

Na中水素計の動的および静的平衡法による試験結果

(小リーク・ナトリウム・水反応試験研究 第8報)

1976年3月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団 大洗工学センター

システム開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor
and Nuclear Fuel Development Corporation 4002, Narita O-arai-machi Higashi-
Ibaraki-gun, Ibaraki, 311-14, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)

1976年3月22日

Na中水素計の動的および静的平衡法による試験結果

(小リーグ・ナトリウム・水反応試験研究 第8報)

報告者	池本一郎*
	橋口功*
	大内義弘*
	井上設生*
	鐘ヶ江直道*
	堀雅夫*

期間 1975年4月～1976年3月

目的 Na中水素計の動的、静的平衡法による試験結果および注水試験に対する応答について報告する。

要旨

本報告書は、上記期間中に行なったNa中水素計の静的および動的平衡法による較正試験、注水試験時に得られた水素計の応答や、較正試験から得られた水素計の特性、およびNa中水素計の設計において考慮すべき点などについて述べたものである。

本試験結果より明らかになった主な事項は、以下のようなものである。

- (1) 静的および動的平衡法による較正試験の結果、Na中水素濃度を精度よく監視できる。
- (2) Ni拡散膜の水素透過率に圧力依存性が認められた。
- (3) バリアン型Na中水素計において、数回の注水実験の後、出力の経時変化が観察された。
- (4) バリアン型およびPNC-MAP I型Na中水素計の両者の応答を比較すると、応答開始はほぼ同時であるが、感度はバリアン型の方が良好である。
- (5) 静的平衡法によりNa中水素分圧を測定する場合、低分圧の場合は真空系壁面からのガス放出、高分圧の場合は電離真空計フィラメントの排気速度の効果を考慮しなくてはならない。

*大洗工学センター高速炉安全性試験室

March 22, 1976

Test Results of In-Sodium Hydrogen Meters by Dynamic
and Static Equilibrium Methods

— Studies of Small Leak Sodium-Water Reactions (8) —

Ichiro Ikemoto*, Ko Hashiguchi*

Yoshihiro Ohuchi*, Setsunari Inoue*

Naomichi Kanegae* and Masao Hori*

Abstract

This report Summarizes the test results obtained from the in-sodium hydrogen meters in Small Sodium-Water Reaction Test Facility(SWAT-2). The calibration tests and operating characteristics of the hydrogen meters, and the response characteristics of the meters to the water injections have been performed. Moreover, some parametric studies have been conducted for design considerations for the in-sodium hydrogen meters.

Important findings from these experiments are:

- (1) Accurate monitoring of hydrogen concentration in sodium can be done dy the dynamic and static equilibrium calibration methods.
- (2) Considerable pressure dependence of the hydrogen permeability through nickel membrane has been observed.
- (3) The drift of meter output has been observed of the Varian-type hydrogen meter after several water injection tests.
- (4) The comparison of the response characteristics of the Varian- and PNC-MAPI-type meters indicated that the response time was nearly the same but the Varian-type showed the better sensitivity.

(5) In determining the hydrogen partial pressure in sodium by the static equilibrium method, outgassing from the vacuum system wall must be taken into account in the case of low pressure range while, in the high pressure range, the pumping effect of the ionization gauge filament must be considered.

*Fast Reactor Safety Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor & Nuclear Fuel Development Corporation.

目 次

1. まえがき	1
2. 試験	2
2.1 試験装置	2
2.1.1 SWAT-2 装置の概要	2
2.1.2 Na 中水素検出計	2
2.2 試験方法	3
2.2.1 較正試験	3
2.2.2 応答試験	5
2.3 試験結果	5
2.3.1 較正試験	5
2.3.2 応答試験	7
3. 試験結果の検討	9
3.1 Na 中水素濃度、分圧と水素計出力の関係式	9
3.1.1 静的平衡圧測定	9
3.1.2 動的平衡圧測定	12
3.1.3 Na 中水素計の応答	13
3.2 較正試験	14
3.2.1 較正曲線	14
3.2.2 電離真空計の自己排気速度の効果	15
3.2.3 Na 中水素計特性の経時変化	16
3.3 Ni 膜中の水素透過率の評価	17
3.3.1 静的平衡圧による透過率の評価	17
3.3.2 動的平衡圧による透過率の評価	18
3.4 応答試験	19
3.5 他研究機関との比較	20
4. 水素計設計上考慮すべき効果	22
4.1 真空系壁面からのガス放出量	22
4.2 電離真空計フィラメントの排気速度	23
5. まとめ	26

図 表 目 次

表番号	表	題
表 2.1		PNC-MAPI型およびバリアン型水素計の仕様比較
表 2.2		バリアン型Na中水素計較正試験結果
表 3.1		ANL Na中水素計の仕様

図番号	表	題
図 2.1		小リーグNa-水反応試験装置(SWAT-2)系統図
〃 2.2		SWAT-2 装置 Na 中水素計ループ
〃 2.3		バリアン型 Na 中水素計概略図
〃 2.4		静的および動的平衡法による Na 中水素分圧の測定
〃 2.5		平衡圧測定例(記録紙)
〃 2.6		サーマルトランスピレーションによる圧力補正
〃 2.7		Na 中水素分圧とイオンポンプ電流の関係
〃 2.8		Na 中水素濃度とイオンポンプ電流の関係
〃 2.9		Na 中水素濃度とイオンポンプ出力の関係(PNC-MAPI型Na中水素計)
〃 2.10		Na 中水素濃度とB-Aゲージ出力の関係(PNC-MAPI型)
〃 2.11		イオンポンプ電流と電離真空計圧力の関係
〃 2.12		注水実験におけるバリアン型Na中水素計の応答(注水時間小の場合)
〃 2.13		注水実験におけるバリアン型Na中水素計の応答(注水時間大の場合)
〃 2.14		バリアン型、PNC-MAPI型水素計の応答の比較
〃 3.1		バリアン型Na中水素計模式図
〃 3.2		較正曲線の実測値と計算値の比較
〃 3.3		高Na中水素濃度時に観察されたNa中水素計の周期的な応答
〃 3.4		イオンポンプ特性の経時変化
〃 3.5		静的平衡圧上昇による透過率の評価
〃 3.6		平衡圧測定時の圧力上昇
〃 3.7		Ni拡散膜の水素透過率とNa中水素分圧の関係
〃 3.8		バリアン型Na中水素計の応答曲線

図番号	表	題
図 3.9		ANLで開発されたNa中水素計
" 3.10		ANLのNa中水素計較正曲線
" 3.11		フェニックス炉のNa中水素計較正曲線
" 3.12		SNR-300用プロトタイプNa中水素計
" 3.13		SNR-300用プロトタイプ水素計の較正曲線
" 3.14		SNR-300用プロトタイプNa中水素計の応答
" 3.15		SNR-300用Na中水素計
" 4.1		低Na中水素分圧測定における壁面からのガス放出の効果と平衡到達時間
" 4.2		平衡圧測定における電離真空計排気速度の効果
" 4.3		Na中水素分圧測定における電離真空計フィラメント排気速度の影響(Na中水素分圧 1 torrの場合)

1. まえがき

高速増殖炉の開発において、Na 加熱蒸気発生器は開発されるべき機器のなかで最も重要なものの一つであり、動燃事業団大洗工学センターにおいても、1 MW 蒸気発生器、50 MW 蒸気発生器などの試験によりその開発にとり組んでいる。

蒸気発生器（以下 SG と略す）は一重の円管壁を隔てて高温 Na と水・蒸気が接しており、伝熱管に小孔や割れなどが発生すると、水（蒸気）と Na が激しく反応し、腐食性の反応生成物や反応熱などを発生する。また水（蒸気）の小リーク・ジェットが隣接する伝熱管に当たるとウェステージにより隣接管が損傷を受け、ついには破損して中リークまたは大リーク事故に至る可能性がある。したがって SG 内で小リークが発生した場合は、できるだけ早期にリークを検出し、SG を停止して伝熱管の破損伝播を防止する必要がある。

小リーク・ナトリウム・水反応試験装置（SWAT-2 装置）では、昭和 47 年 4 月以来、小リークに伴うウェステージ実験と、リーク検出器の開発を行なって来た⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾。小リーク検出器としては、現在種々のものが考えられているが、現在最も開発が進み、信頼性が高いと考えられているものは、拡散膜型 Na 中水素計である。拡散膜型 Na 中水素計は、Ni などの薄い拡散膜を通して Na 中から拡散透過する水素を、真空計やイオンポンプや質量分析器などの出力で監視し、またその出力の変化によって Na 中水素濃度変化を検出するものである。

現在 SWAT-2 装置には、運転開始時（昭和 47 年 4 月）から使用されている PNC-MAP I 型 Na 中水素計と昭和 49 年 12 月中旬に新しく設置されたバリアン型 Na 中水素計の 2 つの拡散膜型 Na 中水素計があり、その特性試験が実施されている。

本報はこれらの Na 中水素計、特に新しく設置されたバリアン型 Na 中水素計に関する動的、静的平衡法による特性試験、注水実験による応答試験、またそれらの試験を通して明らかとなつた問題点などについて報告するものであり、これから Na 中水素計の開発、設計に対する提言についても記述する。

2. 試験

2.1 試験装置

2.1.1 SWAT-2 装置の概要

SWAT-2 装置は、小リーク・Na-水反応による材料ウェステージの研究と、小リーク検出器の開発を目的として設置された実験装置である。その系統を図 2.1 に示す。ループは主循環系、純化系、リーク検出計ループ、水-蒸気系、ガス系、放出系、ドレン系などから構成されている。

主循環系は電磁ポンプ、主加熱器、反応容器、空気冷却器などから構成され、注水実験（ウェステージ実験）時には、水-蒸気系から高温、高圧の蒸気が反応容器内に注入される。

純化系はエコノマイザとコールドトラップから構成され、リーク検出器の試験や注水実験時の Na 純度を管理する。

リーク検出計ループとしては、Na 中水素検出計、カバーガス水素検出計とプランギング計の各ループが設置され、各検出器の特性や応答が試験される。

運転時にはダンプタンクよりループに約 600 ℥ の Na をチャージし、Na 温度を所定の温度まで昇温する。試験には、注水試験と Na 中水素検出計特性試験がある。前者の場合、コールドトラップ温度約 120 °C で Na を純化し、コールドトラップ隔離の後反応容器内に蒸気を注入して、材料ウェステージとリーク検出器の応答が試験される。

後者の場合は、コールドトラップ温度を一定に保ち、Na 中不純物濃度を一定にした状態で Na 中水素計の基礎特性試験や較正試験が行なわれる。

なお詳細な装置の説明は第 1 報⁽¹⁾、第 2 報⁽²⁾に詳しく述べられている。

2.1.2 Na 中水素検出計

SWAT-2 装置の主循環系には、Na 中水素検出計ループが取り付けられている。このループには、PNC-MAPI 型とバリアン型の 2 種類の Na 中水素計がある。

Na 中水素計ループの系統を図 2.2 に示す。主循環系から流入した Na は電磁ポンプによりエコノマイザ、Na 温度制御用ヒータ、水素計拡散膜部、エコノマイザ、電磁流量計の順に流れ主循環系に戻る。最も典型的な運転条件は、主循環系 Na 温度：450～500 °C、水素計拡散膜部 Na 温度：500 °C、検出系 Na 流量約 10 ℥/min である。水素計拡散膜部の Na 温度は、加熱器入口 Na 温度により加熱器入力を制御するフィードフォワード方式によって、設定温度の ± 2 °C 以内に制御されるように設計されている。

Na 中水素計は PNC-MAPI 型、バリアン型とも Ni 拡散膜を Na 中に浸漬し、膜を

通して透過して来る水素をイオンポンプで排気し、真空側の圧力あるいはイオンポンプ電流などで Na 中水素濃度または濃度変化を検出するものである。

PNC-MAPI型水素計は、SWAT-2装置の運転開始当初から取付けられている三菱原子力工業機(MAPI)製のものを、PNCが各種試験のため改造したものであり、真空系は拡散膜、電離真空系(B-Aゲージとシュルツゲージ)、隔離弁、質量分析器、イオンポンプとそれを連結する配管から構成されている。このため、本水素計の原型の使用方式とその性能とは、無関係である。この水素計の特性試験は前報⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾までに詳しく述べられている。

バリアン型水素計は、昭和49年12月に初めてSWAT-2装置に取り付けられた Na 中水素計で、真空系は拡散膜、電離真空計(ミリトルゲージ)、隔離弁、イオンポンプとそれを連結する配管から構成されている。本報は、主としてこのバリアン型 Na 中水素計の特性試験について報告するものである。

表2.1にPNC-MAPI型とバリアン型の両 Na 中水素計の仕様の比較を示す。両者を比較すると明らかのようにPNC-MAPI型に比べバリアン型は形状、構成とも非常にコンパクトになっている。これはPNC-MAPI型が、 Na 中水素計としては初期のものに属するのに対し、バリアン型は最近開発されたものであることによる。

バリアン型水素計の概略構造を図2.3に示す。本水素計は隔離弁の開閉により、リーク検出器としても Na 中水素分圧(Na 中水素濃度)測定器としても使用することができる。

電離真空計の測定範囲は 10^{-6} torr から 0.6 torr であり、仕様では平衡圧の測定により Na 中水素濃度にして数 $10 \text{ ppb} \sim \text{数 ppm}$ までの測定が可能である。

イオンポンプは、排気速度 $1 \ell/\text{sec}$ (N_2 換算)の小さなポンプであり、陰極に特別な材料を使用して水素化合物の膜の堆積を最少にし、排気速度の経時変化を少なくするよう設計されている。また真空系配管内面も、表面処理により放出ガス量を低くしてある。

Na 中水素計の運転は動的および静的モードの2種類に分けられる。動的モード運転は隔離弁を開いて運転する方法で、拡散膜を透過した水素量を電離真空計およびイオンポンプ電流の出力としてとり出し、その出力によって Na 中水素濃度あるいはその変化および水素計の特性を測定する方法である(2.2参照)。

一方静的モード運転は、 Na 中水素濃度が一定の状態で隔離弁を閉じ、その到達平衡圧力や圧力上昇率から Na 中水素濃度および水素計の特性を測定する方法である(2.2参照)。

2.2 試験方法

2.2.1 較正試験

較正試験とは、 Na 中水素分圧 P_{NH} あるいは Na 中水素濃度 C_{NH} と Na 中水素計の出力の関係を求めるもので、系内 Na 中水素濃度 C_{NH} を段階的に変えて行き各濃度に対する

る水素計出力値、たとえばイオンポンプ電流 I_p との関係を図示することにより、較正曲線を得るために実施するものである。

したがって、まず系内水素濃度を各段階で一定に保つことおよびその時の Na 中水素分圧あるいは水素濃度値を正確に知る必要がある。このためには、コールドトラップ温度を一定にして運転し、系内 Na 中水素濃度を一定にした上で水素計を静的平衡状態にする。この静的平衡状態とは、イオンポンプを停止あるいはイオンポンプ隔離弁を閉じること等により水素計真空側の排気能力を停止し、Ni 膜を通して透過する水素により真空側圧力が Na 中水素分圧と等しくなった状態をいう。すなわち、この静的平衡状態における真空側圧力が Na 中水素分圧そのものの値となる。

その後、真空部の排気を行なえば、Ni 膜を介して Na 中水素分圧と真空側圧力の間に、イオンポンプ排気能力に応じた圧力分布が形成される。この状態を動的平衡状態という。これより、同一 Na 中水素濃度における動的平衡状態での水素計出力と、上記静的平衡法により求められる Na 中水素分圧が測定される。以上の手順と水素計出力の変化を模式的に図 2.4 に示す。

Na 中水素濃度を段階的に変化させて上記の静的および動的平衡法による測定を行なえば、Na 中水素分圧と水素計出力の関係が求まるが、この Na 中水素分圧は Sieverts の法則により Na 中水素濃度と次のような関係がある。

$$C_{NH} = K_H \cdot P_{NH}^{1/2} \quad (2.1)$$

ここに C_{NH} : Na 中水素濃度 (ppm)

P_{NH} : Na 中水素分圧 (torr)

K_H : Sieverts 定数 (ppm/torr^{1/2})

したがって、Na 中水素分圧を (2.1) 式で Na 中水素濃度に換算することにより、Na 中水素濃度と水素計出力との関係が求められる。これがいわゆる較正曲線である。

本報告では、Na 中水素計の出力として主としてイオンポンプ電流を採用し較正曲線を求めた。イオンポンプの特性として、ある真空中度領域 (通常 $10^{-8} \sim 10^{-4}$ torr 程度) では、真空系圧力とイオンポンプ電流は比例するため (図 2.11 参照)、イオンポンプ電流にある定数を乗じれば真空系圧力と Na 中水素濃度の較正曲線となる。

実際の較正試験においては、拡散膜部 Na 温度を 500°C と一定にし、コールドトラップ温度を約 110°C ~ 220°C の範囲で変化させて平衡圧を測定した。なお、データの再現性を確かめるため、同じコールドトラップ温度で 2 ~ 3 回の平衡圧を測定した。またコールドトラップ温度を順次上昇させた場合と、下降させた場合についても平衡圧を測定した。

また、注水実験前と実験後の両方についても平衡圧測定実験を行ない系の注水履歴の影響も調べた。

2. 2. 2 応答試験

実機 SG でリークが発生した場合の水素計の応答を評価するため、注水実験における水素計の応答を調べた。この応答曲線に前述の較正曲線を適用することにより、リーク発生時の濃度上昇や発生リーク規模等の推定が可能となる。

Na 系をコールドトラップ温度約 120°C で純化し、系内水素濃度が一定になった時点で反応容器内に蒸気を注入し、Na 中水素計の応答が調べられた。Na 中水素計の運転条件は較正試験と同じである。この場合、Na 中水素濃度変化はほぼステップ状に近い変化と考えて良く、拡散膜内の水素の透過を拡散現象が支配的であると考えると、拡散膜が十分薄いことから膜の水素透過量は一次元の拡散方程式を解くことにより計算される。

MAPI-PNC 型およびバリアン型 Na 中水素計の応答特性が求められ、両者が比較検討された。

2.3 試験結果

2.3.1 較正試験

昭和 50 年 4 月～ 11 月の間にバリアン型 Na 中水素計について 13 シリーズの較正試験が行なわれ、Na 中水素分圧（Na 中水素濃度）と Na 中水素計出力の関係が調べられた。

実験は 2.2.1 に述べたように、コールドトラップ温度を段階的に変化させ、各コールドトラップ温度において、Na 中水素濃度が一定になったと確認された時点を動的平衡状態とし、水素計の隔離弁を閉としてその時の Na 中水素分圧（静的平衡圧）を測定した。なお、系内 Na 中水素濃度が一定になったという確認は、PNC-MAPI 型およびバリアン型 Na 中水素計の出力が一定になることで行なった。

図 2.5 に Na 中水素分圧の測定例（レコーダチャート）を示す。隔離弁を閉にして約 30 分程度で平衡に達している。平衡に達してからの指示値のゆれは、コールドトラップ温度（ON-OFF 制御）のゆれに対応している。

表 2.2 に各較正試験の試験条件および試験結果を示す。この表において、11 月の試験（試験 No. 11A, B, 12A, B ）はイオンポンプが水素を吸いすぎて特性が変化したと考えられるため、本節ではこのデータを除いて整理し、これらのデータに関しては 3.2.3 で検討する。

