

安全性を追求した革新的炉心材料利用技術に関する研究開発

研究代表者 林 大和 株式会社東芝原子力安全システム設計部
参画機関 株式会社東芝、国立大学法人京都大学、国立大学法人北海道大学
研究開発期間 平成24年度～27年度

1. 研究開発の背景とねらい

1. 1 背景

2011年3月11日の東日本大地震によって発生した津波により、東京電力福島第一原子力発電所では全交流電源喪失および最終ヒートシンク喪失が発生し、1号機から3号機にて原子炉冷却不全に陥った。その結果、燃料温度が上昇し、被覆管と水との酸化発熱反応が進んだため、酸化熱により燃料温度が急激に上昇し、炉心損傷に至ったと考えられている。その過程で、被覆管およびチャンネルボックス（ともにジルコニウム合金）の酸化反応に伴い発生した水素が格納容器から漏洩し、原子炉建屋内で爆発が発生した。損傷炉心より放出された放射性物質は、発電所外部の広範囲に拡散し、汚染を引きおこして社会に深刻な影響を与えている。このことから、軽水炉事故時のような高温でも化学的に安定で、金属に比べて高温水あるいは水蒸気と酸化反応しにくい（反応速度が小さい）セラミックス材を被覆管やチャンネルボックスといった炉心材料に適用し、酸化発熱反応による水素発生リスクおよび炉心損傷リスクを低減することは、原子力発電所から外部への放射性物質放出リスクを低減することにつながり、その利用技術開発は福島第一原子力発電所事故後の社会要請に応えるものであるといえる。

また、ウラン・プルトニウム資源の格段に利用効率向上を目指す革新炉として、低減速軽水炉がJAEAとメーカーの共同で開発が行われてきたが、低減速軽水炉では、稠密な燃料棒配置や炉心短尺化以外は軽水炉と共通であるため、セラミックス炉心材料利用技術は低減速軽水炉での安全基盤技術となり、さらには、超臨界圧水冷却炉への適用も有望と考えられている。

1. 2 研究開発のねらい

軽水炉と水冷却革新炉で使用するSiC複合材炉心材料（被覆管およびチャンネルボックス）の実用化を最終目標として、本研究ではその第一ステップとして、現存する種々の製法にて作製されたSiC単体およびSiC複合材試料を用いて、水環境における被覆管およびチャンネルボックス適用のための試験を行い、実用化の際に利用できるSiC複合材の基礎データを取得する。2012年度は、異なる作製方法によってSiC単体（モノリシック）試料を作製し、試料検査後、事故時のような高温水蒸気雰囲気での耐酸化特性を調べるために高温水蒸気酸化試験に供した。

2. 研究開発成果

2. 1 SiC試料作製

SiC複合材料は、SiC繊維、SiCマトリックス、繊維とマトリックス間の界面層で構成されるが、環境にさらされる部分はマトリックスであり、マトリックスの耐酸化特性や耐食性が重要となる。SiCマトリックスの特性は、その作製方法により異なってくるため、最適な作製方法を選択することが重要である。そこで、本研究では、化学蒸気浸透（CVI）法、液相焼結（LPS）法、

反応焼結 (RS) 法の異なる作製方法によってモノリシック SiC 試料を作製して、高温での耐酸化特性を調べるために、高温水蒸気試験に供した。モノリシック SiC 試料の作製は、腐食時の挙動が異なることが想定されることから、焼結助剂量等を変化させた LPS 及び Si と C の比率を変えた RS により、9 種類の試料を作製した。CVD 法で作製されるマトリックスの参照材として、化学蒸気蒸着 (CVD) 法で作製された SiC を購入し、合計で 10 種類の試料を準備した。表 1 に試料の種類をまとめる。微細組織の観察には、電子顕微鏡、光学顕微鏡等を用い、材料の気孔、不純物の成分や分散性等の検査を行った。

