

ナトリウム再着火挙動実験

(研究報告書)

1999年10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。

〒319-1194 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

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 319-1194,
Japan.

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
1999

ナトリウム再着火挙動実験 (研究報告書)

大野 修司^{*}, 石川 浩康^{**}, 加藤 一憲^{***}
宮原 信哉^{*}, 荒 邦章^{****}

要 旨

プール状の燃焼ナトリウムを窒素で消火すると、未燃焼ナトリウムを含む燃焼生成物は常温においても空気雰囲気中で再着火する可能性がある。本実験研究はこの再着火が生じる原因を解明し再着火防止策を提示することを目的として行ったものである。

内径70mm、長さ300mmの耐熱ガラス製容器内で約1gのナトリウムを燃焼させて、燃焼および消火雰囲気中の酸素と湿分および二酸化炭素の濃度をパラメータとした実験を実施した。現象の観察、再着火温度の測定、燃焼生成物の観察と分析を行った結果、以下の知見を得た。

- (1) 純窒素で消火した場合、常温(50℃)では再着火は生じなかった。しかし、消火用窒素に1%程度以上の酸素が混入した場合に常温で再着火が生じた。
- (2) 酸素が混入した窒素で消火した場合でも、冷却後に湿分と二酸化炭素を用いて燃焼生成物を安定化すると常温での再着火防止効果が認められた。
- (3) 燃焼生成物の化学分析結果は Na_2O が主体であり、他に条件により NaOH 、 Na_2CO_3 、 Na_2O_2 が認められたが、他の特異な化合物は認められなかった。これから、再着火の原因は消火後の燃焼生成物である Na_2O を多く含んだ灰白色の樹氷状突起に起因すると思われる。

* 大洗工学センター ナトリウム・安全工学試験部 プラント安全工学グループ

** 大洗工学センター 現在、システム技術開発部 FBRシステムグループ

*** 原子力技術株式会社

**** 大洗工学センター ナトリウム・安全工学試験部 原子炉工学グループ

Experimental Study of Sodium Reignition Behavior

Shuji Ohno*, Hiroyasu Ishikawa**,
Kazunori Katoh***, Shinya Miyahara*,
Kuniaki Ara***

Abstract

Reaction residue of sodium combustion has possibility of reignition in an air atmosphere even at 50deg-C when the sodium pool fire was extinguished by nitrogen (N₂) gas. Thus we carried out an experimental study of this behavior for the purpose to clarify the cause of the reignition and to make a suggestion for a preventive measure.

The sodium burning and extinguishing experiments were performed changing fraction of oxygen (O₂), carbon-dioxide (CO₂) and humidity in the atmosphere, using 1g sodium and a glass-made chamber of 70mm inner diameter and 300mm length. By the observation of phenomena, measurement of reignition temperature, and analyses of reaction residue, the following results and conclusions were obtained.

- i) When the burning was distinguished by pure N₂ gas, reignition did not occur at 50deg-C. However, reignition occurred at 50deg-C when the distinguishing N₂ gas contained over 1% O₂.
- ii) Reignition temperature became higher by supplying humidity and CO₂ after cooling down the residue, even when the distinguishing N₂ gas contained O₂.
- iii) The reaction residue consisted mainly of Na₂O and Na, partly of NaOH, Na₂CO₃, and Na₂O₂ depending on the experimental condition. No peculiar compound was detected. The reignition might be attributed to the sharply projecting-shaped gray-white-colored reaction products which contains Na₂O.

* Plant Safety Engineering Group, Sodium and Safety Engineering Division, OEC

** FBR System Design Group, System Engineering Technology Division, OEC

*** Nuclear Technology and Engineering Company

**** Reactor Engineering Group, Sodium and Safety Engineering Division, OEC

目 次

1. はじめに	1
2. 実験装置と実験方法および実験条件	2
(1) 実験装置	2
(2) 実験方法	2
(3) 実験条件	3
3. 実験結果と考察	5
(1) 乾燥空気下で燃え尽きるまで燃焼させた場合 (ケース1)	5
(2) 純窒素で消火した場合 (ケース2)	5
(3) 消火用窒素に酸素が混入した場合 (ケース3および4)	6
(4) 消火用窒素に二酸化炭素を混入した場合 (ケース5~7)	6
(5) 燃焼雰囲気湿り空気とした場合 (ケース8および9)	7
(6) 常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合 (ケース10)	7
4. まとめ	9
5. 謝辞	10
6. 参考文献	11
APPENDIX 各実験ケースにおける加熱ブロック、燃焼皿およびガス空間の 温度推移の測定結果	37

表リスト

表-1	使用したガスの仕様	12
表-2	実験条件と再着火温度および分析結果	13

図リスト

図-1	Na燃焼窒素消火試験装置	14
図-2	Na燃焼窒素消火実験の手順	15
図-3	Na燃焼窒素消火実験の手順(常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合)	16
図-4	ナトリウム温度の推移(ケース1)	17
図-5	ナトリウム温度の推移(ケース2)	18
図-6	ナトリウム温度の推移(ケース3)	19
図-7	ナトリウム温度の推移(ケース4)	20
図-8	ナトリウム温度の推移(ケース5)	21
図-9	ナトリウム温度の推移(ケース6)	22
図-10	ナトリウム温度の推移(ケース7)	23
図-11	ナトリウム温度の推移(ケース8)	24
図-12	ナトリウム温度の推移(ケース9)	25
図-13	ナトリウム温度の推移(ケース10)	26
図A-1	加熱ブロック温度の推移(ケース1)	38
図A-2	燃焼皿温度の推移(ケース1)	39
図A-3	ガス空間温度の推移(ケース1)	40
図A-4	加熱ブロック温度の推移(ケース2)	41
図A-5	燃焼皿温度の推移(ケース2)	42
図A-6	ガス空間温度の推移(ケース2)	43
図A-7	加熱ブロック温度の推移(ケース3)	44
図A-8	燃焼皿温度の推移(ケース3)	45
図A-9	ガス空間温度の推移(ケース3)	46
図A-10	加熱ブロック温度の推移(ケース4)	47
図A-11	燃焼皿温度の推移(ケース4)	48

図A-12	ガス空間温度の推移 (ケース4)	49
図A-13	加熱ブロック温度の推移 (ケース5)	50
図A-14	燃焼皿温度の推移 (ケース5)	51
図A-15	ガス空間温度の推移 (ケース5)	52
図A-16	加熱ブロック温度の推移 (ケース6)	53
図A-17	燃焼皿温度の推移 (ケース6)	54
図A-18	ガス空間温度の推移 (ケース6)	55
図A-19	加熱ブロック温度の推移 (ケース7)	56
図A-20	燃焼皿温度の推移 (ケース7)	57
図A-21	ガス空間温度の推移 (ケース7)	58
図A-22	加熱ブロック温度の推移 (ケース8)	59
図A-23	燃焼皿温度の推移 (ケース8)	60
図A-24	ガス空間温度の推移 (ケース8)	61
図A-25	加熱ブロック温度の推移 (ケース9)	62
図A-26	燃焼皿温度の推移 (ケース9)	63
図A-27	ガス空間温度の推移 (ケース9)	64
図A-28	加熱ブロック温度の推移 (ケース10)	65
図A-29	燃焼皿温度の推移 (ケース10)	66
図A-30	ガス空間温度の推移 (ケース10)	67

写真リスト

写真-1	実験開始前の加熱処理および実験開始後の燃焼させた時の状況	27
写真-2	乾燥空気下で燃え尽きるまで燃焼させた時の状況 (ケース1)	29
写真-3	純窒素または酸素を含む窒素で消火後、乾燥空気下で再着火させた時の状況 (ケース2, 3, 4)	31
写真-4	二酸化炭素を混合した窒素で消火後、乾燥空気下で再着火させた時の状況 (ケース5, 6, 7)	33
写真-5	湿り空気で燃焼させた場合と乾燥空気下で燃焼後常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合の状況 (ケース8, 9, 10)	35

1. はじめに

液体金属ナトリウムを冷却材とする原子炉における空気雰囲気での冷却材漏洩の影響緩和の観点から、ナトリウム燃焼の消火に係わる研究が行われている。配管等の機器から漏出・燃焼したナトリウムの消火には、専用の消火剤を散布する方法¹⁾の他、窒素ガスを注入する方法^{1),2)}や漏出ナトリウムを貯留槽に導いて窒息消火する方法^{3),4)}が有効である。しかし、特に後者の二つの場合には、消火したナトリウムを回収、処理するために常温で空気雰囲気に再びさらした際に再着火する可能性があることが知られている^{2),5)}。例えば、ナトリウムの小規模のプール燃焼ではプール表面で樹氷状の燃焼生成物が形成され、これが燈芯のようになって燃焼するが、これを未燃焼ナトリウムが残る状態で窒素置換もしくは酸欠などにより窒息消火した場合、プール表面には樹氷状の燃焼生成物が残り、これらが常温においても空気雰囲気中で再着火する現象である。この原因については、燃焼生成物が樹氷状の特異な形状を示すことに起因するのか、何らかの活性な物質の生成に起因するのか明らかにされていない。

このため、本研究ではナトリウムの燃焼を窒素ガスで消火した場合に再着火の生じる条件を解明するとともに再着火防止策を提示することを目的として、ナトリウムを燃焼および消火させる雰囲気中の酸素と湿分および二酸化炭素の濃度をパラメータとした小規模実験を実施して、再着火の有無の確認ならびに再着火温度の測定を行った。また、再着火現象の原因を検討するために燃焼生成物の形状の観察、再着火時の着火挙動の観察、さらに生成物の化学分析を行った。

2. 実験装置と実験方法および実験条件

(1) 実験装置

使用した実験装置を図-1に示す。実験装置は、パイレックスガラス製の十字型円筒容器（内径70mm、厚み5mm、長さ300mm）、容器内に濃度調整したガスを供給するためのガス供給系および計測系から構成される。

容器内中央部には、ヒータ付きの円柱状加熱ブロック（外径約25mm、SUS304製）が上部フランジから懸垂設置してあり、その上部にナトリウムを燃焼させるための燃焼皿（内径16.5mm、深さ7mm、SUS304製）を載せた。また、容器側部から左右に突出した円筒部のうち、一方は熱電対と燃焼皿観察用CCDカメラの計測用管台として、もう一方は燃焼皿等の出し入れ用管台として利用した。後者にはさらに、内部をアルゴンガス雰囲気にすることが可能なグローブ付きのビニールバッグが取り付けられている。

ガス供給系には、空気、窒素および二酸化炭素の各ガスボンベが接続されており、条件によってそれぞれのガスを混合し所定の濃度と約20ℓ/minの流量に設定した後、湿分濃度調整器で湿分を加えて容器内に供給することができる。使用したガスのグレードは、空気は純ガスS、窒素は純ガスAで、露点はいずれも-80℃以下、二酸化炭素は純度99.9%以上の液化炭酸ガスで、露点は-60℃以下である。使用したガスの仕様をまとめて表-1に示す。調整したガスの濃度確認は、バッチ式でガスクロマトグラフにて行ない、湿分濃度については供給ラインに設置した露点計にてオンラインで測定した。

計測系については、容器内各部の温度測定用としてK型シース熱電対（シース径0.5mm、0.75級）を使用し、加熱ブロック、燃焼皿、燃焼皿内ナトリウム、燃焼皿上部空間ガスの温度変化をデータロガーに記録した。また、現象観察のため、容器内部にCCDカメラを設置して燃焼皿部分の様子をVTRに収録するとともに容器外部からもデジタルビデオカメラを用いて燃焼皿部分の様子を収録した。

(2) 実験方法

実験を開始するにあたっては、まず容器内部の湿分を除去するために加熱ブロックと燃焼皿を100℃以上に昇温してベーキングを行なう。次に温度を常温まで下げ、サイコロ状の固形ナトリウム約1gをビニールバッグ内から容器内の燃焼皿に

移し入れる。このナトリウムは、予め別途グローブボックス内で表面の酸化皮膜を削り取り重量を測定したものである。ナトリウムを一旦約600℃まで昇温して加熱処理した後、約500℃まで降温する。これら一連の操作は、容器内に窒素を供給しつつ行なった。

実験は、ナトリウム温度が約500℃になった時点で容器内への供給ガスを窒素から空気に切り替え、燃焼させることにより開始した。空気はケースによって乾燥空気または湿り空気（露点約18℃、絶対湿分濃度約20000vppm）とした。燃焼時間は10秒間としたが、これは予備実験で約1gのナトリウムが本実験体系では約40秒で燃え尽き、消火後の燃焼皿に十分な量の金属ナトリウムが残留していないと再着火が起こらないことから決定した。その後は、消火用ガスを90秒間供給し消火した。消火用ガスは窒素をベースとし、ケースによって酸素（1.5%または3%）と二酸化炭素（5%）を加えた。消火後（90秒後）には、再び窒素を供給しつつ冷却し、温度が約50℃になった時点で乾燥空気を60秒間供給して再着火の有無を確認した。再着火した場合は60秒後に再び窒素を供給して実験を終了し、再着火しなかった場合は窒素を供給しつつ約20℃ステップで昇温して再着火するまで同じ操作を繰り返した。

以上の手順をナトリウム温度の推移として図式化したものを図-2および図-3に、実験開始前の加熱処理および実験開始後の燃焼させた時の状況を写真-1にそれぞれ示す。

生成物の化学分析を行うため、次項で述べる各々の実験条件について2回の実験を行った。1回目の実験は、上述の手順で消火までを行い、消火後の化学分析を行った。2回目の実験は、再着火までを行い、再着火後の化学分析を行った。各々の化学分析のためのサンプリングでは、容器内に窒素を流しつつ燃焼生成物を燃焼皿ごとビニールバッグ内のサンプルびんに回収し、これを別途グローブボックス内で分析用に粉末化处理した。分析は不活性雰囲気でのX線回折を主とし、イオンクロマトグラフと中和滴定（ Na_2CO_3 定量用）およびSEM/EDXを補助的に用いた。

(3) 実験条件

実験条件は燃焼時および消火時の雰囲気ガス成分をパラメータとして決定した。

計10ケースの実験条件を後述する実験結果とともに表-2に示す。

まず、本実験体系におけるナトリウムの燃焼条件を確認するため、乾燥空気下でナトリウムのほぼ全量が燃え尽きるまで（約40秒間）燃焼させる実験を行なった（ケース1）。この燃焼生成物の分析結果は、その他の条件における燃焼生成物の化学組成の比較基準とした。次に、消火用ガスとして用いる窒素の純度が再着火挙動に及ぼす影響を確認するため、純窒素を用いた場合（ケース2）と、これに1.5%または3%の酸素が混入した場合（ケース3及び4）について実験した。さらに、これらの消火用ガスに二酸化炭素を混合させた場合の再着火防止効果を確認するため、ケース2から4の消火用ガスに5%の二酸化炭素を混合させた場合（ケース5、6、7）について実験した。

一方、実際のナトリウム燃焼雰囲気には湿分が含まれているのが一般的であることから、ナトリウムを燃焼させる雰囲気を湿り空気（露点約18℃、絶対湿分濃度約20000vppm）とした場合についてもその再着火挙動に及ぼす影響を確認する必要がある。このため、ケース4とケース7の燃焼雰囲気条件を湿り空気とした場合（ケース8及び9）について実験した。

最後に、再着火を防止する上で最も効果的と考えられる方法を提示するため、ケース4の条件で消火した燃焼生成物に対し、温度が約50℃になった時点で酸素（3%）と湿分（露点約18℃、絶対湿分濃度約20000vppm）および二酸化炭素（5%）を混合した窒素を120秒間供給する操作を加えた場合（ケース10）について実験した。

3. 実験結果と考察

各ケースの実験条件と測定された再着火温度および燃焼生成物の分析結果を表-2に示す。尚、前述したように消火後（以下、消火した後に常温まで冷却した燃焼生成物の状態を消火後とする）と再着火後の分析用サンプルは、同一条件で二回実験を実施して得たものであり、同一サンプルではない。また、湿分を混入させないケースで検出されたNaOHは、分析操作の過程における若干の吸湿によるものと考えられる。

(1) 乾燥空気下で燃え尽きるまで燃焼させた場合（ケース1）

ナトリウム温度が約500℃になった時点で容器内への供給ガスを窒素から空気に切り替え、燃焼を開始させた。燃焼開始から約40秒間はナトリウムが皿の周囲からあふれながら火炎を伴って燃焼し、その後は皿の内部にわずかな火炎が認められる状態が燃焼開始から約2分後まで継続した。本ケースでは、目視で火炎が無くなった時点で容器内への供給ガスを再び窒素に切り替えて燃焼生成物を冷却した。

本ケースにおけるナトリウム温度の推移を図-4に示す。燃焼を開始させた時間を0minとして表示している。燃焼開始とともにナトリウム温度は上昇し、そのピーク温度は約740℃であった。燃焼終了直後は温度は約450℃まで急激に低下し、その後は時間とともにゆるやかに低下している。

燃焼終了直後と冷却後の燃焼生成物の状況を写真-2に示す。燃焼生成物は皿の周囲からあふれ、外壁に樹氷状となって付着しているのが認められる。その色は、燃焼終了直後では樹氷状根元部分が黒色で樹氷状部分が淡黄色であるのに対し、冷却後では淡黄色の部分がかなり白色化している。表-2に示した消火後の燃焼生成物の分析結果を見ると、 Na_2O が主成分で、Naと Na_2O_2 が痕跡程度含まれている。一般に、 Na_2O_2 は淡黄色であることから、燃焼終了直後に淡黄色を示していた樹氷状部分には Na_2O_2 が多く含まれており、冷却過程でこれが徐々に分解して Na_2O に変化したために上記の色の変化が生じたと推察する。

(2) 純窒素で消火した場合（ケース2）

ナトリウム温度の推移を図-5に示す。ケース1と異なり、燃焼開始後10秒で容

器内に純窒素を供給して消火したため、そのピーク温度は約570℃である。純窒素を供給すると温度は約400℃まで急激に下がり、その後は時間とともにゆるやかに低下している。また、温度がナトリウムの融点である98℃まで低下した時点で変曲点を示していることから、燃焼生成物にNaが多く残留していることが推定される。約50℃になった時点で乾燥空気を供給したが再着火しなかったため、約20℃ステップで昇温している。再着火した温度は約120℃であった。

消火直後（消火開始から約2分後）、消火後および再着火後の状況を写真-3に示す。消火直後および消火後は銀白色の針状突起が多数観察され、再着火後はその一部が黒く変色している。表-2に示した燃焼生成物の分析結果は、消火後と再着火後のいずれもNaとNa₂Oが主成分で、これら以外に特異な物質は認められなかった。

(3) 消火用窒素に酸素が混入した場合（ケース3および4）

消火用窒素に酸素を1.5%混入させたケース3と3%混入させたケース4のナトリウム温度の推移を図-6および図-7に示す。燃焼開始後および消火用ガス供給後の温度推移はケース2と同様である。ただし、約50℃になった時点で乾燥空気を供給したところ、いずれのケースも再着火して燃焼した。したがって、その再着火温度は50℃以下である。

消火直後、消火後および再着火後の状況を写真-3に示した。消火直後および消火後は灰白色の樹氷状突起が多数観察され、ケース4の消火直後は黒色の部分もある。再着火は突起物の先端で生じ、時間とともに全体に広がった。表-2に示した分析結果をケース2と比較すると、消火後についてはNa₂Oが多く、再着火後にNa₂O₂が検出されている。これらの他、X線回折ではNaNO₃とNaN₃の存在が示唆されたが、イオンクロマトグラフで分析した結果、分析下限値（0.01%）以下であった。以上の結果から、窒素消火したナトリウムが常温で再着火を起こすのは、消火に用いる窒素に1%程度以上の酸素が混入している場合で、その原因は消火後の燃焼生成物であるNa₂Oを多く含んだ灰白色の樹氷状突起に起因すると思われる。

(4) 消火用窒素に二酸化炭素を混合した場合（ケース5～7）

消火用窒素に5%の二酸化炭素を混ぜ、酸素の混入量を0%（ケース5）、1.5%

(ケース6)、3% (ケース7) とした場合のナトリウム温度の推移を図-8、図-9 および図-10に示す。燃焼開始後および消火用ガス供給後の温度推移はケース2と同様である。5%の二酸化炭素を混合した窒素で消火した場合(ケース5)、再着火温度は約150℃まで上昇して常温での再着火防止効果が認められたが、これに1%程度以上の酸素が混入するとその効果はなくなることがわかる(ケース6および7)。

各ケースの消火直後、消火後および再着火後の状況を写真-4に示す。消火後はいずれのケースも茶褐色の樹氷状突起が観察されている。表-2に示した分析結果を見ると、酸素が混入した場合は Na_2CO_3 よりも Na_2O が多く、上述の再着火しやすい状態が形成されているものと思われる。燃焼生成物の色が茶褐色を示したことについては、消火に二酸化炭素を用いた場合、遊離炭素を生成するとの報告例⁶⁾があるが、本実験の場合いずれのケースもSEM/EDXによる分析では検出されなかった。

(5) 燃焼雰囲気湿り空気とした場合 (ケース8および9)

湿り空気(湿分は約2%)で燃焼させ、消火雰囲気を3%酸素(ケース8)、3%酸素+5%二酸化炭素(ケース9)とした場合のナトリウム温度の推移を図-11および図-12に示す。燃焼開始後および消火用ガス供給後の温度推移はケース2と同様である。消火用窒素に酸素が混入した場合(ケース8)は、再着火温度に及ばず湿り空気の影響はなかった。ただし、高湿分空気下で長時間燃焼させた場合には、再着火しないという報告もある⁷⁾。これに5%の二酸化炭素を混合した場合(ケース9)には、表-2に示した分析結果から Na_2CO_3 の生成が顕著であり、再着火温度も約100℃まで上昇して再着火防止効果が認められた。各ケースの消火直後、消火後および再着火後の状況を写真-5に示す。

(6) 常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合 (ケース10)

再着火を防止する有効な方策を提示するため、ケース4の条件に、温度が約50℃になった時点で酸素(3%)と湿分(湿分約2%)および二酸化炭素(5%)を混合した窒素を120秒間供給する操作を加えてケース10とした。ナトリウム温度の推移を図-13に示す。また、消火直後、消火後および再着火後の状況を写真-5に

示した。

表-2に示した分析結果から再着火後サンプルには多量のナトリウムが残っていたが、その再着火温度は約200℃と高く十分な再着火防止効果が認められた。

以上、ケース9およびケース10の結果から、湿分と二酸化炭素が混合した雰囲気中で燃焼した場合には再着火防止効果が現れること、消火後に湿分と二酸化炭素を混合した窒素を供給することで再着火防止が可能であることが確認された。実際のナトリウム漏洩燃焼における環境条件を勘案すると、ナトリウムの燃焼を窒素ガスで消火した場合の再着火防止策としては、常温まで冷却後に湿分と二酸化炭素を用いて燃焼生成物を安定化させることが有効と考えられる。

尚、各ケースにおける加熱ブロック、燃焼皿およびガス空間の温度推移の測定結果については、図A-1～図A-30としてAPPENDIXに添付した。

4. まとめ

ナトリウムの再着火挙動に着目して雰囲気酸素と湿分および二酸化炭素の濃度をパラメータとした実験を実施して、現象の観察、再着火温度の測定、燃焼生成物の観察と分析を行った。その結果、再着火の生じる原因および再着火防止策に関して以下の知見を得た。

- (1) 純窒素で消火した場合、常温(50℃)では再着火せず、再度温度を上昇させると約120℃で再着火した。
- (2) 消火用窒素に1%程度以上の酸素が混入した場合は常温(50℃)で再着火が生じた。
- (3) 5%の二酸化炭素を混合した窒素で消火した場合には、純窒素の場合と比べて再着火温度が上昇する効果(再着火温度約150℃)が認められたが、これに1%程度以上の酸素が混入するとその効果はなくなった。
- (4) 湿り空気下での燃焼ナトリウムの窒素消火に対しては、5%の二酸化炭素を混合した窒素であれば3%の酸素が混入していても再着火防止効果が認められた。
- (5) 酸素が混入した窒素で消火した場合でも、常温まで冷却後に湿分と二酸化炭素を用いて燃焼生成物を安定化すると再着火防止方策として有効であった。
- (6) 燃焼生成物の化学分析結果は Na_2O が主体であり、他に条件により NaOH 、 Na_2CO_3 、 Na_2O_2 が認められたが、他の特異な化合物は認められなかった。これから、再着火の原因は消火後の燃焼生成物である Na_2O を多く含んだ灰白色の樹氷状突起に起因すると思われる。

5. 謝辞

本研究の実施にあたり、大洗工学センターナトリウム・安全工学試験部前田清彦部長、同部プラント安全工学グループ三宅収グループリーダーに適切な助言および指導をいただいた。また、本報告書の査読にあたっては、同部和田雄作次長に貴重な意見をいただいた。さらに、本実験の実施にあたって常陽産業(株)の石川興暢氏に、本報告書の作成にあたって原子力システム(株)の豊原大輔氏に多大な協力をいただいた。これら関係者に深く感謝します。

6. 参考文献

- 1) 守川時生：火災, 27, 3 (108), 28-34 (1977).
- 2) Hilliard, R.K., Muhlestein, L.D., HEDL-TME 74-34 (1974).
- 3) Ballif, J.L., HEDL-TME-79-17 (1979).
- 4) 宮原信哉, 佐々木和一, 山田敏雄, 姫野嘉昭：
日本原子力学会「昭62年会」予稿集, A65 (1987).
- 5) 斎藤直, 廖赤虹, 鶴田俊：平成11年度日本火災学会研究発表会概要集,
A-23 (1999).
- 6) Newman, R.N., Proc. LMFBR Safety Topical Mtg., III, 3-12 (1982).
- 7) Boehmer, W.D., Hilliard, R.K., HEDL-TME 75-98 (1975).

