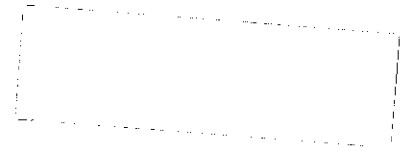




対向流拡散火炎の解析による
ナトリウムプール燃焼特性評価
(研究報告書)



2001年7月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4-49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2001

対向流拡散火炎の解析によるナトリウムプール燃焼特性評価

(研究報告書)

山口 彰¹、 田嶋 雄次²

要旨

液体金属ナトリウムの燃焼は伝熱・流動、物質伝達、化学反応、エアロゾルの挙動が相互に関連する複合現象である。本研究では、ナトリウムプール燃焼時のこれらの複合現象を解析する新しい手法を開発した。この手法では熱流動場を求めるために境界層近似を用いている。化学反応の定量化には Gibbs の自由エネルギー極小化法を用いている。化学反応と伝熱流動、物質伝達を反復的に解いており、同時にふく射伝熱と反応によって生成されるエアロゾルの挙動も解いている。

既往のナトリウムプール燃焼実験結果と数値シミュレーションの結果を比較した結果、両者は良好に一致した。プール燃焼時の燃焼率、火炎温度、火炎高さ、プール中のナトリウム温度に関する実験結果を矛盾無く説明できる。特に、実験において観察されたプール温度がある温度よりも上昇しないという事実を数値解析によって伝熱メカニズムを調べることによって説明した。実験では、プール温度を 1003K (730°C) 以上に維持することはできず、このことは他の熱源がなければプール下のライナの温度もこれ以上には上昇し得ないことを示している。すなわち、このような特徴は飽和蒸気圧の低いナトリウム燃焼の固有の特徴であり、燃焼を抑制するフィードバックが作用すると結論できる。

今後の課題として、ふく射伝熱に影響するエアロゾルの光学的特性の測定、境界層内部での微視的な温度や濃度分布の測定が望まれる。なお、初生エアロゾルの粒径分布に関しては、文献調査等により、個数基準中央半径で $0.1\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は 2.0 が適切であるとの結論を得た。

¹ 大洗工学センター要素技術開発部流体計算工学研究グループ

² イーエヌオー数理解析リサーチ

Numerical Investigation of Non-Premixed Sodium Pool Combustion

Akira Yamaguchi¹, Yuji Tajima²

Abstract

Liquid sodium combustion is a coupled phenomenon of heat and mass transfer, chemical reaction and aerosol dynamics. This paper presents numerical investigation of the coupled phenomena of the sodium pool combustion using a new computational tool based on a flame sheet model. The boundary layer equations are solved to obtain the thermalhydraulic field above the pool surface. The chemical reaction is evaluated with the chemical equilibrium model using Gibbs free energy minimization method. The chemical reaction and heat and mass transfer are solved interactively considering radiation heat transfer and behavior of reaction product aerosols.

Numerical results are compared with sodium pool combustion experiments and the agreement is excellent. The computations reproduce the experimental observations concerning burning rate, flame temperature and flame height, consistently. Particularly, the mechanism of the experimental evidence that pool temperatures do not exceed 1000 K is clarified based on the computations. In other words, the steel liner temperature would stay below the limiting temperature. It is an intrinsic feature that the sodium pool combustion is self-limited and negative feedback seems to be at work.

Further research needs are estimation of the optical characteristics of aerosols for radiation heat transfer and measurement of the temperature and chemical species distributions in vicinity of the flame. The information is useful to investigate the sodium combustion phenomena in more detail.

¹ O-arai Engineering Center, Advanced Technology Division, Thermalhydraulic Research Group

² ENO Suri Kaiseki Research

目次

1. 序論	1
2. 対向流拡散火炎の支配方程式	3
2.1 境界層流れの方程式	3
2.2 対向流拡散火炎の支配方程式	7
2.3 質量フラックスの境界条件	8
2.4 燃焼モデル	9
3. エアロゾル挙動モデル	12
3.1 エアロゾル粒子の保存方程式	12
3.2 ナトリウム酸化物微粒子の生成	12
3.3 エアロゾルの移動速度	20
3.4 エアロゾルの沈着	25
3.4.1 重力沈降速度	25
3.4.2 ブラウン拡散沈着	25
3.4.3 熱泳動による沈着	26
3.5 エアロゾルの凝集	27
3.5.1 重力凝集	27
3.5.2 対流による凝集	28
3.5.3 ブラウン凝集	29
3.5.4 乱流凝集	29
3.6 物性値	29
4. ふく射伝熱評価	31
4.1 ふく射伝熱モデル	31
4.2 ナトリウム燃焼エアロゾルのふく射率実験値	32
4.3 Felske と Tien のふく射率モデル	32
4.4 実験結果とエアロゾルふく射率モデルの比較	35
4.5 ナトリウム燃焼のスペクトルについて	37
5. ナトリウムプール燃焼特性評価	40
5.1 燃焼率の評価	40
5.2 火炎温度と火炎高さ	41
5.3 燃焼伝熱メカニズム	43
5.4 反応生成物の生成率と分布	45
5.5 エアロゾルの挙動評価	49
6. 結論	58
7. 参考文献	59

図表一覧

図 1	プール燃焼時のライナ温度のガスふく射に対する感度	2
図 2	フレイムシートモデルの概念図	10
図 3	ナトリウムの飽和蒸気圧	11
図 4	飽和条件でのナトリウム質量濃度 (プール液面のナトリウム濃度)	11
図 5	Kelvin 比と凝縮エアロゾル粒子の直径	13
図 6	Ettinger らの実験による質量基準中央直径と個数中央基準直径 (小プール燃焼)	16
図 7	Ettinger らの実験による質量基準中央直径と個数基準中央直径 (大プール燃焼)	16
図 8	Ettinger らの実験による質量基準中央直径と幾何標準偏差 (小プール燃焼)	17
図 9	Ettinger らの実験による質量基準中央直径と幾何標準偏差 (大プール燃焼)	17
図 10	実験で得られた幾何標準偏差と対数正規分布を仮定して(61)式を用いて計算した幾何標準偏差の比較	18
図 11	二神らがプール燃焼実験で測定したガス空間のエアロゾル粒径分布	19
図 12	エアロゾル粒径分布	20
図 13	空気流速が 1cm/s のときの粒子径とレイノルズ数の関係	21
図 14	Cunningham 係数	22
図 15	エアロゾル粒子のストークス数	24
図 16	拡散係数	25
図 17	空気の平均自由行程と温度の関係	27
図 18	エアロゾル粒径比と衝突効率の関係	28
図 19	エアロゾル吸収係数の実験結果[16]	36
図 20	エアロゾルのふく射率評価モデルと指数型関数へのフィッティング	36
図 21	エアロゾルのふく射率に関する実験結果と解析モデル推定の比較	37
図 22	火炎からのスペクトル (連続スペクトルと D 吸収線が示される); R.N.Newman(1983)	39
図 23	ナトリウムプール燃焼率とプール温度の関係	40
図 24	火炎温度と火炎高さ	41
図 25	雰囲気ガス温度の影響	42
図 26	燃焼熱のプールとガスへの分配と伝熱メカニズム	43
図 27	燃焼熱とナトリウム供給に必要な潜熱と顕熱の比較	44
図 28	ふく射伝熱係数	45
図 29	ガス温度と化学種の質量濃度分布	46
図 30	燃焼生成エアロゾルの生成率	47

図 31	ナトリウム酸化物の生成割合	47
図 32	プール温度が 800K のときの化学種の濃度分布	48
図 33	プール温度が 1100K のときの化学種の濃度分布	49
図 34	計算ノード番号と座標の関係	50
図 35	各メッシュ番号 (2-5) における粒径分布	51
図 36	各メッシュ番号 (6-10) における粒径分布	51
図 37	各メッシュ番号 (11-15) における粒径分布	52
図 38	各メッシュ番号 (16-20) における粒径分布	53
図 39	各メッシュ番号 (21-30) における粒径分布	53
図 40	各メッシュ番号 (31-40) における粒径分布	54
図 41	プール表面におけるエアロゾルの移動特性	55
図 42	火炎直下 (プール側) におけるエアロゾルの移動特性	55
図 43	火炎上部 (雰囲気ガス側) におけるエアロゾルの移動特性	56
図 44	火炎上部の境界層内におけるエアロゾルの移動特性	56
図 45	境界層外側におけるエアロゾルの移動特性	57

1. 序論

高速炉の冷却材として使用される液体金属ナトリウムは、優れた熱伝達性能を備え、冷却材の沸騰までの余裕が大きいなどの長所がある。一方、化学的活性が高く、空気に接触すると酸素や湿分と反応して燃焼する。従って、安全評価の観点から、ナトリウムと酸素や水蒸気との反応の定量化を行う必要がある。

原型炉「もんじゅ」のナトリウム漏えい以来、ナトリウム燃焼の解析的および実験的研究が活発に行われた。「もんじゅ」での燃焼が小規模であったこと、また、その後の燃焼実験で床ライナに開孔が見られたことなどから、特に着目したポイントのひとつは、比較的小さな規模のプール燃焼であった。解析的研究としては、SPHINCS コードや AQUA-SF コードなど、伝熱流動とナトリウムの化学反応を結合させて解析をする機構論的燃焼評価手法を開発した[1-2]。また、比較的小さなプールでの燃焼に関する実験研究が実施され[3-4]、その結果により解析手法の検証が行われた。

SPHINCS コードや AQUA-SF コードの解析モデルでは、化学反応定量化に Gibbs の自由エネルギー最小化法を用いたこと、エアロゾル濃度よりふく射伝熱量を評価したこと、またプールの質量保存則とエネルギー保存則を解いてプール拡大挙動を評価したことなどにより、解析精度を向上させた。プール燃焼モデルに関しては、フレームシートモデルを用いているが、火炎部近傍の局所的な温度分布や物質濃度分布の影響、エアロゾル濃度分布がふく射伝熱に及ぼす影響などを考慮していない。そこで、入力データとして以下のパラメータを与える必要があり、これらは実験データ等に基づき半経験的に決定されている。

- (1) 火炎とプール表面のふく射伝熱係数
- (2) 火炎と室内ガスとのふく射伝熱係数
- (3) 燃焼生成エアロゾルの室内ガス中への放出割合
- (4) 生成エアロゾルの粒径分布

ふく射伝熱がライナ温度評価に及ぼす影響の解析例を図 1 に示す。図中にふく射伝熱係数とあるのは形態係数を考慮したふく射率であり、次式の h_r で定義している。

$$q_{1 \rightarrow 2} = h_r \sigma (T_1^4 - T_2^4) \quad (1)$$

ここで σ は Stephan-Boltzman 定数、 $q_{1 \rightarrow 2}$ は媒質 1 から媒質 2 への熱フラックス、 T_1 と T_2 はそれぞれ媒質 1 と 2 の温度である。燃焼解析モデルで凝集などによるエアロゾル粒径分布の変化とエアロゾル濃度を計算すれば、ガスふく射率を計算することができる。その解析結果を図中に▲で示している。この場合には、一定のふく射率を与えた場合と 300 秒以降

で結果が異なることが図から分かる。この時刻は、プールが拡大し、燃焼の進展と共にエアロゾル濃度が増加して一定値に近づいた時刻に相当する。このようにふく射伝熱は燃焼影響評価にとって重要であり、ふく射伝熱を評価するためには、エアロゾル挙動も含め、火炎部の燃焼及び熱流動特性を詳細に調べる必要がある。

本研究では、境界層近似に基づいてプール燃焼時の火炎部近傍の物質伝達、熱伝達、化学反応、移流・拡散、エアロゾル挙動などを評価する解析コードを開発した。化学反応の定量化には Gibbs の自由エネルギー極小化法を用いた。化学反応と、熱流動場、ふく射伝熱、エアロゾルの挙動（凝集や沈着）は互いの相互作用を考慮してそれぞれの支配方程式を反復的に解いている。考慮した反応物は、 $Na-O_2-H_2O$ 系である。開発した解析手法の支配方程式については第 2 章に述べる。第 3 章には初生エアロゾルの粒径分布とエアロゾル挙動モデルについて述べる。第 4 章ではふく射伝熱モデルに関して述べ、エアロゾルのふく射率について実験結果との対応を議論する。第 5 章には、プール燃焼の解析をについて述べる。解析結果を既往の実験結果と比較するとともに、ナトリウムプール燃焼の特性について分析する。第 6 章には結論を述べる。

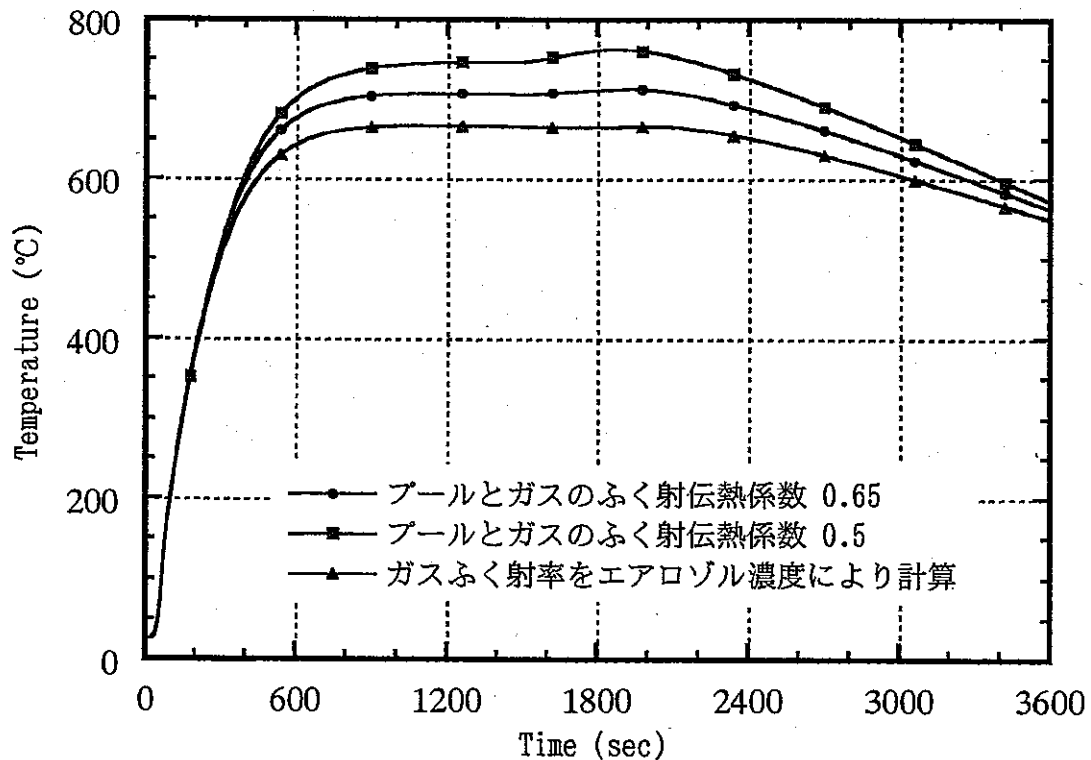


図 1 プール燃焼時のライナ温度のガスふく射に対する感度

2. 対向流拡散火炎の支配方程式

2.1 境界層流れの方程式

プール燃焼では軸対称二次元流れを仮定する。 $r-z$ 円柱座標における二次元非圧縮性流れの支配方程式は以下のとおりとなる。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial ru}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left(\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} - \frac{u}{r^2} \right) \quad (2)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \left(\frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) \quad (3)$$

ここで、 u, v はそれぞれ r, z 方向の流速、 p は圧力、 t は時間、 ν は動粘性係数である。

代表的な長さ L と流速 U を用いて(1)から(3)式を無次元化する。無次元化した量を用いて支配方程式を表せば、動粘性係数 ν をレイノルズ数の逆数で置き換えた形となる。(1)から(3)式と同じ記号を用いて示す。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial ru}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \quad (4)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{\partial p}{\partial r} + \frac{1}{\text{Re}} \left(\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} - \frac{u}{r^2} \right) \quad (5)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} = -\frac{\partial p}{\partial z} + \frac{1}{\text{Re}} \left(\frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) \quad (6)$$

境界層の外の自由流れを代表流速にとれば無次元流速 u は自由流れでは 1 になる。つまり、無次元で表した境界層の厚さを δ とすれば、 δ は 1 よりも十分に小さく、 $z = \delta$ で $u = 1$ である。

従って、連続の式(4)式の第 1 項は 1 のオーダーである。よって、第二項も 1 のオーダーでなければならない。(4)式を 0 から δ まで積分すれば、

$$v(z = \delta) = -\int_0^\delta \frac{1}{r} \frac{\partial ru}{\partial r} dz = -\delta \int_0^1 \frac{1}{r} \frac{\partial ru}{\partial r} dZ \quad (7)$$

となる。従って、 v は δ のオーダーになる。よって、 $O(1)$ を 1 のオーダー、 $O(\delta)$ を δ のオーダーなどと表せば

$$\begin{aligned} v &= O(\delta) \\ \frac{\partial v}{\partial z} &= O(1) \end{aligned} \quad (8)$$

である。次に、(5)式と(6)式の各項のオーダーを調べる。 u と r は1のオーダーであるから、

$$\begin{aligned} u &= O(1) \\ \frac{\partial u}{\partial r} &= O(1) \\ \frac{\partial^2 u}{\partial r^2} &= O(1) \\ \frac{\partial u}{\partial t} &= O(1) \end{aligned} \quad (9)$$

一方、 v は δ のオーダーであり

$$\begin{aligned} \frac{\partial v}{\partial r} &= O(\delta) \\ \frac{\partial^2 v}{\partial r^2} &= O(\delta) \\ \frac{\partial v}{\partial t} &= O(\delta) \end{aligned} \quad (10)$$

z は境界層の厚さ δ のオーダーであるので

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial z} &= O\left(\frac{1}{\delta}\right) \\ \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} &= O\left(\frac{1}{\delta^2}\right) \\ \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} &= O\left(\frac{1}{\delta}\right) \end{aligned} \quad (11)$$

(5)式に、(8)式から(11)式を代入すると、左辺は全て1のオーダーになる。従って、右辺の圧力項と粘性項の和も1のオーダーになる必要がある。右辺の括弧内は第3項が圧倒的に大きく $1/\delta^2$ である。よってレイノルズ数は次式のオーダーでなければならない。

$$\text{Re} = O\left(\frac{1}{\delta^2}\right) \quad (12)$$

境界層流れでは慣性力と粘性力が支配的である。(5)式の左辺の代表的な量である $u \frac{\partial u}{\partial r}$ と右辺の代表的な量である $\nu \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}$ がほぼ等しいので、 $\frac{U^2}{L} = \frac{\nu U}{\delta^2}$ より、境界層厚さは次式で与えられる。

$$\delta = \sqrt{\frac{\nu L}{U}} = L \sqrt{\frac{1}{\text{Re}}} \quad (13)$$

次に、(6)式に(8)式から(11)式を代入すれば、左辺は全て δ のオーダーになる。また、右辺の粘性項も δ のオーダーになるので、

$$\frac{\partial p}{\partial z} = O(\delta) \approx 0 \quad (14)$$

が成立する。すなわち、圧力は境界層厚さ方向に勾配を持たない。

ここで、(4)式から(6)式から δ 以下のオーダーの項を落とせば、円柱座標系の境界層方程式が得られる。なお、以下では無次元化する前の物理量にもどすこととする。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial ru}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \quad (15)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \quad (16)$$

$$\frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (17)$$

境界条件は

$$u = v = 0 \quad \text{at} \quad z = 0 \quad (18)$$

$$u = U, \quad \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad \text{at} \quad z = \delta \quad (19)$$

である。(16)式から(19)式は直交座標系の境界層方程式と同じであり、数値的に解くことができる。

境界層の外側の流れでは非回転非粘性の運動でベルヌーイの方程式より

$$p + \frac{1}{2} \rho U^2 = 0 \quad \text{or} \quad -\frac{\partial p}{\partial r} = \rho U \frac{\partial U}{\partial r} \quad (20)$$

境界層流れでは r が異なる断面の速度分布は相似になり、 u/U は z/δ のみの関数

$$\frac{u}{U} = \zeta \left(\frac{z}{\delta} \right) \quad (21)$$

になると考えられる。 η を次式で定義する。

$$\eta = \frac{z}{\delta} = z \sqrt{\frac{U}{\nu r}} \quad (22)$$

ここで、(13)式を用いている。(22)式的全微分をとれば、

$$d\eta = \sqrt{\frac{U}{\nu r}} dz - \frac{1}{2} \frac{z}{r} \sqrt{\frac{U}{\nu r}} dr \quad (23)$$

従って、(22)式を(23)式に代入すれば次式を得る。

$$\frac{d\eta}{\eta} = \frac{dz}{z} - \frac{dr}{2r} \quad (24)$$

偏微分に関して $d\eta = \frac{\partial \eta}{\partial z} dz + \frac{\partial \eta}{\partial r} dr$ であるから

$$\begin{aligned} \frac{\partial \eta}{\partial r} &= -\frac{\eta}{2r} \\ \frac{\partial \eta}{\partial z} &= \frac{\eta}{z} \end{aligned} \quad (25)$$

従って、次の関係が成り立つ。

$$\frac{\partial}{\partial r} = -\frac{\eta}{2r} \frac{d}{d\eta} \quad (26)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} = \frac{\eta}{z} \frac{d}{d\eta} = \sqrt{\frac{U}{\nu r}} \frac{d}{d\eta} \quad (27)$$

ポテンシャル流れでは、流れ関数 Ψ を用いて、

$$u = -\frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad v = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r} \quad (28)$$

と円柱座標系における流速を求められる。

$$\frac{d\Psi}{d\eta} = \sqrt{\frac{\nu r}{U}} \frac{\partial \Psi}{\partial z} = -\sqrt{\frac{\nu r}{U}} r u = -\sqrt{\nu r U} \zeta(\eta) \quad (29)$$

ここで、(21)式を用いた。従って

$$\Psi = -\sqrt{U \nu r r} \int \zeta(\eta) d\eta = -\sqrt{U \nu r^3} f(\eta) \quad (30)$$

ただし、

$$f(\eta) \equiv \int \zeta(\eta) d\eta \quad (31)$$

とする。(30)式を(28)式に代入すれば次式の通り流速を計算できる。

$$u = U f' \quad (32)$$

$$v = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{U \nu}{r}} (3f - f'\eta) \quad (33)$$

ここで(22)式と(25)式の関係を用いている。

なお、直交座標系においては、流れ関数を用いて流速は

$$u = -\frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad v = \frac{\partial \Psi}{\partial r} \quad (34)$$

で与えられるので、

$$u = Uf' \quad (35)$$

$$v = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{U\nu}{x}} (f - f'\eta) \quad (36)$$

である。

境界層厚さは

$$\delta_{0.99} = 5.0 \sqrt{\frac{\nu r}{U}} \quad (37)$$

で与えられる。

境界層の厚さ $\delta = \sqrt{\frac{\nu r}{U}}$ が r に依存しないためには、

$$U = ar \quad (38)$$

の形でなければならない。ここで a はひずみ速度である。そこで(32)式より

$$u = arf' \quad (39)$$

2.2 対向流拡散火炎の支配方程式

図 2 にフレームシートモデルの概念図を示す。プール上部には反応域が存在し、反応域に向かってナトリウムと酸素が移流・拡散により輸送される。反応により生成した熱エネルギーとエアロゾルはプール中あるいは上部のガス中へ輸送される。境界層方程式で密度変化を考慮する。化学反応を考慮した境界層近似の支配方程式は次のようになる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + 2a\rho f' + \frac{\partial}{\partial z}(\rho v) = \sum_{k=gas} \dot{w}_k W_k \quad (40)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\mu \frac{df'}{dz} \right) - \rho v \frac{\partial f'}{\partial z} + a \{ \rho_\infty - \rho f'^2 \} = 0 \quad (41)$$

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + 2a\rho Y_k f' + v \frac{\partial \rho Y_k}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z}(\rho Y_k V_k) - \dot{w}_k W_k = 0 \quad k = 1, 2, \dots, K \quad (42)$$

$$\frac{d(\rho c_p T)}{dt} + 2a\rho c_p T f' + v \frac{d(\rho c_p T)}{dz} - \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \sum_{k=1}^K Y_k V_k \frac{d(\rho c_{pk} T)}{dz} - \sum_{k=1}^K \dot{w}_k W_k h_k - Q = 0 \quad (43)$$

