溶融燃料と冷却材の熱的相互作用

(東京大学工学部) 秋 山 守

溶融燃料と冷却材の熱的相互作用 (FCI) について、原子炉の安全の立場からの考え方や扱い方を述べるとともに、とくに液体金属冷却高速増殖炉に関して、仮想的な炉心溶融事故時の FCI の物理的事象を理解すべく、現在までに行われている各種の研究ならびに今後の動向を説明し、また併せて国内の研究態勢や国際的情報交流の状況についても簡単に紹介する。

I. 2 液接触時の熱的相互作用

温度の異なる 2 つの液体が直接に接触すると、高温側から低温側に急速に熱が流れて、状況により高温液の表面が凝固したり、低温液が沸騰したり、また液の微粒化・飛散や圧力波の生成などを伴うことがある。これら一連の現象のうち、圧力波(すなわち、熱エネルギーから機械的エネルギーへの変換現象)が問題となるような場合を 2 液接触時の激しい熱的相互作用と呼んでいる。

激しい熱的相互作用は、鑄造工場(溶鉄/水)、製紙工場(溶融パルプ/水)、低温燃料輸送系 (LNG/水)、海底火山(溶岩/水)などでまれに経験され、もしくは発生の可能性があると考えられている。

原子炉では燃料は溶融しないように設計され、万一の事故の際にも大量の燃料が溶融することはあり得ないことが、安全解析を通じて明らかになっている。しかし、現実的な多くの前提を無視した仮想的状況において、炉心溶融が生じたとしても、なおかつ公衆の安全を確保できることを示すことは安全の観点から有意義なことであり、また炉心溶融が仮想上のものであっても、それに関連する事象の物理的な理解を深めて、これを実用炉の経済的な安全設計に盛り込んでいくことが必要である。

このような見地に立って、溶融燃料-冷却材の熱的相互作用 (FCI)* の研究が各国で進められている。

II. 原子炉の安全性と FCI

問題となる炉型は液体冷却炉であり、軽水炉 (LWR) と液体金属冷却高速増殖炉 (LMFBR) を例にとって、

炉心規模の FCI の起因事象と事故シーケンスを要約すると次のようになる。

- (1) LWR・FCI: 起因事象は①TOPA(反応度事故)、②LOCA(冷却材喪失事故)/ECCS(非常用炉心冷却系)不作動、③炉停止/余熱除去系不作動。

Rasmussen 報告⁽¹⁾では①は発生確率があまりにも低いとし、②、③のみを検討している。溶融燃料は原子炉底部または格納容器底部で水と接触して激しい FCI (EFCI) を生じるとして評価を行なっている。

- (2) LMFBR・FCI: 起因事象は①TOPA、②TOPA/流量減少、③ポンプ電源喪失による LOFA (流量減少)、④1次系配管破断など(いずれも制御系不作動)が考えられている。燃料溶融はホットチャネルから全炉心へと進行し、その過程で FCI が同時に発生していく。

EFCI を含む事故は、LWR では明確に DBA (設計基準事故) の外とされているが、LMFBR では安全評価の統一的な方式・基準が固まっていないことや、全炉心溶融時の影響が LWR の場合よりも約 1 桁厳しいとの見解もあることから、DBA に近い線まで含めた幅広い意見がみられる。

LMFBR の仮想的事故において、FCI は主に次の点で注目されている。

Molten Fuel-Coolant Interaction, Mamoru AKIYAMA. (1978年 5月6日 受理)

* Fuel-Coolant Interaction の略。LMFBR では FSI (Fuel-Sodium Interaction) あるいは SFI ともいう。また、溶融 (Molten) を冠して MFCI などともいう。後述の激しい FCI は Energetic を冠して EFCI と表わす。

- (1) 燃料等の分散挙動 (事故時の反応度の評価)
- (2) 燃料の冷却確保 (アセンブリー流路, もしくは溶融燃料沈積物などに関して)
- (3) エナジェティクス (炉心の機械的な崩壊伝播, 1次系構造物・容器等の健全性評価など)

以下には主に LMFBR の場合の FCI エナジェティクスについて概説する。

Ⅲ. LMFBR 炉心規模溶融事故の解析例

Super Phenix 炉の1解析例⁽²⁾では, ①外部電源喪失, ②ディーゼル発電機起動失敗, ③安全棒がすべて不動作, という想定のもとで, 次の過程をたどると評価されている。

