

PNC-TJ250 75-49

JAERI-M

6073

本資料は1996年9月21日付けで登録区分
変更する。

[技術情報グループ]

ナトリウム火災モデル試験

1975年3月

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



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

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

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

ナトリウム火災モデル試験

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

吉川和夫、木谷 進、山田栄吉*

村田秀男、春田秀人†、大山信美‡

高橋和宏§

(1975年2月13日受理)

Na 冷却高炉の安全解析に際し、格納容器内で Na 火災が発生した場合の Na の燃焼状態、格納容器の安全性を把握するため、高さ 2 m、直径 1.5 m、内容積 3.2 m³ の密閉容器で 0.3、0.15、0.075 m² の燃焼表面積をもたせた Na 火災の 1~6 回のモデル試験を、初期 Na 温度、初期酸素濃度、湿度等を変化させつつ行った。そして、酸素濃度変化、ガス密度変化および発熱量より燃焼速度を求めた。

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

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

(現在) * 動力炉・核燃料開発事業団

** 日本無機繊維 KK

総 次

Model Experiments on Na Pool Fire

Kazuo FURUKAWA, Susumu KITANI, Eikichi YAMADA*,
Hideo MURATA, Hideto HARUTA*, Nobumi OYAMA* and

Kazuhiro TAKAHASHI**

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received February 13, 1975)

In Na-cooled Fast Breeder Hazard Analysis for a Na pool fire in the reactor containment vessel, Na fire model experiments have been carried out with a 3.2 m³ closed vessel of height 2 m and diameter 1.5 m.

The burning areas used are 0.3, 0.15 and 0.075 m². For the different initial Na temperatures, initial oxygen contents and atmospheric humidities, the burning rate was estimated from change of the oxygen content in the atmosphere, gas density or generated heat.

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

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

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

** Nippon Muki Seini K.K.

緒 論	1
同実験	2
第Ⅰ篇 ナトリウム火災モデル試験 (I)	4
第Ⅱ篇 ナトリウム火災モデル試験 (II)	7
(後記)	71
	116

緒 言

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

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

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

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

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

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

総括

Na浴槽高速実験がる蓄熱器内における Na ノール火災のモデル実験が、その安全解析のため実施された。

火災実験器は、直径 1.5 m、高さ 1 m、内容積 3.2 m³であり、断然的に実験できるよう保温材で施されている。その容器の底には Na ノールを貯める皿があり、その中に加熱された Na が急速に供給される。この皿、配管および Na は、予定された同じ温度に保たれている。

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

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

実施された 16 回の試験よりえられた結論は次のとおりなものである。

- (1) Na の燃焼速度を推定するのにより信頼できる方法は、ガス中燃素濃度測定法よりも、先生熱集計法およびガス密度法であった。これは、より大型の容器においても成立するであろう。
 - (2) 反応容器内の空気によって、500 ℃の Na 表面が燃焼する速度は、燃焼時間内ではほぼ一定速度であった。火点は次第に減少する。また容器の横断面積（または底面積）と Na 表面積の比に、燃焼速度は強く依存する。（第 II 節第 6.1 図参照）
 - (3) 最大 Na 表面積（炉床全面積に相当）に外挿された燃焼速度は、0.4 kg Na/m² min 以下と推定された。
 - (4) ガス中の相対湿度を 20% ～ 30% ～ 80% の範囲に変化させたが、燃焼速度の変化は認められなかつた。
 - (5) Na ノールの深さの影響は、50 ～ 150 mm の範囲では燃焼速度に変化をもたらすと思われなかつた。（150 mm は実験での最大予想値である。）
 - (6) ガス中の燃素濃度が 5% 以下となると、発光止まり燃素濃度は燃焼速度に拘束して一次反応となる。
 - (7) 初期燃素濃度が 10% 以下のガス中では、発光を作り激しい燃焼とならず、おだやかな燃化反応のみとなる。
 - (8) 一般に液化・還元反応は、次の反応式で近似できる。
- $$2 \text{Na} + \frac{1}{2} \text{O}_2 \rightarrow \text{Na}_2\text{O} + 1.04 \text{ k cal}$$
- これは反応の熱解析により明かにされた。
- (9) 以上の結果は、約 200 ppm Ca と約 2000 ppm K を含む Na 金剛に対してえたものである。Ca または K が約 10 倍多い Na に対しては、上記より 10 倍高い燃焼速度となる。
 - (10) 燃焼速度に関する U.S. の結果(2)および(3)は、Atomics International が約 10 倍値

の反応器で行った 1 回の実験の結果とよく一致する。これは我々の結果を原子炉の場合に外挙できる可能性を示すものであらう。（第 I 節 § 7.5、第 II 節第 6.1 の参考）

この研究は、動力炉・核燃料開発事業団からの委託に基いて行われたものである。

SUMMARY*

Simulating the sodium pool fire in the container of Fast Reactor
** experimental tests was done for the hazard analysis.

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

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

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

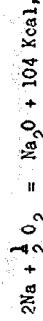
Some conclusions of the results of 16 tests were as follows:

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

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

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

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



which was supported by the thermal analysis of reaction heat.

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

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

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

第一篇 ナトリウム火災モデル試験 (I)

要　　旨

本報告書は、高速実験炉の安全解析に際し、格納容器内でNa火災が発生した場合のNaの燃焼状態、格納容器の安全性を把握するため、高さ2m、直径1.5mの密閉容器で0.075, 0.15, 0.3m²の燃焼表面積をもたせたNa火災のモデル試験を、温度、酸素濃度、湿度等を変えて行ったものの結果について述べたものである。

1968年12月

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

Section I:

Model Experiments of Na Pool Fire - No. I

Abstract

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

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

Three different pool surface areas were used; i.e., 0.075 m², 0.15 m² and 0.3 m². Sodium temperature, oxygen content and humidity in the vessel were varied for the study.

Dec. 1968

Furukawa K. et al.

目 次

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

5.4 結果および検討	52	第3.7図 実験 K6.5 マンホールに堆積した酸化物	25
6. 温度および圧力応答	57	" 3.8 " " K6.6 燃焼皿取出し直後	26
6.1 仮定	57	" 3.9 " " K6.7 燃焼終了直後	26
6.2 基準式	57	" 3.10-1 図 実験 K6.8 Na燃焼現象(10秒毎)	27
6.3 結果および検討	57	" 3.10-2 図 " "	28
7. 総括的考察および結論	61	第4.1図 酸素濃度測定フローチート	33
7.1 はじめに	61	" 4.2 " 檢量線の精度	34
7.2 観察事実より見て	61	" 4.3 " サンプリングの差れ	35
7.3 酸素濃度変化から見て	61	" 4.4 " 実験 K6.2 酸素濃度の経時変化	35
7.4 燃焼熱および圧力応答から見て	62	" 4.5 " " K6.3 "	36
7.5 最近のAIの実験およびそれとの比較	63	" 4.6 " " K6.4 "	36
7.6 結論	65	" 4.7 " " K6.5 "	37
8. 参考文献	67	" 4.8 " " K6.6 "	37
		" 4.9 " " K6.7 "	38
		" 4.10 " " K6.8 "	38
		" 4.11 " 燃焼速度とS/S ₀ の関係	42
		" 4.12 " 燃焼速度とNa深さの関係	42
第1.1表 試験条件(計画)	14	" 4.13 " 燃焼速度と初期水蒸気量との関係	43
2.1 試験装置一覧表	16	" 4.14 " 燃焼速度と初期火災熱量の関係	43
2.2 Na燃焼皿	19	第5.1図 Naマニホール火災圧力容器温度計測定	45
3.1 試験条件と経過	20	" 5.2 " ヒートバランスプロセスの模型	47
3.2 各実験の相互比較対照表	21	" 5.3 " フローチート	47
3.3 燃焼による生成物の分析結果	29	" 5.4 " 多重層の温度分布	48
4.1 各条件下における燃焼速度	40	" 5.5 " 热量と温度の関係	48
		" 5.6 " 実験 K6.4 圧力容器内半径方向温度分布	55
		" 5.7 " " K6.5 "	55
		" 5.8 " " K6.8 "	55
		" 5.9 " " K6.5 圧力容器中心方向温度分布	56
第2.1図 Na火災モデル試験用施設	17	" 5.10 " " K6.6 "	56
2.2 試験装置フローチート	18	" 5.11 " " K6.8 酸素濃度・密度および発熱量の変化	56
2.3 試験装置配置図	18	第6.1図 実験 K6.8 温度および圧力応答	58
2.4 試験容器本体	17	" 6.2 " " K6.2 "	58
3.1 実験 K6.1 燃焼後の生成物	24	" 6.3 " " K6.3 "	59
3.2 K6.2 容器より取はずし直後のNa燃焼皿	24	" 6.4 " " K6.4 "	59
3.3 K6.3 観察窓	24		
3.4 K6.5 燃焼3hr後	24		
3.6 容器内部に堆積した酸化物	25		

目 次

表 目 次

§ 1 実験目的および条件

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

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

- (1) 高さ2m、直径1.5mの上部を半球形に近くした炉容器に形状が似たものとする。
- (2) 容器内の空気によるNa燃焼時間はほぼ R (Na 燃焼面積/空気容積)に反比例すると考えてよいであろう。したがつて高速実験炉の

$$R_E = A m^2 / V m^3 = 53.0 m^2 / 1.2 \times 10^4 m^3 = 0.044 m^{-1}$$

に近いモデル容器およびNa燃焼皿を設計する。

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

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

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

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

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

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

上記のための測定項目としては

- I 1回毎の注入Na量
- II 初期空気状態(酸素濃度、湿度)
- III 燃焼中、燃焼後の酸素濃度
- IV 各部の温度変化
- V 容器内の圧力変化
- VI 燃焼状態の観察と記録
- VII 燃焼生成物の化学分析

等を第1.1表に示した7ケースについて実験を行なうこととした。

次に実験装置について概略を説明する。

§ 2 実験装置

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

第1.1表 実験条件(計画)

Na 初期温度		500°C				1500°C			
液 深 度	保 持 深 度	50 mm		150 mm		50 mm		150 mm	
O ₂ ガス初期濃度 % (Na ガスで希釈)		5	21	10		5	21	10	
燃焼面積 (m ²)	0.15	0.15	0.075	0.15	0.30	0.15	0.15	0.075	0.15
温度 (20°C, ℃)	70	70	70	70	70	70	70	70	40
試験回数	1	1	1	1	1	1	1	1	1

2.1 実験用建屋(屋根付き裏庭)および計測用バケツ

3.5 m × 4 m × 4 mの簡易建屋が、ナトリウム研究、Na 处理室の南側壁に付設して作られた。計測用バケツはNa 处理室の操作室に設置され、連絡用小窓や、配管用貫通孔が南側壁にあけられた。(第2.1図)

2.2 試験装置

試験装置は、本体およびNa 溶融タンク、Na 溶融皿、が主要な構成機器であり、Na 容器、Ar ガス、真空系がNa 光沢のために使用された。個々の器材で重要なものとしては、ファンドライバーハブルア、ペローシールバルブ、非接触继手、安全弁などがある。試験装置のフローリートを第2.2図に示し、実験室内の配線図を第2.3図に主要な構成機器を個別に概略説明する。

I) 本体(試験容器): 約3.5 m³のステンレス鋼製ドーム造りで、500 ℃マシンホール、観察窓、温度計用ノズル、安全弁などが付属品としてあり、Na 溶融皿を下部でファンドライバー構造であり、この中でNa を燃焼させるものである。(第2.4図)

II) Na 燃焼皿: Na 溶融タンクから導入したNa を燃焼させる容器で、本体とファンドライバー構造になつてある。Na の底や表面積を試験条件によつて変えるため、第2.1図に示すように4種類ある。

III) Na 溶融タンク: 約80 ℥のNa を収容でき、ここでNa を試験温度である500°C

まで加熱して、Ar ガスで加圧してNa 溶融皿にNa を送り込むものである。

IV) Na 容器: Na 溶融タンクにNa をチャージする加熱可能な200 ℥用ドラム缶があり合併の上に渠せてあつて、チャージしたNa 缶を移動することができる。

2.3 災害方法

(1) 溶融タンクへのNa チャージ: Na 容器を加熱しNa を溶解させ、Ar ガスで規定量だけNa を注入する。この際のNa チャージは合併により評価する。

① Na 燃焼皿の本体への取付け:

② 漏洩テスト: 本体への air 加圧による。

③ 計算その他の確認

④ 本体内を所定の標準温度、湿度に設定する。

⑤ Na 燃焼皿へのNa チャージ:(Na 溶融タンクをAr ガスで加圧し、連結部のチャーブバルブを開く。チャージ量の検定は燃焼皿内の接觸式液面計データによること。)

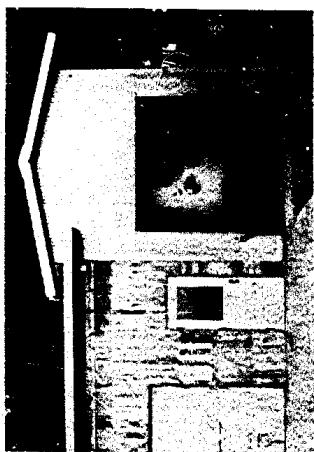
(6) 初 期: ① 溶融(容器盤および内部、燃焼皿)および圧力

② 溶素吸収(ガスクロ、北川式)

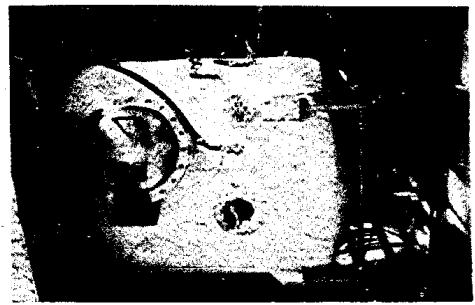
- III) Na 液中の温度分布

表2.1表 計算量與一覽表

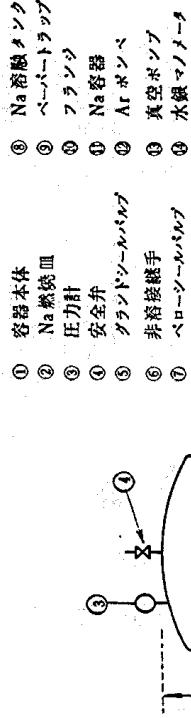
第2.1図 Na火灾モデル試験用建屋



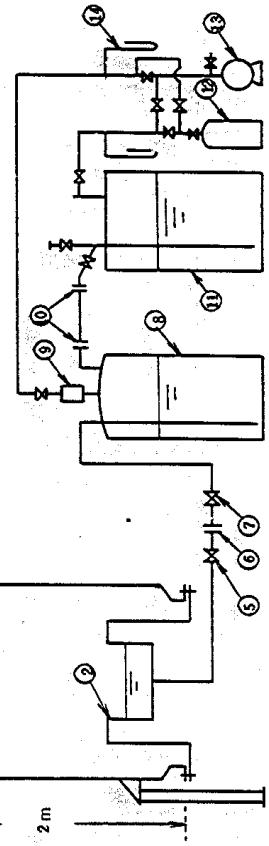
第2.4回 試験容器本体



- IV 燃焼状態の観察(ビデオテープ、8ミリカメラ)
- 用 燃焼反応終了の確認(120°C 清後で剖出し)
- (a) 未反応Na₂の回収
 - (b) Na₂燃焼皿を貯めます。
 - (c) 安全弁
 - (d) フラッシュ
 - (e) 液化物等をサンプリングする。(→分析)
 - (f) Na₂燃焼皿のクリーニング(Na₂処理室で水封罐)
 - (g) Na₂本体をクリーニング(水洗→乾燥)する。
 - (h) 本体をクリーニング(水洗→乾燥)する。
 - (i) 次の実験用機器焼却を取付ける。



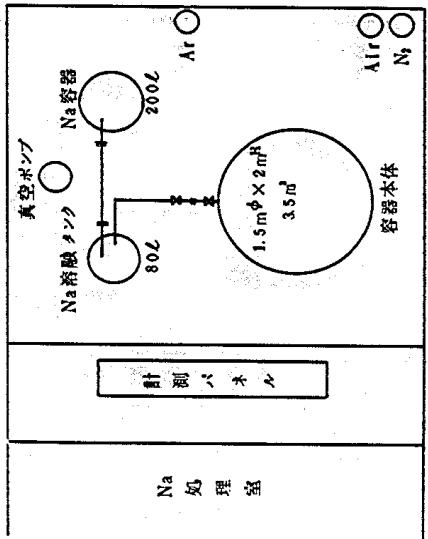
第2.2図 試験装置フローシート



第2.2図 試験装置フローシート

種類	Na量 (kg)	面積 (m ²)	液深 (mm)
A	11.3	0.075	150
B	7.6	0.15	50
C	22.7	0.15	150
D	45.3	0.30	150

第2.2表 Na燃焼皿



第2.3図 試験装置配置図

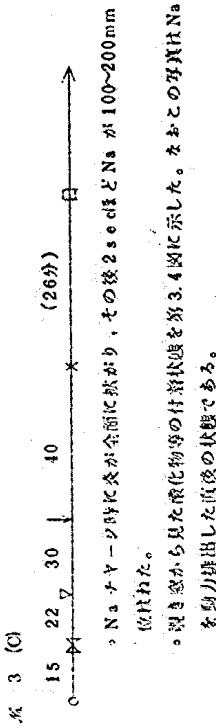
・瓶は燃焼皿に残留したNaは溶液のNaを冷却直前(120~150°C)に取り戻したものであり、液化物等でん毛滴により液体Naの燃焼性が悪くなつたために残留したものである。

・瓶は3分後付近した白色の液化物が黄色の

過液化物に変化し発煙が進行する。
○3.5分後一層発火、危険(第3.3図)
○4分後、液化物の高さが3.5mmから2.0mmに成る。

○6.5分後Na処理管へ遊びNaを水處理する。水處理の際少しつぶ水を散布す

ると1mにも遠ざかる炎を上げて発生した水蒸気が燃焼した。





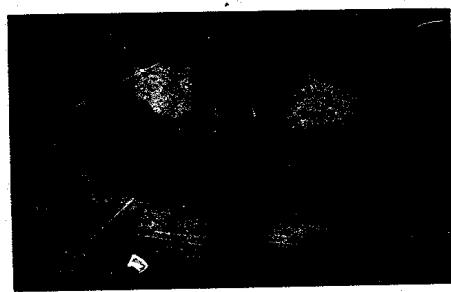
第3.5図 実験 No.5 燃焼 3 hr 後



第3.6図 実験 No.5 谷器内部に堆積した酸化物



第3.7図 実験 No.5 マンホールに堆積した酸化物

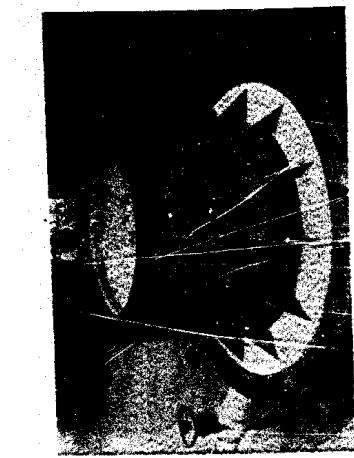
第3.4図 実験 No.2 第3.2図の4分後の状態
(燃焼後2 hr)第3.3図 実験 No.2 第3.2図の4分後の状態
(燃焼後2 hr)

第3.2図 実験 No.2 谷器上部に堆積したNa蒸気

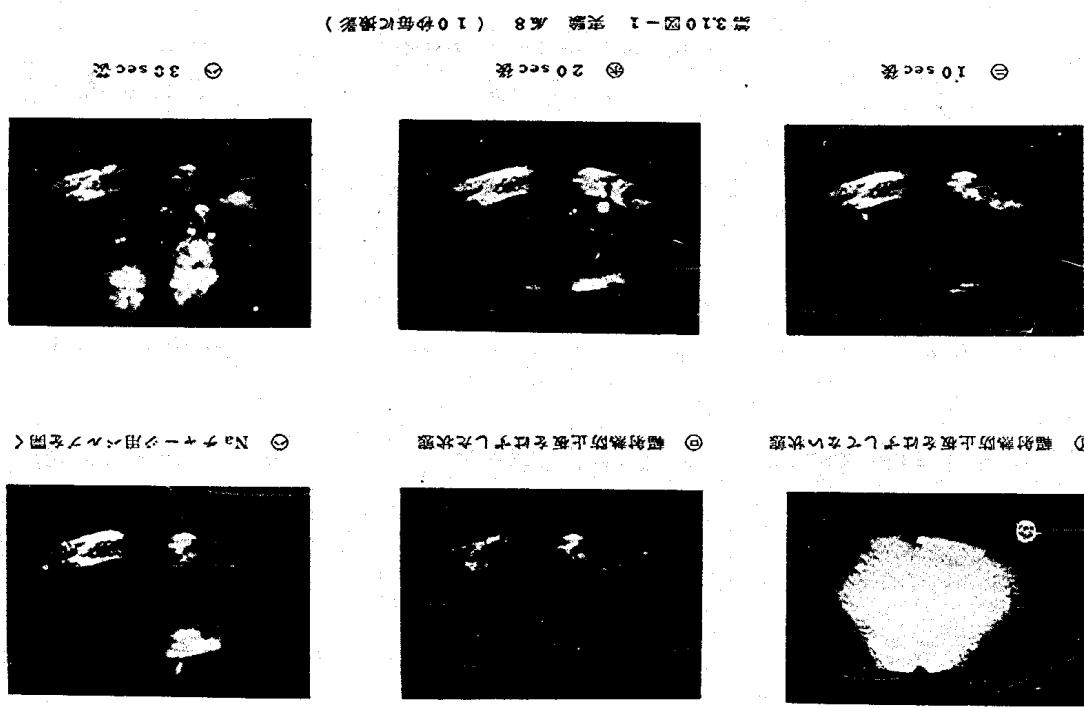


第3.1図 実験 No.1 燃焼後の生鉄管





第3.8図 実験 N66 燃焼皿取出し直後

第3.9図 実験 N67 非発火燃焼終了後のナトリウム液面
(何分後)

第3.3表 燃焼による生成物の分析結果
(原研分析センター)

	K 2 (灰色)	K 4 (灰色)
試料	9.486g	3.407g
液 濃 度	5.00mℓ	2.50mℓ
採 取 量	5.0mℓ	5.0mℓ
滴 定 値	3.275 32.75mℓ	26.75 26.75mℓ
0990N-HCl		
アルカリ性	3.240 32.40ミリ当量	26.45 26.45ミリ当量
ナトリウム	3.240ミリ当量	1.323ミリ当量
ナトリウム	7.45g	3.04g
酸 済 式	2.03g	0.364g
	127.1ミリ当量	22.75ミリ当量
N _a : 0	1 : 0.39	1 : 0.17

3.4 燃焼現象の観察結果の経過

3.4.1 初期燃焼現象の経過(図2-6, 3-7)

(1) 燃焼濃度21%の場合

N_a が注入されると、火点(5~10ms)が数ヶ所発生し、約1分後に全表面に拡大しつつ多点の白煙とともに燃焼が進行し、2.0~2.5分燃焼が続行する。容器内の白煙はやがて粉状になって浮下し、主に容器側下部に堆積(3~5mm)する。堆積した液化物の性状は1)と推察された。容器内の内部は燃焼後約2時間で視野が1.00m²になる。この時の燃焼皿は上部に一層液化したN_a 液滴物が2.0~4.0mm程度あり、燃焼現象が激しいことを示している。なお、N_a は燃焼状態で残り、初期段位より3.0~5.0m²低下している。N_a を着力抨出しした後もN_a が1.5~2.5m²のままで残留するが、これはN_a 液化物が液中に沈殿し、N_a を保護したために液体N_a の流动性が悪くなつたためである。

