

# ナトリウム燃焼時のエアロゾル挙動に関する研究 — 化学反応モデルの開発とエアロゾル輸送挙動の簡易評価 —

(東京工業大学・核燃料サイクル開発機構 共同研究報告書)

1999年3月

東京工業大学  
原子炉工学研究所  
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。

〒319-1194 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 319-1194

Japan.

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

1999

# ナトリウム燃焼時のエアロゾル挙動に関する研究

## —化学反応モデルの開発とエアロゾル輸送挙動の簡易評価—

(東京工業大学・核燃料サイクル開発機構 共同研究報告書)

二ノ方 壽\*、堂田 哲広\*、岡野 靖\*\*

### 要 旨

1995年12月に発生したもんじゅのナトリウム漏洩事故以来、ナトリウムプール燃焼時のエアロゾルの生成と輸送の詳細なメカニズムが注目されている。特に、発生したエアロゾルが雰囲気へ飛散するかプール表面へ沈降するかの割合(飛散割合 release rate)は、燃焼の状態およびナトリウムの広がった床の温度を評価する際のキーパラメータとなっている。しかし、このエアロゾルの飛散割合を評価するためには、火炎内の流速分布、化学種の濃度分布及び温度分布などの複雑な構造を評価する必要があり、これまでの研究ではその評価が十分ではなかった。

本研究では、プール燃焼により発生した自然対流が室内を定常的に循環する系を想定し、さらにナトリウムと酸素の反応は瞬時化学平衡が成り立つと仮定する事により問題を簡単化して、層流拡散火炎の理論を用いて数値解析を行った。具体的には、気流に関しては質量、運動量、化学種の質量およびエネルギー保存の境界層方程式を解き、また、エアロゾル輸送に関しては対流からの抗力、熱泳動力、重力を考慮した解析を行った。

解析の結果、燃焼率に関して比較的よく実験結果が説明でき、その他の燃焼特性についても妥当な結果が得られた。また、エアロゾルの飛散率に関してはプール表面温度が1000K程度であれば従来の解析に用いられていた飛散率は妥当である事がわかった。

本研究の実施に際し、東京工業大学が化学平衡モデルのプール燃焼への適用およびエアロゾル輸送挙動解析手法の開発を、核燃料サイクル機構が化学反応平衡モデルの開発を行った。

\* 東京工業大学 原子炉工学研究所

\*\* 核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター

システム技術開発部 熱流体技術開発グループ

## Study on Aerosol Behaviors in Sodium Pool Fire

- Development of chemical reaction model and evaluation of aerosol transport -

Hisashi Ninokata \*, Norihiro Doda \*, Yasushi Okano\*\*

### ABSTRACT

Since the sodium leakage event from the secondary loop in Monju December 1995, attention has been called upon to the mechanisms of aerosol generation and transport. In particular it is considered important to determine the fractions of the aerosol that is transported into the atmosphere and onto the sodium pool surface, because they are important parameters in evaluating the sodium fire and the floor temperature. In order to estimate the fractions, the flame structure such as the velocity, the density of chemical species and the temperature distributions must be analyzed. In an initial attempt, we have assumed the system in which the steady-state natural convection is generated by the fire in the compartment. It is also assumed that sodium-oxygen reactions are controlled by an instantaneous chemical equilibrium and the aerosols transport is due to a sum of the drag force, the thermal force and the gravity. Finally we solve the boundary layer equations for the mass, momentum, chemical species, and energy based on the theory of the laminar diffusion flame which has been studied well.

From these results, it is estimated that the calculation results for burning rate are in good agreement with the experimental results. The release fraction of around 0.3, which is used in the conventional calculation, is adequate for the pool temperature of about 1000K.

To develop the models of the sodium fire on the floor and the aerosols transport is performed by Tokyo Institute of Technology (TIT), and that of the chemical equilibrium is by Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC).

---

\* Tokyo Institute of Technology, Research Laboratory for Nuclear Reactors

\*\* Japan Nuclear Cycle Development Institute, O-arai Engineering Center,

System Engineering Technology Division, Thermal-Hydraulics Research Group

## 目次

要旨	I
Abstract	II
目次	III
図表リスト	IV
 1. 緒言 .....	1
2. 解析手法 .....	2
2.1 ナトリウムプール燃焼解析手法 .....	2
2.1.1. 化学反応を含む気体成分の支配方程式 .....	2
2.1.2. ナトリウム燃焼モデル .....	4
2.2 エアロゾル挙動 .....	4
2.2.1. エアロゾルの粒径分布 .....	4
2.2.2. エアロゾルの駆動力 .....	5
2.2.3. エアロゾルの飛散率 .....	6
2.3 数値計算手法 .....	6
3. 解析条件 .....	7
3.1 計算体系 .....	7
3.2 境界条件 .....	7
4. 解析結果及び考察 .....	9
4.1 化学種濃度分布及び温度分布 .....	9
4.2 エアロゾル生成率と流速の分布 .....	9
4.3 燃焼率 .....	10
4.4 エアロゾルの空气中への飛散率 .....	10
5. 結言 .....	12
謝辞 .....	13
参考文献 .....	14

## 図表リスト

## 表

表 1	各種物性値.....	15
表 2	空気の粘性係数と熱伝導度 .....	15
表 3	窒素と酸素の臨界圧力 $T_c$ 、臨界温度 $P_c$ .....	15
表 4	Na の比熱.....	16
表 5	酸素の比熱.....	16
表 6	窒素の比熱.....	16
表 7	比較した実験の一覧.....	16

## 図

図 1	仮定したプール表面近傍の流れ .....	17
図 2	プール温度 900K における濃度分布と温度分布の計算値.....	18
図 3	プール温度 950K における濃度分布と温度分布の計算値.....	19
図 4	プール温度 1000K における濃度分布と温度分布の計算値.....	20
図 5	プール温度 900K における生成率分布と流速分布の計算値.....	21
図 6	プール温度 950K における生成率分布と流速分布の計算値.....	22
図 7	プール温度 1000K における生成率分布と流速分布の計算値.....	23
図 8	燃焼率の測定値、本モデルの計算値、SPM コードの計算値の比較 .....	24
図 9	飛散率の測定値と幾何平均半径を $1\mu\text{m}$ , $5\mu\text{m}$ , $10\mu\text{m}$ と仮定した場合の計算値の比較	25

## 1. 緒言

高速炉において高温ナトリウムが空気中に漏洩した場合、漏洩したナトリウムは空気中の酸素などと反応して燃焼する。この時、反応熱によって床や雰囲気の温度を上昇させるとともに、 $\text{Na}_2\text{O}$  及び  $\text{Na}_2\text{O}_2$  などの生成物がエアロゾルとして放出されて周辺の機器などに悪影響を及ぼすことが知られている。特に、空气中に湿分が多い場合には上記生成物の他に  $\text{NaOH}$  も多く生成されるため、床などの構造物に大きな影響を及ぼす可能性もある。したがって、ナトリウム漏洩時のプラントの安全性を確保するためには、ナトリウムの燃焼特性やエアロゾルの沈降率等の挙動を、実験と解析の両面から精度良く評価することが重要となっている。

これまでのナトリウムプール燃焼の解析評価手法は、反応は一方向の反応式（例えば  $2\text{Na} + \text{O}_2 \rightarrow \text{Na}_2\text{O}_2$  や  $4\text{Na} + \text{O}_2 \rightarrow 2\text{Na}_2\text{O}$  など）が支配的であり、しかも物質移動と熱伝達とのアナロジーにより酸素が火炎へ供給されると仮定したフレームシートモデルを用いて解析を行っていた<sup>[1,2,3]</sup>。本フレームシートモデルでは、火炎は厚さを持たない平面火炎であり、さらに生成物の生成割合やエアロゾルの沈降率などは既知の値として与えなければならなかった。

もんじゅのナトリウム漏洩事故以来、反応生成物の生成割合を既知の値ではなく温度や濃度分布などの解析体系の異なる条件に応じて自動的に得るために化学平衡を用いた新しい計算手法が開発されている<sup>[4]</sup>。しかし上記のモデルでは、生成物の生成割合は体系の条件に応じて自動的に得られるものの、火炎に供給される酸素量やエアロゾル挙動などは上記のフレームシートモデルと同等であった。

一方、エアロゾルの沈降率に関しては、実験からの知見により 30%程度とされ解析に用いられてきた<sup>[14]</sup>。しかしこの沈降率は、エアロゾルの雰囲気への放出量の評価やナトリウムプール燃焼時のプール内の組成を評価する上で重要な因子であるにもかかわらず、ナトリウム燃焼やエアロゾル生成メカニズムの複雑さからこれまでに解析的な評価は行われてこなかった。

以上から、本研究では、まず最初の試みとして湿分がほとんど存在しない体系におけるナトリウムプール燃焼を対象とし、この時の燃焼特性を化学平衡モデルを用いて反応生成物の生成割合や系内の温度及び濃度分布などを精度良く評価し、さらに従来の解析では既知の値と仮定していたエアロゾルの雰囲気中への飛散率を評価することを目的としている。