ここで ρ はガスの密度、 μ は粘性係数、 λ は熱伝導度、 c_p は定圧比熱である。添え字の ∞ は境界層外部、 k は化学種を表す。 Y_k 、 V_k 、 \dot{w}_k 、 W_k 、 h_k は化学種 k の質量分率、拡散速度、単位体積あたりのモル生成率、分子量、比エンタルピーである。 Q はふく射伝熱量である。以上の式を解くときの境界条件は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} f' &= 1 \\ V &= V_\infty \\ T &= T_\infty \\ Y_k &= Y_{k\infty} \end{aligned} \quad (44)$$

拡散速度は次式で計算される。

$$Y_k V_k = -D_k \frac{dY_k}{dz} \quad (45)$$

また、化学種のソース項である \dot{w}_k とエネルギーの生成項である Q は後述するように燃焼モデル及びふく射モデルにて計算される。

2.3 質量フラックスの境界条件

境界層近似による運動量と質量の保存則から火炎面近傍での流速分布を評価することができる。しかし境界条件として火炎面からある距離の点における流速を与える必要がある。

$$\frac{dv}{dz} = -2f/a \quad (46)$$

プール表面を $z=0$ 、境界層外部で境界条件を与える点を $z=L$ 、境界条件として与える流速を V_∞ として(46)式を解けば、

$$v = -2a \int_0^L f' dz + V_\infty \quad (47)$$

である。 $z=L$ においては、火炎面に正味供給される酸化剤の質量フラックスに対応するガス流速でなければならない。

火炎表面における質量フラックス ϕ を求める必要がある。ガスの密度を ρ とすればこれに相当する流速は

$$\bar{v} = \frac{\phi}{\rho} \quad (48)$$

である。

この流速は多次元解析によって求めることができるが、SPHINCS コードでは、熱伝達と物質伝達の相似則にもとづき質量フラックスを次式で評価している。

$$\phi = \frac{Y_i C_i}{1 - Y_i D_i} Sh \quad (49)$$

ここでシャーウッド数は次式で与えられる。

$$Sh = 0.14 Gr^{1/2} Sc^{1/3} \quad (50)$$

以上の準備をした上で、以下の手順により境界条件を決定する。

- Step 1 解析体系を設定し、流速境界条件を与える点を決定する。すなわち、 L を決定する
- Step 2 流速境界条件 V_{∞} の予測値を与える
- Step 3 境界層近似の質量と運動量の保存則、(40)式と(41)式より、 a と f' を決定する
- Step 4 (47)式より火炎面における流速 v を計算する
- Step 5 (49)式より、酸化剤の質量フラックスを求める
- Step 6 酸化剤の質量フラックスより求めた火炎面における流速 \bar{v} を(48)式より求める
- Step 7 連続の式より求めた v と酸化剤の質量フラックスより求めた \bar{v} と等しくなるように流速境界条件 $V_{\infty}^{new} = V_{\infty} - v + \bar{v}$ を設定する
- Step 8 収束が得られるまですなわち $V_{\infty}^{new} \approx V_{\infty}$ となるまで step 3 に戻り、計算を繰り返す。

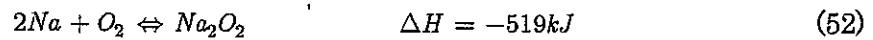
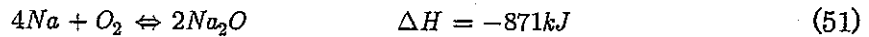
以上を反復計算し、火炎面における流速が自然対流に基づく質量フラックスと一致するように境界条件流速を決定する。

2.4 燃焼モデル

図 2 にプール燃焼モデルの概念図を示す。ナトリウムの気相での燃焼は酸化剤の拡散律速であり、火炎面においてナトリウム蒸気と酸化剤が適当な割合で反応する。図 3 にナトリウムの飽和蒸気圧を示す。また、図 4 に飽和条件でのナトリウム質量濃度を示す。ナトリウムの飽和蒸気圧は低いため、化石燃料などに比べると火炎は低く、穏やかに燃焼する。プール表面では、ナトリウム濃度は当該プール温度における飽和濃度と等しい。火炎面まではナトリウム蒸気は拡散によって輸送される。

ナトリウム燃焼量に関しては、Gibbs の自由エネルギー極小化法による BISHOP コード [5]を組み込んで反応量を評価する。反応生成物の割合は、場の温度や酸素や水蒸気、ナトリウムなどのモル分率に応じて計算する。水蒸気が含まれない場合には解析で考慮する物

質は Na 、 O_2 、 N_2 、 Na_2O 、 Na_2O_2 である。ナトリウムの燃焼では以下が主要な総括反応である。



熱伝達と物質伝達のアナロジより水平平板上向きの自然対流物質伝達率は Fishenden's の式で計算できる。

$$\text{for turbulent flow } Sh = 0.14 (Gr Sc)^{1/3} \quad (53)$$

$$\text{for laminar flow } Sh = 0.54 (Gr Sc)^{1/4} \quad (54)$$

ここで、 Sh 、 Gr 、 Sc はそれぞれシャーウッド数、グラスホフ数、シュミット数であり、プール直径 L を代表長さとする。酸化剤のモルフラックス ϕ_A は

$$\phi_A = \left(\frac{\bar{Y}_A}{1 - \bar{Y}_A} \right) \frac{\bar{C}_A D_A}{L} \times Sh \quad (55)$$

で与えられ、 Sh は(53)式か(54)式を用いて計算される。添え字 A は酸化剤を表す。 \bar{Y}_A と \bar{C}_A はモル分率と酸化剤のモル濃度である。

乱流物質伝達率(53)式は代表長さに依存しないが、層流物質伝達率(54)式は $L^{-1/4}$ に比例する。従って(55)式のモルフラックスは小さなプールほど大きくなる。Newman [6]によれば、層流物質伝達率から乱流物質伝達率への遷移は $Gr \simeq 10^6$ 程度で生じる。実験によれば、直径が 0.1m以下のプールにおける燃焼ではプールの直径を小さくするにつれて燃焼率の増加、すなわち乱流から層流への遷移が観察されている。[7]

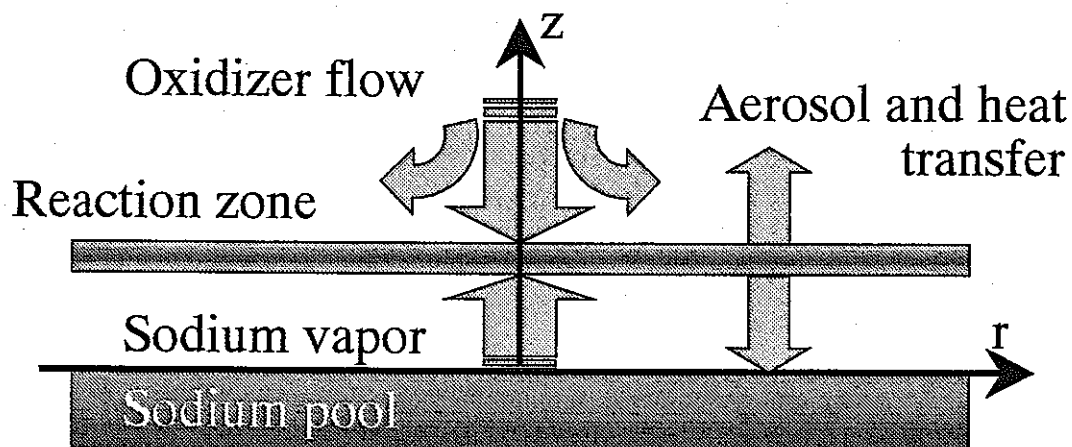


図 2 フレームシートモデルの概念図

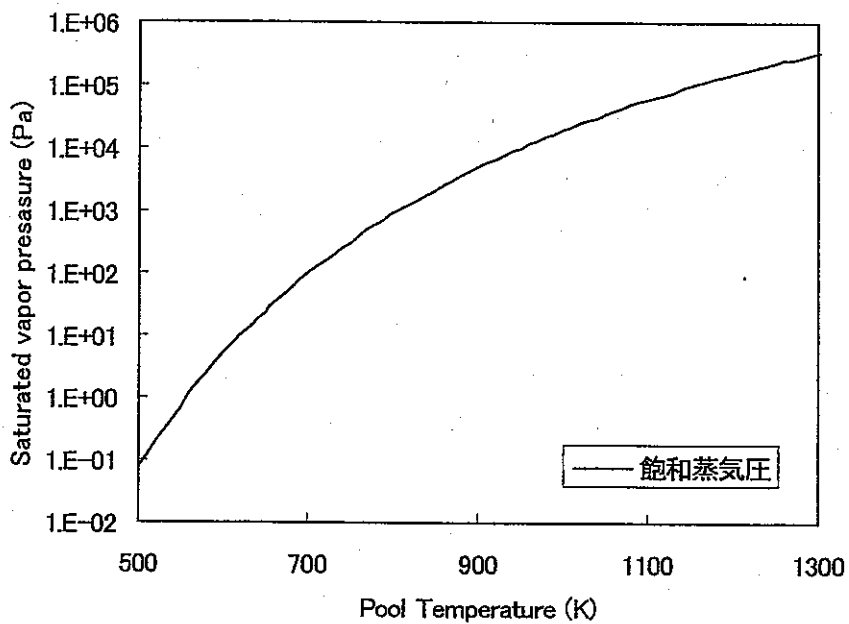


図 3 ナトリウムの飽和蒸気圧

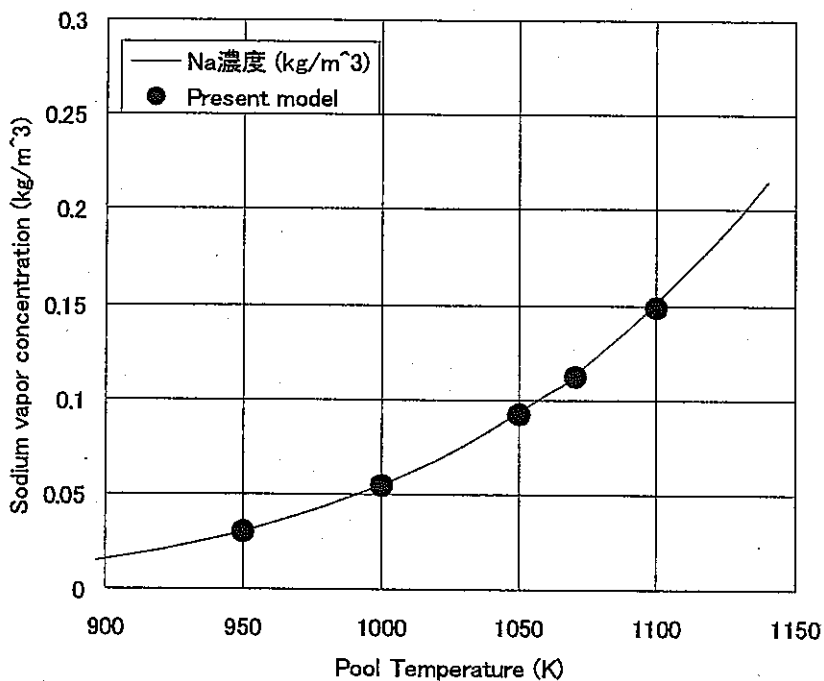


図 4 飽和条件でのナトリウム質量濃度 (プール液面のナトリウム濃度)

3. エアロゾル挙動モデル

3.1 エアロゾル粒子の保存方程式

エアロゾルの挙動は、漏えいの検出、ふく射による熱伝達、エアロゾルの飛散による影響などの観点からナトリウム燃焼では重要である。火炎近傍について言えば、一般に、エアロゾル濃度が高ければエアロゾルが媒体となってふく射熱伝達が促進される。一方、エアロゾル濃度は、燃焼に伴うエアロゾル生成率とエアロゾルの輸送特性に支配される。燃焼によって生成されるエアロゾルは熱泳動、重力沈降、ブラウン拡散、対流の現象により凝集し、濃度分布と粒径分布を変化させながら輸送される。さらに、これらの現象に影響を及ぼす要因として、燃焼によって生成される初生エアロゾルの粒径分布がある。かようにエアロゾルを含む物質伝達と熱伝達の問題は複雑であり、その挙動に影響を及ぼす支配的なメカニズムの解明が必要である。

体積が v の粒子の個数密度 $n(v, t)$ は

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = & \frac{1}{2} \int_0^v n(v', t) n(v - v', t) \beta(v', v - v') dv' \\ & - n(v, t) \int_0^\infty n(v', t) \beta(v, v') dv' - R(v) \cdot n(v, t) + S(v, t) \end{aligned} \quad (56)$$

で表される。ここで β は凝集確率でブラウン凝集、重力凝集、乱流凝集による。 R は消滅確率でブラウン拡散と熱泳動による壁への沈着と重力沈降、対流による輸送を考慮する。 S は燃焼による生成項である。

3.2 ナトリウム酸化物微粒子の生成

エアロゾルは蒸気相の凝縮、あるいは液相か固相の微粒化によって生成されるが、ナトリウム燃焼の場合には前者による。エアロゾルが生成されるときには分子のサイズであるが、比較的短い時間 (10^{-4} s のオーダー) で均質核生成および非均質核生成によりクラスタ一化し、白煙を生じる。さらに時間をかけて、凝集などのゆっくりとしたメカニズムによって粒径は増大する。先ず、燃焼部で採取した一次エアロゾルの粒径分布に関して既往の実験的知見を調べる。

均質核生成は母相から瞬時に核が生成されるプロセスで、過飽和度があるレベルを超えると生じる。過飽和は、凝縮性ガスを含む気流が低温ガスと混合する場合や、温度境界層内の拡散によって生じる。一般には、過飽和度 (蒸気圧と飽和蒸気圧の比) が 2~5 になると凝縮速度が顕著になる。化学反応によって蒸気圧の低い物質ができる場合には、反応生成物は過飽和状態にあり、直ちに核生成する。ナトリウム蒸気と酸素によりナトリウム酸化物ができるのはこの例である。

非均質核生成は、低温の表面や既に存在しているエアロゾル粒子の表面に凝縮するプロセスである。これらの核生成や凝縮は過飽和度が1を超えていれば起きる。

Newman[8]によれば、ナトリウム燃焼時にもっとも安定な反応生成物は Na_2O であり、これは金属ナトリウムよりも揮発性が低いのでナトリウムは気相で燃焼する。ナトリウム燃焼では気相燃焼と表面反応が起きるが、酸素の輸送が多くなれば気相燃焼が支配的になる。

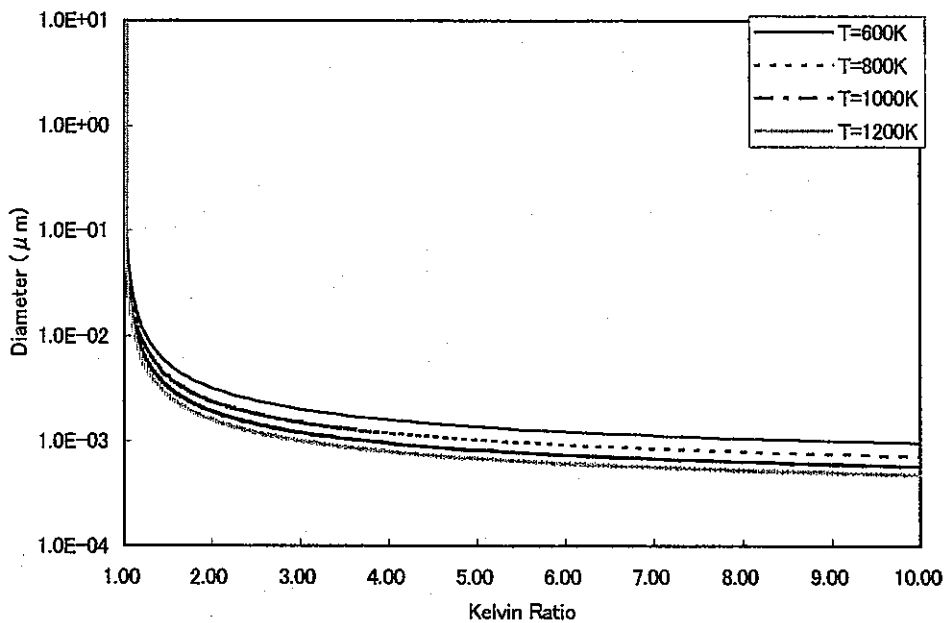


図 5 Kelvin 比と凝縮エアロゾル粒子の直径

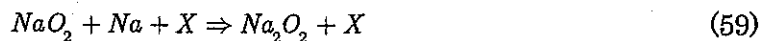
均質核生成によって最初にエアロゾルが生成されるメカニズムは、化学反応によって飽和蒸気圧の低い物質が生成され、過飽和状態になることによる。その条件は、エアロゾル表面における圧力と蒸気圧が等しいことであり、Kelvin の式

$$\ln S = \frac{2My}{RT\rho r} \quad (57)$$

で表される。ここで、 S は過飽和度あるいは Kelvin 比と呼ばれ、粒子の表面における蒸気圧と飽和蒸気圧の比である。また M はエアロゾル物質の分子量、 y は表面張力、 ρ はエアロゾルの密度、 T は温度、 R は一般ガス定数 ($= 8.3144 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$)、 r はエアロゾルの半径である。Kelvin 比と凝縮エアロゾル粒子の直径の関係を図 5 に示す。一般に、過飽和度が 2 から 5 になると凝縮が顕著になると言われており、燃焼からエアロゾルが生成するためには、この図から、 $0.01 \mu\text{m}$ から $0.001 \mu\text{m}$ 程度のエアロゾルが初期生成されることが分かる。このサイズはクラスターを形成している分子程度の大きさである。Kelvin 比が 100 程

度になると、 $0.0003\mu\text{m}$ 程度の大きさになり、これは分子の寸法程度である。

気相のナトリウム酸化物で知られているものは、 Na_2O 、 NaO 、 NaO_2 である。この3種類のナトリウム酸化物分子が 10^{-4}s の時間オーダーで凝縮による均質核生成され得るかを検討する。均質核生成では直径が $0.001\mu\text{m}$ 以下の粒子が生成される[9]。そのためにはKelvin比は2~10程度以上である必要がある。Newman[8]は平衡計算と飽和蒸気圧から、以下を指摘している。ナトリウムの沸点以上では NaO_2 の飽和蒸気圧は1気圧を超えてしまうのでSが10を超えることは無く、 NaO_2 の凝縮を考慮する必要は無い。一方、 NaO は1800K以下で、 Na_2O は1900K以下で、 Na_2O_2 は1630K以下で、Sが10以上になりうる。またNewmanによれば、ナトリウム燃焼時のスペクトルの観察結果から、凝縮性の反応生成物は 10^{-4} 秒程度以下の短時間に生成されている。ナトリウム燃焼域の温度範囲で気相成分 NaO 、 Na_2O 、 Na_2O_2 について、これだけの短時間で凝縮することが可能な反応メカニズムは以下であると指摘している。ただし、 Na_2O_2 の気相の存在は確認されておらず、その存在を前提としての推定である。



すなわち、ナトリウム燃焼では、気相の NaO_2 生成しさらに気相の Na_2O_2 が生成する。しかし、 Na_2O_2 の飽和蒸気圧は低いいため、凝縮相を形成しエアロゾル化する。このことは、発生して室内に放出されるエアロゾルがほとんど Na_2O_2 であることに対応していると考えられる。ところでナトリウムプール中ではほとんど Na_2O のみが生成されている。熱泳動の速度が数 cm/s のオーダーで火炎高さが 1mm のオーダーであるから、エアロゾルがプールに落ちるまでの時間は 10^{-1}s のオーダーである。この間に、酸素がない火炎下部領域を通過する間に還元されるものと考えられる。いずれにしても、現時点ではナトリウム燃焼の素反応に関しては未知の部分が多いが、Kelvin比が10程度に達して均質核生成することは可能である。

Cherdron [10]によれば、ドイツの開ループFAUNA装置でナトリウム燃焼試験を行ったときに、燃焼プール直上で一次エアロゾルの粒径を測定した結果、10-30秒後には重量基準中央直径が $0.9\mu\text{m}$ 、5分後には $2.35\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は1.4であった。質量基準中央直径(MMD)と個数基準中央直径(CMD)には

$$\text{MMD} = \text{CMD} \exp(3 \ln^2 \sigma_g) \quad (61)$$

の関係があるから、個数基準中央直径にすれば10-30秒後には $0.64\mu\text{m}$ 、5分後には 1.7μ

m である。またスプレイ燃焼実験では最大 $4.8\mu\text{m}$ が得られている。

H.J. Ettinger ら[11]によれば、小さなタンタル皿（直径 2-3cm）の上で燃焼させたナトリウムの直上にプレシピテータを設置し、生成される一次エアロゾルの粒径分布を測定した。その結果、粒径分布に関して表 1 の結果を得た。なお、粒径分布は酸素濃度には依存せず、湿分には若干の依存性が見られたと述べている。一方、大きな直径（2フィート）のプールで 600 ポンドのナトリウムを燃焼させた結果、表 2 の粒径分布を得ている。この場合にも、酸素濃度依存性はなかった。表 1 と表 2 を比べれば、小さなプール実験と大きなプール実験で優位な差はなく、また酸素濃度にも依存しないことが示されている。

表 1 小プール燃焼におけるエアロゾルの粒径分布実測値

	下限値	上限値	幾何平均
個数基準中央直径	0.07	0.91	0.47
幾何標準偏差	1.68	3.25	2.98
質量基準中央直径	0.9	14.3	2.13

表 2 大プール燃焼におけるエアロゾルの粒径分布実測値

	下限値	上限値	幾何平均
個数基準中央直径	0.20	1.09	0.42
幾何標準偏差	1.53	2.82	2.08
質量基準中央直径	0.53	16.17	2.56

図 6 に小プール燃焼実験における個数基準中央直径と質量基準中央直径の相関を示す。個数基準中央直径は $0.1\mu\text{m}$ から $1\mu\text{m}$ の間に分布しているが個数基準中央直径は $1\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の間にある。この結果は図 7 に示される大プール燃焼実験においても同様の傾向にある。これらのデータの中には、中央値で $10\mu\text{m}$ を超えるデータもある。このことはかなり大きいサイズのエアロゾルも存在することを示している。

図 8 と図 9 には質量基準中央直径と幾何標準偏差の関係をそれぞれ小プール燃焼実験、大プール燃焼実験について示す。幾何標準偏差は 2 から 3 の間にあり、質量基準中央直径と正の相関がある。すなわち、大きな直径のエアロゾルでは幾何標準偏差も大きい。

図 10 に実験データから直接得られた質量基準中央直径と、対数正規分布を仮定して、個数基準中央直径と幾何標準偏差から(61)式を用いて計算した質量基準中央直径の関係を示す。図中の直線状にデータ点があるときには分布は対数正規分布であるといえる。両者に正の相関があり、各データ点は直線状にあることから、一次エアロゾルは対数正規分布に従うと考えられること、また、中央値が $10\mu\text{m}$ を超えるような大きいエアロゾルも存在し

ていることが示される。

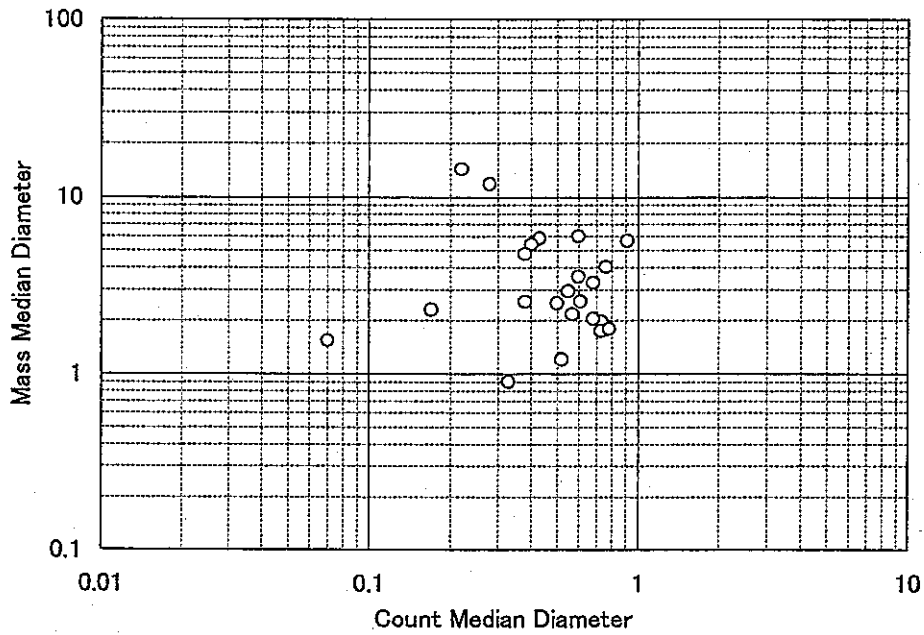


図 6 Ettinger らの実験による質量基準中央直径と個数中央基準直径
(小プール燃焼)