表 - 1 使用したガスの仕様

ガス	グレード (名称)	純度(%)	不純物濃度						
			O ₂ (ppm)	CO (ppm)	CO ₂ (ppm)	CH ₄ (ppm)	NO _x (ppm)	SO ₂ (ppm)	H ₂ O (露点)
空気	純ガスS	大気組成	/	<0.1	<0.1	<0.1	<0.01	<0.01	<-80℃
窒素	純ガスA	>99.9998	<0.3	<0.3	<0.3	<0.1	<0.1	<0.1	<-80℃
二酸化炭素	液化炭酸 ガス	>99.9	/	/	/	/	/	/	<-60℃
アルゴン	スーパー アルゴン	>99.999	<2	/	/	/	/	/	<-70℃

表-2 実験条件と再着火温度および分析結果

ケース	燃焼 雰囲気 条件	消火 雰囲気 条件	消火後の化学組成						再着火 雰囲気 条件	再着火 温度	再着火後の化学組成					
			Na	Na ₂ O	Na ₂ O ₂	Na ₂ O ₂ (H)	NaOH	Na ₂ CO ₃			Na	Na ₂ O	Na ₂ O ₂	Na ₂ O ₂ (H)	NaOH	Na ₂ CO ₃
1	乾燥 空気	自然鎮火	Tr.	++++	Tr.	Tr.	+	-	—	—	—	—	—	—	—	—
2	乾燥 空気	N ₂	++++	+++	-	-	+	-	乾燥 空気	約120 ℃	++	++++	-	-	+	-
3	乾燥 空気	N ₂ +1.5%O ₂	++++	++++	-	-	+	-	乾燥 空気	50℃ 以下	+	++++	Tr.	Tr.	+	-
4	乾燥 空気	N ₂ +3%O ₂	+++	++++	-	-	+	-	乾燥 空気	50℃ 以下	-	++++	+	Tr.	+	-
5	乾燥 空気	N ₂ +5%CO ₂	++++	+	-	-	+	Tr.	乾燥 空気	約150 ℃	+++	++	-	-	+	Tr.
6	乾燥 空気	N ₂ +1.5%O ₂ +5%CO ₂	++++	++	-	-	+	Tr.	乾燥 空気	50℃ 以下	+++	++++	Tr.	-	+	++
7	乾燥 空気	N ₂ +3%O ₂ +5%CO ₂	++++	+++	-	-	+	++	乾燥 空気	50℃ 以下	+++	++	-	-	+	++
8	湿り 空気*	N ₂ +3%O ₂	++++	++++	-	-	+	-	乾燥 空気	50℃ 以下	-	++++	+	Tr.	+	-
9	湿り 空気*	N ₂ +3%O ₂ +5%CO ₂	++++	+++	-	-	+	++	乾燥 空気	約100 ℃	-	++++	Tr.	Tr.	+	++
10	乾燥 空気	N ₂ +3%O ₂ (+5%CO ₂ +湿分)**	++++	+++	-	-	+	Tr.	乾燥 空気	約200 ℃	++++	+++	-	-	+	+

(注) ++++ : 非常に多い、+++ : 多い、++ : 中程度、+ : 少量、Tr. : 痕跡程度、- : 不検出、Na₂O₂(H) : 六方晶系 (Hexagonal)

* : 露点温度約18℃、** : 約50℃まで冷却後に混合、露点温度約18℃

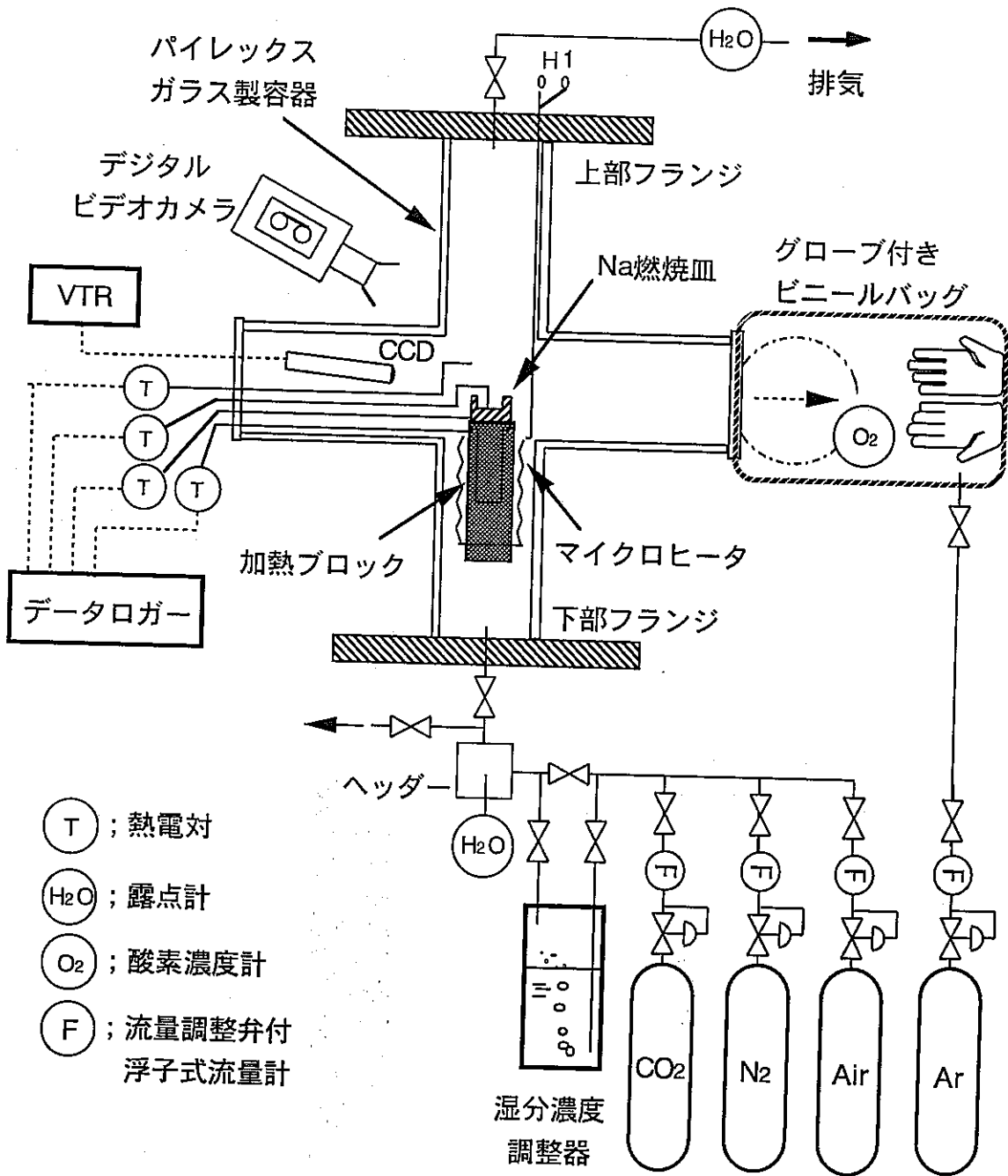


図 - 1 Na燃焼室素消火試験装置

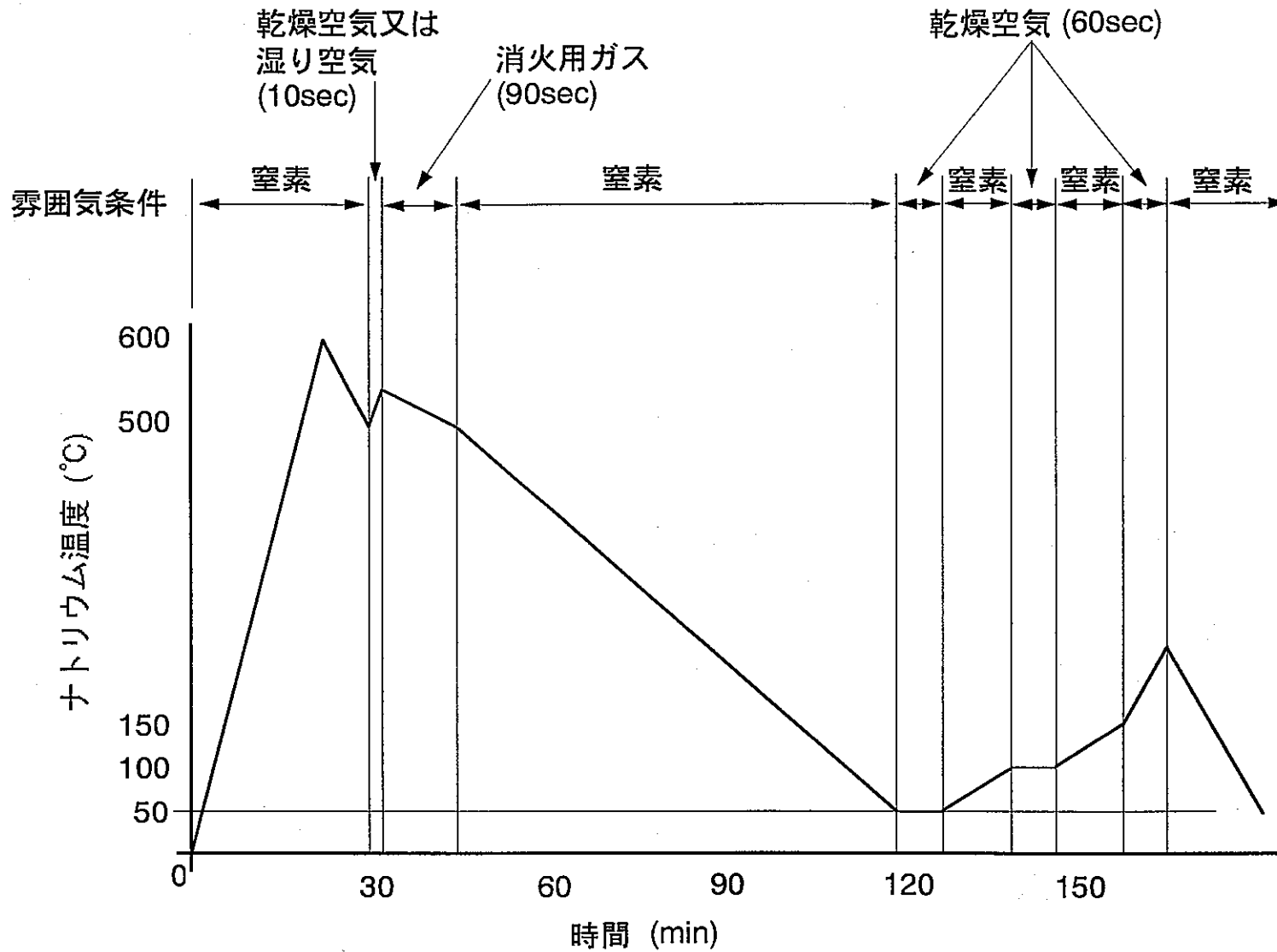


図 - 2 Na燃焼窒素消火実験の手順

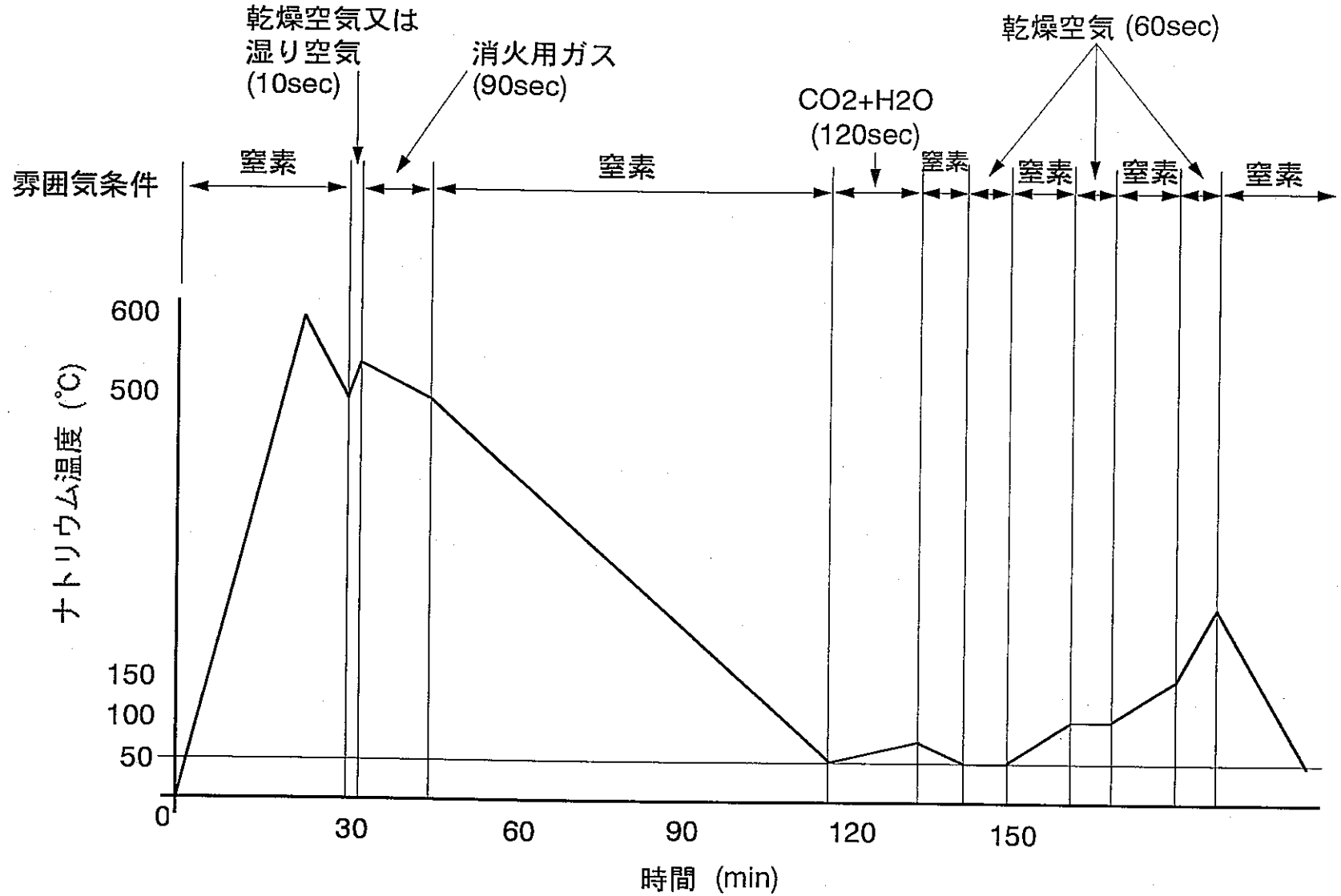


図 - 3 Na 燃焼窒素消火実験の手順 (常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合)

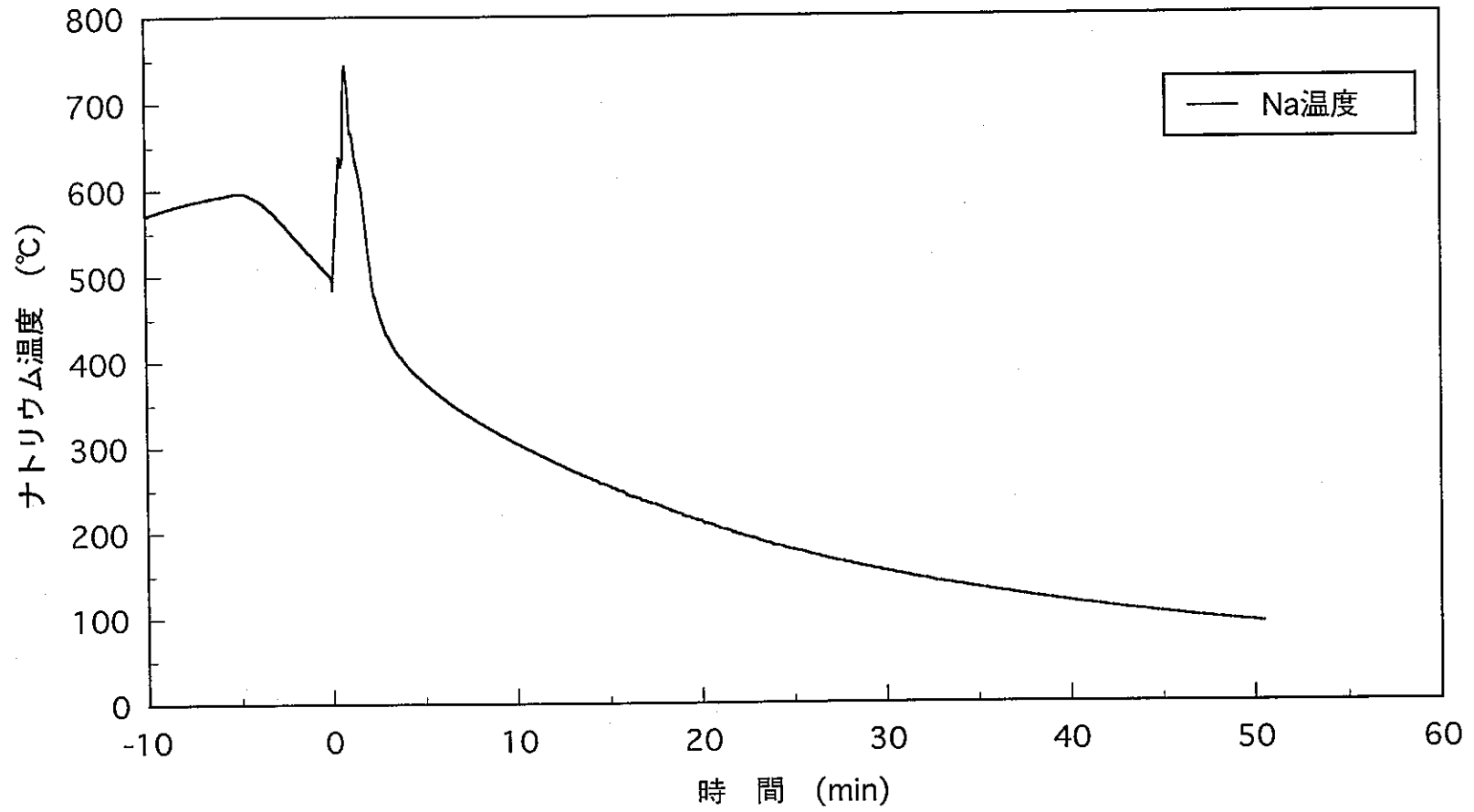


図-4 ナトリウム温度の推移 (ケース1)

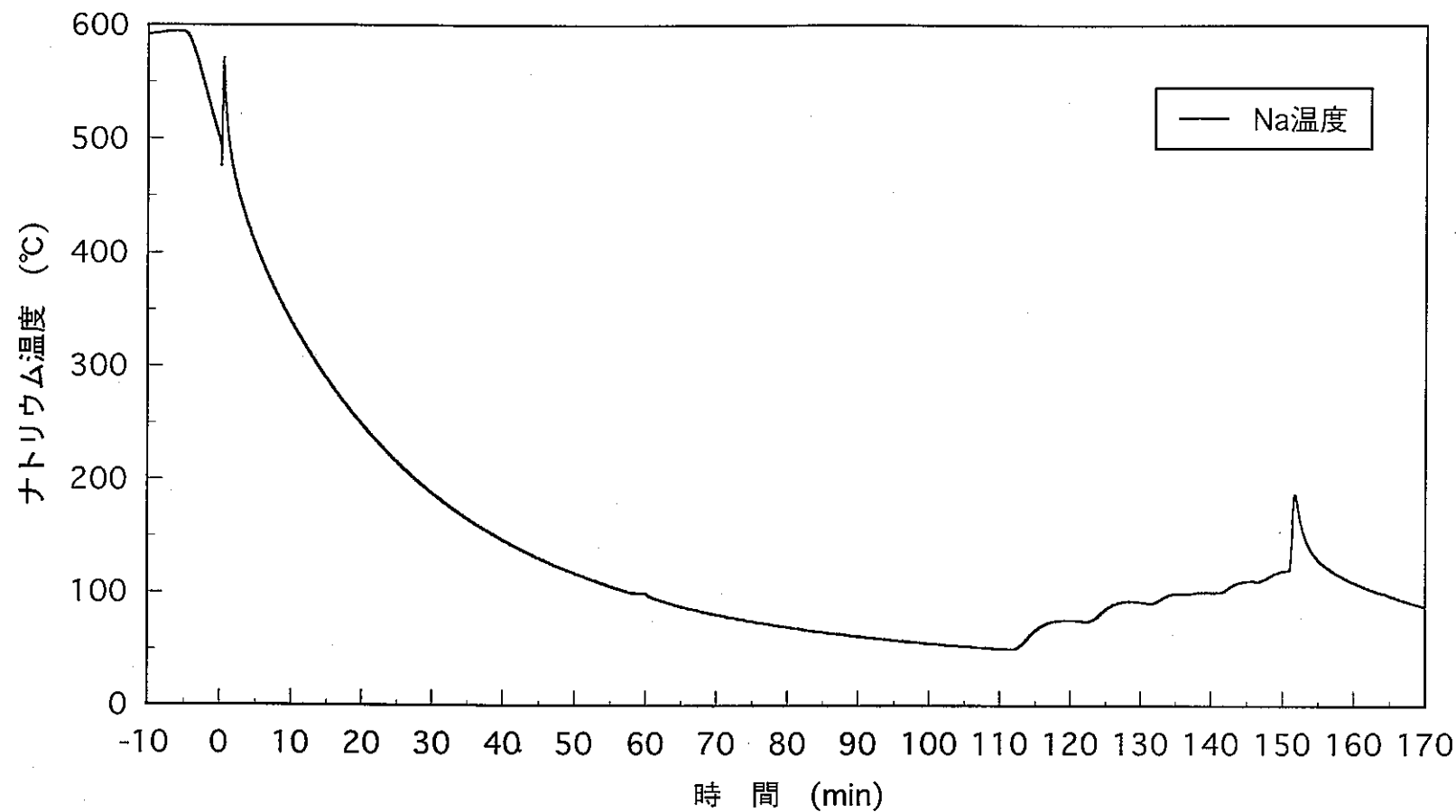


図-5 ナトリウム温度の推移 (ケース2)

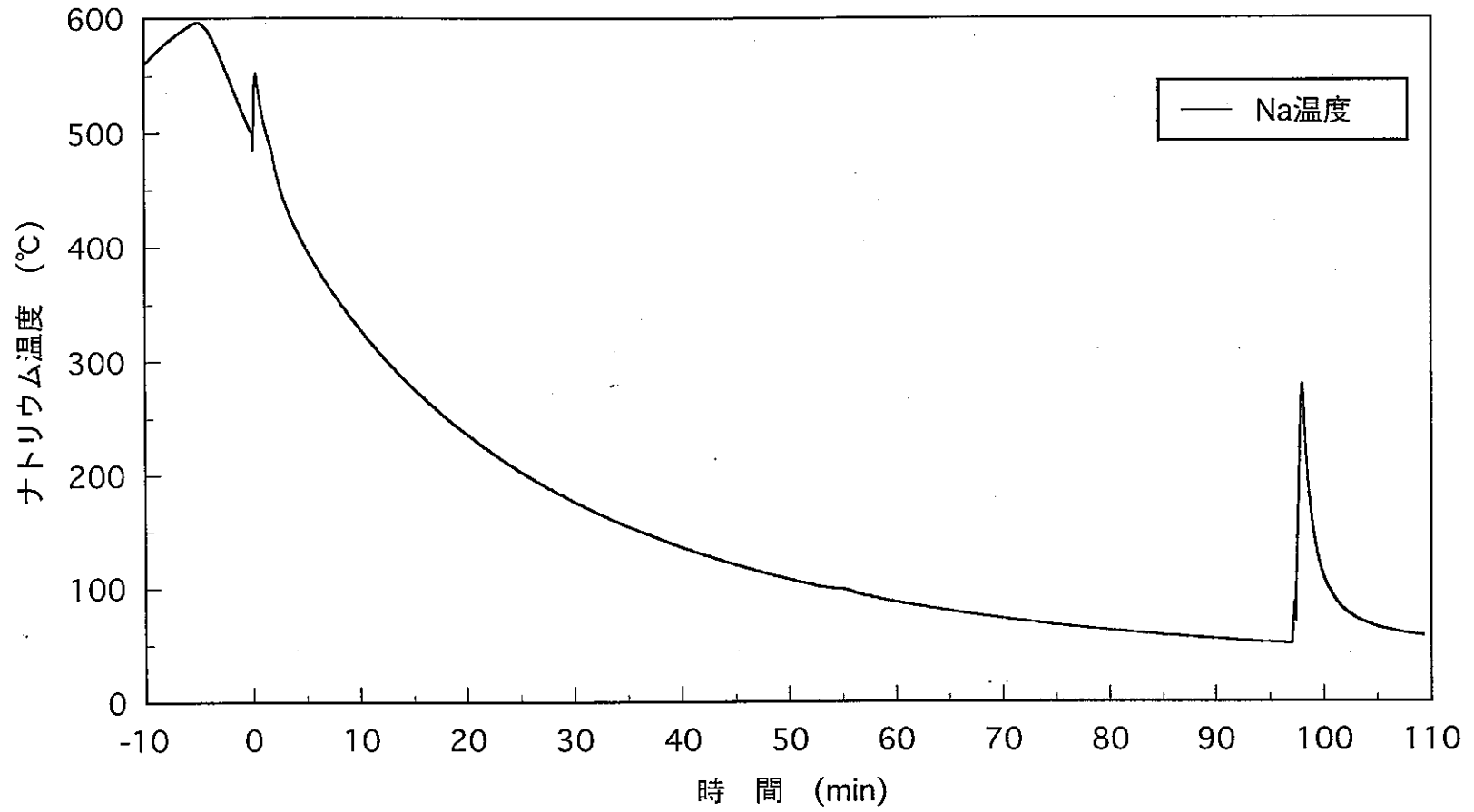


図-6 ナトリウム温度の推移 (ケース3)

