ナトリウムプールの着火遅れと着火限界* (理論と実験との比較)

牧 野 敦^{*1}

Ignition Delay and Limit of Ignitability for Sodium Pool (Theory and Experimental Comparisons)

Atsushi MAKINO^{*2}^{*2} Japan Aerospace Exploration Agency,
7-44-1 Jindaiji-Higashi, Chofu-shi, Tokyo, 182-8522 Japan

Relevant to sodium pool burning, ignition delay and ignitability are examined in order to obtain appropriate parameters that can fairly correlate dominant system parameters influencing the ignition. For this aim, a theoretical work has first been conducted, being considered that the surface reaction can mainly exert influences. It is found that both the ignition delay time and the limit of ignitability are closely related to the pool size and oxygen concentration, as well as the initial sodium temperature. Specifically, for the ignition delay, a comprehensive parameter defined as the ignition delay time multiplied by oxygen concentration and divided by pool depth has been identified. For the limit of ignitability, it is found another comprehensive parameter defined as a product of oxygen concentration and representative length for the heat transfer. In order to evaluate appropriateness of the theory, experimental comparisons have been conducted, by use of experimental data in the literature. It is demonstrated that there exists a fair degree of agreement between the experimental and analytical results, as far as the trend and/or approximate magnitude are concerned, in spite of differences in experimental conditions and several assumptions done in the present analysis. Because of simple forms of the comprehensive parameters, they are expected to be useful in evaluating ignitability of sodium prior to pool burning in an oxidizing atmosphere. Furthermore, it is found that the increase in volume-to-surface ratio of the sodium pool prolongs the ignition delay, and that the decrease in pool diameter suppresses the ignition, both of which can be attributed to the reduced contribution of the surface reaction that can supply heat in the induction period.

Key Words: Combustion, Combustion Phenomena, Ignition, Sodium, Ignition Delay, Limit of Ignitability

1. 緒 論

ナトリウムは優れた熱伝導性を有しており、高速増殖炉(FBR: Fast Breeder Reactor)では熱媒体としての利用が検討されてきた。しかしながら、ナトリウム利用技術の未熟さゆえに事故が多発し、高速増殖炉の開発自体を見直さざるをえないというのが世界のすう勢で、日本でも1995年の「もんじゅ」の火災事故以来、高速増殖炉は運転を停止したままである。

火災の危険性が内在するナトリウムについては、実用に供するという目的のもと、1960年代から、火災や燃焼に関する研究が開始され、これにより実に膨大な研究成果が得られてきた。これらは総説論文^{(1)~(3)}により知ることができるが、基礎研究としては、単一液滴燃焼⁽⁴⁾⁽⁵⁾やプール燃焼⁽⁶⁾が取り上げられてきたし、日本でも大規模漏えい燃焼実験⁽⁷⁾が行われてきた。

しかしながら、燃焼挙動の把握とか燃焼機構の解明

とかに限定すると、大きな進展が得られたとはいえない状況で、現象の複雑さが厳として存在することが指摘されている。例えば、プール燃焼の開始に限定したとしても、着火に先立ちナトリウム表面に酸化物の突起が出現すること、次にこれらが針状に成長しつつも寄り集まって団塊へと成長していくこと、そしてこの段階に到達するとオレンジ色の発光が生じ、多量の白煙が放出されることなどが、微視的観察⁽¹⁾により報告されている。

とはいえ、漏えい時の着火・燃焼の抑制ないしはそれらの制御を最優先と考えるのであれば、細部にとらわれることなく、着火・燃焼に及ぼす主要因の影響を明確にしておくことが不可欠で、「もんじゅ」のナトリウム漏えい・火災事故以降、このことは焦眉(び)の的となってきた。そして、火災消火実験やナトリウム燃焼解析コードの確立など、安全対策を重視した研究⁽⁸⁾⁽⁹⁾が実施されてきた。しかも、これにより明白になったことは、ナトリウム火災・燃焼にかかわる基本特性の把握は、従来の研究成果^{(1)~(3)}だけでは不十分であり、安全対策の立案にも支障をきたしかねないということであった。その一例がナトリウムの着火温度

* 原稿受付 2004年11月2日。

^{*1} 正員、宇宙航空研究開発機構(〒182-8522 調布市深大寺東町7-44-1)。

E-mail: makino.atsushi@jaxa.jp

で、論文により $394^{(10)} \sim 700 \text{ K}^{(11)}$ と大きな相違を示している。

着火現象は、周知のとおり、熱発生と熱損失の釣合いに密接に関連しており、しかも、熱損失を適切に評価するためには、伝熱面での流れのようすが明確であることが要求される。しかるに、これまで報告されてきたナトリウムプールの着火温度については、ほとんどの場合、実験時の空気ないし酸化剤の流れが明記されておらず、熱損失の適切な評価などまったく不可能となっている。それゆえ、仮に、実験条件から熱損失を見積もることができれば、実験結果と解析結果の定量的比較が可能となり、ナトリウムプールの着火に関する包括的理解が促進されると期待される。