## 2. 解析手法

### 2.1 ナトリウムプール燃焼解析手法

ナトリウムプール表面近傍では、大きな長さスケールの自然対流と小さな長さスケールの燃焼領域内の流れ場を同時に考慮する必要がある。一方、ナトリウムプール燃焼に関しては、漏洩ナトリウムが床にプール状に堆積し、プールから蒸発したナトリウム蒸気と雰囲気の酸素などと反応し燃焼する。この時、反応熱によりプール温度が上昇すると、ナトリウムの蒸発量が増加し燃焼が促進されるものの、同時に一部の反応生成物がプール表面に沈降することによりナトリウムの蒸発量が減少し燃焼は抑制されると考えられる。そこで、本研究では次に示す仮定を用いることにより問題を簡略化した。

- (1) 図1に示したように、流れが定常的に循環している軸対称の体系とし、プール表面から上昇する流速とプール表面へ下降する流速が等しく、かつ境界層近似が成立つ。
- (2) ナトリウムプール表面温度は既知である。
- (3) 反応生成物の沈降により抑制されるナトリウム蒸発の量は無視できる。

#### 2.1.1. 化学反応を含む気体成分の支配方程式

気体成分 ( $\text{Na}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ ) の質量、運動量、化学種及びエネルギーに関する支配方程式を、境界層近似し、軸対称座標系で表わすと以下のようになる。

##### 1) 質量保存式

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\rho u r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v) = \sum_k \left. \frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} \right|_{react}, \quad k = \text{Na}, \text{O}_2, \text{N}_2 \quad (1)$$

##### 2) 運動方程式

$$\rho u \frac{\partial u}{\partial r} + \rho v \frac{\partial u}{\partial z} = - \frac{dp}{dr} + \frac{\partial}{\partial z} \left( \mu \frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (2)$$

##### 3) 化学種の保存式

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \rho u \frac{\partial Y_k}{\partial r} + \rho v \frac{\partial Y_k}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \rho D_k \frac{\partial Y_k}{\partial z} \right) + \left. \frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} \right|_{react} \quad (3)$$

##### 4) エネルギー保存式

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho u c_p \frac{\partial T}{\partial r} + \rho v c_p \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \frac{\partial h}{\partial t} \Big|_{react} - F_{fp} \sigma (T^4 - T_{pool}^4) - F_{fa} \sigma (T^4 - T_{air}^4) \quad (4)$$

ここで、式(1)の右辺及び式(3)の右辺第2項は、気体成分からエアロゾル成分への密度変化を、式(4)の右辺第2項は反応熱を表わし、次節で記述する化学平衡モデルより計算した。また、式(4)の右辺第4及び第5項は、それぞれ火炎面からプール面及び火炎面から雰囲気への輻射熱を表わす。さらに、以上の支配方程式において全各化学種の定圧比熱は等しい ( $c_{pk} = c_p$ ) とし、気体成分は理想気体と近似して次の状態方程式を用いた。

$$p = \rho R T \sum_j \frac{Y_j}{W_j} \quad (5)$$

ただし、 $W_j$  は各化学種の分子量を表わす。

境界層の外側の流れはポテンシャルフローであるから、 $a$  をナトリウムプール面への流れの近づき強さとすると、境界層端の径方向流速は  $u_{air} = ar$  で与えられる。したがって、流れ関数の導関数  $f'$  を導入すると境界層内の流速は式(6)及び(7)で表わされる。

$$u = arf' \quad (6)$$

$$V = \rho v \quad (7)$$

これらの式(6)及び(7)を用いると、式(1)～(4)は以下に示す常微分方程式に変換される。

### 1) 質量保存式

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial V}{\partial z} + 2a\rho f' = \sum_k \frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} \Big|_{react}, \quad k = Na, O_2, N_2 \quad (8)$$

### 2) 運動方程式

$$\frac{d}{dz} \left( \mu \frac{df'}{dz} \right) - V \frac{df'}{dz} + a [\rho_{air} - \rho(f')^2] = 0 \quad (9)$$

### 3) 化学種の保存式

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \rho D_k \frac{\partial Y_k}{\partial z} \right) - V \frac{\partial Y_k}{\partial z} + \frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} \Big|_{react} \quad (10)$$

## 4) エネルギー保存式

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) - V \frac{\partial T}{\partial z} + \frac{\partial h}{\partial t} \Big|_{react} - F_{fp} \sigma (T^4 - T_{pool}^4) - F_{fa} \sigma (T^4 - T_{air}^4) \quad (11)$$

以上の変換により、質量、高さ方向の流束、化学種及び温度が径方向成分と独立となる。したがって本研究では、軸対称のナトリウムプール燃焼を式(8)～(11)を用いて計算した。

## 2.1.2. ナトリウム燃焼モデル

ナトリウム蒸気と酸素の反応速度は、各々の対流及び拡散速度と比べて極めて速いと考えられる事から、両者が出会えば直ちに化学平衡に達すると仮定した。ここでは化学平衡反応式を次に示す式(12)および(13)とし、各化学種の平衡濃度やエンタルピー変化（反応熱）は、本体系に存在する化学種 ( $\text{Na}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$  及び  $\text{Na}_2\text{O}_2$ ) の Gibbs の自由エネルギーを最小とする原理 (Gibbs 自由エネルギー極小化法) を用いた BISHOP コード<sup>[6]</sup>により計算した。



## 2.2 エアロゾル挙動

## 2.2.1. エアロゾルの粒径分布

ナトリウム燃焼生成物である  $\text{Na}_2\text{O}$  及び  $\text{Na}_2\text{O}_2$  は、生成直後は気体であるが、温度の低い領域に移行すると液体から固体へと変化し、周囲の気体の凝縮あるいは生成物同士の凝集により、エアロゾルに成長すると考えられる。これらの現象は、燃焼後に極めて短い時間で生じる現象と考えられるため、本研究では燃焼直後に式(14)及び(15)で表わされる粒径分布及び数密度を持ったエアロゾルが発生し、しかもその後の粒径変化はないと仮定した。

## 1) エアロゾルの粒径分布

$$n(r) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \frac{1}{r} \exp \left( -\frac{(\ln r - \ln r_g)^2}{2 \ln^2 \sigma_g} \right) \quad (14)$$

## 2) エアロゾルの数密度

$$N_0 = \frac{\rho_{Na_2O} + \rho_{Na_2O_2}}{\frac{4}{3}\pi r_g^3 \rho_a \exp(4.5 \ln^2 \sigma_g)} \quad (15)$$

ここで、 $\sigma_g$  は粒径分布の標準偏差、 $r$  はエアロゾル半径、 $r_g$  は幾何平均半径、 $\rho_{Na_2O}$ 、 $\rho_{Na_2O_2}$  はそれぞれエアロゾル成分  $Na_2O$ 、 $Na_2O_2$  の濃度及び $\rho_a$  はナトリウムエアロゾルの見かけ密度である。

## 2.2.2. エアロゾルの駆動力

エアロゾルに働く主な駆動力は、式(16)～(18)に示す気体成分からの抗力、熱泳動力および重力とした。

1) 抗力；  $F_d$ 

$$F_d = 3\pi\mu v_g d \cdot \frac{1}{C_c} \quad (\text{for } d_a > 0.01\mu\text{m}) \quad (16)$$

$$C_c = 1 + \frac{l}{d} \left( 2.514 + 0.800 \exp\left(-\frac{0.55d}{l}\right) \right) \quad (17)$$

$$l = \frac{1}{\sqrt{2n\pi d_m^2}} \quad (18)$$

2) 热泳動力；  $F_{th}$ 

$$F_{th} = -\frac{pld^2}{T} \frac{dT}{dz} \quad (\text{for } d < l) \quad (19)$$

3) 重力；  $F_g$ 

$$F_g = \frac{4}{3}\pi r^3 \rho_a g \quad (20)$$

ここで、 $\mu$  は粘性係数、 $v_g$  は気体成分の流速、 $d$  はエアロゾル直径、 $C_c$  はカニンガム係数、 $l$  は平均自由行程、 $d_m$  は空気の衝突直径、 $r$  はエアロゾル半径、 $\rho_g$  はエアロゾルの見かけ密度、 $g$  は重力加速度を表わす。

