

# 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

(受託者) 株式会社東芝 電力システム社

(研究代表者) 小此木 一成 原子力安全システム設計部

(再委託先) 国立大学法人京都大学、国立大学法人北海道大学

(研究期間) 平成24年度～27年度

## 1. 研究の背景とねらい

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、反応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、被覆管及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、全交流電源喪失事故時のような高温環境下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。

本研究開発は、SiC（炭化ケイ素）セラミックス材料の炉心材料への利用を目指し、SiC 試料作製技術開発（マトリックス材、複合材）、通常時・事故時環境下での特性試験及び事故時安全性、燃料棒熱・機械挙動を解析評価した。

## 2. これまでの研究成果

### (1) SiC マトリックス材料の高温水蒸気酸化特性（事故時環境模擬）

液相焼結 SiC 材料（LPS 材）及び CVD（いずれもモノリシック）について事故時環境を模擬した条件で、高温水蒸気酸化試験（温度 1200、1400℃、大気圧、100%水蒸気雰囲気、72 時間）を実施した。図 1 は、腐食量と試験温度の関係を示す。Zry-2 と比較し、高温水蒸気中での SiC の酸化量は約 1/1000 に低減することを確認した。

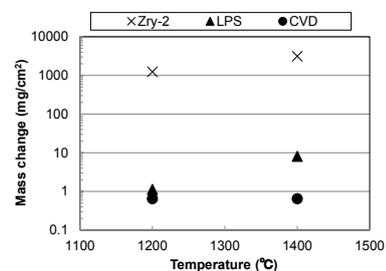


図 1 高温水蒸気試験結果

### (2) SiC マトリックス材料の高温水腐食特性（通常時環境模擬）

焼結助剤の添加量が異なる 3 種類の液相焼結材 LPS3、LPS6、LPS12 及び CVD（いずれもモノリシック）を用いた高温水腐食試験（320℃、20MPa、168h、溶存酸素量 8ppm）を実施した。試験結果を図 2 に示す。これより、SiC 材料は、腐食減量を示し、LPS 材は、CVD よりも腐食減量が大き

く、また助剂量増加に伴い、腐食減量も増加することを確認した。微細組織の結果を図 3(1)に示す。粒界に沿った脱粒痕が観察され、粒界中の助剤が溶解することにより、腐食が進行していると推定され、粒界の助剤形態が影響を及ぼしていると考えられた。そこで、粒界に安定的な助剤を形成させるために助剤組成を改良した条件で SiC 試料を作製し、腐食試験を実施した。微細組織観察結果を図 3(2)に示す。これより、改良 LPS では、脱粒が抑制されることを確認した。

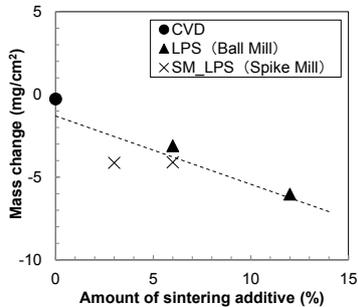


図 2 腐食の助剂量依存性

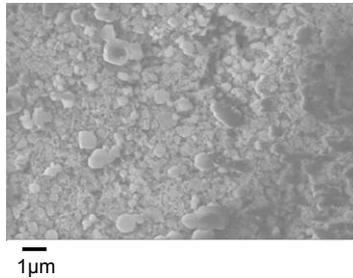


図 3(1) LPS 材の組織 (腐食後)

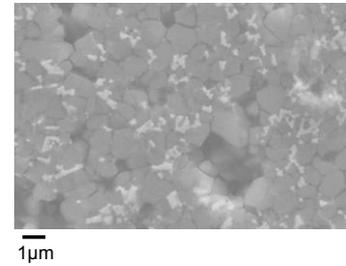


図 3(2) LPS 材 (改良助剤) の組織 (腐食後)

## (2) SiC 試料の照射試験

### ① イオン照射試験

中性子模擬照射としてイオン照射試験 (5.1 MeV Si イオン) を実施し、照射材の腐食試験 (320°C、20MPa、168h) を実施した。照射材の腐食試験結果 (図 4) から、照射領域で腐食が促進され、腐食速度は損傷量と相関があると考えられた (図 5)。図 6 は、腐食後の TEM 組織観察結果を示す。これより、積層欠陥、粒界上で、局所的に腐食することが分かった。

