

ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究  
—ナトリウム静止液滴燃焼実験—  
平成12～13年度共同研究成果報告書  
(研究報告)

2002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  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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

JNC TY9400 2003-008

2002年3月

## ナトリウム液滴の燃焼挙動に関する研究

### —ナトリウム静止液滴燃焼実験—

(平成12~13年度共同研究成果報告書)

佐藤研二\*

#### 要　旨

ナトリウム液滴の燃焼挙動の現象論的解明に向けて、液滴の着火挙動や着火後の燃焼挙動を詳細に把握することを目的に、静止ナトリウム液滴を対象として、97年度より一連の実験的研究を行い、これまでに、空気流中で静止液滴の自然着火現象を実現して観察する基本的な実験手法を確立し、高速度カメラを用い液滴表面および近傍の着火時の様子の時間変化の観察を行ってきた。

本研究では、ナトリウム液滴の着火および燃焼の挙動と機構の解明にとって重要な液滴ならびに火炎の温度を、熱電対を用いて計測するシステムを構築した。さらに、液滴が懸垂状態で所定の初期直径まで成長する間に生じる酸化皮膜の形成を極力防止するために、液滴生成系の改善を図った。

温度測定系構築においては、時間応答性のよい測定ができるように熱電対にシリカ被覆をほどこした素線径 $20\mu\text{m}$ の微細なR型熱電対を用い、パルスモーター、モーター回転制御装置、遅延装置を組み合わせて熱電対を迅速に動かす移動装置を製作してその動作を確認した。液滴温度測定時の出力信号に付随するノイズの除去、熱電対表面の被覆の効果と影響等について今後検討の余地があるが、着火過程の気相中で応答性のよい温度測定結果が得られ、着火過程での詳細温度測定の基本となる手法が確立された。

---

\* 東邦大学理学部物理学科

JNC TY9400 2003-008

March, 2002

Study on Combustion Behavior of Sodium Droplet  
- Combustion Experiment of Suspended Sodium Droplet -  
JFY2000-2001 Joint Research Report

Kenji Sato\*

### Abstract

Experimental studies have been performed since JFY1997 for the combustion of suspended sodium droplet in order to understand the detailed phenomenology of its ignition and burning behavior. The author has accumulated to date the high-speed camera picture data of change in a droplet surface and its neighboring gas phase of spontaneous ignition of suspended sodium droplet in air flow, after establishing fundamental experimental techniques to observe the process.

In the study from JFY2000 to 2001, a system was developed which enable to measure the temperature of sodium droplet and of flame zone. The study includes the improvement of droplet generation system so as to prevent the oxidation of suspended droplet.

The temperature measurement system consists of silica-coated fine R-type thermocouple of  $20\mu\text{m}$  in diam. adopted to ensure excellent responsibility, and its driving apparatus. The driving system is composed of pulse motor, its controller and delay circuit, and its performance was confirmed by several tests. It was shown from the preliminary tests that the basic technique was established for detailed temperature measurement around the time of droplet ignition, though several problems should be investigated furthermore such as electrical noise removal in temperature measurement and effect of thermocouple coating.

---

\* Department of Physics, Toho University

目 次

1. はじめに	1
2. 実験2	
2. 1 実験装置	2
2. 2 実験方法	5
3. 実験結果と考察	6
3. 1 不活性雰囲気中での液滴温度測定	6
3. 2 着火過程の温度測定	7
4. まとめ	10
参考文献	11

図表リスト

図 1 燃焼装置の概要	2
図 2 パルスモーターによる熱電対の移動パターンの例	5
図 3 不活性雰囲気での液滴温度測定例	6
図 4 着火過程における液滴表面付近の温度の時間変化の測定例	8

## 1. はじめに

液体ナトリウムの漏えい時に生じるナトリウム液滴の燃焼挙動の現象論的解明に向けて、液滴の着火挙動や着火後の燃焼挙動を詳細に把握することを目的に、静止ナトリウム液滴を対象として、97年度より一連の実験的研究を行ってきた<sup>1,2)</sup>。これまでに、空気流中で静止液滴の自然着火現象を実現して観察する基本的な実験手法を確立し、高速度カメラを用いて液滴表面および近傍の着火時の様子の時間変化の観察を行ってきた。

本研究では、ナトリウム液滴の着火および燃焼の挙動と機構の解明にとって重要なとなる液滴ならびに火炎の温度を、熱電対を用いて計測するシステムを構築し、温度と高速度映画の同時記録を行った。また、液滴を懸垂状態で所定の初期直径まで成長させる間の酸化皮膜の形成を極力防止するために、液滴生成系の改善を図った。

