

事故時高温条件での燃料健全性確保のための ODSフェライト鋼燃料被覆管の研究開発

(受託者) 国立大学法人北海道大学

(研究代表者) 鶴飼重治 大学院工学研究院

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、日本核燃料開発株式会社、

国立大学法人京都大学、国立大学法人東京工業大学

(研究期間) 平成 25 年度～28 年度

1. 研究の背景とねらい

高速炉では、既存の ODS 鋼被覆管を対象に 1000℃を超える高温条件に適用可能な高温強度評価式を構築して、事故時燃料破損の回避、遅延の可能性を定量的に評価する。軽水炉においては、福島第一原子力発電所事故がジルカロイと水蒸気との大きな発熱を伴う酸化反応を起点にして炉心溶融に到ったことに鑑み、耐水蒸気酸化が格段に優れた FeCrAl-ODS 鋼被覆管の適用性を評価し、事故時の事象緩和程度を明らかにする。

2. これまでの研究成果

2.1 製造被覆管の事故時破損限界評価

(1) 事故時高温条件での強度特性

既存 ODS 鋼被覆管の 1300℃までの周方向引張強さから、9CrODS 鋼被覆管は高温強度に優れているが、1200℃を超えると強度がゼロ近傍まで低下する（図 1）。この温度域で結晶粒界でメカニカルアロイング中に導入されたアルゴンガスバブルや酸化物粒子の凝集・粗大化が認められるとともに、結晶構造の FCC（ γ 相）から元素拡散の速い BCC（ δ 相）への変態が相乗して、粒界破断に至ったことが確認されている。FeCrAl-ODS 鋼被覆管の周方向引張強さは同じフェライト系である既存 12CrODS 鋼（Al 無添加）と同様の強度レベルにあり、現行ジルカロイと比較すると、室温から 1300℃までの温度範囲で大幅に強度が向上していることが分かる（図 1）。

事故時温度上昇を模擬した急速加熱バースト試験では、被覆管周応力を 50MPa から 200MPa の範

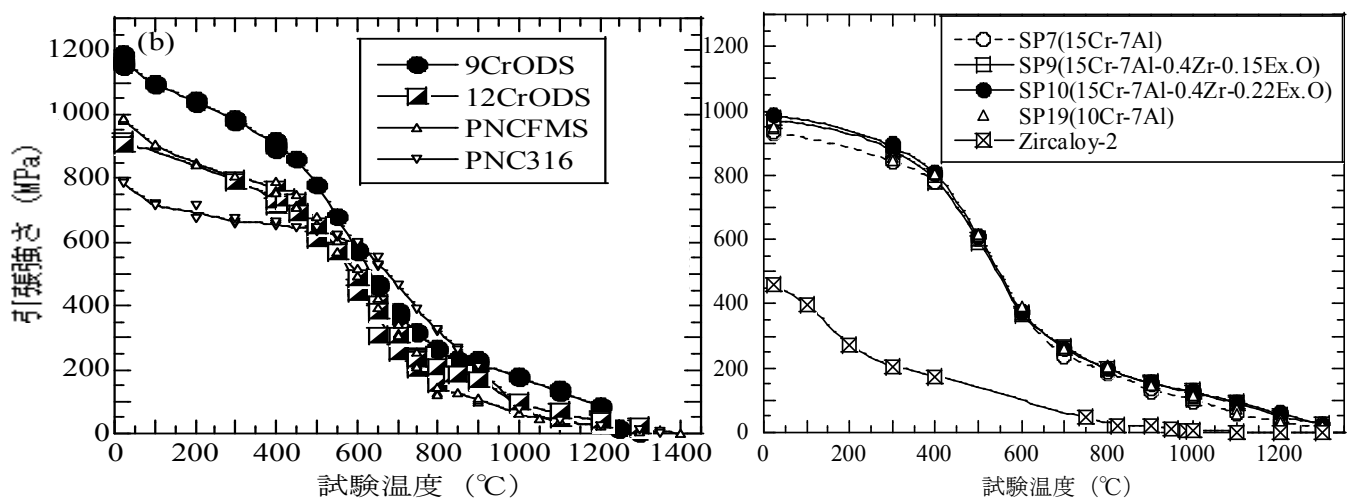


図 1 既存 ODS 鋼被覆管（左）と FeCrAl-ODS 鋼被覆管（右）の周方向引張強さ（室温～1300℃）

囲に設定し、5℃/s と 0.1℃/s で温度上昇させた場合の被覆管破裂温度を評価した。緩慢な温度上昇ではこの間のクリープ累積損傷により破裂温度は低下する。FeCrAl-ODS 鋼被覆管の破裂温度はZr 添加により上昇し、周応力が低くなるに従い9CrODS 鋼の破裂温度に近づくことが判明した。

