

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

(受託者) 国立大学法人室蘭工業大学

(研究代表者) 香山晃 環境・エネルギーシステム材料研究機構

(再委託先) 国立大学法人北海道大学、国立大学法人大阪大学、  
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成24年度～28年度

## 1. 研究の背景とねらい

本事業は東電・福島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の炉心部からのジルカロイ等の排除と高性能セラミック複合材料である SiC/SiC 複合材料の利用により軽水炉の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およびセラミック燃料ピン製造の実用化へ向けた基盤技術の確立を目指します。

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 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（以下、NITE 法）により製造する事 ②模擬燃料ピン要素を作製する要素技術を統合し、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。これらにより、本研究期間内の目的である SiC/SiC 燃料被覆管を用いる燃料ピンが軽水炉炉心への高度な安全性付与に貢献できる近い将来の有望なオプションであることを実証します。

## 2. これまでの研究成果

2. 1 研究開発項目：(1) SiC/SiC 燃料被覆管の製造と性能評価

### 1) SiC/SiC 被覆管製造

これまでに開発してきた NITE 法に基づく量産化・長尺化製造技術を統合することで、特性評価及び照射研究、アッセンブリ技術研究で必要とされる図 1 に示す外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 100mm 以上の SiC/SiC 被覆管を作製し、長尺化を達成しました。また照射研究に必要な気密性を確保していることも確認しました。



図1 外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 100mm 以上の SiC/SiC 被覆管外観

### 2) SiC/SiC 被覆管性能評価

平成 25 年度に試作した中心加熱型熱伝導率測定装置を用いて、SiC/SiC 被覆管熱伝導率測定の予備試験を行い、セル内測定にむけた課題の抽出を行いました。

併せて平成 25 年度に試作した高温酸化試験機を用いて、温度 1500℃、大気中及び水蒸気雰囲気中にて SiC/SiC 被覆管の酸化試験を実施しました。試験後の重量測定から、大気中及び水蒸気

雰囲気中共に SiC/SiC 被覆管の重量増加が認められました。図 2 には水蒸気雰囲気酸化試験後の外観観察結果を示します。試験後の SiC/SiC 被覆管表面には白い付着物が生じているものの、水蒸気酸化雰囲気中においても形状の維持が認められたことから、本条件下での形状安定性が示されました。また SEM による微細組織観察からは試料表面全面に腐食層の形成を確認しました。

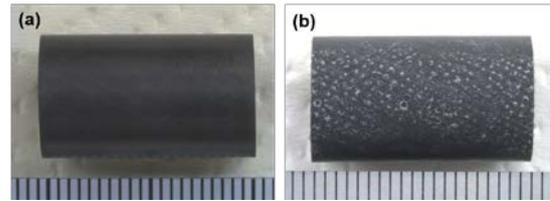


図 2 水蒸気雰囲気酸化試験前後の SiC/SiC 被覆管の外観

## 2. 2 研究開発項目：(2) SiC/SiC 燃料被覆管のアッセンブリ技術

### 1) アッセンブリ技術（再委託先：北海道大学）

ネジによる機械的接合とロウ付けによる化学的接合を併用した接合技術開発を行い、図 3 に示す照射試験用 SiC/SiC 被覆管セグメントを作製しました。この照射試験用セグメントは全長 130mm で、SiC/SiC 被覆管の両端に端栓接合用のジルカロイ管を接合したセグメントであり、予備も含め 18 本作製しました。作製したすべてのセグメントにおいてハルデン原子炉装荷基準を満たす高い気密性を達成し、(3)-2) -①ハルデン原子炉照射実験に供しました。併せて SiC/SiC 被覆管セグメント接合部の微細組織評価を実施しました。



図 3 照射試験用 SiC/SiC 被覆管セグメントの外観

### 2) アッセンブリ評価技術（再委託先：大阪大学）

平成 25 年度に実施した平板材のアコースティックエミッション（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。1/2 円管形状試験片を用いて、軸引張強度試験ならびにフープ強度試験における破損評価に AE 法を適用し、応力-ひずみ曲線と AE エネルギー蓄積との関係、AE の発生位置と応力・エネルギーの関係を明らかにしました。図 4 には軸引張強度試験の応力-ひずみ曲線と AE エネルギーの蓄積の様子を示します。一見したところ 40 MPa 程度まではほぼ線形的な挙動を示していますが、厳密には 20 MPa を超えたあたりから AE の蓄積が開始していました。この間の

