

JAERI-M
91-179

黒鉛模擬炉心内空気浸入実験

1991年11月

武田 哲明・菱田 誠・馬場 信一

JAERI-M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、お申しこしてください。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。

JAERI-M reports are 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, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

黒鉛模擬炉心内空気浸入実験

日本原子力研究所東海研究所高温工学部

武田 哲明・菱田 誠・馬場 信一

(1991年10月2日受理)

高温ガス炉の1次冷却系主配管が破断した場合には、冷却系統および炉内が減圧して格納容器の圧力と均圧した後、空気が破断口から炉内に浸入すると考えられる。この際、浸入した空気中の酸素と、炉内の黒鉛構造物とが反応して、黒鉛が酸化する可能性がある。そのため、空気の浸入挙動及び酸化反応に伴い発生する一酸化炭素、二酸化炭素の挙動を把握する必要がある。

これまで、このような配管破断事故後の比較的初期段階に生じる空気浸入挙動を調べるため、高温ガス炉の炉心部を簡単に模擬した試験装置を用いて実験を行ってきた、しかしながら、これまでの実験装置は炉心部を鋼製の流路で模擬していたため、浸入した空気中の酸素と黒鉛の酸化反応を模擬することはできなかった。そこで、本実験装置では、炉心部を7本の黒鉛流路で模擬し、さらに高温プレナムには黒鉛材を内張りした容器を用いて実験を行った。

実験の結果以下のことが分かった。

- (1) 空気中の浸入過程については、定性的には酸化反応がない場合とほぼ同じ挙動を示す。
- (2) 比較的低温の領域（450°C以下）においては、空気を用いた場合も窒素を用いた場合も自然循環流発生時間はほぼ同じであるが、模擬炉心部の温度が500°C以上になると、空気を用いた実験の方が、自然循環流発生までの時間は短く、特に500°C～700°Cの温度範囲でその差が顕著である。
- (3) 模擬炉心部が600°C以上になると、浸入する空気中の酸素はほとんど全量が消費され、700°Cまでは一酸化炭素の発生量は少なく、主に二酸化炭素が発生する。

Experimental Study on Air Ingress during A Primary Pipe
Rupture Accident with A Graphite Reactor Core Simulator

Tetsuaki TAKEDA, Makoto HISHIDA and Shinichi BABA

Department of High Temperature Engineering
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 2, 1991)

When a primary coolant pipe of a High Temperature Gas Cooled Reactor (HTGR) ruptures, helium gas in the reactor core blows out into the container, and the primary cooling system reduces the pressure. After the pressures are balanced between the reactor and the container, air is expected to enter into the reactor core from the breach. It seems to be probable that the graphite structures is oxidized by air. Hence, it is necessary to investigate the air ingress process and the behavior of the generating gases by the oxidation reactions.

The previous experimental study is performed on the molecular diffusion and natural convection of the two component gas mixtures using a test model simulating simply the reactor. Objective of the study was to investigate the air ingress process during the early stage of the primary pipe rupture accident. However, since the model did not have any kind of graphite components, the reaction between graphite and oxygen was not simulated. The present model includes the reactor core and the high temperature plenum simulators made of graphite.

The major results obtained in the present study are summarized in the followings:

- (1) The air ingress process with graphite oxidation reaction is similar to that without the reaction qualitatively.
- (2) When the reactor core simulator is maintained at low temperatures (lower than 450°C), the initiation time of the natural circulation of air is almost equal to that of the natural circulation of nitrogen. On the other hand, when the temperature of the reactor core simulator is high (more than 500°C), the initiation time of the natural circulation of air is earlier than that of nitrogen.
- (3) When the temperature of the reactor core simulator is higher than 600°C, oxygen is almost dissipated by the graphite structures. When the temperature of the reactor core simulator is below 700°C, carbon dioxide mainly is generated by the oxidation reactions.

Keywords: HTGR, Natural Convection, Molecular Diffusion, Graphite Oxidation

目 次

1. まえがき	1
2. 実験装置	2
2.1 実験装置の概略	2
2.2 温度及び濃度の測定方法	3
3. 実験方法と実験条件	3
4. 実験結果	4
5. あとがき	8
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Apparatus	2
2.1 Summary of the Test Model Simulating Simply the Reactor	2
2.2 Measuring Method of the Temperature and Concentration	3
3. Experimental Procedure and Conditions	3
4. Experimental Results	4
5. Conclusion	8
References	9

主 な 記 号

- T_{CP} : 冷却管部の平均温度 [°C]
 T_{LP} : 下部プレナムの平均温度 [°C]
 T_{SC} : 模擬炉心部の平均温度 [°C]
 T_{UP} : 上部プレナムの平均温度 [°C]
 t_{in} : 空気の自然循環流発生時刻
 ΔT : 模擬炉心部と冷却管部との温度差 [K]

1. ま え が き

高温ガス炉の設計基準事故の一つに1次冷却系配管破断事故がある。もし仮に、1次冷却系の配管が破断した場合には、炉内のヘリウムが格納容器内に噴出し、炉内と格納容器内の圧力が均圧する。この時、破断口の上部に位置する炉内にはヘリウムが存在し、その下部にはヘリウムより重い空気（実際には空気とヘリウムの混合気体）が存在して安定な成層となるため、破断後すぐには炉内のヘリウムと格納容器内の空気とが置換されることはない。また、炉内には比較的高温の部分（例えば炉心部流路）と比較的低温の部分（例えば固定反射体と圧力容器との間の環状流路）とが存在するが、炉内流路の温度差及び濃度差によって生じる浮力は、ヘリウムに比べて密度の大きい重い空気を破断口から吸い上げて、炉内を一巡するような自然循環流を発生させるほど大きくない。

これまで著者らは、高温ガス炉を簡単に模擬した実験装置を用いて、1次冷却系配管破断後の空気浸入に関する実験と解析を行ってきた^{(1),(2)}。その結果によれば、模擬配管破断後の比較的初期段階において、空気は分子拡散と非常に微弱な自然対流によって実験装置内に運ばれることが分かった。また、空気の浸入に伴い装置内の混合気体の密度が徐々に大きくなり、空気が実験装置内を一巡するような自然循環流は数十時間後に発生した。このことから類推すると、実際の高温ガス炉においても、配管破断後の比較的初期段階は格納容器内の空気が、破断口から分子拡散と非常にゆっくりしたヘリウムと空気の混合気体による自然対流によって炉内に運ばれるものと予想される。

炉内に発生する非常に微弱な混合気体の自然対流とは、高温プレナム、炉心部等の高温側流路と、固定反射体と圧力容器との間の環状流路及び下鏡部等の低温側流路との間の混合気体の温度差及び各成分気体の濃度差により発生する浮力が駆動力となる1次元的な自然循環流のことである。配管破断後の初期段階においては、炉内の気体はほとんどヘリウムであるため、温度差によって生じる浮力は非常に小さく、破断口下部の重い空気（常温でヘリウムの約7～8倍の密度）を吸い込むことができない。そのため、この自然循環流は極めて遅い流れとなり、自然循環流によって移動する空気の量も極くわずかであり、拡散により移動する量と同程度かまたはそれ以下であると考えられる。

そこで、まず空気は高温側と低温側の両破断口から拡散によって炉内に浸入し、さらに高温側から低温側に向かう微弱な自然循環流によって高温側の破断口から空気が浸入する。空気の浸入に伴い、炉内各部の混合気体の密度が徐々に大きくなり、高温側と低温側の流路間の密度差も大きくなる。すなわち、混合気体の密度差に伴い発生する浮力も徐々に大きくなる。浮力の値が空気を吸い上げて炉内を一巡するような自然循環流を引き起こすくらい十分大きくなった時点で、突然空気の自然循環流が発生する。その後は、炉全体を一巡する空気の自然循環流が定常的に発生することになる。

実際の原子炉においては、炉内に浸入した空気により、反射体や燃料体等の黒鉛構造物が酸化されるため、空気浸入量に加えて黒鉛と反応して発生する一酸化炭素、二酸化炭素の生成量等

を正確に把握する必要がある。高温プレナムや炉心部では酸化反応を伴う多成分気体の自然対流が発生するので、一酸化炭素の発生量を知るためには、多成分気体中の各成分気体の挙動を調べる必要がある。しかしながら、著者らの知る限り非常に微弱な自然対流場における反応を伴う多成分気体の挙動を実験的、解析的に調べた研究は見あたらない。これまで著者らが行った実験では原子炉の炉心部や高温プレナムを鋼製の流路や容器で模擬した装置を用いたため、黒鉛との酸化反応は起こらず、一酸化炭素や二酸化炭素の発生量や気体の挙動を調べることができなかった。

そこで、本実験装置においては高温ガス炉の炉心部を7本の黒鉛流路で模擬し、高温プレナムには黒鉛材を内張りした容器を用いた。このような実験装置を用いて、配管破断事故時の比較的初期段階における空気浸入実験を行った⁽³⁾。実験装置内に浸入する気体が空気の場合（黒鉛と酸素との反応有り）と窒素の場合（黒鉛との酸化反応なし）について実験を行った。浸入した空気中の酸素と黒鉛との反応が空気の浸入挙動に及ぼす影響、及び発生する一酸化炭素、二酸化炭素の挙動を調べた。

2. 実験装置

2.1 実験装置の概略

Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。本装置は、炉心部を簡単に模擬した模擬炉心部、高温プレナムに相当する下部プレナム、压力容器の上鏡部に相当する上部プレナム、固定反射体と压力容器との間の環状流路及び1次冷却系2重配管に相当する冷却管から構成されている。模擬炉心部は7本の黒鉛製円管（IG-110、内径16mm、外径25.5mm、長さ870mm）からなり、中心に1本、周辺に6本配置した。それぞれの黒鉛製円管はインコネル600製円管の中に挿入されており、外側に巻き付けたシースヒータによって加熱される。下部プレナムは内径240mm、高さ124mmのインコネル600製の円筒型容器の中に内径220mm、外径240mm、高さ70mm、下蓋厚さ10mm、上蓋厚さ30mmの黒鉛材料を内張りしたもので、インコネル容器の外側に巻き付けたシースヒータによって加熱される。さらに熱損失を抑えるために、模擬炉心部と下部プレナムを内径350mm、外径360mm、高さ1255mmのステンレス製円筒内に納め、この円筒の外側にシースヒータを巻き付けて補償ヒータとした。上部プレナムは内径240mm、高さ145mmのインコネル600製の円筒型容器で、容器の底には模擬炉心部からの熱損失を抑えるため厚さ30mmの断熱板を入れ、黒鉛材料は内張りしていない。模擬炉心部、上下プレナムを内径610mm、外径620mm、高さ1380mmの水冷容器内に納め、その中には断熱材を充填した。下部プレナムには内径40.5mm、高さ300mmの入口加熱管が接続されており、下部プレナム側から150mmだけシースヒータを巻き付けて、熱損失を防いでいる。さらに、この入口加熱管に高さ178mmの入口冷却管を取り付け、電動ボールバルブを介してガス貯留容器と接続されている。出口冷却管は内径41.2mm、高さ1600mmのステンレス製円管で、下端は電動ボールバルブを介してガス貯留容器と接続されている。出口冷却管の上部と、上部プレナム及

