



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	高速炉の事故時における冷却材ナトリウム燃焼挙動に関する研究
Author(s)	西村, 正弘
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	乙第7079号
Issue Date	2019-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.r7079
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74099
Type	doctoral thesis
File Information	Masahiro_Nishimura.pdf



高速炉の事故時における冷却材ナトリウム
燃焼挙動に関する研究
(学位論文)

西村 正弘

目次

1. 緒言	3
1 章の参考文献	8
2. ナトリウム燃焼における従来の研究成果と今後の課題	11
2.1 ナトリウム燃焼における従来の研究成果	11
2.2 研究課題	18
2 章の参考文献	31
3. ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動に関する研究	37
3.1 概要	37
3.2 実験条件と実験手法	39
3.3 ナトリウムの漏えい挙動	42
3.3.1 ナトリウムの拡がり面積	42
3.3.2 ナトリウムプールの拡がりを支配する要因	44
3.4 漏えいしたナトリウムの燃焼挙動	49
3.4.1 単位時間当たりの燃焼量	49
3.4.2 床ライナ構造物（キャッチパン）に与える熱的影響評価	51
3.4.3 ナトリウム燃焼後の燃焼生成物の特徴	52
3.4.4 ナトリウム拡がりモデルの構築	53
3 章の参考文献	82
4. ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れに関する研究	87
4.1 概要	87
4.2 実験条件	88
4.3 ナトリウム燃焼における樹枝状酸化反応生成物の生成と成長	90
4.4 樹枝状酸化反応生成物の成長の影響要因（酸素濃度、温度依存）	95
4.5 ナトリウム液滴着火モデル	99
4 章の参考文献	127
5. ナトリウムの燃焼反応抑制（消火）機構に関する研究	131
5.1 概要	131
5.2 ナトリウム燃焼における樹枝状酸化物の成長と燃焼継続機構	132
5.3 ナノ粒子分散ナトリウムの特性	136
5.4 ナノ粒子分散ナトリウムにおける樹枝状酸化物の成長	137
5.5 ナトリウム燃焼反応における反応抑制（消火）	143
5 章の参考文献	161
6. 結言	165
6.1 ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動	165

6.2 ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れ	166
6.3 ナトリウムの燃焼反応抑制（消火）機構.....	169
謝 辞.....	175
付録1 改良 NACOM コードのソースファイル.....	181

表リスト

表 3- 1 実験条件	56
表 3- 2 燃焼生成物の化学組成	57
表 4- 1 実験条件	112
表 4- 2 温度上昇率の変曲点到達時の温度	112

図リスト

図 2- 1	ナトリウム配管からの漏えい形態 ⁽²²⁾	27
図 2- 2	燃焼モデル ⁽²²⁾	27
図 2- 3	Sire の燃焼モデル ⁽²⁷⁾	28
図 2- 4	D ² 則 燃焼モデル ⁽²⁸⁾	29
図 2- 5	2 次主冷却系設備 配管室 (A446) でのナトリウム漏えい時の床ライナ温度 (ライナ温度に着目した解析) ⁽³³⁾	30
図 3- 1	床ライナの構造 ⁽⁷⁾	58
図 3- 2	FRAT-1 試験装置	59
図 3- 3	FRAT-1 試験体系	60
図 3- 4	熱電対および熱流束計の配置図 (その 1) (模擬床ライナ裏面)	61
図 3- 5	熱電対および熱流束計の配置図 (その 2) (模擬床ライナ裏面)	62
図 3- 6	熱電対配置図 (プール拡がり計測用)	63
図 3- 7	容器中の酸素濃度変化 (Case3A と Case3B の比較)	64
図 3- 8	実験後の模擬床ライナ上の燃焼性生物	65
図 3- 9	漏えい率と最終プール拡がり面積の関係	66
図 3- 10	燃焼プールのカメラ映像 (漏えい終了後)	67
図 3- 11	プール半径の時間変化	68
図 3- 12	プール面積の時間変化	69
図 3- 13	プール表面のポーラス状ナトリウム反応生成物	70
図 3- 14	漏えい初期のカメラ映像 (Case1)	71
図 3- 15	熱量概算の体系図	72
図 3- 16	漏えい率と最高燃焼速度との関係	73
図 3- 17	燃焼速度の時間変化	74
図 3- 18	熱流束の時間変化	75
図 3- 19	模擬床ライナの最高温度を示した場所における温度の時間変化	76
図 3- 20	漏えい率と模擬床ライナ裏面の最高温度の関係	77
図 3- 21	模擬床ライナ上燃焼生成物の化学組成 (Case2C)	78
図 3- 22	ナトリウムプール拡がりモデル	79
図 3- 23	ナトリウムプール拡がりモデルによる計算結果	80
図 3- 24	SPHINCS の解析結果 ⁽¹⁰⁾ (Case2A)	81
図 4- 1	液滴燃焼実験体系	113
図 4- 2	液滴燃焼の事象推移 (ナトリウム初期温度 400°C)	114
図 4- 3	燃焼時の液滴内部温度の時間変化 (ナトリウム初期温度 400°C)	115
図 4- 4	液滴の樹枝状酸化物にみられるナトリウム金属光沢	116

図 4-5 樹枝状酸化物の形成挙動.....	117
図 4-6 酸素濃度に対する生成物割合（化学平衡論的な計算結果）	118
図 4-7 燃焼時液滴内部温度の酸素濃度依存特性（ナトリウム初期温度 300℃） ...	119
図 4-8 燃焼時液滴表面の観察結果と対応する内部温度（ナトリウム初期温度 300℃）	120
図 4-9 液滴燃焼挙動の初期ナトリウム温度依存性（酸素濃度 20%）	121
図 4-10 燃焼時液滴内部温度の初期温度依存性（酸素濃度 20%, 4%）	122
図 4-11 (1/2) NACOM 改良モデルによる計算結果と実験結果の比較	123
図 4-12 温度上昇率の時間変化.....	125
図 4-13 反応界面の温度	126
図 5-1 樹枝状酸化物の成長挙動観察.....	148
図 5-2 樹枝状酸化物の成長機構要因.....	149
図 5-3 未反応ナトリウムの界面形成.....	150
図 5-4 樹枝状酸化物の成長模式図	151
図 5-5 樹枝状酸化物の先端での反応機構模式図	152
図 5-6 ナノ粒子分散ナトリウムの表面張力 ⁽⁴⁾	153
図 5-7 ナノ粒子分散ナトリウムの蒸発速度 ⁽⁴⁾	154
図 5-8 ナトリウムおよびナノ粒子分散ナトリウムの反応生成物成長挙動 ⁽⁵⁾	155
図 5-9 ナトリウムおよびナノ粒子分散ナトリウム燃焼プールの温度変化 ⁽⁵⁾	156
図 5-10 ナノ粒子分散ナトリウムの樹枝状酸化物成長挙動 ⁽⁵⁾	157
図 5-11 ナノ粒子分散ナトリウム燃焼残渣の X 線回折結果.....	158
図 5-12 ナトリウム化合物の化学的安定性.....	159
図 5-13 ナトリウム反応生成物の成長方向 ⁽⁵⁾	160

1. 緒言

1. 緒言

深刻な地球温暖化、異常気象による地球環境の著しい変化のなか、持続可能な社会の実現のため大量消費型の社会からリサイクルを旨とする循環型社会への構造改革が不可欠である。その中で省資源、循環型社会の流れに沿ってクリーンで持続的なエネルギー源として原子力エネルギーは有力な候補であり、安全性を一層向上させた原子力システムの利用を人類は進めるべきである。

この観点から、軽水炉の分野に注目すれば活発な研究がすすめられプラント設計も世代交代が進んでいる。具体的には商業炉としては第 2 世代原子炉と呼ばれる BWR, PWR からより安全性を向上させた第 3 世代原子炉と呼ばれる ABWR, EPR さらに第 3 世代から高出力化されかつ建設費も抑えられている第 3 世代+の原子炉 AP1000 などへの流れができあがっている。

一方で核拡散抵抗性、廃棄物と天然資源利用の最小化の観点では第 4 世代の一つとしてナトリウム冷却高速炉が着目されている。高速炉の燃料の核分裂に用いられる高速中性子は、熱中性子よりも核分裂時に放出される中性子数が多くその高速中性子を利用して長期間の管理が必要な長寿命核種を含んだ高レベル放射性廃棄物を低減することが可能である。また、高速増殖炉の冷却材には、核分裂で発生した高速中性子を減速せずに連鎖反応に用いることが求められ、液体金属冷却材が着目されたが、構造材との共存性、沸点の高さ、化学的活性度

と漏えい時の挙動を総合的に判断してナトリウムの利用が世界的に選択されてきている。

この流れで、フランスでは、2012 年に使命を終えた原型炉フェニックスの成果に基づいて長寿命放射性核種の減量・潜在的有害度低減（放射能早期低減）の現実的な選択として実証炉 ASTRID が検討されている。ロシアの原型炉 BN600 では、1982 年から 2012 年までの平均稼働率が約 74%であり、2040 年までの 60 年運転を予定している。また、この実績に基づき、実証炉 BN800 を建設し 2015 年 12 月に送電を開始している。

中国では、ロシア技術を導入して発電システムを組み込んだ実験炉 CEFR（2 万 kWe、プール型）を建設し、2014 年の 12 月には 100%出力運転を達成している。さらに原型炉はスキップしロシアの BN-800 を導入して 2025 年頃までに実証炉 CFR600 を建設する予定としている。インドの原型炉 PFBR は、2015 年 7 月に建設は完了しており 2017 年 10 月時点で初臨界達成待ちである。このように、長期的な観点から高速炉に対する積極的な取り組みが海外において実施されている状況にある。

わが国では高速実験炉「常陽」（1977 年に初臨界）が現在においても稼働し、研究成果を上げている。原型炉「もんじゅ」（1994 年に初臨界）は建設されたものの、1995 年の 2 次系ナトリウム漏えい事故や、東日本大震災時の福島第一原

原子力発電所事故の影響を鑑み高速炉の研究のあり方も再検討がなされた中で平成 28 年 12 月 21 日に開催された第 6 回原子力関係閣僚会議において、「もんじゅ」の取扱いに関する政府方針を決定し、これまでの「もんじゅ」の位置づけを見直し、「もんじゅ」については様々な不確実性を伴う原子炉としての運転再開はせず、今後、廃止措置に移行する方針が示された⁽¹⁾。しかしながら、高速炉開発会議が示した「高速炉開発の方針」⁽²⁾では、高速炉開発の推進を含めた核燃料サイクルの推進については堅持する方針が示されており、開発方針の具体化のため実務レベルの「戦略ワーキンググループ」を設置して当面の 10 年程度の開発作業を特定する「戦略ロードマップ」が検討され、平成 30 年 12 月の第 5 回高速炉開発会議において提示されている⁽³⁾。また、高速炉研究開発の中核を担う組織として日本原子力研究開発機構も将来の高速炉の実現に向け、関係機関との連携を強化しつつ事業を進める方針が示されている⁽⁴⁾。

このような背景のもと、本研究では、次世代エネルギーを担う有力な候補である液体金属ナトリウム冷却型の高速炉の実用化を目指すにあたり、克服すべき課題として事故時のナトリウム火災に着目する。液体金属ナトリウムは、化学的に活性であり空気中の酸素や湿分と反応することから、通常運転時においてバウンダリ機能を保持したシステムを構築する必要があるとともに、事故時においてバウンダリ機能が喪失した場合の対策をとる必要がある。本研究では、液

体金属ナトリウム冷却型の高速炉における特徴的な想定事故であるナトリウム火災事故において更なる安全性の向上を目指したナトリウム燃焼挙動に関する研究を実施する。

本論文の構成は、以下のようになっている。

まず、2 章「ナトリウム燃焼における従来の研究成果と今後の課題」においてこれまで実施されてきたナトリウム燃焼に関する関連研究をレビューし、残された課題の摘出をおこなった。

3 章「ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動に関する研究」では、2 章で摘出された課題の内、従来は大規模な漏えい（漏えい率：120 ton/h 程度）に結果が包絡されると考えられ、評価が実施されていなかった小規模漏えい（漏えい率：10 kg/h 程度）時に、床ライナの限定した範囲でナトリウムが燃焼する条件でのライナの最高温度とこれに影響を及ぼす燃焼速度、ナトリウムプール拡がり挙動についての知見をまとめた。

4 章「ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れに関する研究」では、ナトリウム燃焼反応における反応界面の観察に適した体系として単一液滴燃焼を観察し、反応継続機構の検討、分析を行った。また、液滴燃焼の着火遅れについて、実験結果から初期温度や酸素濃度をパラメータとして整理を行い、着火前現象を取り込んだモデルを導入した解析結果と比較した検討を実施し現

象理解を深めた。

5 章「ナトリウムの燃焼反応抑制に関する研究」では、4 章で観察されたナトリウム燃焼の反応継続機構の検討、分析を進め、反応継続に必要な反応生成物形成における 3 つの要因のモデル化を行った。この反応継続機構の検討、分析を進める中で従来とは異なる燃焼反応を停止させる概念として、反応生成物中のナトリウムの供給を阻害するため、その経路中に固体で安定な反応生成物を形成させることを考案・提示した。さらにその提示した概念の妥当性および適用可能性について金属 Ti ナノ粒子を分散させたナトリウムの燃焼挙動観察及び反応生成物の化学分析によって検証した。

6 章では、一連の研究によって取得したナトリウム燃焼挙動に関する知見をまとめ、今後の高速炉の安全性向上への貢献についてまとめて結言としている。

1 章の参考文献

- (1) 第6回原子力関係閣僚会議, “「もんじゅ」の取扱いに関する政府方針,” 平成28年12月21日
- (2) 高速炉開発会議, “高速炉開発の方針,” 平成28年12月19日
- (3) 高速炉開発会議, “戦略ロードマップ,” 平成30年12月20日
- (4) 日本原子力研究開発機構, “「高速炉サイクルの研究開発に関する今後の運営方針と対応について,” 平成28年12月21日

2. ナトリウム燃焼における従来の研究成果 と今後の課題

2. ナトリウム燃焼における従来の研究成果と今後の課題

2.1 ナトリウム燃焼における従来の研究成果

原子炉の冷却材としての液体金属ナトリウム（以下、ナトリウム）の利用は、1950年代に、アトミック・インターナショナル社（AI社）が、アメリカで初めてとなる商業用の原子炉を建設する上で冷却材として水よりもナトリウムを選定したことに始まる。

ナトリウムは、優れた伝熱特性と低い運転圧力と比較的低い融点（約 98℃）を持つという理由で選ばれた。水を冷却材とした場合には、運転温度において、高い圧力下に置くために厚肉配管が必要となるのと、事故時において突然、配管が亀裂を生じて高圧の水蒸気が放出された時に圧力を受け止めるとともに冷却材である水を確保するために、蒸気を凝縮させたり、緊急の水を注入するための設備を備えた格納容器を必要とする。ナトリウムを冷却材とした場合には、急激な圧力上昇はなく静的なガードベッセルを設置することにより冷却材が確保されることから格納容器に上記のような設備は必要がない。

しかしながら、ナトリウムは化学的に活性であることから空気中の酸素や水分と反応して、熱を発生し、構造物に熱的なダメージを与えること、反応後に生じる反応生成物の一部がナトリウムエアロゾル（ Na_2O , Na_2O_2 等）として拡散し、機器に付着した場合には事後の腐食要因となることが懸念される。

そこで、AI 社では、特に設計、建設、運転に必要な基礎的なナトリウム火災に対する技術開発が行われた⁽¹⁾。その成果は、日本においても日本原子力研究開発所の古川らによって和訳⁽²⁾されるとともに、安全工学協会において、原子炉の研究および製造、金属ナトリウムの製造、消火保安用品の製造、損害保険および安全工学界の関係諸専門家によって組織されたナトリウム防災研究委員会にて「液体ナトリウム取扱い安全指針」⁽³⁾が取りまとめられ、プラントスケールでの液体ナトリウムを取り扱う上で、参考とすべき知見を今もなお提供している。

その後、ナトリウム冷却材は中性子をあまり吸収しないために燃料増殖が可能であることから、エネルギーの有効利用の観点からナトリウム冷却型の高速炉の開発が日本を含め各国で精力的に進められた。そのため、ナトリウム安全に関する研究についても、1970 年～1990 年代は、国際原子力機関 (IAEA) が主催する高速炉の専門家会合において加盟各国間の情報交換が行われつつ進められ、IAEA の公式刊行物として成果がまとめられている⁽⁴⁻⁸⁾。これらのナトリウム炉の安全上の特徴を考慮した検討をもとに、高速実験炉「常陽」(1977 年に初臨界)、原型炉「もんじゅ」(1994 年に初臨界) の建設にあたって設計、安全評価が実施された^(9,10)。

まず、原子炉の熱を水蒸気系まで熱を伝えるのに、1 次冷却系、2 次冷却系の

2 系統のナトリウム冷却系を備え、放射性物質の拡散のリスクを抑制している。

例えば「もんじゅ」では、1 次冷却系については、床、側壁及び天井に鋼製ライナを、2 次冷却系については床に鋼製ライナ（キャッチパン）を設置してナトリウムとコンクリートの接触を防止している。また、1 次冷却系については、放射性ナトリウムをはじめとする放射性物質を含むことから、万一のナトリウム漏えい時の燃焼を抑制するため、窒素雰囲気として管理されている。

2 次冷却系は、基本的に放射性物質を含まないため窒素雰囲気に管理されておらず空気雰囲気である。そのため、万一ナトリウムが漏えいした場合には燃焼して設備・機器類への熱的影響、化学的影響や部屋の内圧などへの影響が懸念される。そのため、キャッチパン上に漏えいしたナトリウムを連通管によってダンプタンク室底部の貯留槽（燃焼抑制槽）に導いて、ナトリウムの燃焼を抑制することとし、2 次系でのナトリウム漏えいの影響が 1 次冷却系に及ぶことがないように設計されている。さらに、各冷却系統は A,B,C の 3 ループで構成され、漏えいループの影響が他の健全なループに及ばない、すなわち系統分離されて重要な安全機能に影響が及ばないようにしている。

ナトリウム燃焼は、①プール燃焼、②スプレー燃焼、③コラム燃焼というように漏えい燃焼の形態によって分類して熱的影響等の評価がされてきた。空気中に含まれる酸素や湿分が金属ナトリウムと化学反応することによって熱やエ

アロゾルを生成する現象という観点では燃焼形態による違いはないが、ナトリウムの酸化反応現象の特徴として、環境要因（酸素とナトリウムの遭遇メカニズムの違い、ナトリウムの漏えい形態の違い）がマクロ的な事象進展挙動に違いを与えることに起因している。

まず、①プール燃焼は床、壁などの構造物に接触し、拡がり範囲を制限される形でプール状にたまった液体ナトリウムの燃焼である。構造物に接触していないナトリウムプール面に対して、空気に含まれる酸素が自然対流などによって供給されることによって、反応が進行する。その燃焼挙動は、プール表面への酸素供給とプール表面からのナトリウム蒸発に支配されている。Newman⁽¹¹⁾らは、直径 10 cm～60 cm 程度の比較的小規模なプール実験を中心として、上記条件別に単位面積、単位時間当たりのナトリウム消費量で定義されるプール燃焼速度を整理した。これによると、プール燃焼速度は雰囲気酸素濃度に概ね比例する結果が得られ、プール近くの雰囲気流速に強く依存することが報告されている。

プラント事故時の規模に近い実験例として、Cherdron⁽¹²⁾や Malet⁽¹³⁾のデータによると、プール面積が 1 ～10 m²、空気雰囲気自然対流条件において、それぞれ燃焼速度は 20～40 kg/m²・h と 17～27 kg/m²・h である。原子力機構の大洗研究開発センターで実施された過去の実験⁽¹⁴⁾においても同程度の燃焼速度が得

られている。これらの、大きな体系でのプール燃焼では、プール面積が大きくなるにつれて燃焼速度が低下する傾向が見られるが、その理由を Malet⁽¹³⁾は中央部付近への酸素供給が不足するためと説明している。

プール燃焼では、プラントに及ぼす熱的影響を評価する必要がある。具体的には、プールが接触している床などの構造材への加熱、雰囲気ガスの加熱、壁などへの加熱を考える必要がある。これらの伝熱現象は、熱伝導、対流伝熱、輻射伝熱および燃焼生成物としてのエアロゾル放出に伴う熱移行が混在することから現象が複雑である。山口⁽¹⁵⁾は、プール燃焼火炎内部の熱・物質移行を詳細に解析する手法を開発して、伝熱・燃焼現象の関係を考察している。

次に、②スプレイ燃焼は、配管等から漏えいするナトリウムが複数の液滴となって飛散・落下する状況での燃焼形態で定義される。液滴表面上におけるナトリウム蒸発と雰囲気からの酸素供給で反応が支配される観点ではプール燃焼と違いがないが、酸素供給の駆動力が強制対流である点が異なる。また構造材と接触しない状態で反応が進行することから、熱移行の観点でもプール燃焼と様相が異なる。

スプレイ燃焼による熱は主に雰囲気に移行する。その結果、プラントに与える影響としては、密閉された雰囲気からの加熱による加圧が問題とされる。したがって、原子力機構によって過去に行われた試験⁽¹⁶⁾は、全て密閉雰囲気中において

て実施され、燃焼に伴う酸素消費や雰囲気圧力の推移に着眼点をおいた試験となっている。

一方、要素的な実験として単一液滴を対象としたナトリウム燃焼実験も行われている。海外では、1970年代以前のはやい段階から、Richard⁽¹⁷⁾やMorewitz⁽¹⁸⁾の研究例がある。国内では、「もんじゅ」ナトリウム漏えい事故以降に、佐藤ら⁽¹⁹⁾が実施した静止液滴の燃焼実験、深田⁽²⁰⁾らや堂田⁽²¹⁾らの落下液滴燃焼実験が実施されてきており、液滴の燃焼挙動の観察、落下データなどの取得が進められてきた。

③コラム燃焼については、ナトリウム配管等から棒状または滝のように落下する状態で燃焼する形態である。配管周囲が内装板、保温材、外装板と多層の保温構造となっている場合の現実的な漏えい燃焼形態と考えられているものであり（図 2-1）、着火を伴わない下向きの漏えい形態となること、ナトリウム燃焼速度はスプレー燃焼の場合よりも小さくなることが原子力機構の大洗研究開発センターで実施された過去の実験においても確認されている⁽²²⁾。

コラム燃焼の着目すべき現象は、落下途中の燃焼ではなく、床などの構造物に衝突・飛散して形成される液滴の燃焼である。大野らはコラム漏えい流を床に衝突・飛散させた場合の燃焼の程度を調べ、同規模のスプレー燃焼よりも穏やかな熱的影響となることを示すとともに、落下高さに依存した燃焼速度実験

式を求めている^(23,24)。しかしながら現象的には、スプレー燃焼に包絡されることから、現在はこの燃焼形態に対する研究は行われていない。

これらの 3 つの形態のナトリウム漏えい燃焼に関する実験的研究の知見をもとに、プール燃焼時およびスプレー燃焼時の建屋の健全性を評価するための解析コードの開発が進められた。これらの解析コードが評価する物理量は建屋（壁、床、構造物）の温度や閉空間の内圧を 1 点や 1 次元で近似するようなものであった。

プール燃焼の計算モデルは、プールと雰囲気間の自然対流による物質伝達を駆動力として雰囲気から酸素や湿分が供給されるという考え方に基づいている。Sagae⁽²⁵⁾や Kikuchi⁽²⁶⁾はプール表面近傍にナトリウム蒸気と酸素等が反応する火炎面を考慮するモデル（図 2-2）の有効性を示し、これらのモデルは解析コードに反映されている。

スプレー燃焼については、強制対流での物質伝達の相関式から計算する Sireらのモデル（図 2-3）⁽²⁷⁾や、炭化水素系の燃料液滴と同様の D^2 則をもとにした Tsai らのモデル（図 2-4）⁽²⁸⁾などがある。

これらの工学的モデルを備えた ASSCOPS コードが日本原子力研究開発機構において開発され、「もんじゅ」事故後の設備改善検討においても使用されてきた^(29,30)。ASSCOPS コードで取り扱う物理現象は①化学反応、②熱の移行、③物

質の移行に分類され、これはナトリウム漏えい燃焼時の熱影響評価を行う上で考慮すべき現象を評価するものとなっている。

2.2 研究課題

1995 年に発生した高速増殖炉「もんじゅ」におけるナトリウム漏えい火災事故後、わが国における高速増殖炉に関する研究開発のあり方は、大きな見直しを迫られた。「もんじゅ」事故までのナトリウム漏えい燃焼に関する研究開発は、「もんじゅ」プラントを対象として①ナトリウム漏えい燃焼と熱的影響に関する評価手法の開発、②ナトリウム漏えい事故時における熱的影響を緩和するための漏えい対策設備の有効性および健全性の実証、③プラントの安全性を確保する上で重要な設備・機器類の事故時における健全性の実証を主たる対象とした研究開発が行われてきていた。これらの研究の中では、保守性をもった工学的な判断のもと、プラントに最もダメージを与え得る事故シーケンスを選定して、そのケースを代表として設備への影響を評価することによって安全性を担保するという考えであった。

「もんじゅ」の安全評価においては、「2 次主冷却系配管室での漏えい」と「過熱器室での漏えい」の 2 ケースが代表ケースとして選定されている。「2 次主冷却系配管室での漏えい」は、原子炉補助建物内の 2 次主冷却系関係の部屋で容

積が最大であり、ナトリウム漏えい量も最大である。したがって他室への圧力開放効果が比較的小さくなり、事故時の室内圧力は最も厳しくなると考えられることから選定され、「過熱器室での漏えい」は、ナトリウム漏えい量は比較的小さくなるが、2次主冷却系関係の部屋で容積が最小であり、部屋の容積に対して漏えいナトリウムの量が相対的に大きくなることから、事故時の雰囲気温度、床ライナ温度等が最も厳しくなると考えられることから選定された。

これらの事象想定は、原子炉補助建物内において、2次主冷却系配管は多数の部屋を通過するが、いずれも雰囲気は空気であり、ループ毎に同一ループに属する部屋は圧力開放用の開口で相互に連通されているという境界条件であり、配管の破損口も、配管径を D 、厚みを t として、 $1/4 Dt$ 相当面積の円形孔が想定されている。ただし、系統分離がなされているため、他のループの部屋とは連通することはない。2つの選定ケースにおける漏えい量と漏えい率はそれぞれ、「2次主冷却系配管室での漏えい」が $150 \text{ m}^3, 33 \text{ kg/sec}$ 、「過熱器室での漏えい」が $95 \text{ m}^3, 28 \text{ kg/sec}$ と、大規模な漏えいが想定されている。

しかし、1995年12月に発生した「もんじゅ」ナトリウム漏えい事故では、事故後の調査から漏えい量は、約 640 kg （約 $0.77 \text{ m}^3, 500^\circ\text{C}$ ）、漏えい率は約 50 g/sec と上記で想定した規模と比較して小規模な漏えい量および漏えい率であった。もんじゅ事故条件での床ライナの局所的な最高温度は $700\sim 750^\circ\text{C}$ と評価さ

れ、一部に、1.5 mm 程度の板厚の減少が確認されたが、漏れたナトリウムが床コンクリートと接触して反応することを防止するキャッチパンの機能は十分維持されていた。漏えいした近くの床コンクリート表面の温度は一時 580 °C 程度、壁コンクリート表面の温度は 400 °C 程度となったと推定されるが、安全上の機能に影響はなかった⁽³¹⁾。

このように、施設の受けたハード的なダメージは原子力安全の考え方からすれば軽微なレベルのものであり、国際事象評価尺度では、レベル 1 と判定されるような事象であったにもかかわらず、その社会的な影響は大きく国民の信頼を損ねる結果となった。

そのため、社会的受容性の観点からナトリウム漏えい燃焼という現象そのものをより基礎的なアプローチで把握し、代表的な事故シーケンス以外の事象に対しても評価を行い、安全性を明確に示す必要性が生じた。また、近年の計算科学分野での技術革新によって、安全を評価するための解析コードも機構論的な解析が可能となり、現象の適切なモデル化とその検証が解析の分野においても重要なテーマとなり、継続的な研究開発が実施されている⁽¹⁶⁾。

また、2011 年 3 月に東北地方太平洋沖で発生した地震による津波の影響によって、東京電力の福島第一原子力発電所で全交流電源が喪失し、放射性物質の環境への放出を伴う原子炉事故が発生した。そのため、炉型は異なるものの

「もんじゅ」の安全確保の考え方についても再構築がなされ、設計基準事故対応策の強化に関する考え方の中で、「ナトリウム冷却高速炉に特有な事象」として、2次系のナトリウム漏えいについても挙げられ、深層防護の観点から安全性を確認し、向上させることの努力が求められている⁽³²⁾。

「もんじゅ」ではナトリウム漏えいの早期検出、拡大防止及び漏えいナトリウムによる影響緩和の観点から、改善策を講じることにより、空気雰囲気下でのナトリウム漏えい事故に対する安全裕度を向上させる設計とされている。この設計が妥当であるかどうかの判断材料を得るため2次主冷却系設備におけるナトリウム漏えい時の雰囲気圧力、床ライナ温度及び水素濃度等についてナトリウム燃焼解析コード ASSCOPS を使用して解析されている^(33,34)。ASSCOPS コードは、ナトリウム漏えい事故時の熱的影響を解析する一点近似コードであり種々の物理・化学的挙動を解析するために工学的な計算モデルを採用している。このため、ナトリウム漏えいや周囲環境の条件に加えて、化学反応、伝熱、エアロゾル挙動など種々の物理・化学的挙動を計算するための解析パラメータを適切に設定することが必要である。

これまでに、解析コードでの評価の妥当性を確認するために、次節でレビューするような各種試験を対象として従来の安全評価の考え方に基づいた評価が実施されている。その結果、①ナトリウムが受け皿に溜まってその上面で燃焼

するプール燃焼挙動とそれに伴う熱移行挙動（ガス圧力、酸素濃度、各部温度等）の推移について、解析結果は概ね実験を再現できることが確認されるとともに、②ナトリウムが液滴状に落下飛散しながら燃焼するスプレイ燃焼挙動とそれに伴う熱移行挙動について、適切または保守的な解析結果が得られることが確認されている。さらに、③ナトリウム燃焼と熱移行挙動に湿分やエアロゾルが影響を与えるような実験についても解析を行った結果、統一して使用した解析パラメータを含め、解析手法全体が適切または保守的な結果を導くものであることが確認されている⁽³⁵⁾。

しかしながら、今後のナトリウム冷却型高速炉の実用化に当たっては、設計、安全評価において、新しい知見を踏まえて過度の保守性を排除した最適評価の実施が求められる。過度に保守性をもった評価モデルの具体例としては、ナトリウムプールの拡がり挙動に関する知見の不足から仮定されたプール燃焼モデルが挙げられる。従来のナトリウム漏えい燃焼時の熱的影響評価においては、床面に落下したナトリウムは瞬時に床面一面に拡がり、その表面に雰囲気から自然対流によって酸素が供給される限り反応が継続する。ASSCOPS コードでは、その反応はナトリウム温度が固体となる温度まで低下しない限り、たとえ雰囲気が非常に低酸素となっても停止することはないというモデルで評価されている。

実際のプール燃焼においては、ナトリウムの漏えい率に従ってプール面積は時間をかけて広がっていくことから床面全面に広がるには時間を要する。また、広がる間にも燃焼は継続していることからプールに落下するナトリウムの供給率によっては床面全面にいたらないプール燃焼形態も考えられる。プール燃焼の発熱量は、プール面積と単位面積あたりの発熱量の積で決定され、単位面積あたりの燃焼量が一定であればプール面積で決定される。したがって、プール面積が瞬時に床面積いっぱいになるという仮定は保守的な想定となっている。また、プールの面積が床面積のうちの限定した範囲までしか広がらない場合には、燃焼プールからプールのない領域のライナへの横方向の熱の移行が生じることから、ライナ温度の熱移行の観点からも保守的な想定である。これらのプール広がり挙動の影響を考慮するためには、挙動を支配している因子を明らかにして、プール面積の変化を評価に取り込む必要がある。もんじゅ事故後のASSCOPSによる漏えい率をパラメータとした床ライナ温度評価⁽³³⁾では、漏えい率が100 kg/h というようなもんじゅ事故の漏えい率（50 g/sec=180 kg/h）よりも小さな漏えい率でも厳しい結果となり（図 2-5）、かつ10 kg/h の漏えい率と小さくなくても最高温度がそれほど降下しない結果となった。この解析結果は保守的な評価となっていることは想定できるものの本研究の前に実験で確かめられた例はなかった。

そこで、3 章では「①ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動」を課題として設定し、プール燃焼挙動の把握を目的とした研究を実施することとした。

また、ナトリウム燃焼実験の結果からは、ナトリウム温度が凝固点まで低下しなくても、反応界面でのナトリウムと酸素の接触がなければナトリウムの反応は終息する。したがって、凝固点まで温度が低下しない限り反応が続くという解析モデルは保守的な想定となっている。反応を継続している機構を明らかにすることができれば、反応が終息する条件設定を行うことができることから現実的な評価が可能となる。

さらに、液滴状に落下飛散しながら燃焼するスプレー燃焼は、漏えい初期の限定された挙動であるが、プール燃焼と比較して反応が激しいことや、初期のナトリウムプールが形成する条件として重要な要因となっているため着目すべき現象となっている。しかしながら、液滴の着火温度の評価と着火に至る過程が明確ではないために、これまでの評価においては、着火遅れ時間は考慮されることなく保守的な評価が実施されている。

スプレー燃焼の挙動は、反応界面がプール燃焼に比較して相対的に大きいことから、反応雰囲気強く依存することが考えられるがその影響は確認されていない。より現実的な挙動の解析を実施するためには、単一液滴での燃焼挙動

について、酸素濃度や初期温度条件といった雰囲気条件をパラメータとした基礎的な検証データを取得して解析コードの予測精度を向上させることが望まれている。

そこで、4 章では「②ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れ」を課題として設定し、液滴の燃焼挙動について反応界面の詳細な観察と液滴内部温度の同時測定を実施した。これまで液滴燃焼時の液滴内部温度を初期酸化時から反応界面の様相と同時測定して詳細に観察した例はなく、これらの実験結果をもとに着火遅れに関する検討評価を実施し、スプレー燃焼の基礎的なモデルである単一液滴の燃焼モデルにおいて着火遅れを考慮した解析モデルによる評価を実施した。また、酸素側の供給を一度停止しても、酸素を再度供給することによって再着火する現象を観察し、窒素ガス供給による消火は再着火の課題があることを認識した。

これまで、ナトリウム火災の消火方法は、乾燥砂などの消火剤を燃焼しているナトリウムの反応界面の上に撒いたり、窒素ガスを吹き付けて不活性雰囲気としたりすることによって窒息消火する方法、すなわち酸素側の供給を遮断する方法のみであった。しかし、この方法で消火されたナトリウム燃焼残渣は後処理のため人が立ち入るためには酸素雰囲気とする必要があり、未反応のナトリウムと酸素が反応して再着火する危険性がある。

そこで、5 章では「③ナトリウムの燃焼反応抑制（消火機構）」を課題として設定した。まず、4 章の液滴燃焼実験において反応界面に観察された反応生成物の成長過程を詳細に観察し、反応の継続機構を把握するための実験研究を行った。その後、把握した反応継続機構をもとに反応生成物中に安定化合物を形成させることによってナトリウム側の供給を阻害して燃焼反応を抑制するという、これまでの概念にとらわれない新しい消火機構について検討した。この消火方法では、酸素雰囲気においても反応が停止することから 4 章で問題となった再着火に関する懸念が払拭されることとなり、プラントの安全性向上が期待できる。

反応生成物中の安定化合物によるナトリウム供給経路の阻害の効果については、荒、斉藤らによるナノ粒子分散ナトリウムによる反応抑制効果に関する研究⁽³⁶⁻³⁸⁾で実施されたナトリウムとナノ粒子分散ナトリウムの反応生成物の成長挙動およびプール燃焼挙動の違いを確認した実験結果を評価することにより確認する。ナノ粒子分散ナトリウムによる反応抑制効果に関する研究においては燃焼反応における反応抑制効果が実験的に示されていたもののその機構の解明が研究テーマとなっていた。そのため本研究のテーマであるナトリウムの反応継続機構の解明とナトリウム分散ナトリウムの反応抑制機構の解明は関連研究となっている。

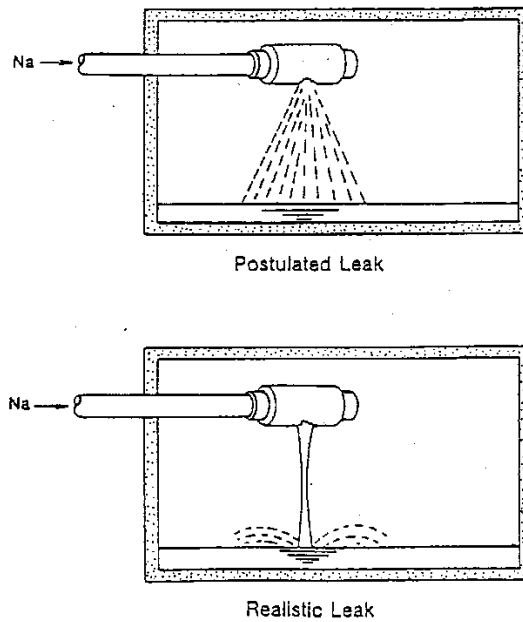


Fig.2 Leakage Flow Pattern from Sodium Piping

図 2-1 ナトリウム配管からの漏えい形態⁽²²⁾

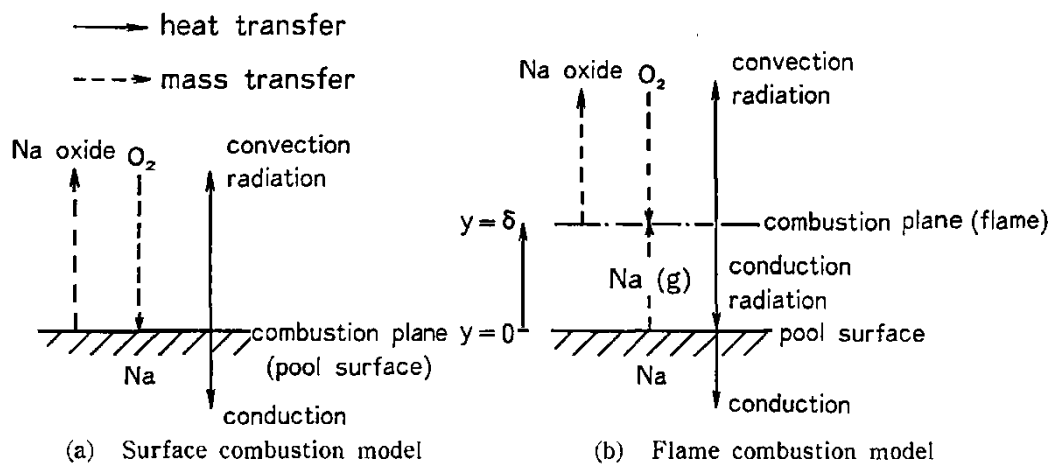


Fig. 2 Combustion model

図 2-2 燃焼モデル⁽²²⁾

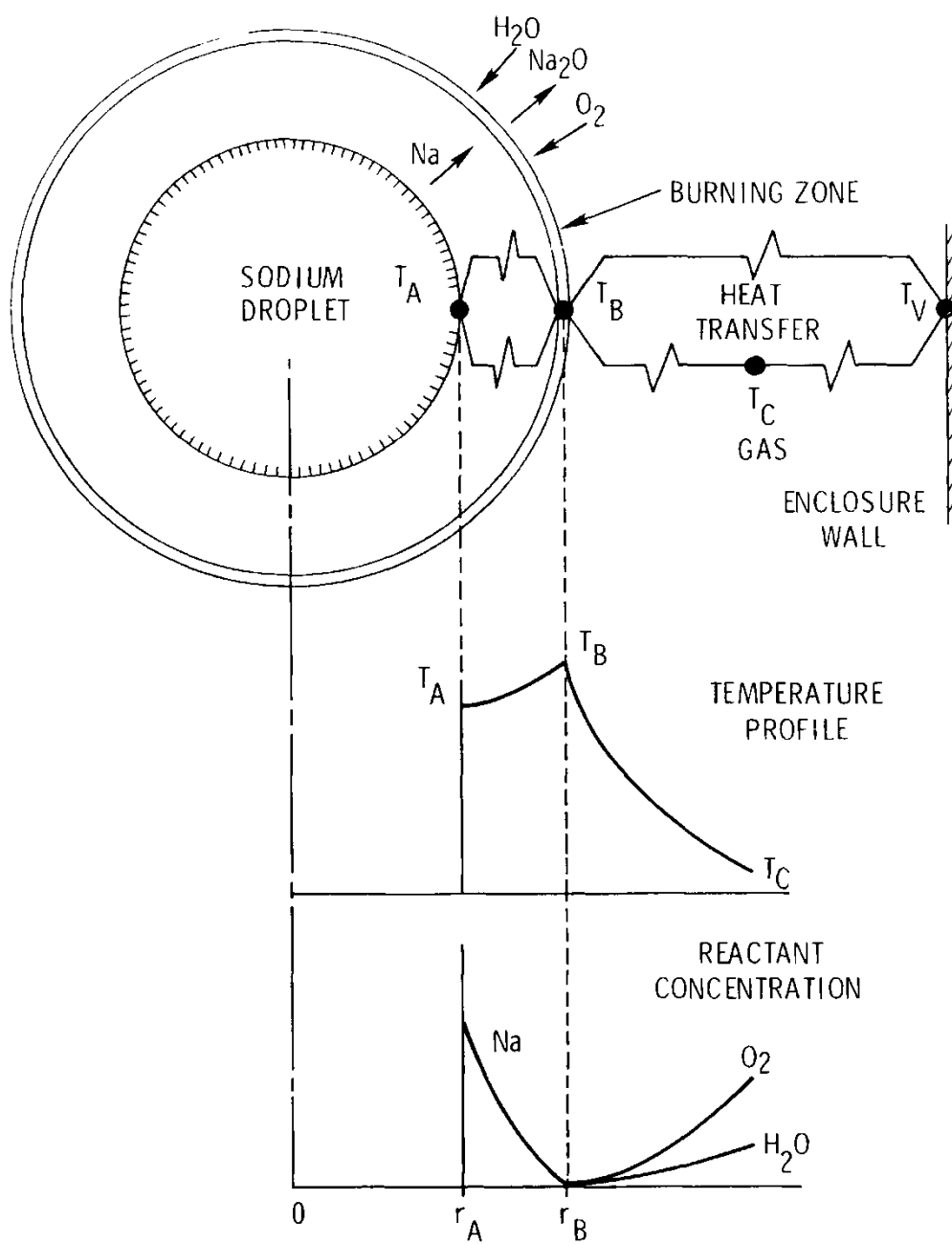


FIGURE 2. Reaction Model For Sodium Droplet.

