

ナトリウムプール水素ガスバブリング試験

(研究報告書)



2002年2月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

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

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

ナトリウムプール水素ガスバブリング試験
(研究報告書)

高井俊秀^{*1}、中桐俊男^{*2}
浜田広次^{*1}

要旨

ナトリウム-コンクリート反応発生時に発生する水素ガスの空気雰囲気下での燃焼挙動を調査することを目的として、「ナトリウムプール中水素ガスバブリング試験」を実施した。

試験では、大規模ナトリウム漏洩燃焼試験施設 SAPPFIRE の小型密閉試験装置 FRAT-1 (内容積 3m³) を用い、内径 9.7cm のナトリウム燃焼容器中で約 500℃ に加熱したナトリウムを燃焼させた。そして、過去のナトリウム-コンクリート反応試験で得られたデータを参考にして、最高 $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ の流量で水素ガスを燃焼するナトリウムプールの液中から供給し、水素の燃焼挙動を調べた。

ナトリウムプール水素ガスバブリング試験から以下の結果を得た。

- (1) ナトリウム燃焼とともに燃焼 (消費) される水素の再結合割合は 99% 以上であることを確認した。
- (2) ナトリウム液中から供給された水素は、もっぱら分子拡散により酸素と混合され、2つの気体の境界で燃焼する「層流拡散炎」の形態をとり燃焼 (消費) されると考えられる。
- (3) 水素燃焼により発生した水蒸気の多くは、雰囲気中のナトリウムエアロゾルと化学反応を起こし消費されると考えられる。

*1: 大洗工学センター 要素技術開発部 熱化学安全試験グループ

*2: 同上、要素技術開発部 新材料研究グループ兼務

Sodium Pool Bubbling Experiment by Hydrogen

Toshihide Takai^{*1}, Toshio Nakagiri^{*2},
and Hirotsugu Hamada^{*1}

Abstract

A sodium pool bubbling test was conducted to investigate the hydrogen combustion behavior under sodium-concrete reaction accident.

FRAT-1 test vessel (Volume of 3m³) of SAPHIRE (Safety Phenomenology Test on Sodium Leak, Fire and Aerosol) facility was used for the test. The sodium combustion pot of ϕ 97mm was installed in FRAT-1 test vessel. Sodium was burned at the maximum hydrogen injection rate of $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$, which was determined value based on past sodium-concrete reaction experiments. And the recombination rate of hydrogen was estimated.

From the results, the following conclusions were obtained:

- (1) The recombination rate of supplied hydrogen was 99% or more.
- (2) It is considered that the burning form of the supplied hydrogen is laminar nonpremixed flame based on the molecular diffusion between hydrogen and oxygen.
- (3) Most of vapor generated by hydrogen combustion was seemed to consume by chemical reaction with sodium aerosol in the atomosphere.

*1: Thermochemistry Safety Engineering Group, Advanced Technology Division, OEC

*2: Thermochemistry Safety Engineering Group and Advanced Material Research Group,
Advanced Technology Division, OEC concurrently

目次

1. はじめに	1
2. 試験装置及び計測・サンプリング装置	2
2.1 試験装置	2
2.1.1 FRAT-1 試験装置	2
2.1.2 ナトリウム燃焼容器	2
2.1.3 小型排煙処理装置	2
2.1.4 ガス供給設備	3
2.1.5 その他	3
2.2 計測・サンプリング装置	3
2.2.1 水素濃度計測	3
2.2.2 湿度の計測	4
2.2.3 温度計測	4
2.2.4 ナトリウム燃焼容器内ナトリウム化学組成	5
2.2.6 FRAT-1 試験装置内監視	5
2.2.7 その他計測装置	5
2.2.8 データ収録装置	5
3. 試験条件と試験方法	6
3.1 試験条件	6
3.1.1 最大水素供給速度	6
3.1.2 FRAT-1 試験装置内換気流量	6
3.1.3 試験時間	6
3.2 試験方法	7
4. 試験結果	8
4.1 試験経過	8
4.2 計測結果	8
4.2.1 ナトリウム及び水素の燃焼挙動	8
4.2.2 ナトリウム温度及び、ナトリウムプール上雰囲気温度	9
4.2.3 試験時の FRAT-1 内雰囲気、及び FRAT-1 壁面温度等	9
4.2.4 雰囲気中の湿度	9
4.2.5 換気流量	9
4.2.6 水素ガス及び窒素ガス供給速度	10

4. 2. 7 FRAT-1 内水素濃度	10
4. 2. 8 FRAT-1 内酸素濃度	10
4. 3 試験後ナトリウム燃焼容器観察結果	10
4. 4 試験後ナトリウムプール組成	11
4. 5 エアロゾル放出量及び化学組成	11
5. 考察	12
5. 1 水素の燃焼挙動及び再結合割合	12
5. 1. 1 水素の燃焼状況	12
5. 1. 2 水素の再結合割合	12
5. 1. 3 水素の燃焼形態及び火炎高さ	13
5. 2 水素燃焼がナトリウム燃焼挙動に及ぼす影響	14
5. 2. 1 水素燃焼に伴う燃焼発熱量の増加	14
5. 2. 2 水素燃焼がエアロゾル挙動に与える影響	15
5. 3 ナトリウムプール化学組成	15
6. 結論	16
7. 謝辞	17
8. 参考文献	18
APPENDIX-1 試験前後の温度履歴	33
APPENDIX-2 試験前後の水素濃度履歴等	35

図表一覧

表一覧

表 4.1 ナトリウム燃焼生成物分析結果 19

表 5.1 再結合割合計算値 19

図一覧

図 2.1 ナトリウムプール水素ガスバブリング試験装置フローシート 20

図 2.2 FRAT-1 試験装置概要図 21

図 2.3 ナトリウム燃焼容器概要図 22

図 2.4 ナトリウム燃焼生成物の分析方法 23

図 2.5 エアロゾルサンプラー概要図 24

図 4.1 ナトリウム温度等及びナトリウムプール上雰囲気温度 25

図 4.2 FRAT-1 試験装置内及び排煙ダクト内雰囲気温度 26

図 4.3 FRAT-1 壁面温度及び防液堤底面温度 27

図 4.4 FRAT-1 吸排気温度及び湿度 28

図 4.5 FRAT-1 換気流量及び圧力 29

図 4.6 水素ガス及び窒素ガス供給流量 30

図 4.7 FRAT-1 内水素濃度 31

図 4.8 FRAT-1 内酸素濃度 32

図 A1.1 試験前後のナトリウム温度及びナトリウムプール上 34
 雰囲気温度等

図 A2.1 試験中・試験後の FRAT-1 内水素濃度履歴 36

1. はじめに

高速炉で冷却材として使用されているナトリウムはコンクリートと接触すると、コンクリート中に含まれる水分と反応することにより、水素を発生する。このため、高速炉プラントでは、ナトリウム漏えい事故対策として、スチールライナを設置し、ナトリウムとコンクリートの接触を防いでいる。しかしながら、高速炉の安全性をより深く追求しておくという観点から、ナトリウムとコンクリートの反応挙動や水素の発生・燃焼挙動について把握しておくことは重要である。

不活性雰囲気におけるナトリウム-コンクリート反応時の水素発生挙動については、旧動力炉・核燃料開発事業団において「もんじゅ」に使用されている硬質砂岩コンクリートを使用した試験¹⁾が実施され、侵食量や水素発生速度等の知見が得られている。

一方、空気雰囲気下におけるナトリウムとコンクリートの反応についての試験例は少なく、ナトリウムプールの液中から水素が放出された際の燃焼挙動については、定量的なデータが得られていない。

このため、空気雰囲気下におけるナトリウム-コンクリート反応試験を実施する前段階として、過去に実施されたナトリウム-コンクリート反応試験で得られたデータを参考にして、ナトリウムプールの液中から水素を供給し、ナトリウム燃焼に伴う水素の燃焼挙動や、燃焼により消費される水素の割合を確認することとした。

なお、この燃焼により消費される水素の割合は、コンクリート中の水分とナトリウムの反応により生成された水素が、空気雰囲気に放出されて燃焼し、再び水に戻る割合を示すことから、以下「再結合割合」という。

2. 試験装置及び計測・サンプリング装置

2.1 試験装置

ナトリウムプール水素ガスバブリング試験は、高速炉安全性第5試験室にあるFRAT-1試験装置を用いて実施した。図2.1に試験装置フローシートを示す。試験装置は、FRAT-1試験装置、ナトリウム燃焼容器、小型排煙処理装置、ガス供給設備等で構成される。以下に主要機器の概要について記す。

2.1.1 FRAT-1試験装置

FRAT-1試験装置の概要を図2.2に示す。FRAT-1は直径約1.3m、高さ約2.2m、肉厚8mm、内容積約3m³、最大使用圧力0.2MPa/cm²G、設計圧力0.3MPa/cm²Gのステンレス製密閉容器である。

FRAT-1には、側面に空気取り入れダクト(4B配管)と監視用の覗き窓、上部には排気ダクト(4B配管、肉厚3mm)等を接続している。ナトリウム燃焼容器を設置するFRAT-1試験容器底部には、試験時に飛散する可能性のあるナトリウム飛沫を受けるため直径1128mm、高さ100mm、肉厚6mmの炭素鋼(SM400B)製受け皿を設置している。

2.1.2 ナトリウム燃焼容器

ナトリウム燃焼容器の概要を図2.3に示す。ナトリウム燃焼容器は内径9.7cm、深さ20cm、側面肉厚8.6mm、底部肉厚16mmのステンレス製容器である。

ナトリウム燃焼容器には、可動式の上蓋とバブリング用ノズルが設置されている。

上蓋には、試験前後の蓋閉時にナトリウム燃焼容器内にアルゴンガスを供給し、不活性化するためのアルゴンガス供給ラインが設置されている。

バブリング用ノズルの詳細を同図2.3に示す。バブリング用ノズルには、ナトリウム温度及びナトリウム燃焼容器上部の雰囲気温度を測定するための熱電対が設置され、ナトリウム燃焼容器上部で窒素・水素ガス供給ラインに接続されている。また、熱電対のシースが、ナトリウム液面近傍の部分において損傷することを避けるため、熱電対シースを固定するバブリング用ノズル管の周囲に補強用SUS板(0.07mmt)を外径約11mmとなるまで巻いて補強した。

2.1.3 小型排煙処理装置

小型排煙処理装置は、水冷却塔、水スクラバ、ベンチュリースクラバ、パイロスクリーン、フィルタ設備、排気ブロア、水循環ポンプ等から構成される。なお、本試験では定格流量の約40%という低い排気流量で運転することから、ベンチュリースクラバ、パイロスクリーンは使用していない(性能保証範囲外)。

試験で発生するナトリウム酸化物を含む排気ガスは、まず水冷却塔で冷却した後、水スクラバ及び2系統のフィルタ設備（プレフィルタ、デミスタ（金属メッシュ）、高性能フィルタ）を通すことによってエアロゾルを除去した後に排気ブローで大気中に放出する。

2.1.4 ガス供給設備

ガス供給設備は、図 2.1 に示すように、アルゴンガス供給ライン、窒素・水素ガス供給ラインを設けている。

アルゴンガス供給ラインは、試験開始前のナトリウム予熱時、試験終了後にナトリウム燃焼容器内を不活性ガス雰囲気を保つために設置した。

窒素・水素ガス供給ラインは、試験時に規定の流量で水素ガスをナトリウム燃焼容器中に供給するとともに、試験開始前のバブリング用ノズルの閉塞を防ぎ、試験後に窒素・水素ガス供給ラインに残存する水素ガスを窒素ガスでパージするために設置した。

2.1.5 その他

その他の機器として、ヒータ制御装置、エア作動弁駆動用コンプレッサー、各種弁類がある。

2.2 計測・サンプリング装置

図 2.1 試験装置フローシートに計測装置、サンプリング装置の接続状況を示す。以下にその概要を記す。

2.2.1 水素濃度計測

(1) ガスクロ

ガスクロは、ヤナコ分析工業（株）製 GT-2800 型 TCD（熱伝導度式検出器）式ガスクロを使用した。本機では、約 0.005～3%の濃度の水素ガスを5分ごとに分析できる。ただし、ガスクロは測定精度が高い（変動係数 5%）ものの、分析に数分かかること及びガスクロが FRAT-1 試験装置より離れた場所に設置されているため試料ガスの吸引時間遅れ（約 1 分）が生じることから、得られる分析結果の出力には約 5 分の時間遅れが生じる。

また、本機は高濃度測定用であるため、試験時に水素の再結合割合が 90%以上となった場合は十分な試験精度を得られない。このため、再結合割合が高い場合の正式な試験データとしては後述のサンプリングボトルに採取した水素濃度のオフライン分析のデータを用いることとした。

(2) 熱伝導度式水素濃度計

熱伝導度式水素濃度計は低濃度の測定には向かないものの、%オーダーでは比較的精度良く（測定値に対して誤差は±数%）オンライン測定ができるので、安全計装として使用した。

ただし、熱伝導度式水素濃度計についても FRAT-1 試験装置より離れた場所に設置されていること、バッファータンクの容量が大きいことから、得られる分析結果には 95% 応答で約 3 分の時間遅れが生じる。

(3) ガスサンプリング装置

供給した水素ガスの再結合割合を算出するため、FRAT-1 試験装置排気ダクト内ガスをサンプリングするガスサンプリング装置を設置した。サンプリング装置には、500cm³のガスサンプリングポットを 6 本設置し、試験開始 9 分後から 5 分おきに 6 回測定した。このサンプリング時刻は、水素供給期間（試験開始 10～30 分後の 20 分間）前後の水素のバックグラウンド（試験開始 9 分後及び、試験開始 34 分後の各 1 点）をおさえるとともに、試験時の再結合割合を求める（試験開始 14、19、24、29 分後の 4 点）ように設定した。試験時に採取したガスは、99.8% 程度までの再結合割合を測定できる検出下限の低い PID（光イオン化検出器）式ガスクロ（検出下限 1ppm、変動係数 3%）を用いて分析を行った。

2.2.2 湿度の計測

FRAT-1 試験装置に出入りする湿分については、吸気ダクト及び排気ダクト内に設置した高分子型露点計で計測した。

2.2.3 温度計測

(1) ナトリウムプール及びナトリウムプール上部雰囲気温度

ナトリウム温度及びナトリウムまたは水素燃焼時のナトリウムプール上部雰囲気温度を確認するため、ナトリウム燃焼容器各部に熱電対を設置した（図 2.3 参照）。使用した熱電対は、全てφ1.6mm の K 型シース熱電対である。

