

JAERI-M

6 2 8 1

溶 融 金 属 の 水 中 落 下 実 験

(溶融金属・水相互作用における金属の微粒子化発生条件)

1975年10月

藤 城 俊 夫・落 合 政 昭*

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

溶融金属の水中落下実験 (溶融金属・水相互作用における金属の微粒子化発生条件)

日本原子力研究所東海研究所反応度安全研究室

藤 城 俊 夫 ・ 落 合 政 昭*

(1975年10月6日 受理)

NSRRにより燃料破損後の機械的エネルギー発生の機構，挙動を調べる為には溶融燃料と冷却材の相互作用の機構，特に溶融燃料の微粒子化現象を知る事が重要である。

本実験は，溶融燃料／冷却材相互作用 (Fuel-Coolant Interaction) を模擬した一連の溶融金属／水相互作用の炉外実験の端緒として，高温の溶融金属が水中に自然落下した時の微粒子化現象の発生条件を金属温度および水のサブクール度をパラメータとして調べたものである。なお，対象金属としてアルミニウム，錫，鉛および半田 (錫50%—鉛50%) の4種を選んだ。

この結果，1) 初期金属温度が低いと微粒子化が発生しないこと，2) サブクール度が低いと微粒子化が発生しない事 (限界サブクール度の存在)，3) 限界サブクール度は金属温度の上昇について増加すること，4) アルミニウム／水相互作用では本実験の条件範囲 (水温0～99℃，金属温度685～1200℃，自然落下) にかぎり，微粒子化が生じないこと等が明らかになった。

* 船舶技術研究所東海支所

Molten Metal Dropping Experiment

-- Initiation Criteria of the Metal Fragmentation
in Molten Metal-water Interaction --

Toshio FUJISHIRO, Masaaki OCHIAI^{*}
Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received October 6, 1975)

Understanding of molten fuel-coolant interaction, i.e. the mechanical energy generation at fuel failure is one of the main objectives of NSRR fuel failure experiments. To analyze this phenomenon there are many unknown parameters such as molten fuel fragment size, fuel-coolant mixing rate and heat transfer coefficient between molten fuel and coolant. Among these parameters, initiation of the fuel fragmentation is one of the important criteria to decide whether or not large mechanical energy shall occur.

The present work is a simulation experiment to find out the thermal conditions for fuel fragmentation using molten metal/water combination in stead of molten UO_2 /water.

Four different metals, Sn, Pb, Al and Sn50%-Pb50% alloy, were used as simulation material of UO_2 . The material was heated to a temperature above its melting point in an electric furnace, then dropped into a temperature-controlled water pool from a little above the water surface. Molten metal temperature and water subcooling were varied in the experiment.

The following results were obtained.

- (1) Fragmentation occurred in low melting-point metals, i.e. Sn, Pb and Sn-Pb alloy.
- (2) In low melting point metal fragmentation, the metal temperature threshold and the water subcooling threshold were observed. That is no fragmentation occurred when the metal temperature was lower than about 100°C above the melting point or when the water subcooling was smaller than 40°C.
- (3) The threshold subcooling increased with the increase of molten metal temperature.
- (4) No fragmentation took place in molten Al/water interaction in our experiment system at pool water temperature 0 - 100°C and metal temperature 685 - 1200°C.

* Tokai Branch, Ship Research Institute

目 次

1. まえがき	1
2. 実験方法	2
3. 実験結果	3
3.1 実験結果の概要	3
3.2 微細化の様相	3
3.3 微細化に与える実験パラメータの影響	4
4. 考 察	5
5. 結 論	7
6. 謝 辞	8
7. 参考文献	9

1. ま え が き

沸点の異なる液体同志が接触する時、高沸点液体の温度が他の液体の沸点よりはるかに高い場合に、蒸気爆発 (vapor explosion) と呼ばれる爆発的な沸騰現象が発生し周囲の構造物あるいは容器に衝撃的な破壊力を及ぼすことがある。原子炉では、燃料・冷却材相互作用または FCI (Fuel Coolant Interaction) としてこの種の液-液接触反応の可能性が想定されている。すなわち、溶融した原子炉燃料が周囲の冷却材中に飛散し急激な熱の授受が溶融燃料と冷却材の間でなされる結果、ついには蒸気爆発に到る現象である。

FCI に関する研究は、主としてナトリウム冷却高速炉の燃料溶融事故を対象として各国でなされているが、軽水炉に関しても米国の SPERT 実験その他の実験が公表されている。これまでに報告されている FCI に関する実験的研究は次の 3 種に大別される。

- 1) 炉内 FCI 実験^{1), 2)} (反応度付加または冷却能力低下等による炉内燃料破壊実験)
- 2) 炉外 FCI 実験^{3), 4)} (溶融 UO_2 / ナトリウム接触実験)
- 3) 炉外 FCI 模擬実験^{5), 6)} (溶融金属 / 水接触または有機液体 / 水接触による FCI 模擬実験)

NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) を用いた反応度事故に関する実験研究は、カプセル内に装荷した試験燃料を原子炉内でパルス照射し反応事故を模擬した急激な発熱を生じさせることにより、(1) 燃料の破損限界、(2) 燃料の破損機構、および (3) 燃料破損後の燃料片分散、機械的エネルギーの発生等の挙動を知ることを行なわれる。これらの目的のうち (3) に示した燃料破損後の挙動研究は FCI 実験にはかならず、上述の 1) の実験項目、すなわち炉内 FCI 実験に分類される。現在、炉内 FCI 実験のデータはあまり多くは報告されていないので、この面からも NSRR 研究計画の遂行が要望されているが、同時に NSRR 実験計画立案のためおよび実験結果を十分に理解するためには炉外での基礎実験の蓄積が必要とされる。反応度安全開発室ではこのために解析コードを開発し予備解析を行うと共に、既報の文献を調査する事により基礎的情報の集収・整理に努めてきた。それと同時に同室ではこれまでの報告で指摘された FCI に特徴的な事象について確認実験を行い、FCI に対しさらに明確な理解を得よう努めている。本実験はこれらの 1 つとして、これに引き続き予定されている溶融金属 / 水相互作用圧力波測定実験の予備実験として行われたものである。

これまでに行われた炉外での溶融金属 / 水相互作用実験の報告にもとづいて、実験的に確認された事実と考えられるものをまとめると以下ようになる。

- 1) Al, Cu などの融点の高い ($T_m > \sim 500^\circ\text{C}$) 金属と水との相互作用は穏やかである。⁷⁾
- 2) Sn, Pb などの融点の低い ($T_m < \sim 400^\circ\text{C}$) 金属は水との間に激しい相互作用をし、この時、金属は微粒子化 (fragmentation) する。⁷⁾
- 3) Sn, Pb などと水との相互作用においても、水温が高いと微粒子化も蒸気爆発も生じない。^{7), 8)}
- 4) 蒸気爆発は微粒子化による伝熱面積の増加が直接的原因と考えられる。
- 5) 微粒子化現象は、主として溶融金属を包み液-液直接接触を妨げている蒸気膜の破断が直接的な契機となる。

この蒸気膜破断は、遷移沸騰、核沸騰により生じる圧力振動、外力、水流のモーメント等⁹⁾の種々の原因によって発生する。

本実験はFCIにおいて生じる蒸気爆発の直接的原因となる微粒子化現象の発生条件を知る事を目的とした予備実験であり、上述のこれまでの実験事実を確認するとともに、色々な研究者が提案している微粒子化モデルの妥当性を検証することを目的としている。特に今回の実験では、微粒子化発生の上限となるような水温（限界サブクール度）の存在を確かめ、金属の種類や金属の温度との関係を知る事に重点をおき、実験方法としては水槽中に溶融した金属を落下させ微粒子化の有無を確認する方法を用いた。

2. 実験方法

実験装置の概略を図1に示す。実験手順を以下に記す。まず電気炉でセミラック製るつぼ（容量30 cc）に入れた所定の金属を加熱融解する。電気炉の最高使用温度は1600℃である。一方、恒温槽中のビーカー（容量2000 cc）の中の水温を所定の温度に設定する。水温はCA熱電対または水銀温度計で測定した。金属温度が必要とする温度に達したら、るつぼを電気炉から取り出しビーカー内の水中に溶融した金属を落とす。その際できるだけ水面に近い位置（水面上約5 cm）から自然落下させるように注意する。電気炉から取り出してからビーカーに落下させるまで、金属温度をPt-Rh（13%）熱電対またはCA熱電対およびデジタル電圧計（最小目盛10 μ V，サンプリング時間0.1 sec）で常時監視する。約2 Kgのプール水量に比べて落下金属量が5～50 gと非常に少なく、金属落下前後のビーカー内水温の変化は実測でも0.5℃以下である事を確かめたので、落下直前の水温をプール水温度とした。水温は ± 0.5 ℃、金属温度は落下操作時の冷却を考慮しても ± 2.5 ℃程度の精度で測定できている。

金属が十分冷却した後に、金属の小片を回収して微粒子化現象の有無を確かめ写真撮影した。

実験対象金属としては、融点が高く水との相互作用が比較的穏やかであると考えられるアルミニウム（ $T_m = 660$ ℃）と、低融点で水と激しく作用すると予想される錫（ $T_m = 231.9$ ℃）鉛（ $T_m = 327.3$ ℃）および両者の共融体である半田（Sn 50%）を選んだ。いずれも純度はJIS 1級のものである。以上の金属は入手も、また取扱いも容易であり、小規模な実験に適している。

表1に錫、アルミニウムおよび鉛の液体での熱的物性値を示す。熱伝導率、熱拡散率、定圧比熱はTouloukian等の推奨値にしたがった。他の物性値は伝熱工学資料¹¹⁾によった。半田の液体での物性値は入手できなかったので示していない。

実験のパラメータ範囲を表2に示す。なお、1回に落下させる金属の重量は、錫-水の組合せで5 g、10 g、20 g、50 gと変化させて比べてみたが、結果に顕著な差が見られなかったので以後の実験では全て10 gを落下金属重量とした。

この蒸気膜破断は、遷移沸騰、核沸騰により生じる圧力振動、外力、水流のモーメント等⁹⁾の種々の原因によって発生する。

本実験はFCIにおいて生じる蒸気爆発の直接的原因となる微粒子化現象の発生条件を知る事を目的とした予備実験であり、上述のこれまでの実験事実を確認するとともに、色々な研究者が提案している微粒子化モデルの妥当性を検証することを目的としている。特に今回の実験では、微粒子化発生の上限となるような水温（限界サブクール度）の存在を確かめ、金属の種類や金属の温度との関係を知る事に重点をおき、実験方法としては水槽中に溶融した金属を落下させ微粒子化の有無を確認する方法を用いた。

