

# ナトリウムエアロゾル発生速度

— 窒素零囲気ガス中の酸素、水分不純物の影響 —

技術資料コード	
開示区分	レポート No.
	N 941 82-268
この資料は 図書室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です	
動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター技術管理室	



1982年12月

動力炉・核燃料開発事業団

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ください。

〒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

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

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

## ナトリウムエアロゾル発生速度

### — 窒素雰囲気ガス中の酸素、水分不純物の影響 —

姫野 嘉昭\*, 金沢 光雄\*

高須 宏雄\*\*, 井口 達郎\*

#### 要

#### 旨

「もんじゅ」では一次冷却系の各機器、配管類からのNa微小漏洩の早期検出を目的に、漏洩検出系の開発が進められている。そこでは検出系の検出遅延時間および検出下限の評価のため、現在各方面で進められているR&Dのデータとともにエアロゾル発生速度データ $\phi$ が必要とされている。本試験では「もんじゅ」の格納容器内窒素雰囲気を模擬した下記の試験条件でこのエアロゾル発生速度 $\phi$ を測定した。

Na温度：200℃～550℃

H<sub>2</sub>中のH<sub>2</sub>O濃度：0.04%～1.0%〃 O<sub>2</sub>濃度：0, 1.5, 3.0%Na表面積：20と80cm<sup>2</sup>

測定で得た結果によると、 $\phi$ はO<sub>2</sub>濃度には敏感であるがH<sub>2</sub>O濃度による変化は少く、Arカバーガス中へのNa蒸発率 $\phi_e$ と類似なNa温度依存性を示すことが明らかにされた。

---

\* 大洗工学センター，高速炉安全工学部，高速炉工学室

\*\* 現：大洗工学センター，高速炉実験炉部，原子炉二課

# Aerosol Release Rate from Sodium Pool into Nitrogen Gas

—Effects of Oxygen and Water Impurities in Nitrogen Gas—

Y. Himeno\*, M. Kanazawa\*, H. Takasu\*\*  
and T. Iguchi\*

## Abstract

Sodium leak detection system is now under development for quick detection of a small leak from Monju primary systems. In this development, aerosol release rate from leaked sodium is required to evaluate the delay time for the detection as well as to determine the lower limit of the detectable aerosol concentration.

To meet that requirement, the test under the following conditions was made. This was to determine the aerosol release rate from sodium into inert nitrogen environment under the primary cell simulated conditions.

sodium temperature	: 200 to 550°C
H <sub>2</sub> O content in N <sub>2</sub>	: 0.04 to 1.0%
O <sub>2</sub> content in N <sub>2</sub>	: 0, 1.5, and 3.0%
surface area of sodium	: 20 and 80cm <sup>2</sup>

The test results revealed that the aerosol release rate is sensitive to the oxygen concentration, but not to the water concentration, and has the same temperature coefficient as the sodium evaporation rate into argon gas.

---

(\*) FBR Safety Engineering Division, OEC, PNC

(\*\*) Maintenance Section, Experimental Fast Reactor Division, OEC, PNC

# 目 次

1	緒 論	1
2	試験装置と試験方法	2
2.1	試験装置	2
2.2	試験方法	2
3	試験と結果の考察	3
3.1	水分 ( H <sub>2</sub> O ) パラメータ試験	3
3.2	酸素 ( O <sub>2</sub> ) パラメータ試験および混合不純物試験	9
3.3	試験時の Na 表面状態の変化	9
3.4	Na 表面積の影響	9
4	結 論	13
	文 献	14

## Table and Figures

Table 1	Test Conditions .....	5
Figure 1	Chamber for Aerosol Release Rate Determination .....	3
Figure 2	Aerosol Release Rate as H <sub>2</sub> O Concentration to be a Parameter .....	6
Figure 3	Dependent of Aerosol Release Rate upon H <sub>2</sub> O Concentration as Pool Temperature to be a Parameter .....	8
Figure 4	Aerosol Release Rate with H <sub>2</sub> O & O <sub>2</sub> Mixed Impurity .....	10
Figure 5	Dependent of Aerosol Release Rate upon O <sub>2</sub> Concentration as Pool Temperature to be a Parameter .....	11

—— 記 号 ——

- P ; ナトリウム蒸気圧 ( atm )  
S ; ナトリウム表面積 (  $\text{cm}^2$  )  
T ; 温 度 (  $^{\circ}\text{C}$  )  
t ; 時 間 ( sec )  
w ; ナトリウム重量 ( gram )  
 $\phi$  ; 蒸発速度またはエアロゾル発生速度 (  $g / \text{cm}^2 \cdot \text{s}$  )

