

# 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ジルカロイ等を排除し、高性能セラミック複合材料である SiC/SiC 複合材料を利用する事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集合体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ほぼ同様の寸法で、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

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 1 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ジッ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 9 月には最終目標である 1 m の SiC/SiC 被覆管製造も成功しました。

### 2) SiC/SiC 被覆管性能評価

高温状態における SiC/SiC 被覆管への内圧負荷に適したシール方法及び高温での SiC/SiC 被覆管の円周方向ひずみ検出法について検討し、圧縮流体拡管法での基幹技術であるシール方法の健

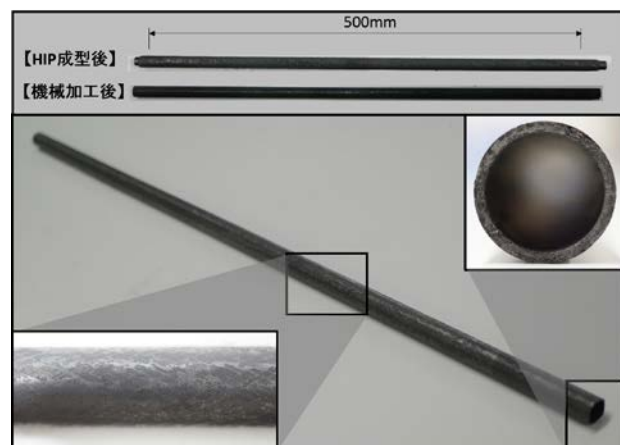


図 1 外径 12mm、肉厚 1mm、長さ 500mm クラスの SiC/SiC 被覆管外観

全性（シール部での水漏れや破損のないこと）が高温でも確認されました。高温での「応力-ひずみ」計測より SiC/SiC 被覆管の室温と 250℃でのヤング率がそれぞれ 190GPa、176GPa である事を得ました。高温試験での破断時においては破裂音の発生と蒸気噴出を確認しました。図 2 に試験後の SiC/SiC 被覆管外観を示します。SiC/SiC 被覆管の両端部には破壊挙動に影響する機械的拘束力や内圧のない事と、き裂の様式から長手方向中央部領域から破壊が開始したと推測できます。

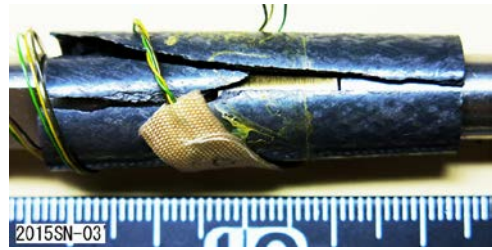


図 2 高温バースト試験後の SiC/SiC 被覆管外観

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

### 1) アセンブリ技術（再委託先：北海道大学）

長尺 SiC/SiC 被覆管に適用可能なネジによる結合とロウ付けを併用した端栓技術開発を行いました。併せて接合予備試験を行い、SiC/SiC 被覆管同士、または片側にオネジあるいはメネジを切った SiC/SiC 端栓を SiC/SiC 被覆管に接合しました。これら作製した接合材を(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 被覆管接合部の微細組織評価を実施しました。図 3 に拡散接合により接合した SiC/SiC 被覆管同士の界面部近傍の SEM 観察結果を示します。接合部においてクラックやマクロポア等の欠陥は観察されないことに加え、気密性を評価した He リークテストの値は接合前と遜色ない値を示したことから、本接合技術により良好な接合が可能であることが示唆されました。

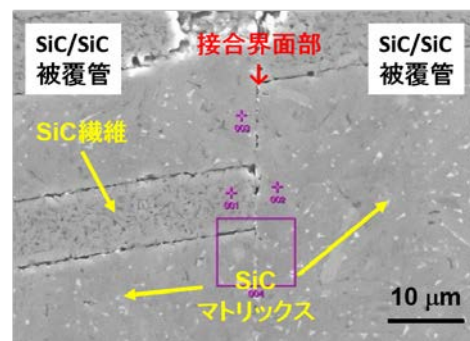


図 3 SiC/SiC 被覆管同士の拡散接合界面部の微細組織

### 2) アセンブリ評価技術（再委託先：大阪大学）

ウレタンを圧力媒体とするバースト試験を SiC/SiC 被覆管で実施し、前年度までの成果であるアコースティックエミッション（以下、AE）解析技術を基に、SiC/SiC 被覆管のき裂進展と境界層破壊の判別技術構築を行いました。

