

令和5年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

高出力密度高温ガス炉における

マルチフィジクス挙動のV&V

成果報告書

令和6年3月

国立大学法人 東京大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立大学法人 東京大学が実施した令和 5 年度「高出力密度高温ガス炉におけるマルチフィジクス挙動の V&V」の成果を取りまとめたものです。

# 目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法	2.2-1
3. 業務の実施内容及び成果	
3.1 SiC酸化評価コードのVVUQ	3.1-1
3.2 SiC酸化要素試験（再委託先：東京工業大学）	3.2-1
3.2.1 SiC試験片及びSiCコンパクトモデルの焼結条件の検討	3.2-1
3.2.2 TG-DTAによる反応焼結SiCの酸化試験	3.2-26
3.3 実機成立性評価（再委託先：原子力機構）	3.3-1
3.4 研究推進	3.4-1
4. 結言	4-1

## 表一覧

表 3. 1-1	試験部シミュレーション用境界条件	3. 1-10
表 3. 1-2	SiC 統合試験の実験条件	3. 1-11
表 3. 1-3	SiC 統合試験結果	3. 1-12
表 3. 1-4	RS-SiC (Si-rich) 統合試験結果	3. 1-14
表 3. 1-5	TG-DTA 空気酸化による重量増加量の比較	3. 1-17
表 3. 1-6	統合試験による重量増加量の比較	3. 1-17
表 3. 2-1	常圧焼結で得られた焼結助剤無添加 SiC 焼結体のかさ密度、相対密度 および開気孔率	3. 2-11
表 3. 2-2	常圧焼結で得られた焼結助剤添加 SiC 焼結体のかさ密度、相対密度 および開気孔率	3. 2-12
表 3. 2-3	混合粉と Si 金属粒の混合粉体から成る成形体を用いた反応焼結体 (方法 C) の寸法および密度の変化	3. 2-17
表 3. 2-4	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料の寸法 および密度	3. 2-18
表 3. 2-5	TG-DTA による酸化試験の測定条件	3. 2-35
表 3. 2-6	TG-DTA による RS-SiC の酸化試験条件	3. 2-38
表 3. 2-7	本研究で作製した RS-SiC (Si リッチ) の酸化試験前の SiC および Si の組成	3. 2-41
表 3. 2-8	1000、1200 および 1400°C、10 時間、大気中での酸化による RS-SiC (Si-less) および RS-SiC (Si-rich) の総重量増加量の比較	3. 2-43
表 3. 3-1	HTR60S-SiC の主な仕様	3. 3-9
表 3. 3-2	燃料濃縮度の配置 (wt%)	3. 3-10
表 3. 3-3	BP の配置 (B 濃度 (%) / BP ペレット直径 (mm))	3. 3-10
表 3. 3-4	減圧事故解析パラメータ	3. 3-19

## 図一覧

図 1-1	SiC 母材燃料コンパクトの概要例	1-1
図 1-2	V&V と不確かさ	1-2
図 2. 1-1	全体計画	2. 1-1
図 3. 1-1	統合試験実験装置試験部	3. 1-9
図 3. 1-2	統合試験実験装置の概略図	3. 1-9
図 3. 1-3	中心面上のメッシュ断面図	3. 1-10
図 3. 1-4	SiC 加熱時の熱平衡解析 (SiC 表面温度 1388 °C)	3. 1-10
図 3. 1-5	グラファイト酸化実験 (#00/1200°C/10ppm)	3. 1-11
図 3. 1-6	SiC 酸化実験 (#01/1200°C/0. 2ppm)	3. 1-11
図 3. 1-7	SiC 酸化実験 (#02/1300°C/0. 2ppm)	3. 1-11
図 3. 1-8	SiC 酸化実験 (#03/1400°C/0. 2ppm)	3. 1-11



図 3.1-9	統合試験後の SiC 試験片写真	3.1-12
図 3.1-10	三層試験	3.1-13
図 3.1-11	三層試験シミュレーションの例	3.1-13
図 3.1-12	RS-SiC①酸化実験の温度履歴 (#11/1300°C/0.2ppm)	3.1-14
図 3.1-13	RS-SiC①酸化実験前後の試験片写真 (1300°C)	3.1-15
図 3.1-14	RS-SiC②酸化実験前後の試験片写真 (1300°C/1000ppm)	3.1-15
図 3.1-15	RS-SiC②酸化実験の温度履歴 (1000°C)	3.1-16
図 3.1-16	TG-DTA 空気酸化による重量増加量の比較	3.1-17
図 3.2-1	SiC の常圧焼結での焼結パターン	3.2-11
図 3.2-2	各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体断面の SEM 写真	3.2-12
図 3.2-3	各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した焼結助剤添加 SiC 焼結体断面の SEM 写真	3.2-13
図 3.2-4	反応焼結における焼結パターン	3.2-14
図 3.2-5	反応焼結後の試料の外観写真	3.2-14
図 3.2-6	反応焼結後の試料を縦方向に切断した面の写真	3.2-14
図 3.2-7	炭素繊維シート (織布) を介して金属 Si 上に成形体を配置する反応焼結法 (方法 A) の模式図	3.2-15
図 3.2-8	方法 A での反応焼結前後のるつぼ内の試料の写真	3.2-15
図 3.2-9	方法 A で反応焼結した試料の外観	3.2-15
図 3.2-10	方法 A で反応焼結した試料の切断面	3.2-15
図 3.2-11	金属 Si を炭素繊維の紐と接触させその上に成形体を配置する反応焼結法 (方法 B) の模式図と外観	3.2-16
図 3.2-12	方法 B で反応焼結した試料 (一軸成形体の反応焼結試料) の外観と破断面	3.2-16
図 3.2-13	方法 B で反応焼結した試料 (CIP 成形体の反応焼結試料) の外観と切断面	3.2-16
図 3.2-14	方法 B で反応焼結した試料 (一軸成形体の反応焼結試料) の外観と切断面	3.2-17
図 3.2-15	混合粉と Si 金属粒の混合粉体から成る成形体を用いた反応焼結体 (方法 C) の外観	3.2-17
図 3.2-16	PVA による造粒粉を用いて作製した成形体 (図左) の反応焼結体の外観 (図中央) および円柱軸方向に切断した切断面 (図右)	3.2-17
図 3.2-17	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法の模式図	3.2-18
図 3.2-18	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料 (成形体径 ; 10 mm φ) の外観	3.2-18
図 3.2-19	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料 (成形体径 ; 10mm φ) の研磨面の光学顕微鏡写真	3.2-18
図 3.2-20	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料 (成形体径 ; 10mm φ) の研磨面	3.2-19

図 3. 2-21	成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料 (成形体径 ; 10mmφ) の研磨面の SEM 像と EDX 元素マッピング	3. 2-19
図 3. 2-22	原料として用いた (a) SiC と (b) C 粉末、(c) これらの混合粉および (d) 反応 焼結により作製した焼結体を粉砕した粉末の X 線回折パターン	3. 2-20
図 3. 2-23	Si 供給量が反応焼結体の密度に及ぼす影響	3. 2-20
図 3. 2-24	室温から 1000°C の温度における反応焼結 SiC 試験片の熱拡散率、 比熱および熱伝導率	3. 2-21
図 3. 2-25	円筒形試料成形用金型	3. 2-21
図 3. 2-26	反応焼結における BN るつぼ、成形体の配置および金属 Si の供給方法	3. 2-22
図 3. 2-27	反応焼結により得られた円筒形状 SiC 焼結体の外観	3. 2-23
図 3. 2-28	供給 Si 量と反応焼結体かさ密度の関係	3. 2-23
図 3. 2-29	2 種類の円筒形状 SiC 焼結体および円柱状 SiC ペレットの X 線 回折パターン	3. 2-24
図 3. 2-30	室温から 1000°C における円筒形状 SiC 焼結体および円柱状 SiC ペレット の熱伝導率	3. 2-25
図 3. 2-31	TG-DTA による大気中での反応焼結 SiC ボールの酸化試験 (保持温度 1100°C)	3. 2-33
図 3. 2-32	TG-DTA による乾燥空気フローにおける反応焼結 SiC ボールの酸化試験 (保持温度 1000°C)	3. 2-33
図 3. 2-33	TG-DTA 装置を用いた SiC の酸化試験の流れ	3. 2-34
図 3. 2-34	酸素濃度を制御した雰囲気下における SiC の酸化試験装置の概略図	3. 2-34
図 3. 2-35	RS-SiC ボールの XRD パターン	3. 2-34
図 3. 2-36	RS-SiC の passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)	3. 2-35
図 3. 2-37	RS-SiC の低温側 (800~1000°C) における passive 酸化速度と温度の関係: 活性化エネルギーの算出	3. 2-35
図 3. 2-38	酸素濃度 1ppm における RS-SiC 酸化中の重量変化	3. 2-36
図 3. 2-39	(a) 酸化試験前および (b, c) 酸化試験後の RS-SiC ボール表面の SEM 写真	3. 2-36
図 3. 2-40	空気酸化における RS-SiC 試料の重量変化	3. 2-36
図 3. 2-41	SiC における C と Si の含有率が酸化挙動に及ぼす影響の考察	3. 2-37
図 3. 2-42	RS-SiC 試料の空気酸化における passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)	3. 2-37
図 3. 2-43	RS-SiC 試料の酸素濃度 1ppm における酸化中の重量変化	3. 2-37
図 3. 2-44	RS-SiC サンプルの 1ppm 酸化で得られた passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)	3. 2-38
図 3. 2-45	高温ガス炉燃料の安全性に関する passive/active 酸化モードの模式図	3. 2-38
図 3. 2-46	TG による酸素濃度 1ppm、流速 50~300mL/min、1400°C で 30 分間酸化 した RS-SiC の重量変化	3. 2-39
図 3. 2-47	1300/1400°C、0. 3/1ppm の条件下での RS-SiC の推定される passive 酸化反応速度と流量との関係	3. 2-39

図 3. 2-48	本研究で得られた結果をもとに作成した RS-SiC の passive/active 酸化 転移ダイアグラム	3. 2-40
図 3. 2-49	市販の RS-SiC (Si-less) を円柱状に加工した試料表面の酸化前後の SEM 像 (酸化試験条件 ; 1400°C、10 時間)	3. 2-40
図 3. 2-50	市販の RS-SiC (Si-less) を円柱状に加工した試料表面の酸化後の 断面 SEM 像 (酸化試験条件 ; 1400°C、10 時間)	3. 2-41
図 3. 2-51	1400°Cでの酸化試験前後の RS-SiC (Si リッチ) の XRD パターン	3. 2-42
図 3. 2-52	空气中、1400°Cで 10 時間酸化した後の RS-SiC 試料 (Si-rich) 断面図の 二次電子像 (SEM 像) および SEM-EDX による C、Si および O 元素 マッピング	3. 2-42
図 3. 3-1	SiC 母材燃料コンパクト (左) と従来のスリーブ付き燃料コンパクト (右)	3. 3-11
図 3. 3-2	HTR60S-SiC 炉心の水平断面図 (左) と鳥瞰図 (右)	3. 3-11
図 3. 3-3	HTR60S-SiC の燃料	3. 3-12
図 3. 3-4	燃料コンパクト内側に SiC の支持棒を通した時の黒鉛燃料コンパクト 支持構造	3. 3-13
図 3. 3-5	制御棒位置の燃焼に伴う変化	3. 3-14
図 3. 3-6	反応度温度係数の燃焼に伴う変化	3. 3-14
図 3. 3-7	燃焼初期 (10 日) での出力密度分布	3. 3-15
図 3. 3-8	燃焼中期 (300 日) での出力密度分布	3. 3-15
図 3. 3-9	燃焼末期 (730 日) での出力密度分布	3. 3-16
図 3. 3-10	伝熱解析モデル	3. 3-17
図 3. 3-11	HTR50S の事故解析の初期状態	3. 3-18
図 3. 3-12	HTR60S-SiC の事故解析の初期状態	3. 3-19
図 3. 3-13	HTR50S の減圧事故解析 (40 気圧/100%:11 時間後)	3. 3-20
図 3. 3-14	HTR50S の減圧事故解析 (40 気圧/100%:31 時間後)	3. 3-21
図 3. 3-15	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (40 気圧/100%:10 時間後)	3. 3-22
図 3. 3-16	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (40 気圧/100%:38 時間後)	3. 3-23
図 3. 3-17	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (30. 625 気圧/90%:6 時間後)	3. 3-24
図 3. 3-18	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (30. 625 気圧/90%:36 時間後)	3. 3-25
図 3. 3-19	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (21. 25 気圧/80%:8 時間後)	3. 3-26
図 3. 3-20	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (21. 25 気圧/80%:38 時間後)	3. 3-27
図 3. 3-21	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (11. 875 気圧/70%:11 時間後)	3. 3-28
図 3. 3-22	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (11. 875 気圧/70%:42 時間後)	3. 3-29
図 3. 3-23	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (2. 5 気圧/60%:11 時間後)	3. 3-30
図 3. 3-24	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (2. 5 気圧/60%:40 時間後)	3. 3-31
図 3. 3-25	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (燃料最高温度)	3. 3-32
図 3. 3-26	HTR60S-SiC の減圧事故解析 (RPV 最高温度)	3. 3-33

## 略語一覧

HTGR	: High Temperature Gas-cooled Reactor	(高温ガス炉)
HTTR	: High Temperature engineering Test Reactor	(高温ガス炉実験炉)
SiC	: Silicon Carbide	(炭化ケイ素)
STP	: Standard Temperature and Pressure	(標準温度と圧力)
TG-DTA	: ThermoGravimetry Differential Thermal Analysis	(示差熱天秤装置)
TRISO 燃料粒子	: TRIsstructural ISOtropic coated fuel particle	(三重被覆燃料粒子)
V&V	: Verification and Validation	(検証と妥当性確認)
VVUQ	: Verification, Validation and Uncertainty Quantification	(検証、妥当性確認と誤差定量化)
HTR60S-SiC 炉心	: SiC 母材の燃料コンパクトを採用した高出力密度高温ガス炉	

## 概略

高温ガス炉の炉心は TRISO 燃料粒子を黒鉛(グラファイト)により焼き固めた、円筒状の燃料コンパクトが用いられる。日本原子力開発機構(以下、原子力機構)の HTTR においては、円筒形燃料コンパクトは、空気侵入事故時の燃料酸化を低減するため、管状の黒鉛スリーブに収められている。この黒鉛スリーブがあることで、スリーブとコンパクト間のギャップコンダクタンスなどにより、冷却性能に限界がある。この黒鉛スリーブを排除することができれば、高出力密度の高温ガス炉が達成される。しかし、空気侵入事故時の黒鉛コンパクト酸化が懸念され、黒鉛コンパクトでは限界がある。なお、黒鉛の酸化挙動評価については、原子力機構が THYTAN コードを開発し、検証を行っている。

一方、黒鉛コンパクトではなく、SiCによってTRISO燃料粒子を焼き固めた、SiCコンパクトを用いるアイデアがある。SiCによって、耐酸化性能を向上させ、伝熱抵抗となっている黒鉛スリーブを省略することができる。すなわち、冷却性能を大幅に向上させ、高温ガス炉の安全性を確保するとともに、高出力密度を達成することができる。円柱状の燃料コンパクトの母材を黒鉛(グラファイト)の代わりにSiCで構成することによって、伝熱性能を確保したまま、耐酸化性能を向上させるというアイデアである。コンパクトの外側に設置される黒鉛スリーブ(黒鉛管)を省略できることから、除熱性能が大幅に向上し、高出力密度高温ガス炉が達成される。一方、このSiCコンパクトによる、高出力密度高温ガス炉を実現するためには、SiC酸化に関する高温ガス炉の酸化評価コードが必須である。SiC酸化に関しては、過去から様々な研究が進められてきているが、SiCコンパクトの製造方法によってその挙動が異なることも知られている。また、近年は軽水炉のATFとして主としてSiCの水蒸気酸化に関する研究が盛んであるが、高温ガス炉においては空気侵入事故時の空気酸化が重要である。中国のHTR-PMなどで進められている、蒸気サイクルを用いる場合は、蒸気発生器配管破断事故などによって、炉心への水侵入が想定されるが、日本で検討されている、高温ガス炉による水素製造やガスタービンサイクル発電などでは、原子炉冷却系に水との熱交換機を扱わないため、水侵入事故は想定できない。一方で、空気侵入事故は、確実に想定すべき事故である。SiCの空気酸化については、その酸素分圧と温度によって、パッシブ酸化とアクティブ酸化が知られており、高温ガス炉事故時の条件などを考慮した、酸化挙動評価を行う事が、安全上きわめて重要である。

本研究では、高出力密度高温ガス炉のための、SiCコンパクトにおけるSiC酸化挙動評価を行うマルチフィジクスシミュレーションコードを開発することを目指し、そのV&V(検証及び妥当性確認)のための技術開発を行う事を目的とする。さらに、V&Vにおいては、その不確かさの定量化(UQ)が重要であり、VVUQ(検証、妥当性確認及び不確かさ定量化)を進める。SiC酸化挙動は、「化学反応」としての酸化反応、「物質移行」としての一酸化炭素流動及び酸素拡散、「エネルギー輸送」としての輻射伝熱や対流伝熱、空気流動といった、マルチフィジクスを同時に解くことが必要であり、その時間スケールや空間スケールも多岐に及んでいる。

目的であるVVUQを推進するにあたり、実機条件をゴールとして、要素試験によるマルチフィジクスシミュレーションコードの構成式確認と相関評価を令和3年度・令和4年度に実施する。さら

に、統合試験としてのSiC酸化実験を3年度目を実施する。統合試験に並行して、時空間マルチスケールの課題に適用するためのVVUQ手法の改良を行うとともに、実機条件の外挿を踏まえたVVUQ手法を評価する。

SiC コンパクト酸化挙動のVVUQがなされることで、設計の信頼性を大幅に高めることが可能となる。このSiC コンパクトを用いた高温ガス炉の高出力化は、東芝などをはじめとする、ポーランドへの高温ガス炉事業を進めている産業界からも期待が寄せられている。日本の技術力を世界に示し、高温ガス炉で世界を先導することにつながる。

令和5年度は最終年度として、東京大学、東京工業大学、原子力機構が連携し、データ取得と評価を実施し、予定通りの成果を上げた。

## 1. はじめに

高温ガス炉の炉心は TRISO 燃料粒子を黒鉛(グラファイト)により焼き固めた、円筒状の燃料コンパクトが用いられる。なお、中国などで用いられている、球状に焼き固めたペブルベッド型は、耐震性などに課題があるため本研究では対象とせず、日本原子力開発機構(以下、原子力機構)の HTTR で実績のある円筒状のプリズマティック型を対象とする。HTTR においては、円筒形燃料コンパクトは、空気侵入事故時の燃料酸化を低減するため、管状の黒鉛スリーブに収められている。この黒鉛スリーブがあることで、スリーブとコンパクト間のギャップコンダクタンスなどにより、冷却性能に限界がある。この黒鉛スリーブを排除することができれば、高出力密度の高温ガス炉が達成される。しかし、空気侵入事故時の黒鉛コンパクト酸化が懸念され、黒鉛コンパクトでは限界がある。なお、黒鉛の酸化挙動評価については、原子力機構が THYTAN コードを開発し、検証を行っている。

一方、黒鉛コンパクトではなく、SiCによってTRISO燃料粒子を焼き固めた、SiCコンパクトを用いるアイデアがある。SiCによって、耐酸化性能を向上させ、伝熱抵抗となっている黒鉛スリーブを省略することができる。すなわち、冷却性能を大幅に向上させ、高温ガス炉の安全性を確保するとともに、高出力密度を達成することができる。図1-1に、SiC燃料コンパクトを模式的に示す。円柱状の燃料コンパクトの母材を黒鉛(グラファイト)の代わりにSiCで構成することによって、伝熱性能を確保したまま、耐酸化性能を向上させるというアイデアである。コンパクトの外側に設置される黒鉛スリーブ(黒鉛管)を省略できる

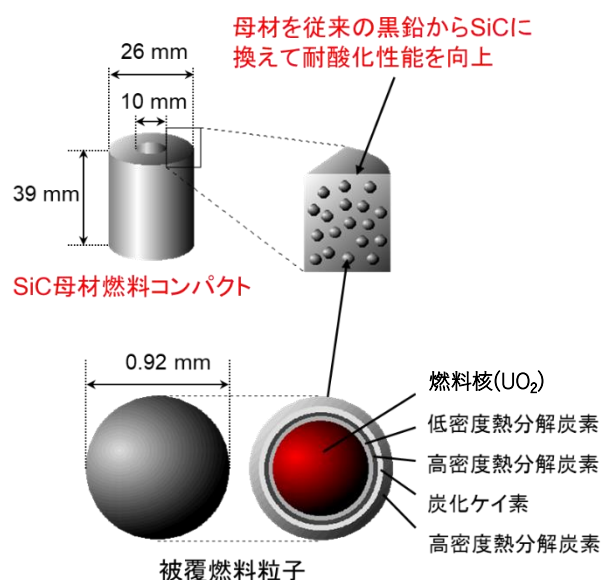


図 1-1 SiC 母材燃料コンパクトの概要例

ことから、除熱性能が大幅に向上し、高出力密度高温ガス炉が達成される。一方、このSiCコンパクトによる、高出力密度高温ガス炉を実現するためには、SiC酸化に関する高温ガス炉の酸化評価コードが必須である。SiC酸化に関しては、過去から様々な研究が進められてきているが、SiCコンパクトの製造方法によってその挙動が異なることも知られている。また、近年は軽水炉のATFとして主としてSiCの水蒸気酸化に関する研究が盛んであるが、高温ガス炉においては空気侵入事故時の空気酸化が重要である。中国のHTR-PMなどで進められている、蒸気サイクルを用いる場合は、蒸気発生器配管破断事故などによって、炉心への水侵入が想定されるが、日本で検討されている、高温ガス炉による水素製造やガスタービンサイクル発電などでは、原子炉冷却系に水との熱交換機を扱わないため、水侵入事故は想定できない。一方で、空気侵入事故は、確実に想定すべき事故である。SiCの空気酸化については、その酸素分圧と温度によって、パッシブ酸化とアクティブ酸化が知られており、高温ガス炉事故時の条件などを考慮した、酸化挙動評価を行う事が、安全上きわめて重要である。

本研究では、高出力密度高温ガス炉のための、SiCコンパクトにおけるSiC酸化挙動評価を行うマルチフィジクスシミュレーションコードを開発することを目指し、そのV&V（検証及び妥当性確認）のための技術開発を行う事を目的とする。さらに、V&Vにおいては、その不確かさの定量化(UQ)が重要であり、VVUQ(検証、妥当性確認及び不確かさ定量化)を進める。SiC酸化挙動は、「化学反応」としての酸化反応、「物質移行」としての一酸化炭素流動及び酸素拡散、「エネルギー輸送」としての輻射伝熱や対流伝熱、空気流動といった、マルチフィジクスを同時に解くことが必要であり、その時間スケールや空間スケールも多岐に及んでいる。

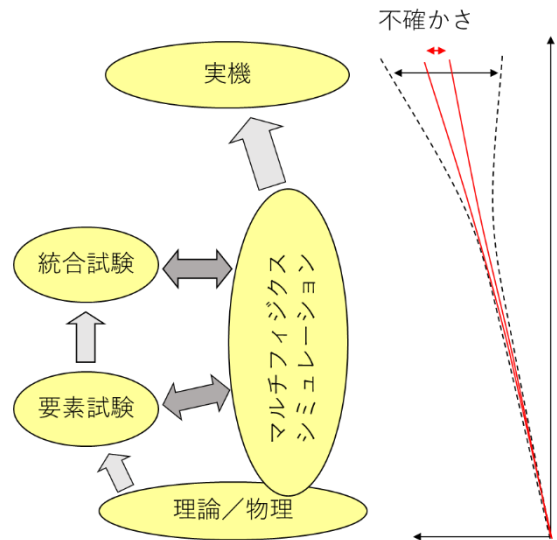


図 1-2 V&V と不確かさ

(原子力eye, Vol. 57-6, (2011)を修正)

図1-2に、VVUQを単純化して示す。このシナリオをベースに研究計画を進める。目的であるVVUQを推進するにあたり、実機条件をゴールとして、要素試験によるマルチフィジクスシミュレーションコードの構成式確認と相関評価を令和3年度・令和4年度に実施する。さらに、統合試験としてのSiC酸化実験を令和5年度に実施する。統合試験に並行して、時空間マルチスケールの課題に適用するためのVVUQ手法の改良を行うとともに、実機条件の外挿を踏まえたVVUQ手法を評価する。



## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

研究項目	令和3年度	令和4年度	令和5年度
(1) SiC酸化評価コードのVVUQ (東京大学)	マルチフィジクス コードのVVUQ評価	コードのVVUQと 統合試験準備	統合試験と VVUQのまとめ
(2) SiC酸化要素試験 (東京工業大学)	SiC試験片製作 試験準備	SiC酸化要素試験 本試験	SiC酸化要素試験 追加試験とまとめ
(3) 実機成立性評価 (原子力機構)	実機評価のための 予備的検討	実機評価のための 境界条件設定	実機成立性評価と まとめ
(4) 研究推進	連携	連携	連携

図 2.1-1 全体計画

## 2.2 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法

高温ガス炉は、極めて安全な原子炉であるとともに、1000℃に近い熱を供給できるメリットがあり、カーボンフリー社会の中核的な技術となり得る。HTTRで用いられている黒鉛スリーブ付き黒鉛コンパクト燃料に対して、スリーブを除去したSiCコンパクト燃料とすることで、熱除去性能が上昇し、出力密度の向上が期待できる。事故時及び通常時のSiC酸化は、化学反応、反応生成物(CO等)の物質移行、冷却材流動、輻射伝熱など、マルチフィジクスである。本研究では、SiC酸化反応に関する解析コードを整備するとともに、そのV&V手法を確立し、高出力密度高温ガス炉の可能性を追求する事を目的とする。

令和5年度は、3年計画の3年度目として、下記を実施する。

### (1) SiC酸化評価コードのVVUQ

統合試験を実施するとともに、要素試験及び統合試験の結果を踏まえてコードのVVUQを進め、本研究のまとめを行う。

### (2) SiC酸化要素試験（再委託先：東京工業大学）

令和4年度までの検討結果をベースとし、SiC試験片及びSiCコンパクトモデルについて酸素濃度及び温度条件を変化させてTG-DTAによる酸化試験を行い、SiCの酸化データを充実させる。また、(1)で実施する統合試験とVVUQのまとめのために、これらのデータを供する。

### (3) 実機成立性評価（再委託先：原子力機構）

令和4年度に明確化した崩壊熱等のパラメータ範囲及び境界条件を用い、(1)で整備するSiC酸化評価コード等により、事故時の解析を行って実機の成立性を評価し、成果を取り纏める。

### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にし、(1)から(3)の研究成果を総合して目的を達成できるよう、情報の共有化に努めながら研究を進める。

### 3. 業務の実施内容及び成果

#### 3.1 SiC 酸化評価コードの VVUQ

##### (1) 統合試験の準備【R3-R4】

###### ① 実験装置の整備

統合試験のために、統合試験実験装置の設計・製作と予備的実験を行った。

図 3.1-1 に実験装置の概略図、図 3.1-2 に試験部のモデルを示す。中央にタングステン線、その外側に、管状の SiC を設置する。熱電対を SiC の表面に設置して温度を計測した。タングステン線ヒーターを直流加熱し、SiC 試験片を間接的に加熱する事とした。また、試験片の外側には、グラファイト円筒で覆い、試験片からの輻射熱を受けるとともに、表面積を稼いで外部にやはり輻射で徐熱している。外側のグラファイト円筒は低温であり、酸化の影響は少ない。

図 3.1-2 に示すように、この実験装置は、主にステンレス製密閉チャンバー、銅電極、ガス供給システム、電源システム、データ収集システムで構成されている。密閉されたステンレス製チャンバーは、不活性雰囲気を提供するために真空引きを含め、予めアルゴンガスを充填しておく。ヒーターとしてタングステンロッドを設置する。予備的な試験片として、市販品の焼結 SiC 管(長さ 30 mm、内径 9 mm および外径 15 mm)をヒーターであるタングステンロッドの外側に配置した。上述のように、SiC 表面から放射される熱エネルギーを受けるとともに酸化実験中に安定したガス流境界を設ける目的で、SiC 管の外側に同じ長さ、内径 30 mm、外径 46 mm のグラファイト円筒(外側グラファイトと表記)を配置した。タングステンロッドの端部は、銅電極を使用して直流電源に接続した。SiC 管と外側グラファイトは、上下にセラミックプレートで保持する。SiC と外側グラファイト表面の温度を測定するために、0.1mm シースの K 型熱電対を設置した。熱電対シースからの除熱は十分に小さい。

###### ② シミュレーションを用いた統合試験の準備

統合試験実験装置加熱時の熱分布解析を StarCCM+ を用いて実施した。環状領域のアルゴンガス流は、定常で層流であると仮定する。固体領域については、熱伝導、熱伝達および輻射モデルを用いた。シミュレーション領域は、タングステンロッド、SiC 円管、外側グラファイト、上部/下部セラミックプレート、上部/下部銅電極、及びアルゴン流で構成した。

計算に用いたメッシュ断面図を図 3.1-3 に示す。基準メッシュサイズは 0.001m とし、境界層と壁近傍の熱伝達を評価するために使用した。これらに加えて基準メッシュサイズの 50 % となるようなカスタムメッシュも用いた。流体領域については、実験値に基づく質量流量を流入境界条件とし、出口では大気圧の圧力境界条件とする。固体領域については、外側グラファイト、上部および下部のセラミックプレート表面を、アルゴンガス対流境界とした。表 3.1-1 は主要な境界条件を示している。アルゴン、タングステン、セラミックプレートなどの物性値は、StarCCM+ ライブラリを用いた。一方、グラファイトと SiC の材料特性は、既往研究データに基づいている<sup>(1)(2)</sup>。加熱源は、タングステンの一様発熱とした。

図 3.1-4 に温度場のシミュレーション結果の例を示す。熱電対の位置等において、StarCCM+ によって計算された温度を図中に数字で示している。温度分布について、予備実験によって得られたデータを元に検証を行った結果、実験データをよく模擬できることを確認した。これをもとに、タングステンロッド径とセラミックプレートのオリフィス直径をパラメータとして、最適な試験装置を解析によって求めた。SiC 温度を 1400℃ となるとともに、タングステンとセラミックプレートの表面温度がそれぞれ 2800℃ 以下及び 1800℃ 以下になる条件を探索した。パラメータとしては、ヒーターであるタングステンロッド径とセラミックプレート穴径とした。シミュレーション結果に基づき、直径 2.5 mm のタングステン棒と穴径 6 mm のセラミックプレートを標準とし、実験装置の製作を行った。なお、試験片形状毎に、シミュレ

ーションを援用して、実験時の温度条件を再現し、評価している。

## (2) 統合試験の実施【R5】

### ① SiCを用いた統合試験

#### 1) 統合試験装置

市販の焼結 SiC を加工し、長さ 39 mm、内径 9 mm・外径 15 mm の円柱状にした試験片を用いて統合試験を実施した。

実験装置は、前項で整備したものをを用いる。タングステンヒーターに直流加熱を行い、輻射により円柱状試験片を加熱する。試験片の外側には輻射を受ける外側グラファイトを設け、さらに輻射によって外部に熱を除熱する。試験部は真空容器内に封入し、アルゴンガスを流入させた条件で、酸素分圧を制御して実験を実施する。試験片の温度は、熱電対によって計測するとともに、検証された数値シミュレーションと、外側グラファイト温度などの情報から確認を行う。

真空容器は、ステンレス鋼製の密閉円筒チャンバーであり、真空ポンプ、ガス供給システム、電源システム、およびデータ取得システムが接続される。試験片の構成には、タングステンヒーター、試験片である SiC、外側グラファイトを保持するために、上部及び下部にアルミナプレート (99.5%) を設置している。タングステンヒーターは、上部及び下部の銅電極に接続され直流加熱を行う。当初の設計用いていたセラミックプレートが熔融するため、99.5% のアルミナで作られたセラミックプレートを用いている。

図 3.1-1 に示すように、ヒーターである直径 3 mm のタングステンロッドの外側に、長さ 39 mm、内径 9 mm と外径 15 mm のグラファイト円筒もしくは SiC 円筒を用いた。さらに、内径 30mm 外径 45mm 同じ長さの外側グラファイトを SiC 円筒の外側に配置する。本構成において、酸化反応を計測するグラファイトもしくは SiC の表面積は  $2940.05 \text{ mm}^2$  となる。この面積は、表面積あたりの重量減少率または重量増加率を計算するために用いた。

酸化量は、SiC 試験片の重量増加または重量減少を計測することによって求められる。タングステンロッドのジュール加熱によって発生した熱は、SiC 円筒に輻射により伝達され、さらに外側グラファイトに輻射により伝達される。SiC 円筒と外側グラファイトの温度から、シミュレーションを援用することにより、放射熱伝達を計算できる。

実験では、2 種類のアルゴンガスを用いた。純度 99.99% アルゴンガスにおいて、酸素濃度は 10 ppm 未満となる。また純度 99.999% アルゴンガスでは、酸素濃度は 0.2 ppm 未満である。定常状態の温度条件に到達した後、テストセクションの底部からアルゴンガスを注入する。実験は 60 分間継続させる。実験条件および実験結果を表 3.1-2 にまとめる。

SiC との比較を行うため、まず、グラファイトによる実験(実験番号#00)を実施した。内径 9 mm、外径 15 mm、長さ 39 mm のグラファイト円筒中空管を使用し、10 ppm の酸素濃度で実施した。酸化実験中のグラファイトと外側グラファイトの温度過渡を図 3.1-5 に示す。電力 865W でタングステンロッドをジュール加熱すると、グラファイト温度は  $1200^{\circ}\text{C}$  に達し、この状態を 60 分間継続した。試験片重量は実験の前後に測定し、酸化実験による重量増減を計測した。

#### 2) 酸化実験

SiC 酸化実験は、市販の焼結 SiC を用いた。なお、温度条件を  $1200^{\circ}\text{C}$ 、 $1300^{\circ}\text{C}$  及び  $1400^{\circ}\text{C}$  の 3 種類に変更して実験を行った。実験は、純度 99.999% のアルゴンガスを用いたので、酸素濃度は 0.2 ppm 未満である。図 3.1-6 に実験番号#01 の温度過渡を示すが、 $1200^{\circ}\text{C}$  実験において、SiC の表面温度は約  $1180^{\circ}\text{C}$  に達している。外側グラファイト (OG) の計測温度は  $750^{\circ}\text{C}$  と測定され、(1)②で実施したシミュレーションから計算された外側グラファイト温度 ( $753^{\circ}\text{C}$ ) とほぼ一致している。この一致により、輻射を伴うシミュレーションが検証された。

なお、図 3.1-5 と図 3.1-6 を比較すると、試験片がグラファイトの場合(#00/図 3.1-5)と SiC の場合(#01/図 3.1-6)の表面温度が約  $1200^{\circ}\text{C}$  と同じでも、外側グラファイト温度には大きな差がある。この差は、グラファイトと SiC で放射率が異なるためである。SiC の放射率が

グラファイトよりも高いことを考慮すると（表 3.1-2）、SiC 表面と外側グラファイトの間の放射熱伝達がより大きくなり、その結果、外側グラファイト温度が高くなる。

1300℃の SiC 酸化実験(#02/図 3.1-7) では、試験片の都合により、短い長さの SiC 円筒(30 mm)で実施し、約 1320℃となった。外側グラファイト (OG)温度は約 820℃で、シミュレーションから計算された外側グラファイト温度とほぼ一致した。

1400℃の SiC 酸化実験(#03 図 3.1-8)では、K 型熱電対の測定温度範囲をオーバーしており、SiC の温度は直接計測できなかった。このため、外側グラファイト(OG)温度と、シミュレーション結果より、SiC の温度は 1400℃となったと推定した。

### 3) 実験結果

それぞれの統合試験における重量測定データを表 3.1-3 に示す。まず、グラファイト試験片に対して、10 ppm という低酸素濃度のため、酸化は十分に小さい。また、SiC 試験片で観察された重量増加は、どちらの場合も SiO<sub>2</sub> が表面に形成されたと考えられる。表には、表面積に対する重量の減少または増加を示す。特に、重量増加率は試験片温度上昇に伴い減少している。

酸化実験後に撮影した SiC のサンプル写真を図 3.1-9 に示す。高温では、SiC 表面はより酸化されているように観測される。なお、タングステンロッドと SiC の両方が同時に酸化するために形成されたとと思われるウール型の構造も観測された。

## ③ RS-SiC(Si-rich) 試験片を用いた統合試験【R5】

### 1) 三層試験

3.2 節において製作した RS-SiC 試験片を用い、統合試験を実施した。この試験片の寸法は、内径 23.8 mm、外径 33.8 mm、長さ 18.6mm の RS-SiC 円筒となる。外径が大きくなり、除熱に寄与する表面積が増加するため、上下にグラファイトホルダーを用いて、高温状態を保つことを試みた。三層試験(3-layer)と呼ぶ。三層試験の試験装置を図 3.1-10 に示す。ホルダーの外径は RS-SiC 円柱試験片と同じ 33.8 mm、内径は 21.6 mm、長さは 54.2 mm とした。RS-SiC 円筒とグラファイトホルダーは、直径 3.5 mm のタングステンロッドでジュール加熱される。

さらに、長さ 127 mm、内径 41 mm、外径 65.8 mm の外側グラファイトを、試験片の外側に配置する。この外側グラファイト、試験片から放射される熱エネルギーを吸収するとともに、実験中に安定したガス流を構成する。②SiC を用いた統合試験と同様に、これら試験片と外側のグラファイトは 2 枚のアルミナ (99.5%) 断熱プレートで保持する。

試験片である RS-SiC 円柱、グラファイトホルダー、外側グラファイトなどの温度を測定するために、K 型熱電対を用いた。温度計測データとシミュレーションを比較して、温度条件を評価する。

図 3.1-11 は、三層試験における温度のシミュレーション結果を示している。本シミュレーション結果と熱電対のデータから、SiC 表面温度データを求めている。

表 3.1-4 に、試作した RS-SiC を用いた実験条件および実験結果をまとめて記す。なお、試験片は、3.2 節で製作した 2 個の試験片を用いている。試験片名にそれぞれ①②として試験片を分けている。試験片①については、統合試験ののち返送し、改めて TG-DTA などの評価を実施している。3.2 節においては、RS-SiC(Si-rich)としてまとめている。

三層試験は試験片①と試験片②を用いて実施した。いずれも温度は 1300℃である。実験番号#11～#21 の 4 回実験を行った。

図 3.1-12 に、実験番号#11(試験片温度 1300 °C、酸素濃度 0.2 ppm)における温度履歴を示す。60 分定常状態を保った後に重量測定のために試験片を取り出した。残念ながら、RS-SiC 試験片に取り付けられた K 型熱電対は、約 40 分を過ぎたころに、高温により破損し、温度情報は得られなくなった。しかし、外側グラファイトの外側表面に取り付けられた熱電対

は動作を続け、図 3.1-11 に示すシミュレーション結果と一致して約 920℃を維持している。したがって、60 分間の酸化実験中、RS-SiC 試験片温度は約 1300℃に維持されていると考えられる。このように、高温実験の場合は、熱電対破損によって試験片温度が直接計測できなくなる場合があるが、その場合でも、入熱及び外側グラファイト温度が変動していないことをもって、想定した温度が継続しているものとした。

なお、実験番号#11 においては、単層試験で得られている質量増加は観測されず、質量欠損が観測された。このため、実験番号#12, #13 と、同じ温度(1300℃)で、より高い酸素濃度 10 ppm における実験を実施した。#12 では、#11 の実験の結果、酸化した表面を#1200 のサンドペーパーで削り、酸化膜を落とした後、同じ試験片を再利用した(Clean-up と表記)。#13 では、#12 の実験後の酸化した表面は削らず、そのままの表面条件で、同じ試験片を使用した(As-is と表記)。温度過渡結果はすべての実験と同様であった。

この結果、表 3.1-4 に示すように、3 回の実験とも、重量損失が観察された。重量変化量は、初期(#11/Initial)、サンドペーパー(#12/Clean-up)、そのまま(#13/As-is)とも、大きな傾向の変化は見られなかった。図 3.1-13 に、実験前、およびそれぞれの実験後の状況を示す。中央部分が RS-SiC 試験片である。初期(#11/Initial/ 0.2 ppm)での酸化実験後の試験片表面は、サンドペーパー(#12/Clean-up /10ppm)及びそのまま(#13/As-is/10ppm)での実験と比較して表面状況がより酸化されているように観察される。反応焼結で高温(1500℃)での焼結後に、時間が経過しており、SiC 表面に酸素が吸着していた可能性もある。また、残留 Si の影響もある可能性がある。この RS-SiC①試験片は、#13 実験ののち、分析のため東京工業大学に返送し、3.2 節で、TG-DTA などの試験を実施している。なお、3.2 節に示されるように、TG-DTA では、いずれの条件でも質量増加が得られている。

新しい試験片 RS-SiC②を用いて、#11 と同様の実験(実験番号#21)を実施した。酸化の影響を評価するため、酸素濃度を 1000ppm とし、同じ 1300℃の実験を行った。結果として、わずかな質量欠損が観測されたが、測定誤差を考慮すると、ほぼ重量変化はなかったと考えることもできる。図 3.1-14 に、実験前後の試験片の写真を示す。なお、酸素濃度が増えたために、上下に設置したグラファイトホルダーの酸化も観測されている。1000ppm のアルゴンガスを下部から導入しているが、下部近傍にグラファイトの酸化の様相が見て取れる。

以上の実験結果より、三層試験においては、TG-DTA で観測されたような質量増加は観測されなかった。この原因については、酸素濃度の違いや、実験方法によるところが考えられる。

## 2) 単層試験

三層試験においては、いずれの実験においても、RS-SiC 試験片の重量増加が観測されなかった。このため、①SiC を用いた統合試験と同様に、グラファイトホルダーを使用せず、SiC 試験片をセラミックプレートで直接保持する実験を行った。単層試験(Single)と呼ぶ。なお、単層試験では、熱伝導による上下セラミックプレートへの除熱量が増大し、1300℃の実験は実施することができない。このため、1200℃の実験温度で単層試験を実施した(実験番号#26)。酸素濃度 0.2ppm としたが、1200℃でも 15 分程度でタングステンヒーターが溶融した。表 3.1-4 に示すように、重量増加が観測されている。

