

JAERI-M

6073

ナトリウム火災モデル試験

1975年3月

古川 和男, 木谷 進, 山田 栄吉\*, 村田 秀男  
春田 秀人\*, 大山 信美\*, 高橋 和宏\*\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

## ナトリウム火災モデル試験

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

古川和夫, 木谷 進, 山田栄吉\*

村田秀男, 春田秀人\*, 大山信美\*,

高橋和宏\*\*

(1975年2月13日受理)

Na 冷却高速炉の安全解析に際し, 格納容器内でNa 火災が発生した場合のNa の燃焼状態, 格納容器の安全性を把握するため, 高さ2 m, 直径1.5 m, 内容積3.2 m<sup>3</sup>の密閉容器で0.3, 0.15, 0.075m<sup>2</sup>の燃焼表面積をもたせたNa 火災の16回のモデル試験を, 初期Na 温度, 初期酸素濃度, 湿度等を変化させつつ行った。そして, 酸素濃度変化, ガス密度変化および発熱量より燃焼速度を求めた。

21 v/o 酸素の密閉空気中の500°CにおけるNa 液面燃焼速度は, Na 表面積と床面積の比に強く影響される。そして見かけ燃焼速度はほぼ一定である。少くも酸素濃度が5 v/o 以下となると発光を伴う燃焼は起らず, 酸素濃度に関して一次の反応となる。

---

本報告書は日本原子力研究所が動力炉・核燃料開発事業団の委託によりおこなった研究の成果である。

(現在) \* 動力炉・核燃料開発事業団

\*\* 日本無機繊維KK

Model Experiments on Na Pool Fire

Kazuo FURUKAWA, Susumu KITANI, Eikichi YAMADA\*,  
Hideo MURATA, Hideto HARUTA\*, Nobumi ŌYAMA\* and  
Kazuhiro TAKAHASHI\*\*

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received February 13, 1975)

In Na-cooled Fast Breeder Hazard Analysis for a Na pool fire in the reactor containment vessel, Na fire model experiments have been carried out with a 3.2 m<sup>3</sup> closed vessel of height 2 m and diameter 1.5 m.

The burning areas used are 0.3, 0.15 and 0.075 m<sup>2</sup>. For the different initial Na temperatures, initial oxygen contents and atmospheric humidities, the burning rate was estimated from change of the oxygen content in the atmosphere, gas density or generated heat.

The Na surface burning rate of initial temperature 500°C in the closed air with 21 v/o oxygen depends strongly on the ratio of Na surface area and sectional (bottom) area of the reaction vessel. The apparent burning rate is nearly constant. Below 5 v/o oxygen, at least, the mild oxidation without brightness proceeds in first-order reaction with the oxygen content.

---

The work performed under contracts between Power Reactor Nuclear Fuel Development Corporation and JAERI

\* Present address; Power Reactor and Nuclear Fuel Dev. Corp.

\*\* Nippon Muki Seni K.K.

## 総 目 次

緒 言 .....	1
総 括 .....	2
同英訳 .....	4
第 I 篇 ナトリウム火災モデル試験 (I) .....	7
第 II 篇 ナトリウム火災モデル試験 (II) .....	69
( 後 記 ) .....	116

## 緒 言

本報告書は、Na 冷却高速炉の安全解析のために、格納容器内でNa 火災が発生した場合の現象のモデル試験を行った結果を報告するものである。

第Ⅰ期の実験は、昭和43年(1968年)9月に7ケース8回行ったものであり、以下に第Ⅰ篇として報告してある。最初はJAERI-memo-3810(未公開)として印刷された。

また第Ⅱ期の実験は、昭和44年(1969年)6月に6ケース8回行ったものであり、第Ⅱ篇として報告してある。最初はJAERI-memo-3811(未公開)として印刷された。

両者は充分関連ある実験であるが、相互に使用したNa 純度が異なりそれが反応状態にかなりの影響を及ぼした。したがって今回は、このような複雑な条件に支配された複雑な現象を余りに単純化ないし一般化してしまう誤解を防ぐため、具体的な実験事実をできるだけ忠実に記録した原報告書を、事実上ほぼそっくりそのまま記載しておくこととした。

今後さらに詳細な実験解析を進める際の基礎資料として活用されることを望むものである。

なお、この種の実験としては、我々の第Ⅰ期実験が終ったのち公表されたA Iのものがある。約10倍の内容積の大型実験であるため、知っているかぎりでは1回しか実験を行っていないが、我々の結果と非常によい一致を示しており、外挿に充分耐えるものであることを証明してくれている。なお燃焼表面積は $0.43\text{ m}^2$ であって、我々の $0.3\text{ m}^2$ と大差ない。詳細は第Ⅰ篇 § 7.5 および第Ⅱ篇第 6.1 図を見られたい。

## 総 括

Na 冷却高速実験炉の格納容器内における Na プール火災のモデル実験が、その安全解析のために実施された。

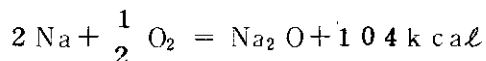
火災実験容器は、直径 1.5 m、高さ 1 m、内容積 3.2 m<sup>3</sup> であり、断熱的に実験できるよう保温材で掩われている。その容器の底には Na プールを収める皿があり、その中に加熱された Na が急速に供給される。この皿、配管および Na は、予定された同じ温度に保たれている。

試験条件としての可変量は、(A)皿の直径、(B)皿の深さ、(C)Na 初期温度、(D)ガス中の酸素濃度および(E)温度である。

火災試験中に測定された量は、(A)ガス中の酸素濃度、(B)Na 中の温度分布、(C)ガス中の温度分布、(D)反応容器の壁の温度分布、(E)ガス圧力である。また(F)燃焼中の Na 表面が直接観察され、Video で記録された。

実施された 16 回の試験よりえられた結論は次のようなものである。

- (1) Na の燃焼速度を推定するのにより信頼できる方法は、ガス中酸素濃度測定法よりも、発生熱集計法およびガス密度法であった。これは、より大型の容器においても成立するであろう。
- (2) 反応容器内の空気によつて、500°C の Na 液面が燃焼する速度は、燃焼時間内ではほぼ一定速度であった。火点は次第に数を増す。また容器の横断面積（または底面積）と Na 表面積の比に、燃焼速度は強く依存する。（第 II 篇第 6.1 図参照）
- (3) 最大 Na 表面積（炉床全面積に相当）に外挿された燃焼速度は、0.4 kg Na/m<sup>2</sup>・min 以下と推定された。
- (4) ガス中の相対湿度を 20°C で 30～80% の範囲に変化させたが、燃焼速度の変化は認められなかった。
- (5) Na プールの深さの影響は、50～150 mm の範囲では燃焼速度に変化を与えるとは思われなかった。（150 mm は実験炉での最大予想値である。）
- (6) ガス中の酸素濃度が 5% 以下となると、発光は止まり酸化反応速度は酸素濃度に関して一次反応となる。
- (7) 初期酸素濃度が 10% 以下のガス中では、発光を伴う激しい燃焼とならず、おだやかな酸化反応のみとなる。
- (8) 一般に酸化・還元反応は、次の反応式で近似できる。



これは反応熱の熱解析により明かにされた。

- (9) 以上の結果は、約 20 ppm Ca と約 2000 ppm K を含む Na 金属に対してえられたものである。Ca または K が約 10 倍多い Na に対しては、上記より 2～3 倍高い燃焼速度となる。
- (10) 燃焼速度に関する上記の結果(2)および(3)は、Atomics International が約 10 倍容量

\* 第3回 UKAEA-JAERI 高速炉会議 (Dec. 1969, Tokyo) で報告された。

の反応容器で行った1回の実験の結果とよく一致する。これは我々の結果を原子炉の場合に外挿できる可能性を示すものであろう。(第I篇 § 7.5, 第II篇第6.1図参照)

この研究は、動力炉・核燃料開発事業団からの委託に基づいて行われたものである。

## SUMMARY\*

Simulating the sodium pool fire in the container of Fast Reactor JFER, experimental tests were done for the hazard analysis.

Reaction container for fire tests had a volume of  $3.2 \text{ m}^3$ , a diameter of 1.5 m and 2 m in height, and was covered by the thermal insulator to be able to test adiabatically. At the bottom of its container a dish of sodium pool was attached, in which fresh sodium was supplied quickly from the sodium melting tank. The temperature of the dish, piping and charging sodium was kept a same chosen value.

The variable parameters in the test conditions were the diameter and depth of dish, the initial temperature of sodium, and the initial composition of atmosphere including its moisture content.

The measure values in the fire tests were the oxygen content in gas phase, the temperatures of sodium, gas and container wall, and the pressure of gas. The burning sodium surface was observed visually and recorded by Video.

Some conclusions of the results of 16 tests were as follows:

- (1) The more reliable estimation methods of burning rate of Na were the generated heat summation method and the gas density method than the oxygen content method.
- (2) The burning rate of  $500^\circ\text{C}$  Na surface by the air in the reaction container was nearly constant in the time period of burning, producing more and more fire spots gradually, and strongly depending on the ratio of Na surface area and cross section (or bottom) area of container. (Section II, Fig. 6.1).
- (3) The burning rate at the largest Na area, which corresponded to the bottom floor area, was estimated less than  $0.4 \text{ kgNa/m}^2 \cdot \text{min}$ .
- (4) The difference of moisture content in atmosphere did not change the burning rate in the range of 30 to 80% relative humidity at  $20^\circ\text{C}$ .
- (5) The variation in the depth of Na pool did not influence the burning rate in the range of 50 to 150 mm. (The latter value corresponds to the maximum value at JFER.).
- (6) After the oxygen content was decreased less than about 5% in the atmosphere by the burning, the oxidizing rate without brightness was the first order reaction on the oxygen content.
- (7) In the case that the initial oxygen content in atmosphere was less

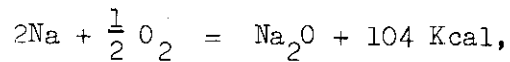
---

\* Presented at 3rd UKAEA-JAERI Fast-Reactor Meeting held Tokyo, December 1969.

\*\* Experimental Fast Reactor "JOYO".

than 10%, the brightly burning phenomena did not observed but only mild surface-oxidization.

(8) Oxidation-Reaction Process in general is approximated by the chemical equation:



which was supported by the thermal analysis of reaction heat.

(9) The above results were gotten using the Na metal of about 20 ppm Ca and 2000 ppm K. The sodium of ten times rich in Ca or K had a higher burning rate of two to three times than the above.

(10) The above conclusions (2) and (3) interesting coincide with the result of single experiment of Atomics International (1968) performed using a big reaction container of about ten times larger volume than ours. This will be a fact supporting the sound extrapolation of our results to real Reactor Systems.

This work was performed under contracts between Power Reactor Nuclear Fuel Development Corporation and JAERI.

## 第 I 篇 ナトリウム火災モデル試験 (I)

## 要 旨

本報告書は、高速実験炉の安全解析に際し、格納容器内でNa火災が発生した場合のNaの燃焼状態、格納容器の安全性を把握するため、高さ2 m、直径1.5 mの密閉容器で0.075, 0.15, 0.3 m<sup>2</sup>の燃焼表面積をもたせたNa火災のモデル試験を、温度、酸素濃度、湿度等を変えて行ったものの結果について述べたものである。

1968年12月

ナトリウム研究室	古川 和男
FP研究室	木谷 進
ナトリウム研究室	山田 栄吉
"	村田 秀男
FP研究室	高橋 和宏

## Section I:

## Model Experiments of Na Pool Fire - No. I

## Abstract

The results of the model experiments of sodium pool fire are described as a basis of safety analysis of design of the Japan Experimental Fast Reactor vessel container.

Sodium pool was set up in a tightly-closed vessel (1.5 m diameter and 2 m high), which was thermally insulated.

Three different pool surface areas were used; i.e., 0.075 m<sup>2</sup>, 0.15 m<sup>2</sup> and 0.3 m<sup>2</sup>. Sodium temperature, oxygen content and humidity in the vessel were varied for the study.

Dec. 1968

Furukawa K. et al.

## 目 次

1. 実験目的および条件	13
2. 実験装置	15
2.1 実験用建家	15
2.2 試験装置	15
2.3 実験方法	15
3. 実験経過	20
3.1 実験までの経過	20
3.2 実験経過	20
3.3 各実験時の燃焼現象	21
3.4 燃焼現象の観察結果の総括	29
3.4.1 初期酸素濃度の影響	29
3.4.2 液深の影響	29
3.4.3 表面積の影響	29
3.4.4 湿度の影響	30
3.5 燃焼後の残留物	30
3.5.1 分析の目的と方法	30
3.5.2 分析の結果	30
4. 酸素濃度変化からみたナトリウム燃焼速度	31
4.1 目的	31
4.2 測定法	31
4.2.1 検量線	31
4.2.2 検量線の精度	31
4.2.3 サンプリングの遅れおよびその補正	32
4.2.4 湿度の測定	32
4.2.5 北川式ガス検知管による酸素濃度の測定	32
4.3 解析結果	32
4.3.1 燃焼速度(反応速度)	32
4.4 考 察	39
4.4.1 燃焼速度とNa露出表面積 $S$ 、容器内断面積 $S_0$ 比( $S/S_0$ )との関係	39
4.4.2 燃焼速度とナトリウム深さの関係	39
4.4.3 燃焼速度と初期水蒸気量との関係	39
4.4.4 燃焼速度と初期酸素濃度の関係	41
5. 燃焼反応熱の計算	44
5.1 計算方法	44
5.2 基礎式	46
5.3 物性値	52

5.4 結果および検討 .....	52
6. 温度および圧力応答 .....	57
6.1 仮定 .....	57
6.2 基礎式 .....	57
6.3 結果および検討 .....	57
7. 総括的考察および結論 .....	61
7.1 はじめに .....	61
7.2 観察事実より見て .....	61
7.3 酸素濃度変化から見て .....	62
7.4 燃焼熱および圧力応答から見て .....	63
7.5 最近の AI の実験およびそれとの比較 .....	65
8. 結 言 .....	67
9. 参考文献 .....	67

## 表 目 次

第 1.1 表 試験条件 (計画) .....	14
# 2.1 " 試験装置一覧表 .....	16
# 2.2 " Na 燃焼皿 .....	19
# 3.1 " 試験条件と経過 .....	20
# 3.2 " 各実験の相互比較対照表 .....	21
# 3.3 " 燃焼による生成物の分析結果 .....	29
# 4.1 " 各条件下における燃焼速度 .....	40

## 図 目 次

第 2.1 図 Na 火災モデル試験用建家 .....	17
# 2.2 " 試験装置フローシート .....	18
# 2.3 " 試験装置配置図 .....	18
# 2.4 " 試験容器本体 .....	17
# 3.1 " 実験 №1 燃焼後の生成物 .....	24
# 3.2 " " №2 容器より取はずし直後の Na 燃焼皿 .....	24
# 3.3 " " №2 第 3.2 図の 4 分後の状態 .....	24
# 3.4 " " №3 覗き窓からみた燃焼皿 .....	24
# 3.5 " " №5 燃焼 3hr 後 .....	25
# 3.6 " " " 容器内部に堆積した酸化物 .....	25

第 3.7 図	実験 № 5	マンホールに堆積した酸化物	25
" 3.8 "	" № 6	燃焼皿取出し直後	26
" 3.9 "	" № 7	燃焼終了直後	26
" 3.10-1 図	実験 № 8	Na 燃焼現象 (10 秒毎)	27
" 3.10-2 図	" "	" "	28
第 4.1 図	酸素濃度測定フローシート		33
" 4.2 "	検量線の精度		34
" 4.3 "	サンプリングの遅れ		35
" 4.4 "	実験 № 2	酸素濃度の経時変化	35
" 4.5 "	" № 3	"	36
" 4.6 "	" № 4	"	36
" 4.7 "	" № 5	"	37
" 4.8 "	" № 6	"	37
" 4.9 "	" № 7	"	38
" 4.10 "	" № 8	"	38
" 4.11 "	燃焼速度と S/So の関係		42
" 4.12 "	燃焼速度と Na 深さの関係		42
" 4.13 "	燃焼速度と初期水蒸気量との関係		43
" 4.14 "	燃焼速度と初期酸素量の関係		43
第 5.1 図	Na プール火災圧力容器温度計測定		45
" 5.2 "	ヒートバランスプロセスの模型		47
" 5.3 "	フローチャート		47
" 5.4 "	多重層の温度分布		48
" 5.5 "	熱量と温度の関係		48
" 5.6 "	実験 № 4	圧力容器内半径方向温度分布	55
" 5.7 "	" № 5	"	55
" 5.8 "	" № 8	"	55
" 5.9 "	" № 5	圧力容器中心方向温度分布	56
" 5.12 "	" № 6	"	56
" 5.11 "	" № 8	酸素濃度・密度および発熱量の変化	56
第 6.1 図	実験 № 8	温度および圧力応答	58
" 6.2 "	" № 2	"	58
" 6.3 "	" № 3	"	59
" 6.4 "	" № 4	"	59

## § 1 実験目的および条件

高速実験炉の設計ならびに安全解析に際し、格納容器内でNa火災が発生した場合のNaの燃焼状態、格納容器の安全性等を把握する必要がある。このため、Na火災のモデル試験と解析を行ない。その安全評価の資料とすることが本実験の目的である。

高速実験炉に等しい試験容器を用意するのは不可能であるので、次の諸点を考慮して実験装置および実験条件を選定した。

(イ) 高さ2 m、直径1.5 mの上部を半球形に近くした炉容器に形状が似たものとする。

(ロ) 容器内の空気によるNa燃焼時間は $R$  (Na燃焼面積/空気容量)に反比例すると考えてよいであろう。したがって高速実験炉の

$$R_E = Am^2 / Vm^3 = 530m^2 / 1.2 \times 10^4 m^3 = 0.044 m^{-1}$$

に近いモデル容器およびNa燃焼皿を設計する。

(ハ) 具体的には $R$ として $\frac{1}{2}R_E$ 、 $R_E$ 、 $2R_E$ の値を選ぶことにより、燃焼面積を大きくしたときの影響を推論できるようにする。

(ニ) Na液深は、実験炉の全Naが床に均一に流出した時になると思われる150 mmとそれより浅い50 mmを選んだ。これより浅いと床への伝達で反応は弱まるものと推論した。

(ホ) 一般には、炉室内は空気と考えてよいが、Na機器配管室の不活性ガスが混入することもあり得るし、炉室もhot cell方式その他において、酸素を減した気相とすることがあり得るので、初期気相成分は21、10、4 v/o酸素+窒素のものを選ぶ。最低を4 v/oとしたのは、5 v/o以下では火災は起らないといわれているからである。

(ヘ) Na温度は、実験炉の炉心出口Na平均最高温度500°C(予定)とし、しかも初期条件が一定となるように、燃焼皿を500°Cにしておき、清浄な500°CのNaを急速に皿に充たすようにする。しかも実験開始までの空気の温度上昇が無視できるように、Na装荷直前で皿には蓋をする。

(ト) 気相の酸素濃度変化測定と、液中、気中、容器壁等の温度測定および圧力測定を行ない、反応解析の基礎資料を求める。解析を容易にするため、実験開始後は断熱条件とする。

(チ) 特に初期湿度の影響を調べる。これは初期反応速度に大きな影響を与える可能性があると考えたからである。炉室温度を20°Cとし、その際の標準相対湿度を70%とし、異例に乾燥した場合(約40%)も試験を行なつてみることにする。

上記のための測定項目としては

- i 1回毎の注入Na量
- ii 初期空気状態(酸素濃度、湿度)
- iii 燃焼中、燃焼後の酸素濃度
- iv 各部の温度変化
- v 容器内の圧力変化
- vi 燃焼状態の観察と記録
- vii 燃焼生成物の化学分析

等を第1.1表に示した7ケースについて実験を行なうこととした。

次に実験装置について概略を説明する。

第 1.1 表 試験条件 (計画)

Na 初期温度	500°C						
液 深	50mm			150mm			
O <sub>2</sub> ガス初期濃度% (N <sub>2</sub> ガスで希釈)	5	21	10	21			
燃焼面積 (m <sup>2</sup> )	0.15		0.15	0.075	0.15	0.30	0.15
湿度 (20°C, %)	70	70	70	70	70	70	40
試験回数	1	1	1	1	1	1	1

## § 2 実 験 装 置

実験用の建屋（屋根付架台）および実験装置は、原研がPNCよりの受託調査として作製した仕様書に基づいて設計・設作されたものであり、PNCからの支給品（貸与品）として原研ナトリウム研究室に設置された。

### 2.1 実験用建屋（屋根付架台）および計測用パネル

3.5 m × 4 m × 4 m 程度の簡易建屋が、ナトリウム研、Na 処理室の南側壁に付設して作られた。計測用パネルはNa 処理室の操作室に設置され、連絡用小窓や、配線用貫通孔が南側壁にあげられた。（第2.1図）

### 2.2 試験装置

試験装置は、本体およびNa 燃焼皿、Na 溶融タンク、が主要な構成機器であり、Na 容器、Ar ガス、真空系がNa 充填のために使用された。個々の器材で重要なものとしては、グランドシールバルブ、ベローシールバルブ、非溶接継手、安全弁などがある。試験装置のフローシートを第2.2図に示し、実験室内の配置図を第2.3図に主要な構成機器を個別に概略説明すると、

i 本体（試験容器）：約 3.5 m<sup>3</sup> のステンレス鋼製ドーム造りで、500 φ マンホール、覗き窓、温度計用ノズル、安全弁などが付属品としてあり、Na 燃焼皿を下部でフランジ止めできる構造であり、この中でNa を燃焼させるものである。（第2.4図）

ii Na 燃焼皿： Na 溶融タンクから導入したNa を燃焼させる容器で、本体とフランジ止めできる構造になっている。Na の量や表面積を試験条件によつて変えるため、第2.1表に示すように4種類ある。

iii Na 溶融タンク： 約 80 ℓ のNa を収容でき、ここでNa を試験温度である 500 °C まで加熱して、Ar ガスで加圧してNa 燃焼皿にNa を送り込むものである。

iv Na 容器： Na 溶融タンクにNa をチャージする加熱可能な 200 ℓ 用ドラム缶であり台秤の上に乗せてあつて、チャージしたNa 量を秤量することができる。

### 2.3 実験方法

(i) 溶融タンクへのNa チャージ： Na 容器を加熱しNa を溶融させ、Ar ガスで規定量だけNa を圧入する。この際のNa チャージ量は台秤により秤量する。

(ii) Na 燃焼皿の本体への取付け：

(a) 漏洩テスト：本体への air 加圧による。

(b) 計器その他の確認

(c) 本体内を所定の酸素濃度、湿度に設定する。

(d) Na 燃焼皿へのNa チャージ：（Na 溶融タンクをAr ガスで加圧し、連絡部のチャージバルブを開く。チャージ量の検定は燃焼皿内の接触式液面計ブザー式による。）

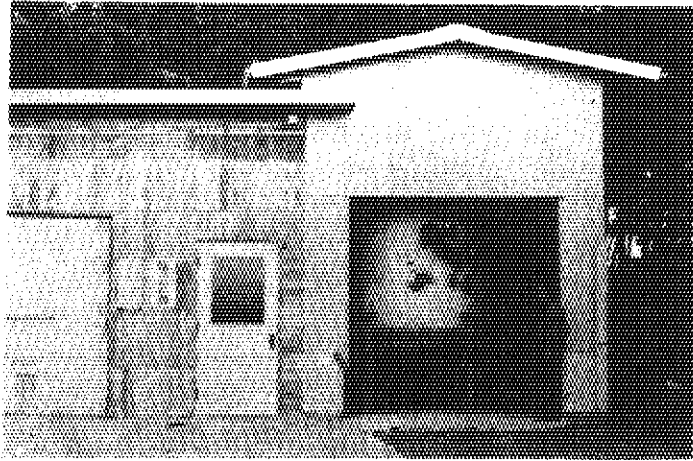
(f) 測定： i 温度（容器壁および内部、燃焼皿）および圧力

ii 酸素濃度（ガスクロ、北川式）

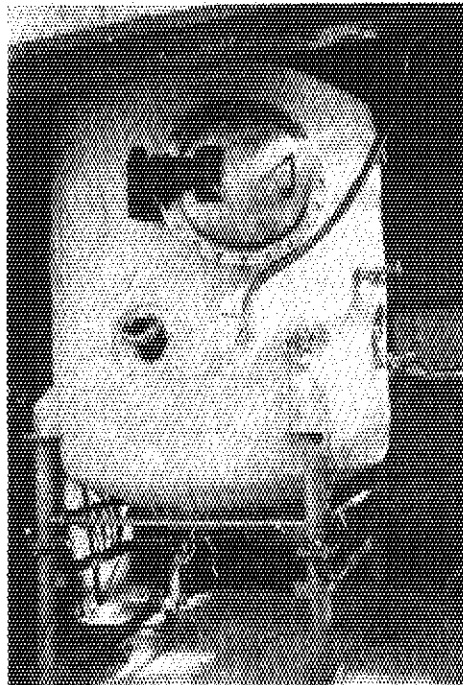
iii Na 液中の温度分布

第2.1表 試験装置一覧表

名 称	仕 様	員 数	ヒ ー タ	熱 電 対 (C.A)	備 考
容器本体	1500φ×2000H(3.2m <sup>3</sup> )6t 4B, ワイパー付き 2.5Kg/cm <sup>2</sup> 用 +3Kg/cm <sup>2</sup> ~-50mmHg 500φ	1 2 1 1	—	内部 2.3φ シース型熱電対(12本) 外部 2.3φ シース型熱電対(6本) その他 (8本)	
燃 焼 皿	0.075m <sup>2</sup> , 150mm(11.3ℓ)用 0.15m <sup>2</sup> , 50mm(7.6ℓ)用 " 150mm(22.7ℓ)用 0.30m <sup>2</sup> , 150mm(45.3ℓ)用 1B, 耐熱度600℃ メタルフランジ(Cuパッキン)	1 1 2 1 5 5	ニクロム線ヒータ(4KW) " " " " "	シース型熱電対 1.6φ×4本 3.2φ×2本	フランジ 1000φ
Na 溶融タンク	400φ, 800H, 3t, SUS-27 3Bステンレスウール ¾B SUS-27 1B, 耐熱度600℃	1 1 1 1	2.3φシース型ヒータ (8KW)	シース型熱電対 (内挿)3.2φ×1本 500~1000mm毎に1点	Naを500℃に する。
Na 容器	200ℓ用SUS-27製ドラム缶 1B, SUS-27	1 1	3.2φシース型ヒータ (6KW)	シース型熱電対 (内挿)3.2φ×1本	シリコンゴム パッキン
ガス真空系	Arボンベ, 真空ポンプ 水銀マノメータ, N <sub>2</sub> ボンベ 温度記録計 圧力記録計 トランス	1式	—	—	
計測パネル		1式	—	—	

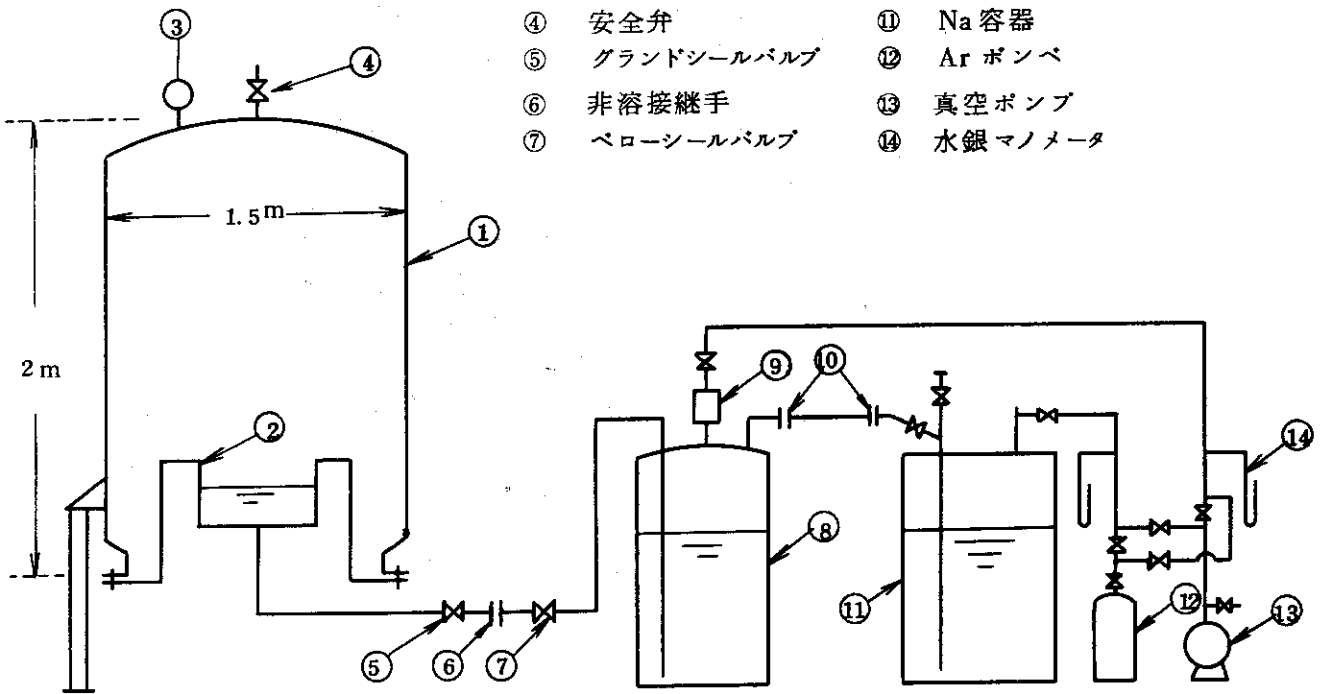


第 2.1 図 Na 火災モデル試験用建屋

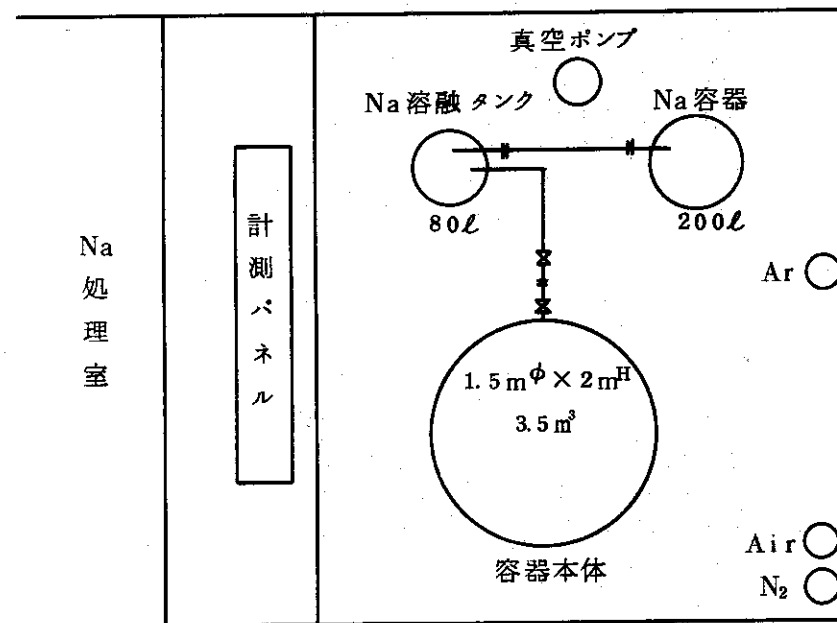


第 2.4 図 試験容器本体

- |              |            |
|--------------|------------|
| ① 容器本体       | ⑧ Na 熔融タンク |
| ② Na 燃焼皿     | ⑨ ベーパートラップ |
| ③ 圧力計        | ⑩ フランジ     |
| ④ 安全弁        | ⑪ Na 容器    |
| ⑤ グランドシールバルブ | ⑫ Ar ポンベ   |
| ⑥ 非溶接継手      | ⑬ 真空ポンプ    |
| ⑦ ベローシールバルブ  | ⑭ 水銀マンオメータ |



第 2.2 図 試験装置フローシート



第 2.3 図 試験装置配置図

## IV 燃焼状態の観察（ビデオテープ，8ミリカメラ）

- (イ) 燃焼反応終了の確認：（発光状態，温度，圧力，酸素濃度等の勾配による）
- (ロ) 未反応Naの回収（120℃前後で動排出）
- (ハ) Na燃焼皿を取はずす。
- (ニ) Na酸化物等をサンプリングする。（→分析）
- (ホ) Na燃焼皿のクリーニング（Na処理室で水処理）
- (ヘ) 本体をクリーニング（水洗→乾燥）する。
- (コ) 次の実験用燃焼皿を取付ける。

第2.2表 Na燃焼皿

種 類	Na 量 (ℓ)	面 積 (m <sup>2</sup> )	液 深 (mm)
A	11.3	0.075	150
B	7.6	0.15	50
C	22.7	0.15	150
D	45.3	0.30	150

§ 3 実 験 経 過

3.1 実験までの経過

- 43年1月 Na 火災モデル試験についてPNCと原研との予備会談あり
- 3/15 Na 火災実験用機器の仕様書作成に関する契約締結、同日付で原研よりPNCへ仕様書提出
- 3/30 契約完了
- 43年8月 本体および計測用パネル入る。
- 8/19 実験用仮設建屋完成
- 9/2 実験開始(第1回実験)
- 9/20 実験完了

3.2 実験経過

実験は4種類の燃焼皿を使用して、7ケース(8回)行なつた。これらの試験条件と実験の経過を第3.1表に示した。

第3.1表 試験条件と経過

実験 No.		1	2	3	4	5	6	7	8	
実験 月 日		9/2	9/4	9/6	9/11	9/13	9/16	9/18	9/20	
燃 焼 皿	注入Na量(ℓ)	11.3	7.6	22.7	45.3	22.7	7.6	22.7	11.3	
	表面積(m <sup>2</sup> )	0.075	0.15	0.15	0.30	0.15	0.15	0.15	0.075	
	液 深(mm)	150	50	150	150	150	50	150	150	
	名 称	A	B	C	D	C'	B	C'	A	
酸素濃度(%)		21	21	21	21	21	5.2	9.6	21	
湿 度	絶対(g/m <sup>3</sup> )	—	17.6	14.4	14.0	6.3	12.1	12.1	12.5	
	相対(%)20°C	—	100	82	78.3	36.8	70	70	72	
温 度(°C)	注入前	535	532	535	500	515	520	495	555	
燃 焼 皿(下 部)	注入後	500	505	520	500	505	470	475	495	
燃 焼 温 度(°C)※	注 入 前	T-19	—	460	435	425	440	450	385	—
		T-18	335	470	440	430	450	460	390	440
		T-17	375	475	445	435	450	465	420	440
	注(最 入 低 点)	T-19	—	350	365	330	385	395	328	—
		T-18	305	380	385	335	385	420	325	390
		T-17	350	395	395	370	385	430	345	410
容器内ガス温度(°C)		35	45	45	65	50	40	50	40	
容器外壁温度(°C)		30	30	30	45	30	30	30	30	

注 (※第5.1図参照) CとC'は副サイズの燃焼皿

第 3.2 表 各実験の相互比較は対照表

	比較に有効な実験の No
1. 液深の影響	2 - 3
2. 表面積の影響	3 - 4 - 8 (1)
3. 初期酸素濃度の影響	2 - 6, 3 - 7
4. 湿度の影響	3 - 5

各実験条件により比較検討を試みようとする場合は、第 3.2 表に示した各実験 No の結果について比較することが有効となる。

なお、実験に使用した Na は純度 99.6% の工業用 Na であり、燃焼に直接要した Na 総量は約 160g であつた。

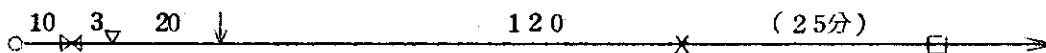
3.3 各実験時の燃焼現象 時間経過その他

記号説明

○	▷	▽	↓	×	□
フ副 タ射 取防 除止 くの	バチ ルヤ ブ1 開シ く用	Na 入 る	達予 す定 液 位 に	る見燃発 。え燃煙 な状に く態よ ながり	る発燃 。光焼 がに 消よ える

No. 1 (A)

(数字は秒数を表わす)

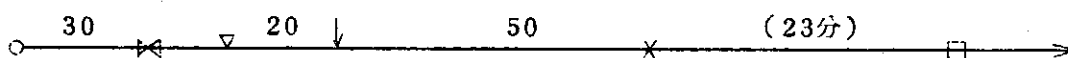


- チャージバルブを開けた直後に発火する。
- Na チャージの 10sec 後に 10mm φ位の火点が 5ヶ所位に発生し、90sec 後火点は全面に面積の 1/2程度拡大する。1.5 時間後視野が次第に明るくなる。

第 3.1 図は覗き窓からみた Na 燃焼皿への Na 酸化物等の付着状態である。

後処理の状態 容器本体から燃焼皿を取りはずすと付着生成物は次第に燃焼をはじめた。

No. 2 (B)

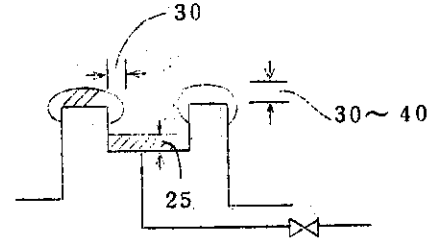


- Na チャージ直後発火したがすぐ消えた。
- チャージ 1min 後小さな火点が全面に広がる。

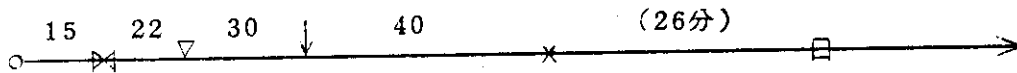
後処理の状態 (屋外湿度 52%)

- No. 1 より酸化物等の付着が少ない。

- 取はずした燃焼皿が第 3.2 図である。酸化物等の付着の様子を略図で示した。  
なお燃焼皿の底に残留した Na は未反応の Na を冷却直前 (120~150°C) に重力により回収したものの残りであり、酸化物等の沈でん混濁により液体 Na の流動性が悪くなつたために残留したものである。
- 取はずし 3 分後付着した白色の酸化物が黄色の過酸化物に変化し吸湿が進行する。
- 3.5 分後一部発火、発煙 (第 3.3 図)
- 4 分後 酸化物の高さが 35 mm から 20 mm 位に沈んでくる。
- 6 分後 発火、発煙が拡大する。
- 6.5 分後 Na 処理室へ運び Na を水処理する、水処理の際少量づつ水を散布すると 1 m にも達する炎を上げて発生した水素が燃焼した。

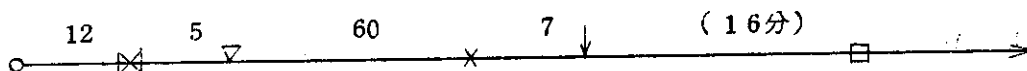


№ 3 (C)



