



# 小規模ナトリウム漏えい時における プール燃烧挙動

二神 敏 大野 修司 西村 正弘

大洗工学センター 要素技術開発部

Characteristics of Pool Burning in Small Scale Sodium Leakage

Satoshi FUTAGAMI Shuji OHNO Masahiro NISHIMURA

Advanced Technology Division O arai Engineering Center

ナトリウム冷却高速炉における空気雰囲気での小規模ナトリウム漏えいを想定し、ナトリウムプール拡がり挙動と床ライナ温度挙動に関する基礎的知見を取得するとともに、床ライナ材腐食挙動に着目した実験を実施した。実験はナトリウムの漏えい率、漏えい高さ、湿度条件をパラメータとして6ケース実施した。本報は、これらの実験の方法と結果及び得られた知見についてまとめたものである。実験の結果から、ナトリウム小規模漏えい時におけるライナ最高温度のナトリウム漏えい率依存性を確認し、最終的なプール面積はナトリウム漏えい率に比例すること、及びナトリウムプールは漏えい時間にほぼ比例して拡大するが、漏えいによるナトリウム供給量と燃焼量がバランスした時点で、漏えい中でも拡大が停止することが明らかとなった。また、腐食減肉量や堆積物の化学分析、材料分析結果によれば、小規模漏えい時の床ライナ腐食は、減肉速度の比較的遅いNaFe複合酸化型腐食が支配的であることを確認した。

*Sodium combustion tests were performed in order to investigate sodium pool expansion behavior, floor liner temperature and floor liner corrosion mechanism under the condition of small scale sodium leakage in air atmosphere of sodium cooled fast reactors. In 6 cases of the tests, sodium leak rate, leak height and humidity were changed as the parameter. This report describes the plan, result and knowledge of these tests.*

*The test results are as follows: The maximum temperature of the floor liner depends on leak rate. The final growth area is mostly proportional to the rate of sodium leakage. Although a sodium pool grows up in proportion [almost] to time in early stages of leakage, the growth stops during the leakage due to the balancing of sodium supply and consumption in the pool. The measured value of floor liner corrosion thickness, chemical analysis of deposit and material analysis result showed that the dominant corrosion mechanism was relatively slow "Na Fe double oxidization type corrosion" under the small scale sodium leakage.*

## キーワード

小規模ナトリウム漏えい，ナトリウム燃焼，プール燃焼，ライナ最高温度，ライナ材料腐食，プール拡がり，ナトリウム漏えい率，FRAT 1，ASSCOPS，SPHINCS

*Small Scale Sodium Leak, Sodium Fire, Pool Burning, Liner Maximum Temperature, Floor Liner Material Corrosion, Sodium Pool Expand Behavior, Sodium Leak Rate, FRAT 1, ASSCOPS, SPHINCS II*



二神 敏

熱化学安全試験グループ  
SG安全研究チーム所属  
副主任研究員  
ナトリウム-水反応実験及び  
ナトリウム燃焼実験に従事



大野 修司

熱化学安全試験グループ  
燃焼・ソースターム安全研  
究チーム所属  
副主任研究員  
ナトリウム漏えい燃焼及び  
ソースターム評価に関する  
業務に従事



西村 正弘

熱化学安全試験グループ  
燃焼・ソースターム安全研  
究チーム所属  
副主任研究員

現在：内閣府出向中

## 1. はじめに

ナトリウム冷却高速炉で空気雰囲気中にナトリウムが漏れいし、漏れい率が比較的小規模（～数百kg/h以下）であった場合の特徴として、プラント建屋に及ぼす火災の潜在的発熱量は大きな問題とならないが、漏れいしたナトリウムは落下位置付近に留まって床上の限られた領域（局所）でプール状に燃焼することが挙げられる。また、それに伴う局所的なライナ温度の上昇は、ライナの勾配により早期に床上からドレンされる大規模漏れいの場合<sup>1)</sup>よりも高くなる傾向がある。さらに、炭素鋼製ライナ材の腐食についても把握しておく必要がある。

ナトリウム燃焼の安全評価に用いるナトリウム燃焼解析コードASSCOPS<sup>2)</sup>のような1点近似モデルに基づく解析コードでは、ナトリウムプールは一定面積上に堆積するものと扱われ、ライナの径方向への熱散逸のような効果は考慮できないため、ライナ最高温度は高めの評価になると予想される。このため、本実験研究では小規模漏れいでの床ライナ最高温度を実験的に把握することを第一の目的とした。一方、現象の機構論的な取扱いを指向した多領域モデルのSPHINCS コード<sup>3)</sup>では、局所的なライナ温度を評価可能であることから、コードの検証データとしても小規模漏れい実験が必要とされた。

また、ライナ材の腐食反応についてはNa-Na<sub>2</sub>O系、NaOH-Na<sub>2</sub>O系、NaOH-Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>系における材料腐食減肉試験<sup>4)</sup>で明らかにされている。雰囲気中の湿度が低い場合は、Na<sub>2</sub>Oが主因のNaFe複合酸化型が支配的となる。他方、湿度が高い場合、反応生成物中に占めるNaOHの割合が多くなり、低融点（328℃）のNaOHによる溶融体が形成され、Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>が主因の溶融塩型となる可能性がある。この腐食型は「ナトリウム漏れい燃焼実験<sup>5)</sup>」で発生した腐食機構とされ、NaFe複合酸化型よりも5倍程腐食速度が速い。これらの腐食に関して、雰囲気湿度がライナ材の腐食環境（プールの化学組成）と腐食機構に及ぼす影響についての情報も必要とされている。

このような経緯のもとで、小規模ナトリウム漏れい時のナトリウムプールの拡がり挙動とライナ最高温度に及ぼす漏れい率の影響についての知見とともに、雰囲気湿度がナトリウムプールの燃焼挙動、ライナ材の腐食機構に及ぼす影響について