一方、ナトリウム液滴については、着火遅れならびに着火限界に関する新たな取組み⁽¹¹⁾ がなされてきており、着火遅れに影響を及ぼす主要因が、液滴温度、液滴直径、酸素濃度、液滴と酸化剤の相対速度であることが明らかにされてきた。しかも、実験結果と解析結果の定量的比較⁽¹²⁾ から、着火遅れならびに着火限界が熱損失に大きく依存していることが判明してきた。さらに、温度以外の主要因については、これらの相互の関連性を指し示す包括パラメータの存在が、着火遅れおよび着火限界のそれぞれについて提示されている。

ナトリウム液滴の着火を解析的に取扱った手法⁽¹¹⁾ は、液滴だけに限定されるものではなく、ナトリウムプールの着火にも適用可能と考えられる。ここでは、ナトリウムプールの着火に及ぼす主要因の影響を明確にする目的で、着火の解析を行っている。さらに、得られた解析結果については、文献中の実験結果と定量的比較を実施しており、これにより解析の妥当性を検討している。

2. おもな記号

a : よどみ速度こう配
 B_s : 表面反応の頻度因子
 c : 比熱
 D_N : ノズル直径
 E : 表面反応の活性化エネルギー
 f : ノズル列でのノズルとプール表面の面積比
 Gr : グラスホフ数
 g : 重力の加速度
 H : ノズル出口とプール表面との距離
 h : 熱伝達係数
 K : ノズル列の補正係数
 L : プール容器の高さ

L_s : プール表面の代表寸法
 l : 伝熱面の代表寸法
 Nu : ヌッセルト数 $= hl/\lambda$
 n : 反応次数
 q° : 燃焼熱(ナトリウム単位質量あたり)
 Pr : プラントル数
 R : 一般ガス定数
 Re : レイノルズ数
 r_s : ナトリウムプールの半径
 S : ナトリウムプールの表面積
 S_{HL} : 伝熱面積
 T : 温度
 Ta : 活性化温度 $= E/R$
 t : 時間
 U : 速度
 V : ナトリウムプールの体積
 W : 分子量
 w_D : ノズル出口での噴出速度
 x : よどみ点からの水平距離
 Y : 質量分率
 ギリシャ文字
 α : 等温場における熱損失パラメータ
 β : 膨張係数
 ϵ : 漸近解析での微小量
 γ : 非等温場における熱損失パラメータ
 λ : 熱伝導率
 μ : 粘性係数
 ν : 量論係数
 ρ : 密度
 θ : 無次元温度
 τ : 無次元時間
 ζ : Nu_{cyl} を求める際の補正パラメータ

下付き添字

cyl : 円筒
 F : 燃料(ナトリウム)
 g : 気体
 ig : 着火
 O : 酸素
 P : 燃焼生成物

plate: 平板

0: 初期状態
 ∞ : 雰囲気ないしは境界層外縁

上付き添字

—: 平均

Fig. 1 Schematic drawing of the sodium pool that undergoes ignition

3. 着火の解析

検討対象は、酸化剤雰囲気(温度 T_∞ , 酸素質量分率 $Y_{O,\infty}$)中に設置されたナトリウムプール(体積 V , 表面積 S , 初期温度 T_0)の着火であり(図1), 反応による熱発生と伝熱面からの熱損失を考慮する。ナトリウムプールの温度については、ナトリウムの優れた熱伝導性ゆえに、時間的に変化するものの、空間的には一様と考える。また、ナトリウム蒸気圧は800 Kでも1 kPa程度なので、気相反応は考慮せず、表面反応のみが進行するものとする。表面反応としては、ナトリウム Na (添字 F)と酸素 O_2 (O)が反応して酸化ナトリウム Na_2O (P)が生成される総括反応 $4\text{Na} + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{Na}_2\text{O}$ (一般式では $\nu_F F + \nu_O O \rightarrow \nu_P P$)を考え、これによりナトリウム単位質量あたり q° の燃焼熱が発生すると考える。ここで、 ν_i は量論係数である。さらに、ナトリウムプールの温度が800 Kを上回らないことから、放射熱損失の影響は考慮しないこととする。

エネルギーの釣合いを記述すると、

$$V\rho_F c_F \frac{dT}{dt} = Sq^\circ \nu_F W_F \left(\frac{\rho_g Y_O}{W_O} \right)^n B_s e^{-E/RT} - S h_L h(T - T_\infty) \quad (1)$$

が得られる。ここで、 V はプールの体積、 S はその表面積、 $S h_L$ は熱損失が生じる伝熱面の面積で、左辺はプール温度の時間変化であり、これがプール表面での表面反応による発熱速度(右辺第1項)と熱損失速度(右辺第2項)により決定されている。なお、 ρ は密度、 c_F はナトリウムの比熱、 T は温度、 t は時間、 W は分子量、 n は表面反応の反応次数、 B_s はその頻度因子、 E は活性化エネルギー、 R は一般ガス定数である。添字 F はナトリウム、 O は酸素、 g は気体、 0 は初期状態、 ∞ は雰囲気を表している。また、 h は熱伝達係数である。注意すべきは、表面反応はプール表面で進行するものの、伝熱面は必ずしもプール表面とは限らず、容器の側壁の場合もあり得るということであ