### 2.2.3. エアロゾルの飛散率

エアロゾルの飛散するか沈降するかの割合については、それぞれの粒径を考慮した流れによる抗力、重力、熱泳動力の合力から各エアロゾルの移動の方向が上向き又は下向きであるかを決定し、総合のエアロゾルの上昇割合を（上昇分の全質量）／（全質量）から算出した。すなわち、エアロゾルの粒径ごとに、式(21)に示す駆動力の合計； $F_{total}$  を計算し、

$$F_{total} = F_d + F_g + F_{th} \quad (21)$$

$F_{total} \geq 0$  の時、霧団気中へ上昇、 $F_{total} < 0$  の時プール面へ沈降するとした。そして、平均のエアロゾルの上昇率を、式(22)に示す上昇・沈降するエアロゾルの合計の質量比から計算した。

$$(平均の飛散率) = \frac{(上昇分の全質量)}{(全質量)} \quad (22)$$

### 2.3 数値計算手法

式(8)～(11)に対し、有限差分法を用いて離散化し数値解析を行った。この時、空間差分には対流項には1次精度の風上差分法を、拡散項には2次精度の中心差分法を用いた。また、時間差分には完全陰解法を用いて離散化し、計算で時間的に流速、温度、及び化学種濃度に変化が無くなった時点を定常解とした。

### 3. 解析条件

#### 3.1 計算体系

計算する体系は、十分離れた距離からプール面へ空気が垂直に吹き付けられる軸対称2次元空間であるが、2.1に述べたように軸方向の1次元常微分方程式に変換した。本計算では雰囲気側の境界までの高さをプールから十分離れた高さとして6cmとした。

#### 3.2 境界条件

境界条件はナトリウムプール表面及びナトリウムプール表面から十分離れた雰囲気の2ヶ所において、温度T、各化学種の質量分率Y、微分流れ関数f'、軸方向流速vを与える必要がある。本研究ではこれらの境界条件を次のように与えた。

##### (1) 温度(T) 及び化学種の質量分率(Y)

境界条件に関しては、ナトリウムプール表面温度( $T_{pool}$ )及び雰囲気温度( $T_{air}$ )を与えた。一方、質量分率に関しては、次式により計算して与えた。

$$Y_{Na,pool} = \frac{W_{Na} P_{s,Na}}{W_{Na} P_{s,Na} + W_{N_2} (P_{air} - P_{s,Na})} \quad (23)$$

$$Y_{Na,air} = 0 \quad (24)$$

$$\frac{dY_{O_2,pool}}{dz} = 0 \quad (25)$$

$$Y_{O_2,air} = \frac{21278.25 * W_{O_2}}{(80046.75 * W_{N_2} + 21278.25 * W_{O_2})} \quad (26)$$

$$Y_{N_2,pool} = 1 - Y_{Na,pool} - Y_{O_2,pool} \quad (27)$$

$$Y_{N_2,air} = \frac{80046.75 * W_{N_2}}{(80046.75 * W_{N_2} + 21278.25 * W_{O_2})} \quad (28)$$

ここで $P_{s,Na}$ はナトリウム蒸気の飽和蒸気圧である。

##### (2) 微分流れ関数; f'

$f'$ については、境界層の端で定義される  $u_{air} = ar$  から、ナトリウムプール表面から十分に離れた雰囲気では  $f' = 1$ 、プール面上では横方向流速が 0 である事から  $f' = 0$  と与えた。

### (3) 軸方向流速; $v$

自然対流による燃焼領域への吹き込み速度を、上昇流流速の絶対値から求める。燃焼面上部の単位体積当たりに働く浮力を考慮し、粘性を無視することにより、燃焼面上の上向き流れに関するレイノルズ数及びグラスホフ数の関係式(29)が導かれる[5]。

$$Re \approx \sqrt{2} \cdot \sqrt{Gr} \quad (29)$$

ここで、グラスホフ数  $Gr$  とレイノルズ数  $Re$  は次で定義される。

$$Gr = \frac{d_{pool}^3 g \beta (T_{pool} - T_{air})}{\nu^2} \quad (30)$$

$$Re = \frac{v_{air} d_{pool}}{\nu} \quad (31)$$

したがって、上向きを正にとり、雰囲気における流速を式(32)により計算して与えた。

$$v_{air} = -\frac{\nu}{d_{pool}} \sqrt{2} \cdot \sqrt{\frac{d_{pool}^3 g \beta (T_{pool} - T_{air})}{\nu^2}} \quad (32)$$

ここで、 $d_{pool}$  はプール直径、 $g$  は重力加速度、 $\beta$  は体積膨張率、 $\nu$  は動粘性率を表す。  
また、ナトリウムプール表面における流速  $v_{pool}$  については、 $v_{pool} = 0$  とした。

各種物性値について、表 1 にまとめる。また、拡散係数を求めるために用いた式は次の通り。

$$\frac{p D_{AB}}{(p_{cA} p_{cB})^{1/3} (T_{cA} T_{cB})^{5/12} \left( \frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right)^{1/2}} = a \left( \frac{T}{\sqrt{T_{cA} T_{cB}}} \right)^b \quad (33)$$

$$a = 2.745 \times 10^{-4}, \quad b = 1.823$$

ここで、 $D_{AB}$  は拡散係数、 $T_c$  は臨界温度、 $P_c$  は臨界圧力を表す。

#### 4. 解析結果及び考察

##### 4.1 化学種濃度分布及び温度分布

図2にナトリウムプール温度が1000Kにおける各化学種の濃度分布及び温度分布を示す。ナトリウム蒸気濃度に関しては、プール表面 ( $z=0\text{ cm}$ ) から拡散により上方向に輸送されるため、およそ  $0 \leq z \leq 0.1\text{ cm}$  の領域で2次関数的に減少し、それ以上の領域ではゼロとなっている。一方、酸素濃度に関しては、およそ  $z \leq 0.8\text{ cm}$  の領域ではプール表面に近づくにつれて上に凸から下に凸の曲線で減少し、 $z=0\text{ cm}$ においてもわずかではあるが存在している。このことから、プール表面からナトリウム蒸気濃度がゼロとなる高さ ( $z=0.1\text{ cm}$ ) までの領域において燃焼が生じていることがわかる。窒素濃度に関しては酸素濃度と同様におよそ  $z \leq 0.8\text{ cm}$  からプール表面に近づくにつれて減少しているものの、 $z \approx 0.1\text{ cm}$ において最小値となった。このことは、本解析モデルでは境界層で圧力が一定であり温度が高くなると気体の密度が減少すること、及びナトリウム蒸気と酸素が反応により減少した体積を窒素で補うと仮定したためである。

温度分布に関しては、上記の化学種濃度と同様に  $z \geq 0.8\text{ cm}$  の領域では一定値（雰囲気温度）、プール表面に近づくにつれて高くなり、窒素が最小値となる位置で最高温度となった。このことは次節に示したように、 $z \approx 0.1\text{ cm}$ において反応が最も著しく生成物濃度が最大になったためである。

図3及び図4にナトリウムプール温度がそれぞれ900K及び950Kにおける各化学種濃度分布及び温度分布を示す。化学種濃度及び温度分布に関しては、図2と同様な傾向となったが、プール表面温度が高くなるにしたがって最大温度が高くなっていること、及び燃焼が生じている領域の幅が大きくなっていることがわかる。このことは、プール表面温度が高くなると供給されるナトリウム蒸気濃度が大きくなり燃焼が促進されるためであり、妥当な結果が得られたと考えられる。

図2、図3及び図4では、およそ  $z \geq 0.8\text{ cm}$  以上の領域において、全ての化学種濃度（ナトリウム蒸気、酸素、窒素）及び温度が境界条件で与えた値と同一の値となったため、 $z \geq 0.8\text{ cm}$  の領域はポテンシャル流領域、 $0 < z \leq 0.8\text{ cm}$  の領域は境界層に相当すると考えられる。

##### 4.2 エアロゾル生成率と流速の分布

図5にプール温度が1000Kにおける反応生成物（ $\text{Na}_2\text{O}$ と $\text{Na}_2\text{O}_2$ ）の発生率及び全化学種の平均流速分布を示す。図からナトリウムプール表面から約0.4cmの領域で生成物が存在し、しかも $\text{Na}_2\text{O}$ の発生率が非常に大きいことがわかる。このことは、図2でも示したように、酸素が対流及び拡散によりプール表面まで輸送され、 $z \approx 0.3\text{ cm}$ 以上の領域では酸素が豊富な状態での燃焼、及び $0 < z \leq 0.3\text{ cm}$ の領域では酸欠状態の燃焼が生じていることを示している。本結果は、「酸素が豊富な場合には $\text{Na}_2\text{O}_2$ が多く生成され、酸欠状態では $\text{Na}_2\text{O}$ が多く生成される」という実験からの知見、及びNewmanによる実験結果<sup>[14]</sup>と定性的に一致し、しかも火炎は有限の厚さを持つ

という知見とも一致している。

一方、流速分布に関しては、およそ  $z \geq 0.8 \text{ cm}$  の領域において、プール表面に近づくにしたがつて軸方向流速が直線的に減少している。この  $z \geq 0.8 \text{ cm}$  の領域における計算結果を式(8)及び(9)に代入すると、 $f' = 1$ かつ  $\rho = \rho_{air}$  が得られる。したがって、本流速分布、4.1 に記述した化学種濃度分布及び温度分布から、本領域はポテンシャル流の領域であることがわかった。したがって、 $0 \leq z \leq 0.8 \text{ cm}$  の領域は境界層となるので、流速分布は密度変化及び反応速度に応じて複雑な分布となった。

