資料 3-3

ナトリウム漏えい対策に関する研究開発

1.ナトリウム漏えいの影響評価手法の高度化のための研究開発

2. ナトリウム漏えい対策設備の設計検討のための研究開発

平成13年11月28日

核燃料サイクル開発機構

ナトリウム漏えい対策に関する研究開発

もんじゅでは2次系ナトリウム漏えい事故及びその後の原因究明の過程で明 らかとなった知見等を基に、ナトリウム漏えい対策設備の改善方策を検討し、 現在その妥当性について国の安全審査を受けているところである。これらの改 善方策をまとめるに当たっては、種々の研究開発あるいは実験により妥当性を 確認しつつ進めてきた。

ナトリウム漏えい対策に関するこれらの研究開発は、ナトリウム漏えいの影響評価手法の高度化を目指して、大洗工学センターで実施してきた基礎試験及び解析手法の開発と、もんじゅ建設所で実施してきたナトリウム漏えい対策設備の改善のための研究開発の2つに大別できる。これら基礎試験や解析結果は、 ナトリウム漏えい対策の設備設計に反映する一方、設備設計の結果は設備改善の効果や妥当性の評価解析に反映されるなど相互に関連性を持ちながら作業が 進められている。ここではこれらの研究開発の具体例に触れながらその取組み についてまとめた。

1.ナトリウム漏えいの影響評価手法の高度化のための研究開発

(大洗工学センタ-)

大洗工学センタ - では、図 1-1 に示すように、従来の取組みが十分でなかっ た小規模漏えい域でのナトリウム燃焼挙動をより詳細に把握できるようにす るとともに、事故後の原因究明過程で明らかになったナトリウム漏えい環境 下での鋼材の腐食現象を考慮した床ライナの健全性評価など、ナトリウム漏 えい燃焼環境下での熱的・化学的影響を把握するため以下のような課題に取 り組んでいる。

- 1.ナトリウム燃焼実験 (ナトリウム小規模プール燃焼実験 など)
- 2.ナトリウム燃焼解析コードの開発 (ASSCOPS コードの改造 など)
- 3.ナトリウム漏えい環境下での腐食に関する研究

(腐食速度測定実験 など)

4.床ライナの機械的健全性評価(床ライナ部分構造模擬実験 など)

本資料では、上記のうち、ナトリウム漏えい環境下での床ライナなどの鋼材 腐食の問題を取り上げ、これに対する取り組みについて報告する。本件につ いてのこれまでの取り組みの流れを図 1-2 に示した。

図に示すように、床ライナ腐食に関しては、ナトリウム漏えい環境下での床 ライナ腐食に関する知見を充実させるとともに、ASSCOPS(添付資料 1参照)などのナトリウム燃焼解析コードを整備することにより、ナトリウム漏えい時の床ライナ温度や、腐食による床ライナ減肉量を適切に評価するための手法を整備してきており、その成果はもんじゅの漏えい対策設備の改善方針にも反映されている。この過程で実施した腐食速度測定実験、ナトリウム小規模プール燃焼実験の概要について以下、説明する。

1.1 腐食速度測定実験

原因究明の過程で明らかとなった、ナトリウム漏えい燃焼環境下で床ライ ナ等の鋼材に影響を及ぼす2種類の腐食機構(NaFe 複合酸化型腐食及び溶 融塩型腐食)のそれぞれについて、鋼材を減肉させる最大速度を測定する実 験を実施した。

図1.1-1にNaFe 複合酸化型腐食機構及び溶融塩型腐食機構の概念を示す。 NaFe 複合酸化型腐食では、床ライナ表面に漏えいしたナトリウムと燃焼生 成物である酸化ナトリウム Na₂O が床ライナ上に共存した極低酸素環境が生 じ、そこで Na₂O と鉄とが反応して複合酸化物を形成する。一方、溶融塩型 腐食では、床ライナ上に燃焼生成物である過酸化ナトリウム Na₂O₂が混入し た、酸化物が水分と反応して生成した水酸化ナトリウム NaOH の溶融プール が形成され、Na₂O₂からの過酸化物イオンにより鉄が電気化学的に腐食する。