単層試験では、高温の実験が困難であるため、温度を 1000℃とし、酸素濃度を 0.2ppm と 10ppm とした実験を 3 回実施した(実験番号#27, #28, #29)。最初の実験番号#27 で用いた RS-SiC 試験片は、1200℃で 15 分酸化させた実験番号#26 の実験終了時の状態をそのまま用いた(As-is)。パラメータは、1000℃で酸素濃度 10ppm である。次に、実験番号#28 においては、実験番号#27 終了後に、サンドペーパーで酸化被膜を削り、1000℃で酸素濃度 10ppm の実験を実施した。さらに、実験番号#29 においては、実験番号#28 終了後に、サンドペーパーで酸化被膜を削り、1000℃で 0.2ppm の実験を実施した。これらの 3 回の実験における温度過渡を、図 3.1-15 にまとめる。比較的低温であるため、熱電対による温度確認もできている。

1 時間保持した後の重量増加または重量欠損のデータを表 3.1-4 に示す。酸化被膜を削った#28 及び#29 の実験においては、いずれも重量増加が観測されている。一方、酸化被膜を削らなかった#27 においては重量欠損が得られている。同様の実験において、重量増加と欠損の両方のデータが得られている。実験開始前には、真空中で酸素を十分に除去しているが、酸

化被膜やSiCに拡散している酸素が必ずしも十分に除去できていないものと考えられる。初期状態として、RS-SiC 試験片表面近傍に拡散している酸素の影響が無視できない。これは、酸素濃度 0.2ppm と酸素濃度 10ppm の実験結果が大きく異なる事からも想定される。

統合試験は、実機で使われるSiCコンパクトと同様の寸法での実験である。実験装置も大型化し、真空チャンバーの大きさも 60cm 程度となり、実験に時間がかかる。また、精密な実験を実施しているが、本研究で取得すべき酸化量は、試験片の大きさに比較しても十分に小さく、0.01%程度のわずかな重量変化を計測する必要がある。実験の不確かさが比較的大きくなるため、定性的な傾向を得るためには十分であるが、不確かさの低減が必要である。なお、酸素濃度が濃い条件の実験は、本実験装置では一酸化炭素を発生させる恐れがあることから、ほとんど実施できなかった。最大で0.1%(1000ppm)での実験を実施したが、基本的には0.2ppmもしくは10ppmでの実験としている。実験時のリスクを低減すること、さらに、実験の不確かさを低減するためにも、統合試験について、よりコンパクト化を図ることが必要である。

### (3) THYTAN の VVUQ 【R3-R5】

#### ①THYTAN の整備 【R3-R4】

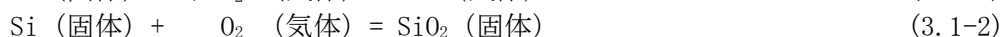
日本原子力研究開発機構で開発されている黒鉛酸化挙動評価コード(THYTAN)<sup>(3)</sup>を参考として、SiC 酸化挙動を評価するコードの整備を進めた。

#### 1) 基礎式

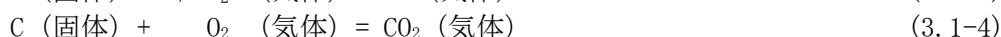
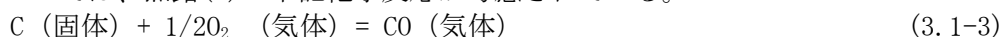
THYTAN コードに SiC 酸化モデルを組み込んだ。

##### a) 化学反応

SiC の化学反応として下記を考慮する



THYTAN では、黒鉛(C)の下記化学反応が考慮されている。



THYTAN に組み込まれている式 3.1-3 を参考として式 3.1-1 の反応を、また、式 3.1-4 を参考として式 3.1-2 の反応を組み込む。但し、SiO<sub>2</sub>は固体であり、式 3.1-4 のCO<sub>2</sub>の気体と異なるため、SiO<sub>2</sub> (固体) の取扱を変更する。具体的には、生成した SiO<sub>2</sub> はその場で固化すると仮定し、SiO<sub>2</sub> の拡散は計算しない。なお、SiO は高温領域では気体である。

##### b) Si の重量変化

SiO 生成反応(式 3.1-1)の場合、重量変化は下記となる。

$$\text{重量変化(減少)} [\text{kg}] = \text{Si 反応量} [\text{mol}] \times \text{Si 分子量} [\text{kg/mol}] \quad (3.1-5)$$

SiO<sub>2</sub> 生成反応(式 3.1-2)の場合、重量変化は下記となる。

$$\text{重量減少} [\text{kg}] = \text{Si 反応量} [\text{mol}] \times \text{Si 分子量} [\text{kg/mol}] \quad (3.1-6)$$

$$\text{重量増加} [\text{kg}] = \text{SiO}_2 \text{ 生成量} [\text{mol}] \times \text{SiO}_2 \text{ 分子量} [\text{kg/mol}] \quad (3.1-7)$$

重量変化は、上記 2 式の差で得られる。

##### c) 体積変化

SiO 生成反応(式 3.1-1)の場合、重量変化は下記となる。

$$\text{体積変化(減少)} [\text{m}^3] = \text{重量変化(減少)} [\text{kg}] \div \text{Si 密度} [\text{kg/m}^3] \quad (3.1-8)$$

SiO<sub>2</sub> 生成反応(式 3.1-2)の場合、重量変化は下記となる。

$$\text{体積減少} [\text{m}^3] = \text{重量減少} [\text{kg}] \div \text{Si 密度} [\text{kg/m}^3] \quad (3.1-9)$$

$$\text{体積増加 [m}^3\text{]} = \text{重量増加 [kg]} \div \text{SiO}_2\text{密度 [kg/m}^3\text{]} \quad (3.1-10)$$

体積変化は上記2式(3.1-9及び3.1-10)の差で求まる。

なお、いずれの場合においても、体積変化[m<sup>3</sup>]から形状に応じて等価腐食厚さを計算することができる。

#### d) 反応速度式

THYTAN においては、反応速度式が下記で与えられている。ここで、 $r$  は反応速度 [g/g/Pa/s]、 $k_{ox}$  は反応速度定数 [g/g/Pa/s]、 $E_{ox}$  は活性化エネルギー [J/mol]、 $R$  はガス定数、 $T$  は温度 [K] である。 $k_{ox}$  及び  $E_{ox}$  に対して、実験で得られた値を代入して計算を実施する。

$$r = k_{ox} \cdot \exp(-E_{ox} / RT) \quad (3.1-11)$$

## 2) 改良

THYTAN を改良し、上記反応式をもとに、計算ができるように変更した。下記に主な改良点をまとめる。

### a) 入力データの追加

- Si と C (黒鉛) の区別は、既存の入力データ変数「GO\_Kindgr」を利用する。  
[Model10]の変数[GO\_Kindgr]に 'Si' を追加
- SiO 生成反応(式 3.1-1)と SiO<sub>2</sub> 生成反応(式 3.1-2)を区別するため、黒鉛ブロック番号に対し、フラグを新規追加する (1次元配列)。
- 「Module\_InputData」内のサブルーチン「ReadModel10」に物性値を追加する  
SiO<sub>2</sub>密度 (kg/m<sup>3</sup>) : GO\_RhoSiO2
- 以下の変数は不変なのでプログラム中 (Module\_Constants) に記載する。  
Si 分子量 (g/mol) : SiMolWeight = 28.0855D+00  
SiO 分子量 (g/mol) : SiOMolWeight = 44.0849D+00  
SiO<sub>2</sub>分子量 (g/mol) : SiO2MolWeight = 60.0843D+00  
(出典) IUPAC 2007 の原子量から計算  
Si : 28.0855  
O : 15.9994

### b) 化学反応計算

「ModuleGO\_driver」内のサブルーチン「GO\_Oxidation\_02」を修正する。

- Si 酸化反応 (式 3.1-1 及び 3.1-2) の追加
- 酸化反応計算サブルーチンにおいて、黒鉛と Si を区別するフラグを用いて、黒鉛酸化反応の計算 (既存) と Si 酸化反応の計算 (新規) を使い分ける

### c) SiC 重量変化、腐食量

式 3.1-5～式 3.1-10 に基づくサブルーチンの新規作成

### d) 物性値

- Si (s)  
分子量[g/mol] 28.0855D+00  
固体密度[kg/m<sup>3</sup>] 入力データで設定
- SiO (g)  
分子量[g/mol] 44.0849D+00  
ガス密度[kg/m<sup>3</sup>] 理想気体として、温度、圧力からプログラム中で計算
- SiO<sub>2</sub> (s)  
分子量[g/mol] 60.0843D+00  
固体密度[kg/m<sup>3</sup>] 入力データで設定



## ②THYTANの検証【R5】

### 1) 検証に用いる実験データ

3.1節の統合試験結果及び3.2節のTG-DTA実験結果を用いてTHYTANコードのVVUQを進めた。

本研究では、SiCの酸化によるSiO<sub>2</sub>生成にともなう重量増加を評価する。改良したTHYTANには、前節に示した式を導入し、計算ができることを確認している。

検証に使うデータをまとめる。

- ・ TG-DTA 空気酸化データ (3.2 節)
  - (a) SiC(焼結 SiC) [空気酸化/1 時間: 令和 4 年度報告書 表 3.1-4]
  - (b) RS-SiC(Si-less) [空気酸化/10 時間: 本報告書 表 3.2-8]
  - (c) RS-SiC(Si-rich) [空気酸化/10 時間: 本報告書 表 3.2-8]
- ・ 統合試験酸化データ (3.1 節①)
  - (a) SiC(焼結 SiC) [酸素濃度 0.2~10ppm/1 時間: 本報告書 表 3.1-3]
  - (b) RS-SiC(Si-rich) [酸素濃度 0.2~1000ppm/1 時間: 本報告書 表 3.1-4]

なお、SiC(焼結 SiC)は、市販の SiC を加工して用いている。RS-SiC(Si-less)は、反応焼結(RS)で生成された市販の SiC である。3.2 節で試作した RS-SiC は、表 3.2-7 に示されるように Si が 10%程度残留している。このため、試作試験片を RS-SiC(Si-rich)と表記する。

### 2) TG-DTA 空気酸化データ

3.2 節において実施された TG-DTA 実験について、実験パラメータを導入し、得られた計算結果を表 3.1-5 及び図 3.1-16 に示す。ここでは、質量増加量を比較して示している。なお、それぞれ表面積が異なるため、質量増加量が異なっている。

(a)SiC(焼結 SiC)試験では、継続時間が試験ごとに異なるため、1 時間相当の重量増加に換算して示した。表及び図に示すように、定性的に傾向をとらえている。1000℃以下の低温酸化条件においては、計算結果は実験結果と大きく乖離がある。

また、(b)(c)のRS-SiCを用いた実験結果は10時間の長時間実験である。表3.2-8には、重量増加量がwt%でまとめられているが、試験片の重量を掛けることによって、重量増加量(mg)としてまとめている。定性的な傾向については、実験結果を模擬できている。長時間酸化実験では、表面にSiO<sub>2</sub>の膜が生成され、SiO<sub>2</sub>とSiC界面における反応をモデル化することが必要となってくる。一方、(c)RS-SiC(Si-Rich)では、1400℃の実験結果が、計算結果と大きく異なっている。10%程度残存しているSiの融点が1400℃近傍であり、その影響が出ている可能性がある。なお、計算モデルには、熔融Siのモデルは入っていない。実機において、Si-RichのRS-SiCを用いる場合には、1400℃以上の温度による酸化反応について評価を行う事が必要になると考えられる。

### 3) 統合試験酸化データ

表 3.1-3 及び表 3.1-4 にまとめられた統合試験における実験データを用いて、THYTAN の計算を実施した。なお、重量欠損が観測された実験が複数報告されているが、THYTAN のモデルでは、SiO<sub>2</sub>を生成することによって、必ず質量増加が求められる。このため、統合試験結果において、質量増加が得られた実験について、THYTAN の計算を実施している。統合試験において、質量増加が認められたのは、表 3.1-6 にまとめる 6 つの実験結果である。

まず、(a)SiC(焼結 SiC)の実験では、3 種類の温度において、実験データが得られている。なお、1300℃の実験は、試験片の都合で、長さが 30mm と短い試験片での実験であるため、他の実験結果と合わせるために、長さ 39mm に補正を行っている。実験結果では、温度が高くなるにつれて、重量増加が減少していく傾向がみられている。これは、TG-DTA の結果(表 3.1-5)の結果とは逆の傾向となる。これは、TG-DTA が空気酸化実験であり、10 時間という長時間酸

化による結果であることも一つの要因である。高温の方が酸素が拡散し、 $\text{SiO}_2$ の生成が多くなる。一方、統合試験では、0.2ppm という、ほぼ窒息条件下での実験となっている。実験開始前に真空引きと温度上昇によって、SiC 内に拡散している酸素はある程度排出される可能性があるが、必ずしも十分とは言えない。THYTANの計算においては、SiC内にも酸素が残留していることを想定して計算を実施した。その結果、温度が増加するに従い、重量増加量が減少するという、実験結果と定性的に一致する計算結果が得られている。

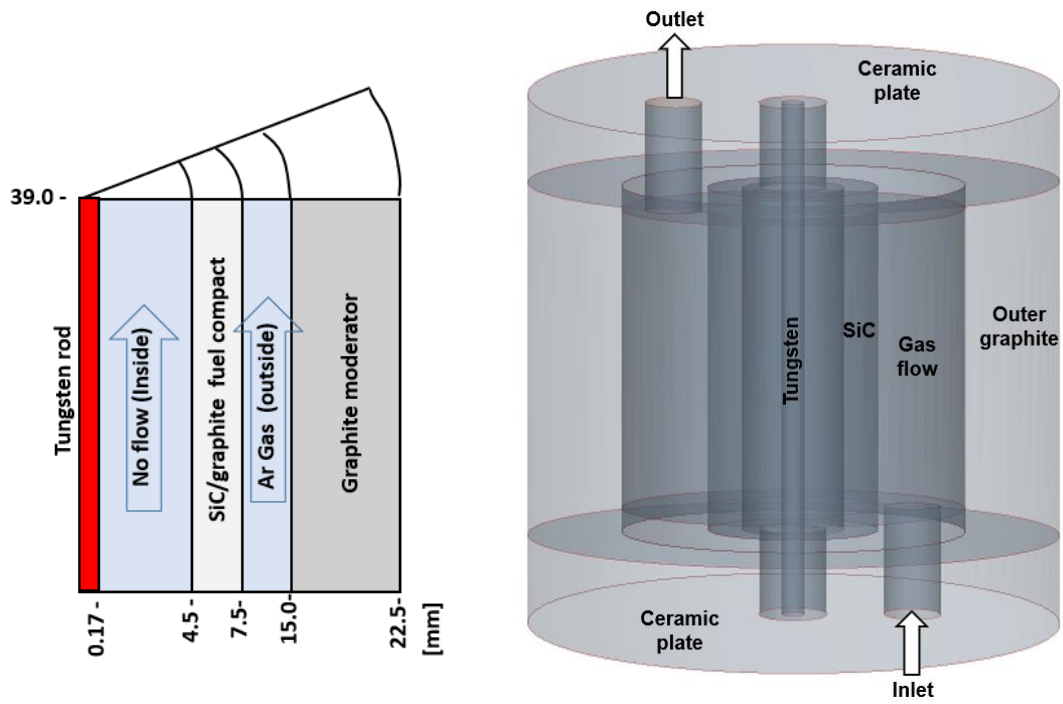
次に、RS-SiC(Si-rich)の結果であるが、こちらも酸素濃度はほぼ窒息条件下での実験である。また、#26 の 1200°Cは 15 分の実験結果データである。温度変化だけを考えると、(a)SiC(焼結 SiC)と同様に、THYTANの結果は、高温の方が増加量は小さくなる。一方で、#28, #29 は、酸素濃度が 10ppm 及び 0.2ppm と異なるが、ほぼ同一の条件の結果である。THYTAN では酸素濃度の差は出てこなかった。

#### 4) まとめ

THYTANにSiC酸化による $\text{SiO}_2$ 生成モデルを組み込んだ。TG-DTA及び統合試験による実験結果について、定性的な傾向をシミュレートすることができることを確認した。空気酸化によるTG-DTA試験では、温度が上昇するに従い、わずかに重量増加が増える傾向をシミュレートすることができた。一方で、900°C以下については、実験結果と大きな乖離が存在している。また、RS-SiC(Si-rich)については、1400°Cの実験において、酸化量の推定に大きな誤差が得られている。これは、残留しているSiの影響など、THYTANでモデル化できていない現象が起きている可能性がある。また、酸素濃度10ppm以下の条件においても、温度上昇に対して定性的な傾向をシミュレートすることができている。一方で、定量的な比較は、実験の不確かさなどの課題があり、難しかった。特にSiCコンパクトで用いられる予定の、RS-SiC(Si-rich)については、単純な酸化モデルでは不十分である事を確認した。基礎的な実験を追加し、酸化モデルを構築し、THYTANに組み込んでいくことが必要である。

#### 参考文献

- (1) Ogawa M., Mass transfer with graphite oxidation in gas mixture laminar flow through circular tube[J]. Nippon Genshiryoku Gakkai-Shi, 1993, 35(3): 245-252.
- (2) Ohashi H., Sato H., Tachibana Y., Kunitomi K., Ogawa M., Feasibility study on naturally safe HTGR (NSHTR) for air ingress accident, Nuclear Engineering and Design 271 (2014) 537-544.
- (3) Yosuke Shimazaki, et al., Verification and Validation of the THYTAN Code for the Graphite Oxidation Analysis in the HTGR Systems, JAEA-Technology 2014-038.



a) 試験片設置状況断面                      b) 試験部概略図

図 3.1-1 統合試験実験装置試験部

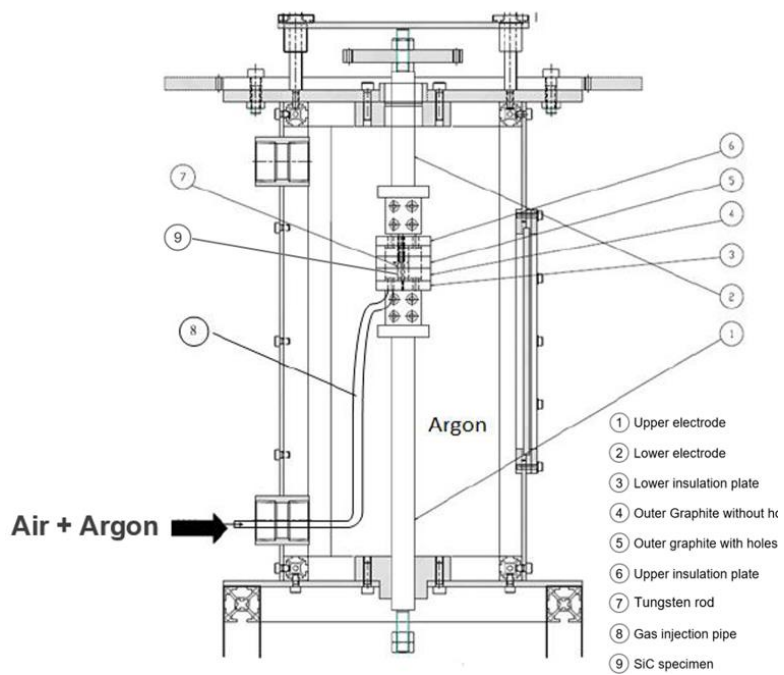


図3.1-2 統合試験実験装置の概略図

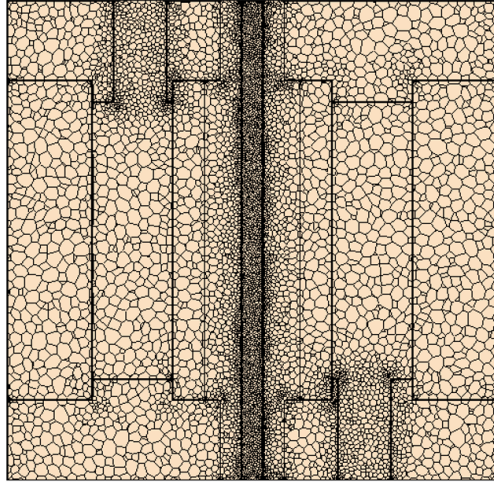
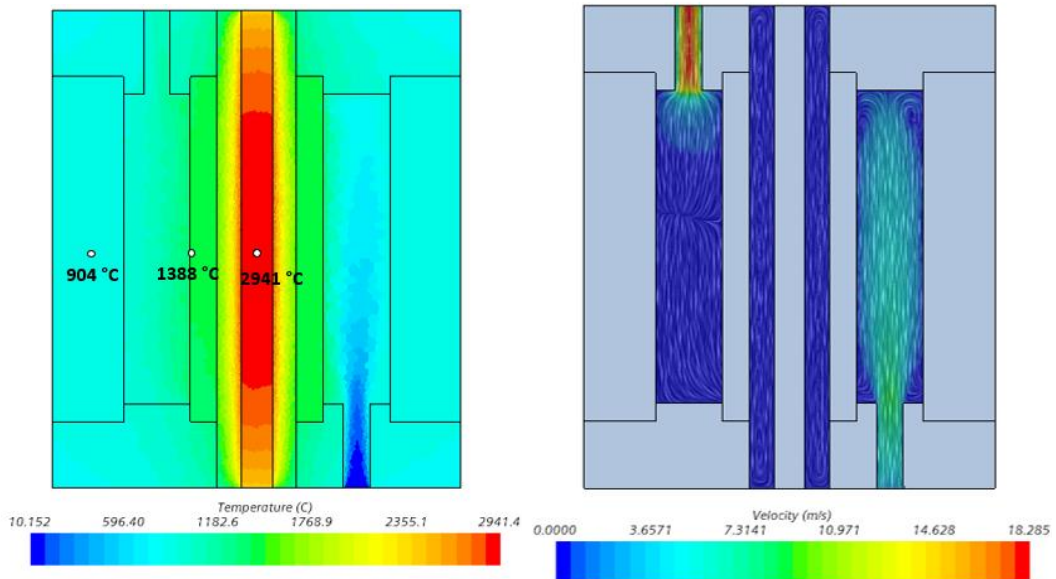


図 3.1-3 中心面上のメッシュ断面図

表 3.1-1 試験部シミュレーション用境界条件

パラメータ	値
タングステン放射率	0.4
SiC 放射率	0.9
外側グラファイト放射率	0.864
接触抵抗 (SiC/プレート間)	0.002 m <sup>2</sup> K/W
接触抵抗 (外側グラファイト/プレート間)	0.003 m <sup>2</sup> K/W



a) 温度分布  
b) 流速分布  
図3.1-4 SiC加熱時の熱平衡解析 (SiC表面温度 1388 °C)

表3.1-2 SiC統合試験の実験条件

パラメータ	値
試験片	SiC(焼結SiC) or グラファイト
試験片形状	OD15/ID9/L39 or L30
ガスの種類	Ar
入口酸素濃度	0.2 or 10 ppm
酸化剤ガス流量	1.0 SLPM
環境流量 (アルゴン)	25.0 SLPM
SiC 温度	1200 ~ 1400°C
酸化持続時間	60 min.

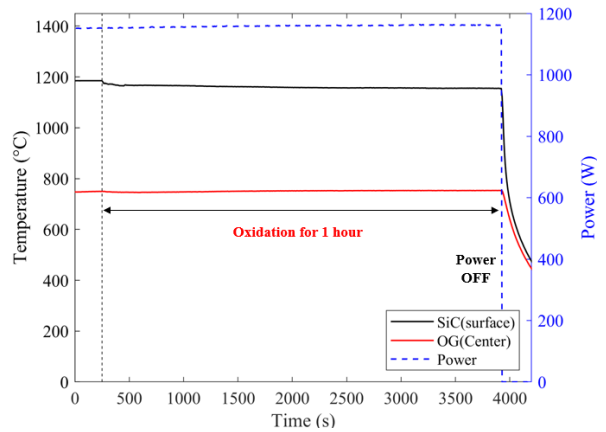
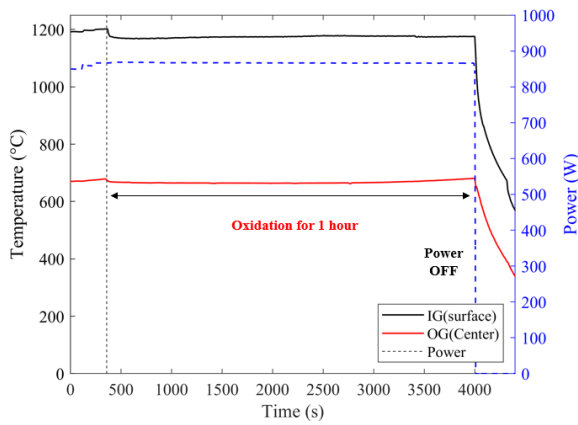


図3.1-5 グラファイト酸化実験 (#00/1200°C/10ppm) 図3.1-6 SiC酸化実験(#01/1200°C/0.2ppm)

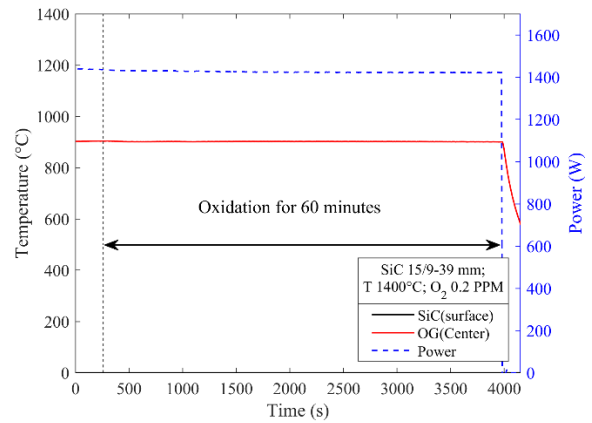
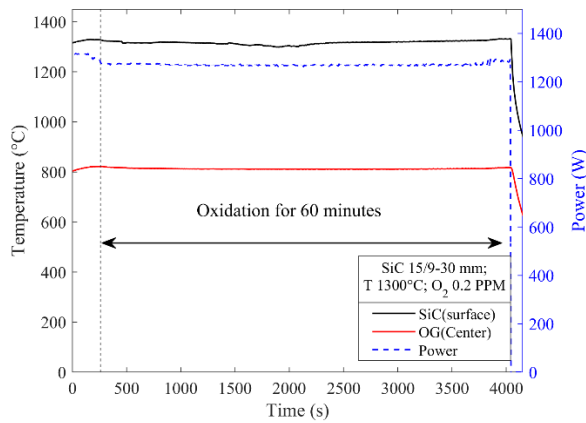


図 3.1-7 SiC 酸化実験(#02/1300°C/0.2ppm) 図 3.1-8 SiC 酸化実験(#03/1400°C/0.2ppm)

表 3.1-3 SiC 統合試験結果

#	Test Piece	Dimension (mm)	Temp. (°C)	O <sub>2</sub> Conc. (ppm)	Before (g)	After 60min (g)	Weight gain (mg)	Weight variation ratio (%)	Weight variation per surface area (g/m <sup>3</sup> )
00	Graphite	OD15/ID9 L39	1200	10	7.9786	7.9716	-7.0	-0.0877	-2.3809
01	SiC	OD15/ID9 L39	1200	0.2	14.0830	14.1965	113.5	+0.8059	38.6047
02	SiC	OD15/ID9 L30	1300	0.2	10.8311	10.8808	49.7	+0.4589	21.9722
03	SiC	OD15/ID9 L39	1400	0.2	14.1314	14.1503	18.9	+0.1337	6.4284

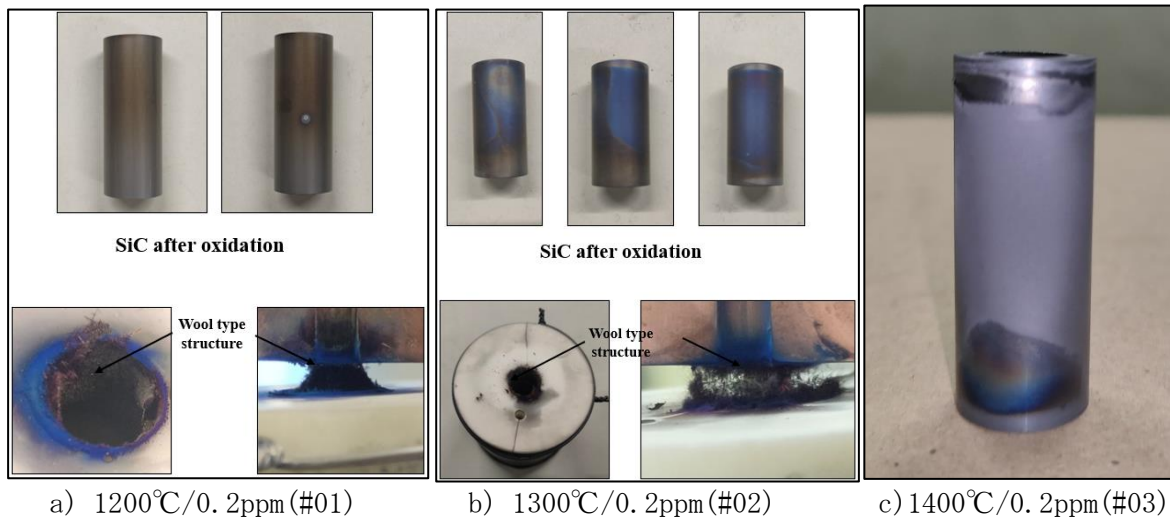
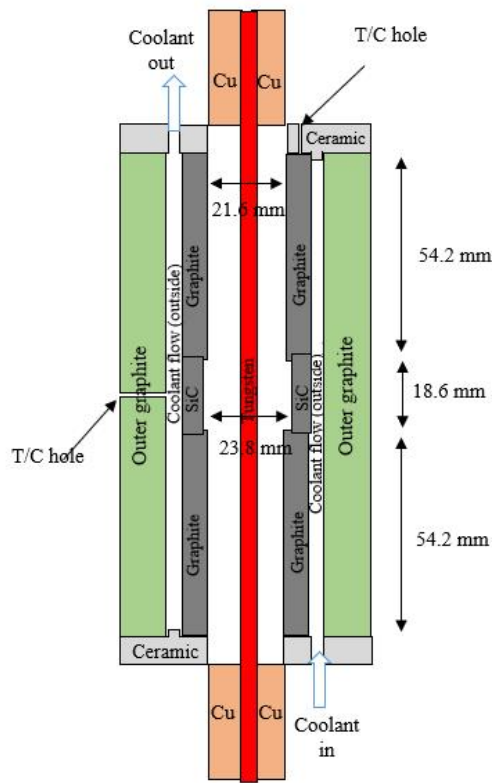


図 3.1-9 統合試験後の SiC 試験片写真



a) 試験中の写真



b) 試験装置断面図

図 3.1-10 三層試験

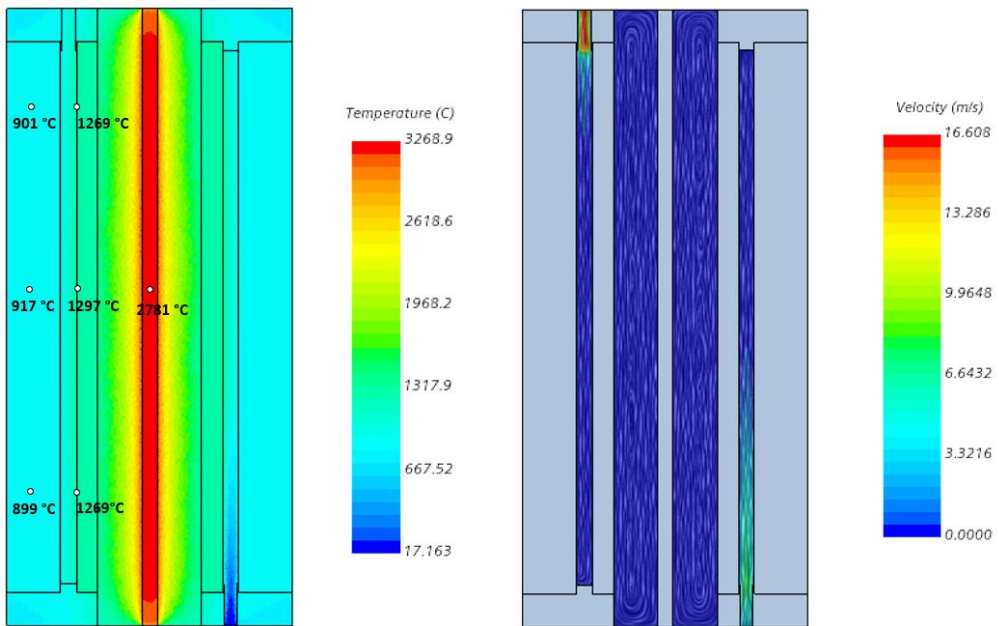


図 3.1-11 三層試験シミュレーションの例



表 3.1-4 RS-SiC(Si-rich) 統合試験結果

#	Test Piece (treatment)	Exp. System	Temp. (°C)	O <sub>2</sub> Conc. (ppm)	Before (g)	After 60min (g)	Weight gain (mg)	Weight variation ratio (%)	Weight variation per surface area (g/m <sup>3</sup> )
11	RS-SiC① Initial	3-layer	1300	0.2	25.0959	25.0806	-15.3	-0.0610	-4.7571
12	RS-SiC① Clean-up	3-layer	1300	10	25.0718	25.0661	-5.7	-0.0227	-1.7723
13	RS-SiC① As-is	3-layer	1300	10	25.0662	25.0565	-9.3	-0.0387	-3.0160
21	RS-SiC② Initial	3-layer	1300	1000	25.0854	25.0850	-0.4	-0.0016	-0.1244
26	RS-SiC② As-is	Single	1200	0.2	25.0800	25.0849 (15min)	4.9 (15min)	0.0195	1.5004
27	RS-SiC② As-is	Single	1000	10	25.0839	25.0796	-4.3	-0.0171	-1.3370
28	RS-SiC② Clean-up	Single	1000	10	25.0695	25.0715	2.0	0.0079	0.0244
29	RS-SiC② Clean-up	Single	1000	0.2	25.0663	25.0766	10.3	0.0411	0.1258

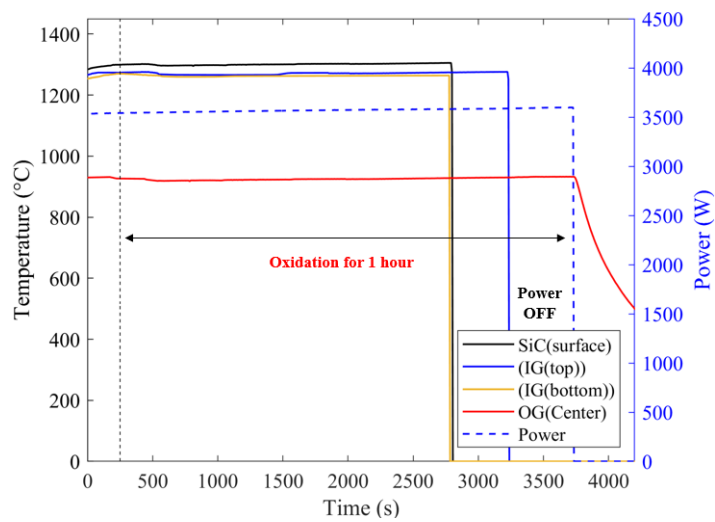
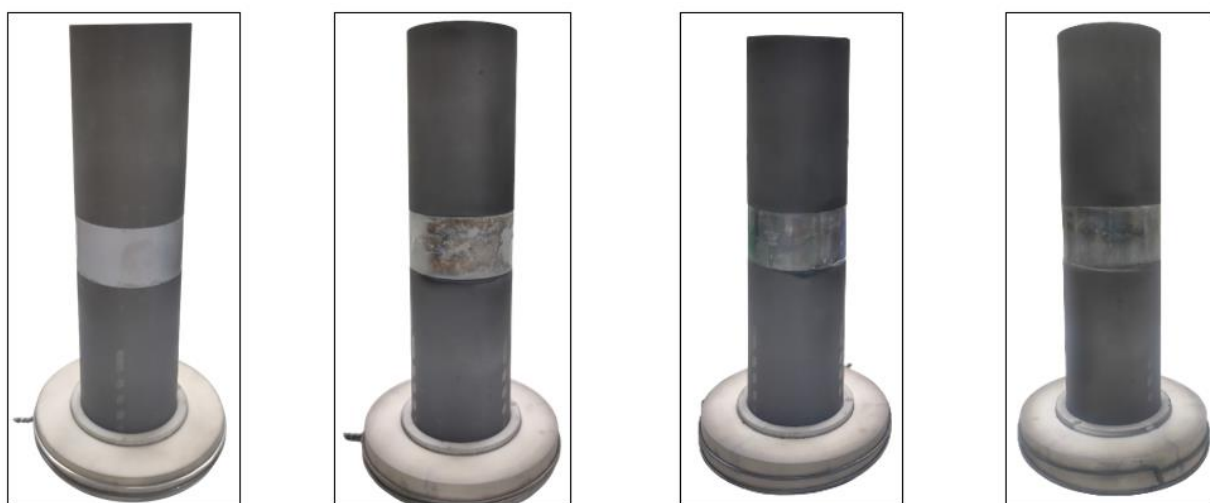


図 3.1-12 RS-SiC①酸化実験の温度履歴(#11/1300°C/0.2ppm)



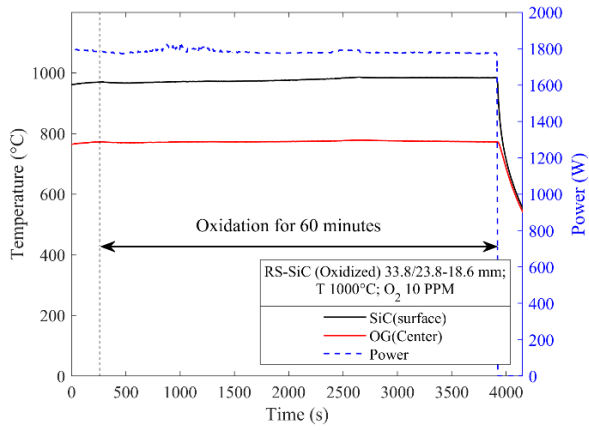


(a) before      (b) after #11(0.2ppm)      (c) after #12(10ppm)      (d) after #13(10ppm)

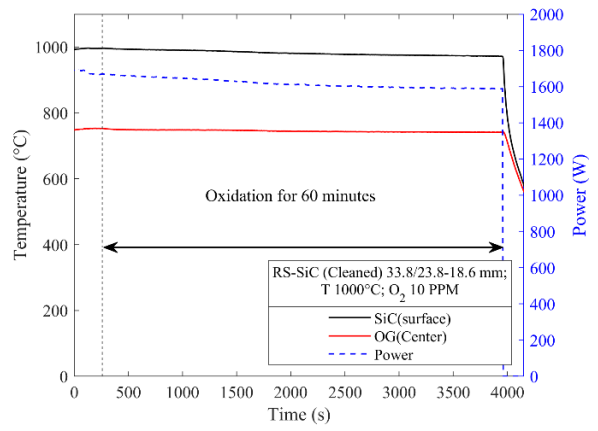
図 3.1-13 RS-SiC①酸化実験前後の試験片写真 (1300°C)



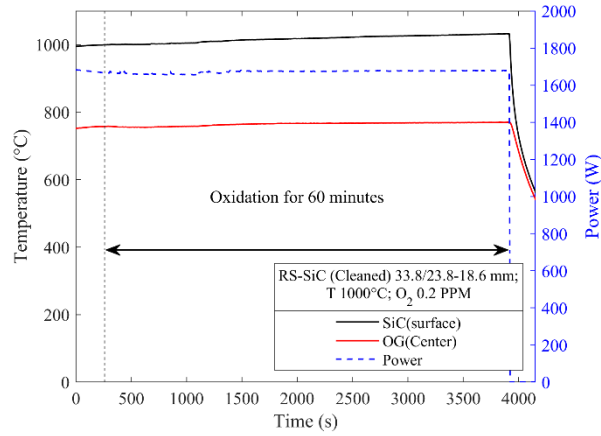
図 3.1-14 RS-SiC②酸化実験前後の試験片写真 (1300°C/1000ppm)



a) RS-SiC② (#27/10ppm/As-is)



b) RS-SiC② (#28/10ppm/Clean-up)



c) RS-SiC② (#29/0.2ppm/Clean-up)

図 3.1-15 RS-SiC②酸化実験の温度履歴(1000°C)

表 3. 1-5 TG-DTA 空気酸化による重量増加量の比較

Material	O <sub>2</sub> (ppm)	Temp.(°C)	Exp.(mg)	Sim.(mg)
(a) SiC	200,000	1400	0.167	0.136
	200,000	1300	0.137	0.130
	200,000	1200	0.136	0.123
	200,000	1100	0.123	0.114
	200,000	1000	0.107	0.097
	200,000	900	0.103	0.054
	200,000	800	0.045	0.012
(b) RS-SiC (Si-less)	200,000	1400	0.394	0.304
	200,000	1200	0.317	0.274
	200,000	1000	0.252	0.217
(c) RS-SiC (Si-rich)	200,000	1400	0.547	0.187
	200,000	1200	0.183	0.173
	200,000	1000	0.107	0.130

