

平成28年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

高度の安全性を有する炉心用
シリコンカーバイト燃料被覆管等の
製造基盤技術に関する研究開発

成果報告書

平成29年3月

国立大学法人 室蘭工業大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立大学法人 室蘭工業大学が実施した平成24-28年度「高度の安全性を有する炉心用シリコンカーバイト燃料被覆管等の製造基盤技術に関する研究開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	2
2.1.1 必要性、研究開発目標	2
2.1.2 技術的実現性	4
2.1.3 研究開発効果	5
2.1.4 人材育成への貢献	6
2.1.5 研究体制	7
2.1.6 研究開発年次計画	8
3. 業務の実施内容及び成果	8
3.1 SiC/SiC 燃料被覆管の製造と性能評価 (H24~H28)	8
3.1.1 SiC/SiC 被覆管製造	8
(1) 生産性・品質安定化のための基本プロセスの概念	8
(2) 最終成果物 (外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 1000mm 被覆管) の製造	11
(3) まとめ	11
3.1.2 SiC/SiC 被覆管性能評価	12
(1) ホットセル内強度・熱特性評価技術開発 (H24~H28)	12
3.2 SiC/SiC 燃料被覆管のアッセンブリ技術開発	22
3.2.1 アッセンブリ技術 (再委託先: 北海道大学) (H24~H28)	22
(1) 端栓処理技術と試作 (H24)	22
(2) 模擬燃料ピンの製作 (H25)	22
(3) SiC/SiC 被覆管セグメントの製造 (H26)	23
(4) 長尺管用端栓処理技術開発 (H27)	24
(5) SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュール製作 (H28)	25
3.2.2 アッセンブリ評価技術 (再委託先: 大阪大学) (H24~H28)	26
(1) AE 計測データ処理・解析装置 (H24~25)	26
(2) 1/2 円管試験片での AE 解析 (H26)	29

(3) SiC/SiC 燃料被覆管の AE 計測データ処理・解析装置の開発 (H27)	31
(4) SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュール用 AE 計測データ処理・解析装置の開発 (H28)	31
3.3 SiC/SiC 燃料被覆管の耐環境性影響評価	32
3.3.1 冷却材共存性評価 (再委託先：大阪大学) (H24～H28)	32
(1) ナトリウム浸漬試験：静的	33
(2) ナトリウム浸漬試験：流動	33
(3) SiC/SiC 燃料被覆管試験 (H26～27)	34
(4) 沸騰・流動ナトリウム共存性試験 (H28)	35
3.3.2 中性子照射影響評価	36
(1) ハルデン原子炉照射実験 (H25～28)	36
(2) BR2 原子炉照射実験 (再委託先：東北大学) (H24～H27) (室蘭工大) (H28)	41
3.4 工学・安全設計 (再委託先：原子力機構) (H24～H28)	42
3.4.1 適用性評価	42
(1) 燃料被覆管の熱構造解析 (H24)	42
(2) 安全設計検討 (H28)	43
3.4.2 加圧水環境下安定性	44
(1) 飽和温度キャプセル詳細設計	44
(2) 炉外実験用装置設計・製作 (H25)	44
(3) 炉外実験 (H26～H27)	44
(4) 照射後実験 (H28)	45
(5) LOCA 模擬試験 (H25～H26)	46
(6) LOCA 模擬試験と水素評価 (H27)	47
3.5 研究推進 (H25～H28)	48
4. 結言	48
4.1 まとめ	48
4.2 今後の展望、次のステップへの提言、今後実施すべき事項	49
5. 研究業績	49

表一覧

表 3. 1-1	酸化試験による重量・寸法変化	15
表 3. 1-2	SCARLET 照射条件と PWR 条件との比較	19
表 3. 4-1	飽和温度キャプセルの設計条件	44

図一覧

図 1-1	本事業のロゴ (1)	2
図 1-2	本事業のロゴ (2)	2
図 2. 1-1	NITE 法の基本製造工程	5
図 2. 1-2	研究体制の概要 (平成 24 年度)	7
図 2. 1-3	年度別全体計画	8
図 3. 1-1	生産性・品質安定化のための基本プロセス概念	9
図 3. 1-2	プリコンポジットリボン製造工程の概略	9
図 3. 1-3	プリプレグシートとプリコンポジットリボンの断面比較	10
図 3. 1-4	プリコンポジットリボン巻取装置 (試作品)	10
図 3. 1-5	ホットローラープレスフォーム装置	11
図 3. 1-6	外径 12mm・肉厚 1mm・長さ 1m クラス SiC/SiC 被覆管	12
図 3. 1-7	SiC 系材料の振る舞いと健全性評価の流れ	13
図 3. 1-8	OEB 試験装置への試験片装荷外観	13
図 3. 1-9	SiC/SiC 被覆管の熱伝導率測定法の概略	14
図 3. 1-10	大気/水蒸気雰囲気中酸化試験による表面変化	15
図 3. 1-11	加熱型伝熱特性評価予備試験装置及び試験片の外観	15
図 3. 1-12	SiC/SiC 被覆管の熱伝導率温度依存性	16
図 3. 1-13	EDC-L 試験での応力-ひずみ関係と試験片外観	16
図 3. 1-14	SiC 重量変化への溶存酸素量の影響	17
図 3. 1-15	SCARLET 1st 照射試験中の溶出 Si 濃度	19
図 3. 1-16	SCARLET 1st 照射試験中の SiC 重量減少速度推定値	19
図 3. 1-17	SCARLET 2nd 照射試験中の溶出 Si 濃度	20
図 3. 1-18	炉水純化停止時の Si 濃度変化	20
図 3. 2-1	模擬端栓の形状及びガラス封止テストの概要	22
図 3. 2-2	ホウケイ酸ガラスによる接合の概要	23
図 3. 2-3	ロウ付け接合の外観及び接合部微細組織	24
図 3. 2-4	ハルデン炉での密封型試料の概略	24
図 3. 2-5	SiC/SiC 複合材料の Ti-Zr-Cu ロウ材による接合界面組織	24
図 3. 2-6	SiC/SiC 管の拡散接合試験結果	25
図 3. 2-7	SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールの概要	26

図 3.2-8	引張強度試験中の AE 計測	27
図 3.2-9	負荷応力と AE エネルギー蓄積の関係	27
図 3.2-10	負荷応力と引張ひずみ及び AE エネルギー蓄積の関係	28
図 3.2-11	SiC 円管の擬似き裂信号による位置標定試験の概要	29
図 3.2-12	軸引張強度試験での AE 発生位置と応力、エネルギー関係	29
図 3.2-13	C リング圧縮強度試験の概要及び AE エネルギー蓄積の様子	30
図 3.2-14	円管バースト試験具の概略	31
図 3.2-15	ダミー被覆管を配置した模擬燃料体系の概略	32
図 3.2-16	ダミー被覆管を配置した模擬燃料体系でのき裂発生位置標定結果	32
図 3.3-1	Na 流動浸漬試験装置の概念図と本体外観	33
図 3.3-2	Na 流動試験前後の SiC/SiC 試験片表面 SEM 像	34
図 3.3-3	改良型上部フランジの外観と円弧型試験・円管試験での Na 流れの概念	34
図 3.3-4	Na 流動環境下共存性試験後の円管試験片表面 SEM 像	35
図 3.3-5	Na 沸騰装置設計図面及び外観	35
図 3.3-6	沸騰 Na 中の共存性試験の概要	36
図 3.3-7	照射キャプセル概念図と照射リグ外観	37
図 3.3-8	SiC/SiC 試験ロッドを装荷した照射リグ外観	37
図 3.3-9	SCARLET 1st 照射実験の原子炉運転データ	38
図 3.3-10	SCARLET 1st 照射前後の SiC/SiC 被覆管セグメントの外観と渦電流測定結果	38
図 3.3-11	照射試験片を装荷した試験ロッド外観	39
図 3.3-12	SCARLET 2nd 照射実験の原子炉運転データ	39
図 3.3-13	SiC/SiC 被覆管セグメントの照射リグへの挿入と照射後解体	40
図 3.3-14	ドロップタワー試験装置の概略	40
図 3.3-15	ドロップタワー試験中の 高速度カメラ画像	41
図 3.3-16	試験データの解析例	41
図 3.3-17	照射材及び熱履歴試験材の三点曲げ試験結果	42
図 3.3-18	三点曲げ試験片の破断表面 :	42
図 3.4-1	SiC/SiC 試料の照射後の外観	45
図 3.4-2	照射による表面形状への影響	45
図 3.4-3	繊維束及び繊維表面形状への照射の影響	46
図 3.4-4	マトリックス領域表面形状への照射の影響	46
図 3.4-5	高温酸化急冷試験後のリング圧縮試験結果	46
図 3.4-6	高温水蒸気中酸化急冷後のリング圧縮試験結果	47
図 3.4-7	高温酸化急冷試験後の試料断面観察結果	47

略語一覧

AE :	Acoustic Emission (アコースティックエミッション)
BR2 :	Belgian Reactor 2 (ベルギー2号原子炉)
BWR :	Boiling Water Reactor (沸騰水型原子炉)
CEB :	Closed End Burst (クローズドエンドバースト試験)
CVD :	Chemical Vapor Deposition (化学気相蒸着)
CVI :	Chemical Vapor Infiltration (化学気相浸透)
DNB :	Departure from Nucleate Boiling (核沸騰離脱)
EBSD :	Electron Back Scattering Diffraction (電子線後方散乱回折法)
EDC-L :	Expansion due to compressed liquid (圧縮流体拡管試験)
EDS :	Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分析装置)
EPMA :	Electron Probe Micro Analyzer (電子線プローブマイクロアナライザ)
FE-SEM :	Field Emission Scanning Electron Microscope (電界放射型走査型電子顕微鏡)
FE-TEM :	Field Emission Transmission Electron Microscope (電界放射型透過型電子顕微鏡)
FIB :	Focused Ion Beam (集束イオンビーム加工装置)
FP :	Fission Product (核分裂生成物)
GB :	Glove Box (グローブボックス)
GeNIV :	Generation IV Reactor (第4世代原子炉)
GNEP :	Global Nuclear Energy Partnership (国際原子力パートナーシップ)
HBWR :	Halden Boiling Water Reactor (ハルデン原子炉)
HIP :	Hot Isostatic Press (熱間等方加圧)
HP :	Hot Press (ホットプレス)
HRP :	Halden Reactor Project (ハルデン原子炉プロジェクト)
HRPF :	Hot Roller Press Form (ホットローラープレスフォーム)
IAEA :	International Atomic Energy Agency (国際原子力機関)
IEA :	International Energy Agency (国際エネルギー機関)
IFE :	Institute for Energy Technology (エネルギー技術研究所)
IPF :	Inverse Pole Figure (結晶方位)
JMTR :	Japan Materials Testing Reactor (材料試験炉)
LOCA :	Loss of Coolant Accident (冷却材喪失事故)
LOFA :	Loss of Flow Accident (流量減少事故)
MOX 燃料 :	Mixed Oxide Fuel (混合酸化物燃料)
NEA :	Nuclear Energy Agency (原子力機関)
NFD :	Nippon Nuclear Fuel Development Co., LTD. (日本核燃料開発株式会社)
NITE 法 :	Nano-Infiltration and Transient Eutectic-phase Process

	(ナノ含浸遷移共晶相法)
NITE-SiC/SiC :	NITE 法により製造した SiC/SiC 複合材料
OASIS :	Organization of Advanced Sustainability Initiative for Energy System/Materials (環境・エネルギーシステム材料研究機構)
OEB :	Open End Burst (オープンエンドバースト試験)
OECD/NEA :	Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency (経済協力開発機構/原子力機関)
PCI :	Pellet Cladding Interaction (ペレット-被覆管相互作用)
PCR :	Pre-Composite Ribbon (プリコンポジットリボン)
PDCA :	Plan-Do-Check-Action (計画-実行-評価-改善)
PPS :	Prepreg Sheet (プリプレグシート)
PVB :	Polyvinyl Butyral (ポリビニル・ブチラール)
PWR :	Pressurized Water Reactor (加圧水型原子炉)
SBO :	Station Black-out (全電源喪失)
SCARLET :	SiC Fuel Cladding/Assembly Research Launching Extra-Safe Technology (高度の安全性を有する炉心用シリコンカーバイト燃料被覆管等の製造基盤技術に関する研究開発)
SEM :	Scanning Electron Microscope (走査型電子顕微鏡)
SiC :	Silicon Carbide (炭化ケイ素)
SiC/SiC :	Continuous SiC Fiber-Reinforced SiC Matrix Composites (炭化ケイ素繊維強化炭化ケイ素マトリックス複合材料)
TEM :	Transmission Electron Microscope (透過型電子顕微鏡)
TG-DTA :	Thermogravimetry Differential Thermal Analysis(熱重量-示差熱分析)
UTT :	Uniaxial Tensile Test (単軸引張試験)
WIP :	Warm Isostatic Press (温間等方加圧)
Zry :	Zircaloy (ジルカロイ)

概略

研究の背景

福島第一原子力発電所の事故以降、軽水炉および革新的原子炉（以下「革新炉」という）の安全性向上のための革新的な技術開発の必要性は強く認識されており、事故耐性燃料に関する包括的な研究の必要性が国際的な共通認識となっています。中でも将来の画期的な選択肢とされてきたセラミック燃料被覆管開発を加速させ、我が国独自の安全性付与技術としてのセラミック燃料被覆管製造及びセラミック燃料ピンの製造の実用化へ向けた基盤技術を確立させる事は国の重要課題となっており、国際協力も含めた検討が進められています。その中でも SiC/SiC 複合材料を利用する炉心概念は事故耐性を画期的に高めるものとして軽水炉用での検討にとどまらず、GenIV 原子炉、核融合炉などでの研究開発が進められてきており、特に米国、フランスにおいて大型のプロジェクトが進められてきました。

解決すべき課題

SiC/SiC 複合材料が高温での特性や中性子照射下での安定性などにおいて優れていることはこれまでの基礎研究において確認されており、100dpa レベルの重照射領域までの損傷挙動についても基本的な理解は得られてきました。しかし、これまでの研究では小型試験片を基本とするデータにはほぼ限定されており、燃料被覆管を模擬した材料での評価は極めて限定されてきました。また、試験に用いられた燃料被覆管の模擬材料の特性は板材での特性と大きく異なっていました。これらの状況から、開発中の SiC/SiC 燃料被覆管が現実的な開発対象として、本格的な大型開発段階へ移行するために必要となる解決すべき重要な課題として以下の課題を提示し、本事業の開発目標としました。これはこのような点での確認を行わないまま大型開発を進め停滞している海外の実例を繰り返さないための課題設定です。

(1) SiC/SiC 燃料被覆管の製造技術の確立と性能評価： ジルカロイ燃料被覆管と同等な断面寸法の被覆管を 1 m 以上の長さで製造し、ジルカロイ管と同等以上の特性を確認する事。特に気密性については留意し、将来の実用化も見据えて十分な供給能力を経済性も満たしつつ、実現できる基本製造プロセスを確立する事。

(2) SiC/SiC 燃料被覆管のアセンブリ技術開発： 燃料を挿入した燃料ピンで燃料集合体を製造する技術体系の構築に向けてアセンブリ技術を確認する事。併せて欠陥の検出や破壊モードの検出の為に非破壊検査システムを提示する事。更に、モデル模擬燃料集合体を製作する事。

(3) SiC/SiC 燃料被覆管の耐環境性影響評価： 軽水炉や Na 冷却型高速炉の熱媒体との共存性について事故対応性も含めて基礎的な知見を得る事。原子炉における中性子照射実験を実施し、炉水との共存性や照射下での安定性を確認する事。同時に関連する耐環境性影響評価を行う事。

(4) 工学・安全設計の推進： 中性子照射実験に向けた基本的な核熱計算等を行い、実験体系案を作成する事。LOCA 模擬実験として高温水蒸気環境下における安定性を確認する事。燃料集合体の安全設計の基礎的な検討を行う事。

本研究の目的

本研究は福島第一原子力発電所で生じた事故の教訓に鑑みて、セラミックス材料の炉心構造材への適用により事故時の原子力システムの炉心安全性の画期的な向上を目指します。本事業では既存の軽水炉のジルカロイ燃料被覆管の代替、あるいは補強技術としての SiC/SiC 燃料被覆管を用いることにより、事故時における核燃料集合体の形状維持や炉心崩壊防止を防ぎ、同時にジル

カロイ燃料被覆管の利用における水素爆発等のリスクを大幅に抑えることで安全性の向上に貢献することを目的とします。同時に Na 冷却型高速炉を始めとする革新炉との共通の安全基盤技術開発も目指します。

本事業の目指すところは (1) 加圧水型原子炉 (PWR) 燃料で用いられるジルカロイ燃料被覆管形状に相当する内径 10 mm、肉厚 1.0 mm 程度のメートル級 SiC/SiC 長尺管の製作、(2) 燃料ピンを製造するための燃料被覆管両端の端栓の接合技術の確立、(3) 数千本単位以上での SiC/SiC 燃料被覆管の製造に近い将来において現実的であることの提示、(4) 原子炉での中性子照射実験や LOCA 時模擬試験・Na 共存性試験などによる耐環境性評価の実施、(5) ペレット-被覆管相互作用 (PCI) や FP 閉じ込め性能の評価などとも関連する、核熱・ふるまい挙動など解析計算や模擬実験による工学安全性設計の検討、です。

本研究の実施内容

(1) SiC/SiC 燃料被覆管の製造技術の確立と性能評価

内径 10 mm、肉厚 1.0 mm 程度のメートル級 SiC/SiC 被覆管の製作
量産生産に資する SiC/SiC 被覆管の基本製造プロセスの開発
照射後試験として適用可能な SiC/SiC 被覆管の強度試験法の開発

(2) SiC/SiC 燃料被覆管のアッセンブリ技術開発

原子炉照射における要求性能を満たす端栓接合技術の確立
密閉型 SiC/SiC 燃料ピンモデルの作製
実使用環境下を想定した SiC/SiC 燃料ピンモデルの破損検出技術の提示
SiC/SiC 燃料集合体の部分モデルの作製

(3) SiC/SiC 燃料被覆管の耐環境性影響評価

密閉型 SiC/SiC 燃料ピンモデルの炉水内・中性子照射試験の実施
炉水内・中性子照射環境下における密閉型 SiC/SiC 燃料ピンモデルの健全性評価
炉水内・中性子照射試験での SiC/SiC 被覆管の腐食損耗に関する系統的な水化学データの取得
新たな照射後試験法の開発による SiC/SiC 被覆管の構造安定性評価

(4) 工学・安全設計の推進

SiC/SiC 被覆管を原子炉へ適用した際の適用工学・安全設計の検討
LOCA 模擬試験による高温水蒸気中の SiC/SiC 被覆管の安定性評価
国内施設における照射した SiC/SiC 被覆管の照射後試験の実施

本研究の成果

SiC/SiC 燃料被覆管の開発は国内も含め海外でも多くの大型研究が進められています。しかし、いずれも CVD/CVI (化学気相蒸着法・浸透法) を基本としており、製造コストは高く、プロセス時間も長い大量生産に対応できることは困難と思われます。更に、高い気密性の確保や熱衝撃での安定性では限界が指摘されています。一方、本課題で採用している我が国の国際特許である NITE 法による燃料被覆管製造では将来的に大量生産に対応できる生産プロセスの開発に成功し、各プロセスの連続化により完全自動化の大量生産プロセスが現実的であることを提示しました。また、目標であった 1 m の長さの被覆管の製造にも成功しています。この被覆管がジルカロイ管と同等の気密性を達成したことは世界初のことです。また、開発したアッセンブリ技術により製造したジルカロイを端栓とする密閉型燃料ピンモデルにおいてジルカロイ燃料ピンと同等の気密

性を達成し、ハルデン原子炉での炉内ループ実験の要求仕様をすべて満たし、本事業期間中に 2 度の照射実験に成功していることも世界最初の事例です。この実験により炉水中への Si の溶出挙動のデータが得られており、2 度の照射実験を通して炉水条件を制御することにより、炉水への Si 溶出を制御できることを実証する水化学データが系統的に得られたのも世界初の成果です。また、ジルカロイと SiC/SiC の接合材料の照射により接合部の健全性が確認できたことも世界初のデータです。これらの挙動は炉外での高温加圧水環境での水化学反応試験により中性子照射効果の分離ということを実現しており、世界初のデータです。LOCA の模擬実験として実施した実験からは高温水蒸気中での優れた安定性が確認されており、安定性という意味では世界最高性能のデータが得られています。燃料被覆管の基本的な特性評価法や非破壊試験法の開発においては多くの新しい試みがなされ、被覆管の強度評価法として新しい試験法に依る結果が得られています。これらの結果は、これまで行われてきている引張試験等の結果と相関則を明らかにすることにより今後の材料評価に活用できる成果です。特に、ドロップタワー型試験装置の開発ではハルデン研究所の協力もあり、中性子照射後の燃料被覆管の落重試験として貴重な高速度映像・荷重/変位データの取得に成功し、開発材料の構造安定性を示す事にも世界で初めて成功しています。多くの貴重な照射済試験片が未だにハルデンに保管されており、これらの照射後試験 (PIE) による大きな成果が見込まれますが、このような短期間に大量かつ多様な照射実験を完了したことは画期的な成果です。

本事業で開発した NITE 法による SiC/SiC 燃料被覆管製造技術とそれに伴う接合技術など、関連する技術統合も進んでおり、SiC/SiC 複合材料製の燃料被覆管が事故耐性燃料の開発における魅力的かつ現実的な選択肢である事を示したのが最大の成果です。このような結論が得られた開発事業は世界初と考えます。小型とは言え、燃料集合体の部分モデルを考案・作成し、実用化への道を具体的な成果物によって示したことも大きな成果と考えます。

今後の展望、将来の見通し

室蘭工業大学を中心に、我が国の主要な研究機関の力を結集し多くの成果を上げており、本事業の継続により、更に大きな成果が上がる事が期待できます。既に今回の研究組織間では研究開発の更なる推進への目標設定や共有も進んでおり、研究・開発組織の強化も含め安全な原子力開発への貢献を強化できる活動であると考えます。

今後の展開については多くの要素があり、材料学的な面での知見の蓄積と高度化、更には欠落している重要なデータの取得などが挙げられます。工学としては燃料被覆管の製造プロセスの完成と関連するアッセンブリ技術等の技術統合が急務であり、より適切な組織での開発も必要になるかもしれません。緒に就いたばかりである照射実験の必要性は言うまでもなく、経済的な視点や効率等を考えると JMTR 等の照射設備を失った我が国としては、ハルデン炉や BR2 炉の高度利用が必要となりますが、本事業に関していえばハルデン炉で継続して照射実験を実施する事が強く望まれます。また、事故時の材料挙動模擬実験装置の整備・強化も望まれます。この材料に関して現在最も強く望まれているのは、原子炉・炉水環境下での SiC の腐食損耗速度の確認と必要性の達成であり、国際協力も含めて進めるべきであると考えます。

既に一部は EC の HORIZON2020 において取り上げられており、本事業の代表者も SiC/SiC 複合材料関連のタスクリーダーとして参画していますが、より大型の計画を我が国主導で進めることが事故耐性燃料の開発において我が国の主導権を将来的にも維持することにつながると考えます。

1. はじめに

平成 23 年 3 月の東日本大震災における甚大な被害は我が国の科学技術の考え方に大きな改革をもたらすこととなり、第 4 期科学技術基本計画（2011 年 8 月 19 日閣議決定）において、「震災からの復興、再生を遂げ、将来にわたる持続的な成長と社会の発展に向けた科学技術イノベーションを戦略的に推進」することが基本方針として示されました。特に、グリーンイノベーションの強化においては「原子力に関する研究開発等については、福島第一原子力発電所事故の検証を踏まえるとともに、今後の我が国のエネルギー政策や原子力政策の方向性を見据えつつ実施する。ただし、原子力に係る安全及び防災研究、放射線モニタリング、放射性廃棄物や汚染水の除染や処理、処分等に関する研究開発等の取組は、これを強化する。」と述べられています。これを受けて、原子力研究に関する指摘として「PDCA（Plan-Do-Check-Action：計画-実行-評価-改善）サイクルの実効性の確保を行いつつ、新成長戦略やエネルギー基本計画、原子力政策大綱など、政府が定める他の計画等の検討結果を踏まえ、第 4 期基本計画の内容についても、必要に応じて見直しを行う。」としてきました。しかし、民主党政権の下での「30 年代に原発稼働ゼロを目指す」としたエネルギー政策により、これらの議論は止まっていました。新しい原子力政策大綱は平成 22 年 12 月に審議を始めましたが、福島第一原子力発電所事故で中断し、平成 24 年 9 月に再開しましたが、内閣府原子力委員会は同年 10 月 2 日の定例会で、原子力政策の基本方針となる新たな「原子力政策大綱」の策定作業を中止すると正式決定しました。