添 字

- 1 ; ナトリウム受皿  
2 ;  $\text{N}_2$  ガス  
3 ; 試験容器壁  
s ; ナトリウム自由液面

## 1 緒 論

「もんじゅ」では一次冷却系のナトリウム（以下Naと略す）の微量漏洩の早期検出のため、Na イオン検出器SID（Sodium Ionization Detector）の開発が進められている。この開発ではSIDそのものの開発の他、実機体系における検出可能な最小Na漏洩量を明らかにする目的で、漏洩箇所からSIDに到るまでのエアロゾルの発生、輸送および濃度減衰も研究対象となっている。本試験は、この内のエアロゾルの発生に関する研究を行うもので、小型試験装置を用いてエアロゾル発生速度の測定実験を行った。試験では窒素（ $N_2$ ）雰囲気中の不純物である $O_2$ と $H_2O$ 、の濃度をパラメータとし、これらの不純物がエアロゾル発生速度に与える影響を調べた。不純物の影響を調べたのは、実機の一次系雰囲気ガスである $N_2$ には $O_2$ と $H_2O$ の混入を避けられず、このためこれらの影響を予め正確に把握しておく必要があるためである。



## 2 試験装置と試験方法

### 2.1 試験装置

Fig. 1 に試験装置を示す。主要構成部品は試験容器（図の中央に示す）、 $N_2$  ガス導入部（図の左側）、および  $N_2$  ガス排出部（図の右側）である。試験容器には Na 受皿、Na チャージ用配管、観測窓などがある。温度計測用の熱電対は Na 受皿の内部、ガス空間中央、および試験容器側壁に取付けられており、それぞれ  $T_1$ 、 $T_2$ 、 $T_3$  として図中に示した。Na 受皿はエアロゾル発生源である Na 液面を形成するが、その Na は試験開始直前に外部の Na タンクより Na チャージ用配管を経由してチャージされる。観測窓は Na 受皿への Na チャージの際の液面レベル監視と試験時のエアロゾル発生状況および Na 液面の観察に使用されるものである。なお試験部全体には予熱ヒータと保温材が取付けられており、これらで試験温度が設定される。次に装置左側の  $N_2$  ガス導入部については露点計とガス流量計があり、図示されていないがその上流側に水ポットとガスポンプ（ $N_2$  ガス、 $N_2$ - $O_2$  混合ガス）が連結されている。水ポットは試験部に導入される  $N_2$  ガスの湿分（ $H_2O$  濃度）調整用に使われる。なお試験部に流入する最終的なガス中の湿分は露点計で計測される。供給ガスには高純度  $N_2$  ガス（B ガス：純度 99.9995%）と  $N_2$ - $O_2$  混合ガスポンプを使用し、これらのポンプからのガス流量の調節によって  $N_2$  ガス中の  $O_2$  濃度を変化させた。最後に図中の右側の  $N_2$  ガス排出部については、試験容器内から  $N_2$  ガス流によって排出されて来るエアロゾルをサイクロンセパレータとエアロゾルフィルタ（公称気孔径：2  $\mu m$ ）によって捕集した。

### 2.2 試験方法

次に試験方法について説明する。まず試験開始前に試験容器全体を予熱ヒータで目標温度にまで昇温する。温度が十分に安定すると、極く短時間（1分以内）で受皿に低温 Na（約 150℃）をチャージする。この時の Na チャージ量は 20～100  $cm^3$  と少く、このため数分間で Na 温度は目標値にまで昇温される。エアロゾルは Na のチャージとともに直ちに発生を開始するため、その容器壁への淡着を避けるため  $N_2$  ガスの流入と排出を直ちに開始する。 $N_2$  ガスとともに排出されたエアロゾルはサイクロンセパレータとエアロゾルフィルタで捕集される。一定時間、このようなエアロゾルの発生と捕集を継続させ、その後ガス流を停止させて試験を終了する。捕集したエアロゾルはサイクロンセパレータおよびフィルタとともにこれをアルコール中に浸漬し、アルコール中の全 Na 重量  $w$  を中和滴定によって測定する。エアロゾル発生速度  $\phi$  は、この  $w$  を用いて(1)式から算出した。

$$\phi (g/cm^3 \cdot s) = \frac{w (g)}{s (cm^3) \cdot t (s)} \quad (1)$$

ところで、試験中は Fig. 1 に示す熱電対、 $T_2$  と  $T_3$  で計測されるガス平均温度および容器内壁温度を  $T_1$  で計測される受皿の Na 温度よりも常に高く制御した。すなわち  $T_3 > T_2 > T_1$  に制御した。