図 1.1 - 2 に実験に用いた高温化学反応試験装置の一例を示す。実験では、 試験片を浸漬する溶液の温度をパラメータとし、溶液中に一定時間浸漬後、 試験片の重量減少を測定して減肉速度を求めた。溶液の化学組成は、明らか となった腐食機構に基づいて、基本的に以下のとおりとした。

・NaFe 複合酸化型腐食 : NaOH + Na₂O 溶液 / Na + Na₂O

・溶融塩型腐食 : NaOH + Na₂O₂溶液

なお、その温度での最大の減肉速度が得られるよう、溶液中の腐食に寄与 する化学物質(Na₂O または Na₂O₂)の濃度が実験を通じて十分維持できるよ う考慮した。また、実際に NaFe 複合酸化型腐食が生じる環境は Na + Na₂O で あるが、NaOH + Na₂O 溶融体を用いているのは、NaOH が腐食生成物を溶解す ることから Na + Na₂O 環境における最大の減肉速度が得られるためである。 さらに、溶融体上の雰囲気を空気あるいは不活性雰囲気(アルゴン)とした 場合でも同様の減肉速度が得られることも、別途実験により確認した。

図 1.1 - 3 に実験から得られた各腐食機構の最大減肉速度を示す。いずれの 腐食機構においても温度依存性が確認された。また、溶融塩型腐食による減 肉速度は、NaFe 複合酸化型腐食に比較して5倍程度早いことがわかった。 さらに、試験片の実験後観察により、いずれの腐食機構でも全面腐食である ことが確認できた。以上の結果から、床ライナの健全性評価に当たっては、 溶融塩型腐食の最大減肉速度を用いることにより保守的な評価が可能であることを確認した。

1.2 ナトリウム小規模プール燃焼実験

ナトリウム漏えい環境下での床ライナの腐食に対しては、これまでの研究か ら床ライナの最高温度や高温状態の長時間の持続を抑制することや、雰囲気 中の湿分を抑えることなどが効果的であるとの知見が得られている。

ここで、図1.2-1 に示すように、床ライナの腐食は、ライナ最高温度が高く しかも高温状態が長時間持続する小規模ナトリウム漏えいの場合が最も厳し くなる。そこで解析による評価手法の整備のため、小規模漏えい時における、 高湿分条件での鋼材の腐食状況、床板最高温度に着目したナトリウム燃焼実 験を実施した。

実験は、図 1.2-2 に示すように、内容積 3 m³の円筒型鋼製容器内を換気し た条件下で、約 507 のナトリウムを一定流量で炭素鋼製受け皿に落下、燃焼 させた。受け皿温度は皿の裏面に設置した熱電対により、また、反応生成物 の拡がり挙動は受け皿表面近傍に設置した熱電対の応答と実験後観察により、 それぞれ測定した。受け皿の腐食については、実験後に受け皿の減肉量測定 を実施するとともに、受け皿上堆積物の化学組成分析などを行った。

その結果、受け皿の腐食については、図 1.2-3 に示すように、減肉量測定 値と計算値の比較から、溶融塩型腐食による評価値を下回っており、溶融塩 型腐食を想定した評価を行うことにより、腐食減肉量について保守的な評価 が可能であることがわかった。また腐食減肉量が、計算値を下回った理由に ついては、化学分析の結果から、非常に高い湿分条件下であったにもかかわ らず、腐食速度の比較的遅い NaFe 複合酸化型腐食が支配的であったためと推 測された。

受け皿最高温度については、図 1.2-4 に示すように、ナトリウム漏えい率 が小さくなるに従って放熱効果により低下する傾向を示した。また、燃焼解 析コード ASSCOPS で求めた最高温度(約 800 以上)を下回ることが確認され、 燃焼解析コードにより保守的な床ライナ温度評価が可能であることがわかっ た。本実験の結果(データ)は、ナトリウム燃焼解析コードの開発及び整備 作業に活用している。 2. ナトリウム漏えい対策設備の設計検討のための研究開発

(もんじゅ建設所)