の情報を得るために、6ケースの実験を実施し、結果を詳細に分析することとした。本報は、これらの実験の方法と結果及び得られた知見についてまとめたものである。

## 2. 実験

### 2.1 実験装置

実験は、核燃料サイクル開発機構大洗工学センター内の小型密閉容器FRAT 1 (Fission Product and Radioactive Aerosol Release Test Rig 1)を用いて実施した。図1に実験装置概略図を示す。FRAT 1は直径約1.3m、高さ約2.2m、内容積約3m<sup>3</sup>のステンレス製密閉容器である。容器内底部にはライナを模擬した炭素鋼 (SM400B) 製受け皿を水平に取り付けた。受け皿は、直径が1,128mm、板厚が6mmのものである。また、受け皿下部は、断熱材 (ファインフレックス 1300, 厚さ50mm) を2層設置し、その下はキャッチパン (SUS304, 厚さ3mm) とした。

ナトリウムはFRAT 1容器上部に供給容器とノズルを設けて落下させた。ノズル先端部の内径は4.35mmである。ナトリウムの漏れい率は、ノズル途中のオリフィスと供給容器のカバーガス圧力を調整することにより、一定流量に制御した。

雰囲気は給気ラインに設けた水蒸気供給装置と

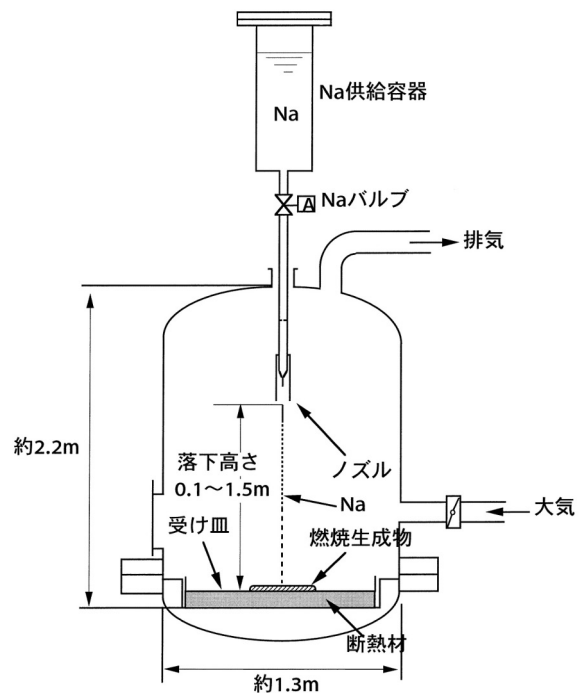


図1 FRAT 1試験装置

予熱ヒータにより湿度，温度を調整した。なお，ナトリウムの漏えい燃焼中にFRAT 1容器内が酸欠傾向とならないよう，3～5 m<sup>3</sup>/minの十分な換気を行った。

ナトリウム燃焼により発生するナトリウムエアロゾルを含む排気ガスは，まず水冷却塔で冷却し，水スクラバ，フィルタ設備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ワで大気中へ放出した。

## 2.2 計測

温度は，ナトリウムプール，ライナ，その他FRAT 1構造材等をK型シース熱電対により計測した。ナトリウムプール温度の測定は図2に示すように，プールの拡がり速度データ取得のために，ライナ表面から約4 mm高さの位置で同心円状に熱電対を配置した。また，ライナ温度の測定はライナ裏面に格子状に熱電対を配置した。

ナトリウム漏えい率は，ナトリウム供給容器内部に設けた接点式及び連続式の液位計により漏え

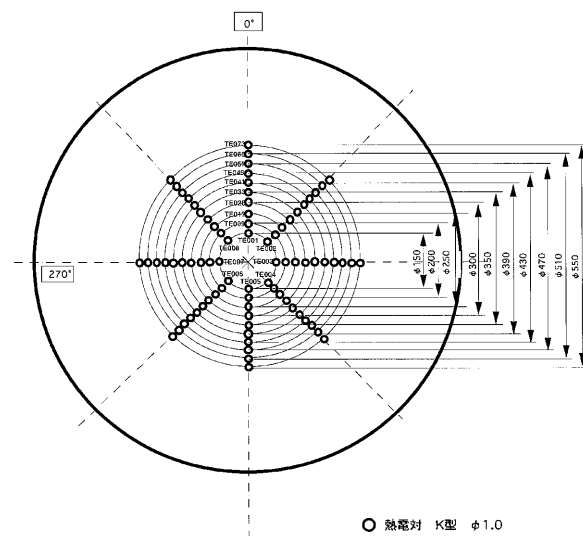


図2 受け皿表面熱電対配置 (Case1)

い量を把握し，漏えい量を漏えい時間で割ることによって算出した。

雰囲気中の湿度は，相対式湿度計（高分子吸湿型）により測定した。

実験終了後は，ライナ上の堆積物をサンプリングし，化学分析を行った。ライナは洗浄した後に，減肉量を測定した。減肉量測定には超音波厚み計を用いた。また，Case2C，Case3A，Case3Bについては，材料分析を実施し，金相組織を観察した。

## 2.3 実験条件

実験は，ナトリウムの漏えい率，漏えい高さがナトリウムプールの拡がり挙動とライナ最高温度に影響を及ぼすと予想されるためパラメータとし，雰囲気湿度についても，プールの燃焼挙動とライナ材の腐食機構の情報を得るためにパラメータとして選定した。実験条件を表1にまとめる。なお，漏えい率と漏えい高さは，装置上の制約による最大値を設定した。ただし，漏えい率については，本実験範囲が漏えいしたナトリウムが局所的に堆積し，ライナ径方向への熱散逸がライナ最高温度へ及ぼす影響を確認できる領域である。漏えい高さについては，本実験の主眼をプールの燃焼挙動の把握に置いており，落下中の燃焼挙動の詳細は別途試験研究を実施中である。

また，ナトリウム温度は，実機プラントで想定される中間熱交換器2次側出口温度を考慮し，安全解析で用いている値とした。

Case2Cでは，高湿度条件による各種影響を確認するために，雰囲気湿度を実機プラントで想定される年間最高湿度約44,000 vol ppm（安全解析で用いている気温35℃，RH 80%に相当）を上回る値とした。

