PNC TJ9807 98-001

静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験

（動力炉・核燃料開発事業団　研究委託内容報告書）

1998年8月

東邦大学

公 開 資 料
PNC TJ9807 98-001
1998年 8月

静止ナトリウム液滴燃焼基礎実験

佐藤研二※

要　旨

高速炉の冷却材ナトリウム(Na)の漏えい事故時の燃焼挙動に関しては，これまでの工学的な取り組みに加え，現象論的にその挙動を解明していくことが重要である。

本実験研究は，Naが液滴となって燃焼する場合の着火挙動に焦点をあて，静止させたNa液滴を着火・燃焼させることによって，Na温度，液滴径および液滴周囲の気流速度が着火挙動におよぼす影響を明らかにすることを目的とした。

実験では，高温Na供給装置先端に取り付けた細管（ノズル）下端にNa液滴を不活性雰囲気中で生成・保持し，ほぼ自然対流に近い低流速で上方に流れる，相対湿度10%未満の乾燥した常温空気にさらし，光学的な方法により着火現象の様子の観察を行った。さらに，多少条件が異なる種々の条件下での着火現象についても実験を行い比較観察を行った。着火・燃焼現象の様子はビデオカメラおよび高速度ビデオカメラを用いて記録し，再生して現象の時間変化を分析した。

実験装置の調整に時間を要したために限られた条件の範囲での実験となったが，実験結果の分析から，着火挙動の様子，Na液滴の初期温度，液滴径が着火遅れ時間等におよぼす影響について基礎的な資料が得られた。

今後，より信頼性の高い結果が得られるように実験の実施上の問題点を整理・検討して実験手法を改良するとともに，実験条件の範囲を拡げ，測定項目を増やして系統的な検討を行う必要がある。

本報告書は、東邦大学が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容結果である。
契約番号：　090D0302
事業団担当部課室および担当者：大洗工学センター安全工学部プラント安全工学室　室長 田辺 裕美
※ 東邦大学理学部物理学科

PNC TJ9807 98-001
August, 1998

A Basic Experimental Study on Combustion of Suspended Sodium Droplet

Kenji Sato※

Abstract

For appropriate understanding and/or prediction of the combustion behavior of sodium, working as liquid coolant in fast breeder reactors, in case of leakage accident, phenomenological analyses of the behavior must be also very important along with conventional engineering approach.

The primary objective of this experimental research is to elucidate the effects of the initial temperature and diameter of sodium droplet and of the flow velocity of surrounding air on the ignition delay time of exposed droplet.

In the experiments, by suspending a high-temperature droplet of sodium provided by liquid-state supply system in a low velocity air flow, the ignition and combustion phenomena were observed by using high-speed color video recording system.

From the analyses of the experimental results performed for major conditions, fundamental information of the effects of initial temperature and diameter of the droplet on the ignition/combustion behavior and ignition delay time was obtained. It was shown that in a low humidity conditions the flame is established uniformly all over the droplet surface although partial initial flame was observed for the cases in relatively high humidity conditions.
For further understanding of the combustion behavior, more extended experiment should be necessary in the future studies.

Work performed by Toho University under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

PNC Liaison: Hiromi Tanabe, Manager, Plant Safety Section, Safety Engineering Division, O-arai Engineering Center

※ Faculty of Science, Toho University

目　次

図 目 次

1．まえがき

高温のナトリウム(Na)の漏えい事故時に起きる現象に関連し，これまでに液滴の状態で燃えるNaの着火・燃焼に関する実験的な研究がろいろな規模で行われ，漏えいNaの挙動に関する工学的な知見が蓄積され，その知識は燃焼挙動の漏えい事故時に発生する現象の予測プログラムに反映されてきた[1)]。

しかし，近年，種々の規模の漏えい事故により的確に対応できるよう，燃焼による影響をさらに精度よく予測するプログラムの開発が望まれている。そのためには，基礎的な燃焼実験を行うことによって個々の液滴の着火・燃焼のふるまいを現象論的に詳しく把握することが重要となる。液滴の燃焼実験の方法としては，無重力下で行う特別な場合を別とすると，周囲雰囲気中を自由落下する液滴を対象とする方法と静止液滴を対象とする方法に分けられる。Naにおいて静止液滴を対象とする方法は，液滴を静止状態で安定に保持して燃焼させることが比較的難しいことなどもありこれまで取り扱われた例が少ないが，小規模な装置によって着火・燃焼過程の詳しい観察が比較的容易に行える利点がある。本研究は，常温空気中での静止液滴の燃焼実験を装置等に工夫をこらして実施し，Na液滴の初期温度，初期直径および周囲の気流が着火のふるまい，着火遅れ時間におよぼす影響を明らかにすることを当初の目的とした。

実験では，液滴生成装置のステンレス細管先端に表面張力によって保持された高温のNa液滴を常温空気流中にさらすことにより，自発着火・燃焼現象の観察を行い，その結果を分析しデータを得ることにした。そのために，新たに製作された燃焼装置，高速度ビデオカメラ，温度測定装置等からなる実験装置を用いて一連の実験を行った。

2．従来の研究

Naの着火・燃焼現象について実験による観察をもとにした研究はこれまでにいろいろなレベルで行われている。

Naの着火・燃焼挙動を，試料を静止させた状態で詳しく観察し，写真を示して挙動を説明した代表的な研究例としては，液滴を対象としたRichardらによる研究[2]とよどみ流れ中に置いた円盤状試料を対象としたYuasaによる研究[3,4]がある。また，北川ら[5]は，写真を示していないものの，着火限界，着火遅れ時間の値を広範囲に実験条件を変えて詳しく調べた結果を報告している。

液滴を対象としたRichard[2]らの研究では，高温炉内においてガラス管先端に保持したNa液滴の着火・燃焼実験を行っている。雰囲気の酸素濃度も変え，高速度映画で拡大撮影し，主に現象の観察と着火後の燃焼率（蒸発係数）を調べている。実験は，ほぼ静止した周囲気体の中において，気体の温度が初期液滴温度と同じ温度（150℃～350℃）の状態で，液滴直径が1.5mm未満を対象に行われている。着火過程でまず皮膜が形成されそれが溶融していく様子等が記述されているが，時間との関係についてはあまり詳しくない。この実験では，周囲温度が液滴と同じ温度であり冷却の影響がないため，本研究で対象としている常温空気中での実験とはいくぶん条件が異なる。

Yuasa[3]の研究では，湿分を調整した常温空気を高温に加熱された水平に置かれた円盤状のNa試料表面にあて，着火過程に注目して実験を行っており，着火に至るまでの表面状態，試料付近の発光の時間変化，最低着火温度等を調べ，実験条件と着火に至る反応の関係について議論している。一連の研究の中で，着火遅れ時間と温度との関係も調べられている[4]。着火後の燃焼挙動はほとんど調べられていない。実験では気流流速がかなり大きな値（一定値）となっており，また試料の大きさが本研究で対象とする液滴径に比較すると大きい等の違いもみられる。

北川ら[5]は，電気炉内で，炉温度，空気流速，空気中湿度，試料の大きさを変えて実験を行っていて，それらが着火限界，着火遅れ時間におよぼす影響を広くかつ詳しく調べているが，着火過程のふるまい関する詳しい観察結果は残念ながら示していない。

液滴に関して行われてきた実験的研究は，上記のRichardらの研究を除くほとんどが空気中を自由落下運動する液滴によるものとなっている。落下液滴に関しては，Morewitzらの研究[6]をはじめ，数多くの研究があり，着火遅れ時間などの定量的なデータが多く得られているが，測定手法上の理由から撮影には流しカメラ等の長い距離にわたり観察が行える方法がとられ，着火過程の液滴付近の様子の詳細な観察は十分行われていない。

3．実験装置

実験装置の主要部には大洗工学センターより貸与を受けた装置を用いた。図1にNa燃焼実験装置全体の構成の概略を示す。実験は，ブロワー，グローブボックス，排気処理装置，液体Na供給系，Na液滴生成部，不活性ガス供給装置などから構成されている。図2には装置の外形の概略を，図3にはグローブボックス断面概略を示した。

図4は，Na供給系およびその周辺の概略を示す。Na供給系には，落下液滴燃焼実験用に日立製作所おいて開発されたβ－アルミナ[7]を利用したNa供給装置が組み込まれている。その上方の管（溜）内に貯蔵されたNaは溶融状態で，β－アルミナを通じてその前後電極間に流れる電流に比例した体積速度で下方に押し出される。β－アルミナの下方には鉛直にステンレス管を用いた配管が続き，Na液滴はその先端のノズル細管出口に生成，保持される。Na供給系には，所定の温度の高温液滴を生成するために，4カ所に個別に制御される加熱用ヒータが取り付けられている。それらの位置は，図4に示すように，βアルミナ付近，グローブボックスへの取付部分上方（フランジ上部），同下方（フランジ下部），加熱ホルダー部となっている。

図5には，ノズル出口付近の状態を示す写真を示した。ノズル先端周囲では，生成された液滴を空気に接触する直前まで酸素から遮断し高温に保つために，高温のHeが円環状吹き出し口（ネジ山のみえる部分の内側）から下方に向けて吹き出される。フランジ上方から加熱ホルダー部にかけての配管は，Heの加熱のために中心部をNaがその外側を壁をはさんでHeが通る2重管構造となっている。ノズル出口下流には，Na液滴がHe流れの中にあるあいだ周囲空気の巻き込みを防ぎさらに液滴を瞬時に空気にさらすことができるよう，着脱可能なガラス管を支持棒で支えて取り付けた。

ノズルは，その上部が加熱ホルダー内まで続くステンレス管細管でできている。管断面は，予定したNa液滴直径範囲を考慮し，内径と外径がそれぞれ 0.6 mmと 1.0 mmとなっている。直接空気中に触れる部分の長さは約7mmとなっている。

供給系の温度および液滴とその周辺の温度を計るために，計9個のKタイプシース熱電対（シース外径，0.5 mmまたは1.0 mm）をNa供給系とノズル下部2カ所に配置した(図

4)。このうち，上端を除く8カ所の熱電対については，冷接点機能を内蔵した8チャンネルのペンレコーダとパソコンを用いて記録した。なお，液滴温度の測定は，K熱電対の使用限界温度による制限から，燃焼実験中は行わず，不活性気体中にある液滴について行った。

空気はグローブボックス底面中央の管（入口部）から流入し，ノズル付近から上方に続くアクリル管から流出し，向きを変え浮遊微粒子を除去するフィルター（HEPAフィルター）を通過した後，ブロワーに至り排気される。本実験装置では空気が回流することが可能となっているが，今回は，燃焼実験を行う際には系を開放系として空気圧縮機（ベビコン）から供給される乾燥度の高い空気を直接入り口部の上流から吸入しながら運転する方法を採っている。グローブボックスを不活性ガスで満たすために，前記のHeのラインのほかにボックス側面に不活性ガスの入口が設けられており，Arまたは窒素を急速に供給できるようになっている。また，空気流路閉鎖時の内部圧力調整はバルブ付きの気体排出用ラインで行うようになっている。光学観測ができるよう対向するボックスの2側面は平面ガラスでにできていて，残りの透明アクリル製の側面にはゴム製グローブが取り付けられている。

光学的な観察では，時間変化の大きな着火現象の撮影用に高速度カラービデオカメラを，また主にモニターと実験全体の記録用に通常のカラービデオカメラ(30 fps)を使用した。高速度ビデオシステム(KODAK EKTAPRO Motion Analyzer Model 1000 HRC)は，デジタル記録方式，最大1000 fpsの撮影速度で，RAM上に全体で1365フレーム記録できる。RAMにいったん保存した記録は読み出して専用MOに保存し，後にビデオテープにも記録した。高速度ビデオ撮影時にカメラの絞りを変えないで自発光のない期間の映像と燃焼による強い自発光のある映像がともに撮影できるよう，燃焼実験時の液滴付近の照明には集光レンズを取り付けた500Wクセノンランプを用いた。

4．実験方法

本研究の実験では，着火・燃焼実験に先だち不活性雰囲気中で所定の温度と直径のNa液滴を生成するための予備的な実験を行い，装置の適切な加熱のしかた等，一連の実験手法を検討した。また，加熱温度と液滴温度との関係についても熱電対を用いて調べた。ブロワーの運転状態と流速の関係の検定，グローブボックス内を不活性な雰囲気から空気雰囲気に切り替える際の手順等，液滴の周囲気流の設定手法に関する予備的な実験も行った。

加熱開始まで装置は常温にあり，供給系内部に充てんされたNaは固体状態で保管される。Naの融点はその酸化物の融点よりも低いため，酸化物がノズル先端部に存在すると，加熱時に融解したNaが液封状態になる恐れがある。このため，保管中は，ノズル先端部分で気体に接するNa表面の酸化が進むのを防ぐため，ノズルを囲む部分にネジ込み式のステンレス製保護カバーを取り付けて密閉度を高め，その内部をノズル周囲から吹き出した不活性気体（主にHe）で満たし，さらにグローブボックス全体も窒素またはアルゴンで満たした状態とした。また，毎回実験に先立ち，ノズル内部の酸化物の有無を確認した。前回の燃焼実験等によって生じた酸化物が内部に残存する場合には，ピンバイスに取り付けた直径0.5 mmまたは0.6 mmのドリルを用いて酸化物を除去した。

実験時の電気ヒーターによる加熱は，ノズル部の保護カバーを外して代わりに底部に絞り部を付けたガラス管カバーを取り付け，グローブボックス内全体を不活性な状態にして開始した。保護カバー使用時にくらべ，ノズル周囲からのHeの吹きだし量をいくぶん増すようにした。図6に燃焼実験を行ったときの装置各部の温度-時間曲線の一例を示す。温度は図4に示した熱電対の各位置に置いて測定されたものである。図中，先端遠点，先端近傍として示した2カ所はノズルに近い部分のHeが流れる付近の気相温度を表している。β-アルミナを，Naを送り出すときの運用温度である250℃まで，限界昇温速度である150 K/hで昇温した。その間，Na供給系内のほかの部位の温度は未融解のNaによる溶融したNaの液封を防ぐため，Naが比較的低い温度で液体状態にあるように設定した。β－アルミナの温度が250℃に達した時点で，系の温度をそれまでに比べていく

ぶん高い温度でいったん安定させ，ノズルからのNaの安定な供給を確認するためβ－アルミナに電流を流した。このとき，電流は2.0A一定になるように設定した（電流1Aで，0.24 mg/sのNaが送り出される）。このときのβ－アルミナ電極間に加えた標準的な電圧は約3.5Vであった。なお，Na供給系内部には，十分抜けきらなかったりNa流出時に入れ替わってノズルから入り込んだと考えられる気体によるガス溜まりが存在し，β－アルミナに電流を流した最初の10～20分間はNaがノズルより流出しない現象がみられた。また，内部の局所的に高い流動抵抗によるガス溜まりの圧縮に起因するとみられる，Naが一時的にまとまって流出する現象もみられた。β－アルミナの作動によるNa液滴の生成が確認された後，ブロワーを運転してベビコンから供給された空気を流しはじめ，グローブボックス内の雰囲気ガスを空気に切り替え，予定液滴温度が得られるまで各部を加熱した。空気流は，アクリル製の下流側流路壁を冷却する働きももつ。ノ周囲気体の空気への切り替えに伴い，ノズル周囲のHe流量を，ガラス管内部への空気の巻き込みを防ぐ目的で増加した。

燃焼実験を行う所定の温度に達したのち，β－アルミナに電流を流し液滴をノズル出口に生成した。残念ながら本研究ではガス溜まりの影響が十分に除去できず，そのため予定した直径の静止液滴を精度よく生成することが困難で，およその直径での燃焼実験となった。液滴が生成された後，β-アルミナの電流を切り，ガラス管をとり外すと同時にHeも止めて液滴を空気流中にさらして自発着火を起こさせた。自発着火に続く燃焼がほぼ終了した時点で，Heを再び流して完全に燃焼を停止させ，ノズル先端周囲に付着した酸化物の除去を行った。ノズル内部に付着した酸化物はガラス管を取り付けた後に除去した。高速度ビデオカメラによる撮影では，撮影速度250 fps（撮影継続時間約5.5 s），露光時間2 ms，絞りf16（レンズ:マクロ機能付き105 mm）で記録した。図5において気相部分における温度に急激で大きな上昇がみられるところが着火が生じた部分になっている。

