

窒素注入後ナトリウム燃焼残渣の  
炭酸ガス安定化条件確認確証実験

— Run-F9-1, Run-F9-2 —

(研究報告書)

2004年4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  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)  
2004

窒素注入後ナトリウム燃焼残渣の  
炭酸ガス安定化条件確認確証実験

— Run-F9-1, Run-F9-2 —

(研究報告書)

石川 浩康\*, 大野 修司\*, 宮原 信哉\*

要 旨

液体金属ナトリウムを冷却材として用いる原子炉において、ナトリウムが空気雰囲気中に漏えいし、燃焼するような事故の場合に、その燃焼を抑制あるいは停止させるための一つの手段として窒素ガス雰囲気とすることが考えられる。しかし、ナトリウムの燃焼を窒素ガスにより途中で停止させた場合、未燃焼ナトリウムを含む燃焼残渣が室温まで冷却するのを待って再び空気雰囲気とすると瞬時に再着火することがある。そこで、本試験研究においては、再着火防止のために湿り炭酸ガスで安定化する方法に関して確証試験を実施した。

実験は、FRAT-1 試験装置を用い、ナトリウム漏えい燃焼時の空气中湿分濃度および安定化確認のための湿分濃度条件だけを変更して 2 回実施した。まず、約 2.5kg のナトリウムを空気中に漏えいさせ、そのナトリウム燃焼を途中で窒素ガスにより停止させた。次に、燃焼残渣を窒素ガス雰囲気のまま冷却し、炭酸ガス濃度が 4%、湿分濃度が 6000vppm、酸素が 3% の窒素ガスベースの混合ガスを用いて燃焼残渣を安定化（炭酸化）処理した。最後に燃焼残渣を再び空気雰囲気にさらしても再着火しないことを確認した。これらにより、本試験研究で確立した湿り炭酸ガスによる安定化の方法が有効であることを確認できた。

---

\* 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

## Conclusive Experimental Study of Prevention Measures Against Sodium Combustion Residuum Reignition

— Run-F9-1, Run-F9-2 —

Hiroyasu Ishikawa\*, Shuji Ohno\*, Shinya Miyahara\*

### Abstract

Nitrogen gas can be an extinguisher or a mitigating material in the case of sodium leak and fire accident in an air atmosphere, which may occur at a liquid metal cooled nuclear power plant. However, sodium combustion residuum sometimes reignites in the air atmosphere even at room temperature when it was produced by nitrogen gas injection to the burning sodium. Then, in this study we executed conclusive experiments of prevention measures against sodium combustion residuum reignition by a mixture of carbon-dioxide (CO<sub>2</sub>) gas, humidity and nitrogen gas.

The experiments were carried out with the FRAT-1 test equipment; the humidity conditions were changed in air which were used to sodium combustion atmosphere and exposure air for confirmation of prevented combustion residue reignition. First of all, the sodium of about 2.5kg was leaked in air atmosphere, and next, the sodium combustion was stopped by nitrogen gas injection. Next, the combustion residuum was cooled in the nitrogen atmosphere, and then the combustion residuum was exposed to atmosphere of carbon-dioxide (4%); humidity (6000vppm); oxygen (3%) - nitrogen (based gas) mixture. It was confirmed that the combustion residuum was not reignition even if exposed to the air atmosphere again at the end of experiment. We had confirmed that the prevention measures against sodium combustion residuum reignition to establish by this research were effective.

---

\*Thermochemistry Safety Engineering Group, Advanced Technology Division, OEC

## 目 次

1.	はじめに	1
1.1	背景	1
1.2	目的	2
1.3	ナトリウム燃焼と燃焼残渣の安定化反応について	2
2.	実験装置と実験方法および実験条件	4
2.1	実験装置	4
2.2	実験方法	5
2.3	実験条件	7
2.4	実験条件の設定根拠	8
3.	実験結果	12
3.1	Run-F9-1の実験結果	12
3.1.1	ナトリウム漏えい燃焼	12
3.1.2	燃焼残渣の安定化	14
3.1.3	安定化の確認（大気通気）	15
3.2	Run-F9-2の実験結果	16
3.2.1	ナトリウム漏えい燃焼	17
3.2.2	燃焼残渣の安定化	18
3.2.3	安定化の確認（大気通気）	19
3.3	分析結果と残渣の目視確認	20
4.	考 察	22
4.1	ナトリウム漏えい燃焼	22
4.2	燃焼残渣の安定化	22
4.3	安定化の確認（大気通気）	23

5.	おわりに .....	25
6.	謝 辞 .....	26
7.	参考文献 .....	27

## 表リスト

表1	実験条件の対比	28
表2	Run-F9-1の実験スケジュール	29
表3	Run-F9-2の実験スケジュール	29
表4	Run-F9-2安定化確認時の潮解液落下の時系列と生じた状態の概要	30
表5	各燃焼残渣からサンプリングした燃焼残渣の分析結果	31

## 図リスト

図1	実験装置の概要	32
図2	Run-F9-1フロー図	33
図3	Run-F9-2フロー図	34
図4	FRAT-1試験容器内ガス空間測定用熱電対配置	35
図5	FRAT-1試験容器壁温度測定用熱電対配置	36
図6	燃焼皿の構造	37
図7	燃焼皿表面熱電対配置	38
図8	燃焼皿裏面熱電対配置	39
図9	ナトリウム供給タンク	40
図10	ナトリウム漏えい用ノズル	41
図11	実験手順の概略	42
図12	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対)	43
図13	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対)	43

図14	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対) ……………	44
図15	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対) ……………	44
図16	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対) ……………	45
図17	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対) ……………	45
図18	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対) ……………	46
図19	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から275mm位置に設置した熱電対) ……………	46
図20	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時のガス空間温度変化 ……………	47
図21	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器壁温度変化 ……………	47
図22	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器内酸素濃度変化 ……	48
図23	Run-F9-1ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器内湿分濃度変化 ……	48
図24	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対) ……………	49
図25	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対) ……………	49
図26	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対) ……………	50
図27	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対) ……………	50

図28	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対) ……………	51
図29	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿裏面の温度変化 ……………	51
図30	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時のガス空間の温度変 ……………	52
図31	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内酸素濃度変化 ……	52
図32	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内 炭酸ガス (CO <sub>2</sub> ) 濃度変化 ……………	53
図33	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内湿分濃度変化 ……	53
図34	Run-F9-1安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対) ……………	54
図35	Run-F9-1安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対) ……………	54
図36	Run-F9-1安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対) ……………	55
図37	Run-F9-1安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対) ……………	55
図38	Run-F9-1安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対) ……………	56
図39	Run-F9-1安定化確認時のFRAT-1容器内酸素濃度変 ……………	56
図40	Run-F9-1安定化確認時のFRAT-1容器内湿分濃度変化 ……………	57
図41	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対) ……………	58
図42	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対) ……………	58

図43	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対)	59
図44	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対)	59
図45	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対)	60
図46	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対)	60
図47	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対)	61
図48	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対)	61
図49	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時のガス空間温度変化	62
図50	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器壁温度変化	62
図51	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器内酸素濃度変化	63
図52	Run-F9-2ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1容器内湿分濃度変化	63
図53	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対)	64
図54	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対)	64
図55	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対)	65
図56	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対)	65

図57	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿表面空間の温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対) .....	66
図58	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時の燃焼皿裏面の温度変化 .....	66
図59	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時のガス空間の温度変化 .....	67
図60	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内酸素濃度変化 .....	67
図61	Run-F9-1燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内 炭酸ガス (CO <sub>2</sub> ) 濃度変化 .....	68
図62	Run-F9-2燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1容器内湿分濃度変化 .....	68
図63	Run-F9-2安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から75mmの位置に設置した熱電対) .....	69
図64	Run-F9-2安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から125mmの位置に設置した熱電対) .....	69
図65	Run-F9-2安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から175mmの位置に設置した熱電対) .....	70
図66	Run-F9-2安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から225mmの位置に設置した熱電対) .....	70
図67	Run-F9-2安定化確認時の燃焼残渣 (燃焼皿表空間) 温度変化 (燃焼皿中心から275mmの位置に設置した熱電対) .....	71
図68	Run-F9-2安定化確認時のFRAT-1容器内酸素濃度変化 .....	71
図69	Run-F9-2安定化確認時のFRAT-1容器内湿分濃度変化 .....	72

#### 写真リスト

写真1	Run-F9-2安定化確認時の潮解液により部分的発火の様子 .....	73
写真2	サンプル採取後の燃焼残渣の写真 .....	73



## 1. はじめに

### 1.1 背景

液体金属ナトリウム (Na) を冷却材として用いる原子炉において、ナトリウムが空気雰囲気中に漏えいし、燃焼するような事故の場合に、その燃焼を抑制あるいは停止させるための一つ的手段として窒素雰囲気とすることが考えられている。このため、高速増殖原型炉「もんじゅ」においてもナトリウム漏えい事故時のナトリウム燃焼を抑制・停止させることを目的とした窒素ガス注入設備がナトリウム漏えい対策の一環として検討されている<sup>1),2)</sup>。しかし、窒素ガスを用いてナトリウム燃焼を抑制・停止させた場合、未燃焼のナトリウムを含む燃焼残渣は、その温度が 50℃程度まで低下するのを待ったとしても、再び空気にさらすことにより再着火・燃焼に至る場合がある<sup>3)-13)</sup>。消防当局の鎮火確認作業や事故後処理作業等を安全に進められるようにするためには、燃焼残渣の再着火・燃焼を防止する必要がある。

これまでに約 1g のナトリウムを用いた基礎的な実験研究 (Run-F9-B シリーズ) を実施し<sup>10)-13)</sup>、ナトリウム燃焼残渣温度が 30~50℃のときに空気雰囲気とすることにより再着火・燃焼する挙動について、燃焼条件による残渣生成の違いと再着火発生の有無の関係を整理した。さらに、湿り炭酸ガスを用いたナトリウム燃焼残渣の再着火・燃焼防止 (安定化) 方策に関して、安定化ガス供給条件と安定化の程度に対する知見を整理することにより留意すべき事項を確認し、安定化の最適条件を求めるに至った。

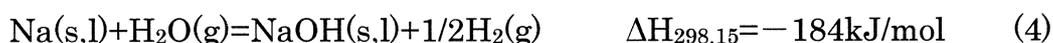
本研究においては、これまでの基礎実験の結果を実証すべく、より実際の事故に近い規模のナトリウム燃焼残渣の安定化確認実験として Run-F9-1 および Run-F9-2 を行なった。

## 1.2 目的

本研究では、基礎実験 (Run-F9-B シリーズ) <sup>10-13)</sup> において効果が確認できたナトリウム燃焼残渣の再着火・燃焼を防止する安定化方法が、実事故規模においても適用可能であることを確証することを目的とした。

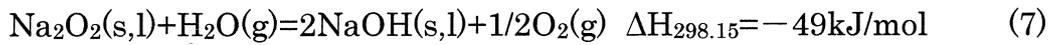
## 1.3 ナトリウム燃焼と燃焼残渣の安定化反応について

金属ナトリウムは、空気雰囲気においては、空気中の酸素および湿分と以下の反応 (燃焼) を生じる。



全てのナトリウムが空気中で燃焼してしまうと、条件にもよるが固体の燃焼生成物としては、酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}$ )、過酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}_2$ )、そして少量の水酸化ナトリウム ( $\text{NaOH}$ ) が残る。しかし、窒素ガス等でナトリウムの燃焼反応を途中で停止させた場合、未反応のナトリウムが残り、上記の固体燃焼生成物と微細に混ざり合う燃焼残渣を形成する。

この燃焼残渣が、空気中の酸素や湿分と再び接触すると、未燃焼ナトリウムによる式(1)~(4)が生じるとともに、酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}$ ) および過酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}_2$ ) でも以下の反応を生じる。



式(1)～(7)の発熱が起こり、燃焼生成物 ( $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}_2$ ,  $\text{NaOH}$ ) による保温効果が作用することによって燃焼残渣の温度が上昇し、未燃焼のナトリウムが着火するに至るのが再着火のメカニズムと考えられる<sup>12)・13)</sup>。

式(4)、(6)、(7)および以下の式(8)を利用して、これらの物質の酸素や湿分との反応活性を失わせる方法が本研究における湿り炭酸ガスによる再着火防止（安定化）の方法である。



## 2. 実験装置と実験方法および実験条件

### 2.1 実験装置

実験装置は、高速炉安全性第5試験室（SAPFIRE 施設）の FRAT-1 試験容器を使用した。FRAT-1 試験容器は、小規模プール燃焼実験（Run-F7 および Run-F8 シリーズ）<sup>14)16)</sup> 等でも使用したもので、試験容器にナトリウム供給タンクおよび排煙系が付属し、本実験用に乾燥空気・窒素ガス供給系、および調整ガス供給系を新たに増設した。使用した実験装置の概要を図 1 に、Run-F9-1 のフローを図 2 に、Run-F9-2 のフローを図 3 に示す。実験条件によって、Run-F9-1 では空気ポンペから乾燥空気を FRAT-1 試験容器へ送り込めるようにしたが、Run-F9-2 では乾燥空気をういないので、供給ラインを外してある。

#### (1) FRAT-1 試験容器

FRAT-1 試験容器は、直径が約 1.3m、高さが約 2.2m、容積が約 3m<sup>3</sup>のステンレス (SUS304) 製タンク型で、容器内ガス空間および壁には温度を測定するための熱電対 (K 型, 0.75 級, シース径 1.6mm) を配置した。FRAT-1 試験容器内ガス空間測定用熱電対の配置を図 4 に、試験容器壁温度測定用熱電対の配置を図 5 に示す。

ナトリウム供給タンクから漏えいさせたナトリウムをプール燃焼させるための炭素鋼 (SM400B) 製燃焼皿を、FRAT-1 試験容器内の下鏡部に設置した。燃焼皿の構造を図 6 に示す。燃焼皿の表面空間 (燃焼皿からの高さが 10 もしくは 20mm の空間) にはナトリウムプール (燃焼後には燃焼残渣) 温度の測定用熱電対 (K 型, 0.75 級, シース径 1.6mm) 20 本を配置した。また、燃焼皿温度の測定用熱電対 (K 型, 0.75 級, シース径 1.6mm) 10 本をステンレス箔で固定した。燃焼皿表面空間熱電対の配置を図 7 に、燃焼皿裏面熱電対の配置を図 8 に示す。

#### (2) ナトリウム計量容器

ナトリウム計量容器を図 9 に、ナトリウム漏えい用ノズルを図 10 に示す。ナトリウム計量容器へのナトリウムのチャージは、サイホン管を用いてアルゴンガス封

入の原子力級ナトリウム入ドラム缶から行なった。

### (3) 排気系

排気系は、排気ブローアを有し、その前段にナトリウムエアロゾルを回収するためのベンチュリスクラバおよび HEPA フィルタを有する。

### (4) ガス供給系

ナトリウム燃焼時の雰囲気空気は、ボンベからの乾燥空気 (Run-F9-1) または大気 (Run-F9-2) のどちらかを選択できるようにした。試験容器に供給する乾燥空気流量は排気流量とバランスするように大型のマスフローコントローラ (ブルックス製 5853S 型) を用いて最大で  $2\text{m}^3/\text{min}$  まで供給できるようにした。また、安定化用の調整ガス供給ラインには、酸素 ( $\text{O}_2$ ) 3%、炭酸ガス ( $\text{CO}_2$ ) 4%、窒素 ( $\text{N}_2$ ) 93%に予め調整したガスボンベからのガスを湿分供給装置に接続し、試験条件に合わせた所定の湿分濃度と流量で供給することができるようにした。湿分供給装置は、恒温槽を有する水槽中 (蒸留水を使用) にガスをバブリングする方式を採用した。

### (5) データ収録装置

各部温度、ガス濃度、ガス流量等の各データは、パソコン型データ収録装置 (横河電機製 DARWIN) に 1 秒周期で収録した。また、漏えい燃焼と燃焼残渣を目視観察するための ITV カメラを FRAT-1 試験容器内上部と容器側面の覗き窓 (外部) に 1 台ずつ設置し、その映像を VHS ビデオデッキで録画した。

## 2.2 実験方法

実験は、「ナトリウム漏えい燃焼」、「燃焼抑制」、「燃焼残渣の冷却」、「安定化处理」、「安定化の確認」、および「サンプリング」の順番で実施した。図 11 に実験手順の概略を示す。以下に各ステップでの実験方法を述べる。

(1) ナトリウム漏えい燃焼

約  $2\text{m}^3/\text{min}$  の排気流量下で、約  $507^\circ\text{C}$  に加熱した約  $2.5\text{kg}$  のナトリウムをナトリウム供給タンクから約 15 分で燃焼皿上へ漏えい燃焼させた。

(2) 燃焼抑制

ナトリウム供給タンクからのナトリウム漏えい終了を確認したと同時に、試験容器へ供給する雰囲気気を空気から窒素ガスへ切換え、試験容器内の酸素濃度が 1% 以下まで低下するのを待ってから排気系の運転を停止させ、試験容器内を窒素雰囲気気で維持できるように試験容器をガス系統から隔離した。

(3) 燃焼残渣の冷却

試験容器内を酸素濃度 1% 以下の窒素雰囲気中に維持しながら、燃焼残渣温度が  $50^\circ\text{C}$  以下となるまで放置した。

(4) 安定化

安定化ガス（絶対湿分濃度が  $6000\text{vppm}$ 、二酸化炭素濃度が 4%、酸素濃度が 3%、残り窒素）を試験容器内へ  $0.2\text{m}^3/\text{min}$  で 68 分間供給し、燃焼残渣を安定化処理した。ただし、湿分の添加は初期の 10 分間だけとした。

(5) 安定化の確認

窒素雰囲気から空気雰囲気中に切り替えることにより着火の有無を目視（カメラ映像）にて確認した。

(6) サンプリング

安定化確認を行なった燃焼残渣をアルゴンガス雰囲気の簡易グローブボックス内で回収し、別の高純度アルゴン雰囲気グローブボックス内において、出来る限り各成分が均一になるように乳鉢を用いて混合した。混合したサンプルをアルゴン雰囲気に保ったX線回折装置（XRD）で定性分析するとともに、各種化学分析を実施して各成分比を定量した。

## 2.3 実験条件

実験条件はこれまでの基礎実験の結果<sup>10-13)</sup>を基にナトリウム漏えい事故事象を勘案した上で設定し、実験は2回実施した。

1回目の実験である Run-F9-1（3月の晴天時に実施）では、ナトリウム漏えい開始前から試験容器内にボンベからの乾燥空気を供給し、容器内湿分濃度が十分低くなったことを確認した後にナトリウムを漏えいさせて試験を開始した。高さ 1.5m から 507℃のナトリウム 2.5kg を 15 分間漏えい（漏えい速度：10kg/h）燃焼させ、漏えい終了と同時に試験容器内を窒素ガス置換することによりナトリウム燃焼を停止させた。燃焼残渣が 50℃以下となるのを待った後、FRAT-1 試験容器内へ調整ガス（O<sub>2</sub>：3%，CO<sub>2</sub>：4%，N<sub>2</sub>：93%）に絶対濃度 0.6%の湿分（露点温度：0℃）を添加した安定化ガスを 0.2m<sup>3</sup>/min の流量で供給して安定化を行った。ただし、湿分の添加は初期の 10 分間とし、残り 58 分間は調整ガスだけの供給とした。安定化終了後、大気（気温：14.3℃，露点温度：約 0℃，相対湿度：36.3%）を 2m<sup>3</sup>/min の流量で取り込み、再着火しないことを確認した。

2回目の実験である Run-F9-2（6月の雨天時に実施）ではナトリウム漏えい燃焼の雰囲気を大気（気温：18.2℃，露点温度：14.7℃，相対湿度：80%）に変えたが、他の条件は Run-F9-1 と同一条件とした。安定化の確認も Run-F9-1 と同様に大気置換によって行ったが、その際に取り込んだ大気（気温：19.5℃，露点温度：16.8℃，

相対湿度：85.5%) は Run-F9-1 と比較して高湿度となった。

以上のことから Run-F9-1 と Run-F9-2 の実験条件の違いはナトリウム漏えい燃焼時雰囲気湿度の濃度の違いと、安定化確認時雰囲気湿度の濃度の違いであり、その他は以下のとおり全て共通の条件とした。実験条件の対比を表 1 に示す。

## 2.4 実験条件の設定根拠

以下に、表 1 に示した実験条件に関して、各項目ごとに設定根拠を述べる。

### ①ナトリウム温度

漏えいナトリウム温度の約 507°C は、「もんじゅ」の 2 次主冷却系のホットレグ温度を採用した。

### ②ナトリウム漏えい率

基礎実験の結果から再着火しやすい燃焼残渣は、未燃焼ナトリウムが重量割合で約 50(±10)wt-% 残ったものであった<sup>10)・13)</sup>。プール燃焼を途中で停止させて、そのような燃焼残渣を作るために、これまでの FRAT-1 における小規模プール燃焼実験結果から判明しているプール燃焼速度<sup>14)・16)</sup>を用いて予測したところ、漏えい率を約 10kg/h とし、漏えい停止と同時に燃焼も停止させる必要があると判断したことから採用した。なお、漏えい停止とともに燃焼を抑制することによって未燃焼ナトリウムを 50wt-% 程度含む燃焼残渣が生ずることは、ナトリウム燃焼解析コード ASSCOPS<sup>17)</sup>を用いた事前解析によっても予測された。

### ③ナトリウム漏えい高さ

実際の事故時の漏えい高さよりも低くなるが、実験装置の制約から最大で 1.5m となる。これまでの小規模プール燃焼実験の実績<sup>3)・5)</sup>から、この約 1.5m でコラム+プール燃焼が生じることが確認されており、実現象に近い漏えい

形態をとれる高さとした。漏えい形態の設定理由に関しては、⑩に後述する。

④ナトリウム漏えい時間

乾燥空気使用時の供給能力の制約から決定したが、15分間の漏えい期間中にナトリウムの約50wt-%が燃焼することから、この時間で十分と判断した。

⑤漏えいナトリウム量

ナトリウム漏えい率とナトリウム漏えい時間から決まる。

⑥燃焼時供給空气中酸素濃度

大気濃度である約21%とした。

⑦燃焼時空气中湿分絶対濃度

ナトリウム燃焼時の供給空气中の湿分絶対濃度は、ナトリウム燃焼における湿分濃度の影響を確認するために2回の実験で違う条件とした。Run-F9-1では乾燥空気、Run-F9-2では大気濃度とした。Run-F9-1における乾燥空気は市販のボンベで、大気から酸素と窒素以外の成分をほぼ取り除いたもので、湿分や炭酸ガス等が10ppb以下の高純度空気を用いた。Run-F9-2では、大気をそのまま吸入して用いたが、実験実施時の湿分絶対濃度は約23000vppmであった。

⑧燃焼部への気流

コラムおよびプール燃焼部への空気の供給は、空気吹き付けの影響が出ないように間接流とした。

⑨燃焼時試験容器内換気流量

試験容器内の酸素濃度がナトリウム燃焼に必要な値を保てることを条件として2 m<sup>3</sup>/minとした。また、乾燥空気使用時のマスフローコントローラ的能力(最大流量2 m<sup>3</sup>/min)とFRAT-1試験装置の排気系における流量の制約(排気流量が2 m<sup>3</sup>/minより小さくなるとナトリウムエアロゾルの処理能力

が低下すること)も勘案した。

#### ⑩ナトリウム漏えい燃焼形態

事故時における配管等からの現実的なナトリウム漏えい形態としては、漏えいがある程度の高さから落下する状態と考えられるので、コラム燃焼(落下による燃焼)とプール燃焼の組合せが妥当であることから採用した。

#### ⑪安定化時残渣温度

基礎実験の結果から、安定化反応中において燃焼残渣温度が数 $10^{\circ}\text{C}$ 上昇することが判明しているため、ナトリウムの融点から上昇温度を差し引いた温度以下に設定することが好ましく、 $50^{\circ}\text{C}$ 以下とした。

#### ⑫安定化ガス濃度

基礎実験の結果から、最適条件として二酸化炭素( $\text{CO}_2$ ) ; 4%、酸素( $\text{O}_2$ ) ; 3%、湿分( $\text{H}_2\text{O}$ ) ; 6000vppm、残りを窒素( $\text{N}_2$ )とした。

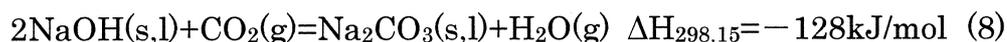
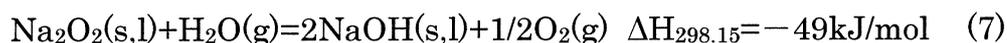
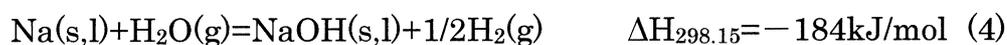
#### ⑬安定化ガス注入条件

実機における安定化ガス供給能力を勘案し決定した。安定化ガス注入の時間は、基礎実験における安定化反応の実績<sup>10-13)</sup>と予測されるナトリウム燃焼残渣の表面積比から、反応に必要な二酸化炭素量を算出し、注入流量で除して算出した。以下に算出の考え方を示す。

基礎実験での燃焼残渣表面積をおよそ $8\text{cm}^2$ と見積もり(Na 燃焼皿は直径 $16\text{mm}$ であったが燃焼残渣は、燃焼皿から大きくはみ出して形成されていたのでおよその数字として算出した)、二酸化炭素( $\text{CO}_2$ ) ; 4%、酸素( $\text{O}_2$ ) ; 3%、湿分( $\text{H}_2\text{O}$ ) ; 6000vppm の安定化ガスを $20\text{L}/\text{min}$ で3分間反応させた場合、約 $0.1\text{mol}$ の二酸化炭素を反応させて安定化に成功していたと考えられる。本実験の燃焼残渣面積をおよそ $2000\text{cm}^2$ と予測し、必要な二酸化炭素量として約 $24.3\text{mol}$ が必要となり、注入流量が $200\text{L}/\text{min}$ である場合、同じ

ガス濃度としているので約 68 分間作用させると安定化できると予測した。

なお、湿分の添加を 6000vppm と少なくし、初期の 10 分間で停止させた理由は、1.3 項で前述した式(4)によって発生する水素 (H<sub>2</sub>) 量を極力抑えたかったことによるものである。また、式(8)による炭酸化反応において水分が生じ、再度式(4)、(6)、(7)において消費されると考えられることから、これを利用することによって湿分添加量を初期の最小限にしたとしても、その後の反応のサイクルで安定化が可能であることを確認しようとしたためである。



#### ⑭安定化確認空气中湿分絶対濃度

安定化確認をする際の空気は、Run-F9-1、Run-F9-2 とともに大気を用いた。

Run-F9-1 実施時は3月の晴天日で約 6000vppm という低湿度条件、Run-F9-2 実施時は6月・梅雨季の雨天時で約 23000vppm の高湿度条件であった。

### 3. 実験結果

#### 3.1 Run-F9-1 の実験結果

Run-F9-1 は、平成 14 年 3 月 12 日に実施した。およその実施スケジュールを表 2 に示す。

ナトリウム漏えいを 14 時 17 分に開始し、直後からナトリウム燃焼を確認した。14 時 32 分にナトリウム漏えい終了を確認し、同時に試験容器へ供給するガスを乾燥空気から窒素ガスに切り替えた。約 4 分後の 14 時 37 分には酸素濃度が 3% となり、試験容器内のエアロゾルによる曇りも晴れてきたので排気ブローを停止させ、窒素ガス雰囲気のままの封じ込めを行ない、酸素濃度が約 1% に維持できることを確認した。

試験容器内の酸素濃度を約 1% に維持しながら、翌朝（平成 13 年 3 月 13 日）まで燃焼残渣を冷却した。

安定化反応のための調整ガスの供給を 10 時 02 分に開始し、10 分後の 10 時 12 分に湿分供給だけを停止した。11 時 10 分に調整ガスの供給も停止し、窒素ガスに置換することにより安定化反応を停止した。

安定化確認のための大気通気を 13 時 33 分に開始し、安定化した燃焼残渣を空気にさらした。16 時 33 分に窒素ガスに置換して酸素濃度が約 1% となるように封じ込めた。なお、燃焼残渣のサンプリングは平成 14 年 4 月 4 日に実施した。

以下に各段階における結果を述べる。

##### 3.1.1 ナトリウム漏えい燃焼

###### (1) ナトリウムプール温度

燃焼皿表面空間の温度変化を、燃焼皿中心（≒漏えい中心）から 75mm の位置に

設置した熱電対の温度データを図 12、125mm 位置の温度データを図 13、175mm 位置の温度データを図 14、225mm 位置の温度データを図 15、275mm 位置の温度データを図 16 にそれぞれ示す。

データ整理の結果、ナトリウムプールの温度を直接測定した熱電対は、燃焼皿中心から 175mm に位置した熱電対までで、225mm に位置した熱電対ではナトリウムプールの広がり到達時に見られる温度上昇を測定していなかった。したがって、ナトリウムが漏えい燃焼している間に広がったプール直径は 350mm から 450mm の間であり、漏えい開始後から 7~8 分でプールの広がりが停止したことが分かる。なお、75mm 位置の 4 本の熱電対のうち、TE011 および TE016 は試験後検査の結果、破損していたことが判明している。

## (2) 燃焼皿裏面温度

燃焼皿中心から 75mm 位置に設置した熱電対の温度データを図 17 に、175mm 位置の温度データを図 18 に、275mm 位置の温度データを図 19 に示す。ナトリウムプール温度に近い温度を示したのは 175mm 位置までの熱電対であり、燃焼皿の最高温度は 638℃であった。

## (3) ガス空間および FRAT-1 容器壁の温度

ガス空間温度データを図 20 に、FRAT-1 容器壁温度データを図 21 に示す。ガス空間温度の最高が 171℃、FRAT-1 容器壁温度の最高が 52℃であった。

## (4) 酸素濃度および湿分濃度

FRAT-1 容器内酸素濃度の変化を図 22 に、同じく露点計指示値から算出した湿分濃度の変化を図 23 に示す。

ナトリウム漏えい中の酸素濃度は、試験容器内および排気系ともに 19%以上を保っており、ナトリウム燃焼に必要な酸素は供給できていたと言える。

露点計の検出下限値は約 1890ppm であり、それより下の数値を示すことができない。湿分濃度は RO101 および RO102 の数値が終始下限値以下であったことから燃焼雰囲気は乾燥空気であると確認できる。

### 3.1.2 燃焼残渣の安定化

#### (1) ナトリウムプール温度

燃焼皿表面空間温度のうち、燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対の温度データを図 24、125mm 位置の温度データを図 25、175mm 位置の温度データを図 26、225mm 位置の温度データを図 27、275mm 位置の温度データを図 28 にそれぞれ分離して示す。

すべての熱電対が安定化開始数分で数°C上昇し、湿分供給停止後に数°C下降した。燃焼残渣が接触していない 225mm 位置および 275mm 位置の熱電対は、漏えいの際に付着したナトリウムの飛沫かエアロゾルの安定化の反応熱を測定したと推測される。

#### (2) 燃焼皿裏面温度

燃焼皿裏面の温度変化をまとめて図 29 に示す。各熱電対に数°Cの分布があるものの、安定化反応による温度変化は燃焼残渣と同様に数°C程度であった。

#### (3) ガス空間温度

ガス空間の温度変化を図 30 に示す。1~3°Cの上昇しかなかった。

#### (4) 酸素濃度、炭酸ガス濃度、湿分濃度

FRAT-1 容器内の酸素濃度変化を図 31 に、炭酸ガス濃度変化を図 32 に、露点計指示値から算出した湿分濃度変化を図 33 に示す。

約 3%濃度で添加した酸素 ( $O_2$ ) は、安定化ガス供給開始から約 20 分後には消費されなくなり、供給濃度とほぼ等しくなった。

約 4%濃度で添加した炭酸ガス ( $CO_2$ ) は安定化ガス供給開始から 52 分頃まで消費され、その後、消費されなくなり、供給濃度とほぼ等しくなった。52 分頃のステップ状の濃度変化については、その原因が不明である。

湿分濃度は終始検出下限値であり、供給した約 6000vppm の湿分全部が消費されていた。

### 3.1.3 安定化の確認 (大気通気)

#### (1) 燃焼残渣温度

燃焼残渣の温度 (燃焼皿表空間温度) 変化のうち、燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対の温度データを図 34、125mm 位置の温度データを図 35、175mm 位置の温度データを図 36、225mm 位置の温度データを図 37、275mm 位置の温度データを図 38 にそれぞれ分離して示す。

燃焼残渣に接触していた 175mm 位置より内側の熱電対は、大気通気開始から数°C上昇したものの、再着火に結びつくような急激な温度上昇はみられなかった。

また、ITV 映像による確認においても、変色、発煙、火点等の再着火現象に結びつく変化は観察されなかった。

#### (2) 酸素濃度および湿分濃度

FRAT-1 容器内の酸素濃度変化を図 39 に、露点計指示値から算出した湿分濃度の

変化を図 40 に示す。酸素濃度は大気通気開始直後に 21%まで上昇したが、露点は 30 分ころから上昇して 70 分ごろに飽和に達した。湿分濃度は、75 分頃に RO102 が約 5900vppm に達し（大気中湿分濃度は約 6000vppm）、その RO101、RO102 とともに 5500vppm 前後で推移した。濃度変化の勾配が変化する 75 分頃以前と、75 分頃以後で湿分の消費に変化が見られた。