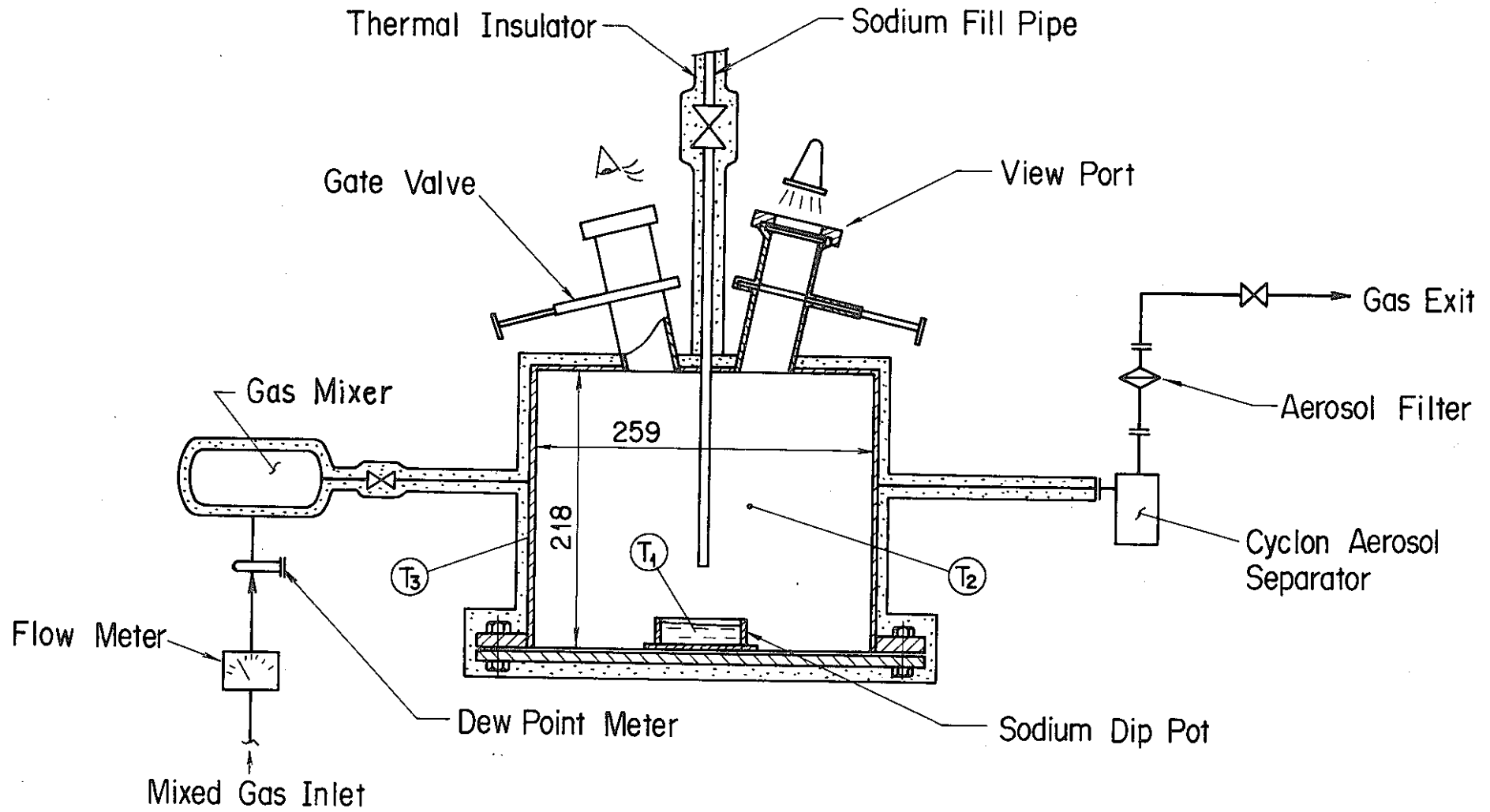


Fig. 1 Chamber for Aerosol Release Rate Determination

これは一つには安全側（すなわち低い側の値）のエアロゾル発生速度を得ること，他の一つは発生エアロゾルの壁面沈着を防ぐことを目的としたためである。後者については代表例について試験後，試験容器を解体した内壁の沈着エアロゾル量をチェックしたが，ほとんど沈着を認めることができなかった。これはガス温度よりも壁温の方が高いため熱泳動沈着が進行しなかったためである。なお上記の諸操作の中で，Na チャージ時のエアロゾル発生量は低温であるため無視することができる。

### 3 試験と結果の考察

試験はN<sub>2</sub>ガス中のH<sub>2</sub>OとO<sub>2</sub>の各濃度をパラメータとする試験，およびH<sub>2</sub>O-O<sub>2</sub>混合不純物を使用した試験の三種類を行った。Table 1に各試験条件を示す。

Table 1 Test Conditions

Test Items	Impurity (vol. %)	Sodium Temperature ( °C )	Surface Aerea of Sodium Pool (cm <sup>2</sup> )
H <sub>2</sub> O Parameter Test	H <sub>2</sub> O : 0.04~1.0	200~550	20 & 80
O <sub>2</sub> Parameter Test	O <sub>2</sub> : 1.5, 3.0 (H <sub>2</sub> O : 0.04)		
H <sub>2</sub> O&O <sub>2</sub> Mixed Impurity Test	H <sub>2</sub> O : 0.2~1.0 O <sub>2</sub> : 1.5		

N<sub>2</sub> Gas Pressure : 0.2kg / cm<sup>2</sup>G

N<sub>2</sub> Gas Flow Rate : 5 ℓ / min

Gas Volume of Test Vessel : 11.5 ℓ

ここに示したように試験では，Na 表面積Sを20cm<sup>2</sup>と80cm<sup>2</sup>の二種類にし，Na 表面積の影響も調べた。またN<sub>2</sub>ガス流量は5ℓ/minとしたが，これは試験容器内のガス沸溜時間(=V/Q)が2.3分であることを相当する。なおエアロゾル捕集時間は5~90分である。

