

分置

高速炉の炉心安全性向上のための試験研究

EAGLE プロジェクト

－ 炉外試験の進捗および融体流出試験結果 －

(共同研究報告)

2005年2月

核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター
日本原子力発電株式会社

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

電話：029-282-1122（代表）

ファックス：029-282-7980

電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2005

高速炉の炉心安全性向上のための試験研究 EAGLE プロジェクト

－炉外試験の進捗および融体流出試験結果－

(共同研究報告)

神山健司* 久保重信** 佐藤一憲*

要旨

EAGLE プロジェクトの目的は、ナトリウム冷却高速炉の炉心崩壊事故時において、固有の現象に基づく燃料の早期排出により、厳しい再臨界事象が原理的に回避可能であると示すことである。これに必要な試験的知見を得るため、カザフスタン共和国・国立原子力センターの炉内・炉外試験施設を利用した試験計画を策定し実行している。本報告書は、試験計画の一部である炉外試験の進捗および成果に関して報告するものである。

EAGLE 炉外試験では、試験実施の基本技術である誘導加熱による融体の生成、試験体への移送技術および計測技術を確立させるための試験シリーズを実施した。得られた知見、成果を以下に記す。

- － 二酸化ウラン及びアルミナを融体の候補材料として選定、試験技術の確立を図るとともに、ナトリウムを使用しない条件下での熔融炉心物質の流出挙動に関わる基本特性を把握した。
- － 二酸化ウランについては、坩堝内面への金属炭化物コーティングなどの手法によって坩堝との化学反応を抑制し、十分な純度の融体生成を図ったが、実機模擬性の観点から妥当な物性を有する融体の生成は困難と判断された。
- － アルミナについては、物性データが既知かつ実機模擬性の観点から妥当性を有すると考えられ、試験実施によって十分な純度を有する融体生成と試験部への移送が可能であることが確認できた。
- － ナトリウムを用いない条件下でのアルミナ融体試験を実施し、流出経路を模擬したステールダクトを熔融し、このダクトを通じて大部分の融体が下部プレナムを模した領域へと短時間で流出する結果を得た。

EAGLE 炉外試験では、今後、アルミナ融体を用いてナトリウムを使用した試験を実施し、融体流出挙動に対するナトリウムとの伝熱挙動の影響等を把握していく。さらに、炉内試験と相補的に活用することで、厳しい再臨界事象の回避に向けた試験データベースを構築してゆく予定である。

*) 大洗工学センター 要素技術開発部 リスク評価研究 Gr.

**) 同上、日本原子力発電(株)からの派遣者。

本報告書には、日本原子力発電(株)との共同研究「炉心安全性向上のための IGR 試験研究」に基づく情報を含む。

EAGLE Project: Experimental Study for Advanced Safety of Fast Reactors

- Progress on the out-of-pile experiments and results of the melt discharge experiment -

(Joint research document)

Kenji Kamiyama*, Shigenobu Kubo** and Ikken Sato*

Abstract

The objective of the EAGLE project is to confirm a possible scenario in the postulated core disruptive accident of sodium cooled fast reactors, in which the molten fuel discharging from the core region in the early stage of the accident with its inherent mechanisms would prevent energetic re-criticalities. In order to obtain necessary experimental data, in-pile and out-of-pile experiments utilizing facilities of National Nuclear Center in the Republic of Kazakhstan were planned and are currently carried out. This document reports progress and results of the out-of-pile experiments which consist of a part of the EAGLE program.

In the out-of-pile program so far, a series of experiments has been carried out aiming at establishment of basic necessary technology which consists of melting of the fuel-simulating material using the induction heating, transferring it into the test section and measuring the related phenomena during the experiments. Following knowledge and results have been obtained so far:

- Using uranium dioxide and alumina as candidate materials for fuel simulant, basic experimental technology has been established, and fundamental data of molten material discharge were obtained under the condition without sodium.
- With uranium dioxide, certain efforts, such as providing carbonized metal coating on the crucible inner surface, have been made to prevent chemical reaction between uranium dioxide and the graphite crucible so as to obtain molten uranium dioxide without a great deal of unfavorable impurities which prevent reasonable simulation of the real fuel behavior. It was concluded, however, that present techniques did not allow molten uranium dioxide with sufficient grade.
- Alumina, which has well-known thermophysical properties, was evaluated to have

adequate characteristics in terms of simulating real molten fuel behavior. Through implementation of the experiments, it was confirmed that molten alumina with sufficient purity and characteristics could be generated and then transferred into the test section.

The experiment using alumina without sodium showed that molten alumina melted the steel duct, which simulated the boundary of the fuel escape paths in the core, and major part of the molten alumina discharged rapidly into the space below simulating the lower sodium plenum of the fast reactors.

In the future EAGLE out-of-pile experiments, into which sodium will be introduced, alumina will be used as the fuel simulating material and effects of heat transfer between melt and sodium on melt discharging behavior will be studied. Outcomes from these experiments will be utilized in a best harmonization with those from the in-pile tests and will provide an experimental database to support elimination of energetic re-criticalities.

* Nuclear System Safety Research Group, Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center, JNC

** Ditto, delegated from the Japan Atomic Power Company Co., Ltd.

This document includes information based on the joint study "Experimental Study Utilizing IGR to Advance the Safety of Fast Reactors Core" with the Japan Atomic Power Company Co., Ltd..

目次

要旨	i
Abstract	ii
目次	iii
目次	iv
表リスト	v
図リスト	v
記号表	vii
1. はじめに	1
1.1. 試験計画の背景	1
1.2. 試験計画の基本的考え方	3
1.3. 試験計画の概要	4
2. 炉外試験装置の構成	14
2.1. 加熱部	14
2.2. 試験体	15
2.3. 試験計装	16
2.3.1. 高周波誘導加熱に関する計装	16
2.3.2. 上部トラップへの融体移送に関する計装	17
2.3.3. 試験体計装	17
3. 試験実施技術の開発および確認	30
3.1. 試料溶融技術の開発	30
3.1.1. 二酸化ウラン溶融技術の開発－炭化物蒸着による坩堝の保護	30
3.1.2. 二酸化ウラン溶融技術の開発－ジルコニウム混合による坩堝の保護	33
3.1.3. 二酸化ウラン溶融技術の開発－タングステンによる坩堝の保護	35
3.1.4. 模擬物質の溶解技術	37
3.2. 移送技術の開発	39
3.3. 試験実施技術のまとめ	40
4. 融体流出試験結果	65
5. おわりに	73
謝辞	74
参考文献	75
付録1 ジルコニウム混合小規模試験の概要と EAGLE 炉外試験条件の検討	付・1(1)
付録2 代替融体について	付・2(2)

表リスト

表 1-1	既存試験一覧	5
表 3-1	二酸化ウラン溶解試験の一覧	41
表 3-2	アルミナ溶解試験の一覧	42
表 3-3	坩堝と溶融試料の化学反応の原因と対策、および、必要となる対応	42

図リスト

図 1-1	燃料流出用の内部ダクトを設置した概念	7
図 1-2	燃料流出における想定主要現象	8
図 1-3	試験体基本概念および炉内試験体の概要	9
図 1-4	IGR 概要図	10
図 1-5	炉外試験装置の概要	11
図 1-6	炉内試験計画の概要	12
図 1-7	炉外試験計画の概要	13
図 2-1	試験装置全体構成図	19
図 2-2	高周波誘導加熱炉	20
図 2-3	溶融試料カセット写真	21
図 2-4	炭化ニオブの蒸着断面写真	21
図 2-5	高周波誘導加熱炉下部拡大図	22
図 2-6	試験装置概略図	23
図 2-7	上部トラップ、内部ダクトおよび流出ダクト図	24
図 2-8	下部トラップ図	25
図 2-9	加熱炉での温度測定点配置例	26
図 2-10	融体移送経路における光学計測位置	27
図 2-11	試験での想定現象	28
図 2-12	測定機器の配置	29
図 3-1	加熱ダイアグラム-1	43
図 3-2	黒鉛および溶融試料の比エンタルピ線	43
図 3-3	加熱炉の熱バランス (UTD-2 試験)	44
図 3-4	加熱炉の温度履歴 (UTD-2 試験)	44
図 3-5	試験後の坩堝縦断面写真 (UTD-2 試験)	45
図 3-6	溶融過程における加熱炉内の雰囲気分析結果	45
図 3-7	坩堝侵食重量の概算結果	46
図 3-8	再固化試料の X 線回折結果 (UTD-1/1 試験)	46

図 3-9	再固化試料の X 線回折結果 (UTD-3/2 試験)	47
図 3-10	ジルコニウムを用いた溶融試料カセットの組立	47
図 3-11	加熱ダイアグラム-2	48
図 3-12	加熱ダイアグラム-3	48
図 3-13	加熱炉の熱バランス (UTD-M3 試験)	49
図 3-14	加熱炉の温度履歴 (UTD-M3 試験)	49
図 3-15	UTD-M1 試験後の坩堝縦断面写真	50
図 3-16	溶融過程における加熱炉内の雰囲気分析結果 (UTD-M1 ~ M3 試験)	50
図 3-17	坩堝侵食重量の概算値 (UTD-M1 ~ M3 試験評価値を追加)	51
図 3-18	再固化試料の X 線回折結果 (UTD-M1 試験)	51
図 3-19	再固化試料の X 線回折結果 (UTD-M2 試験)	52
図 3-20	UTD-M3 試験後の坩堝および再固化物の縦断面と酸化物の含有割合(vol.%)	53
図 3-21	タングステン内筒による黒鉛坩堝保護	54
図 3-22	UTD-M4 試験で用いた加熱履歴	55
図 3-23	UTD-M5 試験での予定加熱履歴	55
図 3-24	加熱炉の熱バランス (UTD-M5 試験)	56
図 3-25	加熱炉の温度履歴 (UTD-M5 試験)	56
図 3-26	UTD-M4 試験後の坩堝解体写真と縦断面概略図	57
図 3-27	UTD-M5 試験後の坩堝縦断面写真	58
図 3-28	UTD-M5 試験後の固化物の縦断面と元素分布割合	59
図 3-29	UTD-M5 試験固化物の X 線回折結果	60
図 3-30	溶融坩堝へのアルミナの装荷形態	61
図 3-31	アルミナ溶解試験の加熱履歴	61
図 3-32	加熱炉の熱バランス (UTD-M2c 試験)	62
図 3-33	アルミナの比エンタルピ線	62
図 3-34	加熱炉の温度履歴 (UTD-M2c 試験)	63
図 3-35	アルミナ試験における試験後の坩堝内表面	63
図 3-36	アルミナ試験における上部トラップ固化物の化学組成割合	64
図 3-37	融体移送の計測例	64
図 4-1	試験後のアルミナ固化物配置	69
図 4-2	試験体の温度および圧力変化	70
図 4-3	内部ダクト破損時刻の事前評価との比較	70
図 4-4	ガンマ線検出器の規格化計数の変化	71
図 4-5	上部トラップの残存融体量変化	71
図 4-6	試験後の排出ダクト任意断面	72

記号表

f : 電源周波数 [Hz]

q : 熱流束 [W/m^2]

T : 温度 [K]

x : 遮蔽厚み [m]

ギリシャ文字

α : 減弱係数[-]

δ : 表皮深度 [cm]

ε : 放射率 [-]

μ : 透磁率 [-]

ρ : 電気抵抗率 [$\Omega \cdot \text{cm}$]

$\sigma_{S.B}$: ステファン・ボルツマン係数 ($5.67 \times 10^{-8} \text{ W}/\text{m}^2/\text{K}^4$)

下付き文字

m : 融体

s : 構造材

1. はじめに

本報は、カザフスタン共和国・国立原子力センター（NNC/RK）の炉内・炉外試験施設を利用した試験研究の一部である炉外試験の進捗および成果に関して報告するものである。

報告書の構成は次の通りである。まず、本章に試験計画の背景、試験計画の基本的考え方および試験計画の概要について述べる。これは、本試験研究プロジェクトの報告書としては、本報が初めてであるためである。以下、第2章で炉外試験装置の構成、第3章で試験技術の開発結果を述べ、試験で得た融体流出挙動については第4章に述べる。

1.1. 試験計画の背景

ナトリウム冷却高速増殖炉（FBR: Fast Breeder Reactor）の安全評価では、その開発の初期段階から炉心崩壊事故（CDA: Core Disruptive Accident）を想定した検討が行われてきている。これは、FBRの炉心が健全状態において最大反応度体系になく、燃料の集中化が正反応度投入につながる特性であることに起因している。これまでの欧米露日各国のFBRの開発努力と運転経験の蓄積により、炉心崩壊の起因となり得る異常の把握がなされ、その進展を防止する安全設備の改善が進められてきた結果、CDAは技術的には起こるとは考えられない事象と認識されるようになった。それにも関わらず、欧米日各国の原型炉、実証炉の許認可ではCDAの評価が何らかの形で行われてきている。これは、CDAの発生を仮定した場合、熔融した燃料の移動によっては即発臨界に至り、格納系の健全性の脅威となる機械的エネルギーが放出される可能性が否定できないためである。わが国の原型炉「もんじゅ」の安全審査では、「技術的には起こるとは考えられない事象」との位置付けで、代表的なCDAの想定起因事象である「1次冷却材流量減少時反応度抑制機能喪失事象」と「制御棒異常引抜時反応度抑制機能喪失事象」の評価が行われ、前者の評価において保守的な想定のもとに評価された機械的エネルギーに対して、格納系の機能が維持されることが示されている。しかし、FBRの実用化に向けては、評価の枠組みの分りやすさや合理性の観点から、このような評価を不要とすべきとの考え方がある。

現在の最新知見によれば、典型的な厳しい再臨界事象としては、熔融領域の拡大過程（いわゆる遷移過程）において熔融燃料が2次元的な揺動によって集中することによる反応度印加が挙げられる^[1]。一方で、炉心内の温度・圧力の上昇に伴い、崩壊燃料は炉心領域外へ分

i ここで議論の対象としているのは、CDAの事象推移において発生する可能性のある核熱現象である。それらの現象のうち、何らかの原因によって炉心に正反応度が投入されて出力が急上昇し、その時投入されるエネルギーが原子炉容器等を機械的に変形させる程度以上に大きくなり得るものを「厳しい再臨界事象」と本報告書では定義する。CDA事象推移評価において、厳しい再臨界事象に至らずに終息することを「厳しい再臨界事象の回避」と本報告書では称する。「厳しい再臨界事象」という用語は、CDAの事象推移の過程において一時的な未臨界状態となったあと、燃料の集中化等によって再び臨界状態となることを想起して用いられている。しかし、未臨界状態を経ることなく厳しい機械的エネルギー発生に至る可能性もある。このような場合は厳密には「再臨界」ではないが、ここではこのような事象も含める

散して反応度が低下するという、遷移過程自体に本質的に存在する緩和機構も存在する。このような駆動要因・緩和機構が競合する CDA の事象進展については、多くの実験データおよびその知見を反映した解析コードによって評価が可能となってきた。しかし、炉心溶融領域が拡大し、かつ、溶融燃料の炉心外への流出が遅れるほど、評価結果の不確定幅が大きくなる傾向にあるのが現状である。これは、遷移過程における溶融燃料の炉心外への流出挙動に関して、試験事実裏付けられた知見が不足していることに起因している。この知見の不足を解消しない限り、保守的な想定のもとに評価された機械的エネルギーに対する格納系の機能維持を示すことが許認可上何らかの形で求められるであろう。したがって、遷移過程における燃料流出挙動に関する試験データを取得することで、遷移過程に関わる評価の不確定性を低減し、厳しいエネルギー放出には至らないことを示すこと、即ち厳しい再臨界事象が回避できることを示すことが、許認可上の CDA 評価の不要化への第 1 段階として重要である。厳しい再臨界事象の回避に関わる不確定性低減においては設計への依存性も大きく、炉心物質の流出促進に配慮した設計研究と併せてその目的を達成するアプローチが有効と考えられる。このような流出促進の具体例として、燃料集合体内部にダクトを設置する炉心概念が提示されている。これを図 1-1 に示す。燃料溶融時に想定される流出挙動は図 1-2 に示される通りで、ダクトの設置によって溶融炉心領域が拡大する前に燃料流出が促進され、未臨界状態に至ることが考えられる。この概念は、従来から燃料流出経路として期待されてきた制御棒案内管の燃料排出経路としての機能を発展させたものと言える。一方、図 1-2 に示した事象推移については、表 1-1 にまとめて示すように、個別現象を扱う試験例があるものの、燃料の溶融から流出・再配置までを一連の現象として扱った試験例はない。該当現象の評価に現状で最適な手法である高速炉安全解析コード SIMMER-III^{[2][3]}については、機構論的アプローチに基づき、個別現象すなわち図 1-2 の①から⑤それぞれを対象としたモデル検証研究は終了した。しかし、一連の流出現象、すなわち図 1-2 の特に②から⑤に示される課程を適正に評価し得るかについては確認に到っていない。これは、融体量や試験条件の観点から適切と考えられる試験データが欠落していることによる。

以上のような背景により、炉心物質の溶融、流出、再配置までの一連の現象を対象とした試験を計画し、1998 年より実施に移行したⁱⁱ。試験では 10kg 単位の溶融燃料を核加熱によって生成する必要があるため、カザフスタン共和国・国立原子力センター (NNC/RK) の黒鉛減速パルス出力炉 (IGR: Impulse Graphite Reactor) を炉内試験施設として使用することとした。さらに、理由は 1.2 にて述べるが、NNC/RK の炉外試験施設を併用する。

この試験計画の目的には 2 つの側面がある。1 つは、これまで欠如していた大量の燃料流出に関する基本原理および主要現象に係わる実験データベースを得るとともに、SIMMER-III

ii 1998 年 (H10 年度) より、日本原子力発電株式会社 (原電) により開始、サイクル機構は原電との共同研究契約により参画した。2000 年からは国の安全研究の一環として、サイクル機構と NNC/RK との研究契約により継続実施している。

/SIMMER-IV^[4]の検証データを提供することによって、個々の設計に依存しない一般性を持った知見を安全評価に反映することである。もう1つの側面は、集合体内部ダクト設置という設計、これは早期流出確保の観点で不確定性を最小限化するためのオプションであるが、その設計の有効性を実験で直接的に確認することである。

この試験実施を伴うプロジェクト名を EAGLE プロジェクト (*Experimental Acquisition of Generalized Logic to Eliminate of re-criticalities*) とした。このプロジェクトにより得られる成果に基づき、炉心崩壊時の固有の現象に基づく燃料の早期排出により、厳しい再臨界事象が原理的に回避可能であることを示す安全論理が構築されることが期待される。

1.2. 試験計画の基本的考え方

EAGLE プロジェクトでは 1.1 にて述べたように、冷却材ナトリウムに満たされた流路を通じた燃料流出に関わる試験データを取得する。よって、試験体が満たすべき要件は次の3点と考えた。

- ① 熔融燃料プール状態を模擬するための容器を有すること。
- ② ナトリウムで充填されたステンレススチール製のダクトを有すること。
- ③ 流出先であるプレナム部を模擬したナトリウム充填容器を有すること。

炉内試験体の概略を図 1-3 に示す。炉内試験施設を使用する場合、熔融燃料の生成から内部ダクトの溶解による流出経路形成挙動を核加熱条件下で実現できるため、高速炉実機条件の模擬性は高い。その半面、試験体は図 1-4 に示す IGR 中心の試験孔 (内径 228mm、長さ 3825mm、このうち炉心軸方向中心から試験孔下方向まで利用できる長さは約 1350mm) に装荷するため、径・軸方向共に空間的制約を受ける。そのため、最適化を図った試験体においても、下部プレナム模擬領域に充填できる冷却材ナトリウム量が制限される。熔融燃料流出先における冷却材との熱的相互作用については、ナトリウム量の影響に留意する必要がある。

これに対して、空間制約が少ない炉外試験施設を利用することで上述の欠点を補うことができる。炉外試験装置の概略を図 1-5 に示す。内部ダクトの仕様を炉内試験とほぼ同一とした上で、流出先であるプレナム模擬領域のナトリウムを十分に配置することを基本とした。さらに、計測系の配置に自由度があり、炉内試験に比べてより多くの試験データが収集できる可能性がある。一方、炉外試験の欠点は、融体から内部ダクトへの伝熱と内部ダクト溶解挙動に対する模擬度の高い試験条件が設定できないことである。これは、炉外では融体を試験体外部で加熱生成した後に試験体へ移送する操作が必要になり、融体からダクトへの伝熱の過程において融体が発熱するという実機条件を模擬できない。また、移送の過程では、融体プール中に流動を生じ、この流動がダクトへの伝熱挙動に不確定性を与える。炉外試験装置についての詳細は第 2 章にて説明する。

以上のように、EAGLE プロジェクトでは炉外試験と炉内試験の欠点を相互に補うことで、

大量の燃料流出に関する基本原理および主要現象に係わる質の高い実験データを得ることが可能である。また、これらの炉内・炉外試験によって、融体温度や圧力などの条件を変えて試験が実施可能であり、このような境界条件依存性に関わるデータベースが得られることは、試験データの質を向上させる観点でも有効なものである。

1.3. 試験計画の概要

EAGLE プロジェクトの実施目標としている試験概要、および、既存試験に実施例が無いことは上述の通りである。よって、本プロジェクトでは、試験を実施するための技術開発から始める必要があった。試験を実施するための技術は、炉内試験・炉外試験で求められる内容は若干異なるものの、概ね以下の通りである。

- ① 実燃料の伝熱現象を適切に模擬する融体 10kg 程度以上を加熱・溶融させ、それを保持すること。(炉外/炉内)
- ② 溶融した融体を、試験体へ移送すること。(炉外)
- ③ 融体によるダクトの溶解挙動、ダクト破損後の融体移動挙動およびそれらに伴う昇圧挙動等を計測系によって検知すること。(炉外/炉内)
- ④ ナトリウムを任意の温度条件に設定し、融体との相互作用による昇圧挙動に際しても試験体内に保持し得ること。さらに、試験後の固化試料観察のために必要なナトリウム処理が行なえること。(炉外/炉内)

実施主体である NNC/RK との協議の結果、これらの試験実施技術開発は段階的に進めていくこととし、炉内試験および炉外試験の概要を図 1-6 および図 1-7 に示すように定めた。

炉内試験では、準備試験として GP 試験、WF 試験を各 1 回、総合試験として FD 試験を 1 回、ID 試験を 2 回実施することとした (GP 試験は結果的に 2 回実施した^[6])。GP 試験、WF 試験を通じて試験実施に必要な技術①を段階的に確認すると共に、WF 試験ではダクト破損挙動に関するデータを取得する。FD 試験は、第 1 回目の ID 試験に匹敵するものをナトリウムが存在しない条件で実施するものであり、両者のデータを比較することで燃料流出挙動に対するナトリウムの影響を評価する狙いがある。第 2 回目の ID 試験条件については、それまでの試験結果によって決めることとした。

炉外試験では、UTD0 シリーズ試験から UTD シリーズ試験の実施によって技術①から③を確立、PIDO 試験およびその準備試験によって技術④を確立させ炉外試験の最終ターゲットとして位置づけた IDO 試験実施に至る。

表 1-1 既存試験一覧(1/2)

主要現象	対応する代表的な既存試験	既存試験の主な知見、解釈
高温融体による内部ダクトの破損挙動	SCARABEE PI-A、BE+3、PV-A、BF2、BF3 代表的な参考文献：[6]	<p>ステイール構造材の破損挙動については以下に分類できる。</p> <p>A) 冷却材沸騰型（例：SCARABEE PI-A）：沸騰による冷却材喪失時に生じる挙動であり、壁面全体の温度が上昇する。圧力差と機械的強度の関係に応じて壁面全体が変形、破損に至る。</p> <p>B) 溶融浸食型（例：SCARABEE BE+3）：外面が強制的に冷却されている場合の挙動であり、内表面のみ溶融が生じる。構造材は内表面から減肉され、圧力差と機械的強度の関係に応じて変形・破損に至る。</p> <p>溶融燃料からのステイール構造材への伝熱挙動については、ステイールの沸騰、燃料の沸騰によってプール内に擾乱が生じ実効熱伝達係数が増加することが示されており、評価相関式についても、SCARABEE BF2、BF3 および BE+3 試験を総合的に評価することで得られている。</p>
経路内での FCI を伴った融体移行挙動	ANL/CAMEL ^{[7][8]} JNC/MELT ^{[9][10]}	<p>溶融燃料の放出に際しては、少量の（～2kg）放出にて FCI により流路ナトリウムがボイド化することが示されている。すなわち、壁面破損時にナトリウムが存在しても、初期融体放出で流路がボイド化するため、後続の融体は容易に流出すると推測される。さらに、ボイドは流路圧力損失がより小さい方向に拡大する。</p> <p>なお、燃料流出時の FCI によって流路と溶融燃料プールの圧力差が逆転した場合、溶融燃料中に冷却材が逆流することで FCI（エントラップ型 FCI）が生じる可能性が示唆されている。一般に、このような逆流型 FCI の発生圧力は高圧になる傾向があるが initial、カバ一ガス空間の制限された試験であり、十分な検証データとはなっていない。</p>

表 1-1 既存試験一覧(2/2)

<p>経路内での FCI を伴った融体移行挙動(続き)</p>	<p>CEA/GYESE ANL/UIPI AEA/MFTF</p>	<p>下部プレナムへの流出過程では、熔融燃料は流路壁面および冷却材ナトリウムと熱交換を行い、バルクエンタルピーが低下することで流動性が低下する。流路壁面との伝熱については、ナトリウムの無い条件であるが、炉外試験^{[13][14][15]}およびその分析^{[16][17][18]}によって特性が確認されており、定量的評価が可能である。流路にナトリウムが存在する場合には類似な試験は、ANL で行われた UPI 試験 (Upper Plenum Injection) ^{[19][20]}、英国の AEA Technology, Winfrith Technology Centre での MFTF 試験^[21]が挙げられる。双方の結果ともに、冷却材の存在は融体の流出挙動に殆ど影響を与えないことを示している。しかし、UPI 試験での融体駆動圧は 50bar にもなるため FCI 圧力の影響が顕在化しない可能性がある点、MFTF 試験では管内径が 3.3mm 程度であり冷却材との混合が発生し難い可能性がある点が課題として残る。</p>
<p>下部プレナム領域での FCI 挙動</p>	<p>THINA, FARO-THERMOS JNC/MELT-FCI</p>	<p>熔融燃料と冷却材の熱的に相互作用 (FCI) を対象とした試験は多数存在する^{[22][23][24][25]}。さらに、熔融燃料-ナトリウムの FCI 特性は、基礎試験により次のように確認されている^[26]。すなわち、ナトリウムの高沸点・高熱伝導特性により、接触界面には安定した蒸気膜が形成されなため、熔融燃料はナトリウムと接触後直ちに冷却・分散されることで、燃料の混合量が抑制され過大な昇圧挙動とはならないと予測される。ただし、これらの既存試験では融体量に対する冷却材量の比が大きく、限定された領域での融体クエンチ挙動や冷却材昇温にともなうサブクール度の低下した条件での挙動、あるいは、カバースペースなど圧力境界条件依存性の観点から、再臨界問題排除を目指した現状試験ニーズには十分なデータを提供していない。</p>

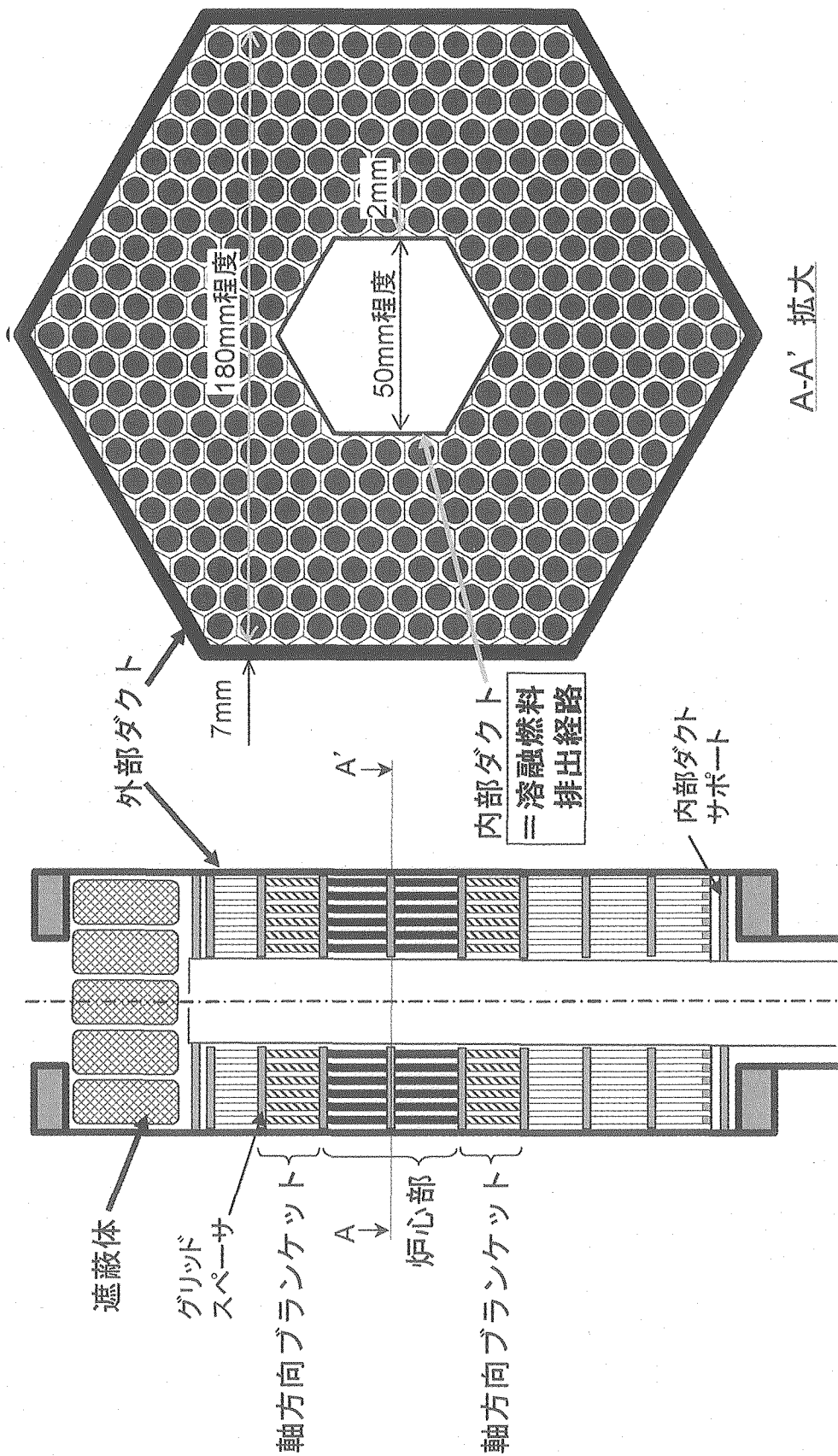


図 1-1 燃料流出用の内部ダクトを設置した概念

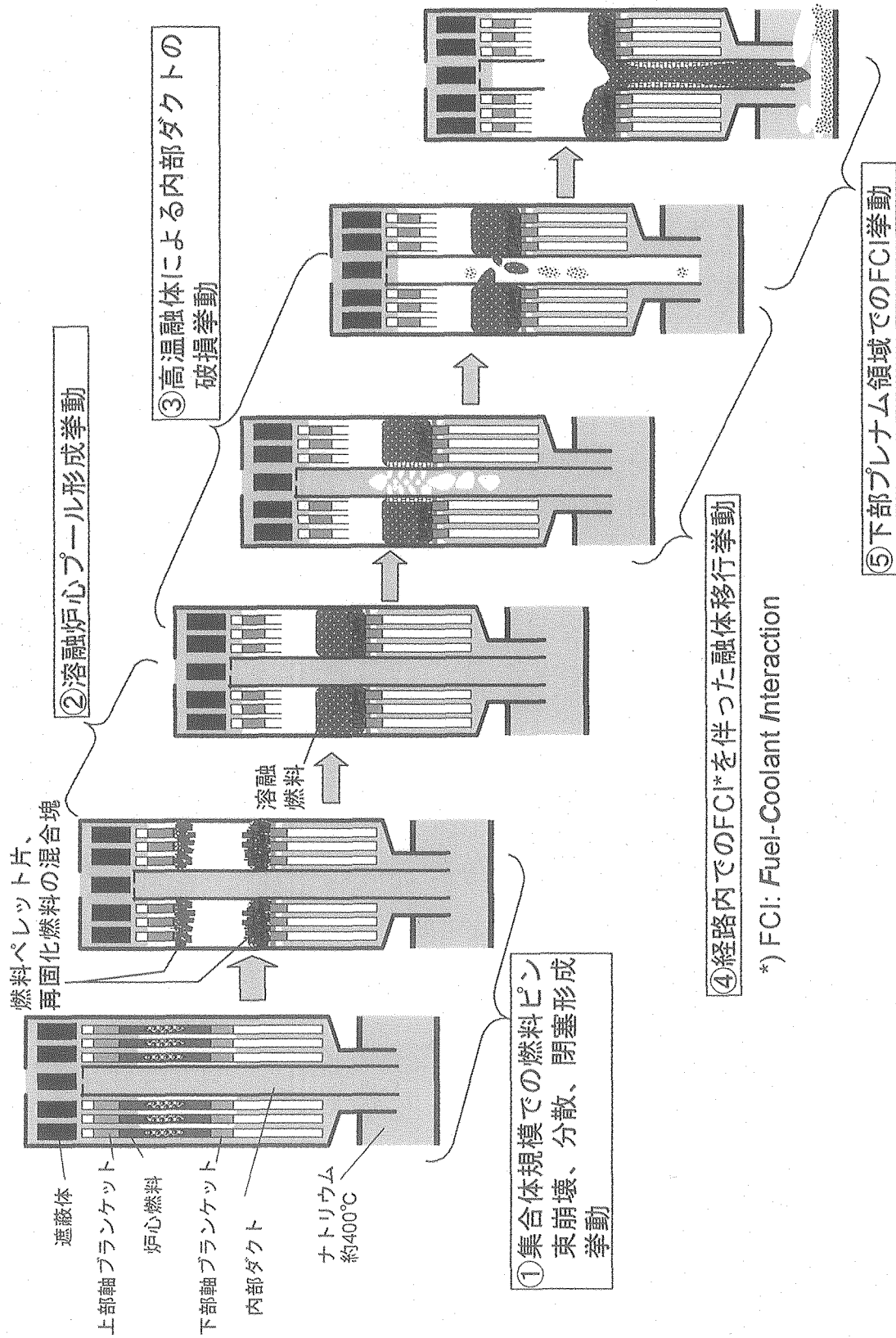


図 1-2 燃料流出における想定主要現象

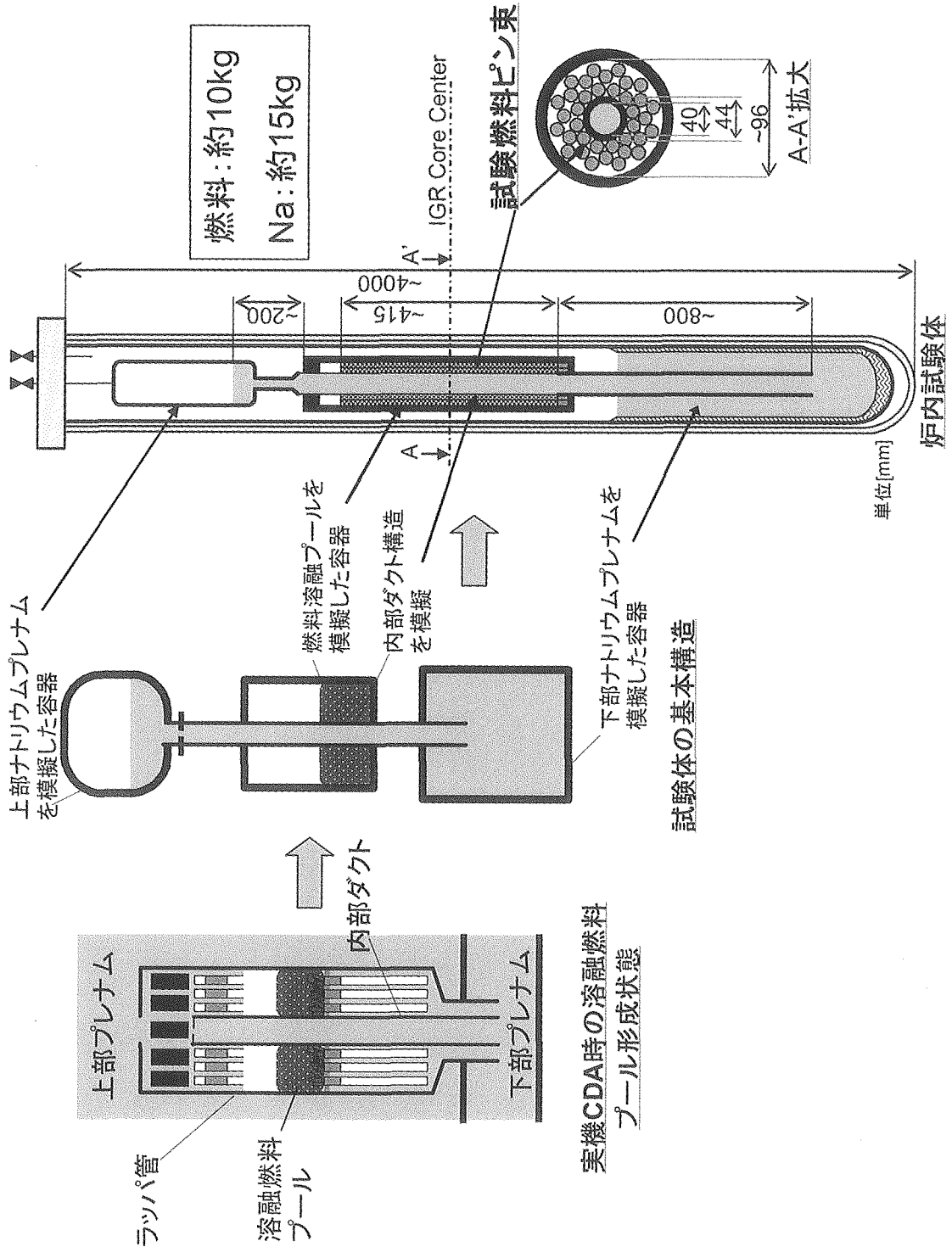
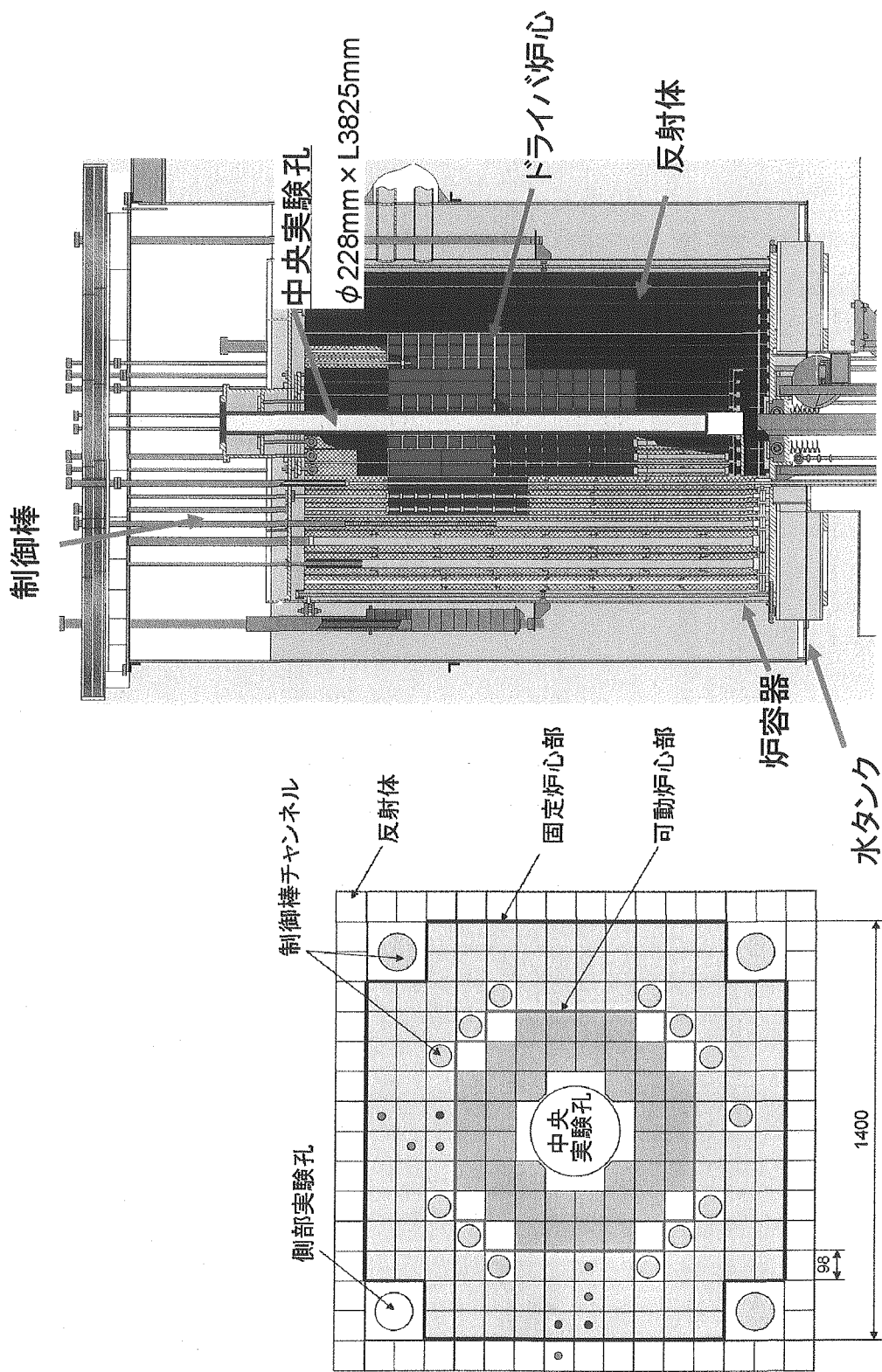