HEDL 7609-87.9

図 2-3 Sire の燃焼モデル⁽²⁷⁾

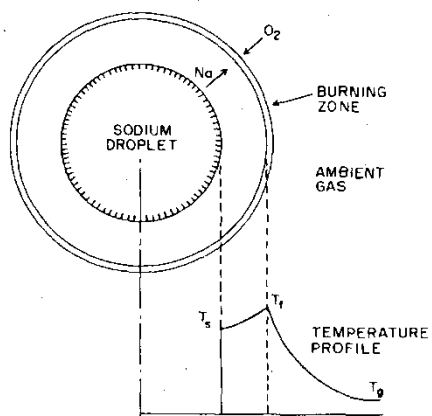


Figure 1. Schematic of a Burning Sodium Droplet

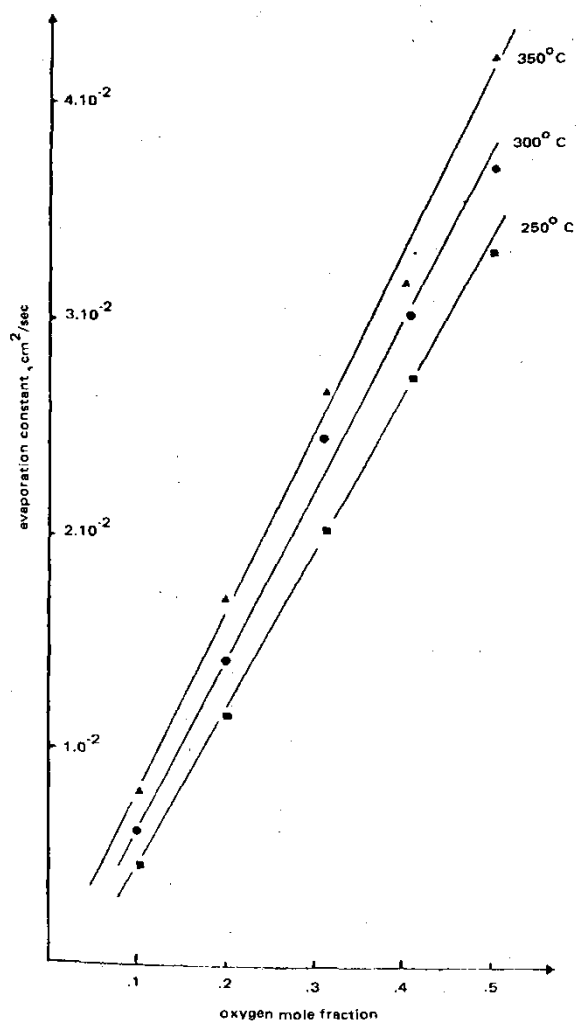


Figure 2. Dependence of Evaporation Constant K (at Different Temperatures) upon Mole Fraction of Oxygen Y

図 2-4 D²則 燃焼モデル(28)

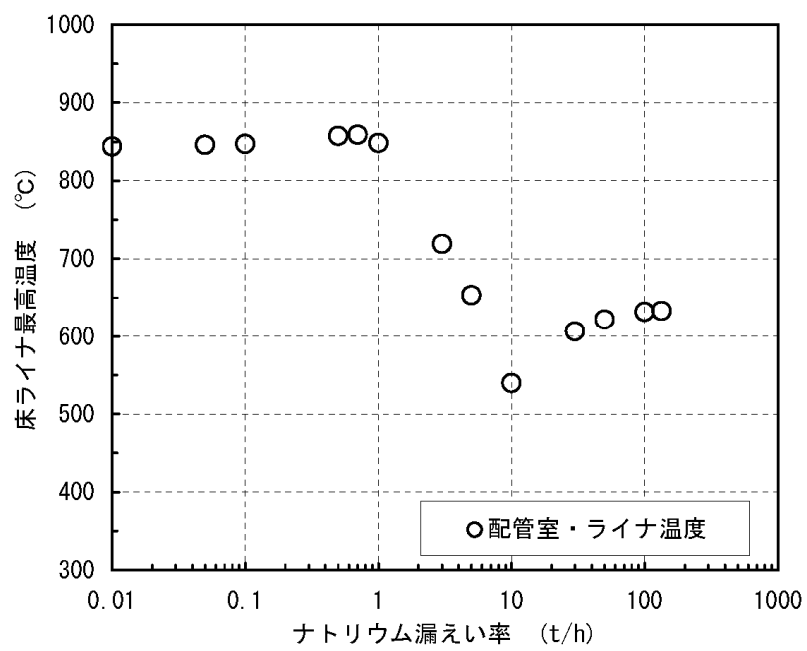


図2-5 2次主冷却系設備 配管室（A446）でのナトリウム漏えい時の床ライナ温度（ライナ温度に着目した解析）⁽³³⁾

2 章の参考文献

- (1) Gracie, J. D. and Droher, J.J., “ A study of sodium fires,” NAA-SR-4383 (1960).
- (2) 古川和男, 井口八枝, “ ナトリウム火災の研究,” JAERI memo 第 2184 号
(1966)
- (3) 日本原子力研究所, “ 液体ナトリウム取扱い安全指針,” JAERI 6019 (1968)
- (4) International Atomic Energy Agency, IAEA-NPR (1972).
- (5) International Atomic Energy Agency, IWGFR / 28 (1978).
- (6) International Atomic Energy Agency, IWGFR / 43 (1985).
- (7) International Atomic Energy Agency, IWGFR / 67 (1988).
- (8) International Atomic Energy Agency, IWGFR / 92 (1996).
- (9) 古川和男、山田栄吉、春田秀人、大山信美、住谷功, “ナトリウム火災の研究,
第 1 報; ループ火災実験と防災法,”、安全工学 10(1):28-34(1971).
- (10) 大野修司、川田耕嗣、宮原信哉, “ナトリウム漏えい燃焼に関する研究,” 動燃
技報 92: 18-32(1994).
- (11) Newman, R. N., “The ignition and burning behaviour of sodium metal in air,”
Progress in nuclear Energy 12, 2:119-147 (1983).
- (12) Cherdron, W., and Jordan, S., IWGFR/67:57-77(1988).
- (13) Malet, J. C., IWGFR/92: 13-37 (1996)
- (14) 川部隆平、姫野嘉昭、福地平、川田耕嗣, 日本原子力学会 昭和 60 年会, 1984,

- (15) Yamaguchi, A., and Tajima, Y., “Numerical Simulation of Non-Premixed Diffusion Flame and Reaction Product Aerosol Behavior in Liquid Metal Pool Combustion,” *Journal of Nuclear Science and Technology* 40, No.2; 93-103 (2003)
- (16) 宮原信哉、大野修司、石川博康、堂田哲広, “高速増殖炉における冷却材ナトリウムの漏えい燃焼対策,” *日本燃焼学会誌* 第45巻133号 141-151 (2003年)
- (17) Richard, J. R., Delbourgo, R., and Laffitte, P., “Spontaneous ignition and combustion of sodium droplets in various oxidizing atmospheres at atmospheric pressure,” *Proc. combust. Inst.* 12: 39-48 (1969).
- (18) Morewitz, H. A., Johnson, R. P., and Nelson, C. T., “Experiments on sodium fires and their aerosols,” *Nuc. Eng. Design* 42: 123-135 (1977)
- (19) 佐藤研二、酒井康弘、大野修司, 第40回燃焼シンポジウム講演論文集, 2002, pp. 547-548
- (20) 深田博一、牧野敦、堤規之, 第40回燃焼シンポジウム講演論文集, 2002, pp. 421-422
- (21) 堂田哲広、大野修司、宮原信哉, 第40回燃焼シンポジウム講演論文集, 2002, pp. 419-420
- (22) Himeno, Y., Miyahara, S., Morii, T., and Sasaki, K.,” Engineering scale test on

- sodium leak and Its Consequences in Auxiliary Building of Fast Breeder Reactors,”
Fourth Int. Conf. on Liquid Metal Engineering and Technology (LIMET),1988,
pp. 202-1-202-9.
- (23) 大野修司、川田耕嗣、森川智、姫野嘉昭, 日本原子力学会「1990 年会」, 1990,
C13.
- (24) Ohno, S., Uchiyama, N., Kawata, K., and Miyake, O., IWGFR/92: 385-396 (1996)
- (25) Sagae, K., and Suzuoki, A., Journal of Nuclear Science and Technology, 22[11]: 12-
22 (1985).
- (26) Kikuchi, Y., Journal of Nuclear Science and Technology, 23[1]: 83-85 (1986).
- (27) P.R. Shire, "SPRAY Code User's Report," HEDL-TME 76-94, (1977).
- (28) S.S.TSAI., “The NACOM code for analysis of postulated sodium spray fires in
LMFBRs,” NUREG/CR-1405, BNL-NUREG-51180 (1980).
- (29) 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: 93-104 (2001).
- (30) 清野裕, 大野修司, 中井良大, 日本原子力学会「1998 年秋の大会」, 1998, E23
- (31) 伊藤和元, 山口彰, 和田雄作, 岩田耕司, 森下正樹, 三宅収, 青砥紀身, 岡林
郁夫, 柴公倫, 安濃田良成, 松岡三郎, “「もんじゅ」ナトリウム漏えい事故に
関する技術報告」, ”日本原子力学会誌, **39** [9], 704 (1997)

- (32) もんじゅピアレビュー委員会,「高速増殖炉もんじゅの安全確保の考え方」
(2014 年)
- (33) 岡部綾夫、大野修司、中井良大、江橋政明, “高速増殖炉「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(II),” JNC TN2400 2003-002 (2004)
- (34) 岡部綾夫、大貫康二、菊池裕彦、内橋昌也、西林洋平、池田真輝典、三宅収,
“高速増殖炉「もんじゅ」詳細設計におけるナトリウム燃焼解析,” JNC TN2400
2003-005 (2004)
- (35) 大野修司、松木卓夫, “ナトリウム燃焼解析コード ASSCOPS の検証,” JNC
TN9400 2000-106 (2000)
- (36) J. Saito, and K. Ara, “A Study of atomic interaction between suspended nanoparticles
and sodium atoms in liquid sodium,” Nucl. Eng. Des. 240 2664-2673, (2010).
- (37) K. Ara, K.Sugiyama, H. Kitagawa, M. Nagai, et al., “Study on Chemical Reactivity
Control of Sodium by Suspended Nanoparticles I,” Journal of Nuclear Science and
Technology 47, 1165-1170 (2010).
- (38) K. Ara, K.Sugiyama, H. Kitagawa, M. Nagai, et al., “Study on Chemical Reactivity
Control of Sodium by Suspended Nanoparticles II,” Journal of Nuclear Science and
Technology 47, 1171-1181 (2010).

3. ナトリウムの小規模漏えい時のプール 拡がり挙動と燃焼挙動に関する研究

3. ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動に関する研究

3.1 概要

1995 年に発生した高速増殖炉「もんじゅ」におけるナトリウム漏えい事故後の一連の研究⁽¹⁻⁵⁾において、小規模なナトリウム漏えい時のナトリウム漏えい挙動および燃焼現象の解明とナトリウム漏えいに対する安全対策設備の一部である鋼性床ライナ（キャッチパン）へ与える熱的影響が着目された。

配管から床面に落下した未燃焼のナトリウムは液体として、自らの表面張力での厚みを持って床面をライナ勾配に従って拡がる挙動を示す。「もんじゅ」の 2 次系の床ライナは、漏えいしたナトリウムとコンクリートとの接触を防止する役割と、勾配によって連通管、燃焼抑制槽に導く設計となっており、実証試験によってその機能が確認されている。床ライナの構造については図 3-1 に示す。

「もんじゅ」におけるナトリウム漏えい事故前は、漏えいしたナトリウムが床面の全体に拡がるような大規模な漏えいを、漏れたナトリウムのエンタルピの総量が多いことから想定し、燃焼抑制設備へ連通管で導き窒息消火する対策等が取られていた。

一方、床ライナの一部にプールを形成するようなナトリウム漏えいにおいては、エンタルピの総量としては小さいが、ナトリウム燃焼プールの持っている

特性によって決定される有限の拡がり範囲内で燃焼するとともに、酸素供給についても体系に依存することから、床ライナに対する局所的な熱的影響を評価するためには、ナトリウムの漏えい挙動、燃焼現象の解明が必要である。

2 章でも述べたように、もんじゅ事故後の ASSCOPS による漏えい率をパラメータとした床ライナ温度評価で、漏えい率が 100 kg/h というようなもんじゅ事故の漏えい率 (50 g/sec=180 kg/h) よりも小さな漏えい率でも厳しい結果となり、かつ 10 kg/h の漏えい率と小さくなくても最高温度がそれほど降下しない結果となった。この解析結果は保守的な評価となっていることは想定できるものの本研究の前に実験で確かめられた例はなかった。

これまでの大規模プール燃焼を対象とした評価では、漏えいと同時に床面積一面に拡がる想定である。プールの面積が床面積のうちの限定した範囲までしか拡がらないような規模の漏えいでは、燃焼プールからプールのない領域のライナへの横方向の熱の移行が生じることから、従来の評価はライナ温度の観点から保守的な想定となっている。また、燃焼によって発生する熱量は燃焼面積に依存するが、ナトリウムプールが、燃焼しながら拡がっていく過渡変化について考慮をしていない点も保守的な想定である。

これらの保守的な要因を排除して適切な評価条件とするために、プール拡がり挙動を支配している因子とその影響を明らかにする必要がある。本章では

「ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動」を課題として設定し検討を実施することとした。

そこで、小規模なナトリウム漏えいで考えられるナトリウムの漏えい現象、燃焼現象の全容を把握するためにナトリウム漏えい燃焼実験を実施した。実験体系を図 3-2 に示す。直径約 1.3 m、高さ約 2.2 m、内容積約 3.0 m³ のステンレス製密閉容器 FRAT-1 (Fission Product and Radioactive Aerosol Release Test Rig-1) を使用した。

ナトリウム漏えい挙動では、床ライナ状に形成されるナトリウムのプールの拡がり挙動に着目するとともに、燃焼挙動では、単位時間、単位面積当たりのナトリウムの消費量で定義される燃焼速度に着目した。これらに影響をおよぼすと考えられるナトリウム漏えい位置から床までの高さ、雰囲気湿度、ナトリウム漏えい率をパラメータとして、それぞれ評価を行った。この章では、これらの評価の結果から明らかとなったナトリウムの漏えい現象、燃焼現象について述べる⁽⁶⁾。

3.2 実験条件と実験手法

FRAT-1 の系統図を図 3-3 に示す。FRAT-1 底部の受け皿(SUS304, 厚さ 3 mm)上に、断熱材(ファインフレックス #1300, 厚 50 mm)を 2 層設置し、その上に

炭素鋼（SM400B）製の模擬床ライナを水平に設置した。模擬床ライナの直径は、1,128 mm、板厚は 6 mm である。この実験におけるライナ裏面の保温施工は、前述の「もんじゅ」実機におけるライナ裏面の施工と比較すると断熱効果が高くなっており、ライナ温度評価の観点から高い温度を与える条件設定となっている。

FRAT-1 の上部にはナトリウムを貯留するナトリウムタンクを設置し、電気ヒータでナトリウムを実験条件まで予熱する。ナトリウムタンクの下部は、仕切り弁を通して供給ノズルに連結しており、仕切り弁を開とすることにより供給ノズルから模擬床ライナ上にナトリウムが漏えいする。供給ノズル先端部の内径は 4.35 mm であり、閉塞を防ぐために先端部を覆うフードを設置し、フード内にヘリウムガスをブローしている。漏えい率は、供給ノズル途中にオリフィスを設けて、ナトリウムタンクのカバーガス圧を調整することにより、一定流量に制御した。FRAT-1 内の雰囲気は、燃焼に必要な酸素が十分に供給されるように 3~5 m³/min の換気を行い、必要に応じて、給気ラインに設けた水蒸気供給装置と予熱ヒータにより、雰囲気条件を調整した。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んだ排気ガスは、水冷却塔で冷却し、水スクラバと高性能フィルタ設備でエアロゾルを除去した後、排気ブロワで大気中へ排出した。

温度の測定には K 型熱電対（JIS クラス 2、シース径 1 mm）を使用した。熱電

対は、ナトリウムプール、床ライナを模擬した模擬床ライナ、FRAT-1 のガス空間、構造材にそれぞれ設置した。模擬床ライナ裏面には、約 50 箇所の熱電対を配置した。

また、模擬床ライナ裏面の中心近傍に表面取り付けタイプの熱流束計（京都電子工業㈱製 E500B-20、常用熱流範囲：1,255～62,745 kJ/m²・h）を設置した。

模擬床ライナ裏面の熱電対は、実験ケースによって配置を変更しており、図

3-4 と図 3-5 に模擬床ライナ裏面の熱電対と熱流束計配置を示す。

模擬床ライナ表面から、約 4 mm 高さの位置で 2 次元的にステンレスシース K 型熱電対（JIS クラス 2、シース径 1 mm）を配置し、ナトリウムプールが模擬床ライナ上に拡がり熱電対に接触することにより温度変化する時間を測定した。これらの熱電対の模擬床ライナ上位置とプール接触時間の情報からプール拡がり速度に関するデータを取得した。図 3-6 に熱電対配置の 1 例を示すが、実験ケース毎にプールの拡がり範囲を予測して熱電対配置を決定した。また、実験中は ITV カメラでプールの拡がり挙動を観察し、実験後には、プールの拡がった最終的な形状を方眼紙に投影し、面積を測定した。

熱電対や熱流束計により測定されたデータは、パソコンタイプの収録装置（横河電機㈱製、DARWIN）を使用して、サンプリング周期 1 秒で収録した。

3.3 ナトリウムの漏えい挙動

3.3.1 ナトリウムの拡がり面積

実験では、ライナ最高温度とこれに影響を及ぼす燃焼速度と拡がり挙動へ影響を与えられる漏えい高さ、湿度、漏えい率の 3 つをパラメータとし、表 2-1 に示す実験条件で実施した。

漏えい高さについては、漏えいしたナトリウムが分裂し、分裂したナトリウムの落下中の燃焼が期待される高さを確保し、その影響を確認する観点から、装置上の限界である 1.5 m を基準として実施した。Case2B では Case2A 条件から漏えい高さのみを 0.1 m と変えて、漏えいしたナトリウムが分裂しない条件で実施し、その影響を確認した。ここで、漏えい高さとは、漏えいしたナトリウムが空気雰囲気にとらわれ始める位置である供給ノズル先端を覆うフードの先端から、模擬床ライナまでの距離をいう。

湿分は、ナトリウムと反応するため、燃焼速度や拡がり挙動に影響を及ぼす可能性がある。Case2C では、高湿度条件における影響を確認するために、原型炉での評価条件とされている高い湿分濃度条件（気温 35 °C、RH80 %の雰囲気を包絡する条件）とした。

漏えい率については、燃焼範囲が局所化すると考えられる漏えいを対象とし

てライナ最高温度や拡がり挙動への影響を確認することとし、6.8～26 kg/h の範囲でパラメータとした。漏えい率の上限については、装置上の制約から設定した。実験時の漏えい量の測定のための計測装置として、ナトリウムタンク内部に接点式液位計及び連続式液位計を設置した。実験における漏えい率は、漏えい量を漏えい時間で除することによって求める平均漏えい率として設定した。

ナトリウムの初期温度については、原型炉の中間熱交換器 2 次側出口温度である 507 °Cとした。

漏えい時間は、燃焼速度や拡がり挙動を観測、観察するための十分な時間を確保するために、プール面積が拡大してほぼ一定に到達するのに必要な時間である約 30 分とした。

この他、模擬床ライナへのナトリウム供給の終了時から燃焼の自然終息時までのプールの状態変化を観察するため、Case3A と Case3B では、主要パラメータを同一にして、FRAT-1 内へのアルゴンガスパージ開始時期を 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。Case3A と Case3B における容器内の酸素濃度条件を図 3-7 に示す。Case3B では、漏えい終了である 30 分以降、燃焼容器内の酸素がアルゴンガスによって速やかに置換されていることが確認できる。

3.3.2 ナトリウムプールの拡がりを支配する要因

漏えい実験中、燃焼によって発生するエアロゾルが視界を遮るまでの間、プール拡がりの様子を ITV カメラによって撮影した。プールは落下地点を中心として等方円状に拡大していた。また、図 3-8 に示すように実験後の観察結果からも堆積物はほぼ等方円状に広がっていることを確認した。図 3-9 に実験後の堆積物の面積と漏えい率との関係を示す。

最終的なプール面積が漏えい率に比例すると仮定し原点を通る一次式で最小 2 乗法によってフィティングしたところ、傾きの大きなグループ L と小さなグループ S に分けられ、それぞれの決定係数が、0.995 と 0.996 となった。漏えい高さの影響を確認した Case2A と Case2B の間で最終面積に違いはなく、影響は小さいことが確認された。また、湿分濃度を非常に大きくした条件の Case2C と漏えい率の一番小さい条件である Case1 がグループ S に属している。これについては雰囲気中の湿分とナトリウムとの化学反応によってナトリウムプール拡がり挙動に影響を与える物性（表面張力、プールの床ライナとの接触角など）に影響を与えていると推察される。

また、燃焼中のカメラの映像からも、両グループの違いが観察された。燃焼が激しい間は、エアロゾルによってプール表面の観察はできないが、燃焼がおさまれば始めエアロゾルがはれるようになると、プールの燃焼表面の様子を観察で

きるようになる。グループ L のプール表面は、固体状の燃焼生成物の凹凸が比較的にはっきりして火点がまばらになった状態で観察できるようになったのに対して、グループ S のプールでは、プールの全面にフレイムがみられるような状態で観察されるようになった（図 3-10）。

図 3-11 に配置を示した熱電対に燃焼プール縁が接触した時間からプール半径の時間変化を求めた結果を図 3-12 に示す。ここで、プール中心を原点とした円筒座標系 (r, θ) を考えた場合、プールが等方円に広がる場合は、中心からのある一定距離にプール縁が到達する時間は、理論的には θ 方向に関係なく一定である。実験では、 θ 方向によって若干のばらつきがあるため、到達時間がばらついている。各ケースについて、プール半径の時間変化は時間の平方根に比例した関数としてフィティングされる。プール半径の時間変化は漏えい率には依存しておらず、図 3-11 に示すように (1) 項と同じ 2 つのグループに分けられた。このように、時間の平方根に比例して成長するという実験結果とプールが円形に広がるとの観察結果から、図 3-12 に示すように時間に比例して成長することが明らかになった。これらのプール拡がり速度 a_L , a_S は漏えい率に依存しておらず、2 つのグループにわけられた。図 3-13 に図 3-9 で示した実験後の観察結果から求めたプールの最終面積を書き込んだ。プールの成長は、この最終面積の線との交点の時刻で停止し、その後はその面積で一定となると考えられ、

プール面積は、以下のような実験式で表される。

$$\begin{aligned} \text{グループ} L : S_p(t) &= a_L \cdot t, & t &\leq \frac{S_{pMAX}}{a_L} \\ &: S_p(t) = S_{pMAX}, & t &\geq \frac{S_{pMAX}}{a_L} \end{aligned} \quad (3-1)$$

$$\begin{aligned} \text{グループ} S : S_p(t) &= a_S \cdot t, & t &\leq \frac{S_{pMAX}}{a_S} \\ &: S_p(t) = S_{pMAX}, & t &\geq \frac{S_{pMAX}}{a_S} \end{aligned} \quad (3-2)$$

$$\begin{aligned} \text{プール拡がり速度} : a_L &= 1.263 \left[\frac{m^2}{h} \right] \\ a_S &= 0.546 \left[\frac{m^2}{h} \right] \\ S_p : &\text{プール面積} \left[m^2 \right] \\ S_{pMAX} : &\text{プール最大面積} \left[m^2 \right] \\ t : &\text{時間} \left[h \right] \end{aligned}$$

これら 2 つのグループの違いは、燃焼プール表面の形状によるものと考えられる。図 3-13 にグループ L に属する Case3B の実験後のプール表面の観察結果を示す。Case3B では漏えい終了と同時に雰囲気アルゴンを置換することによって酸素濃度を下げて強制的に消火したために、プール表面は燃焼中の様相を示していると考えられる。図 3-13 に示すように、漏えい終了後も酸素を供給し続けて自然に終息するまで燃焼させたときに残る燃焼生成物の様相とは異なり、堆積物の表面はポーラス状のナトリウム酸化物に覆われていた。この堆積物を不活性ガス雰囲気中で切断して観察すると、ポーラス状の酸化物の間に

金属光沢のあるナトリウムが入り込んでいる様子が観察された。これらの観察結果からナトリウムのプールの成長に、ナトリウム酸化物が形成するポーラス形状が寄与していることが推察される。Case2C のような高湿度条件では、漏えい中でも湿分がプール燃焼面へ供給されるために、ナトリウム酸化物のうちの表面に近い一部が水酸化ナトリウム (NaOH) へ変化するものと考えられる。その結果、ポーラスな形状の形成が阻害され、同じ漏えい速度の他のケースと比較して拡がり速度に違いが現れたものと考えられる。

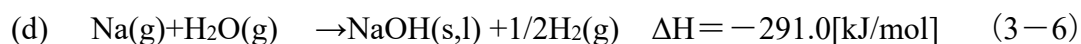
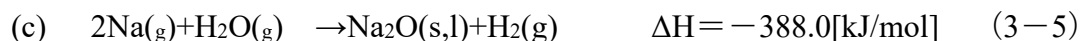
グループ S に属するもうひとつの Case1 では図 3-14 に示すように約 3 分間燃焼していない。これは、漏えい率が微小なため熱が模擬床ライナへ吸収されたためであると考えられる。この間に、プール表面のナトリウム酸化物のうち表面に近い一部が雰囲気中の湿分と反応し、Case1 では、雰囲気湿度が 23000～24000 vol-ppm 程度とグループ L に属する Case3A、Case3B の湿度とそれほど違いが無いにも関わらずナトリウム燃焼プール中に NaOH が形成され、プール表面にポーラスな形状が形成されなかったものと考えられる。

一方、グループ L に属するケースでは、プール燃焼によって発生するエアロゾル (Na_2O , Na_2O_2) の吸湿作用によりプール表面に湿分が供給されず、NaOH が生成されないと考えられることから、プールの拡がり過程でポーラスな形状が存在したものと考えられる。

前に示した図 3-10 での燃焼中の観察結果も、プール表面にポーラスな形状が顕著である場合の燃焼とそうでない場合の燃焼の違い、すなわち燃焼プールでの NaOH の形成の有無の違いと考えられる。

グループ L の方がグループ S と比較してプールの拡がり速度が速いことから、Case3B で観察されたポーラスな形状は、ナトリウムの拡がりを促進する寄与を与えていると考えられる。

ここで、漏えいナトリウムが空気中の酸素及び水蒸気と反応する場合、一般に以下の反応に従う。



これらの反応における標準自由エネルギー変化は、負の値でありいずれも反応は右に向かって自発的に進行する。空気中の酸素の分圧と比較すると、水蒸気の方分圧はわずかである。さらに化学反応の平衡定数 K_p から(c)と(d)の反応で生成する Na_2O と NaOH の割合を比較すると Na_2O の生成割合が非常に多くなる検討⁽⁷⁾がなされており、一般的な条件下における燃焼実験で生成する NaOH は激しい燃焼中は生成せず、燃焼が終息に向かい吸湿作用のある酸化物エアロゾル

が雰囲気中になくなるような段階において、プール中の残渣としての酸化物 ((a) や(b)の反応で生成) と反応して副次的に生成するものと考えられる。

3.4 漏えいしたナトリウムの燃焼挙動

3.4.1 単位時間当たりの燃焼量

燃焼速度については図 3-15 に示すモデルに従い熱量変化から導出した。ナトリウム燃焼による反応熱は、容器やガス温度等を上昇させることとなる。そこで、容器壁温度、天井温度、受け皿温度、断熱材温度、実験室温度、給排気温度の時間変化と構造材等の比熱から 1 秒あたりの受熱量を概算した。温度の急激な変動がある燃焼初期にはデータが安定していないが、燃焼が定常な状態に近い時間帯では、比較的安定した結果が得られており、各ケース間の定性的な傾向を論じることは可能であると考ええる。反応生成物の割合を過去の実験知見⁽⁸⁾から $\text{Na}_2\text{O} : \text{Na}_2\text{O}_2 = 6 : 4$ と仮定した場合の反応熱を用いてナトリウムの消費速度を算出すると各ケースのナトリウムの消費速度と漏えい率は図 3-16 に示すように比例傾向にある。また、ナトリウムの消費速度を図 3-12 のプール面積の時間変化から単位面積当たりのナトリウムの消費速度すなわち燃焼速度として規格化すると図 3-17 に示すようになる。熱量変化を安定して測定することのできる漏えい開始から 0.15～0.4 時間の間では各ケースで平均すると約 20～40kg-

$\text{Na/h} \cdot \text{m}^2$ の範囲内にあり漏えい高さ、湿度、漏えい率といったパラメータに対する明確な相関性を確認することはできなかった。

また、図 3-18 に模擬床ライナ中心部近傍の熱流束を示す。Case1 においては、カメラで撮影した映像によると初期に漏えいしたナトリウムは、前述したように漏えい開始後、約 3 分間燃焼しておらず、すぐに着火する他のケースと燃焼状態が異なっている。そのために熱流束も異なった挙動を示しているが、その他のケースについては熱量の変化が安定する漏えい開始から 0.15~0.4 時間の間で、模擬床ライナ鉛直方向への熱流束は同程度であった。ライナの温度上昇の熱源は接触しているナトリウム燃焼プールからの熱伝達によるものであることを考えると、熱源であるプールの単位面積当りの燃焼量が同じであれば、妥当な結果と考えられる。したがって、ライナの最高温度に影響を与える、プールが接触している模擬床ライナに移行する熱量は、プール面積、つまりプール半径の 2 乗に依存する。ここで、最終プール面積は漏えい率に比例しており、すべてのケースで模擬床ライナ最高温度は、ナトリウム供給終了後、すなわち最終のプール面積となった後に記録している。一方、径方向への熱移行は、円周、つまりプール半径に依存する。従って、プール面積、つまり漏えい率が小さいほど、模擬床ライナに移行する熱量に対して径方向への放熱の効果が相対的に大きくなると考えられる。

3.4.2 床ライナ構造物（キャッチパン）に与える熱的影響評価

各ケースの模擬床ライナ最高温度を示した熱電対の測定値の時間変化を図 3-19 に示す。いずれのケースにおいても漏えい終了後に温度上昇が見られるが、ナトリウム供給期間中は供給している未燃焼のナトリウム（初期温度約 507℃）が、プール温度を低下させており、供給停止後にはこの効果が無くなることによる。最高温度を示した熱電対の設置位置は、ほとんどすべてのケースで、供給ノズル直下近傍（図 3-4 および図 3-5 に示した熱電対配置で中心位置から第 1 及び第 2 近接）であった。ただし、Case3B だけは、プール縁に比較的近い位置（中心位置から約 283 mm）の熱電対が最高温度を示した。ナトリウム漏えい高さの点から Case2A と Case2B を比較すると、模擬床ライナ最高温度は、Case2B の 0.1 m よりも基準ケース Case2A の 1.5 m の方が約 63℃高い。

次に高湿度条件の 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、湿度が高い方が模擬床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、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。

ライナ最高温度に及ぼす漏えい率の影響について整理したグラフを図 3-20 に示す。「もんじゅ」事故原因究明作業の一環として実施した実験-I⁽⁹⁾、実験-I

II⁽⁷⁾の結果もあわせて図中に示すが、模擬床ライナの最高温度は漏えい率の低下とともに低下する傾向となった。従って前章の ASSCOPS 解析の結果（図 2-5）は、保守的な結果を与えていることが実験的に確認された。

実験－Iと実験－IIでは、同一の漏えい率であるが模擬床ライナの最高温度が異なっている。これは、実験－Iを実施した燃焼容器は、鋼製であるが、実験－IIはコンクリート製のため湿分濃度が高い燃焼雰囲気条件であることと、実験－IIではプール面を観察するために、視界を遮るエアロゾルを吹き飛ばす目的で、強制的にプール面に向けて空気を供給したことから、実験－IIのライナ最高温度が高くなったものである。

3.4.3 ナトリウム燃焼後の燃焼生成物の特徴

各ケースの実験後に模擬床ライナ上の堆積物の代表的な化学性状を把握するために中心からの距離、方位を考慮して数点サンプリングし、化学組成を分析した結果を各ケース単位で算術平均したものを表 3-2 に示す。