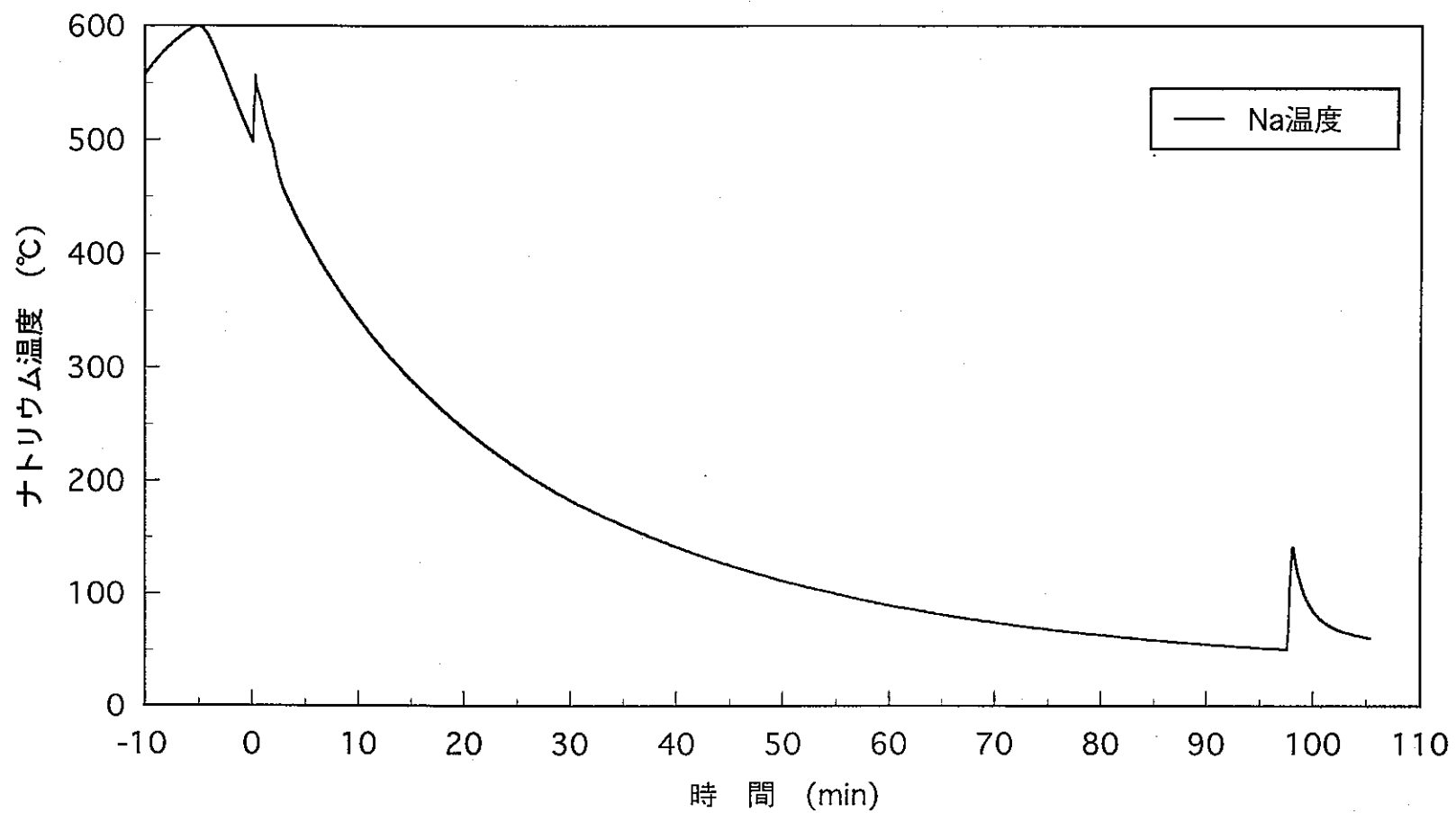


図-7 ナトリウム温度の推移 (ケース4)

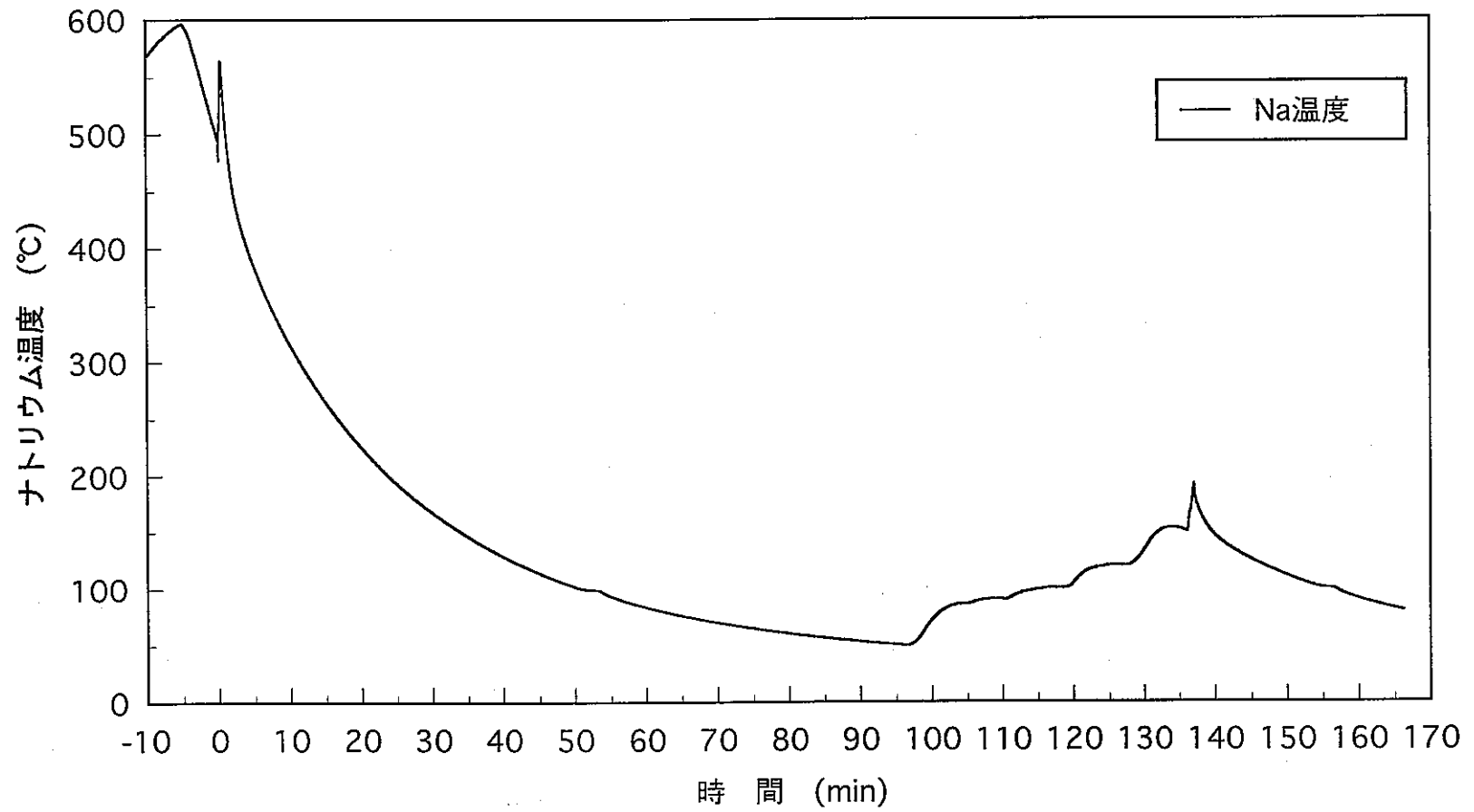


図 - 8 ナトリウム温度の推移 (ケース 5)

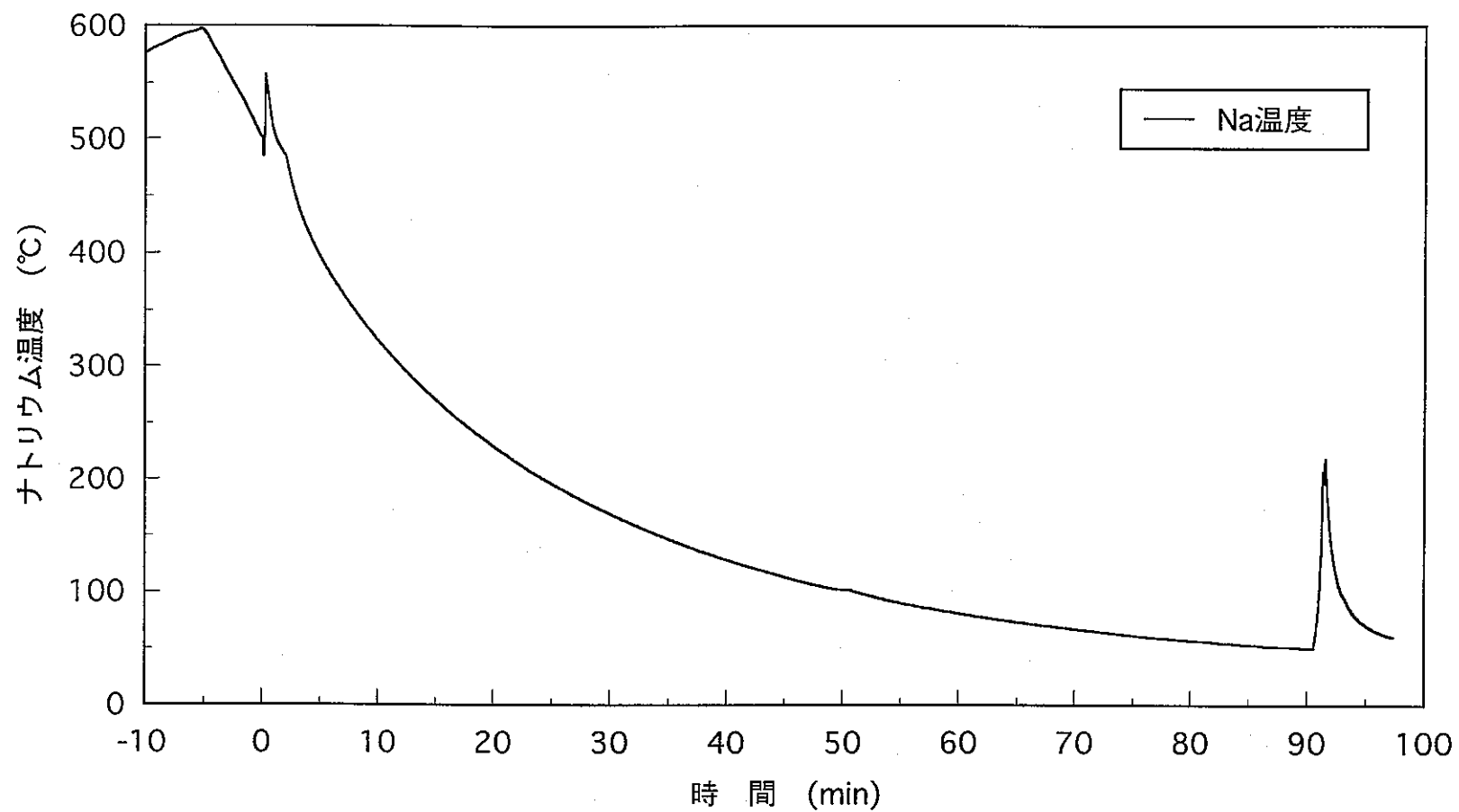


図-9 ナトリウム温度の推移 (ケース6)

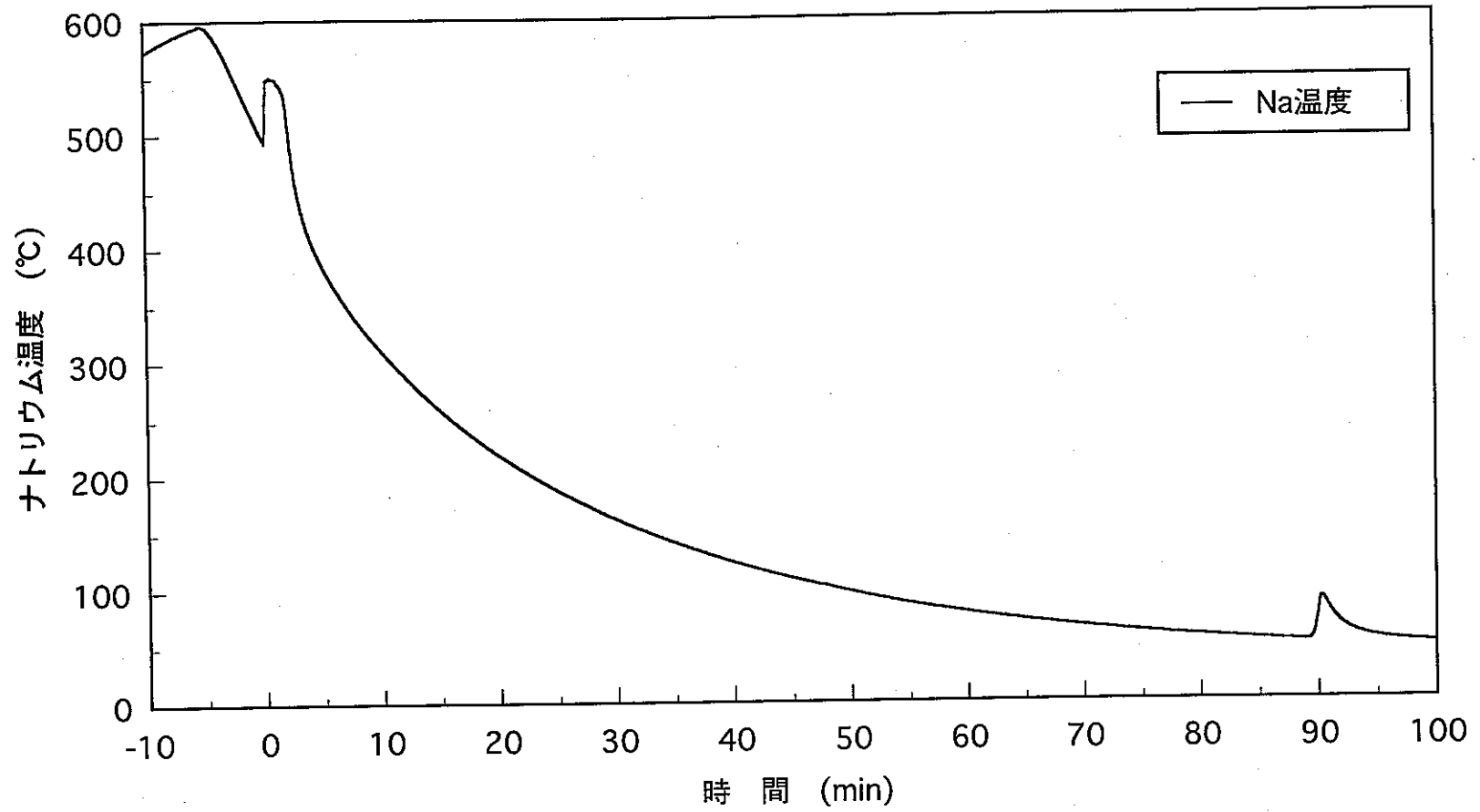


図-10 ナトリウム温度の推移 (ケース7)

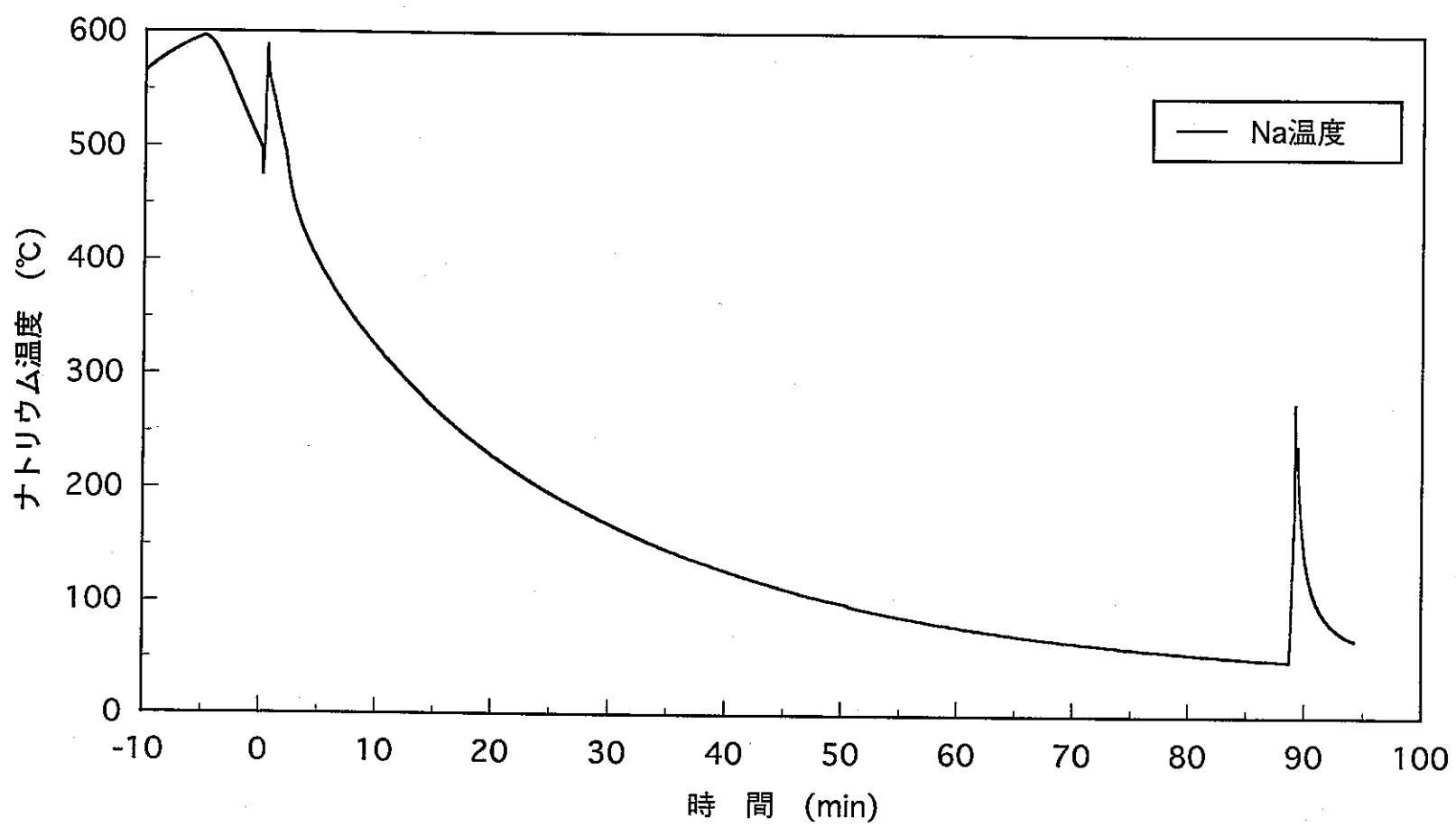


図-11 ナトリウム温度の推移 (ケース8)

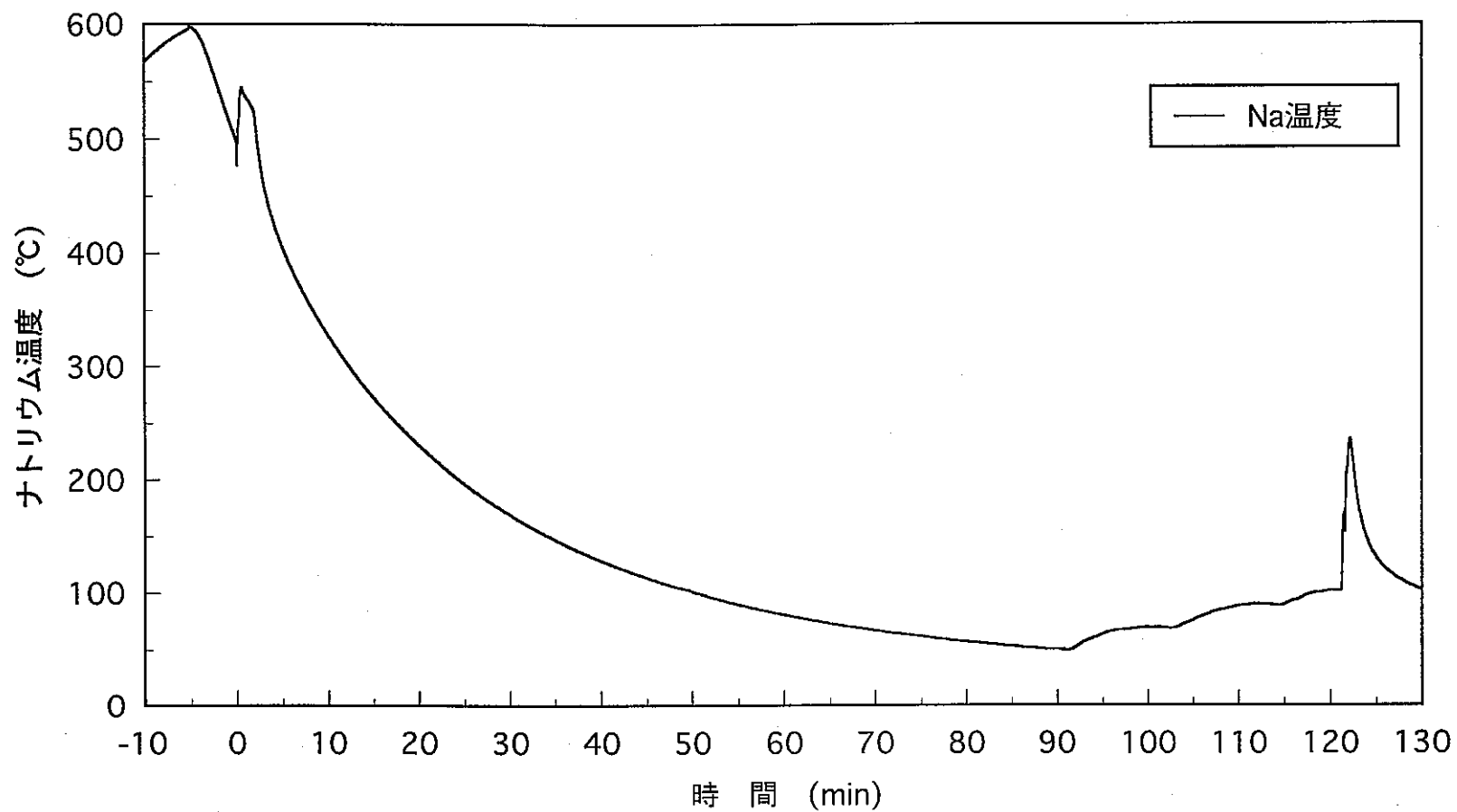


図-12 ナトリウム温度の推移 (ケース9)

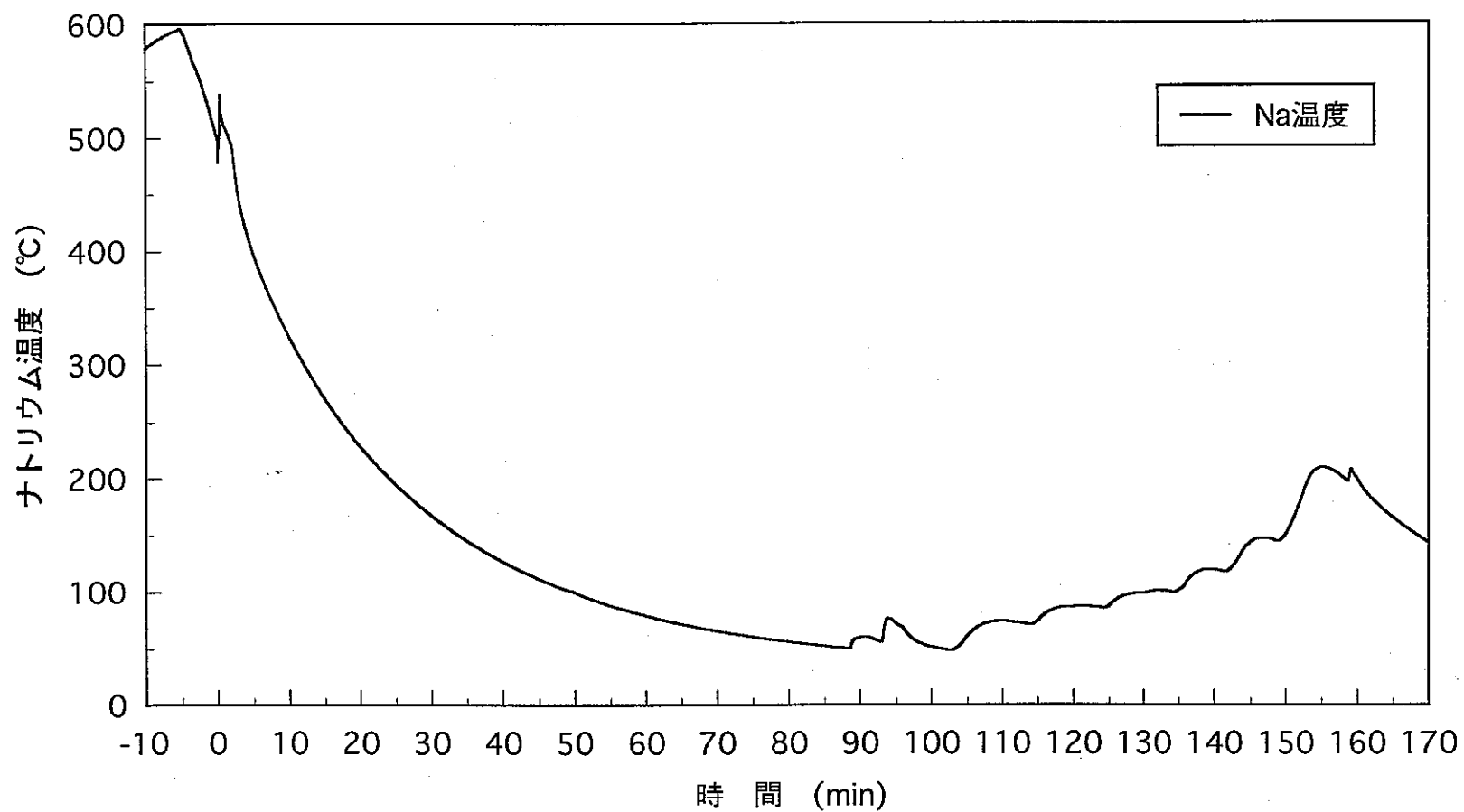


図-13 ナトリウム温度の推移 (ケース10)