### 3.2 Run-F9-2 の実験結果

Run-F9-2 は、平成 14 年 6 月 12 日に実施した。およその実施スケジュールを表 3 に示す。

ナトリウム漏えいを 14 時 01 分に開始し、直後からナトリウム燃焼を確認した。14 時 17 分にナトリウム漏えい終了を確認し、同時に試験容器へ供給するガスを乾燥空気から窒素ガスに切り替えた。約 4 分後の 14 時 21 分には酸素濃度が 3%となり、試験容器内のエアロゾルによる曇りも晴れてきたので排気ブローを停止させ、窒素ガス雰囲気のままの封じ込めを行ない、酸素濃度が約 1%に維持できることを確認した。

試験容器内の酸素濃度を約 1%に維持しながら、翌朝（平成 13 年 6 月 13 日）まで燃焼残渣を冷却した。

安定化反応のための調整ガスの供給を 10 時 06 分に開始し、10 分後の 10 時 16 分に湿分供給だけを停止した。11 時 14 分に調整ガスの供給も停止し、窒素ガスに置換することにより安定化反応を停止した。

安定化確認のための大気通気を 13 時 28 分に開始し、安定化した燃焼残渣を空気にさらした。途中数回、試験容器構造物（主に熱電対支持構造物）に付着したエアロゾル潮解液が燃焼残渣上に落下し、火点が発生した。14 時 49 分頃に燃焼残渣温度の上昇が飽和し、潮解による反応を避けるために 14 時 59 分に窒素ガスに置換し

て酸素濃度が約 1%となるように封じ込めた。なお、燃焼残渣のサンプリングは平成 14 年 6 月 19 日～20 日にかけて実施した。

以下に各段階における結果を述べる。

### 3.2.1 ナトリウム漏えい燃焼

#### (1) ナトリウムプール温度

燃焼皿表面空間の温度変化を、燃焼皿中心（≒漏えい中心）から 75mm の位置に設置した熱電対の温度データを図 41、125mm 位置の温度データを図 42、175mm 位置の温度データを図 43、225mm 位置の温度データを図 44、275mm 位置の温度データを図 45 にそれぞれ分離して示す。

ナトリウムプールの温度を直接測定した熱電対は、漏えい開始から 11 分後には 275mm 位置まで達しており、Run-F9-1 よりもプールに流動性のあったことが分かる。直径は 450mm と 550mm の間であり、漏えい開始後から 7～8 分でプールの広がりや停止したことが分かる。

#### (2) 燃焼皿裏面温度

燃焼皿中心から 75mm 位置に設置した熱電対の温度データを図 46 に、175mm 位置の温度データを図 47 に、275mm 位置の温度データを図 48 に示す。燃焼皿の最高温度は、燃焼中心に近い 75mm 位置 TE021 の 621℃であった。

#### (3) ガス空間および FRAT-1 容器壁の温度

ガス空間温度データを図 49 に、FRAT-1 容器壁の温度データを図 50 に示す。ガス空間測定用熱電対のうち、ナトリウムプールに近い位置に設置した TE401 の温度が一番高く、ピークで 195℃となった。FRAT-1 容器壁の温度は最高で約 56℃であ

った。

#### (4) 酸素濃度および湿分濃度

FRAT-1 容器内の酸素濃度の変化を図 51 に、同じく露点計指示値の変化から算出した湿分濃度変化を図 52 に示す。

ナトリウム漏えい中の酸素濃度は、試験容器内および排気系ともに 20%以上を保っており、ナトリウム燃焼に必要となる酸素は供給できていたと言える。

湿分濃度は、ナトリウム漏えい燃焼開始とともに下降したことから、消費されていたことが分かる。窒素置換後は検出下限値以下となり、乾燥状態を保つことが出来た。

### 3.2.2 燃焼残渣の安定化

#### (1) ナトリウムプール温度

燃焼皿表面空間の温度変化を、燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対の温度データを図 53、125mm 位置の温度データを図 54、175mm 位置の温度データを図 55、225mm 位置の温度データを図 56、275mm 位置の温度データを図 57 にそれぞれ分離して示す。

温度上昇は燃焼皿中心よりも遠い位置に設置した熱電対の方が高くなる傾向となった。最も大きな温度上昇が見られたのは、225mm 位置に設置した熱電対で 15～30℃程度の上昇があった。熱電対の設置位置が 225mm の場合、燃焼皿表面から 20mm 高さに設置していたことと、燃焼残渣の中心付近の方が外周側（残渣の縁側）よりも厚みが厚く、外周側へ行くほど厚みが薄くなる傾向にあったことを併せて判断すると、安定化反応による発熱は表面近傍で多く生じていることが分かる。

## (2) 燃焼皿裏面温度

燃焼皿裏面の温度変化をまとめて図 58 に示す。各熱電対に数°Cの分布があるものの、安定化反応による温度変化も数°C程度であった。

## (3) ガス空間温度

ガス空間の温度変化を図 59 に示す。10 数°Cの温度上昇が見られた。

## (4) 酸素濃度、炭酸ガス濃度、湿分濃度

FRAT-1 容器内の酸素濃度変化を図 60 に、炭酸ガス濃度変化を図 61 に、露点計指示値から算出した湿分濃度の変化を図 62 に示す。

約 3%添加した酸素 ( $O_2$ ) は、安定化ガス供給開始から約 16 分後には消費されなくなり、供給濃度とほぼ等しくなった。

約 4%添加した炭酸ガス ( $CO_2$ ) は、FRAT-1 容器内を測定した C701 を見た場合には消費される量が減少傾向にあったが、供給停止までには供給濃度 (約 4%) と等しくはならず、常に供給量の数割が消費されていた。さらに、FRAT-1 容器の出口配管内を測定した C702 を見た場合には、安定化反応時において終始 1%未満の濃度であり、炭酸ガスが消費され続けていたことを示唆している。

露点計指示値は、供給した 6000vppm (RO104 : 一点鎖線) よりも大きい値が検出された。このことに関しては考察に後述する。

### 3.2.3 安定化の確認 (大気通気)

#### (1) 燃焼残渣温度

燃焼残渣の温度 (燃焼皿表空間温度) 変化を示した温度データのうち、燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対の温度データを図 63、125mm 位置の温度デ

ータを図 64、175mm 位置の温度データを図 65、225mm 位置の温度データを図 66、275mm 位置の温度データを図 67 にそれぞれ分離して示す。

燃焼残渣に接触していた全ての熱電対は約 10°C 上昇したものの、再着火に結びつくような急激な温度上昇はみられなかった。ただし、前述したように、熱電対支持構造物や試験容器構造物に付着したエアロゾル潮解液が燃焼残渣上に落下し、火点が発生した (ITV 映像でも確認)。何点か見られる不規則な温度上昇は、熱電対付近で発生した火点や潮解液と燃焼残渣の反応熱を検出したものである。VTR 記録から確認した潮解液落下の時系列と生じた状態の概要を表 4 に、火点発生時の VTR 記録の静止面を写真 1 に示す。

## (2) 酸素濃度および湿分濃度

酸素濃度変化を図 68 に、露点計指示値から算出した湿分濃度の変化を図 69 に示す。酸素濃度は、大気通気開始後約 7 分で 21% に達した。湿分の上昇も 10 分頃には止まったが、RO101 が約 15000vppm、RO102 が約 16000vppm で横這い状態を保っており、大気の湿分濃度 (約 23000vppm) には達しなかった。

## 3.3 分析結果と残渣の目視観察

各燃焼残渣からサンプリングした燃焼残渣の分析結果を表 5 に、Run-F9-1 のサンプル採取後の燃焼残渣を写真 2 に示す。Run-F9-2 の残渣も様相は似たようなものであった。燃焼残渣は共に、表層部の厚さ数 mm の領域は黄白色で表面がやや滑らかである程度の硬さのある状態 (煎餅のようなもの)、その下側から深層にかけてはポーラスで柔らかい灰色の物質であった。

Run-F9-1 のサンプル採取後の燃焼残渣を廃棄処分するために空気雰囲気さらした際には、直ちに再着火する挙動は見られなかった。しかし、表層にあった黄白

色層を取り除き、深層部の灰色の部分に鋼製の棒で崩した際には、10 数分後に発煙が生じ、更らに数分後には火点が数箇所発生した。この火点は、直ぐに燃え広がるようなものではなく、着火と消炎を繰り返している状態で、最終的にはガスバーナーで加熱、燃焼させて処分した。同様に Run-F9-2 のサンプル採取後の燃焼残渣でも表層にあった黄白色層を取り除き、深層部の灰色の部分に鋼製の棒で崩した際には数分で発煙が発生し、再着火を開始した。Run-F9-2 の燃焼残渣は Run-F9-1 のそれよりも着火に至る時間が短く、より着火しやすい状態であった。ただし、これらの再着火現象は、安定化をしていない燃焼残渣のような早い再着火・再燃焼<sup>9-12)</sup>ではなく、未燃焼ナトリウムの部分が緩慢に燃えるものであった。

## 4. 考 察

### 4.1 ナトリウム漏えい燃焼

Run-F9-1 と Run-F9-2 のナトリウム漏えい燃焼時のプール温度変化を比較すると、Run-F9-1 (図 12-16) のナトリウムプール直径は約 50cm であり、漏えい開始約 7 分でプール広がり停止したが、Run-F9-2 (図 41-45) のナトリウムプール直径は約 60cm であり、約 12 分でプール広がり停止した。このプール広がり相違は、燃焼雰囲気中の湿分濃度の違いによるものと考えられる。したがって、燃焼雰囲気中の湿分濃度が高い程、燃焼生成物を含むプールは流動性を有していることになる。

燃焼皿中心 (=漏えい中心) から 75mm 位置の熱電対 (図 12 と図 41)、および 125mm 位置の熱電対 (図 13 と図 42) をそれぞれ比較しても、Run-F9-1 の方が温度上昇を開始する時間が早く、到達温度も高い。Run-F9-1 ではプールの流動性が悪かったことにより、ナトリウムが中心付近により多く留まって燃焼していたと推測される。

なお、燃焼残渣の分析結果から、Run-F9-1 の方が未燃焼ナトリウム (Na) の割合が少なく、酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}$ ) の割合が多かったことから、湿分濃度が低い場合はナトリウム燃焼速度が速くなると推測される。

### 4.2 燃焼残渣の安定化

Run-F9-1 と Run-F9-2 の安定化反応時の残渣温度変化を比較すると、Run-F9-1 (図 24-28) の安定化時の温度上昇は 7°C 程度であったのに対して、Run-F9-2 (図 53-57) では 30°C 程度の温度上昇があった。この差の原因は 2 点あり、1 点は燃焼残渣表面から熱電対までの距離 (燃焼残渣の厚さ) が違ったことが挙げられる。燃

焼残渣の厚さは、プール広がりの違いから Run-F9-2の方が薄く、Run-F9-2の熱電対の方が焼残渣の表面から近い場所に位置していたことになり、表面での反応熱も検知しやすい状態であったことが考えられる。もう1点は、焼雰囲気中の湿分濃度による影響で、Run-F9-2では前述の化学式(1)および(2)がナトリウム漏えい燃焼中にも生じたことにより、Run-F9-1に比べて水酸化ナトリウム (NaOH) が多く生成し、安定化の際に前述(3)式の炭酸化反応 (発熱反応) が Run-F9-1より促進され、焼残渣の温度が上昇したと考えられる。また、このことは安定化反応実施時の容器内湿分濃度が投入湿分よりも高くなった原因と考えられる。すなわち、漏えい燃焼期間中にも既に水酸化ナトリウムが (NaOH) 生成していたことから、化学反応式(3)の反応生成物である湿分 (H<sub>2</sub>O) が生成し、これが安定化反応期間中の装置内湿分濃度上昇に寄与したと考えられる。表 5 の焼残渣分析結果をみると、Run-F9-2の深層部の水酸化ナトリウム (NaOH) 割合が多くなっており、上述の考えを裏付ける結果となっている。

### 4.3 安定化の確認 (大気通気)

Run-F9-1 と Run-F9-2 双方の安定化確認時においては、焼残渣が空気に再曝露しても再着火・燃焼しないことを確認できた。Run-F9-2においては、熱電対支持構造物に溜まった潮解液が焼残渣表面に落下し、これが反応して火点が発生することが数回あったものの、それぞれが瞬時に消炎し、火点が広がることはなかった。このことから、本実験で使用した安定化方法が再燃焼防止に有効であるといえる。

また、ナトリウム燃焼時に湿分濃度が高い方が残渣表面ではより炭酸化しやすいことが双方の分析結果から判明した。表 5 の焼残渣分析結果において、炭酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) の割合は、表層部においては Run-F9-2の方が多く、深層部にお

いては逆に Run-F9-1 の方が多くなった。したがって、Run-F9-2 のように燃焼雰囲気  
の湿分濃度が高い場合は、燃焼残渣表面での安定化効果は大きく、深層部におい  
ては安定化効果が小さくなる傾向と考えられる。ただし、双方の安定化中の CO<sub>2</sub> 濃  
度変化 (図 33 と図 62) を比較した場合、Run-F9-2 の C702 の値は安定化ガスの供  
給を停止させる直前においても 1%未満にしかならなかったことから判断すると、更  
に時間をかけて安定化ガスを供給すれば表面での CO<sub>2</sub> 消費が減少することによって  
深層での炭酸化反応が進行する可能性も残されている。すなわち、安定化初期にお  
いては、Run-F9-2 のように燃焼雰囲気の湿分濃度が高い場合のほうが、表層におけ  
る単位時間あたりの炭酸化速度が速く、深層への CO<sub>2</sub> の供給が阻害されやすいとも  
考えられる。

なお、表層における炭酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) の割合は Run-F9-1 で 7wt-%、  
Run-F9-2 でも 10wt-%と低い値であったが、これ位の炭酸化であっても再着火の防  
止効果 (安定化効果) が十分にあると判断される。

## 5. おわりに

ナトリウムを約 2.5kg 用い、基礎実験結果を基にした、窒素による燃焼停止後ナトリウム燃焼残渣の湿り炭酸ガスによる安定化確認実験を 2 回実施した。ナトリウム燃焼時の雰囲気の違いは、ナトリウムプール形状に違いを生じさ、安定化の進行度に差異を生じさせたものの、再着火・燃焼を防止するという安定化の効果そのものに大きな違いを生じさせなかった。

安定化確認の大気通気においては、湿分濃度が高い場合に構造物に付着した潮解液が落下することにより、残渣との接触反応が起こることが判明したが、その場合においても発生した火点が燃え広がらないことを確認することができた。

なお、燃焼雰囲気中の湿分濃度が高い場合には、燃焼残渣の表面における安定化が促進される一方で、深層部の安定化効果は小さいことが分かった。そのような燃焼残渣を安定化した場合は、燃焼残渣深層部を空気にさらすことにより再着火・燃焼が発生する可能性があるものの、燃え広がる速度は緩慢なものであることから、残渣処理作業に際してナトリウム火災用の消火薬剤を散布しながら実施することによって再燃焼を十分に防止できるといえる。

## 6. 謝 辞

本研究の実験を実施するにあたり、原子力技術株式会社の加藤一憲氏、東興機械工業株式会社の鈴木和右氏、高橋正義氏、他多数の方に多大な協力を頂いた。また、独立行政法人消防研究所の斎藤直氏と鶴田俊氏及び廖赤虹氏からは共同研究に基づく情報交換を通じて有益な議論をして頂いた。ここに記して謝意を表す。

## 7. 参考文献

- 1) 茂垣勝巳, 他, 「高速増殖原型炉「もんじゅ」のナトリウム漏洩対策」, サイクル機構技報 No.6 (2000).
- 2) 菊池裕彦, 他, 「高速増殖炉「もんじゅ」における窒素ガス注入によるナトリウム火災対策」, 日本原子力学会和文論文誌 1(1): 69-79 (2002).
- 3) Hilliard, R.K., Muhlestein, L.D., "Sodium Fire Control by Space Isolation with Nitrogen Flooding - FFTF Proof Test F2," HEDL-TME 74-34 (1974).
- 4) 廖 赤虹, 鶴田 俊, 斉藤 直, 「窒素消火したナトリウム固体残渣の着火挙動」, 第37回燃焼シンポジウム講演論文集, D344 (1999).
- 5) 大野修司, 石川浩康, 宮原信哉, 荒 邦章, 「ナトリウム再着火挙動に関する実験研究」, 第37回燃焼シンポジウム講演論文集, D342 (1999).
- 6) 大野修司, 石川浩康, 宮原信哉, 他, 「ナトリウム再着火挙動実験」JNC TN9400 99-081 (1999).
- 7) 廖 赤虹, 鶴田 俊, 斉藤 直, 「ナトリウム酸化生成物の反応性と含有の過酸化物の割合」, 第38回燃焼シンポジウム講演論文集, C111 (2000).
- 8) 鶴田 俊, 廖 赤虹, 斉藤 直, 「ナトリウム酸化物と熔融ナトリウムの反応」, 第38回燃焼シンポジウム講演論文集, C112 (2000).
- 9) 斉藤 直, 鶴田 俊, 廖 赤虹, 「ナトリウム火災対策としての窒素消火と課題」, 第38回燃焼シンポジウム講演論文集, P1B16 (2000).
- 10) 石川浩康, 大野修司, 宮原信哉, 「ナトリウム燃焼残渣の安定化」, 第39回燃焼シンポジウム講演論文集, A322 (2001).
- 11) 石川浩康, 大野修司, 宮原信哉, 「ナトリウム燃焼残渣の再燃焼防止 (1) 小規模燃焼残渣による安定化基礎試験」, 日本原子力学会2003年(第41回)春の年会要旨集, L54 (2003).
- 12) 石川浩康, 大野修司, 宮原信哉, 「窒素注入後ナトリウム燃焼残渣の炭酸ガス安定化条件確認基礎実験」, JNC TN9400 2002-081 (2003).
- 13) 石川浩康, 大野修司, 宮原信哉, 「ナトリウム燃焼残渣の炭酸ガス安定化実験」, 日本燃焼学会誌, 第45巻134号: 248-256 (2003).
- 14) 二神 敏, 他, 「ナトリウムプール燃焼実験Run-F7(中間報告)」, PNC TN9410 98-074, (1998).
- 15) 二神 敏, 他, 「ナトリウム漏えい燃焼環境における床ライナの腐食発生条件確認実験 (Run-F7-3, Run-F8-1)」, JNC TN9400 2000-092 (2000).
- 16) 二神 敏, 他, 「小規模漏えいを対象としたナトリウムプール燃焼実験 - Run-F7-4及びRun-F8-2 -」, JNC TN9400 2003-067 (2003).
- 17) 大野修司, 松木卓夫, 「ナトリウム燃焼解析コード ASCCOPS 使用説明書」, JNC TN9520 2000-001 (2000).

表 1 実験条件の対比

項 目	Run-F9-1	Run-F9-2
ナトリウム温度	約 507°C	約 507°C
ナトリウム漏えい率	約 10kg/h	約 10kg/h
ナトリウム漏えい高さ	約 1.5m	約 1.5m
ナトリウム漏えい時間	約 15 分	約 15 分
漏えいナトリウム量	約 2.5kg	約 2.5kg
燃焼時供給酸素濃度	約 21%	約 21%
燃焼時供給湿分絶対濃	乾気 (乾燥空気を供給)	大気濃度 (約 23000vppm)
燃焼部への気流	間接	間接
燃焼時試験容器内換気流	約 2 m <sup>3</sup> /min	約 2 m <sup>3</sup> /min
ナトリウム漏えい燃焼形態	コラム+プール燃焼	コラム+プール燃焼
安定化時残渣温度	50°C以下	50°C以下
安定化ガス濃度	CO <sub>2</sub> ; 4%, O <sub>2</sub> ; 3%, 絶対湿分濃度; 6000vppm ベース; N <sub>2</sub> (湿分の添加は初期の 10 分間)	CO <sub>2</sub> ; 4%, O <sub>2</sub> ; 3%, 絶対湿分濃度; 6000vppm ベース; N <sub>2</sub> (湿分の添加は初期の 10 分間)
安定化ガス注入条件	流量; 0.2m <sup>3</sup> /min 時間; 68 分	流量; 0.2m <sup>3</sup> /min 時間; 68 分
安定化確認中湿分絶対濃度	大気濃度 (約 6000vppm)	大気濃度 (約 23000vppm)

表 2 Run-F9-1 の実験スケジュール

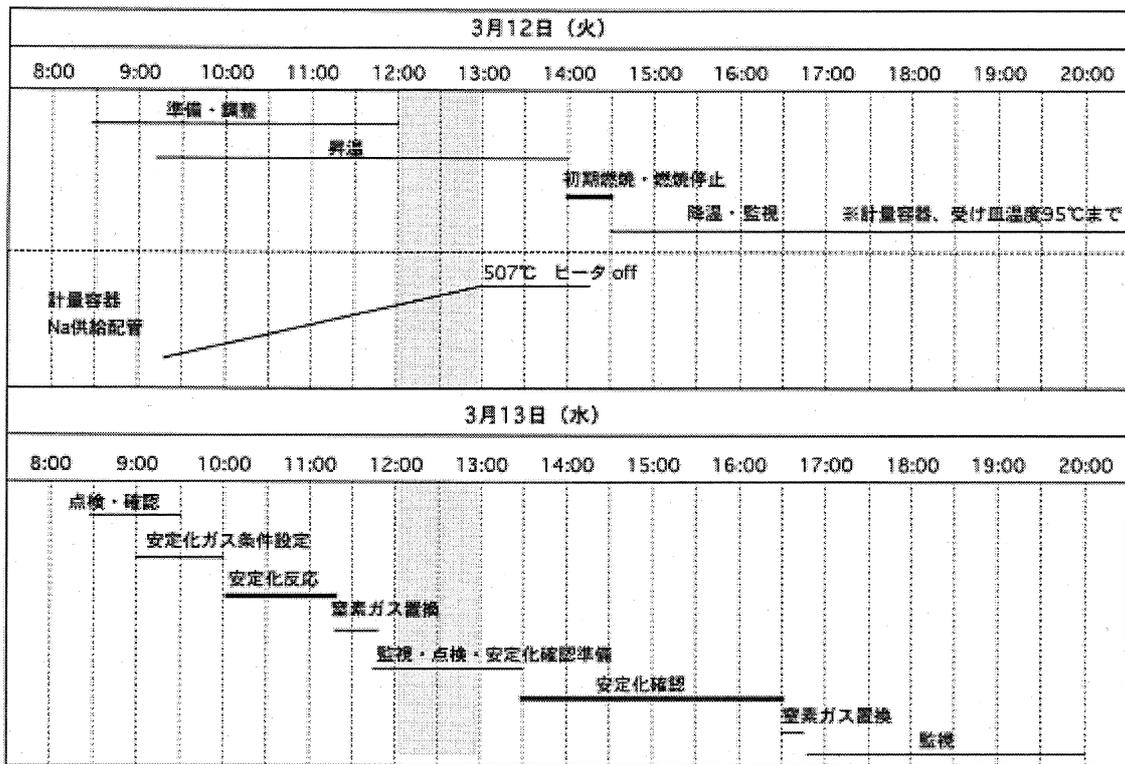


表 3 Run-F9-2 の実験スケジュール

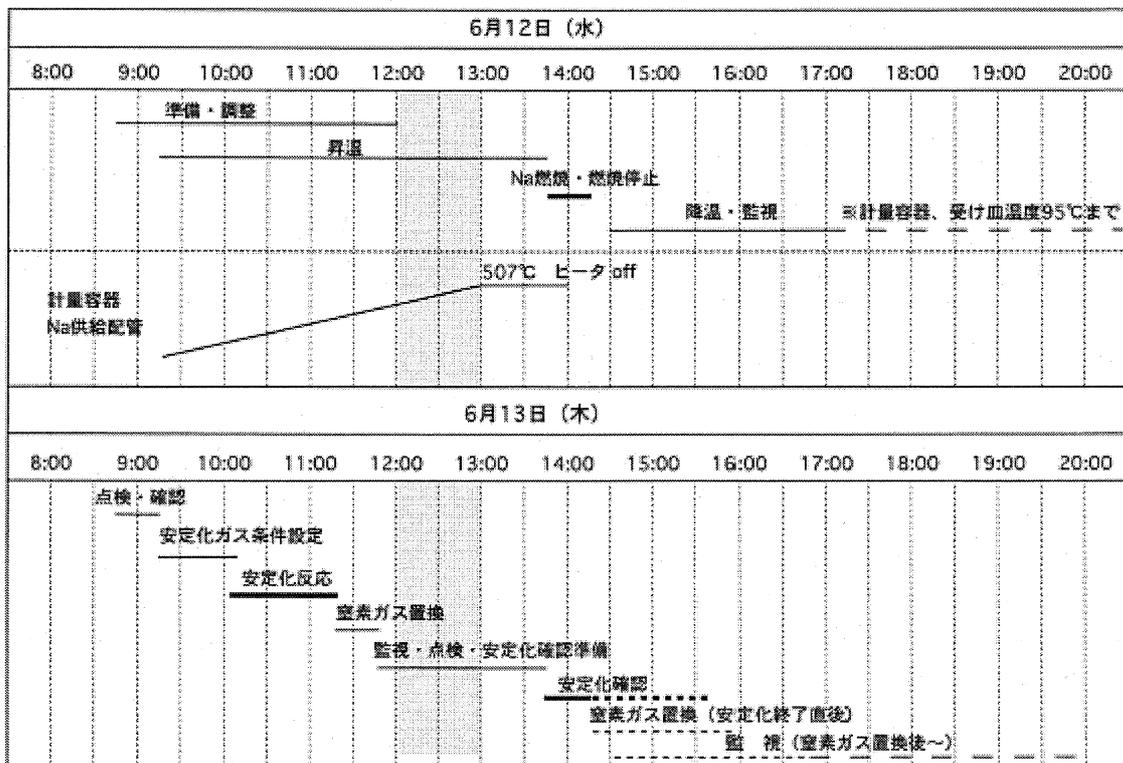


表 4 Run-F9-2 安定化確認時の潮解液落下の時系列と生じた状態の概要

空気通気(曝露)開始からの時間	VTR から確認した現象
45分20秒	潮解液落下・未発火
46分22秒	潮解液落下・発火
52分23秒	潮解液落下・発火
53分00秒	発火(潮解液落下未確認)
54分40秒	潮解液落下・発火
56分18秒	潮解液落下・発火
1時間00分12秒	潮解液落下・未発火
1時間12分19秒	潮解液落下・未発火
1時間16分42秒	潮解液落下・未発火
1時間21分38秒	潮解液落下・発火

表 5 サンプルングした燃焼残渣の分析結果<sup>\*</sup>)

Run-F9-1			Run-F9-2		
表 層 (黄白色)	Na	8 wt-%	表 層 (黄白色)	Na	2 wt-%
	Na <sub>2</sub> O	38 wt-%		Na <sub>2</sub> O	33 wt-%
	Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	5 wt-%		Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	25 wt-%
	NaOH	42 wt-%		NaOH	53 wt-%
	Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	7 wt-%		Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	10 wt-%
深 層 (濃灰色)	Na	22 wt-%	深 層 (濃灰色)	Na	40 wt-%
	Na <sub>2</sub> O	63 wt-%		Na <sub>2</sub> O	43 wt-%
	Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.5 wt-%		Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.3 wt-%
	NaOH	7 wt-%		NaOH	14 wt-%
	Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	7 wt-%		Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	3 wt-%