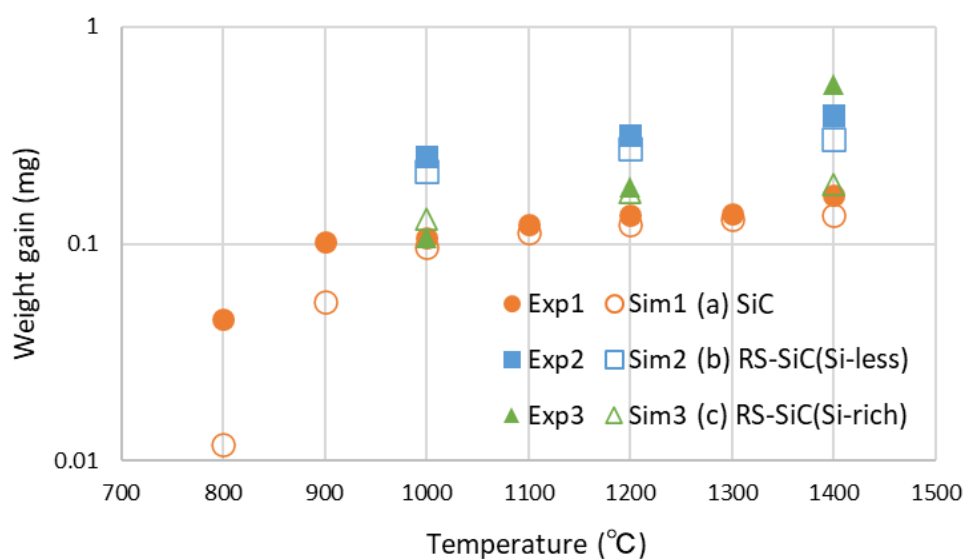


図 3. 1-16 TG-DTA 空気酸化による重量増加量の比較

表 3. 1-6 統合試験による重量増加量の比較

Material	#	O <sub>2</sub> (ppm)	Temp.(°C)	Exp.(mg)	Sim.(mg)
(a) SiC	01	0.2	1400	18.9	15.2
	02	0.2	1300	64.6*	16.1
	03	0.2	1200	113.5	17.2
(b) RS-SiC②	26	10	1200	4.9	19.8
	28	10	1000	2.0	22.8
	29	0.2	1000	10.3	22.8

\* #01 と比較のため、試験片長さ 39mm 相当に変換

### 3.2 SiC 酸化要素試験（再委託先：東京工業大学）【R3～R5】

令和3年度は、SiC試験片及びSiCコンパクトモデルの製作方法として常圧焼結及び反応焼結を候補とし、焼結助剤の利用については焼結助剤の有無や成分について核的な影響を考慮した検討を行った。また、示差熱天秤装置（TG-DTA）による酸化試験を行うための予備的実験を行い、酸化試験を実施するための装置の整備を行った。

令和4年度は、製作方法や焼結温度等の製作条件を変えてSiC試験片及びSiCコンパクトモデルを製作し、酸素濃度及び温度条件を変化させてTG-DTAによる酸化試験を行い、SiCの酸化データを取得した。また、第3.1節で実施するVVUQ評価と統合試験準備のために、これらのデータを供した。

令和5年度は、令和4年度までの検討結果をベースとし、SiC試験片及びSiCコンパクトモデルについて酸素濃度及び温度条件を変化させてTG-DTAによる酸化試験を行い、SiCの酸化データを充実させた。また、3.1節で実施する統合試験とVVUQのまとめのために、これらのデータを供した。

#### 3.2.1 SiC 試験片及び SiC コンパクトモデルの焼結条件の検討【R3-R5】

令和3年度は、SiC試験片及びSiCコンパクトモデルの製作方法として常圧焼結及び反応焼結を候補とし、焼結助剤の利用については焼結助剤の有無や成分について核的な影響を考慮した検討を行った。

令和4年度は、SiCコンパクトを作製するための反応焼結条件を検討するため、熔融Siの供給条件の最適化を図った。また、得られた反応焼結SiCについて、熱伝導率を評価した。

令和5年度は、令和4年度の成果をもとに、反応焼結によるSiCコンパクトモデルを作製するために円筒形状の金型を設計・作製し、反応焼結における円筒形状成形体の作製条件を検討した。また、得られた円筒形状SiC反応焼結体のキャラクターゼーションおよびその熱伝導率を評価した。

##### (1) SiCの常圧焼結条件の検討

###### ① 焼結助剤無添加SiC焼結体の常圧焼結条件の検討【R3】

燃料コンパクトの母材を従来の黒鉛から耐酸化性に優れる炭化ケイ素（SiC）に換えたSiC母材燃料コンパクトの導入が提案されており<sup>(1,2)</sup>、SiC燃料コンパクトを製造するためのSiCの焼結プロセスを検討する必要がある。SiCの焼結条件を決めるにあたり、考慮すべき事柄として燃料コンパクトが内包しているTRISO被覆燃料の健全性の維持が挙げられる。TRISO被覆燃料のSiC層は化学蒸着法によって作製された $\beta$ -SiCであるが、これは準安定相であり1900°C以上の焼結や長時間の焼結によって $\alpha$ -SiCに転移する恐れがある。この転移を起こすと緻密なSiC層に亀裂が生じ、核分裂生成物の閉じ込め機構が損なわれる可能性がある。またTRISO被覆燃料の変形を防ぐとともに燃料コンパクトの製作性の観点から、焼結は無加圧で行うことが好ましい。以上より、SiC母材燃料コンパクトの作製は、1800°C以下の無加圧焼結で行うのがよいと考えられる。本研究では、1800°C以下の温度でのSiCの常圧焼結条件について検討した。

まず、焼結助剤無添加 SiC について、1800°C での常圧焼結を行った。SiC の原料粉末として  $\beta$ -SiC (平均粒径  $0.5 \mu\text{m}$ 、Höganäs 社製) を用い、直径 13mm の金型を用いて 20MPa の圧力で一軸加压成形を行い、円柱状成形体を作製した。また、一軸加压成形体を 200MPa の圧力で冷間等方圧加压 (CIP) を行った。焼成前の一軸加压成形体および CIP 成形体について、寸法と重量から求めたかさ密度は、一軸加压成形体では  $1.45\text{g}/\text{cm}^3$ 、CIP 成形体では  $1.70\text{g}/\text{cm}^3$  であった。一軸加压成形体および CIP 成形体をカーボンルツポに入れ、多目的高温炉 (Hi-Multi5000、富士電波工業製) を用いて常圧焼結を行った。常圧焼結は以下の 2 種類の加熱パターン (図 3.2-1) で行った。

(焼結パターン A) アルゴンフローで室温から 1800°C まで  $30^\circ\text{C}/\text{min}$  の昇温速度で加熱し、1800°C で 1 時間保持した後、炉冷した。

(焼結パターン B) 真空中で室温から 1500°C まで  $30^\circ\text{C}/\text{min}$  の昇温速度で加熱し、1500°C で 30 分間保持した後、1500°C で保持し Ar ガス置換を行った。Ar ガス置換後、 $30^\circ\text{C}/\text{min}$  の昇温速度で 1800°C まで加熱し、1800°C で 1 時間保持し、炉冷した。

JIS R1634<sup>(3)</sup> に則り、アルキメデス法により常圧焼結により得られた SiC 焼結体のかさ密度および開気孔率を測定した。また、得られた SiC 焼結体の破断面を電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM ; S4800、日立製作所製) により観察した。

2 種類の成形条件に対して、それぞれの焼結パターンで常圧焼結した SiC 焼結体の密度および開気孔率を表 3.2-1 に示す。一軸成形体を常圧焼結した SiC 焼結体のかさ密度は  $1.46\text{g}/\text{cm}^3$ 、CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体では  $1.65\text{g}/\text{cm}^3$  であった。理論密度を  $3.20\text{g}/\text{cm}^3$  とした場合、相対密度は一軸成形体を常圧焼結した SiC 焼結体では 45%、CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体では 50% であった。CIP 成形体を常圧焼結した場合、一軸成形体を常圧焼結した SiC 焼結体と比較するとかさ密度は高い値を示し、開気孔率は低い値となった。また、CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体では、焼結パターン A よりも焼結パターン B の方がかさ密度が高く、開気孔率が低くなっていることがわかる。

各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体断面の SEM 写真を図 3.2-2 に示す。どの焼結パターンにおいても、粒子のネック部分が結合している様子が見られるが、気孔を多く残しており、かさ密度および開気孔率は焼結パターンによる差がみられたものの、SEM 観察の結果では両者の顕著な違いは見られなかった。

## ② 焼結助剤添加 SiC 焼結体の常圧焼結条件の検討【R3】

3.2.1(1)①において、1800°C で保持した常圧焼結では相対密度が約 50%にとどまったため、焼結体の密度を高める手段の一つとして、焼結助剤の添加を検討した。SiC は難焼結性であり、例えば無加压助剤添加なしで焼結を行う場合は、2200°C 以上の高温にしなければならない。SiC の焼結温度を下げる方法の一つとして焼結助剤の添加が挙げられる。焼結助剤添加により表面エネルギーの減少または液相を介した粒子拡散の促進が起こり、低温でも焼結が起こりやすくなる。しかし、焼結助剤の添加により焼結体は 2 相以上になるため熱伝導率が悪化する可能性がある。また、核分裂反応を阻害しないように、焼結助剤として使う元素は、その中性子捕獲断面積が小さいことが必要となる。

例えば SiC 焼結助剤として広く使われているホウ素は、中性子捕獲断面積が非常に大きく、核分裂反応を大きく阻害するため、SiC 母材燃料コンパクトの作製に用いる助剤としては適さない。SiC の常圧焼結において緻密化に有効な焼結助剤として B+C 系助剤や Al 系助剤等があるが、焼結助剤の選定にあたり、焼結助剤の成分について核的な影響を考慮した検討を行った。SiC の焼結助剤として、Al、Zr、Ti、Cr を候補とし、高温ガス炉 SiC コンパクト炉心の反応度に及ぼす影響をモンテカルロ輸送計算コード MVP-3 および核データライブラリー (JENDL-5) により検討したところ、Al 又は Zr については、添加量が 1mol%程度であれば、核設計上は概ね無視可能であり、核設計上無視できない助剤添加量であっても、設計で対応できる可能性があることがわかった。本研究では、まず、Al を焼結助剤として選択し、SiC の常圧焼結を行った。先行研究として SiC にアルミナ ( $Al_2O_3$ ) を焼結助剤として添加し、 $1900^{\circ}C \sim 2100^{\circ}C$  の温度での常圧焼結が報告されている<sup>(4)</sup>。この報告によると、SiC に対して  $Al_2O_3$  を 5wt%加えた場合に高い密度を示していることから、本研究では、5wt%  $Al_2O_3$  を基準とし、それぞれ同じ Al 量となるように金属アルミニウムおよび硝酸アルミニウムを SiC に添加し、SiC の常圧焼結を行った。

$Al_2O_3$  (平均粒径  $0.1 \mu m$ 、大明化学株式会社製)、金属アルミニウム (Al; 平均粒径  $5 \mu m$ 、高純度化学製)、および硝酸アルミニウム ( $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ ; 純度 98%、ナカライテスク製) を Al 系焼結助剤として用いた。Al 量が  $Al_2O_3$  換算で 5wt%となるように各焼結助剤を秤量し、SiC 粉末 ( $\beta$ -SiC; 平均粒径  $0.5 \mu m$ 、Höganäs 社製) に添加し、SiC 製ボール (径 10mm) およびエタノール溶媒を用いた湿式ボールミルにより 24 時間混合した。混合後、ロータリーエバポレーターおよび乾燥器で乾燥し、得られた混合粉末を粉砕およびふるいがけ (目開き  $90 \mu m$ ) を行った。直径 13mm の金型を用いて 20MPa の圧力で一軸加圧成形を行い、円柱状成形体を作製した。また、一軸加圧成形体を 200MPa の圧力で冷間等方圧加圧 (CIP) を行った。これらの成形体をカーボンルツボに入れ、多目的高温炉 (Hi-Multi 5000、富士電波工業製) を用いて常圧焼結を行った。常圧焼結は①と同様に 2 種類の焼結パターンで行った。JIS R1634<sup>(3)</sup>に則り、アルキメデス法により常圧焼結により得られた SiC 焼結体のかさ密度および開気孔率を測定した。また、得られた SiC 焼結体の破断面を電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM; S4800、日立製作所製) により観察した。

2 種類の成形条件および 3 種類の焼結助剤に対して、それぞれの焼結パターンで常圧焼結した SiC 焼結体の密度および開気孔率を表 3.2-2 に示す。なお、相対密度を計算するにあたり、真密度は、SiC では  $3.20g/cm^3$ 、アルミナを助剤とした場合では  $3.23g/cm^3$ 、金属アルミニウム、硝酸アルミニウムを助剤とした場合では  $3.18g/cm^3$  とした。焼結助剤無添加 SiC 焼結体と比較して、Al 系焼結助剤を添加した SiC 焼結体では、かさ密度は高くなり、開気孔率は低い値を示したことから、アルミニウム系焼結助剤の添加は SiC の高密度化に有効であることがわかる。また、金属アルミニウムを焼結助剤として添加した SiC 焼結体でかさ密度は最も高い値を示し、開気孔率は低い値を示した。それぞれの焼結助剤において、焼結パターンの違いによるかさ密度および開気孔率の顕著な差は見られなかった。

各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した焼結助剤添加 SiC 焼結体断面の SEM 写真

を図 3.2-3 に示す。焼結助剤無添加 SiC 焼結体 (図 3-2.2) と比較して粒成長がほとんど起こっておらず、微細な SiC 粒子で構成されており、気孔も少ないことがわかる。また、焼結助剤の違いによる微構造の違いは見られなかった。

以上のことから、1800°C の常圧焼結において、金属アルミニウムが SiC の焼結助剤として有効であることを明らかにした。

## (2) SiC の反応焼結条件の検討

### ① SiC の反応焼結条件の検討【R3】

常圧焼結では Al 系焼結助剤を添加することにより相対密度が 60% を超える焼結体を作製することができたが、燃料コンパクトへの適用のためには、さらなる緻密化が必要である。本研究では、低温での緻密化が可能であると考えられる反応焼結法を検討した。反応焼結法は SiC 粉末とカーボン粉末からなる混合成形体に高温で熔融した Si を含浸させ、カーボンと Si とを反応させて SiC を形成し、緻密化を図る焼結法である<sup>(5)</sup>。

原料として、 $\beta$ -SiC (平均粒径 0.5  $\mu$ m、Höganäs 社製)、カーボンブラック (旭カーボン製) を用いた。SiC とカーボンの重量比は、参考文献<sup>(6)</sup>を参考として、SiC : C = 1 : 0.6 とした。これらの原料粉末を、SiC 製ボール (径 10mm) およびエタノール溶媒を用いた湿式ボールミルにより 24 時間混合した。混合後、ロータリーエバポレーターおよび乾燥器で乾燥し、得られた混合粉末を粉碎およびふるいがけ (目開き 300  $\mu$ m) を行った。混合粉末を直径 15mm の金型を用いて 20MPa の圧力で一軸加圧成形を行い、円柱状成形体を作製した。また、一軸加圧成形体を 200MPa の圧力で冷間等方圧加圧 (CIP) を行った。BN るつぼの底に金属シリコンを敷き詰め、その上に一軸加圧成形体および CIP 成形体をそれぞれ 1 個を置いた後、BN るつぼをカーボンルツボに入れ、多目的高温炉 (Hi-Multi 5000、富士電波工業製) を用いて反応焼結を行った。反応焼結は真空中、1500°C、15 分の条件で行った。反応焼結における焼結パターンを図 3.2-4 に示す。得られた反応焼結体について、反応焼結の進行状況を把握するため、外観および切断面を観察した。

反応焼結後の試料の外観写真を図 3.2-5 に示す。試料表面には含浸せずに残存した Si が付着していた。反応焼結後の試料を縦方向に切断した面の写真を図 3.2-6 に示す。一軸加圧成形体を用いた反応焼結体では、側面から内部に向かって熔融 Si の含浸が進行しており、SiC 化が進んでいるが、中央では、熔融 Si の含浸が不十分であり、SiC 化が進んでいなかった。また、試料内部には成形過程あるいは焼結過程に発生したと考えられるクラックが見られた。一方、CIP 成形体試料では、熔融 Si の含浸は表層の 1mm 以下の範囲にとどまり、それよりも内側では熔融 Si が含浸していないことがわかった。これは CIP 成形体では一軸加圧成形体よりも密度が高く、気孔率が低いため、熔融 Si の含浸性が低下したものと考えられる。

以上の結果から、成形体密度が熔融 Si の含浸性に大きく影響を及ぼすことが示唆され、今後、成形体密度および成形体の SiC と C の組成について最適化を図る必要があると考えられた。また、成形体内部への熔融 Si の供給方法についても検討する必要がある。

## ② 炭素繊維シートあるいは紐を介した熔融 Si 供給条件の検討【R4】

$\beta$ -SiC とカーボンブラックの混合粉の成形体に熔融 Si を含浸させる方法として、(方法 A) BN るつぼの底に金属 Si を敷き詰め、その上に炭素繊維シート(織布)を敷いて、さらにその上に成形体を置く方法、(方法 B) BN るつぼの底に金属 Si を敷き詰め、それらに接するように炭素繊維の紐を置き、穴をあけた BN 板にこの紐を通して、紐の上に成形体を置く方法を検討した。(方法 A) では金属 Si が熔融して炭素繊維の隙間を通して成形体に達して反応し、(方法 B) では、炭素繊維の紐を熔融シリコンが浸透し、成形体に達して反応する。

方法 A の模式図を図 3.2-7 に示す。また、反応焼結前後の試料のるつぼ内の写真を図 3.2-8 に示す。成形体は 15mm 径、高さ約 11.5mm で、円柱形の軸方向が鉛直方向に置いた。反応焼結後の試料表面には含浸せずに残存した Si が付着していた。反応焼結後の試料を取り出した外観写真を図 3.2-9、縦方向に切断した面の写真を図 3.2-10 に示す。一軸加圧成形体を用いた反応焼結体では、側面から内部に向かって熔融 Si の含浸が進行しており、SiC 化が進んでいるが、中央では、熔融 Si の含浸が不十分であり、SiC 化が進んでいなかった。また、試料内部には成形過程あるいは焼結過程に発生したと考えられるクラックが見られた。このクラックに沿って Si が侵入し、焼結体中央部では Si の近傍において SiC 化が生じている。一方、CIP 成形体試料では、熔融 Si の含浸は表層の 1mm 以下の範囲にとどまり、それよりも内側では熔融 Si が含浸していないことがわかった。これは CIP 成形体の成形密度は約  $1.55\text{g}/\text{cm}^3$  であり、一軸加圧成形体の  $1.47\text{g}/\text{cm}^3$  よりも密度が高く、空隙が少ないため、熔融 Si の含浸性が低下したものと考えられる。

方法 B の模式図および焼成前の BN るつぼの外観写真を図 3.2-11 に示す。ここでは、13mm 径で高さ約 15mm の円柱成形体の軸方向が水平方向となるように 2 本の炭素繊維の紐の上に置いた。一軸加圧成形の反応焼結後のるつぼ内の写真および試料の破断面の写真を図 3.2-12 に示す。熔融 Si は炭素繊維の紐を通じて成形体試料に達していたが、試料との反応は紐が接している部分のみが SiC 化しており、それ以外は反応の形跡は見られなかった。円柱試料にはクラックが生じているが、Si 含浸が進んでいないことから、冷却時に発生したものと考えられる。CIP 試料の反応焼結後の試料台上の焼結体の外観写真と切断面を図 3.2-13 に示す。この場合も、熔融 Si は炭素繊維の紐を通じて成形体試料に達していたが、試料との反応は紐が接している部分および表層部のみ SiC 化しており、内部は未反応の状態であった。

一方、高さの高い円柱状の一軸加圧成形試料を得るため、3 回に分けて金型に混合粉を供給して作製した成形体を方法 B の同条件で反応焼結を行った。反応焼結後の試料の外観写真と点線の箇所切断した断面写真を図 3.2-14 に示す。成形時の密度不均一によるクラックが焼結反応中に生じたと考えられ、3 分割に近い状態となったが、表層部ならびにクラック面も SiC 化が進んでいるように見える。試料中央部の切断面はほぼ全体が SiC 化しており、写真の左上部に 2 本のコントラストの異なる筋が見られるが、これは試料下部の紐を経由して付着した金属 Si と同じコントラストであり、未反応の Si



と考えられる。

### ③ 金属 Si を成形体原料粉末と混合することによる熔融 Si 供給条件の検討【R4】

成形体に熔融 Si を効率的かつ均一に含浸させる方法として、(方法 C) 金属 Si を  $\beta$ -SiC とカーボンブラックの混合粉と混合して加圧成形し、反応焼結を行う方法を検討した。成形体の原料としてこれまでの研究と同じ粉末を用い、この原料粉末に添加する金属 Si として、Si 粉末 (粒度  $<45\mu\text{m}$ )、金属 Si 粒 (粒度 ; 約  $200\mu\text{m}$  および約  $700\mu\text{m}$ ) を準備した。また、金属 Si の混合量として、混合粉中のカーボンブラックと反応して SiC を生成する Si 量を基準としてその 1.05 倍および 1.5 倍の金属 Si をそれぞれの粒度で準備した。混合粉の C 量の 1.05 倍の量の  $45\mu\text{m}$  金属 Si を添加し一軸加圧成形した成形体について反応焼結した試料の外観写真を図 3.2-15 に示す。添加した金属 Si が原料粉末と反応している様子は見られず、クラックが多数生じた。反応焼結前後の円柱状試料寸法および密度の変化を表 3.2-3 に示す。重量は減少し、体積が膨張した結果、密度が低下した。この変化は金属 Si の粒度、混合量にかかわらず同様の傾向を示した。

### ④ バインダー添加した原料粉末の造粒による熔融 Si 供給条件の検討【R4】

混合粉の成形体に熔融 Si が効率的に浸透するための空隙を形成する方法を検討した。空隙を形成する手段として、成形体原料となる混合粉にバインダーを添加して造粒し、造粒粉を成形した後に成形体内のバインダーを燃焼消失した成形体について反応焼結することを試みた。

$\beta$ -SiC とカーボンブラックから成る混合粉に、バインダーとして固形分 8% のポリビニルアルコール (PVA) 水溶液を混合粉重量に対して 10% 添加し、造粒した。造粒粉を  $13\text{mm}\phi$  の円柱金型に充填し、 $20\text{MPa}$  の一軸加圧成形により作製した成形体を、 $360^\circ\text{C}$ 、4 時間、大気中で加熱することでバインダーを燃焼消失した。脱バインダー後の成形体について、方法 B により反応焼結した。反応焼結前後の試料の外観写真と円柱試料軸方向に切断した切断面の写真を図 3.2-16 に示す。切断面の写真において、底面 (下部) が炭素繊維の紐による熔融 Si の供給箇所となっている。鉛直方向に残留 Si と考えられる筋が見られるものの、全体的に SiC 化しており、未反応部分は見られなかったことから、本手法が反応焼結には有効であると考えられる。

### ⑤ 金属 Si の設置方法による熔融 Si 供給条件の検討【R4】

これまでは、炭素繊維シートあるいは紐を介した成形体への熔融 Si の供給方法を検討したが、目標とする SiC コンパクトはより大きなサイズの反応焼結体が求められるため、成形体に直接金属 Si を置き、反応焼結を行う方法を検討した。BN りつぼの底に炭素繊維シートを敷き、金属 Si 塊の上に脱バインダー後の成形体を置き、さらにその上に金属 Si 塊を置いた。この熔融 Si 供給方法の模式図を図 3.2-17 に示す。成形体は  $10\text{mm}\phi$  および  $15\text{mm}\phi$  の 2 種類の金型を用いて、 $20\text{MPa}$  の一軸加圧成形を行い、高さがおおよそ  $5\text{mm}$  となるように成形した。また、供給する金属 Si は、混合粉に含まれるカーボンブラックがすべて SiC となる Si 量の 1.4~1.5 倍の重量とした。この成形体と金属 Si 塊を

入れた BN りつぽをカーボンリツポに入れ、多目的高温炉を用いて反応焼結を行った。反応焼結は、1000°C まで昇温速度 20°C/分、1350°C まで昇温速度 10°C/分、1500°C まで昇温速度 2°C/分、1500°C で 15 分保持、の条件で行った。

10mm φ の金型を用いて作製した成形体に金属 Si 塊を載せた反応焼結前後の外観写真を図 3.2-18 に示す。一部の Si は反応焼結後も成形体内部に浸透せず、上部に残存している。15mm φ の金型を用いて作製した成形体の反応焼結体では、未反応の部分は見られず、一様に SiC 化していた。

10mm φ、15mm φ の成形体および焼結体についてそれぞれの寸法および密度の変化を表 3.2-4 に示す。なお、焼結体表面に付着した残留 Si は研磨で取り除き、円柱状として測定した。反応焼結前後の寸法変化は極めて小さく、どちらの成形体についても、反応焼結により密度の高い SiC 焼結体の作製に成功した。

熱伝導率および酸化挙動の評価のために、10mm φ の金型で成形し反応焼結により得られた焼結体を 1mm 厚さの円板状試料に加工し、両面を鏡面研磨した試料を作製した。この試料の研磨面の光学顕微鏡写真を図 3.2-19 に示す。黒く見える領域は気孔であり、コントラストの高い領域は組成の異なる組織と考えられる。組成を明らかにするために、電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM) を用いて、図 3.2-19 の右上の領域を観察した。二次電子像および反射電子像を図 3.2-20 に示す。また、この領域について、FE-SEM に付属のエネルギー分散型 X 線分光 (EDX) 装置を用いた元素マッピングを図 3.2-21 に示す。その結果、図 3.2-19 においてコントラストの高い領域は金属 Si であり、それを囲む領域は SiC と考えられる。

また、原料として用いた SiC と C 粉末、これらの混合粉および反応焼結により作製した焼結体を粉砕した粉末の X 線回折パターンを図 3.2-22 に示す。SiC 原料には  $\beta$ -SiC (3C) の他にわずかに  $\alpha$ -SiC (6H) のピークが見られた。C 原料はブロードな回折パターンを示し、混合粉の回折パターンにおいても  $2\theta = 25^\circ$  付近にブロードピークが見られた。反応焼結体では、 $\beta$ -SiC (3C) が主相であり、わずかに  $\alpha$ -SiC (6H) も含まれていることがわかった。また、C に帰属するピークは見られず、残留 Si のピークが見られたことから、一部の Si は C と反応せず Si 単体として残存しているものと考えられる。

## ⑥ 反応焼結における溶融 Si 供給量の最適化【R4】

これまでの結果から、供給した溶融 Si の全量が反応焼結に寄与せず、一部 Si が残留している状況を鑑みて、供給 Si 量を変えた場合の反応の様子および焼結体密度の変化を調べた。10mm φ、高さ約 2mm の成形体を作製し、上下面から供給する Si 量を変えて反応焼結を行った。供給する Si 量は、混合粉に含まれるカーボンブラックがすべて SiC となる Si 量の 1.0 倍から 1.6 倍の範囲で変化させた。Si 供給量が反応焼結体の密度に及ぼす影響を図 3.2-23 に示す。Si 比 1.3 倍付近で密度が  $3.0\text{g/cm}^3$  となり、それ以上の Si 量ではほぼ一定の値となった。このことから、本実験条件においては、1.3~1.4 倍の Si 供給量が妥当であると考えられた。

### ⑦ 反応焼結 SiC の熱伝導率の評価【R4】

3.2.1(2)⑤で作製した反応焼結 SiC 試験片について、室温から 1000°C の温度における熱伝導率を測定した。試料の熱拡散率( $\alpha$ )および比熱( $C_p$ )はレーザーフラッシュアナライザー (LFA457 MicroFlash, NETZSCH 製) を用いて室温から 1000°C の温度でアルゴン雰囲気中で測定した。熱伝導率( $\kappa$ )は以下の式(3.2-1)により求めた。

$$\kappa = \alpha \cdot C_p \cdot \rho \quad (3.2-1)$$

ここで、 $\rho$ はアルキメデス法により求めた試料のかさ密度である。室温から 1000°C の温度における反応焼結 SiC 試験片の熱拡散率、比熱および熱伝導率を図 3.2-24 に示す。反応焼結 SiC 試験片の熱拡散率は室温では 28.4mm<sup>2</sup>/s であったが、1000°C では 8.0mm<sup>2</sup>/s に低下した。また、比熱は室温では 0.64J/g・K であり、1000°C では 1.13J/g・K となり、試験温度の上昇に伴い高い値となった。式(1)により求めた熱伝導率は、室温では 64W/m・K、1000°C では 26W/m・K の値となった。高温ガス炉用燃料コンパクトとしての適用を考えた場合、核分裂生成物を燃料コンパクト内部に保持するための高密度化に加え、より高い熱伝導率が強く求められている。高温ガス炉の炉心設計の観点から、TRISO 燃料粒子を用いた燃料成形体の SiC の熱伝導率は、NITE 法で作製した SiC (40W/m・K at 300°C、20W/m・K at 1000°C<sup>(7)</sup>) と同等以上が望まれており、本研究で作製した反応焼結 SiC はその値を十分満たしていると考えられる。

### (3) 反応焼結による SiC コンパクトモデルの作製条件の検討およびその熱伝導率評価【R5】

#### ① 円筒形状成形体作製のための金型の設計・作製

令和 4 年度の成果をもとに、燃料コンパクト形状の成形体を作製するための成形金型を設計・作製した。これまで実験において、円柱ペレット成形体の反応焼結での寸法変化(収縮)は、外径、高さのいずれも平均 0.8%以下であり、反応焼結後、目的とする燃料コンパクトと同じ寸法となるように、収縮率を考慮し金型(材質;SKD11 焼入れ)を設計・作製した。金型は、図 3.2-25 に示すように、円筒状の上下パンチと外側のダイス、内側の芯棒で構成されており、外形 34mm、内径 24mm、肉厚 5mm の円筒形状成形体を作製ができよう設計・作製した。

#### ② 金属 Si 供給方法の検討

令和 4 年度は  $\beta$ -SiC とカーボンブラックの混合粉からなる円柱状ペレット (10~15mm $\phi$  x 5mm) について、熔融 Si を含浸させる方法を検討し、Si の供給として成形体の上部に金属 Si を積載して加熱、熔融 Si を含浸させる方法を採用した。円筒形状成形体(外形 34mm、内径 24mm、肉厚 5mm、高さ 18-20mm)は、円柱ペレット成形体と比較して体積はほぼ 10 倍であり、表面積も大きくなるため、金属 Si の積載方法(位置)について検討した。図 3.2-26 に本実験で検討した Si の積載方法を模式的に示す。方法 A では、金属 Si をペレットの場合と同様に成形体の上に積載した。方法 B では、熔融 Si の供給速度を遅らせるために成形体直上の位置で、周囲の BN るつぼと内側に置く BN ブロックの一部に傾斜をつけて配置した。方法 C では、金属 Si の細粒を成形体の内外周囲に充填した。方法 D では、方法 C と同様の方法で、周囲の細粒の量を方法 C の半分とした。

方法 E では、BN りつぼの底部に金属 Si 粒を置き、その上に成形体を載せた。方法 F では、金属 Si 粒を成形体の上下に置いた。方法 G では、成形体の底に金属 Si の薄片または細粒を少量敷き、その上に成形体を載せ、さらに上から金属 Si を積載した。

本研究における反応焼結 SiC の作製方法の概略を以下に述べる。原料として、 $\beta$ -SiC (平均粒径  $0.5\ \mu\text{m}$ 、Höganäs 社製)、カーボンブラック (旭カーボン製) を用いた。SiC とカーボンの比は  $\text{SiC} : \text{C} = 1 : 0.6$  とした。これらの原料粉末を、SiC 製ボール (直径  $10\text{mm}$   $\phi$ ) およびエタノール溶媒を用いた湿式ボールミルにより 24 時間混合した。混合後、ロータリーエバポレーターおよび乾燥器で乾燥し、得られた混合粉末を、粉碎およびふるいがけ (目開き  $300\ \mu\text{m}$ ) を行った。ふるいを通した粉末に PVA 水溶液と蒸留水を加えて攪拌し、乾燥後  $1\text{mm}$  目開きのふるいを用いて造粒した。造粒粉末を 3.2.1(3)①で設計・作製した円筒形状の金型を用いて、 $10\text{MPa}$  で一軸加圧成形を行い、外径  $34\text{mm}$ 、内径  $24\text{mm}$ 、高さ  $18\sim 20\text{mm}$  の形状の成形体を得た。成形体は  $360^\circ\text{C}$ 、大気中、4 時間の条件で脱バインダー処理を行った。反応焼結に際しては、上記の方法で円筒形状成形体および金属 Si を設置した BN りつぼをカーボンりつぼに入れ、多目的高温炉 (Hi-Multi 5000、富士電波工業製) を用いて反応焼結を行った。反応焼結は真空中で行い、 $1500^\circ\text{C}$ 、15 分の条件で行った。図 3.2-27 に本実験で反応焼結により得られた円筒形状 SiC 焼結体の外観を示す。方法 B は成形体への溶融 Si の供給速度を遅くし均一に含浸させることを目的としたが、BN りつぼの一部の傾斜をつけて Si 供給の速度を遅らせた場合は、すべての場合において欠けが発生し、大きな空洞が生じた。金属 Si の含浸が不十分な場合や不均一な含浸となった場合には、欠けや剥離、き裂等が発生した (図 3.2-27 (b) ~ (d))。欠けやき裂のない円筒形状 SiC 焼結体を得るには、より均一な溶融 Si の含浸が要求されると考えられ、方法 A、C、D および E において、金属 Si が十分にかつ均一に含浸できた場合には、割れは発生せず、図 3.2-27 (a) に示すような良好な焼結体を得られた。上からだけでなく周囲に Si 粒子を配置することでより十分かつ均一な溶融 Si の含浸が実現できたと考えられる。

### ③ 金属 Si 供給量の影響

欠けやき裂のない良好な円筒形状 SiC 焼結体について、金属 Si の供給量 (Si/C) とかさ密度の関係を図 3.2-28 に示す。金属 Si の供給量を増やすと、かさ密度が高くなる傾向はみられるものの、同じ Si 供給量でもかさ密度がばらついており、両者の相関は低いと言える。令和 4 年度に報告した反応焼結による円柱状 SiC ペレットでは、Si 供給量は  $\text{Si}/\text{C} = 1.4$  としたが、円筒形状 SiC 焼結体の作製においても、Si 供給量は  $\text{Si}/\text{C} = 1.4$  付近が最適な供給量であると考えられる。

### ④ 円筒形状 SiC 焼結体のキャラクタリゼーション

Si 供給量 (Si/C) を変え、方法 A で作製した 2 種類の円筒形状 SiC 焼結体についてキャラクタリゼーションを行った。試料 1 は  $\text{Si}/\text{C} = 1.45$  でかさ密度は  $2.95\text{g}/\text{cm}^3$ 、試料 2 は  $\text{Si}/\text{C} = 1.40$  でかさ密度は  $2.85\text{g}/\text{cm}^3$  であった。

2 種類の円筒形状 SiC 焼結体および令和 4 年度に作製した円柱状 SiC ペレットの X 線

回折パターンを図 3.2-29 に示す。試料 1 と試料 2 は Si 供給量およびかさ密度が異なるが、回折パターンに大きな違いは見られず、主相である  $\beta$ -SiC(3C)の他に、わずかに  $\alpha$ -SiC(6H)が見られ、焼結体内部に残存する Si に起因する回折ピークが見られた。Si の回折ピーク強度は、Si 供給量が異なるにもかかわらず、試料 1 と試料 2 で大きな差は見られなかった。また、令和 4 年度に作製した円柱状 SiC ペレットの X 線回折パターンと比較すると、円筒形状 SiC 焼結体の SiC と Si の回折ピーク強度比は小さくなっていることから、円柱状 SiC ペレットよりも未反応 Si が多く含まれている可能性が示唆された。

#### ⑤ 円筒形状 SiC 焼結体の熱伝導率

上記円筒形状試料 1 および試料 2 について、それぞれの試料から 10mm x 10mm x 1.75mm の角状試料を切り出し、室温から 1000°C の温度における熱伝導率を測定した。試料の熱拡散率 ( $\alpha$ ) および比熱 ( $C_p$ ) はレーザーフラッシュアナライザー (LFA457 MicroFlash, NETZSCH 製) を用いて室温から 1000°C の温度でアルゴン雰囲気中で測定した。熱伝導率は 3.2.1(2)⑦に示す式(3.2-1)により求めた。

室温から 1000°C における円筒形状 SiC 焼結体の熱伝導率を図 3.2-30 に示す。比較のため、令和 4 年度に作製した円柱状 SiC ペレットの熱伝導率も示す。円筒形状 SiC 焼結体の室温の熱伝導率は、試料 1 (かさ密度 2.95g/cm<sup>3</sup>) では 87W/m・K、試料 2 (かさ密度 2.85g/cm<sup>3</sup>) では 96W/m・K であり、円柱状ペレット (室温熱伝導率 64W/m・K) よりも高い値を示した。また、円筒形状 SiC 焼結体の 1000°C の熱伝導率は、試料 1 では 31W/m・K、試料 2 では 26W/m・K であり、円筒形状 SiC 焼結体は、円柱 SiC ペレットと同等またはそれ以上の熱伝導率を有することを明らかにした。3.2.1(2)⑦でも述べたように、高温ガス炉用燃料コンパクトとしての適用を考えた場合、核分裂生成物を燃料コンパクト内部に保持するための高密度化に加え、より高い熱伝導率が強く求められている。高温ガス炉の炉心設計の観点から、TRISO 燃料粒子を用いた燃料成形体の SiC の熱伝導率は、NITE 法で作製した SiC (40W/m・K at 300°C、20m・K at 1000°C<sup>(7)</sup>) と同等以上が望まれており、本研究で作製した円筒形状を有する反応焼結 SiC はその値を十分満たしていると考えられ、本研究で提案する反応焼結プロセスは、緻密で高い熱伝導率を有する SiC マトリックス燃料コンパクトの作製プロセスとして期待できることを見出した。

#### 参考文献

- (1) N. Mizuta, et al., "Study of SiC-matrix fuel element for HTGR," Proceedings of ICONE-27, Tsukuba, Japan, May 19-24, 2019.
- (2) M. Goto, et al, "Conceptual study of an experimental HTGR upgraded from HTR," Proceedings of HTR2018, Warsaw, Poland, October 8-10, 2018.
- (3) ファインセラミックスの焼結体密度・開気孔率の測定方法, 日本工業規格 JIS R1634:1998.
- (4) M. A. Mulla, V. D. Krstic, "Pressureless sintering of  $\beta$ -SiC with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> additions", J. Mater. Sci., 29 (1994) 934.

- (5) 日本学術振興会、高温セラミック材料第 124 委員会編、「SiC 系セラミックス新材料 最近の展開」, 内田老鶴圃, p.242-243 (2001).
- (6) K. Yoshida, H. Mukai, M. Imai, K. Hashimoto, Y. Toda, H. Hyuga, N. Kondo, H. Kita and T. Yano, “Reaction sintering of two-dimensional silicon carbide fiber-reinforced silicon carbide composite by sheet stacking method”, J. Nuclear. Mater., 367 (2007) 769.
- (7) Terrani, K. A., Snead, L. L., Gehin, J. C., J. Nucl. Mater., 427, 209-224 (2012).