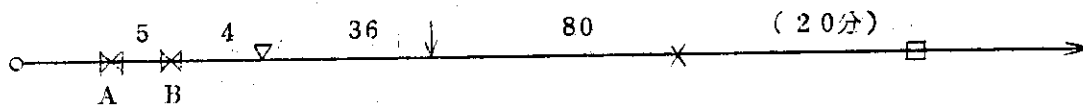
- Na チャージ時に炎が全面に拡がり、その後 2 sec ほど Na が 100~200 mm 位はねた。
- 覗き窓から見た酸化物等の付着状態を第 3.4 図に示した。なおこの写真は Na を動力排出した直後の状態である。

№ 4 (D)



- Na チャージの際は炎は出ず 15sec ほど少し Na がはねた。
- Na チャージ 30 sec 後全面に火点が拡がり予定液面に到達する前に発煙により視野がゼロになつた。

№ 5 (C)

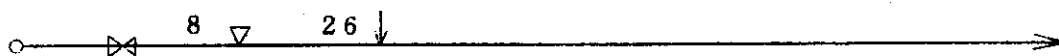


- チャージ用バルブ (グランドパツキンタイプ) を開いた時、燃焼皿で発火現象あり
- Na チャージして 5sec 位炎が発生
- " 15sec 位 Na が少しはねる。
- " 45sec 後全面に火点が拡がる。
- 燃焼 3 時間後の Na 燃焼皿の状態が第 3.5 図である Na を動力排出する前の状態で Na がきれいな鏡面状態で残留しており、酸化物等は沈降、もしくは燃焼皿の縁に付着している。
- 第 3.6 図は試験容器本体の内側下部に堆積した 3~4 mm の厚さの Na 酸化物で

ある。

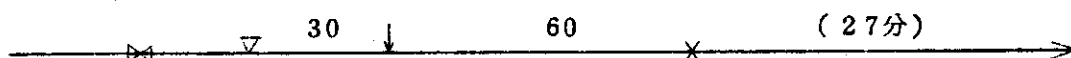
- 第3.7図は前記と同様のNa 酸化物であり、容器本体のマンホール部に堆積したものである。

## No. 6 (B)



- 発火に至らず煙がたゞよっている。
- Na チャージ 4 min 後、煙で燃焼皿の縁が見えなくなる。
- 4分後予熱ヒータを入れNa を 500℃ に保つ。
- 試験終了後にNa 燃焼皿を取はずした状態が第3.8図である。下部に白くみえるのが煙状の酸化物が降下、堆積したものである。

## No. 7 (C)



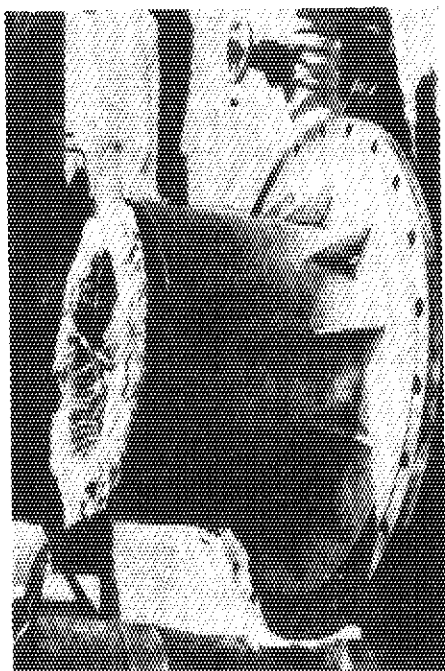
- Na チャージ後 10sec 位 100mm 程度 Na がはねる。
- 発煙は No. 6 より激しいが発火に至らず。
- Na チャージ 1 min 後燃焼皿のヘリが見えなくなる。
- 1 min 後予熱用のヒータを入れNa を 500℃ に保つ。
- Na チャージ 1 時間後の燃焼皿の様子を第3.9図にのせた。

## No. 8

No. 1 と同条件の実験で燃焼現象もほとんど同じ

燃焼状態の経過を 10 秒毎に撮影したものを第3.10図に示す。

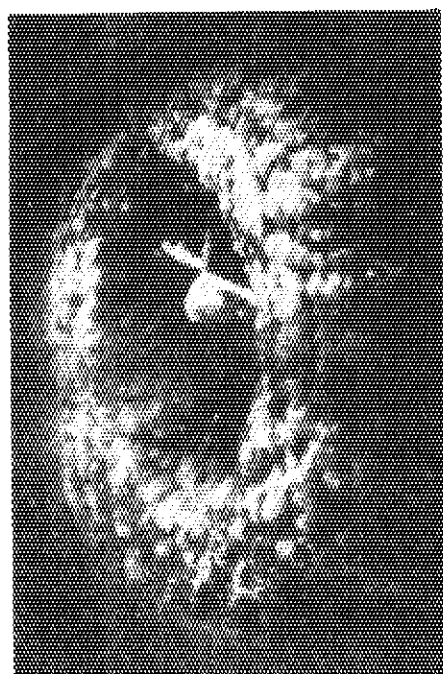
- [ 写真説明 ]
- イ 輻射熱防止板をのせてあるNa 燃焼皿上部
  - ロ Na チャージ用バルブを開く
  - ハ 初期発火状態
  - ニ (10秒後) Na 注入開始
  - ホ (20秒後) 火点が現れる
  - ヘ (30秒後) 予定液面に到達(150mm) 火点拡大
  - ト (40秒後) 火点が連結し発煙も多くなる。
  - チ (50秒後) ほぼ全面に火点が広がる。
  - リ (60秒後) 発煙で視度がせばまる。
  - ヌ (70秒後) 全面燃焼
  - ル (80秒後) 視度ほとんどなくなる。



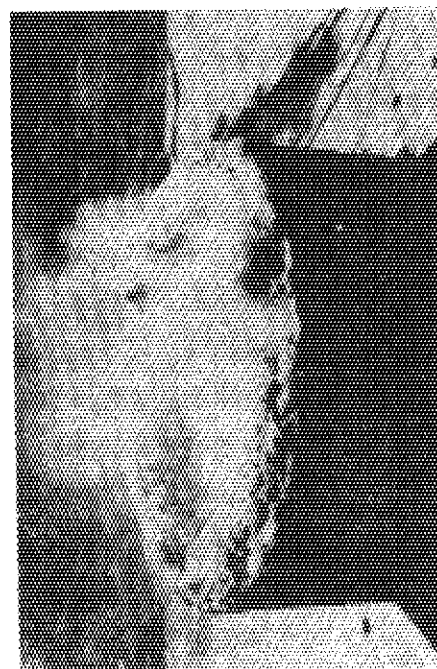
第3.2図 実験 No.2 容器より取りはずし直後のNa燃焼



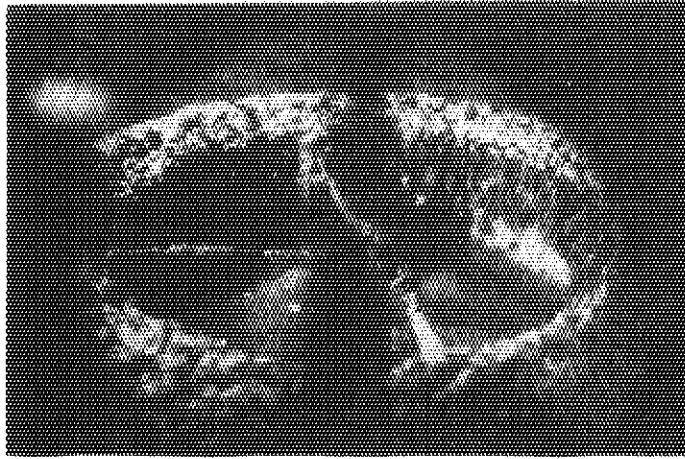
第3.4図 実験 No.3 覗き窓からみた燃焼皿 (燃焼後2hr)



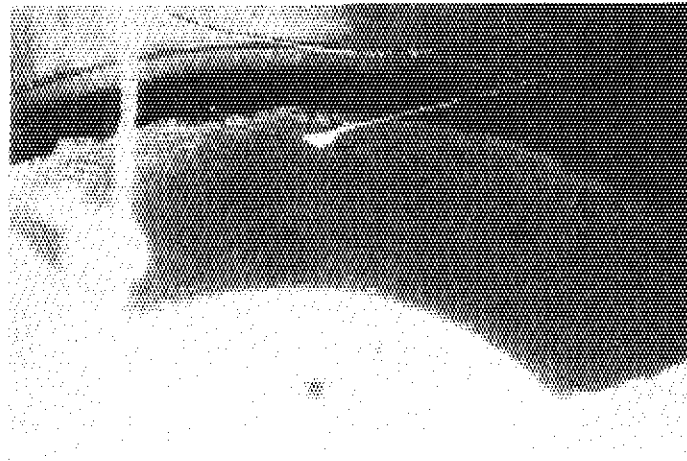
第3.1図 実験 No.1 燃焼後の生成物



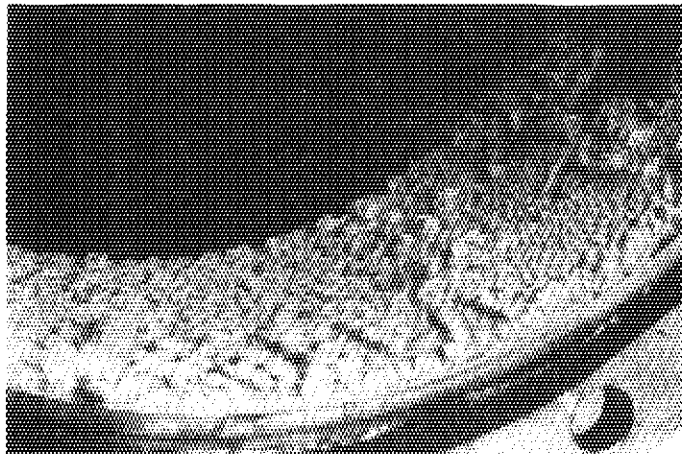
第3.3図 実験 No.2 第3.2図の4分後の状態 (燃焼生成物が発煙)



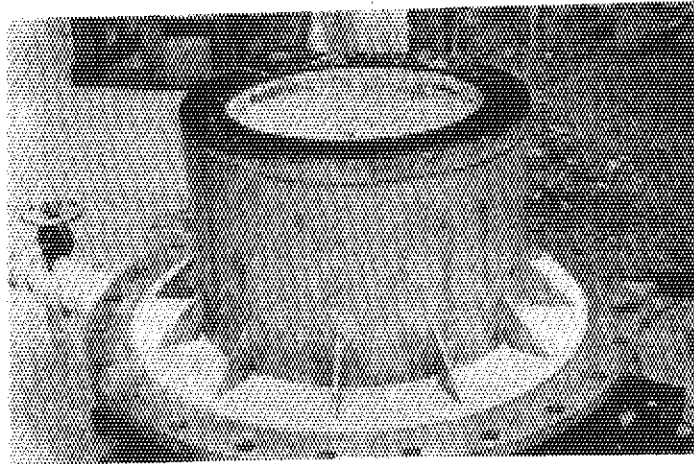
第 3.5 図 実験 №5 燃焼 3 hr 後



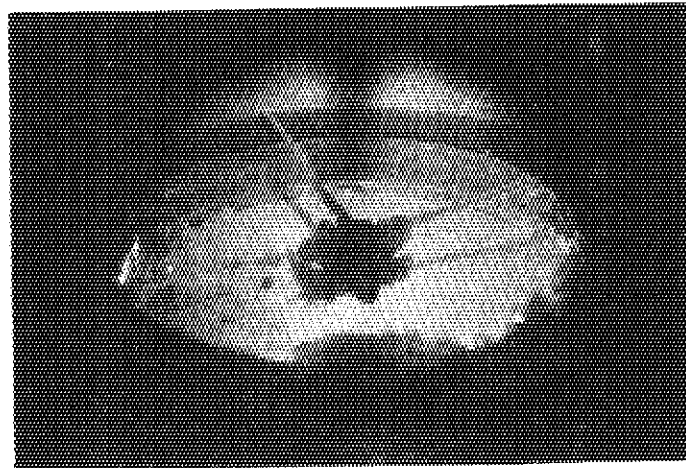
第 3.6 図 実験 №5 容器内部に堆積した酸化物



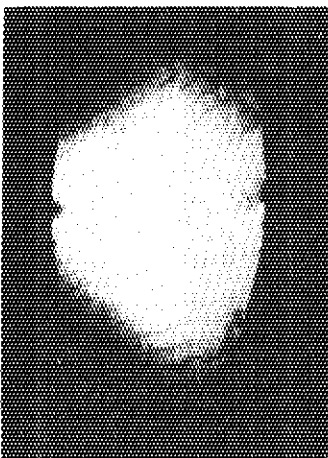
第 3.7 図 実験 №5 マンホールに堆積した酸化物



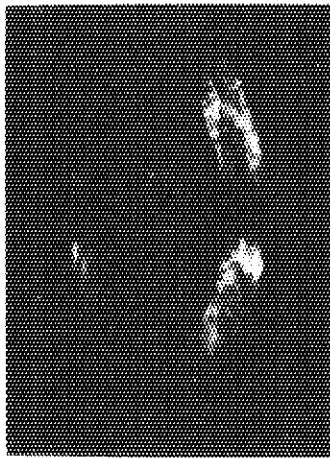
第 3.8 図 実験 № 6 燃焼皿取出し直後



第 3.9 図 実験 № 7 非発火燃焼終了後のナトリウム液面  
(何分後)



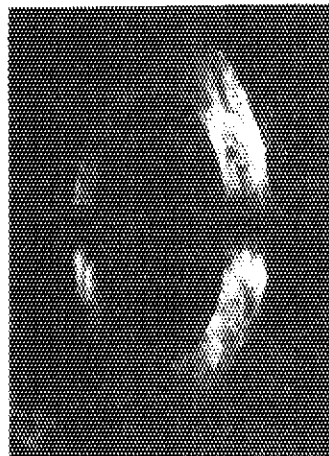
① 輻射熱防止板をはずしてない状態



② 輻射熱防止板をはずした状態



③ Na チャージ用バルブを開く



④ 10 sec 後

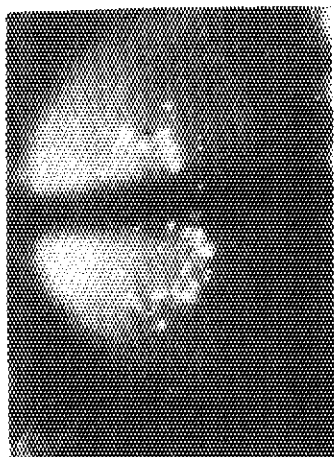


⑤ 20 sec 後

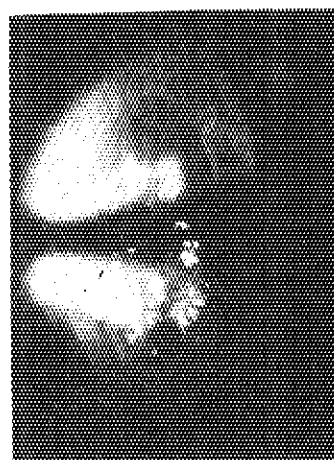


⑥ 30 sec 後

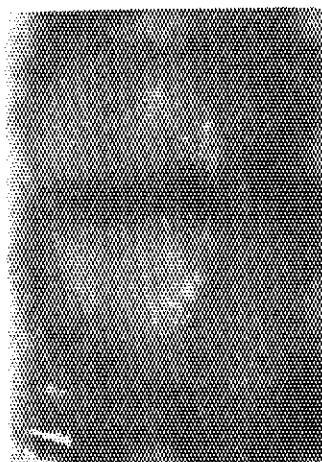
第 3.10 図-1 実験 Ⅷ8 (10 秒毎に撮影)



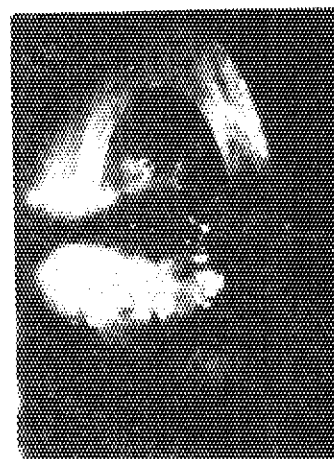
① 60 sec 後



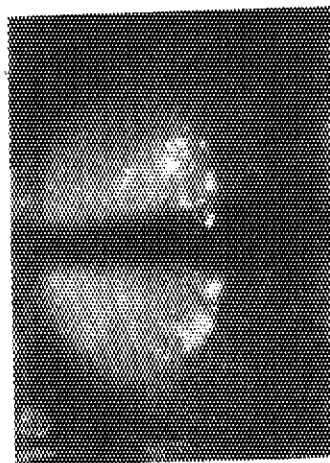
② 50 sec 後



③ 80 sec 後



④ 40 sec 後



⑤ 70 sec 後

第3.10図-2

第 3.3 表 燃焼による生成物の分析結果

(原研分析センター)

	№ 2 (灰色)	№ 4 (灰色)
試料	9.486 g	3.407 g
液量	500 ml	250 ml
採取量	50 ml	50 ml
0.990N-HCl		
滴定量	32.75 32.75 ml	26.75 26.75 ml
アルカリ量	32.40 32.40 ミリ当量	26.45 26.45 ミリ当量
ナトリウム量	32.40 ミリ当量	13.23 ミリ当量
	7.45 g	3.04 g
酸素量	2.03 g	0.364 g
	127.1 ミリ当量	22.75 ミリ当量
Na : O	1 : 0.39	1 : 0.17

## 3.4 燃焼現象の観察結果の総括

## 3.4.1 初期酸素濃度の影響 (№ 2-6, 3-7)

## (i) 酸素濃度 21% の場合

Na が注入されると、火点 (5~10 mm φ) が数ヶ所発生し、約 1 分後に全表面に拡大しつつ多量の白煙とともに燃焼が進行し、20~25 分燃焼が続行する。容器内の白煙はやがて粉状になつて降下し、主に容器側下部に堆積 (3~5 mm) する。堆積した酸化物の量は約 1 kg と推算された。容器内の内部は燃焼後約 2 時間で視野が 100% になる。この時の燃焼皿は上部に一部酸化した Na 蒸着物が 20~40 mm 盛り、燃焼現象が激しいことを示している。なお、Na は鏡面状態で残り、初期液位より 30~50 mm 低下している。Na を重力排出した後 Na が 15~25 mm の厚さで残留するが、これは Na 酸化物が液中に沈殿し、Na と混濁したために液体 Na の流動性が悪くなつたためである。

## (ii) 酸素濃度 5.2% および 9.6% の場合

5.2% の場合は、Na は発火燃焼に至らず、そのまま残留した。

酸素濃度 9.6% の場合は、発煙したが、発火現象は認められなかつた。

## 3.4.2 液深の影響 (№ 2-3)

特に顕著な差異はなかつた。たゞし、50 mm と 150 mm における試験ではいずれも容器内の酸素の消費による自然鎮火時には Na が液体のまま充分残留できる程度に量的に多い場合であり、液深が燃焼しつくしてしまう程度の場合とは比較していない。

## 3.4.3 表面積の影響

(i) 表面積小 (0.075 m<sup>2</sup>) の場合

燃焼速度が比較的速く、生成酸化物の量も表面積の大きなものと比較して多かつた。これは容器本体内における熱対流現象が表面積が大なものに比べて、起りやすい傾向を示しているも

のと思われる。

(四) 表面積中 ( $0.15\text{ m}^2$ ) の場合

発煙状態は表面積小の場合より激しくなるが、初期の火点成長の様子は同様である。

(五) 表面積大 ( $0.30\text{ m}^2$ ) の場合

Na の量的にも多くなるので、予定液面に到達する前に発煙によつて視野がゼロになつたが、火点の拡大の傾向は表面積による差異はほとんどない。しかし、燃焼時には、浮遊ナトリウム酸化物の動きを覗き窓から観察することにより、燃焼表面積が大の場合容器本体内部の対流現象が円滑に行われにくいことがわかるので、Na の燃焼速度としては遅くなることが推測される (第 5.4 章参照)。

#### 3.4.4 湿度の影響

低湿度 ( $36.8\% = 20^\circ\text{C}$ ) の方が、通常湿度 ( $70\% = 20^\circ\text{C}$ ) より予定液面に到着してから、発煙により容器本体内の視野がゼロになるまでの時間が約 2 倍長かつた。

燃焼の現象としては、通常湿度の場合と顕著な差異はないが、燃焼持続時間としては 3~5 分短かつた。

### 3.5 燃焼後の残留物

実験 No. 2 および No. 4 の燃焼後の燃焼皿上部および下部に付着した反応生成物を採取して分析を行なつた。

#### 3.5.1 分析の目的と方法

試料中の Na 量と酸素量を測定することが目的で試料をアルコール、次に水で溶解処理後、塩酸で滴定してアルカリ量を求め、試料重量から差引いた残りを酸素量とした。

#### 3.5.2 分析の結果

分析した結果を第 3.3 表に示した。

No. 2 (灰色) の試料が No. 4 (灰色) より酸素量の比率が高くなつてゐるが、容器本体内の初期湿度 (第 3.1 表参照) が異なるため、湿度の高い時の方が含有酸素量が多いものと思われる。



#### 4.2.3 サンプリングの遅れおよびその補正

炉室内のサンプリング孔（第5.1図）よりガスクロマトグラフィーに試料ガスが到達するまでに一定時間が経過する。従つて測定値を真の値に補正する必要がある。

平均遅れ時間  $t'$  はサンプリング孔からガスクロマトグラフィー導入口までの流系の体積  $V$  とし流量を  $v$  とすれば

$$t' = V/v \quad \dots\dots\dots (5)$$

である。 $t'$  を第4.3図に示した。 $t'$  の前後で濃度が変わっているのは、一部のガスは期待される時間よりも早く測定系に到達し、一部のガスは遅れるためである。一般に  $f(t)$  を時間  $t$  に対する測定値、 $L$  をむだ時間、 $\tau$  を時定数とすれば、 $T = t - L$  について

$$g(T) = f(T) - \tau \frac{df(T)}{dt} \quad \dots\dots\dots (6)$$

が成立し  $T$  における真の値  $g(T)$  が得られる。

第4.3図より、 $L = 50/60 \text{ min}$ 、 $\tau = 35/60 \text{ min}$  なる値が求められ、(6)式を使用して測定値を補正した。データは第5.4～5.10図に  $g(T)$  と  $T$  の関係として与えられている。

#### 4.2.4 湿度の測定

容器内の湿度は露点湿度計により測定した。露点 (DP) および絶対湿度、 $20^\circ\text{C}$  に換算した相対湿度 (R.H.) をそれぞれのデータに表示した。

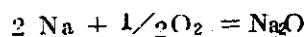
#### 4.2.5 北川式ガス検知管による酸素濃度の測定

実験 No. 8 において、北川式ガス検知管で酸素濃度を測定した。サンプリングは第4.1図の A 点で行なつた。その結果をガスクロマトグラフィーによる測定値と比較のため第4.10図に示した。酸素濃度  $15 \text{ v/o}$  以下の所ではガスクロマトグラフィーによる値とよく一致している。

### 4.3 解析結果

#### 4.3.1 燃焼速度 (反応速度)

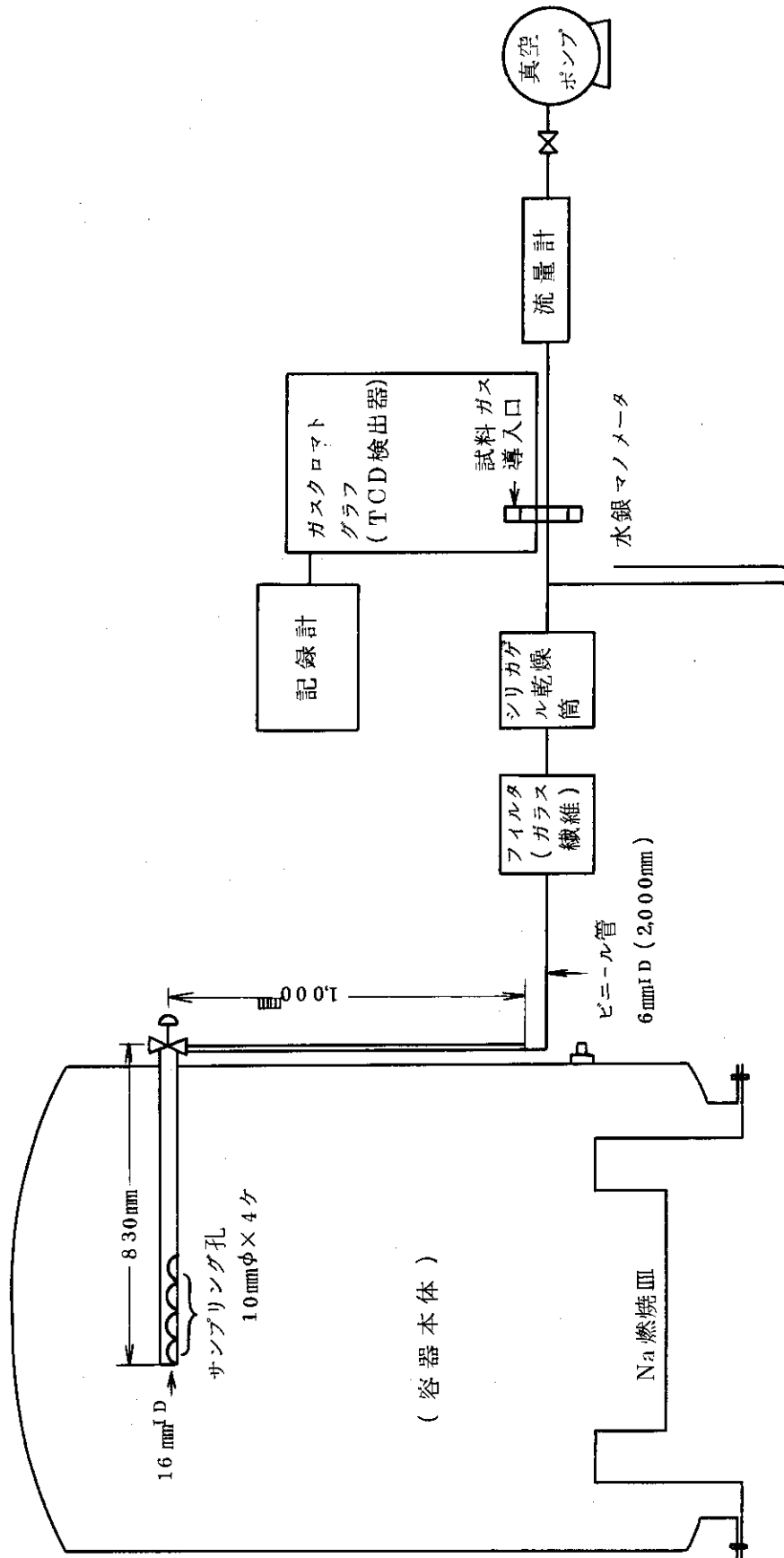
Na と酸素との反応は酸素不足の状態では次の様に進むであろう。



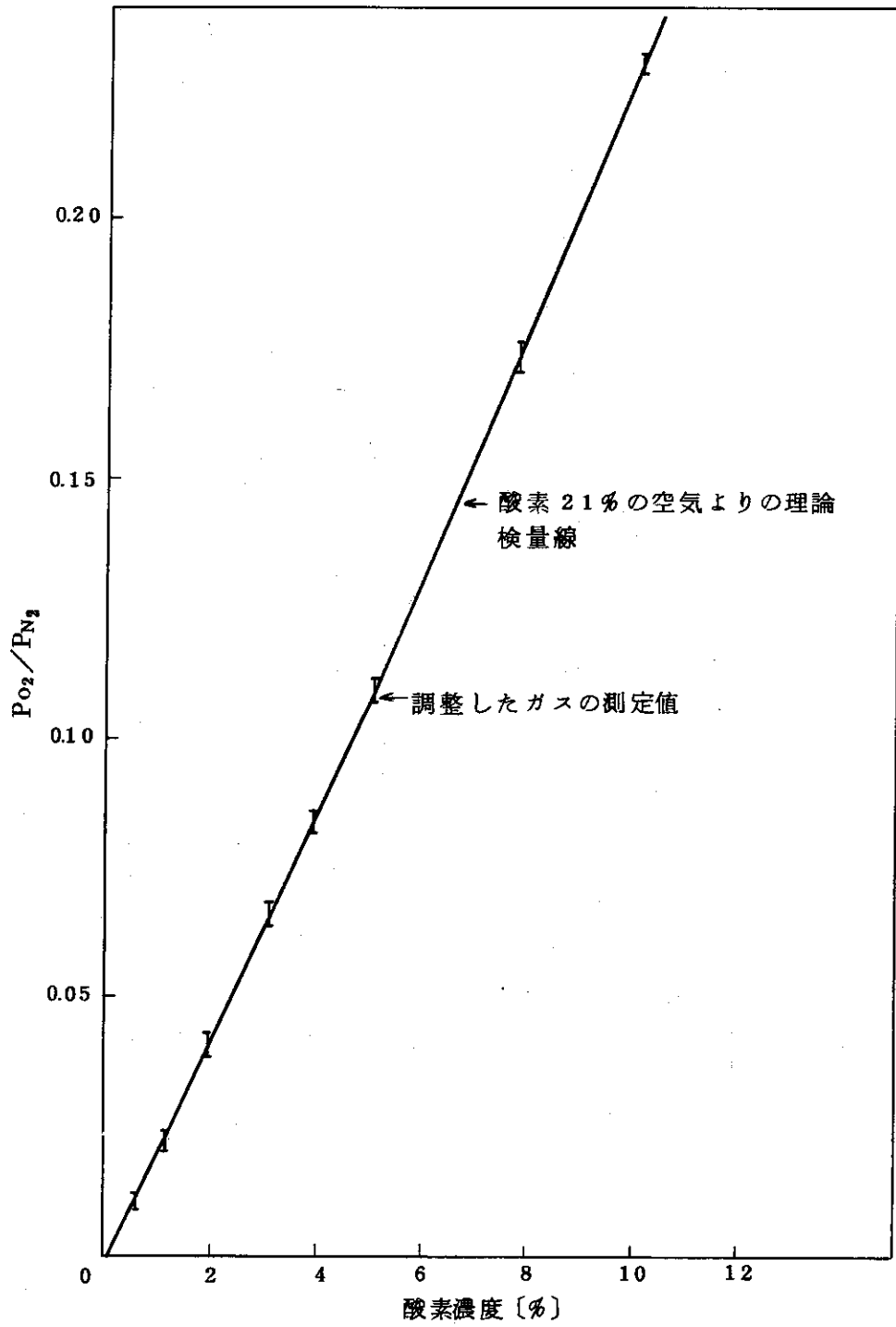
すなわち、酸素 1 モルの減少はナトリウムモルの減少に対応する。一般に一次反応速度は

$$-\frac{d[x]}{dt} = k[x] \quad \dots\dots\dots (7)$$

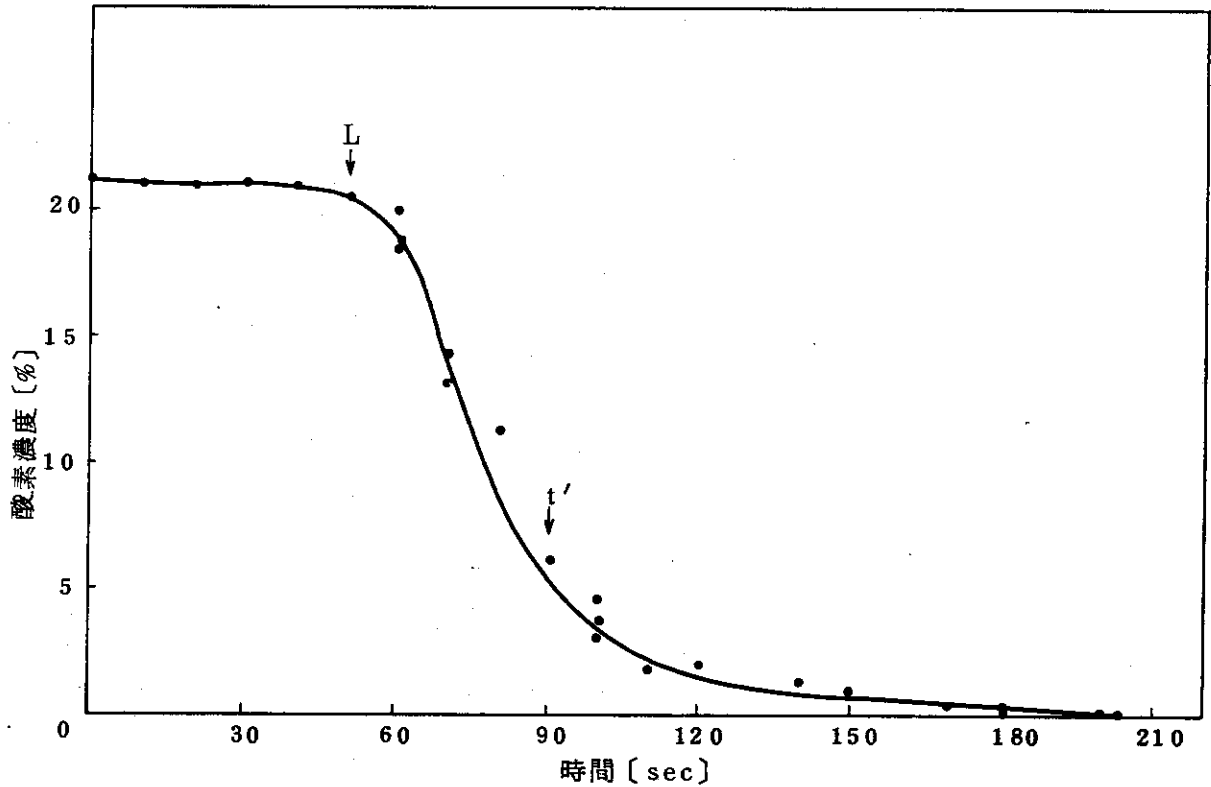
なる関係がある。 $[x]$  は残留  $\text{O}_2$  量である。本実験の場合、燃焼は Na 表面上で一様に起つておらず、不均一な火点を中心として燃焼が起つておるようである。そしてこの火点は反応が進むにつれて増加していく事が認められ、極めて複雑である。実験結果では反応の初