表 2.2 において Na 中水素分圧指示値 $P_{\text{e}1}$ とあるのは実際の電離真空計の指示値であり、普通この指示値はガスの種類によって異なる。従って、電離真空計部での真の水素分圧 P_{e} を求めるには、ゲージ係数 G_c を乗じなくてはならない。SWAT-2 装置のバリアン型水素計のゲージ係数は 3.45 ± 0.16 である。

$$P_e = G_c \cdot P_{\text{e}1}$$

(2.2)

$$\text{ここに } G_c = 3.45 \pm 0.16$$

また、電離真空計部の温度は常温であるのに対し、拡散膜部の温度は約 500°C であるため、圧力測定時にはサーマルトランスピレーション（熱遷移）の効果により、両者の圧力が異なっている。したがって、静的平衡法による平衡圧測定の場合には、Na 中水素分圧は拡散膜部（高温部）で平衡しているため、サーマルトランスピレーションの効果を考慮して、測定された圧力を拡散膜部圧力 P_{NH} に補正する必要がある。拡散膜部温度 500°C の場合の電離真空計部圧力と拡散膜部圧力の関係を図 2.6 に示す。なお使用した計算式は 3.1 の (3.6) 式⁽⁶⁾によった。図のように約 10^{-1} torr 以上ではほとんど差がないが、圧力が低くなるに従って差が大きくなり、 10^{-3} torr 以下では 50 ~ 60 % の差となっている。これは低圧部（クヌッセン領域）では、補正係数が拡散膜部の温度 T_{NH} (°K) と電離真空計部温度 T_e (°K) の比の平方根 $\sqrt{T_{NH}/T_e}$ (= 1.6) となるためである。表 2.2 中の Na 中水素分圧 P_{NH} はゲージ部圧力 P_g に (3.6) 式によってサーマルトランスピレーションの補正を施したものである。

以上のようにして求めた Na 中水素分圧（拡散膜部平衡圧）とそれに対応する動的平衡状態でのイオンポンプ電流の関係を図 2.7 に示す。Na 中水素分圧 P_{NH} とイオンポンプ電流 I_p の関には次の関係がある。

$$P_{NH} = 3.0 \times 10^{-4} I_p^{1.43} \quad (2.3)$$

ここに P_{NH} : Na 中水素分圧 (torr)

I_p : イオンポンプ電流 (μA)

(2.3) 式を Sieverts の法則により (3.10), (3.11) 式 (3.1.1 参照) を用いて、Na 中水素濃度 C_{NH} とイオンポンプ電流の関係に直すと、

$$C_{NH} = 8.7 \times 10^{-2} \cdot I_p^{0.72} \quad (2.4)$$

ここに C_{NH} : Na 中水素濃度 (ppm)

となり、この関係が SWAT-2 装置のバリアン型 Na 中水素計の較正曲線となる。図 2.8 に測定された Na 中水素濃度とイオンポンプ電流の関係および (2.4) 式の関係を示す。

したがって、図 2.8 または (2.4) 式により、動的モード運転におけるイオンポンプ電流指示値から Na 中水素濃度を連続的に知ることができる。

一方、PNC-MAPI 型の Na 中水素計については、電離真空計の水素に対するゲージ係数が正確に判っていなかったため、較正曲線が求まらなかつたが、バリアン型水素計の較正試験時における水素計出力を用いて較正曲線が得られた。PNC-MAPI 型水素計の場合は、電離真空計として B-A ゲージが使用されており、バリアン型の電離真空計に比べてより高真空側まで測定できる。したがって、較正曲線をイオンポンプ出力および B-A ゲージ出力の両方に対して求めた。これを図 2.9, 2.10 に示す。両較正曲線ともバリ

アン型に比べ、少しばらつきが大きいが大略次の関係がある。

$$C_{NH} \propto P_{IP}^{0.75} \quad (2.5)$$

または

$$C_{NH} \propto P_{BA}^{0.75} \quad (2.6)$$

ここに P_{IP} : イオンポンプ出力 (torr)

P_{BA} : B-A ゲージ出力 (torr)

PNC-MAP I 型に比べ、バリアン型は較正曲線の再現性もよくばらつきが少ない。また両 Na 中水素計とも、Na 中水素濃度のイオンポンプ電流、あるいは真空計圧力に対する依存性は同様の傾向を示している。

なおバリアン型 Na 中水素計の動的運転状態におけるイオンポンプ電流と電離真空計圧力の関係を図 2.11 に示す。イオンポンプについて一般的に言われているように、約 5×10^{-4} torr までは圧力とイオンポンプ電流は比例している。圧力が低いところ ($\sim 5 \times 10^{-6}$ 以下) で比例関係からずれているのは、圧力が電離真空計の測定下限 ($\sim 5 \times 10^{-6}$ torr) に近づいているため、誤差が大きくなっているためである。この図の関係を用いれば、(2.4) 式の関係を用いて、Na 中水素濃度と電離真空計部圧力の関係を求めることができる (3.2 参照)。

2.3.2 応答試験

バリアン型 Na 中水素計および PNC-MAP I 型の Na 中水素計の注水実験時の応答が調べられた。応答は、注水率、注水時間、拡散膜温度などによって異なるが、バリアン型水素計の典型的な応答例 (注水時間が比較的短い場合) を図 2.12 に示す。縦軸は、バリアン型水素計のイオンポンプ電流であり、拡散膜を通して透過する水素量に比例している。横軸は注水開始からの経過時間である。

注水開始後約 40 秒でイオンポンプ電流が変化し始めている。これは注水点から、水素計拡散膜までの Na の輸送時間に対応する。

応答開始後、一担上昇した水素濃度が再び減少しているのは、注水が終了したことにより比較的きれいな Na が拡散膜部に達したためであり、応答開始から減少しはじめるまでの時間は注水時間と対応している。その後再び水素濃度が上昇するのは、Na がループを一巡して再び多量の反応生成物を含んだ Na が拡散膜部に達した事を示している。この時間もループ一巡時間と対応している。

もう一度このような変化をくり返した後、Na 中水素濃度は徐々に上昇している。これは注水部周返に付着した Na - 水反応生成物が、Na の循環に伴なって徐々に溶解しているためであろう。

図 2. 13 に注水時間の長い場合のバリアン型水素計の応答例を示す。図 2. 12 に比べると、応答開始時間はほぼ同じであるが、注水時間（～110 秒）が Na の一巡時間（50 ～60 秒）より長いため、図 2. 12 のようなイオンポンプ電流の波形の変化は表われていない。

このような応答試験（注水試験）を計 26 回行なったが、注水開始から、イオンポンプ電流に応答が現われるのは、いずれの場合も計算から求まる注水点から水素計までの Na 輸送時間である約 40 秒であった。

バリアン型および P N C - M A P I 型水素計の応答の比較を図 2. 14 に示す。すべての応答曲線は、記録紙に記録されたそのままのスケールで書かれている。バリアン型水素計の出力としてはミリトルゲージの出力とイオンポンプの出力、P N C - M A P I 型水素計の出力としては B - A ゲージとイオンポンプの出力をとって比較した。この注水実験は、1 度注水（No. 102 回注水実験）した後の実験で、注水前の Na 中水素濃度は約 3 ～ 4 ppm とかなりバックグラウンド水素濃度が高い状態での応答である。

注水開始から水素計に応答が表われるまでの時間は 4 つの水素計出力ともほぼ同じ時間であるが、感度あるいは応答の良さはバリアン型のミリトルゲージ、同イオンポンプ、P N C - M A P I 型の B - A ゲージ、同イオンポンプの順となっていることが判る。またバリアン型水素計の出力には、図 2. 12 で見られたような出力の周期的変化が見られるのに対し、P N C - M A P I 型の出力には見られない。これは P N C - M A P I 型の真空系容積が大きいことおよび拡散膜厚さが 2 倍であることなどのため出力がなまつたためであろう。

図 2. 12 に示された注水実験（No. 102）は図 2. 14 の注水実験（No. 103）の前に行なわれたものであり、No. 102 注水実験は注水前の Na 中水素濃度が比較的低い場合の応答である。両注水実験とも注水条件にそれほど差はないため、応答の違いは注水前の Na 中水素濃度の違いによるものである。

3. 試験結果の検討

本章では、2章に述べられた動的および静的平衡法による試験と応答試験の結果より、以下の項目に対して検討を行なった。

- (1) Na中水素濃度または水素分圧と水素計出力の関係を、計算から予想される値と比較する。
- (2) Ni拡散膜の水素透過率の評価
- (3) 他機関における研究との比較

3.1 Na中水素濃度、分圧と水素計出力の関係式

3.1.1 静的平衡圧測定

図3.1はNa中水素計を模式的に表わしたものである。このような系において、Na系内の水素濃度およびNa中水素計の真空系が平衡状態（動的平衡状態）にある時、時刻 $t = 0$ で隔離弁を閉じたとする。

拡散膜における拡散時間遅れ（3.1.3参照）を無視すると、拡散膜を通してNa側から真空側に拡散して来る水素量 Q_H は次式で与えられる⁽²⁾。

$$Q_H = q_H \cdot A = \frac{K \cdot A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P^{1/2}) \quad (3.1)$$

ここに Q_H : 拡散膜の透過水素量 ($\text{torr} \cdot \text{cm}^3/\text{sec}$)

q_H : 拡散膜単位面積、単位時間当たりの透過水素量

A : 拡散膜面積 (cm^2)

K : 拡散膜の水素透過率 ($\text{cm} \cdot \text{torr}^{1/2}/\text{sec}$)

d : 拡散膜厚さ (cm)

P_{NH} : Na中水素分圧 (torr)

P : 真空系拡散膜部圧力 (torr)

電離真空計フィラメントの自己排気速度 S_F と真空系壁面からのガス放出量 Q^* を考慮すると、真空系拡散膜部の圧力上昇は次式で表わされる。

$$V \frac{dP}{dt} = \frac{K \cdot A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P^{1/2}) - S_F \cdot P_G + Q^* \quad (3.2)$$

ここに V : 拡散膜一隔離弁間の真空系容積 (cm^3)

t : 時間 (sec)

S_F : 電離真空計フィラメントの自己排気速度 (cm^3/sec)

P_e : 電離真空計部圧力 (torr)

Q^* : 真空計壁面からのガス放出量 (torr · cm³ / sec)

バリアン型 Na 中水素計の場合、壁面からのガス放出率 q^* は約 10^{-10} torr · cm³ / sec · cm² と考えられており、真空計表面積 A_{vac} は約 200 cm² であるから

$$Q^* = q^* \cdot A_{vac} = 2 \times 10^{-8} \text{ torr} \cdot \text{cm}^3 / \text{sec} \quad (3.3)$$

となる。したがって、静的平衡圧測定時間（約 1 時間程度）では、真空系容積 70 cm³ より、ガス放出による圧力上昇は約 1×10^{-6} torr となり、測定平衡圧約 $3 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-2}$ torr の範囲では Q^* による誤差は十分小さく無視できる。したがって (3.2) 式は、

$$V \frac{dP}{dt} = \frac{K \cdot A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P^{1/2}) - S_F \cdot P_e \quad (3.3)$$

と表わされる。

次に、 P と P_e の関係を求める。拡散膜と電離真空計をつなぐ配管は、およそ 1.5 cm 内径 × 20 cm 長さであり、その間のコンダクタンスは C_{mi} は

$$C_{mi} = 3.87 \cdot \frac{D_p^3}{L} \sqrt{\frac{T}{M}} \cong 8 \text{ (} l / \text{sec} \text{) } \quad (3.5)$$

ただし、 D_p : 配管径 (cm)

L : 配管長 (cm)

T : 温度 (°K)

M : 分子量 (= 2)

となり、 S_F ($\ll 10^{-2} l / \text{sec}$) に比べ十分大きく、コンダクタンスの影響は無視できる。

従って拡散膜部圧力 P と電離真空計部圧力 P_e の関係は、サーマルトランスピレーションの効果のみを考慮すれば良く、たとえば次式で与えられる⁽⁶⁾。

$$\frac{P_e}{P} = F_t = \frac{AX^2 + BX + C\sqrt{X} + \sqrt{(T_e + 273)/(T_{N1} + 273)}}{AX^2 + BX + C\sqrt{X} + 1} \quad (3.6)$$

ここで、 T_e : 電離真空計部温度 (°C)

T_{N1} : 拡散膜部温度 (°C)

$$X = P_e \cdot D_p \quad (D_p : \text{mm})$$

$$A = A^* \cdot T_{av}^{-2}$$

$$B = B^* \cdot T_{av}^{-1}$$

$$C = C^* \cdot T_{av}^{-\frac{1}{2}}$$

$$T_{av} = (T_{Ni} + T_{g}) / 2 + 273 \text{ (°K)}$$

A^* , B^* , C^* はガスの種類によって与えられる定数であり、水素の場合、 $A^* = 1.24 \times 10^5$, $B^* = 8.00 \times 10^2$, $C^* = 10.6$ で与えられる。 F_t はサーマルトランスピレーション値と呼ばれるものである。従って、平衡圧測定時の圧力上昇率を表わす(3.3)式は、

$$V \frac{dP}{dt} = \frac{K \cdot A}{d} (P_{NH}^{\frac{1}{2}} - P^{\frac{1}{2}}) - S_F \cdot F_t \cdot P \quad (3.7)$$

となる。この微分方程式を解けばおおよその圧力上昇過程が求まる。いま簡単のため、 F_t を P に依存しない定数と仮定して、 $t = 0$ のとき $P = 0$ (実際には $P = 0$ ではないが、 $P_{NH} >> P$ のためこのように仮定する)の初期条件で(3.7)式を解くと、

$$t = -\frac{b}{a} \cdot \frac{1}{\sqrt{b^2 + 4ab}} \ln \frac{(2a\sqrt{p^*} + b + \sqrt{b^2 + 4ab})^2}{|4a(p^* + b\sqrt{p^*} - b)|} - \frac{1}{a} \ln [ap^* + b\sqrt{p^*} - b] + K_1 \quad (3.8)$$

ここで

$$P^* = \frac{P}{P_{NH}}$$

$$a = \frac{S_F \cdot F_t}{V}$$

$$b = \frac{K \cdot A}{V \cdot d} \cdot \frac{1}{P_{NH}^{\frac{1}{2}}}$$

$$K_1 = \frac{b}{a} \cdot \frac{1}{\sqrt{b^2 + 4ab}} \ln \frac{(b + \sqrt{b^2 + 4ab})^2}{4ab} + \frac{1}{a} \ln b$$

となる。もし、(3.7)式において電離真空計フィラメントの排気速度が無視できる場合には、 $S_F = 0$ とおき、 $t = 0$ のとき $P = 0$ の初期条件で解くと、次式のようになる。

$$\sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} + \ln \left(1 - \sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} \right) = - \frac{K \cdot A}{2 \cdot V \cdot d \cdot P_{NH}^{\frac{1}{2}}} \cdot t \quad (3.9)$$

(3.9)式の場合、充分時間が経過すると $P = P_{NH}$ つまり拡散膜部圧力は Ni 中水素分圧と等しくなり Ni 中水素分圧を知ることができる。また圧力上昇率より Ni 膜中の水素の透過率 K を求めることもできる。

しかし、電離真空計フィラメントの自己排気速度 S_F が無視できない場合には、充分時間が経過した後も、真空系圧力は Ni 中水素分圧より低い値で平衡状態に達する。この場

合の到達圧力は、(3.7)式の左辺を0とおくことによって得られる。平衡圧測定における電離真空計フィラメントの自己排気速度の影響の定量評価については3.2項および4.2項において検討されている。

Na中水素分圧が求められると、Sievertsの法則により次式でNa中水素濃度 C_{NH} が求められる。

$$C_{NH} = K_H \cdot P_{NH}^{1/2} \quad (3.10)$$

Sieverts定数 K_H については、数人の研究者によって実験的に求められているが、⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾本解析においては特に低水素濃度における実験を行なっているVissersらの値⁽⁹⁾を使用した。

$$\log K_H = 0.86 - \frac{122.0}{T_{Na}} \quad (3.11)$$

ここに K_H : ppm/torr^{1/2}

T_{Na} : Na温度(°K)

3.1.2 動的平衡圧測定

図3.1に示すような系において、隔離弁が開けイオンポンプが作動している状態の場合、Naから拡散膜を通って真空系に拡散する水素量が定常状態にあるとする。拡散膜を通してNa側から真空側に拡散して来る水素量 Q_H は、3.1.1で述べたように、

$$Q_H = q_H \cdot A = \frac{K \cdot A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P^{1/2}) \quad (3.1)$$

で与えられる。動的平衡状態においては、イオンポンプ排気速度 S が充分大きいため、電離真空計フィラメントの自己排気速度 S_F および真空系内壁からのガス放出量は無視できるため、水素の收支としてはNi拡散膜を通しての拡散水素量と、イオンポンプで排気される水素量のみを考えればよい。

イオンポンプで排気される水素量 Q_H は、

$$Q_H = S \cdot P_{IP} \quad (3.12)$$

ここに S : イオンポンプ排気速度(cm^3/sec)

で与えられる。本Na中水素計では、真空系圧力は電離真空計により測定されているため、各部のコンダクタンスを考慮して、電離真空計部圧力とNa中水素分圧の関係を求める。

拡散膜部圧力 P と電離真空計部圧力 P_G の関係は、両者の間のコンダクタンス C_{M1} 効果(3.1.1参照)を考慮すると、次式で表わされる。

$$Q_H = C_{M1} (P - P_G) \quad (3.13)$$

ここに C_{M1} : 拡散膜-電離真空計間のコンダクタンス (cm^3/sec)

また、 P_g とイオンポンプ部圧力 P_{IP} の関係も、両者の間のコンダクタンス C_{IP} を考慮して次式で表わされる。

$$Q_H = C_{IP} (P_g - P_{IP}) \quad (3.14)$$

ここに C_{IP} : 電離真空計-イオンポンプ間のコンダクタンス (cm^3/sec)

(3.1), (3.12), (3.13), (3.14) 式より Na 中水素分圧 P_{NH} と電離真空計圧力 P_g の関係を求める

$$P_{NH}^{1/2} = \frac{d \cdot S}{K \cdot A} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} P_g + \left\{ \frac{S}{C_{M1}} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} + 1 \right\}^{1/2} P_g^{1/2} \quad (3.15)$$

となり、 Na 中水素計の真空系の特性と Ni 拡散膜の水素透過係数が与えられると、電離真空計圧力より Na 中水素分圧、あるいは(3.10)式を介して Na 中水素濃度が計算される。また P_{NH} と P_g および真空系諸元を知ることにより、 Ni 膜の水素透過係数 K を求めることができる(3.3 参照)。

3.1.3 Na 中水素計の応答

Na 中水素計が動的平衡状態にあり、時刻 $t = 0$ で Na 中水素濃度がステップ状に変化した場合の Na 中水素計の応答について考える。 Ni 拡散膜内の水素は拡散によって移動すると考えられるため、拡散膜内の水素濃度 C の変化を一次元で表わすと、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (3.16)$$

となる。この拡散方程式を Na 中水素計のステップ応答の初期条件、境界条件で解き、

$$q_H = D \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)_{x=0} \quad (3.17)$$

より拡散膜表面における水素透過量を求めて、水素透過量の変化すなわち Na 中水素計出力の変化を求める

$$\frac{q_H(t) - q_H(0)}{q_H(\infty) - q_H(0)} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D}{d^2} t\right) \quad (3.18)$$

ここに $q_H(t)$: 任意の時刻における単位面積、単位時間

あたりの水素透過量 ($\text{torr} \cdot \text{cm}^3/\text{sec} \cdot \text{cm}^2$)

$q_H(0)$: $t = 0$ における

$q_H(\infty)$: $t = \infty$ における単位面積、単位時間
あたりの水素透過量 (torr · cm³ / sec · cm²)

D : 拡散係数 (cm² / sec)

(3.18) 式より、Na 中水素濃度のステップ状変化に対する Na 中水素計の応答が計算される。

3.2 調正試験

3.2.1 調正曲線

図 2.7 ~ 2.10 から明らかなように、バリアン型 Na 中水素計の調正曲線は PNC-MA PI 型水素計に比べてバラツキが少なく、イオンポンプ電流の値からかなり正確に Na 中水素分圧または Na 中水素濃度を推定することができる。これは、水素計の真空側が非常にコンパクトなこと、イオンポンプ・スペッタ面の処理、壁面からのガス放出が少ないことなどによると考えられる。