約600℃



約500℃



燃焼中

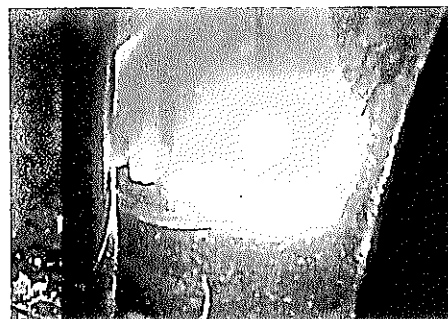


写真 - 1 実験開始前の加熱処理および実験開始後の燃焼させた時の状況

燃焼終了直後



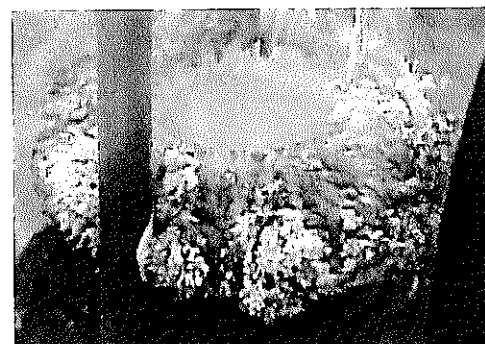
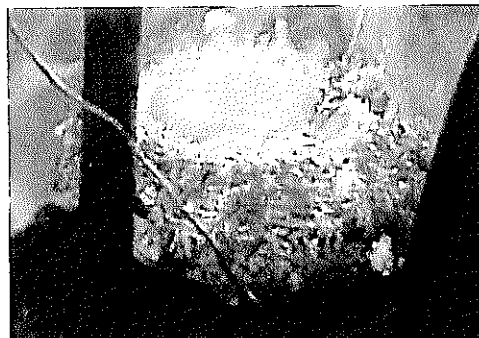
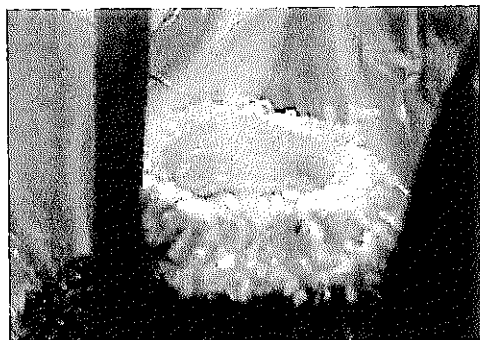
冷却後



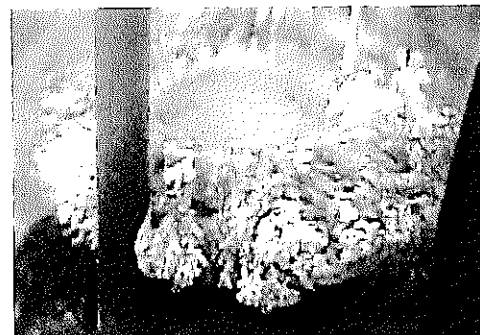
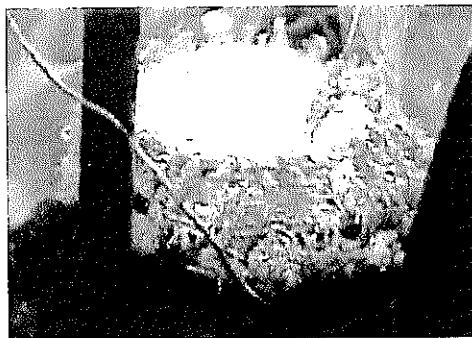
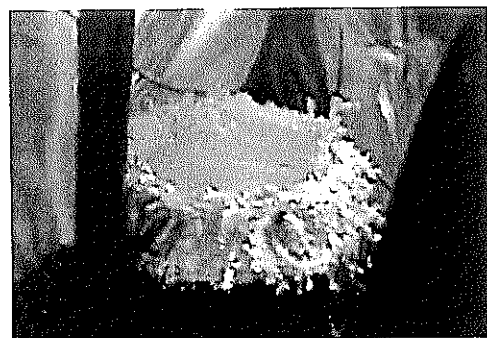
ケース1

写真-2 乾燥空気下で燃え尽きるまで燃焼させた時の状況（ケース1）

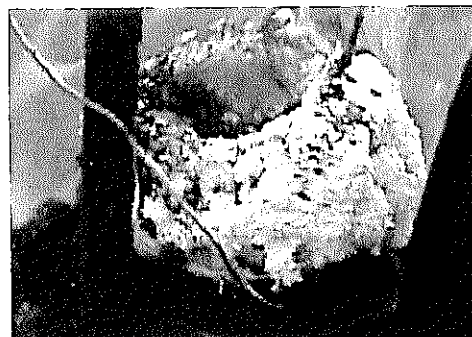
消火直後



消火後



再着火後



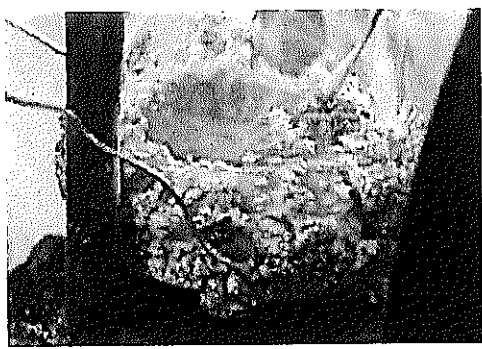
ケース2 (N_2)

ケース3 ($N_2+1.5\%O_2$)

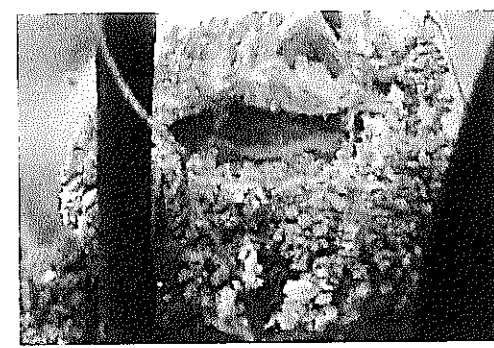
ケース4 ($N_2+3\%O_2$)

写真-3 純窒素または酸素を含む窒素で消火後、乾燥空気下で再着火させた時の状況 (ケース2, 3, 4)

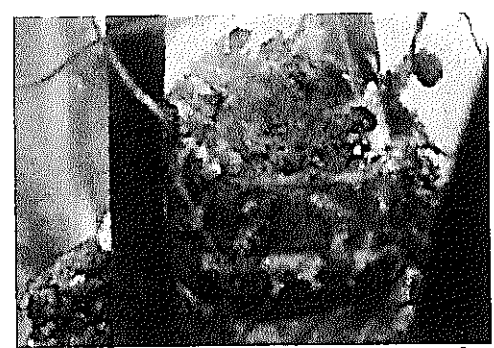
消火直後



消火後



再着火後



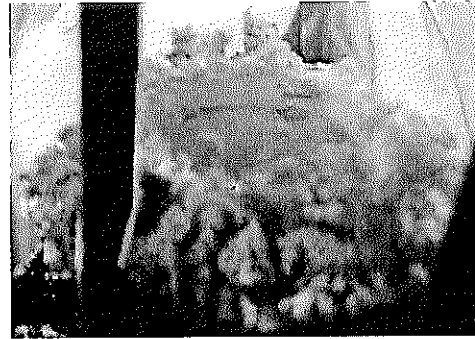
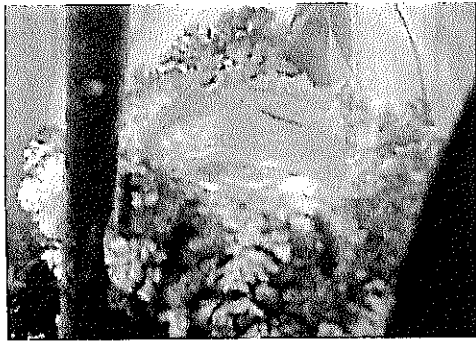
ケース5 ($N_2+5\%CO_2$)

ケース6 ($N_2+1.5\%O_2+5\%CO_2$)

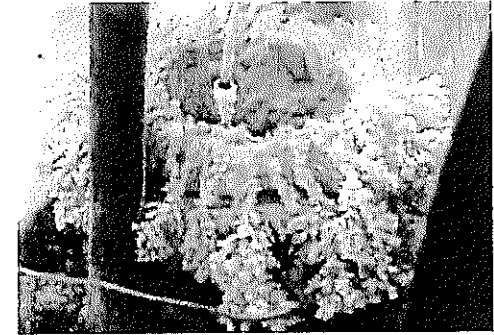
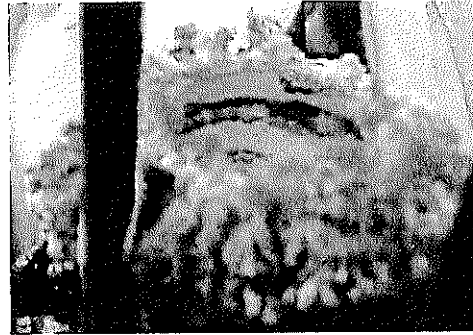
ケース7 ($N_2+3\%O_2+5\%CO_2$)

写真-4 二酸化炭素を混合した窒素で消火後、乾燥空気下で再着火させた時の状況 (ケース5,6,7)

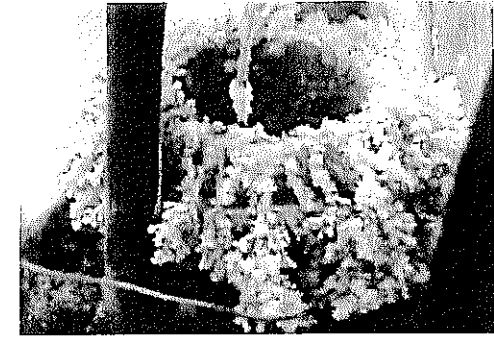
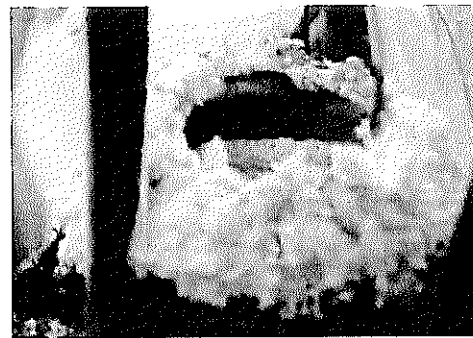
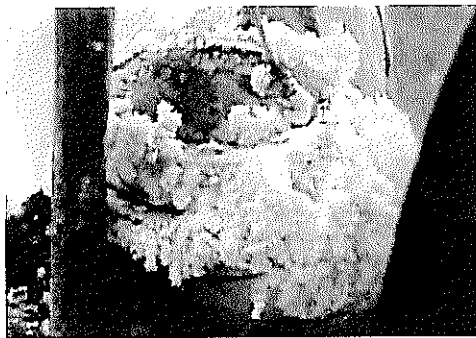
消火直後



消火後



再着火後



ケース8 ($N_2+3\%O_2$)
湿り空気で燃焼

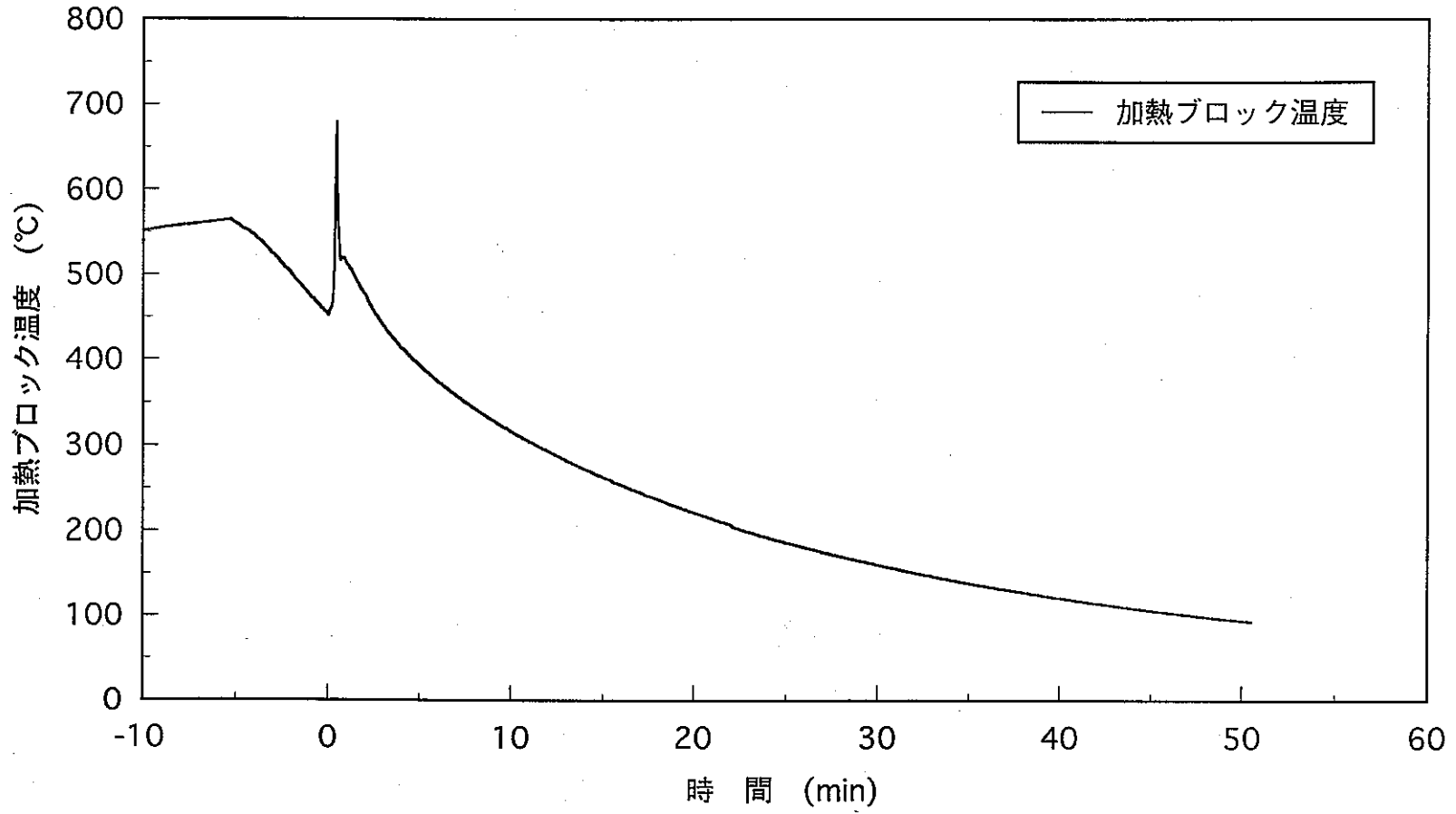
ケース9 ($N_2+3\%O_2+5\%CO_2$)
湿り空気で燃焼

ケース10 ($N_2+3\%O_2$)
乾燥空気で燃焼。
冷却後に5% CO_2 +湿分

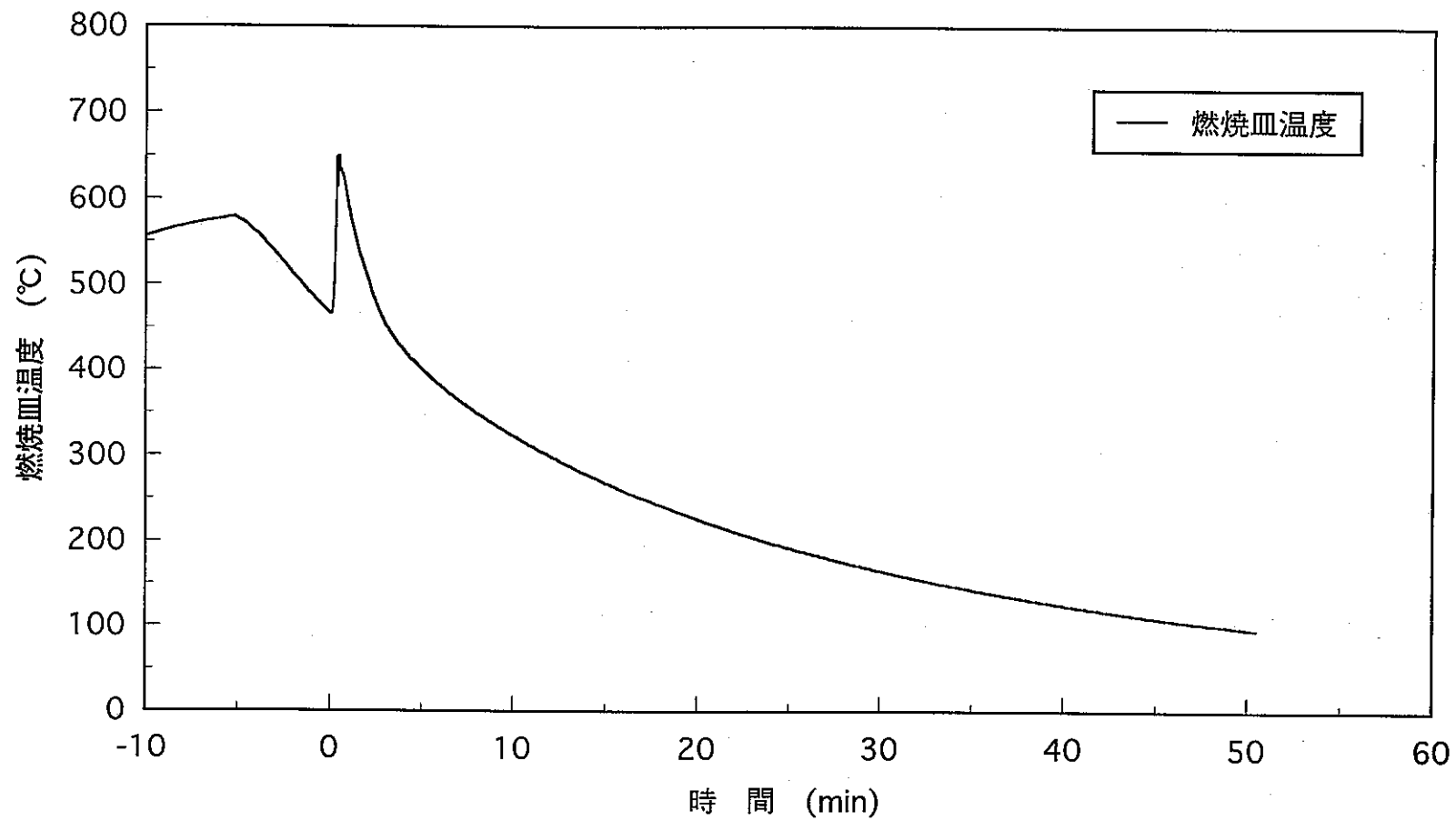
写真-5 湿り空気で燃焼させた場合と乾燥空気で燃焼後常温で湿分と二酸化炭素を加えた場合の状況 (ケース8,9,10)

APPENDIX

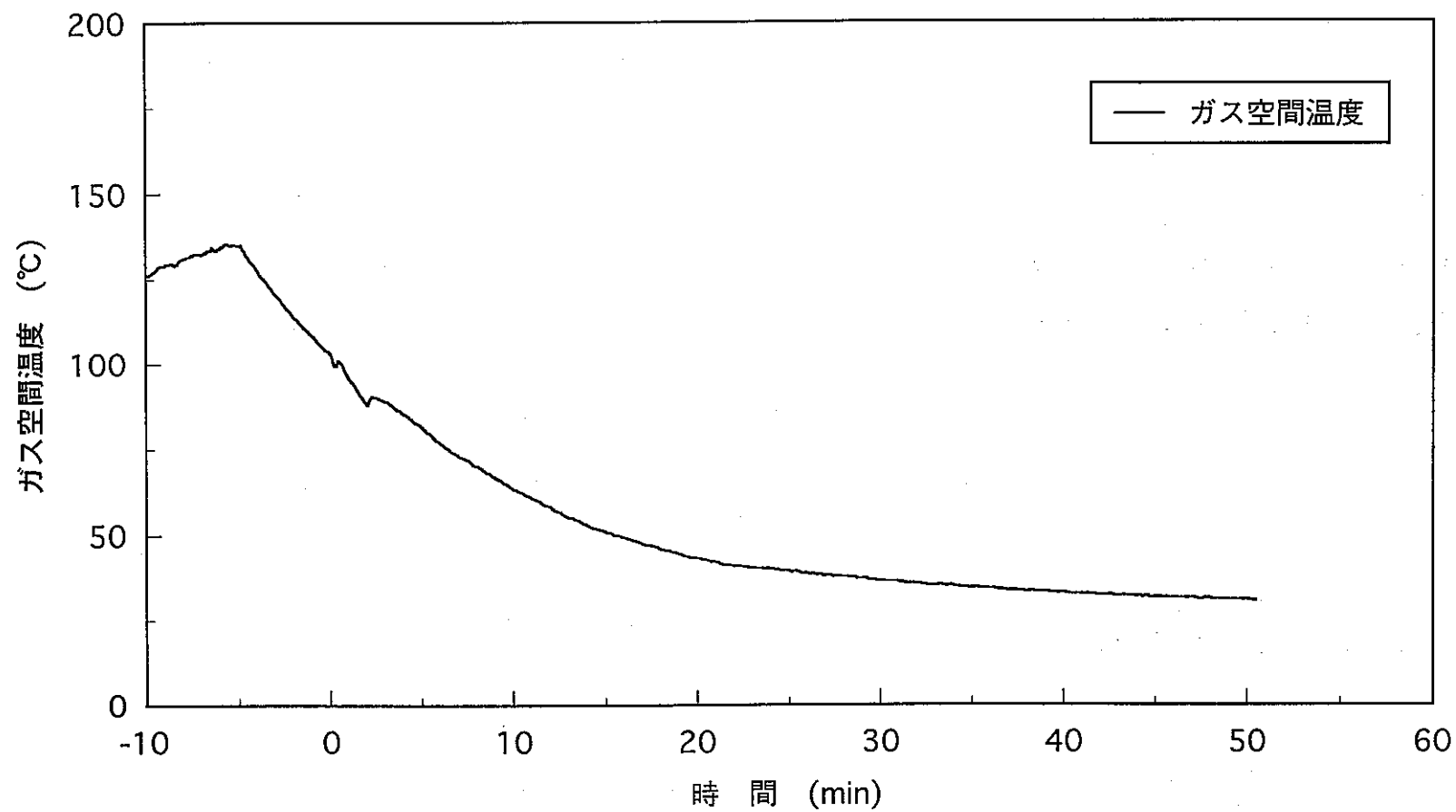
各実験ケースにおける加熱ブロック、燃焼皿およびガス空間の温度推移の測定結果



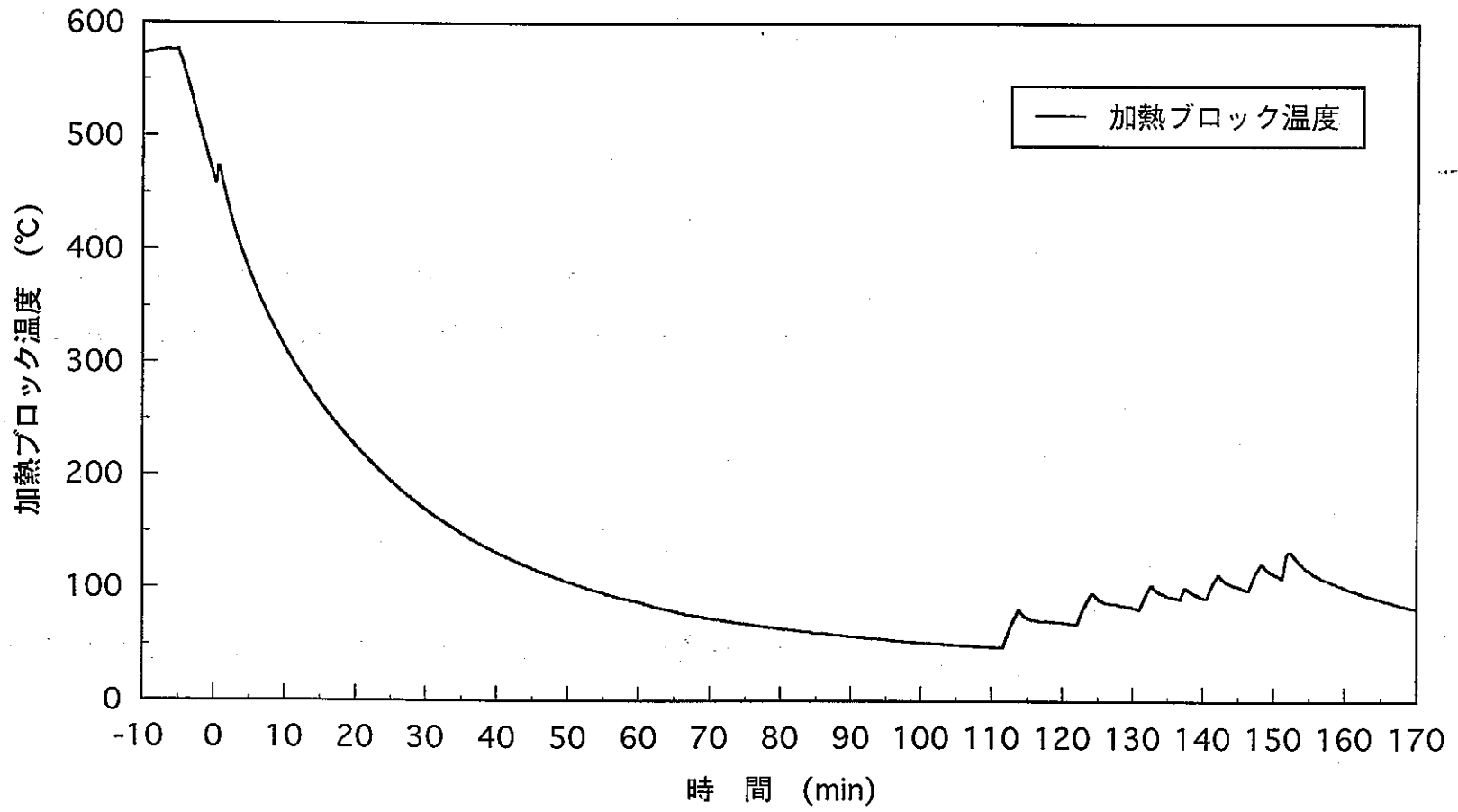
図A-1 加熱ブロック温度の推移 (ケース1)