図6 及び図7には、ナトリウムプール温度がそれぞれ 900K 及び 950K の場合の生成物濃度分布及び流速分布を示す。生成物濃度に関しては図5と同傾向であるが、温度分布から明らかかなように、プール温度が大きくなるにつれて燃焼が促進されるため、生成物濃度のピーク値が大きくなつた。また流速分布に関しては、他の層流拡散火炎の解析結果と同様、異なるプール温度にかかわらずほとんど同様な分布が得られた。

以上の結果から、本解析モデルでは境界層の厚さ及び生成物の割合をあらかじめ与えることなくナトリウムプール燃焼解析が実施でき、しかも妥当な温度分布、化学種濃度分布、及び流速分布が得られることがわかった。

#### 4.3 燃焼率

図8にプール温度が 900K、950K、及び 1000K における燃焼率（ナトリウムの消費率）を示す。また同図には、測定結果、及び SPM コードによる上記 2 ケースの計算結果 ( $\text{Na}_2\text{O}$ のみが生成される場合及び  $\text{Na}_2\text{O}_2$ のみが生成される場合) も示す。図から本解析モデルによる結果は、各プール温度において測定結果と比較的良く一致していることがわかる。一方、SPM コードによる 2 ケースの計算結果はともに、本モデル及び測定結果に対して平行な値を示している事から、適当な反応式の割合を与えることにより実験と比較的良く一致する。

以上の結果から、本解析モデルはフレームシートモデルと異なり有限の火炎厚さを持ち、しかも実際の燃焼特性を比較的良く説明すると考えられる。

#### 4.4 エアロゾルの空气中への飛散率

エアロゾルの空气中への飛散率に関する測定結果及び本解析モデルによる計算結果を図9に示す。測定結果は、プール温度が 1000K の時には 0.3~0.72 間でばらついているが、その中で特に 0.3~0.45 間にデータが多い。また、プール温度が 900K 及び 950K の時には、少ないデータではあるものの、0.2 度程となっている。これらの測定結果から、火炎温度が高くなるにしたがつて飛散率が大きくなることがわかる。

OECD/NEA のベンチマーク解析結果では、エアロゾル幾何平均半径 ( $r_g$ ) が  $2.0 \sim 7.0 \mu\text{m}$  であったことから、本解析では式(14)及び(15)の幾何平均半径を、 $r_g = 1.0$ 、 $5.0$  及び  $10.0 \mu\text{m}$  と仮定して飛散率を計算した。図 9 から、プール温度が  $1000$  の時には  $r_g = 5.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$ 、 $950\text{K}$  の時には  $r_g = 5.0 \mu\text{m}$ 、及び  $900\text{K}$  の時には  $r_g = 1.0 \mu\text{m}$  と仮定した場合が測定結果を比較的良く説明することができる。すなわち、火炎温度が高くなるにしたがってエアロゾルの幾何平均半径は大きくなっている。このことは、火炎温度が高いほど気体成分の凝縮やエアロゾル同士の凝集が盛んになり、エアロゾルの成長が促進されるためと考えられる。

従来のプール燃焼解析では、飛散率として Newman と Payne により報告されている  $0.3$  程度の値<sup>[14]</sup>が用いられてきた。この値は、プール温度が  $1000\text{K}$  程度、かつエアロゾルの幾何平均半径が  $5.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$  とした場合には妥当な飛散率を与える事が分かった。

## 5. 結言

湿分がほとんど存在しない体系におけるナトリウムプール燃焼特性や、従来の解析では既知の値と仮定していたエアロゾルの雰囲気中への飛散率などを評価することを目的として、化学平衡燃焼モデル及び対向拡散火炎の理論を用いてプール燃焼解析を行い、そこで発生したエアロゾル挙動を対流による抗力、熱泳動力及び重力を考慮して評価した。

解析の結果、次の結論が得られた。

- (1) 本解析モデルでは、境界層の厚さ及び生成物の割合をあらかじめ与えることなくナトリウムプール燃焼解析が実施でき、しかも妥当な温度分布、化学種濃度分布、及び流速分布が得られることがわかった。
- (2) 本解析モデルはフレームシートモデルと異なり有限の火炎厚さを持ち、しかも実際の燃焼特性を比較的良く説明することがわかった。
- (3) 従来の解析で用いられている飛散率は、プール温度が 1000K 程度かつエアロゾルの幾何平均半径が  $5.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$  とした場合に妥当である事が分かった。

## 謝辞

本研究において、燃焼に対する物理的考察に関し有意義な議論をしていただいた FBEC 技術部の遠藤 寛氏に感謝の意を表します。ナトリウム燃焼の性質について、実験的知見を踏まえたコメントをいただいた JNC 大洗工学センター ナトリウム・安全工学試験部 プラント安全工学グループの宮原 信哉氏に感謝の意を表します。解析手法に関して有意義なコメントをいただいた JNC 大洗工学センター システム技術開発部 热流体技術開発グループの山口 彰氏に感謝の意を表します。また解析手法開発に際して議論していくとともに、コード開発に際して技術的協力を頂いた JNC 大洗工学センターの大平 博昭氏に感謝の意を表します。

## 参考文献

1. K. Sagae, 1985. Development of Analytical Model for Sodium Pool Combustion, J. Nucl. Sci. Technol. 22[11], pp870-880.
2. Y. Kikuchi, 1990. A Fundamental Study of Sodium Pool Combustion, Trans. JSME, Ser. B, 56, pp. 2793-2801.
3. O. Miyake, S. Miyahara, S. Ohno and Y. Himeno, 1991. Sodium Pool Combustion Codes for Evaluation of Fast Breeder Reactor Safety. J. Nucl. Sci. Technol. 28[2], pp. 107-121.
4. A. Yamaguchi et al., 1997. Mechanistic Approach to the Sodium Leakage and Fire Analysis, PNC TN9410 97-040 (in Japanese).
5. Eckhart E. R. and Drake M. R., 1955. Heat and Mass Transfer, McGraw-Hill
6. Y. Okano and A. Yamaguchi, Direct Numerical Simulation of Liquid Sodium Droplet Combustion in Forced Convection Air Flow, to be published in Proc. of 7th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-7239, Tokyo, April 19-23 (1999).
7. Mitchell D. Smooke, 1991. Numerical Modeling of Laminar Diffusion Flames. American Institute of Aeronautics and Astronautics, Vol. 2, New York, pp.183-223.
8. Cunningham, E., 1910. On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles Through Fluid Medium, Proc. R. Soc., A-83, 357-365.
9. Waldmann, L., and Schmitt, K. H., in Aerosol Science, C. N. Davies (Ed.), Academic Press, London, 1966.
10. Newman R. N. and Payne J. F. B., 1976. ANS ERDA AIME, Int. Conf. On Liquid Metals Technology in Energy Rod, Champion Penn.
11. G. Dixon-lewis, T. David, P. H. Gaskell, S. Fukutani, H. Jinno, J. A. Miller, R. J. Kee, M. D. Smooke, N. Peters, E. Effelsberg, J. Warnatz, F. Behrendt, 1984. Calculation of the Structure and Extinction Limit of a Methane-Air Counterflow Diffusion Flame in the Forward Stagnation Region of a Porous Cylinder. Twentieth Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, pp.1893-1904.
12. OECD-NEA, 1979. Nuclear Aerosols in Reactor Safety, CSNI/SOAR.
13. Newman R. N. and Payne J. F. B., 1978. The Burning Rates of Sodium Pool Fires. Combustion and Flame, 33, pp291-297.
14. Newman R. N., 1983. The ignition and burning behaviour of sodium metal in air. Progress in Nuclear Energy, Vol. 12, No. 2, pp.119-147.
15. J.P.Holman, 1976, Heat Transfer, McGraw-Hill.
16. R. Byron Bird, Warren E. Stewart and Edwin N. Lightfoot, 1960, Transport phenomena, John Wiley & Sons.