温度測定系構築においては、熱電対にシリカ被覆をほどこした素線径 $20\mu\text{m}$ の微細なR型熱電対を用い、またパルスモーター、モーター回転制御装置、遅延装置を組み合わせて熱電対を迅速に動かせる移動装置を作成した。装置製作の概要および、実験結果について述べる。

## 2. 実験

### 2.1 実験装置

図1に静止液滴燃焼装置の概要を示す。燃焼装置は、グローブボックス、液体ナトリウム供給系、ナトリウム液滴生成部、乾燥空気供給系、不活性ガス供給装置、排気処理装置などから構成されている。液滴はグローブボックス中央においてヘリウム雰囲気内にステンレス細管ノズル（内径0.6 mm, 外径1.0 mm）に懸垂した状態で生成され、上方に向かって流れる空気流にさらされる。

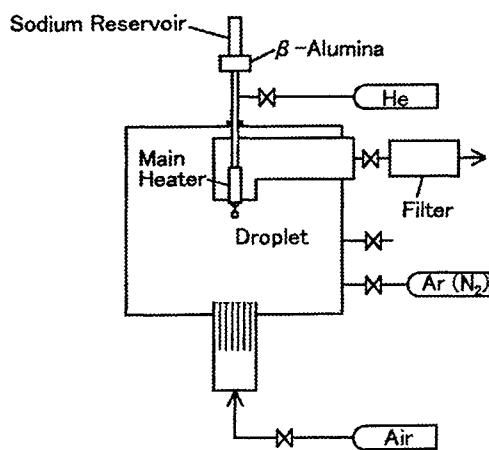


図1 燃焼装置の概要

液体ナトリウムは、貯蔵部から $\beta$ -アルミナ利用のナトリウム供給装置を通じて、 $\beta$ -アルミナ前後電極間に流れる電流に比例した流量で供給配管内を下方に押し出される。同供給系にはヒーターが4カ所に取り付けられていて、ノズル先端直上の加熱ヒーターホルダー内蔵のヒーターで液滴を所定の温度まで加熱する。グローブボックス上面に接するフランジのやや上から加熱ヒーターホルダ一部にかけての配管は、中心部をナトリウムが通り壁をはさんでヘリウムが保護ガスラインを通る2重管構造となっていて、ヘリウムは加熱された後に円環状出口から液滴を包むように吹き出される。ノズル先端付近は、液滴生成中はガラス管で囲むことにより不活性雰囲気に保たれるようにされている。電磁弁によるヘリウム遮断とガラス管の取り去りがほぼ同時に行われて、液滴は空気流にさらされる。ガラス管の取り去りはばねを利用し、管頂部が液滴部分を通過するまでの時間は約0.04 s、管全体が空気流の外部に出るまでの時間は約0.1 sとなっている。なお、用いた $\beta$ アルミナの性能上、液滴を直径数mmまで成長させるのに数十秒以上の時間を要するが、従来、その間にヘリウム流内に混入した酸素によって生じたと思われる皮膜の生成が液滴表面で広範囲にみられた。酸素を巻き込む主な原因を検討した結果、主要なものとして

加熱用ヒーターブロック部分のヘリウムの配管外壁に熱電対挿入用にあけた穴の微小すきまからの空気の巻き込みが考えられた。そこで、この穴を充てん剤で防ぐとともに、あわせてガラス管内径を若干大きくして管上部とヒーターブロック部分間の密着性の向上も図った。これらの改善によって、従来にくらべ、膜の生成量を大きく抑えた初期液滴状態を作りだすことが可能となった。

液滴の初期温度は、以前の測定で液滴近傍を流れるヘリウムの温度とほぼ等しいことが示されているため、本研究ではこのヘリウムの温度で代用した。空気にはポンベより供給される乾燥空気を用いた。空気と燃焼生成物は、ノズル付近上方の流出管内を流れ、HEPAフィルターで浮遊微粒子が除去され、排気ダクトに導かれる。

液滴周囲の温度測定には可動式の熱電対を用いた。また、デジタルメモリ記録方式の高速度カラービデオカメラ (KODAK EKTAPRO Model 1000HRC) を使用し、高速度映画の撮影も行った。