中止された原子力委員会の策定作業においては今後の原子力政策における重要な視点として、

- ★ 安全の確保と国民の信頼回復に向けた原子力政策の再構築
- ★ 原子力依存度が低減する中での原子力政策の再構築
- ★ 最高水準の原子力安全システムの構築

が必要とされていました。

高い安全性を目指すとされる革新炉と呼ばれる第 4 世代原子炉（Generation IV Reactor：GeNIV）のみならず、現行の軽水炉の安全性の向上・経済性の向上等を実現し、原子炉・核融合炉のエネルギー源としての魅力を大きく高めるためには先進原子力システム用のセラミックス材料の開発と近い将来での実用化が必須であることは従来も広く認識されてきました。しかし、特に現行の原子力発電システムにおいては多重防護の高い成熟度とこれまでの歴史的な事実の前に、セラミックス材料の開発は基礎研究としてゆっくりと進めるべきであるとの意見が大勢を占めてきました。このような状況を鑑み、日本原子力学会においては平成 20 年度より、「セラミックス材料の先進原子力システムへの応用」研究専門委員会（香山 晃 主査）を設置し、セラミックス材料の先進原子力システムへの現実的な応用を検討し、早期実用化に向けた共通課題の抽出と技術融合・研究開発に関する検討を 4 年間にわたって実施してきました。この委員会は平成 24 年 2 月に近藤駿介原子力委員会委員長へ要望書を提出し、福島第一原子力発電所事故後の原子力対策のための「セラミックス材料の先進原子力システムへの応用」研究の加速への支援要請を行いました。この中で、米国エネルギー省が福島第一原子力発電所での事故を踏まえ、打ち出している対策の一つとして、「燃料・材料関連では” Re-engineering barriers can reduce complications” とし、SiC 製燃料被覆管の重要性をあげ、研究開発の強化を表明している。」ことを挙げ、更に欧州での取り組みが米国よりも進んでいることも併せて、我が国の対

応の遅れが大いに危惧されるとし、一刻も早い研究強化を求めています。

本事業は福島第一原子力発電所での事故以来、より一層の安全性が求められている軽水炉および革新炉（高速炉）の炉心部からのジルカロイ等の排除と高性能のセラミックス複合材料の利用により安全性を画期的に向上させようとするものです。

本事業では将来の画期的な選択肢とされてきたセラミック燃料被覆管開発の加速により、我が国独自の安全性付与技術としてのセラミック燃料被覆管製造及び、セラミック燃料ピンの製造の実用化へ向けた基盤技術を確認させ、早期実用化可能なオプションとする事を目指します。具体的には現行の軽水炉燃料被覆管と同様の寸法で、要求される仕様を満たす①SiC/SiC 複合材料製燃料被覆管を提案代表者らの国際特許であるナノ含浸遷移共晶相法 (Nano-Infiltration and Transient Eutectic-phase Process、以下「NITE 法」という) により製造する事、②模擬燃料要素を作製する技術を統合し、照射実験用の模擬燃料ピンを製作する事、③SiC/SiC 複合材料素材、燃料被覆管、模擬燃料ピンの基礎特性・軽水炉および革新炉（高速炉）環境下特性・耐中性子照射特性等を評価する事を実施します。この事により、本研究期間内に SiC/SiC 複合材料製燃料被覆管を用いる燃料ピンが軽水炉および革新炉（高速炉）炉心への高度な安全性付与に貢献できることを実証することが目標です。

本事業の英文名は” SiC Fuel Cladding/Assembly Research Launching Extra-Safe Technology” であり、頭文字より SCARLET 計画と命名し、安全性の向上を意味する丹頂鶴を配した原子炉のイメージを用いた図 1-1 に示すロゴを作成しました。また、Letter Head 用のロゴとして、図 1-2 に示すロゴも同時に作成し、広報活動にも用いています。

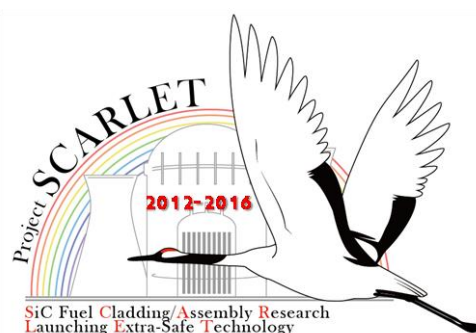


図 1-1 本事業のロゴ (1)



図 1-2 本事業のロゴ (2)

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 必要性、研究開発目標

本提案は、福島第一原子力発電所で生じた事故の教訓に鑑みて、セラミックス材料の炉心構造材への適用により事故時の原子力システムの炉心安全性を高めるものです。具体的には燃料被覆管にウラン燃料と同等の融点・昇華温度を持つ SiC/SiC 複合材料を用いることで高温まで核燃料集合体の形状を維持して炉心崩壊を防ぎ、同時にジルカロイ燃料被覆管の酸化反応で生じる水素の発生を大幅に抑えることで安全性の向上に貢献し、最悪の LOCA、流量減少事故 (Loss of Flow Accident、以下「LOFA」という) や全電源喪失 (Station Black-out、以下「SBO」という) 等の事故対応での時間的な余裕を稼ぎ、炉心損傷のリスクを極限まで低減させることを可能とします。本事業では既存の軽水炉のジルカロイ燃料被覆管の代替、あるいは補強技術としての SiC/SiC 燃料被覆管の利用を目指すものですが、SiC と Na との共存性の確保と、被覆管と混合酸化物 (Mixed Oxide、以下「MOX」という) 燃料との相互作用の改善が期待できること

から Na 冷却高速増殖炉を始めとする革新炉との共通の安全基盤技術開発ともなりえるものです。

本事業の SiC/SiC 開発で用いる NITE 法は研究代表者らが有する国際特許であり、燃料被覆管として用いるのに十分な大型部材の製造と大量生産が可能であり、米国等が開発している化学気相浸透 (Chemical Vapor Infiltration、以下「CVI」という) 法による製法の最大の欠点である大型化の難しさ、生産性の低さ、気密性の不十分さ、熱衝撃性に劣る等の問題をすべて解決できる唯一の製法と考えられます。結果として低コスト化も達成でき、実用システムでの経済性付与にも貢献できる唯一の製法となります。

軽水炉への SiC/SiC 燃料被覆管利用については米国の幾つかのプログラム (例えば、国際原子力パートナーシップ (Global Nuclear Energy Partnership : GNEP) など) で検討が進められており、15th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems において、米国エネルギー省は福島第一原子力発電所事故の反省も踏まえて早急に SiC/SiC 燃料被覆管の開発を進めるとの発表を行っています。米国はジルカロイ被覆管に SiC 繊維のワインディングを行なって CVI 法によって SiC マトリックスを形成し、ジルカロイ被覆管の熔融時にウラン燃料ペレットの崩壊を防止する方法を第一優先順位で検討しています。この手法に特別の優位性は無く、SiC マトリックスの CVI 法での成型が米国の得意とする技術で国内に関連企業を抱えている事情が大きく、CVI-SiC マトリックスの気密性の不足からジルカロイまたはジルコニウム製の内管による気密性の補強が必要となっています。この結果、LOCA 時のジルカロイ燃料被覆管の水反応に伴う水素発生の危険は除去できず、過大なモノリシック SiC 層の採用は強度上の安全性においても危惧されます。NITE-SiC/SiC 複合材料は優れた気密性により核分裂生成物 (Fission Product、以下「FP」という) の閉じ込め性能等での要求をはじめとして基本的な要求仕様は満たすと考えられ、NITE 法による燃料被覆管の開発は我が国が世界標準を作る絶好の機会であると思われま。

本事業の提案では、SiC/SiC 燃料被覆管は加圧水型原子炉 (Pressurized Water Reactor、以下「PWR」という) 燃料で用いられるジルカロイ燃料被覆管形状に相当する内径 10 mm、肉厚 1.0 mm 程度のメートル級 SiC/SiC 長尺管を製作可能なことを示します。燃料ピンを製造するための燃料被覆管両端の端栓の接合技術の確立も重要な課題です。実用化のためには事故時においても十分な FP 閉じ込め特性と強度を確保することを実証すると同時に、数千本単位での SiC/SiC 燃料被覆管の製造が近い将来において現実的であることを示すことが基本要件です。本事業では中間素材製造から管成型技術、長尺管製造の技術開発、SiC/SiC 燃料被覆管の実用化生産プロセス技術の構築を行い (室蘭工業大学・一部グンゼ株式会社 (以下「グンゼ」という) への業務委託)、SiC/SiC 燃料被覆管の端栓技術を中心とする燃料ピンアッセンブリ技術とアッセンブリ評価技術を開発し (北海道大学・大阪大学)、材料試験炉 (Japan Material Test Reactor、以下「JMTR」という) での照射実験 (原子力機構) や LOCA 時模擬試験・Na 共存性試験 (大阪大学・室蘭工業大学) のための模擬燃料ピンの製作や照射用のカプセル設計及び製作等 (東北大学) も行う事を原案として提示し、計画の承認を得ました。JMTR での中性子照射実験においては JMTR の新しい施設である加圧水環境照射ループでの照射実験や単純カプセルでの照射、SiC/SiC 照射実験や、核燃料を封入したインナーキャプセルによる模擬燃料ピン照射試験を行い、ペレット-被覆管相互作用 (Pellet Cladding Interaction : PCI) の評価や FP 閉じ込めの

健全性評価なども実行する（東北大学・原子力機構）予定でした。ジルカロイ燃料被覆管においては一次冷却材圧力による収縮により、燃料ペレット-被覆管ギャップの減少と熱接触の確保が可能です。ジルカロイに比して運転温度での強度が高く変形量が小さい SiC/SiC 複合材料では熱・機械特性とも解析コードを用いた計算と、それに基づく燃料ピン設計が重要となります。この為に SiC/SiC 管の基本的な強度試験に加え熱・疲労試験によるパラメータ取得や設計へのフィードバックを行い SiC/SiC 燃料被覆管の軽水炉における成立性を示します（原子力機構、一部日本核燃料開発株式会社（Nippon Nuclear Fuel Development Co., LTD.、以下「NFD」という）への業務委託）。

上記の研究開発活動をより効率的かつ適切に運営する為に第三者によるアドバイザー委員会を設けて適宜、評価とアドバイスを受けることにしています。

2.1.2 技術的実現性

本事業の基礎となる NITE-SiC/SiC 複合材料は、戦略的基礎研究や革新的原子力システム研究を通して開発されてきた画期的な総合特性を有する材料であり、純国産の技術で、研究代表者の有する国際特許を基本として製造されるものです。NITE-SiC/SiC 複合材料の基礎は研究代表者の実施した革新的原子力システム技術開発事業「高効率・環境調和型超高温ガス冷却高速炉炉心構造体の先進材料システム開発」（平成 14-17 年度、研究代表者：香山 晃 所属：国立大学法人京都大学（以下「京都大学」という）エネルギー理工学研究所）で確立されており、熱交換器にむけた SiC/SiC 複合材料を用いたコンポーネント製造技術、及び高温ガス・活性金属流体と SiC の共存性評価技術は、原子力システム研究開発事業、革新技術創出型研究開発、研究課題「先進複合材コンパクト中間熱交換器の技術開発」（平成 17-21 年度、研究代表者：小西 哲之 所属：京都大学エネルギー理工学研究所）で実施され、これらの研究により幅広い材料特性の基礎データが得られています。SiC/SiC 複合材料には核融合炉材料に関する国際エネルギー機関（International Energy Agency：IEA）作業グループでの標準材料や、日米協力・日欧協力における中性子照射研究に関する標準材料としての多様な機関での評価実績もあります。本研究開発における重要技術である大型・複雑形状の製造や直管の製造はこれまでの研究開発においてある程度まで実証されており、将来の実用化に向けた海外の期待も大きくなっています。例えば、核融合開発における幅広いアプローチに関する日欧共同事業（Broader Approach：BA）においてこの材料が標準材料として欧州側から要請されており、フランスの高温ガス炉用燃料被覆管の性能比較においても NITE 法による SiC/SiC 被覆管は及第点を獲得しています。

一方、これまでの成果を受けて京都大学発のベンチャー活動として先進 SiC 繊維としては世界初の連続製造操業が既に開始されており、能力的には年間 10 トンを越える糸の生産が可能となっています（これまでは日米 3 社の合計でもバッチ式の生産で年間数 100kg 程度が上限であった）。また、フランス原子力エネルギー庁の協力により超微粒高純度 SiC 粉末の供給も実現しており、年間数 10 トンを越える供給が可能となっています。SiC の中間素材製造設備及びプリフォーム高密度化設備のプロトタイプ装置は室蘭工業大学に設置されており、数千本オーダーの SiC/SiC 燃料被覆管を製造可能な基本的なインフラストラクチャーは原理的には整っています。図 2.1-1 は NITE 法の基本製造工程を示しており、ハンドメイド品ではありますが多様な形状の製品が製造されてきました。

SiC は熱中性子吸収断面積の小さな炭素とケイ素で構成された融点 2700°C超の材料であるため、SBO 事故時対応の時間的余裕の確保、超高温状態での燃料ピン形状の維持、その結果としての冷却回復時の温度低下効率の確保と圧力容器破損の可能性の低下など、現行の原子炉システムにおいてジルカロイ燃料被覆管の代替として SiC/SiC 燃料被覆管を使用することで安全性を著しく高めることが可能であることは良く知られています。

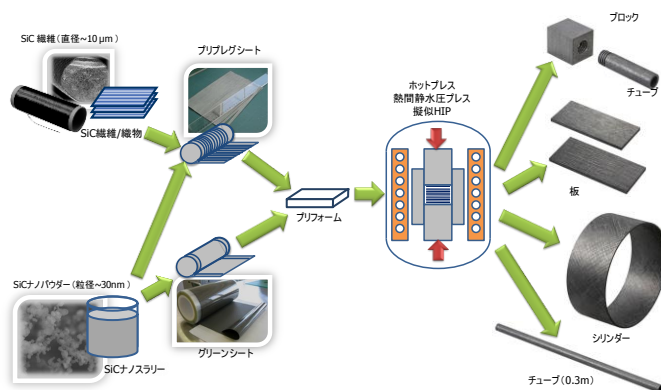


図 2.1-1 NITE 法の基本製造工程

ジルカロイと比べて、SiC/SiC 複合材料を燃料被覆管として使用した場合の代表的な利点は以下の通りです。

- 1 : 2000°C以上での事故時の安定性が圧倒的に優れている。
- 2 : Zr の水蒸気反応から使用上限値 2200°F を考慮する必要がない。
- 3 : LOCA 時の水素ガス生成が 3 桁以上抑制される。
- 4 : 弾性率が大きくフレットング損傷を抑制できる。
- 5 : 照射誘起スウェリングが小さく、飽和が見込まれる。
- 6 : 中性子吸収が小さく燃料の経済性が高くなる。
- 7 : Zr/UO₂ と比べて高燃焼度が達成できる。

2.1.3 研究開発効果

福島第一原子力発電所事故の解析では「ジルカロイ燃料被覆管は 1850°C程度で熔融し、数秒で溶け落ちてウラン燃料ペレットの崩壊を招き、燃料集合体の崩落と一体化した燃料/燃料被覆管の圧力容器底部への蓄積が、冷却材再投入後のウラン燃料の崩壊熱の除熱不良と圧力容器底部の部分的熔融を招いている」という報告もありますが、高温でのジルカロイの水反応の危険性と熔融が安全性上の大きな問題であることが基本認識です。SiC の融点は 2730°Cであり、SiC/SiC 複合材料の燃料被覆管は 2850°Cのウラン燃料熔融温度近傍まで燃料棒形状の維持が期待できます。燃料集合体の崩壊まで多大な時間が確保できることで全電源喪失事故時の回復オペレーションの時間的余裕が生ずるとともに、FP ガスあるいは放射性物質の燃料被覆管外への放出は最小限に抑えられ、燃料ピン形状は維持されているので冷却材の再投入開始においては十分な冷却効率が確保できて、圧力容器の破損の確率を著しく低減することが可能です。特に高温水蒸気との反応においてジルカロイと比べて圧倒的に損耗量が小さいことや水素ガスの発生が 3 桁以上小さいことは安全性確保のうえで顕著な効果が期待できます。その他、Zr 合金と

比べた優れた特性はエネルギー源としての軽水炉の経済性を高める意味でも特筆できます。また、従来の燃料ピンにおける課題であった、長尺燃料ピン・多段のグリッドスペーサによる炉心圧損増加の問題（低圧損化のため、配列ピッチを増加させると反応度特性が悪化し、炉心性能低下をもたらす）は SiC/SiC 燃料ピンの利用により燃料ピンの短尺化及び、SiC/SiC 被覆管の剛性によりスペーサレス集合体概念が可能となることで炉心圧損を大幅に低下させることが可能となり解決できます。更に、SiC/燃料体積比により反応度特性を調整し、固有安全性を強化することも特筆できる期待項目です。

軽水炉への応用では燃料被覆管のみならず、ガイドチューブ・制御棒・沸騰水型原子炉 (Boiling Water Reactor、以下「BWR」という) のチャンネルボックス等へ適用することにより炉心の安全性をさらに高める効果が期待できます。これらの製造技術は燃料被覆管よりは難易度が低く、本事業での技術の提示はこれらの分野での実用化の可能性も示すことになります。これ以外にも炉心構造物の金属材料を SiC/SiC 複合材料へ変更する事での炉心の低放射化や構造物の剛性の向上からくる炉心構造の簡素化など波及効果は多々期待できます。

SiC/SiC 複合材料はあらゆる過酷環境用途の構造材料としてブレイクスルーとなりうる材料であり、高温・腐食環境の複合環境下での使用など金属材料では対応不可能な諸課題を解決可能とする優れた材料です。1000℃超の熱源となりうる高温エネルギーシステム開発でもブレイクスルーとなりうる材料であり、限られた化石エネルギーや核エネルギーを有効活用すると共に、優れた耐食性を生かしての水素製造装置への応用が期待でき、近未来の水素利用の低炭素社会構築の柱となる可能性が極めて高い材料でもあります。高温で比強度が高く耐酸化性に優れるので、航空宇宙機エンジン用部材の材料としても開発が進められていますが、現在はレアメタルで製造されている部材をケイ素と炭素というありふれた元素にまるごと置き換えることになり、省エネルギーと省希少金属資源の両面でも社会を変革するレベルでの圧倒的な波及効果が期待できます。

2.1.4 人材育成への貢献

原子力技術の直面している課題として、新たな人材の不足と並んで知識伝承の断絶が挙げられます。日本において蓄積された原子力技術の蓄積は素晴らしいものですが、これらの技術・知識の多くが伝承されず忘却寸前であり、すでに議論されつくしているはずの知識が「新たな提案」として再登場する危機的状況を呈しています。東日本大震災における原子力発電所事故対応においてもベテラン技術者の経験と知識の重要性が認識されましたが、本課題においてもこの認識に基づいて今後の原子力研究と人材育成の中心となる 30 代、40 代の研究者・技術者に対しての知識と技術の伝承を大きなテーマとしており、各機関の准教授・中堅研究者を活動の中心に据え、特に JMTR において蓄積された中性子照射実験・評価技術と知識を若手研究者と共に実際の作業を含めて習得していくことを大きな目的としています。セラミックス材料である SiC/SiC は安定した取り扱いやすい材料ですが、ホットラボ内での作業や非照射・照射材の諸特性評価において金属材料で慣れ親しんだルーチンワークだけでは処理しえず、新たな実験手法の考案や評価法の確立が必要となり、多くの試行錯誤が求められると考えられます。本事業の実施期間は原子力安全の創成期から中核を担ってきたベテランから中堅・若手への直接的な知識伝承を行えるほぼ最後の機会といえます。原子力特有の技術の知識伝承を中堅・若

手研究者に行うと同時に、将来の原子力システムの安全性向上に重要となる高温・耐食性に優れたセラミックス材料の取り扱いに長けた、現状では非常に不足しているセラミックス材料に関連する人材を本事業により原子力分野に供給することが期待できます。室蘭工業大学においては、原子力人材育成プログラムを実施し、原子力材料トラックを平成23年度より開始するなど、本提案に関連する材料研究等を通じて人材育成に努めており、原子力機構、電力会社や東北大学をはじめとする大学との連携も行いながら人材育成への貢献度を高める取り組みを行っています。また、関連して教授採用枠の導入など積極的な体製造りが進んでいます。東北大学・大阪大学・北海道大学もそれぞれに特色ある人材育成プログラムを推進していますが、本申請での活動を通して、新しい連携活動の下での人材育成を軽水炉および革新炉の安全性と材料・システム開発の観点より推進してきました。

2.1.5 研究体制

室蘭工業大学の部局横断型研究組織である環境・エネルギーシステム材料研究機構 (Organization of Advanced Sustainability Initiative for Energy System/Materials、以下「OASIS」という) が代表機関となり、取りまとめを行うと同時に、SiC/SiC 複合材料の中間素材製造から管成型技術、長尺管製造の技術開発を行い SiC/SiC 燃料被覆管の実用化生産プロセス技術の構築を行います (大型部材の製造は一部グンゼへ業務委託)。組織/体系化・連携/協力体制等の概要(図 2.1-2)についてに示します。参画機関は東北大学 (金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター：平成26年度まで)、大阪大学 (大学院工学研究科・接合科学研究所)、北海道大学 (大学院工学研究院)、原子力機構 (大洗研究開発センター 照射試験炉センター) です。いずれも本提案の担当分野において我が国の主導的な活動を行っている研究グループであり、これまでも多様な形での共同研究開発を行っており相互の信頼関係も強固で、基本的な研究インフラ・体制も整っています。SiC/SiC 燃料被覆管の端栓技術を中心とする燃料ピンアセンブリ技術とアセンブリ評価技術の開発は北海道大学・大阪大学が担当、JMTR での照射実験 (原子力機構が実行機関) や LOCA 模擬試験・Na 共存性試験 (大阪大学・室蘭工業大学) のための模擬燃料ピンの製作や照射用のカプセル設計及び製作等は東北大学が担当しました。

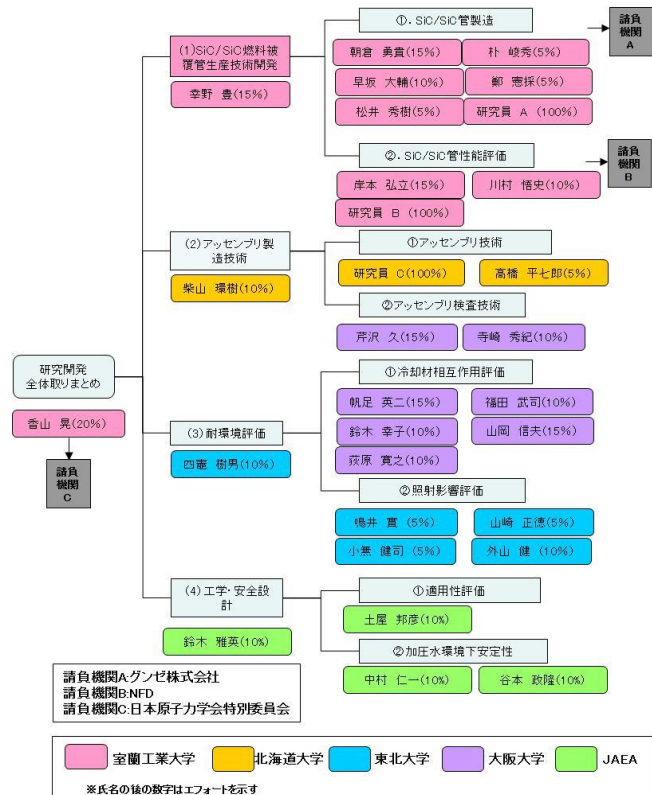


図 2.1-2 研究体制の概要 (平成 24 年度)

