

# ナトリウム液滴落下燃焼実験 (FD-2)

(研究報告)

2003年3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村松4番地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)  
2003

## ナトリウム液滴落下燃焼実験 (FD-2)

堂田 哲広\*, 大野 修司\*, 宮原 信哉\*

### 要旨

ナトリウム漏えい燃焼現象を詳細に理解し、それに基づく機構論的な評価手法を確立するための実験研究の一環として、これまでに最大落下距離 2.7m のナトリウム単一液滴の予備的実験を行い、実験技術の確認を行った。本研究では、液滴の燃焼と落下運動の関係を明らかにする事を目的とし、最大落下距離 8m の大型落下燃焼実験装置を用いて実験 (FD-2: Falling Droplet Test -2) を行った。

初期温度約 450℃, 初期直径約 5mm のナトリウム液滴を最大 8.0m 落下させ、落下時間, 着火遅れ時間, 初期液滴質量, 回収液滴質量を測定した。また, 落下燃焼する液滴の形状撮影を試みた。本実験で得た結果は, 以下のとおりである。

- 1) 燃焼液滴の 8m までの落下時間は, 従来モデルである液滴を剛体球と仮定した計算の落下時間よりも 11~23% 長かった。
- 2) 燃焼開始時間は 0.5~0.9 秒と幅があった。落下直後のナトリウム液滴は, その表面に酸化皮膜を生成した後に着火に至るためと考えられる。
- 3) 着火開始後の燃焼は, 強制対流下での液滴燃焼に対する蒸発係数を用いた  $D^2$  則で概ね記述できた。
- 4) 火炎の発光波長をフィルタによってカットできず, 火炎光そのものが撮影された。落下燃焼液滴の形状撮影はできなかった。

---

\*大洗工学センター 要素技術開発部 熱化学安全試験グループ

## Falling Sodium Droplet Experiment(FD-2)

Norihiro Doda\*, Shuji Ohno\*, Shinya Miyahara\*

### Abstract

Preliminarily sodium single droplet experiment of 2.7 meters fall had been done as part of the studies for understanding the burning behavior of sodium leakage combustion and establishment of the mechanistic evaluation method. This experiment, Falling Droplet Test -2, was done in order to more clarify the burning effect on falling movement of a sodium droplet with new apparatus that could have 8 meters long of falling distance in maximum.

Falling time, ignition delay time and burned mass of sodium could be measured in the case of 450°C of initial temperature and 5mm of initial diameter of a sodium droplet. Additionally, we tried to observe the shape of liquid surface of a falling and burning droplet. The experimental results are as follows:

- 1) The falling velocity of a burning droplet was 11~23% slower than that of conventional model calculation in which a droplet was assumed as a solid sphere.
- 2) Ignition delay time had a wide distribution between 0.5~0.9 seconds. The reason is guessed that a sodium droplet ignites, when its surface oxide film melts uncertainly.
- 3) The falling sodium droplet combustion after ignited could be described by the  $D^2$  law with using the evaporation coefficient under forced convection condition.
- 4) The shape of burning droplet's liquid surface was not observed, because the light of sodium flame could not be cut off with optical filter.

---

\*Thermochemistry Safety Engineering Group, Advanced Technology Division, OEC

## 目次

要旨.....	i
Abstract.....	ii
目次.....	iii
図表リスト.....	iv
1. はじめに.....	1
1.1. 研究の背景.....	1
1.2. 実験の目的.....	3
2. 実験方法.....	4
2.1. 実験装置.....	4
2.2. 測定項目.....	4
2.2.1. 落下時間.....	4
2.2.2. 着火遅れ時間.....	5
2.2.3. 初期液滴.....	5
2.2.4. 回収液滴.....	7
2.2.5. 液滴形状.....	7
2.3. 実験条件.....	8
3. 実験結果.....	9
4. 考察.....	10
4.1. 落下運動.....	10
4.2. 燃焼量.....	10
4.3. 今後の課題.....	12
5. おわりに.....	13
謝辞.....	14
参考文献.....	15
Appendix.....	32
1.1. パラフィン中に拡散したナトリウム量の分析.....	32
1.2. 液滴落下運動の計算.....	35
1.3. ナトリウム燃焼量の計算.....	36

図表リスト

表

Table 2-1 外径測定 of 校正データ(FD-2-2) .....	16
Table 2-2 外径測定 of 校正データ(FD-2-3) .....	16
Table 2-3 ナトリウム初期液滴の質量測定値の比較 (FD-2-3) .....	16
Table 2-4 実験条件一覧.....	17
Table 2-5 落下液滴燃焼実験の測定値 .....	18

図

Fig.2-1 落下液滴燃焼実験装置の模式図.....	19
Fig.2-2 落下液滴燃焼実験装置.....	20
Fig.2-3 液滴生成装置の模式図.....	21
Fig.2-4 液滴生成装置下部とその周辺機器 .....	22
Fig.2-5 スリットレーザ式通過検出計.....	23
Fig.2-6 レーザ投光部.....	23
Fig.2-7 レーザ受光部.....	23
Fig.2-8 高速度カメラで撮影した落下燃焼するナトリウム液滴.....	24
Fig.2-9 カラーイメージセンサーで撮影したナトリウム液滴.....	25
Fig.2-10 燃焼ナトリウム液滴の回収から保管までのプロセス.....	26
Fig.2-11 燃焼ナトリウム液滴の回収の様子.....	27
Fig.3-1 落下燃焼中のナトリウム液滴 .....	28
Fig.4-1 落下時間と落下距離.....	29
Fig. 4-2 落下距離とナトリウム燃焼量 (FD-2-3).....	30
Fig.4-3 ナトリウム燃焼量の測定値と予測値.....	31

## 1. はじめに

### 1.1. 研究の背景

高速増殖炉の 2 次系配管からナトリウムが漏えいした場合、ナトリウムの燃焼形態として、スプレー燃焼とプール燃焼が想定される。スプレー燃焼は配管のナトリウム漏えい部から床までの間でナトリウム液滴群が落下燃焼する現象である。ナトリウム液滴群は様々な大きさの液滴で構成されており、液滴の大きさによってその落下運動、着火条件、燃焼速度は変化することから、様々な大きさの液滴が含まれる液滴群の燃焼機構を詳細に調べる事は難しい。このため、液滴の落下燃焼の基礎研究として、単一液滴を対象とした落下燃焼研究が行われている。ナトリウムを使った単一液滴の落下燃焼実験は 1970 年代に Rockwell International で行われ、報告されている[1]。

一方、もんじゅのナトリウム漏えい事故を契機に、ナトリウム漏えい燃焼現象をより詳細に理解し、それに基づく機構論的な評価手法を確立するための実験研究が行われている。実験研究の一環として、サイクル機構 (JNC) はこれまでに最大落下距離 2.7m の装置を用いたナトリウム単一液滴の予備的実験を実施し、実験計測手法の改良点の提案および今後の実験で確認すべき重点項目を報告している[2]。具体的には、実験測定手法の改良点として、

①初期液滴質量測定時の不確定要素の排除、

②落下速度測定における精度の向上、

今後の実験で確認すべき項目として、

③落下距離が長い場合の落下運動挙動、

④火炎内の支配化学反応式の解明、

⑤着火前後での燃焼挙動の変化

を挙げている。

生成液滴の大きさは液滴の着火条件および燃焼量に大きく影響する事から重要であるが、予備的実験で使用した $\beta$ アルミナ固体電解質を用いた液滴生成装置は均一な大きさの液滴の安定生成、および大きさの正確な測定が困難であった。そこで本実験では、液滴生成の方法を滴下法、すなわち液滴をノズル先端に懸垂させ、液滴の自重とノズル先端部での表面張力の釣合いによってほぼ均一な液滴を生成させる方法にし、また生成液滴の大きさ測定の方法を滴下直後の液滴画像から測定する事にした。落下速度測定については、スリットレーザを用いた液滴の通過検出計を設置し、落下開始から測定地点までの経過時間を1ms単位で測定する方法を新たに採用した。液滴の落下距離については、予備実験装置に比べて約3倍の落下距離(8m)にした。着火前後での燃焼挙動の変化については、落下距離を変えた実験を行い、その燃焼量の変化によって調べた。また、液滴の変形が液滴の落下運動に影響する可能性がある事から落下燃焼中の液滴形状を撮影する事にした。

以上の考えから、今回実施する実験方針を次のように定めた。

- ①各液滴に対して、各測定を同時に行う。
- ②液滴生成の方法として滴下法を採用する。
- ③初期液滴質量の測定方法として非接触な光学的方法を採用する。
- ④着火開始時刻(着火遅れ時間)、落下時間、回収液滴質量の測定を行う。
- ⑤液滴の落下距離を最大8.0mとする。
- ⑥落下距離を変化させ、着火前後での燃焼挙動の変化を調べる。
- ⑦液滴の落下運動に影響する可能性がある液滴形状を撮影する。

なお、火炎内の支配化学反応式の解明は、本実験では行わなかった。



## 1.2. 実験の目的

本実験は、予備の実験で得た知見をもとに、詳細にナトリウム液滴の落下燃焼特性を調べる事を目的とする。とくに、落下距離の増加に伴う燃焼量の変化に着目する。

## 2. 実験方法

### 2.1. 実験装置

Fig.2-1 及び Fig.2-2 に示す落下液滴燃焼実験装置は、高さ 8.7m、内径 0.6m の鋼鉄製実験容器上部に設置した液滴生成装置からナトリウムを滴下し、エレベータで回収容器を移動し、任意の落下距離（0.5m～8.0m）で液滴を回収できる装置である。Fig.2-3 及び Fig.2-4 に示す液滴生成装置は最高 450℃まで昇温した液体ナトリウムを流調弁（Swagelok 製 SS-4BMRW）で調整しながら微流量でノズルに供給し、ノズル先端に懸垂した液滴の重量とノズル先端の周囲長さに沿って働く表面張力の釣合いによってほぼ均一の液滴を生成できる。計測機器として、光ファイバセンサ、カラー画像センサ、高速度カメラ、レーザ通過検出計、相対湿度計（桜エンドレス製 rh-plus2250）および熱伝導度式酸素濃度計、その他監視用の温度計が設置されている。