3.1.2 の (3.15) 式により、動的平衡状態における Na 中水素分圧あるいは Na 中水素濃度と真空系圧力あるいはイオンポンプ電流の関係を求めることができる。

$$P_{NH}^{\frac{1}{2}} = \frac{d \cdot S}{K \cdot A} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} P_e + \left\{ \frac{S}{C_{NH}} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} + 1 \right\}^{\frac{1}{2}} P_e^{\frac{1}{2}} \quad (3.15)$$

右辺第 1 項に比べて第 2 項は無視できる程小さいため、次式のように書ける。

$$P_{NH}^{\frac{1}{2}} = \frac{d \cdot S}{K \cdot A} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} P_e \quad (3.19)$$

また電離真空計圧力 P_e とその時のイオンポンプ電流 I_p の間には、図 2.11 (2.3.1 参照) の関係があり、これを式で表わすと次式となる。

$$P_e (\text{torr}) = 2.2 \times 10^{-7} \cdot I_p (\mu\text{A}) \quad (3.20)$$

また、Na 中水素分圧 P_{NH} と Na 中水素濃度 C_{NH} は (3.10)、(3.11) 式の関係があるから、 C_{NH} と I_p の関係を求めるとき次のようになる。

$$C_{NH} = K_H \left\{ \frac{d \cdot S}{K \cdot A} \cdot \frac{C_{IP}}{(S + C_{IP})} \cdot 2.2 \times 10^{-7} \cdot I_p \right\} \quad (3.21)$$

ここで I_p : μA

C_{NH} : ppm

(3.21) 式において、Ni 膜中の水素透過率 K は拡散係数 D と水素の Ni への溶解率 k

の積で表わされる⁽²⁾⁽⁴⁾が、拡散係数D、溶解率kおよび透過率Kの値についてEbisuzakiらは大気圧のもとで実験し、次のように報告している⁽¹³⁾。

$$D = 5.22 \times 10^{-3} \exp\left(\frac{-9560}{RT}\right) \quad (3.22)$$

ここに D : 拡散係数 (cm²/sec)

R : ガス定数 (cal/mole·°K)

T : Ni膜温度 (°K)

$$k = 3.26 \times 10^{-3} \exp\left(\frac{-3600}{RT}\right) \quad (3.23)$$

ここに k : 溶解率 (atoms/atom)

$$K = 2.58 \times 10^{-6} \exp\left(\frac{-13160}{RT}\right) \quad (3.24)$$

ここに K : 透過率 (g(H)/cm·sec)

水素ガス温度は真空系で常温になると考えてKの単位を変換すると、

$$K = 0.875 \exp\left(-\frac{13160}{RT}\right) \quad (3.25)$$

ここに K : cm² · torr^{1/2}/sec

で表わされる。(3.21)式に、(3.25)、(3.11)式を代入してNa中水素濃度C_{Na}とイオンポンプ電流I_Pの関係を求め、実験値(図2.8)と比較したものを図3.2に示す。ただし、バリアン型水素計のイオンポンプ排気速度SとコンダクタンスC_{IP}の正確な値が求まっていないため、S · C_{IP}/(S+C_{IP})の値を2ℓ/secとして計算した。

計算値と実際の較正曲線を比較すると測定した範囲での絶対値はほぼ同程度であるが勾配が異なっていることがわかる。計算値と実測値の勾配の違いは、透過係数がNi膜の温度のみでなく、水素分圧にも依存することを示している。透過率の圧力依存性については、第9報⁽¹³⁾に詳しく述べられている。

3.2.2 電離真空計の自己排気速度の効果

Na中水素分圧の測定において、充分注意しなくてはならないものに、電離真空計の自己排気速度の効果がある。電離真空計の排気速度は、フィラメントのエミッション電流により気体がイオン化され、真空系の壁面に付着することにより生じる。これは壁面への付着量が大となるに従がって脱着量がふえるため、見かけの排気速度は小さくなると考えられるが、エミッション電流が流れているかぎり、平衡圧測定程度の時間ではゼロとなるこ

とはないと考えられる。電離真空計に排気速度が存在する場合、拡散膜を通して拡散する水素量と、電離真空計で排気される水素量が平衡に達したところで圧力が一定となり、真の Na 中水素分圧より低い平衡圧力を与えることになる。この効果を評価するには、3.1 の(3.3)式の左辺をゼロと置くことにより、到達平衡圧を求めることができる。バリアン型 Na 中水素計の電離真空計(ミリトルゲージ)の場合、フィラメント部が小さい事、エミッション電流が $10 \mu\text{A}$ と小さい事、フィラメントの温度が低い事などによりかなり小さいと言われているが、定量的な評価は困難である。したがって本較正試験におけるフィラメントの排気速度は一応考へないこととし、4.2節において、一般的な定量評価を試みた。

3.2.3 Na 中水素計特性の経時変化

バリアン型 Na 中水素計は昭和 49 年 12 月に SWAT-2 装置に取り付けられ、間歇的な運転ではあるが、昭和 50 年 12 月まで試験された。その間には計 31 回の注水実験や数 10 回の平衡圧測定実験が含まれている。特に注水実験後は、Na 中水素濃度が上昇し、多量の水素がイオンポンプ内に蓄積される。

バリアン型水素計のイオンポンプの排気速度は、Na ガス換算で約 1 l/sec と小型であるため、上記のような多量の水素を排気する条件で使用すると、経時変化が表われると考えられる。この経時変化は、イオンポンプの水素ゲッター部の水素量が多くなるため、ゲッター部からの水素逆放出量が大きくなり、排気速度は変らなくてイオンポンプ電流が大きくなる現象で特長づけられる。

S W A T - 2 装置の注水実験履歴によると、昭和 50 年 9 月 18 日～19 日にかけて 7 回の注水実験(No. 108～No. 114)を行なった。この 7 回の注水実験の注水率は $8 \sim 14 \text{ g/sec}$ の範囲であり、総注水量は約 310 g であった。バリアン型水素計がそれまで経験した 10 回の注水実験の注水率の範囲、総注水量は各々 $0.28 \sim 4.5 \text{ g/sec}$, 210 g であり、この 7 回の注水実験で相当量の水素がイオンポンプ内に蓄積したと思われる。

また上記の大注水率の注水実験中、Na 中水素濃度は一定のもとで図 3.3 に示すようなイオンポンプおよびゲージの周期的な変動がしばしば観測された。この周期的な変動は、イオンポンプが多量の水素を吸いこんだため、ゲッター面が水素で過飽和状態になり、ゲッター面から真空系内への水素の逆放出が生じたためと考えられる。

このような水素濃度の高い状態で使用した後、Na 中水素分圧を測定した結果が表 2.2 の実験 No. 11A, B と 12A, B に示される。

このデータを、それ以前の Na 中水素分圧とイオンポンプ電流の関係(図 2.7)と比較したものを、図 3.4 中に▲印で示す。以前に比べて明らかにイオンポンプ電流が増加して

いることがわかる。

このことは、Na中水素計を使用する場合、イオンポンプがかなり水素を吸った時点での再び較正曲線をとる必要があることを示している。しかし、大容量のイオンポンプを使用すれば、再較正が必要になるまでの時間を長くすることは可能である。

3.3 Ni膜中の水素透過率の評価

金属Ni中の水素透過率は多くの研究者によって実験的に求められているが、その値は500°CのNiで、約 $3 \times 10^{-5} \sim 3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \cdot \text{torr}^{1/2}/\text{sec}$ と2オーダ程度のバラツキがある。これは金属中の水素透過が、金属の表面状態の影響を受けやすいこと、金属そのものの材質に依存することなどが原因と考えられる。また水素透過率が、特に圧力の低い場合、水素圧力(分圧)に依存するという報告もある¹⁴⁾¹⁵⁾¹⁶⁾¹⁷⁾¹⁸⁾。

Ni膜中の水素透過率を知ることは、Na中水素計の設計および特性試験に必要であるため、静的平衡圧測定時の圧力上昇率および動的平衡状態における特性から、Ni膜中の水素透過率を評価した。

3.3.1 静的平衡圧による透過率の評価

静的平衡圧測定における真空系圧力と時間の関係は、拡散膜における拡散遅れ時間と電離真空計フィラメントの自己排気能力を無視すると(3.9)式によって表わされる(3.1.1参考)。

$$\sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} + \ln \left(1 - \sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} \right) = - \frac{K \cdot A}{2 \cdot V \cdot d \cdot P_{NH}^{1/2}} \cdot t \quad (3.9)$$

従って、平衡圧測定時の圧力-時間の関係から、 $\sqrt{P/P_{NH}} + \ln \left(1 - \sqrt{P/P_{NH}} \right)$ とtの関係をプロットすればその傾きから透過率Kが求まる。この方法で透過率Kを求めた一例を図3.5に示す。時間が大きいところで直線からずれているのは、フィラメントの排気速度の影響によるものと考えられる。また、このようにして求めたKを用いて、(3.9)式により圧力Pと時間tの関係の計算値を測定値とともにプロットしたものの一例を図3.6に示す。この図でも同様に圧力が平衡圧に近づくに従って計算値と測定値がずれてくることがわかる。

以上の方法で各平衡圧測定実験より透過率を求めた。使用した値は、

$$A = 10 \text{ cm}^2$$

$$V = 70 \text{ cm}^3$$

$$d = 0.025 \text{ cm}$$

である。縦軸に透過率、横軸に Na 中水素分圧で整理したものを図 3.7 に○印で示す。図中の実線は、3.3.2 で述べられる動的平衡状態の特性から計算される透過率である。

透過率の絶対値は $10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{torr}^{1/2}/\text{sec}$ のオーダとかなり低い値となっているが、表 2.1 からわかるように(3.9)式の A, V, d の数値の誤差を考えると、値のとり方により ± 100% 程度の誤差があり、絶対値を議論するのはあまり意味がない。しかし、各データ間の相対的な関係は求められ、透過率に明らかな圧力依存性が求められる。

この水素透過率の圧力依存性については第 9 報⁽⁴⁾に詳しく検討されている。

3.3.2 動的平衡圧による透過率の評価

動的平衡状態においては、真空系圧力 P_e (電離真空計部圧力) と Na 中水素分圧 P_{NH} の間には(3.15)式の関係がある(3.1.2 参照)。

$$P_{NH}^{1/2} = \frac{d \cdot s}{K \cdot A} \cdot \frac{C_{IP}}{(s + C_{IP})} P_e + \left\{ \frac{s}{C_{MI}} \cdot \frac{C_{IP}}{(s + C_{IP})} + 1 \right\}^{1/2} P_e^{1/2} \quad (3.15)$$

(3.15)式を K について整理して

$$K = \frac{\frac{d \cdot s}{A} \cdot \frac{C_{IP}}{(s + C_{IP})}}{P_{NH}^{1/2} - \left\{ \frac{s}{C_{MI}} \cdot \frac{C_{IP}}{(s + C_{IP})} + 1 \right\}^{1/2} \cdot P_e^{1/2}} \quad (3.26)$$

となる。(3.26)式の分母において、第 1 項と第 2 項を比べると、第 2 項は第 1 項に対して無視できるため(3.26)式は次のように書ける。

$$K = \frac{\frac{d \cdot s}{A} \cdot \frac{C_{IP}}{(s + C_{IP})} P_e}{P_{NH}^{1/2}} \quad (3.27)$$

バリアン型水素計の場合、水素ガスについての C_{IP} (電離真空計—イオンポンプ間のコンダクタンス) と s (イオンポンプ排気速度) の値が正確にわかっていないが、隔離弁のコンダクタンスが水素に対して約 19 l/sec であり、連結配管のコンダクタンスを推算したうえ、 C_{IP} を 5 l/sec 程度と考え、 s をパラメータとして計算した。使用した値は、 $d = 0.025 \text{ cm}$, $A = 10 \text{ cm}^2$, $C_{IP} = 5000 \text{ cm}^3/\text{sec}$ である。また電離真空計圧力 P_e とその時のイオンポンプ電流 I_p の間には(3.21)式の関係がある。

$$P_e (\text{torr}) = 2.2 \times 10^{-7} \cdot I_p (\mu\text{A}) \quad (3.21)$$

さらに、動的平衡状態においては、Na 中水素分圧 P_{NH} とイオンポンプ電流の間には

(2.4)式の関係(2.3.1参照)があり、これを書き直すと、

$$I_p = 2.9 \times 10^2 \cdot P_{NH}^{0.7} \quad (3.28)$$

となる。したがって、(3.21)、(3.28)式とd、A、C_{IP}の値を(3.27)式に代入すると、

$$K = \frac{8.0 \times 10^{-4} \cdot S}{(S + 5000)} \cdot P_{NH}^{0.2} \quad (3.29)$$

となり透過係数KとNa中水素分圧P_{NH}の関係が求まる。(3.29)式で求められた関係を、イオンポンプ排気速度Sをパラメータとして、図3.7に実線で示す。

透過係数の絶対値は、使用した値が不正確なため評価できないが、透過係数の圧力依存性は、圧力上昇率から求めたものと比較すると勾配が少し異なる。特にNa中水素分圧の低い領域(<~2×10⁻³ torr)でこの差が大きい。この原因はよく判らないが、圧力の低いところでは、拡散遅れ時間が大きいことが影響して圧力上昇率が小さくなり、それから求められる透過率が小さくなっているのも一因と考えられる。

3.4 応答試験

拡散膜部に表われたNa中水素濃度のステップ状変化に対する水素計の応答は(3.18)式によって計算される。

またNa-水反応点から水素計拡散膜まで、反応生成物(水素)が輸送される過程における反応生成物の混合の効果、すなわちステップ状変化の輸送過程でのなり、およびそれに対する水素計の応答については、SWAT-2装置の体系において第4報⁽⁴⁾において検討されている。

バリアン型Na中水素計において、拡散膜部にステップ状の水素濃度変化があった場合の応答を(3.18)式で計算すると、図3.8のようになる。拡散膜部温度500°Cの場合、応答の立ち上りは2~3秒遅れることがわかる。注水実験での拡散膜の応答遅れは2.3.2で述べたように数秒以内と評価され、この計算と良く一致する。なお(3.18)式の拡散係数DとしてはEbisuzakiらの(3.22)式を用いた。このほか応答試験の結果からいえることは、2.3.2でも述べたように図2.12と図2.14のバリアン型水素計のイオンポンプ電流の応答を比較すると、注水前のNa中水素濃度が低い場合の方が格段に良い応答を示すことがわかる。したがってこのことからも小リーキ検出器としてNa中水素計を用いる場合には、バックグラウンドNa中水素濃度を低くした方が有利であるということは明らかである。

3.5 他研究機関との比較

SWAT-2 装置に取り付けられているような拡散膜型 Na 中水素計は、各国で試験が行なわれており、リーク検出方法としてはもう確立された技術といつてもよい。本節では各国の Na 中水素計の仕様と、その較正試験結果について比較した。

米国においては、LMEC (Liquid Metal Engineering Center) の SCTI (Sodium Components Test Installation) において、実際の SG ループに Na 中水素計を取り付け、蒸気注入を含む種々の試験が行なわれている⁽²²⁾。この水素計には 2 つの型があり、一つは Water Leak Detector と呼ばれるもので、Ni 拡散膜とイオンポンプからなる簡単な構造のものである。もう一つは Hydrogen Activity Meter と呼ばれるもので、バリアン型 Na 中水素計と同じように拡散膜、イオンポンプ、電離真空計、隔離弁などから成り、動的および静的の 2 つのモードでの運転が可能である。これらは ANL で開発されたものであり、その概略図を図 3.9 に、Water Leak Detector (2 種類) の仕様を表 3.1 に示す。

Water Leak Detector のイオンポンプ電流と、Na 中水素濃度の関係（較正曲線）を図 3.10 に示す。バリアン型 Na 中水素計と同様に、イオンポンプ電流は Na 中水素濃度の一乗に比例せず、その勾配もよく一致している。

フランスにおいては、フェニックス炉の蒸気発生器系に拡散膜型 Na 中水素計を取り付けて試験を行なっている⁽²²⁾⁽²³⁾。Na 中水素計の拡散膜は、面積：226 cm²、厚さ：0.3 mm で、外径 7.2 mm のエルボ型をした管 4 本からなっている。イオンポンプの排気速度は 200 l/sec で真空系センサとして四重極質量分析器を使用している。

フェニックス炉の Na 中水素計の質量分析器出力と Na 中水素濃度の関係（較正曲線）を図 3.11 に示す。質量分析器の出力は、拡散水素量に比例するものであるから、バリアン型または ANL 型水素計のイオンポンプ電流に対応するものである。フェニックス炉の Na 中水素計の場合、質量分析器出力は、Na 中水素濃度の 1.13～1.49 乗に比例し、その平均値は 1.26 乗であると報告している。このことは、Na 中水素濃度 C_{Na} が質量分析器出力（あるいはイオンポンプ電流の $\frac{1}{1.26}$ 乗 (≈ 0.8 乗) に比例することを示し、本実験結果の勾配と大体一致する。

SNR-300 炉用の Na 中水素計はオランダの TNO により開発され、Hengelo の 50 MW 蒸気発生器取り付けられて試験されている⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾。初期の評価において 4 つの型の拡散膜型 Na 中水素計を試験し、総合的な性能としては、真空系センサとしてイオンポンプを使用したもののが最もよいと報告している⁽²⁶⁾。この報告において試験されたイオンポンプ型 Na 中水素計は、図 3.12 に示すようなもので、拡散膜として指型の Ni 管を使用し、その面積は 16 cm²、膜厚は 0.4 mm である。イオンポンプの排気速度は 25 l/sec であり電離真空計と隔

離弁はない。この水素計の較正は、Na ループ中に既知量の水素ガスを吹き込んで行なっている。しかし初期水素濃度や溶解度が不明のため、正確な較正曲線は求まっておらず、それらの値を適当に推定して図 3. 13 のような較正曲線を得ている。この較正曲線は Na 中水素濃度とイオンポンプ電流が大体比例しているが、上にも述べたように水素濃度の値が正確に測定されていないためあまり正確ではない。

この較正試験における、水素注入時の水素計の応答を図 3. 14 に示す。SWAT-2 装置のバリアン型 Na 中水素計の注水実験時の応答（図 2. 12）と極めて良く似ている。

以上初期の SNR-300 炉用水素計について述べたが、現在は図 3. 15 のような 静的平衡圧も測定可能である水素計を使用している。

4. 水素計設計上考慮すべき効果

本章では、今まで SWAT-2 装置で使用されて来た 2 つの Na 中水素計の使用経験をもとに、Na 中水素計の問題点について検討し、この型の水素計の設計上注意すべき 2 ~ 3 点について述べる。その他の一般的な設計法、たとえば拡散膜面積、同厚さ、イオンポンプ排気速度の選び方など、について第 10 報²⁶⁾を参照されたい。

4.1 真空系壁面からのガス放出量

真空系壁面からのガス放出量は、動的モードで運転する場合のイオンポンプ電流のバックグラウンド値を規定するものであるが、拡散膜からの拡散水素量に比べて十分低く抑えることは可能であり、動的モードにおいてはそれほど影響はないと考えられる。

しかし、静的平衡法によって Na 中水素分圧を測定する場合、Na 側から拡散する水素は時間とともに平衡に達して一定圧力になるのに対し、真空系壁面からのガス放出量はほぼ一定と考えられるため、時間とともに増加する。したがって、特に低い Na 中水素分圧測定の場合、壁面からのガス放出による誤差に十分注意する必要がある。