表 1 SiC 試料の種類

| 作製法 | 試料種類 (特徴) |
|----------------|---|
| 化学蒸気蒸着 (CVD) 法 | ・CVD(参照材) |
| 液相焼結 (LPS) 法 | <ul style="list-style-type: none"> ・LPS6(焼結助剤 6%) ・LPS12(焼結助剤 12%) ・LPS18(焼結助剤 18%) ・SM_LPS6(スパイクミル混合、焼結助剤 6%) ・SM_LPS6_GS(スパイクミル混合、グリーンシート化、焼結助剤 6%) ・SM_LPS6_Mix(スパイクミル混合、サブナノ粉末混合、焼結助剤 6%) |
| 反応焼結 (RS) 法 | <ul style="list-style-type: none"> ・RS (Si:C=1:1) ・Si-rich RS (Si:C=2:1) ・C-rich RS (Si:C=1:2) |

2. 2 試料検査結果

試料の微細組織観察代表例を図 2 に示す。CVD 材は LPS 材に比べ、気孔による欠陥がほぼ見えず緻密な組織を表している。また、LPS 材は助剤の局所的偏析と共に気孔が観察された。特に、LPS6 に関しては、焼結助剂量が比較的小さいため、助剤の過剰な偏析と不完全な焼結が生じたものと考えられる。

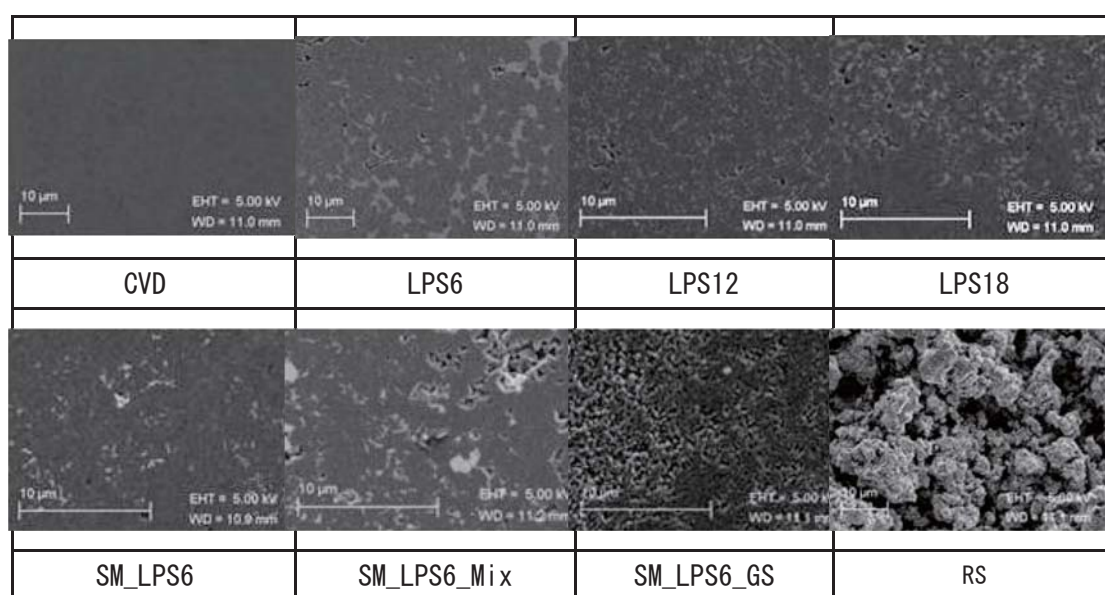


図 2 SiC 試料の微細組織写真 (代表例)