一連の燃焼実験が終わった後は，系の温度を下げながら内部を不活性雰囲気に切り替え，Naが凝固した後にノズルカバーを取り付け実験を終了した。

5．実験結果

5.1 液滴温度と加熱ホルダー温度の関係

燃焼実験時にはシース型K熱電対による温度測定が測定限界温度や現象への影響などにより不可能であるので，不活性ガス雰囲気中で液滴温度と他の部分の温度との関係をあらかじめ調べた。その結果，He流量を約2L/min一定とした条件のもとでは，加熱ホルダー下部の温度測定値と液滴温度測定値が，上方の温度設定の変動がある範囲内で起こっても，それらに影響を受けず比較的よく対応していることが見いだされた。図7に，加熱ホルダー下部温度と液滴温度の関係を調べた結果を示す。液滴温度300℃内外では，加熱ホルダー下部での温度よりも液滴温度が約数十K低く，その差は温度が高くなるほど広がる傾向がみられる。なお，ノズル下流のHe流内部で計ったHeの温度と液滴の温度は近い値になっている。燃焼実験時の液滴初期温度は図7の関係を用いて設定した。

5.2 着火挙動

着火挙動の観察は主に高速度ビデオによって行った。実験中，室温は空調装置によって26±1℃に保たれた。標準的な条件での実験においては，空気に空気圧縮機(ベビコン)から吐き出した相対湿度が4～7%の乾燥度の高いものを用い，不活性な高温He流れの供給を停止し瞬間的に流速約10cm/sの比較的低い空気流中にさらしたときの着火・燃焼挙動について調べた。なお，本研究では，当初空気流速の影響も調べる計画であったが，時間的な制約等から流速を一定として液滴の初期温度と初期直径の影響を主に調べる実験を行った。

また，この標準的な条件以外の条件についてもいくつかの実験を行った。その中には，室内の相対湿度が約60%の空気を使用したものなどがあげられる。

以下では，まずこれらの結果を標準的な条件の場合と，それ以外の種々の条件の場合に分け，それぞれ，高速度ビデオ画像(写真)をもとに現象の様子について述べる。着火過程に含まれる各過程の時間変化については，着火遅れ時間との関係で次節でも改めてふれる。

5.2.1 標準的な条件における着火挙動

初期液滴温度の条件としては，250℃，300℃，350℃について行った。このうち，250℃では自発着火がおきず，また300℃では他の着火した場合に比べて小さな液滴径の直径2 mmの場合に自発着火に至らない現象がみられた。

図8，図9に初期液滴温度T_0が300℃の場合の連続写真を2例示した。液滴は縦方向にやや長めの形となっている。このような場合の直径の決め方にはいくつかの方法がある[8]が，本研究においては，液滴径として水平方向の直径d_0をとった。

図中，記号tは，引き抜かれたガラス管上端から液滴が出てからの経過時間，すなわち空気にさらされはじめてからの経過時間を示す。となりあう写真間の時間間隔は不定とし，時間変化が激しい部分の変化は詳しく示している。Naは非常に反応性が高いために，ガラス管内にあって液滴周囲がほぼHe雰囲気に満たされている間にもわずかに

含まれる酸素によって酸化が進み，またガラス管を手動で取り外すのに0.1 s以上かかるために，多くの場合，ガラス管から液滴が出た状態ですでに表面に薄い酸化膜と考えられる膜が形成されている。また，Heの流れはボールバルブ式のストップバルブで停止したがこの操作とガラス管を外すタイミングのずれによってもいくぶん液滴が空気に触れるまでの時間に誤差が生じた。これらの要素は，経過時間tと着火過程の進行の対応関係にいくぶん不確かさを生じている。

クセノンランプの光は，手前のやや左側からあてられている。なお，個々の写真内で，背景の暗い部分において長方形に区切られた領域ごとに明暗の差がみられるが，これは，カメラのCCD受光部がデータ取り込みを高速にするために16分割されその区画ごとに微弱光に対する感度がばらついているために生じているものであり，実際の現象では一様な背景になっている。

液滴径d_0 が 3.7 mmの図8の例では，Heの遮断操作がやや緩慢であったためその影響が経過時間が早い部分での現象に含まれるが，典型的な経過が比較的良好に観察されている。時刻t = 0では表面に薄く酸化膜が形成されているが，光の反射の様子からまだ光沢が残っているのがわかる。表面に光沢がある場合，強い反射光は光源の径が小さいためにカメラ側に向いた面に限られる。光の反射のしかたは時間とともに変化し，これから表面の様子を知ることができる。

液滴表面は，空気に触れ急速に光沢がなくなり，まず濃紺色になって(写真B,C)，その後，光沢のない状態で白っぽい乱反射光を放つようになる。一連の写真では，カメラ色特性および絞り込み関係で灰色がかってみえるが，肉眼では白っぽくみえる。膜におおわれた状態が着火に至る過程の中でしめる時間割合は比較的大きい。約2 s経過後から薄く白っぽい煙が立ち上がり始め，球の裏側から手前に向かって，煙の発生を伴いながら金属光沢をもつ面が固体が溶けるように拡がってくるのがみられる。

液滴の全面が金属光沢のある面に包まれた頃から，煙の発生が本格的になり，また煙の色は，表面全体にわたり時間とともに一様に黄色みをおびてくる。煙を通してみえる金属光沢のある表面には細かな粒状の凹凸がみられる。煙が黄色みを増すとともに煙

内部で半径方向に濃さや明るさに分布が現れ始める(写真K)。液滴表面付近では自発光とみられる光が強まり，外側部分では逆に多少煙が薄く透明度があがってくるようになる。表面付近の発光はいくぶん赤みをおびながら時間とともに強まり火炎を形作るようになる(写真L,M)。肉眼で直接みたところでは，写真に示された色にくらべより明るく白っぽい感じがする。液滴の背後(後流側，上方側)では，液滴付近に褐色がかった煙があり，その上方には白っぽい煙が続いている。全面が金属光沢の面でおおわれ煙の発生が盛んになりはじめてから火炎らしい構造が明瞭になるまでの時間は0.2 s程度であり，それまでの経過時間に比べると短い。着火過程の間，液滴径は時間とともに若干増加する傾向を示す。煙の発生あるいは火炎の生成により表面の正確な位置の判定は困難になってくる。

形成された火炎では発光が急速に強まり準定常的な燃焼状態に至る。時間とともに発光帯の厚みが増すとともに，煙の発生も盛んになる。液滴表面での凹凸は写真Nの時点でもまだ存在しているのがわかる。

図9は，d_0 = 4.5 mmの場合を，着火後の準定常的な燃焼も含めて示す。空気に触れた時点の初期皮膜の生成の度合いがやや大きい。このケースでは初期段階で部分的にまだらな青黒い点が現れているが，液滴全体にわたり濃紺におおわれる現象はおきていない。時間とともに酸化膜表面に比較的はっきりした，大きなスケールの凹凸の構造ができ，底部には大きく膨らんだ部分もみられる。金属光沢面は，液滴全体の各所でほぼ同じ時刻に現れ，短時間で全体をおおう。その後の経過は図8の場合と同様となっている。写真Oに示すまでの時間範囲では酸化膜におおわれた時点での形状に近い球からいくぶんずれた液滴形状が続くが，写真R(t = 2.368 s)付近から非対称性が消滅しほぼ球形となる。燃焼状態に入った後，煙の下端の位置は比較的激しく上下に変動し表面からやや離れた位置まで濃い煙がおおう現象もみられるようになる。気相では，液滴表面近傍にみえる強い発光の部分とその外側の発光の弱い部分が区別できる。燃焼状態では，最後の写真に至るまで液滴中心部のほぼ同じ位置に反射光とみられるスポット状の光がある。このことから，この時間範囲内では，液滴表面は比較的なめらかな

ことがうかがえる。

図10から図12に，初期液滴温度が350℃のときの着火挙動を，液滴直径が小さい方から順に3ケース示した。図11と図12の2例は，液滴径が300℃の場合に示した2例と近い値となっている。

図10はd_0 = 2.8 mmの場合を示す。このケースでは，ノズル周辺にNaの付着がみられ上部が変形した初期状態となっている。初期皮膜の進展がやや大きい。図からわかるように短時間で着火に至っている。写真IとJでは，火炎が形成されていく途中の気相内の分布をもつ構造が，他の観察されたケースにくらべ比較的鮮明に示されている。これは，他に比較して液滴径が小さく，その結果像の周辺部で奥行き方向の光りの重なりの影響が少ないためと考えられる。写真L(t = 0.696 s)において，下部表面付近から強い発光が始まってハレーションがおきはじまり，その後このハレーションの領域は拡大していく。これらの部分では温度が高いことがうかがわれる。写真では，初期発光は，手前からみて両サイドの位置の表面付近に見えている。もし発光が比較的なめらかな表面自身で起きているとすれば対称性から手前の表面も同様に光り始めるはずである。したがって，この発光は，表面に近いものの液滴表面からは離れた気相内での気相そのものあるいは気相に浮遊した粒子群の発光と考えられる。

図11はd_0 = 3.9 mmの場合を示す。照明がやや弱く，初期状態で濃紺の酸化膜が広範囲に形成されている。酸化膜ができた状態での表面の凹凸はそれほど顕著にはみられず，また上昇気流の動きも含め対称性が高い現象が起きている。煙は，比較的早い部分では液滴上方でいったん幅がせばまった後さらに上方で外側に広がっているが，これは主にノズル上方にヒーターホルダー下部が広がり，その底面にそって流れが曲げられることに起因している。煙の幅は，写真Q(t = 1.340 s)付近から図9の場合と同様のハレーションが始まっている。

図12はd_0 = 4.3 mmの場合を示す。表面光沢のある酸化度の小さな初期状態からはじまり，濃紺色を経て全体が白っぽい酸化膜でおおわれた。再び金属光沢をもつ表面が現れる場合に，表面がやや青みがかった，円環状にみえる部分付近で最も早く現れ，

全体に拡がった金属光沢面には多くの小さな粒状の凹凸がみられる。表面の凹凸は時間とともに平滑化され，写真U(t = 2.420 s)の頃にはほぼ消滅している。気相では，写真QからRにかけて火炎構造が現れ始めている。

5.2.2 種々の条件における着火挙動

前記の標準的な低湿度空気中での静止液滴状態での実験のほか，いくつかの異なった条件下での着火現象も観察した。これらは，条件や現象がやや特殊な場合も多く，定量的な比較検討では意味を持たないが，空気中での着火現象の性質の把握に参考となると思われるので，連続写真を示し観察した様子を以下に記す。

図13は，初期液滴温度300℃で，相対湿度が60%程度での実験結果を示す。高速度ビデオの記録が現象の途中からしか残っていないために，撮影が始まった時刻をt^* = 0 sとして他の場合の時刻表示t と区別した。ふつうのビデオとの画像の突き合わせによると，液滴がガラス管を出てから時刻t^* = 0 s までは約2 s経過している。ガラス管から出た直後の液滴はほぼ球形をしているが，その後，酸化膜でおおわれた上部が縦方向のしわを伴いながら円錐状に伸び，袋に内部の液体が包まれたような状態になる。この円錐状の部分が金属光沢面におおわれ，その先端が下方に向かって移動していく途中で蒸気の発生が盛んになり黄色がかった煙が濃くなり，金属光沢部先端が液滴下端に達するまえに火炎が形成される。その後，火炎先端と金属光沢先端部位置がほぼ同じ位置になりながら，下端に向かって拡がる。火炎先端が下面全体をおおう前からハレーションが発生している。火炎の外側約1 mmの位置に，火炎を包むような厚さ，濃さがともに薄い，白っぽい煙層が存在している。この層は相対湿度の低い場合には観察されておらず，湿度によって大きく異なる点となっている。

図14は，初期温度350℃で，ノズルを包んで下方に向かうHe流を切らない状態で空気流中にさらした場合を示している。液滴がガラス管から出てから時刻t^* = 0 s までは約1.4 s経過している。液滴の表面全体が金属光沢をおびるまでの表面の様子は図12の場合に似ているが，白い煙は下向きのHe流れと上向きの空気流が対向する影響を

受け横方向に広がってたなびいている。やがて液滴全体が黄色がかった煙りでおおわれ，その下部に火炎構造が現れてくる。液滴自身も熱発光により輝いているようにみえ，時間がたっても火炎の範囲は液滴の下半分の表面付近に限られその発光は弱い。また，煙の発生も少ない。詳細にみると準定常的な燃焼状態となった後，液滴径が時間とともに減少しているのがわかる。

図15は，着火後の途中までHeの吹き出しを伴う場合を示している(初期液滴温度は300℃，初期液滴直径は3.8 mm)。金属光沢が現れるまでの表面の様子は，同じ初期温度，ほぼ同じ初期直径の図8の例と似ている。また，初期の煙の挙動(たなびき方)は図14と同様である。写真K(t = 2.820 s)付近の時点でHeを遮断後，火炎の発光が強まるとともに，煙の流れる方向も通常の空気雰囲気中での燃焼の場合と同様の向きに変化する。その変化は約0.1s程度の間におこり，火炎の様子は周囲の酸素濃度あるいは流れの向きの変化に敏感に反応することがわかる。なお，この現象とは逆に空気中で燃焼中にHeの弁を瞬間的に開いた場合の現象も通常のビデオ記録により観察しているが，一瞬火炎が吹き飛んだ後に図14でみられたような火炎が継続する現象がみられている。

図16には，他の静止液滴の場合とは異なり，Naのノズルからの継続的な供給が起こり液滴径が時間とともに増加し(成長液滴)やがて落下する場合の着火・燃焼現象の例を示す(液滴温度300℃)。周囲空気は相対湿度約60%で標準状態の場合とは異なる。煙の様子から判断すると，前半，弱いHe流れの影響がみられる。新しい液滴が形成された後，他の場合と同様酸化膜の生成，金属光沢面への遷移が起きる。写真Kにみられるように，途中で金属光沢面の表面に，部分的に明瞭な発光を伴った突起がところどころに現れている。火炎構造が現れ始める前の濃い黄色みをおびた煙が表面をおおう期間が長く，現れた火炎の構造が明瞭になる変化も緩慢になっている。写真ZBは液滴が落下してノズルから離れる直前を示している。火炎の外側約1mmの位置には，図13の場合と同様の薄い煙層がみられる。

5.3 着火遅れ時間

着火とみなされるまでの時間すなわち着火遅れ時間は，定量的な検討を行う場合に最も基本的な値となる。

着火現象の時間変化の速さを考慮すると，本研究の実験の範囲では実験条件設定，手順等にまだ厳密さが欠けると考えられ，測定値にも誤差や不確かさが含まれ定量的検討には問題点も残るが，整理した結果について以下に示す。

今回設定した初期温度範囲で行われた標準的な条件での着火過程に含まれる過程はほぼ共通している。ここでは，着火遅れ時間を調べる前にまず連続写真から着火過程をいくつかの主要な過程に分けて考え，その相互の関係を調べてみる。それらの過程はおおよそ以下のように分けてよいと考えられる。

i) 酸化膜におおわれる期間

ii) 金属光沢液体表面が拡がる期間

iii) 全面に金属光沢液体面が拡がり煙の発生が盛んになる期間

iv) 火炎構造が現れ始めてから火炎構造がほぼできあがるまでの期間

v) その後の燃焼期間

(vi) ハレーションを伴う強い発光のある期間)

このうち，viは測定装置の条件に依存する便宜的なものである。

図17には，連続写真で示した場合について，上記した各過程と時間経過の関係を示す。300℃の場合は，初期直径d_0が3.7 mmの場合の実験で過程前半にHe流の影響がいくぶん残ったこと，初期酸化の程度に差があること，またd_0 = 2 mmで着火が生じなかったことから，結果の解釈にはいくぶん詳しく検討すべき余地があり，より高温で一般性の高い結果が得られたと考えられる350℃の場合の結果について最初に述べる。

350℃では，初期液滴直径が小さくなる場合，各過程の相対的な時間長さの関係がある程度保たれたまま着火過程全体の時間が短くなり，空気に触れてから着火に至る時間が短くなることがわかる。液滴径が小さいとハレーションが発生しやすく，ハレーションが起きるまでの時間も短くなっている。このことから液滴径が小さい場合，燃焼反応自

体が強まるようにみえる。各過程の相対的な時間の長さの関係をみてみると，たとえば初期液滴径が4.3 mmの場合，最初の酸化膜におおわれた期間が長く，金属光沢面が拡がる期間と全面に拡がった金属光沢面をおおうように煙が発生して濃くなる，火炎構造のできはじめまでの期間の長さがほぼ等しい。いったん火炎構造ができ始めるときわめて短時間で明瞭な火炎構造となる。この傾向はこれまでに落下液滴実験で得られた結果とも一致する。これらの関係を考慮すると，高温では，液滴径が小さいほど容易に短時間で着火すると考えるのが妥当と考えられる。

300℃の場合には，前述した理由から詳細な議論には無理があるが，着火する限界温度に近づいていることもあり，より高温の場合と比べるとやや傾向が異なる場合もありうることが考えられる。4.5 mmでは，同じ様な径の350℃，4.3 mmの場合と同程度の値となっているが，この場合初期酸化の進みが少し大きく，空気中でこの程度の酸化まで進展するのに要する時間を考慮すると通常は得られた値よりもいくぶん長い時間を要すると考えられる。3.7 mmの場合には，iii以降の過程は350℃での場合と同様直径の大きな場合に比べて短くなっている。逆にi，iiの過程の長さは大きく増加しており，他の変化の傾向と異なる。この長くなった理由のひとつにHeの途中までの不十分な遮断の影響が考えられるが，不着火に終わった液滴径 2.0 mmの場合ではiの過程だけが長時間続きそのまま不着火に至っておりその場合の挙動を支配した要因との関連も考えられる。

