

# シビアアクシデント時の炉心燃料損傷及びリロケーションに関する知見と今後の課題

## Findings from Studies on Core Fuel Damage and Relocation under Severe Accident Conditions and Future Research Challenges

西田 浩二 (Koji Nishida) \*1

**要約** シビアアクシデントの防止策、緩和策を検討するには、原子力プラントの特性を把握すると共に、シビアアクシデント時の現象を試験等で理解することが重要である。本論文では炉心燃料損傷及びリロケーションに関する試験と今後の課題を解説した。炉心燃料のリロケーションに及ぼす制御棒の影響を調べた試験では、ジルカロイ被覆管より先に低融点の制御棒が溶融して落下することが示されている。損傷及びリロケーションに及ぼす燃料棒のガス圧力と集合体の圧力の影響を検討した試験では、2つの損傷機構が示されている。一つは、燃料棒のガス圧力の方が大きい時に生じるバルーニングである。もう一つは集合体の圧力の方が大きい時に生じる損傷であり、比較的時間を要してから崩落が発生することが示されている。炉心燃料損傷及びリロケーションには被覆管の水蒸気酸化反応が影響することから、軽水炉の安全評価で用いられている水蒸気反応速度式の導出についても調査した。また従来知見を踏まえ今後の課題を検討した。炉内、炉外試験は、実炉より小さい径方向サイズで実施されている。径方向のスケール差を考慮すると共に、リロケーションの更なる現象解明に基づいた解析モデルの高度化が望まれる。

**キーワード** シビアアクシデント、炉心燃料損傷、リロケーション、水蒸気酸化反応

**Abstract** To consider prevention and mitigation measures for severe accidents, it is important not only to comprehend nuclear plant performance, but also to understand the phenomena based on findings from tests under severe accident conditions. This paper reviews the findings from studies on core fuel damage and relocation under severe accident conditions and future research challenges. The test results from examinations of the influence of control rods on core fuel damage and relocation showed that the control rods melted and relocated prior to the Zircaloy cladding. The test results from examinations of the effects of fuel rod gas and fuel bundle pressures showed two mechanisms of damage. One was ballooning that occurred when the fuel rod gas pressure was larger. The other was damage that occurred when the fuel bundle pressure was larger, and it caused collapse during a long time. Since the steam oxidation reaction of the cladding affects core fuel damage and relocation, steam reaction rate equations used in the safety evaluation were reviewed. Furthermore, future challenges based on the findings were discussed. In-pile and out-pile tests have been conducted at smaller radial sizes than actual reactor cores. So the advanced analytical models taking into account the radial scale differences and the further studies on core fuel relocation are desired.

**Keywords** severe accident, core fuel damage, relocation, steam oxidation reaction

### 1. はじめに

1979年に起きた米国のスリーマイル島原子力発電所2号機(TMI-2)事故は、シビアアクシデント(SA)が現実起こることを認識させた。TMI-2事故当時、SAに関する試験データベースは少なかつ

たが、TMI-2事故を契機に米国、欧州を中心にSAの研究が本格的に開始され、炉心燃料損傷及びリロケーション(再配置)に関する試験及びSA解析コード等の検証も進められてきた。米国では、LOCA(Loss of Coolant Accident)に関する研究に重点をシフトしたが、欧州ではNUGENIA(Nuclear

\*1 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

Generation II & III Association) の枠組みの中で SA 時の炉心燃料損傷及び再配置に関する試験が継続されている。

日本では2011年3月に福島第一原子力発電所で SA が起きた。福島第一原子力発電所の事故以降、国内外で SA 時の炉心燃料損傷及び再配置の研究の重要性が再認識されている。

日本原子力学会「シビアアクシデント」研究専門委員会では、福島第一原子力発電所3号機を対象に事故進展解析の主に熱水力に関わる課題を PIRT (Phenomena Identification Ranking Table) で検討し、燃料集合体の溶融開始から圧力容器内の下部プレナムへの再配置の時間帯の解析結果が、圧力容器の損傷以降の事故進展にも大きく影響すると報告<sup>(1)</sup>している。

米国では、福島第一原子力発電所の SA 解析コードの結果を検討し、圧力容器内での炉心燃料損傷、炉心溶融物挙動に関する知識ギャップが大きいと報告<sup>(2)</sup>している。更に福島第一原子力発電所1号機を対象とした SA 解析コード MAAP と MELCOR の解析結果の差異と、炉心損傷及び再配置に関連する解析モデルについても報告<sup>(3)</sup>している。

SA の防止策、緩和策を検討するためには、PRA (Probabilistic Risk Assessment) 等により原子力プラントの特性を把握すると共に、SA 時の現象を試験等から理解することが重要である。

本論文では、SA 時の炉心燃料損傷及び再配置に関する炉内及び炉外試験について調査した結果を報告する。炉心燃料損傷及び再配置にはジルカロイ (Zry) 被覆管の水蒸気酸化反応が影響することから、軽水炉の安全評価で用いられている水蒸気反応速度式の導出についても報告する。また従来の知見を踏まえ、今後の課題について報告する。

## 2. 炉心燃料損傷及び再配置

### 2.1 炉内及び炉外試験

米国 TMI-2 事故の当時、炉心燃料損傷及び再配置に関する試験データは少なかった。TMI-2 事故を契機として米国、欧州を中心に、SA の研究が本格的に開始され、炉心燃料損傷及び再配置に関する炉内試験、炉外試験も実施された。

当時の炉内試験には、米国のアイダホ国立工学研究所の PBF (Power Burst Facility) 炉を用いた

SFD (Severe Fuel Damage) 試験、米国のサンディエ国立研究所の ACRR (Annular Core Research Reactor) を用いた DF (Damaged Fuel) 試験、カナダのチョーク・リバー原子力研究所の NRU (National Research Universal) 炉を用いた FLHT (Full Length Heat Transfer) 試験等がある。

米国の PBF-SFD 試験の概要、試験条件については OECD/NEA 報告書<sup>(4)</sup>に示されている。PBF-SFD 試験では、燃料集合体を用いて4回の試験が実施された。燃料集合体内には燃料棒が6×6正方形列されており、発熱長は短尺の約1mである。4回の試験の中、1～2回目は未照射燃料棒を用い、3～4回目は未照射燃料棒、照射燃料棒、制御棒を用いた。試験では冷却材流量を低下させると共に、出力を急上昇させて燃料集合体内で再配置を生じさせた。

SFD 試験により燃料集合体の損傷、再配置、Zry 被覆管の水蒸気酸化と水素発生、FP (Fission Products) の放出と移行に関する基本的な知見が得られた。