Isostatic Press、以下「HIP」という）法により加圧・焼結（最終成型）を行い、SiC/SiC 被覆管を製造します。以下にこれまでに開発した各工程での基本となる基盤技術をまとめます。

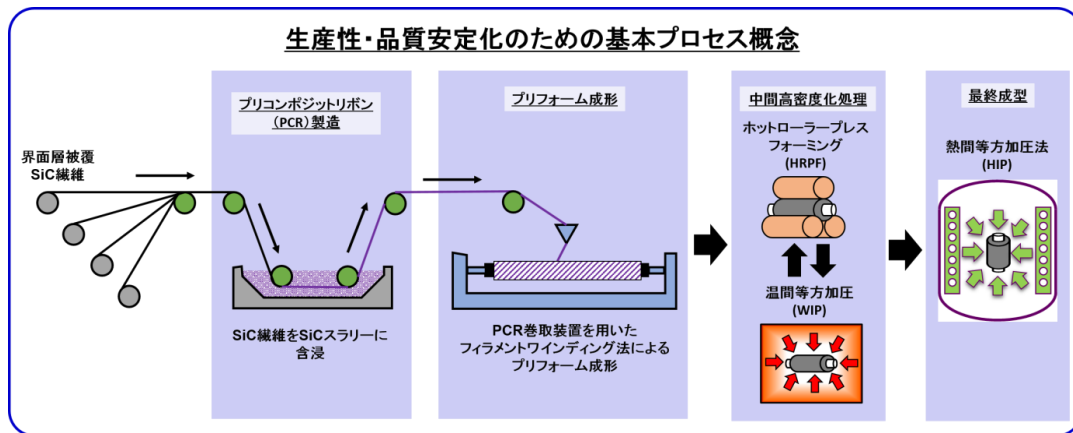


図 3.1-1 生産性・品質安定化のための基本プロセス概念

① プリコンポジットリボンの概念及び製造

SiC/SiC 被覆管の量産化・長尺化を容易に達成可能にする新しい中間素材であるプリコンポジットリボンは界面層被覆した高結晶性 SiC 繊維を SiC ナノパウダー、焼結助剤、バインダー及び溶媒からなる SiC スラリーでコーティングする手法で作製します（図 3.1-2）。従来の中間材料であるプリプレグシートは複数の繊維束が一定間隔で配列された幅 40～300mm、厚さ 1～2mm のシート状であるのに対し、プリコンポジットリボンは

図 3.1-3 に示すように 1～3 束の繊維束で構成された幅 1～2mm、厚さ 0.1～0.2mm の長いリボン状の中間素材です。

プリプレグシートを用いる従来法では、シートから切り出して、心棒に接着する為、時間と手間と技術が必要です。一方、プリコンポジットリボンでは、自動巻き取り装置を導入する事により、連続して均一なプリフォーム成形体を得る事が期待出来ます。

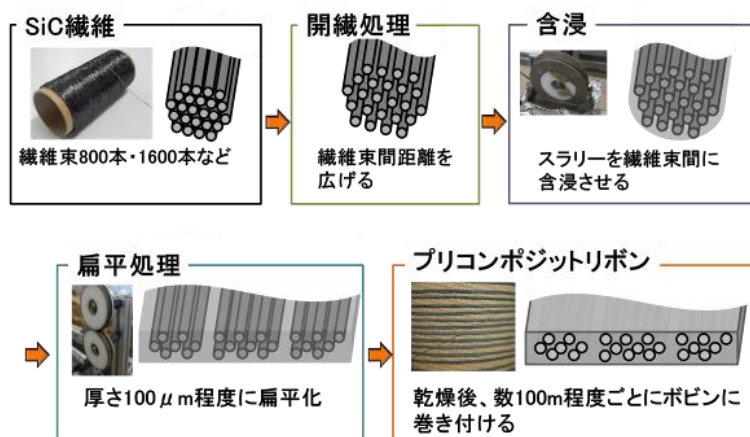


図 3.1-2 プリコンポジットリボン製造工程の概略

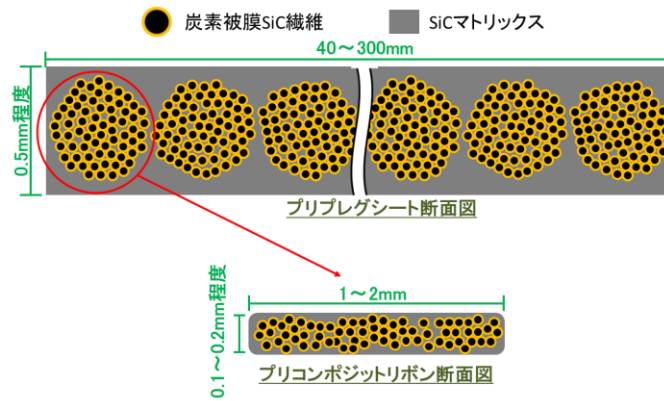


図 3.1-3 プリプレグシートとプリコンポジットリボンの断面比較

② プリコンポジットリボン巻取装置を用いたプリフォーム成形

プリフォームは平成 24 年度に本事業で試作したプリコンポジットリボン巻取装置（試作品）（図 3.1-4）によって自動的にプリコンポジットリボンを 2D 織り込み構造で心棒に巻き付けて作製します。平成 24 年度は長さ 500mm のプリフォームを作製し、平成 25 年度では図 3.1-6 に示すような長さ 1m の長尺 SiC/SiC 被覆管プリフォームを作製しました。長尺化にあたっては、プリコンポジットリボンにおいて形状・繊維の撚り及び真直性の改善を加え、プリコンポジットリボン巻き付け時には長尺化及び繊維損傷の低減と均質化の為、張力・反復時のセンサ設定・速度コントロール等管理の最適化を行いました。

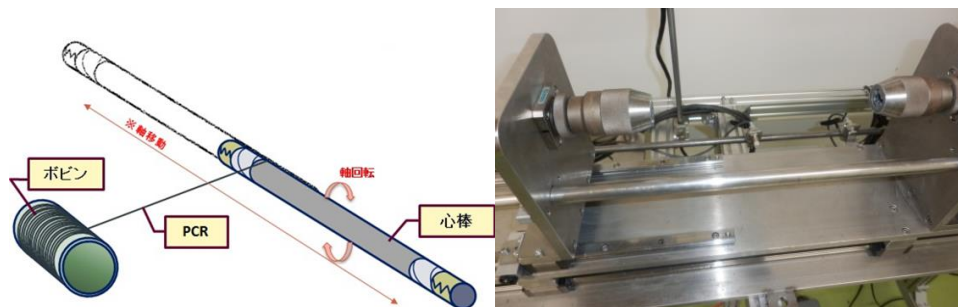


図 3.1-4 プリコンポジットリボン巻取装置（試作品）

③ プリフォームの中間高密度化処理

プリフォーム成形後、プリフォーム中の空隙等の欠陥の抑制に加え、繊維束内にマトリックス原料を緻密に充填するために中間高密度化処理を行います。更に中間高密度化処理には最終成型時の体積収縮に伴う繊維構造の崩れや欠陥の形成を抑制する効果もあります。本事業では加熱と回転しながら加圧を加えるホットローラープレスフォーム装置（図 3.1-5）及び均等に加圧を加える WIP 装置による高密度化処理を開発しました。

平成 25 年度では、1m の長尺 SiC/SiC 被覆管プリフォーム用の WIP 処理を行う為に、内径 90mm、長さ 1200mm の長尺管用加圧チャンバーを新たに本事業で作製し、室蘭工業大学 OASIS の文部科学省先端研究施設共用事業の装置で注水機構及び加圧機構、加熱機構を備える WIP 装置に取り付けました。



図 3.1-5 ホットローラープレスフォーム装置

④ 最終成型

最終成型には熱間等方加圧（Hot Isostatic Press、以下「HIP」という）法を用います。HIP 法は圧力媒体として Ar 等のガスを用い高温での等方圧加圧成形法であり、本事業で要求される高性能（高密度・高強度）な製品の製造に最も適した成形法です。プリフォーム段階では気孔率が非常に高く、圧力媒体である不活性ガスのプリフォーム内部への侵入防止が必要であるため、プリフォームを石英管へ真空封入して HIP 処理に供します。平成 24 年度では、本事業の HIP 処理に適した石英管を選択し、条件調整を行いました。平成 25 年度ではさらに石英管への真空封入の最適化を行う事で照射研究に必要な特性を満たした SiC/SiC 被覆管が作製出来ました。平成 26 年度では石英管へのプリフォーム挿入条件の最適化を行う事で、照射研究に必要な特性を満たしつつ長尺化を達成しました。

(2) 最終成果物（外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 1000mm 被覆管）の製造

NITE 法に基づく長尺化・量産化を考慮した実用化製造プロセス開発を継続し、図 3.1-6 に示すような外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 500mm クラスの SiC/SiC 被覆管を製造しました。また、生産性・品質安定化のためのプリコンポジトリボンを中間素材とする基本プロセスについて概念を示しました。平成 28 年度では最終目標である 1 m の SiC/SiC 被覆管製造にも成功しました。

(3) まとめ

NITE 法に基づく長尺化・量産化を考慮した実用化製造プロセス開発を行い、生産性・品質安定化のためのプリコンポジトリボンを中間素材とする基本プロセスについて概念を示すと共に、外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 1m クラスの SiC/SiC 被覆管を製造しました。国内外での関連の学術会議で積極的に参加し、情報収集と発信を行いました。最終年度である平成 28 年では軽水炉燃料性能会議（Top Fuel 2016）及び材料会議（MRS Fall Meeting & Exhibit）に参加し本事業成果を纏めて発表するとともに、今後の活用に向けた情報収集を行いました。



図 3.1-6 外径 12mm・肉厚 1mm・長さ 1m クラス SiC/SiC 被覆管

3.1.2 SiC/SiC 被覆管性能評価

本研究項目では、軽水炉の各運転状態での振舞い予測と研究課題の抽出を行うと共に、それらの内で最も重要な項目を取り上げて予備的な解析を行いました。以下にその結果を述べます。

(1) ホットセル内強度・熱特性評価技術開発 (H24～H28)

① 各種運転状態でのふるまいの予測と研究課題の抽出 (H24)

軽水炉では Zr 系合金からなる燃料被覆管が使用され、燃料の振る舞いや健全性に関して豊富な知識が蓄積されてきました。

これまでの経験を基本として SiC/SiC 燃料被覆管について知られている基本的な特性を基に、出力急昇時、冷却材喪失事故時の健全性評価の流れを作成しました (図 3.1-7)。特徴的な点は、SiC/SiC 燃料棒では外圧によるクリープ変形が Zr 系に比べて小さく、ギャップの閉塞量が少なく、炉水による酸化や被覆管材料に含有される水素量は無視できます。

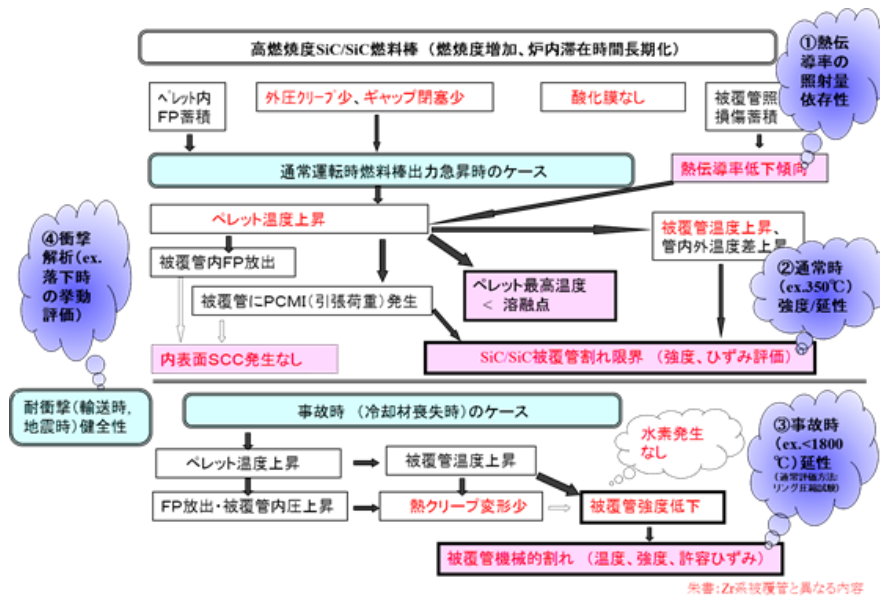


図 3.1-7 SiC 系材料の振る舞いと健全性評価の流れ

② 強度評価技術開発 (H24)

管円周方向のみの単軸応力状態になるオープンエンドバースト (Open end burst、以下「OEB」という) 方式の試験手法を取り上げることとし、SiC/SiC 被覆管のような脆性複合材料への適応性を確認し、SiC/SiC 被覆管固有の問題がある場合への対応策を検討しました。次に、原子炉照射後のホットセル内での遠隔操作試験が必要になるため OEB 試験法 (特許公開 2007-256164) での内圧シール用治具と燃料被覆管の本事業への対応検討を行いました。図 3.1-8 は OEB 試験装置への試験片装荷外観です。内径 ϕ 10mm、肉厚 1mm、長さ 25mm の試験片で工学的には妥当な強度 (内圧強さ) が測定できることを確認しました。



図 3.1-8 OEB 試験装置への試験片装荷外観

③ 面内負荷試験 (H25)

SiC/SiC 被覆管を用いて OEB 試験を実施しました。室温での内圧 (水圧) 負荷による円周方向ひずみ測定し、内圧-ひずみ関係が変形初期から破損まで直線関係を維持することを確認しました。得られた円周方向の応力-ひずみ関係から求めたヤング率は 330~510GPa であり、引張強さは 91~202MPa でした。OEB 試験後の FE-SEM による破断面観察では、繊維引き抜けを含む複雑な破壊様子が見られました。

④ セル内熱伝導率測定技術開発 (H24)

供試材の特性を考慮し、本事業では中心加熱技術を応用した定常法による熱伝導率測定技術開発を行いました。試験装置詳細設計のための予備的温度解析として一次元解析を行

い、次段階での試験片の詳細設計に対応するため FEM コード (ANSYS) を用いる温度分布の検討を行いました。

⑤ 伝熱特性評価技術開発 (H25)

照射された SiCSiC 被覆管のセル内熱伝導率測定を目的とし、測定装置を試作しました。SiC 管の熱伝導率の基本特性をまとめ、次に熱伝導率測定装置の試作のための詳細設計を行い、最後に非管理区域で試作品を製作しました。

管径方向に定常熱流束を与える同心円筒の内外温度から絶対値を求める試験法の概略を図 3.1-9 に示します。同図中で試験片外径内径は D_o 、 D_i であり、ヒータは例えば外径 ϕ 8.0mm です。なお外径 D_i 、内径 ϕ 8.0mm の筒は熱電対セット用の間隙充填材です。投入電力を Q (W/m)、内外面の表面温度を T_i 、 T_o とすると、円筒の半径方向定常熱伝導の式から熱伝導率 κ が求まります。

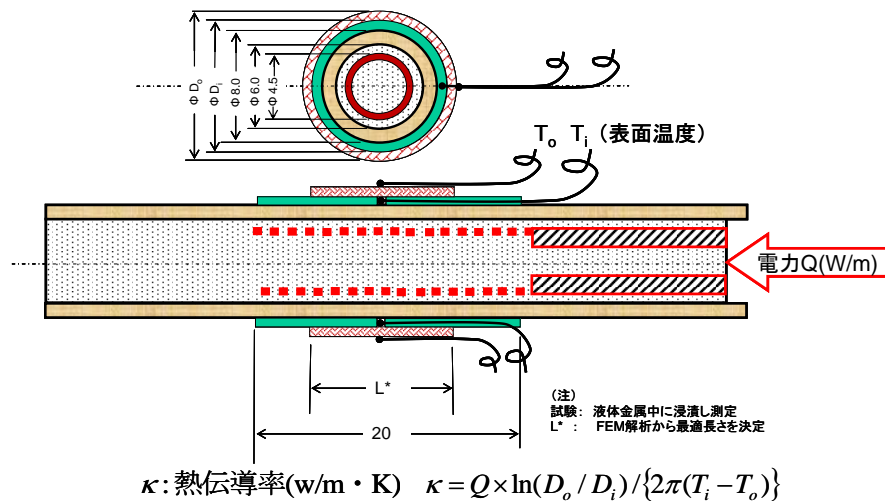


図 3.1-9 SiC/SiC 被覆管の熱伝導率測定法の概略

本試験法では熱除去が効率的にでき、試料外表面の検出温度の誤差を抑えるために高熱伝達率の液体金属を用いています。

⑥ 高温酸化試験 (H26)

SiC/SiC 被覆管を供試材として、事故時を模擬した 1500°C の高温酸化雰囲気中での酸化試験を実施し、寸法安定性と表面状態を予測するデータを取得しました。酸化試験は、温度 1500°C、大気中及び水蒸気雰囲気中で実施しました。1 時間の酸化試験後、試料の重量測定、寸法測定、外観観察及び SEM 観察を実施しました。

表 3.1-1 に酸化試験前後の重量・寸法変化を示します。図 3.1-10 に酸化試験前後の外観を示します。2 種類の酸化試験において、SiC/SiC 被覆管の重量や寸法の顕著な変化は見られませんでした。

表 3.1-1 酸化試験による重量・寸法変化

試料番号	重量 [g]			内径 [mm]			外径 [mm]		
	試験前	試験後	変化量	試験前	試験後	変化量	試験前	試験後	変化量
大気 SC-N1-01	2.22552	2.22744	0.00192	10.009	10.011	0.002	11.997	12.095	0.098
水蒸気 SC-N1-02	2.21301	2.22010	0.00709	10.004	10.006	0.002	11.994	12.031	0.037

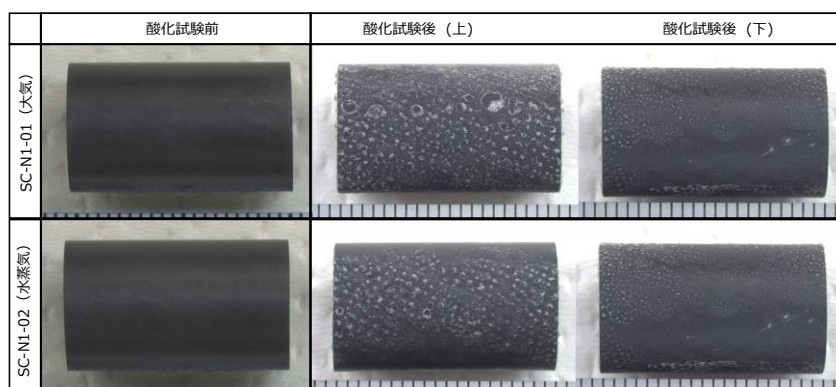


図 3.1-10 大気/水蒸気雰囲気中酸化試験による表面変化

⑦ 加熱型伝熱特性評価予備試験 (H26)

加熱型伝熱特性評価予備試験用に新しい装置を試作しました。(図 3.1-11) この装置では校正材の熱伝導率と本装置の測定結果に無視できない差異が認められたので、300℃における SUS316 (19W/(m・K)) とホウケイ酸ガラスの値 (1.7W/(m・K)) から 300℃での補正式を作成し、SiC の 300℃近傍の測定値を求めました。同じ補正式で求めた 100℃及び 500℃の熱伝導率も妥当な値となりました (図 3.1-12)。

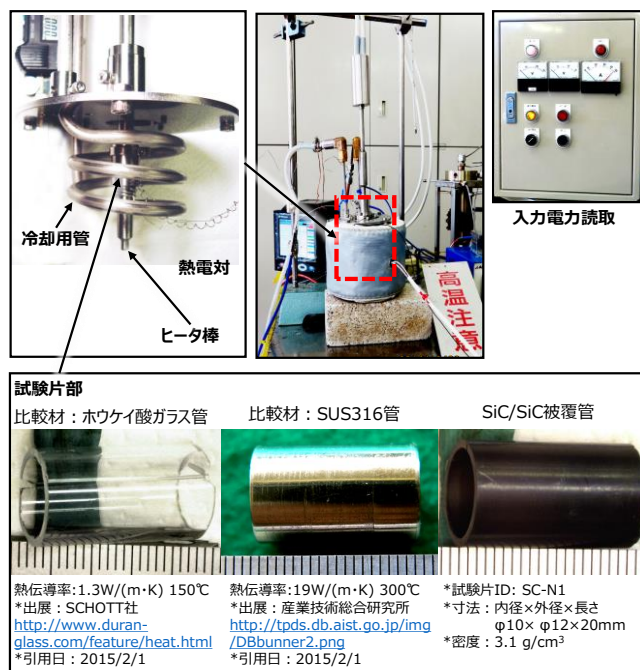


図 3.1-11 加熱型伝熱特性評価予備試験装置及び試験片の外観

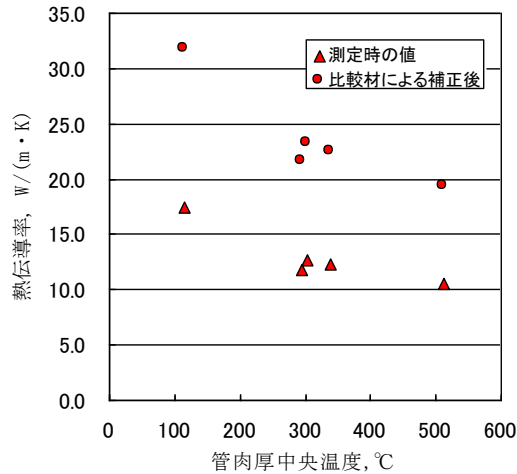


図 3.1-12 SiC/SiC 被覆管の熱伝導率温度依存性

⑧ 高温内圧負荷試験 (H27)

SiC/SiC 被覆管を用いて高温での内圧強度評価を行いました。室温での内圧負荷試験と同じく、OEB 法を用い、管両端における内圧シール部での破損を防止する意図から、両端を拘束しないで、液体で拡張する圧縮流体拡張 (Expansion due to compressed liquid、以下「EDC-L」という) 方式を採用しました。

採用した内圧シール方法が健全に機能し、シール部での水漏れや破損は無く、試験を無事に実施できました。室温と 250°C でのヤング率は 190GPa、176GPa であり、破断時には破裂音と共に管部長手方向中央から蒸気が噴出しました。試験前後の SiC/SiC 被覆管外観及び取得した応力-ひずみ関係を図 3.1-13 に示します。

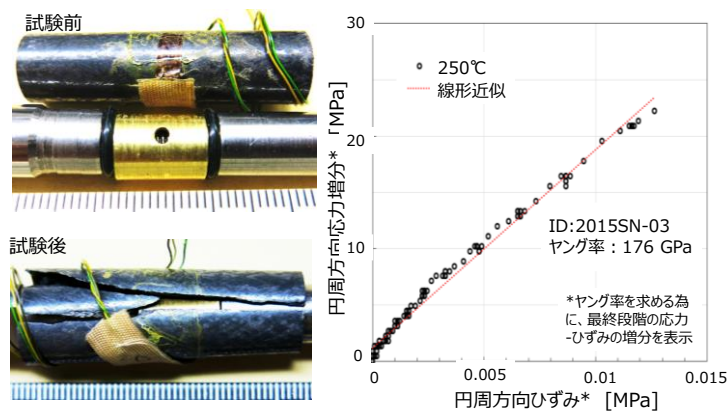


図 3.1-13 EDC-L 試験での応力-ひずみ関係と試験片外観

⑨ 耐環境性試験用模擬試料解析 (H28)

耐環境性試験用模擬試料の解析として、炉水環境を模擬した条件で暴露した SiC/SiC 被覆管およびハルデン原子炉で照射された SiC/SiC 被覆管の解析を行いました。

1) 耐環境性試験用模擬試料解析

炉水環境を模擬した条件で高温高压水腐食試験を行いました。試験温度 288°C、圧力 8 MPa、試験時間～999 h、溶存酸素量 250-1000 ppb にて実施しました。いずれの溶存酸素量においても亀裂等の損傷形成は認められませんでした。ただし、図 3.1-14 に示す通り溶存酸素量が高いと重量減少量が増加する傾向が認められます。重量減少量から求めた SiC 重量減少速度は溶存酸素量が約 1 桁増加すると、5 倍程度増加する傾向にあることが分かりました。

