孝
副 査 教 授 鬼 柳 善 明
副 査 教 授 日 野 友 明
副 査 教 授 渡 辺 精 一

学 位 論 文 題 名

超高温ガス炉(VHTR)のための 燃料の照射挙動に関する研究

高温ガス炉 (HTGR) は、高温のガスを発電用に供給することが可能で、固有の安全性にも優れた原子炉であり、海外でも 950 °C 以上の高温のガスを取り出すことを目標とした超高温ガス炉 (VHTR) は第四世代原子炉システム (GEN-IV) の一つとして、高い優先度で開発が進められている。我が国では、日本原子力研究開発機構の高温工学試験研究炉 (HTTR) を用いて高温ガス炉の研究開発が進められている。VHTR では、炉心の出力や出力密度が大きく、温度条件が HTTR より厳しいため、炉心で使用される燃料に関して、より高照射量、高温における挙動を確認する必要があるとともに、従来型燃料よりもより耐高温性、化学的安定性に優れた燃料の開発が望まれる。

本研究では、VHTR で使用される燃料の開発に資することを目的とし、従来の高温ガス炉燃料である SiC 被覆燃料粒子について、原子炉運転中の燃料及び核分裂生成物挙動に関するデータの取得・分析、並びに照射済燃料の照射特性データの取得・評価等を行い、高温ガス炉燃料の健全性及び核分裂生成物挙動に関する評価モデルを開発した。また、VHTR 用燃料として期待されている ZrC 被覆燃料粒子の高品質製造条件に関するデータの取得・分析・評価を行った。

本論文は 5 章から構成されており、各章の概要は以下の通りである。

第 1 章では、超高温ガス炉開発のための燃料の照射挙動に関する研究の背景、研究の目的、従来の研究の概要と本研究の位置付けと研究方針について述べている。

第 2 章では、原子炉運転中の燃料の健全性を 1 次冷却材中の核分裂生成物挙動により評価する技術の開発を目的として、原子炉保護設備の 1 次冷却材放射能計装や 1 次冷却材サンプリング設備などを用いた試験及び評価手法の開発を行っている。HTTR の出力上昇試験においては、1 次冷却材放射能濃度並びに核分裂生成物ガスの濃度は極めて低く、商用規模で製造された国産の HTTR 燃料が世界的にも最高品質であることを確認している。また Kr-88 核種の放出挙動を放出率 (R/B) 値により評価する方法により、原子炉出力の上昇につれて燃料温度の上昇に伴う拡散放出挙動が支配的となることを示し、高品質燃料の使用が前提となる VHTR へも適用可能な、高精度な燃料健全性評価手法を確立している。

第 3 章では、高温ガス炉用燃料の高燃焼度化に資することを目的として、HTTR の燃料の照射特

性を把握するため、設計値の2倍を超える高燃焼度まで照射した HTTR 初装荷燃料試料を用いた照射後試験を実施している。燃料コンパクトの寸法測定により、マトリックス材の高速中性子照射による収縮挙動がこれまでの照射試験と同程度であることを確認している。また、Cs-137 等の核分裂生成物の定量分析により燃料コンパクト及び被覆燃料粒子の燃焼度を評価する手法を確立している。また、破損粒子を検出し、燃焼に伴う粒子内部圧力の上昇による破損が原因であると考察し、全体として先行研究に示される破損確率や照射試験データの評価結果から予想された通り、燃料破損率は低く、商用規模で製造された高温ガス炉燃料の品質が極めて高いことを確認している。

第4章では、VHTR 燃料の高度化に向けた炭化ジルコニウム (ZrC) 被覆燃料粒子の実用化のため、ZrC 被覆装置の大型化を可能とする ZrC 被覆条件の確立を目的として、実際の燃料核を模擬した模擬被覆粒子を使用した ZrC 被覆実験を実施している。実験当初に得られた ZrC 層の断面金相において周方向の縞が観察されたが、ZrC 層断面を STEM(走査透過型電子顕微鏡)及び STEM/EDX で観察し、周方向の縞が余剰な遊離炭素が原因によるものであることを突き止めている。ZrC 層の定比性 (C/Zr 比) は被覆温度に大きく依存するため、遊離炭素相の不均一分布は被覆温度の不安定性に起因するものと考察し、被覆温度を安定させる方法で均一で定比性の良い ZrC 層を被覆することに成功している。

第5章では、本研究で得られた成果を総括するとともに、今後の展望を示した。

これを要するに著者は、高温ガス炉の従来燃料である SiC 被覆燃料粒子について、原子炉運転中の燃料及び核分裂生成物挙動に関する評価モデルの開発、並びに照射済燃料の照射特性データの取得・評価を通じて、VHTR へ適用可能な燃料の照射健全性の評価に大きく貢献している。さらに、ZrC 被覆燃料粒子の高品質製造技術の開発を通じて、VHTR 燃料の高性能化に大きく貢献している。これらの知見は、原子力工学に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。