もんじゅでは、図 2-1 に示すように、今回事故において漏えいの原因となっ た 2 次冷却系温度計を改良型温度計に交換もしくは撤去するとともに、事故 の教訓を踏まえ、万一ナトリウム漏えいが発生しても漏えいを早期に終息さ せ、かつ漏えいナトリウムによる影響をより一層抑制することができるよう、 ナトリウム漏えい対策工事を実施する計画である。もんじゅ建設所ではナト リウム漏えい対策設備設計を進める上で必要となる以下のような確認試験を 実施している。

- ・セルモニタの設置(煙感知器の感度確認試験)
- ・ドレン系の改造(実機ドレン時間測定試験 など)
- ・換気空調設備の改造(ダクト、ダンパの耐熱性能確認試験 など)
- ・窒素ガス注入設備の追加及び区画

(窒素ガス注入による燃焼抑制効果確認試験、

窒素ガス混合率確認試験 など)

・監視カメラ設置(カメラ配置検討)

ここでは代表例として、セルモニタと窒素ガス注入設備に関する確認試験を 取り上げて報告する。

2.1 セルモニタ設備設計に関する確認試験

ナトリウム漏えい対策では、2次系配管や機器からの空気雰囲気へのナトリウム漏えいを早期かつ確実に検知するため、各部屋に煙感知器と熱感知器で構成される検知システム(セルモニタ)を設置する計画である。

セルモニタは、ナトリウムが空気中の酸素などと反応して発生する白煙(ナ トリウムエアロゾル)もしくは熱によって、ナトリウム漏えいを検知するも のである。このうち煙感知器の動作原理(概念図)を図 2.1-1 に示した。煙 感知器は図のように煙粒子による散乱光を受光素子によって検知する原理で ある。

煙感知器には一般火災用と同型式の光電式感知器を適用するが、ナトリウム エアロゾルに対する感度についてこれまで知見が無かったため、空気雰囲気 中でナトリウムを燃焼させて発生したナトリウムエアロゾルを用いて、煙感 知器のナトリウムエアロゾルに対する感度を確認する実験を行った。

実験では図 2.1-2 に示すようにナトリウムエアロゾル発生容器でナトリウムを燃焼させ、発生したエアロゾルを空気で種々の濃度に希釈しながら試験 容器に導いて容器内の煙感知器からの出力信号を記録する一方、通過したエアロゾルの一部は流量を計測しながらフィルタで捕集してエアロゾル濃度を 定量した。なお、実験に当たっては雰囲気中の湿分濃度や試験容器形状、サンプリングガス流量の条件を変化させたが、これらの影響は認められなかったため、得られたデータはすべて同等に取扱っている。

煙感知器からは減光率⁽¹⁾で表わされる信号が出力される。これを「ナト リウムエアロゾル濃度」に対して整理すると、図 2.1.-3 が得られる。

本図のデータには実験精度に由来するばらつきが認められるが、これらを考 慮して保守的な関係式を求めると、図中に実線で示すような関係となる。

感知器の警報設定値は、感知範囲内であれば任意に設定することが可能であ るが、鋭敏な設定は誤警報の原因となるので望ましくない。そこで警報設定 値を実機にすでに設置されているものと同じ感度(減光率10%/m)とすること を考えると、同図よりナトリウムエアロゾル濃度が20mg⁽²⁾/m³以上であれ ば余裕をもって検知可能であることがわかる。以上より、煙感知器は濃度が 20mg/m³以上のナトリウムエアロゾルを検知できることがわかった。

(1): 煙濃度の表わし方の一つであり。光の強度が1メートルあたりに減衰する割合。

(²): ナトリウムエアロゾルは実際には酸化物など化合物の形態であるが、ここでいうエアロゾル濃度 (mg/m³)は、エアロゾルに含まれる金属ナトリウム(単体)に換算した濃度を表わす。

2.2 窒素ガス注入設備設計に関する確認試験

2次系ナトリウム漏えい時は、漏えい発生区画に、ナトリウムと反応しない 窒素ガスを注入することにより酸素濃度を低減し、燃焼を抑制する計画であ る。このため窒素ガス注入設備を新たに設置することとしている(図2.2-1)。 本設備の窒素ガス貯蔵量を決定するため、以下の試験を実施した。