る。

着火時には、初期温度からの温度上昇は微小で、それゆえ、酸化剤の消費も考慮する必要がないと考えるのが一般的である。そこで、 $T = T_0[1 + \varepsilon\theta + O(\varepsilon^2)]$ ならびに $Y_O = Y_{O,\infty}[1 + \varepsilon\eta + O(\varepsilon^2)]$ と表示したうえで、漸近解析を実施すると、ナトリウム液滴の場合⁽¹¹⁾と同様、式(1)より

$$\frac{d\theta}{d\tau} = e^\theta - \gamma - \alpha\theta \quad (2)$$

が得られる。ここで、 θ は無次元温度上昇、 τ は無次元時間($=t\Delta$)で、他のパラメータは次のとおりである。

$$\frac{1}{\Delta} = \frac{(V/S)\rho_F}{B_s(Y_{O,\infty})^n \nu_F W_F} \left(\frac{RT_0}{pW} \right)^n \left(\frac{c_F T_0}{q^\circ} \right) \times \left(\frac{RT_0}{E} \right) \exp\left(\frac{E}{RT_0} \right) \quad (3)$$

$$\gamma = \frac{(S h_L/S)Nu}{(V/S)\Delta} \frac{\lambda_g}{\rho_F c_F} \frac{T_0 - T_\infty}{T_0} \frac{E/R}{T_0} \quad (4)$$

$$\alpha = \frac{(S h_L/S)Nu}{(V/S)\Delta} \frac{\lambda_g}{\rho_F c_F} \quad (5)$$

なお、 $1/\Delta$ は発熱特性時間、 γ は非等温場での熱損失パラメータ、 α は等温場での熱損失パラメータ、 $\bar{W}$ は酸化剤の平均分子量であり、微量量 ε は RT_0/E と表示される。また、ヌセルト数 $Nu \equiv lh/\lambda_g$ で定義され、 l は伝熱面の代表寸法である。なお、式(2)中で γ を含まない式は、非定常「熱爆発」の解析^{(13)~(15)}に用いられた式と同一形であるものの、ナトリウムプールの着火では、雰囲気は室温と考えて差し支えないため、式(2)中で α を含まない式が支配方程式となる。これを初期条件 $\theta_{\tau=0}=0$ のもとで解くとともに、温度上昇 $\theta_{\tau=\tau_{ig}} \rightarrow \infty$ となる時点が着火時とすれば、無次元着火遅れ時間は、液滴の場合⁽¹¹⁾と同様、次式となる。

$$\tau_{ig} = \frac{1}{\gamma} \ln\left(\frac{1}{1-\gamma} \right) \quad (6)$$

さらに、式(3)を次式のように変形すれば、重要な知見が引き出される。

$$\frac{t_{ig}(Y_{O,\infty})^n}{(V/S)} = \tau_{ig} \frac{\rho_F}{B_s} \frac{W_O^n}{\nu_F W_F} \left(\frac{RT_0}{pW} \right)^n \left(\frac{c_F T_0}{q^\circ} \right) \times \left(\frac{RT_0}{E} \right) \exp\left(\frac{E}{RT_0} \right) \quad (7)$$

式(7)が示唆するところは、包括パラメータ $t_{ig}(Y_{O,\infty})^n/(V/S)$ を用いれば、着火遅れに及ぼす主要因の影響を初期温度 T_0 に対して包括的に整理するという点である。

一方、 $\tau_{ig} \rightarrow \infty$ となる着火限界においては、 $\gamma=1$ であるため、式(3)および式(4)より、次の関係が求められる。

$$\frac{IS}{S_{HL}}(Y_{0,\infty})^n = \frac{Nu\lambda_a}{B_s q^0} \frac{W_0^n}{\nu_F W_F} \left(\frac{RT_0}{p\bar{W}} \right)^n \times (T_0 - T_\infty) \exp\left(\frac{E}{RT_0}\right) \quad \dots\dots\dots (8)$$

式(8)が示唆するところは、 $(IS/S_{HL})(Y_{0,\infty})^n$ というパラメータを用いれば、着火限界に及ぼす主要因の影響を初期温度 T_0 に対して包括的に整理しようということである。

4. 結果および実験との比較

ナトリウム液滴の着火の研究⁽¹¹⁾では、文献中に報告されている着火遅れ^{(4)(5)(16)~(19)}から、液滴直径 $2r_s$ を代表寸法として総括パラメータ $t_{ig}(Y_{0,\infty})^n/(2r_s)$ を求め、これをアレニウスプロットすることにより、総括表面反応の活性化温度 $T_a = E/R = 6350$ K、頻度因子 $B_s = 320$ m/s、反応次数 $n=1$ と求められている。しかも、実験結果と解析結果の比較⁽¹²⁾から、これらが妥当な値であることも確認されている。ここでは、これらの値を用いて、ナトリウムプールの着火について、解析結果を求めることとする。