そこで低 Na 中水素分圧測定時における放出ガスによる誤差評価をし、さらに Na 中水素計の設計において考慮すべき点について言及する。Na 中水素分圧測定時における真空系の水素圧力上昇は、拡散膜における拡散遅れ時間と電離真空計フィラメントの自己排気速度を無視すると、(3.2) 式の右辺第 2 項をゼロとした式を解くことにより(3.9) 式で表わされる。

$$\sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} + \ln \left(1 - \sqrt{\frac{P}{P_{NH}}} \right) = - \frac{K \cdot A}{2 \cdot V \cdot d \cdot P_{NH}^{1/2}} \cdot t \quad (3.9)$$

記号、単位については巻末記号表参照のこと。

また、その時の壁面からのガス放出による圧力上昇率は次式で与えられる。

$$\frac{dP}{dt} = \frac{A_{vac} \cdot q^*}{V} \quad (4.1)$$

ここに A_{vac} : 真空系壁面々積 (cm^2)

q^* : 壁面からのガス放出率 ($\text{torr} \cdot \text{cm}^3 / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)

したがって、Na 中水素分圧測定における誤差を評価するためには、(3.9) 式により分圧測定に要する時間を求め、(4.1) 式よりその時間に対するガス放出による圧力増加を求めて比較すればよい。ここで仮に、真空系水素圧力が Na 中水素分圧の 98 % ($P/P_{NH} = 0.98$) になる時間を平衡圧測定時間とし、Na 中水素分圧の下限として 10^{-4} torr (Na 中水素濃度約

50 ppb)まで測定する場合を考える。Ni膜の水素透過率としては、Ebisuzaki らによる値(3.25)式を使用し、Ni膜温度は500°Cとして計算する。(3.9)式に $P/P_{NH} = 0.98$, $P_{NH} = 10^{-4}$ torr, $K = 1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{torr}^{1/2}/\text{sec}$ を代入して整理すると次のようになる。

$$\frac{A}{V \cdot d} t = 4.57 \times 10^2 \quad (4.2)$$

q^* を一定と仮定して、(4.1)式を解き、ガス放出による水素分圧測定誤差を5%(5×10^{-6} torr)まで許容するとすれば

$$P = \frac{A_{vac} \cdot q^*}{V} t < 5 \times 10^{-6} \quad (4.3)$$

となり、(4.2), (4.3)式より t を消去すると低分圧測定時の水素計仕様の条件が求まる。

$$\frac{A_{vac} \cdot q^* \cdot d}{A} < 1.1 \times 10^{-8} \quad (4.4)$$

この関係よりガス放出率 q^* をパラメータにして、壁面々積 A_{vac} と拡散膜の面積と厚さの比 A/d の関係を図4.1に実線で示す。また、その時の A/d に対して(4.2)式より求まる平衡圧測定時間を、真空系容積 V をパラメータにして図4.1に破線で示す。

Na中水素計の A/d が定まると、真空系壁面々積 A_{vac} の値から壁面のガス放出率の値をどの程度に抑えなくてはならないか、あるいはガス放出率の値を知って壁面々積をどの程度まで大きくできるかが求まる。また、真空系容積が定まれば、Na中水素分圧が約 10^{-4} torrの場合の平衡圧測定時間が求まる。ただし、図4.1は透過率として Ebisuzaki らの値を用いており、Na中の水素に対する透過率が本試験結果(図3.7参照)のように小さければ関係が異なってくることに注意しなくてはならない。

4.2 電離真空計フィラメントの排気速度

電離真空計はフィラメント部での放電により水素ガスがイオン化され、容器壁に吸着することによって排気速度を持つことが指摘されている²⁷⁾。この排気速度は、一般的に言ってフィラメントのエミッション電流を小さくすること、フィラメントの温度を下げること、放電部を小さくすることなどによって小さくすることができます。

このフィラメントによる排気速度の効果は、動的モードにおいてはイオンポンプ排気速度が大きいため無視できるが、平衡圧測定時には到達平衡圧に大きな影響を与える。

フィラメントに排気速度を考慮した場合の到達平衡圧 P_{eq} は、壁面からのガス放出を無

視すれば、(3.7)式の左辺をゼロとすることにより与えられる。

$$\frac{K \cdot A}{d} \left(P_{NH}^{\frac{1}{2}} - P_{EQ}^{\frac{1}{2}} \right) = S_F \cdot F_t \cdot P_{EQ} \quad (4.5)$$

(4.5)式より P_{NH} を求めると

$$P_{NH} = \left(P_{EQ}^{\frac{1}{2}} + \frac{d \cdot S_F \cdot P_{EQ}}{K \cdot A \cdot F_t} \right)^2 \quad (4.6)$$

となり、 S_F がゼロでないかぎり、測定平衡圧 P_{EQ} は右辺第2項ぶんだけ誤差を含むことになる。右辺第2項の d , S_F , K , A を定数と考えると、 P_{EQ}/F_t は Na 中水素分圧 P_{NH} が大きくなるに従って大きくなる。すなわち、大きな Na 中水素分圧を測定するほど大きな誤差をもつことになる。この誤差を評価するため、 $d \cdot S_F / K \cdot A (= M)$ をパラメータとして、 P_{NH} と P_{EQ} の関係を求めたものが図 4.2 である。なおサーマルトランスピレーション値 F_t は 1 として計算した。縦軸は静的平衡法により測定された Na 中水素分圧であり、横軸は真の Na 中水素分圧である。Na 中水素分圧が大きい程フィラメント排気速度の影響が大きくなり、測定圧は真の Na 中水素分圧 ($M = 0$ の線) からずれてくる。また M の値が大きい程、誤差が大きくなっている。

このように静的平衡法による Na 中水素分圧測定において、電離真空計フィラメントの排気速度を考慮した場合、高い Na 中水素分圧で誤差が大きくなる。そこで 1 torr の Na 中水素分圧 (Na 中水素濃度約 5 ppm) を、フィラメント排気速度による誤差を 5 % 以内に抑えて測定したい場合に Na 中水素計に要求される仕様について検討する。水素分圧が 1 torr 程度であれば図 2.6 または (3.6) 式より $F_t = 1.0$ になるため、(4.6) 式に $P_{NH} = 1 \text{ torr}$, $F_t = 1.0$, $P_{EQ} > 0.95 \text{ torr}$ を代入して整理すると次式のようになる。

$$\frac{A}{d} \cdot \frac{K}{S_F} \geq 37.5 \quad (4.7)$$

この関係を図 4.3 に示す。この図より Na 中水素分圧 1 torr を 5 % の誤差で測定する場合に許されるフィラメント排気速度の上限が求められる。たとえば、Ni 拡散膜の水素透過率を $2 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{torr}^{\frac{1}{2}}/\text{sec}$ とすれば、フィラメントの排気速度 $0.01 \text{ cm}^3/\text{sec}$ の場合で A/d を 2,000 以上に、 $0.1 \text{ cm}^3/\text{sec}$ の場合は 20,000 以上にしなくてはならない。これは拡散膜厚さを 0.5 mm とすると、拡散膜面積はそれぞれ 100 cm^2 , 1000 cm^2 となる。拡散膜面積は設計上それほど大きくとれないため、フィラメントの排気速度は拡散膜型 Na 中水素計の設計に大きな影響を与えるといえる。

以上のように、Na中水素計による静的平衡圧測定において、壁面からのガス放出は低平衡圧測定時の設計条件を決め、フィラメントの排気速度は高平衡圧測定時の設計条件を決定する。従ってNa中水素計の設計においては、上記2つの効果も含めて系の最適化を計らねばならない。

5. まとめ

SWAT-2 装置における、バリアン型および PNC-MAPI 型 Na 中水素計の動的、静的平衡法による試験および応答試験の結果、つぎのことことが言える。

(1) 静的、動的平衡法による試験

- (i) 静的平衡圧測定により、Na 中水素計出力と Na 中水素濃度の関係（較正曲線）が求まり、Na 中水素濃度の監視が可能である。
- (ii) 較正試験の結果、Na 中水素濃度 C_{NH} と Na 中水素計出力 G の関係は、計算より予想される比例関係ではなく、 $C_{NH} \propto G^{0.72 \sim 0.75}$ という関係にある。これは Ni 膜中の水素透過率が圧力依存性を持つためと考えられる。
- (iii) このような現象は、米国の SCTI や仏のフェニックス炉の Na 中水素計でも観察されている。
- (iv) バリアン型と PNC-MAPI 型水素計の較正曲線を比較した場合、バリアン型の方がデータのばらつきが少ない。
- (v) バリアン型水素計の場合、高 Na 中水素濃度下で長時間使用した結果、イオンポンプが水素を吸いすぎて圧力-電流特性が変化（経時変化）し、較正曲線からのずれが観察された。
- (vi) 静的平衡圧測定時の圧力上昇を、準定常状態と考えて、透過率を求め、動的平衡状態から求めた値と比較した。この透過率の絶対値は水素計諸元が正確にわかっていないため評価できないが、透過率の圧力依存性は確認できた。

(2) 応答試験

- (i) 注水開始から両 Na 中水素計の応答開始までの時間は約 40 秒前後でほとんど同程度である。注水点から Na 中水素計までの Na の輸送時間が 40 秒たらざると考えられるため、拡散膜による応答遅れは数秒程度と考えられる。
- (ii) 注水後の水素計（特にバリアン型）の応答は、予想される Na 中水素濃度の変化と良く対応している。
- (iii) バリアン型と PNC-MAPI 型の水素計の応答を比較すると、感度はバリアン型の方が良好である。これは、バリアン型の構造がコンパクトであり、拡散膜厚が小さいことが主な理由であると考えられる。

(3) その他

- (i) 静的平衡法によって、特に低い Na 中水素分圧を測定する場合、壁面からのガス放出による誤差を最小にするよう注意しなくてはならない。これは、真空系内面の表面処理や真

空系の設計における壁面々積と体積の比のとり方などによって小さくすることができる。

- (ii) 静的平衡法によって N_a 中水素分圧を測定する場合、電離真空計フィラメントの排気速度に十分注意する必要がある。フィラメントの排気速度があると、到達平衡圧力は真のN_a 中水素分圧より小さい値を示す。
- (iii) フィラメント排気速度の効果を小さくするためには、真空系の設計において拡散膜面積と拡散膜厚さの比を大きくする方が良い。
- (iv) フィラメント排気速度を一定と仮定すると、測定する N_a 中水素分圧が大きい程誤差が大きくなる。

以上の問題については、今後さらに確認する必要がある。

記 号 表

A	: 拡散膜面積	(cm ²)
A _{VAC}	: 真空系表面積	(cm ²)
C _{IP}	: 電離真空計—イオンポンプ間のコンダクタンス	(cm ³ / sec)
C _{MI}	: 拡散膜—電離真空計間のコンダクタンス	(cm ³ / sec)
C _{NH}	: Na 中水素濃度	(ppm)
D	: 拡散膜の水素拡散係数	(cm ² / sec)
D _P	: 真空系配管内径	(cm)
d	: 拡散膜厚さ	(cm)
F _t	: サーマルトランスピレーション値	(—)
I _P	: イオンポンプ電流	(μA)
K	: 拡散膜の水素透過率	(cm ² · torr ^{1/2} / sec)
K _H	: Sieverts 定数	(ppm · torr ^{1/2})
P	: 真空系拡散膜部圧力	(torr)
P _G	: 電離真空計部圧力	(torr)
P _{IP}	: イオンポンプ部圧力	(torr)
P _{NH}	: Na 中水素分圧	(torr)
Q _H	: 拡散膜の水素透過量	(torr · cm ³ / sec)
Q [*]	: 真空系壁面からのガス放出量	(torr · cm ³ / sec)
q _H	: 拡散膜単位面積、単位時間当たりの水素透過量	(torr · cm ³ / sec · cm ²)
q [*]	: 真空系壁面単位面積当たりのガス放出率	(torr · cm ³ / sec · cm ²)
S	: イオンポンプ排気速度	(cm ³ / sec)
S _F	: 電離真空計 フィラメントの自己排気速度	(cm ³ / sec)
T _G	: 電離真空計部温度	(°C)
T _{Na}	: Na 温度	(°C)
T _{NH}	: 拡散膜温度	(°C)
t	: 時間	(sec)
V	: 拡散膜—隔離弁間の真空系容積	(cm ³)

参 考 文 献

- (1) 根井, 大内, 大島, 堀 「小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第1報, 試験装置の概要」SN 941 72-08 (1972)
- (2) 根井, 大内, 氏原, 大島
井上, 堀 「小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第2報, リーク検出計の特性試験」SN 941 72-14 (1972)
- (3) 根井, 氏原, 大内, 大島
井上, 堀 「小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第3報, 蒸気ウェス
テージと検出計の応答」SN 941 72-02 (1973)
- (4) 根井, 氏原, 大内, 橋口
大島, 井上, 堀 「小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第4報, 蒸気ウェス
テージと検出計の応答」SN 941 74-45 (1974)
- (5) 根井, 氏原, 大内, 橋口
大島, 井上, 堀 「小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第5報, 音響式検出
器」SN 941 74-70 (1974)
- (6) 高石 「サーマル・トランスピレーションについて」真空第6卷第9
号(昭38)
- (7) S, A, Meacham et.al, "The Solubility of Hydrogen in Sodium" APDA-241 (1970)
- (8) A, C, Whittingham, "The Liquid Sodium-Hydrogen System Equilibrium and Kinetic Measurements in the Temperature Range 610-677K" CEGB RD/B/N 2550 (1974)
- (9) D, R, Vissers et.al., "A Hydrogen-Activity Meter for Liquid Sodium and Its Application to Hydrogen Solubility Measurements" Nuclear Technology Vol. 21, (Mar 1974)
- (10) 熊谷, 富永 「真空の物理と応用」物理学選書11, 蔦華房 (1970)
- (11) D, R, Vissers et.al., "A Hydrogen Monitor for Detection of Leaks in LMFR Steam Generators" Nuclear Technology, Vol, 12, (Oct. 1971)
- (12) H, S, Carslaw, J, C, Jaeger "Conduction of Heat in Solids" Oxford at the Clarendon Press (1971)
- (13) Y, Ebisuzaki et.al., "Diffusion and Solubility of Hydrogen in Single Crystals of Nickel and Nickel-Vanadium Alloy" J, Chem, Phys., Vol. 46, No4 (1967)
- (14) R, W, Webb "Permeation of Hydrogen Through Metals" NAA-SR-10462 (1965)

- (15) 吉田, 増井 「金属材料の水素透過について」日本金属学会会報第 11 卷 7 号 (1972)
- (16) C.J. Smithells et.al., "The Diffusion of Gases through Metals" Proc. Roy. Soc. P 172 (1935)
- (17) P. Roy et.al., "Characterization of a Diffusion Tube Hydrogen Detector in a Dynamic Sodium System" Nuclear Technology Vol. 12 (1971)
- (18) R.A. Strehlow, H.C. Savage "The Permeation of Hydrogen Isotopes Through Structural Metals at Low Pressures and Through Metals With Oxide Film Barriers" Nucl. Technol. Vol. 22 (1974)
- (19) 鐘ヶ江, 池本, 橋口, 堀 「Ni 膜型水素検出計設計における水素透過率の圧力依存性に関する考察—小リーク・ナトリウム・水反応試験研究 9 報」 SN 941 76-29 (1976)
- (20) J.M. Mackee, L.E. Pohl "Use of In-Sodium Hydrogen Detectors During Steam Generator Tests in the SCTI" ANS Meeting (1974)
- (21) J.M. Mackee, W.R. Simmons "Evaluation of Steam-to-Sodium Leak Detectors in the Sodium Components Test Installation (SCTI)" IAEA Bensberg Mtg. (1974)
- (22) N. Lions et.al., "Special Instrumentation for Phenix - Part III - Hydrogen Detection" Int. Conf. Fast Reactor Power Station, London, (1974)
- (23) E. Cambillard et.al., "Tests Carried Out on the Phenix Steam Generator Leak Detection Systems" IAEA Bensberg Mtg. (1974)
- (24) M. Hissink "Evaluation of Monitoring Instruments for Hydrogen in Sodium" SR-TN/7005-31 (1970)
- (25) M. Hissink "Leak Detection in Steam-Generators with Hydrogen Monitors Using Diffusion Membrane" IAEA Bensberg Mtg. (1974)
- (26) 鐘ヶ江, 池本, 橋口, 堀 「Ni 膜-イオンポンプ型 Na 中水素計における Ni 膜および真空部最適設計法—小リーク・ナトリウム・水反応試験研究第 10 報」 SN 941 76-30 (1976)
- (27) J.H. Singleton "Errors in Pressure Measurement and Impurity Generation in Hydrogen Using Bayard-Alpert Ionization Gauges" J. Vac. Sci. Technol., Vol. 4, No 3 (1966)

表2.1 PNC-MAPI型およびバリアン型水素計の仕様比較

	項 目	PNC-MAPI型	バ リ アン 型
拡 散 膜	材 質	Ni	270grade Ni
	形 状	円 筒 形	半 球 形
	厚 さ (cm)	0.05	0.025±20%
	面 積 (cm ²)	100 (16φ ×200)	10 ±10%
電離真空計	型 式	B-Aゲージ シュルツゲージ	ミリトルゲージ
	測定範囲 (torr)	10 ⁻⁴ ~ 10 ⁻⁹	10 ⁻⁵ ~ 10 ⁻¹ 10 ⁻⁶ ~ 0.6
	エミッション電流 (μA)	4000	20 10 (2~100可変)
イオンポンプ	型 式	スパッタ・イオンポンプ	スパッタ・イオンポンプ
	排 気 速 度 (ℓ/sec)	16 (H ₂)	~1 (N ₂)
	作 動 電 壓 (KV)	5.2	3.5
真 空 系 仕 様	配 管 内 径 (mm)	52.7	15
	膜一隔離弁容積 (cm ³)	~2700 ^{注3)}	~70 ^{注1)}
	隔離弁コンダクタンス (ℓ/sec)		5 (N ₂)
使 用 条 件	拡 散 膜 温 度 (°C)	~500 ^{注2)}	
	N ₂ 流 量 (ℓ/min)	~10	