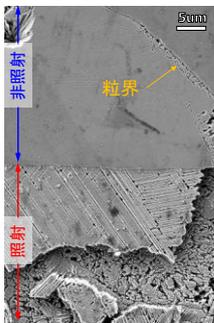


図 4 腐食後表面観察

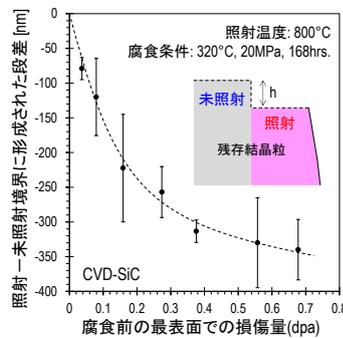


図 5 腐食と損傷量の関係

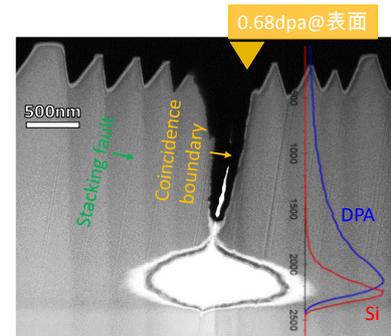


図 6 TEM 組織観察

### ② 雰囲気電子線照射試験

照射下 SiC 酸化のメカニズム解明研究の一環として、これまでに整備したマスフローボックスシステム装置及び環境セルを用いて、酸素雰囲気電子線照射下における SiC の微細構造変化その場観察を実施した。薄膜化した SiC 材料を雰囲気制御型電子線照射実験用環境セルに設置し (図 7)、 $5 \times 10^{-2}$  Pa の真空中及び 20kPa の酸素分圧下において室温で 20 分間電子線照射その場観察実験を実施した。その結果を図 8 に示す。酸素雰囲気下で照射中に回折図形の変化が観られ、酸素の存在が照射中の SiC の構造変化に影響を及ぼした可能性があると考えられた。

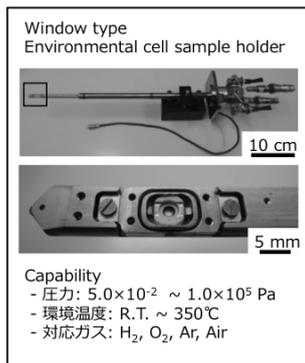


図7 環境セルホルダー

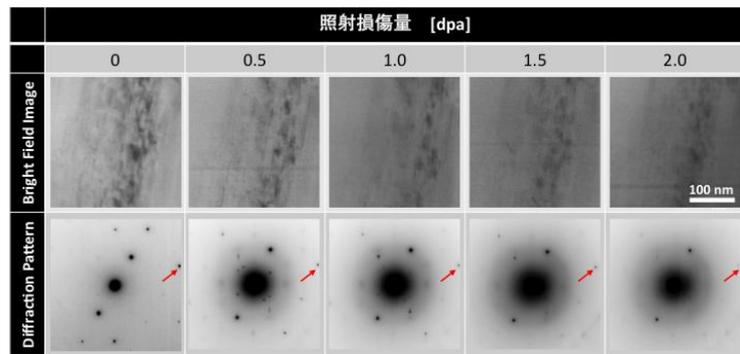


図8 酸素雰囲気下でのTEM観察

### (3) SiC 複合材試料作製の技術開発

既存のSiC複合材料は、延性と材料としての信頼性を得るために、繊維とマトリックスの界面にC相を用いているが、酸化雰囲気では、界面相が酸素と反応して消失してしまうため、強度特性が大きく劣化してしまう。繊維への均一な界面相の形成は、実用スケールの材料作製を考慮した場合に、ほとんど不可能である。これらの観点で、新たに繊維とマトリックスの間の界面相を無くして、マトリックスに粒子を分散させた材料を開発し(図9)、界面相無しでも複合材料としての強度の信頼性を備え、1500°C大気アニールしても強度の劣化がみられない新たな材料の開発に成功した(図10)。また、通常状態における高温水環境下では、粒界に残存する液相焼結に用いるアルミナやイットリアが優先的に腐食することが明らかになっており、焼結助剤の選択と焼結条件の制御により粒界制御を行い、耐高温水に優れたSiCの開発に成功した。