## 表

表 1 各種物性値

空気の衝突直径 $d_m$	$3.7 \times 10^{-8}$ [cm]
エアロゾル粒径分布の標準偏差 $\sigma$	2.0 [-]
エアロゾルの見かけ密度 $\rho_a$	0.3 [g/cm <sup>3</sup> ]

表 2 空気の粘性係数と熱伝導度[15]

$T$ [K]	$\mu$ [ $\times 10^5$ kg/m·s]	$\lambda$ [W/m·K]
600	0.0003018	0.04659
650	0.0003177	0.04953
700	0.0003332	0.0523
750	0.0003481	0.05509
800	0.0003625	0.05779
850	0.0003765	0.06028
900	0.0003899	0.06279
950	0.0004023	0.06525
1000	0.0004152	0.06752
1100	0.000444	0.0732
1200	0.000469	0.0782
1300	0.000493	0.0837
1400	0.000517	0.0891
1500	0.00054	0.0946
1600	0.000563	0.100
1700	0.000585	0.105
1800	0.000607	0.111
1900	0.000629	0.117
2000	0.00065	0.124

表 3 氮素と酸素の臨界圧力  $T_c$ 、臨界温度  $P_c$  [16]

Substance	$T_c$ [K]	$P_c$ [atm]
N <sub>2</sub>	126.2	33.5
O <sub>2</sub>	154.4	49.7

表 4 Naの比熱

T[K]	Cp [J/kg·K]
500	3335.825
600	3142.772
700	2956.413
800	2776.748
900	2603.777
1000	2437.5
1100	2277.917
1200	2125.028
1300	1978.833
1400	1839.332
1500	1706.525

表 5 酸素の比熱[15]

T[K]	Cp [J/kg·K]
900	1073.5938
1000	1089.6875
1100	1103.125
1200	1114.5938
1300	1124.625
1400	1133.6563
1500	1142.0
1600	1149.875
1700	1157.5
1800	1164.9063
1900	1172.1875
2000	1179.4063

表 6 窒素の比熱[15]

T[K]	Cp [J/kg·K]
298	1039.8
300	1039.8
400	1044.1
500	1055.9
600	1074.9
700	1097.9
800	1122.1
900	1145.7
1000	1167.4
1100	1186.8
1200	1204.1
1300	1219.2

表 7 比較した実験の一覧

Reference	%O <sub>2</sub>	Characteristic pool dimension and pool area
Newman and Payne (1976) (for calculation)	21	0.1m; 0.0079m <sup>2</sup>
Koontz et al. (1969,1966)	21	0.6096m;0.292 m <sup>2</sup>
	21	0.2032m;0.032 m <sup>2</sup>
Huber et al. (1974)	21	1m;1.1 m <sup>2</sup>
	21	2.1m;4.5 m <sup>2</sup>
	21	0.41m;0.18 m <sup>2</sup>
Lauben (1966)	21	0.6096m;0.292 m <sup>2</sup>
	21	0.267m;0.056 m <sup>2</sup>

