

JAERI-Research

95-042



# 高温ガス炉1次系配管破断事故条件下における 黒鉛ダスト及び沈着核分裂生成物挙動の検討

1995年6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。

入手の問合せは、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, Tokaimura, 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

高温ガス炉 1 次系配管破断事故条件下における  
黒鉛ダスト及び沈着核分裂生成物挙動の検討

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5月16日受理)

高温ガス炉では、通常運転時に微量の核分裂生成物が燃料から放出され、1次冷却系を移行する。燃料から放出された核分裂生成物は、循環中に1次冷却設備の内壁面に沈着する。高温ガス炉で原子炉冷却材圧力バウンダリの健全性が損なわれる事故、例えば1次冷却設備二重管破断事故（減圧事故）時には、この沈着核分裂生成物が破断に伴う環境の物理的・化学的变化によって剥離（リフトオフ）し、1次冷却設備から放出され、被ばく評価上影響を及ぼす可能性がある。

この離脱挙動は、非常に複雑な現象であり、これまで定量的なモデルは確立されていない。そこで、大口径破断事故を模擬した核分裂生成物離脱実験を行った。実験としては、配管沈着核分裂生成物の挙動に関するものと、黒鉛ダストの挙動に関するものについて別個に実施した。ここでは、これらの実験データに基づき、物理現象を組み込んだ Turbulent Burst モデル（乱流バーストモデル）を当てはめることを検討した。

An Investigation of Graphite Dust and Plateout Fission Product Behavior  
under Pipe Rupture Accident Condition  
in Primary Cooling System of High Temperature Gas-cooled Reactor

Kazuhiro SAWA

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

(Received May 16, 1995)

In high temperature gas-cooled reactors (HTGRs), a small amount of fission products are released from fuel elements during normal operation. Then condensable fission products plateout on the inner surface of primary cooling system components. In accident conditions such as rapid depressurization events, plated-out fission products would be re-entrained into the coolant by chemical and/or mechanical forces. The re-entrainment process is called liftoff.

Since this process is very complicated phenomenon, a quantitative model for analysis has not been established. Therefore, experiments were carried out to investigate the behavior of fission products and graphite dusts under the rapid depressurization condition caused by large-scale pipe rupture accident. One experiment was focused on fission products plated-out on metal surface or on/in oxide film and another was focused on the graphite dusts behavior. In this paper, applicability of turbulent burst model to graphite dusts and fission products liftoff models to the experimental data was investigated.

Keywords: HTGR, FP, Depressurization, Plateout, Liftoff, Dust, Turbulent Burst Model

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験データ .....	2
2.1 核分裂生成物離脱実験 .....	3
2.2 ダスト離脱実験 .....	6
3. 異脱モデル .....	20
3.1 剪断力比モデル .....	21
3.2 Turbulent Burst モデル .....	22
4. 考 察 .....	25
4.1 ダスト .....	25
4.2 ヨウ素 .....	28
4.3 セシウム .....	29
5. 結 論 .....	43
謝 辞 .....	44
参考文献 .....	44

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental Data .....	2
2.1 Fission Products Liftoff .....	3
2.2 Dust Liftoff .....	6
3. Liftoff Model .....	20
3.1 Shear Ratio Model .....	21
3.2 Turbulent Burst Model .....	22
4. Discussions .....	25
4.1 Dust .....	25
4.2 Iodine .....	28
4.3 Cesium .....	29
5. Conclusions .....	43
Acknowledgements .....	44
References .....	44

# 1. はじめに

高温ガス炉では、通常運転時に微量の核分裂生成物が主に被覆層が破損した燃料から放出され、1次冷却系を移行する。一方、高温ガス炉は、1次冷却材としてヘリウムガスを用いるのでそれ自身の放射化が無く、放射化生成物の発生量も非常に少ない。そのため、核分裂生成物からのガンマ線が高温ガス炉の遮蔽設計上主要な線源となる。燃料から放出された核分裂生成物は、冷却材とともに1次冷却系を循環し、沈着性の核種は、循環中に1次冷却設備の内壁面に沈着しガンマ線の発生源となる。以上のことから、1次冷却設備の機器・配管等の遮蔽設計では、核分裂生成物が考慮すべき主要な線源となる<sup>(1), (2)</sup>。

さらに、高温ガス炉の原子炉冷却材圧力バウンダリの健全性が損なわれるような事故、例えば1次冷却設備二重管破断事故（減圧事故）時には、沈着した核分裂生成物が破断に伴う流速の上昇等によって剥離し、1次冷却設備から放出される可能性がある。この時、被ばく評価の観点からは、沈着核分裂生成物のうち甲状腺に対する影響の大きいヨウ素、スカイシャイン等によって外部被ばくに大きな影響を及ぼすセシウムが評価上重要な核種となる<sup>(3)</sup>。

減圧事故時の沈着核分裂生成物の離脱（リフトオフ）についての研究は、米国を中心に行われてきたが、これらは小口径破断事故を想定した小規模な実験が中心であり<sup>(4)</sup>、HTTRで想定しているような大口径破断事故時への適用は不可能であった。また、リフトオフは非常に複雑な現象であり、モデルは確立されていない。そこで、原研ではHTTRの大口径破断事故を模擬した核分裂生成物離脱実験を行い、離脱機構の解明及び設計への適用方法の検討を行った。実験としては、OGI-1で試料を作成して行った配管沈着核分裂生成物挙動に関するもの<sup>(5)</sup>と黒鉛ダストの離脱挙動に関するもの<sup>(6)</sup>の2つについて別々に実施した。これらの実験の結果については、既に報告している<sup>(5)～(7)</sup>。

本研究は、これらの実験データに基づき、物理現象を組み込んだ解析モデルの適用の妥当性を検討したものである。具体的には、以下のようないかたの検討を行った。

- ①ダストについてはTurbulent Burst Model を基本的なモデルとし、配管表面からの離脱パラメータと実験データの対応性を検討した。
- ②ヨウ素およびセシウムについては、酸化皮膜の剥離により離脱が生じているものと仮定し、その定量化を試みた。

以下、2章では原研で実施した実験方法、条件及び結果について示す。3章では離脱に関する主要なモデルについて、4章では検討結果を示す。

## 2. 実験データ

高温ガス炉では、通常運転時に主に被覆燃料粒子の被覆層が破損した燃料から放出された沈着性の核分裂生成物が1次冷却設備の機器・配管表面に沈着する。これらの核分裂生成物は、高温ガス炉の原子炉冷却材圧力バウンダリの健全性が損なわれるような事故、例えば1次冷却設備二重管破断事故（減圧事故）時には、破断に伴う流速の上昇等によって剥離し、1次冷却設備から放出される可能性がある。この時、被ばく評価の観点からは、沈着性核分裂生成物のうち甲状腺に対する影響の大きいヨウ素、スカイシャイン等によって外部被ばくに大きな影響を及ぼすセシウムが評価上重要な核種となる。1次冷却設備内に沈着している核分裂生成物の剥離による離脱（リフトオフ）割合の研究は、これまで主に海外で行われてきており、米国のFort St. Vrain炉の安全審査においては、実験結果に基づき核分裂生成物の離脱割合はせん断力比によって記述できるとされている<sup>(8)</sup>。

これまでの沈着に関する研究から、高温ガス炉の1次冷却系内壁面に沈着した核分裂生成物の形態は、大別して以下の3種類に分類できると考えられる<sup>(9)～(11)</sup>。

- ①内壁面に付着したダストに吸着している核分裂生成物
- ②内壁表面に吸着している核分裂生成物
- ③内壁面からさらに母材中に拡散、侵入している核分裂生成物

これらの分類を図示したものをFig. 2.1に示す。

1次冷却系に存在する核分裂生成物の付着したダストは、主に高温ガス炉の炉内構成要素として存在する黒鉛から発生すると考えられる。HTTRのように燃料要素同志が直接接触することの無いブロック型燃料の場合には、核分裂生成物を含んだ大量のダストの発生はないと予想され、事実OGI-1におけるこれまでの実験でも大量のダストが発生したことではない。そのため、試

以下、2章では原研で実施した実験方法、条件及び結果について示す。3章では離脱に関する主要なモデルについて、4章では検討結果を示す。

## 2. 実験データ

高温ガス炉では、通常運転時に主に被覆燃料粒子の被覆層が破損した燃料から放出された沈着性の核分裂生成物が1次冷却設備の機器・配管表面に沈着する。これらの核分裂生成物は、高温ガス炉の原子炉冷却材圧力バウンダリの健全性が損なわれるような事故、例えば1次冷却設備二重管破断事故（減圧事故）時には、破断に伴う流速の上昇等によって剥離し、1次冷却設備から放出される可能性がある。この時、被ばく評価の観点からは、沈着性核分裂生成物のうち甲状腺に対する影響の大きいヨウ素、スカイシャイン等によって外部被ばくに大きな影響を及ぼすセシウムが評価上重要な核種となる。1次冷却設備内に沈着している核分裂生成物の剥離による離脱（リフトオフ）割合の研究は、これまで主に海外で行われてきており、米国のFort St. Vrain炉の安全審査においては、実験結果に基づき核分裂生成物の離脱割合はせん断力比によって記述できるとされている<sup>(8)</sup>。

これまでの沈着に関する研究から、高温ガス炉の1次冷却系内壁面に沈着した核分裂生成物の形態は、大別して以下の3種類に分類できると考えられる<sup>(9)~(11)</sup>。

- ①内壁面に付着したダストに吸着している核分裂生成物
- ②内壁表面に吸着している核分裂生成物
- ③内壁面からさらに母材中に拡散、侵入している核分裂生成物

これらの分類を図示したものをFig. 2.1に示す。

1次冷却系に存在する核分裂生成物の付着したダストは、主に高温ガス炉の炉内構成要素として存在する黒鉛から発生すると考えられる。HTTRのように燃料要素同志が直接接触することの無いブロック型燃料の場合には、核分裂生成物を含んだ大量のダストの発生はないと予想され、事実OGL-1におけるこれまでの実験でも大量のダストが発生したことはない。そのため、試

料の作成方法が異なる以下の2種類の実験を行った。

- ①配管沈着核分裂生成物の離脱実験
- ②黒鉛ダストの離脱実験

これらの実験方法及び結果については既に詳細に報告している<sup>(5)~(7)</sup>ので、ここでは結果を中心述べる。

## 2.1 核分裂生成物離脱実験

本実験では、金属表面又は酸化皮膜に沈着した核分裂生成物の離脱挙動について検討を行うことを目的とした。実験を行うに当たっては、以下に示す点に重点をおいた。

- ①これまでの実験は、主に小口径破断を想定したものであるため、大口径破断を想定した場合にはその結果を外挿することができるかどうかの判断ができなかった。そこで、せん断力比の大きい（流速が早い）ところまで実験範囲を広げた。
- ②試料としては、高温ガス炉の1次系の状態を模擬したOG-L-1で実際に核分裂生成物を沈着させて作成した。
- ③ガス流速の上昇による離脱実験（ブローダウン試験）に加えて、拭取り試験、温水洗浄及び化学リーチング試験を行い、離脱機構等を総合的に検討できるようにした。

実験は以下に示す3種類行った。

- ①ブローダウン試験
- ②拭取試験
- ③リーチング試験

HTRの1次冷却設備の核分裂生成物の沈着分布を予測すると、運転中に多くの核分裂生成物が沈着する部位は、配管温度が低い1次加圧水冷却器伝熱管部及び表面積が大きいガス循環機部分等である<sup>(1), (2)</sup>。実験に用いる試験片は、可能な限りHTRにおけるこれらの部位の核分裂生成物沈着条件とできるだけ近い状態で沈着したものを用いることとした。すなわち、離脱

実験用の試験片は、OGL-1に設置して核分裂生成物を沈着させることにより作成した。試験片への沈着条件をTable 2.1に示す。試験片の材質はステンレス鋼、ハステロイ-XR及びインコネルである。沈着時の流速は約50~60m/s、試験時の流速は約90~580m/sである。測定の対象とした核種は、被ばく評価上重要なセシウム及びヨウ素である。

### 2.1.1 実験方法

#### (1) ブローダウン試験

ブローダウン試験は、核分裂生成物離脱実験装置を用いて行った。実験装置のフロー図をFig. 2.2に示す。実験装置は貯蔵タンク、試験部、レシーバタンク及びデータ処理部から構成される。貯蔵タンクは4MPaまでヘリウムガスを貯蔵でき、ガスは試験部へ導かれる。ブローダウンガス試験部とレシーバタンク間のバルブを高速で開くことによって急速減圧条件を模擬した。ガス流束はオリフィスの大きさとニードルバルブの開度で調節した。離脱割合は、ブローダウン試験前後に試験片に沈着している放射性核種から出るガンマ線をGe検出器で測定して求めた。

#### (2) 拭取試験

拭取り試験は、離脱試験を行った後、試料表面に残存する核分裂生成物を除去する目的で行った。ブローダウン試験では、装置上の制限からせん断力の上限値は約 $1,500\text{N}/\text{m}^2$ （剪断力比にして約135）である。そこで、試験片内面を布で拭取り高剪断力を得ることとした。

本試験は、二つ割りにした試験片内面に接触させた滑り片（ウェイト）をロードセルに接続し、試験片ケースを移動させるものである。試験ケースはモーターによって定速移動させ、移動時の力をロードセルで検出しせん断力を求めた。本試験によって最大 $37,000\text{N}/\text{m}^2$ の剪断力（剪断力比にして約3,000）が得られた。

#### (4) リーチング試験

リーチング試験は、温水洗浄及び化学リーチング試験から成る。温水洗浄は、配管表面に吸着した核分裂生成物の除去を目的として行った。また、化学リーチングは、酸化皮膜内に拡散侵入した核分裂生成物を除去するために行った。温水洗浄は、約80°Cの純水中に試験片を90分程度入れ、試験片表面の核分裂生成物を除去するものである。この試験による核分裂生成物の除去割合は、洗浄前後の試験片のガンマ線測定から評価した。

化学リーチングは、約80°Cのリーチング溶液中に試験片を約20分入れ、試験片の酸化皮膜をその中の核分裂生成物とともに除去するものである。リーチング溶液は、水1リットルに対し、NaOHを102g、KMnO<sub>4</sub>を34gの割合で調合したものである。除去割合は、温水洗浄後と化学リーチング後のガンマ線測定により評価した。

### 2.1.2 結果

ブローダウン試験結果をセシウム及びヨウ素についてTable 2.2に示す。

拭き取り試験結果をセシウムについてTable 2.3に示す。

温水洗浄及び化学リーチング試験結果をセシウムについてTable 2.4に示す。

なお、表中の試料名のうち、はじめの2桁の数字が核分裂生成物を沈着させたときのOGL-1燃料体の次数を示している。次の英文字は試験片の材質を示し、「H」がハステロイ-XR、「I」がインコロイ、「S」がステンレスを表している。それ以降の英数字は、試料の切り出しに際しての位置を示している。

ブローダウン試験の結果を剪断力比の関数としてFig. 2.3に示す。図中の●はセシウムに関するデータを、▲はヨウ素に関するデータを示している。図より、離脱割合のばらつきは大きく、同程度のせん断力比に対しても離脱割合は大きく異なってはいるが、セシウムに較べてヨウ素の方が離脱割合が大きいことが分かる。金属表面とのヨウ素の平衡蒸気圧はそれほど大きくないことが分かっている<sup>(10)</sup>ことから、この違いは両核種の揮発性の違いでは説明できない。むしろヨウ素とセシウムの沈着挙動の差によって違いが生じていると考えられる。<sup>137</sup>Csは半減期が約30年と長く、表面から酸化皮膜あるいは金属母材内に拡散していくと考えられる。一方、<sup>131</sup>Iは酸化皮膜への親和力の弱さ及び8日間という比較的短い半減期のため、酸化皮膜内に侵入する前に脱着あるいは崩壊し、内部にはほとんど存在しないと考えられる。従って、急速減圧条件下で酸化皮膜の微細構造の剥離が生じているとすると、<sup>131</sup>Iの離脱割合は実験結果が示しているように<sup>137</sup>Csの離脱割合よりも大きくなると考えられる。

Figure 2.3に示すように離脱割合は剪断力比が約130まで増加しており、離脱割合と機械的な力は何らかの関係があることを示唆しているが、データのばらつきから考えて、剪断力比のみで離脱割合を記述することは、必ずしも妥当ではない。

Figure 2.4に拭取り試験、温水洗浄及び化学リーチング試験の結果をブローダウン試験結果と共に示す。図中の●はブローダウンによる離脱割合を、▲は温水洗浄による除去割合（ブローダ

ウン試験を行った後の試料を用いた場合はブローダウンによる離脱割合も含む)を、■は化学リーチングによる除去割合(温水洗浄による除去割合を含む。ブローダウン試験を行った後の試料を用いた場合はブローダウンによる離脱割合も含む)を示す。◆は拭取り試験による離脱割合(ブローダウンによる離脱割合も含む)を示す。

拭取試験の結果によると金属表面のセシウムの除去割合は最大でも20%程度であり、試験の範囲である剪断力比にして3000の範囲まで酸化皮膜は完全には除去されていないことが分かる。従って、大口径破断事故条件下においても沈着核分裂生成物は完全には離脱しないと考えられる。

温水洗浄の結果から、表面の微細構造に沈着している核分裂生成物は40から80%の間であり、残りの20から60%は酸化皮膜内部に拡散侵入していると考えられる。侵入した核分裂生成物は、ブローダウンや拭取によって除去されていない。ここで観察された現象は、Decken等によって仮定された「non-reversible process」<sup>(11)</sup>に対応する。従って、内部侵入核分裂生成物は、大口径破断事故条件下においても離脱しないと考えられる。また、内部侵入核分裂生成物の割合は、1次冷却設備の運転時間が長くなればなるほど大きくなっていくので、運転時間の増加と共に離脱割合は減少していくものと考えられる。

## 2.2 ダスト離脱実験

1次冷却系に存在する核分裂生成物の付着したダストは、主に高温ガス炉の炉内構成要素として存在する黒鉛から発生すると考えられる。1次冷却材中に単体として放出される核分裂生成物が1次冷却系内壁面に存在する炭素または黒鉛に集中的に吸着するとは考え難いため、この形態で1次冷却系内に存在する核分裂生成物は、運転中に炉心内で燃料要素の黒鉛表面近傍に吸着したもので、そのまま機械的な力で剥離した黒鉛とともに、1次冷却系内を移動したものが主であると考えられる。従って、このような形で存在し得る核分裂生成物は、通常運転状態における温度状態で炉内黒鉛への吸着力が大きいもので、かつ、1次冷却系内面を構成する金属へ移行しにくい核種であると考えられる。こうした観点からは、ヨウ素等、高温ガス炉の通常運転状態において黒鉛に吸着しにくい核種は、この形態で1次冷却系内に存在することはほとんど無いと考えられる。また、発生機構から考えて、被ばく評価上問題となりうるような量の黒鉛ダストが発生し得るのは、炉心内で核分裂生成物を含む可能性がある燃料要素表面が機械的に直接接触、摩耗する、ペブルベッド型炉心の場合である。HTTRのように燃料要素同志が直接接触することの無いブロック型燃料の場合には、核分裂生成物を含んだ大量のダストの発生はないと予想され、