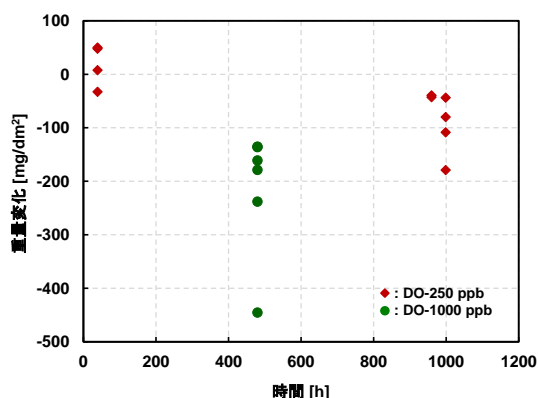


図 3.1-14 SiC 重量変化への溶存酸素量の影響

2) ハルデン原子炉で照射された SiC/SiC 被覆管の解析

ハルデン原子炉においては 2 回の炉水内・中性子照射を実施しました（以下一回目の照射を「SCARLET 1st」、二回目の照射を「SCARLET 2nd」と称します。）。表 3.1-2 に各照射条件を示します。図 3.1-15 に SCARLET 1st 照射試験中の炉水内の Si 濃度変化を示します。ただし、本照射に用いた SiC/SiC 被覆管セグメントは SiC/SiC 被覆管の両端にジルカロイ管を接合した SiC/SiC 被覆管セグメントです。これは短期間での SiC/SiC 燃料ピンセグメントの炉水内・中性子照射試験の実施を前提とした設計に基づいていることと、端栓封止として既存の技術である電子ビーム溶接によるジルカロイ端栓の封止により行う事とした為です。また照射後の試料においては健全性が認められた試料がある一方で、破損が認められた試料もありました。そのため、図 3.1-15 の Si 濃度変化の解釈においては、炉水と接していた SiC/SiC 被覆管の正確な表面積がわからないこと、SiC/SiC 被覆管とジルカロイ管の電位腐食の影響や、SiC の腐食への破損の影響が不明であることから定量的な解釈の精度は極めて悪いことに注意する必要があります。また炉水中の Si 濃度が許容濃度を超えないように、炉水を適宜交換しています。

図 3.1-15 から Si の溶出挙動を正確に求めることは出来ませんが、ここでは大胆な仮定の下で照射中の SiC/SiC 被覆管からの Si 溶出挙動の解析を実施しました。まず照射前の炉水において Si 濃度はハルデン原子炉の分析器の検出限界以下でした。図 3.1-15 より試験開始とともに Si 濃度は増加し、試験初期で 1000 ppb 程度まで増加しています。Si 濃度を原子炉運転のための許容値に制御するために、図 3.1-15 に示すように炉水を交換しています。炉水交換に伴う炉水ループから取り出された Si 重量は式 (1) より推定しました。

$$m_{Si} = \frac{(\rho_0 + \rho)}{2} \times V \times 1000 \quad (1)$$

ここで、 m_{Si} は炉水ループから取り出された推定された Si 重量[mg]、 ρ_0 は炉水交換前の Si 濃度[ppb]、 ρ は炉水交換後の Si 濃度[ppb]、 V は交換した水量[l]です。

推定した Si 重量から、SiC 重量減少速度は式 (2) より推定できます。

$$WLR_{SiC} \cong m_{Si} \times \frac{M_{SiC}}{M_{Si}} \times \frac{1}{A_{SiC} \times \Delta t} \quad (2)$$

ここで、 WLR_{SiC} は SiC 重量減少速度[mg/dm²/day]、 M_{SiC} は SiC の分子量 (= 40.0962) [g/mol]、 M_{Si} は Si の分子量 (= 28.0855) [g/mol]、 A_{SiC} は SiC の炉水に曝される断面積[dm²]、 Δt は試験時間[day]です。

推定された SiC 重量減少速度変化を図 3.1-16 に示します。大胆に推定した平均の SiC 重量減少速度は 32 mg/dm²/day でした。中性子照射終了後、SiC 重量減少への中性子照射の影響を評価するために炉水ループを運転し続けました。中性子照射がない場合、Si 濃度は大きく減少し、SiC 重量減少速度は 11 mg/dm²/day と中性子照射ありの場合と比較し低くなりました。

SCARLET 2nd は酸素水化学と水素水化学の 2 種類の水化学条件で行いました。まず酸素水化学条件 (0 : 200~300 ppb) で 22 日間照射試験を行った後に、水素水化学条件 (H : 1.8~2.2 ppm) で 18 日間照射試験を実施しました。SCARLET 2nd においては照射試験中にイオン交換樹脂による炉水の純化を行うことで、Si 溶解レベルを低く抑え、炉水交換も行われませんでした。中性子照射中の動的な Si 溶解速度を評価するために、何度か炉水の純化を止める、バイパス試験も行いました。図 3.1-17 に SCARLET 2nd 中のバイパス試験も含んだ Si 濃度変化挙動を示します。図 3.1-17 では、4 つの鋭いピークが見られ、これらピークはバイパス試験と対応しています。バイパス試験中の Si 濃度変化を抜粋したプロットを図 3.1-18 に示します。バイパス試験中の Si 濃度変化から、SiC 重量減少速度は式 (3) により推定することが出来ます。

$$WLR_{SiC} \cong \frac{24}{1000} \times a \times V \times \frac{M_{SiC}}{M_{Si}} \times \frac{1}{A_{SiC}} \quad (3)$$

ここで、 a は図 3.1-18 の Si 濃度変化挙動の傾きから求めた Si 濃度変化速度[ppb/h]であり、 V は炉水ループ内の水量 (= 80 l) です。推定される SiC 重量減少速度は酸素水化学条件で 99~120 mg/dm²/day、水素水化学条件で 28~32 mg/dm²/day です。

また溶存酸素量 250 ppb における炉外試験での SiC 重量減少速度と、SCARLET 2nd 照射試験における酸素水化学条件の推定される SiC 重量減少速度とを比較すると、照射による約 2 桁程度の SiC 重量減少速度の増加が示唆されます。

本解析から、照射試験中においても Si 濃度変化から SiC の重量減少速度が推定できることが示されました。この推定値と照射後の重量計測からこの予測値がオーダ的には正しいことも確認されました。

表 3.1-2 SCARLET 照射条件と PWR 条件との比較

		PWR	SCARLET 1 st	SCARLET 2 nd	
条件	単位	1 st system	水ループ	水ループ	
照射期間	day		2014/12/22~2015/2/1	2015/9/11~2015/10/23	
温度	℃	310	入口 270~290	入口 280	
			出口 285~310	出口 300	
圧力	MPa	13.4	16.2	12.7	
流量	ℓ/h		1,600	1,650	
反応制御		制御棒+ホウ素	-	-	
ボロン	ppm	100~2,000			
リチウム	ppm	< 3.5	~1,000		
酸素	ppb	< 5	~4.5	200~300	-
水素	ppm	2~3	2.2~3.2	-	1.8~2.2

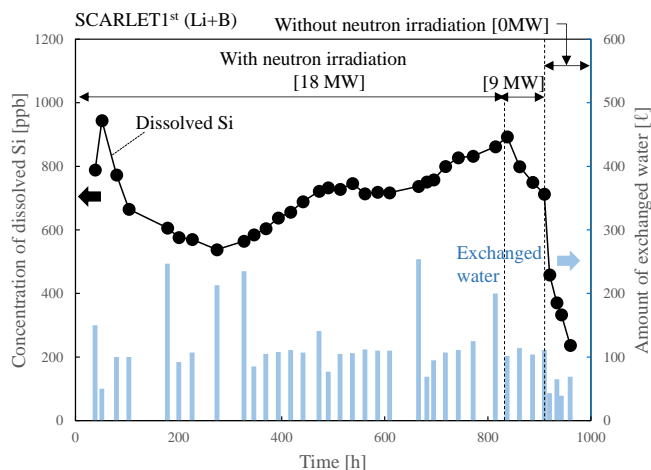


図 3.1-15 SCARLET 1st 照射試験中の溶出 Si 濃度

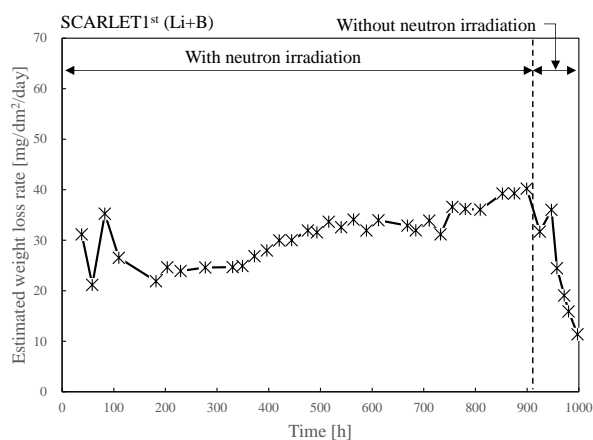


図 3.1-16 SCARLET 1st 照射試験中の SiC 重量減少速度推定値

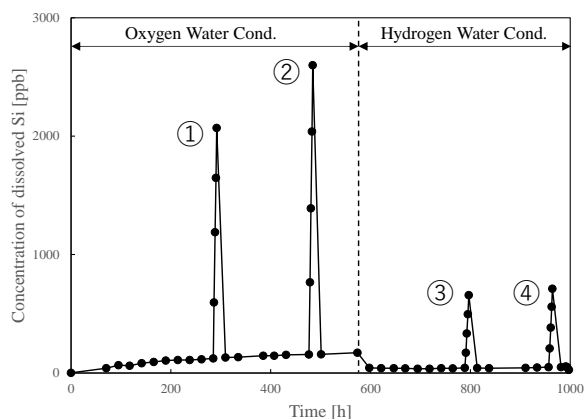


図 3.1-17 SCARLET 2nd 照射試験中の溶出 Si 濃度

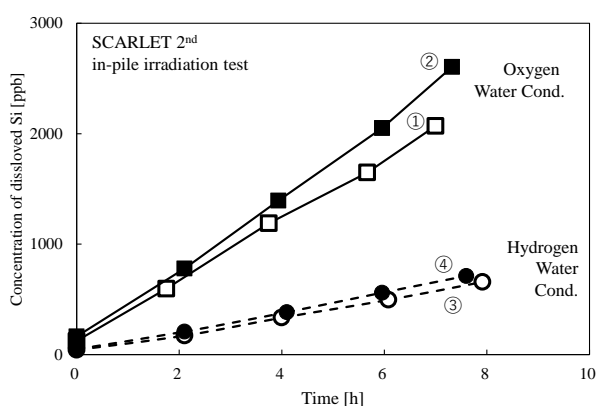


図 3.1-18 炉水純化停止時の Si 濃度変化

⑩ 振動試験と耐震性評価 (H28)

原子炉燃料の動的挙動や動的な諸特性・評価は、燃料棒の健全性だけでなく原子炉全体の安全性の観点から重要な課題の一つです。ここでは「SiC/SiC 燃料被覆管の製造と性能評価」の一環として、特に SiC/SiC 燃料被覆管性能評価項目において、地震時の振動解析と耐振動評価を行いました。

具体的には (A) 燃料集合体に組みこまれた SiC/SiC 燃料被覆管が輸送時に受ける振動荷重負荷時の挙動、および (B) 燃料集合体に組みこまれた SiC/SiC 燃料被覆管の地震時の挙動に注目し其々の事象での振動モード、最大変形、応力、固有振動数等から性能評価を行いました。以下にその結果を述べます。

1) 輸送時の振動挙動

a) SiC/SiC 燃料棒と Zry 燃料棒共通挙動

- ・両燃料棒とも、最大たわみ発生位置は、ペレットがない上端部 1 スパン近傍に生じると考えられます。

- ・両燃料棒とも輸送システム（機器）と一体化した振動現象なので、具体的な輸送装置と組み合わせた事前の振動計測により、全体として共振を避けるように設計を行う必要があります。

b) Zry 燃料棒に対する SiC/SiC 燃料棒の耐振動における優位性

・ SiC/SiC 燃料棒は Zry 燃料棒に対して、相対的に軽量・高剛性なので、輸送時には相対的に高周波側の振動を生じることが定性的に予想されますが、解析により固有振動数は SiC/SiC 燃料棒の方が Zry 燃料棒より大です。

・ 輸送時に発生することが想定される加振周波数内（10-70Hz）には、SiC/SiC 燃料棒では 3-8 次の 6 個の振動モードにとどまるのに対して、Zry 燃料棒では 3-10 次の 8 個の振動モードがあり、SiC/SiC 燃料棒の方が共振発生の可能性が低い事が判ります。

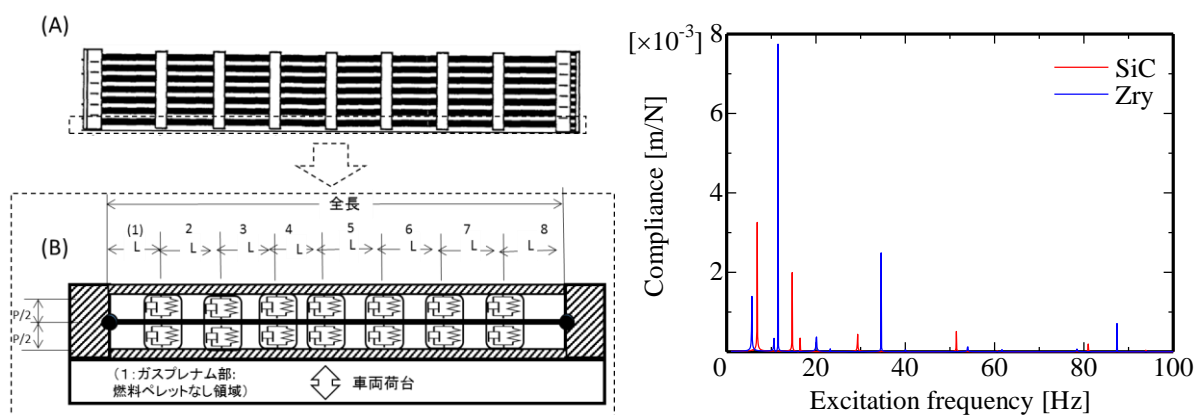


図 3.1-19 輸送時の振動解析モデル及び解析結果：振動スペクトル

2) 地震時の炉内振動挙動

a) SiC/SiC 燃料棒と Zry 燃料棒共通挙動

・ 両燃料棒とも振動開始直後の過渡応答期には、たわみ・応力値は長手方向上部領域で他の領域に比べて一瞬大きくなり、その後定常振動への移行に伴い燃料棒の下方領域に大きなたわみが生じて、同領域に最大応力が発生しています。また、解析した周波数の差に関わらず同一傾向でした。

・ 両燃料棒とも炉心の構造・寸法に依存した振動現象なので、具体的な実機燃料棒および燃料集合体に関する振動試験を実施し、炉内での共振を避ける詳細設計を行う必要があります。

b) Zry 燃料棒に対する SiC/SiC 燃料棒の耐振動における優位性

・ 炉内で生じると考えられる振動モード次数（1-10 次）で、SiC と Zry 燃料棒の各固有振動数は、SiC/SiC 燃料棒の方が大きいことが定量的に得られました。即ち、SiC/SiC 燃料棒の方が共振のモード数が少なく Zry 燃料棒より共振発生の可能性が低いと考えられます。

・ SiC/SiC 燃料棒は 1 次、2 次の固有振動数が 2 つとも 5Hz 付近に近接しているのに対して、Zry 燃料棒は 1 次～3 次の固有振動数が 4Hz～10Hz に広く分布しているので、SiC/SiC 燃料被覆管は共振を避けて設計する際の自由度が大きい有利さがあります。

3.2 SiC/SiC 燃料被覆管のアセンブリ技術開発

3.2.1 アセンブリ技術（再委託先：北海道大学）（H24～H28）

(1) 端栓処理技術と試作（H24）

中性子照射用燃料ピンは、核分裂物質や核分裂生成物を全ての使用期間において封じ込めることが要求されることから、定常状態である原子炉の停止時や定常運転中などの静的な環境における封止能力だけでなく、原子炉が起動中や停止中の温度や内外の圧力が変動する動的な環境においても健全性を維持する必要があります。多様なアセンブリ技術の基礎検討を基に、ホットセル内で操作可能な端栓処理技術の候補について試作することを目的としました。

金属材料の接合で用いられる、接合表面の機械加工による残留歪を低減させる接合強度向上処理を併用する事とし、レーザー導入装置と精密研磨装置による表面処理技術と拡散・機械的接合等の諸技術の併用を前提としホットセル内で操作可能な端栓処理技術の候補について試作を行いました。

被覆管および端栓にねじ加工を施しての機械的接合と、フィラーあるいはその他の手法による材料学的接合との併用による強度特性確保と気密性確保を基本的方針としました。接合面の精密研磨とレーザー導入装置を用いて大気中および減圧下で、ミリ秒パルスレーザー照射により接合面の表面処理をおこなって試料表面の残留歪除去効果の確認を行い、タングステン端栓とガラスを用いた SiC 端栓部の封止試験を行って、SiC 管の封止が可能であることを示しました（図 3.2-1）。

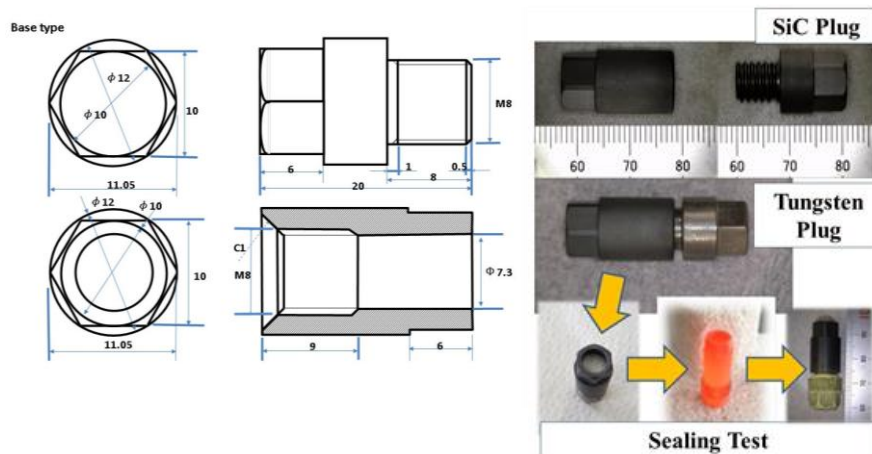


図 3.2-1 模擬端栓の形状及びガラス封止テストの概要

(2) 模擬燃料ピンの製作（H25）

中性子照射用模擬燃料ピンに適用可能な端栓処理技術として SiC/SiC 製端栓、あるいは他の金属製端栓での、レーザー導入装置と精密研磨装置による表面処理技術と拡散・機械的接合等諸技術からホットセル内で操作可能な端栓処理技術の候補について試作を行いました。

まず、模擬被覆管の端栓として強度と気密性を有する β -SiC 焼結体を選定しました。また、接合条件を探索するために、SiC/SiC 被覆管の代替として端栓と同じ材質の β -SiC 焼

結体を選定しました。次に、ホットセル内で操作可能な端栓処理技術として、マニピュレーターでつかみ易い形状にするために、平成 24 年度に考案した模擬燃料被覆管の端栓近傍外側と端栓の上部の外周を六角形に加工しました。また、強度と気密性を向上させるために模擬燃料被覆管の内側をめねじに加工し、端栓の模擬燃料被覆管挿入部の外径をピンの内径同等とすると共におねじに加工し機械的に締結しました。その後、端栓と被覆管の間にはワッシャー状に加工したホウケイ酸ガラスをフィラーとして接合する条件を探索しました。Ar 中で高温に加熱し保持した後、室温まで徐冷しました。接合部を光学顕微鏡で観察して目視できる欠陥の有無を観察しました。その後、接合部表面を電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM) により微細構造解析を行いました。

更に、接合界面の微細構造解析の結果、接合部にガラスフィラーが充填されていない場合でも、ねじ加工した部分が接合しており、ワッシャー状に加工したホウケイ酸ガラスをフィラーとして接合する事によってリークタイトな構造を簡便に得られる可能性が示唆されました。このことからホウケイ酸ガラスをフィラーとしてホットセル内において作業可能な、50mm 程度の長さの SiC/SiC 被覆管の端栓処理技術を開発することができました。

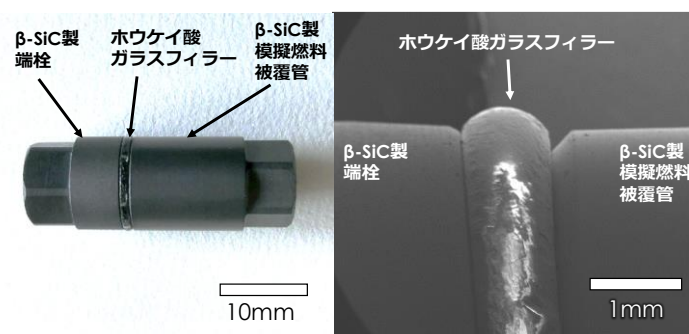


図 3.2-2 ホウケイ酸ガラスによる接合の概要

(3) SiC/SiC 被覆管セグメントの製造 (H26)

SiC/SiC 被覆管セグメントの製造技術開発を行い、ハルデン原子炉照射実験の要求仕様を満たす照射実験用 SiC/SiC 燃料被覆管セグメントの製造に成功しました。具体的には、中性子照射用模擬燃料被覆管に適用可能な強度と気密性を有する SiC/SiC 被覆管とハルデン原子炉照射実験でループに接続するために必要なジルカロイ製金属端栓にねじ加工を行い、活性金属ロウを用いてロウ付けを行いました。走査型電子顕微鏡と透過型電子顕微鏡による接合断面の微細構造観察の結果、接合界面には空隙が存在せず、SiC と活性金属ロウ材料の拡散接合部に脆弱な反応相が存在しないことが優れた接合特性の理由であることが明らかになりました (図 3.2-3)。ハルデンでの照射実験に供した密封型試料の概要を図 3.2-4 に示します。

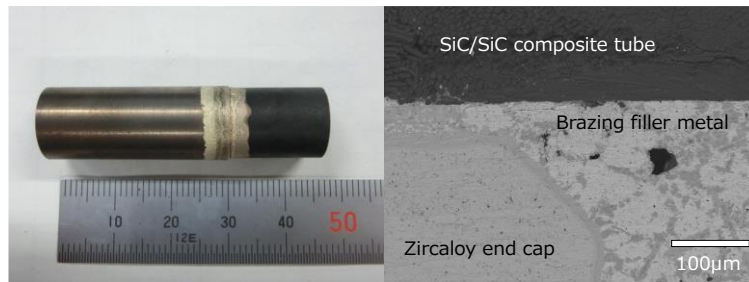


図 3.2-3 ロウ付け接合の外観及び接合部微細組織

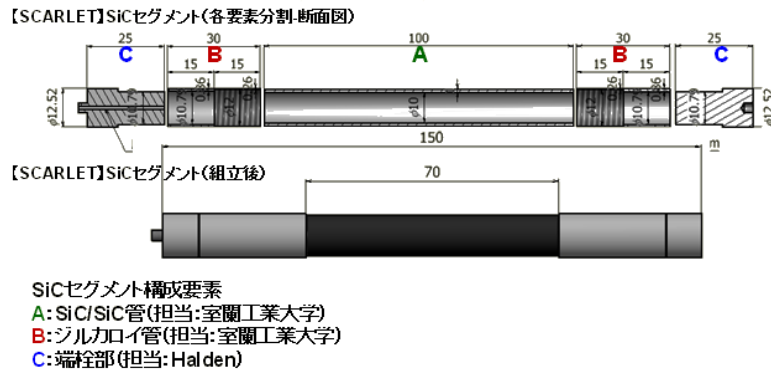


図 3.2-4 ハルデン炉での密封型試料の概略

(4) 長尺管用端栓処理技術開発(H27)

長尺燃料被覆管に適用可能な強度と気密性を有するロウ付け端栓技術開発として、平成26年度で検討したAg-Cu-Ti-In系ロウ材に加えて、Ti-Zr-Cu系ロウ材を用いた検討を行いました(図3.2-5)。また、接合予備試験として単軸で加圧し高温で拡散接合する方法を検討しました。SiCナノ粒子粉末とプロセス添加剤を溶液と混合してスラリー状にし、有機バインダーを加えシート状にしたNITE-SiCグリーンシート(GS)を挟んで拡散接合する方法も検討しました(図3.2-6)。更に、SiC/SiC複合材料端栓を作製し、同様の方法で拡散接合する方法も検討し、接合界面の微細組織観察を行いました。これらの取り組みにより、ロウ付けしたSiCとロウ材の接合界面で生じる材料組織学的な知見やNITE-SiCグリーンシートを用いたことによるSiC/SiC複合材料の接合界面における弾性残留歪みの低減に関する知見が得られました。