### 2.2. 測定項目

#### 2.2.1. 落下時間

液滴の落下開始とある落下距離までの経過時間を各液滴について測定した。落下開始時刻の測定は、落下する液滴がその光線を横切るように光ファイバセンサ（キーエンス製 FU-12, FD-V11）を水平方向に設置し、液滴がノズルから離れた瞬間を検出して行った（Fig.2-3, Fig.2-4）。滴下検出の最大時間遅れは、液滴がノズル先端から離れて光線を通過するまでの 0.026s であった。落下時間は Fig.2-1 に示す落下距離 1.9m, 3.7m, 5.7m, 8.0m の各位置に設置したスリットレーザ式通過検出計（キーエンス製レーザセンサ LX2：60 個使用）で、液滴が各検出計のレーザを遮った時刻を検出して測定した（Fig.2-5～Fig.2-7）。スリットレーザ式通過検出計の時間測定精度は 1ms である。但し、装置の仕様

から、本装置は落下距離 8.0m のケースでのみ使用した。

### 2.2.2. 着火遅れ時間

液滴は初め未着火のまま落下し、しばらく落下した後に着火する。落下開始から着火までの時間（着火遅れ時間）を高速度カメラ撮影により測定した。白黒高速度カメラ（フォトロン製 FASTCAM-Net1000, キヤノン製 PHF3.5 1.6 レンズ使用）を実験容器の観察用窓部（落下距離 5.67m の位置）から実験容器内部を見上げる角度で設置し、シャッタ間隔 1/125s, 露出時間 1/250s で撮影した。前述の光ファイバセンサの検出信号で録画を開始し、着火遅れ時間は、録画開始から液滴が着火するまでの時間を録画映像から読み取った。着火の判定は黒色の液滴映像が白色になった時点とし、部分着火と全周着火の区別はしていない。着火遅れ時間の測定範囲は視野の制限から 0.632s~0.864s である。撮影した画像を Fig.2-8 に示す。

### 2.2.3. 初期液滴

ノズルに供給される液体が微流量の場合、ノズル先端に懸垂した液滴の重量とノズル先端の周囲長さに沿って働く表面張力が釣り合い、ほぼ均一の大きさの液滴が生成される。従って、液滴生成装置で生成される液滴の大きさは、原理的には均一である。しかしながら、液体にナトリウムを使用した場合、ノズル先端の周囲長さがナトリウムの酸化反応、湿分との反応によって変化しやすく、生成される液滴の大きさの再現性は低くなってしまふ。そこで、本実験では次の方法で初期液滴質量を各液滴に対して測定する事にした。落下直後の液滴を撮影し、画像処理によって液滴直径、形状を求めて体積を計算し、ナトリウム温度から換算した密度を用いて初期液滴質量を求める。

撮影は、カラー画像センサ（キーエンス製 CV-750, 同社製焦点距離 16mm レンズ CV-L16）を使用し、液滴から約 10cm 離れた位置から、露出時間 1/10,000s のバックライト撮影で行った (Fig2-9)。撮影画像と実スケールの対応は、 $\pm 20 \mu\text{m}$  精度のベアリング用 SUS 製球 (4mm, 5mm, 6mm) を使用し、その外径測定値を基準として行った。具体的には、真空ポンプを用いてノズル内を負圧にして SUS 球をノズル先端に懸垂させ、負圧を開放して落下する SUS 球を撮影した。SUS 球をノズル先端に懸垂させて落下させるのは、液滴がノズル先端から落下し撮影されるのと近い状態にするためである。このスケール合わせは、各実験前に実施した。Table 2-1 及び Table 2-2 に FD-2-2 及び FD-2-3 実験前に実施した SUS 球の外径測定値を示す。これらのデータに基づく、実スケールと画素数の関係式を以下に示す。

FD-2-2 :

$$\text{(水平方向実スケール mm)} = 0.0544 \times \text{(画素数)} + 0.1510$$

$$\text{(垂直方向実スケール mm)} = 0.0535 \times \text{(画素数)} + 0.2167$$

FD-2-3 :

$$\text{(水平方向実スケール mm)} = 0.0541 \times \text{(画素数)} + 0.2242$$

$$\text{(垂直方向実スケール mm)} = 0.0540 \times \text{(画素数)} + 0.2327$$

ナトリウム液滴の質量測定の精度について調べるため、本装置による質量測定値と落下直後に回収した液滴中に含まれるナトリウム量（原子吸光分析値）を比較し、本装置の液滴質量の測定値が原子吸光測定値の相対標準偏差 2.5% 以内で一致する事を確認した (Table2-3)。よって、本装置の液滴質量測定の相対誤差を 2.5% とした。

#### 2.2.4. 回収液滴

液滴の落下速度は落下距離 8m の地点で約 6m/s に達する。この液滴を任意の落下距離で瞬時に消火し、かつ液滴を飛散させずに回収する必要がある。また、回収した液滴を分析するまでの間、化学的に安定に保管する必要がある。本実験では、直径 30cmSUS 製容器に入れた流動パラフィンを実験容器をアルゴンガスでバブリングし、その中に液滴を回収した (Fig.2-10, Fig.2-11)。アルゴンガスを吹き込む目的は、流動パラフィン液面に泡層を形成する事で液滴が液面に衝突する際の分裂または飛散を防ぐ事と不活性ガスを回収容器に充満させて液滴を瞬時に消火する事である。回収した液滴はピンセットで、流動パラフィンを入れたサンプル瓶に移して保管し、後日、水溶液化して原子吸光分析を行った。

液滴回収時にナトリウムが流動パラフィン中へ拡散する量および保管用サンプル瓶中のパラフィンへ拡散する量は、別途実施した流動パラフィン中のナトリウム質量分析を実施し、原子吸光分析による回収液滴質量測定の誤差 2.5% に対して無視できるほど小さい事を確認した (Appendix1.1 参照)。従って、回収液滴質量測定の相対誤差を 2.5% とした。

#### 2.2.5. 液滴形状

燃焼しながら落下するナトリウム液滴を高速度カメラにより撮影した。落下距離 8m の位置に、実験容器外の液滴落下軌道から約 2m 離れた位置に高速度カメラ (フォトン製 FASTCAM-Net1000) を水平に設置し、シャッター間隔 1/1,000s, 露出時間 1/20,000sec で撮影した。この時、燃焼の発光波長のほとんどはナトリウム D 線 (波長 589nm) であるとし、波長 589nm 付近以下の光を遮断するフィルタ (FUJIFILM 製 SC-58, 60, 62, IR-76) をカメラレンズに取り付けた。液滴形状撮影は実験容器窓部に取り付けてあるレーザカーテンを

一部外すため、レーザ機器を使用する落下時間測定を行わない FD-2-0A でのみ行った。

### 2.3. 実験条件

実験は FD-2-0, FD-2-0A, FD-2-1, FD-2-2, FD-2-3 の計 5 回実施した。FD-2-0 実験は測定装置の機能確認のみ、および FD-2-0A 実験は測定装置の機能確認および液滴形状撮影を試みた実験であり、FD-2-1 実験, FD-2-2 実験, FD-2-3 実験は、落下時間, 着火遅れ時間, 燃焼量の測定を目的に行った実験である。Table 2-4 に各実験の実験実施日, 雰囲気条件, 使用ノズル, 落下液滴の初期温度, 落下距離を示す。

### 3. 実験結果

FD-2-0A で行った液滴形状の撮影は、火炎の発光波長をフィルタによってカットする事ができず、火炎の発光そのものが撮影された。図 3-1 に撮影された落下液滴の映像を示す。撮影できなかった原因としては、①火炎の発光強度がフィルタの遮光能力を超えていた、あるいは②落下液滴燃焼の発光スペクトルは D 線 (589nm) が主ではなく、幅広い波長の分布を持っているためと考えられる。

FD-2-1 ではナトリウムが 2 滴又は 3 滴連続で滴下され、各液滴に対する測定を実施する事ができなかった。

FD-2-2 および FD-2-3 では、ナトリウム流調弁の開閉具合で液滴生成速度の制御ができるようになり、単一液滴の測定が可能となった。FD-2-2 および FD-2-3 の測定データを Table 2-5 に示す。初期液滴質量について、FD-2-2 では  $56.36 \pm 1.41 \text{mg} \sim 57.05 \pm 1.43 \text{mg}$ 、FD-2-3 では  $45.21 \pm 1.13 \text{mg} \sim 47.98 \pm 1.20 \text{mg}$  で測定された。FD-2-2 と FD-2-3 の初期液滴質量の平均値には約 10mg 程度の差が存在するが、両ケースとも同じ外径 1mm のノズルを使用している。この差は先述したようにノズル先端の状態（ナトリウムの酸化物、および湿分との反応物の付着によるよごれ）の影響によるものと考えられる。着火遅れ時間の測定結果は、値のばらつきが大きかった。これは、ナトリウム液滴の着火が液滴表面の酸化膜が溶融することに伴って起こると考えられることから、実験上、酸化膜の溶融がある程度の不確定性を持つことによって、着火までの時間がばらつきをもつものと推測される。

## 4. 考察

### 4.1. 落下運動

表 2-5 に示すように、落下時間について、FD-2-2 シリーズと FD-2-3 シリーズで大きな違いは見られなかった。これは両ケースの初期液滴直径の平均値 5.04mm と 4.75mm の差が 0.3mm 程度であるため、液滴の落下運動に対しては大きな差を生じなかったと理解される。従って、落下運動の評価にあたっては、FD-2-2 シリーズと FD-2-3 シリーズは初期液滴大きさが同じ条件の測定データとみなせる。

一般に、落下する燃焼液滴には主な駆動力として浮力、重力及び空気からの抗力が加わると考えられる。従来の研究では、液滴を剛体球と仮定して、その抗力を計算した落下運動の評価が行われている[2]。これは、等温場における剛体球の落下運動モデルで液滴の落下運動を模擬する事に相当する。

従来の抗力モデルを用いた液滴の運動方程式を 4 次のルンゲクッタ法で解いた結果（Appendix1.2.参照；FD-2-3-2 の結果を代表として表示）と実験測定値を Fig.4-1 に示す。総落下時間の実験値が 1.615～1.780s であるのに対して、計算値は 1.45s であり、燃焼液滴の実際の落下運動は計算モデルより 11～23%遅い事を確認した。この差は、実際の燃焼液滴は、液滴の変形、液滴表面および内部の流動、周囲ガス温度上昇による物性値の変化、液滴表面からの蒸発などが剛体球と異なっているためであると考えられる。そのモデル化については、今後の課題とした。

### 4.2. 燃焼量

燃焼量  $\Delta m$  は次式に示すように初期液滴質量  $m_i$  と回収液滴質量  $m_c$  の差から計算した。



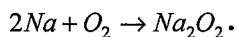
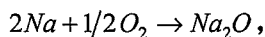
$$\Delta m = m_i - m_c \quad (1)$$