OGI-1におけるこれまでの実験でも大量のダストが発生したことはない。しかしながら、減圧事故状態におけるダストの挙動についても検討を行うために、ダストの離脱に関する試験も行った。

OGI-1を用いて試料を作成してもダストについては知見を得ることはできなかった。そこで、ダストが多い系における離脱挙動を研究するために、ダストを対象とした炉外試験を行った。

### 2.2.1 実験方法

試験装置をFig. 2.5に示す。装置は、圧力容器、試験部、フィルタ部、排気部及びデータ処理部から構成される。

圧力容器は、窒素又はヘリウムのブローダウンガスを最高4 MPaまで貯蔵できる。試験部との間に高速ニードルバルブを開くことによってブローダウンガスを試験部に流した。試験部の最大ガス流速は、圧力容器の初期ガス圧力とニードルバルブ下流のオリフィスで調整した。

試験部は試験管と試料ホルダから成る。試験部をFig. 2.6に示す。図に示したように3種類の寸法の試料を支持できるようになっている。ブローダウンガスは、試料の外面とホルダーの間の環状流路を流れる。試料の表面には黒鉛ダストを手で付けた。試料の長さは1 mである。

フィルタ部は離脱したダストを収集するために設けた。ダストの量はフィルタに捕捉された重量を測定することによって求めるため、フィルタは軽量でかつ交換が容易でなくてはならない。一方、フィルタは減圧事故条件を模擬した高速のブローダウンガスにさらされるので、強度も要求される。最終的には $5 \mu\text{m}$ のメッシュのポリフロンフィルタを金網で補強したものをフィルタとして用いた。

排気部にはサイレンサを付け、ブローダウンガスを大気に放出した。

データ処理部はセンサー、信号処理系、データロガーから成る。ブローダウン中の圧力、温度、ガス流速を試験部の上流で測定する。試験部の下流では、圧力と温度を測定する。データは試験中データロガーに蓄積される。

試験においては、黒鉛粉末を試料外面に手で付け、新しいフィルタをセットした。オリフィスを選択し圧力容器に窒素あるいはヘリウムガスを充填する。エアバルブを開いて高速ガスを流し、試料から離脱した黒鉛粉末が付着したフィルタを取り外して重量を測定した。せん断力比を得るためにブローダウンは一つの試料に対して2回行った。1回目のブローは通常運転状態を模擬し、2回目のブローは減圧事故状態を模擬する。Fig. 2.7に以上の手順を示す。黒鉛粉末の直径は、

高温ガス炉で用いる黒鉛の平均粒径と同程度の約 $10\text{ }\mu\text{m}$ である。

試験は試験管の外径、ブローダウンガス等を変化させて行った。また、原研のH E N D E L (Helium Engineering Demonstration Loop) の運転に用いられた実炉条件に近い雰囲気でダストが付着したガス循環機フィルタを試料とした試験も行い、手で付けた黒鉛の離脱挙動が妥当なものであったかどうかの確認も行うこととした。

## 2.2.2 結果

ダストの離脱割合をFig. 2.8に示す。図中の丸は第1試験（基準ケース）、三角は管直径が大きい第2試験、四角はヘリウムガスをブローダウンガスとした第3試験の結果である。菱形は米国で黒鉛ダストを加えて行われた剪断力比が8までの炉外ブローダウン試験の結果である<sup>(4)</sup>。回帰直線は、離脱割合が剪断力比に比例すると仮定して、標準ケースのデータに対して計算した。離脱割合は剪断力比が30まで増加していることが分かる。この点では、剪断力比の小さい範囲で得られた米国の結果と同じ傾向を示した。しかし、データのはらつきは大きく（相関係数は0.64）、剪断力比が離脱を記述する主要なパラメータであると結論づけることはできない。特に、剪断力比の小さい領域で実験データは0になっておらず、剪断力比モデルの有効性は疑問である。このことは、剪断力が通常運転状態を超えることなくダストの離脱は起こりうることを示している。

試験管の直径が大きくなても離脱割合に大きな変化は見られなかった。また、ブローダウンガスの違いも離脱挙動に影響を与えていない。

H E N D E Lは高温ガス炉の高温機器の運転特性等を実証するための大型ループであり、圧力4 MPaのヘリウムガスが400~950°Cで運転されている。H E N D E Lは、黒鉛構造物も含んでおり、運転中に黒鉛ダストが発生している。人工的に付着させた試験と実炉条件下での付着の違いを調べるために、H E N D E Lのガス循環機の入り口フィルタを試料としてブローダウン試験を行った。フィルタは、SUS316の焼結体である。離脱割合をFig. 2.9に示す。図中の直線は、標準試験について求めた回帰直線である。データ点は2点しかないが、離脱割合に大きな差は見られなかった。したがって、人工的に付着させた黒鉛の離脱の仕方も実炉条件で付着したものと大きく変わらないと考えられる。

Table 2.1 Plateout conditions of test specimen.

<b>Materials</b>	<b>Stainless steel (SUS-316), Hastelloy-XR, Inconel-800</b>
<b>Temperature</b>	
9th irradiation test	670 °C
10th irradiation test	675 °C
12th irradiation test	630 °C
<b>Helium gas pressure</b>	<b>3 MPa</b>
<b>Plateout duration</b>	
9th irradiation test	120 days
10th irradiation test	100 days
12th irradiation test	150 days
<b>Helium gas velocity</b>	
9th irradiation test	60 m/s
10th irradiation test	50 m/s
12th irradiation test	50 m/s

Table 2.2(1) Blow down test results (Cesium).

Specimen name <sup>(a)</sup>	Max. velocity (m/s)	Liftoff fraction (%)
9HBL1	219	7.69
9HAL2	371	6.40
9HBL2	378	9.95
9IBL2	304	3.77
9IBL1	367	1.87
9IAL2	495	5.37
9IAL1	547	3.58
10SAL1	86	2.38
10SAL2	198	4.18
10SBL2	536	5.94
10HAL1	106	4.66
10HAL2	395	10.6
10HBL2	576	3.64
10HBL1	576	2.06
10IBL1	344	2.27
10IAL1	367	2.55
10IBL2	536	7.73
10IAL2	540	1.92
12HBL3	184	4.96
12HBL2	270	7.75
12HAL2	300	14.0
12HAL1	436	17.5
12HAL3	553	21.8
12HCL2	553	19.0
12HCL1	557	6.19
12HBL1	557	10.7

(a) First number : irradiation test number (plateout condition shown in Table I)  
First alphabetic character : H=Hastelloy-XR, S=Stainless steel, I=Inconel

Table 2.2(2) Blow down test results (Iodine).

Specimen name <sup>(a)</sup>	Max. velocity (m/s)	Liftoff fraction (%)
12HBL3	184	8.81
12HBL2	270	22.7
12HAL2	300	20.8
12HAL1	436	29.3
12HAL3	553	37.8
12HCL2	553	28.4
12HCL1	557	2.68
12HBL1	557	10.6

(a) First number : irradiation test number (plateout condition shown in Table I)

First alphabetic character : H=Hastelloy-XR, S=Stainless steel,  
I=Inconel

Table 2.3 Wipe off test results (Cesium).

Specimen name <sup>(a)</sup>	Wall shear stress ( $\times 10^3$ dyne/cm $^2$ )	Wipe off fraction (%)	Cumulative fraction removed (%)
9IBL2 <sup>(b)</sup>	80.5	9.49	12.2
	209	2.66	
9IBL2 <sup>(c)</sup>	117	9.35	10.2
	194	0.875	
10SBL2 <sup>(b)</sup>	7.28	5.20	6.55
	21.3	1.35	
10IAL1 <sup>(b)</sup>	203	4.79	7.40
	hand wipe	2.61	
10IAL1 <sup>(c)</sup>	234	3.69	7.00
	361	3.31	
10IBL2 <sup>(a)</sup>	30.6	2.17	2.17
	208	0	
10IAL2 <sup>(b)</sup>	227	6.46	6.46
	hand wipe	0	
10IAL2 <sup>(c)</sup>	11.6	2.23	5.49
	1150	3.26	

- (a) First number : irradiation test number (plateout condition shown in Table I)  
First alphabetic character : H=Hastelloy-XR, S=Stainless steel,  
I=Inconel
- (b) a half of vertically cut specimen  
(c) another half of vertically cut specimen

Table 2.4 Result of leaching test (Cesium).

Specimen name <sup>(a)</sup>	Removed fraction by water washing (%)	Removed fraction by chemical leaching (%)	Cumulative removed fraction by leaching test (%)
9HBL1	57.6	34.3	91.9
9HAL2	65.0	27.8	92.8
9HBL2	65.6	24.1	89.7
9IBL1	71.9	24.3	96.2
9IAL2	72.1	21.3	93.4
9IAL1	75.3	20.3	95.6
10SAL1	42.9	54.3	97.2
10SAL2	44.2	49.4	93.6
10HAL1	41.0	53.7	94.7
10HAL2	37.6	51.4	89.0
10HBL2	21.4	73.7	95.1
10HBL1	44.7	51.6	96.3
10IBL1	16.5	80.3	96.8
9HAY1	76.4	23.6	100
9HBY1	78.0	22.1	100
9IAY1	76.5	22.6	99.1
10SAY1	55.9	43.5	99.4
10SBY1	45.8	53.0	98.8
10HAY1	35.9	63.7	99.6
10HBY1	47.3	51.5	98.9

(a)First number : irradiation test number (plateout condition shown in Table I)  
 First alphabetic character : H=Hastelloy-XR, S=Stainless steel, I=Inconel

### Primary coolant

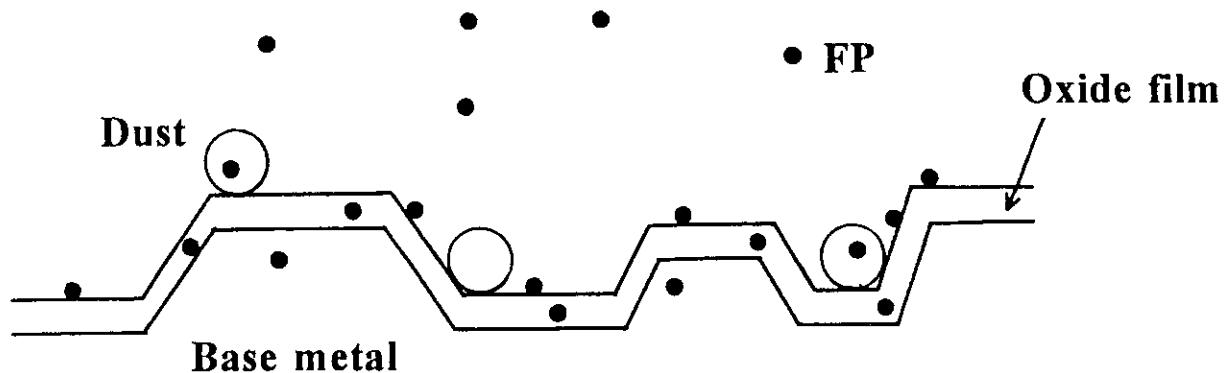


Fig.2.1 Plateout model.

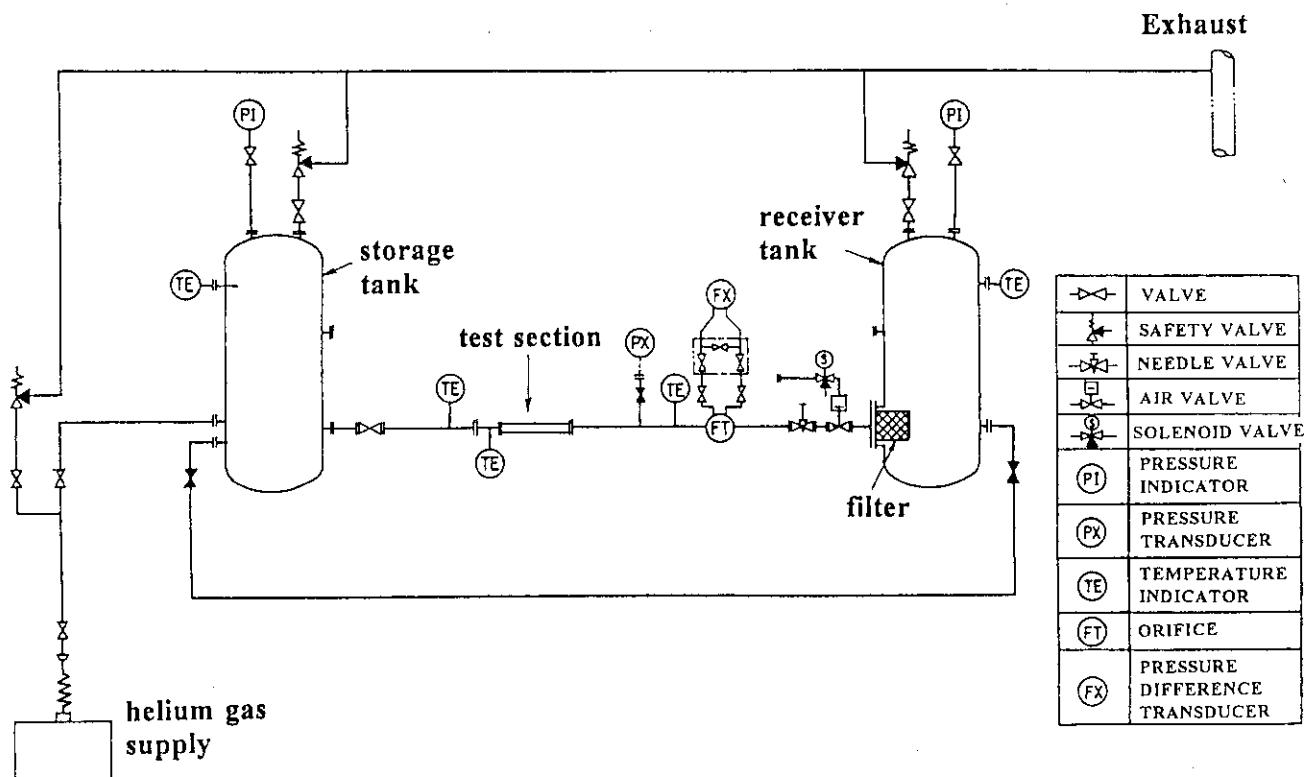


Fig.2.2 Schematic diagram of fission product blow down test apparatus.

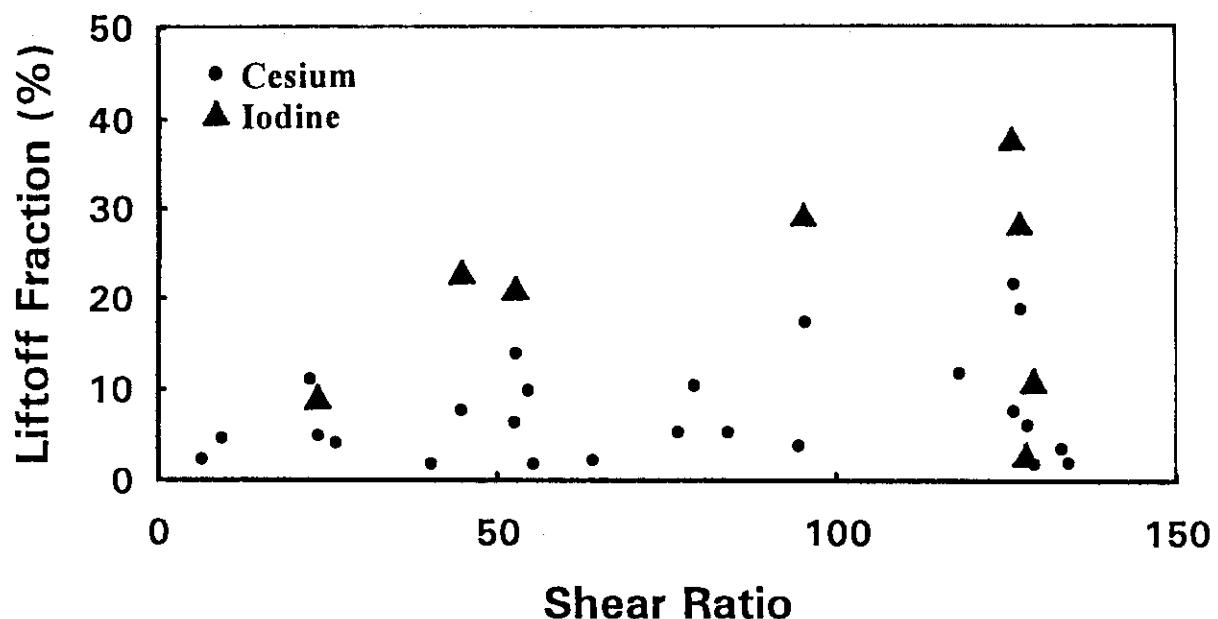


Fig.2.3 Measured fission product liftoff fraction in blow down test.