- (1) 沸騰開始まで: ① Na 流量が慣性に支配されつつ漸減し, 50sec で約半分になる。② 炉心出口温度および炉構造物温度が上昇。③ 約 9 min 後に中央部で沸騰開始, このとき出力レベルおよび Na 流量は定格のそれぞれ 24%, 9%。
- (2) 沸騰過程: ① 中央部で 0.4 sec 間で Na 逸出し, 大きな正の反応度が加わる。② 4 sec 後に中央部に接する外周上で沸騰が始まり加速度的に外に拡がる。
- (3) 燃料溶融と集合体崩壊の過程: ① 最大 7~10 \$/sec という反応度挿入の結果, 出力は急上昇し燃料溶融が始まる。② 溶融燃料の飛散により沸騰開始から約 6 sec 後に出力逸走は終了。③ この結果, 溶融燃料は全炉心の約 27% すなわち 10 t に達し, その熱エネルギーは約 11,000 MJ となる (以上の過程は現実的に評価されているが, 以下は超保守的評価)。
- (4) 同時的(コヒーレント)な FCI: ① 炉上部に逸出していた Na が溶融炉心に落下流入し, 約 50 msec で混合する。② このときの Na と燃料の質量比は約 0.1 と見積られる。③ 燃料は粒径 200 μm の球であるとし, 溶融燃料・Na とともに全量が FCI に寄与するものとする。④ FCI による機械的エネルギーの発生量は安全例に見積って約 550 MJ, すなわち熱エネルギーからの変換効率率は約 5% と評価された。⑤ 1次系は 800 MJ の機械的エネルギーに耐えられるよう設計してあるため, その健全性は確保される。

CRBR (Clinch River LMFBR) の例では, 溶融炉心温度などをパラメータとした評価研究⁽³⁾が行われており, 温度 4,800 K に対応する機械的生成エネルギーは第 1 図のようである。

第 1 図 CRBR の仮想 EFCI 時のエネルギー配分過程⁽³⁾ (EFCI 開始時炉心平均温度を 4,800 K と想定した場合)

Ⅳ. 激しい熱的相互作用はどのように起るのか

1. EFCI 発生に必要な条件

これまでの実験結果と推論を通じて, 次の 3 条件が EFCI にとって必要であることがほぼ確かになってきている。

- (1) 初期に粗い 2 液混合があること (EFCI 領域の形成): 初期接触のモードには ① ジェット型 (激しい TOPA の場合, 冷却材の沸騰以前に溶融燃料が蒸気・F.P. ガスとともに噴出), ② ショックチューブ型 (LOFA の場合など, いったん逸出した冷却材が溶融燃料の上に落下), ③ ドロップ型 (底に溜まった冷却材の中に溶融燃料が落下), ④ スタティック型 (炉心支持部で両液が静かに層状で接触), などが考えられる。①や②の場合には初期混合が起ると仮定するのは無理なことではない。
- (2) 適切なトリガリングおよび現象の自己伝播性があること: 何がこの条件を満たしうるかについては, すぐ後で述べるような異なった見解があるが, いずれにせよ, 本条件が満たされれば微粒化・伝熱・蒸気生成・圧力波生成・相互作用のフロント進行などが同時に生じることになる。
- (3) 体系が力学的にある程度以上拘束されていること: 液柱の慣性力や固体壁の存在などによって, EFCI 領域の圧力緩和が抑制されることを意味するもので, 炉心体系で本条件を仮定することは解析的にも妥当である。

EFCI の発生の経過を燃料滴下型モードに則して概念的に示すと第 2 図のようになる。

第2図 EFCIに至る過程の概念図
(溶融燃料滴下型の場合の例)

2. EFCIのトリガリングと自己伝播性

前節の(2)が満たされるための条件として Fauske (米)による温度しきい値説⁽⁴⁾があり、これに対立する説として Board ら(英)による熱的デトネーション説⁽⁵⁾などがある。