金属の着火現象において，着火遅れ時間をどのように定義するかは種々の考え方があるが，本研究では実質的な強い燃焼が開始する，火炎構造が完成したと時点として考えてみる。火炎構造ができ始める時点までを着火遅れ時間とするのも妥当性があると考えられるが，図17からもわかるように全過程の中でその差は小さく，どちらの方法でも大きな差はない。図17に示した結果をもとにまとめた着火遅れ時間を図18に示す。350℃では，液滴径の現象とともに着火遅れ時間が短くなる様子がわかる。300℃の場合には上でも述べたように液滴径が小さい場合に着火限界があり，着火遅れ時間も径が短いほど長いとの結果となっている。

6．考察

本研究を通じて，これまでにあまり知られていなかったNa液滴の自発着火過程の様子がカラーの高速度の映像として撮影することができ，火炎構造の発達のしかたなどが明らかになったと考えられる。

湿度の低いとき，小さな空気流速のもとでの数mm以内の直径の高温Na液滴では，火炎が部分的に形成されてその先端が球面全体に伝ぱするというよりも，表面全体で方向によらずほぼ一様に着火現象がおきることが明らかになった。また，湿度が高い場合にはこれとは逆に火炎伝ぱ現象を伴う着火現象が起きることが確認され，湿度が現象への影響のしかたについてもいくつかの情報が得られたと考えられる。

低湿度空気中の場合の変化は，Yuasa[3]の結果を参考に考えると，初期の皮膜が溶ける変化では，Na_2O_2がその融点である460℃で溶解し，液滴表面にNa_2O_2が溶け込んだNaが現れたものと考えられる。粒状の凹凸は消滅にいたるまで動きがあまりみられないことから表面付近での流動性は少なくてもこの間はあまり大きくないと考えられる。

気相で煙りの粒子状にみえているものは，Na蒸気が凝縮したものあるいはNa蒸気と酸素の反応によって生成した，Na_2O_2，Na_2O等の粒子のいずれかと考えられる。完全に不活性な雰囲気中ではNa蒸気が空中で冷やされて凝縮し微粒子となってただようのが観察されたとの報告があるが，本研究で観察された煙の微粒子について詳しい検討が必要と考えられる。

比較的湿度が高い場合の例として，図13と図16の場合を示したが両者では，火炎のでき方に大きな違いがみられる。液滴の初期温度は，火炎伝ぱがみられた図13の場合が300℃，図16の場合が350℃ある。湿度が高い場合には，酸化皮膜の中にNaOHが入り込むことが考えられるが，NaOHの融点は318℃(328℃)であり，この温度は図13と図16の液滴の初期温度の中間となっており，図13の場合にはNaOHが最初の段階では溶けない状態で存在し，図16の場合には溶けた状態で存在したことが考えられる。ひとつの可能性として，このNaOHの状態が火炎の生成およびその挙動に影響を与えたことが考えられる。このように，着火の過程においてはそのふるまいに差が見られるが，火炎が形

成された後には共通点が見られている。ともに，通常の火炎につながってみえる煙の外側にやや空間をおいてもう一すじの煙がある。これは，その位置において凝集したために他の発光の光りを反射してみえた煙の可能性がある。このことから，火炎帯全体の構造が湿度の影響によってある程度変化することが実験的にも推定される。

また，不十分ではあるが燃焼継続時間についての測定値も得られており，追ってその内容について検討する予定である。

本研究の範囲では，得られた実験結果の数が少なく，系統的な結果および結論を得るためには，さらに多くの直径について実験を行うなど，再実験を要すると考えられる。また，観察手法についても詳細な観察ができる方法を開発する必要があると考えられる。

7．あとがき

本研究では，静止Na液滴燃焼実験装置を製作して主に相対湿度の低い空気中で燃焼実験を行い，限られた範囲（初期温度250，300，350℃）ではあるが，液滴初期温度，液滴直径を変えて着火現象の観察を行い，着火挙動，着火遅れ時間等を調べた。また，一部，この温度範囲で標準的な場合以外についても着火現象を観察して比較した。

得られた結果を要約すると以下のようになる。

1）液滴温度が300℃と350℃で着火現象がみられ，その場合の火炎形成は，酸化膜が溶けてできたと考えられる金属光沢をもつ液状の表面でほぼ一様に生ずる。

2）火炎の形成に先立ち液滴表面は煙層におおわれ，煙は時間とともに濃さを増し火災へと移行する。

3）着火遅れ時間は，350℃では，これまでの他の実験結果からも予想されるように液滴径が小さくなるほど短くなる傾向がある。しかし，限界に近い300℃では，小径のものは着火せず，また径が小さいほど着火遅れ時間が長くなる傾向がみられた。この妥当性についてはさらに検討を要する

4）高湿度のもとでは，初期温度範囲にもよるが，液滴の一部で火炎が発生しその先端が液滴表面を伝ぱする現象が現れる。

前述したように，実施した実験条件は限られ，また得られた結果もまだ少ないために，一般性のある結論を得るためには今後広範囲に条件を変えて系統的な実験を行う必要があると考えている。

謝辞

本研究は動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター安全工学部プラント安全工学室から，東邦大学理学部助教授佐藤研二が受託して実施したものである。

実験装置製作と実験方法に関し，プラント安全工学室の田辺裕美室長，宮原信哉主任研究員，下山一仁研究員，高井俊秀研究員，原子炉工学室の荒　邦章担当役，軍司　稔主務ほか多くの方々にご指導ならびにご協力をいただいた。

Naの供給装置の準備と組立に関しては，日立製作所原子力開発技術センターの床井博見氏と高橋和雄氏に格別のご協力をいただいた。

また，実験の準備と実施にあたっては，本学の酒井康弘講師，本学学生の高野剛史君，岡田英明君，森幸代君に協力していただいた。

終わりにあたり上記の方々に深謝いたします。

参考文献

(1) 大野修司, 川田耕嗣, 宮原信哉, ナトリウム漏洩燃焼に関する研究:動燃技報, No.92, pp.18-32(1994)

(2) Richard, J. R., Delbourgo, R., and Laffitte, P., Spontaneous Ignition and Combustion of Sodium Droplets in Various Oxidizing Atmospheres at Atmosphere Pressure: Twelfth Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, pp. 39-48 (1969)

(3) Yuasa, S., Spontaneous Ignition of Sodium in Dry and Moist Air Streams: Twentieth Symposium (International) on Combustion, The Combustion Institute, pp. 1869-1876 (1984)

(4) 湯浅三郎, ナトリウムの着火の研究 -自発着火限界温度-:第 19 回燃焼シンポジウム前刷集, pp.199-201(1981)

(5) 北川徹三, 小木曾千秋, 液体ナトリウムの発火および燃焼現象の研究: 安全工学, Vol.7, No.1, pp.31-36 (1968)

(6) Morewitz, H. A., Johnson, R. P., and Nelson, C. T., Experiments on Sodium Fires and Their Aerosols: Nuclear Engineering and Design, Vol.42, pp.123-135 (1977)

(7) 日本セラミックス協会編, これだけは知っておきたいセラミックスのすべて:日刊工業新聞社 pp.38-40 (1996)

(8) 熊谷清一郎, 燃焼, 岩波全書:岩波書店, pp.167-171 (1976)