この時、燃焼量の測定誤差  $\delta m$  は、初期液滴質量の測定誤差  $\delta m_i$  と回収液滴質量の測定誤差  $\delta m_c$  の二乗平均から求められる。

$$\delta m = \sqrt{\delta m_i^2 + \delta m_c^2} \quad (2)$$

落下距離 8m の条件での  $\delta m$  の最大値は、 $\delta m_i$  が 1.43mg、 $\delta m_c$  が 1.11mg の時の 1.81mg である。この時の燃焼量  $\Delta m$  12.67mg に対しては 14.3%の相対誤差に相当する。落下距離 8m の条件では、燃焼量に対する相対誤差は 12.9～19.6%であった。

FD-2-3 シリーズは落下距離を変えた測定である。落下距離が着火位置に近い FD-2-3-5～FD-2-3-7 は、Fig.4-2 に示すように落下開始から着火までの燃焼量が無視できるほど小さい。従って、燃焼量の評価は着火後の燃焼のみを考えればよい。ただし、これは本測定の燃焼量がエアロゾルとして雰囲気中へ飛散したナトリウム量と定義し、ナトリウム酸化物が液滴表面に残る表面酸化反応による燃焼量を考慮していない事によるもので、着火までに表面反応がない事を示すものではない。燃焼モデルは、前報[1]と同じく強制対流下での液滴燃焼に対する蒸発係数を用いた  $D^2$  則を用いた。化学反応に以下の 2 式を考慮し、その割合を入力で与えた（詳しくは Appendix1.3.参照）。



燃焼率の計算に用いる液滴の落下速度は、落下時間測定値から求めた各計測区間の平均落下速度とした。測定値のない FD-2-2-3 及び FD-2-3-3～FD-2-3-5 については液滴の初期条件に近い FD-2-2-4 及び FD-2-3-2 の値をそれぞれ用いた。

燃焼量は、燃焼率を時間積分して求めた。積分区間は、燃焼開始とみなせる着火遅れ時間の測定値から燃焼が終了する回収容器までの落下時間の測定値までとした。燃焼量の計算値と測定値を Fig.4-3 に示す。計算の燃焼量は、反応式割合をパラメータとして含み、 $Na_2O$  のみが生成される場合が上限値、 $Na_2O_2$  のみが生成される場合が下限値の線分となる。また、測定値は測定誤差を含むため、横軸方向に  $2\delta$  の幅をもつ。誤差幅を各測定点の測定誤差の上限下限を結

んだ直線で示した。計算値と測定値を比較すると、計算値は測定値の誤差範囲内に入っており、測定精度に対して十分予測できているといえる。すなわち着火開始からの燃焼量は概ね  $D^2$  則で記述できると考える。しかしながら、燃焼量が大きいもの、すなわち FD-2-2-2, FD-2-2-3, FD-2-2-4 の場合は、計算値が測定値より若干過小評価する傾向があるようにとらえる事もできる。これは、今後の実験で比較する点数を増やす事により明らかにするものとする。

#### 4.3. 今後の課題

燃焼率は液滴落下速度の平方根に比例し、燃焼量はその時間積分値である。今回の燃焼モデルの評価は、落下時間の測定値と計算値で最大 23% の差があったため、落下運動については落下時間の測定値を用いて行った。落下時間を短く評価すれば、落下速度を速く評価する事になる。落下時間と落下速度の増加はそれぞれ燃焼率を増加、減少させる方向に働き、全体的には相殺する関係にあるが、燃焼率の時間変化の正確な予測のためには、落下運動モデルの修正が必要であると考え。この際、今回撮影できなかつた液滴形状変化の効果も含めて検討する必要がある。また、液滴径を変化させ、液滴の落下運動および燃焼挙動に与える影響もあらためて調べる必要があると考える。

## 5. おわりに

最大落下距離 8.0m の実験装置を用いて、初期直径約 5mm、初期温度 450℃ のナトリウム液滴の落下時間、着火遅れ時間、燃焼量の測定を各液滴に対して実施した。また、従来の燃焼モデルおよび落下運動モデルを用いた計算を行い、その評価を行った。得られた実験結果と評価結果を以下に示す。

- 1) 燃焼液滴の 8m までの落下時間は、従来モデルである液滴を剛体球と仮定した計算の落下時間よりも 11～23% 長かった。
- 2) 落下直後のナトリウム液滴は、その表面に酸化皮膜を生成した後に着火に至るため、燃焼開始時間は 0.5～0.9 秒と幅があった。
- 3) 着火開始後の燃焼は、強制対流下での液滴燃焼に対する蒸発係数を用いた  $D^2$  則で概ね記述できた。
- 4) 火炎の発光波長をフィルタによってカットできず、火炎の発光そのものが撮影され、落下燃焼液滴の形状撮影はできなかった。

今後の課題は、ナトリウム燃焼液滴の落下運動モデルの修正、液滴径および初期液滴温度が落下燃焼挙動に与える影響の評価である。

## 謝辞

本研究の実施にあたり，測定方法の考案及び装置製作に関して，東興機械工業株式会社鈴木和右氏，深作和男氏，米道剛氏，原子力技術株式会社加藤一憲氏にご協力いただきました。ここに記してこれら関係者の方々に感謝の意を表します。

参考文献

- (1) H. A. Morewitz, R. P. Johnson, and C. T. Nelson: Experiments on sodium fires and their aerosols, Nuclear Engineering and Design, Vol.42, pp.123-135, (1977).
- (2) 宮原信哉, 荒邦章: ナトリウム液滴落下燃焼実験 - 予備的実験の評価 - , PNC TN9410 98-065, (1998).
- (3) Bird, R. B., Stewart, W. E. Lightfoot, E. N.: Transport Phenomena, John Wiley and Sons, 190-194, (1960).

Table 2-1 外径測定 of 校正データ(FD-2-2)

球直径(mm)	4	5	6
水平方向(dot)	70.8	89.5	107.6
	70.6	89.7	107.3
	70.6	89.0	107.4
垂直方向(dot)	70.8	89.4	108.4
	70.6	89.6	108.1
	70.8	89.5	107.9

Table 2-2 外径測定 of 校正データ(FD-2-3)

球直径(mm)	4	5	6
水平方向(dot)	69.5	88.3	106.6
	69.6	88.3	106.6
	70.0	88.2	106.6
垂直方向(dot)	69.6	88.3	106.9
	69.9	88.4	106.7
	69.7	88.3	106.7

Table 2-3 ナトリウム初期液滴の質量測定値の比較 (FD-2-3)

試料名	CV-750 $m_{cv}$	原子吸光分析 $m_{at}$	$(m_{cv}-m_{at})/m_{at} \times 100$
予 1	48.83	47.78	2.16%
予 2	47.91	47.63	0.58%
I2	49.57	50.45	-1.77%
I3	47.35	47.01	0.73%
I4	47.12	47.66	-1.14%

Table 2-4 実験条件一覧

	FD-2-1	FD-2-2	FD-2-3
実施日	2002.7.22	2002.8.5	2002.8.22
雰囲気温度	36.6	33.8	30.0
雰囲気湿度	25.0	24.2	15.3
使用ノズル	SUS製 外径1mm	SUS製 外径1mm	SUS製 外径1mm
液滴初期温度※	450	450	450
落下距離 (m)	8.0	8.0	8.0, 5.7, 3.7, 1.9

※ノズル先端温度

Table 2-5 落下液滴燃焼実験の測定値

CASE	Total falling distance z (m)	Ignition Time delay $t_{ig}$ (s)	Initial mass $m_i$ (mg)	Collected mass $m_c$ (mg)	Burned mass $\Delta m$ (mg)	Falling time at some distance $T_z$ (s) ( $\pm 0.001s$ )			
						z=1.9 (m)	z=3.7 (m)	z=5.7 (m)	z=8.0 (m)
FD-2-2-1	8.0	0.610 $\pm$ 0.008	57.05 $\pm$ 1.43	44.38 $\pm$ 1.11	12.67 $\pm$ 1.81	0.660	1.027	1.352	1.687
FD-2-2-2	8.0	0.720 $\pm$ 0.008	56.36 $\pm$ 1.41	44.04 $\pm$ 1.11	12.32 $\pm$ 1.79	x	x	x	x
FD-2-2-3	8.0	0.710 $\pm$ 0.008	56.55 $\pm$ 1.42	42.73 $\pm$ 1.07	13.82 $\pm$ 1.78	0.636	0.980	1.344	1.779
FD-2-3-1	8.0	>0.864	47.45 $\pm$ 1.19	39.53 $\pm$ 0.99	7.92 $\pm$ 1.55	0.641	0.983	1.369	1.780
FD-2-3-2	8.0	0.790 $\pm$ 0.008	47.51 $\pm$ 1.19	39.14 $\pm$ 0.98	8.37 $\pm$ 1.54	0.642	0.967	1.273	1.615
FD-2-3-3	5.7	>0.864	47.63 $\pm$ 1.20	44.45 $\pm$ 1.12	3.18 $\pm$ 1.64	-	-	-	-
FD-2-3-4	5.7	0.864 $\pm$ 0.008	45.21 $\pm$ 1.13	41.40 $\pm$ 1.04	3.81 $\pm$ 1.54	-	-	-	-
FD-2-3-5	3.7	0.840 $\pm$ 0.008	47.92 $\pm$ 1.20	47.18 $\pm$ 1.18	0.74 $\pm$ 1.68	-	-	-	-
FD-2-3-6	1.9	-	47.98 $\pm$ 1.20	48.70 $\pm$ 1.22	-0.72 $\pm$ 1.71	-	-	-	-
FD-2-3-7	1.9	-	47.07 $\pm$ 1.18	46.88 $\pm$ 1.18	0.19 $\pm$ 1.67	-	-	-	-