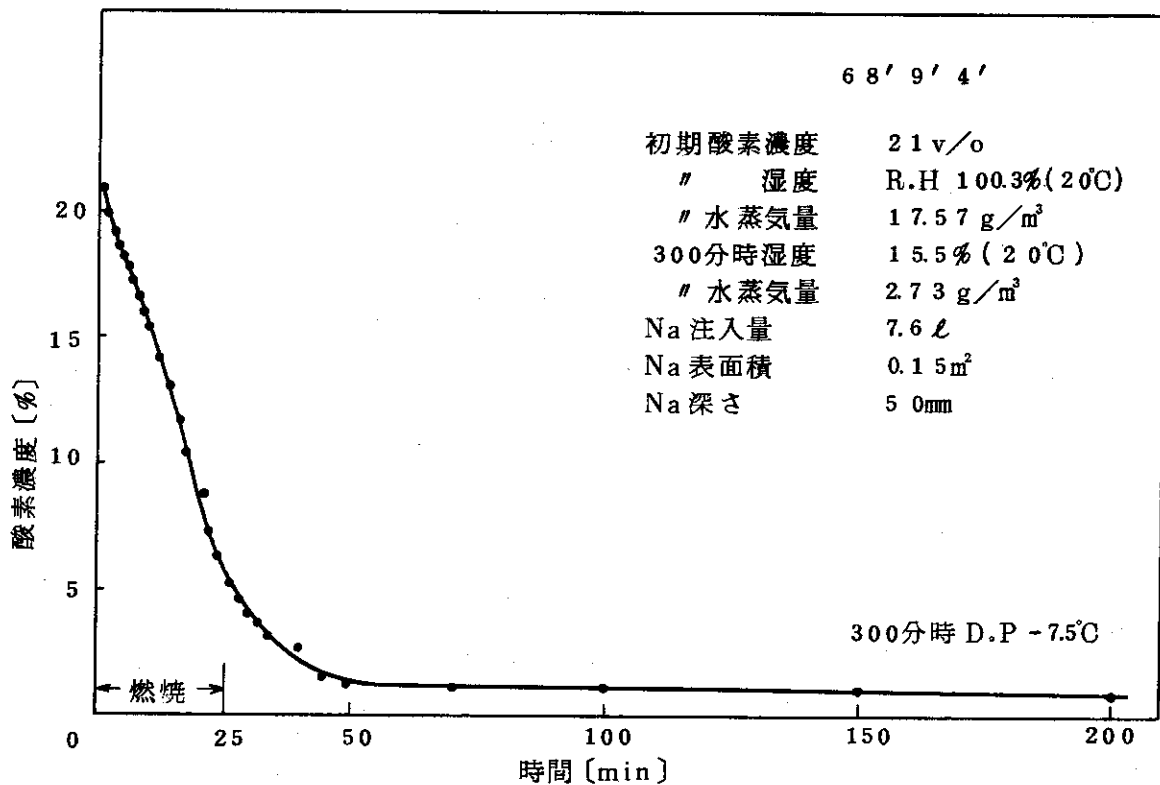
第 4.1 図 酸素濃度測定フローシート



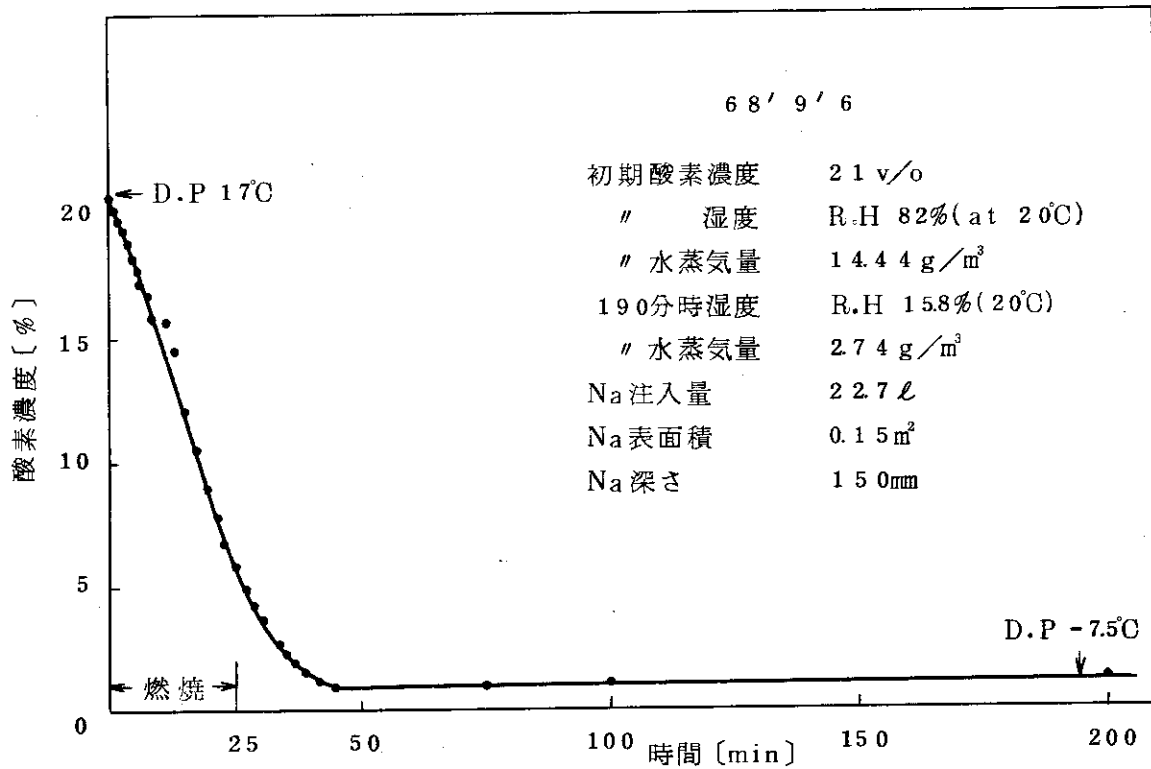
第 4.2 図 検量線の精度



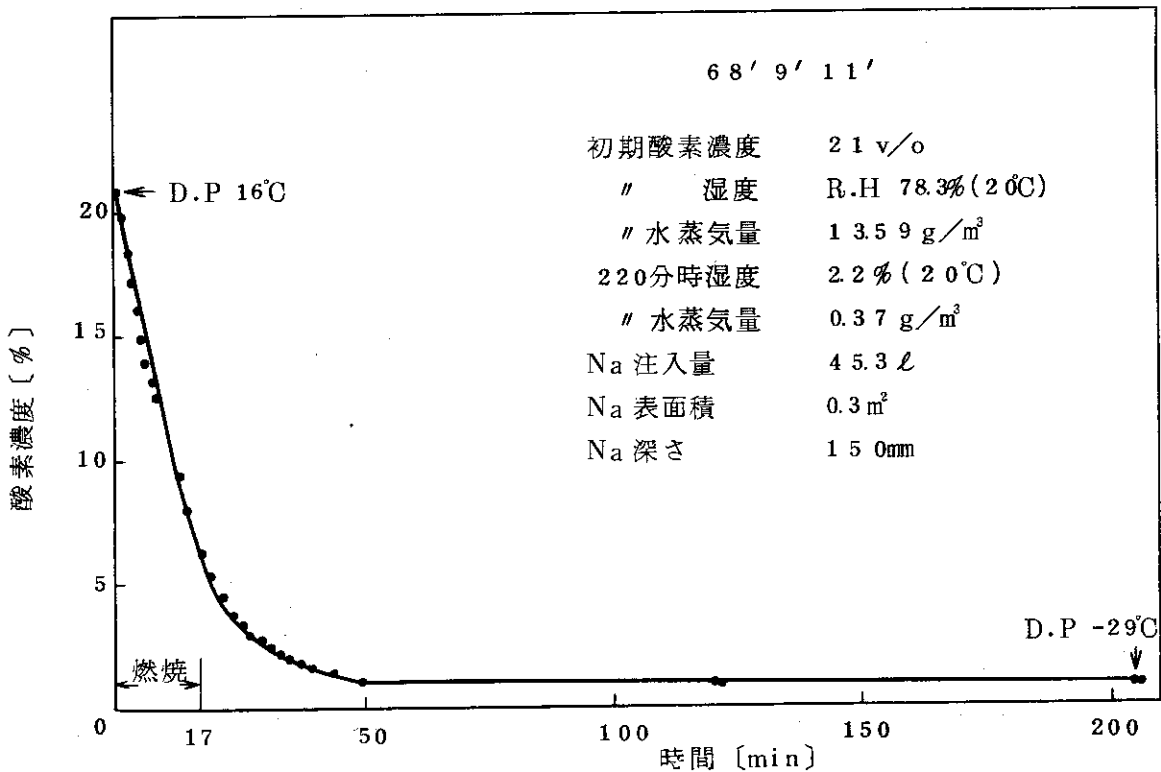
第 4.3 図 サンプリングのおくれ



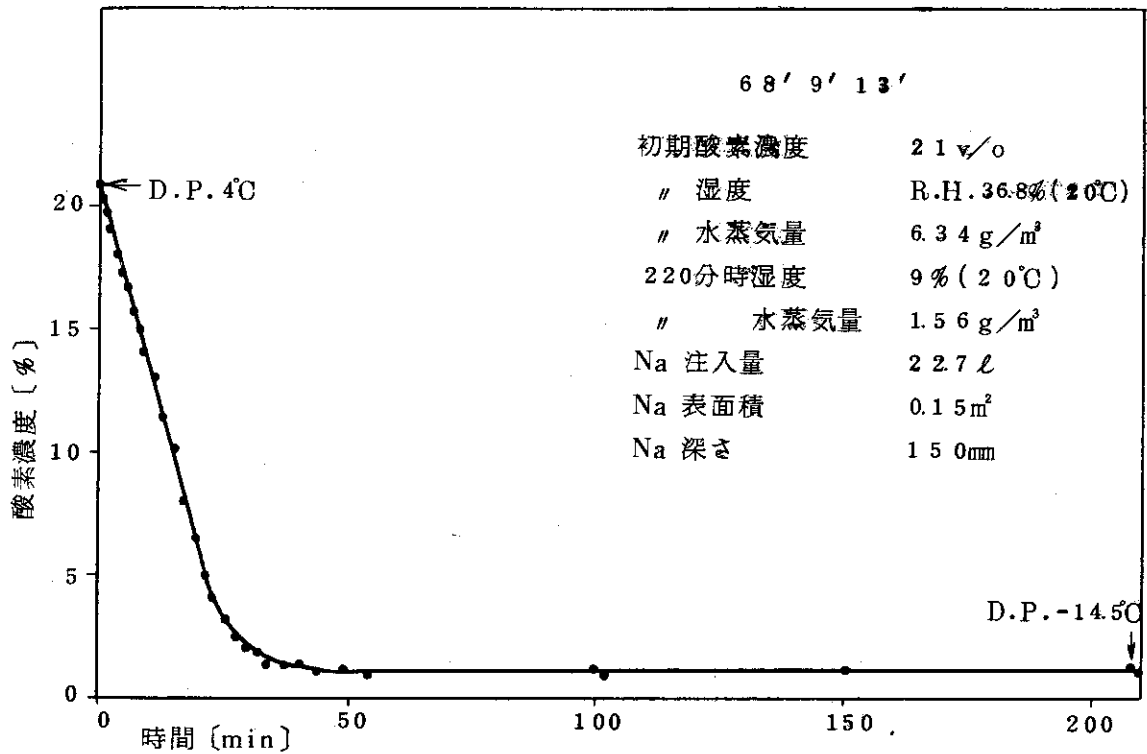
第 4.4 図 実験 No. 2 酸素濃度の経時変化



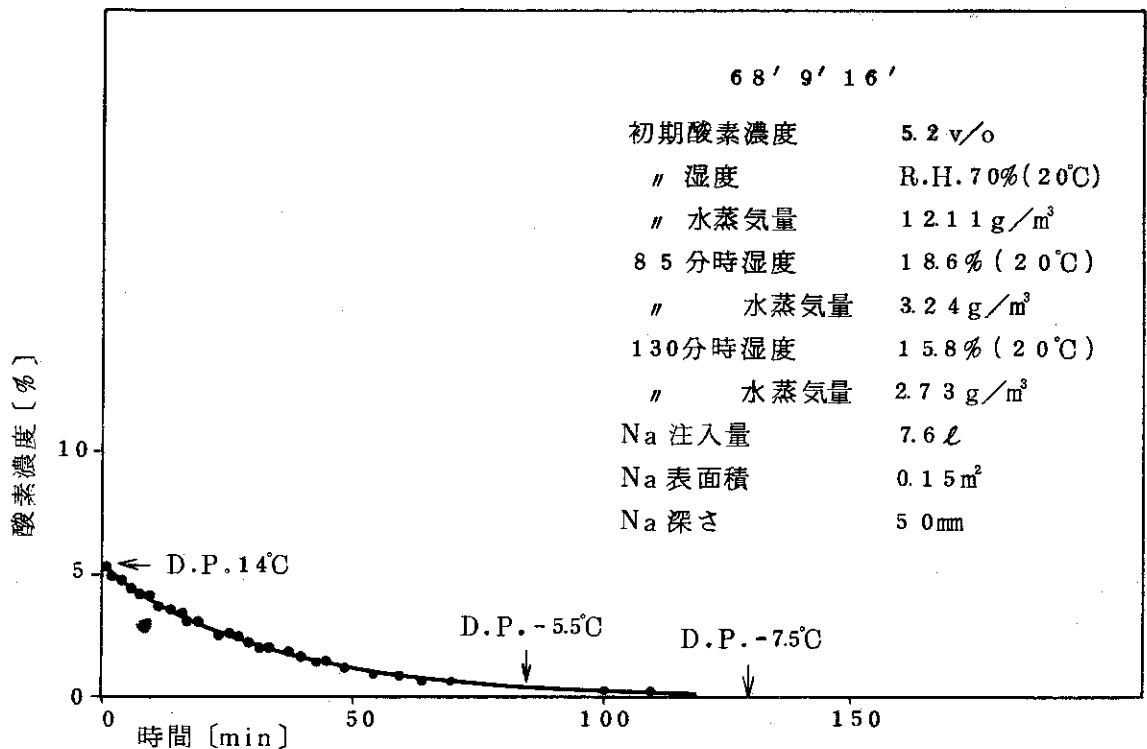
第 4.5 図 実験 No.3 酸素濃度の経時変化



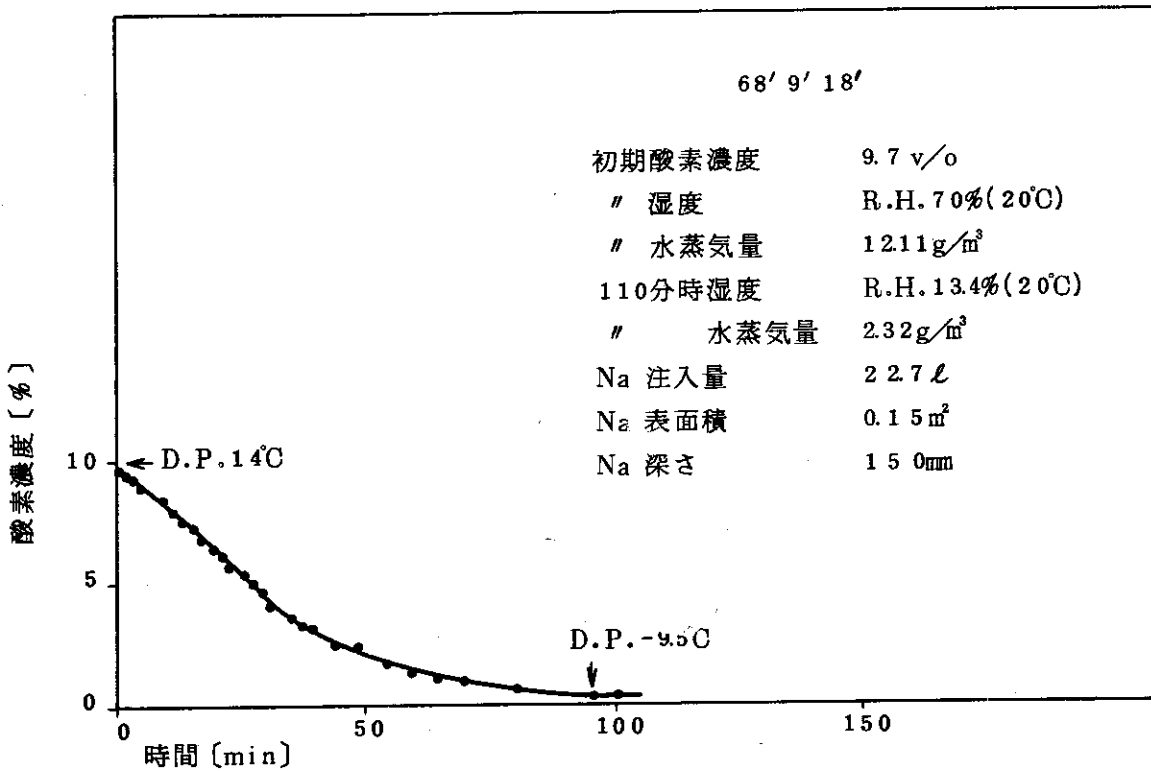
第 4.6 図 実験 No.4 酸素濃度の経時変化



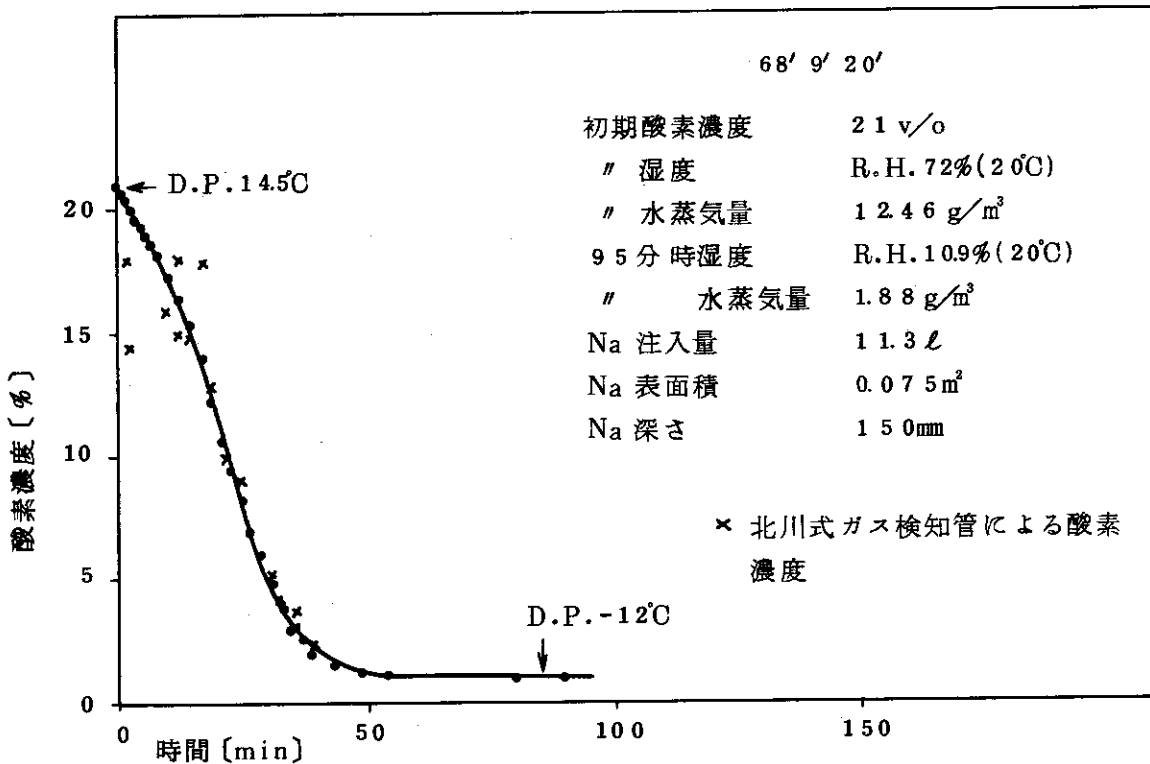
第 4.7 図 実験 No. 5 酸素濃度の経時変化



第 4.8 図 実験 No. 6 酸素濃度の経時変化



第4.9図 実験 No. 7 酸素濃度の経時変化



第4.10図 実験 No. 8 酸素濃度の経時変化

期において見掛け上、次式の様に反応が進んでいる。

$$-\frac{d[x]}{dt} = k \quad \dots\dots\dots (8)$$

故に、0次反応である。すなわち、(8)式のkについて、酸素濃度の減少率をNaの燃焼速度に変換し、それをNaの単位表面積当りに整理し(9)式を導いた。

$$\text{反応速度} = \frac{4 N_0 [Na]}{ST} \text{ kg/m}^2 \text{ hr} \quad \dots\dots\dots (9)$$

- $N_0$  : 初期酸素のモル数 [mol]
- $[Na]$  : ナトリウム分子量 [kg/mol]
- $S$  : Na 露出表面積 [m<sup>2</sup>]
- $T$  : 見掛けの反応時間 [hr]

実験No. 6, No. 7においては、反応は(8)式よりむしろ(7)式に従っていると推定されるが、比較のために(8)式に従うとし、(9)式を用いて整理した。

なお、実験No. 6, 7の場合は燃焼皿の温度を500°Cに保っている。 $N_0$ の値は実験毎に幾分異なる(これは炉室内容積が燃焼皿の大きさによつて異なるからである)。

ガスサンプルのために吸引した空気量は実験誤差内であつたので無視した。各実験条件および反応速度の値を第4.1表に示した。

#### 4.4 考 察 (さらに総合的な論議は§7にゆずる)

##### 4.4.1 燃焼速度とNa露出表面積S, 容器内断面積 $S_0$ の比( $S/S_0$ )との関係

初期酸素濃度21v/oの場合の燃焼速度と $S/S_0$ との関係を第4.1.1図に示した。いずれの実験でも強制的に容器内空気の攪拌を行なつていないので、酸素(空気)の燃焼表面への供給は対流効果による影響を受ける。この対流の影響は $S/S_0$ の値が小さい方がより大であろう。すなわち、 $S/S_0$ の値が小さくなれば容器内側壁に沿り下向流が強くなり、対流効果による酸素の供給が大となり、燃焼速度も増加すると推定される。

本実験による結果はよくこの事を示している。 $S/S_0$ の値が0.2以上では一定値に達し、約0.3 kg/m<sup>2</sup>minである。0.2以下では、燃焼速度は $S/S_0$ に反比例して大きくなる。

しかし、 $S/S_0$ の値が我々の実験範囲よりさらに減少する場合に、燃焼速度がどの程度まで増加するかは、本実験の結果より推定することは不可能である。

##### 4.4.2 燃焼速度とナトリウム深さの関係

$S/S_0$ が一定で、初期酸素濃度21v/oの場合の燃焼速度とNa深さとの関係を第4.1.2図に示した。深さが増加すると燃焼速度は増加すると推定されたが、本実験の深さ50mm~150mmの範囲では影響は見られなかつた。

##### 4.4.3 燃焼速度と初期水蒸気量との関係

$S/S_0$ が一定で、初期酸素濃度21v/oの場合の燃焼速度と初期水蒸気量との関係を第4.1.3図に示した。

第4.1表 各条件下における燃焼速度 (反応速度)

実験 No.	初期濃度 [v/o]	ナトリウム 露出面積 S (m <sup>2</sup> )	ナトリウム 液深 D (mm)	注 ナトリウム量 (ℓ)	初期 水蒸気量 (g/m <sup>2</sup> )	ナトリウム露出 表面積/ 容器面積 S/S <sub>0</sub>	燃焼速度		(反応速度)	
							kg/m <sup>2</sup> ·hr	kg/m <sup>2</sup> ·mm	ed / ft <sup>2</sup> ·hr	eb / ft <sup>2</sup> ·min
1	21	0.075								
2	"	0.15	50	7.6	1.76	0.0849	30.3	0.505	6.21	0.103
3	"	"	150	22.7	1.44	"	27.3	0.454	5.58	0.093
4	"	0.3	"	45.3	1.36	0.1698	21.3	0.356	4.37	0.073
5	"	0.15	"	22.7	6.3	0.0849	37.0	0.617	7.56	0.126
6*	5.2	"	50	7.6	1.21	"	5.2	0.087	1.07	0.018
7*	9.7	"	150	22.7	1.21	"	7.9	0.131	1.61	0.027
8	21	0.075	"	11.3	1.25	0.0425	51.1	0.853	10.48	0.175

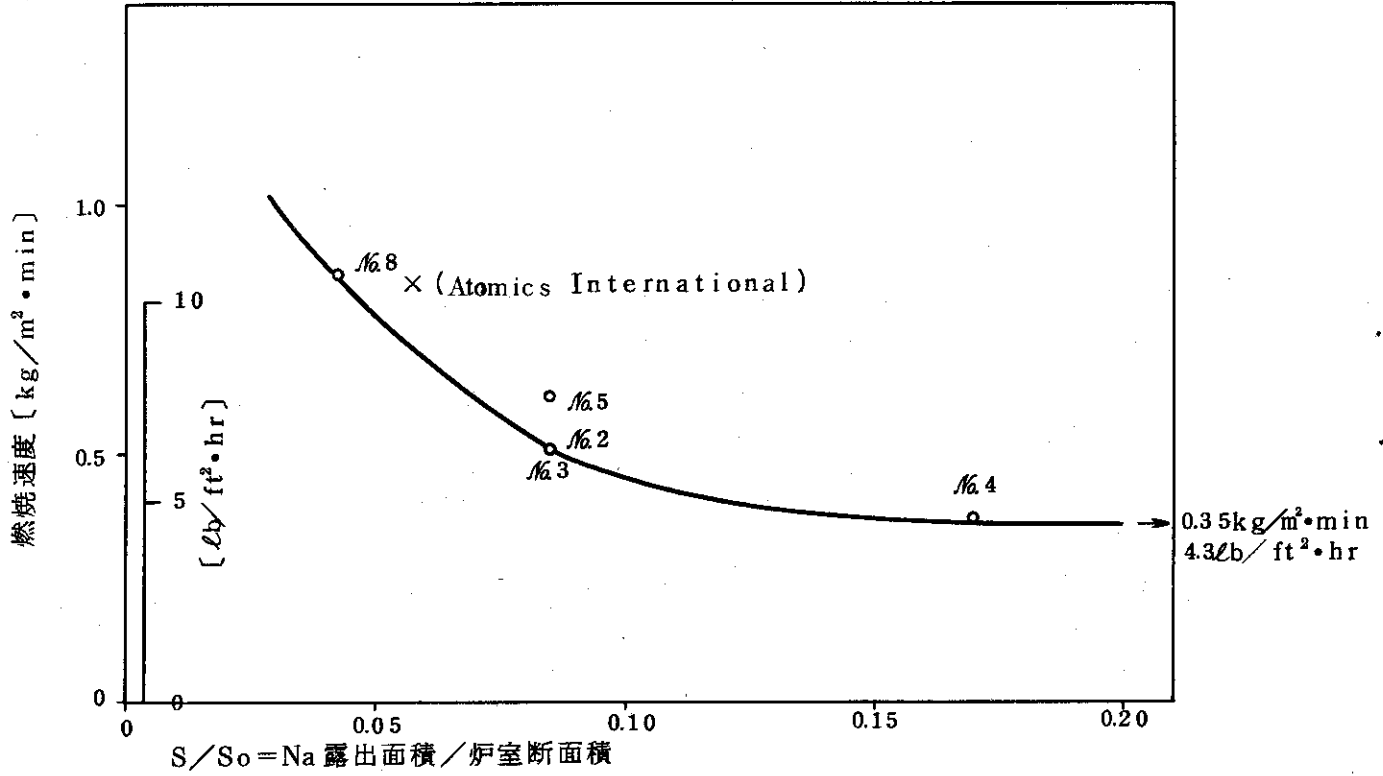
※ 燃焼皿温度は500℃に保つてあつた。  
 1 kg / m<sup>2</sup> hr ↔ 0.2048 lb / ft<sup>2</sup>·hr

一般に水蒸気量が増加すると燃焼速度は増加すると推定されるが、本実験の水蒸気量範囲では水蒸気の燃焼速度におよぼす影響はみられなかつた。水蒸気の存在が、Na 燃焼速度に影響を与えるのは、さらに低い湿度の場合であると推定されるが、その場合、実際上の火災の条件としては無関係である。

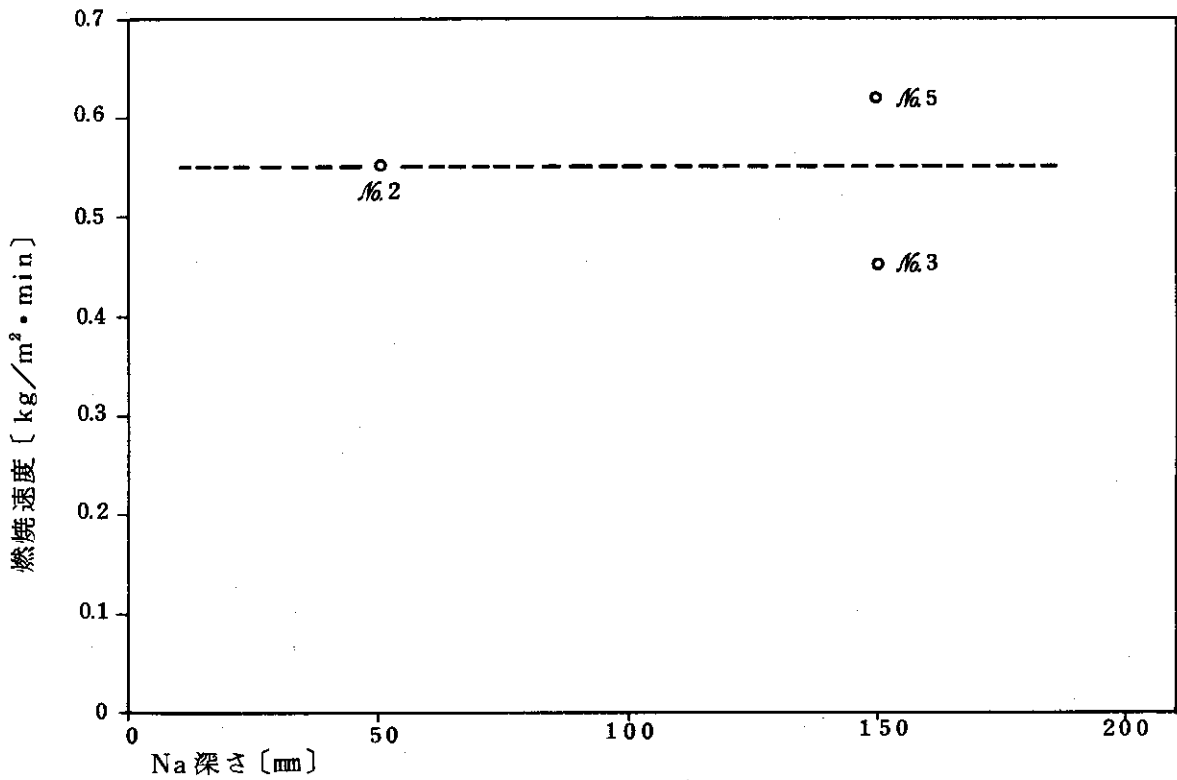
#### 4.4.4 燃焼速度と初期酸素濃度の関係

初期酸素濃度は、燃焼速度に著るしい影響を与えていることが第4.1.4図より見られる。初期酸素21v/oの場合、炎を上げる燃焼反応が止るのは酸素濃度が5~6 v/oになつた時であり、反応が止るのは酸素1 v/o程度の時である。酸素濃度が5.2 v/o, 9.7 v/oの時は炎を上げる様な激しい燃焼反応は起らなかつた。酸素濃度が何v/oの所で炎を上げて燃焼するかということは重要であるが、湿度の場合と同様に実際上酸素21v/oの時に意味があるのではないかと考えられる。

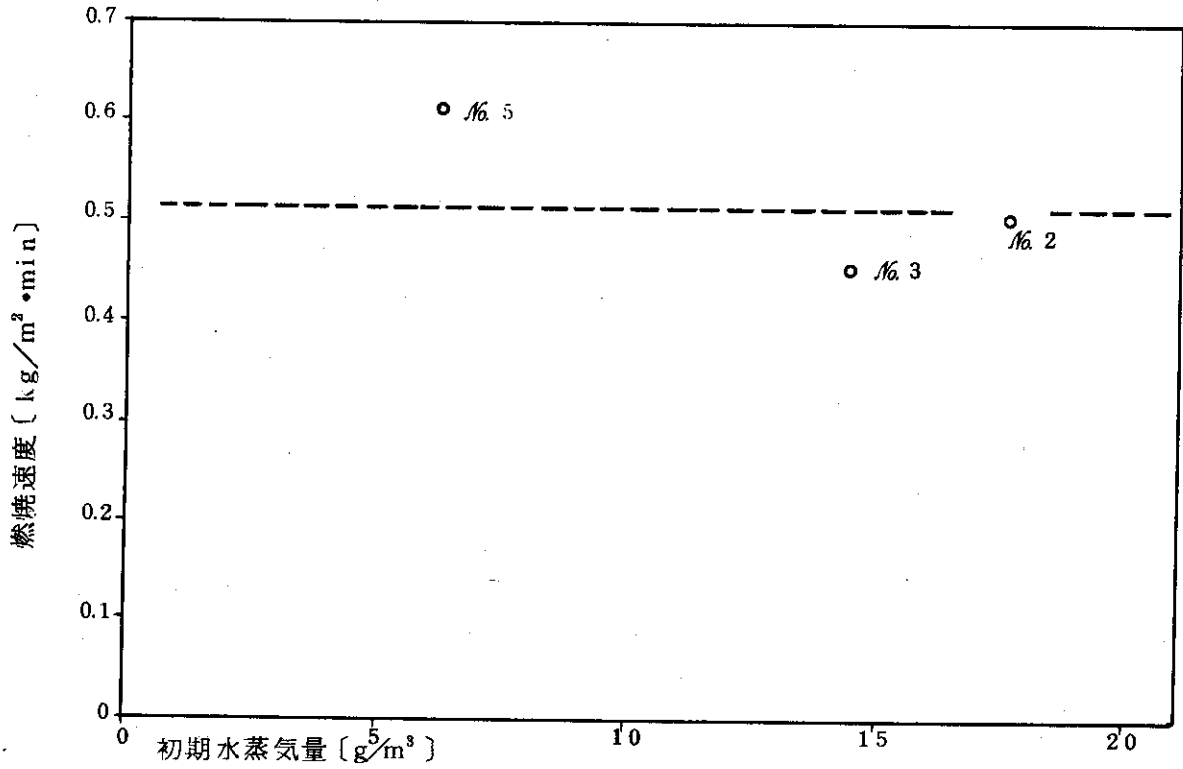
なお、酸素濃度5.2 v/o, 9.7 v/oの場合は燃焼皿に外部より熱を加えて500°Cに保つてあつた。他の実験と同様にNa 装荷直後に熱を加えるのをやめたならば、燃焼速度はさらに減少していたであろう。



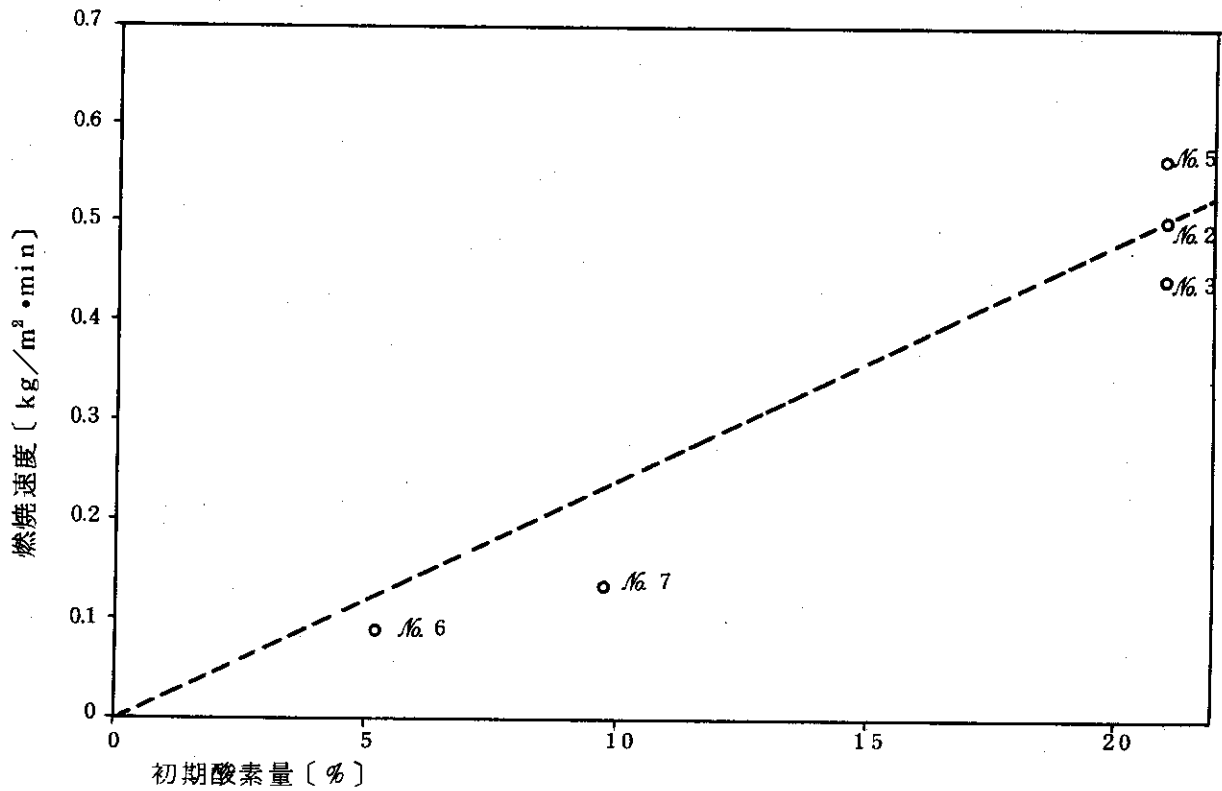
第4.1.1図 燃焼速度とS/Soの関係



第4.1.2図 燃焼速度とNa深さの関係



第 4.1.3 図 燃焼速度と初期水蒸気量との関係



第 4.1.4 図 燃焼速度と初期酸素量との関係

## § 5 燃焼反応熱の計算

## 5.1 計算方法

## a) 仮定

燃焼反応熱の計算にあたり計算を容易にするために次に述べるような若干の仮定を設ける。

- ① 燃焼反応中の Na プールは第 5.1 図に示すように 3 領域から構成されるものと考えられるが、これを液体 Na プール一領域からなるものとする。したがって、燃焼反応中の Na プールの熱容量は液体 Na の熱容量に等しいものとし、またふく射伝熱は液体 Na 面において行なわれるものとし Na プール中の温度分布は無視する。
- ② 燃焼皿は 2 領域に区分し Na プール底面より上方は Na プール温度に等しいものとし、Na プール底面より下方にあつては構造材からの熱損失に従つた温度分布を有するものとする。
- ③ 圧力容器内のガスは熱的には空気とみなし諸物性値は空気に関するものを用いる。
- ④ 圧力容器およびその内部のガスの仕事量は無視する。また、圧力容器内部のガスの運動エネルギーも無視する。
- ⑤ 燃焼反応熱の計算に用いるガス、圧力容器および保温材の温度は体積あるいは質量の重み付き平均温度を用いるものとする。
- ⑥ 圧力容器内外壁の温度分布はこれ無視する。また、保温材中の温度分布は線形とみなす。
- ⑦ Na プール面および圧力容器の中空円筒部の内外壁面（圧力容器の上部および下部の鏡板部はこれと面積の等しい中空円筒の伝熱に等しいものとみなす）における伝熱は前者にあつてはこれと面積の等しい水平正方形平板、後者にあつてはその曲率を無視して垂直平板として取り扱う。

## b) 計算方法

第 5.2 図に示すようなプロセスを考える。このプロセスにおいて各々のシステムは内部エネルギー  $U_0$  を保有しかつ静止状態にあるものとする。いま、このプロセスの任意のシステムに熱量  $dq_1$  が流入し熱量  $dq_2$  が流出するものとする。その結果、システムの内部エネルギーが  $du$  だけ増加しかつ外部に対して仕事  $dw$  をなしたものとすれば容易に次の関係が得られる。

$$dq_1 = du + A dw + dq_2 \quad \dots\dots\dots (5.1)$$

ここに、 $A$  は仕事の熱当量である。(5.1) 式をプロセス全体に適用すればプロセスに流入した全熱量  $Q$  とプロセス全体の保有エネルギーの関係は次式で示される。

$$Q = \sum G_i \int C_p \cdot d\theta + A \sum V_j \int dp + \int q_e \cdot dt \quad \dots\dots\dots (5.2)$$

ここに、

$G$  : システムの質量

$V$  : システムの体積



- $C_p$  : システムの定圧比熱
- $q_l$  : プロセスからの熱損失
- $\theta$  : 温度
- $P$  : 圧力
- $t$  : 時間

であつて、これが本章における燃焼反応熱の計算方法の基本的な考え方である。

ここに、第5-1図に対して前述の仮定のもとに次節(5.2)に示した基本式を(5.2)式に準じて適用すれば燃焼反応熱を求めることができる。この計算は非常に煩雑であるので電子計算機を用いて行なつた。そのフローチャートを第5-3図に示す。第5-3図における平均温度とは次式によつて定義される体積あるいは質量の重み付も平均温度である。

$$\bar{\theta}_{ij} = \frac{1}{X_0} \sum_{ij} \left( \frac{1}{\alpha} \sum \theta_i \right) \dots\dots\dots (5.3)$$

第5-1図においてあるセクションにおいては温度を満足に測定できなかつた。そのセクションに対しては次に述べるような方法で温度分布を計算しこれを用いて燃焼反応熱を求めた。

第5-4図において温度 $\theta_1$  および $\theta_6$ が与えられた場合各々の構造材の熱伝導率入に対応して各々の構造材はここを通過する熱量によつて関係づけられる温度分布を形成する。すなわち、ある熱量 $Q$ に対して熱伝導率の小さい構造材ほどその層内における温度降下は大きいものとなる。そして各々の層内の温度降下の和は温度差 $(\theta_1 - \theta_6)$ に等しいはずである。いま、この事実を用いるならば、第5-4図における多重層の温度分布を求めることができる。

まず、多重層を通過する熱量 $Q$ を仮定する。するとこの熱量 $Q$ ；各々の層構造材の熱伝導率入とその厚さおよび $\theta_1$ より容易に $\theta_2$ 、 $\theta_3$ を求めることができる。同様にして $\theta_6$ を基準にすれば $\theta_5$ 、 $\theta_4$ が定まる。ここで、層Ⅱにおいては熱量 $Q$ に対応して温度差 $\Delta T'$ が定まるが、一方両基準温度から求めた温度 $\theta_3$ 、 $\theta_4$ から温度差 $\Delta T = \theta_3 - \theta_4$ が求まる。ここで、 $\Delta T'$ および $\Delta T$ は $Q$ の関数であつて両者が等しくなるような $Q$ を求めればそれがこの多重層を通過する熱量でありかつ同時に温度分布も定まる。(第5-5図参照)この計算は熱伝導率入の温度依存性を補正しながら行なわれるが熱量 $Q$ はあるきざみ巾 $\Delta Q$ をもつているので両温度差は等しくなることはないが $(\Delta T - \Delta T' < \delta)$ 、熱量のきざみ巾 $\Delta Q$ を十分小さくすることによつて誤差 $\delta$ を十分小さくすることができる。プログラミングの具体的方法およびその詳細な内容についてはここでは特に触れない。