以下に、熱電対とその移動装置について述べる。

(a) 热電対

用いる熱電対の仕様の検討にあたって以下の要素を考慮した。

- 1) 現象は狭い空間で起きることから、気相測定では、空間分解能、時間応答性が高く、かつ現象に及ぼす影響が小さいように細い熱電対が望ましい。
- 2) 火炎の最高温度はK型熱電対の常用測定限界温度の1,100°C程度を超えると考えられるので、気相測定用には、測定上限が高いR型 ( $P_t - P_{t_1} / R_{h1} \times 3\%$ ) が適している。
- 3) 液滴温度はナトリウムの沸点881°C以下と考えられ、この温度範囲ではK型熱電対でも十分であるが、気相の火炎を通過する部分は耐熱性があることが望ましい。
- 4) 热電対の安定した出力信号を得るために、金属であるナトリウム液滴と熱電対素線の間で電気的絶縁が高いことが望ましい。高い絶縁性を得るには、シリカ被覆の素線を使用するか、非接地型のシースタイプ熱電対とする方法が考えられる。
- 5) 非接地型シースタイプ熱電対は、製作上あまり細くできないが絶縁性の確保が確実である。
- 6) シリカ被覆素線は、被覆の完全性の確保、シリカとナトリウムの反応の影響の不確かさなどに課題があるが、数十μm程度まで細くでき、空間分解能、応答性において優れている。

本研究においては気相と液滴の温度の測定を試みることにし、空間分解能、応

答性、燃焼場への影響の軽減を重視し、直径 $20 \mu\text{m}$ のR型の素線にシリカ被覆をほどこした熱電対を用いることとした。この熱電対は、補償銅線接続用コネクター付のホルダーに取り付けられ、ホルダーごと交換される。ホルダーには素線保持用の平行な2本のセラミックスがあり、その先端間中央に測定用接点が来るようさし渡した。接点は酸素一空気予混合火炎で素線先端どうしを溶着して作成し、シリカ被覆は、都市ガス一空気火炎中にシリコンオイルを鉄線につけて入れて加熱し、炎の上方の高温気流中に置いた熱電対素線表面にシリカを堆積させる方法で行った。被覆の厚みは数十 $\mu\text{m}$ 以内となっている。

#### (b) 热電対移動装置

着火実験時に液滴周りの温度測定に用いる熱電対の個数は着火現象への影響の緩和等を考えて1個とし、測定方法として以下の2つの方法を考えた。

- 1) ある時間の間、固定点での時間変化を観察する。現象の再現性がよければ、同一燃焼条件の実験を複数回行い異なった位置での測定結果を組み合わせることにより、半径あるいは水平方向等の温度分布の時間変化も知ることができる。
- 2) 温度の時間変化が小さな状態に達した後、熱電対を1方向に、応答性に問題がない範囲でできるだけ大きな速度で移動させる。既知の速度で移動すれば、1回の測定で近似的にある時刻の半径方向等の温度分布を知ることができる。

2方法ともできるよう、パルスマーターを用いて速度または加速度を制御しながら熱電対を水平に移動し温度計測ができる測定系を構築した。熱電対接点は、ガラス管との干渉を避けるためガラス管を取り去る前には空気側に置き、取り去り後に液滴付近まで接近させることとした。移動距離は、設定条件により異なるが $20\sim30\text{ mm}$ とした。加速度、定速部速度をプログラムにより設定することにより、目的に応じた熱電対の動きをさせることができる。

着火実験ではガラス管を外すとすぐに酸化の進行が始まり時間とともに急速にその厚さを増す。液滴内部の温度を測定するためには酸化膜がまだ強固でない $0.1\text{s}$ 以内に熱電対が液面まで到達し、かつ適度な速さをもって液面をスムースに通過して停止する必要がある。図2に、熱電対移動パターンの設定例として、途中を高速で移動し減速しながら停止するときの時間と速度、位置との関係の一例を示す。動作は、高速度ビデオを用いて確認した。

