

JAERI-Research
95-072

JP9601144



高温及び酸化条件下における
被覆燃料粒子のふるまいと
高温ガス炉の設計に関する考察

1995年11月

沢 和弘

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)原子力資料サービス

高温及び酸化条件下における
被覆燃料粒子のふるまいと高温ガス炉の設計に関する考察

日本原子力研究所大洗研究所高温工学試験研究炉開発部

沢 和弘

(1995年10月5日受理)

高温ガス炉の設計上留意すべき点を抽出するために、被覆燃料粒子の事故条件下におけるふるまいについて評価を行った。着目した事故事象としては、昇温事故及び酸化事故である。昇温事故については、照射後加熱試験データによって開発された破損率評価モデルに基づきパラメータ計算を行った。その結果、SiC層厚さの増加により破損率を1桁程度低減できることなどが分かった。酸化事故については、化学平衡計算に基づくSiC層の酸化皮膜形成条件に基づき、破損率評価モデルを提案した。本モデルを用いると、HTTRの減圧事故相当の事故時の追加破損率は0.02%程度になると評価された。本検討結果は、将来高温ガス炉の燃料、安全設計を実施する上で有用であると考えられる。

A Consideration of Coated Fuel Particle Behavior and HTGR Design
under Core Heat-up and Oxidization Conditions

Kazuhiro SAWA

Department of HTTR Project
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received October 5, 1995)

An estimation of coated fuel particle behavior under accident conditions was carried out to reveal important points for High Temperature Gas-cooled Reactor (HTGR) design. Core heat-up and oxidization accidents were chosen in this study. Parameter calculations were carried out with a coated fuel particle failure model, which was developed based on core heat-up simulation tests, to evaluate the fuel failure fraction during core heatup accident. The results showed that the failure fraction will decrease about an order by thicker SiC coating layer.

For an evaluation of fuel behavior under oxidization accident, a fuel failure model based on thermodynamic analysis, which showed the active-to-passive transitions of oxidation of SiC layer, was introduced. Based on this model, an additional failure fraction during depressurization accident of the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) was evaluated to be about 0.02%.

These results obtained from this consideration will be useful for the fuel and safety design of future HTGRs.

Keywords: Coated Fuel Particle, Accident, HTGR, Core Heat Up, Oxidization,
Failure Fraction

目 次

1. はじめに	1
2. 高温状態における燃料挙動	2
2.1 解析モデル	2
2.2 計算結果	4
2.3 設計における考察	5
3. 酸化状態における燃料挙動	11
3.1 解析モデル	11
3.2 計算結果	12
3.3 設計における考察	14
4. まとめ	18
謝 辞	19
参考文献	19

Contents

1. Introduction	1
2. Coated Fuel Particle Behavior under Core Heat Up Condition	2
2.1 Analytical Model	2
2.2 Calculation Result	4
2.3 Considerations for Design	5
3. Coated Fuel Particle Behavior under Oxidization Condition	11
3.1 Analytical Model	11
3.2 Calculation Result	12
3.3 Considerations for Design	14
4. Summary	18
Acknowledgement	19
References	19

1. はじめに

高温ガス炉の燃料は、軽水炉等の燃料とは全く異なり、直径500～600 μm 程度の燃料核をセラミクスで多層被覆した球を基本単位としている。このため、軽水炉や高速炉のように金属製の被覆管を用いた燃料では被覆管温度を650 $^{\circ}\text{C}$ 以上にするには困難であるのに対し、高温ガス炉の燃料では、その被覆層の温度が1000 $^{\circ}\text{C}$ 以上でも使用上問題なく、冷却材温度を極めて高温にできる。

高温ガス炉の特徴の一つとして、高い固有の安全性が挙げられる。高温ガス炉が固有の安全性に優れているのは、主に以下の理由による^{(1)、(2)}。

- ①炉心構成材に黒鉛を用いているので、炉心体積が軽水炉等と比較して相対的に大きい。このため、出力密度が小さく熱容量が大きくなり、出力の異常な上昇や冷却能力の異常な低下などが生じても炉心温度の変化が極めて緩慢となる。
- ②異常状態が起これば炉心の温度が上昇すると、温度上昇による出力を抑える負のフィードバックが他の原子炉よりも大きい。
- ③金属を用いていないので、炉心が高温になっても、燃料被覆や炉心構成物が溶融することはなく、炉心溶融の心配がない。

具体的には、燃料粒子被覆層は、高温まで破損しない（高温工学試験研究炉（HTTR）では、通常運転時および運転時の異常な過渡変化時の判断基準として1600 $^{\circ}\text{C}$ としているが、実際は短時間であれば約2200 $^{\circ}\text{C}$ まで核分裂生成物の閉じ込め能力の急激な劣化は生じない⁽³⁾）。また、炉心の主要な構成材料である黒鉛は、2500 $^{\circ}\text{C}$ 程度までは強度の低下はない⁽³⁾。ただし、炉心の主要な構成材料である黒鉛は、酸素と反応して酸化する可能性がある。

これらの特徴から、1600 $^{\circ}\text{C}$ を長時間超えるような昇温事故及び大量の空気が炉心内に侵入する酸化事故時の燃料挙動が安全上重要であると考えられる。

昇温事故については照射後加熱試験で模擬できる減圧事故や加圧事故のようなゆっくりとした挙動の他に、反応度添加事故のような昇温速度が比較的速い事故が考えられる。昇温条件下における燃料挙動については、照射後加熱試験等のデータ及びこれに基づく破損率評価モデルが提案

2. 高温状態における燃料挙動

2.1 解析モデル

高温状態における被覆燃料粒子挙動については、アメリカ、ドイツ、日本を中心に照射後加熱試験によりデータが取得されている他、これらのデータに基づくモデルがいくつか提案されている⁽⁷⁾。これらのモデルでは以下の点が共通している。

- (1) SiC層の破損をもって被覆燃料粒子破損とする。
- (2) 昇温によりSiC層の強度低下が生じる。
- (3) 破損確率は統計的にワイブル分布で表現できる。

本検討では、以下に示す小川等により提案された国産SiC層被覆粒子の照射後加熱試験データに基づくモデル⁽⁴⁾・⁽⁸⁾を用いる。このモデルでは、破損確率（ f ）は以下のように表される。

$$f = 1 - \exp(-(\sigma/\sigma_0)) \quad (2-1)$$

$$\sigma = P(r/2t) \quad (2-2)$$

$$\sigma_0 = 1650 \exp(-12.5P_0) \quad (2-3)$$

$$P_0^4 = 5 \times 10^9 t \times \exp(-912 \times 10^3 / 8.314T) \quad (2-4)$$

ここで、 r はSiC層内面までの距離、 t はSiC層厚さ、 P は内圧、 P_0 はSiC層のポロジティ、 t は照射期間、 T は照射温度である。

このモデルでは、昇温事故条件下における破損機構としてSiC層の内圧破損を考慮しており、SiC層の強度低下を加熱によって増加するポロジティで表している。本モデルの基本的な妥当性は超高温照射後加熱試験結果を用いて確認されているが、その適用範囲、特に1800°C以下の比較的温度の低い領域における成立性は必ずしも明らかにされてはいない。しかしながら、本検討の目的は、今後の高温ガス炉の燃料、炉心設計上重要なパラメータの抽出とその効果を定量的に示すことであることから、本モデルを用いて相対比較を行うこととした。