ナトリウムプールの着火に関しては、酸化剤の流れ場が明記してある研究がいくつか存在するが、注意しなければならない点は酸化剤流れのようすで、これにより強制対流なのか自然対流なのかが決まり、しかも熱移動にかかわるヌッセルト数 Nu が異なるという点である。なお、着火を取扱う際には、初期温度からの温度上昇が微小であるため、ヌッセルト数 Nu の算

出には伝熱工学の知見が活用可能である。

4・1 よどみ流れ まず、よどみ流れ中でのナトリウムプールの着火を調べてみる(図3挿絵参照)。よどみ流れは、流体力学的に良く研究された流れで、速度こう配 a により流れ場が一義的に決定されるという特徴を有している。しかも、よどみ流れの場合は強制対流場の一つであるため、熱損失が生じる伝熱面はプール表面に一致している。

軸対称よどみ流れのヌッセルト数 Nu については、伝熱工学の教科書⁽²⁰⁾に記載されているように

$$Nu_x = 0.763 Pr^{0.4} Re_x^{0.5} \quad \dots\dots\dots (9)$$

で表示される。ここで、ヌッセルト数 $Nu_x = h_x x / \lambda_a$ 、レイノルズ数 $Re_x = \rho_\infty U_\infty x / \mu_\infty$ で定義され、 Pr はプラントル数である。また、 x はよどみ点からの距離である。さらに、境界層外縁での半径方向速度 U_∞ については、よどみ流れの特性から $U_\infty = ax$ と表示されるので、熱伝達係数 h_x は

$$\frac{h_x}{\lambda_a} = 0.763 Pr^{0.4} \sqrt{\frac{a}{(\mu/\rho)_\infty}} \quad \dots\dots\dots (10)$$

で表示され、しかも、よどみ点からの距離 x には依存していない。なお、用いる熱物性値は気流の代表温度での値とし、代表温度は雰囲気温度に重みをもたせた Sparrow の 1/3 則⁽²¹⁾で求めていく。

ヌッセルト数 Nu_x ないしは熱伝達係数 h_x が得られれば、着火遅れ時間(無次元) τ_{ig} の算出に不可欠な熱損失パラメータ γ は、

Fig. 2 Ignition delay time as a function of the surface temperature, with the velocity gradient taken as a parameter

Fig. 3 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ for the ignition delay in the stagnation flow field

$$\gamma = \frac{0.763Pr^{0.4}}{(V/S)\Delta} \sqrt{\frac{a}{(\mu/\rho)_{\infty}}} \frac{\lambda_g}{\rho_F C_F} \frac{T_0 - T_{\infty}}{T_0} \frac{E/R}{T_0} \quad \dots\dots\dots (11)$$

で与えられる。また、着火限界については

$$\sqrt{\frac{(\mu/\rho)_{\infty}}{a}} (Y_{0,\infty}) = 0.763Pr^{0.4} \frac{\lambda_g}{B_s q^0} \frac{W_0}{\nu_F W_F} \times \left(\frac{RT_0}{pW} \right) (T_0 - T_{\infty}) \exp\left(\frac{E}{RT_0} \right) \quad \dots\dots\dots (12)$$

の関係が得られる。なお、これらの式に現れる $[(\mu/\rho)_{\infty}/a]^{1/2}$ は新たな代表寸法で、よどみ流れ場での境界層厚さ⁽²²⁾に対応している。

図2に着火遅れ時間 t_{ig} に及ぼす初期温度 T_0 の影響を示す。パラメータは速度こう配 a である。初期温度 T_0 の低下に伴い、反応が抑制されるため、着火遅れ時間 t_{ig} が最初緩やかに、その後急激に増加しており、ついには着火限界に到達している。また、速度こう配 a の低下により、熱損失が小さくなると、着火遅れ時間 t_{ig} が短くなっている。Gracie-Droher の総説論文⁽¹⁾では、ナトリウムプールは 476 K では着火しないという実験結果を記載しているが、吹付け速度が小さい速度こう配 $a=10 \text{ s}^{-1}$ では、この温度でも着火するという結果が得られており、酸化剤の流れのようすを把握することがいかに重要なかを再認識させられる結果となっている。

図2中のデータ点は Yuasa の実験結果⁽⁶⁾⁽²³⁾で、軸対称よどみ流れ(室温、空気)中にてナトリウムプール(直径 $2r_s=20 \text{ mm}$ 、深さ $V/S=2.8 \text{ mm}$)の着火を調べている。この実験では、ノズルからの噴出速度