Case3AとCase3Bは，ライナの腐食減肉と腐食機構に影響するNaOHの生成時期の関係を確認するために主要パラメータを同一とし，FRAT 1容

表1 実験条件

Case	1	2A	2B	2C	3A	3B
ナトリウム温度(℃)	507					
漏えい高さ(m)	1.5		0.1		1.5	
換気流量(m <sup>3</sup> /min)	3			5		
湿度(vol ppm)	23,000 - 24,000	14,000 - 15,000	6,000	46,000 - 48,000	27,000 - 28,000	25,000 - 28,000
平均ナトリウム漏えい率(kg/h)	6.8	12	12	14.5	26	24
漏えい継続時間(min)	22	25	25	30	23	25
不活性化の時期	燃焼終了時					漏えい終了時

器内をアルゴンガスにより不活性化した時期を、Case3Aは他のケースと同様に燃焼終了時、Case3Bは漏えい終了時とした。

### 3. 結果

#### 3.1 ライナ最高温度

ライナ最高温度を図3に示す。また、比較のため、ナトリウム燃焼解析コードASSCOPS ver.2.1による「もんじゅ」2次主冷却系設備配管室体系での漏えい率をパラメータとした解析結果（雰囲気条件はCase2Cと同様<sup>7)</sup>、SPHINCSコードによるCase2B条件での解析結果、ナトリウム漏えい燃焼実験<sup>7)</sup>、ナトリウム漏えい燃焼実験の床ライナ最高温度も図3に示す。なお、ASSCOPSコードについては、一点近似モデルであるが、ナトリウム漏えい燃焼実験の結果と良い一致を示している。また、ASSCOPSの解析体系等と比較して、本実験及びSPHINCSの解析体系は内容積約3m<sup>3</sup>のFRAT1容器を用いたため小規模であるが、容器内が酸欠傾向とならないよう、十分な換気を行っており、燃焼挙動に与える体系の影響は小さいと考えられる。

本実験では、ライナ最高温度はナトリウム漏えい率の低下とともに低下する傾向となり、一点近似のASSCOPSコードによる解析（約800以上）よりも低く、ナトリウムプールやライナを多領域

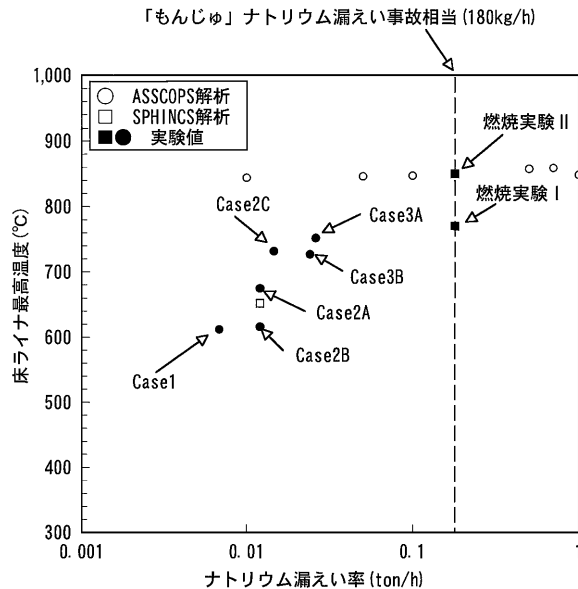


図3 ナトリウム漏えい率と床ライナ最高温度（もんじゅ2次主冷却系設備配管室解析結果と実験値の比較）

メッシュ分割で解析するSPHINCSコードと整合する結果となった。

また、漏えい高さについては、Case2AとCase2Bを比較すると、Case2Bの0.1mよりも本実験基準ケースCase2Aの1.5mの方がライナ最高温度は約59℃高くなった。これは、後述のナトリウムプールの拡がり挙動が両ケースで同様であり、ノズル直下のライナ温度のCase2AとCase2Bの差が最高温度を示した位置の温度の差とほぼ等しかったことから、落下中に燃焼する時間が長くなり、ナトリウムプールへ供給されるナトリウムの温度が高くなったためと考えられる。

さらに、雰囲気湿度については、高湿度条件のCase2Cと湿度以外の諸条件がほぼ一致するCase2Aを比較した場合、湿度が高い方がライナ最高温度も高い。両ケースは温度履歴も異なっており（図4）、Case2Cは最高温度となった時間が遅く、高温である時間も長かった。このことは、燃焼速度の観点から考察にて後述するが、Case2Cの湿度が実機で考えうる最高湿度であることから、湿度の影響による上限値であると言える。

#### 3.2 ナトリウムプールの拡がり挙動

図5にナトリウムプール面積の時間変化を示す。ここで、ナトリウムプール面積は、ライナ上に同心円状に配置した熱電対へのプール到達時刻を熱電対信号から推定し、各径方向におけるプール到達時刻と熱電対の位置から、時々刻々のプールの先端位置を内挿近似し、その先端位置を結ん