図 1-3 試験体基本概念および炉内試験体の概要



IGR垂直断面図

IGR炉心水平断面図

図 1-4 IGR 概要図

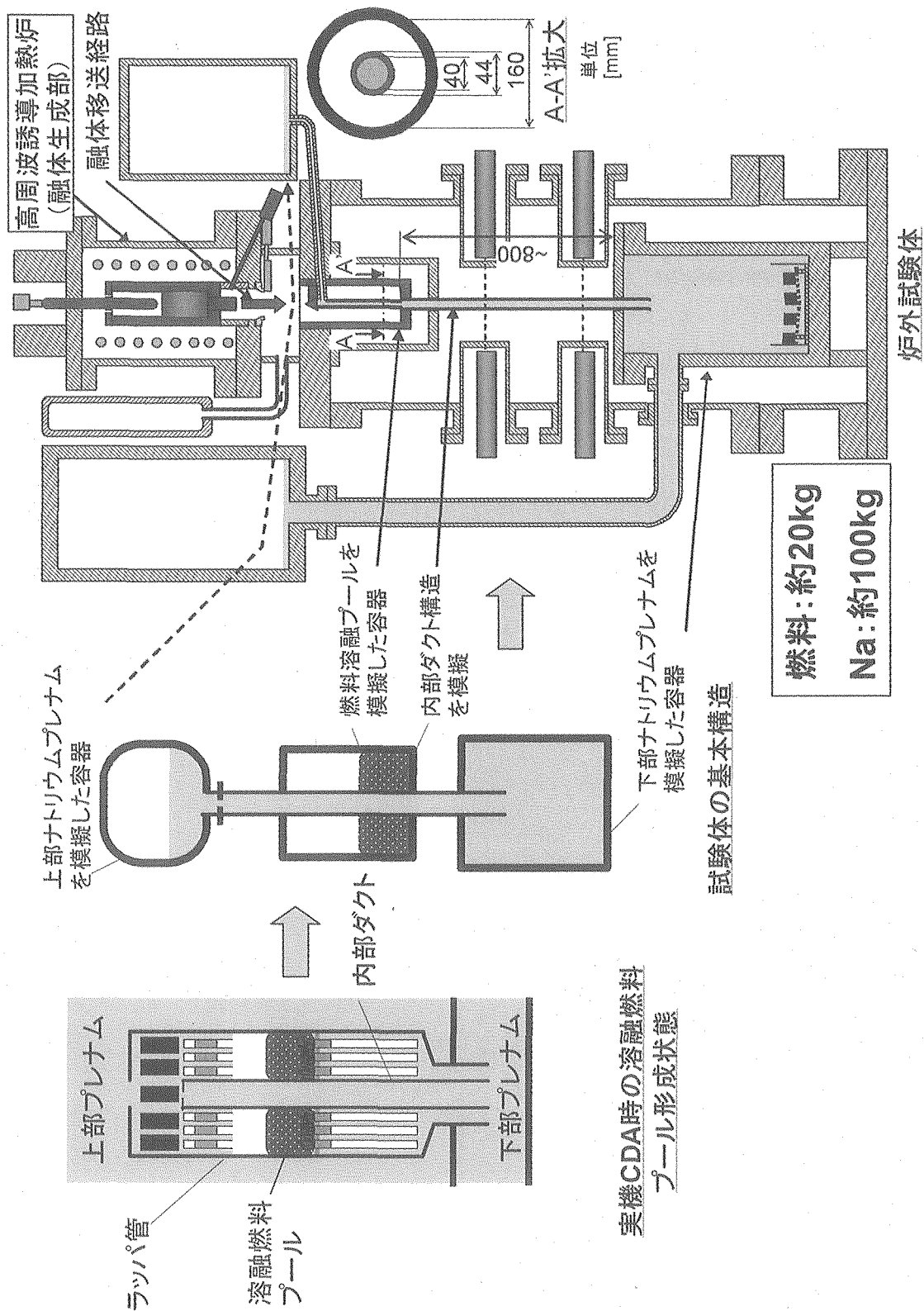
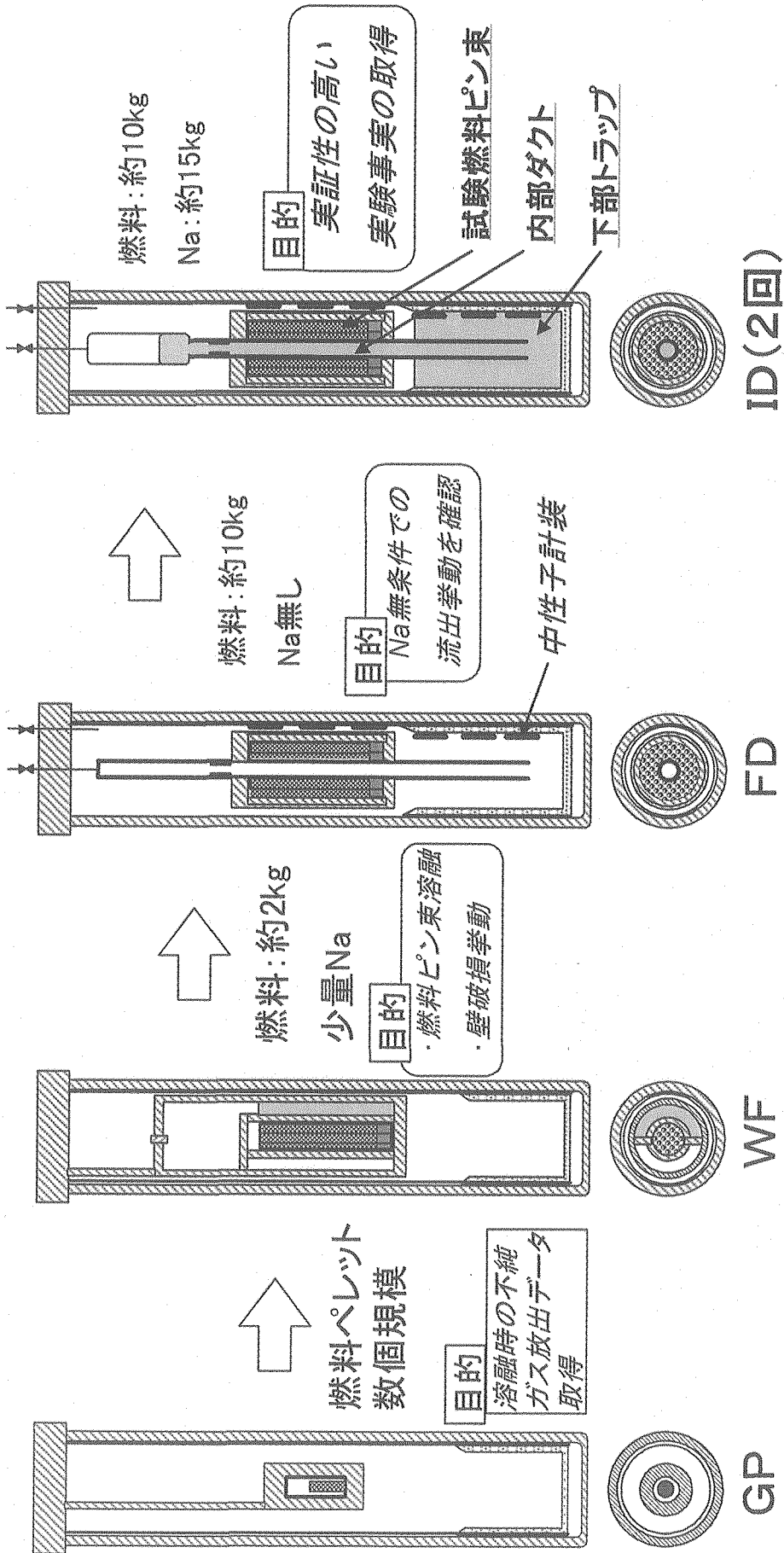
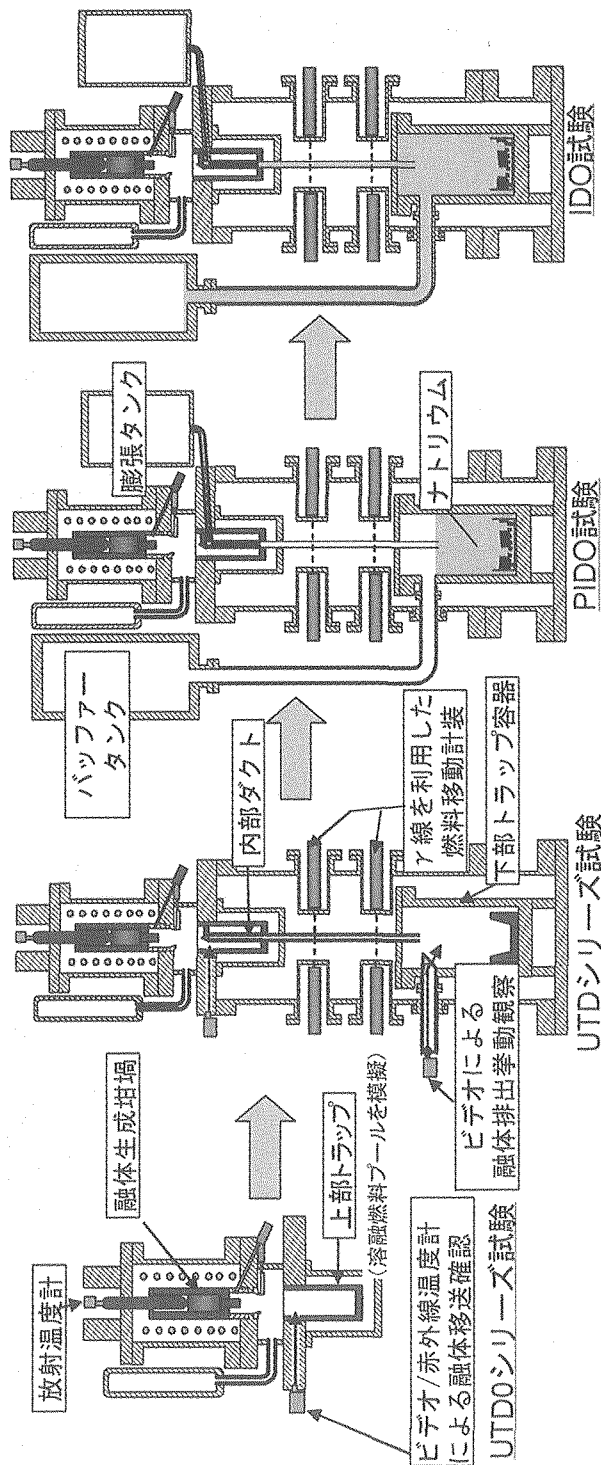


図 1-5 炉外試験装置の概要



準備試験 総合試験

図 1-6 炉内試験計画の概要



技術開発項目	UTDOシリーズ	UTDOシリーズ	PIDO
①融体生成技術			
②融体移送技術			
③測定技術			
融体温度測定			
ガンマ線による融体移動測定			
主要現象の測定			
④ナトリウム取扱技術			
試験体内保持・昇温			
試験後処理			

図 1-7 炉外試験計画の概要

2. 炉外試験装置の構成

試験装置の全体構成を図 2-1 に示す。炉外試験装置は大別して、加熱部、試験体およびナトリウム供給・排出系から構成される。試験では、ナトリウムを試験体へ所定量注入し所定温度まで昇温した後、高周波誘導加熱にて生成した融体を試験部へ移送、その後に生じる諸現象を測定する。特に、試験実施のために難易度の高い技術開発は、熔融試料を所定温度まで加熱し、試験体に移送することである。

本章では、試験実施上重要性の高い加熱部、試験体および試験計装について説明する。

2.1. 加熱部

誘導加熱炉を図 2-2 に示す。プロジェクト開始当初は、できる限り実機で想定される CDA 条件を模擬するため、熔融試料を二酸化ウラン 20.7kg とステンレススティール（以下、スティール）5.5kg の混合物とし、約 3300K まで加熱することを技術開発目標としたⁱⁱⁱ。加熱コイル、加熱炉の側壁・蓋、下部フランジは全て強制的に冷却することで健全性を確保する。冷却材は、初期の開発段階では水を用いるが、ナトリウムを用いる試験に向けてシリコンオイルに切り替える。

加熱坩堝は、NNC/RK の試験実績、費用、調達性および加工性を考慮して黒鉛製とした。黒鉛製坩堝の肉厚を 30mm とし、誘導加熱の周波数 (f) を 2.4kHz、最大電力を約 150kW とした。周波数と坩堝肉厚との関係は、以下の式で定義される表皮深度 (δ cm) を考慮して定めた。表皮深度は、坩堝厚み 3cm にほぼ等しくなる。

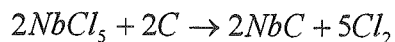
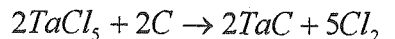
$$\delta = 5.03 \times 10^3 \sqrt{\frac{\rho}{\mu f}} \quad (\text{出典}[28])$$

ここで、 μ は透磁率で黒鉛は 1、 ρ は電気抵抗率で黒鉛では 0.001 [$\Omega \cdot \text{cm}$] 程度である。よって、2.4kHz の誘導加熱によって発熱するのは導電体である黒鉛坩堝であり、熔融試料は坩堝からの伝熱によって間接的に加熱されることになる。したがって、坩堝壁面に近いほど加熱効率が向上する。そのため、二酸化ウランのペレットを円環状のカセットに組み上げて坩堝内に装荷する。これを図 2-3 に示す。

ここで、熔融対象である二酸化ウランと黒鉛とは、1530°C 以上で反応し炭化ウラン (UC_2 および UC) を生成、一酸化炭素 (CO) を放出することは、プロジェクト開始当初より既存知見^[27]によって把握していた。そのため、坩堝内表面に炭化物の保護膜を蒸着させ、黒鉛と二酸化ウランとの直接接触を回避することを試みた。炭化物蒸着膜は、蒸着性に優れた炭化ニオブ (NbC) を基材として、欠陥孔を炭化タンタル (TaC) にて埋める二重の保

ⁱⁱⁱ 詳細は 3.1 にて述べるが、多数の溶解試験の実施により、黒鉛材を基本とする現状手法では実機燃料の物性を適切に模擬した融体生成が極めて困難であることが判明した。

護膜とした。NbC の蒸着状態写真を図 2-4 に示す。ベースとなる NbC の融点は約 3800K、TaC は約 4100K であり、目標温度に対して裕度がある。保護膜の形成は、以下の化学変化を利用した化学蒸着であり、温度約 2600K で行なわれる。



なお、二酸化ウランと黒鉛製坩堝の反応防止策については、上述の化学蒸着の他にジルコニウム (Zr) の混入、タングステン筒の挿入も試みた。詳細は 3.1 にて述べる。

次に、融体を試験部へ移送するための構造について説明する。加熱炉下部の詳細を図 2-5 に示す。所定の温度に加熱した融体は、坩堝下面に孔を設けて試験体へ移送する。よって、坩堝については、融体の保持および指定時間での孔の形成という 2 つの相反する要求を満たす必要がある。そのため、坩堝下面に W 字型の切り込みを加工、ハンマーによる打撃を加えることで孔を形成することとした。孔形成後、プラグはタンタル製の籠状のプラグトラップに従って自重によって融体移送経路外へ移動する。この措置の目的は、プラグが試験部へ落下して以後の事象推移に影響するのを防止することである。

融体移送完了に伴い、加熱炉下端に設けたシャッターを閉止する。これは、試験部に移送された融体やナトリウムが加熱炉に侵入するのを防ぐためである。したがって、内部ダクトが破損する時間までにシャッターを閉止する必要がある、当然、融体移送はシャッター閉止までに終了している必要がある。シャッターの閉止時間は、ナトリウムを用いない試験にて移送時間およびダクト破損時間を測定し、その結果にて決めることとする。移送空間へは排気ラインを接続し、容量約 0.49m³ のタンクに接続する。これは、高温の融体移送に伴い、移送空間のガスが加熱されて圧力が上昇することを防止することが目的である。坩堝内圧と移送空間の圧力差が移送途中で大きく逆転した場合、融体注入が阻害される可能性があるためである。

2.2. 試験体

試験体の概要を図 2-6 に示す。局所的な熔融燃料プールを模擬した上部トラップ、下部プレナム部を模擬した下部トラップ、上部プレナム部を模擬した膨張タンクを配置し、内部ダクトを模擬した配管によって接続する。この配管は、上部トラップー膨張タンク間で延長ダクト、上部トラップ内では内部ダクト、上部トラップー下部トラップ間では排出ダクトと称する。

図 2-7 に上部トラップ、内部ダクトおよび流出ダクトの詳細を示す。ダクトの形状は炉内試験体に可能な限り合わせることにし、内部ダクトの内径を 40mm、厚みを 2mm とし、流出ダクトの内径は 40mm、厚さ 10mm、長さを約 840mm とした。厚さ 10mm とは、実機では流出経路壁面の外周部にナトリウムが存在するため、そのヒートシンク効果を模擬

することを意図している。上部トラップの内径は、融体が充填される位置で160mmとし、加熱部からの融体移送量を増加させるため、トラップの上部にテーパーを設けて内径を拡大する。

延長ダクトは内径を15mmとし、厚みはヒートシンク効果を模擬して10mmとした。実機内部ダクトの炉心部上端位置に設置される流量調整用の絞り効果を模擬するため、延長ダクト内部にオリフィス構造を挿入することが可能になっている。延長ダクトは、容積約0.1m³の膨張タンクに接続する。

下部トラップを図2-8に示す。下部トラップには、流出した融体を十分に冷却する観点から、ナトリウム約90kgを配置する。さらに、実機模擬性の観点から、下部トラップには液面を設けない。よって、融体とナトリウムの熱的相互作用による圧力は、内径98mmの配管を介して容積約0.3m³のバッファータンクへと開放する。

2.3. 試験計装

炉外試験では、融体流出に関わる諸現象を測定することに加え、試験初期条件の設定あるいは把握のため、高周波誘導加熱炉の温度測定および融体移送時間の測定が必要となる。以下、各計装について詳細を述べる。

2.3.1. 高周波誘導加熱に関する計装

坩堝内の融体温度測定は、高周波炉の運転および試験初期条件の両面から重要である。融体温度の代表点としては、液中の中心部温度が望ましい。そこで、黒鉛筒（サーモウエル）を坩堝内部に挿入した上で、ウエル底面温度を2色温度計にて測定することとした。サーモウエルの外表面には融体との化学反応を抑制するため、炭化ニオブと炭化タングスタルのコーティングを施し、内部は透明度を保つためにアルゴンガスを流す。

一方、浸漬型のサーモウエルが必要な測定時間に渡って常に健全性を保つとは限らない。そこで、計算による評価を可能とするため、以下の測定を実施する。

- 高周波電源の電圧、電流、位相差を測定する。
- タングステン・レニウム熱電対を坩堝内部、外表面、断熱材外表面に配置し、2300K程度までの昇温挙動を測定する。配置例を図2-9に示す。図中の“T”が該当する。
- 加熱コイル、加熱炉の側壁・蓋、下部フランジを強制冷却している冷却材の流量および出入口温度を測定する。

以上により、投入エネルギーに対する昇温と放熱の関係を把握することが可能となり、加熱炉内の熱収支評価が可能となる。このことによって、少なくとも投入熱量の過不足を把握することができる。

以上の測定方法は、試験結果を踏まえながら改良を行なうため、試験毎に測定点等が変更される。例としては、冷却材出入口温度測定が挙げられる。初期の試験ではクロメル・アルメル（CA）熱電対を用いたが、誘導加熱に伴う電氣的ノイズが収録データに乗

ってしまい除去できないことから、白金測温抵抗体に変更した。

2.3.2. 上部トラップへの融体移送に関する計装

溶融坩堝から上部トラップへの融体移送所要時間を把握することは、2.1 で述べたシャッター閉止操作の時刻を決める観点、および、試験データ分析時において融体プールが形成された時間を把握する観点から重要である。

融体移送時間は熱電対および圧力計の変化にて把握する。温度変化による検知は、移送先である上部トラップ壁面に設置した熱電対応答を利用する。対象が 3000K を超える融体であるため接触と同時に破損する可能性があり、移送開始は検知できるものの融体移送終了時刻を把握することが難しい。そこで、圧力変化によって融体移送終了を把握する。さらに、図 2-10 に示すように上部トラップの上部に観測孔を設け、可視像および二色温度計によって融体移送時間の測定を行なう。

以上の計装による測定結果は、3.2 にて説明する。

2.3.3. 試験体計装

各計測機器の仕様は、対象とする現象ならびにその物理量の大きさの予測に基づいて選定する必要がある。そこで、既存試験結果や解析コード SIMMER-III の評価結果に基づき事象推移を図 2-11 のように予測し、計測器の選定を行なった。仕様選定および配置に対する基本的な考え方を以下に述べる。計測機器の基本配置を図 2-12 に示す。

(1) 融体プール形成および内部ダクト破損挙動に関わる計装

必須の計測項目は、上部トラップに融体プールが形成されてから、ダクト内ナトリウム沸騰の開始およびダクト破損による流出経路形成までの時間である。付加的情報として、融体プールの液面位置、温度および内部ダクト破損位置を検知できることが望ましい。

融体プールの計測として、液面位置の同定のために CA 熱電対を、温度測定のためタングステン・レニウム (W/Re) 熱電対を各 6 本ずつ配置する。これらに対応し、CA 熱電対および W/Re 熱電対の熱接点位置を以下のようにした。

- CA 熱電対の熱接点位置は、上部トラップ壁面に設けた貫通孔の内部とし、内表面からの距離を 1mm 程度とする。液面位置の同定が目的であるため、温度の絶対値測定の必要はなく、融体との接触による指示値変化が生ずれば十分と考える。
- W/Re 熱電対の熱接点位置は、上部トラップの内壁面から融体中に 20mm 程度突き出した位置とする。さらに、上部トラップ下面に近い 2 本の熱電対については、測定時間を可能な限り長くするため、黒鉛製のウェル中に納める。

さらに、試験後に上部トラップを解体、融体の痕跡を確認することで液面位置に関する情報を得ることとする。

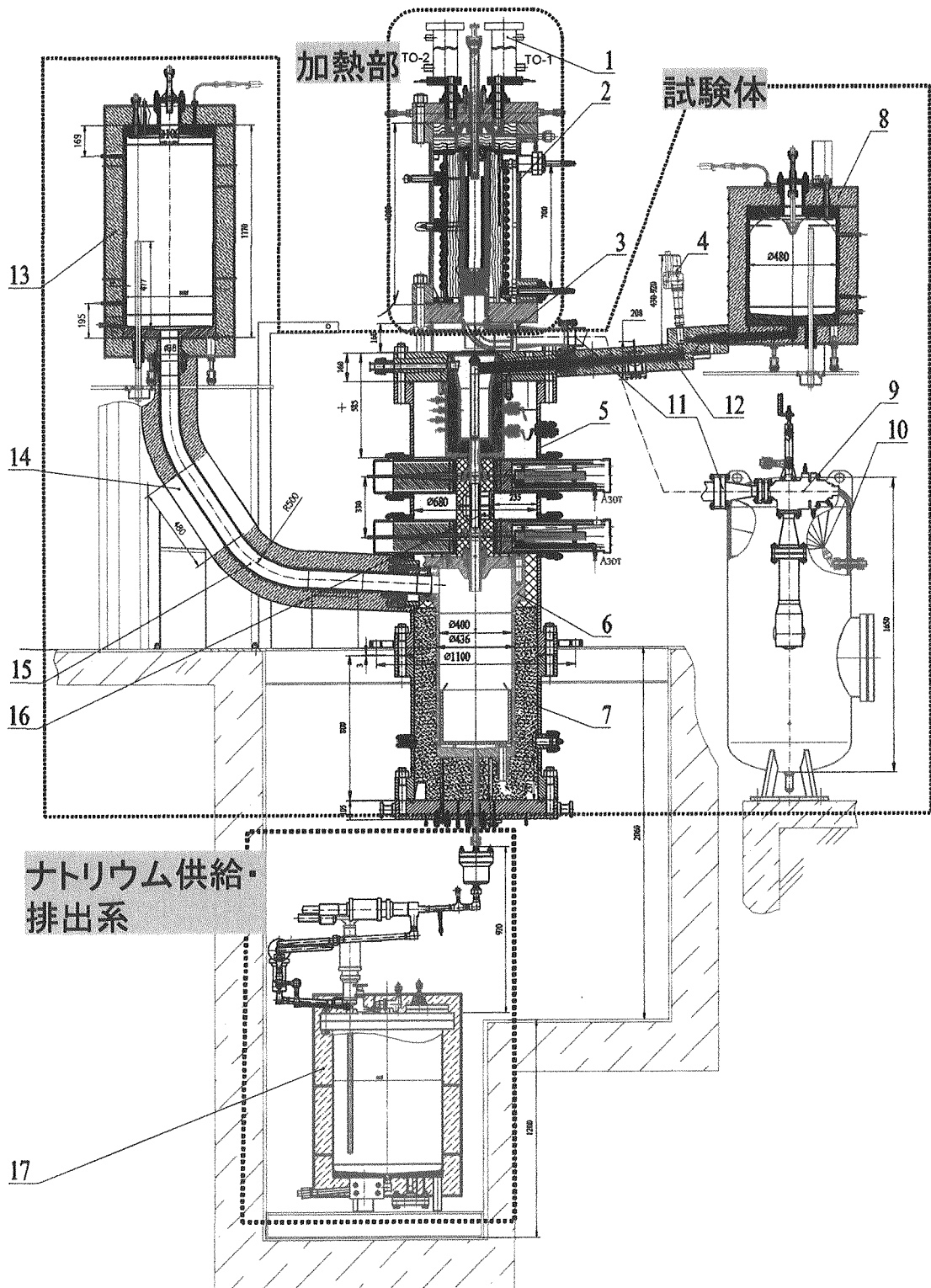
内部ダクトでのナトリウム沸騰開始時刻は、流出ダクトおよび延長ダクトに設置した電磁流量計指示値変動によって検知し、破損時刻はダクトに設置した熱電対応答によって同定する。熱接点位置は内部ダクトの内壁面すなわちナトリウム流路側とし、高さを変えて5点設置することでダクト破損位置に関する情報が得られることを期待する。CA熱電対を3本、W/Re熱電対を2本設置する。

(2) 融体流出挙動に関わる計装

必須の計測項目は、融体の流出終了時刻である。さらに、流出挙動を支配する圧力変化の測定も必須である。付加的情報として、融体の流出流量が得られることが望ましい。融体は、延長ダクトと流出ダクトの内径差により、主として下部トラップへ流出すると予測している。

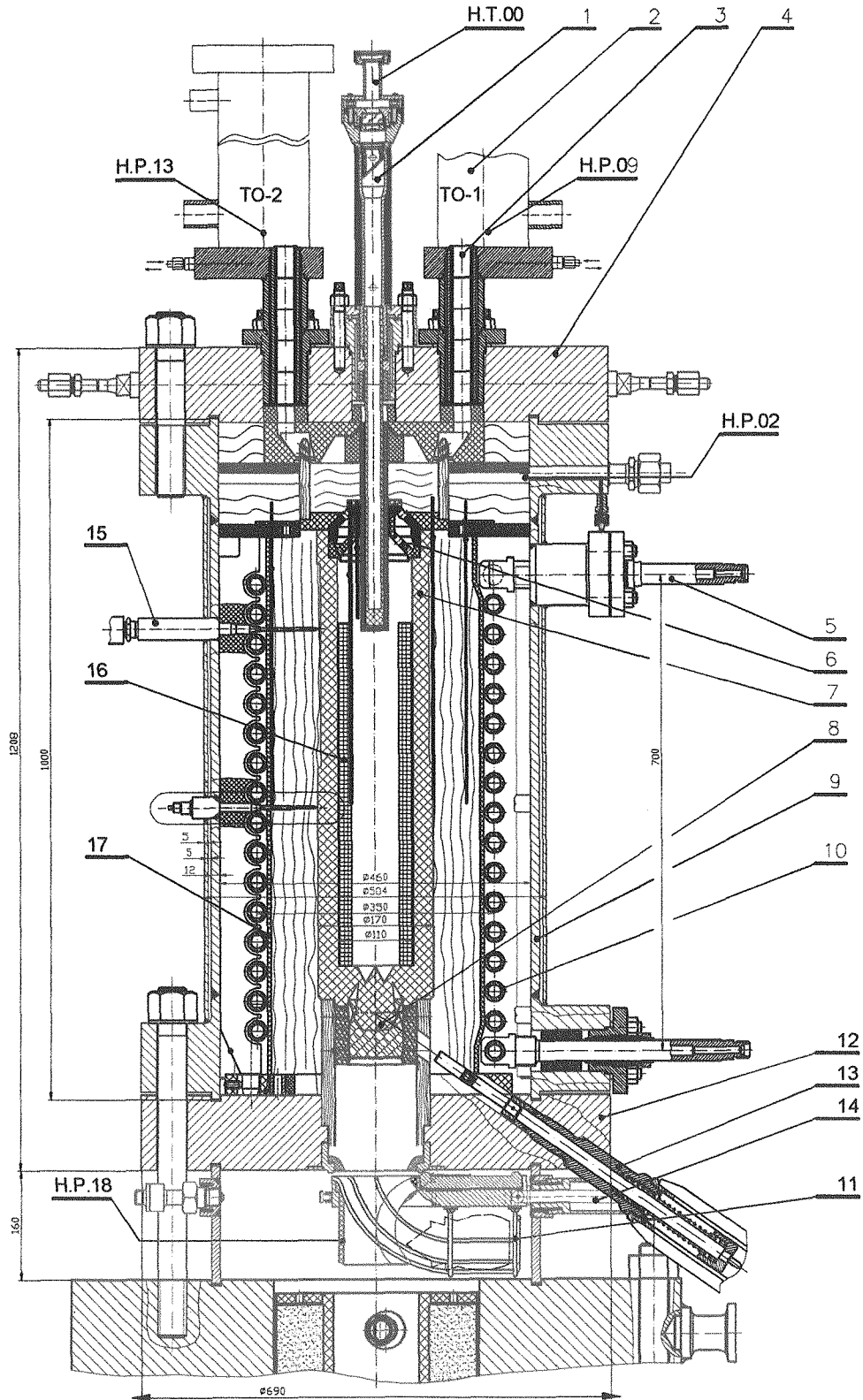
融体流出挙動測定のため、流出ダクトにガンマ線検出器を2箇所設ける。これは、通過する融体によるガンマ線の遮蔽効果を利用したものであり、ガンマ線強度の減衰・回復によって融体通過終了時刻を得ることができる。また、減衰開始時刻差および各減衰率により、融体流量の評価が期待できる。さらに、流出ダクトには熱電対を設置する。軸方向に3点、管断面を融体が均一に流下しない可能性を考慮し、各測定断面あたり4本の計12本設置する。熱接点位置はダクト内表面から流路側へ1mm程度突き出した位置とする。これらの設置によって、ガンマ線検出器では検知できない少量の融体移動を検知する。これは、内部ダクトの初期破損は局部的に生じるため、その時点で流出する融体量が少ないと予測されるためである。さらに、流出ダクトの下部トラップ出口にも2点熱電対を設置することで、下部トラップへの融体流入した時刻を得る。

流出挙動を支配する圧力変化は主に2つの領域で考えられ、双方とも融体とナトリウムとの熱的相互作用によりナトリウムが急速に蒸発・凝縮することで生じる。1つ目は、内部ダクト破損直後に生じ、もう1つは下部トラップへ融体が流入した際に生じる。前者の昇圧挙動は融体流出の駆動圧となり得るため、上部トラップのカバーガス圧変化を測定することは必須である。さらに、ダクト内の昇圧挙動測定も付加的情報として必要になるが、これは延長ダクトに設けたパルス圧力計にて測定する。融体の主たる移動方向が下部トラップであるため、流出ダクトには耐熱性の観点から圧力計を設置できないためである。後者の昇圧挙動は、融体流出を過渡的に抑制するため、その定量化のためには下部トラップの圧力計測は必須である。下部トラップには自由液面が無いため、ナトリウム中に設けたパルス圧力計にて発生圧力を測定する。さらに、下部トラップ内でのナトリウム蒸気の拡大・縮小によって、バッファードクト内にナトリウムの流れが生じると予想されるため、この測定のために電磁流量計をバッファードクトに設ける。



1- heat exchanger; 2- electromagnetic furnace; 3- shutter; 4- valve Dc15; 5- ED upper vessel; 6- lower trap; 7- ED lower vessel; 8- expansion tank; 9- shut off valve; 10- damper tank; 11- damper tank pipeline; 12- expansion tank pipeline; 13- buffer tank; 14- flowmeter Dc100; 15- buffer tank pipeline; 16-discharging duct flowmeter; 17- transporting tank

図 2-1 試験装置全体構成図



1- Channel of infrared sensor; 2- Heat exchanger; 3- Water-cooled channel; 4- Copper lid; 5- Current input; 6- Crucible lid; 7- Crucible; 8- Crucible plug; 9- Vessel; 10- Inductor; 11- Catching of plug; 12- Copper bottom; 13- Plug destruction mechanism; 14- Shutter; 15- Movable thermocouple; 16- Experimental cassette, 17- Heat resistant liner.