<sup>\*</sup>)部分的なサンプルング結果であり、全体の平均濃度ではない。

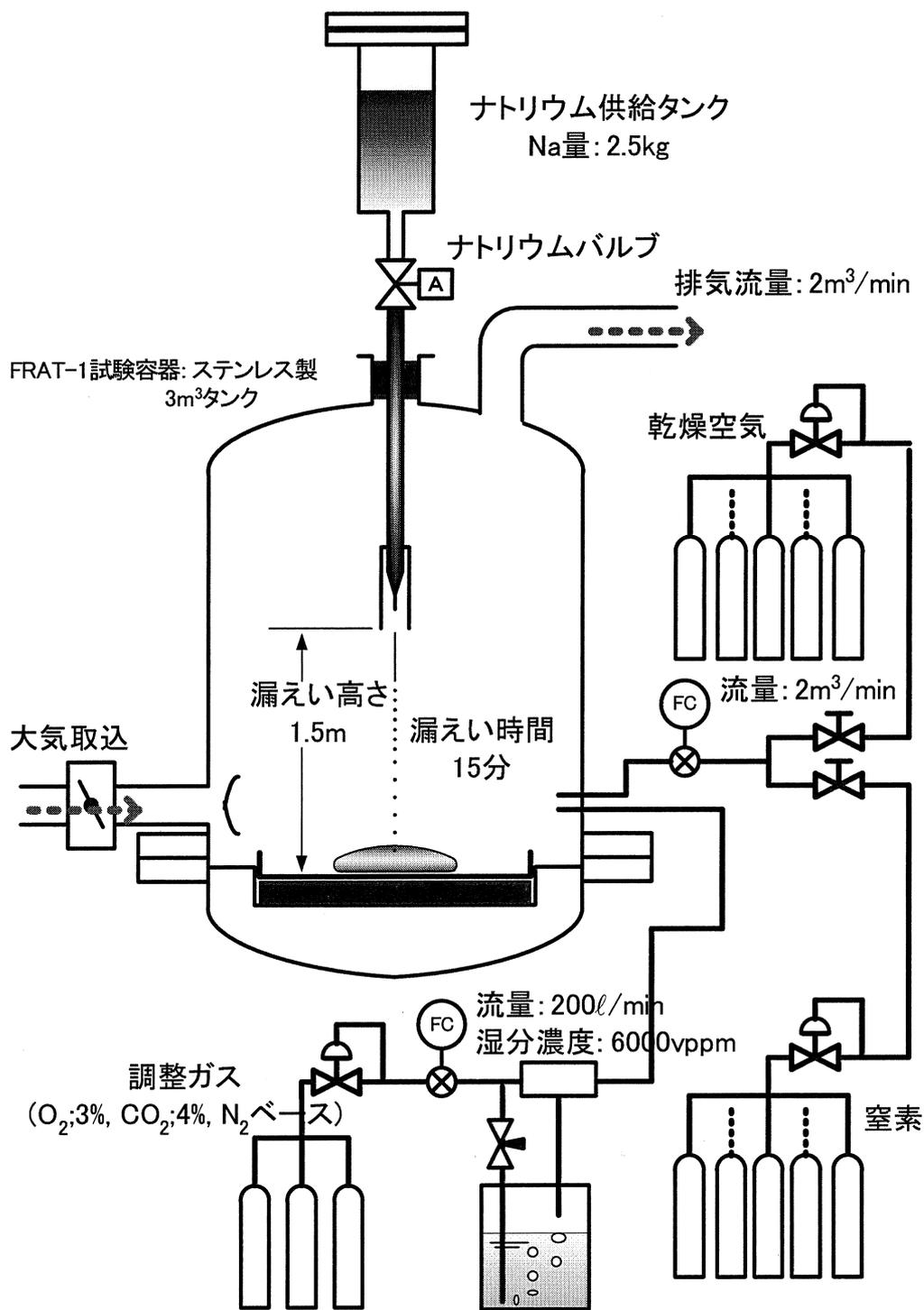


図 1 実験装置の概要

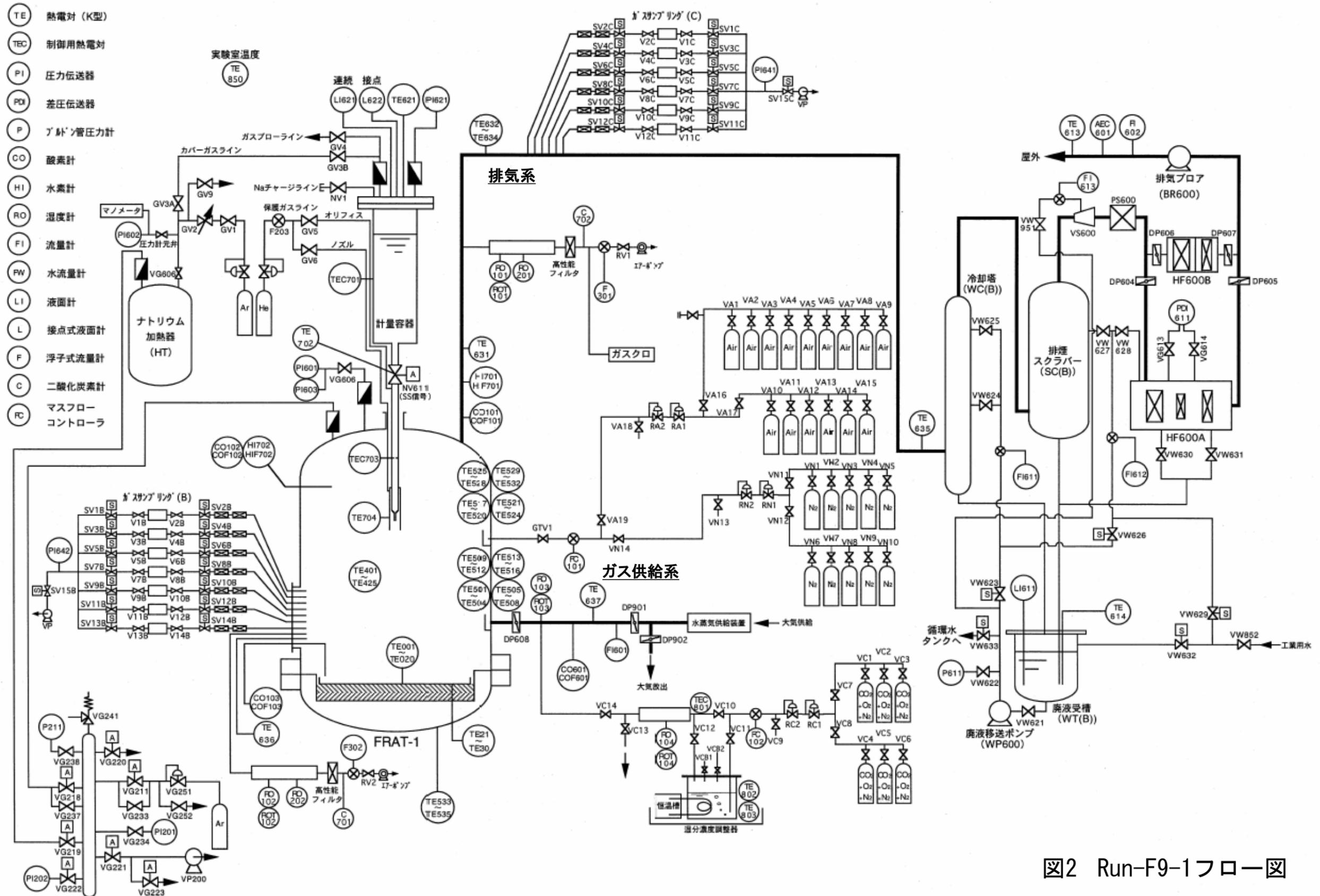


図2 Run-F9-1フロー図

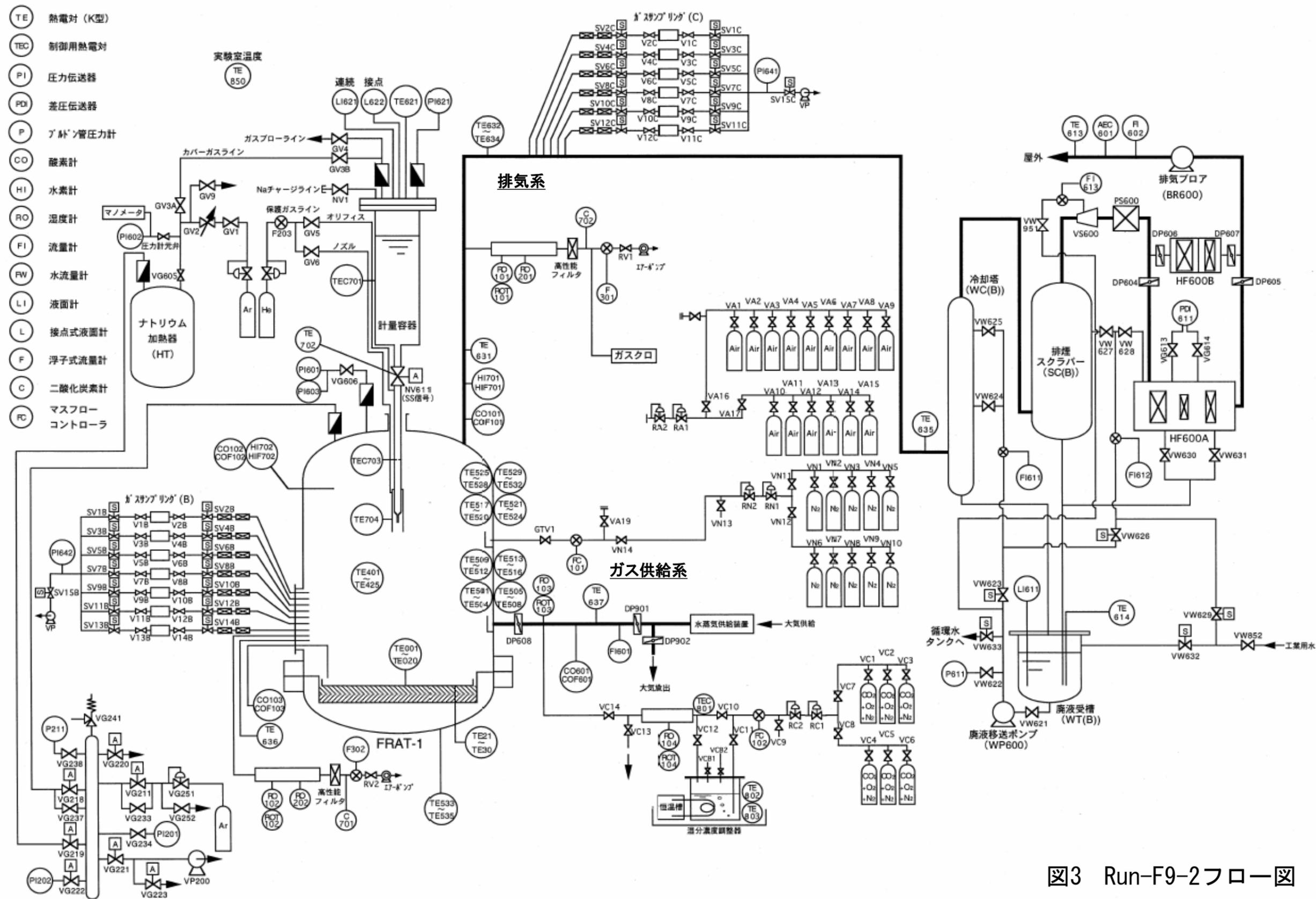


図3 Run-F9-2フロー図

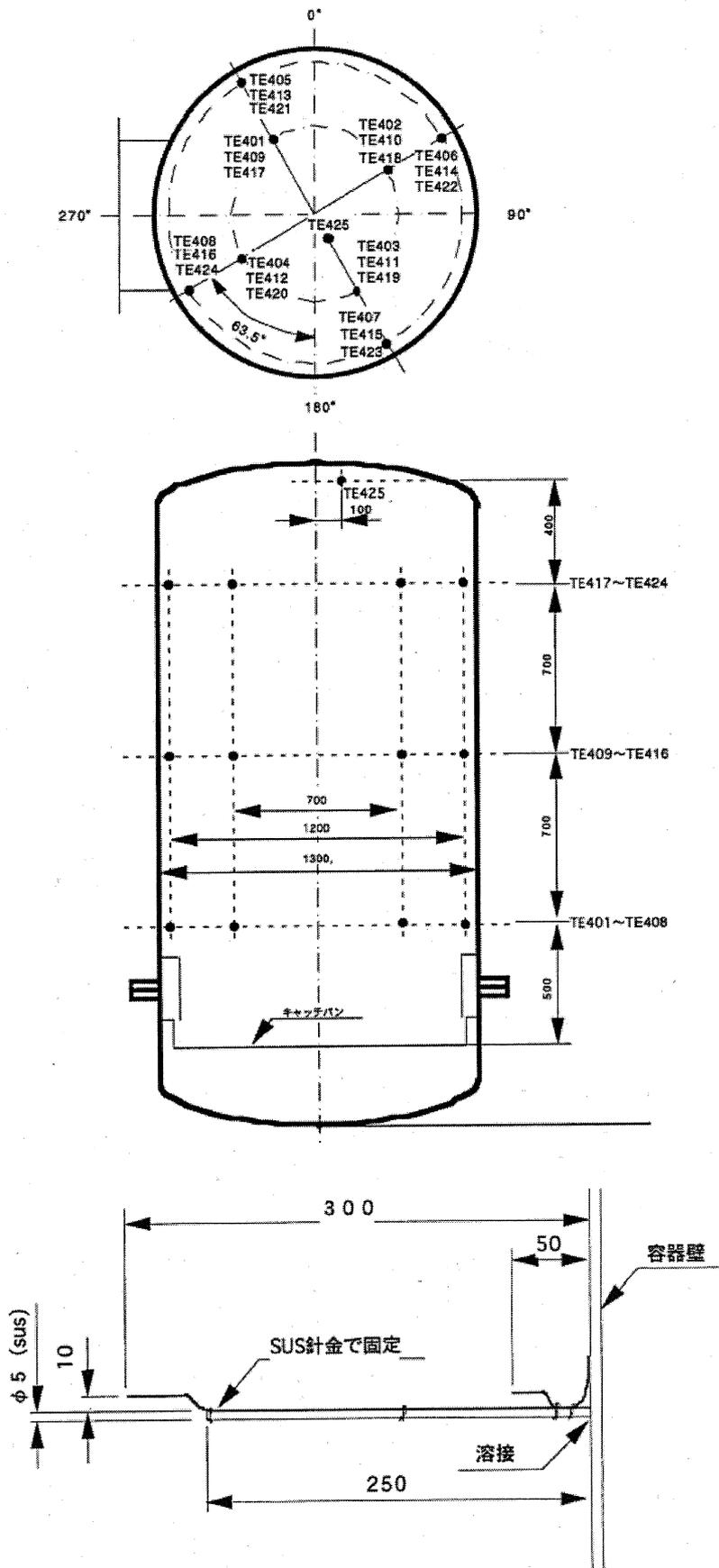


図 4 FRAT-1 試験容器内ガス空間測定用熱電対配置

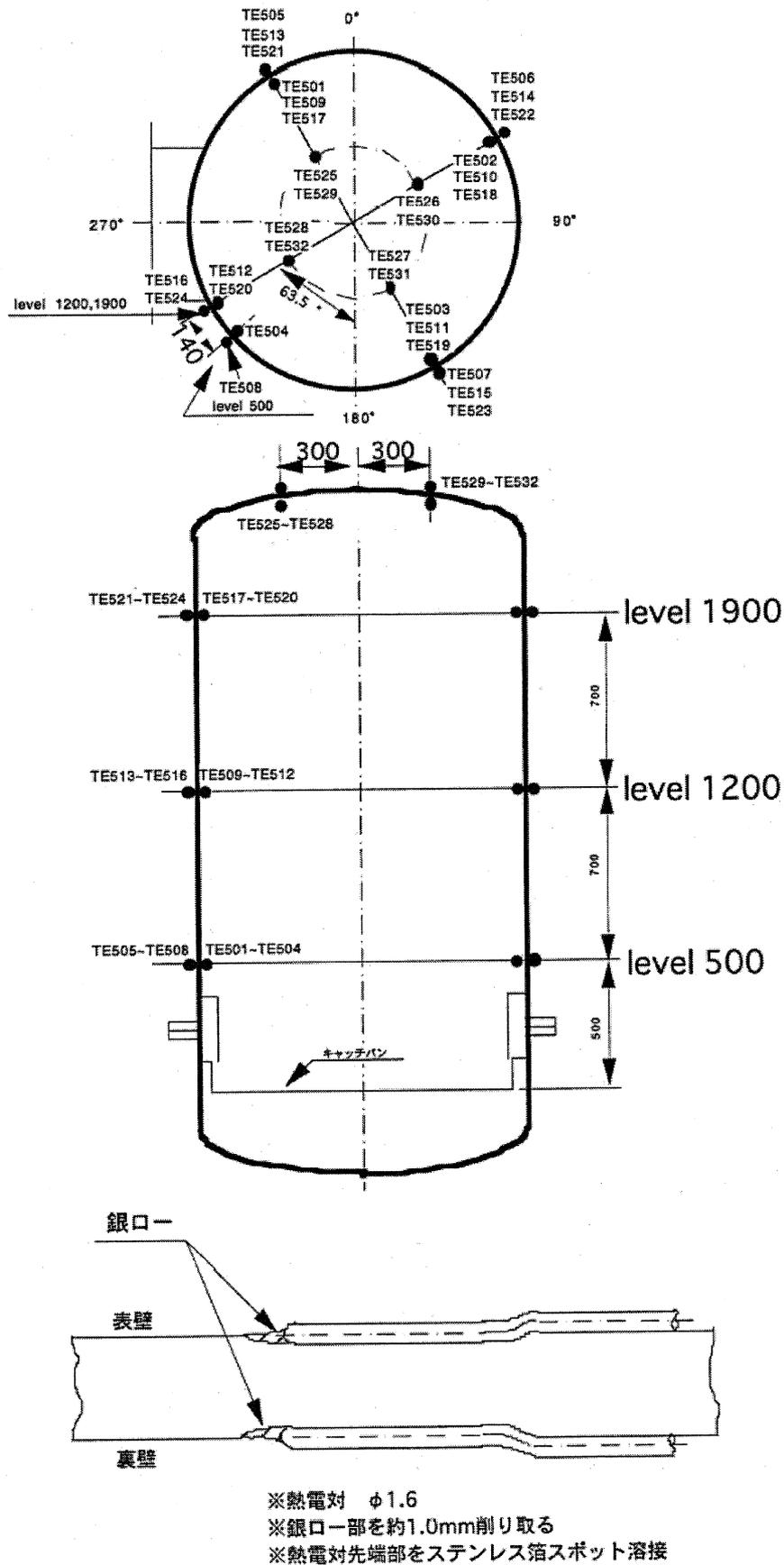


図 5 FRAT-1 試験容器壁温度測定用熱電対配置

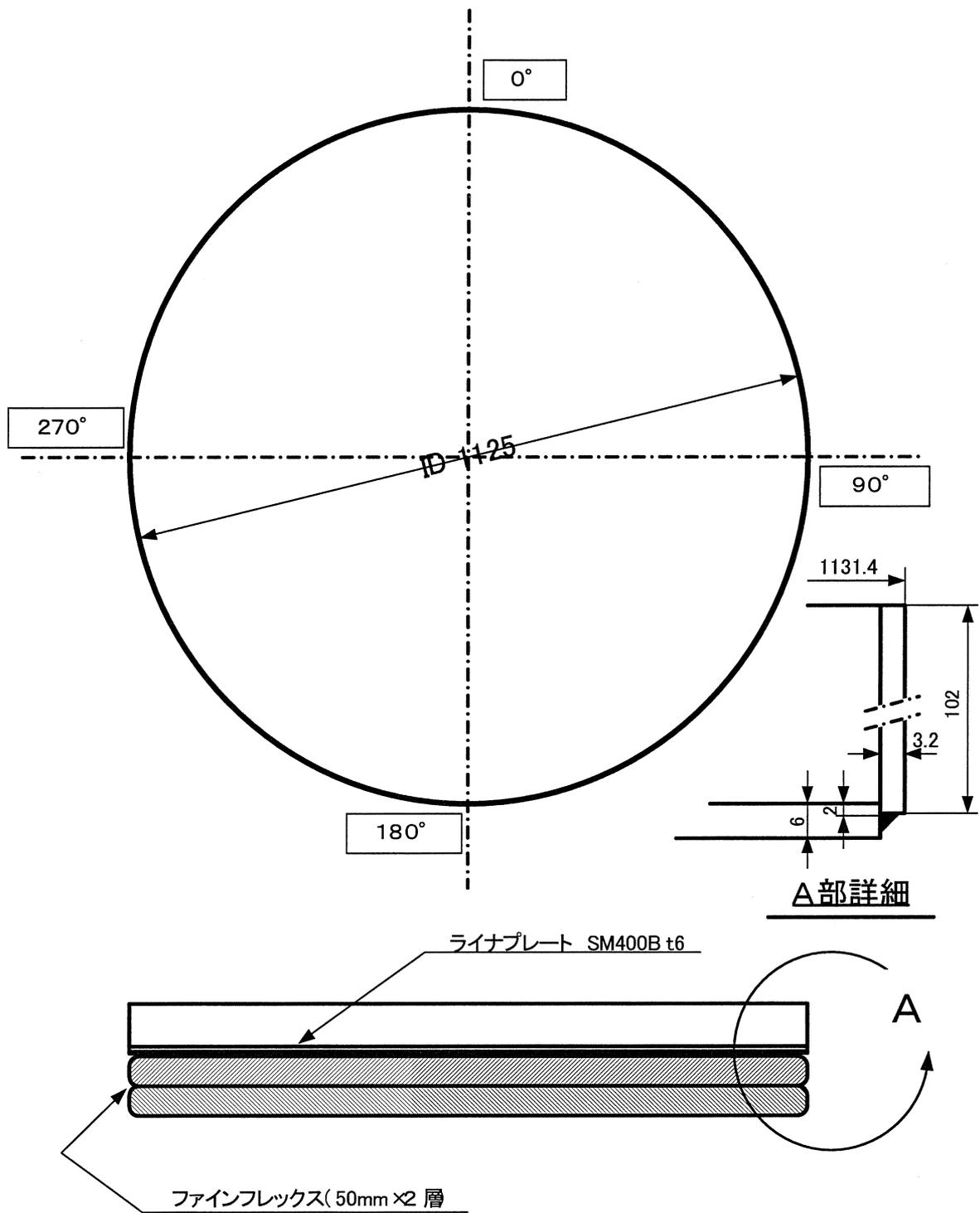


図 6 燃焼皿の構造

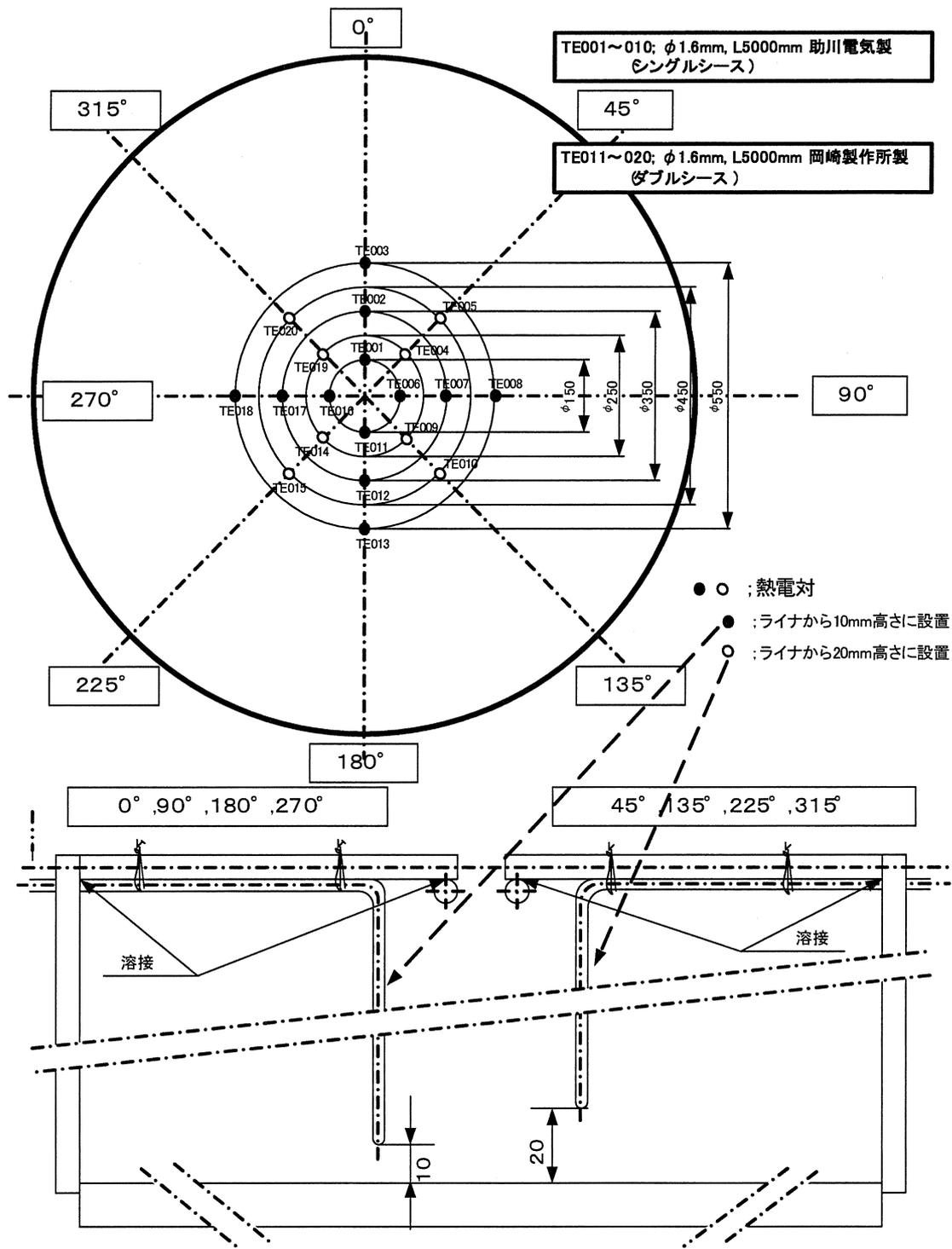


図 7 燃烧皿表面熱電対配置

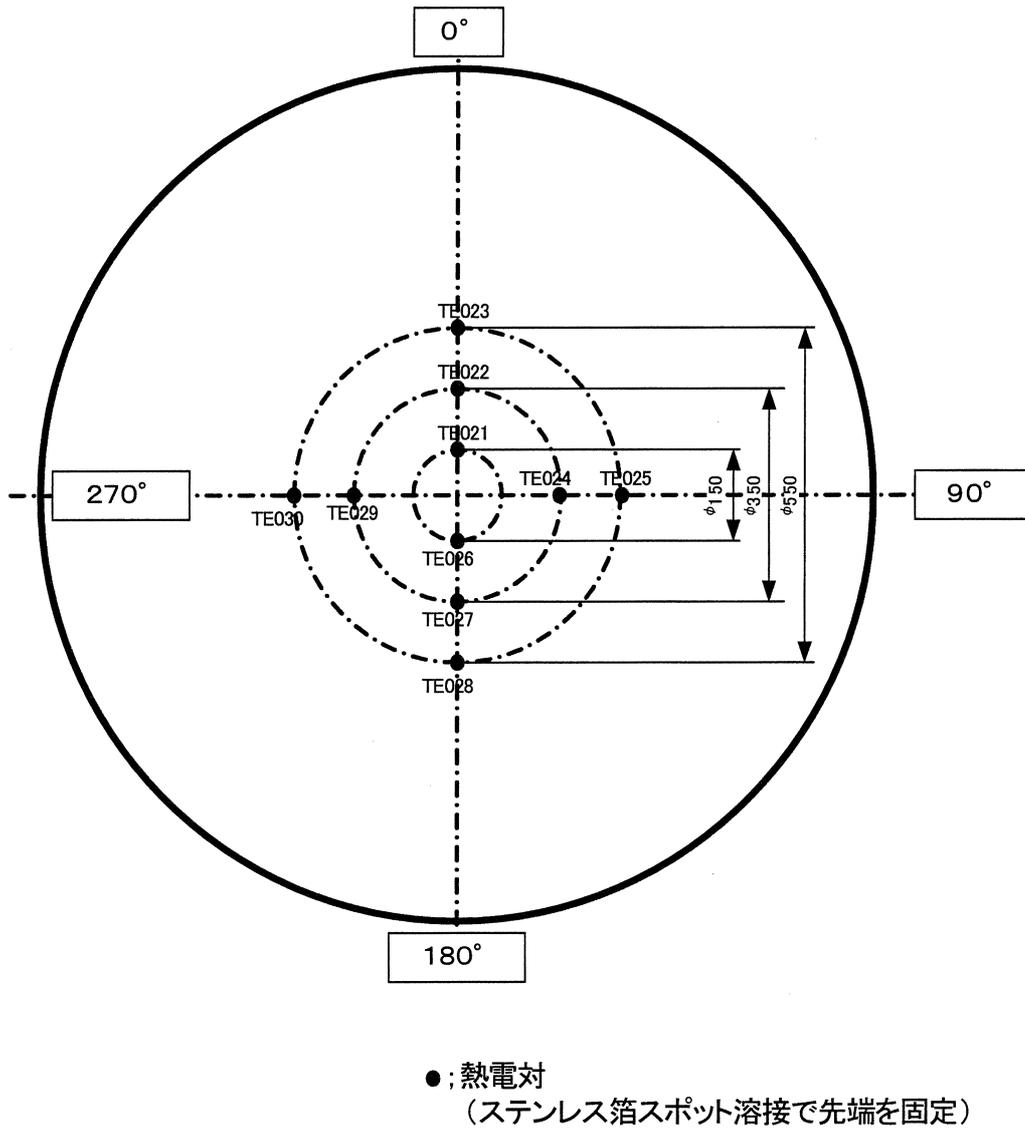


図 8 燃烧皿裏面熱電対配置

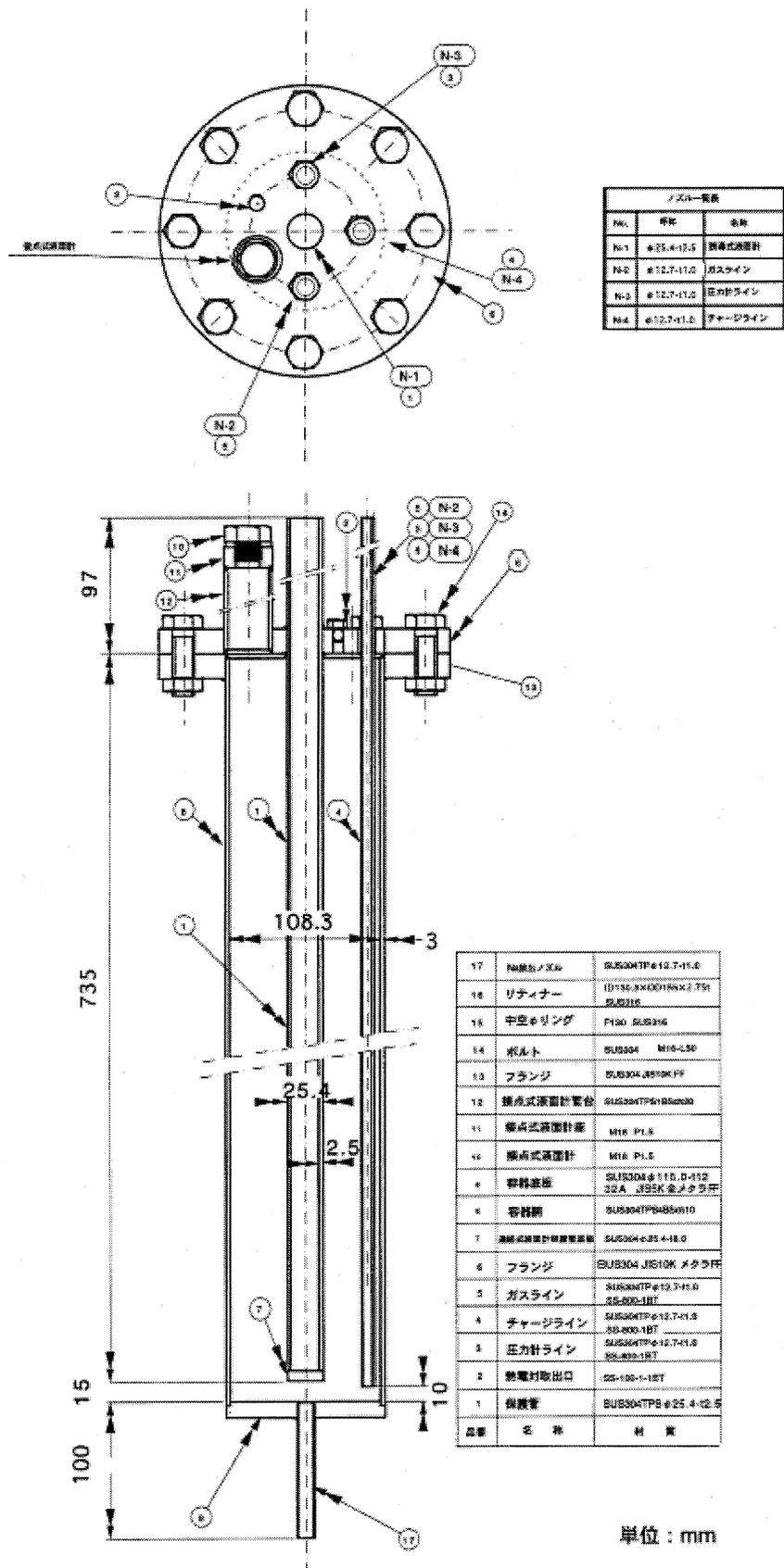


図 9 ナトリウム計量容器

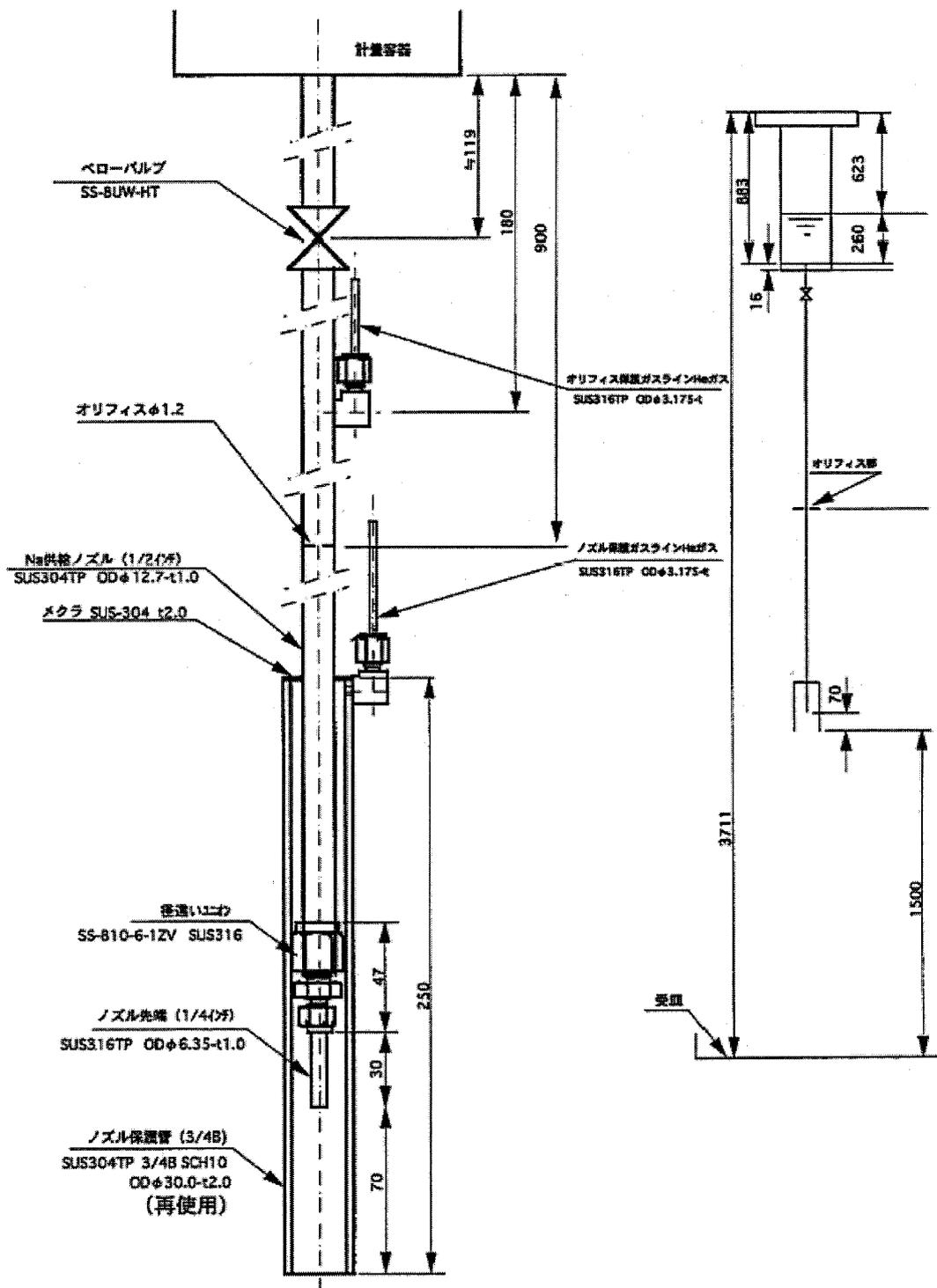
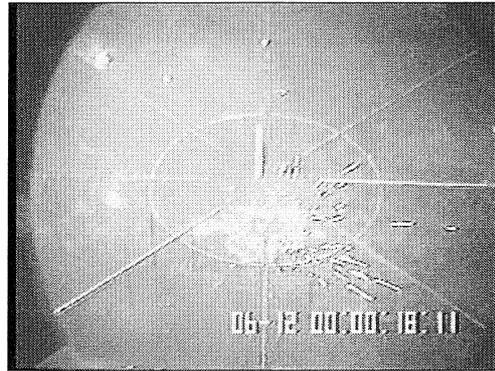
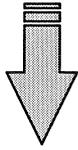
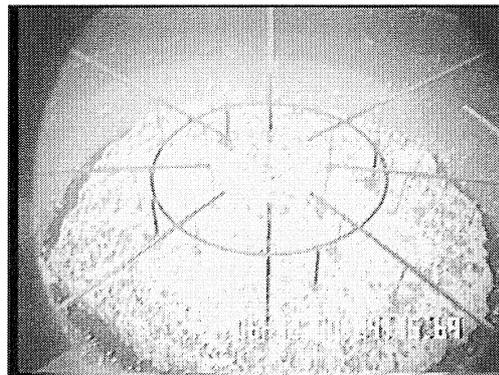
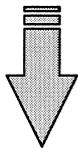


