総 説

〔46〕 高 温 断 熱 の 研 究

越 後 亮 三*, 谷 田 稔**, 下 村 寛 昭**

(1972年 2月17日 受 理)

Thermal Insulation at High Temperature

By Ryozo ECHIGO, Minoru TANIDA and Hiroaki SHIMOMURA

Studies on thermal insulation at high temperature have been widely performed, stimulated by the development of high temperature gas cooled nuclear reactors. These insulators are often exposed not only to high temperatures but at the same time also to high pressures and, hence, have required elucidation of heat transport mechanisms under such conditions for the purpose of evaluating thermal insulation.

In the present study some problems involved in thermal insulation at high temperature and pressure have been reviewed briefly based on the results of recent studies and the related problems are examined to some extent. Firstly the fibroid and porous (both permeable and impermeable) materials for insulation (random insulators) are taken up, and the characteristics are discussed by comparisons with multilayer foil insulators (regular insulators) and, further, not only the micro-cell and free convective but also radiative heat transfer in random insulators are discussed in some detail. Also, some typical methods for the measurement of the apparent thermal conductivity are outlined and finally practical applications in nuclear reactors are illustrated, taking as a case study the Fort St. Vrain Gas Cooled Reactor.

I. 緒 言

高温域における断熱の問題は、最近の諸熱機関等が高温化する傾向のなかで重要な研究課題になってきている。すなわち、原子力発電を含めた蒸気原動所の高温、高圧化とか、高速飛しょう体における断熱あるいはMHD発電、核融合炉等のように苛酷な条件下における断熱材および断熱方法の研究開発が活発になってきた。このような問題では、被断熱媒体(流体)は温度が高いだけでなく高圧の場合が少なくない。さらに温度差の大きいことも断熱を困難なものとする。一般に高温で十分な強度をもつ適当な材料を得るのが難かしいため、高温、高圧媒体の断熱は耐圧構造物(容器、配管等)を比較的低い温度で使用できるよう断熱材を構造物内部に入れるような方法がとられる。しかし、高温、高圧の条件下では、ごく普通に用いられている断熱材、断熱方法をそのまま適用すると、断熱材内部での

セル対流、熱輻射伝播などの影響により断熱材の見掛け上の熱伝導率(有効熱伝導率)が急激に増加して熱遮蔽の効果はほとんどなくなるので、実施にあたっては慎重を期する必要がある。

一般に断熱に関する研究は、断熱材料の開発と断熱方法に大別できるが、高温域では前者においては耐火性の問題とか、介在ガスとの化学反応による材料の変質劣化の問題があり、後者では材料の選定、配置のような応用的な問題と熱移動機構のように基礎的な問題とがある。これらの諸問題は相互に関連していることは説明するまでもないが、両者に共通している重要な研究課題に測定(熱伝導率など)の問題がある。

本報では、まず材料、構造の問題について触れ、つ

* 九州大学 工学部応用原子核工学科(Dept. of Nucl. Eng., Kyushu Univ.)

** 日本原子力研究所 伝熱流動第1研究室 (Japan At. Energy Res. Inst.)

いで断熱材内の熱輸送機構に関する基礎的問題点を最近の研究結果をもとに概観し、有効熱伝導率の測定に関する具体例を説明し、最後に高温ガス冷却型原子炉への応用例を紹介する。この高温断熱の問題は、高温ガス炉の進展とともにその開発研究への要求が高まっています、高温ガス炉の性能にかかわる範囲にとどまらずその成否を左右する重要な研究課題である。

II. 材料, 構造

高温用断熱材として使用されているものには、多孔質材料などの構造が不規則なもの(不規則型断熱材)と、金属箔積層断熱材のような構造が規則的なもの(規則型断熱材)に大別することができるが、両者を併用したものもある。

高温で使用する代表的な不規則型断熱材には、次のような繊維状のものと固型のものがある。

繊維状断熱材

セラミック・ファイバー

ロック・ウール

グラス・ウール

固型断熱材

セラミック・ブリック

カーボン・ブリック

ポーラス・カーボン

熔融シリカ

軽石コンクリート

第1図は各種材料の熱伝導率と温度との関係を示したものである⁽¹⁾。一般に固型のものよりも繊維状のものの方が性能がよい。この図で、空気の熱伝導率よりも小さいものがあるが、これは断熱材内部の空隙の大きさが気体分子の平均自由行程より小さく分子伝導による効果が減殺されるため、超断熱体(super-insulator)と呼ばれる。