本結果からは、各ケースによって NaOH の割合と雰囲気湿度との間に明確な関連性を見出すことはできなかった。雰囲気湿度の非常に大きな Case2C の結果について図 3-21 に示す。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。さらに、漏えい終了直後に不活性ガスパー

ジを開始した Case3B の NaOH の割合が、燃焼終了後に不活性ガスパージを開始した Case3A と比較して非常に小さいことから、主としてナトリウム漏えい終了後から、燃焼が終了するまでの間に NaOH が生成すると考えられる。

また、Case3B を除くすべてのケースで燃焼が自発的に終息するまで酸素を供給しているが未反応のナトリウムが残ったまま、反応が終息しているケースがある点が着目される。反応が終息した後のナトリウムの燃焼生成物中に未反応ナトリウムが残るケースでは、他の反応生成物に対する過酸化ナトリウムの割合が相対的に小さいという特徴がある。これは、ナトリウムの燃焼挙動を理解するためには、燃焼プール中の反応生成物が反応継続性にあたえる影響を理解することが重要であることを示唆している。

3.4.4 ナトリウム拡がりモデルの構築

本実験の結果から、小規模なナトリウム漏えい時のプールの拡がり面積は漏えい率と燃焼速度との関係によって決定され、プールの拡がりに寄与しているナトリウムの質量移行量が燃焼によって消費される量と等しくなった時に成長が止まると考えられることから図 3-22 に示すようなモデル化を行った。プール厚さについては、ナトリウムの表面張力によって決定する一定厚さであるとの仮定の下、以下の微分方程式で表される。

$$\rho \cdot \delta \cdot \frac{S_p(t)}{dt} = W_{in} - \dot{m} \cdot \chi \cdot S_p(t)$$

(3-7)

ρ : ナトリウムの密度 $\left[\frac{kg}{m^3}\right]$

δ : プール厚さ $[m]$

W_{in} : プールに 1 時間あたりに供給されるナトリウム重量 $\left[\frac{kg}{h}\right]$

$\dot{m}$: 供給される酸素の質量流量 $\left[\frac{kg}{m^2 \cdot h}\right]$

χ : 燃焼反応におけるナトリウムの酸素に対する化学量論比 $[-]$

この微分方程式から、プール面積の時間変化は次のように表される。

$$S_p(t) = \left(\frac{W_{in}}{\dot{m} \cdot \chi}\right) \cdot \left(1 - \exp\left(\frac{-\dot{m} \cdot \chi \cdot t}{\rho \cdot \delta}\right)\right)$$

(3-8)

実験では、ナトリウムプールの拡がりが 2 つのグループに分けられたが、床ライナの熱的評価の観点からはプール面積が広がりやすいグループ L が厳しい条件となる。従って、グループ L についてプール拡がりモデルをもとに計算し、実験により得られた最終プール面積と比較した結果、図 3-23 に示すように概ねよく一致しており、小規模漏えい時のナトリウムプール拡がり現象を定量的に評価することが可能となった。計算の結果が、実験結果よりもプール面積がわずかに大きくなっている。これは、プール厚さを決める接触角をナトリウムで測定されている値での 130 度を仮定して計算していることに起因していると考え

られる。実験のグループ L のプール燃焼では、プールの物性はナトリウムに近いものの燃焼生成物の影響をわずかに受けて接触角が小さくなり、厚みを増すことによって実験では小さな面積となったと考えられる。グループ S はナトリウム中に融点の低い (318 °C) NaOH が融体となって溶け込み、プールの物性が変化してナトリウムの物性を仮定したプール拡がり速度との間に違いがでてい
るものと考えられる。

このプール拡がり面積の時間変化を評価に取り入れることのできる多次元的な解析評価モデルを導入することにより燃焼速度の時間変化、ライナの径方向の放熱の効果を取り入れることが可能となり、図 3-24 に示すように評価精度を向上させた⁽¹⁰⁾。そして図 3-20 で示した 1 次元解析コードのライナ最高温度の評価は保守的な評価であり、0.01 t/h の小規模漏えいではもんじゅ事故時の漏えい率における床ライナ最高温度と比較しても低くなることから、解析的にも評価することが可能となった。

表 3- 1 実験条件

Case	1	2A	2B	2C	3A	3B
Leak height (m)	1.5	1.5	0.1	1.5	1.5	1.5
Humidity (vol-ppm)	23000 -24000	14000 -15000	6000	46000 -48000	27000 -28000	25000 -28000
Total leak quantity (kg)	2.5	5.0		7.3	10	10
Average leak rate (kg/h)	6.8	12	12	14.5	26	24
Supply sodium temp. (°C)	507	507	507	507	507	507
Leaking time (min)	22	25	25	30	23	25
Flow Rate of Ventilation (m ³ /min)	3	3	3	3	5	5
Start timing of an inert gas purge	After Burning	After Burning	After Burning	After Burning	After Burning	After Leaking

表 3- 2 燃焼生成物の化学組成

(wt%)

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

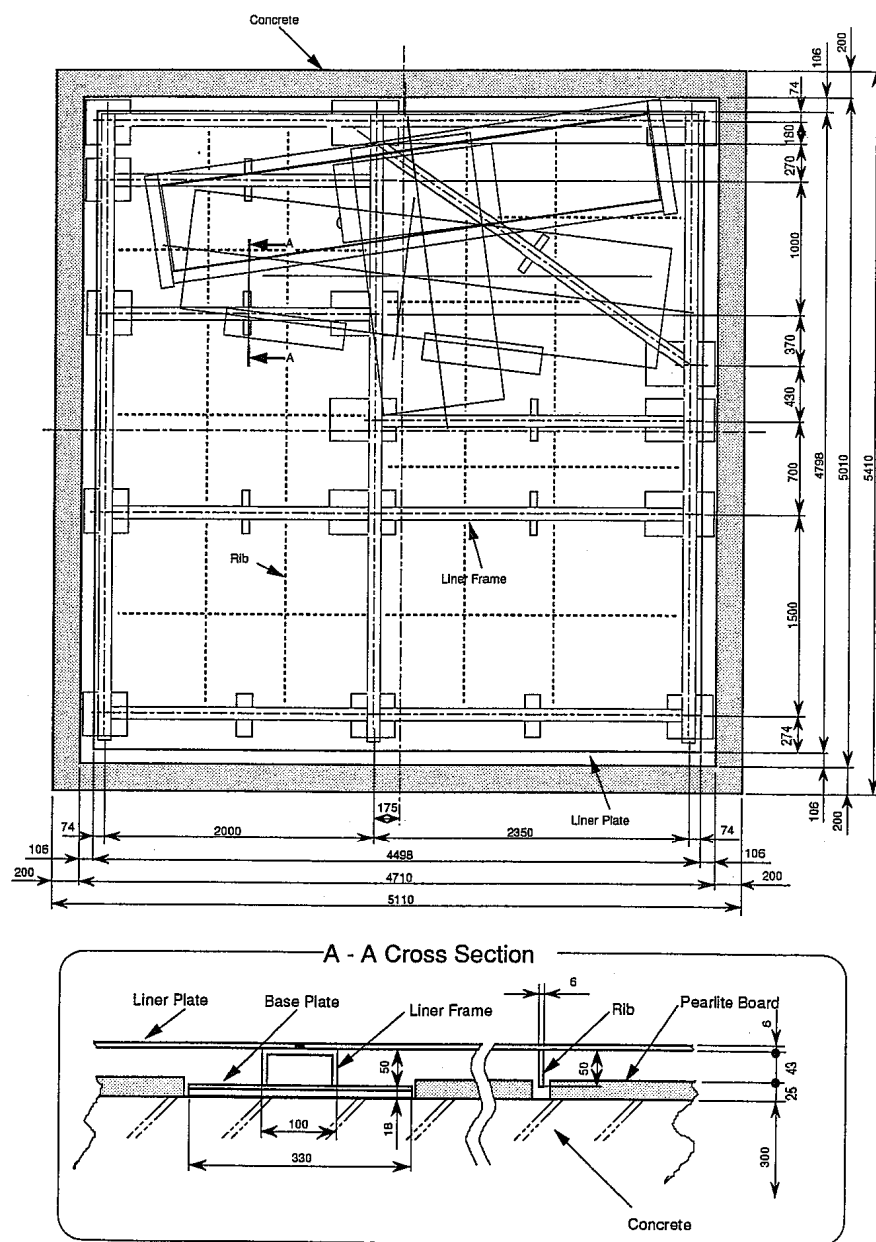


図 3-1 床ライナの構造(7)

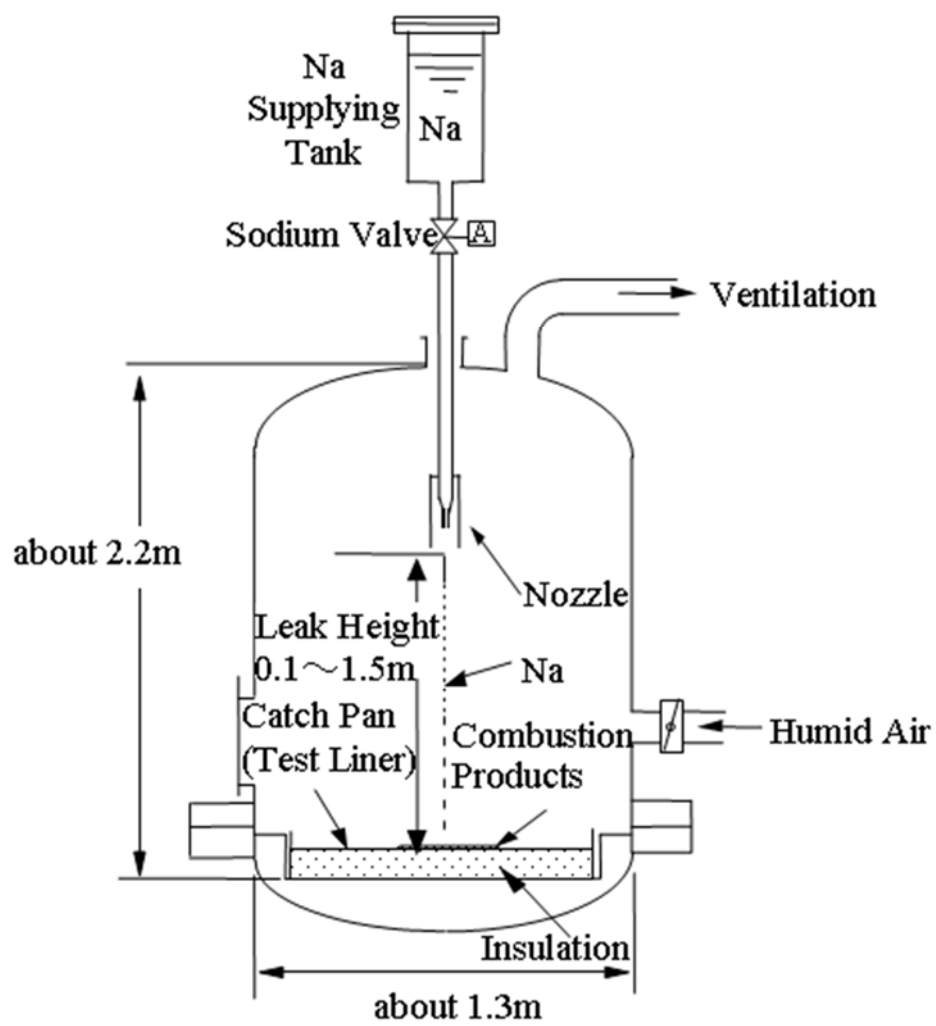


図 3-2 FRAT-1 試験装置

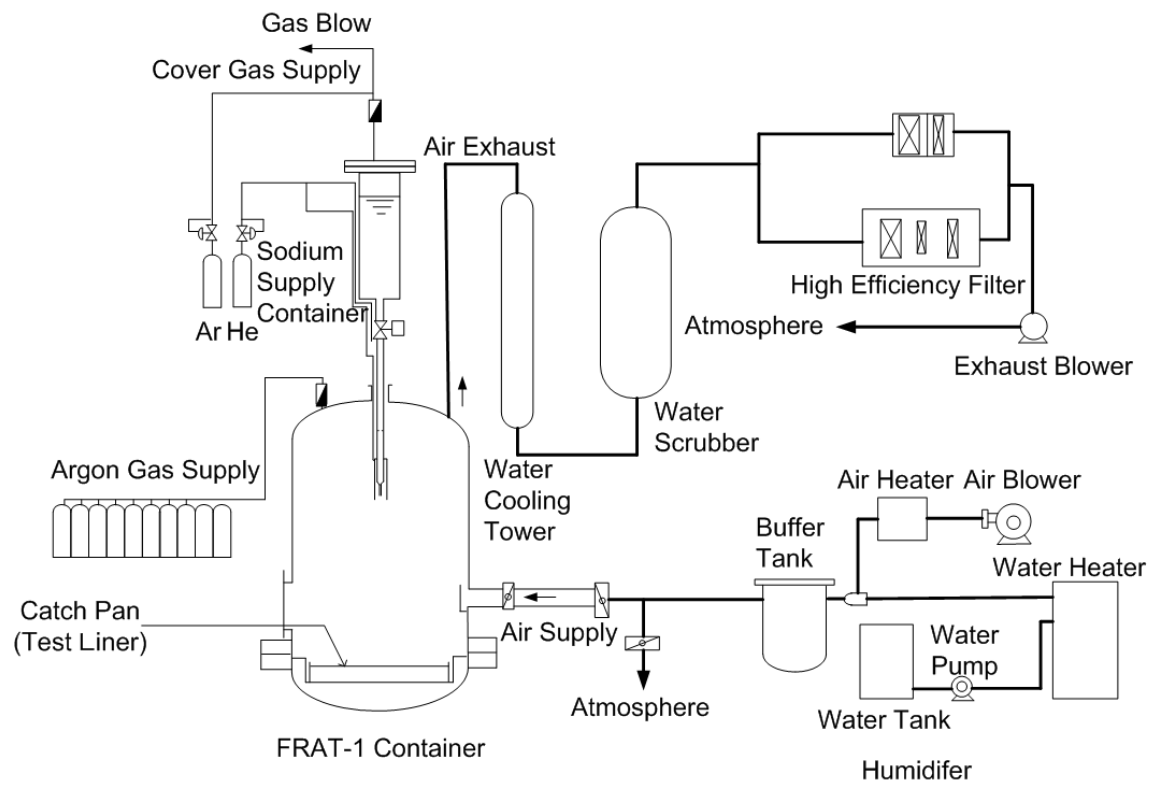


図 3-3 FRAT-1 試験体系

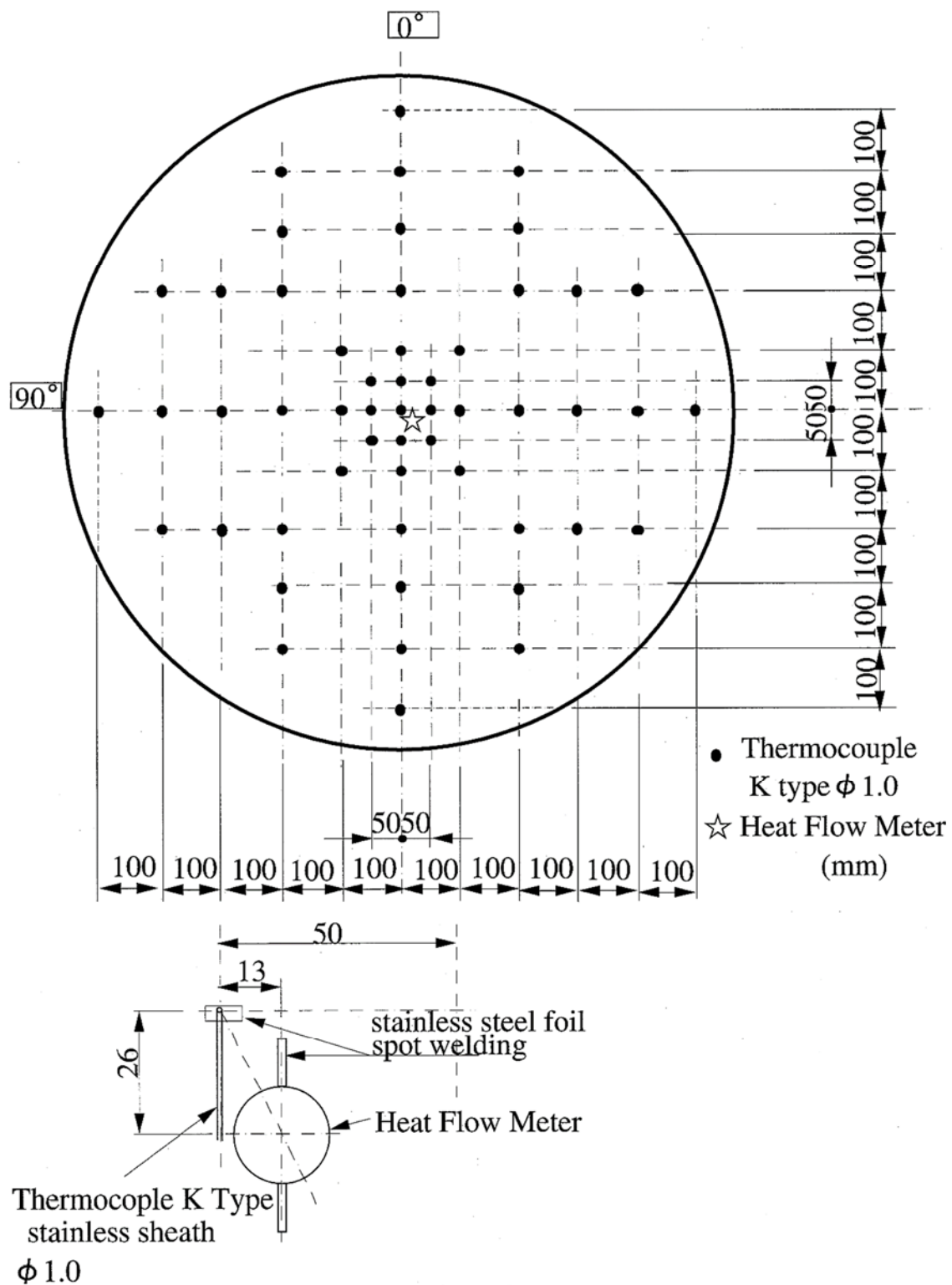


図 3-4 熱電対および熱流束計の配置図（その 1）（模擬床ライナ裏面）

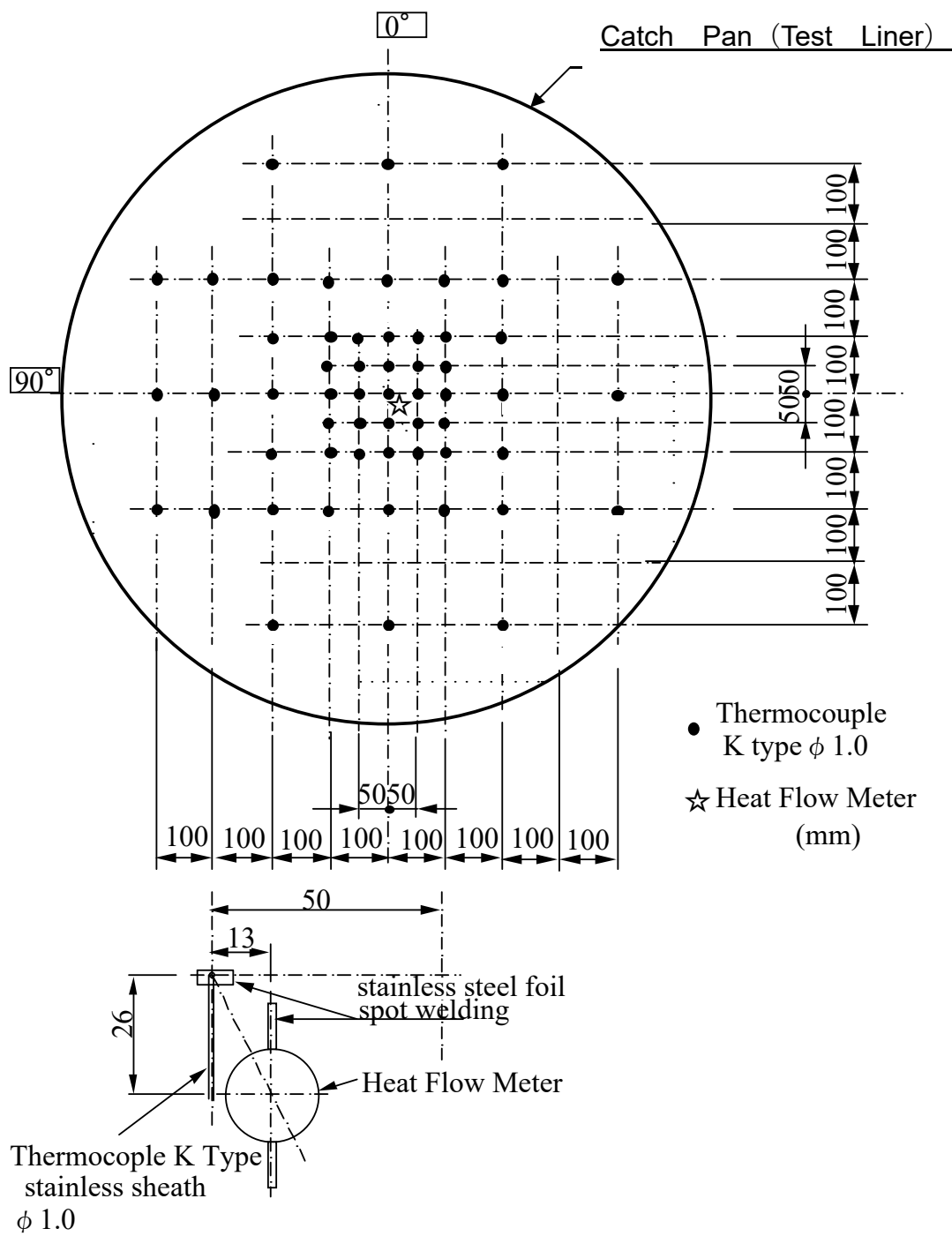


図 3-5 熱電対および熱流束計の配置図（その 2）（模擬床ライナ裏面）

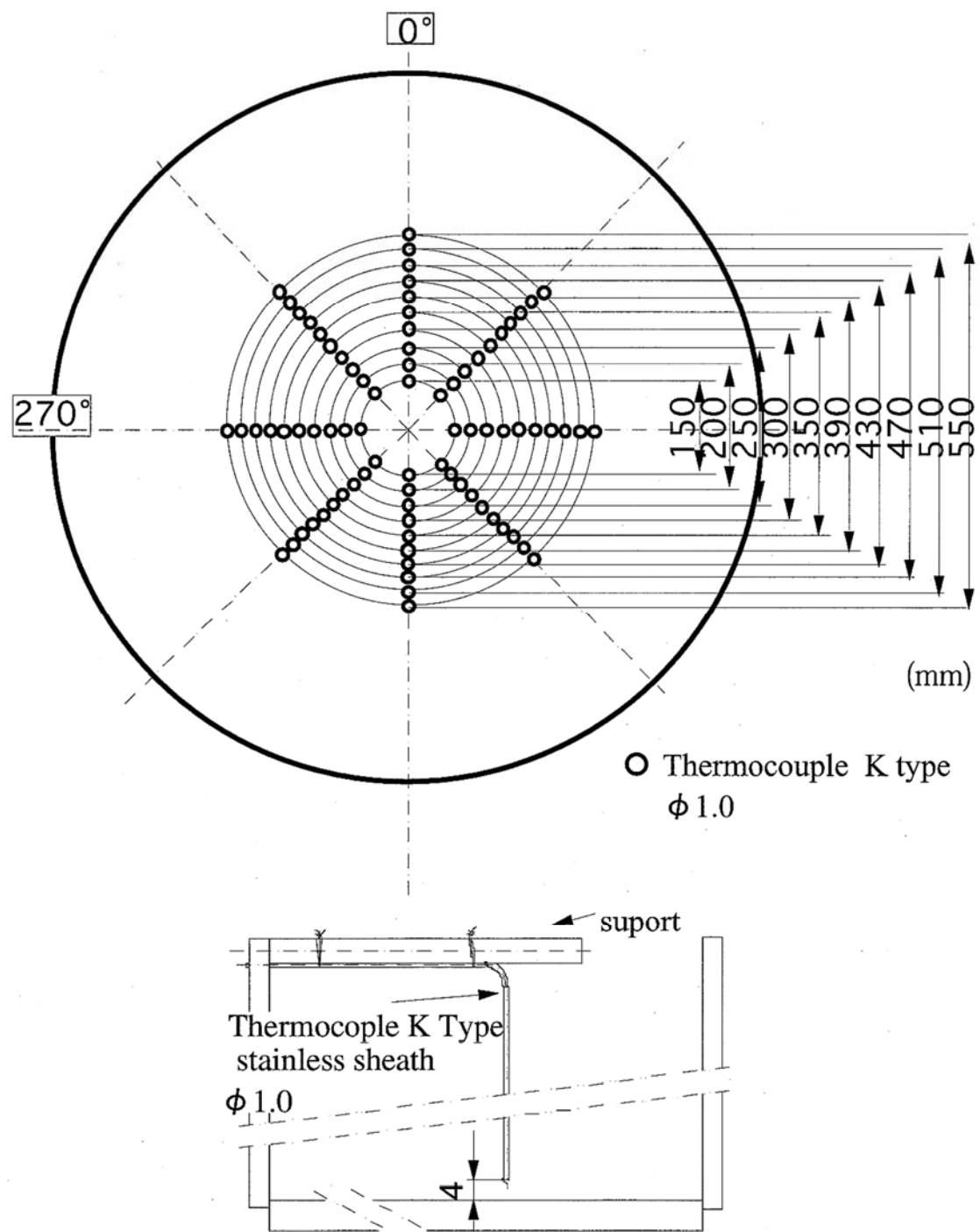


図 3-6 熱電対配置図（プール拡がり計測用）

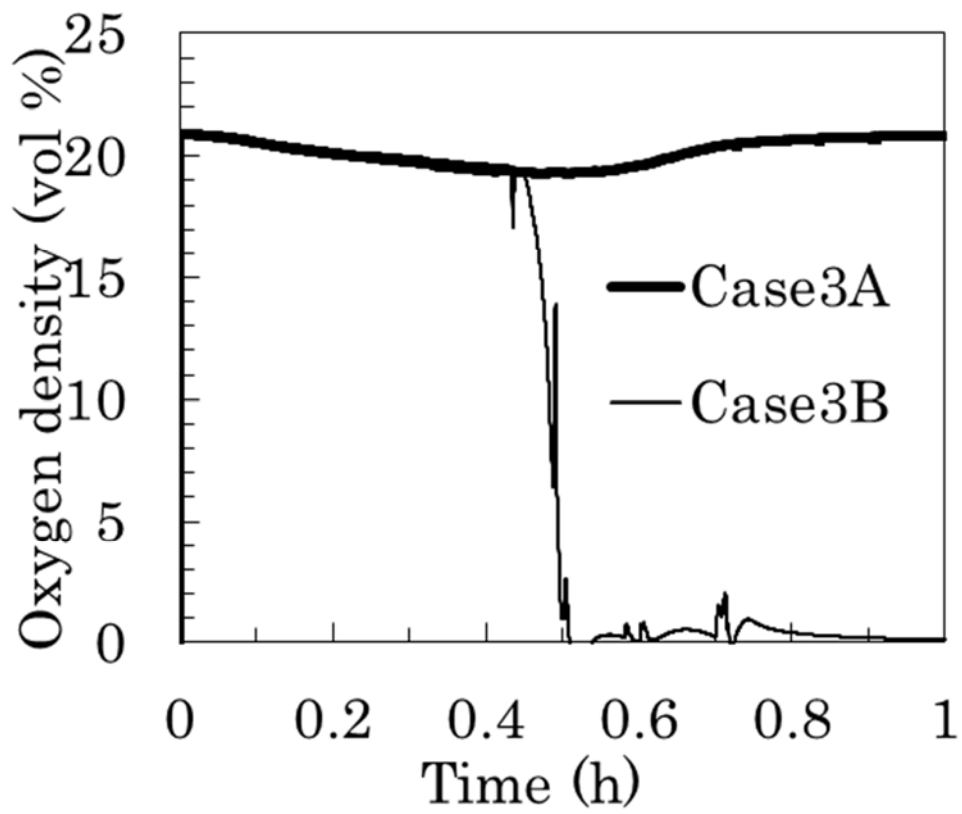


図 3-7 容器中の酸素濃度変化 (Case3A と Case3B の比較)



図 3・8 実験後の模擬床ライナ上の燃焼性生物

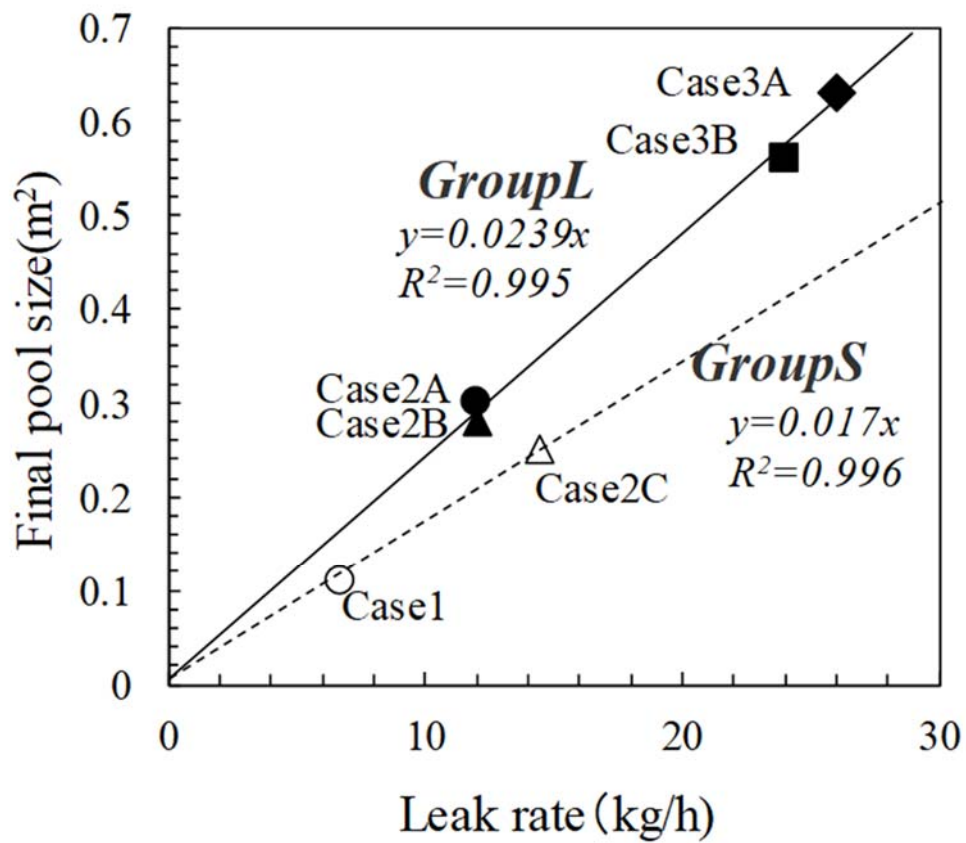


図 3-9 漏えい率と最終プール拡がり面積の関係



図 3-10 燃焼プールのカメラ映像（漏えい終了後）

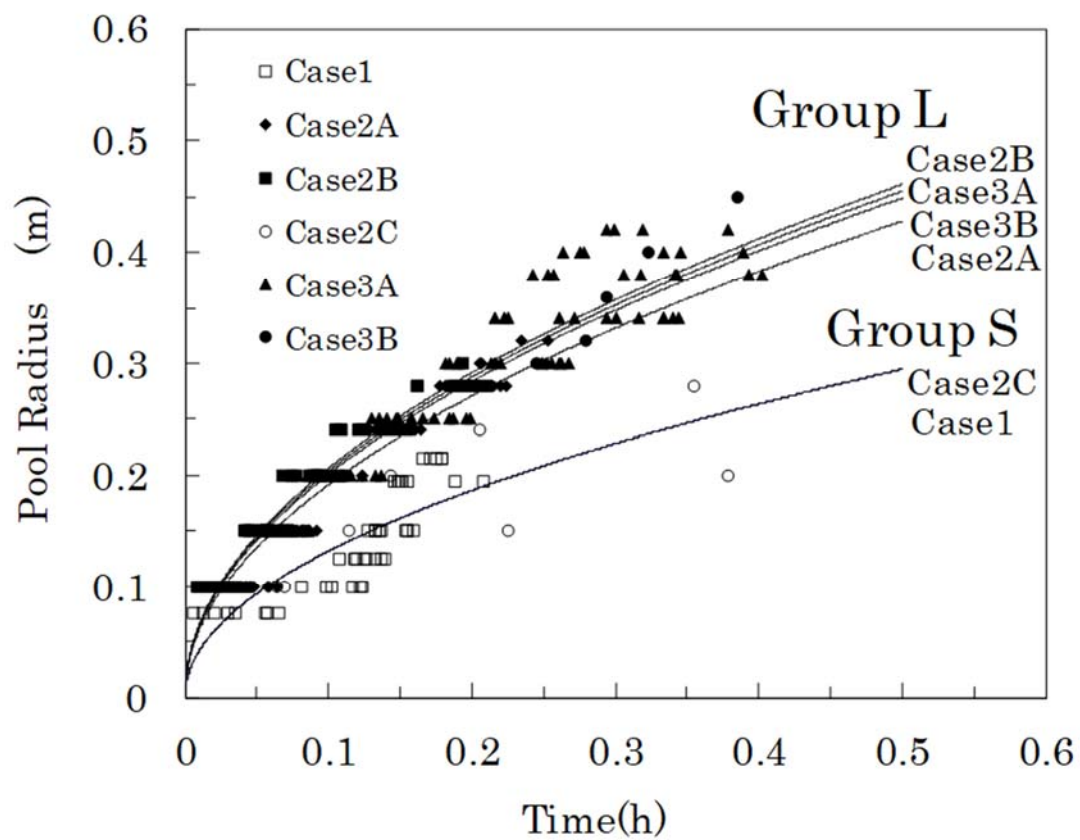


図 3-11 プール半径の時間変化

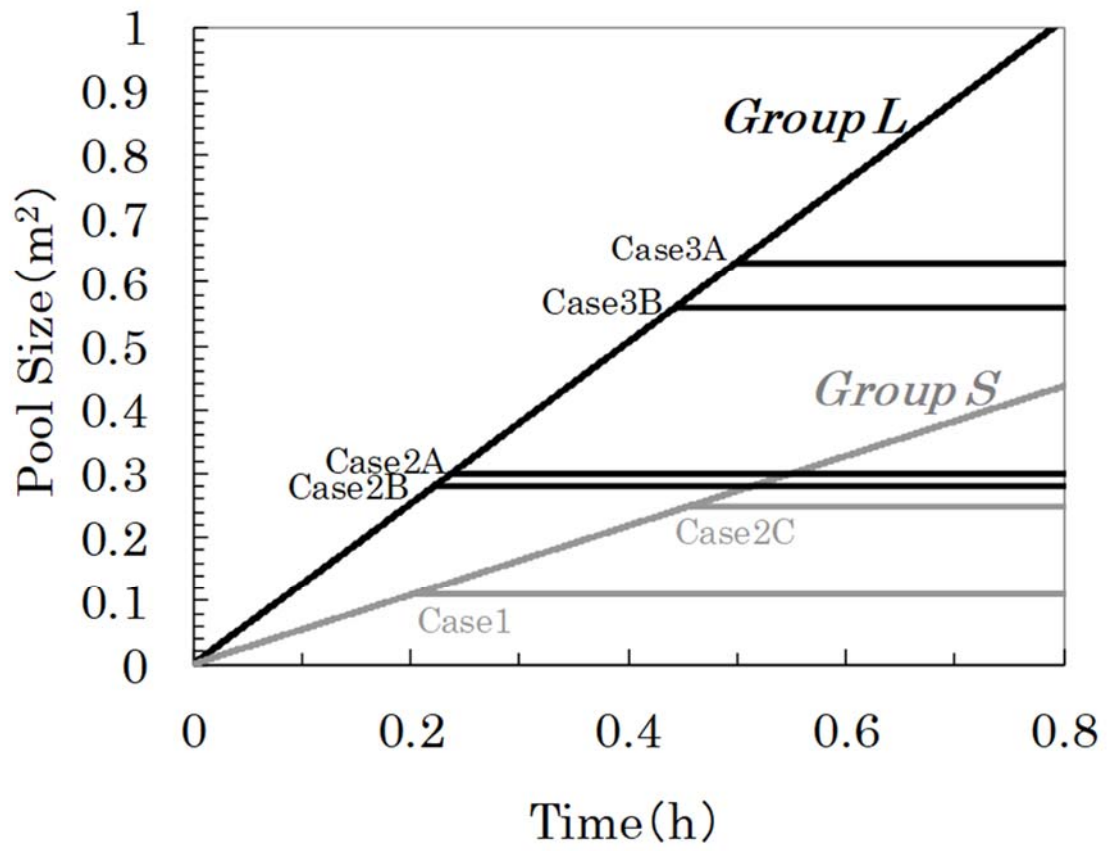


図 3-12 プール面積の時間変化



図 3- 13 プール表面のポーラス状ナトリウム反応生成物



図 3- 14 漏えい初期のカメラ映像 (Case1)

