

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：502-1 原子炉材料，環境劣化，照射効果，評価・分析技術

2024年9月13日(金) 14:45 ~ 15:50 O会場(講義棟B棟2F B204)

[3007-10] 被覆管材料2

座長:阿部 弘亨(東大)

14:45 ~ 15:00

[3007]

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(1) JAEAにおける事故耐性コーティング技術研究と装置開発

*山下 真一郎¹、モハマド アフィカ¹、根本 義之¹、相馬 康孝¹、石島 暖大¹、佐藤 智徳¹、井岡 郁夫¹、
パム ハイ¹、三輪 周平¹、中島 邦久¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

15:00 ~ 15:15

[3008]

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(2) 照射下腐食挙動評価のための装置開発

*相馬 康孝¹、山下 真一郎¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

15:15 ~ 15:30

[3009]

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(3) 高温水蒸気中で酸化試験したCrコーティング被覆管の金相評価

*河合 慶人¹、藤村 由希²、近藤 啓悦²、阿部 陽介²、石川 法人²、根本 義之²、山下 真一郎²、石島 暖大²、
舟本 幸大³、渥美 寿雄¹ (1. 近畿大学、2. 日本原子力開発機構、3. トーカロ株式会社)

15:30 ~ 15:45

[3010]

Study on coating technic to enhance accident tolerance of fuel cladding II

(4) Steam oxidation of Ti-coated SiC as Accident Tolerant Fuel Cladding

*Hai Pham¹, Ryo Ishibashi², Masana Sasaki², Yoshiyuki Nemoto¹, Shinichiro Yamashita¹ (1. JAEA, 2. HGNE)

15:45 ~ 15:50

座長持ち時間

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(1) JAEA における事故耐性コーティング技術研究と装置開発

Study on coating technic to enhance accident tolerance of fuel cladding II

(1) Overview of accident tolerant coating technic studies and apparatus development in JAEA

*山下真一郎¹, Afifa Mohamad¹, 根本義之¹, 相馬康孝¹, 石島暖大¹, 佐藤智徳¹, 井岡郁夫¹,
Pham vu Hai¹, 三輪周平¹, 中島邦久¹, 加治芳行¹

¹JAEA

日本原子力研究開発機構（以下、JAEA）では、事故耐性の向上を目指した燃料被覆管の実用化に資する基礎基盤研究の一環として、各種コーティング被覆管の特性評価を進めている。本シリーズ発表では、全体概要の他、特性評価試験に用いることを目的とした JAEA での新規装置開発の状況、高温水蒸気酸化特性評価試験の結果等について紹介する。本発表においては、研究計画全体の概要を報告する。

キーワード：軽水炉、安全性向上、事故耐性、燃料被覆管

1. 緒言

福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえて、事故時の事象進展を遅らせ、かつ水素発生量を低減する事故耐性燃料(ATF)の開発が国内外で精力的に進められている。国内の ATF 開発においては、様々な被覆管材料に対するコーティング技術の適用性が検討され、実用化に資する ATF 候補概念として、ジルコニウム (Zr) 合金を母材に外表面を Cr 薄膜で覆った Cr コーティング被覆管[1]や炭化珪素 (SiC) 複合材料を母材に金属薄膜で外表面を被覆した SiC/SiC 複合材料被覆管[2]等が提案されている。

2. 研究計画の全体概要

JAEA では、公開文献等の調査結果をもとに、コーティング技術を施した Cr コーティング被覆管や SiC/SiC 複合材料被覆管等の複数の ATF 概念に対する、様々な軽水炉運転条件下での特性評価を行うための計画を検討し、コーティング技術に関する基礎研究やそれら基礎研究に必要な試験装置開発等を進めてきている。研究計画の検討においては、特に JAEA において実施が期待されている、「通常運転時」や「事故時」等の燃料ふるまいに重点を置いて実施項目を選定し、各基礎研究の実施による燃料ふるまいのメカニズム解明の他、現象論のモデル化、解析コードへの組み込み（既存コードの改良含む）までを実施する計画である。

3. 開発中の試験装置の概略

各種コーティング被覆管の他、国内で開発中の ATF 全てへの適用を視野に、ATF の腐食挙動に及ぼす放射線の影響や環境と照射の重畳影響等の評価に用いる、 γ 線照射下腐食試験装置や高エネルギー粒子線照射下腐食試験装置等の試験装置開発を進めている。発表当日は、試験装置の整備状況の詳細も紹介する。

参考文献

[1] Okada, et.al., “Investigation of Chromium Coated Zirconium Alloy Behaviours Accident Tolerant Fuel Cladding for Conventional LWRs”, Proceedings of Top Fuel2021, Santander, Spain, Jun.6-10, (2021).