(1) 温度しきい値説

EFCI では、冷却材の蒸発による仕事为中心的役割を果たす(このため蒸気爆発という表現が用いられることもある)が、この説は FCI 領域で同時多発的に発泡核が活性化し、その結果、高い圧力が生じるためには、溶融燃料と冷却材の界面温度 T_I が冷却材の自発核生成温度 T_{SN} よりも高いことが必要であるとの考え方をとっている。

T_I は、2つの液塊が充分大きければ、両者の初期温度と物性値(熱伝導率・比熱・密度)だけで定まり、微粒液滴でもごく短時間内は T_I はほぼ一定とみなせる。

両液が互いに良く濡れる物質であれば、 T_{SN} は均質核生成温度 T_{HN} (純粋な液体内部での自発核生成温度で熱力学的臨界温度の約0.9倍の値をとる。水では約300°C, Na では約2,150°C)に等しく、濡れ性が悪ければ T_{HN} より多少低い値をとる。また、 UO_2/Na 系の多くの場合で予想されるように、界面が固化すると、固液間の T_{SN} は非均質核生成温度(T_{HN} よりかなり低い値)に等しくおかなければならない。

第3図は、フレオン液を高温の油に滴下したときのピーク圧力をプロットした例⁽⁶⁾であり、この系では $T_I = T_{HN}$ がしきい値であるといえる。溶融ビスマス/水系などでも、 T_{HN} が EFCI のしきい値の一応の目安になることもわかっている⁽⁶⁾。

試算によれば、Na 温度を1,000°Cとして T_I がしきい値に達するためには UO_2 温度として約4,500°Cを要することになるが、LMFBR 事故条件ではこの温度には達せず、このことから Fauske は LMFBR で EFCI は起らないと主張している。

第3図 フレオン-11/油系の生成ピーク圧力と界面温度⁽⁶⁾ (滴下型実験による)

(2) 熱的デトネーション説

初期の粗混合と膜沸騰ポイドのある系に衝撃波が加わると、第4図のように衝撃波の後方に衝撃波前縁から音速で離れていく面(Chapman-Jouguet 面と呼ばれる)が形成され、このため Taylor 不安定性に基づいて衝撃波後面で瞬時に微粒化が生じ、いわゆるデトネーションとして、微粒化と高い圧力波生成が同時的に進行するというもので、この説によればデトネーション圧力とその進行速度は、微粒化の機構・速度あるいはエネルギー移行速度に関係なく初期混合質量比・温度・ポイド比のみで定まる。

第4図 熱的デトネーション説の現象モデル⁽⁶⁾

Board らは10 g UO_2 (3,550 K), 1 g Na (700 K), 蒸気0.5 ccの単一液滴分散体系で、 $v_1 = 1.6 \times 10^3$ m/sec, $v_1 - v_2 = 2.3 \times 10^2$ m/secと試算し、これをもとに LMFBR 条件で熱的デトネーションの可能性が捨てきれないと主張している。

(3) 問題点

温度しきい値説に対しては次の反論がある。① Na と接触すると UO_2 表面は固化するので T_{SN} として T_{HN} を用いるのは不適当である。② $T_I < T_{HN}$ でも実験によってはかなりの圧力波は出る。③ 仮りに温度しきい値説を認めたとしても、Na 滴が UO_2 内にトラップされた場合には T_I が短時間内に上昇して Na の T_{HN} を越し、その結果 EFCI に至ることがあり得る。

一方、熱的デトネーション説には次の反論がある。

① 多数液滴の分散した体系で計算すると、通常の EFCI で問題となる程度の圧力波 ($\leq 10^3$ bar) では微粒化に結びつかない⁽⁷⁾。② 熱的デトネーションを裏付けたとする実験データは $T_I \geq T_{SN}$ の範囲で得られたものであり、 $T_I < T_{SN}$ ではデータがない。③ UO_2/Na 系のこれまでの FCI 実験で、Na 滴が UO_2 内にトラップされたと思われる例を除けば、EFCI を生じた例がなく、これは温度しきい値説に有利な資料である。