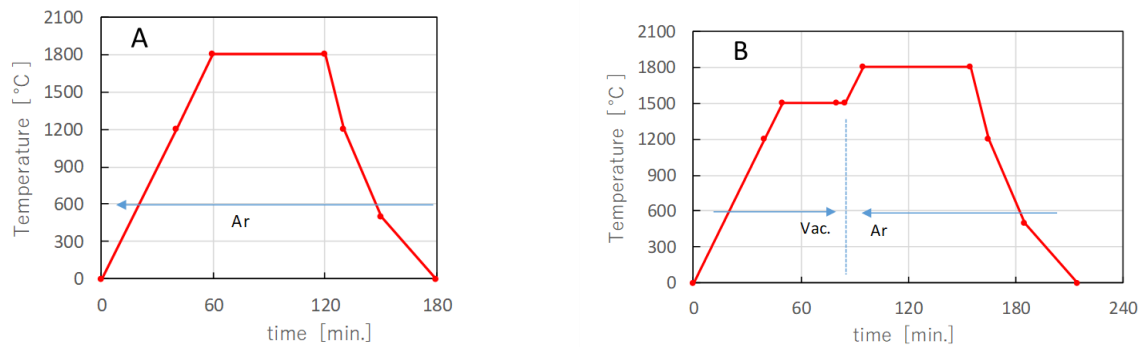


図 3.2-1 SiC の常圧焼結での焼結パターン

A : アルゴン (Ar) 雰囲気、B : 真空 (室温~1500°C) 後、アルゴン (Ar) 導入

表 3.2-1 常圧焼結で得られた焼結助剤無添加 SiC 焼結体のかさ密度、相対密度および開気孔率

試料	成形方法	焼結パターン	かさ密度 (g/cm <sup>3</sup> )	相対密度 (%)	開気孔率 (%)
助剤無添加 SiC	一軸加圧	A (Ar)	1.47	45.9	54.1
		B (Vac→Ar)	1.45	45.3	53.9
	CIP	A (Ar)	1.66	51.9	44.4
		B (Vac→Ar)	1.64	51.3	36.7

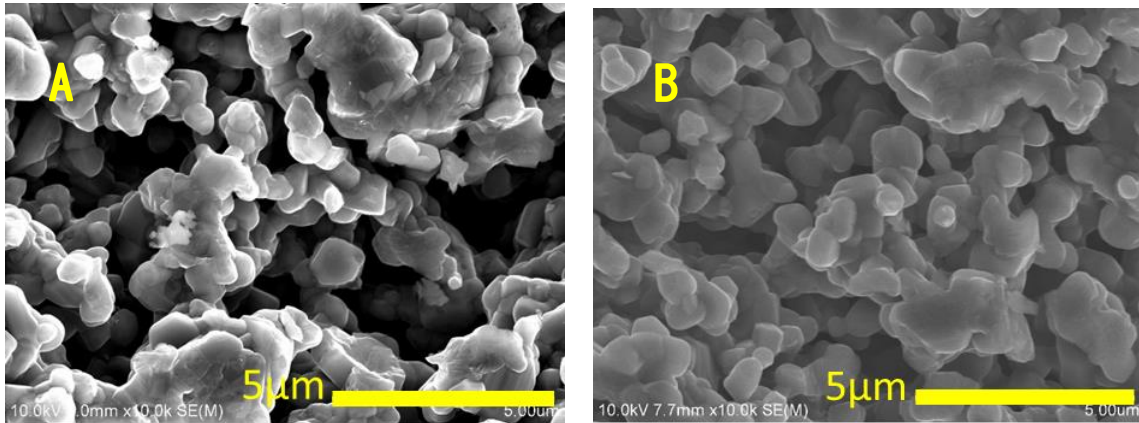
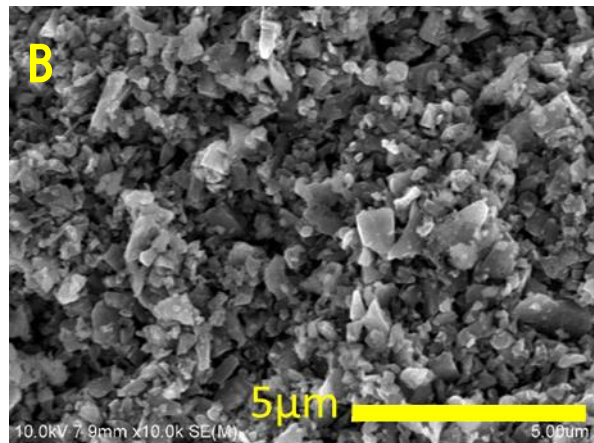
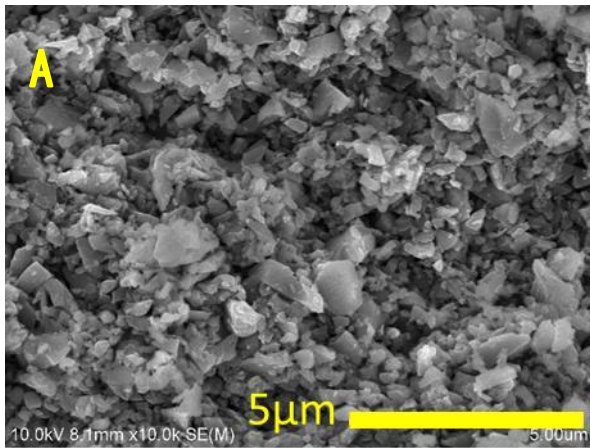


図 3.2-2 各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した SiC 焼結体断面の SEM 写真  
(図中 A、B は焼結パターンを示す)

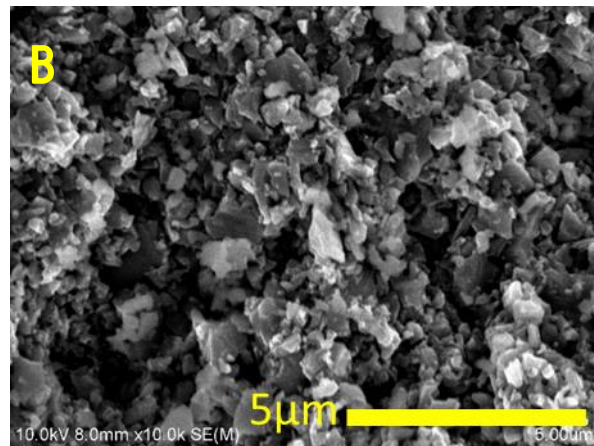
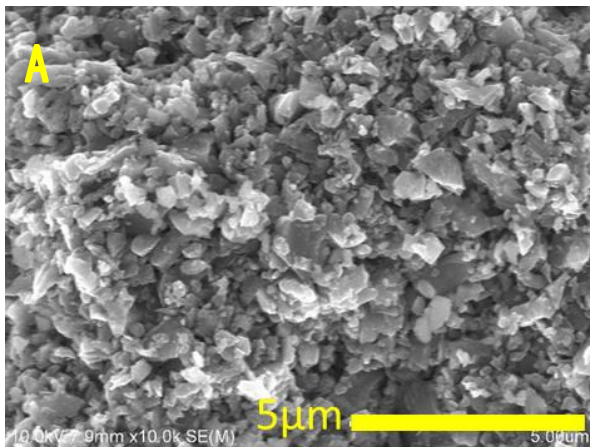
表 3.2-2 常圧焼結で得られた焼結助剤添加 SiC 焼結体のかさ密度、相対密度および開気孔率

焼結助剤	成形方法	焼成 パターン	かさ密度 (g/cm <sup>3</sup> )	相対密度 (%)	開気孔率 (%)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	一軸加圧	A (Ar)	1.68	52.0	44.2
Al			1.81	56.9	40.1
Al(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>			1.57	49.2	50.2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		B (Vac→Ar)	1.67	51.7	44.0
Al			1.79	56.4	39.8
Al(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>			1.56	48.9	49.9
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CIP	A (Ar)	1.87	57.9	39.4
Al			2.00	62.8	34.9
Al(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>			1.84	58.0	41.0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		B (Vac→Ar)	1.85	57.4	39.1
Al			1.97	62.0	35.1
Al(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>			1.83	57.5	40.7

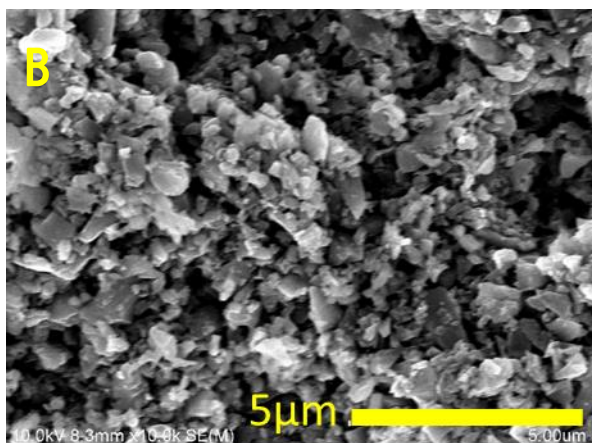
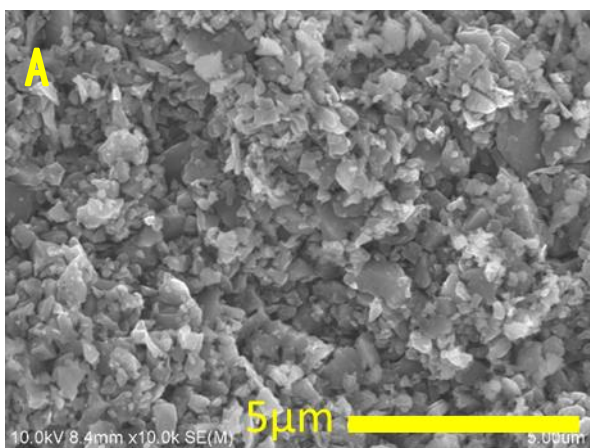




アルミナ添加



金属アルミニウム添加



硝酸アルミニウム添加

図 3. 2-3 各焼結パターンで CIP 成形体を常圧焼結した焼結助剤添加 SiC 焼結体断面の SEM 写真  
(図中 A、B は焼結パターンを示す)



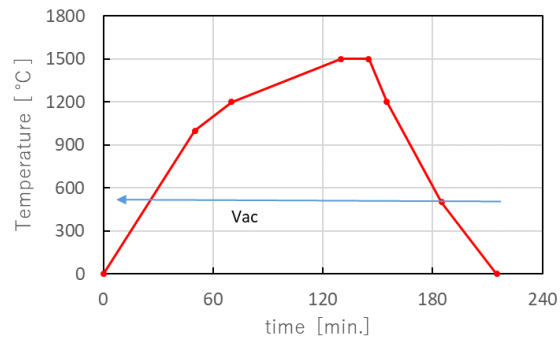


図 3.2-4 反応焼結における焼結パターン



図 3.2-5 反応焼結後の試料の外観写真



図 3.2-6 反応焼結後の試料を縦方向に切断した面の写真  
(左：一軸加圧成形体の反応焼結体、右：CIP 成形体の反応焼結体)

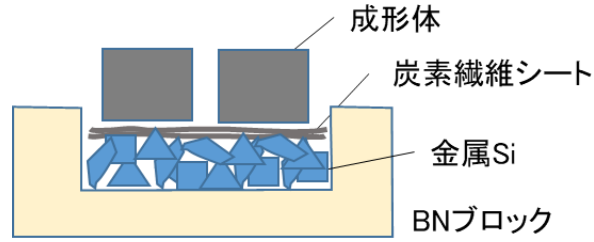


図 3.2-7 炭素繊維シート（織布）を介して金属 Si 上に成形体を配置する反応焼結法（方法 A）の模式図



(a) 反応焼結前

(b) 反応焼結後

図 3.2-8 方法 A での反応焼結前後のるつぼ内の試料の写真



図 3.2-9 方法 A で反応焼結した試料の外観



図 3.2-10 方法 A で反応焼結した試料の切断面  
(左：一軸成形体の反応焼結試料、右：CIP 成形体の反応焼結試料)

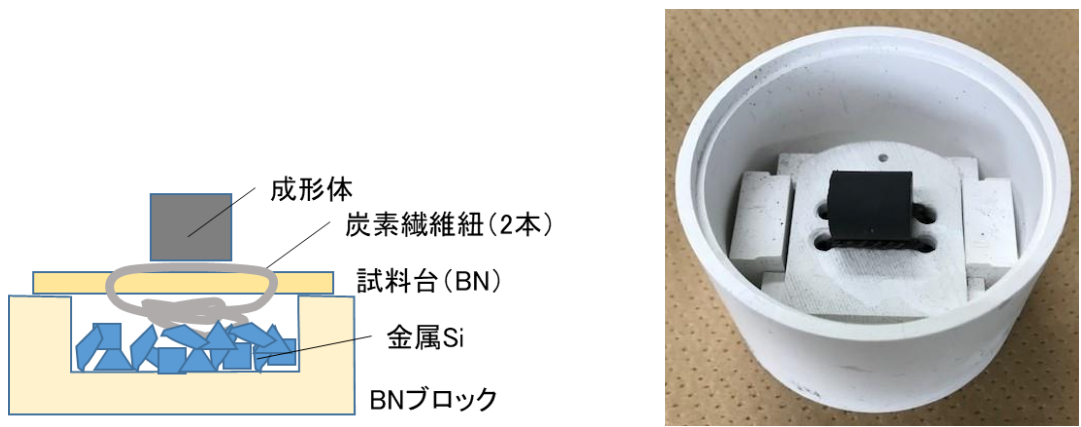


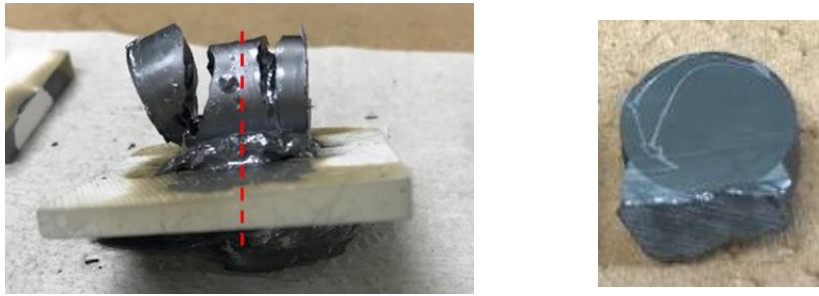
図 3.2-11 金属 Si を炭素繊維の紐と接触させその上に成形体を配置する反応焼結法（方法 B）の模式図と外観



図 3.2-12 方法 B で反応焼結した試料（一軸成形体の反応焼結試料）の外観と破断面



図 3.2-13 方法 B で反応焼結した試料（CIP 成形体の反応焼結試料）の外観と切断面



(a) 外観

(b) 切断面

図 3.2-14 方法 B で反応焼結した試料（一軸成形体の反応焼結試料）の外観と切断面



(a) 上面

(b) 側面

図 3.2-15 混合粉と Si 金属粒の混合粉体から成る成形体を用いた反応焼結体（方法 C）の外観

表 3.2-3 混合粉と Si 金属粒の混合粉体から成る成形体を用いた反応焼結体（方法 C）の寸法および密度の変化

	重量 (g)	直径 (mm)	高さ (mm)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
成形時	2.2879	13.06	11.07	1.543
焼結後	2.2357	14.04	12.30	1.174



図 3.2-16 PVA による造粒粉を用いて作製した成形体（図左）の反応焼結体の外観（図中央）および円柱軸方向に切断した切断面（図右）

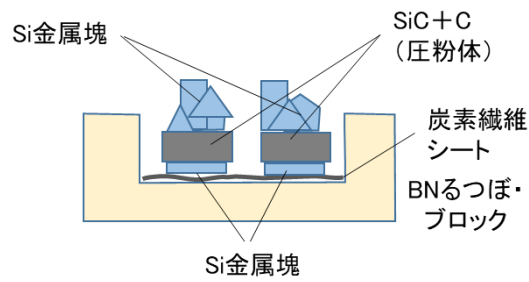


図 3.2-17 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法の模式図



図 3.2-18 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料  
(成形体径 ; 10 mm φ) の外観 (左 : 反応焼結前、右 : 反応焼結後)

表 3.2-4 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料の寸法および密度

成形体	成形体				反応焼結体				Archimedes
	重量(g)	直径(mm)	高さ(mm)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	重量(g)	直径(mm)	高さ(mm)	密度(g/cm <sup>3</sup> )	密度(g/cm <sup>3</sup> )
15mm φ	1.3233	15.06	5.09	1.459	2.6523	14.97	4.98	3.026	3.018
	1.3207	15.06	5.09	1.457	2.6660	14.96	5.02	3.021	3.011
10mm φ	0.6646	10.06	5.67	1.475	1.3545	10.01	5.66	3.041	3.018
	0.6638	10.05	5.67	1.476	1.3377	10.01	5.60	3.035	3.011

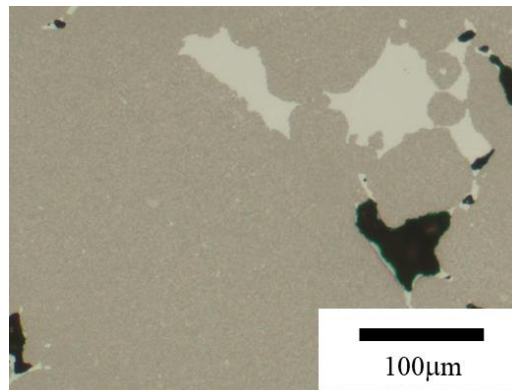
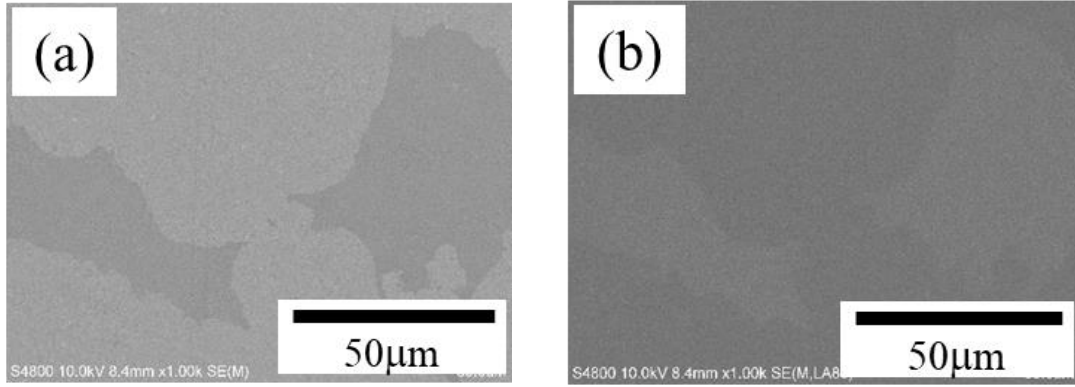


図 3.2-19 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料  
(成形体径 ; 10mm φ) の研磨面の光学顕微鏡写真





(a) 二次電子像

(b) 反射電子像

図 3.2-20 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料  
(成形体径 ; 10mm φ) の研磨面

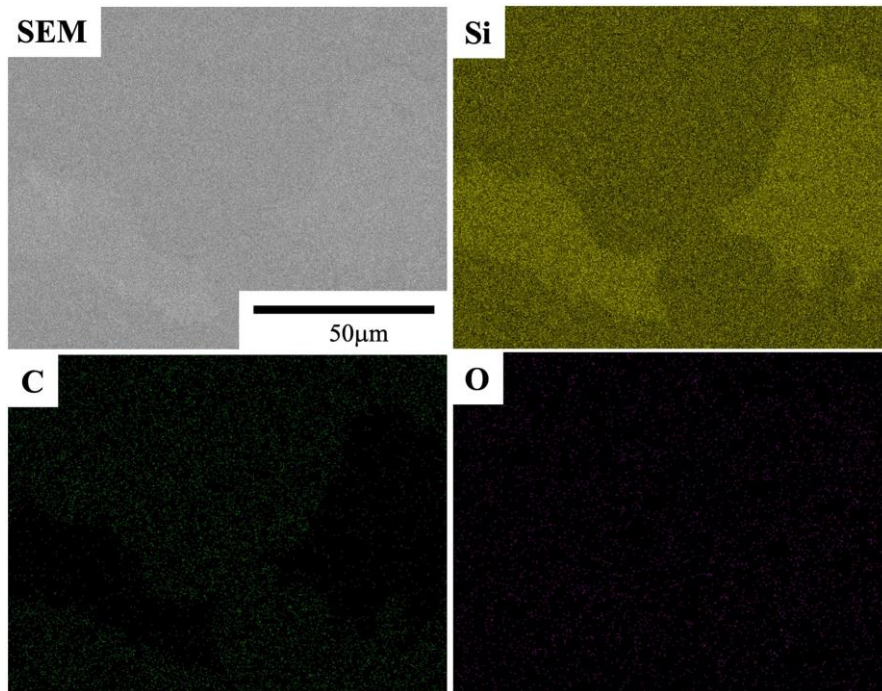


図 3.2-21 成形体に直接金属 Si を接触させる反応焼結法で作製した試料  
(成形体径 ; 10mm φ) の研磨面の SEM 像と EDX 元素マッピング

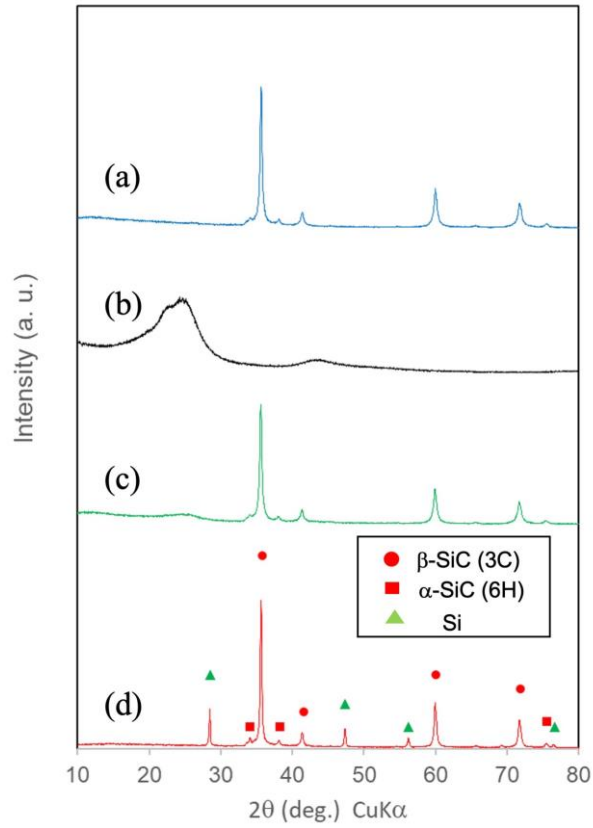


図 3.2-22 原料として用いた(a)SiC と(b)C 粉末、(c)これらの混合粉および(d)反応焼結により作製した焼結体を粉砕した粉末の X 線回折パターン

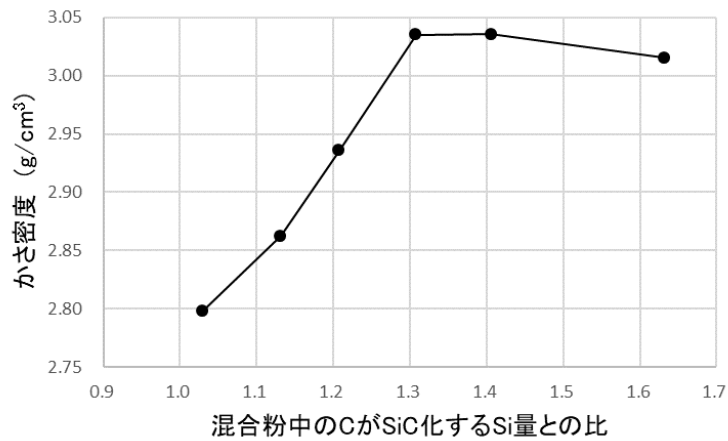


図 3.2-23 Si 供給量が反応焼結体の密度に及ぼす影響

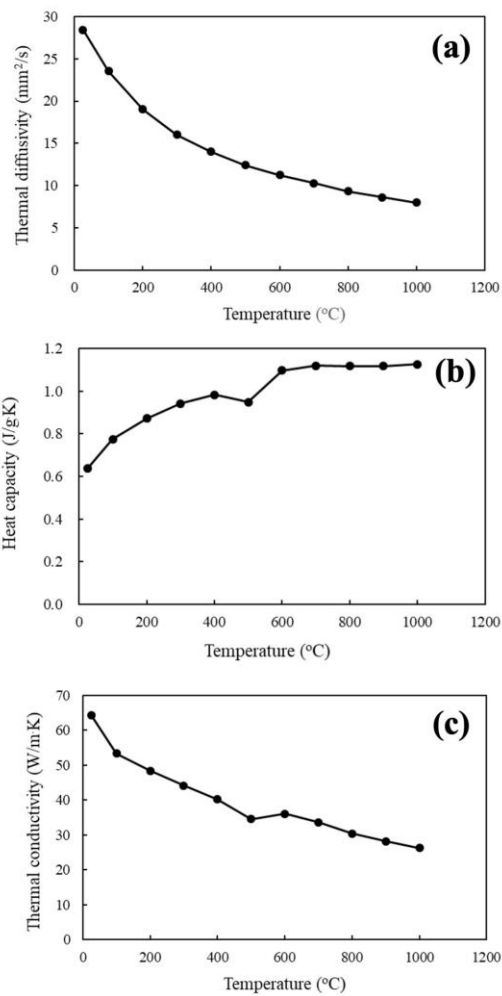


図 3.2-24 室温から 1000°C の温度における反応焼結 SiC 試験片の熱拡散率、比熱および熱伝導率



図 3.2-25 円筒形試料成形用金型



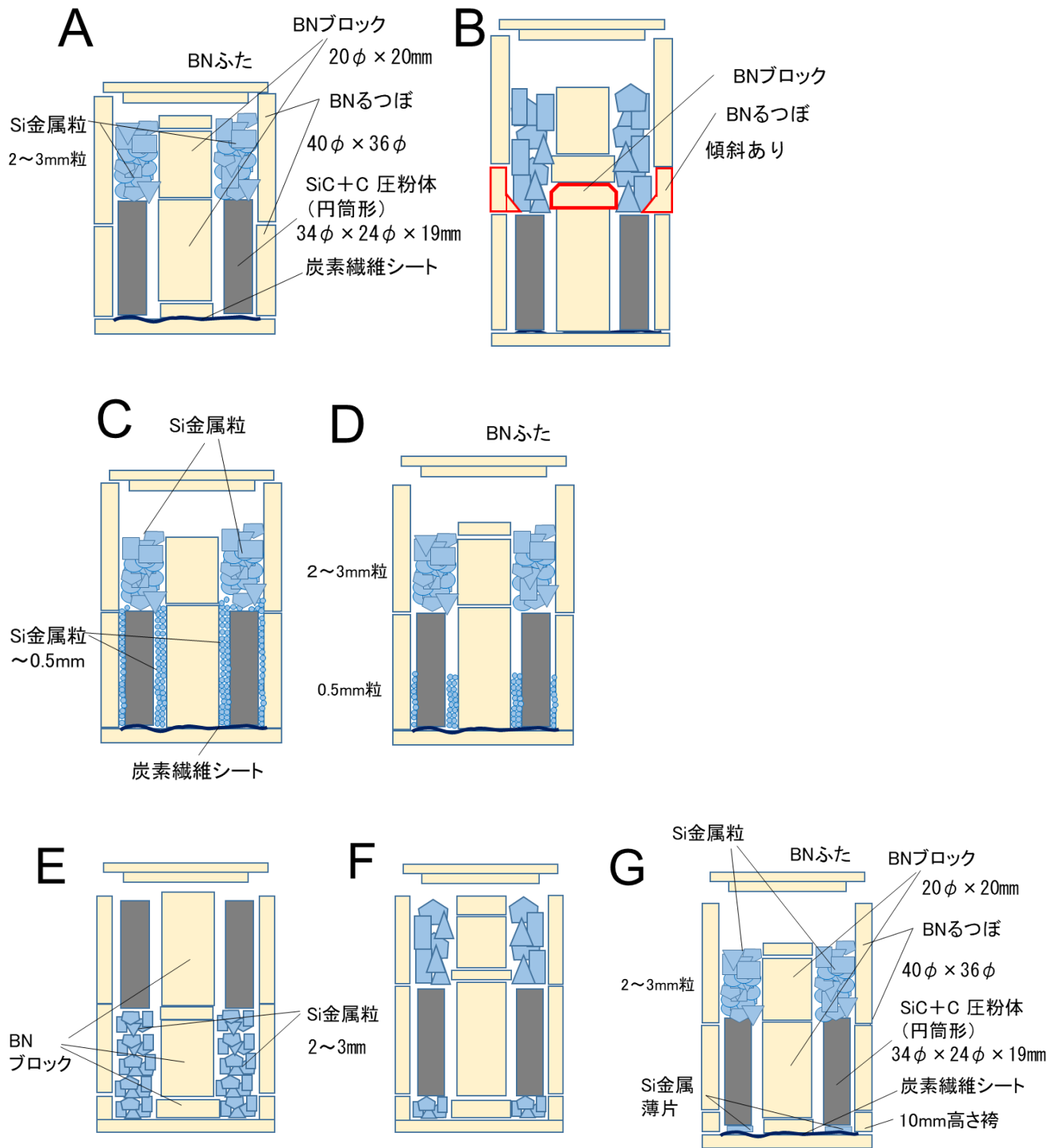


図 3. 2-26 反応焼結における BN るつぼ、成形体の配置および金属 Si の供給方法



図 3.2-27 反応焼結により得られた円筒形状 SiC 焼結体の外観

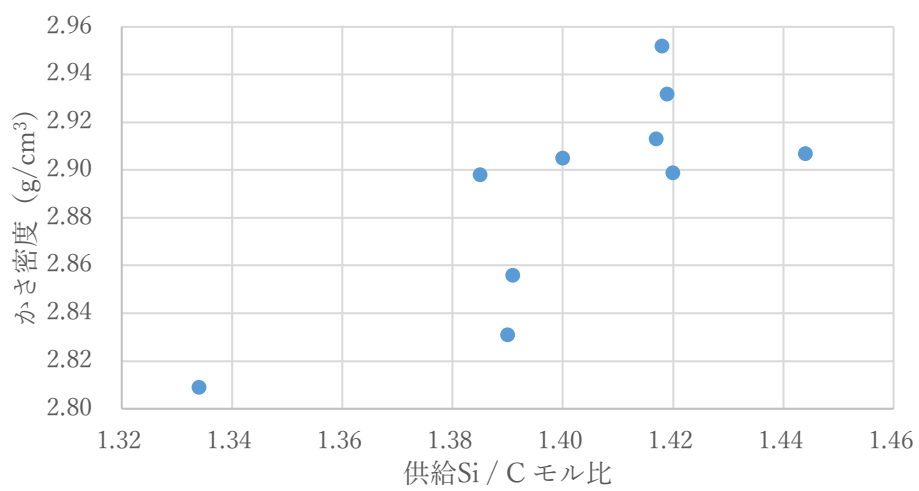


図 3.2-28 供給 Si 量と反応焼結体かさ密度の関係

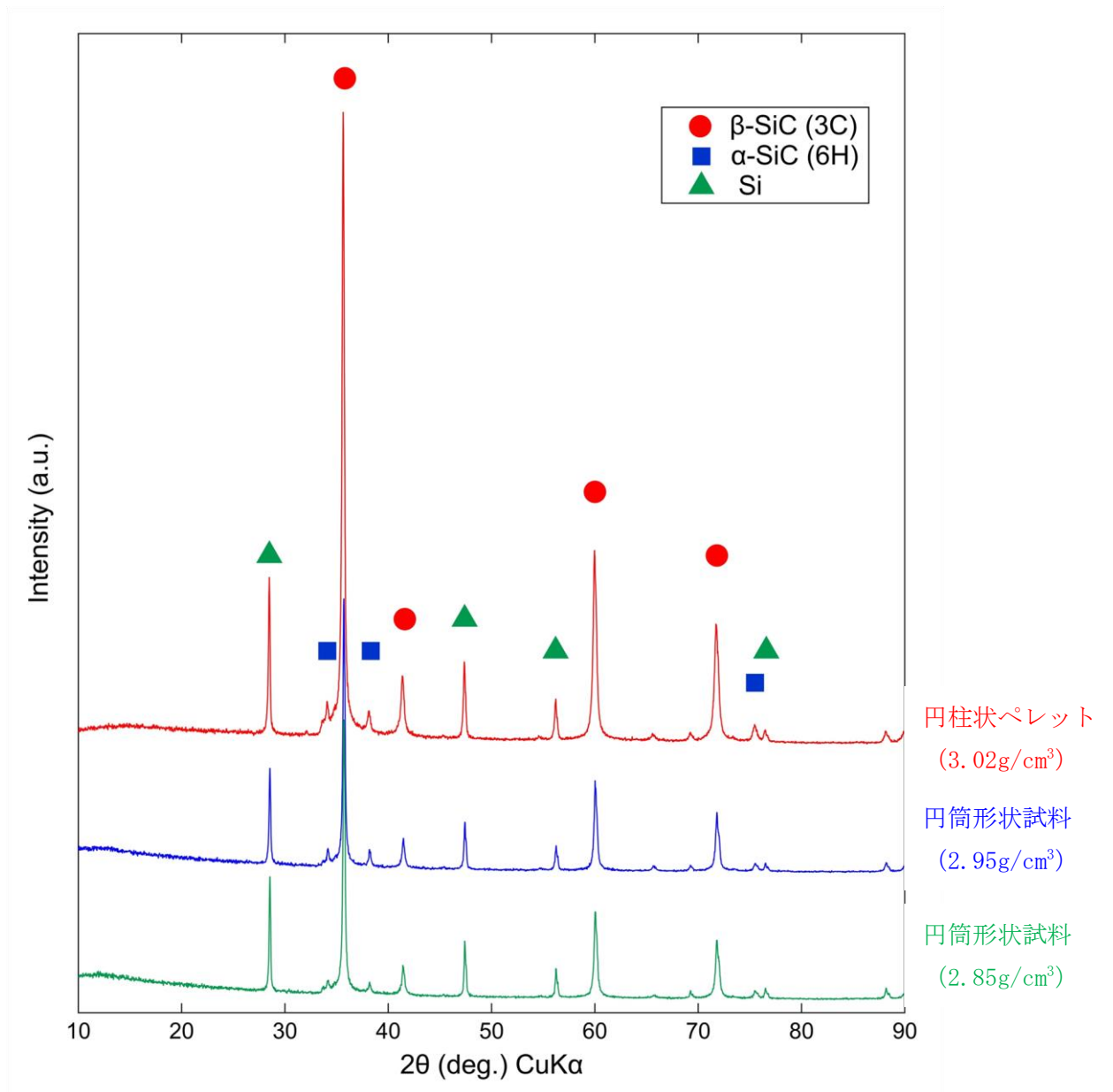


図 3.2-29 2種類の円筒形状 SiC 焼結体および円柱状 SiC ペレットの X 線回折パターン

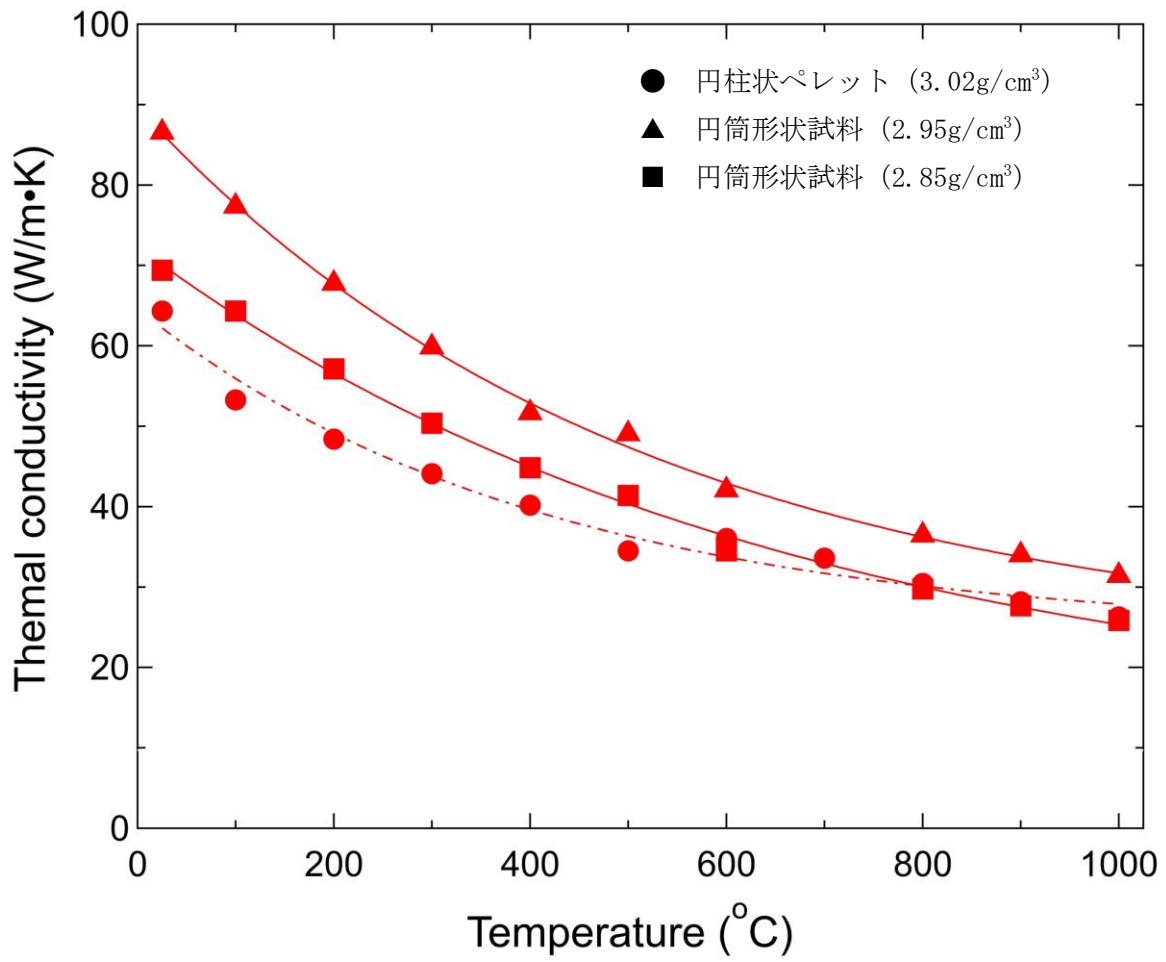


図 3. 2-30 室温から 1000°C における円筒形状 SiC 焼結体および円柱状 SiC ペレットの熱伝導率

### 3.2.2 TG-DTAによる反応焼結SiCの酸化試験【R3-R5】

令和3年度は、熱重量-示差熱分析装置（TG-DTA）による酸化試験を行うための予備的実験を行い、酸化試験を実施するための装置の整備を行った。

令和4年度は、製作方法や焼結温度等の製作条件を変えてSiC試験片及びSiCコンパクトモデルを製作し、酸素濃度及び温度条件を変化させてTG-DTAによる酸化試験を行い、SiCの酸化データを取得した。また、第3.1節で実施するVVUQ評価と統合試験準備のために、これらのデータを供した。

令和5年度は、令和4年度までの検討結果をベースとし、SiC試験片及びSiCコンパクトモデルについて酸素濃度及び温度条件を変化させてTG-DTAによる酸化試験を行い、SiCの酸化データを充実させた。また、第3.1節で実施する統合試験とVVUQのまとめのために、これらのデータを供した。

#### (1) 示差熱天秤装置（TG-DTA）による酸化試験の予備的実験

##### ① 大気中酸化試験の予備的実験【R3】

示差熱天秤装置（TG-DTA）による大気中酸化試験を行うための予備的実験を行った。評価試料として、市販の炭化ケイ素（SiC）球（直径3.968mm）を用いた。SiC球をエタノール中で超音波洗浄した後、寸法（直径）及び重量を測定した。洗浄したSiC球を白金製容器に入れ、TG-DTA装置内に設置し、大気中で、室温から所定の温度まで10°C/minの昇温速度で昇温した。所定温度到達後、30分間保持し、炉冷した。保持温度は800°Cから1100°Cで設定した。図3.2-31にTG-DTAによる大気中でのSiC球の酸化試験結果の一例を示す（保持温度1100°C）。加熱温度850°Cまで3段階の重量減少が見られた。この重量減少は、SiC球表面に付着しているカーボン等の不純物の酸化によるものと考えられる。850°C以上の大気中での加熱で重量増加が見られたことから、850°C付近から大気中におけるSiC球の酸化が起こっていることがわかる。以上のことから、TG-DTAによる大気中でのSiCの酸化試験の予備的検討を行うことができた。

##### ② 乾燥空気フロー下における大気中酸化試験の予備的実験【R3】

次に、所定温度におけるSiCの酸化挙動を評価するため、所定温度に到達するまでアルゴンガスを導入し、所定温度到達後、空気を導入する酸化試験について検討した。3.2.2(1)①と同様に、評価試料としてSiC球を用いた。洗浄したSiC球を白金またはアルミナ製容器に入れ、TG-DTA装置内に設置した後、ロータリーポンプを用いて真空引きを行い、アルゴン雰囲気置換した。アルゴン置換後、アルゴンフロー（流量50ml/min）とした。アルゴンフロー下で所定温度まで昇温速度20°C/minで加熱し、所定温度到達後、50ml/minの乾燥空気フローに切り替え、30～60分間保持した。保持温度は800°Cから1400°Cで設定した。保持温度が800°C～1100°Cの場合は白金製容器を、1100°C以上の温度の場合はアルミナ製容器を用いた。TG-DTAによる乾燥空気フローでのSiC

球の酸化試験結果の一例を図3.2-32に示す（保持温度1000℃）。アルゴンフローで1000℃まで昇温した後、アルゴンフローから乾燥空気に切り替えた際にTG線（図中緑線）にわずかなノイズが見られたが、これは試料と容器の浮力の変化によるものである。乾燥空気導入後、SiCの酸化による重量増加が明瞭に見られた。以上のことから、TG-DTAによる乾燥空気フローでのSiCの酸化試験の予備的検討を行うことができた。

### ③ 酸化試験を行うための装置の整備【R3】

SiCの酸化試験を実施するためのTG-DTA装置の整備を行った。まず、本研究で実施予定のTG-DTA装置を用いたSiCの酸化試験の流れを図3.2-33に示す。本研究でのSiCの酸化試験は、図3.2-33に示す通り、酸素濃度を制御した雰囲気下においてSiCの酸化試験を行う計画であり、そのためには高純度アルゴンガスとアルゴン/O<sub>2</sub>標準ガスを用意し、所定の酸素濃度となるようにこれらのガスを混合し、TG-DTAの試料室に導入する必要がある。この酸化試験を可能とするためにTG-DTA装置の整備を行った。酸素濃度を制御した雰囲気下におけるSiCの酸化試験装置の概略図を図3.2-34に示す。

ガスボンベから供給される高純度アルゴンガスとアルゴン/O<sub>2</sub>標準ガスの量をマスフローメータで制御し、所定の割合となるようにガス混合器内で混合する。その際、混合ガス中の酸素濃度を酸素濃度計で測定する。この混合ガスをTG-DTA装置の試料室に所定の流量で導入する。このガス混合システムを導入することで、酸素濃度を制御し、幅広い酸素濃度の環境下で酸化試験を行うこと可能となる。以上のことから、本研究においてSiCの酸化試験を実施するためのTG-DTA装置の整備を行うことができた。

## (2) 酸素濃度及び温度条件を変化させた TG-DTA による酸化試験

### ① SiC の TG-DTA による酸化試験【R4】

本研究で提案するスリーブレス SiC 母材燃料コンパクトの高温ガス炉空気侵入事故時の SiC 酸化挙動を把握するための要素試験としての位置付けで、SiC 酸化試験を行った。燃料コンパクトは製造方法の観点から反応焼結 SiC (reaction-sintered SiC, 以下 RS-SiC) を採用している。本研究では、市販の反応焼結 SiC (RS-SiC) を評価試料とし、酸化試験を行った。

本研究で用いた RS-SiC ボール(平均重量 98.65mg、直径 3.998mm、佐藤鉄工製)の結晶相を調べるため、XRD 回折(Aeris Research edition、Malvern Panalytical Ltd 製)を行った。得られた XRD パターンを図 3.2-35 に示す。XRD パターンから、RS-SiC ボールは典型的な  $\alpha$ -SiC と  $\beta$ -SiC の混合多結晶であることが分かった<sup>(1-4)</sup>。

この RS-SiC ボールを試料として、熱重量-示差熱分析装置 (TG-DTA ; Thermogravimetry-Differential Thermal Analysis, Bruker, model TG-DTA2020SA) を用いた酸化試験を行った。表 3.2-5 に TG-DTA による酸化試験の測定条件を示す。温度は SiC 酸化が有意に始まる 800℃から空気侵入事故時に到達するとされる 1400℃まで、酸素濃度は空気を仮定した 20%から極低の 1ppm までとし、雰囲気ガスとして Ar/O<sub>2</sub> 混合

ガスを用いた。試験前に TG-DTA 炉内の真空引きを入念に行い、昇温開始後は Ar ガスフロー、目標温度に到達すると同時に Ar/O<sub>2</sub> ガスフローに切り替えて、30 分間の酸化反応に伴う試験片の重量変化をリアルタイムモニタリング測定した。重量増加が見られた passive 酸化ケースの酸化速度と温度の関係(アレニウスプロット)を図 3.2-36 に示す。また、図 3.2-37 には図 3.2-36 の 800~1000°C 低温側での活性化エネルギーの算出、図 3.2-38 には酸素濃度 1ppm での RS-SiC の重量変化の結果をそれぞれ示す。