#### 3.1 水分(H<sub>2</sub>O)濃度パラメータ試験

測定結果をFig. 2に示す。同図には比較のためArカバーストック中のNa蒸発速度 $\phi_e$ <sup>(1)</sup>も示した。この $\phi_e$ は高純度Naの不活性ガス雰囲気への蒸発速度で，H<sub>2</sub>OやO<sub>2</sub>などの不純物ガスがなく蒸発Naと不純物ガスとの化学反応がない時に相当する。

ところで，エアロゾルの発生過程にはNa液面からの蒸発とそれに続く蒸気と不純物ガスとの化学反応が含まれている。Na液面が清浄で，高純度状態が長時間保たれていれば，不純物ガス濃度が一定である限りエアロゾル発生速度 $\phi$ も時間に対して一定の値を示すことになる。ところが，後述するように，今回の試験では不純物ガスのため，Na液面が不純物で覆われて変化している。このことは測定時間中に $\phi$ に変化が生じていることを示す。よってFig. 2に示した $\phi$ は，これら刻々

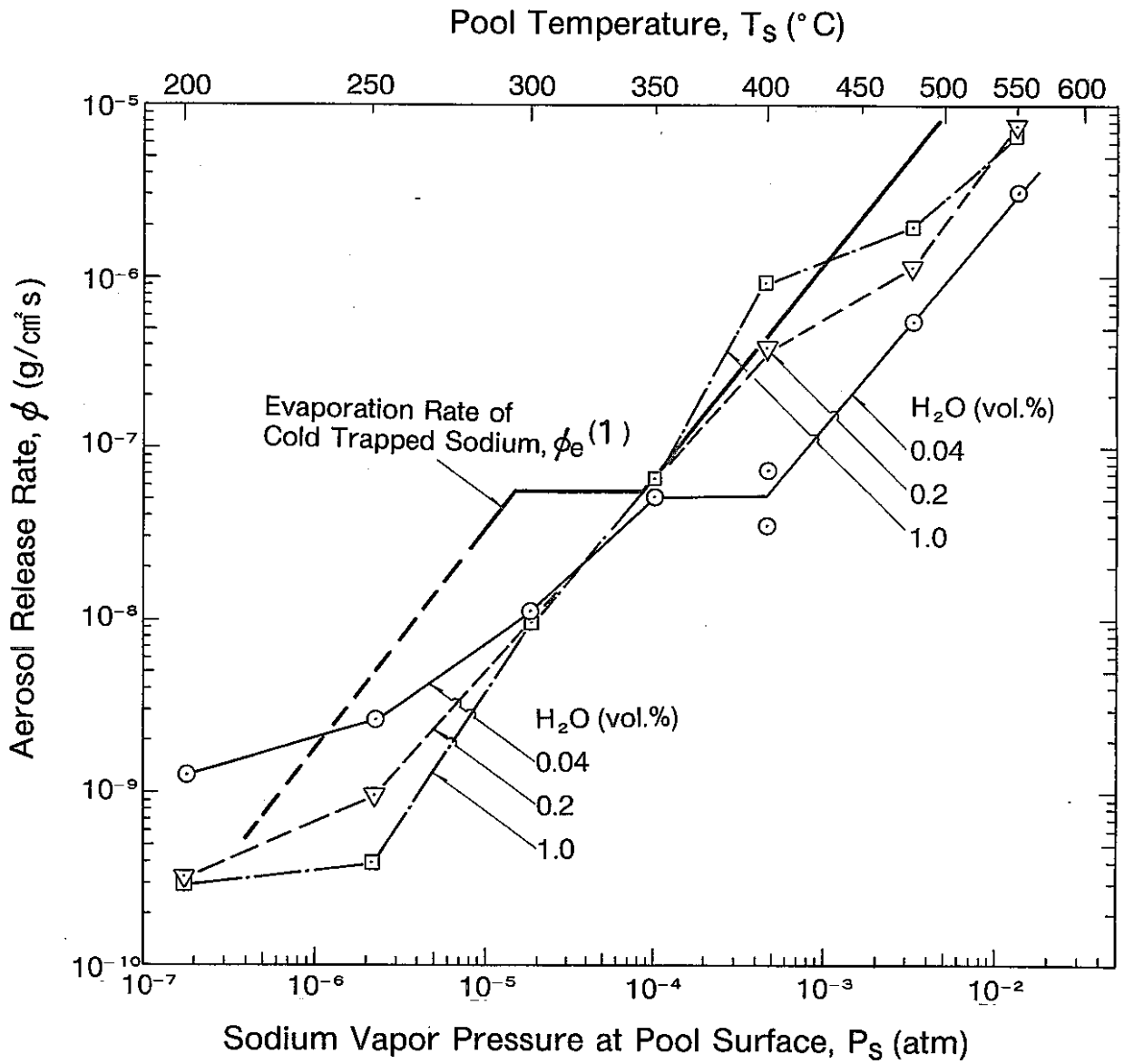


Fig. 2 Aerosol Release Rate as H<sub>2</sub>O Concentration to be a Parameter

と変化している $\phi$ の時間，平均値であることに注意されたい。

上述のように液面状態の変化に伴う不正確さはあるが，Fig. 2からは次のことがわかる。まず，水分濃度が1.0 vol%以下であればエアロゾル発生速度 $\phi$ はNa蒸発速度 $\phi_e$ におおよそ近い。特にNa温度350℃の時は水分濃度と無関係に $\phi$ が見かけ上 $\phi_e$ と一致している。

