

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 エネルギーシステムソリューション社

(研究代表者) 佐藤 寿樹 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。

本研究開発では、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た基礎的検討として、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、図 2 は、試験前後の外観写真及び腐食量と試験温度の関係を示す。

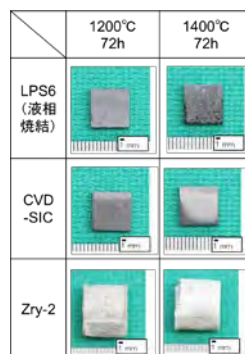


図1 試験前後の外観
(高温水蒸気酸化試験)

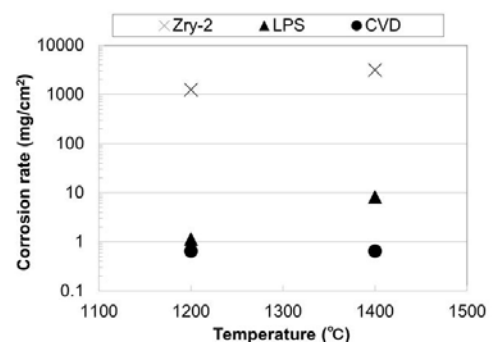


図2 腐食量
(高温水蒸気酸化試験)

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。

(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 (LPS) 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、溶存酸素量 8ppm) を実施した。試験結果を図 3 に示す。これより、SiC 材料は、腐食減量 (重量減少) を示し、LPS は CVD よりも腐食減量が大きく、助剤量の増加に伴い、腐食減量も増加する傾向があった。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、結果を図 4 に示す。これより、粒界を完全に YAG (Yttrium Aluminum Garnet) に制御できれば、耐食性を改善できることが示唆された。

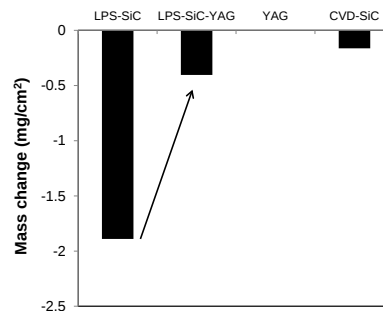
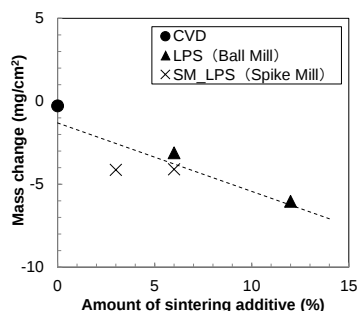


図 3 腐食の助剤量依存性 (高温水腐食試験)

図 4 腐食の助剤組成依存性 (高温水腐食試験)

(3) 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℃、20MPa) を実施した。イオン照射により評価したスエリングを図 5 に示す。スエリングは、照射初期に増加し、飽和する傾向となった。未照射／イオン照射材の腐食特性を図 6 に示す。腐食速度は溶存酸素量に依存し、溶存酸素の高い条件では点欠陥量に依存する傾向を示した。

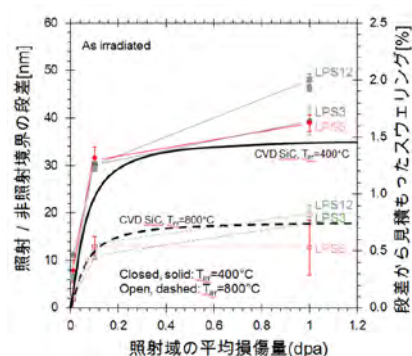


図 5 イオン照射により評価したスエリング

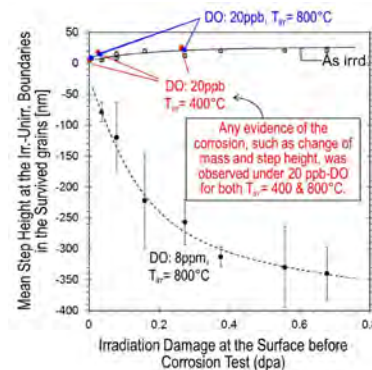


図 6 未照射／イオン照射材の腐食特性

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）、 5×10^{-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。酸素雰囲気中で SiO_2 の形成が確認され、高圧下酸素雰囲気において、より顕著となる傾向を示した。

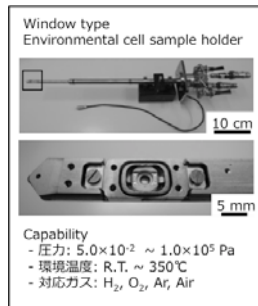


図 7 環境セルホルダー

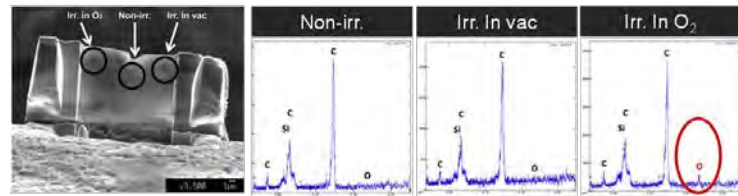


図 8 CVD-SiC の室温・雰囲気電子線照射後の SXES 表面分析結果

（４）SiC 複合材試料作製の技術開発

SiC 複合材料開発においては、代替コーティングの観点で研究開発を進め、新たな概念として、繊維コーティング無しでマトリックスに粒子を分散させた複合材料の製作を検討した。粒界に耐高温水特性に優れた YAG 組成を有する液相焼結（LPS）と高温酸化特性に優れる BN 粒子分散 SiC 複合材料を組み合わせることにより、SiC 複合材で期待される延性効果を示し、耐高温水特性と高温酸化特性に優れる複合材の製作に成功した。