(2) 燃焼濃度5.2%および9.6%の場合

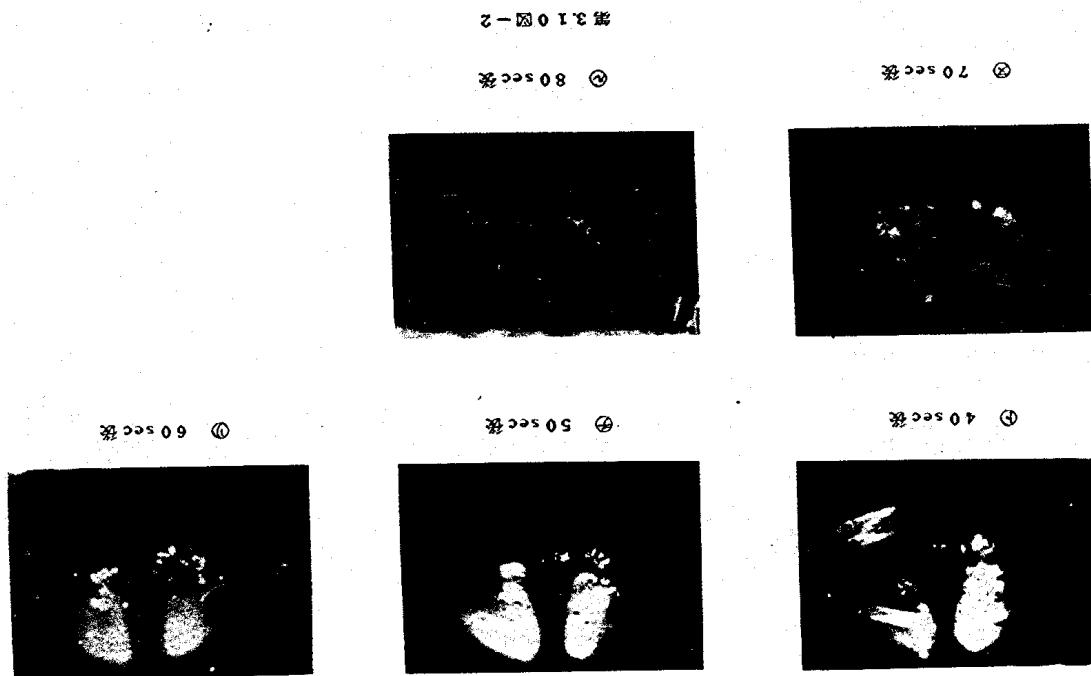
5.2%の場合、N_a は完全燃焼に至らず、そのまま残留した。
燃焼濃度9.6%の場合、燃焼したが、燃焼現象は認められなかつた。

3.4.2 燃焼の経過(図2-3)

特に燃焼が見出せなかつた。ただし、5.0と1.5m²における試験ではいずれも容器内の液滴の消費による自然燃火時にはN_a 液滴体のまゝが燃焼できる程度にや的におい場合であり、液滴が燃焼しつくしてしまつる程度の場合とは比較していい。

3.4.3 水蒸気の燃焼

(1) 装置底面(0.075m²)の場合
燃焼速度が比較的遅く、生成物の性質も表面積の大きさものと比較して多かつた。これは容器本体内における熱対流現象が表面積が大きなものと比べて、よりやさしい傾向を示している。



のと思われる。

(a) 表面積中 ($0.1 \sim 5 \text{ m}^2$) の場合
燃焼状態は表面積の場合より激しくなるが、初期の火点成長の様子は同様である。

(b) 表面積大 (0.30 m^2) の場合

N_{∞} の具現化も多くなるので、予定燃焼に到達する前に発煙によつて視野がゼロになつたが、火点の激大の傾向は表面積による差異ほとんどない。しかし、燃焼時には、浮遊物質は、浮遊物の動きを観察から離脱することにより、燃焼表面積が大の場合器本体内部の対流現象が内消に行われにくいくことからるので、 N_{∞} の燃焼速度とすれば遅くなることが推測される（第5.4図参照）。

3.4.4 混合の影響

低温度 ($3.6.8 \text{ }^{\circ}\text{C} = 20 \text{ }^{\circ}\text{C}$) の方が、通常温度 ($7.0 \text{ }^{\circ}\text{C} = 20 \text{ }^{\circ}\text{C}$) より予定燃焼に到達してから、発煙により容器本体内部の視野がゼロになるまでの時間が約2倍長かつた。
燃焼の現象としては、通常温度の場合は、燃焼時間としては $3 \sim 5$ 分短かつた。

4.2.1 検定法

燃焼および燃焼ガスの入出しが小さいで、その面積はピーチ管さに比例する。
従つて

$$CO_2 = K' P_{CO_2} \quad (1)$$

$$ON_2 = K'' P_{ON_2} \quad (2)$$

$$CO_2 + ON_2 = 1 \quad (3)$$

式(1), (2), (3)より、

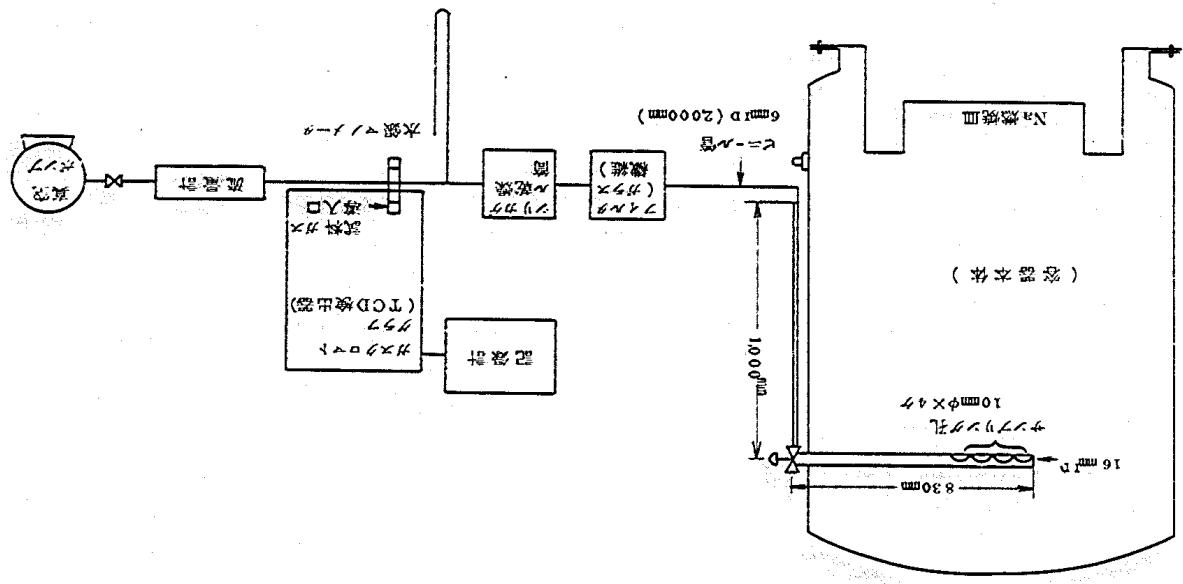
$$P_{CO_2} / P_{ON_2} = \frac{K'}{K''} \frac{100 \times CO_2}{1 - CO_2} = K \frac{100 \times CO_2}{1 - CO_2} \quad (4)$$

Kは試料ガスの全圧、カクハ温、光でん消の劣化係数等により異なつてるので各実験ごとに大気空氣を校正ガスとして求めた。

4.2.2 濃度の算出

検定法の精度を調べるために、 $0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 10$ の各酸素ガスのガスを調査し、それらのクロマトランジを取り、(4)式を作成し、(4)式で求めた理論値と比較した。第5.2図より明らかに理論値と理論値は良く一致しており実験値の誤差は、絶対値 $0.2 \sim 0.4$ %以下であった。

第41图 植物组织固定液



4.2.3 サンアリングの遅れおよびその補正
姫宮内カサンアリング孔(第5.1図)よりガスクロマトグラフィに試料が供給するまでに一定時間が経過する。従つて測定値を真の値に補正する必要がある。
平均遅れ時間はサンアリン孔からガスクロマトグラフィ導入までの所要の体積Vとしが
おきとすれば

(5)

である。 \mathbf{t}' を第4.3図に示した。 \mathbf{t}' の前後で断続が交差しているのは、一方のガスは転換され、一方のガスは流れながらある。一般に $\mathbf{t}'(\mathbf{t})$ を時間にして示すと、 \mathbf{t}' をもじむ時間 \mathbf{T} に対する相定数 \mathbf{I} をもじむ時間 \mathbf{I} について

$$f'(x) = f'(0) + x \frac{df}{dx}(0)$$

が成り立つにおける真の傾き m が得られる。
 実験結果より、 $L = 50/60\text{m}$, $\tau = 35/60\text{m/s}$ が求められ、(6)式を使用して補足定式を
 補正した。データは第 5.4 ~ 5.10 図に m と T の関係として示されている。

4.2.4 溫度の測定

た相対性線 (R/H) をそれぞのデータで表示した。

4.2.5 北川式ガス吸乾管による乾燥度の測定
実験が8で述べて、北川式ガス吸乾管で乾燥度を測定した。サンプリングは第4.1図のA点で行なった。その結果をガスクロマトグラフィによると測定値と比較のため第4.1图に示した各乾燥度 $15\text{V}/\text{o}$ 以下の所ではガスクロマトグラフィによるとよく一致している。

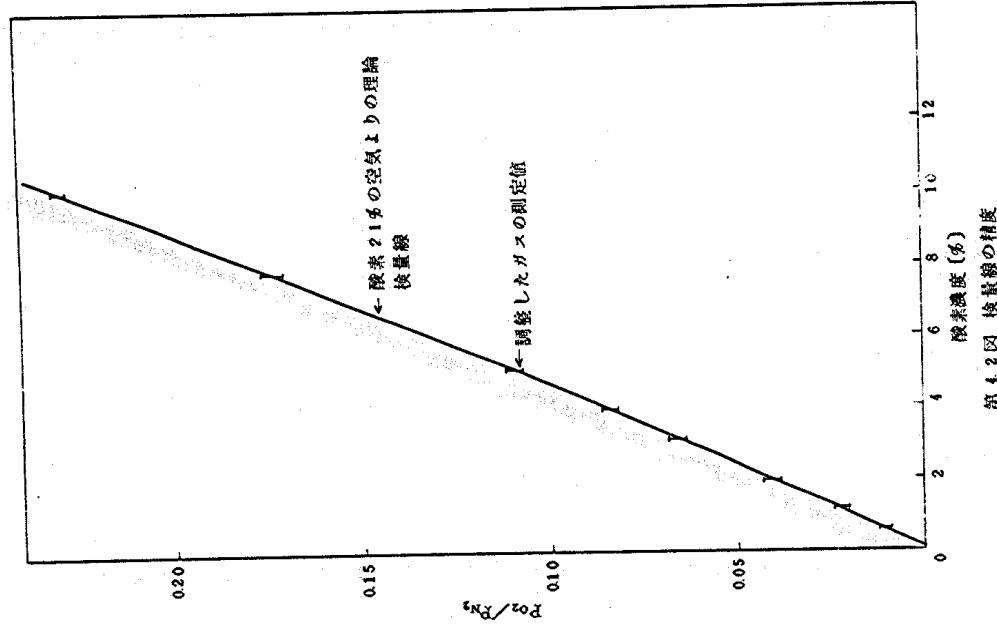
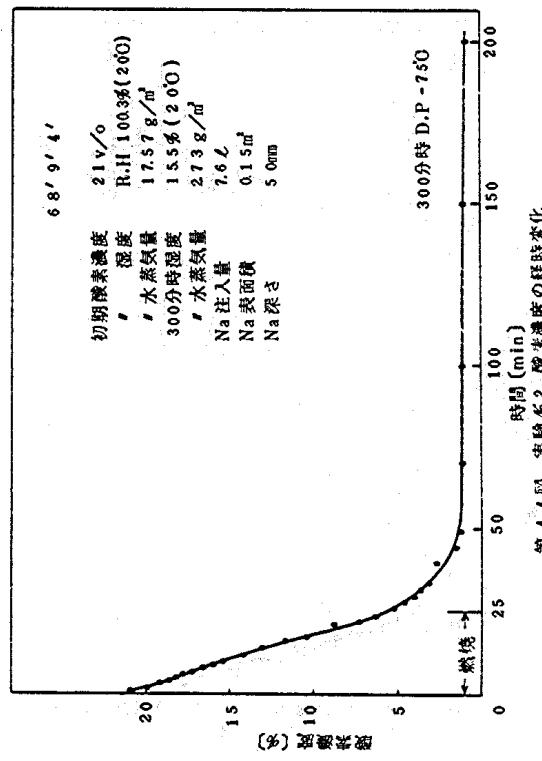
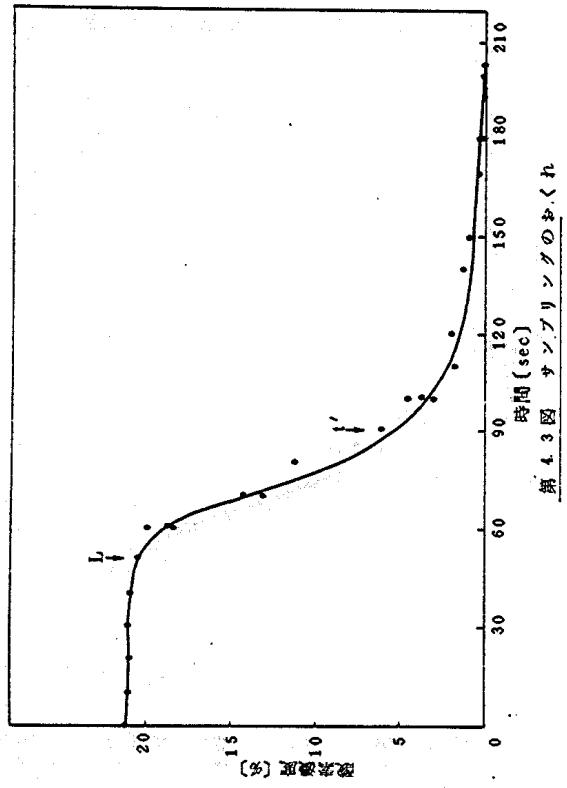
卷之三

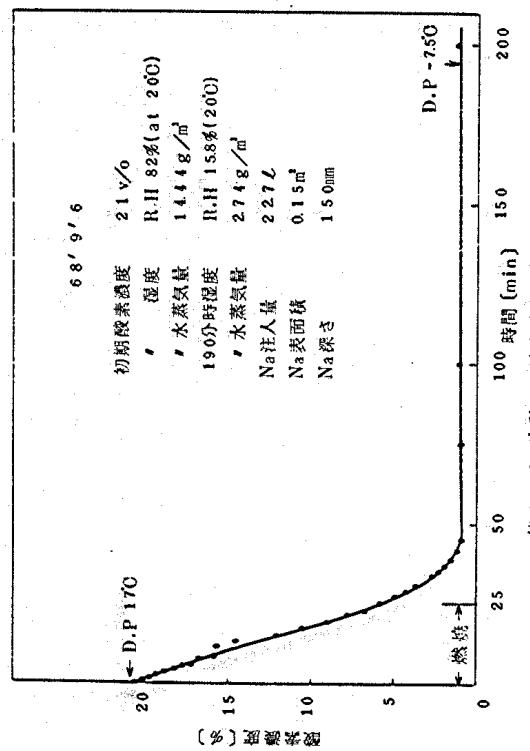
(三) 異地植物

の減少はナトリウムモルの減少に対応する。一般に一次反応速度

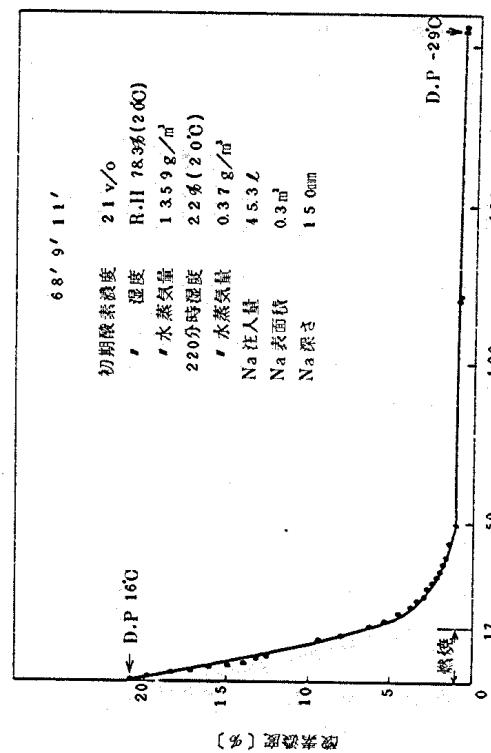
すむわち、隣室！モルの減少はトリムモルの減少に対するもの。一般に

は反応が進むにつれて増加していく事が認められる。極めて複雑である。極めて複雑である。燃焼の初期には、 CO_2 が生成する。

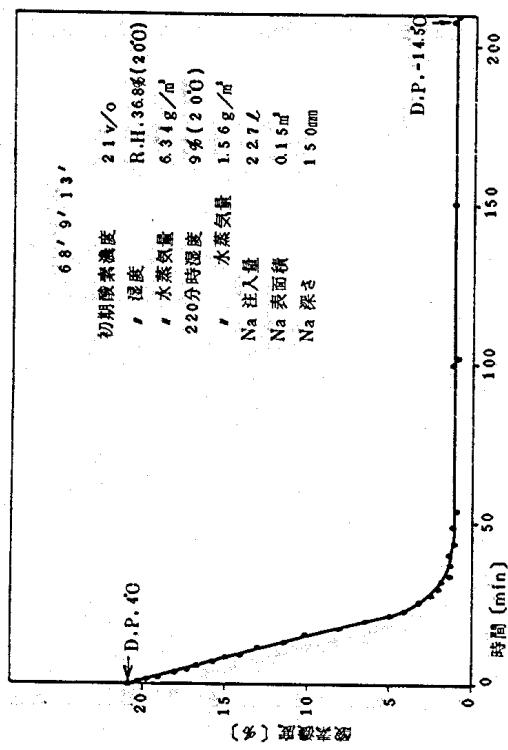




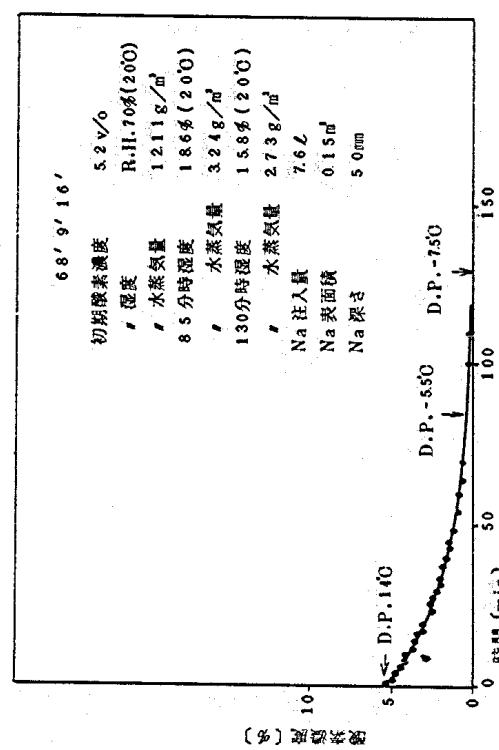
第 4.5 図 実験 No.3 検査濃度の経時変化



第 4.6 図 実験 No.4 検査濃度の経時変化

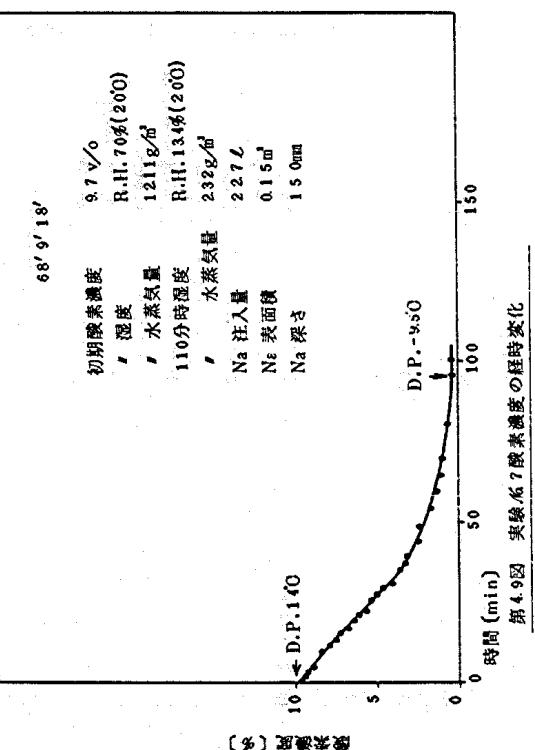


第 4.7 図 実験 No.5 検査濃度の経時変化



第 4.8 図 実験 No.6 検査濃度の経時変化

朝において見掛け上、公式の様に反応が進んでゐる。



第4.9図 実験室7酸素濃度の経時変化

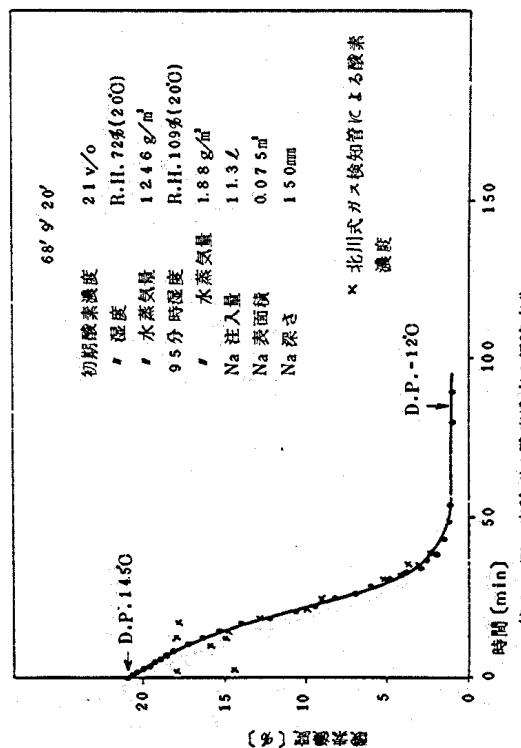


図110 実験室時間と実際の経時変化

44C、O₂反応である。すなわち、(8)式の k について、未調節の減少率を Na の燃焼速度に
乗算し、それを Na の単位表面積当たりに整理し(9)式を得た。

$$-\frac{C(x)}{d_1} = k \quad (8)$$

$$\text{反応速度} = \frac{4 N_o(N_a)}{S T} k_p / m^2 \text{hr} \quad (9)$$

実験が6、7ににおいては、反応は(8式)よりもむしろ(7式)に従つていると推定されるが、比較のため(8式)に従うとし、(9式)を用いて整理した。
なお、実験番号6、7のは場合は燃焼皿の温度を500°Cに保つてある。No.の値は燃焼皿に焼
付する(これは硝酸内銅鏡が燃焼皿の大きさによつて異なるからである)。
ガスサンプルのために吸引した空気量は実験装置内であつたので無限した。各実験条件および燃焼速度の順序を第4表に示す。