外表面におけるフープ応力をパラメータに、外表面のひずみ蓄積と累積 AE エネルギーの関係を図 4 に示します。なお、AE エネルギーは  $1\text{eu} = 10^{14} \text{Vs}^2$  で示します。図 4 により比較的初期からフープひずみが非線形的に蓄積している様子が見られます。一方で、AE エネルギーの蓄積は破断直前までほとんど認められず、フープひずみの急激な増加が認められる、フープ応力 40~50MPa 付近で突発的に生じてい

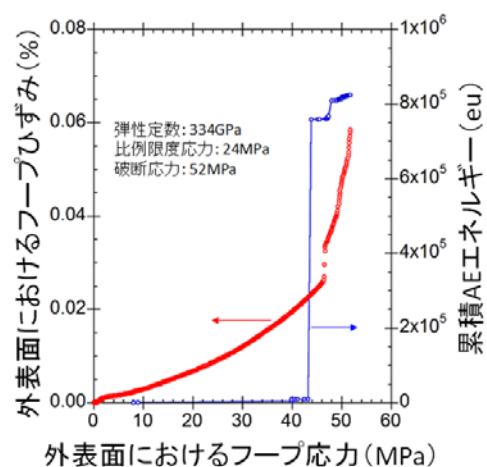


図 4 SiC/SiC 被覆管のフープ破壊挙動と AE エネルギー蓄積の様子

ました。その後、破断に向けて緩やかに AE エネルギーの蓄積が認められました。本結果より、応力-ひずみ曲線における初期の見かけ上の非線形挙動は、局所的な変形によるものと推測していますが、検出された AE シグナルの多くがエネルギーの低いものであり、破壊に関連付けられる高エネルギーの放出は初期にはない事が確認され、本複合材料の破壊はごく限られた数の比較的高いエネルギーを放出する損傷によって瞬時的に引き起こされることが明らかとなりました。SiC/SiC 複合材料板材の非主軸引張試験においてもこれまで同様の整合性の良い結果が得られています。

## 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 26 年度までに製作した Na 浸漬流動試験装置を用い、SiC/SiC 被覆管の Na 共存性試験を温度 350℃で約 45 時間実施しました。図 5 に Na 流動浸漬試験後の SiC/SiC 被覆管表面の微細組織観察及び EDS 分析結果を示します。一部の繊維/マトリックス間の炭素界面部において流動による物理的な浸食と思われる特徴的な組織が観察されましたが、全体としては図 5 に示すような健全な表面状態が維持されていました。EDS 分析結果から Na が検出されましたが、腐食層の形成が明確に認められない、カウント数の絶対値が小さい、事などから洗浄しきれずに試験片表面に残った残存物と判断しています。以上の結果から、流動 Na 中での SiC/SiC 被覆管素材の Na との共存性を確認しました。

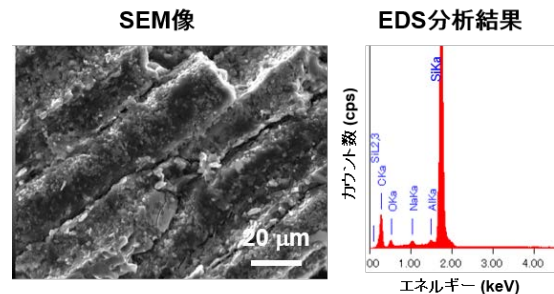


図5 Na 流動浸漬試験後の SiC/SiC 被覆管表面の微細組織及び EDS 分析結果

### 2) 中性子照射影響評価

#### ① ハルデン原子炉照射実験

昨年度から継続してハルデン原子炉での照射実験を実施しました。1 サイクル照射実験完了後、中間検査を実施し、結果を基にオール SiC/SiC 被覆管セグメントを含む新たなテストマトリックスで照射実験を実施しました。1 サイクル照射実験後の中間検査から、図 6 に示すように照射後においても SiC/SiC セグメント外観にクラック等の損傷は認められませんでした。さらに健全性確認の為の過電流測定結果からも、測定した SiC/SiC セグメントにおいては、照射前の気密性が照射後においても維持されていることが確認され、外観観察の結果と併せ、照射中における SiC/SiC セグメントの健全性が確認できました。一部試料では損傷が見られましたが、それぞれの原因についてはこれからの詳細な検討を待つことになります。また炉水内・中性子照射環境下における SiC/SiC 被覆管の材料挙動を明確化することを目的とした 2 サイクル目の照射試験から、照射中のデータと炉水の化学分析データを総合的に解析することで、①水素雰囲気水化学条件では酸素雰囲気水化学条件と比較して、SiC からの Si の溶出が著しく低下すること、②中性子照射により SiC からの Si の溶出は一桁以上加速されることを確認しました。