現在、諸説の検証努力が継続されている段階であり、安全評価の立場からみて、あらゆる場合に対してどの説が完全に真実であるかを結論づけるには至っていない。

3. EFCI 発生前後の現象過程

2 液の粗混合後、蒸気膜が崩れて液-液接触が行われると、微粒化とともに冷却材の熱膨脹による圧縮波が生じ、この波が自由液面で反射して膨脹波となって FCI 領域に戻ってくる。この期間を phase A と称している。計算上では phase A においてかなり高い圧力波が出るが、持続時間がごく短いので構造容器への仕事は比較的に小さい。

phase A が終ると phase B に移る。ここでは 2 液界面で沸騰が生じ、それに伴って再び圧力波が発生する。EFCI の機械的仕事は主に phase B を対象として評価される。

(1) 微粒化

10 種類以上の機構が提唱されており、例えば蒸気膜崩壊時の液ジェット流入に伴う運動エネルギーや、 UO_2 表面固化・収縮に伴う液滴内圧上昇などが取沙汰されている。微粒化の時間的挙動は筆者の知る限りいまだ明らかでなく、解析モデルでは瞬時微粒化と時間的な微粒化進行の両モデルが用いられている。実際には、微粒化・FCI 領域の拡大・蒸気の成長消滅・液-液接触・圧力波形成などの諸過程は、互いにフィードバックしながら同時に進行するものと思われる。

(2) 伝熱

微粒液滴の周囲での非定常沸騰伝熱特性は、現象が

きわめて速くしかも微小体系であるため、いまのところ実験的に正確に把みようがないが、微小鋼球を水中に投入した際の膜沸騰伝熱データなどを通じてある程度の推算が行われ、これと併わせて解析では、他のパラメータの場合と同じく感度解析が行われている。

(3) 圧力生成

phase B の圧力挙動は伝熱に伴う蒸気生成、周辺の液体の運動および体系の拡がりや境界条件の影響を受ける。

4. 熱から機械的エネルギーへの変換

最大の理論変換効率、冷却材蒸気の初期圧力と系の最終静定圧(ほぼ大気圧)との間の熱力学的最大仕事効率であって、 UO_2/Na 系では約 30% になるが、実際には摩擦や放熱による諸損失があるので、実際効率はかなり低くなる。さらに、初期の熱エネルギーのうち EFCI に直接関与するのは一部であることが実験的にも確かめられており、機械的仕事を初期の全熱エネルギーで除した総合効率はずっと低くなり、その値は多くの実験で 1% をかなり下回ることが示されている。

熱デトネーション説でも LMFBR 事故条件で EFCI に寄与する熱を基準として最大約 30% の変換効率の可能性があるとしているが、仮りにそういうことが実現されるとしても、EFCI に寄与しない熱を含めた総合効率は数% 以下になるものと推定される。

V. LMFBR に関する FCI の実験研究

1. 炉内実験

TREAT (米), RCN/HFR (オランダ), CABRI (仏) などで燃料破損時の FCI 実験が進められており、わが国は CABRI 計画に参加している。現在までに最も多数のデータを出しているのは TREAT で、S シリーズ (TOPA, 静止 Na), E-H シリーズ (TOPA, ループ Na), F シリーズ (LOFA, LOFA 起因の TOPA, 静止 Na), L-R シリーズ (LOFA, ループ Na) などが実施されている。7 本ピン規模まで実験されており、照射済み燃料も使用されている。 UO_2 の量、Na 温度、TOPA エネルギーなど広範囲に変化させている。

実験結果として、① EFCI は起らない、② LOFA の FCI は緩やかで非同時的 (インコヒーレント)、③ LOFA 時に逸出した Na の炉心再流入は被覆のブラギングや Na 蒸気の存在のため起りにくい、などが判明している。RCN でも EFCI は見られなかったと報告されている。

2. 炉外 UO_2/Na 大規模実験

ANL(米), Grenoble(仏), Ispra(ユーラトム), GfK(西独), 動燃事業団などで UO_2 数kg規模(将来は数10kg)の溶融滴下をはじめとする一連の実験が実施中または計画中である。

ループNa中の燃料集合体実験として、ANLで7本ピン体系の中に溶融 UO_2 を注入する実験が行われており、また動燃事業団では直接通電・電力制御方式によるループNa中の多ピン溶融実験が計画されている。 UO_2 の溶融法としてテルミット、電気炉、高周波加熱、直接通電など各国でさまざまな工夫が試みられている。