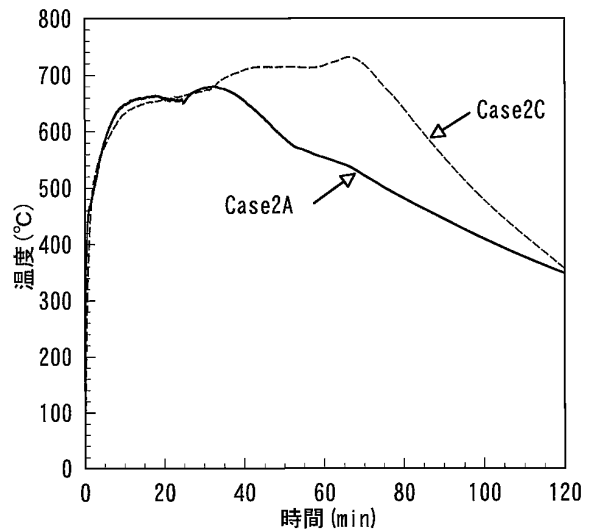


図4 Case2AとCase2Cのライナ中心温度比較

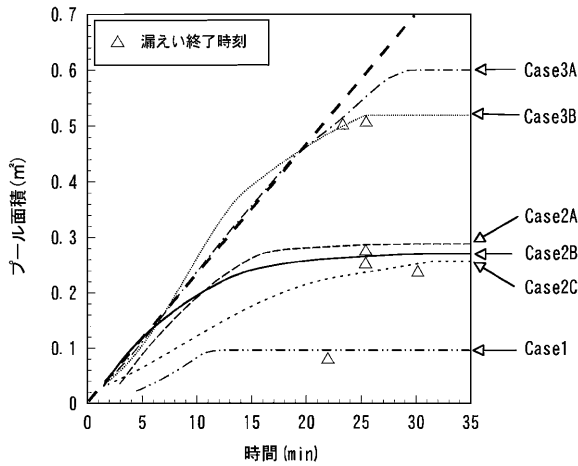


図5 プール面積の時間変化

だ多角形の面積として導出した。なお、プール面積計算上の終値は、多角形近似の面積となるため、実験後に測定したプール面積の実測値よりも若干小さい。漏えい初期のプールの拡がり速度は、漏えい高さ、漏えい率の影響が小さく、Case2C以外のケースはほぼ同じ速度で時間に比例して拡大することを確認した。高湿度条件のCase2Cは拡がり速度が遅いが、これは湿度が高いことに起因して拡大中のプール表面にNaOHの薄膜が形成され、拡がりを減速させる働きをしていると推察されるが、考察にて後述する。

また、実験後にナトリウムプール（堆積物）の面積を実測した結果を図6に示す。なお、写真1（Case2B）に示すように、堆積物はほぼ円形であつ

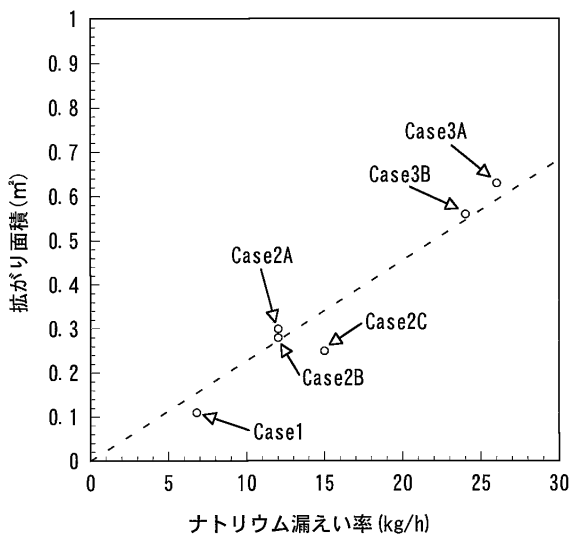


図6 ナトリウム漏えい率とプール拡がり面積

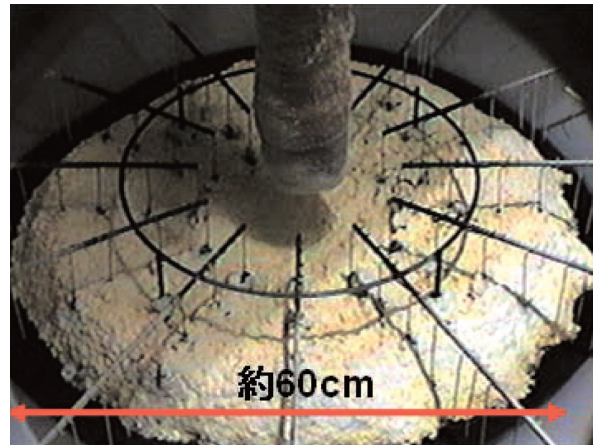


写真1 実験後の受け皿上堆積物（Case2B）

たため、ナトリウムプールが等方的に拡大したことがわかる。図6の結果から、最終的なナトリウムプール面積は漏えい率に比例する傾向があり、漏えい高さ、雰囲気湿度による影響が小さいことを確認した。本実験規模の漏えい率とナトリウムプール面積の関係については、良い直線近似が得られた。

### 3.3 ライナ減肉量

図7に各ケースのライナ（受け皿）減肉量の最大値を示す。なお、減肉量は、ライナ全面を50mm間隔（中心付近では25mm間隔）で、試験前後に超音波厚み計にて定点測定した肉厚の差であり、図7に示したものは、全測定点中における最大値である。腐食減肉量の最大値はCase2C以外の

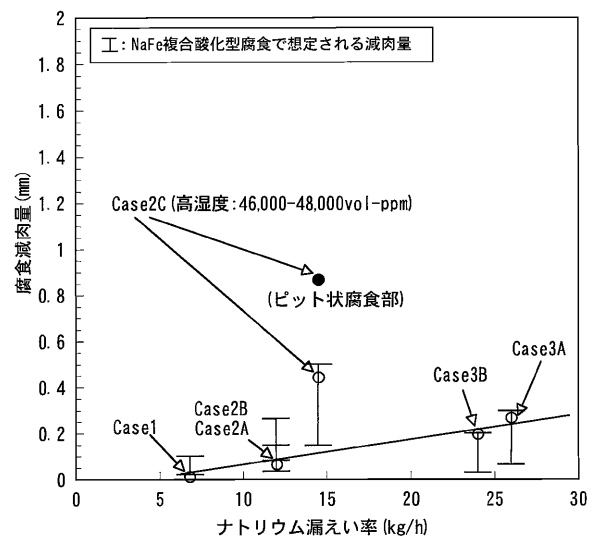


図7 ライナ（受け皿）減肉料

ケースで漏えい率に依存する傾向である。腐食速度は温度に依存するため、最高温度が漏えい率に依存したこれらのケースにおける減肉量の傾向は妥当である。また、各ケースのライナ温度履歴をNaFe複合酸化型で想定する腐食速度に適用し、算出した減肉量を図7に併せて示す。各ケースの減肉量はNaFe複合酸化型腐食で想定される減肉量の範囲内であった。