図 10 ナトリウム漏えい用ノズル

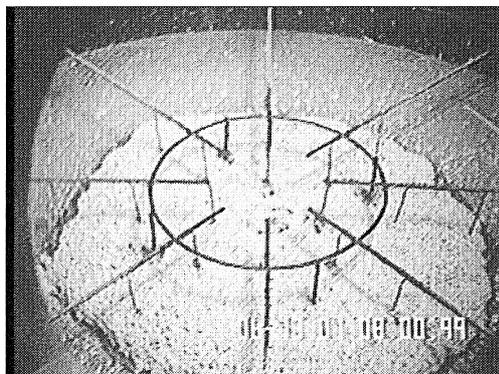
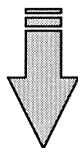
(1) 空気雰囲気でのナトリウム漏えい燃焼



(2) 窒素ガスによる燃焼抑制



(3) 湿り炭酸ガスによる安定化反応



(4) 空気雰囲気による安定化の確認



図 11 実験手順の概略 (Run-F9-2 の映像)

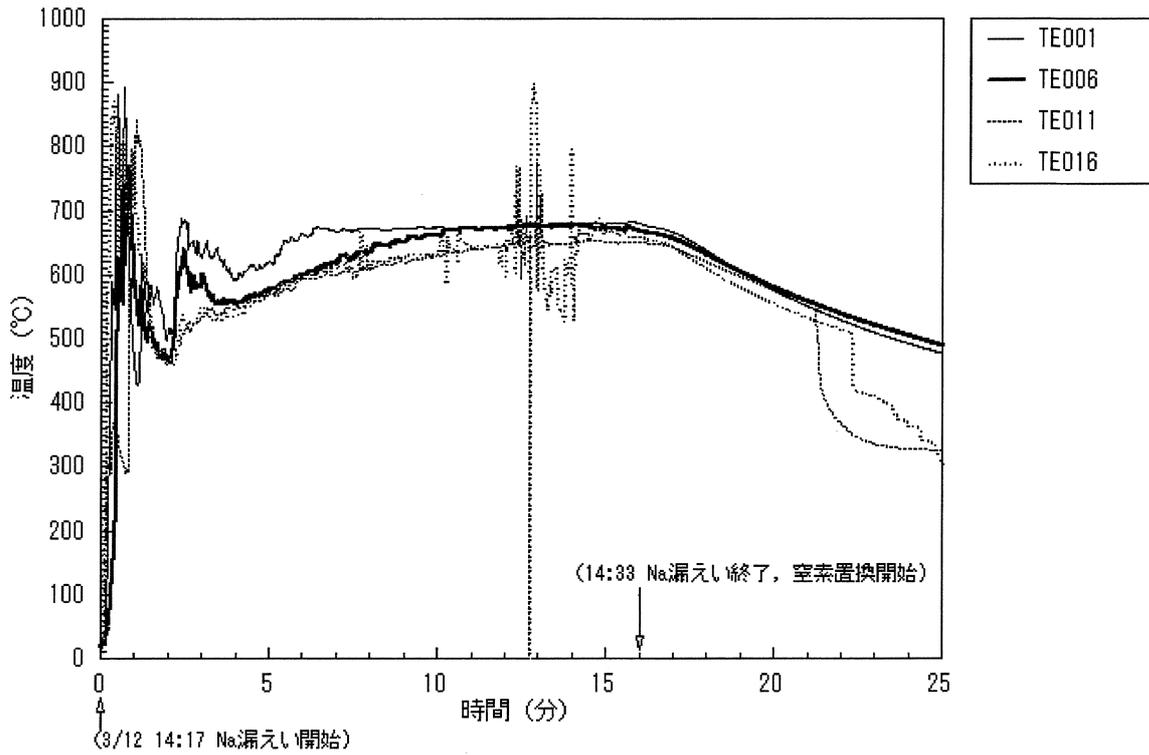


図 12 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

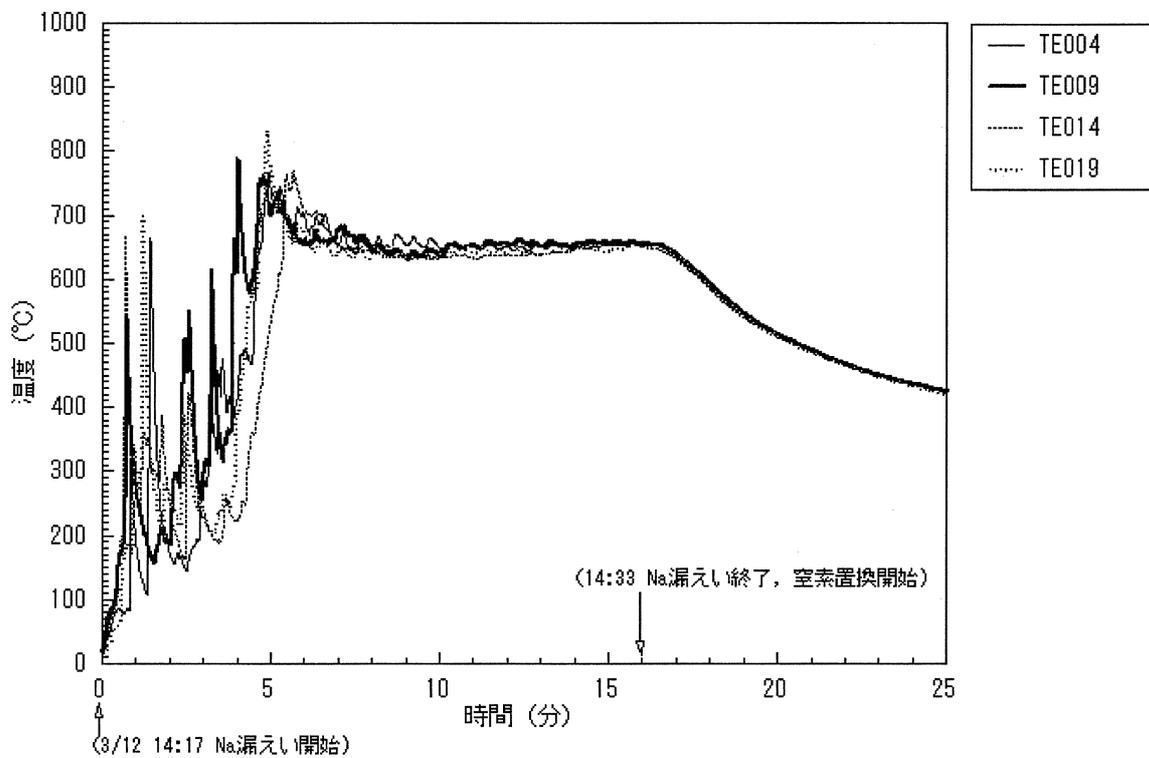


図 13 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対)

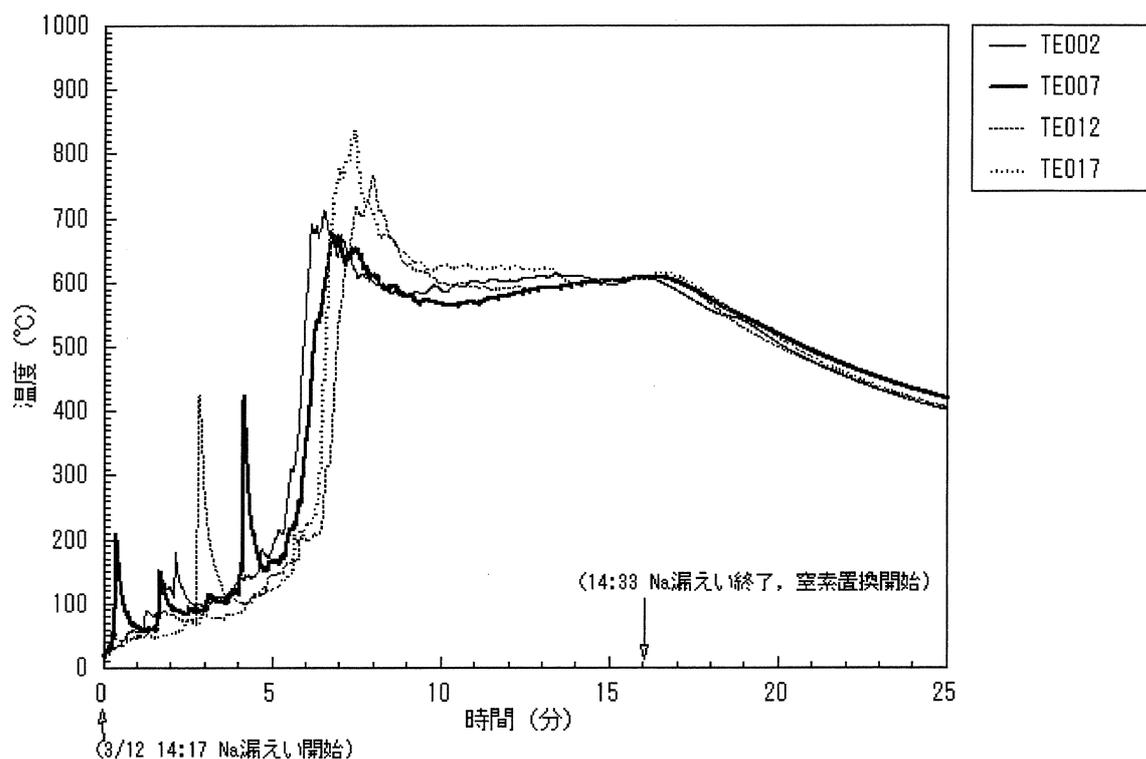


図 14 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

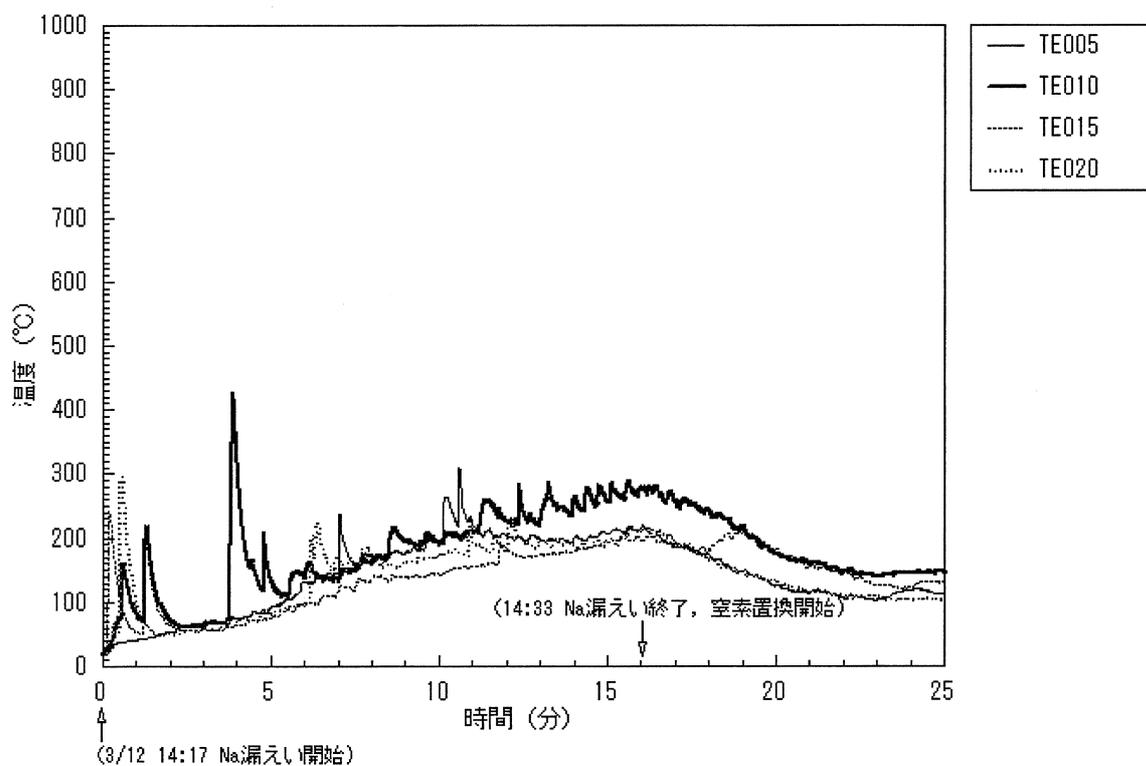


図 15 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対)