LPS12 と LPS18 材は LPS6 材より助剤の偏析サイズが小さく、LPS6 材よりも良く分散されているのが確認された。特に、LPS12 は助剤の分布が均一になったのが観察された。また、助剤の添加量の増加によって気孔の数が少なくなった。スパイクミル装置で混合した液相焼結 (SM_LPS) 材は、SM_LPS6_Mix 以外は、ナノ粉末のみを使用しており、助剤の偏析のサイズも小さく分散性も良く全体的に均一な組織が観察された。サブナノ混合粉末を用いた SM_LPS6_Mix では、比較的大きな気孔を助剤が埋めるような組織が観察された。グリーンシートを用いた SM_LPS6_GS では、比較的小さい気孔が多く観察された。RS 材は全体的に十分な緻密化が進まなかった。

2. 3 高温水蒸気酸化試験

高温水蒸気に対する耐酸化特性を観察するために、各種類 5 体ずつ (Si-rich RS と C-rich RS は 4 体) 1600℃での高温水蒸気酸化試験に供した。また、比較のために、ジルカロイ試料も試験に供した。試験手順は次の通りである。圧力 1 atm の N₂ ガス雰囲気中で昇温速度 250 °C/hr で昇温し、温度が 1600℃に達した後、雰囲気を圧力 1 atm、20 vol%の水蒸気に切り替えた。ここで、水蒸気濃度は、キャリアガスである N₂ と、バブラから発生する蒸気とを混合し、各気体の流量を調整することで制御した。水蒸気に切替えて 72 時間経過後、雰囲気を再度 N₂ ガスへ切替え、100 °C/hr 以下の冷却速度で室温まで冷却した。

2. 4 外観観察

図 3 に、高温水蒸気酸化試験前後の SiC 試料外観写真の代表例を示す。いずれの試料においても表面に SiO₂ と見られる白色の被膜が形成されていた。CVD 材は試験後に板状の形状を保っていた。LPS 材は、一部、損傷が見られる試料もあったが、ほとんどの試料は形状を保っていた。SM_LPS 材も、LPS 材と同様、ほとんどの試料は形状を保っていた。RS 材はいずれの試料にも著しい損傷が見られた。ジルカロイ試料は完全に酸化しきっていた。

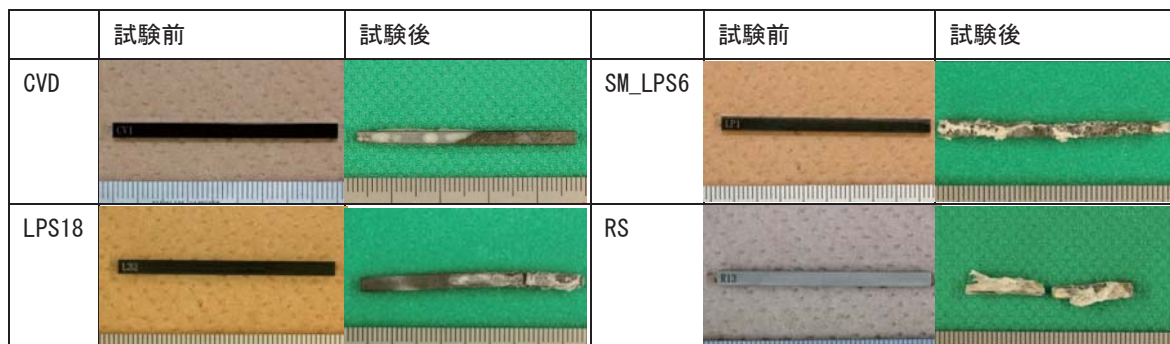


図 3 高温水蒸気酸化試験後の SiC 試料の微細組織写真 (代表例)

2. 5 断面観察

図 4 に高温水蒸気酸化試験後の試料断面観察結果の代表例を示す。CVD 材の断面には割れや気孔は観察されなかった。また、ほぼ均一に酸化されており、局所的な減肉も観察されなかった。LPS 材はいずれの試料においても、不均一酸化による減肉が観察された。LPS18 においては、試験片表面から内部に達するクラックが生じていた。SM_LPS6 材も、LPS 材同様、不均一酸化による減肉が観察された。反応焼結 (RS) 材はいずれの試料も著しく減肉していた。