次に各Na温度 $T_s$ における $\phi$ の水分濃度に対する依存性を見るとFig. 3のごとき結果を得た。 $T_s$ が350℃以上の高温側では水分濃度とともに $\phi$ は増加する傾向にある。ただ350℃以下の低温側では逆に減少傾向にある。

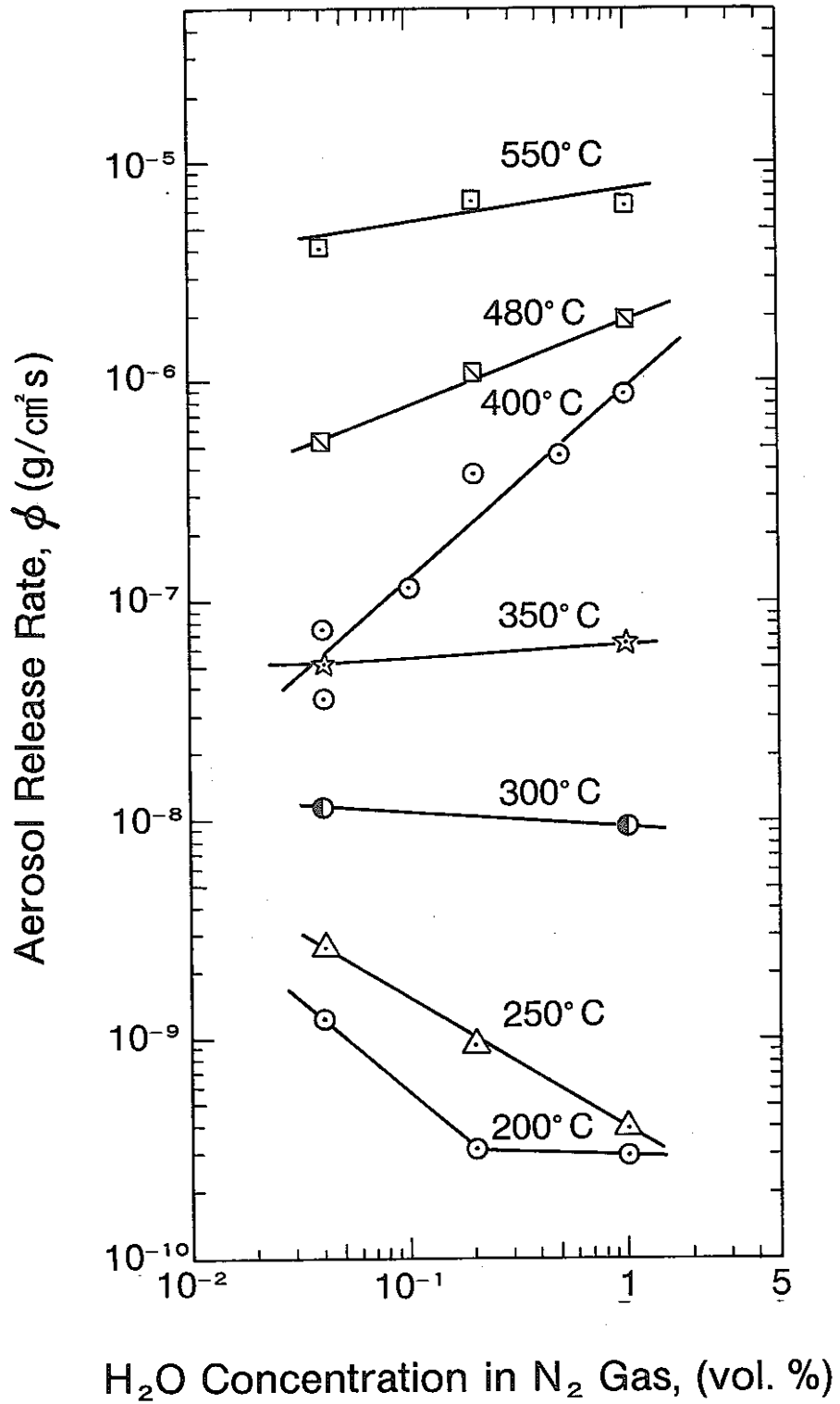


Fig. 3 Dependent of Aerosol Release Rate upon  $\text{H}_2\text{O}$  Concentration as Pool Temperature to be a Parameter

### 3.2 酸素 (O<sub>2</sub>) 濃度パラメータ試験および混合不純物試験

Table 1 に示したように O<sub>2</sub> パラメータ試験では 1.5 vol% と 3.0 vol% の二種類の濃度で測定を行った。当初の計画では O<sub>2</sub> 濃度 0~3 vol% の間の多数点で測定を行う予定であったが、試験時間の制約から、「もんじゅ」の運転条件と想定される上記の二つの濃度を測定条件とした。混合不純物試験では O<sub>2</sub> 濃度は 1.5 vol% 1 点のみとし、H<sub>2</sub>O 濃度のみを 0.04, 0.2, 1.0 vol% と三種類に変化させた。