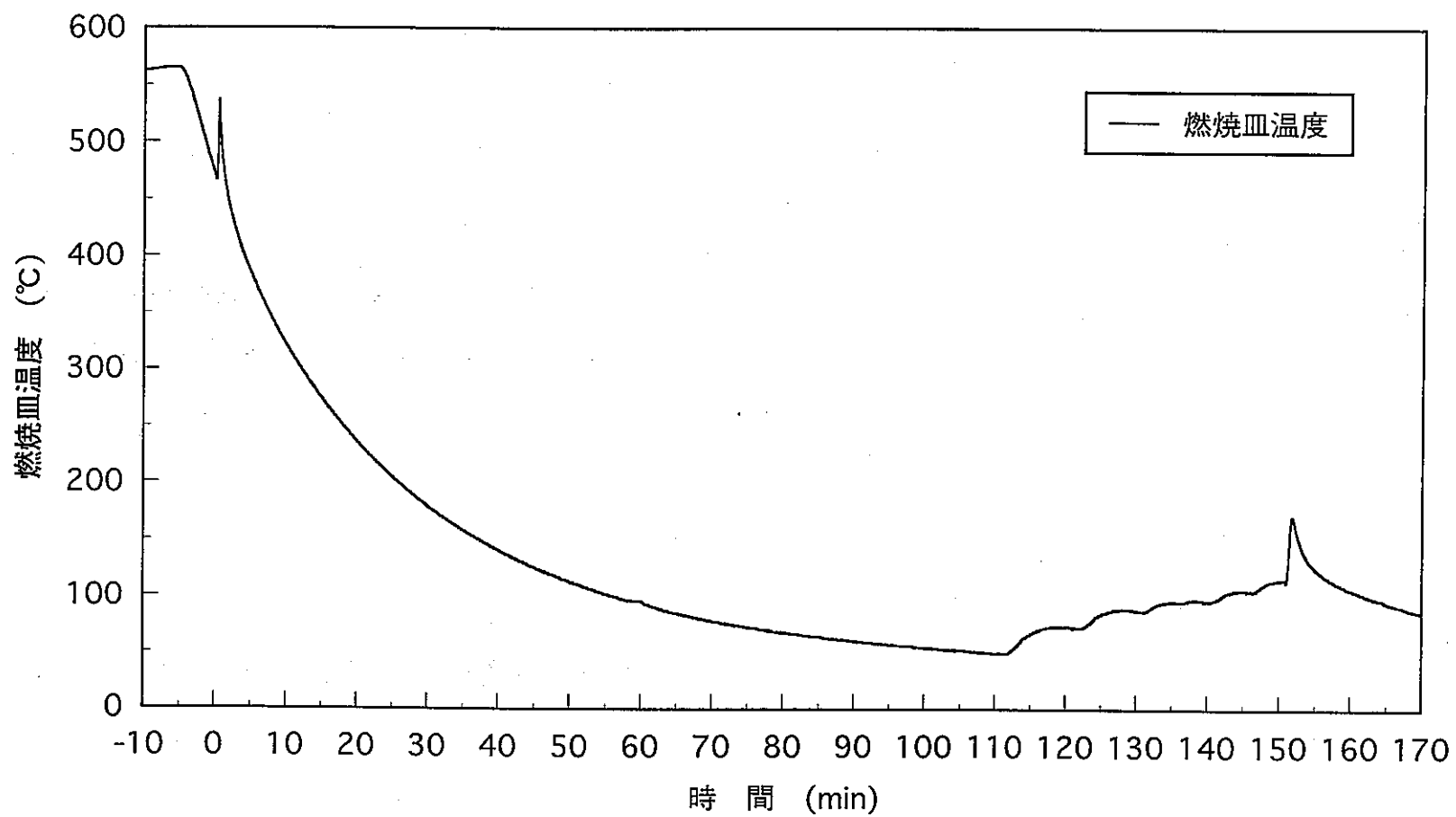
図A-2 燃焼皿温度の推移 (ケース1)



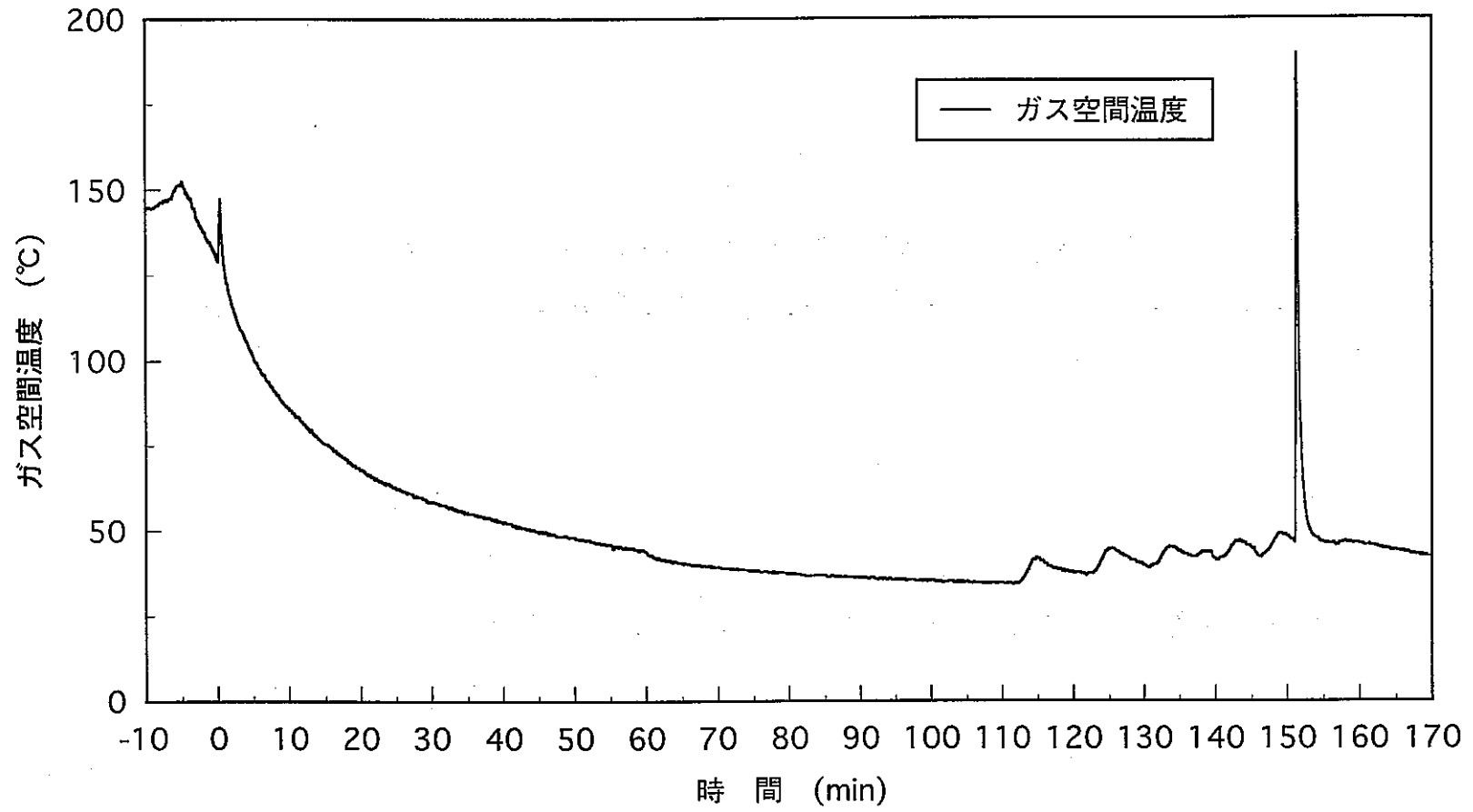
図A-3 ガス空間温度の推移 (ケース1)



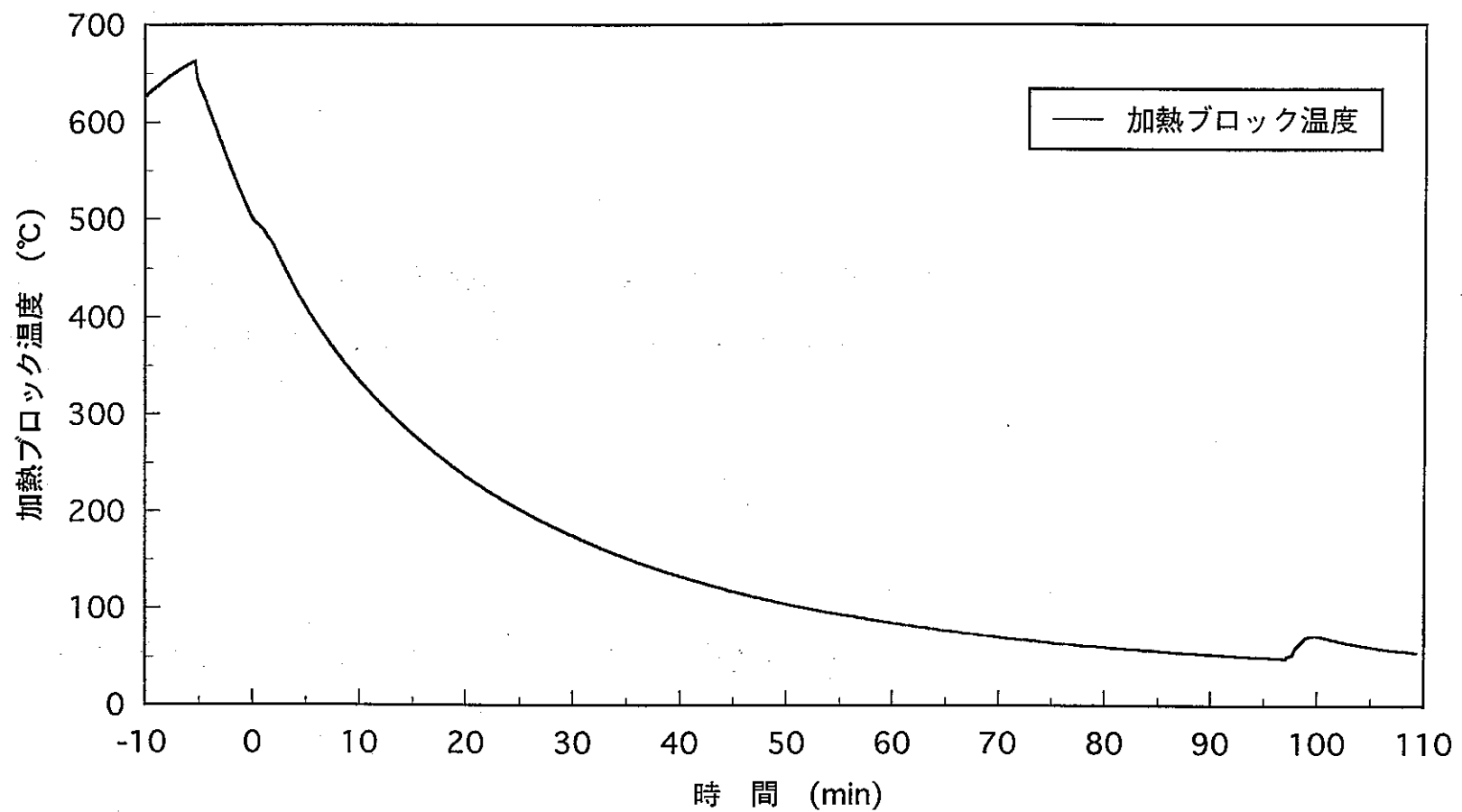
図A-4 加熱ブロック温度の推移 (ケース2)



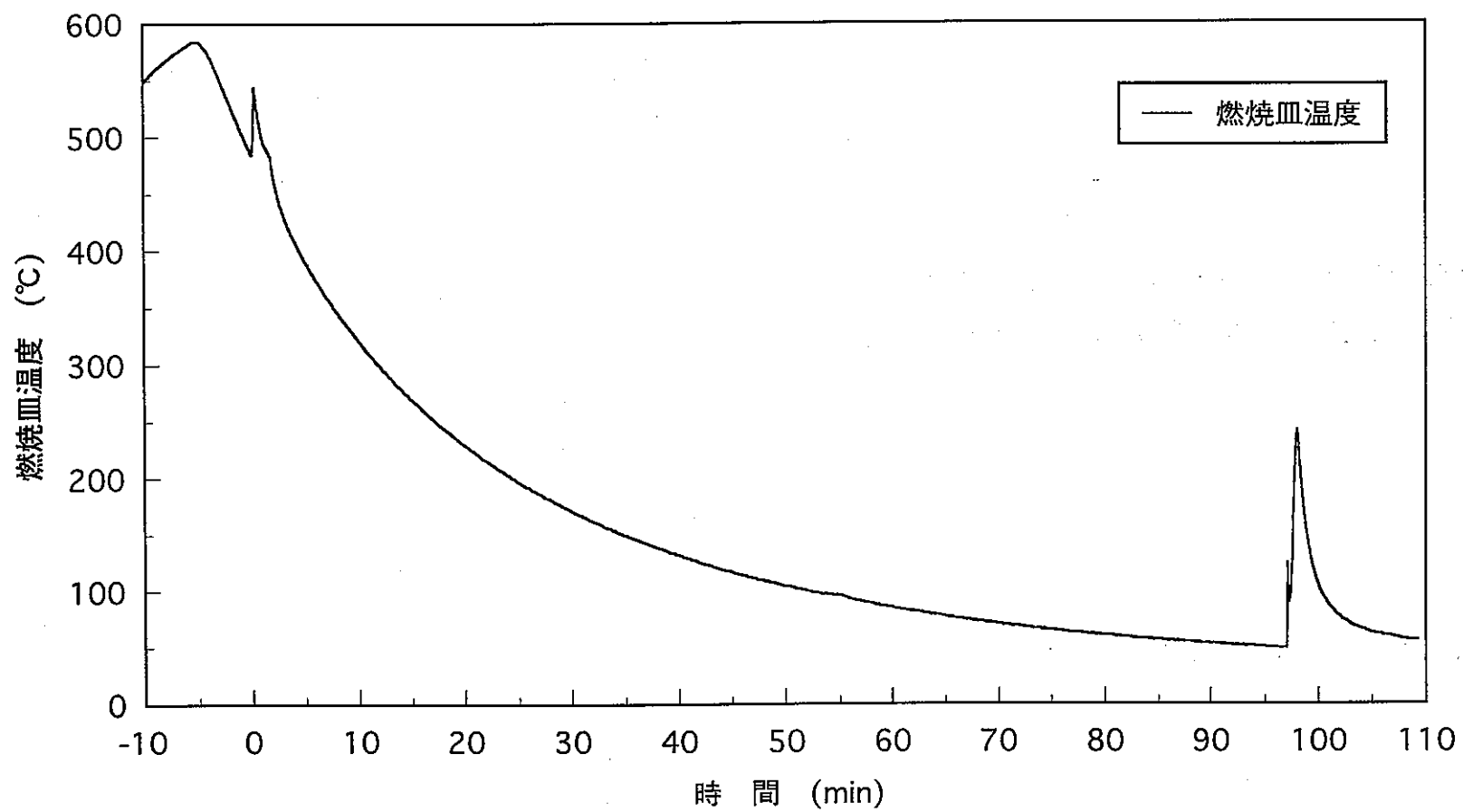
図A-5 燃焼皿温度の推移 (ケース2)



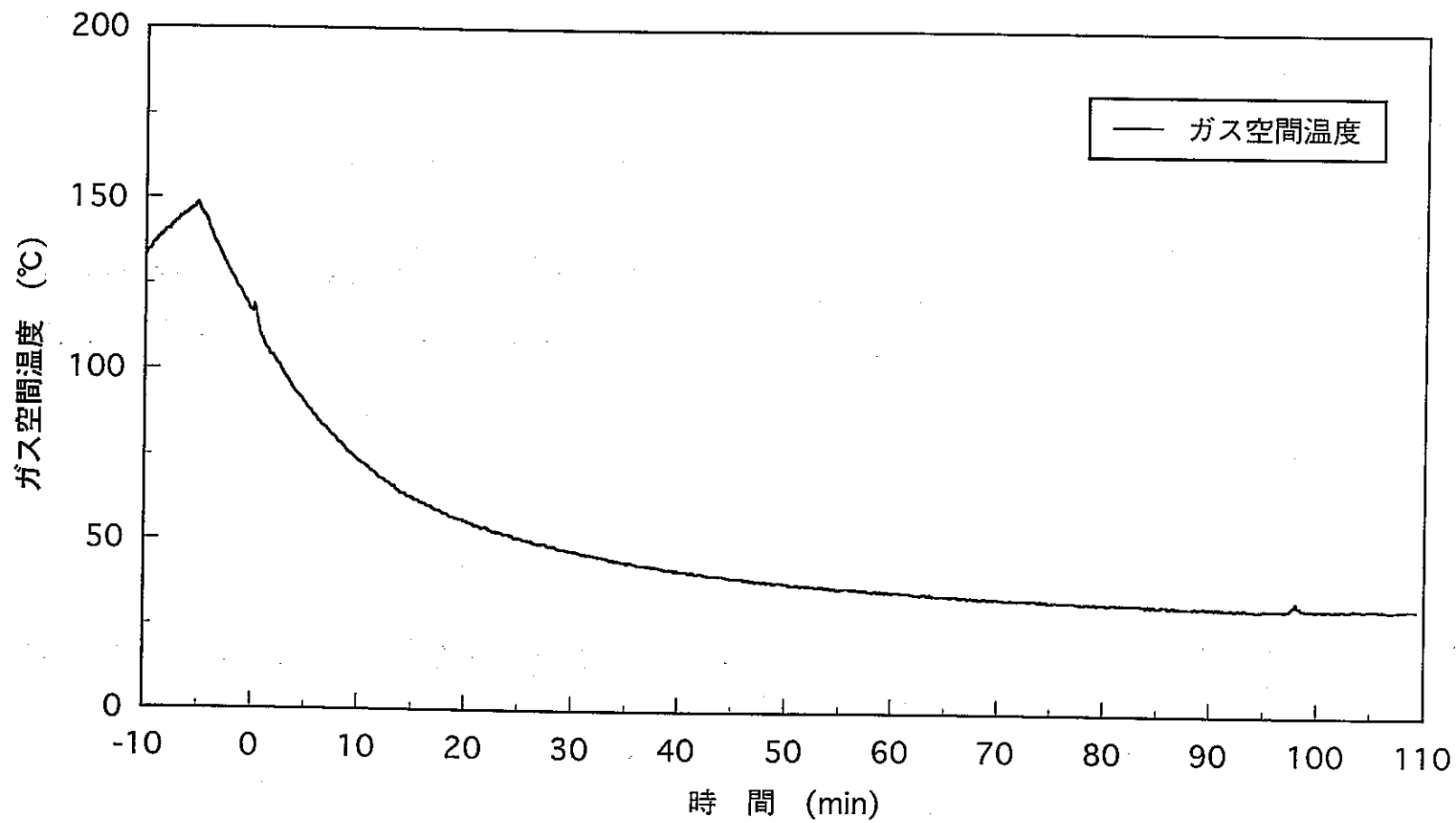
図A-6 ガス空間温度の推移 (ケース2)



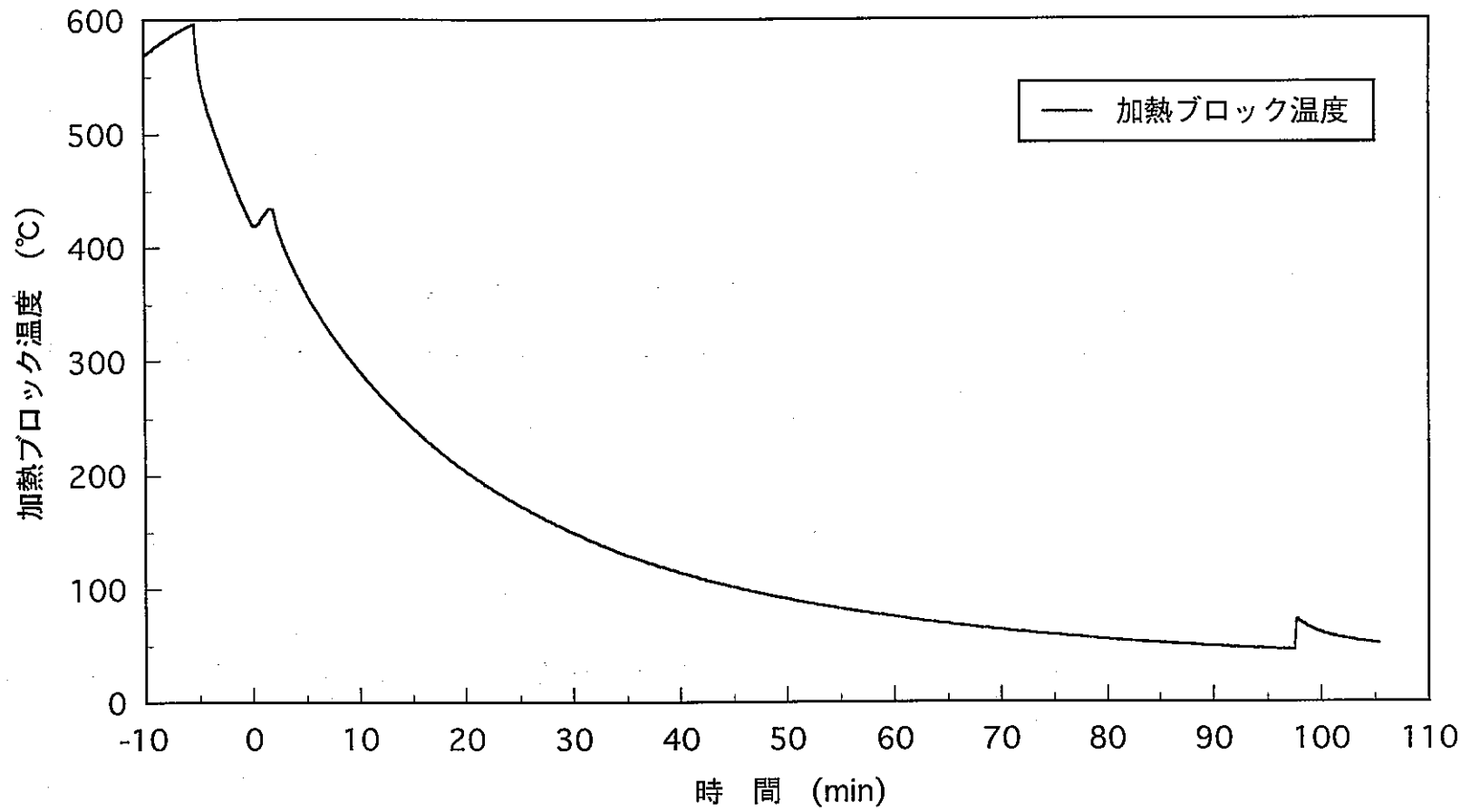
図A-7 加熱ブロック温度の推移 (ケース3)