注1) 形状から推定

注2) 主要使用温度

注3) 真空系全容積

表2.2 バリアン型Na中水素計較正試験結果

試験 No.	試験日	拡散膜 温 度 T_{Ni} (°C)	コールド トラップ 温 度 (°C)	Na中水素分圧 指示値 P_{GI} (torr)	Na中水素 分圧 P_{NH} (torr)	Na中水素 濃度 C_{NH} (ppm)	イオン ポンプ 電流 I_p (μA)
1A	4/25/75	502	199	9.7×10^{-3}	4.0×10^{-2}	1.00	32
1B	〃	502	198	9.5×10^{-3}	3.9×10^{-2}	0.99	31
1C	〃	502	199	9.4×10^{-3}	3.9×10^{-2}	0.99	31
1D	4/26/75	502	199	9.2×10^{-3}	3.8×10^{-2}	0.98	33
1E	〃	502	198	9.0×10^{-3}	3.8×10^{-2}	0.97	32
2A	〃	502	173	2.1×10^{-3}	1.0×10^{-2}	0.50	11
2B	〃	502	172	1.9×10^{-3}	9.2×10^{-3}	0.48	10
2C	〃	502	170	1.8×10^{-3}	8.8×10^{-3}	0.47	10
3A	7/ 1/75	500	150	6.0×10^{-4}	3.1×10^{-3}	0.28	4.35
3B	〃	500	148	5.5×10^{-4}	2.85×10^{-3}	0.27	4.4
3C	7/ 2/75	500	150	5.4×10^{-4}	2.8×10^{-3}	0.265	4.4
4A	〃	500	128	3.0×10^{-4}	1.6×10^{-3}	0.20	3.0
4B	〃	500	128	3.1×10^{-4}	1.63×10^{-3}	0.202	2.9
4C	〃	500	127	2.7×10^{-4}	1.43×10^{-3}	0.19	2.9
5A	7/ 3/75	500	115	6.9×10^{-5}	3.7×10^{-4}	0.099	1.15
5B	7/ 4/75	500	114	6.2×10^{-5}	3.4×10^{-4}	0.094	—
5C	〃	500	114	6.0×10^{-5}	3.2×10^{-4}	0.092	—
6A	〃	500	130	1.05×10^{-4}	5.65×10^{-4}	0.12	1.8
6B	7/ 5/75	500	130	1.03×10^{-4}	5.5×10^{-4}	0.12	1.65
6C	〃	500	130	1.0×10^{-4}	5.4×10^{-4}	0.118	1.51
7A	〃	500	150	3.2×10^{-4}	1.7×10^{-3}	0.21	3.65
7B	〃	500	148	3.2×10^{-4}	1.7×10^{-3}	0.21	3.7
7C	〃	500	147	3.2×10^{-4}	1.7×10^{-3}	0.21	3.6
8A	9/17/75	500	200	1.2×10^{-2}	4.9×10^{-2}	1.1	37.5
8B	9/18/75	500	200	1.2×10^{-2}	4.9×10^{-2}	1.1	34
9A	〃	500	165	1.3×10^{-3}	6.6×10^{-3}	0.405	8.7
9B	〃	500	165	1.28×10^{-3}	6.4×10^{-3}	0.40	8.2
10A	〃	500	120	1.8×10^{-4}	9.6×10^{-4}	0.155	2.3
11A	11/13/75	500	113	1.4×10^{-4}	7.5×10^{-4}	0.14	2.8
11B	〃	500	113	1.35×10^{-4}	7.3×10^{-4}	0.135	2.4
12A	11/14/75	(510)	215	3.3×10^{-2}	1.14×10^{-1}	1.8	180
12B	〃	(510)	215	3.2×10^{-2}	1.14×10^{-1}	1.74	170

表3.1 ANLNa中水素計の仕様 (20)

	項 目	Type I	Type II
Ni 拡散 膜	面 積 (cm^2)	8.86	31.6
	厚 さ (cm)	0.0229	0.0254
	温 度 ($^{\circ}\text{F}$)	900	950
感 度	電流／濃度 ($\mu\text{A}/\text{ppbH}$) (4-2-73)	0.06	0.24
	電流／濃度 ($\mu\text{A}/\text{ppbH}$) (9-20-73)	0.05	0.21
	検出可能濃度変化(ppbH)	~3	~1.5
	ノイズレベル (μA)	± 0.1	± 0.2

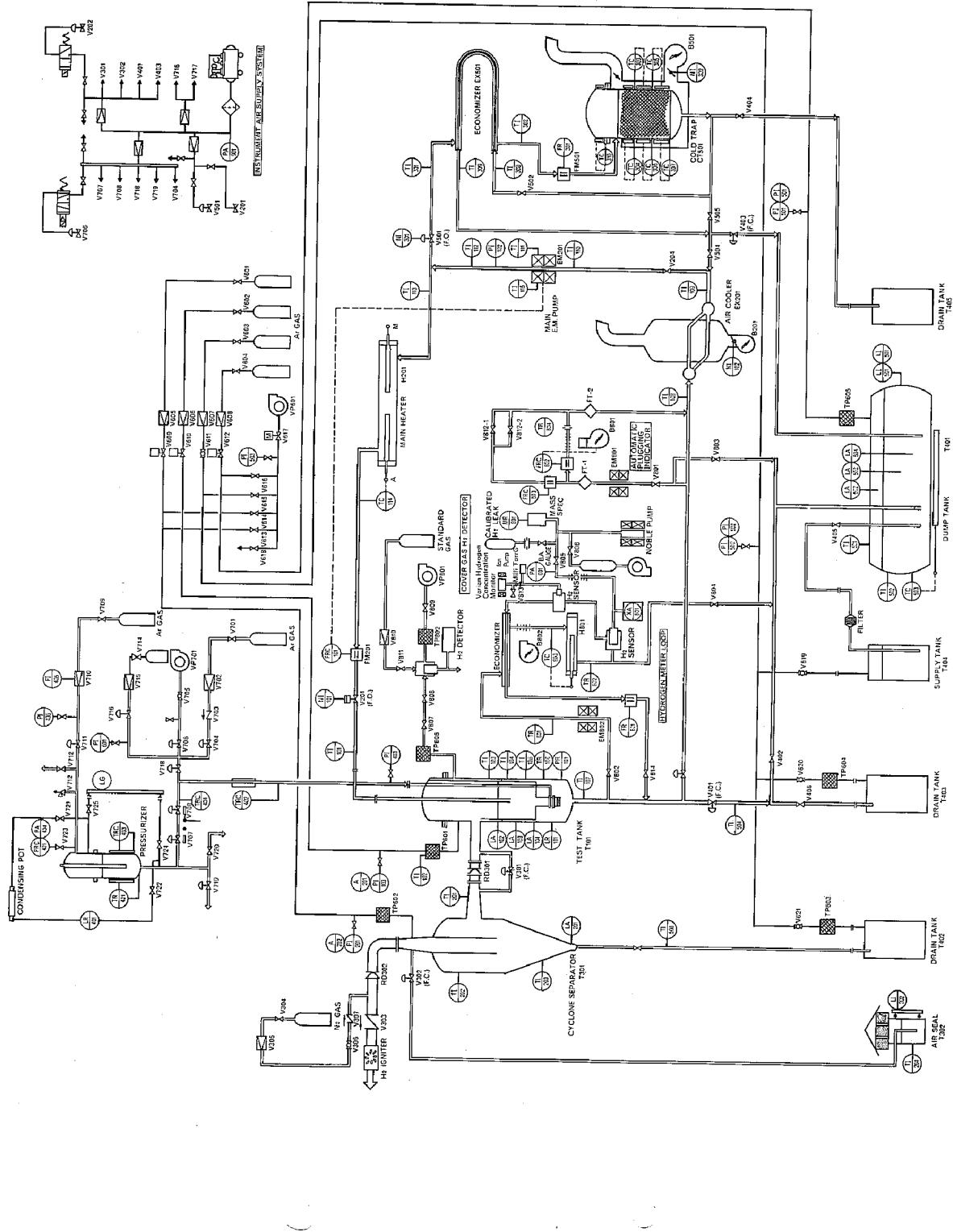


図 II-2.1 小リーケ・ナトリウム・水反応試験装置 (SWAT-2) 系統図

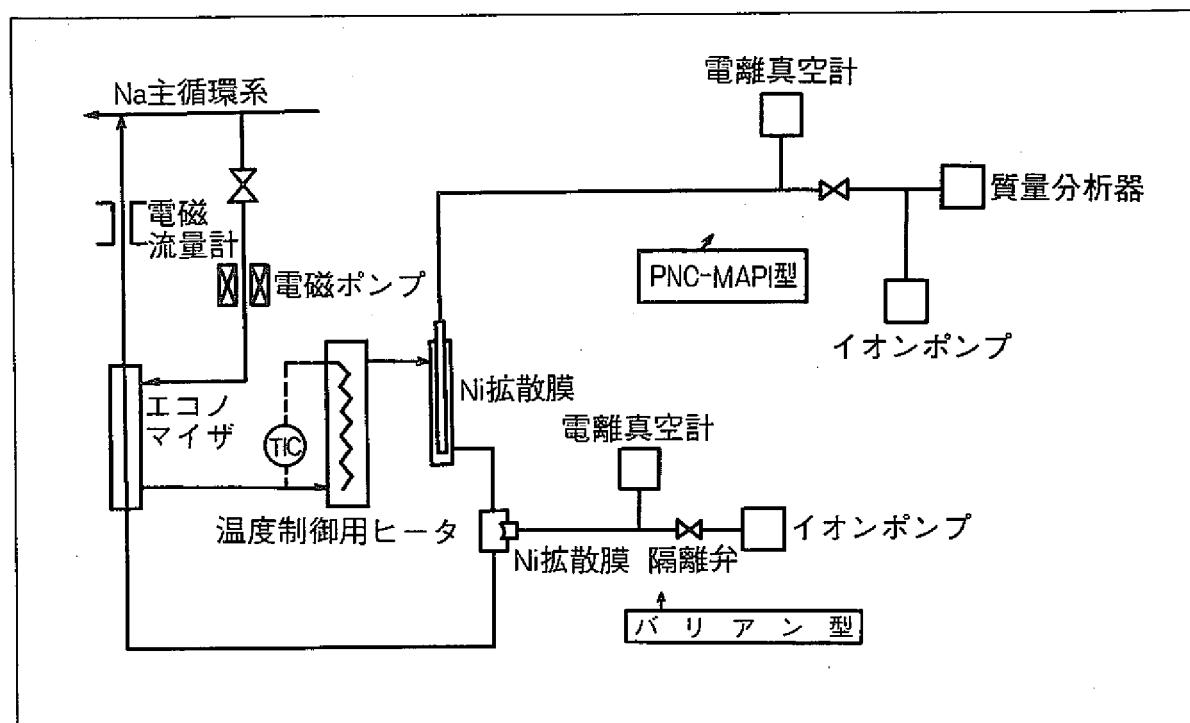


図2.2 SWAT-2装置Na中水素計ループ

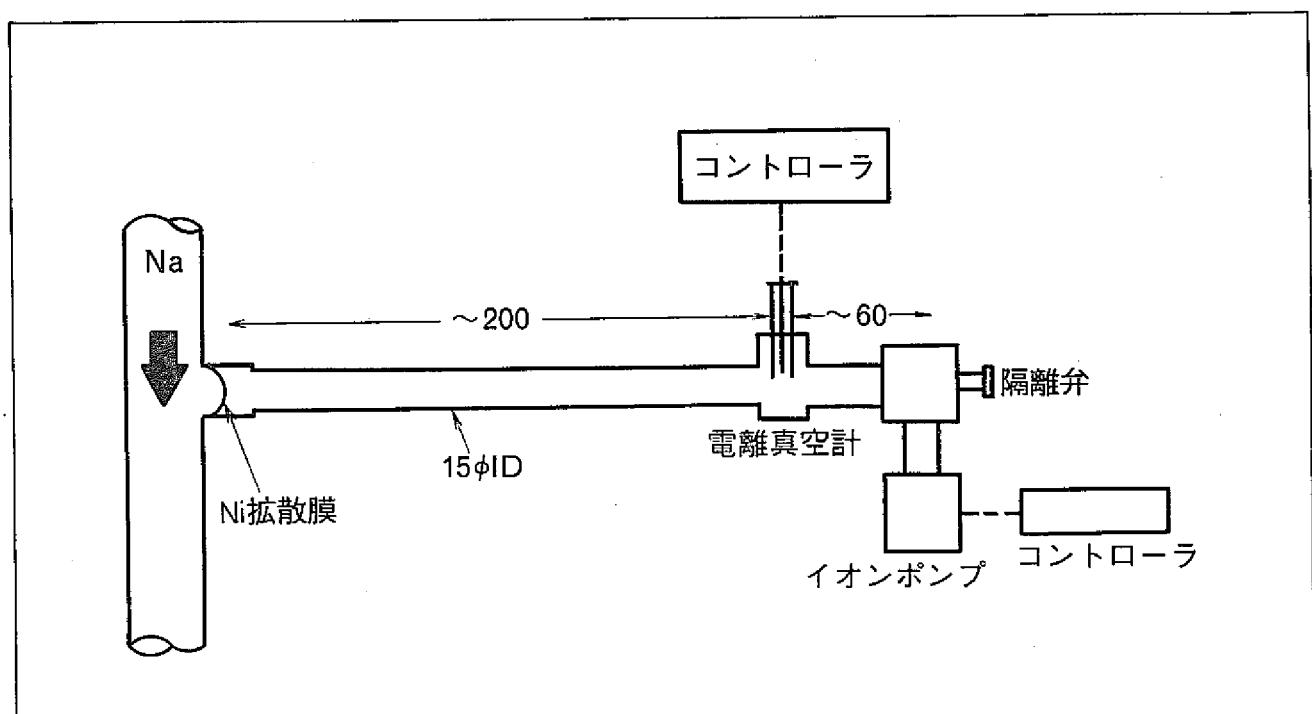


図2.3 バリアン型Na中水素計概略図

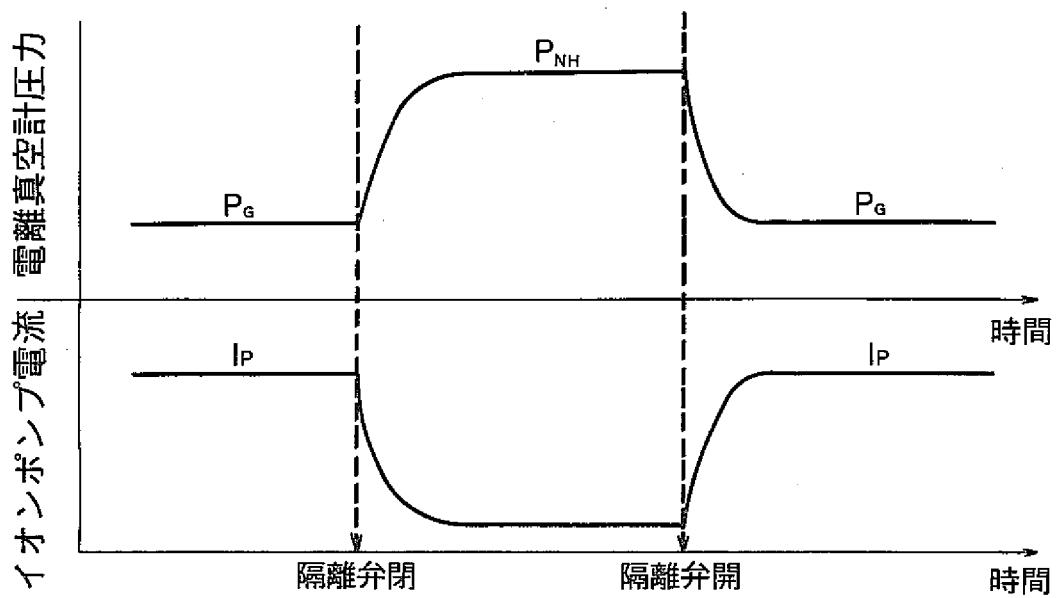


図2.4 静的および動的平衡法によるNa中水素分圧の測定

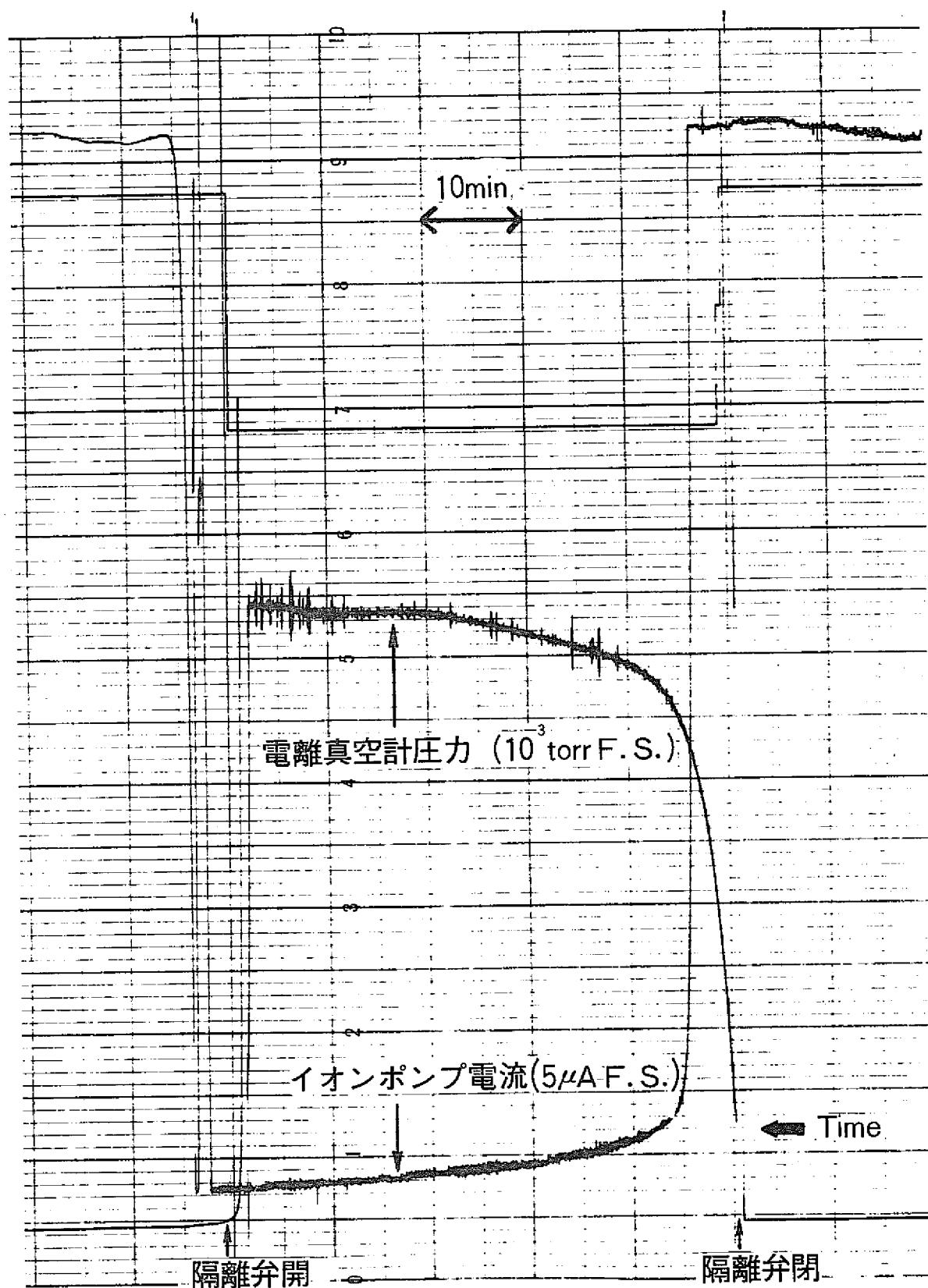


図2.5 平衡圧測定例 (記録紙)