図 3.2-36 において、RS-SiC の passive 酸化速度は温度に対して明瞭に依存する低温側と、温度上昇に対して酸化速度が見かけ上一定になる高温側に分割できることが分かる。低温では、SiC 基盤に対して酸素の内部拡散が支配的であるのに対し、高温では生成した CO<sub>2</sub> の外部拡散が支配的になり、なおかつ CO<sub>2</sub> の拡散速度は高温では温度に対して依存しなくなる傾向にあることが分かっており<sup>(5)</sup>、そのため本実験結果では RS-SiC の高温における passive 酸化速度が見かけ上一定になっていると解釈される。図 3.2-21 において、酸素濃度 20% における passive 酸化の活性化エネルギーは 187 kJ/mol と見積られ、この値は単結晶 α-SiC における 179kJ/mol<sup>(6)</sup> とほぼ等しく、また CVD-SiC の 310kJ/mol<sup>(7)</sup> より小さい値となった。この事実は、RS-SiC が α と β-SiC の混合であるため、α-SiC の化学的挙動に近い性質を持つと合理的に解釈が可能である。また、各酸素濃度に対して算出された活性化エネルギーと酸素濃度の関係を考えると、酸素濃度と活性化エネルギーが線形比例の関係にあることが分かる。一般に、SiC 酸化は Si 面と C 面での酸化があるが、Si 面における活性化エネルギーは 358kJ/mol、C 面では 85kJ/mol<sup>(8)</sup> であることが報告されており、本研究において低酸素濃度では活性化エネルギーが低くなることから C 面での酸化が支配的になることが示唆され、原子状酸素の拡散の方が分子状酸素の拡散よりも支配的になることが予測される。図 3.2-37 で明らかになった RS-SiC の passive 酸化挙動から、有用な実験式を以下に導いた。

$$k = Ae^{-\frac{E_a}{RT}} = 5.7891 \times 10^{12} \cdot C_{O_2}^{2.4976} \cdot e^{-\frac{2.9397 \times 10^{-3} C_{O_2} + 4.8746 \times 10^{-2}}{T}} \quad (3.2-2)$$

$$800 \leq T \leq 1000 \text{ [}^\circ\text{C]}, 1 \leq C_{O_2} \leq 100 \text{ [ppm]}$$

ここで  $k$  は passive 酸化速度 (mg<sup>2</sup>/s)、 $A$  は頻度因子 (mg<sup>2</sup>/s)、 $E_a$  は活性化エネルギー (kJ/mol)、 $R$  は理想気体の気体定数 (kJ/mol/K)、 $T$  は絶対温度 (K)、 $C_{O_2}$  は酸素濃度 (-) である。

図 3.2-38 から、酸素濃度 1ppm の厳しい条件において 800~1300°C では典型的な重量増加を伴う passive 酸化を示したが、1400°C では大きな重量減少を伴う active 酸化が観察された。結論として、1400°C/10ppm 酸素濃度までの条件においては RS-SiC は優れた耐酸化性能を示し、高温ガス炉空気侵入事故時においてはその材料健全性を維持できると期待できる。以上の結果から、本研究において RS-SiC の酸化挙動に関する基礎的なデータの取得に成功した。

次に、RS-SiC ボールの酸化試験による表面形態変化を調べるため、RS-SiC ボール表

面の SEM 観察 (FE-SEM; S - 4800, HITACHI) を行った。図 3. 2-39 (a) - (c) に酸化試験前および酸化試験後の RS-SiC ボール表面の SEM 写真をそれぞれ示す。1400°C、酸素濃度 20% の Ar/O<sub>2</sub> フロー内における酸化試験後の SEM 観察から、同試料表面でガラス質の SiO<sub>2</sub> 酸化膜が一様に形成されている様子や、ウィスカー状の粒子が RS-SiC ボール表面に成長している様子が観察された。

## ② 本研究で作製した反応焼結 SiC の TG-DTA による酸化試験【R4】

3. 2. 2 (2) ① の TG-DTA 酸化試験と同様の条件・手順で、本研究で作製した RS-SiC 試料 (3. 2. 1 (2) ⑤) の耐酸化性能試験を行った。

図 3. 2-40 に空気酸化における RS-SiC 試料の重量変化の結果を示す。800~1400°C までの条件で、900~1000°C の 2 通りを除いて典型的な重量増加を伴う passive 酸化であることが確認された。900~1000°C においては使用したサンプルは C を多く含んでおり、そのため C の燃焼による重量減少が起こったと考えられるため、SiC の active 酸化であるとは判断されない。図 3. 2-41 に SiC における C と Si の含有率が酸化挙動に及ぼす影響の考察を模式的に示す。図 3. 2-41 に示す通り、C が少ない領域では Si-rich な領域と比較して CO<sub>2</sub> の燃焼で部分的に重量が減少することが考えられる。また、重量増加は RS-SiC 試料の表面積で除し、単位面積あたりの passive 酸化速度を算出した。各試料の表面積  $S$  (mm<sup>2</sup>) は、形状が複雑で直接測定することが困難なことから、以下のように各サンプルの厚み  $t$  (0. 66mm 一定) および重量  $m$  (mg) を測定し、アルキメデス法で求めた密度  $\rho$  (3. 015g/cm<sup>3</sup>) から表面積  $S$  を算出した。

$$S = \frac{m}{\rho t} \quad (3.2 - 3)$$

図 3. 2-42 に passive 酸化速度と温度の関係を示す。この傾向は 3. 2. 2 (2) ① で報告した RS-SiC ボールの空気酸化のアレニウス挙動と非常によく一致する傾向を示した<sup>(9)</sup>。図 3. 2-43 に酸素濃度 1ppm の厳しい条件での 1200~1400°C 酸化における RS-SiC 試料の重量変化を示す。RS-SiC ボールの場合と異なり、1400°C/1ppm までの条件において腐食的な active 酸化は起こらず、安定な passive 酸化であることが分かった。また、図 3. 2-44 に RS-SiC サンプルの 1ppm 酸化で得られた passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット) を示す。図 3. 2-44 において、その高温側での活性化エネルギーがフィッティングから算出され、およそ 390kJ/mol と見積られた。結論として、東工大で作製した RS-SiC 試料は好ましい耐酸化性能を有していると評価できた。ただし、製造上のプロセスにおいて、C が十分に拡散されず C-rich な領域が残存している可能性が指摘され、これにより材料が酸化時に損耗する可能性があるため、均一な SiC 組成となるように制御することが課題であると考えた。



### (3) 反応焼結 SiC の酸化挙動および酸化メカニズムの解明【R5】

#### ① 反応焼結 SiC の passive/active 酸化転移挙動の解明

昨年度までの研究で、高温ガス炉空気侵入事故時を想定した空気酸化においては、SiC は passive 酸化モードを示し、著しい酸化腐食は見られないことを明らかにしたが、通常運転時のヘリウム冷却材に含まれているとされるおおよそ 0.04ppm の不純物酸素<sup>(10)</sup>や、一次系に酸素が微量に混入する等の過渡変化を想定した低酸素濃度における active 酸化の可能性を検討する必要がある(図 3.2-45)。本研究では、表 3.2-6 に示す実験条件で、TG-DTA 装置を用いて市販の反応焼結 SiC (RS-SiC、佐藤鉄工製) の酸化試験を行った。

図 3.2-46 に TG-DTA 装置を用いて試験 1 (酸素濃度 1ppm、流量 50~300mL/min、1400°C、30 分) の条件で行った酸化試験における RS-SiC の重量変化を示す。流量の増大に伴い、SiC 酸化による重量変化が負から正へと変化していることから、酸化モードについて active-to-passive 転移が起こっているものと考えられる。Hertz-Knudsen-Langmuir らの理論<sup>(11)</sup>により、active-to-passive 転移が起こる酸素分圧は以下の式で与えられることが知られている。

$$P_{O_2}^{\text{active-to-passive}} = \frac{P_{O_2}^{SiC/SiO_2}}{h_{O_2}} \left( \frac{RT}{2\pi M_{SiO}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.2-2)$$

ここで、 $P_{O_2}$  は SiC/SiO<sub>2</sub> 界面における酸素の平衡圧力、 $R$  は気体定数、 $T$  は絶対温度、 $M_{SiO}$  は SiO の分子量 (g)、 $h_{O_2}$  は酸素の質量伝達係数であり、質量伝達係数は以下の式 (3.2-3) で与えられる。

$$h_{O_2} = 0.664 \left( \frac{D_{O_2}^2 \rho}{\eta} \right)^{\frac{1}{6}} \left( \frac{v}{L} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.2-3)$$

ここで、 $D_{O_2}$  は酸素の拡散係数、 $\rho$  は気体密度、 $\eta$  は粘度、 $v$  はガス流速、 $L$  は試料寸法である。これらの式を本実験結果に単純に適用すると、高いガス流速  $v$  で  $h_{O_2}$  が増加することから、他のパラメーターが一定であると仮定すると、 $P_{O_2}^{\text{active-to-passive}}$  が低くなることになる。以上のことから、高い流量で  $P_{O_2}^{\text{active-to-passive}}$  は低くなり、それによって active 酸化から passive 酸化への転移が起こるものと考えられ、本実験の結果から、理論モデルを実証することができた。

図 3.2-47 に試験 2 (温度 1300/1400°C、酸素濃度 0.3/1ppm) の条件下での RS-SiC の推定される passive 酸化反応速度と流量との関係を示す。流量を増大させると passive モードであることは変わらず、酸化反応速度が増大する傾向が見られた。DG モデルでは、高い流量においてガス境界でのカーボンの拡散フラックス ( $F_{CO}$ ) が高くなることで CO ガス濃度勾配が小さくなり、その結果、全体的な酸化反応が加速されることになり、上記モデルに基づくと、passive 酸化反応速度と流量の間に比例関係が成り立つことがわかる。

得られた結果をもとに、RS-SiC の passive/active 酸化転移ダイアグラムのデータを拡張した (図 3.2-48)。図 3.2-48 から、燃料母材の健全性を維持するためには passive 酸化領域の温度・酸素濃度条件のもとで運転制御する必要があることが示唆された。

## ② 反応焼結 SiC 燃料母材の空気侵入事故時における passive 酸化膜成長メカニズムの解明

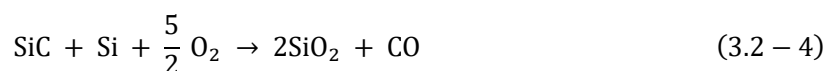
本研究において、これまで SiC 母材の passive/active 酸化転移挙動およびその酸化反応速度を評価した。一方、空気侵入事故時の空気酸化における SiC の酸化膜の成長メカニズムやその微細構造については未だ理解されていない点が多い。本実験では、1000-1400°Cにおいて 10 時間、空気酸化を行い、酸化後試料に生成した酸化膜を観察した。

図 3.2-49 に市販の RS-SiC (Si-less) を円柱状に加工した試料表面の酸化前後の SEM 像を示す。酸化前試料 (図 3.2-49 (a) および (b)) では、粒子および試料加工による粗い表面が観察されたが、酸化後試料 (図 3.2-49 (c) および (d)) では、同試料表面で場所による微細構造の違いが見られるが、表面に密なガラス状の酸化層が生成している様子が観察された。酸化膜中に見られるクラックは、酸化物相と SiC との熱膨張差に起因して生成したものと考えられる。図 3.2-50 に、上記酸化試験後試料の断面の SEM 像を示す。SiC 表面に厚さ約 1.6-4.1  $\mu\text{m}$  の酸化層が観察された (図 3.2-50 (a) および (b))。また、図 3.2-50 (c) および (d) で示すように、酸化後の SiC 表面に島状の酸化物が生成した領域も観察された。断面 SEM 像から島状の酸化物の厚さと幅を測定したところそれぞれ約 10  $\mu\text{m}$  と 80  $\mu\text{m}$  であった。

空気侵入事故時の RS-SiC マトリックスの燃料安全性を評価するために、本研究で反応焼結により作製した RS-SiC (Si-rich) の酸化挙動について以下の通り考察した。本研究で作製した RS-SiC の酸化試験前の SiC および Si の組成を表 3.2-7 に示す。表 3.2-7 に示すように、それぞれの温度の酸化試験で使用した RS-SiC 試料には約 10%の残留 Si が含まれていた。1400°Cでの酸化試験前後の RS-SiC (Si-rich) の XRD パターンを図 3.2-51 に示す。1400°Cでの酸化試験後の RS-SiC (Si-rich) 表面にはクリストバライト ( $\text{SiO}_2$ ) が生成していた。図 3.2-52 に、空气中、1400°Cで 10 時間酸化した後の RS-SiC 試料 (Si-rich) 断面図の二次電子像 (SEM 像) および SEM-EDX による C、Si および O 元素マッピング結果を示す。SEM-EDX 結果から、1400°Cでの酸化試験後の RS-SiC (Si-rich) 表面には Si および O からなる緻密な酸化層が形成されていることがわかる。また、上で報告した RS-SiC (Si-less) で見られた島状の酸化物は RS-SiC (Si-rich) 表面には観察されなかった。

1400°Cでの酸化試験後の RS-SiC (Si-rich) 表面に形成した酸化層の平均厚さはおよそ 20  $\mu\text{m}$  であり、RS-SiC (Si-less) 表面に形成した酸化層厚さの 5 倍以上の厚さであった。これは、マトリックス内の SiC に加えて残留 Si の酸化が影響しているものと考えられた。SiC/ $\text{SiO}_2$  界面にはおよそ 2  $\mu\text{m}$  の Si の濃化した領域が見られた。これは 1400°C以上では熔融 Si が選択的に界面に拡散し、酸化中に Si が濃化すると考えられ、Hijikata らが提案する Si 原子放出モデル<sup>(12)</sup>を支持する結果となった。1000、1200 お

よび 1400°C、10 時間、大気中での酸化による RS-SiC (Si-less) および RS-SiC (Si-rich) の総重量増加量の比較を表 3.2-8 にまとめた。RS-SiC (Si-rich) の総重量増加量は、酸化試験温度が高いほど多く、1400°Cで酸化による重量増加が加速される傾向を示した。これは、式 (3.2-4) の反応式で示す SiC に加えて残留 Si の酸化によって質量増加が加速すると考えられ、Avincola ら<sup>(13)</sup> と Liu ら<sup>(14)</sup> の報告する SiC 中の Si 不純物が空気中での酸化を促進する結果と一致していることがわかった。



以上のことから、反応焼結により作製した SiC 燃料母材の酸化挙動を明らかにすることができ、SiC の酸化データを充実させることができた。

### 参考文献

- (1) J. M. Bind, *Materials Research Bulletin*, 13, 91-96(1978).
- (2) H. Ott, *Acta Crystallographica B* (24, 1968-38, 1982), 25, 477-488, (1969).
- (3) N. W. Thibault, *Journal of Materials Science*, 14, 2013-2013 (1979).
- (4) P. Scherrer, P. Debye, *Physikalische Zeitschrift*, 18, 291-301 (1917).
- (5) O.P. Chakrabarti, J. Mukerji, *Bull. Mater. Sci.*, 16, 325-329 (1993).
- (6) D. Das, J. Farjas, P. Roura, *Journal of the American Ceramic Society*, 87, 1301-1305 (2004).
- (7) C. Eric Ramberg, Wayne L. Worrell, *Journal of the American Ceramic Society*, 84, 2607-2616 (2001).
- (8) B. Chayasombat, T. Kato, T. Hirayama, T. Tokunaga, K. Sasaki, K. Kuroda, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 120, 181-185 (2012).
- (9) Y. Nishimura, A. Gubarevich, K. Yoshida, K. Okamoto, *Mech. Eng. Lett.*, 8, 22-00315 (2022).
- (10) N. Sakaba, S. Nakagawa, T. Furusawa, K. Emori, Y. Tachibana, *Trans. At. Energy Soc. Japan*, 3, 388-395 (2004).
- (11) C. Wagner, *J. Appl. Phys.* 29, 1295-1297 (1958).
- (12) Y. Hijikata, H. Yamaguchi, and S. Yoshida, *Appl. Phys. Express*, 2, 021203-1 021203-3 (2009).
- (13) V. A. Avincola, M. Grosse, U. Stegmaier, M. Steinbrueck, H. J. Seifert, *Journal of Nuclear Engineering and Design*, 295 (15), 468-478 (2015).
- (14) H. Liu, Y. Chen, Z. Gao, N. Rohbeck, P. Xiao, *Corrosion Science*, 219, 111209 (2023).

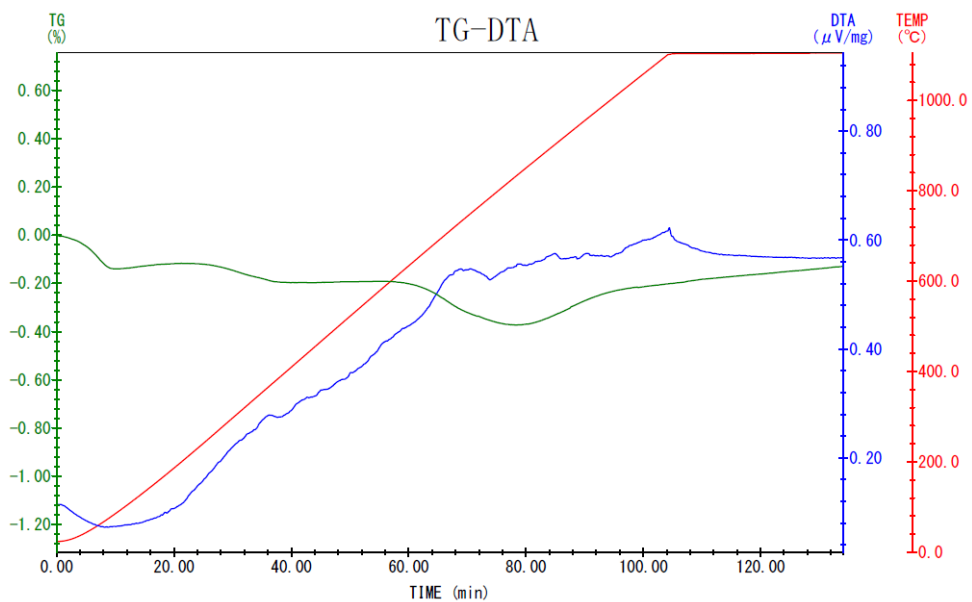


図 3.2-31 TG-DTA による大気中での反応焼結 SiC ボールの酸化試験 (保持温度 1100°C)

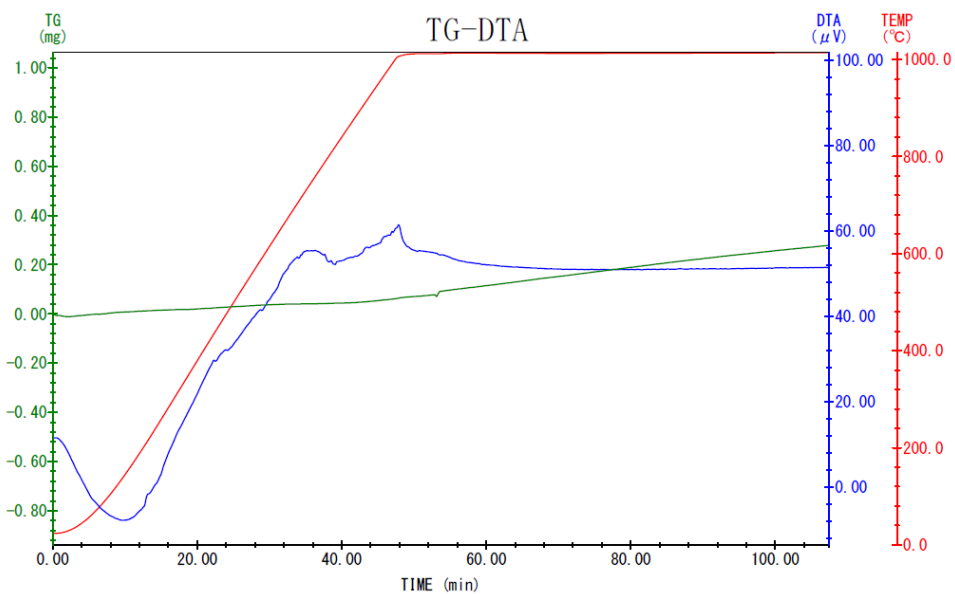


図 3.2-32 TG-DTA による乾燥空気フローにおける反応焼結 SiC ボールの酸化試験 (保持温度 1000°C)

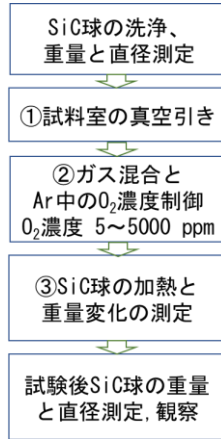


図 3.2-33 TG-DTA 装置を用いた SiC の酸化試験の流れ

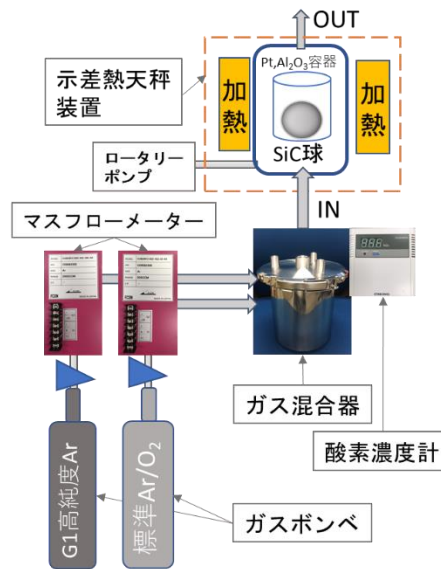


図 3.2-34 酸素濃度を制御した雰囲気下における SiC の酸化試験装置の概略図

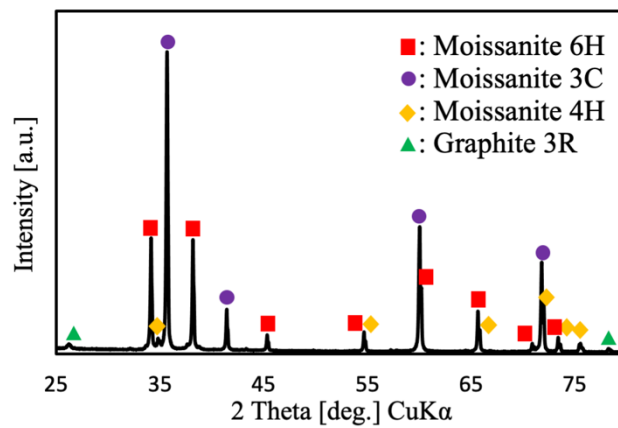


図 3.2-35 RS-SiC ボールの XRD パターン

表 3.2-5 TG-DTA による酸化試験の測定条件

パラメータ	値
温度 [°C]	800~1400
酸素濃度	1 ppm~20 %
昇温速度	20 °C/min
ガス流速	50 mL/min
酸化時間	30 min

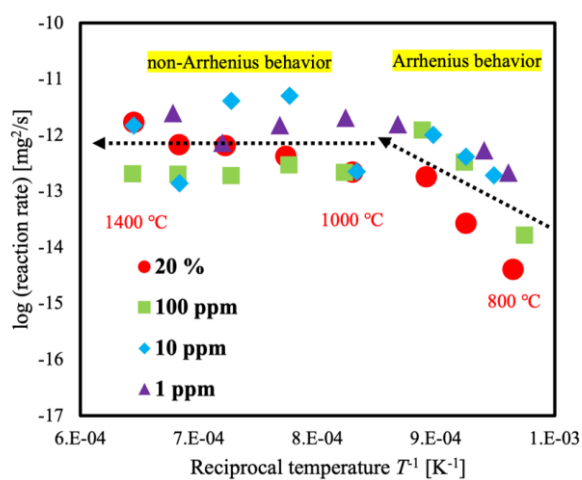


図 3.2-36 RS-SiC の passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)

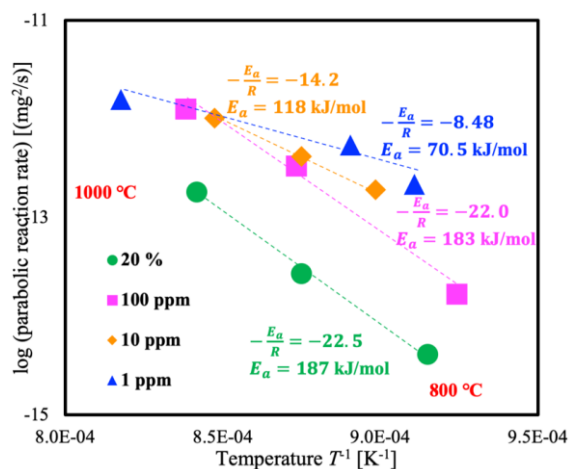


図 3.2-37 RS-SiC の低温側(800~1000°C)における passive 酸化速度と温度の関係:  
活性化エネルギーの算出

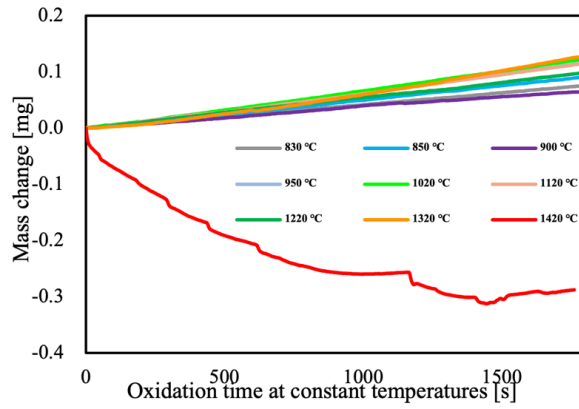


図 3.2-38 酸素濃度 1ppm における RS-SiC 酸化中の重量変化

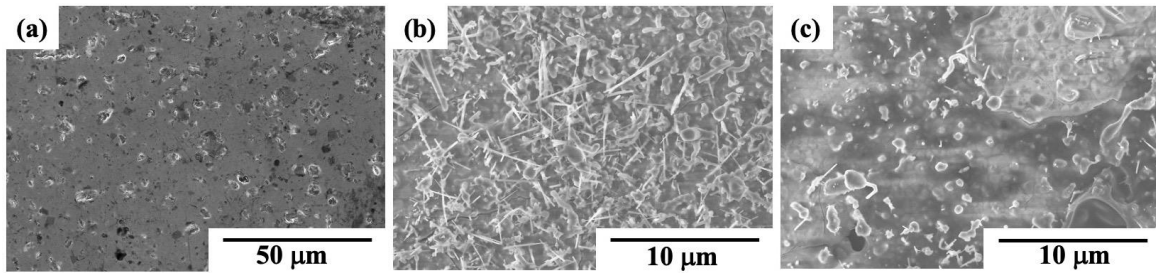


図 3.2-39 (a)酸化試験前および(b, c)酸化試験後の RS-SiC ボール表面の SEM 写真

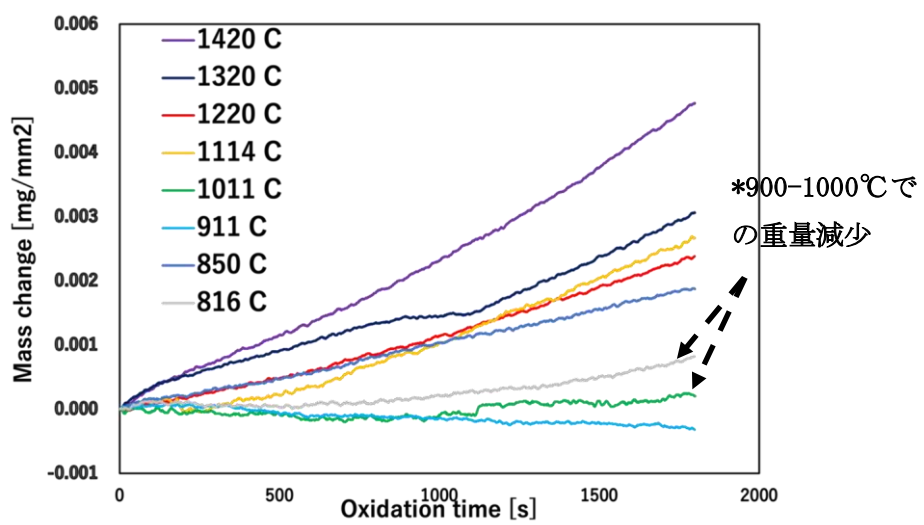


図 3.2-40 空気酸化における RS-SiC 試料の重量変化

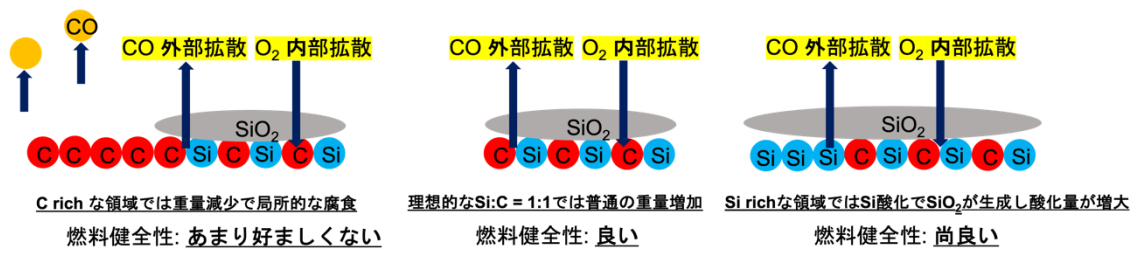


図 3.2-41 SiC における C と Si の含有率が酸化挙動に及ぼす影響の考察

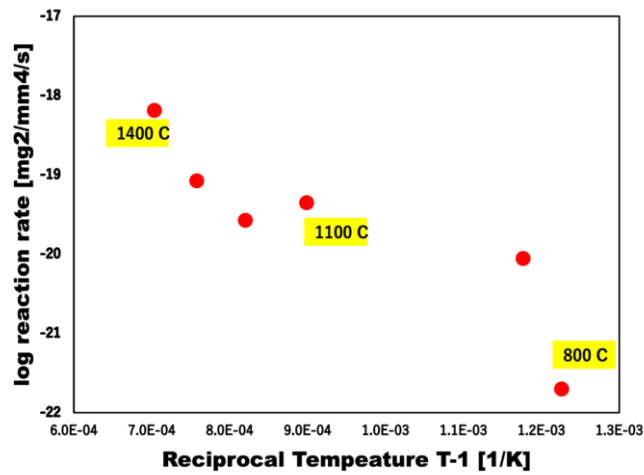


図 3.2-42 RS-SiC 試料の空気酸化における passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)

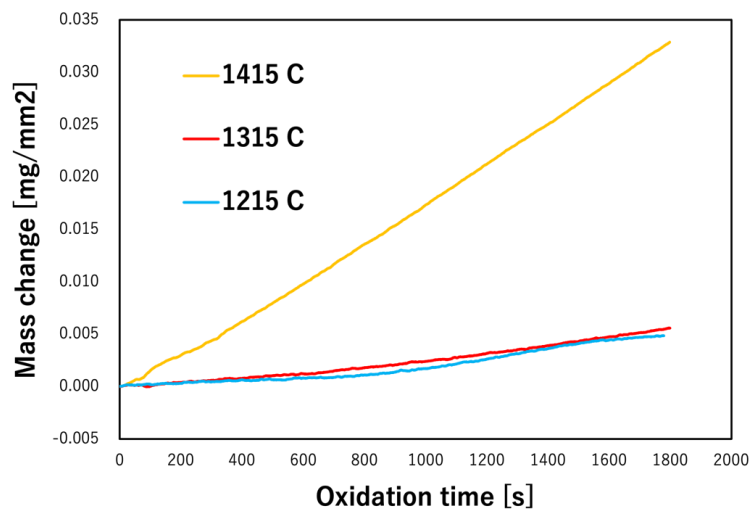


図 3.2-43 RS-SiC 試料の酸素濃度 1ppm における酸化中の重量変化



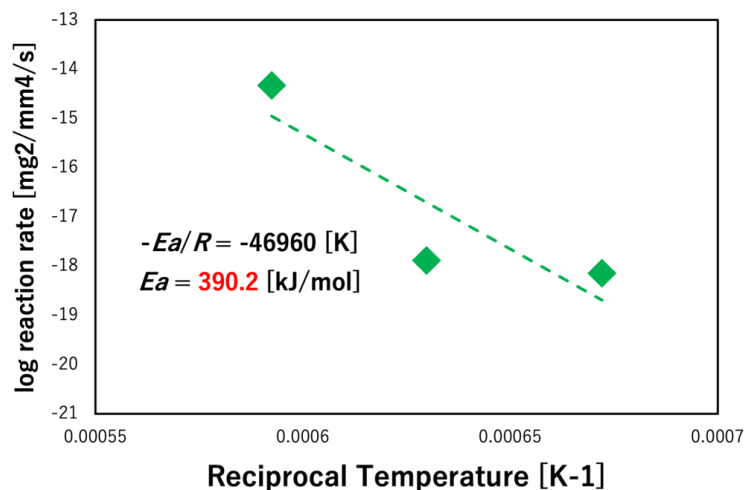


図 3.2-44 RS-SiC サンプルの 1ppm 酸化で得られた passive 酸化速度と温度の関係 (アレニウスプロット)

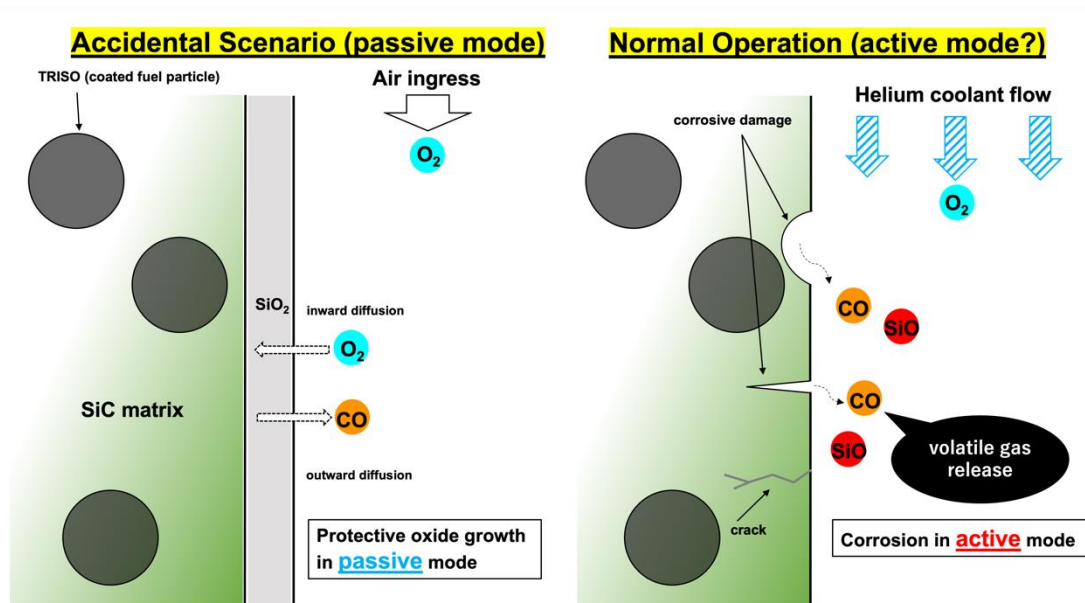


図 3.2-45 高温ガス炉燃料の安全性に関する passive/active 酸化モードの模式図

表 3.2-6 TG-DTA による RS-SiC の酸化試験条件

	試験温度 [°C]	酸素濃度 [ppm]	流量 [mL/min]	保持時間 [min]
試験 1	1400	1	50-300	30
試験 2	1300/1400	0.3/1	100-300	30

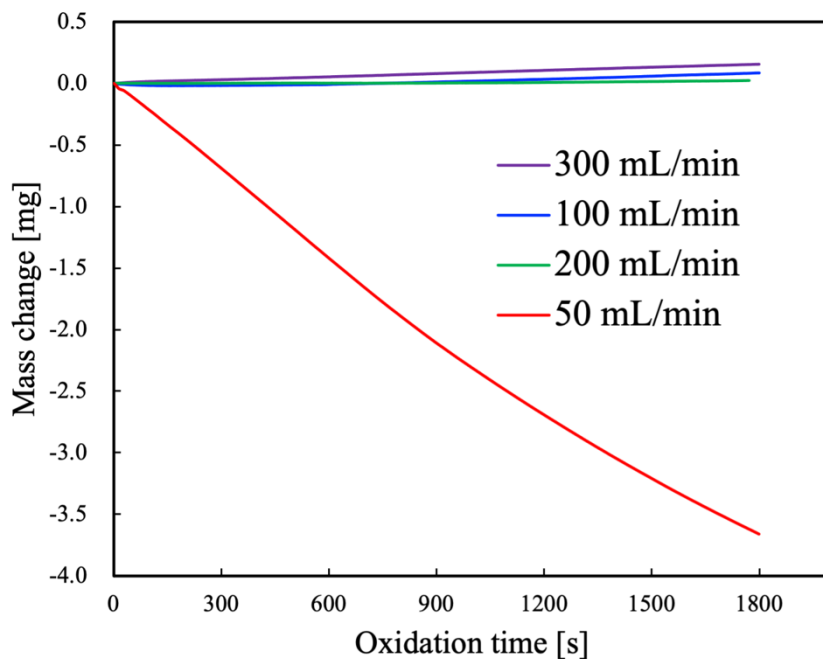


図 3.2-46 TG による酸素濃度 1ppm、流速 50~300mL/min、1400°C で 30 分間酸化した RS-SiC の重量変化

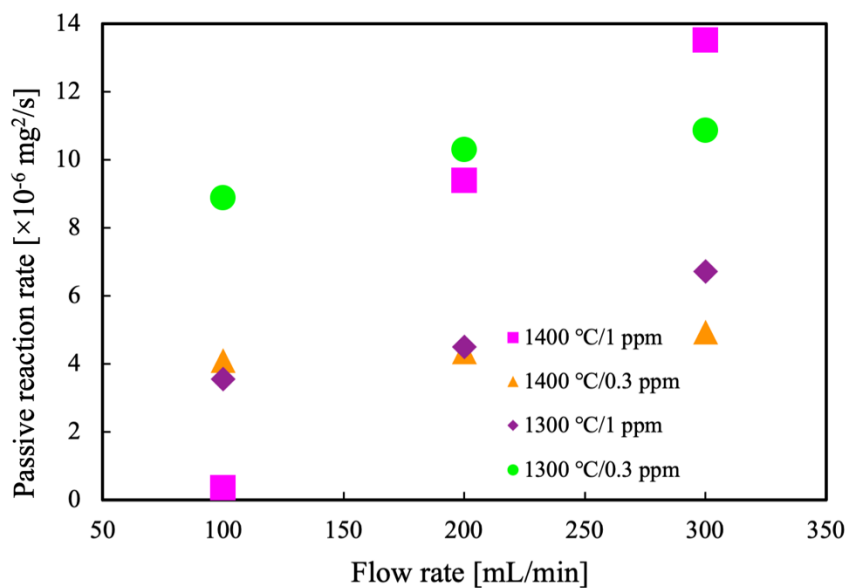


図 3.2-47 1300/1400°C、0.3/1ppm の条件下での RS-SiC の推定される passive 酸化反応速度と流量との関係

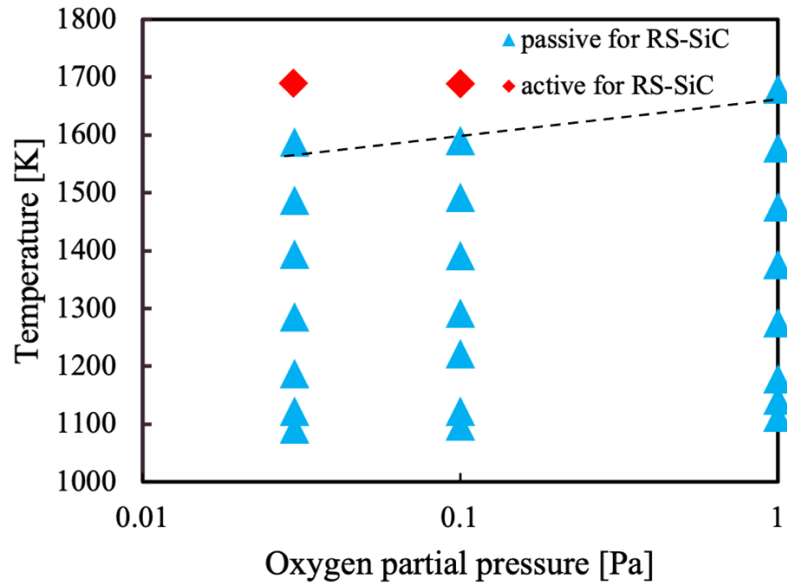


図 3.2-48 本研究で得られた結果をもとに作成した RS-SiC の passive/active 酸化転移ダイアグラム

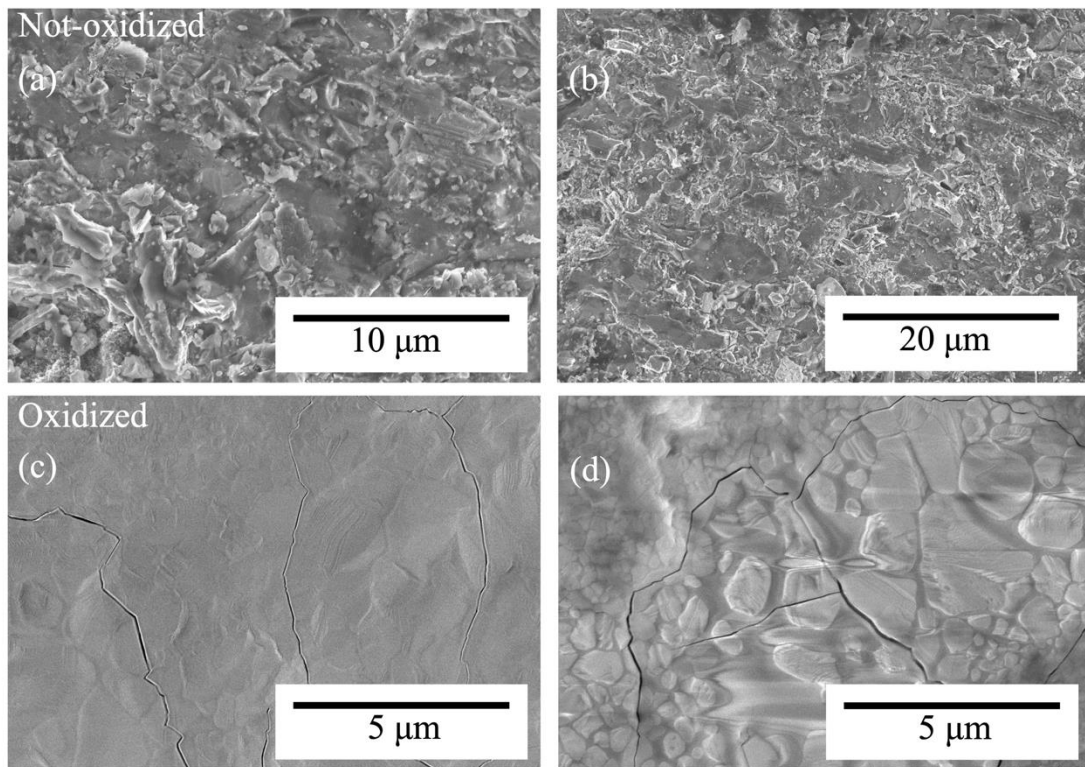


図 3.2-49 市販の RS-SiC (Si-less) を円柱状に加工した試料表面の酸化前後の SEM 像 (酸化試験条件 ; 1400℃、10 時間)