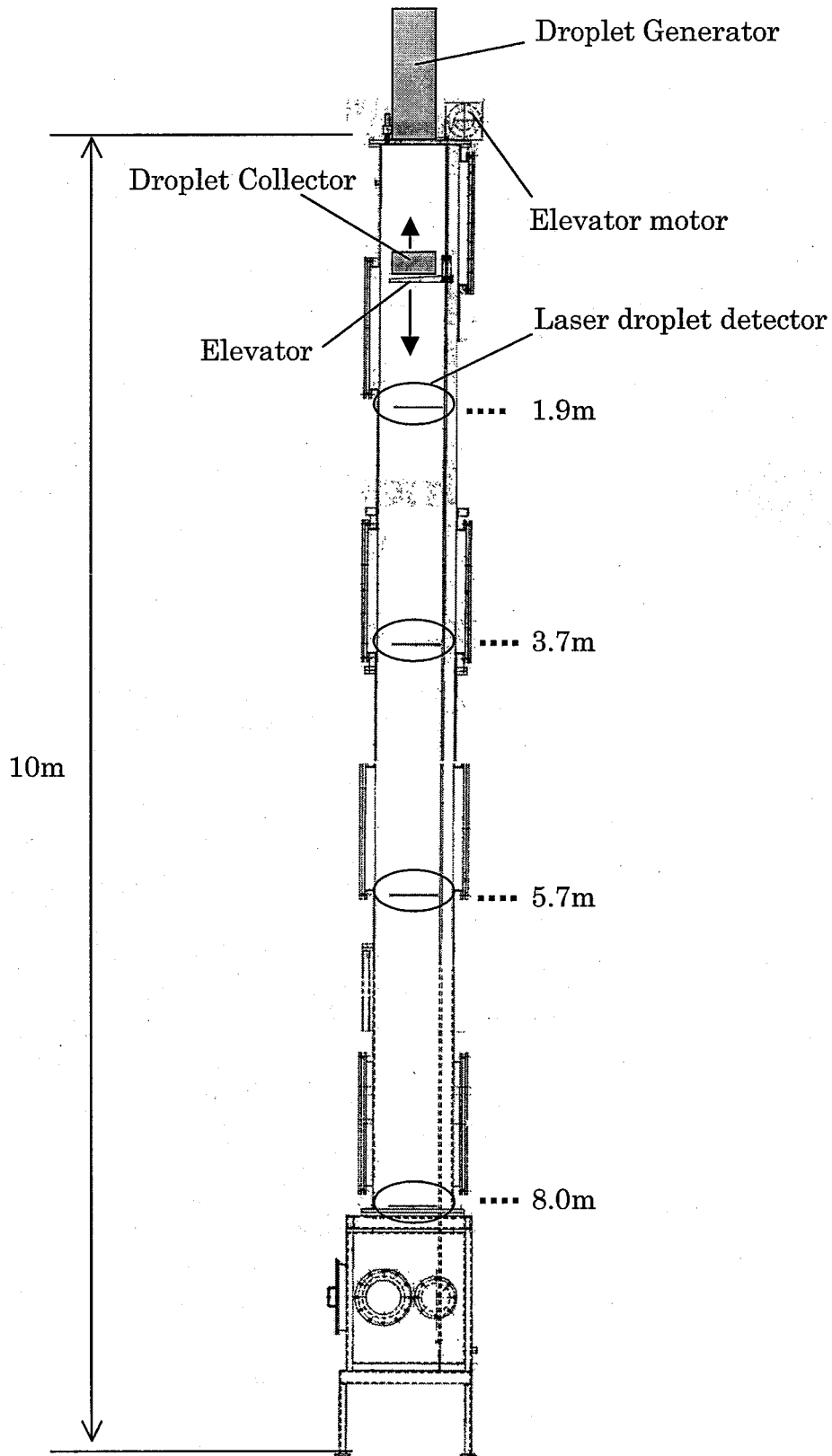


Fig.2-1 落下液滴燃焼実験装置の模式図.

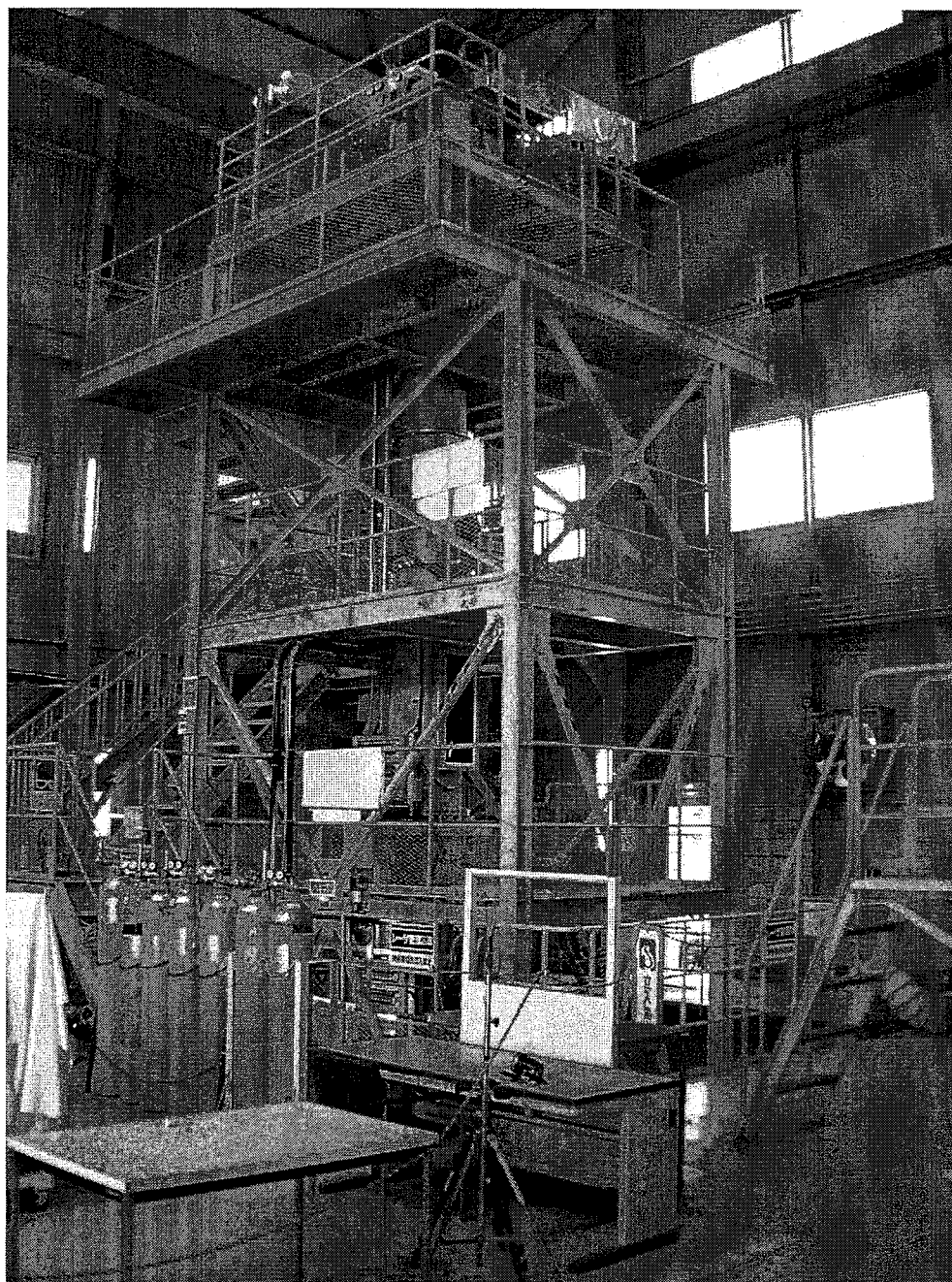


Fig.2-2 落下液滴燃烧实验装置.

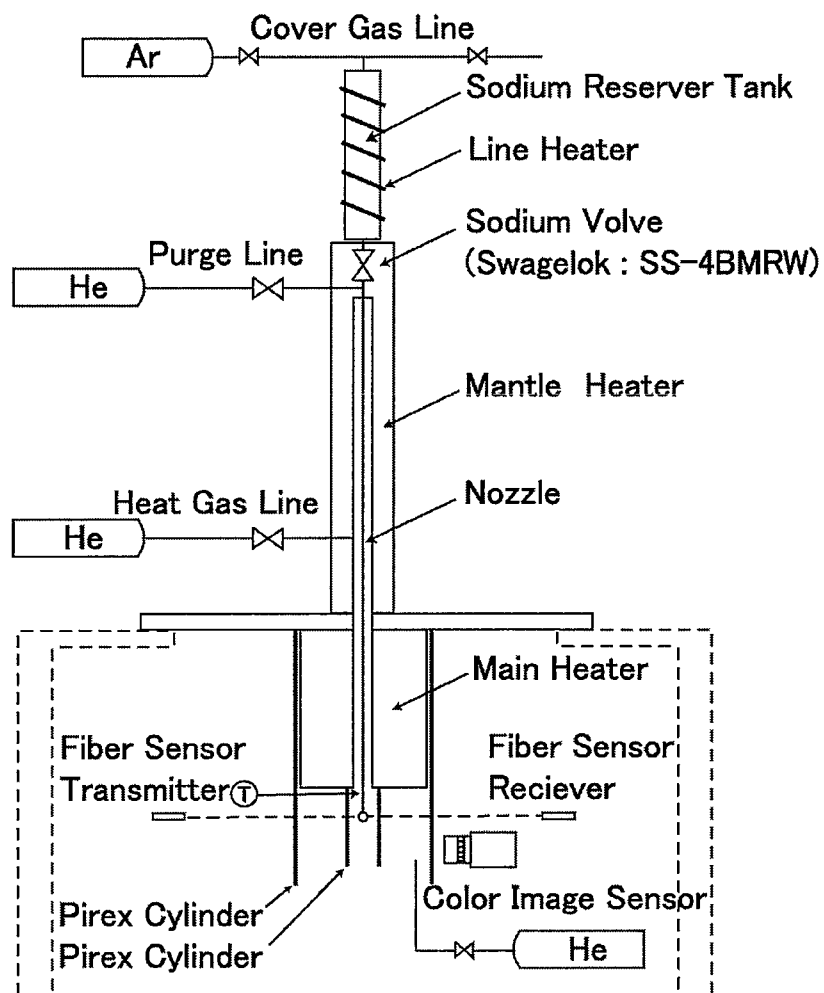


Fig.2-3 液滴生成装置の模式図.