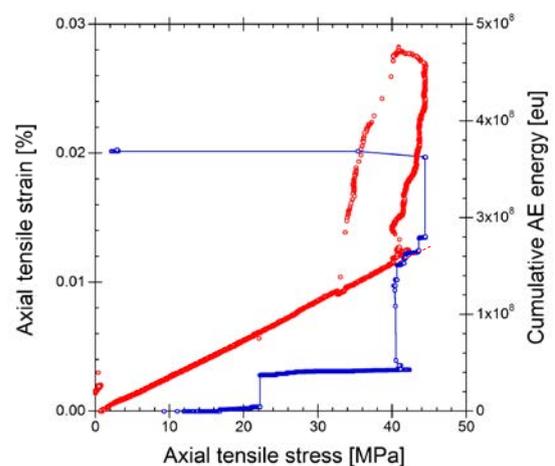


図 4 引張強度試験の応力-ひずみ曲線と AE エネルギーの蓄積の様子

AEはほとんどが低エネルギーのもので、たった1つの高エネルギーAEも材料内部からの本質的なものか、外乱によるものかは今後の検討を要します。一方、40 MPaを超えた際の応力-ひずみ曲線における著しいひずみの蓄積は、多くの高エネルギーAEの蓄積と強く関連しており、これらのAEは破壊を特徴付けるものと考えられます。また破断後試料の組織観察からき裂進展挙動を評価し、複雑な亀裂経路を経て破断していることを確認し、複合材料独特の繊維の引き抜きの様子も認められました。

## 2. 3 研究開発項目：(3) SiC/SiC 燃料被覆管の耐環境性影響評価

### 1) 冷却材共存性評価（再委託先：大阪大学）

平成25年度に製作したNa浸漬流動試験装置を用い、SiC/SiC被覆管から切り出した円弧型試験片のNa共存性試験を温度300℃～350℃で約40時間実施しました。試験後の試料表面微細組織観察から試料表面全体において目立った浸食や腐食層の形成は観察されず、EDSによる元素分析からも腐食層の形成は認められませんでした。(図5)これは昨年度に実施したSiC/SiC板材と同様の結果であることから、本試験条件下における流動Na中でのSiC/SiC被覆管素材の健全性が示されました。

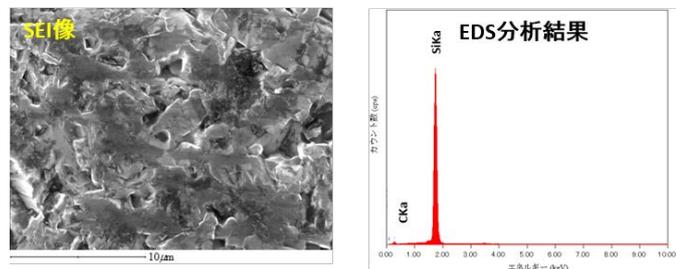


図5 Na浸漬流動試験後表面の微細組織及びEDS分析結果

### 2) 中性子照射影響評価

#### ① ハルデン原子炉照射実験

照射実験用SiC/SiC被覆管セグメント18本をハルデン原子炉に持ち込みました。寸法測定や重量測定、気密性計測等の受け入れ検査の結果、ハルデン原子炉側の検査においても炉内装荷基準を満たす高い気密性を有していることが確認されました。受け入れ検査後、各セグメント内へ破壊検出用のコラプシブルベローズを挿入して、ジルカロイ製エンドキャップを電子ビーム溶接にて接合し端栓封止しました。その後、室蘭工業大学とハルデン原子炉側で合意したテストマトリックスに基づき各セグメントを照射リグに組み込みました。図6にSiC/SiC被覆管セグメントを組み込んだ照射リグの外観を示します。この照射リグをハルデン原子炉に装荷して、平成25年度に実施した核計算及び熱水力計算結果に基づき、加圧水型軽水炉(PWR)条件にて照射試験を開始しました。