不規則型断熱材の特徴は、対流防止効果があり、どのような形状のものにも取付け可能で、また取付けも簡単である。吸着ガスを放出して雰囲気汚染する場合もあるので、材料の選択には注意を要する。

規則型断熱材にはアルミニウム、ステンレン鋼、ハステロイ、インコネル、タングステン、タンタル、モリブデン等の金属箔が用いられる。これらの金属箔を使用温度範囲、圧力、雰囲気ガスの種類によって使い分け、第2, 3図⁽²⁾に示すような特殊形状の積層板、ワイヤメッシュとの組合せ、あるいは蜂の巣(ハニーカム)状の構造に加工する。さらに対流防止のために、箔相互間に Y_2O_3 , ThO_2 等の耐熱酸化物を充填する場合もある。

第1図 各種断熱材の熱伝導率

第2図 波型およびリブ型構造

第3図 箔ワイヤメッシュ組合せ構造

る。規則型断熱材の特徴は、その形状が正確で狭い場所にも使用でき、さらに流体と接する場合流動抵抗が小さく、流体を汚さないことである。

Ⅲ. 基礎的問題点

規則型断熱材における熱移動機構は、不規則型に比べ簡単に断熱効果に対する評価も比較的容易であるので、ここでは主に不規則型断熱材について述べる。不規則型断熱材を構造的にみると固相と空隙よりなっていて、空隙内には気体が入っていることが多く、ときには液体あるいは真空(超断熱体の場合)になっていることもある。しかし不規則型断熱材は粉粒体、繊維質あるいはこれらを凝集(焼結)したものなど種類も多く、それに応じて熱の移動機構もかなり様相を異にするが、固相および空隙を幾何学的に分類すると、

(i) 固相: 連続体, 半連続体, 不連続体

(ii) 空隙: 不連続体, 半連続体, 連続体

のようになり、両者を組み合わせた空間的配列により構成されている。これらいずれの断熱材においても高温(高温度差)になると、一般に固相の熱伝導率は小さくなるにもかかわらず、断熱材の有効熱伝導率 λ_{eff} が増大し、また介在媒体の圧力が増加しても同様の傾向を示し、断熱材としての効果が劣化する。この1つの原因は、空隙内のセル対流、空隙が半連続か連続の場合にはスケールの大きなセル対流あるいは層内全体にわたる自然対流が発生するため、これらの対流の発生は断熱材の浸透率(permeability) $k(m^2)$ と密接な関係にある。浸透率 k は次式の Darcy の法則により定義される。

$$u = -\frac{k}{\mu} \text{grad } p \quad (1)$$

ただし、 u, μ, p は介在流体の見掛け上の移動速度、粘性係数、圧力で、同一流体、同一圧力勾配においては浸透率が大きいほど u が大きく、したがって空隙間にまたがる対流が発生しやすいことになる。他の原因として高温における輻射伝播があり、これは固相、介在媒体の輻射線に対する吸収率、反射率、屈折率などの光学的特性に関連する。このように断熱材における熱移動に関する基礎的な問題であるセル対流(自然対流も含め)、熱輻射の問題は化学工業における充填層、流動層のような各種装置に見られる現象と共通性があり、以下比較的最近の研究例を参照しながら説明する。

まず Wooding は、ポーラス物質(浸透性)内の流動について解析⁽³⁾および実験⁽⁴⁾を行い、引き続き垂直円管内の流動の安定、不安定についても広範な解析⁽⁵⁾⁻⁽⁸⁾を