卷之三（五台山歷經的名僧法師及傳記）

4.4.1 燃焼速度と S_0 、燃出表面積 S 、容積内断面積 S_0 の比 (S/S_0) との関係

初期燃焼速度 $21V$ の場合の燃焼速度と S/S_0 との関係を表4.11に示した。いずれの実験でも強制的に燃室内空気の搅拌を行っていないので、阻素(空気)の絶対表面への供給は對流効果による影響を受ける。この對流の影響は S/S_0 の値が小さいかがより大きくなる。しかし、 S/S_0 の値が小さくなれば容器内側壁に沿り下向流が強くなり、對流効果による燃焼の供給が大きくなり、燃焼速度も増加すると推定される。

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

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

ΔH_f が一定で、初期燃焼率は 21% の場合の燃焼速度と Na 混合との関係を Fig. 4.1-2 に示した。深さが増加すると燃焼速度が増加するが、本実験の深さ 5 mm ～ 150 mm でした。

S_1/S_0 が一定で、初期に充満する $21\text{v}/6$ の組合の燃焼度と初期水蒸気試との関係を示す。

一般に水蒸気供給が増加すると燃焼速度は増加すると推定されるが、本実験の水蒸気供給量では水蒸気の燃焼速度に影響を与えることは、さらに低い温度の場合でもあると推定されるが、その場合、実際上の火災の条件としては無関係である。

4.4.4 燃焼速度と初期燃焼段階の関係

初期燃焼段階は、燃焼速度に著るしい影響を与えていることが第4.1.4回より見られる。初期燃焼率21%の場合、炎を上げる燃焼反応が止まるのは酸素濃度が5~6%になつた時であり、反応が止るのは酸素1%の程度の時である。酸素濃度が5.2%~9.7%の時は炎を上げる様な微小な燃焼反応は起らなかつた。試験消費が何%の所で炎を上げて燃焼するかということは重要なが、温度の場合は、温度の範囲と同様に炎焼上部紫21%の時に意味があるのではないかと考えられる。

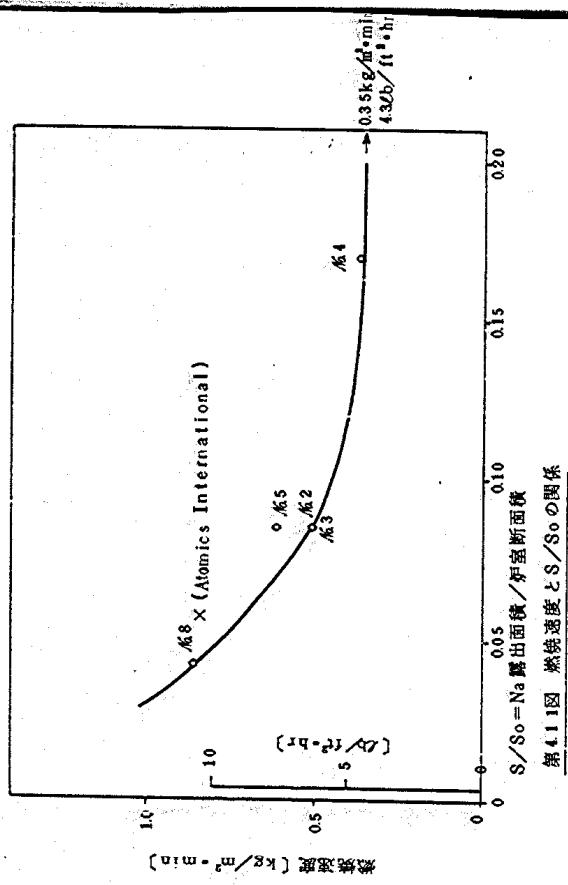
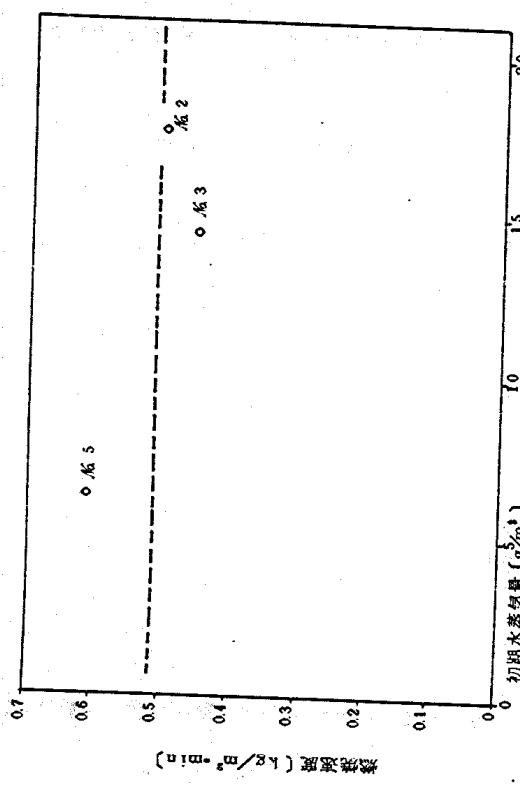
なお、酸素濃度5.2%~9.7%の場合炎焼皿に外部より熱を加えて500°Cに保つてある。他の実験と同様にNa液面直後に熱を加えるのをやめたならば、燃焼速度はさらに減少していくであろう。

$$1.94 \text{ m}^2 \cdot \text{hr} \rightarrow 0.2048 \text{ m}^2 \cdot \text{hr}$$

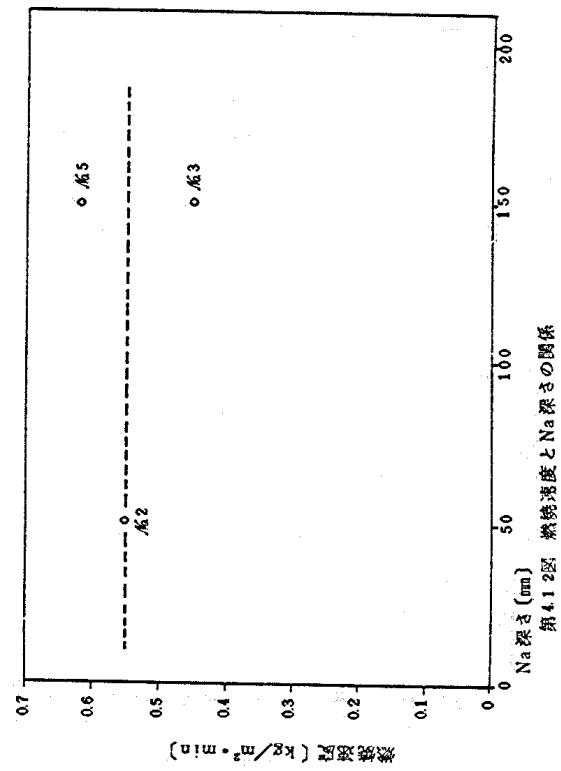
※ 燃焼皿面積 500.00 cm² と 232 cm²。

実験番号	初期 酸素 率 (%)	初期 水蒸 気 供給 量 (m ³)	初期 炎 高 さ (mm)	初期 炎 幅 (mm)	初期 炎 長 (mm)	初期 炎 面 積 (mm ²)	初期 炎 燃 燒 速 度 (kg/m ² · hr)			
1	2.1	0.075	"	12.3	12.5	0.0425	5.12	0.853	10.48	0.175
2	"	0.15	50	7.6	12.1	"	7.9	0.131	1.61	0.027
3	"	0.15	50	22.7	12.1	"	5.2	0.087	1.07	0.018
4	"	0.3	150	43.3	13.6	0.1698	21.3	0.356	4.37	0.073
5	"	0.3	150	22.7	14.4	"	27.3	0.454	5.58	0.093
6	"	0.2	"	7.6	12.1	"	37.0	0.627	7.56	0.126
7	9.7	"	150	22.7	12.1	"	5.2	0.087	1.07	0.018
8	2.1	0.075	"	12.3	12.5	0.0425	5.12	0.853	10.48	0.175

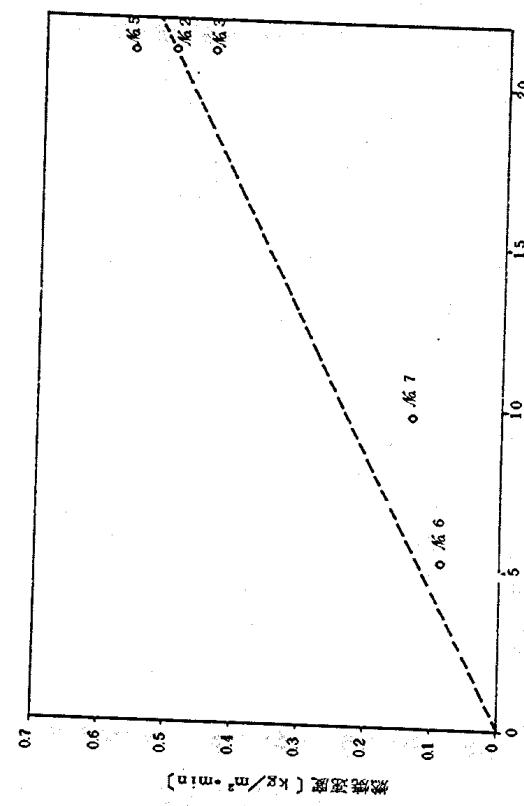
表4.1表 各条件下の炎焼速度 (kg/m² · hr)

第4.1.1図 燃焼速度とS/S₀の関係

第4.1.3図 燃焼速度と初期水蒸気量との関係



第4.1.2図 燃焼速度とNa深さの関係



第4.1.4図 燃焼速度と初期酸素量の関係

§ 5 燃焼反応熱の計算

5.1 計算方法

a) 基本

- 燃焼反応熱の計算にあたり計算を容易にするために次述べるようを若干の仮定を設ける。
- ① 燃焼反応中のNaアーレルはがくし1回に示すように3領域から構成されるものとを考えられるが、これを被体Naアーレル領域からなるものと考へる。したがつて、燃焼反応中のNaアーレルの熱容は被体Naの熱容と等しいものとし、またふく射伝熱は被体Na面において行なわれるものとしNaアーレル中の温度分布は無視する。
 - ② 燃焼皿は2領域に区分しNaアーレル底面より上方はNaアーレル端面等しいものとし、Naアーレル底面より下方においては構造物からの熱損失に従つた温度分布を有するものとする。
 - ③ 压力容器内のガスは熱的には空気とみなしある性質は空気に属するものを用いる。
 - ④ 压力容器およびその内部のガスの仕事は無視する。また、圧力を容器内部のガスの運動エネルギーも無視する。
 - ⑤ 燃焼反応熱の計算に用いるガス、圧力を器および保溫材の端壁は体積もあるいは他の形で付き平均温度を用いるものとする。
 - ⑥ 壓力容器内外壁の温度分布はこれを無視する。また、保溫材中の温度分布は線形とみなす。
 - ⑦ Naアーレル面および保溫材の中空円筒部の内面壁面(圧力容器の上部および下部の鏡面)はこれと面積の等しい中空円筒の伝熱に等しいものとみなし)における伝熱は前半にあつてはこれと面積の等しい水平正方形平板、後者にあつてはその曲率を無視して平面半板として取り扱う。

b) 計算方法

図5-2中に示すようなプロセスを考へる。このプロセスにおいて各々のシステムは内部エネルギー U_0 を保有しかつ静止状態にあるものとする。いま、このプロセスの伝熱のシステムだけが dQ_1 が流入したが dQ_2 が流出するものとする。その結果、システムの内部エネルギー U_0 だけが加かかつ外漏に対して仕事 dW をなしたものとすれば関係が得られる。

$$dQ_1 = dU + A dw + dQ_2 \quad \dots \quad (5.1)$$

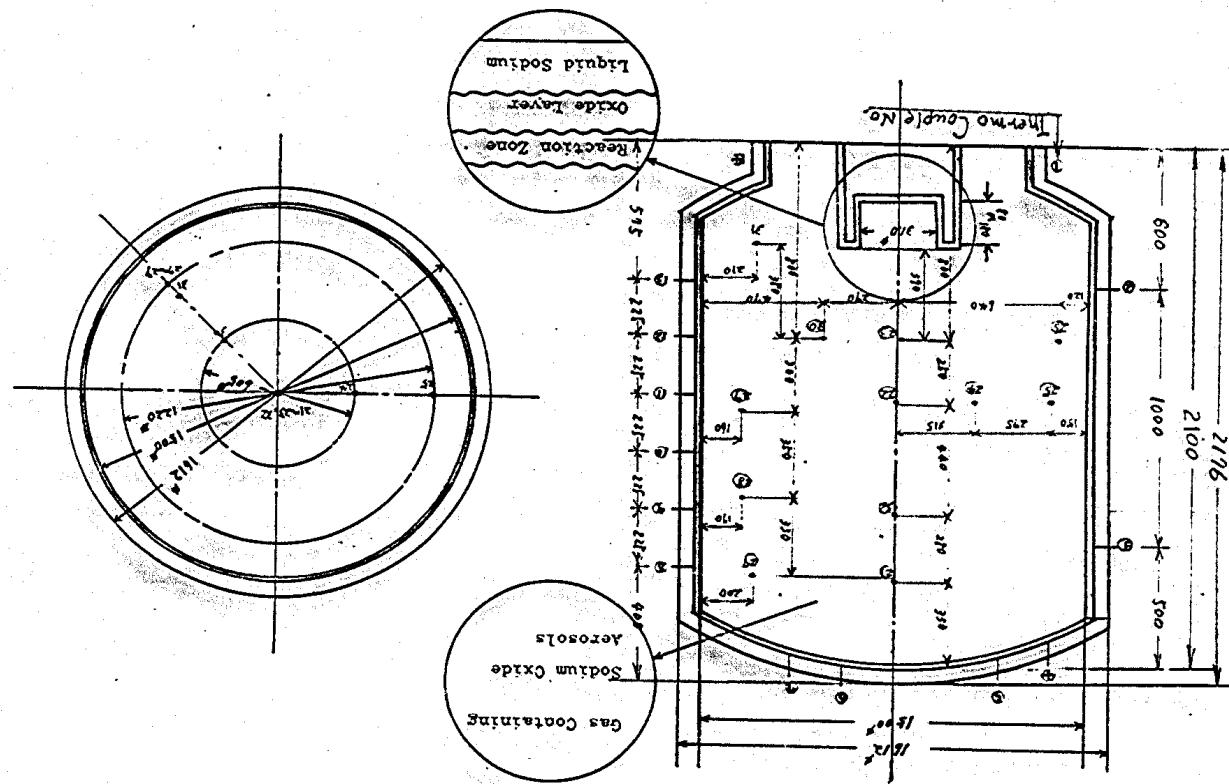
ここに、Aは仕事の担当者である。 (5.1) 式をプロセス全体に適用すればプロセスに流入した全熱流 Q とプロセス全体の保有エネルギーの関係は次式で示される。

$$Q = \sum Q_i \int c_p \cdot dT + \Lambda \sum V_i \int dp + \int q_e \cdot dt \quad \dots \quad (5.2)$$

ここで、

Q_i : システムの熱流

V_i : システムの体積



Q: システムの定出比
qf: アロセスからの熱損失
 θ : 熱度
P: 出力
dV: 時間

であつて、これが本算における熱伝導計算の基本的な考え方である。
ここに、第5-1図に対する前述の假定のもとに次節(5.2)に示した基本式を(5.2)式に依じて適用すれば燃焼反応熱を求めることがができる。この計算は非常に煩雑であるので電子計算機を用いて行なつた。そのフローチャートを第5-3図に示す。第5-3図における平均熱度とは次式によつて定義される体積あたりの質的の重み付も平均温度である。

$$\bar{\theta}_{ij} = \frac{1}{X_0} \sum_{k=1}^{N_i} (\frac{1}{\Delta t} \theta_{ik}) \quad (5.3)$$

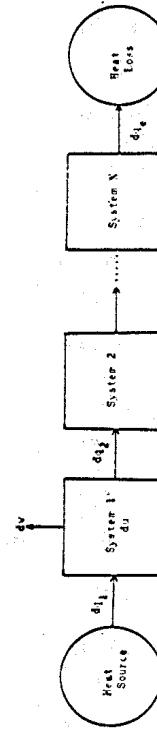
第5-1図においてあるセクションにおいては温度を満足できなかつた。そのセクション、
ノードに対するは次の方法で温度分布を計算しそれを用いて燃焼反応熱を求めた。
第5-4図において温度 θ_1 、および θ_2 が与えられた場合各々の構造材の燃焼導入に対応し
て各々の構造材はこれを通過する熱はによりて開閉ずられる温度分布を形成する。すなわち、
ある熱流 Q に対して熱伝導率の小さい構造材ほどその内部における温度降下は大きいものとな
る。そして各々の層内の温度降下の和は温降差 $(\theta_1 - \theta_2)$ に等しいはずである。いま、この事実
を用いるならば、第5-4図における多層構造の温度分布を求めることができる。
まず、多層Mを通過する熱流 Q を仮定する。するとこの熱流 Q ；各々の層体積の熱伝導率
とその厚さおよび各層に θ_1 、 θ_2 を求めることができる。同様にして M 層間にすれ
ば θ_1 、 θ_2 が定まる。ここで、層 i における熱流 Q に対応して温降差 ΔT が定まるが、一方尚
然熱流から求めた温度 θ_i 、から温降差 $\Delta T = \theta_1 - \theta_i$ が求まることで、 ΔT および $\Delta T = Q$
の関係であるつて前者が等しくなるよう ΔT を求むればそれがこの多層構造を通過する熱流であり
かつ同時に温度分布も定まる。(第5-5図参照) この計算は熱伝導率の温度依存性を補正
しながら行なわれるが熱流 Q はあるまき小さく ΔT をもつてゐるので計算誤差は等しくなること
はないが ($\Delta T - \Delta T'$ とか) 热流のきまみ巾 ΔQ を十分小さくすることによって誤差を十分小
さくすることができる。プログラミングの具体的な方法をおびせの詳細な内容についてはここと
は特に触れない。

5.2 热傳導

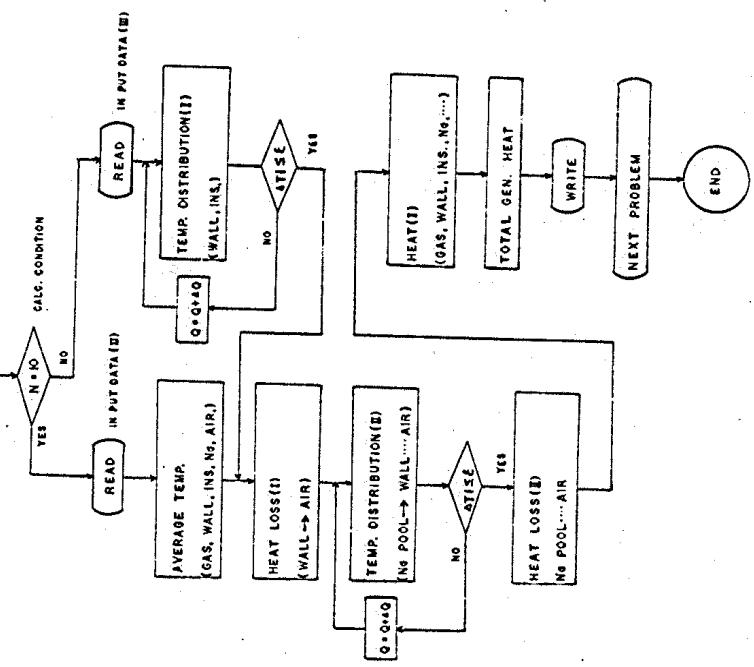
5.2.1 燃焼反応熱

これは過剰が与えられた場合の多層Mにおける燃焼反応熱は次式で与えられる。

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



第5-2図 ヒートバランスプロセスの模式



第5-3図 フローチャート

おとび(5.6)式で与えられる。

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{\alpha_1} + \frac{1}{\alpha_2} + \sum_{i=1}^{\infty} \dots \quad (5.5)$$

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{2\pi} \left[\frac{1}{r_1 \alpha_1} + \frac{1}{r_1 \alpha_2} + \sum_{i=1}^1 \ell_i \left(\frac{r_{i+1}}{r_i} \right) \right] \quad (5.6)$$

中古円鏡の研究

Q = 云淡 Kcal/m

卷之二

卷之三

二十一

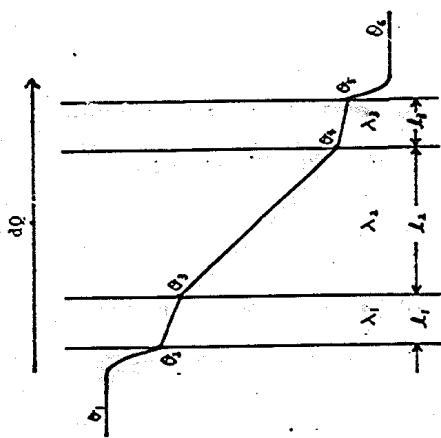
卷之三

三三三

卷之三

y_i = 角の半径 m

第五章 多重障壁の問題 分布



a) 水素水銀

水平板の板面からの伝熱は(5.7)式によつて求めることができる。ここに、 \dot{N}_a 燃焼面の燃焼面および皿底部における伝伝達は水平円形平板として取り扱うのが適切であるが著者の調査した範囲内では信頼性の高い実用式が見出せなかつたのでここでは水平正方形平板における伝伝達式を用いる。

平板の表面風速が周囲の流体の風速より高い場合(高風平板)と周囲の流体風速より低い場合(低風平板)とは伝伝達の機構が異なるので前者を区別して考える。すなわち、高風平板の上方あるいは低風平板の下方においてはグラスホフ数(Gf)とアントルム数(Pr)との比($Gr Pr$)

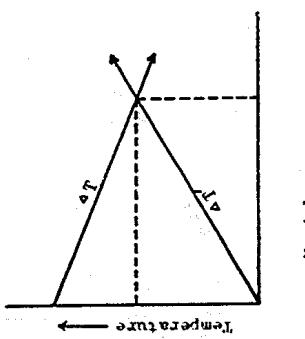
$$Q = \alpha S \Delta \theta \quad (5.7)$$

$$Nu = 0.54 \left(\frac{GrPr}{Re} \right)^{1/4} \quad (5.8)$$

$10^4 < GrPr < 2 \times 10^7$

$$2 \times 10^{-1} < \eta_r \nu_r < 3 \times 10^{10} \quad \{ \text{5.9} \}$$

卷之三



$$\left. \begin{aligned} Nu &= 0.27 (Gr Pr)^{\frac{1}{4}} \\ &\quad \times 10^8 < Gr Pr < 3 \times 10^{10} \end{aligned} \right\} \quad (5.10)$$