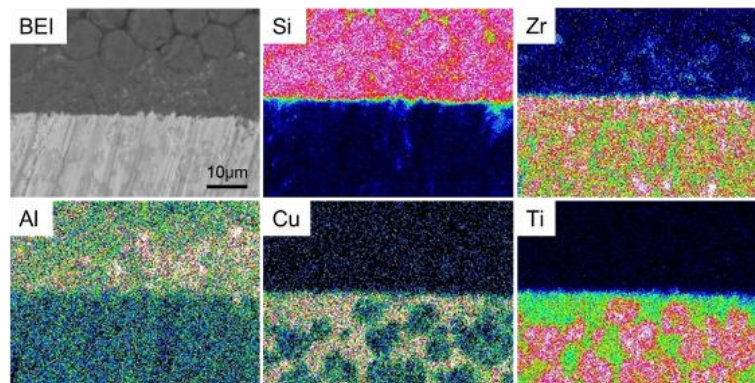


図 3.2-5 SiC/SiC 複合材料のTi-Zr-Cu ロウ材による接合界面組織

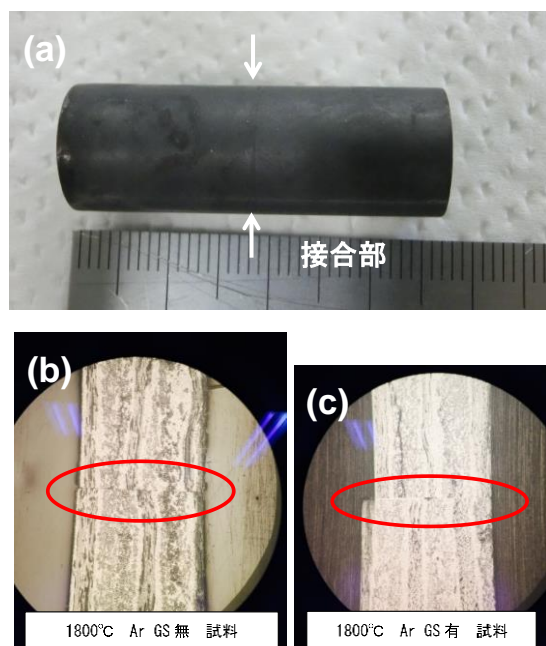


図 3.2-6 SiC/SiC 管の拡散接合試験結果
GS 無し接合の外観：(a)と接合部の光学顕微鏡像：(b)、(c)

(5) SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュール製作 (H28)

これまでの SiC/SiC 燃料被覆管に関する技術開発を基に、SiC/SiC 燃料被覆管を複数本以上用いる SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールの製作を目的に、モジュールの詳細な検討と設計を行い、室蘭工業大学にて SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールを製作しました。

3本の SiC/SiC 燃料被覆管を三角格子上に配置し、BWR や PWR で長尺の燃料被覆管を支える支持格子に相当する SiC/SiC 燃料被覆管の外径と同等の穴を開けた円盤状の支持格子を挿入するモジュールを検討しました。しかしながら、もう一つの業務である「アコースティックエミッション(AE)解析による、SiC/SiC 燃料被覆管のき裂進展と境界層破壊の判別技術をもとに、SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールのき裂進展と境界層破壊の判別技術構築や今後期待される効果」で使用するモジュールとの互換性を考慮した結果、実機をモデルにしたモジュールを採用することとしました。本モジュールの第一次案で検討した支持格子無しで SiC/SiC 燃料被覆管を下部ノズルと上部ノズルで支え、起動時や定常運転時に振動でたわんで接触し無い様に、支持格子の代替となる SiC/SiC 燃料被覆管の表面外周に沿ってリブ状の構造物を取り付け、ギャップを規制する構造を検討した所、冷却材の流動を制限するコンダクタンスとなる可能性が有ることが指摘されました。また、リング状のリブからブロック状のリブ構造を外周に、ある間隔毎に配置する構造も検討しましたが、ブロック状のリブ構造自身やその周辺部のエロージョン・コロージョンなどが懸念される事が分かった事に加え、近年 BWR の支持格子上部にミキシングベーンを取り付けて燃料被覆管表面のドライアウトや核沸騰離脱 (DNB) を抑制することが検討されていることから、SiC/SiC 燃料被覆管の表面外周に沿ってミキシングベーン状の構造物を取り付けて SiC/SiC 燃料被覆管同士のギャップの維持や冷却材の攪拌混合効果を高める構造を採用する事としました。次に、下部ノズルは SiC/SiC 複合材料として、SiC/SiC 燃料被覆管の下部端栓を

差し込む構造としました。上部ノズルは、アクリルで、本モジュールのギャップやミキシングベーン機能と支持格子の機能を有するリブ構造が上部から目視できるようにアクリル製として、上部端栓部を差し込む構造としました。また、実機のPWRで使用されている直径約 $\phi 8\text{mm}$ 、高さ約 10mm の燃料ペレットとの関係が目視できるように、アクリルで SiC/SiC 燃料被覆管と同等のスケルトン燃料被覆管を作製し、燃料ペレットと同形状に加工したステンレス製の模擬燃料ペレットを装填しました。図 3.2-7 に作製したモジュールの概要を示します。

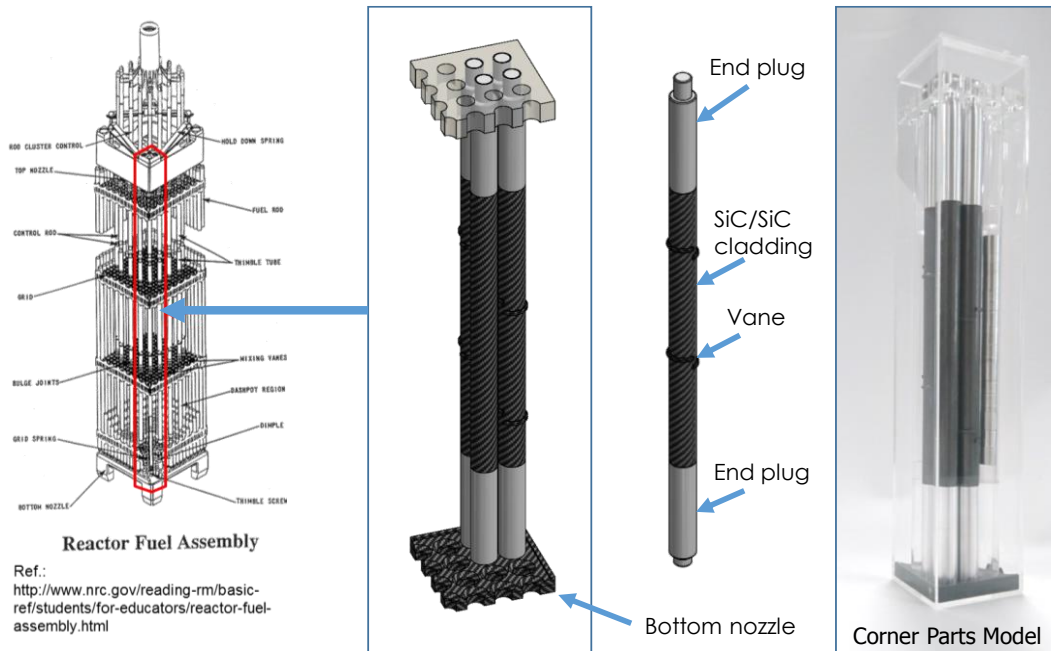


図 3.2-7 SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールの概要

3.2.2 アセンブリ評価技術（再委託先：大阪大学）（H24～H28）

(1) AE 計測データ処理・解析装置（H24～25）

① 板材におけるき裂進展と境界層破壊の判別技術開発

擬延性を有する SiC/SiC 燃料被覆管においては、実稼動下におけるモニタリングを目標とした、アコースティックエミッション (AE) による破壊の検出技術の確立が必須であり、メートル級 SiC/SiC 燃料被覆管での破壊評価が可能な技術開発を行いました。

ASTM 試験規格 C1275 に準拠して室温での引張強度試験を行い、荷重負荷方向は繊維長手方向と一致するようにし、除負荷/再負荷を繰り返しながら破断荷重まで徐々に負荷レベルを上げるサイクル試験を実施し、損傷の蓄積過程を調査しました (図 3.2-8)。また、SiC/SiC 複合材料の破損過程における、SiC マトリックスや SiC 繊維の破壊を区別するための予備的検討のため、同じく一方向強化複合材料を用いて、荷重負荷方向に対して繊維長手方向角度が 0、20、45、90 度となるように作製した試験片を用いた引張強度試験も実施し、損傷の蓄積過程を調査しました。

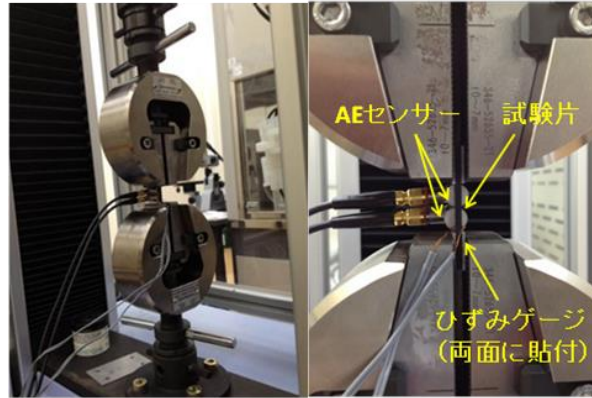


図 3.2-8 引張強度試験中の AE 計測

初期の線形領域の傾きから求められる弾性定数は 318GPa であり、繊維体積率と空孔率を用いて複合則により算出した弾性定数 347GPa とは概ね良い一致を示し、損傷の指標としての比例限度応力は最大負荷時の破断応力と一致し、約 120MPa となりました。

引張試験における AE 測定結果（生データ）にはゲージ外で発生する AE シグナルを含むものですが、AE シグナルの検出が解析可能に行えることが確認出来ました。次に位置標定により、AE の発生位置と AE カウントの関係から比較的能量の低い AE は負荷開始初期から、ゲージ部全体にわたって検出され、エネルギーの高い AE は最大荷重付近で局所的に発生していました。図 3.2-9 に示すように一つ一つの AE のエネルギーがけた違いで大きいことから、これらの AE に特徴づけられる破壊現象が複合材料の破断に強く寄与している事が分かります分かります。

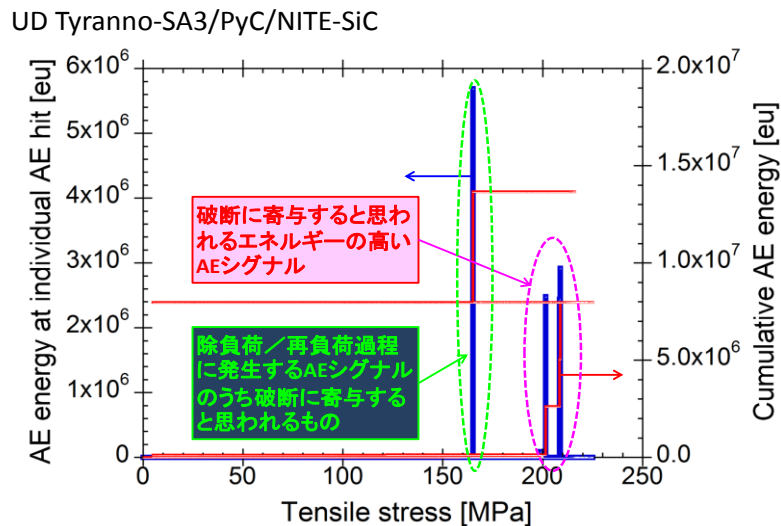


図 3.2-9 負荷応力と AE エネルギー蓄積の関係

AE シグナルが検出される時の負荷応力と、破断応力との関係を比較すると、荷重負荷方向と繊維長手方向が同じ場合には、破断応力に達する前に AE シグナルが検出されましたが、荷重負荷方向に対して繊維長手方向が 90 度の場合には、ほぼ最大負荷時の破断応力に達した時点で、初めて AE シグナルが検出されました（図 3.2-10）。また、引張応力ー引張率

動の結果に基づき、比例限界応力での AE イベントを対象に、波形解析（フーリエ解析およびウェーブレット解析）した結果、荷重方向に対する繊維長手方向が変化すると、検出される AE 波の周波数の分布形態が変化することが分かりました。更に、破断面観察等を行い、得られた AE 波の周波数の分布形態との比較を行い、各々の破損段階に特徴づけられる周波数の同定を行いました。

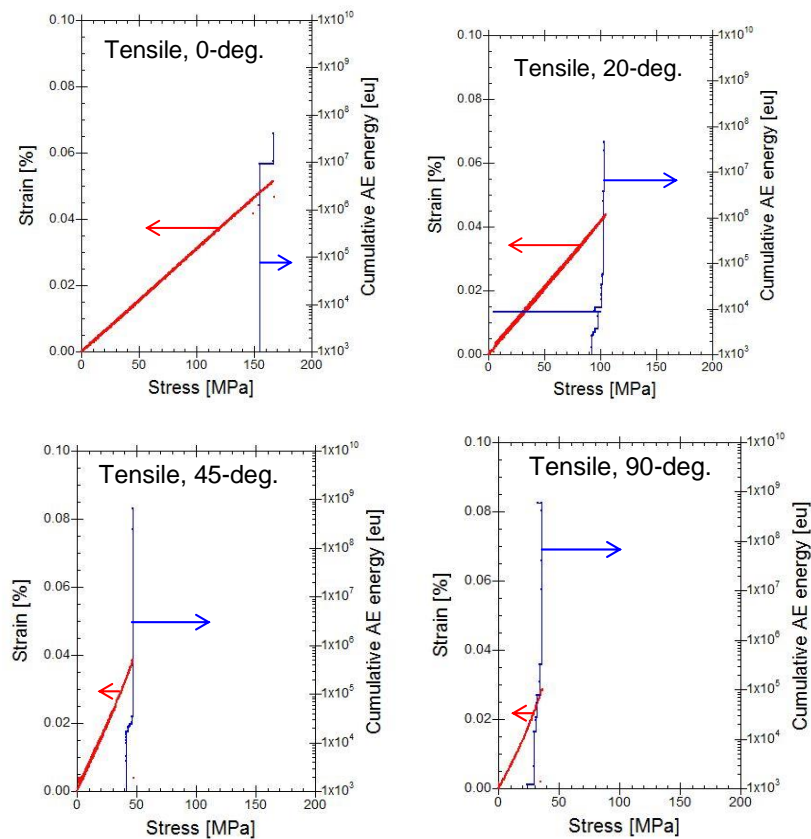


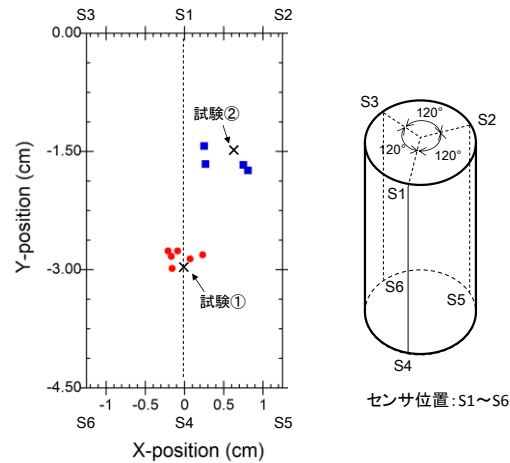
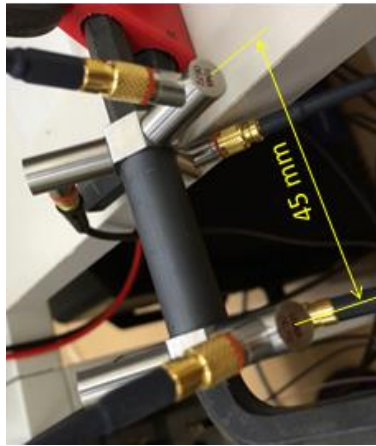
図 3.2-10 負荷応力と引張ひずみ及び AE エネルギー蓄積の関係

② SiC 管材評価への AE 試験技術の適用

板材におけるき裂進展と境界層破壊の判別技術を開発した試験技術を SiC 管材評価へ適用しました。SiC/SiC 燃料被覆管の破壊試験における AE 測定において、第一に破壊に寄与する AE 信号を適切に抽出し、評価する必要があります。そのため、AE 信号の位置標定は必要不可欠な前提条件となります。

円管の位置標定においては、まず肉厚を考慮しない二次元曲面について、SiC 円管を用いた予備検討を行いました。AE センサは円管試験片端部に、3ヶ所ずつ（計 6ヶ所）設置しました。試験は任意の AE センサ間の円管表面で、黒鉛（シャープペンシルの芯）を折ることで擬似き裂信号を発生させ、その信号が各 AE センサに到達する時間を計測し、その時間差から位置を定めることを行いました。

図 3.2-11 に示すように任意の 2 点（図中×点）においてそれぞれ 4~6 回擬似き裂信号を発生させ、得られた AE 波によって位置標定を行った結果、良好な結果を得ました。



(a) AE センサを貼り付けた SiC 円管

(b) 位置標定結果

図 3.2-11 SiC 円管の擬似き裂信号による位置標定試験の概要

(2) 1/2 円管試験片での AE 解析 (H26)

平板材の AE 解析技術をもとに、SiC/SiC 被覆管から 1/2 円管形状に切り出した壁材のき裂進展と境界層破壊の判別技術構築を行いました。

① 1/2 円管の軸引張強度試験への AE 技術の適用検討

1/2 円管形状に切り出した壁材の軸方向引張強度試験への AE 技術の適用検討を行うこととし、具体的には、位置標定を行った AE データをもとに、破壊試験時の損傷蓄積過程の評価を行いました。全長 200mm の SiC/SiC 燃料被覆管 (外径 12mm/内径 10mm) を長さ 40mm に切断した円管を、更に縦に 2 等分した試験片を用い、引張破壊過程における損傷モニタリングのため、AE 計測による弾性波の計測から損傷蓄積過程の詳細を評価しました。測定に用いた計測システムは Vallen 社製の AE 計測システム (AMSY-5) を基本構成とし、試験片のエッジ部に、AE センサを計 2 個設置し、位置標定を行うことで、試験片ゲージ部で生じた AE 信号を選択的に取得するようにしました。

図 3.2-12 に AE の発生位置と軸引張応力、エネルギー強度の関係を示します。著しい非線形挙動を示す約 40MPa 以上の負荷応力では、比較的高いエネルギーの AE が多く検出されました。

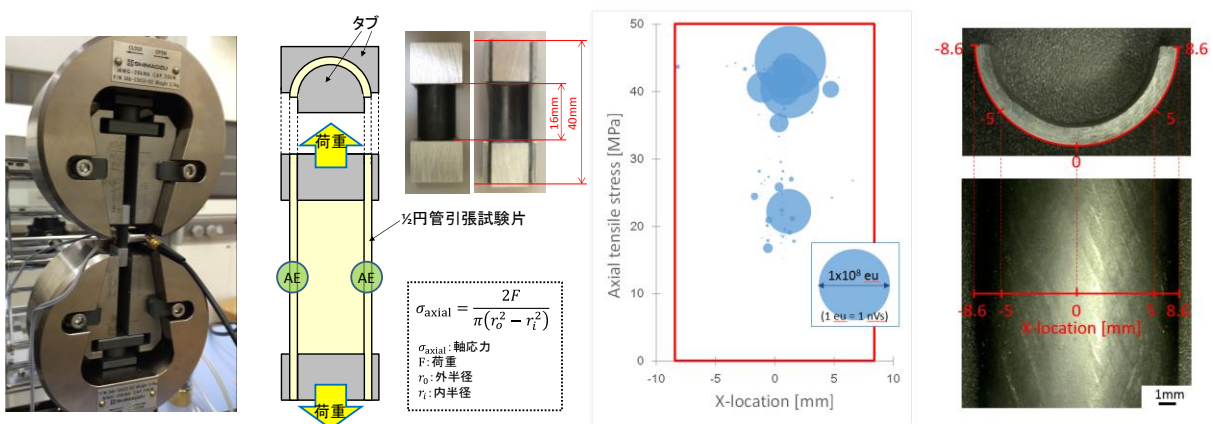


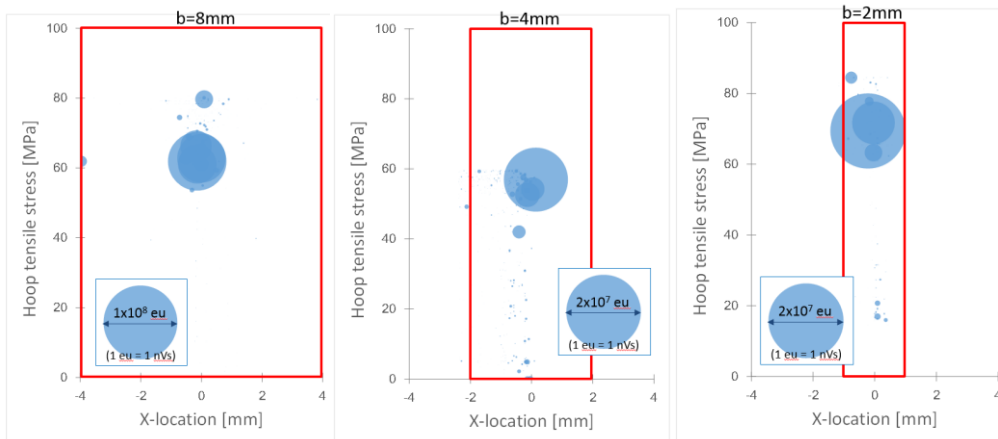
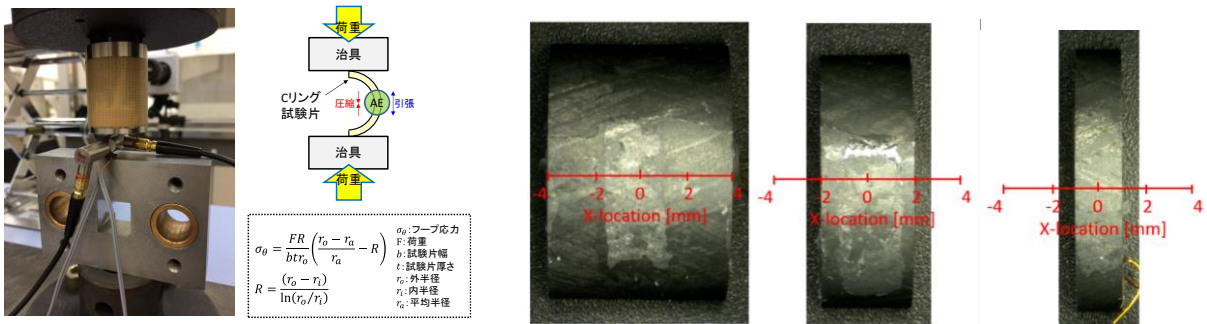
図 3.2-12 軸引張強度試験での AE 発生位置と応力、エネルギー関係

ほとんどの AE が試験片中央部に集中していたことから、AE 検出応力で導入された損傷を起点として損傷が徐々に蓄積し、その後、40MPa を越えたところで破壊が急激に進展している様子が認められ、平板材に多く見られる試験片エッジ部への破壊の集中というエッジ効果はほぼ認められませんでした。

② 1/2 円管のフープ強度試験への AE 技術の適用検討

1/2 円管形状の試験片で C リング圧縮強度試験を行い破壊試験時の損傷蓄積過程の評価を行いました。その際、平板材で認められたエッジ効果の有無を明らかにするため、異なる奥行き長さの試験片を用いた評価を行いました。フープ強度試験は供試材から長さ 2、4、8mm に切断した円管を、更に縦に 2 等分した C リング状の試験片 (外径 12mm/内径 10mm) を用いました。軸引張試験と同様に、試験片エッジ部に AE センサを設置し、損傷モニタリングを実施し、試験後、位置標定により間引きした AE データをもとに、損傷蓄積過程の評価を行いました。