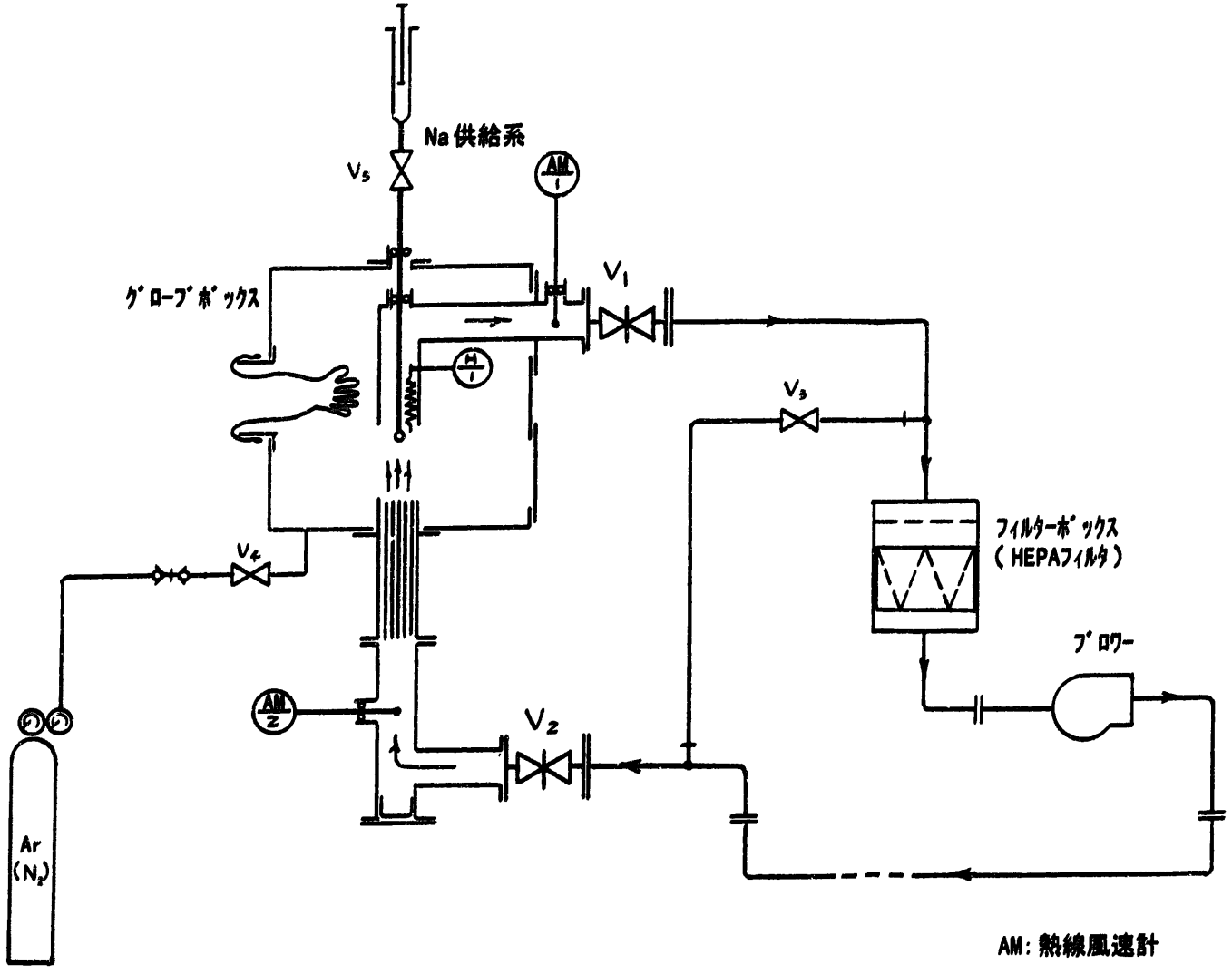


図1　燃焼実験装置全体の構成の概略

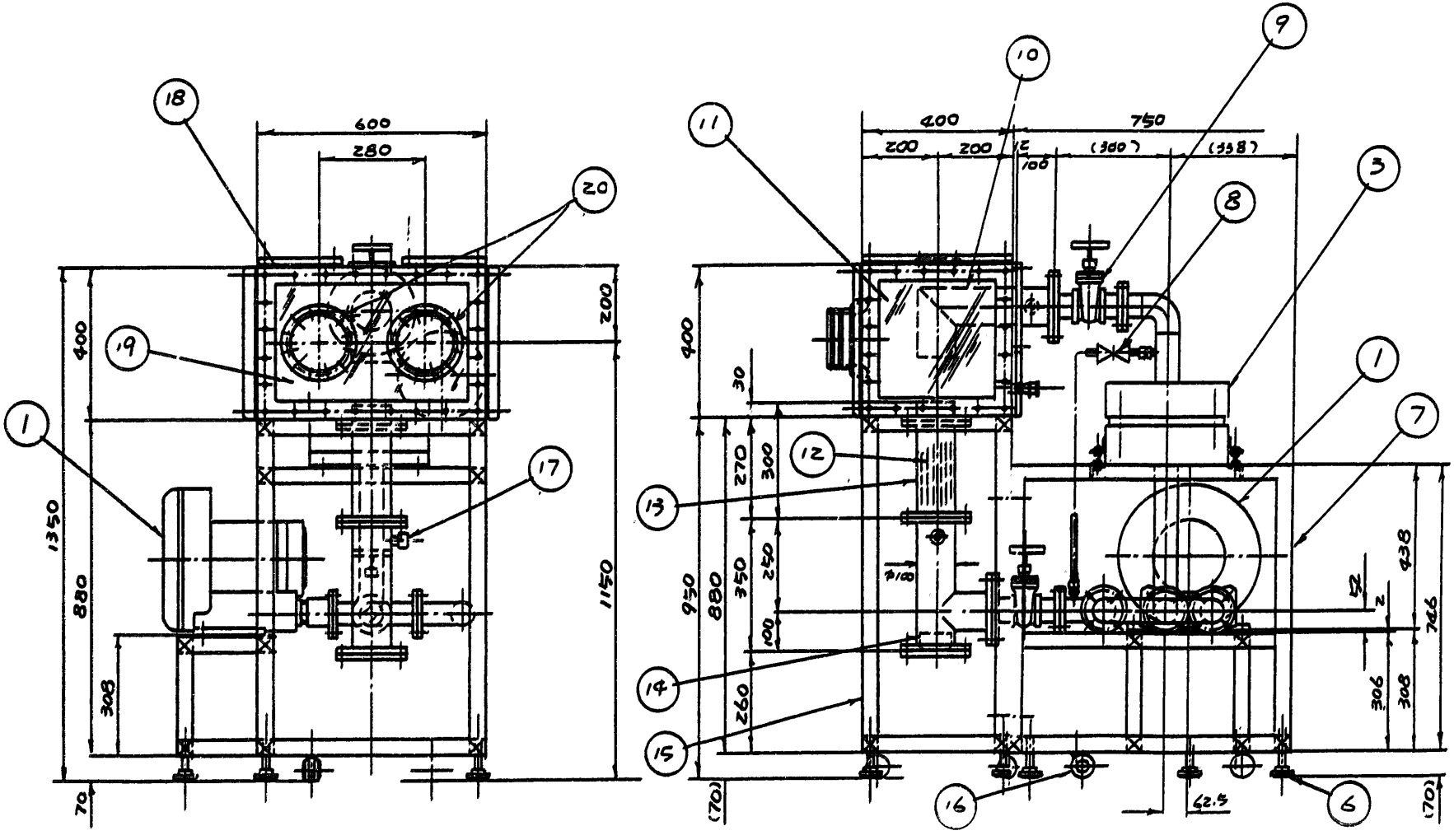


図２　実験装置外形の概略

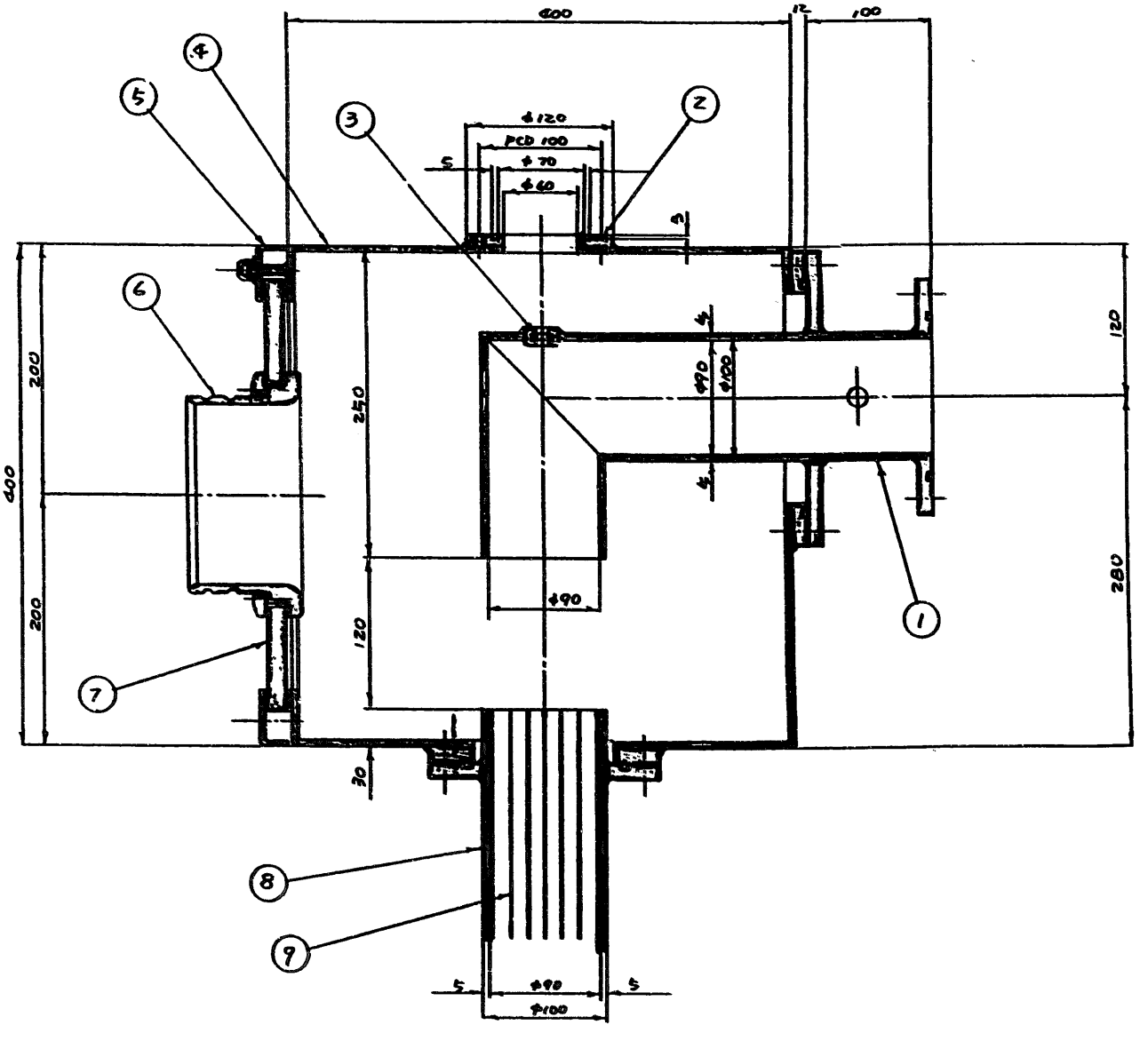


図3 グローブボックス断面概略（Na供給系未装着状態）

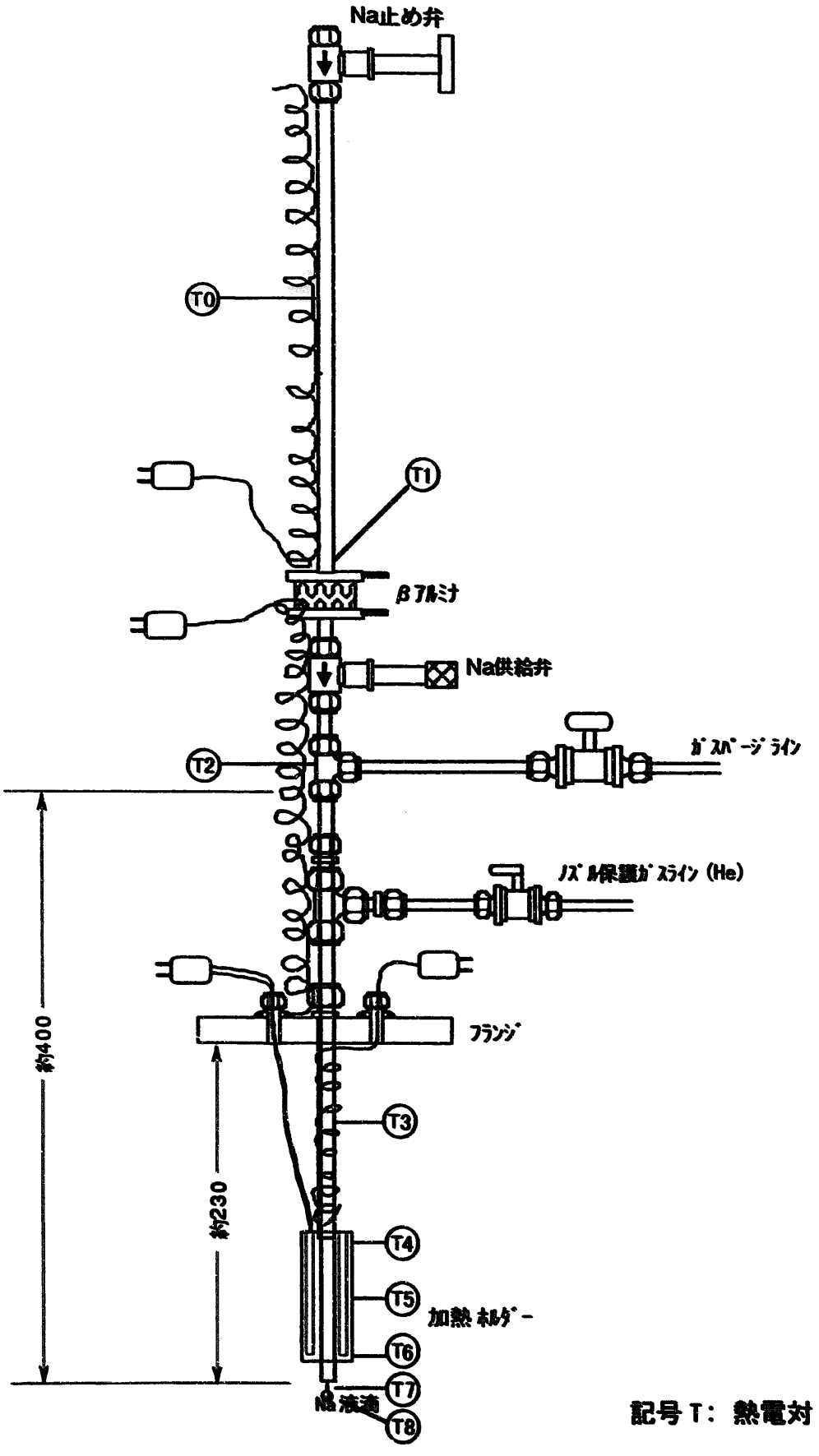
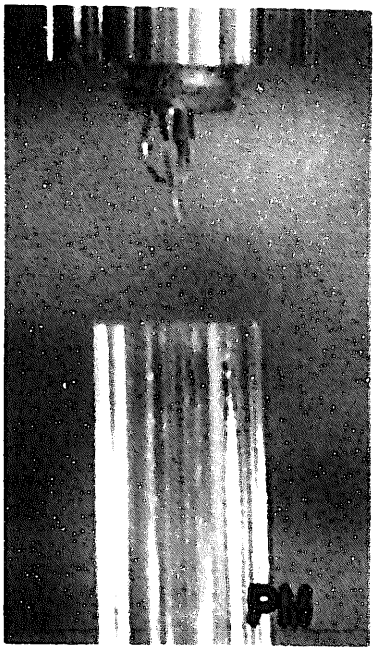
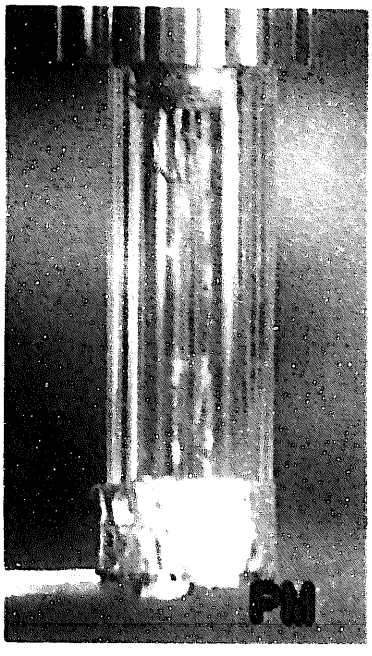