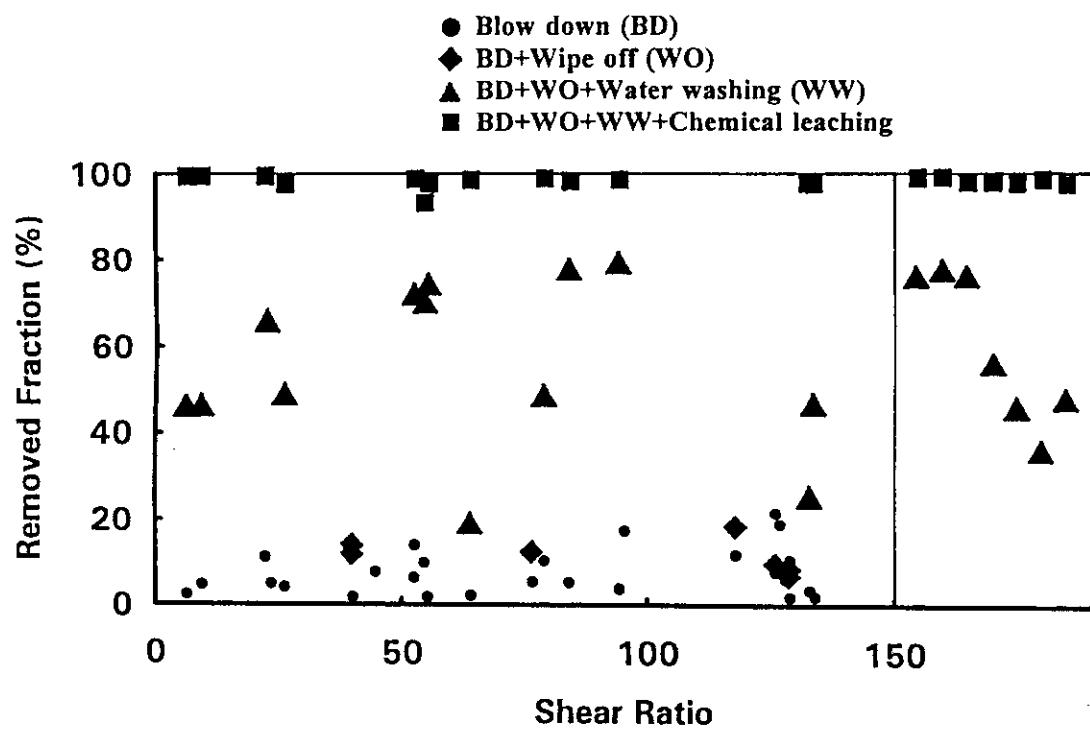


Fig.2.4 Summary of fission product liftoff test.

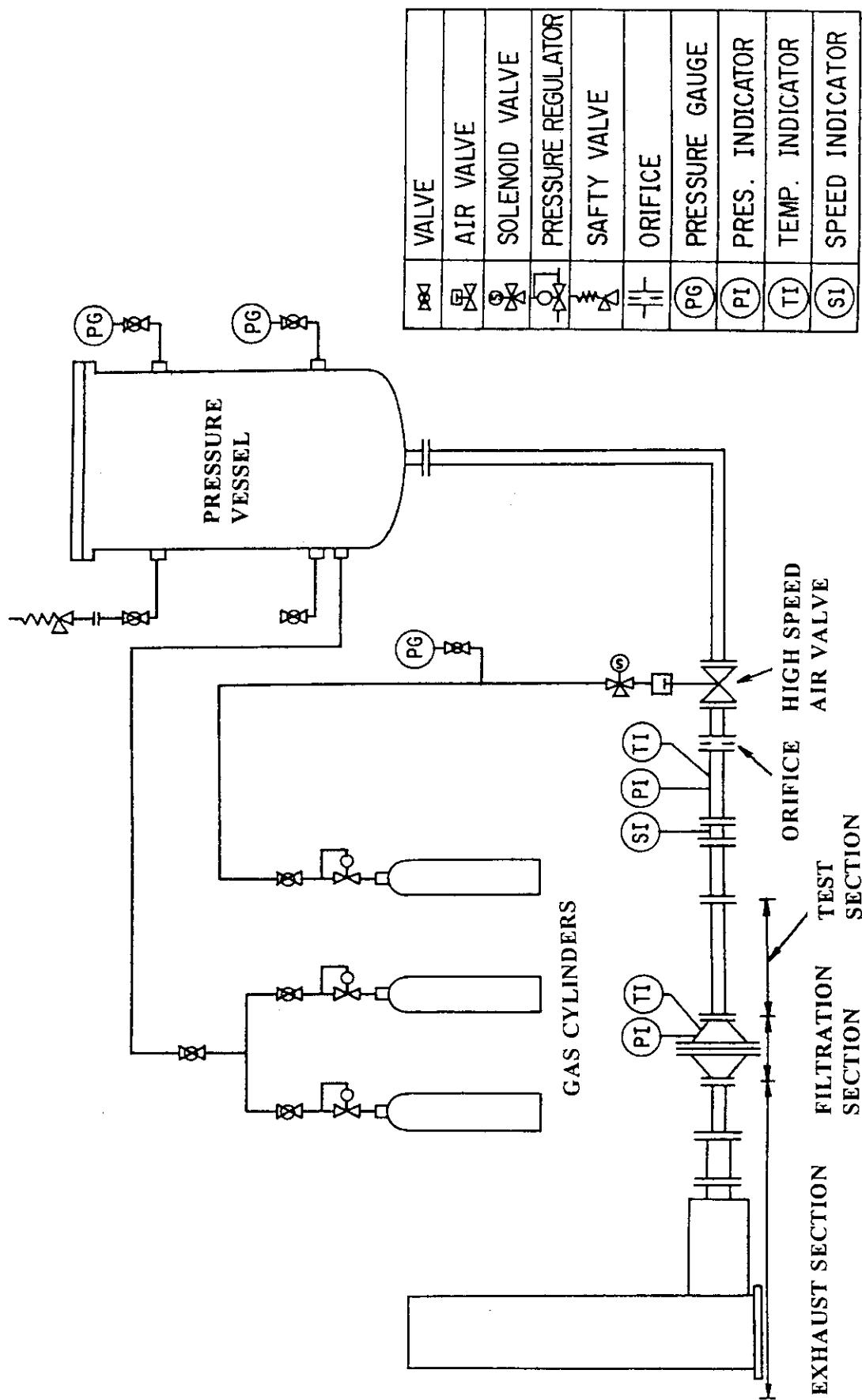


Fig. 2.5 Schematic diagram of dust blow down test apparatus.

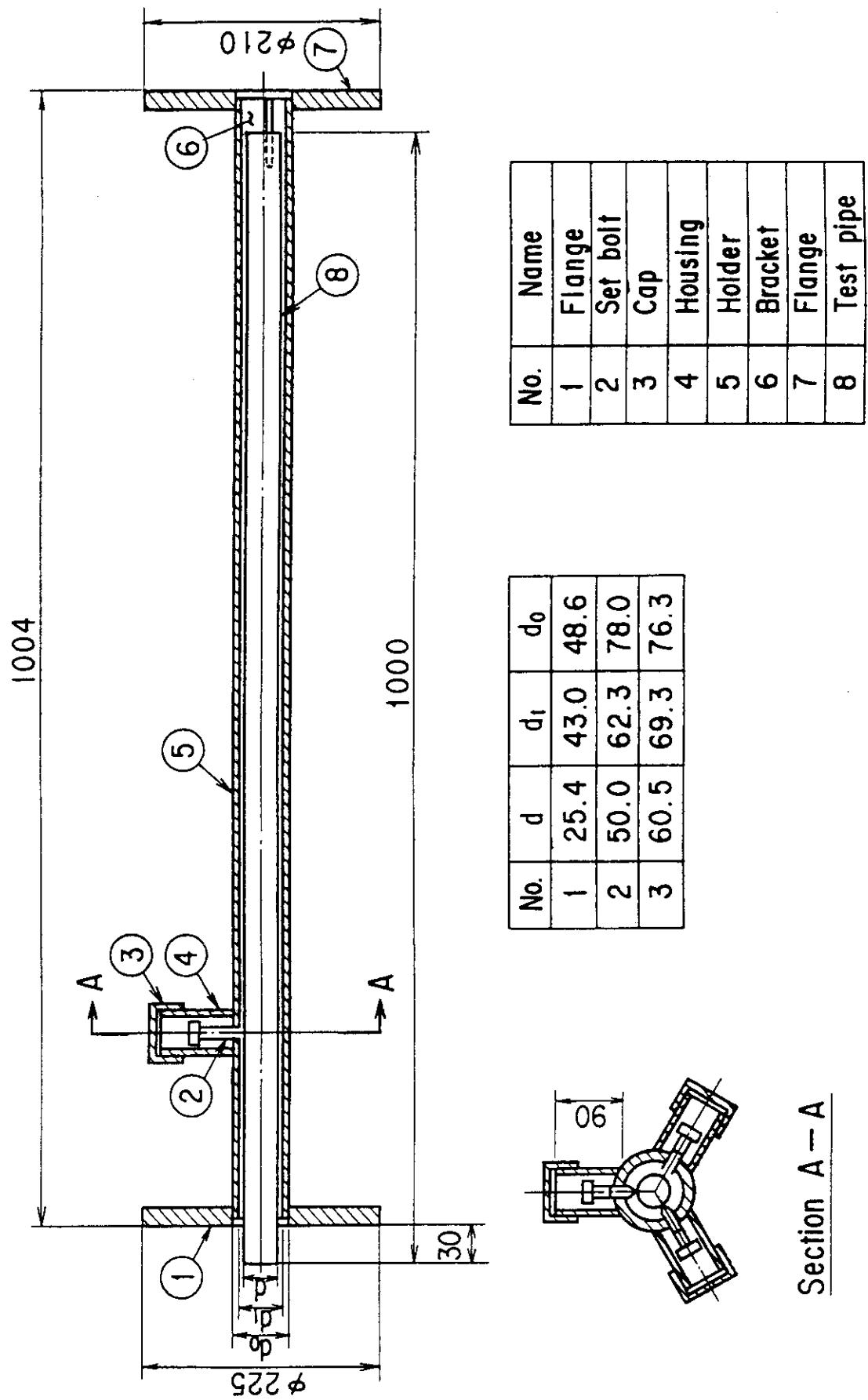
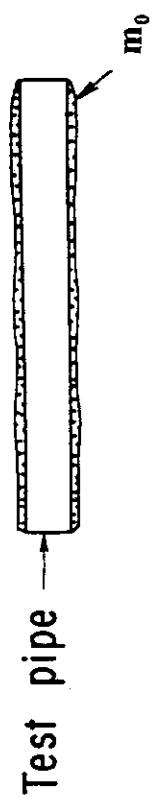
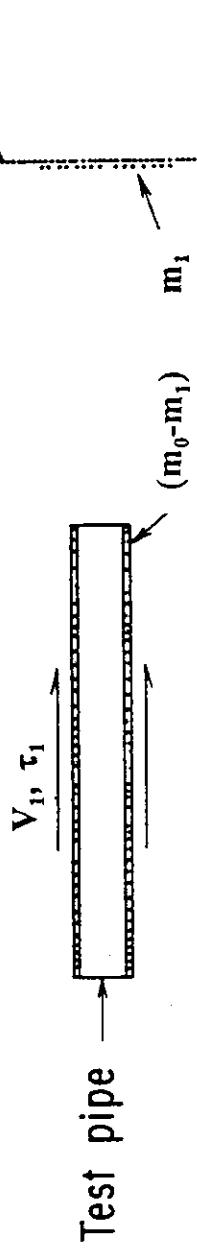


Fig.2.6 Test section of dust blow down test apparatus.

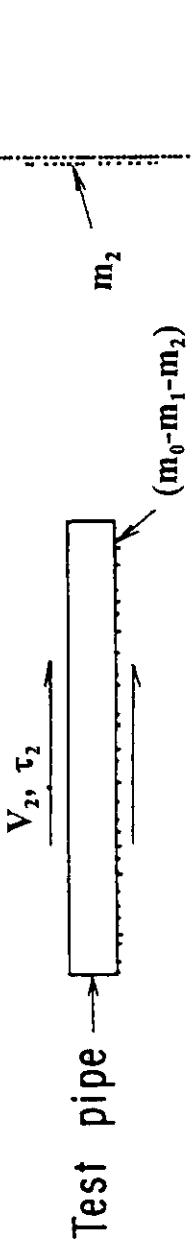
- ① Attachment of carbon powder onto the outer surface of test pipe.



- ② 1st blow.



- ③ 2nd blow



Symbols  
Subscripts

V:	Velocity	0:	for initial condition
$\tau$ :	Shearing stress	1:	for 1st blow
m:	Liftoff or initial charge quantity	2:	for 2nd blow

Fig.2.7 Procedure of dust blow down test.

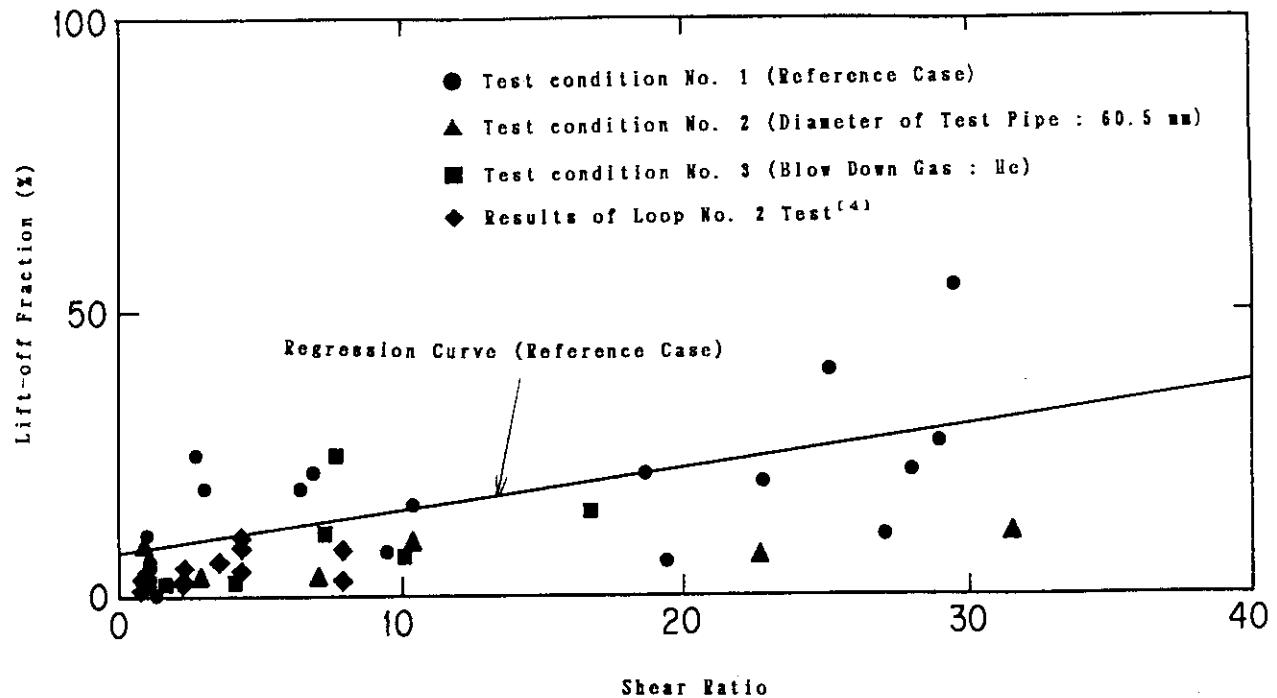


Fig.2.8 Liftoff fraction of dust.

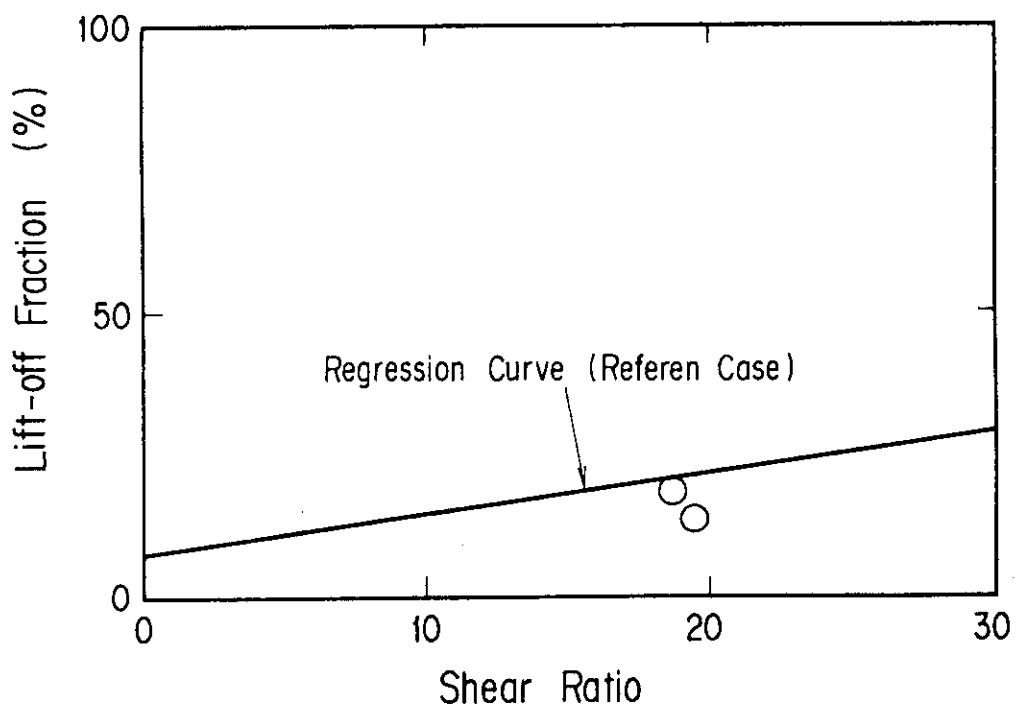


Fig.2.9 Dust liftoff fraction from filter element of HENDEL.