を正確に把握する必要がある。高温プレナムや炉心部では酸化反応を伴う多成分気体の自然対流が発生するので、一酸化炭素の発生量を知るためには、多成分気体中の各成分気体の挙動を調べる必要がある。しかしながら、著者らの知る限り非常に微弱な自然対流場における反応を伴う多成分気体の挙動を実験的、解析的に調べた研究は見あたらない。これまで著者らが行った実験では原子炉の炉心部や高温プレナムを鋼製の流路や容器で模擬した装置を用いたため、黒鉛との酸化反応は起こらず、一酸化炭素や二酸化炭素の発生量や気体の挙動を調べることができなかった。

そこで、本実験装置においては高温ガス炉の炉心部を7本の黒鉛流路で模擬し、高温プレナムには黒鉛材を内張りした容器を用いた。このような実験装置を用いて、配管破断事故時の比較的初期段階における空気浸入実験を行った⁽³⁾。実験装置内に浸入する気体が空気の場合（黒鉛と酸素との反応有り）と窒素の場合（黒鉛との酸化反応なし）について実験を行った。浸入した空気中の酸素と黒鉛との反応が空気の浸入挙動に及ぼす影響、及び発生する一酸化炭素、二酸化炭素の挙動を調べた。

2. 実験装置

2.1 実験装置の概略

Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。本装置は、炉心部を簡単に模擬した模擬炉心部、高温プレナムに相当する下部プレナム、圧力容器の上鏡部に相当する上部プレナム、固定反射体と圧力容器との間の環状流路及び1次冷却系2重配管に相当する冷却管から構成されている。模擬炉心部は7本の黒鉛製円管（IG-110、内径16mm、外径25.5mm、長さ870mm）からなり、中心に1本、周辺に6本配置した。それぞれの黒鉛製円管はインコネル600製円管の中に挿入されており、外側に巻き付けたシースヒータによって加熱される。下部プレナムは内径240mm、高さ124mmのインコネル600製の円筒型容器の中に内径220mm、外径240mm、高さ70mm、下蓋厚さ10mm、上蓋厚さ30mmの黒鉛材料を内張りしたもので、インコネル容器の外側に巻き付けたシースヒータによって加熱される。さらに熱損失を抑えるために、模擬炉心部と下部プレナムを内径350mm、外径360mm、高さ1255mmのステンレス製円筒内に納め、この円筒の外側にシースヒータを巻き付けて補償ヒータとした。上部プレナムは内径240mm、高さ145mmのインコネル600製の円筒型容器で、容器の底には模擬炉心部からの熱損失を抑えるため厚さ30mmの断熱板を入れ、黒鉛材料は内張りしていない。模擬炉心部、上下プレナムを内径610mm、外径620mm、高さ1380mmの水冷容器内に納め、その中には断熱材を充填した。下部プレナムには内径40.5mm、高さ300mmの入口加熱管が接続されており、下部プレナム側から150mmだけシースヒータを巻き付けて、熱損失を防いでいる。さらに、この入口加熱管に高さ178mmの入口冷却管を取り付け、電動ボールバルブを介してガス貯留容器と接続されている。出口冷却管は内径41.2mm、高さ1600mmのステンレス製円管で、下端は電動ボールバルブを介してガス貯留容器と接続されている。出口冷却管の上部と、上部プレナム及

びその間の水平管を曲管で接続した。出口冷却管と上部プレナムの中心軸間の水平距離は 500 mm である。ガス貯留容器は内径 1000 mm, 高さ 400 mm の円筒容器で, 容器内のガス温度を一定に保持するため, 内部には銅管をコイル状にした冷却器が挿入されている。本容器の内容積は約 0.28m^3 で, 試験部の容積 (0.0035m^3) の約 80 倍となっている。

2.2 温度及び濃度の測定方法

Fig. 2 に温度及び濃度測定点の概略を示す。図に示すように中心加熱管と周辺加熱管の内の 3 本には鉛直方向に 8 点, 残り 3 本の周辺加熱管には 4 点の合計 44 点に K-Type 熱電対を取り付けた。下部プレナムには, 黒鉛下壁に 4 本, 黒鉛側壁に 2 本, インコネル容器の外壁に 3 本熱電対を取り付けた。プレナム内のガス温度測定には 2 本の熱電対を設け, 上部プレナムの外壁には 5 本, プレナム内ガス温度測定用に 2 本の熱電対を取り付けた。模擬炉心部の外側の補償ヒータ支持円筒には, 鉛直方向 4 カ所のそれぞれの位置において円周方向に 3 本, 合計 12 本の熱電対を設けた。また, 入口加熱管のガス温度 1 点, 壁温度 3 点, 水平管と冷却管内のガス温度を 3 点ずつ測定した。さらにガス貯留容器内のガス温度測定用に 4 本の熱電対を取り付けた。

混合気体の密度及び各成分気体のモル分率の測定点を Fig. 2 の C 1 ~ C 4 に示す。これらの箇所にて検出孔から混合気体を吸引ポンプで連続的にサンプリングし, 酸素計, 二酸化炭素計, 一酸化炭素計, 振動式密度計でガス分析を行った。サンプリングの際, 試験装置内の流れを乱さないようにするため, サンプリング流量を少なくするとともに ($50\text{ml}/\text{min}$), ガス分析後は吸引孔近辺に戻した。サンプリング流量を少なくしたために, ガス分析には最大 5 分の時間遅れが生じた。ただし各測定点のサンプリング管距離を等しくすることによって, 各測定点間の時間遅れはなかった。各分析計の測定精度は, 酸素計が $\pm 2\%$ F S, 一酸化炭素と二酸化炭素計は $\pm 2\%$ F S, 密度は $\pm 1\%$ F S である。

3. 実験方法と実験条件

実験は, 以下の手順で行った。まず試験部とガス貯留容器との間に設けた 2 個のボールバルブを閉じ, 試験部内をヘリウムガスに真空置換するとともにガス貯留容器内を乾燥空気 (または窒素) に真空置換する。次に試験部各部の温度が所定の温度に達するまで加熱し, 以後その温度を一定に保つ。加熱中は入口冷却管に取り付けてある均圧弁を開放して試験部内の圧力を実験室内の圧力 (大気圧) に保った。試験装置各部の温度が定常状態に達した後, 2 個のバルブを同時に開くことによって配管破断を模擬して実験を開始する。その後もヒータパイプの壁温を一定温度に保持する。模擬配管破断後の実験中はガス貯留容器の下部に取り付けてある均圧弁を開放のままにし, 黒鉛と空気中の酸素との反応による混合気体のモル数変化があっても試験装置内の圧力が変化しないよう留意した。また, 酸化による黒鉛の損耗量を少なくするため, 空気の自然循環流発生後は直ちにボールバルブを閉じて実験を終了した。

びその間の水平管を曲管で接続した。出口冷却管と上部プレナムの中心軸間の水平距離は 500 mm である。ガス貯留容器は内径 1000 mm, 高さ 400 mm の円筒容器で、容器内のガス温度を一定に保持するため、内部には銅管をコイル状にした冷却器が挿入されている。本容器の内容積は約 0.28m^3 で、試験部の容積 (0.0035m^3) の約 80 倍となっている。

2.2 温度及び濃度の測定方法

Fig. 2 に温度及び濃度測定点の概略を示す。図に示すように中心加熱管と周辺加熱管の内の 3 本には鉛直方向に 8 点, 残り 3 本の周辺加熱管には 4 点の合計 44 点に K-Type 熱電対を取り付けた。下部プレナムには, 黒鉛下壁に 4 本, 黒鉛側壁に 2 本, インコネル容器の外壁に 3 本熱電対を取り付けた。プレナム内のガス温度測定には 2 本の熱電対を設け, 上部プレナムの外壁には 5 本, プレナム内ガス温度測定用に 2 本の熱電対を取り付けた。模擬炉心部の外側の補償ヒータ支持円筒には, 鉛直方向 4 カ所のそれぞれの位置において円周方向に 3 本, 合計 12 本の熱電対を設けた。また, 入口加熱管のガス温度 1 点, 壁温度 3 点, 水平管と冷却管内のガス温度を 3 点ずつ測定した。さらにガス貯留容器内のガス温度測定用に 4 本の熱電対を取り付けた。

混合気体の密度及び各成分気体のモル分率の測定点を Fig. 2 の C 1 ~ C 4 に示す。これらの箇所にて検出孔から混合気体を吸引ポンプで連続的にサンプリングし, 酸素計, 二酸化炭素計, 一酸化炭素計, 振動式密度計でガス分析を行った。サンプリングの際, 試験装置内の流れを乱さないようにするため, サンプリング流量を少なくするとともに ($50\text{ml}/\text{min}$), ガス分析後は吸引孔近辺に戻した。サンプリング流量を少なくしたために, ガス分析には最大 5 分の時間遅れが生じた。ただし各測定点のサンプリング管距離を等しくすることによって, 各測定点間の時間遅れはなかった。各分析計の測定精度は, 酸素計が $\pm 2\%$ F S, 一酸化炭素と二酸化炭素計は $\pm 2\%$ F S, 密度は $\pm 1\%$ F S である。

3. 実験方法と実験条件

実験は, 以下の手順で行った。まず試験部とガス貯留容器との間に設けた 2 個のボールバルブを閉じ, 試験部内をヘリウムガスに真空置換するとともにガス貯留容器内を乾燥空気 (または窒素) に真空置換する。次に試験部各部の温度が所定の温度に達するまで加熱し, 以後その温度を一定に保つ。加熱中は入口冷却管に取り付けてある均圧弁を開放して試験部内の圧力を実験室内の圧力 (大気圧) に保った。試験装置各部の温度が定常状態に達した後, 2 個のバルブを同時に開くことによって配管破断を模擬して実験を開始する。その後もヒータパイプの壁温を一定温度に保持する。模擬配管破断後の実験中はガス貯留容器の下部に取り付けてある均圧弁を開放のままにし, 黒鉛と空気中の酸素との反応による混合気体のモル数変化があっても試験装置内の圧力が変化しないよう留意した。また, 酸化による黒鉛の損耗量を少なくするため, 空気の自然循環流発生後は直ちにボールバルブを閉じて実験を終了した。