図4 Na供給系およびその周辺の概略



(a) ガラス管を外した状態



(b) ガラス管を取り付けた状態

図5　ノズル出口付近の写真

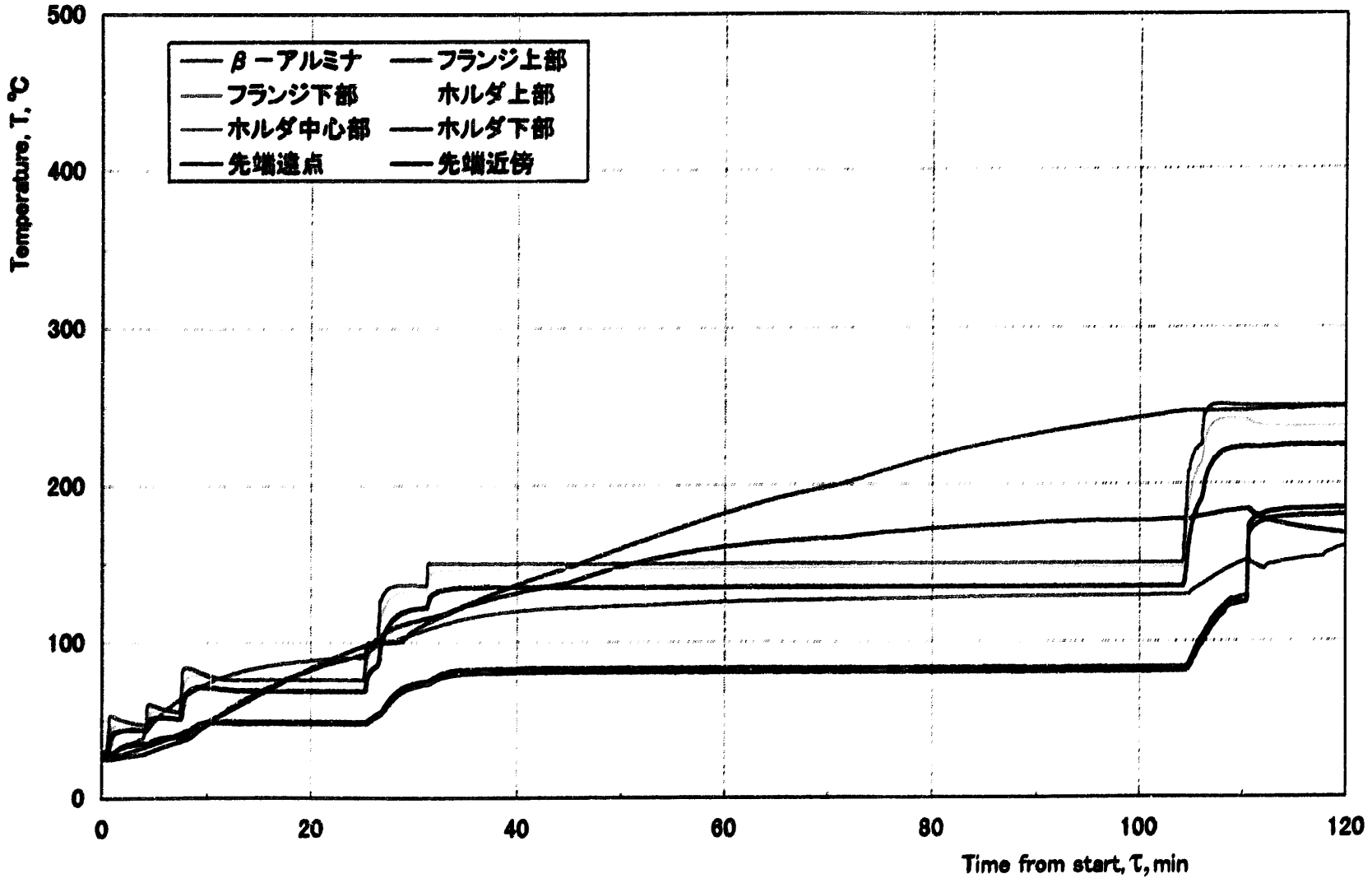


図6　温度－時間曲線の例（1/3）

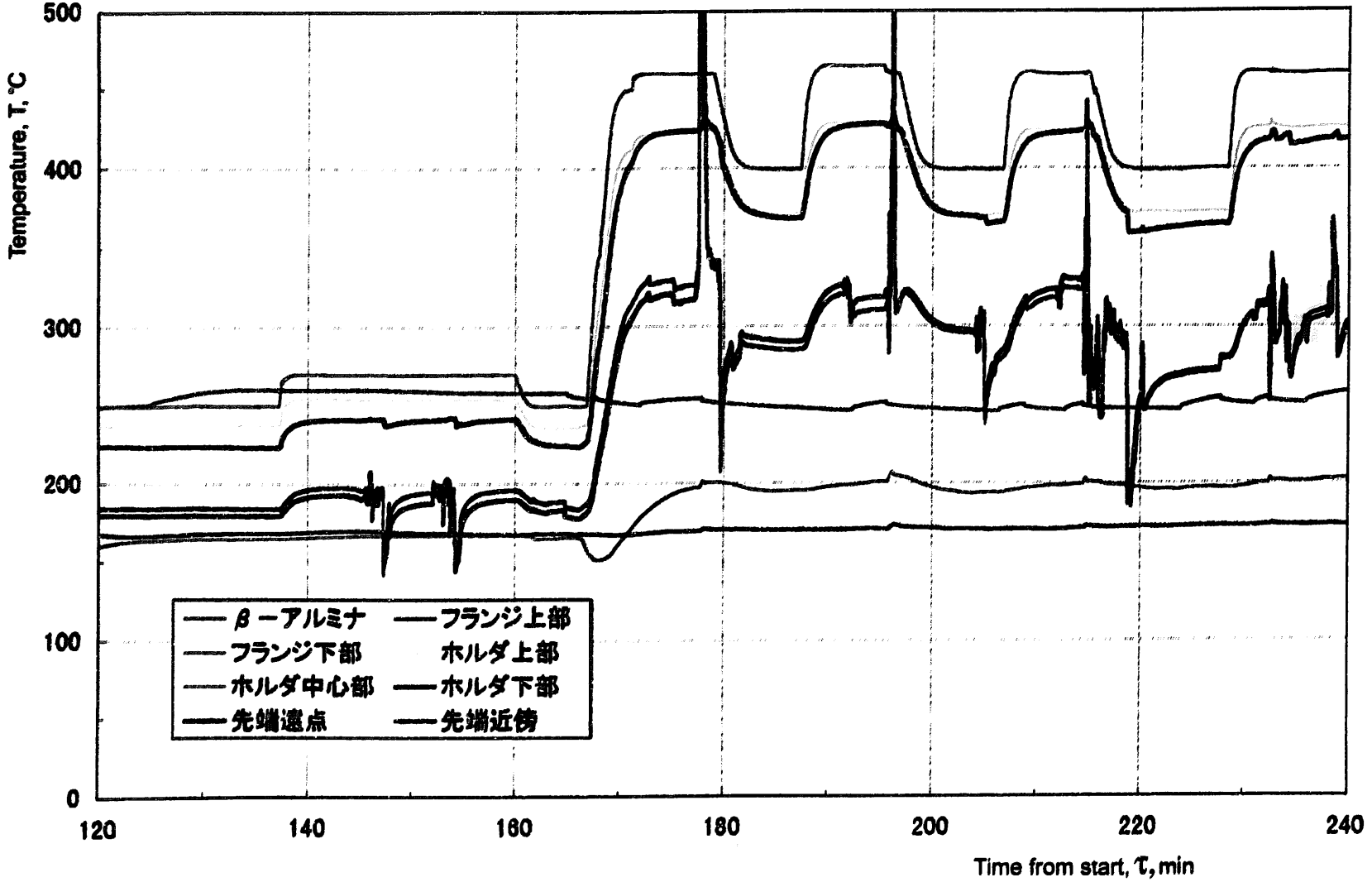


図６　温度－時間曲線の例（2/3）

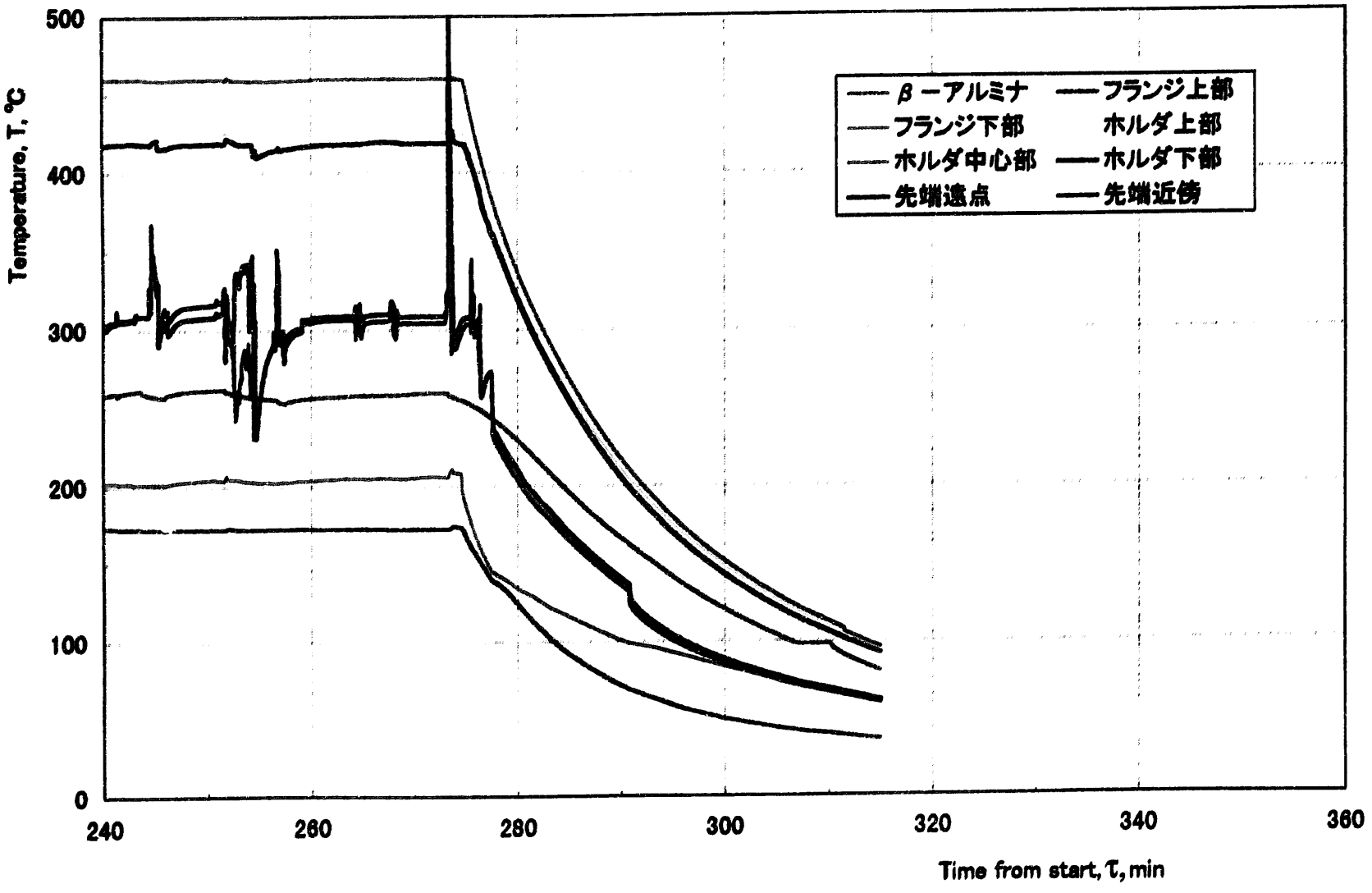


図６　温度－時間曲線の例（3/3）

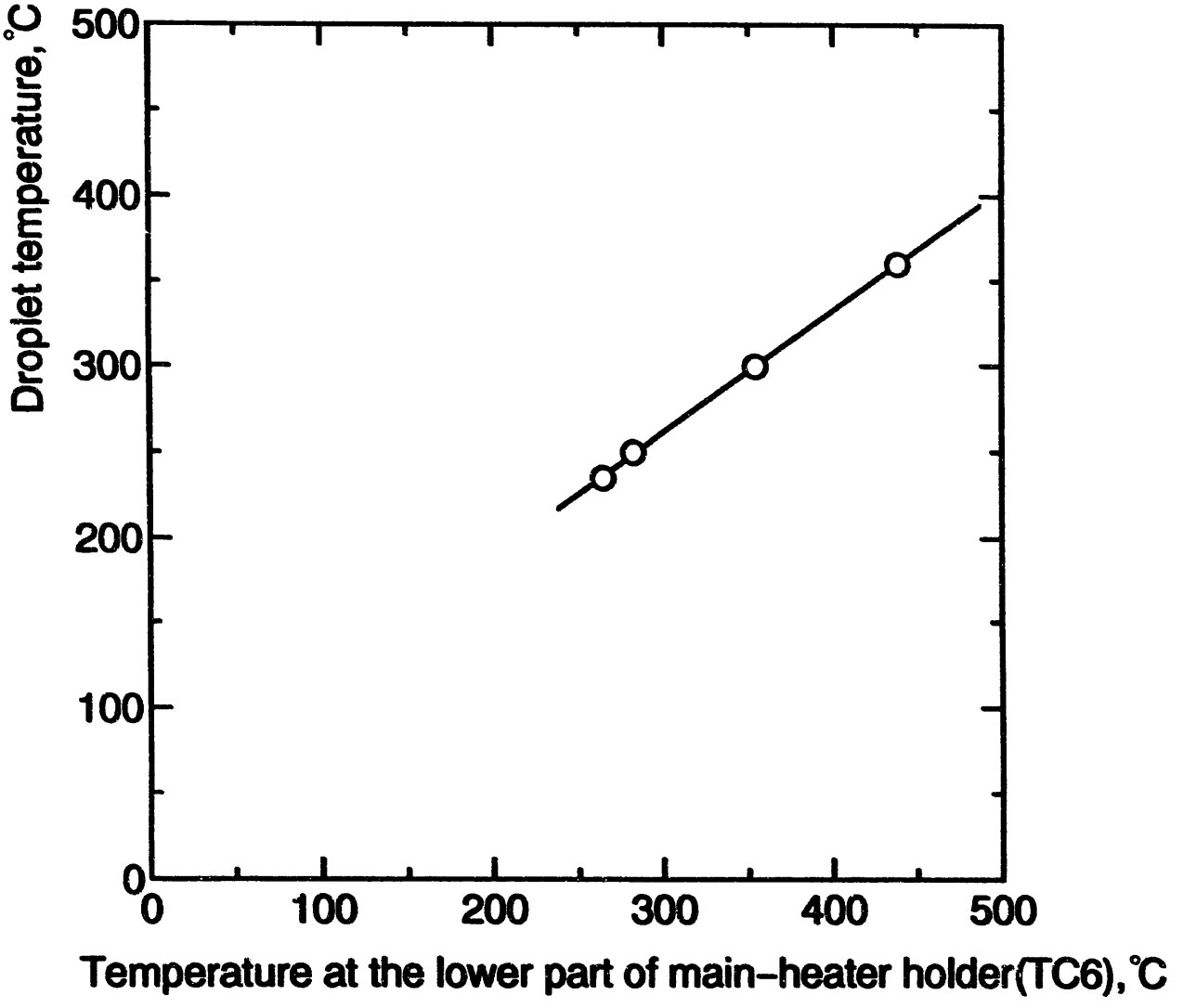


図７　加熱ホルダー下部温度と液滴温度の関係

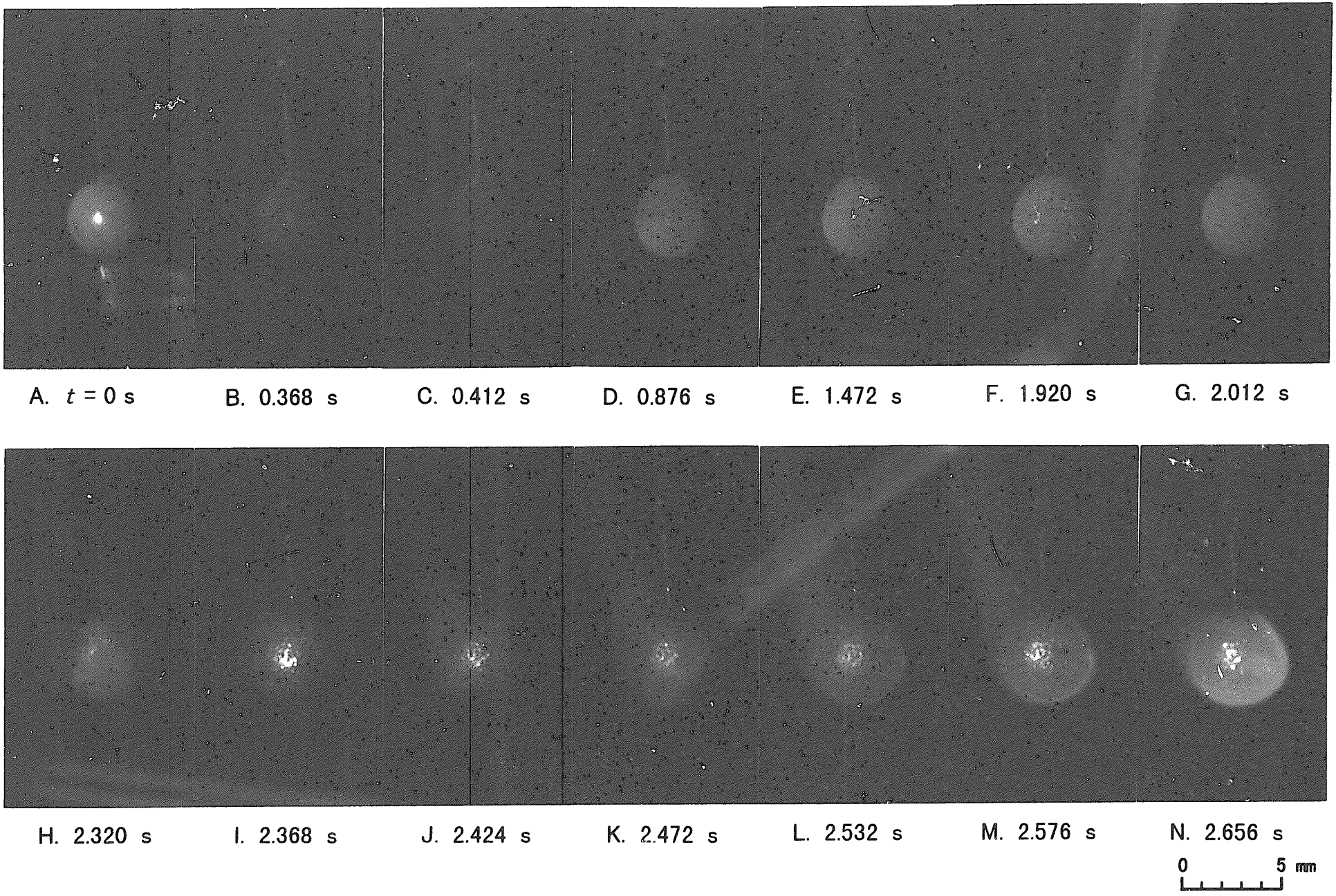


図 8　着火の様子の連続写真（初期液滴温度 T_o = 300℃，初期液滴直径 d_o = 3.7 mm）

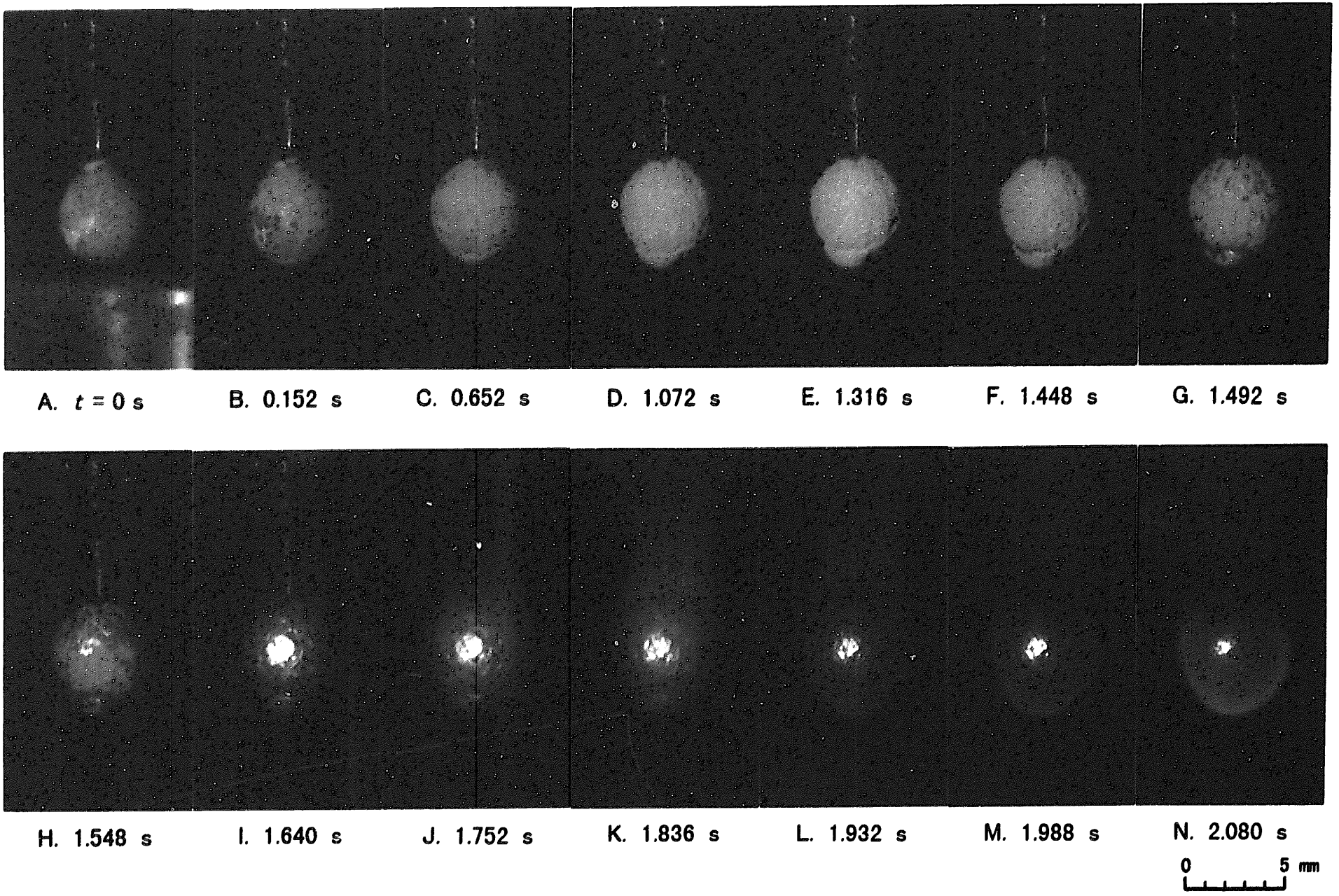
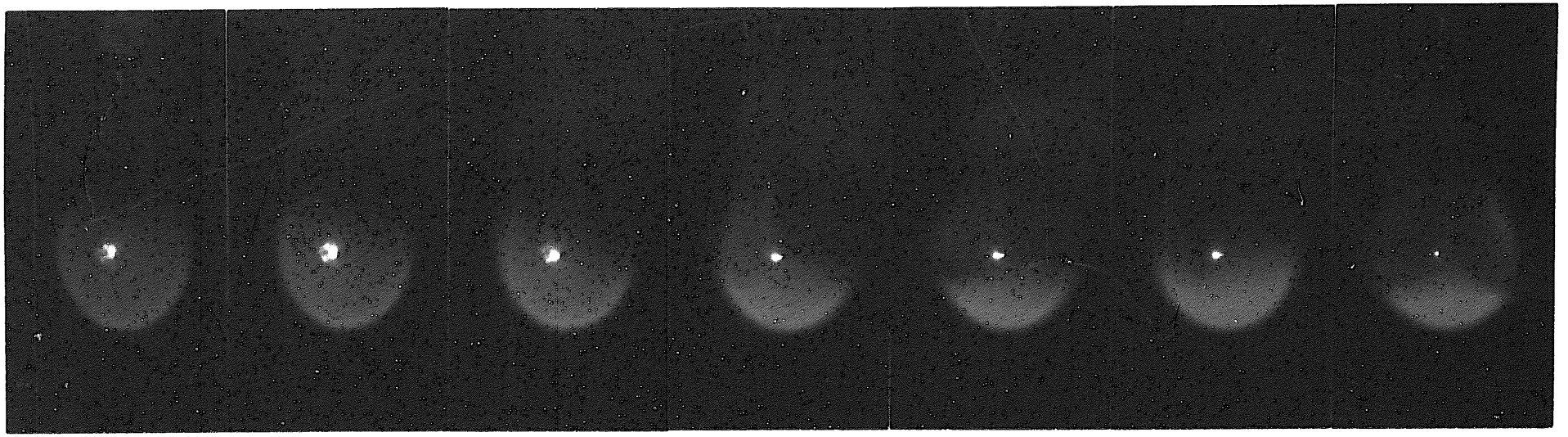


図 9　着火の様子の連続写真 (T_o = 300℃ , d_o = 4.5 mm)　(1/2)



O. 2.148 s　P. 2.196 s　Q. 2.272 s　R. 2.368 s　S. 2.432 s　T. 2.516 s　U. 3.544 s

0　5 mm

V. 4.552 s

図 9　着火の様子の連続写真 (T_o = 300℃ , d_o = 4.5 mm)　(2/2)