図

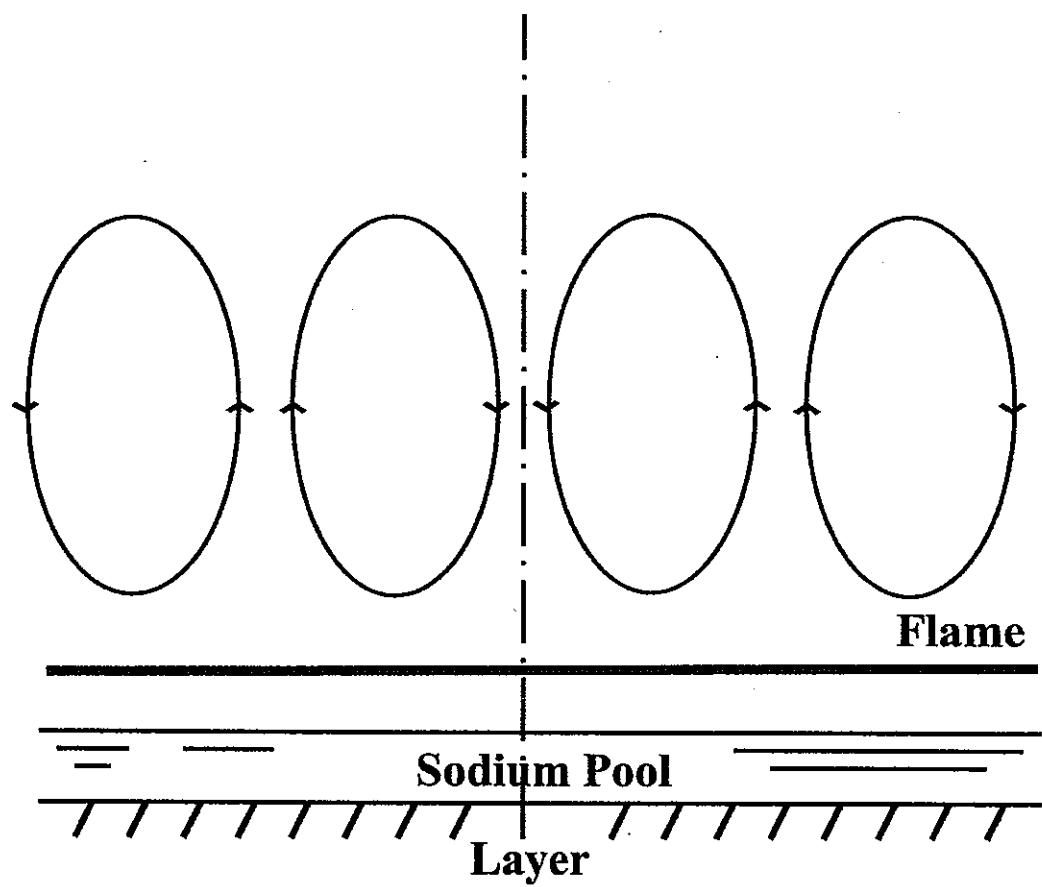


図 1 仮定したプール表面近傍の流れ

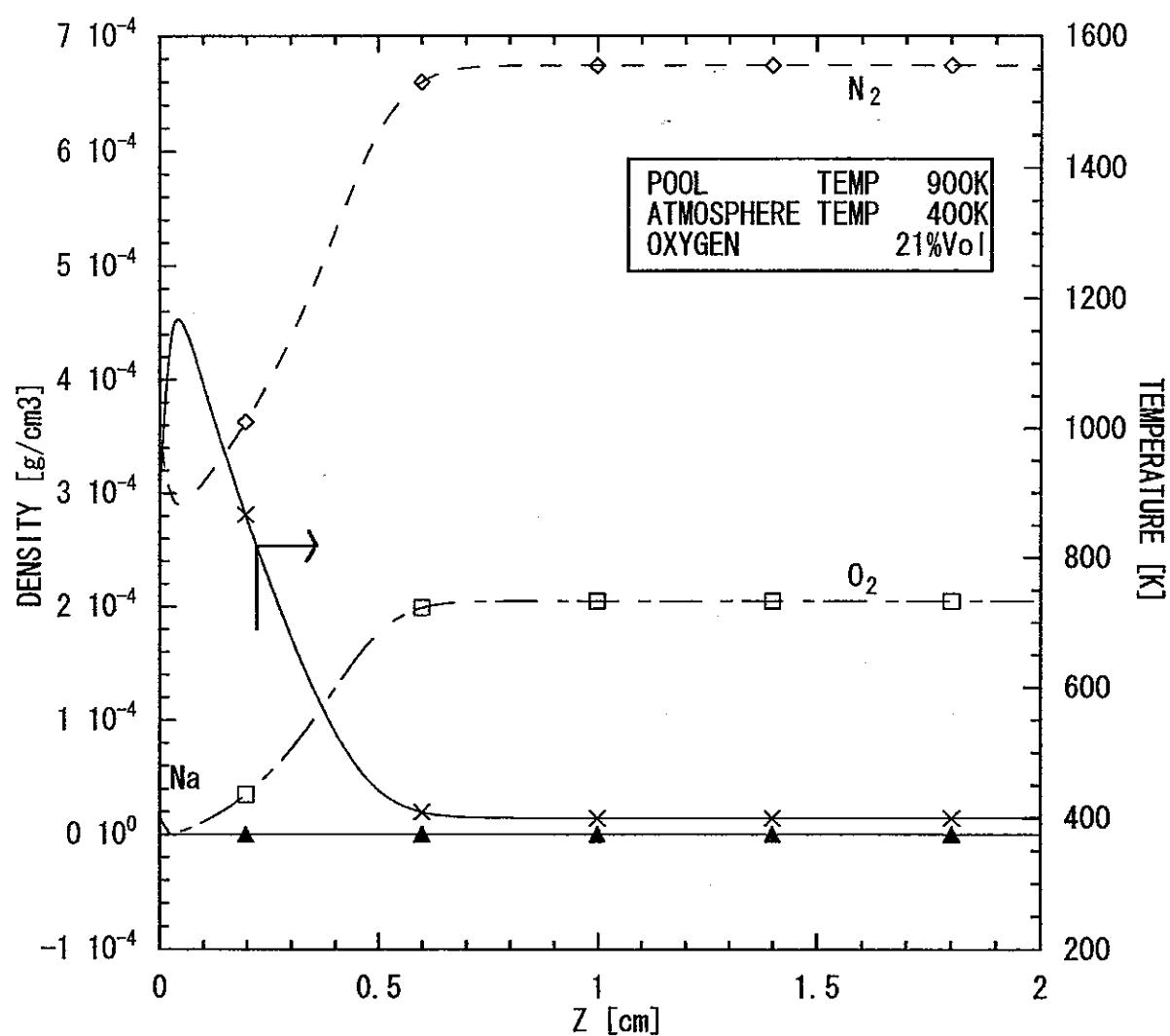


図 2 プール温度 900K における濃度分布と温度分布の計算値

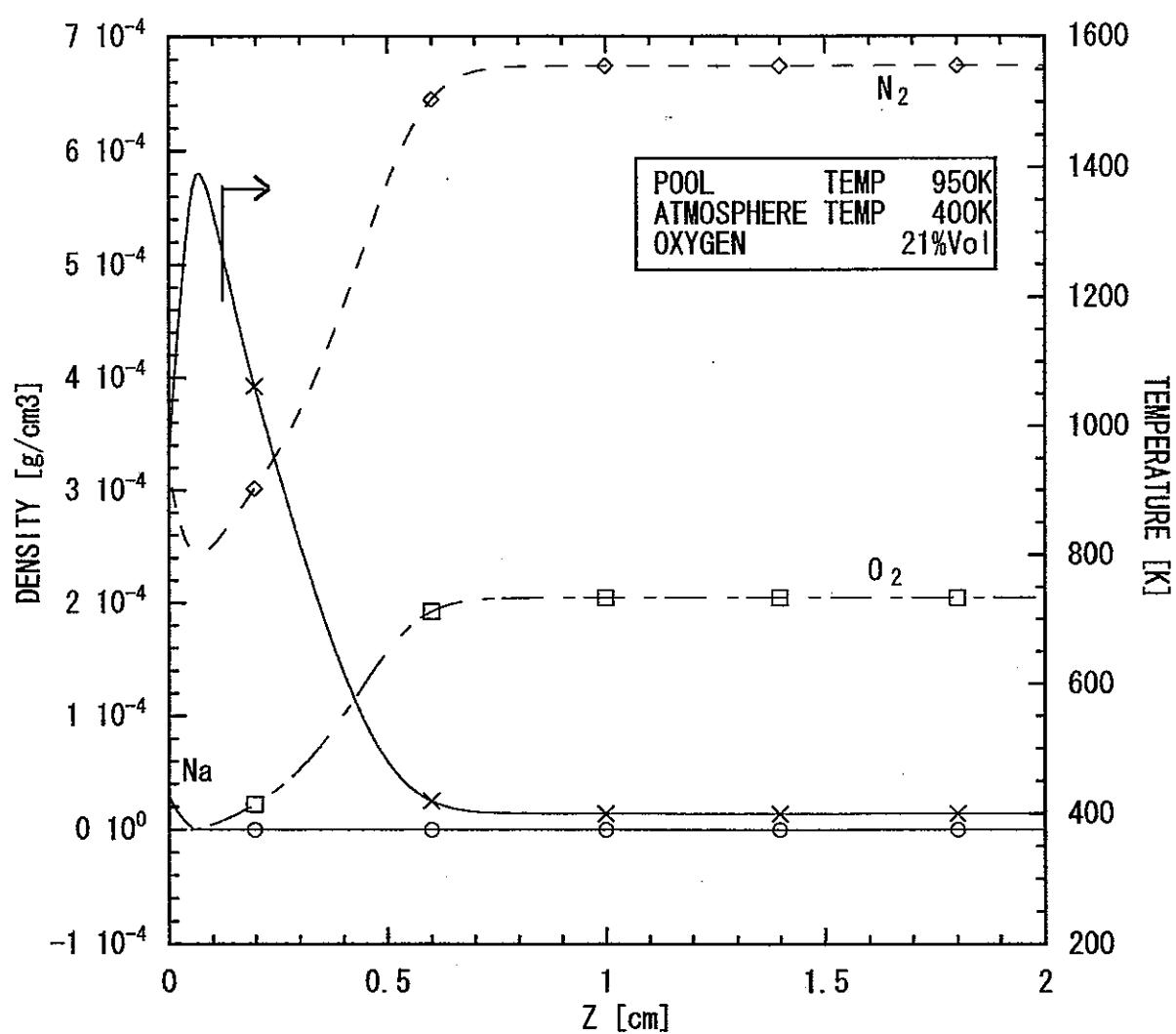


図 3 プール温度 950K における濃度分布と温度分布の計算値

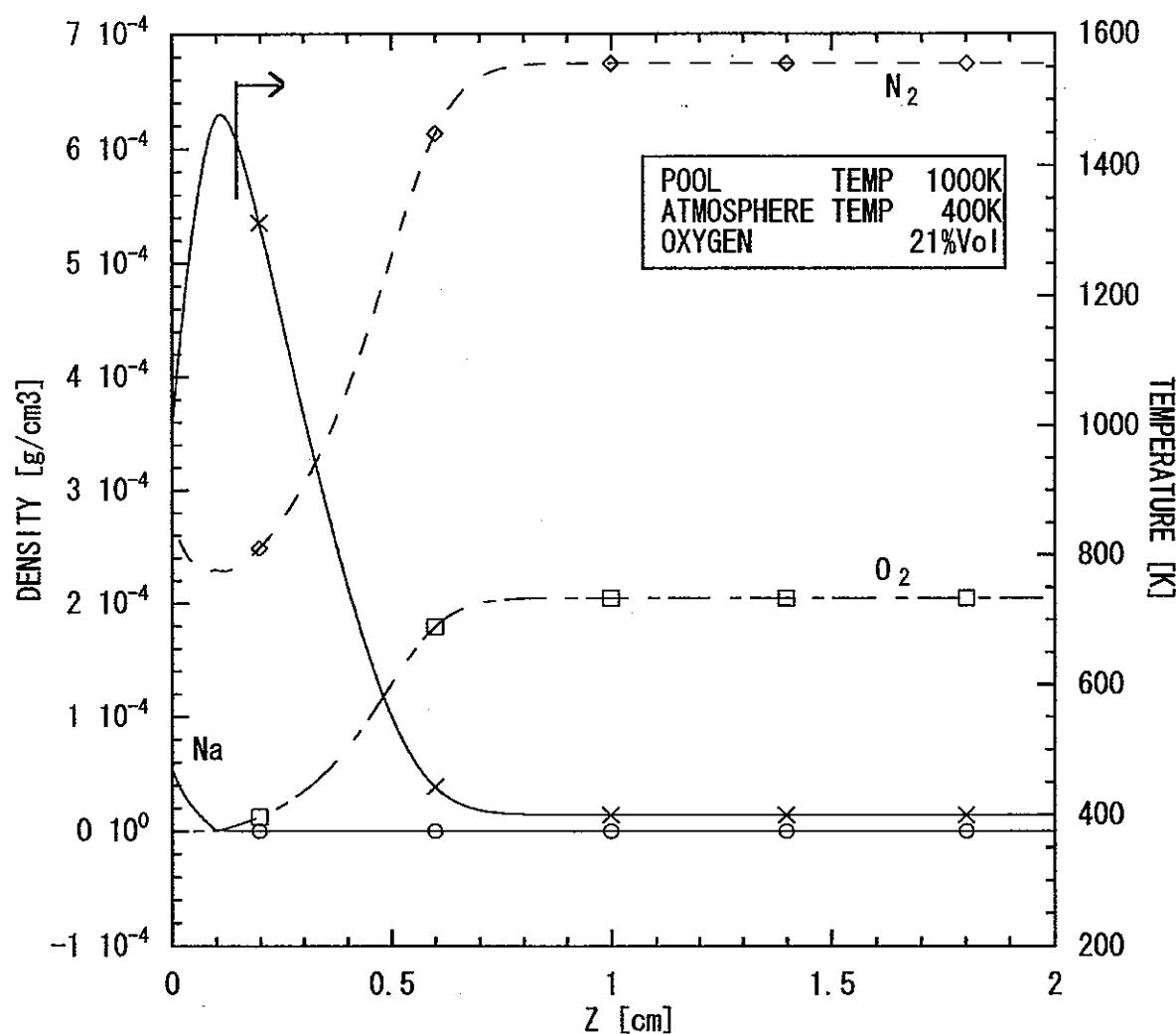