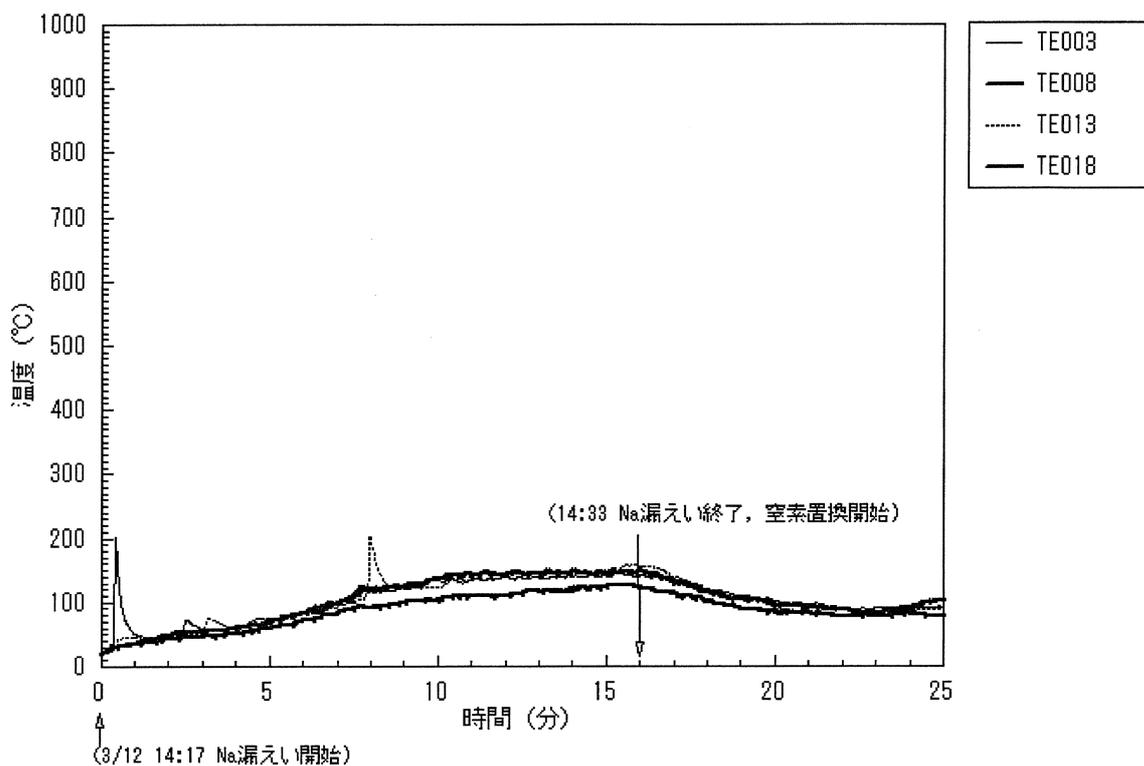


図 16 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

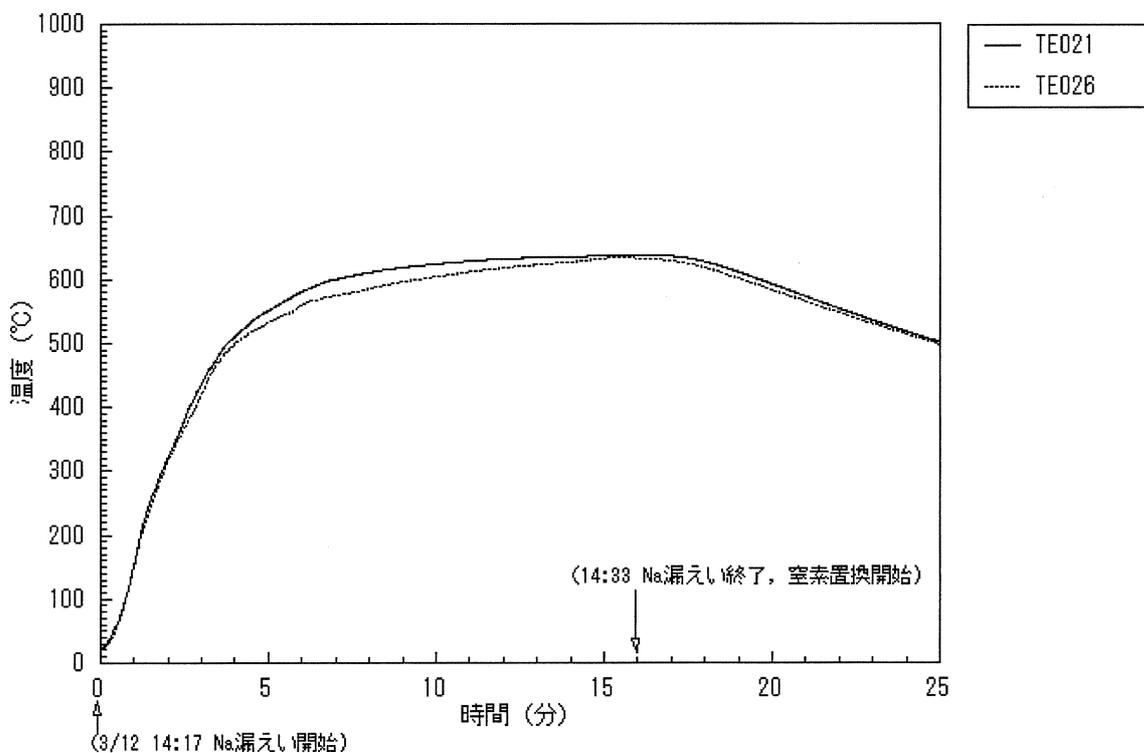


図 17 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

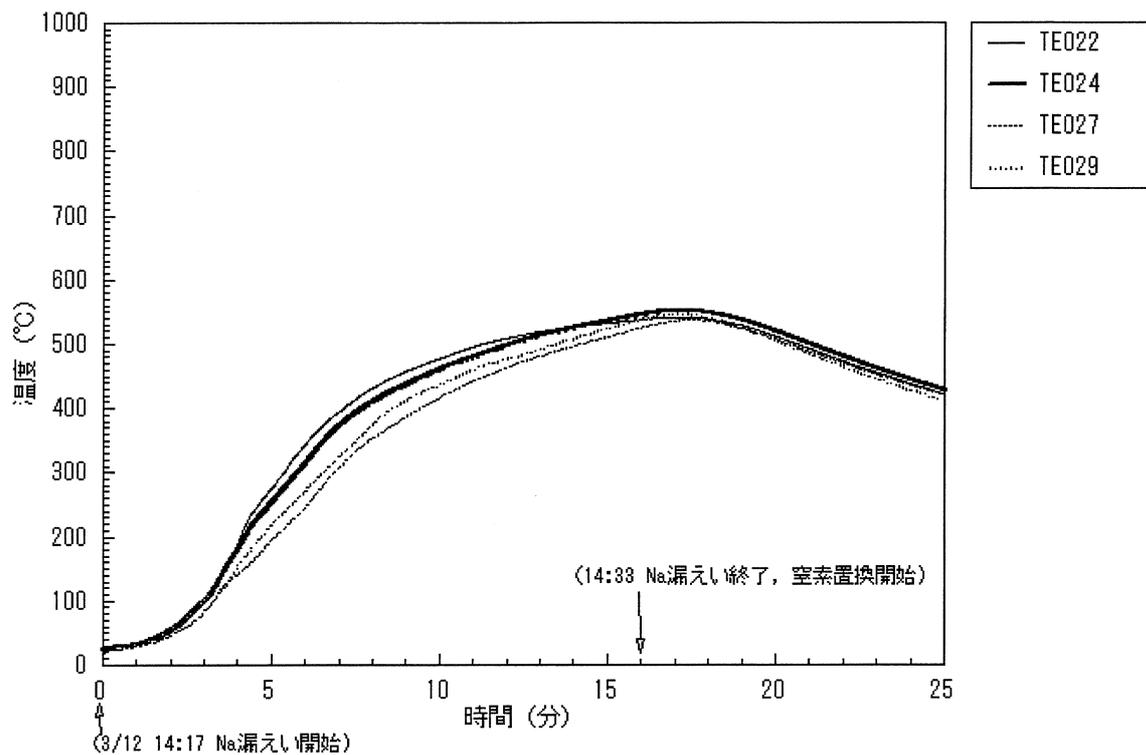


図 18 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

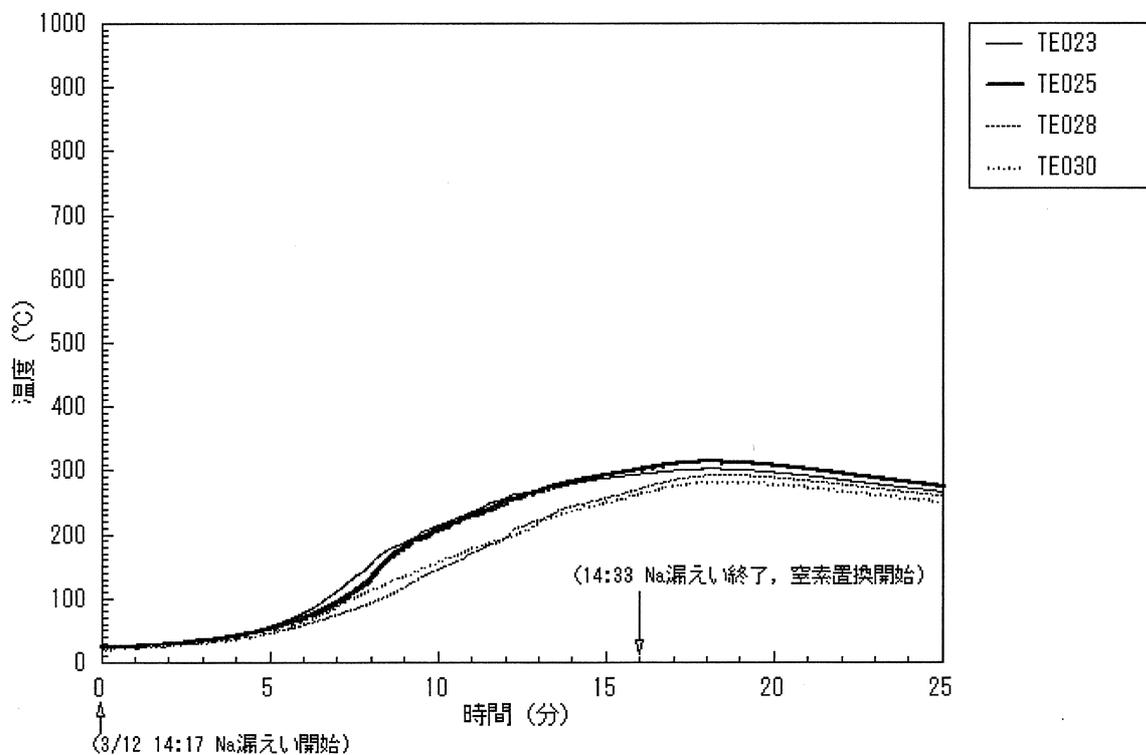


図 19 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

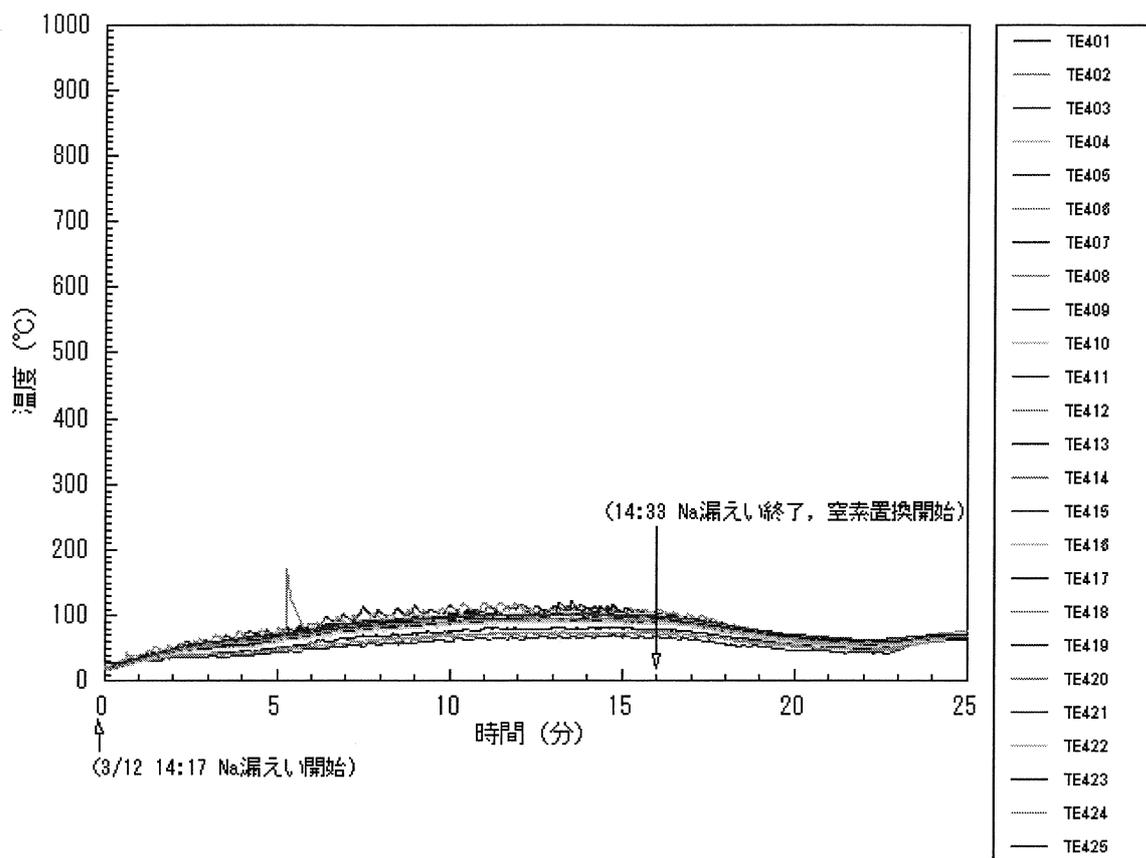


図 20 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時のガス空間温度変化

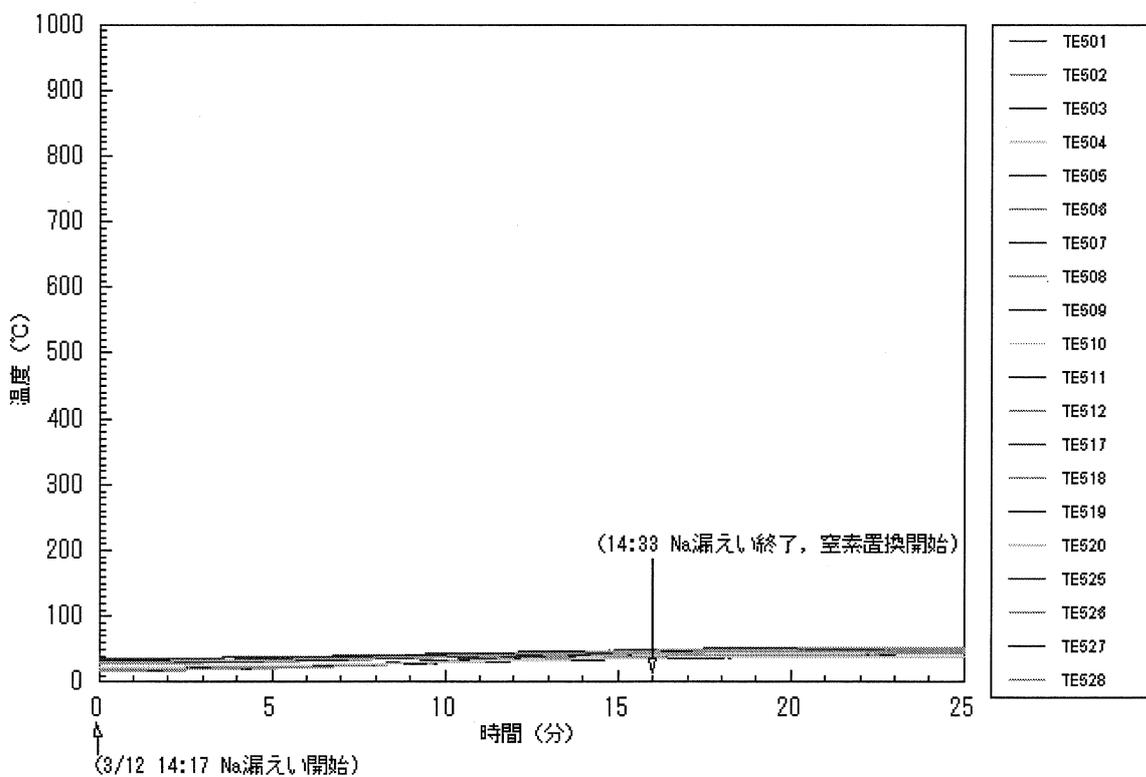


図 21 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1 容器壁温度変化

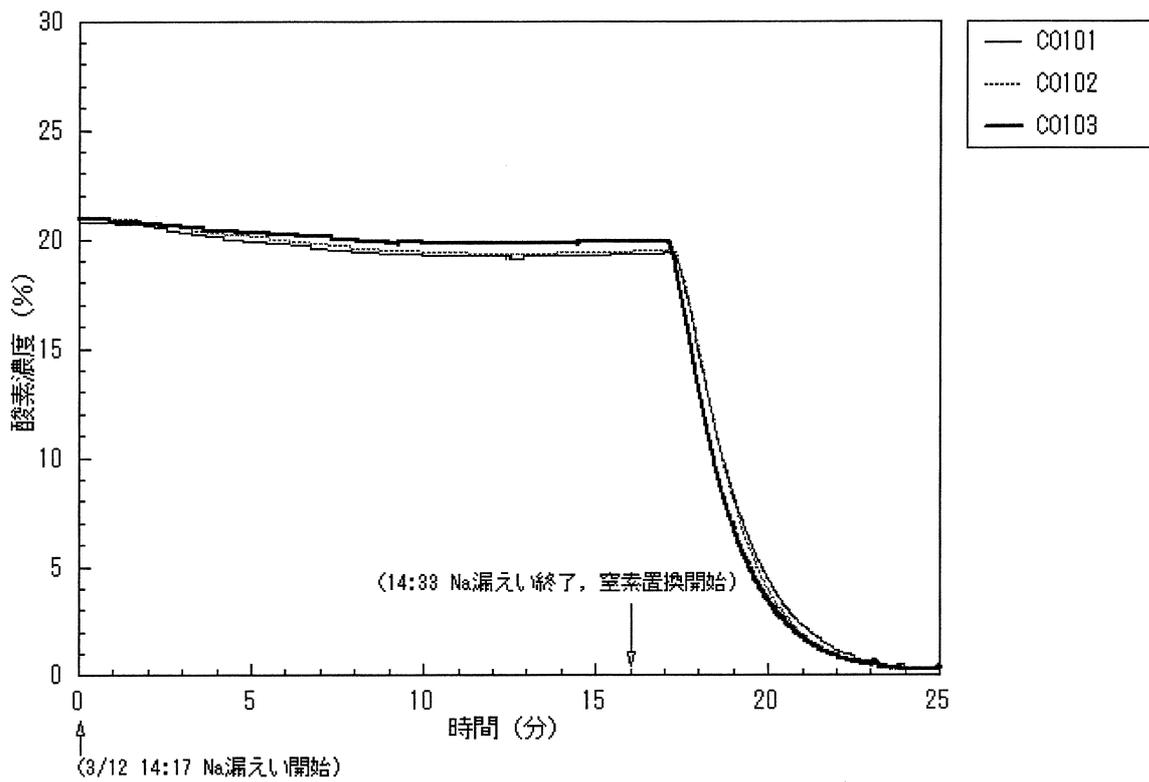


図 22 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の FRAT-1 容器内酸素濃度変化

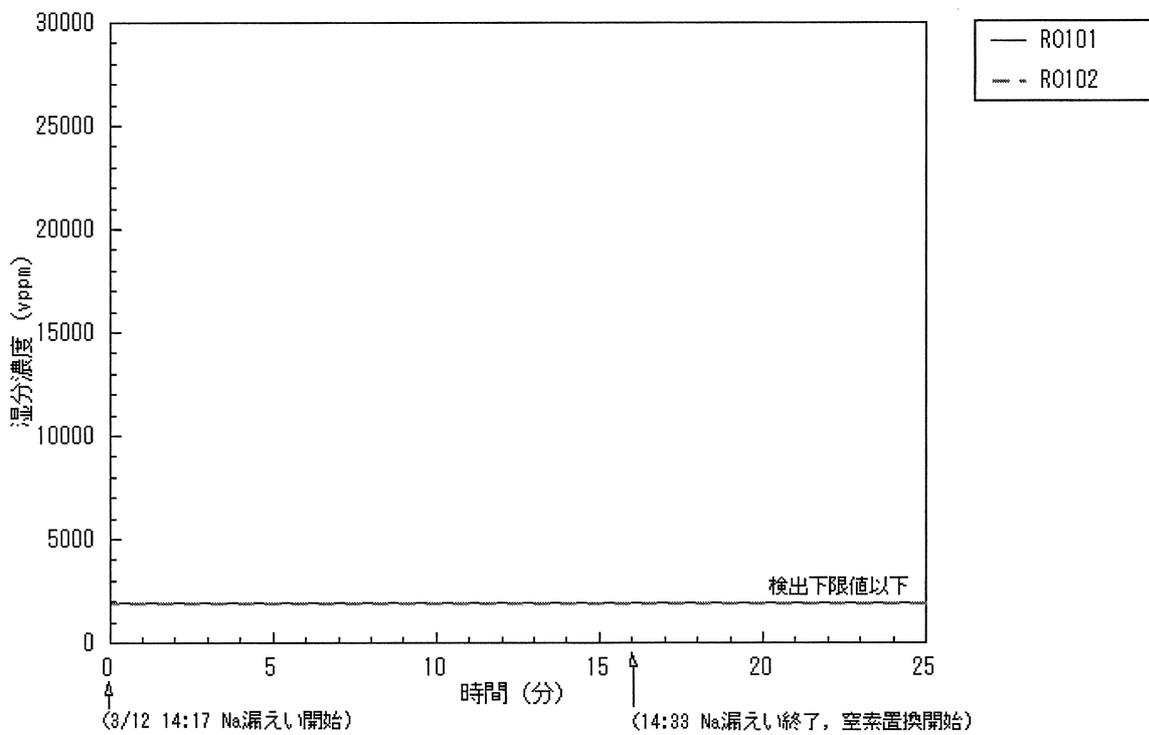


図 23 Run-F9-1 ナトリウム漏えい燃焼時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化

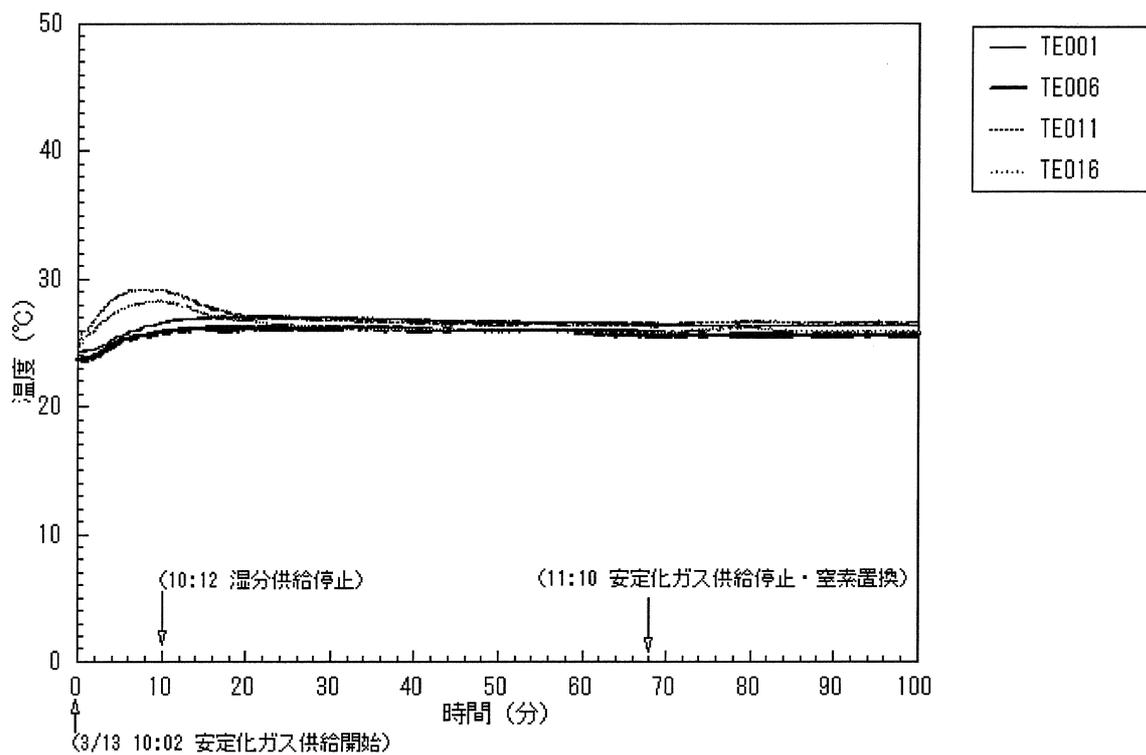


図 24 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

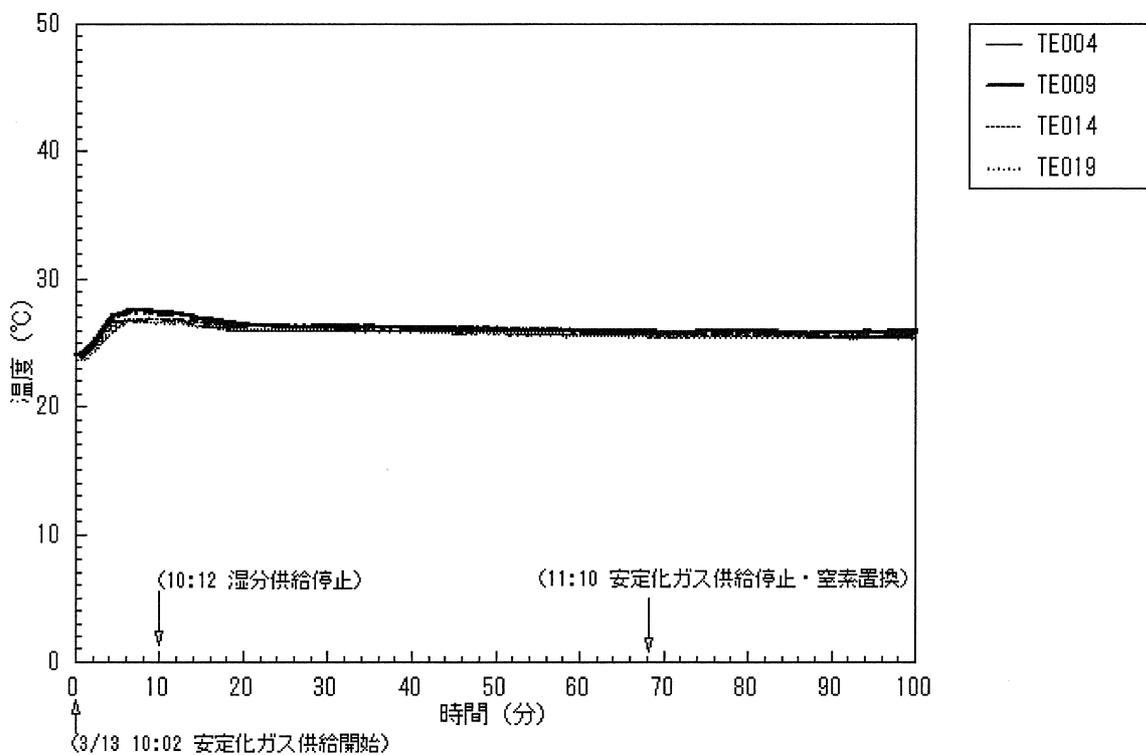


図 25 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対)

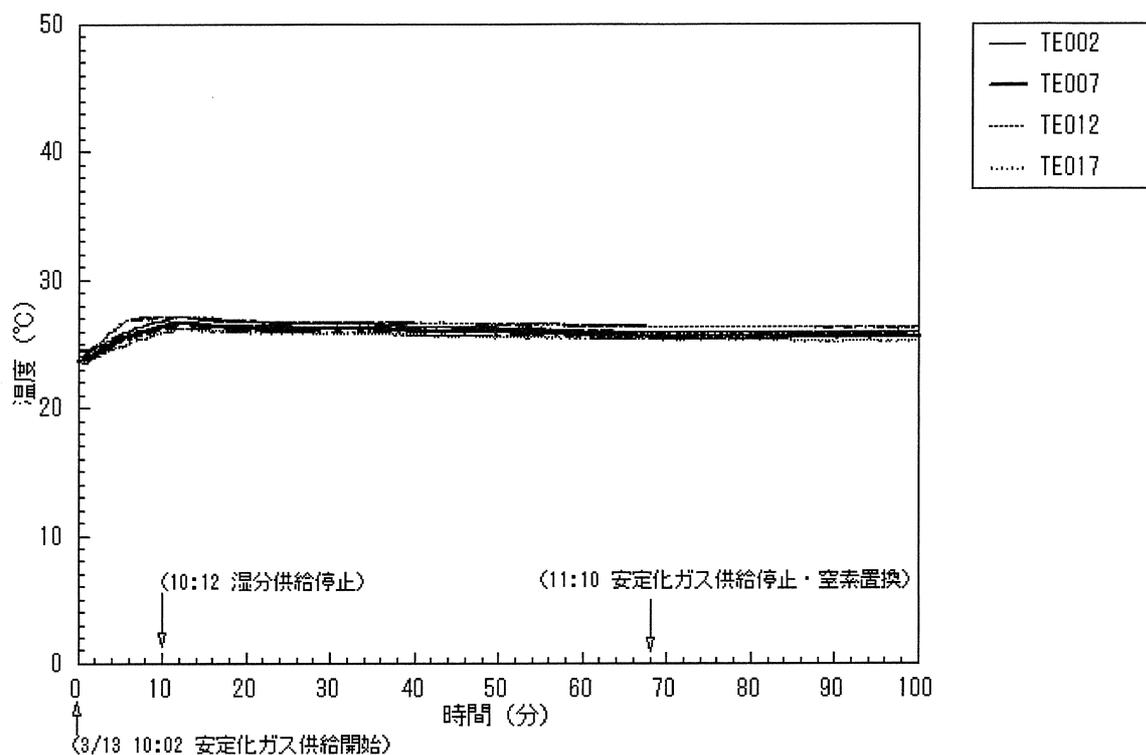


図 26 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

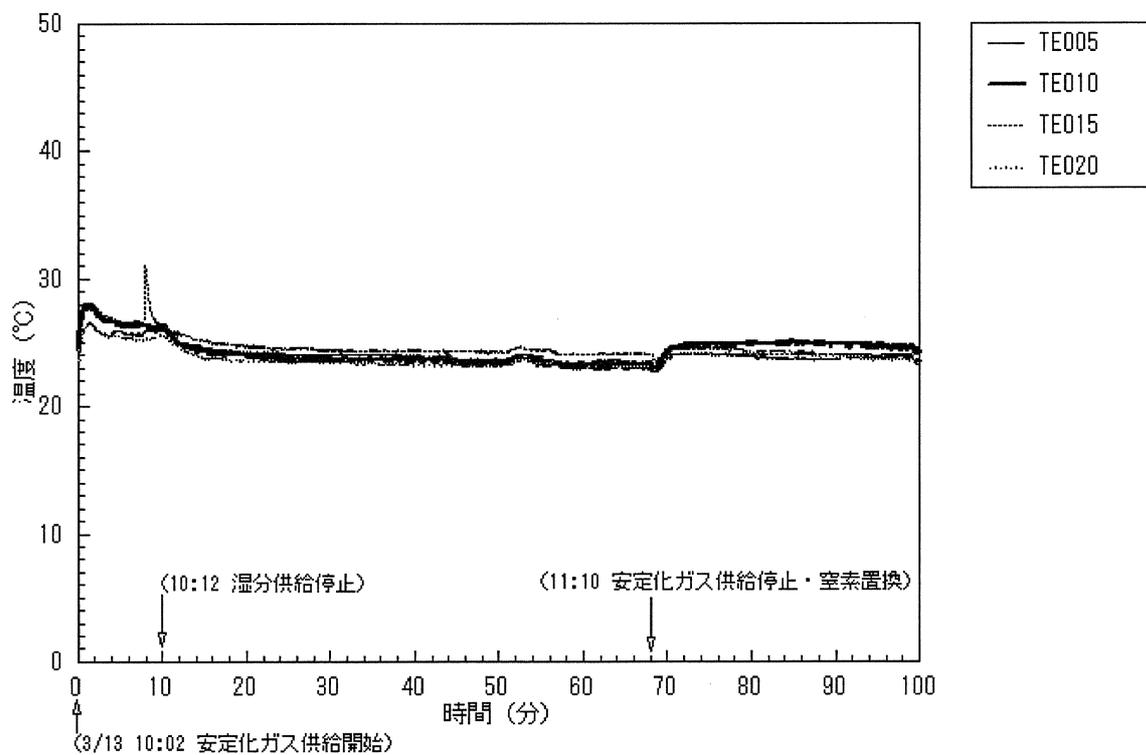


図 27 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対)