(1) 窒素ガス注入によるナトリウム燃焼抑制効果確認試験

ナトリウム燃焼は空気中の酸素との反応であるため、漏えい区画の酸素濃 度を低減すれば燃焼を抑制することが可能であるが、その効果について定量 的に把握し、設計条件を設定するために、ナトリウム燃焼試験を実施した。

ナトリウム燃焼部を中心とした自然対流のガス流れになるような試験装置 形状とした(図2.2-2)。試験結果は以下の通り。

酸素供給量と発熱量の関係

図 2.2-3 に示すように、酸素濃度と酸素モル流量に依存する結果が得られた。実際の燃焼の場合を想定し、ガス流量を自然対流に相当する流量とした場合、酸素濃度 21%時は約 200kW/m²であるが、酸素濃度 5%では約 15kW/m²(放熱量が発熱量を上回るレベル)まで一桁以上低減されるなど、酸素濃度を 5%まで低減することの燃焼抑制効果が定量的に明らかになった。

目視確認

観察窓からの目視により、酸素濃度 5%においては連続的な火炎はなく、燃

焼が抑制されていることが確認された(図2.2-4)。

(2) 窒素ガス混合率確認試験

注入した窒素ガスが区画内の空気とよく混合すれば、有効に窒素ガスが利 用できるが、混合特性が悪い場合はその分を割り増しして窒素ガス注入流量 を設定する必要がある。そこで窒素ガスの設計条件を設定するため、実機を 模擬した試験装置にて窒素ガスの混合割合(混合率(3))を評価するための試 験を実施した。

実機 2 次系エリアの 1/10 モデルを製作し、窒素ガス注入口とともに、各部 屋の隅など 10 箇所に酸素濃度計を設置した(図 2.2-5)。

酸素濃度変化を図 2.2-6 に示す。最も酸素濃度低下が遅い酸素濃度計でも 混合率は 0.9 以上であり、有効に窒素ガスが混合されることが確認された。

以上(1)、(2)の試験結果から、以下の値を基に設計条件を設定した。

・燃焼を抑制するための酸素濃度:5%以下

・注入窒素ガスの混合率 : 0.9

これらを基に必要な窒素ガス注入流量と注入時間を求め、窒素ガス貯蔵量 を以下のように設定した。

 $12,500m^{3}/h(normal) \times 45 分 = 9400 m^{3} (normal)$

⁽³⁾:混合率について:

一般に窒素注入時の酸素濃度の時間変化は以下の式で表される。が混合率である。

 $C(t) = CO \cdot exp(- Qt / V)$

ただし、CO:初期酸素濃度、Q:窒素ガス流量

Ⅴ:窒素注入区画容積、t:注入開始からの時間

=1.0のとき注入した窒素ガスは理想的に混合されることを示しているが、実際の建物内の全ての 場所で =1.0となることは通常期待できないため、期待する酸素濃度低減性能を得るためには現実的 に期待し得る混合率を評価するとともに、その不足分を窒素ガス流量もしくは注入時間で補う必要が ある。



図1-1 ナトリウム漏えい対策に関する研究開発 (大洗工学センター)



図1-2 床ライナ腐食に関する 取り組み

NaFe複合酸化型腐食



漏れたナトリウムとそれが燃焼した時に生成する酸化 ナトリウムが混合状態となり、鉄を溶かす腐食。 この状態では、床ライナ表面がほぼ窒息状態となり、 酸化ナトリウムが床ライナ(鉄)と反応して複合酸化 物を形成する。床ライナ温度が高い場合(700℃以上) では、形成された複合酸化物が溶融するので,腐食が進 行する。

溶融塩型腐食



ナトリウムが漏れだし、燃焼した時に生成する化合物 (過酸化ナトリウムと水酸化ナトリウム)が溶融状態 となり、急速に鉄を溶かす腐食。

この状態では、過酸化ナトリウムNa202から生じる過酸

化物イオンが強力な酸化剤となって床ライナ(鉄)を 腐食させ、かつ腐食生成物は直接溶融体環境に溶け出 し、保護膜の形成も期待できないため、急速に腐食が 進行することになる。