図 4 プール温度 1000K における濃度分布と温度分布の計算値

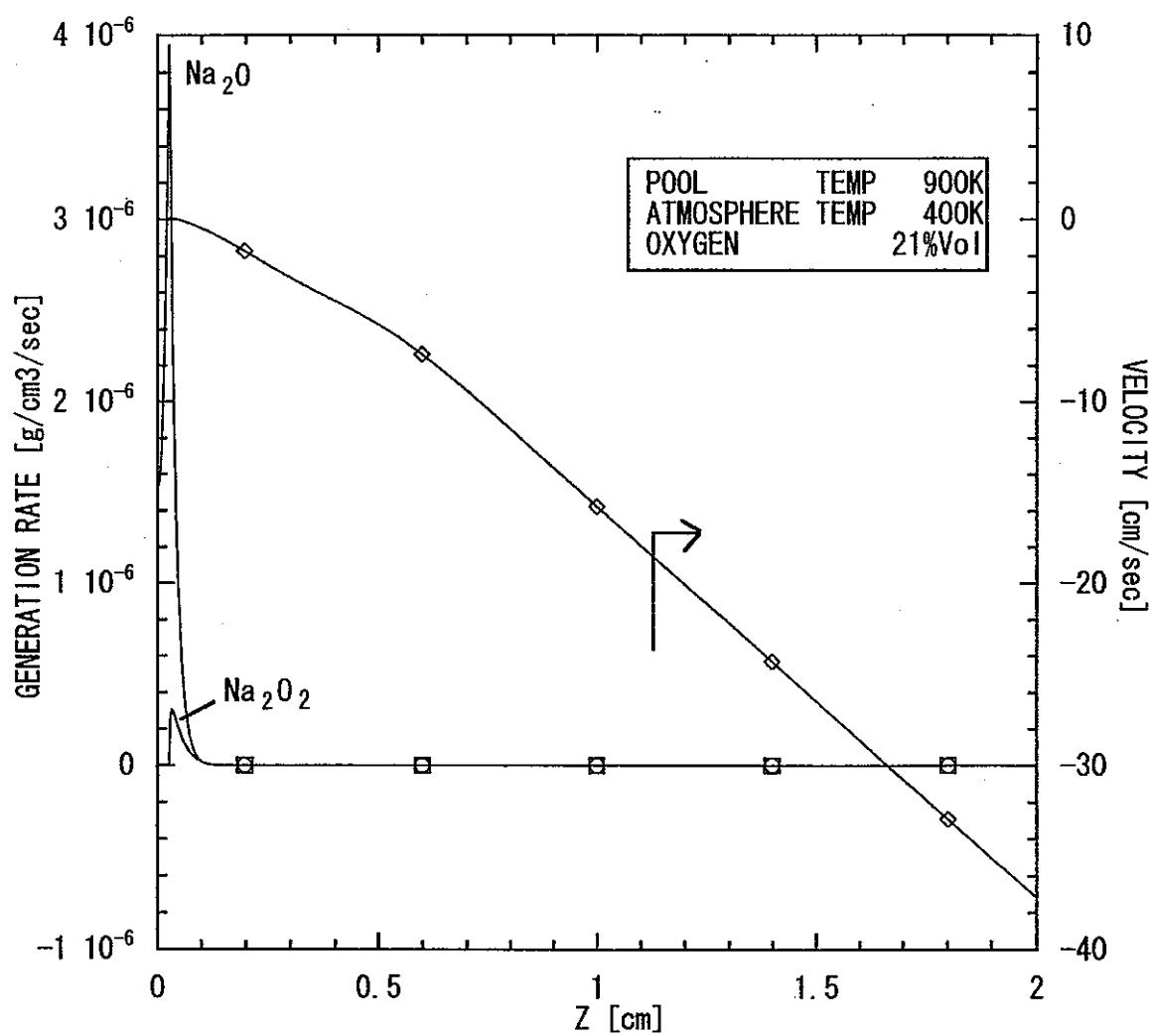


図 5 プール温度 900K における生成率分布と流速分布の計算値

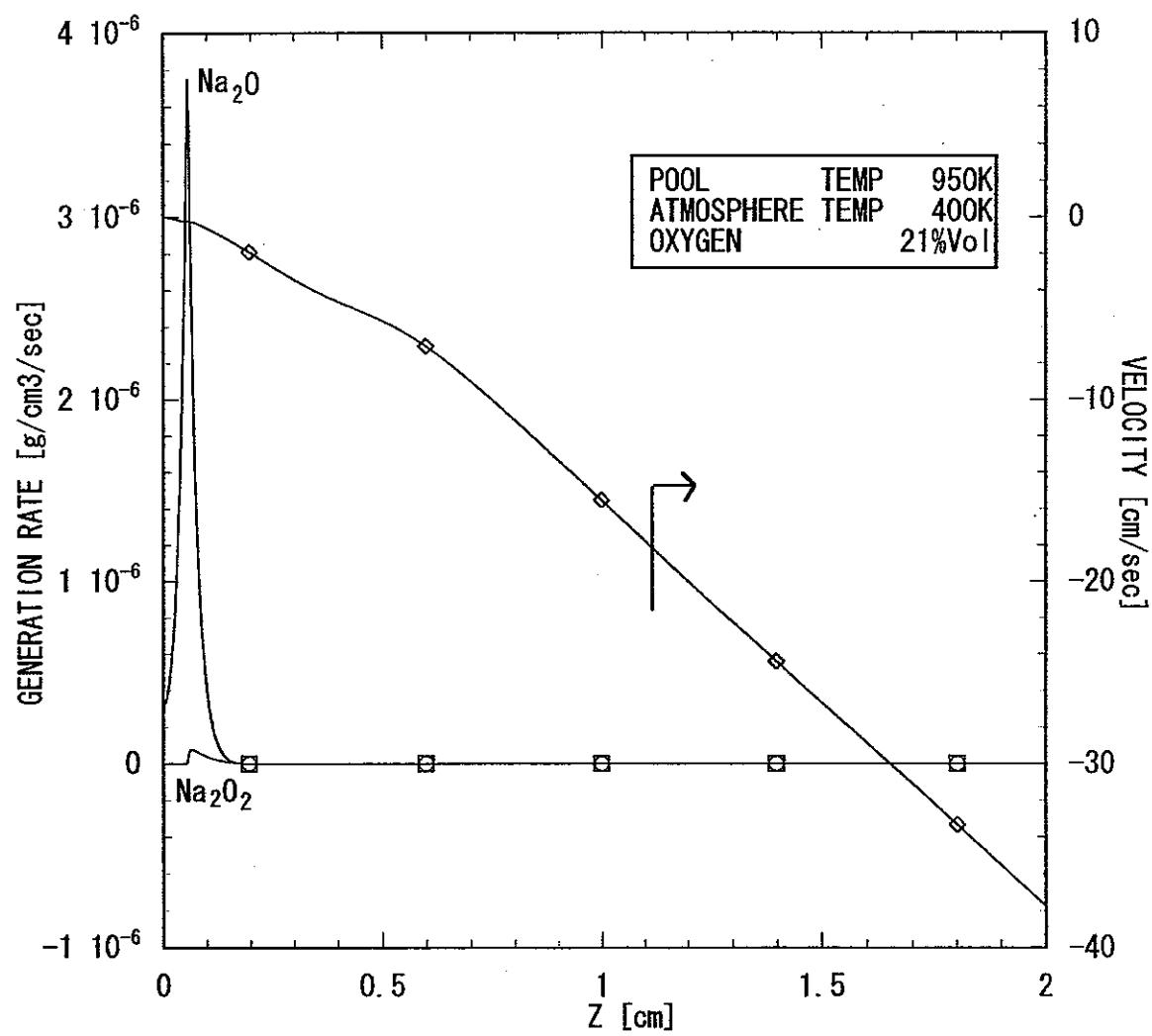


図 6 プール温度 950K における生成率分布と流速分布の計算値

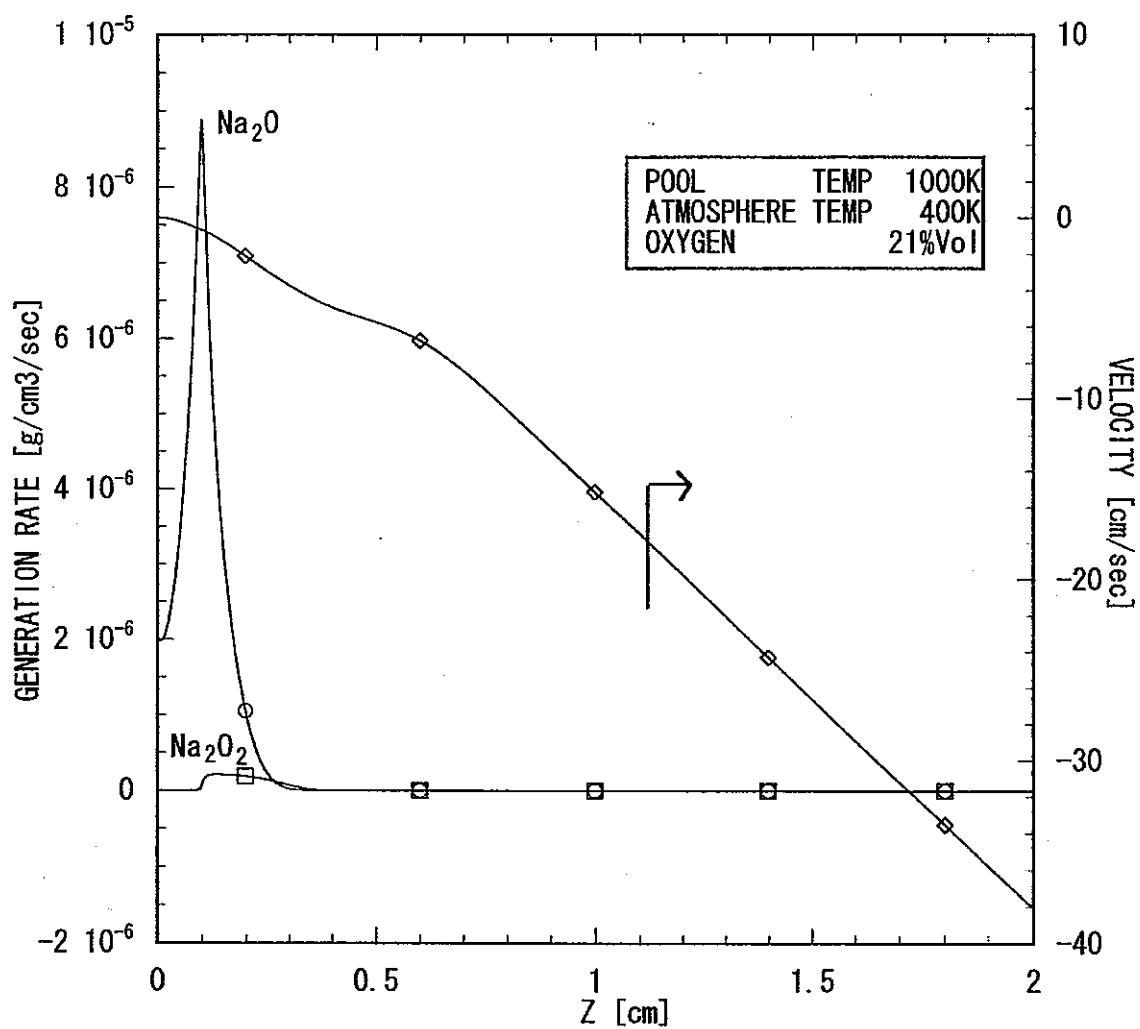