米国の DF (Damage Fuel) 試験では4回の試験が実施された。4回目の DF-4 試験<sup>(5)</sup>では、BWR 燃料集合体の損傷過程が調べられた。試験体は、矩形の Zry チャンネルボックスの内側にステンレス鋼被覆の B<sub>4</sub>C 制御棒を配置し、チャンネルボックス外側に長さ約0.5mの Zry 被覆管の燃料棒を14本配置した構造である。試験では温度及び水素発生量を計測すると共に、燃料集合体の損傷及び再配置の状況を石英ガラス窓から撮影した。DF-4 試験により、PWR と同様、BWR でも制御棒が燃料集合体の損傷及び再配置に影響することが明らかになった。

カナダの FLHT 試験<sup>(6)</sup>では、実発熱長(約3.7m)の Zry 被覆管の燃料棒を正方形列配置した4×4燃料集合体で4回の試験が実施された。試験では燃料棒の温度、水素の発生量等を計測すると共に、燃料集合体の水位低下と Zry 被覆管の水蒸気酸化領域の上下方向への進展、燃料損傷及び再配置に伴う冷却材(蒸気)の流動抵抗の増大が明らかになった。

その他の炉心燃料損傷及び再配置に関する代表的な炉内試験としては、LOFT-FP (Loss of Fluid Test, Fission Product) 試験、PHEBUS-SFD (Severe Fuel Damage) 試験、PHEBUS-FP (Fission Product) 試験、ACRR-MP (Annular Core Research Reactor, Melt Progression) 試験がある。これらの試験では、炉心燃料損傷及び再配置に及ぼす試験パ

ラメータの感度や特定の事象を解明することを主な目的としている。

LOFT (Loss of Fluid Test) では米国のアイダホ国立工学研究所のPWR試験炉を用い、主にLOCA時及び異常な過渡時の試験が実施された。LOFT試験の特徴は、燃料集合体を9体、燃料棒を1300本配置し、実炉の1/30程度の燃料棒本数であるが、炉心を模擬したことである。燃料集合体の有効発熱長は1.68mであった。1982年からはOECD/NEA傘下で8回の試験<sup>(7)</sup>が実施された。

その中、最後の2回は燃料棒を損傷させてFPの移行を解明するためのLOFT-FP試験が実施された。LOFT-FP試験では、中央に配置する燃料集合体の周囲に断熱材を設置して放熱を抑制し、燃料集合体を損傷させた。LOFT試験では、LOCAからSAまでの挙動を系統的に検討できるデータを取得した。LOFTの成果については、日本原子力研究所のLOCA研究委員会・LOFT専門部会でまとめられている<sup>(8)</sup>。

フランスの原子力・代替エネルギー庁のPHEBUS-SFD (Sever Fuel Damage) 試験 (1986-1989年)、PHEBUS-FP試験では、発熱長約1mの燃料棒を5×5正方配列した燃料集合体を用いられた。

PHEBUS-SFD試験の条件はOECD/NEAの報告書<sup>(4)</sup>に示されている。試験では、被覆管の水蒸気酸化と水素発生、被覆管と燃料ペレットの化学反応等の挙動が明らかになった。

PHEBUS-FP試験<sup>(9)</sup>では、燃料棒及び制御棒(Ag-In-Cd又はB<sub>4</sub>C)を配置した燃料集合体を用い、燃料集合体の損傷及び再配置と共に、FPの放出、移行、格納容器内での付着等に関する挙動が明らかになった。

米国のサンディア国立研究所のACRR-MP試験(1989-1992年)の条件はOECD/NEA報告書<sup>(4)</sup>、試験結果は杉本ら<sup>(10)</sup>により紹介されている。ACRR-MP試験では2回の試験が実施された。TMI-2事故では、再配置したデブリが崩壊熱のために再溶融し、下部ヘッドに移動したことが明らかになっている。ACRR-MP試験では、この挙動を明らかにするため、燃料集合体の上部に人工の溶融固化物(クラスト)を作り、その上にUO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>のデブリを乗せて加熱し、溶融の過程を調べた。2回目に実施したACRR-MP-2試験では、制御棒及び金属構造物からなる金属クラストを用いた。金属クラストは

UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>のデブリが溶融して形成する溶融プールによって溶かされて下方に移動した。一方、溶融プールは周囲が固化したクラストにより保持される結果となった。サンディア国立研究所は、この試験結果に基づいてデブリベッドを多孔質物質として取り扱う解析モデルを開発した。

炉内試験は、核加熱による燃料集合体の損傷及び再配置を明らかにできるが、試験パラメータの制御が難しく、放射線の防護も必要となる。一方、炉外試験ではヒータロッドに設けた電気ヒータで反応熱を模擬しており、燃料集合体の発熱量の制御、温度の計測が比較的容易で、試験パラメータを変えた多くの試験が実施できる。また放射線の防護の必要もないので、試験中及び試験後の観察が容易である。

炉外試験としては、ドイツのカールスルーエ原子力研究所(現、カールスルーエ工学研究所)のNIELS試験、CORA試験、QUENCH試験等がある。

NIELS試験は1982年から1986年まで実施され、試験条件等はOECD/NEA報告書<sup>(4)</sup>に示されている。NIELS試験では、単一ヒータロッド(模擬燃料棒)に蒸気を供給するESSI試験、水素の影響を調べたESA試験、3×3燃料棒配列の燃料集合体(制御棒含まず)でのESBU試験、PWR制御棒を含むABS試験が実施された。模擬燃料棒はZry被覆管内に環状のUO<sub>2</sub>ペレット、中心部にタングステンヒータロッドを設けた構造で、タングステンヒータロッドを加熱することでZry被覆管、UO<sub>2</sub>ペレットを損傷及び再配置させた。NIELS試験では、模擬燃料棒又は模擬燃料集合体の損傷及び再配置に及ぼす加熱速度、最高温度、制御棒の有無等の影響が調べられた。

NIELS試験の中のESSI試験<sup>(11)</sup>では、模擬燃料棒のZry被覆管温度を約2200℃まで加熱し、試験後の損傷及び再配置の写真が示された。模擬燃料棒の加熱速度が大きい時には、Zry被覆管の融点(約1850℃)を超えると被覆管は流下すると共に、環状のUO<sub>2</sub>ペレットが落下する結果が示された。一方、加熱速度が小さい時には、Zryが水蒸気酸化し、融点の高いジルコニア(融点約2700℃)に変化するために比較的燃料棒が元の形状を維持できることが示された。

CORA試験では、PWR<sup>(12)</sup>、BWR<sup>(13)</sup>、VVER<sup>(14)</sup>を対象に燃料集合体の損傷に及ぼすクエンチ速度、加熱速度、蒸気流量、被覆管の酸化割合の影響が調べられた。PWR、BWR、VVERを対象とした燃料

集合体の構造は異なる。PWRを対象とした燃料集合体（模擬燃料棒の発熱長は約1m）では、16本の模擬燃料棒、8本の非加熱棒、1本の制御棒（集合体中央に配置）が設けられていた。