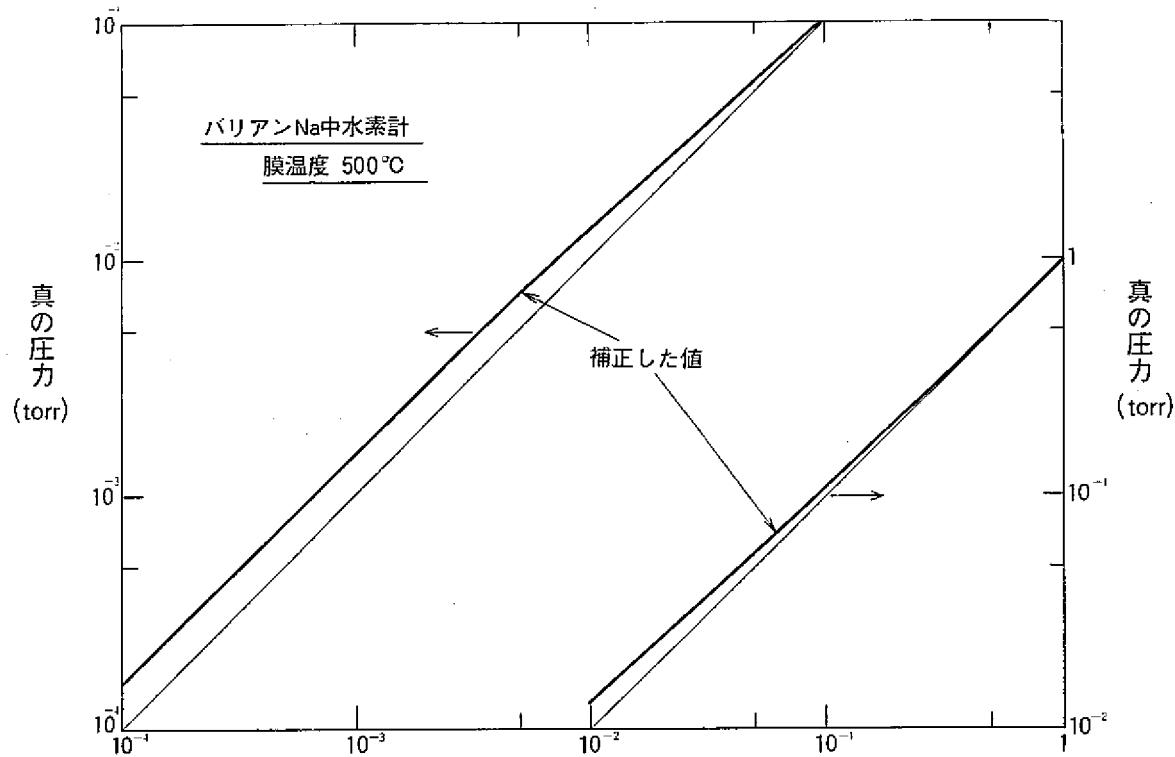


図2.6 サーマルトランスピレーションによる圧力補正

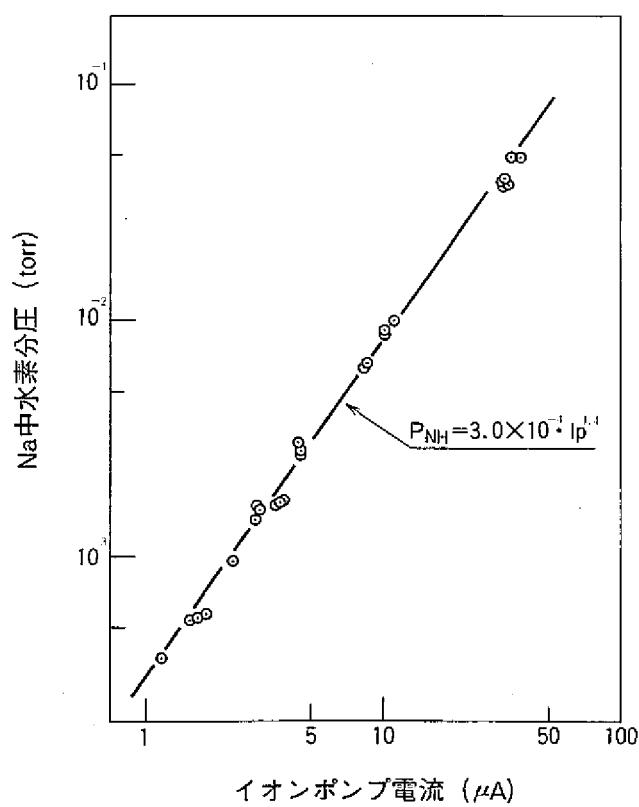


図2.7 Na中水素分圧とイオンポンプ電流の関係

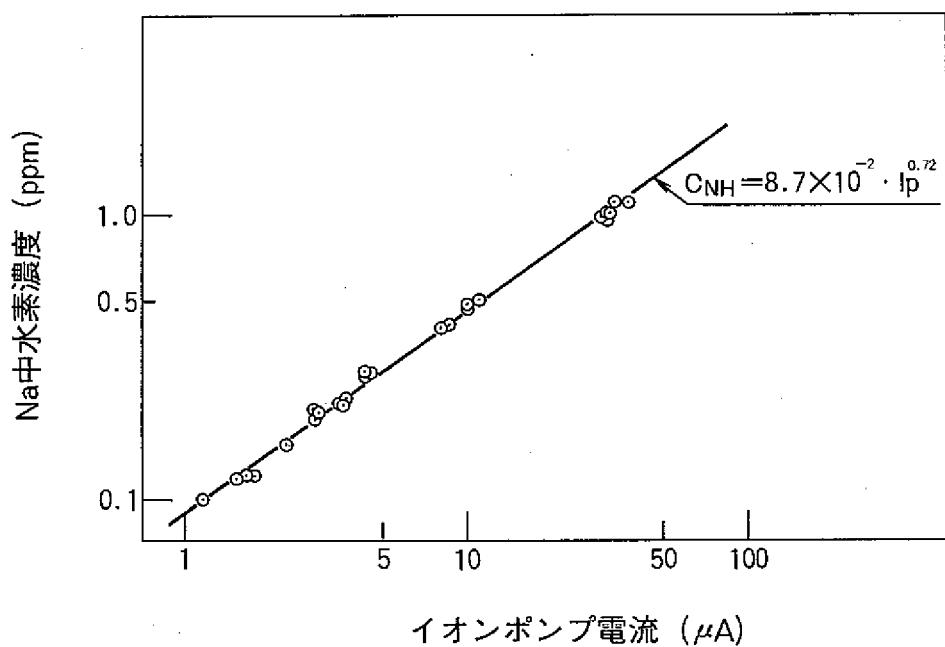


図2.8 Na中水素濃度とイオンポンプ電流の関係

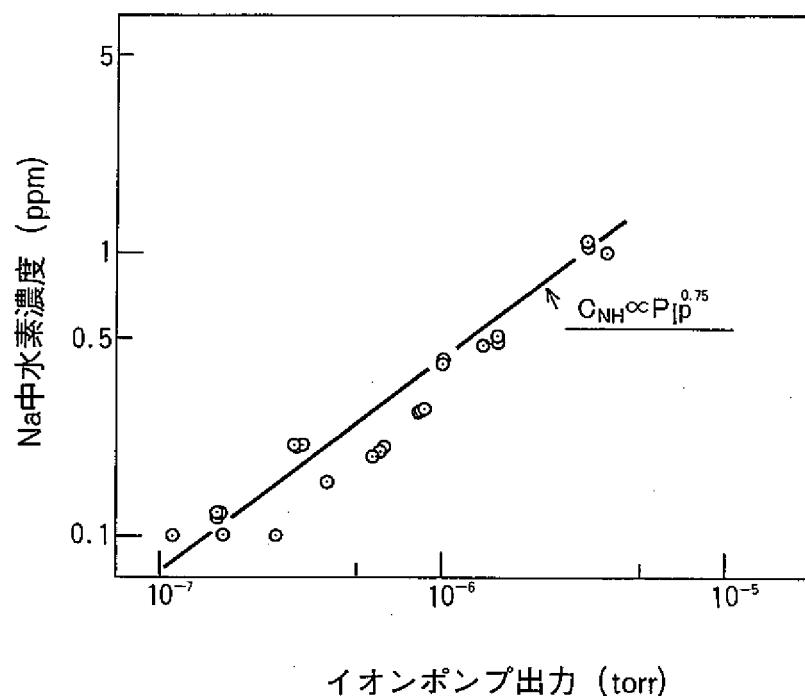


図2.9 Na中水素濃度とイオンポンプ出力の関係
(PNC-MAP型Na中水素計)

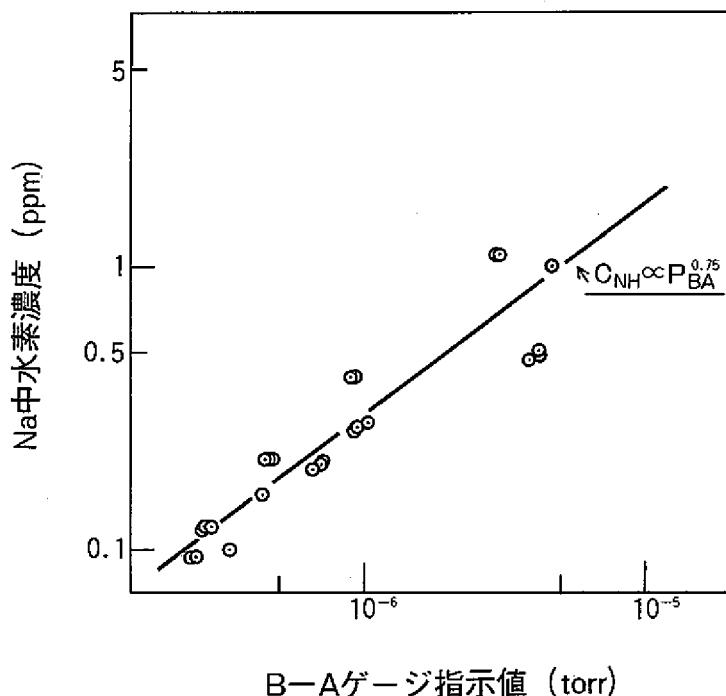


図2.10 Na中水素濃度とB-Aゲージ出力の関係
(PNC-MAP型)

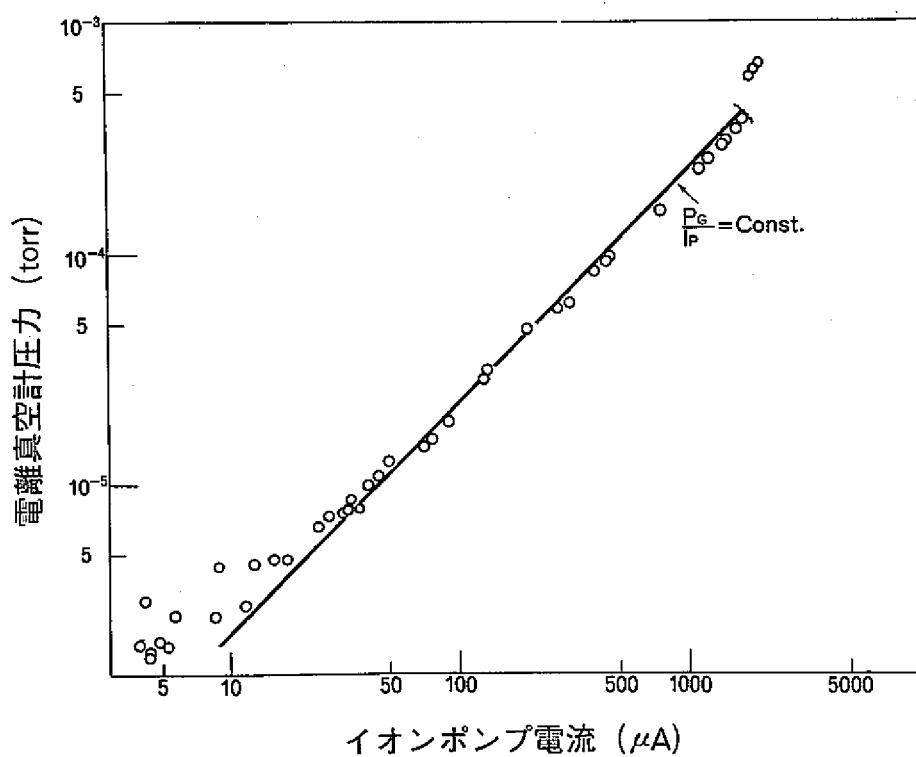


図2.11 イオンポンプ電流と電離真空計圧力の関係

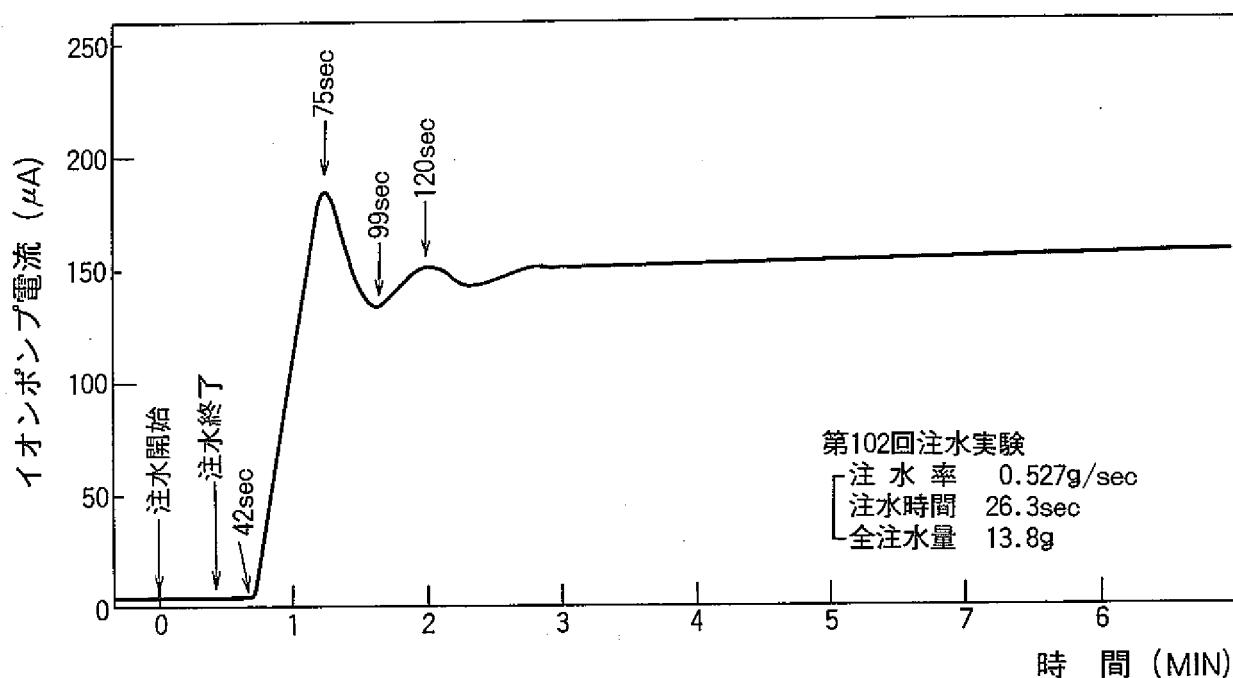


図2.12 注水実験におけるバリアン型Na中水素計の応答（注水時間小の場合）

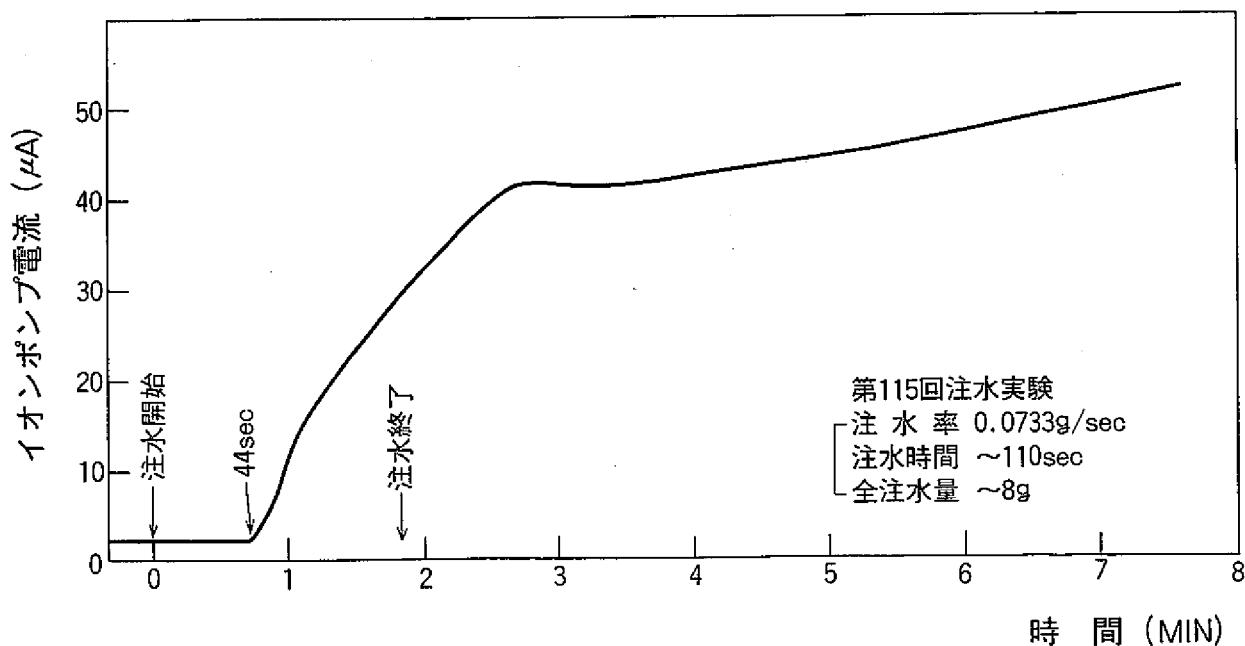


図2.13 注水実験におけるバリアン型Na中水素計の応答（注水時間大の場合）

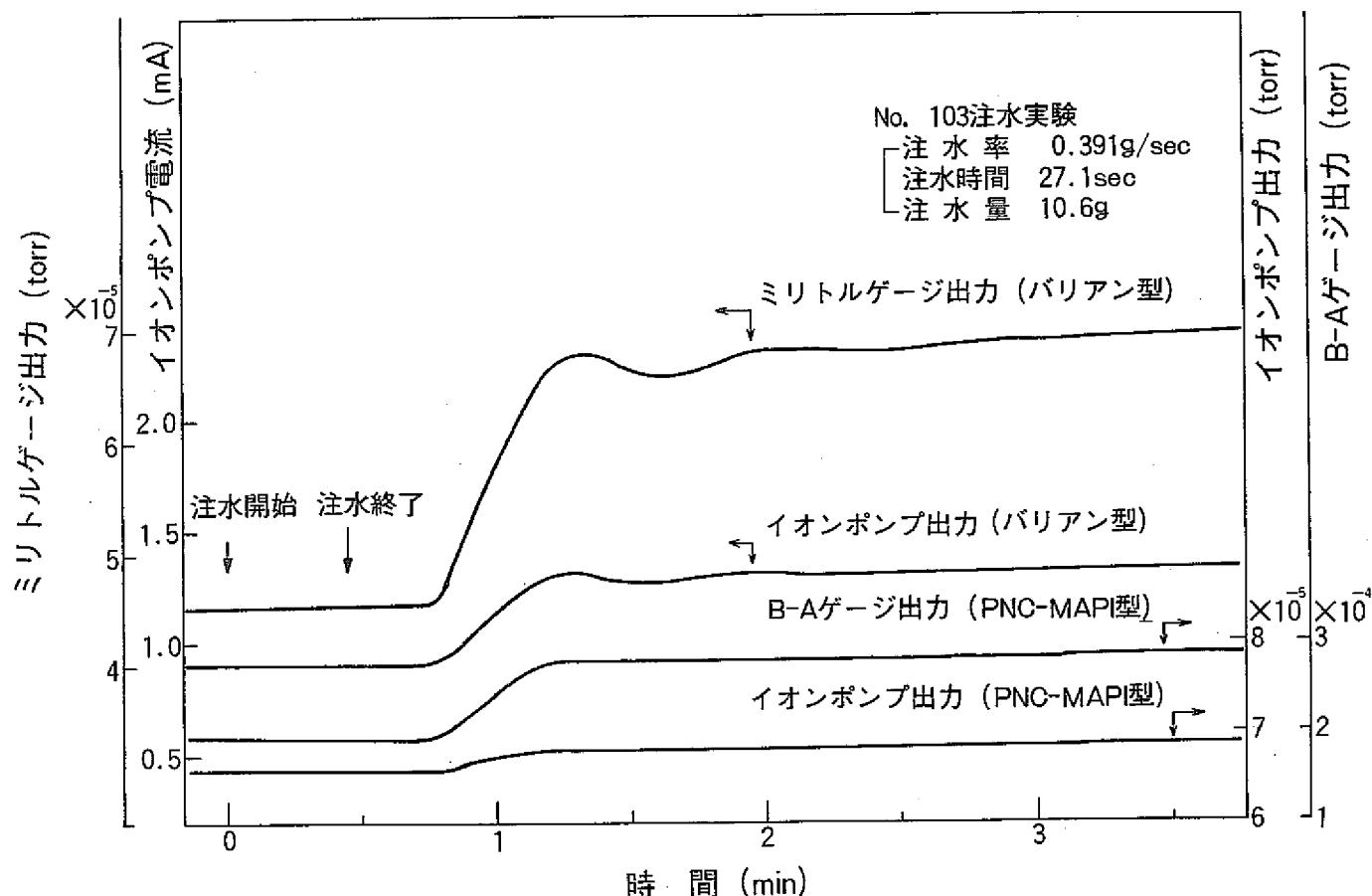
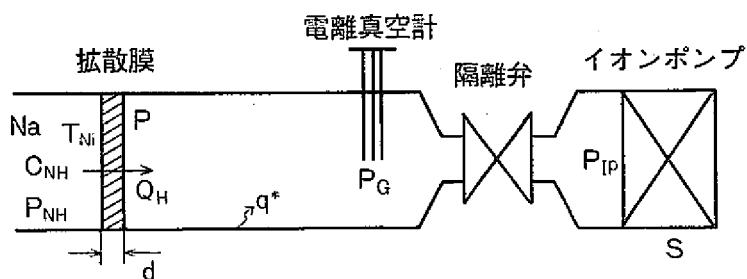