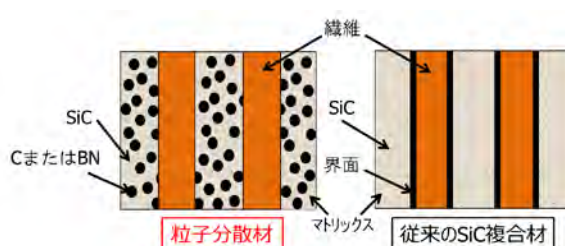


図 9 粒子分散 SiC 複合材料と従来の SiC 複合材料の概念図

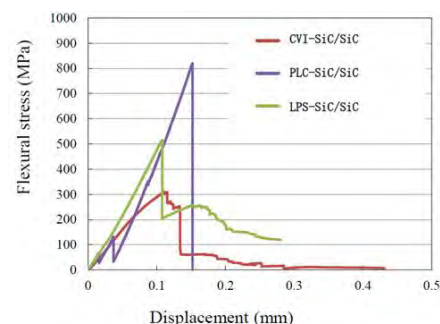


図 10 粒子分散 SiC 複合材料の曲げ試験結果

（５）臨界特性

SiC の核性を NCA (Toshiba Nuclear Critical Assembly) 臨界試験で測定し、得られた反応度値データをモンテカルロ輸送計算結果と比較した。SiC の熱中性子領域の反応度特性の実験値は、解析値と概ね一致することを確認した。

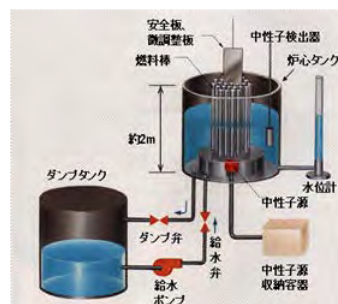


図 11 東芝臨界実験装置 (NCA)

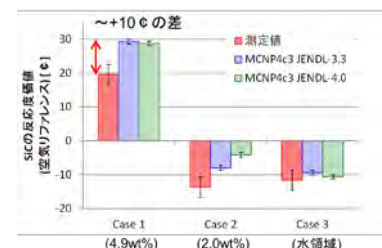


図 12 SiC の反応度値

(6) 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。放電プラズマ接合法は、プラズマによる励起と、電極（試験片）への大電流を通じることにより発生するジュール熱を利用したもので、融点以下での接合を特徴とし、SiC のような高融点材料でも接合が可能である。SiC 管／丸型端栓（モノリシック）の接合試験を実施し、外観上、割れや変形がないことを確認し（図 13）、更に、接合部の強度試験、He リーク試験を実施し、母材と同等の強度、検出限界以下の密封性を確認した。



図 13 接合試験（管一端栓）

(7) 事故時の再冠水による熱衝撃評価

モノリシック及び SiC 複合材について、熱衝撃試験（1200℃から急冷）を実施した。その結果、モノリシックは粉碎し、SiC 複合材は、粉碎せず形状を維持しており（図 14）、1200℃からの熱衝撃に耐性があることを確認した。



図 14 熱衝撃試験前後の外観

(8) 総合評価

① 燃料棒熱・機械挙動

本研究において得られた知見を基に、SiC 複合材被覆管燃料の熱機械物性などを評価するモデル案を検討した。同モデルを燃料熱機械挙動評価コード「FEMAXI-6」に実装し、SiC 複合材物性の特徴を反映した解析を実施し、Zry 被覆管燃料とのふるまいの差異を評価した。

② 炉心特性

SiC 被覆管燃料の炉心を作成し Zry 体系と比較した結果、炉心性能、安全性は大きく変わらないことを確認した。

③ 過渡時燃料温度変化

典型的な過渡事象である外部電源喪失時において、SiC 被覆管のプラント過渡応答時の挙動は、Zry 被覆管と大きく異なるものではなく、十分に適用可能であると考えられた。

④ 事故時燃料温度変化

SiC の高温酸化反応モデルを適用した事故時挙動解析を実施し、事故時進展挙動及び水素発生量を評価した。

3. 今後の展望

本研究を通して抽出された課題の一つとして、溶存酸素に依存する照射下での高温水腐食特性が挙げられた。今後の次ステップでは、照射試験炉を用いた中性子照射環境下での基礎的な腐食特性を評価する必要がある。

掲載されている商品・役務等の名称は、それぞれ各社が商標として使用している場合があります。