图 2-2 高周波誘導加熱炉

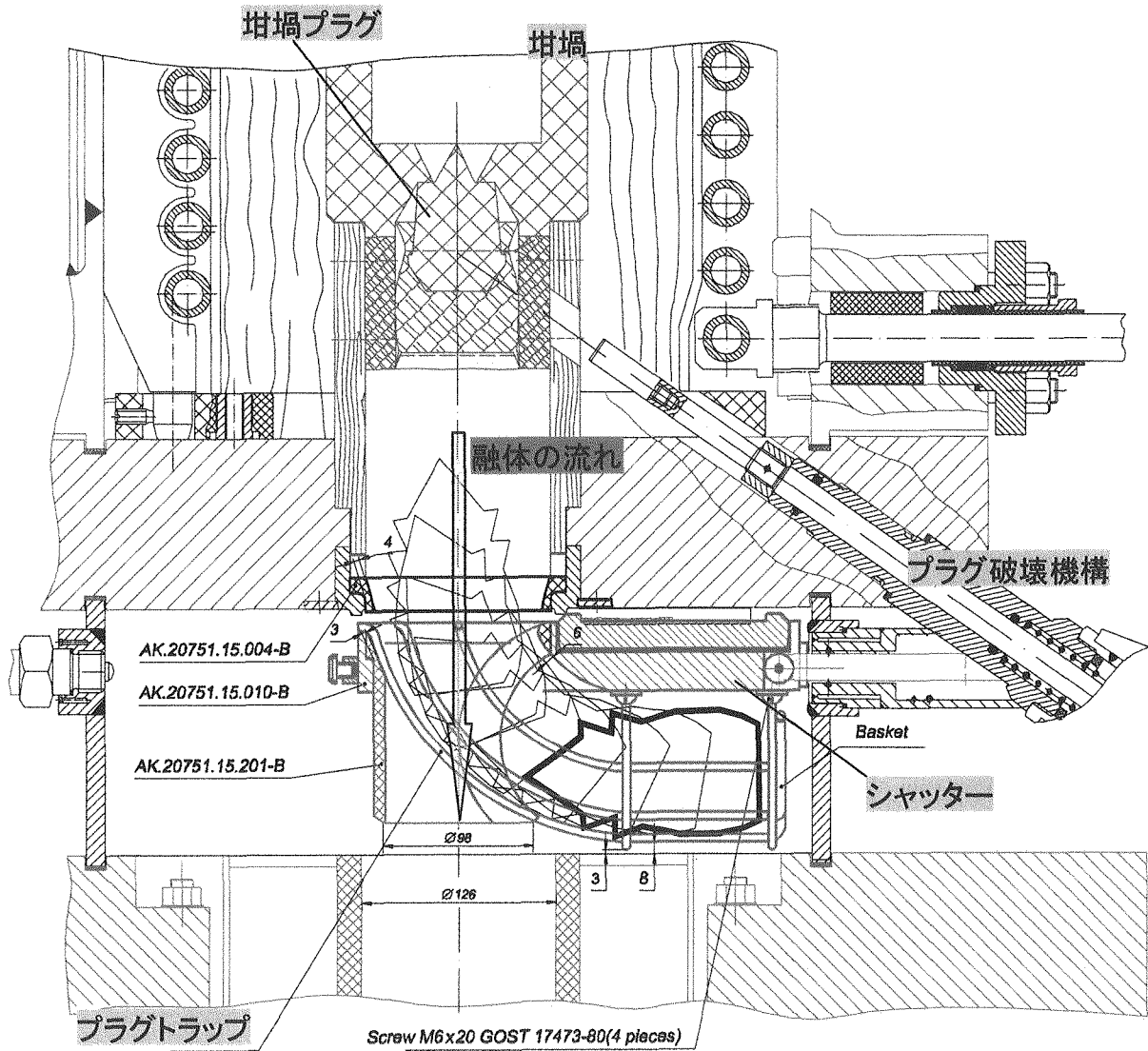


図 2-5 高周波誘導加熱炉下部拡大図

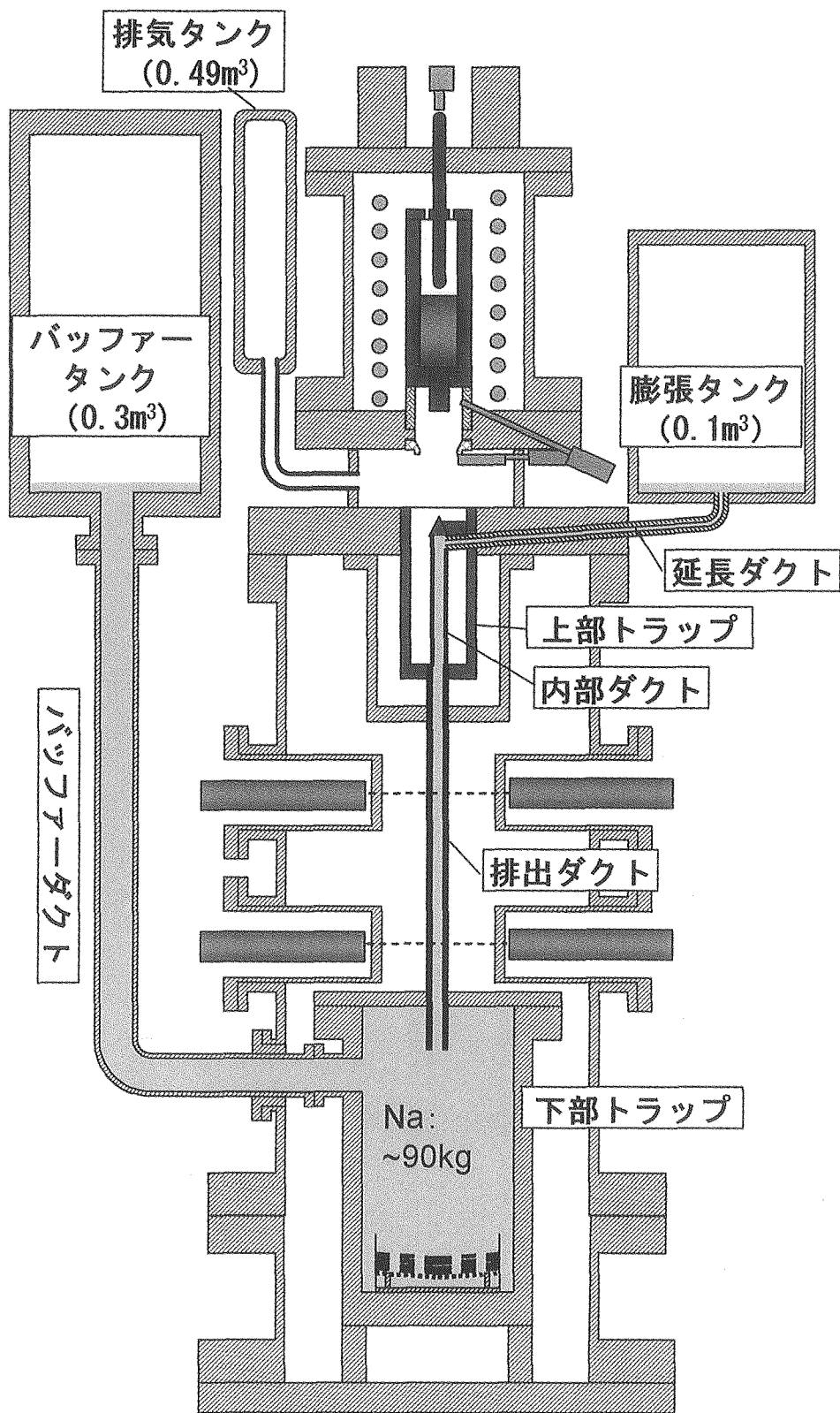
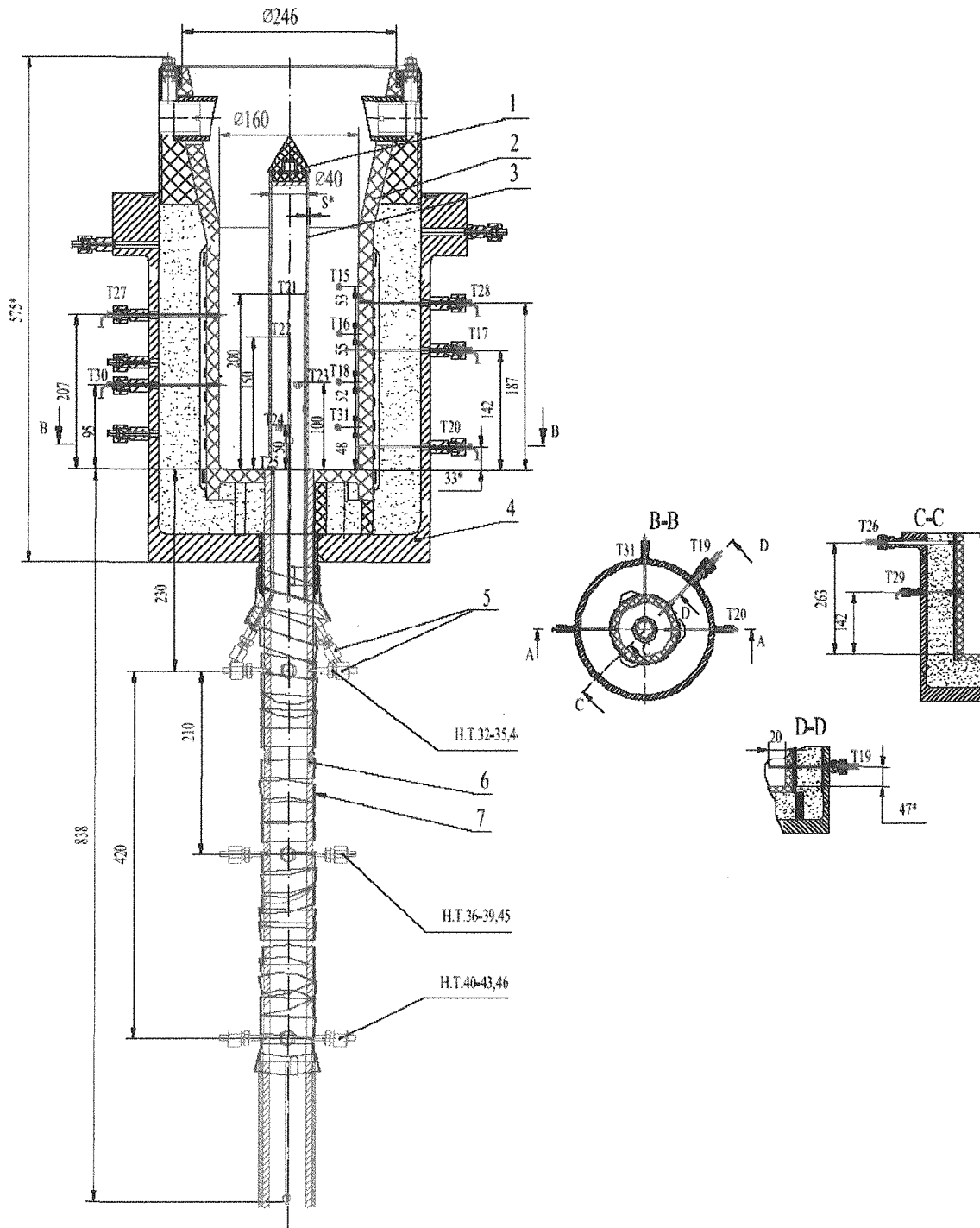
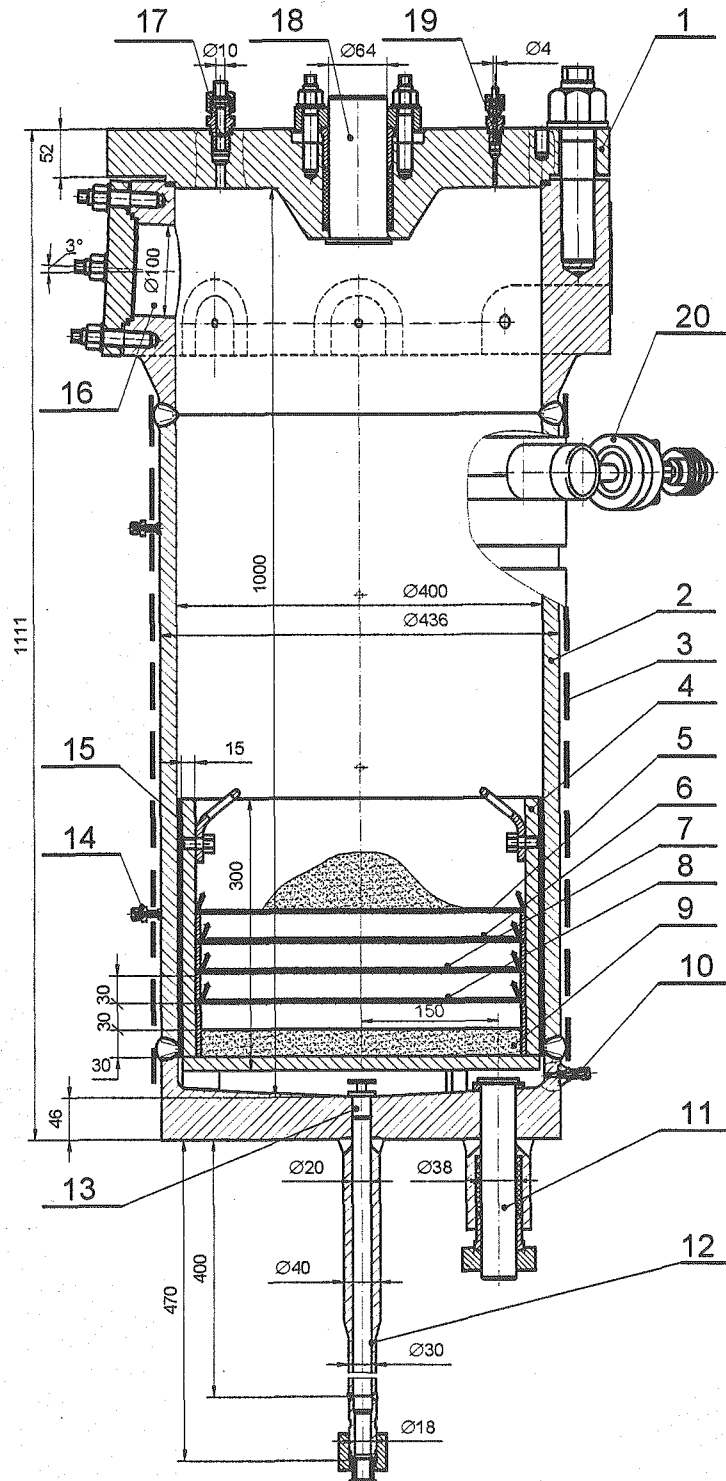


図 2-6 試験装置概略図



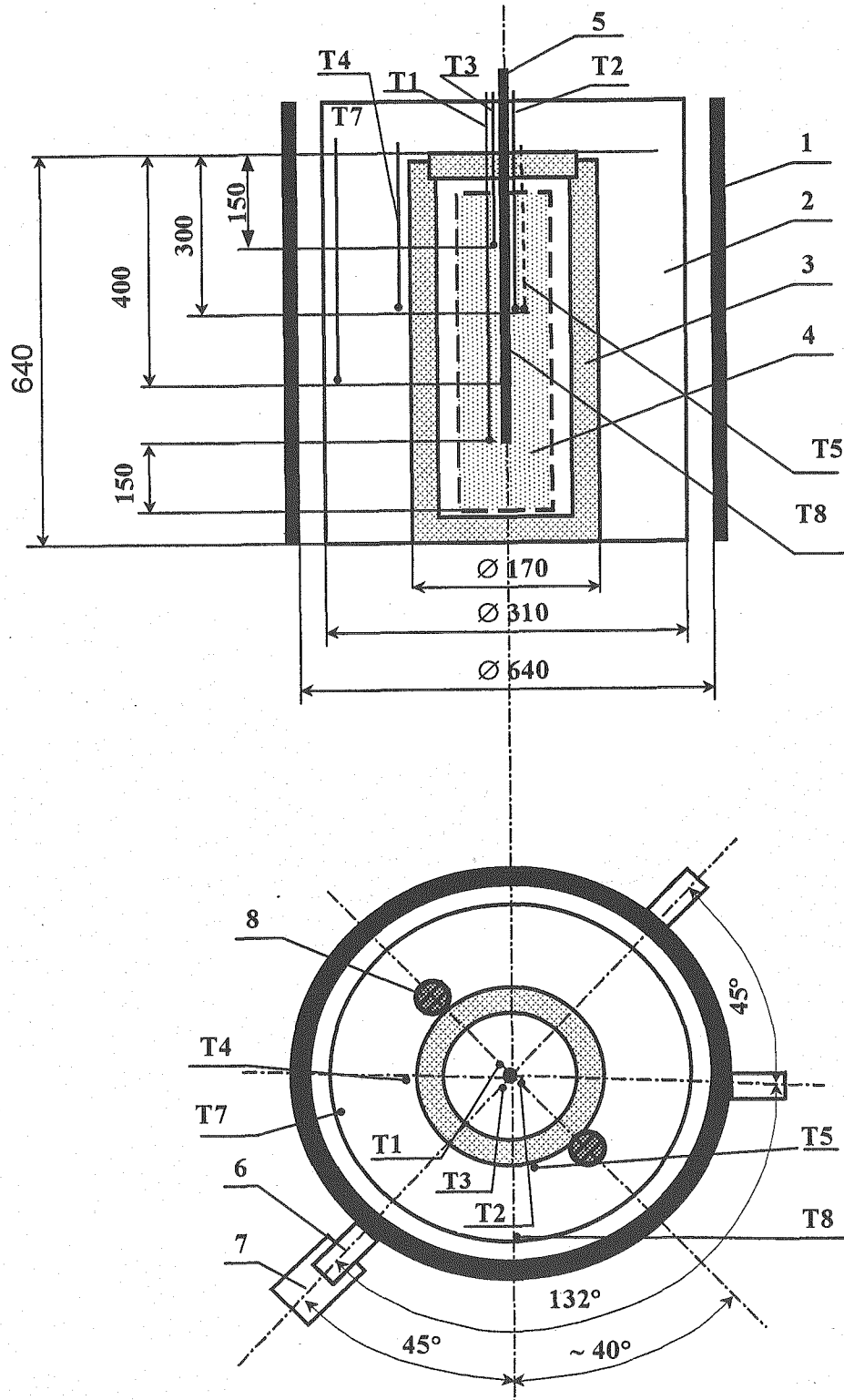
1-Inner duct upper part shielding; 2-Crucible; 3-Inner duct upper part; 4-Trap vessel; 5- Thermocouple installation places; 6-Lower part of the inner duct; 7-Electric heater.

図 2-7 上部トラップ、内部ダクトおよび流出ダクト図



1- lid; 2- vessel; 3- heater; 4- trap; 5- perforated sheet; 6- grid N1; 7- grid N08; 8- grid N05; 9- filling (zirconium oxide); 10- connecting pipe for thermocouple; 11- seal; 12- medium discharge; 13- discharge hole plug; 14- connecting pipe for thermocouple; 15- graphite cloth; 16- window of buffer duct setting; 17- connecting pipe of inert gases supply; 18- seal of the hole for discharge duct; 19- connecting pipe for thermocouple; 20- impulse pressure sensor

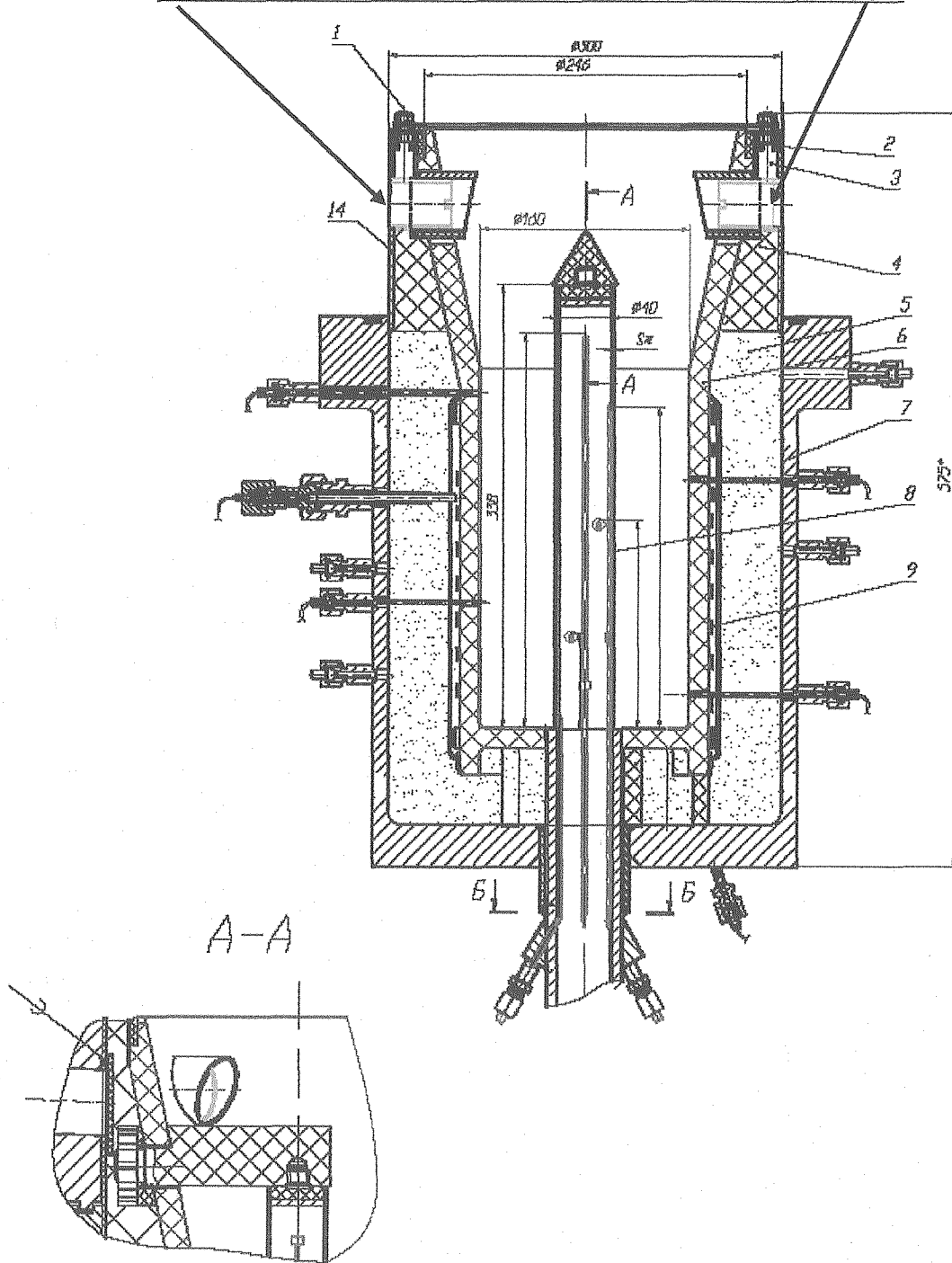
図 2-8 下部トラップ図



- 1- thimble; 2- heat insulation; 3- graphite crucible; 4- cassette;
 5- thermowell; 6- hermetic connector;
 7- crucible plug destruction mechanism; 8- heat exchanger projection.

図 2-9 加熱炉での温度測定点配置例

2色温度計およびビデオカメラ用の観測孔



- 1-flange; 2-asbestos cloth; 3-welded bolt; 4-graphite felt;
- 5-zirconium dioxide powder; 6-crucible; 7-trap vessel;
- 8-upper section of the discharge duct; 9-electric heater

図 2-10 融体移送経路における光学計測位置

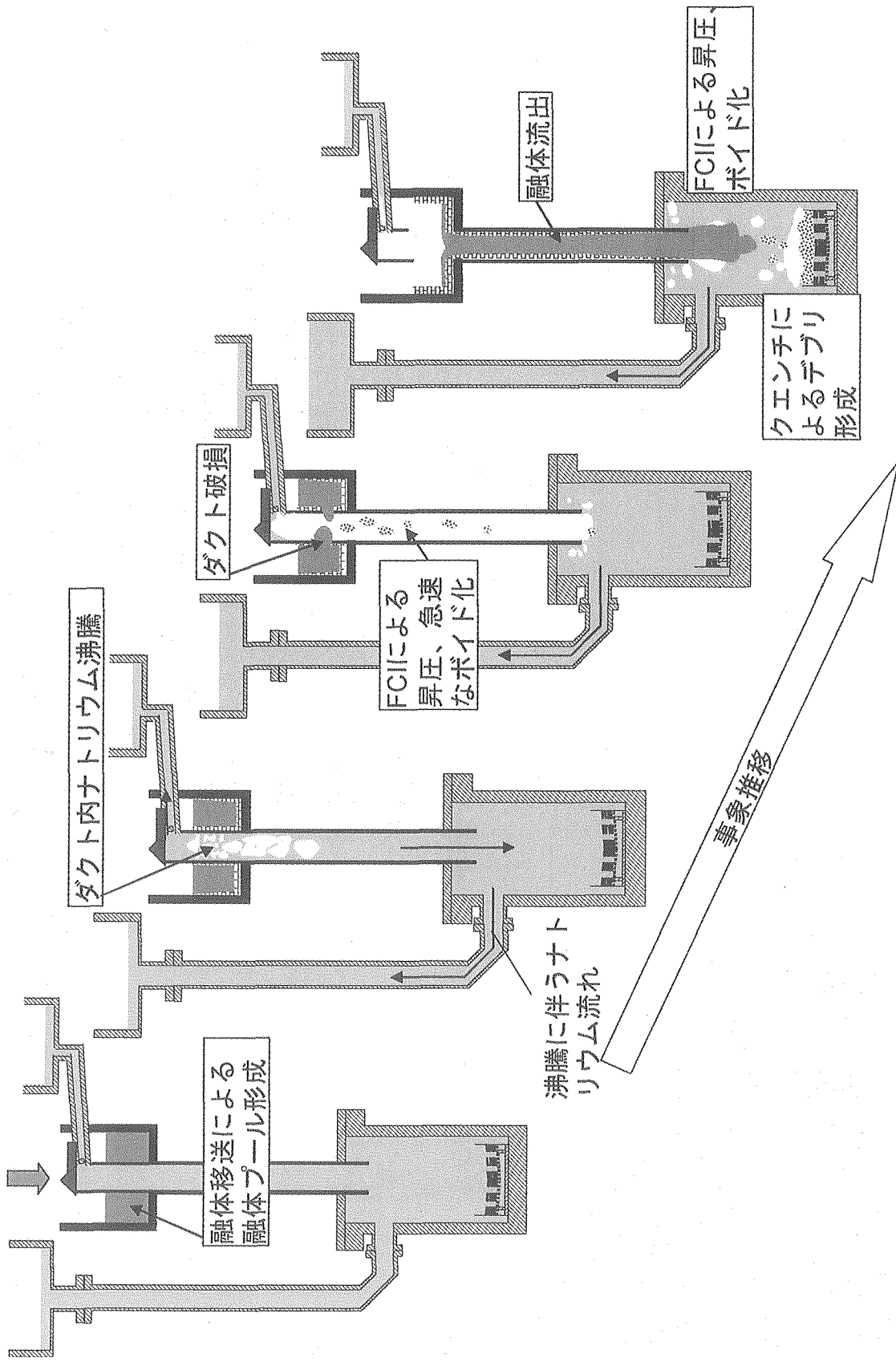


図 2-11 試験での想定現象

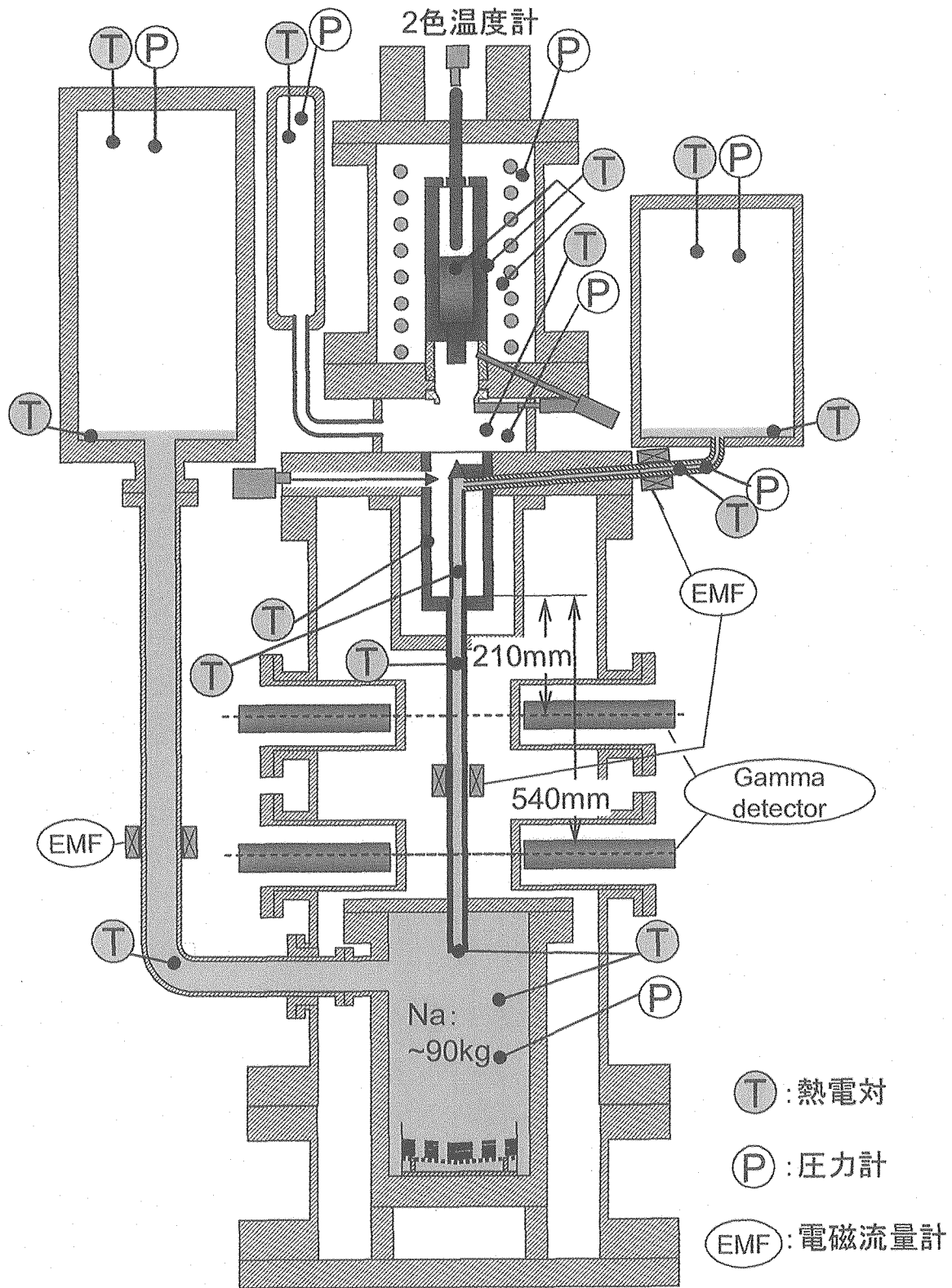


図 2-12 測定機器の配置

3. 試験実施技術の開発および確認

本章では、試験を実施するために必要となる技術開発について記述する。開発あるいは確認が必要な技術は、試料の熔融技術、熔融物質の試験部への移送技術、および、それらの計測技術に大別される。

試料の熔融技術開発の結果を 3.1 に、移送技術開発の結果を 3.2 に述べる。本章にて述べる計測技術の開発は、試料の熔融、試験部への移送を対象とするものであり、3.1 および 3.2 の中にて述べることとする。3.3 には、試験実施技術のまとめを述べる。

3.1. 試料熔融技術の開発

熔融試験の一覧を表 3-1 および表 3-2 に示す。2.1 にて述べた通り、黒鉛製坩堝は酸化物と化学反応を生じるため、反応を抑制しつつ加熱することが求められる。そのため、熔融試料の組成、坩堝の保護方法、加熱方法を変更しながら、大別して 4 つの方法を試行した。

以下、方法毎に試験結果を整理して述べる。

3.1.1. 二酸化ウラン熔融技術の開発－炭化物蒸着による坩堝の保護

(1) 熔融試験の条件

熔融試料に対する加熱方法を図 3-1 に示す。前半の 2 回の加熱をモード A、モード B と称し、坩堝温度をそれぞれ約 700K、1100~1300K に昇温・保持し、加熱炉内雰囲気の真空処理、不活性雰囲気（アルゴンガス雰囲気）への置換、装置関連設備・系統の健全性確認を行なう。モード B 終了後、電源での最大電力 150kW で加熱し試料を溶解、120kW 程度に電力を低下させて熔融状態を保持する。これをモード C と称する。最大電力で加熱を行なう理由は加熱時間を可能な限り短縮することであり、保護膜の効果が不十分であっても C・UO₂ 反応時間を最小化することによって融体の炭化を可能な限り減少させるという考え方に立つ。

(2) 熔融試験の結果および考察

(a) 加熱性能および計測について

まず、坩堝および熔融試料の重量、比熱、熔融潜熱により、室温から 3300K まで昇温するのに必要となる投入熱量を求める。黒鉛、二酸化ウラン、二酸化ジルコニウム、スチールの比エンタルピー変化を図 3-2 に従うとして評価すると、約 140MJ となる。黒鉛製坩堝の重量は約 15kg、熔融試料の組成および重量は表 3-1 に示した通りである。坩堝断熱材 2.5kg は坩堝の一部と見なして必要投入熱量に加算した。熔融試料の昇温に必要な熱量は約 45MJ 程度で、約 95MJ は坩堝と断熱材の昇温に消費される。

次に、加熱炉の性能を評価するため、試験で実際に投入された熱量が試料の熔融に十分であったかを確認する。誘導加熱によって発熱するのは黒鉛製の坩堝で、その熱が坩

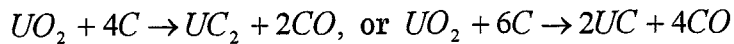
坩堝の内外部に伝達される。すなわち、坩堝内部の溶融試料が昇温されると同時に、坩堝外周部への放熱が生じる。誘導加熱によって発生する熱量は、電源電力（印加電圧、電流、位相差（0.95~0.96）の積）から回路損失（13~15%）を差し引くことで評価することができる。放熱量は、加熱コイル、加熱炉の胴部、蓋および底面フランジの冷却材温度変化に流量と比熱を乗じることで評価することができる。ここで、加熱炉等の構造自体の温度も上昇するが、その上昇幅は数度であるため熱量換算では1MJ未満となるので、評価上除外しても差し支えない。放熱量については、加熱コイルおよび加熱炉胴部についてのみ評価を行なった。これは、加熱炉蓋および底面フランジの温度変化幅に比べ誘導加熱に伴うノイズが大きく、測定データを評価に用いることが不適切なためである。なお、この温度測定系を改良した後続の試験にて、蓋および底面を通じた放熱が加熱コイルを通じた放熱の10%未満であることを確認したので、放熱量から除外しても本論には支障無い。試験での電源電力量、積算電力量の実測値、および、冷却材流量・温度差を基に評価した熱損失量を図3-3に示す。積算電力量約340MJから回路損失を14%として差し引くと、誘導加熱による発熱量は約290MJとなる。熱損失量は約120MJであることから、坩堝および溶融試料の加熱に投入された熱量は約170MJとなる。以上より、図3-1に示した加熱方法にて溶融試料に十分な熱量を供給できたと判断することができる。

誘導加熱時の加熱炉内の温度変化を、印加電力および積算電力と共に図3-4に示す。坩堝外表面を測定する熱電対は2000℃程度までであり、坩堝内部温度は赤外線温度計（HTC01）の指示値にて把握する。加熱終了時点で坩堝内部温度は約3000℃になっていたことが分かる。6700秒から7000秒にかけての温度低下は、融体の溶融遷移に加え、後述する坩堝と二酸化ウランの化学反応が生じたためと推定される。この反応は吸熱反応であるため、熱エネルギーが消費される。このことは、6000秒以降に見られる断熱材外周部温度（HT07）低下に現れていると考えられる。

(b) 黒鉛製坩堝の侵食について

坩堝侵食の定量的な把握は、試験後に装置を解体、坩堝を縦に切断した試料を作成して行なう。試験後の黒鉛坩堝の縦断面写真例を図3-5に示す。全ての試験において坩堝の侵食が見られ、炭化物の保護膜は試験後には確認できない。

坩堝の侵食発生の有無については、上記の加熱履歴以外に、加熱炉内部のガス成分分析データによって加熱中に把握することができる。ガス分析結果を図3-6に示す。これは、加熱モードC（試料の溶融過程）において加熱炉雰囲気から採取されたガスである。加熱開始前には存在しない一酸化炭素が確認できる。一酸化炭素は、以下の反応によって生じたものと推定できる。



坩堝の侵食量と試験条件との関係を調査する。断面写真によって侵食量を見積もり、黒鉛の密度 1790 (kg/m³) を乗じて侵食重量を求めた。横軸に試験での投入積算エネルギーをとって整理したものを図 3-7 に示す。図中のプロットの形状は、坩堝に装荷した試料成分の違いを意味している。菱形がスチールを含んだ試験、四角が二酸化ウランのみの試験である。積算エネルギーが高くなるほど侵食重量が増加する傾向にあり、試料成分の差すなわちスチールの影響は見られない。侵食黒鉛重量と化学反応式により、反応した二酸化ウラン重量を評価することができる。二酸化ウランへの反応のみと仮定すると、加熱を途中で停止した UTD-3 試験を除き、反応した二酸化ウランの割合は 80% を超えることになる。すなわち、炭化物が主成分となる融体が生成された可能性が高いと考えられ、これは、後述の X 線分析結果に整合する。

炭化物はスチールへ溶解する特性があるが^[27]、以上の結果から、スチールの有無に関係無く、炭化物の保護膜では坩堝と二酸化ウランの反応を防止することはできないと結論できる。最も確からしい原因として、炭化物の融点降下が考えられる。保護膜の基材となっている NbC は、約 3420K を超えると炭化数が増加し、融点が約 3800K から降下する^[27]。誘導加熱の特性により、坩堝温度は溶融試料の目標温度 3300K よりも高くする必要があり、かつ、軸方向に発熱分布が生じるため最大発熱部温度は 3300K より数 100K 以上高くなっていると推定できることから、融点降下によって保護膜の健全性が損なわれた可能性が考えられる。

(c) 再固化試料の組成について

坩堝で溶融させた試料は、試験後に冷却・固化後させて回収し（再固化試料）X 線分析等を行なう。図 3-8 および図 3-9 は、再固化試料の典型的な X 線回折結果である。二酸化ウランの最大強度線は $2\theta = 28.2^\circ$ であるが、両者とも最大強度線となっていない。図 3-9 では二酸化ウランの最大強度線である 29.3° が現れており、二酸化ウランが炭化ウランに変化したことが分かる。一方、図 3-8 に示した試験では、溶融試料にスチールが含まれることから、鉄元素を含む炭化物となっていることは分かるが、具体的な化学式は同定できない。何れにしても、強度線の減少により、主成分は二酸化ウラン以外の物質であると判断できる。

この判断を確認するため、室温にて固化物質の電気抵抗率を測定した。測定値は全て $1 \times 10^{-2} \sim 10^{-5} [\Omega \cdot cm]$ 程度であり、二酸化ウランの $1 \times 10^3 \sim 10^5 [\Omega \cdot cm]$ に比べ $1/10^5$ 以下となっている。これは、電気伝導特性が自由電子移動によることを示している。酸化物の電気伝導は格子の振動によるものである。電気伝導特性が自由電子移動支配の場合、熱伝導も自由電子によって生ずることになり、酸化物に比べて良好な熱伝導特性を有す

ることになる。すなわち、熔融過程において二酸化ウランから二炭化ウラン等の組成を有する物質に変化しており、熱物性も酸化物から炭化物の特性に変化したものと判断できる。

3.1.2. 二酸化ウラン熔融技術の開発—ジルコニウム混合による坩堝の保護

(1) 熔融試験の条件

ジルコニウム (Zr) の混入目的は、坩堝との C-Zr 反応により保護膜 ZrC を形成し、同時に $UO_2 \cdot Zr$ 反応によって (U, Zr) Ox を生成することで坩堝の炭素と二酸化ウランとの反応を防止することである。この方法は、小型坩堝を用いた小規模試験によって経験的に効果が確認されたため、炉外試験計画で試行することとした。小規模試験の概要について、付録 1 に記す。小規模試験結果を踏まえ、Zr の混合量および配置を定めた。坩堝へ挿入するための熔融試料カセットを図 3-10 に示す。二酸化ウランを円環状に積み上げるため、Zr 板にて内筒を形成する。さらに、C-Zr 反応による保護膜 ZrC の形成促進を意図し、二酸化ウランの外周部に Zr 板を配置する。

Zr 混合試験は、3 試験実施した。最初の 1 試験実施後、加熱方法を試験毎に見直した。これは、坩堝の軸方向発熱分布が不均一であることが坩堝侵食の原因の 1 つになっていると考えたからである。すなわち、最大出力で坩堝を加熱して試料熔融を行なった場合、最大発熱領域では過加熱状態となり、保護膜の健全性が損なわれると考えた。よって、加熱モード C について図 3-11 に示す変更を行った。電力 40kW 程度で 2400K 程度まで緩やかに加熱することで、軸方向温度の均一化を図った。さらには、図 3-12 に示すように、2400K 程度で一旦保持して坩堝軸方向温度の均一化を図った上、試料の溶解を 100kW 程度の電力で行い、坩堝の過加熱を防止する加熱方法も試みた。

(2) 熔融試験の結果および考察

(a) 加熱性能および計測について

3.1.1 と同様に、試験にて加熱対象物に投入された実効熱量を評価し、図 3-13 に示す。図 3-12 に示した加熱方法の変更により、加熱時間が最も長くなる UTD-M3 試験について評価した。積算電力量約 320MJ から回路損失を 14%として差し引くと、誘導加熱による発熱量は約 270MJ となる。熱損失量は約 110MJ であることから、坩堝および熔融試料の加熱に投入された熱量は約 160MJ となる。二酸化ウラン約 22kg、ジルコニウム約 4kg を 3300K まで昇温するための必要投入熱量は約 130MJ であるから、試料熔融に十分な熱量を供給できたと判断できる。

加熱炉の昇温履歴を図 3-14 に示す。図 3-4 に示した測定結果に比べ、計測点を増加させた。これは、坩堝軸方向の温度分布を定量的に把握するためである。低出力で温度の均一化を図った 4000 秒時点で、計測点 HT01 と HT03 の温度差は 330℃となっており、

坩堝上部の温度がより低温になることが分かる。この差は加熱を開始すると増加する傾向にあり、5500 秒時点で約 430°C の温度差となる。6500 秒では、HT01 とほぼ同位置を測定している赤外線温度計との比較にて、約 740°C の温度差となる。赤外線温度計測用のサーモウエルは、先端位置が融体中になるよう坩堝底面から 150mm の位置に変更した。3.1.1 と同様に、溶融遷移が発生する時刻に温度の低下が見られる。加熱終了時点での坩堝内部温度は、約 3000°C となっている。

(b) 黒鉛製坩堝の侵食について

試験後の黒鉛坩堝の縦断面写真例を図 3-15 に示す。Zr を混合させた全ての試験にて坩堝の侵食が見られる。加熱モード C (試料の溶融過程) における加熱炉内のガス分析結果を図 3-16 に示す。図 3-6 同様に一酸化炭素の生成が認められ、坩堝の侵食は 3.1.1 と同じ化学反応によるものと推定できる。

3.1.1 と同じ手法にて坩堝侵食重量を評価し、図 3-7 に追加したものを図 3-17 に示す。丸がジルコニウムを含んだ試験である。UTD-M1 試験結果と比較すると、UTD-M2 および M3 試験では坩堝の侵食重量が減じられていると言える。したがって、坩堝侵食の低減には Zr の効果というよりむしろ加熱方法の改善の方が効果的と考えられる。UTD-M2 試験では温度の均一化を図るモードが追加され、UTD-M3 試験ではさらに低出力での溶解を行なっている。つまり、高電力で短時間に溶解を図るよりも、低電力にて加熱するほうが化学反応抑制の観点からは効果的であると解釈することができる。

(c) 再固化試料の組成について

図 3-18 に、UTD-M1 試験で得られた再固化試料の X 線回折例を示す。二酸化ウランの最大強度線 $2\theta = 28.2^\circ$ が減少し、二酸化ウランの最大強度線である 29.3° が現れていることが分かる。つまり、3.1.1 にて述べた試験同様に二酸化ウランは炭化しており、Zr の混合による融体組成の改善が見られないことを示している。

次に、UTD-M2 試験試料の X 線回折結果について述べる。試験では、坩堝で生成した融体の一部しか上部トラップに移送できなかった。そこで、X 線回折を行なう再固化物については、上部トラップと坩堝の双方から採取した。結果を図 3-19 に示す。上部トラップから得られた固化物では二酸化ウランの最大強度線が消え、炭化物の主線のみが見える。一方、坩堝の試料は二酸化ウランのピークが確認でき、組成変化がほとんど生じていないことが確認できる。

最後に、UTD-M3 試験結果について述べる。この試験では、試験部へ融体移送できなかった。理由は、加熱中に坩堝底面から融体が漏洩してプラグ周りに付着、プラグが固着したためである。この試験においても、酸化物融体の生成が確認できた。化学組成は $U_{0.9}Zr_{0.1}O_2 + UO_2$ であるが、図 3-20 に示すようにその含有量は不均一であった。

以上のように、加熱電力を下げるほど酸化物の含有量は多くなっており、坩堝の侵食傾向と整合する。ただし、流体としての連続相が二酸化ウランにて形成されるとは言い難い状態であり、融体組成も不均一である。

3.1.3. 二酸化ウラン溶融技術の開発ータングステンによる坩堝の保護

二酸化ウランとの共存性が確認されているタングステン筒を坩堝の中に挿入し、黒鉛坩堝の保護を試みた。タングステンの融点は 3680K で融点 3120K の二酸化ウランを溶解させるには十分な高融点物質であり、二酸化ウランの溶解用の坩堝材として一般的に使用されている。しかし、タングステンを炭素と共存させて使用できるかは不明である。理由は、炭素と反応することで炭化物を形成し、融点が 3100K 程度へ降下するためである^[27]。よって、二酸化ウランの溶解を達成するにはタングステンの炭化も防止しなければならない。そのため、黒鉛坩堝とタングステン内筒の間に、タンタルを挿入した。配置を図 3-21 に示す。タンタルの融点は 3253K であり、二酸化ウランの溶解温度に対して裕度が低いが、炭化することで融点が 4100K 程度へ上昇する性質がある。すなわち、黒鉛に接触するのはタンタルのみとし、炭化によって融点を上昇させつつタングステンへの浸炭を防止し、二酸化ウランの溶解を達成する試みを行なった。