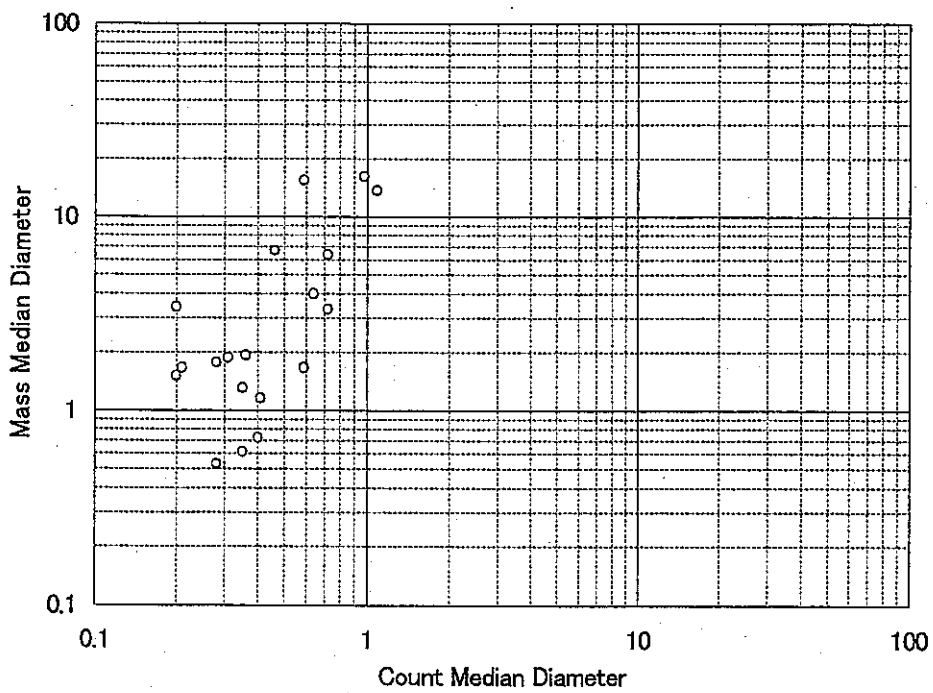


図 7 Ettinger らの実験による質量基準中央直径と個数基準中央直径
(大プール燃焼)

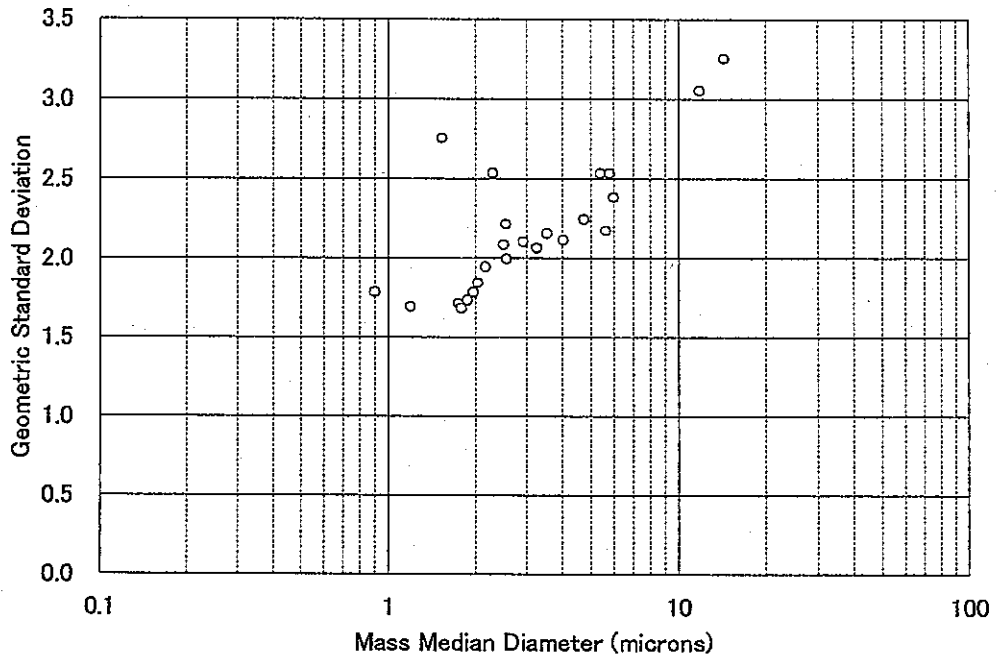


図 8 Ettinger らの実験による質量基準中央直径と幾何標準偏差 (小プール燃焼)

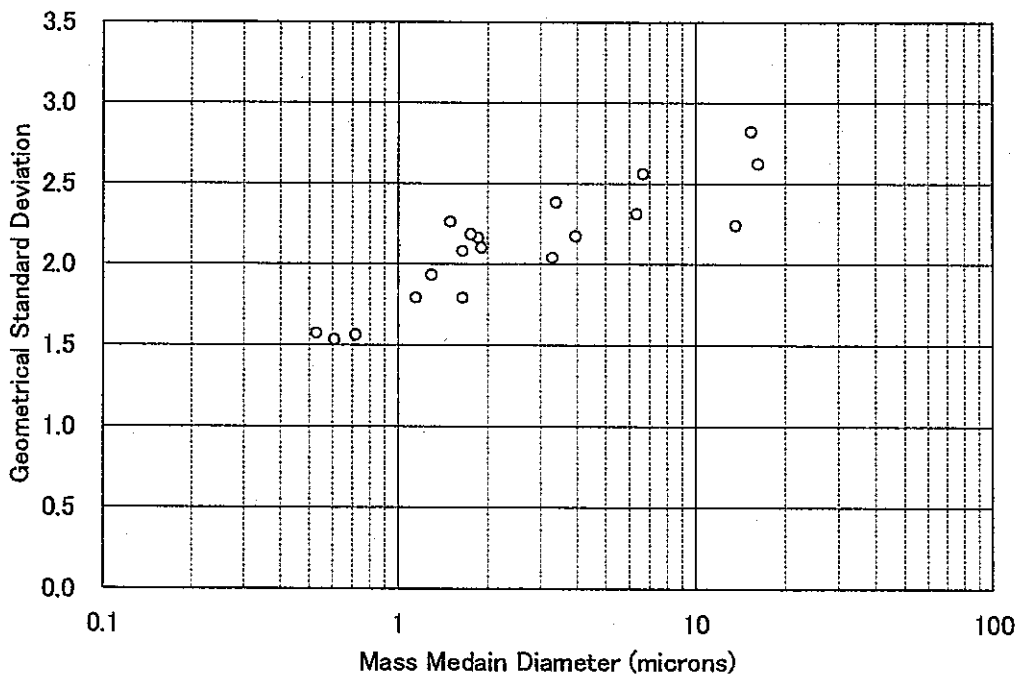


図 9 Ettinger らの実験による質量基準中央直径と幾何標準偏差 (大プール燃焼)

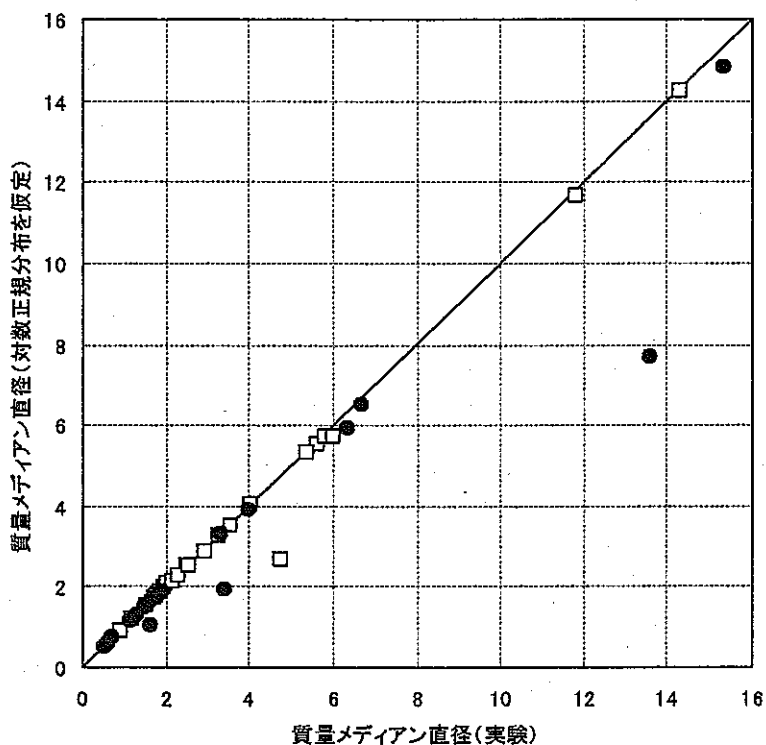


図 10 実験で得られた幾何標準偏差と対数正規分布を仮定して(61)式を用いて計算した幾何標準偏差の比較

ところで、Ettinger らの実験で $10\mu\text{m}$ を超えるエアロゾルが測定されていることに関しては、以下のように説明できる。図 11 には二神ら[4]がプール燃焼実験で測定したエアロゾル粒径分布を示す。測定は ELPI(Electric Low Pressure Impactor)により連続的になされた。図は燃焼中 25 分間の平均である。図から、個数基準中央直径は 2 から $3\mu\text{m}$ であるが、 $3\mu\text{m}$ 以上のエアロゾルが測定結果から欠落しているように思える。実験では容器から排気ガス系を通ってきたエアロゾルが測定されており、大径のエアロゾルは試験容器内と配管内に重力沈降等により沈着していると考えられる。いずれの実験においても、一次エアロゾルのみを測定しているわけではなく、凝集により粒径分布が変化し、主に重力により沈降してきたものや対流により輸送されたガス空間にあるエアロゾルも含まれているであろう。Ettinger らの実験で測定された大径のエアロゾルはこのようにして生成された大径のエアロゾルも含めて測定していたと考えられる。

図 10 において、実験で測定した中央値と対数正規分布を仮定して計算した中央値を比べたとき、いくつかのデータは実験で測定した値が大きい。このようにデータ点が図中の直線の下方に偏っているのは、対数正規分布から外れるいくつかの大きい粒子が存在していたからであろう。雰囲気ガス中で成長したエアロゾルが対流等により輸送されたものと考えられる。

NEA/CSNI の専門家グループ[12]によれば以下の考察が述べられている。生成核の大きさは $0.001\mu\text{m}$ のオーダーであるが、その後、凝縮により急速に成長する。準定常的に生成される一次粒子の大きさは、冷却速度、生成物の蒸気圧、蒸気濃度に依存する。そして、同専門家グループは、ナトリウム酸化物の直径は $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ であり、最確値として個数基準中央直径が $0.5\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差が 2.0 を推奨している。

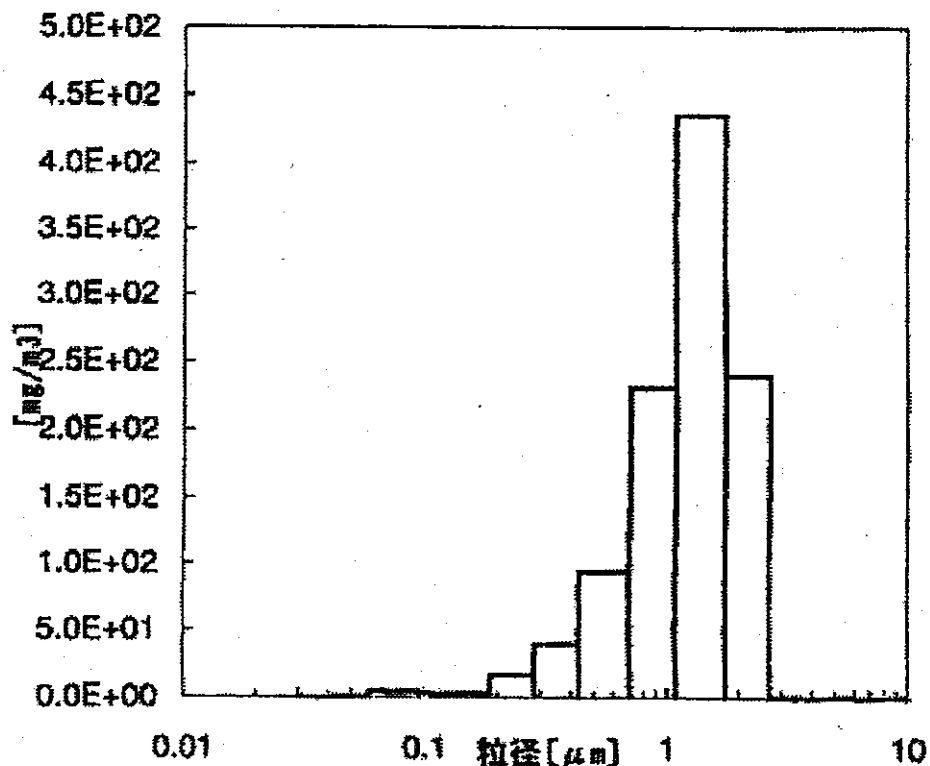


図 11 二神らがプール燃焼実験で測定したガス空間のエアロゾル粒径分布

以上の文献等を参照すれば以下のとおりにまとめられる。均質核生成（凝縮）により燃焼部では分子程度から $0.001\mu\text{m}$ 程度の粒子が先ず生成される。ただし、Kelvin 比が高々 10 程度であることを考えれば、直径が $0.001\mu\text{m}$ 程度のクラスターが最初に生成されると考えられる。そして、燃焼部ではエアロゾル濃度が高いため、非均質核生成により短時間のうちに $0.1\mu\text{m}$ 程度に成長するものと考えられる。凝集は、後に述べるように二つの粒子の直径差が大きいほど活発に起きるため、小さな粒子は比較的大きな粒子に捕捉されてしまう。その結果、試験で観察された粒径は $0.1\mu\text{m}$ から $0.5\mu\text{m}$ となっていると考えられる。以上から判断すれば、生成初期のエアロゾル粒径分布としては対数正規分布を用い、個数基準中央直径は $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ 程度、幾何標準偏差は 2.0 とすることが現在の知見から妥当であると言える。Ettinger らの実験で、 $10\mu\text{m}$ 以上の粒子が測定されているのは、雰囲気中で成長したエアロゾルが移流・沈降したものであると考えられる。

本研究では $0.1\mu\text{m}$ から $0.5\mu\text{m}$ という幅の幾何平均をとって直径を $0.2\mu\text{m}$ 、半径を $0.1\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差 2.0 を採用する。図 12 にこの条件での粒径分布を示す。個数基準中央直径が $0.2\mu\text{m}$ であるとき、質量基準中央直径は $0.845\mu\text{m}$ となる。図中には個数分布関数と質量分布関数を示す。

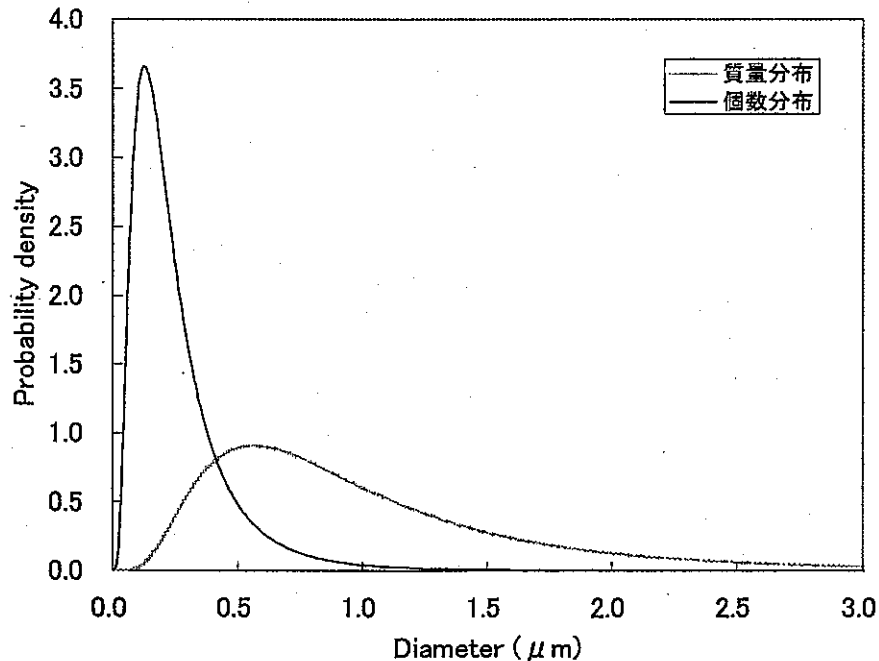


図 12 エアロゾル粒径分布

3.3 エアロゾルの移動速度

$Re > 1000$ ではニュートンの法則が成立し、抗力は粒子の面積と流速の二乗に比例する。この領域では抗力係数はほぼ一定 (0.44 程度) である。

次に、 $1 < Re < 1000$ はストークスの法則とニュートンの法則の遷移域であり、レイノルズ数が小さくなるにつれて抗力係数は増加する。

さらに、エアロゾルなどの微粒子の範囲、すなわち $Re < 1$ ではストークスの法則

$$F_d = 3\pi\eta Vd \quad (62)$$

によって抗力があらわされる。抗力係数は

$$C_d = \frac{24}{Re} \quad (63)$$

により計算される。図 13 に空気流速を 1cm/s とした場合のレイノルズ数を粒子径の関数と

して示す。ナトリウム燃焼の温度範囲は室温(300K)から火炎温度(~1400K)までであり、この温度範囲ではレイノルズ数は 10^{-3} のオーダー以下であるため、ストークスの法則が成立する範囲である。

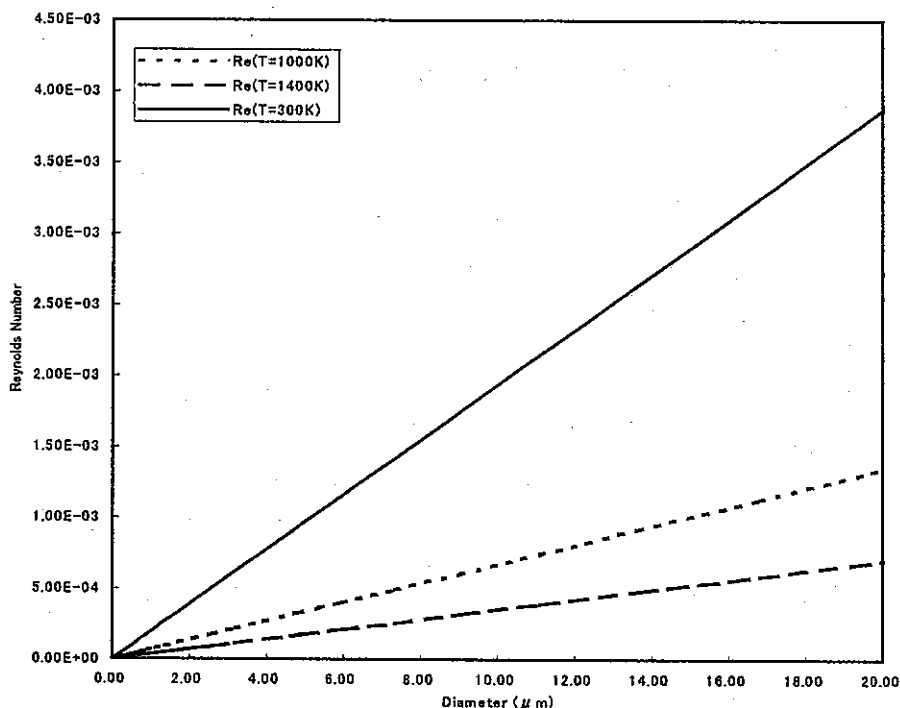


図 13 空気流速が 1cm/s のときの粒子径とレイノルズ数の関係

外力として重力が作用している場合には、ストークスの法則に従うレイノルズ数領域では、抗力と重力が釣り合う条件より、終端速度は

$$V_{ts} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta} \quad (64)$$

となる。ストークスの法則では、抗力と速度に比例関係があるので、ある力がかかったときに終端速度がいくらになるかを表すモビリティ

$$B = \frac{V_{ts}}{F_D} = \frac{1}{3\pi\eta d} \quad (65)$$

が定義される。

粒子表面ですべりが無いというストークスの法則で用いている前提条件は、粒子径が平均自由行程に近づくと成立しない。その効果を考慮するため、Cunningham の修正係数 C_c が導かれている。

$$C_c = 1 + A \frac{\lambda}{r} \quad (66)$$

ここで A に関しては

$$A = 1.26 \quad (67)$$

を用いれば $0.1 \mu\text{m}$ までストークスの法則が成立する。さらに、次式を用いれば全ての粒径にわたって精度良くストークスの法則が成立する。

$$A = 1.257 + 0.4 \exp\left(-1.1 \frac{r}{\lambda}\right) \quad (68)$$

ここで r はエアロゾル粒子の半径、 λ は平均自由行程である。

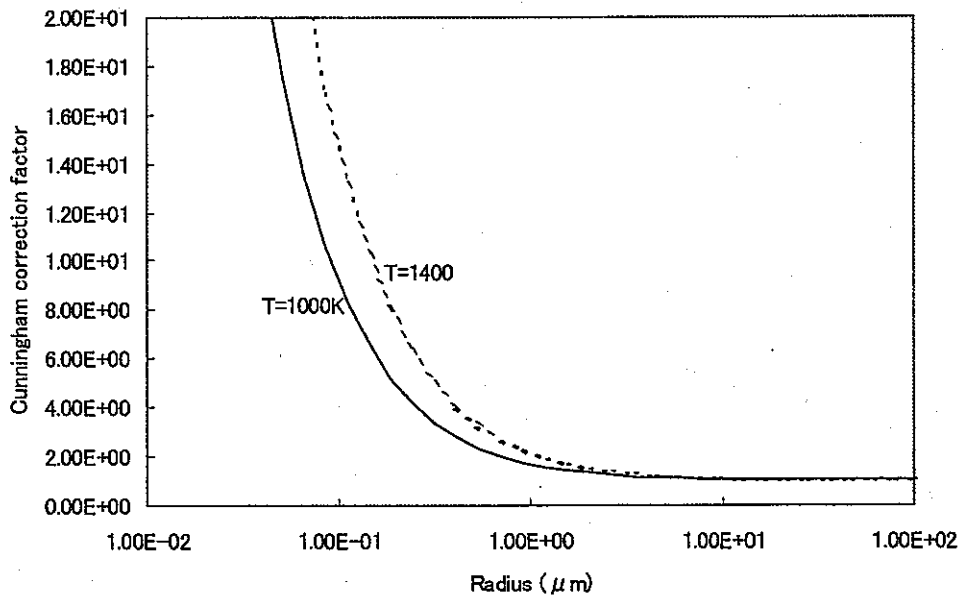


図 14 Cunningham 係数

Cunningham の修正係数を用いれば、(62)式の抗力は次式に修正される。

$$F_D = \frac{3\pi\eta Vd}{C_c} \quad (69)$$

従って、(64)式の終端速度は

$$V_{TS} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta} C_c \quad (70)$$

(65)式の本モビリティは

$$B = \frac{V_{TS}}{F_D} = \frac{C_c}{3\pi\eta d} \quad (71)$$

と求められる。

図 14 に Cunningham 係数の粒径依存性を $T=1000\text{K}$ と $T=1400\text{K}$ に関して示す。Cunningham 係数は、図から粒径が $10\mu\text{m}$ 以上ではほぼ 1 であり、ストークスの仮定が成り立っている。しかし、粒径が $1\mu\text{m}$ 以下になると徐々に大きくなり、すべりの効果が無視できないことが分かる。ナトリウムエアロゾルでは個数基準中央粒径は 0.1 から $0.5\mu\text{m}$ (半径は 0.05 から $0.25\mu\text{m}$) と報告されており、この領域では Cunningham 係数は 3-4 から数十程度になる。また、Cunningham 係数は高温になるほど大きくなる傾向にある。ナトリウム燃焼時の火炎部の温度は $1300-1400\text{K}$ であり、火炎部ではエアロゾルの粒径は比較的小さいため、特に重要になると考えられる。