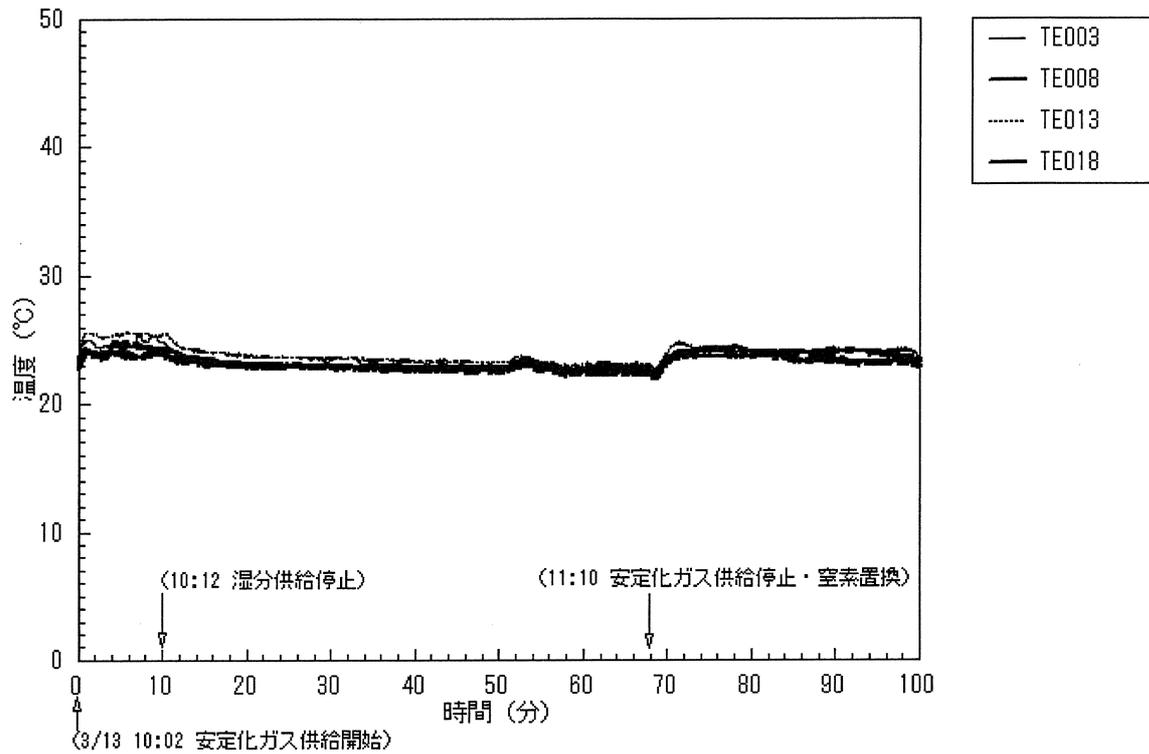


図 28 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

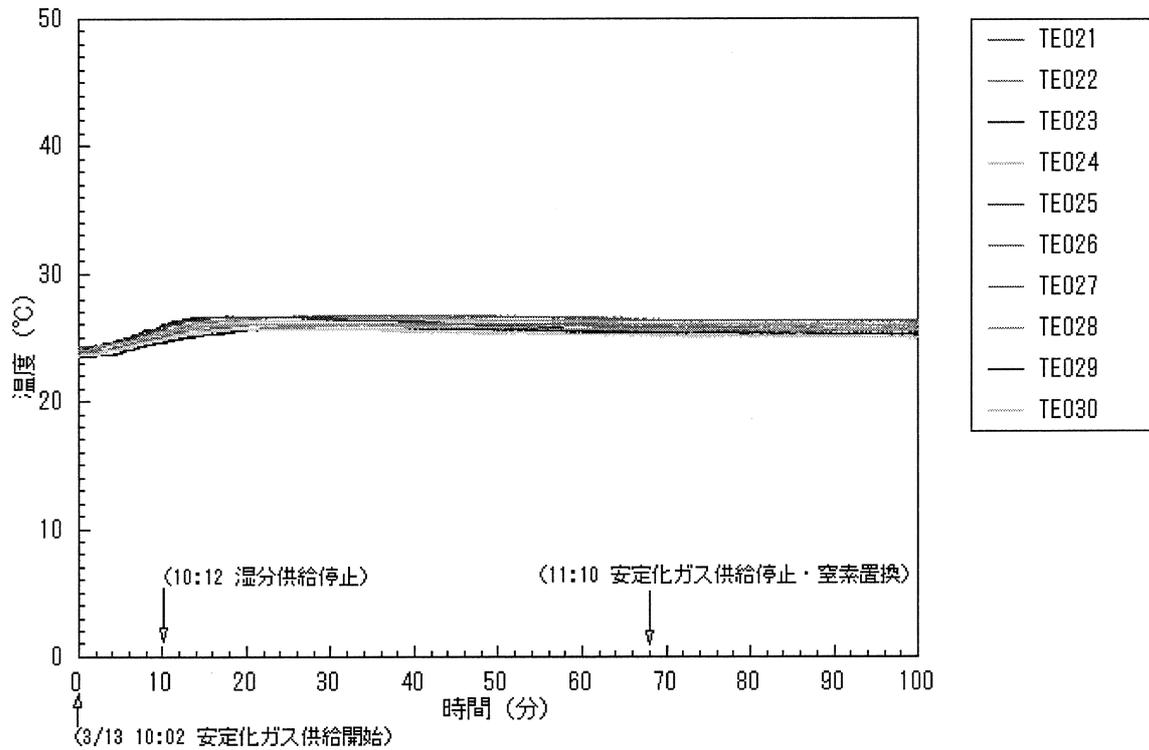


図 29 Run-F9-1 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿裏面の温度変化

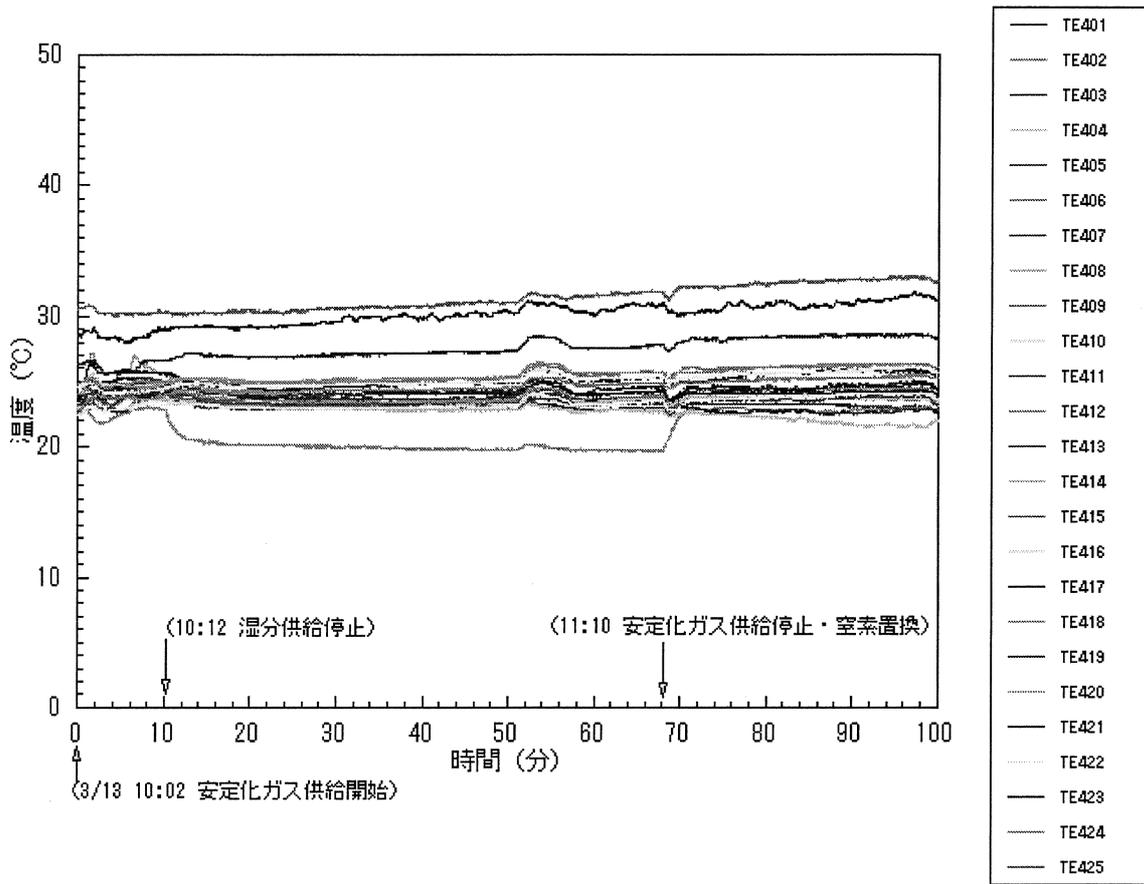


図 30 Run-F9-1 燃焼残渣安定化反応時のガス空間の温度変化

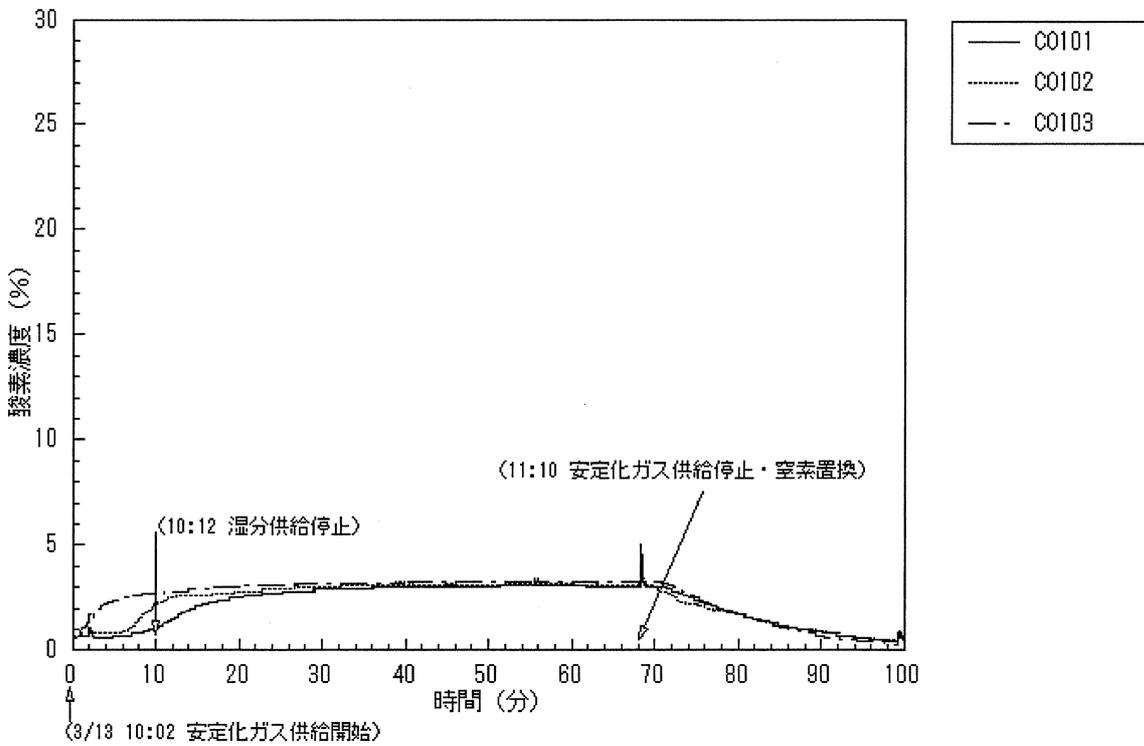


図 31 Run-F9-1 燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1 容器内酸素濃度変化

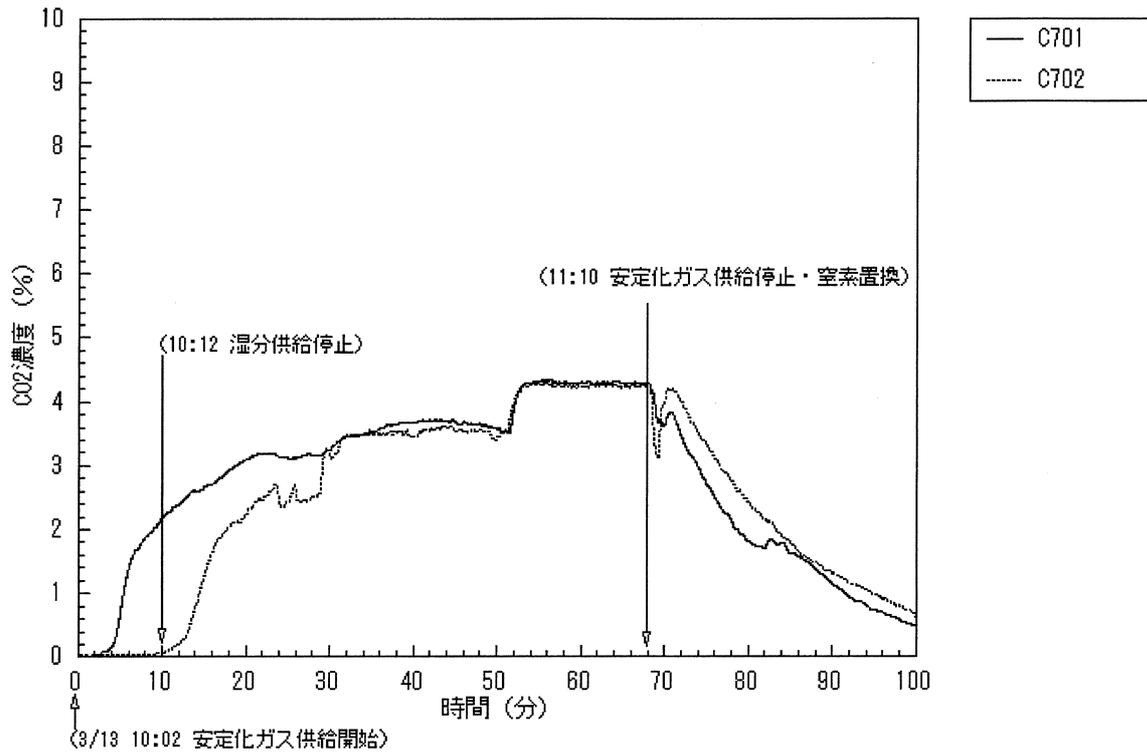


図 32 Run-F9-1 燃焼残渣安定化反応時の FRAT-1 容器内炭酸ガス (CO<sub>2</sub>) 濃度変化

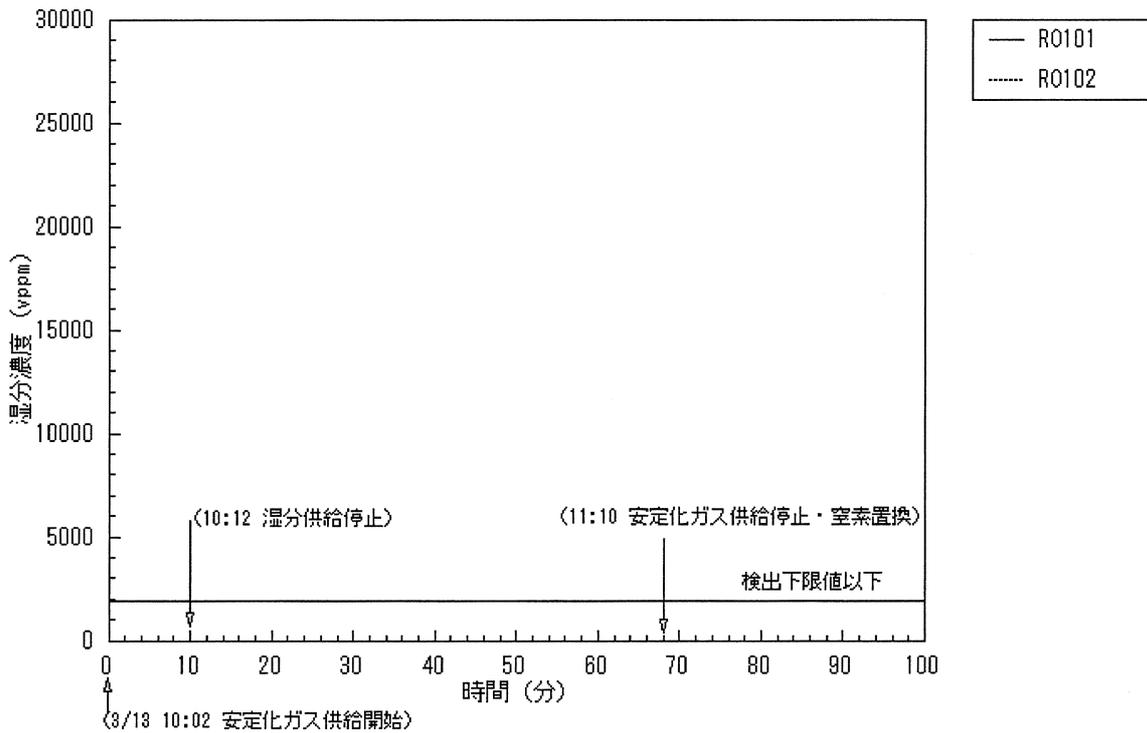


図 33 Run-F9-1 燃焼残渣安定化反応時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化

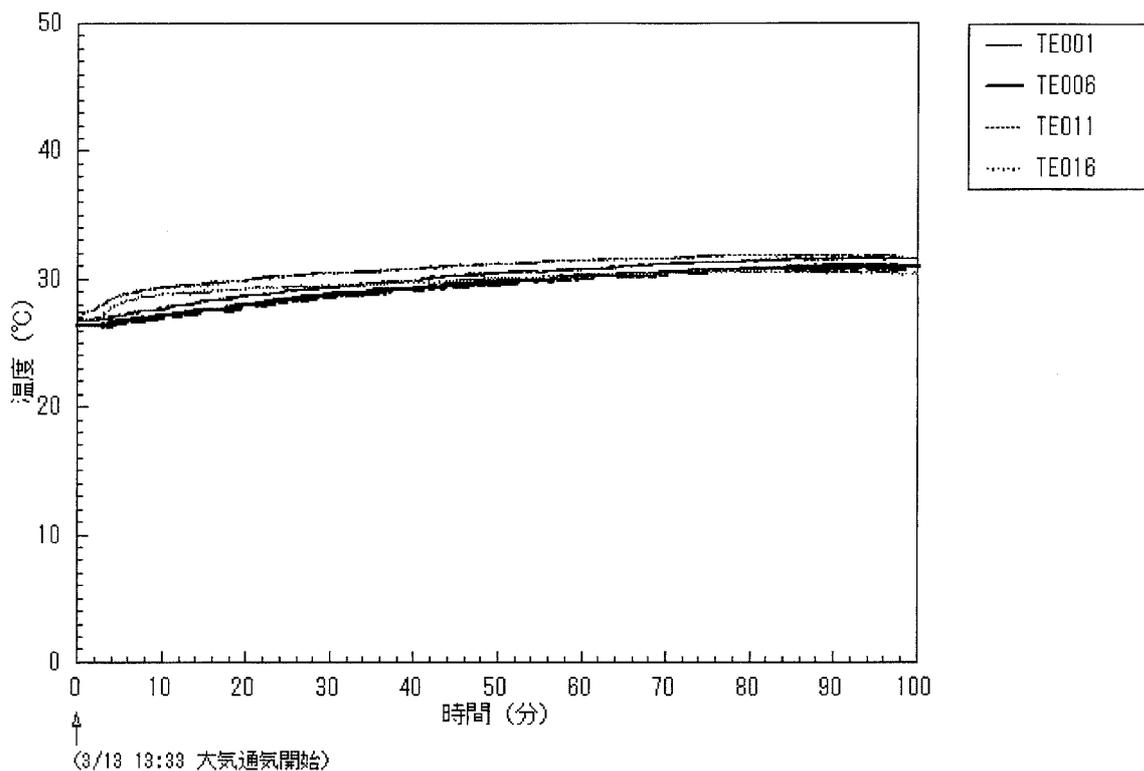


図 34 Run-F9-1 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対）

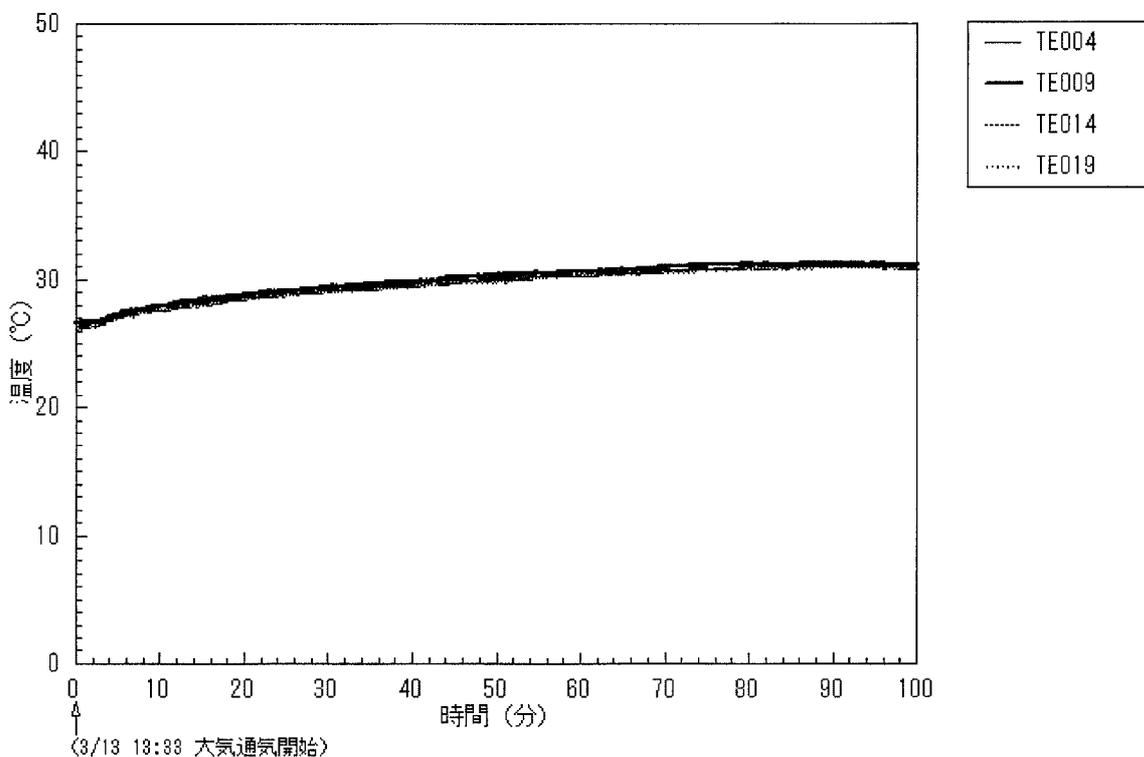


図 35 Run-F9-1 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対）

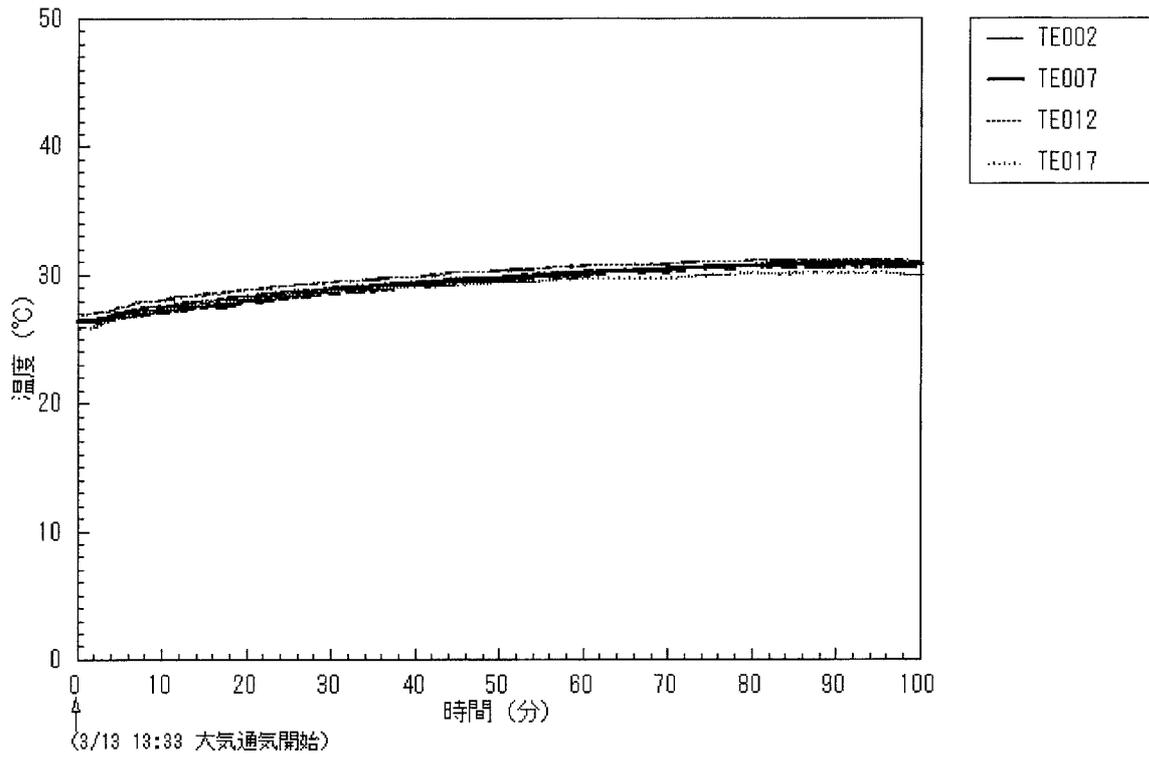


図 36 Run-F9-1 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対）

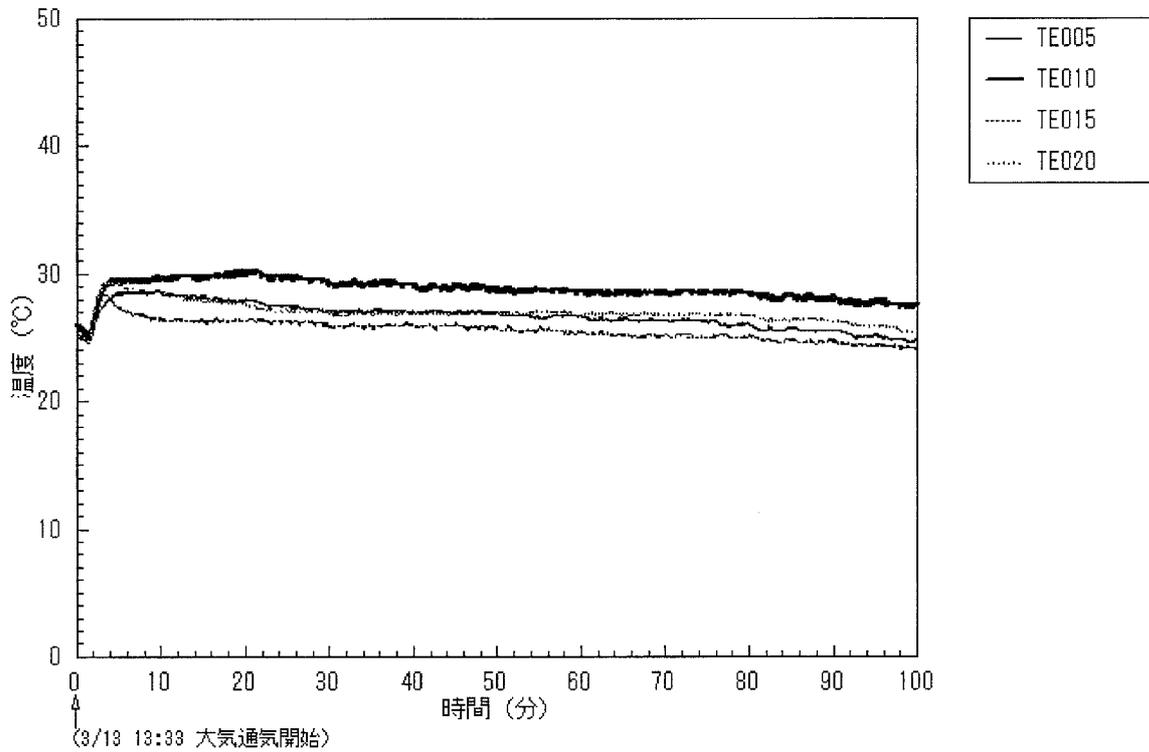


図 37 Run-F9-1 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対）

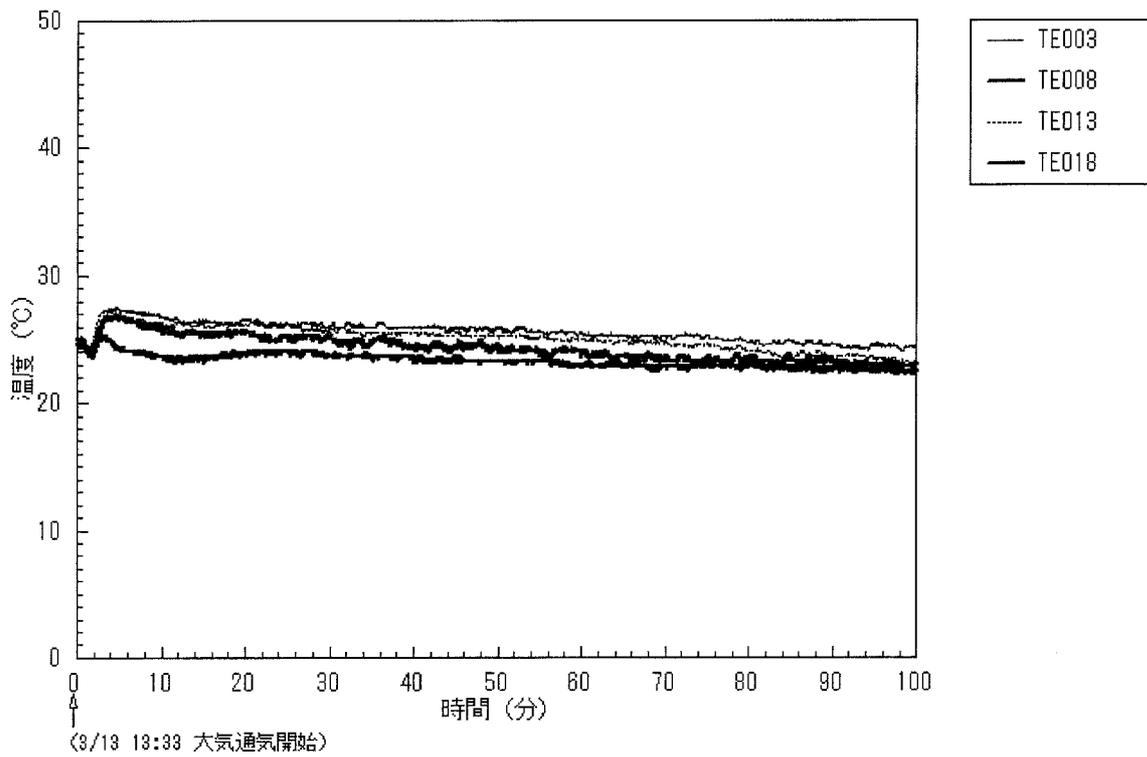


図 38 Run-F9-1 安定化確認時の燃烧残渣（燃烧皿表空間）温度変化  
（燃烧皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対）

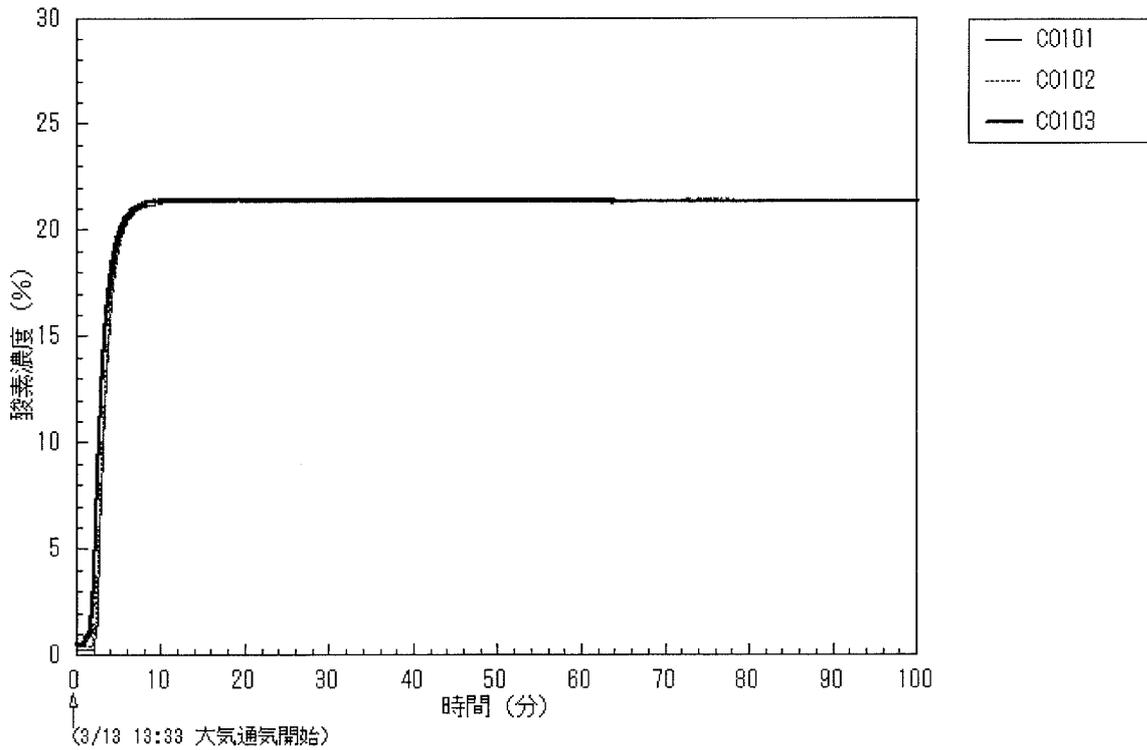


図 39 Run-F9-1 安定化確認時の FRAT-1 容器内酸素濃度変化

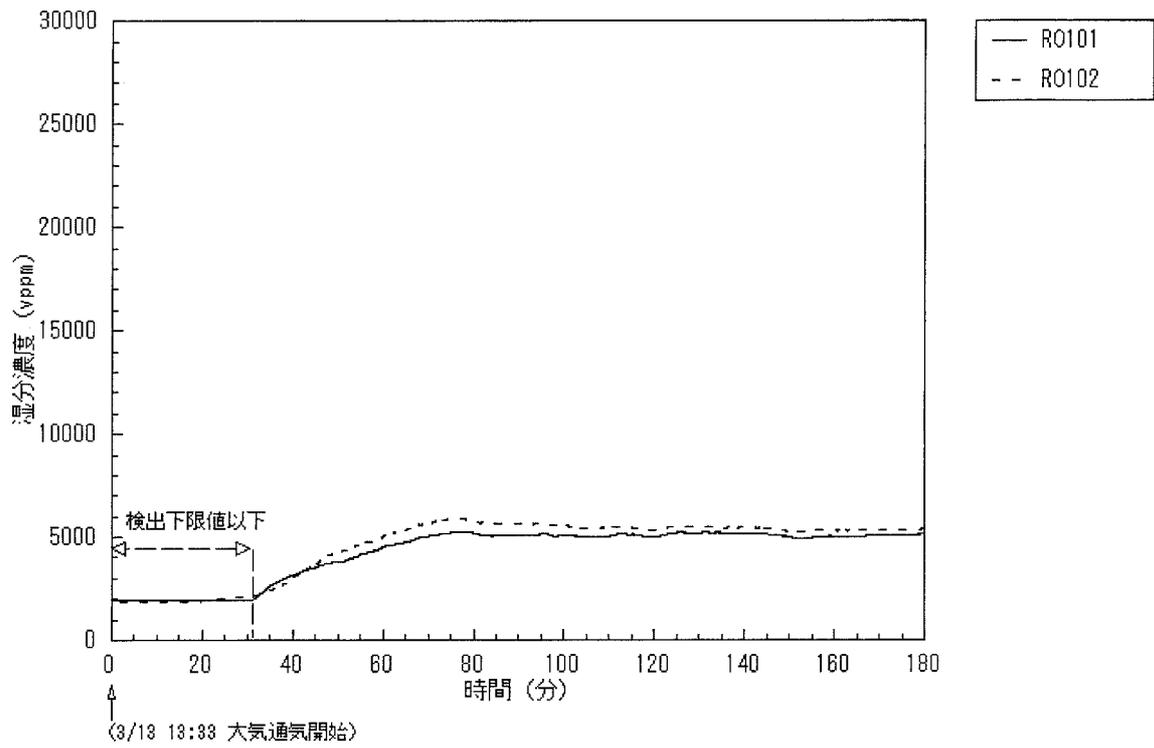


図 40 Run-F9-1 安定化確認時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化

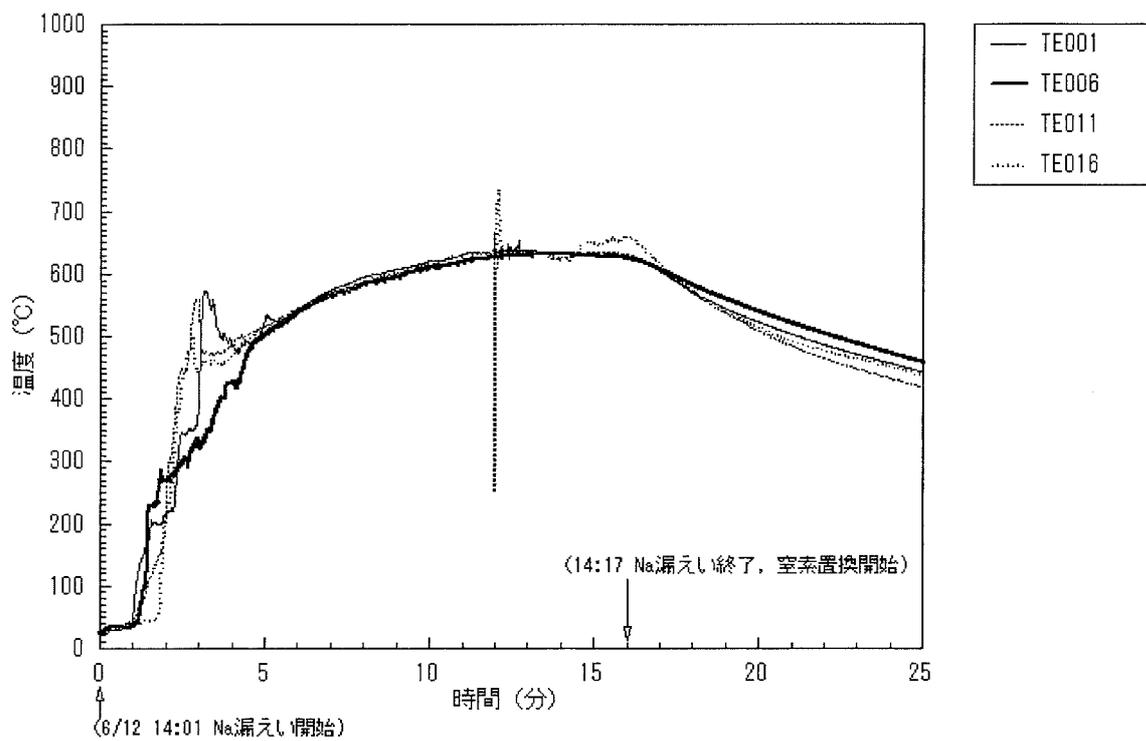


図 41 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

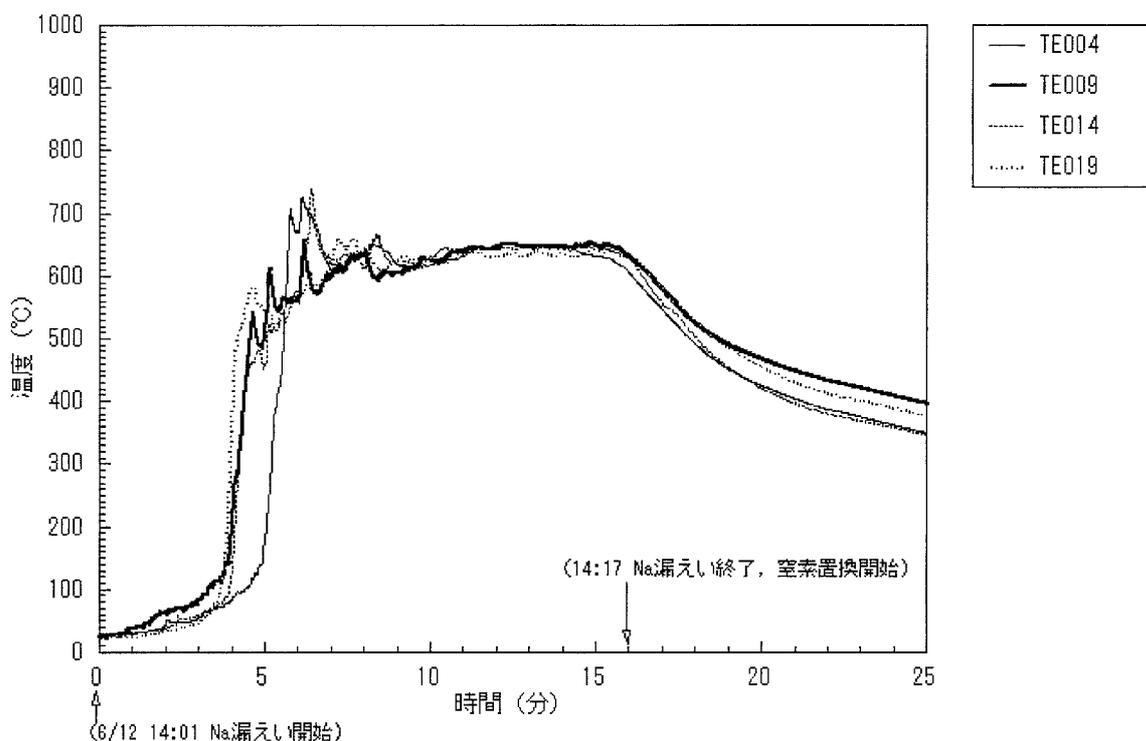


図 42 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対)

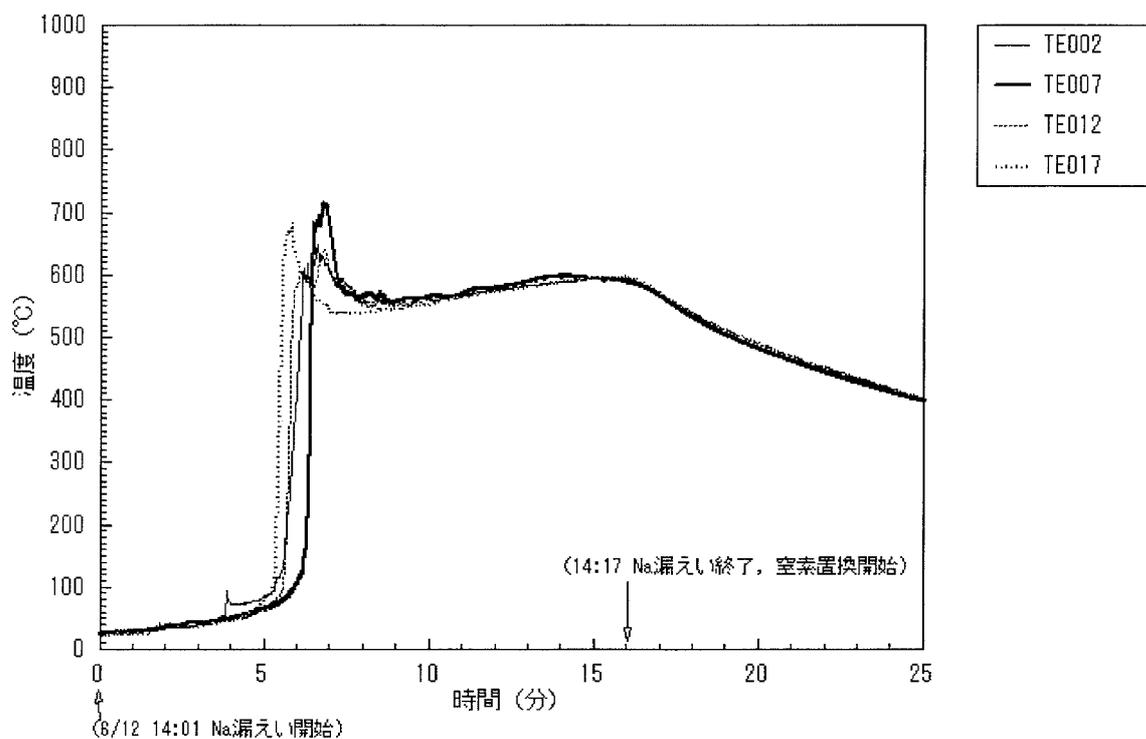


図 43 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

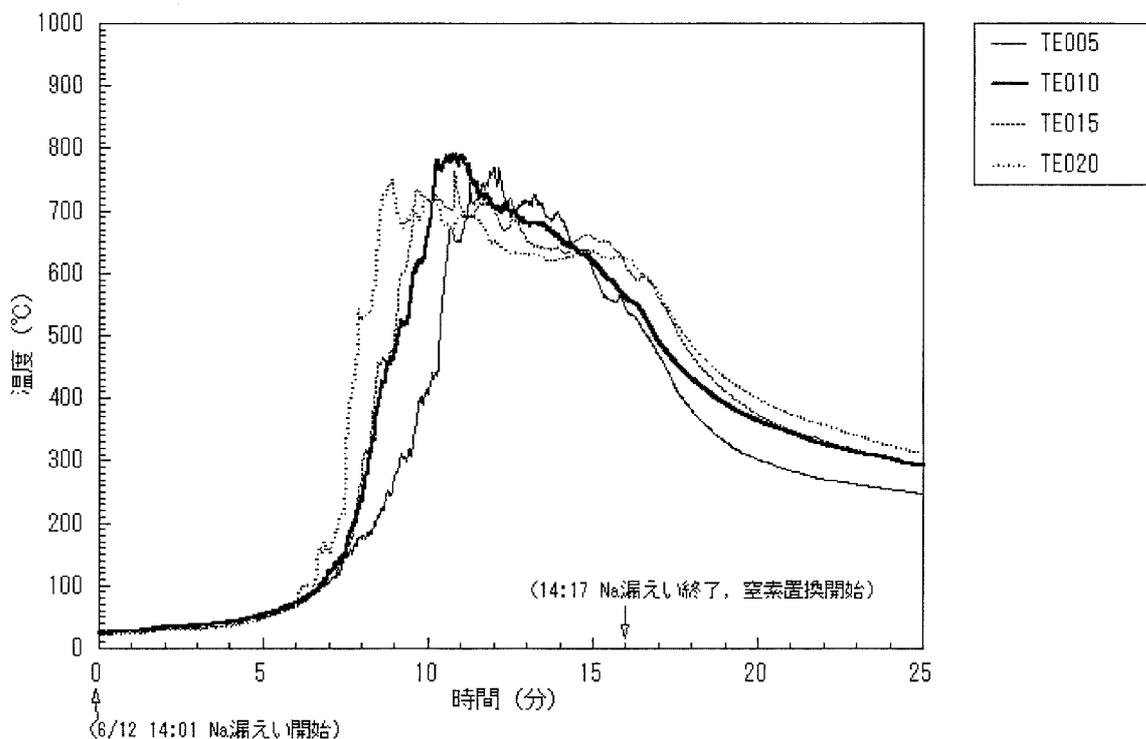


図 44 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対)

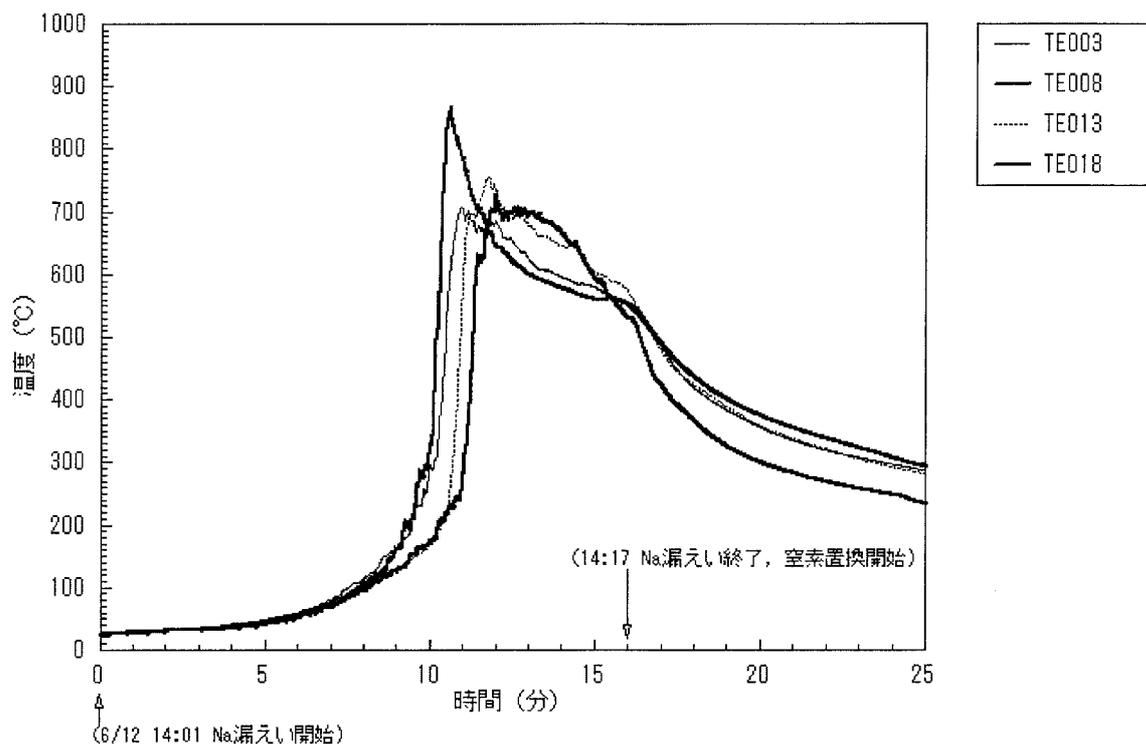


図 45 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿表面空間の温度変化  
(燃焼皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