(2) 防液堤内温度

万が一のナトリウム燃焼容器からのナトリウム漏えいを早期に検知するため、防液堤内にφ1.6mm の K 型シース熱電対 1 本 (TE12) を設置した。

(3) FRAT-1 試験装置内雰囲気温度

FRAT-1 試験装置内部の雰囲気温度は、直径 5mm のステンレス棒で支持したφ1mm の K 型シース熱電対 2 本により測定した。測定高さは、受け皿よりそれぞれ

1.2m (TE05)、1.9m (TE06)の高さとした。

(4) FRAT-1 試験装置壁面温度

FRAT-1 試験装置壁面の温度は、壁面外部に設置したφ1mmのK型シーす熱電対3本により測定した。測定高さは、受け皿よりそれぞれ0.5m (TE09)、1.2m (TE10)、1.9m (TE11)の高さとした。

(5) その他の温度計測

FRAT-1 試験装置排気ダクト内に排気温度測定用の熱電対を2本 (TE07、TE08) 設置した。また、吸気ダクト及び排気ダクトに設置した高分子型露点計内蔵の測温抵抗体により吸気 (ROT102) 及び排気 (ROT101) の温度を測定した。

2.2.4 ナトリウム燃焼容器内ナトリウム化合物化学組成

試験終了後のナトリウム燃焼容器中のナトリウム化合物は、不活性雰囲気下でサンプリングを行い、図2.4に示すフローに従って化学組成の分析を行った。

2.2.5 エアロゾル化学組成

エアロゾル化学組成分析用として、FRAT-1 試験装置排気ダクトの途中に図2.5に示すエアロゾルサンプラーを設置した。試験開始1分前から試験終了後までトラップフィルターを排気ダクト内に挿入し、エアロゾルのサンプリングを行った。サンプリング後はトラップフィルターを排気ダクトから抜き出し、アルゴン雰囲気に置換することにより、分析を行う時までエアロゾルの化学組成が変化しないようにした。

2.2.6 FRAT-1 試験装置内監視

FRAT-1 試験装置内に監視カメラを2台設置 (図2.2参照) し、試験中継続して監視した。

2.2.7 その他計測装置

その他の計測装置としては、運転計装である圧力計、エアロゾル濃度計、磁気式酸素濃度計等がある

2.2.8 データ収録装置

試験時の各部の温度、吸排気の露点温度、FRAT-1 試験装置内の水素・酸素濃度、試験装置運転にかかる温度、流量等のデータ収録には、横河電機 (株) 製のDARWINを使用し、1sec周期でデータ収録を行った。

3. 試験条件と試験方法

3.1 試験条件

以下に本試験における試験条件の設定根拠を述べる。

3.1.1 最大水素供給速度

過去に行われた「Na-コンクリート反応基礎試験」¹⁾等で測定されたナトリウム-コンクリート反応発生時の最高水素発生速度を基に、試験時の最高水素供給速度を定めることとした。

過去に行われた試験結果を平均し、ナトリウム-コンクリート反応時の最高水素発生速度を求めると、 $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ となるため、これを最高水素供給速度とした。

なお、ナトリウム燃焼容器内面の表面積 (0.0074m^2) を考慮すると、試験時の最高水素供給速度は $4.2 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{min}$ となる。

3.1.2 FRAT-1 試験装置内換気流量

本試験は、試験時の水素供給速度と、再結合せずにガスとして放出される水素の換気中濃度を測定することにより、燃焼により消費された水素の割合（再結合割合）を確認することを目的としている。

試験精度の観点からは、換気中の未燃焼水素濃度を精度良く測定する必要がある、換気流量は少ないほうが良い。ただし、換気流量が少ない場合は、排煙処理装置の効率が低下する問題も生じる。一方、安全上の観点からは、供給した水素が全く燃焼しなかったとしても換気中の水素濃度が燃焼下限以上とならないようにするため、換気流量は多いほうが良い。

このため、排煙処理装置の性能を勘案して、安全性を確保しつつ、十分な試験精度を確保できる換気流量として $2 \text{Nm}^3/\text{min}$ を設定した。

3.1.3 試験時間

試験実施にあたっては、水素燃焼がナトリウムプール燃焼に与える影響を調査するため、試験開始初期はナトリウムプール燃焼のみとし、その後ナトリウムプール中に水素を供給し、その影響を調べることとした。

試験時間は 30 分とし、最初の 10 分間はナトリウムプール燃焼のみとした。また、試験の実施にあたって水素ガスを取り扱うという安全上の配慮から、水素の供給速度は 2 段階とし、試験開始 10~20 分までは最高水素供給速度の 1/2 の $4.8 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ (実際の水素供給速度：約 $2.1 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{min}$) とし、試験開始 20~30 分後までは $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ (実際の水素供給速度：約 $4.2 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{min}$) とした。

3.2 試験方法

ナトリウム燃焼容器内に 603.7g のナトリウムを充填し、アルゴン雰囲気中で 500℃ まで昇温した。この間、ノズルの閉塞を避けるため、ノズル内に $2.3 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ (実際の窒素供給速度: $1 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{min}$) で窒素ガスを流した。なお、予熱前には小型排煙処理装置を起動し、 $2 \text{Nm}^3/\text{min}$ で以後継続して試験装置内の換気を実施した。

昇温完了後、ナトリウム燃焼容器上蓋を開け、ナトリウムを燃焼させ試験を開始した。試験開始 10 分後からノズル内に水素ガスを供給し、窒素ガス供給を停止した。水素ガス及びナトリウムの燃焼状態を確認しつつ水素供給速度を $4.8 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ まで段階的に増加させた。試験開始 20 分後、水素ガス供給速度を段階的に増加させ $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ とした。

試験時には、熱伝導度式水素濃度計、ガスクロにより FRAT-1 試験装置内の水素濃度を継続して監視した。また、所定の時間に再結合割合算出用のオフライン分析用ガスサンプルの採取、及び化学組成調査用のエアロゾルサンプリングを行った。

試験終了後は予熱を停止し、自然空冷で試験装置を冷却した。

4. 試験結果及び考察

4.1 試験経過

以下に試験時の時間履歴を示す。なお、ガスクロによる水素の検出時刻は実時間であり、サンプリング流量の低下に伴う時間遅れを補正していない。

- 0:00:00 ナトリウム燃焼容器上蓋を開け、ナトリウムプール燃焼を確認（試験開始）
- 0:10:00 水素供給開始（約 $1.2 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ より状況を確認しながら流量増加）
- 0:11:57 水素供給流量 $4.8 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ 到達
- 0:10:59 ガスクロサンプリング流量低下のため、ライン切換（SV1G）
- 0:19:13 ガスクロサンプリング流量低下のため、ライン切換（SV3G）
- 0:20:00 水素供給流量調整（約 $1.2 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ ステップで徐々に流量増加）
- 0:21:48 水素供給流量 $9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ 到達
- 0:22:16 ガスクロサンプリング流量低下のため、全ライン開放（SV1G～SV3G）
- 0:28:13 ガスクロサンプリング流量低により試験終了
- 0:29:06 燃焼容器蓋の隙間から火炎の発生確認、以後、約 1 時間 28 分間継続して燃焼する。

4.2 試験装置内の状況

4.2.1 ナトリウム及び水素の燃焼挙動

ナトリウム燃焼容器上蓋を開けた直後、バブリングノズル挿入部付近からオレンジ色の火点が発生し、部分的なナトリウム燃焼が始まった。その 1 分後くらいには、プール全面でオレンジ色の光を発しナトリウムが燃焼するようになったため、この時点をもって試験開始とした。ナトリウム燃焼に伴い多量のエアロゾルが FRAT-1 試験装置内に放出されるようになり、時間の経過とともに ITV2 から確認できていたナトリウム燃焼容器上部の飛沫ガード、上蓋、窒素・水素ガス供給ライン等も曇って確認できなくなり、試験開始 1 分後くらいには窒素・水素ガス供給ラインの上部しか確認できなくなった。

水素の供給を開始（試験開始 10 分後）した直後、オレンジ色の発光が明るさを増したが、大きな火炎の発生は確認できなかった。その後時間の経過とともに FRAT-1 内のエアロゾルが減衰して、試験開始約 12 分後には曇って確認できなかった窒素・水素ガス供給ラインの全体が、試験開始約 13 分後にはナトリウム燃焼容器上部の飛沫ガードが確認できるようになり始め、試験開始 18 分後に

は飛沫ガード全体が確認できるほどエアロゾルは減衰した。

試験開始 20 分後、水素供給速度を増加させた。これに伴いオレンジ色の発光は ITV 映像がハレーションを起こすほど増大した。ここでも、大きな火炎の発生は確認できなかった。エアロゾルの減衰はその後も続き、ITV 映像はより鮮明となった。

試験開始約 28 分後に試験終了措置として水素ガスの供給を止め、ナトリウム燃焼容器上部に蓋をし、内部を不活性化して燃焼を強制的に終息させた。その後も上蓋の隙間からエアロゾルが継続的に放出されていた。試験終了約 1 分後（試験開始約 29 分後）に、上蓋の隙間から火炎が発生しているのを確認した。

4.2.2 ナトリウム温度及びナトリウムプール上雰囲気温度

試験時のナトリウム温度及びナトリウムプール上雰囲気温度等を図 4.1 に示す。試験開始前ナトリウム温度 (TE02) は、500℃で推移していたが、試験開始（ナトリウム着火）直後に約 520℃まで上昇して一端安定し、水素供給が開始された試験開始 10 分後より上昇を始め、水素供給量を増加させた試験開始 20 分後より上昇速度が増加する傾向が見られた。ナトリウムプール初期液面より約 30mm 上の雰囲気温度 (TE03) は、水素供給開始とともに上昇しているが、初期液面より約 100mm 上の雰囲気温度 (TE04) は顕著に上昇していない。

4.2.3 試験時の FRAT-1 内雰囲気、及び FRAT-1 壁面温度等

試験時の FRAT-1 内雰囲気温度、排煙ダクト中排気温度を図 4.2 に、FRAT-1 壁面及び防液堤底面温度を図 4.3 に、試験時の吸排気温度を図 4.4 に示す。

4.2.4 雰囲気中の湿度

試験時の吸排気中の絶対湿度を図 4.4 に示す。この図より吸気中の湿度 (R0102) は 17500vol-ppm 程度で推移していたが、排気中の湿度 (R0101) は試験開始後より低下していき、試験開始約 4 分後に 16000vol-ppm で安定した後、水素供給が開始される試験開始 10 分後あたりから緩やかに上昇して、18000vol-ppm 程度で安定する傾向が見られた。

この排気中の湿度の減少分は、ナトリウム燃焼領域付近でナトリウムとの反応により消費されたと考えられるが、その量を見積もると約 1.7mol-H₂O である。

4.2.5 換気流量

FRAT-1 換気流量及び FRAT-1 内圧力を図 4.5 に示す。吸気流量 (FI601) は排気流量 (FI602) よりも低めで推移している。その理由としては、換気を排気側ブローアのみによって行ったため、FRAT-1 内が負圧になっていること、吸排気温度の

差、試験・計測用管台からの外気の吸い込み等が考えられる。

4.2.6 水素ガス及び窒素ガス供給流量

ナトリウムプールバブリングノズルに供給した水素ガス及び窒素ガスの供給流量を図 4.6 に示す。試験時の積算水素供給量は約 $5.01 \times 10^{-2} \text{Nm}^3$ (約 2.2mol) である。

なお、試験開始前からノズルに窒素ガスを流しているのは、水素ガス供給前にノズルが閉塞するのを避けるためである。また、試験終了後は水素窒素ガス供給ライン内に残存する水素ガスをパージするため、再度窒素ガスを供給した。

4.2.7 FRAT-1 内水素濃度

試験時の FRAT-1 内水素濃度履歴を図 4.7 に示す。本図において GT2800 型ガスクロのサンプリング流量が低下を始めた試験開始 11 分以降の水素濃度指示値は、サンプリング流量低下に伴う時間遅れを含んでおり、当該時刻における FRAT-1 内の水素濃度を正しく表しているものではない。また、オフライン分析は、ガスサンプリングポットに採取したガスを試験後 PID 式ガスクロで分析したものである。

試験開始前に FRAT-1 内の水素濃度を GT2800 型ガスクロで分析したところ、水素は検出されていない。また、この図より試験時には FRAT-1 内水素濃度は極低濃度で推移しており、有意な上昇は見られなかった。

しかしながら、試験終了措置として水素ガスの供給を止め、ナトリウム燃焼容器上部に蓋をし、内部を不活性化して燃焼を終息させて以降、水素濃度が上昇する傾向が見られた。

4.2.8 FRAT-1 内酸素濃度

試験時の FRAT-1 内酸素濃度履歴を図 4.8 に示す。本試験においては燃焼させたナトリウム量が少なかったこともあり、有意な酸素濃度の低下は見られなかった。

4.3 試験後ナトリウム燃焼容器観察結果

ナトリウム燃焼容器内に残存するナトリウムは表面が白色に変色しているものの、その下は全て金属ナトリウムと思われる。ナトリウム燃焼容器上部から、試験後の残存ナトリウム表面までの距離は 14.6~15.5cm 程度であった(試験前の静止液面は、燃焼容器上部より約 10cm)。残存ナトリウムを削ると、金属ナトリウム層の下に一部に空洞が見られた。また、燃焼容器側面には、緑色の非常に硬い反応生成物が付着していた。

バブリングノズルに巻かれた補強用巻板は一部損傷していたが、ナトリウム燃焼容器に目立った減肉は見られなかった。

4.4 試験後のナトリウムプール組成

試験後、ナトリウム燃焼容器に残存する金属ナトリウム量の分析結果は 574.3g であった。また、ナトリウム燃焼容器側面に付着している緑色の反応生成物量の重量測定結果は 2.7g であった。