QUENCH試験<sup>(15),(16)</sup>では、燃料集合体が比較的大きく損傷していない状況を想定し、主に再冠水の影響が調べられた。燃料集合体には、模擬燃料棒、模擬制御棒案内管、非加熱棒が計21本程度配置された。模擬燃料棒の発熱長は約1mである。主な試験パラメータは、模擬燃料棒の加熱速度、被覆管の酸化の程度、再冠水速度及びクエンチ開始時の被覆管温度である。QUENCH試験は現在でも継続されている試験である。

炉心燃料損傷及び再配置に対しては金属構造物と水蒸気酸化反応、特にZry-水蒸気酸化反応による被覆管の発熱及び水素発生が影響する。

水蒸気酸化反応に関しては、Baker-Just<sup>(17)</sup>、Urbanic-Heidrick<sup>(18)</sup>、Prater-Courtright<sup>(19)</sup>、Cathcart<sup>(20)</sup>等、多くの試験結果及び水蒸気酸化反応速度式が報告されている。

本章では、PWR燃料集合体の燃料損傷及び再配置に対する制御棒の影響を検討したSFD1-4試験、実発熱長で燃料損傷及び再配置に及ぼす燃料棒圧力とシステム圧力の影響を検討したFLHT試験について紹介する。更に、軽水炉の安全性評価のために広く使われているBaker-Just<sup>(17)</sup>の試験及び水蒸気酸化反応速度式の導出法について報告する。

## 2.2 制御棒の影響

燃料集合体は、燃料棒、制御棒、制御棒案内管、燃料スペーサ等で構成される。燃料再配置に対する制御棒の影響はSFD 1-4試験<sup>(21)</sup>で検討された。SFD1-4試験の特徴は、PWRの小破断LOCAに相当する圧力約7MPaで、制御棒の融点以上に加熱して溶融させて再配置させる一方で、燃料棒の再配置がある程度抑制した加熱条件を設定したことである。

SFD1-4試験部の横断面を図1、縦断面を図2に示す。試験部の中央部には燃料集合体を配置している。燃料集合体は28本のZry被覆管の燃料棒、4本のZry案内管内の制御棒（ステンレス鋼被覆、Ag-In-Cd制御材）及びZryライナーを有する。燃料棒ピッチは12.75mmである。燃料棒のうち26本は外径9.5mmの照射燃料棒であり、2本は外径9.63mmの未照射燃料棒である。未照射燃料棒には、

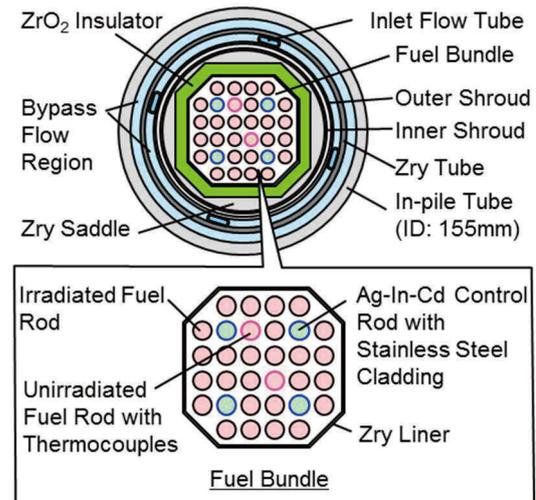


図1 SFD1-4試験部の横断面<sup>(21)</sup>

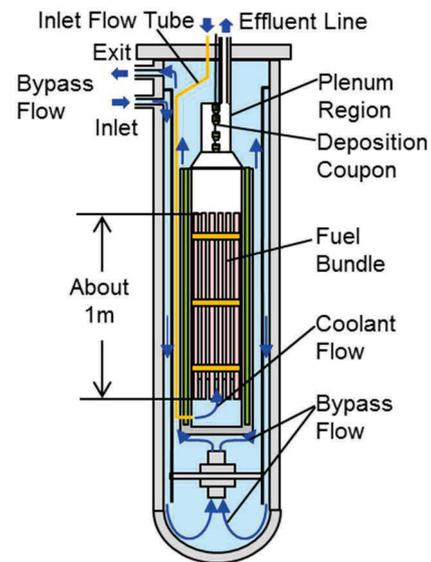


図2 SFD1-4試験部の縦断面<sup>(21)</sup>

温度を測定するための熱電対が被覆管の内面と燃料棒の中央に取付けられている。制御棒案内管の外径は12.24mm、内径は11.43mmである。制御棒の外径は9.7mmであり、4本の制御棒のうち、1本の制御棒にも熱電対が設けられている。

燃料集合体は酸化ジルコニウム ( $ZrO_2$ ) 断熱材で囲われ、熱損失が最小化されている。断熱材はZryライナーとZryサドルで挟み込まれた厚さ7.6mmの $ZrO_2$ 高密度繊維で構成される。断熱材の領域はアルゴンガスで加圧されている。 $ZrO_2$ 断熱材の外壁には温度を測定するための熱電対が設けられている。

内側シュラウドがZryサドルを取り囲み、その外側に外側シュラウドが配置され、圧力境界を形成す

る。内側と外側のシュラウドのギャップはヘリウムガスにより0.49MPaに加圧されている。外側シュラウドの更に外側にはバイパス流領域があり、Zry管の外側は下降流、内側は上昇流になっている。燃料集合体の冷却材はバイパス領域に設けた4個の入口流入管を経て集合体の入口部から供給される。

照射燃料棒及び未照射燃料棒の発熱長はそれぞれ1.0m及び0.914mであり、発熱長上端は同じ位置である。制御材の長さは0.957mである。インコネル製の燃料スペーサは軸方向に3個配置されている。

試験中に燃料集合体内で発生するFP及び水素は蒸気と共に流出ラインに至る。上部のプレナム領域には、FP付着量を計測するための付着棒があり、図中には示されていないが、流出ラインに水素流量の計測器が設けられている。

試験はPWRの小破断LOCAに相当する約7MPaの圧力条件で実施し、燃料集合体の出力を図3に示す様に急激に増大し、約220sの間、約27kWで維持し、その後約1kWまで急激に減少させて燃料集合体の損傷及び再配置を終わらせる。試験時には燃料集合体に冷却材が供給されているが、燃料集合体の水位は初期の0.28mから低下して2400sで0mまで低下し、その後、水位の回復は見られていない。