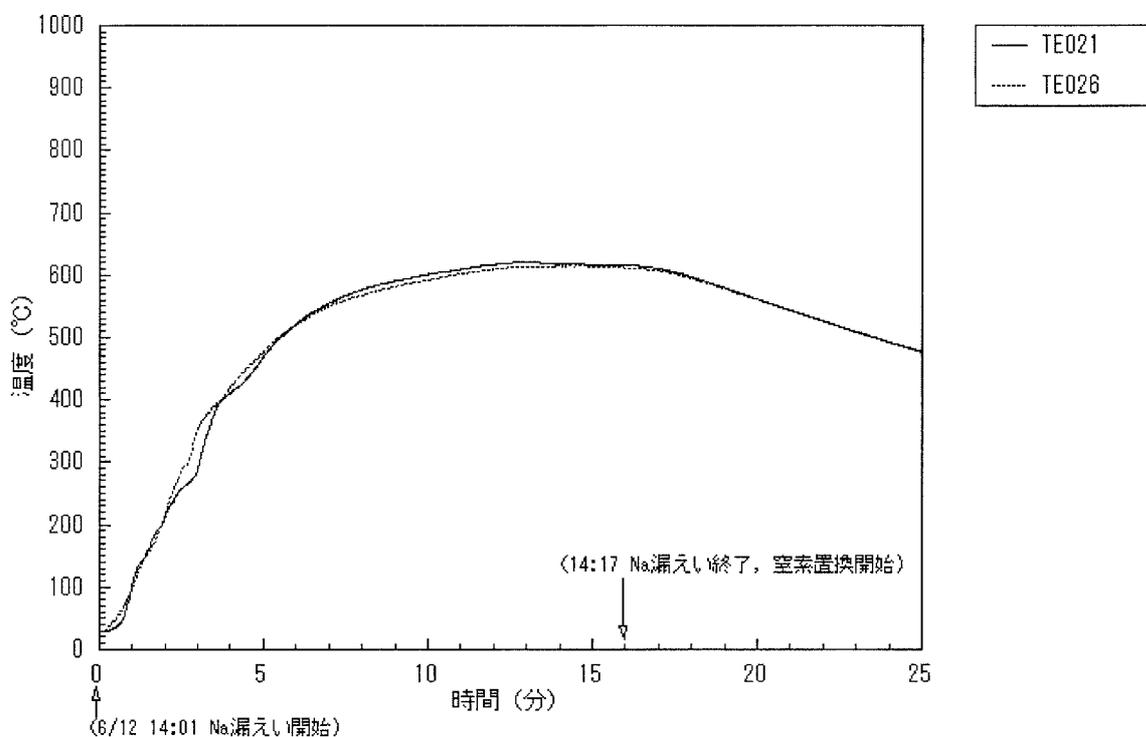


図 46 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

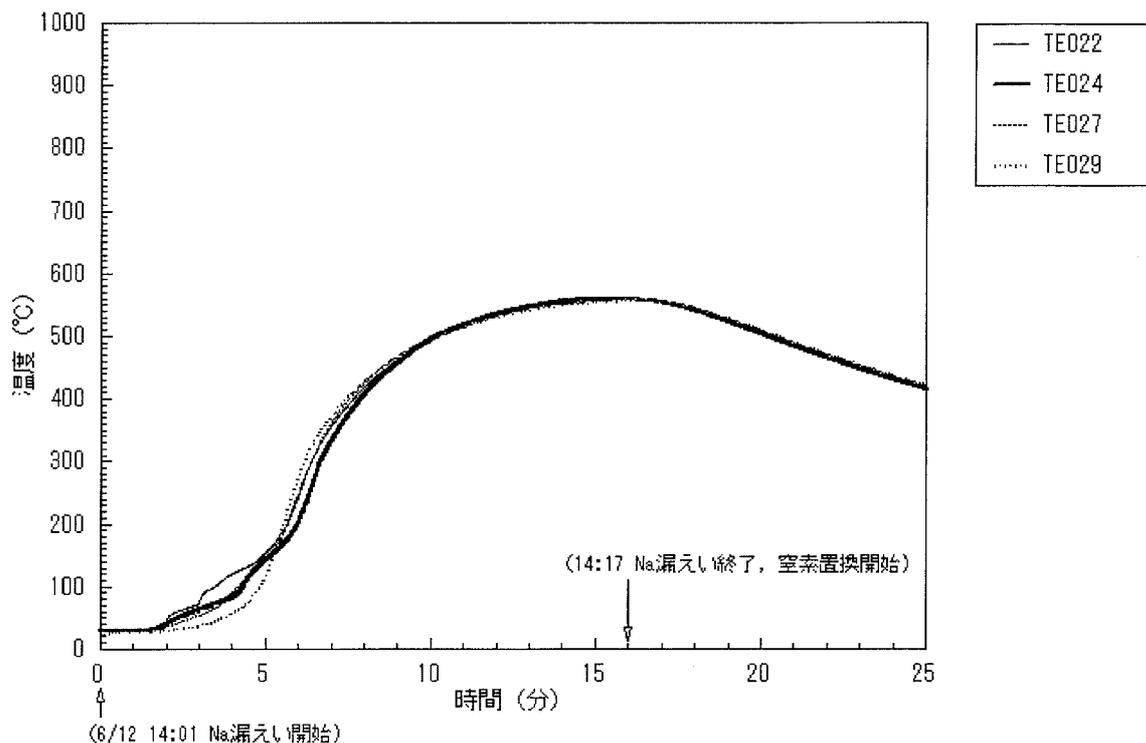


図 47 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

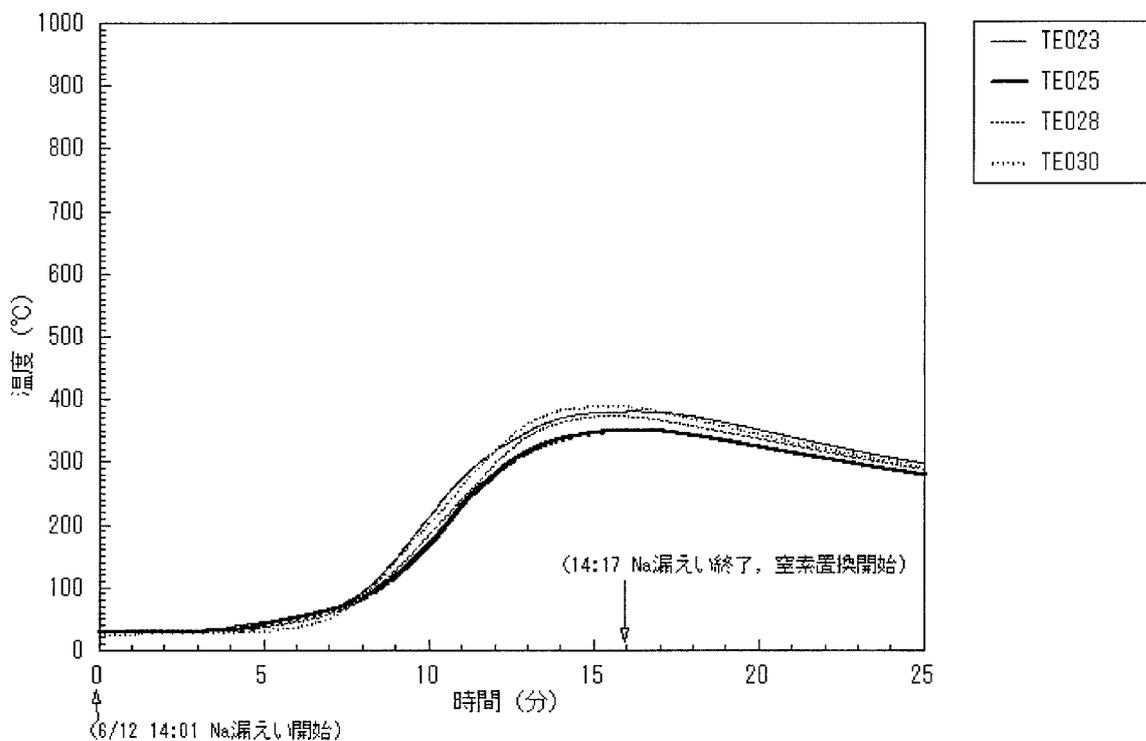


図 48 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の燃焼皿裏面の温度変化  
(燃焼皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

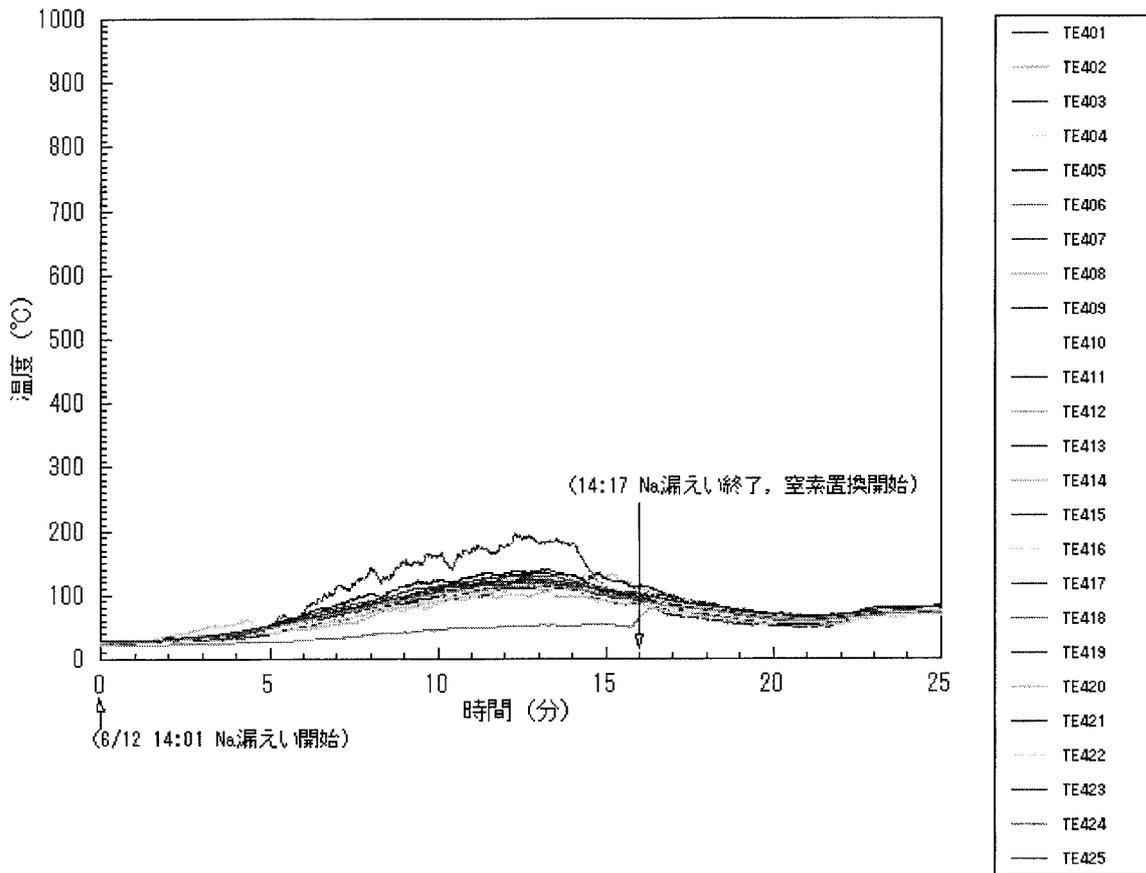


図 49 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時のガス空間温度変化

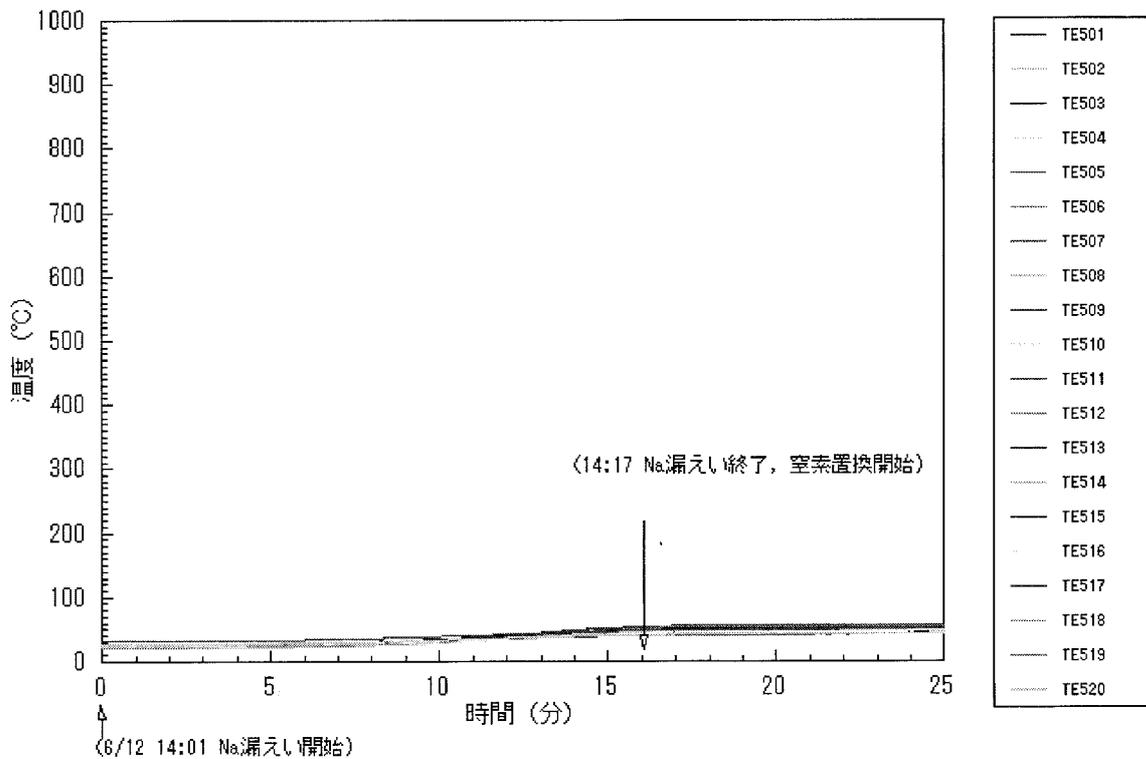


図 50 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時のFRAT-1 容器壁温度変化

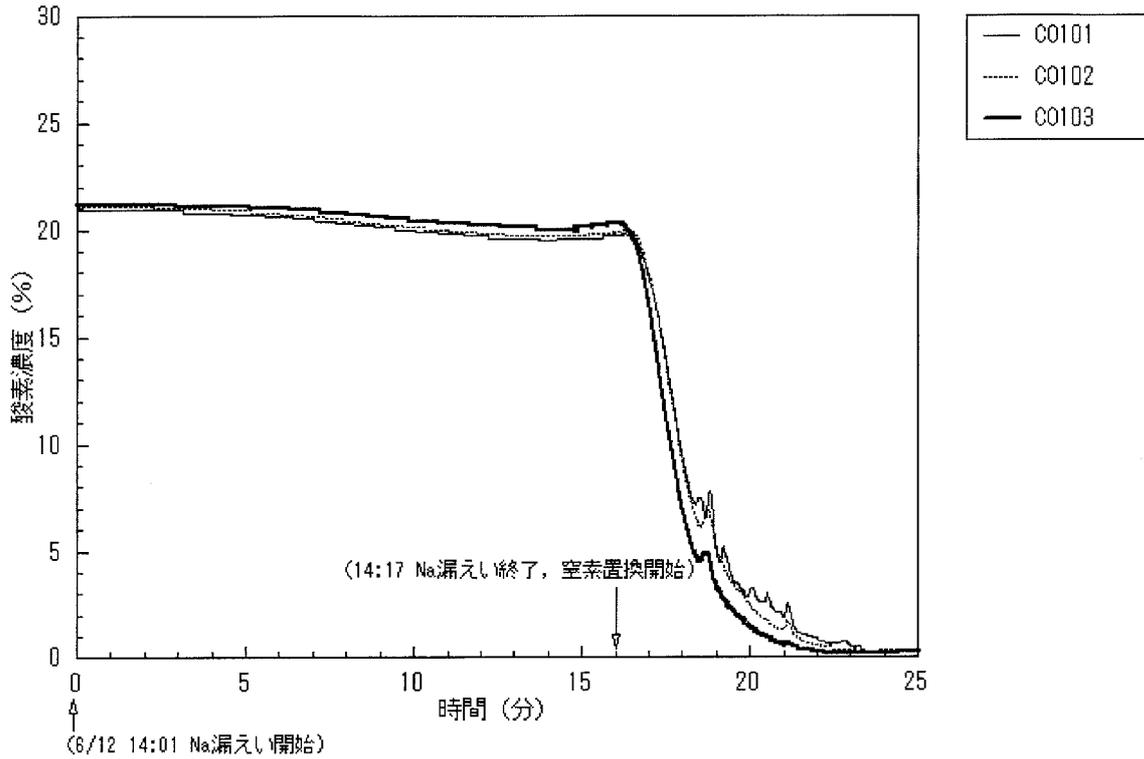


図 51 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の FRAT-1 容器内酸素濃度変化

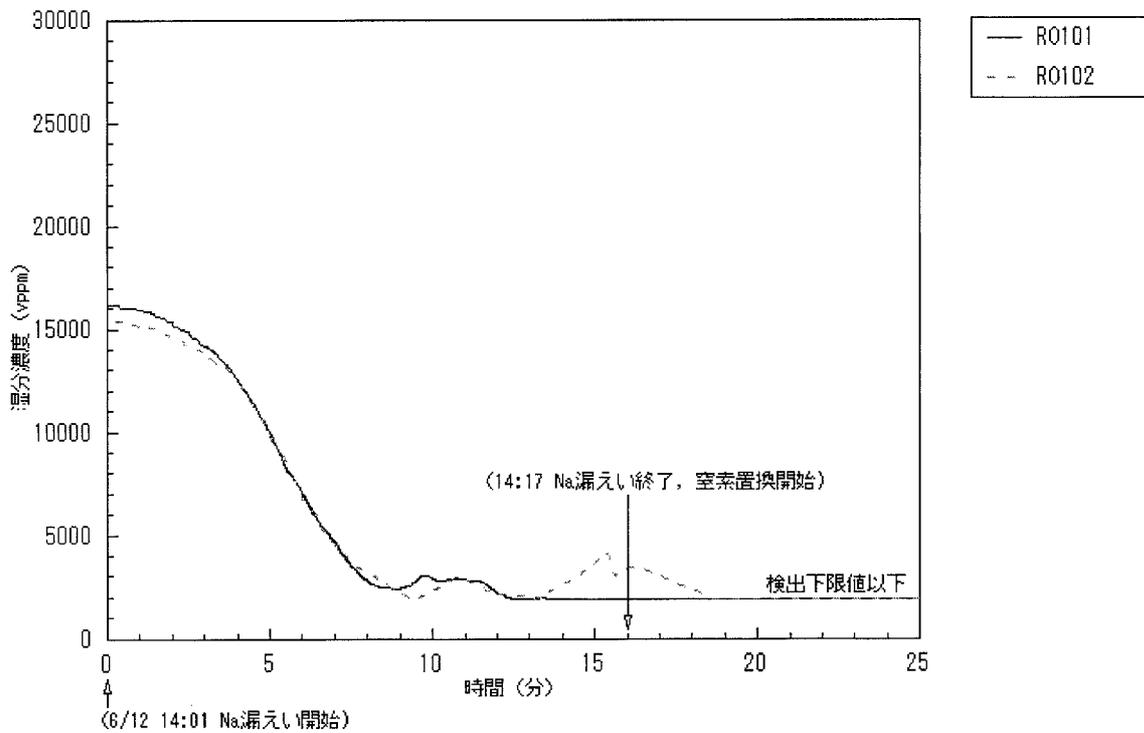


図 52 Run-F9-2 ナトリウム漏えい燃焼時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化

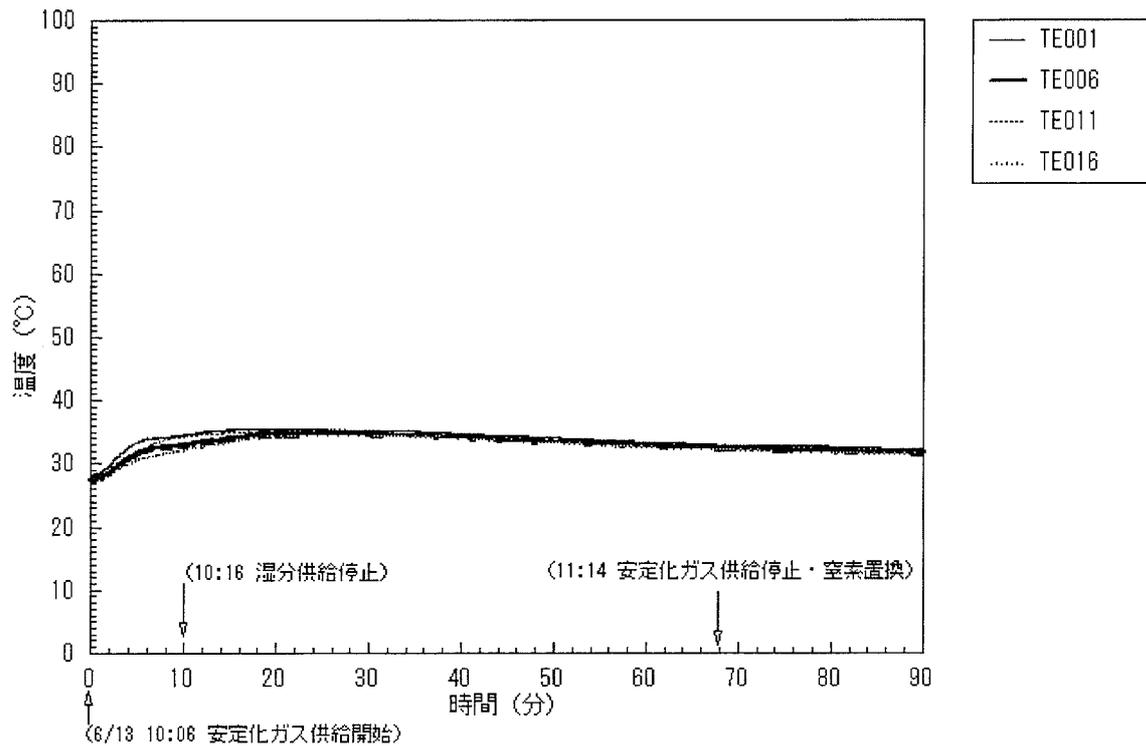


図 53 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対)

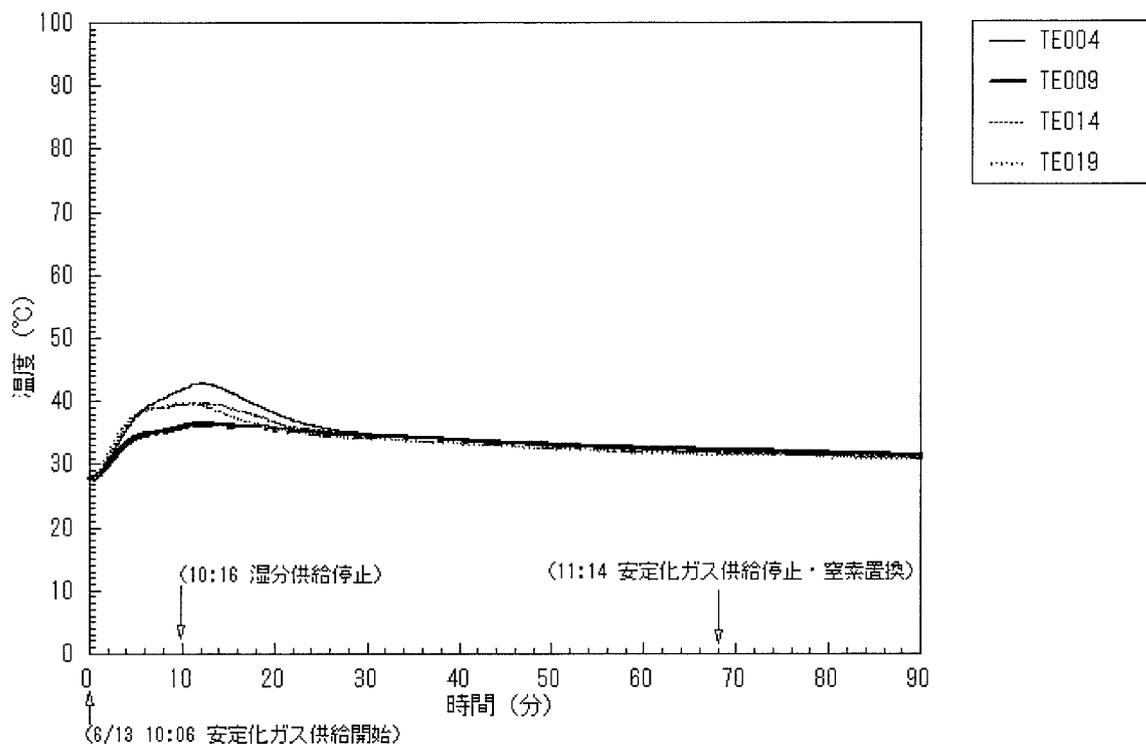


図 54 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対)

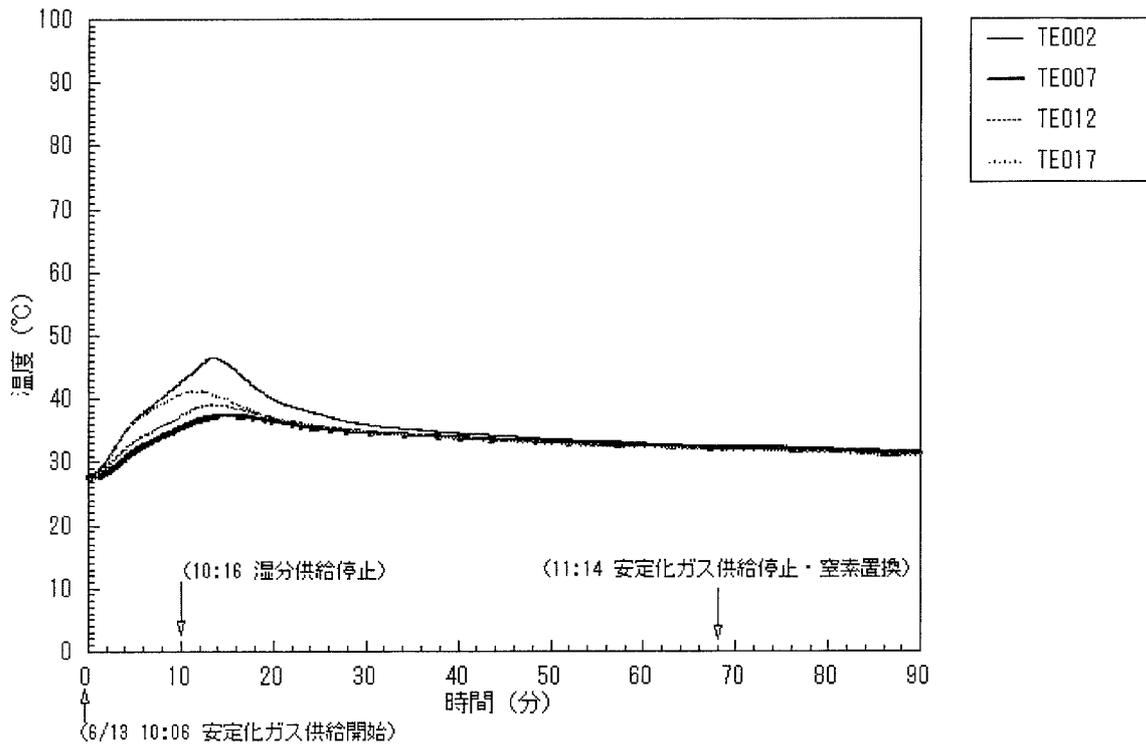


図 55 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対)

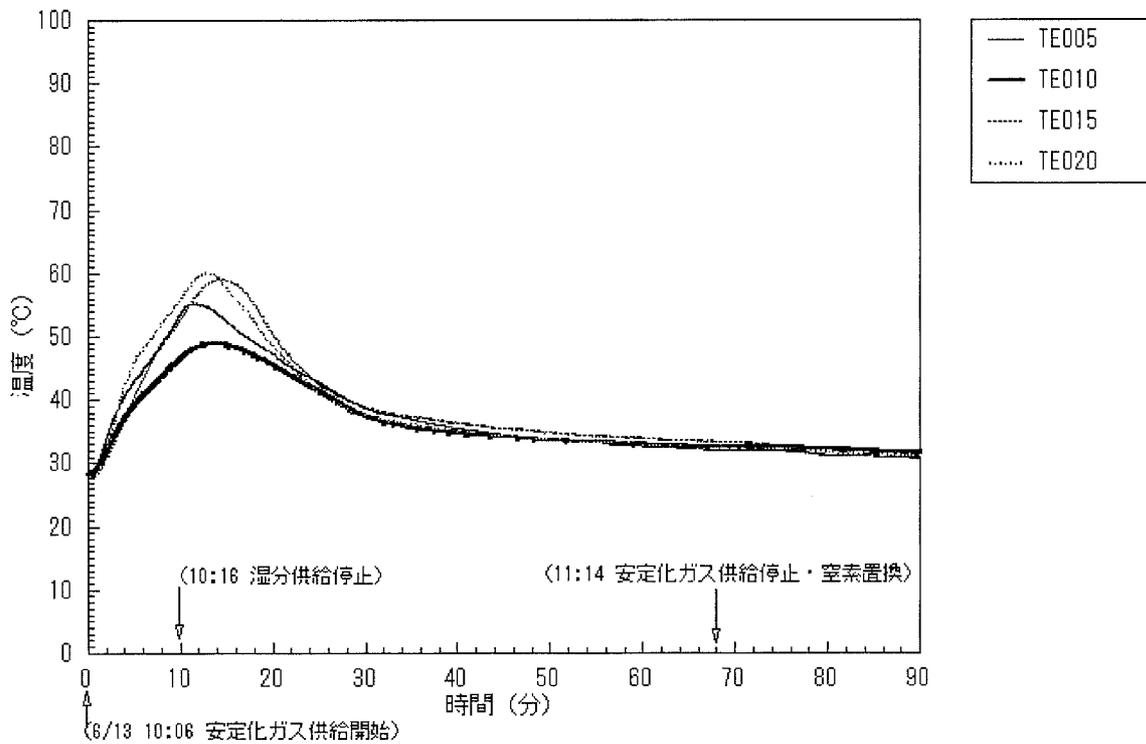


図 56 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対)

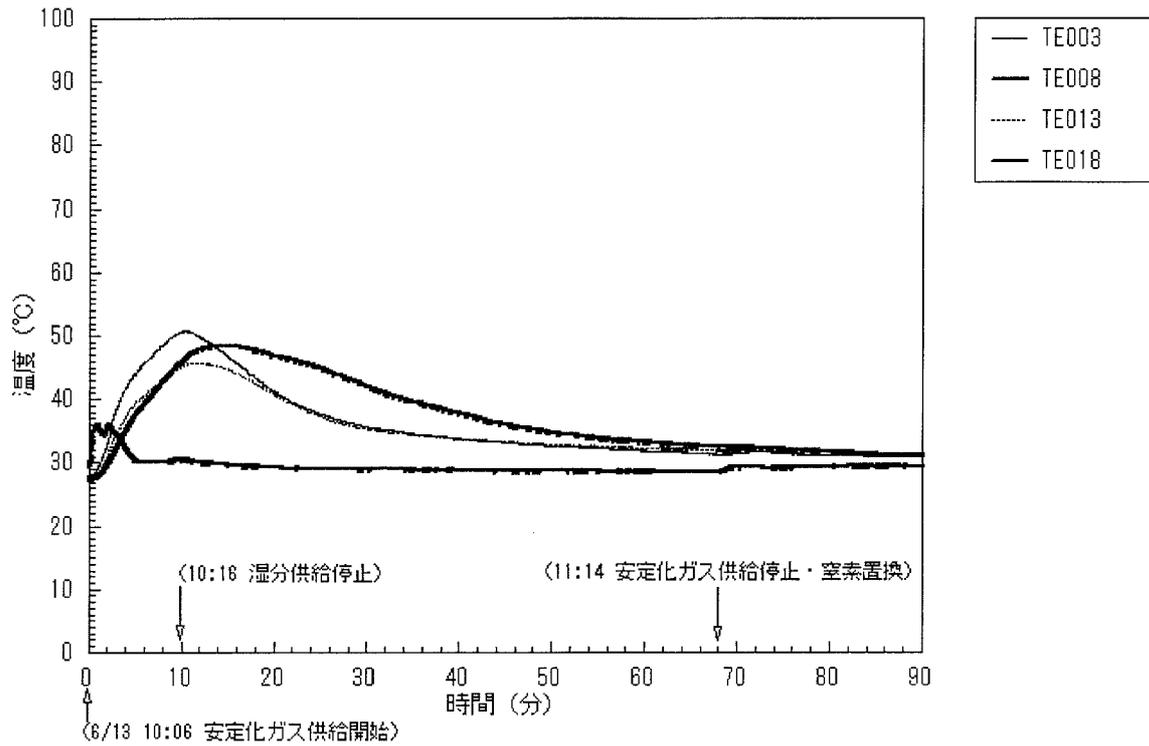


図 57 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿表面空間の温度変化  
(燃烧皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対)