ナトリウム燃焼容器側面に付着していた緑色の非常に硬い反応生成物及びナトリウムプール上層、下層の化学組成を表 4.1 に示す。

この分析結果によると、ナトリウム燃焼容器側面に付着していた緑色の反応生成物の主成分は、 Na_2O (53.4%) と NaOH (37.9%) であり、金属 Na (3.1%) が少量、 Na_2O_2 (0.1%) が微量検出されている。また、ナトリウムプールの主成分は金属 Na (87.9~94.4%) であった。この他にナトリウムプール上層からは NaOH (5.6%)、 Na_2O (2.8%) が少量、 Na_2O_2 (0.6%) が微量検出されている。一方、ナトリウムプール下層には NaOH (0.4%)、 Na_2O (0.3%)、 Na_2O_2 (0.2%) のいずれも微量しか含まれていない。

なお、いずれの試料からも NaH は検出されなかった。

4.5 エアロゾル放出量及び化学組成

今回の試験では、ナトリウムの燃焼量が少なく全エアロゾルの回収は困難であることから、ナトリウム充填量と試験後のナトリウム燃焼容器に残存するナトリウム量の分析結果の差よりエアロゾル放出量を算出すると、26.7g- Na である。

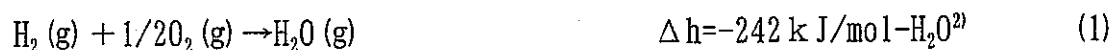
また、排気ダクト上流側でエアロゾルのサンプリングを行ったが、試験後取り出してみると完全に潮解しており化学組成の分析はできなかった。

5. 考察

5.1 水素の燃焼状況及び再結合割合

5.1.1 水素の燃焼状況

第 4.2.2 節で述べたナトリウム温度及びナトリウムプール上部雰囲気温度履歴より、水素供給開始と共にそれまで約 520℃ で安定していたナトリウムプール温度 (TE02) の緩やかな上昇傾向と、ナトリウムプール初期液面より約 30mm 上の雰囲気温度 (TE03) の上昇が見られた。また、第 4.2.7 節で述べた FRAT-1 内水素濃度より、水素供給開始後も、排気中の水素濃度が上昇していかないことがわかる。これらのことより、ナトリウムプール液中から供給された水素は、ナトリウム燃焼とともに以下の反応により燃焼 (消費) され、その反応熱が加わることにより、それまで安定していたナトリウムプール温度が上昇していると考えられる。



また、水素供給流量を増加させた試験開始 20 分以降、ナトリウムプールの温度上昇速度がさらに増加しているが、これは水素燃焼による反応熱が増加したこと、バブリング流量が大きくなったことにより空気と接触するナトリウム表面積が増大しナトリウム燃焼量が増大したことに起因すると考えられる。

5.1.2 水素の再結合割合

ガスサンプリングポットに採取した排気中の水素濃度の分析結果より、燃焼により消費された水素の割合 (再結合割合) を計算した。再結合割合の計算式は以下のとおりである。

$$\text{再結合割合} = 1 - \text{排気流量} \times \text{排気中水素濃度} / \text{水素供給量} \quad (2)$$

なお、FRAT-1 排気中には、ナトリウムプールに供給した水素 (約 2.2mol) の未燃焼分の他に、換気によって FRAT-1 内に取り込まれた湿分の減少分 (約 1.7mol) とナトリウムとの反応によって生成された水素が含まれていると考えられる。しかしながら、水素ガス供給開始前に排気中の水素濃度を分析したところ極微量しか検出されていないことから、換気中の湿分による影響は無かったと考えられる。

再結合割合の計算結果を表 5.1 に示す。この再結合率割合の誤差は、換気流量、水素濃度分析値、水素供給量の誤差から考えると次項に示すようになる。

① 換気流量の変動幅

試験時における小型排煙処理装置の換気流量の変動は $2.0\text{Nm}^3/\text{min} \pm 2.5\%$ であった。

② 水素濃度測定値

PID 式ガスクロの測定精度は $\pm 3\%$ 程度である。

③ 水素供給量の変動幅

試験時に水素供給速度に変動はなかったが、マスフローメータの最小表示は $0.1 \times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{min}$ であり、水素の供給速度は $2.1 \sim 4.2 \times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{min}$ ($4.8 \sim 9.5 \times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ 相当) であることから、誤差の最大値として考えられるのは、 $0.1 \div 2.1 \times 100 = 5\%$ 程度である。

これらをもとに (2) 式右辺第 2 項の誤差を求めることにする。一般的に 2 種のデータの誤差 (μ) 同士の掛け算割り算は二乗和の平均値 ($\sqrt{\mu_1^2 + \mu_2^2}$) で表されることから、これら誤差を計算すると約 7% (小数点以下切り上げ) となる。

表 5.1 より、再結合割合は概ね 99.7% であるので、誤差は $0.3\% \times 0.07 = 0.002\%$ となる。

5.1.3 水素の燃焼形態及び火炎高さ

ここで燃焼容器内の水素ガスの流れを考えることにする。試験時の最大水素供給速度は $9.5 \times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ (燃焼容器内の平均流速に換算すると、最大で約 $3\text{cm}/\text{sec}$ at 630°C) と小さいことから、レイノルズ数は小さく (< 10)、容器内のガスの流れは層流となる。このような場合、ナトリウム液中から供給された水素は、もっぱら分子拡散により酸素と混合され、2つの気体の境界で燃焼する「層流拡散炎」の形態をとり燃焼(消費)されると考えられる^{3),4)}。このような燃焼形態の場合、火炎高さは簡易的に次式のように表される⁵⁾ので、同式を用いて試験時の最高火炎高さを求めることにした。

$$h = \phi / 2\pi D \quad (3)$$

h : 火炎高さ (cm)

ϕ : 水素のフラックス (cm^3/sec)

D : 水素の空気中への拡散係数 (約 $13.4\text{cm}^2/\text{sec}$ at 630°C ⁶⁾)

水素のフラックスが最大となるのは、水素供給速度が最大 ($9.5 \times 10^{-3}\text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$)

(約 $4.2 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{min}$) で、ナトリウムプール温度が最高 (630°C) となる試験終了直前であるから、このときの水素のフラックスを求めると約 $2.2 \times 10^2 \text{cm}^3/\text{sec}$ となる。この値を用いて試験終了直前の火炎高さを求めると約 2.6cm (約 26mm) となる。

第 4.2.2 節で述べたナトリウム温度及びナトリウムプール上部雰囲気温度履歴より、水素供給開始と共にナトリウムプール初期液面より約 30mm 上の雰囲気温度 (TE03) は上昇していき、最高で 900°C 近くまで上昇しているのは、火炎からの輻射熱や、火炎自体の温度の影響を受けたためであると考えられる。

5.2 水素供給がナトリウム燃焼挙動に及ぼす影響

5.2.1 水素燃焼に伴う燃焼発熱量の増加

ここでは水素の燃焼発熱量とナトリウムの燃焼発熱量をそれぞれ推定し、ナトリウムプール燃焼と水素燃焼が独立に発生すると仮定した場合の燃焼発熱量の増加分を見積もる。

① 水素の燃焼発熱量

試験時における水素の供給速度は、 $4.8 \sim 9.5 \times 10^{-3} \text{Nm}^3/\text{m}^2\text{sec}$ ($9.4 \times 10^{-2} \sim 1.9 \times 10^{-1} \text{mol}/\text{min}$) であるから、(1) 式より単位時間あたりの発熱量を求めると 23 ~ 46kJ/min となる。

② ナトリウムの燃焼発熱量

過去における試験結果から、プール燃焼時のナトリウム燃焼速度は 20 ~ 30kg-Na/m²h 程度¹⁾ となることが知られている。また、空気雰囲気中ではナトリウムは以下の反応により燃焼される。



この時の反応生成物である Na_2O と Na_2O_2 の生成割合を 60 : 40 とすると、燃焼発熱量は約 10000kJ/kg-Na となる。ここで、プール燃焼時のナトリウム燃焼速度を 25kg-Na/m²h と仮定し、単位時間あたりの発熱量を求めると、31kJ/min となる。

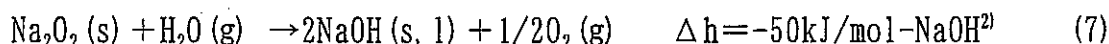
これらのことより、ナトリウムプール燃焼と水素燃焼が独立に発生すると仮定すると、燃焼発熱量は 1.7 ~ 2.5 倍程度になると推定される。なお、実際には

水素燃焼により酸素が消費され、ナトリウムの燃焼速度は酸素の供給量により制約されること、バブリングによりナトリウム燃焼速度が増加することの影響があると考えられるため、この燃焼発熱量の増加割合はあくまでも参考値である。

5.2.2 水素燃焼がエアロゾル挙動に与える影響

第4.2.1節で述べた試験時のITV映像より、水素供給開始直後よりFRAT-1試験装置内に充満していたエアロゾルが減衰していく様子が見受けられている。また、排気ダクトから採取したエアロゾルサンプルを試験後取り出してみると、このサンプルは採取直後より高純度アルゴンガス(99.9995%以上)を充填した密閉容器中で保管されていたにもかかわらず完全に潮解していた。

これらのことは、第5.2.1節で述べたようにナトリウムの燃焼速度が酸素の供給量により制約され、エアロゾル発生量が減少したこと、エアロゾルが水素燃焼により発生した水蒸気を含む高湿分濃度の雰囲気下を移行していく際に、以下の反応により吸湿が促進されたことに起因すると考えられる。



5.3 ナトリウムプール化学組成

第4.3節で述べた試験後のナトリウムプール組成によると、ナトリウムプール成分の約9割は金属Naであり、燃焼生成物はプール中に多く含まれていない。ナトリウムプール中に含まれる燃焼生成物として、プール上層からNaOH(5.6%)、 Na_2O (2.8%)が検出されているが、プール下層からは微量しか検出されていない。また、 Na_2O_2 はプール中から微量しか検出されていない。空気雰囲気中でナトリウムを燃焼させた時の Na_2O と Na_2O_2 の生成割合は、およそ60:40となることが知られているが、今回の分析結果では $\text{Na}_2\text{O}:\text{Na}_2\text{O}_2$ の生成割合がこれと比較して大きく異なっている。

過去に行われた研究例から、 Na_2O_2 は、雰囲気中に水分が存在すると直ちに反応してNaOHに変化することが知られている。このことから、プール燃焼時に発生した Na_2O_2 は、水素燃焼により発生した水分と反応し消費されNaOHに変化したものと考えられる。

なお、ナトリウムプール上層に存在するNaOHには、試験装置解体時の吸湿により生成されたものも一部含まれていると考えられる。

6. 結論

ナトリウム-コンクリート反応発生時に発生する水素ガスの空気雰囲気下での燃焼挙動を調査することを主目的として、「ナトリウムプール中水素ガスバブリング試験」を実施した。本試験結果から以下の結果を得た。

- (1) ナトリウム燃焼とともに燃焼（消費）される水素の再結合割合は 99%以上であることを確認した。
- (2) ナトリウム液中から供給された水素は、もっぱら分子拡散により酸素と混合され、2つの気体の境界で燃焼する「層流拡散炎」の形態をとり燃焼（消費）されると考えられる。
- (3) 水素燃焼により発生した水蒸気の多くは、ナトリウム燃焼時に発生した雰囲気中のナトリウムエアロゾル (Na_2O 、 Na_2O_2) と化学反応を起こし消費され、 NaOH に変化したものと考えられる。

7. 謝辞

本研究を実施するにあたり、大洗工学センター要素技術開発部熱化学安全試験グループ宮原信哉サブリーダーから適切な助言及び指導をいただいた。

本試験の準備、実施等にあたっては、東興機械工業(株)の鈴木和右氏並びに関係者、原子力技術(株)の加藤一憲氏の御協力をいただいた。

金属ナトリウムの分析については、実験炉部技術課助川一弥サブチームリーダーをはじめ、分析関係者の御協力をいただいた。

これらの各位に謝意を表します。

8. 参考文献

- 1) 畹本敏行他、「Na-コンクリート反応基礎試験」、PNC TJ270 82-02、1982年10月
- 2) 大野修司他、「ナトリウム燃焼解析コード ASSCOPS Version 2.1 使用説明書 (マニュアル)」、PNC TN9520 2000-001、2000年1月
- 3) エヌ・ヴェ・ラヴロフ、「燃料燃焼過程の物理的化学的基礎」、(社)新日本鑄鍛造協会、昭和49年10月
- 4) ブラッドレー、「火炎と爆発-燃焼現象のすべて」、三共出版(株)、昭和47年6月
- 5) J. Warnatz et al., "Combustion Physical and Chemical Fundamentals, Modeling and Simulation, Experiments, Pollutant Formation Second Edition", Springer, 1999.
- 6) R. B. Bird et al., "TRANSPORT PHENOMENA", JOHN WILEY & SONS INC, 1960.
- 7) 大野修司他、「ナトリウム棒状漏洩燃焼試験」、PNC TN9410 89-154、1989年11月

表4.1 ナトリウム燃焼生成物分析結果 (wt%)

サンプリング箇所	金属Na	Na ₂ O ₂	Na ₂ O	NaOH	NaH	その他
Naプール上層	87.9	0.6	2.8	5.6	0	4.3
Naプール下層	94.4	0.2	0.3	0.4	0	4.7
燃焼容器側面	3.1	0.1	53.4	37.9	0	5.5

表5.1 再結合割合計算値

試験開始後時間 (min)	水素供給速度 (Nm ³ /m ² sec)	再結合割合 (%)
14	4.8×10^{-3}	99.74
19	4.8×10^{-3}	99.67
24	9.5×10^{-3}	99.71