している。多孔質内の流れでは、定常状態が実現しているか否かは実験的にはかなり重要な因子となるが、非定常の場合には Elder の研究⁽⁹⁾があり、定常の場合⁽¹⁰⁾との相違を明らかにしている。甲藤ら⁽¹¹⁾は下面加熱の水平層内の自然対流の発生限界について解析し、定常の場合のエネルギー方程式を検討して温度伝導率 $\kappa \equiv \lambda / (C_p \rho)$ (λ, C_p, ρ は熱伝導率、定圧比熱、密度)の値には λ に対しては従来どおり混合物の値、 $(C_p \rho)$ は流体の値をとらねばならないことを指摘した。実験においても定常状態を比較的早く実現するためにより大きな粒塊を用いて測定し、両者はよく対応することを示した。有効熱伝導率 λ_{eff} についての研究例はかなり多く⁽¹²⁾⁻⁽¹⁵⁾、 λ_{eff} に及ぼす介在ガス圧の影響⁽¹⁶⁾⁻⁽¹⁹⁾も調べられてはいるが、圧力範囲、温度範囲が小さく、また断熱材の構造による差異が論じられている程度で、高温域でのデータは乏しく、今後の研究が必要と思われる。またガスの種類を変えた研究⁽²⁰⁾もある。最近では電子計算機を用いて Darcy 数 ($Da \equiv k/D^2$, D は充填層の幅)、Rayleigh 数 (Ra)、アスペクト比 (L/D , L は充填層の高さ)などをパラメータとして変えた場合の流線、等温線を求め、伝熱特性を論じた報告⁽²¹⁾⁻⁽²²⁾があるが、この研究方法は高温高圧下の伝熱機構を解析に組み入れることにより、多くの実験データの集積が困難な苛酷な条件での知見を得るために有用であり、今後の展開が期待される。

一方輻射の影響については、国井の解説⁽²³⁾に要領よくまとめられており、固体の熱伝導率 λ_s に対する有効熱伝導率 λ_{eff} の比を固体輻射率、空隙率、介在ガスと固体の熱伝導率との比などの関数として理論式、半理論式が整理され、それぞれ測定値と比較検討されている。しかし最近、輻射伝熱に関する研究は急速に進展し、固相、介在ガスの輻射線に対する光学的特性の中でも固相の結晶構造とか粒度(繊維質の場合には相当径)が輻射波の波長と相互に選択的な関係(選択律)をもつ場合があるので、それぞれの温度に応じた輻射の波長範囲における分光学的性質を知ることが重要となる。しかし、断熱に関しては今日までにはあまり研究されていないようで、 UO_2 燃料原子炉の炉内温度分布、伝熱特性の研究と関連し、 UO_2 燃料の結晶構造(単結晶、多結晶)の違った場合の分光学的吸収率の測定⁽²⁴⁾、輻射を考慮した伝熱の解析⁽²⁵⁾、焼結 UO_2 について最高1,100°Cまでの有効熱伝導率の測定⁽²⁶⁾などの研究報告があり、今後高温断熱の研究においても粉粒体、繊維質の分光学的輻射特性を考慮した研究が必要となろう。

介在ガス中に凝縮性気体が含まれている場合には、断熱材内部で局所的あるいは全体的にヒートパイプと同じ作動原理によって大きな熱量が輸送されることがある。すなわち、凝縮性気体を含む高温ガスが対流により低温側に移動した際に凝縮して熱を放出し、断熱材の毛管作用により凝縮液は高温側に戻り蒸発する。これは潜熱輸送であるので、温度勾配が小さくても熱流束は大きく、凝縮性気体が少量であっても問題となり、配慮を欠くと断熱設計上の大きなミスとなることがあるので注意が肝要である。

IV. 測定法

断熱材に関する測定としては熱伝導率を初めとする熱的諸量の測定があり、そのほか見掛け比重(カサ比重)、空隙率、空隙分布、表面積などの構成要素に関する測定、さらに各種強度等の機械的性質の測定がある。本章ではこれらの諸量のうちで、断熱材の特性上最も重要な熱伝導率測定について簡単に述べる。

高温断熱材の熱伝導率の測定にあたって、一般の熱伝導率測定の場合に比較してやや異なる点は、高温では放射の影響があるので、固相と熱電対(シースされた場合はシース材)の放射率の差が大きいと誤差も大きくなり、その点を正しく評価してより一層精度の高い測定が必要となることであろう。また、高温原子炉用内部断熱材を対象とする場合は、数10気圧以上のHe等の雰囲気中での測定が必要となる。