[2] R. ISHIBASHI et al., “Improvement of Corrosion Resistant Coating for Silicon-Carbide Fuel Cladding in Oxygenated High Temperature Water,” Proceedings of TopFuel2018, Prague, Czech Republic, Sep.30-Oct.4, (2018).

備考：本研究発表には、経済産業省資源エネルギー庁の令和 4 年度及び令和 5 年度原子力の安全性向上に資する技術開発事業（安全性向上に資する新型燃料の既存軽水炉への導入に向けた技術基盤整備）の成果が一部含まれている。

*Shinichiro Yamashita¹, Afifa Mohamad¹, Yoshiyuki Nemoto¹, Yasutaka Soma¹, Yasuhiro Ishijima¹, Tomonori Sato¹, Ikuo Ioka¹,
Pham vu Hai¹, Shuhei Miwa¹, Kunihisa Nakajima¹, Yoshiyuki Kaji¹, ¹JAEA

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(2)照射下腐食挙動評価のための装置開発

Study on coating technic to enhance accident tolerance of fuel cladding II

(2) Development of apparatus for evaluating corrosion behavior under irradiation

*相馬 康孝¹, 山下 真一郎¹

¹ 日本原子力研究開発機構

JAEA では事故耐性燃料 (ATF) 被覆管の腐食挙動を評価する目的で、プロトン照射下における材料の高温水中腐食試験を可能とする装置「プロトン照射下腐食試験装置」(以下、本装置)の開発を行っている。本報告では、本装置で実現を目指す腐食評価技術の特徴と、現在までの装置整備進捗状況について述べる。

キーワード: 事故耐性燃料、腐食、高温水、電気化学、プロトン照射

1. 緒言

ATF 材料として開発が進められている Cr コーティングを形成したジルカロイ被覆管 (Cr-Zry) の挙動評価のための炉内試験は、海外炉に依存しており、得られるデータ数が少ない上に多大なコストと時間を要している。このことから国内においてより柔軟に実施可能な腐食評価技術が必要とされている。これに対し JAEA は、プロトンビームによる照射損傷、高温水による腐食、及びラジオリシスが重畳した環境 (以下、重畳環境) において Cr-Zry の挙動評価を可能とするべく本装置の開発を行っている。以下に、本装置の概要、開発状況、及び先行研究[1]にない特徴である電気化学測定による腐食状態のその場測定機能に関して述べる。

2. 実施内容

図 1 に本装置の概要を示す。ビーム制御、及び高温水制御関連の複数の装置で構成される本装置は東北大学先端量子ビーム科学研究センター青葉山事業所に設置される。サイクロトロンにより加速された最大 20 MeV、50 μ A のプロトンビームを偏向電磁石により本装置側へ偏向し、ビーム輸送真空系によりアラインメントを行った後、高温水を循環させた圧力容器に固定した厚さ 500 μ m の試験片に入射させ、重畳環境を形成させる。試験系の構造は先行する米国の装置[1]を基本とし、これに

腐食挙動のその場測定機能を付加することを計画している。すなわち、従来研究では照射後試験片の顕微鏡学的 ex situ 分析が試験結果の主要な分析法であったのに対し、本研究では電気化学測定法により腐食電位 (ECP) や Cr-Zry で予測される微小な腐食速度測定をその場分析で実現する。開発においては、圧力境界における気密性と、電気化学測定のための電子絶縁性に関する技術的課題に遭遇している。2024 年 7 月時点において高温水循環装置の整備は完了し、その他の要素は改造もしくは製造中である。

3. 結論

2024 年度中の照射試験実施に向け、重畳環境における腐食評価が可能な本装置の開発を行い、各種機器の設計製造と技術的課題の解決に取り組んでいる。

参考文献

[1] M. Reyes, P. Wang, G. Was, and J. Marian, J. Nucl. Mater., 523 (2019) 56-65.