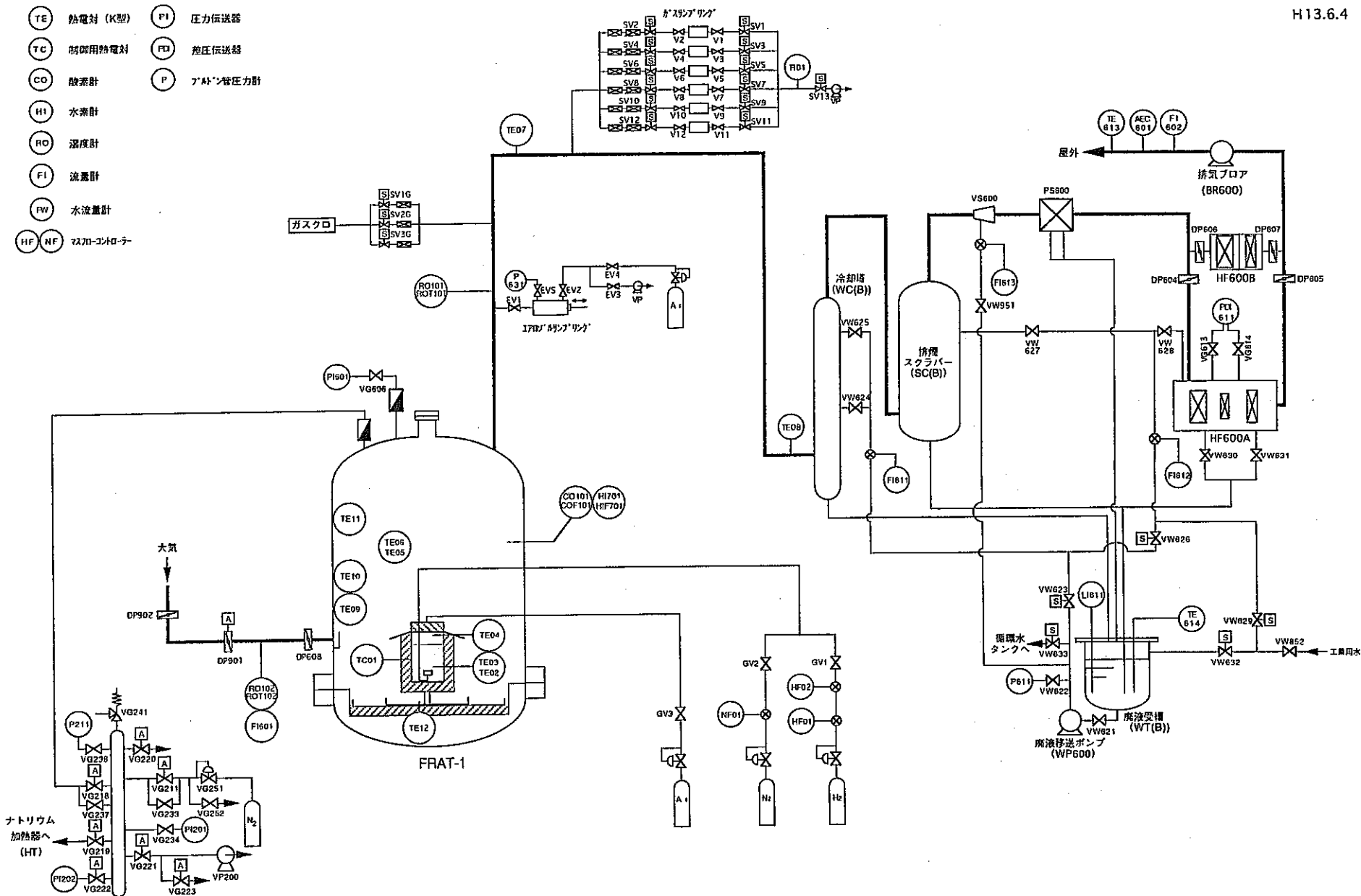
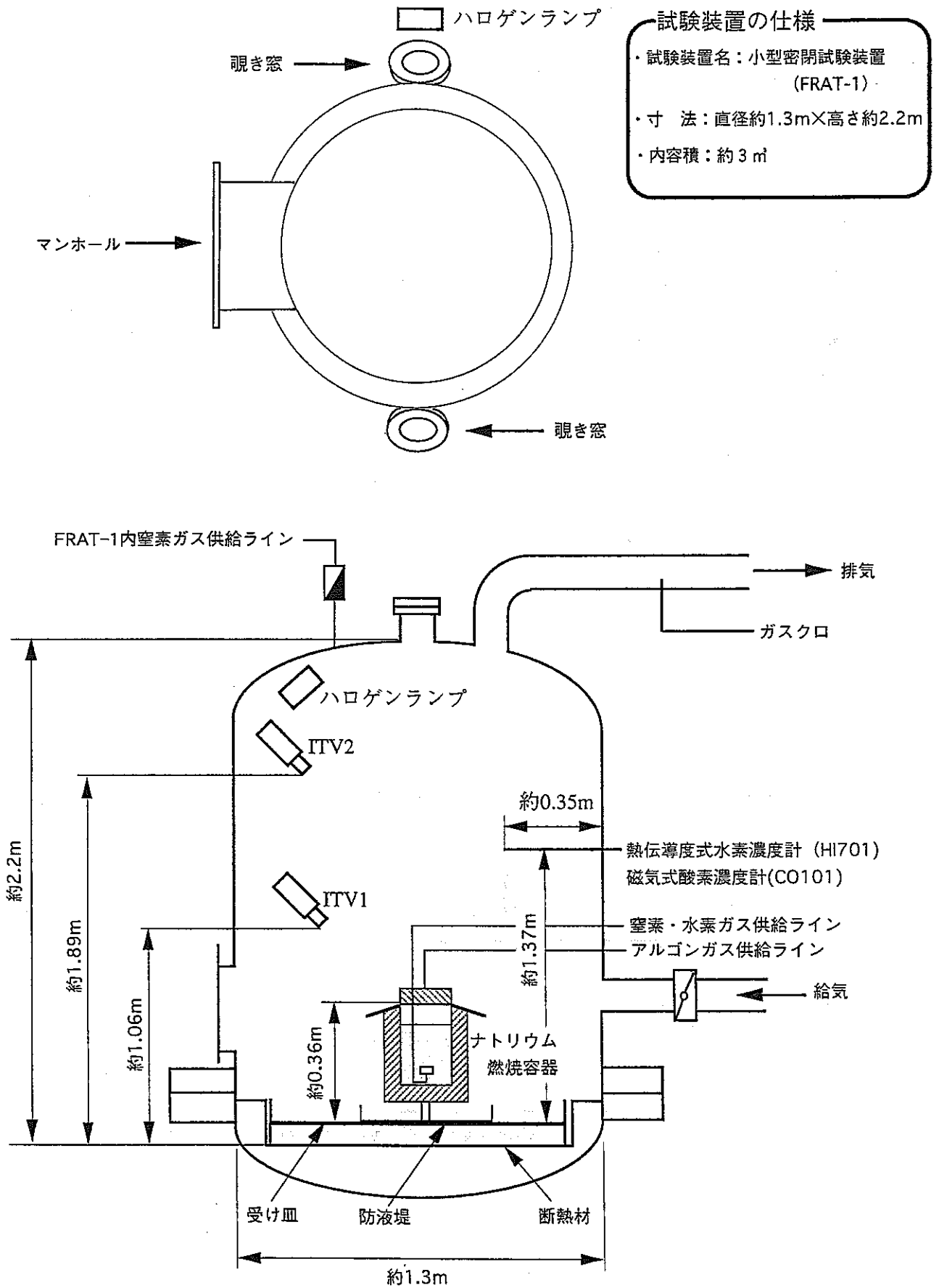


図2.1 ナトリウムプール水素ガスバブリング試験装置 フローシート



試験装置の仕様

- ・試験装置名：小型密閉試験装置 (FRAT-1)
- ・寸法：直径約1.3m×高さ約2.2m
- ・内容積：約3 m³

図2.2 FRAT-1試験装置概略図

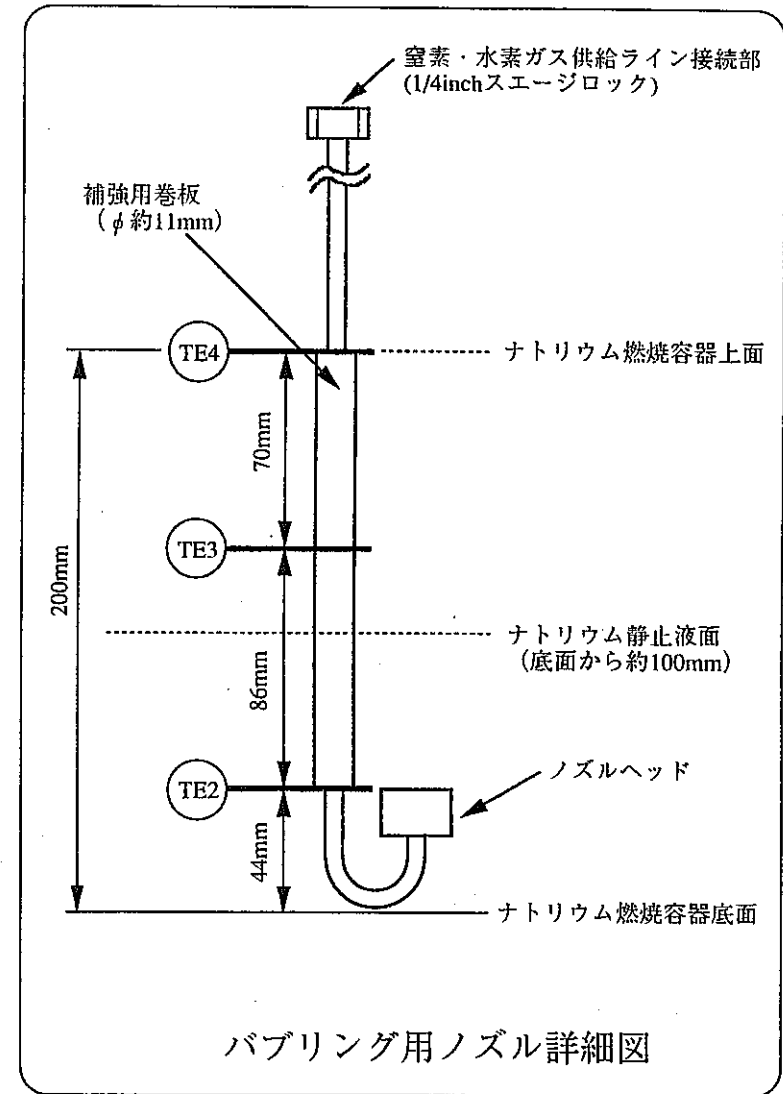
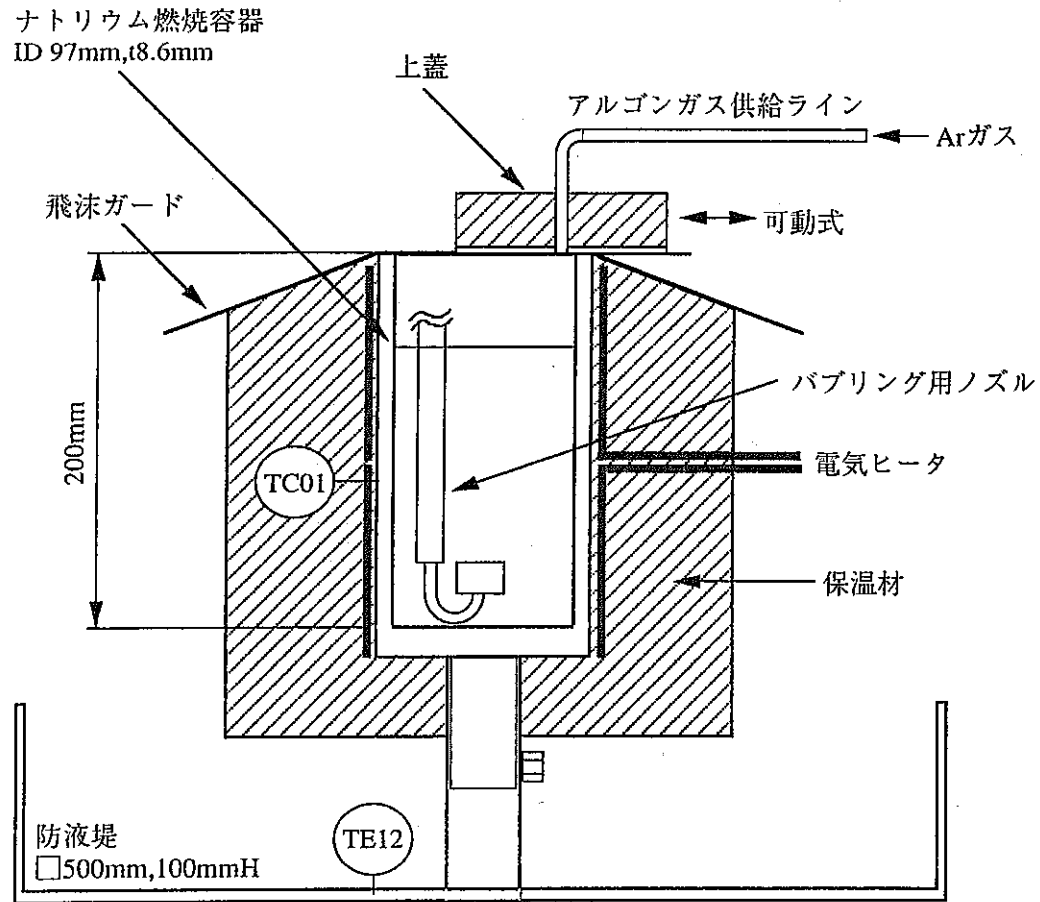