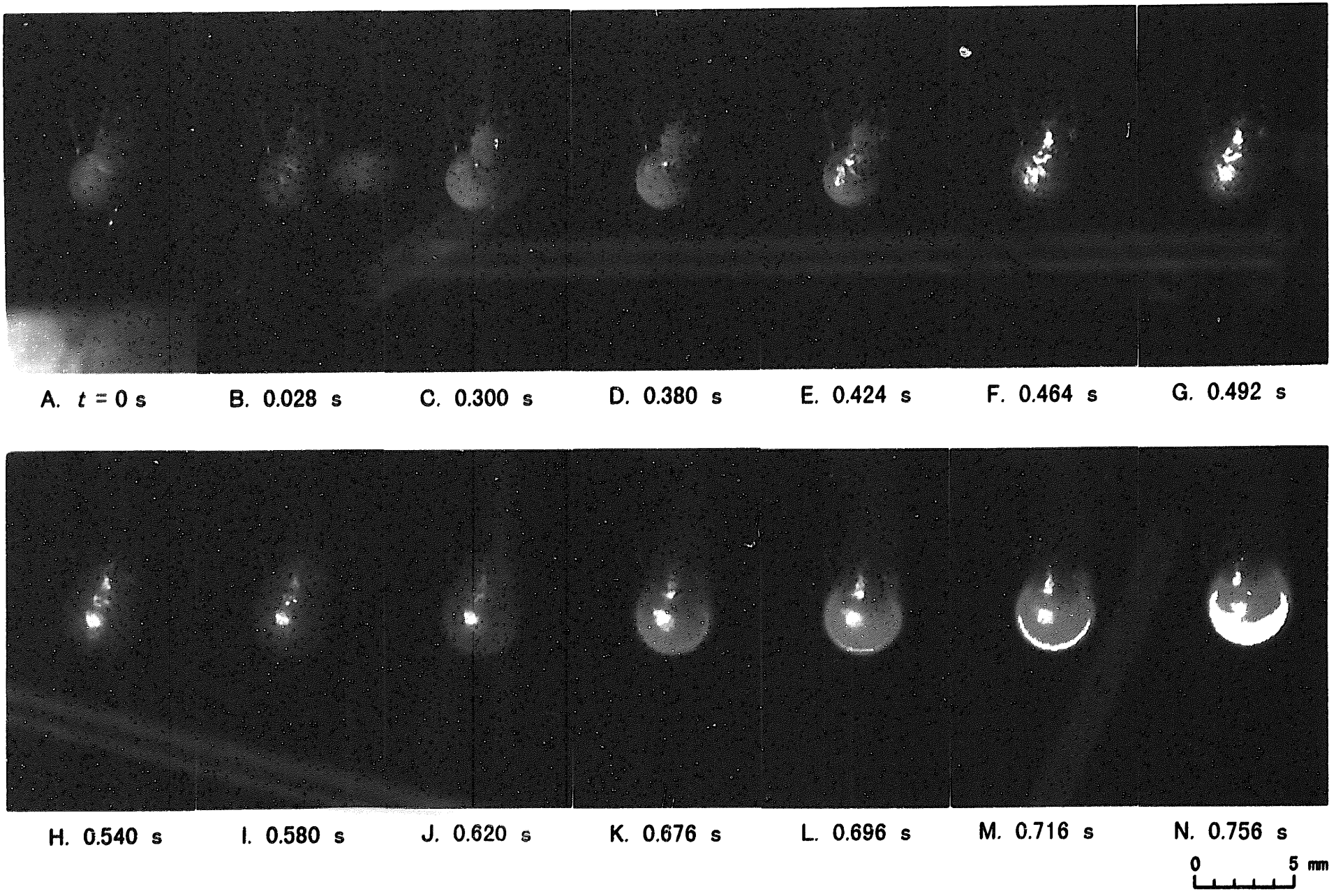


図 10 着火の様子の連続写真 (T_0 = 350℃ , d_0 = 2.8 mm)

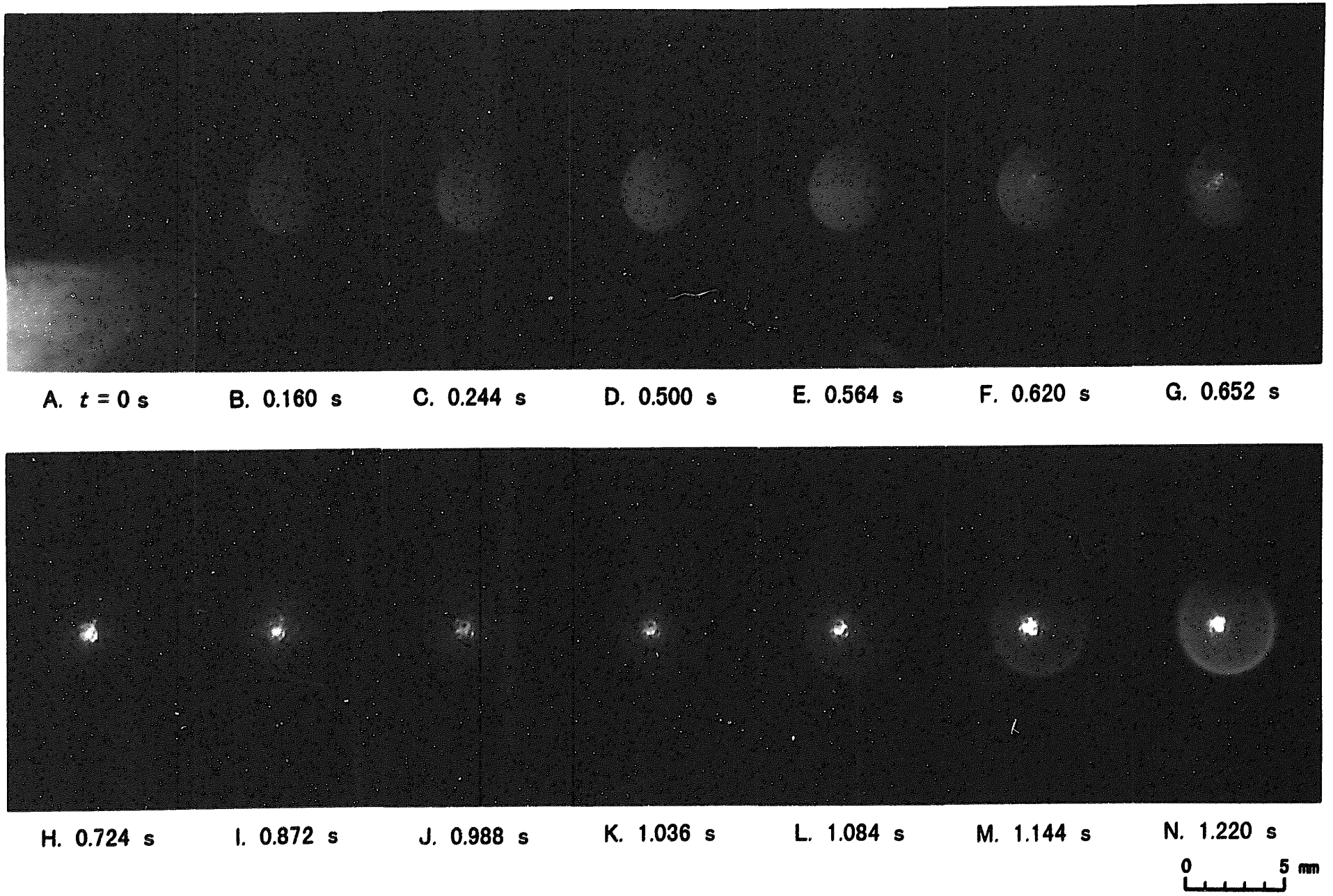


図 11　着火の様子の連続写真 (T_0 = 350℃ , d_0 = 3.9 mm)　(1/2)

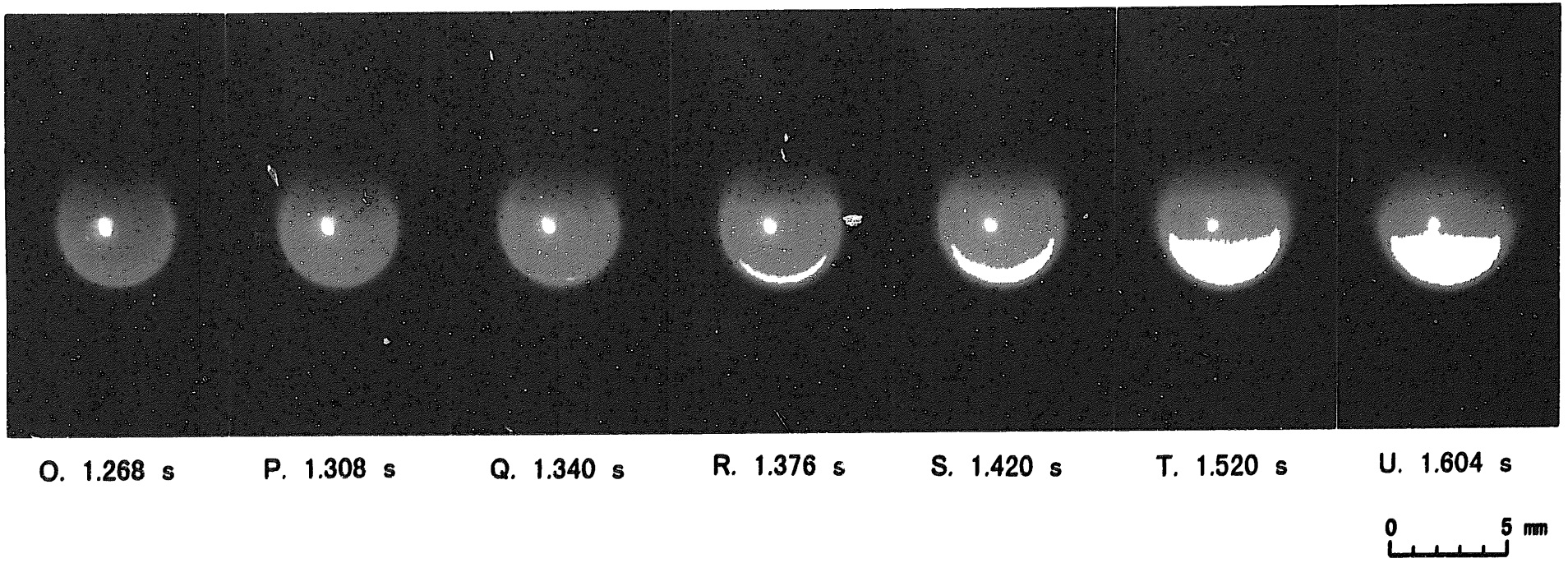
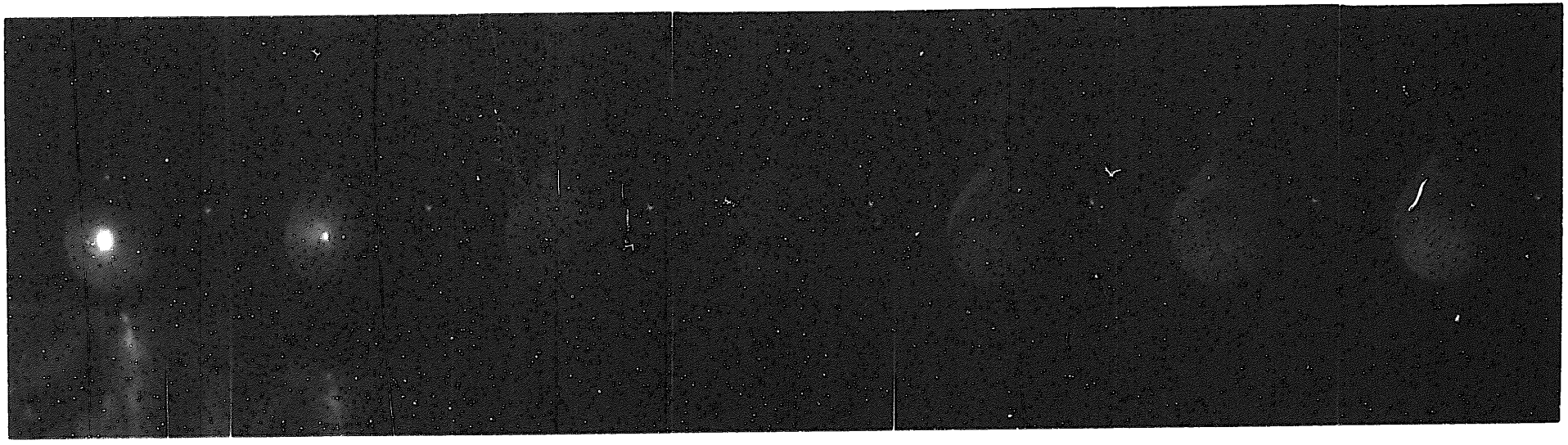
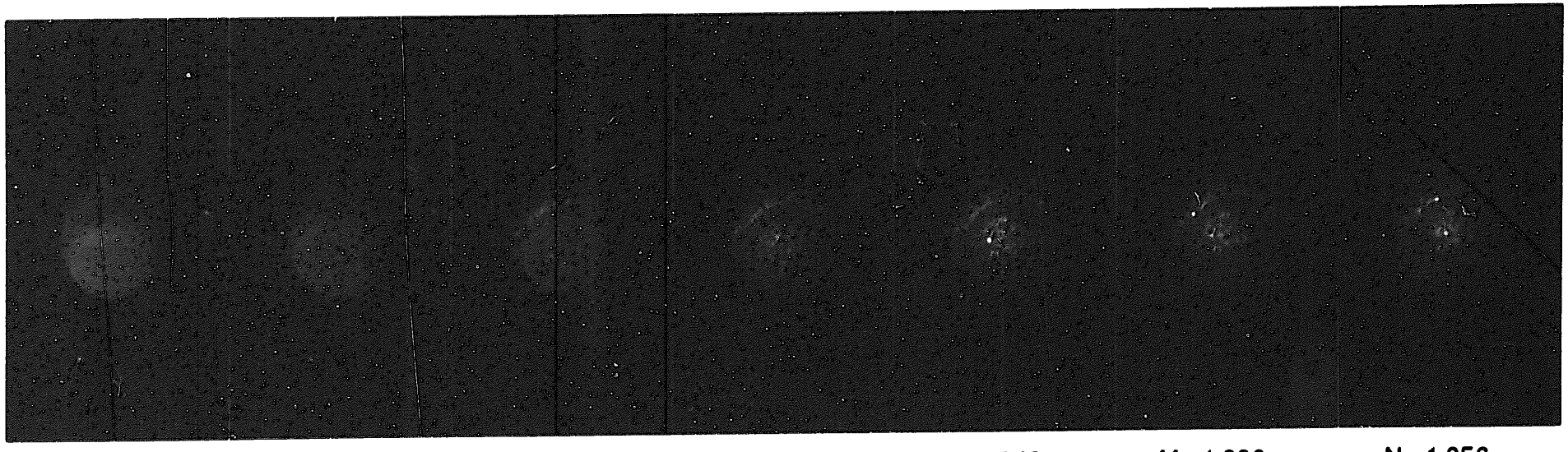


図 11　着火の様子の連続写真 (T_0 = 350℃ , d_0 = 3.9 mm)　(2/2)



A. $t = 0$ s　B. 0.028 s　C. 0.076 s　D. 0.160 s　E. 0.276 s　F. 0.420 s　G. 0.544 s



H. 0.876 s　I. 1.480 s　J. 1.676 s　K. 1.756 s　L. 1.840 s　M. 1.896 s　N. 1.956 s

0　5 mm

図 12　着火の様子の連続写真 (T_0 = 350℃ , d_0 = 4.3 mm)　(1/2)