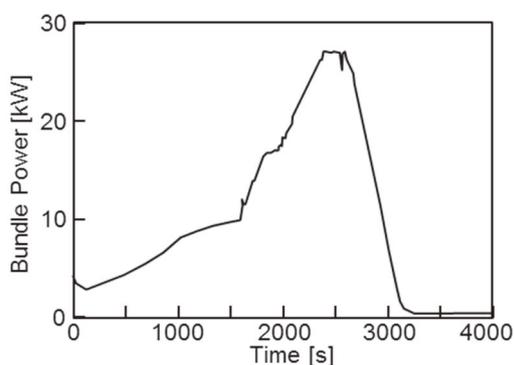


図3 燃料集合体の出力<sup>(21)</sup>

Zry被覆管の内面及びZrO<sub>2</sub>断熱材の外面の温度の時間変化を図4に示す。パラメータは燃料集合体の下端からの高さである。燃料集合体の出力(図3参照)の急激な増大により、被覆管の内面の温度は上昇し、Zry-水蒸気酸化反応による発熱を伴って急激に温度が上昇し、2000s近くになると2000K近くまで達する。その後、熱電対が損傷するために信号が失われる。燃料集合体の下端に近い高さ0.39mでの被覆管の内面の温度は、他の高さの温度より若干低いが、Zry-水蒸気酸化反応が顕著になると、その差は小さくなる。

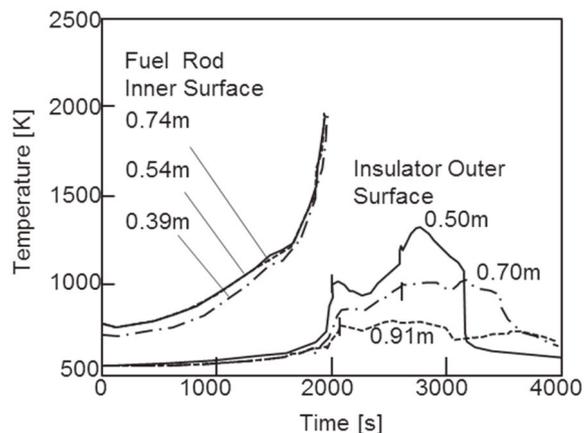


図4 被覆管の内面及び断熱材の外面の温度変化<sup>(21)</sup>

断熱材の外面の温度も燃料集合体の出力の増大に伴い上昇し、燃料集合体でのZry-水蒸気酸化反応が顕著になる約2000s近くで急激に上昇する。燃料集合体の出力が約2600sから低減され、約3200sでは1kWまで下げられるため、断熱材の外面の温度も時間と共に低下する。断熱材の外面の温度は被覆管の熱電対が損傷する時刻以降も得られており、解析等で燃料集合体での事象進展を検討する上で貴重な試験データである。

試験後に測定された流路面積の軸方向分布を図5に示す。燃料集合体の発熱部は高さ0~1.0mの領域であり、初期の流路面積は一点鎖線で示す34cm<sup>2</sup>である。試験後の流路面積は高さ0.4mより上部では初期より大きく、高さ0.4mより下部では小さくなっている。

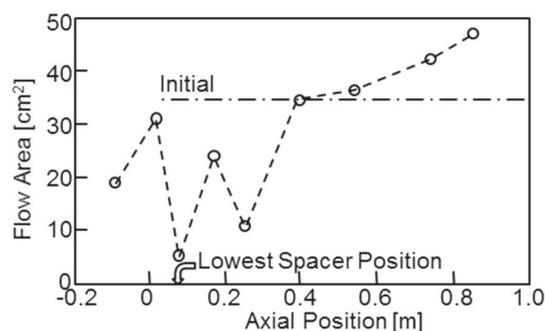


図5 流路面積の軸方向分布<sup>(21)</sup>

試験後に各断面の写真撮影と材料分析も実施されており、燃料集合体の損傷の状況について考察している。

最上端の測定点の0.85mでは、流路面積が47cm<sup>2</sup>まで増大している。これは主にZry被覆管、制御棒、Zry制御棒案内管が溶融して落下したことで、UO<sub>2</sub>

の一部が落下したことによる。

高さ0.25mの流路面積は11cm<sup>2</sup>まで減少している。制御棒は溶融して落下するが、集合体の上部から金属、セラミック材料の溶融物が落下して堆積することにより、流路面積が小さくなっている。

この位置でのZry被覆管の外表面は酸化して融点の高いZrO<sub>2</sub>に変化して比較的元の形状を維持しており、その後上部から溶融物が落下している。本試験では冷却材の流量が少なく、水蒸気酸化反応に使われる酸素が集合体の下方でのZrO<sub>2</sub>への変化に消費される。そのため、上部ではZry被覆管がZrO<sub>2</sub>に変化することなく溶融してこの様な結果になったと考えられる。

高さ0.08mの位置における流路面積は5cm<sup>2</sup>まで減少している。この位置には燃料集合体の最下端の燃料スペーサがあり、制御材、Zry及び若干のステンレス鋼の溶融物が燃料スペーサに捕獲され、流路面積が小さくなっている。

最下端の燃料スペーサ位置は燃料集合体の下端に近く、軸方向の相対出力は小さい。更に水位近くに位置することで、蒸気による冷却効果もあり、燃料スペーサは溶融せずに溶融金属等を捕獲したと考える。最下端の燃料スペーサで捕獲されなかった制御棒等は更に落下し、非加熱部で固化して高さ-0.09mでの流路面積は19cm<sup>2</sup>に減少している。

制御棒を備えた発熱長約1mの燃料集合体のSFD1-4試験では、小破断LOCAに相当する約7MPaの圧力条件、かつ冷却材流量が少ない酸素欠乏条件で、燃料集合体内での再配置が検討された。試験では0.4mより下方で落下物により流路面積が減少し、0.4mより上方で増大した。融点の低い制御棒が溶融し、一部が最下端の燃料スペーサ付近で捕獲された。Zry被覆管は水蒸気酸化反応により下方では融点の高いZrO<sub>2</sub>になり比較的被覆管の形状を保っており、上方の酸素欠乏域のUO<sub>2</sub>燃料ペレットの一部、Zry被覆管、制御棒及びZry制御棒案内管が溶融して落下した。

### 2.3 燃料棒内外圧力差の影響

実発熱長(約3.7m)のZry被覆管の燃料棒を4×4正方配置にし、燃料棒内外圧力差が燃料集合体の損傷に及ぼす影響について、カナダのチョーク・リバー原子力研究所のNRU(National Research Universal)炉でのFLHT(Full Length

Heat Transfer)試験<sup>(6)</sup>で検討された。試験は4回実施され、その中で燃料集合体の損傷及び再配置の機構が異なるFLHT-2とFLHT-5試験時の主なパラメータを表1に示す。試験は、燃料集合体の出力をほぼ固定し、冷却材流量を1.2g/s～1.4g/sまで低下させて燃料棒の損傷を生じさせた。燃料集合体の水位は0.76～0.9mまで低下し、燃料集合体の最高被覆管温度は2500～2600Kに達する。