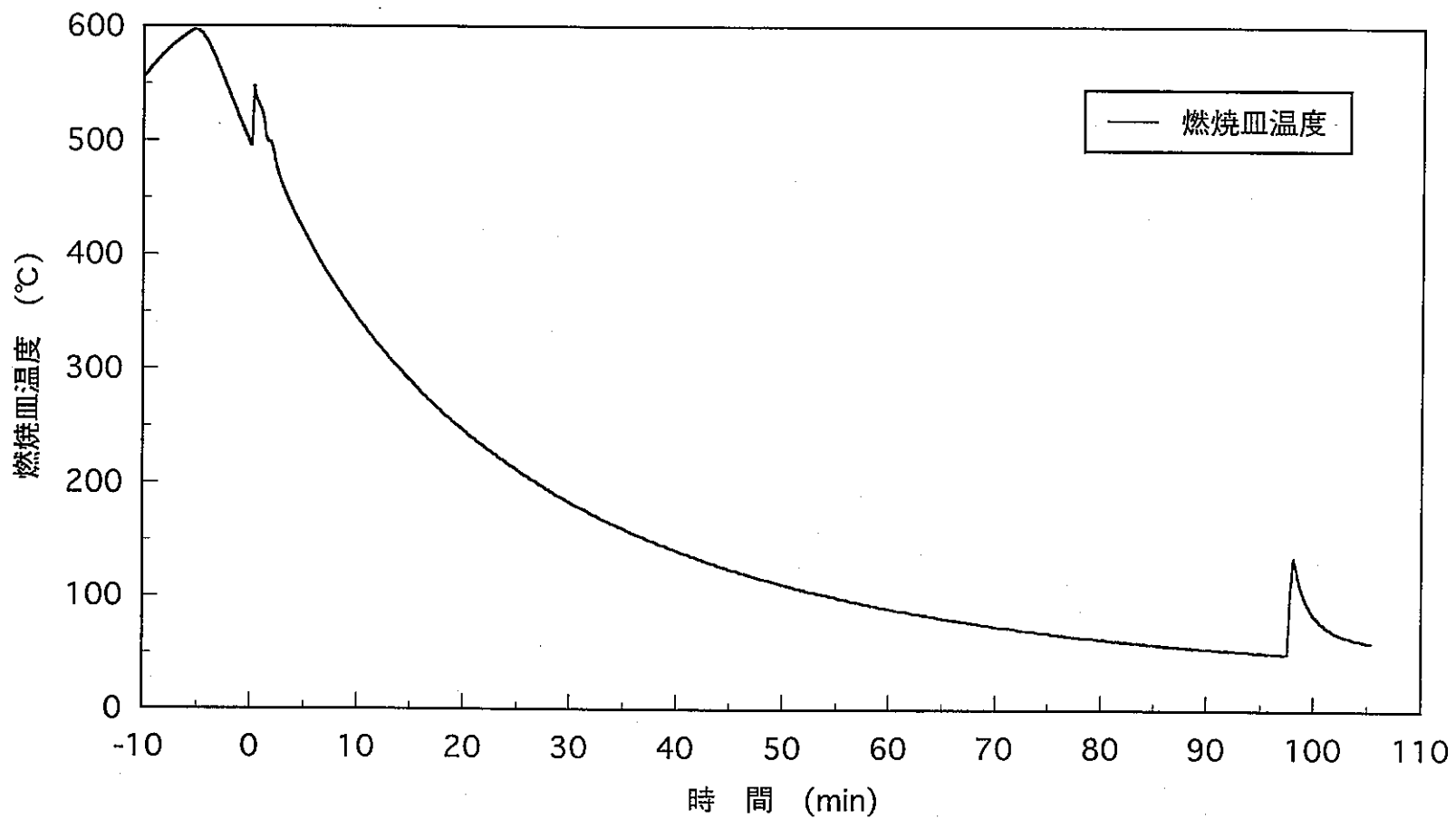
図A-8 燃焼皿温度の推移 (ケース3)



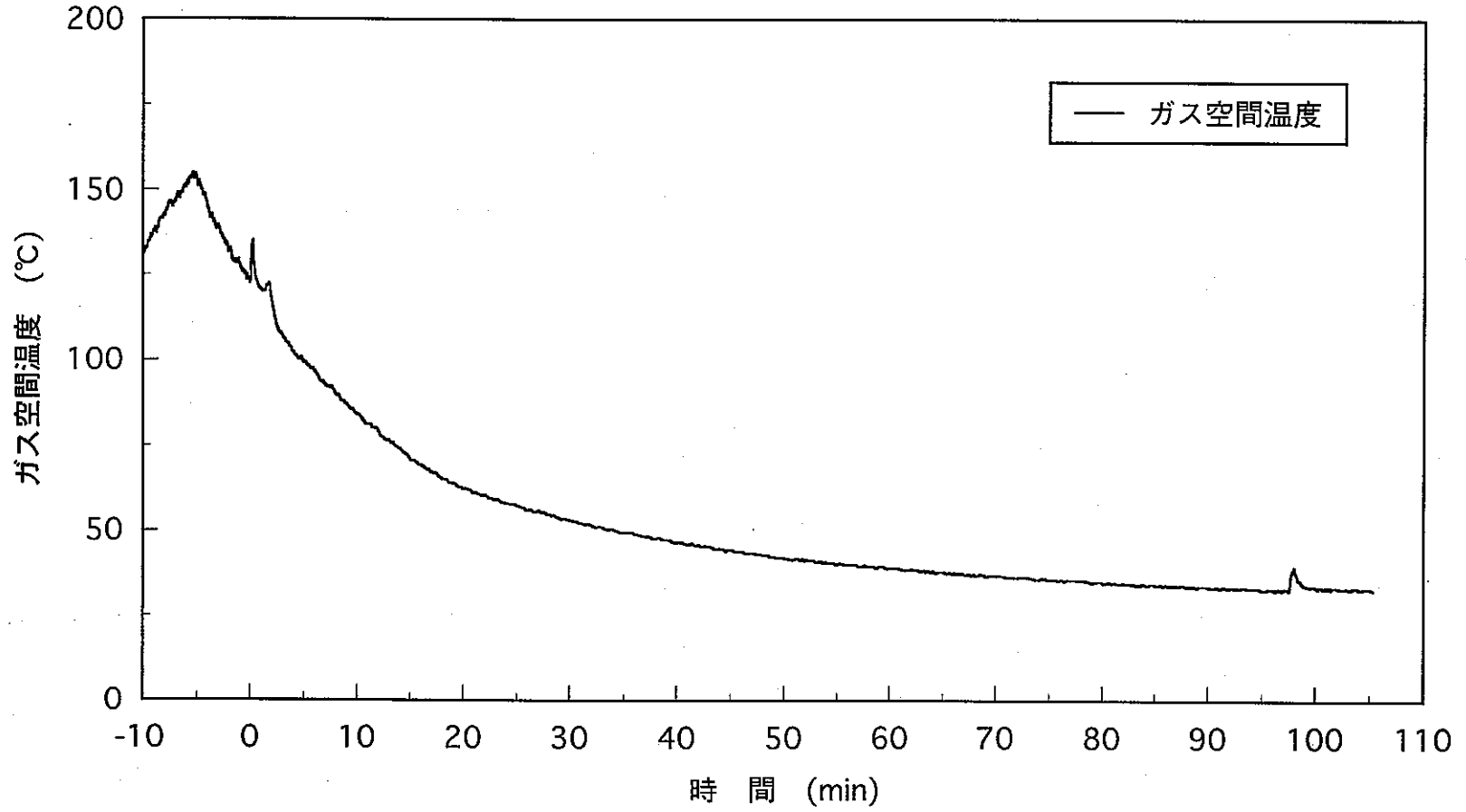
図A-9 ガス空間温度の推移(ケース3)



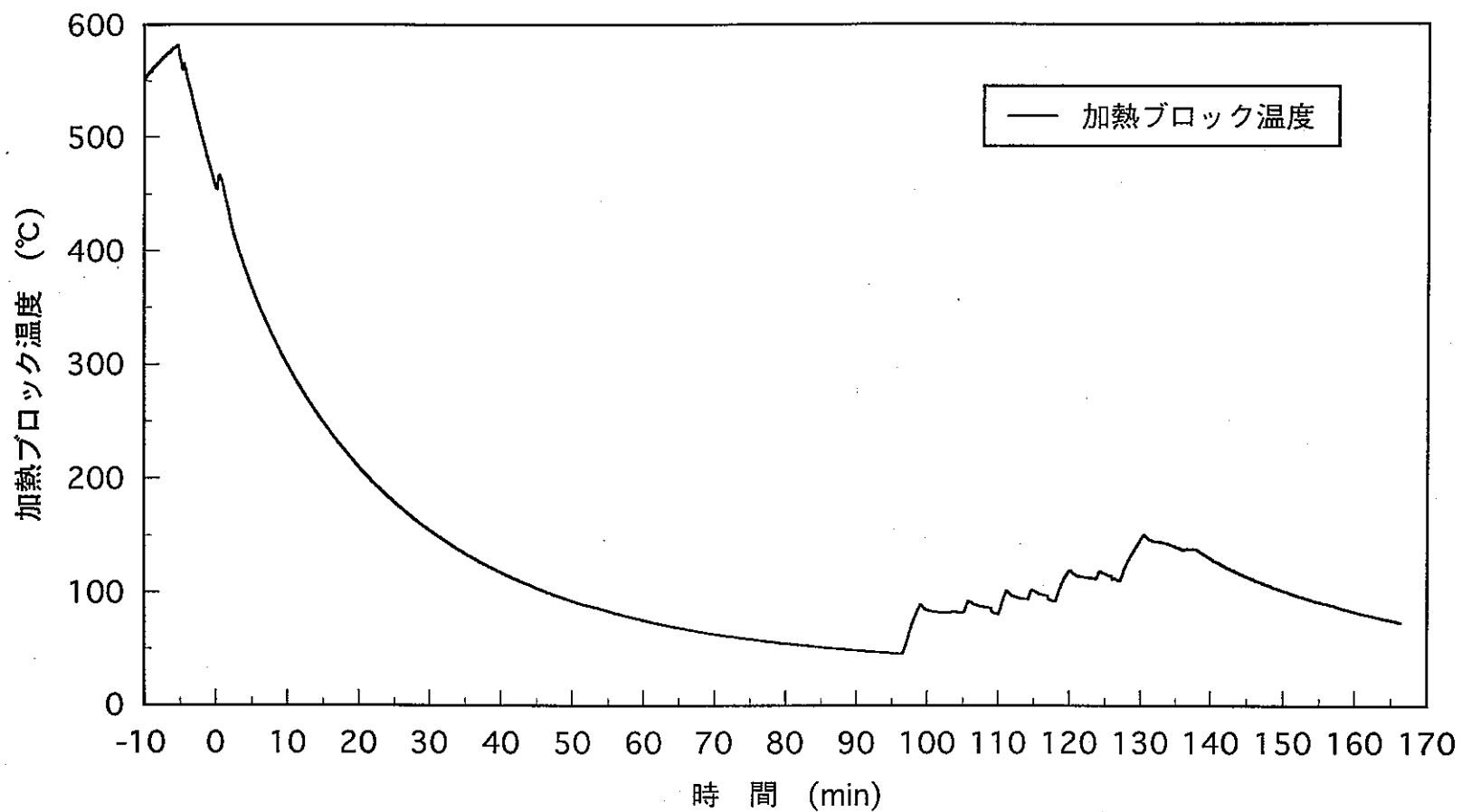
図A-10 加熱ブロック温度の推移 (ケース4)



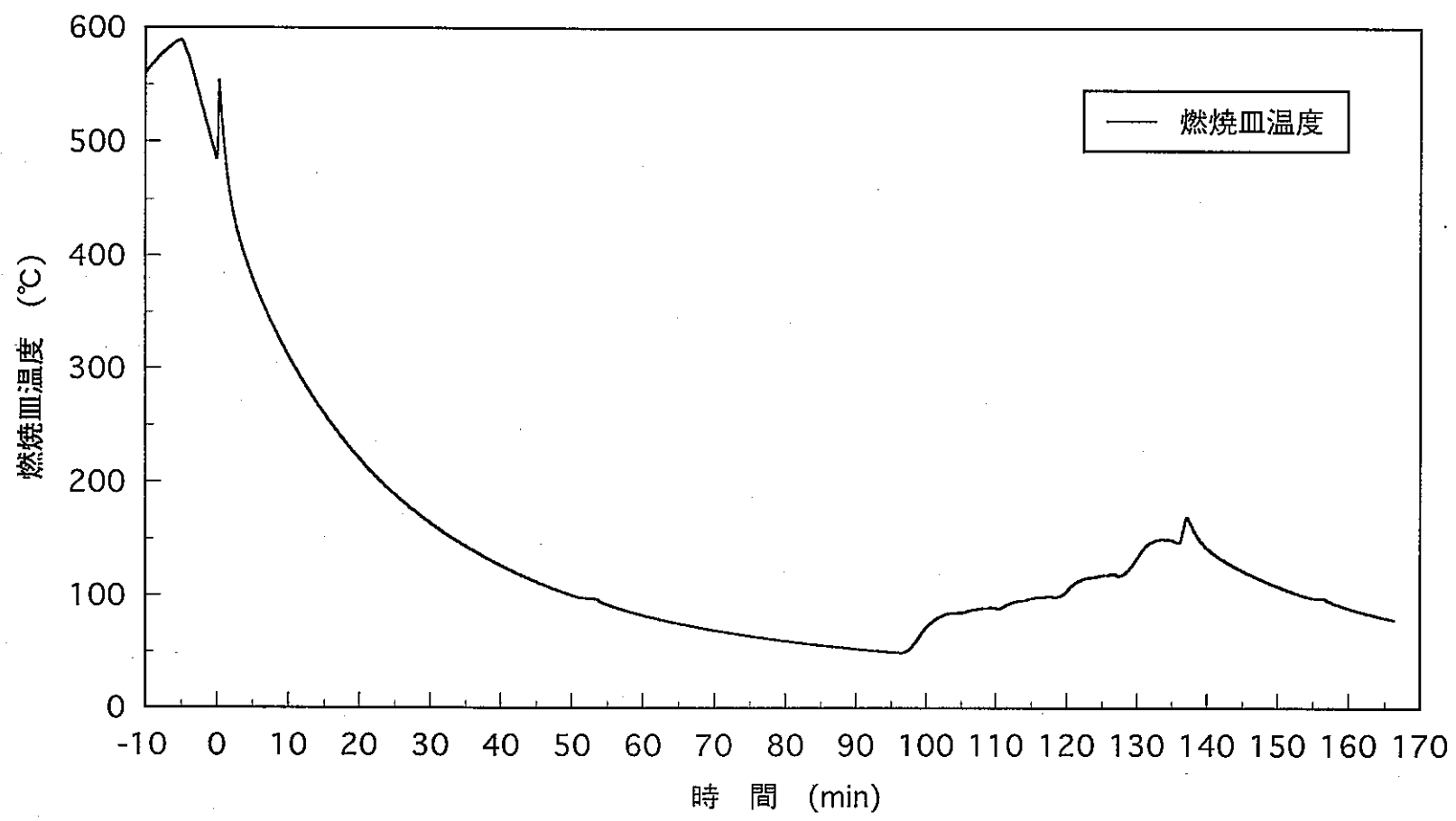
図A-11 燃焼皿温度の推移 (ケース4)



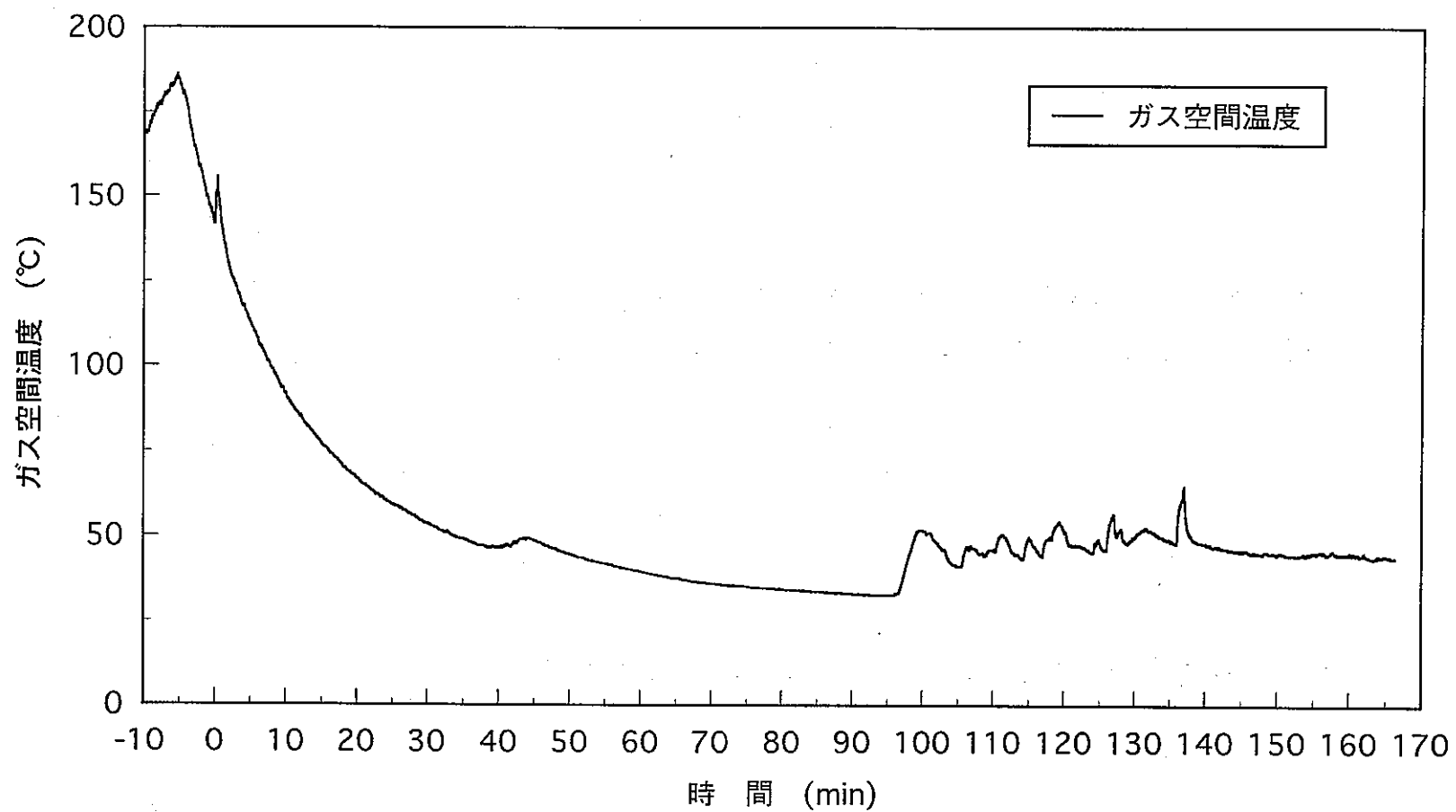
図A-12 ガス空間温度の推移 (ケース4)



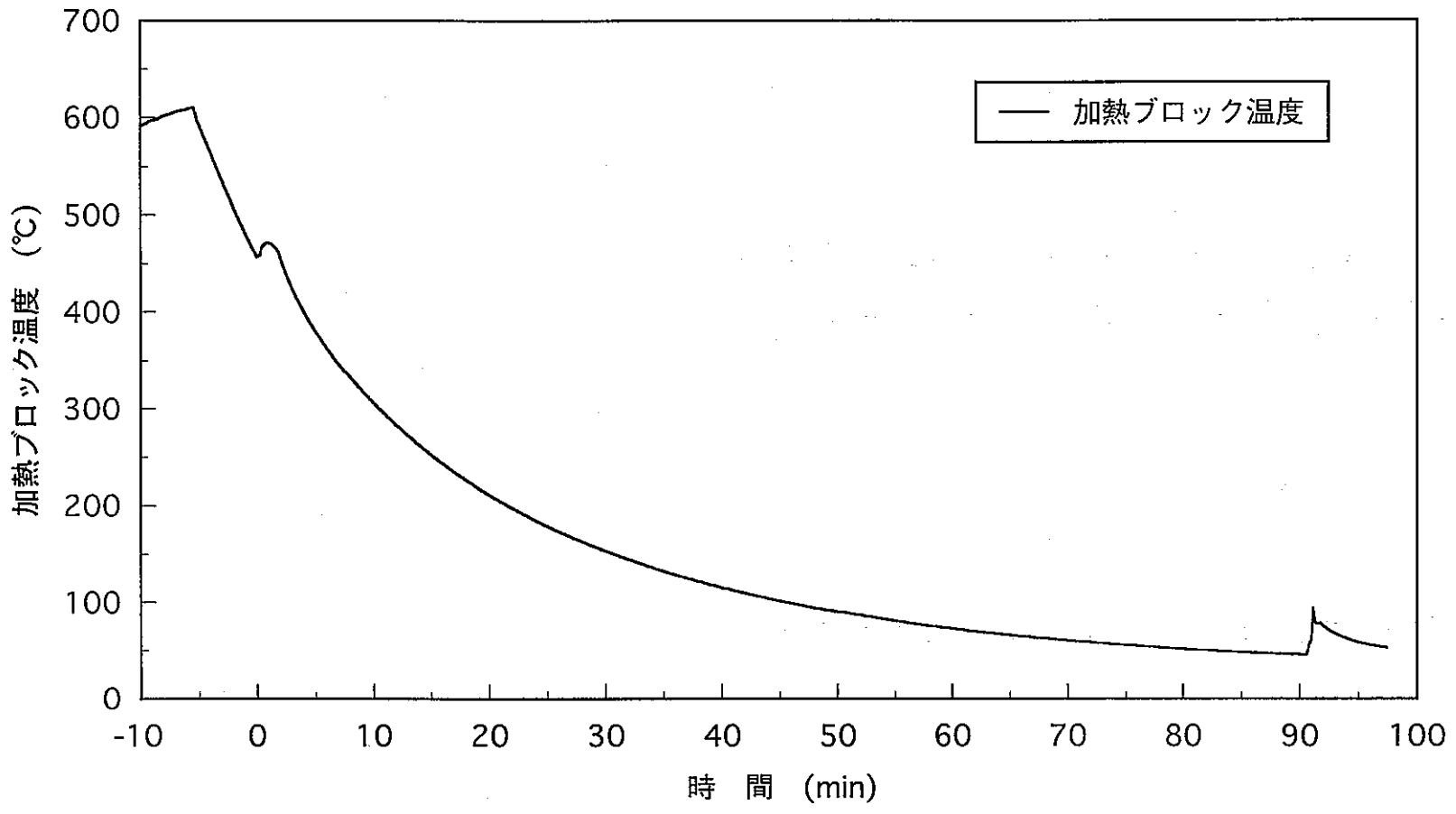
図A-13 加熱ブロック温度の推移 (ケース5)



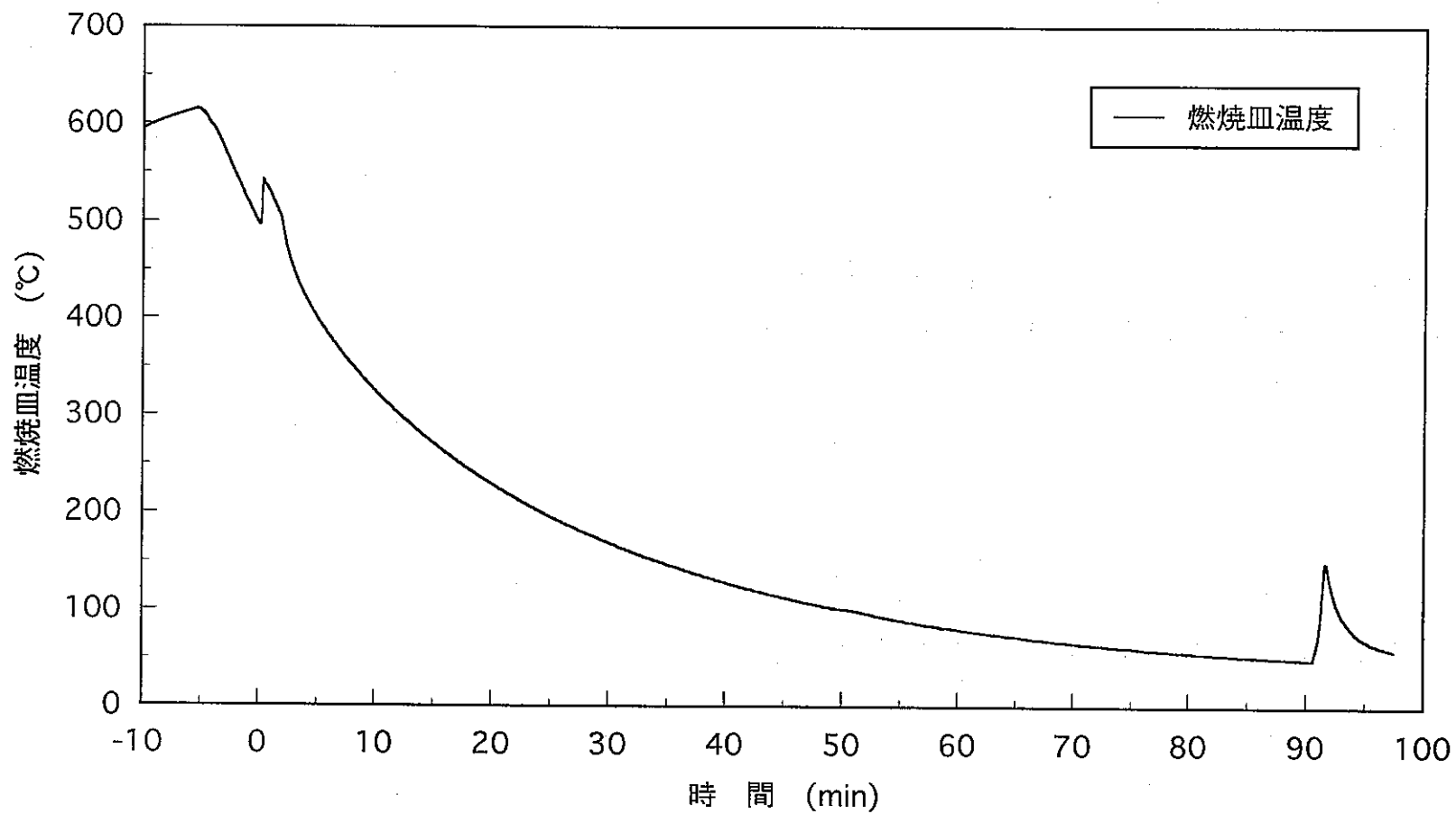
図A-14 燃焼皿温度の推移 (ケース5)