図 3.2-13 に C リング圧縮法によるフープ強度試験における応力 - ひずみ曲線と、同時測定した AE のエネルギー蓄積の様子を示します。異なる奥行き長さの試験片の結果を比較しました。いずれの場合も、比例限度応力ではほとんど高いエネルギーの AE の蓄積は認められず、ある程度破壊が進行した後に、ひずみ蓄積に関連すると思われる高エネルギーの AE の発生を検出しました。



(c) フープ応力 - ひずみ曲線と AE エネルギーの蓄積の様子

図 3.2-13 C リング圧縮強度試験の概要及び AE エネルギー蓄積の様子

なお、比例限度応力が奥行き 8mm の試験片が約 40MPa であったのに対し、奥行き 4mm、2mm の場合では約 20MPa と、ほぼ半減していました。これに対し、高エネルギーAE 検出応力は、いずれの場合も約 60MPa であり、ほとんど有意な差異は認められませんでした。

③ 円管バースト試験治具の開発

SiC/SiC 燃料被覆管の破損評価への AE 技術の適用のため、円管バースト試験への AE の適用を考慮した治具の設計を行い、試作品を製作しました。具体的には、円管試験片に AE センサを直接貼り付けて行う直接損傷モニタリング手法の開発に加え、水中でのバースト試験時に水中を伝播する AE を水槽部分で検出し、三次元位置標定を行うことが可能な間接損傷モニタリング手法の開発を目的とした多目的治具の設計と試作品の製作を行いました (図 3.2-14)。

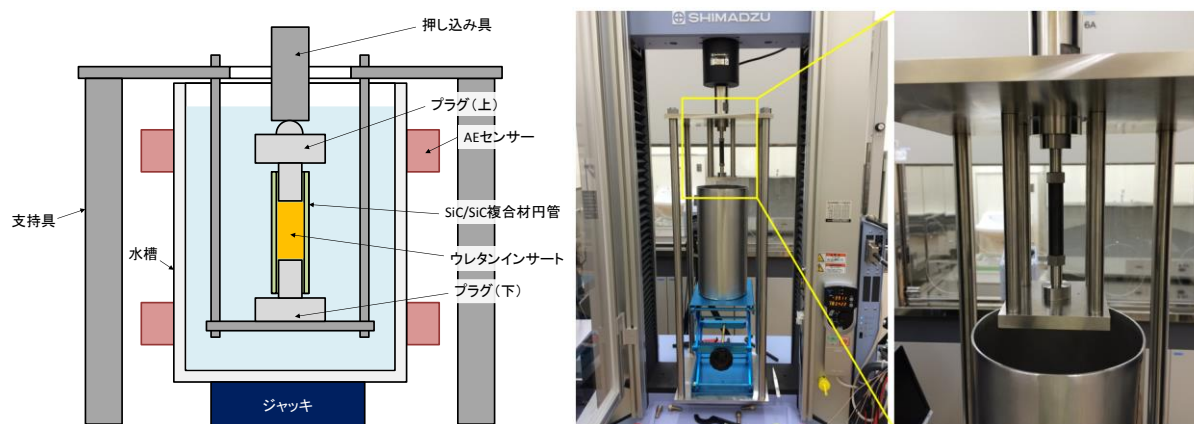


図 3.2-14 円管バースト試験具の概略

(3) SiC/SiC 燃料被覆管の AE 計測データ処理・解析装置の開発 (H27)

SiC/SiC 燃料被覆管の破損評価への AE 技術の適用のため、円管バースト試験への AE の適用を考慮した治具の設計を行い、試作品を製作しました。具体的には、円管試験片に AE センサを直接貼り付けて行う直接損傷モニタリング手法の開発に加え、水中でのバースト試験時に水中を伝播する AE を水槽部分で検出し、三次元位置標定を行うことが可能な間接損傷モニタリング手法の開発を目的とした多目的治具の設計と試作品の製作を行いました。

(4) SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュール用 AE 計測データ処理・解析装置の開発 (H28)

AE 解析による、SiC/SiC 被覆管のき裂進展と境界層破壊の判別技術をもとに、SiC/SiC 燃料被覆管集合体モジュールのき裂進展と境界層破壊の判別技術構築を行うことを目的としました。具体的には、今までに検討を進めた水中伝播 AE 法による SiC/SiC 円管の破損評価手法を新たに SiC/SiC 燃料被覆管モジュールに適用し、得られた水中伝播 AE 信号の位置標定と波形解析を行うことで破損過程の特徴について整理しました。ダミー被覆管を配置した模擬燃料体系の概略を図 3.2-15 に示します。

水中伝播 AE 法による破損源の位置標定手法を、燃料被覆管モジュール試験に適用した結果を図 3.2-16 に示します。平面のズレは配置したダミー燃料被覆管による遮蔽により、また高さのズレは治具の支持部 (試験体下側にあるステンレス鋼製プレート) による遮蔽

により、各センサーへの AE 信号の到達時間が遅延する影響があり位置標定精度に改善の余地はありますが、当初目標であった燃料被覆管の破損検出技術の開発と破損位置の推定に十分な見通しを得ることが出来ました。

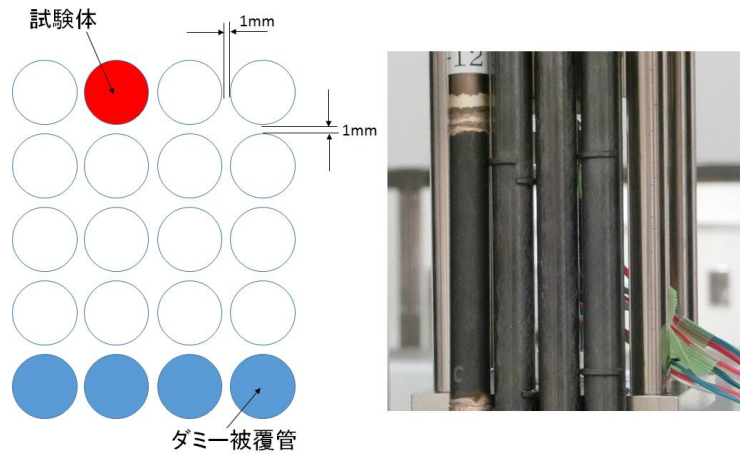


図 3.2-15 ダミー被覆管を配置した模擬燃料体系の概略

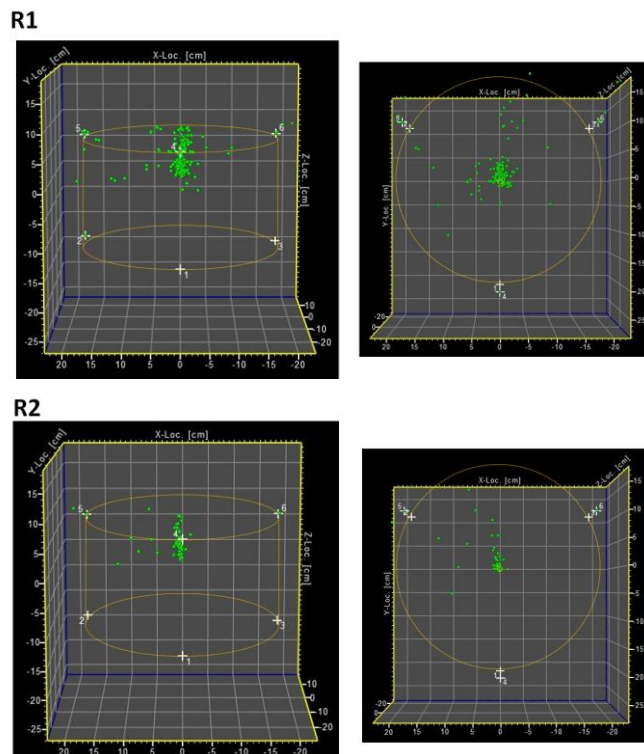


図 3.2-16 ダミー被覆管を配置した模擬燃料体系でのき裂発生位置標定結果

3.3 SiC/SiC 燃料被覆管の耐環境性影響評価

3.3.1 冷却材共存性評価（再委託先：大阪大学）(H24～H28)

SiC の高速炉への適用検討として、液体金属 Na との共存性評価を行いました。

(1) ナトリウム浸漬試験：静的

Na 浸漬試験用溶融るつぼを設計し静的共存性評価を行いました。るつぼは材質が SUS316、外径 $\phi 30\text{mm}$ 、内径 $\phi 25\text{mm}$ 、高さ 30mm の円筒状容器であり、下部面はより熱を受けやすくするために $\phi 50\text{mm}$ 、厚さ 3mm の円板となっています。SiC 試験片は $2\text{mm} \times 2\text{mm} \times 3\text{mm}$ の角片でした。

静的 Na 浸漬試験は、グローブボックス (GB) で十分に酸素濃度が下がるまで窒素置換を行い、ヒーター上に設置したるつぼに金属 Na 塊 1 つ (1g) を溶解させて実施しました。既存の GB は気密性が十分に確保されておらず (酸素濃度：1~5%程度)、時間の経過と共に Na の表面が酸化・潮解してしまいました。デジタルマイクروسコープや SEM を用いた浸漬後の試験片表面解析からは浸漬前にはなかった欠損が見られますが Na 浸漬によるものとは考えられませんでした。

(2) ナトリウム浸漬試験：流動

高速炉における実使用環境では、燃料被覆管周りでは冷却材は流動しており、そのような状態での共存性に関する知見が必要不可欠となります。流動環境を実現できる試験装置の設計・製作、及び Na 流動浸漬試験を実施し、流動環境下における共存性に関する検討を行い以下の結果を得ました。

① ナトリウム浸漬流動装置製作

流動環境下での共存性試験用の Na 浸漬流動試験装置の設計・製作を実施し (図 3.3-1)、試験は GB 内の不活性ガス雰囲気で行いました。攪拌用プロペラで試験片部を流動 Na 環境下に置きます。運転温度は最高 550°C とし設計温度は 600°C としました。試験片ホルダーは周方向 120° 毎に計 3 つ、中心から 20mm の距離としました。実機高速炉内の燃料付近の流速を考慮し、流速は最大で 6m/s 、回転数に直すと 3000rpm を可能としています。

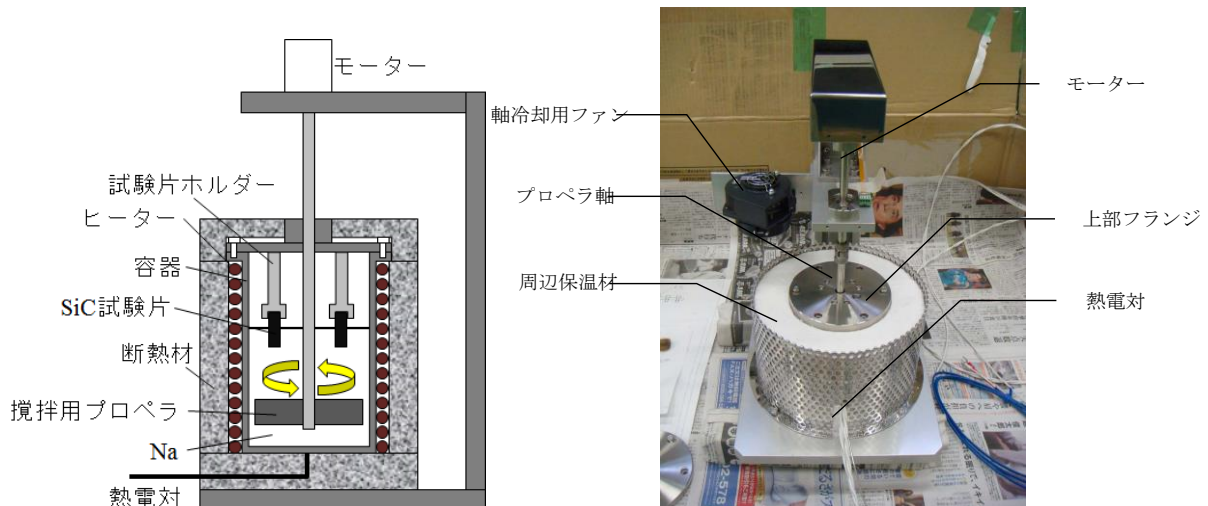


図 3.3-1 Na 流動浸漬試験装置の概念図と本体外観

② ナトリウム浸漬試験：流動

$20\text{mm} \times 10\text{mm} \times 2\text{mm}$ の板状 SiC/SiC 試験片を用い、温度 300°C 、Na の流動速度が試験片位

置で約 1.6 m/s の条件で Na 流動浸漬試験を合計流動浸漬時間 12 時間で行いました。走査型電子顕微鏡 (SEM) 及びエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDS) にて表面分析を行った結果、Na との反応に伴う損耗や反応は検出されず、優れた共存性が確認されました (図 3.3-2)。ただし、温度が 300°C と高速炉の炉心条件より低く、流動浸漬時間も 12 時間と短いことから、より高温・長時間での評価が課題であり、Na 沸騰・流動に対応する試験装置改良に移行しました。

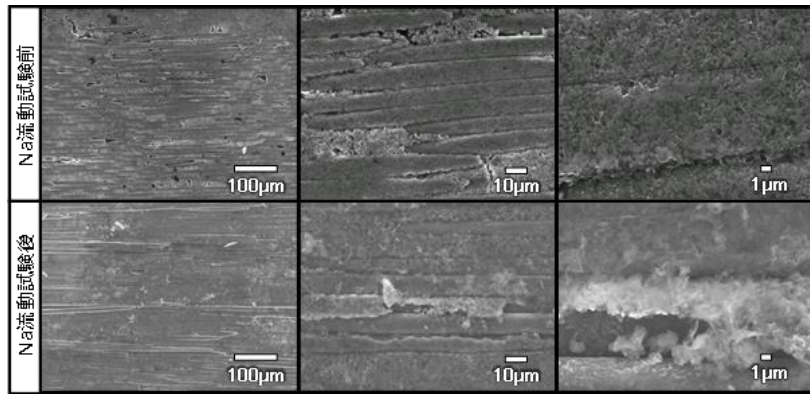


図 3.3-2 Na 流動試験前後の SiC/SiC 試験片表面 SEM 像

(3) SiC/SiC 燃料被覆管試験 (H26~27)

実用環境に近づけるため、円筒から削りだした円弧型試験片及び被覆管形状である円管試験片をいた Na との共存性試験を実施しました。まず、図 3.3-3 のように円弧型試験及び円管試験片に対応する改良型上部フランジを作製し、Na 流動浸漬試験装置に取り付けました。プロペラによる攪拌流動をさせて、流動 Na に試験片が接触するようにしました。

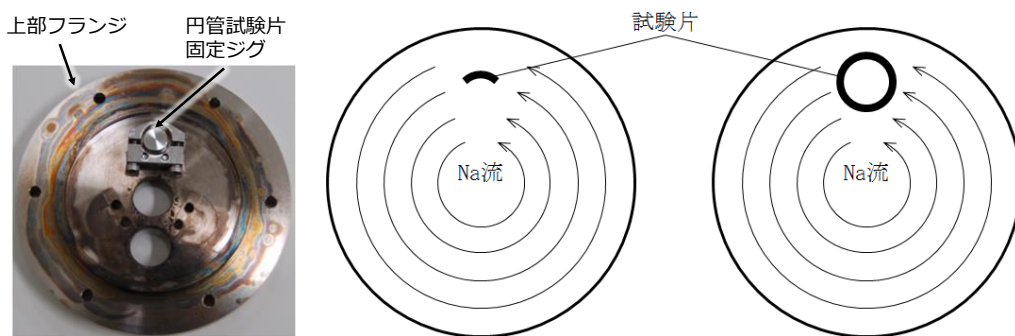


図 3.3-3 改良型上部フランジの外観と円弧型試験・円管試験での Na 流れの概念

図 3.3-4 に Na 浸漬試験後の SEM 観察画像を示します。Na 流れが直接に当たる面(表)において僅かですが一部の繊維/マトリックス間の炭素界面部が浸食される特徴的な表面構造が見られます。しかし、当たらない面(裏)には変化が認められず、全体としては健全な表面を維持していることが確認され、円管構造においても Na 中で SiC/SiC 被覆管は十分な耐性を持つことを確認することができました。

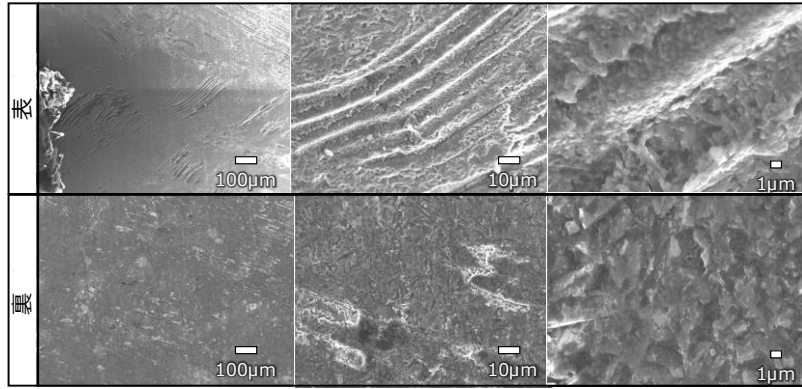


図 3.3-4 Na 流動環境下共存性試験後の円管試験片表面 SEM 像
(表 : Na 流れに対向、裏 : Na 流れ無し)

(4) 沸騰・流動ナトリウム共存性試験 (H28)

これまでの Na 共存性試験では流動条件であるものの、装置的な制約により試験温度は 350°C 程度までと限定的でありました。過酷事故時を想定した際に重要となる Na 沸騰における耐性を検証すべく、図 3.3-5 に示すような Na の沸点 (881°C) より高く加熱できるコンパクトな Na 沸騰装置を設計・製作を行うと共に、Na 沸騰条件での共存性実験を実施しました。

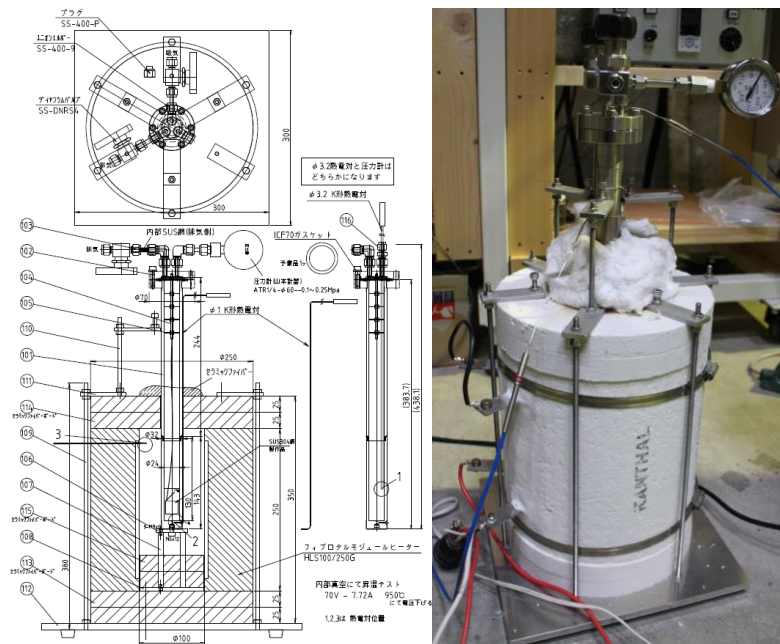


図 3.3-5 Na 沸騰装置設計図面及び外観

炉内温度は~920°C程度、約 1.2 気圧程度であり、内部の伝熱流動が生じる条件でテストを行いました。図 3.3-6 に示しているように、Na が沸騰状態 (900°C以上) にあっても SiC/SiC 燃料被覆管には腐食反応等が見られず、十分な耐性を持つことを確認出来ました。

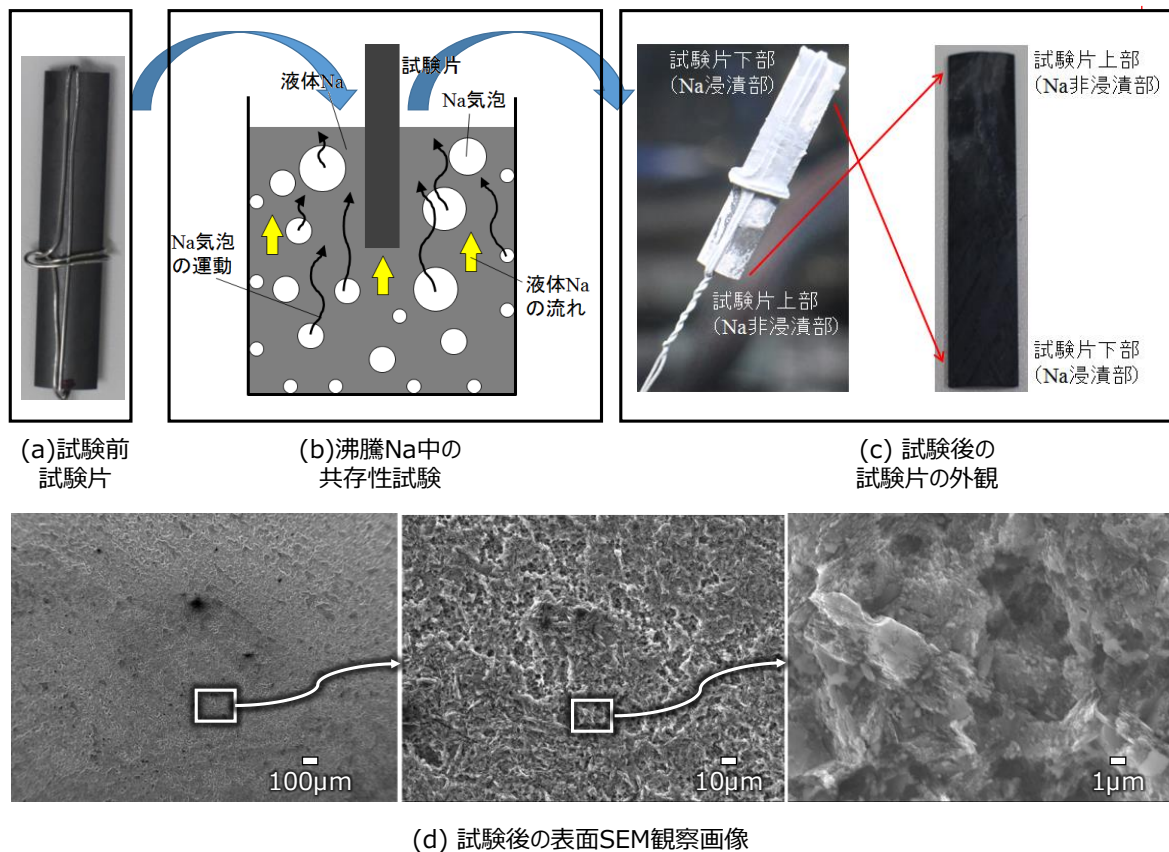


図 3.3-6 沸騰 Na 中の共存性試験の概要

Na との共存性を評価する静的な浸漬試験、平板、円弧、円管試験片での流動浸漬試験、そして沸騰浸漬試験のいずれにおいても、Na 浸漬による致命的な損傷や腐食は見られず、SiC/SiC 複合材料と Na との共存性は良好である事が確認出来ました。本試験結果により、SiC/SiC 複合材料を用いた新しい燃料被覆管の高速増殖炉での適用可能性が示されました。

3.3.2 中性子照射影響評価

(1) ハルデン原子炉照射実験 (H25~28)

① ハルデン原子炉照射用冶具設計・部品製作 (H25)

本サブタスクでは、世界でトップクラスの照射試験技術を有するノルウェー・ハルデン炉にて、NITE-SiC/SiC 被覆管の PWR 水環境下における中性子照射試験の実施に向けて、照射キャプセル及び照射用 SiC/SiC 被覆管セグメントの仕様、テストマトリックスを現地の研究者・技術者等との密接な協議により決定し、照射用リグ部品を製作しました(図 3.3-7)。また、照射用 SiC/SiC 被覆管セグメントを試作しました。このために必要となる燃料濃縮度解析及び熱流動解析も実施しました。本計画の目標出力は 20-25kW/m の範囲であり、燃料濃縮度は 4-5wt% としました。熱流動解析により安全裕度 1.5 以上確保できる運転条件を算出し、降水管での圧力損失も照射試験に影響を及ぼさない設計としました。