以上の議論は球形の粒子に対して成立するものである。液体粒子や凝縮により生成された粒子は球形であるが、その他のメカニズムも関与する場合には粒子は球形と限らない。この場合に、抗力と終端速度が影響されるので動的形状係数を導入する。動的形状係数は、非球形実在粒子のモビリティを説明するもので、空力的直径と質量等価直径の比、あるいは非球形粒子の抵抗と、同じ体積、速度を持つ球形粒子の抵抗の比で定義される。

$$\chi = \frac{F_D}{3\pi\eta V d_e} \quad (72)$$

ここで d_e は等価体積直径である。球形ではない粒子に対するストークスの法則は

$$F_D = 3\pi\eta V d_e \chi \quad (73)$$

従って、終端速度は

$$V_{TS} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta \chi} \quad (74)$$

Hinds らは、空気中のナトリウムエアロゾルで動的形状係数が 1.3 であるとの結果を得ている。また Cherdron らは、形状は球からそれほどずれないこと、動的形状係数は 1.1 であることを実験で調べている。また、エアロゾル粒子の密度に関しては、ほとんど全ての測定で、エアロゾル粒子密度は物質の密度と同じかそれより小さく、沈着粒子の密度は 1.76g/cm^3 、 Na_2O_2 の物質密度は 2.80 であったと報告している。

プール表面の対向流のように流れの向きが変化する場合、非常に小さな粒子では、慣性が小さく無視できるので、ガスの流れに沿って移動する。一方、大きくて重い粒子では、ガスの流れと関係なく直進する。このような曲線運動の特徴はストークス数 (停止距離と形状の特性長さの比) で表される。

$$Stk = \frac{S}{d_c} = \frac{\tau U_0}{d_c} \text{ for } Re_0 < 1.0 \quad (75)$$

ここで S は停止距離、 τ は緩和時間、 U_0 は代表的な流束である。緩和時間はモビリティと

粒子の質量 m 、直径 d を用いて次式で定義される。

$$\tau = mB = \rho_p \frac{\pi}{6} d^3 B \quad (76)$$

また、 d_c は特性長さで、問題依存である。外力が重力の場合にはモビリティは(65)式で与えられるので、

$$\tau = \frac{\rho_p d^2}{18\eta} C_c \quad (77)$$

プール表面の対向流を考える。代表長さをプール半径 R とする。境界層外の流速は(39)式より aRf' で与えられ、 $f' = 1$ であるから $U_0/d_c = a$ となる。

$$Stk = \frac{\tau U_0}{R} = \frac{\rho_p d^2 a}{18\eta} C_c \quad (78)$$

自然対流条件ではおよそ $a = 10/s$ 程度として、図 15 にプール燃焼時のストークス数を示す。ストークス数はほぼ 1 以下となっていることが分かる。

ストークス数が 1 よりも大きければ、気体の流れの方向が変わっても粒子は直進する。逆にストークス数が 1 よりも小さければ粒子は気体とともに運動する。ガス流において、レイノルズ数が同じであればガス流は相似である。一方、ストークス数が同じであれば、ガス中の粒子の挙動は相似である。

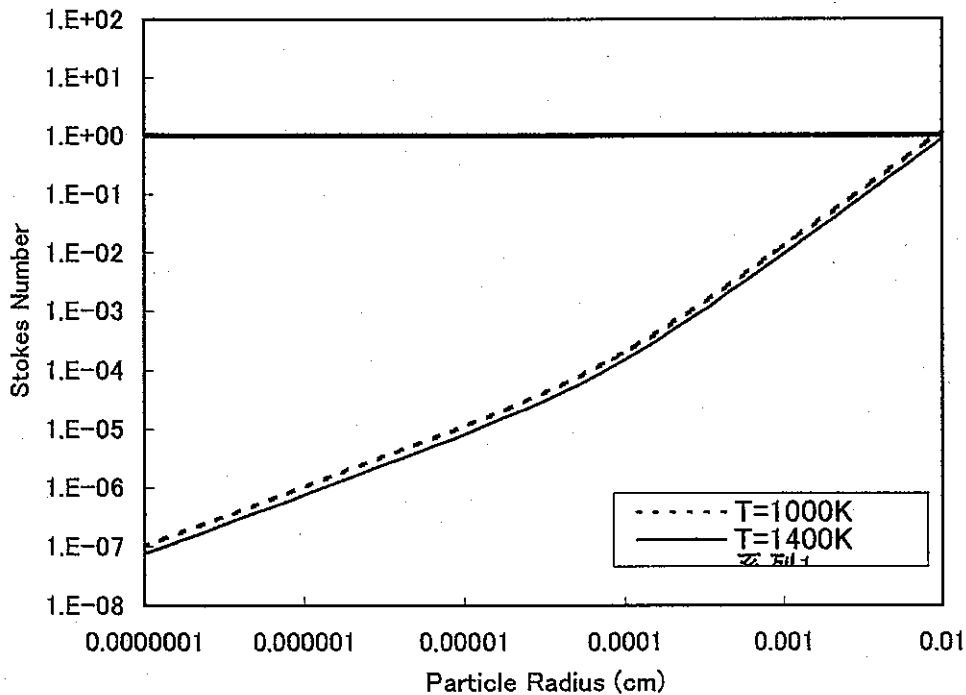


図 15 エアロゾル粒子のストークス数

3.4 エアロゾルの沈着

3.4.1 重力沈降速度

重力によるエアロゾルの沈降速度は、ストークスの法則から導かれる流速に、Cunningham 係数によるすべりの補正と動的形状係数による非球形効果の補正を施せばよい。従って

$$V_{ts} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta} \frac{1}{\chi} C_c \quad (79)$$

である。

3.4.2 ブラウン拡散沈着

拡散による力がストークスの抗力と等しい条件及び Fick の法則より、Stokes-Einstein の式

$$D = \frac{kTC_c}{3\pi\eta d} \quad (80)$$

が得られる。図 16 に温度が 1000K と 1400K の場合の拡散係数を示す。

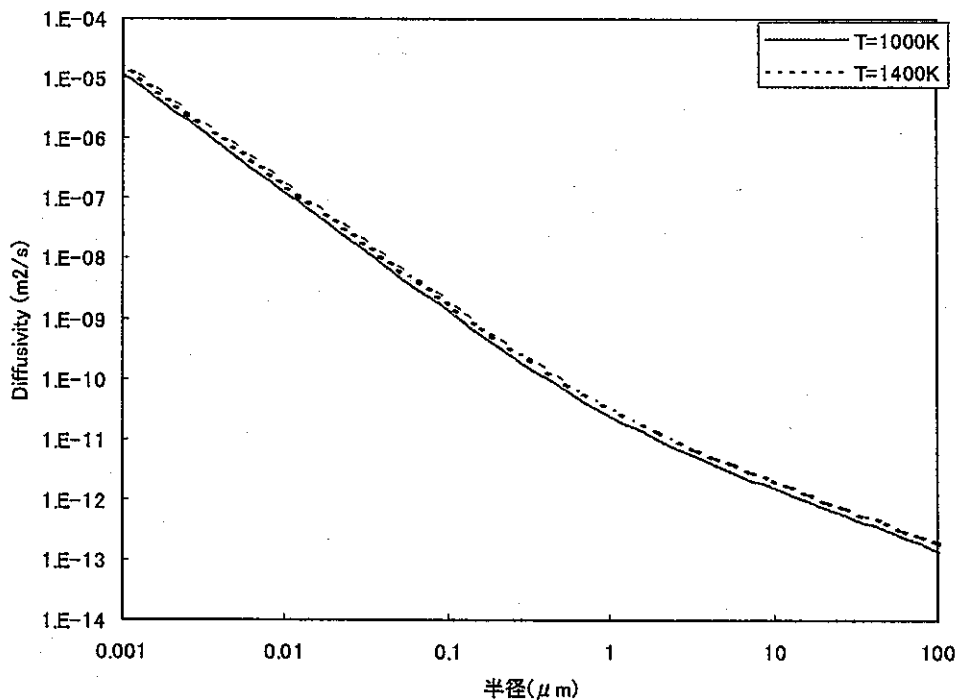


図 16 拡散係数

濃度境界層厚さを δ とすれば、ブラウン拡散沈着速度は

$$V_d = \frac{D}{\delta} \quad (81)$$

と表される。これに、形状補正を加えれば、

$$V_d = \frac{1}{\delta} \frac{kTC_c}{3\pi\eta d\chi} \quad (82)$$

と求められる。ここで、濃度境界層厚さを決める必要がある。

計算メッシュを用いる場合には

$$\frac{\rho Y}{\delta} = \frac{\partial \rho Y}{\partial z} \quad (83)$$

より境界層厚さを計算する。ただし、 Y はモル分率である。

3.4.3 熱泳動による沈着

熱泳動 (thermophoresis) は粒子と温度勾配のある周囲ガスとの非対称な相互作用である。熱泳動による力は、理論的に以下に述べる式で与えられる。粒径が平均自由行程程度に大きくなると、粒子内部の温度勾配を無視できなくなる。

まず、粒径が気体の平均自由行程より小さいときは

$$F_h = \frac{-p\lambda d^2 \nabla T}{T} \quad \text{for } d < \lambda \quad (84)$$

熱泳動による移動速度は次式で与えられる。

$$V_h = \frac{-0.55\eta \nabla T}{\rho_g T} \quad \text{for } d < \lambda \quad (85)$$

粒子が大きいときには粒子内部に温度分布がつくので、その影響を考慮すれば、熱泳動による力は次式で与えられる。

$$F_h = \frac{-9\pi d \eta^2 H \nabla T}{2\rho_g T} \quad \text{for } d > \lambda \quad (86)$$

ここで、

$$H \cong \left(\frac{1}{1 + 6\lambda/d} \right) \left(\frac{k_a/k_p + 4.4\lambda/d}{1 + 2k_a/k_p + 8.8\lambda/d} \right) \quad (87)$$

熱泳動による移動速度は次式で与えられる。

$$V_h = \frac{-3\eta C_c H \nabla T}{2\rho_g T} \quad \text{for } d > \lambda \quad (88)$$

図 17 に、空気の平均自由行程を示す。

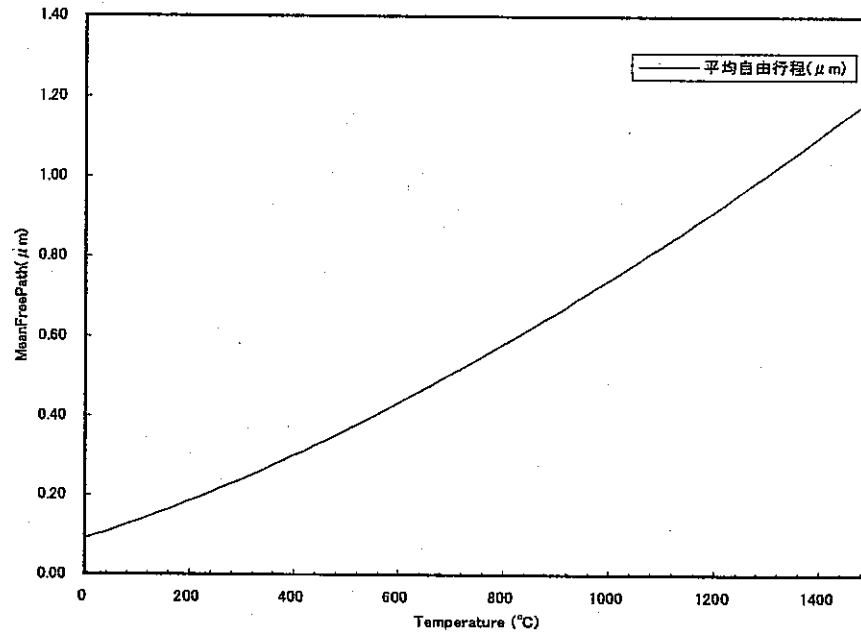


図 17 空気の平均自由行程と温度の関係

3.5 エアロゾルの凝集

エアロゾルの凝集定数として、重力凝集、対流による凝集、ブラウン凝集、乱流凝集を考慮する。またそれら凝集定数の線形和によって全体の凝集定数が評価できるものと仮定する。凝集を評価する場合に、エアロゾルが球ではない影響を考慮するために凝集形状係数 γ が導入されている。

3.5.1 重力凝集

重力沈降の終端速度は粒径によって異なる。従って、その速度差により凝集が生じる。

$$V_{TS} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta} \frac{1}{\chi} C_e \quad (89)$$

を用いれば、半径 r_i と半径 r_j の粒子の相対速度は

$$V_{s,i} - V_{s,j} = \frac{2\rho_p g}{9\eta} \left[(r_i^2 - r_j^2) + \lambda (C_{e,i} r_i - C_{e,j} r_j) \right] \frac{1}{\chi} \quad (90)$$

で与えられ、従って

$$K_G = \varepsilon(r_i, r_j) \pi (r_i + r_j)^2 |V_{s,i} - V_{s,j}| \gamma^2 \quad (91)$$

により重力凝集定数は与えられる。

ここで、 ϵ は衝突効率である。Fusch によれば、

$$\epsilon(r_i, r_j) = \left[1 + \frac{r_j}{2(r_i + r_j)} \right] \frac{r_i^2}{(r_i + r_j)^2} \quad r_i < r_j \quad (92)$$

である。ただし、この式は静止したエアロゾルを仮定している。Klett による式

$$\epsilon(r_i, r_j) = \frac{3}{2} \frac{r_i^2}{(r_i + r_j)^2} \quad r_i < r_j \quad (93)$$

が精度が良いという報告もある。図 18 にエアロゾル粒径比と衝突効率の関係を示す。

Fusch の式は若干衝突効率を過小評価しているが大きな差は認められない。

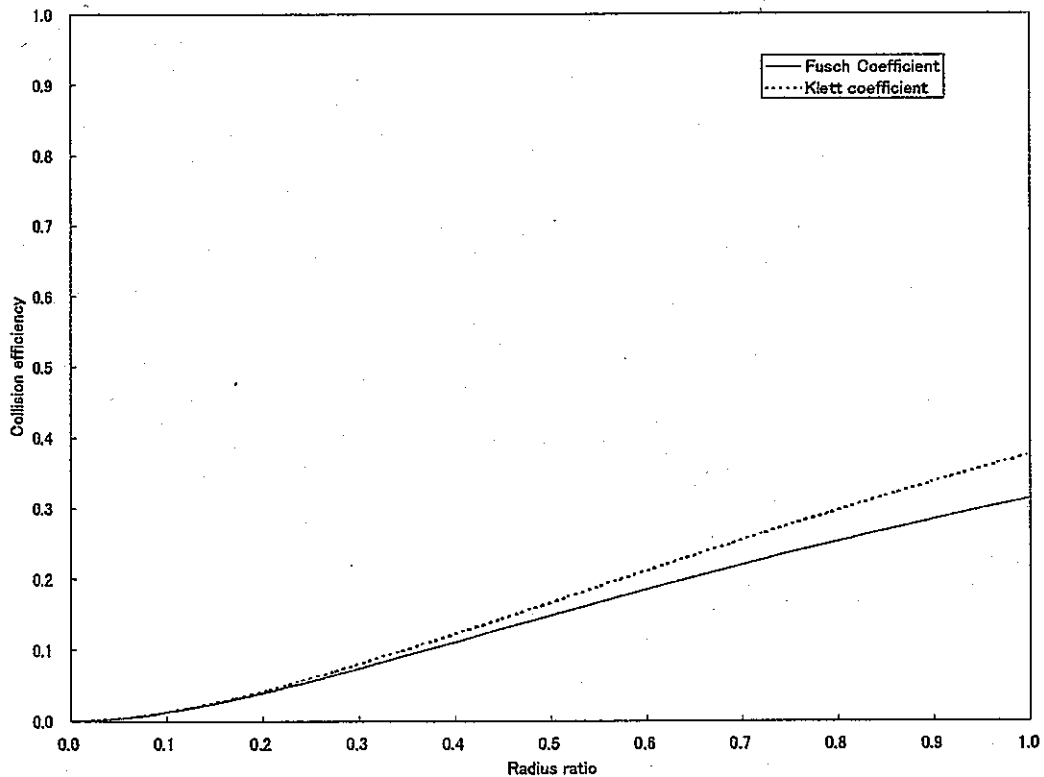


図 18 エアロゾル粒径比と衝突効率の関係

3.5.2 対流による凝集

気体の z 方向及び r 方向の局所流速をそれぞれ U 、 V とする。スリップを無視すればエアロゾルも同じ速度で移流されるが、スリップを考慮すればエアロゾルの移流速度は

$$u_{c,i} = \frac{U}{C_{c,i}} \quad (94)$$

$$v_{c,i} = \frac{V}{C_{c,i}} \quad (95)$$

で与えられる。従って、対流の凝集定数は

$$K_c = \varepsilon(r_i, r_j) \pi (r_i + r_j)^2 \left| \sqrt{(u_i^2 + v_i^2)} - \sqrt{(u_j^2 + v_j^2)} \right| \gamma^2 \quad (96)$$

で計算できる。

3.5.3 ブラウン凝集

ブラウン運動による凝集定数は

$$K_B = 4\pi(D_i + D_j)(r_i + r_j) \frac{\gamma}{\chi} \quad (97)$$

なお、拡散係数は Stokes-Einstein の式

$$D = \frac{kTC_c}{3\pi\eta d} \quad (98)$$

より得られる。

3.5.4 乱流凝集

乱流凝集のメカニズムは、気体のランダムな乱流により粒子が運動して衝突する効果と、乱流挙動をするガスと粒子の密度差による効果がある。Saffman と Turner によれば、

$$K_T = \varepsilon(r_i, r_j) \left[\frac{8\pi\varepsilon_T \rho_g}{15\eta} \right]^{1/2} \gamma^3 (r_i + r_j)^3 \\ + \varepsilon(r_i, r_j) \left[\frac{4\rho_p \sqrt{2\pi}}{9\eta} \left| \frac{1.69\varepsilon_T^3 \rho_g}{15\eta} \right|^{1/4} \right] |r_i^2 C_{c,i} - r_j^2 C_{c,j}| (r_i + r_j)^2 \frac{\gamma^2}{\chi} \quad (99)$$

である。

3.6 物性値

粘性係数は

$$\eta = 1.830 \times 10^{-4} - 4.83 \times 10^{-7} (23 - T_g) \quad (100)$$

密度は

$$\rho_g = \frac{9.7 \times 10^{-8} P}{1 + 3.67 \times 10^{-3} T_g} \quad (101)$$

$$\lambda = \frac{3\eta}{2\sqrt{2\rho_g}} \sqrt{\frac{1.1 \times 10^{-8}}{T_g - 273.0}} \quad (102)$$

ここで両式の単位は cgs 系とする。Hinds らによれば、動的形状係数 χ は 1.3 程度とのデータを得ている。また、凝集したときのエアロゾルの密度は 0.61 倍程度になるとしている。 Na_2O_2 の密度は 2800kg/m^3 であるから、 1700kg/m^3 程度の密度とするのが妥当である。また、Cherdron, W. ら [10] は凝集形状係数 γ を 4 程度とすれば実験と一致することを示している。

4. ふく射伝熱評価

4.1 ふく射伝熱モデル

ふく射熱伝達は温度に強く依存するため、反復解法を用いる必要がある。水蒸気や二酸化炭素、エアロゾルなどのふく射性成分も輻射熱伝達に影響を及ぼす。エアロゾルを含むふく射性ガスのふく射率と吸収率は Modak[13]のふく射特性モデルを用いて次式で表される。

$$\varepsilon_m = \varepsilon_a + \varepsilon_{gas} - \varepsilon_a \varepsilon_{gas} \quad (103)$$

$$\alpha_m = \alpha_a + \alpha_{gas} - \alpha_a \alpha_{gas} \quad (104)$$

ここで、 ε_a と α_a はそれぞれエアロゾルのふく射率と吸収率である。 ε_{gas} と α_{gas} はガスのふく射率と吸収率である。吸収係数はエアロゾルの濃度に比例する。エアロゾルを含むガスの吸収係数 $k_{\lambda,i}$ はエアロゾルの体積率に正比例し、ふく射の波長 λ に反比例する。従って、解析体系で i -番目の計算セルにおけるガスのふく射率 ε_i 次式で計算できる。

$$\varepsilon_i = 1 - \exp(-k_{\lambda,i} L_i) \equiv 1 - \exp(-k_{\lambda} C_i L_i) \text{ where } k_{\lambda,i} = \frac{B}{\rho_a \lambda} C_i \quad (105)$$

ここで、 B は比例定数である。 i -番目の計算セルのエアロゾルの体積率は、エアロゾルの質量濃度 C_i と密度 ρ_a から計算できる。ガスの光学厚さ L_i はセルサイズとした。吸収係数 k_{λ} は粒子の粒径と光学定数に依存するが、1000K のガス温度で小さなすす粒子を含む場合に 3000 から 6000 m^2/kg 程度である [14]。ここでは、 k_{λ} を 4000 m^2/kg とした。

i -番目の計算セルのガス温度 T_i と Stephan-Boltzman 定数 σ を用いれば、体積発熱率 Q_i を計算することができる。

$$Q_i L_i = \varepsilon_i G_p \prod_{j=1}^{i-1} (1 - \varepsilon_j) + \varepsilon_i \sum_{j=i} \left\{ \varepsilon_j \sigma T_j^4 \prod_{k=i+1}^{j-1} (1 - \varepsilon_k) \right\} - 2\varepsilon_i \sigma T_i^4 \quad (106)$$

$$G_p = \varepsilon_p \sigma T_p^4 + \sigma \sum_{j=1}^n \varepsilon_j T_j^4 \prod_{k=1}^{j-1} (1 - \varepsilon_k) \quad (107)$$

ここで、 T_p はプール温度であり、プールのエネルギー式を解けば評価できる。右辺第1項はプールからの射出エネルギー、第二項は他のセルからの射出エネルギー、第三項は自身から射出されるエネルギーである。プール表面のふく射率 ε_p はプール表面の状態に依存する。Hashiguchi et al. [15]によれば、 ε_p はプール表面に酸化物があるときには 0.65、反応生成物が表面に存在しないときには 0.05 であるとの実験結果を得ている。 G_p はプール表面からの熱フラックスであり(107)式で計算される。

SPHINCS コードなどで使用しているフレームシートモデルにおいては、火炎面とプールおよびガスとのふく射を考慮している。それと比較するため、温度が最大となるセルにふく射率を与え、それ以外は透明であるとして、次式によりふく射エネルギーフラックスを計算すれば、本モデルとの対応を取ることができる。

$$q = h_{rg}\sigma(T_p^4 - T_i^4) + h_{rg}\sigma(T_g^4 - T_i^4) \quad (108)$$

ここで h_{rg} は雰囲気ガスのふく射率で 0.5 を仮定した。(108)式の右辺第 1 項は火炎からプールへの熱フラックス、第 2 項は火炎から雰囲気への熱フラックスである。

4.2 ナトリウム燃焼エアロゾルのふく射率実験値

ナトリウムエアロゾルのふく射率に関する実験的知見としては、大野[16]がガス温度と光学厚さをパラメータとしてふく射透過率とエアロゾルの濃度を測定した。試験の条件と測定結果を表 1 に示す。ガス温度は 100°C から 400°C の範囲である。ふく射線の透過率は

$$I = I_0 \exp(-KC_s L) \quad (109)$$

あるいは

$$\epsilon_p = 1 - \exp(-KC_s L) \quad (110)$$

となる。ここで I_0 と I はそれぞれ入射光と透過光の強度、 K は減衰係数、 L は光学厚さ、 C_s はナトリウム換算エアロゾル質量濃度 ($g-Na/m^3$) である。実測値から評価した減衰係数を図 19 に示す[16]。この実験の温度範囲では、透過率の温度依存性は見られず、図より $K \approx 0.2 \pm 0.1 m^2 / g-Na$ と評価されている。この実験の温度範囲で酸素濃度が高いときには Na_2O_2 が生成されるので、この実験で生成された物質は全て Na_2O_2 であると仮定する。反応生成物中のナトリウムの質量比は $0.590 (= 46 / (46 + 32))$ であるので、ナトリウム換算エアロゾル質量濃度 C_s ($g-Na/m^3$) とエアロゾルの質量濃度 C_p (kg/m^3) は

$$C_s = 0.590 \times 10^3 C_p \quad (111)$$

の関係式で与えられる。従って(110)式より次式を得る。

$$\epsilon_p = 1 - \exp(-118C_p L) \quad (112)$$

4.3 Felske と Tien のふく射率モデル

Felske と Tien[17]によれば、ふく射波長よりもエアロゾル粒径が小さいときには、エアロゾルのふく射率は次式で与えられる。

$$\epsilon_p = 1 - \frac{15}{\pi^4} \phi^{(3)}(y) \quad (113)$$

$$y = 1 + \alpha_{\lambda_m} L T_{\text{gas}} \frac{\lambda_m}{c_2} \quad (114)$$