*Yasutaka Soma¹, and Shinichiro Yamashita¹

¹Japan Atomic Energy Agency.

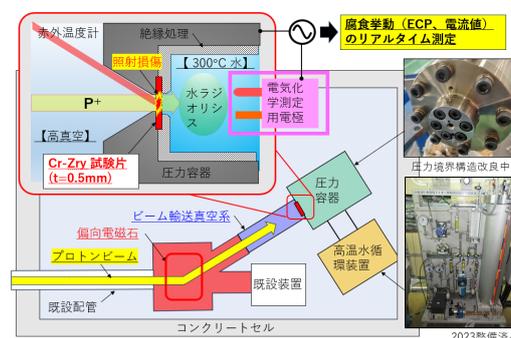


図 1 本装置の概要

事故耐性向上を目指した燃料被覆管のコーティング技術に関する研究 II

(3) 高温水蒸気中で酸化試験した Cr コーティング被覆管の金相評価

Study on coating technic to enhance accident tolerance of fuel cladding II

(3) Metallographic evaluation of Cr-coated cladding after oxidation test in high temperature steam

*河合 慶人¹, 藤村 由希², 近藤 啓悦², 阿部 陽介², 石川 法人², 根本 義之²,
山下 真一郎², 石島 暖大², 井岡 郁夫², 舟本 幸大³, 渥美 寿雄¹

¹ 近畿大学, ² 日本原子力開発機構, ³ トーカロ株式会社

事故耐性燃料 (ATF) 被覆管候補として開発が進められているクロム (Cr) コーティング被覆管の高温水蒸気中での酸化及び水素吸収挙動について、コーティングなし試料の場合との比較を行った結果を報告する。

キーワード: 軽水炉, 安全性向上, 事故耐性, 燃料被覆管

1. 緒言

前報では、ジルカロイ 4 被覆管試料及び、その外表面に Cr コーティングを施した試料を用いて 1100°C での高温水蒸気中酸化試験を 20 分間行った場合の酸化挙動と水素吸収挙動を評価し、コーティングありの方がコーティングなしよりも水素吸収量が多くなったことを報告した。今回はそれらの試料の断面観察の詳細を報告し、Cr コーティングの有無による水素化物等の形状や分布の違いを評価した結果について報告する。

2. 実験方法

ジルカロイ 4 被覆管及び Cr コーティング被覆管について 1100°C の高温水蒸気中での酸化試験後、周方向断面の金相観察を走査型電子顕微鏡 (SEM) や電子線後方散乱回折法 (EBSD) を用いて行った。それらの画像から数値解析ソフト (MATLAB) を用いて画像解析を行い、水素化物や析出物の分布などを評価した。

3. 結果

酸化試験後の試料を SEM で観察すると、コーティングなしでは、笹の葉状の水素化物が粒内にまばらに形成されている (図 1 a)。これに対して、コーティングありでは、針状の水素化物が粒界付近に形成され (図 1 b)、さらに、コーティング層に近い領域で粒状の析出物が分散している様子が見られた。これは EDS 分析から Cr の析出物であることが分かった。また、画像解析の結果、それらはコーティング付近に多く析出していることが明らかになった。

4. 結論

断面観察の結果、コーティングありの方がコーティングなしよりも水素吸収量が多くなった原因の一つは、Cr の拡散に関連した水素化物生成の様相の変化である可能性が示された。今後これらの水素化物の形状や析出箇所の変化の原因について詳細を検討する必要があると考えられる。

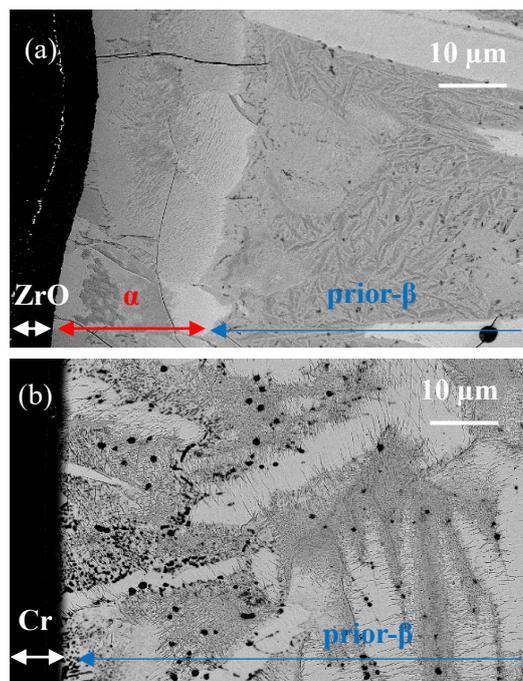


図 1 酸化試験後の外面付近の SEM 観察結果

(a : コーティングなし, b : コーティングあり)