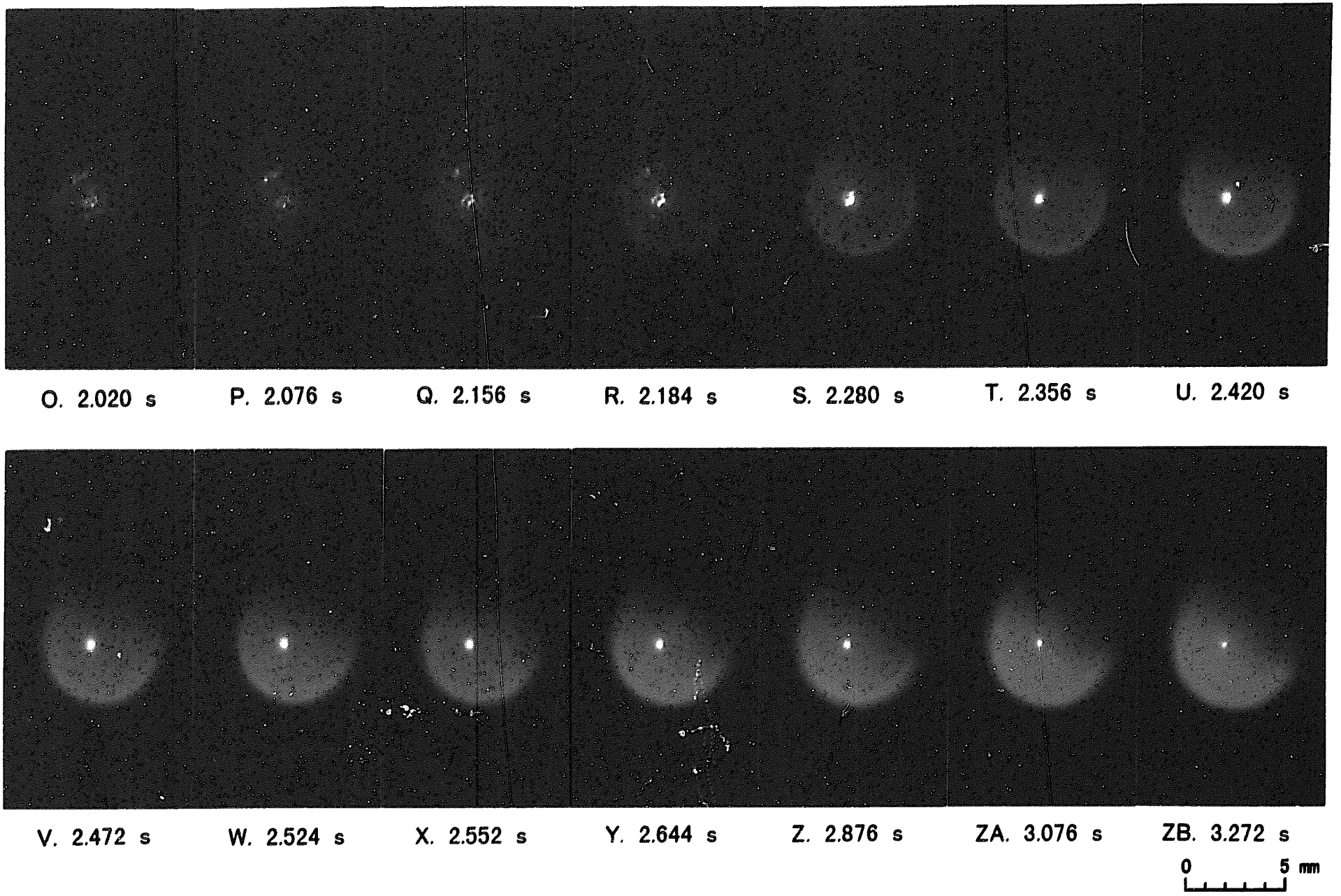
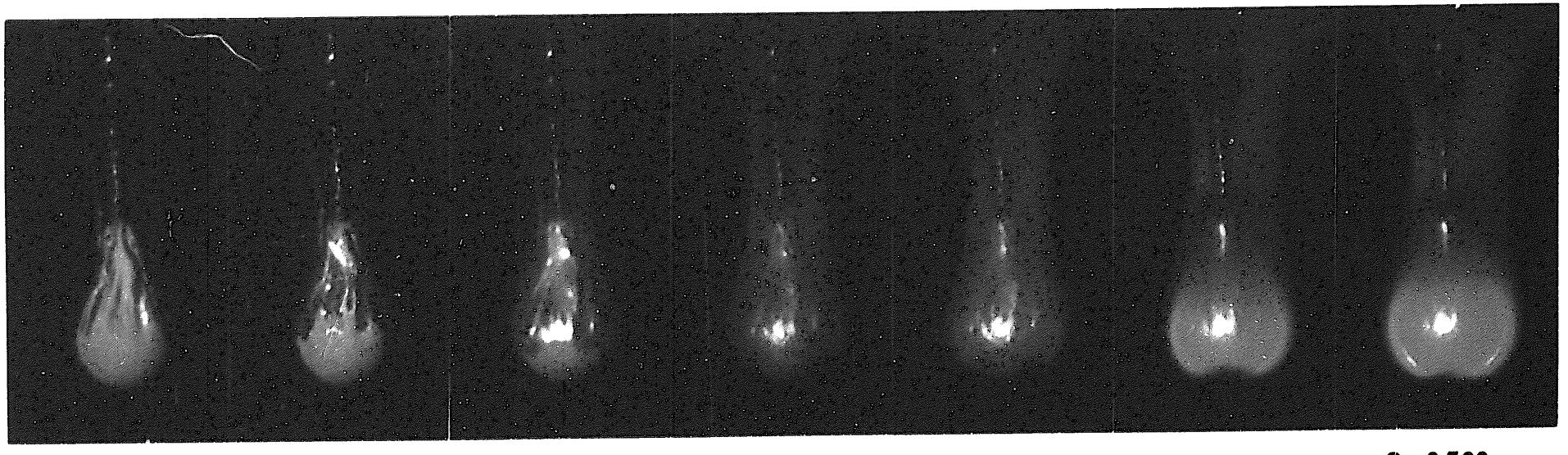
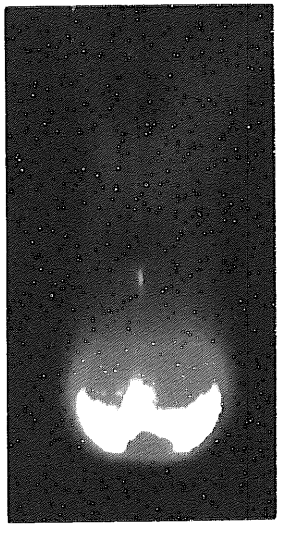


図 12 着火の様子の連続写真 (T_o = 350℃ , d_o = 4.3 mm) (2/2)



A. $t^* = 0$ s　B. 0.072 s　C. 0.208 s　D. 0.328 s　E. 0.376 s　F. 0.508 s　G. 0.560 s

0　5 mm



H. 0.636 s

図 13　着火の様子の連続写真（相対湿度約 60％，T_0 = 300℃，途中からの像）

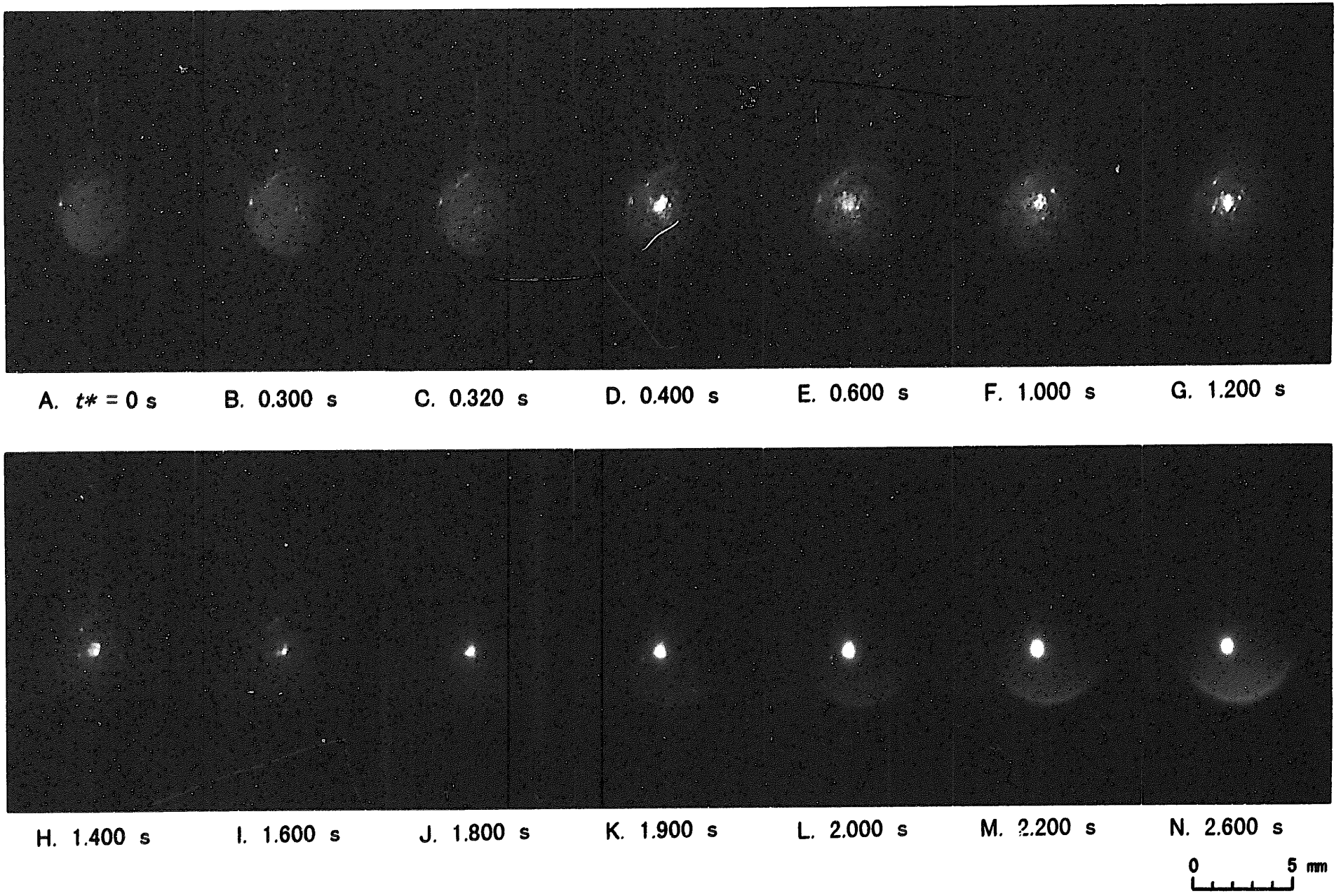


図 14　着火の様子の連続写真 (Heの吹き出しを伴う場合，T_0 = 350℃，途中からの像)　(1/2)

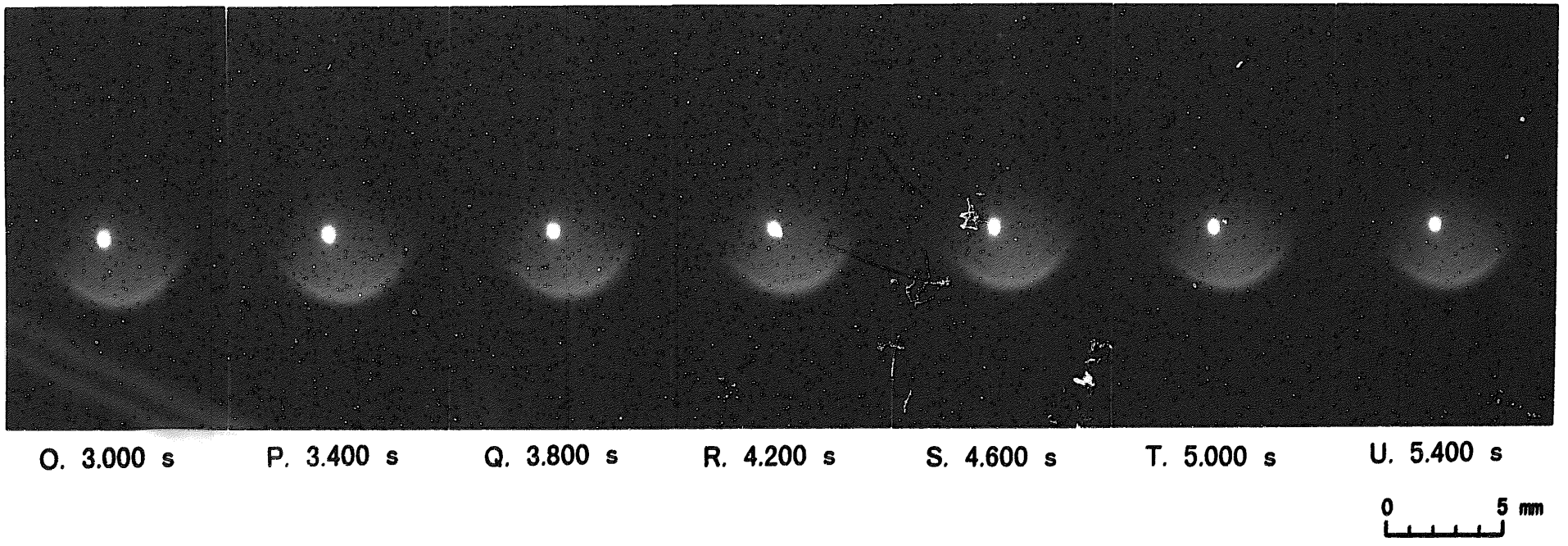


図 14　着火の様子の連続写真（Heの吹き出しを伴う場合，T_0 = 350℃，途中からの像）　(2/2)

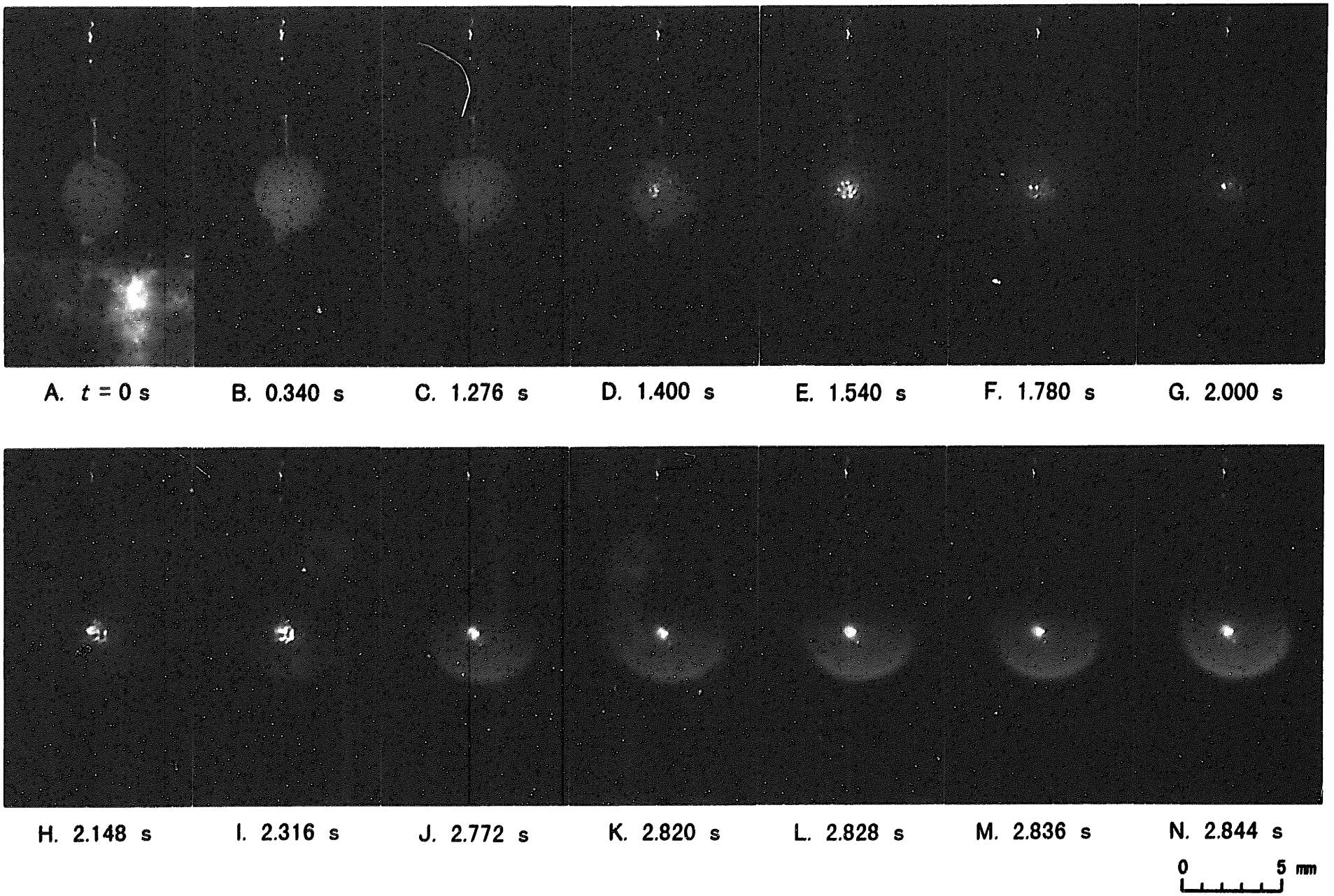


図 15　着火の様子の連続写真（着火後の途中までHeの吹き出しを伴う場合，T_0 = 300℃，d_0 = 3.8 mm）　(1/2)