表1 FLHT試験での主なパラメータ<sup>(6)</sup>

Items	FLHT-2	FLHT-5
Bundle Power [kW]	23	30
Flow Rate [g/s]	1.4	1.21
Time at Peak Temp.* [min]	4.5	60
Final Water Level [m]	0.9	0.76
Peak Cladding Temp. [K]	2500	2600

\*Time after Onset of Cladding Melting Temp. (2100K)

FLHT試験部の横断面を図6に示す。試験部の中央部には、燃料棒ピッチ13mmで正方配列された4×4燃料集合体を配置している。燃料集合体は、12本の17×17PWR用の燃料棒と、厚さ0.8mmのZryライナーから構成されている。その外側にはSFD1-4試験と同様に断熱材、サドル、内側シュラウド、及び圧力境界である外側シュラウドが設けられている。外側シュラウドの健全性を維持するため、圧力管内にバイパス冷却水を下方から上方に流している。燃料棒ガスの圧力は圧力センサで計測し、燃料棒被覆管の損傷を検出している。またZry被覆管及びZryライナーには熱電対が軸方向に複数取付けられ、試験時の温度を計測している。また、差圧計が燃料集合体の初期の水頭及び試験中の燃料損傷及び再配置による流動抵抗の変化を検出するため設け

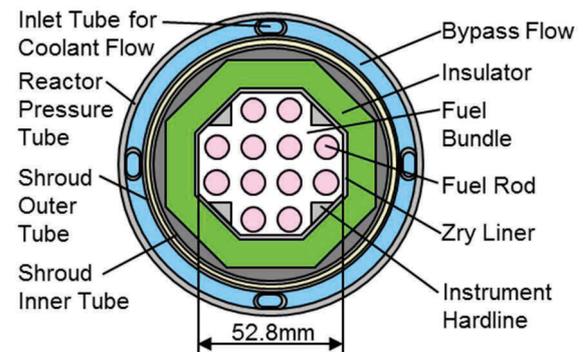


図6 FLHT試験部の横断面<sup>(6)</sup>

られている。

FLHT-2試験における燃料棒のガス圧力と最高被覆管温度（燃料集合体内の測定点の中で最も高い被覆管温度）の時間変化を図7に示す。本試験は燃料棒のガス圧力（2.3MPa）が燃料集合体の圧力（1.4MPa）より高い試験条件である。冷却材流量の減少により、最高被覆管温度は上昇し、それに伴って燃料棒のガス圧力も上昇する。燃料棒のガス圧力は400s近くになると減少し始め、約420sで集合体の圧力まで急激に低下し、その後はほぼ一定の値を維持している。その時の燃料集合体内の最高被覆管温度は約1300Kであり、燃料棒のガス圧力により被覆管が内面から加圧され、バルーニングで被覆管が損傷して燃料集合体の圧力まで減少したと考えられる。

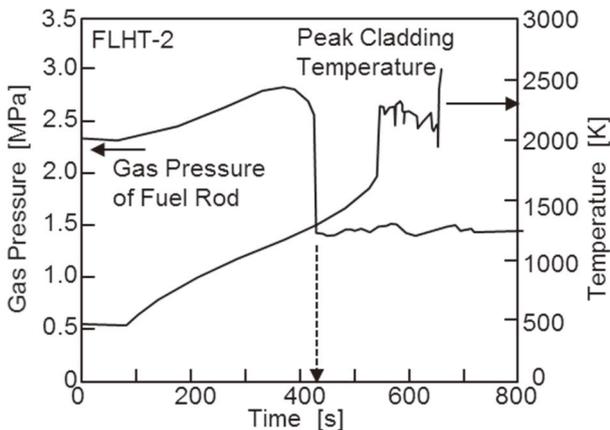


図7 燃料棒のガス圧力と最高被覆管温度の時間変化 (FLHT-2)<sup>(6)</sup>

一方、最高被覆管温度は燃料棒のガス圧力が急激に低下する420s以降も上昇し、ジルカロイ-水蒸気反応が顕著になる1500Kを過ぎると急激に上昇して最高で2600Kに達している。

その時の熱電対の示度から求めた水位と差圧計で求めた水頭の時間変化を図8に示す。図中には燃料棒のガス圧力が急激に低下する時刻（約420s）を矢印で示している。

冷却材流量の低下に伴って熱電対の示度から求めた水位は800sでは0.9m近くまで低下する。一方、差圧計で求めた水頭は燃料棒のガス圧力が低下し始める400s近くから増加する傾向が見られ、600sを過ぎるとほぼ一定値を示している。差圧計で計測した水頭は、水の位置損失と流動損失の和であることから、被覆管のバルーニングにより流動抵抗が増大し、水頭が増大したと考えられる。