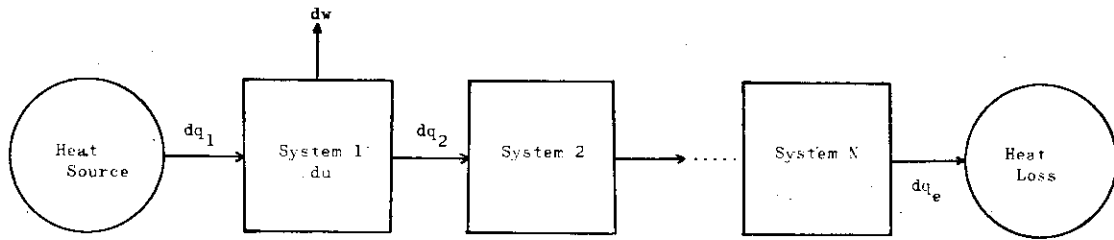
## 5.2 基礎式

### 5.2.1 伝導伝熱

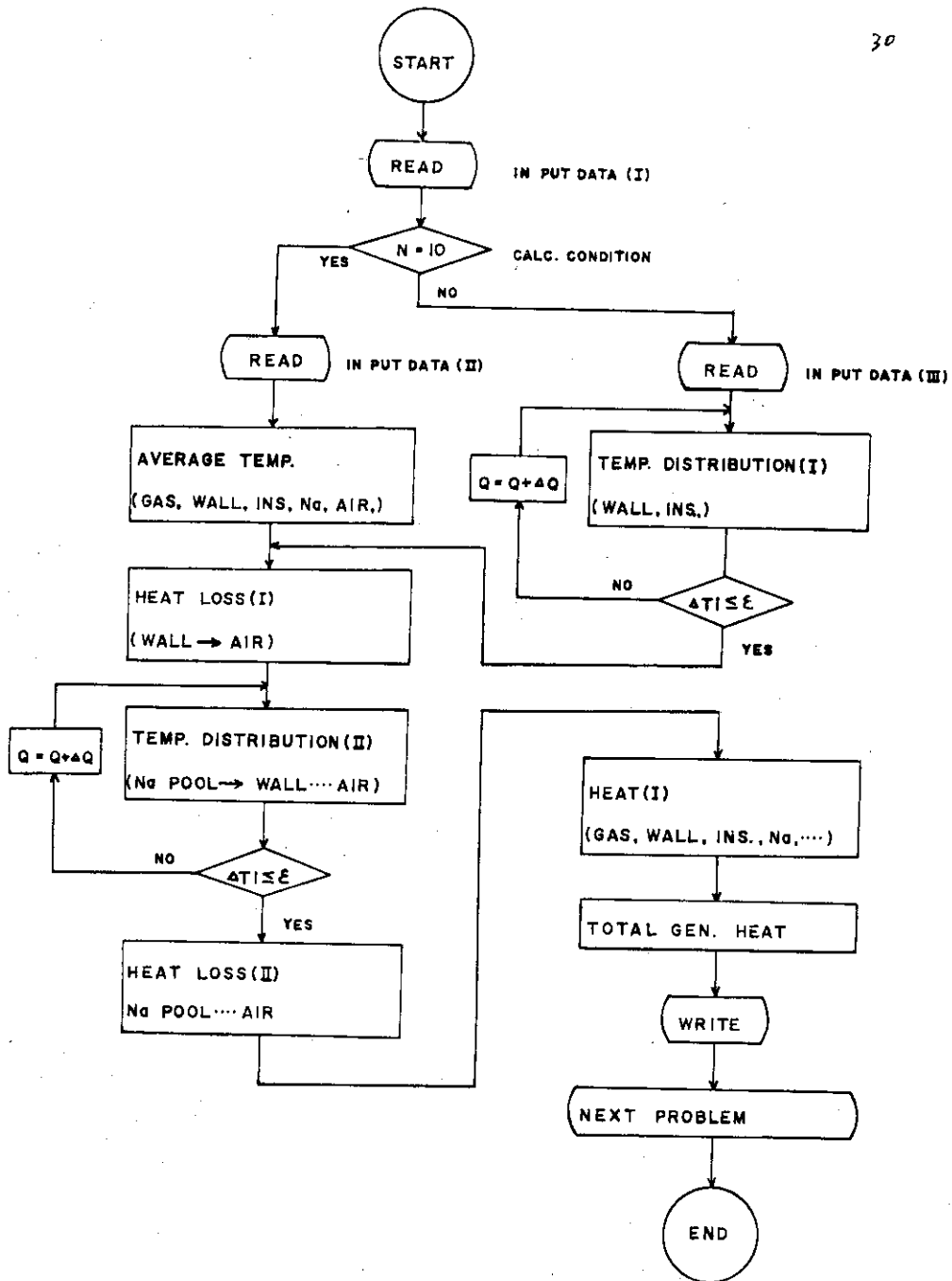
流体温度が与えられた場合の多重層における伝熱量は次式で与えられる。

$$Q = K (\theta_1 - \theta_2) \dots\dots\dots (5.4)$$

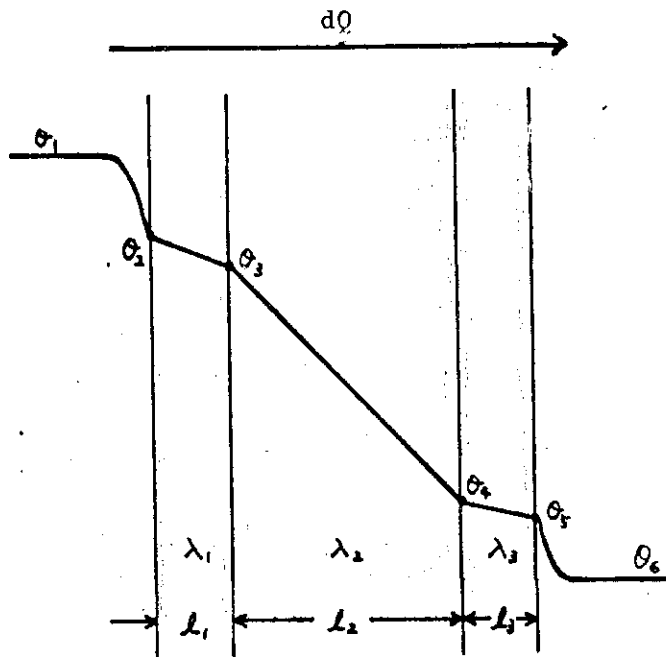
ここに熱通過率 $K$ は多重層の形状によつて定り平面および中空円筒の場合それぞれ(5.5)



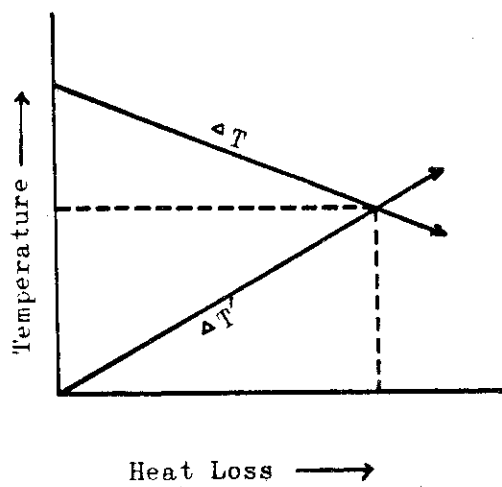
第 5 - 2 図 ヒートバランスプロセスの模形



第 5 - 3 図 フローチャート



第5-4図 多重層の温度分布



第5-5図 熱量と温度の関係

および (5.6) 式で与えられる。

平面の場合，

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{\alpha_1} + \frac{1}{\alpha_2} + \sum \frac{\ell_i}{\lambda_i} \dots\dots\dots (5.5)$$

中空円筒の場合，

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{2\pi} \left[ \frac{1}{r_1 \alpha_1} + \frac{1}{r_2 \alpha_2} + \sum \frac{1}{\lambda_i} \ell_n \left( \frac{r_{i+1}}{r_i} \right) \right] \dots\dots\dots (5.6)$$

ここに，

- Q = 伝熱量 Kcal/h
- K = 熱抵抗
- $\alpha_i$  = 熱伝達率 Kcal/m<sup>2</sup> · h · C
- $\theta_i$  = 温度 °C
- $\ell_i$  = 層の厚さ m
- $r_i$  = 層の半径 m
- $\lambda_i$  = 熱伝導率 Kcal/m · h · C

5.2.2 自然対流伝熱

a) 水平平板

水平平板の板片面からの伝熱量は (5.7) 式によつて求めることができる。ここに，Na 燃焼皿の燃焼面および皿底部における熱伝達は水平円形平板として取り扱うのが適切であるが筆者の調査した範囲内では信頼性の高い実用式が見出せなかつたのでここでは水平正方形平板における熱伝達式を用いる。

平板の表面温度が周囲の流体の温度より高い場合 (高温平板) と周囲の流体温度より低い場合 (低温平板) とでは熱伝達の機構が異なるので両者を区別して考える。すなわち，高温平板の上方あるいは低温平板の下方においてはグラスホフ数 Gr とプラントル数 Pr との積 (Gr Pr) の大きさによりそれぞれ (5.8) 式あるいは (5.9) 式を用い，また高温平板の下方あるいは低温平板の上方においては (5.10) 式を用いるものとする。

$$Q = \alpha S \Delta \theta = \frac{Nu \lambda S \Delta \theta}{\ell} \dots\dots\dots (5.7)$$

$$\left. \begin{aligned} Nu &= 0.54 (Gr Pr)^{\frac{1}{4}} \\ 10^5 &< Gr Pr < 2 \times 10^7 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (5.8)$$

$$\left. \begin{aligned} Nu &= 0.14 (Gr Pr)^{\frac{1}{3}} \\ 2 \times 10^7 &< Gr Pr < 3 \times 10^{10} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (5.9)$$

$$\left. \begin{aligned} \text{Nu} &= 0.27 (\text{Gr Pr})^{\frac{1}{3}} \\ 3 \times 10^5 &< \text{Gr Pr} < 3 \times 10^{10} \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (5.10)$$

ここで、

- Q : 板片面からの伝熱量 Kcal/h
- Nu : ヌセルト数
- Gr : グラスホフ数  $\text{Gr} = g \ell^3 \beta \Delta \theta / \nu^2$
- Pr : プラントル数  $\text{Pr} = C_p \nu / \lambda$
- $\ell$  : 正方形平板の一辺の長さ m
- S : 板の片面の面積  $\text{m}^2$
- g : 重力の加速度  $1.27 \times 10^8 \text{ m/h}^2$
- $\theta_0$  : 平板の表面温度  $^{\circ}\text{C}$
- $\theta_1$  : 平板から十分離れその影響を受けていない流体の温度  $^{\circ}\text{C}$
- $\theta_m$  : 平均温度  $\theta_m = (\theta_0 + \theta_1) / 2$
- $\Delta \theta$  : 温度差  $\Delta \theta = |\theta_0 - \theta_1|$   $^{\circ}\text{C}$
- $\beta$  : 流体の膨張係数, 気体の場合には  $\beta = 1 / (273 + \theta_1)$
- $\nu$  : 平均温度における流体の動粘性係数  $\text{m}^2/\text{h}$
- $\lambda$  : 平均温度における流体の熱伝導率 Kcal/mh $^{\circ}\text{C}$
- $\alpha$  : 板の片面の平均熱伝達率 Kcal/ $\text{m}^2\text{h}^{\circ}\text{C}$

b) 垂直平板

圧力容器の曲率は小さいので圧力容器内面および外面における熱伝達は垂直平板として取り扱うこととし、層流および乱流境界層に対してそれぞれ (5.12) および (5.13) 式を用いるものとする。

$$\begin{aligned} Q &= \alpha S \Delta \theta \\ &= \frac{\lambda \text{Nu} S (\theta_0 - \theta_1)}{\lambda} \dots \dots \dots (5.11) \end{aligned}$$

層流の場合、

$$\left. \begin{aligned} \text{Nu} &= \frac{4}{3} f (\text{Pr}) \text{Gr}^{\frac{1}{4}} \\ \text{Pr Gr} &< 10^9 \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (5.12)$$

乱流の場合、

$$\left. \begin{aligned} \text{Nu} &= 0.129 (\text{Gr Pr})^{\frac{1}{3}} \\ \text{Pr Gr} &> 10^9 \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (5.13)$$

ここに、

- Q : 伝熱量 Kcal/h
- Nu : ヌセルト数
- Gr : グラスホフ数  $Gr = g \beta \ell^3 (\theta_0 - \theta_1) / \nu^2$
- Pr : プラントル数  $Pr = 3600 C_p \nu / \lambda$
- $\ell$  : 代表長さ m
- S : 伝熱面積  $m^2$
- g : 重力の加速度  $m/s^2$
- $\theta_0$  : 伝熱面の表面温度  $^{\circ}C$
- $\theta_1$  : 伝熱面から十分離れその影響を受けない温度  $^{\circ}C$
- $\theta_m$  : 平均温度  $\theta_m = (\theta_0 + \theta_1) / 2$   $^{\circ}C$
- $\Delta\theta$  : 温度差  $\Delta\theta = |\theta_0 - \theta_1|$   $^{\circ}C$
- $\beta$  : 流体の膨張係数, 気体の場合には  $\beta = 1 / (273 + \theta_1)$
- $\nu$  : 平均温度における流体の動粘性係数  $m^2/h$
- $\lambda$  : 平均温度における流体の熱伝導率 Kcal/mh $^{\circ}C$
- $\alpha$  : 熱伝達率 Kcal/m $^2$ h $^{\circ}C$

5.2.3 ふく射伝熱

ふく射伝熱量は次式によつて求めることができる。

$$Q = A_H \phi_{Hc} (E_H - E_c) \dots\dots\dots (5.14)$$

ここに総括吸収率 (有効黒度)  $\phi_{Hc}$  は固体面で図れている空間内にふく射を吸収するガス (炎) が存在する場合は、ふく射線がこれを通過する場合に吸収される割合を考慮し、かつ高温および低温の両伝熱面が完全にふく射ガスを包囲する場合は次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} \phi_{Hc} &= \frac{1}{M} \epsilon_H \epsilon_c \left( 1 - \frac{A_G}{A_T} \epsilon_G \right) \\ \phi_{HG} &= \frac{1}{M} \epsilon_H \epsilon_G \left( \frac{A_G}{A_T} \left\{ 1 + (1 - \epsilon_c) \left( 1 - \frac{A_G}{A_T} \epsilon_c \right) \left( \frac{A_H}{A_c} \right) \right\} \right) \\ \phi_{cG} &= \frac{1}{M} \epsilon_c \epsilon_G \left( \frac{A_G}{A_T} \left\{ 1 + (1 - \epsilon_H) \left( 1 - \frac{A_G}{A_T} \epsilon_G \right) \left( \frac{A_H}{A_c} \right) \right\} \right) \\ M &= \left( 1 - (1 - \epsilon_c) \left( 1 - \epsilon_G \frac{A_G}{A_T} \right) \left\{ 1 - \left( \epsilon_H + \frac{A_G}{A_T} \epsilon_G - \epsilon_H \epsilon_c \frac{A_G}{A_T} \right) \frac{A_H}{A_c} \right\} \right) \end{aligned} \right\} \dots\dots (5.15)$$

ここに、

- Q : 伝熱量 Kcal/h
- $A_i$  : 伝熱面積  $m^2$

$\phi_{ij}$  : 総括吸収率

$E_i$  : 黒体の全ふく射  $E_i = 4.88 (T_i/100)^4$

$\epsilon_i$  :  $i$  面のふく射率

$T_i$  : 絶対温度 °K

であつて、添字 H, C, G および T はそれぞれ高温, 低温, ガスおよび全系を表わす。

### 5.3 物性値

計算には第 5-1 表に示した諸物性値をそれぞれ引用した。

第 5-1 表 計算に使用した諸物性値

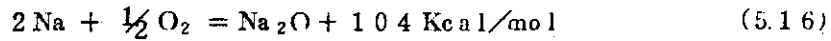
		References
Sodium	Heat Capacity	1)
	Density	1)
	Radiation Emissivity	No Information
Stainless Steel	Heat Capacity	2)
	Thermal Conductivity	2)
	Radiation Emissivity	3)
	Density	2)
Air	Heat Capacity	4)
	Thermal Conductivity	4)
	Density	4)
	Prandtl Number	4)
	Viscosity	4)
Insulator	Thermal Conductivity	5)
	Density	5)

### 5.4 結果および検討

#### a) 燃焼反応熱

##### 1) 燃焼反応熱

燃焼反応熱の計算結果を第 5-2 表に示す。また、燃焼反応が次式に示すような形で行なわれたものと仮定した場合の燃焼反応熱を第 5-2 表に合せて示す。



Na の酸化物は四種類の存在が確認されているが、Na-空気反応では $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}_2$ の二種類が多量に形成される。これらの反応ではまず $\text{Na}_2\text{O}$ が形成され次いで過剰の酸素があると $\text{Na}_2\text{O}$ は更に酸化されて $\text{Na}_2\text{O}_2$ となる。実際、酸素が多い初期には $\text{Na}_2\text{O}_2$ が一部形成され、それが次第に再還元されるものと思われるが主として前者の反応のみが行なわれるとして計算を進める。一方、空気中には水蒸気が存在するがその量が少ないので全体の燃焼反応におよぼす効果は小さい。したがって、密閉容器内におけるNa-空気反応は(5.16)式の反応のみが行なわれるものと仮定してその燃焼反応熱を求めてもよいであろう。

#### ロ) 熱清算

燃焼反応によつて発生した熱は約70%が対流およびふく射伝熱によつてガスおよび容器に伝熱される。残りはNaおよびNa燃焼皿に伝熱される。これは、第5-1図に示したようなNaプールの表面状態を考えれば酸化物のすべてが容器内に飛散するわけではなく、また第4章に示した反応後の燃焼皿の酸化物の付着状況からみても明らかなようにNaプール中の酸化物はより低温部すなわち燃焼皿外周部へ移動付着することからも容易にうなずける。

熱清算を検討するためには主として容器内への酸化物の分散および容器壁への付着状態を考慮しなければならないが、これは容器と燃焼皿の形状によつて支配される容器内部の自然対流の問題に帰着する。また、この問題は燃焼ガスから容器への熱伝達すなわち容器内の圧力応答をも支配する重要な要素である。さらに、高温のNa、Na燃焼面におけるふく射伝熱、および酸化物が分散している気体(aerosol)のふく射吸収率等が問題となる。これらについては別に検討中である。

第5-2表 全発熱量と燃焼速度

	全発熱量 (Kcal)		燃焼速度 ( $\text{kg}/\text{m}^2 \text{min}$ )		
	実測値	理論値	密度基準	発熱量基準	酸素濃度基準
1	5180	5780	1.45	1.05	
2	5480	5730	0.679	0.537	0.505
3	5250	5800	0.647	0.586	0.454
4	5090	5930	0.430	0.293	0.356
5		5850	0.748		0.617
6		1430	0.104	0.106	0.087
7		2680	0.187		0.131
8	4910	5880	1.33	0.837	0.853

## ハ) 温度分布

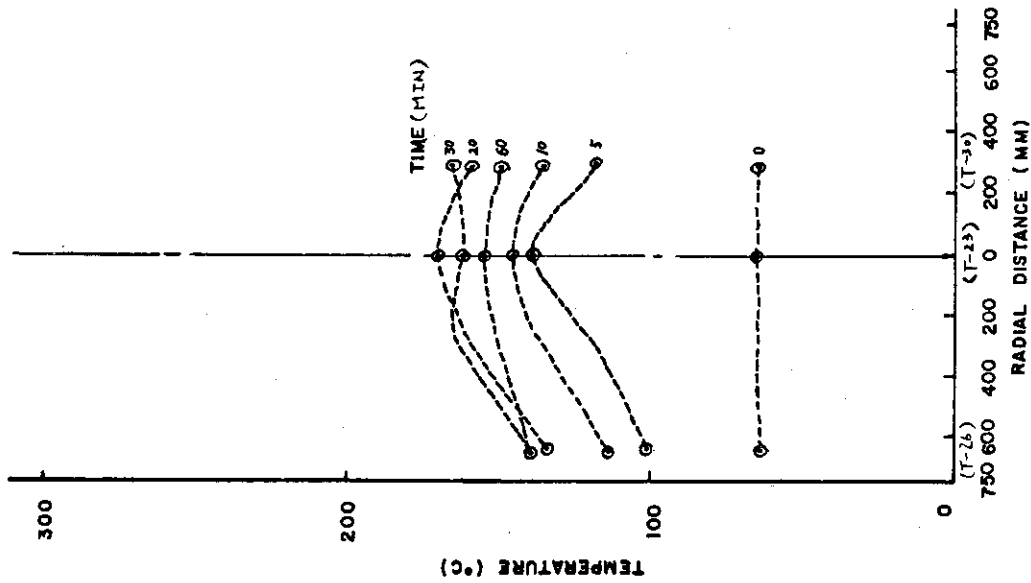
容器内部の温度分布は主として容器および燃焼皿の形状によつて支配される。(第5-6~10図参照) これは容器内部の自然対流を支配し燃焼速度、酸化物等の容器内部への飛散および付着状態、さらには容器内面における熱伝達を支配するから、圧力応答を考えるには非常に重要な要素である。これについては別に検討中である。

## b) 燃焼反応速度

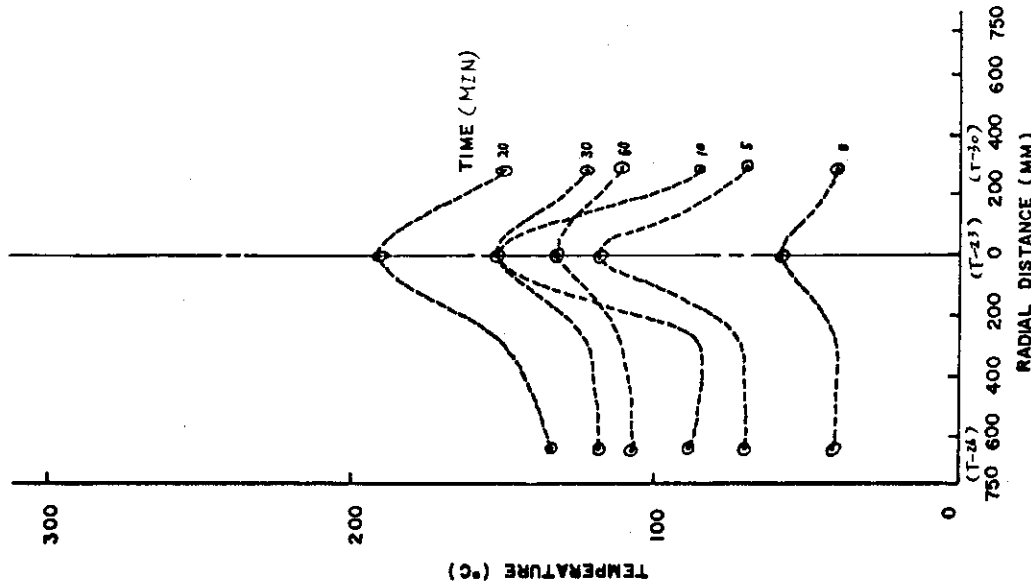
容器内部における気体の密度の変化および全系の熱量変化の割合から燃焼速度を求めた。

(第5-11図参照) その結果は第5-2表に示すように容器内部の酸素濃度の変化から求めた燃焼速度とほぼ一致する。

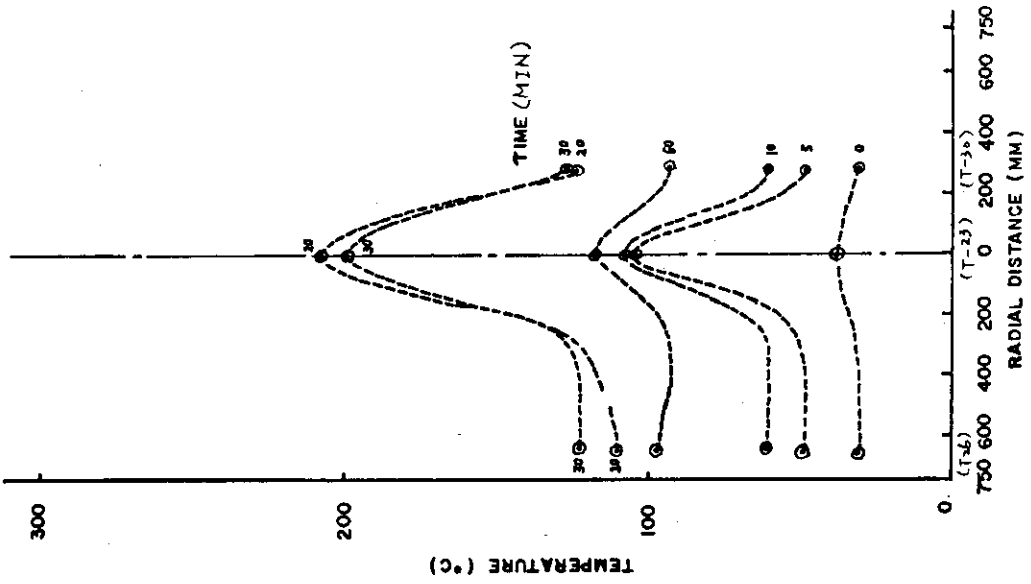
ここで、燃焼皿の表面積の小さいもの程燃焼速度は大きい傾向にあるが、これは容器内部の温度分布すなわち自然対流の状態が異なるためであろう。すなわち、第5-7~10図に示すように容器内部の半径方向の温度分布は燃焼皿の表面積によつて大きく変化することからも容易にうなずけよう。



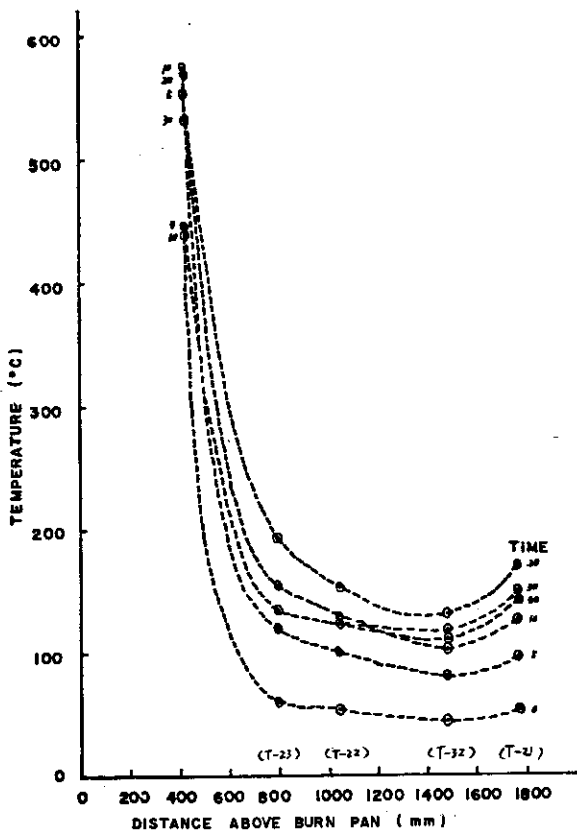
第 5.6 图 皿上方 400 mm, 面積 0.3 m<sup>2</sup>  
 压力容器内半径方向温度分布 (№4)



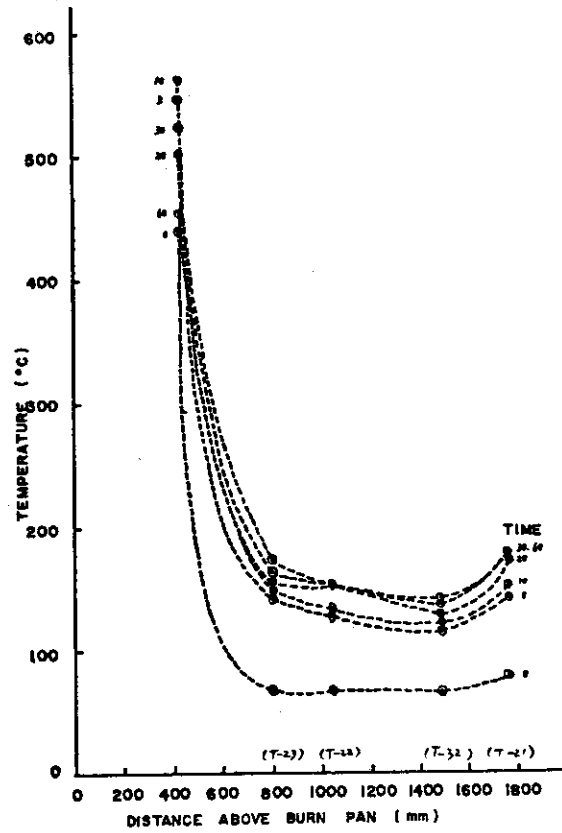
第 5.7 图 皿上方 400 mm, 面積 0.15 m<sup>2</sup>  
 压力容器内半径方向温度分布 (№5)



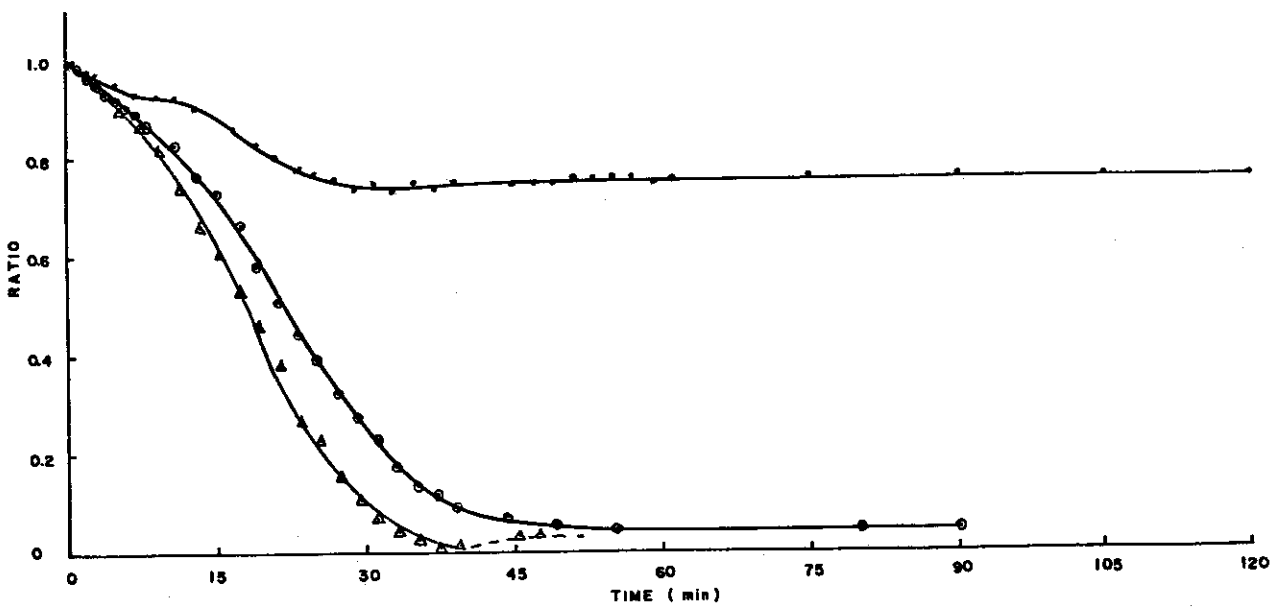
第 5.8 图 皿上方 400 mm, 面積 0.0754 m<sup>2</sup>  
 压力容器内半径方向温度分布 (№8)



第 5.9 図 圧力容器中心方向温度分布(実験 No.5)



第 5.10 図 圧力容器中心方向温度分布(実験 No.6)



第 5.11 図 ガス酸素濃度の時間変化 化学分析より求めたもの(○), ガス密度より求めたもの(・), 発熱量より[ $1 - (\text{実測発熱量} / \text{理論総発熱量})$ ]として求めたもの(△): 実験 No.8

## § 6. 圧力応答

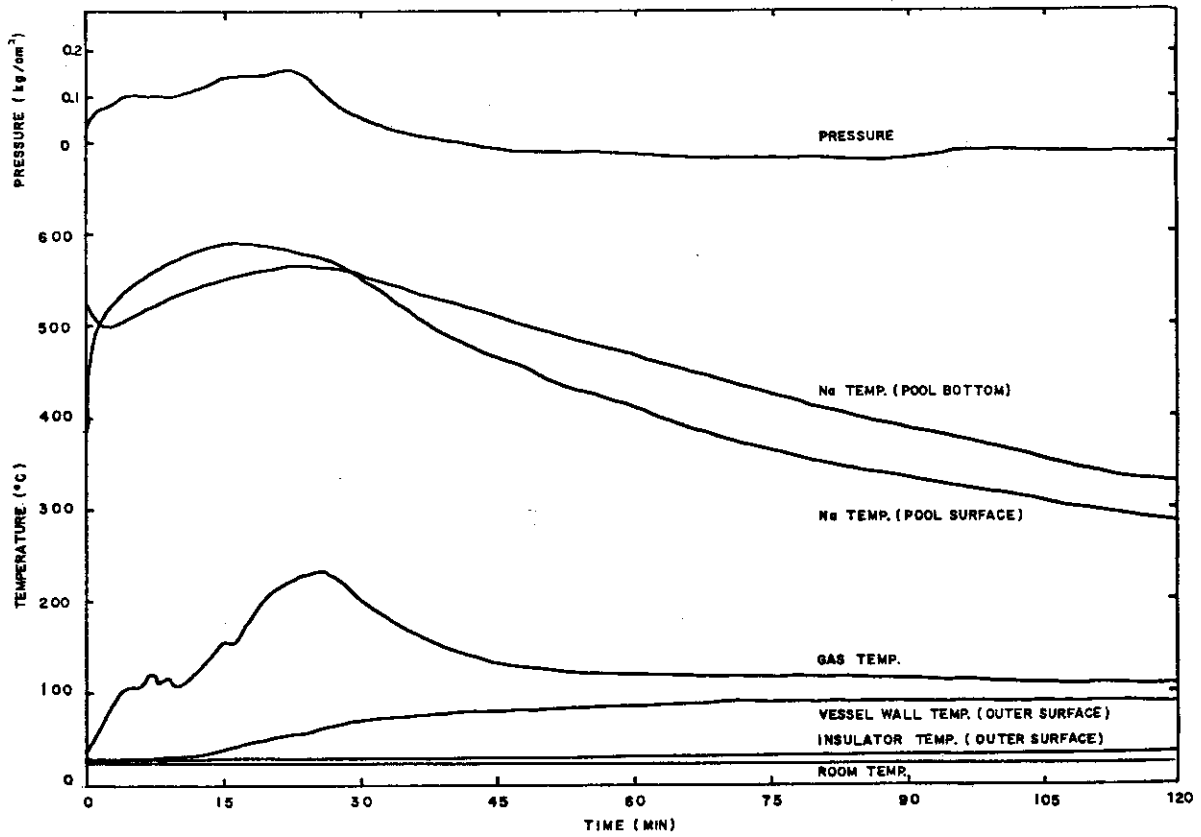
### 6.1 仮定

### 6.2 基礎式

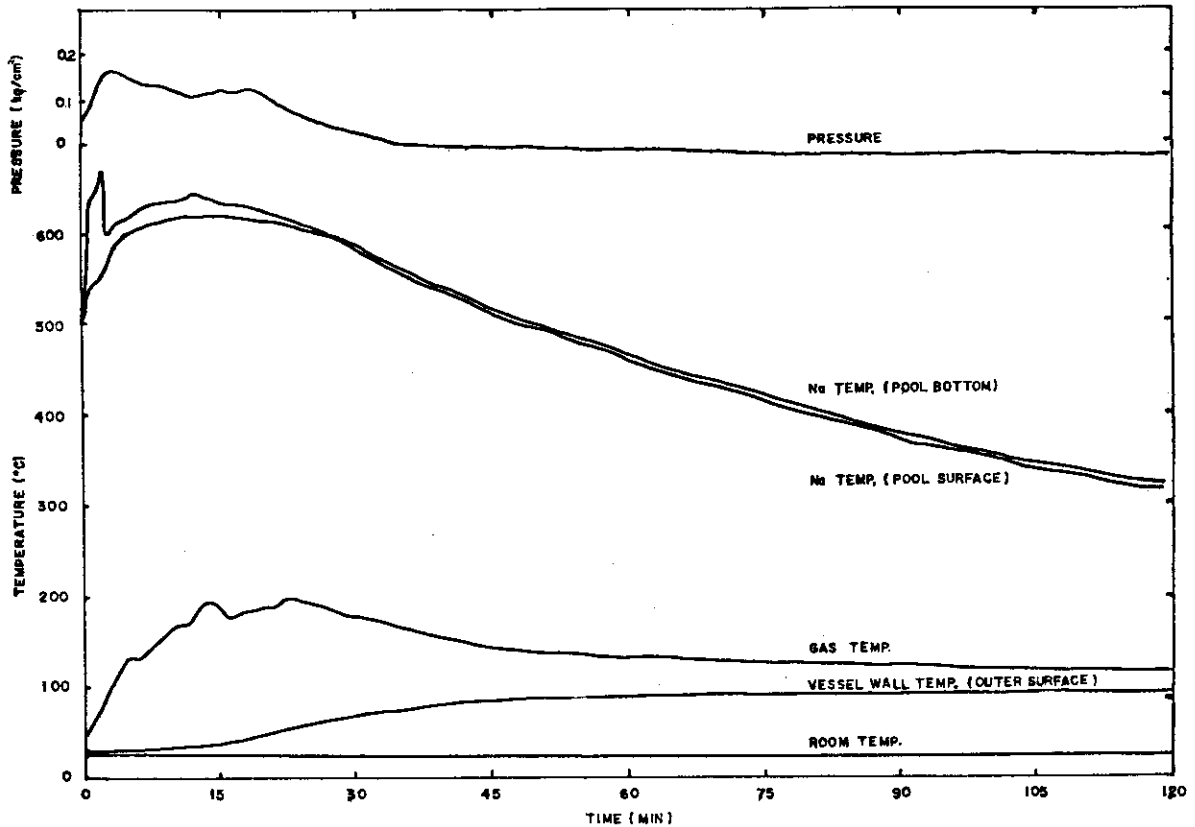
### 6.3 結果および検討

圧力応答の測定結果を主要部の温度測定結果とともに第6-1~4図および第6-1表に示す。圧力応答は燃焼皿の面積、すなわち燃焼速度によつて大きく異り明確な相異が認められる。図および表より明らかなように燃焼速度の大きいもの程（燃焼皿の面積の小さいもの程）圧力の第2ピークは高く現われ燃焼速度の減少とともに第1および第2ピークの高さは接近し最も燃焼速度の小さいものにあつては第2ピークは認められない。