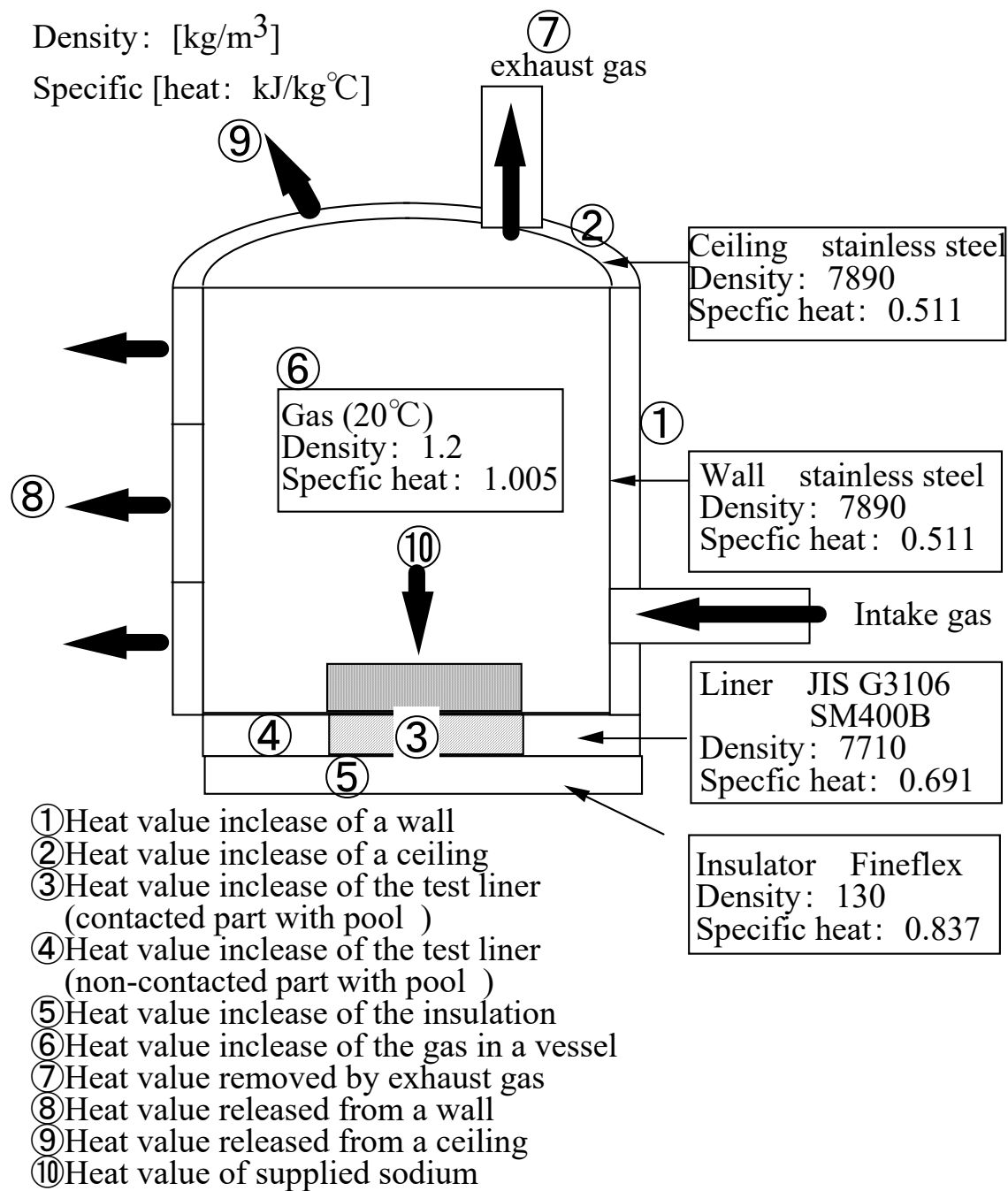


図 3- 15 熱量概算の体系図

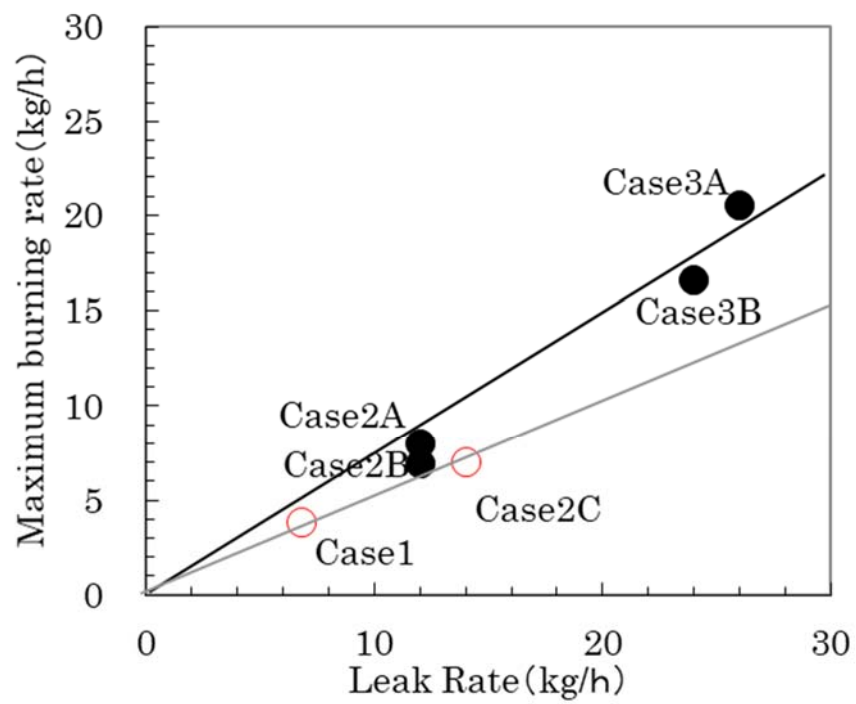


図 3-16 漏えい率と最高燃焼速度との関係

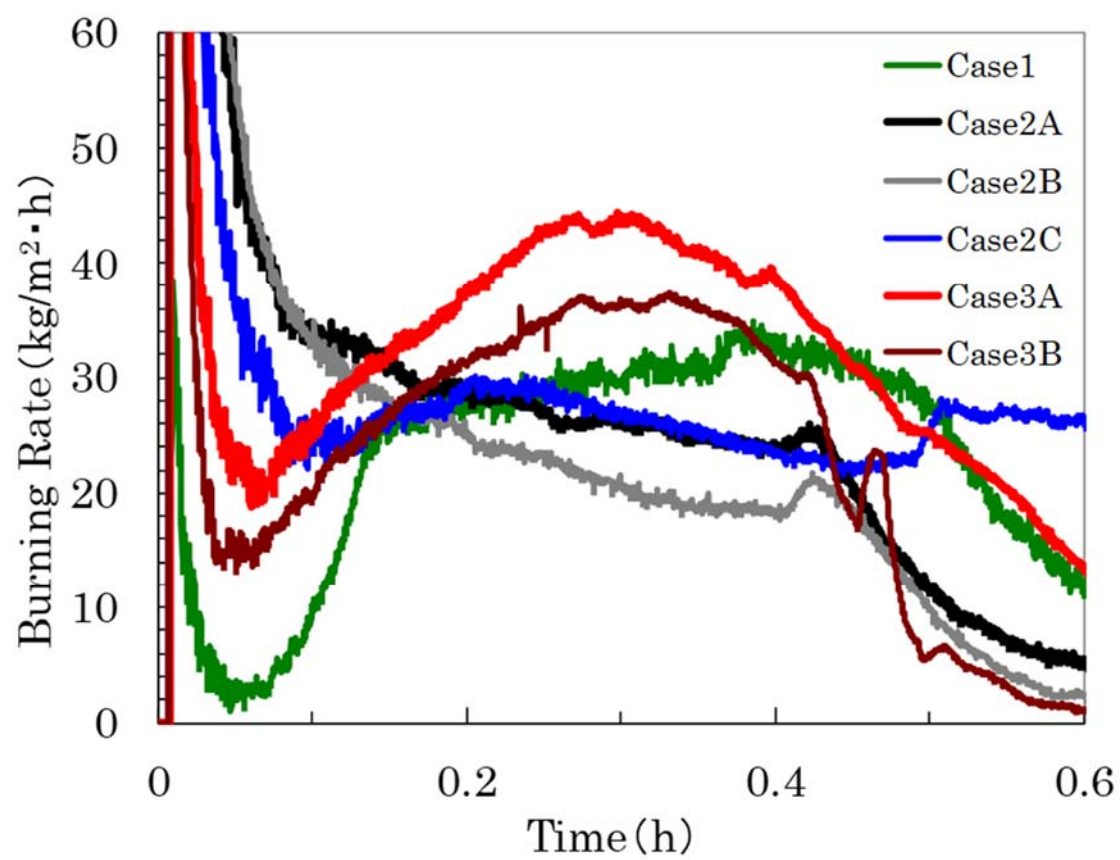


図 3-17 燃焼速度の時間変化

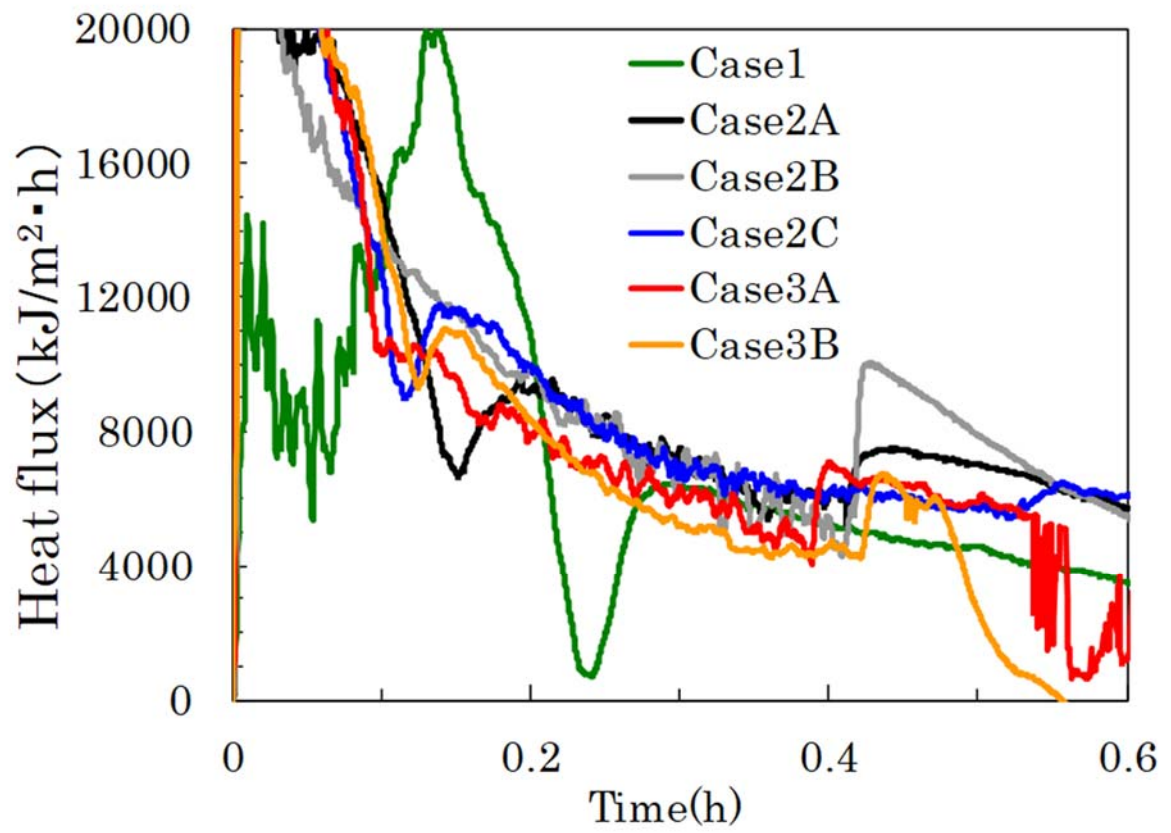


図 3-18 熱流束の時間変化

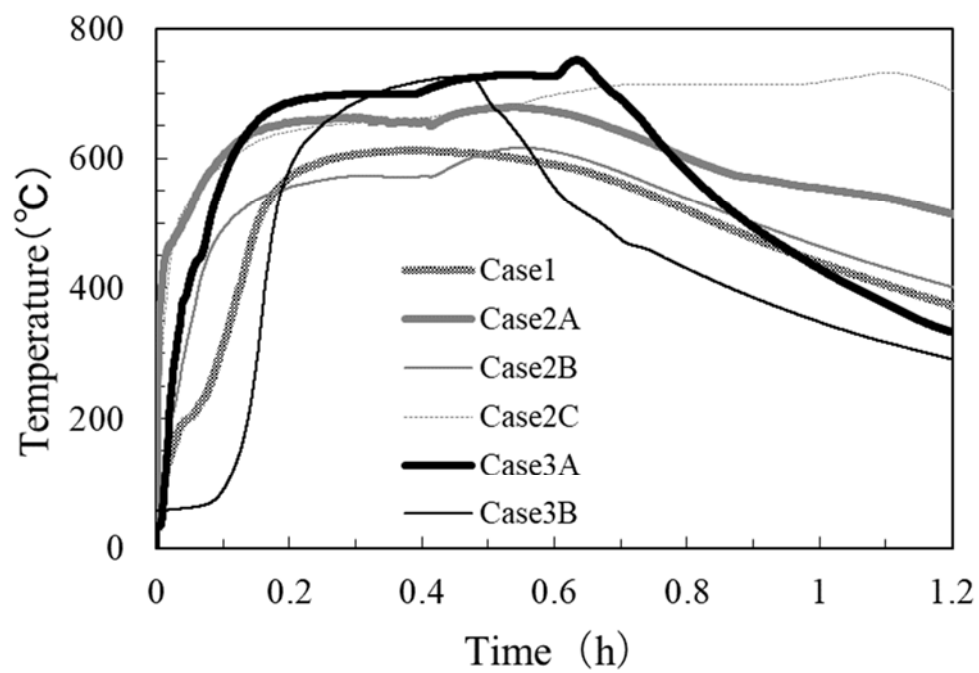


図 3-19 模擬床ライナの最高温度を示した場所における温度の時間変化

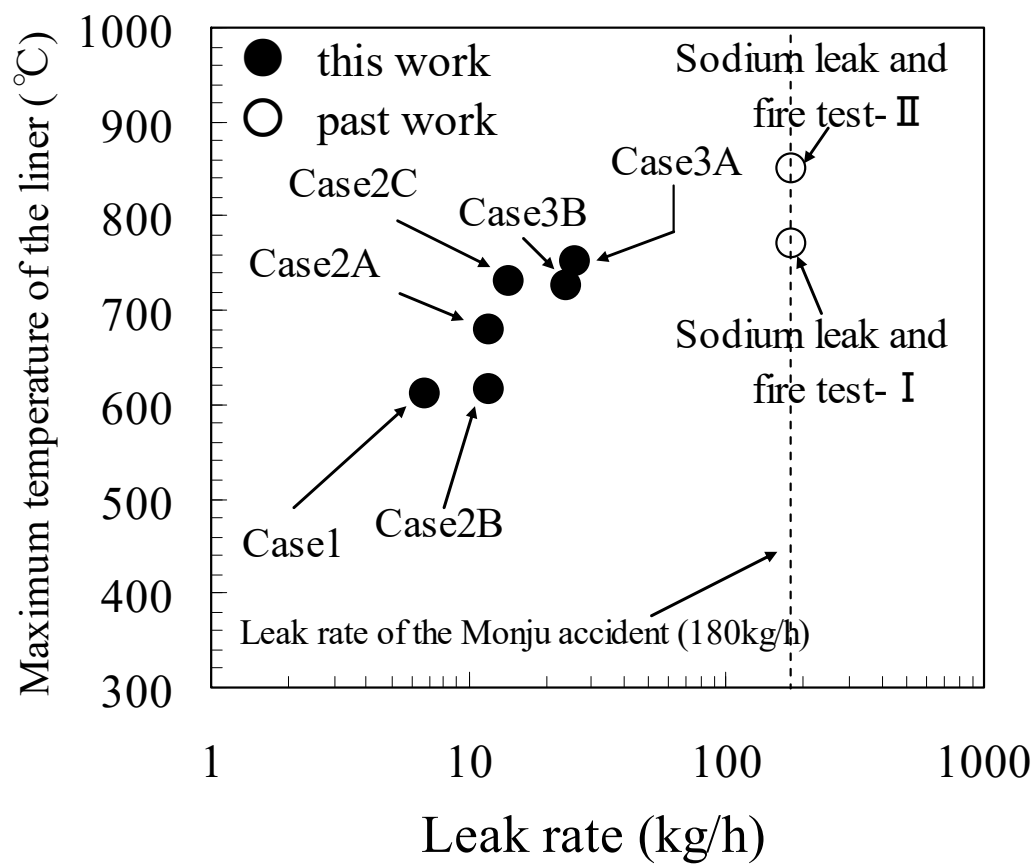


図 3-20 漏えい率と模擬床ライナ裏面の最高温度の関係

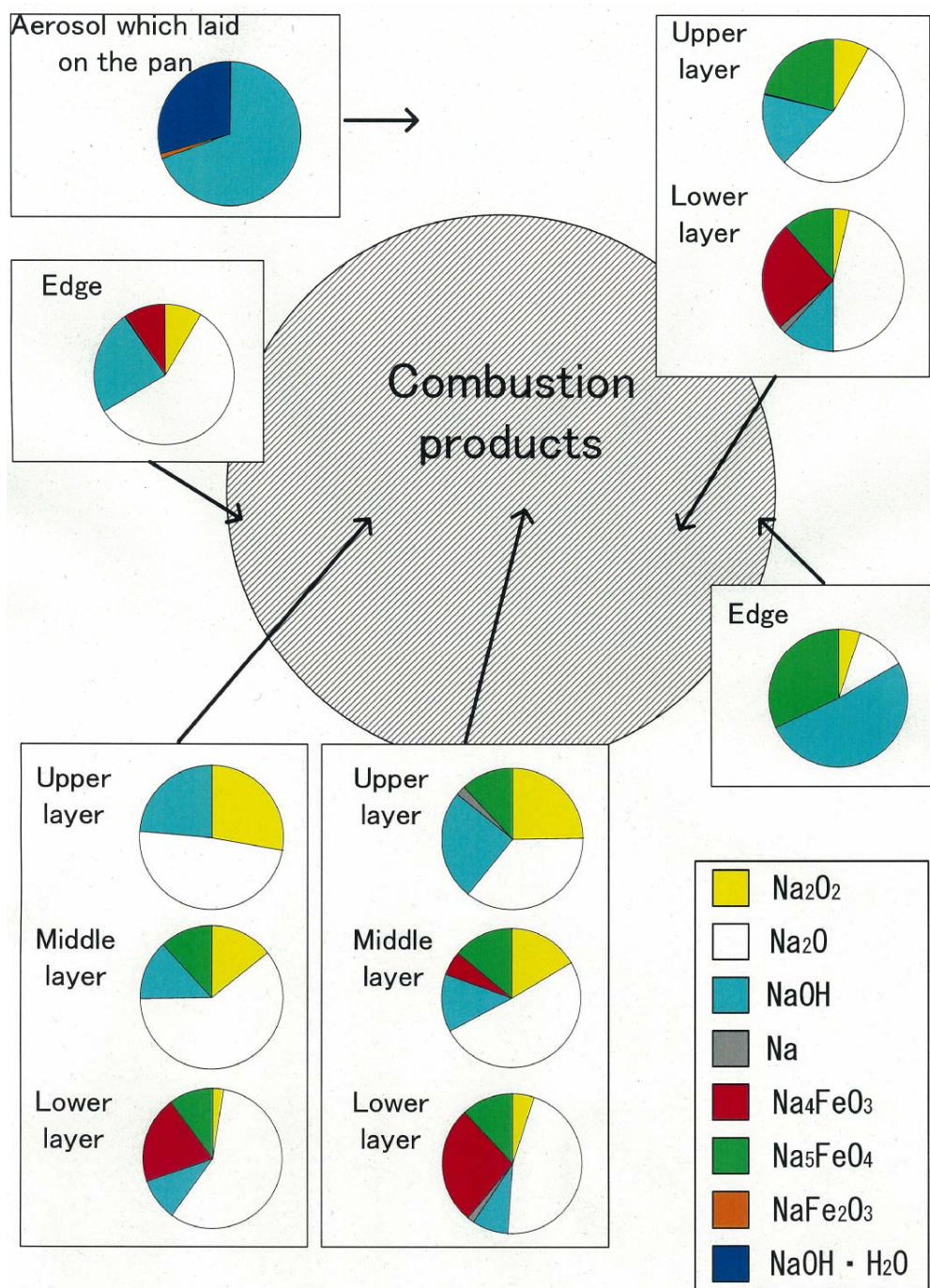


図 3- 21 模擬床ライナ上燃焼生成物の化学組成 (Case2C)

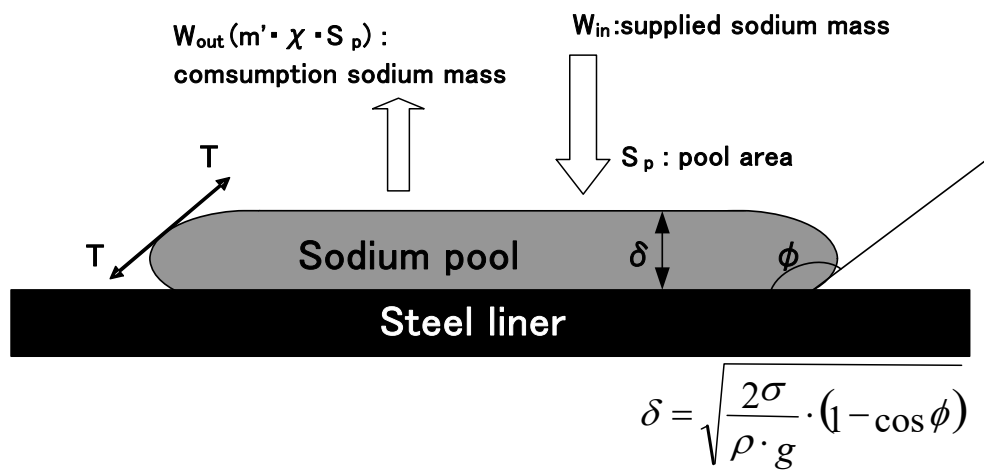
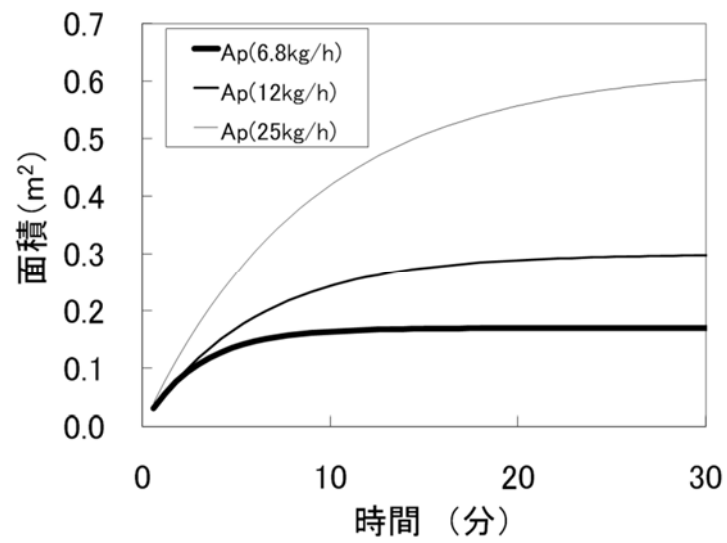
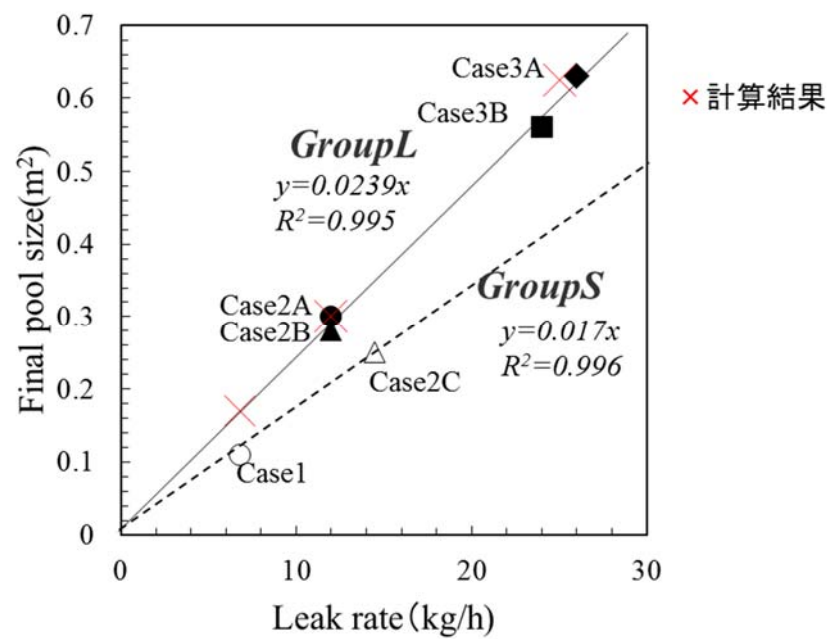


図 3-22 ナトリウムプール拡がりモデル



(A)時間変化



(A)実験結果との比較

図 3-23 ナトリウムプール拡がりモデルによる計算結果

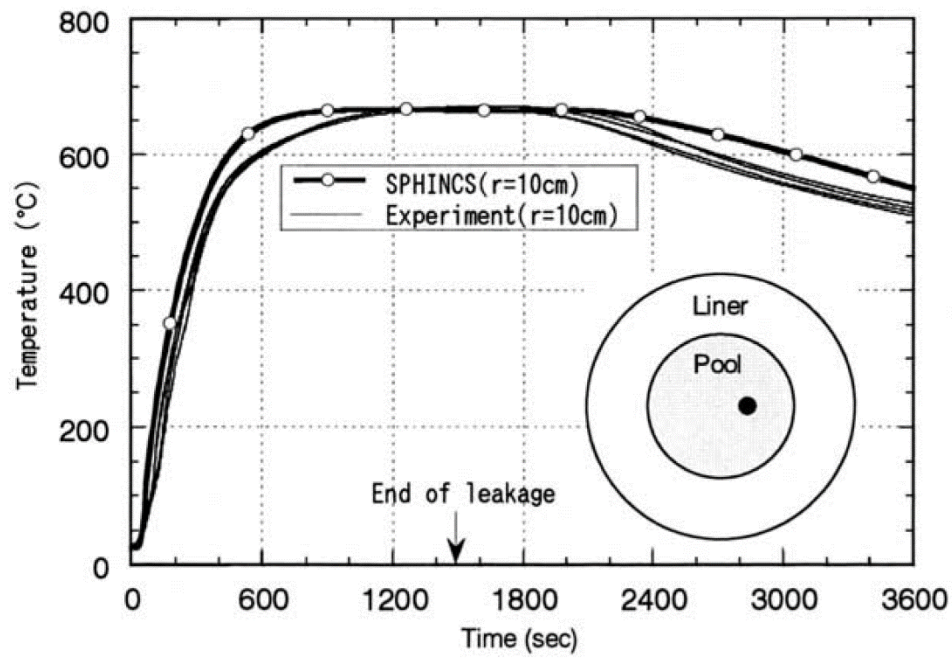


図 3-24 SPHINCS の解析結果⁽¹⁰⁾ (Case2A)

3 章の参考文献

- (1) H.Mikami, A.Shono, H.Hiroi, et al., "Sodium Leak at Monju(I) - Cause and Consequences - ," *Proc. Int. Working Group on Fast Reactors, Technical Committee Meeting on Evaluation of Radioactive Materials Release and Sodium Fires in Fast Reactors*, O-arai, Ibaraki, Japan, Nov. 11-14, 271 (1996)
- (2) T.Funada, Y.Yamagishi, "Sodium Leak at Monju(II) - Sodium leak, burning and aerosol Behavior - ," *Proc. Int. Working Group on Fast Reactors, Technical Committee Meeting on Evaluation of Radioactive Materials Release and Sodium Fires in Fast Reactors*, O-arai, Ibaraki, Japan, Nov. 11-14, 283 (1996)
- (3) H.Seino, S.Miyahara, O.Miyake, et al., "Sodium Fire Tests for Investigating the Sodium Leak in Monju," *Proc. Int. Working Group on Fast Reactors, Technical Committee Meeting on Evaluation of Radioactive Materials Release and Sodium Fires in Fast Reactors*, O-arai, Ibaraki, Japan, Nov. 11-14, 297 (1996)
- (4) 伊藤和元, 山口彰, 和田雄作, 他, "「もんじゅ」ナトリウム漏えい事故に関する技術報告" 日本原子力学会誌, **39** [9], 704 (1997).
- (5) 動燃事業団高速増殖炉もんじゅ建設所, 40%出力運転中における 2 次主冷却系ナトリウム漏洩事故について (第 5 報告書) , 1997
- (6) 西村正弘, 二神敏, 大野修司, 宮原信哉, “小規模ナトリウム漏えい時の燃焼挙

- 動,” 原子力学会論文誌, 6, 2,p.149-160 (2007).
- (7) N.Uchiyama, T.Takai, M.Nishimura, et al., *Investigation of the Sodium Leak in Monju - Sodium Leak and Fire Test -II-*, JNC TN9400 2000-090, Japan Nuclear Cycle Development Institute , (2000).
- (8) W.Chardon, S.Jordan , et al., "Determination of Sodium Fire Aerosol Process Coefficients from FAUNA Experiments," *Proc. of the CSNI Specialists Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety*, NUREG/CR-1724(1980).
- (9) K.Kawata, T.Teraoku, S.Ohno, et al., *Investigation for the Sodium Leak in Monju - Sodium Leak and Fire Test -I-*, JNC TN9400 2000-089, Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC), (2000).
- (10) A.Yamaguchi, Y.Tajima, et al., "Validation study of computer code SPHINCS for sodium fire safety evaluation of fast reactor, " *Nucl Eng Des.*, **219**[1], 19-34(2003)

4. ナトリウム燃焼における反応継続機構 および着火遅れに関する研究

4. ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れに関する研究

4.1 概要

第 4 章では、酸素との反応界面に生成する反応生成物の特性を把握するとともに、液滴の燃焼における着火遅れに対する初期温度、酸素濃度の影響を確認するために実施した実験研究について述べる⁽¹⁾。反応界面の観察を容易とするために、ノズルに懸垂させた単一ナトリウム液滴の下方から空気を供給して反応させる実験体系とした。ナトリウム燃焼中はエアロゾルが視界を遮るため反応界面の観察は困難である。下から空気が供給される単一液滴の反応の場合は、液滴周囲のエアロゾルが上方に導かれるため、本実験体系は反応界面の観察に適している。また、スプレー燃焼時の液滴は、重力落下が運動を支配しており液滴下面からの対向流を受けることから、本試験体系は実現象を模擬している。

下方から供給する気体を窒素から空気へと切り替えると液滴の表面（反応界面）に樹枝状酸化物が出現、成長し、液滴が着火する様子が高速度カメラによって観察された。この樹枝状酸化物の成長挙動の現象把握のためには、反応生成物の生成条件を決定する要因の一つである液滴内部温度データの取得が必要であるが、液滴の外部からの温度計測には実験的な困難を伴う。液滴の外部からシース径の細い熱電対の測温部を液滴内部に差し込み、液滴温度を測定すると

反応フレイムが測温点近くの熱電対シース部にあたることから影響も加わる。

また、熱電対の挿入によって液滴表面が変形し反応界面状態が影響を受けことから反応界面の観察の阻害となる。また、放射温度計での計測では、燃焼中の液滴内部温度を測定することが原理上できない。本研究では、酸素濃度や初期の液滴温度をパラメータとして、燃焼時に酸化物が発生・成長する現象推移や着火現象を高速度カメラによって観察すると同時に、液滴を懸垂させたノズルから貫通させた熱電対によって、反応前の状態から着火、燃焼時の液滴内部温度を計測することに成功した。これらの同時観察の結果から、ナトリウム樹枝状酸化物の発生・成長及び燃焼反応への進展現象をナトリウム温度との関係で把握した。

また、実験から得られた反応開始直後の温度上昇を詳細分析し、スプレー燃焼を評価する従来の解析モデルにおいて保守的に取り扱われている着火前現象について実験結果をもとにモデル化した解析を実施して従前の結果との比較検討を実施することによって初期の表面酸化現象についての現象理解を深めた。

4.2 実験条件

実験装置は、燃焼容器、グローブボックス、燃焼現象を撮影するための装置、ガス供給システムから構成されている。実験装置の概略図を図 4-1 に示す。

燃焼容器は、内径 101.6 mm で高さ 130 mm のステンレス容器製である。ナトリウム液滴をつくるためのノズルつき坩堝、ナトリウムを予熱するヒータ、坩堝内の液体ナトリウムを外に押し出すピストンが、上のフランジで支えられている。ピストンを動かすモーターは、上部フランジの上に設置されている。ガスを供給するための管と、試料回収装置がノズルの直下にセットされている。観察窓は、ナトリウム液滴を観察するためにノズルと同じ高さにセットされている。坩堝とピストンの両方ともステンレス製である。ノズルの外径は、2 mm で内径は 0.6 mm である。ピストンの外径は 6 mm である。液滴の内部温度を測定するためにシース外径が 0.25 mm のクロメルアルメル熱電対をピストンにあけた 0.3 mm ほどの穴を通してノズル先端まで挿入して設置している。

燃焼容器は、酸素濃度と湿分濃度を 1 ppm 以下にコントロールしたグローブボックス内に設置され、高速度カメラとガスシステムがグローブボックスの脇にセットされている。試験ガスは、予め調整された 20 %酸素ガスと窒素ガスを混合調整して供給する。バイパスラインは、実験ガスの酸素濃度を供給する前に流量、濃度を安定させるために使用する。

ナトリウムを坩堝の中にセットしてヒータによって、設定した温度まで予熱する。ナトリウム液滴は、ゆっくりとピストンを押してノズルの先端で作られる。液滴の水平直径は、約 5 mm である。その後、熱電対の先端がナトリウム

液滴の中心となるように調整した後、液滴の内部温度が目的とする内部温度となるようにヒータ出力を調整して温度平衡を保つ。ナトリウム液滴温度が落ち着いたら、試験ガスの酸素濃度と流量（2 L/min）をバイパスラインで調整する一方で、エアロゾルの観察窓への沈着を防ぐために、カーテンガスを燃焼容器壁に沿わせるように 15 L/min の流量でグローブボックスから供給する。バイパスラインから燃焼容器への供給ラインにバルブを切り替え実験を開始する（T=0）と試験ガスが燃焼容器に供給される。同時に映像を高速度カメラで撮影した。

実験条件は、表 4-1 に示している。ナトリウム液滴の初期温度は高速炉の冷却材としての使用環境を考慮して、温度 200 °C から 500 °C まで変化させ、酸素濃度を 4 % から 20 % まで変化させた。供給ガスの温度については、ナトリウム液滴の初期温度と同一の温度である。

4.3 ナトリウム燃焼における樹枝状酸化反応生成物の生成と成長

400 °C に予熱された液体ナトリウムに窒素ベース 20 % 酸素を供給して、液滴での酸化挙動を高速度カメラで記録した。ナトリウム初期温度 400 °C における事象推移を図 4-2 に示す。

酸素混合ガスが供給されると、液滴表面が金属光沢から白色に変化する（約 1 秒）。徐々に樹枝状酸化物が液滴の下側に現れる。液滴周辺の気相部では反応

生成物のエアロゾルが生成している。

反応の開始していない 0.0 秒の写真において液滴の左側にエアロゾルのような白い線が認められるが、これは観察窓を固定しているフランジの反射がカメラに映りこんでいるものである。0.0 秒と 1.0 秒の写真で全く同じ場所に映っていることから、エアロゾルとは考えられない。

2.0 秒の写真で液滴の右上部に気相における反応生成物（エアロゾル）の生成を確認することができる。引用文献⁽¹⁾では、液相のまわりの気相においてエアロゾルの生成が確認されたことをもって着火したと定義し、その時間や着火温度が整理されている。一般的に、着火は局所を起点としておこる事象であるので高速度カメラの画像から正確な時間確認が困難である。また、気相におけるエアロゾルの存在は、気相反応の開始の傍証となりうるものの、初期温度が低温の場合は、気相での反応が開始した後も、オレンジ色の炎に包まれる状態にまで至らないケースも観察される。液滴表面の樹枝状酸化物は、オレンジ色の炎で包まれて液滴の中に沈み込み、表面は再び平滑になる。（3.0 秒）これらの事象推移に対応した液滴の内部温度の時間変化は図 4-3 に示される。これらの事象推移の間、液滴の温度は単調に上昇する。

ナトリウムは、温度が高いほど、酸素の溶存量が多くなる⁽²⁾ことから、樹枝状の酸化物は、内部温度の上昇のために液滴に溶け込んだものと考えられる。

図 4-3 は 3.0～5.0 秒以降、内部温度はほぼ一定であることを示している。このことは、燃焼による熱の生成と放熱が 3.0 秒から 2 秒間はバランスして、平衡状態にあることを示している。しばらくの間、平衡反応が続くと液滴のなめらかな表面が、粗くなる様子が観察される（5.0 秒）。この現象は、溶媒としてのナトリウムの量が酸化反応による消費によって減少し、溶質である反応生成物が液滴の表面に析出してきていることを示している。