一方、試験実施のためには、溶融させた融体を坩堝底面から排出させなければならない。そのため、タングステン内筒の底面には図 3-21(b)で示す融体排出用の孔を設ける。よって、底面での坩堝と二酸化ウランの反応を防止できない。そのため、反応を抑制する観点から、加熱時間を制限する必要がある。

(1) 溶融試験の条件

2つの試験を実施した。試験番号は UTD-M4、UTD-M5 で、加熱方法のみを変更して実施した。溶解モードの出力は、3.1.2 の結果により低い方が望ましいことは明らかであるが、底面の反応の観点から溶解時間は短くする必要があり、両者は相反する条件設定となる。最適な出力を調査するため、UTD-M4 試験での加熱履歴は、図 3-22 に示すように加熱電力を 120kW に設定した。一方、UTD-M5 試験では、図 3-23 に示すように溶解モード電力を 80kW とし、溶解時間を UTD-M4 試験の 2 倍に延長した。

(2) 溶融試験の結果および考察

(a) 加熱性能について

加熱時間が最も長くなる UTD-M5 試験について実効熱量を評価し、図 3-24 に示す。積算電力量約 420MJ から回路損失を 14%として差し引くと、誘導加熱による発熱量は約 360MJ となる。熱損失量は約 170MJ であることから、坩堝および溶融試料の加熱に投入された熱量は約 190MJ となる。一方、溶融試料約 23kg、タングステン内筒約 6kg、

タンタルライナー約 2kg および坩堝約 13kg を 3300K まで昇温するために必要となる投入熱量は約 120MJ であるから、試料溶融に十分な熱量を供給できたと判断できる。なお、5000 秒および 6000 秒近傍での加熱停止は、故障した計測機器の修理を行なうためのものであり、試験前の加熱計画には見込まれていない。しかし、上述の熱収支により、これらの加熱停止は試料の加熱に対して影響を与えていないことが確認できる。

加熱炉の昇温履歴を図 3-25 に示す。赤外線温度計は、測定回路の不具合によって 8000 秒以降のみの表示となる。温度測定点として、坩堝上部の壁面温度 (HT06) が追加された。測定結果として信頼をおけるのは約 4500 秒までで、60kW 程度の電力投入でも 500°C 程度の温度差が坩堝軸方向に発生することが分かる。坩堝内挿熱電対の値も同様に、上部に配置されている熱電対の指示値が低く、5000 秒の時点で約 400°C の温度差が生じている。加熱終了時点での坩堝内部温度は、約 2800°C となっている。

なお、UTD-M4、M5 試験共に、プラグ破壊には成功したものの融体は試験部へは移送されずに、大部分が坩堝内に留まる結果となった。投入された実効的な熱量は十分であることから、坩堝と二酸化ウランの化学反応が原因と考えられる。この反応は吸熱反応であるため、坩堝に与えた熱エネルギーが化学反応に消費されたことで融体の温度が十分に上昇せず、上部トラップへ移送できる十分な流動性を得ることが出来なかったと考えられる。

(b) 黒鉛製坩堝の侵食について

UTD-M4 試験後に解体された坩堝を図 3-26 に示す。図 3-26(a) は坩堝を上部から覗き込んだ写真で、黄金色の物質は炭化タンタルである。図 3-26(b) は坩堝下部の縦断面写真である。炭化タンタルは認められず、タングステンも消失しており、坩堝の侵食が生じていることが分かる。坩堝侵食およびタンタルとタングステンの分布概略を図 3-26(c) に示す。タングステンが溶融し沈降していることがわかる。タングステンの融点は 3680K であり、誘導加熱の対象が黒鉛製の坩堝であることを考えると、タングステンは融点に達したのではなく、炭化によって融点が降下して溶解、沈降したと考える方が合理的である。これは、タンタル層の健全性が損なわれたことを意味する。理由としては、坩堝下部の加熱速度が速く、TaC 形成前にタンタル融点 (2980°C) に到達し、タンタルが移動したと推定される。すなわち、底面での反応時間を可能な限り短縮するために加熱速度を増加させた場合、坩堝側面のタンタル・タングステン層の健全性が保たれず、結果として坩堝と二酸化ウランの反応が生じることになる。

次に、UTD-M5 試験後に解体された坩堝を図 3-27 に示す。タングステンについては、UTD-M4 試験に比べより健全な形状で存在することが確認できる。しかし、坩堝の発熱分布や残存状況を考慮すると、このタングステンは発熱の低い上部に存在していたもので、下部の消失によって下方へ沈降してきたと推定される。さらに、図 3-27(b) にて明確

に確認できるが、左側面に貫通孔が存在する。さらに、底面の侵食も UTD-M4 試験に比べて増加しており、予定したプラグ破壊時刻の 90 秒前に、融体が坩堝底面から漏洩した。すなわち、坩堝上部のタングステン内筒の健全性に対しては加熱電力低減効果が認められたが、試験後の坩堝侵食量に対しては加熱電力の低減が不十分であり、加熱時間の延長によって坩堝の侵食がむしろ増加する結果となっている。対策としては、加熱電力をさらに低減させることになるが、底面侵食を考えると加熱時間をこれ以上増加させることは好ましくない。

(c) 再固化試料の組成について

UTD-M4、M5 試験の固化物の成分、化学組成ほぼ同じ傾向を示す。UTD-M5 試験で得られた固化融体の縦断面について、X 線蛍光分析によって元素分布を測定した結果を図 3-28 に示す。タンタルおよびタングステンが融体中に混入していたことがわかる。固化物の X 線回折の結果を図 3-29 に示す。固化物は、暗灰色と明灰色に大別され、暗灰色の固化物は回折線の特徴から二酸化ウランが主成分であることが分かる。一方、明灰色の固化物は、二酸化ウランの回折線強度が減少し、代わりにタングステン-ウラン炭化物の回折線強度が増加している。これは、融体主成分が炭化物であったことを意味し、坩堝が侵食された事実と整合する。

以上から、タングステン内筒を用いた場合においても、二酸化ウランが主成分となる融体を得られていないと判断することができる。

3.1.4. 模擬物質の溶解技術

二酸化ウラン溶解技術開発と並行して、低融点酸化物の溶解技術確立を試みた。これは、黒鉛坩堝を用いた溶解技術では根本的に二酸化ウラン溶解が困難な場合を想定し、代替物質を確保する必要があると考えたためである。一般的に、化学反応は温度低下と共に穏やかになる性質があるため、融点の低い物質であれば誘導加熱装置を改修せずに溶融が可能と考えた。

模擬物質としてアルミナ (Al_2O_3) を選定した。選定理由は以下の 3 つである。

- アルミナの融点は 2324K で二酸化ウランよりも 800K 程度低く、化学反応の抑制が期待できる。
- 固相、液相の物性値が把握されている。
- 詳細な評価結果は付録 2 にて述べるが、アルミナは二酸化ウランに比べて比熱、溶融潜熱および熱伝導度が大きいいため、ダクト破損挙動は同等になると評価された。また、流出ダクト内の冷却材ボイド拡大を見る上で十分な熱量を有し、下部トラップで想定される冷却材との熱的相互作用についても、二酸化ウランと同様の特性を示すと評価された。

(1) 溶融試験の条件

坩堝へのアルミナの装荷形態を図 3-30 に示す。予備的な 2 試験 (UTD-M2a、M2b) の実施を経て、アルミナの充填量を可能な限り多くするため、アルミナの焼結体を製作した上で坩堝に装荷することを選択した。これは、室温におけるアルミナの密度は二酸化ウラン密度の約 40% である上、坩堝内容積は加熱炉の構成が制約となってほとんど増加させることが出来ないためである。試験目的からは 10kg 程度のアルミナ融体が必要であるが、焼結体を用いることで装荷重量は 14kg になり、十分な量が確保できる。アルミナと黒鉛坩堝との反応を防止するため、坩堝内表面はタンタルで保護した。

溶融試料に対する加熱方法は図 3-31 に示すように、二酸化ウランの溶解と同様にモード A、B の加熱を行ない、加熱炉内雰囲気の真空処理、不活性雰囲気 (アルゴンガス雰囲気) への置換、装置関連設備・システムの健全性確認を行なう。モード C の電力は 90kW 程度とし、加熱目標温度は 2700K とした。

(2) 溶融試験の結果および考察

(a) 加熱性能について

UTD-M2c 試験について実効熱量を評価し、図 3-32 に示す。積算電力量約 230MJ から回路損失を 14% として差し引くと、誘導加熱による発熱量は約 200MJ となる。熱損失量は約 60MJ であることから、坩堝および溶融試料の加熱に投入された熱量は約 140MJ となる。一方、溶融試料約 14kg、タンタルライナー約 2kg および坩堝約 13kg を 2700K まで昇温するために必要となる投入熱量は約 120MJ であるから、試料溶融に十分な熱量を供給できたと判断できる。なお、アルミナは図 3-33 に示されるように、二酸化ウランに比べて比熱、溶融潜熱が大きい。従って、120MJ の約 50% はアルミナの昇温に必要となり、二酸化ウランの場合と熱量分配が異なる。

加熱炉の昇温履歴を図 3-34 に示す。二酸化ウランのケースと同様に、坩堝軸方向の温度分布が見られる。赤外線温度計により、坩堝下部のアルミナは約 5000 秒の時点で溶融開始したことが示されているが、坩堝上部の熱電対 (HT03) の指示値は 1100°C 程度であり、約 1000°C の温度差が発生している。この測定結果は、坩堝上部に配置されたアルミナが溶け残ったことに整合する。なお、赤外線温度計であるが、溶融遷移の指示値が約 2050°C を示しており、これはアルミナの理論融点 2051°C とほぼ一致する。加熱停止前の指示値の急激な減少は、サーモウエルの破損に伴って光学系のシャッターが保護回路によって閉じられたためである。サーモウエルの破損原因は再利用によるものであり、試験毎に交換することで破損を防止できるため、これは本質的な問題ではない。

(b) 黒鉛製坩堝の侵食について

試験後の坩堝内表面を図 3-35 に示す。二酸化ウラン試験で見られたような侵食は生じ

ていない。

(c) 再固化試料の組成について

試験体各所から採取した再固化物について X 線回折を行ない、回折線強度に基づいて各化学組成の割合を算出した。典型的な結果を図 3-36 に示す。溶融坩堝にて生成、試験部へ移送された融体は、アルミナが 90%以上を占めていることが確認できる。電気抵抗率も全てのサンプルで $1 \times 10^4 [\Omega \cdot cm]$ 以上となっており、酸化物の特性を示している。つまり、アルミナ熱物性値を用いた評価を行なって問題ないことを示している。アルミナの溶解においては坩堝との化学反応が問題とならないことを確認できた。

3.2. 移送技術の開発

2.1 にて説明したように、融体を所定の温度に加熱した後、坩堝下面に設けたプラグを破壊することで孔を設け、試験体へ移送する。内部ダクトの溶融破損予想時刻より、この移送は 2 秒以内に完了させる必要がある。

まずは、この融体移送時間の測定結果について説明する。時間測定は 2.3.2 にて述べたように、熱電対、圧力計、可視像および二色温度計にて行なう。測定例を図 3-37 に示す。可視像は、プラグ破壊時刻の 0 秒から 0.28 秒までを表示してある。輝度の変化から、融体は約 0.3 秒までに図 2-10 に示した測定領域を通過していることが分かる。さらに、上部トラップ熱電対が約 0.4 秒から応答しており、この時刻には上部トラップへ融体が注入されたと考えることができる。なお、熱電対については測定限界を超えた温度を対象としており、計測値は融体温度の実態を示しているものではない。つまり、熱電対はその応答によって融体の到着を検知する用途で使用する点に注意が必要である。圧力計の応答であるが、0.4 秒から 0.5 秒にかけて約 3.8atm から約 5.4atm に上昇しており、これは融体通過によって移送空間のガスが昇温され、膨張にともなって圧力が上昇していることに対応する。0.5 秒から 0.6 秒にかけて圧力は 4.7atm 程度に減少し、その後は緩やかな圧力降下となっているが、これは排気ラインを通じてガスが排出され、系がほぼ平衡状態に達したことを示している。すなわち、0.5 秒近傍で融体の移送がほぼ完了したと考えることができる。二色温度計については、融体が検知可能な領域を通過するとは限らず、信頼性のある検知手段とはなっていない。

以上により、融体移送の開始および完了時刻は、可視像、熱電対、圧力計のいずれかで把握できることを確認した。融体移送が生じた試験では上記の代表例のように、プラグ破壊操作後 0.5 秒程度で溶融した試料のほぼ全量が上部トラップに注入されている。これは、試験での操作手順を考慮すると、十分な速さである。

ここで、技術開発の観点から、上記の移送の確実性について述べる。実績としては、全ての試験にてプラグ破壊、融体移送に成功しているわけではない。二酸化ウランを溶解さ

せた場合、表 3-1 に示した 14 試験のうち、実際に融体移送に成功したのは 5 試験である。失敗の原因は全て試験試料と坩堝との反応による。融体移送に失敗した試験では、加熱中にプラグ周囲の切り欠き部から融体が漏洩するといった事象や、吸熱反応によって十分な流動性を持つまでに加熱されないため、坩堝から排出されないといった事象が生じた。すなわち、坩堝と融体の化学反応は、融体移送に対して不確実性を与えると言える。一方、坩堝と試料との反応がほとんど発生していないアルミナ試験では、融体移送に失敗した例は無い。よって、坩堝と試料との化学反応が防止できる限り、融体は意図した過熱度、流動性を得ることができ、結果として制御された試験体への移送が可能になると考えられる。

3.3. 試験実施技術のまとめ

融体の昇温・試験部への移送は、制御された状態で行なわれる必要がある。上記の結果は、二酸化ウラン融体の取扱いが極めて困難であることを示している。酸化物と黒鉛は根本的に反応する組み合わせであり、両者の間に挿入する反応防止材は、二酸化ウランが熔融する高温条件まで耐性が確保できない。その他考えられる反応防止対策を表 3-3 にまとめて示す。理論的には有効と考えられるものの、すべて装置設備の変更や追加が必要なものであり、期間の限定されている本 EAGLE 計画の中で実施するのは難しい。

一方、アルミナについては、試験で対象としている主要現象が二酸化ウラン融体を用いた場合と類似であると推定されることに加え、取扱い温度が二酸化ウランに比べて低いため、溶解過程での化学反応は無視し得るものとなっている。さらに、試験部への移送も問題なく行なえることが確認できた。すなわち、制御された状態で融体の昇温・試験部への移送ができる。

以上より、本 EAGLE 計画の炉外試験では使用融体としてアルミナを選定することとした。

表 3-1 二酸化ウラン溶解試験の一覧

試験番号	UTD0-2	UTD0-3	UTD0-3/1	UTD-1	UTD-1/1	UTD-2	UTD-3
溶解試料 成分	UO ₂ [kg]	14.0	16.2	16.2	16.2	19.0	25.9
	ZrO ₂ [kg]	...	4.0	4.4	4.5	4.4	...
	Steel [kg]	5.6	5.5	5.5	5.5	2.5	...
	Zr [kg]
坩堝の保護方法	NbC+TaC 蒸着膜						
加熱方法	図 3-1						
積算投入熱量 [MJ]	365.0	213.3	386.7	371.9	348.2	339.4	294.5

試験番号	UTD-3/1	UTD-3/2	UTD-M1	UTD-M2	UTD-M3	UTD-M4	UTD-M5
溶解試料 成分	UO ₂ [kg]	26.2	22.2	22.5	22.3		
	ZrO ₂ [kg]		
	Steel [kg]		
	Zr [kg]	...	3.9	4.2	3.8		
坩堝の保護方法	NbC 蒸着膜						
加熱方法	図 3-1						
積算投入熱量 [MJ]	369.4	344.6	362.9	312.4	317.0	Ta シート + W 筒	

表 3-2 アルミナ溶解試験の一覧

試験番号	UTD-M2a	UTD-M2b	UTD-M2c
熔融試料成分：Al ₂ O ₃ [kg]	4.550	4.425	14.430
坩堝の保護方法	Ta シート	←	←
加熱方法	図 3-31	←	←
積算投入熱量 [MJ]	123.7	157.8	229.4

表 3-3 坩堝と熔融試料の化学反応の原因と対策、および、必要となる対応

原因	対策	必要となる対応
化学反応が生じる系である。	坩堝材をタンゲステンへ変更	坩堝底面からの融体排出方法の見直し。 断熱材の二酸化トリウム(ThO ₂)への変更。
	コールド・クルーシブル法への変更	坩堝底面からの融体排出方法の見直し。 電源周波数の変更。
	二酸化炭素による加圧 (20 気圧以上)	二酸化炭素の供給設備の追加。
軸方向発熱分布により高発熱部にて保護材が消失	加熱コイル軸長を坩堝軸長に対して十分(3 倍程度)に長くする。	加熱炉の新設。 坩堝底面からの融体排出方法の見直し。

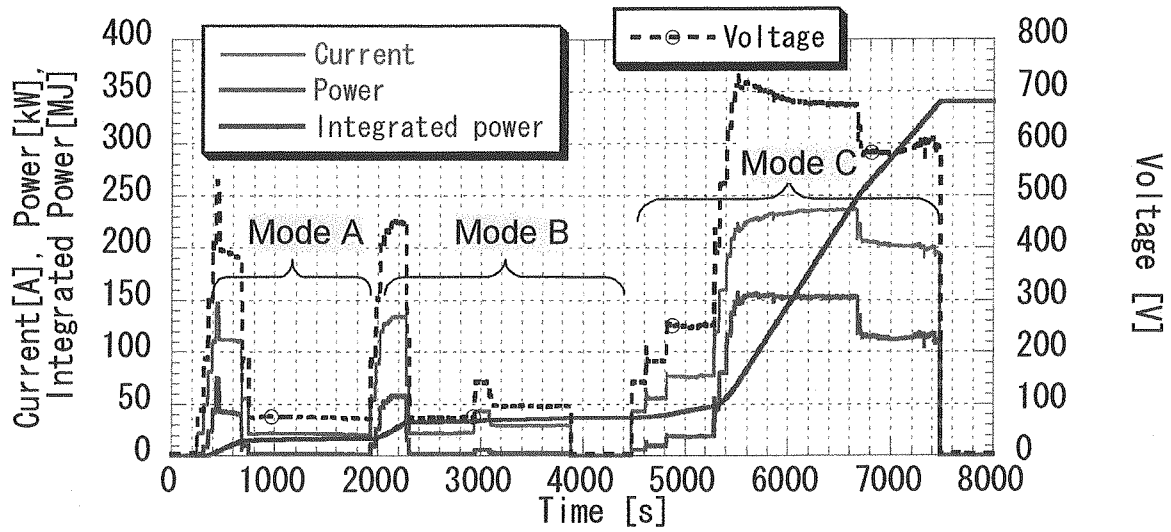


図 3-1 加熱ダイアグラム-1

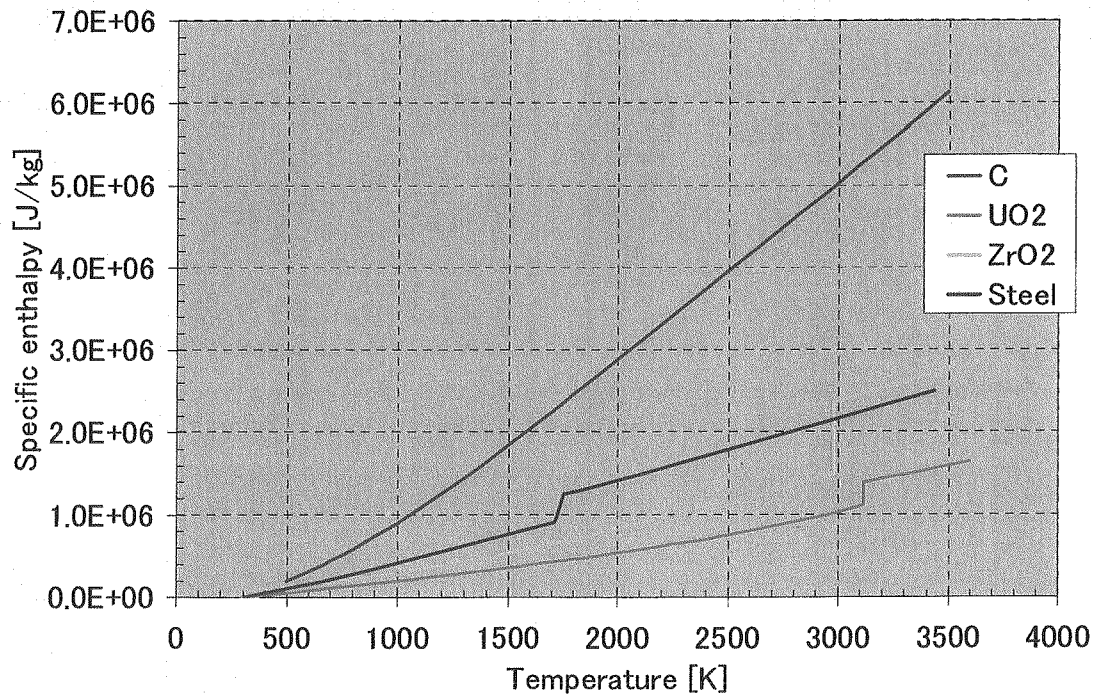


図 3-2 黒鉛および溶融試料の比エンタルピ線

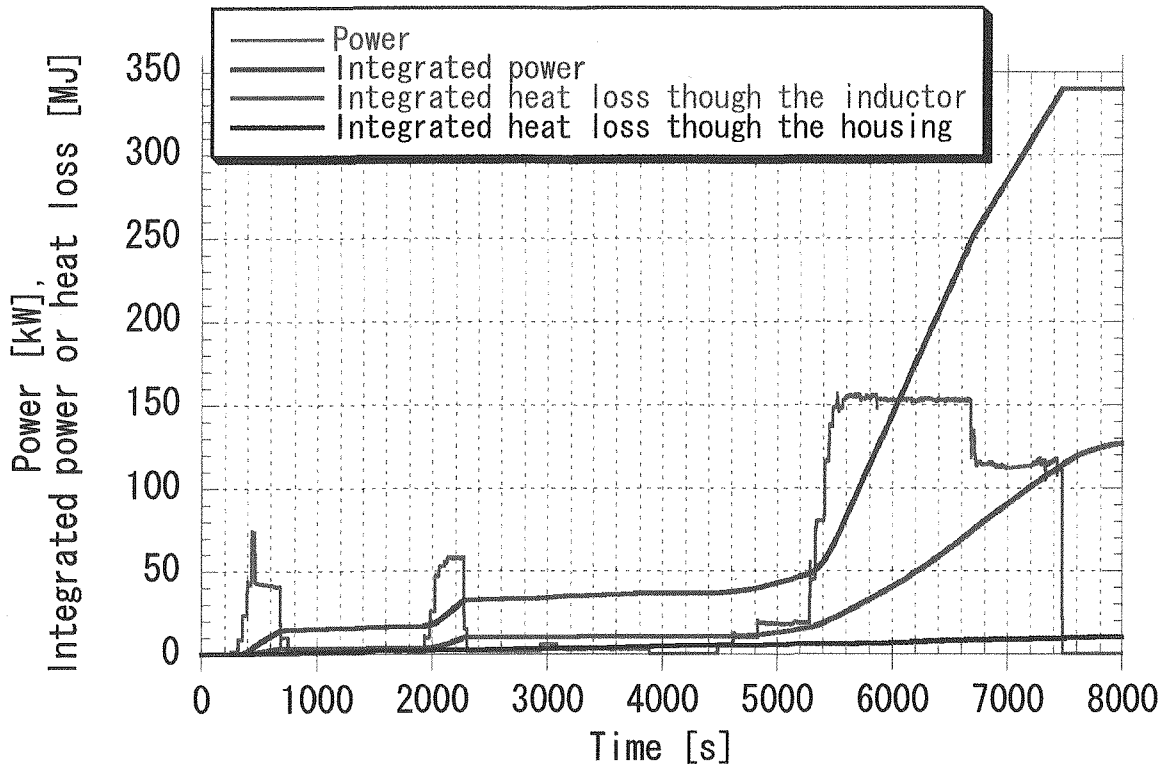


図 3-3 加熱炉の熱バランス (UTD-2 試験)

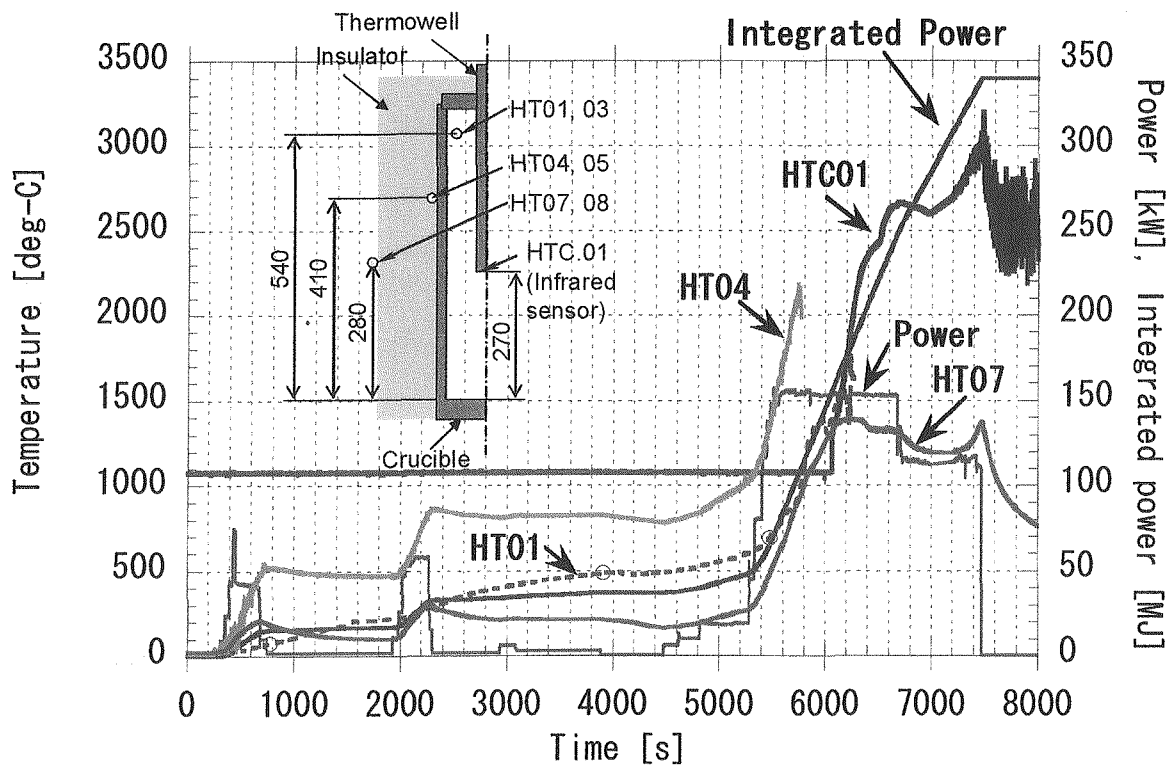


図 3-4 加熱炉の温度履歴 (UTD-2 試験)

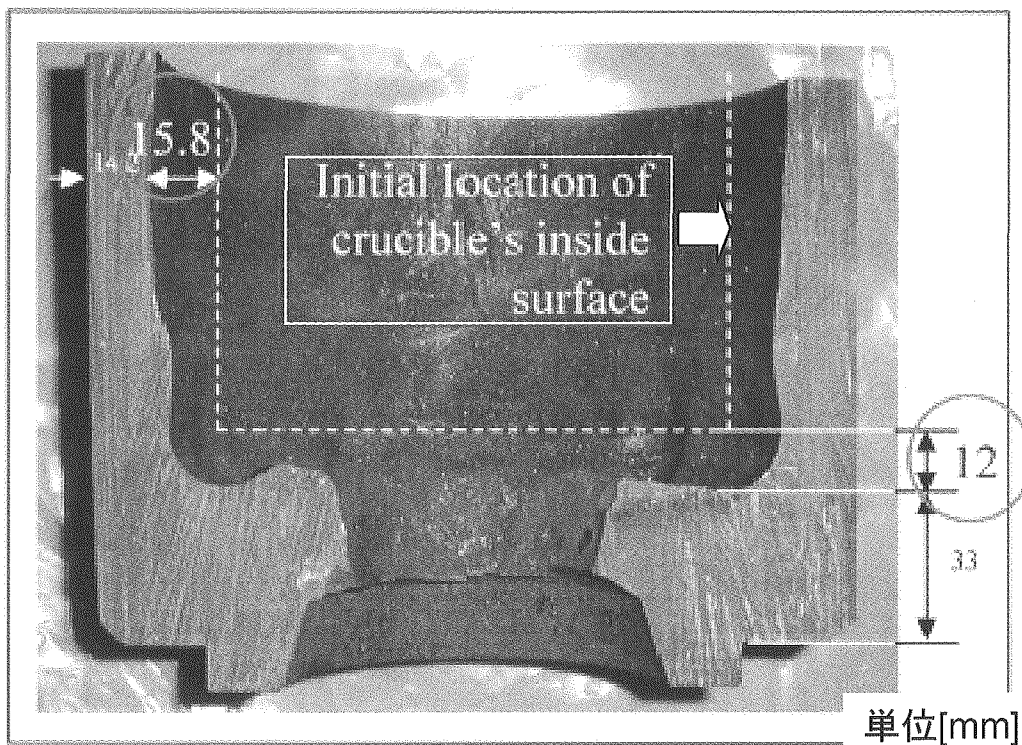


図 3-5 試験後の坩堝縦断面写真 (UTD-2 試験)

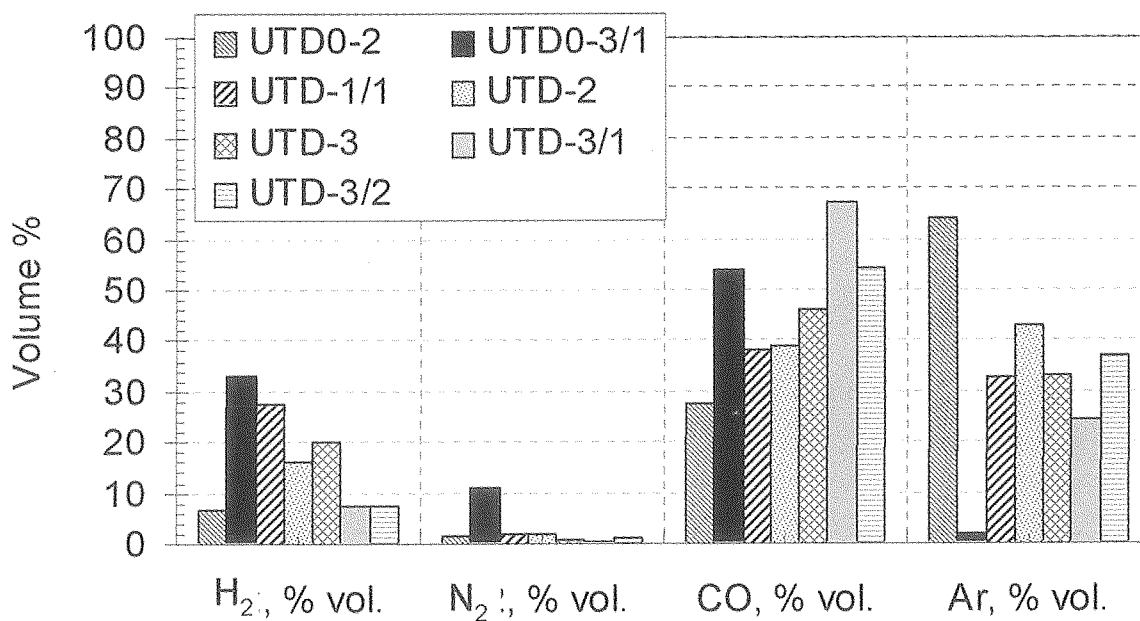


図 3-6 溶融過程における加熱炉内の雰囲気分析結果

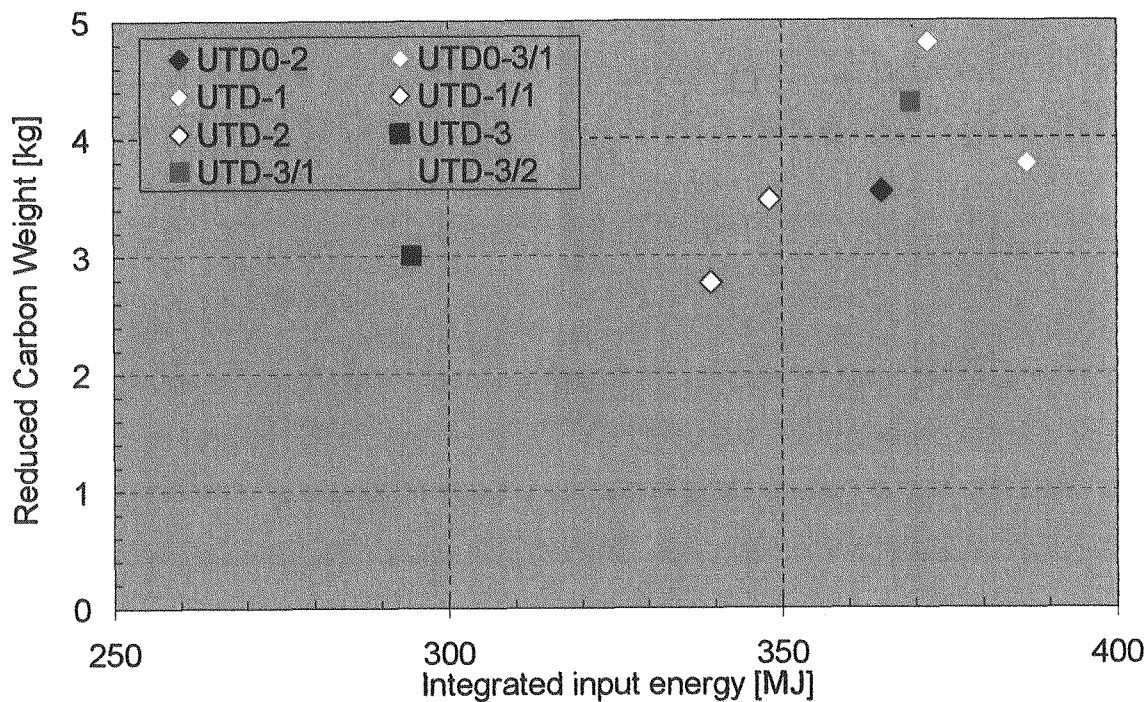


図 3-7 坩堝侵食重量の概算結果

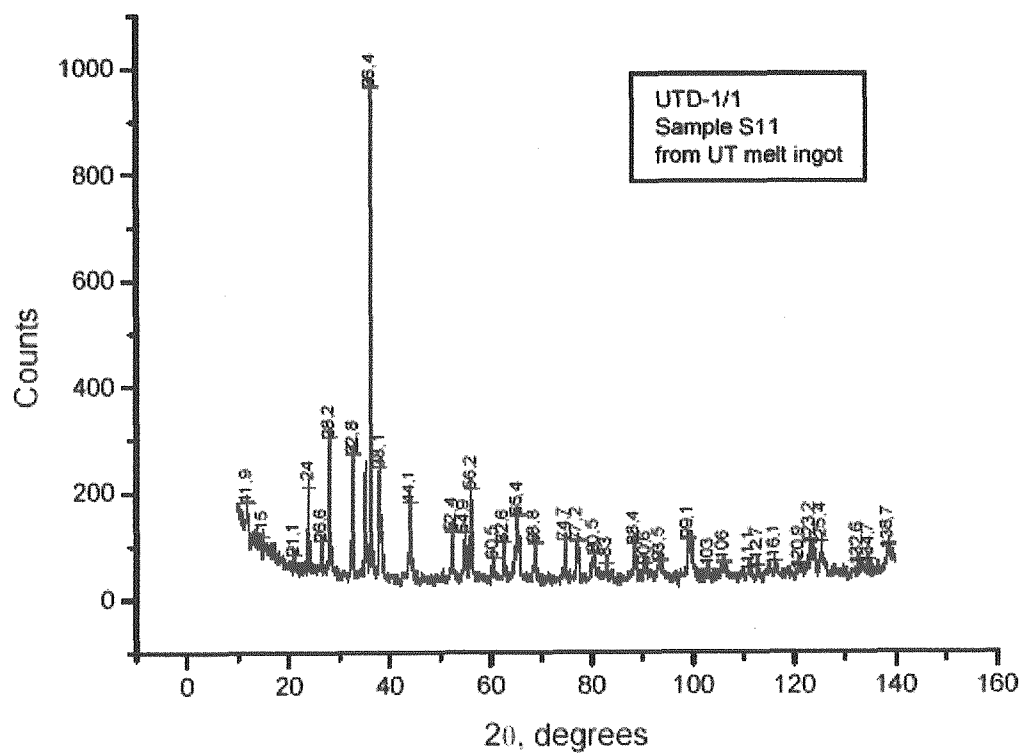


図 3-8 再固化試料の X 線回折結果 (UTD-1/1 試験)

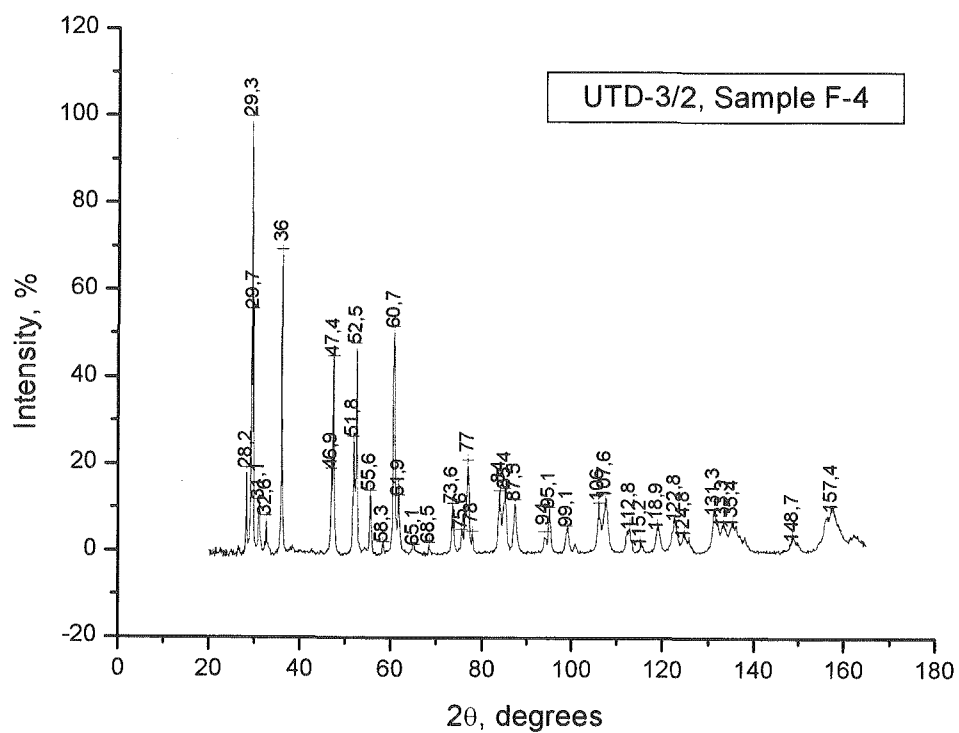
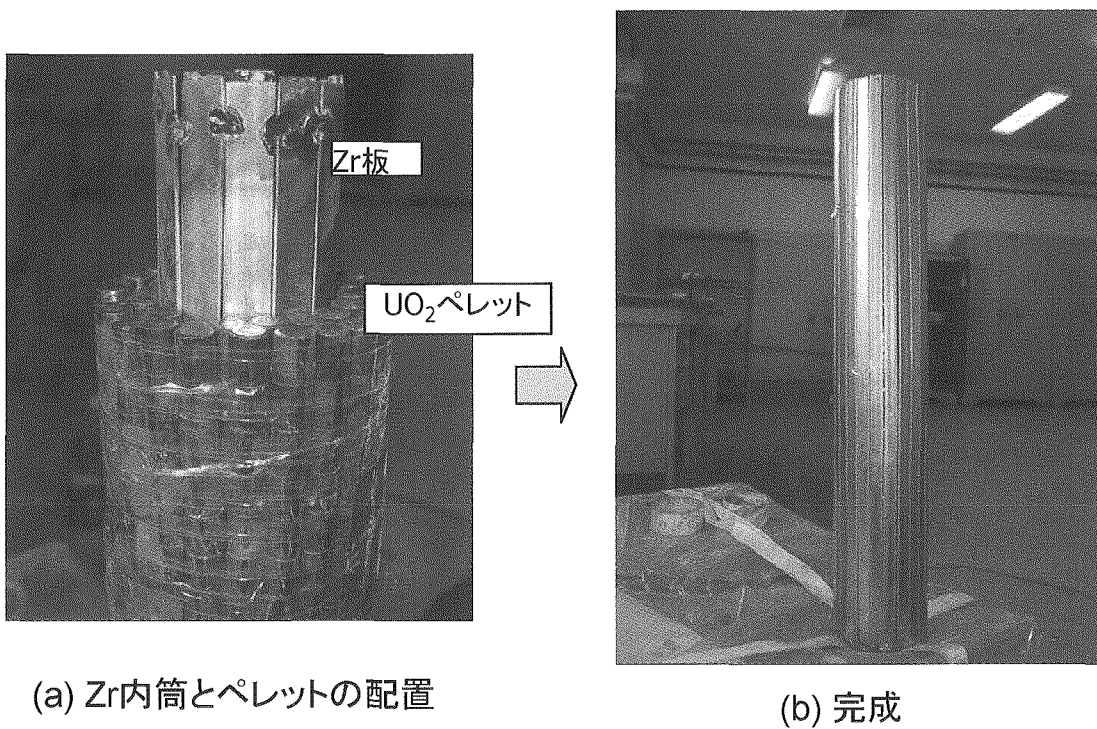