### 3. 離脱モデル

配管破断が生じても流量等の環境変化が緩やかな、すなわち小口径配管の破断事故の場合は、以下のような機構で離脱が生じると考えられる<sup>(10)</sup>。

- ①沈着核分裂生成物は、減圧に伴い脱着する。脱着量はLangmuir型の平衡で評価できる。
- ②ダストに沈着している核分裂生成物は、ダストと共に系外に放出される。ダストの離脱は機械的に生じる。

しかしながら、高温ガス炉の1次系の大口径配管破断事故による急速減圧状態を仮定した場合には、上記のようなモデルだけでは離脱挙動を予測するのに不十分である。このような条件下では、金属または酸化物皮膜表面に沈着した核分裂生成物は、一般に、以下のような離脱挙動を示すと推定される。

- ①金属表面に沈着した核分裂生成物は、通常運転状態や小口径破断事故時（剪断力比が1程度であり減圧が数10秒続く場合）には脱着により離脱する。
- ②流量の変化が大きく激しい（剪断力比は100程度で数秒の間に減圧が生じる）場合は、脱着のみならず金属表面の微細構造の破損等の機械的な機構によっても離脱が生じうる。例えば、HTTRで想定している二重管破断事故時には、剪断力比の最大値は事故後1秒以内に生じその値は約800となる。

ここで、剪断力比とは、配管表面にかかる剪断力の通常運転状態の値に対する事故時の値であり、流動条件等の変化がなければ1となる様なパラメータである<sup>(4), (10)</sup>。剪断力は減圧時には時間とともに変化するので、剪断力比としては壁面剪断力の最高値として定義する。

壁面剪断力は、下式のように圧力と簡単な関係を持っている。

$$\tau = \frac{\Delta P \cdot D}{4L} \quad (3.1)$$

ここで、 $\tau$  : 壁面剪断力 ( $N/m^2$ )、

$\Delta P$  : ある区間の圧力差 ( $N/m^2$ )、

D : 流路の等価直径 (m)、

L : ある区間の長さ (m)

である。

以下に、これまでに考えられている離脱モデルについて簡単に述べる。

### 3.1 剪断力比モデル

(3.1) 式を変換すると、剪断力比 SR は以下の様に書ける<sup>(6)</sup>。

$$SR = (P_B/P_N)^{0.75} (V_B/V_N)^{1.75} (T_B/T_N)^{-0.58} \quad (3.2)$$

ここで、P、V、T はそれぞれ圧力、流速、温度を表しており、添字 N、B はそれぞれ通常運転時、減圧事故時の値であることを表している。

せん断力比モデルの主要な概念は、ある流動条件下で沈着した粒子は壁面せん断力を大きくするような流動変化がない限り離脱しないというものである。しかしながら、せん断力比モデルは、せん断力比が与えられたときに離脱の程度を表すもので、必ずしも厳密な意味でのモデルではなく、以下のことを表している。

$$F_{L0} = 0 \quad SR \text{が } 1 \text{ 以下}$$

$$F_{L0} = f(SR) \quad SR \text{が } 1 \text{ より大きい} \quad (3.3)$$

ここで、 $F_{L0}$  : 離脱割合

SR : せん断力比、すなわち通常時に対する減圧時の壁面せん断力の比

$f(SR)$  : SR の非決定関数

である

このモデルでは、時間依存性は考慮されておらず、離脱は高いせん断力のもとで瞬時に起こると仮定されている。離脱関数  $f_i(SR)$  は、実験的に定められる。これまでの米国における実験では、核分裂生成物の核種によって関数が異なる。すなわち(3.3)式は、核種  $i$  別に、以下のように書く必要がある。

$$F_{lo,i} = f_i(SR) \quad SR \text{が } 1 \text{ より大きい} \quad (3.4)$$

しかしながら、2章で述べた新たな実験結果からも明らかなように、データの大きなばらつきによって結論が不確かなものとなっているのが現状である。

以上を整理すると、せん断力比モデルの主な利点は出発点が単純であるということにある。一方、このモデルの弱点は以下の点である。

- ①(3.3)式の離脱関数  $f_i(SR)$  (または  $f_i(SR)$ ) の物理的な形式が無い。そのため、実験に多くを負っている。未知の関数を実験データのみから決めるとなると、実験に問題があつたり系統的誤差があつても対応できない。また、理論的根拠がないと、実験を実施するに当たっても適切なパラメータ等を選定することができない。
- ②せん断力比モデルの仮定では、剪断力比が1以下では離脱が零である。しかし、第2章に示したように、実験ではこの場合でも離脱が生じている。

これらの検討を受け、新しい離脱モデルが検討されてきている<sup>(10)</sup>。その一つの有力なモデル例を以下に示す。

### 3.2 Turbulent Burstモデル

粒子の離脱解析に関する研究がCleaverとYatesによって行われた<sup>(12)</sup>。彼らは、流れにおいて頻繁に発生する層流底層から壁面へ通過する乱流渦に着目した。このモデルは、離脱がこれらのTurbulent Burstによるものとするものである。

沈着している粒子は付着力と移動力の比に依存する割合で流動力によって剥離する。すなわち、再付着が無視できる場合、以下のような粒子脱着モデルを仮定する。

$$\frac{dS}{dt} = -\beta(F) S \quad (3.5)$$

ここで、  $S$  : 単位面積当たりの粒子、  $1/m^2$

$\beta$  : 除去率(離脱)定数、  $1/s$

$F$  : 粒子への力の比、  $F_A/F_D$

$F_A$  : 付着力

$F_D$  : 流れによる引きずり力

である。

さらに、 Wen と Kasper は粒子の離脱定数と力の比の関係として以下のような仮定をした<sup>(13)</sup>。

$$\beta(F) = (\text{定数}) \times A e^{-F} \quad (3.6)$$

すなわち、 離脱定数は化学反応の形を取り、 パラメータ  $F$  がアレニウスの項、  $E/RT$  に替わっている。もしも付着力  $F_A$  と引剥がし力(離脱力)  $F_D$  の十分な表式があれば、  $\beta$  は減圧事故時の離脱割合評価モデルに適用できる可能性がある。

モデルの 2 番目の特徴は、 粒径分布に依存する変数  $F$  が含まれていることである。このことは、 主要な特性パラメータである粒径  $d$  を直接求められれば、 物理的解釈が容易になるということを示している。最終的な仮定は、 沈着している粒子の  $F$  がある最小値から最大値まで均一に分布しているということである。  $F$  を正規または対数正規分布とすると、 数値解析が必要となる。これらの仮定により、 結果は以下のようになる。

$$S(t) = \frac{S_0}{(F_{\max} - F_{\min})} \{ \exp [-A \exp (-F_{\max} t) - \exp (-A \exp (-F_{\min} t))] \} \quad (3.7)$$

ここで、  $S$  : 離脱率、  $1/m^2 \cdot s$

$S_0$  : 初期沈着密度、  $1/m^2$

$F_{\max}$ 、  $F_{\min}$  :  $F$  の範囲

である。

このモデルは、 $F < 1$  の全ての粒子が初期に瞬時に離脱し、その他の粒子は離脱しないとするせん断力比モデルとは全く異なる結果を与える。

このことは、瞬時離脱を仮定しているせん断力比モデルを改良できる可能性を示唆している。もう一つの重要な点は、せん断応力にこれ以上では離脱し、これ以下では離脱しないというはつきりとしたカットオフが無いことである。その代わり、このモデルではより強く保持された粒子が徐々に除去され離脱率が小さくなっていくと予測することになる。

Wen と Kasper の方法を実炉条件における離脱モデルに適用するため、 $\beta$  の力の比への依存性を表している(3.6) 式を以下のように書き換える。

$$\beta = \beta_0 \exp(-F_A/F_0) \quad (3.8)$$

ここで、定数  $A$  を  $\beta_0$  と書き換え、粒子付着力  $F_A$  と離脱力  $F_0$  が等しいとすると、離脱定数  $\beta$  は一定値となる。従って、 $\beta_0$  をせん断力比が 1 の時の定常の離脱定数の値とする。単一表面領域からの離脱のマスバランスは以下のように書ける（離脱中の付着は無視する）。

$$\frac{dS}{dt} = -\beta(F) S(t) \quad (3.9)$$

ここで、 $S(t)$  は沈着の程度 ( $\text{kg}/\text{m}^2$ ) で、離脱定数は力の比  $F$  の関数である。離脱割合  $F_{Lo}(t)$  を書き換えると以下のようになる。

$$F_{Lo}(t) = 1 - S(t)/S(0)$$

$$F_{Lo}(t) = 1 - \exp \left[ \int_0^t \beta(F) dt \right] \quad (3.10)$$

したがって、離脱定数  $\beta$  の力の比  $F$  に対する形が既知でならば、(3.10)式の積分を行うことにより時間依存の離脱割合を求めることができる。式(3.10)は離脱定数  $\beta$  の流れに対する強い依存性を示唆しており、以下のような表式を仮定する<sup>(10)</sup>。

$$\beta = \beta_0 \exp(SR(t) - 1) \quad (3.11)$$

ここで、 $\beta_0$  はせん断力比が 1 の時の通常流れの離脱定数で、 $SR(t)$  はブローダウン中のせん断力比である。

## 4. 考 察

実験で得られた離脱割合のデータは、第2章に示したとおりである。これらのデータを最大流速、せん断力比、離脱パラメータで整理したものを、それぞれ Figs. 4.1, 4.2, 4.3 に示す。Figure 4.3 の横軸は、第3章で示した Turbulent Burst モデルのパラメータであり、以下の式を用いて実験条件から計算した。

$$x = \int_0^t \exp(SR(t)-1) dt \quad (4.1)$$

これにより、(3.10) 式に示した離脱割合は以下のように書ける。

$$F_{lo} = 1 - \exp(-\beta \cdot X) \quad (4.2)$$

### 4.1 ダスト

せん断力比モデルによる実験データの解釈については、既に実施しており以下の結論を得ている。

- ①ダストの離脱割合は、剪断力比の増加と共に増加する。
- ②剪断力比に対する実験データの相関係数は 0.68 である。
- ③せん断力比が 1 以下でも離脱が生じている。

この結果を受け、ダストの離脱挙動を、3 章で述べた Turbulent Burst モデルを用いて解釈する。

ここで、 $\beta_0$  はせん断力比が 1 の時の通常流れの離脱定数で、 $SR(t)$  はブローダウン中のせん断力比である。

## 4. 考 察

実験で得られた離脱割合のデータは、第 2 章に示したとおりである。これらのデータを最大流速、せん断力比、離脱パラメータで整理したものを、それぞれ Figs. 4.1, 4.2, 4.3 に示す。Figure 4.3 の横軸は、第 3 章で示した Turbulent Burst モデルのパラメータであり、以下の式を用いて実験条件から計算した。

$$x = \int_0^t \exp(SR(t)-1) dt \quad (4.1)$$

これにより、(3.10) 式に示した離脱割合は以下のように書ける。

$$F_{lo} = 1 - \exp(-\beta \cdot X) \quad (4.2)$$

### 4.1 ダスト

せん断力比モデルによる実験データの解釈については、既に実施しており以下の結論を得ている。

- ①ダストの離脱割合は、剪断力比の増加と共に増加する。
- ②剪断力比に対する実験データの相関係数は 0.68 である。
- ③せん断力比が 1 以下でも離脱が生じている。

この結果を受け、ダストの離脱挙動を、3 章で述べた Turbulent Burst モデルを用いて解釈する。

## (1) Turbulent Burst モデルの適用

ダストの離脱割合にTurbulent Burst モデルを単純に適用しても、実験結果を再現できない。すなわち、単一の離脱定数 $\beta$ では、実験事実を説明できない。そこで、付着粒子の離脱定数 $\beta$ （あるいは他のパラメータ）に分布があると仮定する。このことは、モデルとしては、ダストに対する $\beta$ の分布とその存在比を考慮することに対応する。

離散型モデルを仮定すると、離脱割合は以下のように書ける。

$$F_{\text{Lo}} = \sum a_i (1 - \exp(-\beta_i \cdot X)) \quad (4.3)$$

ここで、 $a_i$  は離脱定数が $\beta_i$  の粒子の存在比である。最も単純な場合として  $i = 2$  を仮定すると、以下の条件でモデルと実験データは良い一致を示す。結果を Figs. 4.4 及び 4.5 に示す。

i	1	2
$\beta$	$2 \times 10^{-3}$	$1 \times 10^{-14}$
a	0.2	0.8

連続型モデルを仮定すると、離脱割合は以下のように書ける。

$$F_{\text{Lo}} = \int_0^{\infty} f(\beta) \cdot (1 - \exp(-\beta \cdot X)) d\beta \quad (4.4)$$

ここで、 $f(\beta)$  はダスト粒子の離脱定数の分布、換言すると付着力の分布である。ここで、離脱パラメータとして正規分布を仮定すると、離脱定数の分布は以下のようになる。（実際は対数正規分布を仮定した。）

$$f(\beta) = \int_{-\infty}^{\beta} \exp(-((X-\beta)^2 / 2\sigma^2)) dX \quad (4.5)$$

離脱定数分布の平均値 ( $\mu$ ) と標準偏差 ( $\sigma$ ) をパラメータとした場合の離脱割合の計算値を実験データと共にFig. 4.6に示す。標準偏差が大きい（すなわち離脱パラメータの分布が広い）場合のみ、計算値は実験結果を再現できる。最も良く実験結果を再現するケースは、離脱定数の中心値が  $1 \times 10^{-2.0} (\text{s}^{-1})$ 、標準偏差が  $1 \times 10^{-1.4}$  の場合である。このときの離脱定数の分布をFig. 4.7に示す。離脱定数の分布はブロードである。この中心値と標準偏差を用い、(4.4) 式で計算した離脱割合をFig. 4.8に示す。

以上の検討から、離散型、連続型モデルのどちらを仮定しても、Turbulent Burst モデルを適用した場合、実験で得られたダスト粒子の離脱割合は、ブロードな離脱定数の分布を仮定しなくては解釈できないことを示している。このことは、物理的には、ダスト粒子の離脱は、剥がれやすい（付着力の小さい）粒子から選択的に生じていることを示している。換言すると、離脱定数分布のテイルに相当する付着力の小さい粒子が、減圧条件下で離脱したと考えられる。

## (2) 異脱定数分布

Turbulent Burst モデルの適用性を検討するために、実験データを再現するような離脱定数の分布をダストの粒径分布に基づき計算する。Turbulent Burst モデルでは、離脱パラメータは、以下のように定義される。

$$\beta = \text{定数} \times \exp(-(\text{付着力}) / (\text{離脱力})) \quad (4.6)$$

一般に、ダストの付着力としては、Van der Waals 力と静電力が考えられる<sup>(10)</sup>。

Van der Waals 力は粒子径に比例する。静電力は粒子径の自乗に比例する。したがって、粒径 ( $d_p$ ) 分布を中心値  $\mu$ 、標準偏差  $\sigma$  の正規分布  $f_{d_p}(\mu, \sigma)$  と仮定すると、離脱定数の相対分布  $f(\beta)$  は、横軸をそれぞれ  $d_p$  (Van der Waals 力)、 $d_p^2$  (静電力) に比例した形の分布となる。現状では、(4.6) 式における定数及び離脱力の絶対値が未知なので、式を以下のように書き換え、定数  $C$  をパラメータとして離脱定数の絶対値を決定する。

$$\beta = C \times \exp(-(\text{付着力})) \quad (4.7)$$

検討を行ったパラメータを以下に示す。

①ダストの付着力 (Van der Waals力又は静電力)

②粒径分布の標準偏差 ( $\sigma = 1, 5, 10 \mu\text{m}$ )、中心値が $10 \mu\text{m}$ の正規分布を仮定した。

③ $\beta$ の絶対値を定める係数 (C)

実験データとの比較及びその時の離脱定数分布を以下の図に示す。

Fig. 4.9及び4.10 : Van der Waals力、粒径分布の標準偏差 $1 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^{-8}$

Fig. 4.11及び4.12 : Van der Waals力、粒径分布の標準偏差 $5 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^{-9}$

Fig. 4.13及び4.14 : Van der Waals力、粒径分布の標準偏差 $10 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^{-10}$

立上がりが急で離脱定数が小さい領域で実験データを再現できない。離脱定数の最確値は $10^{-13} \sim 10^{-15} \text{s}^{-1}$ 程度となった。

Fig. 4.15及び4.16 : 静電力、粒径分布の標準偏差 $1 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^{27}$

Fig. 4.17及び4.18 : 静電力、粒径分布の標準偏差 $5 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^7$

Fig. 4.19及び4.20 : 静電力、粒径分布の標準偏差 $10 \mu\text{m}$ 、 $C = 10^3$

実験データを良く再現している。 $\beta$ の最確値は、標準偏差が $1 \mu\text{m}$ の場合が約 $10^{-17} \text{s}^{-1}$ で、 $5$ 及び $10 \mu\text{m}$ についてはそれぞれ約 $10^{-37}, 10^{-41}$ となった。離脱定数分布の図から分かるように、これらのモデルでは離脱定数が小さい（すなわち付着力が弱い）領域に頻度分布が尾を引いており、弱く付着した粒子から少しづつ離脱していくことを示している。実験データとこのケースが比較的良い一致を示したことは、ダストの離脱は、付着力が何であれ、離脱定数（付着力）の分布のテイルの離脱により生じていると考えられる。すなわち、Turbulent Burst モデルを適用すると、ダストの離脱割合は、離脱定数分布においてテイル粒子をどう表現するかの問題に帰着することになる。仮に粒径分布を正規分布と仮定すると、実験データは付着力としてテイルの出やすい静電力を示唆している。

## 4.2 ヨウ素

ヨウ素の沈着は、表面吸着が主であるため、その離脱は脱着と酸化皮膜（表面）の剥離によって生じると考えられる。米国のモジュラー型高温ガス炉（MHTGR）の減圧事故条件下における離脱割合の検討結果によると、脱着割合（化学的離脱）は概ね $0.05 \sim 0.1\%$ であると予想されている<sup>(10)</sup>。一方、本実験で得られたヨウ素の離脱割合は、Table 2.2 及びFig. 2.3から分かるように $10\%$ 以上の値を示しており、脱着（化学的離脱）によってのみ生じているとは考えられない。

ダストの離脱割合の検討に用いたTurbulent Burst モデルは、減圧事故条件下で生じる乱流渦が層流低層を透過して配管表面に力を加えるというモデルであり、ヨウ素が吸着している表面の微細構造の剥離についても適用できる可能性がある。この場合、具体的には、酸化皮膜表面の微細構造の減圧事故条件下における剥離の度合いを離脱定数で記述することになる。すなわち、離脱定数には、酸化皮膜と母材の結合の強さの情報が含まれることになる。

ダストの場合と同様に、離散型、連続型モデルを仮定し、フィッティングを試みると、 $i = 2$  の時離散型モデルでは以下の条件でモデルと実験データは良い一致を示す。結果をFig. 4.21 に示す。

$i$	1	2
$\beta$	$1 \times 10^{-10}$	$1 \times 10^{-60}$
a	0.15	0.85

この結果をダストについて行った結果と比較すると、ヨウ素の離脱（＝酸化皮膜表面の離脱）は、ダストの離脱に比べて非常に起こりにくいことを示している。剥がれやすいものでも離脱パラメータが7桁、剥がれにくいものは46桁も小さい。言い換えると、酸化皮膜はダストと比較すると母材と強く結合していることを示している。

連続型モデルを仮定すると、最も実験結果を再現するとみられるケースは離脱定数の中心値が  $1 \times 10^{-60} (\text{s}^{-1})$ 、標準偏差が  $1 \times 10^{-60}$  の時である。離脱率の計算値と実験値の比較をFig. 4.22に示す。離脱定数分布の標準偏差が非常に大きい場合のみ実験結果を再現できる。すなわち、ヨウ素の離脱言い換えれば酸化皮膜の離脱をTurbulent Burst モデルで記述すると、酸化皮膜表面の剥離が生じるか否かは離脱定数に関してほとんどランダムに生じている。

しかしながら、次節に示すように、本モデルを用いるとヨウ素とセシウムの離脱割合の違いは酸化皮膜内と表面の吸着量の違いによって説明できることが分かる。

#### 4.3 セシウム

沈着セシウムの離脱についても、その原因は酸化皮膜（表面）の剥離によって生じると考えられる。しかしながら半減期の長いセシウムは、ヨウ素に比べて母材（酸化皮膜）内への拡散侵入量が大きいので、離脱に寄与する量そのものが小さいと考えられる。