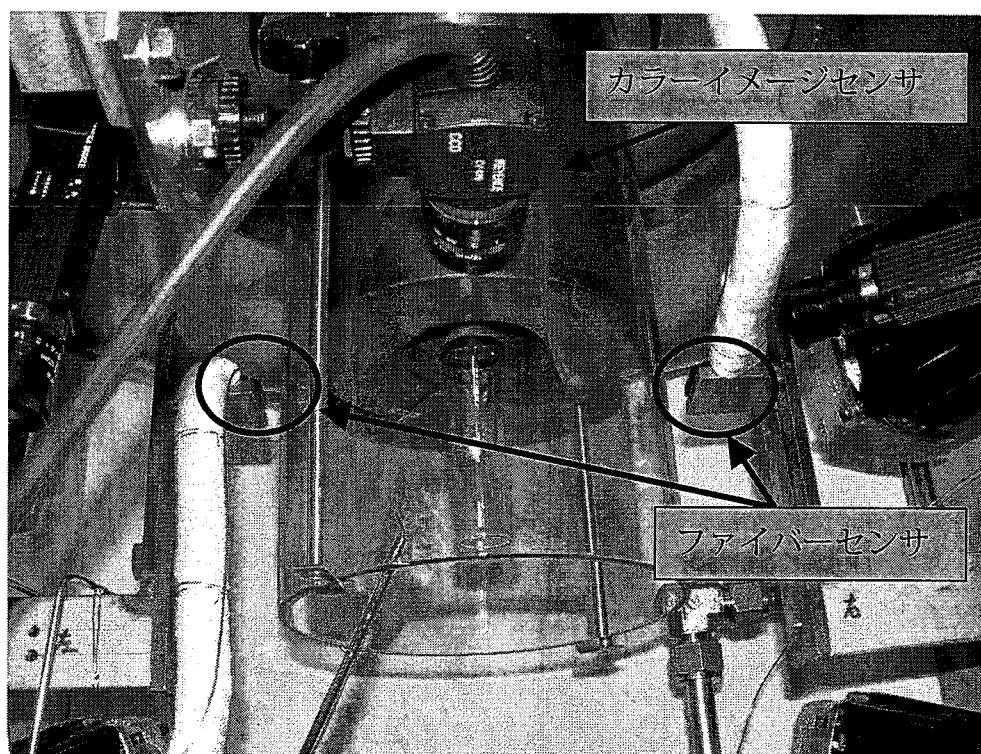


Fig.2-4 液滴生成装置下部とその周辺機器

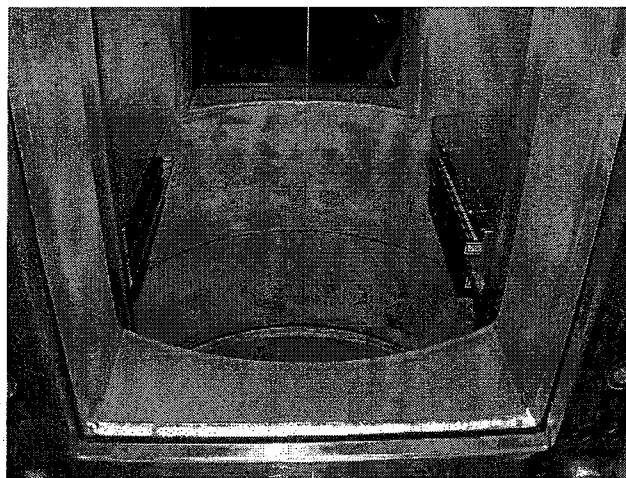


Fig.2-5 スリットレーザ式通過検出計.

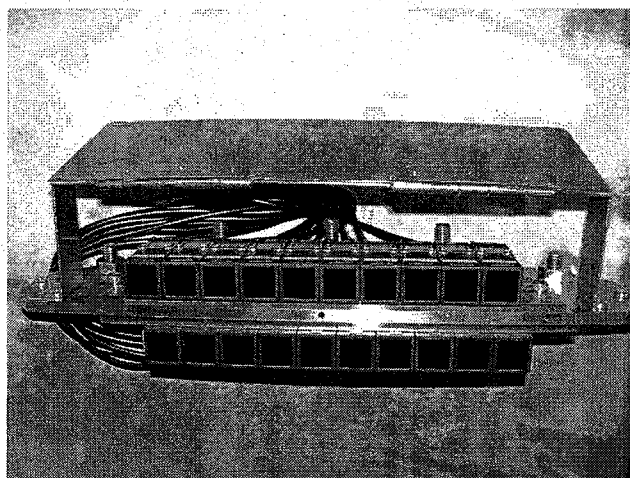


Fig.2-6 レーザ投光部.

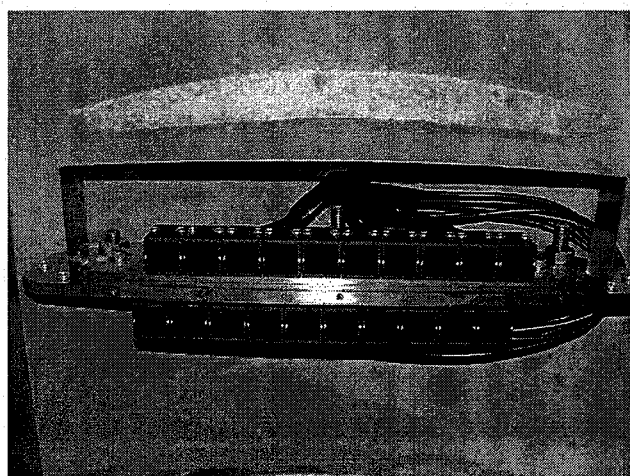


Fig.2-7 レーザ受光部.

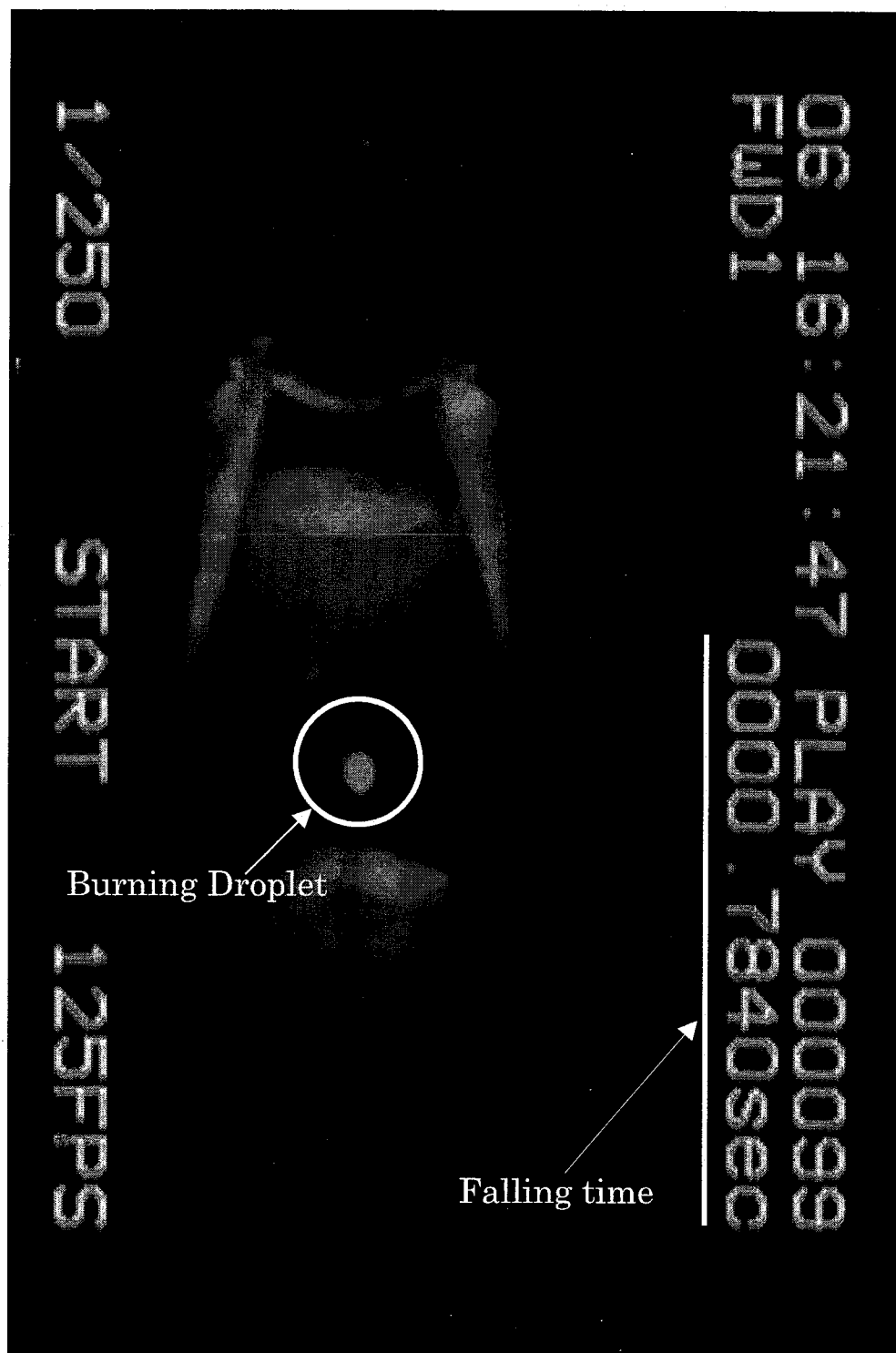


Fig.2-8 高速度カメラで撮影した落下燃焼するナトリウム液滴.