されている⁽⁴⁾。一方、後者については、NSRRを用いた照射試験が行われており⁽⁵⁾ これを受けてモデルの開発等が行われる予定である。ここでは、減圧事故等による長時間の昇温条件下

における被覆燃料粒子挙動について検討を行う。

被覆燃料粒子の酸化は、水又は空気が炉心に侵入することによって生じるが、これについては、世界的に実験データは少なく検討課題となっている。また、酸化事故は将来の高温ガス炉燃料として期待されているZrC被覆粒子にとって最も厳しい事故であると考えられており⁽⁶⁾ 設計上の対応方法の確立は重要な課題である。ここでは、一つの提案として、化学平衡計算に基づくSiC層の酸化皮膜形成条件に基づき、破損率評価モデルを作成し検討を行った。

本検討は、被覆燃料粒子の昇温時及び酸化時におけるふるまいに関する現在の知見を整理し、評価モデルを用いて破損率をできるだけ定量化すると共に、その結果を踏まえて設計上留意すべき点を抽出することを目的として行ったものである。

2.2 計算結果

内圧は気体の状態方程式を用いて計算した。被覆燃料粒子内のガス溜の自由体積はバッファ層の体積と密度に基づき $3 \times 10^{-11} \text{ m}^3$ と仮定した。内圧に寄与する気体は、安定希ガスと二酸化ウランからの遊離酸素によるとし、希ガスの発生量は $0.31F$ (F は核分裂数)、遊離酸素の発生量を $10^{-0.21-8500/T} \times t^2 \times F$ (t はdays)として計算した⁽⁹⁾。計算は、ある期間照射された被覆燃料粒子がその後加熱されるという条件で実施した。これは、炉心内の燃料の状態としては、ある温度である燃焼度まで燃焼した被覆燃料粒子が、その時点で生じた昇温事故によってある温度にある時間保持された時の破損確率を推定することに対応する。高温ガス炉の昇温事故の特徴は、燃料温度の上昇分は比較的小さくその時間的挙動が緩慢であることである。緩慢な挙動であることは逆に高温に保持される時間が長いことも意味しており、H T T Rの減圧事故を例にすると、高温に保持される時間は数十時間以上である⁽¹⁾。

Figure 2.1は加熱（昇温）前の破損確率を示したものである。横軸は照射温度を縦軸は破損率を表している。図中の基準ケース (Reference) とは、H T T R初装荷燃料とその照射条件に相当する場合であり、S i C厚さが $25 \mu\text{m}$ 、照射日数が660日の場合である。この計算モデルは照射後加熱による破損確率を計算するために作成されたものであるため、この場合の絶対値の妥当性は検証されていないが、参考までに示すと、照射温度が 1230°C 程度で破損率は 0.01% 程度となる。照射日数を2倍の1320日とすると、照射温度が 1000°C 程度で破損率が 0.01% となる。また、照射日数を半分の330日とすると、 1520°C 程度の照射温度で破損率が 0.01% となる。また、S i C層厚さを新たに開発された高燃焼度燃料⁽¹⁰⁾と同じ $35 \mu\text{m}$ とした場合、S i C層の強度が増すことにより同一照射条件における破損確率は約 $1/5$ に低下する。

Figure 2.2は基準ケースの照射条件に対し、加熱温度をパラメータとしたときの時間依存の破損確率を示したものである。加熱温度、すなわち昇温事故時の燃料温度が 2200°C に達すると数時間で急激に破損が生じ、100時間後には破損確率は 100% となる。 2000°C でも有為な破損が比較的短時間で生じると予測される。加熱温度が 1800 及び 1600°C の場合の破損確率をFig. 2.3に詳細に示す。Figure 2.3では、S i C層厚さを $35 \mu\text{m}$ とした場合の結果についても示している。S i C層厚さを $35 \mu\text{m}$ とすると、破損確率は約1桁小さくなる。

加熱温度と破損確率の関係をFig. 2.4に示す。図中の四角は加熱時間100時間、三角は500時間、丸は1000時間の値である。さらに、S i C層厚さについても $25 \mu\text{m}$ 及び $35 \mu\text{m}$ の2ケースについて示している。

2.3 設計における考察

以上の結果をまとめると、以下のことが分かる。

- ・加熱温度が1600°Cまでは、著しい破損は生じない。加熱温度が1800°Cでは数時間程度ならば破損率の上昇は極わずかである。従って、設計における燃料の許容設計限界は、現在の1600°Cから数時間であれば1800°Cまで緩和できる可能性がある。
- ・SiC層厚さを25 μm から35 μm に増加することにより、昇温事故による破損率は約1桁低減できる。本検討では、バッファ層の厚さ等は変更していないが、高燃焼度燃料ではバッファ層も厚くすることを考えているため、さらに破損率の低減効果は大きくなる。燃料設計においては、昇温事故時の破損率低減の観点からも高燃焼度燃料の採用が望ましい。
- ・米国のモジュラー型高温ガス炉のように、設計において事故時における燃料破損率の制限値を設定する⁽¹¹⁾と、本モデルを用いて加熱温度と加熱時間の関数で制限条件を設定することができる。許容される事故による追加破損率を仮定した場合、それぞれの値を下回るために許容される加熱時間と加熱温度の関係を本検討結果に基づきTable 2.1に示す。燃料の許容設計限界にこうした考え方を取入れることにより、事故時の被曝評価等を合理的に実施することができると期待される。
- ・将来の炉では、出力密度、燃焼日数の増加等により燃料の燃焼度が高くなると考えられる。本計算結果では、燃焼度が2倍になると、同一加熱条件下で破損率は約3桁大きくなる。このことは、事故時における被覆燃料粒子破損率に制限を設けた場合は、昇温条件によって燃焼度が制限される可能性があることを示している。

Table 2.1 許容される追加破損率と加熱時間、加熱温度の関係

SiC層厚さが35 μ mの時

許容される 破損率	加 熱 時 間 (時間)		
	100	500	1000
10^{-4}	1530	1500	1470
10^{-3}	1730	1680	1650
10^{-2}	1900	1850	1820

SiC層厚さが25 μ mの時

許容される 破損率	加 熱 時 間 (時間)		
	100	500	1000
10^{-4}	<1400	<1400	<1400
10^{-3}	1550	1530	1520
10^{-2}	1760	1720	1700