表面吸着量を算出するために、Table 2.4 に示した温水洗浄及び化学リーチングによる除去量を用いた。Fig. 4.23 に、各試料毎の表面吸着セシウム割合を示す。ここで、表面吸着割合は、下式で求めた。

$$\begin{aligned} \text{表面吸着割合} &= 1 - \text{母材内拡散割合} \\ &= 1 - \text{化学リーチングによる除去割合} \end{aligned} \quad (4.8)$$

表面に存在するセシウムに対して、ヨウ素の場合と同様にTurbulent Burst モデルによる酸化皮膜表面の剥離を仮定した。規格化処理済の離脱割合をFig. 4.24 に示す。離散型モデルを仮定し、フィッティングを試みると、 $i = 2$  の時ヨウ素の場合と全く同じパラメータでモデルと実験データは良い一致を示す。結果をFig. 4.24 に示す。このことは、酸化皮膜表面の離脱挙動の記述にTurbulent Burst モデルを仮定すると、セシウムとヨウ素の離脱挙動は同じパラメータで表されること、すなわち、沈着しているセシウム及びヨウ素の離脱は、酸化皮膜表面の剥離によって生じていることを示唆している。

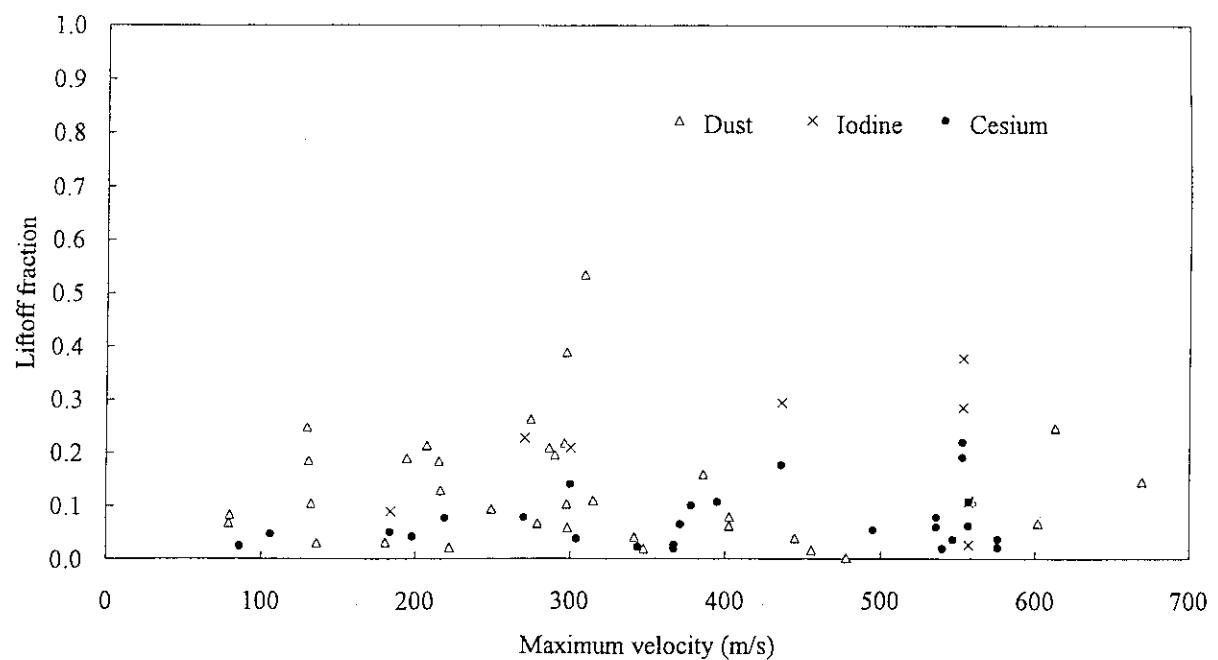


Fig.4.1 Summary of liftoff fraction as a function of maximum gas velocity.

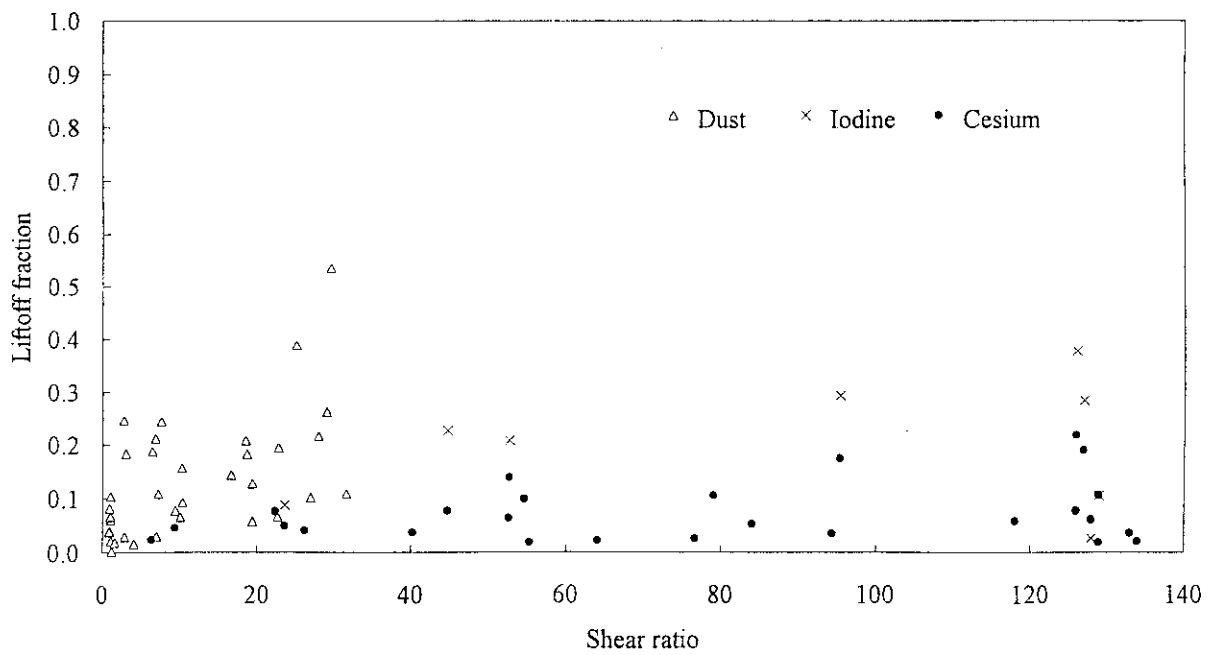


Fig.4.2 Summary of liftoff fraction as a function of maximum shear ratio.

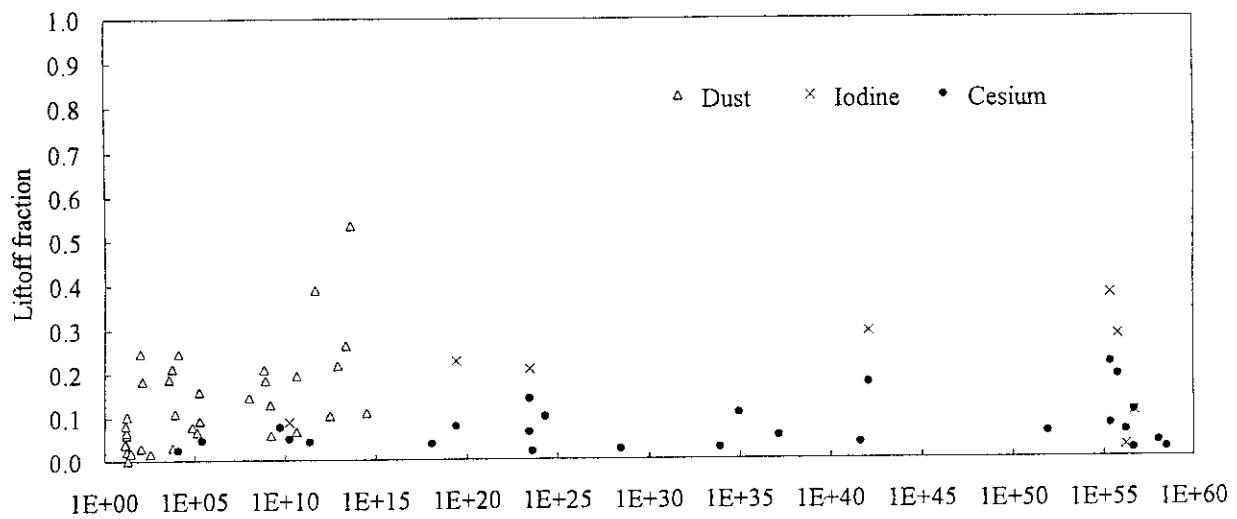


Fig.4.3 Summary of liftoff fraction as a function of parameter X.

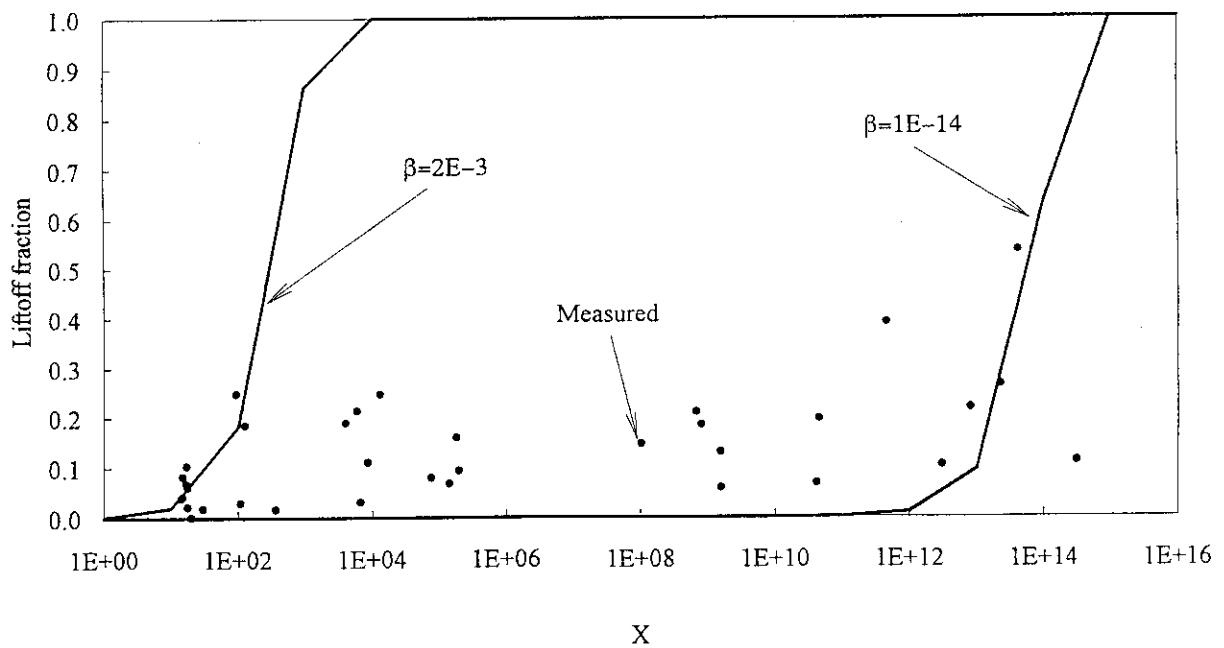


Fig.4.4 Measured and calculated dust liftoff fraction.

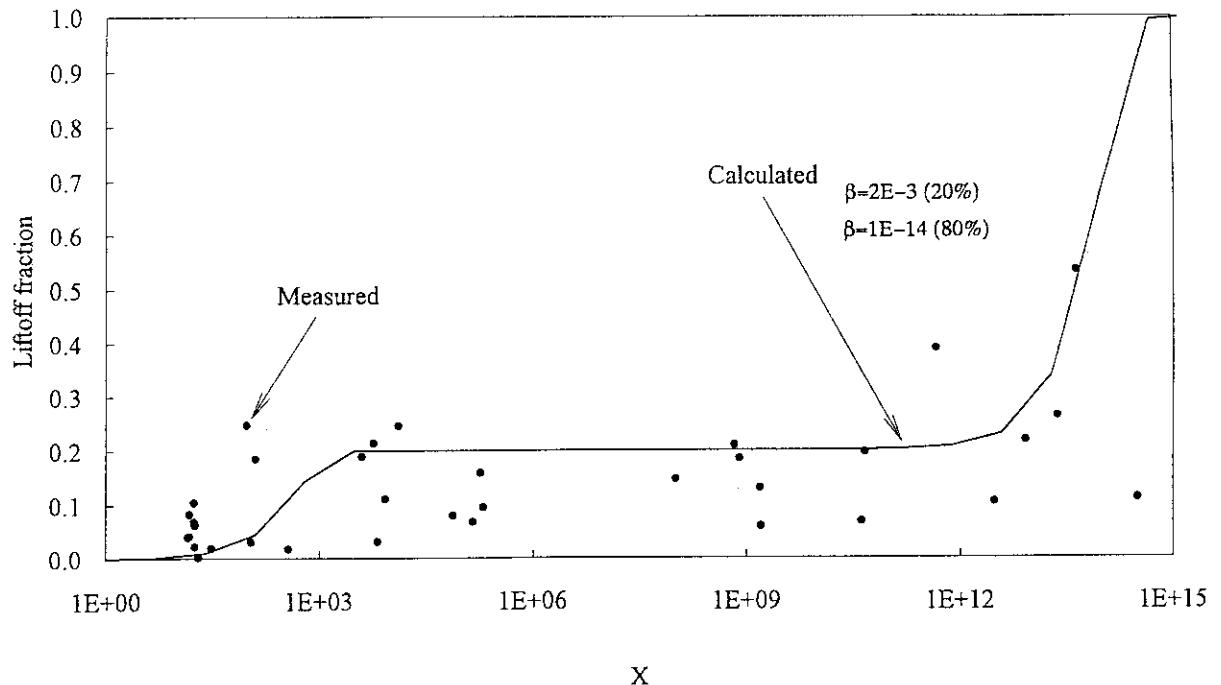


Fig. 4.5 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.

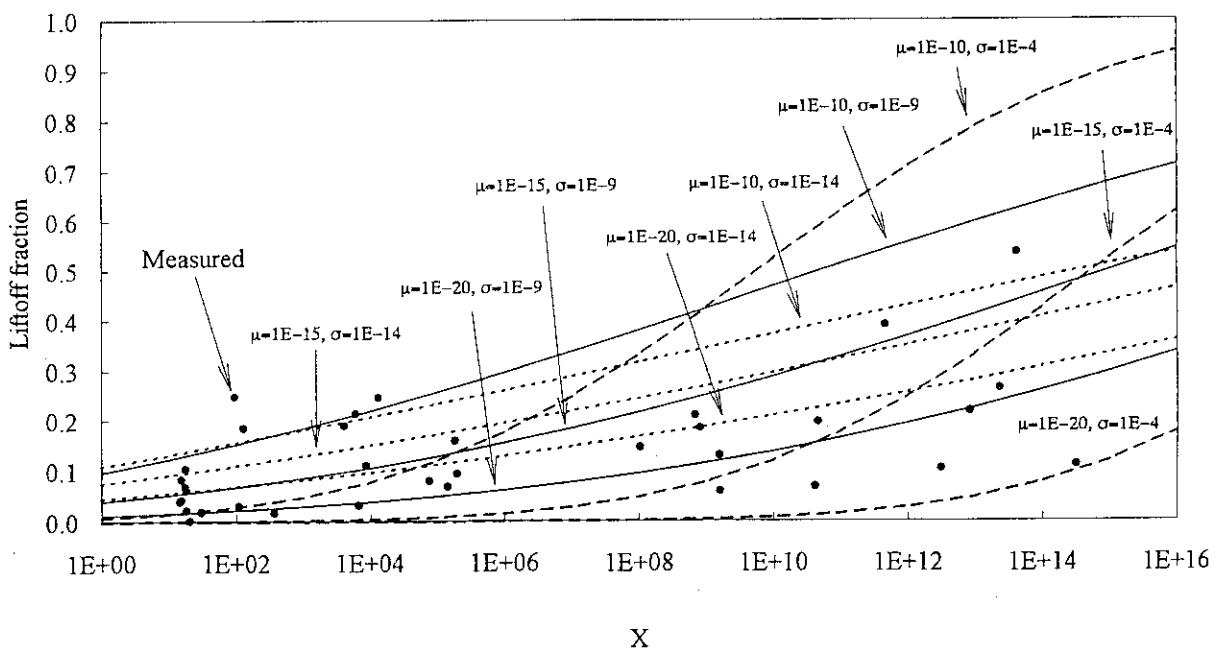


Fig. 4.6 Parameter calculation results of dust liftoff fraction.

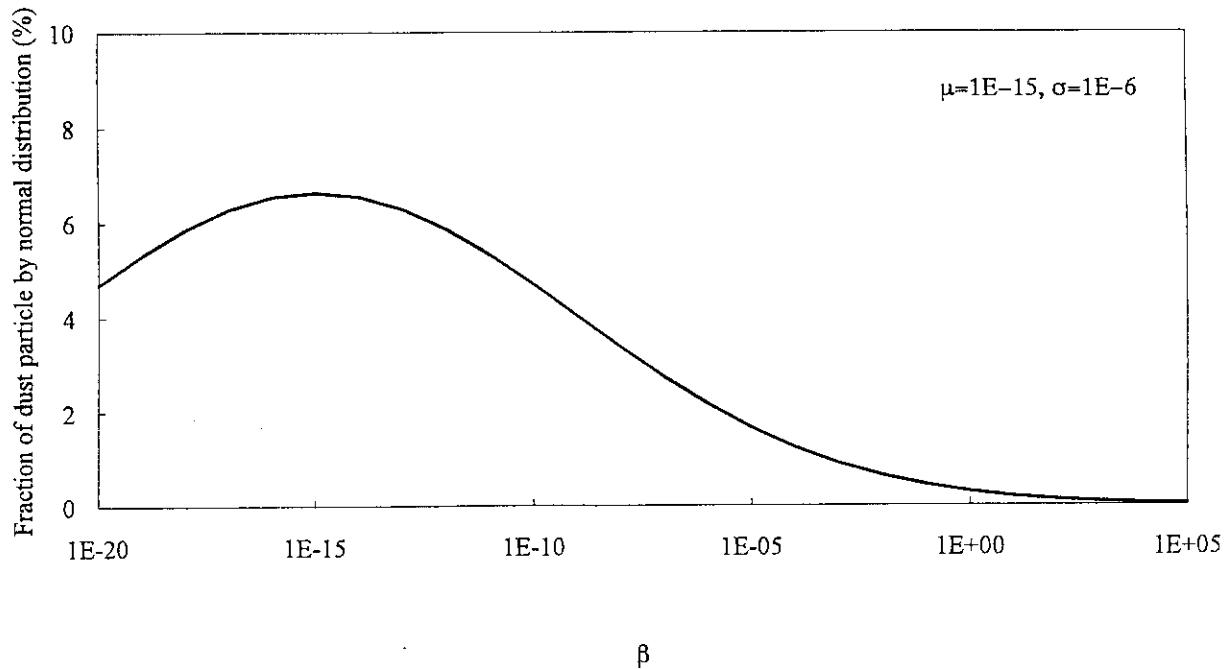


Fig.4.7 An example of liftoff parameter distribution.