照射前



照射後



図 6 照射試験前後の SiC/SiC セグメント外観観察結果

この「動的炉水環境中」での SiC/SiC 複合材料燃料被覆管からの Si 溶出データは世界初のものであり、定量的な正確さの向上とデータの蓄積が各国から期待されています。

## ②BR2 原子炉照射実験

BR2 原子炉照射 SiC/SiC 被覆管試験片の照射後強度試験と比較試験である照射中の熱履歴を模擬した SiC/SiC 被覆管試験片の強度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,  $1 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup> で、推定損傷量は 0.05、0.1 dpa です。照射後試験において、照射材は非照射材と同等以上の強度特性を示しました (図 7)。また破壊挙動においても明確な違いのない事を確認しました。さらに熱履歴評価からも、中性子照射時の模擬熱処理による強度特性への顕著な変化は認められませんでした。これらの結果から、強度特性への中性子照射効果、熱履歴効果は本試験範囲では認められない事を確認しました。

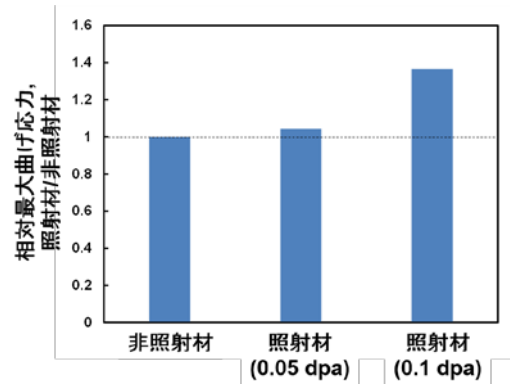


図 7 中性子照射による曲げ応力変化

## 2. 4 研究開発項目：(4) 工学・安全設計 (再委託先：原子力機構)

### 1) 加圧水環境下安定性

高温・水蒸気中環境下での SiC 材の安定性に関して SiC/SiC 被覆管材の炉外酸化試験を実施し、SiC/SiC 被覆管材の酸化挙動と発生水素量を評価しました。熱重量分析と発生ガスの質量分析により、SiC 材の腐食量と水素発生量がジルカロイ-4 に比べて顕著に小さいことを確認しました (図 8)。また、冷却材喪失事故時挙動における SiC/SiC 被覆管の高温水蒸気中酸化後の熱衝撃特性に係る試験を実施し、外観、表面及び内部組織変化より、熱衝撃時の健全性を評価しました。

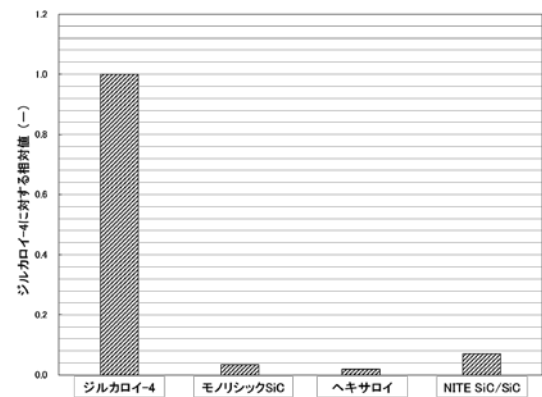


図 8 各材料の露点 30℃での水素発生量

## 3. 今後の展望

平成 27 年度まではそれぞれ所期の年度目標を達成してきました。特にハルデン原子炉における炉水内・中性子照射試験後の SiC/SiC セグメントの健全性が認められたことは特筆すべき成果です。最終年度である平成 28 年度の見通しとしては、SiC/SiC 被覆管の長尺化を継続し、目標とする長さ 1000mm クラスの SiC/SiC 被覆管の作製を達成することに加え、所期の年度目標を達成できると考えています。ただし、当初予定していなかった多くの追加情報が得られたこと、多くの試験片を用いるより広範な照射後試験が可能性として残されていることより、次年度以降での可能な限り迅速な次期計画の承認と開始が望まれます。