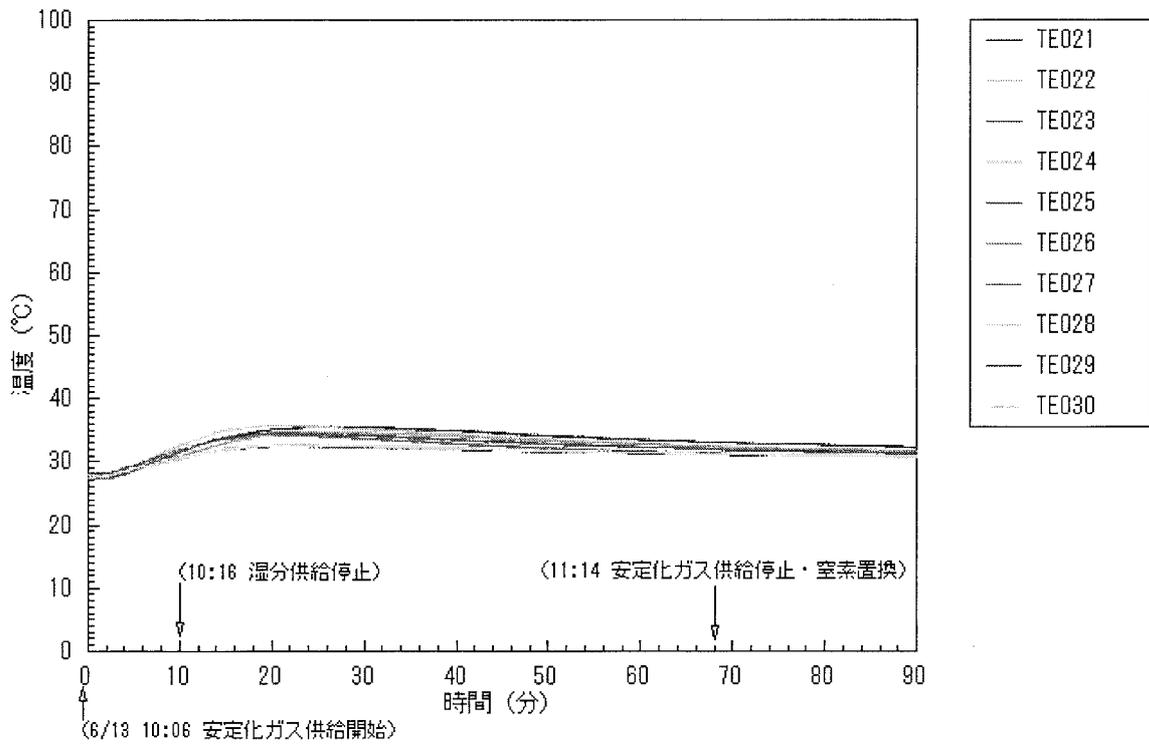


図 58 Run-F9-2 燃烧残渣安定化反応時の燃烧皿裏面の温度変化

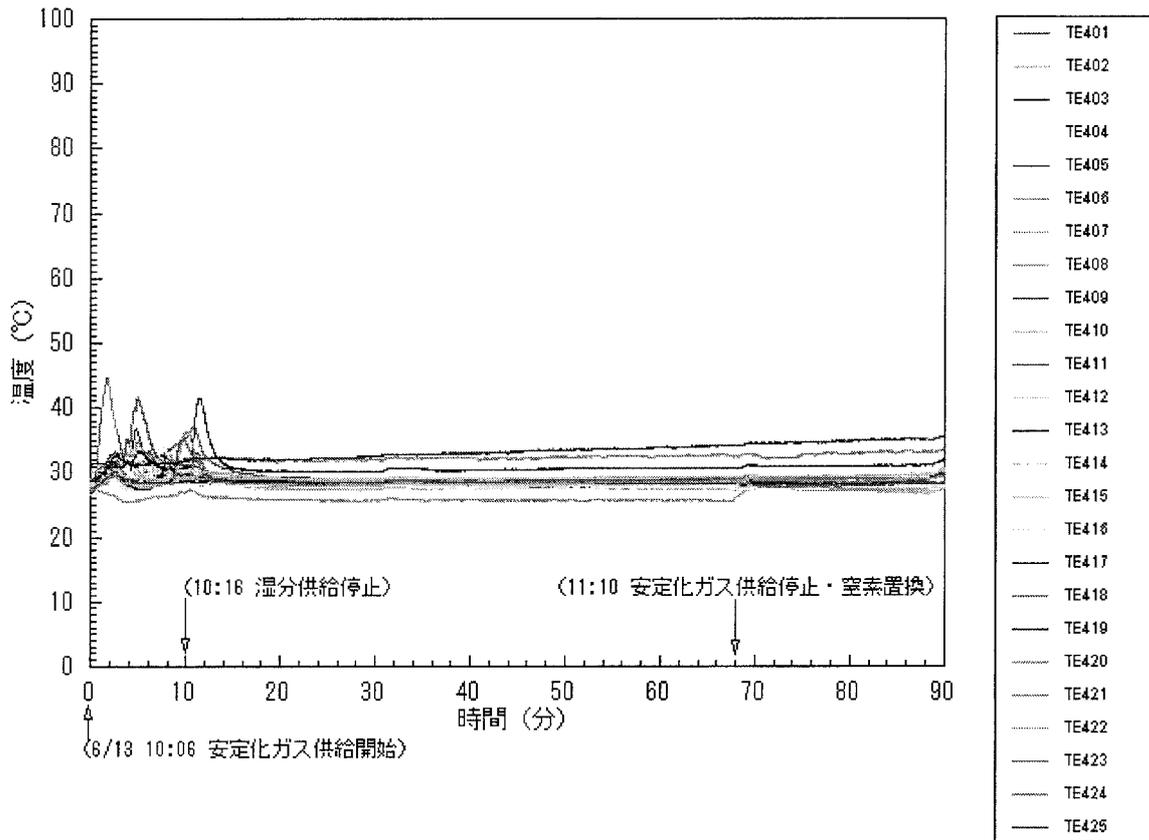


図 59 Run-F9-2 燃焼残渣安定化反応時のガス空間の温度変化

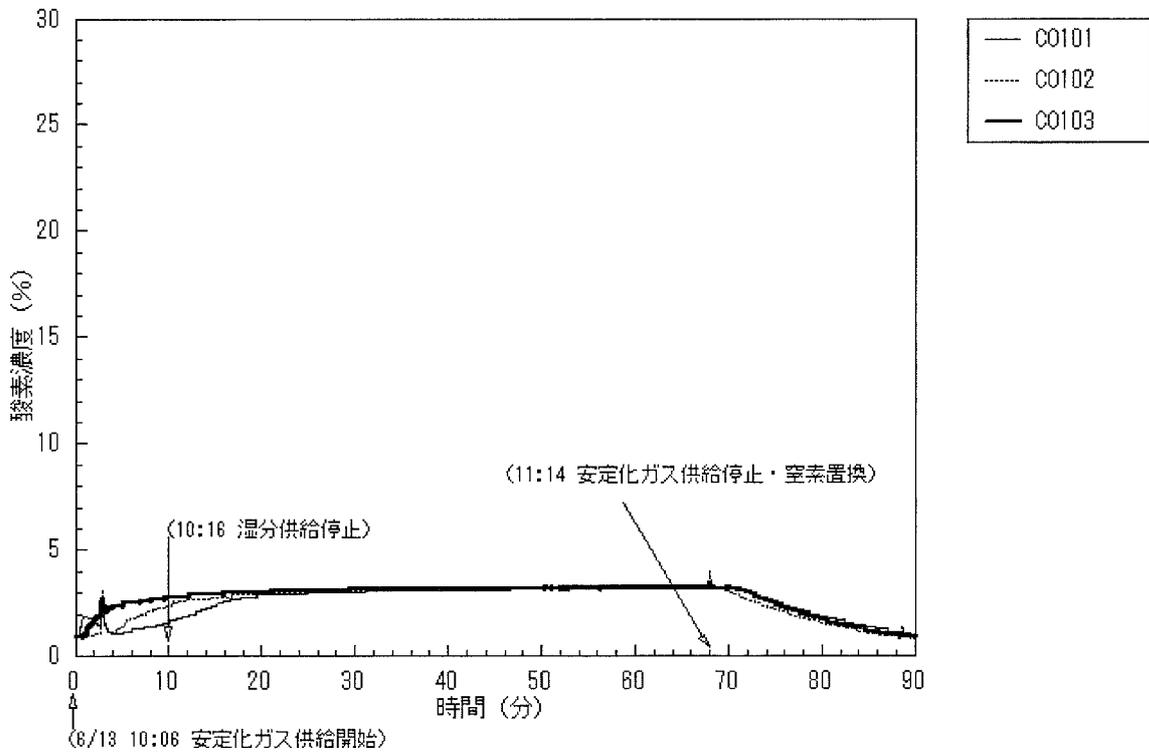


図 60 Run-F9-2 燃焼残渣安定化反応時のFRAT-1 容器内酸素濃度変化

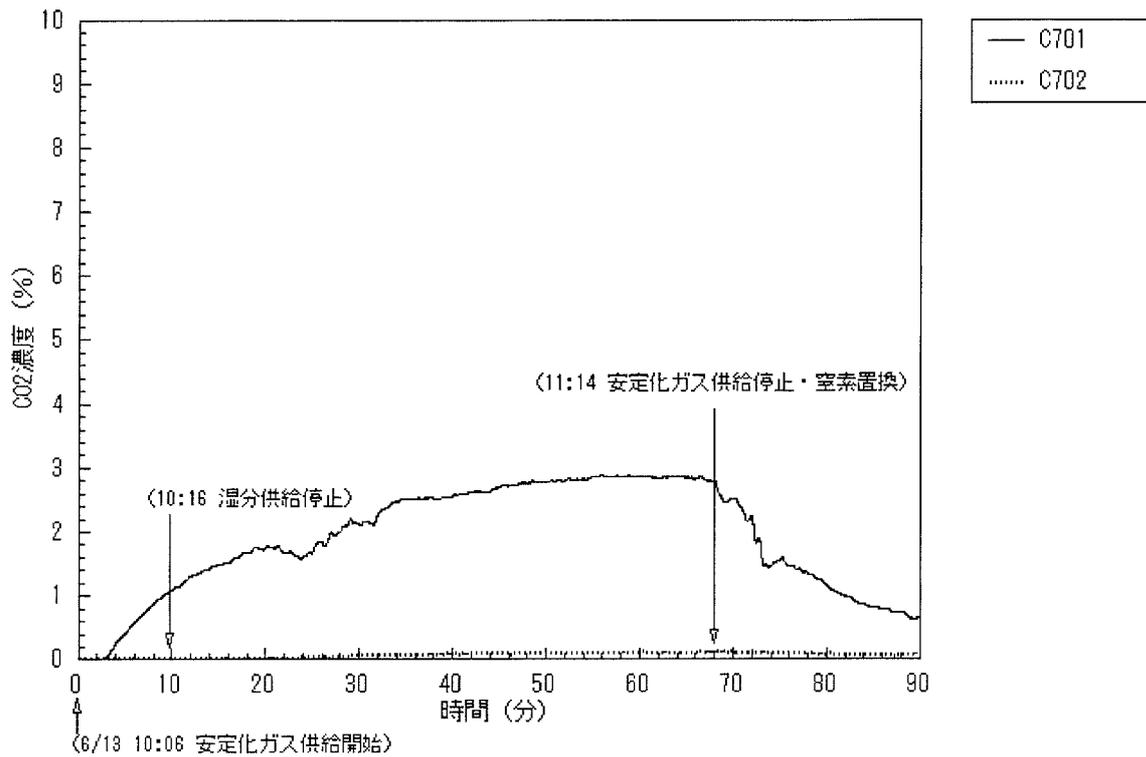


図 61 Run-F9-1 燃焼残渣安定化反応時の FRAT-1 容器内炭酸ガス (CO<sub>2</sub>) 濃度変化

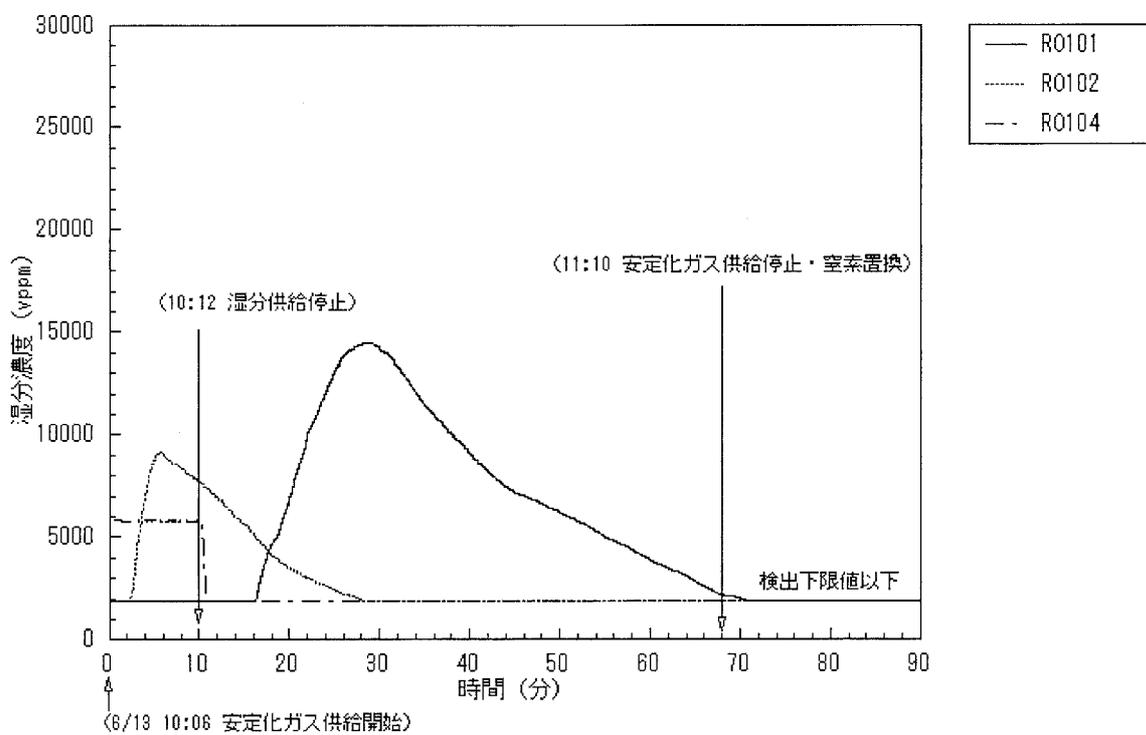


図 62 Run-F9-2 燃焼残渣安定化反応時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化

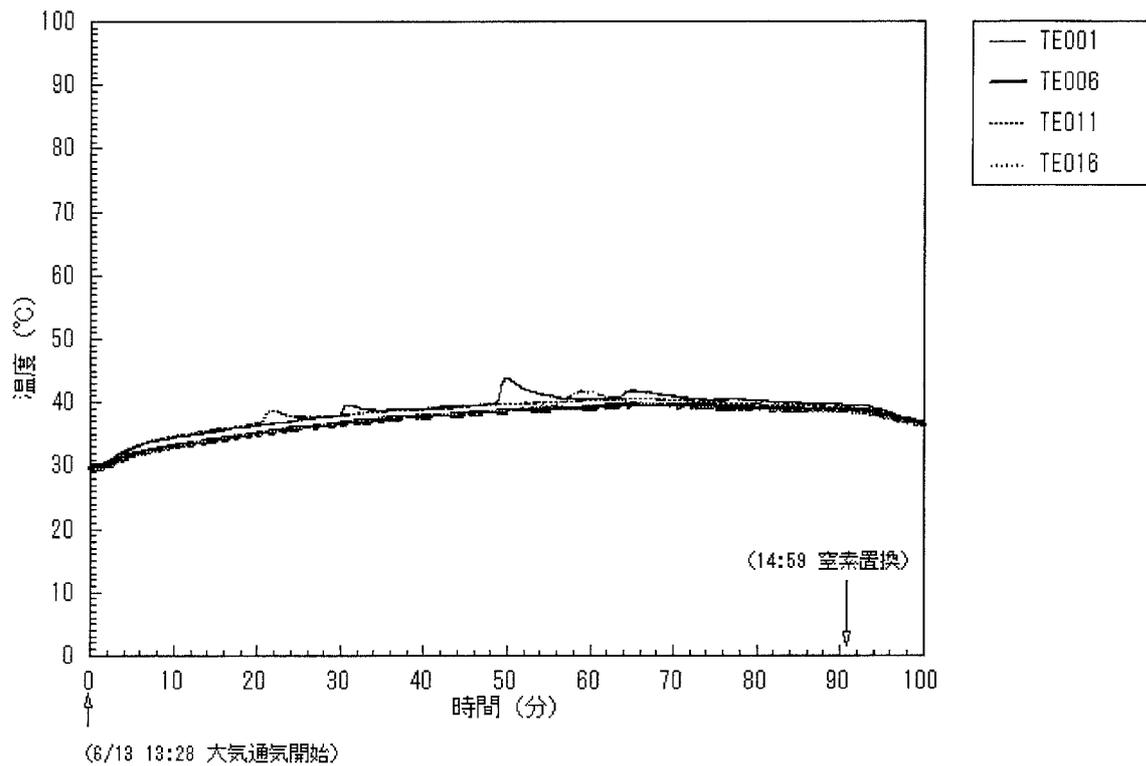


図 63 Run-F9-2 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 75mm の位置に設置した熱電対）

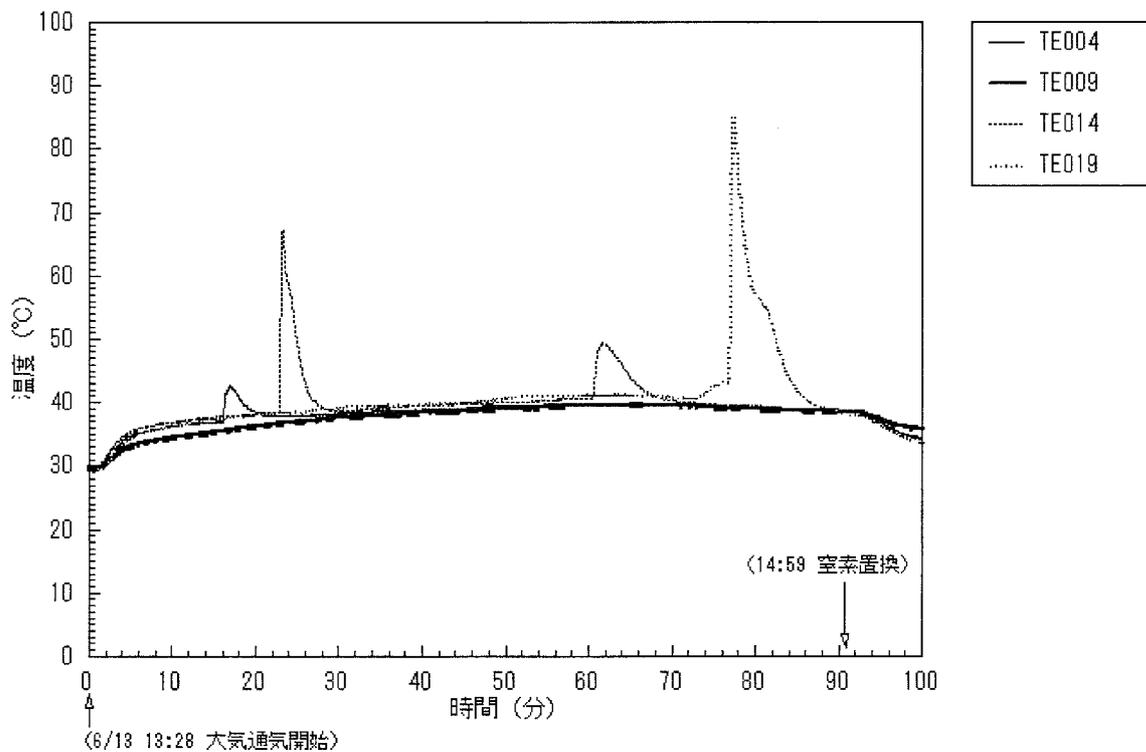


図 64 Run-F9-2 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 125mm の位置に設置した熱電対）

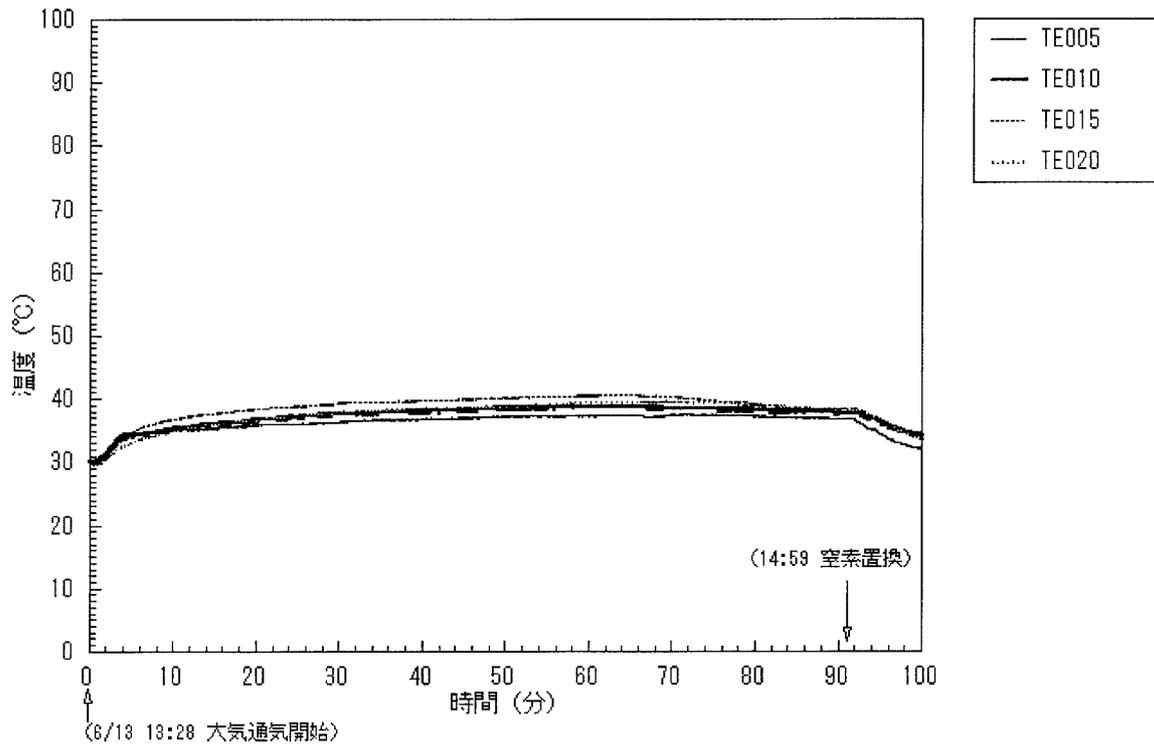


図 65 Run-F9-2 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 175mm の位置に設置した熱電対）

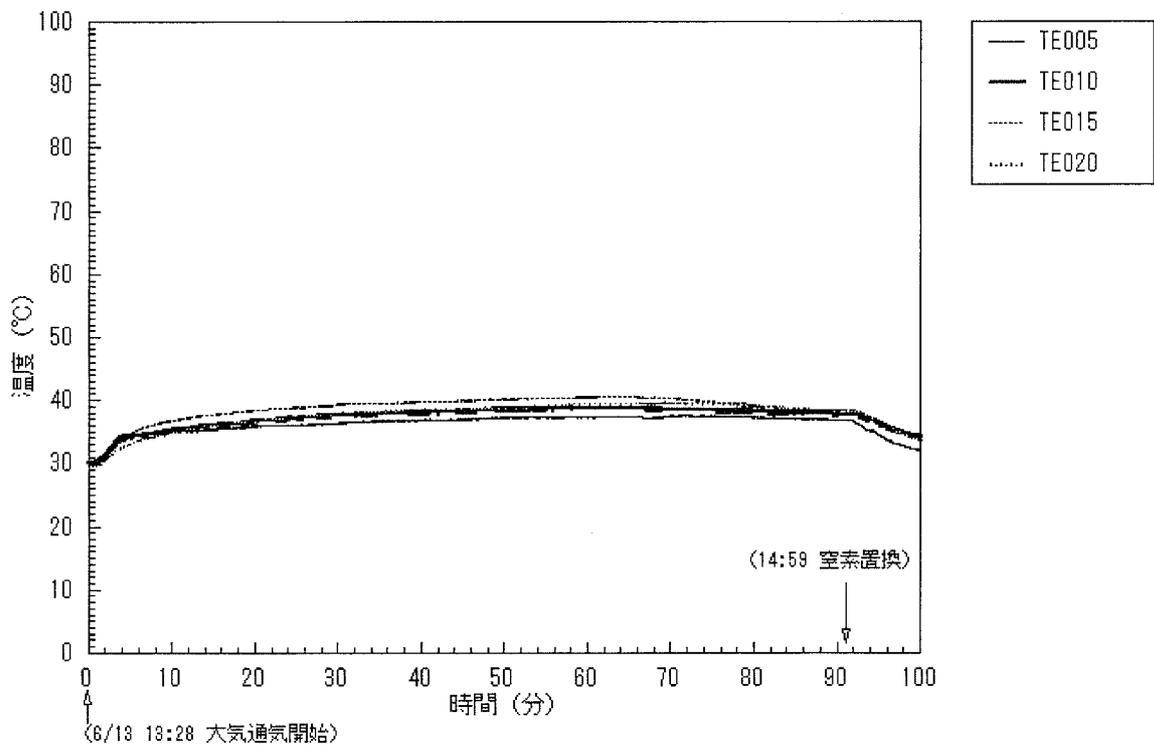


図 66 Run-F9-2 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
（燃焼皿中心から 225mm の位置に設置した熱電対）

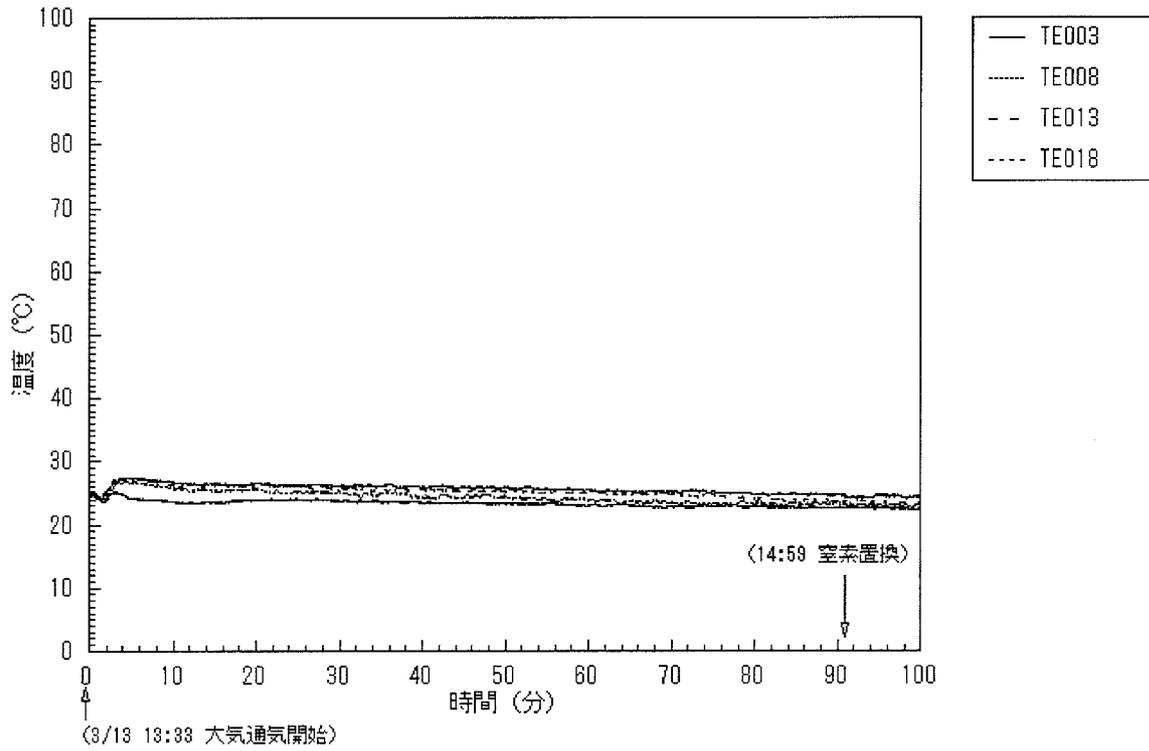


図 67 Run-F9-2 安定化確認時の燃焼残渣（燃焼皿表空間）温度変化  
 （燃焼皿中心から 275mm の位置に設置した熱電対）

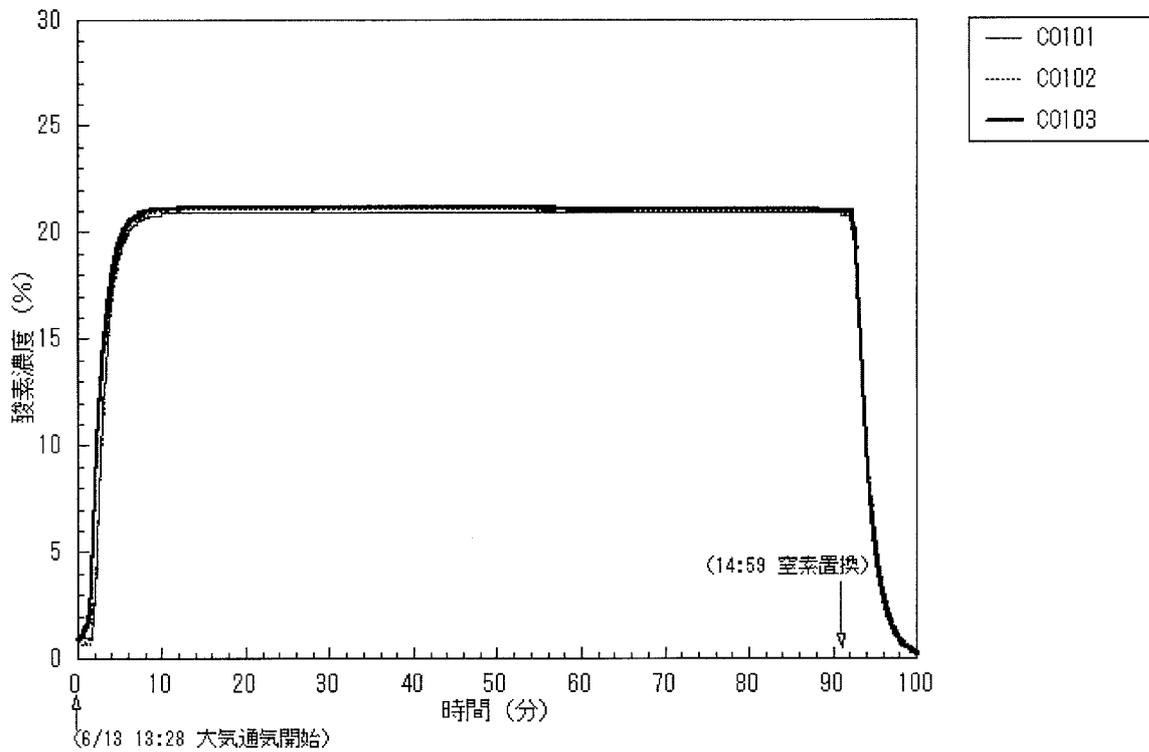


図 68 Run-F9-2 安定化確認時の FRAT-1 容器内酸素濃度変化

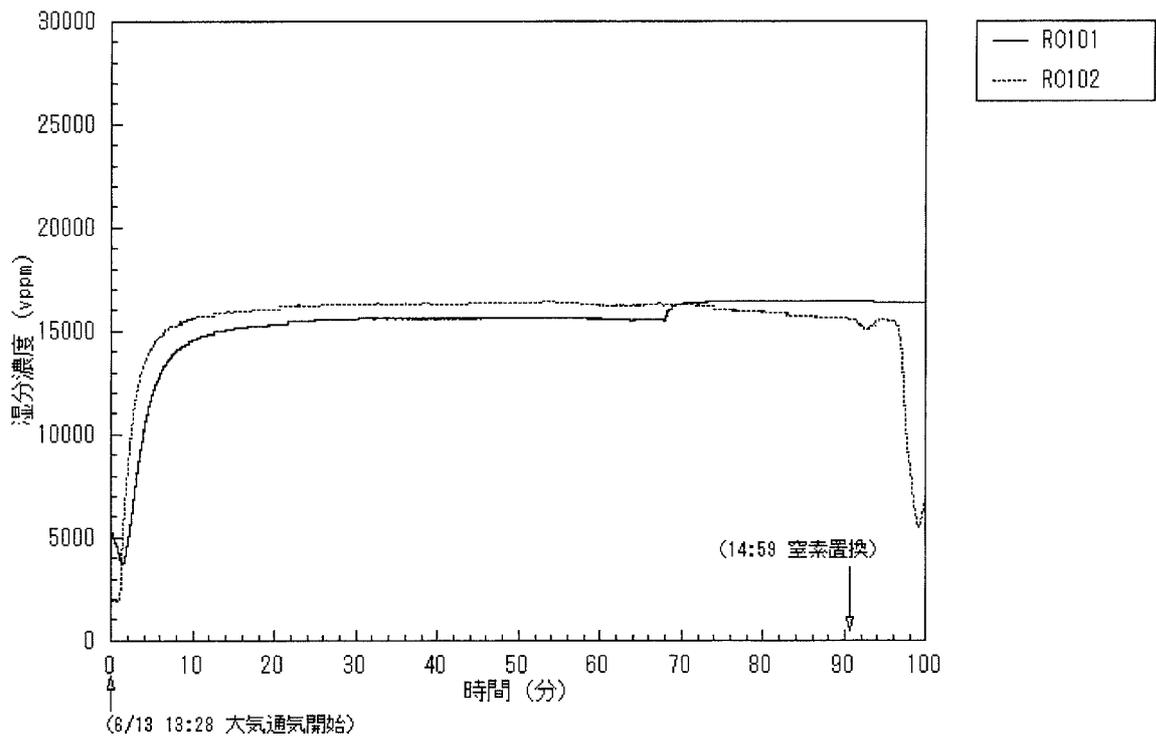


図 69 Run-F9-2 安定化確認時の FRAT-1 容器内湿分濃度変化



写真1 Run-F9-2 安定化確認時の潮解液により部分的発火の様子



写真2 サンプル採取後の燃焼残渣の写真 (Run-F9-1)