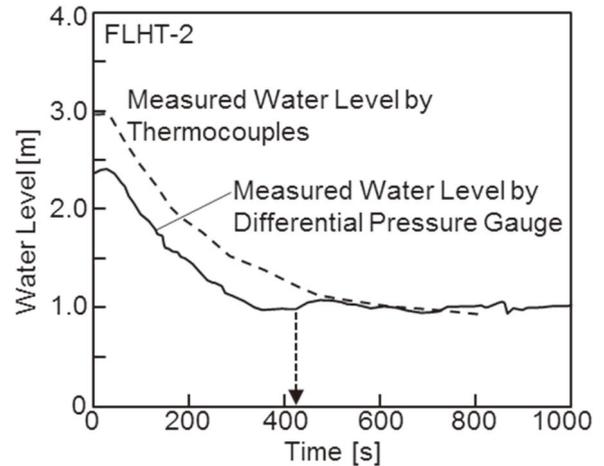


図8 燃料集合体の水位と水頭の時間変化 (FLHT-2)<sup>(6)</sup>

FLHT-5試験における燃料棒のガス圧力と最高被覆管温度の時間変化を図9に示す。本試験は燃料棒のガス圧力が燃料集合体の圧力より低い試験条件である。

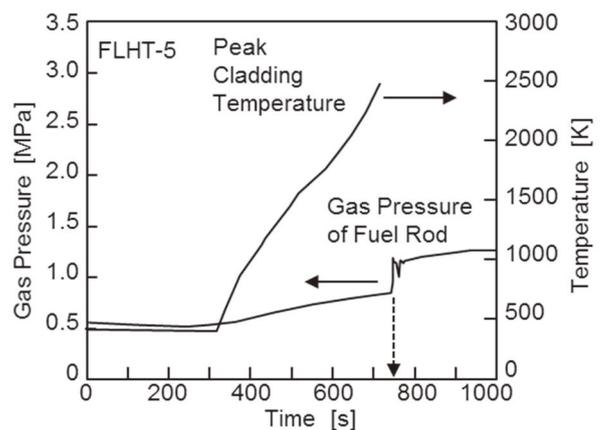


図9 燃料棒のガス圧力と最高被覆管温度の時間変化 (FLHT-5)<sup>(6)</sup>

燃料集合体内の最高被覆管温度の上昇に伴って、燃料棒のガス圧力は上昇し、約745sでガス圧力が急激に上昇して集合体の圧力に相当する1.3MPaまで達している。

この時の最高被覆管温度は、熱電対が損傷したために示されていないが、2500K以上に達したと推定される。

燃料集合体内の水位及び水頭の時間変化を図10に示す。図中には燃料棒のガス圧力が急激に高くなった時刻を矢印で示している。

熱電対の示度で求めた水位及び差圧計で求めた水頭共に、被覆管が損傷した時刻以降（図中に矢印で示す）も低下し、水位は約1250sでほぼ一定値に達

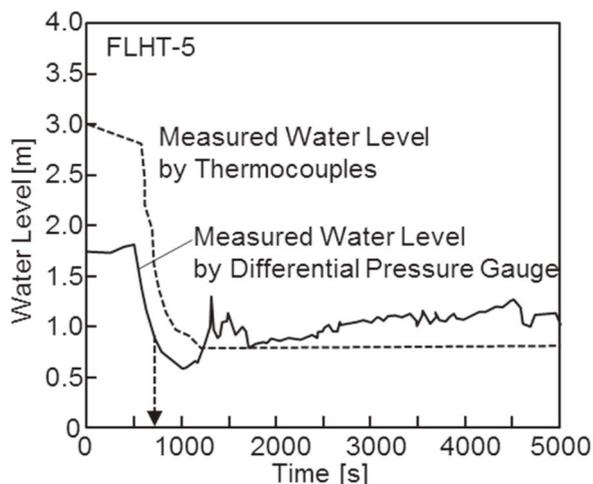


図10 燃料集合体の水位と水頭の時間変化 (FLHT-5)<sup>(6)</sup>

している。一方、水頭は約1000sから増大し、一次的には減少するものの、水位がほぼ一定の時間においても、徐々に増大している。差圧計で計測した水頭は、水の位置損失と流動損失の和であり、燃料集合体の損傷後、徐々に崩落が生じ、燃料集合体の流動抵抗が大きくなるためと考えられる。

FLHT試験では、燃料集合体の損傷には2つのメカニズムがあることが示されている。一つは燃料棒のガス圧力が燃料集合体の圧力より大きい時に起きるバルーニングである。本試験でのZry被覆管のバルーニングは約1300Kで生じ、Zry-水蒸気酸化反応がその後に発生している。もう一つは燃料棒のガス圧力が燃料集合体の圧力より小さい時に起きる損傷である。この時、燃料集合体の損傷は約2500Kで発生していると推定されており、損傷が起きて直ぐに燃料集合体の流動抵抗が増大するのではなく、比較的時間を要してから燃料集合体での崩落が発生する。

## 2.4 ジルカロイ-水蒸気酸化反応

燃料集合体の損傷及び再配置は被覆管のZry-水蒸気酸化反応により影響を受ける場合がある。現在、軽水炉の安全性評価のためにBaker-Just式<sup>(17)</sup>が広く使われているが、彼らの試験及び酸化反応速度式の導出についての解説は少ない。本論文では、試験及び彼らが構築した伝熱と化学反応を連立させた評価モデルを中心に紹介する。

Baker-Justは、Zr細線（長さ1in、直径30mil、60mil）を脱気した水中に設置し、コンデンサに蓄えた電気エネルギーを短時間（0.3ms程度）で供給

してZr線を加熱、溶融させた。試験では常温水と高圧水試験用の反応セル（最大圧力10.35MPa、温度315℃）を用いた。試験後のZr線は金属粒子になっており、質量、平均粒径を調べると共に、発生した水素を回収して金属の水蒸気酸化反応率（水蒸気酸化したZryの比率）を求めた。また、Zry-3の水蒸気酸化反応率も検討され、ZrとZry-3で大きな差がないことが確認された。

試験後の考察で、Zr細線の水蒸気酸化反応率は金属粒子の平均粒径に依存することが示された。Baker-Justは金属粒子の温度は直接測定していないが、水蒸気酸化反応で発熱するZr融点の金属粒子から水蒸気膜を介しての除熱と水蒸気酸化反応を考慮した図11の評価モデルを考えた。

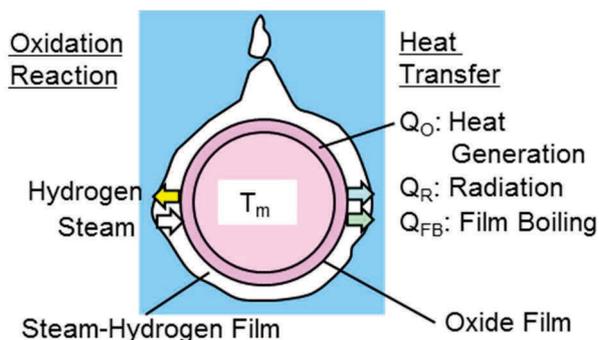


図11 Baker-Justの評価モデル<sup>(17)</sup>

金属粒子は水蒸気酸化反応で発熱し、膜沸騰伝熱と輻射伝熱で除熱され、金属粒子の固化率と温度が時間と共に変化する。水蒸気は金属粒子の酸化反応に使われるが、酸化反応時に発生する水素により水蒸気の移行が妨げられ、酸化反応が抑制される。Baker-Justはこの時の水蒸気反応が初期には拡散則に支配され、その後は放物線則に支配されるとする水蒸気酸化反応を仮定した。

Baker-Justの評価モデルで求めた金属粒子の温度、水蒸気酸化反応速度、酸化反応率の時間変化の計算値を図12に示す。評価条件は、金属粒子の初期温度が融点（1852℃）、金属粒子径が2.1mmである。また、水素が存在する時の蒸気膜中の蒸気分圧が全圧に等しいと仮定している。

金属粒子の温度は、水蒸気酸化反応熱により約0.6sまでは初期のZr融点を維持し、酸化反応熱の減少に伴って低下する。水蒸気酸化は実線で示す様に、初期には拡散則による反応に支配され、途中からは放物線則の反応に支配され、金属粒子の温度が融点より下がると、更に低下する結果となってい