高湿度条件のCase2Cは、他のケースの漏えい率に対する減肉量の傾向を上回る。これは、雰囲気湿度が減肉量に影響することを示すが、他のケースと同様にNaFe複合酸化型で想定される減肉量の範囲内であった。すなわち、図4のCase2Aとの温度履歴の比較で示すように、Case2Cの最高温度が高く、高温期間が長かったことに起因して減肉量が大きくなったということであり、他のケースと異なる腐食機構で進行した減肉ではないと考えられる。なお、Case2Cでは、各所に幅が0.1~数mm程度のピットが確認され、ピット部の減肉量は最大0.868mmであった。ピットはライナ全面に不均一に分布し、温度分布との相関は見られない。この点についてはナトリウムプールの化学組成の観点から考察にて後述する。

#### 4. 考察

##### 4.1 ライナ最高温度に及ぼす影響因子の分析

ライナ最高温度に及ぼす影響因子について、ナトリウム漏えい率の低下とともにライナ最高温度が低下し、漏えい高さ、雰囲気湿度ともにライナ最高温度を上昇させることを確認したが、これらを燃焼速度の観点から分析する。燃焼速度の導出は熱量変化から図8に示すモデルに従い、容器壁温度、天井温度、受け皿温度、断熱材温度、実験室温度、排気温度の時間変化、構造材等の物理量から熱量変化を求め、反応生成物の割合を $\text{Na}_2\text{O} : \text{Na}_2\text{O}_2 = 6 : 4$ とした場合の反応熱を仮定して算出した。反応生成物の割合については、過去の実験知見によるが、反応熱の差は、 $\text{Na}_2\text{O}_2$ 生成反応の方が約20%大きい程度であり、燃焼速度の傾向を比較する上では有意でない。図9に各ケースの燃焼速度の最大値を示す。燃焼速度の最大値は、漏えい率にほぼ比例する傾向である。さらに、図5のプール面積の時間変化をもとに単位面積あたりの燃焼速度を導出すると、図10ようになる。高湿度条件のCase 2C以外のケースでは、漏えい

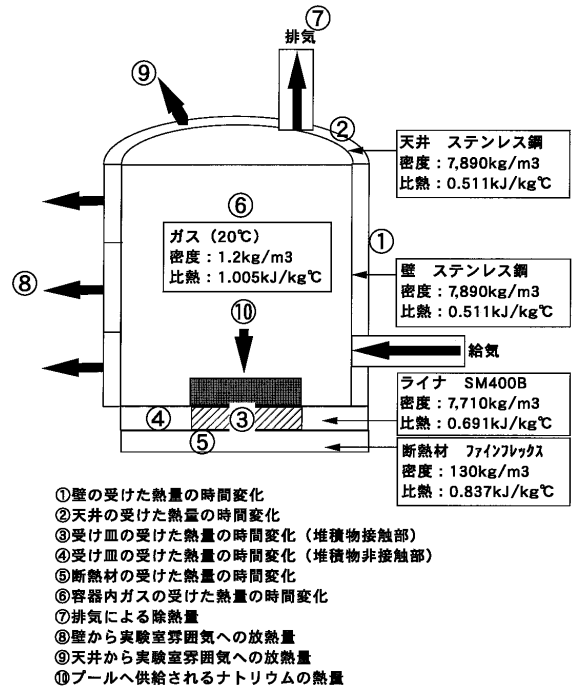


図8 燃焼速度を算出した熱量変化モデル

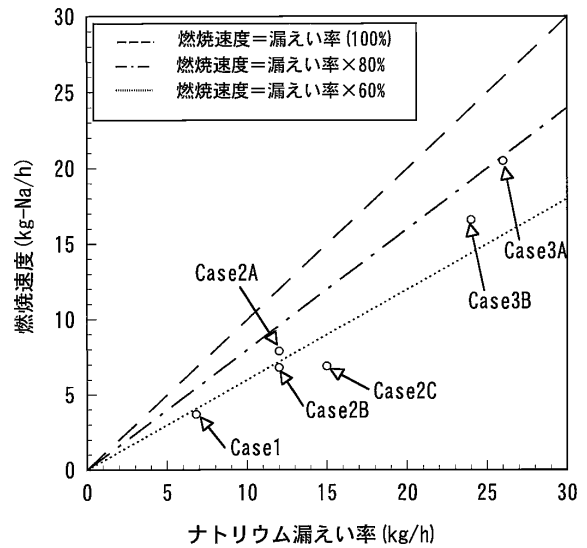


図9 ナトリウム漏えい率と燃焼速度最大値

中の値は約20kg Na/hm<sup>2</sup>~40kg Na/hm<sup>2</sup>であり、各ケースで大差が無い。すなわち、ナトリウムプールの燃焼状態はナトリウムの漏えい率によらず同様で、ライナ鉛直方向への熱流束は同程度であったということである。このことから、ライナ最高温度が漏えい率の低下とともに低下する原因は、ライナの熱収支のバランスとして、ライナの径方向(外側方向)への熱の散逸による影響が漏えい率の低下(プール面積が小さくなる)とともに大