(a) および (b) 酸化前試料表面、(c) および (d) 酸化後試料表面

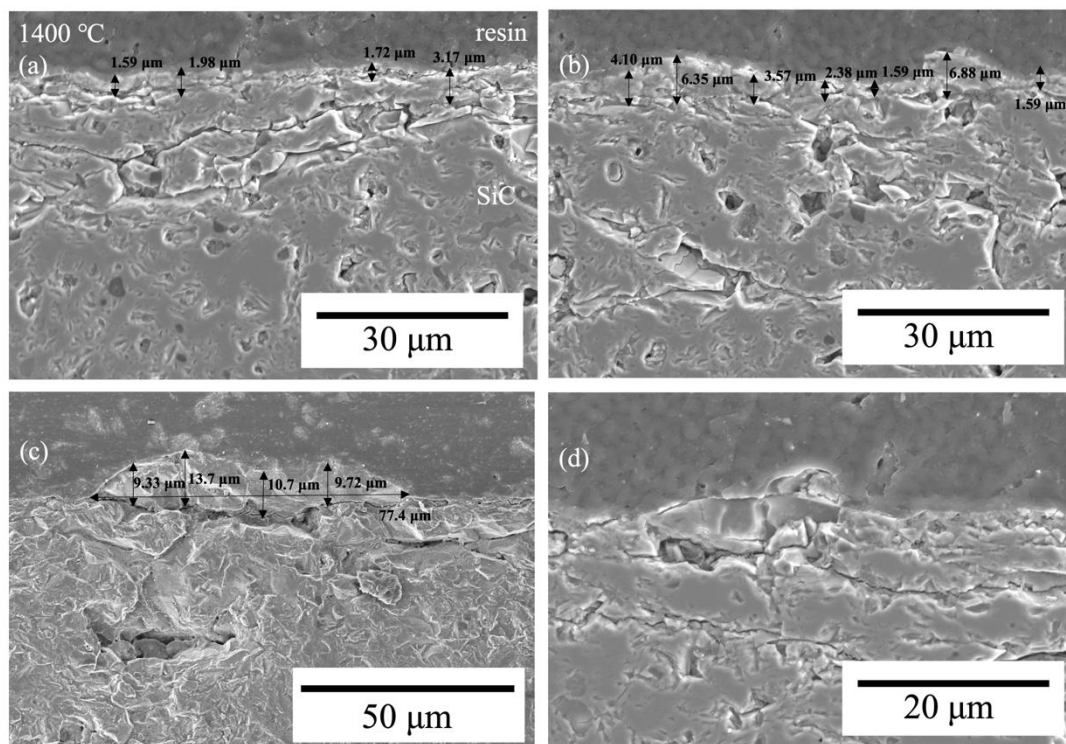


図 3.2-50 市販の RS-SiC (Si-less) を円柱状に加工した試料表面の酸化後の断面 SEM 像 (酸化試験条件 ; 1400°C、10 時間)

表 3.2-7 本研究で作製した RS-SiC (Si リッチ) の酸化試験前の SiC および Si の組成

酸化試験温度 [°C]	SiC [wt%]	Si [wt%]
800	89.5	10.5
1000	90.1	9.90
1200	89.7	10.3
1400	89.7	10.3
平均値	89.8	10.2
標準偏差	0.25	0.31

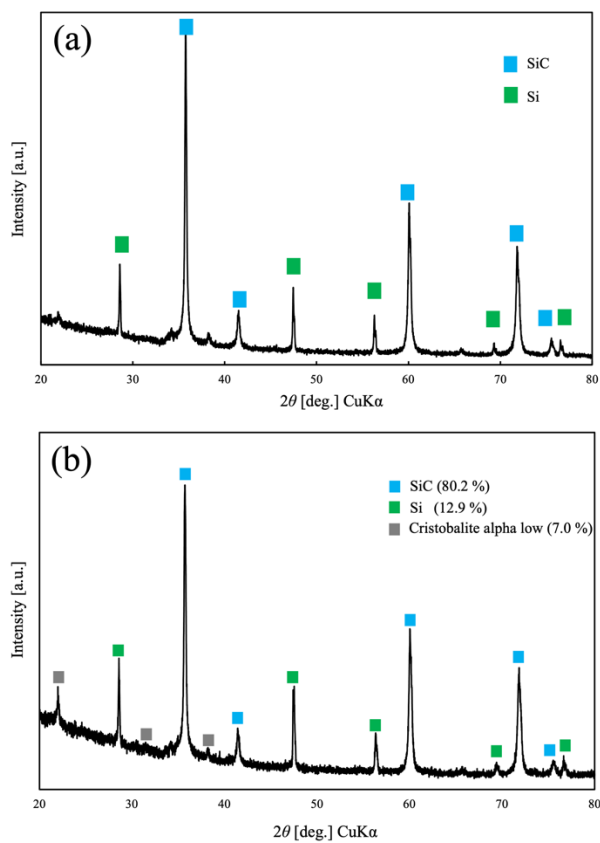


図 3.2-51 1400°Cでの酸化試験前後のRS-SiC (Si リッチ) のXRDパターン  
(a) 酸化試験前、(b) 酸化試験後

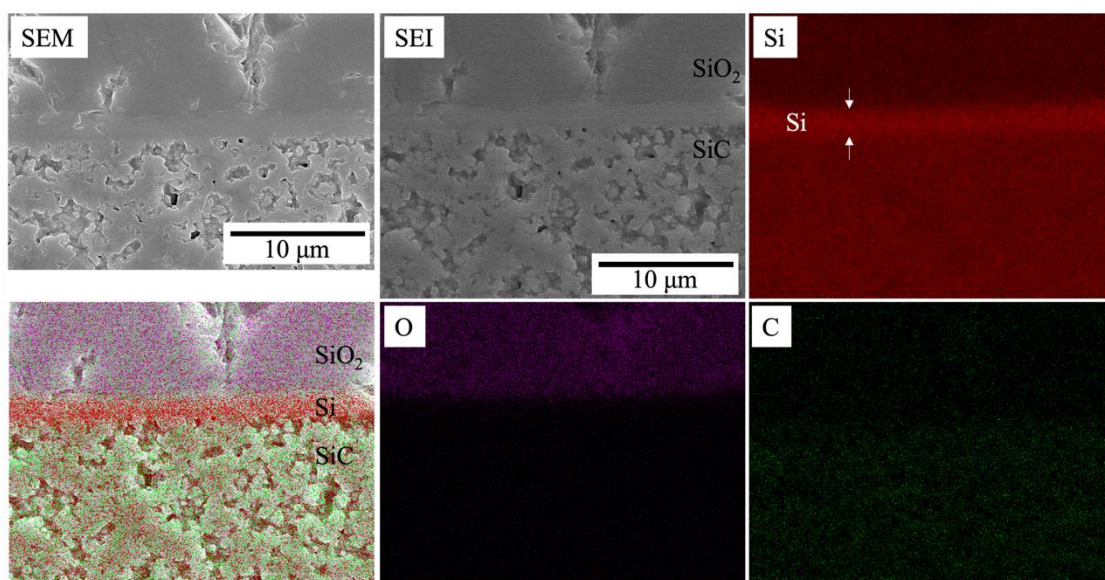


図 3.2-52 空气中、1400°Cで10時間酸化した後のRS-SiC試料 (Si-rich) 断面図の二次電子像 (SEM 像) およびSEM-EDXによるC、SiおよびO元素マッピング

表 3.2-8 1000、1200 および 1400°C、10 時間、大気中での酸化による RS-SiC (Si-less) およ  
 び RS-SiC (Si-rich) の総重量増加量の比較

酸化試験温度 [°C]	総重量増加量 [wt%]	
	RS-SiC (Si-less)	RS-SiC (Si-rich)
1400	0.691	2.078
1200	0.556	0.676
1000	0.450	0.418

注記： RS-SiC(Si-less) : SiC 試験片  
 RS-SiC(Si-rich) : SiC コンパクトモデル

### 3.3 実機成立性評価(再委託先：原子力機構)

#### (1) パラメータ範囲及び境界条件を明確化【R3-R4】

令和3年度～4年度の計算結果を用いて、SiC酸化評価コードが考慮すべき、崩壊熱等のパラメータ範囲及び境界条件を明確化した。具体的には、炉内温度分布、及び崩壊熱の評価に必要な出力密度分布等のパラメータについて、炉心設計が成立する範囲を示した。

##### ①はじめに

HTTR (High Temperature Engineering Test Reactor) <sup>(1)</sup>のようなピンインブロック型の高温度ガス炉では、燃料コンパクトは図 3.3-1 に示すように耐酸化性を有する黒鉛スリーブに収納され、空気侵入事故時の燃料コンパクトの酸化を防いでいる。燃料コンパクトは黒鉛スリーブ越しに冷却されるが、燃料コンパクトと黒鉛スリーブの間にはギャップがあり、燃料の効果的な冷却を妨げている。燃料コンパクトの母材を従来の黒鉛から炭化ケイ素 (SiC) に換える (SiC 母材燃料コンパクトと呼ぶ) ことにより、燃料コンパクトに耐酸化性能を持たせて黒鉛スリーブを廃することができる。また、従来の燃料コンパクトとスリーブ間のギャップが無くなるため、燃料の冷却性能の向上が期待できる。

HTTR や HTTR をベースに設計が行われた HTR50S <sup>(2)</sup> といったピンインブロック型高温ガス炉では、通常運転時の燃料最高温度に熱的制限値 (1495 °C) が設定されており、この温度を超えないように炉心設計が行われる。従来のスリーブ付き燃料を上述の SiC 母材燃料コンパクトに換えた場合、燃料最高温度は低下する。言い換えれば、出力密度の向上、即ち原子炉出力の向上が期待できるが、どの程度、原子炉出力の向上できるかは明確ではない。そこで本研究では、SiC 母材燃料コンパクトの導入による原子炉出力向上の大きさを明確にすることを目的とし、HTR50S をベースに SiC 母材燃料コンパクトを装荷して、原子炉出力を 60 MW に増加させた高温ガス炉 (HTR60S-SiC) の炉心設計が成立する範囲を調査した。

##### ②HTR60S-SiC 炉心設計の概要

###### 構造

炉心の構造を図 3.3-2 に示す。炉心寸法、燃料体、反射板ブロック、制御棒案内ブロックの配置は HTR50S と同一とする <sup>(1)</sup>。対照的に、原子炉出力や平均出力密度は HTR50S とは異なる。炉心は 3 種類の六角柱ブロック (燃料ブロック、制御棒案内ブロック、可動反射体ブロック) を積み上げて構成され、それらは固定反射体で囲まれている。軸方向に上から順に 1st layer から 6th layer の 6 層の燃料ブロックが積み上げられ、一方で径方向には中心から近い順に燃料領域番号が 1 から 4 まで付与された合計 30 体の燃料ブロックが配置される。すなわち炉心全体で 180 体 (=6×30) の燃料ブロックが装荷される。六角柱ブロックは高純度の黒鉛 (IG-110) 製で、面間距離 36 cm 及び高さ 58 cm は、3 種類のブロックで同じである。冷却材はヘリウムが用いられ、炉心上部から下部へと下向きに流れる。

###### 燃料

燃料の構成を図 3.3-3 に示す。燃料として、核分裂生成物の閉じ込め機能を持つセラミックス被覆を 4 層とした被覆燃料粒子を用いる。被覆燃料粒子は体積充填率 30%で燃料コンパ



クトに充填される。複数の燃料コンパクトからなる燃料棒計 33 本を六角柱黒鉛ブロックに施された冷却孔に装荷することで、燃料ブロックを構成する。なお、燃料コンパクトは、令和 3 年度の設計では、HTR50S と同じ寸法であるのに対して、令和 4 年度の設計では、燃料インベントリ量はそのままに、径方向の厚さを約 5mm まで薄くすることで除熱性能を向上させた。また、令和 4 年度までの成果を反映し、燃料コンパクトの中央に SiC の支持棒を装荷し、燃料コンパクトの内側と外側を流れる冷却材の流量配分の最適化(内側 39%、外側 61%)を図った(図 3.3-4)。

### **反応度制御機構**

反応度制御は、制御棒と可燃性毒物(BP : Burnable Poison)を用いて行う。制御棒の炉心への挿入量が大きくなると、炉内の出力分布が歪み、その結果、燃料温度が熱的制限値(1495 °C)を超える。そのため、制御棒の炉心への挿入量を、燃焼期間を通してできるだけ小さく保つ必要がある。そこで、燃焼に伴う反応度変化の補償は、燃焼期間を通して主に BP を用いて行う。

#### **1) 制御棒**

制御棒の挿入位置を図 3.3-2 に示す。制御棒は、燃料領域に 7 対(計 14 本)、可動反射体領域に 6 対(計 12 本)装荷する。制御棒の中性子吸収体は炭化ホウ素と黒鉛粉末の混合焼成体である。

制御棒の長さは約 370 cm で、制御棒案内ブロックに施された縦方向の孔を通して炉心上部から挿入され、最大で燃料領域の下端部まで挿入される。各制御棒案内ブロックには、3 つの縦方向の孔が施されており、2 つが制御棒用で、残りの 1 つは後備停止系(RSS : Reserved Shutdown System)用である。

#### **2) 可燃性毒物**

炭化ホウ素と黒鉛粉末の混合焼成体を BP として用いる。BP は棒状にして燃料ブロックのダウエルピンの下に施された孔に挿入する。1 つの燃料ブロックにつき 2 本の棒状 BP を装荷する。

#### **3) 後備停止系**

制御棒案内ブロックには 3 つの孔を施し、そのうちの 1 つを後備停止系用とする。制御棒が何らかの理由で炉心に挿入できなくなった場合、多数の炭化ホウ素と黒鉛粉末の混合焼成体のペレットを、重力により孔に落下させることで、原子炉を停止することができる。

### **出力分布の最適化**

燃料濃縮度及び BP の配置は、径方向の出力密度分布を平坦化し、かつ初装荷燃料のウラン濃縮度を低減させるように行った。令和 3 年度と令和 4 年度の違いは、燃料コンパクトの寸法、燃料濃縮度及び BP の配置であり、それ以外は同じである。設計のベースとなった HTR50S と異なる項目については、設計の仕様(表 3.3-1)に纏める。



経済性の観点から、HTR50Sと同様に3種類の燃料濃縮度及び2種類の直径のBPを用いて出力分布の最適化を図った。燃焼期間中に制御棒の挿入量が大きくなると、最適化した出力分布の形が軸方向に歪み、出力密度が局所的に大きくなり、結果として燃料最高温度が制限値を超える。そこで、燃焼期間にわたり過剰反応度を小さく保ち、制御棒の炉心挿入量が小さく保たれる（制御棒位置が燃料領域1層目の底面より上に保たれる）ようにした。また、通常出力運転時において、燃料ブロック1層目（1st layer）の反応度は制御棒で制御し、燃料ブロック2層目（2nd layer）から燃料ブロック6層目（6th layer）の反応度はBPで制御する考えから、1st layerにはBPを装荷しないこととした。具体的な燃料濃縮度及びBPの配置を表3.3-2及び表3.3-3に示す。燃料濃縮度については、1st layerには13.6wt%、2nd layer及び3rd layerには10.7wt%、4th layer以降には7.6wt%の濃縮度の燃料ブロックを配置することにした。BPについては、全て同じ濃縮度とした上で、2nd layer及び3rd layerには直径18mm、4th layer以降には直径13mmのBPを配置することにした。

### ③評価方法

原子炉出力50 MW、燃焼期間730日の高温ガス炉であるHTR50Sをベースに、SiC母材燃料コンパクトを装荷し原子炉出力を60 MWに増加させた高温ガス炉（HTR60S-SiC）に対して成立する範囲を確認する。具体的には、両側冷却の流量配分割合をパラメータとして、以下の炉心燃焼計算上の炉心設計の成立性のチェックポイントである①～③、及び燃料温度計算上の炉心設計の成立性のチェックポイントである④と⑤を確認する。両側冷却の流量配分の調整は、オリフィス等を活用して行うことを想定する。①は、燃焼期間730日が可能なことを確認するものである。②は、炉内の温度上昇に対して負の反応度フィードバックが働くことを確認するものである。③は、炉心が有する過剰反応度が最も大きくなる炉心温度が室温（=300 K）かつ初装荷燃料の炉心という条件下で、最も反応度値が大きい制御棒1対が炉心に挿入できない状況であっても、原子炉を停止させることが可能であることを確認するものである。④は、通常運転時の燃料温度が制限値以下であることを確認するものである。⑤は、通常運転時の燃料核移動距離が制限値以下であることを確認するものである。なお、通常運転時の燃料温度が制限値以下を確保できれば、異常事象時においても燃料の健全性が確保できる。

- ① 燃焼末期の過剰反応度が確保されていること
- ② 燃焼期間にわたり反応度温度係数が負であること
- ③ ワンロードスタック時の炉停止余裕が確保されていること
- ④ 燃焼期間中の燃料最高温度が熱的制限値（1495 °C）以下であること
- ⑤ 燃焼末期の燃料核移動距離が制限値（55 μm）以下であること

炉心燃焼計算はLINUX計算機上（CentOS Stream 9）に整備したSRAC2006EX<sup>(3)</sup>コードシステムを用いて行った。SRAC2006EXは、被覆燃料粒子に起因する二重非均質性を考慮した計算ができるように、SRAC2006<sup>(4)</sup>コードシステムを改良したものである。SRAC/PIJコード<sup>(4)</sup>を用いセル燃焼計算を行って少数群断面を作成し、作成した少数群断面とSRAC/COREBNコー

ド<sup>(4)</sup>を用い 3 次元炉心燃焼計算を行って実効増倍率及び出力分布を計算した。炉心燃焼計算は、燃焼日数毎に臨界になるように制御棒位置を変えながら行った。具体的には、各燃焼ステップにおいて、実効増倍率の計算結果が 1 に最も近くなる制御棒位置の条件で 3 次元炉心燃焼計算を行って炉内の組成情報を持つヒストリファイルを作成し、そのヒストリファイルを用いて次の燃焼ステップの計算を行った。燃料温度計算は LINUX 計算機上 (CentOS Stream 9) に整備した高温ガス炉用燃料温度計算コード FTCC<sup>(5)</sup>を用いて行った。

#### ④結果<sup>(6)</sup>

##### 1) 過剰反応度

通常運転時における制御棒位置の燃焼に伴う変化を図 3.3-5 に示す。制御棒位置は過剰反応度の大きさを示し、過剰反応度が大きいと制御棒の炉心装入量も大きくなる。制御棒は炉心上部から挿入され、全挿入時は燃料領域の底面まで挿入される。制御棒位置は燃料領域底面から制御棒先端部までの距離であり、全挿入時の制御棒位置は 0 cm で、燃料領域の上面まで引き抜かれた時の制御棒位置は 348 cm である。また、径方向の出力分布を平坦にするため、制御棒は径方向については同じ高さとなっている。制御棒位置は燃焼期間にわたり燃料領域 1 層目の底面 (290 cm) より上であり、設計方針通り、燃焼期間にわたり過剰反応度を小さく保つことができた。

##### 2) 反応度温度係数過剰反応度

通常運転時における反応度温度係数の燃焼に伴う変化を図 3.3-6 に示す。燃焼期間全体にわたり、反応度温度係数が負であり、炉内の温度上昇に対して負の反応度フィードバックが働くことが確認できた。

##### 3) 炉停止余裕

炉心温度 300 K かつワンロードスタック時の炉停止余裕は  $18.5\% \Delta k/k$  であり、最も反応度値が大きい制御棒 1 対が炉心に挿入できない状況であっても、原子炉を停止させることが可能であることを確認することができた。

##### 4) 燃料温度・5) 燃料核移動距離

燃焼初期(10 日)、燃焼中期(300 日)、燃焼末期(730 日)における出力密度分布を図 3.3-7~3.3-9 に示す。出力密度分布は、平坦化され、理想曲線<sup>(7)</sup>に近い形状となっていることが見て取れる。

これらの出力密度分布を基に計算される燃料最高温度は、1284 °C である。燃焼期間中の燃料最高温度が熱的制限値 (1495 °C) 以下となり、制限値を満足する。一方で、出力密度分布を基に計算した燃料末期における最大燃料核移動距離は、22  $\mu\text{m}$  である。燃焼末期の燃料核移動距離が制限値 (55  $\mu\text{m}$ ) 以下となり、制限値を満足する。ベースとなった HTR50S の設計での燃料最高温度、及び最大燃料核移動距離が、本設計よりも出力密度が 20%低いにも関わらず、それぞれ 1464 °C、及び 53  $\mu\text{m}$  と評価されていることを踏まえると、本 HTR60S-SiC の炉心設計は、極めて高い除熱能力があることがわかった。

## ⑤まとめ

HTR60S-SiCの炉心設計が成立する範囲が明らかになった。具体的には、パラメータ範囲は、図 3.3-7～9 に示す出力密度であり、2～12W/cc となる事を示した。この出力密度から崩壊熱などを求めることができる。また、境界条件としては、表 3.3-1 に示す燃料コンパクトの寸法として明確化した。

## (2) 事故時の解析【R5】

### ①事故時の解析の概要

本研究では、SiC 母材の燃料コンパクトを採用した高出力密度高温ガス炉（HTR60S-SiC 炉心）の事故解析を行い、実機の成立性を評価する。具体的には、高温ガス炉の安全評価で用いた 2 次元非定常伝熱解析コード（TAC-NC）<sup>(8,9,10)</sup>を用いて減圧事故解析を行い、燃料最高温度が、現時点の受動的安全性を確保できる目標値（1400℃）を超えないことを確認することで、HTR60S-SiC 炉心の実機としての成立性を評価する。これにより SiC 母材の燃料コンパクトを採用した HTR60S-SiC 炉心は、受動的安全性を確保できることを示すことができる。

### ②評価方法

#### 1) 計算機

計算機の性能は、ハードウェアのメモリは 3.8GB、プロセッサは Intel(R) Pentium(R) CPU E2200 2.2GHz で Dual である。OS は LINUX を採用し、CentOS release 6.5 (final)、カーネルは Linux 2.6.32-431.el6.i686、GNOME 2.28.2 である。

#### 2) 伝熱解析コード

伝熱解析は 2 次元非定常伝熱解析コード（TAC-NC）<sup>(8,9,10)</sup>を用いて行った。

TAC-NC コードは、高温ガス炉における 1 次冷却材喪失事故（減圧事故）等の安全評価のため、汎用 2 次元伝熱計算コード（TAC-2D コード）に自然循環のモデルを組み込んだコードである。熱伝導、熱放射及び冷却材と構造物との熱伝達の計算に加えて、自然循環流量の計算、自然循環による冷却材と構造材との熱伝達の計算が可能である。

TAC-NC コード内に保有する自然循環解析モデルの検証については、配管破断時の空気侵入実験との比較解析を実施している。

TAC-NC コード全体の検証については、減圧事故時における空気の炉内侵入挙動を再現できる実験装置を用いた配管破断模擬試験との比較解析を実施している。

HTTR の安全評価においては、TAC-NC コードを使用し、減圧事故、1 次冷却設備二重管内管破損事故（加圧事故）等の事故時の均質化炉心の燃料温度及び原子炉圧力容器の温度を評価してきた。

#### 3) 事故解析

出力 50 MW、燃焼期間 730 日の高温ガス炉である HTR50S をベースに、SiC 母材燃料コンパクトを装荷し原子炉出力を 60 MW に増加させた HTR60S-SiC 炉心が成立する範囲を確認する。

原子炉出力 60MW の HTR60S-SiC 炉心について、定格運転状態から 1 次冷却設備二重管の破断による減圧事故を想定した。

2次元非定常伝熱解析コード (TAC-NC) を用いて、燃料最高温度と原子炉压力容器 (RPV) 最高温度を評価した。

一部、保守的な条件を含むノミナル評価条件を用いて、燃焼 0 日の燃料最高温度と RPV 最高温度を評価した。

減圧事故時の制限温度 (燃料 : 1600°C、RPV : 540°C\*1) 未満を満足できるのかを確認した。なお、\*1 は ASME Section III Division 5 によると、SA533 TypeB, 1000hr 以内である。

#### 4) 伝熱解析モデル

伝熱解析モデルを図 3.3-10 に示す。RPV の外側には VCS パネルを設け、側面パネルの内側には熱反射板 1 枚を設置する。境界条件となる VCS パネル温度は、現状の VCS の検討状況を反映して、通常運転時及び事故時共に 65°C を設定した。

#### 5) 冷却材流路データ

側部遮へい体の内側の炉側部流路と、燃料チャンネル流路を冷却材流路として考慮する。通常運転時 (定常解析) には炉側部流路を上昇し、上部プレナム空間で向きを反転して燃料チャンネル流路を下向きに流れる。

事故時 (過渡解析) には、冷却材流路の向きは指定せず、燃料チャンネル及び炉側部流路の冷却材のヘッド差で生じる自然循環の流れによって向きが決まる。

#### 6) ガス組成

1 次冷却設備二重管破断による事故時の冷却材圧力を 40 気圧から 2.5 気圧まで減少させた。同様に、ガス組成をヘリウム 100% から 60% まで減少させた。なお、HTTR の評価条件は、冷却材圧力を 2.5 気圧とし、ガス組成をヘリウム 60% としている<sup>(10)</sup>。

#### 7) 加圧事象

小型高温ガス炉では、受動的な安全性を十分活かす設計を目指している。減圧事故だけでなく、外部電源喪失等の運転状態として加圧異常事象 (冷却能力喪失事象) を想定する必要がある。このとき、評価上は停止時冷却系には炉内冷却を期待できない。冷却材の自然循環により炉内各部が昇温する可能性があり、適切な温度評価が必要である。そこで 1 次冷却設備二重管破断による事故時の冷却材圧力を 40 気圧に設定、ガス組成をヘリウム 100% と設定した。

#### 8) 炉心崩壊熱

原子炉スクラム後の炉心崩壊熱は、Shure の式の 1.2 倍にアクチニド崩壊熱を合計した。原子炉運転中の U-239 の生成率は、HTTR 安全評価時と同じ値 (燃焼 330 日の値の 1.2 倍) を使用した。

### ③結果

#### 1) 事故解析の初期条件

- 事故解析の初期条件を図 3.3-11 及び図 3.3-12 に示す。HTR50S<sup>(2,3,11)</sup>の原子炉出力 50MW 及び平均出力密度 3.5MW/cm<sup>3</sup> に対し、HTR60S-SiC の原子炉出力 60MW 及び平均出力密度 4.2MW/cm<sup>3</sup> と 1.2 倍も増加させたにもかかわらず、事故解析の初期状態の HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1125℃となり、RPV の最高温度は 252℃となった。

#### 2) 事故解析

- 事故解析を図 3.3-13 から図 3.3-26 に示す。1 次冷却設備二重管破断による事故時の冷却材圧力を 40 気圧から 2.5 気圧まで減少させた。同様に、ガス組成をヘリウム 100%から 60%まで減少させた。解析パラメータを表 3.3-4 にまとめる。その結果、減圧事故解析の HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1266℃～1304℃と変化した。温度は 38℃変化しただけであった。
- 減圧事故解析の HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 363℃～375℃と変化した。温度は 12℃変化しただけであった。
- 高温ガス炉の冷却材は気体（ヘリウム）であるため、1 次冷却材設備二重管破断により冷却材圧力が低下し、ガス組成のヘリウム割合が低下しても、冷却能力に影響が少ないことがわかった。
- 理由は、炉心部の崩壊熱が輻射により炉心径方向へ移動し、RPV から外側へ熱放射されるためである。仮に真空状態になっても輻射は存在する。
- 減圧事故解析の HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は上に凸型に変化した。一方、RPV の最高温度は下に凸型に変化した。これは炉心部の崩壊熱が燃料温度を上昇させた際、反対に RPV 温度を上昇させる崩壊熱が少なくなったためである。
- 燃料体以外の炉内構造物である上部シュラウド、上部プレナム、上部遮へい体、上部可動反射体、下部可動反射体、シール用高温プレナムブロック、キー結合用高温プレナムブロック、高温プレナム、プレナム下部ブロック、下端ブロック、炉心支持板、下部コアバレル、側部可動反射体、固定反射体、側部遮へい体等の温度は、周囲の炉内構造物の温度と比較して、急激に変化している挙動はないことを確認した。
- 減圧事故時においても燃料最高温度が 1400℃を超えないこと、RPV の制限温度（540℃）未満を満足できることを確認した。
- HTR60S-SiC の固有の安全性、つまり受動的安全性を明示することができた。

#### ④まとめ

令和 4 年度の計算結果を用いて、事故時の解析を行った結果、SiC 母材の燃料コンパクトを採用した高出力密度高温ガス炉 (HTR60S-SiC 炉心) の燃料温度分布及び RPV 温度分布等を導出するとともに、燃料最高温度が 1400°C を超えないこと、RPV の制限温度 (540°C) 未満を満足できることを確認できた。

具体的には、燃料温度分布、及び RPV 温度分布等のパラメータについて、実機が成立する範囲を示すことができた。

以上により 1 次冷却設備二重管破断による減圧事故が発生しても、SiC 母材の燃料コンパクトを採用した HTR60S-SiC 炉心は、受動的安全性を確保できることを明らかにした。

令和 4 年度に明確化した崩壊熱等のパラメータ範囲及び境界条件を用い、事故時の解析を行って実機の成立性を評価し、成果を取り纏めた。

#### 参考文献

- (1) S. Saito et al., Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR), JAERI-1332 (1994).
- (2) 後藤実 他、小型高温ガス炉システムの概念設計 (II) -核設計-、JAEA-Technology 2012-017 (2012).
- (3) 後藤実、高温ガス炉の核特性解析手法と核設計に関する研究、JAEA-Review 2014-058 (2014).
- (4) K. Okumura et al., SRAC2006 : A Comprehensive Neutronics Calculation Code System, JAEA-Data/Code 2007-004 (2007)
- (5) 稲葉良知 他、高温ガス炉用燃料温度計算コード FTCC の開発、JAEA-Technology 2017-002 (2017).
- (6) S. Okita, et al., "RESEARCH ON IMPROVEMENT OF HTGR CORE POWER-DENSITY:(4) FEASIBILITY STUDY FOR A REACTOR CORE," The Proceedings of the 30<sup>th</sup> International Conference on Nuclear Engineering (ICONE30), ICONE30-1119 (2023).
- (7) S. Okita, et al., "Derivation of ideal power distribution to minimize the maximum kernel migration rate for nuclear design of pin-in-block type HTGR," Journal of Nuclear Science and Technology, 58(1), pp. 9-16 (2021).
- (8) 國富一彦、中川繁昭、鈴木勝男、和田穂積、平野光将、高温工学試験研究炉の炉内 2 次元温度分布解析コード TAC-NC とその検証、JAERI-M 89-001 (1989).
- (9) 椎名保顕、國富一彦、丸山創、藤田茂樹、中川繁昭、平野雅司、伊与久達夫、新藤雅美、数土幸夫、高温工学試験研究炉 (HTTR) の安全解析に用いる解析コードとその検証、JAERI-M 90-034 (1990).
- (10) 國富一彦、中川繁昭、板倉洋文、高温工学試験研究炉の減圧事故時の温度分布解析、JAERI-M 91-163 (1991).
- (11) 大橋弘史、佐藤博之、田澤勇次郎、Yan, X.、橘幸男、小型高温ガス炉システムの概念設計, 1; 基本仕様及び系統概念設計、JAEA-Technology 2011-013 (2011).

表 3.3-1 HTR60S-SiC の主な仕様

	HTR60S-SiC	HTR50S <sup>(2, 3)</sup>	HTTR <sup>(1)</sup>
原子炉出力(MW)	60	1.2倍 50	30
平均出力密度(MW/m <sup>3</sup> )	4.2	1.2倍 3.5	2.5
原子炉冷却材入口温度(°C)/ 原子炉冷却材出口温度(°C)	325/750	同左	395/850
燃焼期間(日)/(年)	730/2	660/1.8	同左
平均燃焼度(GWd/t)	40	33	22
炉心			
型式	ピンインブロック	同左	同左
燃料領域高さ(m)	3.48	同左	2.9
燃料領域等価直径(m)	約 2.3	同左	同左
構造材	黒鉛	同左	同左
燃料体の数	180 (30 columns × 6 layers)	同左	150 (30 columns × 5 layers)
燃料体の幅(cm)/高さ(cm)	36/58	同左	同左
燃料物質	UO <sub>2</sub>	同左	同左
平均燃料濃縮度(wt%)	9.6	6.1	5.9
燃料濃縮度の数	3	同左	12
型式	被覆燃料粒子	同左	同左
被覆燃料粒子の直径(mm)	0.92	同左	同左
燃料核の直径(mm)	0.60	同左	同左
被覆燃料粒子の充填率(%)	30	同左	同左
燃料コンパクト母材(matrix) 物質	炭化ケイ素(SiC)	黒鉛(Graphite)	同左
燃料コンパクトの直径(内径 (mm)/外径(mm))	23.5/33.6	10/26	同左
燃料コンパクトの半径(内径 (mm)/外径(mm))	11.75/16.8	5/13	同左
燃料コンパクトの高さ(mm)	未定 スペーサ間隔による	39	同左
黒鉛スリーブ	無し	有り	有り

表 3.3-2 燃料濃縮度の配置 (wt%)

		燃料領域番号			
		1	2	3	4
層番号	1st layer	13.6	13.6	13.6	13.6
	2nd layer	10.7	10.7	10.7	10.7
	3rd layer	10.7	10.7	10.7	10.7
	4th layer	7.6	7.6	7.6	7.6
	5th layer	7.6	7.6	7.6	7.6
	6th layer	7.6	7.6	7.6	7.6

表 3.3-3 BP の配置 (B 濃度 (%) / BP ペレット直径 (mm))

		燃料領域番号			
		1	2	3	4
層番号	1st layer	-	-	-	-
	2nd layer	2.5/18	2.5/18	2.5/18	2.5/18
	3rd layer	2.5/18	2.5/18	2.5/18	2.5/18
	4th layer	2.5/13	2.5/13	2.5/13	2.5/13
	5th layer	2.5/13	2.5/13	2.5/13	2.5/13
	6th layer	2.5/13	2.5/13	2.5/13	2.5/13



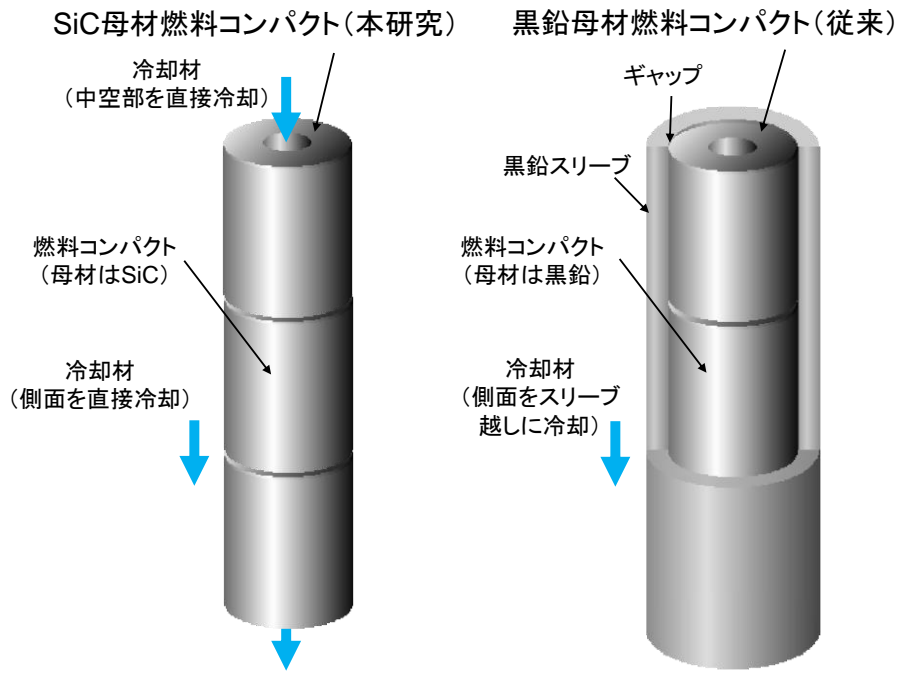


図 3. 3-1 SiC 母材燃料コンパクト (左) と従来のスリーブ付き燃料コンパクト (右)

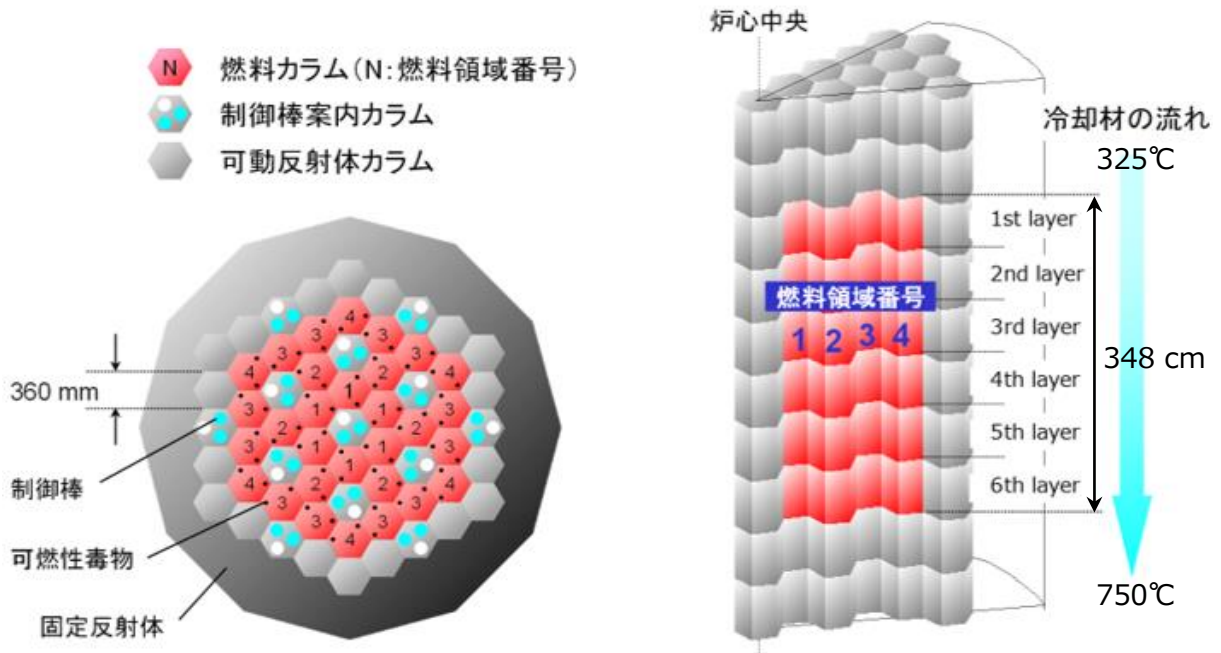


図 3. 3-2 HTR60S-SiC 炉心部の水平断面図 (左) と鳥瞰図 (右)