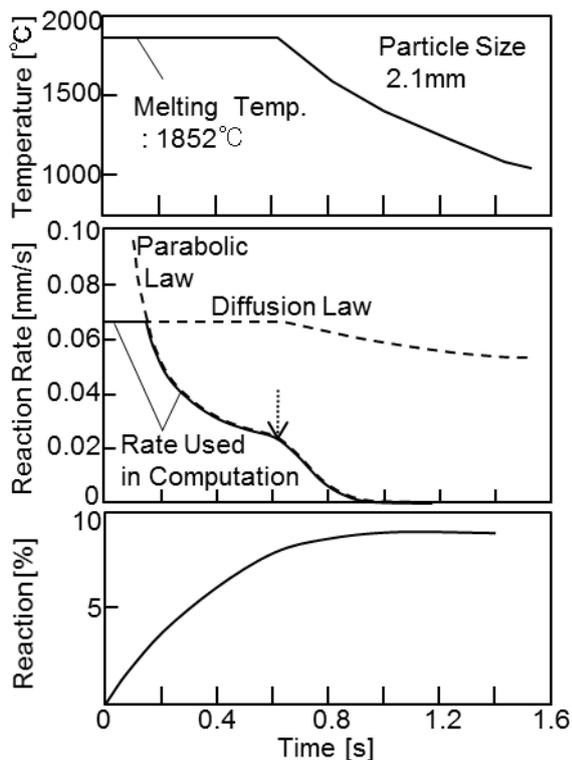


図12 温度、反応速度及び反応率の時間変化の計算値<sup>(17)</sup>

る。その結果、Zrの反応率は時間と共に大きくなり、金属粒子の温度が融点より低下すると小さくなり、1.4sでは反応率が9%に漸近する。

Baker-Justは、Zr融点でのデータと、水中のZry-2で得たBostrom<sup>(22)</sup>のデータ及び蒸気中で得たLemmon<sup>(23)</sup>のデータを用いて、水蒸気反応速度定数の温度依存性を検討した。評価結果を図13に示す。図中の一点鎖線上のデータがBaker-Justの評価モデルで求めた水蒸気酸化反応速度定数である。また図中にはBostrom<sup>(22)</sup>、Lemmon<sup>(23)</sup>の試

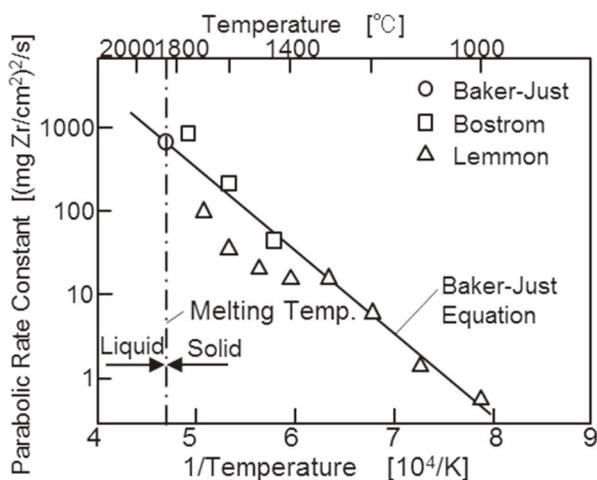


図13 反応速度定数と反応温度との関係<sup>(17)</sup>

験データを用い、Baker-Justが評価した水蒸気反応速度定数も示している。Baker-Justは彼らのZrの融点(1852°C)、及びBostrom<sup>(22)</sup>、Lemmon<sup>(23)</sup>の温度をパラメータにした水蒸気反応速度定数より、図中の実線で示す水蒸気反応速度定数kの評価式を導出した。

$$k = 33.3 \times 10^6 \cdot \exp\left(-\frac{455000}{RT}\right) \quad (1)$$

ここでRはガス定数、Tは反応温度(K)である。

単位面積当たりの水蒸気酸化反応を行うZrの質量w (mg/cm<sup>2</sup>)は反応が放物線則に従うとすると、水蒸気酸化反応速度定数と反応時間には次の関係がある。

$$w^2 = kt \quad (2)$$

ここで、kは水蒸気酸化反応速度定数 (mg<sup>2</sup>/cm<sup>4</sup>s)、tは反応時間 (s)である。結局、本計算手法で求めた単位面積当たりの水蒸気酸化反応を行うZrの質量w (mg/cm<sup>2</sup>)は、反応時間 (s)、反応温度 (K)を用いて次式で表すことができる。

$$w^2 = 33.3 \times 10^6 t \cdot \exp\left(-\frac{455000}{RT}\right) \quad (3)$$

本論文では、軽水炉の安全性評価のために広く使われているBaker-Just式の試験と酸化反応速度式の導出過程を紹介した。Baker-Justは彼らのZrの融点での試験データで水蒸気酸化反応評価モデルを構築し、Bostrom<sup>(22)</sup>、Lemmon<sup>(23)</sup>の水蒸気酸化反応の温度依存性を考慮して水蒸気酸化反応式を構築した。Baker-Just式はその後のZryの水蒸気反応に関する研究から、水蒸気反応速度定数を大きく、水素の発生量を保守側に評価する結果が示されている。

### 3. 今後の課題

燃料集合体の損傷及び再配置に関わる炉内、炉外試験は実機の炉心と比較して小さな径方向サイズで実施されている。実機の炉心では、炉心の一部から再配置が生じ、炉心径方向に冷却材の流量配分が生じ、炉心燃料の再配置に影響を与える可能性がある。

福島第一原子力発電所1号機を対象に、SA解析コードMAAP5とMELCORの解析結果の違いと、炉心損傷及び再配置に関連する解析モデルが報告<sup>(3)</sup>された。MAAP5では、TMI-2事故での実機炉心の溶融領域を再現できる解析モデルを構築している。

一方、MELCORの解析モデルは、炉内試験であるVERCORS試験<sup>(24)</sup>の結果に基づいて解析モデルが開発されている。福島第一原子力発電所1号機の解析結果の比較では、MELCORはMAAP5よりも溶融領域が径方向に拡がらない。また、粒子状デブリの最小径を仮定しており、MAAP5よりも金属との水蒸気酸化反応が促進されている。

本論文で紹介した様に、SA時の炉心燃料の損傷及び再配置に関して多くの試験結果の報告がある。また欧州では炉外試験であるQUENCH試験も現在でも継続されている。近年はSA解析コード等の解析技術も進歩しており、炉内、炉外試験データ、TMI-2、福島第一原子力発電所の実機の事故時データを用い、径方向の冷却材の流量配分及び溶融領域の拡がりを解明して、SA時の実機炉心燃料の解析モデルを高度化することが望まれる。また、炉心燃料の再配置時の更なる現象解明に基づいた、解析モデルの高度化が望まれる。

#### 4. まとめ

本論文では、SA時の炉心燃料損傷及び再配置に関する炉内及び炉外試験について調査した結果を報告した。炉心燃料損傷及び再配置には被覆管の水蒸気酸化反応が影響することから、軽水炉の安全評価で用いられている水蒸気反応速度式の導出についても調査した。また従来の知見を踏まえ今後の課題について解説した。主な知見と課題を以下に示す。