図1.1-1 腐食機構の概念



図1.1-2 腐食速度測定実験









FRAT-1試験装置の概略 ^{材 質:SUS304} 内容積:3m3 実験の視点 床ライナに見たてた受け皿について以下を確認した

- 高湿分条件での受け皿腐食状況確認 (減肉量測定、堆積物化学分析など)
- ・受け皿最高温度確認

人员 人名						
Run No.	F7-1	F7-2	F7-3	F7-4	F8-1	F8-2
漏えいNa温度	度 約507℃					
落下高さ	0.1m			1.5m		
換気流量	3 m³/min	3 m³/min	5 m³/min	3 m ³ /min	5 m³/min	3 m³/min
給気湿分濃度	約0.6 %	1 4~ 1 5 %	2.7~ 2.8 %	2.3~ 2.4 %	2.5~ 2.8%	4 6~ 4 8 %
平均Na漏えい率	約12 kg/h	約12 kg/h	約26 kg/h	約6.8kg/h	約24 kg/h	約15 kg/h
不活性化の時期	燃焼の終了後* 漏えし 終了 勝			漏えい 終了時	燃焼の 終了後*	

宝段冬州 (宝娃店)

* 受け皿裏面で500℃以下を確認後

図1.2-2 ナトリウム小規模プール燃焼実験



腐食に対する湿分の影響及び腐食が進行する時期を確認できる3ケースについて減肉量を測定





燃焼解析コードにより保守的な床ライナ温度の評価が可能 漏えい率が低くなると、熱の放散効果により最高温度が低くなる

図1.2-4 受け皿最高温度



図2-1 ナトリウム漏えい対策に関する研究開発 (もんじゅ)



通常は発光素子の光は受光素子に届かないが、火災時に暗箱(あんばこ)に煙が進入すると、散乱 光の一部が受光部に達するため検知される。

図 2.1-1 煙感知器 (光電アナログ式スポット型感知器)の原理



図2.1-2 試験概要



図 2.1-3 エアロゾル濃度と感知器出力の関係





図 2.2-2 小型ナトリウム燃焼実験装置



図 2.2-3 酸素供給量と発熱量の関係



酸素濃度 21%

ナトリウムは火炎を伴って燃焼

酸素濃度5%

火炎を伴った燃焼は見られない

図 2.2-4 目視確認結果

2 次系 C ループ配管室及び隣接するポンプ室を 1/10 スケールで模擬





図 2.2-5 1/10 スケール混合率実験装置外観



図 2.2-6 酸素濃度低下挙動(1/10 スケールモデル実験)

添付資料

燃焼解析コードASSCOPS

解析モデル(例)および解析結果(例)

<第3回委員会資料より抜粋>

(目次)

<u>項 目</u>	<u>頁 No.</u>	<u>備考</u>
1.解析モデルの概要	添1-1	1
2 .床ライナ最高温度、減肉量評価結果 (蒸発器室/漏えい率パラメータ)	添1-2)	
3 .床ライナ温度、減肉量評価結果 (蒸発器室 / 時間変化)	添1-3	. 7
4.床ライナ最高温度、減肉量評価結果 (各部屋 /まとめ表)	添1-4	_
5.床ライナ温度 (各部屋 / 大漏えい時)	添1-4	

1 第3回委員会資料 資料 No.2-3 より抜粋

2 第3回委員会資料 資料 No.2-4 より抜粋



図1 解析モデルの概要(2次主冷却系配管室の例)

添1-1



図1-2a 床ライナ温度解析の結果

図1-2b 床ライナ減肉量評価の結果



図1-3 解析結果の時間変化(蒸発器室の漏えい率0.3t/hの例)

表1-1 評価結果(漏えい率パラメータ) 表1-2 評価結果(大漏えい時)

漏えい室	床ライナ 最高温度	床ライナ 最大減肉量	漏えい率
2次主冷却系配管室 (A446)	約 860°C	約2.6mm	0.7t/h
蒸発器室 (A438)	約 870°C	約2.6mm	0.3t/h
過熱器室 (A439)	約860°C	約2.6mm	0.4t/h

漏えい室	床ライナ 最高温度		
2次主冷却系配管室 (A446)	約 630°C		
蒸発器室 (A438)	約840°C		
過熱器室 (A439)	約810°C		

床ライナの最高温度 約870℃ 床ライナの最大減肉量 約2.6mm