実験は、ガス貯留容器内に乾燥空気を充填した場合（試験部内で空気と黒鉛との酸化反応有）と、窒素を充填した場合（黒鉛との酸化反応無）とについて行った。模擬炉心流路及び下部プレナムの壁温度を、400°C から 800°C までの範囲について50°C 間隔に設定して実験を行った。また、模擬炉心流路間には温度差が生じないように中心と周辺加熱管の温度をできる限り等しくなるように留意した。

Fig. 3 に中心加熱管と周辺加熱管の軸方向壁温分布を示す。これより、中心加熱管と周辺加熱管の壁温分布はほぼ等しいことが分かる。しかしながら、いずれの加熱管も上部プレナム方向への熱損失が大きく、鉛直方向に平坦な温度分布を達成することができなかった。結局、下部プレナムから加熱管の中心付近までの約 400 mm の部分についてのみ平坦な温度分布を作ることができた。

4. 実験結果

これまで、我々は高温ガス炉を簡単に模擬した実験装置と逆U字管型の実験装置を用いて、配管破断時の空気と窒素の浸入過程を調べてきた。逆U字管型の容器内と容器外を同種の気体、あるいは常温における密度がほぼ等しい気体で満たし、逆U字型流路の片方を加熱、もう一方を冷却した状態で配管破断を起こさせると、直ちに実験装置内を一巡する自然循環流が発生する。しかしながら、本実験のように逆U字型容器内に軽い気体、容器外に重い気体が存在するような系においては、逆U字型流路の高温側の気体の密度差により生じる浮力が、容器外の重い気体を吸い込んで自然循環流を発生させるだけ十分大きくないために、装置内を一巡する重い気体（窒素や空気）の自然循環流は模擬配管破断後すぐには発生しない。

本実験の目的は、実際に黒鉛と酸素とが反応した場合に空気の浸入過程にどのような影響を与えるか、また酸化反応に伴い発生する一酸化炭素や二酸化炭素がどのような挙動を示すかを調べることである。高温の黒鉛流路内でこれらの気体が発生した場合は、局部的にその場所の密度が大きくなったり、モル数の変化が生じるために、これまで発生していた流れ場に影響を及ぼし、さらに複雑な流れ場に変化することが予想される。例えば、一酸化炭素は分子量が約 28g/mol でほぼ窒素と等しいが、二酸化炭素が発生する場合は分子量が約 44g/mol であるため、ヘリウムや窒素に比べてかなり重い気体が発生することになる。また、拡散係数の違いによっても各成分気体の挙動に影響を及ぼす。一例として、Table 1 に一酸化炭素と二酸化炭素について、ヘリウムと窒素に対する 2 成分気体相互拡散係数を示す。表より、CO-He と CO₂-He 及び、CO-N₂ と CO₂-N₂との差はそれほど大きくないことが分かる。しかしながら、一酸化炭素、二酸化炭素の両者ともヘリウムに対する拡散係数は窒素に対するそれより約 5~6 倍も大きいためヘリウム雰囲気では窒素雰囲気と比べ、かなり速く拡散することが分かる。すなわち、本実験の比較的初期段階においては、装置の出入口管から空気が拡散してくるため、黒鉛流路の上方、上部プレナム付近ではヘリウム雰囲気、下方の出入口部付近では窒素あるいは空気雰囲気であるため、黒鉛流路で発生した一酸化炭素や二酸化炭素は上部プレナム方向に速く拡散する。実際には、各成分気体の拡散に加えて高温側から低温側へ非常に微弱な

実験は、ガス貯留容器内に乾燥空気を充填した場合（試験部内で空気と黒鉛との酸化反応有）と、窒素を充填した場合（黒鉛との酸化反応無）とについて行った。模擬炉心流路及び下部プレナムの壁温度を、400°C から 800°C までの範囲について50°C 間隔に設定して実験を行った。また、模擬炉心流路間には温度差が生じないように中心と周辺加熱管の温度をできる限り等しくなるように留意した。

Fig. 3 に中心加熱管と周辺加熱管の軸方向壁温分布を示す。これより、中心加熱管と周辺加熱管の壁温分布はほぼ等しいことが分かる。しかしながら、いずれの加熱管も上部プレナム方向への熱損失が大きく、鉛直方向に平坦な温度分布を達成することができなかった。結局、下部プレナムから加熱管の中心付近までの約 400 mm の部分についてのみ平坦な温度分布を作ることができた。

4. 実験結果

これまで、我々は高温ガス炉を簡単に模擬した実験装置と逆U字管型の実験装置を用いて、配管破断時の空気と窒素の浸入過程を調べてきた。逆U字管型の容器内と容器外を同種の気体、あるいは常温における密度がほぼ等しい気体で満たし、逆U字型流路の片方を加熱、もう一方を冷却した状態で配管破断を起こさせると、直ちに実験装置内を一巡する自然循環流が発生する。しかしながら、本実験のように逆U字型容器内に軽い気体、容器外に重い気体が存在するような系においては、逆U字型流路の高温側の気体の密度差により生じる浮力が、容器外の重い気体を吸い込んで自然循環流を発生させるだけ十分大きくないために、装置内を一巡する重い気体（窒素や空気）の自然循環流は模擬配管破断後すぐには発生しない。

本実験の目的は、実際に黒鉛と酸素とが反応した場合に空気の浸入過程にどのような影響を与えるか、また酸化反応に伴い発生する一酸化炭素や二酸化炭素がどのような挙動を示すかを調べることである。高温の黒鉛流路内でこれらの気体が発生した場合は、局部的にその場所の密度が大きくなったり、モル数の変化が生じるために、これまで発生していた流れ場に影響を及ぼし、さらに複雑な流れ場に変化することが予想される。例えば、一酸化炭素は分子量が約 28g/mol でほぼ窒素と等しいが、二酸化炭素が発生する場合は分子量が約 44g/mol であるため、ヘリウムや窒素に比べてかなり重い気体が発生することになる。また、拡散係数の違いによっても各成分気体の挙動に影響を及ぼす。一例として、Table 1 に一酸化炭素と二酸化炭素について、ヘリウムと窒素に対する 2 成分気体相互拡散係数を示す。表より、CO-He と CO₂-He 及び、CO-N₂ と CO₂-N₂との差はそれほど大きくないことが分かる。しかしながら、一酸化炭素、二酸化炭素の両者ともヘリウムに対する拡散係数は窒素に対するそれより約 5~6 倍も大きいためヘリウム雰囲気では窒素雰囲気と比べ、かなり速く拡散することが分かる。すなわち、本実験の比較的初期段階においては、装置の出入口管から空気が拡散してくるため、黒鉛流路の上方、上部プレナム付近ではヘリウム雰囲気、下方の出入口部付近では窒素あるいは空気雰囲気であるため、黒鉛流路で発生した一酸化炭素や二酸化炭素は上部プレナム方向に速く拡散する。実際には、各成分気体の拡散に加えて高温側から低温側へ非常に微弱な

自然対流が発生しているため、一酸化炭素や二酸化炭素の挙動はかなり複雑なものとなる。

Fig. 4 に下部プレナムの平均温度 (T_{LP}) を 803°C 、模擬炉心部の平均温度 (T_{SC}) を 696°C 、上部プレナム (T_{UP}) を 303°C 、冷却管部 (T_{CP}) を 24°C に保持した場合の各成分気体 (CO , O_2 , CO_2) のモル分率の時間変化を示す。横軸は模擬配管破断後の経過時間である。この場合は、下部プレナム (測定点 C 1) に到達した空気中の酸素は、ほとんど全量が黒鉛と反応し一酸化炭素と二酸化炭素が発生するため、酸素のモル分率は空気の自然循環流が発生する直前までゼロである。上部プレナム (測定点 C 2) においても、酸素は下部プレナムと模擬炉心部で全部消費されるため検出されていない。二酸化炭素については、時間の経過とともに下部プレナムのモル分率は増加し続けている。上部プレナムでは黒鉛材料がないため、下部プレナム及び模擬炉心部から拡散と非常に微弱な自然対流によって移動した量が検出されている。下部プレナムの一酸化炭素のモル分率は、3時間付近をピークにして、それ以降は減少している。上部プレナムでは下部プレナムから移動した一酸化炭素が検出されていて、3時間以降は下部プレナムにおけるモル分率が減少するので、上部プレナムにおいても徐々に減少していることが分かる。

低温側流路の冷却管部 (測定点 C 4) の酸素モル分率は、模擬配管破断後 2～3 時間までの間は徐々に増加しているが、その後は減少し、5 時間以降はほとんど検出されていない。これは、以下のように説明できる。模擬配管破断直後は主に分子拡散によって低温流路においても空気が上方向に移動するため、しばらくの間は酸素濃度が増加する。時間の経過とともに混合気体の密度が増加し、浮力も大きくなって混合気体の微弱な自然対流の流速が速くなる。低温側流路においては、この自然対流は拡散の方向とは逆向きであるため、出口管から浸入した空気は逆に押し戻されることになる。さらに、高温側流路で酸素はすべて消費されるので冷却管を流下する混合気体に酸素が含まれていない。以上の理由により、模擬配管破断後 2～3 時間経過すると酸素モル分率は減少し始めると考えられる。

この実験では黒鉛温度が比較的高温であるにもかかわらず、一酸化炭素は二酸化炭素に比べて発生量が少ない。一般的には、高温 (800°C 以上) になれば、一酸化炭素の発生量が二酸化炭素に比べて多くなることが知られている。このような結果となった原因の一つは、自然対流の流速がかなり遅いため、発生した一酸化炭素と浸入してきた酸素が、さらに気相で反応して二酸化炭素になるため、一酸化炭素の発生量が少なくなったのではないかと考えている。

この実験では、模擬配管破断後約 7 時間経過した時点で空気の自然循環流 (ガス貯留容器 - 試験体の高温側流路 - 低温側流路 - ガス貯留容器に戻る一巡の自然循環流) の発生に至っている。前述のように本実験では空気の自然循環発生後直ちにバルブを閉じ、さらにガス分析に約 5 分の時間遅れがあるため、ガス濃度の変化には空気の自然循環発生後のガス濃度変化が明確には現れていない。