2. 実験方法

実験装置の概略を図1に示す。実験手順を以下に記す。まず電気炉でセミラック製のつぼ（容量30 cc）に入れた所定の金属を加熱融解する。電気炉の最高使用温度は1600℃である。一方、恒温槽中のビーカー（容量2000 cc）の中の水温を所定の温度に設定する。水温はCA熱電対または水銀温度計で測定した。金属温度が必要とする温度に達したら、つぼを電気炉から取り出しビーカー内の水中に溶融した金属を落とす。その際できるだけ水面に近い位置（水面上約5 cm）から自然落下させるように注意する。電気炉から取り出してからビーカーに落下させるまで、金属温度をPt-Rh（13%）熱電対またはCA熱電対およびデジタル電圧計（最小目盛10 μ V，サンプリング時間0.1 sec）で常時監視する。約2 Kgのプール水量に比べて落下金属量が5～50 gと非常に少なく、金属落下前後のビーカー内水温の変化は実測でも0.5℃以下である事を確かめたので、落下直前の水温をプール水温度とした。水温は ± 0.5 ℃、金属温度は落下操作時の冷却を考慮しても ± 2.5 ℃程度の精度で測定できている。

金属が十分冷却した後に、金属の小片を回収して微粒子化現象の有無を確かめ写真撮影した。

実験対象金属としては、融点が高く水との相互作用が比較的穏やかであると考えられるアルミニウム（ $T_m = 660$ ℃）と、低融点で水と激しく作用すると予想される錫（ $T_m = 231.9$ ℃）鉛（ $T_m = 327.3$ ℃）および両者の共融体である半田（Sn 50%）を選んだ。いずれも純度はJIS 1級のものである。以上の金属は入手も、また取扱いも容易であり、小規模な実験に適している。

表1に錫、アルミニウムおよび鉛の液体での熱的物性値を示す。熱伝導率、熱拡散率、定圧比熱はTouloukian等の推奨値にしたがった。他の物性値は伝熱工学資料¹¹⁾によった。半田の液体での物性値は入手できなかったので示していない。

実験のパラメータ範囲を表2に示す。なお、1回に落下させる金属の重量は、錫-水の組合せで5 g、10 g、20 g、50 gと変化させて比べてみたが、結果に顕著な差が見られなかったため以後の実験では全て10 gを落下金属重量とした。

3. 実験結果

3.1 実験結果の概要

実験結果の概要を表3に示す。微粒子化は錫、鉛および半田では生じたが、アルミニウムでは生じなかった。また微粒子化の発生は金属の初期温度 T_i および水のサブクール度 T_{sub} によって支配され、錫、鉛等の比較的低融点の金属でも初期温度が約450℃以下であるか、あるいはサブクール度が小さいと微粒子化しなかった。

微粒子化現象を生じた時には必ず爆発音が観測された。初期金属温度が高いほど爆発音が高いという傾向がみられ、錫/水相互作用で錫50g、初期金属温度615℃、水温30℃の時には爆発音とともにピーカーが割れた。

なお、金属/水間の化学反応は定量的には測定しなかったが、微粒子化後も金属光沢をもっていることから考えて顕著な化学反応は生じていないと思われる。

3.2 微細化の様相

写真1～写真3に金属/水相互作用後の金属片の様相を示す。写真1-a～fは微細化が発生したときの様相で錫、鉛、半田ともによく似た形を示している。この場合には金属の大部分は砂粒状に微細化され、比較的大きな塊として残った部分の表面とも海面状の凹凸があり、伝熱面積の増大が示されている。初期金属温度が高い場合には落下したほとんど全量が砂粒化した。初期金属温度が比較的低い場合は金属の一部のみが微粒子化し、残部の表面は海綿状化したものの金属塊のままであった。この場合にも爆発音を伴っており、微細化が発生したとして分類した。

写真2-a～hは微細化が発生しなかったときの様相で錫、鉛、半田では初期金属温度が低いか、またはサブクール度が小さいために微細化しなかった例であり、またアルミニウムについては本実験の条件範囲では微細化しなかった。初期金属温度が低いときには落下金属は水面付近で固化したが、金属温度が高いにもかかわらずサブクール度が小さいために微細化しなかった場合には、金属は液体のままピーカーの底に達し、最初は膜沸騰、次には遷移および核沸騰に静かに移行した後固化した。アルミニウムの場合にはピーカーの底部の受け皿の中で安定した膜沸騰を呈し、最後に激しい発泡を伴う核沸騰が見られたが、爆発音は観測されなかった。残った金属片の中に写真2-c, dに見られるように風船状に膨張した中空アルミニウム片が回収された。内部に水を含んでいたり、膨張部分の頂点が破れて水蒸気が吹き出したものと推測される形状のものが大部分であり、いずれのケースでも膨張部分の内部には発泡点の根拠であろうと思われる多数の凹凸が見うけられた。したがってこのような金属片が形成される原因は金属が溶融状態のときに金属内に巻き込まれた水の突沸によるものと思われる。このような中空金属片はZyskowskiの論文にも報告されており、“empty shell”と呼ばれている。

写真3-a～fは上述の写真1の場合と写真2の場合の境界に位置するものである。局所的には微細化が生じはじめているが金属塊の内部までは進行せず、爆発音もほとんど観測されなかった。冷却水および金属塊の温度条件も微細化が生じる場合と生じない場合の中間の条件で

このようになるのでこのような場合を微細化発生の境界現象として分類した。

3.3 微細化に与える実験パラメータの影響

(1) 金属重量の影響

図2に錫／水の組合せの場合に、微粒子化現象発生に及ぼす落下金属重量の影響を示す。これは、水温を 15°C （サブクール度 85°C ）として、これに 5 g 、 10 g および 20 g の錫を落下させたときの微粒子化発生の有無を、金属重量と金属初期温度との関係として整理したものである。本実験では水の重量が金属重量に比べ非常に大きく、水を無限媒質とみなしうる。このような条件においては、落下する熔融金属塊の大きさによる微粒子化発生の様相の変化は図2からも分るようにより顕著ではなかった。

(2) 金属初期温度および水のサブクール度の影響

微粒子化現象発生におよぼす金属温度およびサブクール度の影響を知るために、横軸に金属温度、縦軸にサブクール度を取り、このグラフに微粒子化が生じた場合、生じなかった場合および表面のみ破砕した場合の実験点をプロットした。図4から図6までにそれぞれ錫／水、鉛／水、半田／水およびアルミニウム／水の組合せの場合のデータを示す。このような整理をすると微粒子化が生じるためには金属温度、サブクール度がともに一定の条件を満たすことが必要なことが明瞭になる。図中の破線は発生限界を示したものであるが、錫、鉛および半田では金属温度が $400\sim 450^{\circ}\text{C}$ 以下では微粒子化が生じないこと、および水のサブクール度が 45°C 以下では微粒子化しないこと、すなわち限界サブクール度が存在することが示されている。さらに限界サブクール度は金属温度の上昇につれて増加し、また、その程度は金属の種類によって顕著な差があり、錫／水では最も小さく、半田／水の場合が最も大きくなった。微粒子化現象は、金属塊がビーカーの底（水深約 15 cm ）に達する前に生じ、初期金属温度が限界温度より低い場合には金属は水中に入るとすぐ固化した。

また、水のサブクール度が限界サブクール度以上の時には金属塊表面は蒸気膜で覆われて底まで落下し、底部で静かに固化した。したがって、金属温度が低い場合には金属表面の固化層が微細化の発生を妨げ、また、水のサブクール度が低い時には膜沸騰による安定な蒸気膜が金属と水との接触を妨げ、熱的および機械的に大きな乱れが生じないためであろうと考えられる。

アルミニウム／水の組合せでは水温 $0\sim 99^{\circ}\text{C}$ 、金属温度 $685\sim 1200^{\circ}\text{C}$ の範囲で全く微粒子化現象は観察されなかった。この結果はこれまでの大部分の同種実験の報告と同様である。全ての実験で、アルミニウムはビーカーの底部の受け皿の中で安定した膜沸騰を呈し最後に激しい発泡を伴う核沸騰がみられた。前節の写真に示したような中空になったアルミニウム塊が回収されたが、いわゆる蒸気爆発的な現象は観察されなかった。アルミニウム／水の相互作用で、微粒子化および蒸気爆発が観測されたという報告は数編^{9),13)}ある。それらによると、微粒子化の原因として人為的外力による蒸気膜の破断、容器とアルミニウムとの間に包まれた部分の突沸、溶解アルミニウム内部に巻き込まれた水の気化⁹⁾等が挙げられている。これらはいずれも比較的大きな外乱が加わる条件の実験になっており、本実験の場合も人為的に大きな外乱を加えてやれば、他の三種の金属と同じような微粒子化が生じたかも知

れない。しかしながら、本実験のように金属塊を静かに落下させるような実験において、アルミニウムと錫、鉛等との間に大きな現象の差が生じる理由は明確でない。

4. 考 察

本実験のように静水中に熔融金属を落下させる形式の熔融金属／水相互作用の実験で生じる微粒子化の原因として、これまでに提案されている解釈として次のようなものがある。

- (1) 遷移沸騰時の気泡生成、消滅による攪乱効果
- (2) 熔融金属中へ巻込まれた水の突沸
- (3) 金属表面の熱衝撃による破碎

以上の諸説にはそれぞれ一理あるが、いずれも決定的な解釈とはなっていない。そこでこれらと本実験の結果とを照合し諸説の妥当性を確かめる。

(1) 遷移沸騰による攪乱効果

大気圧の水は約 300℃ 以上の高温の物体と接すると膜沸騰を生じ、冷却にともなって遷移沸騰さらに核沸騰へと移行する。膜沸騰が続いている間は物体表面は非常に静かであるが遷移沸騰の発生とともに気泡の生成・消滅による局所的な流動や衝撃圧が発生する。攪乱効果説はこのような遷移沸騰時の攪乱によって熔融金属が分散するという解釈である。

この解釈にもとづけば、本実験においてアルミニウム／水相互作用で微粒子化が生じなかった事は次のように説明できる。水あるいはその他の液体が高温の物体と接触した場合に、高温物体の表面温度が液体のライデンフロスト温度以上であると安定な膜沸騰を生じる。大気圧下の水の場合、この温度は約 300℃ である。したがって融点が約 660℃ のアルミニウムでは、熔融状態で水に入るとすぐ安定な蒸気膜で覆われ、アルミニウムの冷却にともなって遷移沸騰へ移行した時にはアルミニウムの大部分は既に固化してしまっている。このため多少の乱れでは微粒子化しない。一方、鉛の場合は融点が 327℃ で、遷移沸騰へ移行した時には表面だけが固化した程度で、遷移沸騰へ移行した時には十分に流動的であり微粒子化が生じ得る。錫、半田の融点は 250℃ 以下なので、表面が 300℃ 以下になり遷移沸騰に移行した時にも液体であり、微粒子化が生じうる。このように定性的には現象を良く説明できる。