図2.14 バリアン型, PNC-MAPI型水素計の応答の比較



C_{NH}	: Na中水素濃度 (ppm)	q^*	: 壁面からのガス放出率 (torr · cm/sec · cm ²)
P_{NH}	: Na中水素分圧 (torr)	P_G	: 電離真空計部圧力 (torr)
T_{Ni}	: 拡散膜温度 (°C)	P_{IP}	: イオンポンプ部圧力 (torr)
d	: 拡散膜厚さ (cm)	S	: イオンポンプ排気速度 (cm ³ /sec)
P	: 真空側拡散膜部圧力 (torr)		
Q_H	: 水素透過量 (torr · cm ³ /sec)		

図3.1 バリアン型Na中水素計模式図

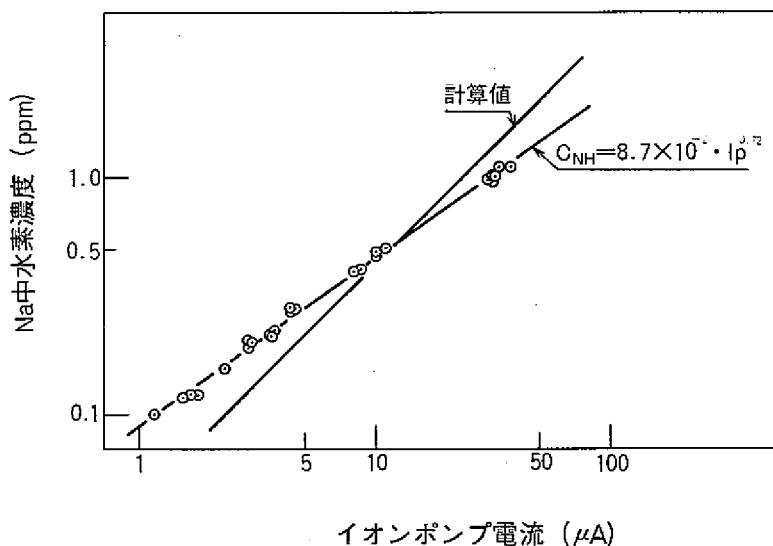


図3.2 較正曲線の実測値と計算値の比較

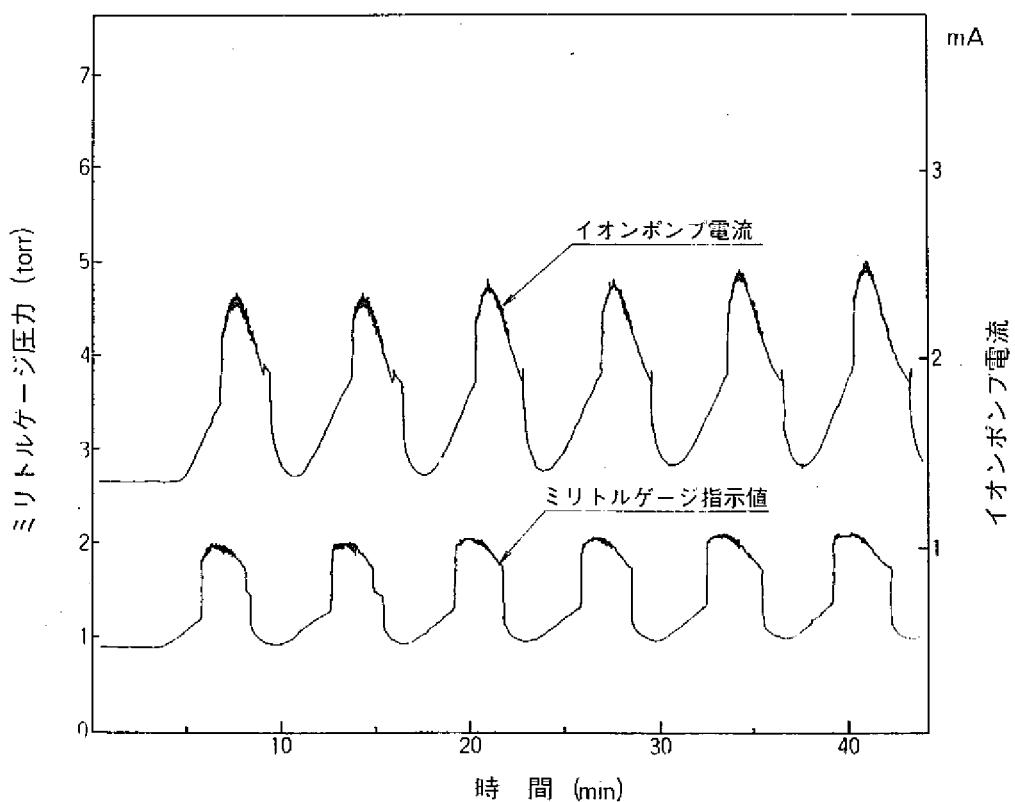


図3.3 高Na中水素濃度時に観察された
Na中水素計の周期的な応答

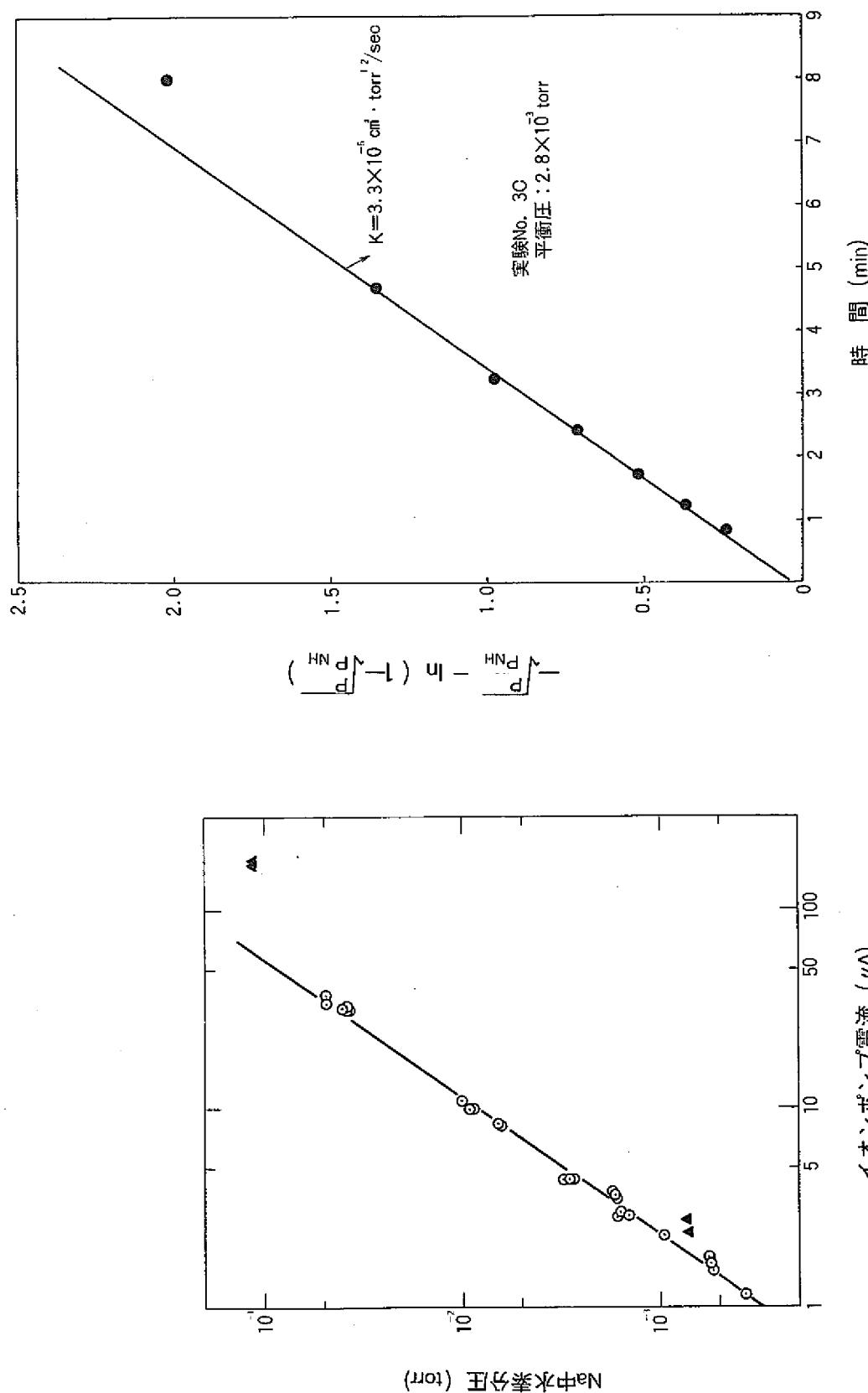


図3.4 イオンポンプ特性の経時変化

図3.5 静的平衡圧上昇による透過率の評価

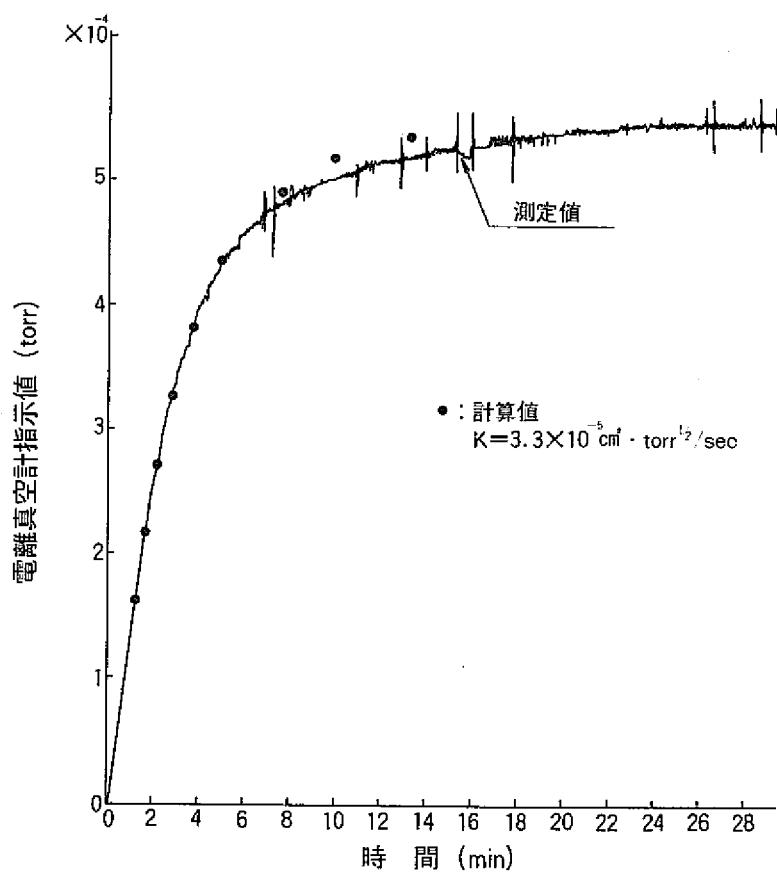


図3.6 平衡圧測定時の圧力上昇

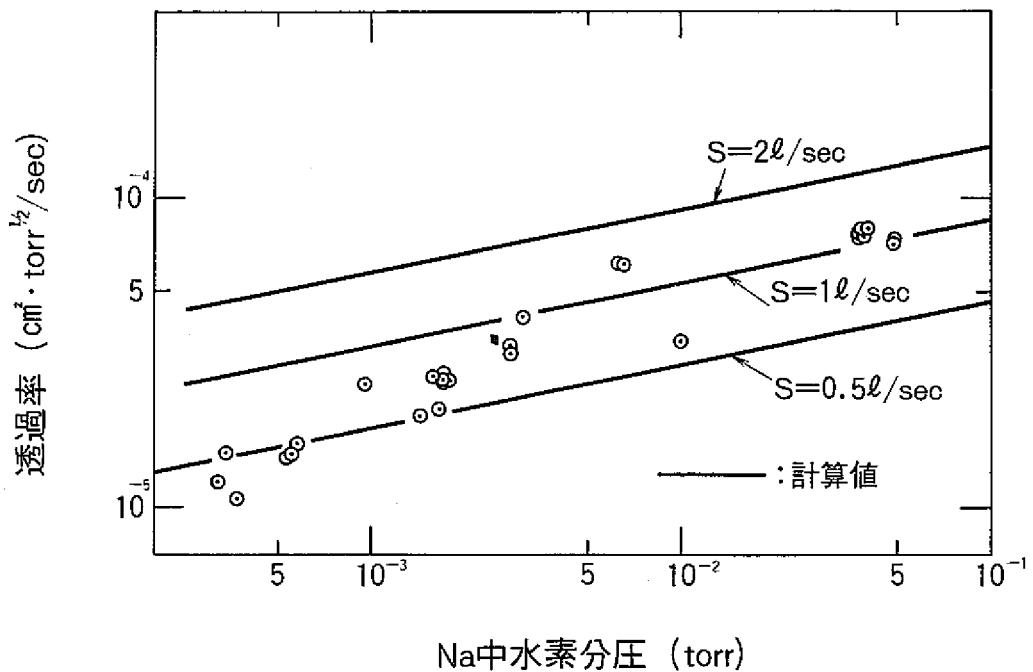


図3.7 Ni拡散膜の水素透過率とNa中水素分圧の関係

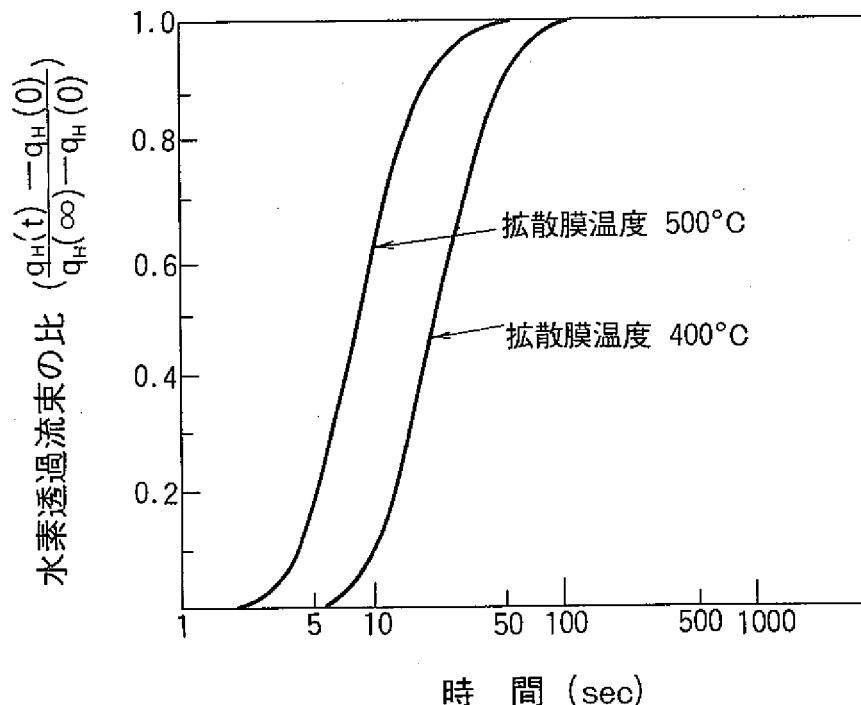


図3.8 バリアン型Na中水素計の応答曲線

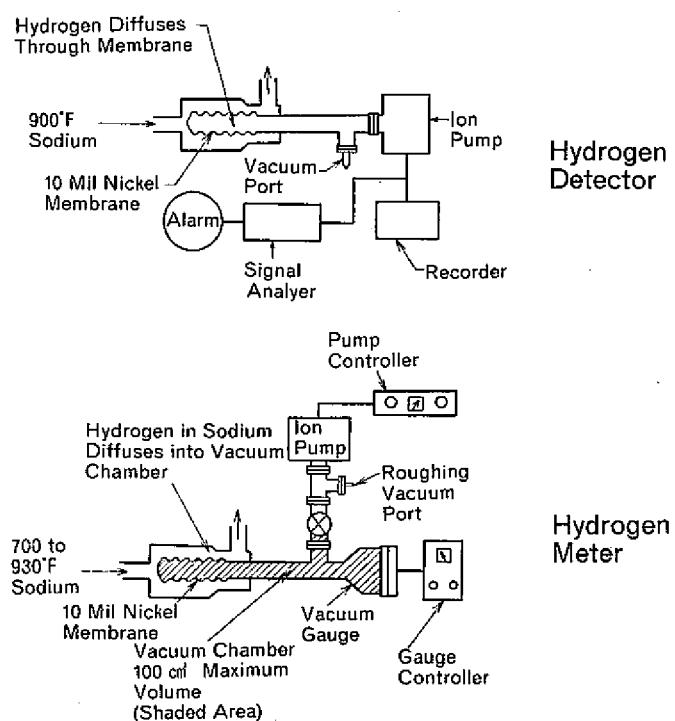


図3.9 ANLで開発されたNa中水素計 (20)

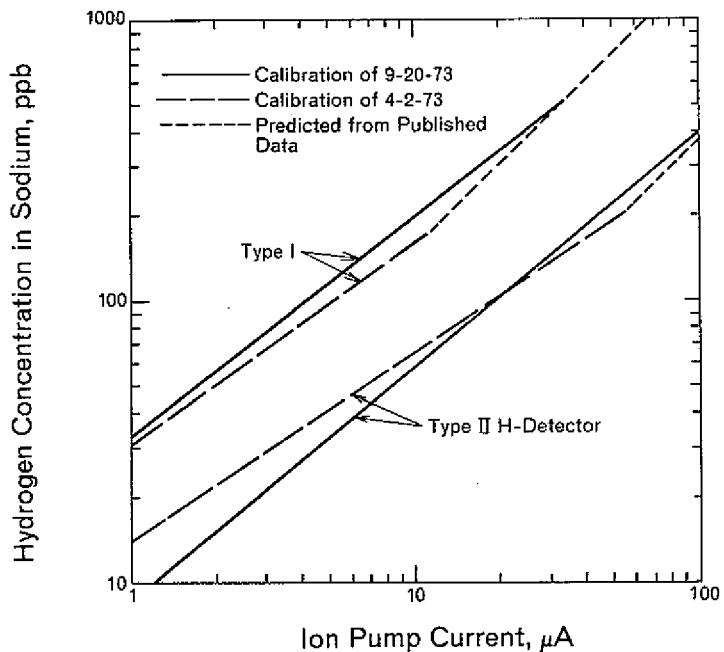


図3.10 ANLのNa中水素計較正曲線 (20)