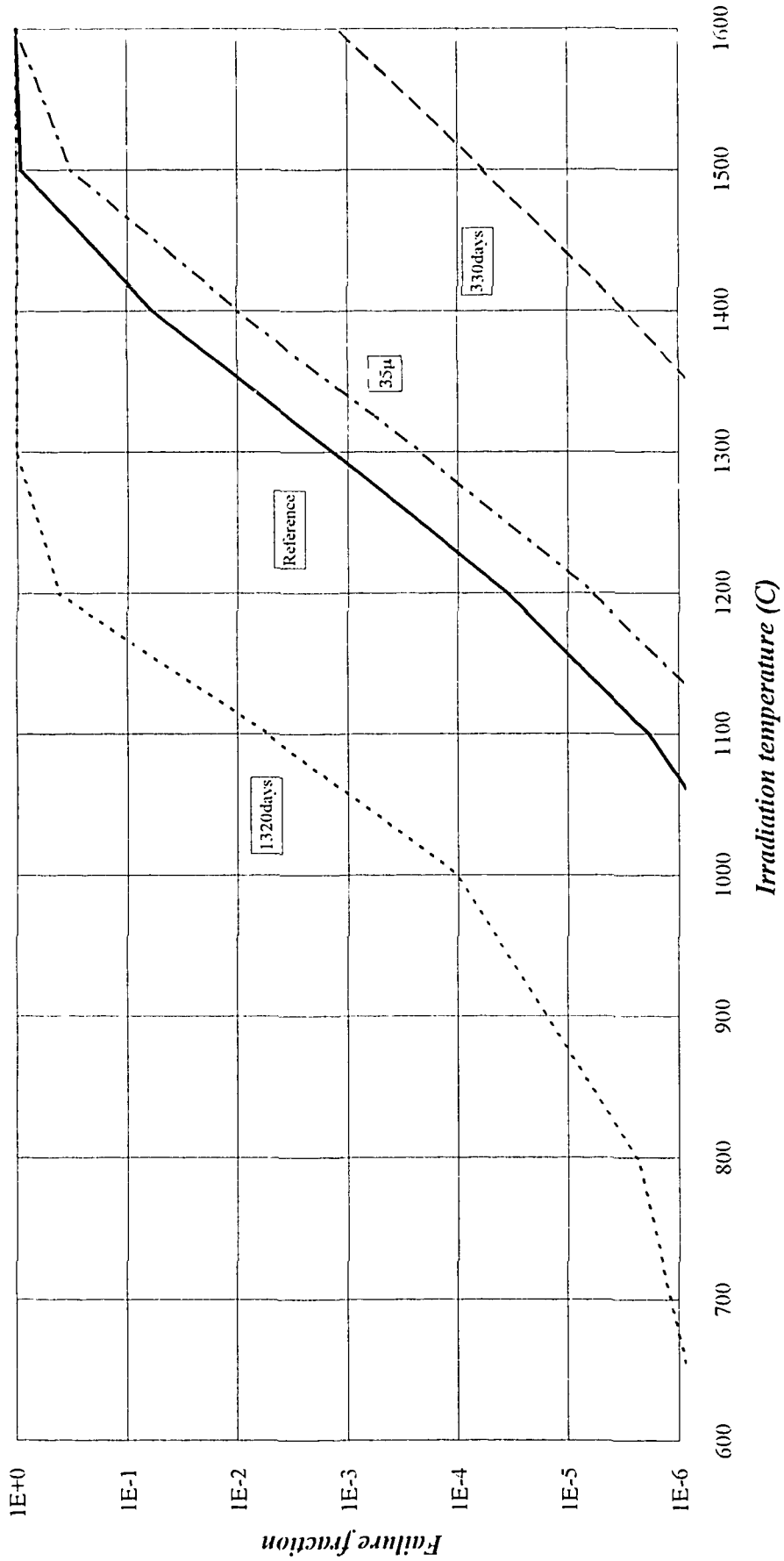


Fig. 2.1 照射温度と破損確率の関係

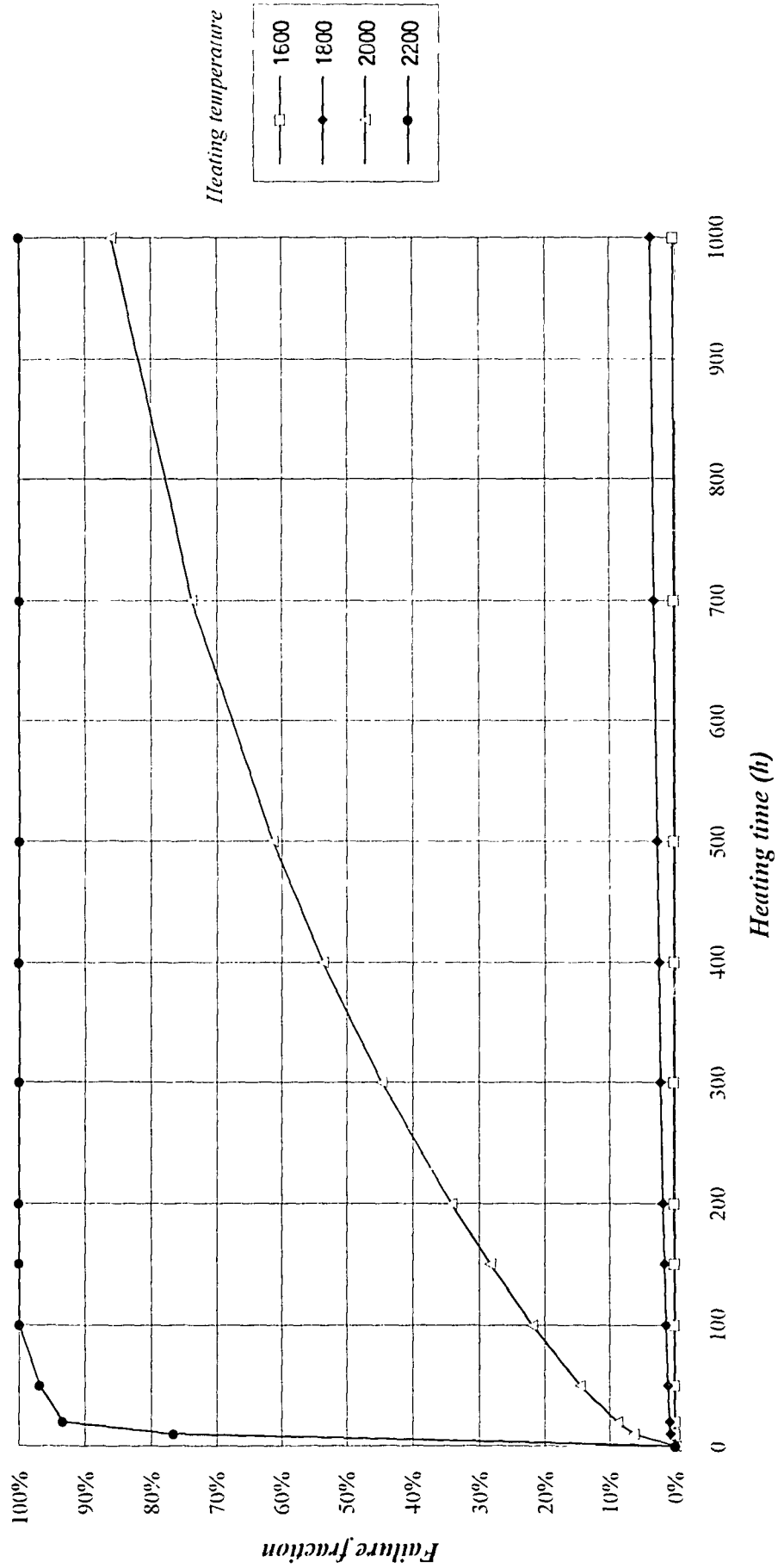


Fig. 2.2 加熱時間と破損確率の関係