以上の理論をさらに定量化したものに「接触温度説」なる仮説が提案されている。この理論では沸騰が開始する直前の金属と水との境界面温度に着目し、この温度 T_c が、沸騰曲線上で遷移沸騰又は核沸騰領域にあり、かつ金属の融点より高い時に金属は微粒子化すると考える。境界面温度あるいは接触温度 T_c は半無限体の熱伝導計算から求める。すなわち、初期温度 T_1 および T_2 の 2 つの半無限厚さの固体が接触した時の境界面温度 T_c は時間によらず一定値をとり、(1)式で計算できる。

$$\frac{T_1 - T_2}{T_c - T_2} = \sqrt{\frac{\lambda_2 r_2 C_{p2}}{\lambda_1 r_1 C_{p1}}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ただし、 λ_1, λ_2 : 物体 1 および 2 の熱伝導率

れない。しかしながら、本実験のように金属塊を静かに落下させるような実験において、アルミニウムと錫、鉛等との間に大きな現象の差が生じる理由は明確でない。

4. 考 察

本実験のように静水中に熔融金属を落下させる形式の熔融金属／水相互作用の実験で生じる微粒子化の原因として、これまでに提案されている解釈として次のようなものがある。

- (1) 遷移沸騰時の気泡生成、消滅による攪乱効果
- (2) 熔融金属中へ巻込まれた水の突沸
- (3) 金属表面の熱衝撃による破碎

以上の諸説にはそれぞれ一理あるが、いずれも決定的な解釈とはなっていない。そこでこれらと本実験の結果とを照合し諸説の妥当性を確かめる。

(1) 遷移沸騰による攪乱効果

大気圧の水は約 300℃ 以上の高温の物体と接すると膜沸騰を生じ、冷却にともなって遷移沸騰さらに核沸騰へと移行する。膜沸騰が続いている間は物体表面は非常に静かであるが遷移沸騰の発生とともに気泡の生成・消滅による局所的な流動や衝撃圧が発生する。攪乱効果説はこのような遷移沸騰時の攪乱によって熔融金属が分散するという解釈である。

この解釈にもとづけば、本実験においてアルミニウム／水相互作用で微粒子化が生じなかった事は次のように説明できる。水あるいはその他の液体が高温の物体と接触した場合に、高温物体の表面温度が液体のライデンフロスト温度以上であると安定な膜沸騰を生じる。大気圧下の水の場合、この温度は約 300℃ である。したがって融点が約 660℃ のアルミニウムでは、熔融状態で水に入るとすぐ安定な蒸気膜で覆われ、アルミニウムの冷却にともなって遷移沸騰へ移行した時にはアルミニウムの大部分は既に固化してしまっている。このため多少の乱れでは微粒子化しない。一方、鉛の場合は融点が 327℃ で、遷移沸騰へ移行した時には表面だけが固化した程度で、遷移沸騰へ移行した時には十分に流動的であり微粒子化が生じ得る。錫、半田の融点は 250℃ 以下なので、表面が 300℃ 以下になり遷移沸騰に移行した時にも液体であり、微粒子化が生じる。このように定性的には現象を良く説明できる。

以上の理論をさらに定量化したものに「接触温度説」なる仮説が提案されている。この理論では沸騰が開始する直前の金属と水との境界面温度に着目し、この温度 T_c が、沸騰曲線上で遷移沸騰又は核沸騰領域にあり、かつ金属の融点より高い時に金属は微粒子化すると考える。境界面温度あるいは接触温度 T_c は半無限体の熱伝導計算から求める。すなわち、初期温度 T_1 および T_2 の 2 つの半無限厚さの固体が接触した時の境界面温度 T_c は時間によらず一定値をとり、(1)式で計算できる。

$$\frac{T_1 - T_2}{T_c - T_2} = \frac{\sqrt{\lambda_2 \gamma_2 C_{p2}}}{\sqrt{\lambda_1 \gamma_1 C_{p1}}} \dots\dots\dots (1)$$

ただし、 λ_1, λ_2 : 物体 1 および 2 の熱伝導率

γ_1, γ_2 : 物体 1 および 2 の比重量

C_{p1}, C_{p2} : " " 定圧比熱

本実験のように水中に熔融金属を落下させる形式の金属/水相互作用では、金属と水とが⁸⁾接触してから最初の気泡が生じるまでの時間は 10 msec 程度であると報告されている。

このような短時間の伝熱現象では、対流の影響は小さく熱伝導のみと考えればよい。また、境界での熱伝導の影響が固体内に浸透する深さ δ は

$$\delta = \sqrt{12 a t} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ただし

a : 熱拡散率 (m^2 / hr)

t : 時間 (hr)

で表わされる。(プロファイル法による)

$t = 10 \text{ msec}$ のときの δ の値を鉛および錫について計算すると、

鉛: $\delta = 1.3 \text{ mm}$

錫: $\delta = 1.8 \text{ mm}$

となり、本実験のように金属塊の直径が最小でも 3 mm, 平均 5 mm 程度の時には、熱伝導は金属の表面近くのみを考えればよい。したがって初期気泡発生までの温度計算に(1)式を用いるのは、ほぼ妥当であろうと考えられる。しかし、接触熱抵抗、あるいは表面酸化膜等の影響は考慮されていないので、ぬれが悪かったり、表面酸化が生じたりすれば T_c の値は違ってくる。

図 3 および図 4 から微粒子化が発生する限界金属温度は、錫や鉛の場合では 400~450 $^{\circ}\text{C}$ となる。そこで、 $T_1 = 400^{\circ}\text{C}$ のときの接触温度 T_c を(1)式から求めると水温を T_2 として次のようになる。

$$\left. \begin{array}{l} \text{錫: } T_c = 330 + 0.17 T_2 \quad (^{\circ}\text{C}) \\ \text{鉛: } T_c = 305 + 0.24 T_2 \quad (^{\circ}\text{C}) \end{array} \right\} \dots\dots\dots (3)$$

$T_2 = 0 \sim 100^{\circ}\text{C}$ としたとき $T_c = 305 \sim 347^{\circ}\text{C}$ となり、この値は Schim⁷⁾らの指摘する水の最小熱流束に対応する伝熱面温度 $\theta_{\min} = 300^{\circ}\text{C}$ とほぼ同じ値となり遷移沸騰領域にある事になるので、微粒子化は発生することになる。したがって、限界温度の値は実験と良く一致することになるがこの値は理論上からは微粒子化発生の上限温度を与えることになるので、我々の実験において限界温度が逆に下限温度となっている事実⁷⁾に反しており、接触温度説による説明は不充分である。

また、半田/水相互作用で、微粒子化発生の下限となる金属温度が鉛、錫等に比較して低い事は、半田の融解温度がより低く、かつ融解温度を基準としたときのエンタルピが同温度の錫や鉛よりも大きい事によるためであろう。

(2) 熔融金属中に巻き込まれた水の沸騰⁸⁾

Buchanan⁸⁾らは、微粒子化の機構を次のように考えている。すなわち何らかの条件で初期気泡が発生したらその後は気泡が発生、成長、消滅のプロセスをくり返し、気泡消滅の際に生ずる局所的な減圧によって誘起される水の噴流が金属に向って流れる。その時に金属が熔融状態で十分に柔らかければ、水の噴流は金属の中にまで入り込む。この入り込んだ水

が激しく沸騰し、前回より大きい圧力変動を生じて、さらに新しく水の巻き込みを生じるサイクルをくり返し、この結果微粒子化に到るという仮説である。彼等は、また、初期気泡の発生にはある限界値 Q_c 以上の熱流束が必要であると仮定している。したがってサブクール度が減少すると最大熱流束は減少し、沸騰曲線の遷移沸騰から膜沸騰に到る部分は伝熱面温度の小さい方にずれるために、サブクール度があまり小さいと Q_c が実現しなかったり、 Q_c に対応する金属温度が金属の融点に下になる結果、微粒子化が生じないとしている。(図7参照) Buchanan らは大気圧下の錫/水相互作用の実験結果から限界サブクール度を 65°C 程度(金属温度 800°C)⁷⁾ としており、この値は本実験結果より 10°C 程度大きい。

一方、Schins らは同じく水の巻き込みを微粒子化の原因とし、これが生じる限界は前述の(1)式で計算される接触温度 T_c が最小熱流束に対応する温度 $T_{\min}$ よりも小さい時に微粒子化が発生するとしている。しかし、すでに(1)で述べたように接触温度 T_c にもとづく解釈は本実験結果と一致しない。また、彼らはサブクール度の影響について、サブクール度が小さいと気泡の消滅速度が小さく十分な噴流が生じないため微粒子化しないと考え、限界となるサブクール度を 30°C としている。

両者の仮説においては、限界サブクール度の存在する原因を主として水の沸騰に関する性質に求めている。定性的な解釈としては、このような解釈は一応根拠のあるものと考えられるが、本実験結果から、限界サブクール度は金属の種類および金属温度にもかなり大きく依存していることが明らかになり、この解釈も含め、より定量的な解析を行なうためには金属側の特性も考慮しなければならないであろう。

(3) 金属表面の熱衝撃による破砕

微粒子化の原因を金属側から考える見方もある。これは、金属の急冷により表面が凝固、収縮し、内圧が上昇する。同時に、表面の殻状の固体に熱衝撃が作用し、これらの総合作用により微粒子化がもたらされるとする説明である。この説では、限界サブクール度をサブクール度の差による冷却速度の差に起因するものとして説明するが、本実験で得られた様な明確な閾値の存在することに対する説明としては承認し難い。

5. 結 論

NSRR研究計画遂行上の基礎実験の一つとして溶融金属を水槽中に落下させる方法により水/金属相互作用における微粒子化の様相を調べる実験を行なった。その結果次の事が確認された。

1. 錫、鉛および半田と水との接触では微粒子化が発生した。又、これらの微粒子化の様相は類似していた。
2. 水のサブクール度がある限界値以下になると微粒子化は発生せず、限界サブクール度の存在が確認された。
3. 金属温度が融点以上のある温度以上でないと微粒子化せず、下限金属温度の存在が確認された。