$w_D=5 \text{ m/s}$ と報告されているのみで速度こう配 a が不明であるが、Matrin⁽²⁴⁾によれば、速度こう配 a と噴出速度 w_D 、ノズル直径 D_N 、さらにノズル出口と表面との距離 H との間には、

$$a = (w_D/D_N)(1.04 - 0.034H/D_N) \quad \dots\dots\dots (13)$$

の関係があるので、これに Yuasa の実験条件 ($w_D=5 \text{ m/s}$, $D_N=70 \text{ mm}$, $H=110 \text{ mm}$) を代入すれば速度こう配 $a=70 \text{ s}^{-1}$ であったことがわかる。解析結果は実験結果と傾向および概略値が一致しており、解析が現象をよくとらえていることを示している。

着火遅れに関する包括パラメータ $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ のアレニウスプロットを図3に示す。パラメータは速度こう配 a である。初期温度 T_0 の低下に伴い包括パラメータ $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ は最初緩やかに、その後急激に増加し、着火限界に到達している。図3中のデータ点は実験結果⁽⁶⁾⁽²³⁾で、図2と同一である。よどみ流れにおいても、包括パラメータ $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ の使用が実験結果の整理に有用であることがわかる。

着火限界に関する包括パラメータ $Y_{0,\infty}[(\mu/\rho)_{\infty}/a]^{1/2}$ のアレニウスプロットを図4に示す。曲線より上方が着火可能な範囲である。なお、式(12)が示すように、この曲線はナトリウムプールの寸法には影響されない普遍的な着火限界曲線となっている。図4中のデータ点は同一文献の実験結果⁽⁶⁾⁽²³⁾で、○記号は着火が生じたことを、×記号は着火が生じなかったことを示している。実験では速度こう配 $a=70 \text{ s}^{-1}$ の場合しか調べていないため実験点が限定されているものの、少なく

Fig. 4 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $Y_{0,\infty}[(\mu/\rho)_{\infty}/a]^{1/2}$ for the limit of ignitability in the stagnation flow field

Fig. 5 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ for the ignition delay in the impinging flow

ともこの実験条件下での着火限界については妥当な一致が得られており、よどみ流れにおいても、包括パラメータ $Y_{0,\infty}[(\mu/\rho)_{\infty}/a]^{1/2}$ の使用が実験結果の整理に有用なことを指し示している。

4.2 衝突流れ 次に、容器下部にナトリウムが存在し、この表面に酸化剤流れが吹き付けられる場合を取り上げる。この場合には、流れは衝突流の様相を呈している(図5挿絵参照)。衝突流のヌッセルト数 Nu は、ノズル列から気体を噴出させた場合が調べられており、Krötzsch⁽²⁵⁾ は

$$\frac{Nu}{Pr^{0.42}} = K(H/D_N, f)\sqrt{f} \times \frac{1-2.2\sqrt{f}}{1+0.2(H/D_N-6)\sqrt{f}} Re^{2/3} \dots\dots\dots (14)$$

を提示している。ここで、補正関数

$$K(H/D_N, f) = \left[1 + \left(\frac{H/D_N}{0.6/\sqrt{f}}\right)^6\right]^{-0.05} \dots\dots\dots (15)$$

ノズルと伝熱面との面積比

$$f = \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \left(\frac{D_N}{L_s}\right)^2 \dots\dots\dots (16)$$

である。さらに、ヌッセルト数 $Nu = hD_N/\lambda_g$ 、レイノルズ数 $Re = \rho_{\infty} w_D D_N/\mu_{\infty}$ である。なお、 L_s は熱移動が生じる伝熱面の代表寸法である。

ヌッセルト数 Nu やレイノルズ数 Re がノズル直径 D_N を代表寸法として定義されていること、伝熱面の代表寸法 L_s がナトリウムプールの直径 $2r_s$ に対応すること、そして伝熱面積 S_{HL} がナトリウムプールの表面積に一致することなどに注意しつつ、熱損失パラメ

ータ γ を求めると、次式が得られる。

$$\gamma = \frac{1}{(V/S)\Delta} \frac{Nu}{D_N} \frac{\lambda_g}{\rho_{FCF}} \frac{T_0 - T_{\infty}}{T_0} \frac{E/R}{T_0} \dots\dots\dots (17)$$

また、着火限界については次式が得られる。

$$(Y_{0,\infty})(2r_s) = \frac{2r_s}{D_N} Nu \frac{\lambda_g}{B_s q^o} \frac{W_0}{\nu_F W_F} \left(\frac{RT_0}{pW}\right) \times (T_0 - T_{\infty}) \exp\left(\frac{E}{RT_0}\right) \dots\dots\dots (18)$$

着火遅れに関する包括パラメータ $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ のアレニウスプロットを図5に示す。傾向は図3と同様である。図5中のデータ点は Kitagawa-Ogiso の実験結果⁽²⁶⁾ で、ナトリウム表面上方(距離 $H=25$ mm)に設置されたノズル(直径 $D_N=6$ mm)から乾燥空気を噴出($w_D=1.3$ m/s)させることにより、ナトリウムプール(直径 $2r_s=29$ mm、深さ $V/S=5$ mm)の着火を調べている。解析結果は実験結果と傾向および概略値が一致しており、解析が現象をよくとらえていること、そして、包括パラメータ $(t_{ig} Y_{0,\infty})/(V/S)$ の使用が有用なことなどがわかる。