(加熱温度1600、1800、2000、2200°C)

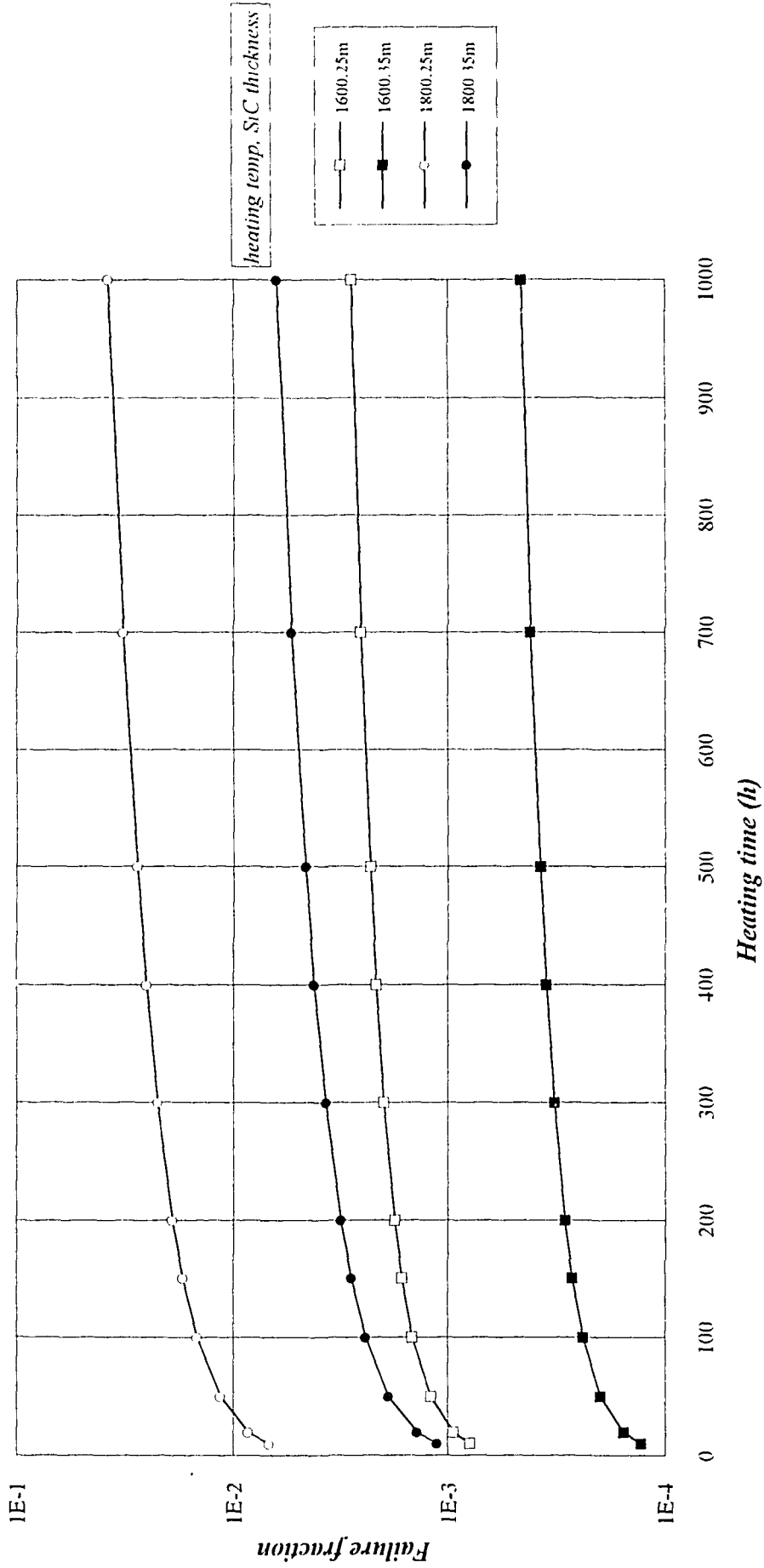


Fig. 2.3 加熱時間と破損確率の関係
(加熱温度1800及び1600°C)