図 3-9 再固化試料の X 線回折結果 (UTD-3/2 試験)



(a) Zr内筒とペレットの配置

(b) 完成

図 3-10 ジルコニウムを用いた溶融試料カセットの組立

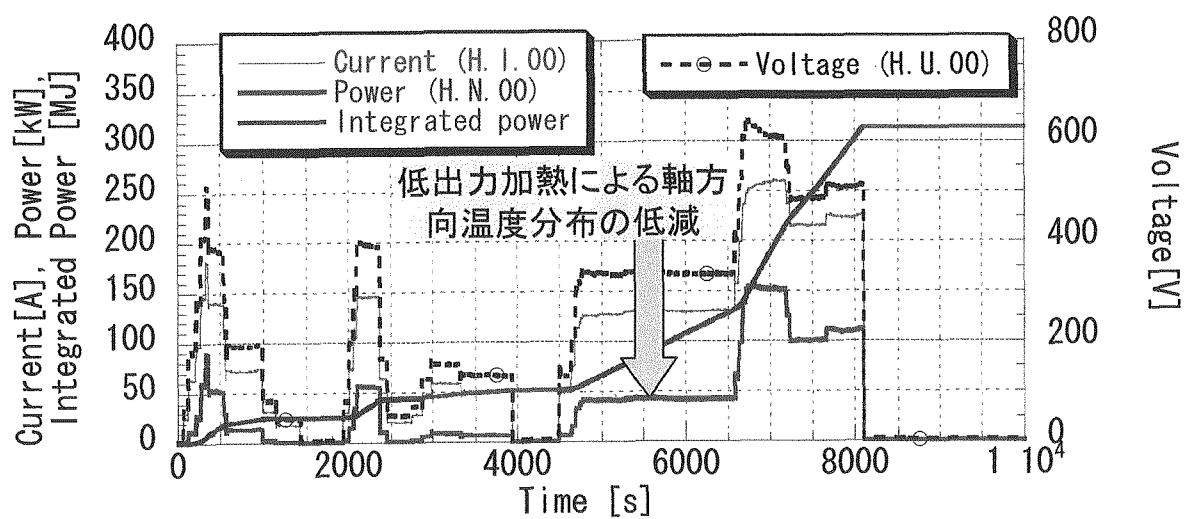


図 3-11 加熱ダイアグラム-2

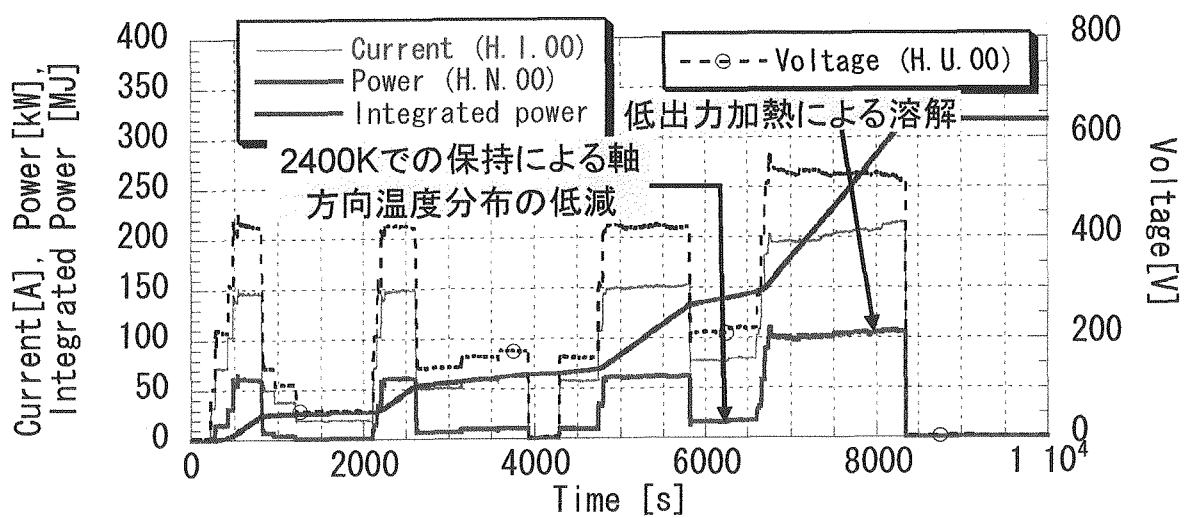


図 3-12 加熱ダイアグラム-3

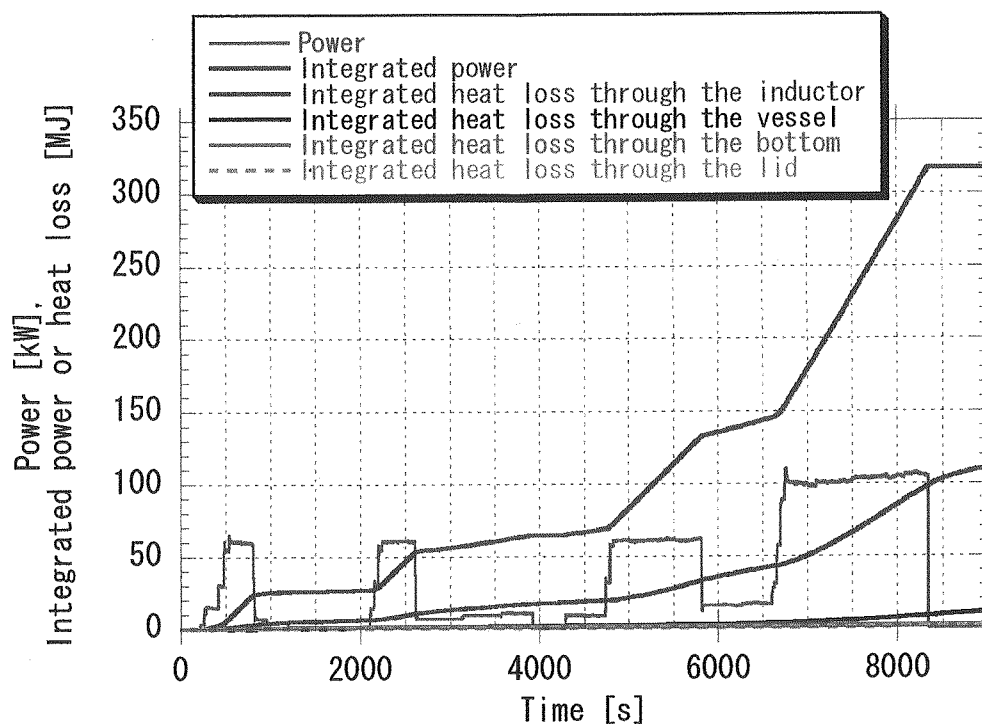


図 3-13 加熱炉の熱バランス (UTD-M3 試験)

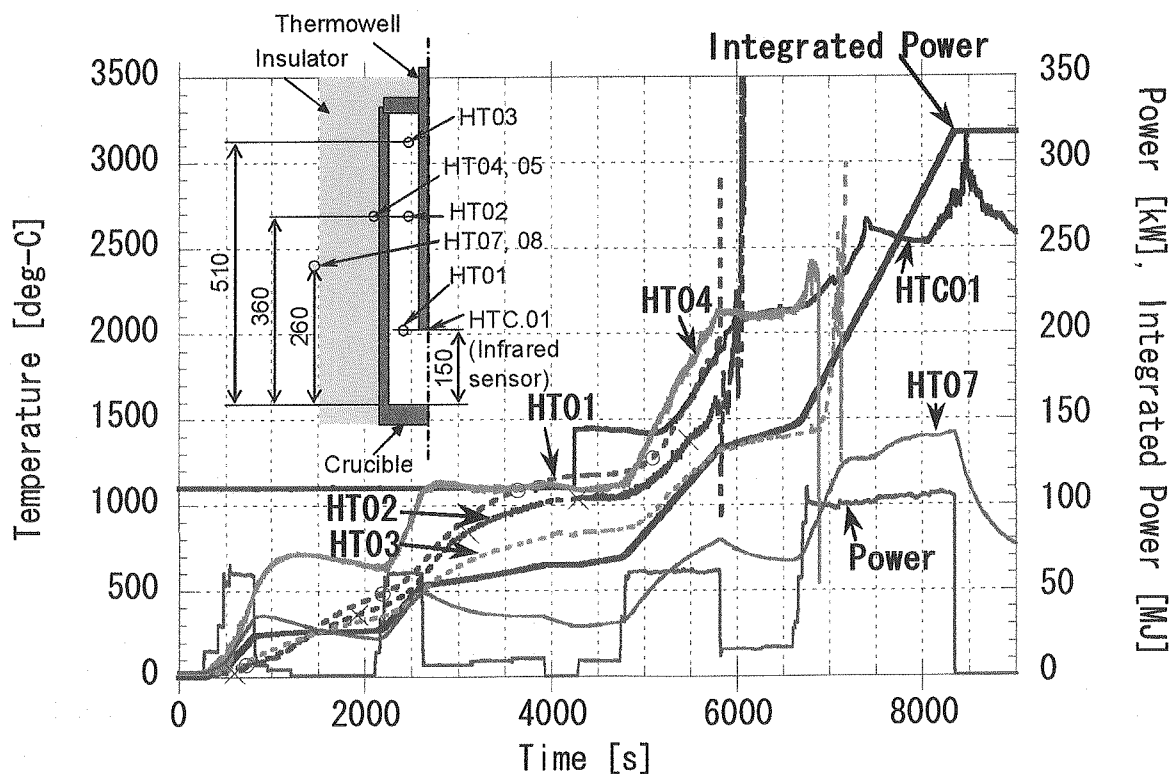


図 3-14 加熱炉の温度履歴 (UTD-M3 試験)

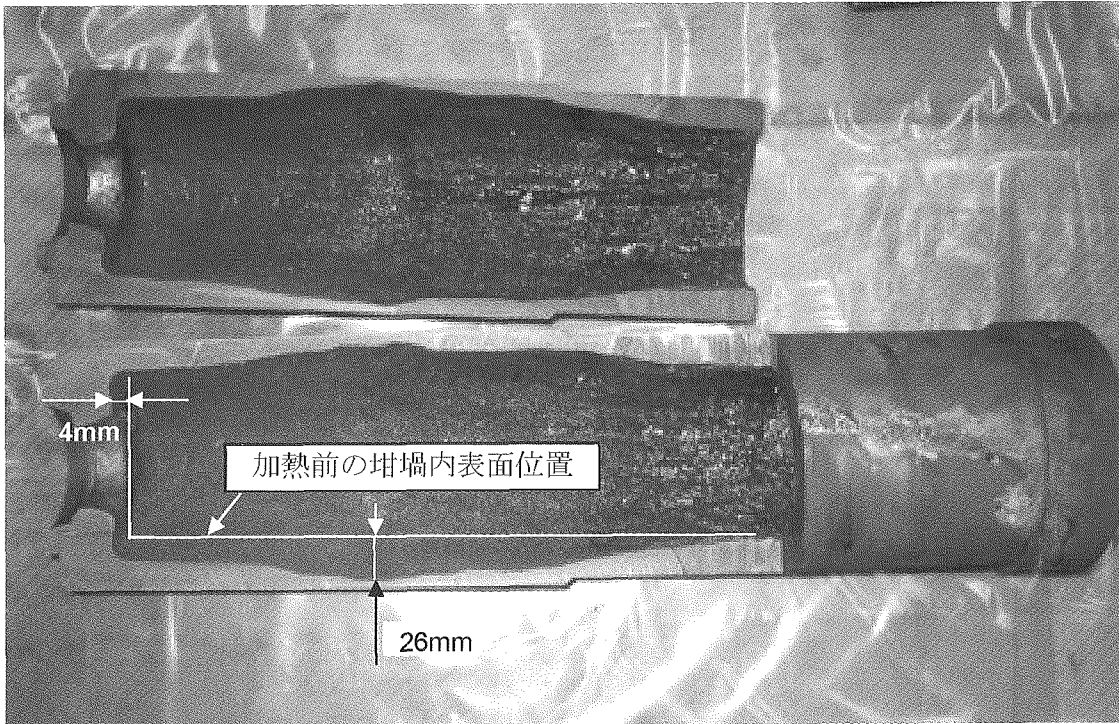


図 3-15 UTD-M1 試験後の坩堝縦断面写真

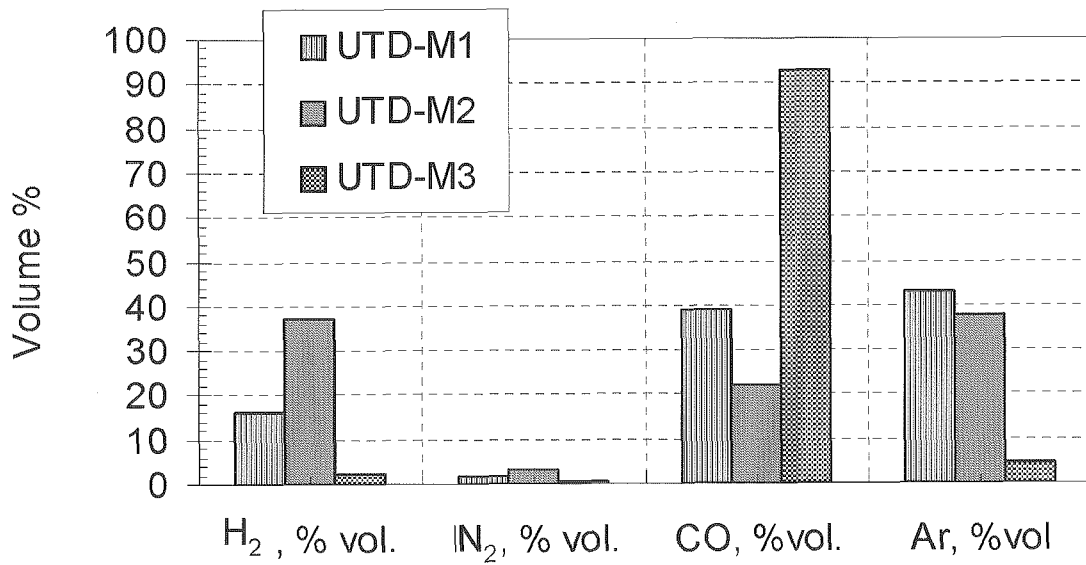


図 3-16 溶融過程における加熱炉内の雰囲気分析結果 (UTD-M1 ~ M3 試験)

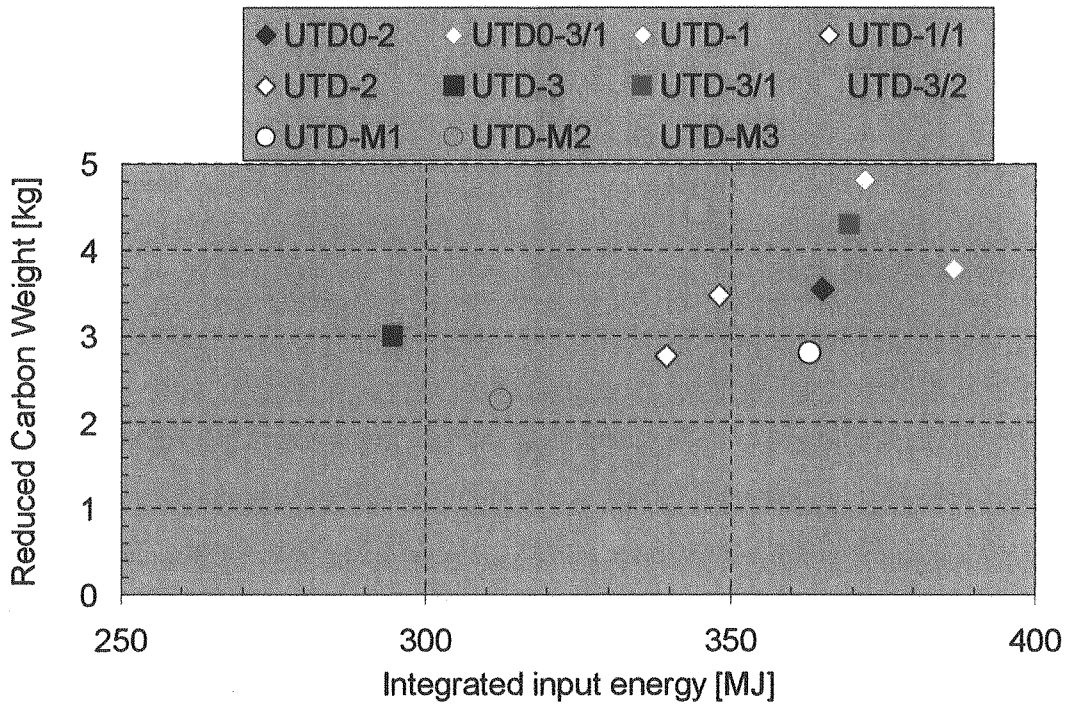


図 3-17 坩堝侵食重量の概算値 (UTD-M1 ~ M3 試験評価値を追加)

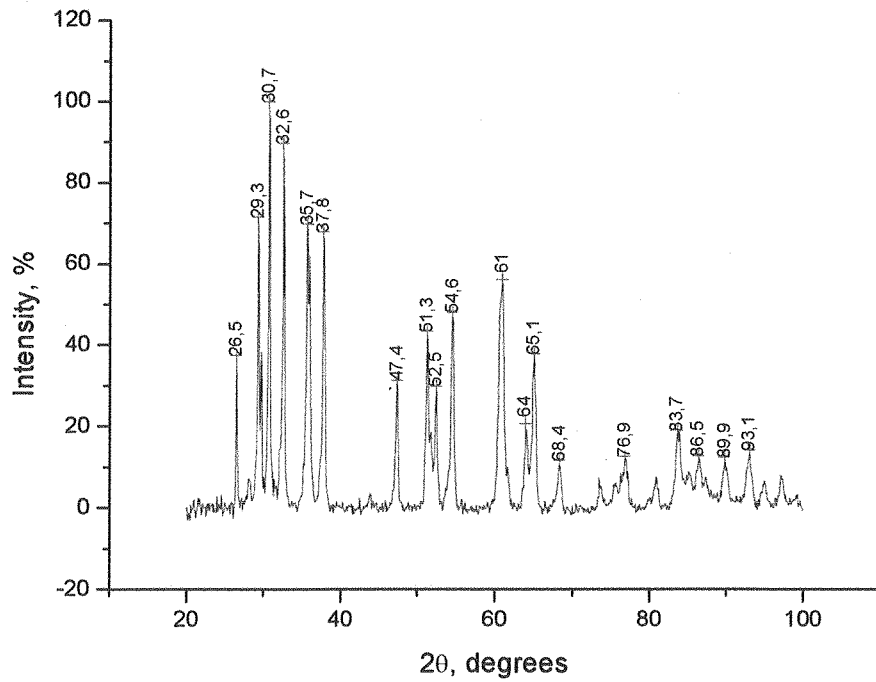
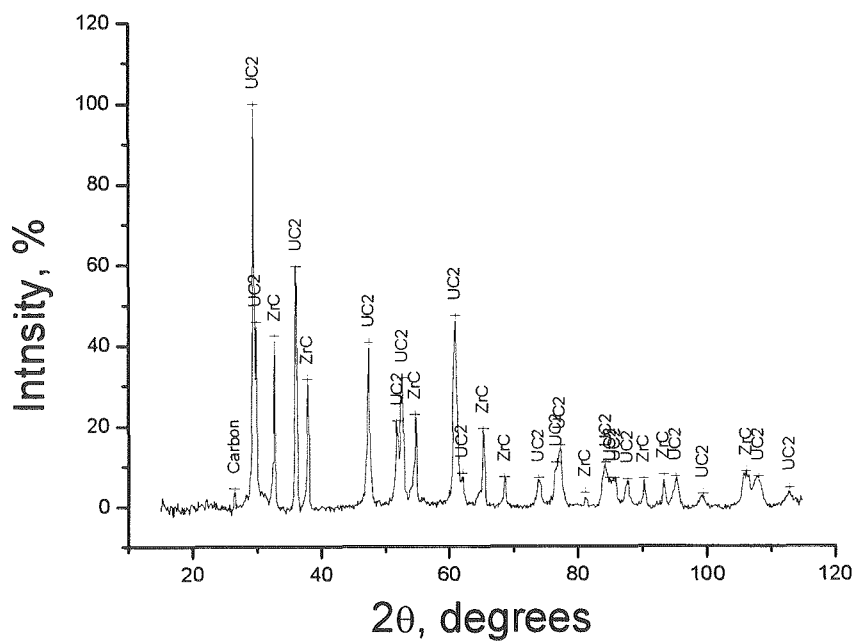
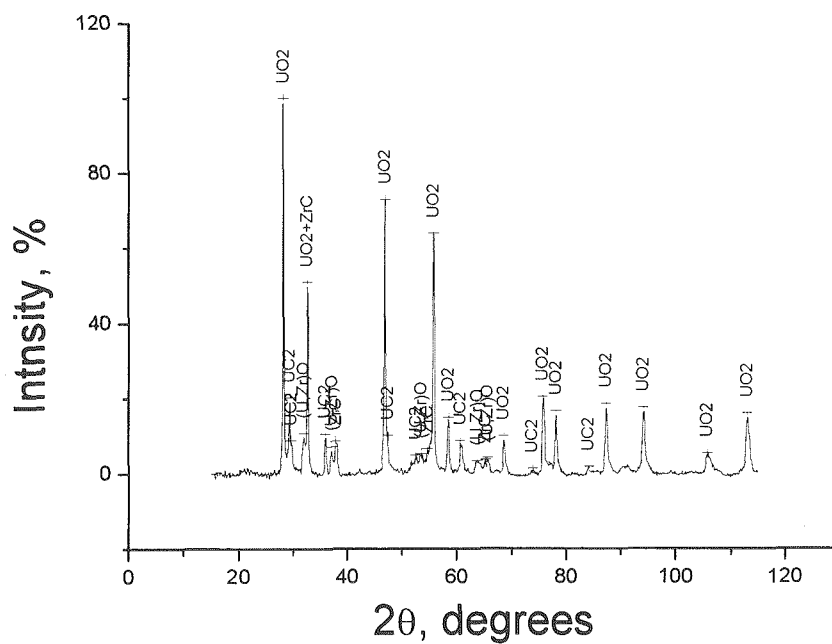


図 3-18 再固化試料の X 線回折結果 (UTD-M1 試験)



(a) 上部トラップから採取した再固化物



(b) 坩堝から採取した再固化物

図 3-19 再固化試料の X 線回折結果 (UTD-M2 試験)

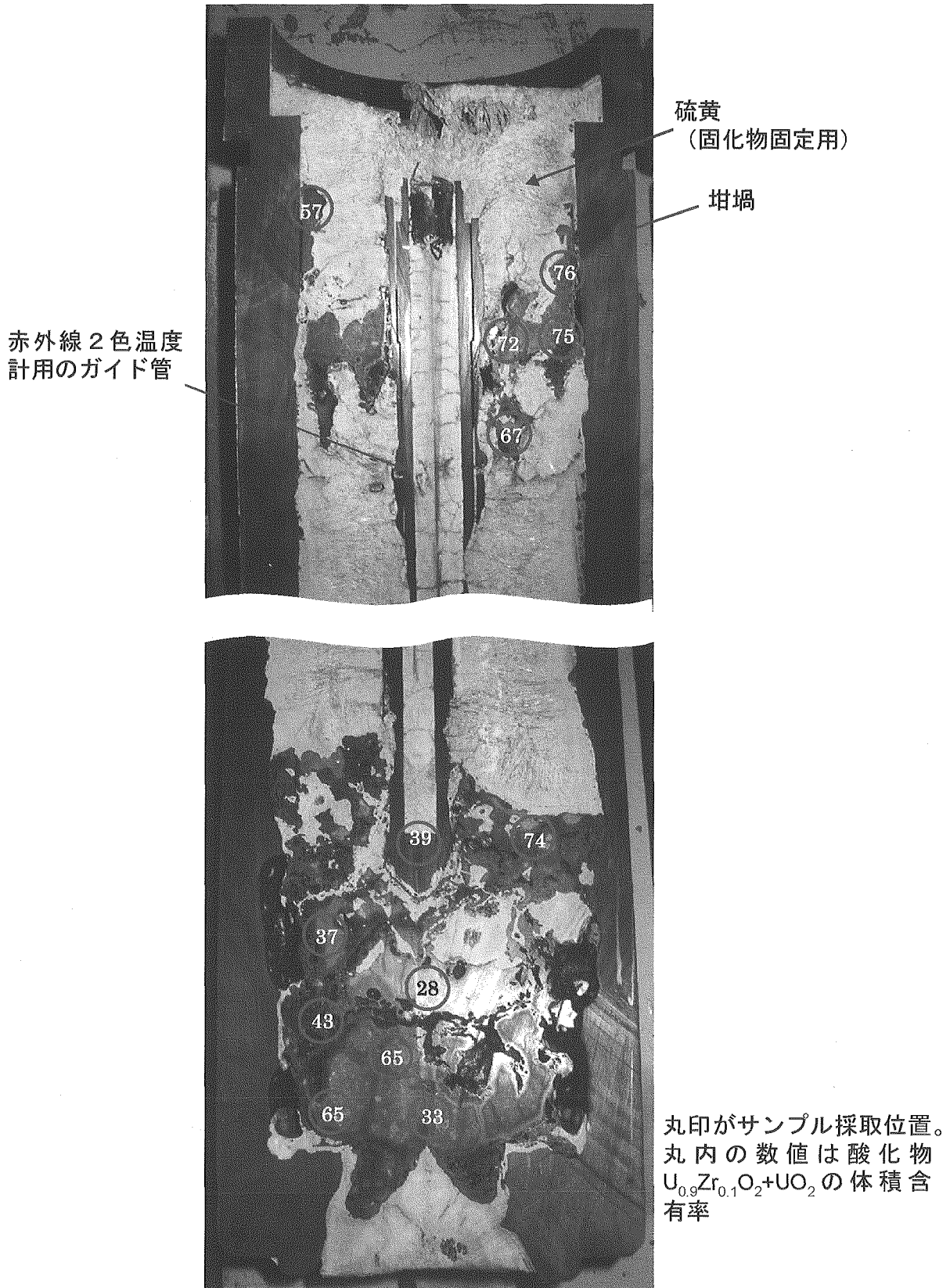


図 3-20 UTD-M3 試験後の坩堝および再固化物の縦断面と酸化物の含有割合(vol.%)

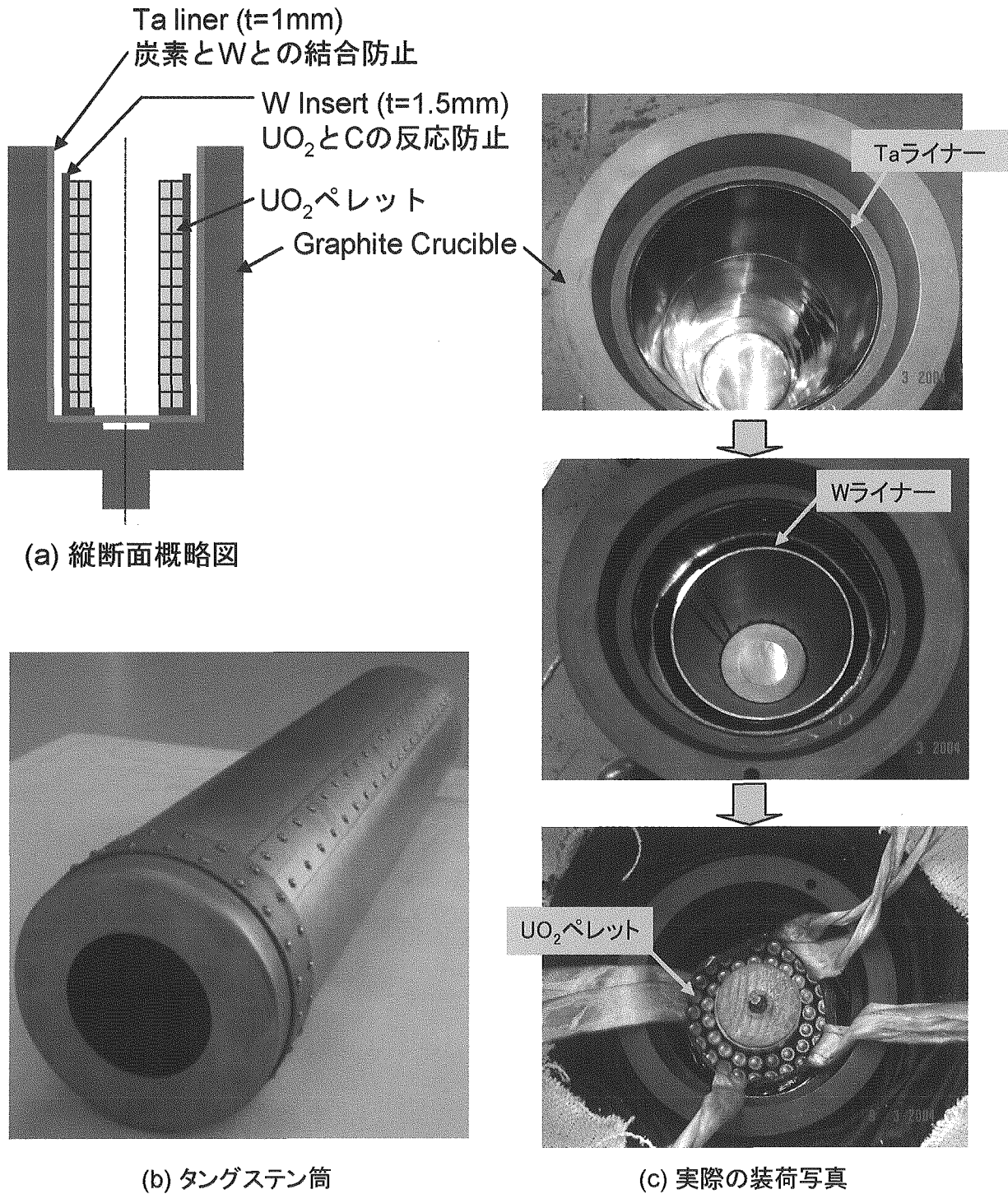


図 3-21 タングステン内筒による黒鉛坩堝保護

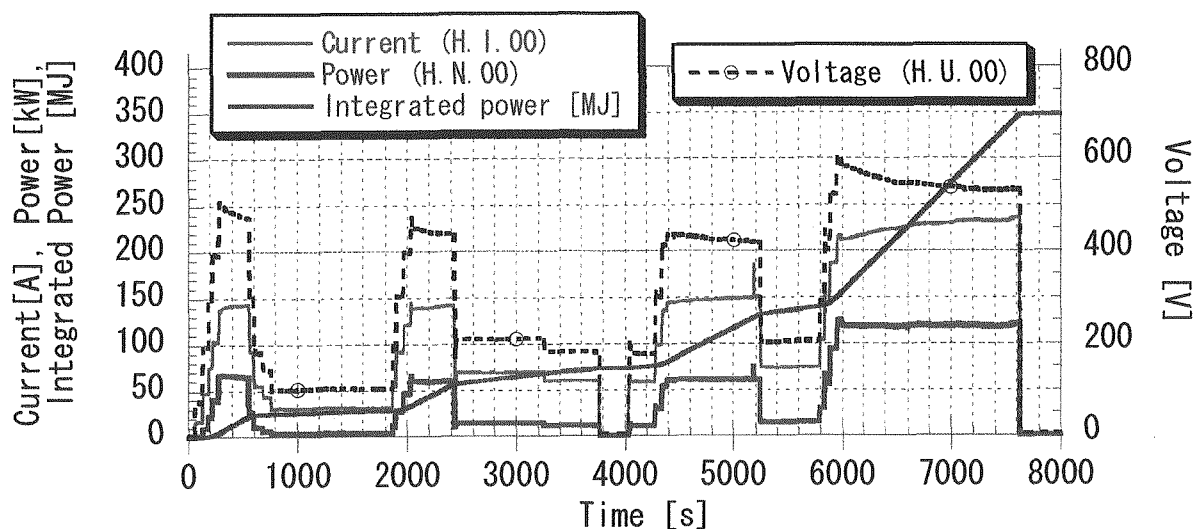


図 3-22 UTD-M4 試験で用いた加熱履歴

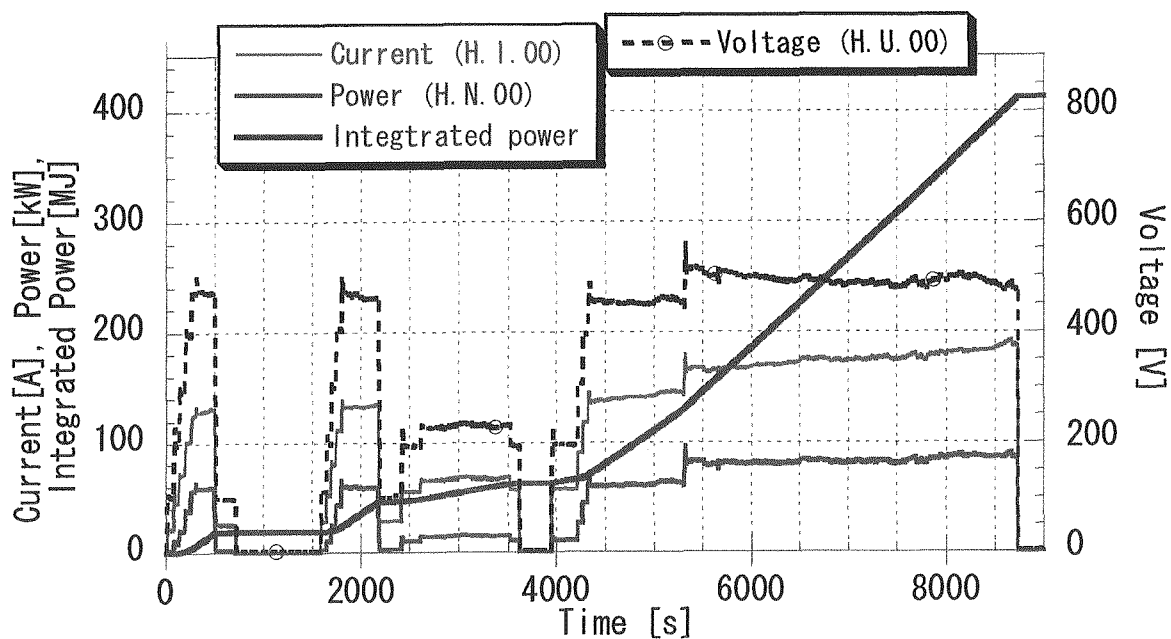


図 3-23 UTD-M5 試験での予定加熱履歴

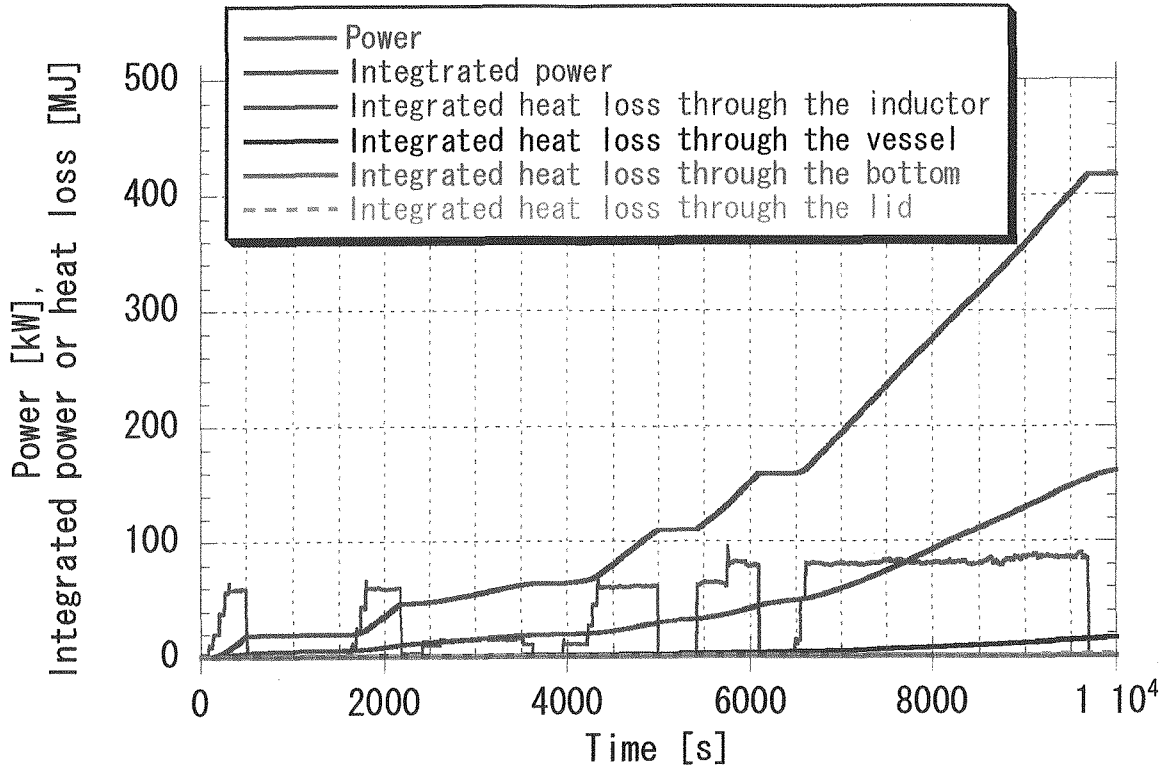


図 3-24 加熱炉の熱バランス (UTD-M5 試験)