- (1) 制御棒を備えたSFD1-4試験で、小破断LOCAに相当する約7MPaの圧力条件、かつ冷却材流量が少ない酸素欠乏条件で、燃料集合体内の再配置が調べられた。燃料集合体の下方で落下物により流路面積が減少し、上方で増大する。融点の低い制御棒が先に溶融した。ジルカロイ被覆管は水蒸気酸化反応により下方では融点の高い酸化ジルコニウムになり比較的元の形状を維持しており、上方の酸素欠乏領域で酸化ウラン燃料ペレットの一部、ジルカロイ被覆管、制御棒及びジルカロイ制御棒案内管が溶融して下方に落下する。
- (2) 燃料集合体の損傷及び再配置には2つのメカニズムがあることがFLHT試験で示された。一つは燃料棒のガス圧力が燃料集合体の圧力より高い時に起きるバルーニングである。も

う一つは燃料棒のガス圧力が燃料集合体の圧力より低い時に起きる損傷である。この時、燃料集合体の損傷は約2500Kで発生していると推定されており、その後、比較的時間を要してから崩落が発生する。

- (3) 軽水炉の安全評価で広く用いられているBaker-Just式は、自らの試験及び伝熱と化学反応に関する考察に基づいて構築した評価モデルと、その当時まで得られていた他の研究者のデータを用い、水蒸気酸化反応の温度依存性を考慮して開発した水蒸気酸化反応式である。
- (4) 従来の知見を踏まえ今後の課題を検討した。炉内、炉外試験は、実炉より小さい径方向サイズで実施されている。径方向の冷却材の流量配分及び溶融領域の拡がりを解明して、SA時の実機炉心燃料の解析モデルを高度化することが望まれる。また、炉心燃料の再配置時の更なる現象解明に基づく解析モデルの高度化が望まれる。

#### 文 献

- (1) 日本原子力学会「シビアアクシデント評価」研究専門委員会、シビアアクシデント評価に関する研究報告書、平成26年11月。
- (2) Edited by Famer, M., Reactor Safety Gap Evaluation of Accident Tolerant Components and Severe Accident Analysis, ANL/NE-15/4 (2015).
- (3) Wachowiak, R., Modular Accident Analysis Program (MAAP) - MELCOR Crosswalk, Phase I Study, EPRI 3002004449 (2014).
- (4) Trambauer, K., Haste, T. J., Adroguer, B., Hozer, Z., Magallon, D. and Zurita, A., In-Vessel Core Degradation Code Validation Matrix, Update 1996-1999, NEA/CSNI/R (2000) 21 (2001).
- (5) Gauntt, R. O., Gasser, R. D., Result of the DF-4 BWR Control Blade-Channel Box Test, SAND90-2716C (1990).
- (6) Lombardo, N. J., Lanning, D. D., and Panisko, F. E., Full-Length Fuel Rod Behavior under Severe Accident Conditions, NUREG/CR-5876 (1992).

- (7) Fell, J., and Modro, S. M., An Account of the OECD LOFT Project, OECD LOFT-T-3907 (1990).
- (8) 日本原子力研究所, LOCA研究委員会・LOFT 専門部会, OECD LOFT 計画の成果, 原子力学会誌, Vol.33, No.12 (1991).
- (9) IRSN, The PHEBUS FP Program, <https://www.irsn.fr/EN/Research/Research-organisation/Research-programmes/PHEBUS-PF/Pages/Severe-accident-research-programme-PHEBUS-FP-3455.aspx>
- (10) 杉本純, 橋本和一郎, 山野憲洋, 日高昭秀, 丸山結, 上塚寛, 更田豊志, 中村武彦, 早田邦久, 片西昌司, シビアアクシデント研究に関する CSARP 計画の成果, 日本原子力学会誌, Vol.39, No.2 (1997).
- (11) Hagen, S., Kapulla, H, Malauschek, H., Wallenfels, K. P., and Buescher, K. P., Temperature Escalation in PWR Fuel Rod Simulators due to the Zircaloy/Steam Reaction: ESSI-4 to ESSI-11 Test Results Report, KfK 3557 (1985).
- (12) Hagen, S., Malauschek, H., Peck, S. O., Wallenfels, K. P., Temperature Escalation in PWR Fuel Rod simulator Bundles due to the Zircaloy/Steam Reaction, KfK-3508 (1983).
- (13) Hagen, S., Hofmann, P., Noack, V., Sepold, L., Schanz, G., Schumacher, G., Large Bundle BWR Test CORA-18: Test Results, FZKA-6031 (1998).
- (14) Hagen, S., Hofmann, P., Noack, V., Schanz, G., Schumacher, G., Sepold, L., Behavior of a VVER-1000 Fuel Element with Boron Carbide/Steel Absorber Tested under Severe Fuel Damage Conditions in the CORA Facility (CORA-W2) , KfK-5363 (1994).
- (15) Hofmann, P., Hering, W., Homann, C., Leiling, W., Miassoedov, A., Piel, D., Schmidt, L., Sepold, L., Steinbruck., M, QUENCH-01 Experimental and Computational Results, FZKA-6100 (1998).
- (16) J. Stuckert, M. Große, Y. Onel, C. Rössger, U. Stegmaier, M. Steinbrück, Results of the QUENCH-DEBRIS (QUENCH-17) test with strongly oxidized Zircaloy-4 and Hafnium claddings filled with (1) segmented pellet simulators, NUSAFE 3572 (2018).
- (17) Baker, L. Jr., and Just, L. C., Study of Metal-Water Reactions at High Temperatures, III. Experimental and Theoretical Studies of the Zirconium-Water Reaction, ANL-6548(1962).
- (18) Urbanic, V. F. and Heidrick, T. R., High-Temperature Oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in Steam, Journal of Nuclear Materials 75 (1978).
- (19) Prater, J. T., and Courtright, E. L., Properties of Reactor Fuel Rod Materials at High Temperatures, NUREG/CR-4891 (1987).
- (20) Cathcart, J. V., Pawel, R. E., McKee, R. A., Druschel, R. E., Yurek, G. J., Compbell, J. J., and Jury, S. H., Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics IV, Reaction Rate Studies, ORNL/NUREG-17 (1977).
- (21) Petti, D. A., Martinson, Z. R., Hobbins, R. R., Allison, C. M., Carlson, E. R., Hagrman, D. L., Hartwell, J. K., Vinjamuri, K., and Seifken, L. J., Power Burst Facility (PBF) , Severe Fuel Damage Test 1-4 Test Results Report, NUREG/CR-5163 (1989).
- (22) Bostrom, W. A., The High Temperature Oxidation of Zircaloy in Water, WAPF-104 (1954).
- (23) Lemmon, A. W., Jr., Studies Relating to the Reaction between Zirconium and Water at High Temperatures, BMI-1154 (1957).
- (24) Pontillon, Y., Malgouyres, P. P., Ducros, G., Nicaise, G., Dubourg, R., Kissane, M., Baichi, M., Lessons learnt from VERCORS tests. Study of the active role played by  $UO_2$ - $ZrO_2$ -FP interactions on irradiated fuel collapse temperature, Journal of Nuclear Materials, Volume 344, pp. 265-273 (2005).