図2.3 ナトリウム燃焼容器概要図

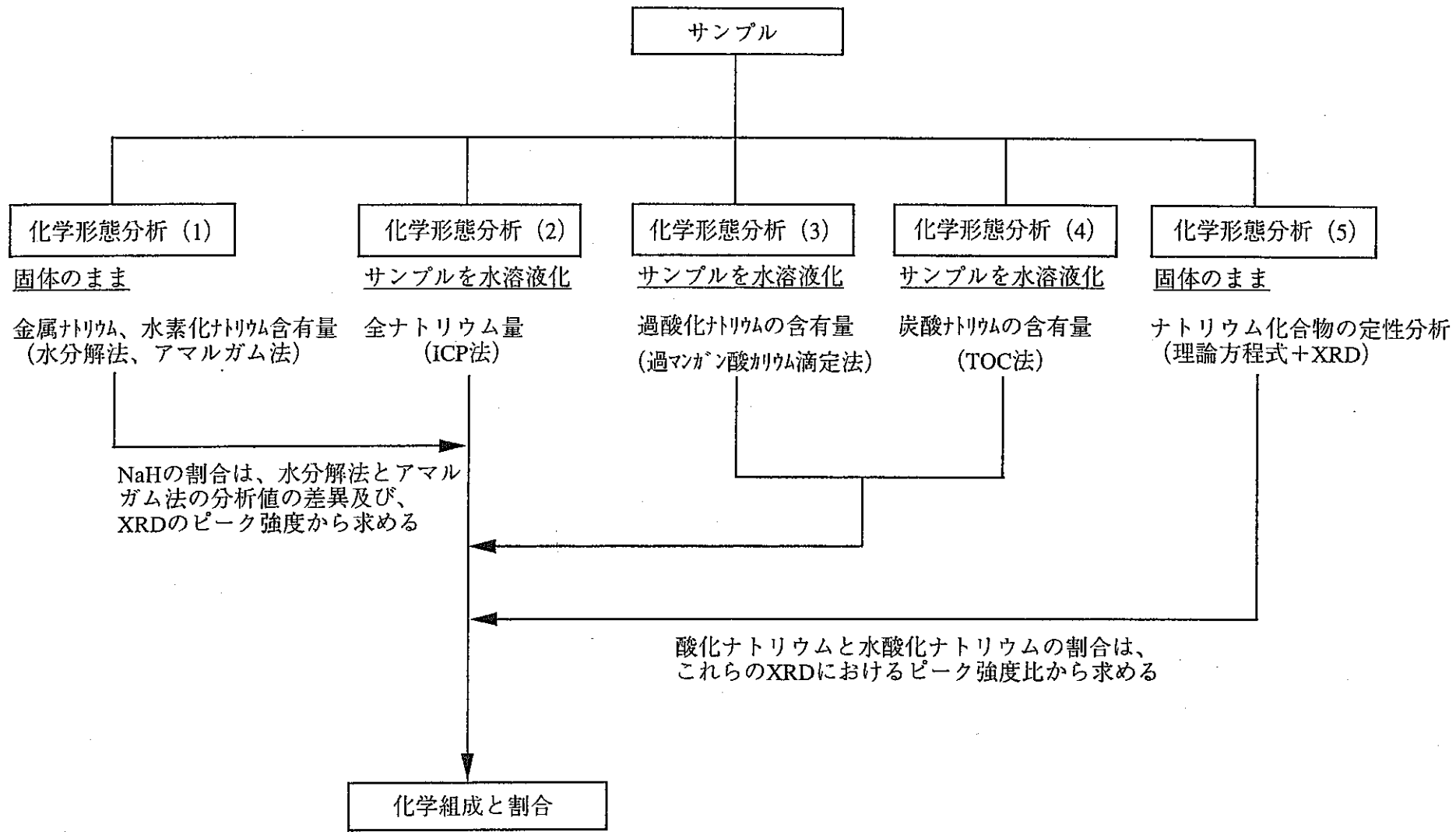
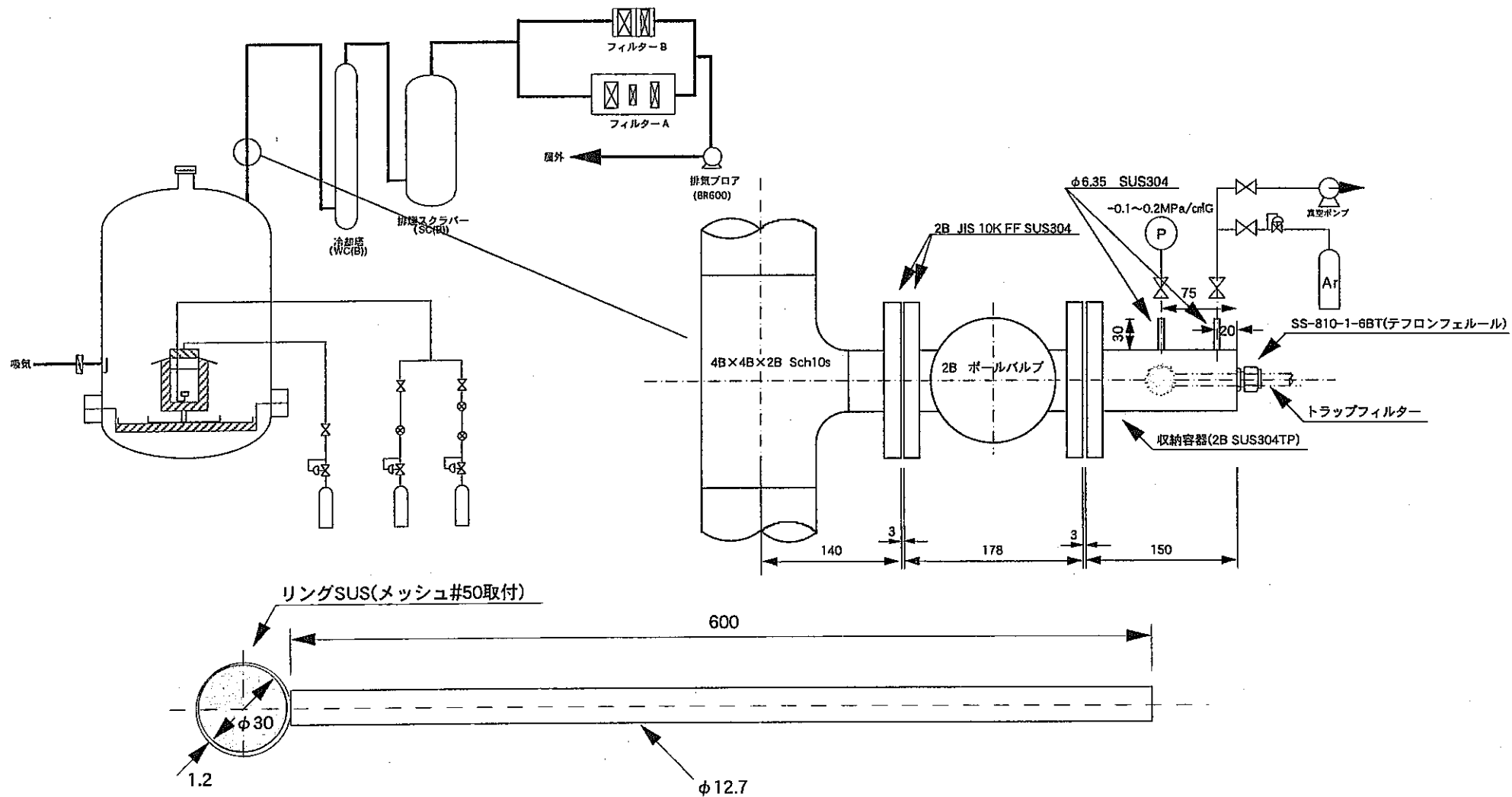
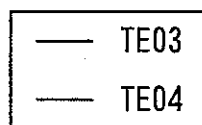
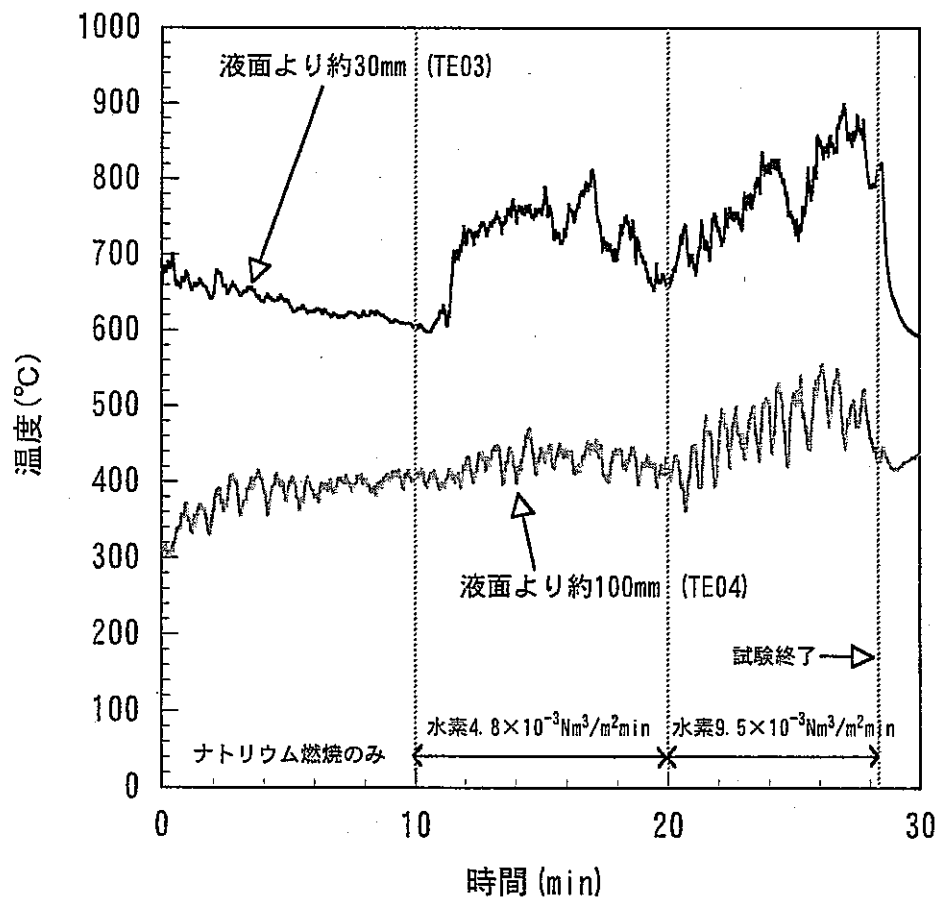
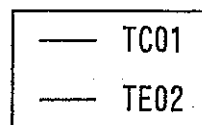
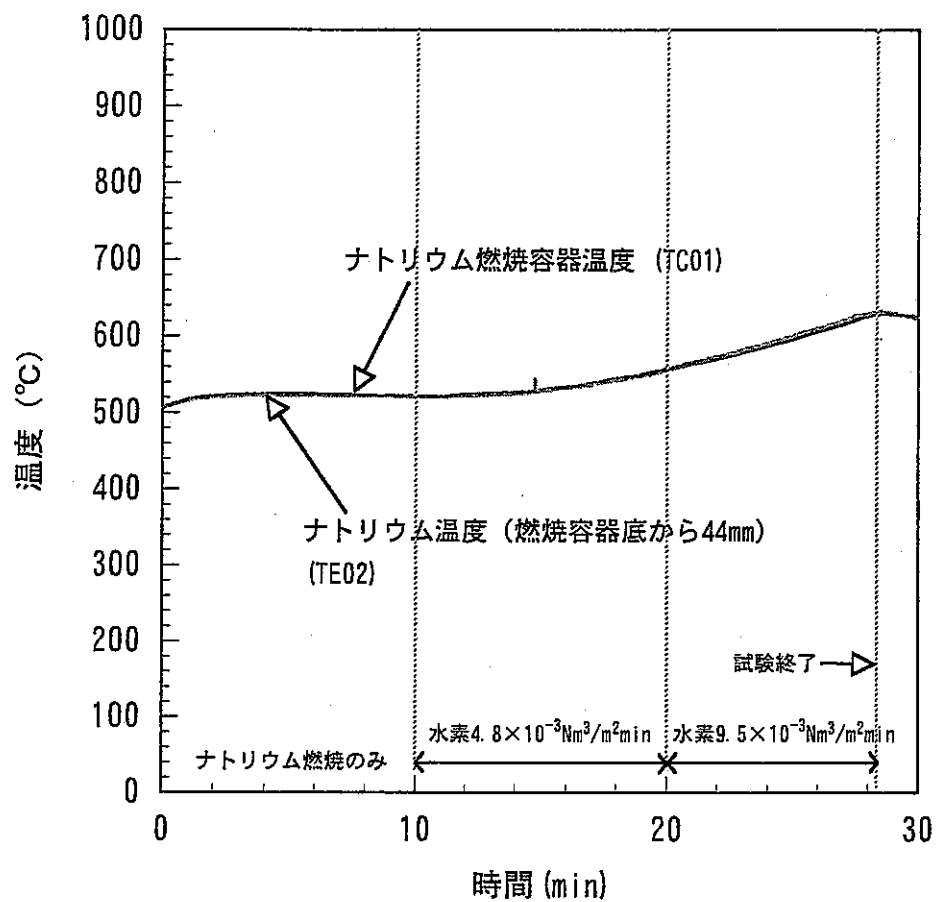