が激しく沸騰し、前回より大きい圧力変動を生じて、さらに新しく水の巻き込みを生じるサイクルをくり返し、この結果微粒子化に到るという仮説である。彼等は、また、初期気泡の発生にはある限界値 Q_c 以上の熱流束が必要であると仮定している。したがってサブクール度が減少すると最大熱流束は減少し、沸騰曲線の遷移沸騰から膜沸騰に到る部分は伝熱面温度の小さい方にずれるために、サブクール度があまり小さいと Q_c が実現しなかったり、 Q_c に対応する金属温度が金属の融点に下になる結果、微粒子化が生じないとしている。(図7参照) Buchanan らは大気圧下の錫/水相互作用の実験結果から限界サブクール度を 65°C 程度(金属温度 800°C)⁷⁾ としており、この値は本実験結果より 10°C 程度大きい。

一方、Schins らは同じく水の巻き込みを微粒子化の原因とし、これが生じる限界は前述の(1)式で計算される接触温度 T_c が最小熱流束に対応する温度 $T_{\min}$ よりも小さい時に微粒子化が発生するとしている。しかし、すでに(1)で述べたように接触温度 T_c にもとづく解釈は本実験結果と一致しない。また、彼らはサブクール度の影響について、サブクール度が小さいと気泡の消滅速度が小さく十分な噴流が生じないため微粒子化しないと考え、限界となるサブクール度を 30°C としている。

両者の仮説においては、限界サブクール度の存在する原因を主として水の沸騰に関する性質に求めている。定性的な解釈としては、このような解釈は一応根拠のあるものと考えられるが、本実験結果から、限界サブクール度は金属の種類および金属温度にもかなり大きく依存していることが明らかになり、この解釈も含め、より定量的な解析を行なうためには金属側の特性も考慮しなければならないであろう。

(3) 金属表面の熱衝撃による破砕

微粒子化の原因を金属側から考える見方もある。これは、金属の急冷により表面が凝固、収縮し、内圧が上昇する。同時に、表面の殻状の固体に熱衝撃が作用し、これらの総合作用により微粒子化がもたらされるとする説明である。この説では、限界サブクール度をサブクール度の差による冷却速度の差に起因するものとして説明するが、本実験で得られた様な明確な閾値の存在することに対する説明としては承認し難い。

5. 結 論

NSRR研究計画遂行上の基礎実験の一つとして溶融金属を水槽中に落下させる方法により水/金属相互作用における微粒子化の様相を調べる実験を行なった。その結果次の事が確認された。

1. 錫、鉛および半田と水との接触では微粒子化が発生した。又、これらの微粒子化の様相は類似していた。
2. 水のサブクール度がある限界値以下になると微粒子化は発生せず、限界サブクール度の存在が確認された。
3. 金属温度が融点以上のある温度以上でないと微粒子化せず、下限金属温度の存在が確認された。

4. 微粒子化には必ず爆発音がともなった。
5. アルミニウムと水との接触では、本実験の条件範囲では微粒子化は発生しなかった。
6. 限界サブクール度は熔融金属温度および金属の種類によって異なった値をとり、熔融金属温度の上昇にともない増大した。

以上の事項のうち1～5は今までに公表されている熔融金属／水相互作用実験の報告で指摘されている事とはほぼ同じ結果であるが、6の事項については今までに言及されているものはない。実際のBWRあるいはPWRの運転条件では冷却水のサブクーリングが比較的小さい事を考えれば、運転条件で熔融燃料が冷却水と静かに接しただけでは微粒子化は生じず、破壊力発生も少なくなることも予想される。この意味から限界サブクーリングの存在には充分注意する必要がある、6の事項の原因説明も含めより詳細な実験および解析を行なっていく必要がある。

さらにNSRRでの燃料破壊実験における UO_2 ／水、又は UO_2 ／Na相互作用の理解を得るために、今後に下のような項目についての炉外実験を行なっていく必要がある。

1. 微粒子化に伴う圧力波のピーク値および持続時間等を、金属の種類、金属温度、圧力、水温等をパラメータとして測定すること。
2. 微粒子化のプロセスの高速度写真観察および微粒子化した金属片の粒径分布を測定すること。
3. 微粒子化に及ぼす外力の影響を調べる。この場合の外力としては、落下する金属のモーメンタム、流動している水中に落下させる場合の水側のモーメンタム、および雰囲気の水圧変動等が重要と考えられる。
4. 熔融金属と水の混合形式と微粒子化、圧力波との相関を知ること。特にNSRRでの燃料破壊実験で想定される各種の破損モードに対応した混合形式を考慮して実験を行なう必要がある。

6. 謝 辞

本実験の写真は全て、現在は動力試験炉部原子炉第1課に所属している宇野久男氏が撮影したものである。又、微粒子化に関する考察を行なうに際し、反応度安全研究室齊藤伸三氏には多くの文献を提供していただき、又、討議にも参加していただいた。

終りに臨み、以上の諸氏に対し衷心より感謝の意を表します。

4. 微粒子化には必ず爆発音がともなった。
5. アルミニウムと水との接触では、本実験の条件範囲では微粒子化は発生しなかった。
6. 限界サブクール度は熔融金属温度および金属の種類によって異なった値をとり、熔融金属温度の上昇にともない増大した。

以上の事項のうち1～5は今までに公表されている熔融金属／水相互作用実験の報告で指摘されている事とはほぼ同じ結果であるが、6の事項については今までに言及されているものはない。実際のBWRあるいはPWRの運転条件では冷却水のサブクーリングが比較的小さい事を考えれば、運転条件で熔融燃料が冷却水と静かに接しただけでは微粒子化は生じず、破壊力発生も少なくなることも予想される。この意味から限界サブクーリングの存在には充分注意する必要がある、6の事項の原因説明も含めより詳細な実験および解析を行なっていく必要がある。

さらにNSRRでの燃料破壊実験における UO_2 ／水、又は UO_2 ／Na相互作用の理解を得るために、今後に下のような項目についての炉外実験を行なっていく必要がある。

1. 微粒子化に伴う圧力波のピーク値および持続時間等を、金属の種類、金属温度、圧力、水温等をパラメータとして測定すること。
2. 微粒子化のプロセスの高速度写真観察および微粒子化した金属片の粒径分布を測定すること。
3. 微粒子化に及ぼす外力の影響を調べる。この場合の外力としては、落下する金属のモーメントム、流動している水中に落下させる場合の水側のモーメントム、および雰囲気圧力変動等が重要と考えられる。
4. 熔融金属と水の混合形式と微粒子化、圧力波との相関を知ること。特にNSRRでの燃料破壊実験で想定される各種の破損モードに対応した混合形式を考慮して実験を行なう必要がある。

6. 謝 辞

本実験の写真は全て、現在は動力試験炉部原子炉第1課に所属している宇野久男氏が撮影したものである。又、微粒子化に関する考察を行なうに際し、反応度安全研究室齊藤伸三氏には多くの文献を提供していただき、又、討議にも参加していただいた。

終りに臨み、以上の諸氏に対し哀心より感謝の意を表します。

7. 参 考 文 献

- 1) S.M. Zivi et al., "Autoclave TREAT Tests S11 and S12 on Fuel Coolant Interactions under Simulated Conditions of Prompt-burst Disassembly", Trans. Amer. Nucl. Soc., 16 No.2 (1973).
- 2) H. Kwast, "Some Observation on Sodium Fuel Interactions after Irradiation of Single Pins under Loss of Cooling Conditions", Paper at the Crest 2nd Specialist Meeting on Sodium-Fuel Interactions SNI 2/2, Ispra, Nov. 1973.
- 3) H. Mizuta et al., "Progress Report on the Molten UO_2 Drop Experiment", Paper at the 2nd Specialist Meeting on Sodium-Fuel Interactions SNI 2/25, Ispra, 1973.
- 4) D.R. Armstrong et al., "Interactions of Sodium with Molten UO_2 and Stainless Steel Using a Dropping Mode of Contact", ANL 7890, Dec. 1971.
- 5) J.N. Guest et al., "Al/Water Shock Tube Experiments at AWRE, Foulness since January 1972", Paper at the 2nd Specialist Meeting on S.F.I. SNI 2/1, Ispra, 1973.
- 6) D.L. Katz, Chem. Eng. Prog. 68, 68-69, 1972.
- 7) H. Schins, "The Consistent Boiling Model for Fragmentation In Mild Thermal Interactions - Boundary Conditions", Paper at the 2nd Specialist Meeting on S.F.I. SNI 2/24, Ispra, 1973.
- 8) D.J. Buchanan & T.A. Dullforce, "Fuel Coolant Interactions - Small Scale Experiments and Theory", Paper at the 2nd Specialist Meeting on S.F.I. SNI 2/3, Ispra, 1973.
- 9) S.J. Board & R.W. Hall, "Propagation in Thermal Explosions" Paper at the 2nd. Specialist Meeting on S.F.I. SNI 2/4, Ispra, 1973.
- 10) Y.S. Touloukian, "Thermophysical Properties of Matter", Vol.1, 4,10 IFI-Tlenu N.Y., (1970 - 1973)
- 11) 日本機械学会編 "伝熱工学資料 改訂版" J. S. M. E. 1962
- 12) W. Zyszkowski, "Experimental-Theoretical Investigation of the Thermal Explosion", Paper at the 2nd Specialist Meeting on S.F.I. SNI 2/10, Ispra, 1973.
- 13) G. Long, "Explosions of Molten Aluminum in Water Cause and Prevention", Metal Progress 71, 107, 1957.
- 14) K. H. Hisiao et al., "Pressurization of a Solidifying Sphere", J. of Applied Mechanics p.71, March 1972.
- 15) F.G. Brauer et al., "Metal/Water Explosions", Nucl. Sci. Eng., 31, p.551, 1968.