図6は、着火限界に関する包括パラメータ $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ のアレニウスプロットであり、図4と同様な傾向を示している。図6中のデータ点は同一文献の実験結果⁽²⁶⁾ である。実験点が少ないものの、着火限界については妥当な一致が得られており、包括パラメータ $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ の有用性が示されている。

4.3 自然対流(伝熱面がプール表面) 酸化剤を吹き付けるのではなく、自然対流の場でナトリウムプールの着火を調べた研究も存在している。自然対流場での着火を取扱う際には、熱損失が生じる伝熱面がどこに位置しているかを見極めることが重要となってくる。

まずは、熱損失が生じる伝熱面がナトリウムプール表面とみなしうる場合(図7挿絵参照)を取扱ってみる。このような自然対流のヌッセルト数 Nu は、Fishenden-Saunders⁽²⁷⁾ が次式のように提示している。

$$\begin{aligned} 10^5 \leq GrPr \leq 1.1 \times 10^7 : \quad Nu &= 0.54(GrPr)^{1/4} \\ 1.1 \times 10^7 \leq GrPr \leq 3 \times 10^{10} : \quad Nu &= 0.14(GrPr)^{1/3} \end{aligned} \dots\dots\dots (19)$$

ここで、グラスホフ数

$$Gr = \frac{l^3 g \beta (T_0 - T_{\infty})}{(\mu_{\infty}/\rho_{\infty})^2} \dots\dots\dots (20)$$

で定義され、 g は重力の加速度、 β は膨張係数である。

伝熱面の代表寸法 l として、ナトリウムプールの直径 $2r_s$ を用いれば、熱損失パラメータ γ は、

$$\gamma = \frac{1}{(V/S)\Delta} \frac{Nu}{2r_s} \frac{\lambda_g}{\rho_{FCF}} \frac{T_0 - T_{\infty}}{T_0} \frac{E/R}{T_0} \dots\dots\dots (21)$$

となる。また、着火限界については次式が得られる。

Fig. 6 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ for the limit of ignitability in the impinging flow

Fig. 7 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ for the limit of ignitability in the natural convection over the surface

Fig. 8 Arrhenius plot of the comprehensive parameter $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ for the limit of ignitability in the natural convection over the container wall

$$(Y_{0,\infty})(2r_s) = 4 \frac{Nu \lambda_g}{B_s q^0} \frac{W_0}{\nu_F W_F} \left(\frac{RT_0}{p \bar{W}} \right) \times (T_0 - T_\infty) \exp \left(\frac{E}{RT_0} \right) \quad \text{..... (22)}$$

なお、自然対流の場にてナトリウムプールの着火を調べるということは、研究の主眼が着火限界に置かれていることを暗示している。

図7は、着火限界に関する包括パラメータ $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ のアレニウスプロットである。図4ならびに図6と同様な傾向を示している。図7中のデータ点は Gracie-Droher の実験結果⁽¹⁾で、自然対流下でナトリウムプール(直径 $2r_s=229$ mm, 深さ $V/S=76$ mm)の着火を調べている。解析結果と実験結果は、傾向および概略値が一致しており、解析が現象をよくとらえていること、包括パラメータ $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ が有用なことを示唆している。

4.4 自然対流(伝熱面が容器壁) 自然対流の場合であっても、容器下部にナトリウムが存在する場合には、伝熱面がナトリウムプール表面とはいいたがたい状況となる。図8中の挿絵が示す状況がこれに相当しており、伝熱面積を適切に見積もらないと、着火限界を求めることは不可能である。自然対流でも、垂直な円筒容器壁(高さ L , 直径 $2r_s$)が伝熱面となる場合のヌセルト数 Nu は、Minkowycz-Sparrow⁽²⁸⁾ により次のように与えられている。

$$Nu_{cyl} = Nu_{plate} (1 + 1.3 \zeta^{0.9}) \quad \text{..... (23)}$$

この式は、垂直円筒壁のヌセルト数 Nu_{cyl} を垂直平板のヌセルト数 Nu_{plate} と関連付ける式で、 Nu_{plate} は Churchill-Chu⁽²⁹⁾ により $0.1 \leq PrGr \leq 10^{12}$ の範囲で

$$(Nu_{plate})^{1/2} = 0.825 + \frac{0.387(PrGr)^{1/6}}{[1 + (0.492/Pr)^{9/16}]^{8/27}} \quad \text{..... (24)}$$

とされている。また、式(23)の補正パラメータ

$$\zeta = \frac{L/(2r_s)}{(PrGr)^{1/4}} \quad \text{..... (25)}$$

グラスホフ数

$$Gr = \frac{L^3 g \beta (T_0 - T_\infty)}{(\mu_\infty / \rho_\infty)^2} \quad \text{..... (26)}$$