ここで

L : 光学厚さ

$\phi^{(3)}$: ベンタガンマ関数

λ_m : 赤外ふく射を表す参照波長で $0.94 \mu\text{m}$

c_2 : ヴィーン・プランク定数で、 $c_2 \equiv ch/k = 1.4388E^{-2} \text{mK}$

α_{λ_m} : 参照波長における吸収係数

であり、 c 、 h 、 k はそれぞれ光速、プランク定数、ボルツマン定数である。エアロゾルのふく射率を(114)式で定義される y の関数で表せば図 20 のようになる。

さて、 y を評価するためには、光学厚さ、ガス温度、及び吸収係数が必要である。光学厚さとガス温度は体系の条件が与えられれば決定できる。吸収係数はエアロゾルの体積分率 f_v に比例し、参照波長に反比例するから、吸収係数は次式で表される。

$$\alpha_{\lambda_m} = \beta f_v / \lambda_m \quad (115)$$

β : 比例定数

f_v : エアロゾルの体積分率 C_p / ρ_p 、(-)

吸収係数を質量濃度を用いて表せば次式を得る。

$$\alpha_{\lambda_m} = \frac{\beta}{\rho_p \lambda_m} C_p \quad (116)$$

β はエアロゾルの特性に依存するが、Hottel と Sarofim[18]は $\beta = 7$ を与えている。

なお、ナトリウム燃焼の解析コードでは、エアロゾル質量濃度は C_p (kg/m^3)に比例する式

$$\alpha_{\lambda_m} = 4000 C_{\lambda_m} C_p \quad (117)$$

で吸収係数を与えている。密度が $\rho_p = 2000 \text{kg}/\text{m}^3$ のすす状粒子では $C_{\lambda_m} = 1$ 程度であるとされている[19]。(117)式を(116)式と比較すれば $\beta = 7.5$ であるから両者はほぼ同じ結果を与えるものである。

(114)式に(116)式を代入すれば

$$y = 1 + \beta \frac{T_{gas}}{c_2 \rho_p} C_p L \quad (118)$$

となる。従って、

$$C_p L = \frac{c_2 \rho_p}{\beta T_{gas}} (y - 1) \quad (119)$$

大野による実験結果では(112)式でふく射率が表されるので、エアロゾル濃度に比例した形で吸収係数を表せば、エアロゾルのふく射率は

$$\epsilon_p = 1 - \exp(-K_p C_p L) \quad (120)$$

で表される。ここで K_p は減衰係数であるが単位は (m^2/kg) であり、(110)式の K とは単位が異なっている。(120)式に(119)式を代入すれば、

$$\epsilon_p = 1 - \exp\left[-\frac{c_2 \rho_p}{\beta T_{gas}} K_p (y - 1)\right] \quad (121)$$

ここで、エアロゾルのふく射率に関して、Felske と Tien [17] による(113)式と指数減衰型の(121)式を比較する。すなわち、(113)式を

$$\epsilon_p = 1 - \exp[-m(y - 1)] \quad (122)$$

にフィッティングさせた結果

$$m = 3.1464, \quad R = 0.996 \quad (123)$$

を得る。ここで R は相関係数である。図 20 には、フィッティング結果も比較のため示している。従って

$$m = \frac{c_2 \rho_p}{\beta T_{gas}} K_p = 3.1464 \quad (124)$$

あるいは

$$\epsilon_p = 1 - \exp\left[-3.1464 \frac{\beta T_{gas}}{c_2 \rho_p} C_p L\right] \quad (125)$$

となる。

エアロゾル密度は

$$\rho_p = 2.805 \times 10^3 \text{ kg/m}^3 \quad \text{for } Na_2O_2 \\ 2.27 \times 10^3 \text{ kg/m}^3 \quad \text{for } Na_2O \quad (126)$$

と評価されている[19]。エアロゾルは Na_2O_2 であると考えてその密度を用いれば、

$$K_p = 3.1464 \frac{\beta T_{gas}}{c_p \rho_p} = 0.546 T_{gas} \quad (127)$$

その他のパラメータも(125)式に代入すれば

$$\varepsilon_p = 1 - \exp(-0.546 T_{gas} C_p L) \quad (128)$$

が導かれる。

4.4 実験結果とエアロゾルふく射率モデルの比較

ガス温度を 300K 及び 400K としたときの大野の実験データ(112)式と Felske と Tien ふく射率のモデル(128)式の比較を図 21 に示す。図に示されるように両者は概ね対応しているが、Felske と Tien のモデルはふく射率を少々大きめに評価する。表 1 からわかるように、エアロゾル濃度の測定値にはファクター 10 程度の幅があり、Felske と Tien のモデルと実験結果との差はその誤差範囲内と考えられる。気相燃焼時には、Malet(1973)によれば、エアロゾルのふく射率は 1 である。

エアロゾルの吸収係数は、エアロゾル濃度とガス温度、エアロゾル粒径などの特性に依存する。エアロゾル濃度とガス温度はナトリウム燃焼と伝熱流動の定量評価により燃焼解析コードで求められるが、エアロゾル粒径の影響や光学的特性を考慮したふく射特性を評価することがナトリウム燃焼影響評価を行う上での今後の課題である。

表 3 エアロゾル吸収係数測定実験の条件

ガス温度 T_{gas} (°C)	光学厚さ L (cm)	Na 換算エアロゾル濃度 C_a (g - Na/m ³)
100	30	1~40
400	30	5~7
250	30	5~50
250	30	2~60
100	50	1~70
100	30	8~50

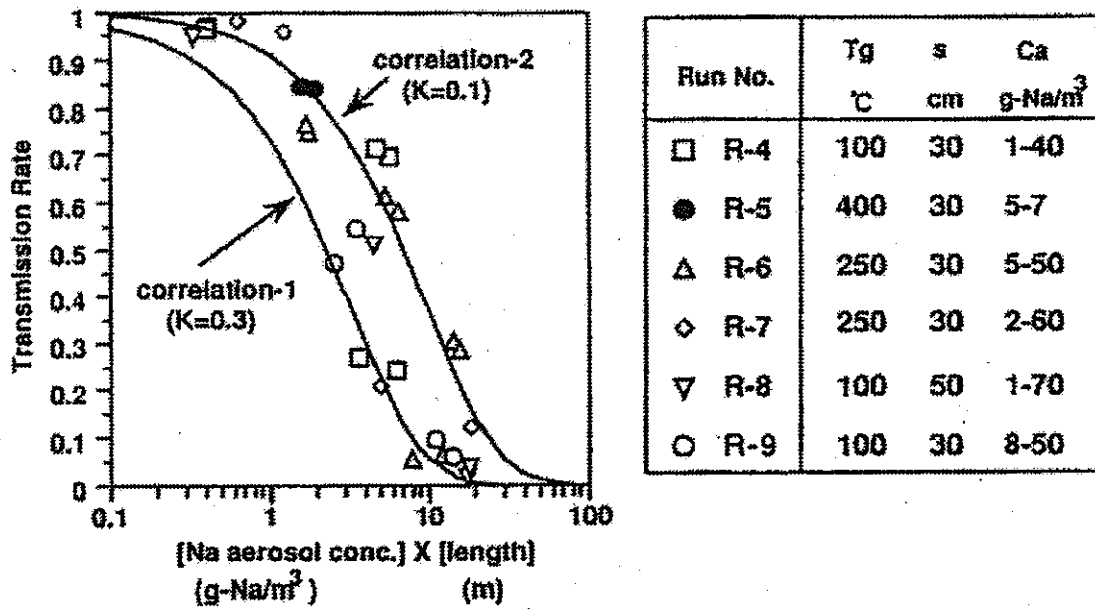


図 19 エアロゾル吸収係数の実験結果[16]

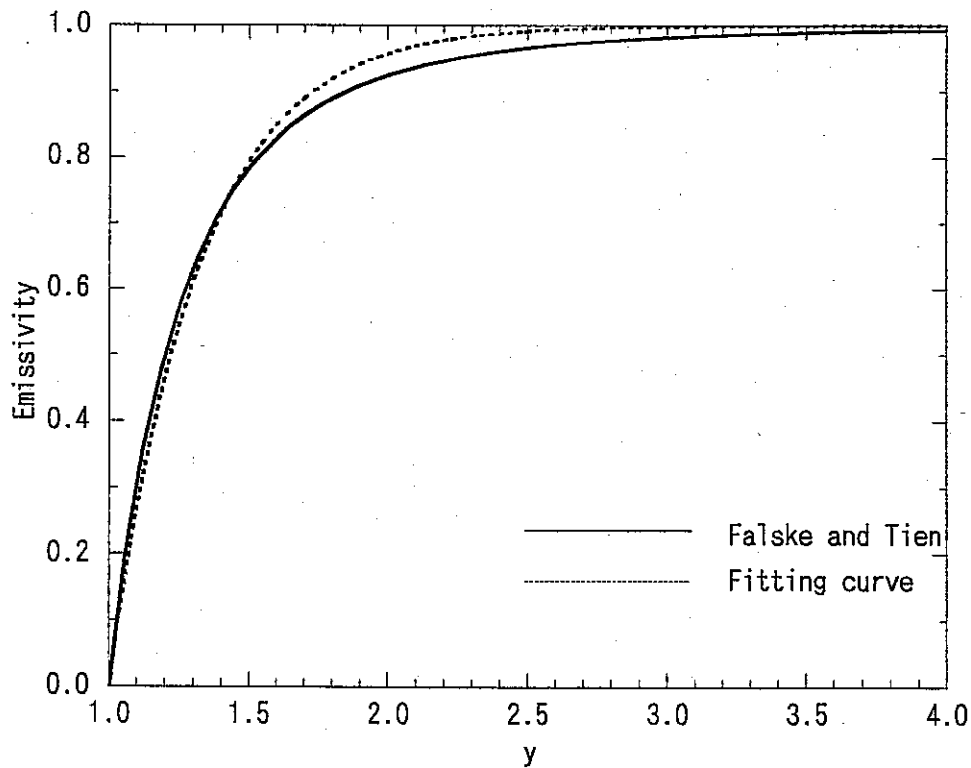


図 20 エアロゾルのふく射率評価モデルと指数型関数へのフィッティング

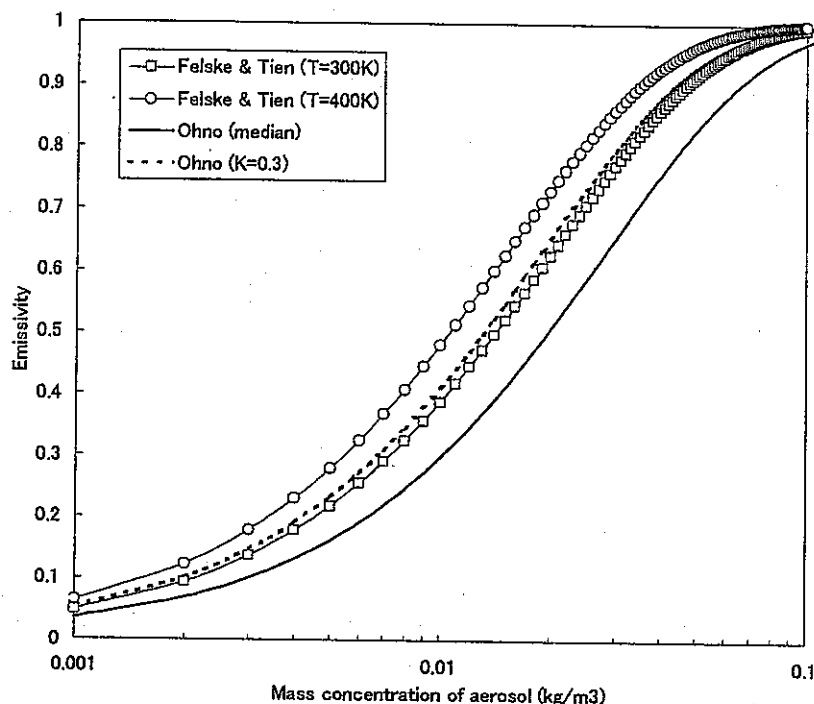


図 21 エアロゾルのふく射率に関する実験結果と解析モデル推定の比較

4.5 ナトリウム燃焼のスペクトルについて

Newman[6]がナトリウム燃焼時のスペクトル観察より得た結果を以下にまとめる。

(1)ナトリウム燃焼においては多量の白煙が発生し、実験容器の内部は数十秒のうちに視界が遮られる。燃焼部の温度範囲は、プール燃焼時のプール表面上部の火炎温度（1000°C程度）から、燃焼スプレイやナトリウム蒸気ジェットの温度（1500°C）までである。従って、射出光のスペクトルは、可視領域の連続的な拡がりとなトリウム D 線の吸収線（589.6～589.0nm）からなる。蒸気ジェット火炎では 512nm(232kJ/mol)と 470nm(253kJ/mol)に付随する極値が現れる（図 22）。

これらの観察結果を説明するためのメカニズムは以下の通りである。

(2)火炎温度で煙粒子が生成され、その煙粒子から連続スペクトルが放出される。酸化物の分子そのものの濃度はきわめて低いために、バンドスペクトルはほとんど現れない。煙の核生成が始まると、煙粒子の表面で反応が生じ、流入するナトリウム原子よりも高温になる。その結果、ナトリウムからのふく射線は吸収される。

(4)Malet と Delburgo によれば、低圧 (0.25 気圧、350°C、30%酸素濃度)での燃焼実験の結果、青光が放出され、硬く黄い反応生成物ができた。より高温、高圧、高酸素濃度の条件では、黄炎と、脆い反応生成物ができ、その反応生成物は容易に NaOH になった。前者は、火炎中に Na_2 が多く存在し、その分子からの青いふく射光である。後者では、火炎温度がもっと高温でありナトリウム二量体は分解されてナトリウム原子のふく射が支配的になる。

(5)低圧の火炎では、気相の酸化物 NaO_2 と Na_2O_2 が生成しそのときの発熱反応により火炎を維持する。その後、火炎の外部で三体反応により気体の酸化物は凝縮する。低速・高酸素濃度・大気圧でのジェット火炎ではナトリウム D 線のふく射がさらに支配的になる (Newman)。このような条件では、火炎での気相反応があるので、 Na_2 分子が熱的あるいは化学的に励起される。

(6)反応体が高個数密度で生成されるような条件では、反応域の中で凝縮などのメカニズムが支配的となり、火炎から白黄炎が放射される。

(7)青色光が生成される他の説明として、化学蛍光気相反応により NaO_2 や Na_2O_2 が形成されるとか、煙粒子表面でのナトリウムの酸化反応 (NaO 、 $\text{NaO}(\text{Na}_2\text{O})_n\text{O}$) 時の発光であるが考えられる。この反応はまたナトリウム火炎連続スペクトルの青緑色ピークの原因であるかもしれない。これは、低圧におけるマグネシウム-酸素火炎からの青い化学蛍光と類似している。

(8)常圧条件でのナトリウム蒸気噴流拡散火炎中のイオン化を測定した結果、電荷密度は $10^{18}/\text{m}^3$ であった。これを Na^+ のみで説明するためには自由 Na 原子が少なすぎるが、正に電荷したナトリウム酸化物煙粒子も考えれば説明できる。

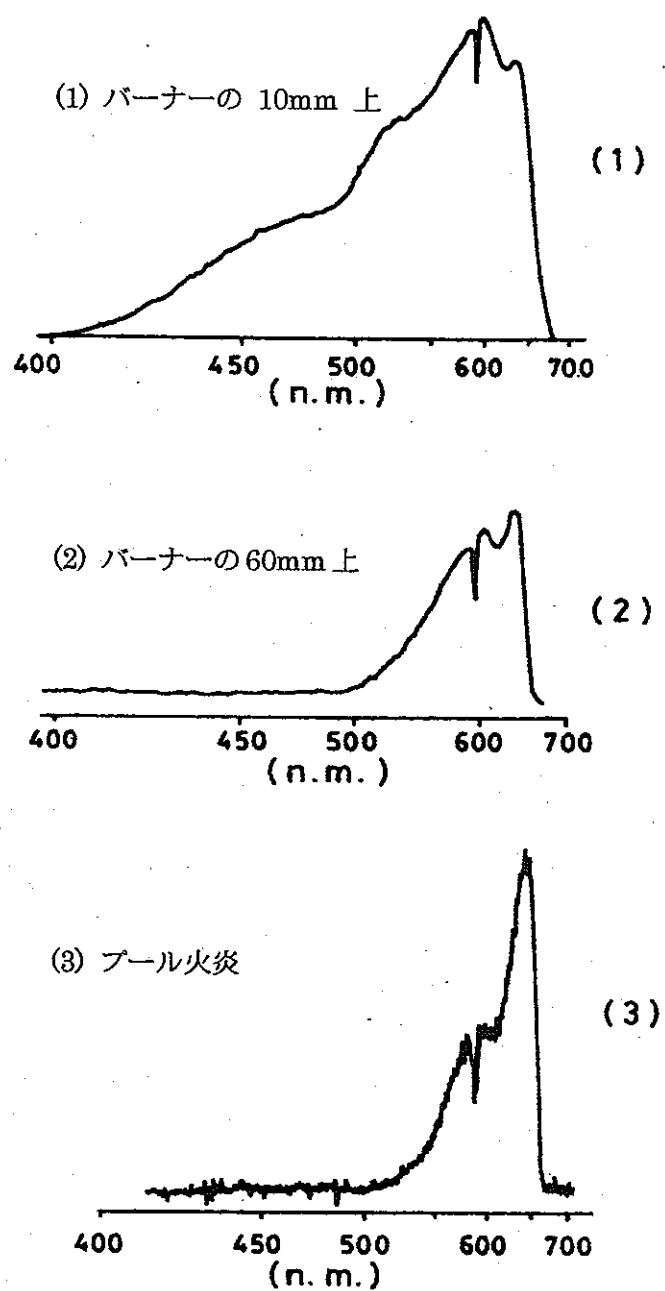


図 22 火炎からのスペクトル (連続スペクトルと D 吸収線が示される) ;
R.N.Newman(1983)

5. ナトリウムプール燃焼特性評価

5.1 燃焼率の評価

これまでに述べた解析手法によりナトリウムプール燃焼解析を行い、プール表面近傍の温度分布、反応生成化学種やガスの濃度分布、ガス流速等を評価した。プール温度を 800 K から 1100 K の範囲でパラメータとした。プールの直径は 0.1 m とし、自然対流条件とした。問題を単純化するため、ガス温度は 400 K に固定した。また水蒸気も考慮せず、雰囲気ガス中は窒素と酸素のみとした。酸素濃度は 21 % である。プール近傍での計算メッシュサイズはおよそ 0.1 mm から 0.01 mm である。プール温度が低くなれば火炎面はプールに近づき、境界層の厚さも薄くなるため、プール温度を低く設定するほどメッシュ幅を小さくした。2 章から 4 章に述べた支配方程式を時間発展により解き、収束解を得た。ここに設定した解析条件は Newman による実験を参考としたものである。

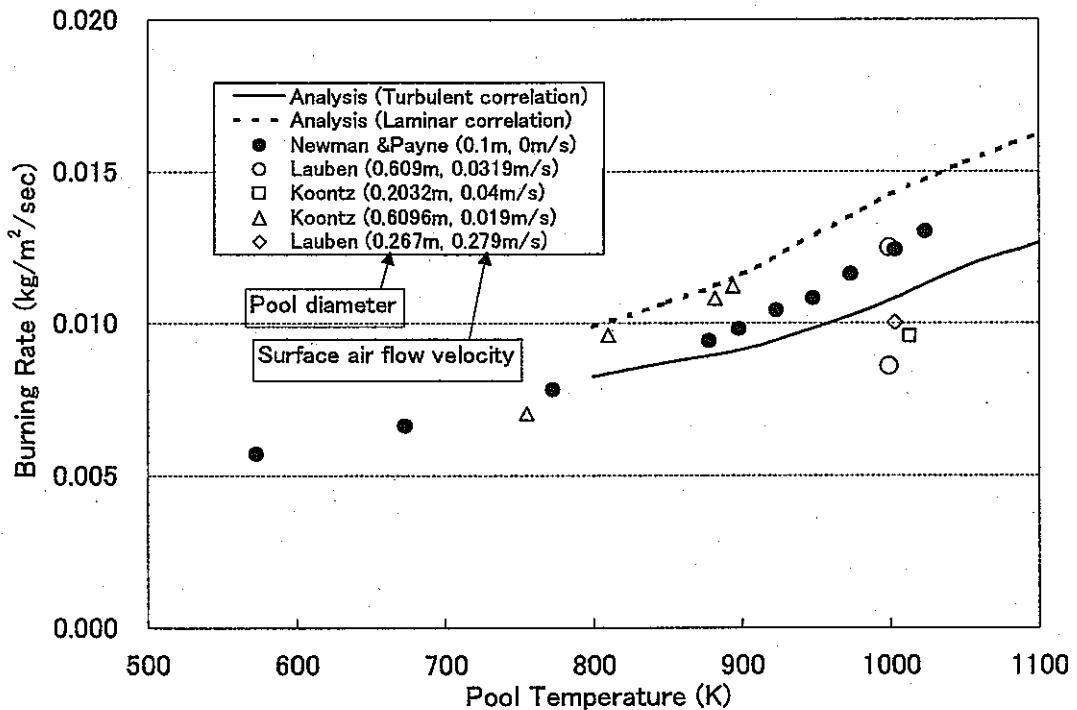


図 23 ナトリウムプール燃焼率とプール温度の関係

図 23 に、既往の実験結果と本解析で得られた燃焼率を比較して示す。本図には Newman[6]がレビューした過去のナトリウム燃焼実験のうち、自然対流条件で酸素濃度が 21% のデータを記している。それぞれの実験におけるプールの直径とプール表面流速を図中に示しているが、Newman のデータが本解析条件にほぼ対応している。2.4 節に述べた

とおり、プール直径が 0.1m 程度より小さくなると乱流物質伝達から層流物質伝達に遷移し、燃焼率が上昇し始めるとことが示されている。他の研究者による実験のプール直径は 0.2-0.6 m であり、これらは乱流物質伝達条件に近いものと考えられる。図中の実線は乱流物質伝達条件とした解析結果である。すなわち、物質伝達率として(53)式を用いている。点線は層流物質伝達条件、すなわち(54)式を用いた解析結果である。数値解析結果は実験データと良好に一致していることが分かる。Newman の実験データは二種類の相関式を用いた結果の中間に位置している。プール温度を低くすると、Newman のデータは乱流相関式の結果に近づくが、このことは火炎とプールの温度差が拡大し Gr 数が増加することと対応している。プール温度を高く設定すれば層流相関式の結果により近くなる。

5.2 火炎温度と火炎高さ

計算により求めた火炎高さや火炎温度を図 24 に示す。Newman と Payne [7]によれば、プール温度を 523-1023 K の範囲とした燃焼実験を行い、目視観察と温度計による測定の結果、火炎の温度はたかだか 1200-1300 K、火炎域はプール表面から 1 mm 程度であることを示した。その結果は図 24 中に影付きの楕円で示している。Newman が実験を行った温度範囲（プール温度が 1023K 以下）に関して言えば、火炎温度と火炎高さの一致はきわめて良好であるといえる。