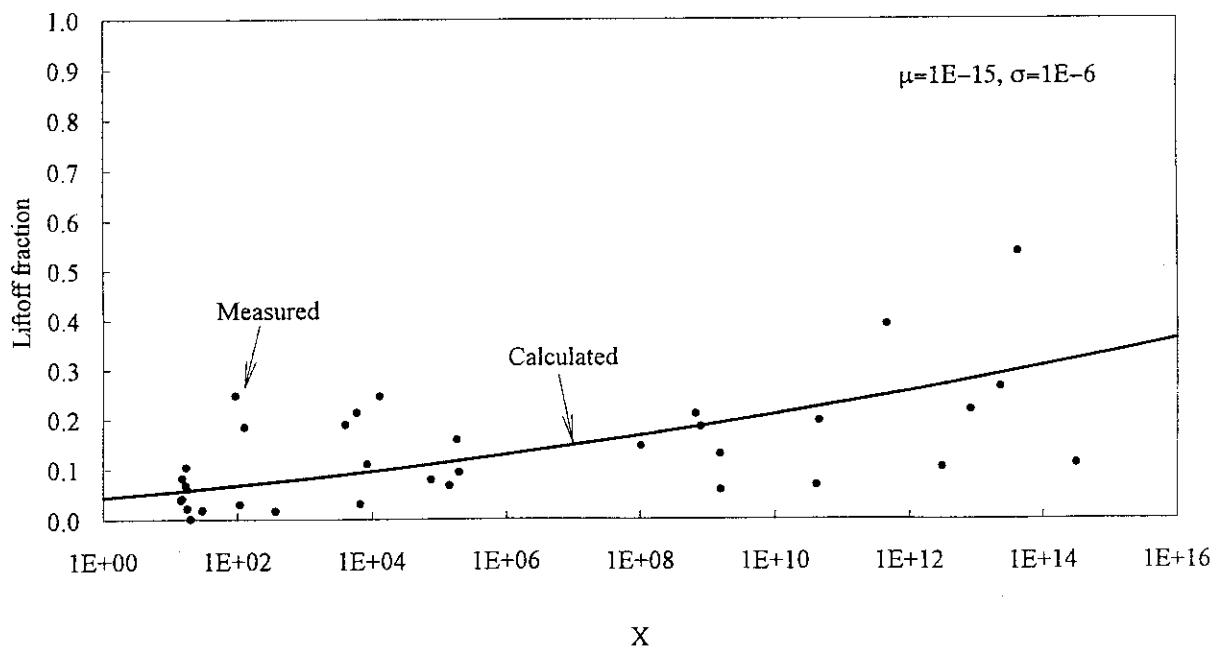


Fig.4.8 Calculation result of dust liftoff fraction.

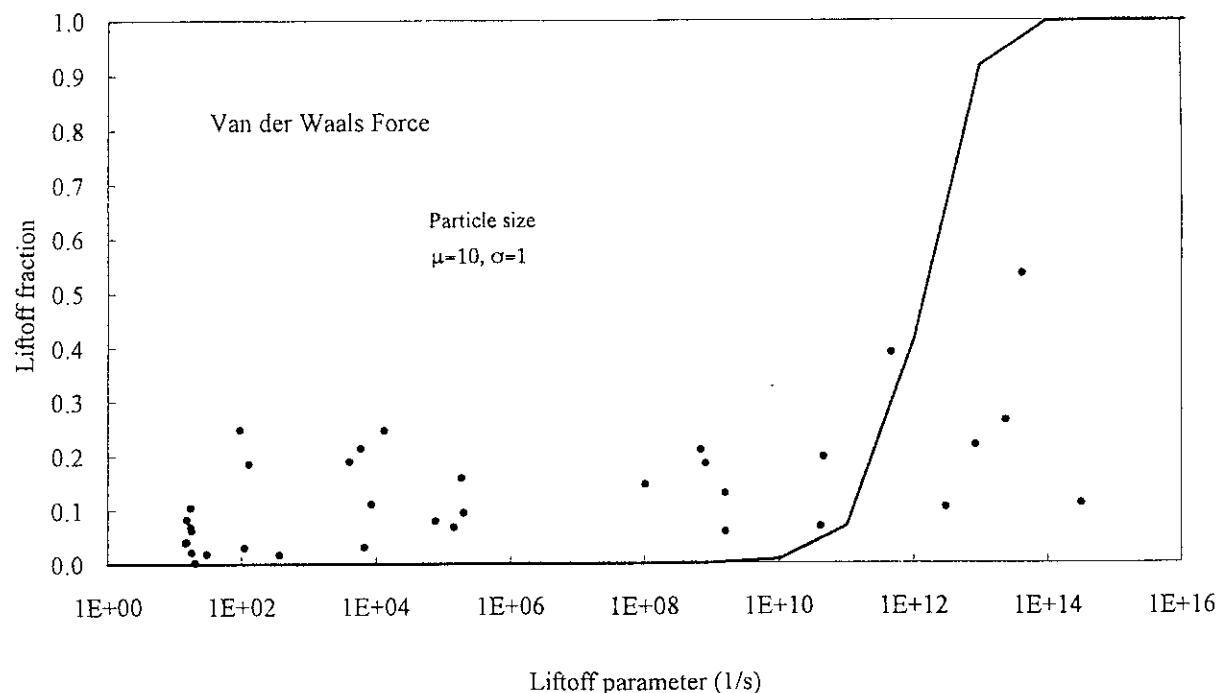


Fig.4.9 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.  
(Van der Waals force ; ( $\mu=10$ ,  $\sigma=1 \mu\text{m}$ )

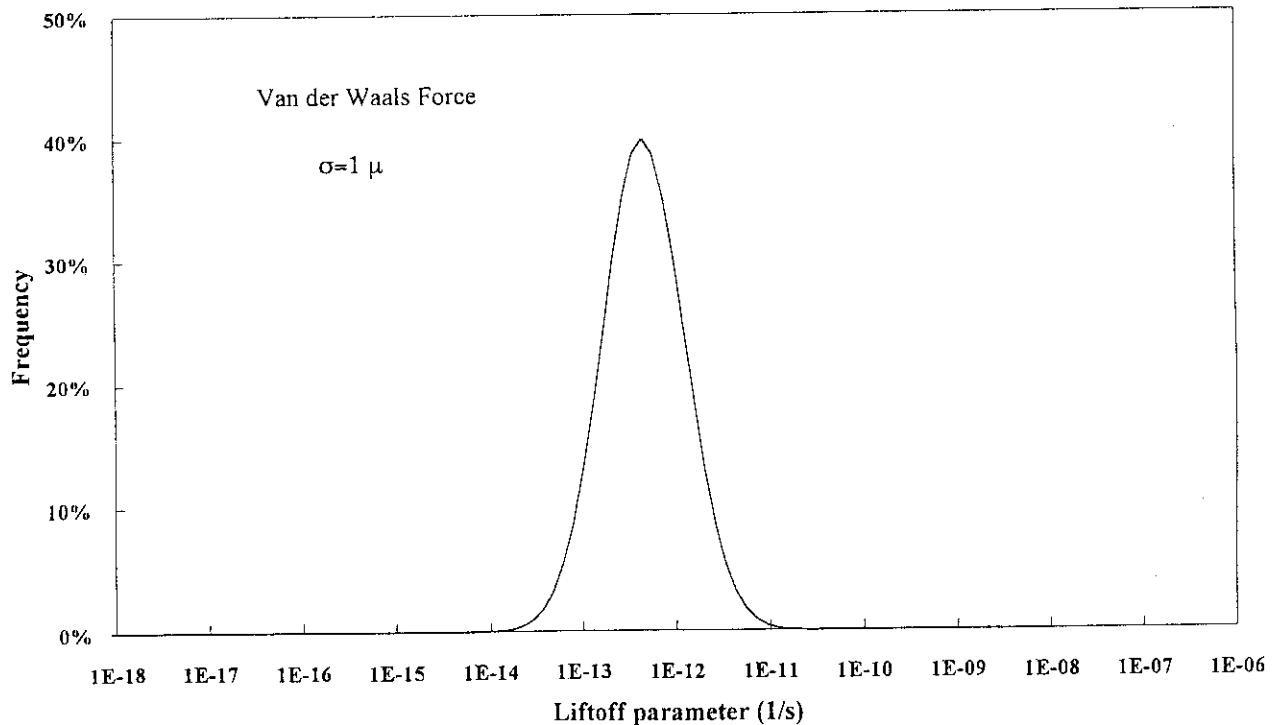


Fig.4.10 Liftoff parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10$ ,  $\sigma=1 \mu\text{m}$ )

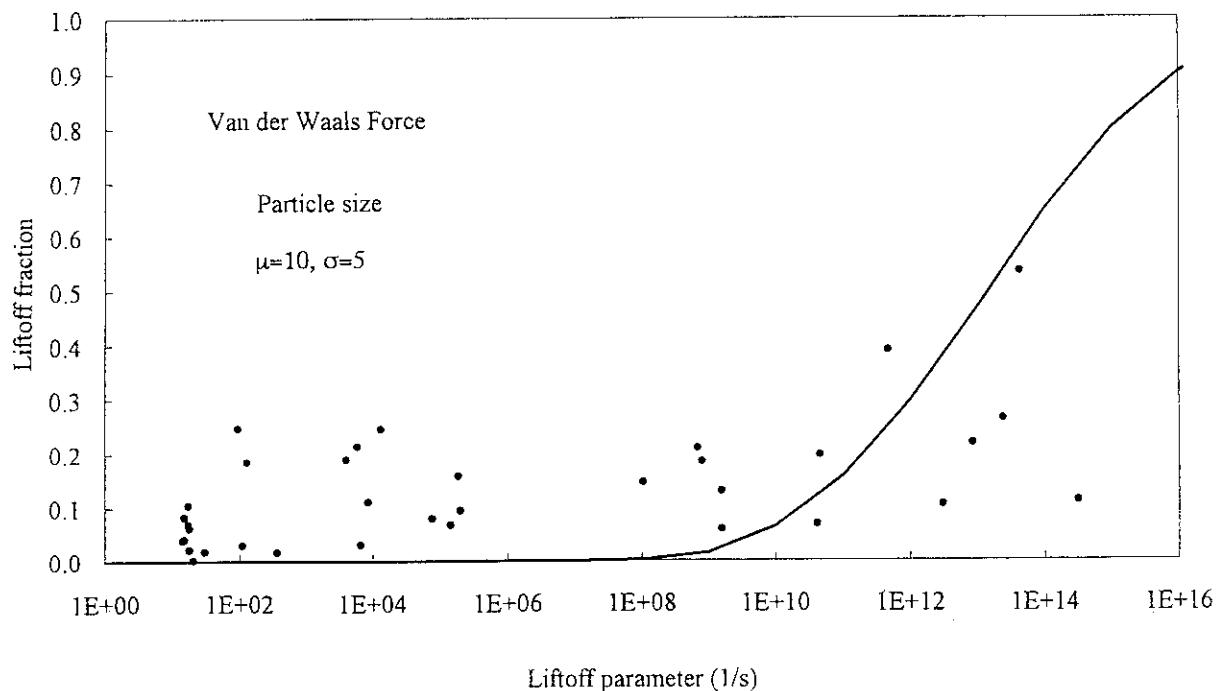


Fig. 4.11 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=5 \mu\text{m}$ )

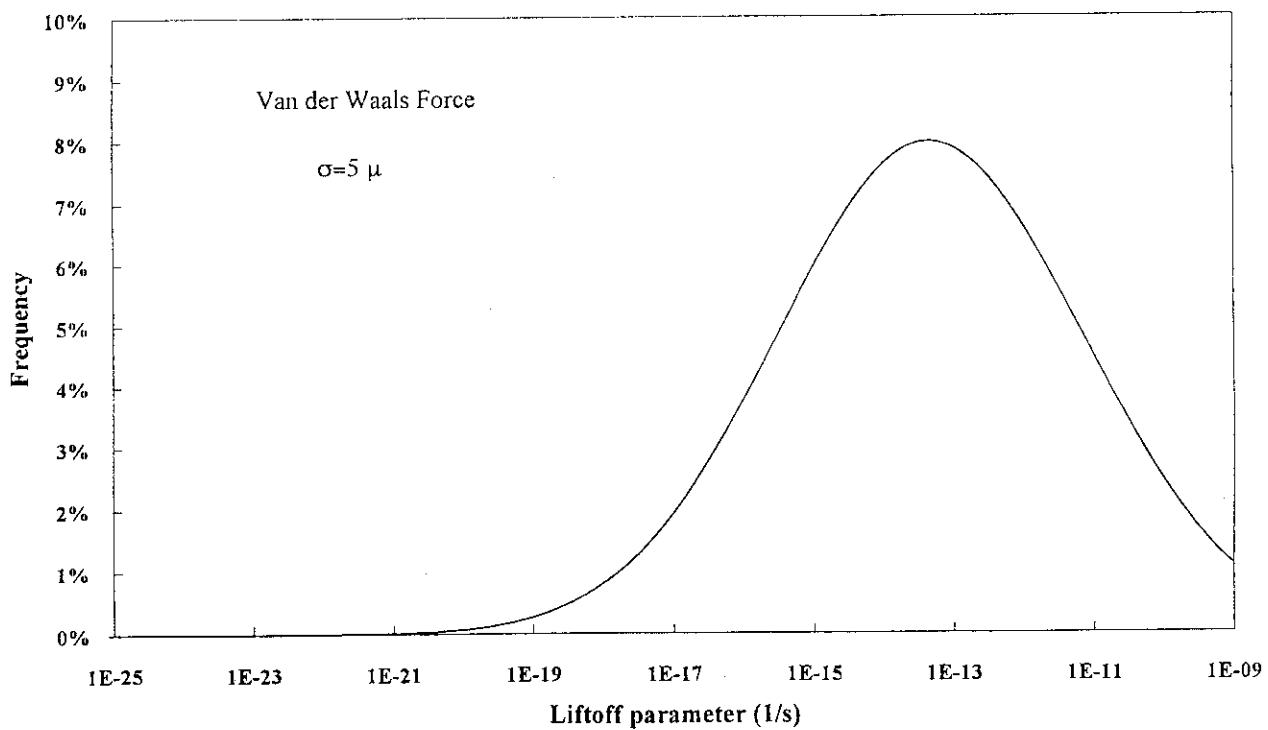


Fig. 4.12 Liftoff parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=5 \mu\text{m}$ )

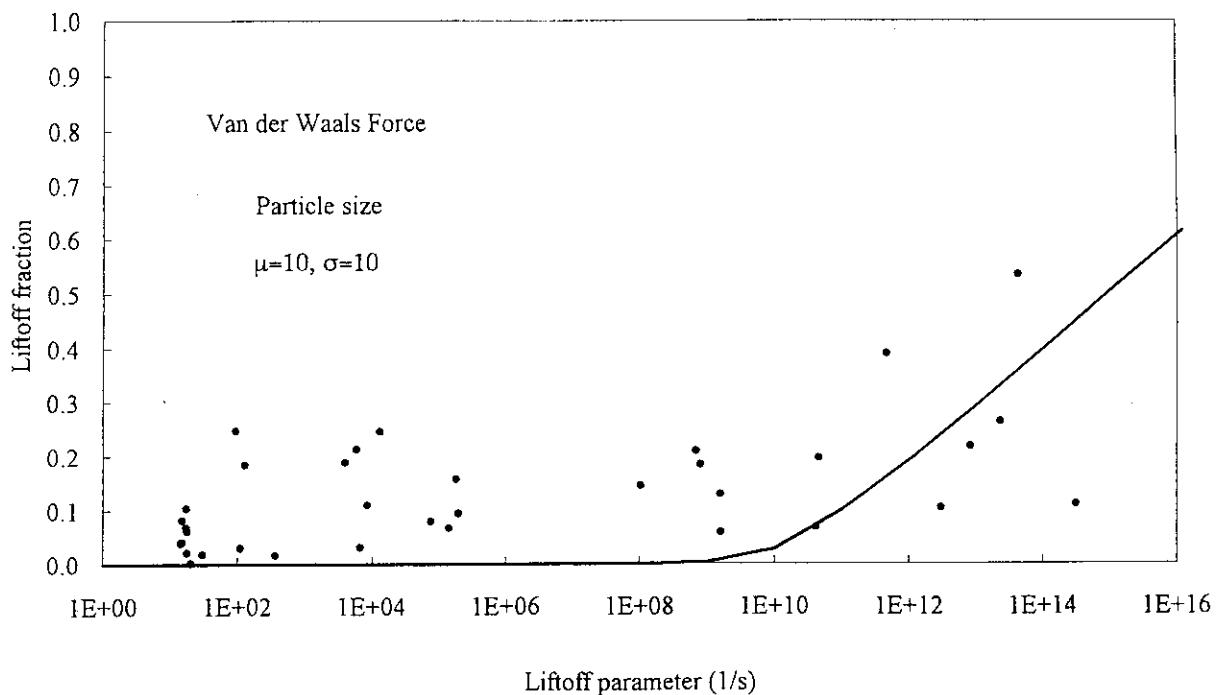


Fig.4.13 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=10 \mu\text{m}$ )