表-1 金属の物性値

Sn	温度 (°K)	600	700	800	900	1,000	1,100	1,200	1,300
融点 231.9°C*	λ (kcal/mh°C)	27.8	29.5	31.3	33.0	34.8	36.6	38.4	40.1
融解熱 14.5 kcal/kg	a (m ² /hr)	0.0680	0.0742	0.0799	0.0853	0.0911	0.0961	0.103	0.107
Al	温度 (°K)	1,000	1,100	1,200	1,300	1,400	1,500	1,600	1,700
融点 660.1°C*	λ (kcal/mh°C)	8.00	8.29	8.55	8.77	9.03	9.20	9.37	9.55
融解熱 9.5 kcal/kg	a (m ² /hr)	0.131	0.137	0.142	0.148	0.153	0.157	0.161	0.165
Pb	温度 (°K)	600.5	700	800	900	1,000			
融点 327.3°C*	λ (kcal/m ² h°C)	1.33	1.50	1.63	1.75	1.85			
融解熱 5.9 kcal/kg*	a (m ² /hr)	0.0356	0.0410	0.0457	0.0500	0.0540			

Cp (kcal/kg°C)

Sn	温度 (°K)	510	550	600	650	700	800
cp (kcal/kg°C)		0.0606	0.0596	0.0586	0.0577	0.0562	0.0557
Al	温度 (°K)	660°C ~ 1,100°C					
	cp (kcal/kg°C)	0.260					
Pb	温度 (°K)	650	750	850	950	1,050	1,150
	cp (kcal/kg°C)	0.0351	0.0348	0.0345	0.0341	0.0337	0.0334

記号

 λ : 熱伝導率 (kcal/mh°C) a : 熱拡散率 (m²/hr) C_p : 定圧比熱 (kcal/kg°C)

はんだ (Pb50%-Sn50%)

融解温度 : 210~219°C*

* : 伝熱工学資料より

その他は参考文献(10)より

表-2 実験パラメータ

対象金属	錫, アルミニウム, 鉛, はんだ (Sn 50)
初期金属温度	約 300℃ ~ 約 900℃ (Sn, Pb, はんだ)
	約 700℃ ~ 約 1200℃ (Al)
水温	0.0℃ ~ 99℃
金属重量	5 g, 10 g, 20 g, 50 g (Sn)
	10 g (Al, Pb, はんだ)

表-3 実験の概要

金 属				水		微粒子化発生の条件
種 類	融 点	反応重量	温度	重量	温度	
錫	231.9℃	5, 10, 20, 50 g	300℃ ~900℃	約 2 kg	15℃ ~85℃	$T_i > 450^\circ\text{C}$ かつ $T_{\text{sub}} > 61 - 0.03 T_i (^\circ\text{C})$
アルミニウム	660.1℃	10 g	700℃ ~1200℃	約 2 kg	0℃ ~100℃	微粒子化せず
鉛	327.3℃	10 g	400℃ ~750℃	約 2 kg	25℃ ~70℃	$T_i > 450^\circ\text{C}$ かつ $T_{\text{sub}} > 89 - 0.08 T_i (^\circ\text{C})$
は ん だ	210℃ ~219℃	10 g	250℃ ~800℃	約 2 kg	0℃ ~63℃	$T_i > 425^\circ\text{C}$ かつ $T_{\text{sub}} > 131 - 0.16 T_i (^\circ\text{C})$

ただし T_i : 初期金属温度 T_{sub} : 水のサブクール度

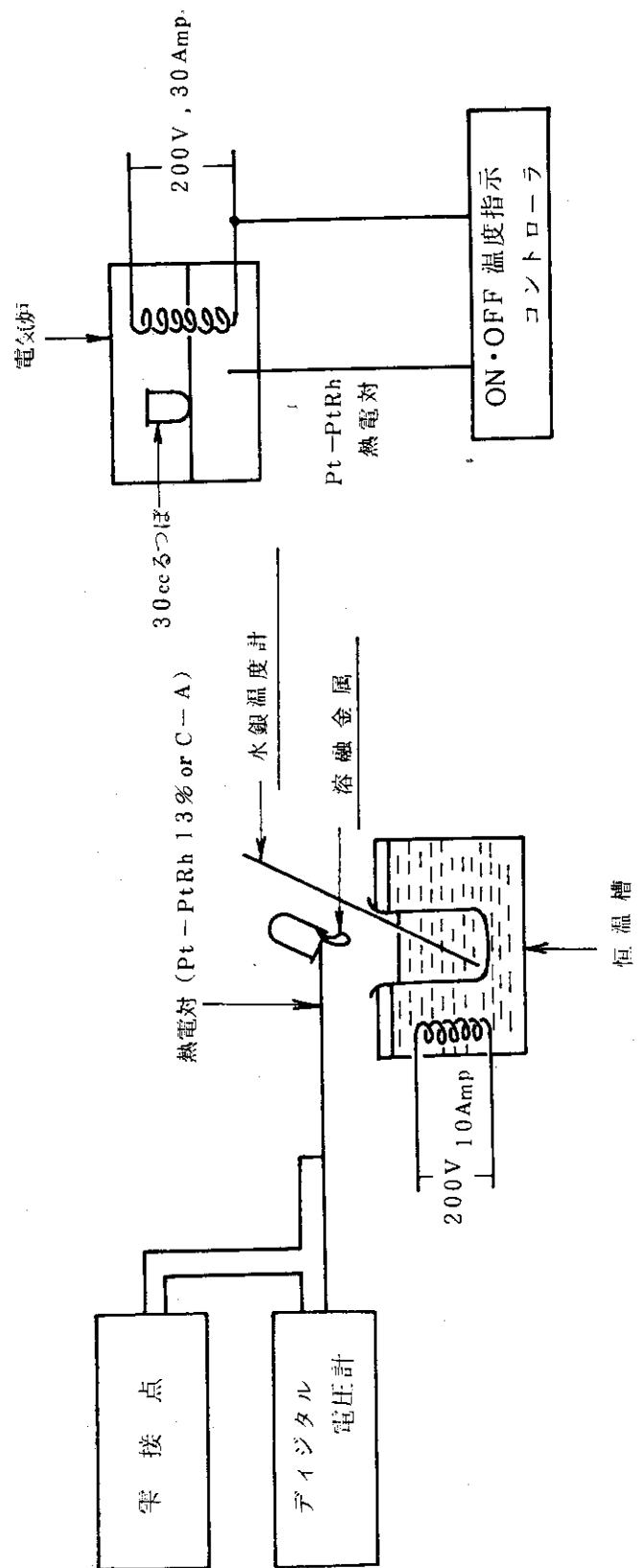


図-1 装置概略図

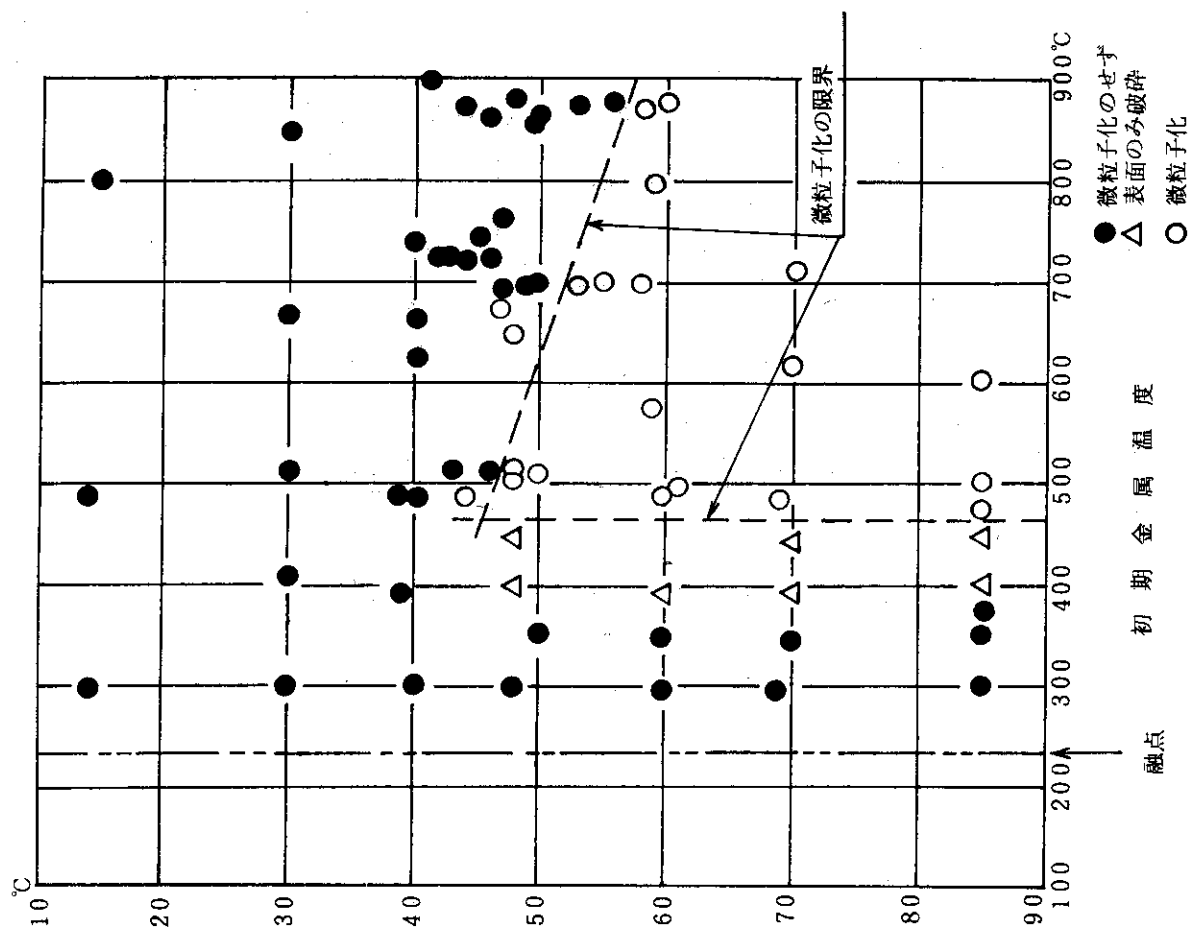


図-3 錫 / 水相互作用
(錫の重量: 10g)