下部プレナムの温度を 600°C 、模擬炉心部を 547°C 、上部プレナムを 231°C 、冷却管部を 21°C に保持した場合の各成分気体のモル分率の時間変化を Fig. 5 に示す。この場合も下部プレナム、模擬炉心部に到達した酸素のほとんどが黒鉛と反応している。Fig. 4 の場合と異なる点は、一酸化炭素の発生量がかなり低く抑えられていることである。二酸化炭素の発生量についても黒鉛部材の温度が低いため値は小さい。この実験では約 10 時間 40 分後に空気の自然循環流の発

生に至っている。

装置各部の平均温度をもう少し下げた場合の実験結果を Fig. 6 に示す。この場合の各部平均温度は、下部プレナムが 505°C、模擬炉心部が 456°C、上部プレナムが 193°C、冷却管部の温度が 22°C である。下部プレナムに到達した酸素は黒鉛と反応し二酸化炭素が発生するが、全量が反応することはない、酸素は残存していることが分かる。しかしながら、上部プレナムに到達するまでの間に模擬炉心部で消費されるため、上部プレナムにおいて酸素は検出されていない。この場合も黒鉛温度が低いので、一酸化炭素はほとんど発生していない。この実験では約 18 時間後に空気の自然循環流が発生した。

Fig. 7 に下部プレナム（測定点 C 1）における酸素のモル分率の時間変化を下部プレナムと模擬炉心部の平均温度をパラメータとして示す。下部プレナム温度が 700°C 以上（○△）の場合、酸素はほとんど全量が黒鉛と反応し、二酸化炭素及び一酸化炭素が発生するため検出されていない。逆に 450°C 以下（▲■）の場合は、反応速度が非常に遅いため、酸素のモル分率変化は 450°C の場合も 400°C の場合とほぼ等しく、ほとんど黒鉛との反応はない。

Fig. 8 に下部プレナムにおける二酸化炭素のモル分率の時間変化を示す。下部プレナムと模擬炉心部の平均温度が高くなるに従い、二酸化炭素の発生量も増加し、また増加率も速くなっている。平均温度が 450°C 以下の場合にはほとんど二酸化炭素は発生していない。

Fig. 9 に下部プレナムにおける一酸化炭素のモル分率変化を示す。450°C 以下では、ほとんど一酸化炭素は検出されず、0.5% 以下である。500°C ~ 600°C までの間は、1% 前後であり、空気の自然循環流発生直前では浸入する空気の量が増加するため、発生する一酸化炭素も増加している。しかしながら、二酸化炭素に比べるとモル分率で約 1/5 程度の発生量にとどまっている。下部プレナムの温度が 800°C のときは、約 2 時間 30 分前後にピークを持ち、発生量は 4% 程度まで上昇しているが、それ以降は徐々に減少する。今回は、黒鉛部材の温度が 800°C 以上の場合についての実験ができなかったために、発生した一酸化炭素の挙動とその発生量について詳細な検討ができなかった。前述のように、発生した一酸化炭素と酸素がさらに気相で反応して二酸化炭素が発生する可能性があるため、この一酸化炭素の挙動については、さらに実験を行って詳細に調べる必要があると考えている。

Fig. 10 に低温側流路の冷却管部（測定点 C 4）における酸素のモル分率の時間変化を示す。いずれの場合も模擬配管破断後 2 ~ 3 時間の間は酸素濃度は急激に増加するが、その後は値を維持するか、あるいは逆に減少する。下部プレナムのガス温度が約 550°C 以上の場合には、2 ~ 3 時間以降は酸素濃度は急激に減少し、803°C の場合には 5 時間、600°C の場合でも 7 時間以降はほとんど検出されていない。これは、前述のように下部プレナムや模擬炉心部の温度が高くなるほど、高温側流路と低温側流路との温度差 (ΔT) が大きくなり、その結果浮力も大きくなって、空気の拡散方向（上向き）とは逆方向の混合気体の自然対流の流速が速くなることと、高温側流路で酸素がすべて消費されるため冷却管を流下する混合気体中に酸素が含まれなくなるからである。

以上のような各成分気体のモル分率の変化及び以前に行った酸化反応がない場合の実験・解析の結果に基づいて考えると、模擬配管破断後空気の自然循環流発生までの間は、空気は分子拡散と試験体内の温度差及び濃度差によって発生する混合気体（ヘリウム、窒素、酸素、二酸

化炭素、一酸化炭素)の非常に遅い自然対流(高温側流路を上昇し、低温側流路を下降する)によって試験体内に輸送される。下部プレナム、模擬炉心部が比較的高温の場合(約700°C以上)は、到達した酸素のほとんどは黒鉛と反応して二酸化炭素と一酸化炭素が発生するが、500~600°Cの場合には一部未反応の酸素が残存し、一酸化炭素はあまり発生せず、主に二酸化炭素が発生する。模擬炉心部の温度が450°C以下ではほとんど二酸化炭素や一酸化炭素は発生しない。時間の経過とともに、試験体内の混合気体の密度は徐々に増加し、高温側流路と低温側流路との間の密度差が大きくなる。流路間の密度差の増加に伴い浮力も大きくなって、混合気体の自然対流の流速が徐々に速くなる。そして、ついにはガス貯留容器内にある空気(重い気体)の自然循環流の発生に至る。

Fig.11に模擬配管破断から空気の自然循環流発生開始までの時間(t_{in})と、高温側流路(下部プレナムと模擬炉心部)の平均温度との関係を示す。図中△は黒鉛の酸化反応が起こらないよう、ガス貯留容器内に窒素(空気と密度、拡散係数が近い)を充填して行った結果で、○は空気を充填して行った結果である。平均温度が400°C以下の場合、酸素と黒鉛との反応速度が非常に遅く、一酸化炭素も二酸化炭素もほとんど発生しないため、 t_{in} は空気をういた実験と窒素を用いた実験とではほぼ等しい時間を示している。平均温度が400°C以上になると、 t_{in} は空気をういた実験の方が小さくなっている。すなわち、早い段階で空気の自然循環流が発生している。これは空気をういた実験の場合、高温の黒鉛流路では酸素と黒鉛が反応して重い気体である二酸化炭素が発生するため、窒素を用いた実験の場合に比べて装置内の混合気体の密度が速く増加し、それに伴う浮力も大きくなって、空気の自然循環流が早い段階で発生するものと考えられる。

Fig.12に各測定点における混合気体の密度変化を、空気をういた場合と窒素の場合の実験とで比較して示した。この場合の下部プレナム平均温度は約605°Cで、模擬炉心部は約540°Cである。この場合、反応により発生するのは主に二酸化炭素であるため高温側流路の混合気体の密度は窒素を用いた場合の実験よりも大きくなっている。また、低温側流路においても空気が早く浸入することになり、空気をういた場合の方が密度が大きくなっている。このように混合気体の密度は空気による実験の方が早い段階で大きくなり、自然循環流発生までの時間も短くなっている。Fig.13に模擬炉心部の平均温度がさらに高くなった場合の密度変化を示す。この場合もFig.12と同様に空気をういた実験の方が自然循環発生時間は短くなっている。また密度変化についてはFig.12の場合と定性的には同様な変化を示している。

Fig.11の結果より平均温度が700°C以上になると空気の場合も窒素の場合も自然循環発生時間には、それほど大きな差がみられない。これは自然循環流発生時間が高温側流路と低温側流路の密度差と、装置外側に存在する気体の密度に依存するものと考えられるため、酸素が二酸化炭素に変化することによって高温側の気体の密度が多少変化しても、模擬炉心部が高温になるにつれて温度差による密度差の影響の方が大きくなるからだと考えている。また空気中に酸素は高々20%程度しか含まれていないために、発生する二酸化炭素や一酸化炭素には限界があることや一酸化炭素の発生量が増加すると一酸化炭素は窒素や酸素と密度があまり変わらないことなども混合気体の成分による密度の変化は、温度による密度変化に比べてそれほど大きくなる理由の一つと考えられる。また、局所的な流れとして一酸化炭素の生成に伴って生じる

モル数増加によって、浮力による自然対流とは逆方向きの混合気体の流れが生じるため、高温側流路から浸入する空気の輸送量が抑えられることも考えられる。

今回、800°C以上の実験を行っていないため、これ以上考察することはできないが、少なくとも700°C以下の場合については、酸化反応がある場合の方が自然循環流発生までの時間は短いことが分かった。800°C以上の場合については今後の検討課題である。

5. あ と が き

高温ガス炉の炉心部と高温プレナムを7本の黒鉛流路と黒鉛製容器で模擬した実験装置を用いて、配管破断時の空気浸入実験を行い、装置内各部における各成分気体のモル分率や混合気体の密度の時間変化、空気の自然循環流発生時間、酸素と黒鉛との反応が空気浸入挙動に及ぼす影響等について調べた結果、以下の知見を得た。

- (1) 空気と窒素を用いた実験を比較した結果、酸素と黒鉛との反応がある場合もない場合も、空気または窒素の浸入挙動は定性的に一致する。
- (2) 模擬炉心部の温度が500°C以上になると、空気を用いた実験の方が、自然循環流発生までの時間は短く、特に一酸化炭素に比べて二酸化炭素が多く発生する700°Cまでの間でその差が顕著である。
- (3) 模擬炉心部が600°C以上になると、浸入する空気中の酸素はほとんど全量が消費され、700°Cまでは一酸化炭素の発生量は少なく、主に二酸化炭素が発生する。
- (4) 模擬炉心部の温度が450°C以下の場合は、酸化反応は起こらず、空気の場合も窒素の場合も自然循環流発生までの時間はほぼ等しい。

本実験装置は、高温ガス炉の炉心部を簡単に模擬するため、7本の黒鉛管を用いて実験を行ったが、黒鉛流路の温度を均一にできなかったことや、プレナム内の各成分気体の流れが複雑であることなどから、詳細な挙動までは調べることができなかった。それで現在は構造が最も簡単な逆U字管内に黒鉛管を挿入した実験装置を用いて、化学反応を伴う多成分気体の流動に関する実験と数値解析を行っている。

モル数増加によって、浮力による自然対流とは逆方向きの混合気体の流れが生じるため、高温側流路から浸入する空気の輸送量が抑えられることも考えられる。

今回、800°C以上の実験を行っていないため、これ以上考察することはできないが、少なくとも700°C以下の場合については、酸化反応がある場合の方が自然循環流発生までの時間は短いことが分かった。800°C以上の場合については今後の検討課題である。

5. あ と が き

高温ガス炉の炉心部と高温プレナムを7本の黒鉛流路と黒鉛製容器で模擬した実験装置を用いて、配管破断時の空気浸入実験を行い、装置内各部における各成分気体のモル分率や混合気体の密度の時間変化、空気の自然循環流発生時間、酸素と黒鉛との反応が空気浸入挙動に及ぼす影響等について調べた結果、以下の知見を得た。