ここで、反応を停止させるために酸素濃度 20 %ガスの供給を 5.0～10.0 秒まで止めた後に、10 秒から酸素濃度 20 %ガスをあらためて供給し再着火現象を確認するための実験を行った。酸素濃度 20%ガスの供給開始から 5.0 秒後にバイパスラインへバルブ切り替えを実施し、窒素ガス 100 %を供給したものの燃焼容器の容積と切り替えバルブから下流の配管内の雰囲気中に酸素が残留するためしばらくは反応が継続した。酸素を含んだ雰囲気が窒素ガスに完全に置き換わると反応が停止して液滴の温度が低下した。すると、表面上の反応生成物は時間とともに（8.0～10.0 秒）ナトリウム温度の低下に伴って成長して行く様子が観察された。酸素は液滴の外側からは供給されていないので、樹枝状酸化物の成長はナトリウムの中の溶解した酸素および反応生成物の化学種変化に由来するものと考えられる。

20 %の酸素が 10.0 秒で再び供給されると、11.0 秒で樹枝状酸化物の先端でナ

トリウムの金属光沢が見られ（図 4-4）、12.0 秒で樹枝状酸化物の先端から再度着火した。着火後、液滴は再度オレンジ色のフレイムによって包まれた。11.0 秒に樹枝状酸化物の先端に観察されたナトリウムの金属光沢は、この樹枝状酸化物を介して反応界面の方向にナトリウムが移行する機構が存在することを示唆している。これは、3 章における反応生成物の形状観察の様子からも観察されたポーラスな性状と関係があると考えられる。反応は未反応ナトリウムと酸素が出会うことによって起こることから、酸化物で覆われたナトリウム液滴から反応界面への未反応ナトリウムの移行機構の理解が重要である。

そこで、樹枝状酸化物の形成挙動の機構を確認するためにステンレスメッシュプレート上のナトリウムプールの酸化挙動を水平方向から観察する実験を行った。図 4-5 に初期ナトリウム温度 300 °C、酸素濃度 20 %雰囲気での挙動を示す。雰囲気温度は、初期ナトリウム温度と同一温度条件である。図中矢印によって示すようにナトリウムの金属光沢が樹枝状酸化物の先端で観察された。それらは、樹枝状酸化物そのものにナトリウムを先端まで移行させる機構を有していることを示している。この機構について考察を進めると、ナトリウムを先端まで移行させる条件としては、酸化物の内部ナトリウムを吸い上げる機構および押し出す機構があること、また、酸素とナトリウムが反応する界面においては、固体のナトリウム酸化物によって反応が阻害されることがないことが要

求され、ナトリウムの燃焼の場合は、生成する酸化物の化学種が反応場の環境要因によって変化することが反応を継続させる機構の一因として考えられる。内部のナトリウムを上部に吸い上げる機構のひとつとして毛細管力が考えられる。毛細管力によって持ち上げられる高さは、以下の式によっている。

$$h = \frac{2 \cdot \sigma}{[(\gamma_1 - \gamma_2) \cdot r]} \quad (4-1)$$

ここで、h:毛細管の上昇高さ、 σ :表面張力、r:メカニカス曲率半径、 γ_1 :メカニカス下部液体比重、 γ_2 :メカニカス上部液体比重を示している。

また、内部のナトリウムを上部に押し出す機構のひとつとしてナトリウムが温度上昇することによって密度が変化し、膨張する力が考えられる。反応生成物の内部で存在しうる体積が限定されている場合、圧損の小さい上部に向かってナトリウムが押し出される。ナトリウム密度については ANL のレポート⁽³⁾によると以下の式で表される。

$$\rho = \rho_c + f \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) + g \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^h \quad \left[\frac{kg}{m^3}\right] \quad (4-2)$$

$$\rho_c = 219, f = 275.32, g = 511.58, h = 0.5, T [K]$$

この式をもとに 200 °C, 500 °C, 850 °C の密度を計算するとそれぞれ 933.1 kg/m³, 864.7 kg/m³, 773.3 kg/m³ となる。従って 200 °C から 500 °C の温度変化による体積膨張は約 8 % で、500 °C から 850 °C では約 12 % と計算される。

生成する酸化物の化学種の反応場の環境要因については、化学量論的な観点から十分な酸素がある場合には、平衡論的には図 4-6 に示すように過酸化ナトリウムが生成する。過酸化ナトリウムは約 675 °C と融点が高い。ナトリウム温度は反応部において高くなるので過酸化物は溶け込み、酸素濃度の高い方向に向かってナトリウムの移行経路が確保されると思われる。一酸化物が形成された場合は 1275 °C と高い融点を持つためにナトリウムの移行が阻害されることが考えられる。

4.4 樹枝状酸化反応生成物の成長の影響要因（酸素濃度、温度依存）

ナトリウム液滴燃焼実験において 2 つの種類の酸化反応が観察された。1 つは、着火する前、すなわち液滴上の表面酸化反応である。もう 1 つは着火後、すなわち液滴の周辺の気相での反応である。気相での反応挙動については、さらに 2 つのケースに分けられる。酸素の供給量が化学量論的に十分な場合と十分な場合である。図 4-7(a) は、初期温度 300 °C で酸素濃度を 4 ~ 20 % に変化さ

せた時の液滴温度の時間変化を示している。

図 4-7(b)では、供給する酸素濃度と平衡温度までの液滴の温度上昇率の関係を
示している。液滴の温度上昇率は液滴の熱容量と液滴への入熱量で決定される。
熱容量については、温度依存があるものの初期温度が一定であることから過渡
現象における温度上昇率の違いの影響を考慮しても各条件で一定と考えて問題
ない。また、気相反応に移行する前の表面酸化反応による反応熱は、固液相側へ
の熱伝導が支配的であると考えられる。したがって、平衡温度に達するまでの温
度上昇率は概ね単位時間の反応量と比例関係にあると考えられる。酸素濃度
16%以下では単位時間の反応量が概ね酸素濃度に比例して増加している。従って
本実験体系において酸素濃度 16 %以下では化学量論的に酸素供給が不足してい
ると考えられる。

一方、酸素濃度が 20 %条件においては単位時間の反応量が 16 %条件とほぼ同
じであることから本実験体系において酸素濃度 16 %以上の条件では化学量論的
反応に必要な酸素が供給されていると考えられる。

高速度カメラによる 4 %条件から 20 %条件までの事象推移観察の結果を図 4-
8 に示す。図中には、初期の表面酸化の時間と温度、画像から気相中に白煙を初
めて確認した時間と温度、オレンジ色の発光を観察できたケースについてはそ
の時間と温度、液滴温度の初期温度と燃焼が継続して平衡状態となった時の温

度差の 95 %まで到達した時の時間とその時の温度を画像とともに記載している。

酸素供給が十分な 16 %条件と 20 %条件の場合、反応過程はほぼ同一の事象推移である。気相反応の第 1 段階でみられた樹枝状酸化物は、ナトリウム温度が上がるにつれて、液滴内に溶け込む。平衡反応状態では、はっきりとした燃焼生成物の突起は液滴の表面上に観察されない。

酸素供給が十分な条件下では、液滴表面上の酸化物の樹枝状酸化物の形成の観察が難しくなる。液滴の内部温度は非常に高く酸化物はすぐにナトリウム液滴の中に沈んでしまうので、表面上で観察される酸化物のサイズが微細となるためと考えられる。

ケース 4 %から 12 %条件までは気相反応中の酸素の供給は不十分で、酸化物が液滴上に成長する。液滴温度は酸素濃度が低下するにつれて低くなり、酸化物の突起は、平衡反応中、液滴の表面上に残り液滴内に沈むことはない。4 %条件と 8 %条件においては平衡反応での液滴温度が低すぎるために、明確なオレンジの炎を観察することができなかった。

一方で、 $t = 0$ から 0.5 秒といった初期の反応フェーズでの表面酸化反応の観測点で酸素濃度の影響を確認した結果、写真画像の観察結果、初期 0.5 秒間の温度上昇率の双方からも明確な違いはみられなかった。

図 4-9 に反応挙動への初期温度の影響を示す。この図においても図 4-8 と同様

に、着火を含む各反応ステージにおける時間、温度を記載している。反応挙動は初期温度が 200 °C以下と 300 °C以上の二つのグループに分けられる。平衡反応で、液滴表面上の樹枝状酸化物は初期温度が 200 °C条件のみに観察された。酸素の供給が十分で、（酸素濃度 20 %）かつ、初期のナトリウム温度が 300 °C以上であれば、気相反応の最初のステージで形成された樹枝状酸化物は、平衡反応中に消失した。

図 4-10(a)に、十分な酸素供給条件下の液滴内部温度変化の初期温度依存性を示す。定性的傾向として初期温度依存性は確認されずほぼ同様であり、温度平衡状態における各液滴温度の違いについても初期温度の違いに比べて小さい。一方、酸素供給が不十分な場合の内部温度の時間変化を図 4-10(b)に示す。このような条件下では、液滴の温度は初期条件の違いを保って上昇している。

以上のように液滴の着火時の温度データについて、影響要因をパラメトリックに振った実験を実施して定性的な影響を整理した。このようなパラメータの影響が整理されたデータはこれまでになく、液滴燃焼の温度と反応界面観察の同時観察の結果は、解析コードの検証データとしても有効に活用できるものである。4.5 節において、本研究成果から得られた知見のナトリウム液滴燃焼の解析コードへの反映について検討する。

4.5 ナトリウム液滴着火モデル

アメリカ合衆国の BNL (Brookhaven National Laboratory) において開発された NACOM コード⁽⁴⁾では、着火前挙動がモデル化されている。着火前の挙動においては、表面酸化の過程で液滴表面上に酸化物の膜が形成されている、酸化の過程で熱が発生し、液滴表面にフィードバックして、液滴の表面からガス雰囲気への移行がしやすくなる。この結果、液滴温度が急速に上昇して液滴の着火温度まで到達すると着火が起こる。ここでは、この着火前挙動がモデル化されている NACOM のモデルを使用して本実験の結果の考察を行う。

液滴の燃焼モデルでは、落下の際に下から上向きの強制対抗流を生じ落下速度によって空気の供給流量が決定する。

本実験では、下から空気を吹き付けていることから、その流速は実現象と異なり一定である。実験における空気の流速つまり実現象における液滴の落下速度は、液滴の下方にセットされた供給ノズル（内径：11 mm）の先端から 2 L/min で供給されていることから約 0.35 m/s と計算される。

一方で、実際の液滴の速度は重力によって加速されていくものの、抗力も時間とともに大きくなることから、ある距離を落下すると一定速度となる。

液滴を剛体球として仮定した場合の空気中での自由落下に伴う運動方程式は一般に以下の式で表すことができる。

$$m \cdot \frac{dV}{dt} = m \cdot g - m' \cdot g - R \quad \cdot \cdot \cdot (4-3)$$

ただし、 m は液滴の質量 (g)、 V は落下速度 (cm/s)、 t は時間 (sec)、 g は重力加速度 (=980 cm/s²)、 m' は液滴の体積が占める空気の質量 (g) である。

右辺第一項の $m \cdot g$ は引力、第二項の $m' \cdot g$ は浮力、第三項の R は抵抗力である。式 4-2 の抵抗力: R に抵抗係数 (C_d) を導入し、すべての項を厳密に表すと以下の式となる。

$$\frac{4}{3}\pi r^3 \rho_d \cdot \frac{dV}{dt} = \frac{4}{3}\pi r^3 \rho_d \cdot g - \frac{4}{3}\pi r^3 \rho_g \cdot g - C_d \cdot \frac{\pi r^2}{2} \cdot \rho_d \rho_g V^2 \quad \cdot \cdot \cdot (4-4)$$

ただし、 r は液滴の半径 (cm)、 ρ_d は液滴の密度 (g/cm³)、 ρ_g は空気の密度 (g/cm³) である。 C_d は抵抗係数であり、 Re 依存がある⁽⁴⁾。 $Re < 0.1$ の時、 $24/Re$ 、 $0.1 \leq Re < 6$ の時、 $2.6 + 23.71/Re$ 、 $6 \leq Re < 500$ の時、 $18.5/Re^{0.6}$ 、 $Re \geq 500$ の時、 $4/9$ である。 Re は $\rho_g VD/\mu$ であり、 D は液滴の直径 (cm)、 μ は空気の粘性係数 (g/cm・s) である。

空気の密度は液滴の密度に比べて十分に小さい ($\rho_g \ll \rho_d$) ため、式 (4-4) の右辺第二項の浮力の効果については無視して整理すると、

$$\frac{dv}{dt} = g - 3\rho_g \cdot V^2 \cdot \frac{C_d}{(4\rho_d \cdot D)} \quad \cdot \cdot \cdot (4-5)$$

と表される。

球の直径が 5 mm 程度であった場合、初速 0 m/s で 20 m 落下すると終端速度が約 7.6 m/s になると計算される。したがって、本試験条件の流速は落下開始直後に対応する。

液滴が着火するまでの表面酸化現象は、前述したように落下する Tsai により液滴表面への酸素の供給を律速とするモデル化^(4,5) がされている。

強制対流下での球まわりの物質移動は、Ranz-Marshall によって提唱されている球のまわりの強制対流熱伝達式⁽³⁾のアナロジーを用いて、以下の式で表される。

$$Sh = 2 + 0.6Re^{1/2} Sc^{1/3} = h_D D / D_c \quad \cdot \cdot \cdot (4-6)$$

ただし、Sh:シャーウッド数

$$Sc: シュミット数 \quad \left(= \frac{\mu}{\rho_g D_c} \right)$$

h_D : 物質移動係数 (cm/s)

D_c : 拡散係数 (cm²/s)

したがって、供給される酸素によって酸化される液滴の酸化速度: Δm は、質量保存則から以下の式で表される。

$$\Delta m = \frac{C_0 Y_{0,\infty}}{i} \cdot \pi D^2 \cdot Sh \frac{D_c}{D}$$

$$= \frac{\pi \cdot C_0 Y_{0,\infty} D_c D}{i} \left(2 + 0.6 Re^{1/2} \cdot Sc^{1/3} \right) \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-7)$$

さらに、着火後の液滴燃焼モデル⁽³⁾については、発火直後の非定常部分を除くと液滴の直径の 2 乗は時間とともに直線的に減少するという実験結果に基づいた、以下に示す D^2 則が一般に用いられる。

$$D_0^2 - D^2 = K(t - t_0) \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-8)$$

または、

$$-d(D^2)/dt = K \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-9)$$

ただし、 D_0 : $t = t_0$ の液滴直径 D (cm)

K : 蒸発係数 (cm²/s)

燃焼中の液滴を含む反応帯の形状が球対称で、燃焼が準定常状態で継続すると仮定すると、液滴の単位時間当たりの質量減少量（燃焼速度）： Δm (g/sec) は定常状態の保存則によって決定され、その Δm に関する質量保存則は以下の式で表される。

$$\Delta m = -d/dt \left(\pi D^3 \rho_d / 6 \right) = -d/dt \left(4\pi r^3 \rho_d / 3 \right) = -4\pi r^2 \rho_d \cdot dr/dt \cdot \cdot \cdot \quad (4-10)$$

式 (4-10) より、

$$d(D^2)/dt = -4\Delta m / \pi \rho_d D = -2\Delta m / \pi \rho_d r \cdot \cdot \cdot \quad (4-11)$$

と表せば式 (4-11) と式 (4-9) より、

$$4\Delta m / (\pi \rho_d D) = 2\Delta m / (\pi \rho_d r) = K \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-12)$$

であるから、 Δm はKを用いて以下の式で表せる。

$$\Delta m = \frac{\pi \rho_d K D}{4} = \frac{\pi \rho_d K r}{2} \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-13)$$

液滴周囲の気相に対流が生じていない場合の蒸発係数： K_0 については、Spalding によって以下の式が提唱されている。

$$K_0 = \left(\frac{8}{\rho_d}\right) \cdot \left(\frac{\lambda}{c_p}\right) \cdot \ln(1 + B) \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-14)$$

ただし、 λ ：液滴周囲の混合ガスの熱伝導率 $(cal/cm \cdot s \cdot K)$

c_p ：液滴周囲の混合ガスの比熱 $(cal/g \cdot K)$

B ：伝達係数 $(-)$

伝達係数 B は、 D^2 則で用いた仮定と実際の現象との相違が燃焼速度に与える影響を修正するために導入された補正係数である。その物理的意味は、境界面における伝達を駆動する力とそれを妨げる力の比を表し、以下の式で示される。

$$B = (1/L) \cdot \left[c_p(T_\infty - T_b) + q_0 Y_{0,\infty} / (W_0 v_0) \right] \cdot \cdot \cdot \quad (4-15)$$

ただし、 L ：液滴の蒸発潜熱 (cal/g)

T_∞ ：液滴表面から十分離れた位置のガス温度($^{\circ}C$)

T_b ：液滴表面のガス温度($^{\circ}C$)

q_0 : 液滴の燃焼熱 cal/g

$Y_{0,\infty}$: 液滴表面から十分離れた位置のガス中酸素モル分率(—)

W_0 : 酸素の分子量 (g/mol)

ν_0 : 単位質量当たりの液滴と反応する酸素のモル数 (mol/g)

式 (4-15) 右辺の ($1/L$) は、蒸発する液滴の単位質量当たりの蒸発熱で、伝達を妨げる抵抗力を、[] 内の第一項及び第二項は周囲の気体と液滴表面の気体間のエンタルピ差及び消費される酸化剤単位質量当たりの発熱量で、伝達の駆動力をそれぞれ表している。蒸発係数 K_0 は、球対称の燃焼、即ち液滴周囲に気相に対流場が存在しない場合に適用可能であるが、強制対流場が存在する場合には球対称が損なわれるために、さらに補正が必要となる。これについては、**Froessling** が燃焼を伴わない蒸発する液滴の研究において、以下の関係を見出している。

$$K/K_0 = 1 + 0.276 Re^{1/2} Sc^{1/3} \cdots \quad (4-16)$$

ただし、 K : 液滴周囲の気相に強制対流場が存在する場合の蒸発係数 (—)

これに対して、液滴燃焼では物質移動より熱伝達の方が重要であるとの考え

に基づき、Agoston 等は式 (4-16) のシュミット数 : Sc をプラントル数で置き換えたほうが合理的として、強制対流下での液滴燃焼に対して、

$$K = K_0 \left(1 + 0.276 Re^{1/2} Pr^{1/3} \right) \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-17)$$

ただし、 Pr : プラントル数 $\left(= C_p \mu / \lambda \right)$

の式を提唱している。

今回の実験結果を検討する解析では、式 (4-17) を用いる。はじめに、本実験は単一液滴の燃焼であることから、液滴とその周囲との熱伝達のみをモデル化しガスや実験容器への熱伝達による熱バランスは考慮しないこととして評価した。

着火前の液滴熱伝達モデルでは、酸化反応によって生成される Na_2O_2 の割合を f とすると、酸素と反応して Na_2O_2 を生成する単位質量当たりのナトリウム液滴の割合は以下の式で表される。

$$S = \frac{1.3478f}{(1.6957 - 0.3479f)} \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-18)$$

また、単位質量当たりのナトリウム反応熱 : $H_c \left(cal/g - Na \right)$ は、 Na_2O 生成

反応熱を $2195\left(\frac{\text{cal}}{\text{g}} - Na\right)$, Na_2O_2 生成反応熱を $2500\left(\frac{\text{cal}}{\text{g}} - Na\right)$ とすると、

$$H_c = 2195(1 - S) + 2500S \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-19)$$

である。したがって、液滴の酸化による酸化熱発生速度： $Q_c\left(\frac{\text{cal}}{\text{s}}\right)$ は、

$$Q_c = H_c \cdot \Delta m \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-20)$$

で表される。ここで、 Δm は、式 (4-6) による。酸化によって発生した熱 Q_c は、Ranz-Marshall による球のまわりの強制対流熱伝達式

$$Nu = 2 + 0.6Re^{1/2}Pr^{1/3} = hD/\lambda \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-21)$$

ただし、Nu: ヌッセルト数

h : 熱伝達係数($\text{cal}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$)

に基づき、以下の式による熱量がガスに移行する。

$$Q_g = \left(\lambda/D\right) \cdot \left(2 + 0.6Re^{1/2}Pr^{1/3}\right) \cdot (T_s - T_g) \quad \cdot \cdot \cdot \quad (4-22)$$

また、液滴側へは $Q_c - Q_g$ 分の熱量が移行し、液滴の温度上昇に寄与する。

着火後の液滴燃焼で発生する熱量は式 (4-20) と同様である。ただし、 Δm は式 (4-13) による。

着火に至る液滴温度条件について、公開文献の NACOM コードのソースプログラムではナトリウムの沸点である 881°Cとされている。また、燃焼中の液滴温度は沸点に維持されると仮定され、燃焼が継続するために必要となるナトリウムの蒸発潜熱分

$$Q_v = L \cdot \Delta m \quad \cdot \cdot \cdot (4-23)$$

が燃焼発熱量： Q_c から液滴側に移行する熱量とした。したがって、ガスに移行する熱量は、

$$Q_g = Q_c - Q_v \quad \cdot \cdot \cdot (4-24)$$

となる。

ここで、スプレー燃焼の中の単一液滴の燃焼においてオリジナルの NACOM

モデルでは考慮されておらず、本実験体系において考慮しなくてはならない液滴からの熱移行モデルについて、(1)pre-ignition phase と(2)full burning phase の双方のフェーズで検討しコード改修を行った。（付録 1）

(1) pre-ignition phase （着火前）

- ① 液滴と実験容器壁との輻射熱伝達の考慮
- ② 液滴温度変化に液滴に生成される Na_2O の熱容量を考慮
- ③ 液滴からのノズルを介した熱伝導による放熱を考慮

(2) full burning phase （気相反応）

- ① 燃焼面と実験容器壁との輻射伝熱による除熱効果の考慮
- ② 燃焼面からの対流伝熱による除熱効果の考慮
- ③ 燃焼熱から燃焼面で生成される Na_2O や Na_2O_2 のエアロゾルの熱容量分が気相中に移行することによる除熱効果の考慮
- ④ 蒸発潜熱の液滴温度による関数化（着火温度が沸点以下のため）
- ⑤ 液滴からのノズルを介した熱伝導による放熱を考慮

また、着火温度は $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ として full burning phase に移行するものとし、上記の熱移行について考慮を行った評価を実施した。解析結果から熱移行の内訳を分析すると、(1)pre-ignition phase では、強制対流熱伝達と輻射による除熱量が発熱量に対して最大約 4 %程度、ノズルからの熱伝導による放熱が最大約 13 %

の熱移行がある。(2) full burning phase では、発熱量が pre-ignition phase の 2 倍弱となり、そのうちの最大で約 36 %が強制対流熱伝達と輻射による除熱、蒸発潜熱が同じく最大で約 36 %、エアロゾルによる放熱はほとんど無視でき、ノズルからの熱伝導による放熱が最大 27 %となる。

このように、本実験体系においてはノズルを介した熱伝導による放熱が大きく、実現現象との対比では大きな相違点であるが、これらの熱移行を考慮することで図 4-11 のように実験結果を概ね再現することが可能となった。

ここで、着火温度については実現現象との対比で重要となることから考察を行う。着火については、反応による発熱量の熱移行において蒸発潜熱を考慮しない状態から、蒸発潜熱を考慮する状態への変化ととらえることができる。この変化をとらえるために温度変化率の時間変化について分析した。すると図 4-12 に示すように、温度変化率があるところで、上昇から下降に転じる点があることがわかる。図 4-9 の中では、写真でエアロゾルが気相中に観測された点を着火温度と定義したが、温度上昇率が減少に下降する時を着火と定義して、着火時間、着火温度を整理した結果を表 4-2 に示す。初期温度と着火温度の差は、初期温度が高くなるほど直線的に小さくなっていき、初期温度と着火温度の差分が 0 となる点はナトリウムの沸点に対応している。

気相反応への移行タイミングを決定する上で高速度カメラ撮影画像から気相

中のエアロゾル発生タイミングを確認するのと比較して、温度上昇率の変化から液滴としての着火温度を決定する方法はより明確に現象を把握することができ、着火時のナトリウム温度に沸点が関係していることが示唆される。

実際に図 4-13 では液滴の燃焼反応が進行し、ナトリウムが消費されて熱電対が液滴の外に突出した状態において表層の反応部でのナトリウム温度がとらえられている。ナトリウムの沸点である 881°C 近傍をしめしており、気相反応時における反応界面でのナトリウムの温度が沸点であることが実験によって確認された。

表 4- 1 実験条件

Initial sodium temperature [°C]	Oxygen fraction [vol %]				
	4	8	12	16	20
200	○	—	—	—	○
300	○	○	○	○	○
400	○	—	—	—	○
500	○	—	—	—	○

表 4- 2 温度上昇率の変曲点到達時の温度

Na 初期温度	酸素濃度	論文 ⁽¹⁾ 記載 の着火温度	温度上昇率 変曲点での 温度	初期温度か ら変曲点ま での温度差	温度上昇率 変曲点への 到達時間
200°C	20%	537°C	401°C	201°C	1.9 秒
300°C	20%	535°C	480°C	180°C	1.9 秒
400°C	20%	493°C	554°C	154°C	1.7 秒
500°C	20%	519°C	623°C	123°C	1.4 秒

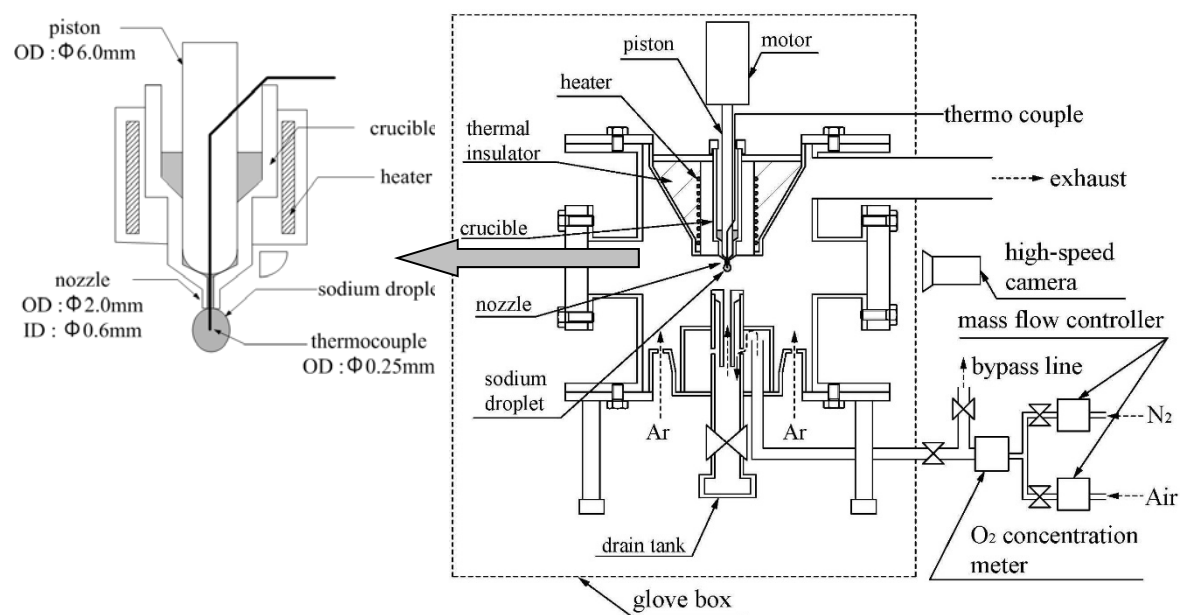
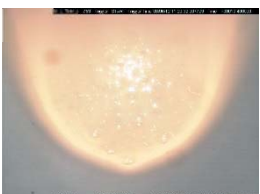
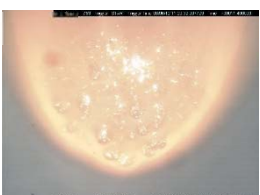


图 4-1 液滴燃烧实验体系

0.0s		Metallic Luster Start Supplying Oxygen	7.0s		Growing Oxides
1.0s		Surface Oxidation	8.0s		Growing Oxides Extinction
2.0s		Appearance of Dendritic oxide and Ignition	9.0s		Growing Oxides Extinction
3.0s		Equilibrium Reaction Start	10.0s		Re-supply of Oxygen
4.0s		Equilibrium Reaction	11.0s		Sodium Soaked in Oxides
5.0s		Stop Supplying Oxygen	12.0s		Re-ignition
6.0s		Appearance of Oxides on the Surface			

0.0–5.0 s : 20% Oxygen Supply for Oxidation
 5.0–10.0 s : 100% N₂ Supply
 10.0 s + : 20% Oxygen Supply

図 4-2 液滴燃焼の事象推移 (ナトリウム初期温度 400°C)

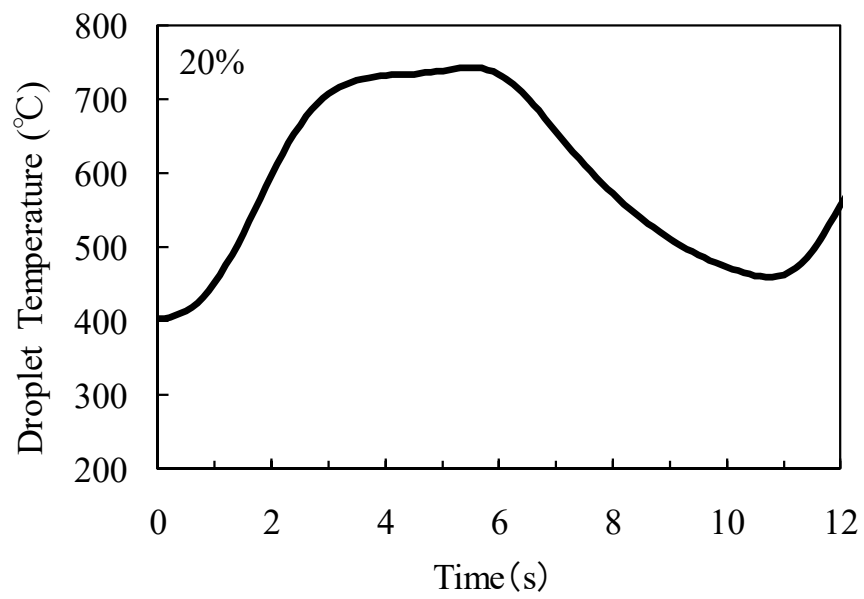


図 4-3 燃焼時の液滴内部温度の時間変化（ナトリウム初期温度 400°C）

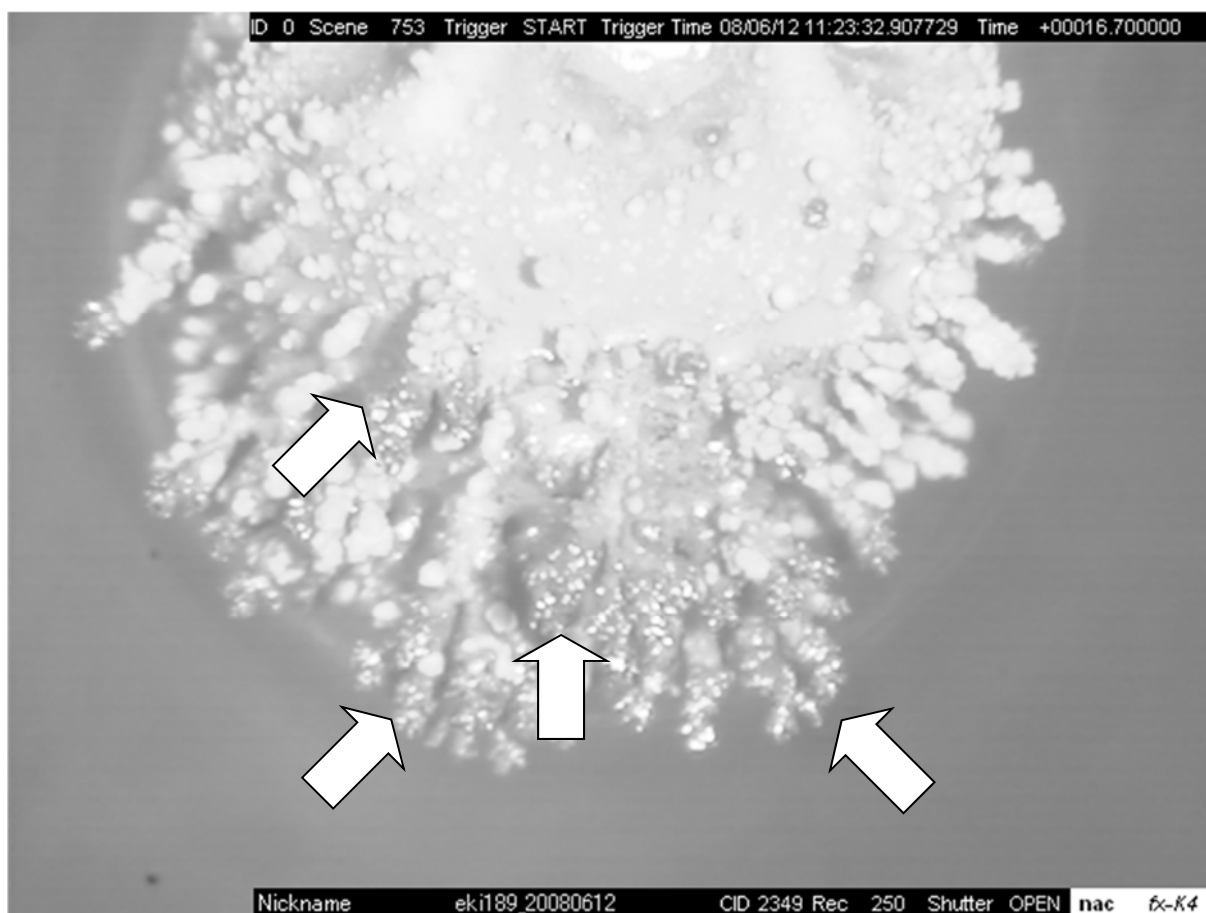


図 4-4 液滴の樹枝状酸化物にみられるナトリウム金属光沢



$t = 0 \text{ s}$



$t = 1.6 \text{ s}$



$t = 2.1 \text{ s}$

Initial Temperature 300 °C
20% O₂

図 4-5 樹枝状酸化物の形成挙動

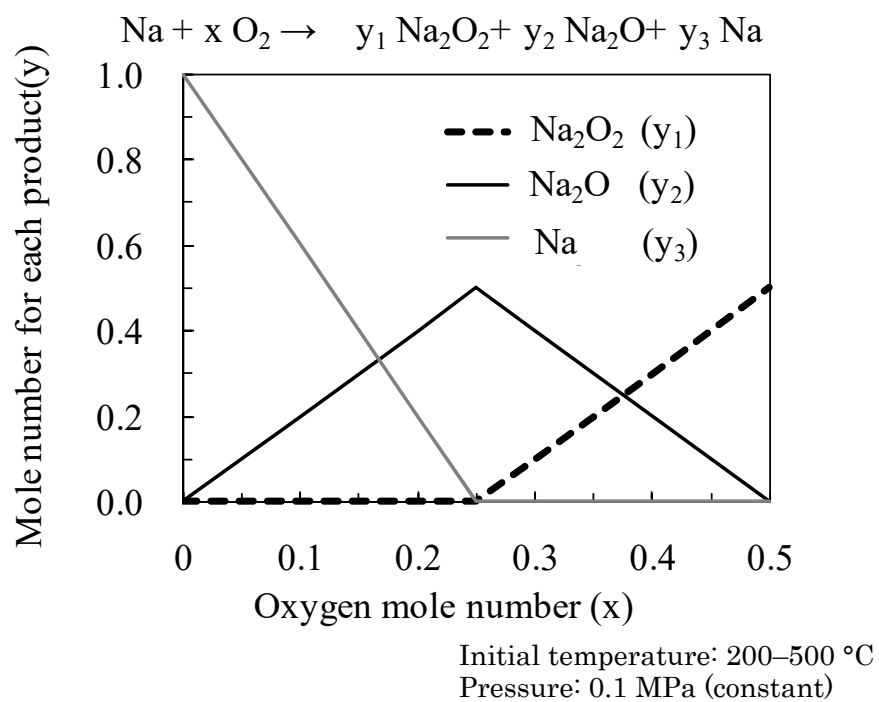
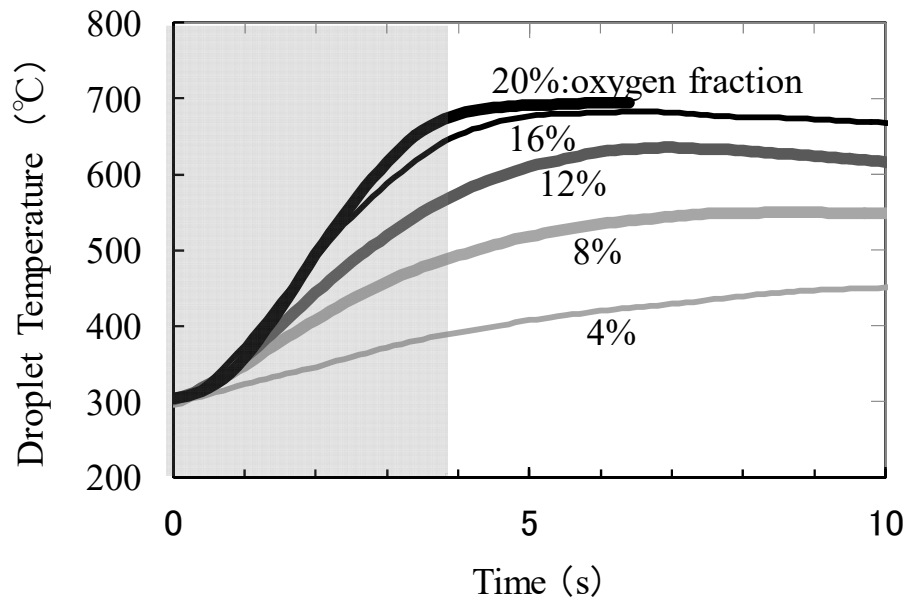


図 4-6 酸素濃度に対する生成物割合（化学平衡論的な計算結果）

(a) Temperature Course



(b) Initial Temperature Rising Rate

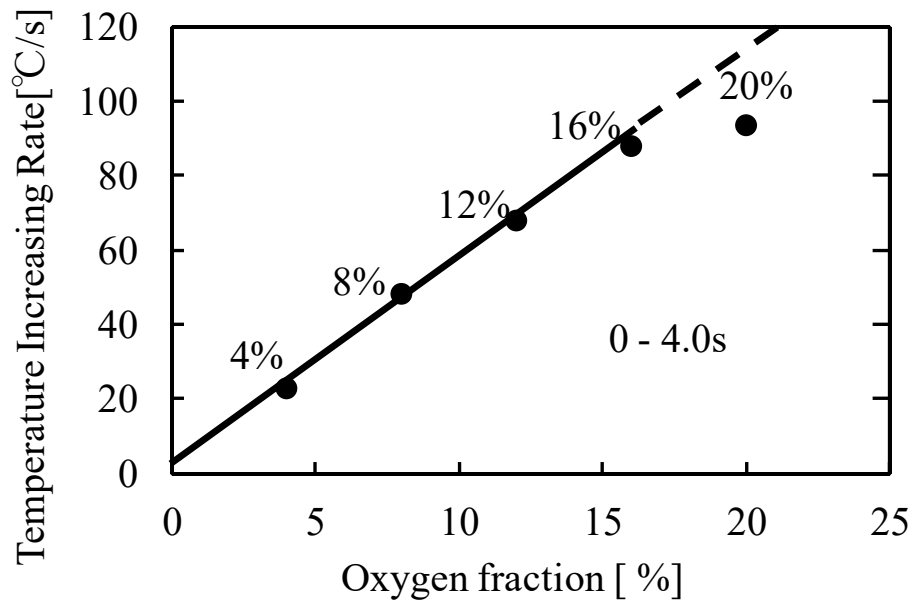
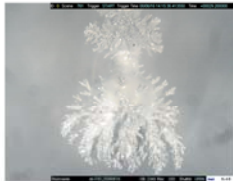
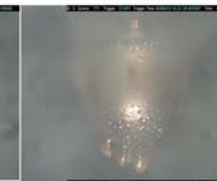
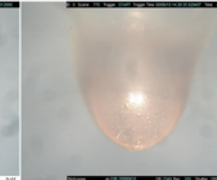
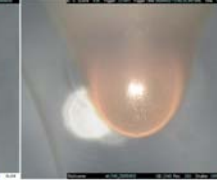


図 4-7 燃焼時液滴内部温度の酸素濃度依存特性 (ナトリウム初期温度 300°C)

Case No.	Surface Oxidation	Gas Phase Reaction Start (Aerosol Observed) Ignition	Orange Emission Observed	Gas Phase Equilibrium Reaction Start (95%)* Time Temperature
Oxygen Fraction	Time Temperature	Time Temperature	Time Temperature	Time Temperature
Case 2a 4%	 0 - 0.5s 300 – 310°C	 5.3s 411°C	Not observed	 28.3s 464°C
Case 2b 8%	 0 - 0.5s 300 – 320°C	 2.6s 440°C	Not observed	 6.3s 538°C
Case 2c 12%	 0 - 0.5s 303 – 323°C	 2.4s 477°C	 4.0s 575°C	 5.5s 620°C
Case 2d 16%	 0 - 0.5s 301 – 327°C	 2.1s 502°C	 2.8s 571°C	 4.4s 665°C
Case 2e 20%	 0 - 0.5s 305 – 318°C	 2.3s 535°C	 2.5s 560°C	 3.9s 676°C

* Starting time of equilibrium reaction: When the temperature rose to 95% of the temperature difference between the initial temperature and the equilibrium temperature.