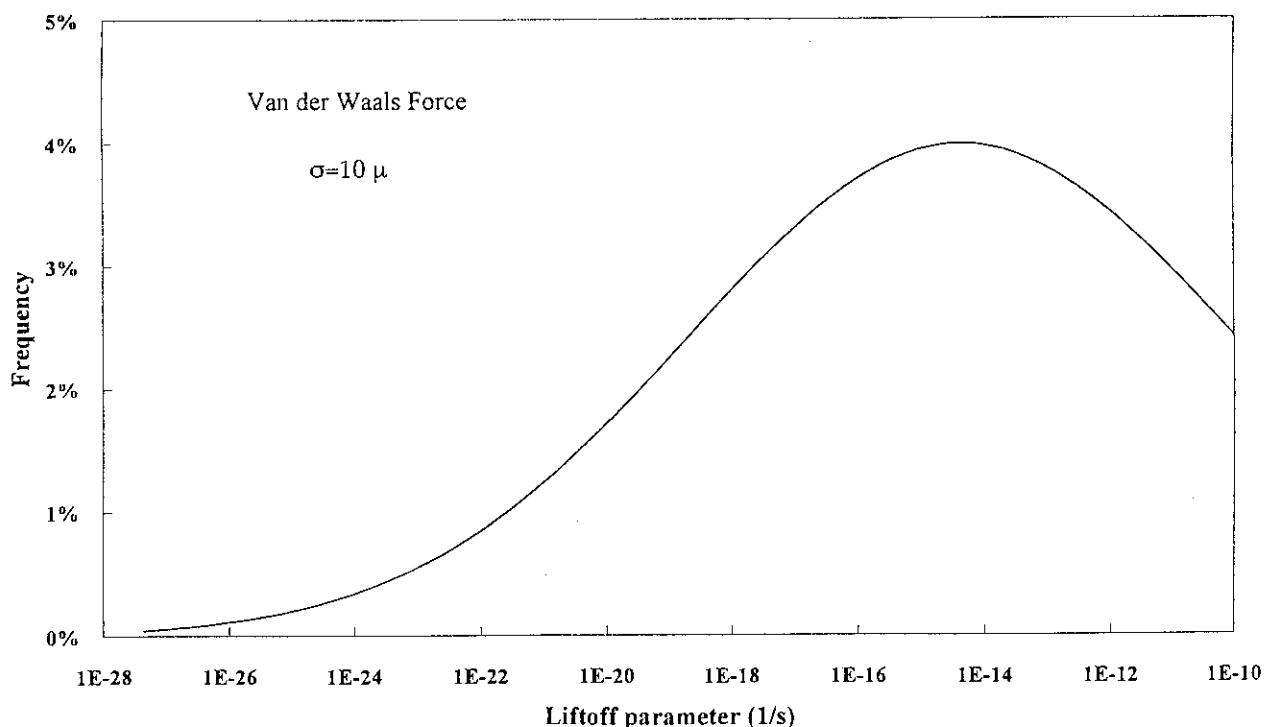


Fig.4.14 Liftoff parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=10 \mu\text{m}$ )

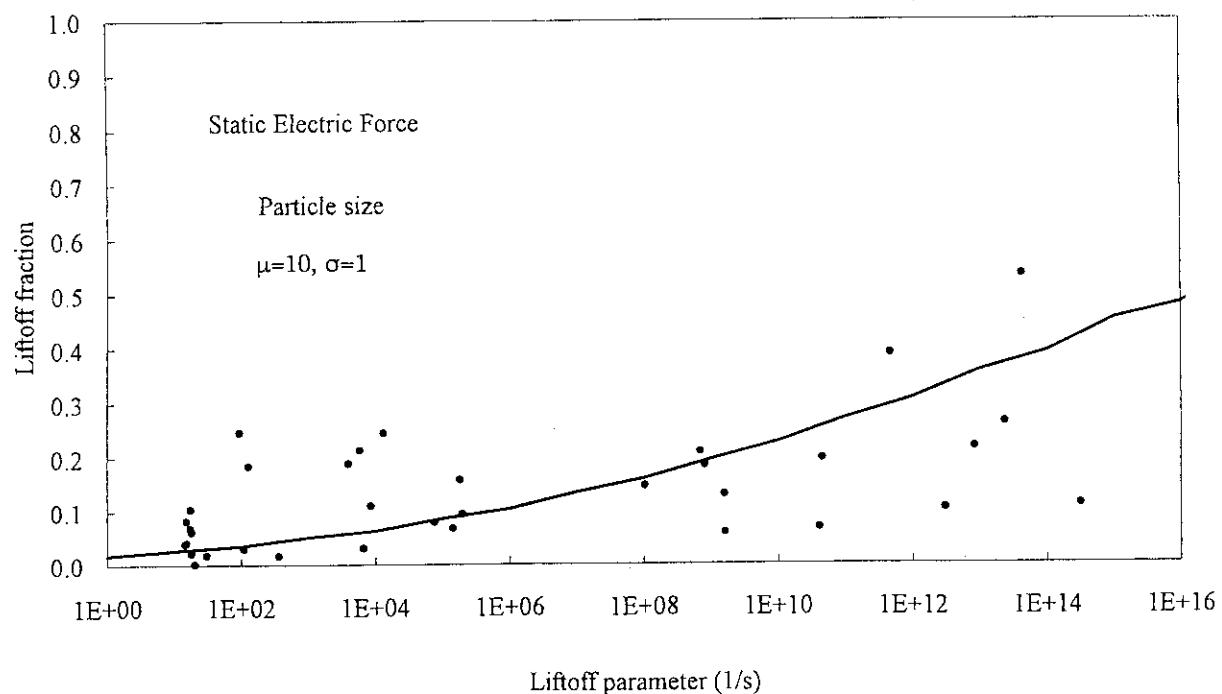


Fig.4.15 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.  
(Static electric force ; ( $\mu=10, \sigma=1 \mu\text{m}$ )

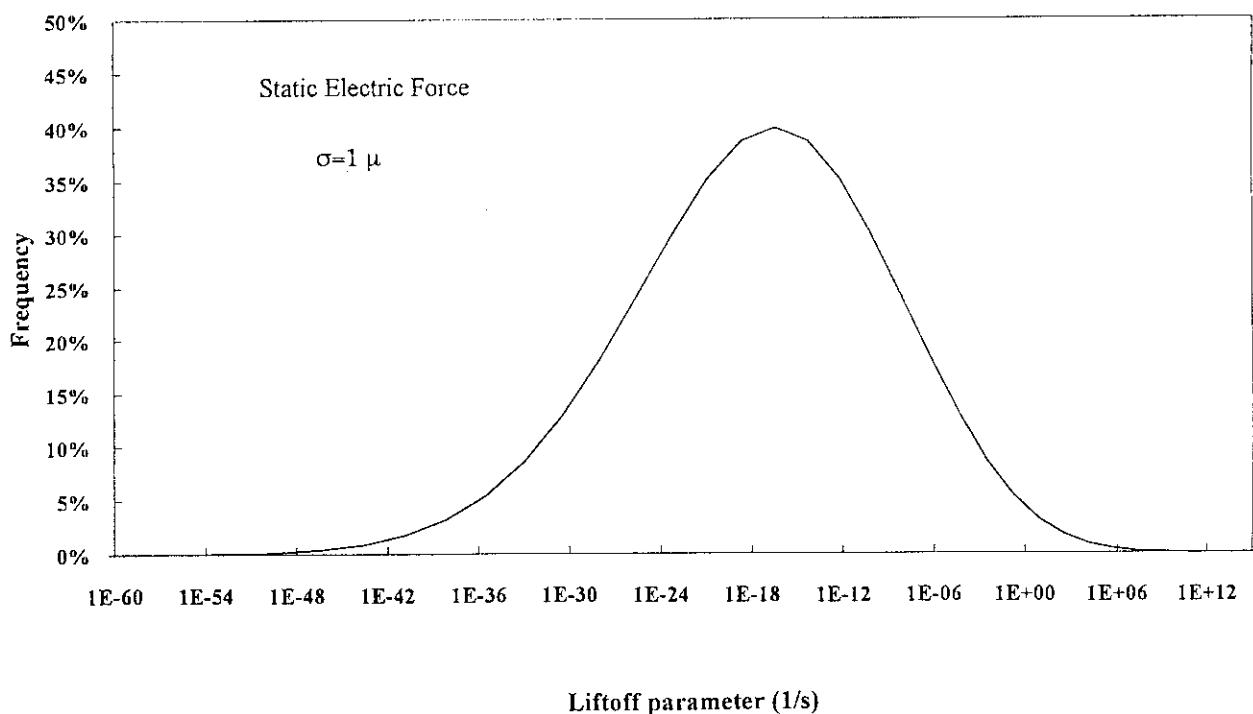


Fig.4.16 Liftoff parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=1 \mu\text{m}$ )

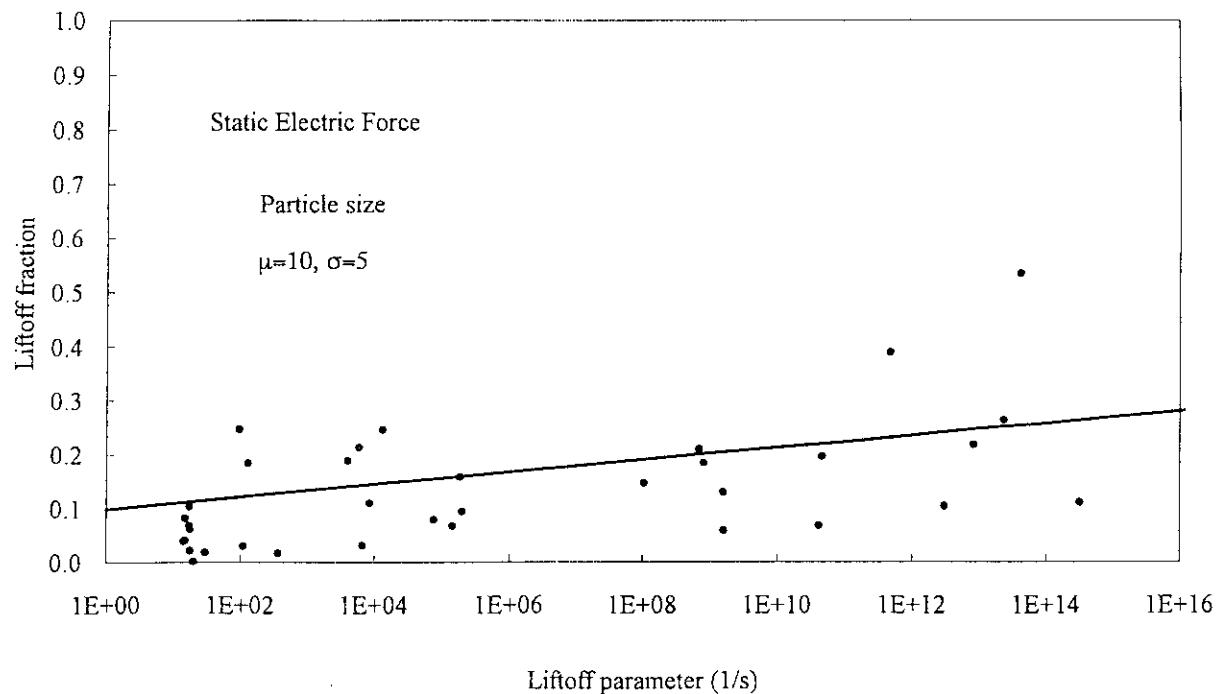


Fig.4.17 Comparison of measured and calculated dust lift-off fractions.  
(Static electric force; ( $\mu=10$ ,  $\sigma=5 \mu\text{m}$ )

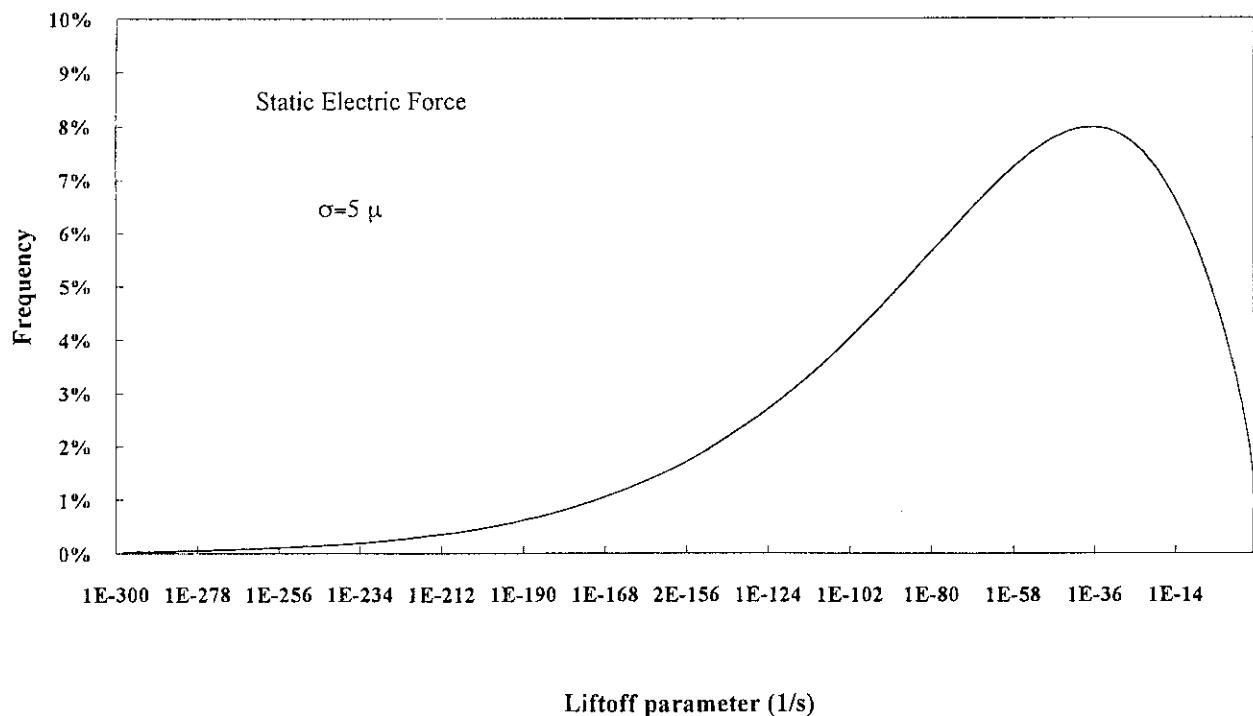


Fig.4.18 Lift-off parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10$ ,  $\sigma=5 \mu\text{m}$ )

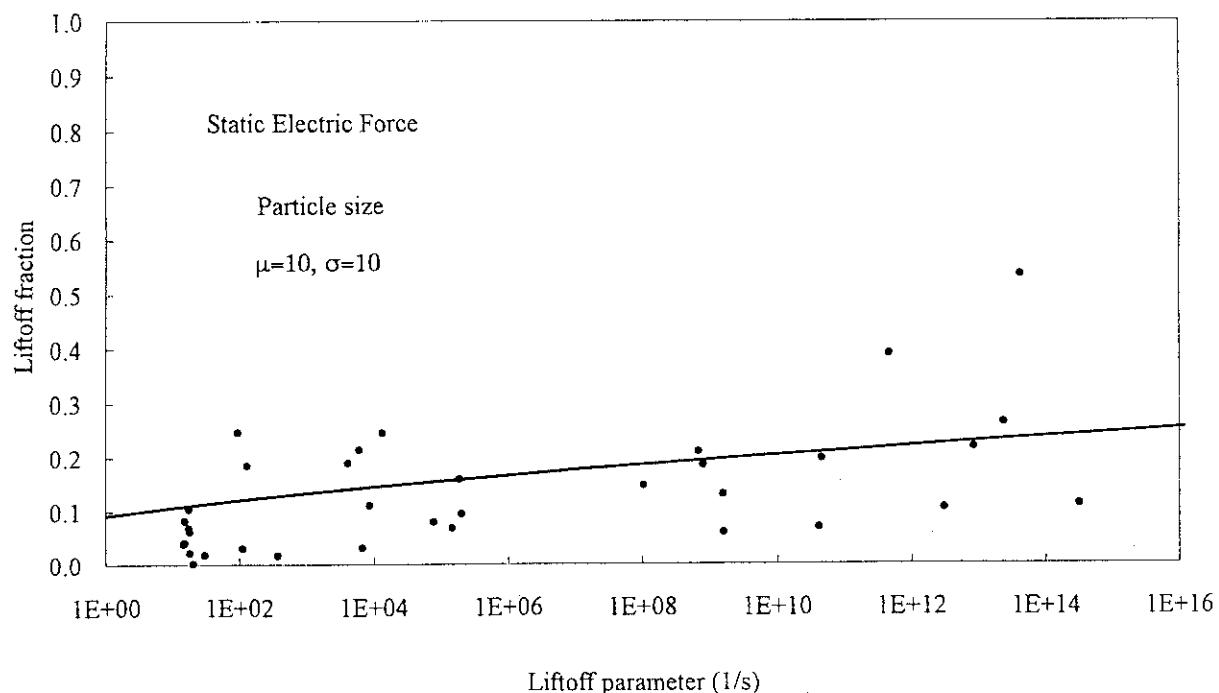


Fig.4.19 Comparison of measured and calculated dust liftoff fractions.  
(Static electric force; ( $\mu=10, \sigma=10\text{ }\mu\text{m}$ )

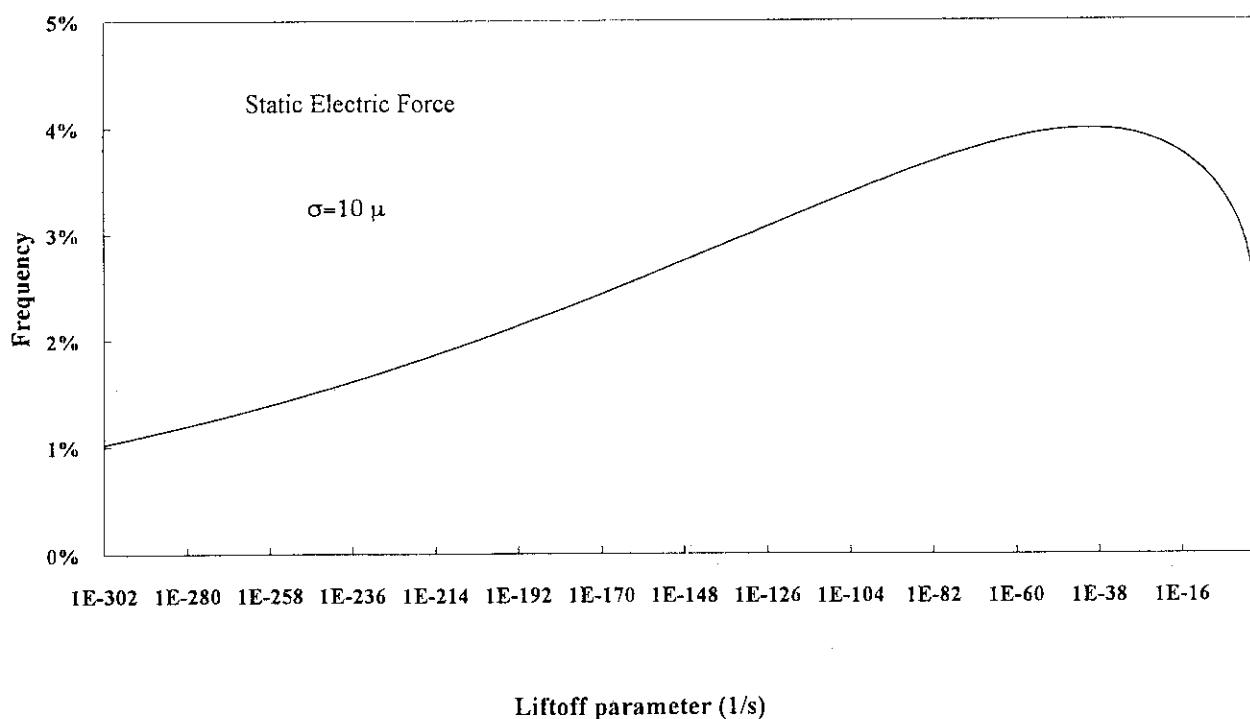


Fig.4.20 Liftoff parameter distribution.  
(Van der Waals force; ( $\mu=10, \sigma=10\text{ }\mu\text{m}$ )