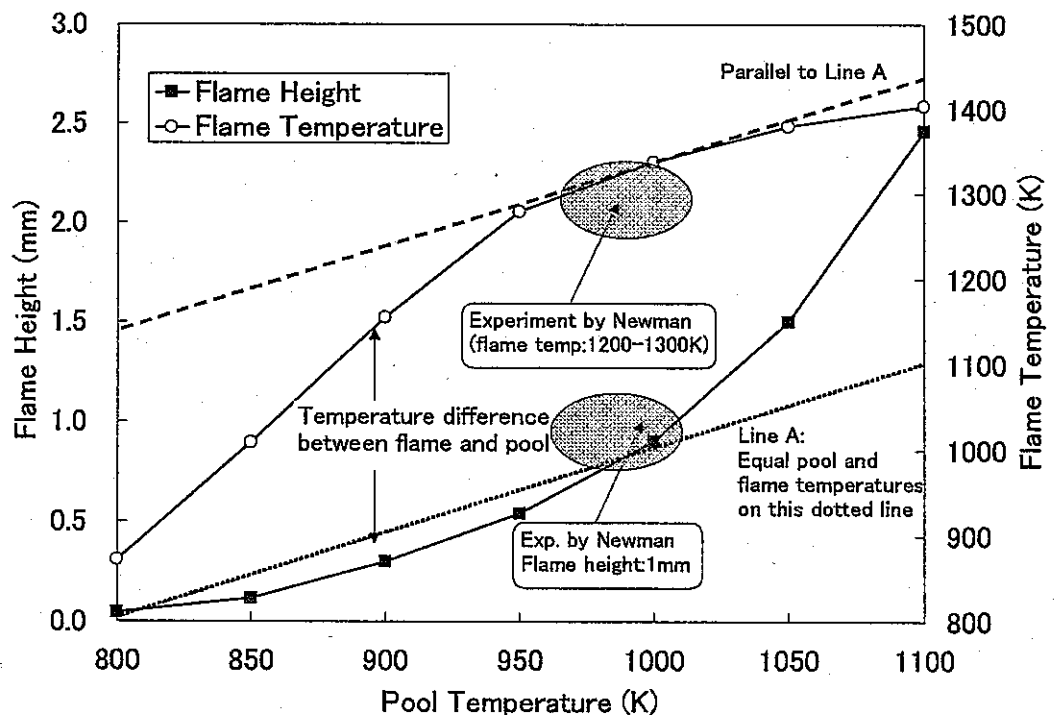


図 24 火炎温度と火炎高さ

図 24 の解析結果から、プール温度の上昇につれて火炎温度の上昇傾向は鈍ってくるのが分かる。すなわち、プール温度が上昇しても、火炎温度はほとんど上昇しなくなる。同図において、点線 A 上ではプール温度と火炎温度が等しくなる。また点線 A と平行に火炎温度の曲線と接するように破線を引いている。この点線 A と火炎温度を比較すれば、火炎温度とプール温度の差を見ることができる。プール温度が低いときには、プール温度を高くするにつれて火炎とプールの温度差は徐々に大きくなり、ほぼ 1000K において最大となり点線 A あるいは破線と傾きが等しくなる。このとき温度差は 330K である。その後はプール温度の上昇につれて温度差が縮まる傾向にある。一方、火炎高さはプール温度の上昇と共に指数関数的に上昇し、プール温度が 1000K を超えると、一層上昇率が大きくなる。Newman と Payne [7] はプール温度を 1003K 以上に設定すると外部から加熱しない限りその温度を維持できないと述べているが、そのメカニズムについて次節に考察する。プール温度が 800K では、火炎位置はプール表面に近づきその高さはわずか 0.1 mm 以下となる。従って、このような低温では安定な火炎を維持することが困難になる。Newman は 600°C (873K) 以下になるとプール表面に多数の灯心が形成され、気相反応ではなく表面反応が支配的になることを観察している。

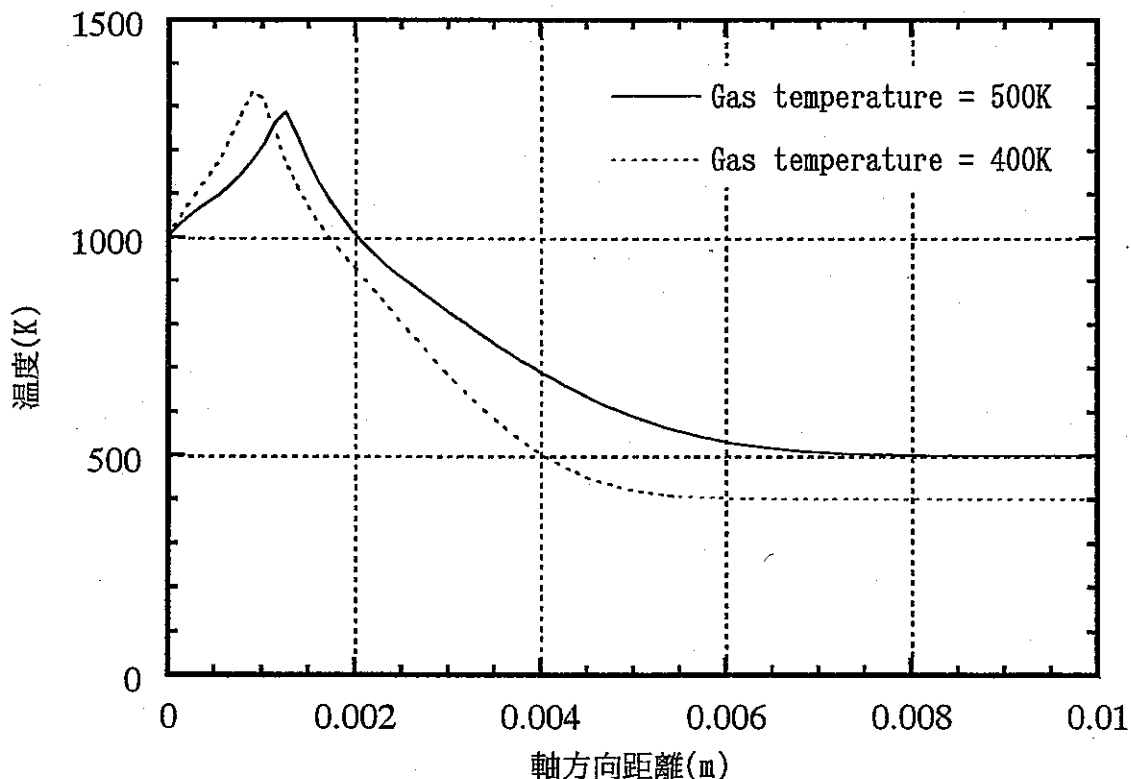


図 25 雰囲気ガス温度の影響

ガス温度が火炎部温度に及ぼす影響を調べる。ここまでに述べた解析では、ガス温度を

400Kと仮定している。ナトリウムプール燃焼時のガス温度は、およそ 350K から 500K 程度である。ガス温度が 500K というのは、セル内がかなり高温になっている場合であり、スプレイ燃焼で燃えている場合、セルが小さい場合等に相当する。図 25 に雰囲気ガス温度が 400K の場合と 500K に上昇させたときの温度分布を比較して示す。ガス温度が上昇すると、酸素のモル濃度が薄くなり、温度差が小さくなるため、対流物質伝達量が低下する。従って、燃焼率が低下し、火炎の温度も低下する。また、酸素のモルフラックスが低下するため、火炎の位置はプールから離れる。このときに、燃焼量は $8.1\text{kg/m}^2\text{s}$ 、火炎温度は 1290K であり、図 23 の燃焼率に関する実験データとの一致も良好である。燃焼によって、室内温度が上昇することと、さらに酸素が消費されて濃度が低下するであろうことは、燃焼を抑制するメカニズムのひとつである。

5.3 燃焼伝熱メカニズム

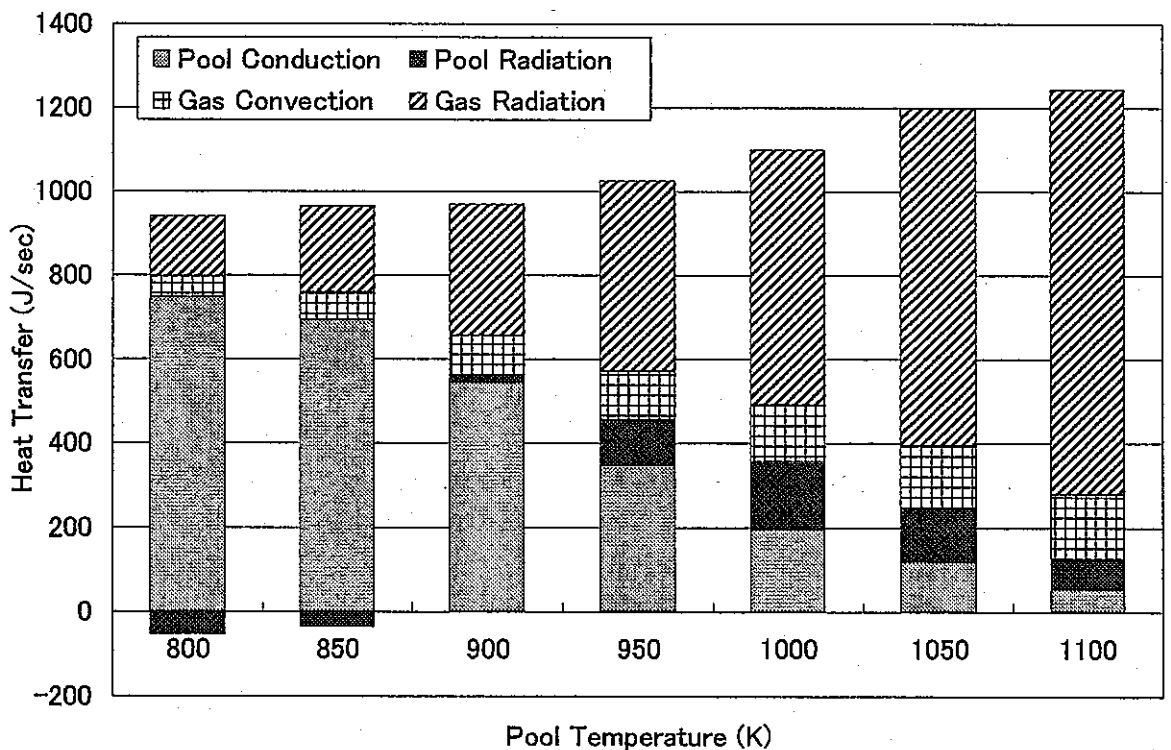


図 26 燃焼熱のプールとガスへの分配と伝熱メカニズム

数値解析によって評価した燃焼熱の伝熱特性を図 26 に示す。ナトリウムプール温度が 800 - 900 K と低いときには熱伝導によるプールへの伝熱が支配的である。その理由は図 24 にもみられるように火炎高さがわずか 0.1 - 0.3 mm でありプールに接近しているからである。プール温度が上昇するにつれて火炎温度は高くなり、プール表面から離れていく。するとガス中へのふく射伝熱が支配的な伝熱メカニズムとなる。図 26 から、プールへの伝

熱量の合計はプール温度が上昇するにつれて減少することがわかる。すなわち、燃焼率が上昇すれば発熱は増すが、その増加分はプールに伝熱されるのではなく雰囲気ガス中に輸送される。従って、プール表面ではナトリウムの蒸発を抑制するメカニズムが作用することになる。火炎温度と燃焼率は自己抑制的であると言える。

本解析では、プール温度を一定と仮定しており、プール中のエネルギー保存式を解いていない。図 23 からプール温度が上昇するにつれて、燃焼率は増加する。しかし、図 26 からプールへの入熱は減少している。従って、プール温度を一定に保ち、燃焼率に相当するナトリウム蒸気を火炎部に供給するためには外部からの入熱が必要である。

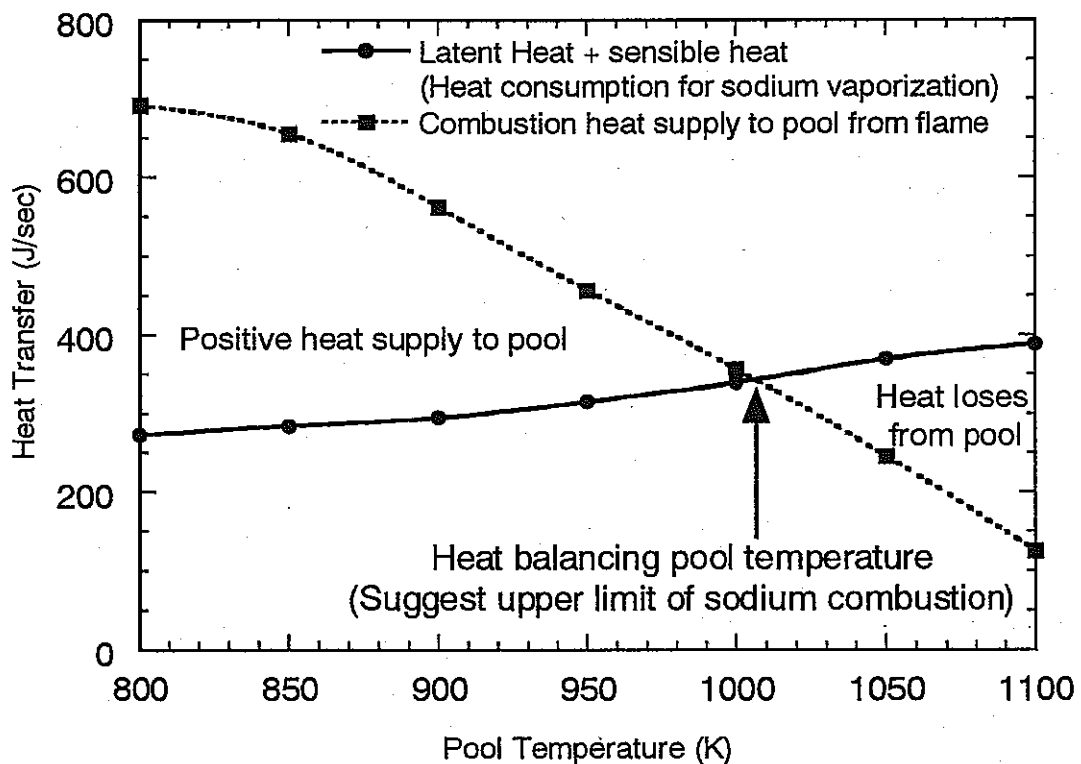


図 27 燃焼熱とナトリウム供給に必要な潜熱と顕熱の比較

このことを理解するために、図 27 に燃焼発熱量と、その燃焼率相当のナトリウム蒸気を供給するために必要なエネルギー（潜熱と顕熱）を示す。燃焼熱の一部はナトリウムプールに輸送され、その熱は液体ナトリウムをプール表面から蒸発させるのに消費される。燃焼率は図 23 から知ることができるので、その燃焼率を維持するために必要な潜熱と顕熱も簡単に計算することができる。プールへの熱供給とプール表面での熱消費を表す両曲線はプール温度がおよそ 1000K に達した時点で交差している。すなわち、プール温度が 1000K を超えると、燃焼率を維持できるだけのナトリウム蒸気を燃焼部に供給することはできなくなる、あるいはその差を補うだけのエネルギーを外部から供給する必要があることがわか

る。図 23 の 1000K 以上の結果は外部からプールを加熱している条件の解析とであると考えることができる。プールのエネルギー方程式を解いていれば、プール温度は例えば 1000K の閾値を超えることは無いはずである。

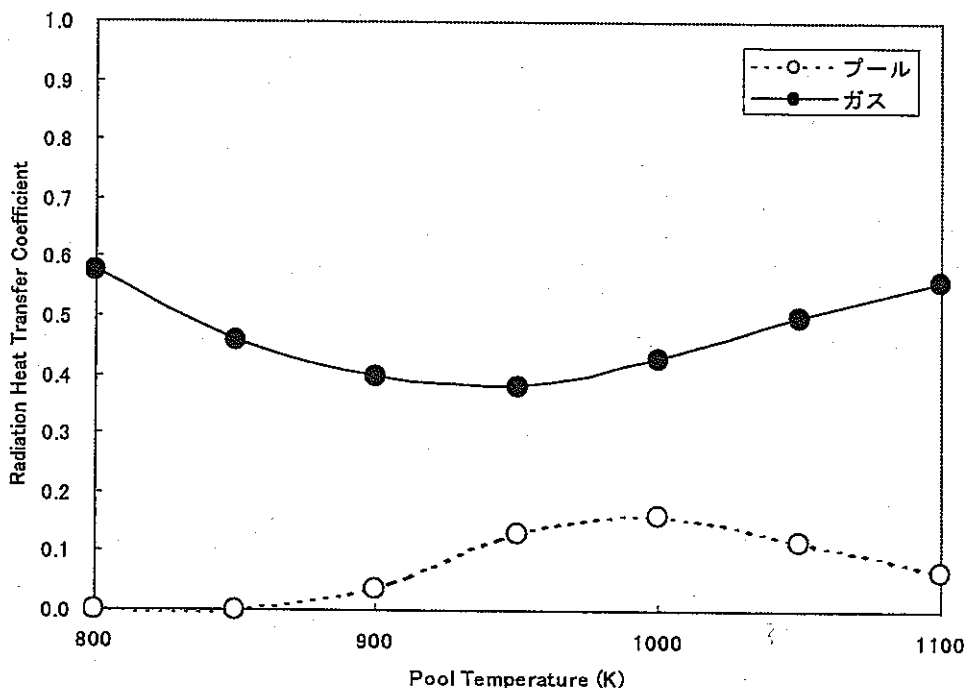


図 28 ふく射伝熱係数

この解析によって(1)式に定義したふく射伝熱係数を定義しておくことと燃焼解析を SPHINCS コードなどで実施するときにより便利である。ふく射伝熱係数は、ガス温度やプール温度、エアロゾル濃度分布などに依存するので、マップ化しておく必要がある。ここでは、雰囲気ガス中のガス温度を 400K、雰囲気ガス中のエアロゾル濃度をゼロとして、図 28 にふく射伝熱係数をふく射伝熱量より計算した結果を示す。ガスへのふく射伝熱係数とプールへのふく射伝熱係数は(108)式の $h_{r,g}$ と $h_{r,p}$ にそれぞれ対応する。プールへのふく射伝熱は小さく、ガスへのふく射伝熱係数は温度に依存するがおよそ 0.5 程度である。プールへのふく射伝熱係数が小さい理由は、火炎部周辺ではエアロゾル濃度が高いため、ふく射線はエアロゾルの雲を通過することができないためと考えられる。

5.4 反応生成物の生成率と分布

プール温度が 1000K の場合のガス温度と化学種の質量濃度分布を図 29 に示す。火炎温度は約 1mm の位置で 1300K に達している。酸素濃度とナトリウム蒸気濃度は火炎部に近づくにつれて徐々に低下し、火炎部でゼロとなる。図 30 には反応生成物の生成率をプール

温度が 1000 K と 1100 K の場合に関して示す。考慮した燃焼生成物はナトリウム酸化物 Na_2O とナトリウム過酸化物 Na_2O_2 である。化学平衡計算と実験結果によれば [5]、温度が 1400 K よりも高い場合には反応生成物はほとんど Na_2O である。また 900 K よりも低い場合には Na_2O_2 が生成される。その間の温度では、両者の割合は徐々に変化し、1100 K 程度では同量が生成される。プール表面から 1 mm の火炎部では温度は 1300-1400 K であり、 Na_2O が生成されている。

図 29 と図 30 を比較すれば、反応生成物はプール表面と雰囲気ガスへ輸送されることがわかる。 Na_2O の質量濃度分布は火炎部で極小値となっている。エアロゾルは上方の雰囲気ガス中へは熱泳動で輸送される。下方へは熱泳動と重力沈降により輸送される。火炎の上方は温度が低く、酸素リッチな条件にあるので、 Na_2O は簡単に酸化されて Na_2O_2 になる。従って、図 29 から分かるようにプール表面から 1.6 mm 上方で Na_2O_2 の質量濃度は極大値をとる。プール表面と火炎部の間では温度は 1000K を下回ることなくナトリウムリッチな条件にある。そこで、 Na_2O は二次的な反応なしにそのままプールに落下する。

最近のナトリウム燃焼実験によれば[20]、燃焼終了直後にはプール表面は白い反応生成物 Na_2O で覆われているが、時間が経つにつれて黄色い Na_2O_2 に変化することが認められている。本解析によれば、プール中の反応生成物は Na_2O であり、この結果から、本プール燃焼モデルの妥当性が示される。

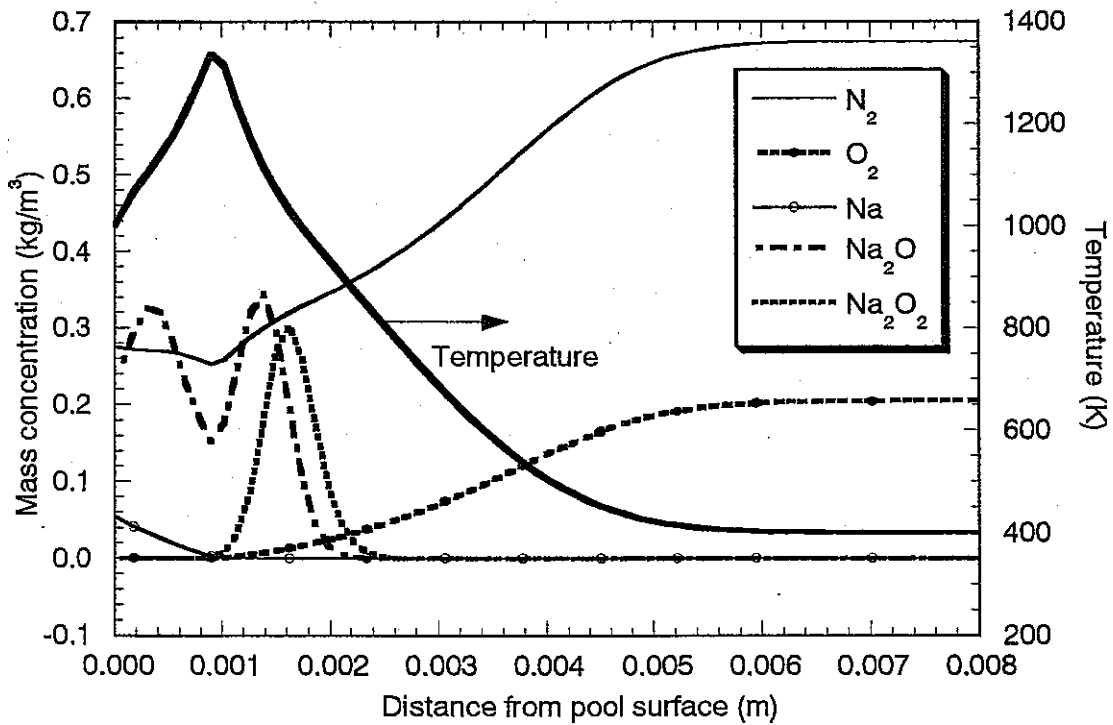


図 29 ガス温度と化学種の質量濃度分布

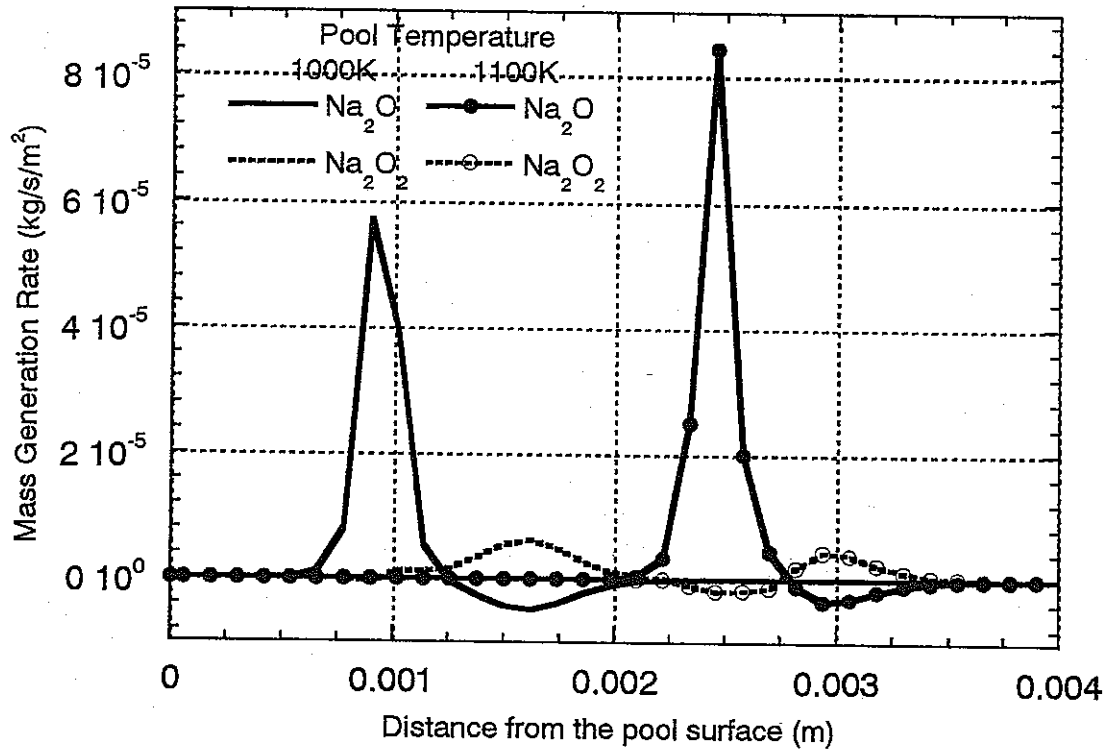


図 30 燃焼生成エアロゾルの生成率

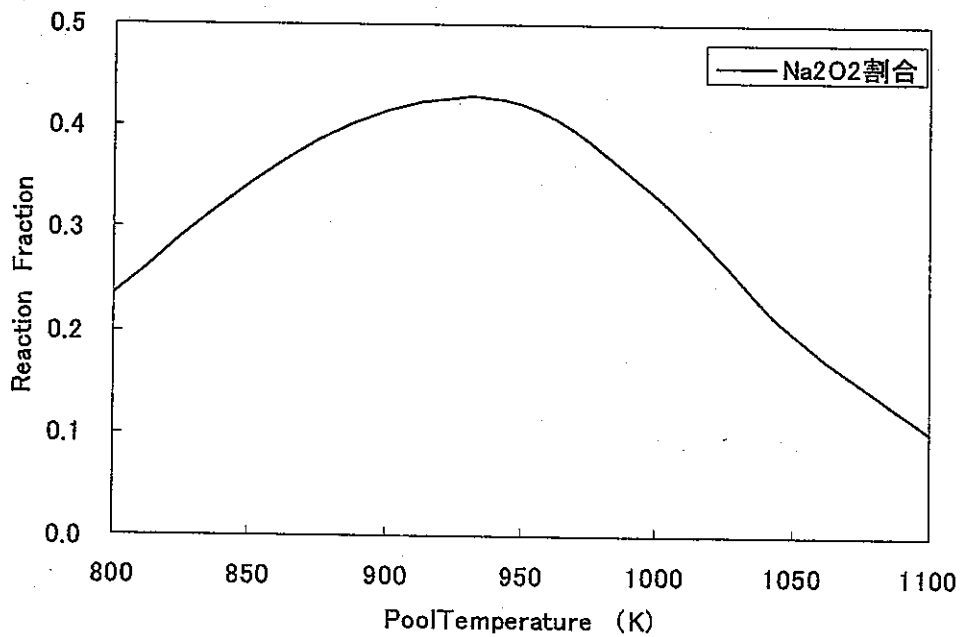


図 31 ナトリウム酸化物の生成割合

次に燃焼時のナトリウム酸化物の生成割合すなわち、 Na_2O と Na_2O_2 の生成割合を図 31 示す。低温では Na_2O_2 ができやすく、高温では Na_2O が生成しやすいという結果が実験や熱力学計算から得られるが、この図からはプール温度が 900K 以下になると再び Na_2O が生成されやすいという傾向を示している。温度が 900K 以下になると、火炎面がプールに近づき、発生したエアロゾルはナトリウムプールに沈着しやすくなる。従って、雰囲気ガス中へのエアロゾルの放出割合が低下する。プール中に沈降する酸化物は Na_2O に、ガス中に放出されるエアロゾルは Na_2O_2 になるため、低温では Na_2O が生成しやすくなるものと考えられる。従って、酸化物の生成割合は、エアロゾルの放出割合と密接に関係しているといえる。