図 4-8 燃焼時液滴表面の観察結果と対応する内部温度（ナトリウム初期温度 300°C）

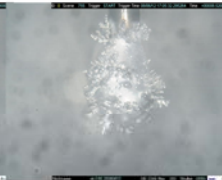
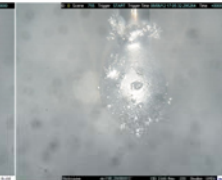
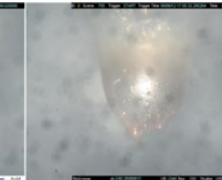
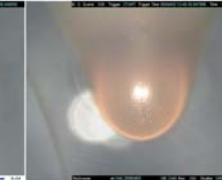
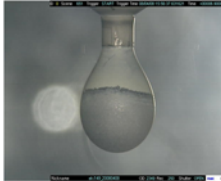
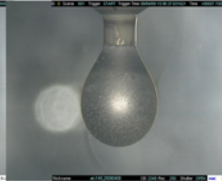
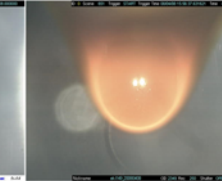
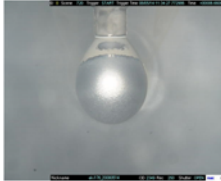
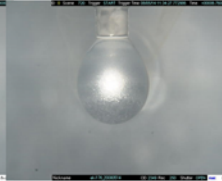
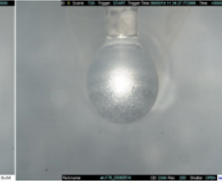
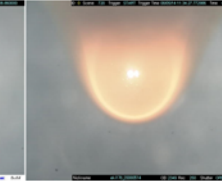
Case No. Initial Na Temperature	Surface Oxidation Time Temperature	Gas Phase Reaction Start (Aerosol Observed) Ignition Time Temperature	Orange Emission Observed Time Temperature	Gas Phase Equilibrium Reaction Start (95%) Time Temperature
Case 1e 200°C	 0 - 0.5 s 203 - 220°C	 2.8 s 537°C	 3.3 s 583°C	 4.3 s 661°C
Case 2e 300°C	 0 - 0.5s 305 - 318°C	 2.3 s 535°C	 2.5 s 560°C	 3.9 s 676°C
Case 3e 400°C	 0 - 0.5s 398-411°C	 1.3 s 493°C	 1.6 s 538°C	 3.4 s 709°C
Case 4e 500°C	 0 - 0.5 s 502-513°C	 0.6 s 519°C	 0.7 s 526°C	 2.7 s 741°C

図4-9 液滴燃焼挙動の初期ナトリウム温度依存性（酸素濃度20%）

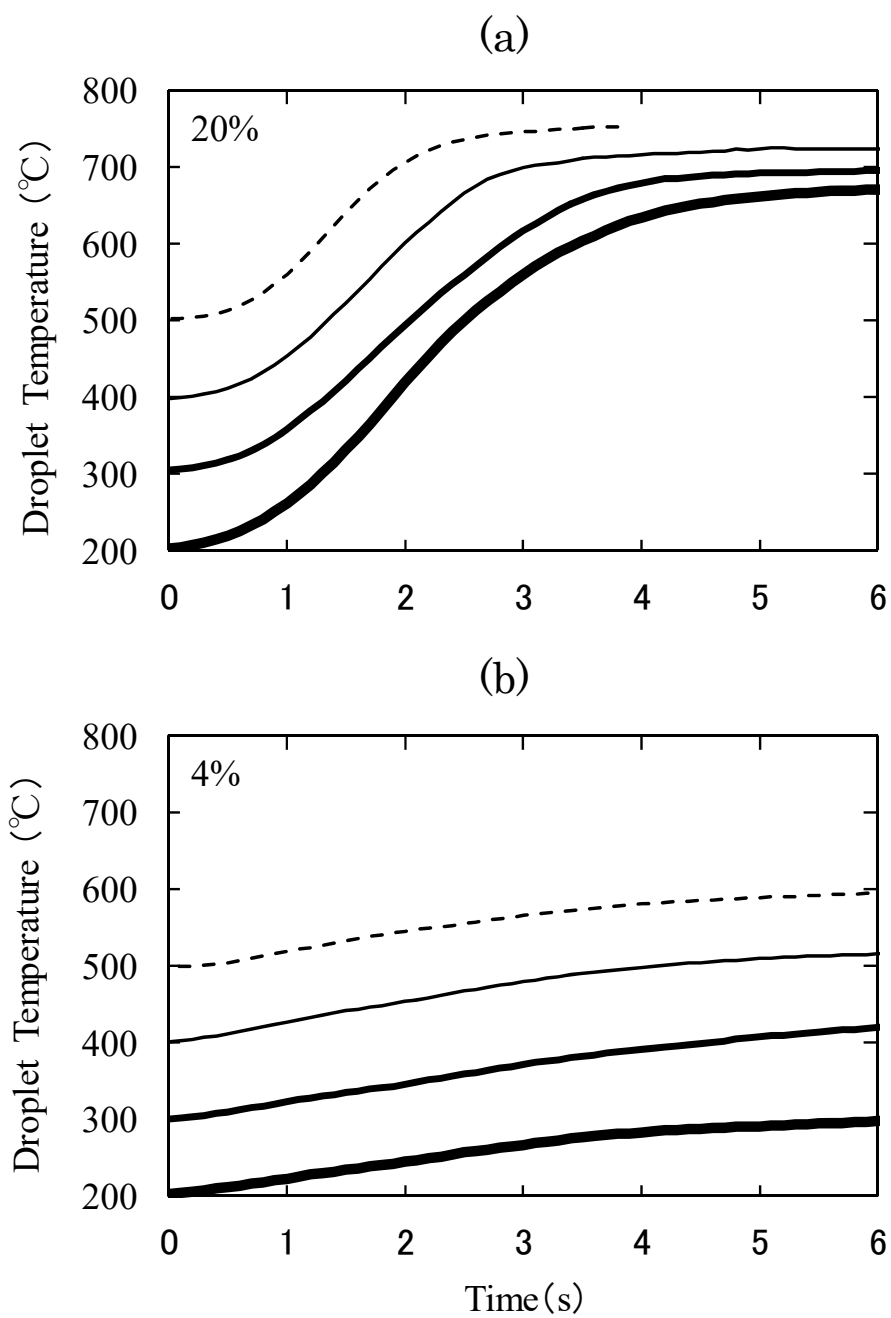


図 4-10 燃焼時液滴内部温度の初期温度依存性（酸素濃度 20%, 4%）

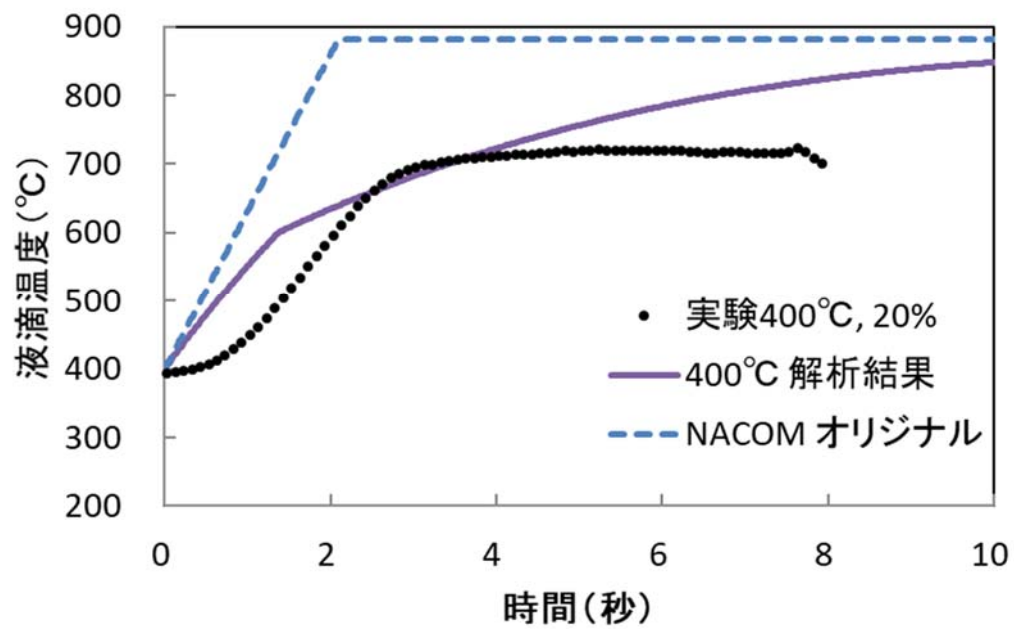
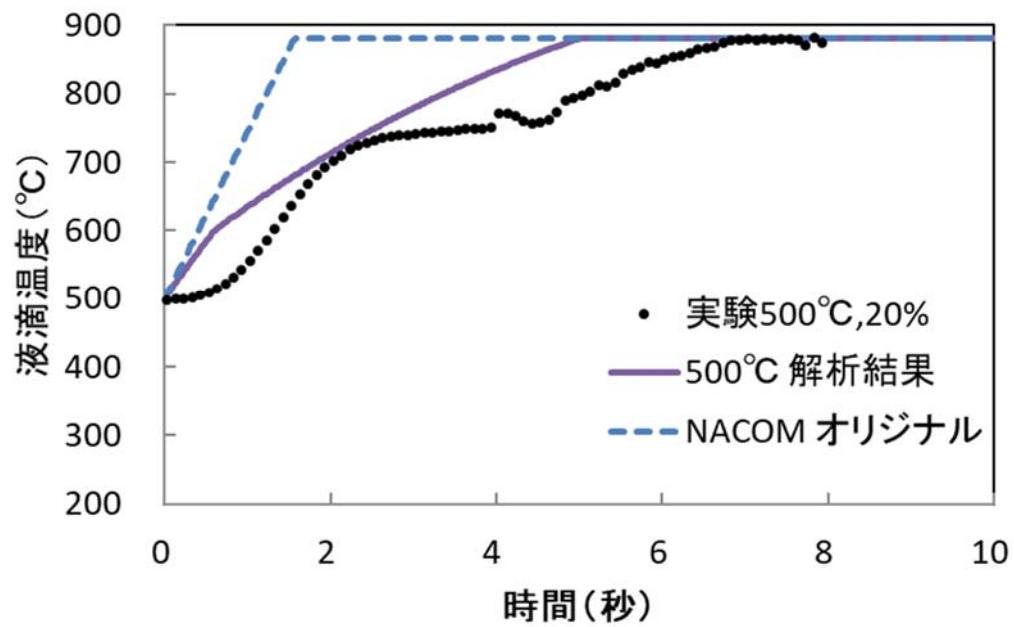


図 4- 11 (1/2) NACOM 改良モデルによる計算結果と実験結果の比較

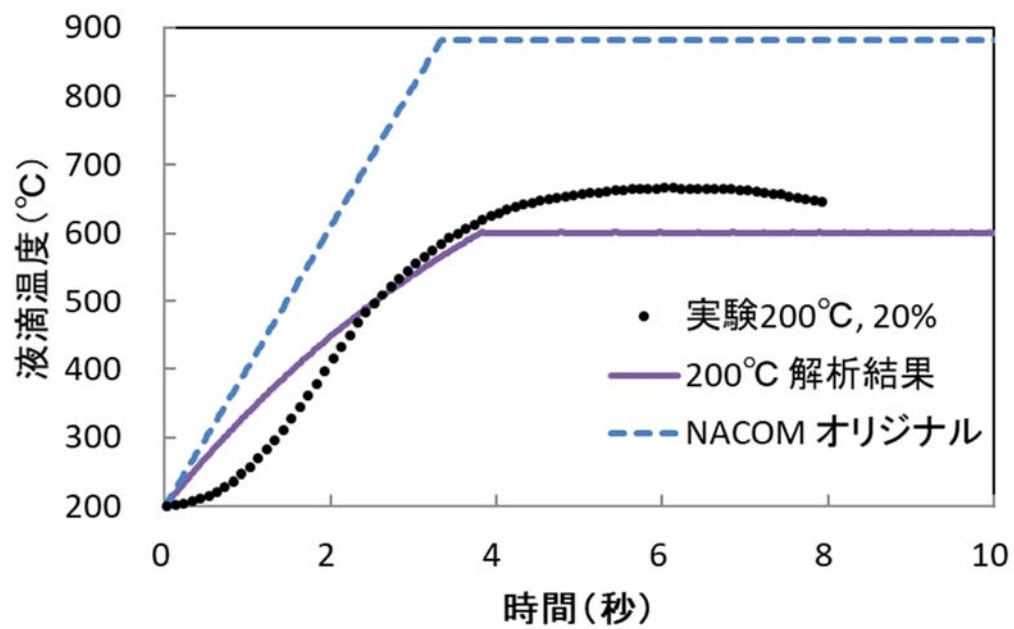
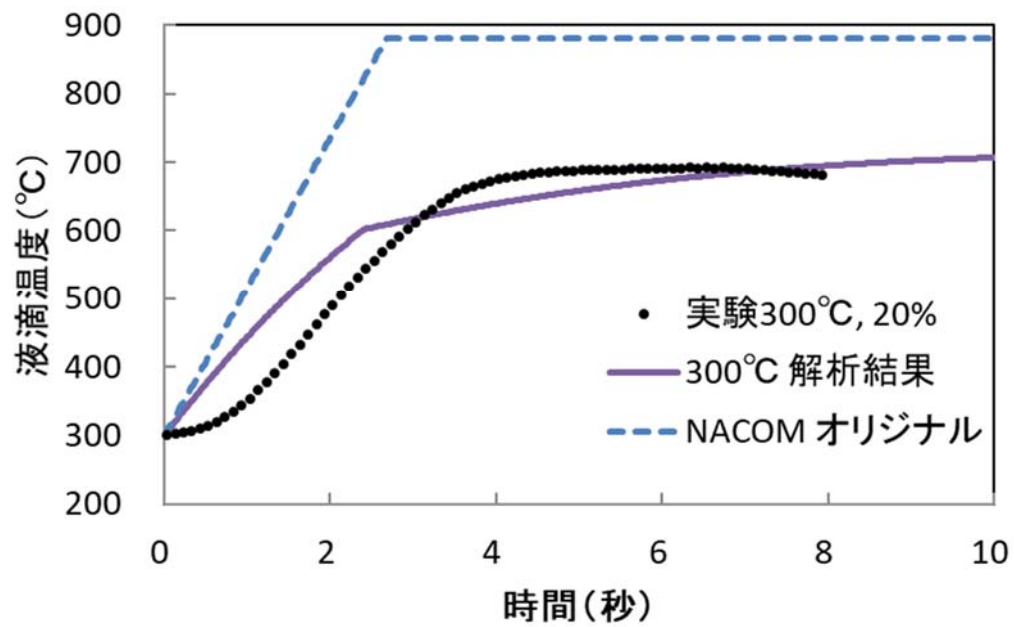


図 4-11 (2/2) NACOM 改良モデルによる計算結果と実験結果の比較

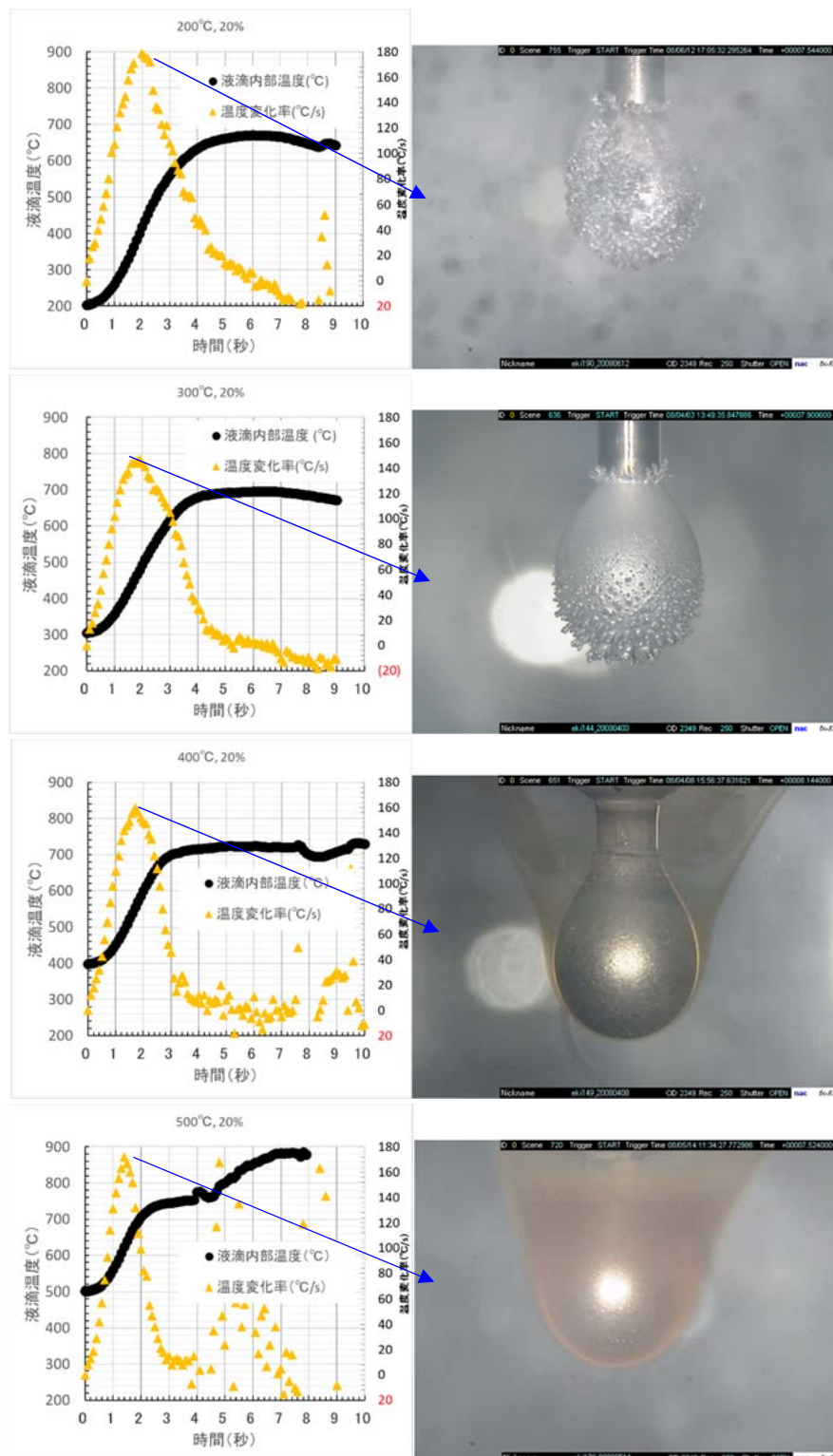


図 4-12 温度上昇率の時間変化

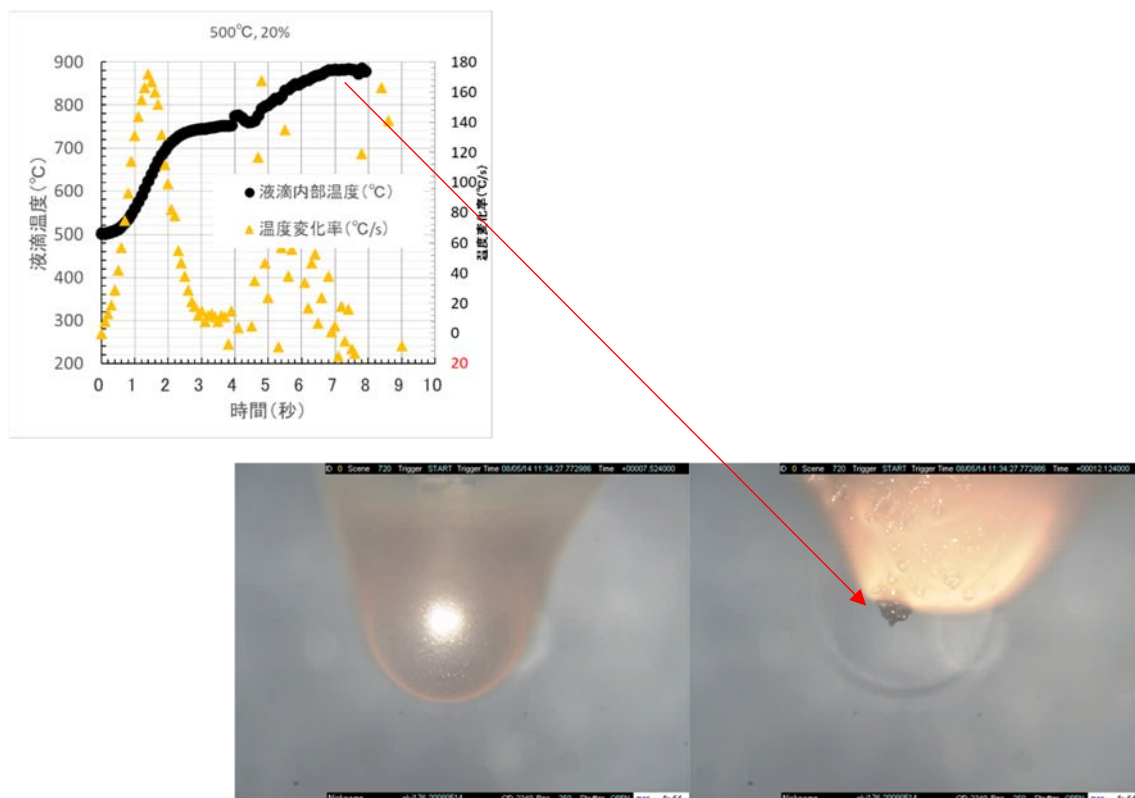


図 4-13 反応界面の温度

4 章の参考文献

- (1) M. Nishimura, H. Kamide, S. Otake, K. Sugiyama, “Features of Dendritic oxide during Sodium Combustion,” Journal of Nuclear Science and Technology, 48, pp.1420-1427, (2011).
- (2) R. L. Eichelberger, “The Solubility of Oxygen in Liquid Sodium: A recommended expression,” AI-AEC-12685 (1968).
- (3) ANL/RE-95/2, “Thermodynamic and Transport Properties of Sodium Liquid and Vapor,” (1995)
- (4) S.S.Tsai, “The NACOM code for analysis of postulated sodium spray fires in LMFBs,” NUREG/CR-1405, BNL-NUREG-51180 (1980).
- (5) S. S. Tsai, “Surface Oxidation Process Prior to Ignition of a Sodium Droplet,” Trans. Am. Nucl. Soc., Vol.27, No.524(1977).

5. ナトリウムの燃焼反応抑制（消火）機構 に関する研究

5. ナトリウムの燃焼反応抑制（消火）機構に関する研究

5.1 概要

第 4 章において、反応界面の観察に適したナトリウム燃焼の最も単純な体系として単一液滴燃焼の燃焼挙動観察を実施した結果、反応界面に成長する樹枝状酸化物の先端に未反応ナトリウムが供給されている様子が確認された。そこで、ナトリウムの反応継続機構を理解するためには、ナトリウムプールから反応中に生成する反応生成物を介して反応界面まで未反応ナトリウムを供給する機構の把握が重要であると着目し、樹枝状に成長する反応生成物をクローズアップした観察を実施した。ナトリウム供給経路を形成するナトリウム反応生成物の化学種が、温度や酸素濃度などの反応環境要因によって異なるという熱力学的な検討のもと、反応中に安定なナトリウム一酸化物が形成するか、過酸化物が形成するかの違いによってナトリウムプールと反応界面をつなぎ反応を介在する反応生成物の形状が異なってくることが想定された。

本章では、まず初めにナトリウム燃焼において反応を介在する反応生成物の成長機構の理解を進めるためにナトリウム温度や酸素濃度を変えて反応生成物の成長挙動を観察し、反応が継続する機構のモデル化を実施した⁽¹⁾。

次に、ナトリウム燃焼が継続する機構の理解から樹枝状酸化物中に確保され

るナトリウム移行経路を阻害するというアプローチでの反応の終息の可能性を提示した。この方法では、反応原料であるナトリウム側の供給を断つことから、窒息消火時に課題であった酸素の流入時の再着火の懸念について排除することが可能となる。

5.2 ナトリウム燃焼における樹枝状酸化物の成長と燃焼継続機構

樹枝状酸化物中の反応界面への未燃焼ナトリウムの移行メカニズムを理解するために、供給する酸素濃度やナトリウムの初期温度をパラメータとして、樹枝状酸化物の成長挙動を観察する実験を実施した。供給するガス温度はナトリウム温度と同一温度である。図 5-1 に、成長挙動の観察結果を示している。成長速度は 1.0 秒後の酸化物のそれぞれの大きさを比較することができる。相対的な成長速度は酸素濃度に依存しており、20 %の酸素濃度条件では 4 %の酸素濃度条件と比較して成長速度が速い。オレンジ色の発光 (図中矢印) を伴った着火挙動は、20 %の酸素濃度でのみ観察された。反応生成物は、20 %の酸素濃度では針状の形状であり、先端は広がっていない。一方、4 %の酸素濃度では、先端が広がっており樹枝状の形状が強調されている。初期温度が低い 200 °C 条件では、酸素濃度が低い条件の場合と同様に、500 °C 条件と比べて相対的な成長速度は遅くなるとともに、生成物先端が広がった樹枝状の形状となっている。

これらの観察の結果から得られた知見と、4 章で実施した熱力学的検討を基にして、図 5-2 に示すように、樹枝状酸化物の成長に関する機構を 3 つの点から推測した。

1 つ目に、未反応のナトリウムの界面形成に関して図 5-3 に示す。反応開始直後、液体ナトリウムの表面に滑らかな白い酸化膜として反応生成物が形成される。その後、酸化膜は温度上昇による液体ナトリウムの膨張などによって割れて、反応界面とプール中のナトリウムをつなぐ流路が図中の矢印に示すように形成される。ナトリウムが酸素と出会う反応界面は半球の液滴の酸化膜の上の外側表面にある。ナトリウム温度が低い時には反応生成物はナトリウム側に沈着し、酸化膜上に樹枝状酸化物が成長する。この反応界面の形は、重力と表面張力のバランスによって決定する。反応界面は、表面張力が大きいほど球形に近づくと考えられる。

2 つ目に反応を継続するために、プール中のナトリウムが反応の界面まで樹枝状酸化物中を移行する機構があげられる。

樹枝状酸化物は、酸素濃度や、温度といった環境要因に依存して形成される一酸化物と過酸化物の 2 種類のナトリウムの酸化物から構成されている。前述したように液体ナトリウム中には溶存酸素が存在し、その溶解度は温度に依存する⁽²⁾。

ナトリウムが高温であるほど酸化物中の移行経路を流れるナトリウムは、高い酸素溶解度によって酸化物が析出しにくいために、流路の閉塞は起こりにくい。そのため、高温部では、連続的にナトリウムが反応界面に移行しやすいといえる。酸化反応部においては反応熱によって温度が上昇し、ナトリウム中の酸素溶解度が高くなることによって酸化物中を移行するナトリウムの量も大きくなる。成長が広がる段階での反応は、図 5-4 の模式図で示すようなサイクルで進行すると考えられる。

また、酸化物の化学種も移行経路の確保に影響を及ぼす一因と考えられる。ナトリウム酸化物として、主にナトリウム過酸化物と一酸化物が形成される。熱力学的な観点から、ナトリウム過酸化物は酸素濃度が十分に高いときに形成され、ナトリウム一酸化物は比較的低い酸素濃度条件下で形成される。前述したように、ナトリウムの過酸化物の融点は $675\text{ }^{\circ}\text{C}$ で一酸化物の融点は $1275\text{ }^{\circ}\text{C}$ である。

高速炉の運転温度範囲は $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ から $550\text{ }^{\circ}\text{C}$ なので、事故時に反応したナトリウムの温度は、ナトリウムの沸点 $881\text{ }^{\circ}\text{C}$ よりも低い過酸化ナトリウムの融点 $675\text{ }^{\circ}\text{C}$ を超えることも容易に想像できる。過酸化ナトリウムは融点を超えると固体として存在することはできないので反応界面の形成を阻害することはない。その結果、樹枝状酸化物は酸素濃度が高い方向にむかって選択的に成長すると

考えられる。

3 つ目に樹枝状酸化物の先端での反応機構について述べる。

表面反応とナトリウム蒸気の気相反応は、樹枝状酸化物の先端で同時に起こる。反応の初期段階では表面反応が支配的であるが、時間の経過にともなって、気相反応が支配的になる。蒸発速度が気相反応で大きくなるにつれて反応総量は大きくなると考えられ、樹枝状酸化物とナトリウムの温度が上昇して、流路内のナトリウム移行量が上昇する。しかしながら、樹枝状酸化物は気相反応においては、反応生成物が気相に放出されることからそれほど成長しない。

これらの機構をモデル化した模式図を図 5-5 に示す。ナトリウム一酸化物は、低酸素濃度条件下で生成する傾向があり、樹枝状酸化物中の液体ナトリウムの質量移行割合は小さくなる。そのため、先端部での反応割合が小さくなるために、温度が上昇しなくなる。酸素は、表面反応によって樹枝状酸化物側に取り込まれ、樹枝状の形態が強調される形で大きく成長すると考えられる。初期ナトリウム温度が低い場合においても、低い溶存酸素量のために多くのナトリウム一酸化物が生成されるため、低酸素濃度条件下と同じ樹枝状酸化物の成長挙動を示す。一方で、高い酸素濃度条件と高い初期ナトリウム温度条件下では、ナトリウム過酸化物が形成されやすいために、気相反応に迅速に移行するため、反応界面は樹枝状酸化物全体をとりまく領域で形成される。そのため、酸化物

の形状は針状となり、低い酸素濃度条件と低い初期ナトリウム温度条件に比較して酸化物全体の大きさは小さくなる。

このモデルから、樹枝状酸化物を介して未反応のナトリウムが反応界面へ移行する燃焼の継続機構において、酸素濃度や、温度といった環境要因によって反応生成物を含んだ反応に関与するナトリウムの溶解度、酸化物の化学種が影響を受けて、燃焼の継続性が変化すると考えられる。3章において、未反応のナトリウムを残したままで反応が終息する現象についても、このモデルで説明することができる。未反応のナトリウムが存在しても樹枝状酸化物中の移行経路が十分に確保されない場合、燃焼は終息にむかうと考えられる。

5.3 ナノ粒子分散ナトリウムの特性

近年、荒、斉藤らによってナトリウムの反応抑制に関する研究（金属ナノ粒子をナトリウム中に分散させることでナノ粒子との相互作用を利用してナトリウムの化学的活性度を抑制する研究）が実施されてきている⁽³⁻⁷⁾。

ナノ粒子分散ナトリウムの研究については、概念の成立性、物性に関する理論的検討、プラントへの適用性に関する検討、ナノ粒子の製造に関する検討、ナトリウムに分散させる方法についての検討、反応抑制効果の実験的確認および理論的考察、実機評価への適用など幅広く検討されている。これらの研究の中で、

ナトリウムとナノ粒子の原子間相互作用が発現された物性としてナノ粒子分散ナトリウムはナトリウムと比較して表面張力は増大し（図 5-6）、蒸発速度は低下する（図 5-7）ことが確認されている。⁽⁴⁾

ナノ粒子分散ナトリウムの研究の中では、プール燃焼反応においてナトリウム燃焼反応との比較研究が実施され、図 5-8 および図 5-9 に示すように特に明確な反応抑制効果が確認されていたが、上記の物性変化のみでは現象を説明することができず、反応抑制機構の解明が研究テーマの一つとなっていた。

そこで、前節で検討した反応継続機構の 3 つの要因（「未反応のナトリウムの界面形成」、「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」、および「樹枝状酸化物の先端での反応機構」）において、これらのナノ粒子分散ナトリウムの概念に基づいた物性の違いに起因する反応抑制効果の検討に加えて、特に燃焼反応に特有の「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」に着目した研究を実施した。

5.4 ナノ粒子分散ナトリウムにおける樹枝状酸化物の成長

「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」では、前節で考察したように樹枝状酸化物中のナトリウムとナトリウムの一酸化物、過酸化物の間で酸素をやり取り（酸化、還元）しながら経路が確保さ

れている。低酸素濃度や低温といった環境条件で一酸化物の形成が優勢の場合は、ナトリウム供給経路が阻害されて反応が抑制される。高酸素濃度や高温といった条件で過酸化物の形成が優勢の場合は、反応が継続、拡大していくことになる。ここで、ナトリウム中に分散している金属ナノ粒子が酸素やナトリウムと反応し、かつ生成した酸化物が樹枝状酸化物中でナトリウム酸化物よりも安定であるならば、ナトリウムの流路を阻害し反応を抑制することになる。そこで、熱力学的な検討を行い反応抑制に効果的な金属ナノ粒子の検討を実施した。

荒、斎藤らのナトリウムに分散させる金属ナノ粒子としては原子間相互作用の効果が表れる 3d, 4d 遷移金属を候補として検討が実施されている。それらの内、実際に粒子製造を実施しているものは Ti, Ni, Mn である。この 3 元素について熱力学データベース MALT の計算機能 gem を使用して、ギブスの自由エネルギー最小化法によって化学平衡計算を実施して生成する化合物を確認した。

Ni（凝縮相）2 mol、Na（凝縮相）98 mol、O₂（ガス相）1000 mol を初期条件とした。ナノ粒子の分散割合は 2 mol% で、酸素は十分にある想定としている。この場合、すべての Na は 2 元系の酸化物として化合物を形成し、Ni も 2 元系の酸化物として化合物を形成した。Mn についても同様な条件で計算するとそれぞれ 2 元系の酸化物を形成する結果となった。しかしながら Ti の場合のみ分散濃度が 2 mol% であっても Na-Ti-O の 3 元化合物を形成する結果となり、ナト