である。

伝熱面の代表寸法 l として円筒容器の高さ L を用い、伝熱面の面積を $S_{HL} = 2\pi r_s L$ とすれば、熱損失パラメータ γ は、

$$\gamma = \frac{4}{(V/S) \Delta} \frac{Nu}{2r_s} \frac{\lambda_g}{\rho_F C_F} \frac{T_0 - T_\infty}{T_0} \frac{E/R}{T_0} \quad \text{..... (27)}$$

となる。また、着火限界については式(22)と同じ関係式が求められる。

図8は、着火限界に関する包括パラメータ $(Y_{0,\infty})(2r_s)$ のアレニウスプロットで、図4, 6, ならびに図7と同様な傾向を示している。図8中のデータ点は Kikuchi らの実験結果⁽³⁰⁾で、自然対流下でナトリウムプール(直径 $2r_s=60$ mm, 深さ $V/S=10$ mm)の着火を調べており、使用した容器の高さ $L=70$ mm である。この場合においても、解析結果と実験結果と

Fig. 9 Ignition delay time t_{ig} under the stagnation airflow at room temperature, as a function of the volume-to-surface V/S , with the velocity gradient a and the initial temperature T_0 taken as parameters

Fig. 10 Ignition delay time t_{ig} under the stagnation airflow at room temperature, as a function of the velocity gradient a , with the initial temperature T_0 taken as parameters

は概略値が一致しており、現象の基本的把握がなされていると判断される。

5. 考 察

実験結果との比較を通して、ナトリウムプールの着火においても、熱損失の適切な評価がいかに重要なかが明らかにされてきた。着火遅れの解析により見いだされた包括パラメータ $(t_{ig} Y_{O\infty})/(V/S)$ は、主として温度 T_0 に依存しているため、漏えい時に着火遅れ時間を引き延ばすためには、当然のことながら、初期温度 T_0 を低下させることが最も有効な手段ということがわかる。そして、もし温度 T_0 が制御できないのであれば、これも当然のことではあるが、酸素濃度 $Y_{O\infty}$ を低下させることが着火遅れの遅延に有効なことがわかる。これ以外の手段としては、プールの深さである V/S を増加させることも有効なことを解析結果は示しているが、著者が知る限りでは、この点を指摘した報告は存在していない。

着火時の温度上昇は表面反応の進行に伴う熱発生により生じるため、プールの深さ V/S を増加させることは反応に関与するプール表面積 S を減少させることと関連しており、温度上昇の抑制、ひいては着火遅れの遅延に有効となっている。この意味では、酸化剤雰囲気と接触するプール表面積を減少させることにより着火を抑制するという方法は、新たな着火抑制方式とみなすことができる。

着火遅れ時間 t_{ig} に及ぼすプール深さ V/S の影響を、よどみ流れ中でのナトリウムプールの着火を例にとって調べてみる(図9)。パラメータは速度こう配 a ならびに初期温度 T_0 で、他の条件は図2ないし図4と同じである。プール深さ V/S の増加は熱容量の増大を引き起こすため、着火遅れ時間 t_{ig} は線形に増加している。なお、プール深さが100 mm程度までであれば、深さ方向に温度分布が生じる危ぐは少なく、本解析の適用が可能と考えられる。一方、速度こう配 a の影響については、その増加が熱移動を促進するため、着火遅れ時間 t_{ig} が増大している。

着火遅れ時間 t_{ig} に及ぼす速度こう配 a の影響をより詳しく調べてみると図10が得られる。パラメータは初期温度 T_0 で、プール深さ $V/S=50$ mmである。速度こう配 a の増加に伴い、着火遅れ時間 t_{ig} は最初緩やかに、その後急激に増大し、着火限界に到達している。しかも、初期温度 T_0 が高いほど、反応が活発であるため、着火限界での速度こう配 a が格段に大きくなっている。

一方、着火限界に関する包括パラメータ $(Y_{O\infty})(2r_s)$ については、図4あるいは図6～8が示すように、 $(Y_{O\infty})(2r_s)$ が限界値よりも小さくなると着火が起こりえなくなっている。着火を抑制するには、初期温度 T_0 や酸素濃度 $Y_{O\infty}$ を低下させることが有効なのであるが、それ以外に、プールの直径 $2r_s$ を減少させることも着火抑制に効果があることをこれらの結果は示唆している。しかも、これは、プール深さ V/S を増大させて着火遅れを遅延させることと軌を一にしている。

6. 結 論

ナトリウムのプールの着火に及ぼす主要因の影響を明確にする目的で研究が行われた。解析においては、表面反応による熱発生と伝熱面からの熱損失を考慮したうえで、プール温度の時間的変化が調べられた。また、伝熱面での流れの様相に大きく依存する熱損失については、ヌッセルト数を用いて評価した。これにより、着火が、プールの初期温度や雰囲気酸化剤濃度以外に、プールの寸法(深さや直径)にも依存している