*Keito Kawai¹, Yuki Fujimura², Keitsu Kondo², Yosuke Abe², Norito Ishikawa², Yoshiyuki Nemoto², Shinichiro Yamashita², Yasuhiro Ishijima², Ikuo Ioka², Koudai Funamoto³ and Hisao Atsumi¹

¹ Kindai Univ., ² Japan Atomic Energy Agency (JAEA), ³ TOCALO Co., Ltd.

Study on coating technic to enhance accident tolerance of fuel cladding II (4) Steam oxidation of Ti-coated SiC as Accident Tolerant Fuel Cladding

*Hai Pham¹, Ryo Ishibashi², Masana Sasaki², Yoshiyuki Nemoto¹, and Shinichiro Yamashita¹

¹JAEA, ²HGNE.

Coating of Ti on SiC was proposed to improve its long-term corrosion resistance in high-temperature water. Steam oxidation kinetics and behavior of Ti-coated SiC are studied via a thermogravimetric system at 1200-1500 °C. Influence of the Ti coating layer on oxidation kinetics and behavior of SiC will then be discussed and reported in this study.

Keywords: ATF, SiC, coating, high temperatures, steam oxidation,

1. Introduction

Silicon carbide is the most prominent candidate for accident tolerant fuel cladding in terms of oxidation resistance and cladding integrity at high temperature steam [1]. However, dilution of silica from SiC in aqueous environment under long-term operation can become a concern when considering SiC as nuclear-grade materials [2]. To improve the corrosion resistance in water under normal operation, Ti coating on SiC was proposed. In this study, oxidation tests in steam of Ti-coated SiC samples via a thermogravimetric system at 1200-1500 °C were conducted. To investigate the influence of Ti coating layer on the oxidation of SiC, oxidation tests of CVD-SiC and Zry-4 samples at 1300 °C were also conducted and discussed.

2. Experimental procedure

Samples (10x10x1 mm) used in this study are prepared from SiC/SiC composites with approximately 100 µm in thickness of SiC overcoat layer obtained by chemical vapor deposition (CVD) method. Final coating of Ti-Cr layers (approximately 15 µm in thickness) were obtained by physical vapor deposition (PVD) method. Details of coating design and method have been reported elsewhere [3]. Since the Ti coating layer is the topcoat (the final coating) layer, the SiC samples with Ti-Cr layers are referred as Ti-coated SiC hereafter. Oxidation tests of Ti-coated SiC samples at 1200-1500 °C for 2 hours under a stream of 60 vol.% H₂O/Ar gas mixture were conducted via a thermogravimetry (STA 2500 Regulus, NETZSCH). Quantitative measurement of hydrogen gas generated during the oxidation tests was performed by a sensor gas chromatography (SGHA-P2, FIS Inc.).

3. Results

Results of this investigation indicated that oxidation kinetics of Ti-coated SiC at 1200-1500 °C was observed with two different states. The first state of oxidation seemed to cause by the oxidation Ti coating layers which was faster than the second oxidation state. The oxidation rate observed in the second oxidation state of Ti-coated SiC at 1300 °C was almost identical to the oxidation rate of CVD-SiC at the same conditions. This observation suggested that Ti coating layer did not negatively influence much on the oxidation resistance of SiC substrate. In comparison with Zry-4, both Ti-coated SiC and CVD-SiC showed favorable aspects on oxidation resistance and hydrogen generation during the oxidation at 1300 °C for 2 hours. Details of microstructure evolution of samples will be presented in the presentation.

References

- [1] M. Steinbrueck *et al.*, An overview of mechanisms of the degradation of promising ATF cladding materials during oxidation at high temperatures, *High Temperature Corrosion of Materials* (2024).
- [2] K. Terrani *et al.*, *Journal of Nuclear Materials* (2015) 465, 488-498.
- [3] R. Ishibashi *et al.*, *Coatings* (2022), 12(6), 832.