ここで、

 Q : 板片面からの伝熱量 $Kcal/h$ Nu : ナンル Gr : グラスホフ数 $Gr = \rho \beta^3 g \Delta \theta / v^2$ Pr : プラントル数 $Pr = 36000 \gamma_v / \kappa$ ℓ : 代表長さ m S : 伝熱面積 m^2 κ : 热力の伝導度 m^2/s^2 θ_0 : 平板の表面温度 $^{\circ}C$ θ_1 : 平板から十分離れたその影響を受けない流体の温度 $^{\circ}C$ θ_m : 平均温度 $\theta_m = (\theta_0 + \theta_1) / 2$ $\Delta \theta$: 温度差 $\Delta \theta = |\theta_0 - \theta_1|$ β : 流体の膨張係数、気体の場合には $\beta = 1 / (273 + \theta_1)$ ρ : 平均温度における流体の動粘性係数 m^2/h v : 平均温度における流体の熱伝導率 $Kcal/m^2h^{\circ}C$ α : 热伝達率 $Kcal/m^2h^{\circ}C$

5.2.3 ふく射伝熱

ふく射伝熱は次式によつて求めることができます。

$$Q = A_H \phi_{Hc} (E_H - E_c) \quad (5.1.4)$$

a) 平板壁にぶつかる流体の伝伝導率 $Kcal/m^2h^{\circ}C$

b) 斜平板

伝力容器の曲率は小さいので圧力容器内面および外面における伝伝導は垂直平板として取扱うことにし、斜板および乱流境界層に対してそれぞれ (5.1.2) および (5.1.3) 式を用いるものとする。

$$Q = \alpha S \Delta \theta$$

ここで潜伏吸収率 (有效吸率) ϕ_{Hc} は固体面で覆られている空間内にふく射を吸収するが ϕ_{Hc} (次) が存在する場合は、ふく射がこれを通過する場合で吸収される場合を考慮し、かつ場合および伝熱の両面が完全にふく射ガスを創出する場合は次式で与えられる。

$$S = \frac{4 Nu S (\theta_0 - \theta_1)}{\lambda} \quad (5.1.1)$$

$$\left. \begin{aligned} \text{乱流の場合,} \quad Nu &= \frac{4}{3} f (Pr) \Delta r^{\frac{1}{4}} \\ Pr \cdot Gr &\leq 10^9 \end{aligned} \right\} \quad (5.1.2)$$

$$\left. \begin{aligned} \text{乱流の場合,} \quad Nu &= 0.129 (Gr Pr)^{\frac{1}{4}} \\ Pr \cdot Gr &> 10^9 \end{aligned} \right\} \quad (5.1.3)$$

$$\phi_{Hc} = \frac{1}{M} \epsilon_H \epsilon_G (1 - \frac{\Lambda_H}{\Lambda_T} \epsilon_G) \quad (5.1.5)$$

$$\left. \begin{aligned} \phi_{Hc} &= \frac{1}{M} \epsilon_H \epsilon_G \left(\frac{\Lambda_0}{\Lambda_T} \left\{ 1 + (1 - \epsilon_G) \left(1 - \frac{\Lambda_H}{\Lambda_T} \epsilon_G \right) \frac{\Lambda_H}{\Lambda_G} \right\} \right) \\ M &= (1 - (1 - \epsilon_G) (1 - \epsilon_H + \frac{\Lambda_0}{\Lambda_T} \epsilon_G - \epsilon_H \epsilon_G \frac{\Lambda_0}{\Lambda_T} \frac{\Lambda_H}{\Lambda_G})) \end{aligned} \right\} \quad (5.1.5)$$

ここで、

 Q : 伝熱量 $Kcal/h$ A_H : 伝熱面積 m^2

付注：総括吸収率

$$B_1 : \text{全体の全ふく射 } B_1 = 4.88 (W/100)^4$$

C₁ : 1面のふく射率

$$T_1 : \text{絶対温度 } ^\circ\text{K}$$

であつて、添字H, O, G₁及びTはそれぞれ高橋、低橋、ガスおよび全系を表す。

5.3 物性値
付注第5-1表に示した諸物性値をそれぞれ引用した。

第5-1表 計算に使用した諸物性値

References			
Heat Capacity	1)	1)	No Information
Density			
Radiation Emissivity			
Heat Capacity	2)		
Density	2)		
Thermal Conductivity	2)		
Radiation Emissivity	3)		
Density	2)		
Heat Capacity	4)		
Thermal Conductivity	4)		
Density	4)		
Prandtl Number	4)		
Viscosity	4)		
Thermal Conductivity	5)		
Density	5)		

5.4 結果および検討

a) 総括吸収率

b) 燃焼放熱

燃焼放熱の計算結果を第5-1表に示す。また、燃焼放熱が次式に示すよき形で行われたものと仮定した場合の燃焼放熱を第5-2表に合せて示す。



Naの酸化物は四極類の存在が確認されているが、Na-空気反応ではNa₂O, Na₃O₂の二種類が主に形成される。どちらの反応ではまずNa₂Oが形成され次いで過剰の酸素があるとNa₃Oが更に酸化されてNa₂O₂となる。実験、検査が多い初期にはNa₃Oが一部形成された。それが火事で再還元されるものと思われるが主として前者の反応のみが行なわれるとして行動を述べる。

一方、空気中では水蒸気が存在するがその量が少ないので全体の燃焼反応における燃焼は小さい。したがつて、密閉容器内におけるNa-空気反応は(5.16)式の反応のみが行なわれるものと仮定してその燃焼反応熱を求めておいてある。

d) 熱計算

燃焼反応によって発生した熱は約70多が対流およびふく射を熱によってがえりび各段に伝達される。残りはNa₂OよりNa燃焼皿に伝達される。これは、第5-1図に示したようなNaアーベルの表面状態を考えれば酸化物のすべてが容器内に熱するわけではなく、また第5-1図に示した燃焼後の燃焼皿の酸化物の付着状況からみて明らかのようにNaアーベル中の酸化物はより低燃焼盤すなわち燃焼皿外周部へ移動付着することからも容易にうなづける。

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

第5-2表 全燃熱と燃焼速度

全燃熱 (Kcal)				燃焼速度 ($\text{kg}/\text{m}^2\text{hr}$)	燃焼基準	燃焼速度基準
1	5180	5780	1.45	1.05		
2	5480	5730	0.679	0.537	0.505	
3	5250	5800	0.647	0.586	0.454	
4	5090	5930	0.430	0.293	0.356	
5		5850	0.748		0.617	
6		1430	0.104	0.106	0.087	
7		2680	0.187		0.131	
8	4910	5880	1.33	0.837	0.853	

ハ) 溫度分布

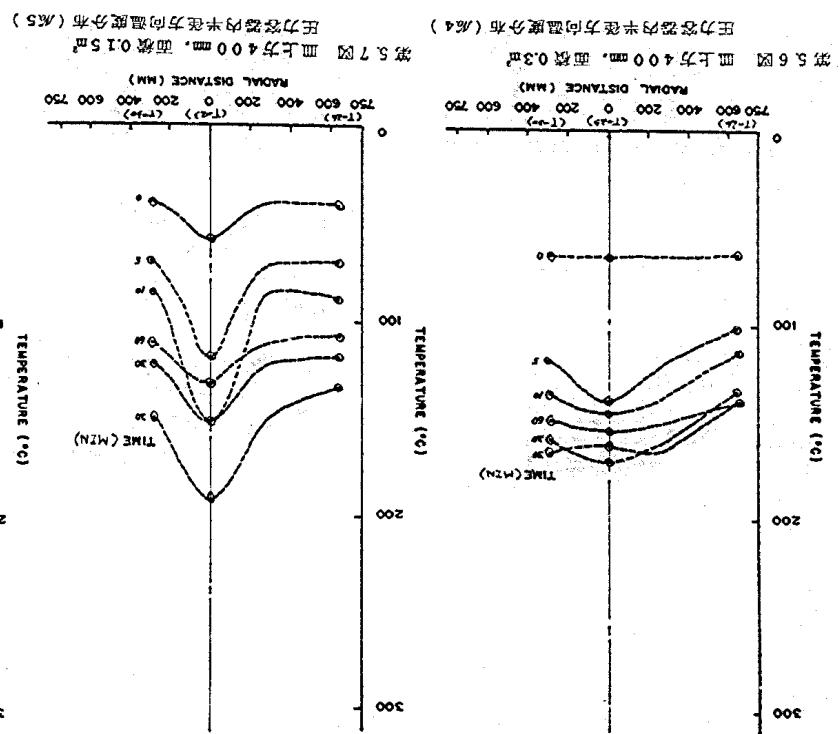
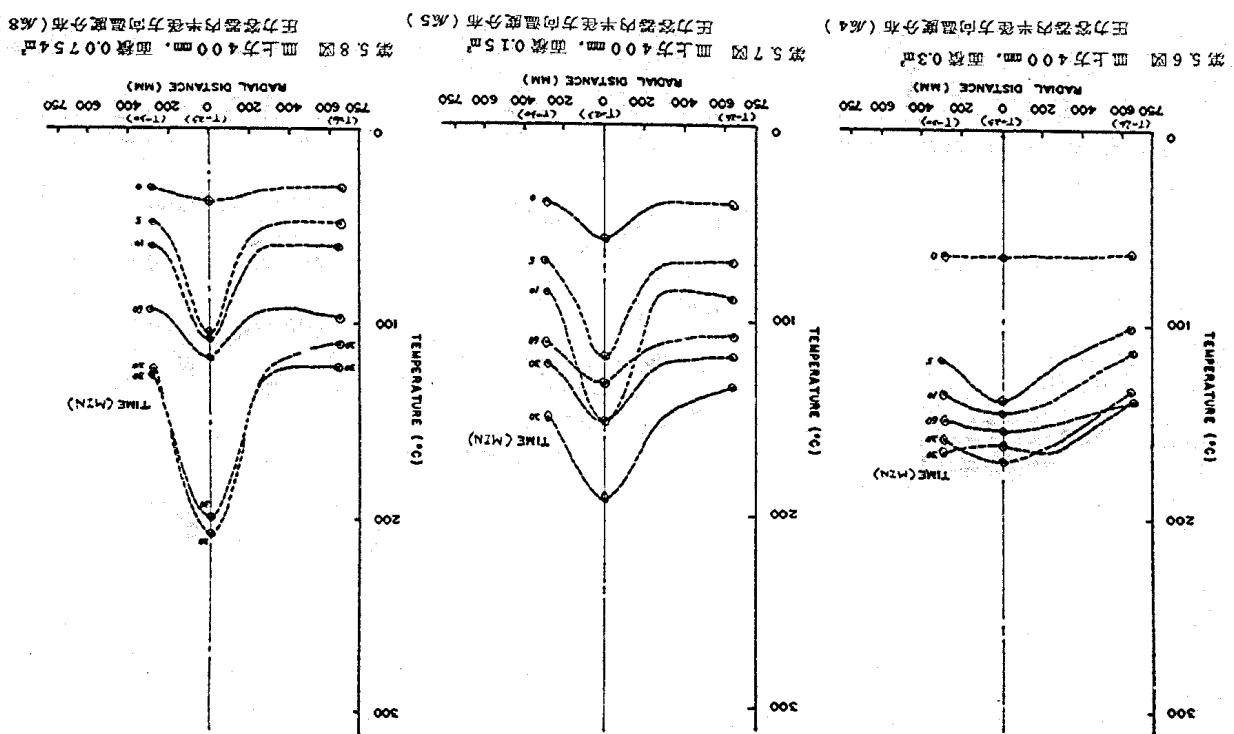
容器内部の温度分布は主として容器および燃焼皿の形状によつて支配される。(第5-6~10図参照) これは容器内部の自然対流を支配し燃焼速度、伝化物等の容器内部への飛散および付着速度、さらには容器内面における伝導速度を支配するから、圧力容器を考える時は非常に重要な要素である。これについては別に検討中である。

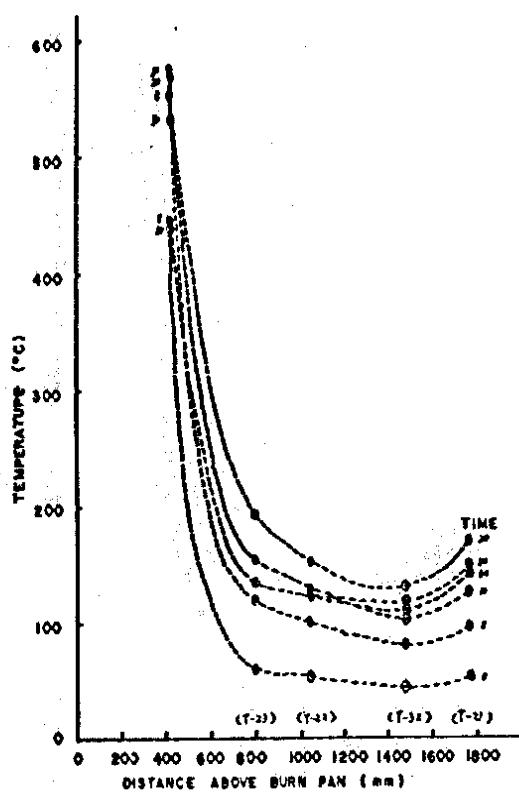
b) 燃焼反応速度

容器内面における気体の温度の変化および金属性の熱収縮の割合から燃焼速度を求めた。

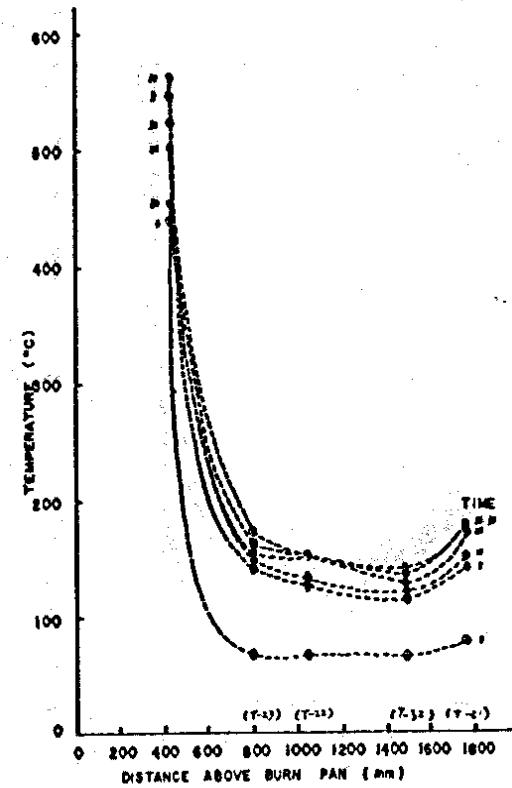
(第5-11図参照) その結果は第5-2表に示すように容器内部の燃焼速度の変化から求めた燃焼速度とほぼ一致する。

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

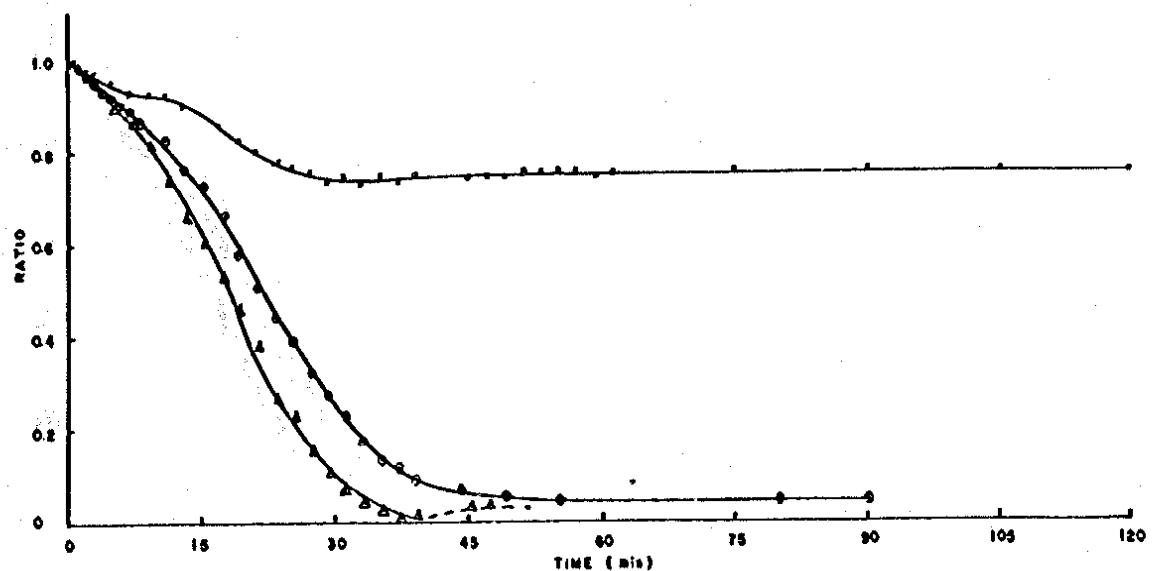




第5.9図 圧力容器中心方向温度分布(実験No.5)



第5.10図 圧力容器中心方向温度分布(実験No.6)



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

§ 6. 圧力応答

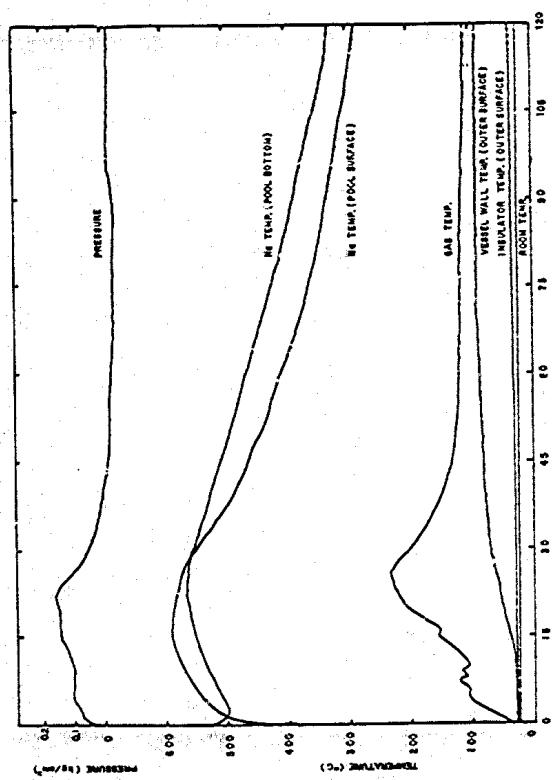
6.1 仮 定

6.2 基礎式

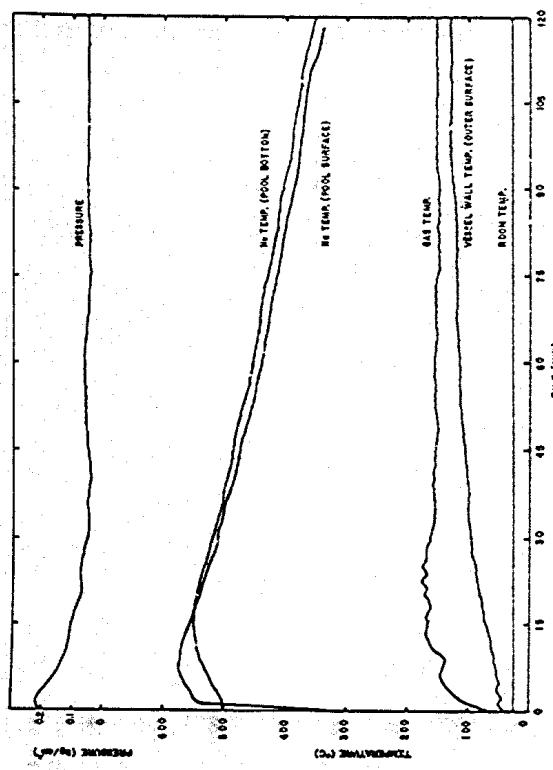
6.3 結果および検討

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

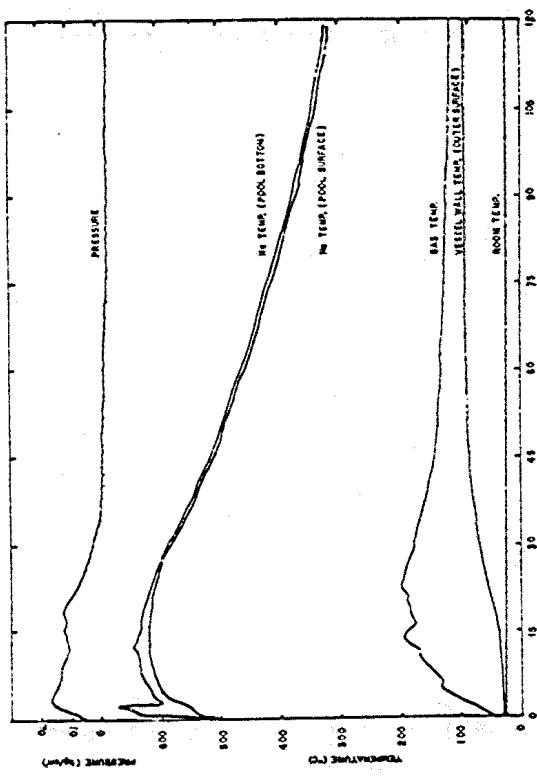
安全解析上特に初期における圧力応答が問題となるがこの問題については別に検討中である。



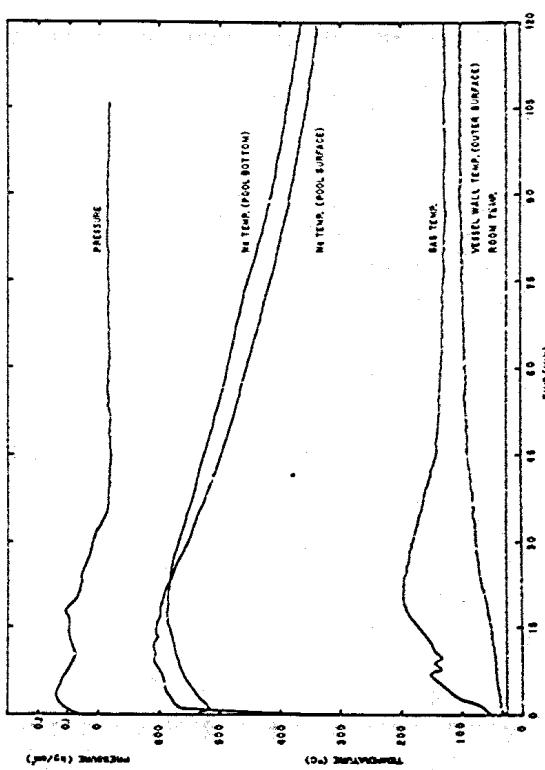
第6.1図 温度と圧力応答(実験No.8)



第6.3図 温度と圧力応答(実験No.3)



第6.2図 温度と圧力応答(実験No.2)



第6.4図 温度と圧力応答(実験No.4)