熱伝導率測定法は大別して次の2種類がある。すなわち、

- (1) 媒体を通過する熱流束 q の大きさと熱流方向に生ずる温度勾配を定常状態に保ちながら熱流束と温度勾配を測定して熱伝導率 λ を求める方法(定常法)
- (2) 断熱材あるいは熱媒体中の温度場を非定常状態にて、与えられた初期条件、境界条件より任意の時間における媒体内温度分布を測定して、温度伝導率 k を求める方法(非定常法)

である。後者では比熱および比重を別に測定することにより λ を求める。次に上述の2つの熱伝導率測定法の概要について述べる。

1. 定常法

試料内部の熱流方向に距離 Δx にある2点あるいはそれ以上の点における温度差 Δt と、試料を通過する熱量および熱流の通過断面積 A とを測定することにより、熱伝導率 λ を

$$\lambda = -(Q/A)/(\Delta t/\Delta x) \quad (2)$$

により求める方法である。このような測定にあたって誤差を生ずる主要な原因としては、熱流束(Q/A)および温度測定点相互間距離 Δx がある。熱流束の測定法としては、電気加熱源を使用して電気入力より求める方法とか低温側に設けた熱量計による方法があるが、測定誤差の主要な原因は、熱量測定法よりもむしろ被測定材における熱流のひずみ、すなわち比較的小さい試料の場合、試料の周囲あるいは端部からの熱損失または加熱体自身の損失があげられる。高温、高圧下における断熱材の熱伝導率測定において注意すべき事項としては、多孔質内の単位セル内での気体の対流とセル相互間の構成材料による伝導が重ね合わされて断熱材中に垂直方向の熱流成分が生じ、垂直方向の見掛け上の熱伝導率あるいは温度勾配が様でなくなることである。この断熱材中に生ずる熱流の垂直成分によって起こる水平方向の温度勾配の高さによる変化は、断熱材中の空間が広いほど増大する傾向を有し、とくに雰囲気圧力が高く、断熱材中の温度勾配が大きいほど顕著となる。熱伝導率を測定した例ではないが軽石コンクリートを2mの高さに施工した場合に、30 atmのHe中で上部の温度勾配と下部の比が最高15に達したことが報告⁽¹⁸⁾されている。定常法による測定装置の例として、円筒状断熱材の中心部に電気ヒータを設けて測定する方法(内熱式)の1例を第4図に示す。ヒータは軸方向に数分割して、中央部における軸方向温度分布が一樣になるように各ヒータの入力を調整し、端部の熱損失を補償する。定常法の他の方法として、熱伝導率が既知の試料と未知の試料とを重ね合わせて両者の温度勾配が熱伝導率に逆比例することを利用して求めることもある。

第4図 内熱式熱伝導率測定装置の1例

2. 非定常法

試料の一部を電気抵抗ヒータ、レーザ、熱線の放射等によって加熱し、断熱材中の温度分布と時間との関係より温度伝導率を求め、間接的に熱伝導率を測定する方法である。非定常法には次の2種類の方法がある。すなわち、試料の表面温度を加熱または冷却によって

突変させ、試料内部の温度分布を加熱(冷却)開始後の適当な時間に測定し、与えられた試料に関する熱伝導方程式の解に一致する温度伝導率を計算する方法で、また別の方法としては試料の一部を周期的に、例えば正弦波状に加熱し、加熱部における温度と、加熱部から一定距離はなれた点における温度との関係から温度伝導率を求める方法である。試料が半無限体とみなせる場合を例にとれば、表面から x の距離にある点の温度振幅 $A(x)$ は

$$A(x) = A_0 \exp\{-x(\pi/\kappa p)^{1/2}\} \quad (3)$$

で与えられ、試料内部における温度波の波長 L は

$$L = 2(\pi a p)^{1/2} = 2(\pi \kappa / f)^{1/2} \quad (4)$$

で与えられる⁽²⁷⁾。ここに A_0 は被加熱部における温度振幅、 p は温度変化の周期、 f は単位時間内における温度変化の振動数 ($f=1/p$)、 κ は温度伝導率である。