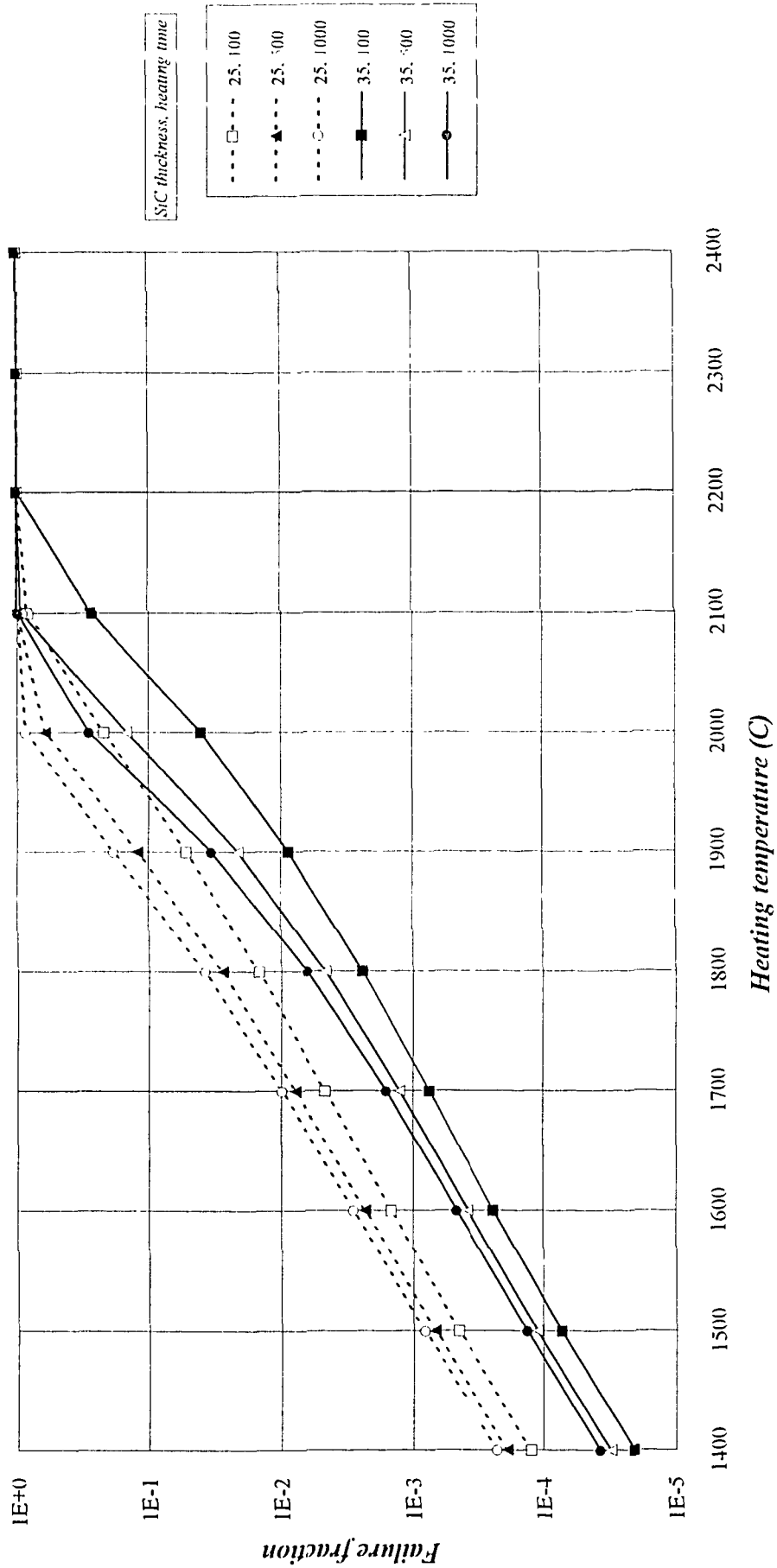


Fig. 2.4 加熱温度と破壊確率の関係
(加熱時間100、500、1000時間)

3. 酸化状態における燃料挙動

3.1 解析モデル

高温状態の炉心に水（水蒸気）や空気が大量に侵入すると、黒鉛構造物の酸化が生じる。高温工学試験研究炉（HTTR）のようなピンインブロック型燃料体では、核分裂生成物を格納している被覆燃料粒子は黒鉛スリーブ内に封入された燃料コンパクト内にあるため、酸素はまず外側の黒鉛スリーブを酸化した後、燃料コンパクトの外面に到達する。燃料コンパクトが酸化されると、酸化された部分に含まれる被覆燃料粒子が外側から酸化されることになる。

現在、酸化による被覆燃料粒子の健全性に関するモデルはない。実験データについても、後述するように、原研で実施した大量の空気を流した場合の酸化試験^(1,2)及び現在実施中のドイツによる酸化試験^(1,3)があるのみである。

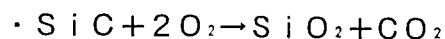
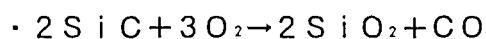
これまでの米、独のモデルでは、酸化事故によって破損粒子からのFP放出量の上昇は考慮するが、大量の空気侵入によっても酸化皮膜が形成されるため、1600°C以下では追加破損を考慮する必要はないと仮定している。また、水侵入時の被覆燃料粒子破損挙動については空気侵入の場合と異なるという検討は特に行っていない。

酸化時の燃料挙動としては、湊等により化学平衡状態におけるSiC層の状態が、酸素分圧及び温度の関数として評価されている^(1,4)。後述のように、本検討ではこの平衡計算結果を用いて酸化挙動の解析モデルを作成し検討を行う。

酸素の供給量が十分な場合、酸化により燃料コンパクト及び外側PyCはほぼ完全に失われる。この時の燃料破損に至るシーケンスは以下ようになる。

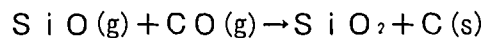
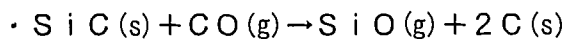
- ・ 空気、水蒸気侵入→燃料コンパクト酸化→SiC層酸化→破損（→FP放出）

最も単純な場合として、十分な酸素供給量の基で酸化が生じることを考えると、SiC層の酸化反応は以下のように生じる。

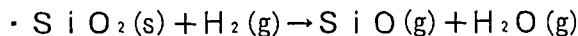


SiO₂ はガラス転移温度約1450°C、融点約2000°Cである。菊池等による実験⁽¹²⁾では、この反応が起こり、燃料コンパクト及び外側の熱分解炭素層が全て酸化により除去されてもSiC層の破損は生じなかったと考えられる。

酸化雰囲気中では酸化物の方が安定であるが、雰囲気状態によって異なる生成物が生じる。湊等による化学反応計算⁽¹⁴⁾によると、酸素分圧が0.1気圧以下では、揮発性のSiOが生じ、SiC層の酸化反応が進み、燃料破損にいたると考えられる。一方、高酸素分圧下ではフィルム状にSiO₂が生成し、表面に安定な保護膜を形成するため反応はそれ以上進まず、燃料破損に至らない。この過程を示すと以下のようなになる。



水、水蒸気侵入時のように水素が共存する場合は、以下のような反応が生じる。



湊等による計算結果をFig. 3.1に示す⁽¹⁴⁾。この図に基づき酸化皮膜を形成しない条件、すなわちSiC層が酸化される条件を以下のように表す。

$$\log_{10} P_{\text{O}_2} \leq -1.67 \times 10^4 \times (1/T_s) + 14.3 \quad (3.1)$$

ここで、P_{O₂}は酸素圧力(Pa)、T_sは酸化反応が生じる閾温度(K)である。

今、酸化反応速度が十分早いと仮定すると、(3.1)式を満足する条件で酸化反応が生じ、SiC層が酸化により無くなっていくと考えることができる。次節で、HTTRの1次冷却設備二重管破断事故(減圧事故)相当の条件を例に、このモデルの具体的な適用例を示す。

3.2 計算結果

HTTRの減圧事故では、1次冷却設備の二重管配管が瞬時破断し1次冷却材であるヘリウムガスが原子炉格納容器内に放出された後、空気が炉心内に侵入する。原子炉はスクラムするが強制冷却を行えず、除熱は炉容器冷却設備のみによるため、残留熱により炉心温度は数十時間にわたって比較的高い温度(1000°C程度以上)に保持される。その間に、原子炉格納容器内の空気が炉心内に侵入した場合の燃料破損率を前節のモデルに従って以下のように評価する。なお、実際