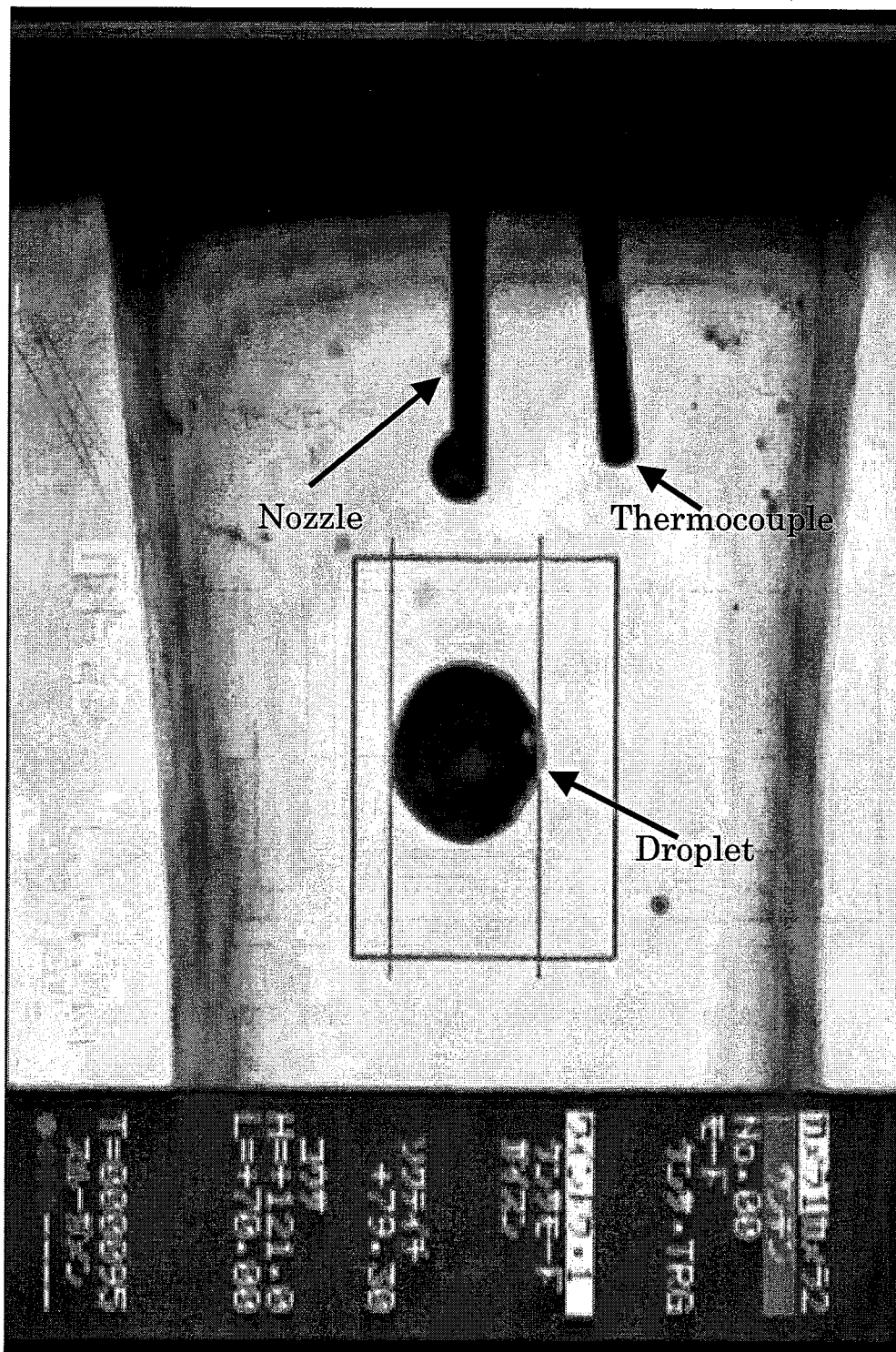


Fig.2-9 カラーイメージセンサーで撮影したナトリウム液滴.

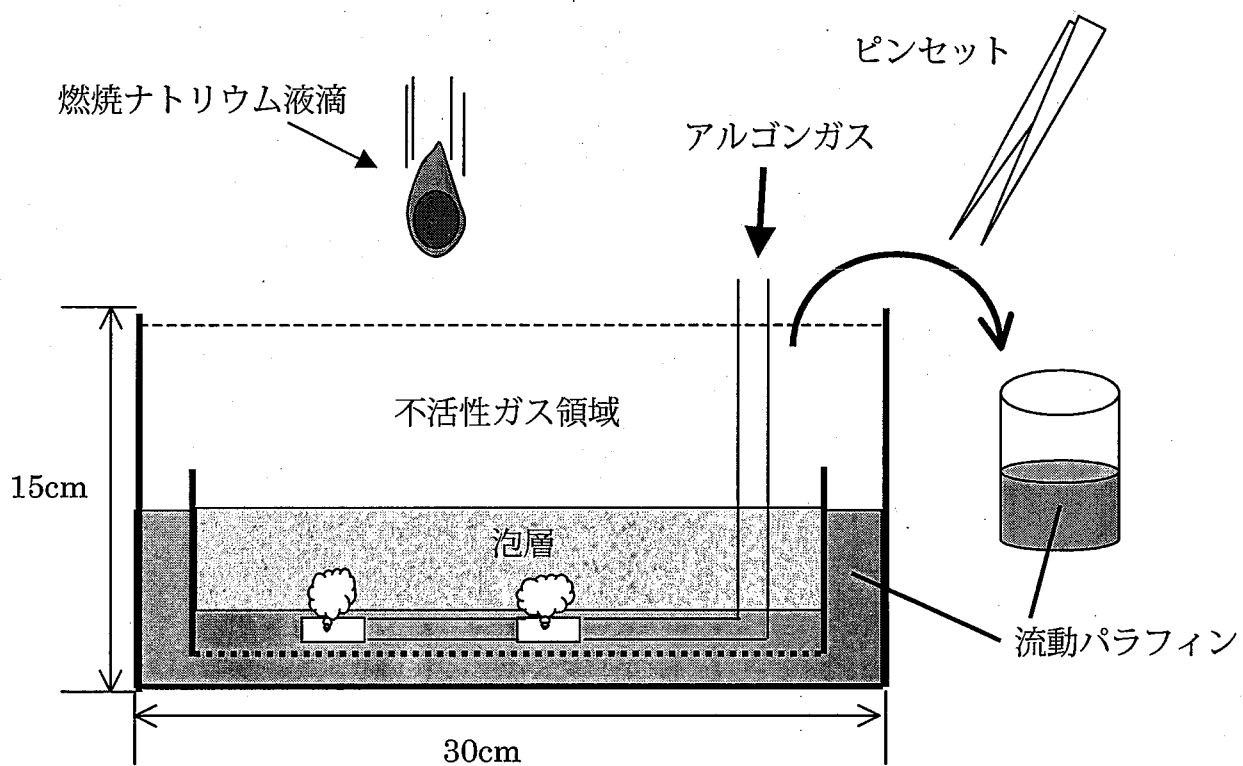


Fig.2-10 燃焼ナトリウム液滴の回収から保管までのプロセス.



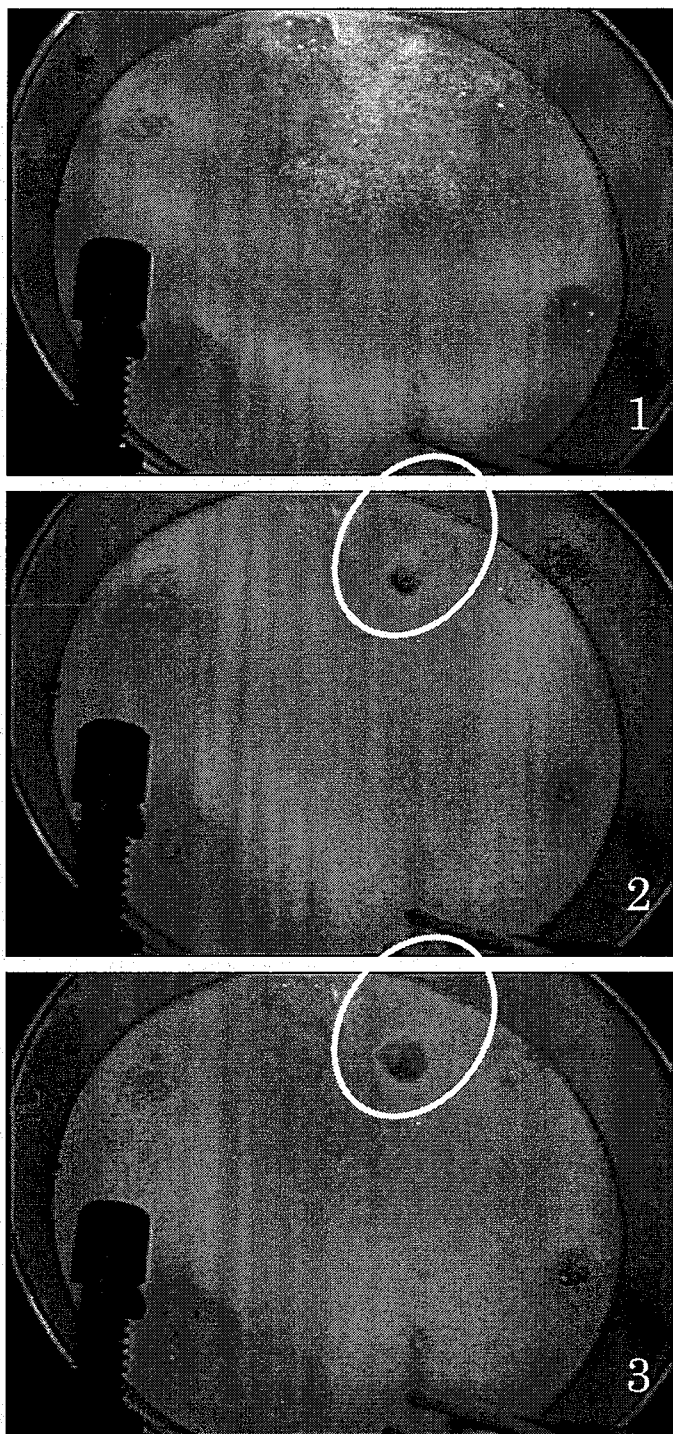


Fig.2-11 燃烧ナトリウム液滴の回収の様子.