図2.4 ナトリウム燃焼生成物の分析方法



トラップフィルター詳細

図2.5 エアロゾルサンプラー概要図



ナトリウムプール上
雰囲気

図4.1 ナトリウム温度等及びナトリウムプール上雰囲気温度

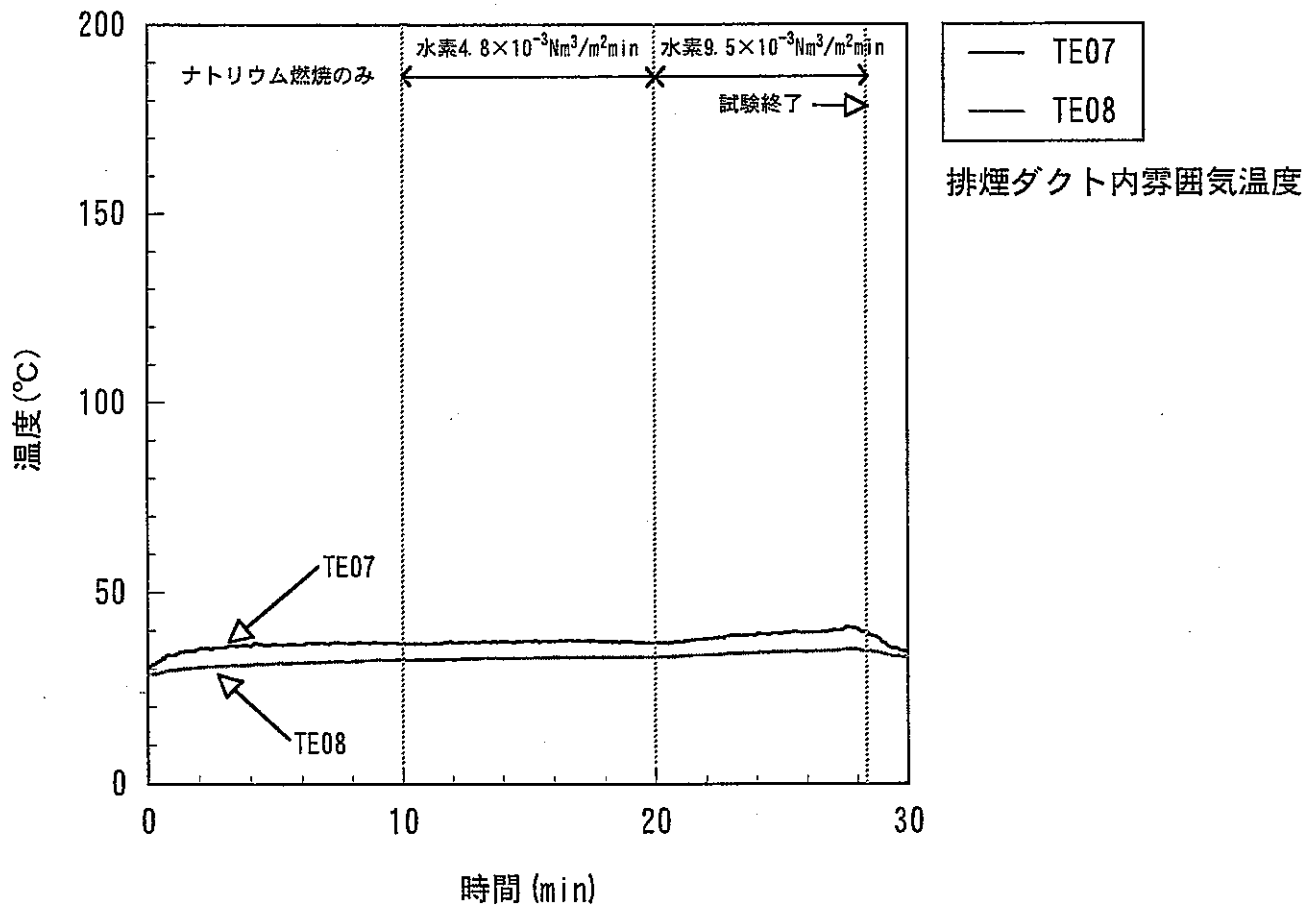
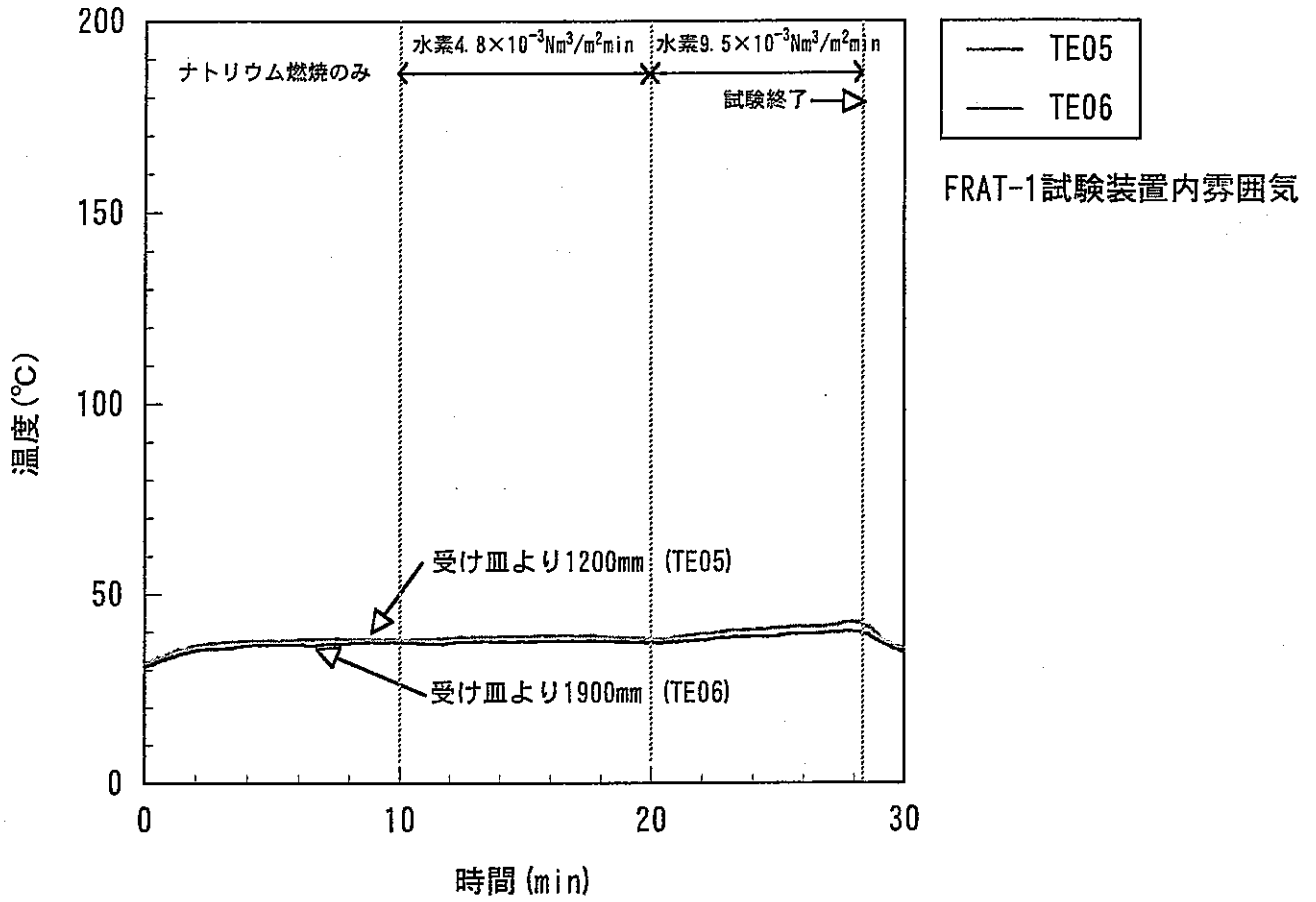