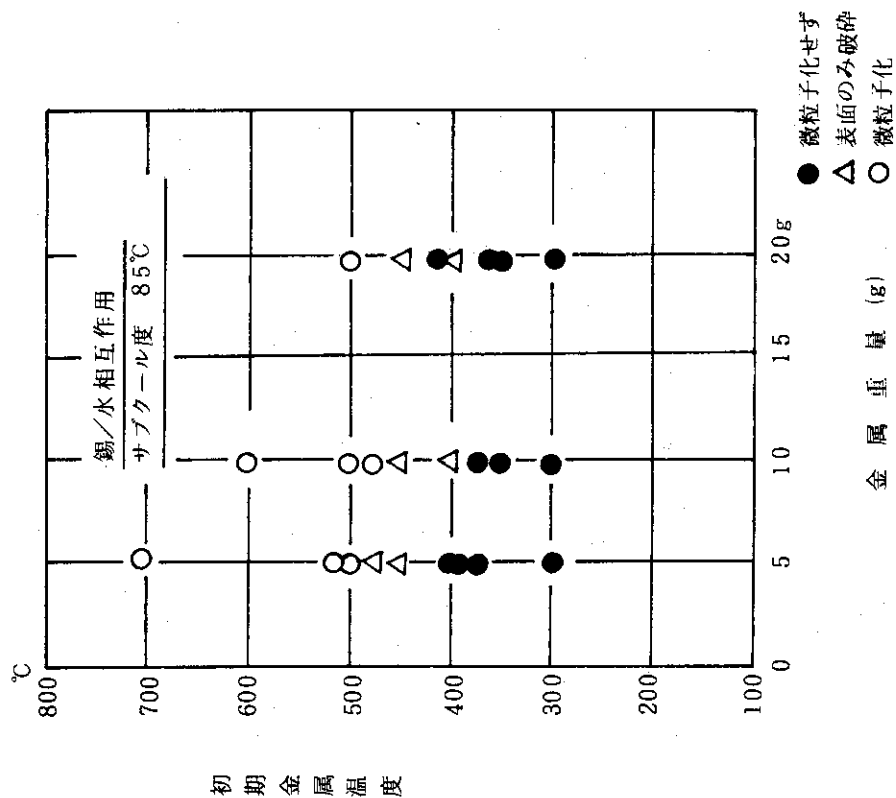


図-2 金属重量の影響

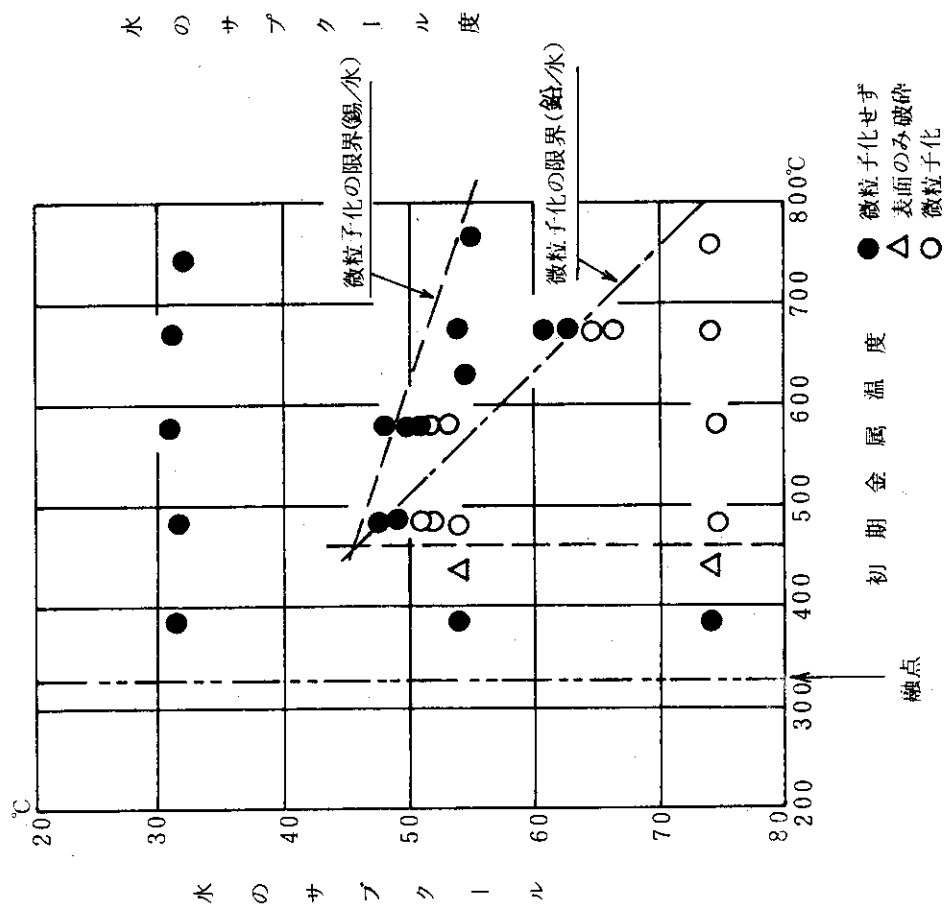


図-4 鉛／水相互作用
(鉛の重量: 10g)

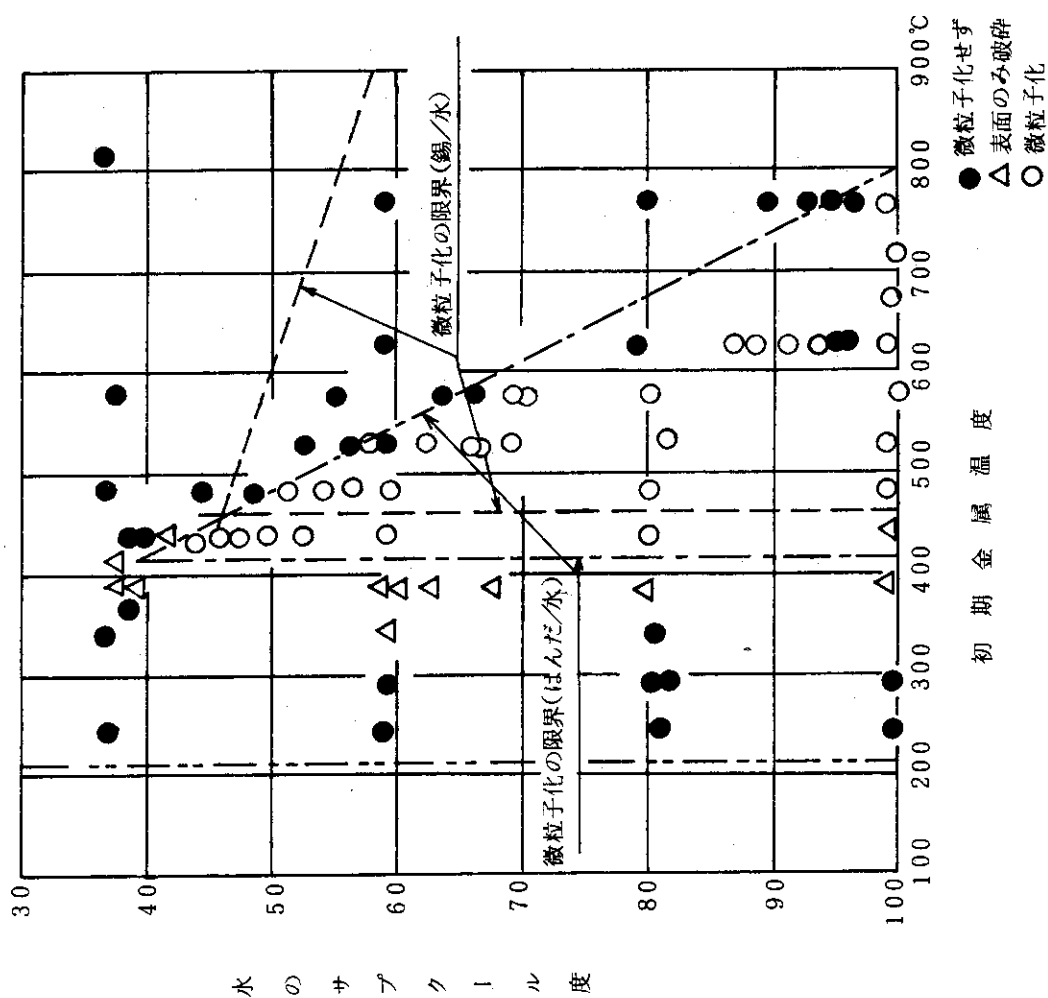


図-5 はんだ／水相互作用
(はんだの重量: 10g)

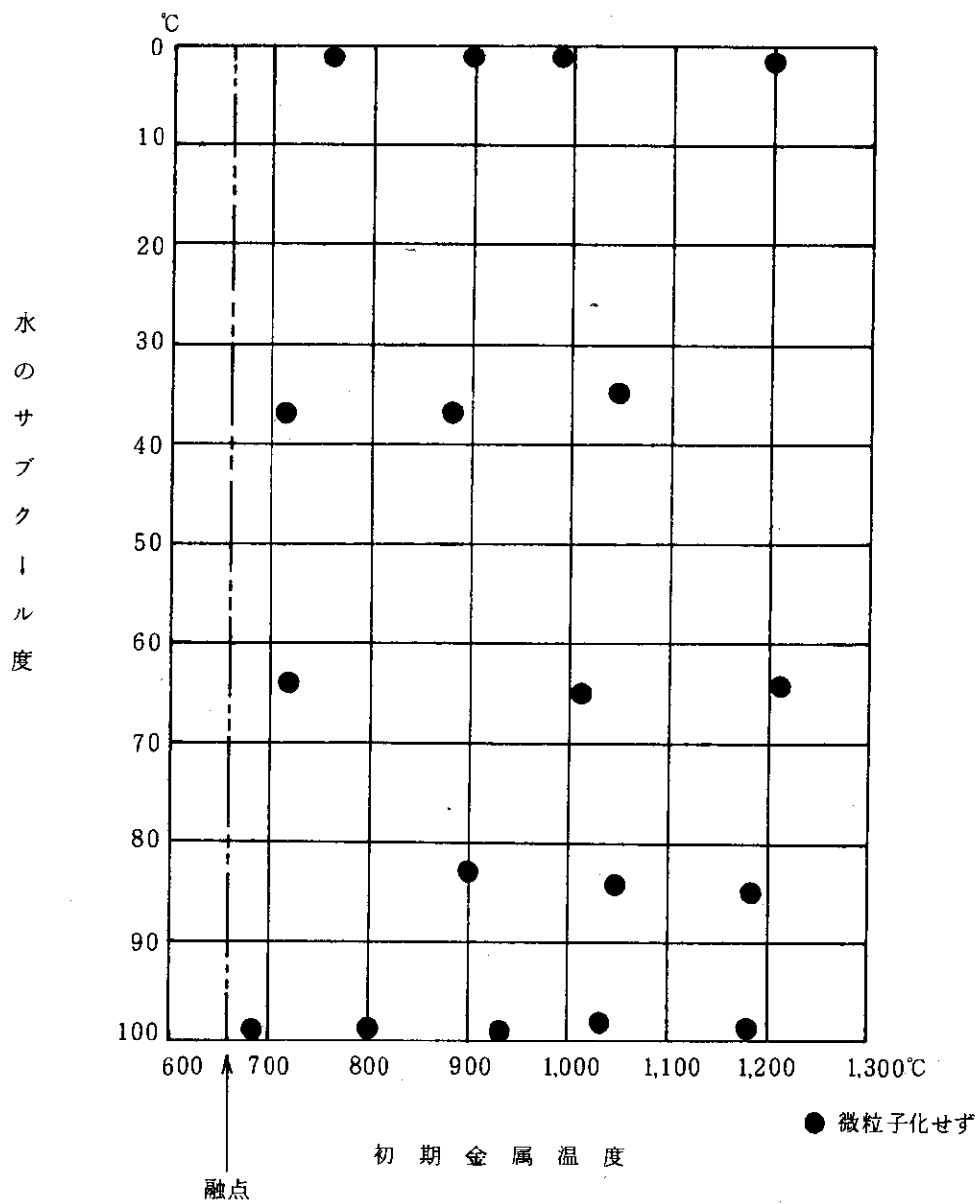
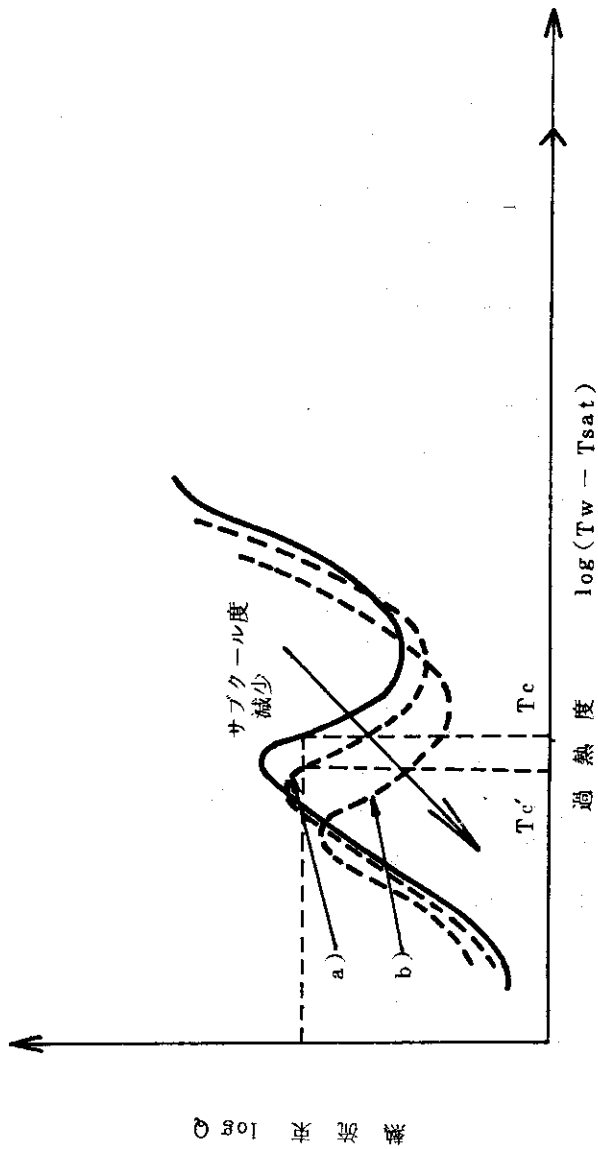