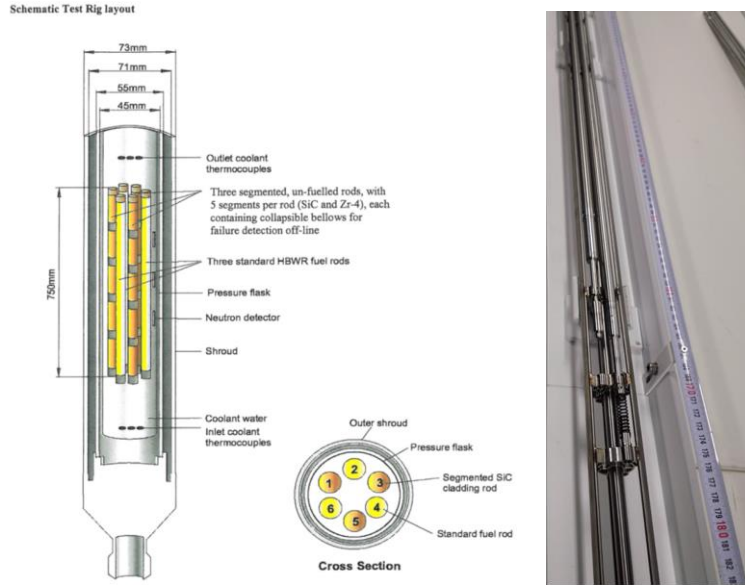


図 3.3-7 照射キャプセル概念図と照射リグ外観

② ハルデン原子炉照射リグ製作 (H26)

炉内照射試験用のジルカロイ管を両端に接合した SiC/SiC 被覆管セグメントを製作・送付した後、ハルデンで端栓密封した SiC/SiC 被覆管セグメントとブースター燃料ロッドを含む原子炉照射用リグを製作し、原子炉に装荷し照射実験を行いました。照射に先立ち、本体テストループ (Assembly Test Loop, ATL) で安全性の確認を行い、SiC/SiC 試験ロッドを照射用リグに組み立てました (図 3.3-8)。PWR 条件での照射試験の為に、高圧プラスチック装化ループシステム (Instrumented Loop System, ILS) を設置し、照射用リグを高圧プラスチックに挿入し PWR の代表的条件で運転される軽水高圧カループシステムに接続しました。

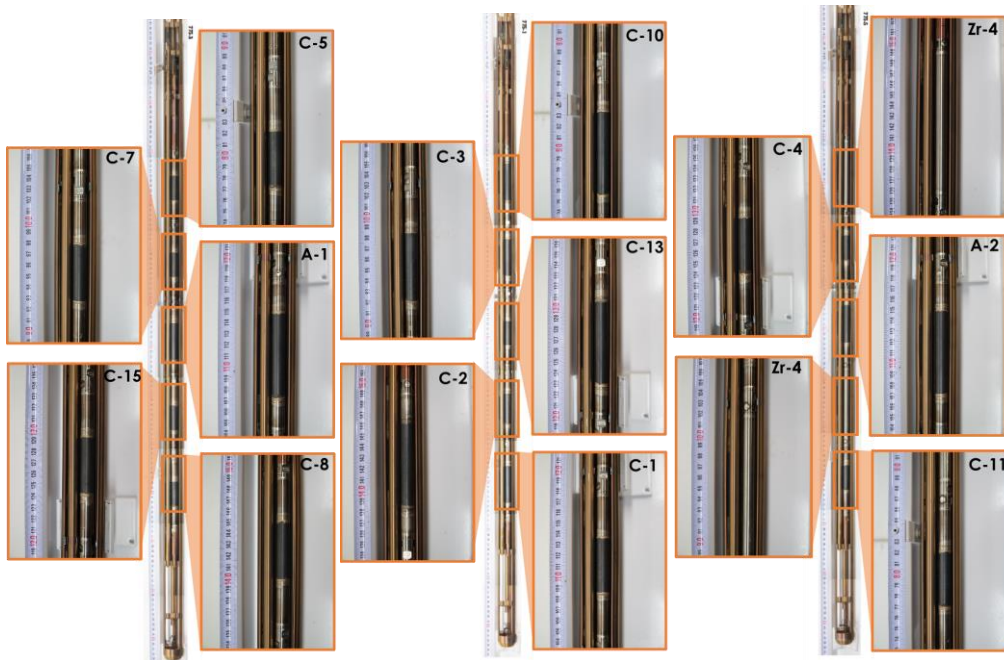


図 3.3-8 SiC/SiC 試験ロッドを装荷した照射リグ外観

③ ハルデン原子炉照射 (H27)

1) SCARLET 1st 照射試験

図 3.3-9 に示すように HBWR で1サイクルの照射試験を行いました。照射後外観検査は原子炉に隣接するホットセル内で行った後、照射用リグからすべての SiC/SiC 試験ロッドを取り出し、詳細な評価を行いました。

照射後の SiC/SiC 被覆管セグメントの外観検査および密封カプセル内圧の変化のない事(渦電流測定より (図 3.3-10) から照射下での健全性が確認できました。一部のカプセルでの損傷や、照射後の試料の取り扱い及び中間検査中でのジルカロイ-4 端栓と SiC/SiC 燃料被覆管との接合部における破損がありました。SiC/SiC セグメントでの重量測定結果からごく僅かな重量減少が確認されたことも併せると、各構成要素 (SiC/SiC 燃料被覆管、ジルカロイ-4 端栓) 及びロウ材の腐食や照射リグの組み立て・装荷時等でのハンドリングによる損傷等、多くの原因が考えられます。大きな損傷要因として金属とセラミックス間での電位腐食の促進が考えられたため、SCARLET 2nd 照射試験においてはジルカロイ端管を排除した試料も装荷することとしました。

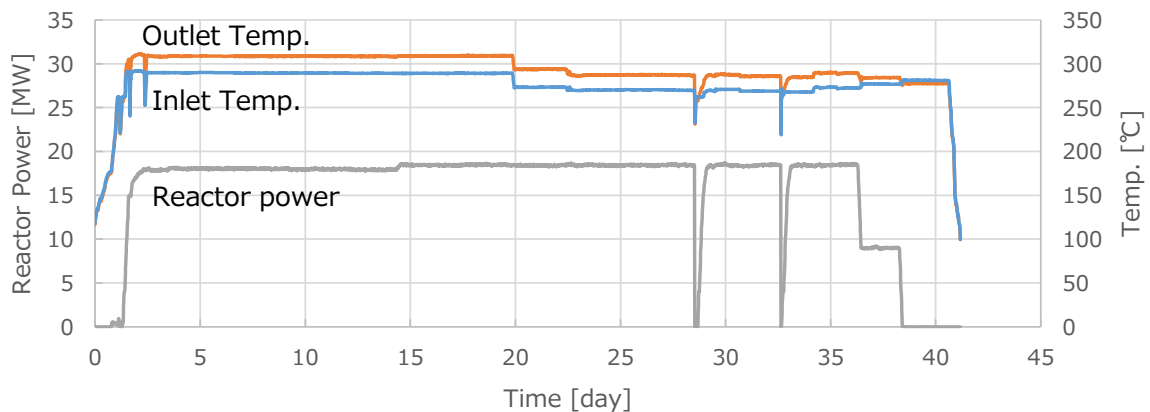


図 3.3-9 SCARLET 1st 照射実験の原子炉運転データ

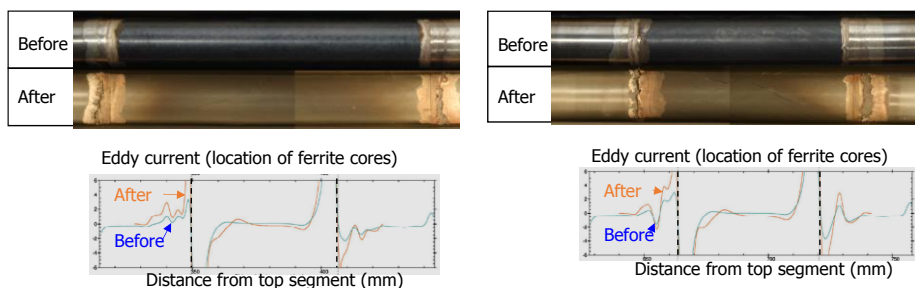


図 3.3-10 SCARLET 1st 照射前後の SiC/SiC 被覆管セグメントの外観と渦電流測定結果

2) SCARLET 2nd 照射試験

図 3.3-11 に照射試験片を装荷した SiC/SiC 試験ロッドの外観を示します。第一回照射試験におけるジルカロイ-4 端栓と SiC/SiC 被覆管接合部の破損原因を究明するために、SCARLET 2nd 照射試験では SiC/SiC 被覆管セグメントの他に、表面に化学気相蒸着 (Chemical Vapor Deposition, CVD) 法により耐環境性 SiC 被覆を施した SiC/SiC 被覆管 (耐環境性被覆の有効性確認のため)、各種ロウ材でジルカロイ-4 管と SiC/SiC 被覆管を接合した接合材 (炉水環境下における材料挙動へのロウ材の影響の確認のため)、SiC/SiC 被覆管同士を拡散接合した接合材 (ガルバニック腐食の排除及びオール SiC/SiC 被覆管セグメントの有効性の確認のため) のテストマトリックスを検討し、照射試験片を照射用リグに装荷し、SCARLET 2nd の照射実験を平成 27 年 9 月からの照射サイクルで実施しました (図 3.3-12)。

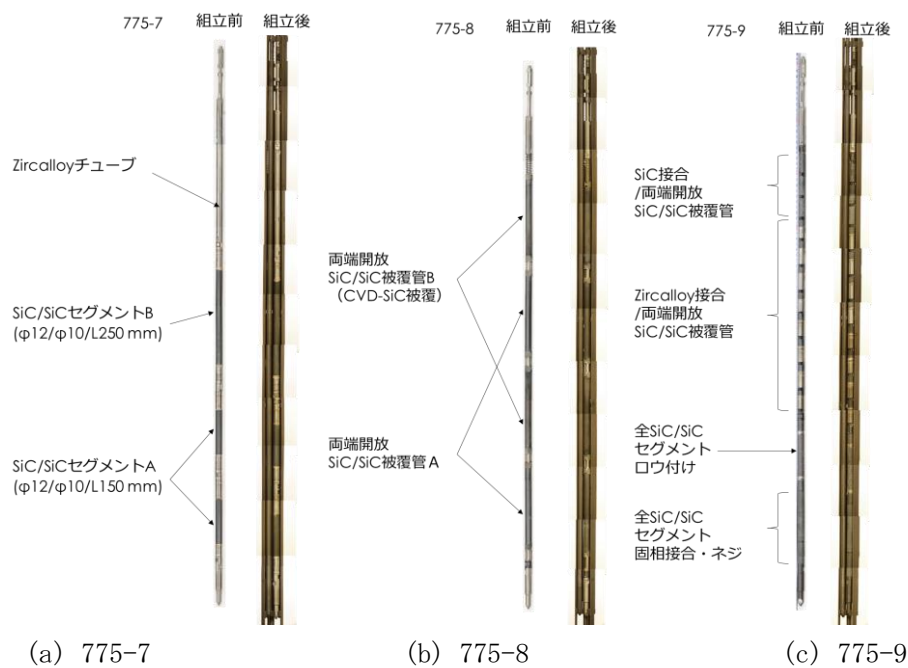


図 3.3-11 照射試験片を装荷した試験ロッド外観

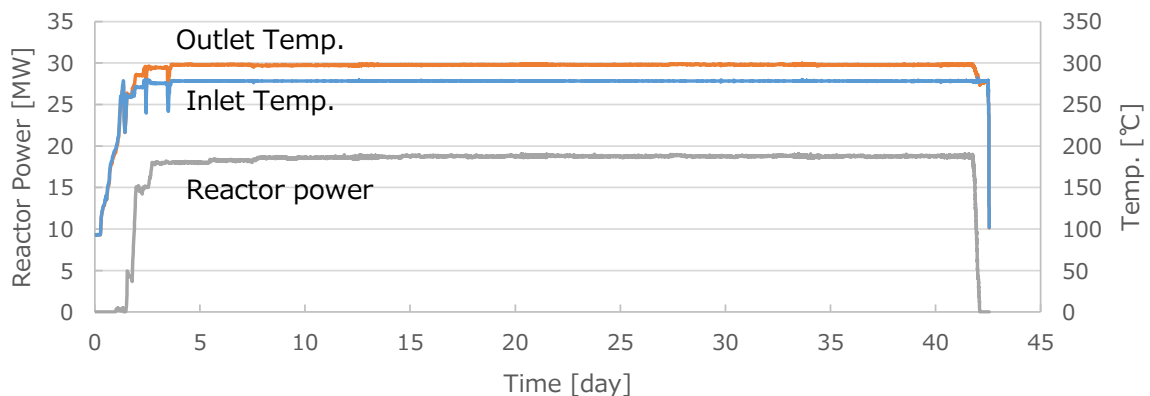


図 3.3-12 SCARLET 2nd 照射実験の原子炉運転データ

① 照射後試験 (H28)

ハルデン炉で照射した SiC/SiC 被覆管の照射後試験を開始するにあたりハルデン原子炉での技術打ち合わせを行い、照射後試験を実施しました。また、ノルウェーへ出張しハルデンプロジェクト拡大成果発表会において講演を行い成果を報告しました。

1) 表面観察・解析

照射済試料の取り出しとそれに続く重量・寸法・線量測定や表面観察は主としてホットセル内での遠隔作業を行いました。SCARLET 1st 照射試験でのロウ付け接合部におけるガルバニック腐食を検証すべく、固相接合により作製した全 SiC/SiC 被覆管セグメントの SCARLET 2nd 照射試験後の外観観察は照射後の残留線量が低いこともあり、ホットセル外での観察が可能となり日本より持参したデジタルカメラでの撮影を含めてより詳細な観察が出来ました。結果の一例を図 3.3-13 に示します。照射前のリグへの挿入ではそれぞれの試料の結合がねじにより行われ一体化されました。照射後はホットセル内で解体が遠隔操作で行われました。同時に固相接合材の照射前後も示されていますが、外観変化は見られず接合部の健全性が確認され、SCARLET 1st の SiC/SiC 被覆管セグメントのジルカロイ接合部での顕著な劣化は異種接合による電位腐食の影響である事が確認出来ました。ジルカロイ管を端管や端栓に用いた試験片はジルカロイの残留放射線が高くホットセル内での作業に限定される事に加えて、SiC/SiC 複合材料部のホットセル外への持ち出し(輸送のための最低条件)のためのジルカロイからの分離作業はホットセル内で行う必要があります、この作業の過程で強度試験を行なう方法の検討を行いました。最終的に金属材料の靱性評価に用いられる落重試験の応用が提案され、試験装置の試作及び測定系の図 3.2-14 に示すようなドロップタワー型試験装置の概要検討が行われました。室蘭での予備試験を経て、ホットセル内仕様の装置を製作し、ハルデンへ搬入しました。ハルデンのホットセルへの設置においては多くの改良が施され、図 3.3-14 のような装置が完成し、照射後試験が行われました。試験の高速カメラによる撮影は 1200 フレーム/秒で行われました。

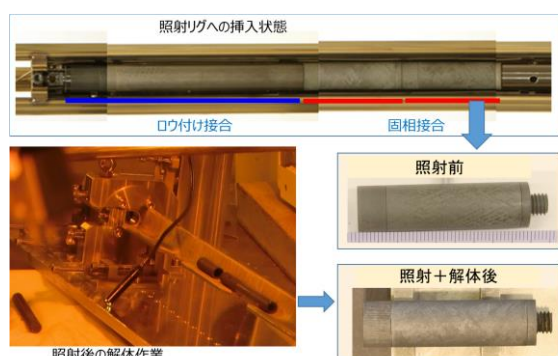


図 3.3-13 SiC/SiC 被覆管セグメントの照射リグへの挿入と照射後解体

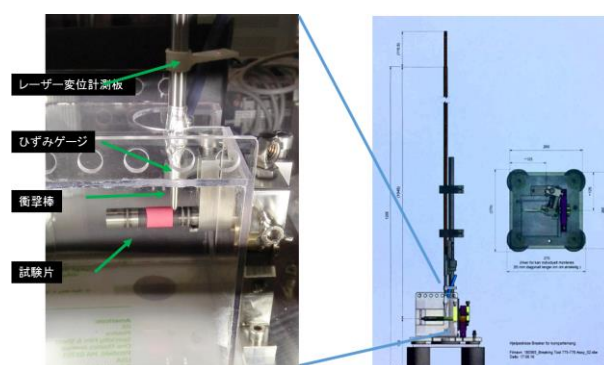


図 3.3-14 ドロップタワー試験装置の概略

この為のセットアップはホットセル外部から行われました。図 3.3-15 は高速カメラ画像の一部であり、破壊の進展状況が確認でき、SiC/SiC 燃料被覆管の信頼性の高さが伺えます。また、この際に得られた応力-変位関係は回帰曲線により解析され、図 3.3-16 に

示されるように4つのピークに分解できることが示されました。このピーク分解とその機構の解明はこれからの詳細な検討を待つこととなりますが、本試験法の有効性を示唆するものであり、今後本試験をさらに高度化させることで照射後試験法として規格化できるように進めたいと考えています。現状ではこのような簡便かつ高度な情報の得られる試験法は存在せず、本事業の成果として今後の活用が待たれます。

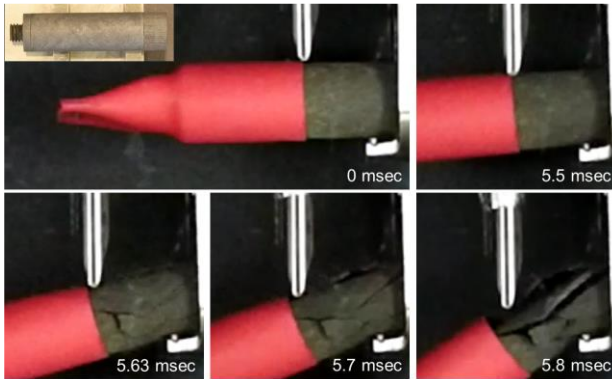


図 3.3-15 ドロップタワー試験中の
高速度カメラ画像

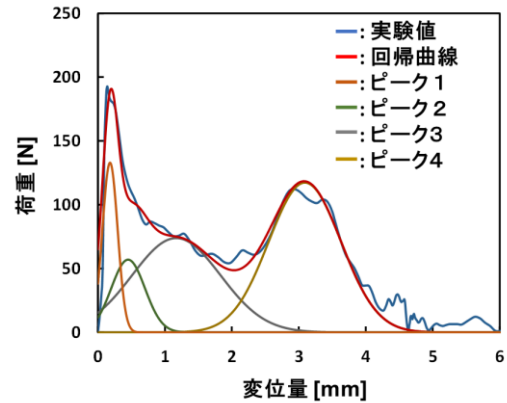


図 3.3-16 試験データの解析例

(2) BR2 原子炉照射実験（再委託先：東北大学）(H24～H27)（室蘭工大）(H28)

① 燃料照射用サブキャプセル試作 (H24)

装荷を予定する計装キャプセルの詳細寸法、計測線、配管の取り合いを考慮して、サブキャプセルの概念設計を実施し、三種類のサブキャプセルを試作しました。試作品については機械加工の適合性を確認し、設計値通りの加工精度を確認し、個々の部品の嵌め合いの確認後端栓の電子ビーム溶接が施工できることも併せて確認しました。

② BR2 原子炉用サブキャプセル製作 (H25)

中性子量、照射温度等に関する BR2 原子炉側との協議・検討を受けて、BR2 炉用 CALLISTO キャプセルを設計・製作しました。作製した CALLISTO キャプセル外筒内に照射用試験片を挿入後、ヘリウムガスを封入して、完成品としました。

③ BR2 原子炉照射 (H26)

BR2 原子炉に作製した CALLISTO キャプセルを装荷し、中性子照射試験を実施しました。中性子照射条件は温度 290℃、雰囲気 He、中性子フルエンス 0.5、 1×10^{24} n/m² です。SiC/SiC 複合材料の推定損傷量は 0.05、0.1 dpa に対応します。

④ BR2 原子炉照射試験片の照射後試験と熱履歴試験 (H26-H28)

BR2 原子炉照射試験片の照射後試験と照射熱履歴を模擬した試験片の比較試験を実施しました。図 3.3-17 に3点曲げ試験結果を、図 3.3-18 に強度試験後の破断面を示します。照射材、熱履歴試験材ともに非照射材と同等以上の強度特性を示し、破壊挙動に違いのない事を確認しました。

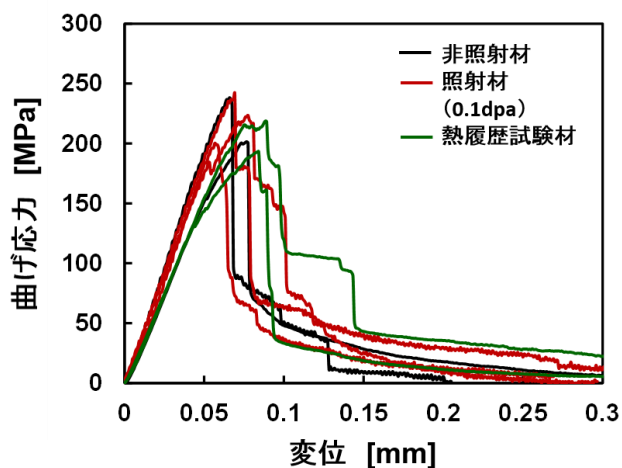


図 3.3-17 照射材及び熱履歴試験材の三点曲げ試験結果

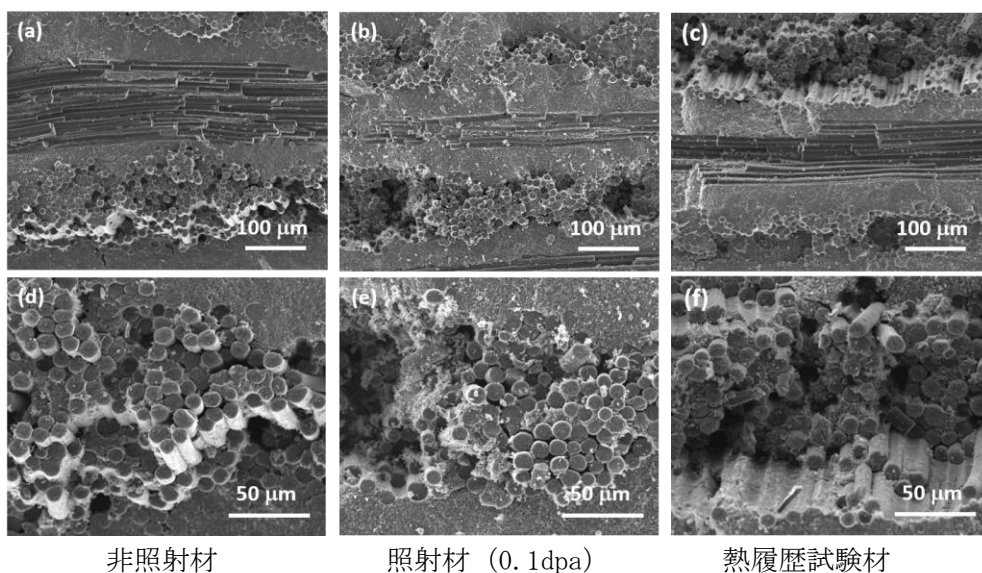


図 3.3-18 三点曲げ試験片の破断表面：

3.4 工学・安全設計（再委託先：原子力機構）（H24～H28）

3.4.1 適用性評価

(1) 燃料被覆管の熱構造解析 (H24)

① 試験片の照射温度の解析条件

SiC/SiC 燃料被覆管の核熱計算を JMTR 照射場条件で行い、具体的には燃料領域の中心近くの J-9 位置と燃料領域の外側の G-6 位置の照射孔を選定しました。解析の対象は、水環境模擬照射装置内とし、キャプセル中心から外周に向かって試験片、熱媒体、外筒の順に配列しました。

② 試験片の照射温度の解析結果

飽和温度キャプセル熱計算コード SATCAP 及び 3 次元有限要素法汎用解析コード FINAS/STAR を用い、照射下における各キャプセルの試験片の温度予測を行いました。