Fig. 4 にこれらの測定結果を一部 Fig. 2 の測定結果も含めて示す。ここで顕著なのは、Na 蒸発速度  $\phi_e$  と比較して、O<sub>2</sub> 濃度が高くなるとエアロゾル発生速度  $\phi$  が増大し、 $\phi$  に H<sub>2</sub>O 不純物があると  $\phi$  が減少する傾向にあることである。特に前者については、Fig. 5 に  $\phi$  の O<sub>2</sub> 濃度依存性を示したが、Na 温度とはあまり関係なく  $\phi$  が O<sub>2</sub> 濃度とともに増大してゆく傾向が示されている。この O<sub>2</sub> 濃度依存性は Na プール火災で Na 燃焼速度が零囲気ガス中の O<sub>2</sub> 濃度に依存することと定性的に一致する。ただ火災では Na 温度が 600~840 °C と非常に高く、また燃焼速度は O<sub>2</sub> 濃度に比例して増大している。<sup>(3)</sup> ところが Na 温度の低い Fig. 5 の結果では、エアロゾル発生速度  $\phi$  に時間変化があることにもよるが必ずしも比例関係にはない。

### 3.3 試験時の Na 表面状態の変化

すでに述べたように、今回の試験のように Na との化学反応式を持った不純物の存在下では、Na 表面状態は時間とともに変化する。Photo 1 は試験中に試験容器上部の観察窓を通して撮影した Na 表面を示したものである。この撮影から次のような知見を得た。

まず、Na 温度が約 550 °C の高温の場合、Na 表面状態の著るしい変化は認められなかった (Photo 1, (A))、ところが約 400 °C 以下の低温の場合、数分間の内に不純物被膜が形成され、時間とともにこの被膜の覆う表面積が増大していった (Photo 1 (B) と (C))。このような不純物被膜表面の増大は、エアロゾルの発生を抑制する効果を持つものと推定される。

本報の目的は漏洩 Na からのエアロゾル発生速度を予測することにある。これまでに述べて来た結果によると、Na 漏洩直後の比較的短時間 (1~2 hrs) の内は Fig. 2 から Fig. 5 のごとき発生速度になる。ところが、長時間が経過すると漏洩 Na の酸化および水酸化のため、特に低温時での連続的な発生は期待し難い。仏の Rapsodie の Na 漏洩事故<sup>(2)</sup>で、この事がよく示されている。また類似な機構で進行する前述の Na プール火災でも、Na がある限り無限に火災が継続することはなく、せいぜい 3~4 時間で自然鎮火する。<sup>(5)</sup> よって今後の課題として、エアロゾル発生速度の時間変化を明らかにする必要がある。

### 3.4 Na 表面積の影響

すでに述べたように試験では Na 受皿の表面積を 20 cm<sup>2</sup> と 80 cm<sup>2</sup> に変えた。しかし今回の試験ではこのように表面積の違いを与えてもエアロゾル発生速度には有意差は生じなかった。