には酸素は炉心の下部の黒鉛構造物等により大部分が消費されてしまうと考えられるが、本検討では簡単のためにこの効果を見せ、酸素が直接燃料コンパクトに到達すると仮定している。

- ・供給される空気量を W (g) とすると、 O_2 の量は $6.9 \times 10^{-3} W$ (mol) となる。
- ・原子炉格納容器の体積を V (m^3) とすると、 O_2 の圧力は $5.8 \times 10^{-2} WT / V$ (MPa) となる。ここで、 T は温度 (K) である。HTTRの原子炉格納容器の体積は $2800 m^3$ であるので、酸化が起きる条件を(3.1)式を用いて評価すると、Fig. 3.2に示すような範囲となる。図では、供給酸素量をパラメータとして酸化が生じる閾温度を示している。例えば供給酸素量が1 ton の時は、温度が約 $1400^\circ C$ を超える部分にある被覆燃料粒子のSiC層は酸化され燃料破損に至る。
- ・被覆燃料粒子1個当たりのマトリックス部黒鉛及び外側高密度熱分解炭素層に含まれる炭素量は 1.8×10^{-3} (g) = 1.5×10^{-4} (mol) である。また、被覆燃料粒子1個当たりの炭化ケイ素は 1.6×10^{-4} (g) = 4.1×10^{-6} (mol) である。被覆燃料粒子の破損が生じるために必要な酸化率を f ($0 \leq f \leq 1$) とすると、1個の被覆燃料粒子を破損させるために必要な酸素量は、以下のようになる。

$$2 \times (4.1 \times 10^{-6} \times f) + 1.5 \times 10^{-4} \text{ (mol)} \quad (3.2)$$

ここで、 $f = 1$ はSiC層が全て酸化された粒子を破損粒子とみなすことに相当し、 $f = 0$ は外側高密度熱分解炭素層が全て酸化された粒子 (SiC層は酸化されていない) を破損粒子とみなすことに相当する。

- ・供給される酸素量は $1.4 \times 10^{-2} W$ (mol) だから、破損しうる被覆燃料粒子量 N は、

$$N = 1.4 \times 10^{-2} W / (2 \times (4.1 \times 10^{-6} \times f) + 1.5 \times 10^{-4}) \quad (3.3)$$

となる。

- ・今、供給空気毎に酸化が生じる閾温度、破損しうる粒子数 (f が0の場合と1の場合) を示すと、Table 3.1 のようになる。(HTTRの減圧事故時の供給空気量は1 ton弱である。)
- ・さらに、減圧事故期間中の温度の空間的な分布を考慮し、それぞれの閾温度を超える燃料の割合 $g(T_c)$ とすると、破損しうる粒子数は、 $N \times g(T_c)$ となる。全炉心の粒子数を N_A とす

ると、酸化による破損率は、

$$N \times g(T_c) / N_A \quad (3.4)$$

となる。

- ・試算のために、Fig. 3.3に示すような温度分布を仮定し、 $N_A=8 \times 10^8$ とすると、破損率は Table 3.2 及び Fig. 3.4 のようになる。(実際の事故条件では、酸素濃度と燃料温度は空間的、時間的に変化するため、その履歴を追って評価を行う必要がある。ここでは、Fig. 3.3 の様な温度分布が事故後連続するという仮定である。)

3.3 設計における考察

実験による確認や詳細なモデルの検討等が今後必要ではあると考えられるが、化学平衡状態の計算結果に基づく酸化事故時の燃料破損率の評価方法を提案した。この評価方法を用いると、SiC被覆粒子の酸化による破損は、基本的に酸素濃度と温度の関数として表される。酸素濃度が低い方がより低い温度で酸化反応が生じる。そのため、燃料破損の観点からは、供給される空気又は水の量が多いほど酸化による破損率が高くなるとは必ずしも言えないことになる。すなわち、酸化事故時の燃料健全性の観点からは、設計において中途半端な酸素量制限を行うと、酸化皮膜の生成を妨げ、大量破損につながる可能性がある。また、酸化事故時においても燃料温度をできるだけ低くすることは、追加破損の防止に有効である。

本モデルを用いてHTTRの減圧事故時における燃料破損率を評価すると、原子炉格納容器内の空気が全て燃料コンパクト部に到達したとしても、0.02%程度の破損が生じるのみであると試算された。

また、ここでは定量的な検討を行わなかったが、ZrC被覆粒子は酸化皮膜を形成しないことが分かっており⁽¹⁴⁾、これまでの検討で $g=1$ 、 $f=0$ とすることにほとんど相当する。このことは、ZrC被覆粒子を用いた場合、炉心内に酸素が侵入することにより大量破損が生じる可能性を示唆しており、設計上対策が必要となる。この一つの案として、燃料コンパクト表面に数百ミクロン程度のSiC層を被覆する方法が考えられる。この場合においても、ここで提案したモデルを用いて、燃料コンパクト表面に酸化皮膜の保護層が形成されるかどうかを判定し、破損率を算定できると考えられる。

Table 3.1 供給空気量と破損が生じる閾温度及び破損しうる粒子数

供給空気量	閾温度 (°C)	破損しうる粒子数 (f = 1 ~ 0)
1 g	764	84~93
100 g	918	8350~9270
10 kg	1127	$8.35 \times 10^5 \sim 9.27 \times 10^5$
1 ton	1426	$8.35 \times 10^7 \sim 9.27 \times 10^7$
100 ton	1895	$8.35 \times 10^9 \sim 9.27 \times 10^9$ (全粒子数 8×10^8)

Table 3.2 供給空気量と破損割合

供給空気量	g (T _c)	破損割合 (f = 1 ~ 0)
1 g	0.942	$9.8 \times 10^{-8} \sim 1.1 \times 10^{-7}$
100 g	0.708	$7.4 \times 10^{-6} \sim 8.2 \times 10^{-6}$
10 kg	0.199	$2.1 \times 10^{-4} \sim 2.3 \times 10^{-4}$
1 ton	2.26×10^{-3}	$2.4 \times 10^{-4} \sim 2.6 \times 10^{-4}$
100 ton	1.21×10^{-9}	1.2×10^{-9}