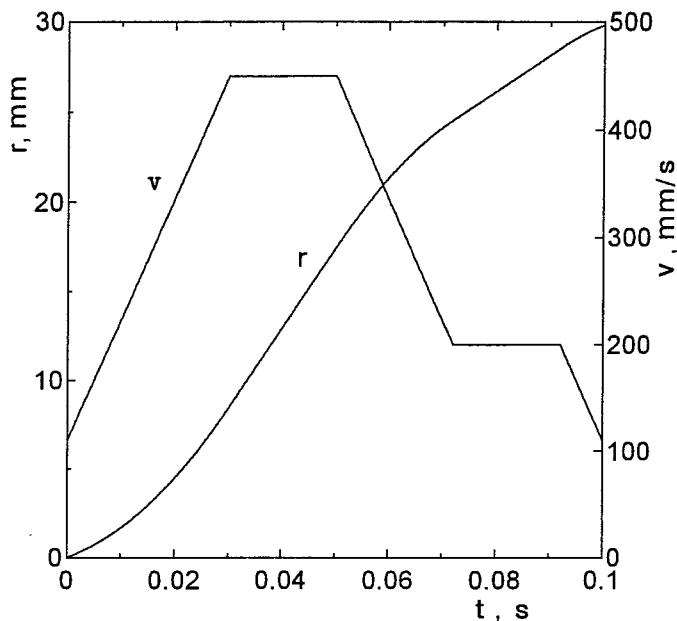


図2 パルスマーターによる熱電対の移動パターンの例(r:位置, v:速度)

## 2.2 実験方法

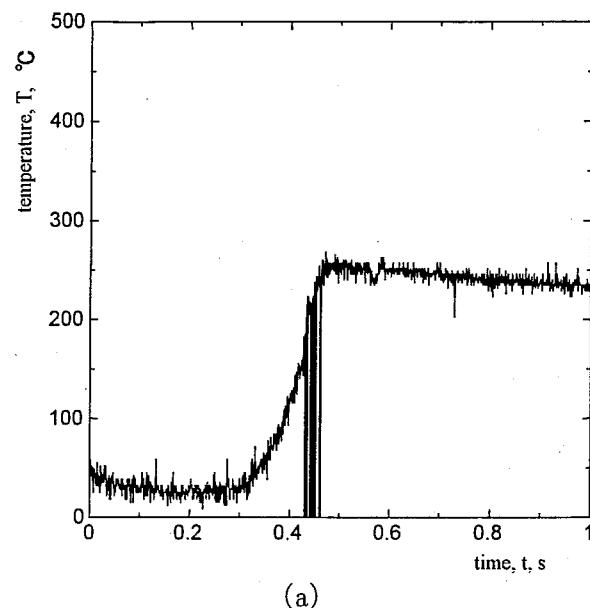
燃焼実験に先立ち、製作した温度測定系の動作確認のために、グローブボックス内を不活性気体で満たし、液滴を生成した後ガラス管を取り外し液滴の温度測定を行った。

着火実験は、所定の温度、直径の液滴を生成した後、電磁弁でヘリウム流を遮断すると同時にガラス管を取り去り液滴を空気流にさらして行った。液滴を空気にさらすのに合わせて、液滴中心とほぼ同じ高さになるように置かれた熱電対を遅延装置とパルスマーターを用いて液滴に向かって水平に移動し温度測定を行った。また、高速度ビデオカメラにより熱電対の移動と着火現象の様子の記録も行った。

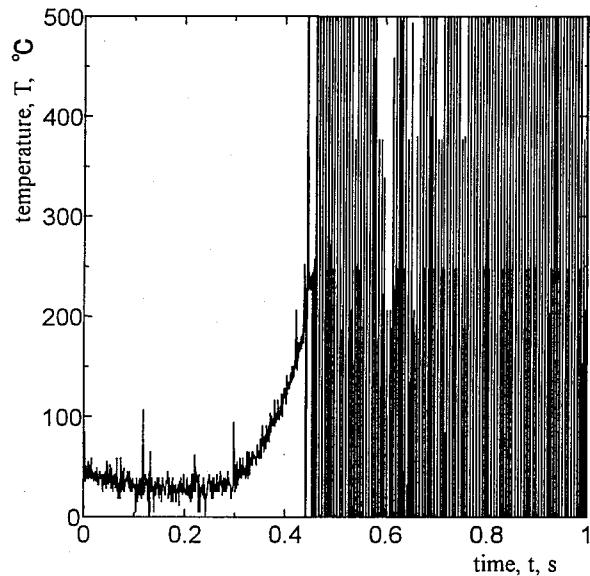
### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 不活性雰囲気中の液滴温度測定

図3 (a), (b)に、グローブボックス内を窒素とヘリウムで満たした中で、ヘリウム流を遮断しない状態のままガラス管を取り去って液滴温度の測定を試みたときの温度記録の時間変化を示す。熱電対は、20 mm移動後液滴内で停止させている。横軸 $t$ はガラス管移動開始からの時間を示す。



(a)



(b)

