

[寄稿]

事故耐性燃料（ATF）被覆管の研究開発について

根本 義之（国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究センター 照射材料工学研究グループ）

1. はじめに

本稿では、ATF 研究開発の全体概要、(国研) 日本原子力研究開発機構 (JAEA) での ATF 研究、そして経済協力開発機構/原子力機関 (OECD/NEA) の Quench-ATF プロジェクトの概要について述べる。

2. ATF 研究開発の全体概要

2011年3月11日の福島第一原発事故では、地震後、原子炉（沸騰水型軽水炉）は成功裡に停止したが、冷却系の停止による炉心温度の上昇で水素が発生し水素爆発が発生した。原子炉内では、ジルコニウム (Zr) 合金製の燃料被覆管やチャンネルボックスが使われている。事故時、その Zr が高温水蒸気と反応し激しく酸化した時に水素が大量発生し、爆発を誘発したのではないかと考えられている。

そこで、事故時の水素発生を抑制するため、Zr 合金被覆管に換わる ATF 被覆管の開発が開始された。ATF 被覆管の主な要件は以下の通りである。

- 通常運転時の耐食性の担保、水素吸収の抑制
- 長期間使用した際の物理的、機械的性質が Zr と同等かそれ以上
- 中性子経済性の担保
- 事故時高温水蒸気中での耐酸化性の向上による、事故時安全裕度の向上
- 高温での機械特性の向上

OECD/NEA 専門家グループが ATF 開発の事前検討の際に作ったリスト⁽¹⁾には、被覆管の材料開発として、

- ① シリコンカーバイト (SiC)、シリコンカーバイトの複合材料の研究開発、
- ② Zr 被覆管の表面をより耐酸化性の高い材料でコーティングする研究開発、
- ③ 鉄鋼系材料を使う研究開発、
- ④ モリブデンなど高融点金属を使う研究開発

が掲載されている。しかし、最近では④の研究はなされていないため、現在、被覆管の材料開発は、①～③の3つで進められている。

また、コアコンポーネントの開発としては、(一財)電力中央研究所が開発中の事故耐性制御棒 (ATCR) やチャンネルボックスなどを別のものに換えて事故耐性を上げていこうという研究開発が掲載されている。

3. JAEA での ATF 研究

(1) 資源エネルギー庁委託事業

① 背景

軽水炉の継続的な安全性向上のため、福島第一原発事故の教訓も踏まえ、事故時でも溶融しにくい/水素を発生しにくい ATF 開発が期待されている。そのような中、JAEA は、資源エネルギー庁の委託事業で、プラント・燃料メーカー、民間研究機関、大学などと連携し、ATF を軽水炉に適用するために必要となる技術基盤を整備し、産業界が行う実用化開発に繋げることを目標に、ATF 研究開発を進めている。

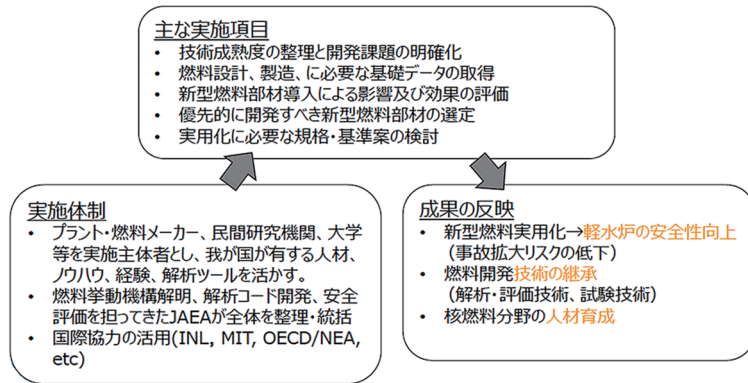


図1 資源エネルギー庁委託事業の実施項目，実施体制，成果の反映⁽¹⁾

② 事業の実施項目，実施体制，成果の反映

図1に主な実施項目，実施体制，成果の概要をまとめた。主な実施項目は，それぞれの材料の技術成熟度の整理と開発課題の明確化，基礎データの取得，あるいはそういった部材を導入したことによる影響や効果の評価，優先的に開発すべきものの部材の選定など，実用化に必要な規格・基準案の検討である。