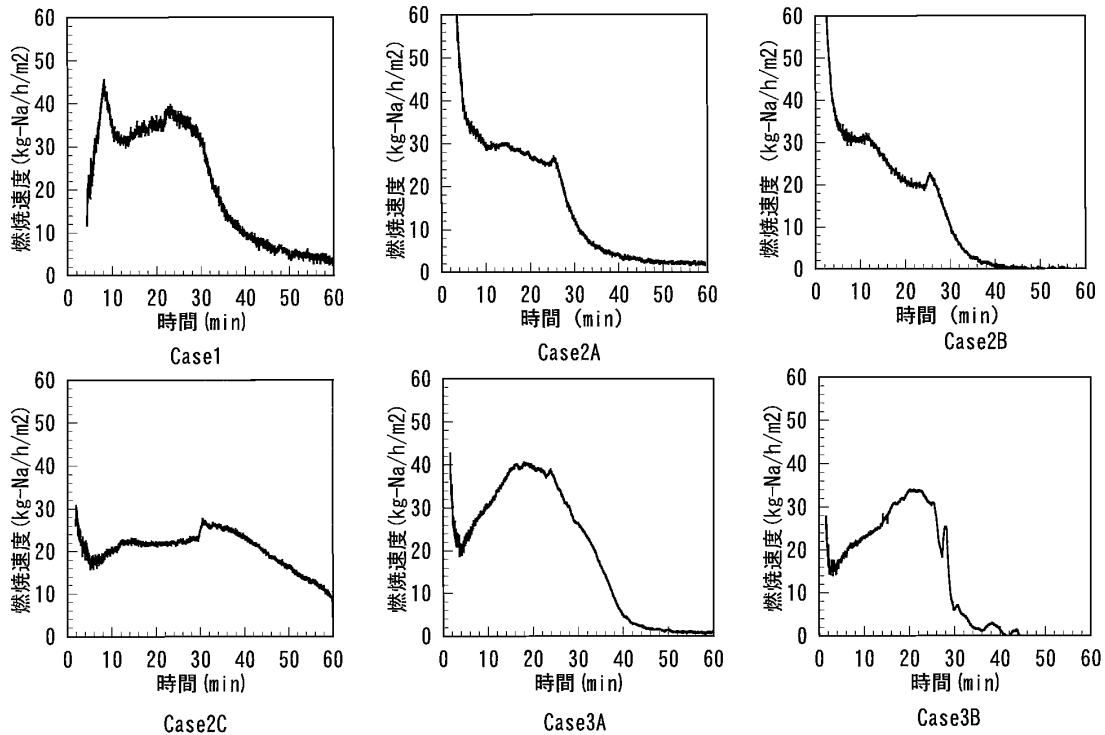


図10 単位面積あたりの燃焼速度（熱量変化より算出）

きくなると考えると説明できる。

また、漏えい高さについては、Case2AとCase2Bの燃焼速度を比較すると、高さが高いCase2A（1.5m）の方が若干大きい。これは、燃焼速度を試験装置全体の熱量変化から算出しているため、落下中の燃焼分の熱量も加わっていると考えられ、ライナ最高温度に生じた差が落下中の燃焼によるものであるという考え方と整合する。

雰囲気湿度については、高湿度条件のCase2CとCase2Aの燃焼速度を比較すると、Case2Cは、単位面積あたりの燃焼速度は小さく、燃焼が継続した時間が長い傾向である（なお、高湿度条件では、ナトリウム及び反応生成物と湿分の反応熱、腐食反応熱も考慮すべきだが、それぞれの反応の寄与割合が本実験結果では不確定なため、ナトリウムの燃焼反応のみとした。よって、これらの反応熱が寄与する割合が大きい場合は、実際の燃焼速度はさらに小さくなると考えられる。）。これはプール拡がり挙動の結果で前述したように、湿度が高いことに起因して堆積物表面にNaOHの薄膜が形成されたことが影響していると推察され、NaOHの薄膜が燃焼を抑制したことにより、燃焼が長く継続したと考えられる。そして、図4に示すように、ライナ中心部の温度を比較すると、漏えい中

は同様であるが、Case2Cは漏えい終了後も上昇傾向にあり最高温度がCase2Aを上回った。これは、大きな燃焼速度で、早期に燃焼が終息したCase2Aではプールの拡大過程における径方向（外側）への熱散逸の影響が大きいのに対し、小さな燃焼速度で燃焼が長く継続したCase2Cではプールが拡大形成され、ライナ中心部での径方向への熱散逸の影響が小さい状態で燃焼が長時間継続したため、ライナの最高温度が高くなったと考えたと理解できる。

#### 4.2 ナトリウムプールの拡がり挙動に及ぼす影響因子の分析

ナトリウムプールの拡がり挙動に及ぼす影響因子について、最終的なプール面積は漏えい率に比例し、プールの拡がり速度は雰囲気湿度に影響されることを確認した。最終的なプール面積に及ぼす漏えい率の影響について、図5のナトリウムプールの拡がり停止時刻に着目し、分析すると、Case3A、Case3B以外のケースは漏えいが終了するよりもかなり早い時刻に停止する傾向である（表2）。すなわち、ナトリウムプールへのナトリウム供給が継続しているにもかかわらず、ナトリウムプールの拡がり停止を示して

表2 ナトリウムプールの拡がり停止時刻

	Case1	Case2A	Case2B	Case2C	Case3A	Case3B
漏えい率(kg/h)	6.8	12	12	14.5	26	24
拡がり停止時刻(min)	12.5	17.8	15.9	21.8	26.3	23.7

拡がり停止時刻は、最終的な拡がり面積の90%到達時とした。

表3 ナトリウムプール(堆積物)の化学組成

(Wt%)

Run No.	Case1	Case2A	Case2B	Case2C	Case3A	Case3B
Na	12	0	10	1	0	46
Na <sub>2</sub> O	53	42	55	47	33	34
Na <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	15	26	14	12	14	2
NaOH	21	30	23	20	44	8
NaFeO化合物	0	0	0	20	9	10

いる。さらに、前述の燃焼速度が最大となった時刻は、プールの拡がり停止時刻とおおよそ一致し、その時の燃焼速度は漏えい率の60~80%に相当した(図9)。これらは、プールの拡がる時間、面積が漏えい率と燃焼速度に依存することを示し、プールの拡がり停止は、ナトリウムプールへ供給されたナトリウムが、流動によるプールの拡大よりも、ほとんど燃焼に費やされるようになった時であると考えられる。すなわち、漏えいによるナトリウムの供給は、水平方向への流動によるプール拡大の駆動力となるが、燃焼による消費は、鉛直方向(プールの厚み)への反応生成物の蓄積と考えると理解できる。これは、ナトリウム燃焼は液体燃料等の燃焼形態とは異なり、プール燃焼表面は反応生成物であるNa<sub>2</sub>O、Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>に覆われ、ポーラス(多孔質)状の反応生成物からナトリウムがしみだし燃焼することからも説明できる。

プールの拡がり速度に及ぼす雰囲気湿度の影響について、Case2Cの拡がり速度が他のケースよりも遅い原因として、NaOHの薄膜が拡がりを減速する働きをしていると推察する。NaOHの薄膜については、ナトリウム燃焼により生成されるNa<sub>2</sub>O、Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>がポーラスな形状を作りナトリウムがしみだし、プールの拡大を助長するのに対し、NaOHはポーラスとならないためナトリウムの進行を阻害する壁となったと考えると理解できる。なお、NaOHの薄膜については、後述する。