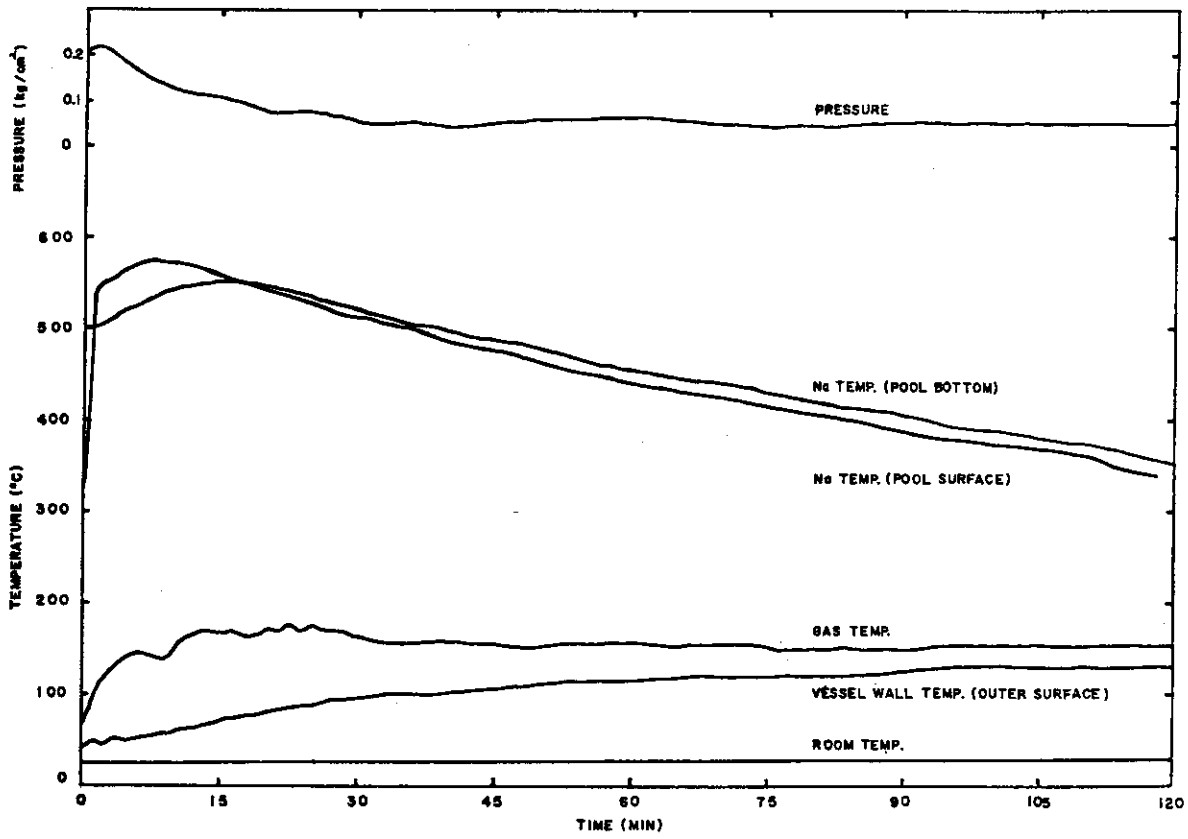
安全解析上は特に初期における圧力応答が問題となるがこの問題については別に検討中である。



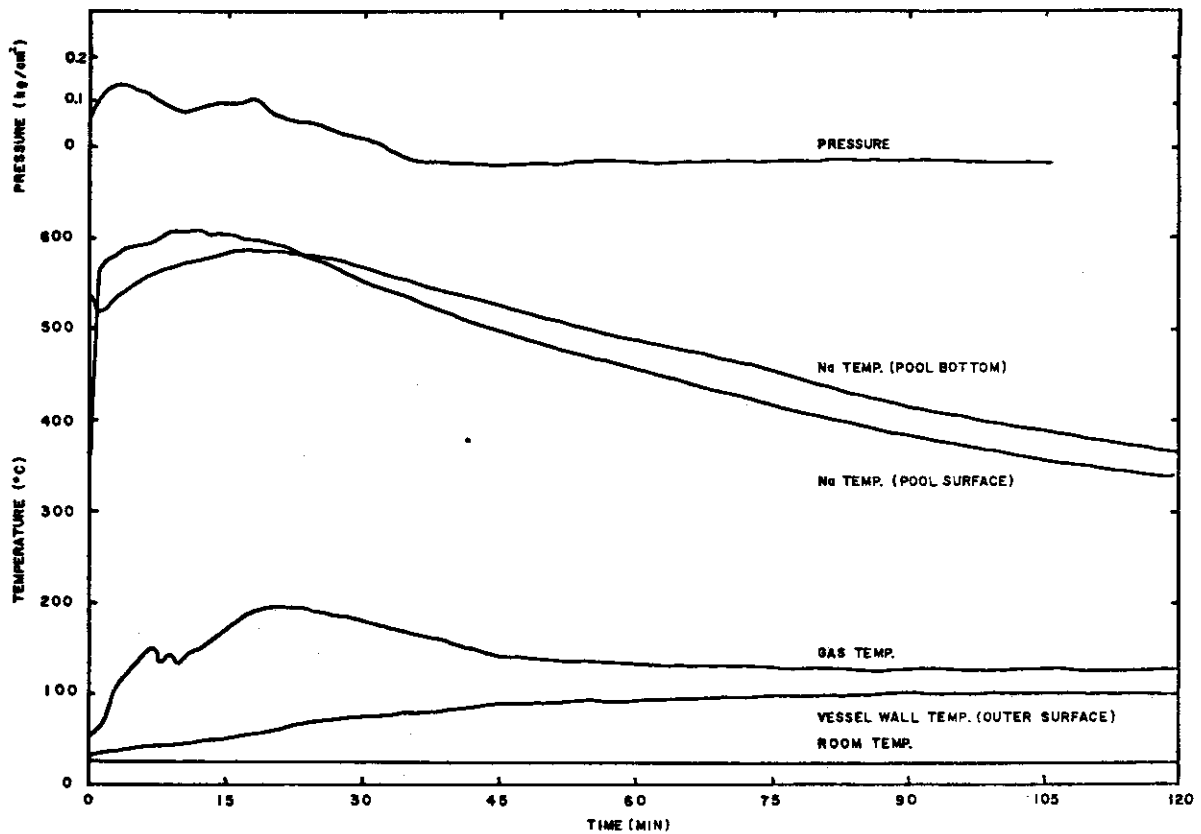
第 6.1 図 温度および圧力応答 (実験 No. 8)



第 6.2 図 温度および圧力応答 (実験 No. 2)



第 6.3 図 温度および圧力応答 (実験 No. 3)



第 6.4 図 温度および圧力応答 (実験 No. 4)

第 6.1 表 試験条件と経過

実験 No.		1	2	3	4	5	6	7	8	
燃烧皿	名称	A	B	C	D	C'	B	C'	A	
	注入 Na 量( $\ell$ )	11.3	7.6	22.7	45.3	22.7	7.6	22.7	11.3	
	表面積 ( $m^2$ )	0.075	0.15	0.15	0.30	0.15	0.15	0.15	0.075	
	液深 ( $mm$ )	150	50	150	150	150	50	150	150	
初期酸素濃度 (%)		21	21	21	21	21	5.2	9.6	21	
	湿度	絶対 ( $g/m^3$ )	17.6	14.4	14.0	6.3	12.1	12.1	12.5	
		20°C 相対 (%)	100	82	78.3	36.8	70	70	72	
温度°C 燃烧皿(下部)	注入前	535	532	535	500	515	520	495	555	
	注入後	500	505	520	500	505	470	475	495	
	注入後(max)	545	620	610	575	565			565	
	同上時間(min)	20	14	18	8	15			23	
Na 温 度 (C)	注 入 前	T-19	-	460	435	425	440	450	385	-
		T-18	335	470	440	430	450	460	390	440
		T-17	375	475	445	435	450	465	420	440
	注 入 後 (最低点)	T-19	-	350	365	330	385	395	328	-
		T-18	305	380	385	335	385	420	325	390
		T-17	350	395	395	370	385	430	345	410
	注 入 後 (最高点)	T-19 時間(min)		620	610	575	575			
		T-18 時間(min)	670	635	605	570	570			590
		T-17 時間(min)	3	14	14	9	13			15
		T-17 時間(min)	570	615	585	565	570			585
ガス 温度	注入前 (C)	35	45	45	65	50	40	50	40	
	注入後	315	200	195	175	195			245	
	同上時間(min)	18	23	20	25	18			25	
容温 器壁	注入前 (C)	30	30	30	45	30	30	30	30	
	注入後 (C)									
圧力 応答 kg/ cm <sup>2</sup> G	注入前	0.05	0.05	0.05	0.13	0.05			0.03	
	注入後(第1ピーク)	0.07	0.16	0.135	0.23	0.125			0.10	
	同上時間(min)	1.5	3	3.5	1.5	5			6	
	注入後(第2ピーク)	0.12	0.12	0.11	-	0.18			0.16	
	同上時間(min)	17.5	18	17.5	-	18			22.5	

## § 7. 総括的考察および結論

### 7.1 はじめに

我々は、Na 冷却高速実験炉室内の Na 火災による災害防止のため、約  $3.5m^3$  のモデル容器を製作して、内部に空気または酸素減損空気を常圧で密封しておき、その底部に突然  $500^\circ\text{C}$  の Na pool を形成させて、燃焼状態観察や燃焼速度解析、温度、圧力変化測定および解析を行なった。

まず第 1 期の計画として、燃焼面積、初期酸素濃度、湿度等を変化させつつ、7 種の実験を行なった結果、下記に示すようなことが明らかとなつてきた、今後の問題点とともに示そう。

### 7.2 観察事実よりみて

(1) 容器本体に設けられた 2 つの窓からの直視は、ビデオテープ、カメラ、8 mm カメラ (1 部) 等による観察は極めて有効であり、温度、圧力、酸素濃度等の間接的情報を補なうものとして、下記にのべるような判断の資料を得ることができた。

(2) 観察による最も重要な知見は点火状況観察で、火点が非常に不規則に発生するのを見て、反応の再現性がかなり低いものであることを予想させるものであつた。

その他、湿度による初期燃焼状況の差異が認められた (後述)。

(3) また、時間にもなり aerosol の粗大化、沈降状況も一部観察できた。

(4) 煙が沈降した後は、写真にすでに示したように多量の堆積物を発見した。これは分析により、 $\text{Na}_2\text{O}$  および Na の凝着物であることが明らかとなつた。(なお、その表面には燃焼終了後、煙が凝集して沈降した雪白の  $\text{Na}_2\text{O}$  粉が乗っている。)

すなわち、激しい反応熱と対流により蒸発した Na が、稀薄になつた酸素で一部酸化されつつ、皿上端でより冷たい壁および気流に触れて凝縮堆積したものであろう。したがつて、燃焼後半期に急速に形成されると考えられる。

なお、極めて pyrophoric な粉体であるから、炉室火災の後処置に関して、注意深い取扱いを要する。室内が充分低温になつたのち、少量ずつ酸素を送入して緩徐に酸化してやるべきであらう。

### 7.3 酸素濃度変化から見て

次に気相酸素濃度変化から得られる結果を改めて考察してみよう。

(1) 外部から酸素の供給がないのであるから、燃焼速度は時間と共に小さくなると予測される。しかし実際は酸素が約 4 vol % 以下になるまで反応速度は極めて一定である。

(2) Na 露出表面積  $S$  と炉室内全断面積  $S_0$  との比  $S/S_0$  の値はすでにのべたように、気相対流状態を強く支配し、小さいほど燃焼に有利である。しかし原子炉安全解析で重要なのは、単位液面当りではなく、全面積の燃焼放熱速度であるから、 $S/S_0$  が大きい程  $S$  が大となり、この値はより大となる。

したがつて、0.2 以上でなると思われる  $0.3\text{kgNa}/\text{m}^2\cdot\text{min}$  (酸素 21 vol %) を採用して安全解析すればよいと言えるであらう。

なお、炉室床面がいくつかのブロックに仕切られるとか、Na 収納機構が設けられるなら安

全対策として極めて有効であろう。全面的火災となるまでにはかなりの時間を要するために、酸素濃度低下による反応低下と相殺するためと考えられる。

(3) 液深は50～150mmの範囲であるかぎり反応速度に影響をおよぼさなかつた。ただしこれは底に沈澱したNa酸化物がNa表面から突出してくるような条件になつていない深いpoolであつたからであつた。

しかし、実際の炉においては、50mm以下の浅いNa流であるなら床を走る間に冷却され、初期の燃焼全体は弱まるであろう。したがつて安全解析にはこれで充分であると考えられる。

(4) 初期水蒸気量の影響については、20℃相対湿度が40～80%の範囲では、燃焼速度は変化しないという結果が得られた。

一般に、水蒸気量が多い程、燃焼速度は増加すると考えるべきであるが、このような結果が得られたのは、Na表面をよく観察してみると、燃焼初期に発生する火点の数が、湿度の少ない方がはるかに多いように見られたことと関係すると思われる。すなわち、水蒸気が多い場合に生成するNaOHの融点(318℃)がNa温度500℃より低いため、表面を液状に覆い、火点の発生をさまたげる可能性がある。したがつて、この妨害作用とH<sub>2</sub>Oの反応促進作用が相殺し合つて、見かけ上、燃焼速度は水蒸気量にあまりよらないのであろうと推論される。

なお、水蒸気量が多い方が、早く視界が閉ざされることが認められたが、これはaerosolが吸湿により、より濃厚不透明となるためであろう。

原子炉室内湿度は上記の範囲を出ることは困難と考えるが、上記のようなことが正しいなら、さらに実験を行なつてその影響を確かめてみる必要がある。

(5) 初期酸素濃度の影響は著しく、9.7v/o酸素の空気ですでに、発光をともなう燃焼反応はおきなかつた。これは普通4v/o酸素以下でそのようなことが観測されるという報告と矛盾する。しかし、実験No.7についてあらゆる測定値は自己無撞着であつて、酸素濃度測定をまよまつたと考えるべきではない。

ところで、この諸外国と知見との差異は、我々の実験においては湿度が高かつたことにその原因を求められるかも知れない。前節でものべたように、湿度が高いと火点が少なくなることが考えられるからである。また我々の実験は、空気巻き込みや不必要な波立ちなく、スムーズに清浄なNa液面が形成されるよう十分に配慮されているので、一層火点形成の機会が少なく、したがつて全表面で発光を促さない酸化反応のみが進行したと説明できるであろう。

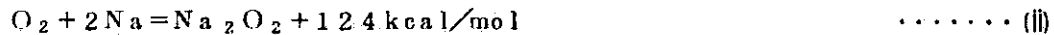
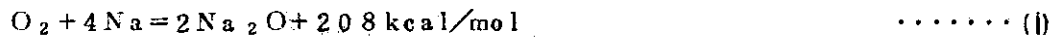
AIなどが報告<sup>(6),(7)</sup>している10v/o酸素における最大値(0.45 lbNa/hr·ft<sup>2</sup>·%O<sub>2</sub>) × (10%O<sub>2</sub>) = 4.5 lbNa/hr·ft<sup>2</sup> = 0.38 kg/m<sup>2</sup>·min より我々の測定値0.13 kg/m<sup>2</sup>·minは1/3である。

したがつて、酸素減損空気の場合には、湿度が高いほど安全性は高いこととなる可能性がある。

#### 7.4 燃焼熱および圧力応答からみて

(1) 酸素の消耗速度からは生成酸化物が何であるかは分らない。それが決定できないと、燃焼熱発生状況も分らず、温度、圧力上昇も分らない。この点は断熱条件を充している我々の実験の場合には、第5章にのべたように、全発熱量測定が可能であつて、これから逆に生成酸化

物のほとんどが $\text{Na}_2\text{O}$ と考えてよいことが分つた。



であつて、(I)でなければ放熱量を説明できないのは明らかである。

(2) なお、補足的な論議を加えておこす。第5.2表から分るように、総発熱量の実測値は、 $\text{Na}_2\text{O}$ のみが生成するとした場合の理論値と比べて、実測値が少し小さくなつてゐる。これは燃焼皿の外周部の温度変化測定が不充分であつたため、この部分の熱容量変化(正の値)を加えるのが不可能であつたからである。堆積物によつても温度分布は変化をうけている。

この部分の熱容量は5~20 kcal/C程度であり、数10°Cの温度差があるので、数100~1,000 kcalとなり、誤差を低く説明することができる。

皿は実験が計画された際には、その熱容量を無視できる程度にし得ると考えていた。しかし労働基準監督所の指示により、急率皿を肉厚にされたために精度が下つたのは残念であつた。安全弁もあるし、圧力上昇も極めてわずかであることが明らかになつたのであるから、改善して最実験する必要がある。

(3) 火災により、約70%の熱は気相および容器壁に伝達されることが分つた。しかしこれは燃焼条件および壁の状態によるのは言うまでもない。

しかし、実際の炉室における火災および圧力・温度上昇状況を、数学的に解析できるようにするためには、自然対流や伝熱機構、特にそれらに対する aerosol の影響を詳細に知つておくことが必要である。さらに具体的に言うと

- a) Na 表面、反応層および aerosol を含む気相の輻射率の決定
- b) 容器内の自然対流機構(すなわち酸素のNa表面への供給状態および熱伝達率への影響)
- c) aerosol の生成、分散状態、容器への附着およびそれらによる熱伝達への影響等

## 7.5 最近のA Iの実験およびそれとの比較

我々の本実験が終つた後、ANLで開催されたNa技術国際会議において、A Iから関連深い1つの報告<sup>(7)</sup>がなされた。その概要をのべ、我々の結果と比較しておきたい。

(1) A Iは10 ft直径×31.7 ft高さの軟鋼容器を用いている。これは我々の約10倍の容積に相当する。これは非常にすぐれた点であるが、実験に手数、経費を要し、1回行なつた実験を報告しているのみである。

(2) その実験は6 ft<sup>2</sup> (0.43 m<sup>2</sup>)であつて、我々の(最大の皿)にほぼ匹敵する程度のものである。25 lb (約11 l)のNaを注入しているので、深さは約25 mmである。我々の実験No.4は0.3 m<sup>2</sup>、深さ150 mm、Na 45 lである。

(3) Na温度は950°F (510°C)で、我々の500°Cより少し高い。気相温度は蓋がないので210°F (98°C)まで上つてしまつてから実験を開始している。

(4) 気相酸素濃度を3ヶ所で測定し、気相温度26ヶ所、その他13ヶ所の温度計測を行なつて、data logging 計算機による解析を行なつてゐる。

(5) 燃焼速度は8~12 lb/hr·ft<sup>2</sup> (0.6~1.0 kg/m<sup>2</sup>·min)であつた。これは我々の実験

Fig. 4 の 2 倍以上である。その理由の 1 つは  $S/S_0$  が小さく 0.06 であるから、第 4.1.1 図より  $0.7 \text{ kg}/\text{m}^2 \cdot \text{min}$  であつてよい。また、気相体積と燃焼表面積の比が約 10 倍であるので、酸素濃度の減衰が小さく、反応速度を高めにする傾向もあるのを考えるとよく一致している。すなわち、我々の得た  $S/S_0$  と反応速度の関係は、実験範囲を越えて適用できることが明らかとなつた。

(6) 反応面や aerosol を含む気相における輻射率の推定に努力しようとしている点はすぐれている。

(7) 我々の実験に比して劣る点は

- a) 反応熱をはかる計画がないので、生成物が  $\text{Na}_2\text{O}$  であることを証明していない。
- b) 気相酸素初期濃度の影響を調べていない。
- c) Na 表面積の影響を調べていない。  
(3~60  $\text{ft}^2$  の範囲で実験を計画している)
- d) 湿度の影響についての関心がない。
- e) 燃焼皿予熱により、 $210^\circ\text{F}$  まで空気を暖めているので、対流を弱めている。我々の実験では蓋を設けた。

装置のある Los Angeles 郊外の Santa Susana の湿度は少くとも 30% 以下であろう。したがつて AI の data を利用する場合には、充分な注意が必要である。例えば放流式燃焼試験装置 (AI の phase I 実験) において、10 v/o 酸素の空気を継続的に流した場合には、やはり発火燃焼したといつている。これは低湿度であつたためと考えられるわけである。

## § 8 結 言

炉室内の Na 火災の特性解析のために、実際の条件をできるだけ模擬しつつ、密閉容器中で 500°C の Na 液面に対し、7 種の実験が行なわれた。その結果

(1) 21 v/o 酸素の空気による Na 液面の燃焼速度は、表面積と床面積の比に強く影響される。

(2) その燃焼は、次第に火点の数が増大する形で進行し、見かけ上、燃焼速度はほぼ一定である。しかし、約 5 v/o 酸素までに減少すると発光を伴う燃焼現象は止まる。

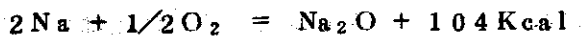
(3) 最大液面積、すなわち床全面に Na が拡がった場合には、燃焼速度は  $0.3 \text{ Kg Na} / \text{m}^2 \cdot \text{min}$  程度になるものと推定される。

(4) 20°C で 30 ~ 80 % の初期雰囲気相対湿度の変化では、反応速度は変らなかつた。しかし、初期火点の数は逆比例的である。

(5) 液深が 50 ~ 150 mm (後者は JEFRC における最大可能値) に変えられても反応速度は変化しなかつた。

(6) 初期酸素濃度が 10 v/o 以下で、少くも 70 % (20°C) の相対湿度では、発光を伴う燃焼現象は起らない。

(7) 一般に進行する酸化還元反応現象は次式によつて充分よく近似できる。



これは、反応熱の熱解析により明らかにされた。

なお、今後の研究課題として考えているものは

- 1) 実際の炉室に scale up できる反応数字模型を定式化するためには、まず
  - a) Na 表面、反応層および aerosol を含んだ気相における輻射率の測定
  - b) 密閉容器内の温度分布とその自然対流への効果の測定。その結果として生ずる酸素供給速度、酸化物の分散、熱伝達率等の変化に関する解析法の確立。が必要であろう。さらに。
- 2) 気相酸素濃度の影響を詳細に調べる。
- 3) 湿度の影響を詳細に調べる。
- 4) 実験装置の改良としては
  - a) 測定点をふやす。特に燃焼皿附近の計測を強化する。
  - b) なお、出来るなら燃焼皿の熱容量を小さくする。
  - c) 圧力計の精度を高める。
  - d) 気相サンプリング位置の影響を調べる。

なお、この他にここでは立入らないが aerosol に関連した重要な研究領域があることは言うまでもない。

## 謝 辞

この研究を遂行するに当り、原研の技術顧問および安全工学協会理事であられる北川徹三教授の御指導と御激励を得たことを深謝します。また先生を委員長とするNa火災実験委員会（委員：若園吉一，秋田一雄，橋口幸雄，柳生昭三，木谷 進，古川和男）の諸氏には各種の有益な御批判と御助言を得たこと，原研，磯 康彦氏からは本問題提起をうけ，原子炉安全性評価との関連につき，多大の教示を得たこと，および動燃団の連絡責任者である鈴木庸一氏には，契約締結，装置整備等を含めて，実験遂行に真剣な御協力を得たことを感謝します。

また，新しい業務形態であつたため，原研の動力が管理室，業務課，構内課その他関連部局からは特別の尽力を得てはじめて実験が遂行できたこと，原研分析センターおよび計算センターに御協力を得たことを感謝するとともに，実験には表記以外のナトリウム研究室員全員に多大の協力を得たことを銘記しておきたいと思ひます。

## § 9. 参考文献

- 1) Liquid-Metals Handbook (Sodium-Nak Supplement) 1955
- 2) 原子力一般設計資料
- 3) 岡本, 熱輻射の機構
- 4) 伝熱工学資料, 日本機械学会編
- 5) 日本アスベスト株型録
- 6) R. P. Johnson, M. Silberberg, J. Hopenfeld, & P. Reiriger ;  
Characterization of Sodium pool Fires, AEC-ANL International  
Conference on Sodium Technology & Large Fast Reactor Design, ANL  
November 7-9, 1968, ANL-7520, Part 1 (1968), 195.
- 7) G. N. Lauben ; Initial Experience with Large Sodium Fires  
Experiments (LF-1), NAA-SR-12041.
- 8) A Study of Sodium Fires, J. D. Gracie & J. J. Drobe ;  
NAA-SR-4383 (Oct. 1960) [(訳)「ナトリウム火災の研究」(改訂版)古川, 井  
口, (1966)]

## 第Ⅱ篇 ナトリウム火災モデル試験(Ⅱ)

## 要 旨

密閉容器内でNa火災が発生した場合のNaの燃焼状態，格納容器への影響を知るため，前年度に行なった「ナトリウム火災モデル試験1」の試験装置の一部を改装して，初期Na温度，初期酸素濃度の効果，自然対流現象の測定時の追加実験を行なった結果を述べた。

1969年12月

ナトリウム研究室	古川 和男
FP研究室	木谷 進
ナトリウム研究室	山田 栄吉
"	村田 秀男
"	春田 秀人
"	大山 信美
FP研究室	高橋 和宏

## Section II:

## Model Experiments of Na Pool Fire - No. II.

## Abstract

Preliminary information on the burning of sodium and its influence on the container vessel in case of a sodium fire was previously obtained with "Model Experiments of Na Pool Fire - No. I".

The purpose of the present study is to obtain detailed data for the same purpose.

The effects of initial sodium temperature, initial oxygen content and natural convection in the vessel were clarified by supplementary tests. The previous experimental facility with some modification was used for the tests.

Dec. 1969

Furukawa K. et al.

## 第 II 篇 目 次

1	実験目的および条件	75
2	実験装置	76
2.1	実験装置の改修	76
2.2	実験方法	76
3	実験結果	77
3.1	実験経過	77
3.2	各実験時の燃焼現象	77
3.3	燃焼現象の観察結果の総括	84
3.3.1	初期燃焼温度の影響	84
3.3.2	初期酸素濃度の影響	86
3.3.3	ガス温度の影響	86
3.3.4	大気に開放して燃焼した場合	87
3.4	燃焼生成物	87
4	酸素濃度変化からみたナトリウム燃焼速度	89
4.1	目的	89
4.2	測定法	89
4.3	燃焼速度	89
4.4	考察	89
4.4.1	初期酸素濃度と燃焼速度	89
4.4.2	初期ナトリウム温度と燃焼速度	89
4.4.3	ガス温度の影響	91
4.4.4	Na 燃焼終期の酸化速度	91
5	燃焼反応熱の計算	98
5.1	目的	98
5.2	計算方法	98
5.3	圧力応答	98
5.4	結果および検討	98
5.4.1	燃焼反応熱	98
5.4.2	燃焼反応速度	99
6	総括的考察および結論	110
6.1	ナトリウム地金の影響	110
6.2	酸素濃度変化よりみた燃焼速度	110
6.3	温度, 圧力変化からみた燃焼速度	111
6.4	一次反応領域と発光燃焼	111

6.5	前報の結果について .....	112
7	結 論 .....	114
8	謝 辞 .....	115
9	参考文献 .....	115

## 表 目 次

第 3.1 表	試験条件	78
第 3.2 表	Na 中の K および金属成分分析値	78
第 3.3 表	Na 分析値	78
第 4.1 表	各条件下における燃焼速度	90
第 4.2 表	一次反応への移行時間	92
第 5.1 表	燃焼反応熱と伝熱割合	100
第 5.2 表	燃焼速度	100
第 6.1 表	燃焼時間	112

## 図 目 次

第 3.1 図(写)	実験 No II-1, 実験後の燃焼皿	80
第 3.2 図(〃)	実験 No II-2, 容器中の燃焼皿表面	80
第 3.3 図(〃)	実験 No II-3, "	81
第 3.4 図(〃)	実験 No II-4, 付着生成物の水処理前の燃焼皿	81
第 3.5 図(〃)	実験 No II-5, 実験後の燃焼皿	83
第 3.6 図(〃)	実験 No II-7, 鎮火 4 時間後の燃焼皿	83
第 3.7 図(〃)	実験 No II-8, 屋外燃焼の経過説明図	85
第 3.8 図(〃)	空気中における Na の発火燃焼事例-A	88
第 3.9 図(〃)	" - B	88
第 3.10 図(〃)	樹枝状に生長したナトリウム	88
第 4.1 図	実験 No 1 酸素濃度の経時変化	93
第 4.2 図	実験 No 2 "	93
第 4.3 図	実験 No 3 "	94
第 4.4 図	実験 No 4 "	94
第 4.5 図	実験 No 5 "	95
第 4.6 図	実験 No 6 "	95
第 4.7 図	実験 No 7 "	96
第 4.8 図	初期酸素濃度と燃焼速度	96
第 4.9 図	初期ナトリウム温度と燃焼速度	97
第 5.1 図	圧力容器(容器本体)測温点	101
第 5.2 図	温度および圧力応答(実験 No 1)	102
第 5.3 図	" (実験 No 2)	102
第 5.4 図	" (実験 No 3)	103

第 5.5 図	温度および圧力応答 (実験 No. 4)	103
第 5.6 図	" (実験 No. 5)	104
第 5.7 図	" (実験 No. 6)	105
第 5.8 図	" (実験 No. 7)	105
第 5.9 図	容器直径方向温度分布	106
第 510 図	"	106
第 511 図	"	107
第 512 図	"	107
第 513 図	軸方向温度分布	107
第 514 図	"	108
第 515 図	"	108
第 516 図	熱的に似た燃焼反応速度と酸素濃度の時間経過	109
第 517 図		
第 6.1 図	面積比 ( $S/S_0$ ) と燃焼速度の関係	113

## § 1 実験目的および条件

高速実験炉の設計と安全解析に際し、格納容器内でNa火災が発生した場合のNaの燃焼状態、格納容器への影響を知る必要がある。このため、前年度に「ナトリウム火災モデル試験-I」による試験と解析を行なったが、試験装置の一部を改装して追加実験を行ない、安全評価の資料とすることが本実験の目的である。

実験に使用した $3.2\text{ m}^2$ の容器本体、Na燃焼皿、Na溶融タンクについては前年度の装置をそのまま使用したので、設計製作の条件等については割愛する。<sup>(1)</sup>

実験は再実験も含めて、容器本体を使用した実験を7回行ない、Na燃焼皿を大気中におき、その中に $500^\circ\text{C}$ のNaを注入して燃焼させ、密閉容器中における燃焼現象との比較を試みる実験を1回、合計8回行なった。

試験項目としては次の通りである。

- 1) Na火災におよぼす湿度および初期酸素濃度の効果を追試する。  
( $30\% \text{ RH}$ ,  $15\% \text{ O}_2$ ,  $10\% \text{ O}_2$ ) ( $\text{RH} = \text{相対湿度}$ )
- 2) 初期Na温度の燃焼現象におよぼす影響をみる。  
( $250^\circ\text{C}$ ,  $500^\circ\text{C}$ ,  $70\% \text{ RH}$ ,  $21\% \text{ O}_2$ ,  $0.15\text{ m}^2$ )
- 3) Na露出表面積 $S$ 、容器内断面積 $S_0$ の比( $S/S_0$ )との関係を追試  
( $S/S_0 = 0.0849$ ,  $0.0425$ )
- 4) 容器内自然対流現象の測定(初期ガス温度 $100^\circ\text{C}$ )
- 5) 空気中に開放した状態の燃焼皿( $0.075\text{ m}^2$ ,  $150\text{ mm}$ 深)を用いたNaの燃焼現象の観察、等である。

上記のための測定項目としては、

- i) 容器本体内の圧力変化
- ii) 容器中の酸素濃度(燃焼中、燃焼後)の変化
- iii) 各部の温度変化(ガス、容器本体)
- iv) 燃焼状態の観察と記録等であり、第3.1表に示した6ケース(8回の実験)について実験を行なった。

## § 2 実験装置

### 2.1 実験装置の改修

実験装置の主要なる部分は、43年度の受託研究において使用したものであるので、詳細は割愛するが、今回の実験のために行なった一部の改装を次に列記する。

#### 1) 容器本体への熱電対追加取付

従来は、容器本体内部のガス温度測定のため、12本のシース型熱電対を内挿していたが、今回は測定点を増すため、集束型のコナックシールを使用して32本の熱電対(シース型1.6φ)を挿入し、一部を燃焼中の液体Naの温度測定にも使用した。

#### 2) 圧力計の取換

前年度使用した圧力計(記録式隔膜圧力計)は $+3 \text{ kg/cm}^2 \sim -500 \text{ mmHg}$ と指示圧が大きく測定精度に難点があったので、 $\pm 1 \text{ kg/cm}^2$ のコンタクト接点付セルメータ式遠隔指示圧力計と交換し、取付用フランジも変更製作した。

#### 3) 試験建屋増設

既設の試験建屋の南側に $2 \text{ m} \times 4 \text{ m}$ の建屋を下屋構造で増設した。これは、ガスクロマトグラフィ装置、圧力計、ビデオコーダー等の設置と操作に供するものであり、雨天時の実験に有効であった。

#### 4) 温度記録計の新設

30mV切換式CA用温度記録計を2台新設した。

補修工事としては、保温工事、バルブのグランドパッキン取換へ、配管およびヒータ、燃焼皿用のNa導入管等の一部取換へを行なった。

### 2.2 実験方法

実験の手順については前報<sup>(1)</sup>と同様なので省略する。〔第I篇参照〕

### § 3 実験結果

#### 3.1 実験経過

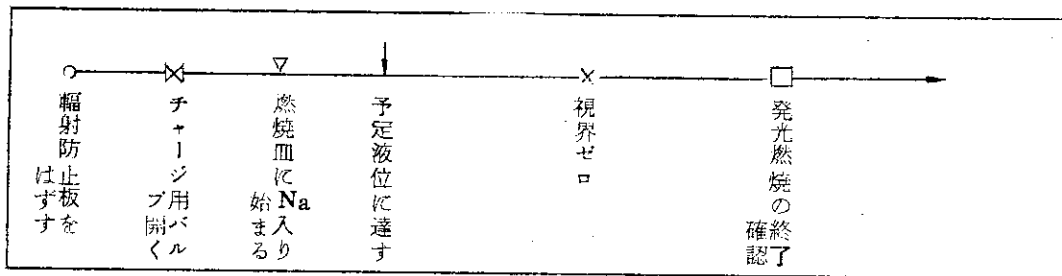
実験は2種類の燃焼皿を使用して、6ケース(8回)行なった。これらの試験条件と実験の経過を第3.1表に示した。実験条件が同じものが2ケースあるが、これは純度の異なるNaを使用したため、燃焼現象に差異があるので再試験を行なったものである。

実験に使用したNaは、№1、№2の実験には99.9%の高純度Naであるが、ループ運転に使用して回収していたNaなので、K等の不純物が混入していたものと思われる。測定したKの分析値を第3.2表に示した。№3以降の実験にはDowns法により製造した工業用Na(日本ソーダ製)を使用した。このNaの分析値を第3.3表に示した。純度99.85%であるがCa、K等の不純物が多く、特にCaは約290ppmであり、100℃における飽和溶解度190ppmより多く、ドラム缶容器の底面近くに偏析していたと考えられ、このドラム缶より熔融タンクに初めてチャージした際、異常にCa含有量の多いNaが入った可能性がある。故に№3~5はCaの存在による影響と思われるものが認められた。

実験に直接使用したNa総量は、約170ℓであった。

#### 3.2 各実験時の燃焼現象(時間経過その他)

記号説明



№1 実験 6/2 (0.15m<sup>2</sup>, 150m/m, 22.7ℓ, 500℃, 75%RH, 21% O<sub>2</sub>)



- ① チャーブバルブ開直後に火花がとんだ。
- ② 10点位の火点が発生し、拡がりながら燃焼。
- ③ 火点が各所に分散して燃焼し全面に拡がる。

第 3.1 表 試 験 条 件

試 験 No.	2	3	1	4	7	5	6	8
初期 Na 温度 (°C)	250		500					
初期酸素濃度 (v/o)	21		21			15	11.2	21
燃 燒 面 積 (m <sup>2</sup> )	0.15		0.15	0.15	0.15	0.15	0.075	
液 深 (mm)	150		150	150	150	150	150	180
Na 量 (ℓ)	22.7		22.7	22.7	22.7	22.7	11.3	13.5
湿度 (20°C 相対%)	68	74	75	68	70	70	35	75
絶対湿度 (g/m <sup>3</sup> )	11.7	12.8	13	11.7	12.1	12.1	6.0	13
そ の 他					空気温度 110°C		大気開 放中 に お け る 燃 焼	
使 用 Na	A	B	A	B			B	B

(注) A 精製試験ループに使用していたNa (K:約1%含有) [第3.2表参照]  
 B ダウンス法により製造した工業用Na (純度99.85%) [第3.3表参照]

第 3.2 表 Na 中の K および金属成分分析値 (第 3.1 表 A)

(ppm)

	K	Fe	Ni	Cr	Al
溶融タンク内のNa	0.87 (%)	9	<1	<1	4
Na用ドラム缶内のNa	1.2 (%)	6	<1	<1	38

(炎光法, 比色法による) 原研分析センター

第 3.3 表 Na 分析値

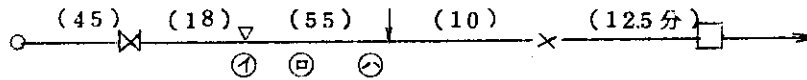
(ppm)

	Na	K	Cl	Ca	Si	Fe	V	Mg	Mn	Al	Cu	Ni	Cr
今 回 (第3.1表B)	99.85 (%)	200	49	290	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
前 回 報 告	99.6 (%)	1800	40	15	15	15		25		15			

なお、接触型の液面計が正常に作動しなかったが、液表面に生成したNa酸化物により接触が妨害されたものと思われる。

容器本体より取はずしたNa燃焼の状態を第3.1図に示す。

**№2実験** 6/4 (0.15m<sup>2</sup>, 150 m/m, 22.7ℓ, 250℃, 68%RH, 21% O<sub>2</sub>)

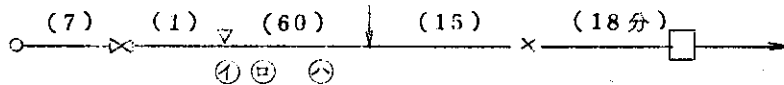


- ① 火点がほぼ全面に発生し、その部分が燃焼し広がる。
- ② 火点の発生が全面に拡がり全面的に燃焼する。
- ③ 炎は低いが火力強く、発煙により視界が10%程度となる。

Naが燃焼皿にチャージされた直後の状態は、全面に酸化物で覆われ、金属光沢は最初からみられず、容器中のNa燃焼皿表面の状態を第3.2図に示す。

Na液面がすっかり燃焼生成物で覆われている様子がわかる。なおこの実験終了後、ドラム缶から新しいNa(第3.3表参照)をチャージした。

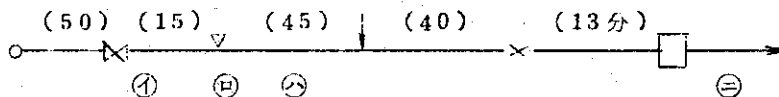
**№3実験** 6/13 (0.15m<sup>2</sup>, 150 m/m, 22.7ℓ, 250℃, 74%RH, 21% O<sub>2</sub>)



- ① Naがチャージされた瞬間にCaによるとと思われる火花がはね飛んだ。
- ② 火点が数箇所発生して燃焼開始
- ③ 火点が全面に拡がり、燃焼が一段と激しくなる。

容器中のNa燃焼皿上部のNa生成物の様子を第3.3図に示す。表面全体が燃焼生成物で覆われている様子がわかる。

**№4実験** 6/16 (0.15m<sup>2</sup>, 150 m/m, 22.7ℓ, 500℃, 68%RH, 21% O<sub>2</sub>)



- ① 30~40cmの炎が発生しすぐ消える。
- ② すぐ火点が発生し、拡大しはじめる。
- ③ 時々、継続的な炎あり。
- ④ 3時間後視界が拡がり、金属光沢をもったNa表面がみえた。

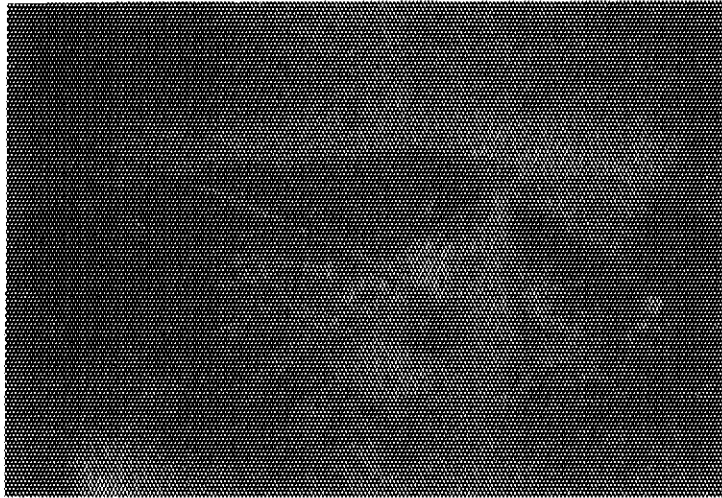
付着生成物の水処理前の燃焼皿の状態を第3.4図に示す



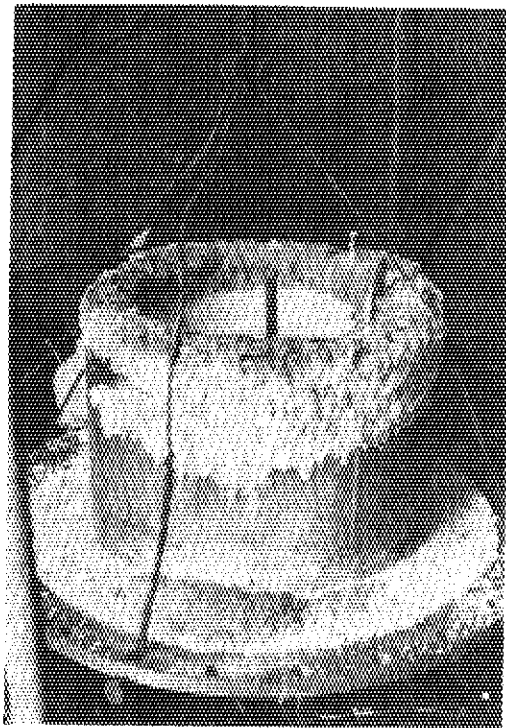
第 3.1 図 実験 No II - 1 実験後の燃焼皿.



