様々な酸素分圧下での先進燃料被覆管材 SiC の高温酸化挙動

High-Temperature oxidation behavior of advanced fuel cladding SiC under various oxygen partial pressures

*山口 壮一朗 エクバル ユスフ 白浜 卓馬 村上 幸弘 宇埜 正美 福井大学附属国際原子力工学研究所

抄録

有望な事故耐性燃料被覆材として SiC が注目されている。実機での健全性を確認するために、高密度バルク SiC の高温酸化挙動を空気及び真空(10Pa)で調べ、実験結果の妥当性を熱力学計算からも検討した。

キーワード

炭化ケイ素、高温酸化挙動、熱力学計算、酸素分圧

1. 緒言

現在 LWR の安全裕度を大幅に改善するために、革新的な技術が強く求められており、その中でも SiC による Zr 合金の完全な置換は、事故耐性燃料被覆材として最も有望であると結論付けられている。SiC は、Zr 合金よりも高い高温強度、高い化学的不活性と、重大事故時ではるかに低い水素発生量が期待されるなど多くの魅力的な利点を有している[1]。また、SiC は焼結しにくいという欠点があるために Al_2O_3 等の酸化物助剤を混合、焼結している。これまでに、水蒸気との酸化反応では良好な特性が示されているが、高温、低酸素分圧で大気中の酸素や酸化物助剤と反応し、以下の反応により反応生成物が気化することが知られている[2]。 $SiC(s) + O_2(g) \to SiO(g) + CO(g)$ (1) $SiC(s) + Al_2O_3(s) \to SiO(g) + Al_2O(g)$ (2)

本研究では、高密度バルク SiC と Al_2O_3 との接触における反応試験を行い、熱力学計算により、実験結果の妥当性を検証するとともに、実機での健全性に検討を加えた。 表 1 Al_2O_3 接触 SiC の重量変化

2. 実験方法

実験は、高密度バルク SiC と Al_2O_3 をスパークプラズマ焼結法で作製した。その後、SiC 単体又は Al_2O_3 接触 SiC 試料を大気及び真空(10Pa) で 1573K、25h 又は 1773K、5h で反応させた。熱力学計算は、 $\Delta G = -RT \ln(K)$ を用いて、大気雰囲気 $(K = P_{SiO} \times P_{Al_2O} \times P_{CO}, P_{SiO,Al_2O,CO} = 100Pa)$ 、真空雰囲気 $(K = P_{SiO} \times P_{Al_2O} \times P_{CO}, P_{O_2,SiO,Al_2O,CO} = 3.34Pa)$ より平衡曲線を導出した。

3. 結果

ここでは、 Al_2O_3 接触 SiC の結果を示す。大気雰囲気ではいずれの温度の反応試験でも SiO $_2$ の生成を確認した。真空雰囲気での、反応試験では、1573K では Al_2O_3 と SiC の重量変化が見られず、1773K では Al_2O_3 と SiC の重量が減少し(表 1)、SiC 表面に空孔が形成されていた。熱力学計算においても、1573K は SiC と Al_2O_3 の反応が進まず、1773K は SiC と Al_2O_3 の反応が進まず、1773K は SiC と Al_2O_3 の反応が進むことが示された(図 1)。

温度 重量変化 (mg/cm²) SiC Al₂O₃ 1573K 0.0 0.0 大気雰囲気 1773K 0.0 0.0 1573K 0.0 0.0 真空雰囲気 1773K -17.5 -19.0

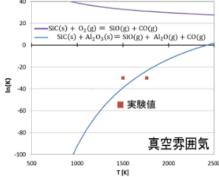


図 1 Al₂O₃接触 SiC の熱力学計算

謝辞:本研究は科研費(26420866)の助成を受けたものである。

参考文献

[1] Barrett, K. et.al Idaho 83415 INL/EXT-12-27090 (2012) [2] T. NAGANO et.al J. Mater. Sci. 37 (2002) 4419-4424

★Souichirou Yamaguchi, Aikebaier Yusufu, Takuma Shirahama, Yukihiro Murakami, Masayoshi Uno Research Institute of Nuclear Engineering, University of Fukui