- (1) 空気と窒素を用いた実験を比較した結果、酸素と黒鉛との反応がある場合もない場合も、空気または窒素の浸入挙動は定性的に一致する。
- (2) 模擬炉心部の温度が500°C以上になると、空気を用いた実験の方が、自然循環流発生までの時間は短く、特に一酸化炭素に比べて二酸化炭素が多く発生する700°Cまでの間でその差が顕著である。
- (3) 模擬炉心部が600°C以上になると、浸入する空気中の酸素はほとんど全量が消費され、700°Cまでは一酸化炭素の発生量は少なく、主に二酸化炭素が発生する。
- (4) 模擬炉心部の温度が450°C以下の場合、酸化反応は起こらず、空気の場合も窒素の場合も自然循環流発生までの時間はほぼ等しい。

本実験装置は、高温ガス炉の炉心部を簡単に模擬するため、7本の黒鉛管を用いて実験を行ったが、黒鉛流路の温度を均一にできなかつたことや、プレナム内の各成分気体の流れが複雑であることなどから、詳細な挙動までは調べることができなかつた。それで現在は構造が最も簡単な逆U字管内に黒鉛管を挿入した実験装置を用いて、化学反応を伴う多成分気体の流動に関する実験と数値解析を行っている。

参 考 文 献

- 1) M.Hishida and T.Takeda, "Study on air ingress during an early stage of a primary-pipe rupture accident of a high-temperature gas-cooled reactor", Nucl. Eng. Des. Vol. 126 (1991), pp 175-187
- 2) T.Takeda and M.Hishida, "Studies on diffusion and natural convection of the two component gases", To be published in Nucl. Eng. Des.
- 3) 武田, 菱田, : 第26回日本伝熱シンポジウム講演論文集, vol. 3, (1989-5), pp. 764-766.
- 4) 武田, 菱田, "2成分気体の拡散と自然循環に関する研究", 機論B編, Vol. 55, No. 517 (1989), pp 2795-2799.

Table 1 Mutual Diffusion Coefficient of CO₂ and CO

	CO ₂ -He (m ² /s)	CO-He (m ² /s)	CO ₂ -N ₂ (m ² /s)	CO-N ₂ (m ² /s)
300 K (27°C)	6.01x10 ⁻⁵	7.12x10 ⁻⁵	1.57x10 ⁻⁵	2.04x10 ⁻⁵
700 K (427°C)	2.47x10 ⁻⁴	2.90x10 ⁻⁴	6.82x10 ⁻⁵	8.63x10 ⁻⁵
900 K (627°C)	3.75x10 ⁻⁴	4.40x10 ⁻⁴	1.04x10 ⁻⁴	1.31x10 ⁻⁴