図 7 プール温度 1000K における生成率分布と流速分布の計算値

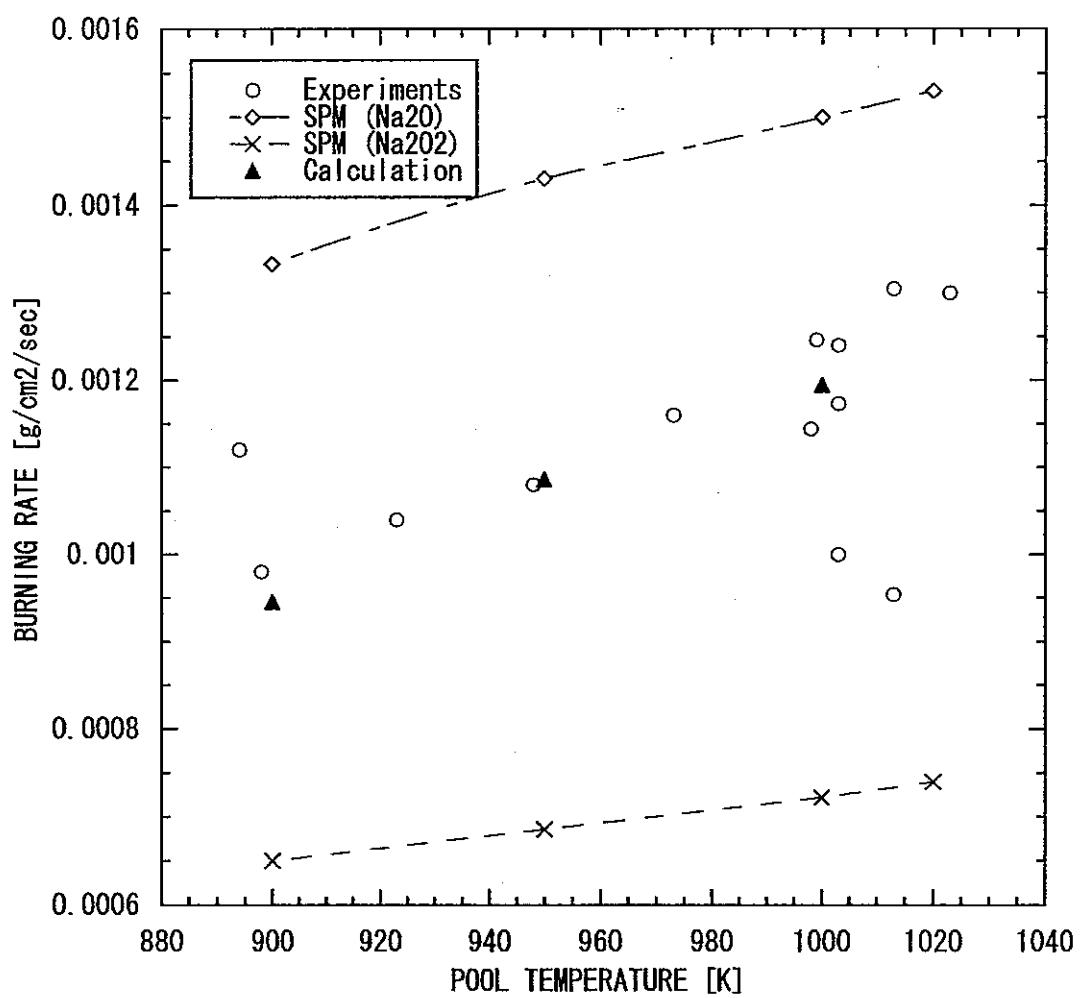


図 8 燃焼率の測定値、本モデルの計算値、SPM コードの計算値の比較

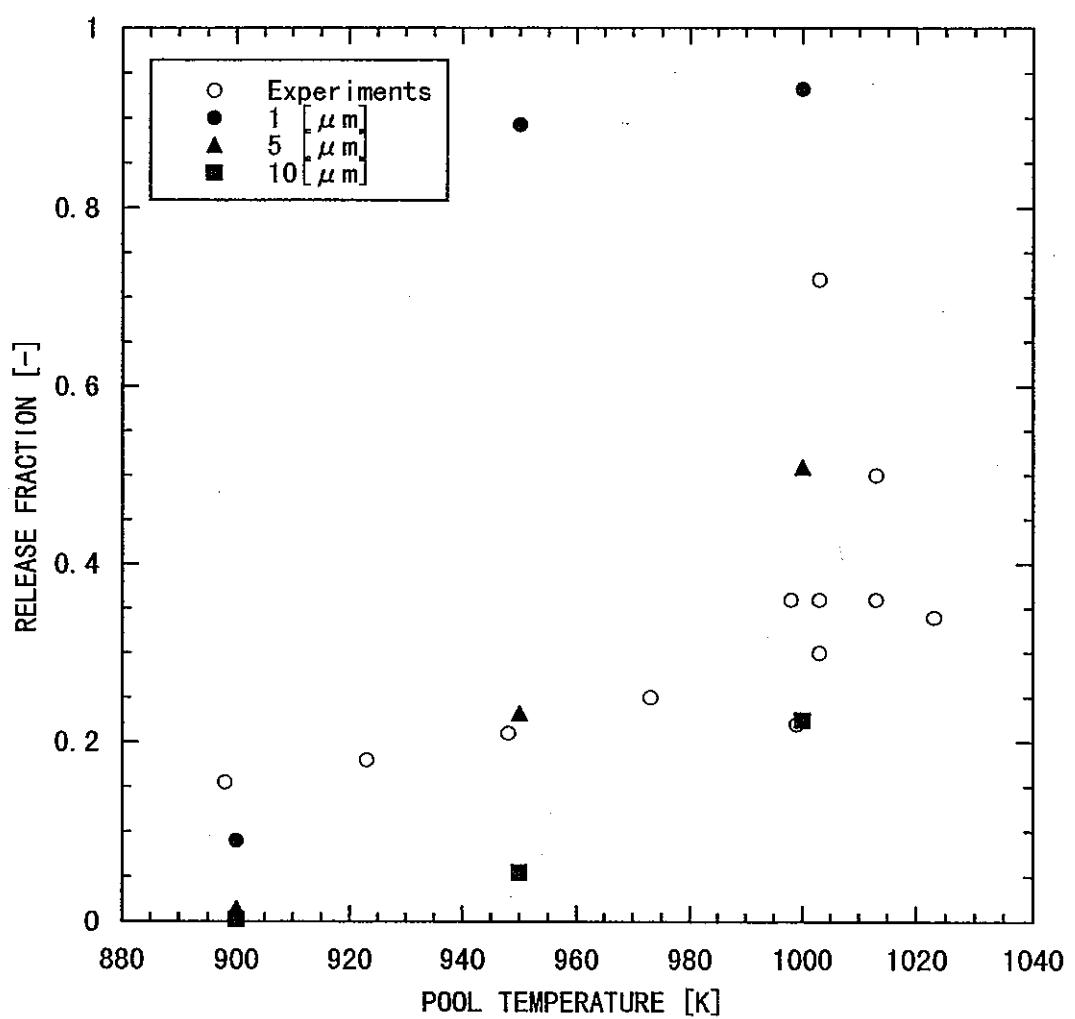


図 9 飛散率の測定値と幾何平均半径を  $1\mu\text{m}$ ,  $5\mu\text{m}$ ,  $10\mu\text{m}$  と仮定した場合の計算値の比較