ことが判明した。しかも、着火遅れに対しては $(t_{ig} Y_{O_{\infty}})/(V/S)$ という包括パラメータを、着火限界に対しては $(Y_{O_{\infty}})(2r_s)$ という包括パラメータを用いれば、実験結果の包括的な整理が可能なことも明らかになった。さらに、文献中の実験結果との比較により、これらの包括パラメータの有用性が検証された。そのうえ、着火遅れの遅延や抑制には、プールの初期温度や雰囲気酸素濃度を低下させる以外に、プール深さに相当する体積/面積比を増加させたり、プール直径を減少させたりすることが有効なことも見いだされた。本研究により見いだされた包括パラメータは、きわめて簡便な形をしているので、ナトリウムプールの着火遅れや着火限界を評価するうえで重要な役割を果たすものと期待される。

本研究は、著者が静岡大学工学部在任中に、消防研究所との共同研究の一部として実施された。支援をいただいた関係各位に謝意を表する。

文 献

- (1) Gracie, J. D. and Droher, J. J., *A Study of Sodium Fires*, NAA-SR-4383 (1960), Atomics International, Canoga Park.
- (2) Newman, R. N. *The Ignition and Combustion of Sodium-A Review*, RD/B/N 2229 (1972), Berkeley Nuclear Laboratories.
- (3) 斎藤直・ほか2名, 燃焼の科学と技術, **8** (2000), 15-25.
- (4) Richard, J. R., ほか2名, *Proc. Combust. Inst.*, **12** (1968), 39-48.
- (5) Morewitz, H. A., ほか2名, *Nucl. Eng. Des.*, **42** (1977), 123-135.
- (6) Yuasa, S., *Proc. Combust. Inst.*, **20** (1984), 1869-1876.
- (7) 大野修司・ほか2名, ナトリウム漏洩燃焼に関する研究, 動燃技報, No. 92 (1994), 18-32.
- (8) 平成13年度研究報告書, 原子力施設の消防防災技術に関する研究, (2002), 消防研究所.
- (9) 平成14年度成果報告会資料, 原子力施設の消防防災技術に関する研究, (2003), 消防研究所.
- (10) Cowen, H. C. and Vickers, H., *The Oxidation of Sodium*, R & DB (C) TN-121, FRDC/P-105 (1955), UK Atomic Energy Authority, Risley.
- (11) Makino, A., *Combust. Flame*, **134** (2003), 149-152.
- (12) Makino, A. and Fukada, H., *Proc. Combust. Inst.*, **30** (2005), 2047-2054.
- (13) Gray, P. and Lee, P. R. (Tipper, F. M., ed.), *Oxidation and Combustion Review*, **2** (1967), 1-83.
- (14) Frank-Kamenetskii, D. A., *Diffusion and Heat Transfer in Chemical Kinetics*, 2nd ed., (1969), 349-357, Plenum, New York.
- (15) Zeldovich, Ya. B., ほか3名, *The Mathematical Theory of Combustion and Explosions* (1985), 59-69, Consultants Bureau, New York.
- (16) 佐藤研二, 静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験, 動燃, PNC Report, TJ 980798-001 (1998).
- (17) 佐藤研二・酒井康弘, 第37回燃焼シンポジウム講演論文集, (1999), 505-506.
- (18) 浅井一仁・ほか2名, 第36回燃焼シンポジウム講演論文集, (1998), 818-820.
- (19) 堤規之・牧野敦, 第39回燃焼シンポジウム講演論文集, (2001), 375-376.
- (20) 甲藤好郎, 伝熱理論, (1982), 4章, 19章, 養賢堂, 東京.
- (21) Glassman, I., *Combustion*, 3rd ed., (1996), 308-312, Academic, San Diego.
- (22) Schlichting, H. and Gersten, K., *Boundary-Layer Theory*, 8th Rev. and Enl. ed., (2000), 110-115, Springer, Berlin.
- (23) 湯浅三郎, 第19回燃焼シンポジウム前刷集, (1981), 199-201.
- (24) Martin, H., (Hartnett, J. P. and Irvine, T. F. Jr., eds.) *Advances in Heat Transfer*, **13** (1977), 1-60.
- (25) Krötzsch, P., *Chem-Ing-Tech.*, **40** (1968), 339-344.
- (26) 北川徹三・小木曾千秋, 安全工学, **7** (1968), 31-36.
- (27) Fishenden, M. and Saunders, O. A., *Introduction of Heat Transfer*, (1950), 180, Clarendon, Oxford.
- (28) Minkowycz, W. J. and Sparrow, E. M., *J. Heat Transf.*, **96** (1974), 178-183.
- (29) Churchill, S. W. and Chu, H. H. S., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **18** (1975), 1323-1329.
- (30) Kikuchi, Y., ほか2名, *Int. Conf. FR'91*, Kyoto, (1991), P 3-21.