これまでの実験結果では、Naを UO_2 中に注入した場合の1～2例を除いてEFCIは観察されず、また流路のFCI時の冷却特性にも特に問題はないと報告されている。F.P.ガス混在の影響もある程度評価されている。なお、微粒化後の微粒分布なども得られており、平均で約100～200 μm 程度であることが知られている。

3. 模擬液体による実験

現象の機構を調べるため、溶融金属(Al, Sn, Bi, Cuなど)、溶融塩(AgCl , NaCl など)、水、油、有機液(フロンなど)が組み合わせて用いられる。実験結果は微粒化、変換効率などの解明のために役立てられている。

非凝固の系では温度しきい値説に沿う結果が出ている。また、蒸気膜が潰れて微粒化に至るというモデルも模擬液体実験を通じて成功裡に検証されている。

4. その他

溶融被覆材(ステンレス鋼)/NaのFCIについても実験が進められている。

VI. EFCI 解析モデル

約15種類の解析モデルが提唱されている。これらは①次元数、②初期条件、③微粒化、④FCI領域内の熱移行(燃料粒子内、冷却材内、発泡条件)、⑤FCI領域外への熱移行、⑥流体の運動、⑦物性値、などの諸点でそれぞれの特徴をもっている。

最も基本的なモデルはCho-Wright(当時ANL)のもので⁶⁾、これには①1次元、②FCIに寄与する燃料の質量が時間の関数、③微粒化は瞬時に球状・均一径・均質分散(微粒化と混合に時間経過と粒径分布を考慮することもできる)、④燃料内温度は一定または直線状分布、④'蒸気層の熱抵抗は無視(適当な値を入力することも可能)、④''飽和温度で発泡、⑤液体や構造材への伝熱を考慮、⑥流体運動はある時期を境として音響的から慣性的へと移行、⑦燃料の物性値一定、⑦'融解潜熱も考慮できる、⑦''非凝縮性ガスの影響も

考慮できる、などの特徴がある。

解析モデルによる計算結果の幅を調べるためFFTFを基準に見立てた標準問題を設定し、その結果が集約・吟味されている。主な条件とともに圧力挙動の結果を第5図に示す。この例では微粒化完了に要する混合時間を10msecと仮定している。

第5図 FFTF 標準問題による各種のEFCI解析コードの比較

なお、Cho-Wright モデルによれば、混合時間が数msecの場合変換効率が数%となる。総合効率はむしろこれより低くなる。

第Ⅱ章で略述したTOPAもしくはLOFAの一連の事故解析は、核・熱・構造の解析コード群により行われるが、EFCI解析モジュールはその一部であるから簡潔を要するわけで、現象に忠実であろうとするあまり複雑になりすぎると実用性が損われる。こうした実用的観点と物理的リアリズムの向上とがうまく調和したEFCI解析モジュールを確立することが今後の課題であろう。

VII. 国際的情報交流とわが国の研究・調査態勢

1. NEA/FCI 専門家会議

OECDのNEAの下でのCSNI(原子力施設安全委員会)の肝入りで「高速炉におけるFCI専門家会議」が1972年(Grenoble)、1973年(Ispra)、1976年(東京)⁶⁾と続けて開催されてきた。その後、「FCIおよび蒸気爆発の科学に関する専門家会議」に引き継がれ、第1回1977年3月(Paris)、第2回1977年12月(ANL)と開かれ、第3回は1978年9月(Grenoble)が予定され

ている。議長は Dr. Teague (英) で、第2回会合では Prof. Hall (英) と Prof. Bankoff (米) が助言者で、Mrs. Fauske (米)、Board (英)、Caldarola (西独)、Kottowski (Ispra) らが活発な議論を展開した。

2. CSNI の FCI ニュースレター

FCI 研究速報が年1〜2回の割で刊行されており、この方面の関係各国の動向の情報が入手できる。動燃事業団 堀 雅夫氏がわが国のコーディネータを担当されている。

3. わが国の FCI 研究・調査態勢

動燃事業団の研究(FCI と燃料挙動、炉構造設計評価、局所事故などに関し、PAPAS 等のコード開発、流路および滴下型 FCI 試験、CABRI 試験などが進められている)を頂点として、関係の研究所・大学の研究(温度しきい値、微粒化過程、圧力波挙動、変換効率、多ピン系流路 FCI、熱デトネーションなどに関する主として模擬液体による基礎研究、および解析モジュールの検討)が連携を保ちながら進められている。動燃事業団の中には PNC・FSI 調査会がもたれており、積極的な調査・検討の作業が行われている。