図3 不活性雰囲気での液滴温度測定例（グローブボックス内を窒素・ヘリウム雰囲気とし、ガラス管を取り去りヘリウム流中で測定； 液滴初期温度：320°C；上昇部までは気相内温度。）

液滴初期温度は約320 °Cで、ガラス管取り去りによる高温ヘリウム流への低温周囲雰囲気の巻き込みによる冷却効果で液滴温度は時間とともに減少してある値に漸近する。測定開始からバックグラウンドの高周波ノイズによる±10°C内外の変動が継続している。熱電対は、高温ヘリウム流の中を通過することにより測定値が上昇しながら液滴に接近し、接触後は液滴内部の温度を測ることになる。図の(a)の例では、熱電対の一部が液滴に接触したと考えられる時刻付近で大きなノイズが生じている。しかし、この大きなノイズはすぐに消えている。液滴に接触後の温度曲線を時刻0に外挿するところ300°Cとなり、おおむね液滴の温度を正確に測定できているとみられる。一方、(b)では、熱電対の一部が液滴に接触するまでは(a)の場合とほぼ同じ経過をたどっているが、接触後は大きなノイズが継続し液滴温度が計測できていない状態となっている。

(a), (b)では、使用した熱電対に外見的な差異は認められないが、結果的に液滴部分温度の測定の成否に違いが生じている。同様の実験を何回か繰り返し、回路中のコンデンサーの挿入、被覆処理回数の増加等の効果についても調べてみたが、ばらつきがあり確実にこの大きなノイズを除去する方法が見出されていない。なお、同一の熱電対において、ナトリウムに接触させると大きなノイズが生じる場合でもナトリウムと隣接するノズルのステンレス部分に接触させたときには大きなノイズが生じないことがあるのも観察されている。ノイズとナトリウムの電気的な性質が関係している可能性もあるが、現時点ではこのノイズの発生の原因は特定できない。

しかしながら、(a)に示されるような、ほぼ正確に液滴内部温度が測れる場合もあることから、このシリカ被覆をほどこしたR型熱電対を用いて着火時の液滴周りの温度測定を実施することとした。

### 3.2 着火過程の温度測定

液滴生成中の酸化皮膜の成長は格段に少なくすることができるようになったが、まだ成長中の皮膜の抑制が十分ではなく、この影響で空気にさらしてからの酸化膜の進行が大きく、現段階では熱電対を液滴内部に挿入するのがまだ困難である。そこで、液滴表面あるいは表面近傍について温度測定を行った。

図4に、ナトリウム液滴の着火過程における液滴表面付近の温度の時間変化の測定例を示す。液滴の初期温度315 °C、液滴直径 3.5mm、空気主流速度は40 cm/sで、熱電対はガラス管移動開始と同時に 20 mm離れた位置から液滴に接近し、 $t = 0.4$  sで液滴表面付近へ到達し停止している。到達後の熱電対位置は、液滴中心よりもやや高い表面近傍となっている。 $0.4$  sでは、表面は全面酸化膜に覆われている。