そのための実施体制として，実際にATFを開発しているプラント・燃料メーカー，民間の研究機関，大学などと連携して事業目的を達成しようとしている。また，解析コードなどを使い，ATFが実際の事故時の効果を評価する必要があるが，現状の解析コードは現行の燃料被覆管を対象に作られているので，ATF被覆管用コードの開発も行う。そして，

照射試験や大型の実験など，日本だけでは実施が困難なことを国際協力で行う体制を組んでいる。

成果の反映としては，軽水炉の安全性向上に資する新型燃料の実用化，燃料開発技術継承，燃料分野の人材育成が考えられる。

③ ATF 開発の流れ

図2は，ATFの実用化に向けた道筋である。最初はプロトタイプの燃料部材などを作って基礎データを取り設計パラメータを確立して行く。その先には，そういった材料の商用炉での照射試験を行い，うまくいけば，新型のATF被覆管を使った燃料棒で集合体を作り，それを商用炉で照射して大丈夫かどうかをみて実用化につなげて行くといった流れである。

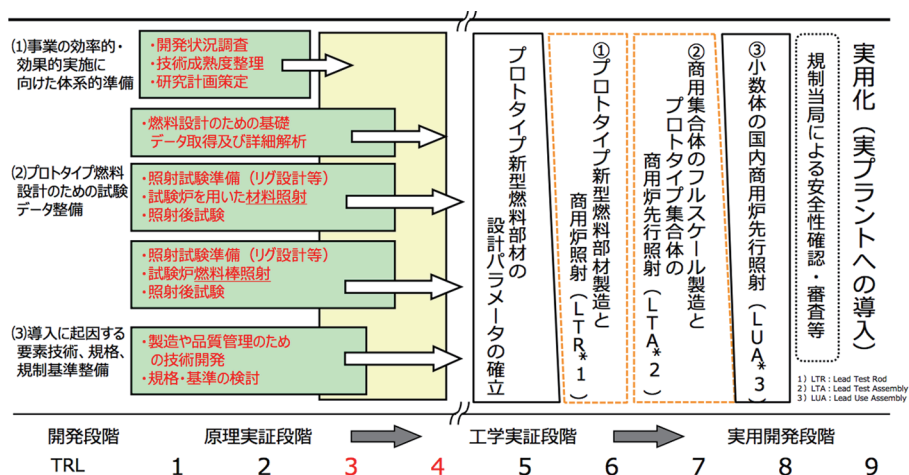


図2 実用化に向けた具体的な道筋⁽²⁾

④ 民間の ATF 研究開発

国内の軽水炉には沸騰水型 (BWR) と加圧水型 (PWR) があるが、それぞれに関して各プラントメーカーが ATF 開発を行っている。

SiC/SiC 複合材については、BWR, PWR 両方用の燃料被覆管、BWR 用チャンネルボックスの開発を東芝エネルギーシステムズ㈱が行っている。燃料被覆管については、日立 GE ニュークリアエネジー㈱でも開発が行われている。

酸化物の粒子をナノサイズで分散させて強度を上げた「改良ステンレス鋼」(FeCrAl-ODS) を使った燃料被覆管については、日立 GE ニュークリア・エナジー㈱、(株)グローバル・ニュークリア・フューエル・ジャパン (GNF-J) 日本核燃料開発㈱ (NFD) が開発を進めている。

PWR 用では、通常の Zr 合金被覆管を Cr でコーティングした燃料被覆管について、三菱重工業㈱ (MHI) が開発を進めている。

JAEA は、これら民間での研究開発を支援するため、第三者視点での技術成熟度 (TRL) やロードマップのレビュー、電力会社と原子力規制庁との情報交換の支援、規格基準策定に向けた取り組みの支援、海外動向の調査などを行っている。