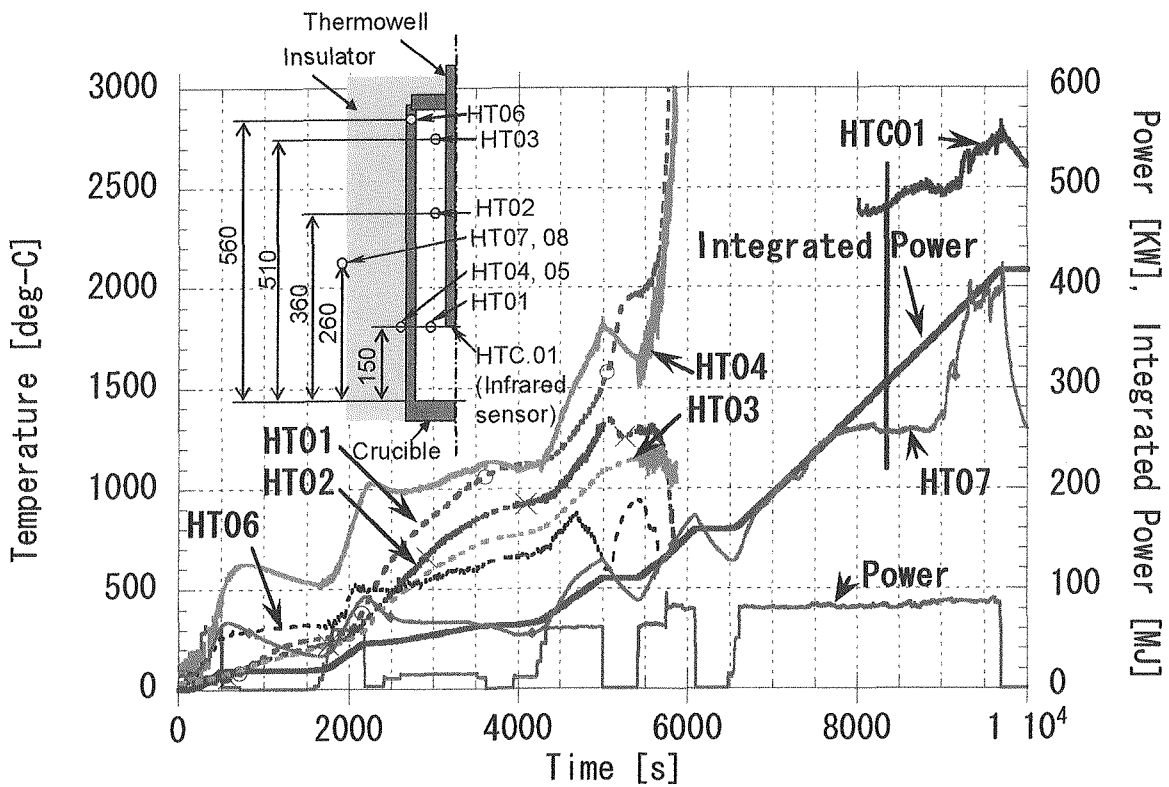
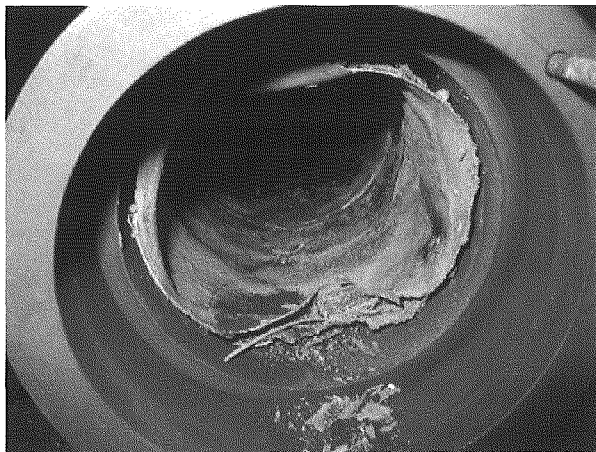
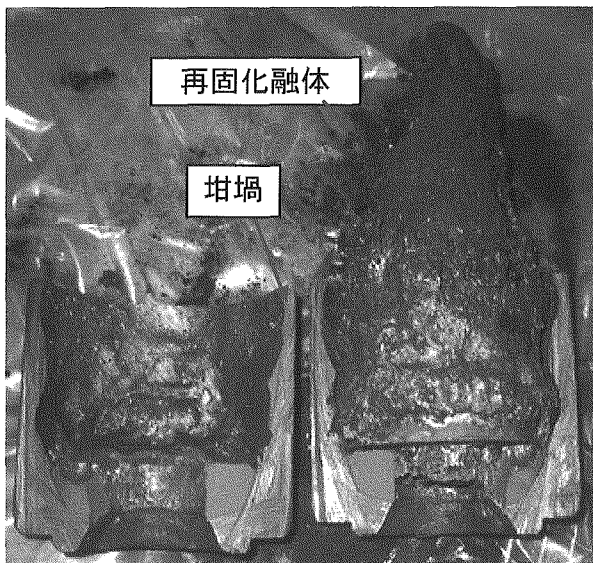


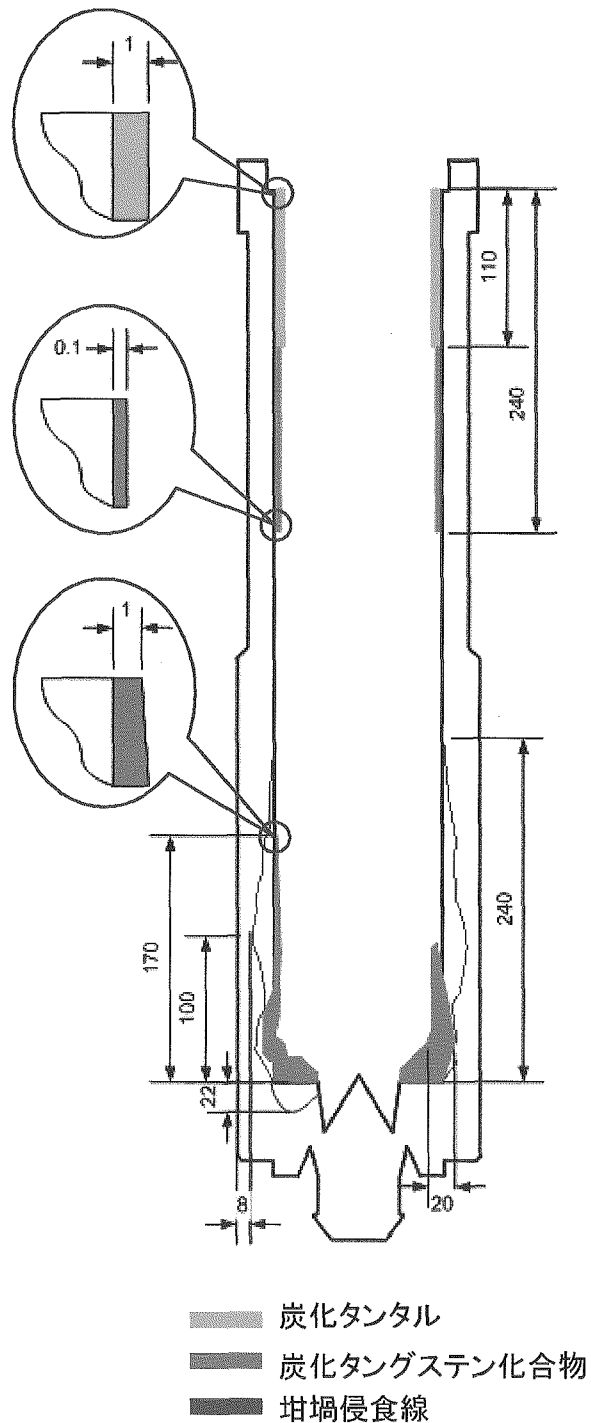
図 3-25 加熱炉の温度履歴 (UTD-M5 試験)



(a) 坩堝上部の写真



(b) 坩堝下部の縦断面写真



(c) 写真を基にした断面の概略図

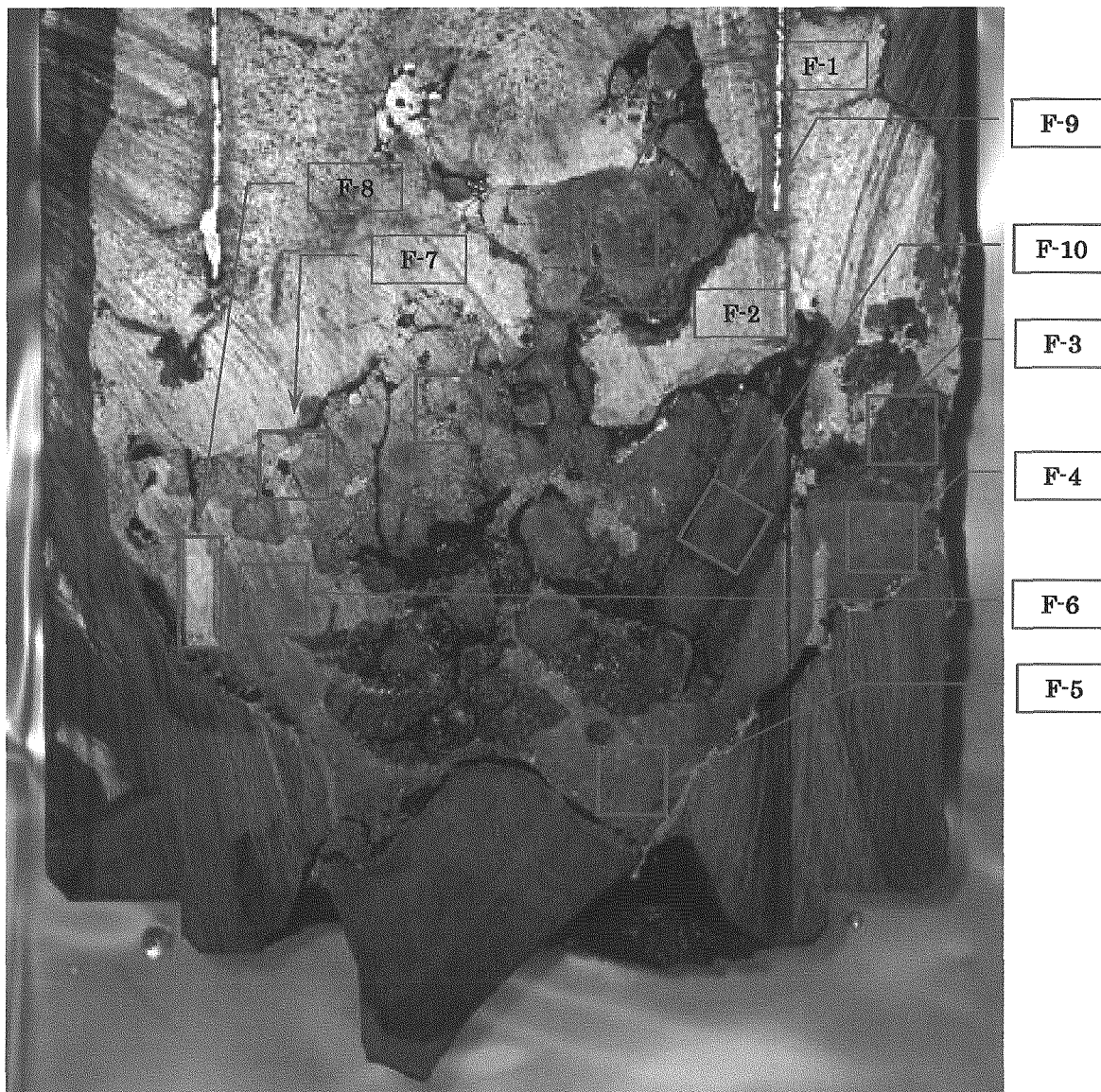
図 3-26 UTD-M4 試験後の坩堝解体写真と縦断面概略図



(a) 坩埚縦断面写真

(b) 坩埚縦断面の下部拡大写真

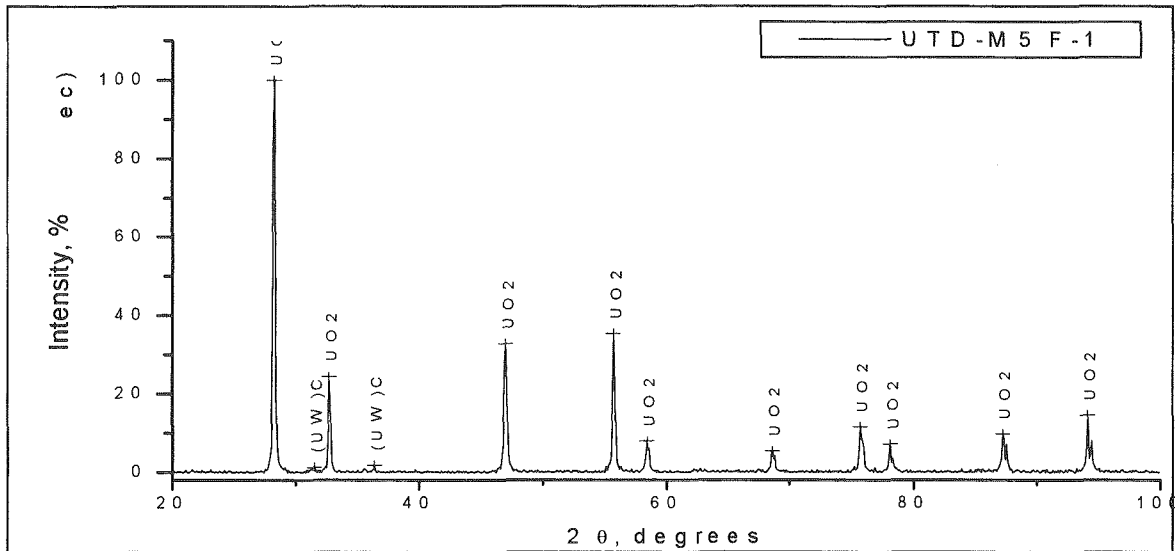
図 3-27 UTD-M5 試験後の坩埚縦断面写真



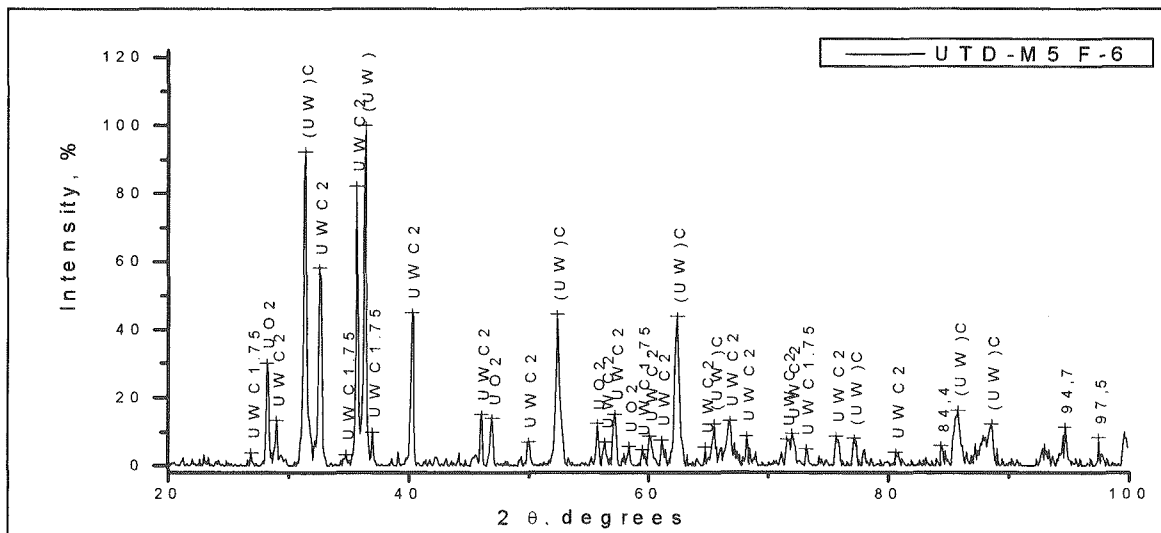
各サンプルの元素割合(単位: wt%)

	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F10
U	96,7	95,9	94,5	89,5	81,0	76,7	91,3	94,8
Ta	0,4	0,1	0,3	0,3	1,1	3,4	0,3	0,6
W	3,0	4,0	5,2	10,3	17,8	19,9	8,4	4,6

図 3-28 UTD-M5 試験後の固化物の縦断面と元素分布割合



(a) 暗灰色領域の X 線回折結果



(b) 明灰色領域の X 線回折結果

図 3-29 UTD-M5 試験固化物の X 線回折結果

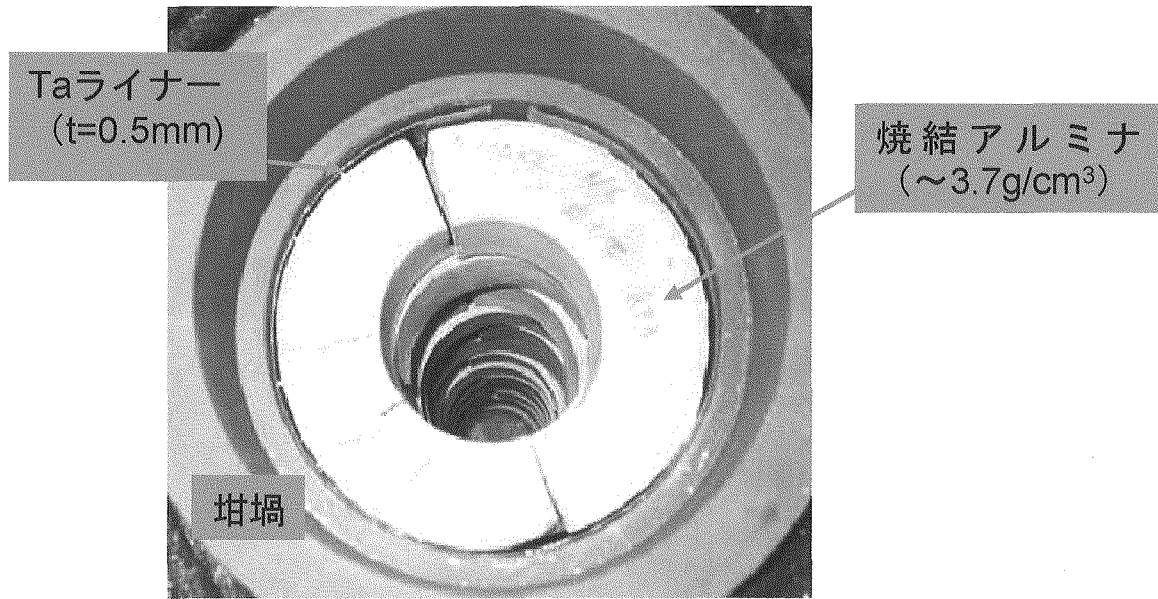


図 3-30 熔融坩堝へのアルミナの装荷形態

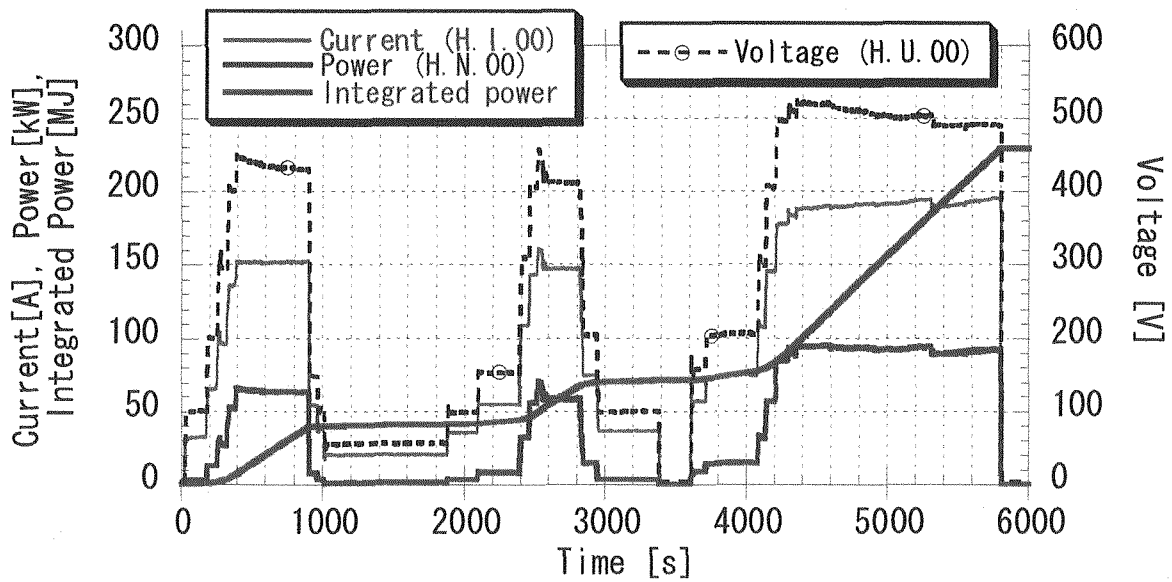


図 3-31 アルミナ溶解試験の加熱履歴

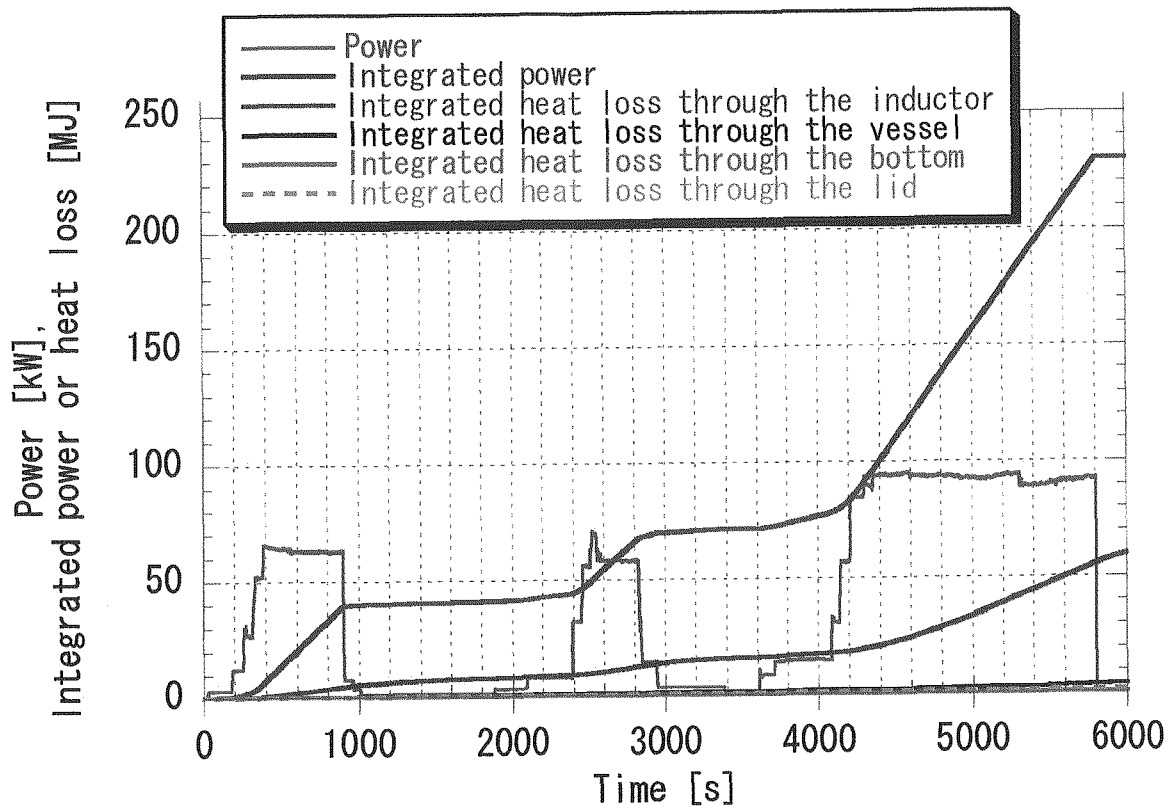


図 3-32 加熱炉の熱バランス (UTD-M2c 試験)

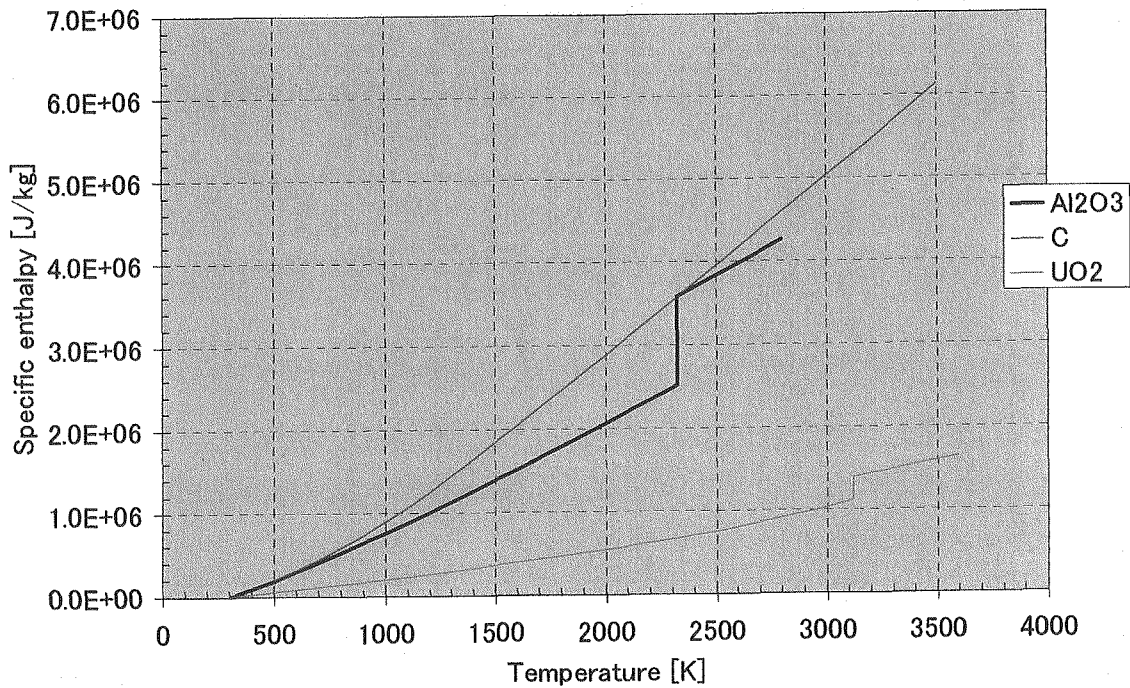


図 3-33 アルミナの比エンタルピ線

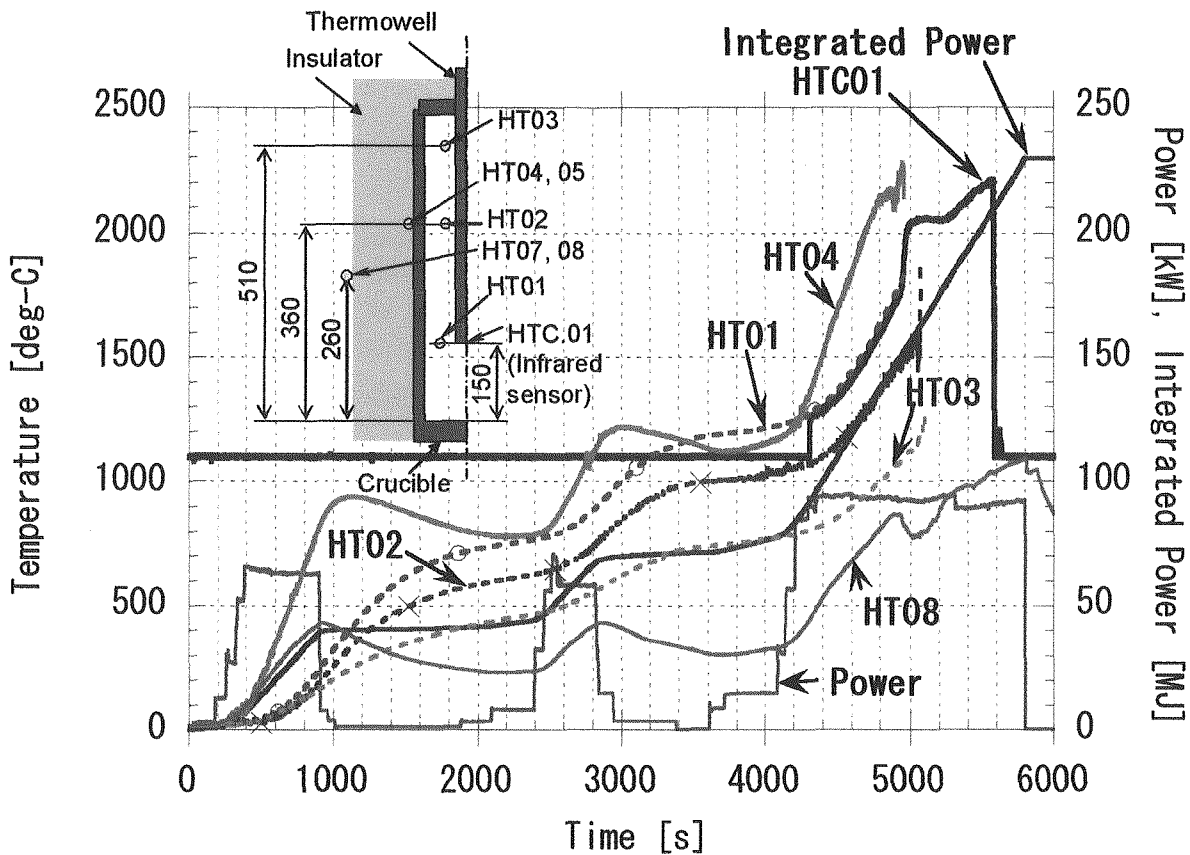


図 3-34 加熱炉の温度履歴 (UTD-M2c 試験)

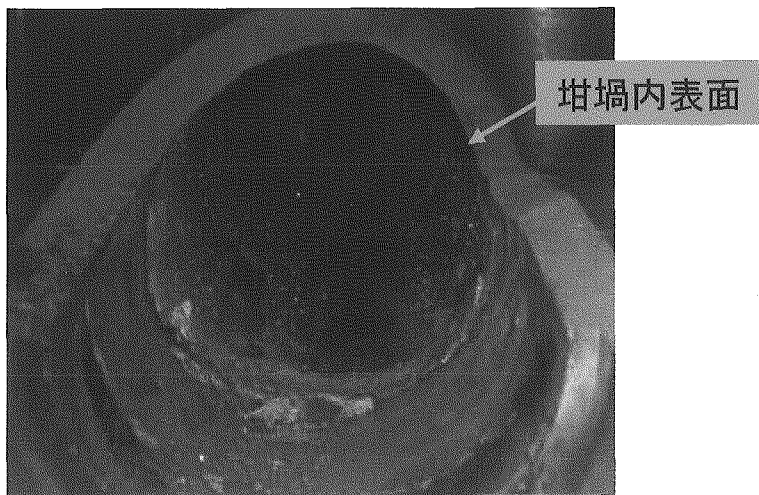


図 3-35 アルミナ試験における試験後の坩埚内表面

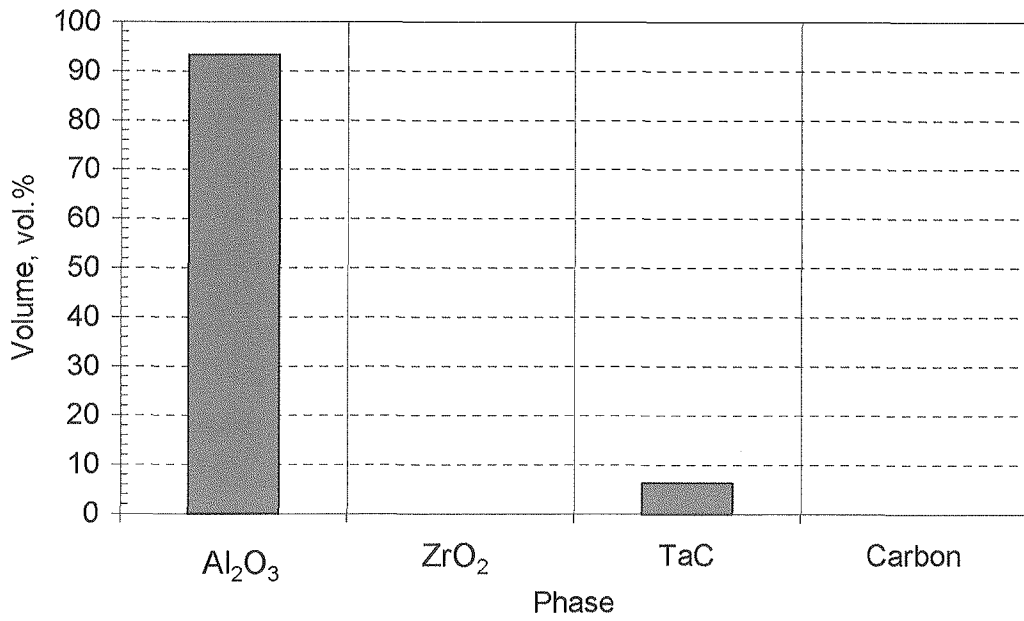


図 3-36 アルミナ試験における上部トラップ固化物の化学組成割合

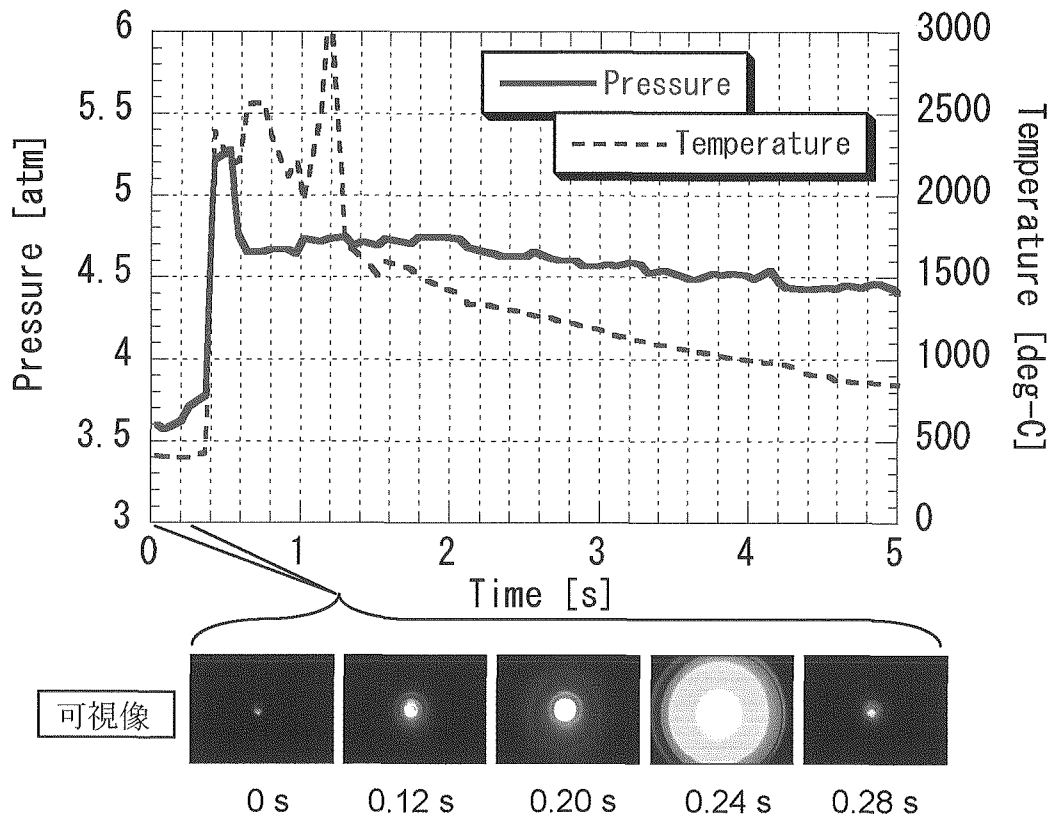


図 3-37 融体移送の計測例

4. 融体流出試験結果

本章では、ナトリウムの無い条件における融体流出挙動を述べる。対象は、アルミナを溶融試料として用いた UTD-M2c 試験結果のみとする。使用物質の熱物性が明確なため、今後の解析評価対象となり得ると考えたためである。

試験での計測データおよび試験後の解体検査により、主な事象推移を以下のように把握できた。このことは、計測手法の妥当性も確認できたことを意味する。

- － 過熱度約 190K の融体プール 10.75kg がプラグ破壊後約 0.4 秒で形成された。
- － プール形成後 2.3 秒で厚さ 2mm の内部ダクトが破損し、融体流出が開始した。内部ダクトの初期温度は 417°C であった。
- － 流出開始後、0.3 秒後で 30wt% が流出、0.4 秒後で 50wt% が流出し、0.7 秒後に上部トラップからの融体流出が終了した。
- － 流出量は 10.48kg で、上部トラップ融体の約 98wt% が流出した。

試験後の物質分布を図 4-1 に示す。以下、測定データを基に融体流出挙動を述べる。

(1) 上部トラップでの融体プール形成

上部トラップ、内部ダクト、排出ダクトの温度変化、および、上部トラップ、下部トラップの圧力変化を図 4-2 に示す。時刻ゼロは、誘導加熱炉の坩堝底面のプラグを破壊した時刻である。3.2 にて述べたように、上部トラップへの融体注入時間は、圧力変化と上部トラップの温度変化で把握することができる。温度変化によって、融体が上部トラップに到達したのは約 0.2 秒で、圧力が平坦化した約 0.4 秒の時点で融体の注入が完了したと推測できる。上部トラップでの融体温度は直接的な計測値を得ることに成功していないため、初期温度と移送に伴う融体の熱損失にて評価する。

プールが形成されるまでの熱損失は、坩堝底面から上部トラップまでの空間移動にともなう輻射伝熱および上部トラップでの熱伝導に分けることができる。移送経路は黒鉛材にて囲まれ、融体は坩堝底面棒状で落下すると近似する。よって、形態係数を 1 と見なし、輻射伝熱による熱流束を以下の式で評価すると、0.4 秒間の輻射による熱損失は約 0.16MJ となる。

$$q = \frac{\sigma_{s,B}}{\frac{1}{\varepsilon_m} + \left(\frac{1}{\varepsilon_s} - 1 \right)} (T_m^4 - T_s^4)$$

上部トラップへの伝熱は、融体移送時間である 0.2 秒から 0.4 秒の間に生じる。この 0.2 秒間における、黒鉛製トラップの伝熱深さは 8mm 程度となる。この 8mm の層が加熱されることによって、融体の熱量は約 1.47MJ 低下する。よって、輻射と伝導による熱損失は約 1.63MJ となり、これは温度換算で約 110K となる。図 3-34 に示す誘導加熱炉の昇温履歴

から、移送開始時の融体温度は約 2620K と評価できる。加熱途中でのサーモウエル故障のため、加熱終了時点での融体温度の実測値は得られていないが、加熱出力一定かつ昇温率一定であるため、直線外挿によって上記評価値を得た。したがって、0.4 秒時点での上部トラップでの融体平均温度は約 2510K、過熱度としては約 190K と評価することができる。

図 4-1 により、上部トラップへの融体移送量は 10.75kg であったと推定できる。これは、試験後の固化物分布を基に坩堝内および周囲の残存アルミナ重量を測定し、初期装荷量から差し引くことで評価した。

(2) 内部ダクト破損

厚み 2mm の内部ダクトの破損は、下部トラップの圧力上昇あるいは上部トラップの圧力低下によって検知することができる。これは、試験装置の構成上、内部ダクトが上部トラップと下部トラップ間の圧力境界を形成しているためである。上部トラップと下部トラップとの圧力差は、融体移送直前で約 2atm、移送後で約 2.6atm である。図 4-2 により、約 2.7 秒から下部トラップの圧力が上昇していることが分かる。上部トラップ圧力も僅かに下降を始める。また、排出ダクト内部の熱電対が約 2.8 秒時点で応答を開始している。すなわち、2.7 秒がダクト破損時刻と判断できる。融体プール形成が上記から約 0.4 秒であるから、融体によるダクト加熱時間は正味約 2.3 秒となる。内部ダクトの初期温度は 417°C であった。

図 4-3 は、付録 2 に述べた内部ダクト破損時刻の事前解析結果と試験結果の比較である。解析結果を外挿すると、融体過熱度約 190K の場合、ダクト破損時刻の予測値は 3.5 秒程度となり、試験結果の 2.3 秒は約 1.2 秒早い破損となる。つまり、予測解析での伝熱量は試験の約 70%であったことを意味する。しかしこの差は、解析条件を考慮すると妥当なものと考えられる。すなわち、解析では融体を静止状態としたが、実際の試験では融体移送に伴う流動が発生し、融体の実効的な熱伝達係数が増加したと考えられるからである。したがって、現行の解析評価手法がダクト破損挙動を適切に模擬している可能性が十分にあるが、今後展開される複数の試験結果により最終的な結論を導くこととする。

(3) 融体流出

図 4-2 に示す圧力変化より、約 3.6 秒の時点で排出ダクト内の融体ほぼ全量が下部トラップへ流出したと推定できる。これは、上部トラップの減圧率および下部トラップの昇圧率双方が増加を始めていることで判断した。減圧率および昇圧率双方の増加は、上部トラップから下部トラップへのガス流れが促進されたことに対応し、これは抵抗となる排出ダクト内融体がほぼ無くなったことを意味すると考えた。上部トラップから流出した量は、排出ダクト内壁面に形成されたクラストおよび下部トラップで固化した融体の和であり、図 4-1 により約 10.5kg となる。すなわち、試験では、融体プールの約 98wt% がダクト破

損から1秒以内で完全に下部トラップへ流出したことになる。

融体流出の過渡変化は、ガンマ線検出器のデータからさらに詳細に把握することができる。ガンマ線検出器計数の変化と、流出ダクトに設置した熱電対応答を図4-4に示す。ガンマ線検出器計数変化は、初期計数值 I_0 との比 I/I_0 で規格化して示す。図中に例えば210mmという表示があるが、これは上部トラップ下面から210mmの位置における測定値であることを意味する。図から、規格化計数の減衰は約2.8秒の時点で開始していること、ほぼ同時刻に熱電対指示値も変化していることが分かる。つまり、アルミナ融体の通過に対応して規格化計数が減衰したと判断できる。

次に、アルミナ融体排出の過渡変化を求める。遮蔽厚み x の変化は、以下の式で評価することができる。

$$x = -\frac{1}{\alpha} \ln \left(\frac{I}{I_0} \right)$$

2つの検出器は流出方向に330mm離れているため、図4-4に示されるように2つの計数値は時間差を持って変化している。この時間差と距離により、7.5 m/sという移動平均速度を求めることができる。この移動平均速度と上記の遮蔽厚さにより、融体流量を評価することができる。図4-5は、上部トラップの残存融体量を規格化して示したものである。2.8秒に流出が始まり、その0.3秒後に30wt%が流出、0.4秒後に50wt%が流出し、0.7秒後である3.5秒時点で流出が終了していることが分かる。