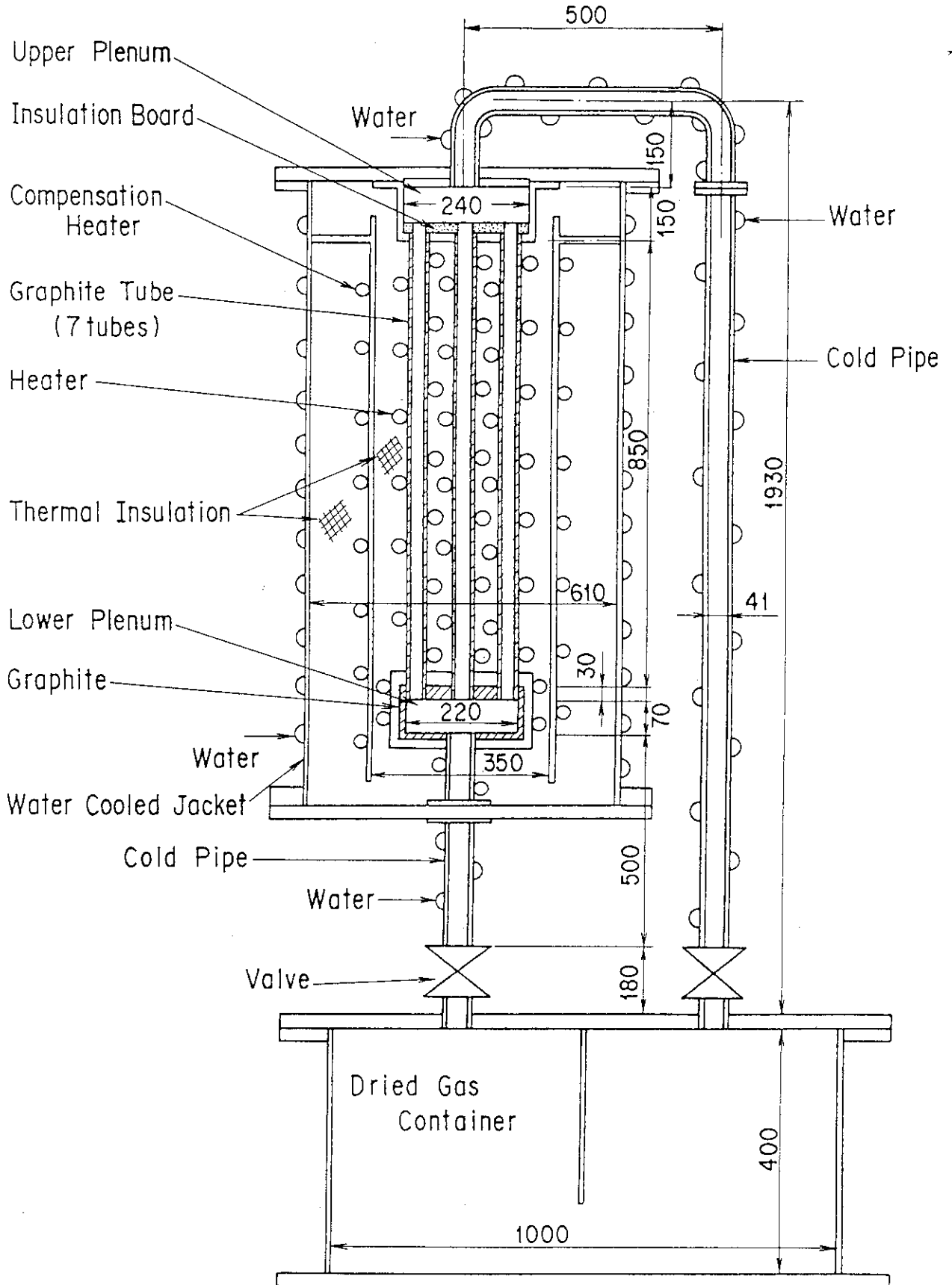


Fig. 1 Experimental apparatus

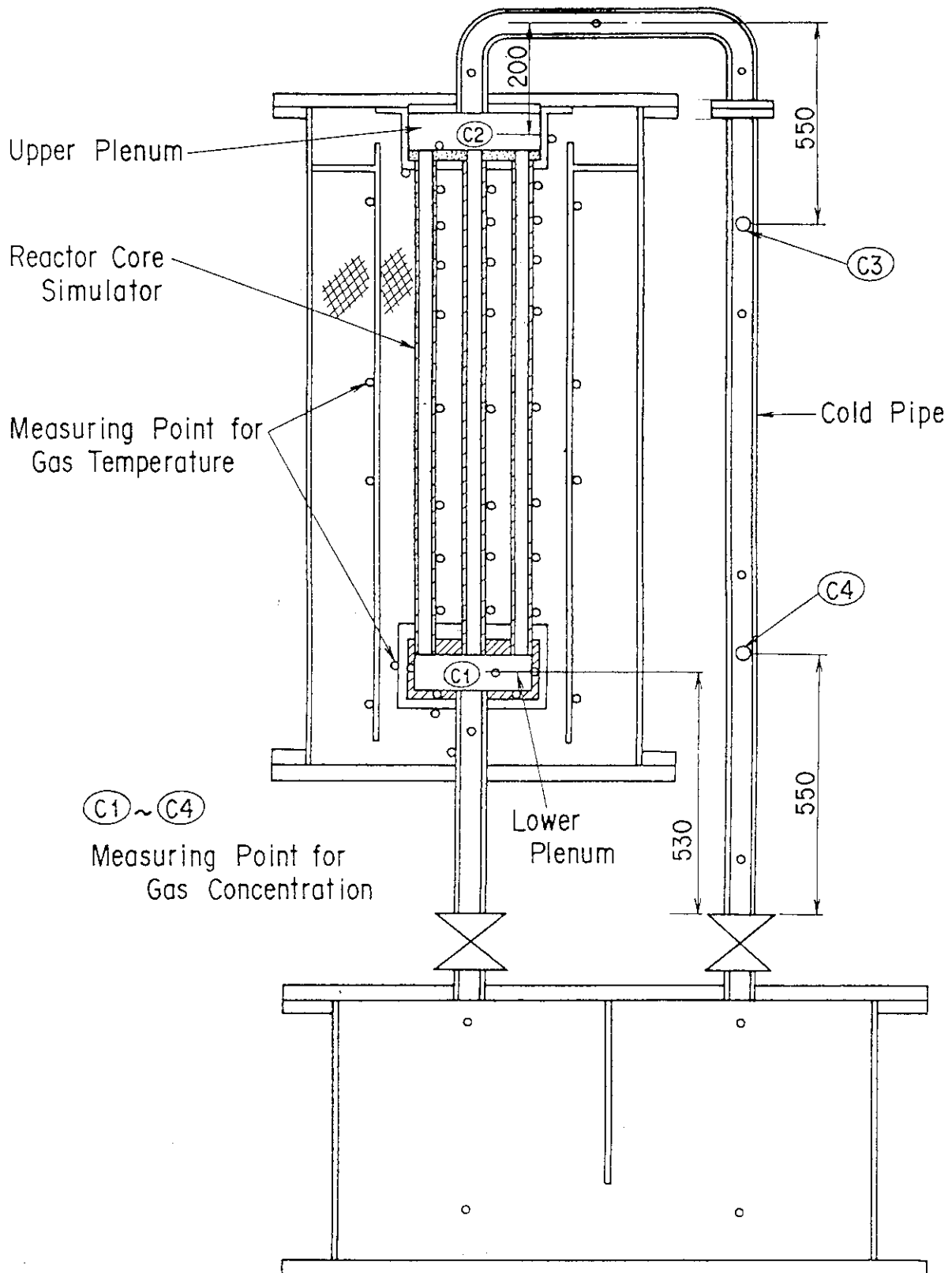


Fig. 2 Position of temperature and gas concentration measurement

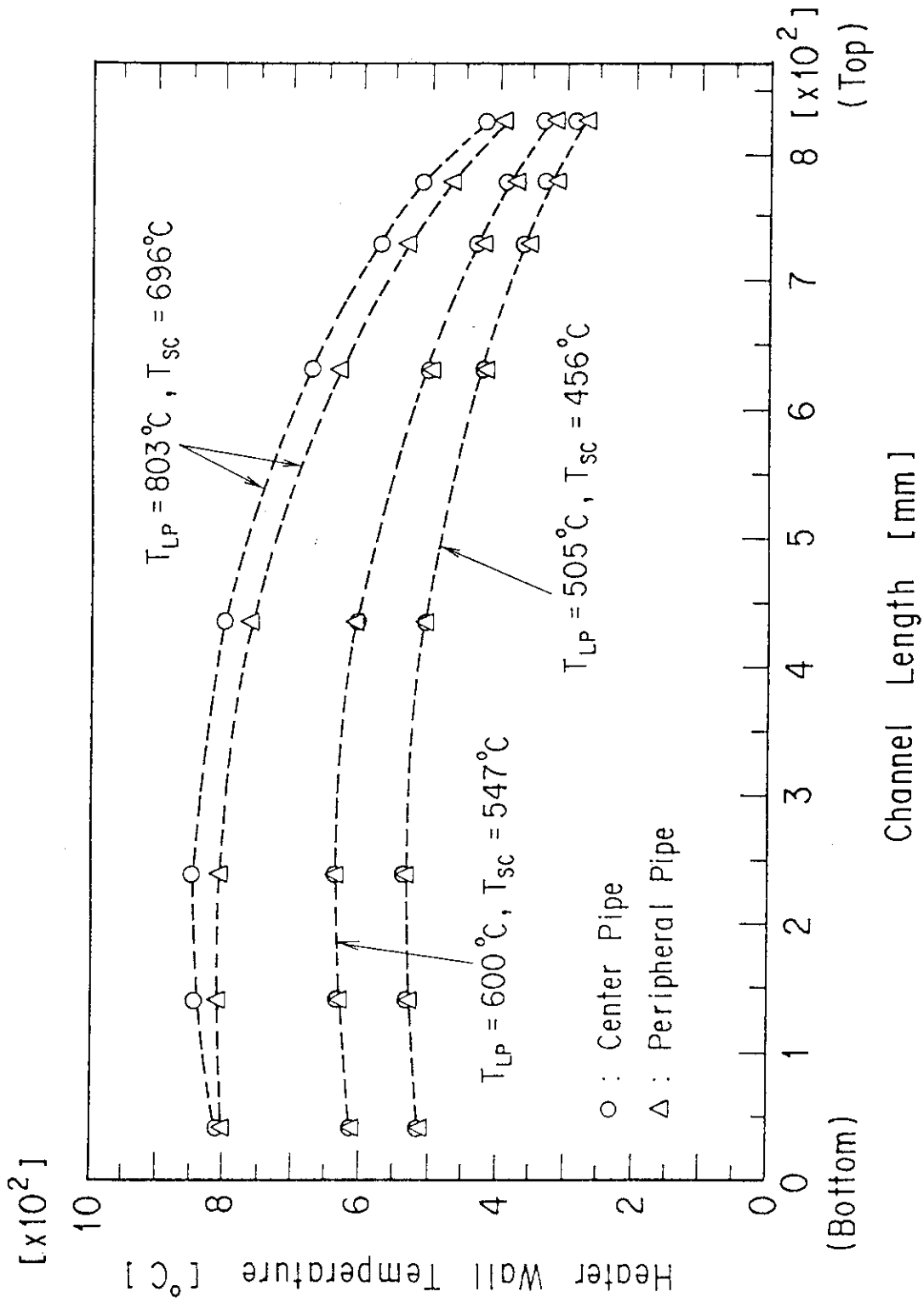


Fig. 3 Distribution of graphite wall temperature

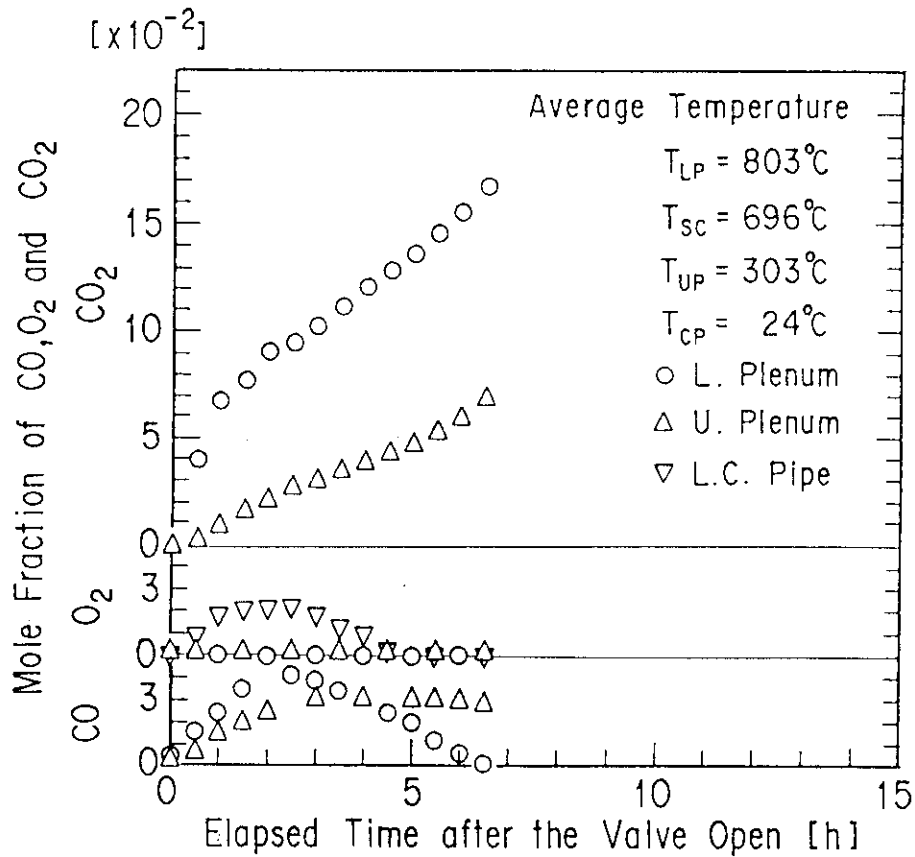


Fig. 4 Mole fraction change of CO, O₂ and CO₂ at the gas sampling positions C1, C2 and C4

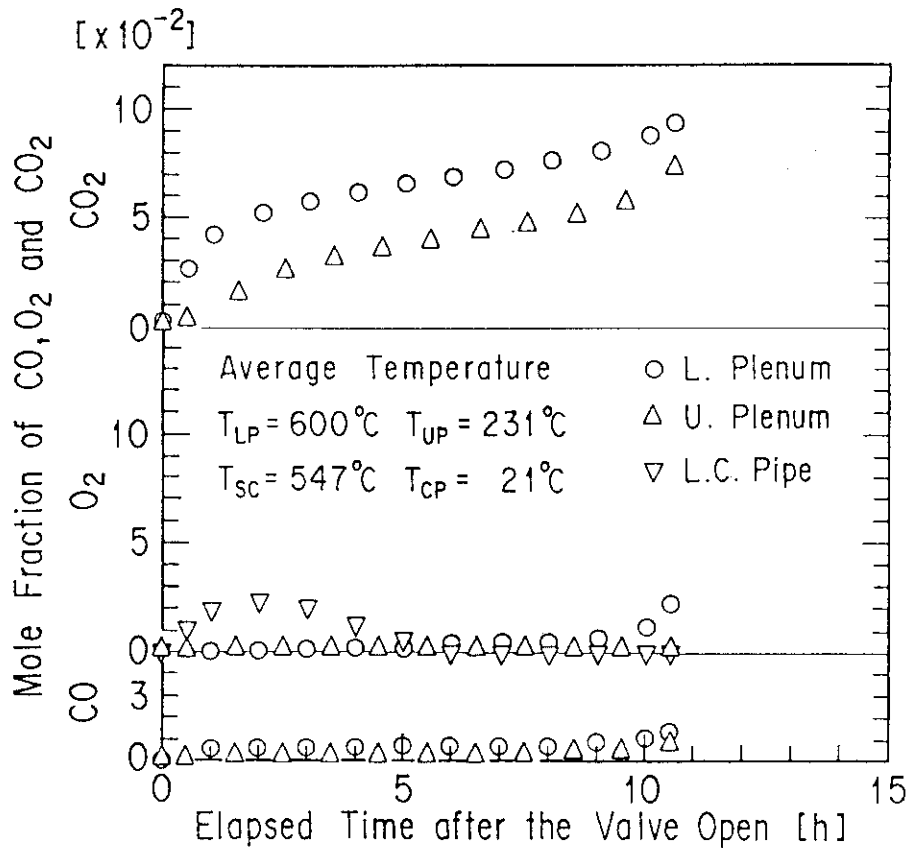


Fig. 5 Mole fraction change of CO, O₂ and CO₂ at the gas sampling positions C1, C2 and C4

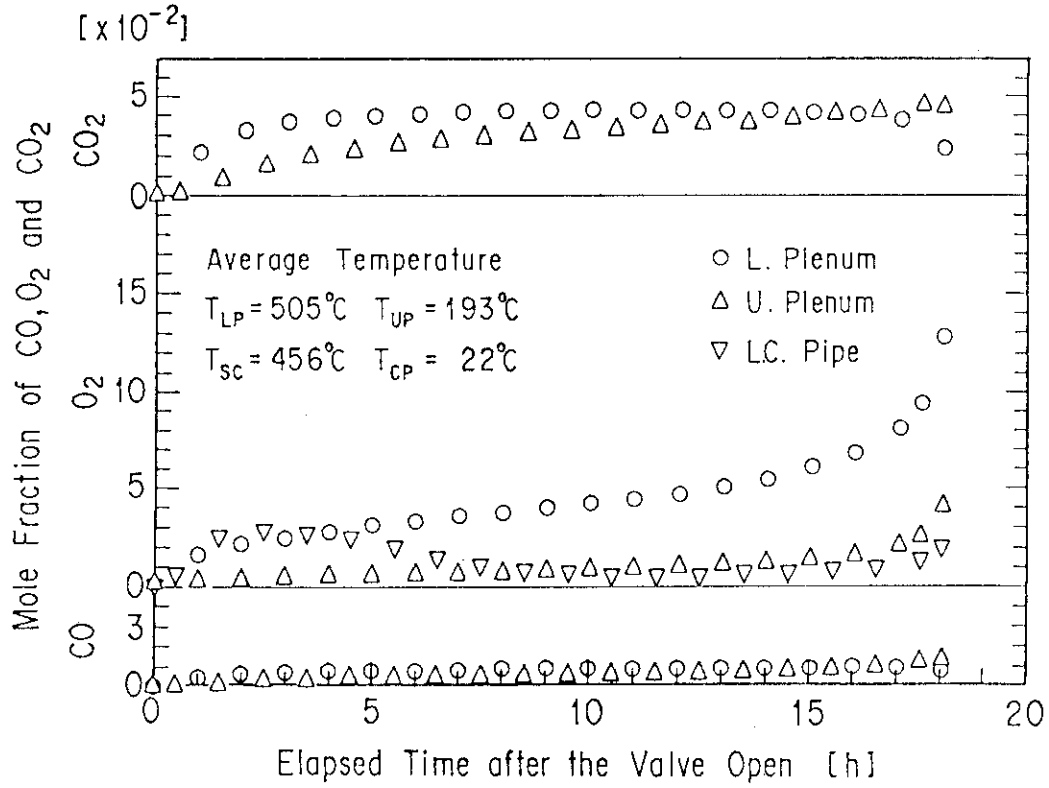


Fig. 6 Mole fraction change of CO , O_2 and CO_2 at the gas sampling positions C1, C2, and C4