⑤ その他の活動

委託事業の中では前項までの活動に加え、NEA の国際プロジェクト Quench-ATF への参加、海外炉での照射試験、燃料ふるまい解析コードの開発、(一財)電力中央研究所で行っている事故耐性制御棒 (ATCR) の開発、(国研)量子科学技術研究開発機構 (QST) で行っている SiC 試験技術 (通常の金属材料ではなくセラミック製複合材料の特性を評価する試験技術) の標準規格に向けた調査を支援している。なお、国際プロジェクト Quench-ATF については、その概要とこれまでの試験結果を後述する。

(2) Cr コーティング被覆管の基礎研究

JAEA は、上記の受託研究に限らず、自主研

究、民間との共同研究、民間からの受託研究なども行っており、三菱原子燃料㈱ (現三菱重工業㈱) とは、共同で ATF 被覆管の基礎研究を行っている。

その成果を『Cr 被覆管に関する研究 (1) 酸化挙動の評価』と題して、筆者が「2022 年春の原子力学会」で発表した。

同研究では、従来の Zr 合金被覆管 (MDA) に Cr をコーティングして、耐酸化性の向上、水素発生と発熱の抑制、事故耐性の向上を目指した。Cr コーティング被覆管は、最も実用化に近い ATF 被覆管候補であるため、国内外で開発が進められている。基礎基盤的な研究で、ATF 研究開発に貢献したいというのが同研究の目的である。

① LOCA 試験の結果

LOCA 試験中に試料である Cr コーティング被覆管が 800 ~ 850°C くらいで膨れて破裂 (バースト) し穴が開いた。試験ではその後、1,100°C 程度で一定時間保持した後、冷却した。

② 被覆管両面の酸化試験の結果

前項のように、LOCA が起きると破裂で被覆管に穴が空いてしまう。穴が開くと燃料管の外面と内面の両方で酸化が進むため、両面の酸化試験も行った。

試料は、Zr 合金被覆管 (MDA) とスパッタリング蒸着法で外面を純 Cr でコーティングした Cr コーティング被覆管 (20mm 長) を使い、熱天秤を用いて高温水蒸気中での酸化挙動を評価した。

雰囲気条件として、水蒸気を露点 60°C で制御し、アルゴン (Ar) ガスを導入した。流量条件は、これまでの研究で判明した事故時に流れ込む水蒸気量 (0.342mol/m²/s) に合わせた。そして、酸化試験後、光学顕微鏡で観察やレーザーラマン分光分析などを行った。

650°C, 1000°C, 1050°C, 1150°C での酸化量の変化を見たところ、純 Cr の板 (Cr), コーティングしない Zr 合金被覆管 (Bare), 外面だけ

をCrコーティングした被覆管 (Coated) のうち最も酸化するのはBareで、Coatedの酸化量はその半分くらい、Crの板はほとんど酸化していない。

温度条件 650°Cと 1000°Cでは、途中で表面に生成した酸化皮膜が割れて酸化速度が急激に上がる現象 (BA: ブレークアウェイ) が起きている。650°Cではコーティングしていない被覆管よりもCrコーティングした被覆管の方がBA現象も酸化も遅れる傾向が見られる。以上の結果を時間で割った酸化速度の変化であるが、傾向としては同じである。

酸化試験後の被覆管の様子を見ると、Crコーティングした被覆管は、酸化物が表面にでき緑色をしていた。レーザーラマン分光分析の結果、酸化クロム (Cr_2O_3) に典型的なピークシフトが見られた。コーティング被膜管の外表面には、いずれの温度条件でも酸化試験後に Cr_2O_3 が生成していた。

酸化試験後の断面を観察すると、コーティングしていない被覆管は、外面も内面も同じようにZrが酸化して酸化層ができ、4時間半の試験では全て酸化している。Crコーティングした被覆管の場合、内面のZrは普通に酸化しているが、コーティングされていた外面では酸化が大きく抑制されている。ただし、4時間半ではほぼすべて酸化している。