第6.1表 試験条件と経過

実験番号	1	2	3	4	5	6	7	8
名称	A	B	C	D	E	F	G	H
注入Na Al(O)	11.3	7.6	22.7	45.3	22.7	7.6	22.7	11.3
表面積(m ²)	0.075	0.15	0.15	0.30	0.15	0.15	0.15	0.075
液深(cm)	150	50	150	150	50	150	150	150
初期液温温度(%)	21	21	21	21	21	5.2	9.6	21
得失	熱対 (9.5%)	17.6	14.4	14.0	6.3	12.1	12.1	12.5
得失 20°C相対	(%)	100	82	78.3	36.8	70	70	72
注入前	535	532	535	500	515	520	495	555
注入後	500	505	520	500	505	470	475	495
温度C 燃焼槽(下部)	注入後(max)	515	620	610	575	565	—	565
注入 T-19	—	160	435	425	410	450	385	—
注入 T-18	335	470	440	430	450	460	390	440
注入 T-17	375	475	445	435	450	465	420	410
注入 T-19	—	350	365	330	385	395	328	—
注入 T-18	305	380	385	335	385	120	325	390
(C)	T-17	350	395	395	370	385	130	315
注入 T-19	—	620	610	575	575	—	—	—
注入 T-18	670	635	605	570	570	—	—	—
注入 T-17	3	14	14	9	13	—	—	15
注入 注入時間(min)	15	15	18	11	15	—	—	38.5
ガス 注入時間	35	45	45	65	50	40	50	19
注入後 注入時間(min)	315	200	195	175	105	—	215	—
注入前 注入時間(CO ₂)	18	23	20	25	18	—	25	—
注入後 注入時間(CO ₂)	30	30	45	30	30	30	30	—
注入前 注入時間(第1C ₂ O ₄)	0.05	0.05	0.05	0.13	0.05	—	0.03	—
注入後 注入時間(第1C ₂ O ₄)	0.07	0.16	0.135	0.23	0.125	—	0.10	—
注入前 注入時間(第2C ₂ O ₄)	1.5	3	3.5	1.5	5	—	6	—
注入後 注入時間(第2C ₂ O ₄)	0.12	0.12	0.11	—	0.18	—	0.16	—
注入前 注入時間(G)	11.5	18	17.5	—	18	—	22.5	—

§7 総括的考察および結論

7.1 はじめに

我々は、Na冷却高遮光槽内のNa火災による災害防止のため、約3.5kgのモデル容器を製作して、内部に空気または酸素を常圧で密封しておき、その底部は突然500°CのNa poolを形成させて、燃焼状態や燃焼速度解析、温度、圧力変化測定および解析を行なった。

まず第1期の計画として、燃焼面積、初期燃焼率や燃焼速度解析、温度、圧力を変化させつつ、7種の実験を行なった。
 行なった結果、下記に示すようなことが明らかとなつてきた。今後の問題点とともに示す。

ナトリウム火灾よりみて
 (1) 容器本体に敷けられた2つの砂から成る底地盤は、ビデオアーフ、カメラ、8mmカメラ(1部)等による視察は極めて有効であり、温度、圧力、燃焼速度等の測定的情報を得たりものと見て、下記に述べるような判断の資料を得ることができた。

(2) 視察による燃も重質なものであることを予想させるものであった。
 反応の再現性がかなり低いものであることを予想させるものであった。
 その他、強度による初期燃焼状況の差異が認められた(後述)。

(3) また、時間とともにaerosolの粗大化、沈降状況も一部観察できた。
 (4) 燃が吹降した後に、等量にまで示したように多様の堆積物を発見した。これは分析により、Na₂OおよびNa₂の複数物であることが明らかとなつた。(なお、その表面には燃焼終了後、煙が凝集して沈降したNa₂O粉が乗つている。)
 (5) さわわち、致しい反応燃と対応により燃発したNa₂が、構造になつた機器で一部化されつつ、皿上燃でより冷たい壁および底および底に附着して燃結堆積したものであつり、したがつて、燃焼後半期に急速に形成されると考えられる。

なお、極めてpyrophoricな粉体であるから、がる火災の後処理に際して、注意深い取扱いを要する。室内が充分低温になつたのち、小づつ熱源を送入して段徐に昇温してやるべきであろう。

7.2 燃焼速度変化から見て

次に燃焼速度変化から得られる結果を改めて考察してみよう。

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

(2) Na溢出表面積SとNa内全断面積Sとの比S/Sの値は下に示したように、燃焼対流状態を強く支配し、小さいほど燃焼有利である。しかし原子炉安全解析では、川口底面燃焼速度ではなく、全面積の燃焼放熱速度であるから、S/Sが大きい程Sが大きくなり、この値はより大きくなる。

したがつて、0.2以上になると想われる0.34Na₂/min(燃焼21v%)を採用して安価な解釈すればよいと見えるであろう。

なお、ガス床面がいくつかのプロックに仕切られるとか、Na吸熱機関が設けられるから安

全燃焼として極めて行なう。全面的火災となるまでにはかかる時間と要するためには、液体状態下による反応性と相殺するためとが考えられる。

(3) 液膜は 5.0 ~ 1.50 mm の範囲であるが、さきに反応速度に影響をおぼさなかつた。ただしこれは既に燃焼した Na₂O₂ 構造物が Na₂O 表面から突出するより大きな条件にておつていい無い pool であつたからであつた。

しかし、実験の所においては、5.0 mm 以下の浅い Na₂O 液であるなら床を充満する間に冷却され、初期の燃焼全体は弱まるであろう。したがつて安全解析にはこれで充分であると考える。

(4) 初期火災気量の影響については、2.0 m³ 純水深度が 4.0 ~ 8.0 m³ の範囲では、燃焼速度が変化しないといき結果が得られた。

一般に、水蒸気量が多い程、燃焼速度は増加すると考えらるべきであるが、このような結果が得られたのは、Na₂O 表面をよく被覆してみると、燃焼初期に発生する火点の数が、深度の少ない方がけるかに多いように見られたことと関係すると思われる。すなわち、水蒸気が多い場合に生成する Na₂O₂ の融点 (31.8 °C) が Na₂O 温度 5.00 °C より低いため、表面を液状に保つ、火点の発生をさまたげる可能性がある。したがつて、この防爆作用と H₂O の反応促進作用が相殺しあつて、見かけ上、燃焼速度は水蒸気量にあまりよらないであらうと推論される。

たお、水蒸気量が多い方が、早く世界が消えられることが認められたが、これは aerosol が吸収により、より射程不透明となるためであろう。

原子炉内燃焼は上記の範囲を出ることは困難と考えるが、上記のようなことが正しいなら、さらに実験を行なつてその影響を調べてみる必要がある。

(5) 初期火災の影響は密閉は密閉は密閉で、発光をともなう燃焼反応はおきなかつた。それは普通 4.5% の酸素以下でそのようなことが観測されると予想する。しかし、実験瓶にについてあらゆる測定値は自己無燃焼であつて、燃素量測定をあやまつたと考へべきでない。

ところで、この格外因と知見との差異は、我々の実験においては温度が低かつたことにその原因を求めるが、も知れない。前述のものといたように、温度が高いと火点が少なくてなることが多められるからである。また我々の実験は、空気を込みや不必要な液体立ちなく、スヌーズに満たされた Na₂O 表面が形成されるよう十分に配慮されているので、一回火炎形成の機会が少なくて、したがつて全火炎面で発光を促進しない催化反応のみが進行したと解明できるであろう。

A.I. などのが報告 (6,7) している 1.0 V_d の酸素における最大値 (0.45 ln Na₂O₂ + 11.560) × (1.03 O₂) = 4.51 ln Na₂O₂ + 11.560 min⁻¹ より我々の測定値 0.13 V_d / min⁻¹ 1/3 である。

したがつて、酸素濃度空気の場合には、酸素が少ないほど安全性は高いこととなる可能だがあざ。

7.4 燃焼熱および圧力応答からみて

(1) 酸素の消耗速度からは生産活性が何であるかは分らぬ。それが決定できないと、燃焼熱と生息状況も分らず、温度、圧力上昇も分らない。この点は断然条件を光している我々の火炎の場合には、第 5 節に述べたより、全燃焼係数が可能であつて、これから逆に生成され

物のほとんどが Na₂O と考えてよいことが分つた。



であるが、(1) でなければ燃焼を説明できないのは明らかである。
(2) なお、補足的な議論を加えておこう。第 5.2 節を分するように、燃焼熱の実験値は、Na₂O のみが生成するとした場合の理論値と比べて、実測値が少しだけ大きい。これは燃焼皿の外周部の温度変化測定が不完全であったため、この部分の熱容量変化(正の値)を加えるのが不可能であつたからである。単純物によつても温度分布が變化をうけている。

この部分の熱容量値は 5 ~ 20 kJ/K°C 程度であり、數 1.0°C の温度変化があるいで、數 1.00 ~ 1.000 kJ となり、誤差をほゞ説明することができる。

皿は実験が計画された際に付、その熱容量を無視できる程度にし得ると考えていた。しかし実験装置監修所の指示により、熱容量を同時にするために精度が下つたのは残念であった。

安全弁もあるし、圧力上昇も極めてわずかであることが明らかになつたのであるから、改修して燃焼燃する必要がある。

(3) 火災により、約 7.0 m³ の純は気相および容積間に伝達されるととが分つた。しかしこれは燃焼条件および壁の伝導によるものではない。

しかし、実験の初回における火災および圧力・温度上昇状況を、数学的に解析できるようになりためには、自然対流や伝熱構造、特にそれらに対する aerosol の影響を詳細に知つておくことが必要である。さらに具体的に言ひとく

a) Na 表面、反応層および aerosol を含んだ気相の輻射率の決定

b) 容器内の自然対流燃焼(すなわち燃焼の Na 表面への供給供給および熱伝達率への影響等)

c) aerosol の生成、分散状態、容器への附着およびそれらによる燃焼率への影響等

7.5 最近の火災の実績およびそれとの比較

我々の実験が終つた後、A.N.L. で開催された Na₂O 技術国際会議において、A.I. から開連かい 1/1 つの報告 (8) がなされた。その概要をのべ、我々の結果と比較しておきたい。

(1) A.I. は 1.0 m³ (直径 × 3.17 m) のガラスの貯蔵槽を用いている。これは我々の約 10 倍の容積に相当する。これは非常にすぐれた点であるが、実験に手数、経費を要し、1 回行なつた火炎を保管しているのみである。

(2) その実験は 6.0 m³ (0.43 m³) であつて、我々の(最大の皿)には 2.4 m³ を使用する程度のものである。2.51 b (約 1.1 l) の Na₂O を注入しているので、深さは約 2.5 m である。我々の実験は 6.4 m³ である。

(3) Na₂O 温度は 9.50 °C (5.10 °C) で、我々の 5.0 °C より少し低い。燃焼度は燃がなないので 2.10 °F (9.8 °C) まで上つてしまつてから火炎を開始している。

(4) 燃焼度が底を 3ヶ所で測定し、気相層 2.6 ヶ所、その他 1.3 ヶ所の温度計測を行なつて、data logging 計算機による解析を行なつてある。

(5) 燃焼速度は 3 ~ 121 m/hr⁻¹ (0.6 ~ 1.06 m²/hr⁻¹) であつた。これは我々の実験

R_4 の 2 倍以上である。その理由の 1 つは S/S 。が小さく 0.06 であるから、第 4.1.1 図より $0.7V/\pi \cdot min$ をもつていい。また、気相体積と燃焼表面積の比が約 10 倍であるので、燃焼度の減衰が小さく、反応速度をもつてあるのを考慮するとよく一致している。すなわち、我々の得た S/S 。と反応速度の関係は、実験範囲を超えて適用できることが明らかとなつた。

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

(7) 我々の実験に比してある点は

a) 反応熱をはかる計画がないので、生焼物が N_2O であることを証明していない。

b) 灰相滞留時間の影響を調べていない。

c) N_2 表面積の影響を調べていない。

(3~6.0)^{1/2} の範囲で実験を行っている。

d) 温度の影響についての関心がない。

e) 燃焼面予熱により、 $210^{\circ}F$ まで空気を暖めているので、対流を弱めている。我々の実験では蒸気を發けた。

弊社のある Los Angeles 郡外の Santa Susana の湿度は少くとも 30 %以下であろう。したがつて A1 の data を利用する場合には、充分な注意が必要である。例えば喷流式燃焼試験装置（A1 の phase I 実験）において、10 v% 濃度の空気を継続的に流した場合には、やはり空気燃焼したといつていい。これは低湿度でおつためと考えられる。

8.8 結 論

研究室内の N_2 火災特性解析のために、実際の条件をできるだけ模擬しつつ、密閉容器中で $500^{\circ}C$ の N_2 液面に対し、7種の実験が行なわれた。その結果

(1) 21 v% 濃度の空気による N_2 液面の燃焼速度は、表面積と床面積の比に強く影響される。

(2) その燃焼は、次第に火点の数が増大する形で進行し、見かけ上、燃焼速度はまづ一定である。しかし、約 5 v% 濃度までに減少すると発光を伴う燃焼現象は止まる。

(3) 様大液面積、すなわち床全面に N_2 が並がつた場合には、燃焼速度は $0.3 N_2O/\pi \cdot m^2 \cdot s$ 程度になるものと推定される。

(4) $20^{\circ}C$ で $3.0 \sim 8.0$ m の初期界曲線相対速度の変化では、反応速度は変らなかつた。しかし、初期火点の枚数は逆比例的である。

(5) 濃度が 5.0 ~ 15.0 mm (後者は JEFR における最大可能値) に変えられても反応速度は変化しなかつた。

(6) 初期燃焼速度が 10 v% 以下で、少くとも $70^{\circ}F$ ($21^{\circ}C$) の相対速度では、発光を伴なう燃焼現象は起らしない。

(7) 一般に進行する液化還元反応現象は次式によつて充分よく近似できる。



これは、反応熱の熱解析により明らかにされたもの。

なお、今後の研究課題として考えているものは

- 1) 実験の状態に scale up できる反応数学模型を定式化するためには、まず
- a) N_2 表面、反応 N_2O より aerosol を含んだ灰相における解剖学的測定
- b) 密封容器内の温度分布とその自然対流への効果の測定。その結果として生ずる燃焼供給速度。液化物の分散、熱伝導等の変化に関する解析法の確立。が必要であろう。

さらに。

- 2) 气相燃焼速度の影響を詳細に調べる。

- 3) 温度の影響を詳細に調べる。

- 4) 密封装置の改良としては

- a) 測定点をふやす。特に燃焼皿附近の計測を強化する。
- b) なお、出来なら燃焼皿の熱容量を小さくする。
- c) 圧力計の精度を高める。
- d) 気相サンプリングは燃の影響を調べる。

なお、この他にこれまで入らなか *aerosol* に因連した重要な研究領域があることに付くまでもない。

附

この研究を遂行するに当たり、原研の技術顧問および安全工学協会理事事務局からなる北川謙三教授の御指導と御教誨を得たことを深謝します。また先生を委員長とするNAA火災実験委員会（委員：若岡吉一、秋田一雄、横口幸雄、岸生新三、大谷 喬、古川和男）の諸氏には各務ね有様な御批判と御助言を得たこと、原研、既康彦氏からは本間謙三君をうけ、原子炉安全性評価との関連につき、多大の教示を得たこと、および物語の運営責任者である猪木祐一氏に、R&D、実験結果、資料整理等を含めて、実験遂行に真剣な御協力を得たことを感謝します。

また、新しい実験形態であったため、原研の協力が得難く、実務課、機内課その他測定部員からは特別の尽力を得てはじめて実験が遂行できること、原研分析センターおよび計量センターに強協力を得たことを感謝するとともに、実験には実記以外のナトリウム耐熱當貞金員に一大の協力を得たことを感謝しておきたいと思います。

§9. 参考文献

- 1) Liquid-Metal Handbook (Sodium-Nek Supplement), 1955
- 2) 原子力一般教科資料
- 3) 同上、熱伝料の概要
- 4) 伝熱工学資料、日本機械学会編
- 5) 日本アスベスト映像録
- 6) R. P. Johnson, M. Silberberg, J. Hoppenfeld, & P. Heitger ; Characterization of Sodium pool fires, AEO-ANL International Conference on Sodium Technology & Large Fast Reactor Design, ANL, November 7-9, 1968, ANL-7520, Part 1 (1968), 195.
- 7) G. N. Lauben ; Initial Experience with Lars Sodium Fires Experiments (LF-1), NAA-SR-12041.
- 8) A Study of Sodium Fires, J. D. Gracie & J. J. Drobé ; NAA-SR-4383 (Oct. 1960) (英)「ナトリウム火災の研究」(改訂版)古川, 幸一, (1966).

第Ⅱ篇 ナトリウム火災モデル試験(Ⅲ)

要 旨

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

1969年12月

ナトリウム研究室	吉川 和男
F P 研究室	木谷 進
ナトリウム研究室	山田 栄吉
	村田 秀男
	春田 秀人
	大山 信美
F P 研究室	高橋 和宏

Section II:

Model Experiments of Na Pool Fire - No. II.

Abstract

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

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

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

Dec. 1969

Furukawa K. et al.

第Ⅱ篇 目 次

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

6.5 前報の結果について	112
7 結論	114
6 説明	115
9 参考文献	115

表 目 次

第 3.1 表 実験条件	80
第 3.2 表 Na 中のKおよび金属成分分析値	88
第 3.3 表 Na 分析値	88
第 4.1 表 各条件下における燃焼速度	90
第 4.2 表 一次反応への移行時間	92
第 5.1 表 燃焼反応熱と伝熱割合	100
第 5.2 表 燃焼速度	100
第 6.1 表 燃焼時間	112

図 目 次

第 3.1 図(写) 実験装置Ⅰ-1, 実験後の燃焼皿	80
第 3.2 図(写) 実験装置Ⅰ-2, 容器中の燃焼皿表面	80
第 3.3 図(写) 実験装置Ⅰ-3,	81
第 3.4 図(写) 実験装置Ⅰ-4, 行着生成物の水処理前の燃焼皿	81
第 3.5 図(写) 実験装置Ⅰ-5, 実験後の燃焼皿	83
第 3.6 図(写) 実験装置Ⅰ-7, 鋼火4時間後の燃焼皿	83
第 3.7 図(写) 実験装置Ⅰ-8, 屋外燃焼の経過説明図	85
第 3.8 図(写) 空気中におけるNa の発火燃焼事例-A	88
第 3.9 図(写) -B	88
第 3.10 図(写) 樹枝状に生長したナトリウム	88
第 4.1 図 実験装置 I 構造変遷の経時変化	93
第 4.2 図 実験装置 2	93
第 4.3 図 実験装置 3	94
第 4.4 図 実験装置 4	94
第 4.5 図 実験装置 5	95
第 4.6 図 実験装置 6	95
第 4.7 図 実験装置 7	96
第 4.8 図 初期燃素濃度と燃焼速度	96
第 4.9 図 初期ナトリウム温度と燃焼速度	97
第 5.1 図 圧力容器(容器本体)測量点	101
第 5.2 図 速度および圧力応答(実験装置 1)	102
第 5.3 図 (実験装置 2)	102
第 5.4 図 (実験装置 3)	103

第 5.5 図	温度および圧力応答(実験系4) 103
第 5.6 図	（実験系5） 104
第 5.7 図	（実験系6） 105
第 5.8 図	（実験系7） 105
第 5.9 図	容器直角方向温度分布 106
第 5.10 図 106
第 5.11 図 107
第 5.12 図 107
第 5.13 図	軸方向温度分布 107
第 5.14 図 108
第 5.15 図 108
第 5.16 図	熱的にみた燃焼反応速度と燃焼濃度の時間経過 109
第 5.17 図 113.
第 6.1 図	面積比(S/S_0)と燃焼速度の関係 109

§ 1 実験目的および条件

高速実験炉の設計と安全解析に際し、格納容器内でNa火灾が発生した場合のNaの燃焼状態、格納容器への影響を知る必要がある。このため、前年度に「ナトリウム火灾モデル試験—1」による試験と解析を行なったが、試験装置の一部を改変して追加実験を行い、安全評価の資料とすることが本実験の目的である。

実験に使用した3.2m³の容器本体、Na燃焼皿、Na浴槽タンクについては前年度の装置をそのまま使用したので、設計製作の条件等については割愛する。⁽¹⁾

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

試験項目としては次の通りである。

- 1) Na火灾における湿度および初期燃素濃度の効果を追試する。
(3.0%RH, 1.5%O₂, 10%O₃) (RH = 相対湿度)
- 2) 初期Na温度の燃焼現象におよび影響をみる。
(250°C, 500°C, 70%RH, 21%O₂, 0.15m³)
- 3) Na燃焼面積S、容器内断面積S₀の比(S/S_0)との関係を追試
($S/S_0 = 0.0849, 0.0425$)
- 4) 容器内自然対流現象の測定(初期ガス温度100°C)
- 5) 空気中に開放した状態の燃焼皿(0.075m³, 150mm深)を用いたNaの燃焼現象で
観察、等である。

上記のための補足項目としては、

- i) 容器本体内の圧力変化
- ii) 容器中の燃焼燃度(燃焼中、燃焼後)の変化
- iii) 各部の温度変化(ガス、容器本体)
- iv) 燃焼状態の観察と比較であり、第3.1表に示した6ケース(8回の実験)について
実験を行なつた。

卷之二

21 実験装置の改修

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

- 1) 容器本体への熱電対追加取付
従来は、容器本体内部のガス温度測定のため、12本のシース型熱電対を内挿していたが、今回も測定点を増やすため、集束型のコナックシールを使用して32本の熱電対（シース型1.6㎟）を挿入し、一部を燃焼中の液体Naの温度測定にも使用した。
 - 2) 圧力計の取扱
前年後使用した圧力計（記録式隔膜圧力計）は+3 kg/cm²～-500 mmHgと指示出しが大きく測定精度に難点があったので、±1 kg/cm²のコンスタクト接点付セルメータ式強隋指示圧力計と交換し、取付用フランジも変更製作した。
 - 3) 試験部位増設
既設の試験部屋の両側に2m×4mの建屋を下屋構造で増設した。これは、ガスクロマトグラフィー装置、圧力計、ビデオコーダー等の設備と操作に供するものであり、雨天時

三

- 容器本体への熱電対追加取付
従来は、容器本体内部のガス温度測定のため、1 2 本のシース型熱電対を内挿していたが、今回は測定点を増やすため、集束型のコナックルを使用して3 2 本の熱電対(シース型1.6 φ)を挿入し、一部を燃焼中の被体Naの温度測定にも使用した。
 - 圧力計の校換
前年既に使用した圧力計(記録式隔膜圧力計)は+3 kg/cm²～-500 atmHgと指示表示が大きく判定精度に難点があったので、±1 kg/cm²のコンタクト接点付セルメータ式圧階指示圧力計と交換し、取付用フランジも変更製作した。
 - 試験槽構造
既設の試験施設の南側に2 m × 4 mの通屋を下屋構造で増設した。これは、ガスクロマトグラフ一装置、圧力計、ビデオコーダー等の設備と操作に供するものであり、雨天時の実験に有効であった。

卷之三

実験計2種

- Na を使用した
実験に使用して回
収率の分析値
(日本データ
Ca, K 等の不
純物) 190 ppm と
り溶融タンク
故に水素 3 ~ 5 %

卷之三

実験は2種類の燃焼皿を併用して、6ケース(8回)を行なった。これらの試験条件と実験の経過を第3表に示した。実験条件が同じものが2ケースあるが、これは純度の異なるNaを使用したため、燃焼現象に差があるもので試験を行なつたものである。

- 実験に使用したNaは、A1、A2の実験にて9.99%の高純度Naであるが、ループ運転にて回収していたNaなので、K等の不純物が混入しているものと思われる。判定したKの分析値を第3.2表に示した。A3以降の実験にはDowns法により製造した工業用Na（日本ソーテ製）を使用した。このNaの分析値を第3.3表に示した。純度9.98%であるが、Oa、K等の不純物が多く、特にCaは約290 ppmであり、100°Cにおける飽和溶解度190 ppmよりも多く、ドラム缶容器の底面近くに偏析していたと考えられ、このドラム缶と