一方、FeCrAl-ODS 鋼被覆管への Zr 添加は 1000℃での周方向クリープ破断強度向上に顕著であり、Zr 添加により破断時間が約 3 桁伸びることが判明した（図 2）。この強度レベルは既存 9CrODS 鋼を凌駕する極めて優れたものである。

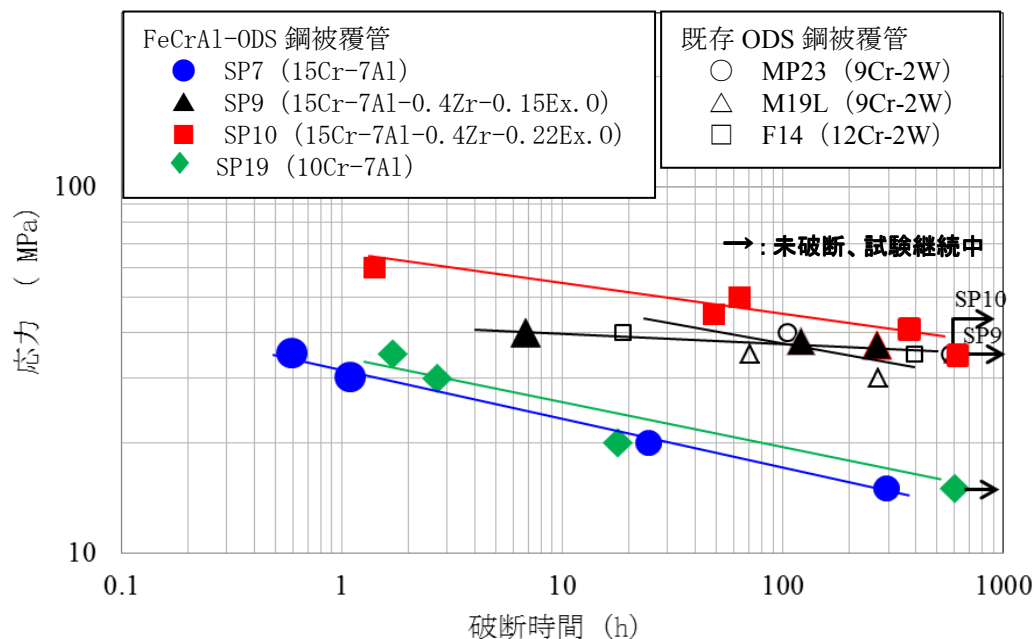


図 2 既存 ODS 鋼被覆管と FeCrAl-ODS 鋼被覆管の周方向クリープ破断強度（1000℃）

(2) 事故時破損限界評価

既存 9CrODS フェライト鋼被覆管の 1000℃までの周方向クリープ破断データに基づき、高速実証炉と原型炉「もんじゅ」の流量減少型事故（LOF）及び過出力型事故（TOP）における被覆管破損限界を評価した。解析ではクリープ破断データを Larson-Miller parameter (LMP) で整理し、相当応力と LMP の関係で定式化した上で、燃料挙動解析コードを用いてクリープ累積損傷解析を行った。既存 9CrODS 鋼被覆管の場合には、現行の改良 SUS316 鋼に比べて大幅に破損温度と破損時間が改善されるという予備的結果が得られている。

また、BWR 軽水炉に Zr 添加 FeCrAl-ODS 鋼被覆管を適用した場合の事故時破損限界についても評価した。700℃、1000℃（図 2）の周方向クリープ破断強度データから 9CrODS 鋼被覆管と同様に相当応力と LMP の関係を定式化し、各応力での破断時間と温度の関係を評価した（図 3）。この関係を用いて、軽水炉の全電源喪失事故時（Station Blackout）に 1 時間程度で燃料要素が破損する温度を概略見積もると、1200℃以上と予測される（現行材：900℃程度）。一方、冷却材圧力が低下する冷却材喪失事故（LOCA）では、燃料要素内圧力上昇による被覆管周応力の増加により、1 時間程度で燃料破損が起こる温度は 900℃以上と見積もられた（現行材：700℃程度）。