非定常法による間接的熱伝導率測定法は、試料が構造の一部、例えば原子炉構成材料の一部である場合のように試料片の取出しが困難な場合に利用し得る利点がある。また定常法では、狭い温度範囲の熱伝導率を求めようとするほど温度(差)と熱流束の測定精度が高く要求されるが、繰返し式の非定常測定法による場合は必ずしも温度(差)の絶対値は必要でなく、試料内の2点での温度振幅の比、あるいは温度振動の位相差から間接的に熱伝導率を求め得る特徴はあるが、一般に定常法と比較して精度が劣る場合が多い。

V. 原子炉への応用

原子炉への応用例として、Fort St. Vrain 炉における断熱材の使用例について述べる⁽²⁸⁾。第5図は Fort St. Vrain 炉の炉心下部の概略構造を示したものである。六角柱の炉心支持ブロック1個あたりに7個の燃料ブロックがのり、それらは PS コンクリート製の支持床の上に設けた支持ポストによって支えられている。燃料ブロックを積み上げた炉心外周には黒鉛ブロック製の周辺反射体があり、それをとりまく炉心外筒と PS コンクリート製压力容器間の環状流路には冷却材の He ガスが流れる。

炉心内で最高温度 1,895°F(100%負荷時)に加熱されて炉心支持床に出た He ガスは、支持床に設けられたダクトを経由して蒸気発生器に入って冷却される。蒸気発生器を出た He ガスは PS コンクリート製炉容器下部の循環送風機により、蒸気発生器相互間の空間および炉心外筒周囲の環状流路を経て、約 758°F の

第5図 Fort St. Vrain 炉の炉心支持部

温度で炉心上部に至り再び加熱される。

PS コンクリートは強度維持および熱疲労防止のため、130°F 付近に保つ必要がある。したがって、炉心支持部において最も熱的にきびしい箇所は炉心支持床上部である。以下炉心外筒内壁、ダクト内壁、PS コンクリート内壁の順となる。したがって、場所により使用される断熱材の材質および施工方法が異ってくる。第1表にそれらの分類を示す。また内張りの施工に使用されるスタッド、カパープレート等は使用温度に応じて

第1表 Fort St. Vrain 炉における断熱材の使用箇所と使用材料

使用箇所	最高温度(°F)	使用材料	設計温度(°F)
PS コンクリート容器内壁	575	セラミック・ファイバー	755
炉心外筒内壁 ダクト内壁	1,250	シリカフェルト	1,470
炉心支持床	2,000	熔融シリカカーボンブリック	3,000

第2表 各種断熱材の原子炉への使用例

	材 料	使 用 例
金属	ステンレス鋼箔	Oldbury (压力容器内壁) Peach Bottom (2重管) 東海炉 (压力容器内壁) AGR
繊維	セラミックファイバー	Fort St. Vrain (压力容器内壁) AGR (压力容器)
	ロックウール	東海炉 (压力容器外側)
固型	カーボンブリック	Fort St. Vrain (炉心支持床)
	ボラスカーボン	AVR (炉心外側反射体)

～800°F 低炭素鋼 (AISI 1010-1020)

800°～1,250°F インコネル 600

1,250°F～ ハステロイ X

のように使用されている。他の原子炉への断熱材の使用例を第2表に示す。

本報は高温断熱の研究と実施例について文献調査を行い、今後の問題点について行なった2, 3の検討を合わせてまとめたものであるが、いずれも充分果し得ず表題の意に添えなかったことをお詫びしたい。また本稿を執るにあたり多くの助言と教示をいただいた日本原子力研究所岡本芳三室長に衷心より謝意を表する次第である。