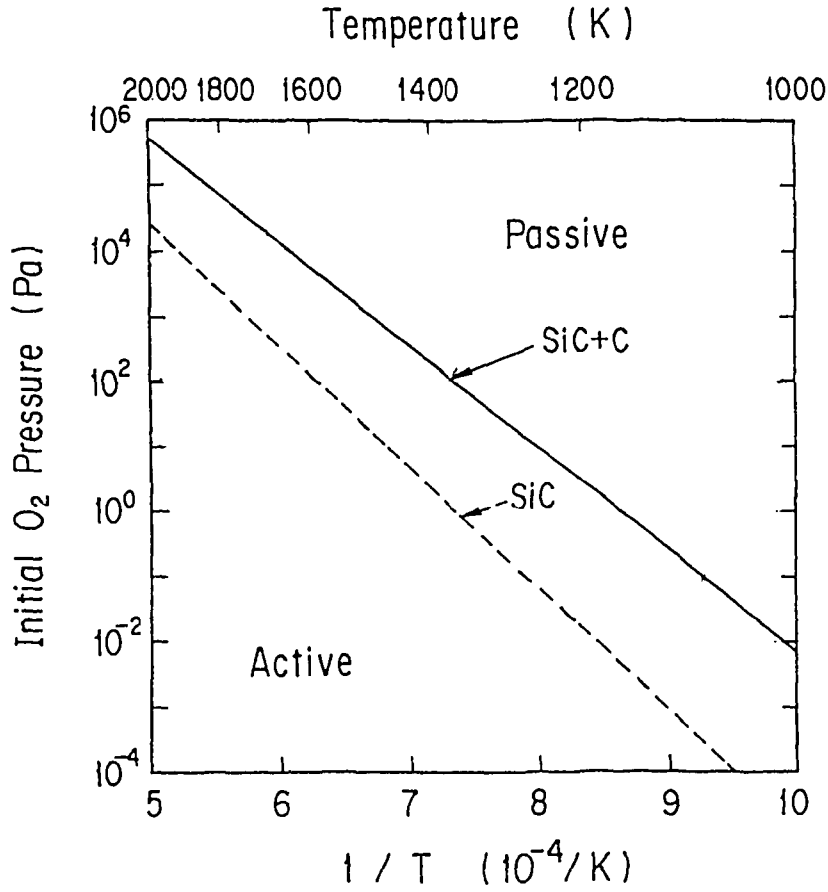


Fig. 3.1 酸素分圧と温度によるSi化合物の生成条件⁽¹⁴⁾

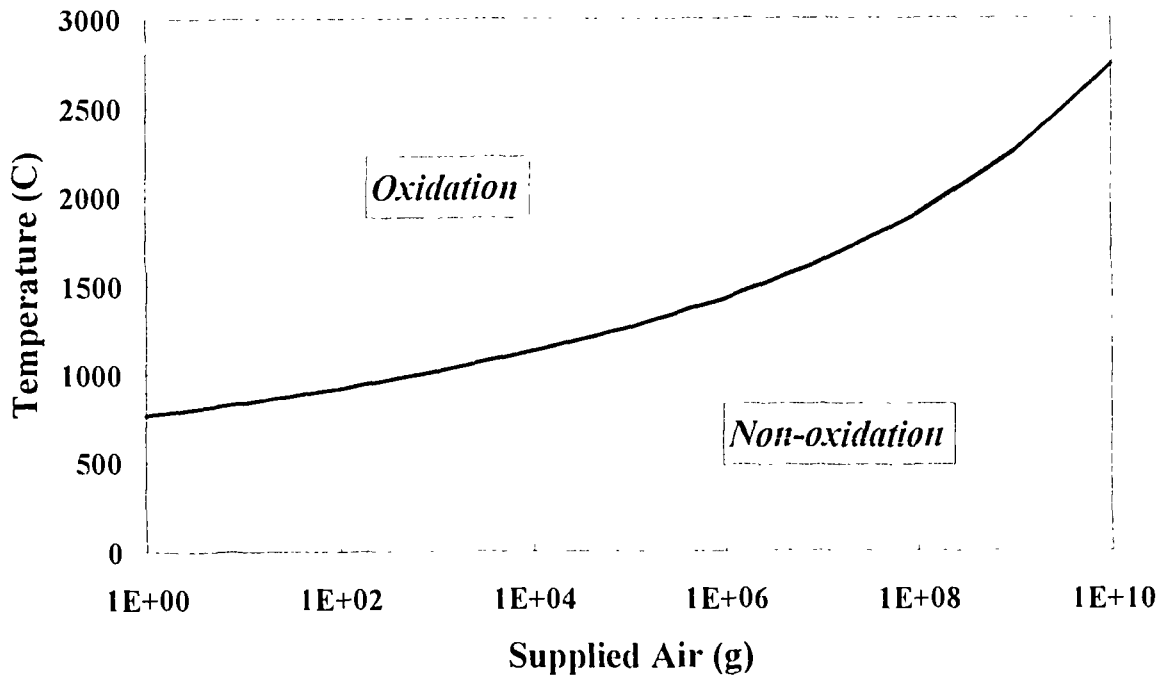


Fig. 3.2 酸素供給量と酸化反応が進行する温度条件の関係

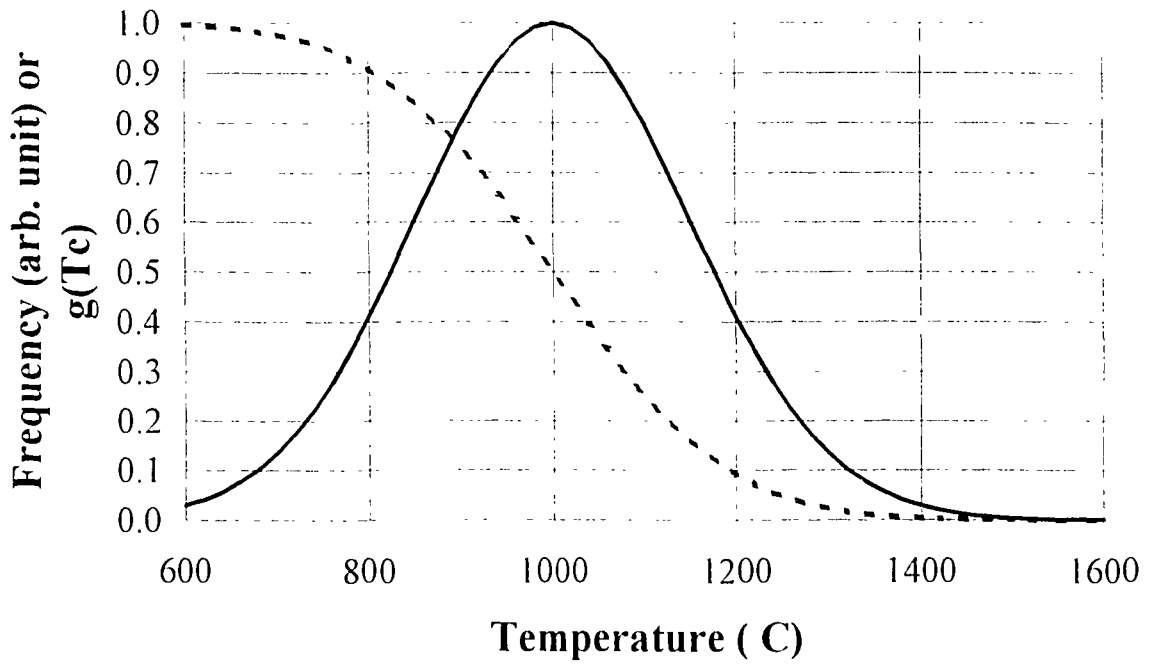


Fig. 3.3 計算に用いた減圧事故時の温度分布

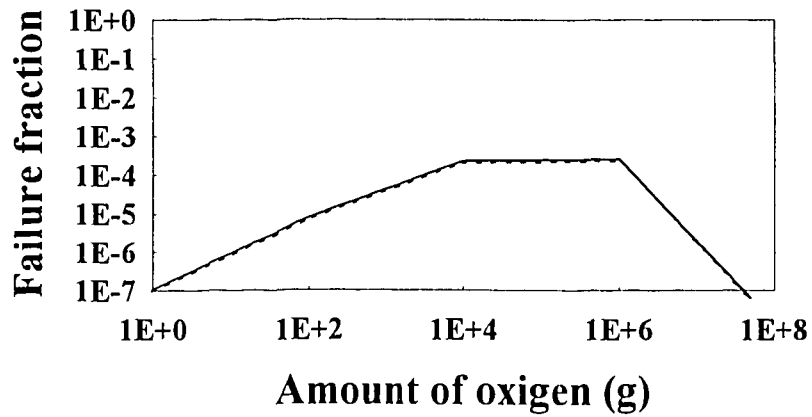


Fig. 3.4 酸素量と破損率 (HTTRの減圧事故相当時)

4. まとめ

高温ガス炉の事故時における燃料の健全性の観点から重要な、昇温事故及び酸化事故条件下における燃料挙動について、概略検討を行った。

昇温時の燃料挙動については、原研で開発されたモデルに基づきパラメータ計算を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

- ①設計における燃料の許容設計限界は、現在の1600°Cから数時間であれば1800°Cまで緩和できる可能性がある。
- ②SiC層厚さを25 μm から35 μm に増加することにより、昇温による破損率は約1桁低減できる。
- ③燃焼度が2倍になると、同一加熱条件下で破損率は3桁程度大きくなる。このため、昇温事故条件から燃焼度が制限される可能性がある。

酸化挙動に関しては、酸化保護皮膜の形成される条件に着目してその酸化挙動を評価した。その結果、以下のことが明らかになった。

- ①酸素濃度が低い方が低い温度で酸化反応が生じる。燃料破損の観点からは、供給される空気又は水の量が多いほど酸化による破損率が高くなるとは言えない。そのため、設計において中途半端な酸素量制限を行うと、酸化皮膜の生成を妨げ、大量破損につながる可能性がある。
- ②酸化事故時においても燃料温度をできるだけ低くすることは、追加破損の防止に有効である。
- ③HTTRの減圧事故相当の試算では、原子炉格納容器内の空気が全て燃料コンパクト部に到達したとしても、0.02%程度の破損が生じるのみである。

謝 辞

本検討を行うに当たり御指導を頂いた田中利幸HTTR開発部長、馬場治同部次長、塩沢周策HTTR原子炉開発室長に深く感謝いたします。また、燃料研究部燃料照射研究室の湊和生氏には燃料酸化について御教示いただいた。深く感謝いたします。さらに、本報告書の作成に当たって貴重なコメントを頂いたHTTR原子炉開発室の国富一彦氏に深く感謝いたします。

参考文献

- (1) S. Saito, T. Tanaka, Y. Sudo, O. Baba, et. al., "Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR)", JAERI-1332 (1994).
- (2) 沢和弘, 塩沢周策, 新藤雅美, 田沢勇次郎, 他, "高温工学試験研究炉の立地評価", JAERI-M 91-158 (1991).
- (3) 林君夫, 沢和弘, 塩沢周策, 福田幸朔, "高温工学試験研究炉用燃料の健全性の評価と許容設計限界", JAERI-M 89-162 (1989).
- (4) T. Ogawa, K. Minato, K. Fukuda, M. Numata, et. al., "A Model to Predict the Ultimate Failure of Coated Fuel Particles during Core Heatup Events", Nucl. Technol., 96 pp. 314-322 (1991).
- (5) 燃料照射研究室, "平成4年度燃料研究状況報告書(第3号)", 原研未公開資料 (1994).
- (6) 塩沢周策, 沢和弘, 山下清信, 丸山創, 他, "将来の高性能高温ガス炉燃料体の検討", 原研未公開資料 (1993).
- (7) K. Verfondern, R. C. Martin, R. Moormann, "Methods and Data for HTGR Fuel Performance and Radionuclide Release Modeling during Normal Operation and Accidents for Safety Analysis", Jul-2721 (1993).

- (8) T. Ogawa, K. Fukuda, "Performance of the Model Fuel Pin of the Very High-Temperature Gas-Cooled Reactor at Temperatures Above 2000°C", Nucl. Eng. Des., 92 pp.15-26 (1986)
- (9) 沢和弘, 中川繁昭, 湊和生, 塩沢周策, "反応度異常時における被覆燃料粒子の温度評価", JAERI-M 92-175 (1992).