第 3.2 図 実験 No II - 2 容器中の燃焼皿表面

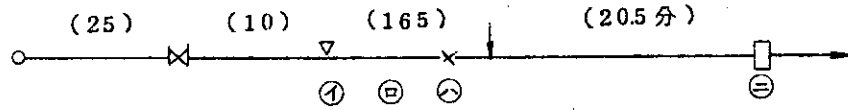


第 3.3 図 実験Ⅱ-3 容器中の燃焼皿表面



第 3.4 図 実験Ⅱ-4 付着生成物の水処理前の燃焼皿

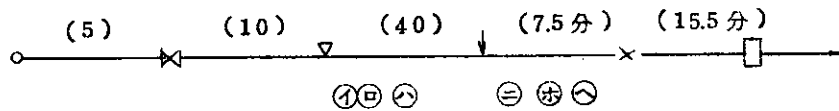
№5 実験 6/18 (0.15 m<sup>2</sup>, 150 m/m, 22.7 ℓ, 500 °C, 70 % RH, 15 % O<sub>2</sub>)



- ㊶ 発煙を伴ないつつNa入る。
- ㊷ 4～5ヶ所に火点発生
- ㊸ 予定液面に到達する以前に視界ゼロとなる。
- ㊹ 発光燃焼の終了時点の判明がやゝ不明瞭

燃焼3時間後、燃焼皿内Na液面に薄い酸化酸が覆っている事を確認する。未反応Na排出後の取出した燃焼皿を第3.5図に示す。なお、この実験終了後ドラム缶からNaを120°Cで再チャージした。

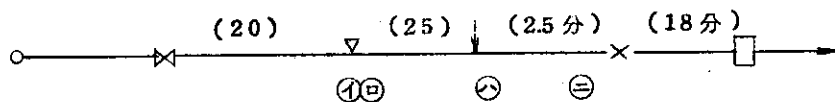
№6 実験 6/20 (0.075 m<sup>2</sup>, 150 m/m, 11.3 ℓ, 500 °C, 35 RH, 11.2 % O<sub>2</sub>)



- ㊶ Na酸化皮膜のシワを生じながら液位上昇
- ㊷ 2ヶ所より火点発生し、しばらく持続
- ㊸ 火点のないところでも突起状の表面から発煙あり。
- ㊹ 燃焼皿の温度を500°Cに保つ。
- ㊺ 急激な燃焼拡大はみられず、徐々に進行する。
- ㊻ 燃焼皿の内壁をNaが燃焼しつつ、1ヶ所はい上ってくる。

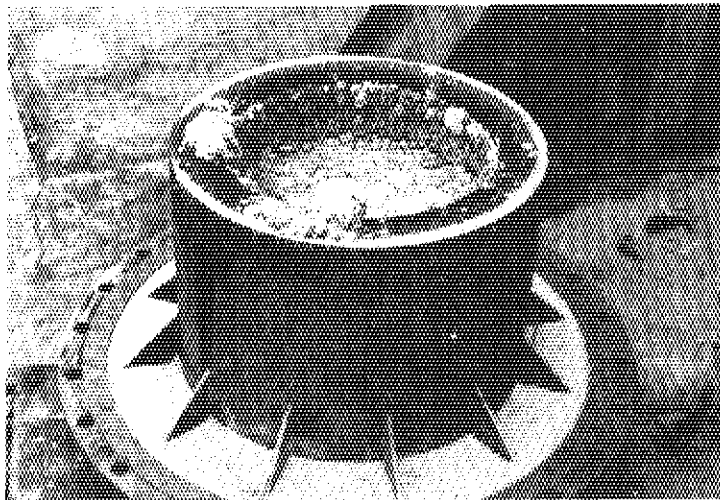
№7 実験 6/24 (0.15 m<sup>2</sup>, 150 m/m, 23 ℓ, 500 °C, 70 % RH, 21 % O<sub>2</sub>)

平均ガス温度110°C)

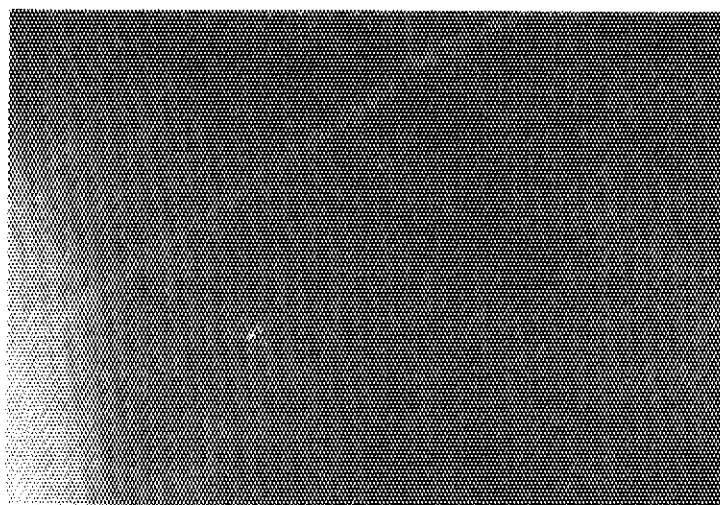


- ㊶ Naチャージと同時に火花発生
- ㊷ 3～5ヶ所から火点発生、白色のNa酸化膜拡がる。
- ㊸ 表面積の1/3で燃焼。火点の拡大が比較的遅い。
- ㊹ ほゞ全面積で燃焼。

鎮火4時間後の燃焼皿の状態を第3.6図に示す。金属光沢をもったNa液面が見える。

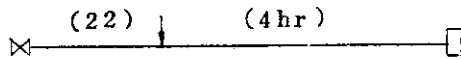


第 3.5 図 実験 No II-5 実験後の燃焼皿



第 3.6 図 実験 No II-7 実験後の容器中の燃焼皿

No. 8 実験

7 / 23 屋外燃焼試験 75%RH, 28°C, 0.075 m<sup>2</sup>, 180 m/m,  
13.5 l, 500°C

- ① Naチャージ直後に4~5ヶ所の火点が発生し、2分後に全面に拡がる。
- ② 燃焼皿の縁内壁に1ヶ所のみ、燃焼生成物が盛り上って形成された。
- ③ 5.5分後へりからNaがこぼれ落ちる。
- ④ 生成物の盛り上った個所の表面からの燃焼がとまる。
- ⑤ 4時間後、表面の燃焼がぼよよる。

燃焼の時間経過を写真で説明する(第3.7図)

### 3.3 燃焼現象の観察結果の総括

#### 3.3.1 初期燃焼温度の影響

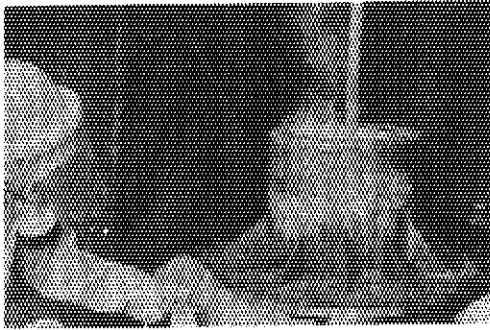
##### (イ) 初期温度500°Cの場合(No. 1, 4, 7 21% O<sub>2</sub>)

全てのケースの場合に、Naチャージ直後に火点が発生、それが拡大して燃焼が続行したが、前回の結果と比較して火点の拡大速度が速く、数秒で全面に広がったことや発展の状態、発火現象の消滅時間が短く20分程度であったことから燃焼速度が速くなったことが予想される。この現象の理由として考えられる事は、使用したNaが前年度のものとは異なり、不純物量が多かったためと考えられる。すなわち、No. 1~2ではKの含有量が、またNo. 3以降ではCaの含有量が多かったと推定される。それらの分析値を第3.2, 3.3表に示した。これらの不純物は移送時は低温(120°C前後)であったため、タンクや配管中に偏析が複雑に起っていたと推定される。発火燃焼終了後約2時間で燃焼容器内の視界が拡がり、白煙が粉状になって容器側下部に堆積する状態は前回試験と同様であるが、燃焼皿の上へりに、一部酸化したNa蒸着物が20~40 m/m盛り上って生成したものの色が、不完全酸化とも思われる黒茶色で、燃焼皿中の未反応Naの表面も同色(No. 1実験)もしくは、酸化物層の皮膜で覆われる(No. 5実験)傾向があり、前回試験のような完全な鏡面状態はNo. 7実験でみられたに過ぎなかった。なお、未反応のNa液底で、燃焼によるNa酸化物と思われる沈殿物が20mm程度の厚さで確認できた。

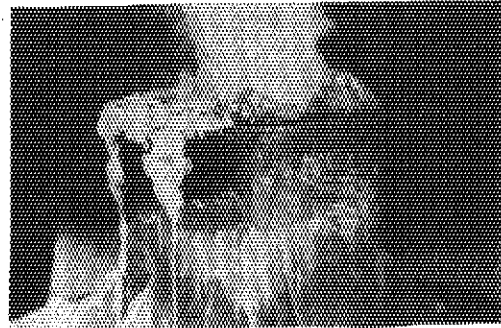
##### (ロ) 初期温度250°Cの場合(No. 2, No. 3実験)

Naがチャージされた直後に、Naによる小火塊が飛散したが、燃焼皿中のNa流入口が小さかったので一部、Naが霧状に噴出し発火したためであり、これは以後の実験から改良した流入口を設けることによって回避した。

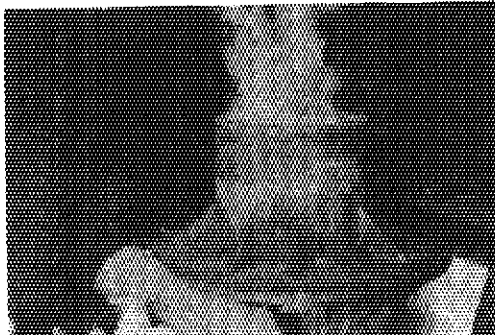
火点の発生や拡大は500°Cの場合と現象的に同様であり精製がなされていないNaにおいては、場合によっては500°Cのチャージ温度の場合よりも火点の拡大が速く、激



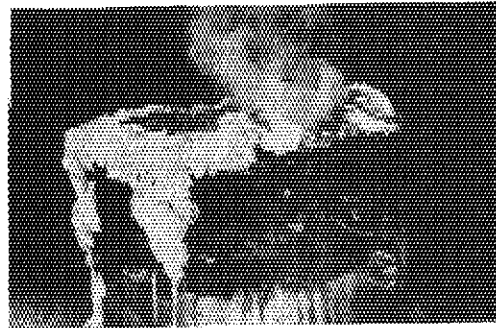
(a) Naチャージ直後



(b) 1時間後



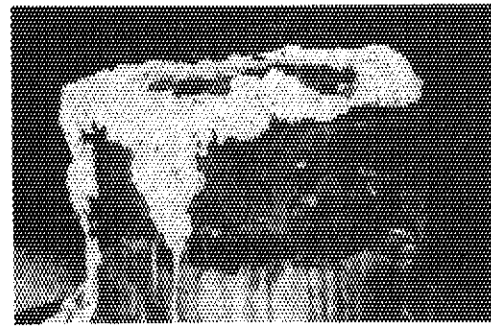
(c) 2分後



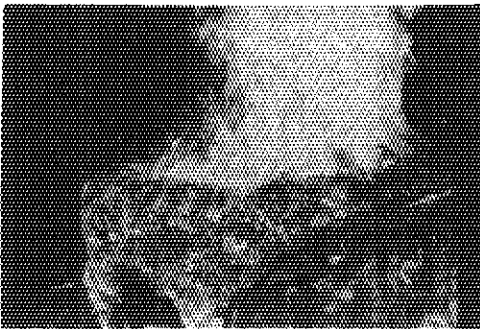
(d) 2時間後



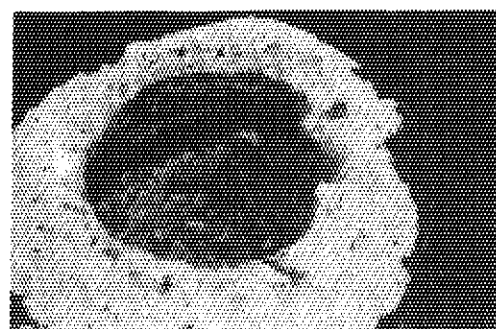
(e) 55分後



(f) 4時間後



(g) 30分後



(h) 燃焼後の燃焼皿内部

第3.7図 外気中のNaプール燃焼状態

しく燃焼する状態が観察された。

また、一度着火燃焼すると、反応燃焼度で燃焼が拡大し、初期のNa温度は燃焼拡大現象にあまり影響しないことがわかる。№2と№3の燃焼現象の差異はほとんどなかったが、鎮火後の燃焼生成物が№3の方が不均一な形状に形成されていた。

#### (c) その他の温度の場合

未反応のNaを燃焼皿から排出する際に、230℃で重力排出して、空気中における発火現象を観察してみた。

受皿を予熱していなかったため、急速に冷却したが、Naの落下点に、酸化物被覆によりアワ状になったものが生成し、その多表面体の部分が容易に発火しやすいことが観察された。しかし、このアワ状の生成物は容易に取り除くことができるので、発火した場合の処理も簡単であった。受皿中の液体Naは一部発火燃焼したが、その表面個所をすくい取ると燃焼は止り、約7kgのNa(液深:約50mm)は、比較的安全に約1.5hrで冷却固化することができた。

また、Naを150℃で同様の条件で排出した場合はアワ状の生成物も発生せず、何等の発火もなく、安全に約1hrで冷却固化することができた。

### 3.3.2 初期酸素濃度の影響

#### (i) 酸素濃度21%の場合

3.3.1の(i)参照のこと。

#### (ii) 酸素濃度15%および11.2%の場合

15%の場合は、比較的緩徐にNaを燃焼皿にチャージしたが、発煙が激しく、150mmの予定液位に到達する以前に容器内の視界がゼロになった。また、発火の状態も不規則な強弱があり、発火燃焼の終了時点の判明がやや不明瞭であった。燃焼現象そのものは21%の場合との差異はつけ難かった。

11.2%の場合は、Naのチャージ途中に表面に数点の火点が発生し、発煙したが、急激な燃焼拡大はみられず、徐々に燃焼が進行した。容器中の視界が零になるまでの時間がこの一連の実験中で最も長く、燃焼皿の内壁をNaが燃焼しつつ、蒸着生成し、せり上ってくる現象が観察できた。なお、この実験は、20℃の相対湿度を35%に設定して行なったものであり、前年度の試験(9.6%、70%RH、500℃:燃焼しなかった。)と比較して、湿度が $\frac{1}{2}$ であったことと、Na中のCa等の不純物濃度が高かったことが初期の火点発生に起因しているものと思われる。

### 3.3.3 ガス温度の影響

容器本体中の空気温度を平均110℃に昇温させて、Naを燃焼皿中で燃焼させた場合は、火点の発生状態が前年度の実験とほぼ同様であった。しかし、火点が全表面に拡大し燃焼するまでの時間が約2.5分と比較的長く燃焼状況も穏やかであった。

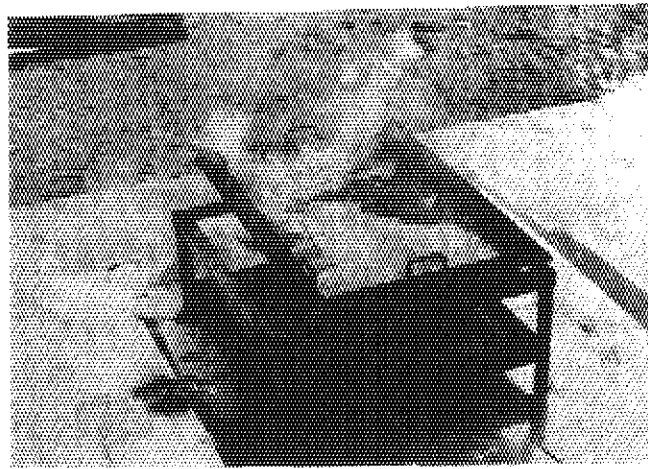
### 3.3.4 大気に開放して燃焼した場合

Naチャージ時は、白いNa酸化皮膜を伴いながら液位が上昇し、4～5点の火点が発生し、2分後に火点が全面に拡大して燃焼し、燃焼生成物が燃焼皿のへりに盛り上ってきた。5.5分後にはこの生成物を介して、毛細管現象で押し出されたとと思われるNa燃焼皿の外部に流れだした。生成物の色は黄色から1時間後に白色に変わった。また、4時間後に自燃消火したが燃焼皿中のNaは、チャージ直後の180mmから約60mmと $\frac{1}{3}$ の液位になり、硬いクラスト（炭酸ナトリウム等から成る）で覆われた。これは密閉容器中の燃焼と最も大きく異なる現象である。またこのクラストの内部には空気遮断されて窒息消火したNaがNa酸化物等と混って残った。なお、これらの水処理には、密閉容器中で燃焼実験した場合の処理よりも時間を要した。

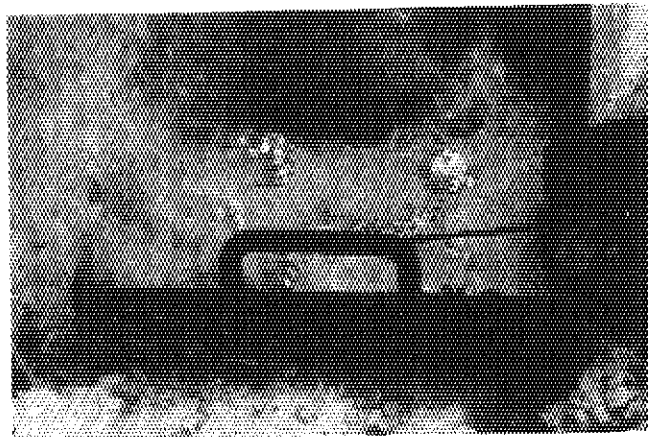
なお、空気中におけるNaの発火燃焼事例を上げると、事例A（75%RH, 29℃）では280℃で着火し（第3.8図）、また事例B（73%RH, 23℃）では250℃で着火（第3.9図）、10min後に400℃に温度上昇した。

### 3.4 燃焼生成物

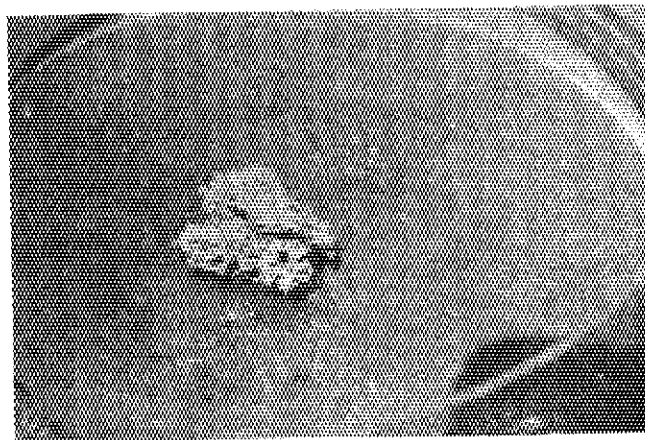
密閉容器中で燃焼実験した燃焼皿に生成された物質は前年度の実験と外観的に同じであった。また燃焼皿上部の内側にNa蒸着をはっきり示す樹枝状のNaが形成された。その一部を取り出したものを第3.10図に示す。



第 3.8 図 空気中における Na の発火燃焼事例 - A



第 3.9 図 空気中における Na の発火燃焼事例 - B



第 3.10 図 樹枝状に生長した Na

## § 4 酸素濃度変化からみたナトリウム燃焼速度

### 4.1 目的

ナトリウムの燃焼速度を、酸素濃度の減少速度を測定することより求め、燃焼速度と初期酸素濃度 $\%$ 、初期Na温度、湿度、初期空気温度、燃焼面積などとの関係を調べた。

### 4.2 測定法

前報と同じであるので省略する。

### 4.3 燃焼速度

前記の測定法により測定した結果を第4.1図～第4.7図に示した。

今回の実験では、初期5分間程度燃焼速度の小さい所があったので、燃焼速度の算出には燃焼速度が直線的になる所で求めた。この現象は実験により、出現する時としない時とがあった。これはNaを燃焼皿にチャージする時の状態（チャージの速度）によるものと考えられる。

以上のようにして、前回と同じ方法で、データ処理した結果を第4.1表に示す。

### 4.4 考察

#### 4.4.1 初期酸素濃度と燃焼速度

同じ $S/S_0 = 0.85$ の条件下での実験値を、前回の初期酸素濃度と燃焼速度の関係とともに第4.8図にプロットした。

№6の実験について言及するとこの実験条件をわち、初期酸素濃度11.2%では火点の発生が認められたけれども、その増加が極めて遅く、1～2分後から燃焼皿の温度を500℃に保った。それにより火点の増加は認められた。前回の№6、№7の場合と同じく実際にはより低い値になると思われる。図では、燃焼面積が異なるので直接グラフ上にプロットする事はできないので、燃焼速度と $S/S_0$ の比の関係より、 $S = 0.15 \text{ m}^2$ に相当する値を近似的に求めてプロットした。

以上の事から、初期酸素濃度の増加につれて燃焼速度は指数関数的に増加すると推定される。初期酸素濃度11.2%附近に火点を生ずるか生じないかの境界があると推定される。

#### 4.4.2 初期ナトリウム温度と燃焼速度

初期ナトリウム温度と燃焼速度との関係を第4.9図に示してある。№1、№2および、№3、№4はそれぞれ同じ種類のナトリウムである。

この実験からでは定量的な事は云えないが、燃焼速度は初期ナトリウム温度に依存すること、またナトリウムの純度により燃焼速度は著るしく影響をうけること、などが明らか

第 4.1 表 各条件下における燃焼速度

実験 No	初期 酸素濃度 [v/o]	ナトリウム 露出表面積 S [m <sup>2</sup> ]	ナトリウム 液 深 O [mm]	注 ナトリウム量 [g]	初 期 水蒸気量 [g/m <sup>3</sup> ]	ナトリウム露出 表面積 容器断面積 [S/So]	燃 焼 速 度 ( 反 応 速 度 )			
							kg/m <sup>2</sup> -hr	kg/m <sup>3</sup> -min	lb/At <sup>2</sup> ·hr	lb/ft <sup>2</sup> -min
1	21	0.15	150	22.7	13.0	0.0849	64.7	1.08	13.3	0.221
2°	21	0.15	150	22.7	11.7	"	27.3	0.455	5.59	0.093
3°	21	0.15	150	22.7	12.8	"	20.7	0.345	4.24	0.071
4	21	0.15	150	22.7	11.7	"	28.7	0.478	5.88	0.093
5	15.1	0.15	150	22.7	12.1	"	11.1	0.19	2.27	0.038
6*	11.2	0.075	150	11.3	6.0	0.0425	17.7	0.29	3.62	0.060
7*	21	0.15	150	22.7	12.1	0.0849	29.6	0.493	6.06	0.101

※ 燃焼皿温度を500℃に保ってあった。

\* 初期ガス温度>100℃

• 初期ナトリウム温度250℃，その他は500℃

となった。

#### 4.4.3 ガス温度の影響

容器内空気温度を100°C程度に加熱しておいて実験を行なった。この時の燃焼速度は0.493 kg/m<sup>3</sup>・minであって、他の通常の実験の場合とほぼ同じであった。

この実験では容器の対流は妨害されていないと推定される。

#### 4.4.4 ナトリウム燃焼終期の酸化速度

前述のように閉じた系においてナトリウム火災が発生した場合、系内O<sub>2</sub>は見掛上零次反動的に減少する。しかし火災終期においてはO<sub>2</sub>減少率が極度に低下し、かつその低下率は一次反動的であることが認められた。(第4.2表参照)

火点が露出ナトリウム表面に存在している状態では、その燃焼に伴う反応熱により系内における上昇気流は激しく、従って下降流と共にO<sub>2</sub>が供給される。しかし、火点がもはや存在しえない状態では、ナトリウム露出表面温度はナトリウムループから容器への伝熱ならびにナトリウム表面から気相に露出している容器内表面への輻射により低下し、かつ上昇気流の速度も低下してO<sub>2</sub>の供給は低下するであろう。事実ナトリウム表面の温度は約10°C/minで低下している。しかしながら、ナトリウム表面は依然として高温であり、激しさの程度において火点存在時に劣るとしても、対流は継続しているであろう。それにより、気相中O<sub>2</sub>は単に拡散による効果だけでなく対流によりナトリウム表面と接触して反応を続行することが推定される。このことは火点を生じない反応〔前回の実験No I-6, No I-7 (ナトリウム温度=500°C・Constant)〕において観測された事実である。

均一一次反応式は、対象化学物質の濃度をCとおくと

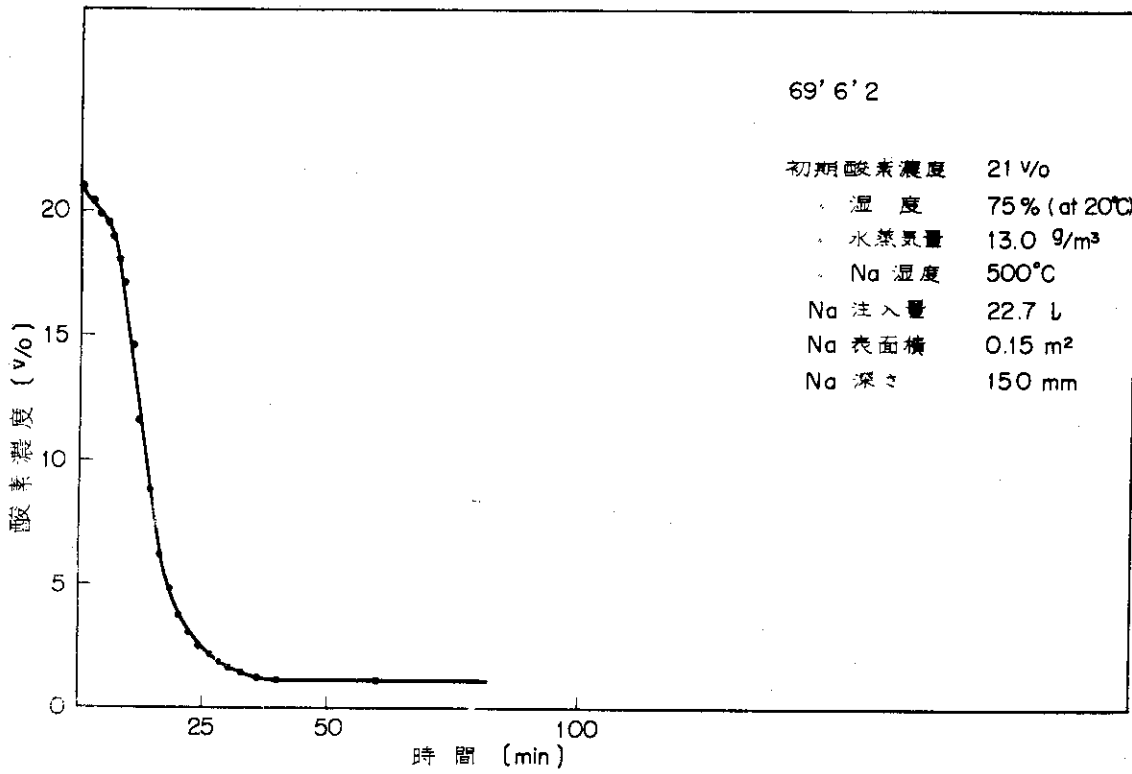
$$\frac{d[C]}{dt} = k_1[C] \quad (1)$$

と表現される。k<sub>1</sub>は〔T<sup>-1</sup>〕の次元をもち、Cの初期濃度に独立な定数である。こゝで取扱った系は不均一で、しかも、O<sub>2</sub>の供給速度、ナトリウムの表面温度、表面積およびその表面状態により変化するものであるので、到底簡単な数学的取扱で律することは不可能である。

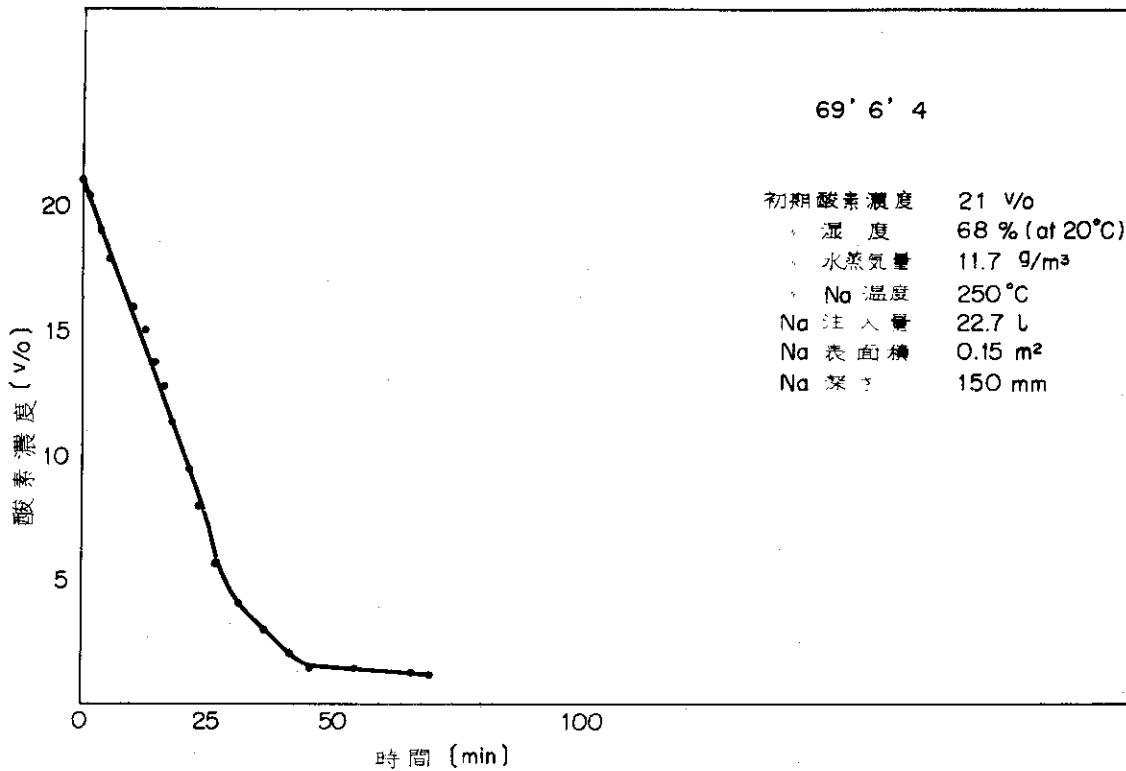
なお、これら実験事実に関する検討は、第7.2節で行なう。

第 4.2 表 一次反応への移行時間

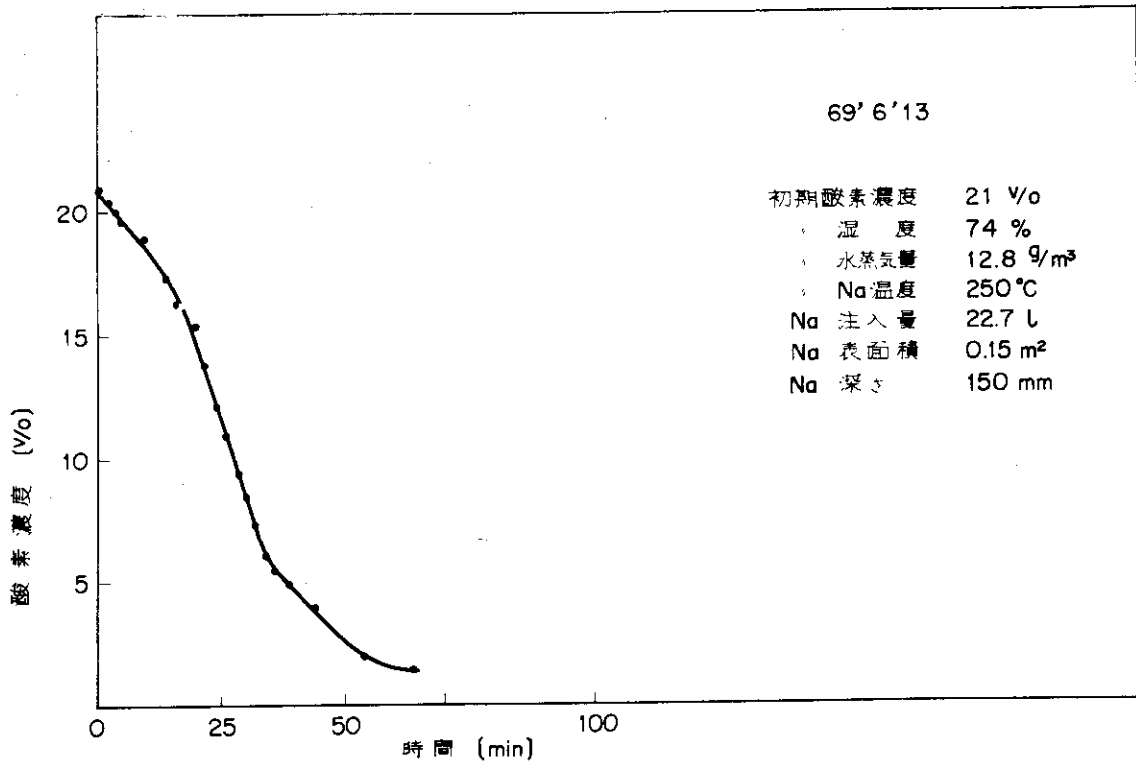
実験 No	初期温度	一次反応開始時		$T^{1/2}$	$k_1$ $0.693/T^{1/2}$
		$t'$	$O_2$ 濃度		
I-2	500	26 (min)	5 (%)	8 (min)	0.086 (min)
I-3	500	27	5	6	0.115
I-4	500	23	3.7	15	0.046
I-5	500	19	6	6	0.115
I-6	500 const	0	5	22	0.0314
I-7	500 const	15	8	18	0.0385
I-8	500	25	8	7.5	0.0925
II-1	500	16	5	7	0.095
II-2	250	25	6.4	9.5	0.073
II-3	250	25	11.5	10	0.0693
II-4	500	24	12	10	0.0693
II-5	500 const	25	12	17	0.0407
II-6	500 const	29	6.8	10	0.0693
II-7	500 (gas 110°C)	20	11.5	5	0.139