図-6 アルミニウム/水相互作用
(アルミニウムの重量: 10g)



Case a Q_c に対応する過熱度を $T_{c'}$ とする。 $T_c + T_{sat}$ が対象金属の融点より低い場合には微粒子化が生じない。

Case b Q_c が限界熱流束より高く初期気泡が発生しない。

T_w 伝熱面温度 (°C)

T_{sat} 飽和温度 (°C)

Q 熱流束 (kcal/hm^2)

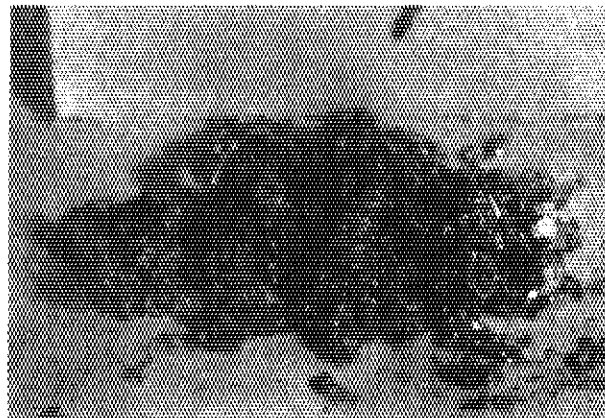
Q_c 初期気泡発生に必要な熱流束

T_c 沸騰曲線上で Q_c に対応する過熱度

図-7 沸騰曲線

写真

1-a



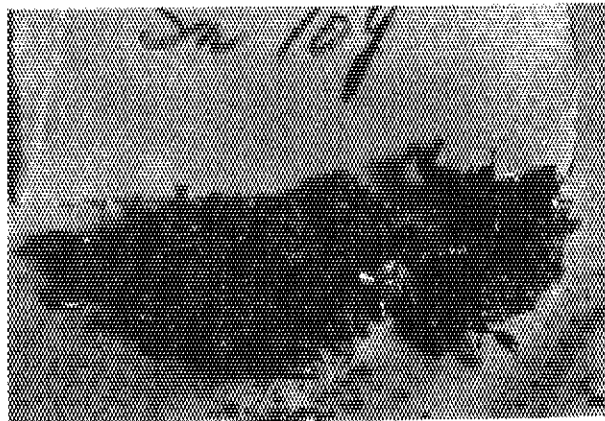
錫 10g

$T_i = 600^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 60^{\circ}\text{C}$

写真

1-b



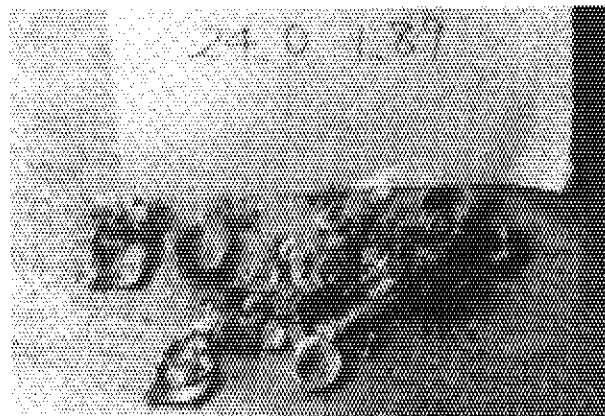
錫 10g

$T_i = 800^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 60^{\circ}\text{C}$

写真

1-c



鉛 10g

$T_i = 579^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 53^{\circ}\text{C}$

写真

1-d



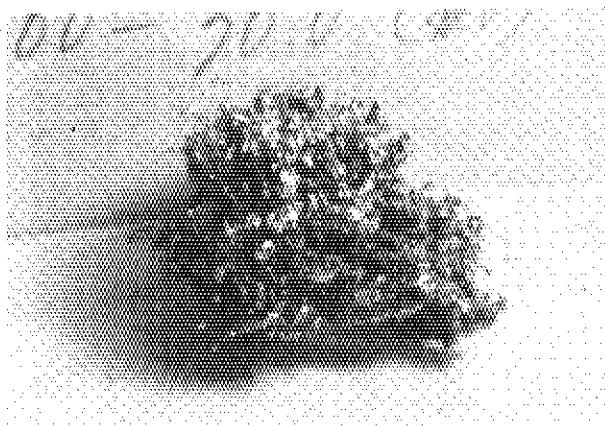
鉛 10g

$T_i = 756^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 74^{\circ}\text{C}$

写真

1-e



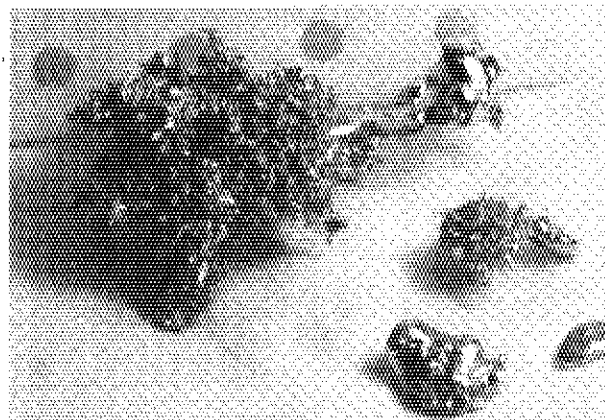
ハンダ 10g

Ti = 721°C

Tsub = 100°C

写真

1-f



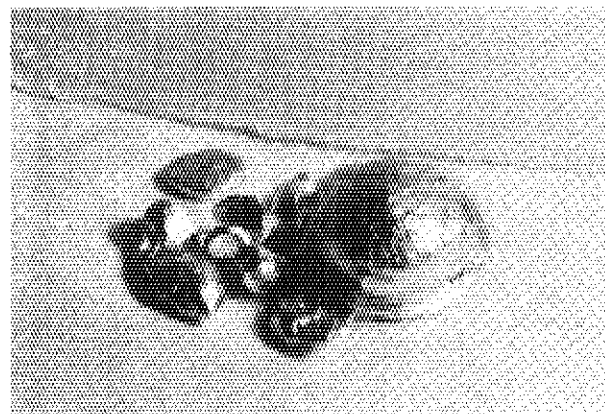
ハンダ 10g

Ti = 532°C

Tsub = 622°C

写真

2-a



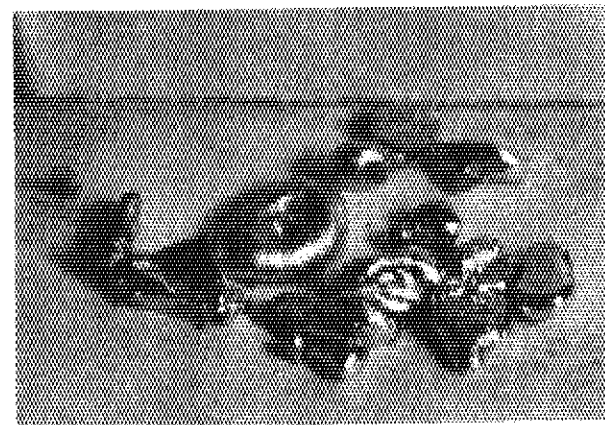
錫 10g

Ti = 300°C

Tsub = 40°C

写真

2-b

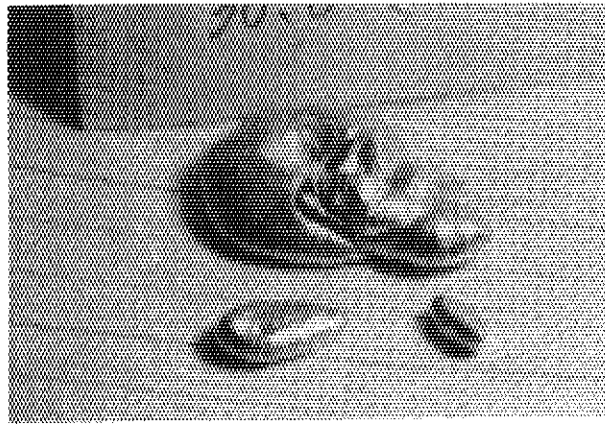


錫 10g

Ti = 485°C

Tsub = 14°C

写真
2-c

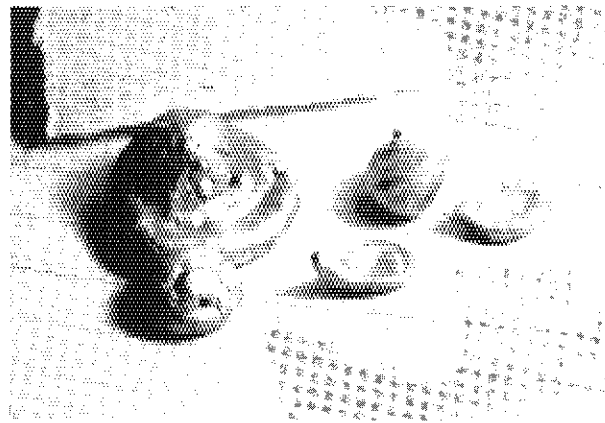


アルミニウム 10g

$T_i = 720^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 37^{\circ}\text{C}$