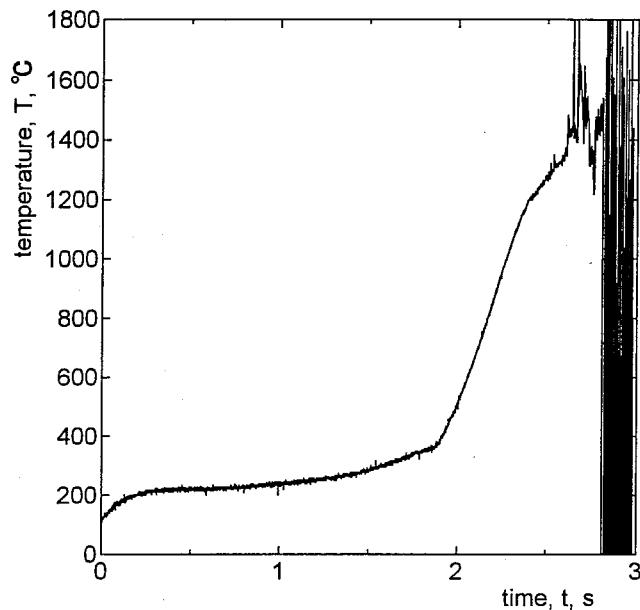


図4 着火過程における液滴表面付近の温度の時間変化の測定例（液滴初期  
温度315 °C, 液滴直径 3.5mm, 热電対の表面付近への到達時間 0.4 s）

熱電対が停止したときの測定値は200°C程度で、その後徐々に上昇率が増しながら温度上昇が生じ、 $t = 2$  s付近で不連続的な勾配の変化を伴って急激な温度上昇に移行している。高速度カメラの映像の観察によると、この温度急上昇過程の途中で液滴表面の酸化膜の溶解が起こり、 $t = 2.5$  s付近からは気相でのオレンジ色の発光が始まる。測定された上昇中の温度はナトリウムの沸点を大きく超えており、この時点の温度は表面近傍の気相中の値を示していると考えられる。温度の上昇率の最大値は2000 K/s程度の大きな値となっている。 $1300 \sim 1400$  °C付近から温度変動が激しくなり始め、その後に熱電対素線が断線し、以降の測定が不可能となっている。このほかの測定においても、燃焼時の温度測定を試み、大きいノイズを伴わない範囲で1200 °C以上の気相温度が得られている。したがって、火炎内部の最高温度は、1300 °C以上の値となっているのは確実と思われる。図4の温度曲線から、熱電対は、R型熱電対の空气中での最高使用温度である約1770 °Cよりもいくぶん低い気相温度中で断線した可能性が考えられる。なお、不活性気体中では液滴温度の測定ができた場合があったが、着火実験においては熱電対が液滴表面に接するといずれも大きなノイズの発生がみられた。

測定データ数がまだ限られているために本研究では気相温度分布の時間変化等はまだ得られていない。しかし、使用したシリカ被覆をほどこしたR型熱電対は、着火過程の途中段階までの気相の温度測定に関しては十分有効であると考えられ、

気相反応が急激に盛んになる着火過程初期段階およびそれ以前の気相温度変化の特徴については、今後、本研究で開発した手法をもとにして再現性のよい実験を行うことにより詳細に把握できることが期待される。

断線や液滴に接した場合の大きなノイズの発生に起因する課題については、熱電対の仕様を中心にさらに今後検討を要すると考えられる。ナトリウムの熱伝導率が極めて大きいことより、シーズ熱電対でもある程度細ければ液滴内部では十分な追従性が得られることが考えられるので、本研究で製作した熱電対移動装置とシーズ型熱電対の組み合わせによる液滴温度測定の試みも意義があると考えられる。

#### 4. まとめ

本研究では、ナトリウム液滴着火過程の液滴ならびに火炎の温度測定用に、シリカ被覆をほどこしたR型微細熱電対（素線径 $20\mu\text{m}$ ）を移動装置に取り付けて計測するシステムを構築した。さらに液滴を懸垂状態で所定の初期直径まで成長させる間の酸化皮膜の形成を極力防止するために、液滴生成系の改善を図り、温度計測システムの動作確認および着火実験を行った。本研究で得られた成果を以下に示す。

- 1) パルスモーター、制御回路、遅延回路を組み合わせ、熱電対を任意の動きで移動させて液滴周辺の温度を測定できるシステムを構築し、その動作を確認した。このシステムは、液滴を空気にさらしてから0.1s以内に熱電対を液滴近傍に移動して温度変化を計測できる。
- 2) 不活性雰囲気中のナトリウム液滴を用い、液滴表面に酸化膜がない場合、熱電対を移動装置により内部に挿入でき温度測定ができると確認した。しかし、液滴温度測定においては大きな信号ノイズの発生する場合がある。
- 3) ナトリウム液滴生成系の保護用ヘリウムガスラインのシール性を高めて周囲空気からヘリウム流中への酸素の拡散・巻き込みを抑制した結果、液滴成長中に形成される酸化被膜が従来にくらべ格段に少なくなり、従来に比べ良好な着火燃焼現象を実現できるようになった。
- 4) 着火実験において、液滴表面近傍気相中の温度の時間変化が応答性良く測定でき、着火過程途中の気相では1300 °Cを超える温度となることが示された。なお、より高温部で生じた熱電対素線の断線、大きな信号ノイズの発生、空気への暴露直後の急速な酸化被膜生成による熱電対の液滴内部への挿入の困難等の課題が抽出され、これらの対策について今後検討する必要がある。

文献

- 1) 東邦大学（佐藤研二），静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験（動力炉・核燃料開発事業団委託研究内容報告書）：PNC TJ9807 98-001(1998)
- 2) 東邦大学（佐藤研二），静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験（II）（核燃料サイクル開発機構研究委託内容報告書）：JNC TJ9400 99-011(1999)