画像処理により、試験前後の試料断面積を測定し、断面積の変化から平均的減肉速度を算出した。図5に減肉速度を示す。なお、RS材は減肉が著しく大きいため、図5からは除外している。CVD材は減肉速度が小さく、また、割れ等の欠陥もないため、耐酸化特性に優れていると言える。LPS18は、断面積から評価した減肉速度は小さくなっているものの、図4に示す通り、割れが生じているため、耐酸化特性に優れているとは言えない。SM_LPS6は、減肉速度はCVD材に比べて大きいものの、割れが生じておらず、有望な材料である。

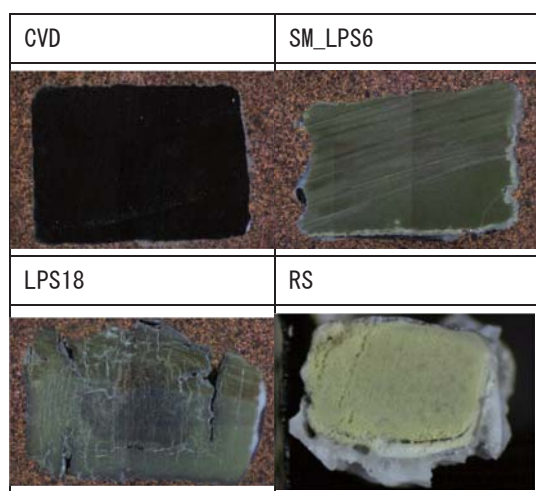


図4 高温水蒸気酸化試験後の試料断面代表例

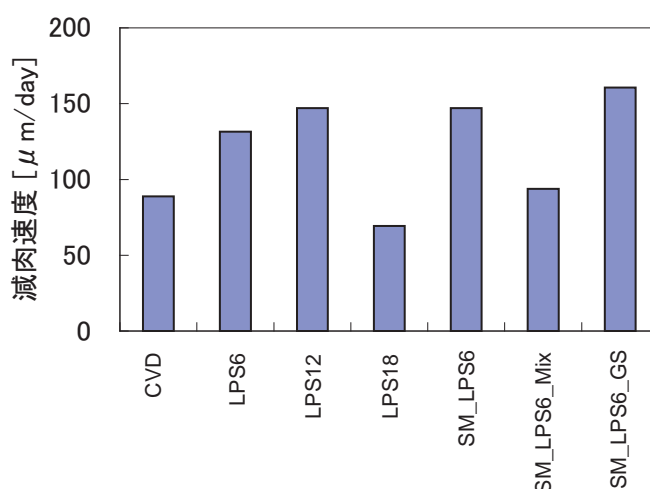


図5 断面積から評価した減肉速度

2. 6 その他の成果

東芝臨界実験装置を用いたSiC反応度特性試験について予備検討を行い、実験に必要なSiCサンプル数量等、実験体系を決定した。また、SiC微細組織変化に及ぼす照射・環境複合効果を超高圧電子顕微鏡にて調べるために、超高圧電子顕微鏡環境セルへ適用する酸素分圧制御器システムを調査し、その設計を行った。SiC-SiCの接合については、フィラー等の異物を介せず直接接合できるプラズマ放電接合装置の設計・製作を進めており、設計および装置の一部の製作を完了した。

3. 今後の展望

ジルカロイ試料が完全に酸化してしまう1600℃、水蒸気環境、72h時間の過酷な酸化試験においても、SiC試料は、作製法によって多少の違いはあるものの、酸化による減肉や損傷が小さいことが確認できた。今後は、通常運転条件での腐食挙動を調べるために、高温水オートクレーブを用いた腐食試験を進めていき、その他の試験や観察と合わせ、軽水炉や水冷却革新炉の炉心材料への適用検討に必要なデータを蓄積していく。