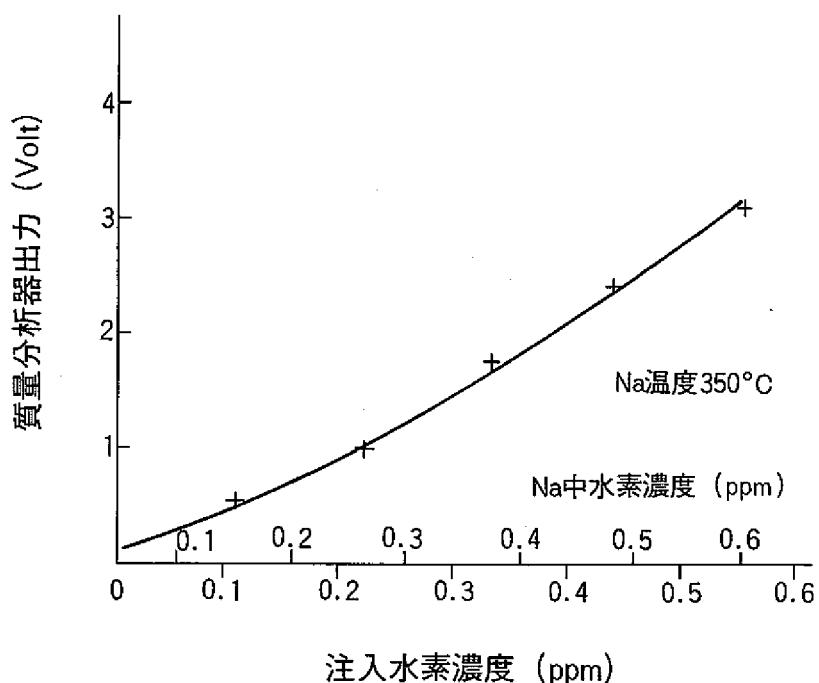


図3.11 フェニックス炉のNa中水素計較正曲線 (23)

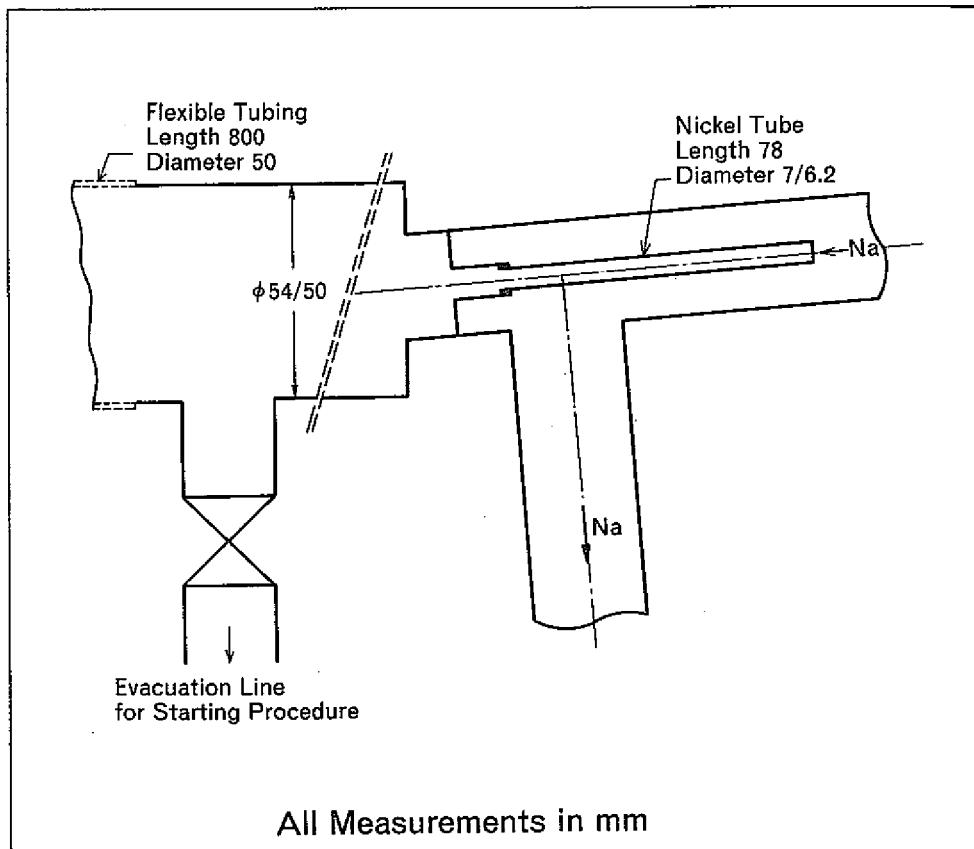


図3.12 SNR-300用プロトタイプNa中水素計 (24)

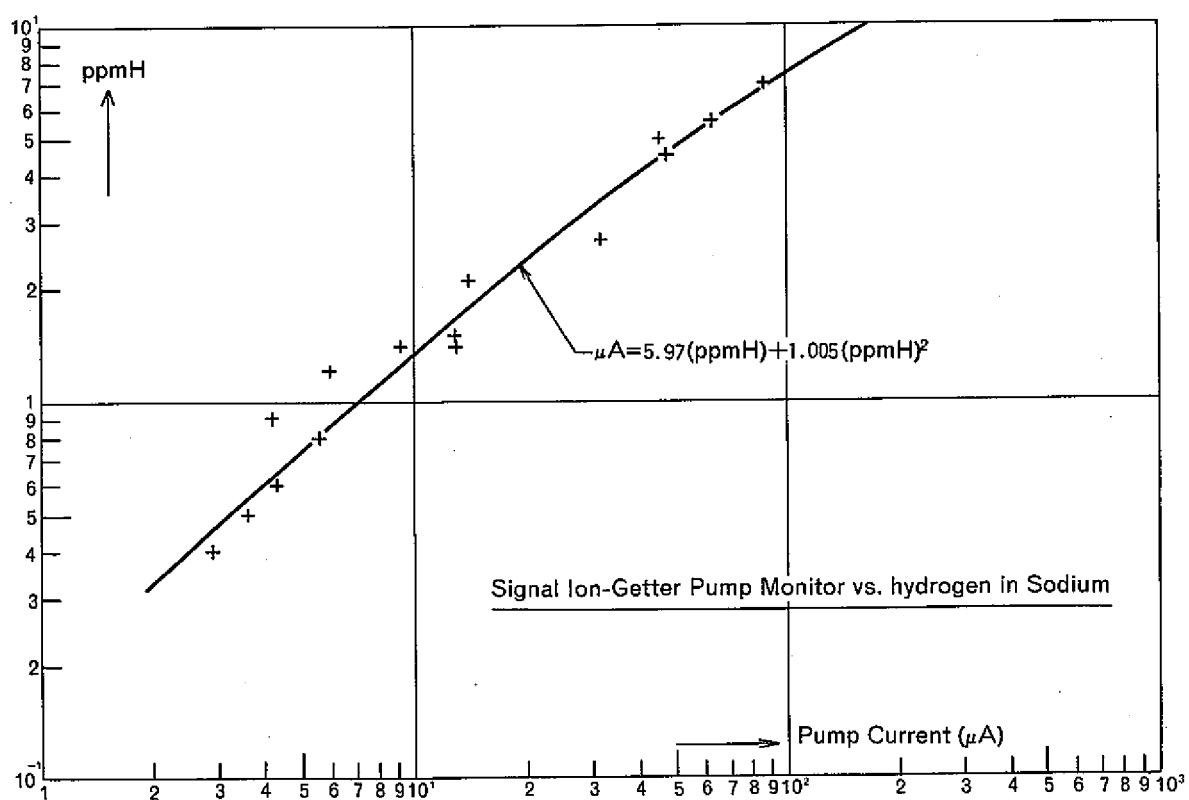


図3.13 SNR-300用プロトタイプ水素計の較正曲線 (24)

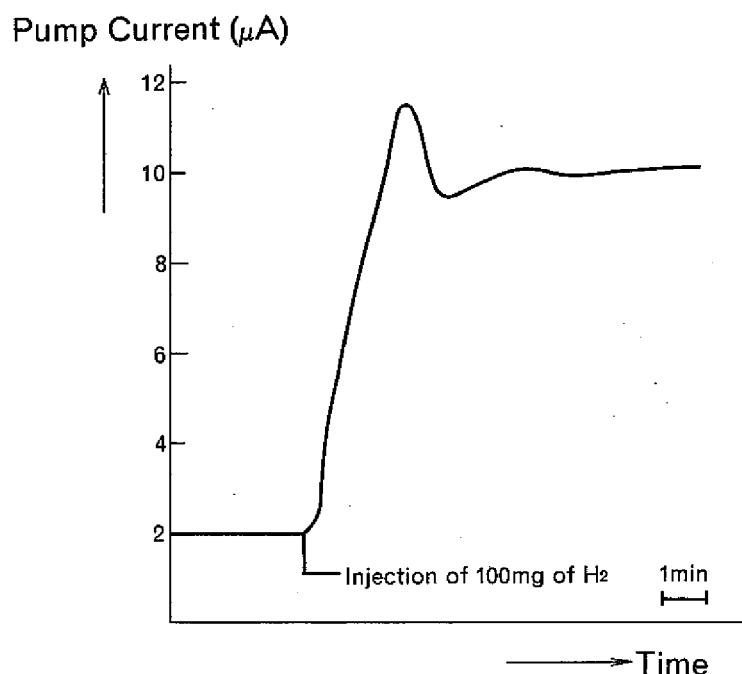


図3.14 SNR-300用プロトタイプNa中水素計の応答⁽²⁴⁾

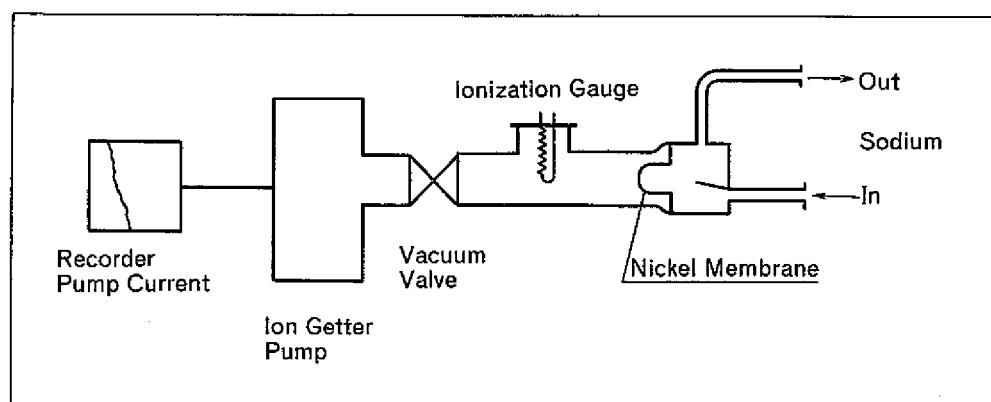


図3.15 SNR-300用Na中水素計⁽²⁵⁾

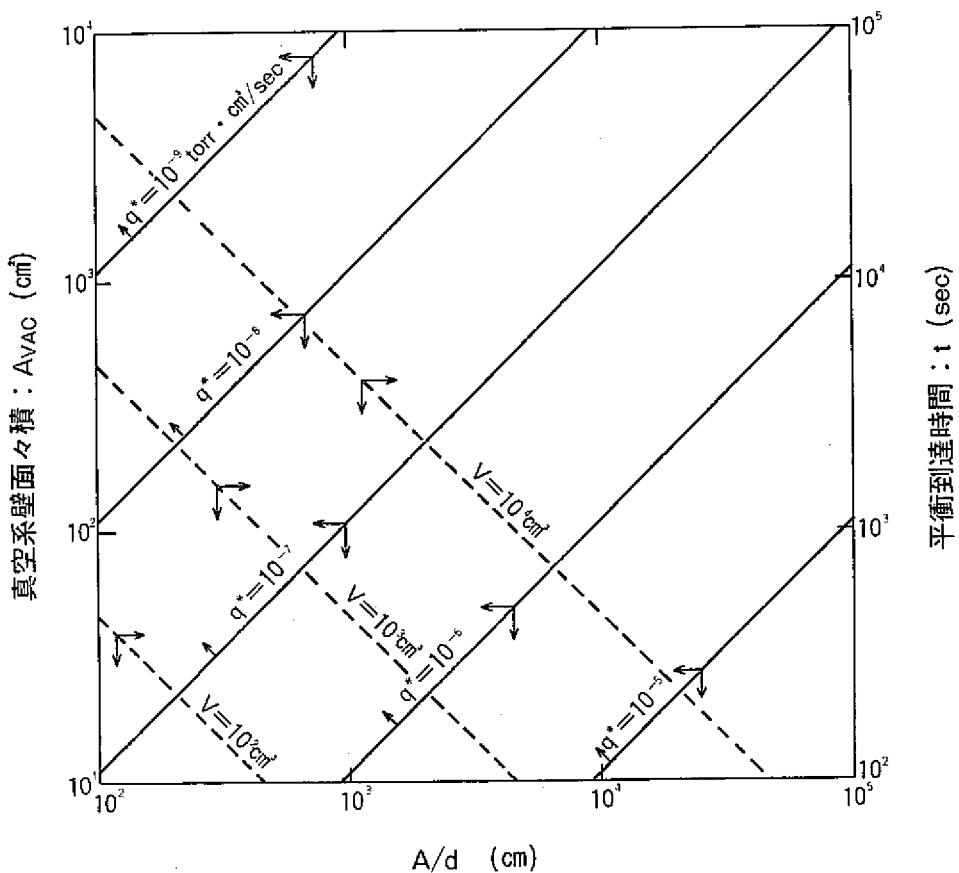


図4-1 低Na中水素分圧測定における壁面からの
ガス放出の効果と平衡到達時間

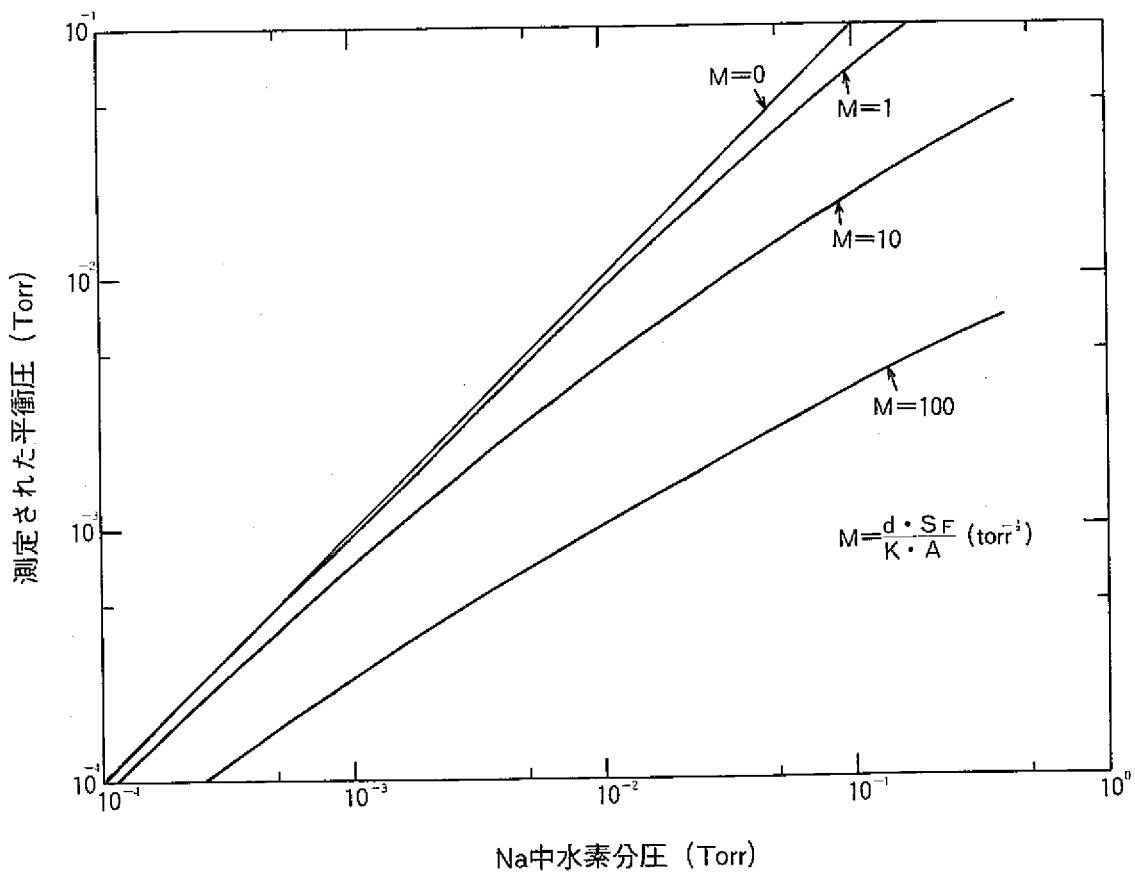


図4-2 平衡圧測定における電離真空計排気速度の効果

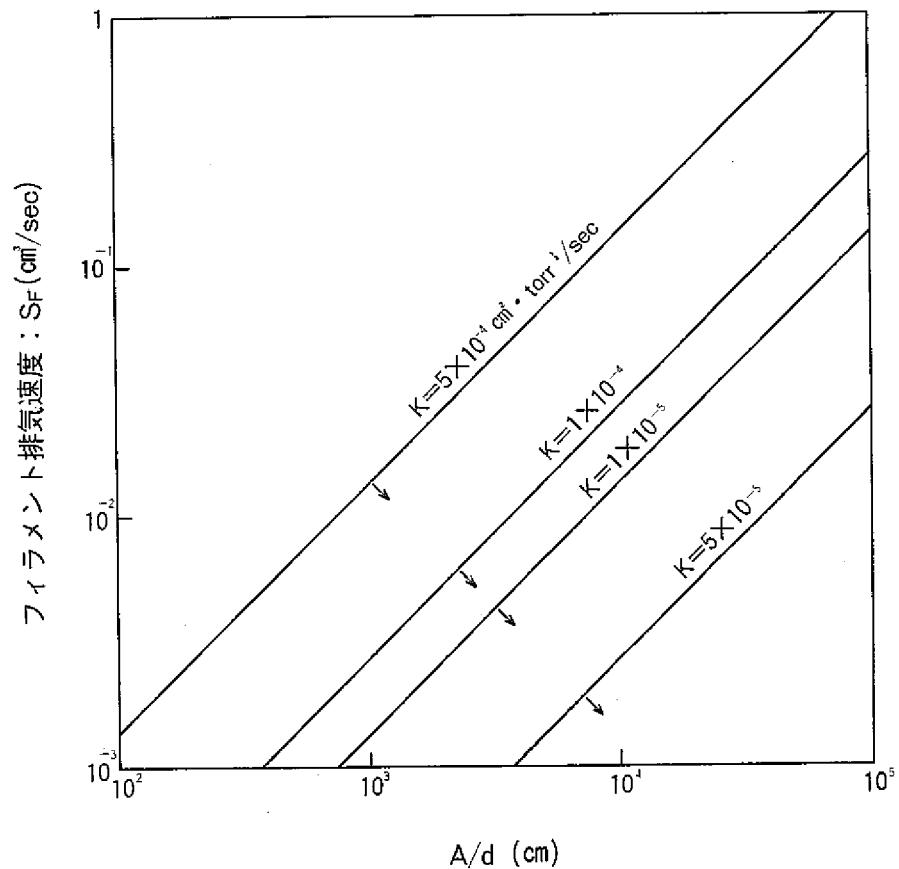


図4-3 Na中水素分圧測定における電離真空計
フィラメント排気速度の影響(Na中水素
分圧1torrの場合)