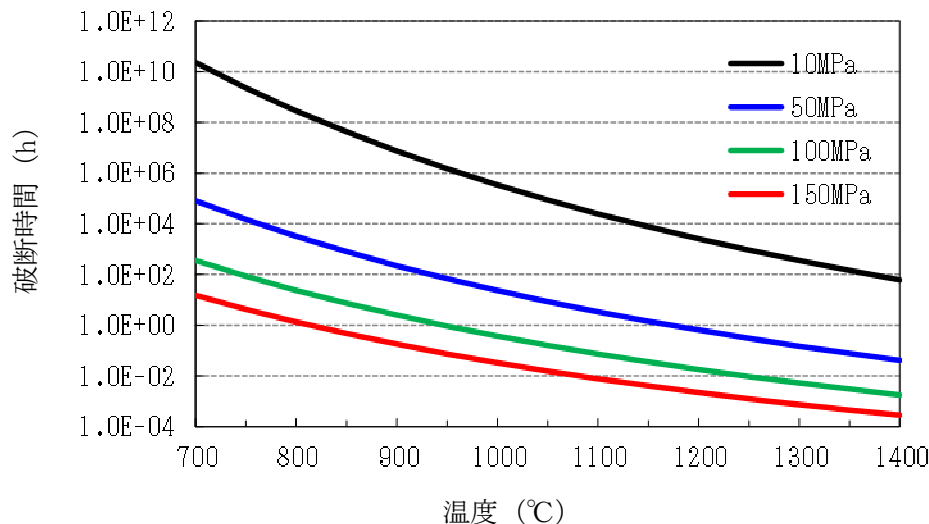


図3 Zr 添加 FeCrAl-ODS 鋼被覆管の各応力における温度と破断時間の関係

2.2 軽水炉用 FeCrAl-ODS 鋼の耐水蒸気酸化特性

Cr、Al、Zr 濃度、及び過剰酸素濃度を変えた 20 種類の FeCrAl-ODS 鋼について 1200℃で 100 時間までの水蒸気酸化試験を行い、それらの水蒸気速度定数はジルカロイに比べて 2 桁～3 桁低いことを明らかにした。しかし図 4 に示すように、高温クリープ強度改善のため Zr 添加した SP10A では、その 1200℃での酸化速度定数は Zr 無添加 SP7A に比べ大きい。これはアルミナ (Al_2O_3) スケール内に酸素の拡散係数の大きいジルコニア (ZrO_2) が生成して水蒸気酸化を促進したためである。そこで 1200℃～1450℃の広い温度範囲で、Zr 添加の有無による水蒸気酸化特性を調査した。Zr 添加により酸化速度定数の温度依存性が低下し、1200℃では Zr 添加は酸化を促進するが、1400℃では酸化が抑制されることが判明した (図 4)。Zr 無添加材では 1300℃を超えるとアルミナスケールの剥離が顕著になり、1450℃では燃え尽きてしまったのに対し、Zr 添加材は 1450℃でも安定であった。このように、Zr 添加は特に 1400℃以上の高温でのアルミナスケールの安定化に極めて有効であることが判明した。

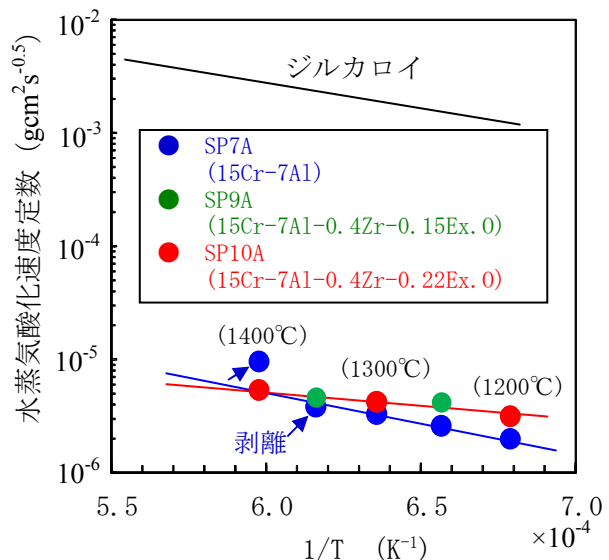


図4 FeCrAl-ODS 鋼の水蒸気酸化速度定数

そこで、1400℃大気中において、15Cr-7Al-0.4Zr をベースに過剰酸素濃度の影響を調査した (図 5)。過剰酸素濃度の増加に伴い酸化増量は低下し耐酸化性が改善されるが、0.22wt%を境にこれ以上になると僅かに酸化量が増加傾向にある。0.22wt%の過剰酸素濃度は酸素/Zr モル比が 3.4 に相当する。ODS 鋼中に生成する複合酸化物粒子には $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ($\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{ZrO}_2$) と $\text{Y}_4\text{Zr}_3\text{O}_{12}$ ($\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 1.5\text{ZrO}_2$) が知られている。これらの複合酸化物粒子の酸素/Zr モル比は 2.0 であり、添加した酸