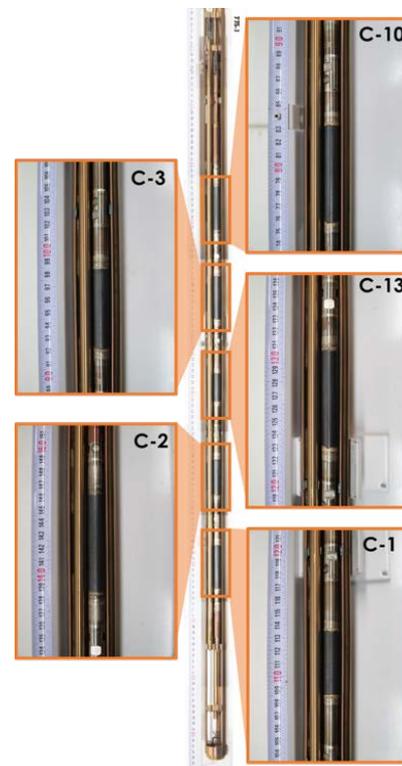


図6 SiC/SiC被覆管セグメントを組み込んだ照射リグ外観

## ②BR2 原子炉照射実験（再委託先：東北大学）

BR2 原子炉から戻った SiC/SiC 被覆管試験片の照射後強度試験を東北大学金属材料研究所大洗センターにて実施しました。供試材は SiC/SiC 複合材料表面にモノリシック SiC を被覆した多層構造 SiC/SiC 複合材料であり、中性子照射条件は温度 <math>100^{\circ}\text{C}</math>、雰囲気 水環境中、中性子フルエンス  $2 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$  で、推定損傷量は 0.2 dpa です。図 7 に引張試験により求めた非照射材及び照射材の応力-ひずみ線図を示しますが、照射後においても見かけ上の弾性率及び最大引張応力ともに非照射材と同等以上の特性を有していることを確認しました。試験後の破断面観察結果からも照射前後で優位な変化は観察されませんでした。本中性子照射条件における SiC/SiC 複合材料の健全性が示唆されました。

また炉外熱損傷評価用キャプセルを設計・製作し、マッフル炉を用いて照射中の温度・時間を模擬した SiC/SiC 被覆管試験片の熱処理試験を行いました。結果として強度特性への熱履歴効果は認められず、熱的に安定である事を確認しました。

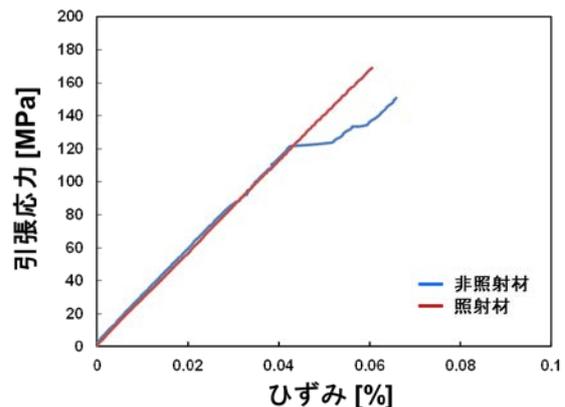


図 7 非照射材及び照射材の引張試験結果

## 2. 4 研究開発項目：(4) 工学・安全設計

### 1) 加圧水環境下安定性（再委託先：原子力機構）

高温・水蒸気中での安定性（非照射時）を確認するため、露点の異なる水蒸気中にて SiC/SiC 複合材料の高温水蒸気酸化試験を行い、微細組織観察及び化学分析より酸化挙動を解析し、安定性を確認しました。試験後試料表面の微細組織観察結果を図 8 に示しますが、明確な酸化膜は観察されず、EPMA 観察結果からも酸化膜の形成は見られませんでした。

冷却材喪失事故（LOCA）時を模擬した試験では、SiC/SiC 被覆管の高温水蒸気中酸化試験に続く急冷処理を行い、試験後試料の外観、表面及び内部組織変化を評価し、リング圧縮試験により熱衝撃による強度変化を評価しました。

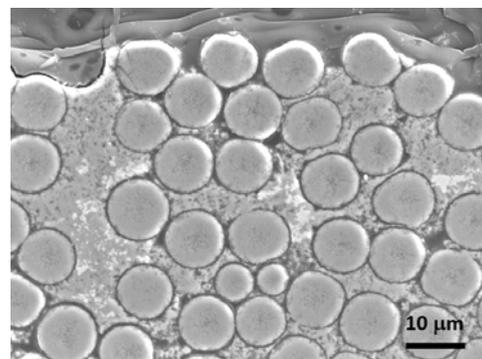


図 8 高温水蒸気酸化試験後の SiC/SiC 複合材料表面の微細組織

## 3. 今後の展望

平成 26 年度の所期の目標を達成し、4 年目の計画を計画通り実施中です。特にハルデン原子炉にて端栓を封止した SiC/SiC 被覆管セグメントの炉内照射を開始できたことは世界初の特筆すべき成果です。次年度の見通しとしては、SiC/SiC 被覆管の長尺化を推進し、長さ 500mm 程度の SiC/SiC 被覆管の作製を目標とします。引き続き耐環境特性等の評価試験を実施し、特にハルデン原子炉照射の継続と照射後試験の準備に努めます。