図4.2 FRAT-1試験装置内、及び排煙ダクト内雰囲気温度

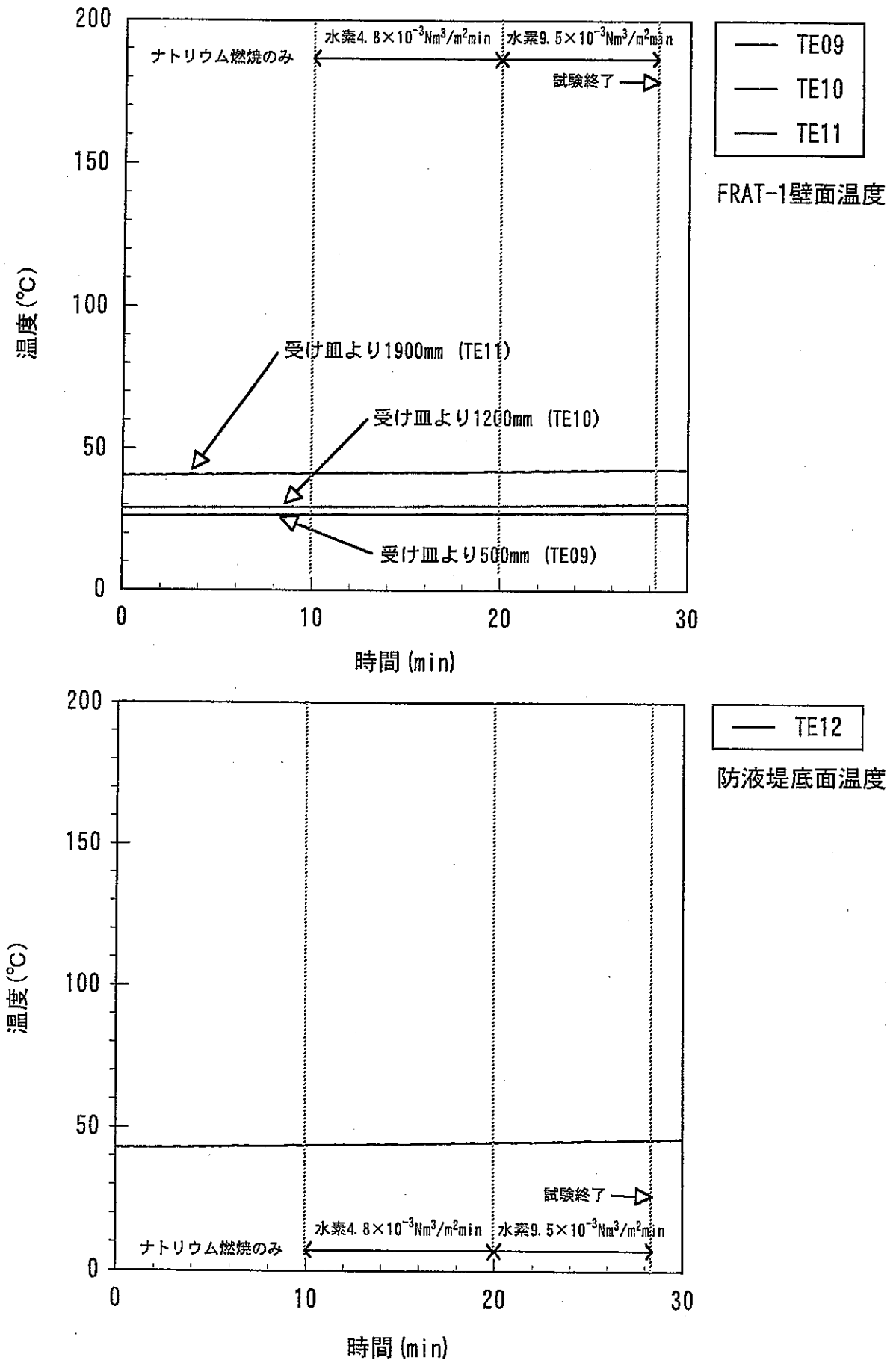


図4.3 FRAT-1壁面及び防液堤底面温度

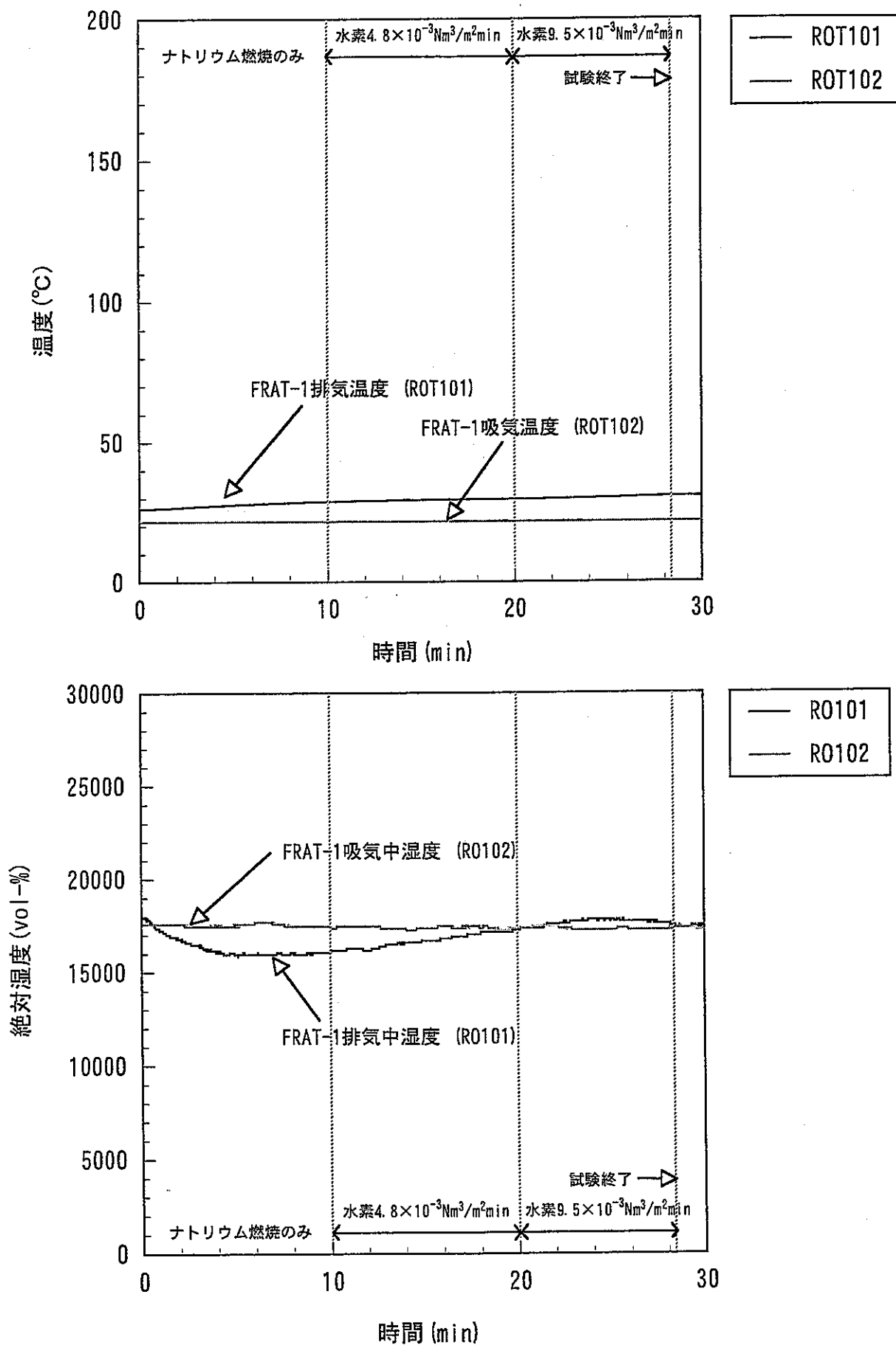


図4.4 FRAT-1吸排気温度及び湿度

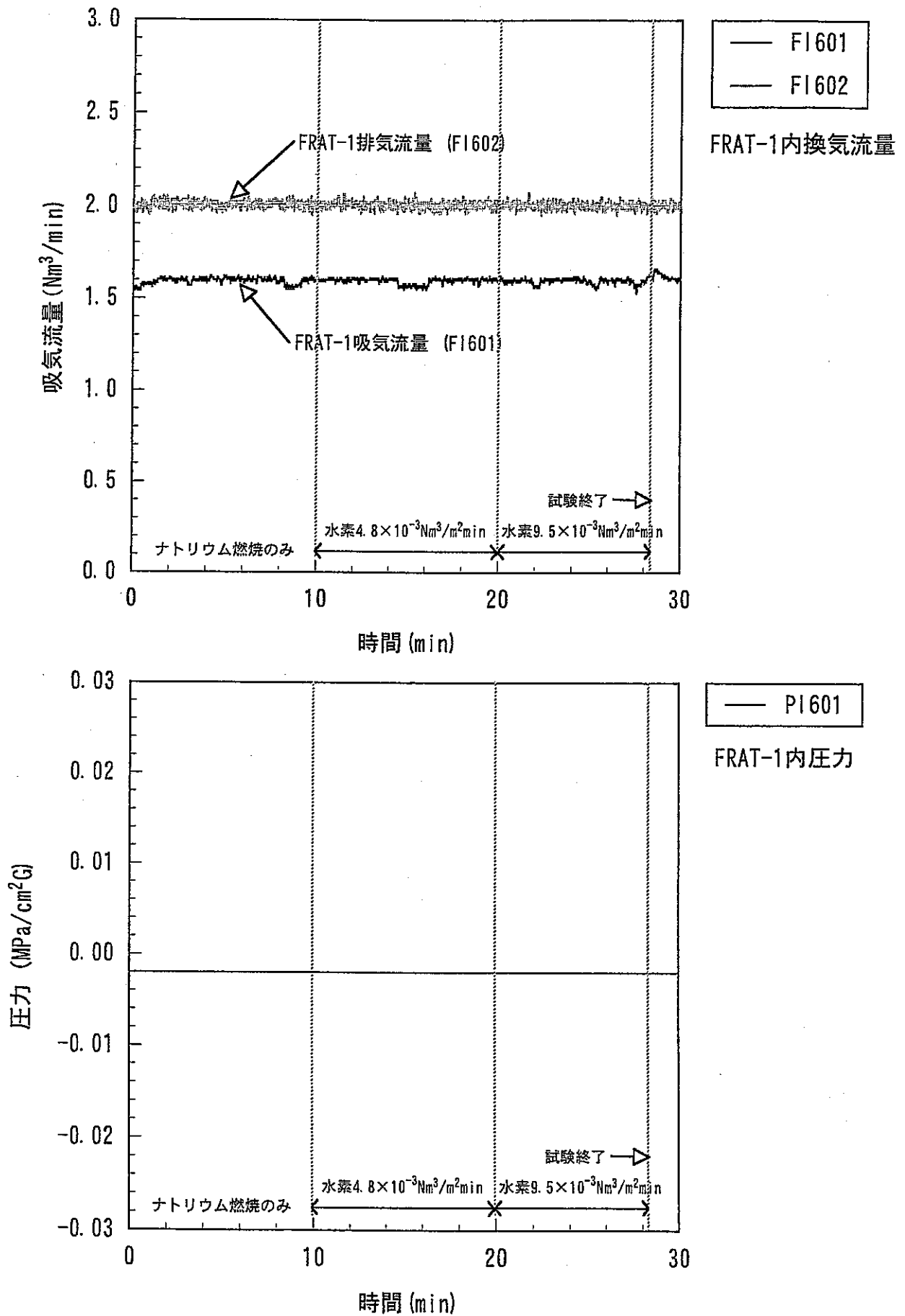


図4.5 FRAT-1換気流量及び圧力

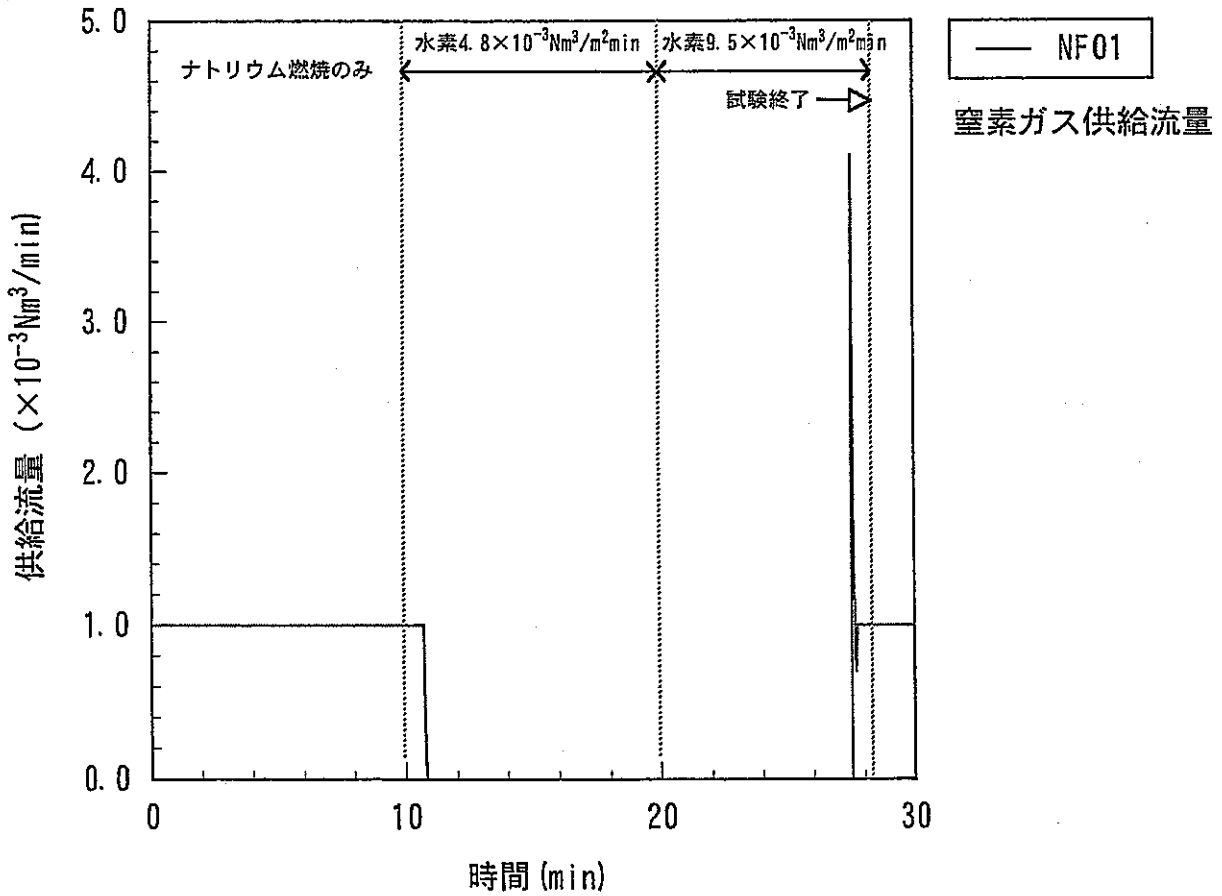
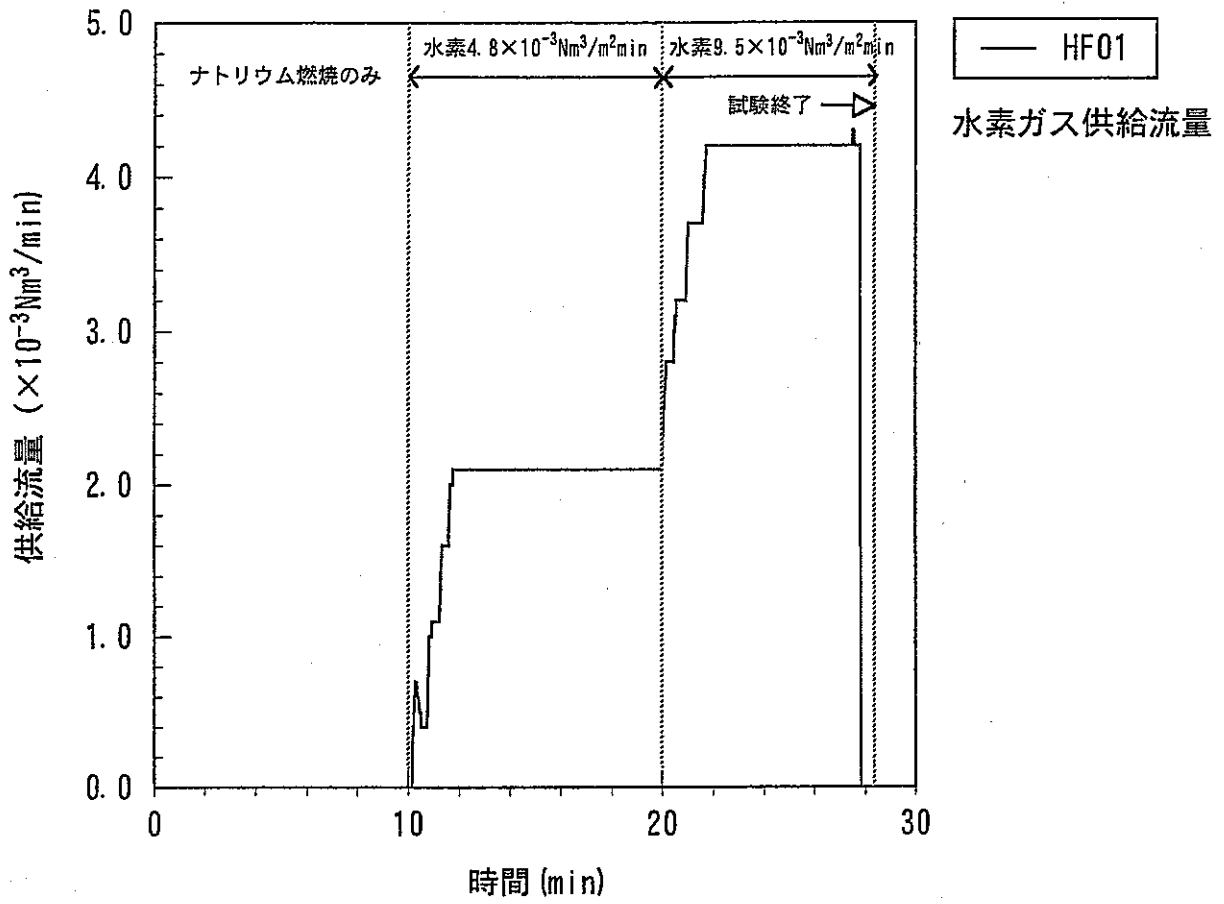