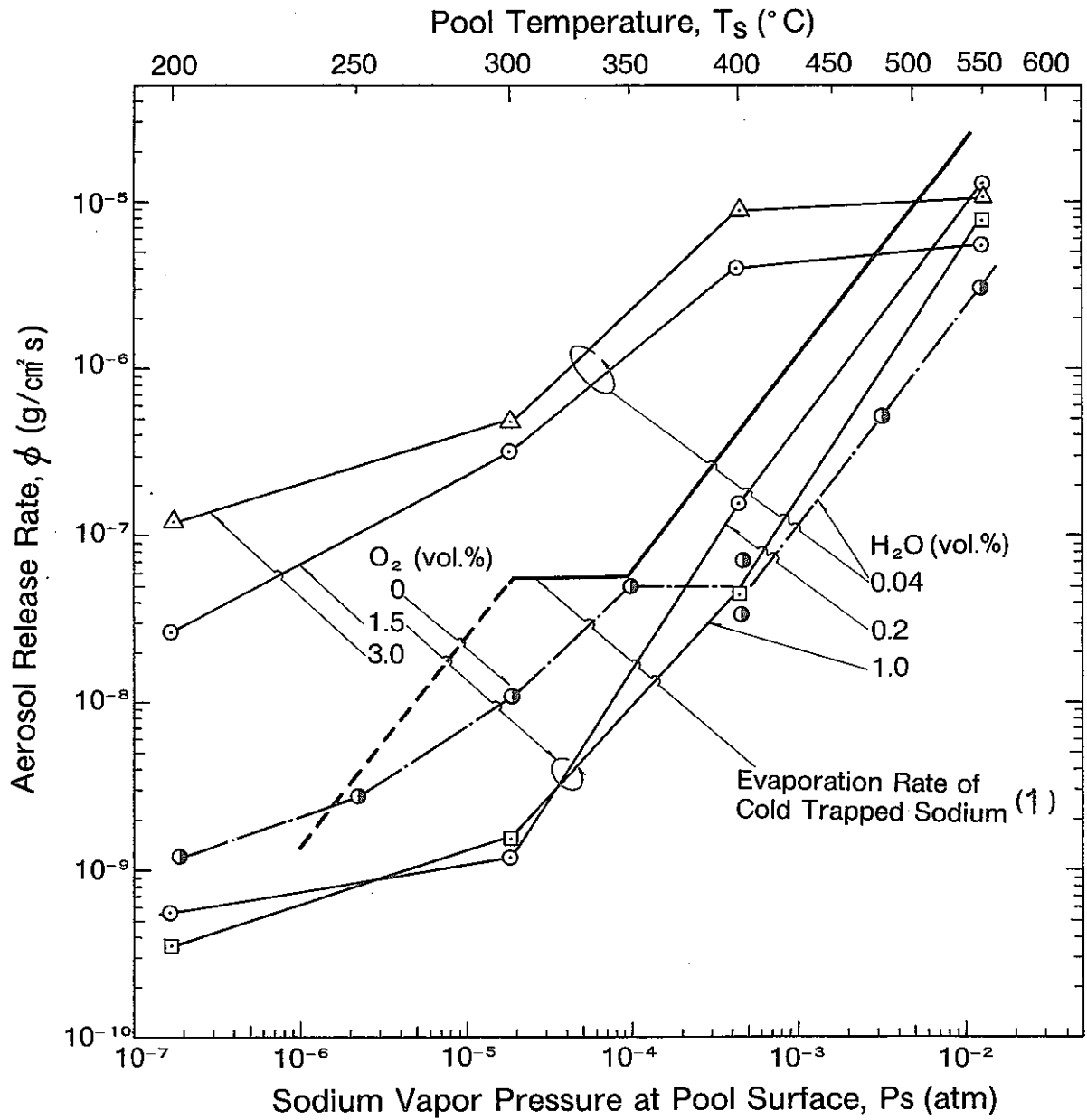


Fig. 4 Aerosol Release Rate with H<sub>2</sub>O & O<sub>2</sub> Mixed Impurity

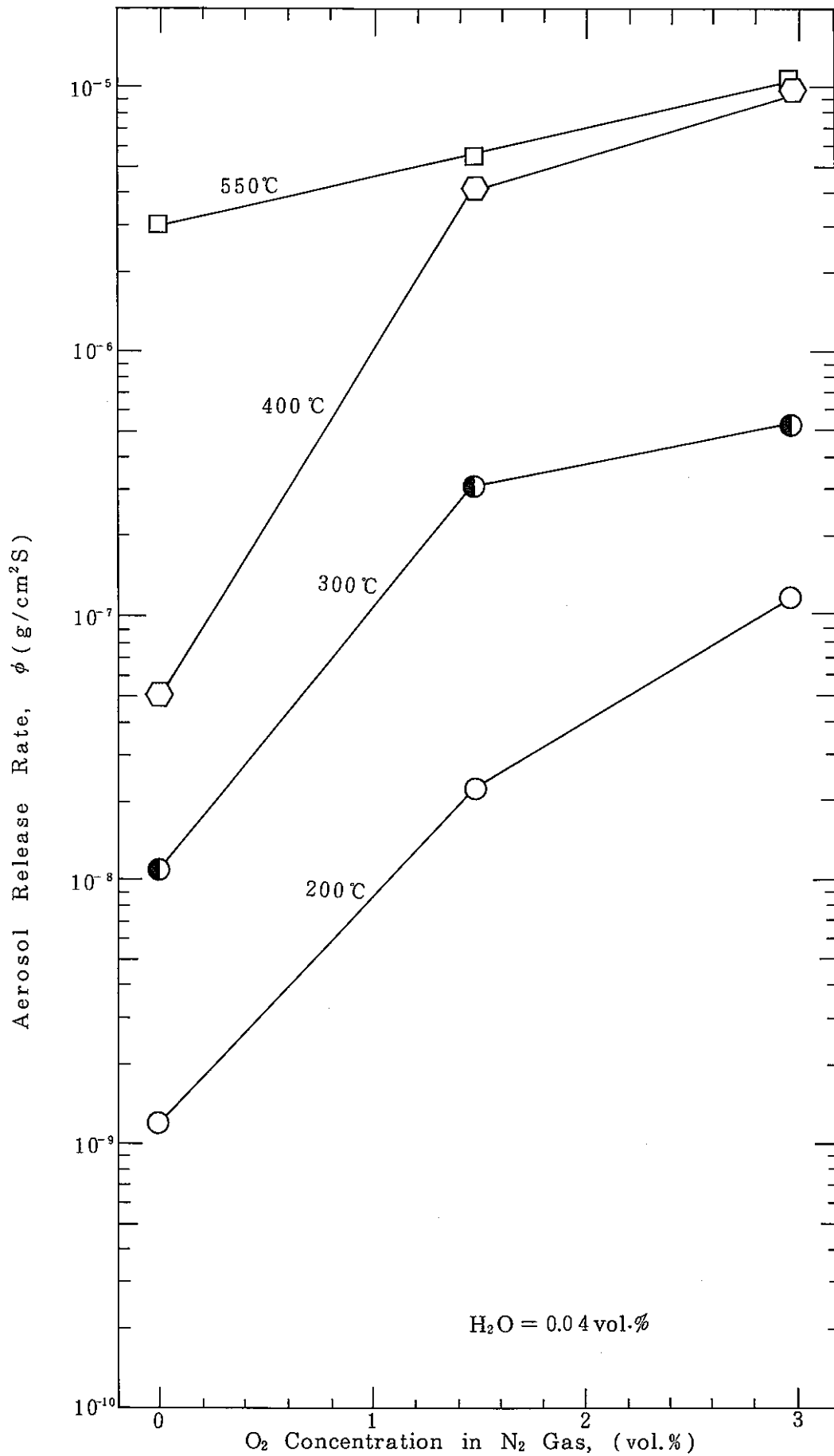
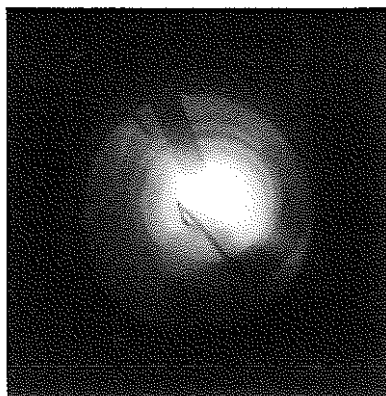
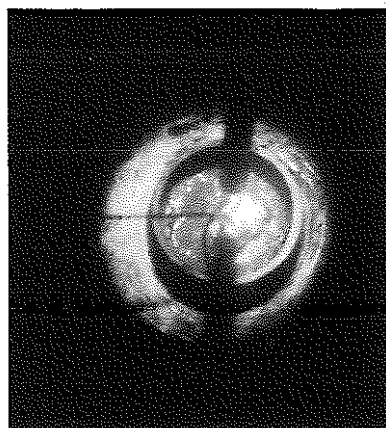