次に、プール温度が低い場合 (800K) と高い場合 (1100K) の化学種の濃度分布を比較して図 32 と図 33 にそれぞれ示す。プール温度が 800K の場合には火炎位置はプールに近接しており、反応生成物はほとんど Na_2O_2 である。ただしプール表面から火炎部までは Na_2O が支配的である。プール温度が 1100K のときには火炎部はプールから離れて 2.5mm の位置にある。この場合には温度が高いため、 Na_2O が主として生成される。

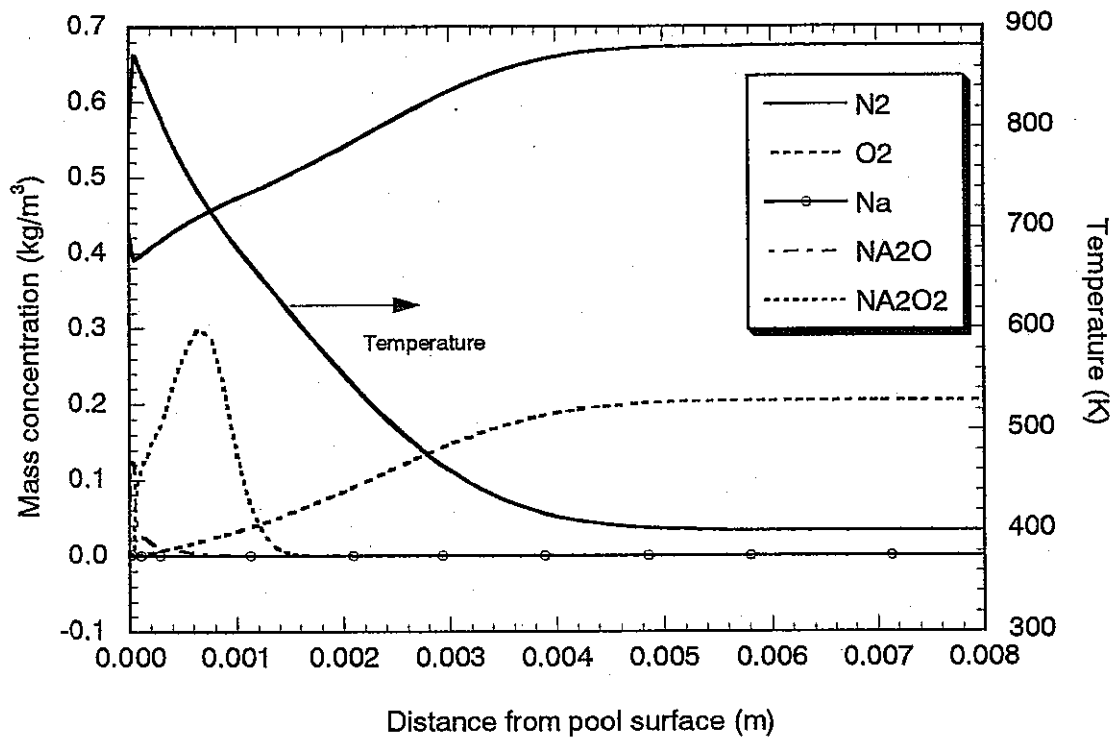


図 32 プール温度が 800K のときの化学種の濃度分布

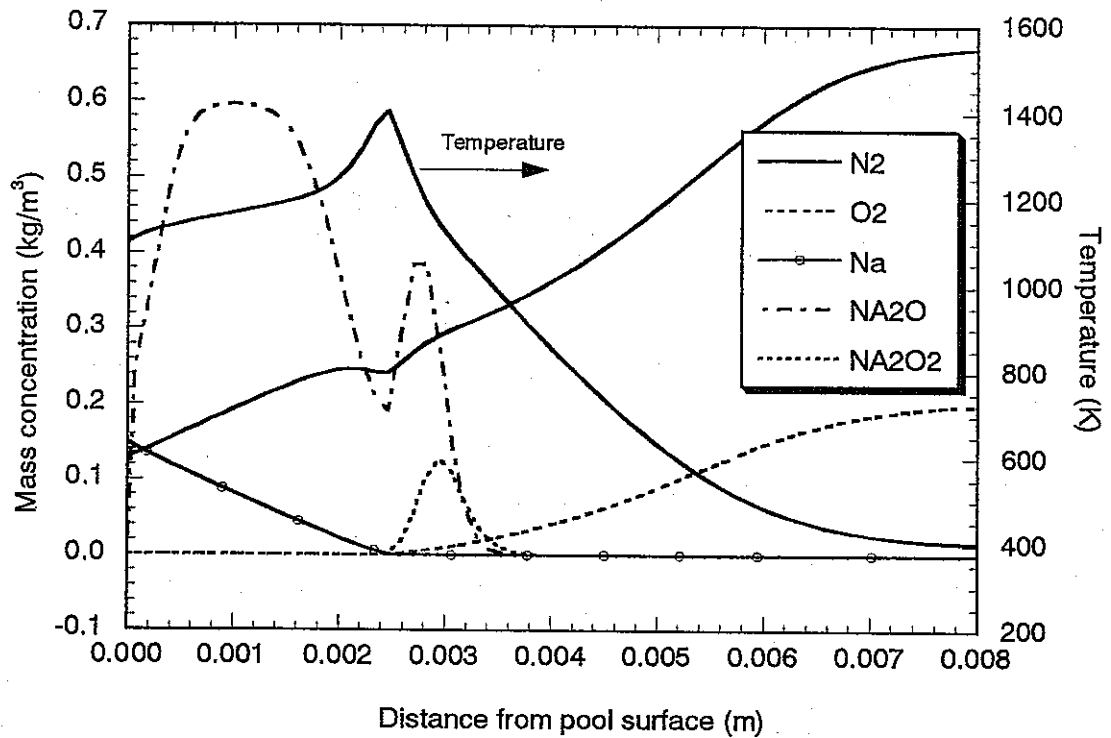


図 33 プール温度が 1100K のときの化学種の濃度分布

5.5 エアロゾルの挙動評価

エアロゾルの挙動について調べるため、各点における粒径分布とエアロゾルの移動速度を調べる。図 35 から図 39 にプール液面上の各ノード点におけるエアロゾル粒径分布を示す。なお、各点の座標を一覧できるように図 34 に計算ノード番号と座標の関係を示す。火炎位置も図中に示す。生成エアロゾルの個数基準中央半径は $0.5\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は 1.7 としている。このとき、質量（または体積）基準中央半径は $1.16\mu\text{m}$ 、質量（または体積）基準最頻半径は $0.377\mu\text{m}$ である。

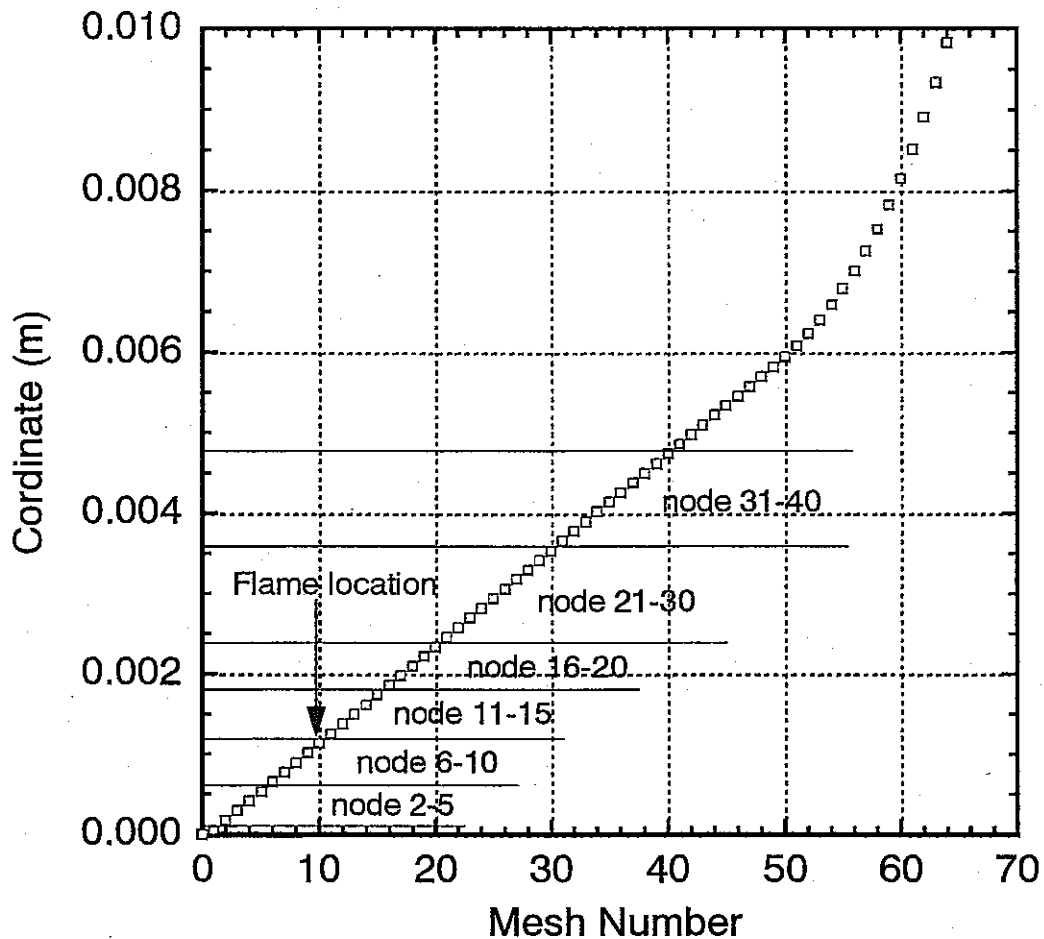


図 34 計算ノード番号と座標の関係

図 35 ではノード番号が 2 から 5、すなわちプール表面から 0.6mm の位置までの粒径分布である。初生エアロゾルの最頻半径は $0.377\mu\text{m}$ であるに対して図では $1\mu\text{m}$ となっている。図 29 と図 30 からエアロゾルの濃度は 0.3kg/m^3 、単位時間あたりの生成率は $6 \times 10^5 \text{kg/m}^3/\text{s}$ である。火炎高さ 1mm、プールへの拡散速度が数 cm/s であるからエアロゾルの落下時間はたかだか 0.01 秒のオーダーである。従って、この間に生成されるエアロゾル生成量は 10^{-7}kg/m^3 であり、濃度に比べれば 6 桁小さい。従って、初生の粒径分布とはかなりことなり、周辺から輸送されてきたエアロゾルやその領域の温度に支配される分布となっている。また火炎部から離れるほど濃度も低下している。

図 36 にはノード番号が 6 から 10、すなわちプール表面から 0.6mm の位置から火炎部までの粒径分布である。プール表面近傍と同様の粒径分布となっているが図 35 と異なる点は火炎部に近づくほど濃度が低下することである。火炎部は高温であるためガスが膨張することにより濃度が低下する。また温度が最高値になることにより、エアロゾルはプール側と雰囲気ガス側に熱泳動で輸送されることもその原因である。

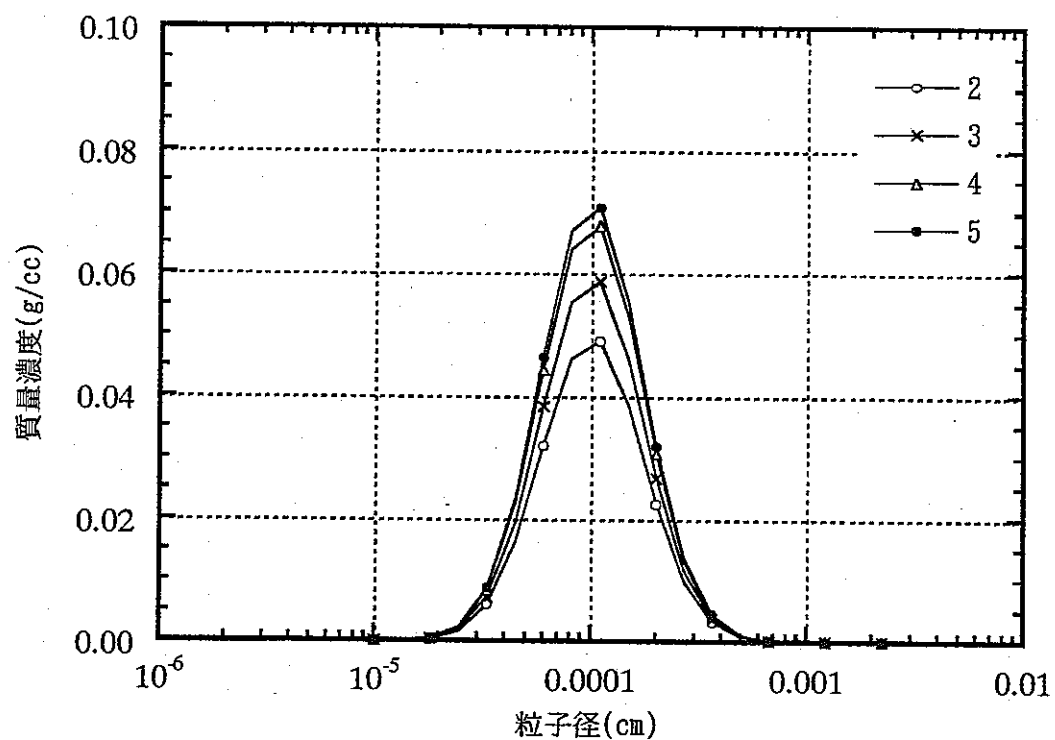


図 35 各メッシュ番号 (2-5) における粒径分布

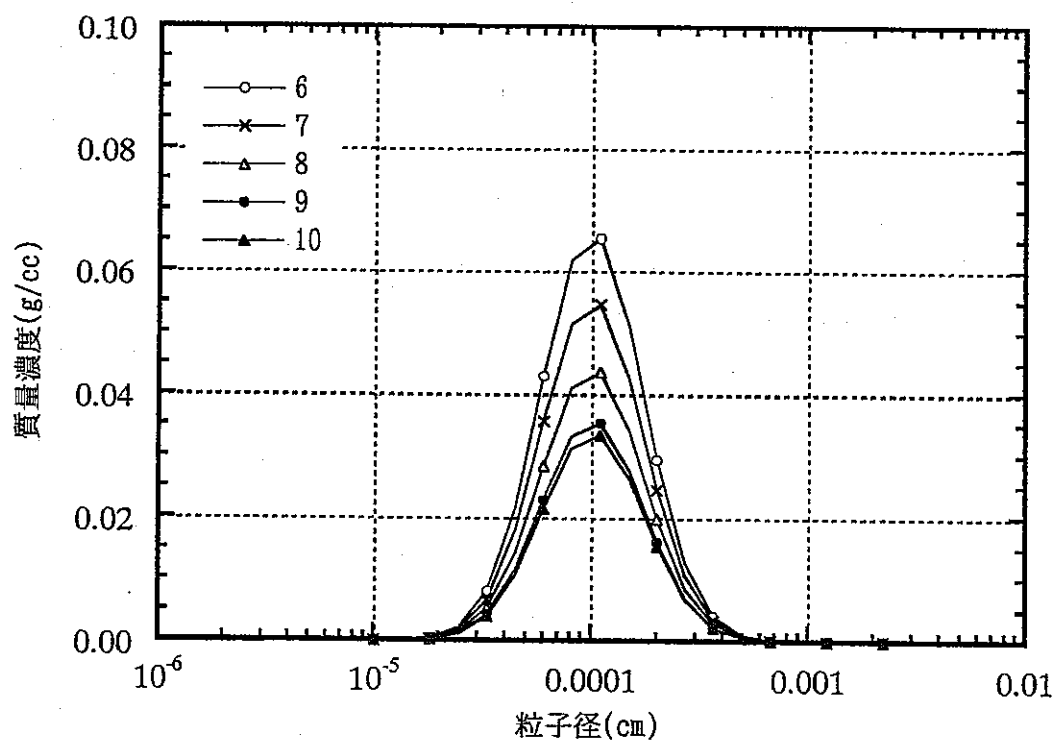


図 36 各メッシュ番号 (6-10) における粒径分布

図 37 にはノード番号が 11 から 15、すなわち火炎部からその上方 0.6mm までの粒径分布である。この領域でも火炎より下方と同様の粒径分布となっている。また火炎部から離れるほどに濃度が増加しており、火炎をはさんで対称な傾向となっている。

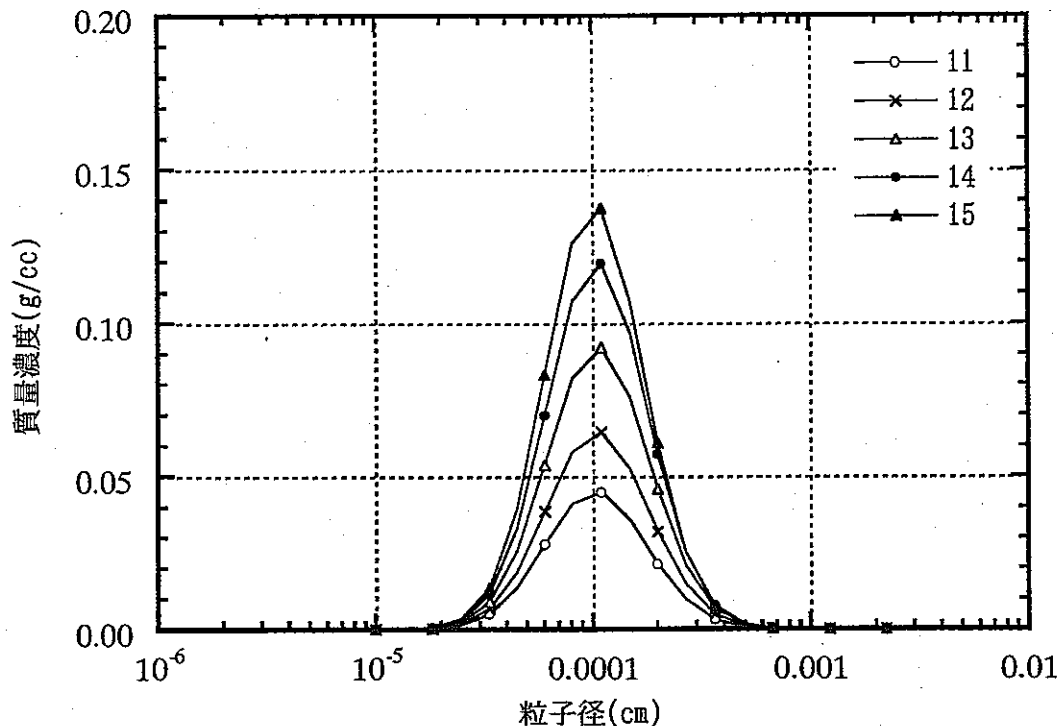


図 37 各メッシュ番号 (11-15) における粒径分布

図 38 はノード番号が 16 から 20、すなわちプール表面から 1.8mm、火炎から 0.6mm 上方の点以降の粒径分布である。この領域では火炎部から離れるほどに濃度が低下している。また中央値が小さい側にシフトしていることが分かる。大きい粒子は対流の効果により室内雰囲気へと輸送され、小さな粒子はすべるためにその場所にとどまることがその原因である。図 39 にはノード番号が 21 から 30、すなわちプール表面から 2.4mm から 3.6mm の粒径分布である。この領域では火炎部から離れるほどに急激に濃度が低下するとともに大きな粒子は重力沈降や対流輸送により消滅していることがわかる。粒径の中央値は $0.3\mu\text{m}$ 程度になっている。最後に図 40 にノード番号が 31 から 40、すなわちプール表面から 3.6mm から 4.7mm までの粒径分布を示す。この領域では初生分布の中央値である $1\mu\text{m}$ 以上の粒子はほとんど存在しない。そして、境界層の外側では対流が強いため、濃度はほぼゼロにまで低下する。

このように、火炎をはさんで上方と下方でエアロゾルの分布が異なること、また濃度も急激に変化している。このことはふく射伝熱の評価を行うときに、エアロゾルの分布を考慮することの重要性を示唆している。