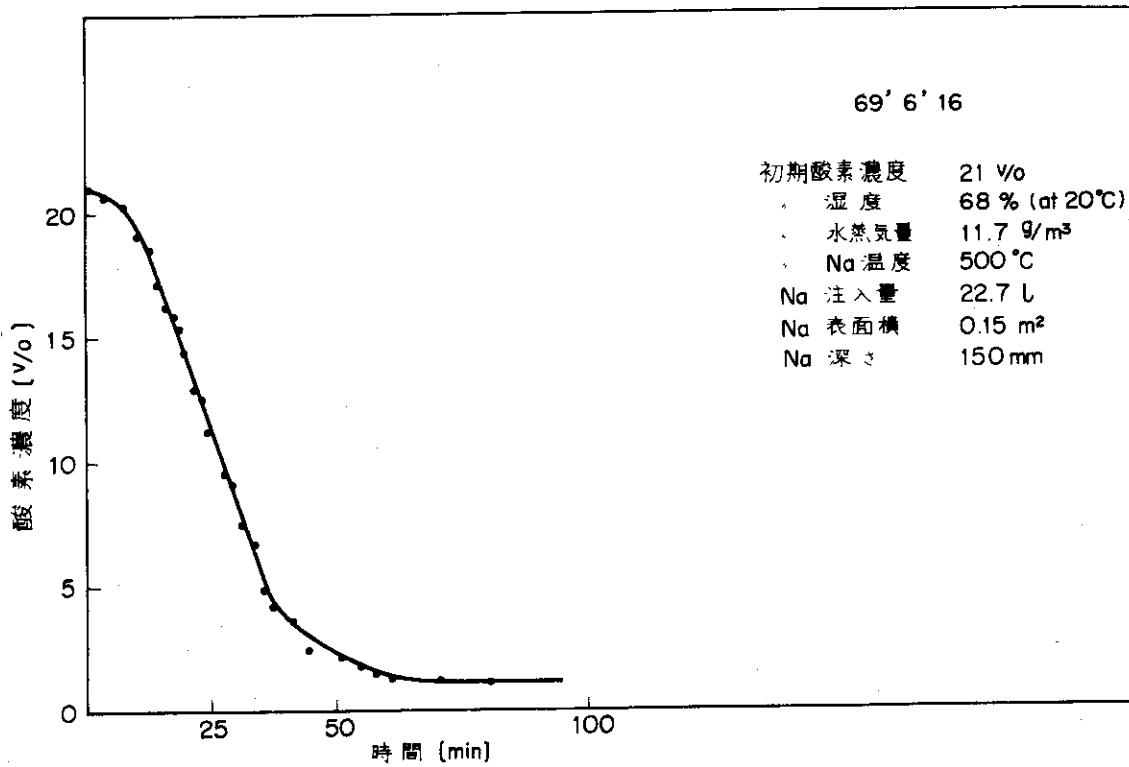
第 4.1 図 実験 No. 1 酸素濃度の経時変化



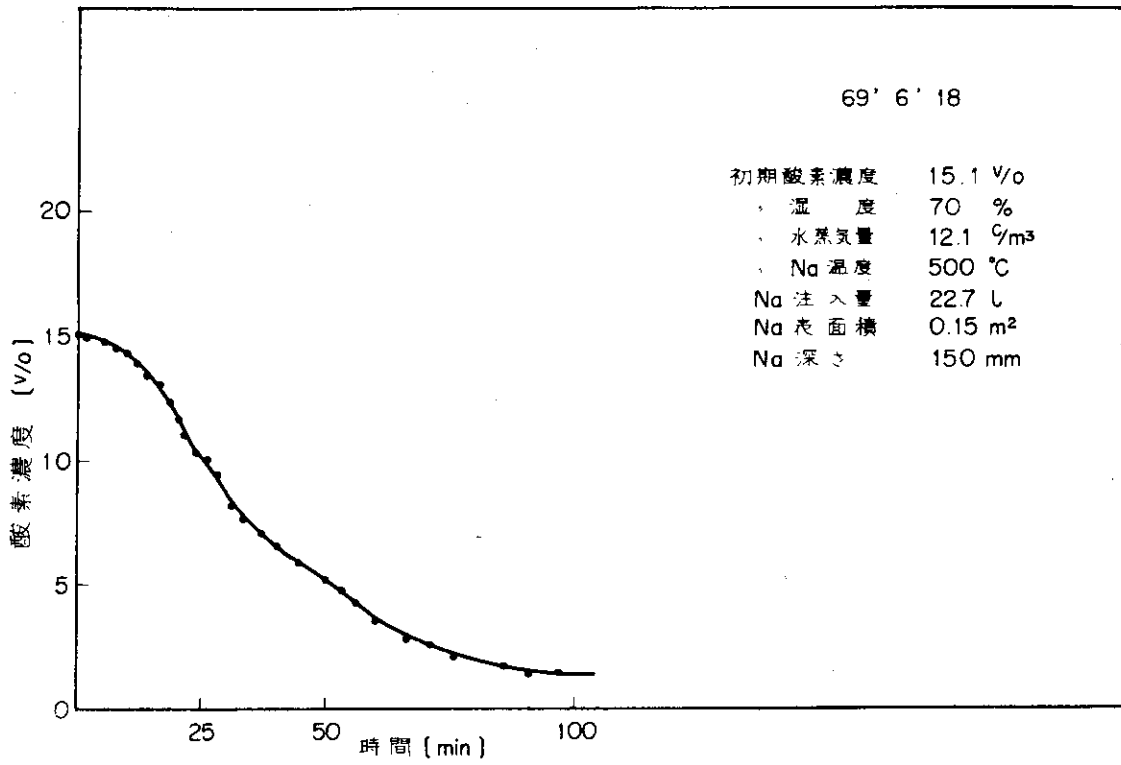
第 4.2 図 実験 No. 2 酸素濃度の経時変化



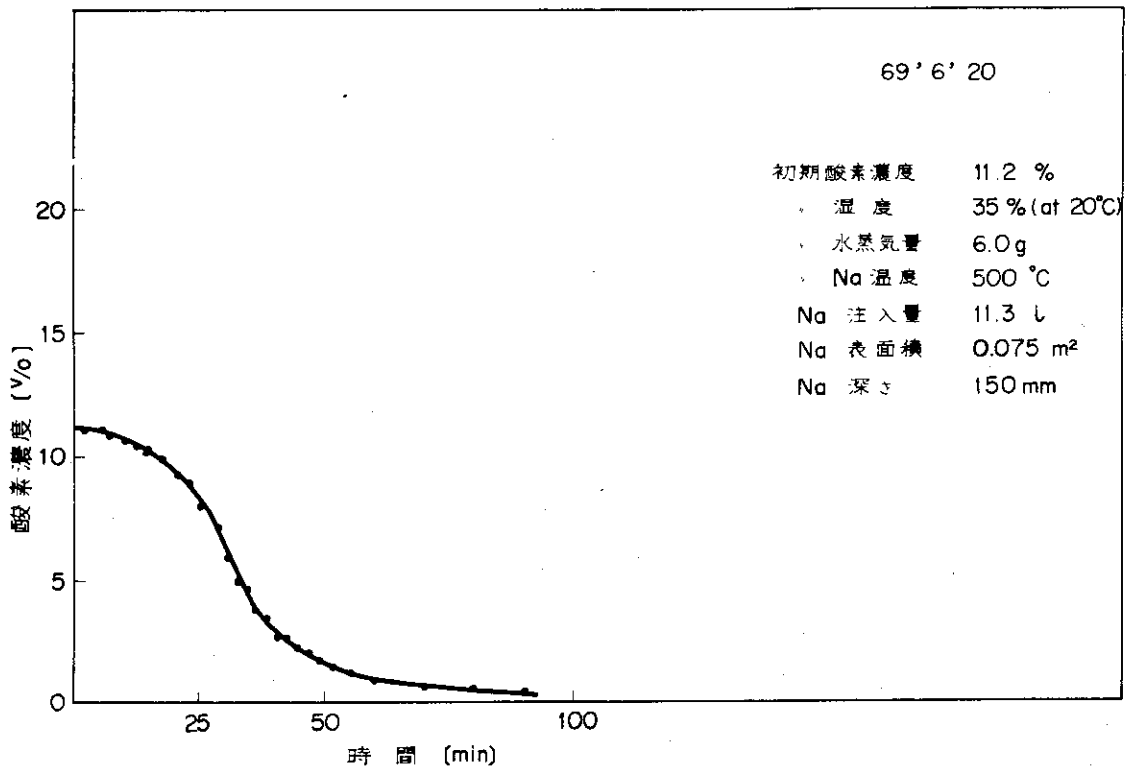
第 4.3 図 実験 No. 3 酸素濃度の経時変化



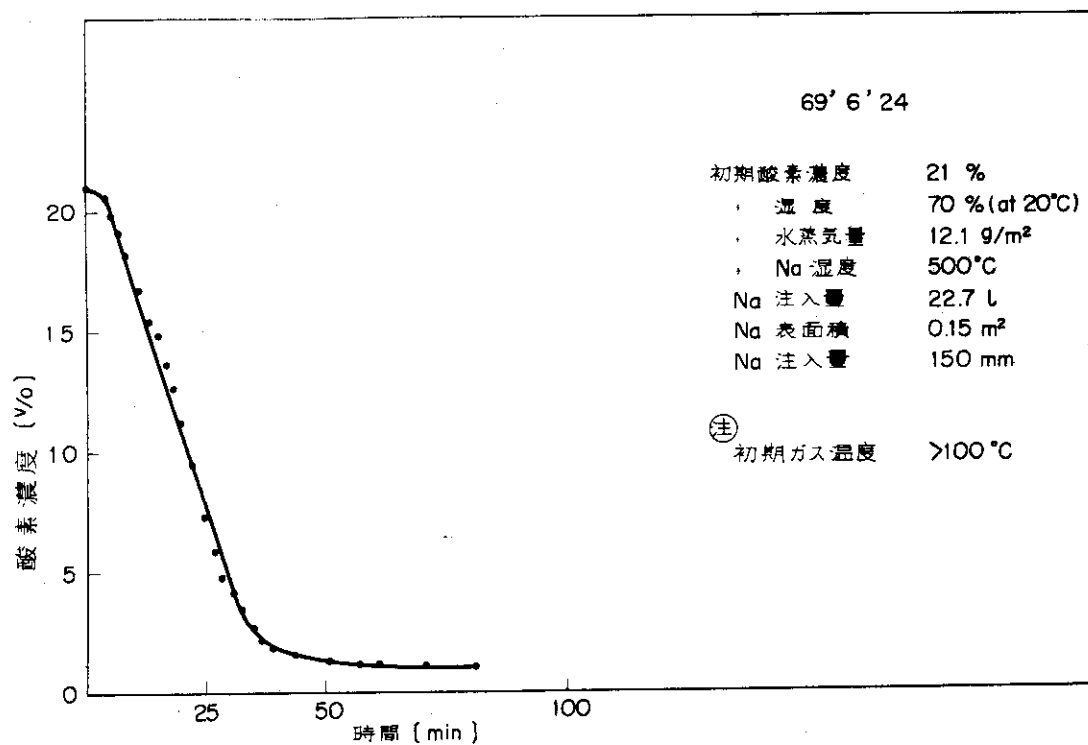
第 4.4 図 実験 No. 4 酸素濃度の経時変化



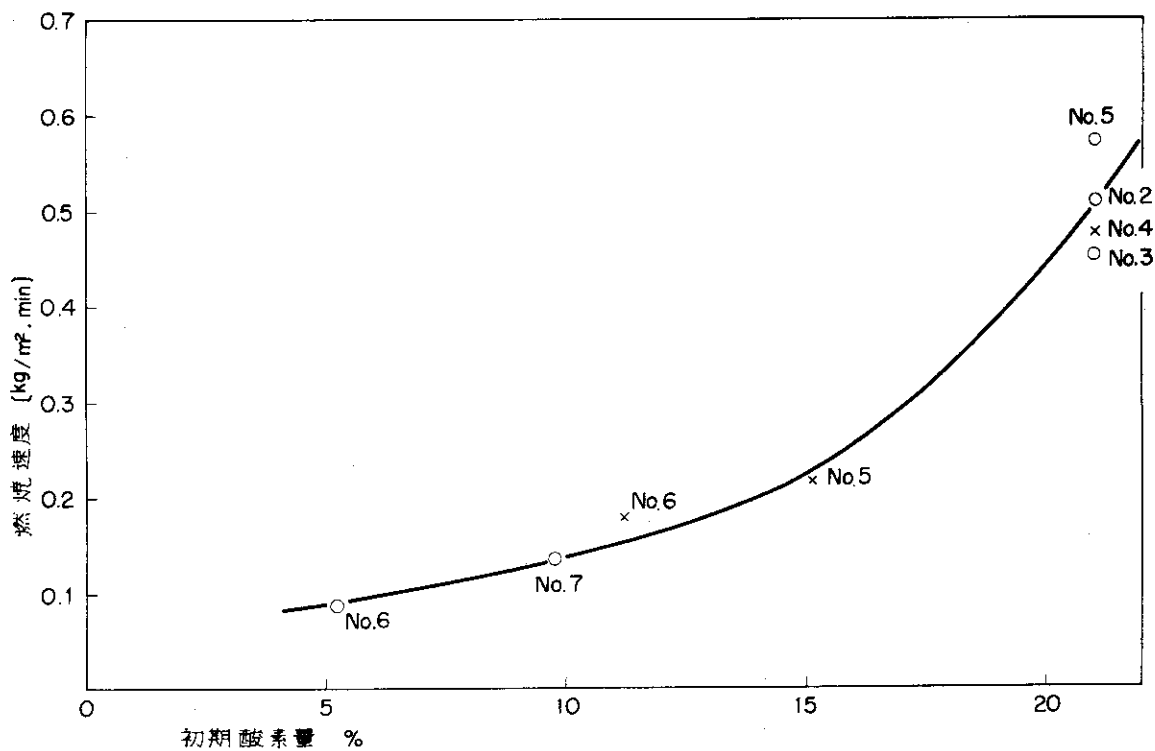
第 4.5 図 実験 No. 5 酸素濃度の経時変化



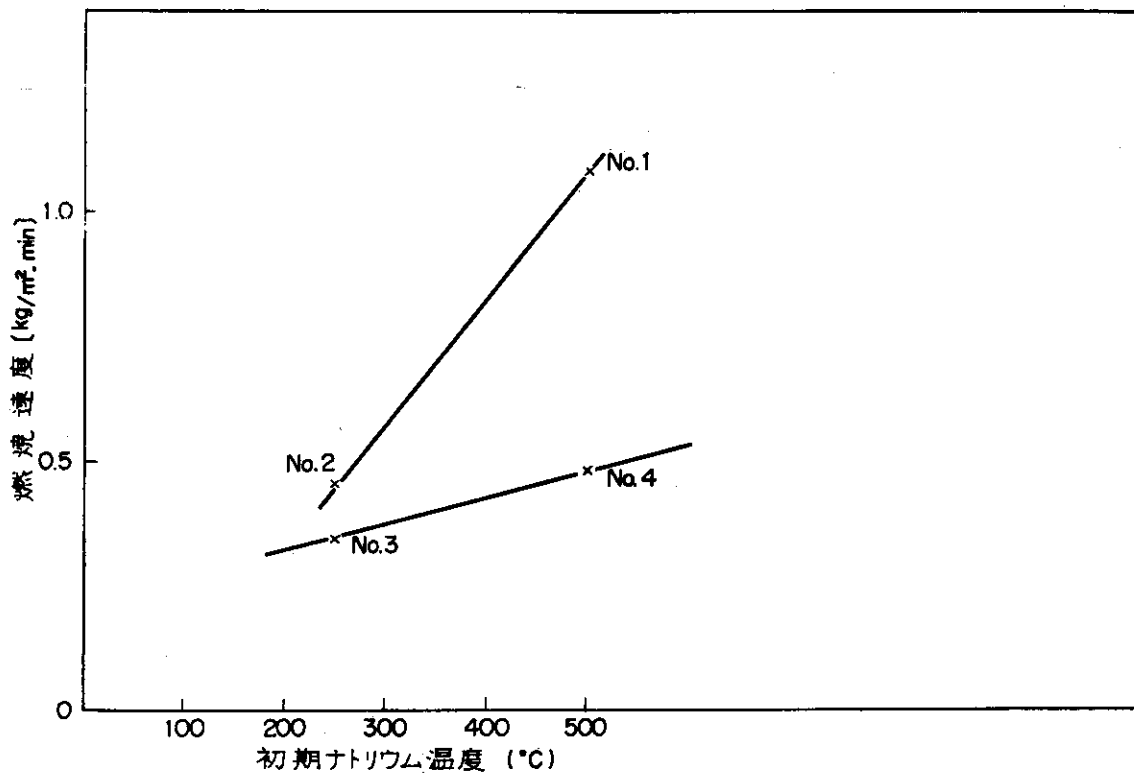
第 4.6 図 実験 No. 6 酸素濃度の経時変化



第 4.7 図 実験 No. 7 酸素濃度の経時変化



第 4.8 図 初期酸素濃度と燃焼速度



第 4.9 図 初期ナトリウム温度と燃焼速度

## § 5 燃焼反応熱の計算

### 5.1 目的

Naのシステムからなるプロセスを考え、このプロセス全体のエネルギー変化量から燃焼反応熱を、またそのエネルギー変化率および容器内の気体分子密度の変化率から熱的にみた燃焼速度を求めてみる。こゝに後者の容器内の気体分子密度の減少は容器内の気体を理想気体とみなせば酸素分子の減少すなわち酸化燃焼速度に対応する。

プロセスの圧力および温度測定点を第5.1図に示す。

### 5.2 計算方法

計算方法、基本式および物性値については、「ナトリウム火災モデル試験(I)」に詳述してあるのでこゝでは特にふれないことにする。〔第I篇参照〕

### 5.3 測定結果

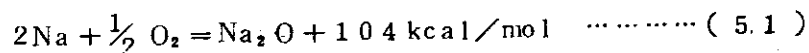
圧力および温度の測定結果を第5.2～5.8図に示す。図において各々の温度はシステム全体の重量重み付き平均温度である。図より明らかなように、温度および圧力の最高値は(各々の実験条件により若干の相異はあるが)たかだか200℃および0.22 kg/cm<sup>2</sup>以下である。これは安全解析に用いられているコード「NAFIRE」の解析結果、温度620℃、圧力1.7 kg/cm<sup>2</sup> Gよりは非常に低い。これはモデルの相異によるものであるが、これらの詳細は別に報告する。<sup>3)</sup>

### 5.4 計算結果および検討

#### 5.4.1 燃焼反応熱

##### (1) 燃焼反応熱

燃焼反応熱の計算結果を第5.1表に示す。また、燃焼反応がすべて次式で示すような形で行なわれたものと仮定した場合の燃焼反応熱の計算値をもあわせて示す。



Naの酸化物は四種類の存在が確認されているがNa-空気反応ではNa<sub>2</sub>O、Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の2種類が多量に形成される。これらの反応ではまずNa<sub>2</sub>Oが形成され、次いで過剰の酸素がある場合はNa<sub>2</sub>Oはさらに酸化されてNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>となる。実際に、酸素が多い反応の初期にはNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>が一部形成され、それが次第に再還元されるものと思われるので、主として前者の反応のみが行なわれるものとみなし得るであろう。<sup>(1)</sup>

一方、実験の肉眼およびビデオテープレコーダーによる観測結果によれば、少なくとも

も初期の燃焼反応の状態は前回<sup>1)</sup>とは全く異った激しい燃焼反応を呈し、また燃焼反応終了後もNaプールは前回のよな鏡面状態とは異り、酸化物が多量に浮遊した状態であった。ここで少なくとも前者に関してはNa地金中の最も反応しやすいkの含有量は、前回は0.1%程度であったものが、今回は1%程度とかなり多量であったことに起因するものと思われる。

なお、空気中には若干の水蒸気が存在するが、その量は少ないので全体の燃焼反応におよぼす効果は小さい。密閉容器内におけるNa-空気反応は少なくとも1%程度のkを含む場合であっても(5.1)式の反応のみが行なわれるものと仮定して、その燃焼反応熱を求めてもよいであろう。

## (2) 熱収支

燃焼反応によって発生した熱は、燃焼反応終了時において約50~70%が対流およびふく射伝熱によって、ガスおよび圧力容器に伝熱される。残りの約50~30%はNaプールおよびNa燃焼皿に伝熱される(第5.1表参照)。このようにNaプール燃焼においては、燃焼反応の約50%~30%がNaプール側に蓄熱されるが、これはNaの燃焼がいわゆる液面燃焼であり、かつNaの熱伝導率が他の燃焼燃料に比して非常に大きいためであろう。しかも、酸化物は他の液体燃料の場合に比して重く、あまり飛散せず、大部分はNaプールの低温部に移動することからも容易にうなずける。

次に燃焼反応層から気体および圧力容器への伝熱過程を考えてみたい。その詳細は別に報告する<sup>(3)</sup>が要点を述べると、いま火点の温度を1500°Cとし、その燃焼表面上の分布割合を50%とすれば、圧力容器への伝熱は約80%がふく射伝熱によって支配される。残りの約20%がNa液面や火焰からの自然対流によって、あるいは酸化物の飛散やAerosolのふく射吸収等によって気体に伝熱される。これらの伝熱過程は圧力容器を支配する重要な要素であるが、これらの詳細な検討結果については別の報告書<sup>(3)</sup>とする。

なお、従来安全解析に用いられているコード「NAFIRE」<sup>(2)</sup>は、燃焼熱のNaプール側への残留やふく射放熱は考慮に入れていないので、非常に安全側に考えたモデルであることが分る。

## (3) 温度分布

容器内部の温度分布は主として容器および燃焼皿の形状によって支配される。(第5-9~5-15図参照)これは容器内部の気体の自然対流を支配し、燃焼速度、酸化物等の容器内部への飛散および付着、さらには容器内面における熱伝達を支配するから容器内の圧力応答を考えるには非常に重要な要素である。これについては別に報告する。<sup>(3)</sup>

### 5.4.2 燃焼反応速度

容器内部の気体の密度の変化割合、および全系のエネルギー変化割合から熱的にみた燃

焼速度を求めた。(第5-16, 17図参照)その結果を第5-2表に示す。表より、容器内部の酸素濃度の変化割合から求めた燃焼速度とは相当の相違が認められるが、これについては次章で検討する。

第5.1表 燃焼反応熱と伝熱割合

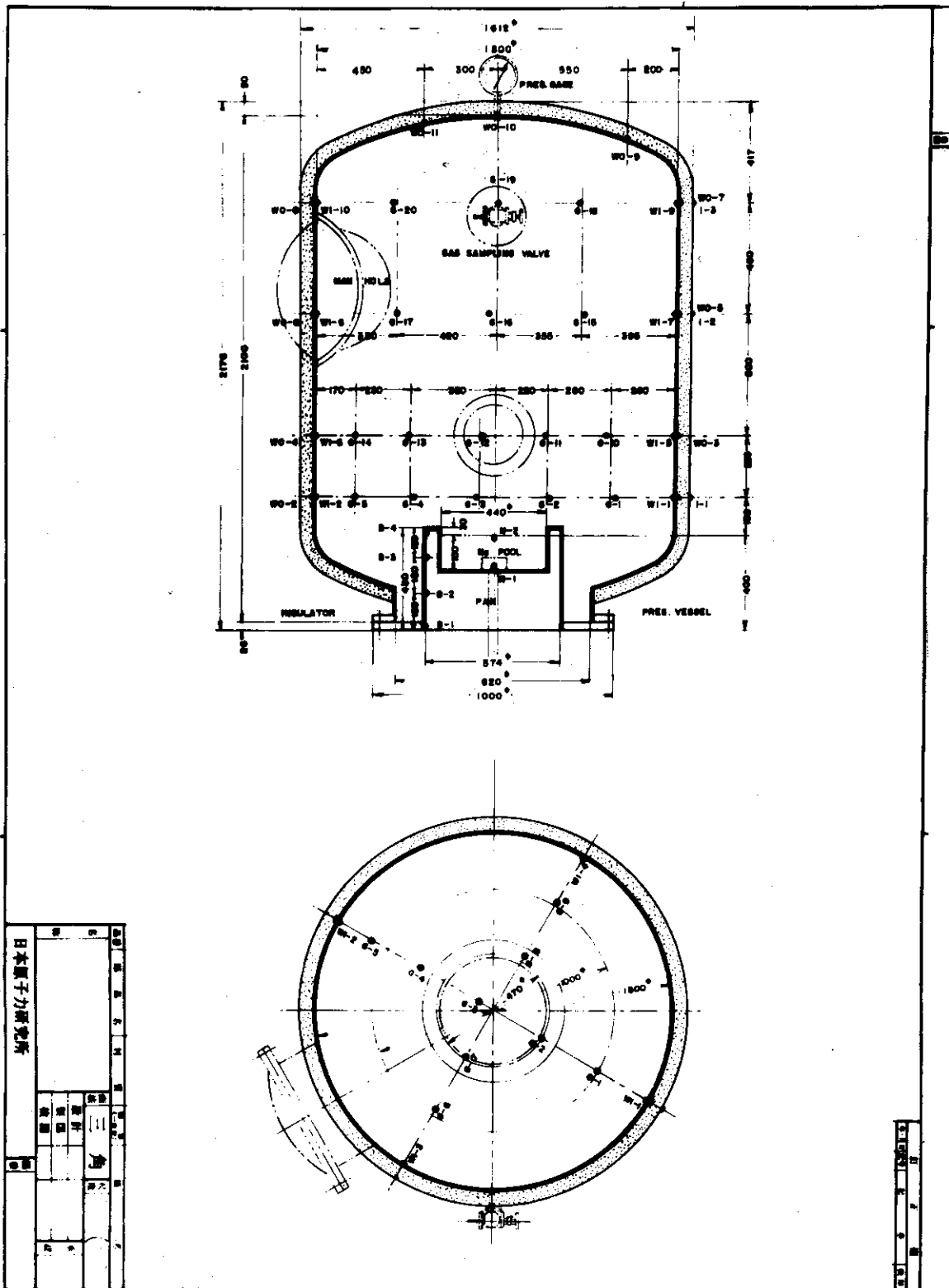
	初期酸素濃度 v/o	全 燃 焼 熱		伝熱割合*2)	
		実測値 kcal	計算値*1) kcal	Naプール側 %	圧力容器側 %
1	21	5280	5750	51.9	48.1
2	21	4600	5750	42.0	58.0
3	21	4270	5750	34.8	65.2
4	21	4400	5750	41.1	58.9
5	15.1	3940	4150	52.8	47.2
6	11.2	3330	3100	31.6	68.4
7	21	4700	5750	57.7	61.3

\*1)  $2Na + \frac{1}{2}O_2 = Na_2O + 104 \text{ kcal/mol}$

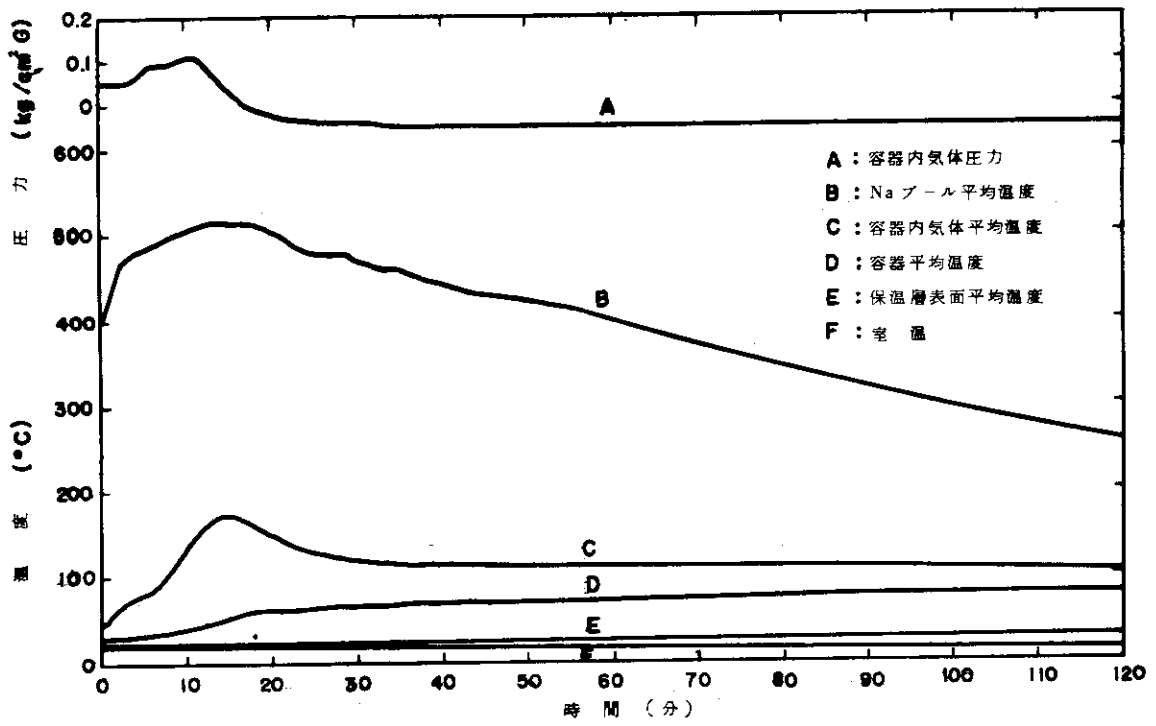
\*2) 熱的にみた燃焼反応終了時における値

第5.2表 燃焼速度

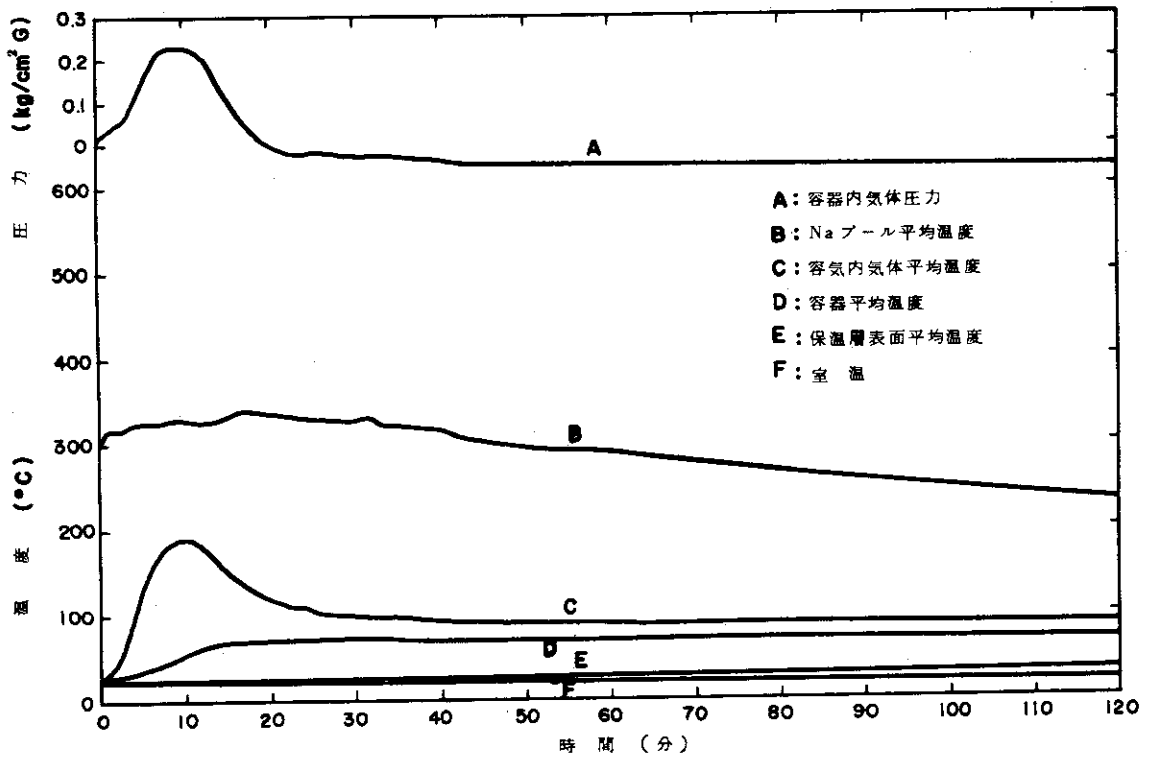
実験態	初期酸素濃度	注入Na温度 C	Naプール面積 m <sup>2</sup>	燃 焼 速 度 kg/m <sup>2</sup> -min		
				燃焼熱基準	密度基準	酸素濃度基準
I-1	21	500	0.075	0.98±0.07	1.72±0.26	-
I-2	21	505	0.15	0.50±0.03	0.58±0.10	0.51
I-3	21	520	0.15	0.57±0.02	0.68±0.03	0.45
I-4	21	500	0.30	0.31±0.02	0.47±0.04	0.36
I-5	21	505	0.15	-	0.68±0.04	0.62
I-6	5.2	470	0.15	0.12±0.01	0.11±0.01	0.08
I-7	9.7	475	0.15	-	0.16±0.02	0.13
I-8	21	495	0.075	0.91±0.07	1.23±0.09	0.85
II-1	21	470	0.15	0.89±0.04	1.03±0.09	1.08
II-2	21	300	0.15	1.05±0.10	(1.49±0.10)	0.46
II-3	21	250	0.15	0.87±0.10	(1.29±0.31)	0.35
II-4	21	475	0.15	0.86±0.03	0.69±0.09	0.48
II-5	15.1	490	0.15	(0.62±0.18)	0.31±0.01	0.19
II-6	11.2	460	0.075	(0.53±0.01)	0.57±0.03	0.29
II-7	21	460	0.15	0.75±0.03	0.76±0.04	0.49



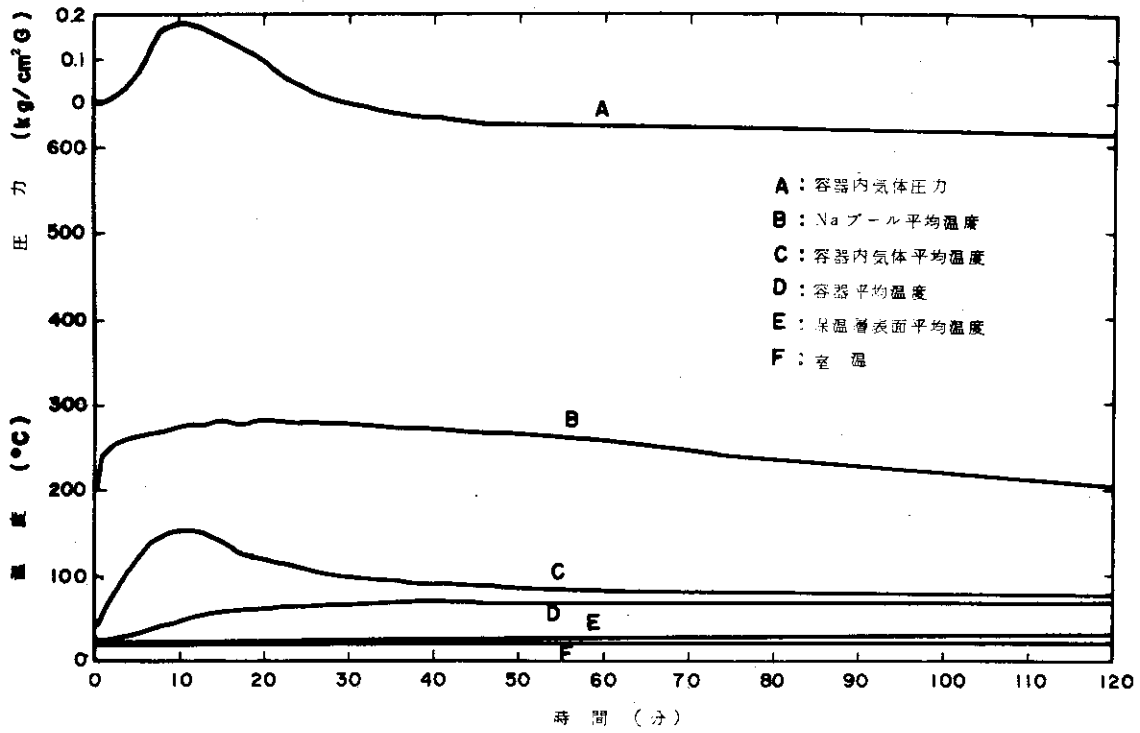
第5.1図 圧力容器温点



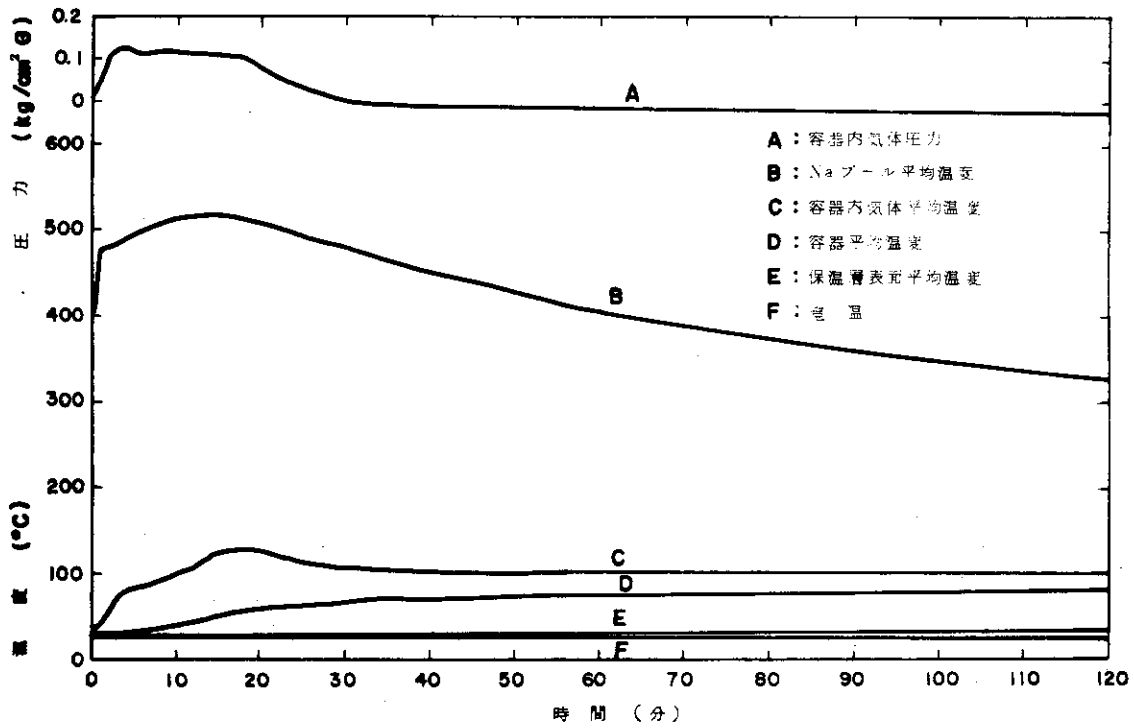
第 5.2 図 温度および圧力応答 (実験 No.1)



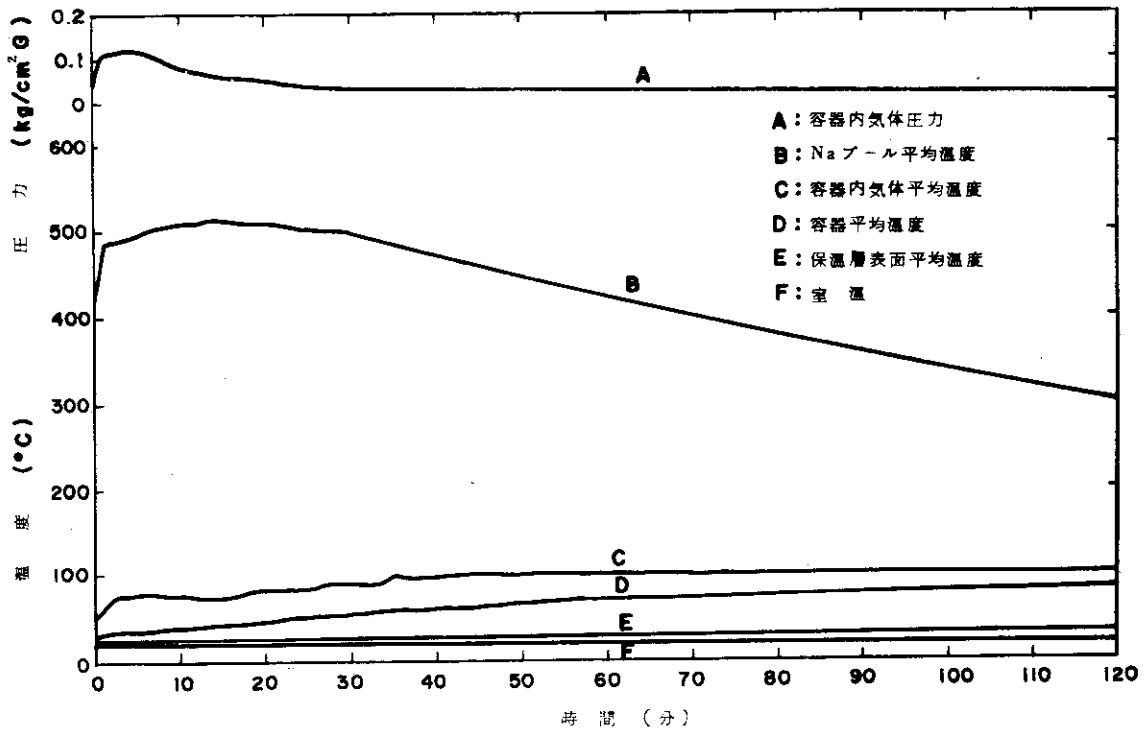
第 5.3 図 温度および圧力応答 (実験 No.2)