誌面の関係で FCI の科学に深く立ち入れなかったが、文献を参照頂ければ幸いである。なお、本稿作成にあたり PNC・FSI 調査会の方々による資料等を参照させて頂いたことを記して感謝します。

— 参 考 文 献 —

- (1) Reactor safety study, WASH-1400, (1975).
- (2) ROBERT, E., et al.: *Proc. Int. Meeting on Fast Reactor Safety and Related Physics*, CONF-761001, (1976).
- (3) MARCHATERRE, J., et al.: *ibid.*
- (4) FAUSKE, H.K.: *Nucl. Sci. Eng.*, 51, 95 (1973).
- (5) BOARD, S.J., et al.: *Nature*, 254, 319 (1975).
- (6) TAGAWA, M.: Presented at 2nd Meeting of CSNI Group of Expert on Science of FCI and of Vapor Explosions, (1977).
- (7) BANKOFF, S.G., et al.: CONF-761005, (1976)
- (8) CHO, D.H., et al.: ANL-7919, (1972).
- (9) *Proc. 3rd Specialist Meeting on Sodium/Fuel Interaction in Fast Reactors*, PNC N 251 76-12, (1976).

原子力工学シリーズ

4・5 原子炉化学 上下

内藤奎爾

A 5 判・各200頁・各2500円

原子炉化学は、原子力の急速な発展を背景に生れた新しい化学の一分野であり、原子炉の開発に関する化学、化学工学を対象とする。原子力を化学的観点から原理的に理解し、本質的な把握を容易ならしめるよう配慮した好著である。

〈上巻目次〉序章 原子力の発展と原子炉化学(原子力の解放と化学/動力炉の開発と化学) 1 核反応(放射性壊変/核反応と核種の生成/核分裂と核分裂生成物/核反跳) 2 化学分離(分離過程と化学分離/酸化と還元/酸と塩基/化学分離法) 3 同位体分離(同位体効果と分離/軽元素の同位体分離/ウラン濃縮) 4 アクチノイドの化学(超ウラン元素の生成と用途/アクチノイド元素の特性/アクチノイドの溶液化学/アクチノイドの固体化学)

〈下巻目次〉5 高純度材料の化学(炉材料と純度/液体材料の精製/気体材料の精製/高純度金属の製造/高融点セラミックスの製造) 6 炉燃料・材料の高温化学(高温熱物性/拡散/蒸発/高温反応) 7 炉内放射線の化学(炉内放射線の効果/放射線の散乱過程/イオン化と電子励起/原子変位/照射による物性の変化/炉内化学反応/原子炉の化学利用) 8 核燃料サイクルの化学(核燃料サイクル/核燃料再処理の化学/放射性廃棄物処理・処分の化学)

6 原子力熱工学

秋山 守

A 5 判・220頁・2800円

原子炉で得られる熱エネルギーを電気エネルギーなどに変換し、あるいは直接に利用するなど、社会的なエネルギー需要をみたし、かつ環境問題にも応ずるシステムを対象として、最新の原子力熱工学を体系的に基礎から概観する。

1 原子炉構造工学

宮健三・矢川元基 原子炉の設計および安全性に関する構造上の諸問題は、原子力開発の発展につれて一層その重要性が認識されてきたが、この種の入門書は皆無にひとしく、本書はこの分野の基礎的知識を必要とする学生・技術者に最適の教科書である。 2500円

2 原子炉燃料

菅野昌義 この分野の権威ある著者が、東京大学における講義内容を軸として、鉱石からのウランや、トリウムなどの製錬、原子燃料の製造加工、物性など、原子炉燃料について一貫して記述したもので、学生・技術者に最適の教科書である。 2500円

3 原子力プラントの構造設計

安藤良夫・岡林邦夫 ASME規定を参照しながら原子力プラント機器の構造設計基準の体系を解析による設計およびクリープ設計という観点からとらえ、材料力学と構造力学の知見が構造設計基準にどのように反映されているかを体系的に解説する。 2500円

東京大学出版会

113 東京都文京区本郷7-3-1〈東大構内〉 振替東京6-59964 総目録呈