Crコーティングした被覆管の外面近傍の断面を拡大した画像で確認したところ、Zr酸化層の部分は外から酸素が入ってきて酸化したのか、あるいは内面から来た酸素が入ってきて酸化したのか今後検討を要する。

LOCA試験後のCrコーティングした被覆管の外面の膨れた部分には、肉眼でも被覆管の軸方向に沿った縞模様が確認できた。縞の部分では、外面のCr層が割れて穴が空いている。その部分をエネルギー分散型分光法 (EDS) で分析するとZrが確認できた。つまり、被覆管が膨んでCrコーティングが割れて素地が出たために、その部分で局所的に酸化が進んでいることが分かる。このことから考察

すると、熱天秤を使った試験でも、Cr層が一部割れて酸素が入る、あるいはCrを通して酸素が供給されるということが考えられる。

また、通常、BAは酸化層が厚くなって内部の圧縮応力が蓄積することによって起きる。しかし、Crコーティング被覆管では、酸化自体が抑制されるのでBAも起こりにくくなる。

最後に、酸化試験のデータから求めた酸化速度定数 k_p の温度依存性を、コーティングしていないZr、外面だけコーティングしたZr、Crについて比較したところ、コーティングによって、酸化速度定数も低下する傾向があることが明らかになった。学会の発表では、これらを整理し、今後の解析手法の高度化などに貢献したい旨を述べた。

③ 学会発表のまとめ

外面のCrコーティングにより、マクロな酸化は抑制される傾向にある。さらに、低温 (650°C) ではBAの遅延効果も期待できる。

今後は、LOCA時のコーティングの割れを考慮して、事故時の酸化条件に即した酸化モデルの構築、解析コードの高度化を目標に研究を進める。

④ 補足：被覆管酸化挙動評価手法の開発

冷却水損失事故時においては、被覆管の温度が高い部分が膨れて行き、ある程度に達すると割れて破裂開口 (バースト) が起き、その後、内面のZrも酸化して2次水素化が始まる。この段階で被覆管が膨れることでCrコーティング層が割れ、素地のZrが露出すると、Crコーティングの有効性がなくなってくる。そこで、コーティングの割れと温度との関係を今後研究して行こうと考えている。例えば、表面のCr層が割れてしまうしきい変形量がコーティング手法によって異なるならば、それを数値化することで、色々なモデル化に役立つと考えている。それにより「Crコーティング」にもスパッタリング蒸着、コールドスプレイ、イオンプレーティング、メッキなど

色々な手法があるが、どの手法が一番良いのか判断する指標も得られると考えている。

そのために、JAEAでは、中が見える状態で被覆管を加熱するLOCA試験を実施している。従来のLOCA試験では、中が見えない状態で被覆管を加熱する「赤外線イメージ炉」を使っているため、バルーニングの過程が見えない。そのため、試験中も内部が観察可能な「高周波加熱装置」を用いてのLOCA試験装置を開発した。その結果、LOCA試験中、被覆管が真っ赤になり、内圧で被覆管がだんだん膨み最終的にバーストする様子を見ることができた。膨張からバーストに至る様子は、被覆管の変形データを基に機械学習（Machine learning）の手法で数値化し、同じ条件で複数回試験することで再現性を確認済みである。被覆管がバーストすることで、内面のZrの酸化が急激に起き、水素が出てくるが、そのオフガスも質量分析器で測定できる装置を整備している。この装置を用いることで、今後、Crコーティングの研究を進めたいと考えている。

4. NEA プロジェクト：Quench-ATF の概要

OECD/NEAの国際協力プロジェクトQuench-ATFは、2021年10月から始まった4年間のプロジェクトで、試験場所は独カー

ルスルーエ工科大学(KIT)である。KITでは、20年ほど前から事故の条件で模擬集合体を加熱して、事故を模した実験を“Quench”と呼ばれる実験設備で実施してきている。