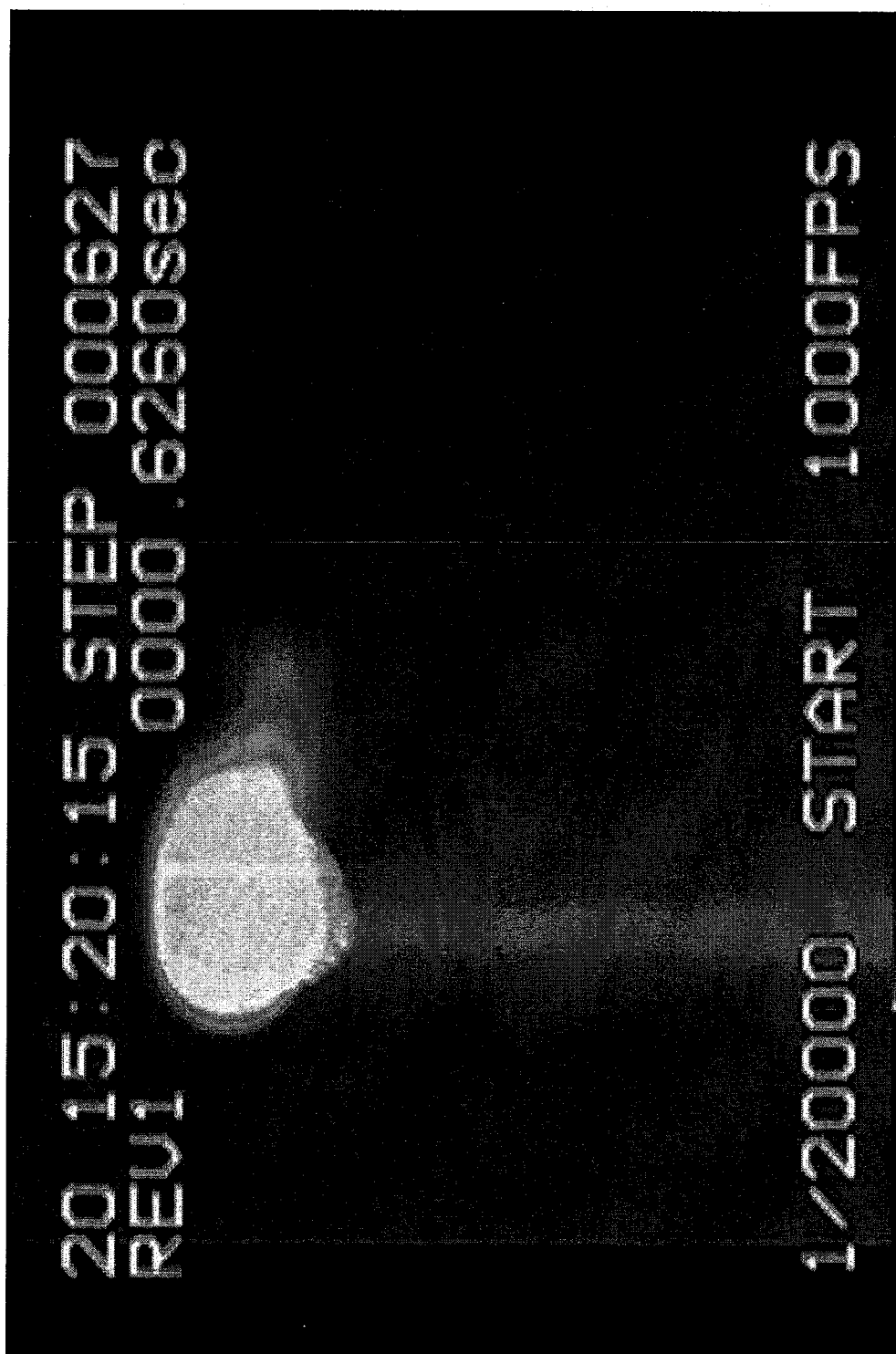


Fig.3-1 落下燃焼中のナトリウム液滴

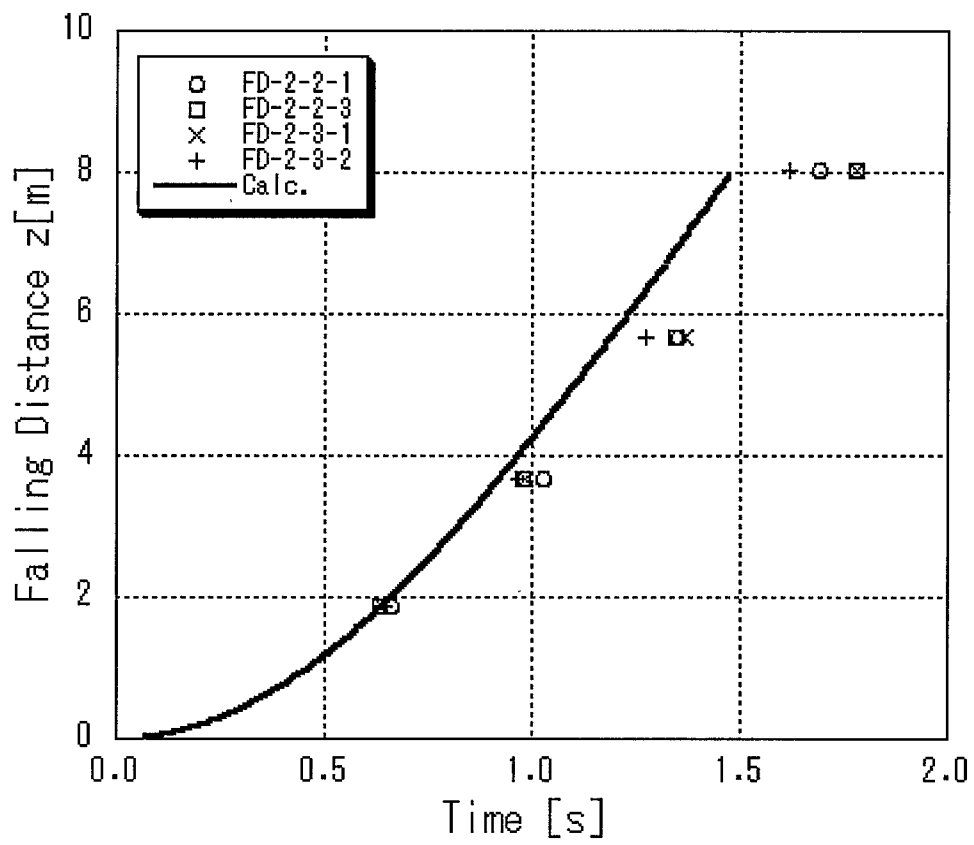


Fig.4-1 落下時間と落下距離.

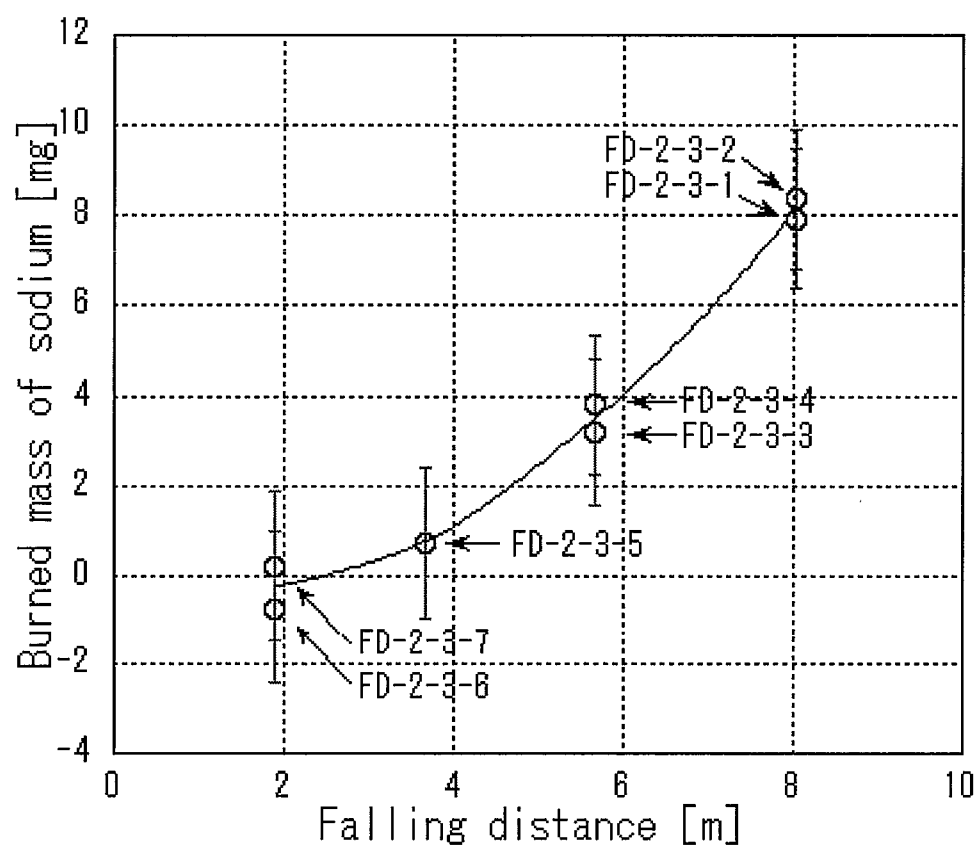


Fig. 4-2 落下距離とナトリウム燃焼量 (FD-2-3).

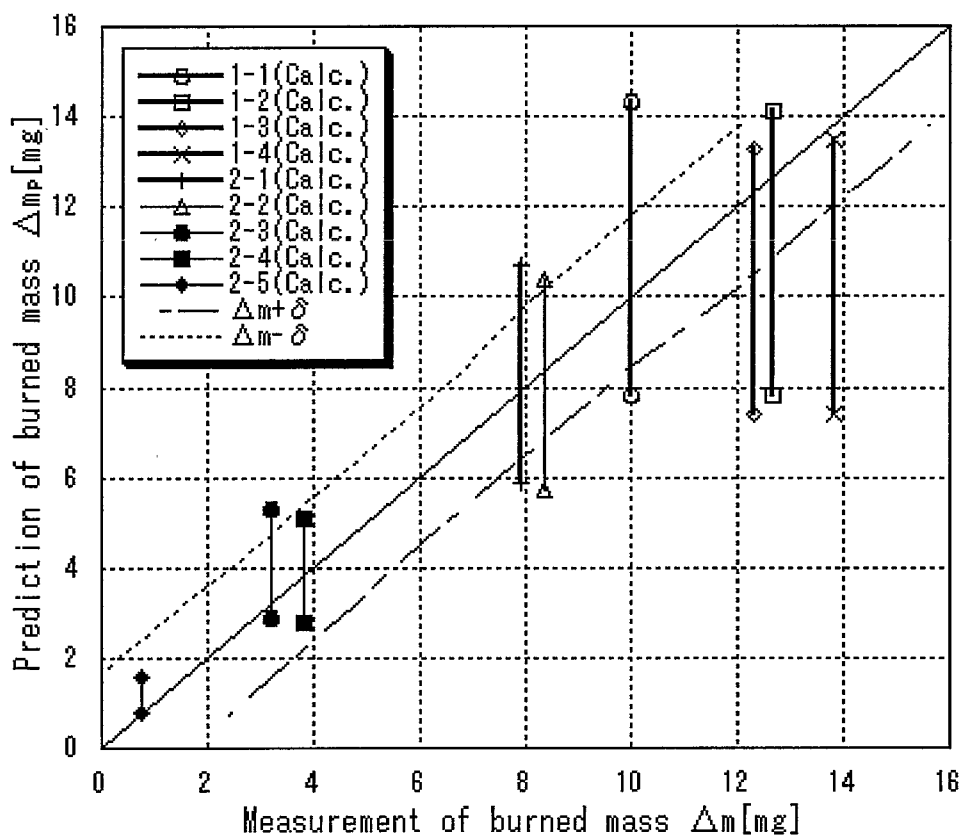


Fig.4-3 ナトリウム燃焼量の測定値と予測値.