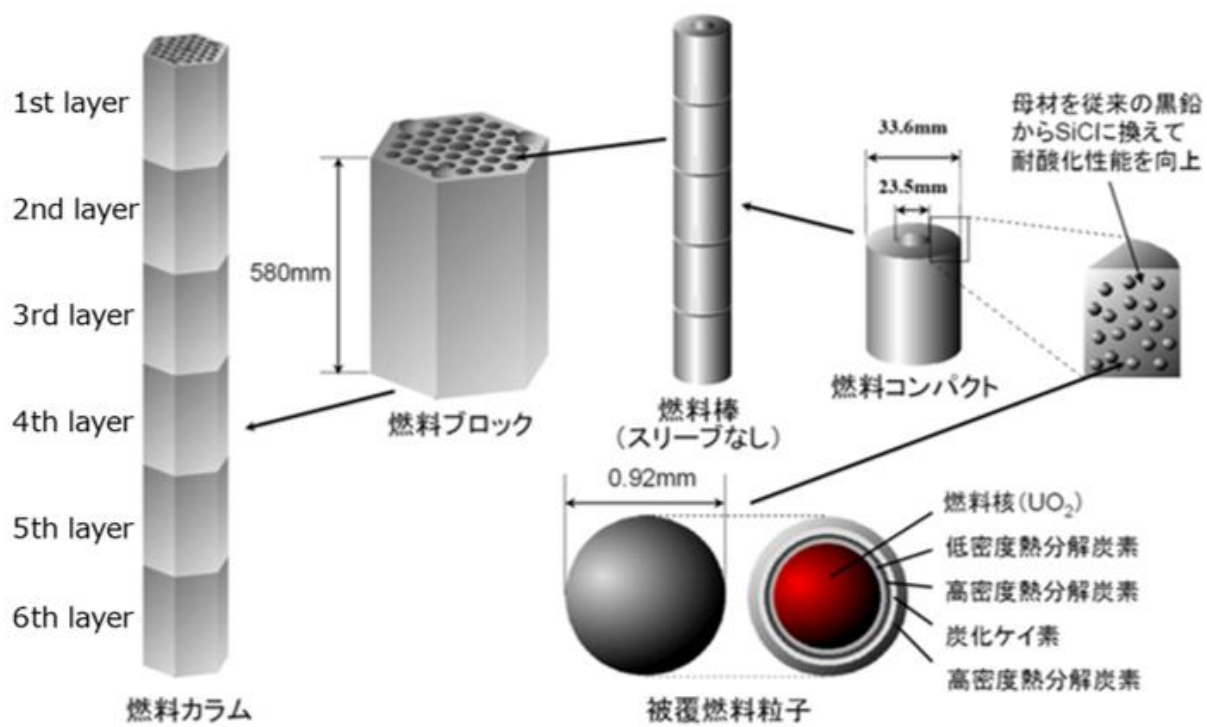


図 3.3-3 HTR60S-SiC の燃料

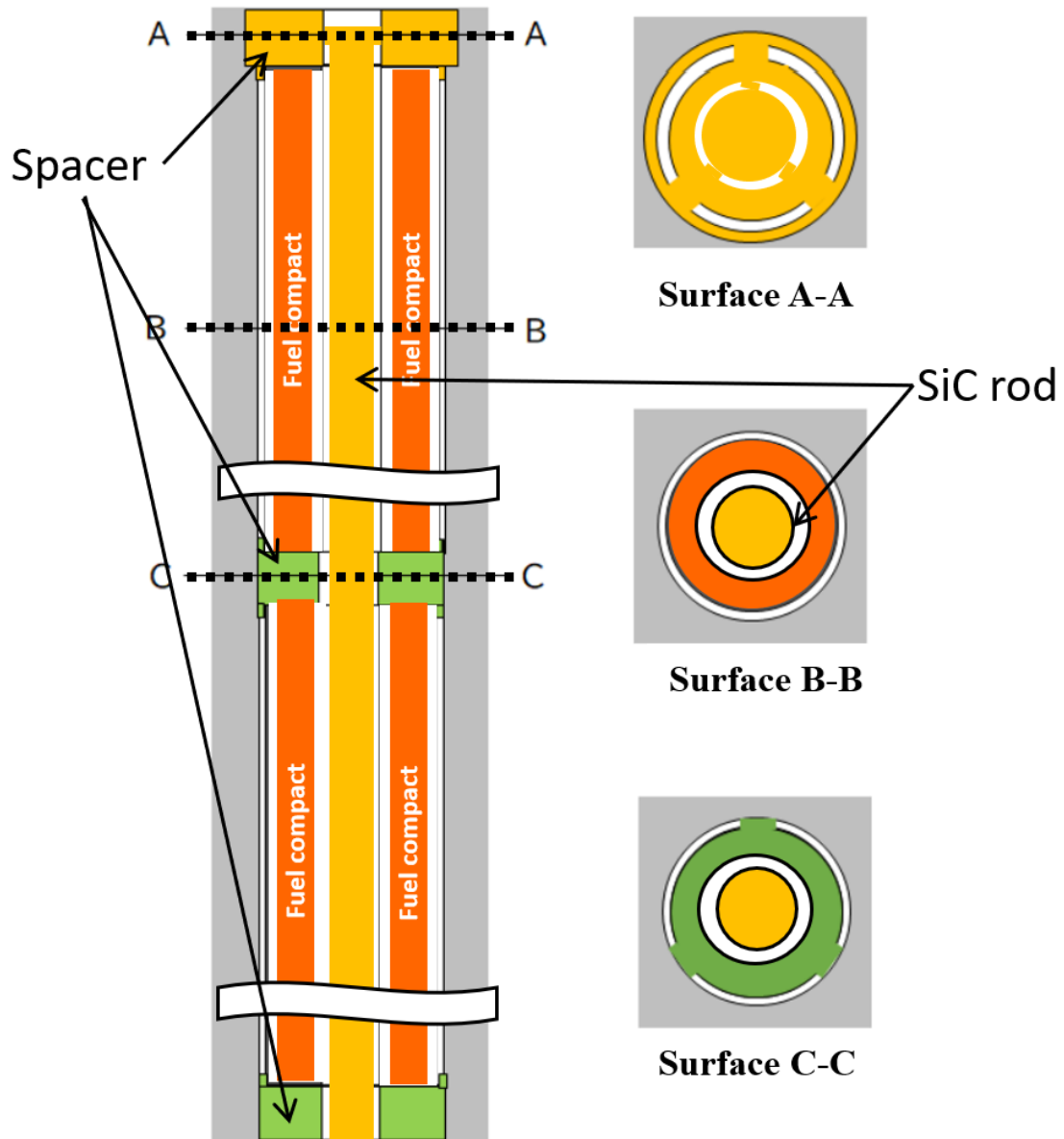


図 3.3-4 燃料コンパクト内側に SiC の支持棒を通した時の黒鉛燃料コンパクト支持構造

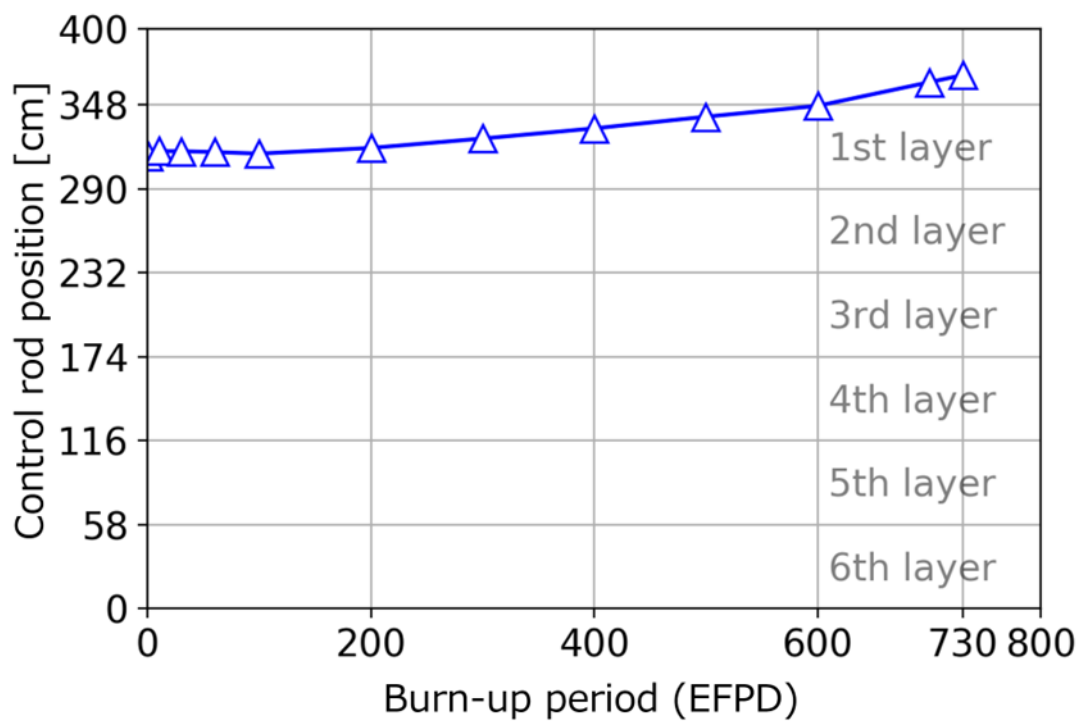


図 3.3-5 制御棒位置の燃焼に伴う変化

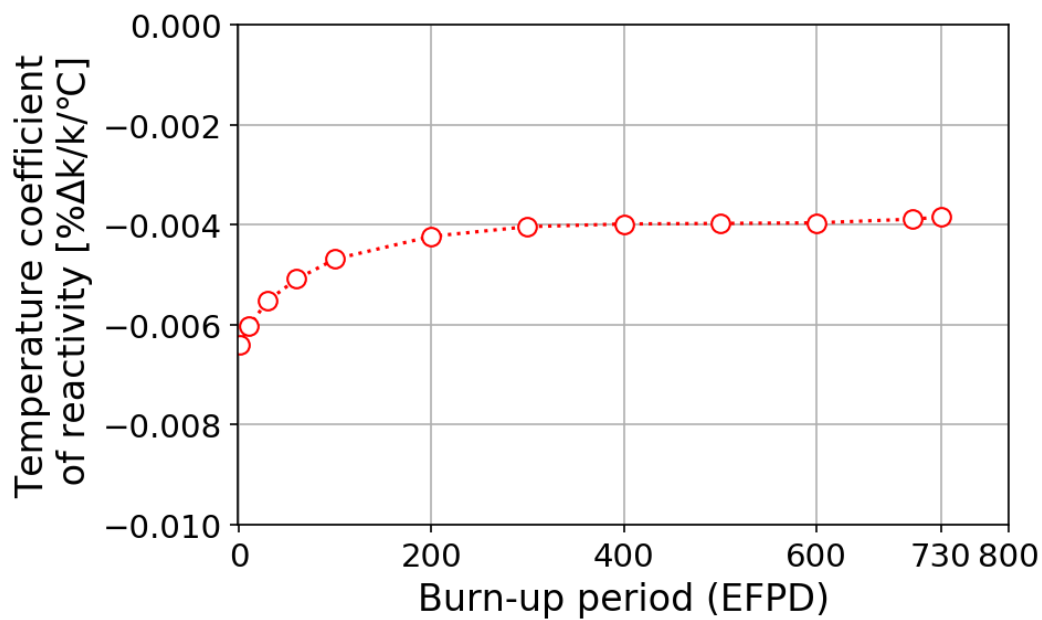


図 3.3-6 反応度温度係数の燃焼に伴う変化

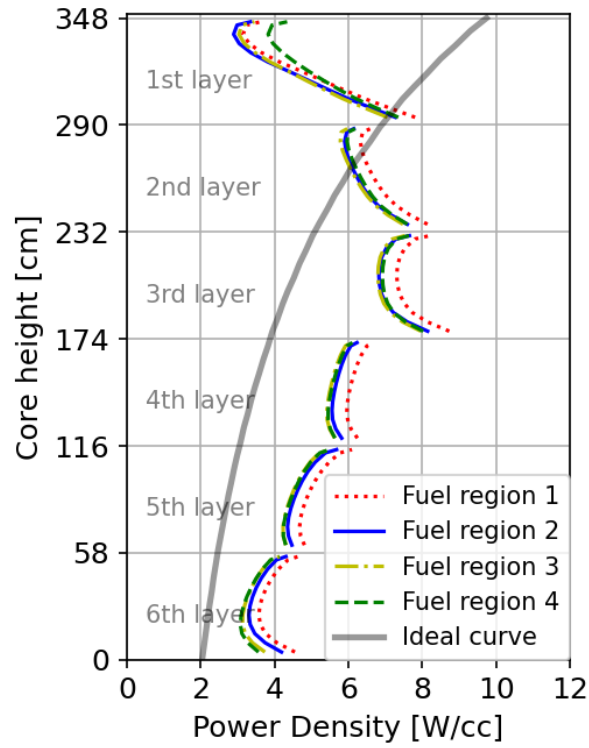


図 3.3-7 燃焼初期(10日)での出力密度分布

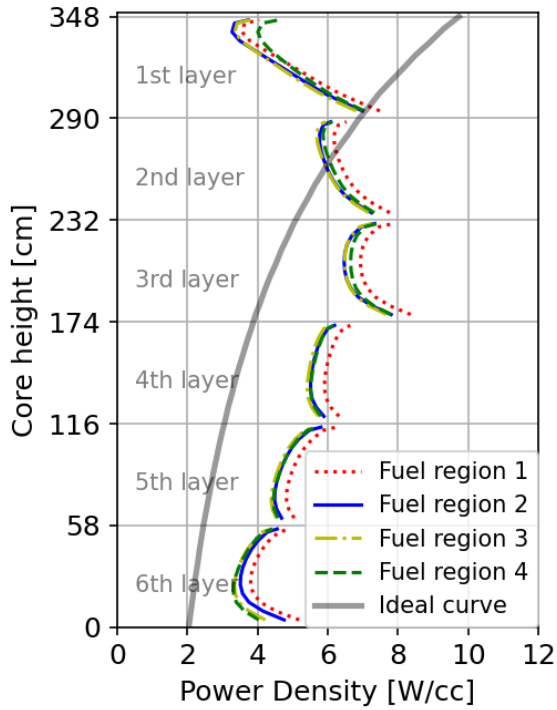


図 3.3-8 燃焼中期(300日)での出力密度分布

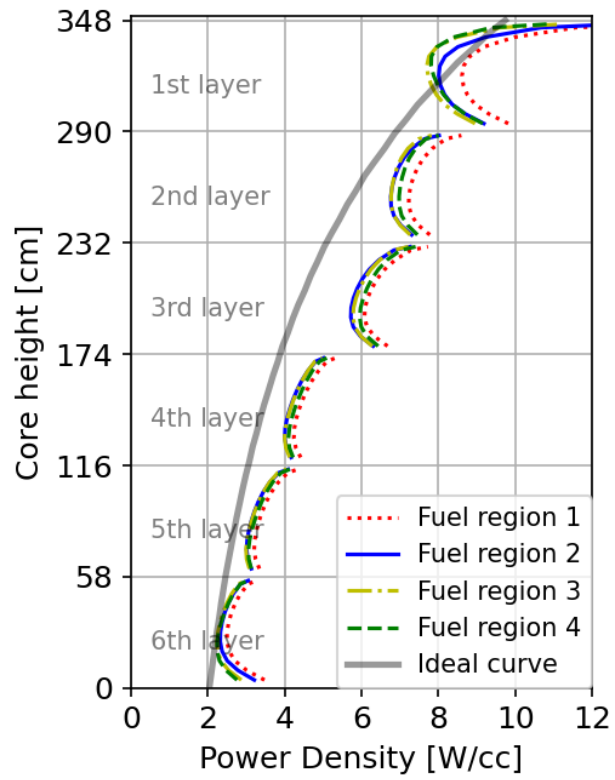


図 3.3-9 燃焼末期(730 日)での出力密度分布

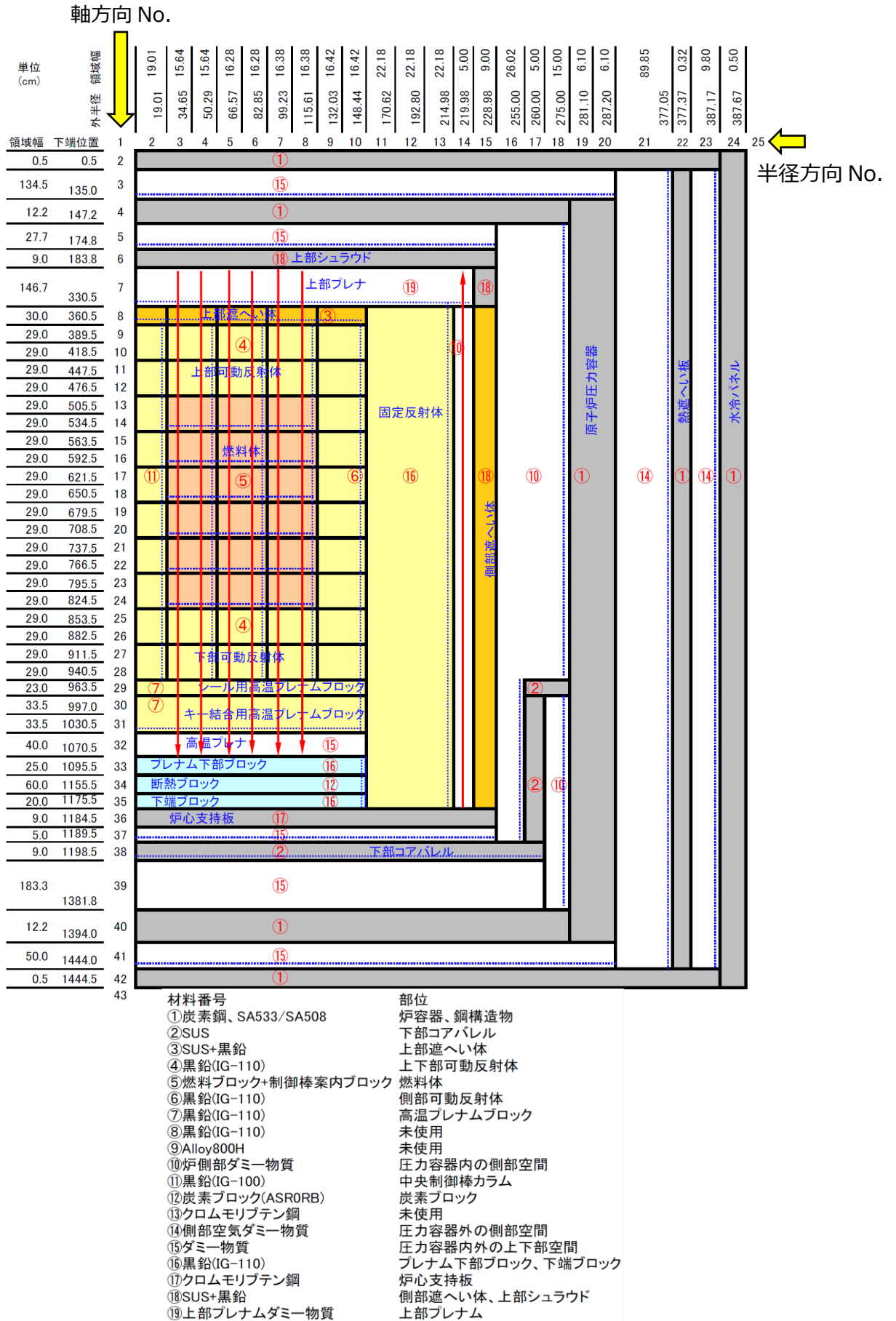
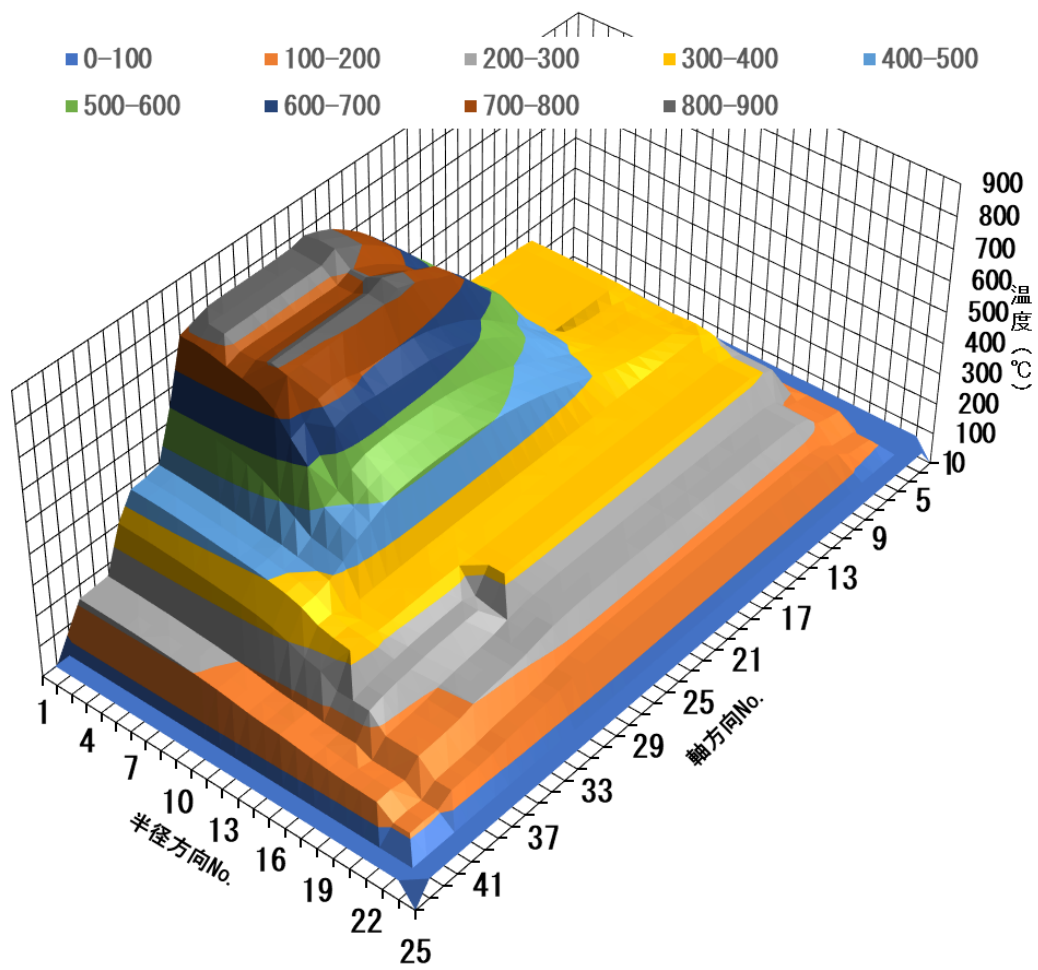


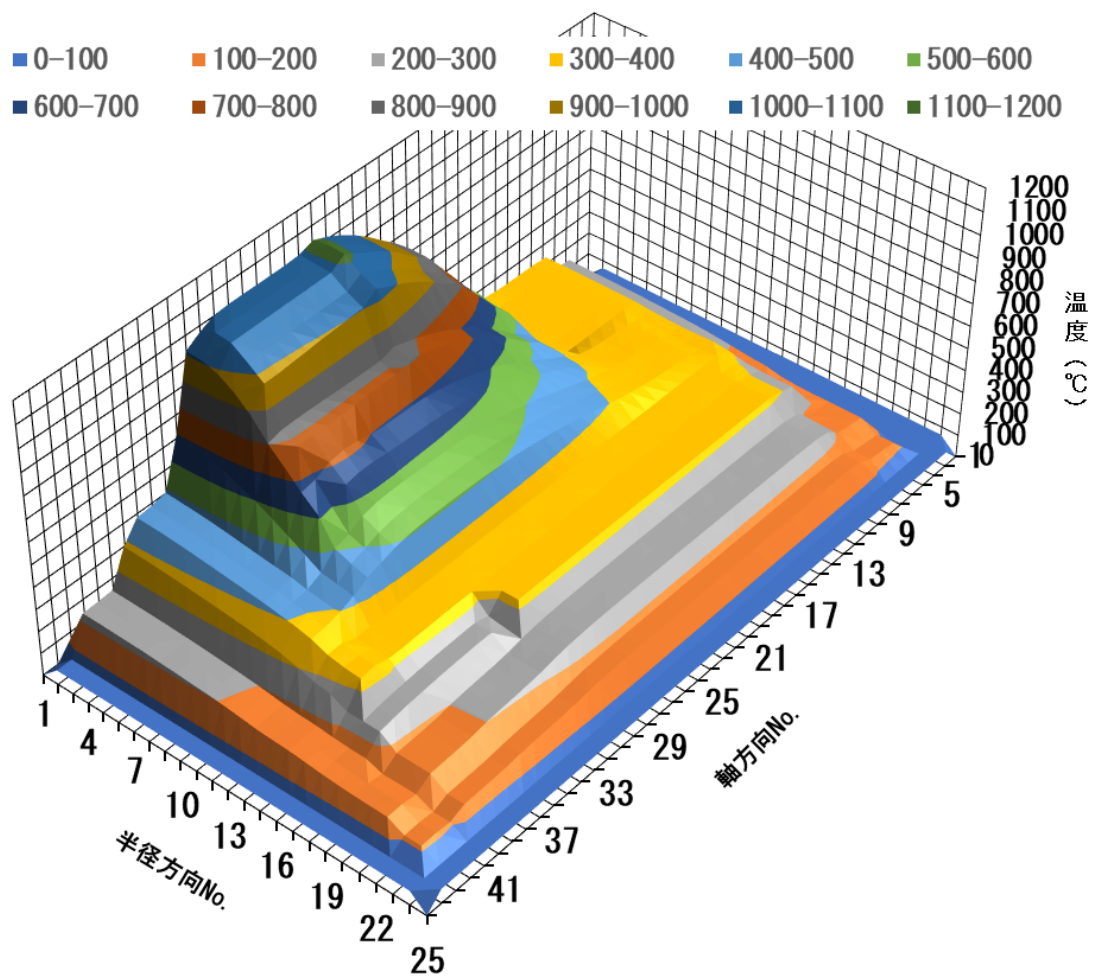
図 3.3-10 伝熱解析モデル



HTR50S<sup>(2,3,11)</sup>の炉心部の燃料最高温度は 845℃である。  
 RPV の最高温度は 252℃である。

図 3.3-11 HTR50S の事故解析の初期状態



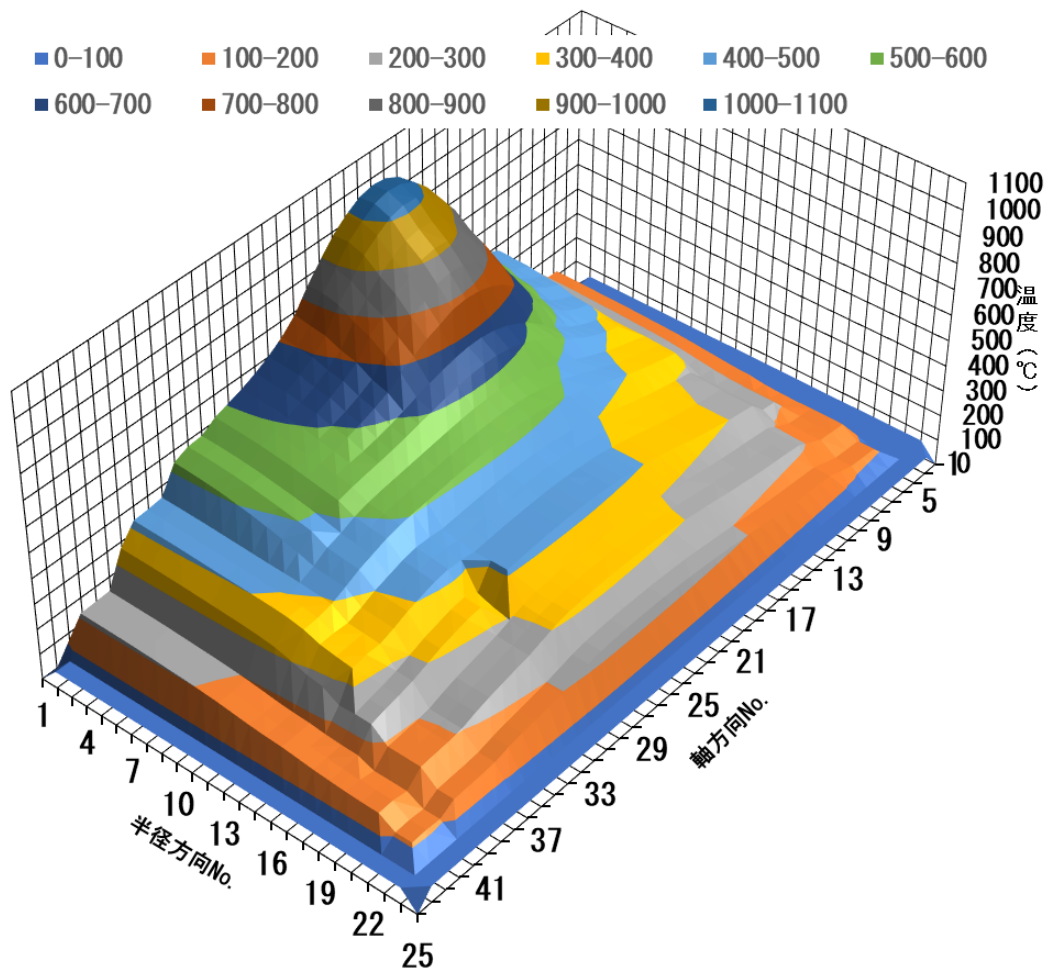


HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1125°C である。  
 RPV の最高温度は 252°C である。

図 3.3-12 HTR60S-SiC の事故解析の初期状態

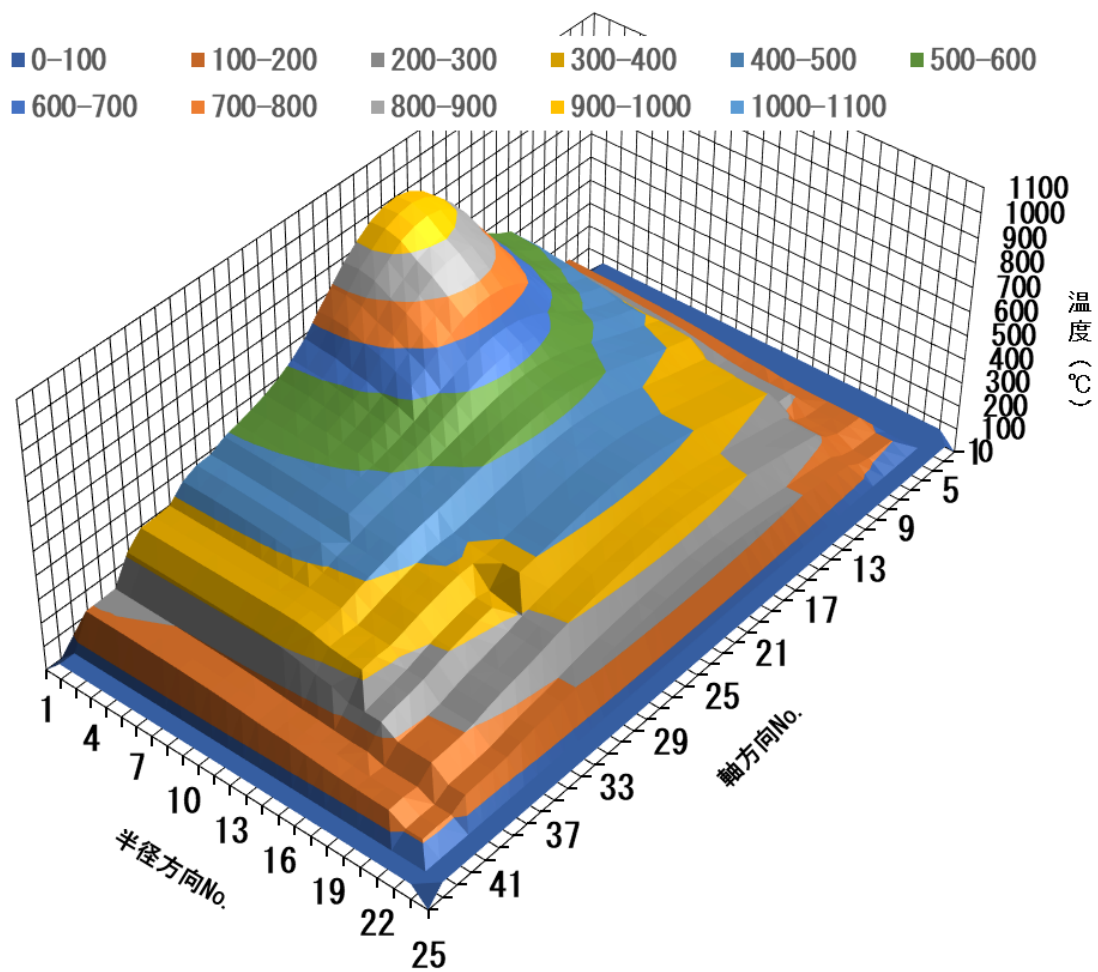
表 3.3-4 1 次冷却設備二重管破断による減圧事故解析パラメータ

冷却材圧力(気圧)	ガス組成(He 濃度)
40	100%
30.625	90%
21.25	80%
11.875	70%
2.5	60%



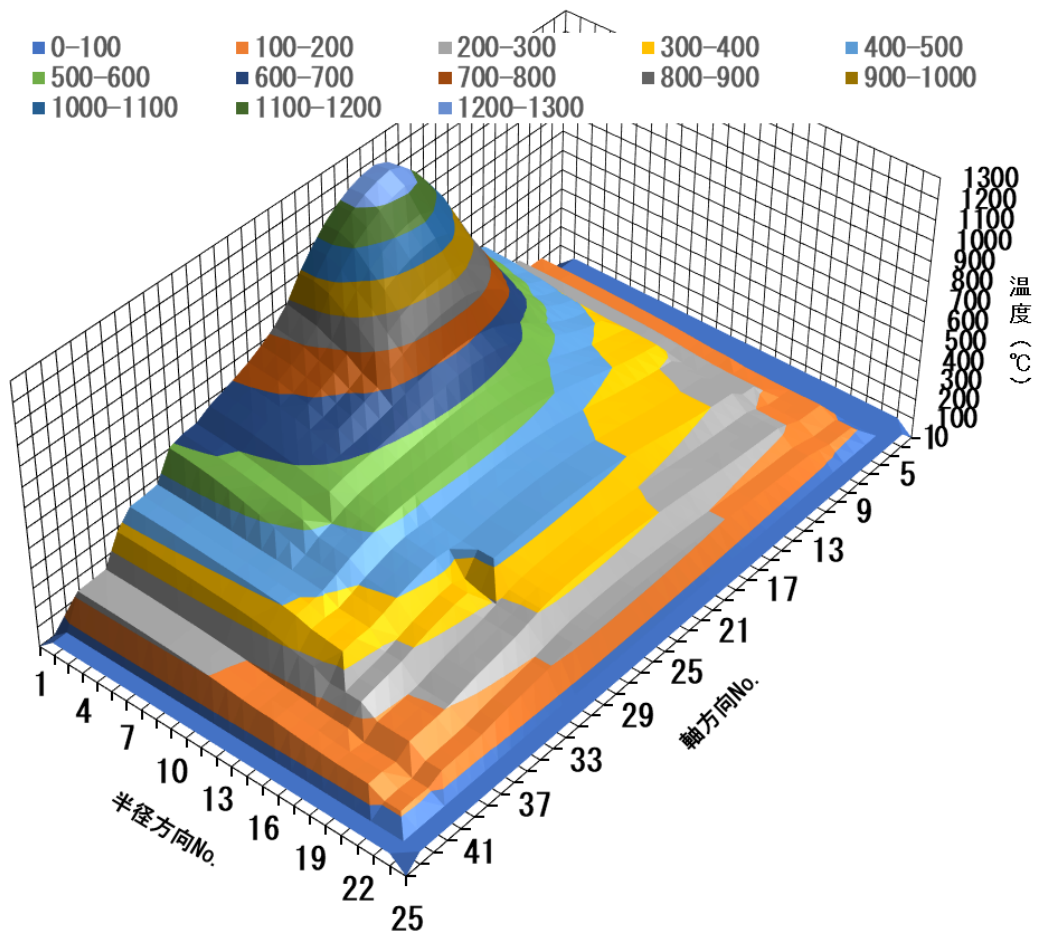
HTR50S<sup>(2,3,11)</sup>の炉心部の燃料最高温度は1044℃である。(事故発生から約11時間後)  
 燃料最高温度が発生する時刻とRPVの最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は40気圧、ヘリウムは100%とした<sup>(10)</sup>。

図 3.3-13 HTR50S の減圧事故解析 (40 気圧/100%:11 時間後)



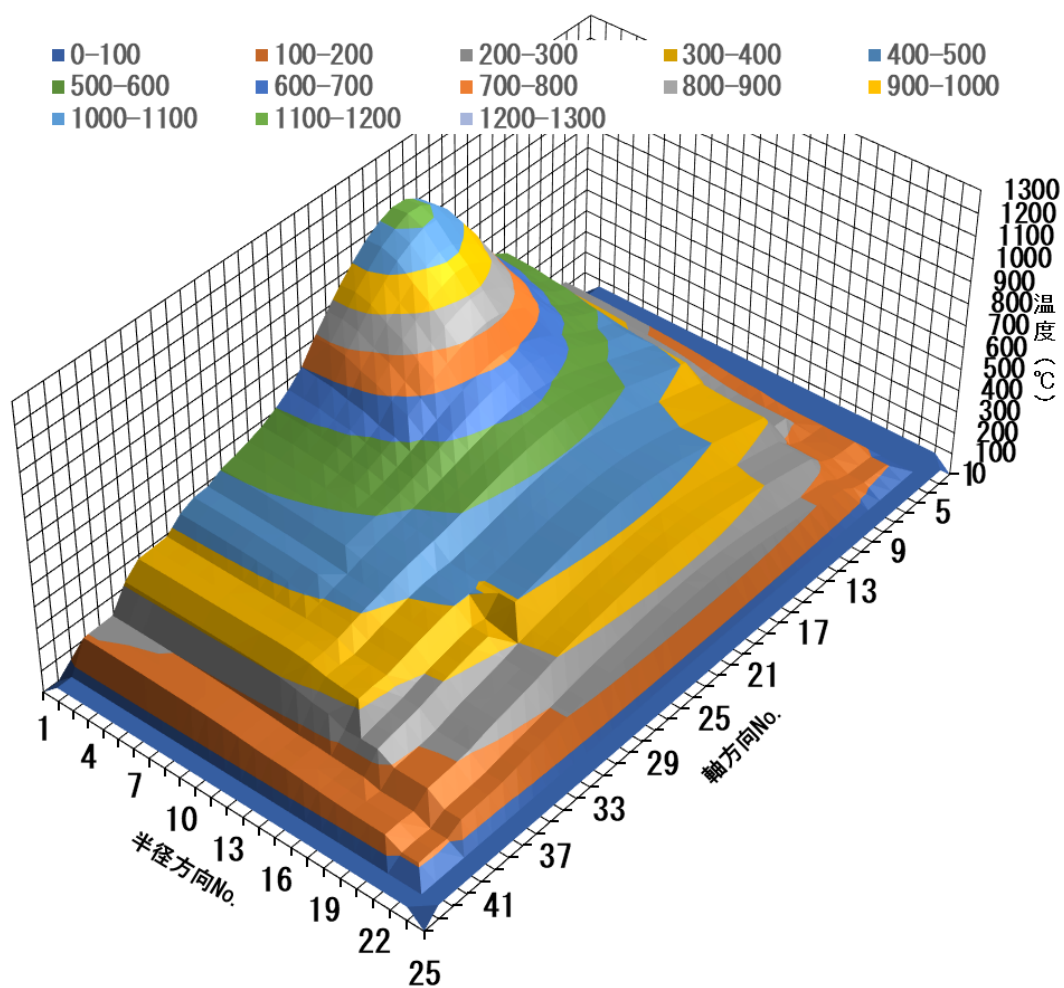
HTR50S<sup>(2,3,11)</sup>のRPVの最高温度は353℃である。(事故発生から約31時間後)  
 燃料最高温度が発生する時刻とRPVの最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は40気圧、ヘリウムは100%とした<sup>(10)</sup>。

図 3.3-14 HTR50S の減圧事故解析 (40 気圧/100%:31 時間後)



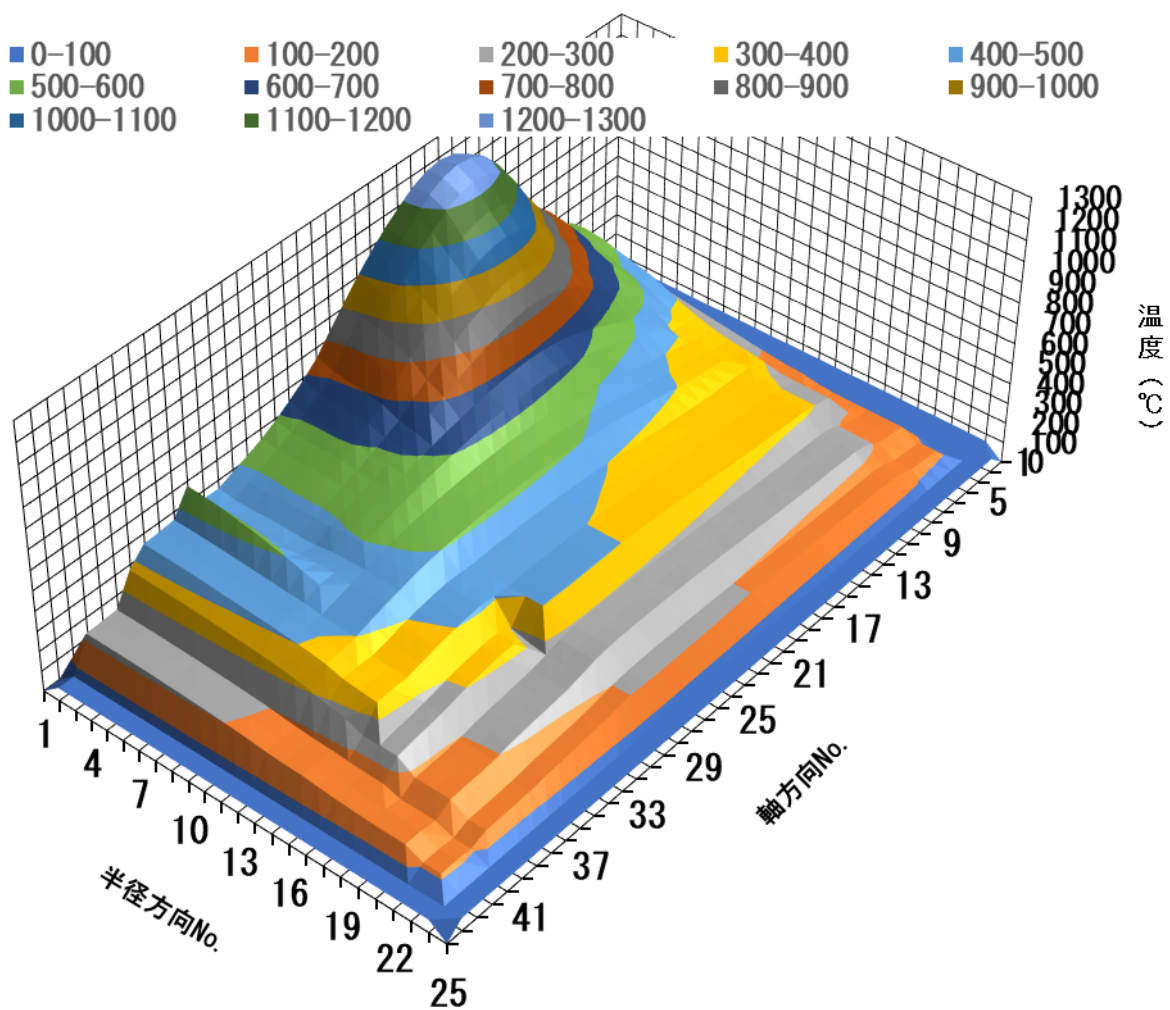
HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1267℃である。（事故発生から約 10 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 40 気圧、ヘリウム  
 は 100%とした。

図 3.3-15 HTR60S-SiC の減圧事故解析（40 気圧/100%:10 時間後）



HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 375°C である。（事故発生から約 38 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 40 気圧、ヘリウム  
 は 100%とした。