- (10) 沢和弘, 福田幸朔, R. Acharya, "高温ガス炉燃料の高燃焼度照射試験における燃料温度予測", JAERI-Tech 94-038 (1995).
- (11) T. D. Dunn, K. Datta, C. Hoot, "Preliminary Safety Assessment of the 450MWT MHTGR", Proc. IAEA Specialists' Mtg. on Behaviour of GCR Fuel under Accident Conditions, IWGGCR /25, pp.111-116 (1990)
- (12) 菊地啓修, 林君夫, 福田幸朔, "高温工学試験研究炉用燃料の空気酸化挙動", JAERI-M 92-114 (1992).
- (13) K. Sawa, K. Minato, K. Fukuda (ed.), "Proceedings of the Second Research Coordinating Meeting on Validation of Fission Product Behavior in Gas-cooled Reactors", 原研未公開資料 (1995).
- (14) K. Minato, K. Fukuda, "Thermodynamic Analysis of Behavior of HTGR Fuel and Fission Products under Accidental Air or Water Ingress Conditions", "Proc. IAEA Technical Committee Mtg. on Response of Fuel, Fuel Elements and Gas-cooled Reactor Cores under Accidental Air or Water Ingress Conditions, IAEA-TECDOC-784, pp.86-91 (1995).

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質	モル	mol
光	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	シーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インタクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ヘクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
 1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
ハ	bar
ガ	Gal
キュ	Ci
レントゲン	R
ラ	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
 1 b = 100 fm² = 10⁻²⁸ m²
 1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
 1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
 1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
 1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
 1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
 1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」 mmHgを表2のカテゴリーに入れていない。

換 算 表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁶ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻³
	6.89476 × 10 ⁻¹	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法) = 4.184 J (熱化学) = 4.1855 J (15 °C) = 4.1868 J (国際蒸気表)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS (仏馬力) = 75 kgf·m/s = 735.499 W
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1	

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

高温及び酸化条件下における被覆燃料粒子のふるまいと高温ガス炉の設計に関する考察