写真
2-d

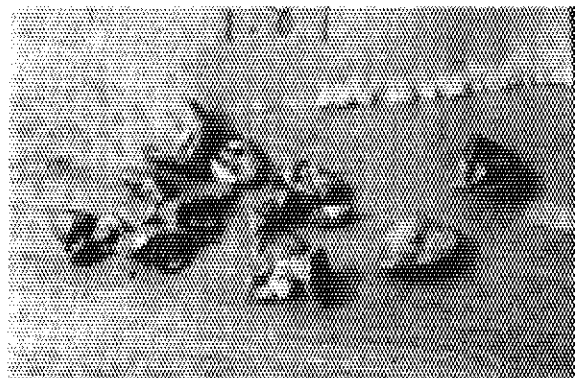


アルミニウム 10g

$T_i = 760^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 83^{\circ}\text{C}$

写真
2-e

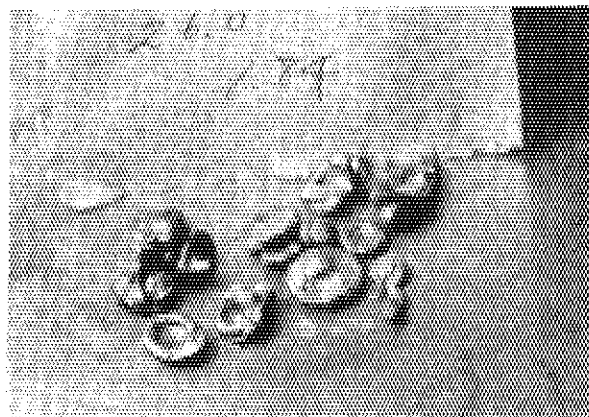


鉛 10g

$T_i = 769^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 55^{\circ}\text{C}$

写真
2-f

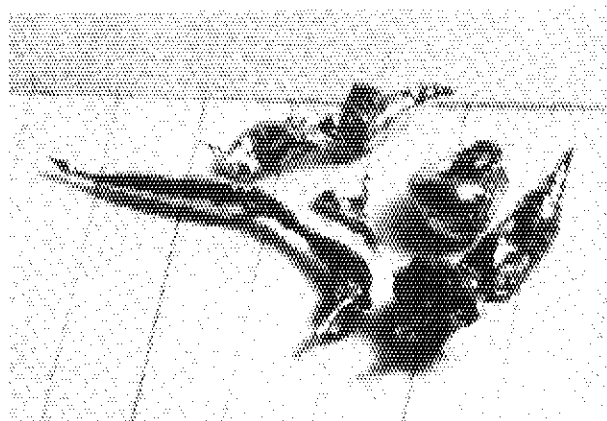


鉛 10g

$T_i = 626^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 54.5^{\circ}\text{C}$

写真
2-g

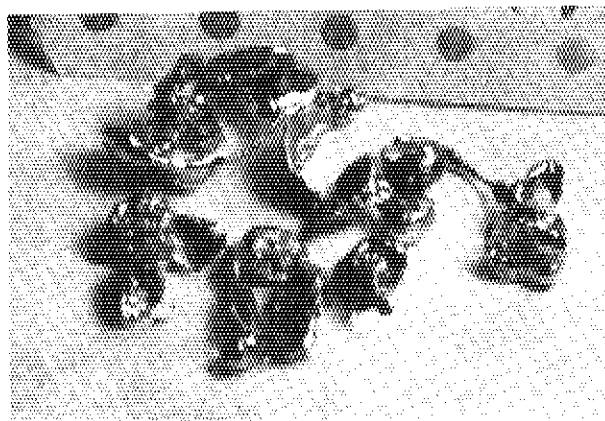


ハンダ 10g

$T_i = 246^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 36.9^{\circ}\text{C}$

写真
2-h

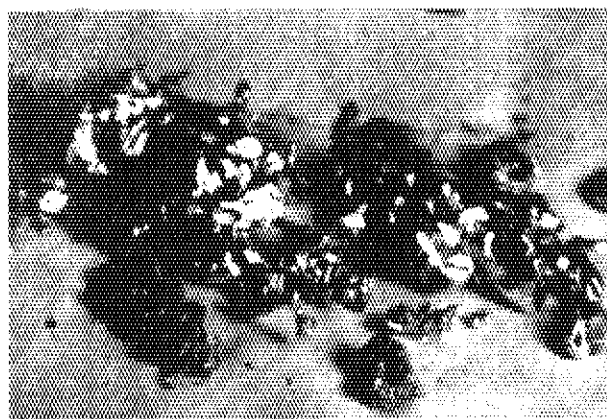


ハンダ 10g

$T_i = 770^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 92.5^{\circ}\text{C}$

写真
3-a

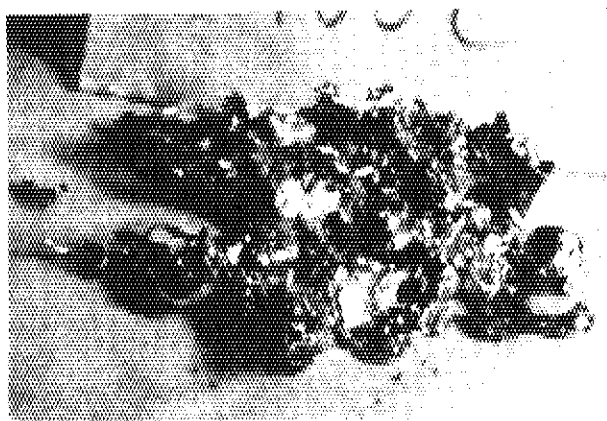


錫 10g

$T_i = 400^{\circ}\text{C}$

$T_{\text{sub}} = 48^{\circ}\text{C}$

写真
3-b

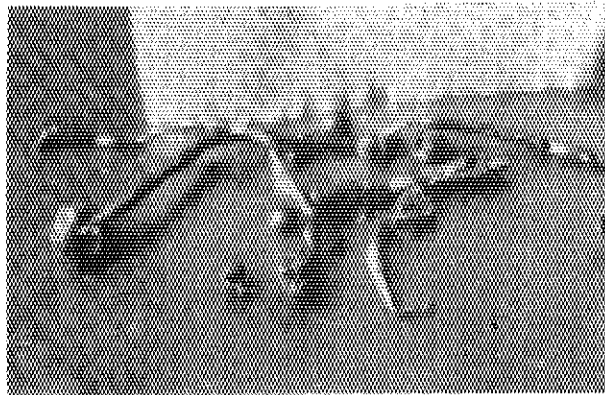


錫 10g

$T_i = 390^{\circ}\text{C}$

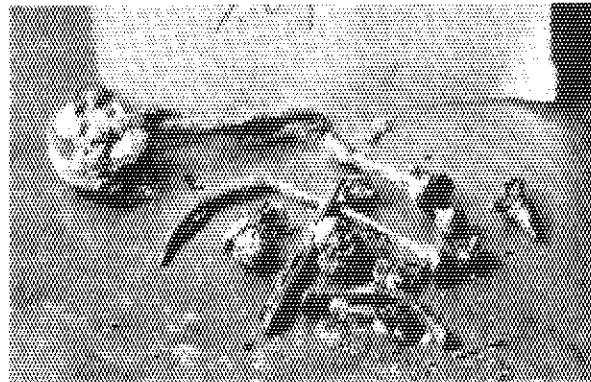
$T_{\text{sub}} = 70^{\circ}\text{C}$

写真
3-c



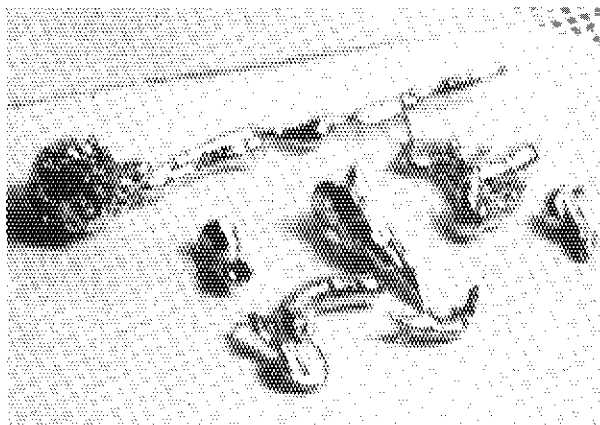
錫 10g
 $T_i = 438^{\circ}\text{C}$
 $T_{\text{sub}} = 54^{\circ}\text{C}$

写真
3-d



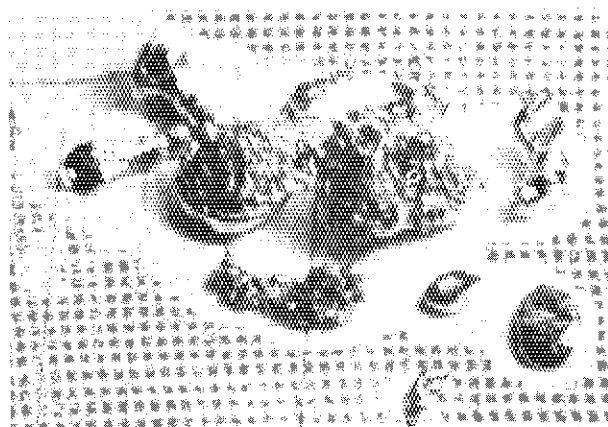
鉛 10g
 $T_i = 440^{\circ}\text{C}$
 $T_{\text{sub}} = 74^{\circ}\text{C}$

写真
3-e



ハンダ 10g
 $T_i = 390^{\circ}\text{C}$
 $T_{\text{sub}} = 58.5^{\circ}\text{C}$

写真
3-f



ハンダ 10g
 $T_i = 390^{\circ}\text{C}$
 $T_{\text{sub}} = 62.5^{\circ}\text{C}$