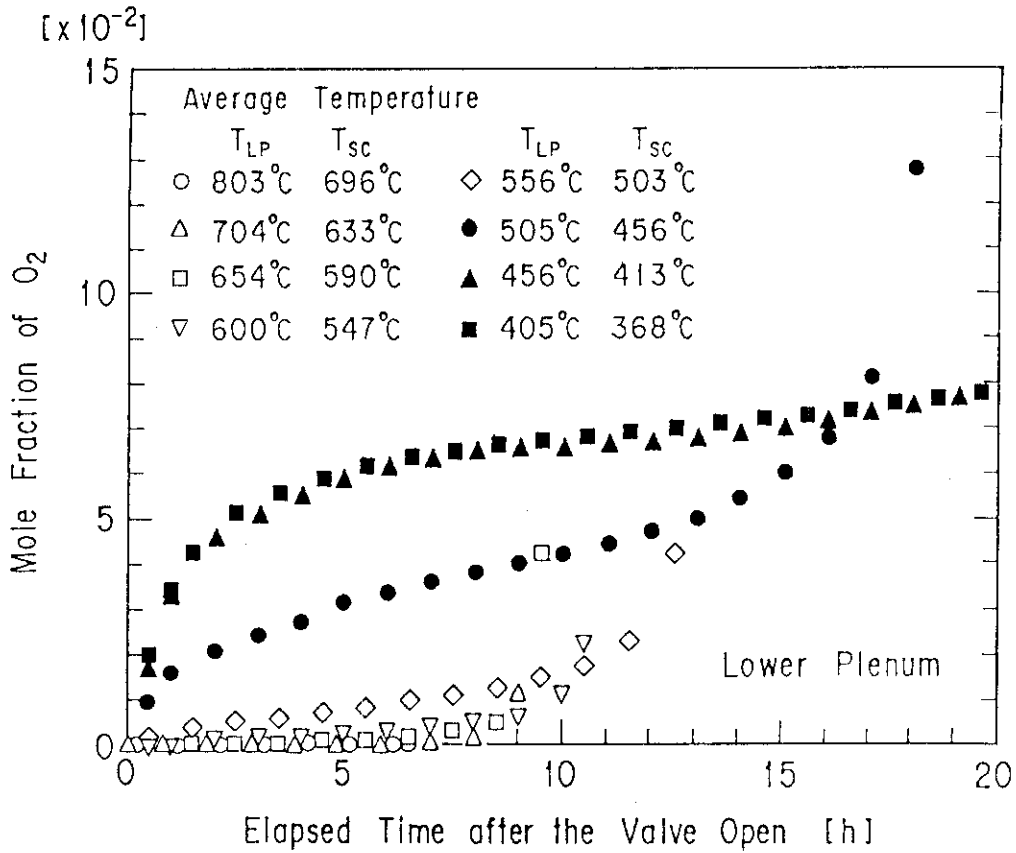


Fig. 7 Mole fraction change of O_2 in lower plenum (Sampling point C1)

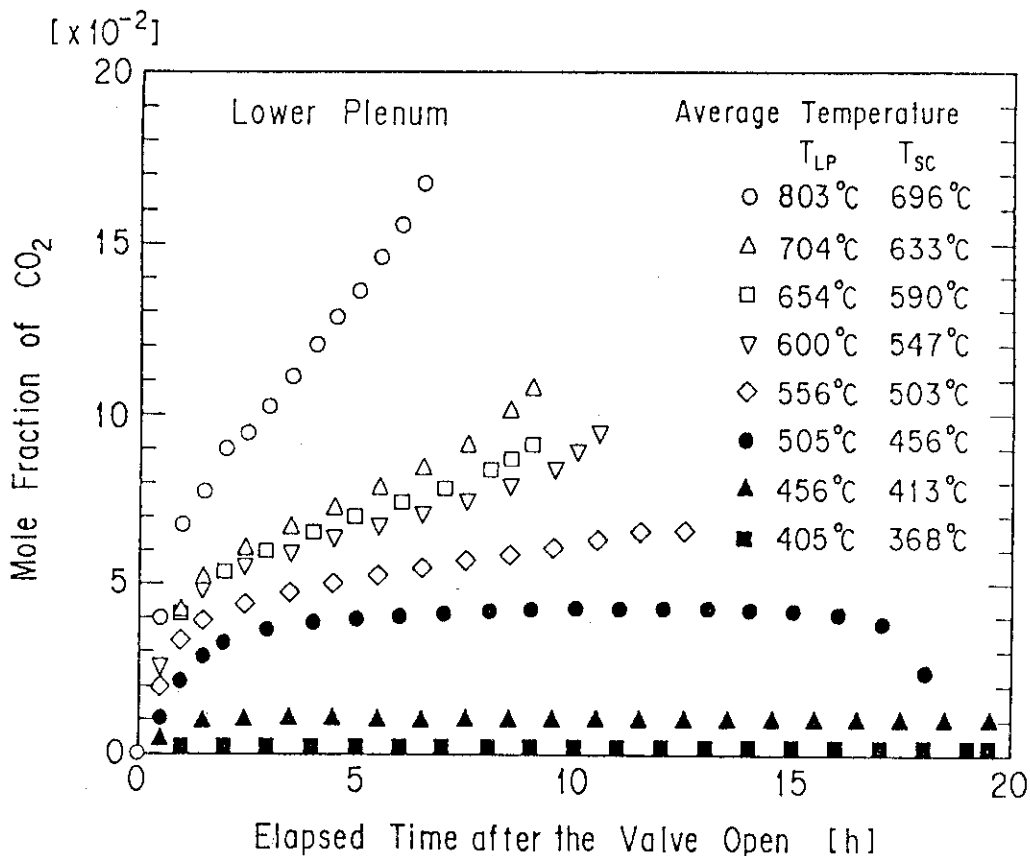


Fig. 8 Mole fraction change of CO₂ in lower plenum (Sampling point C1)

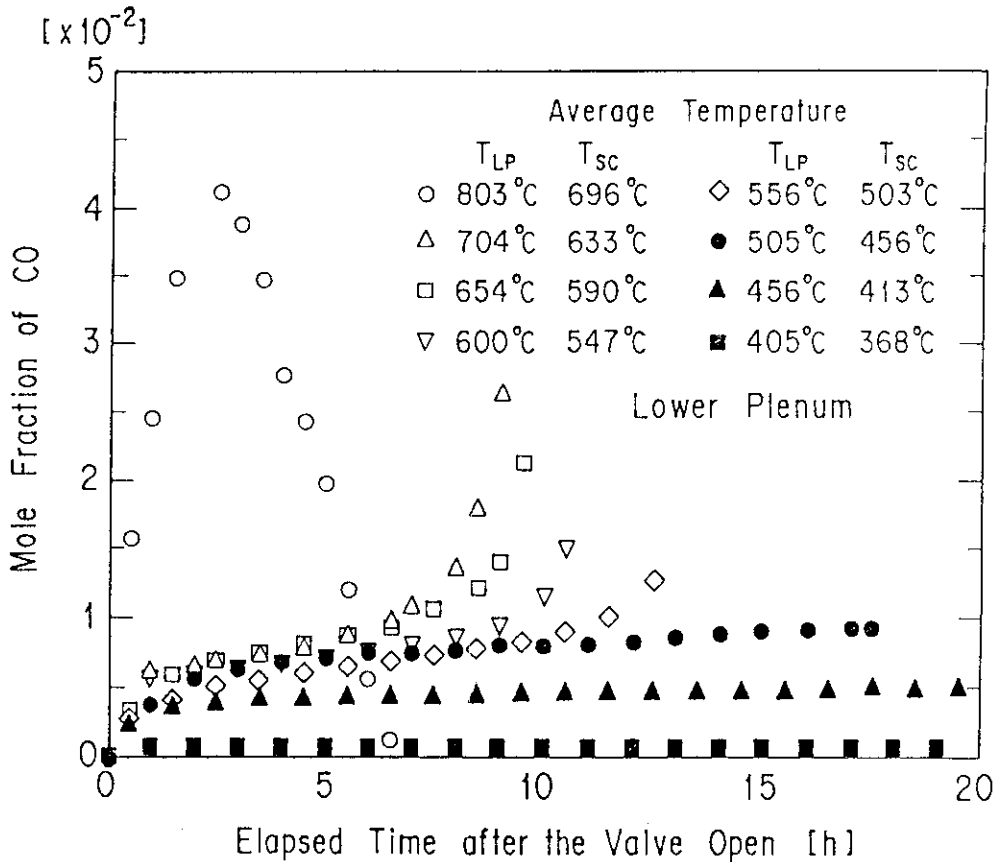


Fig. 9 Mole fraction change of CO in lower plenum (Sampling point C1)