—参考文献—

- (1) MCWILLIAMS, J.A., HUGHES, J.W.: Industrial application for isotopic power generators", *Trans. ENEA Org. Eco. Co-op. Dev.*, (1966).
- (2) HUGHES, J.W., ARMSTRONG, E.: *Trans. Conf. P.C. Press. Vessels*, (1967).
- (3) WOODING, R.A.: Steady-state free thermal convection of liquid in a saturated permeable medium, *J. Fluid Mech.*, **2**, 273 (1957).
- (4) WOODING, R.A.: An experiment on free thermal convection of water in saturated permeable material, *ibid.*, **3**, 582 (1958).
- (5) WOODING, R.A.: Instability of a viscous liquid of variable density in a vertical heleshaw cell, *ibid.*, **7**, 501 (1960).
- (6) WOODING, R.A.: Rayleigh instability of a thermal boundary layer in flow through a porous medium, *ibid.*, **9**, 183 (1960).
- (7) WOODING, R.A.: Free convection of fluid in vertical tube with porous material, *ibid.*, **13**, 129 (1962).
- (8) WOODING, R.A.: Convection in a saturated porous medium at large Rayleigh number or Peclet number, *ibid.*, **15**, 527 (1963).
- (9) ELDER, J.W.: Transient convection in a porous medium, *ibid.*, **27**, 609 (1967).
- (10) ELDER, J.W.: Steady free convection in a porous medium from below, *ibid.*, **27**, 29 (1967).
- (11) 甲藤好郎, 増岡隆士: 水平多孔質層の自然対流発生限界, 機械学会論文集, **32**[243], 1708 (1966).
- (12) YAGI, S., KUNII, D., WAKAO, N.: Radially effective thermal conductivities in packed beds, *Int. Dev. in Heat Transfer, Proc. Heat Transfer Conf.*, 742 (1961).
- (13) KUNII, D., SMITH, J.M.: Heat transfer characteristics of porous rocks, *AIChE J*, **6** [1], 71 (1960).
- (14) OFUCHI, K., KUNII, D.: Heat transfer characteristics of packed beds with stagnant fluids, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **8**, 749 (1965).
- (15) TYE, R.P.: The thermal conductivity of Mink-2000 thermal insulation in different environments to high temperatures, *Proc. Conf. Thermal Conductivity* [CONF 691002], 341 (1969).
- (16) WEININGER, J.L., SCHNEIDER, W.G.: Thermal conductivity of granular beds filled with compressed gases, *Ind. Eng. Chem.*, **43**[5], 1229 (1951).
- (17) SANDERSON, P.D., GARRATT, V.E.W.: The effect of carbon dioxide gas pressure on thermal conductivity of some granular insulations, *Proc. Inst. Mech. Eng.*, **181**, Pt. 31, (1966~67).
- (18) TARBES, B., MENESTRIER, S.: Pumice concrete, thermal insulator in a gas under pressure, *ibid.*, **181**, Pt. 31, (1966~67).
- (19) KLEMENS, P.G.: Pressure dependence of the thermal conductivity of non metals, *Proc. Conf. Thermal Conductivity* [CONF-691002], 533 (1969).
- (20) DEISSLER, R.G., BOEGLI, J.S.: An investigation of effective thermal conductivities of powders in various gases, *Trans. ASME*, 1417 (1958).
- (21) HIRATA, M., et al.: Heat transfer across an enclosed vertical layer of relatively low height/thickness ratio, *Proc. JSME Semi-Int'l Symp.*, P. 203, 13 (1967).
- (22) CHAN, B.K.C., IVEY, C.M., BARRY, J.M.: Natural convection in enclosed porous media with rectangular boundaries, *J. Heat Transfer Trans. ASME*, Ser. C, **92**[1], 21 (1970).
- (23) 国井大蔵: 多孔質内の放射伝熱, 機械誌, **65**[525], 1447 (1961).
- (24) BATES, J.L.: Visible and infrared absorption spectra of uranium dioxide, *Nucl. Sci. Eng.*, **21**, 26 (1965).
- (25) VISKANTA, R.: Influence of internal thermal radiation on heat transfer in UO₂ fuel elements, *ibid.*, **21**, 13 (1965).
- (26) GODFREY, T.G., et al.: Thermal conductivity of uranium dioxide, from -57° to 1100 °C by radial heat flow technique, *J. Amer. Ceram. Soc.*, **48**[6], 297 (1965).
- (27) LUIKOV, A.V.: "Analytical Heat Diffusion Theory", (1968), Academic Press, N.Y.
- (28) Fort St. Vrain Nuclear Generating Station Final Safety Analysis Report, *DOCKET-50267-14*, (1969).