#### 4.3 ライナ減肉量に及ぼす影響因子の分析

ライナの腐食減肉量については、ナトリウムの漏えい率に依存し、雰囲気湿度が影響することを

確認した。ここで、各ケースのライナの腐食機構について、ナトリウムプール(堆積物)の化学組成の観点から分析する。表3にナトリウムプール中のナトリウム化合物の定量分析結果を示す。ここで示す結果は、実験後に堆積物を10箇所以上の複数箇所からサンプリングし、その分析結果を算術平均したものである。概略の傾向を見るとNa<sub>2</sub>Oが多く含まれ、溶融塩型腐食の主因であるNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の割合が小さいことがわかる。NaOHについては、その割合が大きい程低温でも溶融体を形成し易くなるが、本実験では、ケースによって差がある。NaOHの生成時期と腐食への影響については、後述するが、各ケース共通してNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の割合が小さいことから、堆積物の酸素ポテンシャルが低く、溶融塩型腐食の発生しにくい環境である。すなわち、本実験の腐食機構がNaFe複合酸化型であったということがナトリウムプールの化学組成の観点からも説明することができる。そして、減肉量が漏えい率に依存した本実験の結果は、温度に依存する同機構の腐食速度のため、ライナ最高温度が漏えい率に依存したことによると考えると理解できる。

なお、表3では概略の傾向を示すために各ケースの分析結果を算術平均したが、サンプル毎では、採取位置、深さにより傾向に違いがあった。一例として、Case2Cの結果を図11に示す。各ケース共通して、堆積物の上層ほどNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、NaOHの割合が多く、下層ほど金属ナトリウムとNaFeO化合物が多かった。この傾向は上層ほど雰囲気に近い酸素ポテンシャルが高く、下層では酸素ポテンシャルが低かったということであり、ナトリウム



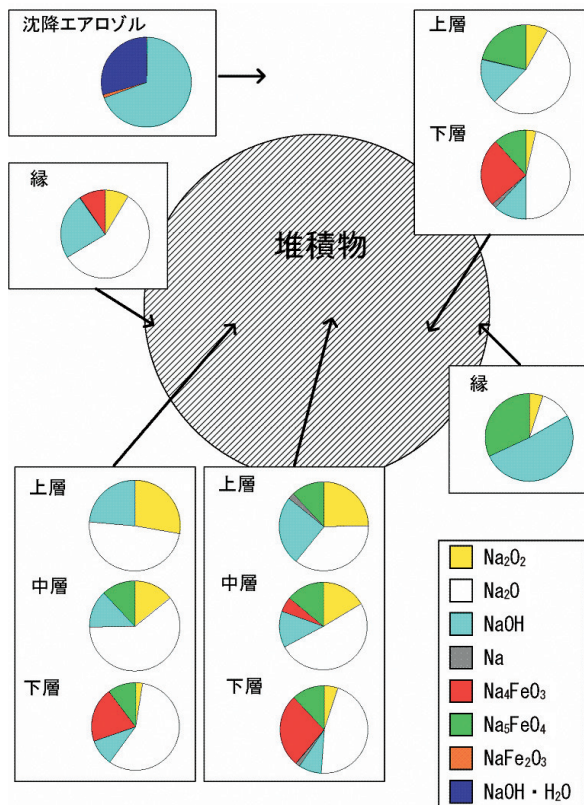


図11 Case2C堆積物化学分析結果

プールとライナ材料界面では、概略の傾向よりも更に溶解塩型腐食の発生しにくい環境にあったことを示唆する。

また、Case3AとCase3Bでは腐食機構に影響するNaOHの生成時期に関する情報を得るために、容器内を不活性化する時期だけを変えて他の条件を同一とした。燃焼終了まで空気雰囲気に触れさせたCase3Aに比べて、漏えい終了時点で不活性化したCase3Bは、未燃焼のナトリウムが多く残り、 $\text{Na}_2\text{O}_2$ とNaOHの量が少ないことが特徴である。このことは、 $\text{Na}_2\text{O}_2$ とNaOHは漏えい終了後または燃焼が終息傾向にある時間域に蓄積されやすいことを示している。 $\text{Na}_2\text{O}_2$ については、プールの燃焼により生成されても、漏えい中は多量に存在する未燃焼ナトリウムの還元作用により減少することが考えられる。また、NaOHについては、漏えい中はプールの燃焼により発生するエアロゾルが多量に雰囲気中に存在するため、エアロゾルの吸湿作用によりプール燃焼面へ湿分が供給されず、生成されなかったと考えられる。エアロゾルの吸湿作用については、後述する。なお、Case3AではNaOH量が多かったが、腐食減肉量としては、

Case3AとCase3Bで大差が無い。これは、腐食機構が両ケース共にNaFe複合酸化型であったためであり、ライナ温度履歴が似通った両ケースの減肉量の傾向は妥当である。換言すれば、漏えい終了以降はプール温度が低下するため、NaOHが増加しても腐食減肉への寄与が小さいことを示唆している。

ライナ減肉量に及ぼす雰囲気湿度の影響については、高湿度条件のCase2Cであっても、NaFeO化合物以外は他のケースと同様のナトリウムプールの化学組成である。NaFeO化合物の割合が多いことは、減肉量が多かったことと一致し、腐食生成物としては $\text{Na}_4\text{FeO}_3$ 、 $\text{Na}_5\text{FeO}_4$ のみであった。これらの腐食生成物はNaFe複合酸化型による腐食であったことを示すものであり、Case2Cのライナ温度履歴がCase2Aよりも最高温度が高く、高温期間が長かったことに起因して減肉量が大きくなったという考え方と整合する。ピット部の腐食については、ナトリウムプールの断面を詳細に化学分析したところ、反応生成物の分布が一樣でないことを確認した。これは、ピットが形成された位置では、腐食性反応生成物の割合が局所的に高くなっていった可能性を示すものであり、ピットの形成には反応生成物の局所的な分布が影響していると推察される。ただし、Case2C、Case3A、Case3Bについては、材料分析を実施し、金相組織を観察しており、各ケースで組織の様相に大差は無かった。Case2Cのピット部金相組織を写真2に示すが、特に厳しい腐食が発生した痕跡は無く、表層断面は滑らかな腐食面であった。すなわち、局所的に腐