以上の評価に際して、減弱係数 α は試験後の較正によって求めた。管内部にクラストとしてアルミナ固化物が付着するため、図4-4に示されるように融体通過後の規格化係数 I/I_0 は1未満となる。よって、試験後計測した管内のクラスト厚みと融体通過後の I/I_0 により減弱係数を求めることができる。ここでは、6.82と評価した。なお、減弱係数については、次の2つの理由にて厳密な値を得ることができない。1つ目の理由は、試験中の測定対象は液相であるのに対して較正は固相で行なうこと、2つ目の理由は、円柱あるいは円管形状の測定対象物を上記の平板モデルで評価せざるを得ないことである^{iv}。この2つの理由は、何れも液相状態のアルミナの通過量を過小評価する。しかし、この問題が顕在化するのには、流出流量の絶対値を評価する場合であり、図4-5の如く流出量を相対値で扱う限りは、減弱係数の不確かさは問題とならない。

試験後の排出ダクト断面を図4-6に示す。図中の距離は、上部トラップ底面を基準としている。複数の断面により、360mmの位置からダクト出口(約840mm)までのクラストは単一層で周方向に厚さ均一であることを確認した。一方、ダクト入口(0mm)から360mm

^{iv} 照射範囲を狭くすることで、平板近似でも精度は向上する。しかし、試験においては融体通過の検出性を優先し、ガンマ線の照射範囲を排出ダクト直径の40mmに設定した。

の位置までは、クラストは複数の層から形成され、周方向に厚さが不均一であることが確認できる。以上のダクト断面に形成されたクラストによって、主たる融体流出は1回であり、上部トラップに残存した融体がある後に滴下して複数層のクラストを形成したと推定できる。

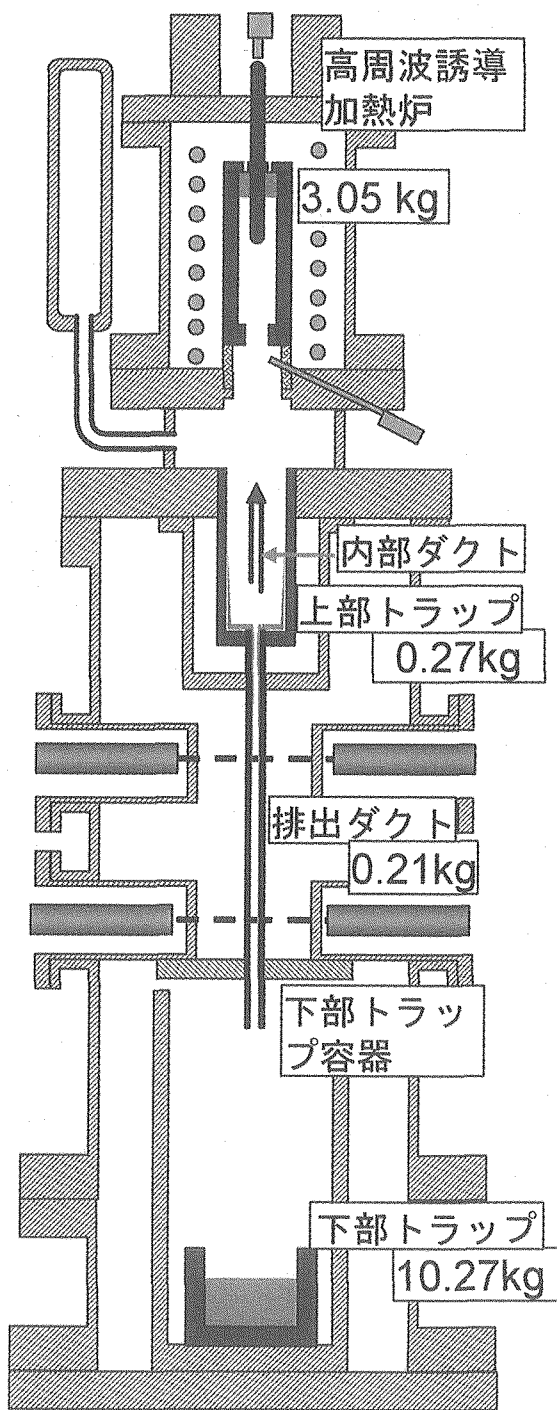


図 4-1 試験後のアルミナ固化物配置

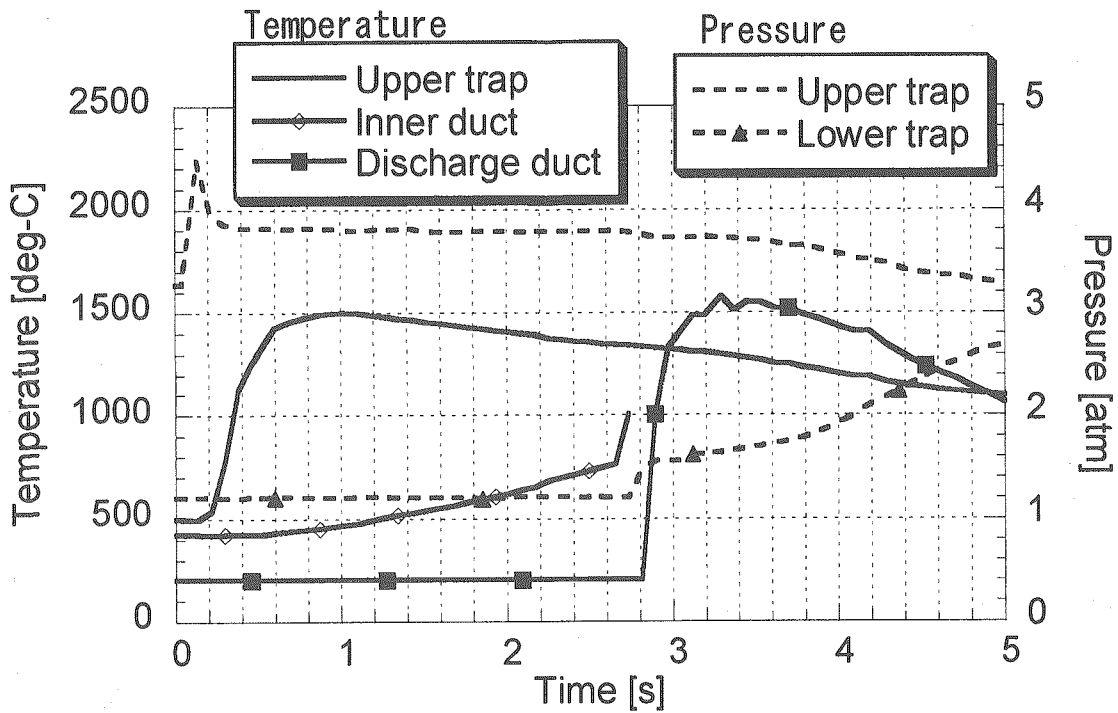


図 4-2 試験体の温度および圧力変化

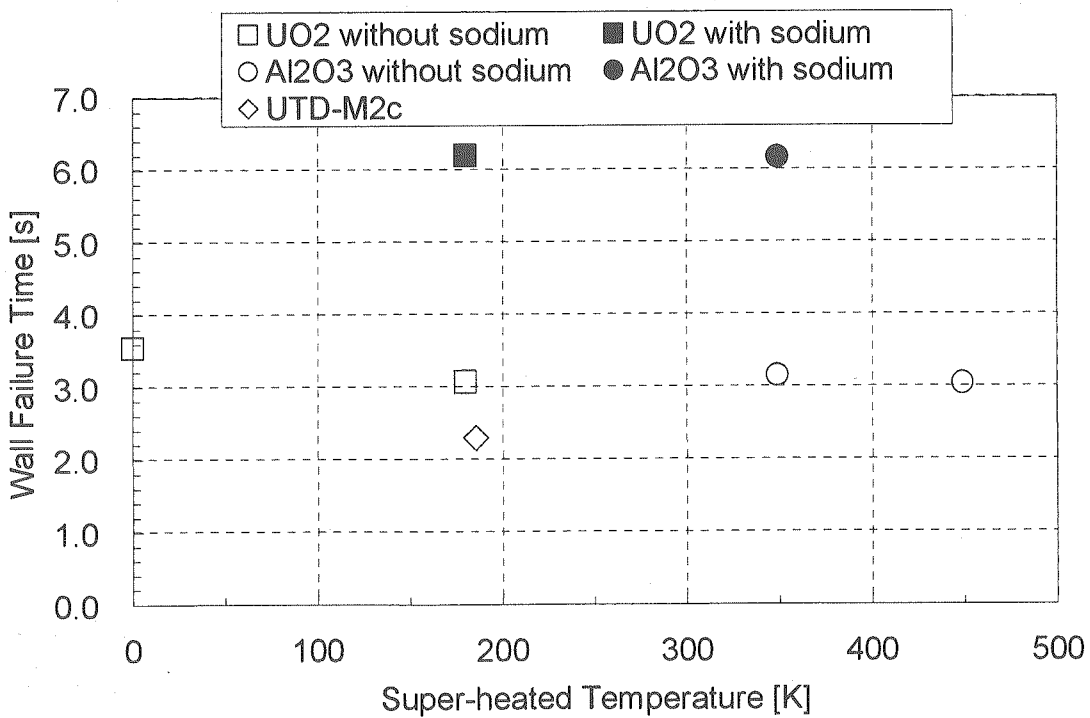


図 4-3 内部ダクト破損時刻の事前評価との比較

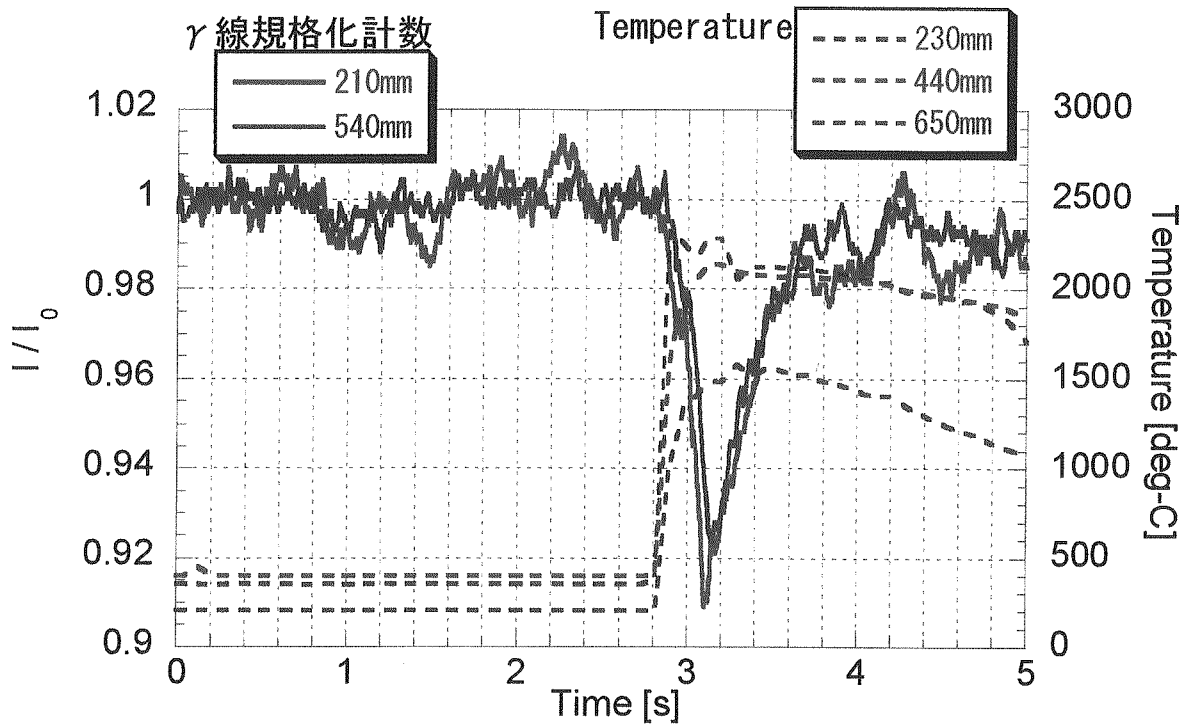


図 4-4 ガンマ線検出器の規格化計数の変化

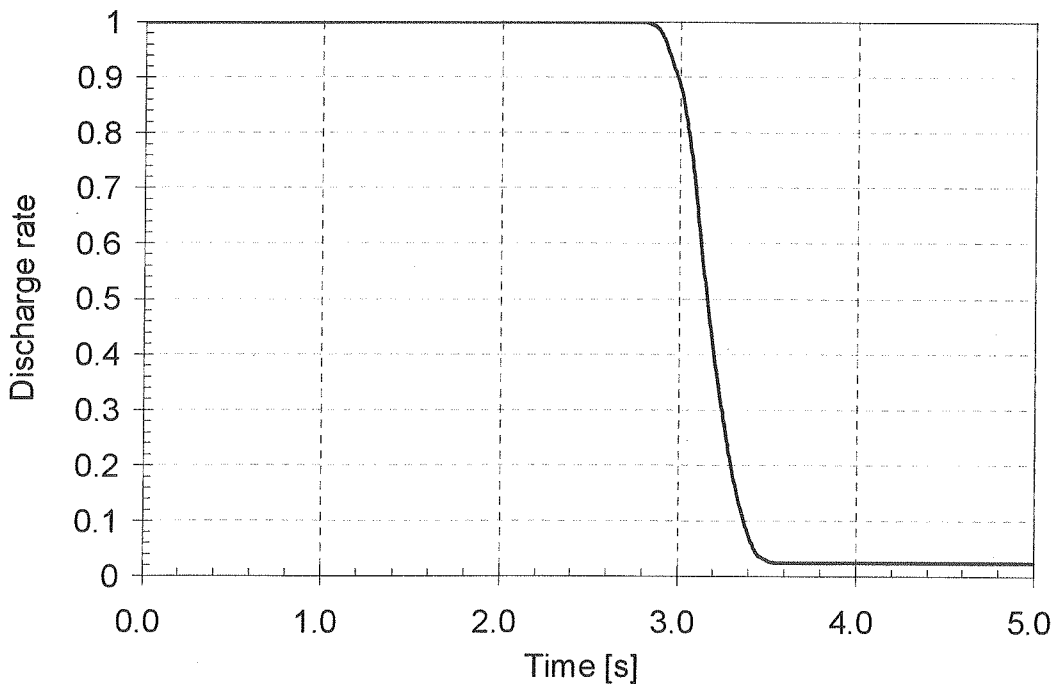


図 4-5 上部トラップの残存融体量変化

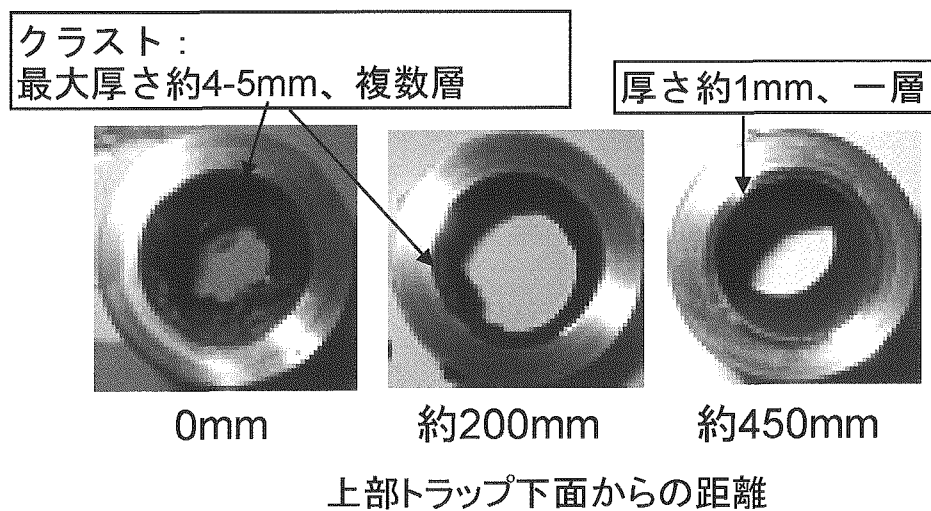


図 4-6 試験後の排出ダクト任意断面

5. おわりに

EAGLE 炉外試験では、試験実施の基本技術である融体生成・試験体への移送技術および計測技術を確立させるための試験シリーズを実施した。炉外試験では、誘導加熱によって熔融炉心物質あるいはその模擬物質を加熱・保持し、制御された条件下で試験部に移送する必要がある。また、生成された融体の物性は、実機における現象模擬の観点から妥当、かつ、試験結果の評価におけるニーズの観点から十分な精度をもって既知であることが必須である。上記ニーズを踏まえ、二酸化ウラン及びアルミナを融体の候補材料として試験技術の確立を図るとともに、ナトリウムを使用しない条件下での熔融炉心物質の流出挙動に関わる基本特性を把握した。試験を通じて得た知見、成果を以下に記す。

- 二酸化ウランについては、坩堝内面に TaC や NbC コーティングを施す手法、Zr を混入させる手法、および、タングステン製内筒を挿入する手法によって坩堝との化学反応を抑制し、十分な純度の融体の実現を図った。しかし、これらの対策は何れも局所的な高温化によって反応防止障壁としての機能が失われ、融体と黒鉛材との直接接触によって化学反応が無視できない程に進行した。さらに、その結果として生成された融体の物性は実機模擬性の観点から不適切である可能性が高く、かつ、物性そのものの定量化が困難であった。
- 一方、アルミナについては、物性データが既知かつ実機模擬性の観点から妥当性を有すると考えられ、試験実施によって十分な純度を有する融体生成と試験部への移送が可能であることが確認できた。
- ナトリウムを用いない条件下での試験の結果、アルミナ融体は流出経路を模擬した厚さ 2mm、初期温度 417°C のスチールダクトを約 2.3 秒で熔融し、98wt% がこのダクトを通じて下部プレナムを模した領域へと 1 秒未満で流出する結果を得た。これは、十分な速さの流出挙動である。

EAGLE 炉外試験では、今後、アルミナ融体を用いてナトリウムを使用した試験を実施し、融体の流出挙動に対するナトリウムとの伝熱現象の影響等を把握していく。さらに、炉内試験と相補的に活用することで、厳しい再臨界事象の回避に向けた試験データベースを構築してゆく予定である。

謝辞

試験の遂行は、カザフスタン共和国国立原子力研究センター（NNC/RK）のバシリエフ氏、カラデシニコフ氏、ズエフ氏、ヤコブレフ氏をはじめとする多くの方々の尽力によるものである。また、東京工業大学の齋藤正樹先生には、試験実施に関する様々な助言を頂いた。さらに、日本原子力発電（株）の小竹庄司殿、独立行政法人原子力安全基盤機構の遠藤寛殿、三菱重工株式会社の林和也殿、島川佳郎殿、新型炉技術開発（株）の渡辺収殿、小山和也殿には、試験計画の立ち上げから試験結果の分析等に多大な御尽力を頂いた。熱化学グループの宮原信哉グループリーダーには、高温での化学反応について貴重な助言を頂いた。本試験計画に係る皆様に御礼申し上げる。

参考文献

- [1] 飛田吉春、他、「高速増殖原型炉 ULOF 事象の評価研究—最新の知見を反映した炉心損傷評価—」、動力炉・核燃料開発事業団報告書 PNC TN9410 97-079 (1997年9月)
- [2] Sa. Kondo, *et al.*, "Status and Achievement of Assessment Program for SIMMER-III, A Multiphase, Multicomponent Code for LMFR Safety Analysis," *Proc. 8-th Int. Top. Mtg. on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-8)*, Kyoto, Japan, September 30 – October 4, 1997.
- [3] Sa. Kondo, *et. al.*, "Phase 2 Code Assessment of SIMMER-III, a Computer Program for LMFR Core Disruptive Accident Analysis", JNC TN9400 2000-105.
- [4] H. Yamano, *et al.*, "SIMMER-IV: A Three-Dimensional Computer Program for LMFR Core Disruptive Accident Analysis, Version 2.A Model Summary and Program Description," JNC Report, JNC TN9400 2003-070, August 2003.
- [5] 小西 賢介、他、「高速炉の炉心安全性向上のための EAGLE プロジェクト(5)—炉内 GP 試験の結果—」、日本原子力学会 2002 年秋の大会.
- [6] G. Kayser, R. Stansfield, "SCARABEE Experimental Experience on Failure Mechanisms of Stainless Steel Walls Attacked by Molten Oxide", *Proc. 1st. Int. Topical Mtg. on Advanced Reactor Safety (ARS '94)*, Pittsburgh, April 1994.
- [7] B. W. Spencer, *et. al.*, "Results of Recent Reactor-Material Tests on Dispersal of Oxide Fuel from a Disrupted Core", *Proc. Intl. Mtg. on Fast Reactor Safety*, 2, 877, Knoxville, April 1985.
- [8] G. P. Devault, "SIMMER-II Analysis of the CAMEL-II C6 and C7 Experiments (Simulated Fuel Penetration into a Primary Control Assembly)", Los Alamos National Laboratory report LA/10280/MS December (1985).
- [9] 松場 賢一、他「MELT-II 試験装置を用いた再臨界排除可視化基礎試験—溶融燃料排出経路の冷却材ボイド化挙動の把握—」、JNC TN 9400 2001-076 (2001年).
- [10] 松場 賢一、他「MELT-II 試験装置を用いた再臨界排除可視化基礎試験(2)—冷却材ボイド拡大挙動に対する冷却材流路の上部圧力損失及び融体エンタルピー投入速度の影響—」、JNC TN 9400 2003-001 (2003年).
- [11] G. Berthoud, *et. al.*, 'Analysis of Large Scale UO₂ Na Interactions Performed in Europe', *Proceedings of IAEA/IWGFR Technical Committee Meeting on Material-Coolant Interactions and Material Movement and Relocation in Liquid Metal Fast Reactors*, O-arai, Ibaraki, Japan, June 6-9, 1994, pp127-165.
- [12] H. Jacobs, 'Simulation of the CORECT II Experiment No. 18 with the MURTI Computer Programme', *OECD (NEA) CSNI Fourth Specialist Meeting on Fuel-Coolant Interaction in Nuclear Reactor Safety*, Bournemouth, April, 1979.
- [13] G. Berthoud, "Relocation of molten fuel: determination of the interfacial resistance", *Proc. IAEA/IWGFR Technical Committee Meeting on Material Coolant Interactions and Material Movement and Relocation in LMFRs*, O-arai, p. 331 (June 1994).

- [14] EPSTEIN et al, "Analytical and experimental studies of transient fuel freezing", Fast Reactor Safety Mtg, Chicago, 1976.
- [15] SPENCER et al, "Summary and evaluation of reactor-material fuel freezing tests", Intl mtg on FR Safety Technology, Seattle, 1979.
- [16] D. J. Brear、他、「Modeling of fuel freezing for reactor safety analysis」、日本原子力学会 1997 年秋の大会、沖縄、H57
- [17] Sa. Kondo, et. al., "Phase 2 Code Assessment of SIMMER-III, a Computer Program for LMFR Core Disruptive Accident Analysis", JNC TN9400 2000-105.
- [18] K. Kamiyama, "Improvement of SIMMER-III Freezing Model - A Study on a Semi-empirical Correlation for the Supercooling Temperature at the Melt/Structure Interface -", JNC TN 9400 2003-039, 2003.
- [19] R. E. Henry et al, "Experiments on Pressure-Driven Fuel Compaction with Reactor Materials", Fast Reactor Safety Mtg, Chicago, 1976.
- [20] SPENCER et al, "Results of Recent Upper Plenum Injection tests", Intl mtg on FR Safety Technology, Seattle, 1979.
- [21] Nuclear Technology vol.98(APR. 1992)
- [22] D. Magallon et al., Nucl. Tech., 98, 79 (1992).
- [23] T. Y. Chu et al., "Medium-Scale Melt-Sodium Fragmentation Experiments," Proc. Int. Mtg. on Fast Reactor Safety Technology, 742, Seattle, Washington, Aug. 1979.
- [24] H. Schins, F. S. Gunnerson, Nucl. Eng. Des., 91, 221 (1986)
- [25] G. Kayser, G. Berthoud, "Fuel Coolant Interactions in SCARABEE," Proc. Int. Conf. on Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plant (ANP '92), IV, 40.2-1, Tokyo, Oct. 1992.
- [26] Sa. Kondo, et. al, "Experimental study on simulated molten jet-coolant interactions", Nuclear Engineering and Design 155 (1995) pp. 73-84.
- [27] エル・ベ・カテリニコフ、他、「超高融点材料便覧」、冶金出版所モスクワ、1969 年.
- [28] 堀 克彦 編著「工業用電気加熱」、(財) 省エネルギーセンター、1995 年.

付録1 ジルコニウム混合小規模試験の概要と EAGLE 炉外試験条件の検討

小規模試験は、EAGLE 炉外試験条件の参考とするため、小型坩堝（内径 27mm、高さ 42mm）を用いて行なう試料熔融試験である。試験後の坩堝縦断面目視観察および固化試料の X 線回折による組成分析により、化学反応の程度を把握する。

試験条件および結果の概要を付録表 1.1 に示す。以下、EAGLE 炉外試験条件を考察するため、小規模試験の比較を行い、ジルコニウム (Zr) の効果的な混合量等を整理する。

(1) 小規模試験結果の整理

(a) 坩堝侵食に対するジルコニウム配置と混合量の影響

W42 試験、W49 試験は Zr の配置が異なるものの、混合量としてはほぼ同じで、約 19wt% (Zr/ UO_2 モル比 : 約 0.55) となる。Zr の装荷方法、試験後の坩堝断面を付録図 1.1 に示す。W42 試験の配置の方が若干ではあるが坩堝侵食防止に有効であることが分かる。ただし、後述するように、融体組成に対してこの侵食の差の影響は生じていない。すなわち、Zr を約 19wt% 混合する場合は、坩堝侵食に対して Zr の配置はほとんど影響しないと考えられる。

次に、Zr の混合量を約 10wt% (モル比約 0.3) まで減じた試験結果を比較する。対象は W45 試験、W50 および W51 試験である。Zr の装荷方法と試験後の坩堝断面を付録図 1.2 に示す。明らかに W45 の配置が坩堝侵食に対して効果的であることが分かる。X 線分析によれば、W51 試験程度の坩堝侵食でも炭化影響は外周部のみに止まっている。

以上より、Zr の装荷量を約 19wt% とした場合、配置に関係なく坩堝侵食防止の効果が生じていることが分かる。10wt% まで減じる場合、Zr は坩堝とバーデンの境界に配置することが最善で、次善は小片にてバーデンに均一に混入させる方法であることが分かる。

(b) ジルコニウム混合量が組成へ及ぼす影響

W42 試験、W49 試験で得られた再固化試料の X 線回折結果を付録図 1.3 に示す。図中に示す UO_2 の 2θ 値は、NNC/RK での実測値である。W42、W49 両試験ともに、反射線が見られる 2θ 値は、その値が大きくなるほど UO_2 の固有値から $0.2\sim 0.6^\circ$ ずれることがわかる。測定上の誤差でなければ、固化物の化学組成は UO_2 でなく、Zr が混入した (U, Zr) O_x となる。なお、 UO_2 以外の反射線も見られるが、物質の断定には至っていない。

次に、Zr 混合量がより少ない W51 試験結果を確認する。W51 試験は、Zr を破片で混入させたもので、その混合量は 10wt% (Zr/ UO_2 モル比 : 約 0.3) である。再固化させた試料の X 線回折像を付録図 1.4 に示すが、反射線の 2θ 値は全て UO_2 固有値に一致している。坩堝の減肉が見られており、坩堝内表面から採取した再固化試料 (W51-4) には、UTD-3/1 試験の坩堝内固化試料と同様の反射線が見られる。すなわち UC_2 および UC 存在が示されている。しかし、その場所以外の再固化試料からは、炭化ウランの存在を示す反射線は見

られない。

以上により、Zr/ UO_2 の混合モル比が0.55以上の場合、再固化物の化学組成は UO_2 から(U, Zr) O_x と変化するが、混合モル比が0.3以下かつW51試験での混合形態であれば再固化物の化学組成は UO_2 ということになる。ただし、Zrが混入しているのは事実であり、回折線への影響が顕在化していないと見るべきである。

(c) 坩堝と二酸化ウランとの反応防止機構

ZrはCに比べて酸化ポテンシャルが高く、 UO_2 の酸素と優先的に反応すると推定される。W42試験、W49試験においては、坩堝と再固化試料との境界面に $\text{ZrC}_{0.7}$ ($2\theta=38, 56, 65.3$)が存在する。すなわち、この2つの試験における UO_2 と坩堝との反応防止機構は、坩堝内表面へのZrC層形成およびZrと酸素との結合である。一方、W51試験の結果では、ZrC層は明確には確認できない。しかし、W50試験との比較から、Zrと酸素との結合のみでも坩堝との反応が抑制される効果があることが分かる。

(2) EAGLE 炉外試験へのジルコニウム装荷

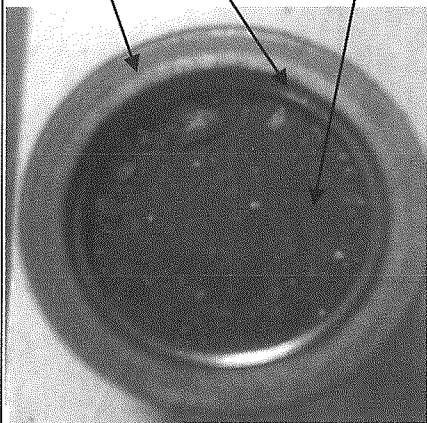
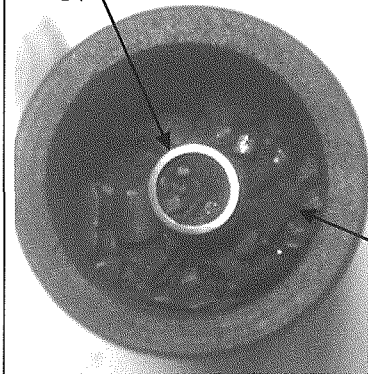
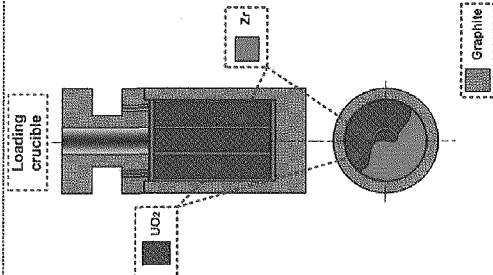
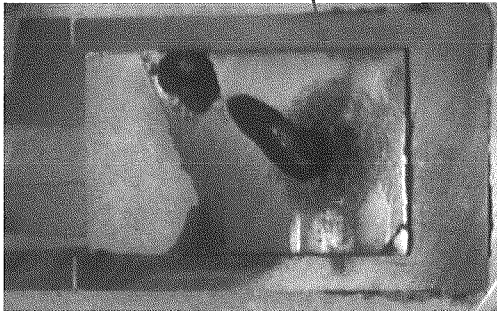
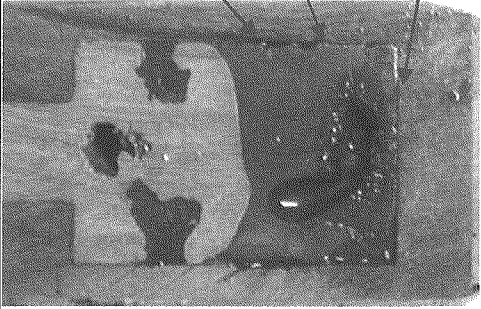
混合量および装荷形態について検討した。

小規模試験では、10wt%から18.8wt%の範囲でZrが混合されたが、混合量が多いほど坩堝侵食が低下する傾向が確認できた。よって、EAGLE炉外試験では、22kgの UO_2 に対して4kg程度のZrを混合することが妥当と判断した。

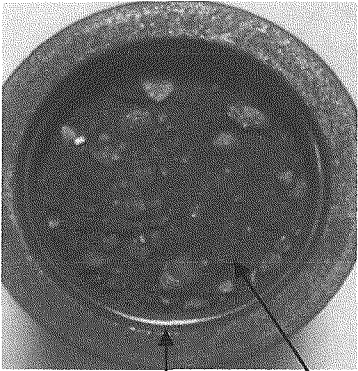
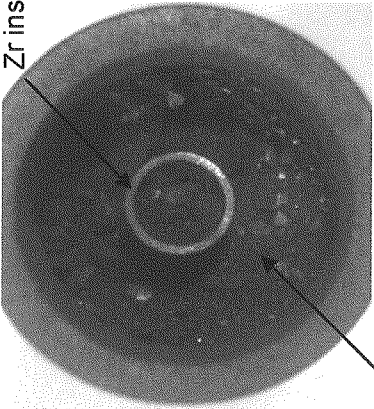
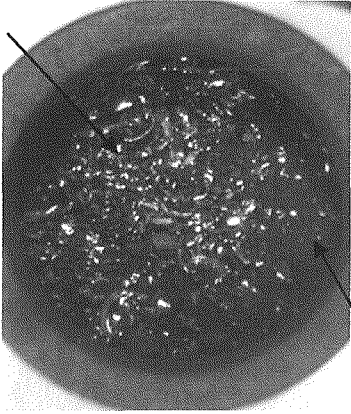
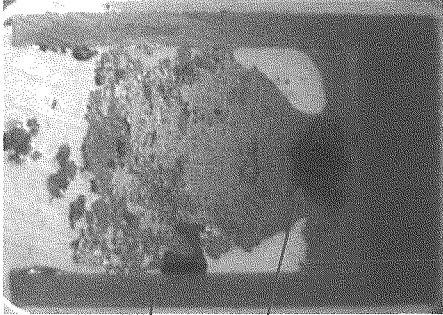
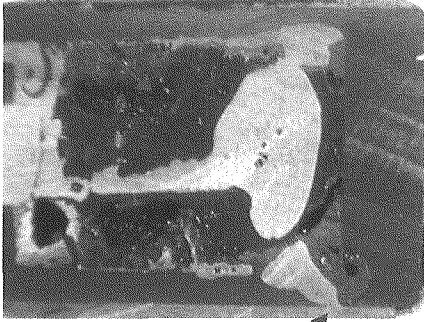
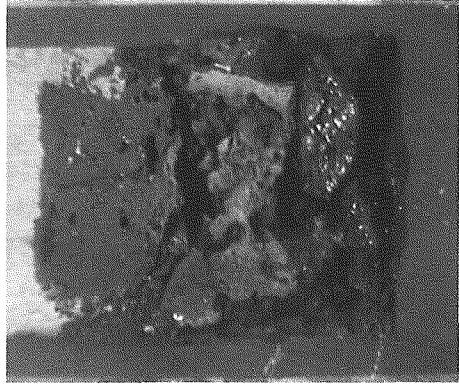
最適と判断されるZrの配置を付録図1.5に示す。加熱の観点から UO_2 ペレットの円環配置が必要であること、小規模試験からは壁面近傍の配置が効果的であったことを考慮した。この配置にて、 UO_2 :Zrを22:4kgで装荷することができる。

付録表 1.1 試験条件および結果の概要

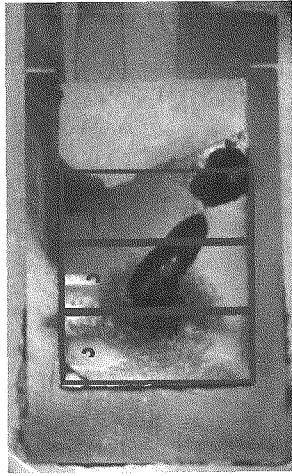
試験 No.	UO ₂	Zr	Zr/UO ₂	Zr 配置	切断面の観察結果	X線回折結果
W-42	135 g 0.50 mol	25 g 0.27 mol	0.185 (重量比) 0.548 (モル比)	坩堝と UO ₂ の境界	坩堝侵食はほとんど無い。	UO ₂ の 2θ 値と比較すると、0.2~0.6° の差が認められる。
W-45	135 g 0.50 mol	13 g 0.14 mol	0.096 (重量比) 0.285 (モル比)	坩堝と UO ₂ の境界	坩堝侵食はほとんど無い。 25%の UO ₂ が未溶融。	データ無し
W-49	117 g 0.43 mol	22 g 0.24 mol	0.188 (重量比) 0.557 (モル比)	UO ₂ 内	坩堝側壁の侵食は僅かに認められる。 坩堝底面の侵食はほとんど無い。	UO ₂ の 2θ 値と比較すると、0.2~0.6° の差が認められる。
W-50	120 g 0.44 mol	12 g 0.13 mol	0.100 (重量比) 0.296 (モル比)	UO ₂ 内	坩堝側壁一部が溶融貫通。 UO ₂ は未溶融。	左記結果に伴い、UO ₂ 以外に、Zr ₃ O ₇ 、β-UO ₃ 等の多成分が混在
W-51	100 g 0.37 mol	10 g 0.11 mol	0.100 (重量比) 0.296 (モル比)	UO ₂ 内に小片	坩堝側壁が 1.5mm 侵食。 坩堝底面の侵食も見られる。	UO ₂ の 2θ 値と一致する。 侵食面では UC ₂ /UC が見られる。

<p>W-42 試験</p>  <p>黒鉛製坩堝 Zr insert: 25g (コップ形状) UO₂: 135g (ペレットを砕いたもの) Zrの装荷方法 (試験前)</p>	<p>W-49 試験</p>  <p>Zr insert: 22g Total UO₂: 117g (ペレットを砕いたもの)</p> 
 <p>坩堝／溶融物境界面の侵食がほとんど無い</p> <p>試験後の坩堝縦断面写真</p>	 <p>坩堝／溶融物境界面に若干の侵食が見られる NbC層が見られる (NbはZr insertに2.5%混入している。) 底面は侵食が見られない。</p> <p>試験後の坩堝断面写真</p>

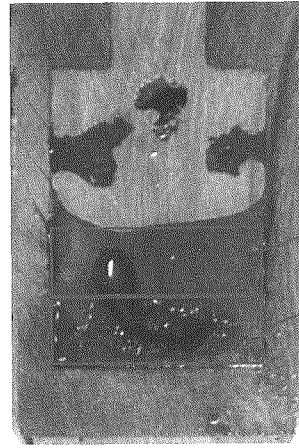
付録図 1.1 W42 試験と W49 試験との比較

<p>W-45 試験</p>  <p>Zr insert: 13g (コップ形状)</p> <p>UO₂: 135g</p> <p>Zr の装荷方法 (試験前)</p>	<p>W-50 試験</p>  <p>Zr insert: 12g</p> <p>UO₂: 120g</p> <p>Zr の装荷方法 (試験前)</p>	<p>W-51 試験</p>  <p>Zr insert: 10g</p> <p>UO₂: 100g</p> <p>Zr の装荷方法 (試験前)</p>
 <p>柑塙 / 溶融物境 界面の侵食がほ とんど無い</p> <p>溶融割合は 75%</p> <p>試験後の柑塙縦断面写真</p>	 <p>貫通孔</p> <p>ほとんどの UO₂ は 未溶融</p> <p>試験後の柑塙縦断面写真</p>	 <p>試験後の柑塙縦断面写真</p>