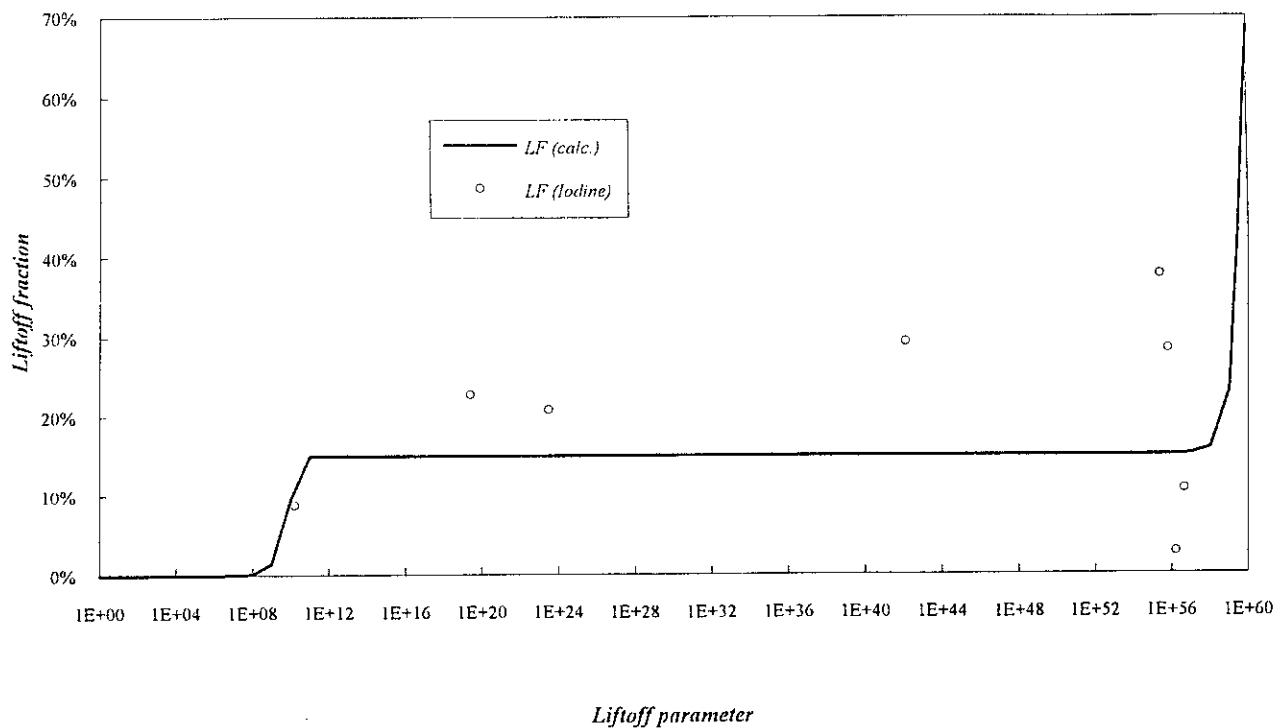


Fig.4.21 Comparison of measured and calculated iodine liftoff fractions.

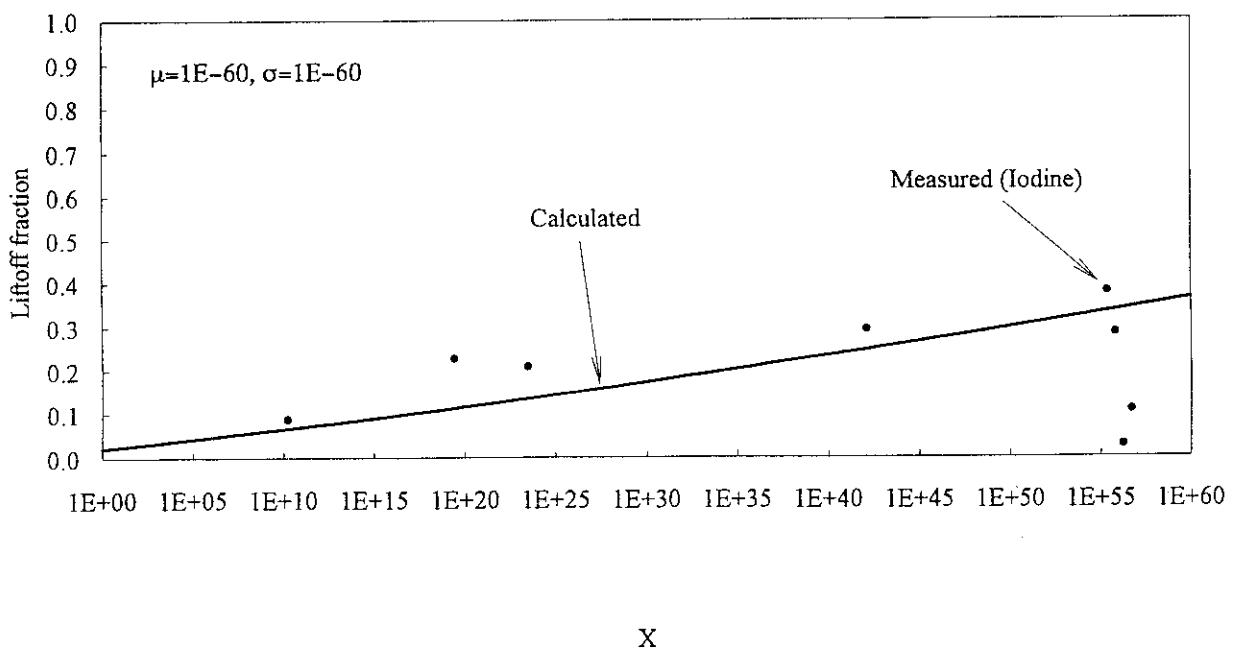


Fig.4.22 Result of calculated iodine liftoff fraction.

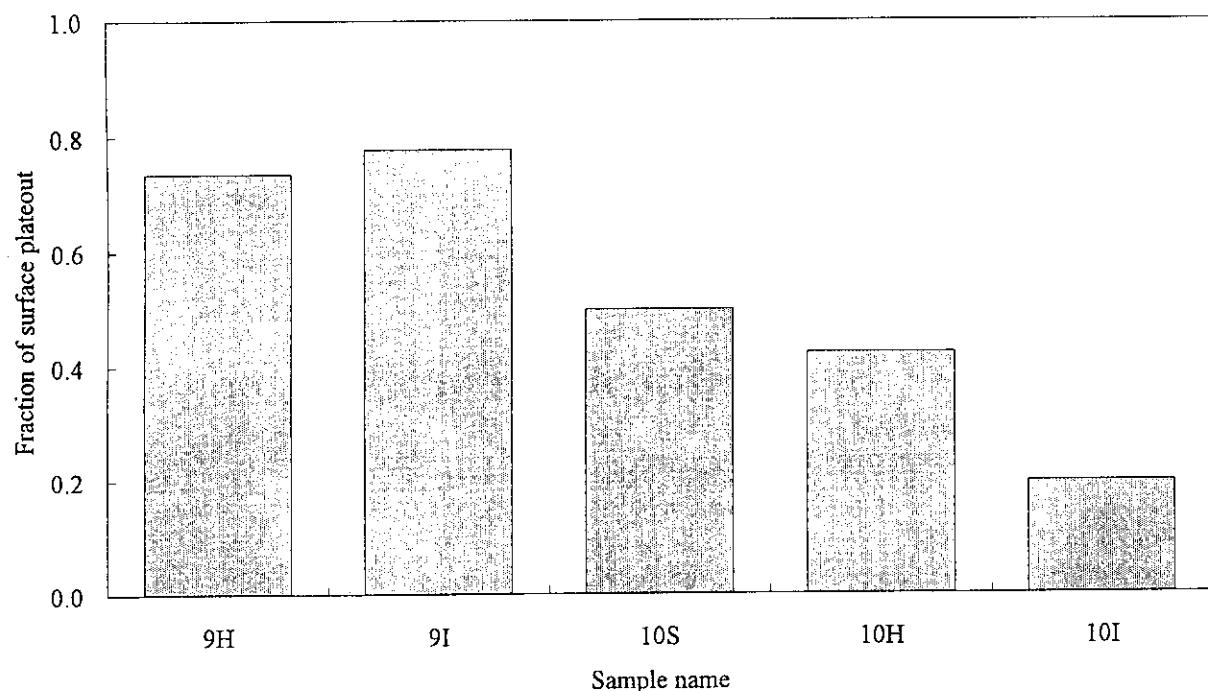


Fig.4.23 Cesium surface plateout fractions.

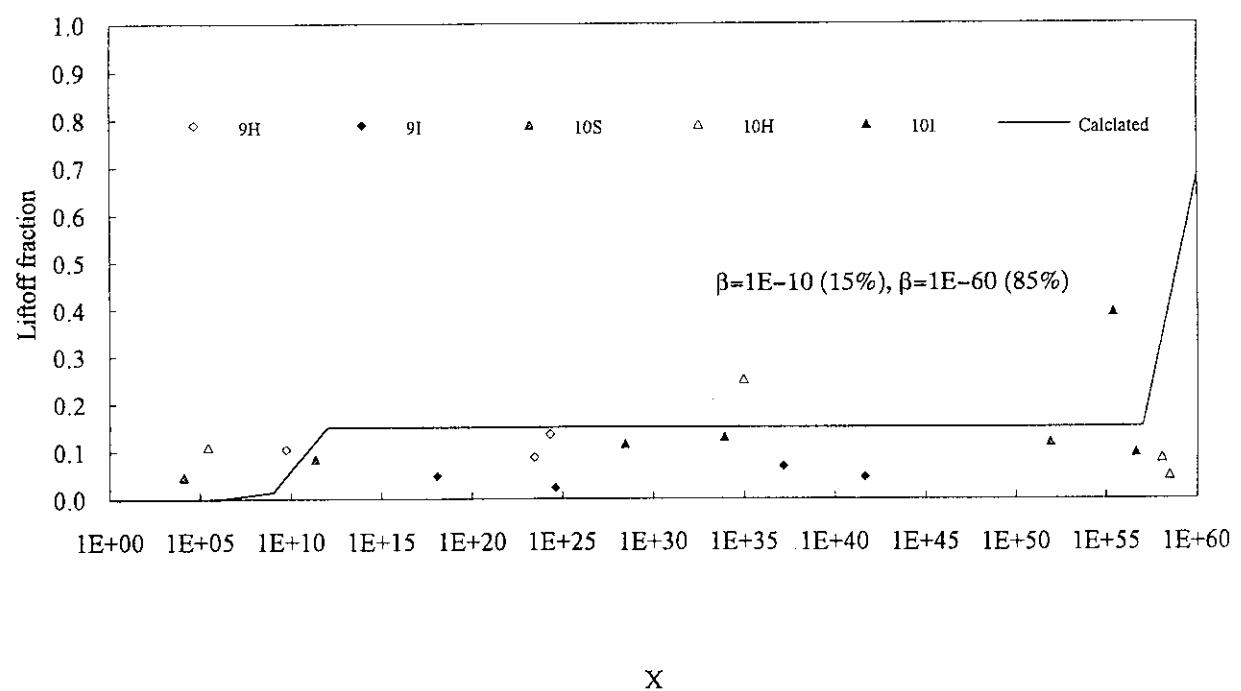


Fig.4.24 Normalized cesium liftoff fraction.

## 5. 結論

高温ガス炉の大口径破断事故条件下におけるダスト及び核分裂生成物の離脱実験データに基づき、モデルを適用してその妥当性を定量的に検討した。

ダストについては、Turbulent Burst モデルの適用を検討した。その結果、以下のことが分かった。

- ①ダストの離脱は、単一の離脱パラメータでは表現できない。
- ②ダストの離脱割合の実験値は、付着粒子の離脱パラメータ分布を考慮することにより再現できる。
- ③広い離脱パラメータの分布を仮定すると、実験結果を再現できる。すなわち、ダストは付着力の弱い（より剥がれやすい）粒子が選択的に離脱される。
- ④粒径分布として正規分布を仮定すると、付着力の弱い粒子の分布としてテイルの出やすい静電力を示唆する。

核分裂生成物の離脱についてもTurbulent Burst モデルの適用を検討し、以下のことが分かった。

- ①ヨウ素及びセシウムの離脱割合の実験値を再現するためには、ダストに比べて数十桁小さい離脱定数を用いる必要があり、その離脱は非常に起こりにくい。
- ②実験結果を記述するためには、離脱パラメータ分布の標準偏差が非常に大きくてはならない。
- ③表面に存在するセシウムに対して、Turbulent Burst モデルによる酸化皮膜表面の剥離を仮定すると、ヨウ素の場合と全く同じパラメータでモデルと実験データは良い一致を示す。このことは、沈着しているセシウム及びヨウ素の離脱は、酸化皮膜表面の剥離によって生じていることを示唆している。

## 謝　　辞

本検討は、高温工学試験研究炉の安全評価のために実施した試験結果に基づくものであり、核分裂生成物離脱実験については現企画室の伊藤治彦氏、現NSRR管理室の松本実喜夫氏の協力を得た。ダスト離脱実験については、現高温工学部長の宮本喜晟氏、現川崎重工西本武士氏の協力を得た。また、米国General Atomic社のDr. D. L. Hanson 氏には、IAEAのCRP2において貴重な助言を頂いた。さらに、本報告書の作成に当たっては、田中利幸HTTR開発部長、塩沢周策HTTR原子炉開発室長、新藤隆一同室長代理及び国富一彦氏に有益なコメントを頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

## 参考文献

- (1) K. Sawa, I. Murata, A. Saikusa, R. Shindo, et al.: "Prediction of Nongaseous Fission Products Behavior in the Primary Cooling System of the High Temperature Gas-cooled Reactor", J. Nucl. Sci. Technol., 31, p654-661 (1994)
- (2) 沢和弘、村田勲、新藤隆一、塩沢周策：“高温工学試験研究炉の遮蔽設計における核分裂生成物線源評価”, JAERI-M 91-198 (1991)
- (3) K. Sawa, S. Shiozawa, M. Shindo: "Radiation Exposure in Depressurization Accident of HTTR", Nucl. Safety, 32, p222-228 (1991)
- (4) D. L. Hanson: "Result of the General Atomics Deposition Loop Program", GA-A 13140 (1976)
- (5) K. Sawa, I. Murata, S. Shiozawa, M. Matsumoto: "A Study of Plateout Fission Product Behavior during Large-scale Pipe Rupture Accident of High Temperature Gas-

## 謝　　辞

本検討は、高温工学試験研究炉の安全評価のために実施した試験結果に基づくものであり、核分裂生成物離脱実験については現企画室の伊藤治彦氏、現NSRR管理室の松本実喜夫氏の協力を得た。ダスト離脱実験については、現高温工学部長の宮本喜晟氏、現川崎重工西本武士氏の協力を得た。また、米国General Atomic社のDr. D. L. Hanson 氏には、IAEAのCRP2において貴重な助言を頂いた。さらに、本報告書の作成に当たっては、田中利幸HTTR開発部長、塩沢周策HTTR原子炉開発室長、新藤隆一同室長代理及び国富一彦氏に有益なコメントを頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

## 参考文献

- (1) K. Sawa, I. Murata, A. Saikusa, R. Shindo, et al.: "Prediction of Nongaseous Fission Products Behavior in the Primary Cooling System of the High Temperature Gas-cooled Reactor", J. Nucl. Sci. Technol., 31, p654-661 (1994)
- (2) 沢和弘、村田勲、新藤隆一、塩沢周策：“高温工学試験研究炉の遮蔽設計における核分裂生成物線源評価”, JAERI-M 91-198 (1991)
- (3) K. Sawa, S. Shiozawa, M. Shindo: "Radiation Exposure in Depressurization Accident of HTTR", Nucl. Safety, 32, p222-228 (1991)
- (4) D. L. Hanson: "Result of the General Atomics Deposition Loop Program", GA-A 13140 (1976)
- (5) K. Sawa, I. Murata, S. Shiozawa, M. Matsumoto: "A Study of Plateout Fission Product Behavior during Large-scale Pipe Rupture Accident of High Temperature Gas-

- cooled Reactor", Nucl. Technol., 106, p265-273 (1994)
- (6) K. Sawa, T. Nishimoto, Y. Miyamoto: "An Experimental Study of Dust Behavior during Depressurization", J. Nucl. Sci. Technol., 29, p1018-1025 (1992)
- (7) 沢和弘、伊藤治彦、松本実喜夫、遠藤泰一、他:"高温ガス炉の事故時の核分裂生成物離脱割合", JAERI-M 91-207 (1991)
- (8) Public Service Company of Colorado: "Fort St. Vrain Nuclear Generating Station Final Analysis Report" (1968)
- (9) 馬場治、露崎典平、沢和弘:"高温ガス炉におけるFP沈着解析コードPLAIN", JAERI-M 88-266 (1988)
- (10) R. P. Wichner: "FP Plateout and Liftoff in the MHTGR Primary System", NUREG/CR-5647 (1991)
- (11) C. B. Decken, N. Iniotakis, K. H. Munchow: "Behavior of Fission Product in Case of a Depressurization Accident", Proc. CSNI Specialists' Mtg. HTGR Safety, Current Status and Perspective, Petten, Netherland (1975)
- (12) J. W. Cleaver, B. Yates: "Mechanism of Detachment of Colloidal Particles from a Flat Substrate in a Turbulent Flow", J. Colloid and Interface Sci., 44, p464-474 (1973)
- (13) H. Y. Wen, G. Kasper: "On the Kinetics of Particle Reentrainment", J. Aero. Sci., 20, 483-498 (1989).