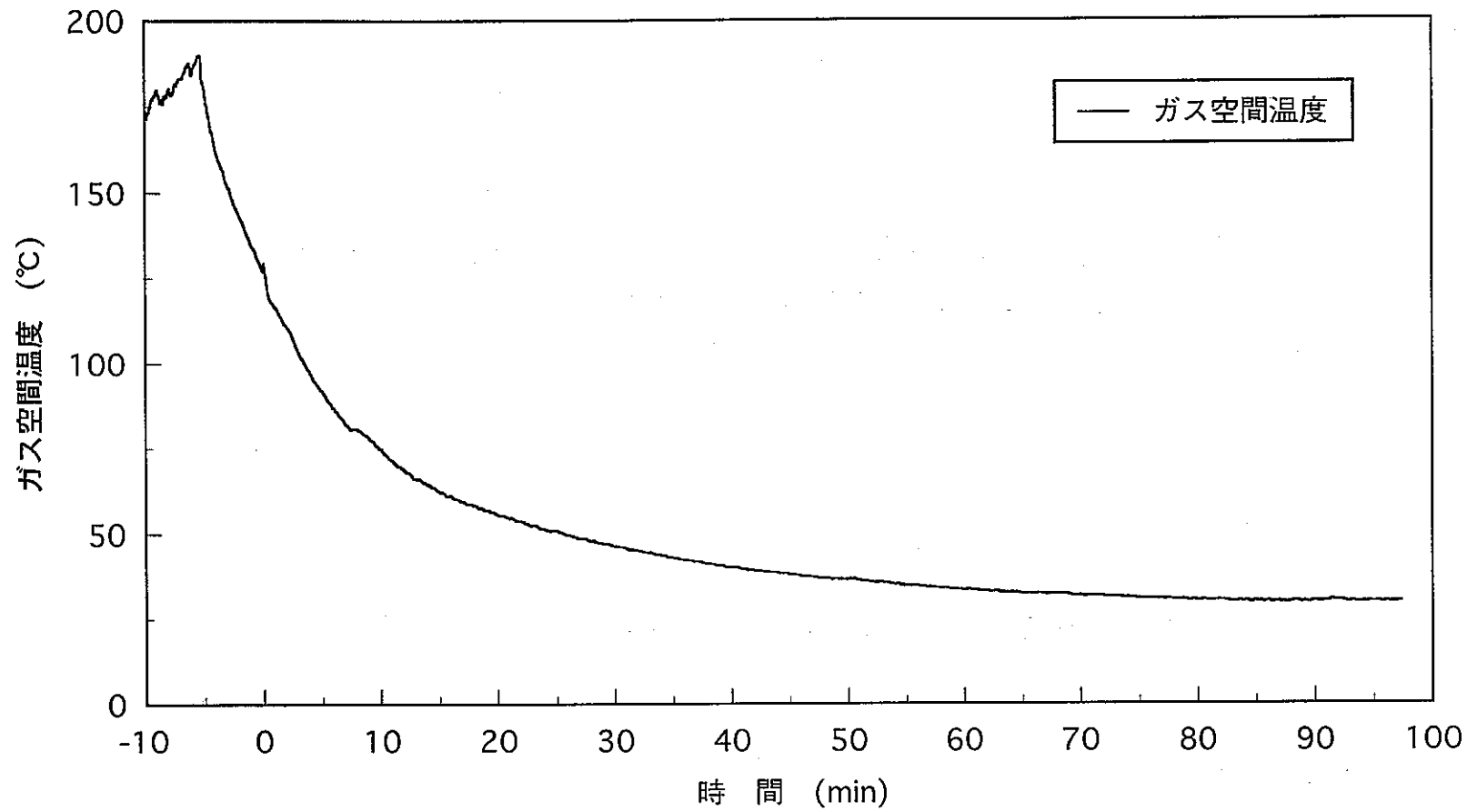
図A-15 ガス空間温度の推移 (ケース5)



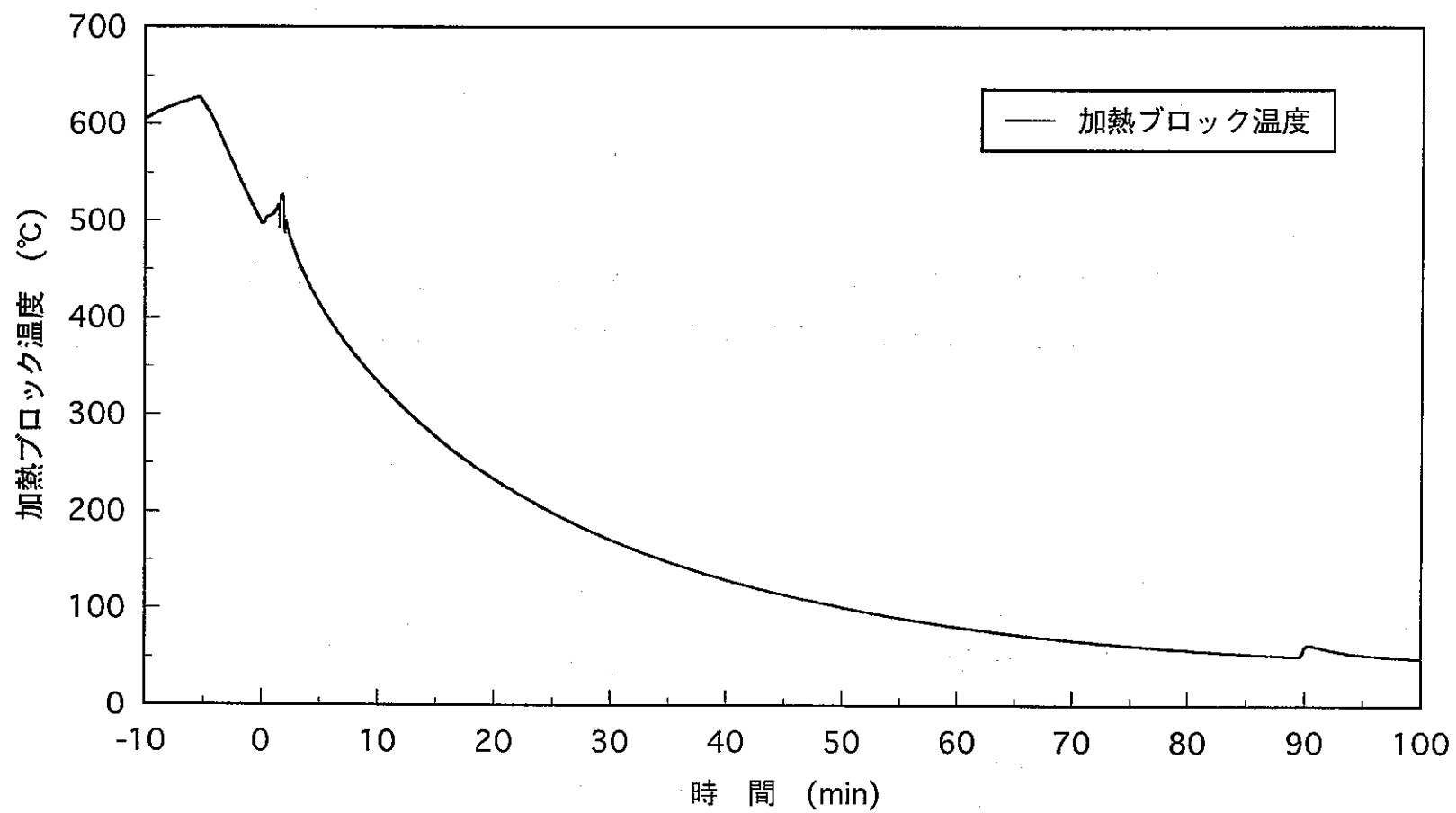
図A-16 加熱ブロック温度の推移 (ケース6)



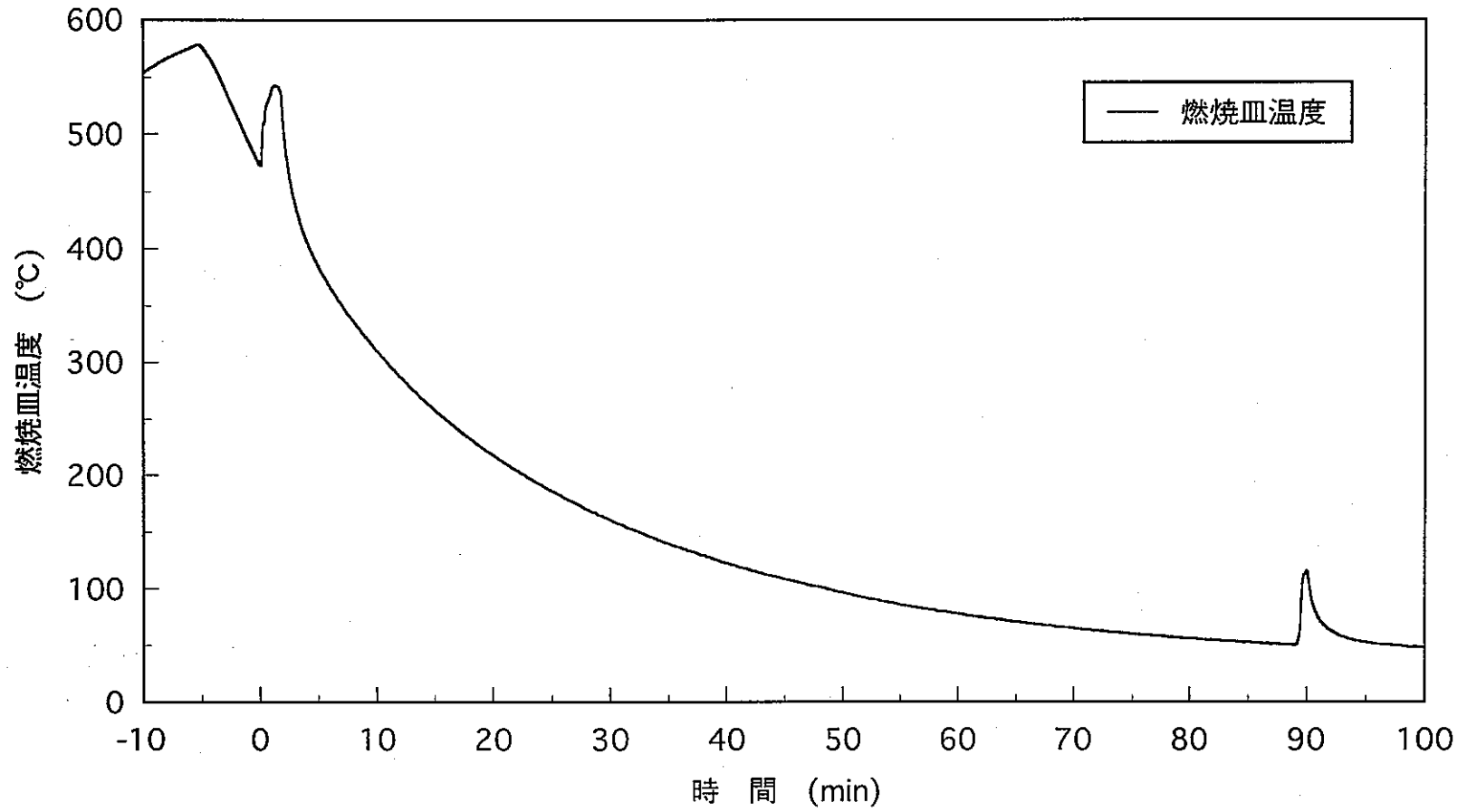
図A-17 燃焼皿温度の推移 (ケース6)



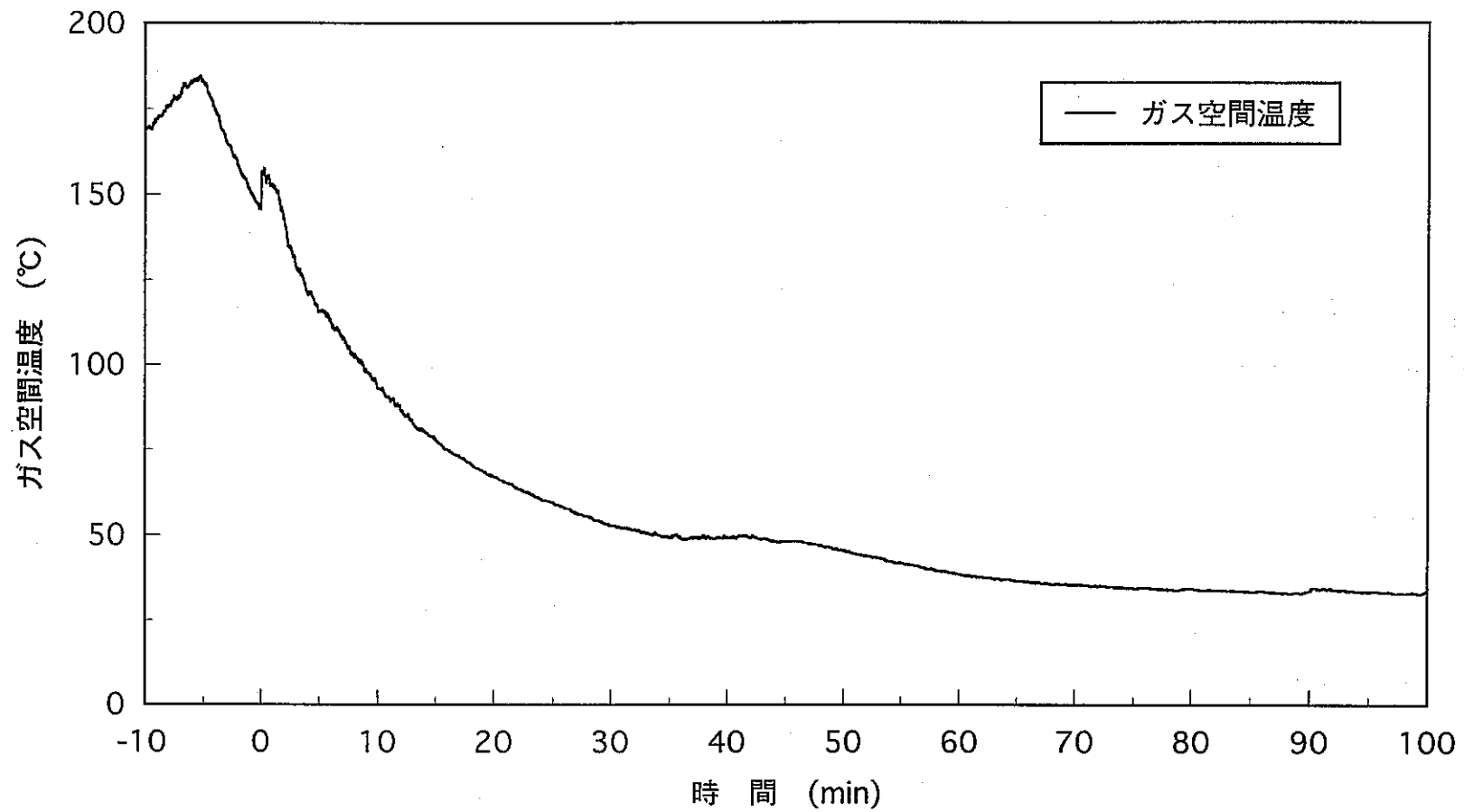
図A-18 ガス空間温度の推移 (ケース6)



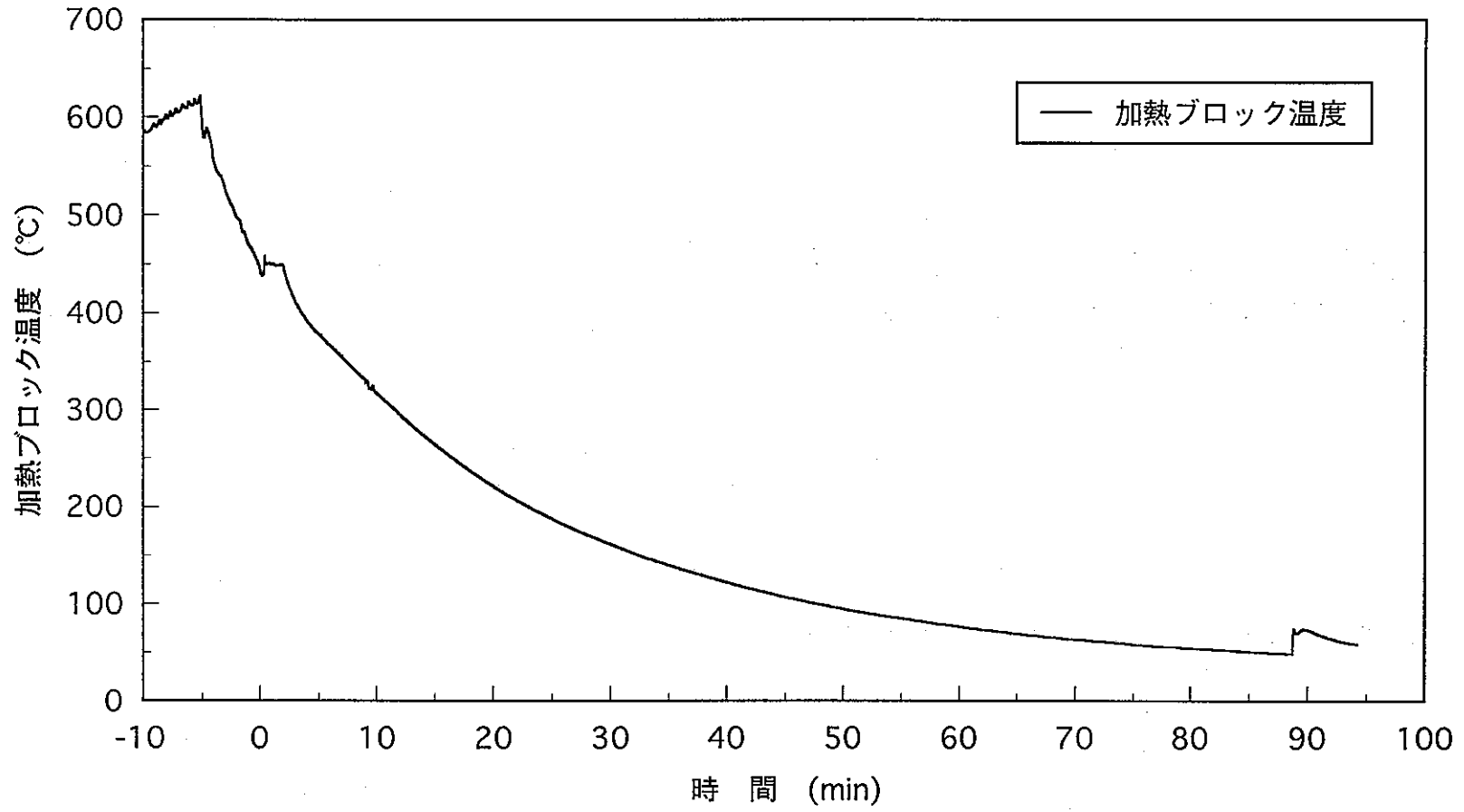
図A-19 加熱ブロック温度の推移 (ケース7)



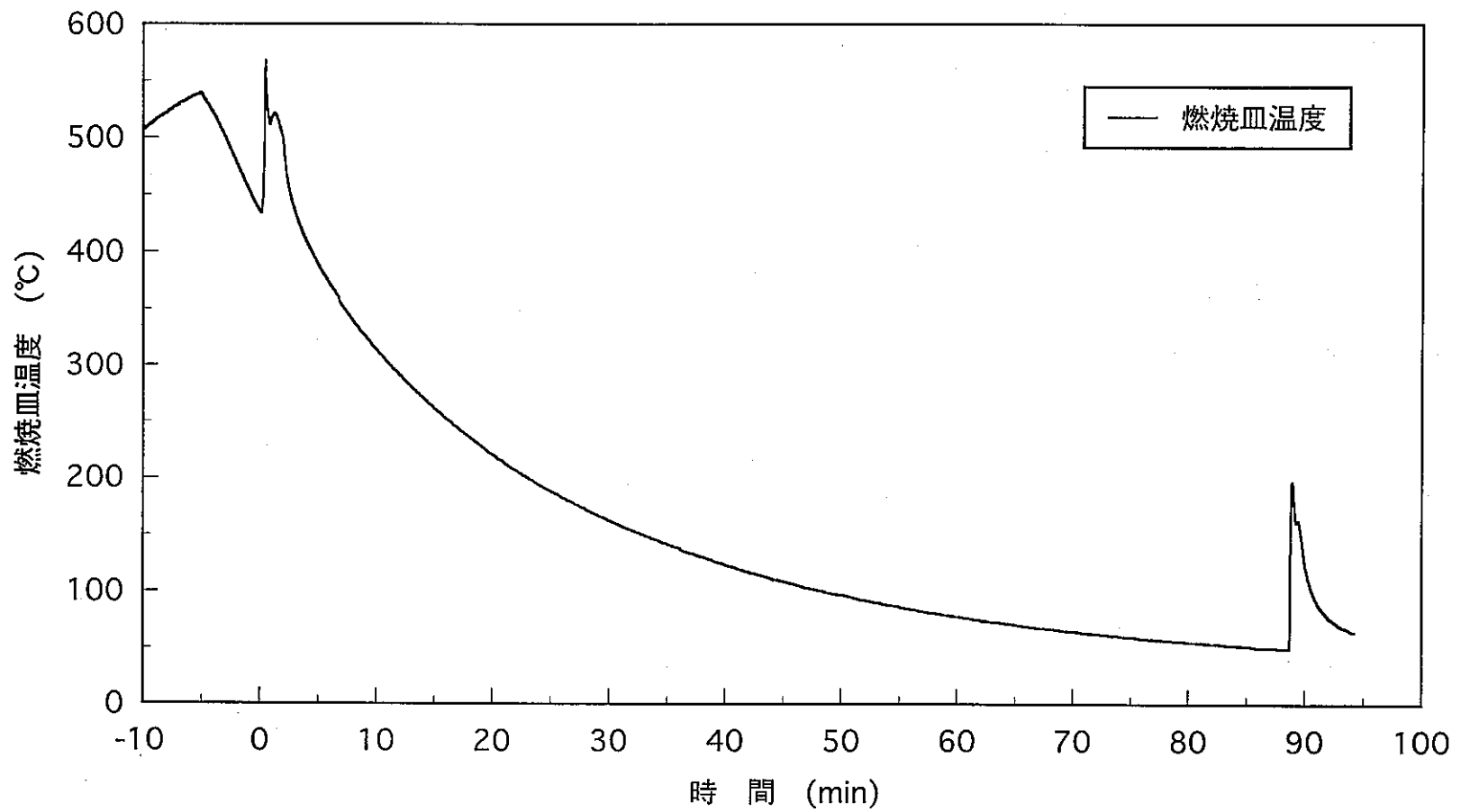
図A-20 燃烧皿温度の推移 (ケース7)