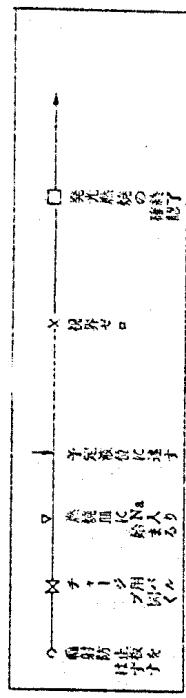
1

に使用して回収していったNa_nなので、K等の不純物が混入していないものと思われる。判定したKの分析値を第3.2表に示した。N3以降の実験にはDowns法により製造した工業用Na

- Ca, K 等の不純物が多く、特に Ca は約 290 ppm であり、100°C における飽和溶解度 190 ppm より多く、ドラム缶容器の底面近くに偏析していたと考えられ、このドラム缶より浴槽タンクに初めてチャーリーした際、異常に Ca 含有量の多い Na が入った可能性がある。故に第 3 ～ 5 は Ca の存在による影響と思われるものが認められた。

3.2 各実験時の燃焼現象（時間経過子の他）

四百三



6/2 (0150¹, 150m², 227.6, 500%, 2551111, 2111111)

- ① チャーハルゾ樹脂後に火点がとんだ。
 ② 10点位の火点が発生し、熱がりながら燃焼
 ③ 燃焼所に分散して燃焼し全間に燃がる。

第3.1表 試験条件

試験番号	2	3	1	4	7	5	6	8
初期Na濃度(℃)	250					500		
初期燃焼速度(v/m ³)	2.1		2.1		1.5	1.2	2.1	
燃焼面積(m ²)	0.15		0.15	0.15	0.15	0.075		
溶媒(%)	150		150	150	150	150	180	
Na量(L)	22.7		22.7	22.7	22.7	1.3	13.5	
温度(20℃相対%)	6.8	7.4	7.5	6.8	7.0	7.0	3.5	7.5
绝对濃度(g/m ³)	11.7	12.8	13	11.7	12.1	12.1	6.0	13
その他					空気過濾 110℃			
使用Na	A	B	A	B	B	B	B	

(注) A 桃井燃焼炉に使用しているNa(K:約1%含有)(第3.2表参照)
B ダランズ法により製造した工業用Na(純度99.85%)(第3.3表参照)

第3.2表 Na中のKおよび金属分析値(第3.1表A)

	K	Fe	Ni	Cr	Al
溶融マグナロジのNa	0.81(%)	9	<1	<1	4
Na用ドライ炉内のNa	1.22(%)	6	<1	<1	3.8

(発光法、比色法による)原材分析センター

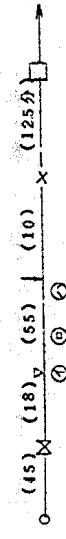
第3.3表 Na分析値

	Na	K	Ca	Si	Fe	V	Mg	Mn	Al	Cu	Ni	Cr
全 (第3.1表B)	99.85(%)	200	4.9	29.6	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
前回報告	99.6(%)	1800	4.0	15	15		25	15				

なお、接触部の溶融面が正常に作動しなかったが、液表面に生成したNa化合物により接觸が妨害されたものと思われる。

溶器本体より取出せたNa燃焼の状態を第3.1図に示す。

第3.1図 **6/4(0.15m³, 150m/m, 22.7L, 250℃, 68%RH, 21%O₂)**



① 火点が全体的に発生し、その部分が燃焼し始める。

② 火点の発生が全面に渡り全面的に燃焼する。

③ 炎は低いが火力強く、発煙により視界が10%程度となる。
Naが燃焼皿にチャージされた直後の状態は、全面に液化物でまわされ、金属性は最初からみられず、容器中のNa燃焼皿表面の状態を第3.2図に示す。

Na表面がすっかり燃焼生成物でまわされている様子がわかる。なおこの炎終了後、ドラム缶から新しいNa(第3.3表参照)をチャージした。

Na表面がすっかり燃焼生成物でまわされている様子がわかる。Naがこの炎終了後、ドラム缶から新しいNa(第3.3表参照)をチャージした。

第3.2図 **6/13(0.15m³, 150m/m, 22.7L, 250℃, 74%RH, 21%O₂)**



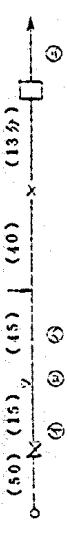
① Naがチャージされた瞬間にCaになると想われる火花がはね飛んだ。

② 火点が燃焼開始に発生して燃焼開始

③ 火点が全面に燃がり、燃焼が一段と激しくなる。

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

第3.3図 **6/16(0.15m³, 150m/m, 22.7L, 500℃, 68%RH, 21%O₂)**



④ 30~40cmの炎が発生しすぐ消える。

⑤ すぐ火点が発生し、拡大しじら。

⑥ 呼吸的炎あり。

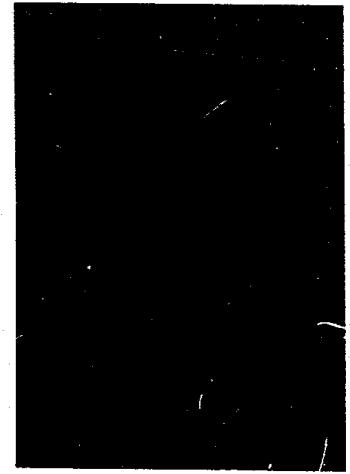
⑦ 3時間後視界が吹き、金属性がもつたNa炎がみえた。
付着生成物の水処理前の燃焼皿の状態を第3.4図に示す



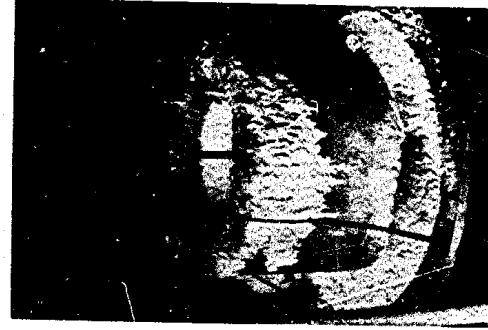
第3.1図 実験No. II-1 実験後の燃焼皿。



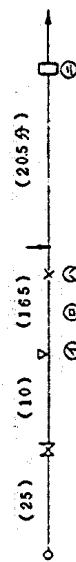
第3.3図 実験No. II-3 容器中の燃焼皿表面



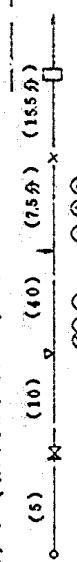
第3.2図 実験No. II-2 容器中の燃焼皿表面



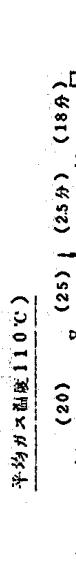
第3.4図 実験No. II-4 付着生成物の水処理前の燃焼皿

K5 実験 $6 / 18 (0.15 \text{m}^3, 150 \text{m}/\text{m}, 227 \ell, 500^\circ\text{C}, 70\% \text{RH}, 1.6\% \text{O}_2)$ 

- ① 無煙を伴ないつつNa入る。
 - ② 4～5ヶ所に火点発生。
 - ③ 予定液面に到達する以前に界隈ゼロとなる。
 - ④ 発光燃焼の終了時点の判明がやゝ不明瞭
- 燃焼3時間後、燃焼皿内Na液面に薄い液化膜が残っているがを確認する。未反応Naを抽出後の取出した燃焼皿を第3.5図に示す。なお、この実験終了後ドラム缶からNaを120°Cで再チャージした。

K6 実験 $6 / 20 (0.075 \text{m}^3, 150 \text{m}/\text{m}, 113 \ell, 500^\circ\text{C}, 35\% \text{RH}, 1.12\% \text{O}_2)$ 

- ① Na液化皮膜のシクリを生じながら液位上升
- ② 2ヶ所より火点発生し、しばらく持続
- ③ 火点のないところでも炎起状の炎面から発煙あり。
- ④ 燃焼皿の温度を500°Cに保つ。
- ⑤ 急激な燃焼拡大はみられず、徐々に進行する。
- ⑥ 燃焼皿の内壁をNaが燃焼しつつ、1ヶ所はい上つてくる。

K7 実験 $6 / 24 (0.15 \text{m}^3, 150 \text{m}/\text{m}, 23 \ell, 500^\circ\text{C}, 70\% \text{RH}, 2.1\% \text{O}_2)$
平均ガス温度110°C

- ① Naチャージと同時に火花発生
 - ② 3～5ヶ所から火点発生、白色のNa液化膜がる。
 - ③ 表面積の1/3で燃焼。火点の最大が比較的低い。
 - ④ ほど全面積で燃焼。
- 鎮火4時間後の燃焼皿の状態を第3.6図に示す。金属光沢をもったNa液面が見える。



第3.5図 実験K5-5 燃焼後の燃焼皿



第3.6図 実験K6-5 燃焼後の燃焼皿

第8実験 7/23 屋外燃焼試験 75cmH₂, 28°C, 0.075m³, 180m/m₂,
135.2, 500°C

- (1) Naチャージ直後に4~5ヶ所の火点が発生し、2分後に全面に炎がかる。
- (2) 燃焼皿の盤内底に1ヶ所のみ、燃焼生成物が盛り上って形成された。
- (3) 5.5分後ヒリからNaがこぼれ落ちる。
- (4) 生成物の盛り上った個所の表面の燃焼が止まる。
- (5) 4時間後、表面の燃焼が止まる。
- (6) 燃焼の時間経過を写真で説明する(第3.7図)

3.3 燃焼現象の観察結果の総括

3.3.1 初期燃焼履歴の影響

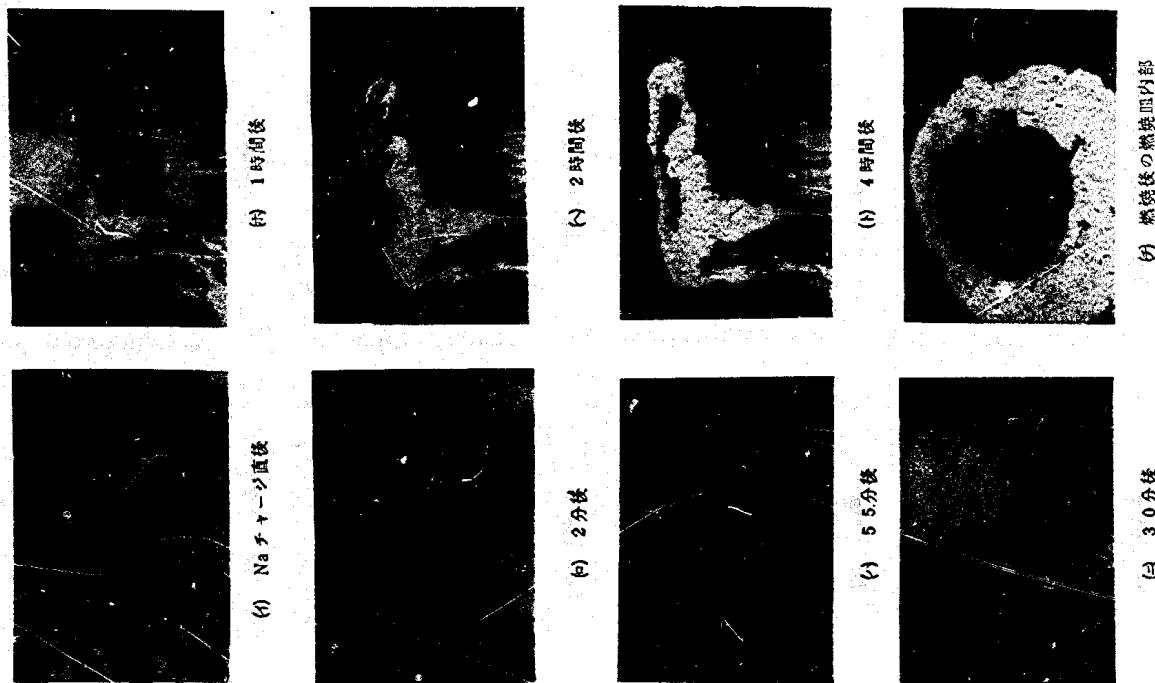
(a) 初期温度500°Cの場合(No.1, 4, 7 21%O₂)

全てのケースの場合に、Naチャージ直後に火点が発生、それが拡大して燃焼が進行したが、前回の結果と比較して火点の拡大速度が遅く、数秒で全面に広がったことや第1回の結果、発火現象の消滅時間が短く20分程度であったことから燃焼速度が遅くなかったことが予想される。この現象の理由として考えられるのは、使用したNaが前年度のものと異なり、不純物量が多かつたためと考えられる。すなわち、No.1~2ではKの含有量が、またNo.3以降ではO₂の含有量が多かつたと推定される。それらの分析値を第3.2, 3.3段に示した。これらの不純物は移送時は低温(120°C前後)であったため、タンクや配管中に偏析が複雑に起こっていたと想定される。発火燃焼終了後約2時間で燃焼器内の現状が抜かり、白煙が粉状になって容器下部に堆積する状態は前回試験と同じ様であるが、燃焼皿の上へりに、一部酸化したNa蒸着物が2.0~4.0m/m²盛り上つて生成したもののが、不完全燃焼とも思われる黒茶色で、燃焼皿中の未反応Naの表面も同色(No.1実験)もしくは、酸化物層の皮膜で覆われる(No.5実験)傾向があり、前回試験のよう完全燃焼面状態はNo.7実験でもみられた過ぎなかつた。なお、未反応のNa底面で、燃焼によりNa酸化物と思われる沈殿物が2.0mm程度の大きさで確認できた。

(b) 初期温度250°Cの場合(No.2, No.3実験)

Naがチャージされた直後に、Naが粉状で噴出しあたため、燃焼皿中のNa流入口が小さかっただので一部、Naが粉状で噴出しあたため、これは以後の実験から改良した流入口を設けることによって回避した。

火点の発生や拡大は500°Cの場合と現象的に同様であり、粉點がされないNaににおいては、場合によつては500°Cのチャージ温度の場合よりも火点の拡大が速く、被



第3.7図 外気中のNaプール燃焼状態

しく燃焼する状態が観察された。

また、一度着火燃焼すると、反応燃焼度で燃焼が拡大し、初期のNa温度は燃焼度大現象にあまり影響しないことがわかる。例と例3の燃焼現象の差異はほとんどなかつたが、鉄火後の燃焼物が例3の方が不均一な形状に形成されていた。

(4) 他の温床の場合

未反応のNaを燃焼皿から取出する際に、230°Cで重力排出して、空气中における発火現象を模擬してみた。

試験を予熱していかなかったので、急速に冷却したが、Naの落下点に、液化物被覆によりアリ状になつたものが生成し、その多孔面体の部分が容易に発火しやすいことが銀鏡された。しかし、このアリ状の生成物は容易に取り除くことができるので、発火した場合の炎頭も構成であった。受皿中の液体Naは一部発火燃焼したが、その表面觸所をすべて取ると燃焼は止り、約7kgのNa(液深: 約5.0mm)は、比較的安全に約1.5 hrで冷却可能であることができた。

また、Naを150°Cで同様の条件で排出した場合はアリ状の生成物も生成せず、何等の強火もなく、安全に約1 hrで冷却可能であることができた。

3.3.2 初期燃焼度の影響

(1) 液素濃度21%の場合

3.3.1の燃焼のこと。

(2) 液素濃度1.5%および11.2%の場合

1.5%の場合は、比較燃焼比Naを燃焼皿にチャージしたが、発煙が激しく、150°Cの予定燃焼度に到達する以前に容器内の液層がゼロになった。また、発火の状態も不規則な強弱があり、発火燃焼の終了時の判明がやゝ不明瞭であった。燃焼現象そのものは21%の場合との差異はつけ難かった。

11.2%の場合、Naのチャージ途中に表面に数点の火点が発生し、発煙したが、急激な燃焼度はみられず、徐々に燃焼が進行した。容器中の液層が零になるまでの時間がこの一連の実験中でも最も長く、燃焼皿の内壁をNaが燃焼しつつ、蒸着生成し、せり上つてくる現象が観察できた。なお、この実験は、20°Cの相対湿度を3.5%に設定して行なったものであり、前年度の試験(9.6%, 70%RH, 500°C; 燃焼しかかつた。)と比較して、湿度が少しあつたことと、Na中のO₂等の不純物濃度が高かつたことが初期の火点発生に起因しているものと思われる。

3.3.3 ガス漏斗の形状

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

3.3.4 大気開放して燃焼した場合

Naチャージ時は、白いNa酸化皮膜を伴ないながら液が上昇し、4~5点の火点が発生し、2分後に火点が全面に拡大して燃焼し、燃焼生成物が燃焼皿のへりに盛り上つてきただ。5.5分後にはこの生成物を介して、毛細管現象で押し出されと思われるNa燃焼皿の外部に飛散した。生成物の色は黄色から1時間後には白色に変わった。また、4時間後には自燃消火したが燃焼皿中のNaH、チャーチ直後の180°Cから約60mmと1/2の液位になり、低いオラスト(炭酸ナトリウム等から成る)で復元された。これは密閉容器中の燃焼と最も大きく異なる現象である。またこのプラスチックの内部には空気遮断されて置換消火したNaがNa酸化物と混つて残つた。なお、これらの処理には、密閉容器中で燃焼実験した場合の処理よりも時間を要した。

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

3.4 燃焼生成物

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

§ 4 燃素燃度変化からみたナトリウム燃焼速度

4.1 目的

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

4.2 測定法

前報と同じであるので省略する。

4.3 燃焼速度

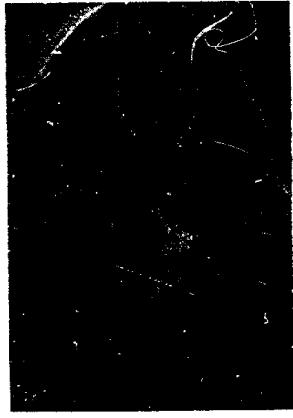
第3.8図 空気中におけるNaの発火燃焼事例－A



第3.9図 空気中におけるNaの発火燃焼事例－B



第3.10図 樹枝状に生長したNa



4.4 考察

4.4.1 初期燃素濃度と燃焼速度

前記の測定法により測定した結果を第4.1図～第4.7図に示した。
今回の実験では、初期5分間程度燃焼速度の小さい所があつたので、燃焼速度の算出には燃焼速度が直線的になる所で求めた。この現象は炎膜により、出現する時としない時とがあった。これはNaを燃焼皿にチャージする時の状態(チャージの速度)によるものと考えられる。

以上のようにして、前回と同じ方法で、データ処理した結果を第4.1表に示す。

同じ $S_0/S_0 = 0 : 85$ の条件下での炎膜を、前回の初期燃素濃度と燃焼速度の関係とともに第4.8図にプロットした。

Fig. 6 の実験について言及するとこの実験条件をもつて、初期燃素濃度 11.2% では火点の発生が認められけれども、その増加が極めて遅く、1～2分後から燃焼皿の温度を 500°C に保つた。それにより火点の増加は認められた。前回の Fig. 6, Fig. 7 の場合と同じく実験にはより低い値になると想われる。図では、燃焼面積が異なるので直接グラフ上にプロットする事はできないので、燃焼速度と S_0/S_0 の比の関係より、 $S = 0.15 m^2$ に相当する値を近似的に求めてプロットした。

以上の事から、初期燃素濃度の増加につれて燃焼速度は指数的的に増加すると推定される。初期燃素濃度 11.2% 附近に火点を生ずるが生じないかの境界があると推定される。初期ナトリウム温度と燃焼速度

4.4.2 初期ナトリウム温度と燃焼速度
初期ナトリウム温度と燃焼速度との関係を第4.9図に示してある。Fig. 1, Fig. 2 および

Fig. 3, Fig. 4 はそれぞれ同じ種類のナトリウムである。
この実験から定常的な火点は見えないが、燃焼速度は初期ナトリウム温度に依存すること、またナトリウムの細胞により燃焼速度は著しく影響をうけること、などが明らか

七
花旗

四庫全書

容器内気体温度を100°C程度に加热しておいて実験を行なつた。この時の燃焼速度は0.032 cm³/cm² minであった。他の通常の実験の場合とは同じであつた。

4.4 ナトリウム燃焼終期の酸化強度
前述のように附じた系においてナトリウム火災が発生した場合、系内O₂は見掛け上、零次反応によって消耗され、O₂濃度が時間とともに低下し、かつその低下

は反応的であります。しかし又火が燃えます。これは第一次反応的であることが認められた。（図4-2参考図）

火点が鋸削ナトリウム表面に存在している状態では、その燃焼に伴う反応熱により系内ににおける上昇が速められしく、従つて下界流と共にO₂が供給される。しかし、火点がもはや存在しない状態では、ナトリウム露出表面温度はナトリウムループから容器への伝熱をなさむにナトリウム表面から気相に露出している容器内部表面への輻射により低下し、かつ上界流の速度も低下してO₂の供給は低下するであろう。但しナトリウム表面の温度は約10°C/minで低下している。しかしながら、ナトリウム表面は依然として高熱度であり、燃しされ壁において火点が存在時に劣るとしても、対流は継続しているであろう。

それにより、気相中O₂は火が燃える効果だけではなく対流によるナトリウム表面と接觸して反応を進行することが達成される。このことは火点を生じない反応（前回の実験結果I-6、図I-7（ナトリウム温度=500°C、Constant）において示されたが

初期効率 $>100\%$ 、初期容量 2500C 。

实验序号	数据整理表(反应回收率)									
	(V/V)	S(m^2)	O (cm^{-1})	(cm)	(cm^{-1})					
1	21	0.15	150	227	130	0.0849	647	108	133	0.221
2	21	0.15	150	227	117	*	273	5.59	0.093	0.093
3	21	0.15	150	227	228	*	207	0.345	424	0.071
4	21	0.15	150	227	117	*	287	0.478	5.88	0.093
5	151	0.15	150	227	121	*	111	0.219	227	0.038
6*	112	0.075	150	113	227	60	0.0425	177	0.029	0.060
7*	21	0.15	150	227	121	*	227	0.049	0.493	0.011

第 42 頁 公衆衛生法之研究與演進

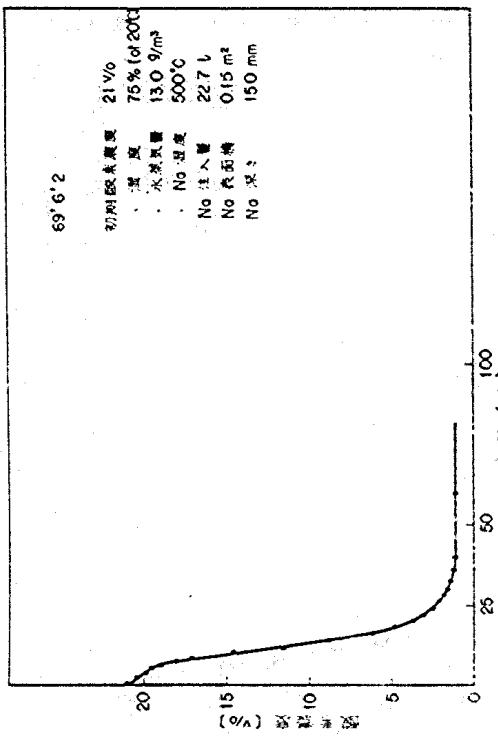
$$\frac{d(C)}{d} = k_1(C)$$

と表現される。 k_1 は (T') の次元をもち、C の初期濃度に比例する定数である。ここで取扱つた系は不均一で、しかも、 O_2 の供給速度、ナトリウムの表面濃度、表面積およびその表面活性剤により変化するものであるので、到底簡単な数学的基板で律するとは不可能である。