Fig. 5 Dependent of Aerosol Release Rate upon O<sub>2</sub> Concentration as Pool Temperature to be a Parameter.



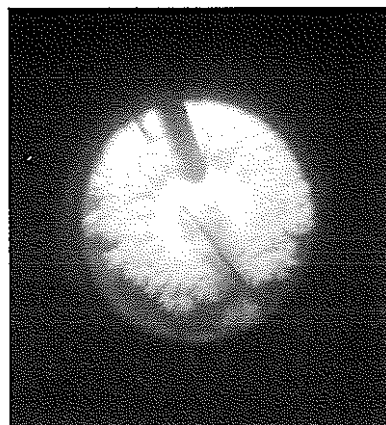
550°C  
H<sub>2</sub>O Impurity  
after 10sec

(A)



400°C  
H<sub>2</sub>O Impurity  
after 3min

(B)



400°C  
O<sub>2</sub> Impurity  
after 15min

(C)

Photo 1 Surface Conditions of Sodium

## 4 結 論

「もんじゅ」一次冷却系のNa 微量漏洩検出システムの開発のため、基礎試験としてNa からのエアロゾル発生速度 $\phi$ の測定試験を行った。試験では零囲気ガスを $N_2$ とし、これに水分や酸素を不純物として加えて実機の一次系配管外側零囲気を模擬した。得られた結果は、これをAr カバーガス中へのNa 蒸発速度 $\phi_e$ と比較しながら不純物の影響を検討した。今回の試験の結果から明らかになった事項は以下の通りである。

- (1)  $H_2O$ 不純物（1 vol.%以下）の存在下では高純度Na の蒸発速度 $\phi_e$ と比べてエアロゾル発生速度 $\phi$ は傾向として小さくなる（最大約1/10）。
- (2)  $O_2$ 不純物（3 vol.%以下）の存在下では $\phi$ は $O_2$ 濃度とともに増大し、 $\phi_e$ よりも大きくなる（最大100倍）。
- (3)  $H_2O$ および $O_2$ 不純物、存在下ではNa 面上に不純物被膜の形成とその表面積の時間に対する増大が認められた。これよりエアロゾル発生速度 $\phi$ に時間変化が生ずることが推定された。
- (4) Na 表面積に対するエアロゾル発生速度の変化は認められなかった。

文 献

- (1) Y. Himeno and J. Takahashi., " Sodium Mist Behaviour in Cover Gas Space of LMFBR - Out-pile Experiment" , J. Nucl. Sci. Technol., 17, No6, 404 (1980)
- (2) J. P. Delisle, J. P. Pages and R. Pontier., " Investigations About A Micro-Leak on The Rapsodie Primary Sodium Circuit ", The Second International Conference on Sodium Technology for Energy Production Session XXI, Richland, USA, Apr., 1980
- (3) R. K. Hilliard., " Summary of HEDL Sodium Fire Tests IAEA ", IWGFR/28. 32, 1978
- (4) J. C. Malet., et al., " Potential Results of Spray and Pool Fires ", Nucl. Eng. Design., 68. 195, 1981