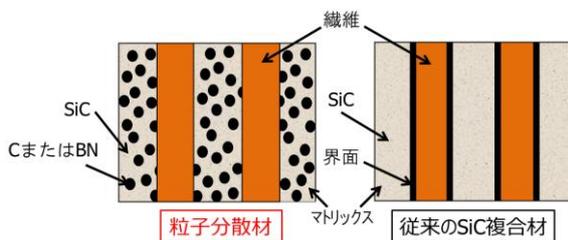


図9 新たに開発した粒子分散SiC複合材料と従来の従来のSiC複合材料の概念図

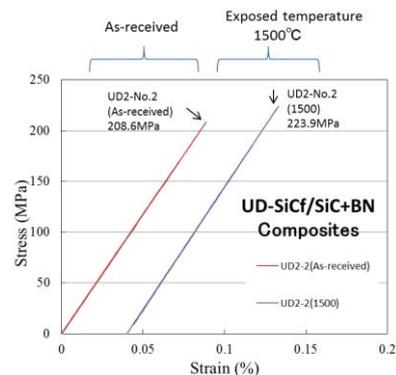


図10 粒子分散SiC複合材料の1500°C大気アニール後の引張強度特性

### (4) SiC 試料の接合試験

放電プラズマを用いた接合技術に着目し、フィラーを用いずSiC同士を直接接合する技術の開発を試みた。接合原理を図11に示す。放電プラズマ接合法とは、電極(試験片)大電流を通じることにより発生するジュール熱と、圧縮荷重をエネルギー源とする固相接合技術で、融点以下の接合であり、高融点材料でも接合可能である。これまでに、SiC管/丸型端栓(モノリシック)の接合試験を予備的に実施し、外観上、割れや変形がないことを確認した(図12)。

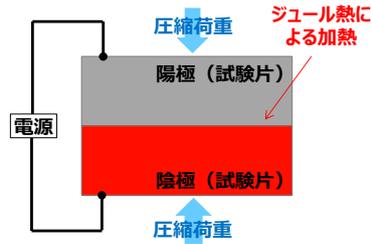


図 11 接合原理

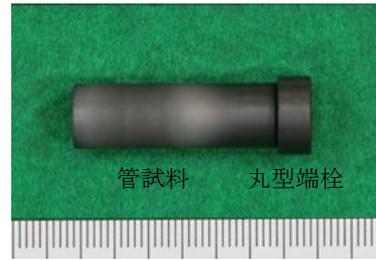


図 12 接合後外観写真

### (5) 総合評価

#### ① 事故時挙動解析

SiC 被覆管を用いた燃料の露出時におけるヒートアップ挙動解析を実施し、現行ジルカロイと比較評価した。解析には過渡安全最適評価コードを用い、解析体系は9×9燃料集合体単体とした。解析条件は、炉心低圧条件での損傷とし、LOCA など1次系圧力が急激に減圧後の炉心条件を想定した。解析結果を図13、図14に示す。SiCは、ジルカロイと比較して、酸化量で約1/100、水素ガス発生量で、約1/60に低減することを確認した。

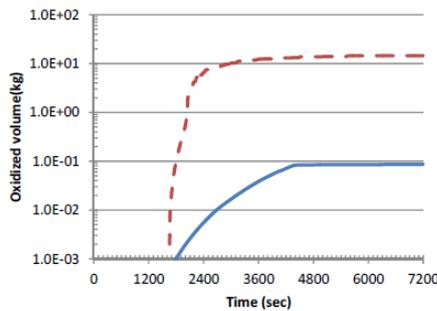


図 13 酸化量

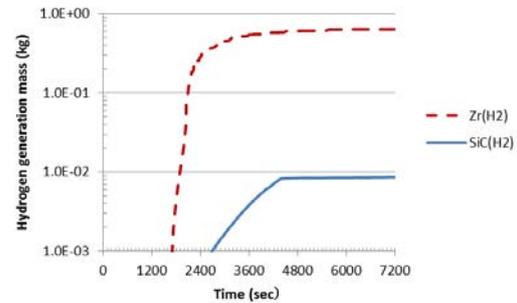


図 14 水素ガス発生量

#### ② 燃料棒熱機械特性解析

燃料棒熱機械挙動解析コードFEMAXI-6にSiCの物性モデルを追加して解析を実施し、現行ジルカロイと比較評価した。考慮した物性は、照射スエリング、熱伝導度、熱膨張率、比熱、弾性係数、クリープ速度、腐食減肉速度とし、燃料棒の寸法は9×9燃料集合体相当とした。SiCでは、被覆管に発生する応力が懸念されるが、腐食減肉の影響は小さいことを確認した(図15)。

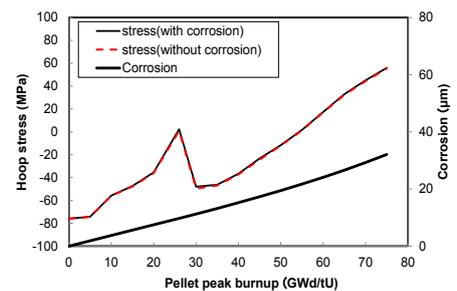


図 15 被覆管に発生する応力

### 3. 今後の展望

- SiC 複合材の管材を作製し、熱衝撃試験、気密性を確かめる密度試験等を通して、特性を確認する。
- 雰囲気制御電子線照射試験において、酸素雰囲気、高温環境下でのその場観察を行い、照射中の酸素の影響について検討する。
- 通常時・過渡時の燃料挙動、事故時安全性等に係わる解析評価を実施する。