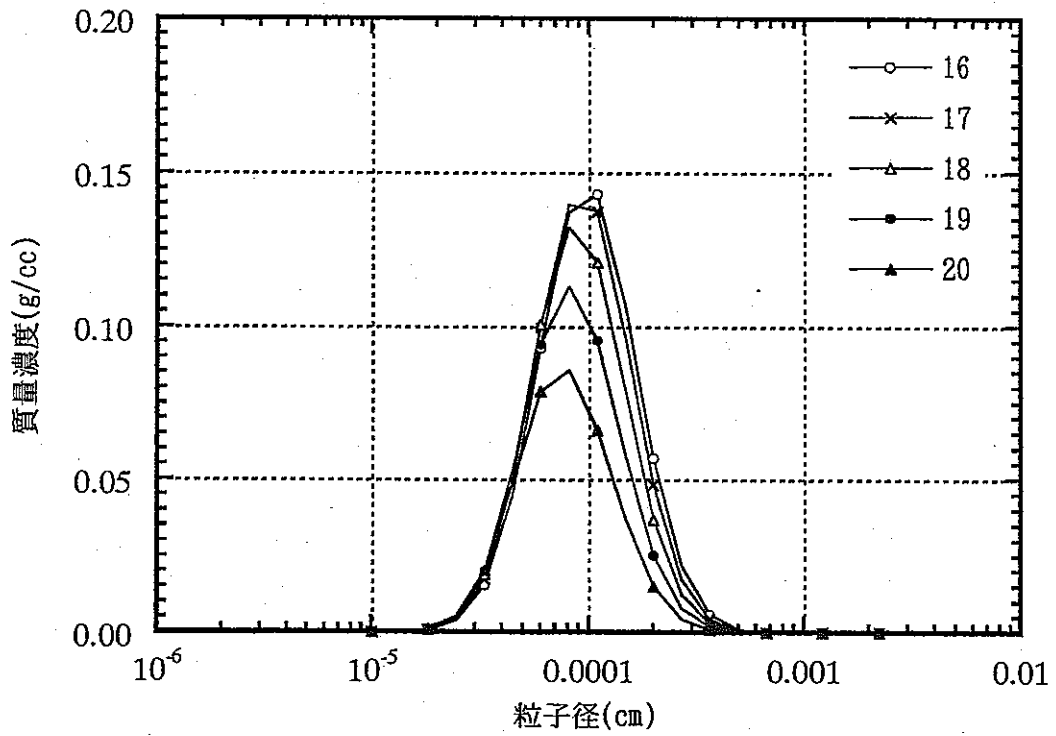


図 38 各メッシュ番号 (16-20) における粒径分布

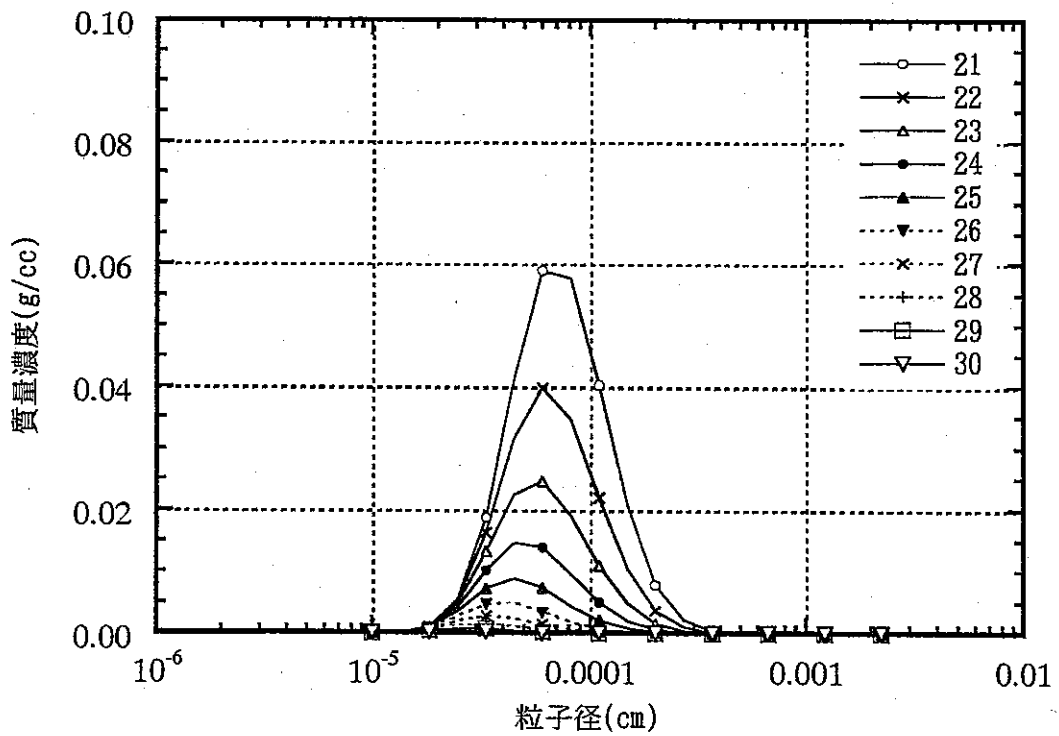


図 39 各メッシュ番号 (21-30) における粒径分布

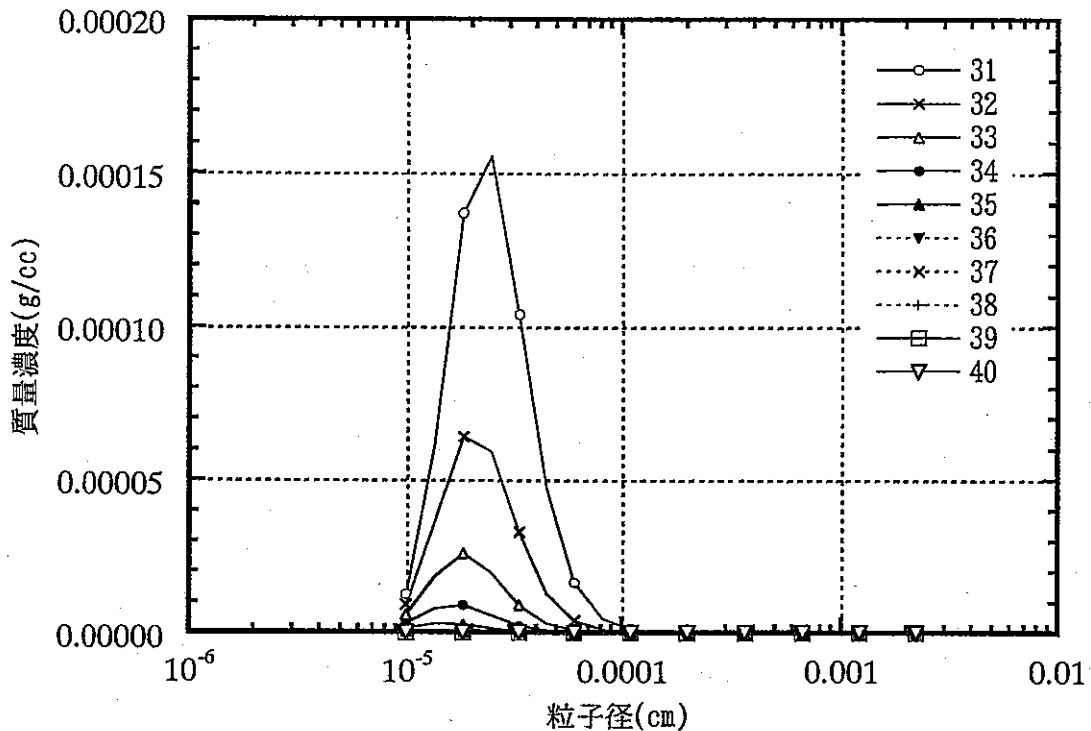


図 40 各メッシュ番号 (31-40) における粒径分布

エアロゾルの挙動をさらに詳しく調べるため、図 41 から図 45 に各点における熱泳動、重力沈降、ブラウン拡散、軸方向の対流、径方向の対流によるエアロゾル移動速度を示す。負の方向はプールに落下することに相当する。径方向の対流により、エアロゾルはプール上方から雰囲気中へ輸送され、この輸送量はエアロゾルの放出割合に関係してくる。

図 41 はプール表面のメッシュ、図 42 は火炎の直下 (プール側) のメッシュ、図 43 は火炎の直上 (雰囲気ガス側) のメッシュ、図 44 は火炎上方の境界層内部のメッシュ、図 45 は火炎上方境界層外部のメッシュにおける結果である。図 41 から、プール表面では熱泳動と径方向の対流が支配的である。また、数 μm を超える粒子では重力沈降が効き始める。一方、拡散はほとんど寄与していない。図 42 と図 43 より、火炎をはさんで、熱泳動の作用する方向が逆転していることがわかる。この領域では径方向の対流が支配的である。火炎から離れると図 44 に見られるように、軸方向の流速の影響があらわれ、図 45 の境界層外部ではほぼ対流が支配している。

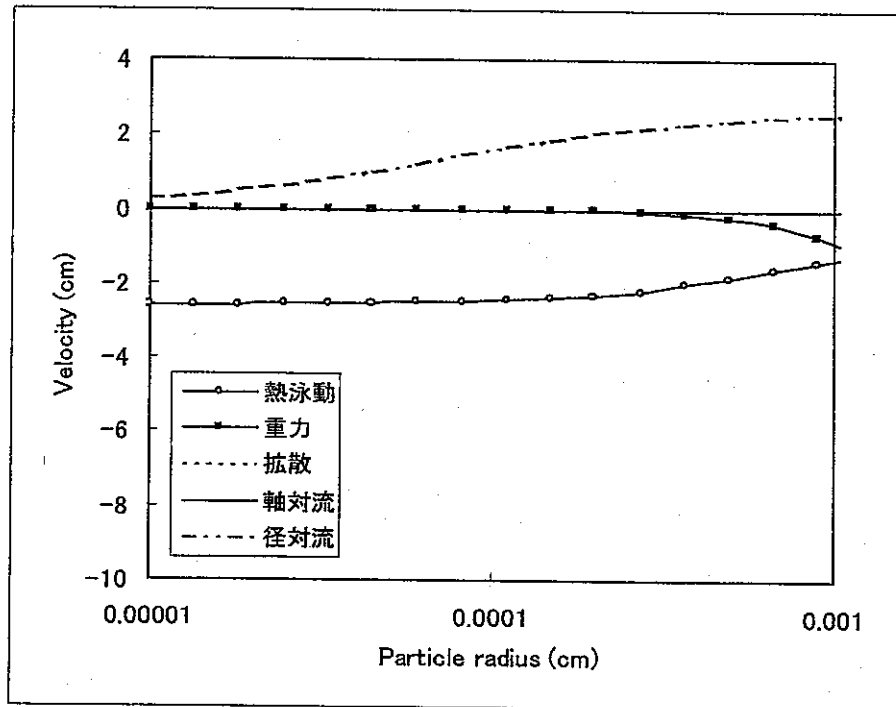


図 41 プール表面におけるエアロゾルの移動特性

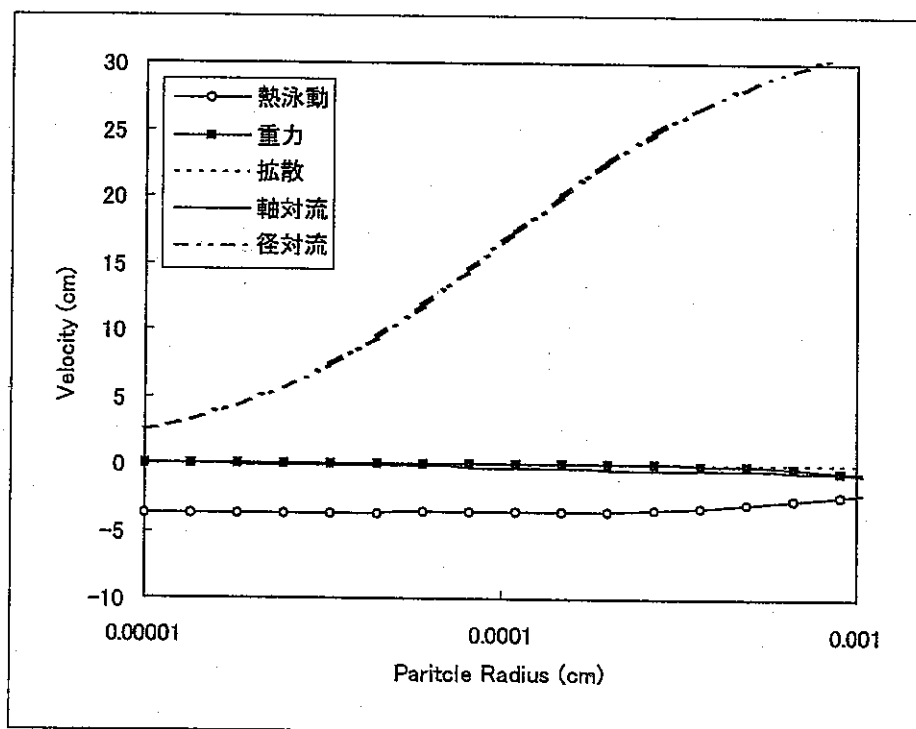


図 42 火炎直下（プール側）におけるエアロゾルの移動特性

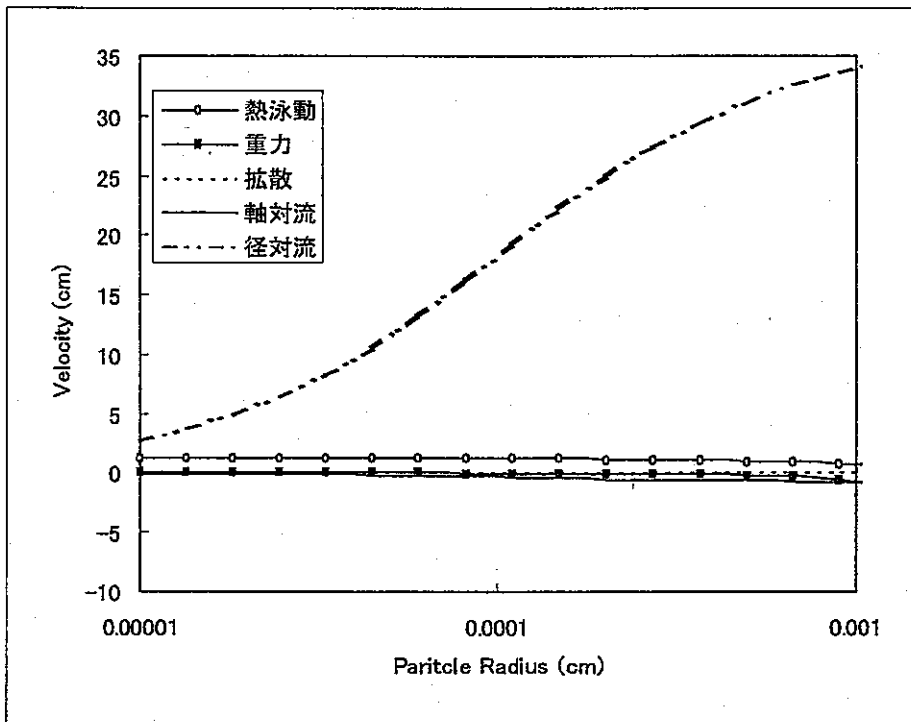


図 43 火炎上部（雰囲気ガス側）におけるエアロゾルの移動特性

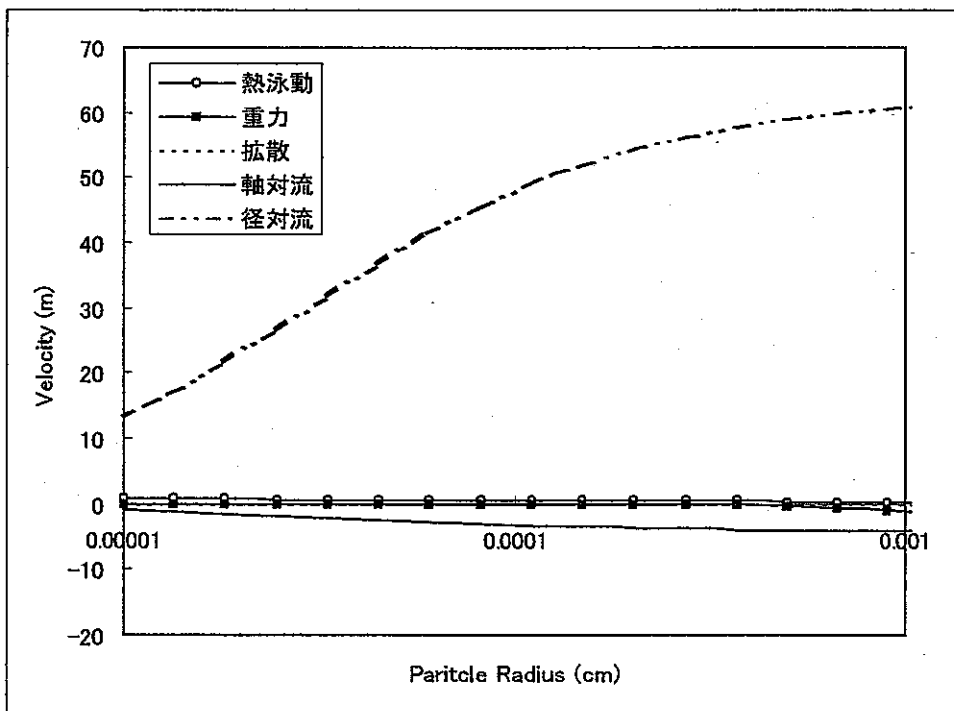


図 44 火炎上部の境界層内におけるエアロゾルの移動特性

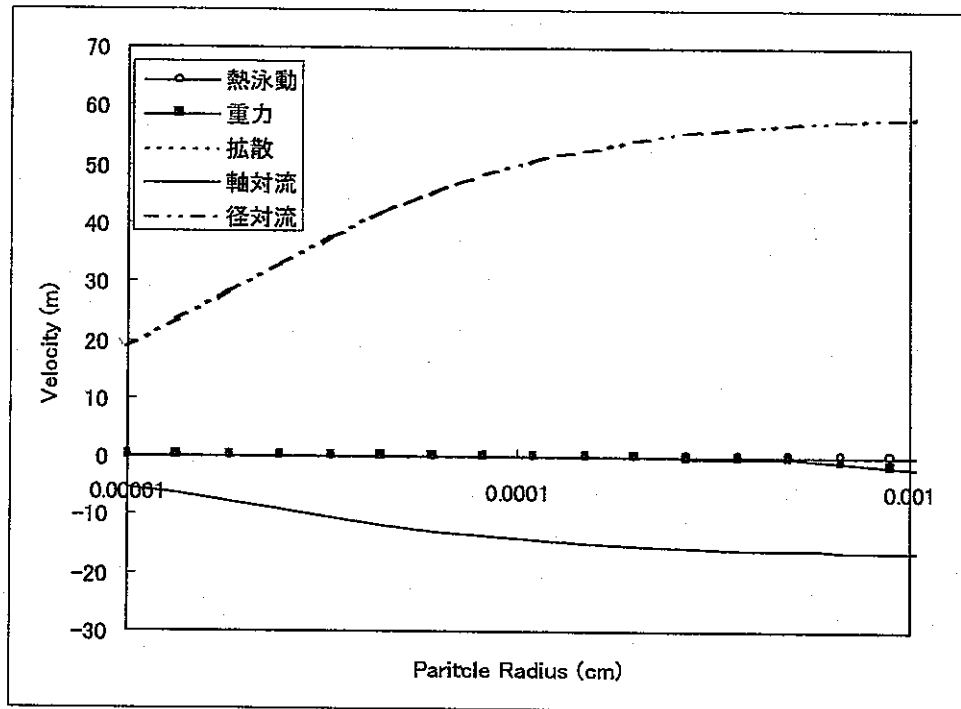


図 45 境界層外側におけるエアロゾルの移動特性

6. 結論

本研究では、プール燃焼火炎の解析を行うコードを開発し、ナトリウムプール燃焼実験の解析を行った。その結果、火炎の温度と位置、ナトリウム温度に関する Newman と Payne [7] の実験的知見が矛盾無く説明できることを示した。プール温度をパラメータとしてナトリウムプール燃焼率を解析した結果、実験データとの良好な一致が得られた。特に、プール温度が 1003 K 以上では外部から熱を加えなければプール温度を維持できないという実験結果はプール温度の上昇につれて伝熱メカニズムが変わることが原因であることを数値解析により示した。この結果から、ナトリウムプール燃焼は自己制御的で、燃焼率に対して負のフィードバックが作用することが分かった。

燃焼反応熱と反応生成物はナトリウムプールと雰囲気ガスへと輸送される。燃焼熱の輸送は伝導、対流、ふく射による。反応生成物の輸送は対流、熱泳動、ブラウン拡散、重力による。これらのうち支配的な輸送のメカニズムを数値解析によって明らかにした。プールへの伝熱メカニズムに関しては、ナトリウムの蒸気圧が低いことにより火炎高さが低いことから熱伝導によるプールへの伝熱が重要である。また燃焼により生成されるエアロゾルを媒体としたガスへのふく射伝熱が重要である。燃焼時の熱伝達は流動、化学反応、エアロゾルの挙動と密接に関連している点に注意して評価を行う必要がある。

開発した解析コードを実験結果と比較して妥当性を検証した。今後はナトリウム燃焼のメカニズム解明や安全評価に利用する予定である。燃焼影響評価を行う SPHINCS や AQUA-SF コードのモデルのパラメータマップの作成にも利用可能である。解析コードナトリウム燃焼の安全評価で対象とする現象は、さまざまな境界条件に依存する。例えば、プール温度やガス温度、ガス中の酸素濃度などである。数値シミュレーションの利点は、それらのパラメータを容易に変更して解析を行えることであり、また物理量が分布として得られるので詳細な分析が可能であることである。

今後の課題として、ふく射伝熱を評価するためエアロゾルの光学的特性を評価することと、火炎周辺での温度分布や化学種の濃度分布を測定することが望まれる。なお、初生エアロゾルの粒径分布に関しては、文献調査等により、個数基準中央半径で $0.1\mu\text{m}$ 、幾何標準偏差は 2.0 が適切であるとの結論を得た。

7. 参考文献

- [1] Yamaguchi, A., Takata, T. and Okano, Y., Numerical Methodology for Sodium Combustion Evaluation of Fast Reactor, Nuclear Technology (to be published) (2001).
- [2] N. Doda, H. Ninokata, H. Ohira, Prediction of release rate of burnt sodium as aerosol, NURETH-9, San Francisco, (1999)
- [3] 二神 敏他 4 名、ナトリウムプール燃焼実験 Run F7、PNC TN9410 98-074 (1998)
- [4] 二神 敏他 3 名、ナトリウム漏えい燃焼環境における床ライナの腐食発生条件確認実験 (Run F7-3, Run F8-1)、JNC TN9400 2000-092 (2000)
- [5] Okano, Y. and Yamaguchi, A., Direct Numerical Simulation of a Combustion Experiment of a Free-falling Liquid Sodium Droplet, Proc in 7th Intl. Conf. on Nucl. Eng. ICONE-7239, 2000.
- [6] Newman, R.N., The Ignition and Burning Behaviour of Sodium Metal in Air, Progress in Nucl. Energy, Vol. 12, No. 2, pp119-147, 1983.
- [7] Newman, R.N. and Payne, J.F.B., The Burning Rates of Sodium Pool Fires, Combustion and Flame, Vol. 33, pp291-297, 1978.
- [8] Newman, R.N., The vapor phase combustion of sodium, Barkley Nuclear Laboratories, RD/B/N2965 (1974)
- [9] Hinds, W.C., Aerosol Technology, Second Edition, John Wiley & Sons, Inc., 1999.
- [10] Cherdron, W. and Jordan, S., Determination of sodium fire aerosol process coefficients from FAUNA-Experiments, Proc. of CSNI Specialists Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety (1980)
- [11] H.J. Ettinger, W.D. Moss, H. Busey, Characteristics of the Aerosol Produced from Burning Sodium and Plutonium, LA-3491 (1966)
- [12] A Group of Experts of the NEA/CSNI, Nuclear Aerosols in Reactor Safety, June 1979.
- [13] Modak, A.T., Radiation from Products of Combustion, Fire Research, Vol. 1, 339-361, 1979.
- [14] JSME Data Book: Heat Transfer, 4th Edition, pp137, 1994 (in Japanese).
- [15] Hashiguchi, I., et al., Proc in Annual Meeting of Atomic Energy Society of Japan, Paper A55, 1978 (in Japanese).
- [16] 平成 3 年度安全研究成果、PNC ZN1410 92-114 改 1、p126、1992.

- [17] Felske, J.D., and Tien, C.L., *Combustion Science Technology*, 7(1973)25
- [18] Hottel, H.C., and Sarifim, A.F., *Radiative Heat Transfer*, McGraw-Hill, New York, 1967, Ch.6, pp.199, 246.
- [19] K.K. Murata, et al., *User's Manual for CONTAIN 1.1: Computer Code for Severe Nuclear Reactor Accident Containment Analysis*, NUREG/CR-5026, SAND87-2309 R4, November 1989.
- [20] Futagami, S., et al., *Pool Combustion Behavior of Liquid Sodium*, Proc. in 36th Japanese Symposium on Combustion, D311, 1998 (in Japanese).