そこで、1400℃大気中において、15Cr-7Al-0.4Zr をベースに過剰酸素濃度の影響を調査した (図 5)。過剰酸素濃度の増加に伴い酸化増量は低下し耐酸化性が改善されるが、0.22wt%を境にこれ以上になると僅かに酸化量が増加傾向にある。0.22wt%の過剰酸素濃度は酸素/Zr モル比が 3.4 に相当する。ODS 鋼中に生成する複合酸化物粒子には $\text{Y}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ($\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{ZrO}_2$) と $\text{Y}_4\text{Zr}_3\text{O}_{12}$ ($\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 1.5\text{ZrO}_2$) が知られている。これらの複合酸化物粒子の酸素/Zr モル比は 2.0 であり、添加した酸

素は Zr 以外の元素 (Ti 等) とともに反応することを考えると、0.22wt%過剰酸素添加の時に Y-Zr 複合酸化物が効果的に生成し、マトリック中の Zr 活量が減少しスケール内にジルコニアが生成するのを抑制したと考えることができる。同様に Zr 濃度依存性についても調べ、0.4wt%Zr が 1400℃において最も耐酸化性に優れていることが判明した。これらの結果から、0.4wt%Zr で 0.22wt%の過剰酸素の添加 (SP10 相当) は 1000℃でのクリープ破断強度のみならず、1400℃での耐酸化にも有効であると結論される。

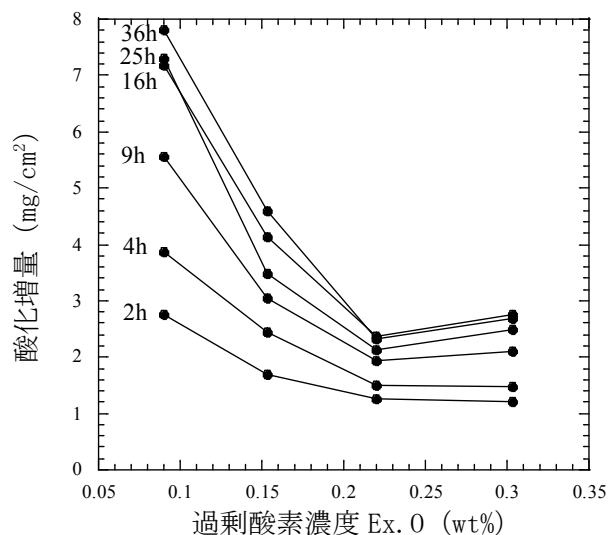


図5 1400℃大気中酸化における酸化増量と過剰酸素濃度との関係 (15Cr-7Al-0.4Zr)

2.3 FeCrAl-ODS 鋼の軽水炉燃料被覆管への適用性評価

FeCrAl-ODS 鋼と UO_2 の反応については、1450℃までの温度範囲で安定なアルミナスケールがバリアーとなり殆ど反応しないことを確認している⁽¹⁾。また LOCA 条件を模擬するため、1200℃で2時間保持後に70℃水中にクエンチした後のリング圧縮試験で十分な延性が確保されていることも確認している。これらの結果、並びに前述の評価結果から、FeCrAl-ODS 鋼被覆管を適用することにより、軽水炉の事故耐性を大幅に向上することができる。一方、300℃以下の通常運転時においては、高 Cr 化による α' 生成に起因して時効脆化が懸念されるが、475℃で1万時間の熱時効試験から、 α' が生成しても引張延性が確保されることを確認している⁽²⁾。また、Zr に比べ中性子吸収断面積の大きな Fe、Cr を使用することに伴う反応度低下は、現行のウラン濃縮度の範囲内で被覆管肉厚をジルカロイの 0.71mm から 0.35mm に半減することで補償できることが示されている⁽³⁾。被覆管薄肉化の燃料健全性への影響については、取得した FeCrAl-ODS 鋼被覆管の 300℃での強度特性データを用いて簡易的に評価され、燃料設計が成立することを確認している⁽⁴⁾。

3. 今後の展望

高速炉では既存 ODS 鋼被覆管、軽水炉では FeCrAl-ODS 鋼被覆管を対象に、想定される事故事象下での事象緩和程度をより定量的に評価するとともに、シミュレーション照射による α' 生成促進を評価して、採択時に計画立案した目標を H28 年度内に達成する予定である。本事業終了後は FeCrAl-ODS 鋼被覆管の軽水炉への適用を目指して、本事業で得られた基盤研究成果をベースに照射試験を含む実用化技術開発に取り組む計画である。

4. 参考文献

- (1) 坂本寛 他、日本原子力学会 2015 年秋の大会、I37、静岡大学、2015 年 9 月 10 日
- (2) 木村晃彦 他、日本原子力学会 2016 年春の年会、1H16、東北大学、2016 年 3 月 26 日
- (3) 高野渉 他、日本原子力学会 2016 年秋の大会、1B08、久留米シティプラザ、2016 年 9 月 7 日
- (4) 草ヶ谷和幸 他、日本原子力学会 2016 年秋の大会、1B09、久留米シティプラザ、2016 年 9 月 7 日