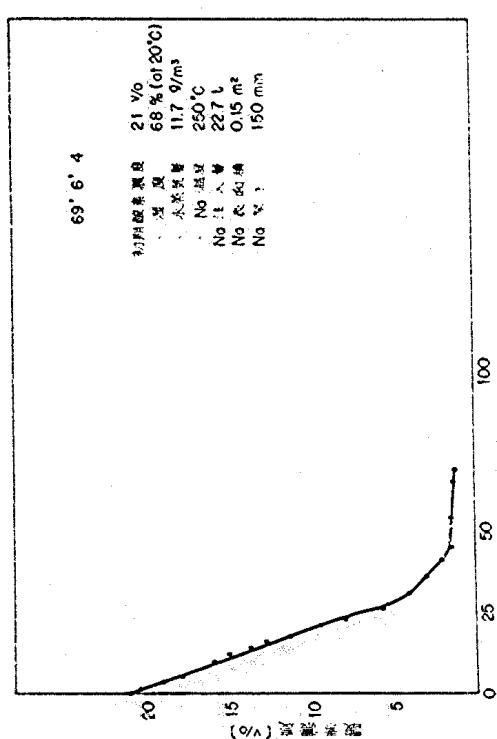
か、これら災難事変に因る損失、第1.2節を行なう。

第4.2表 一次反応への移行時間

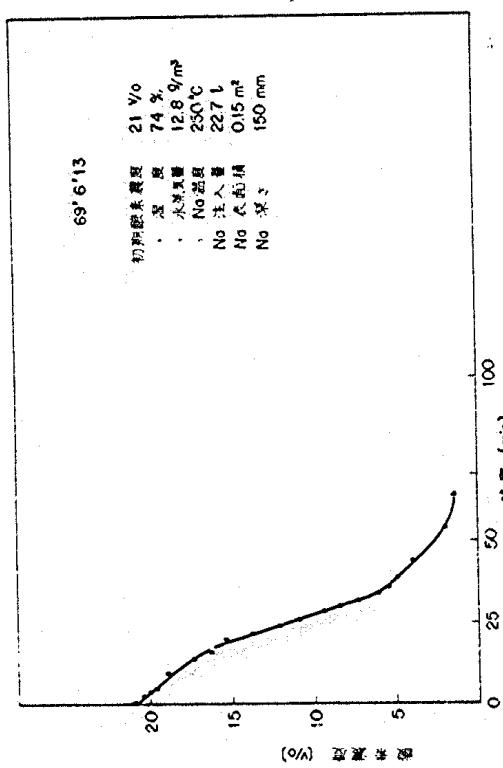
実験番号	初期濃度	一次反応開始時		$T_{1/2}$	k_1	$0.693/T_{1/2}$
		t'	O_2 濃度			
I-2	5.00	2.6 (min)	5 (%)	8 (min)	0.086 (min)	0.086
I-3	5.00	2.7	5	6	0.115	0.115
I-4	5.00	2.3	3.7	15	0.046	0.046
I-5	5.00	1.9	6	6	0.115	0.115
I-6	5.00 const	0	5	22	0.0314	0.0314
I-7	5.00 const	1.5	8	18	0.0365	0.0365
I-8	5.00	2.5	8	7.5	0.0925	0.0925
II-1	5.00	1.6	5	7	0.095	0.095
II-2	2.50	2.5	6.4	9.5	0.073	0.073
II-3	2.50	2.5	11.5	10	0.0693	0.0693
II-4	5.00	2.4	1.2	1.0	0.0693	0.0693
II-5	5.00 const	2.5	1.2	1.7	0.0407	0.0407
II-6	5.00 const	2.9	6.8	10	0.0693	0.0693
II-7	5.00 ($\frac{845}{110C}$)	2.0	11.5	5	0.139	0.139



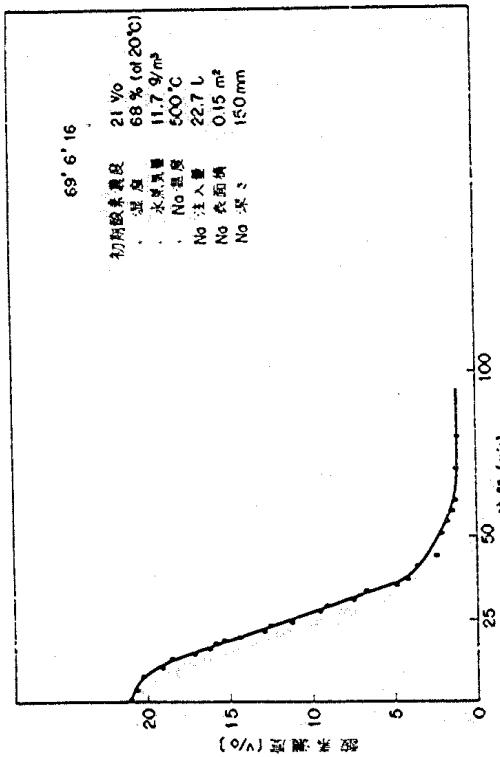
第4.1図 実験系1酸素濃度の経時変化



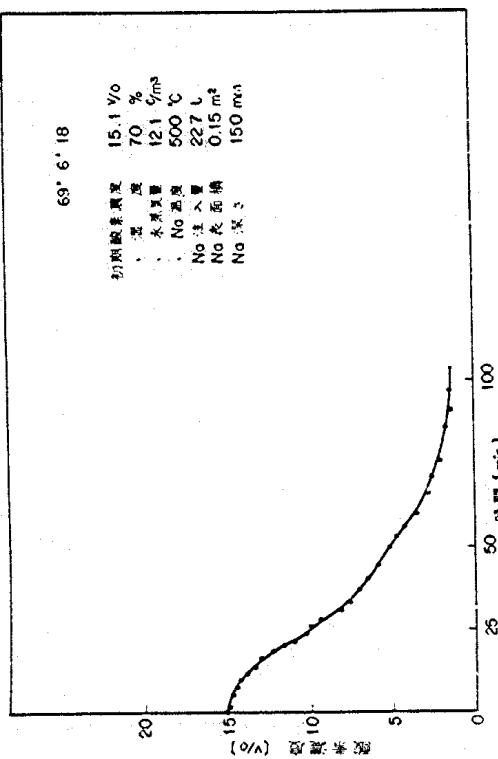
第4.2図 実験系2酸素濃度の経時変化



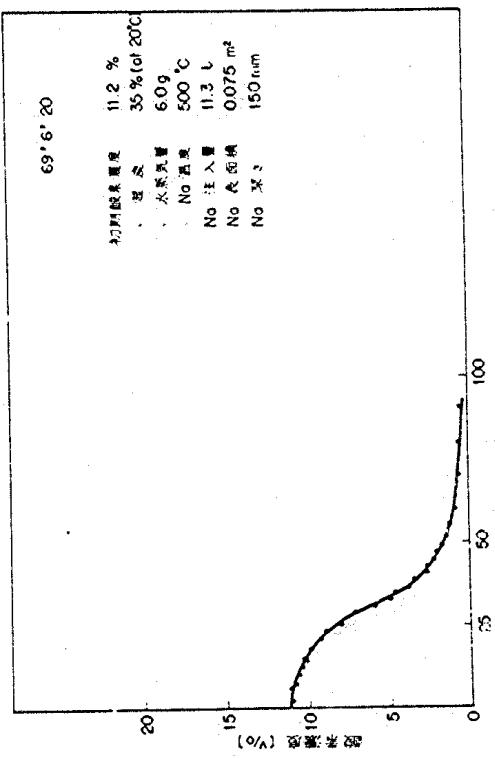
第4.3図 実験No.3酸素濃度の経時変化



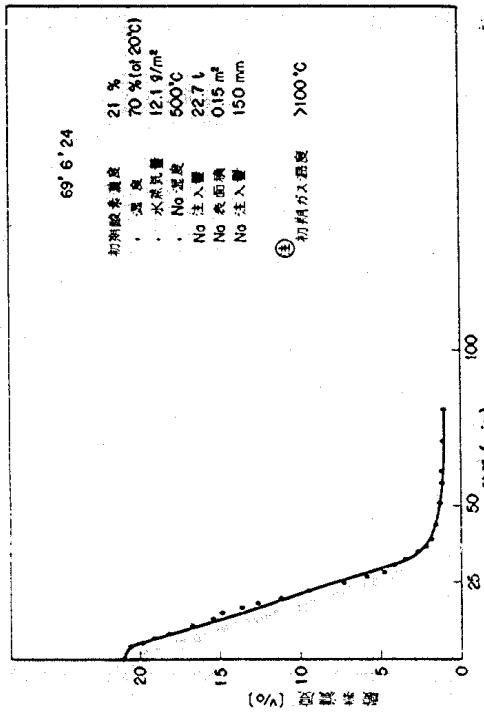
第4.4図 実験No.4酸素濃度の経時変化



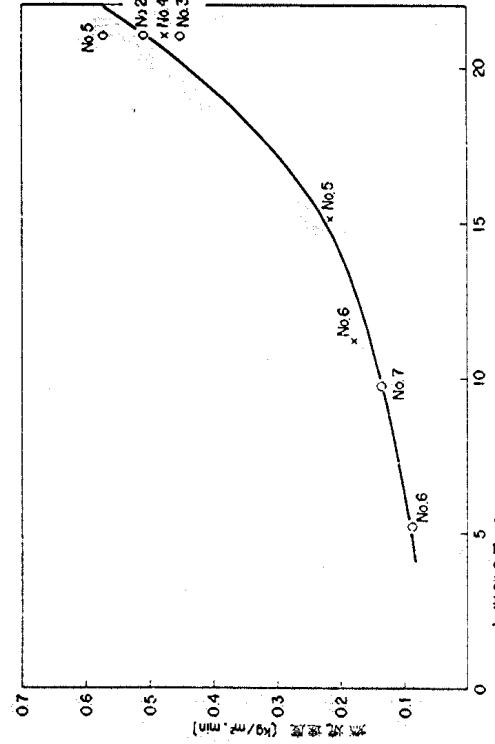
第4.5図 実験No.5酸素濃度の経時変化



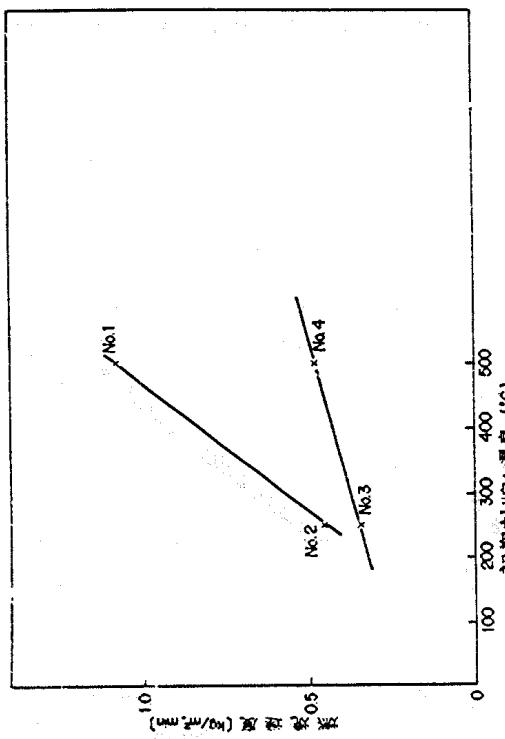
第4.6図 実験No.6酸素濃度の経時変化



第4.7図 実験No.7 濃度の経時変化



第4.8図 初期濃度と燃焼速度



第4.9図 初期ナトリウム温度と燃焼速度

§ 5 燃焼反応熱の計算

5.1 目的

Naのシステムからなるプロセスを考え、このプロセス全体のエネルギー変化量から燃焼反応熱を、またそのエネルギー変化量および容器内の気体分子密度の減少は容器内の気体を理想気体とみなせば燃素分子の減少すなわち酸化燃焼速度に対応する。
プロセスの圧力および温度測定点を第5.1図に示す。

5.2 計算方法

計算方法、基本式および物性値については、「ナトリウム火灾モデル計算(1)」に詳述してあるのでこゝでは特に述べないことにする。(第1章参照)

5.3 測定結果

圧力および温度の測定結果を第5.2～5.8図に示す。図において各々の温度はシステム全体の直積平均温度である。図より明らかのように、温度および圧力の最高値は(各々の実験条件下より若干の相異はあるが)たしかに200°Cおよび0.22 kg/cm²以下である。これは安全解析に用いられているコード「NAFIRE」の解析結果、温度620°C、圧力1.7 kg/cm²O₂よりは非常に低い。これはモデルの相異によるものであるが、これらの詳細は別に報告する。⁽³⁾

5.4 計算結果および検討

5.4.1 燃焼反応熱

(1) 燃焼反応熱

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

$$2\text{Na} + \frac{1}{2}\text{O}_2 = \text{Na}_2\text{O} + 104 \text{ kcal}/\text{no} \quad \dots \dots \dots (5.1)$$

Naの酸化物は廻路循環の存在が確認されているがNa—空気反応ではNa₂O、Na₂O₂の生成が多量に形成される。これらの反応ではNa₂O₂が形成され、次いで過剰の酸素がある場合はNa₂O₂はさらには酸化されてNa₂O₃となる。実際に、酸素が多い反応の初期にはNa₂O₃が一部形成され、それが次第に再還元されるものと思われるが、主として前者の反応のみが行なわれるものとみなし得るであろう。⁽¹⁾
一方、実験の内限およびデータの不正確による誤差結果によれば、少なくとも

も初期の燃焼反応の状態は前回⁽¹⁾とは全く異った激しい燃焼反応を呈し、また燃焼反応終了後もNaブールは前回のような鏡面状態とは異り、酸化物が多量に浮遊した状態であった。ここで少なくとも前者に関してはNa₂O中の燃も反応しやすいための含有量は、前回は0.1%程度であったものが、今回は1%程度とかなり多量であったことに起因するものと思われる。

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

(2) 熱収支

燃焼反応によって発生した熱は、燃焼反応終了時において約50～70%が対流および伝導熱によって、ガスおよび圧力容器に伝熱される。残りの約50～30%はNaブールおよびNa燃焼皿に伝熱される(第5.1章参照)。このようにNaブール燃焼においては、燃焼反応の約50%～30%がNaブール側に蓄熱されるが、これはNaの燃焼がいわゆる液面燃焼である、かつNaの燃焼導率が他の燃体燃料に比して非常に大きいからである。しかも、酸化物は他の液体燃料の場合に比して重く、あまり飛散せず、本部分はNaブールの低温部に移動することからも容易にうなづける。次に燃焼反応層から気体および圧力容器への伝熱過程を考えてみたい。その詳細は別に報告する⁽¹⁾が要点を述べると、いま火点の温度を1500°Cとし、その燃焼表面上の発熱率を5.0%とすれば、圧力容器への伝熱は約80%がふく射伝熱によって支配される。残りの約20%がNa液面や火炎からの自然対流によって、あるいは液体の飛散やAerosolのふく射吸収等によって気体に伝熱される。これらの伝熱過程は圧力容器を支配する重要な要素であるが、これらとの詳細な後段結果については別の報告⁽¹⁾とする。

なお、往來安全解析に用いられているコード「NAFIRE」⁽¹⁾は、燃焼熱のNaブール側への残留やふく射放熱は考慮に入れていないので、非常に安全側に考へたモデルでもことがある。

(3) 溫度分布

容器内部の温度分布は主として容器および燃焼皿の形状によって支配される。(第5-9～5-15図参照)これは容器内部の気体の自然対流を支配し、燃焼速度、酸化物等の容器内部への飛散および付着、さらには容器内面における伝熱を支配するから容器内の圧力応答を考えるには非常に重要な要素である。これについては別に報告する。⁽¹⁾

5.4.2 燃焼反応速度

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

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

第5.1表 燃焼反応率と燃焼割合

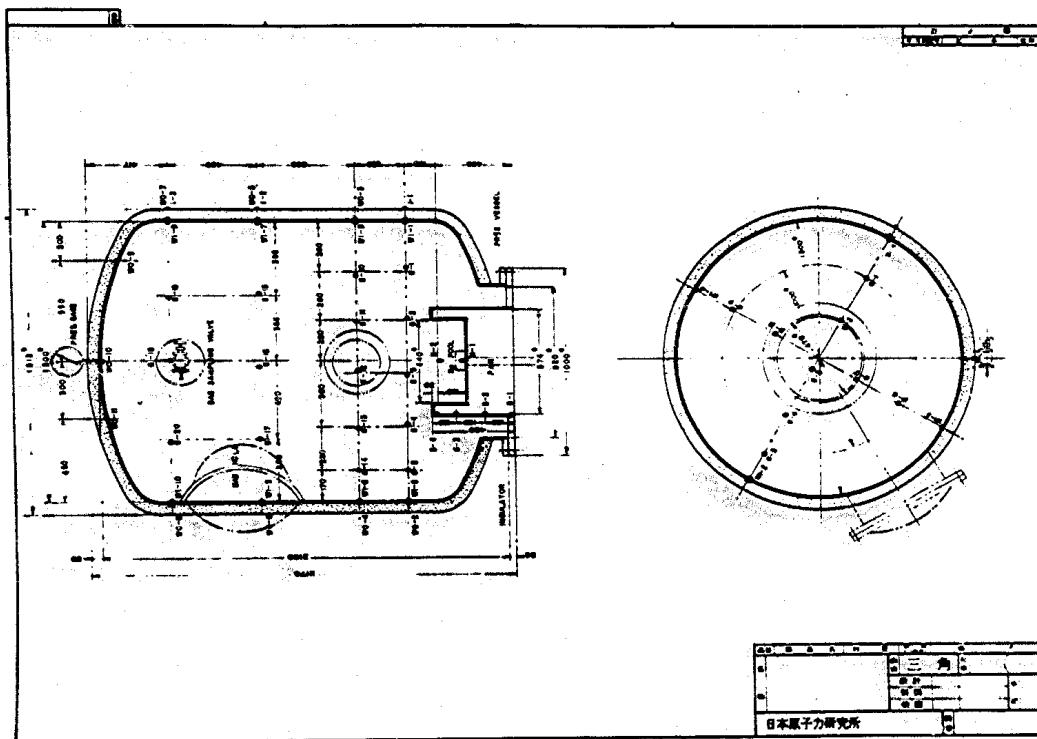
実験点	初期燃素濃度	注入Na ₂ 量 g	Na ₂ 蒸気量 m ³	燃焼反応率と燃焼割合(%)	
				燃素速度 mm/min	燃素割合 % (燃素速度)
1-1	2.1	5200	5750	51.9	48.1
2-1	4.5	5150	420	56.0	
3-1	6.2	5750	34.8	65.2	
4-1	4.4	5750	41.1	56.9	
5-1	3.9	4150	52.8	47.2	
6-1	3.3	3100	31.6	68.4	
7-1	4.7	5750	57.7	61.3	

$$(1) \quad 2\text{Na} + \frac{1}{2}\text{O}_2 = \text{Na}_2 + 106\text{Kcal}/\text{mol}$$

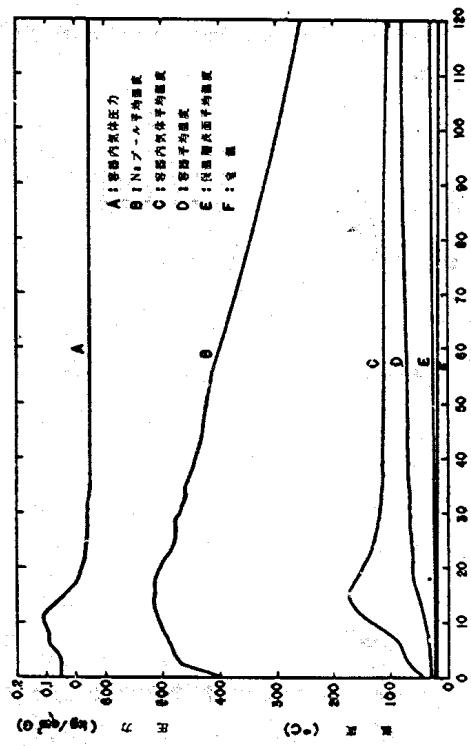
(2) 燃りこみ熱量式による計算値

第5.2表 燃焼速度

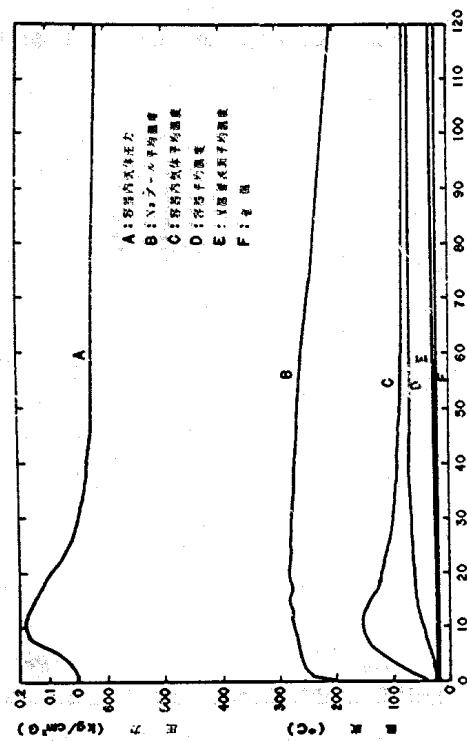
実験点	初期燃素濃度	注入Na ₂ 量 g	Na ₂ 蒸気量 m ³	燃焼速度 kg/m ² min	
				燃素速度 mm/min	燃焼速度 kg/m ² min
1-1	2.1	500	0.075	0.93±0.07	1.72±0.26
1-2	2.1	505	0.15	0.55±0.03	0.53±0.10
1-3	2.1	520	0.15	0.57±0.02	0.68±0.03
1-4	2.1	500	0.30	0.31±0.02	0.47±0.04
1-5	2.1	505	0.15	—	0.68±0.04
1-6	3.2	470	0.15	0.12±0.01	0.11±0.01
1-7	9.7	475	0.15	—	0.16±0.02
1-8	2.1	495	0.075	0.91±0.07	1.23±0.09
1-1	2.1	470	0.15	0.89±0.04	1.03±0.09
1-2	2.1	300	0.15	1.05±0.10	(1.19±0.10)
1-3	2.1	250	0.15	0.87±0.10	(0.129±0.031)
1-4	2.1	475	0.15	0.86±0.03	0.63±0.09
1-5	1.5	490	0.15	(0.62±0.18)	0.31±0.01
1-6	1.12	460	0.075	(0.53±0.01)	0.51±0.03
1-7	2.1	460	0.15	0.75±0.03	0.71±0.04