図4.6 水素ガス及び窒素ガス供給流量

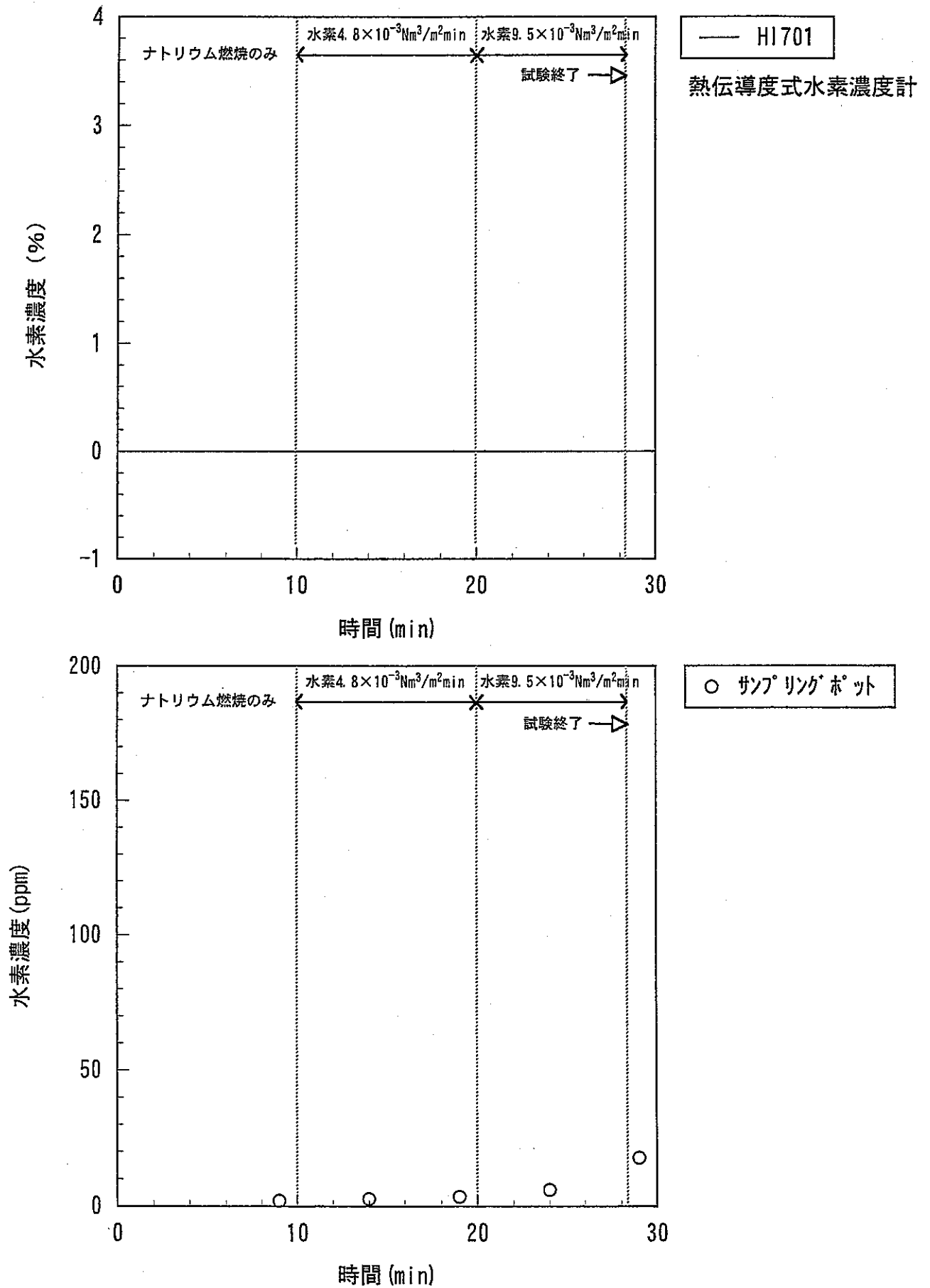


図4.7 FRAT-1内水素濃度

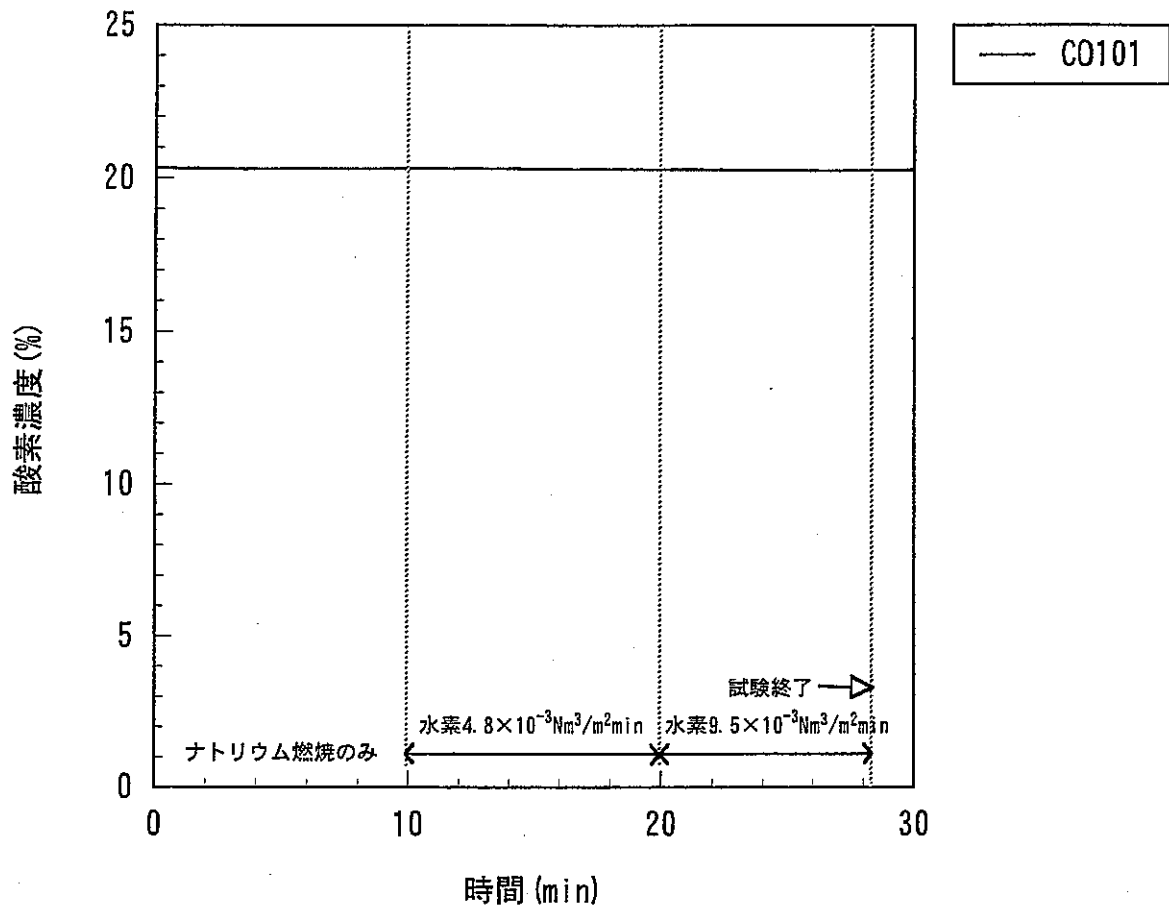


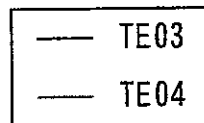
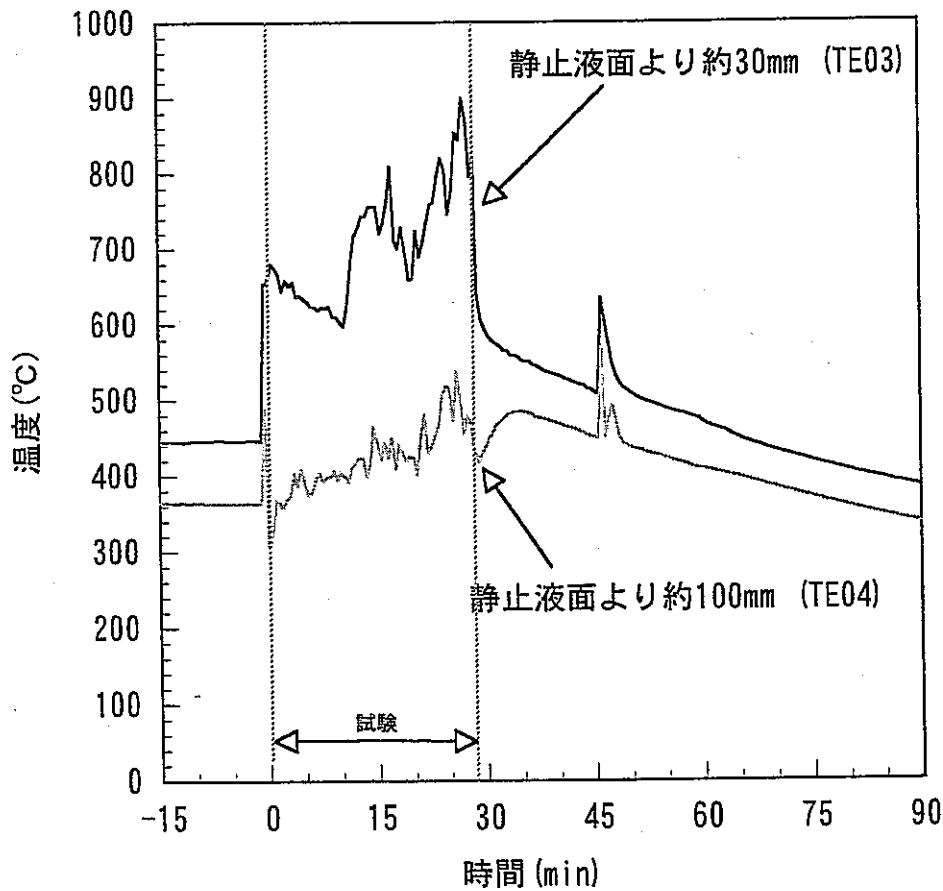
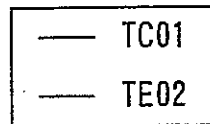
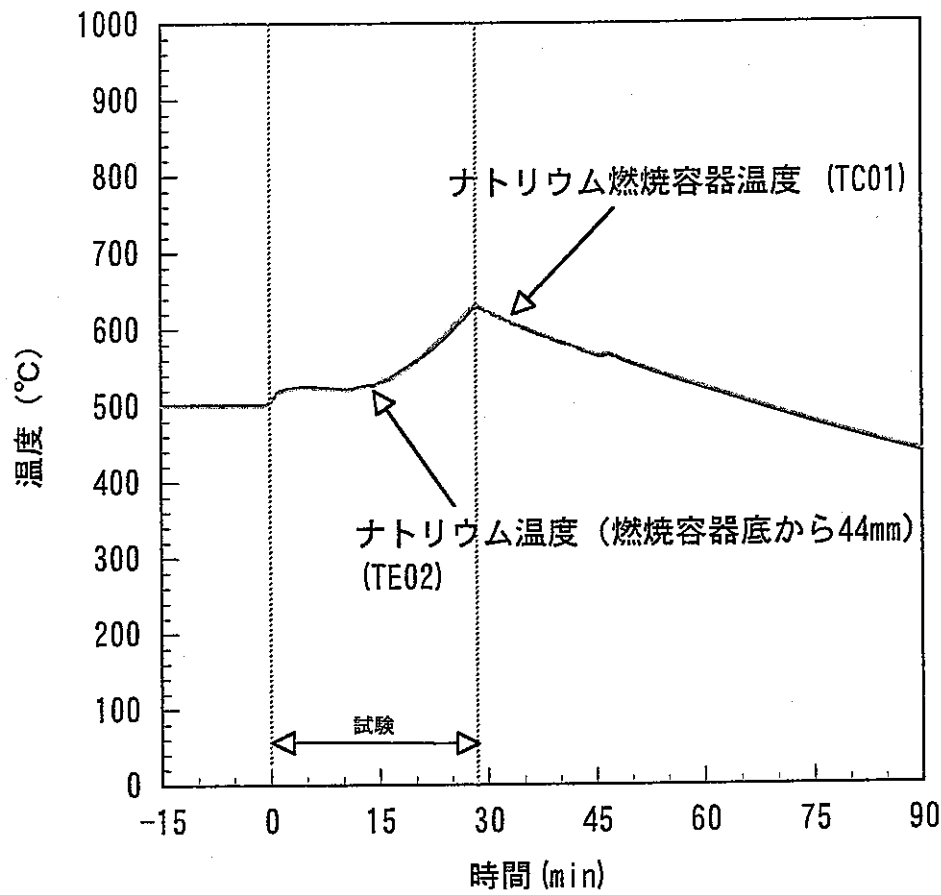
図4.8 FRAT-1内酸素濃度

APPENDIX-1 試験後の温度履歴

試験前後のナトリウム温度、ナトリウムプール上雰囲気温度等を図 A1.1 に示す。

試験終了措置として、ナトリウム燃焼容器上部に蓋をして内部を不活性化して燃焼を終息させた後、ナトリウムプール温度、ナトリウムプール上雰囲気温度とも緩やかに低下して行く傾向が見られる。なお、試験終了直後に静止液面より約 100mm 上の雰囲気温度 (TE04) が一旦低下し、その後上昇しているのは、ナトリウム燃焼容器上部に蓋をして燃焼を終息させたため、燃焼の終了と共に雰囲気温度は一旦低下し、その後は、蓋をしたことによりナトリウム燃焼容器から外部への放熱が減少し、内部に熱が蓄積して、温度が上昇したものと考えられる。

また、試験開始約 46 分 (試験終了約 18 分) 後にナトリウムプール上部雰囲気温度 (TE03、TE04) が大きく上昇しているが、これはバブリングノズル閉塞防止用に流していた窒素の供給を停止した際に、上蓋の隙間から空気を吸い込んだためであると考えられる。



ナトリウムプール上
雰囲気

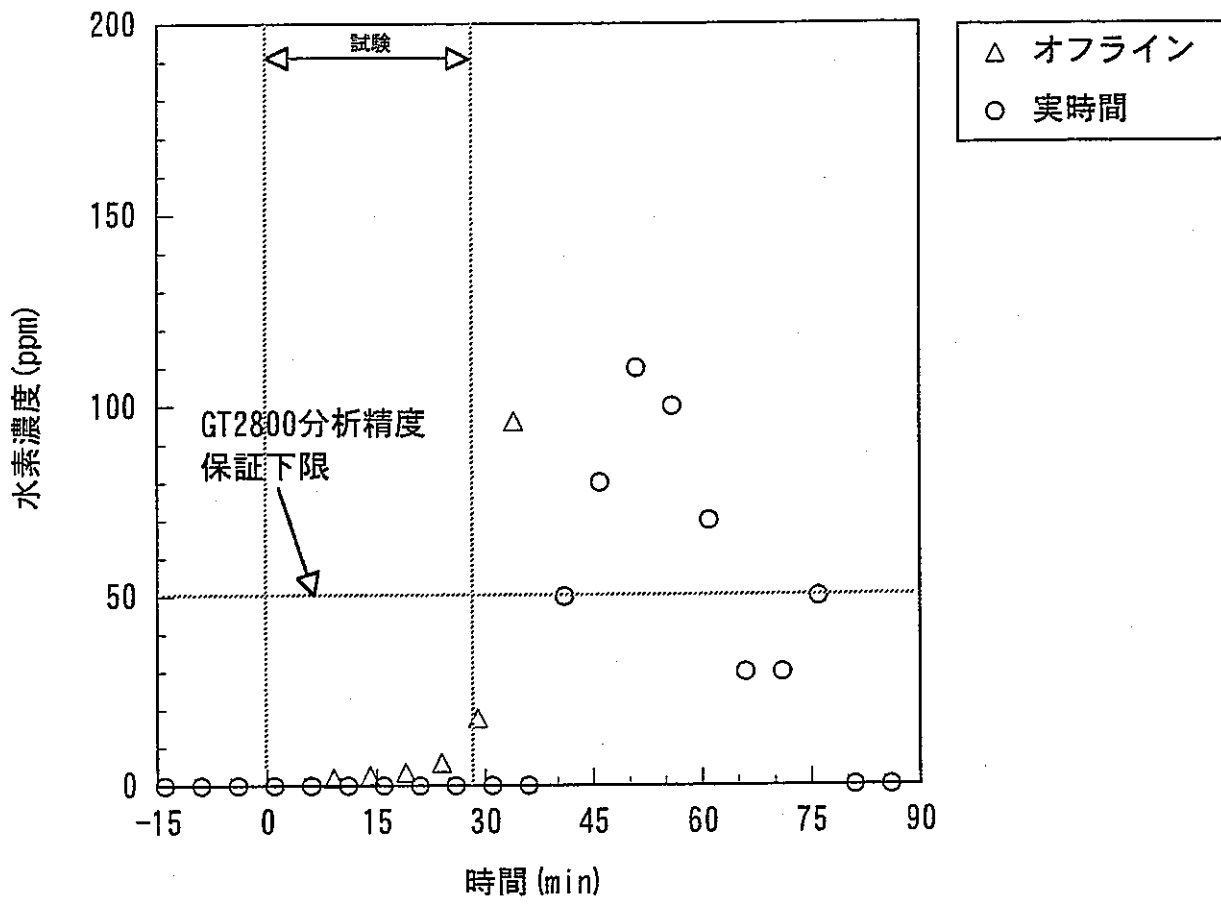
図A1.1 ナトリウム温度等及びナトリウムプール上雰囲気温度

APPENDIX-2 試験後の水素濃度履歴等

試験前後の FRAT-1 内水素濃度履歴を図 A2.1 に示す。なお、本図において GT2800 型ガスクロのサンプリング流量が低下を始めた試験開始 11 分以降の水素濃度指示値は、サンプリング流量低下に伴う時間遅れを含んでおり、当該時刻における FRAT-1 内の水素濃度を正しく表しているものではない。また、オフライン分析は、ガスサンプリングポットに採取したガスを試験後 PID 式ガスクロで分析したものである。

試験終了措置として水素ガスの供給を止め、ナトリウム燃焼容器上部に蓋をし、内部を不活性化して燃焼を終息させた試験開始 28 分以降、水素濃度は上昇をはじめ、最大で 110ppm に達し、その後低下していく傾向が見られた。また、試験終了 1 分後くらいから、上蓋の隙間から火炎が発生し、約 1 時間 28 分燃え続ける現象が確認された。

これは、蓋をしてナトリウム燃焼を終息させた試験特有の現象と考えられるが、図 A2.2 に示す GT2800 による水素濃度の分析結果が、分析精度保証下限以下の濃度についても正しいと仮定し、燃焼せずに放出された水素量を見積もると約 0.2mol となる。



図A2.1 FRAT-1内水素濃度