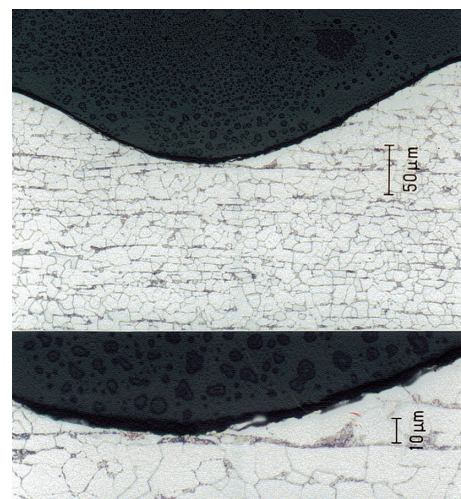


写真2 Case2Cピット部金相組織

食減肉が大きいピット部であっても、腐食形態はNaFe複合酸化型であったと考えられる。

#### 4.4 高湿度条件におけるNaOH薄膜の形成

ライナ最高温度、プールの拡がり挙動でも述べたように、高湿度条件のCase2Cでプールの拡がり他のケースと比較して遅く、燃焼速度が小さいことは、NaOHの薄膜が形成されたことによると推察するが、表3の結果では、堆積物全体としてはNaOHの割合に差がない。しかし、図11に示すようにサンプルごとの傾向としては、NaOHが上層に多く存在し、実験の終了時にはNaOHが表層を覆う傾向を示している。また、Case3AとCase3Bの比較結果によると、ナトリウム漏えい中にNaOHが蓄積されないことを確認した。すなわち、25,000~28,000 vol ppm程度の湿度条件では、プールの拡がり過程でNaOH薄膜は形成されない。これは、ナトリウムプールの燃焼によって発生するエアロゾル( $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}_2$ )の吸湿作用により、プール表面に湿分が供給されず、NaOHが生成されなかったことによると考えられる。この吸湿作用は、排気中のエアロゾルを化学分析した結果、全量NaOHであったことから説明でき、発生したエアロゾルの全量がプール燃焼面近傍で湿分と反応し、NaOH化したと推察される。さらに、エアロゾルの発生量は、実験後にエアロゾルを回収し、分析計量した結果、Case3Aで約2.9kg Na, Case3Bで約2.1kg Naであったのに対し、Case2Cでは、約0.7kg Naと少なかった。このことは、高湿度条件のCase2Cでは、漏えい中(プールの拡がり過程)でも湿分がプール燃焼面へ供給され、プール表面にNaOH膜が形成されていた可能性を示唆するものである。また、エアロゾル発生量が少ないという現象も、プール燃焼面からのエアロゾルの放出を抑制するNaOH薄膜の存在によると考えると理解できる。

#### 5. 結論

これまで6回実施した実験の結果から、ナトリウム小規模漏えい時の、ライナ最高温度、ナトリウムプール拡がり挙動、ライナ減肉量について以下の結論を得た。

①ライナ最高温度は径方向への熱散逸の影響により、ナトリウム漏えい率の低下とともに低くな

る傾向である。また、漏えい高さ、湿度ともに高いほど最高温度を上昇させる要因となる。

- ②ナトリウムプールの拡がり挙動として、最終的なプール面積は漏えい率に比例し、プールの拡がり速度は漏えい率によらずほぼ同様であるが、雰囲気湿度に影響されることを確認した。また、拡がり速度については、漏えい初期はプール面積が時間にほぼ比例して拡大するが、漏えいによるナトリウム供給量と燃焼量がバランスした時点で、漏えい中であっても拡大は停止する。
- ③以上二つの項目について、湿度が及ぼす影響として、プールの拡がりが遅くなり、燃焼速度が小さくなる原因として、雰囲気中のエアロゾル発生量が高湿度条件では少なくなり、プール燃焼面に湿分が供給され、NaOHの薄膜が形成されたことによると考えられる。
- ライナの減肉量については、ナトリウムの漏えい率に比例し、雰囲気湿度が影響することを確認した。腐食減肉量測定値や堆積物の化学分析、材料分析結果によれば、ライナの腐食機構は、減肉速度の比較的遅いNaFe複合酸化型であり、ライナの温度履歴が支配要因となる。また、ナトリウムプール中の反応生成物のうち、 $\text{Na}_2\text{O}_2$ 及びNaOHの蓄積は漏えい中よりも、漏えい終了後に進行する。

#### 参考文献

- 1) 大野修司, 川田耕嗣, 他: “ナトリウム漏洩燃焼に関する研究”, 動燃技報, No.92, pp. 18-32(1994).
- 2) 大野修司, 松木卓夫: “ナトリウム燃焼解析コードASSCOPSの開発と検証”, サイクル機構技報, No.11, pp. 93-104 (2001).
- 3) 山口彰, 田嶋雄次: “SPHINCSコードによるナトリウムプール燃焼実験 (Run F7) の検証解析”, PNC TN9410 98-070 (1998).
- 4) 青砥紀身: “大気中ナトリウム漏洩流下部における鉄系材料の腐食機構”, 動燃技報, No.103, pp. 35-45 (1997).
- 5) 内山尚基, 高井俊秀, 他: “もんじゅナトリウム漏えい事故の原因究明 - ナトリウム漏えい燃焼実験 -”, PNC TN9410 97-051 (1997).
- 6) 宮園敏光, 大野修司, 他: “高速増殖原型炉「もんじゅ」2次主冷却系設備におけるナトリウム燃焼解析”, JNC TN2400 2000-006 (2000).
- 7) 川田耕嗣, 寺奥拓史, 他: “もんじゅナトリウム漏えい事故の原因究明 - ナトリウム漏えい燃焼実験 -”, PNC TN9410 97-036 (1997).