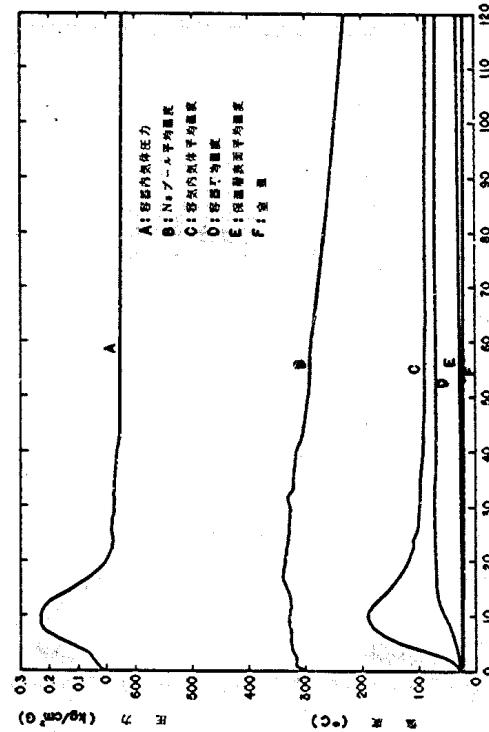
第5.1図 壓力容器構造



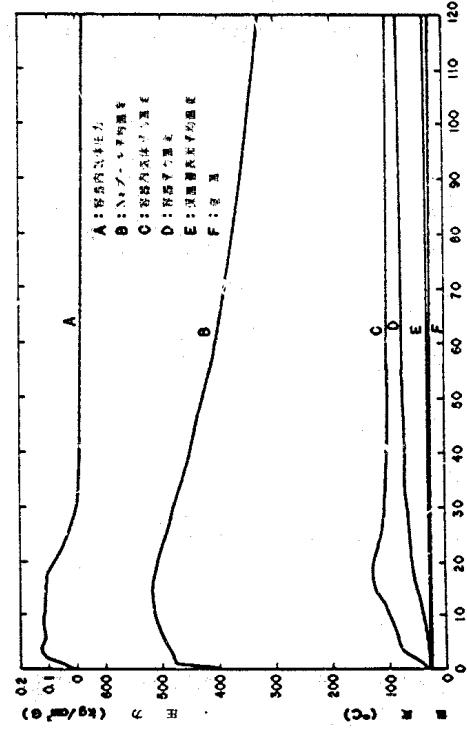
第5.2図 溫度上昇圧力応答 (実験No.3)



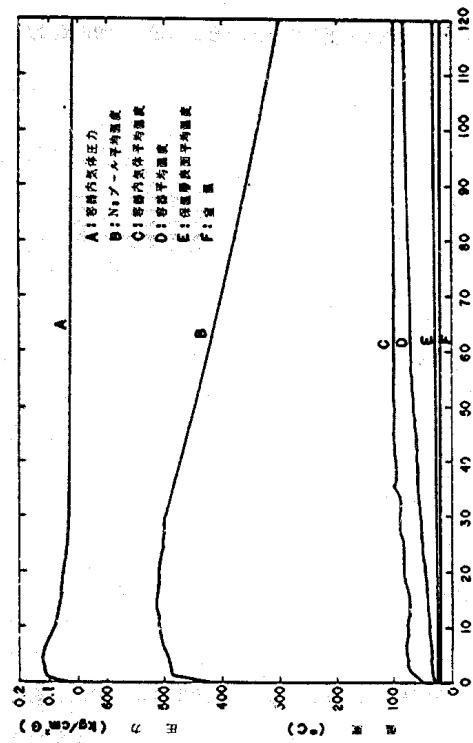
第5.4図 溫度上昇圧力応答 (実験No.3)



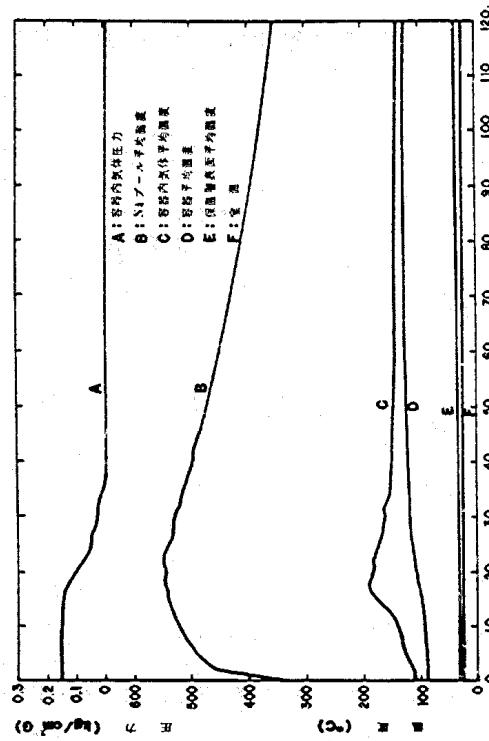
第5.3図 溫度上昇圧力応答 (実験No.2)



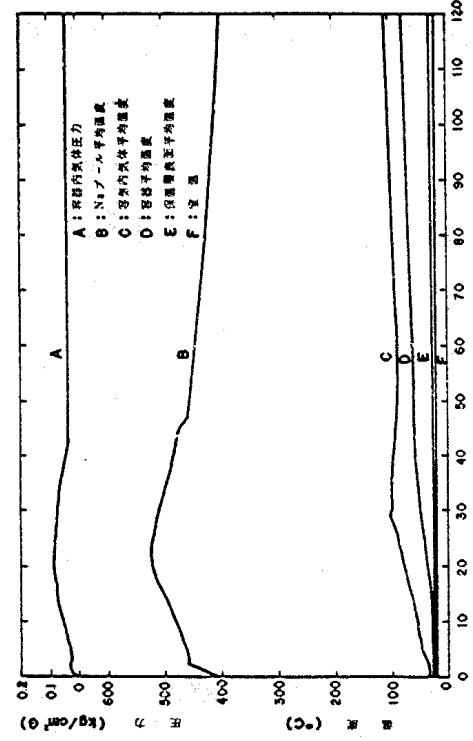
第5.5図 溫度上昇圧力応答 (実験No.4)



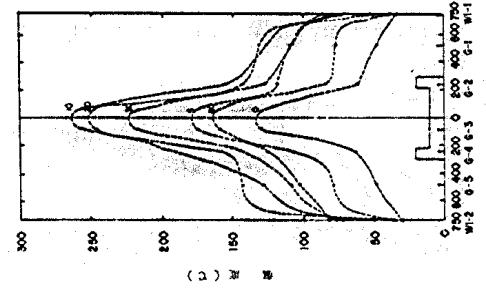
第5.6図 溫度および圧力応答（実験No.5）

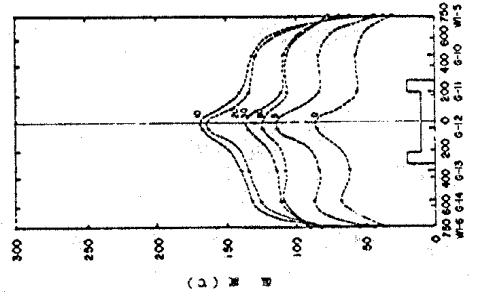


第5.7図 溫度および圧力応答（実験No.7）

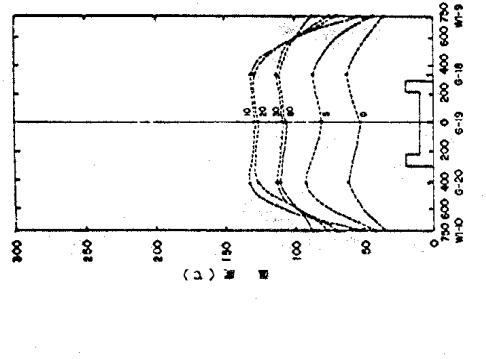


第5.8図 溫度および圧力応答（実験No.7）

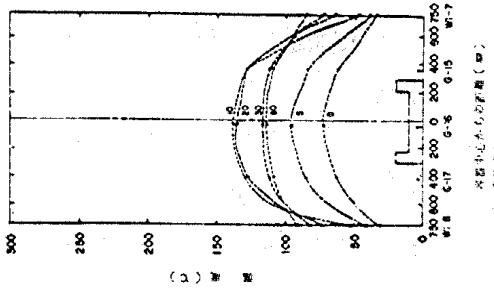
第5.9図 容器直達方向温度分布
実験No.1



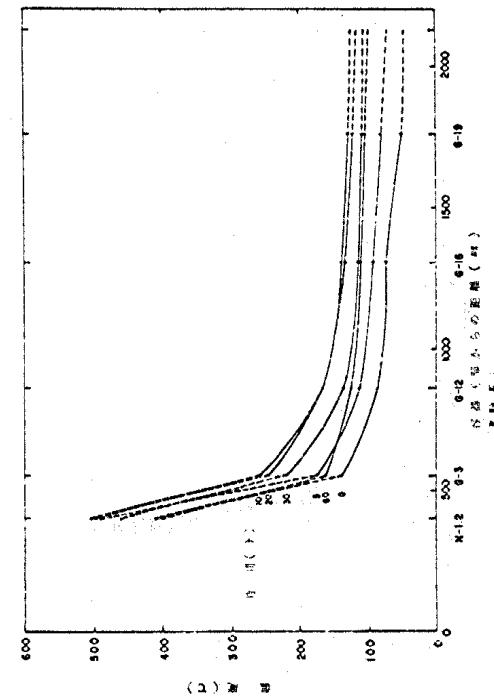
第 5.10 図 容器直角方向温度分布



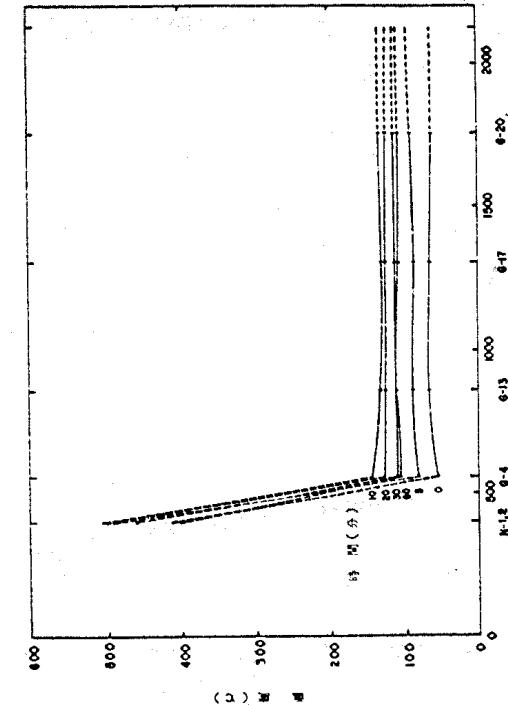
第 5.12 図 容器直角方向温度分布



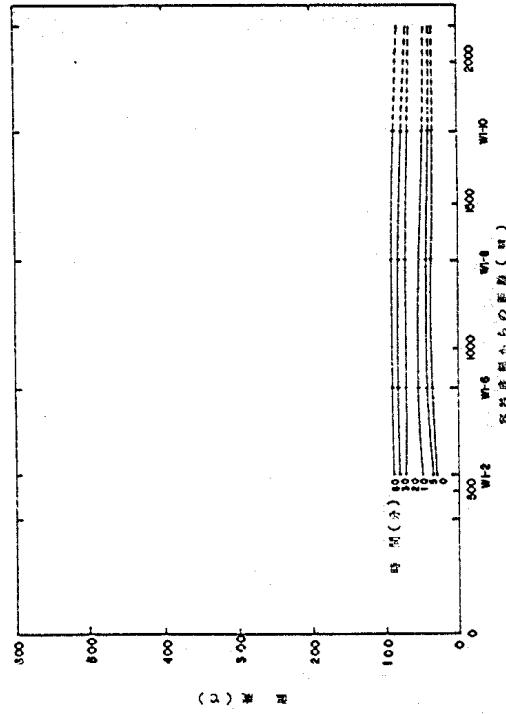
第 5.11 図 容器直角方向温度分布



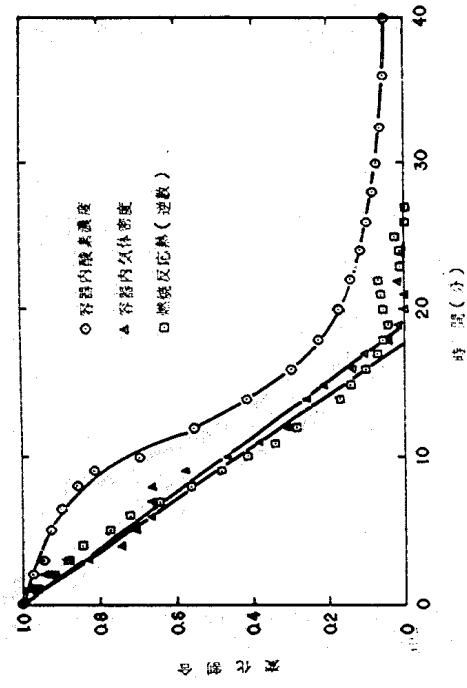
第 5.13 図 軸方向温度分布



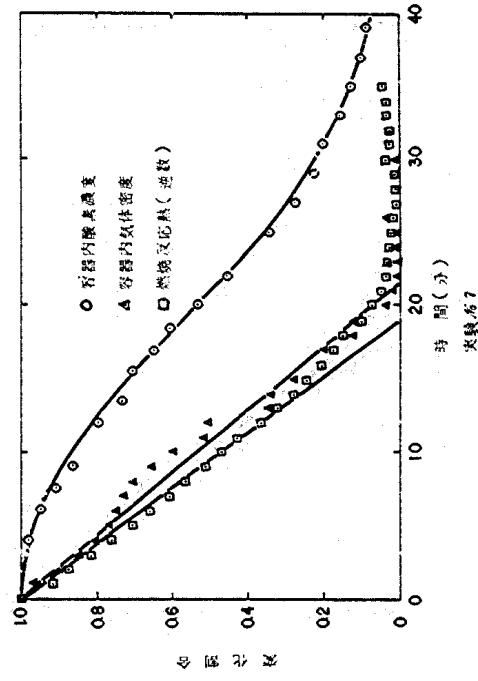
第5.14図 軸方向温度分布



第5.15図 軸方向温度分布



第5.16図 熱的にみた燃焼反応速度と酸素濃度の時間経過



第5.17図 熱的にみた燃焼反応速度と酸素濃度の時間経過

§ 6: 総括的考察および結論

6.1 ナトリウム地金の影響

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

6.1, 2の実験では、第3.2表から分かるようにKが、通常(および前回の実験)の0.1%の約10倍込んだ地金による実験であった。6.3実験以降は、Downs法(NaO₂電解法)で作られた工業用Na(第3.3表)であって、前回の24 ppmよりやはり約10倍の290 ppmのCaを含んだ地金による実験であった。しかもドラムカンから溶融タンクへの最初の接觸は、ドラムカン底部温度を100~120°Cとして行われたため、Caの饱和溶解度(100°Cで190 ppm)を超すための剖析がおきており、Caが特に多いNaが接觸されたようである。接觸の構造上、実験No.3で使用されたNaは特にCaが多くなった可能性があり、親水窓からその根柢もそれを支持する。逆にNo.6~8の実験には、290 ppmより少ないCa量のNaが使用されたであろう。これらが第5.2表に見られるように、燃焼速度を大きくしていく方向である。

6.2 酸素濃度変化よりみた燃焼速度

前回同様、燃焼速度はまず空気中の酸素濃度変化から測定された。その結果は、第4.1~4.7図および第4.1表に示したようなものであつて、比較的小さな値を示した。これは窓からの鉄錆爆発であるところの新しい燃焼開始、短い発光燃焼時間や密度および発熱量活量より見た燃焼速度などと対応しない結果である(第5.2表参照)。

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

考られた結果は、反応容器内の気相燃焼状態の変化である。気相内温度測定用熱電対を前回の1.2点より3.0点に増加させたため、その先端についた約30度角のステンレス箔(熱辐射防止板)による対応の妨害がおきて、上部のオササンフラ一附近の酸素減少が数分おくれ気味になつたものと考えられる。これは、第5.1回の熱電対0~1.6と6~1.9の温度差と前回の報告書の第5.9回の報告書の第5.9回の熱電対T-3.2とT-2.1の温度差の符号が逆転していることからも推測される所である。

したがつて、我々は次節の計算値の方を信頼ねがるものと考えたい。一見、第4.1~4.7回は前回と絶対同様の被覆曲線を与えたために、実験中ににおいて改善策を取ることができるなかつた。

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

6.3 温度・圧力変化からみた燃焼速度

今回も前回よりも測温点を増加させて詳細な温度分布およびその時間変化を測定した。そのデータの詳細な解析は別に計画中で、これにより、炎管炉等の実験規模に外挿可能なモデルを完成させる予定⁽¹⁾であるが、今回第5章でその一部を示した。

解析結果によると、第5.2表から分かるように、酸素濃度から求めた燃焼速度より、一般に大きい値を示した。しかし、密度基準による計算値の一致は非常によく、共に十分よい近似で、第一次反応の直線性を示した。また、第6.1表から分るより、発光燃焼終了が觸刺された時点と、上記の計算値で燃焼速度が零次反応から1次反応に変る時点とは、よい一致を示していることが分かる。

6.4 一次反応領域と発光燃焼

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

前回でのべたように、燃焼速度の変化は大きめ今回の実験、即ちII-1~II-7に関する解析結果は信頼性がないと書いてある。したがつて、第6.1表から分るより発光燃焼時の酸素濃度が、前回と異り、1.0~1.5%酸素という高い値を示した理由も明らかになったと考える。正しい波面近くの酸素濃度は極正により求めらるべきが、前回の実験結果に示された6%附近であると考えよいであろう。

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

第6.1表 燃焼時間

実 験 日 数 表 紙	注入Na濃度 (cc)	初期燃素濃度 (v/v)	第一次燃焼時間			一次反応 開始後燃 素濃度より 燃素濃度変化 (分)	一次反応 開始後燃 素濃度より 燃素濃度変化 (分)
			注入時間 (分)	燃焼熱より (kcal/g)	密度変化より (分)		
1	470	2.1	1.6	1.9	1.7	1.6	(6.5)
2	300	2.1	1.4	1.45	(1.7)*	2.5	13.7
3	250	2.1	1.87	1.82	(1.2)*	2.5	15.5
4	475	2.1	2.0	2.0	2.15	2.4	15.0
5	490	1.51	2.35	(27.5)*	3.75††	2.5	10.2
6	460	1.12	2.4	(35)*	3.0	2.9	8.2
7	460	2.1	2.1	2.15	2.35	2.0	10.6

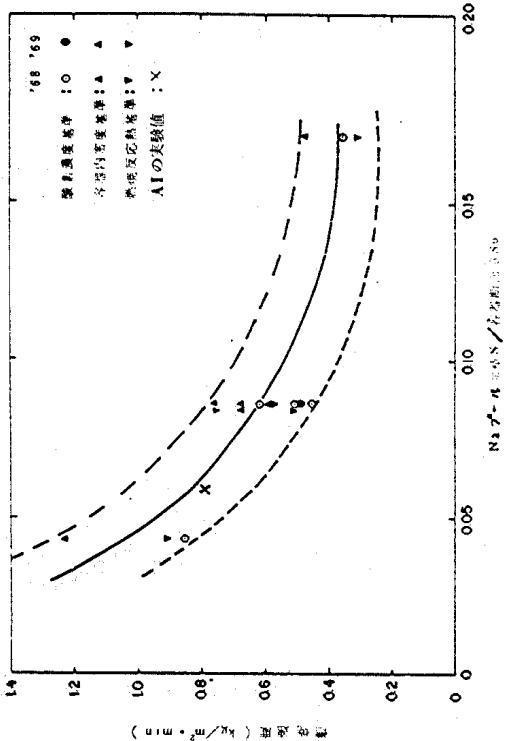
(注) * 定力運定に異常あり ** 500℃にて予熱を行

これがかなりよい一致を示すのは興味あることである。II-5, II-6の実験ではあまりよい一致がみられないのは、予熱を抜けた時の理由によるものであろう。

一次反応の速度係数も(第4.2表)についても今回の試験データを解析したものは、余り意味をもとんと変更しないでよい事が分かる。

6.5 前報の結果について

前回報告の第5.2表から明らかのように、今回と同様の燃素濃度変化、密度変化および燃焼熱変化より求めたNa燃焼速度が相互に良い一致を示していた。したがって、前回の結論はほとんど変更しないでよい事が分かる。



第6.1図 面積比 (S/S_0) と燃焼速度の関係
(AIの実験について) (1973年5月)

§ 7 結論

(1) 前回とは同様の装置で実験が行われたが、今回の気相割合を12点から30点に増加させた。またその他の割合点も1.6点から3.0点に変えた。したがって温度分布および変化の測定精度が非常に高まつた。それから求められた燃焼熱基準および密度基準の燃焼速度は、発火燃焼が止まるまで時間に遡る反応的かよい直線性を示した。両者の一致もよく予想される以上に信頼性ある解析が可能となつた。解析の恐れのある元素濃度変化測定よりも直観的であることが判明した。

(2) 前回⁽¹⁾はCastner法で作られた工業用Naを使用したが、今回はDown's法で作られた工業用Naを大絶分の実験に使用した。これはOaが前回のものより約10倍の290 ppm含むものであったので、下記のような結果となつた。これはまだK1, K2の実験に使用した所の、Kが前回のものより約10倍の1を含む地金に対してもほぼ同様の結果であった。
即ち、初期500で、21%換素、燃焼面積0.15 m², S(燃焼面積)/So(容器断面積)
 $= 0.085$ の実験では前回第4.1回から約0.5 kg/m²・minの燃焼速度であったものが、
今回のNa地金に対しては、K1, K2の実験から分るようになり約0.9 kg/m²・minの燃焼速
度となつた(第5.2表、燃焼熱基準、密度基準からみた燃焼速度より)。

(3) 濃度変化からみた燃焼速度は、他の方法による燃焼速度より非常に小さくなつてゐる。これは気相割合点を増したための対流物質、気相混合不完全によるものであらうことが、表面燃焼結果、温度分布状態などから推定された。

(4) 前回の実験解析においては、三種の燃焼速度がほぼ一致しているので、との割合の酸素濃度変化を中心とした解析データに基づく結論は変更する必要はないであろう。特にS/Soとの関係は第7.1図に示したが、前回に従来値として示した曲線(因の実験)に依然信頼性もあるものであろう。

(5) なお、(1)でのべたように、温度分布に復する詳細なデータがえられたので、前回のデータに対する内挿値の推定が容易になり、解析精度を高めるようになつた。さらに燃焼機解析も容易になつたので、実験が規模にも外挿可能な式がえられるよう考案⁽¹⁾を行いつつある。

以 上

§ 8 謝辞

研究業務遂行に終始御助力いただいた効率的の給木情一氏および福島義氏に感謝します。
また実験実施にあたり多大の協力をえた所の表記以外の全ナトリウム研究員、特に須藤高
史、横田俊明の兩氏、化学分析をお願いした原研分析センター、および膨大なデータ整理と計
算を窮屈に行って下さった清水陽子・佐藤淳子の両娘に謝意を表します。

§ 9 参考文献

- 1) 古川、木谷、山田、村田、高橋
「ナトリウム火災モデル試験(I)」動力炉核燃料開発事業团受託研究。
(1968年12月) (本報告書第I篇として再録)
- 2) 田坂、ナトリウム空気反応解析コード「NAFIRE」(1968年8月)
- 3) 古川、村田、(1970年1月)「ナトリウム燃焼火災機構の解析」、動力炉核燃料開発事業團受託研究,

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

最初は、原研高速実験炉計画の安全性評価に関係しておられた磯康彦氏から実験をすすめられたのに始まったようである。その後、動燃團が発足し、鈴木脩一氏の熱心なおすすめによりお引受けしたものである。

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

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

委員長： 北川徹三教授

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

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

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

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

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