リウム環境での酸化物の安定性の観点で 3 元系の安定化合物を形成する Ti をナノ粒子として選定するのがもっとも適していると考えられる。

そこでナノ粒子分散ナトリウムの研究で直径約 10 nm の Ti ナノ粒子をナトリウム中に 2 at.%分散させた試料を供試した燃焼実験の結果を参照することとした。図 5-10 にナトリウムの樹枝状酸化物の観察を実施した方法と同様に、ステンレスメッシュプレート上のナノ粒子分散ナトリウムの樹枝状酸化物の成長挙動を水平方向から観察した実験結果をナトリウムと比較した結果を引用する⁽⁵⁾。成長挙動の違いをより観察しやすいよう実験条件は、温度は低温条件の 200 °C、酸素濃度は低濃度条件の 4 %とされている。ナノ粒子分散ナトリウムの反応生成物の形状はナトリウムの場合と比べて異なっている様子が確認される。純粋なナトリウムの場合は、金属光沢をした未反応のナトリウムが、樹枝状酸化物の先端で連続的に観察されて反応が継続していく。一方で、ナノ粒子分散ナトリウムの場合は、反応の進み方は緩やかで反応初期の段階で酸化物が生成して表面を覆うと、ナトリウムの場合に観察されたような樹枝状の形状が大きく形成されることなく反応が終息している。つまりナノ粒子分散ナトリウムにおいて反応継続機構に関連する樹枝状酸化物の成長が抑制されている。

これらの、反応継続機構に関わる樹枝状酸化物の比較観察結果は前節に述べた樹枝状酸化物の成長モデルにおける 3 つの影響因子で説明することができる。

はじめに「未反応のナトリウムの界面形成」に関し関係の深い、ナノ粒子分散ナトリウムの表面張力は、ナノ粒子とナトリウムの間の原子間力の強化によって、15～20 %程度大きくなっている。一方で密度は、ナトリウムよりも 5 %大きい。はじめに「未反応のナトリウムの界面形成」に関して、結果的に、ナトリウムを上を引き上げる力が大きく界面の形が半球状になるので、ナノ粒子分散ナトリウムの反応界面はナトリウムに比べて相対的に小さくなる。界面が小さくなることは、反応が抑制される方向の効果となるもののその影響は表面張力の差（15～20 %）というほどの定量的影響は現れないと考えられる。

「樹枝状酸化物の先端での反応機構」に関しては、樹枝状酸化物の先端での蒸発現象について検討する。図 5-7 に示したように、同一温度条件におけるナノ粒子分散ナトリウムの蒸発速度はナトリウムに比べて 20 %弱低下している。先端での蒸発現象は気相反応の量に関係しており、仮に同じフラックスで酸化物の表面までナトリウムが供給されたとしても蒸発速度の違いで反応量に違いが現れると考えられ 20 %弱の反応抑制効果が期待できる。

「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」に関しては、ナトリウムとナノ粒子分散ナトリウムの間には、樹枝状酸化物内に存在する未反応ナトリウムを反応界面まで移行する経路において形成される酸化反応生成物の化学種の違いが存在し、本研究で着目している点である。

酸化物の化学的安定性は、反応の継続性に非常に重要な役割を果たす。ナトリウムの場合は、一酸化物と過酸化物の 2 種類を考えればよく、酸素が過酸化ナトリウムの形で取り込まれると気相反応主体で反応継続性が高くなり一酸化ナトリウムの形で取り込まれると表面反応が主体で反応が終息に向かう方向となる。化学平衡計算では Ti ナノ粒子を分散させたナトリウムは酸素と反応して、 Na-Ti-O の 3 元化合物を生成する結果となっている。

実際にナノ粒子分散ナトリウム酸化反応後の反応界面近傍の燃焼残渣を不活性ガス中でサンプリングし、粉末 X 線回折を実施した結果を図 5-11 に示す。ナトリウムの一酸化物、過酸化物の他に Na-Ti-O の 3 元化合物や、Ti 酸化物の回折パターンを確認した。Ti 濃度は、ナトリウムに対して 2 at.% と小さいことを鑑みると安定な化合物として選択的に生成していると考えられる。

図 5-12 に、化学平衡計算ソフト MALT に内蔵されている熱力学データを用いて 1 モルの酸素と反応した時のいくつかの酸化物の化学的安定性を示すが、Ti を含む酸化物の化学的安定性は、Ti のない酸化物の安定性よりも高いことがわかる。これらの Ti を含む酸化物が樹枝状酸化物中のナトリウム流路中に安定な酸化物として取り込まれていると、反応中のナトリウム酸化物においてナトリウムの流路が狭くなると考えられる。すなわち、ナノ粒子分散ナトリウムの樹枝状酸化物中では、ナトリウムの移行経路が阻害され、反応界面に供給される

ナトリウムの移行フラックスが低下することによって反応が抑制される。

以上より、前節で提示した燃焼継続機構としての樹枝状酸化物の成長モデルにおける 3 つの影響因子において、ナノ粒子分散ナトリウムの持つ特性に起因した総合的な反応抑制を確認するとともに、燃焼継続機構としての樹枝状酸化物の成長モデルに現象を説明する上で矛盾がないことを確認した。

これらの要因は、相互に負の連鎖的な機構が働き大きな反応抑制効果となる。具体的には、ナトリウムの樹枝状酸化物中の未反応ナトリウムの移行フラックスが低下すれば、反応界面での反応量が低下し、結果として温度場も低下する。その結果、界面の形成も小さくなるとともに、ナトリウムの樹枝状酸化物中の移行経路においても、ナトリウムの移行が低下して反応が抑制されることになる。

ここで、3 つの要因の内「未反応のナトリウムの界面形成」、「樹枝状酸化物の先端での反応機構」の 2 つについては、ナノ粒子の原子間相互作用の効果によるナトリウムの物性（表面張力、蒸発速度）の違いに起因するものである。一方、本研究で着目している「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」におけるナノ粒子の作用については、化学熱力学的要因に起因するものであるが、燃焼反応においては大きな抑制要因として働くことを明らかにした。

5.5 ナトリウム燃焼反応における反応抑制（消火）

本節では、明らかにされたナトリウム反応継続機構をもとに、燃焼反応の抑制（消火）について、新しい概念の提示を行う。本概念については、5.3 節で確認されていたナノ粒子分散ナトリウムのプール燃焼時に測定された反応抑制機構の解明という側面も担っている。

プール燃焼による発熱量の総量は、プール面積と単位面積あたりの発熱量の積によって評価されるため、反応に寄与するプール面積を小さく抑えることは反応を抑制することにつながる。そのため、高速炉プラントでは、床ライナの小区画化を行い、表面張力によって決定する拡がり面積よりも狭い範囲にプール面積を制限するような設備対策が施されている。

しかしながら、ナトリウムの燃焼挙動は、図 5-13 で示すように⁽⁵⁾、酸素を上から供給すると、樹枝状酸化物の総体としての反応生成物は上へ成長する。酸素を横から供給すると横に成長する。また、液滴燃焼でも観察されたように酸素を下から供給すると下に向かって成長する。つまり樹枝状酸化物は、酸素分圧の高い方向に反応界面が形成され、選択的に酸素分圧の高い方向に反応生成物が積層し、自ら酸素との反応界面を求めていくように成長しながら燃焼反応が継続していく。したがって、プールの拡がりを区画によってある程度制限することはできても、完全に止めることはできない。

また、従来のナトリウムが漏えいした場合の消火方法としては、乾燥砂などの消火剤を燃焼プールの上に覆い、酸素の供給を断ったり、雰囲気窒素ガスを注入したりして酸素分圧を下げるといった方法が採用されている。しかしながら、広い範囲で燃焼しているナトリウムプールの場合は、近傍まで人が接近し、消火剤でプールをすべて覆い窒息消火させることは困難である。また、プラントの配管室などの広く貫通部があるような空間において、酸素濃度を下げただけの窒素を供給する設備対策を実施するのは、その後の処理として、空気置換が必要であることを考えると、再着火などの問題があり非現実的である⁽⁸⁾。

ここで、前節でモデルの妥当性を確認したナトリウム反応継続機構をもとにすると、ナトリウムおよび酸素と安定な化合物を形成するナノ粒子を分散したナトリウムのプール燃焼では、燃焼生成物中のナトリウム移行経路が阻害されることによって、プールの拡がりが増加されるとともに、プール中にナトリウムが残っている状態で酸素を供給し続けても、反応が終息（消火）することが想定される。

この想定を検証のため、5.3 節で実施されているプール体系において前述と同様にナノ粒子として直径約 10 nm の Ti をナトリウム中に 2 at.%分散させた試料を燃焼させてナトリウムの燃焼挙動と比較した実験を参照して検討を行う。プール上部のノズルから反応に十分な空気を供給することによって反応させ、プ

ール燃焼の様子がビデオカメラで撮影され、同時に燃焼プールの温度が測定されている。

ビデオカメラでの撮影結果を図 5-8 に引用する。動画から反応前、空気供給後 20 秒, 30 秒, 100 秒の画像が切り出されている。20 秒後の段階では、ナトリウムとナノ粒子分散ナトリウムの燃焼挙動について相違を認識することはできないが、30 秒後においては違いが明確に現れている。

ナノ粒子分散ナトリウムにおいては、樹枝状酸化物中のナトリウムの移行機構が反応の初期段階において機能しておらず気相反応が終息している様子が観察される。一方、ナトリウムの場合は、樹枝状酸化物中のナトリウム移行機構が機能し続け、酸素が供給されている方向に酸化物が積層して反応が継続している。

100 秒後の映像では、ナトリウムでは反応が継続している様子が確認できるものの、ナノ粒子分散ナトリウムは気相反応が画像から確認できず、プールの表面の様子を観察することができる。プールの表面は、ナトリウムのように空気の供給ノズルに向かって反応生成物がせりあがることはなく平面的である。

上記のビデオ観察と同時測定された、ナトリウムプール温度を図 5-9 に示す。バルブ切り替えのタイミングを 0 秒としており、反応が開始するまでに約 10 秒の遅れがある。この時間軸については、先のビデオカメラ映像の時間軸と同じで

ある。

ナノ粒子分散ナトリウムにおける燃焼プール温度は、ナトリウムと比較して早期に温度が低下し始めており、映像観察に対応するように 20 秒の段階では反応がほぼ終息している。

また、これらの燃焼反応試験の後、燃焼残渣中の未反応のナトリウムの総量を化学定量したところ、ナトリウムだけの反応の場合は全量が反応して未反応のナトリウムが存在しなかった。一方で、ナノ粒子分散ナトリウムの場合は、初期に充填した重量の約 20 %のナトリウムが燃焼生成物の中に残存していた。

以上の結果から、ステンレスメッシュでの樹枝状酸化物の成長挙動観察から確認した「未反応のナトリウムの界面形成」, 「樹枝状酸化物の先端での反応機構」「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」の 3 つの要因においてナノ粒子分散ナトリウムが相乗的に反応抑制効果を発現した結果であり、プール燃焼において酸素が十分に供給される環境下においても反応が停止するまで抑制されること、すなわち消火することを確認した。

この効果は、ナノ粒子の原子間相互作用に起因する物性の違いから想定される反応抑制効果に比べ大きな抑制効果が発現しており、ナトリウム燃焼反応においては「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保

される機構」において、ナノ粒子がナトリウムおよび酸素と安定化合物を形成し、ナトリウム移行を阻害する効果が、反応抑制の大きな支配因子であることを明らかにした。

反応生成物内でナトリウム移行経路が遮断される機構を含めた反応抑制効果は、単位面積あたりの燃焼速度が時間とともに低下することに対応することから、この効果を解析評価モデルに導入することによって、反応停止を再現することが可能となっている。この反応抑制のモデルを取り入れたナトリウム燃焼解析コード開発については、斉藤らによって継続的に実施されている。実機プラントへナノ粒子分散ナトリウムを適用した場合の燃焼反応における予測解析にこれらの抑制効果を取り入れた結果、プラントに与える熱的な影響が低減され、安全性が大きく向上する見通しが得られている⁽⁹⁾。

さらに関連研究のナノ粒子分散ナトリウムに関する研究においては燃焼に限らず、冷却材ナトリウムの高い化学的活性が設計基準を超えるような事故時に原子炉格納機能の健全性を脅かす可能性のある現象について網羅的に評価検討が実施され安全性向上の検討が実施されている。⁽¹⁰⁾