Quench-ATFでは、KITの“Quench”で3回に分けて実験して行こうという活動である。1回目の試験は2022年6月17日に実施済み、2回目は2024年前半に実施する予定である。2回目では、1回目同様、米ウエスティングハウス・エレクトリック社(WH)が提供する、Zr合金被覆管の表面にコールドスプレイ手法でCrコーティングした試料を使う。さらに、(一財)電力中央研究所が開発中の事故耐性制御棒(ATCR)のペレットも装荷する。

3回目の試験では、より厳しい条件で、物理蒸着(PVD)手法でCrコーティングした被覆管の試験を検討している。試料の提供元については、WH、英国国立原子力研究所(NNL)、仏原子力庁(CEA)などが検討されている。

実施済みの1回目の試験の概要を表1に示す。試料は、ヘリウム雰囲気中で“Zirlo”と呼ばれる被覆管にコールドスプレイ手法で25μm厚のCrコーティングをしたWH社製被覆管(2.3m長)24本での模擬集合体を使った。集合体の中にはZrO₂模擬ペレットが入っていて、さらにその中にヒーター部が入っていて加熱する。24本での模擬集合体を囲むシュ

表1 Quench-ATFプロジェクト(1回目試験の概要)⁽³⁾

試料	<ul style="list-style-type: none"> ● Zirlo 被覆管に He 雰囲気中でのコールドスプレイで 25 μm 厚の Cr コーティングをした Westinghouse の被覆管試料 (2.3m 長), 24 本の模擬集合体 (ZrO₂ 模擬ペレット入り) ● シュラウドも Zr に PVD で 10 μm 厚の Cr コーティングをしたものを使用
試験条件	<ul style="list-style-type: none"> ● Extended DBA 条件 <ul style="list-style-type: none"> ○ 燃料棒には 5.5MPa の内圧 ○ 5K/s で 1600K まで加熱 (過熱水蒸気 0.8g/m²/s 中) ○ → -2K/s で冷却 (この時点で水蒸気量は 10 倍に切替え (ドイツの規制基準に基づくシナリオ)) ○ → 1200K まで冷えた時点で, 4 g/s/rod で注水, 急冷 <p>水蒸気発生量は, コーティングなし材より, 若干低い程度だった (原因は検討中)</p>
試験後の評価	<ul style="list-style-type: none"> ● 金相試験, 中性子ラジオグラフィ, 脆化評価試験等 (一部 CEA, IRSN, PSI 等で実施) ● ベンチマーク解析も実施中 (日本からは (一財) エネルギー総合工学研究所が SAMPSON で参加中)

ラウド材も Zr に PVD で 10 μ m 厚の Cr コーティングをした。試験条件は Extended DBA (拡張設計基準事故) とし、試料を 5 K/s で 1600K まで加熱した後に - 2K/s で冷却し、最後には水を入れて急冷した。

試験中に計測された水素発生量は、予想に反して、コーティングしていない被膜管よりも若干低い程度でしかなかったため、その原因を検討しているところである。

試験後の評価としては、金相試験、中性子ラジオグラフィーによる水素吸収量の分布測定、脆化評価試験などを行った。そのうち、脆化評価試験については、一部を CEA、放射線防護・原子力安全研究所 (IRSN)、ポール・シェラー研究所 (PSI) に移送して行った。ベンチマーク解析も実施中で、日本からは (一財) エネルギー総合工学研究所が解析コード SAMPSON で参加している。

5. おわりに

JAEA では、ATF 研究活動として、資源エネルギー庁委託事業での民間の研究開発のとりまとめとともに、国際協力、海外炉での照射試験や自主的な基礎研究なども実施中である。今後も引き続き ATF の開発に貢献して行きたいと考えている。

参考文献

- (1) 根本義之, 『事故耐性燃料 (ATF) 被覆管の研究開発について』, (一財) エネルギー総合工学研究所主催月例研究会講演資料, 2024 年 2 月 22 日
- (2) 山下 真一郎, 『国内の ATF 研究開発概要』 事故耐性燃料開発に関するワークショップ講演資料, 2023 年 12 月 14 日, 東京大学
- (3) https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_36597/quench-atf-project