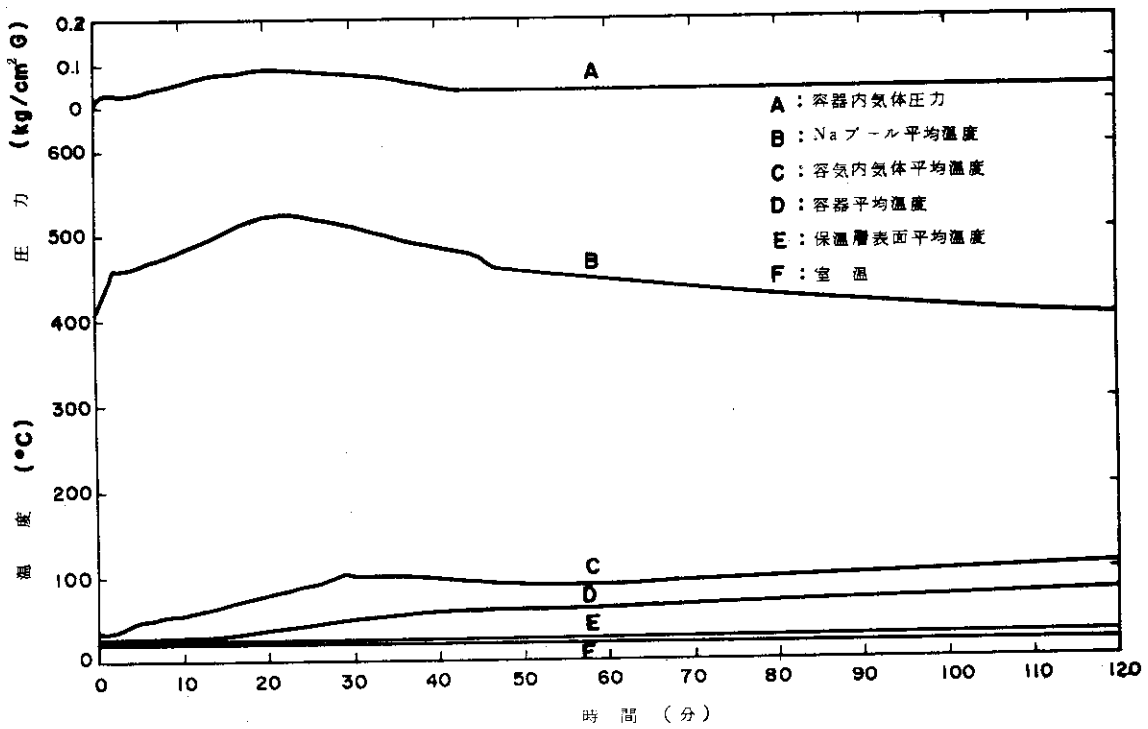
第5.4図 温度および圧力応答 (実験 No.3)



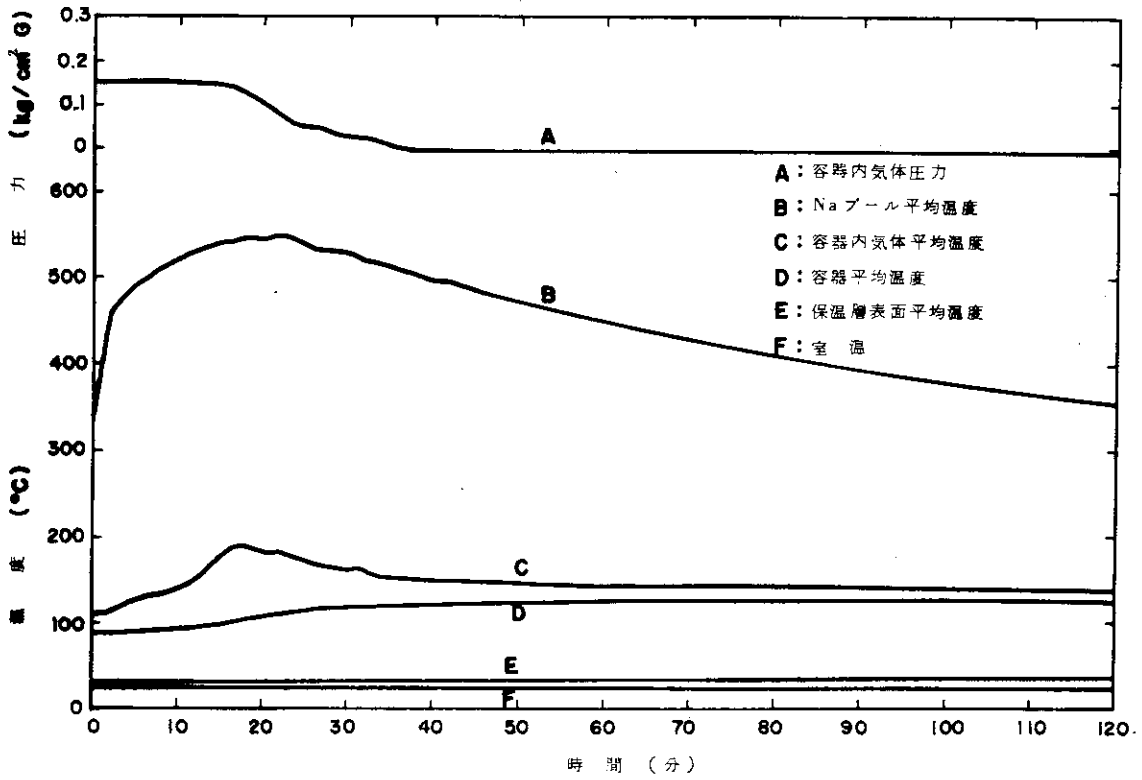
第5.5図 温度および圧力応答 (実験 No.4)



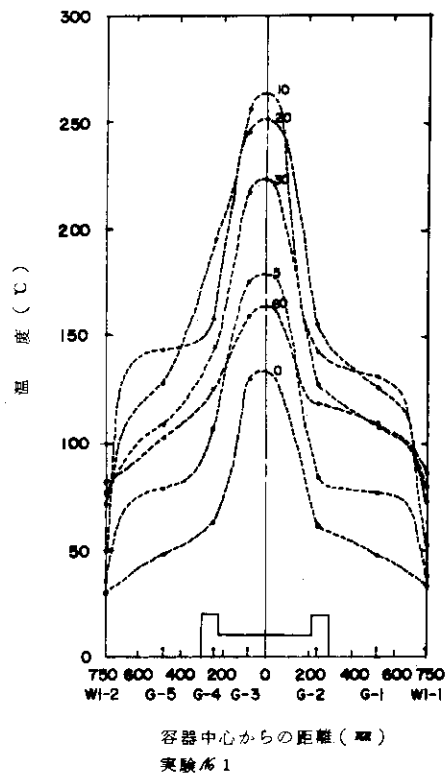
第 5.6 図 温度および圧力応答 (実験 No.5)



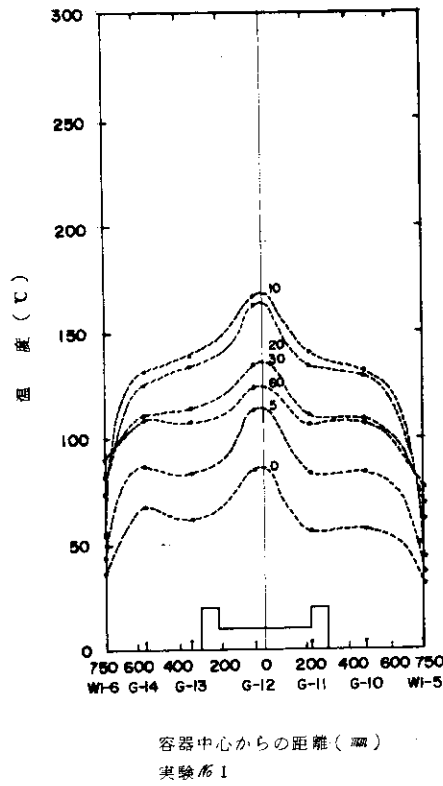
第 5.7 図 温度および圧力応答 (実験 No.6)



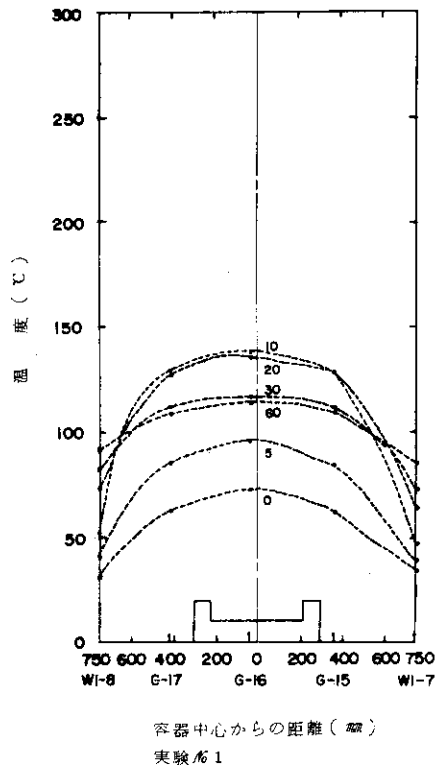
第 5. 3 図 温度および圧力応答 (実験 No.7)



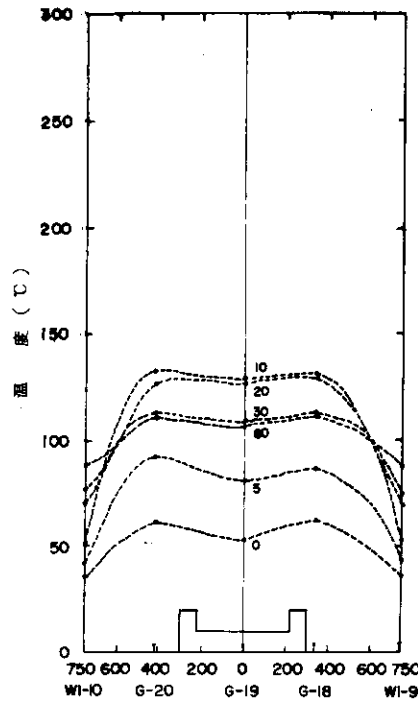
第 5. 9 図 容器直径方向温度分布



第 5.10 図 容器直径方向温度分布

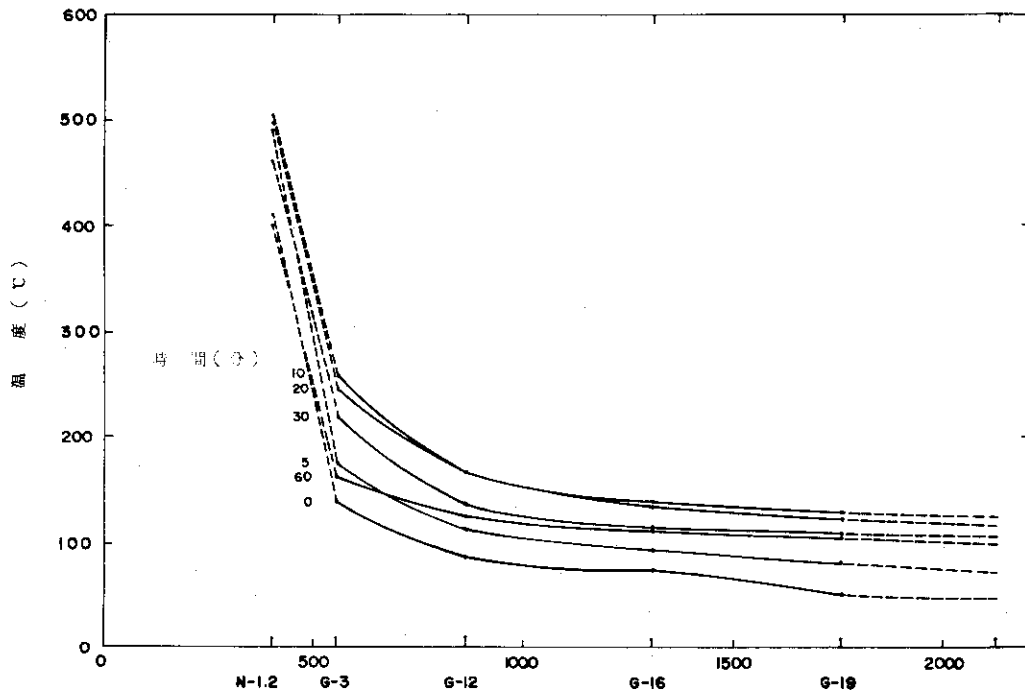


第 5.11 図 容器直径方向温度分布



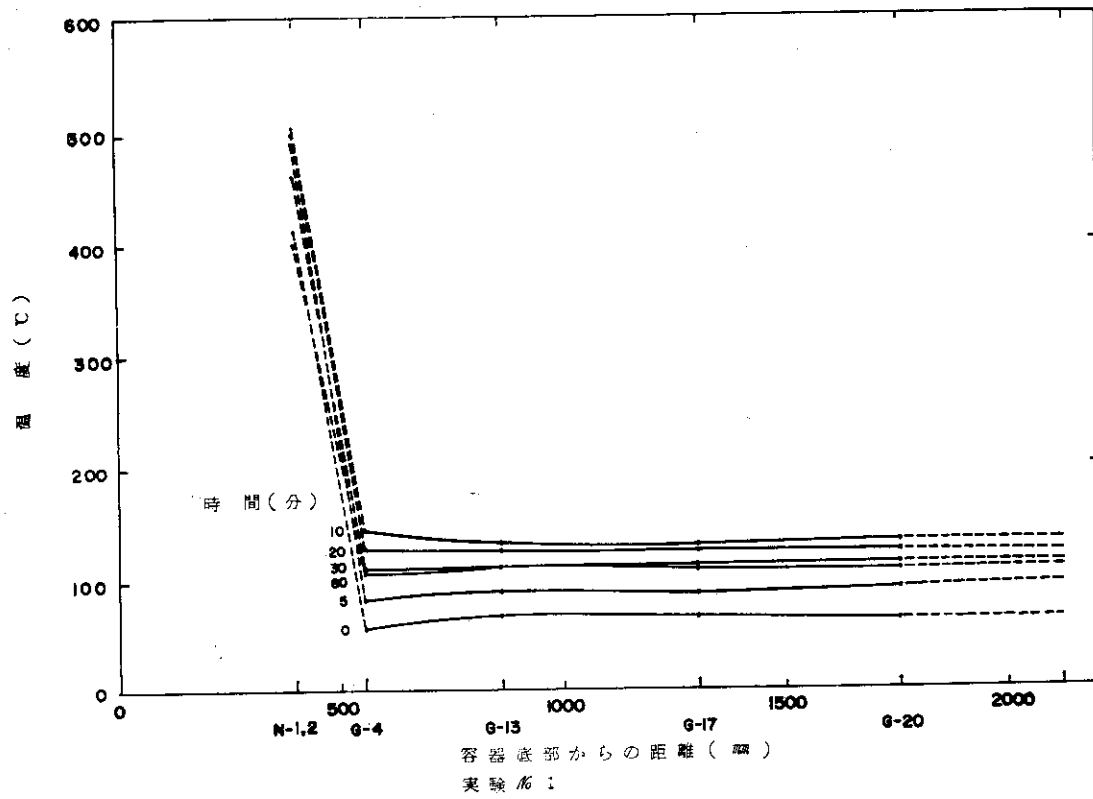
容器中心からの距離  
実験 61

第 5.12 図 容器直径方向温度分布

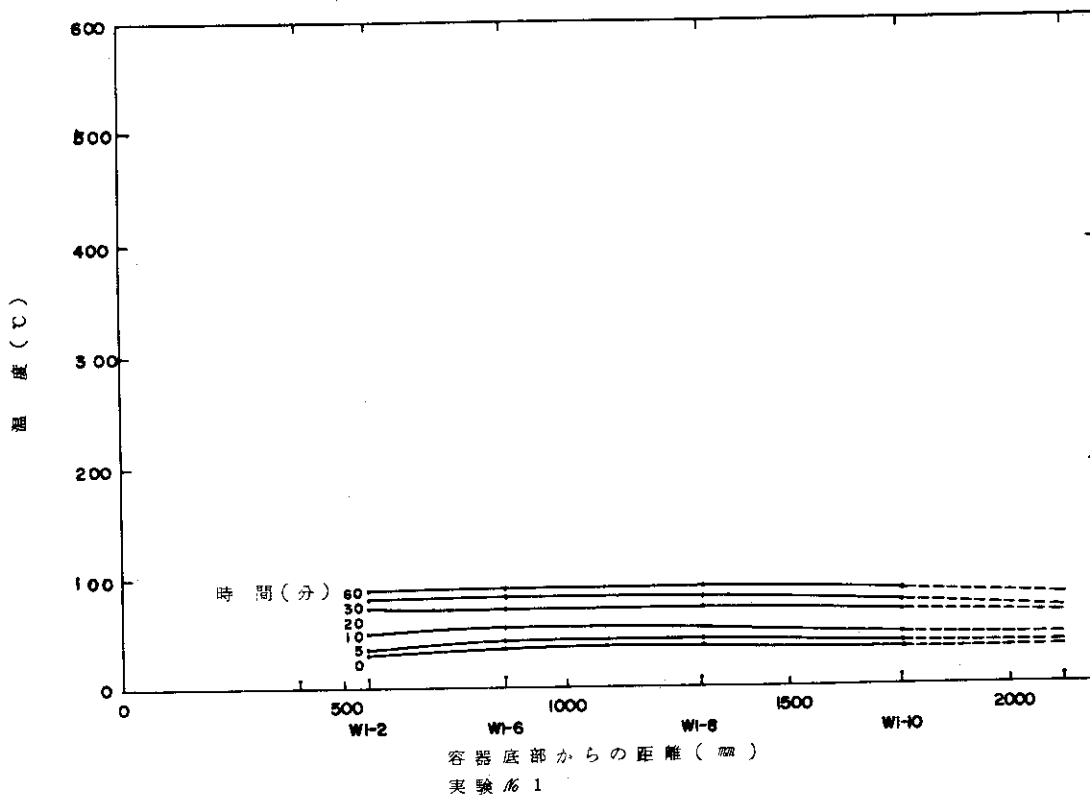


容器端部からの距離 (mm)  
実験 61

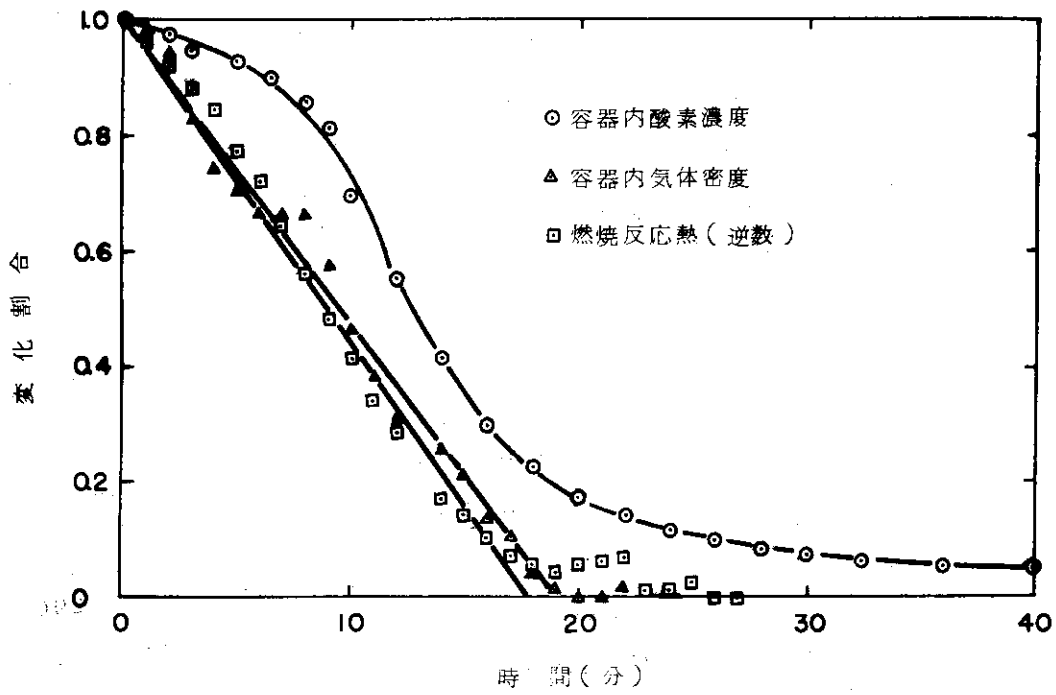
第 5.13 図 軸方向温度分布



第 5.14 図 軸 方 向 温 度 分 布

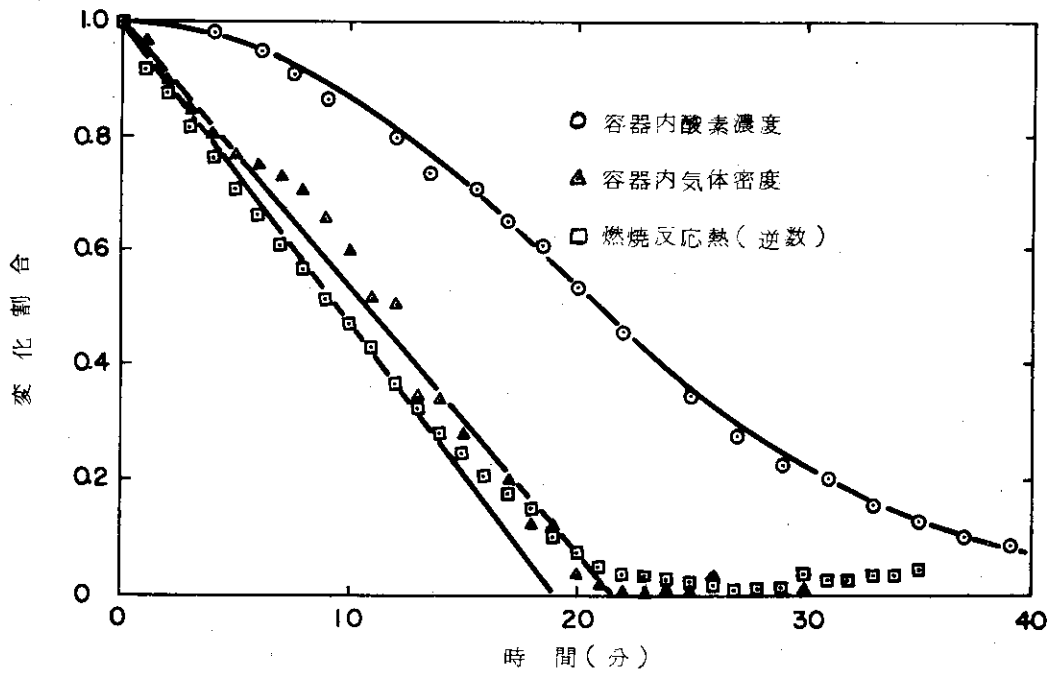


第 5.15 図 軸 方 向 温 度 分 布



実験 No 1

第 5.16 図 熱的にみた燃焼反応速度と酸素濃度の時間経過



実験 No 7

第 5.17 図 熱的にみた燃焼反応速度と酸素濃度の時間経過

## § 6 総括的考察および結論

### 6.1 ナトリウム地金の影響

一般的に我々は諸経験事実からみて、普通使用しているNa地金であるかぎり、その純度の差が燃焼現象に特異性を与えることは考えられなかった。例えば、Kが少し多いNaや工業用Naをしばしば、燃焼実験や消火剤試験に使用したが、特に著しい発光現象などは経験しなかった。前回の実験にはCastner法(NaOH電解法)で作られた工業用Naを使用した。しかし今回の実験結果から見ると、酸化膜のないNa表面が空気に触れて酸化を開始する場合には、苔状の酸化物生成が急速に行われるだけでなく、それが源となる火点形成が非常に早くなることが一般的に観察された。

№1, 2の実験では、第3.2表から分るようにKが、通常(および前回の実験時)の0.1%の約10倍含んだ地金による実験であった。№3実験以降は、Downs法(NaCl電解法)で作られた工業用Na(第3.3表)であって、前回の24 ppmよりやはり約10倍の290 ppmのCaを含んだ地金による実験であった。しかもドラムカンから溶融タンクへの最初の装荷は、ドラムカン底部温度を100~120℃として行われたため、Caの飽和溶解度(100℃で190 ppm)を越すための偏析がおきており、Caが特に多いNaが装荷されたようである。装置の構造上、実験№3で使用されたNaは特にCaが多くなった可能性があり、覗き窓からの観察もそれを支持する。逆に№6~8の実験には、290 ppmより少いCa量のNaが使用されたであろう。これらが第5.2表に見られるように、燃焼速度を大きくしているようである。

### 6.2 酸素濃度変化よりみた燃焼速度

前回同様、燃焼速度はまず空気中の酸素濃度変化から測定された。その結果は、第4.1~4.7図および第4.1表に示したようなものであって、比較的小さな値を示した。これは窓からの観察事実であるところの激しい燃焼開始、短い発光燃焼時間や密度および発熱量基準より見た燃焼速度などに対応しない結果である(第5.2表参照)。

これは、何等かの原因で前回と比べて測定条件に異常が生じたものと考えられる。酸素測定装置の異常は、較正が行われているのでほとんど考えられない。また最終酸素濃度が前回通り、約1%になっていることも正常性を支持するものである。

考えられる原因は、反応容器内の気相対流状態の変化である。気相内温度測定用熱電対を前回の12点より30点に増加させたため、その先端につけた約30度のステンレス箔（熱輻射防止板）による対流の妨害がおきて、上部のガスサンプラー附近の酸素減少が数分おくれ気味になったものと考えられる。これは、第5.1図の熱電対G-16とG-19の温度差と前回の報告書の第5.9図の熱電対T-32とT-21の温度差の符号が逆転していることから推測される所である。

したがって、我々は次節の計算値の方を信頼おけるものと考えたい。一見、第4.1～4.7図は前回とほぼ同様の減衰曲線を与えたために、実験途中において改善策を取ることができなかった。

酸素分布が不均一になった結果、燃焼面附近の酸素は、平均値より少くなり、それだけ燃焼速度は小さくなったと考えられる。

### 6.3 温度・圧力変化からみた燃焼速度

今回は、前回よりも測温点を増加させて詳細な温度分布およびその時間変化を測定した。そのデータの詳細な解析は別に計画中で、これにより、実験炉等の実際規模に外挿可能なモデルを完成させる予定<sup>(3)</sup>であるが、今回第5章でその一部を示した。

解析結果によると、第5.2表から分るように、酸素濃度から求めた燃焼速度より、一般に大きい値を示した。

しかし、密度基準によるものと燃焼熱基準による計算値の一致は非常によく、共に十分よい近似で、零次反応的直線性を示した。また、第6.1表から分るように、発光燃焼終了が観測された時点と、上記の計算値で燃焼速度が零次反応から1次反応に変わる時点とは、よい一致を示していることが分る。

なお、この実験の様な断熱された系では、温度、圧力測定値から十分よい近似で、酸素減衰速度を計算できることは前回の報告でもすでに明らかであった。今回は、さらに測温点を増したので、その精度は十分向上したと考えられる。

### 6.4 一次反応領域と発光燃焼

前節でのべたように、酸素濃度の変化は大きな時間遅れをもっており、平均的な濃度を示していなかったと考えられるので、第4.2表の今回の実験、即ちII-1～II-7に関する解析結果は信頼性がないと言いうる。したがって、第6.1表から分るように発光燃焼消滅時の酸素濃度が、前回と異り、10～15%酸素という高い値を示した理由も明らかになったと考える。正しい液面近くの酸素濃度は補正により求めうる見込みはないが、前回<sup>(1)</sup>の実験結果に示された5%附近であると考えてよいであろう。

なお、発光燃焼の終了時間と、燃焼熱、密度変化からみた零次反応終了時間（第6.1表）

第 6.1 表 燃焼時間

項 目 実 験 順	注入Na 温度 (℃)	初期酸素濃度 (v/o)	発光燃焼 終了時間 (分)	零次燃焼反応時間			一次反応 開始酸素 濃度 (v/o)
				燃焼熱より (分)	密度変化より (分)	酸素濃度より (分)	
1	470	21	16	19	17	16	(6.5)
2	300	21	14	14.5	(17)*	25	13.7
3	250	21	18.7	18.2	(12)*	25	15.5
4	475	21	20	20	21.5	24	15.0
5	490	15.1	23.5	(27.5)**	37.5(?)	25	10.2
6	460	11.2	24	(35)**	30	29	8.2
7	460	21	21	21.5	23.5	20	10.6

(注) \* 圧力測定に異常あり      \*\* 500℃に予熱を続行

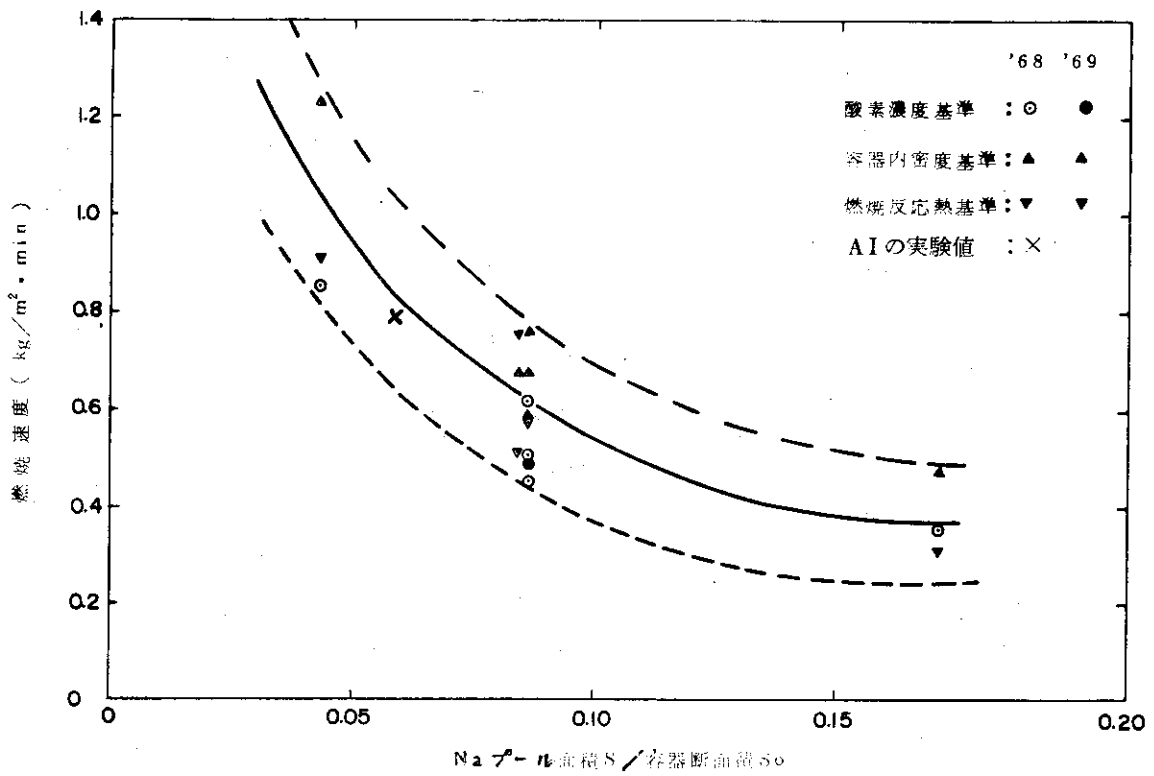
とがかなりよい一致を示すのは興味あることである。II-5, II-6の実験ではあまりよい一致がみられないのは、予熱を続けた等の理由によるのであろう。

一次反応の速度係数  $k_1$  (第 4.2 表) についても今回の試験データを解析したものは、余り意味をもたないであろう。

### 6.5 前報の結果について

前回報告の第 5.2 表から明らかなように、今回とは異って酸素濃度変化、密度変化および燃焼熱変化より求めた Na 燃焼速度が相互に良い一致を示していた。したがって、前回の諸結論はほとんど変更しないのでよい事が分る。

さらに、今回の測定箇所を増した精細な温度測定および解析によって、前回の温度分布に関する詳細な内挿補正が可能となったので、一層精度の高い論議ができると考える。相互の一致がよいので、結論を変えるとは思えないが、補正再計算の結果は「燃焼機構の解析」に関する報告書<sup>(3)</sup>で行ないたいと考える。



第 6.1 図 面積比 (S/S<sub>0</sub>) と燃焼速度の関係  
(AIの実験については第1篇 §7.5 参照のこと)

## § 7 結 論

- (1) 前回とほぼ同様の装置で実験が行われたが、今回は気相測温点を12点から30点に増加させた。またその他の測温点も16点から30点に変えた。したがって温度分布およびその変化の測定精度が非常に高まった。それから求められた燃焼熱基準および密度基準の燃焼速度は、発火燃焼が止まるまで時間に関し零次反応的なよい直線性を示した。両者の一致もよく予想される以上に信頼性ある解析が可能となった。偏析の恐れのある酸素濃度変化測定よりも直線的であることが判明した。
- (2) 前回<sup>(1)</sup>はCastner法で作られた工業用Naを使用した。今回はDowns法で作られた工業用Naを大部分の実験に使用した。これはCaが前回のものより約10倍の290 ppm含むものであったので、下記のような結果となった。これはまたNo.1, No.2の実験に使用した所の、Kが前回のものより約10倍の1%を含む地金に対してもほぼ同様の結果であった。
- 即ち、初期500°C、21%酸素、燃焼面積0.15 m<sup>2</sup>、 $S$  (燃焼面積) /  $S_0$  (容器断面積) = 0.085の実験では前報第4.1.1図から約0.5 kg/m<sup>2</sup>・minの燃焼速度であったものが、今回のNa地金に対しては、No.1, No.4の実験から分るように約0.9 kg/m<sup>2</sup>・minの燃焼速度となった〔第5.2表、燃焼熱基準、密度基準からみた燃焼速度より〕。
- (3) 酸素濃度変化からみた燃焼速度は、他の方法による燃焼速度より非常に小さくなっている。これは気相測温点を増したための対流妨害、気相混合不完全によるものであろうことか、表面観察結果、温度分布状態などから推定された。
- (4) 前回の実験解析においては、三種の燃焼速度がほぼ一致しているので、この場合の酸素濃度変化を中心にした解析データに基く諸結論は変更する必要はないであろう。特に $S/S_0$ との関係は第7.1図に示したが、前報に最確値として示した曲線(図の実線)は依然信頼性あるものであろう。
- (5) なお、(1)でのべたように、温度分布に関する詳細なデータがえられたので、前回のデータに対する内挿値の推定が容易になり、解析精度を高めるようになった。さらに燃焼機構解析も容易になったので、実験炉規模にも外挿可能な式がえられるよう考察<sup>(3)</sup>を行いつつある。

以 上

## § 8 謝 辞

研究業務遂行に終始御助力いただいた動燃団の鈴木庸一氏および福島穰氏に感謝します。

また実験実施にあたり多大の協力をえた所の表記以外の全ナトリウム研究室員，特に須藤高史・熊田俊明の両氏，化学分析をお願いした原研分析センター，および膨大なデータ整理と計算を着実に行って下さった富永陽子・佐藤淳子の両嬢に謝意を表します。

## § 9 参 考 文 献

- 1) 古川，木谷，山田，村田，高橋

「ナトリウム火災モデル試験(I)」動力炉核燃料開発事業団受託研究。

(1968年12月)〔本報告書第I篇として再録〕

- 2) 田坂，ナトリウム-空気反応解析コード「NAFIRE」(1968年8月)

- 3) 古川，村田，(1970年1月)「ナトリウム燃焼火災機構の解析」，動力炉核燃料開発事業団受託研究，

(後記) 本研究は、6～7年前に動燃事業団からの受託研究として実施されたものである。Na冷却高速炉開発・実用化の努力は、今後とも長く続くものであるから、もう少し広く利用していただくため、公開したいと考えた。

最初は、原研高速実験炉計画の安全性評価に関係しておられた磯康彦氏から実験をすすめられたのに始まったようである。その後、動燃団が発足し、鈴木庸一氏の熱心なおすすめによりお引受けしたものである。

当時、我々ナトリウム研究室は、それまで行ってきたNa技術開発研究を一応可能なかぎりまとめて上げて、動燃団に手渡すため、実験および支授業務に極めて多忙であった。何とか、所外で引受けただけはないかと苦心したが見出せなかった。幸い、所内FP研究室の木谷室長と高橋外来研究員の好意的な協力申し出を受け、義務をはたすことができた。

また実施にあたっては、防災工学の日本における創始者のお一人であられる北川徹三教授から基本姿勢に関して高邁な御教示をうけ、“Na火災実験委員会”

委員長： 北川徹三教授

委員： (故)若園吉一教授，秋田一雄教授，橋口幸雄氏，柳生昭三氏，木谷進氏，古川和男氏

を組織していただいて、我々の作製した計画原案を徹底的に吟味していただきつつ実行された。

言うまでもなく、火災といった現象は学問的に余りに複雑で予測を立てることは不可能である。また単純な結論を得る見こみはないであろう。しかも実に苦痛に満ちた作業であった。Na取扱いに関し中心となってくれた山田栄吉君その他の人々に感謝いたしたい。

ほぼ同じ頃、USAECの要請でAtomics Internationalが10倍の容積の容器により試験を行った。しかし余りに大きいので一回しか実験を行っていないようである。反応機構解析も行っていない。しかし燃焼速度値は我々のとよく一致している。このようによい成果をおさめえたのは、上記の方々および担当者、研究室員の使命感に燃えた協力体制に基くものと、いま感銘を新たにしている。時代は移り変わって行くかに見えるが、よき伝統は残してゆきたいものである。

なお、もっとよく整理した報告書をとも考えたが、できるだけOriginalな情報を残したかったのと、依然身辺余りに将来炉のために多忙であるからである。お許しいただきたい。何かお気づきの点は、御教えいただきたいと思ひます。(1975年3月 古川 記)