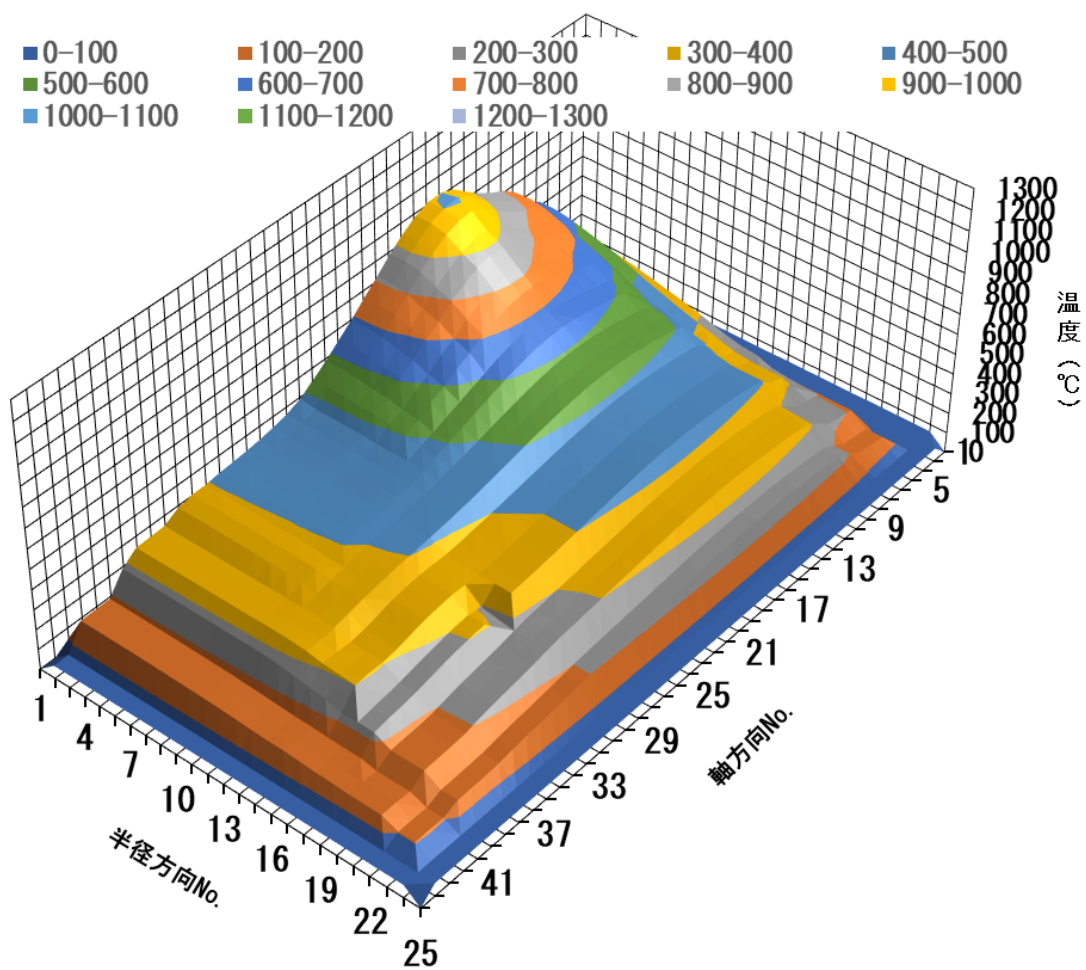
図 3.3-16 HTR60S-SiC の減圧事故解析（40 気圧/100%:38 時間後）



HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1286℃である。（事故発生から約 6 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 30.625 気圧、ヘリウムは 90%まで減少するとした。

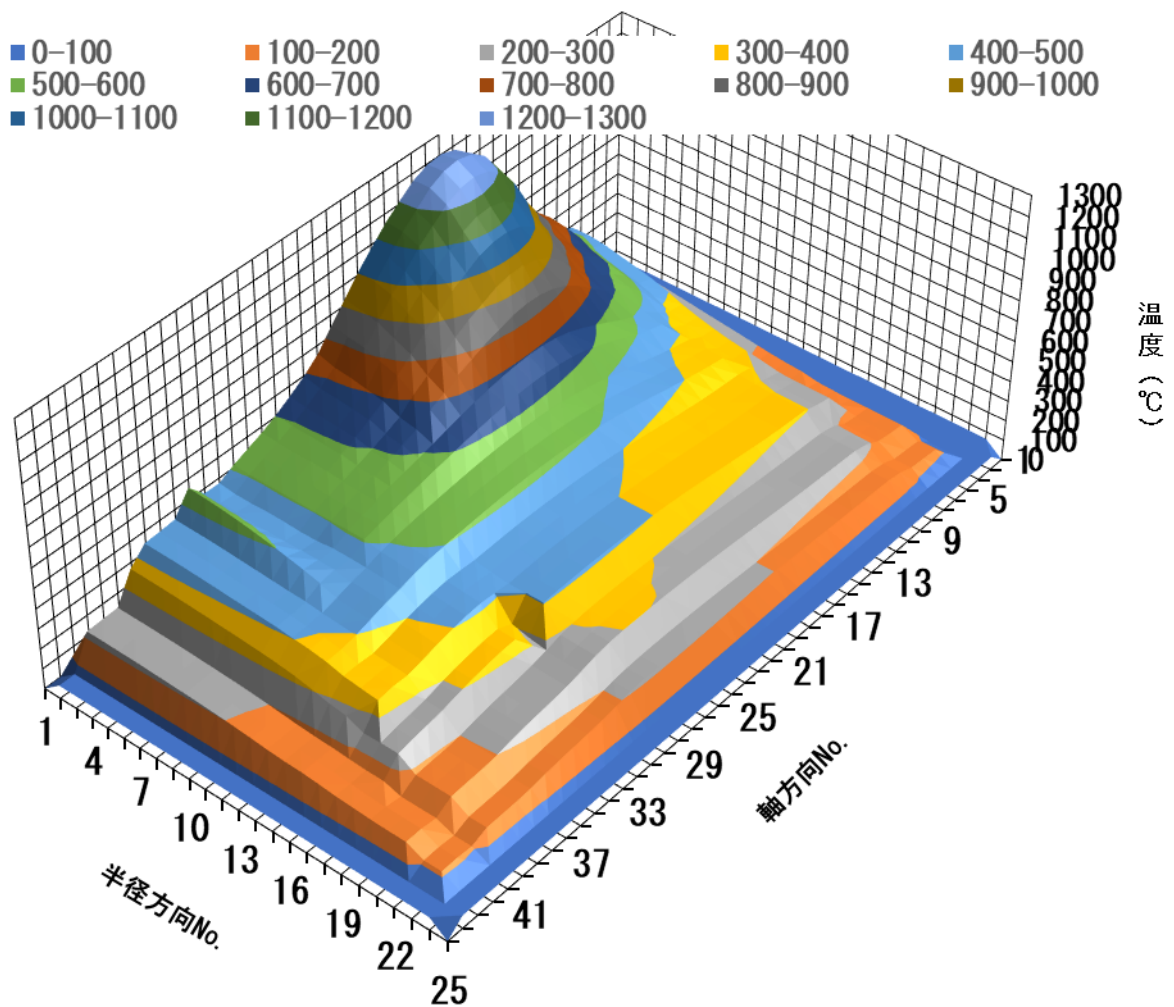
図 3.3-17 HTR60S-SiC の減圧事故解析（30.625 気圧/90%:6 時間後）





HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 364°C である。（事故発生から約 36 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 30.625 気圧、ヘリウム  
 は 90% まで減少するとした。

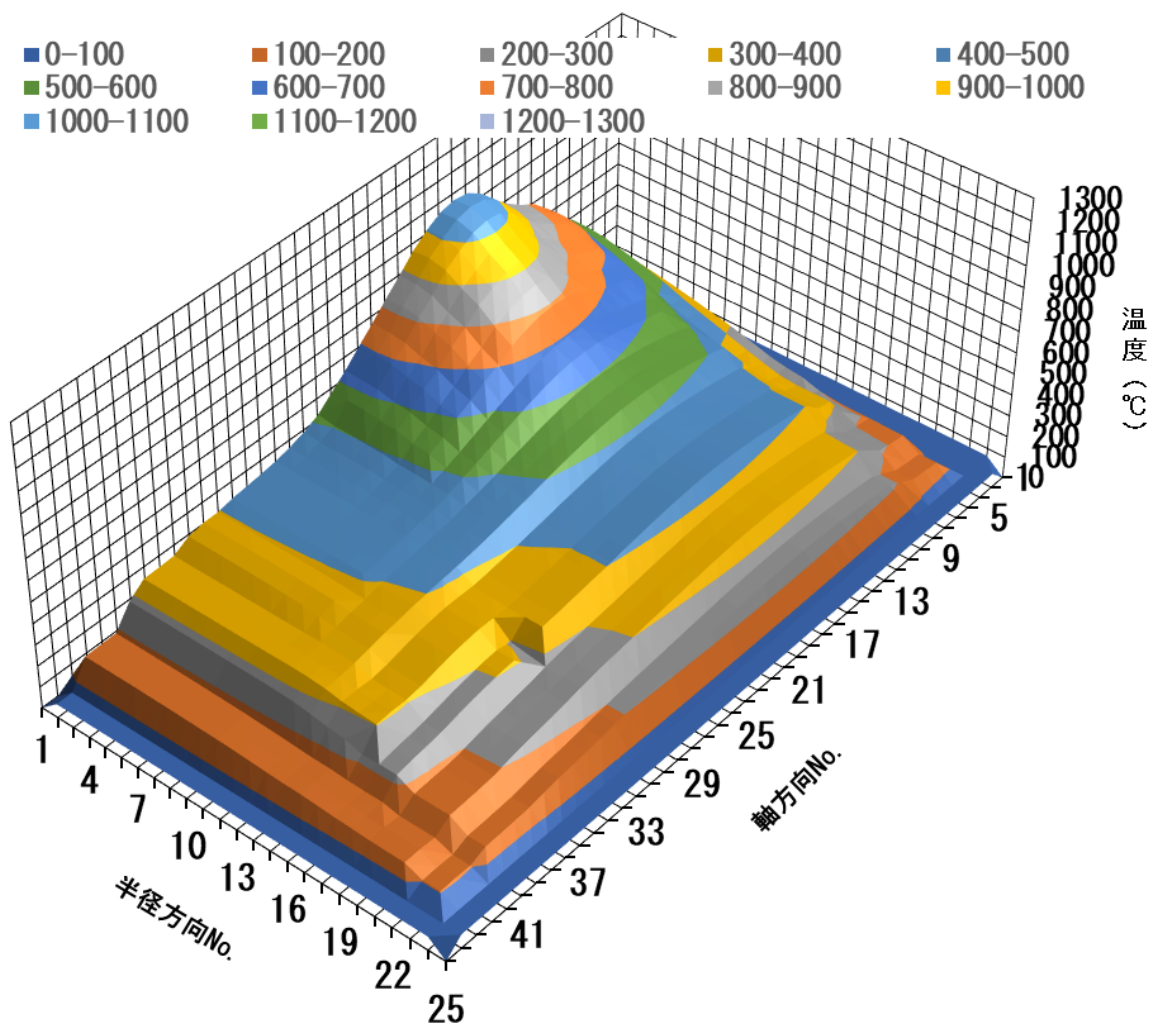
図 3.3-18 HTR60S-SiC の減圧事故解析 (30.625 気圧/90%:36 時間後)



HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1299℃である。（事故発生から約 8 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 21.25 気圧、ヘリウム  
 は 80%まで減少するとした。

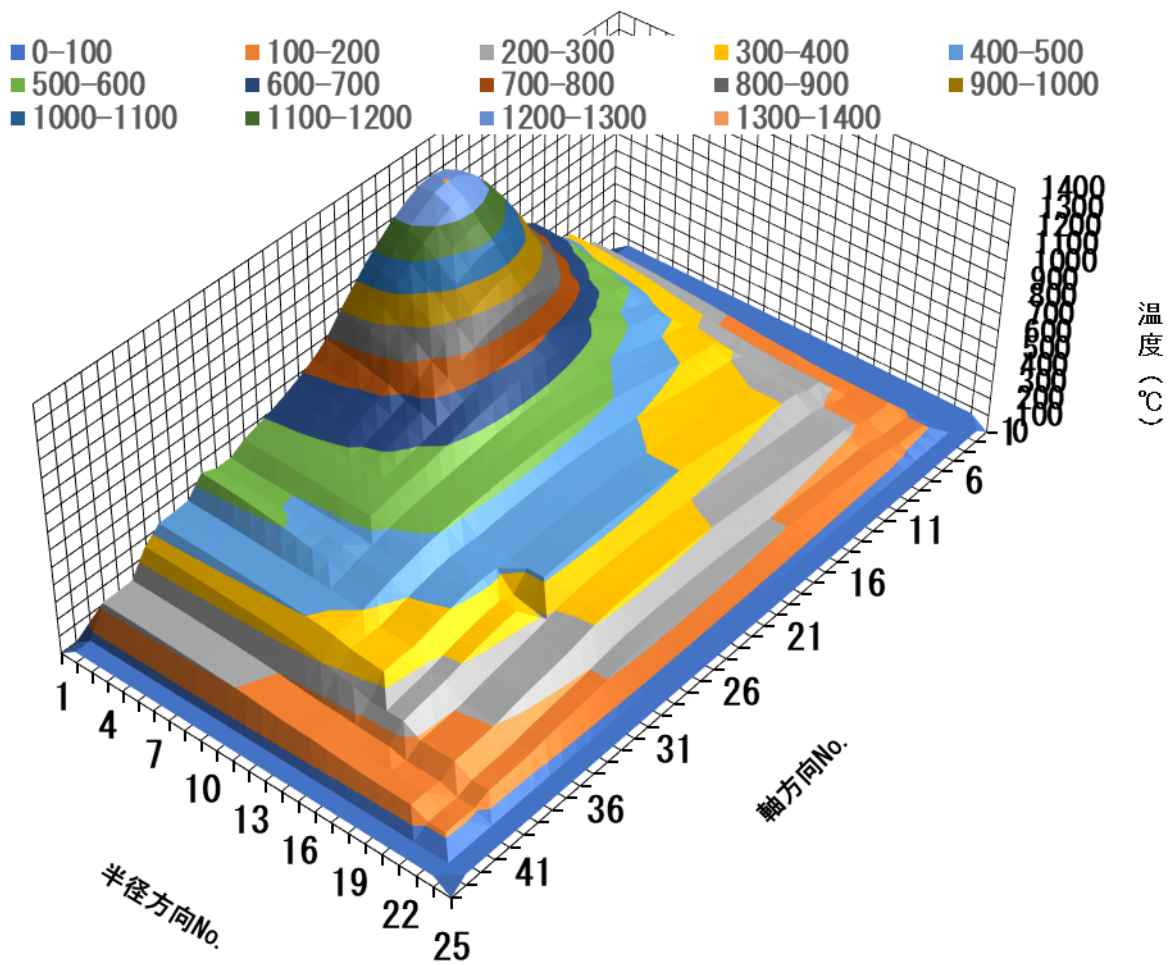
図 3.3-19 HTR60S-SiC の減圧事故解析（21.25 気圧/80%:8 時間後）





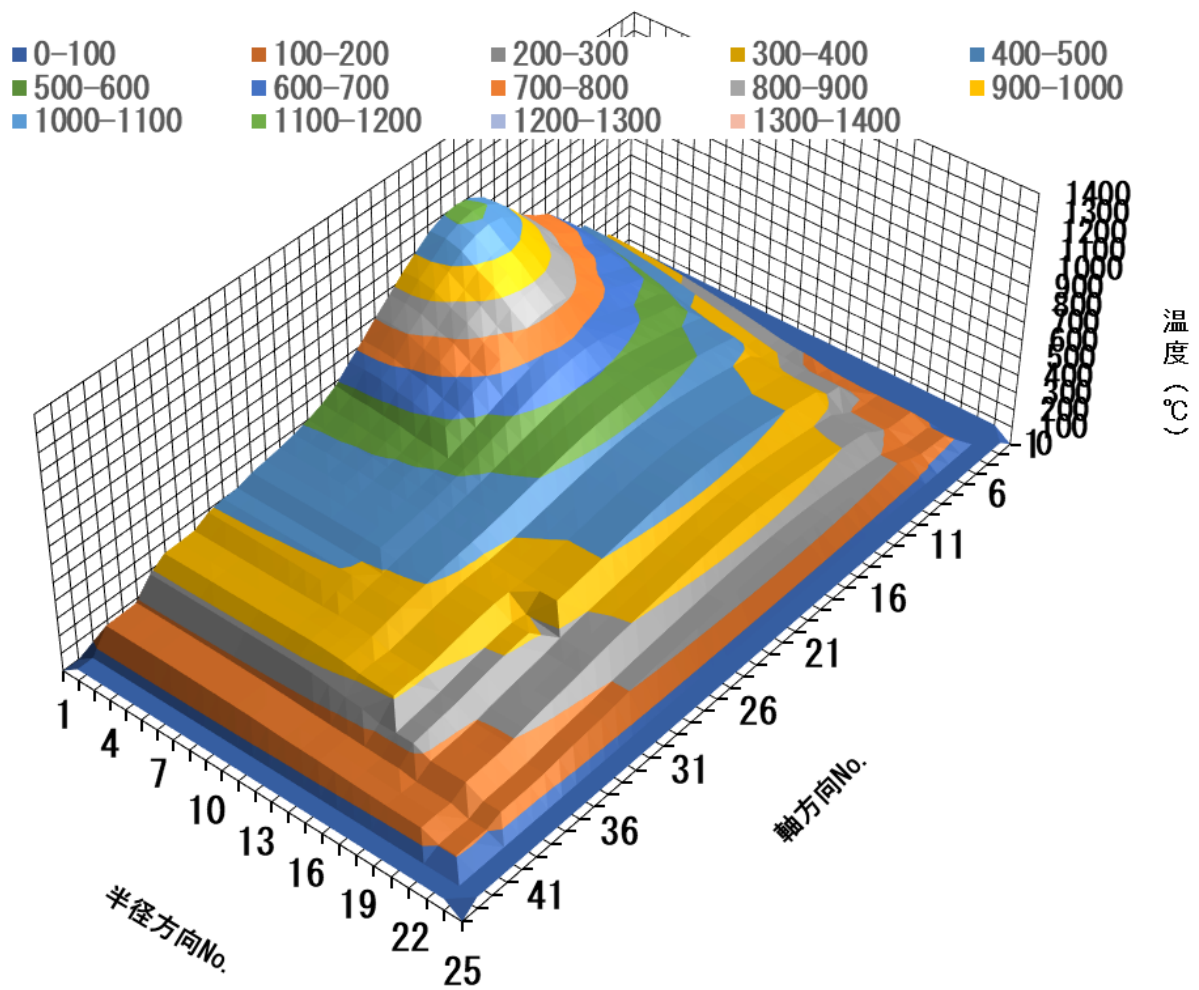
HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 363°C である。（事故発生から約 38 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 21.25 気圧、ヘリウム  
 は 80% まで減少するとした。

図 3.3-20 HTR60S-SiC の減圧事故解析（21.25 気圧/80%:38 時間後）



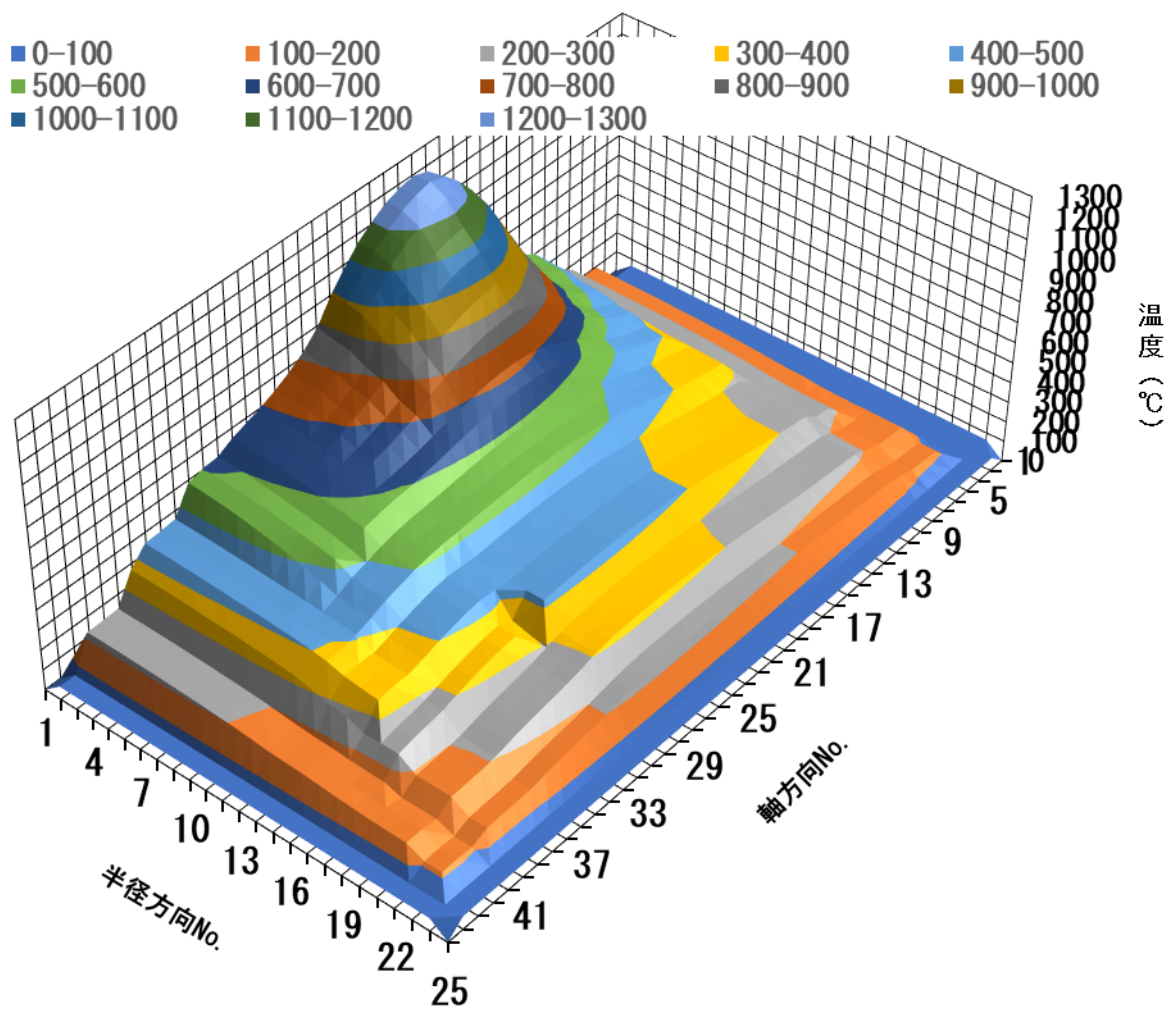
HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1303°C である。(事故発生から約 11 時間後)  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 11.875 気圧、ヘリウム  
 は 70% まで減少するとした。

図 3.3-21 HTR60S-SiC の減圧事故解析 (11.875 気圧/70%:11 時間後)



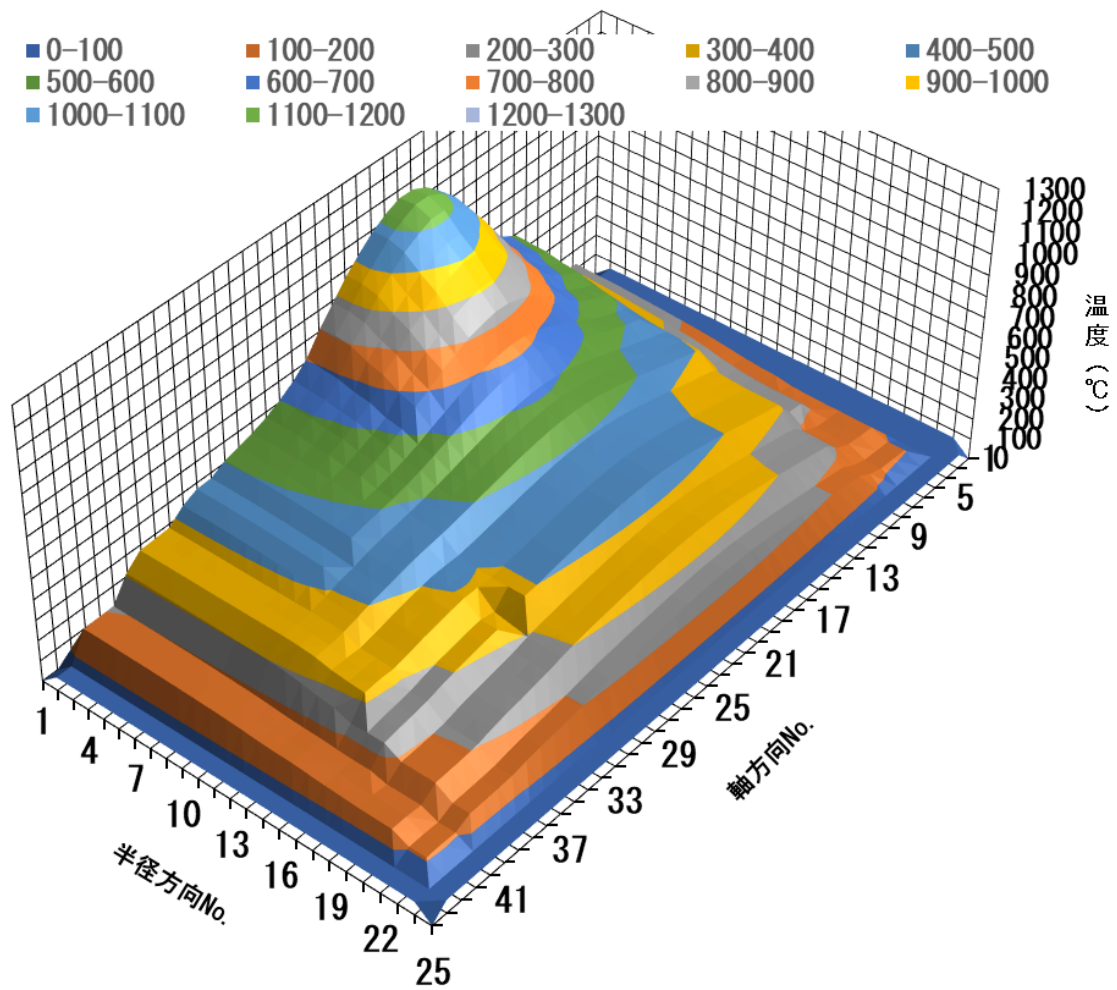
HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 364°C である。（事故発生から約 42 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 11.875 気圧、ヘリウム  
 は 70% まで減少するとした。

図 3.3-22 HTR60S-SiC の減圧事故解析（11.875 気圧/70%:42 時間後）



HTR60S-SiC の炉心部の燃料最高温度は 1291℃である。（事故発生から約 11 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 2.5 気圧、ヘリウムは 60%まで減少するとした<sup>(1-3)</sup>。

図 3.3-23 HTR60S-SiC の減圧事故解析（2.5 気圧/60%:11 時間後）



HTR60S-SiC の RPV の最高温度は 371°C である。（事故発生から約 40 時間後）  
 燃料最高温度が発生する時刻と RPV の最高温度が発生する時刻は異なる。  
 1 次冷却設備二重管破断による事故が発生した場合、冷却材圧力は 2.5 気圧、ヘリウムは 60% まで減少するとした<sup>(1-3)</sup>。

図 3.3-24 HTR60S-SiC の減圧事故解析（2.5 気圧/60%:40 時間後）

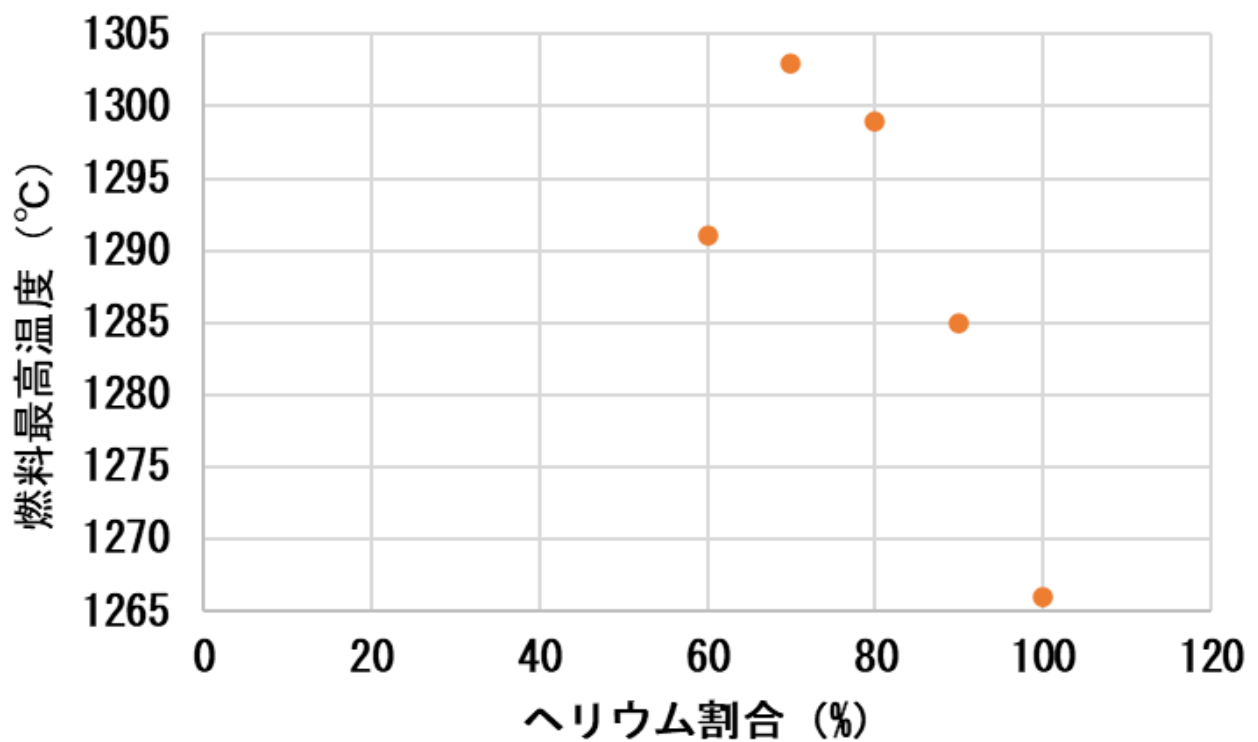
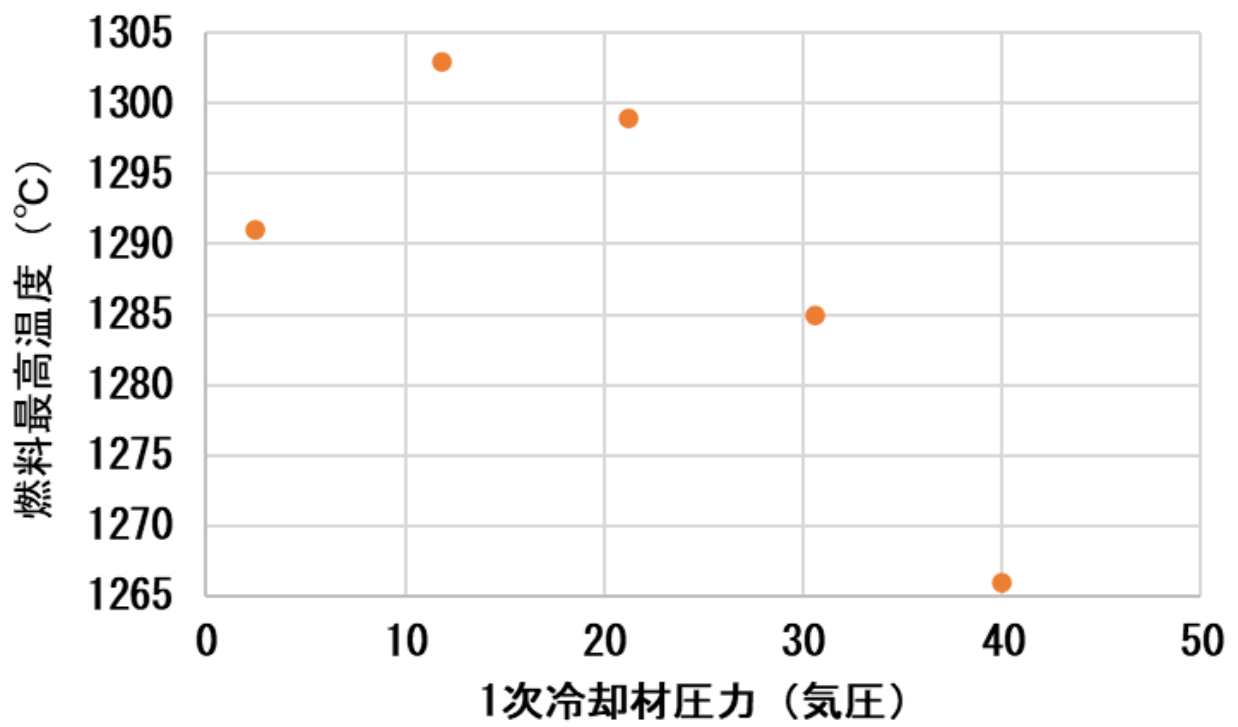


図 3.3-25 HTR60S-SiC の減圧事故解析 (燃料最高温度)

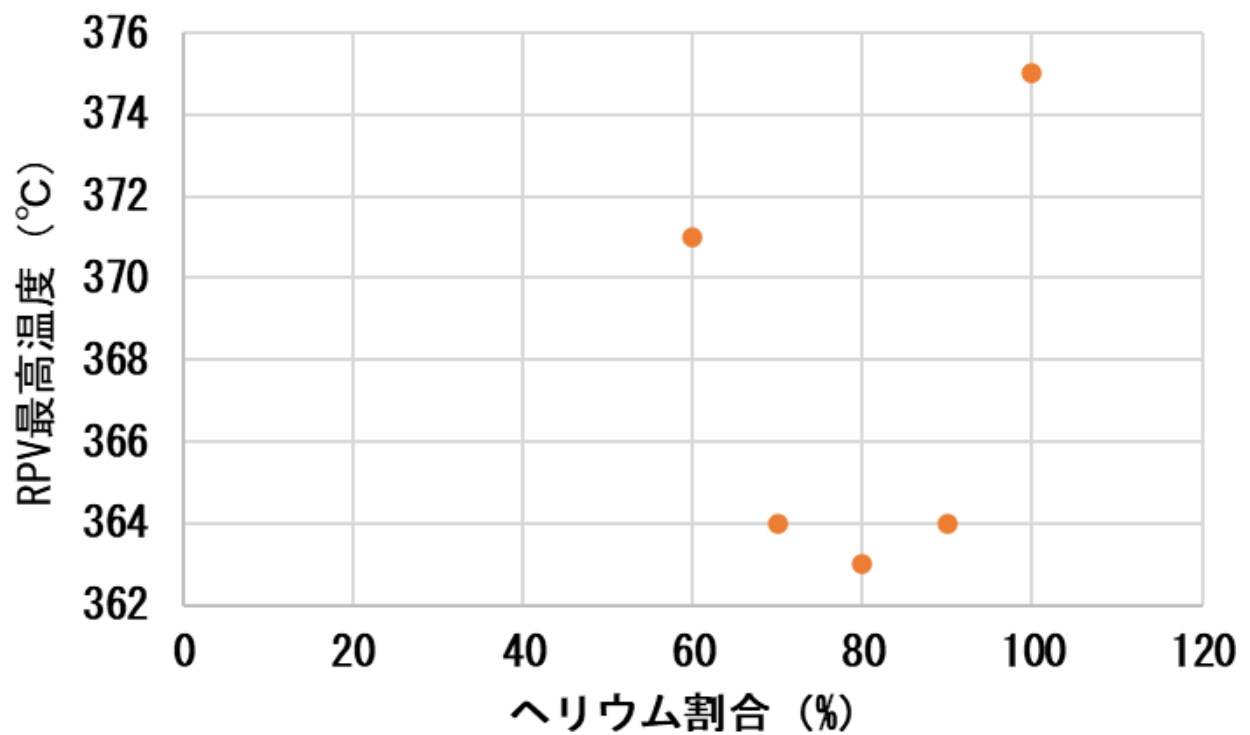
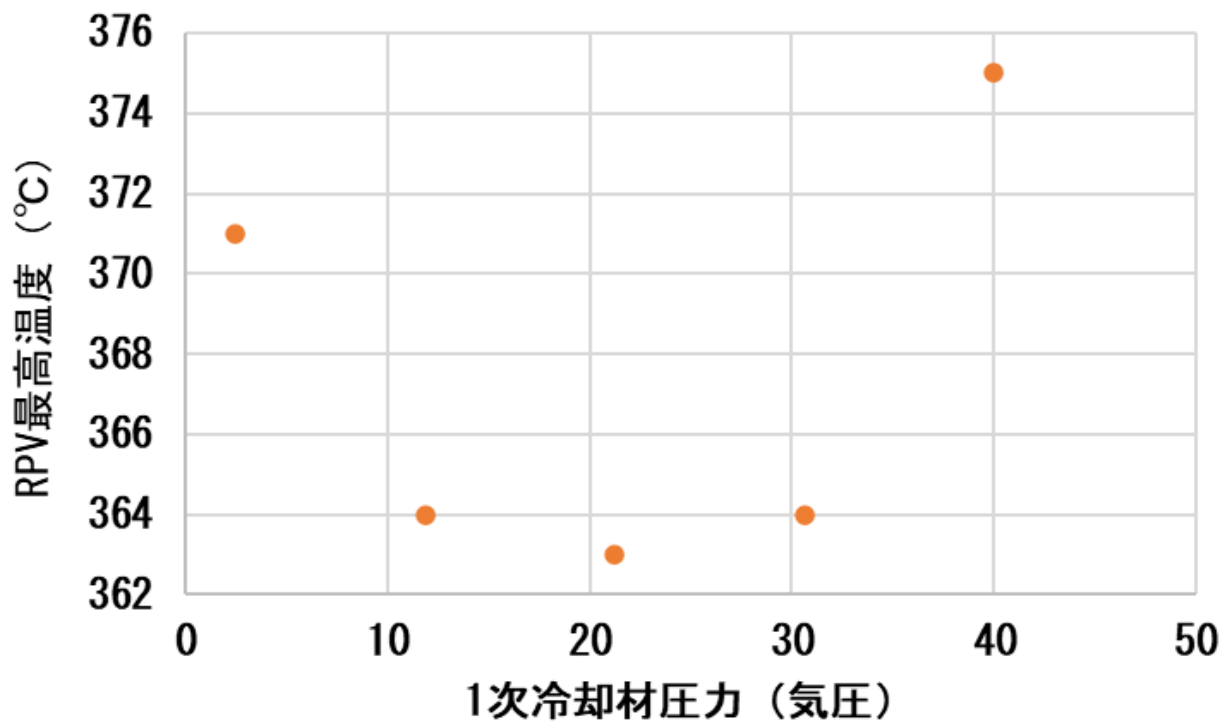


図 3.3-26 HTR60S-SiC の減圧事故解析 (RPV 最高温度)



### 3.4 研究推進

本研究を推進するに当たり、基盤チームの連携を図るために、月に 1 回、定期的な会議を zoom を用いてオンラインで実施した。

- |        |            |   |
|--------|------------|---|
| 第 21 回 | 2023/4/7   | 前年度成果報告書のまとめ状況共有。今年度実施内容、スケジュールなどの確認。   |
| 第 22 回 | 2023/5/12  | 反応焼結及び熱設計に関する情報共有。5 月末の ICONE30 でのシリーズ発表に関する確認。   |
| 第 23 回 | 2023/6/16  | 統合試験計画について議論を行った。TG-DTA の修理状況について情報共有を実施  |
| 第 24 回 | 2023/7/7   | TG-DTA や SEM の結果の紹介。安全解析の経過報告。  |
| 第 25 回 | 2023/8/4   | 総合試験について、グラファイトを用いた実験準備中である旨の報告があった。  |
| 第 26 回 | 2023/9/15  | 統合試験結果について、SiC 試験片で 1300 度での質量欠損が観測された。TG-DTA の結果とは異なるので、統合試験の再実験を行うこととした。              |
| 第 27 回 | 2023/10/13 | 統合試験の再実験においても質量欠損が観測された。試験片を東工大に送って TG-DTA で確認を行うこととした。また、長時間の TG-DTA で重量増加が止まる現象が得られた。 |
| 第 28 回 | 2023/11/17 | 反応焼結の最適化を行い、新しい試験片を 12 月目標で東大に送付することとした。  |
| 第 29 回 | 2023/12/22 | 統合試験結果の試験片を分析した結果、酸化被膜が確認されなかった。理由については検討中。   |
| 第 30 回 | 2024/1/13  | 進捗状況報告。TG-DTA の再現性についての議論を行った。  |
| 第 31 回 | 2024/2/18  | 新しい試験片での統合試験結果でも質量欠損が得られた。ホルダーに用いている黒鉛の酸化により SiC の酸化反応が影響を受けていることが推測された。                |
| 第 32 回 | 2024/3/8   | 今年度事業報告書と成果報告書に関する連絡。報告書をまとめたのちも、本グループとしては継続的に検討を進めていくことを確認した。                          |



#### 4. 結言

高温ガス炉は、極めて安全な原子炉であるとともに、1000℃に近い熱を供給できるメリットがあり、カーボンフリー社会の中核的な技術となり得る。HTTR で用いられている黒鉛スリーブ付き黒鉛コンパクト燃料に対して、スリーブを除去した SiC コンパクト燃料とすることで、熱除去性能が上昇し、出力密度の向上が期待できる。事故時及び通常時の SiC 酸化は、化学反応、反応生成物 (CO 等) の物質移行、冷却材流動、輻射伝熱など、マルチフィジクスである。本研究では、SiC 酸化反応に関する解析コードを整備するとともに、その V&V 手法を確立し、高出力密度高温ガス炉の可能性を追求する事を目的としている。

以下に、3 カ年計画の 3 年目である本年度の業務実績を述べる。

##### (1) SiC 酸化評価コードの VVUQ

統合試験を実施するとともに、要素試験及び統合試験の結果を踏まえてコードの VVUQ を進め、本研究のまとめを行った。

##### (2) SiC 酸化要素試験 (再委託先：東京工業大学)

令和 4 年度までの検討結果をベースとし、SiC 試験片及び SiC コンパクトモデルについて酸素濃度及び温度条件を変化させて TG-DTA による酸化試験を行い、SiC の酸化データを充実させた。また、(1) で実施する統合試験と VVUQ のまとめのために、これらのデータを供した。

##### (3) 実機成立性評価 (再委託先：原子力機構)

令和 4 年度に明確化した崩壊熱等のパラメータ範囲及び境界条件を用い、(1) で整備する SiC 酸化評価コード等により、事故時の解析を行って実機の成立性を評価し、成果を取り纏めた。

##### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にし、(1) から (3) の研究成果を総合して目的を達成できるよう、情報の共有化に努めながら研究を進めた。

以上、3 カ年計画の 3 年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。