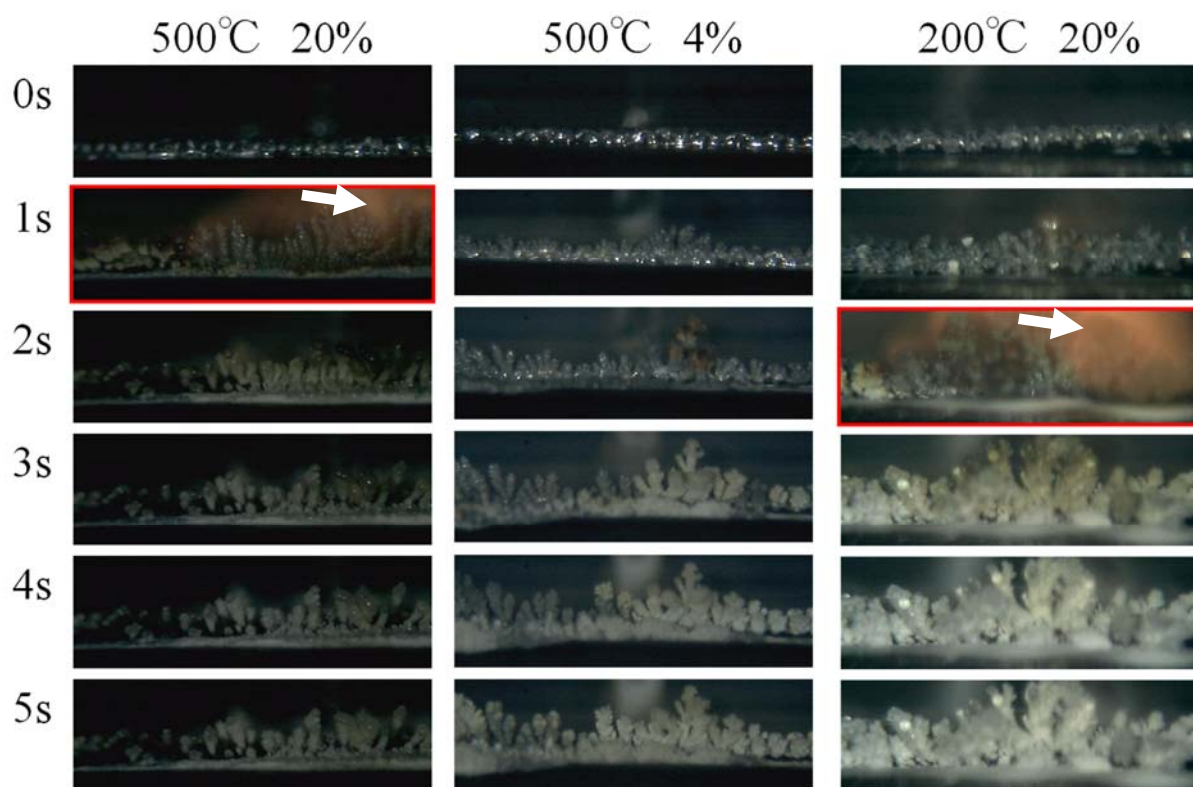


図 5-1 樹枝状酸化物の成長挙動観察

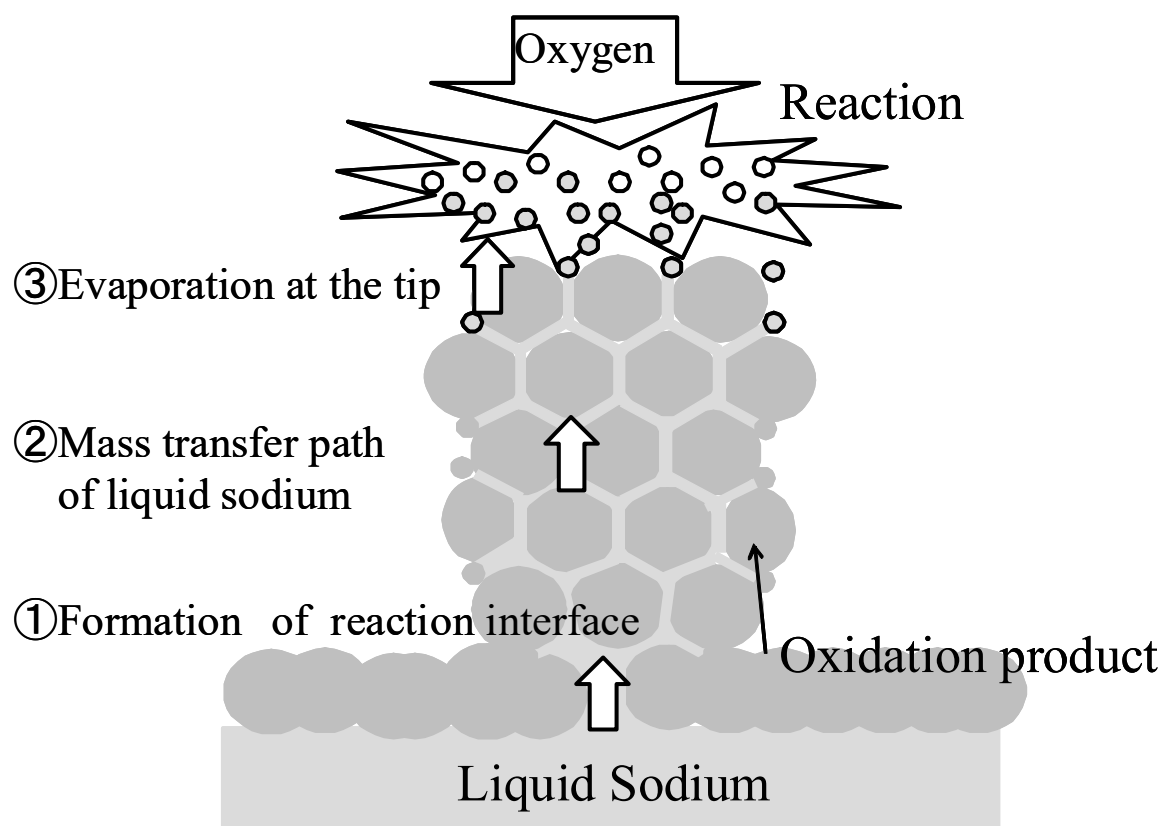


図 5-2 樹枝状酸化物の成長機構要因

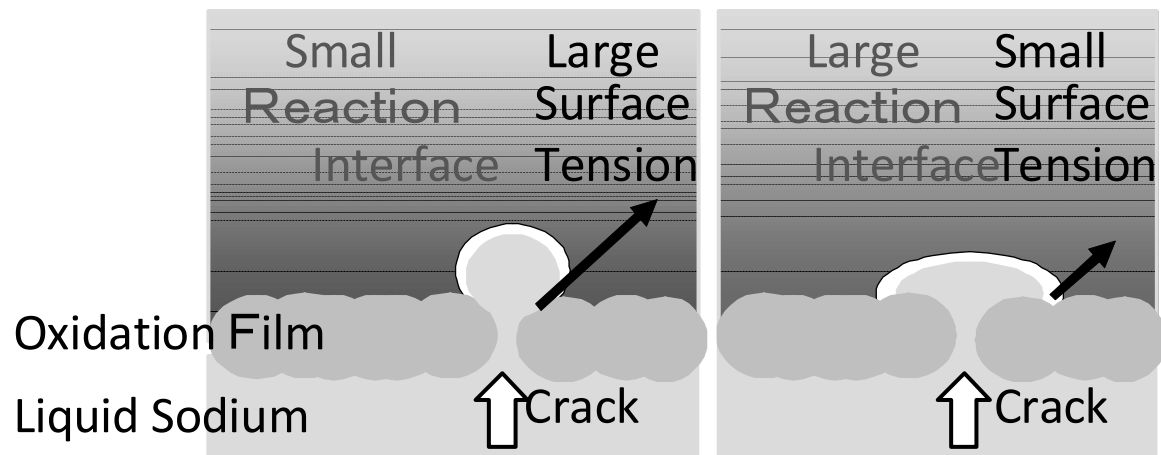


図 5-3 未反応ナトリウムの界面形成

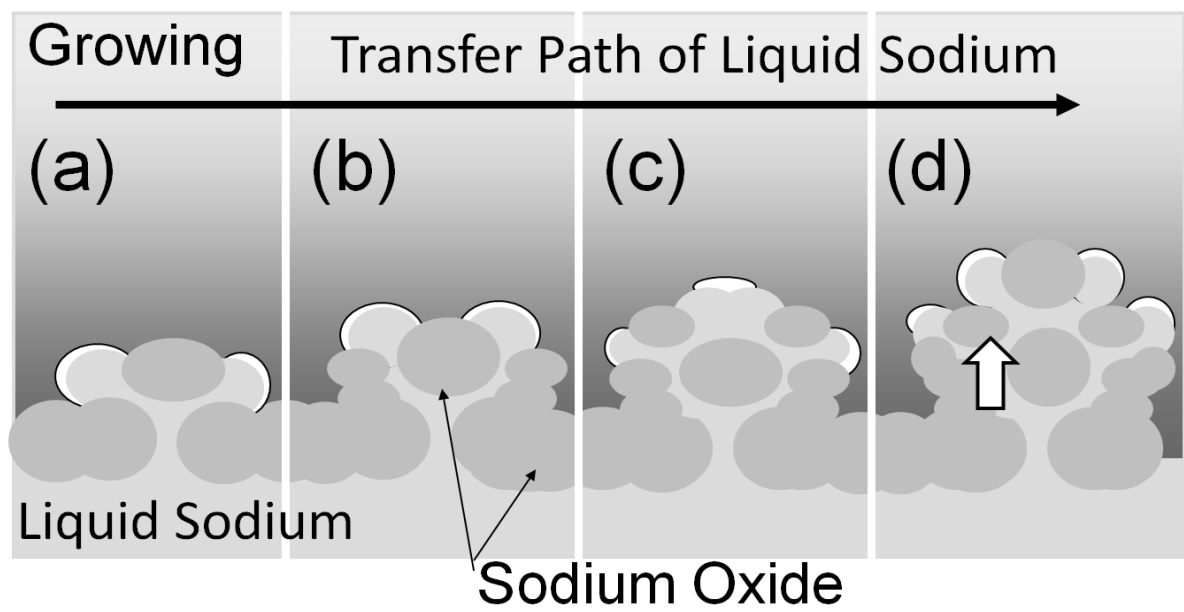


図 5-4 樹枝状酸化物の成長模式図

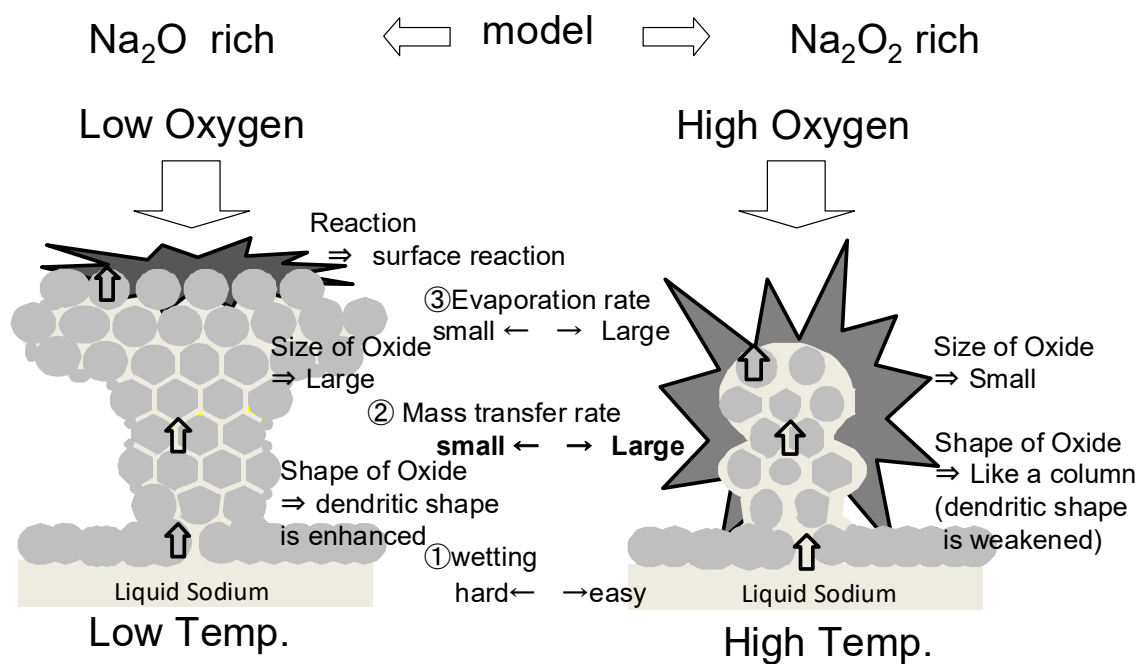


図 5-5 樹枝状酸化物の先端での反応機構模式図

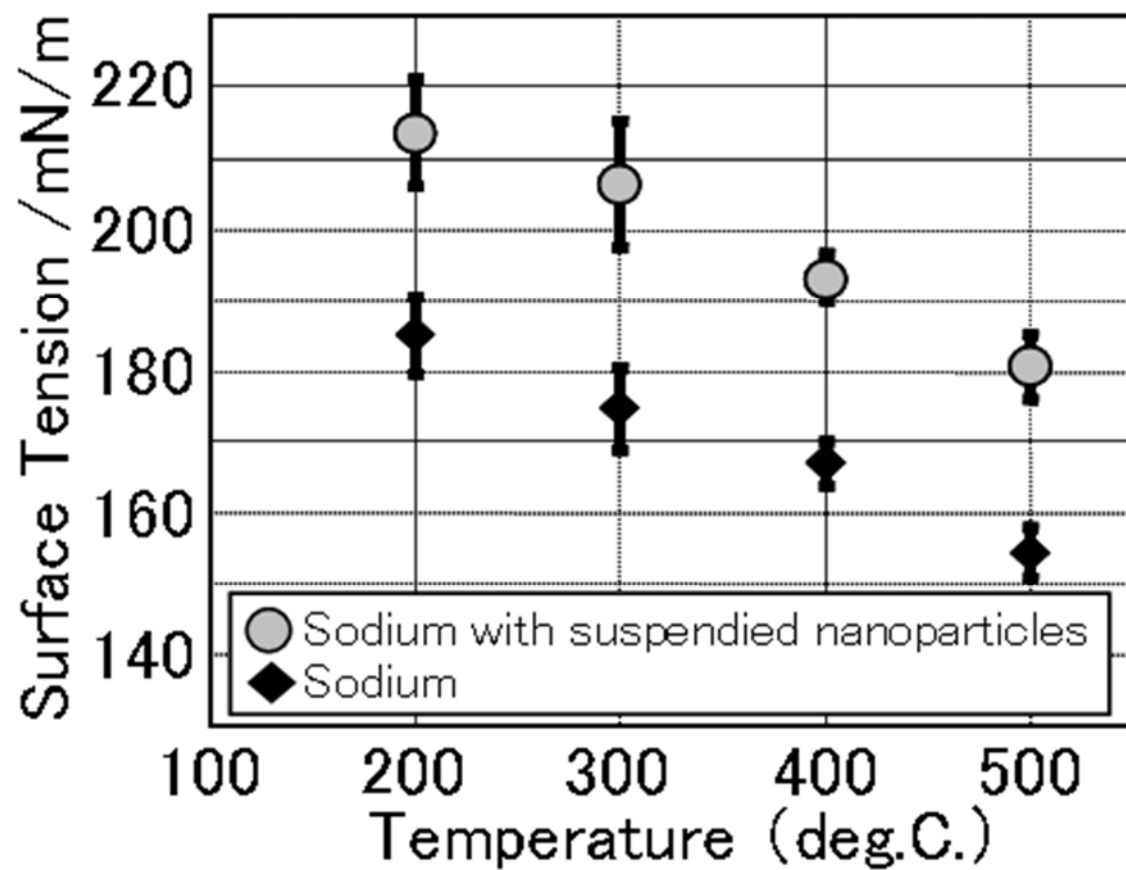


図 5・6 ナノ粒子分散ナトリウムの表面張力 ⁽⁴⁾

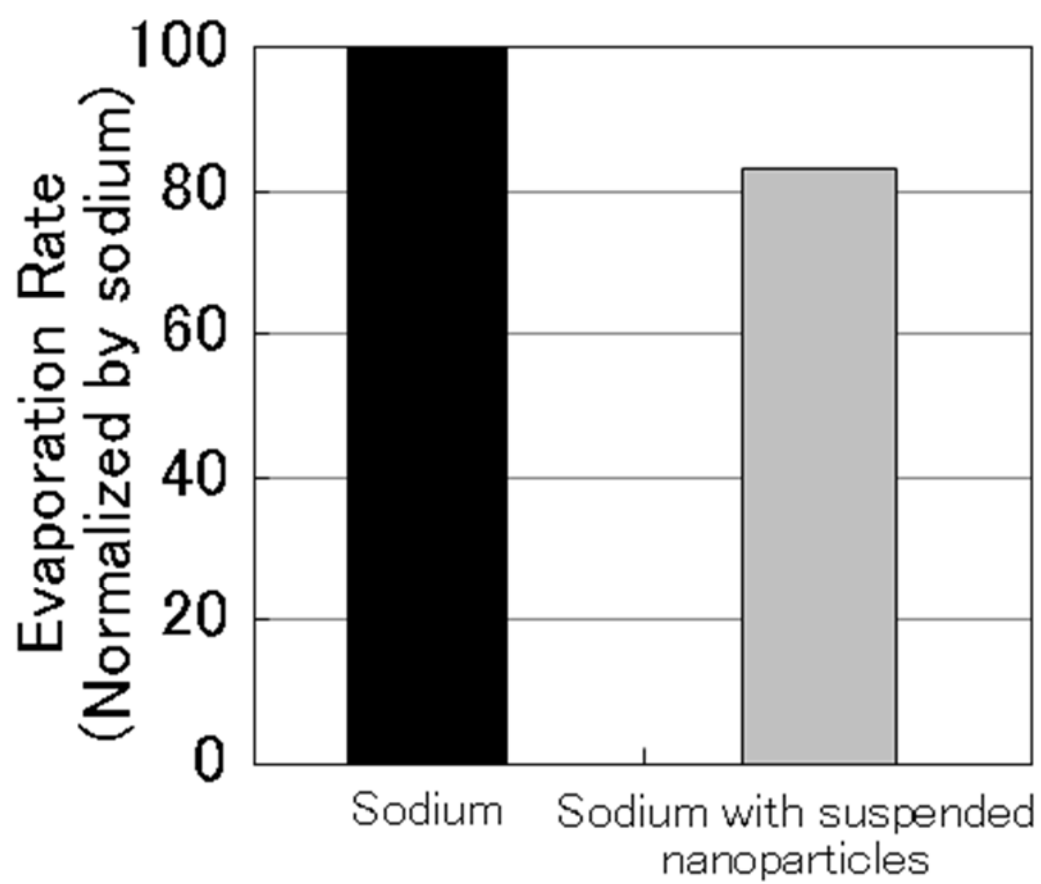


図 5-7 ナノ粒子分散ナトリウムの蒸発速度⁽⁴⁾

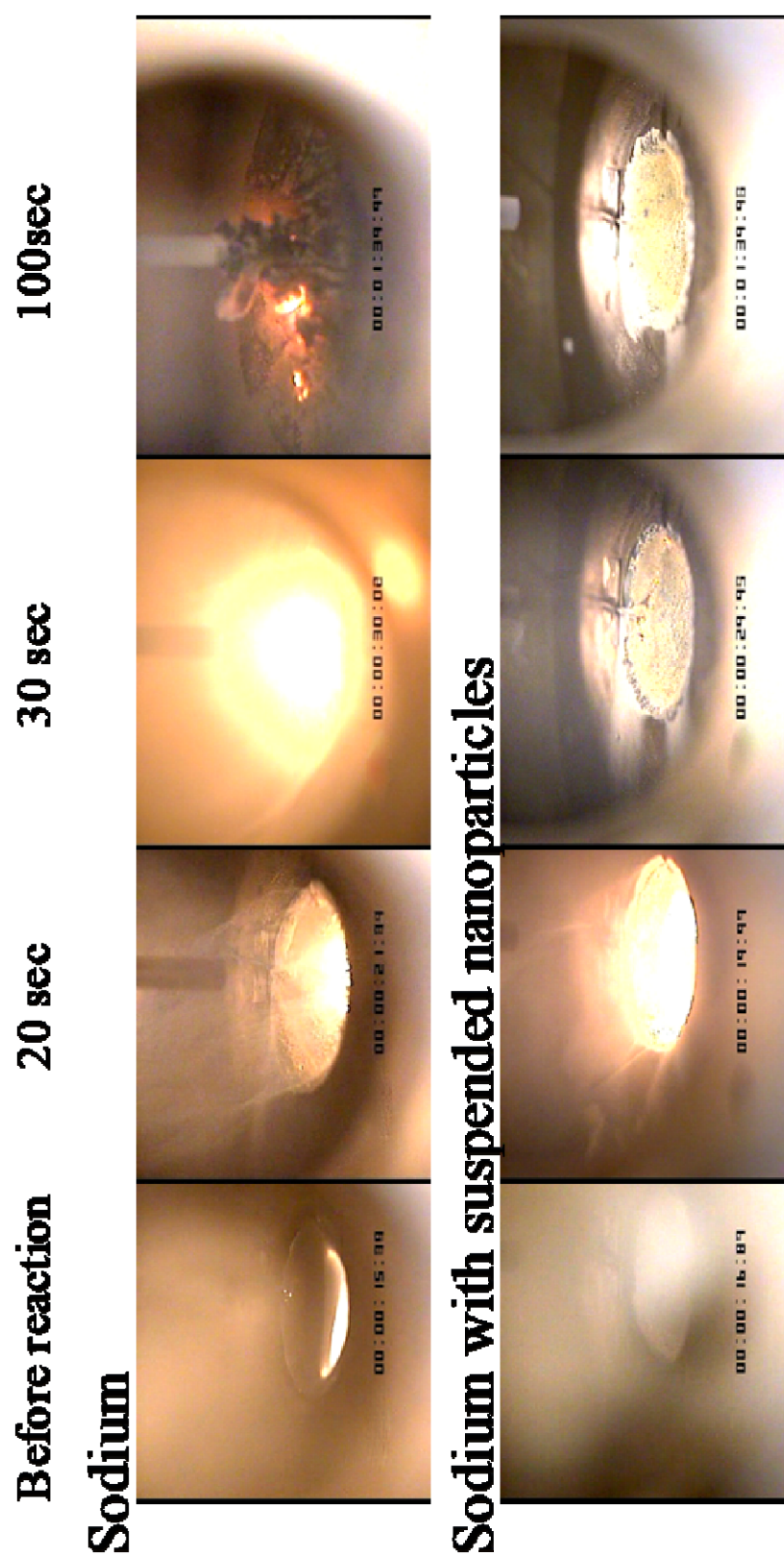


図 5- 8 ナトリウムおよびナノ粒子分散ナトリウムの反応生成物成長挙動 ⁽⁵⁾

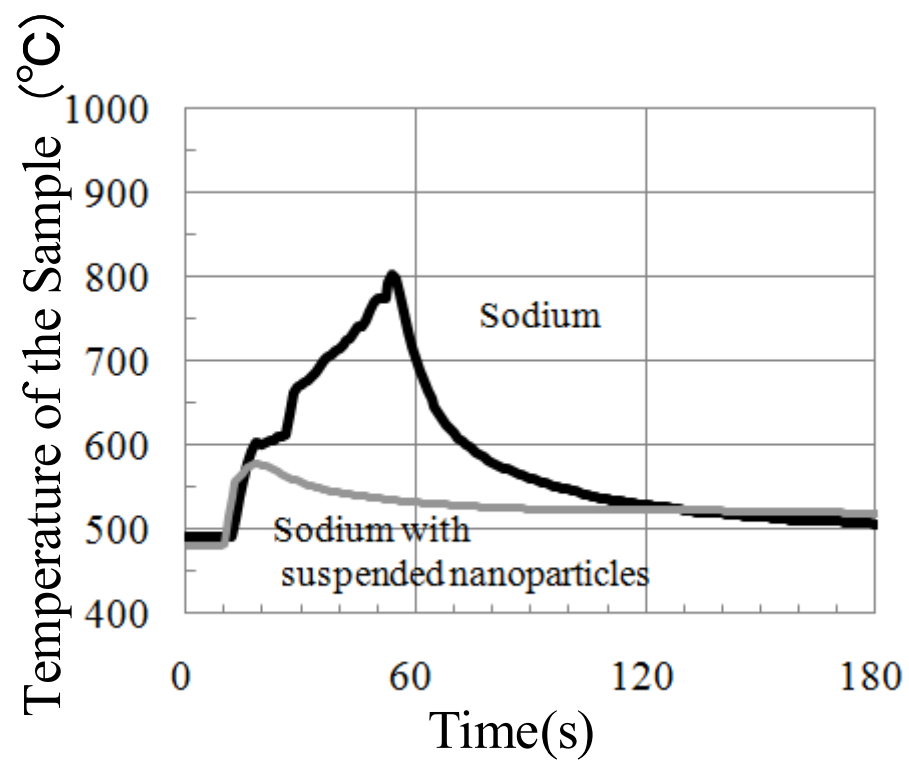


図 5-9 ナトリウムおよびナノ粒子分散ナトリウム燃焼プールの温度変化 ⁽⁵⁾

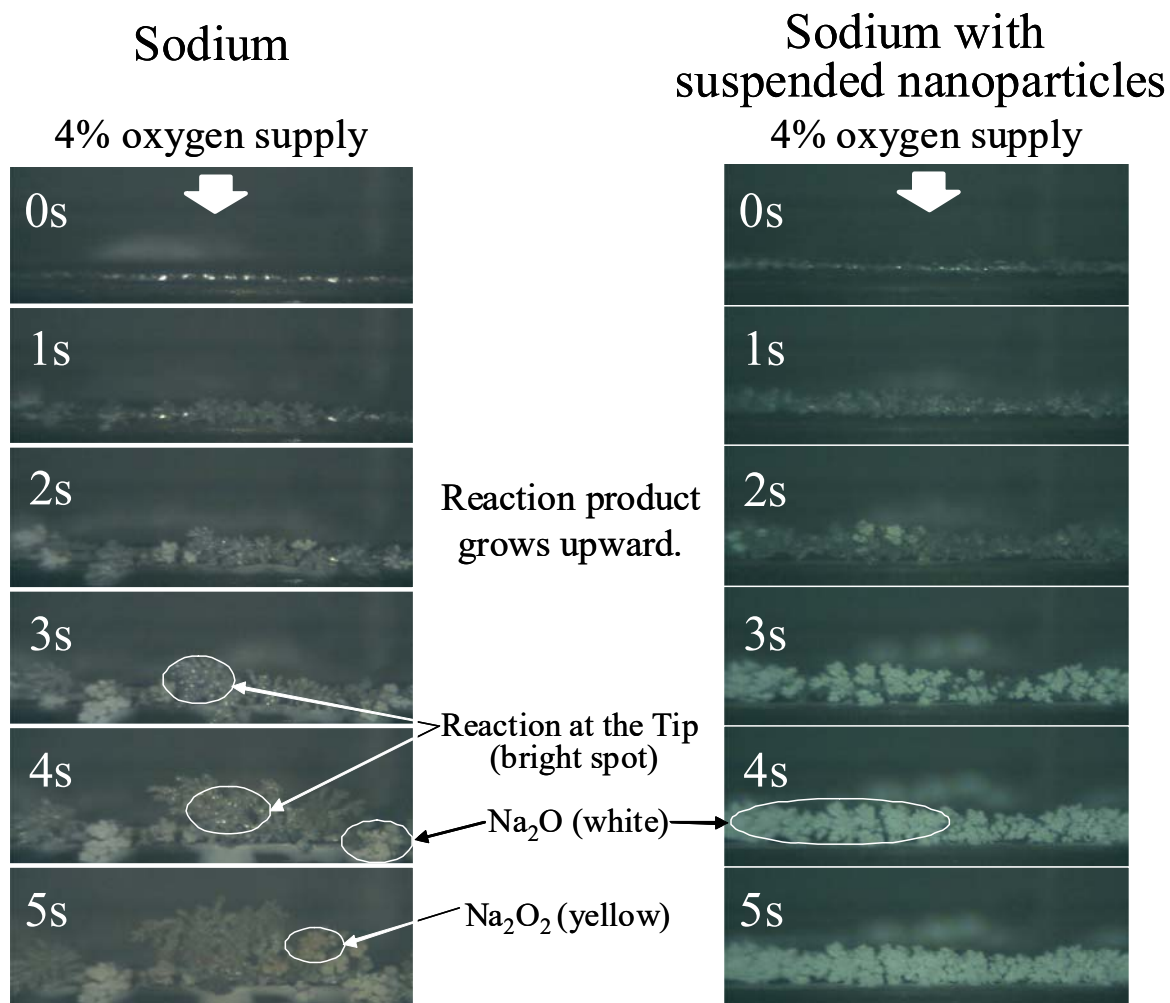


図 5-10 ナノ粒子分散ナトリウムの樹枝状酸化物成長挙動⁽⁵⁾

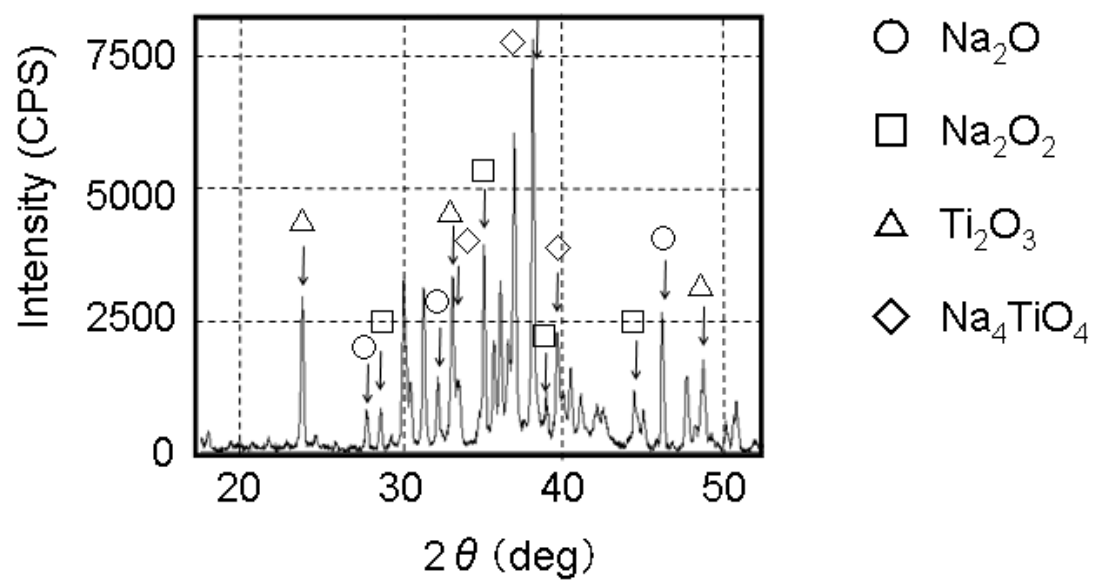


図 5- 11 ナノ粒子分散ナトリウム燃焼残渣の X 線回折結果

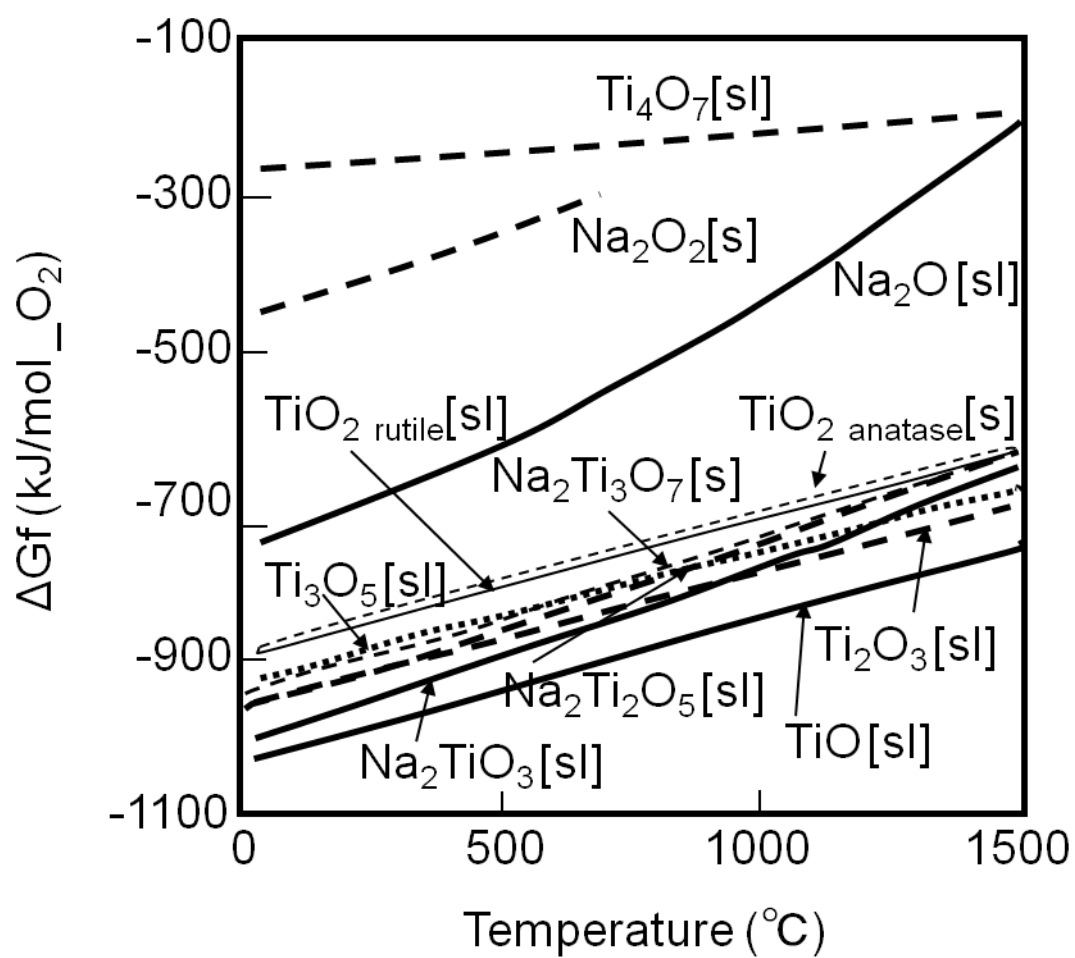


図 5-12 ナトリウム化合物の化学的安定性

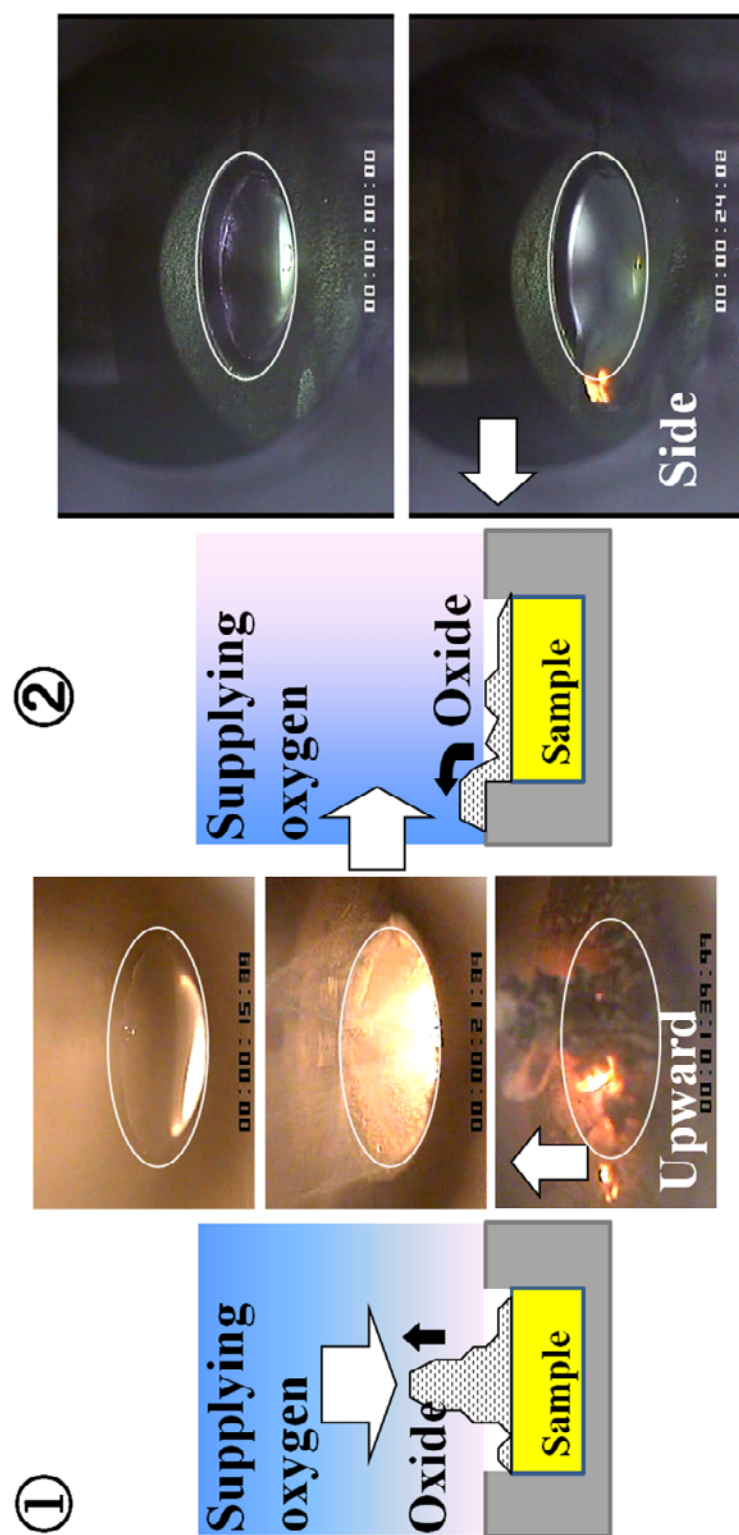


図 5-13 ナトリウム反応生成物の成長方向 ⁽⁵⁾

5 章の参考文献

- (1) M. Nishimura, K. Nagai, T. Onojima, J. Saito, K. Ara, K. Sugiyama “The sodium oxidation reaction and suppression effect of sodium with suspended nanoparticles,” Journal of Nuclear Science and Technology, 49, pp.71-77, (2012)
- (2) R. L. Eichelberger, “The Solubility of Oxygen in Liquid Sodium: A recommended expression,” AI-AEC-12685 (1968).
- (3) J. Saito, and K. Ara, “A Study of atomic interaction between suspended nanoparticles and sodium atoms in liquid sodium,” Nucl. Eng. Des. 240 2664-2673, (2010).
- (4) K. Ara, K.Sugiyama, H. Kitagawa, M. Nagai, et al., “Study on Chemical Reactivity Control of Sodium by Suspended Nanoparticles I,” Journal of Nuclear Science and Technology 47, 1165-1170 (2010).
- (5) K. Ara, K.Sugiyama, H. Kitagawa, M. Nagai, et al., “Study on Chemical Reactivity Control of Sodium by Suspended Nanoparticles II,” Journal of Nuclear Science and Technology 47, 1171-1181 (2010).
- (6) 日本原子力研究開発機構, “ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上技術の開発“ 平成 26 年度 成果報告書
- (7) 日本原子力研究開発機構, “ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上技術の開発“ 平成 28 年度 成果報告書

- (8) 高橋和雄, 床井博見, “液体窒素噴霧による燃焼ナトリウムの消化実験,”日本原子力学会和文論文誌, vol.2, No.1 pp.76-80, (2003)
- (9) 松村篤, 吉岡直樹, 荒邦章, 斉藤淳一, 永井桂一, “ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上に関する研究 (14)ナノ粒子分散ナトリウムの適用性評価,” 日本原子力学会春の年会, 2N12, (2016)
- (10)日本原子力研究開発機構, “ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上技術の開発“ 平成 28 年度 成果報告書

6. 結言

6. 結言

6.1 ナトリウムの小規模漏えい時のプール拡がり挙動と燃焼挙動

3 章では従来実施されてきたナトリウム燃焼に関する実験研究を調査し、これまで着目されていなかった小規模 (10kg/h 程度) のナトリウム漏えい率において床ライナの限定した範囲でナトリウムが燃焼する条件におけるライナの最高温度とこれに影響を及ぼす燃焼速度、ナトリウムプール拡がり挙動についての知見をまとめた。床面にナトリウムプールを形成する挙動および深層防護の観点から重要な燃焼プールがプール下の床ライナへ与える熱的な影響の把握を行った。この研究では、これまでに FBR プラントレベルとしては、これまでに研究されておらず実験的な知見が全くなかった小規模ナトリウム漏えいの知見の想定に対して、ナトリウム燃焼プールに関する拡がり挙動、床ライナへの熱的影響に関する知見を取得した。

これらの実験的知見は、ナトリウムプールが限定された範囲で燃焼するようなナトリウムプール燃焼挙動の評価に必要な燃焼解析コードに必要な多次元的な検証用データを提供するものである。従来、ナトリウム燃焼解析コードは、瞬時に床一面に拡がり、燃焼すると仮定した評価がなされており、「もんじゅ」のナトリウム漏えい事故のように、部屋の一部にナトリウムプールが拡がりながら燃焼するような挙動を評価することができなかった。本実験によっ

て、漏えい率から拡がり挙動、プール面積を見積もることが可能となったことから、それまで想定していなかったあらたな燃焼形態についての解析評価モデルの構築、コード開発が可能となった。

ナトリウムプールが限定された範囲で燃焼する場合のライナの径方向の放熱の効果を定量化したり、プールが拡がっていく期間のナトリウム燃焼量においてプール拡がり面積の時間変化を評価に取り入れたりすることのできる多次元的な解析評価モデルを導入することにより従来の評価では過度の保守性を持った評価しかできなかった小規模漏えい時のナトリウムプール燃焼評価に対して精度の高い評価が可能となり、プラントで考えられるすべての漏えい率における評価が可能となった。

また、ナトリウム燃焼プールの成長挙動では、反応生成物がプール表面においてポーラス状であるか否かに影響を受けており、反応生成物の介在が反応に重要な影響を与えていることを明らかにした。

6.2 ナトリウム燃焼における反応継続機構および着火遅れ

4章ではナトリウム燃焼の最も単純な体系での要素試験として、反応界面の観察に適した単一液滴の燃焼挙動観察を実施した。まず、液滴燃焼において酸素の供給を一時停止して反応を途中で停止させ、再度酸素を供給することによって

再着火する挙動を観察した。界面に形成されるナトリウム反応生成物の先端にナトリウムの金属光沢が観察され再着火反応の起点となる様子が確認されたことから、反応生成物中にナトリウムを反応界面まで供給する機構があることを明らかにした。これは、3章でマクロ的に観察されたポーラスな性状を構成する一要素と考えられる。

また、ナトリウム初期温度や酸素濃度をパラメータとしてナトリウム液滴燃焼の反応開始直後から液滴の内部温度と反応界面での酸化挙動の同時測定を実施し、表面酸化から気相反応への移行におけるナトリウムの特徴的な樹枝状酸化物の生成挙動の把握、気相反応での定常状態にいたるまでの液滴温度上昇挙動の貴重なデータ取得に成功した。

高速炉の安全評価においては、冷却材バウンダリから漏えいしたナトリウムの燃焼形態として、スプレー燃焼とプール燃焼が想定されている。スプレー燃焼は、配管などの冷却材バウンダリ破損部から床までの間にナトリウム液敵群が落下しながら燃焼する現象であるが、本研究の中で実施された単一液滴での燃焼は、燃焼コードでスプレー燃焼を機構論的に扱う上で、最も基本となる燃焼と考えることができる。

スプレー燃焼において、液滴表面近傍における反応は、ナトリウムが蒸発・燃焼する以前の着火前過程と着火後過程に分けられるが、液滴の着火前反応過

程の理解が不十分であることから、わが国で安全評価に使用している解析コードにおいて液滴は生成後に直ちに着火するモデルとなっており、着火前過程が無視されている。このことは、漏えいしたナトリウムのスプレー燃焼による反応量を過大に評価していることを意味していた。

冷却材バウンダリから漏えいしたナトリウム火災の事故のシーケンスを考慮すると、スプレー燃焼で燃焼しなかったナトリウムが、床面に堆積してプール燃焼となる。スプレー燃焼は、ナトリウムの空気雰囲気に対する比表面積が大きくなることから、プール燃焼に比較して燃焼挙動が激しくなる傾向にある。そのため、スプレー燃焼を過大に評価することは、雰囲気温度の上昇、建屋内の圧力増加、湿分の放出、水素の発生などの観点から、実際よりも厳しい評価を実施することになる。

本研究において実施した単一液滴の酸化反応過程を酸素濃度や初期温度をパラメータとして内部温度との対応で詳細観察した結果は、スプレー燃焼の素過程として着火前過程の理解に貢献することができる。液滴が酸素と出会ってから着火するまでの時間（着火遅れ時間）に関する知見を取得し、今後のスプレー燃焼の機構論的評価において、保守的に想定されていた液滴の着火モデルに反映し、現象論的評価が可能となった。

6.3 ナトリウムの燃焼反応抑制（消火）機構

反応生成物中のナトリウムを反応界面まで供給する機構について、先端の反応生成物の成長にクローズアップした要素試験を実施した。反応界面に生成する反応生成物を詳細に観察し実際のプラント環境で変化する可能性のあるパラメータの酸素濃度や温度に対しての影響を確認した結果から、ナトリウム燃焼が反応継続する基本的な 3 つの要因「未反応のナトリウムの界面形成」、「樹枝状酸化物の先端での反応機構」、「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」からなるモデル化を行った。

特にナトリウムの燃焼反応に特有な「ナトリウムが反応の界面まで移行する経路が樹枝状酸化物中に確保される機構」に着目し、酸素との安定化合物を形成する Ti ナノ粒子をナトリウムに分散させたナノ粒子分散ナトリウムの反応生成物の観察実験結果を参照して、樹枝状酸化物内においてナトリウム供給経路が阻害され、特に大きな反応抑制効果が発現することを確認した。

従来ナトリウム燃焼の消火に関しては、従来は表面を消火剤で覆って蒸発するナトリウムの供給を遮断する方法や、窒素を注入して酸素濃度を薄くして反応を停止させる方法などが対策設備として準備されている。本研究の成果として、酸素との安定化合物をつくる金属ナノ粒子をナトリウム中に分散させることによって、従来とは全く異なる概念で、燃焼反応を停止し消火することができるこ

とをナトリウム分散ナトリウムのプール燃焼実験結果から確認した。燃焼生成物残渣中には未燃焼のナトリウムが残っているながら酸素が供給されても、燃焼反応が停止している。安定化合物でナトリウムの供給経路が遮断されているため再着火の懸念が低減され、事故後の処理の安全性が向上する。

2005 年から荒、斉藤らによって提案、実施されている「ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上技術の開発」の中では、本研究における実験結果をもとに反応界面が時間とともに低下する機構をモデル化した評価手法を用いて、反応抑制効果の評価が実施され、プラントの安全性が向上することが評価されている。

もんじゅナトリウム漏えい事故では、その事故の影響は軽微レベルであり国際事象評価尺度ではレベル 1 と判定されるような事象であったが、社会的な影響は大きく、国民の信頼を損ねる結果となった。また、福島第一原子力発電所の事故を受けてシビアアクシデント対策の強化が課題となっている。これらの状況は、事故の基礎的現象論の理解不足に起因している。そこで、ナトリウム燃焼の現象論的理解を深めることを動機として本研究を進め高速炉に特有なナトリウムの燃焼挙動について、要素実験、検証実験を通じてその機構を把握した。その結果、従来の安全評価の保守性を排除した実現象に則した評価が可能

となった。また明らかにした反応継続機構モデルをもとに新しいに新しい反応抑制（消火）の概念を提示し検証を行った。その結果、本研究は、省資源、循環型社会への構築に向けて次世代の有力なエネルギーシステムである液体金属ナトリウム冷却型の高速炉の安全性に関わる評価手法の高度化に大きく貢献した。

謝 辭

謝 辞

本論文は、著者が北海道大学大学院工学研究科博士後期課程社会人特別選抜に在籍した 2006 年 10 月から 2009 年 9 月と、その後 2019 年 2 月にかけて取りまとめました。

本論文を取りまとめるにあたり、北海道大学工学研究院 澤和弘教授より高い視点とご見識から論文の作成、発表のご指導とご助言を賜りましたことに心より感謝申し上げます。また、本論文および発表原稿の作成と審査にあたって貴重なご指導をいただきました北海道大学工学研究院 小崎完教授、森治嗣特任教授、千葉豪准教授に心より感謝申し上げます。

北海道大学名誉教授の杉山憲一郎先生には、博士課程在籍中においては指導教官として、また単位取得後退学した後も長期間にわたって貴重なお時間を割いていただき、熱心にご指導をいただきました。非常にご心配をおかけしたと思います。先生のご厚情に心より感謝申し上げます。

博士後期課程入学にあたり、当時の所属上司である現 福井大学附属国際原子力工学研究所の宮原信哉 特命教授に認めていただきましたが、予定の 3 年で論文をまとめることができず、10 年を超える期間を要してしまいました。あきらめそうになっているところを、時には激励いただきながら本論文をまとめることができました。本論文の 2 章で述べた従来のナトリウム燃焼に関する知見の

レビューおよび 4 章の液滴燃焼の解析評価については、先生との度重なる議論
とご指導をもとに執筆させていただきました。心より感謝申し上げます。

3 章の小規模ナトリウム漏えいにおいては、入社して間もないところを当時の
田辺裕美室長をはじめ、ナトリウム燃焼チームの大野修司博士、川田耕嗣氏、石
川浩康博士、二神敏氏というナトリウム取り扱い経験の豊富なメンバーに恵ま
れ、協力して難しい実験を成功させることができました。実験及び評価の実施に
当たっては東興機械工業（株）の鈴木和右氏、深作和男氏、高橋正義氏、樋田和
彦氏、検査開発（株）の加藤一憲氏（当時 原子力技術（株））および松木卓夫氏
の多大なるご協力をいただきました。ここに感謝申し上げます。

4 章および 5 章の研究では、MEXT 公募研究「ナノ粒子分散ナトリウムによる
ナトリウムの化学的活性度抑制に関する研究」の中で関係各位のご理解とご協
力をいただき実施させていただきました。研究代表として牽引いただきました
日本原子力研究開発機構の現上席嘱託であり東北大学の客員教授である荒邦章
博士には、本研究の根幹であるナトリウムの反応機構についてご議論、ご指導い
ただき、考察を深めることができました。また、公募研究を共に実施し、議論い
ただきました日本原子力研究開発機構の斉藤淳一博士、永井桂一氏、小野島貴光
氏、並びに実験の準備、実施、データ処理にご協力をいただきました東興機械工
業（株）の郡司仁氏、小泉公亮氏（現 有限会社 大内製作所）、真家光良氏、伊

藤清勝氏、(株)NESIの大和田康雄氏（現 退職）、関谷直樹氏の皆様に感謝申し上げます。

また、論文をまとめる期間中に所属の異動がありましたが、直属の上司であった日本原子力研究開発機構の上出英樹博士（現 副部門長）、深野義隆博士（GL）、栗原成計博士（GL）、現上司の清野裕 GL には、ご理解をいただき研究の後押しをいただきました。また、原子力システム安全工学研究室の卒業生である小野綾子博士には、学位取得にむけて親身に相談にのっていただきました。皆様に心より感謝申し上げます。

おわりに、これまで絶えず暖かい応援と協力をいただき、支えていただきました両親、家族へ心から感謝いたします。ありがとうございました。

付録 1

改良 NACOM コードのソースファイル

付録1 改良 NACOM コードのソースファイル

```
PROGRAM DROP

!
! DROP IS A COMPUTER PROGRAM WHICH SIMULATES THE FALLING
AND BURNING
! OF SINGLE SODIUM DROPLET
!

  DIMENSION T(600),Z(600),VF(600)
  DIMENSION RE(600),QC(600),QG(600),TSS(600)
  DIMENSION BRF(600),QIN(600),EC(600),QVAP(600)
  DIMENSION QOUT(600),QNSUS(600),QNNA(600),QNOZZL(600)
  DIMENSION DD(600),DM(600),TS(600)
  REAL NA2O2
  REAL MOLO,MOLG,MUG
  DATA R/82.054/,HFG/925.6/

!
!-----
  OPEN(UNIT=6,FILE='DROPLET3_Result.txt',STATUS='NEW')
!-----
!

  H=270.
  VOL=2.95D5
  D=0.5
  TSI=300.
  PI=1.
  TGI=299.
  TG=299.+273.
  TB=1154.
  TTR=401.+273
  YOC=0.04
  X=2.
  NA2O2=1.0

!

  P=PI
  DT=0.01*X
```

```

S=1.3478*NA2O2/(1.6957-0.3479*NA2O2)
HC=(1.-S)*2194.5+S*2500.
AI=S/1.4375+(1.-S)/2.875
!***MIY
SIGMA=2.387D-13
F1=0.1
F2=0.65
TBOX=31.+273.
RAMSUS=0.0525
ANOZZL=3.14159*(0.1**2-0.025**2)
ANOZNA=3.14159*0.025**2
!***MIY
VF(1)=1.D-8
T(1)=0.
Z(1)=0.
!***MIY.FRM
CPNA2O=0.
CPNA2O2=0.
!***MIY.TO
NN=0
!
DD(1)=D
TS(1)=TSI+273.
TSS(1)=TSI
TF=TS(1)
RHOL=0.949-2.23D-4*TSS(1)-1.75D-8*TSS(1)**2
A=3.14159/6.*RHOL
!
DO 10 J=1,599
T(J+1)=T(J)+DT
VF(J)=45.
!
! COMPUTE THE FALLING VELOCITIES BY INTEGRATING THE EQUATION
OF
! MOTION FOR THE DROPLET
!

```

```

MOLG=P*VOL/(R*TG)
MOLO=MOLG*YOC
GM=(MOLG-MOLO)*28.016+MOLO*32.
YO=MOLO*32./GM
RHOG=GM/VOL
TA=(TG+TF)/2.
CPG=0.2316+4.61D-5*TA
AKG=1.05D-6*TA**0.71852
MUG=4.2D-6*TA**0.66
PR=CPG*MUG/AKG
A2=PR**0.3333
DP=1.849D-5*TA**1.645/P
CDP=2.25D-7*TA**0.645
SC=MUG/(RHOG*DP)
!***MIY.FRM
TSR=TS(J)*1.8
HFG=(2011.4-0.2129*TSR)/1.8
!***MIY.TO
B=HC*YO/HFG/AI+CPG*(TG-TF)/HFG
!
RP=3.*RHOG/(4.*RHOL*DD(J))
DRM=DD(J)*RHOG/MUG
EC(J)=0.
!
! RUNGE-KUTTA METHOD TO SOLVE THE EQUATION OF MOTION FOR
DROPLET VELOCITY.
!
! IF(NN.EQ.1) GO TO 200
! VF(J+1)=980.*T(J+1)
! Z(J+1)=490.*T(J+1)**2
! REV=VF(J+1)*DRM
! DRAG=RP*VF(J+1)**2*CD(REV)
! IF(DRAG.LT.1.) GO TO 110
! NN=1
! 200 X=VF(J)
! REV=X*DRM

```

```

!      DRAG=RP*X**2*CD(REV)
!      P1=(980.-DRAG)*DT
!      X=VF(J)+P1/2.
!      REV=X*DRM
!      P2=(980.-RP*X**2*CD(REV))*DT
!      X=VF(J)+P2/2.
!      REV=X*DRM
!      P3=(980.-RP*X**2*CD(REV))*DT
!      X=VF(J)+P3
!      REV=X*DRM
!      P4=(980.-RP*X**2*CD(REV))*DT
!      VF(J+1)=VF(J)+(P1+2.*P2+2.*P3+P4)/6.
!      Z(J+1)=Z(J)+VF(J)*DT
! 110 CONTINUE
!
!   CALCULATE THE BURNING RATE OF SODIUM DROPLET AND HEAT
RELEASED
!   BY DROPLET COMBUSTION
!
      DM(J)=A*DD(J)**3
      IF(DD(J).LT.1.D-10) GO TO 20
      RE(J)=VF(J)*DD(J)*RHOG/MUG
      A1=SQRT(RE(J))
      DMT=DM(J)/DT
      IF(TS(J).GE.TTR) GO TO 601
      BRF(J)=CDP*YOC*3.14159*DD(J)*(2.+0.6*A1*SC**0.3333)*32./AI
      IF(BRF(J).GT.DMT) BRF(J)=DMT
      QC(J)=HC*BRF(J)
!***MIY.FRM
!      QG(J)=3.14159*AKG*DD(J)*(TS(J)-TG)*(2.+0.6*A1*A2)
      QG(J)=3.14159*(AKG*DD(J)*(TS(J)-
TG)*(2.+0.6*A1*A2)+F1*SIGMA*DD(J)**2.0*(TS(J)**4.0-TBOX**4.0))
      QNSUS(J)=RAMSUS*ANOZZL*(TS(J)-TS(1))/0.5
      RAMNA=0.2166-1.16D-4*(TS(J)-273.)
      QNNA(J)=RAMNA*ANOZNA*(TS(J)-TS(1))/0.5
      QNOZZL(J)=QNSUS(J)+QNNA(J)

```

```

      QIN(J)=QC(J)-QG(J)-QNOZZL(J)
      GO TO 602
601 BR=2.*3.14159*DD(J)*AKG/CPG*ALOG(1.+B)
      IF(BR.LT.1.D-10) BR=0.
      BRF(J)=BR*(1.+0.276*A1*A2)
      EC(J)=8.*AKG/(CPG*RHOL)*ALOG(1.+B)*(1.+0.276*A1*A2)
      IF(BRF(J).GT.DMT) BRF(J)=DMT
!***MIY.FRM
      IF(TS(J).GE.TB) TS(J)=TB
      TSR=TS(J)*1.8
      TF=1573.
      CPNA2O=(1.06836D3+0.7077/TF**2-2.2729D-4*TF**2)*0.23868/1.0D3
      IF(TF.GT.1405.) CPNA2O=0.4458
      CPNA2O2=(948.96+0.7267*TF)*0.23868/1.0D3
      IF(TF.GT.785.) CPNA2O2=0.3477
      QVAP(J)=HFG*BRF(J)
      QOUT(J)=BRF(J)*(CPNA2O*(1.-S)+CPNA2O2*S)
!      QIN(J)=HFG*BRF(J)
      QC(J)=HC*BRF(J)
!      QG(J)=QC(J)-QIN(J)
      QG(J)=3.14159*(AKG*DD(J)*(TF-
TG)*(2.+0.6*A1*A2)+F2*SIGMA*DD(J)**2.0*(TF**4.0-TBOX**4.0))
      QNSUS(J)=RAMSUS*ANOZZL*(TS(J)-TS(1))/0.5
      RAMNA=0.2166-1.16D-4*(TS(J)-273.)
      QNNA(J)=RAMNA*ANOZNA*(TS(J)-TS(1))/0.5
      QNOZZL(J)=QNSUS(J)+QNNA(J)
      QIN(J)=QC(J)-QG(J)-QOUT(J)-QVAP(J)-QNOZZL(J)
!      IF(TS(J).GE.TB) TS(J)=TB
!***MIY.TO
      602 TSS(J)=TS(J)-273.
      20 CONTINUE
!
! COMPUTE DROP SIZE AND TEMPERATURE AT NEXT TIME STEP
!
      IF(DD(J).LT.1.D-10) GO TO 120
      IF(TS(J).GE.TB) GO TO 604

```

```

      CPL=0.34324-1.3868D-4*(TS(J)-273.)+1.1044D-7*(TS(J)-273.)**2
!***MIY.FRM
      CPNA2O=(1.06836D3+0.7077/TS(J)**2-2.2729D-
4*TS(J)**2)*0.23868/1.0D3
      IF(TS(J).GT.1405.) CPNA2O=0.4458
      DDM=BRF(J)*DT
      DMD=DM(J)-DDM
      IF(DMD.LT.1.0D-10) GO TO 120
!      B1=QIN(J)/(DM(J)*CPL)
      B1=QIN(J)/(DMD*CPL+DDM*CPNA2O)
      IF(TS(J).GE.TTR) B1=QIN(J)/(DM(J)*CPL)
!***MIY.TO
      TS(J+1)=TS(J)+B1*DT
      IF(TS(J+1).GT.TB) TS(J+1)=TB
      TSS(J+1)=TS(J+1)-273.
      TF=TS(J+1)
      GO TO 603
604 TS(J+1)=TS(J)
      TSS(J+1)=TS(J+1)-273.
      TF=1573.
!***MIY.FRM
! 603 DDM=BRF(J)*DT
      DDM=BRF(J)*DT
      DMD=DM(J)-DDM
      IF(DMD.LT.1.D-10) GO TO 120
603 CONTINUE
!***MIY.TO
      RHOL=0.949-2.23D-4*TSS(J+1)-1.75D-8*TSS(J+1)**2
      A=3.14159/6.*RHOL
      DD(J+1)=(DMD/A)**0.3333
      GO TO 130
120 DD(J+1)=0.
      TS(J+1)=273.
      TSS(J+1)=TS(J+1)-273.
130 CONTINUE
!
```

```

        IF(Z(J+1).GE.H) GO TO 90
10 CONTINUE
90 CONTINUE
        WRITE(6,50) D,TSL,PI,TGI,YOC,NA2O2
        WRITE(6,60)
DO 80 K=1,J
!***MIY.FRM
        WRITE(6,70)
T(K),DD(K),TSS(K),DM(K),BRF(K),QC(K),QVAP(K),QG(K),QOUT(K),QNSUS(K),
QNNA(K),QNOZZL(K)
!***MIY.TO
        80 CONTINUE
50
FORMAT(/1X,"DI=",D10.4,2X,"TSI=",D10.4,2X,"PI=",D10.4,2X,"TGI=",D10.4,2X,"
YOC=",D10.4,2X,"NA2O2=",D10.4/)
!***MIY.FRM
        60                                FORMAT(1X,"T(SEC)",6X,"DD(CM)",6X,"TS(DEG-
C)",3X,"DM(G)",7X,"DR(G/S)",5X,"QC(CAL/S)",3X,"QVAP(CAL/S)",1X,"QG(CAL/
S)",3X,"QOUT(CAL/S)",1X,"QNSUS(CAL/S)","QNNA(CAL/S)",1X,"QNOZZL(CAL
/S)")
!***MIY.TO
        70 FORMAT(D11.4,11(1X,D11.4))
!...
!-----
        CLOSE(UNIT=6)
!-----
!...
        STOP
        END
!      FUNCTION CD(REV)
!
!      STANDARD DRAG COEFFICIENT CORRELATIONS.
!
!
!      IF(REV.LT.0.1) CD=24./REV
!      IF(REV.GE.0.1.AND.REV.LT.6.) CD=2.6+23.71/REV

```

```
!      IF(REV.GE.6..AND.REV.LT.500.) CD=18.5/REV**0.6
!      IF(REV.GE.500.) CD=4./9.
!      RETURN
!      END
```