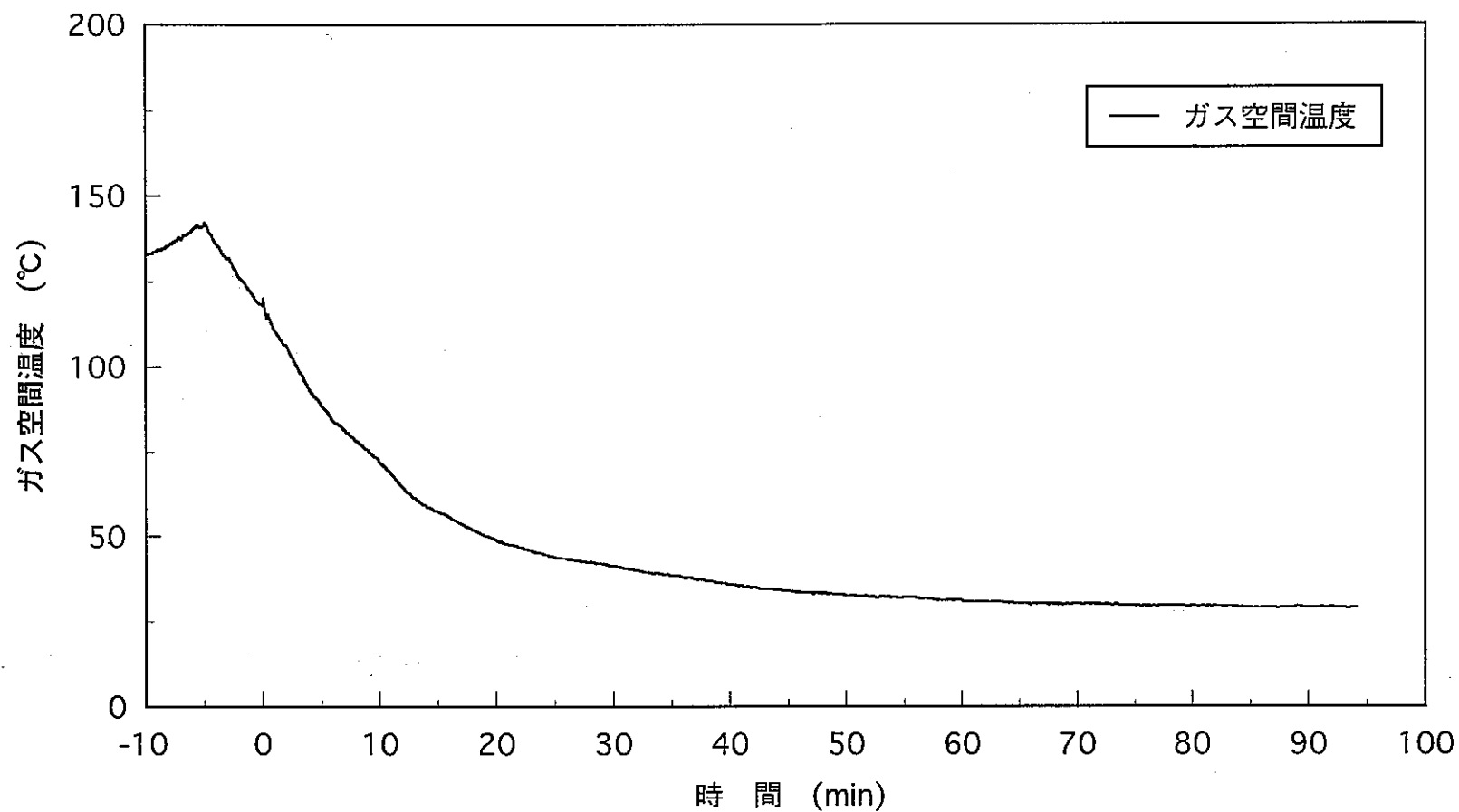
図A-21 ガス空間温度の推移 (ケース7)



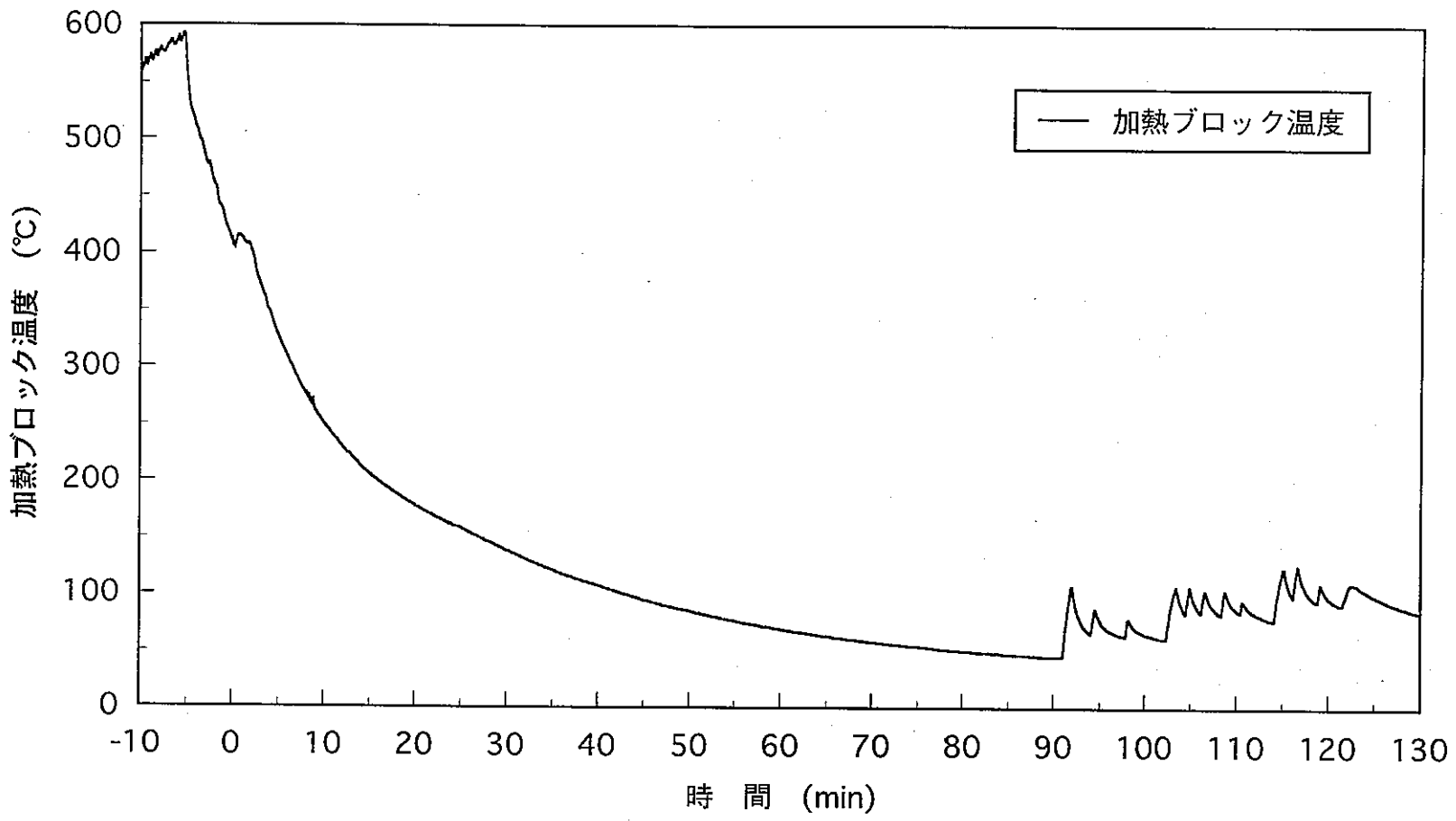
図A-22 加熱ブロック温度の推移 (ケース 8)



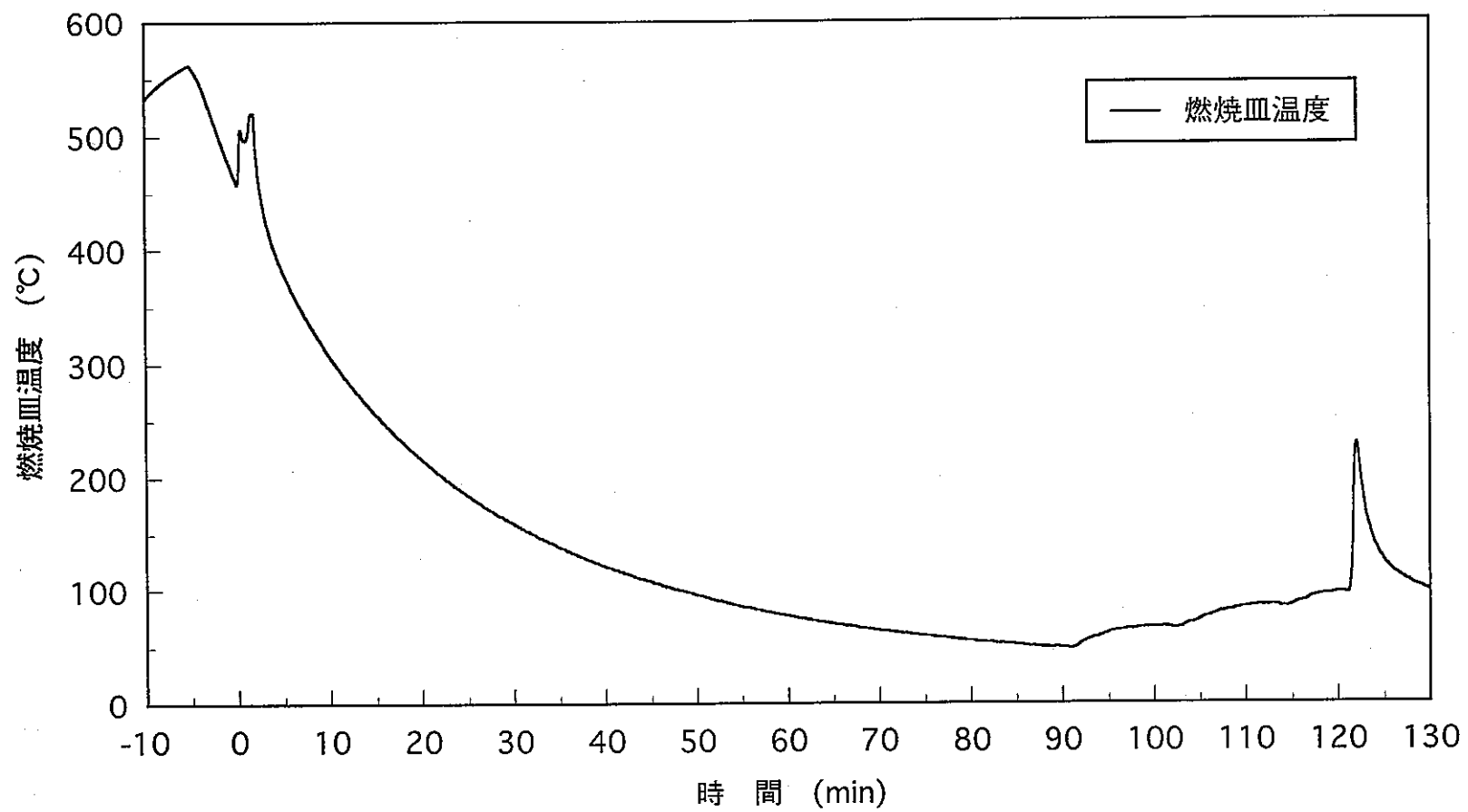
図A-23 燃烧皿温度の推移 (ケース8)



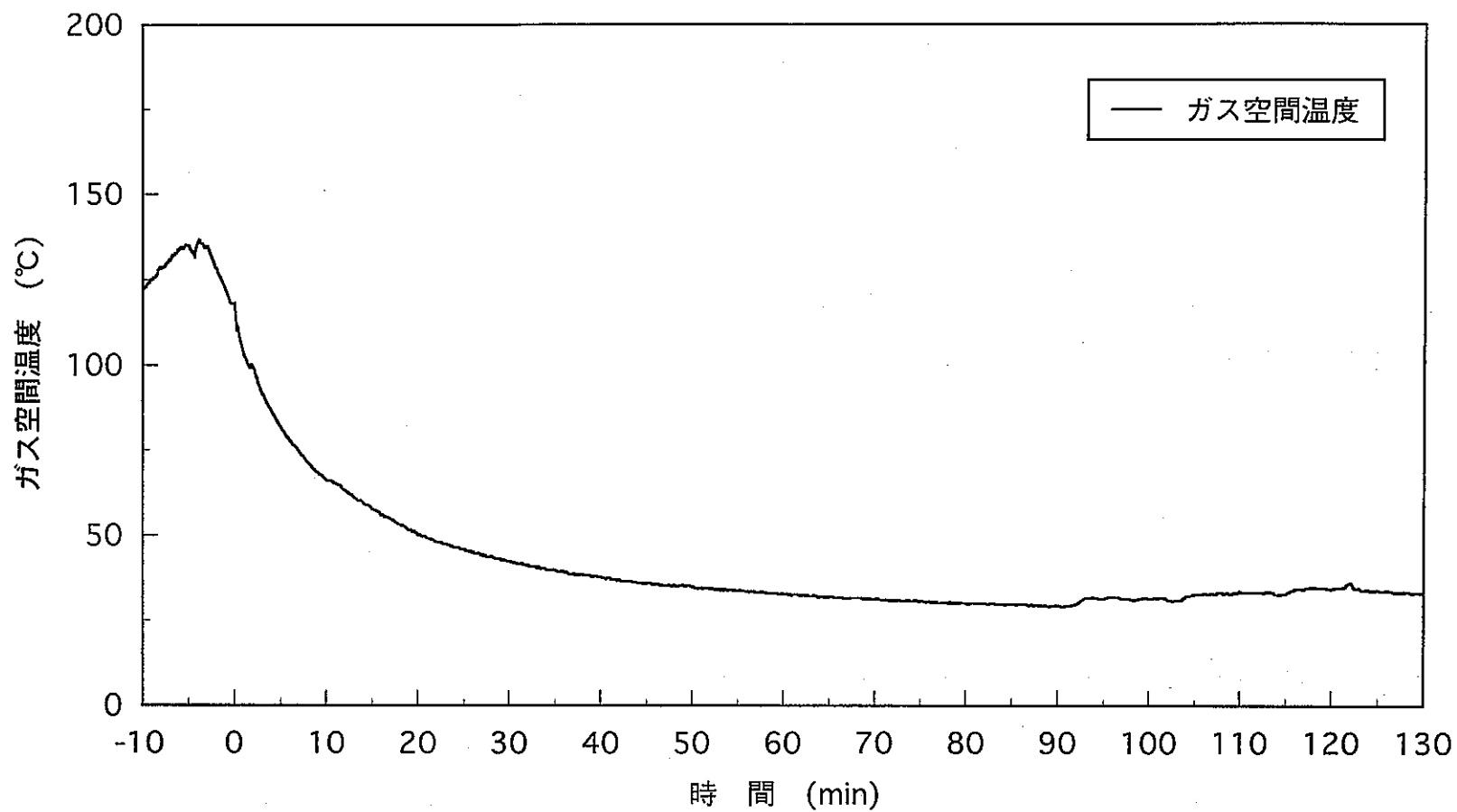
図A-24 ガス空間温度の推移 (ケース8)



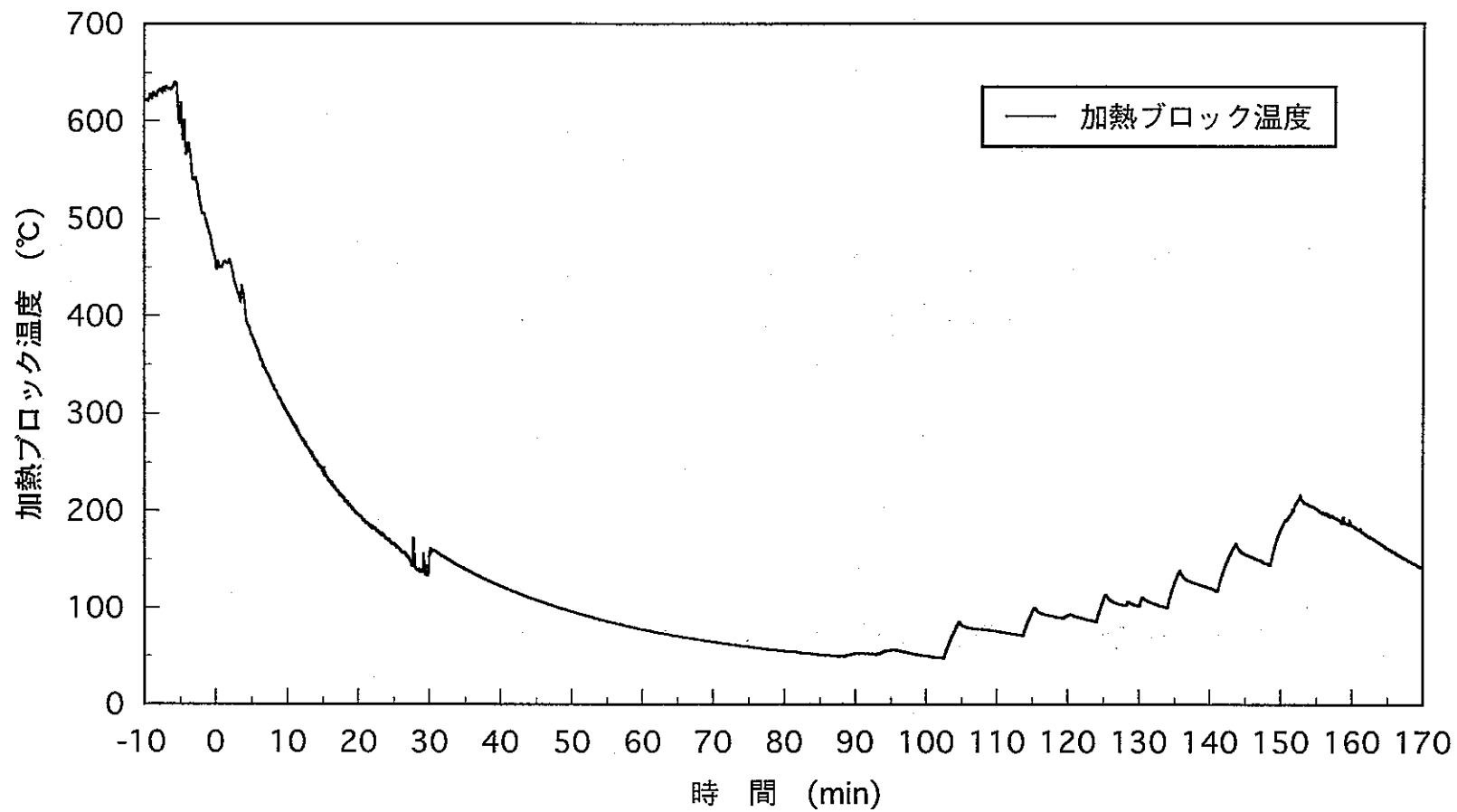
図A-25 加熱ブロック温度の推移 (ケース9)



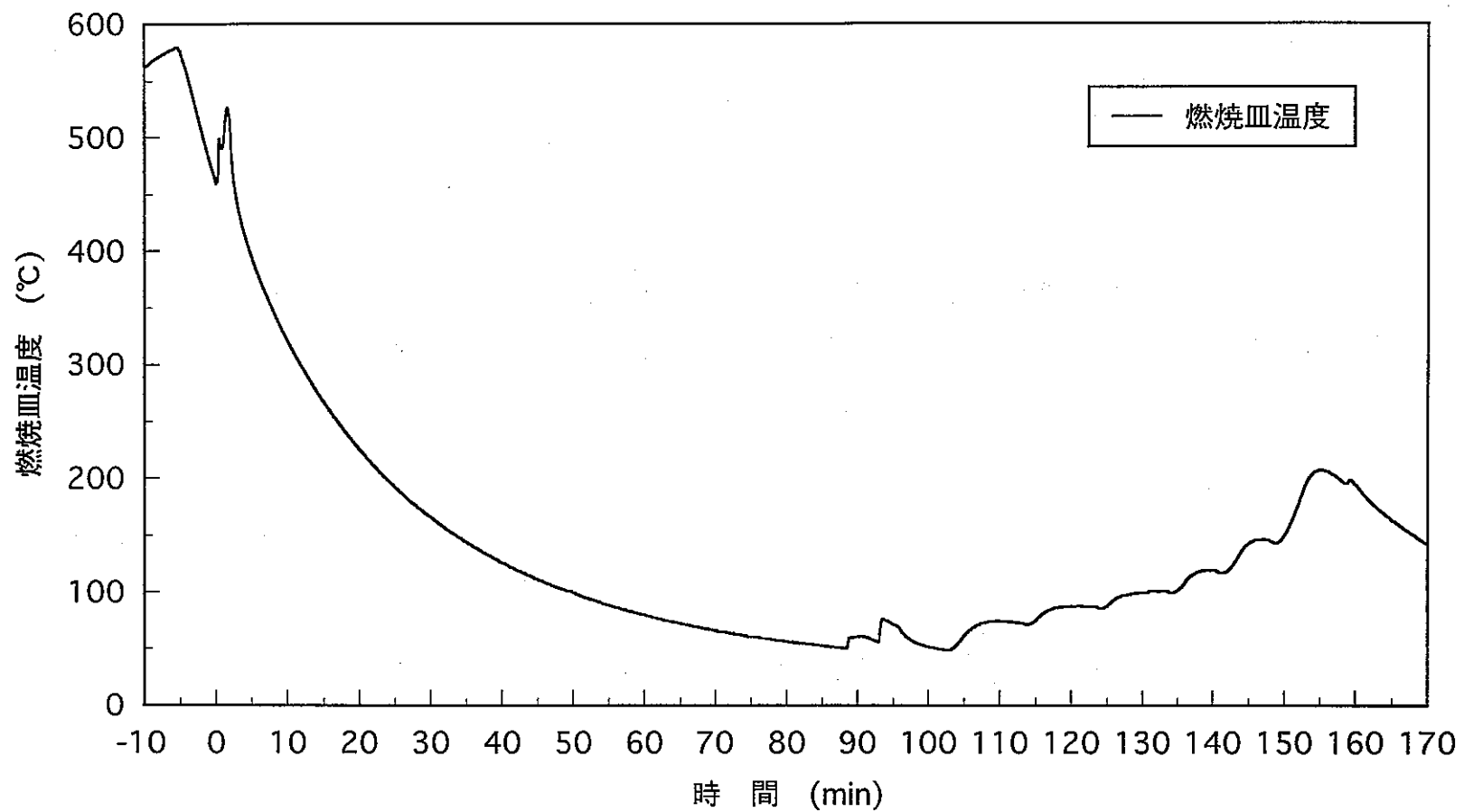
図A-26 燃焼皿温度の推移 (ケース9)



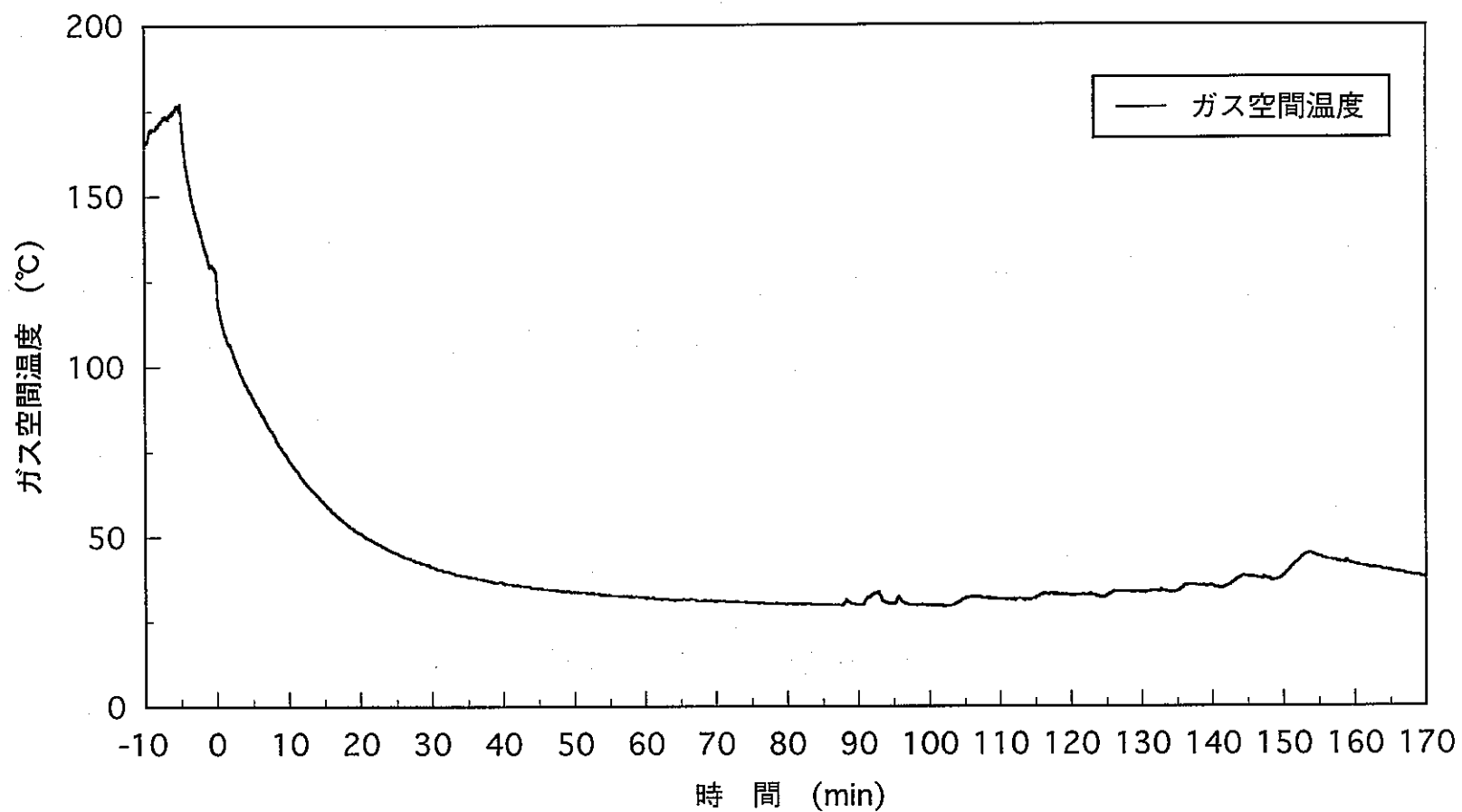
図A-27 ガス空間温度の推移 (ケース9)



図A-28 加熱ブロック温度の推移 (ケース10)



図A-29 燃焼皿温度の推移 (ケース10)



図A-30 ガス空間温度の推移 (ケース10)