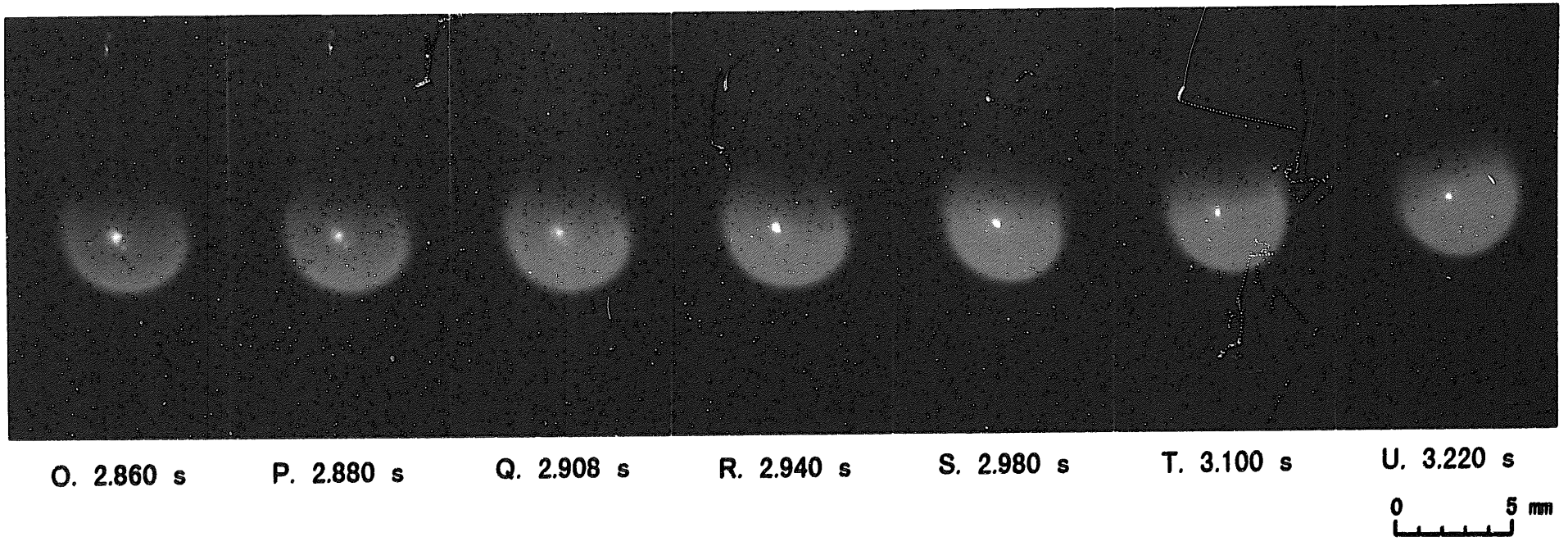


図 15 着火の様子の連続写真（着火後の途中までHeの吹き出しを伴う場合，T_o = 300℃，d_o = 3.8 mm） (2/2)

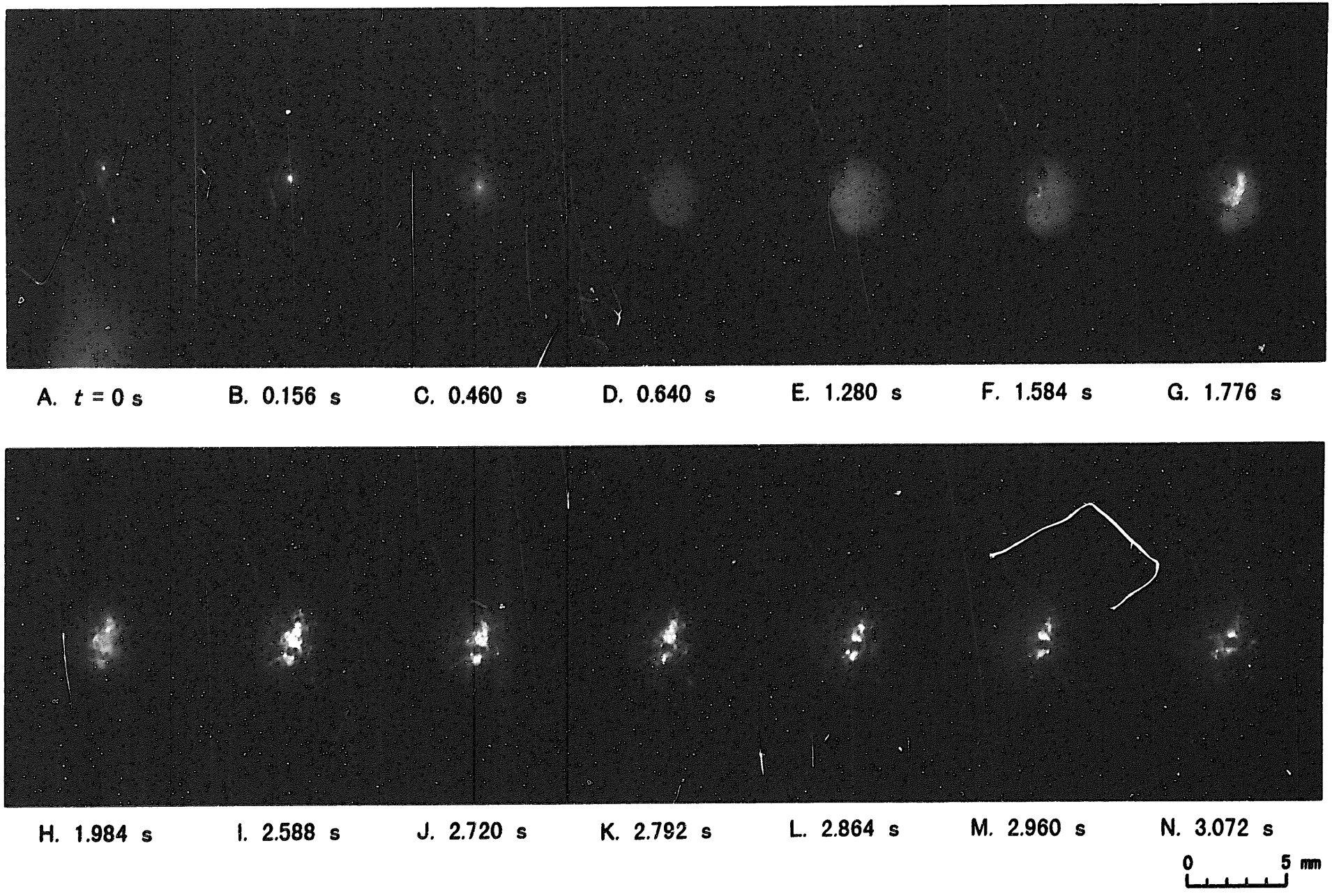


図 16 着火の様子の連続写真（成長を伴う液滴，相対湿度約 60％，T_0 = 350℃） (1/2)

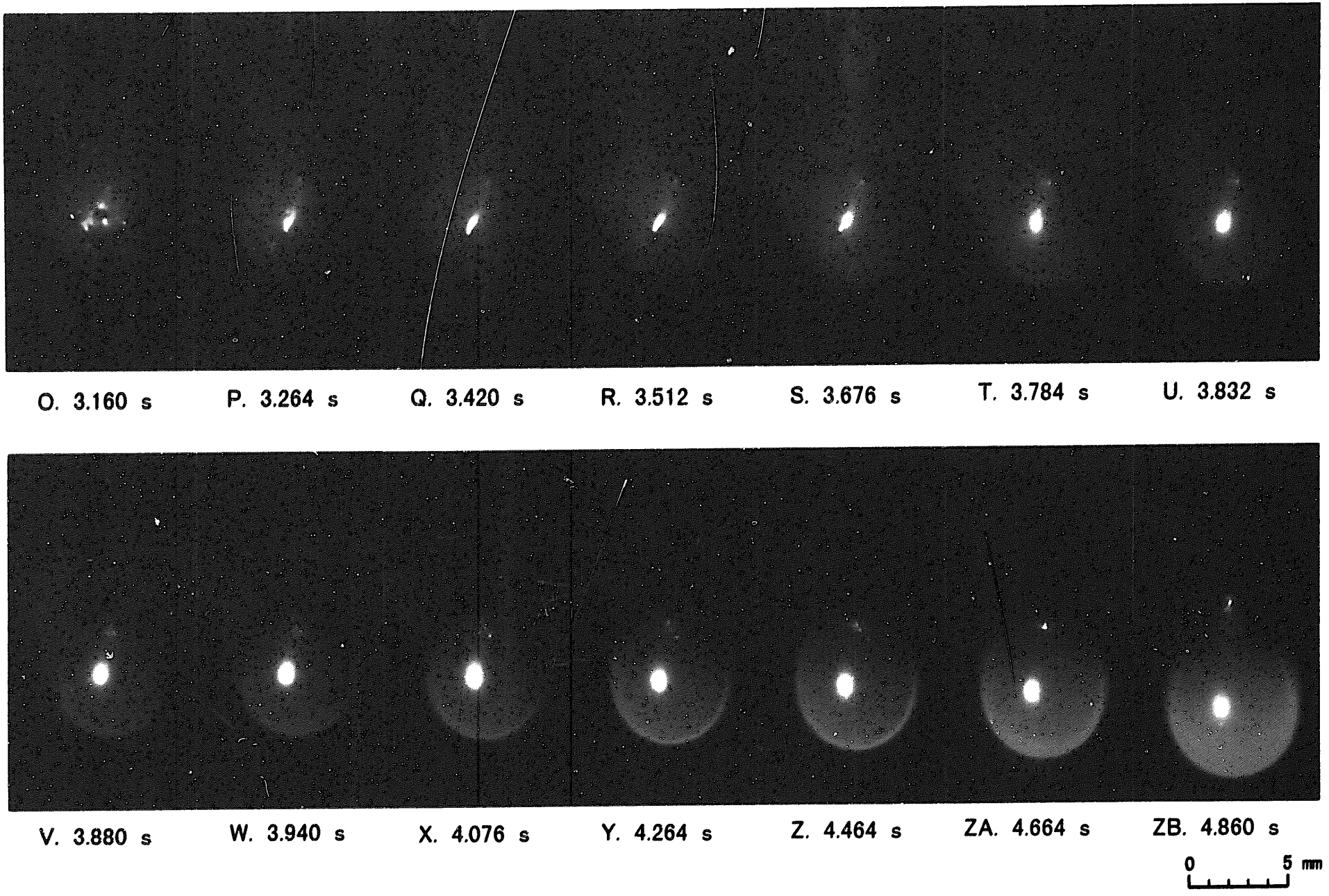


図 16　着火の様子の連続写真（成長を伴う液滴，相対湿度約 60％，T_o = 350℃）　(2/2)

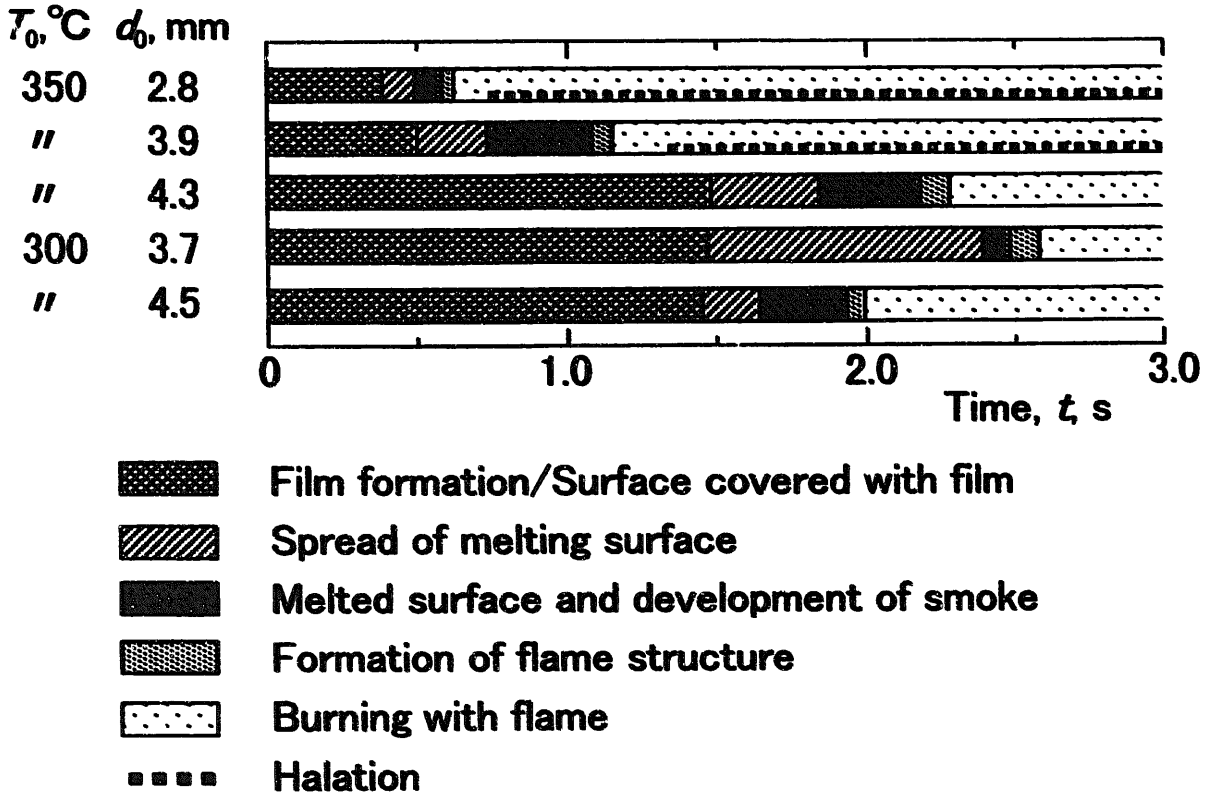


図 17　着火過程の各過程と時間経過の関係

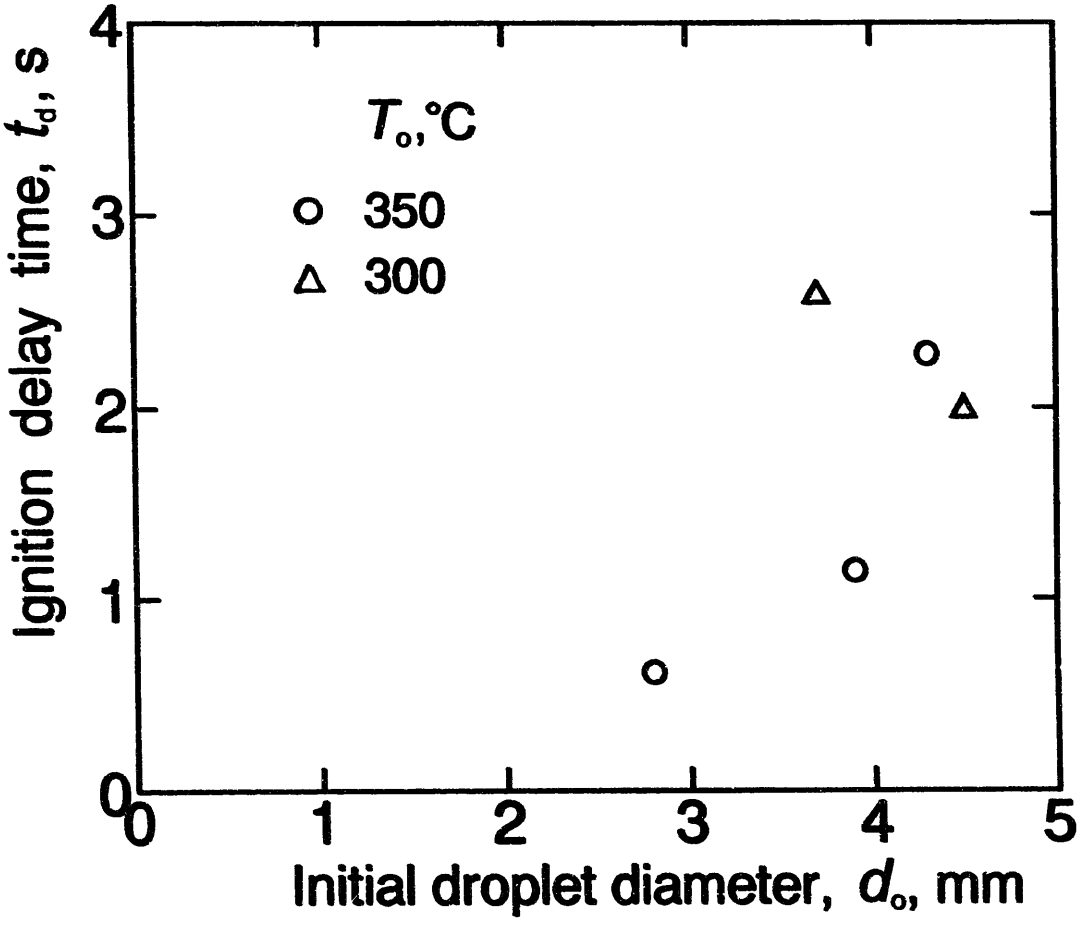

Ignition delay time, t_d, s
T_o,°C
350
300
Initial droplet diameter, d_o, mm
0
1
2
3
4
5

図 18　着火遅れ時間