## Appendix

## 1.1. パラフィン中に拡散したナトリウム量の分析

## (1) 回収容器のパラフィンに含まれるナトリウム量の測定

燃焼液滴の回収に用いたパラフィンをよく混合した場合、小さい粒径のものは空間的に均一に分散するが、大きい粒径のものは沈降して底部に偏って存在すると考えられる。そのため、粒径  $1\mu\text{m}$  以上のナトリウム粒子を  $1\mu\text{m}$  穴のガラスファイバ濾紙で濾過し、 $1\mu\text{m}$  以下のナトリウム粒子と分離してそれぞれ測定を行った。粒径  $1\mu\text{m}$  以上のものについては濾紙も含めてサンプルとし、 $1\mu\text{m}$  以下については液面付近、液中央、容器底付近の 3 点をサンプリングした。測定方法には ICP-AES または ICP-MS を用いた。TableA-1 に、FD-2-0A (54 滴回収) と FD-2-2 (5 滴回収) で使用したパラフィンに含まれるナトリウム量を示す。FD-2-2 の回収パラフィンに含まれていたナトリウム量は、 $1.63\text{mg}$  (粒径  $1\mu\text{m}$  以上)  $+0.231\text{mg}$  (粒径  $1\mu\text{m}$  以下の平均値)  $=1.861\text{mg}$  である。回収液滴 1 滴あたりに換算すると  $0.3722\text{mg}$  である。これは、液滴質量最小値  $42.73\text{mg}$  に対して  $0.87\%$ 、燃焼量最小値  $12.32\text{mg}$  に対して  $3.02\%$  である。本実験での液滴質量測定の精度は 2.2.4.節で示したように  $2.5\%$  程度、また燃焼量評価の精度は 4.2.節で示したように落下距離  $8.0\text{m}$  の条件では  $12.9\sim 19.6\%$  であり、液滴の回収プロセスが本実験の燃焼評価に与える影響は無視できる。回収液滴数が約 10 倍である FD-2-0A についても、各全ナトリウム量が 10 倍程度であり、同様な結果が得られた。

## (2) 保管用サンプル瓶のパラフィンに含まれるナトリウム量の測定

各保管用サンプル瓶のパラフィンを灰化した後、水溶液化し、ICP-AES または ICP-MS でナトリウム量を測定した。サンプル保管中にパラフィンへ拡散したナトリウム量 (TableA-2 の全ナトリウム量) は回収液滴質量の  $1\%$  以下であ

り，回収液滴質量測定では無視できる。

Table A-1. 回収容器のパラフィンへ拡散したナトリウム量  
粒径  $1\mu\text{m}$  以上のナトリウム粒子

試料名	採取部位	パラフィン全量 (L)	ナトリウム濃度 (mg/L)	全ナトリウム量 (mg)
FD-2-0A	全部	4.30	2.09	8.98
FD-2-2	全部	4.23	0.384	1.63

粒径  $1\mu\text{m}$  以下のナトリウム粒子

試料名	採取部位	パラフィン全量 (L)	ナトリウム濃度 (mg/L)	全ナトリウム量 (mg)
FD-2-0A	液面付近	4.30	0.388	1.67
	液中央		0.373	1.60
	容器底付近		0.463	1.99
FD-2-2	液面付近	4.23	0.0450	0.191
	液中央		0.0376	0.159
	容器底付近		0.0814	0.344
バック グラウンド	液面付近	4.40	<0.01	<0.04
	液中央		<0.01	<0.04
	容器底付近		<0.01	<0.04

Table A-2. 保管用サンプル瓶のパラフィンへ拡散したナトリウム量

試料名	パラフィン全量 (mL)	ナトリウム濃度 (mg/L)	全ナトリウム量 ( $\mu\text{g}$ )	回収液滴質量 (mg)
FD-2-2-1	9.8	0.31	3.04	44.38 $\pm$ 1.11
FD-2-2-2	8.1	1.3	10.8	44.04 $\pm$ 1.11
FD-2-2-3	10.4	4.3	45.1	42.73 $\pm$ 1.07
FD-2-3-1	10.3	3.4	35.3	39.53 $\pm$ 0.99
FD-2-3-2	9.8	1.2	11.5	39.14 $\pm$ 0.98
FD-2-3-3	10.8	1.5	16.2	44.45 $\pm$ 1.12
FD-2-3-4	9.8	0.39	3.86	41.40 $\pm$ 1.04
FD-2-3-5	11.4	0.21	2.43	47.18 $\pm$ 1.18
FD-2-3-6	10.0	0.87	8.70	48.70 $\pm$ 1.22
FD-2-3-7	13.0	0.27	3.56	46.88 $\pm$ 1.18



## 1.2. 液滴落下運動の計算

落下する燃焼液滴には、浮力、重力及び空気からの抗力が加わると考えられる。これは、一般に以下の式で記述する事ができ、4次のルンゲクッタ法で解いた。

$$\frac{dV}{dt} = \frac{(\rho - \rho_{gas})}{\rho} g - \frac{3}{4} \frac{C_D}{d} \frac{\rho_{gas}}{\rho} V^2 \quad (1)$$

ここで、Vは液滴落下速度、 $\rho$ は密度、gは重力加速度、 $C_D$ は抗力係数、dは液滴の質量等価直径をあらわす。

実際の燃焼液滴に加わる空気抵抗は、液滴の変形、周囲ガス温度上昇による物性値の変化、液滴表面の蒸発による物質移動などにより剛体球に加わるそれとは異なるが、簡単のためナトリウム液滴を剛体球と仮定した。

抗力係数の関係式として次の剛体球の式を用いた[3]。

$$C_D = 24/Re \quad ; \quad Re < 0.1 \quad (2)$$

$$C_D = 2.6 + 23.71/Re \quad ; \quad 0.1 \leq Re < 6 \quad (3)$$

$$C_D = 18.5/Re^{0.6} \quad ; \quad 6 \leq Re < 500 \quad (4)$$

$$C_D = 4/9 \quad ; \quad Re \geq 500 \quad (5)$$

$$Re = \rho_{gas} V d / \mu_{gas} \quad (6)$$

物性値は温度 T[K] の関数として以下に示す。

$$\text{ナトリウム密度 } \rho \text{ [kg/m}^3] \quad : \quad \rho = 950.1 + T(-0.22976 + T)(-1.46 \times 10^{-5} + 5.638 \times 10^{-9} T)$$

$$\text{ガス密度 } \rho_{gas} \text{ [kg/m}^3] \quad : \quad \rho_{gas} = 1.293 / (1 + 0.00367 T_{gas})$$

$$\text{粘性係数 } \mu \text{ [Pa}\cdot\text{s}] \quad : \quad \mu = 4.2 \times 10^{-6} T_{gas}^{0.56}$$

$$\text{熱伝導度 } \lambda \text{ [cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{K}] \quad : \quad \lambda = 1.05^{-6} T_{gas}^{0.71852}$$

### 1.3. ナトリウム燃焼量の計算

着火開始（落下開始から着火遅れ時間経過後）から液滴回収までのナトリウム燃焼量を計算した。液滴燃焼モデルとして、前報[2]と同じく強制対流下での液滴燃焼に対する蒸発係数を用いた  $D^2$  則に基づく以下のモデルを用いた。

$$\dot{m} = \frac{8}{\rho C_p} \frac{\lambda}{C_p} \ln(1+B) (1 + 0.276 \text{Re}^{1/2} \text{Pr}^{1/3}) \quad (7)$$

$$B = \frac{1}{H_{fg}} \left[ C_p (T_{gas} - T_{surface}) + \frac{q Y_{O_2}}{WV} \right] \quad (8)$$

$$\text{Re} = \rho_{gas} V d / \mu_{gas} \quad (9)$$

$$\text{Pr} = \nu / \alpha \quad (10)$$

ここで、 $\dot{m}$  は燃焼率、 $\rho$  はナトリウム密度、 $\lambda$  と  $C_p$  は液滴周囲ガスの熱伝導率と定圧比熱、 $B$  は伝達数、 $\text{Re}$  はレイノルズ数、 $\text{Pr}$  はプラントル数である。 $H_{fg}$  は液滴の蒸発潜熱、 $q$  はナトリウム 1g の燃焼熱量、 $Y_{O_2}$  はガス中の酸素モル分率、 $W$  は酸素分子量、 $\nu$  は単位質量あたりのナトリウムと反応する酸素のモル数である。 $\rho_{gas}$  は空気密度、 $V$  は液滴と周囲気体の相対速度、 $d$  は落下液滴の質量相当直径、 $\mu$  と  $\nu$  は空気の粘性係数と動粘性係数、 $\alpha$  は空気の温度伝導度である。

化学反応に以下の 2 式を考慮し、



反応生成物の  $\text{Na}_2\text{O}_2$  成分のモル分率  $X_{\text{Na}_2\text{O}_2}$  を入力で与えて、 $\nu$  を求めた。

$$\nu = \frac{\{1/2 X_{\text{Na}_2\text{O}_2} + 1/4(1 - X_{\text{Na}_2\text{O}_2})\}}{22.9898} \quad (13)$$

液滴のナトリウム 1g の燃焼熱量  $q$  [cal/g] は、以下の式から求めた。

$$q = 3275 X_{\text{Na}_2\text{O}_2} + 3777(1 - X_{\text{Na}_2\text{O}_2}) \quad (14)$$

液滴と周囲気体の相対速度  $V$  は、落下距離 1.9m, 3.7m, 5.7m, 8.0m で測定した落下時間から求めた平均速度を用いた。

使用した物性値は以下のとおりである。ここで、 $T$ [K]は温度を表す。

$$\text{ナトリウム密度 } \rho \text{ [kg/m}^3\text{]} \quad : \rho = 950.1 + T(-0.22976 + T)(-1.46 \times 10^{-5} + 5.638 \times 10^{-9} T)$$

$$\text{ガス密度 } \rho_{\text{gas}} \text{ [kg/m}^3\text{]} \quad : \rho_{\text{gas}} = 1.293 / (1 + 0.00367 T_{\text{gas}})$$

$$\text{ガス粘性係数 } \mu \text{ [Pa}\cdot\text{s]} \quad : \mu = 4.2 \times 10^{-6} T_{\text{gas}}^{0.56}$$

$$\text{ガス熱伝導度 } \lambda \text{ [cal/cm}\cdot\text{s}\cdot\text{K]} \quad : \lambda = 1.05^{-6} T_{\text{gas}}^{0.71852}$$

$$\text{ガス定圧比熱 } C_p \text{ [cal/g}\cdot\text{K]} \quad : C_p = 0.2316 + 4.61 \times 10^{-5} T_{\text{gas}}$$

$$\text{ナトリウムの蒸発潜熱 } H_{\text{fg}} \text{ [cal/g]} \quad : 925.6$$