③ 熱応力に対する評価

中性子照射下のキャプセル外筒にガンマ加熱により発生する熱応力を算出し、原子炉一次冷却水とのバウンダリーを構成する外筒の強度評価を行いました。

④ 照射下の外筒温度及び熱応力の計算

飽和温度キャプセルの外筒について、FINAS/STARにより熱応力を計算しました。

⑤ 外筒の応力評価

JMTR キャプセル等設計基準に従い、外筒に加わる1次応力と2次応力の総和が、許容応力 (107MPa at 200°C) の3倍未満であることを確認しました。

BWR条件では、J-9、G-6ともに許容値を下回っていますが、PWR条件では、外径φ60mmでは許容値を超えていました。これらの検討結果を平成25年度以降のBR2炉およびハルゲン炉での照射実験に適用し、核熱設計を実施していく事としました。

(2) 安全設計検討 (H28)

① SiC/SiC 燃料被覆管の原子炉への適用のための安全設計検討項目

新規基準での大幅に強化された「設計基準」について検討し、安全設計の妥当性評価について、「運転時の異常な過渡変化」と「事故」の影響について検討しました。その結果、SiC/SiC 燃料被覆管適用時の安全設計では材料の違いによる観点の妥当性検討の重要性を指摘しました。

② 冷却材喪失事象に対する試験研究項目の検討および課題抽出

冷却材喪失事故 (LOCA) の概要確認に従い、現行 Zr 系燃料棒に関する試験研究のレビューを行い、LOCA 時の安全規制基準に至る経緯を含め概要を示しました。この結果を受けて SiC/SiC 燃料被覆管の LOCA に関する試験研究項目の検討と課題抽出を行いました。

③ 反応度挿入事象に対する試験研究項目の検討および課題抽出

反応度事故の概要確認に従い、現行 Zr 系燃料棒の反応度事故対応に関して試験研究のレビューと現行安全指針への結果の反映を示しました。続いて SiC/SiC 燃料被覆管の反応度事故に関する試験研究項目の検討と課題抽出を行い、ペレット組成・製造等の最適化研究が、基本的かつ重要な課題になる事を指摘しました。

④ 過酷事象に対する試験研究項目の検討および課題抽出

過酷事象に対する研究項目の背景より、SiC/SiC 燃料被覆管の利用における注目すべき視点が示されました。中でも高温酸化反応特性に関してより詳細な検討の必要性を述べ、課題抽出を行いました。

3.4.2 加圧水環境下安定性

(1) 飽和温度キャプセル詳細設計

① 飽和温度キャプセル内の照射試料の配置

中性子照射試験は、当初軽水炉水環境条件（BWR 条件及び PWR 条件）を模擬する飽和温度キャプセルで計画されました。このため、JMTR での一般的な外径 $\phi 40\text{mm}$ と $\phi 60\text{mm}$ のもので設計検討を進めました。また、炉内の配置等についても検討しました。

② 飽和温度キャプセルの設計条件

飽和温度キャプセルの設計条件を表 3.4-1 に示します。

表 3.4-1 飽和温度キャプセルの設計条件

①最高使用圧力（外圧）	: 1.76 MPa
②最高使用圧力（内圧）	: 10 MPa（BWR）、17 MPa（PWR）
③最高使用温度（端栓）	: 300 °C（BWR）、375 °C（PWR）
④最高使用温度（外筒）	: 175 °C
⑤最高使用温度（保護管、レギュレーサ）	: 100 °C
⑥キャプセル内供給水	: 軽水
⑦外筒の外径	: 40 mm、60 mm

③ 飽和温度キャプセルの構造

外径 $\phi 40\text{mm}$ もしくは $\phi 60\text{mm}$ のステンレス製の外筒及び上・下部端栓から成る密閉構造の一重管内に、照射試料、熱媒体、スプリング、支柱、スペーサ、給・排水管を配置し、その上部に給・排水管及び計装配線を包蔵する保護管が接続される構造としました。

④ 飽和温度キャプセルの強度計算

飽和温度キャプセルは、中性子照射試験中に外圧及び内圧により生じる応力（1次応力）、と熱応力（2次応力）に対し健全性を維持することが求められます。この観点でキャプセルの強度設計を行いました。

(2) 炉外実験用装置設計・製作（H25）

炉外試験のための水蒸気加熱装置の試作を行い、性能確認を行いました。また、既設の熱重量測定装置を併用し SiC 試料について酸化予備試験を実施しました。

(3) 炉外実験（H26～H27）

SiC/SiC 被覆管の環境安定性を確認するため、炉外試験として水蒸気を含む空気中での酸化試験を行い、試験温度 1000°C、試験時間 2 h での重量変化を測定し、併せて微細組織観察及び化学分析を行いました。供試材はジルカロイ-4、モノリシック SiC（NITE-SiC 及びヘキサロイ）、NITE-SiC/SiC 被覆管材です。本試験の露点条件のすべての範囲内におい

て、SiC 材料の重量変化はジルカロイ-4 に比べて 1/40-1/100 程度と非常に小さく、水素発生量は、ジルカロイ-4 に比べて 2-7%程度で顕著に小さいことを確認しました。

(4) 照射後実験 (H28)

ハルデン炉内・加圧水環境下で中性子照射された SiC/SiC 被覆管試料より、日本への輸送及び東北大学大洗施設の共同利用設備での照射後試験に適した試料材料を選別し、日本へ輸送しました。更に、これらの試験材料の照射後試験を実施しました。

① 照射試料の輸送

ハルデン炉で中性子照射された試料より、東北大学大洗施設での受け入れ条件に適合する試料を選定しました。平成 28 年 8 月に東北大学大洗施設へ輸送・受け入れを完了しました。

② 外観観察

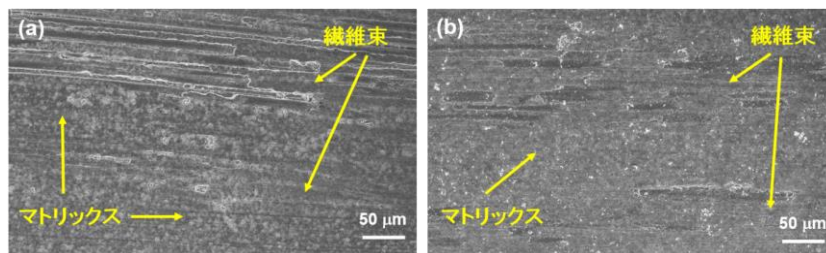
目視による観察からは ID 刻印部も含め、試料の外観変化は認められませんでした (図 3.4-1 SiC/SiC 試料の照射後の外観)。



図 3.4-1 SiC/SiC 試料の照射後の外観

③ 微細組織観察

SEM による微細組織観察から本倍率においては、繊維束領域およびマトリックス領域ともに流動冷却水による損傷・損耗 (クラックの形成や繊維束及びマトリックス領域単位での脱離) は観察されず、ハルデン炉水内・中性子照射環境下での SiC/SiC 燃料被覆管の健全性が確認できました (図 3.4-2~4)。また SiC/SiC 複合材料の高靱化の重要な要素である SiC 繊維への炭素被覆層の維持も確認できました (図 3.4-3 (c)、(d))。



(a) 照射前

(b) 照射後

図 3.4-2 照射による表面形状への影響

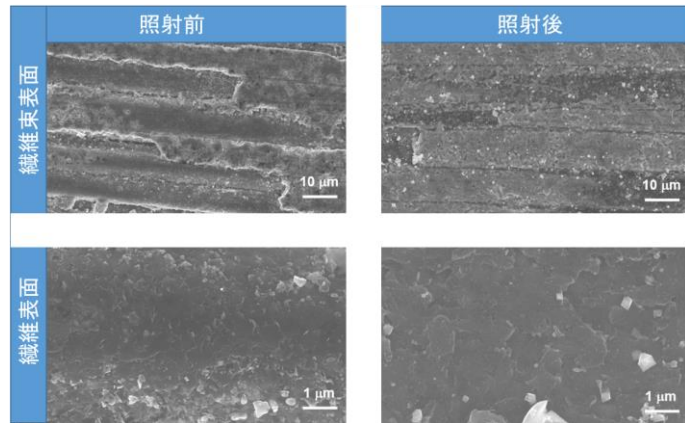


図 3.4-3 繊維束及び繊維表面形状への照射の影響

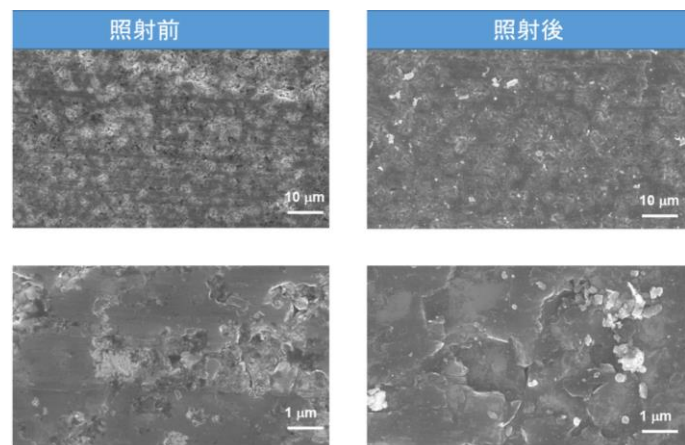
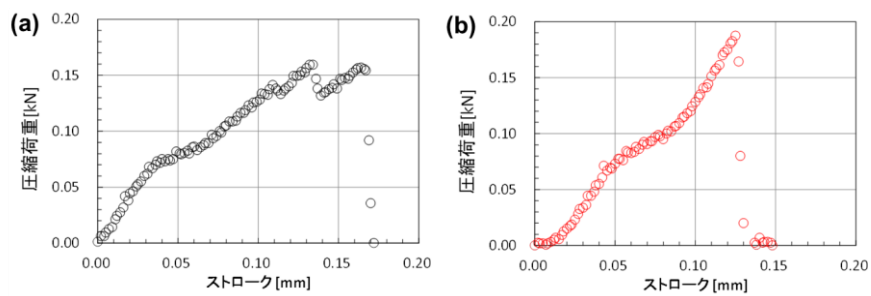


図 3.4-4 マトリックス領域表面形状への照射の影響

(5) LOCA 模擬試験 (H25~H26)

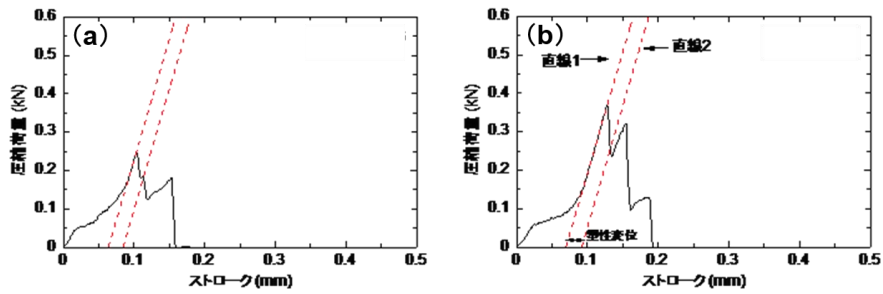
LOCA 模擬試験として、高温酸化（温度：1000~1600℃、時間：~2 時間、He-20% O₂）、高温水蒸気中酸化予備実験（温度：1000℃、時間：440~1800s、He-20% O₂、露点 30℃）を実施し、試験後の熱衝撃特性試験、外観観察、表面観察及び断面観察を実施しました。また、管状試料を対象としたリング圧縮試験を行い、図 3.4-5 に示す高温酸化急冷試験による強度特性変化を検討しました。



(a) 未処理材、(b) 高温酸化急冷試験後材 (1200℃、440s 酸化後)

図 3.4-5 高温酸化急冷試験後のリング圧縮試験結果

H26年度にはSiC/SiC被覆管の高温水蒸気中酸化試験（温度：1200℃、時間100～1800s）による熱衝撃特性変化を確認しました。酸化試験後は炉冷により700℃まで冷却後、冷水で急冷処理を行いました。試験後試料の外観、表面及び内部組織変化には変化は確認できず、リング圧縮試験による強度特性変化（図3.4-6）からもLOCA模擬実験による強度劣化のないことが示唆されました。



(a) 未処理材、(b) 高温水蒸気中酸化急冷試験後材
 図 3.4-6 高温水蒸気中酸化急冷後のリング圧縮試験結果

(6) LOCA 模擬試験と水素評価 (H27)

前年度からの継続としてLOCA 模擬試験を行い、さらに詳細な評価を行いました。酸化試験条件は温度：1000-1100℃、時間100～1800sとしました。試験後のマクロ観察からもき裂の発生など欠陥の発生は認められませんでした（図3.4-7）。

高温・水蒸気中環境下でのSiC/SiC被覆管の炉外酸化試験から発生水素量の評価を実施しました。水素発生量は、1000℃、2時間での酸化試験中の水素発生量とし、SiC材料ではジルカロイ-4の発生量に対して5%以下の水素発生であることを質量分析により確認しました。

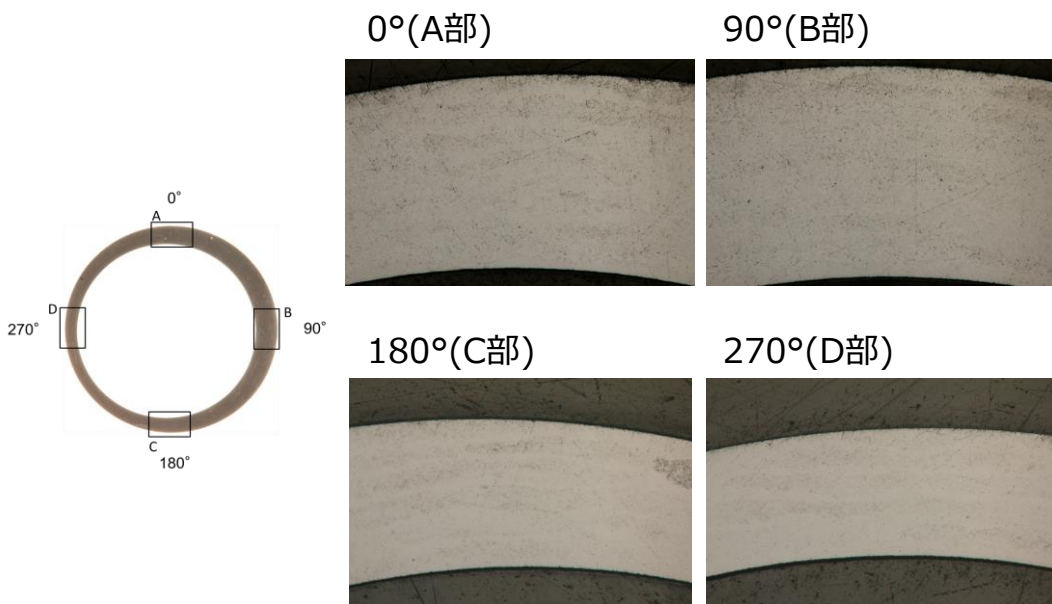


図 3.4-7 高温酸化急冷試験後の試料断面観察結果

3.5 研究推進 (H25～H28)

広く意見を聞きながら研究を進めるため委員会を設けました。委員会では SCARLET 計画の準備・実施状況の報告を行い、各年度における課題設定、実施結果に関する質疑応答による評価を受けました。また、計画全体についての助言や関連情報の紹介などをいただきました。最終年度においては、本活動の纏め・成果の有効活用に向けた委員会を開催しました。また、得られた成果は学術会議で積極的に発表しており、発表実績は全年度に渡って 48 件（国内 39 件、国外 9 件）です。また、学会誌・雑誌等における論文掲載実績は 7 件です。

4. 結言

4.1 まとめ

SiC/SiC 燃料被覆管の開発は国内も含め海外でも多くの大型研究が進められています。しかし、いずれも CVD/CVI(化学気相蒸着法・浸透法)を基本としており、製造コストは高く、プロセス時間も長いため大量生産に対応できることは困難と思われます。更に、高い気密性の確保や熱衝撃での安定性では限界が指摘されています。一方、本課題で採用している我が国の国際特許である NITE 法による燃料被覆管製造では将来的に大量生産に対応できる生産プロセスの開発に成功し、各プロセスの連続化により完全自動化の大量生産プロセスが現実的であることを提示しました。また、目標であった 1m の長さの被覆管の製造にも成功しています。この被覆管がジルカロイ管と同等の気密性を達成したことは世界初のことです。また、開発したアッセンブリ技術により製造したジルカロイを端栓とする密閉型燃料ピンモデルにおいてジルカロイ燃料ピンと同等の気密性を達成し、ハルデン原子炉での炉内ループ実験の要求仕様をすべて満たし、本事業期間中に 2 度の照射実験に成功していることも世界最初の事例です。この実験により炉水中への Si の溶出挙動のデータが得られており、2 度の照射実験を通して炉水条件を制御することにより炉水への Si 溶出を制御できることを実証する水化学データが系統的に得られたのも世界初の成果です。また、ジルカロイと SiC/SiC の接合材料の照射により接合部の健全性が確認できたことも世界初のデータです。これらの挙動は炉外での高温加圧水環境での水化学反応試験により中性子照射効果の分離ということを可能としており、世界初のデータです。LOCA の模擬実験として実施した実験からは高温水蒸気中での優れた安定性が確認されており、安定性という意味では世界最高性能のデータが得られています。燃料被覆管の基本的な特性評価法や非破壊試験法の開発においては多くの新しい試みがなされ、被覆管の強度評価法として新しい試験法に依る結果が得られています。これらの結果はこれまで行われてきている引張試験等の結果と相関則を明らかにすることにより今後の材料評価に活用できる成果です。特に、ドロップタワー型試験装置の開発ではハルデン研究所の協力もあり、中性子照射後の燃料被覆管の落重試験として貴重な高速度カメラ映像・荷重/変位データの取得に成功し開発材料の構造安定性を示す事にも世界で初めて成功しています。多くの貴重な照射済試験片が未だにハルデンに保管されており、これらの照射後試験 (PIE) による大きな成果が見込まれますが、このような短期間に大量かつ多様な照射実験を完了したことは画期的な成果です。

本事業で開発した NITE 法による SiC/SiC 燃料被覆管製造技術とそれに伴う接合技術など、関連する技術統合も進んでおり、SiC/SiC 燃料被覆管が事故耐性燃料の開発における魅力的かつ

現実的な選択肢である事を示したのが最大の成果です。このような結論が得られた開発事業は世界初と考えます。小型とは言え、燃料集合体の部分モデルを考案・作製し、実用化への道を具体的な成果物によって示したことも大きな成果と考えます。

4.2 今後の展望、次のステップへの提言、今後実施すべき事項

室蘭工業大学を中心に、我が国の主要な研究機関の力を結集し多くの成果を上げており、本事業の継続により、更に大きな成果が上がる事が期待できます。既に今回の研究組織間では研究開発の更なる推進への目標設定や共有も進んでおり、研究・開発組織の強化も含め安全な原子力開発への貢献を強化できる活動であると考えます。

今後の展開については多くの要素があり、材料学的な面での知見の蓄積と高度化、更には欠落している重要なデータの取得などが挙げられます。工学としては燃料被覆管の製造プロセスの完成と関連するアセンブリ技術等の技術統合が急務であり、より適切な組織での開発も必要になるかもしれません。緒に就いたばかりである照射実験の必要性は言うまでもなく、経済的な視点や効率等を考えると JMTR 等の照射設備を失った我が国としてはハルデン炉や BR2 炉の高度利用が必要となりますが、本事業に関していえばハルデン炉で継続して照射実験を実施する事が強く望まれます。また、事故時の材料挙動模擬実験装置の整備・強化も望まれます。この材料に関して現在最も強く望まれているのは原子炉・炉水環境下での SiC の腐食損耗速度の確認と必要性能の達成であり、国際協力も含めて進めるべきであると考えます。

既に一部は EC の HORIZON2020 において取り上げられており、本事業の代表者も SiC/SiC 複合材料関連のタスクリーダーとして参画していますが、より大型の計画を我が国主導で進めることが事故耐性燃料の開発において我が国の主導権を将来的にも維持することにつながると考えます。

5. 研究業績

5.1 学会誌・雑誌等における論文

- [1] Y. Asakura, D. Hayasaka, J. S. Park, H. Kishimoto, A. Kohyama, “SiC/SiC Fuel Cladding by NITE process for Innovative LWR -Pre-composite Ribbon Design and Fabrication-”, Ceramic Transactions, 246, p.79-84 (2014)
- [2] C. Kanda, Y. Kanda, H. Kishimoto, A. Kohyama, “SiC/SiC Fuel Cladding by Nite Process for Innovative Light Water Reactorcompatibility with high Temperature Pressurized Water”, Ceramic Transactions, 246, p.85-9 (2014)
- [3] H. Kishimoto, T. Shibayama, Y. Asakura, D. Hayasaka, Y. Kohno, A. Kohyama, “SiC/SiC Fuel Cladding by NITE process for Innovative LWR -Concept and Process Development of Fuel Pin Assembly Technologies-”, Ceramic Transactions, 246, p.93-98 (2014)
- [4] Hisashi SERIZAWA, Yuuki ASAKURA, Hirotaka MOTOKI, Daisuke TANIGAWA, Masahiro TSUKAMOTO, Joon-Soo PARK, Hirotatsu KISHIMOTO, Akira KOHYAMA, “Development of Joining Method between Zircaloy and SiC/SiC Composite Tubes by Using Diode Laser”, Materials Science Forum, 879, p.1743-1748 (2016)

- [5] Daisuke HAYASAKA, Joon-Soo PARK, Hirotatsu KISHIMOTO, Akira KOHYAMA, “Gas leak tightness of SiC/SiC composites at elevated temperature”, Fusion Engineering and Design, 109-111 B, p.1498-1501 (2016)
- [6] Daisuke HAYASAKA, Hirotatsu KISHIMOTO, Akira KOHYAMA, “Helium permeability of high-performance SiC/SiC tube”, Journal of Nuclear Science and Technology, 53, p.2034-2039 (2016)
- [7] Hisashi SERIZAWA, Yuuki ASAKURA, Joon-Soo PARK, Hirotatsu KISHIMOTO, Akira KOHYAMA, “Development of Joining Method for Zircaloy and SiC/SiC Composite Tubes by Using Fiber Laser”, Ceramic Transactions, 255, p.177-184 (2016)

5.2 学会等における成果発表

- [1] 香山 晃, “事故耐性燃料開発における SiC/SiC 複合材料の位置づけと現状”, 日本原子力学会 2015 年 秋の年会, 静岡, 9 月 11 日, 2015
- [2] 朴 峻秀, 岸本弘立, 香山 晃, “NITE-SiC/SiC 被覆管の炉水環境下の化学的安定性”, 日本原子力学会 2015 年 秋の年会, 静岡, 9 月 11 日, 2015
- [3] 朝倉勇貴, 岸本弘立, 朴 峻秀, 中里直史, 香山 晃, 柴山環樹, “NITE-SiC/SiC 被覆ピンの端栓処理技術の予備的検討”, 日本原子力学会 2015 年 秋の年会, 静岡, 9 月 11 日, 2015
- [4] 岸本 弘立, 中里 直史, 朴 峻秀, 香山 晃, “NITE 法による SiC/SiC 燃料被覆管等の製造基盤技術に関する研究開発(SCARLET 計画)の現状”, 日本原子力学会 2016 年 春の年会, 宮城, 3 月 26 日, 2016
- [5] Kohyama, H. Kishimoto and J. S. Park, ““In-Situ” Neutron Irradiation Effects in SiC/SiC Fuel Pin Segments under Dynamic LWR Water Environment”, EHPG Sandefjord 2016, Sandefjord, Norway, May 10, 2016
- [6] 中里直史, 朴峻秀, 本間将人, 柳谷絵里, 岸本弘立, 香山 晃, “高温高压水中における NITE-SiC/SiC 被覆管の材料挙動に及ぼす溶存酸素量の影響”, 日本原子力学会 2016 年秋の大会, 九州, 9 月 7 日, 2016
- [7] Kohyama, J.S. Park, N. Nakazato, D. Hayasaka, Y. Asakura, E. Yanagiya, H. Kishimoto, “All SiC/SiC Cladding Irradiation in LWR Environments”, TOP FUEL 2016, Boise, Idaho, USA, September 13, 2016
- [8] Kohyama, H. Kishimoto, J.S. Park, “Large Scale Production of High Performance SiC/SiC Fuel Pins and the Behaviour under Dynamic Reactor Water in Halden BWR”, 2016 Materials Research Society Fall Meeting & Exhibit, Boston, Massachusetts, USA, December 1, 2016

他、40 件