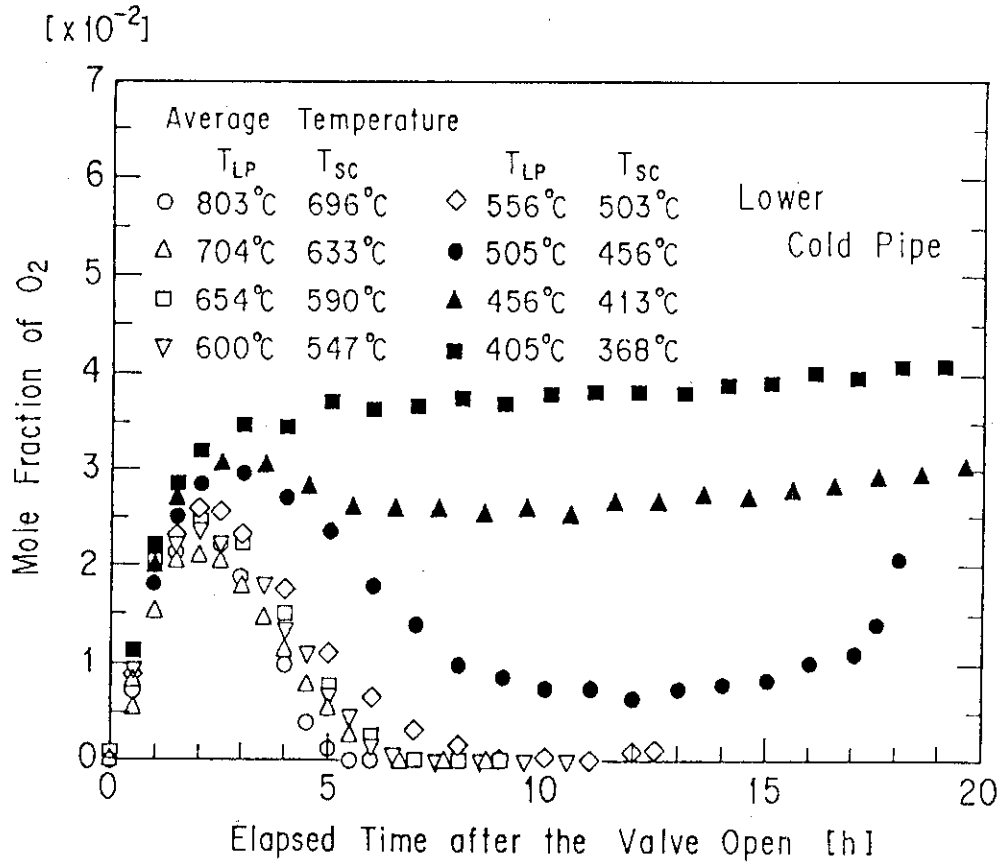


Fig. 10 Mole fraction change of O_2 in lower cold pipe (Sampling point C4)

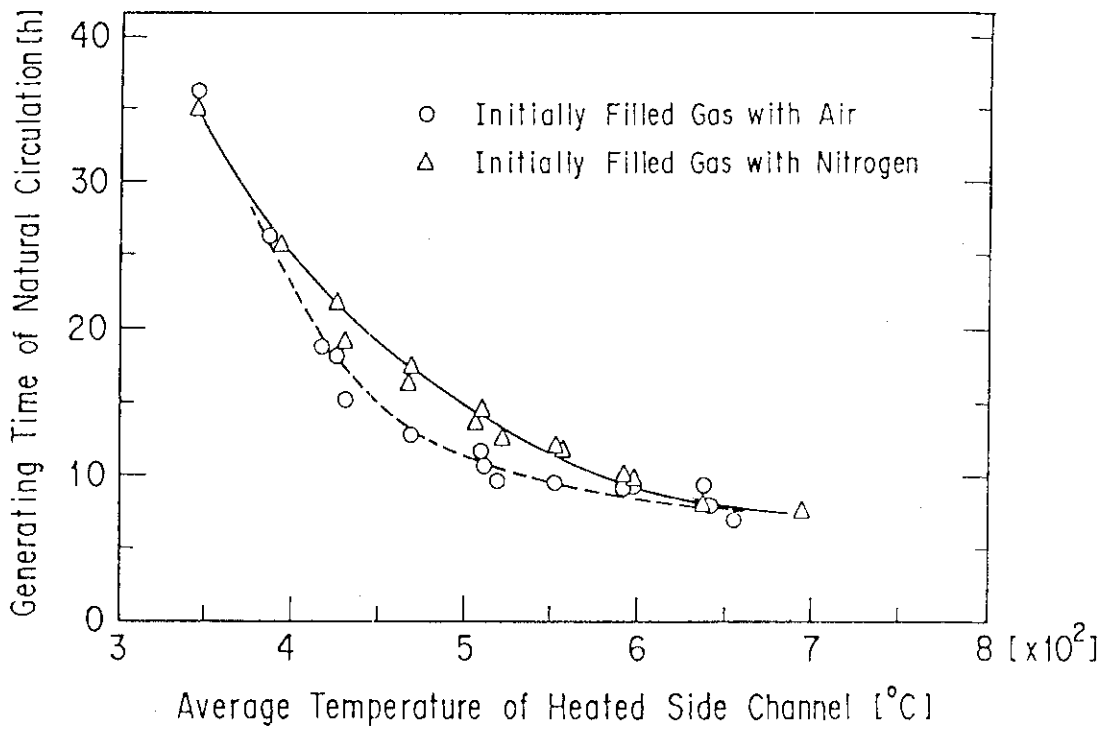


Fig. 11 The relationship between generating time of natural circulation of pure air or N_2 and the average temperature of heated side channel

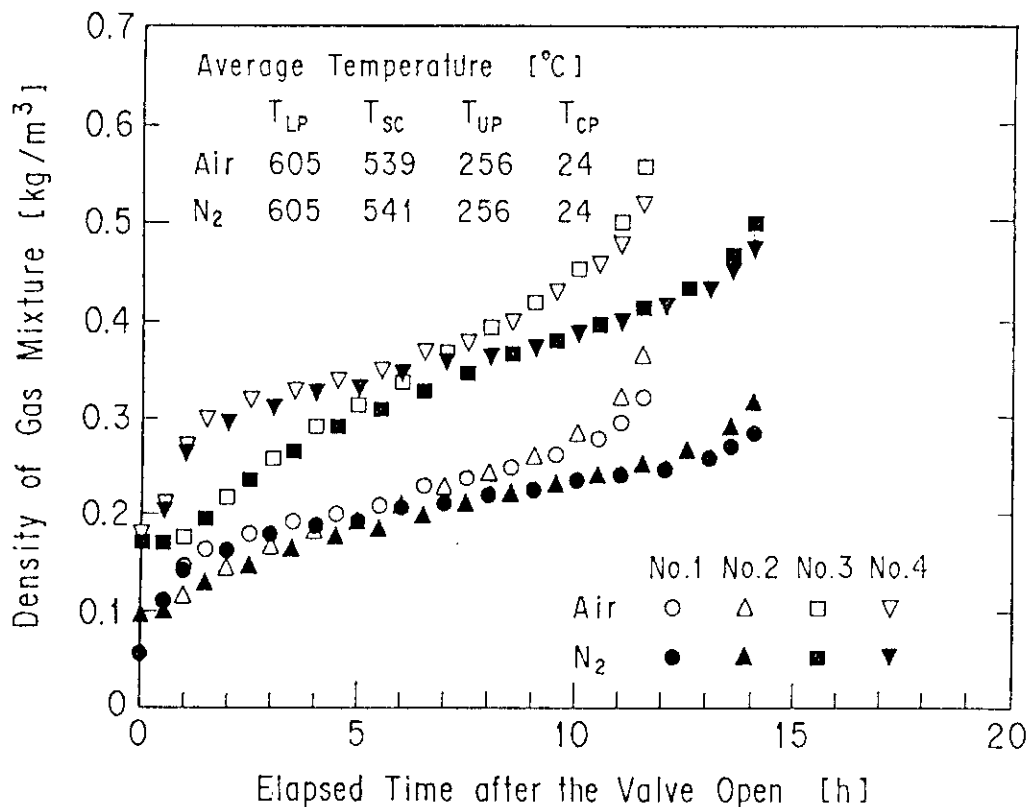


Fig. 12 Density change of gas mixture at the gas sampling positions C1, C2, C3 and C4

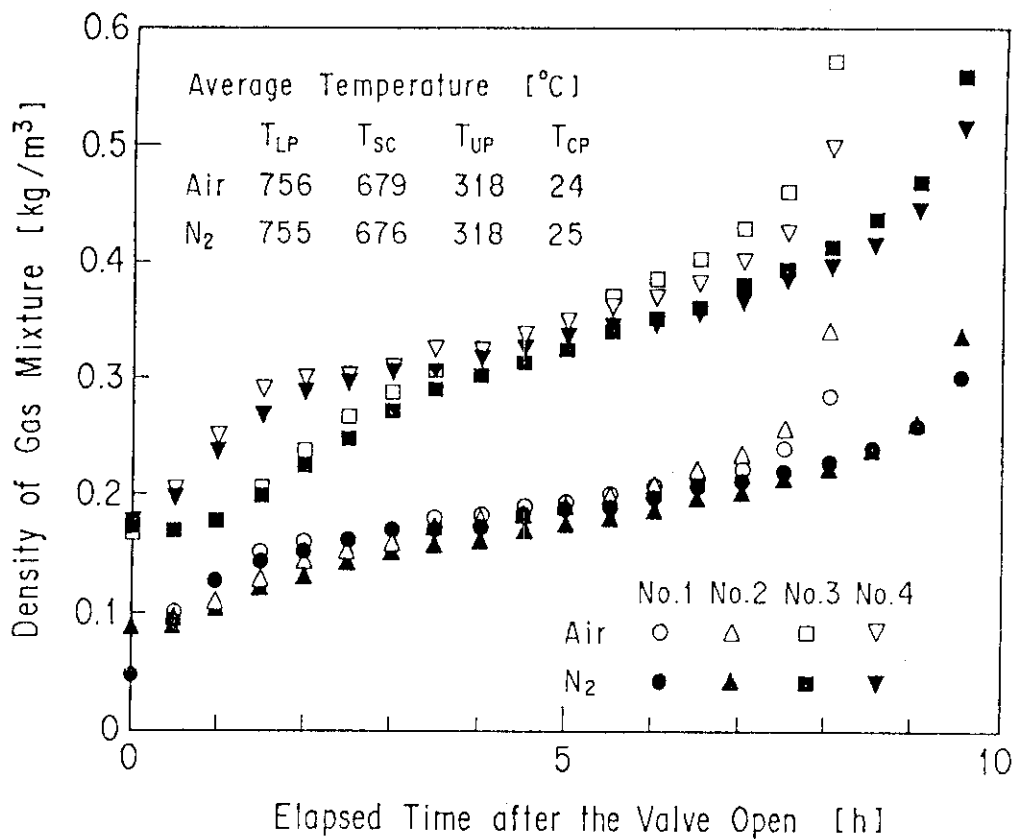


Fig. 13 Density change of gas mixture of the gas sampling positions C1, C2, C3 and C4