付録図 1.2 W45 試験、W50 試験および W51 試験の比較



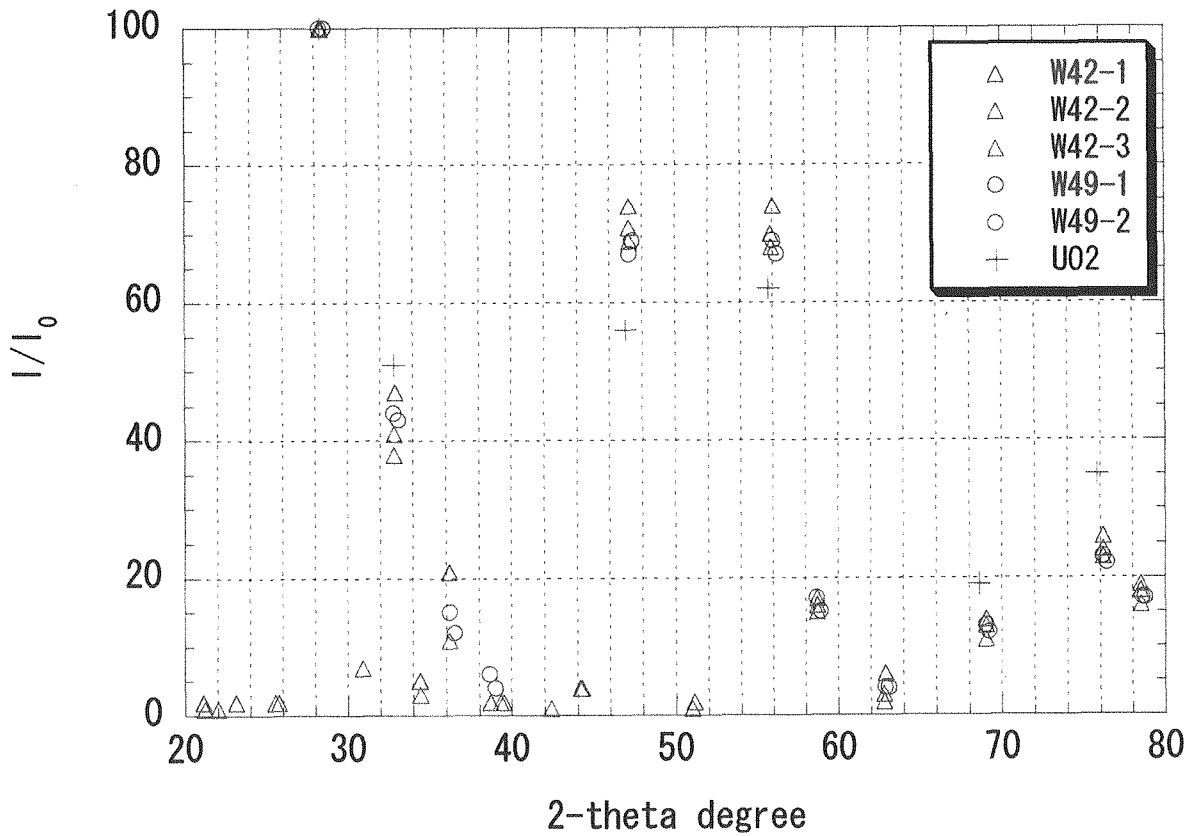
W42 試験のサンプリング位置



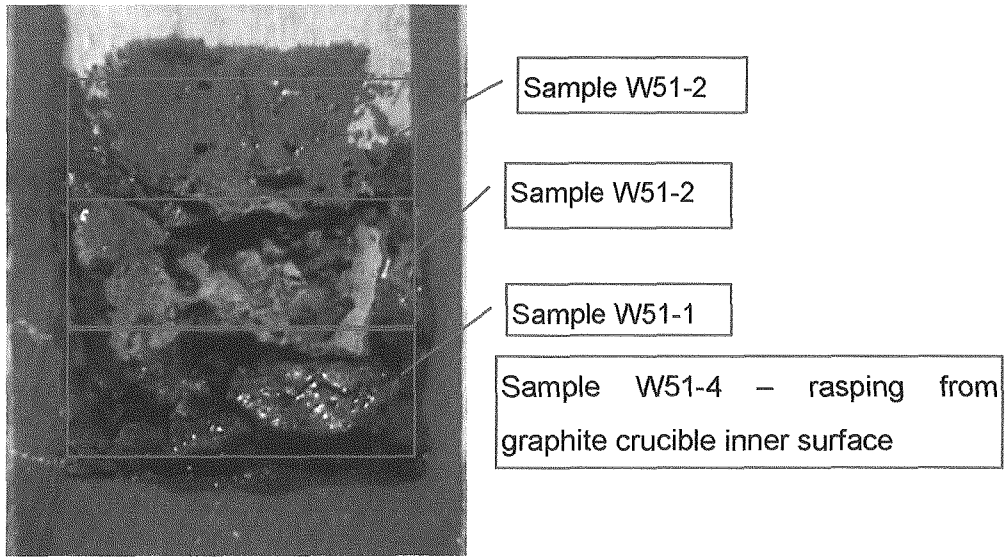
Sample W49-2

Sample W49-1

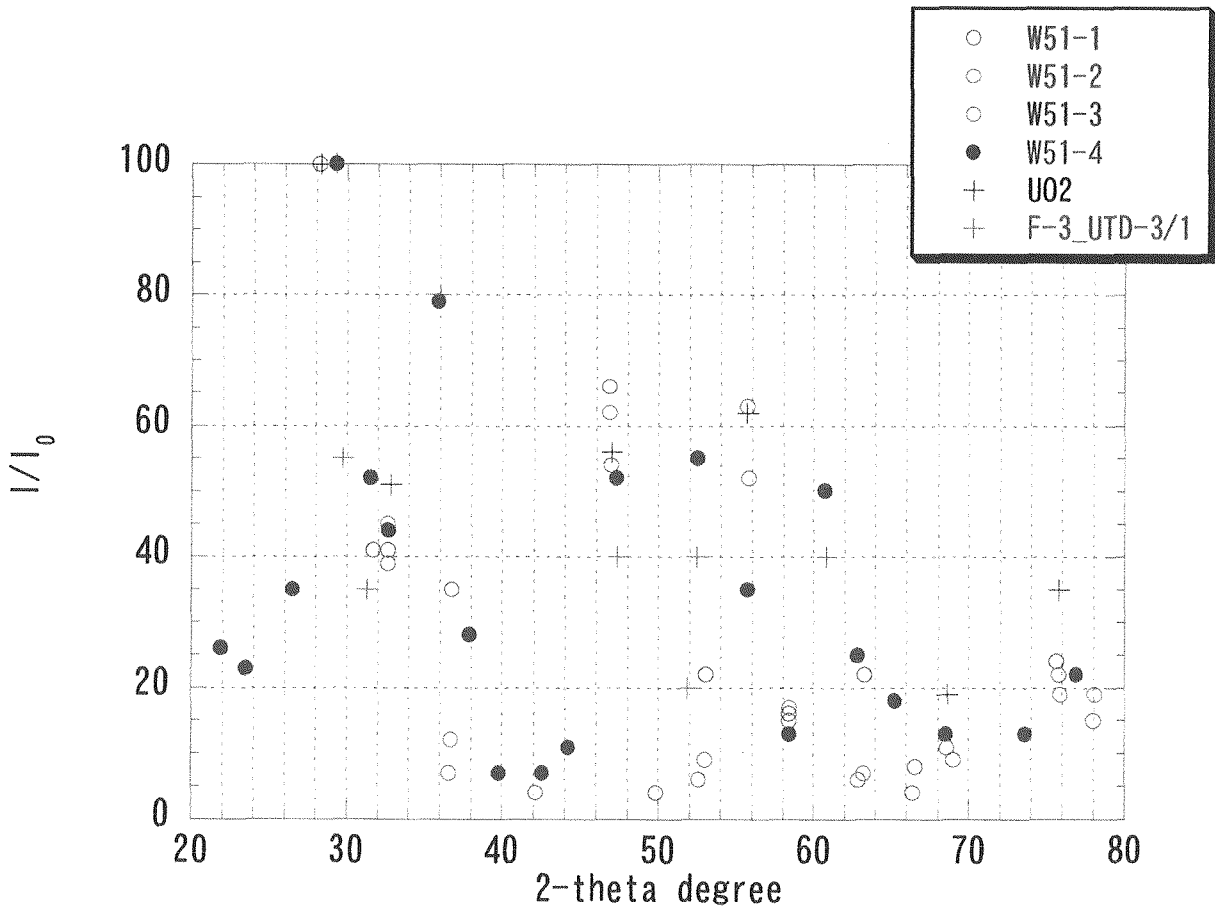
W49 試験のサンプリング位置



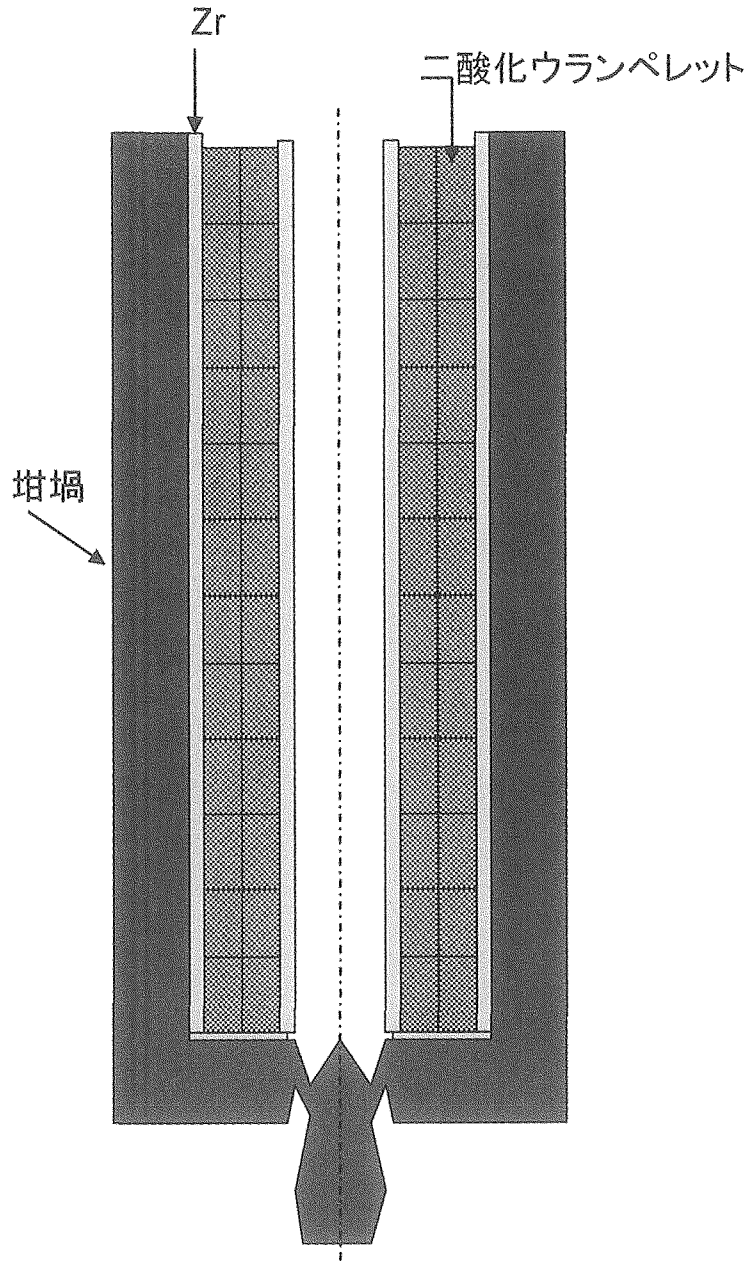
付録図 1.3 W42 試験、W49 試験で得られた再固化試料の X 線回折結果



W51 試験のサンプリング位置



付録図 1.4 W51 試験で得られた再固化試料の X 線回折結果



付録図 1.5 EAGLE 試験での Zr の配置案

付録2 代替融体について

確実に融体生成・移送を行なうためには、熔融試料と坩堝の化学反応を抑制する必要がある。現有の技術では、坩堝の加熱温度を下げるのが有効な方法となる。よって、融点の低い熔融試料を選定する必要がある。

選択肢は既存試験での実績を重視し、ジルコニア (ZrO_2)、軽水炉コリウム ($UO_2 \cdot ZrO_2 \cdot Zr$)、アルミナ (Al_2O_3) となる。ジルコニアの融点は二酸化ウランよりも 150K 程度低いので、温度を下げる効果が十分でない可能性がある。軽水炉コリウムは物質の混合比率で液相/固相点に変化し、明確な値を得ることが難しい。一方、アルミナは、液相/固相点が明確に把握され、かつ、その値が二酸化ウランよりも約 800K 低いので化学反応の抑制が期待できる。さらに、諸熱物性値は、解析コード等の評価に使用できる程度に整備されている。よって、アルミナの選択が望ましい。

しかし、アルミナを代替融体として採用するには、融体流出に関わる一連の挙動についての予測評価が必要となる。アルミナは、軽水炉のシビア・アクシデント研究や高速炉の CDA 研究にて熔融炉心の模擬物質として利用されてきものの、本文図 2-11 に記した現象についての適用性は未知である。例えば、温度が低いため、スチール製のダクトを熔融・破損した上で流出するかどうか評価が必要となる。

そこで本章では、アルミナについて融体流出に関わる一連の挙動についての評価を行ない、二酸化ウランの代替融体として妥当かを検討する。

(1) 内部ダクト破損挙動

合理的な検討とするため、2段階に分けた評価を実施する。また、二酸化ウランの代替融体としての妥当性を検討するため、全て二酸化ウランとの比較による相対評価となる。初めに、内部ダクト熔融に対する融体熱量について比較検討する。アルミナの熱量が二酸化ウランに比べて同等と判断できた場合、解析によって内部ダクトの破損時間を比較評価する。

(a) 融体熱量評価

内部ダクトの熔融所要熱量を初期温度 (673K) から液相点までで定義し、アルミナ融体の熱量を 200K の過熱度と熔融潜熱にて定義する。スチールの単位重量当たりの熔融所要熱量は本文図 3-2 より約 1.1MJ/kg、アルミナの単位熱量は本文図 3-33 より約 1.4MJ/kg となることが分かる。内部ダクトの軸方向熱伝導を無視すると、上部トラップに形成される液面以下が加熱対象となる。アルミナの重量を 15kg とすると、液面高さは約 0.28m となるから、融体によって加熱されるダクト重量は約 0.6kg、ダクトの熔融に必要な熱量は約 0.66MJ となる。この 0.66MJ の熱量は、ダクト周囲の厚さ約 4mm のアルミナ融体層が凝固するまでの熱量に相当する。上部トラップ内径は 0.16m であり、4mm 層とは融体量の約 3% である。なお、二酸化ウランの場合、取扱い重量を 26kg よ

り液面高さは約 0.16m となるから、融体によって加熱されるダクト重量は約 0.3kg、約 0.33MJ がダクト溶融に必要な熱量となる。本文図 3-2 から、200K の過熱度を有する二酸化ウランの単位熱量は約 0.4MJ/kg であるから、0.33MJ はダクト周囲の厚さ約 4mm の二酸化ウラン融体層が凝固するまでの熱量に相当する。これは、アルミナと同じである。

以上より、アルミナ融体は二酸化ウラン融体と同様のダクト溶融熱量を持つと判断することが妥当である。

(b) 破損時間評価

次に、ダクト破損時間について解析評価を行なう。ダクト破損に時間を要する程、上部トラップへの伝熱、液面からの輻射によって融体の熱損失量が大きくなり、融体の温度低下、粘度増加をもたらすため流出挙動に影響する。解析は SIMMER-III コードを用いて実施する。

(i) 計算体系および条件

上部トラップのみを模擬した体系にて計算を実施する。計算体系を付録図 2.1 に示す。伝熱計算初期において、融体と冷却材を完全に静止させるため、計算開始から 0.1 秒間は伝熱計算を行わず、流体計算のみで定常状態を設定する。融体については、加熱炉からの移送に伴う流動が存在すると想定されるが、今回の計算では融体物性差によるダクト溶融時間差を評価することが目的であるため、初期完全静止という同じ条件を全ての計算条件に共通とした。

計算条件を付録表 2.1 に示す。融体の種類、初期温度、ナトリウムの有無をパラメータとして実施した。計算に用いた主要な熱物性値を付録表 2.2 に、特に温度依存性の高い熱伝導度を付録図 2.2 に示す。

(ii) 計算結果

計算結果を付録表 2.1 にまとめて示す。壁面溶融について計算結果を整理したものを付録図 2.3 に示す。ダクト内にナトリウムが無いケースについては、アルミナの初期過熱度は二酸化ウランに比べて高く設定されているものの、ダクト破損時刻に対する影響は 100K で 0.2 秒程度である。よって、二酸化ウランの過熱度に外挿しても、ダクト破損時刻の差は 0.5 秒程度であると推定できる。ダクト内にナトリウムが存在する場合も同じと考えられる。よって、アルミナ融体によるダクト破損時刻は、二酸化ウラン融体に比べると若干遅くなるものの、試験データ取得の面では問題にはならないと考えられる。以下は、同程度の破損時刻となることについて、理由を分析したものである。

融体がダクトに接触すると、ダクトにはクラストが形成される。よって、ダクト温度上昇はクラストを介した伝熱に支配される。付録図 2.4 に、壁面表面とクラスト間の温度差を示す。融点の高い二酸化ウランのクラスト温度は、アルミナに比べて高くなって

おり、壁面との温度差も大きくなる。一方、付録図 2.5 に示されるように、クラストの熱伝導度はアルミナの方が大きい。よって、付録図 2.6 に示すように、これら正負の効果が打ち消し合うため、各単位伝熱面の熱流束値が2つの融体ともほぼ同じ値となり、壁面温度上昇と破損時刻が同等になると解釈できる。

融体の温度低下は、最大でも 100K 程度であった。トラップ底面の冷却効果は模擬されていないが、融体中心温度が変化していないこと、冷却の影響を受けるのは底面から約 20~30mm であることを確認した。よって、ダクト破損後でも融体は十分な流動性を持つものと予想される。

(iii) ダクト破損挙動のまとめ

アルミナ融体を用いても、ダクト溶融時間は二酸化ウラン融体とほぼ同じとなることが示された。これは、アルミナの熱伝導度が二酸化ウランの約 2 倍であることに起因する。

絶対的な溶融時刻については、融体の熱伝達係数に対し次の2点で過少評価している可能性がある。1つは計算セルの粗さに伴う等価直径の過大評価、もう1つは上部トラップ内流動を考慮していないことによる Nu 数の過少評価である。よって、試験にてデータを取得し、再評価を行なうことが望ましい。すなわち、ダクト温度の測定値および溶融時刻を基に融体の等価熱伝達係数を評価することが妥当である。

(2) ダクト内ボイド拡大挙動

ここでは、物性差による基本特性を評価することが目的であるため、内部ダクト内ナトリウム温度を初期温度と想定して評価を行なう。

該当の挙動に対する試験的知見としては、JNC の MELT 施設で実施された試験^{[9][10]}が系統的に実施された唯一の試験例である。試験結果は、横軸に「ボイド化のし易さに関するパラメータ \tilde{C} 」、縦軸に「冷却材ボイド発生までの融体放出時間 \tilde{t} 」で整理されており、ANL の CAMEL 試験^[7]結果を外挿できることが示されている。ここでは、高融点物質に対する評価のため、定義式に溶融潜熱 L_f を加え以下の通りとした。

$$\tilde{C} = \frac{\rho_m [Cp_m (T_m - T_{sat}) + L_f] \phi^2}{\rho_c Cp_c \Delta T_{sub} d^2}, \quad \tilde{t} = \frac{\bar{v} t}{d}。$$

評価結果を付録図 2.7 に示す。融体物性差を把握するため、ボイド発生までの放出時間は一定とした。図から、アルミナは温度低下の影響が相対的に強くなり、ボイド化し難い特性になっていることが分かる。しかし、その差は僅かであり、熱量としては十分であると判断される。

(3) 融体と冷却材の熱的相互挙動

融体の流出は、上下トラップの圧力差によって定まり、下部トラップでの熱的相互作用による昇圧挙動は融体流出を妨げる方向に働く。よって、融体の流出先である下部トラップでの熱的相互作用を検討する。

下部トラップには、約 90kg のナトリウムが配置される。これは融体を冷却するに十分な量であり、この場合と融体温度と冷却材温度および両者の界面温度からなるマップ^[26]にて特性を把握できる。付録図 2.8 に、二酸化ウラン、アルミナとナトリウムの熱的相互作用の特性図を示す。図から、試験条件で想定される相互作用は、二酸化ウラン、アルミナ共に境界温度が最小膜沸騰限界温度以下となることが分かる。これは、融体の物性よりも冷却材の冷却特性に支配されているためである。つまり、下部トラップへ流出した融体は冷却材との接触境界面に安定した蒸気膜を形成しない。そのため、熱的相互作用による昇圧と蒸気の凝縮と圧力開放による下部トラップの減圧を繰り返す周期的な流出挙動になると推測される。

(4) まとめ

アルミナ融体を用いた場合の内部ダクト破損挙動、ダクト内ナトリウムのボイド拡大挙動および冷却材との熱的相互挙動について、二酸化ウラン融体との差異を検討した。

アルミナは二酸化ウランに比べて比熱、溶融潜熱および熱伝導度が大きいため、ダクト破損挙動は同等になると評価された。また、ボイド拡大挙動についても、二酸化ウランに比べて僅かにボイド化し難い特性があるが、熱量は十分であると評価された。下部トラップで想定される冷却材との熱的相互作用については、融体の物性よりも冷却材の冷却特性に支配されているため、二酸化ウランと同様に安定蒸気膜が融体と冷却材の境界面に形成されないという同じ特性を示すと評価された。

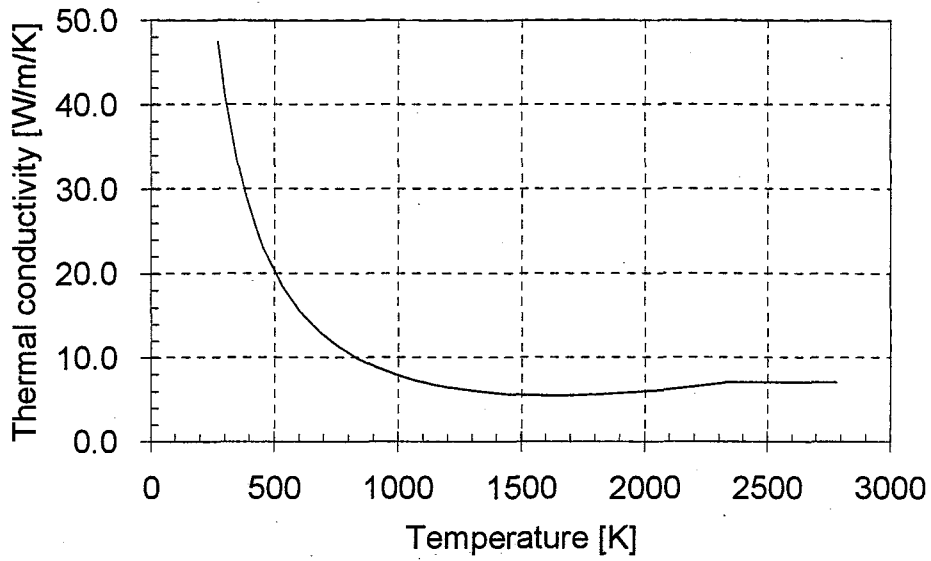
以上の評価結果より、二酸化ウランの代替融体としてアルミナを使用することは妥当であると判断した。

付録表 2.1 計算条件および結果一覧

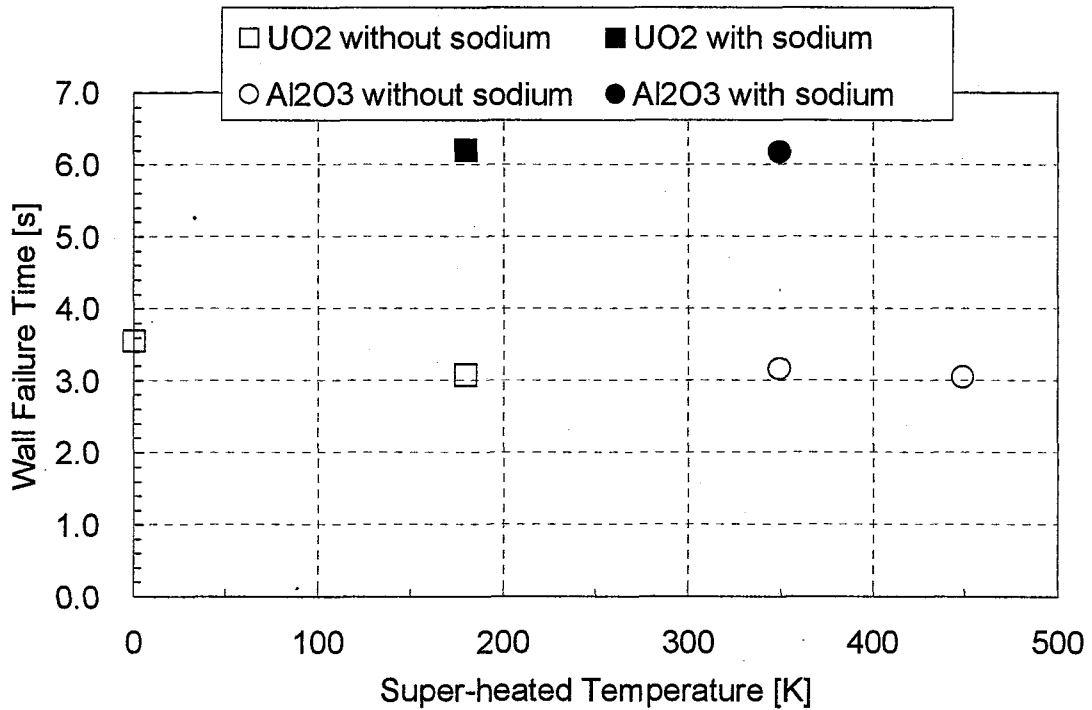
溶融物質	計算初期条件		結果	
	融体温度 [K] (過熱度 [K])	ナトリウムと壁面 温度 [K]	壁面溶融破損 時間 [s]	壁面破損時のクラ スト厚み [mm]
UO ₂	3300 (180)	673	6.2	2.08
UO ₂	3300 (180)	ナトリウムなし	3.1	1.38
UO ₂	3120 (0)	ナトリウムなし	3.5	2.28
Al ₂ O ₃	2673 (349)	673	6.2	2.05
Al ₂ O ₃	2673 (349)	ナトリウムなし	3.2	1.40
Al ₂ O ₃	2773 (449)	ナトリウムなし	3.0	1.24

付録表 2.2 計算に用いたアルミナ物性

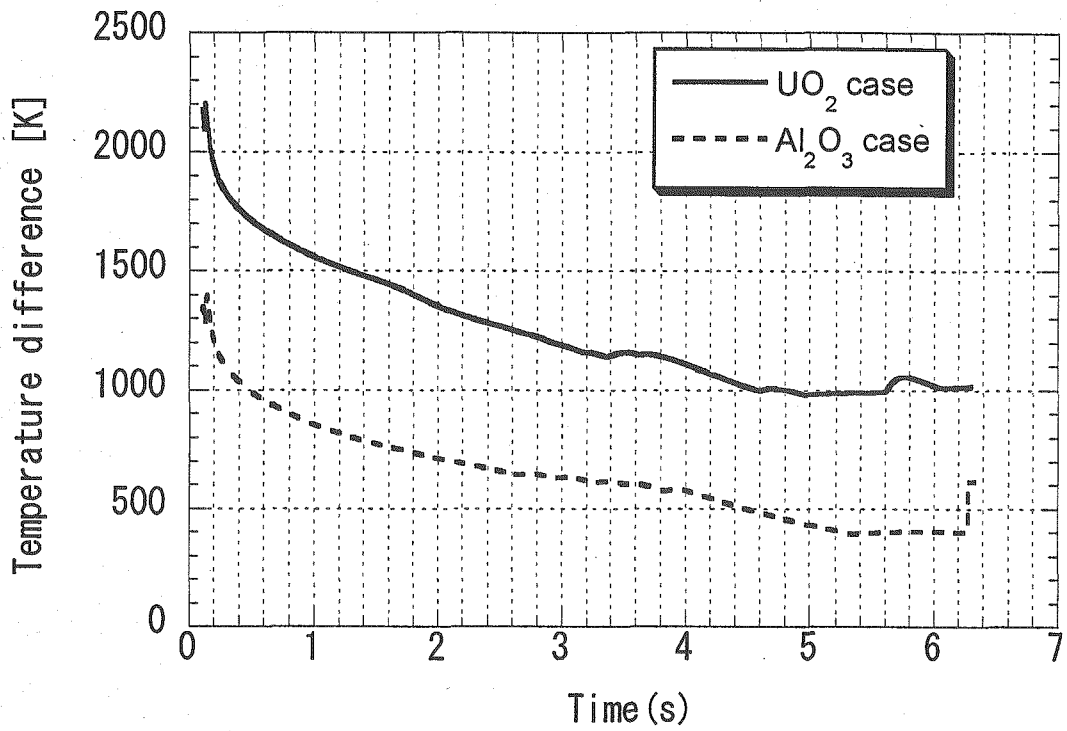
密度 [kg/m ³]	3843(固相点) / 2863(液相点)
比熱 [J/kg/K]	1315(固相点) / 1422 (液相点)
固相点/液相点 [K]	2324.15 / 2324.15
溶融潜熱 [J/kg]	1.055 × 10 ⁶



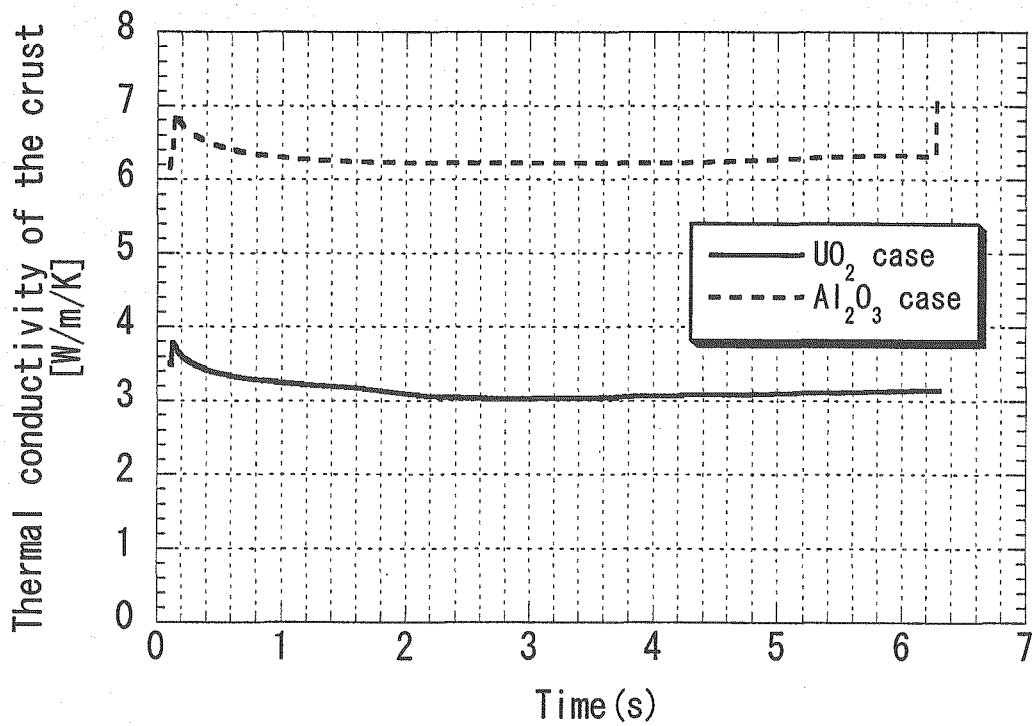
付録図 2.2 計算に用いたアルミナの熱物性



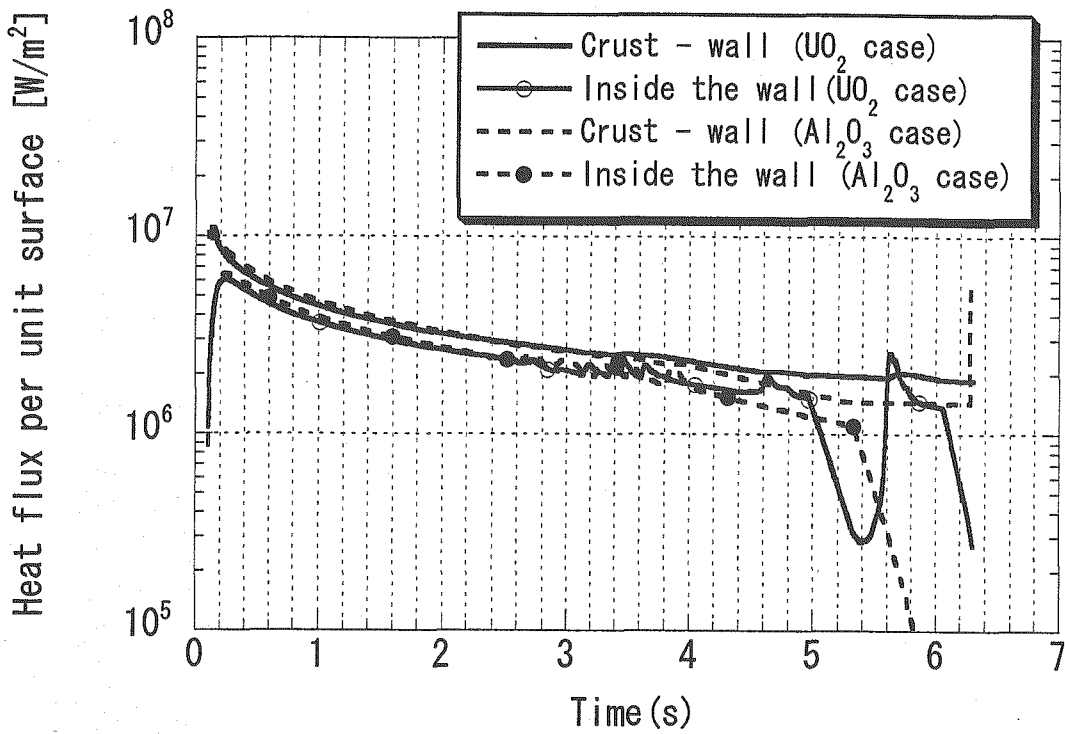
付録図 2.3 ダクト溶融時間の比較



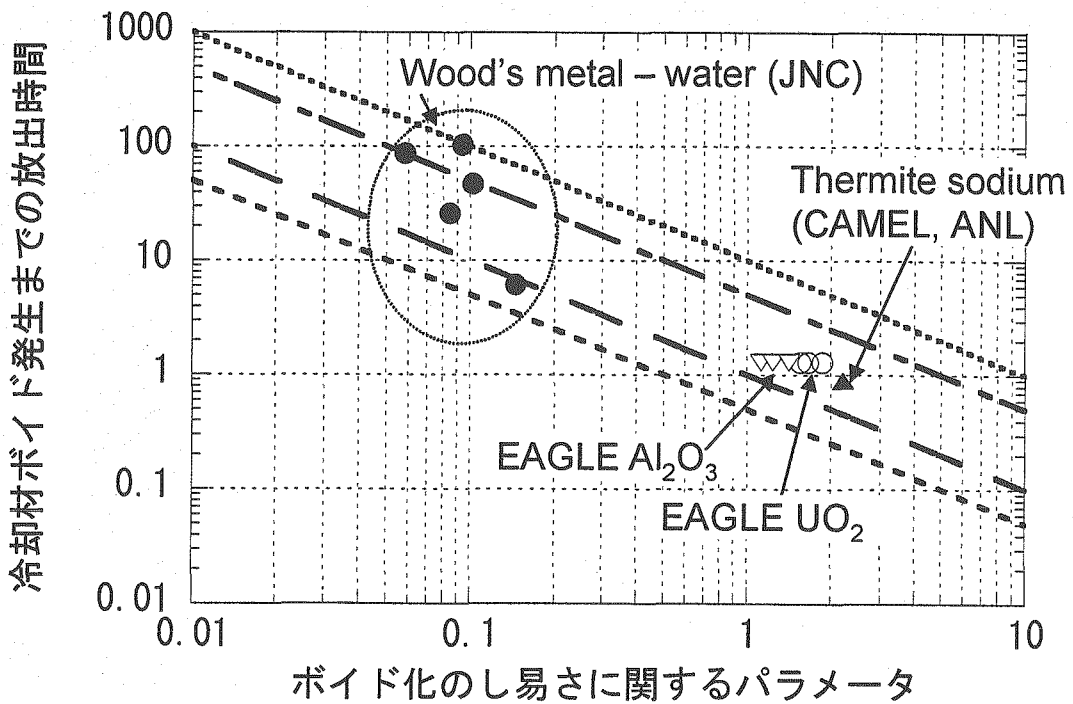
付録図 2.4 クラストとダクト表面の温度差



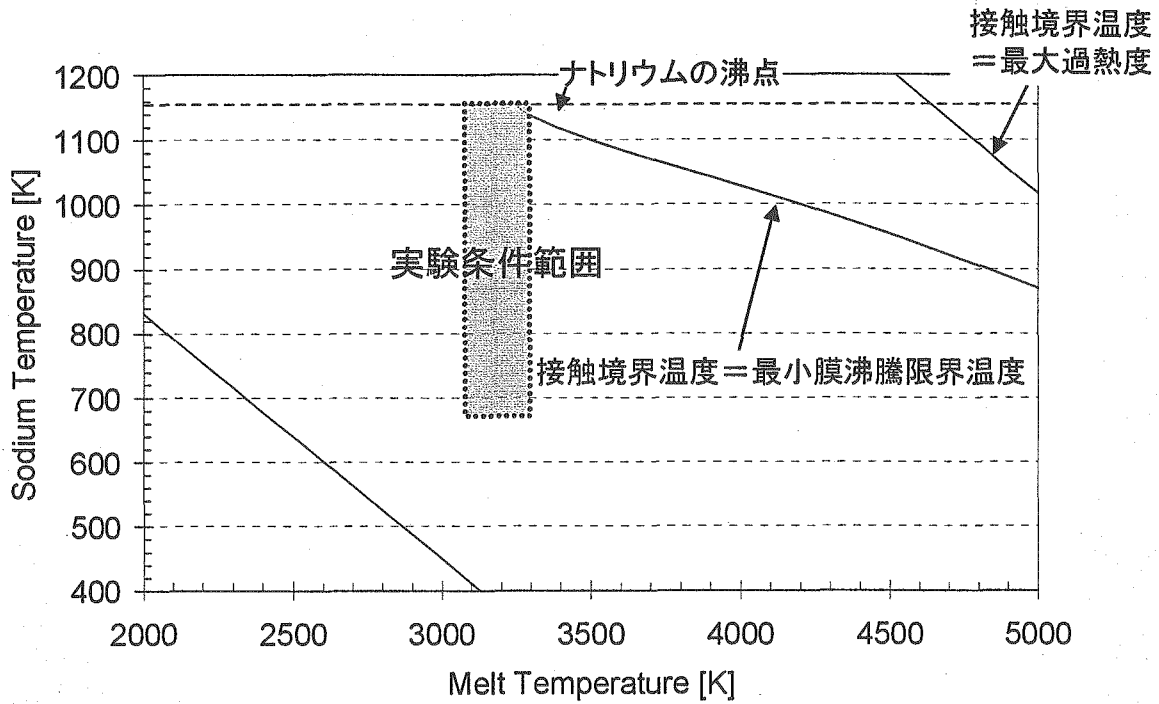
付録図 2.5 クラストの熱伝導度比較



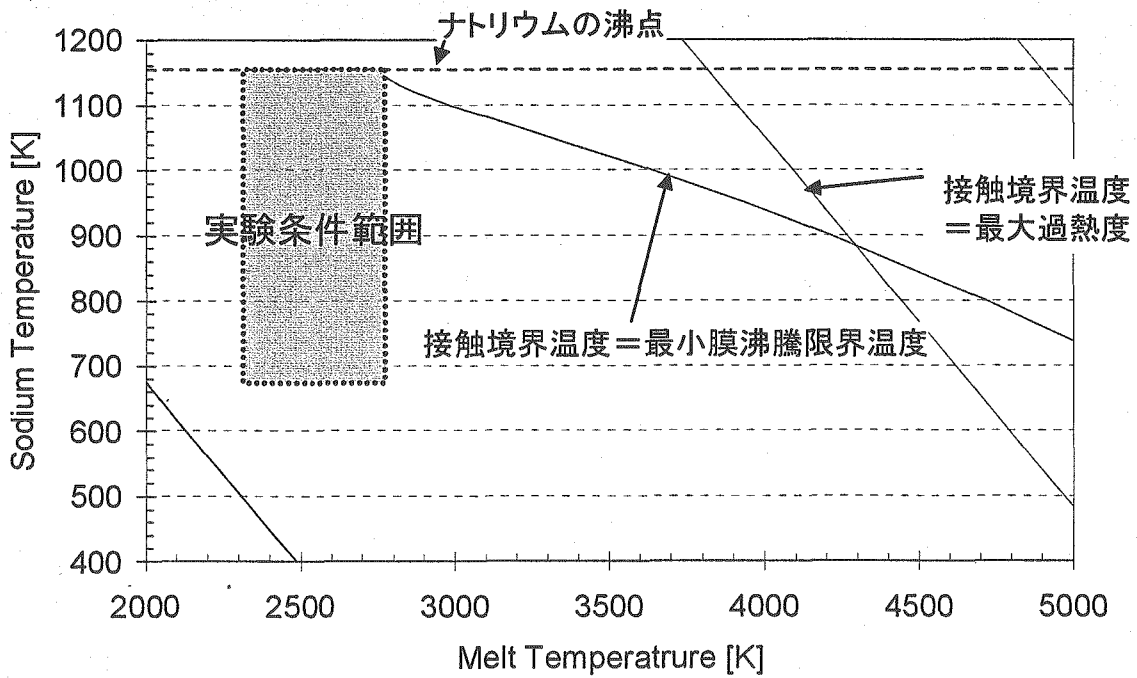
付録図 2.6 クラストから壁面への熱流束値の比較



付録図 2.7 冷却材ボイド化特性



(a) 二酸化ウランとナトリウムの熱的相互作用



(b) アルミナとナトリウムの熱的相互作用

付録図 2.8 熱的相互作用の特性図