

SGナトリウム液面カバーガス部における水素挙動

(リーク検出計開発試験 第4報)

1982年4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)

SGナトリウム液面カバーガス部における水素挙動 (リーク検出開発試験 第4報)

奥村泰伸^{1*} 黒羽光男^{1*} 佐藤 稔^{1*}
大後美道^{2*} 池本一郎^{3*} 葛西省三^{4*}
太田英久^{5*} 佐野雄二^{6*} 増井章裕^{7*}

要旨

すでに報告されている直接挿入型カバーガス中水素計を使用してナトリウム／カバーガス体系における水素ガス挙動を解明するための試験を実施した。試験は、動力炉・核燃料開発事業団、大洗工学センター蒸気発生器安全性試験室内の SWAT-2 装置に、蒸気発生器を模擬するための容器を新設し、その上部にカバーガス中水素計を設置し、既設の PNC 型ナトリウム中水素計と共に使用して、バックグランド水素濃度測定、注水素、注水試験等を行なった。

本書では、これらの試験結果について報告するものであり、得られた成果は以下の通りである。

- (1) アルゴンガス中の水素ガスの移行は、分子拡散より、浮力および対流によるミキシング効果の方が支配的である。
- (2) ナトリウム／カバーガス体系でのカバーガス中バックグランド水素分圧は、ナトリウム中水素分圧に比べ2～3オーダ高く、 10^{-2} Torr 以下には下がらない。
- (3) ナトリウム中における単気泡の気泡径と上昇速度の関係は、実験と解析がよく一致した。
- (4) 本試験体系でカバーガス中へ出た水素ガスの検出割合は約20%であった。またナトリウム中へ溶解した水素の検出割合は約80%であった。
- (5) ナトリウム－水反応で発生する水素のナトリウム中水素計での検出割合は、注水素試験に比べ数倍高くなる。

1* 大洗工学センター、高速炉安全工学部、プラント安全工学室

2* FBR 開発本部、システム設計グループ

3* 動燃事業団嘱託（電力中央研究所、エネルギー、環境技術研究所）

4* 動燃事業団嘱託（株式会社日立製作所那珂工場）

5* 動燃事業団嘱託（石川島播磨重工業株式会社、エネルギー事業部）

6* 動燃事業団嘱託（東京芝浦電気株式会社原子力技術研究所）

7* 動燃事業団嘱託（三菱原子力工業株式会社、原子力開発センター）

Experiments of Hydrogen Behavior in the Cover Gas and Sodium Space of
the LMFBR's SG

— Studies of Leak Detector Developments on LMFBR's SG (4) —

Y. Okumura ^{1*)}, M. Kuroha ^{1*)}, M. Sato ^{1*)},
Y. Daigo ^{2*)}, I. Ikemoto ^{3*)}, S. Kasai ^{4*)},
H. Ohta ^{5*)}, Y. Sano ^{6*)} and A. Masui ^{7*)}

Abstract

Various tests were conducted in SWAT-2 to investigate the hydrogen behavior both in the cover-gas and in the sodium by using the In-cover gas and the In-sodium hydrogen meters. The results of the hydrogen injection tests, the water injection tests and the bubble rising velocity measurement tests are presented in this report. The conclusions that were drawn from these tests are the followings.

- (1) Traveling velocity of hydrogen gas in the cover gas was dominated by the buoyancy and the convection rather than by the diffusion.
- (2) The background hydrogen partial pressure in the cover gas did not become lower than 10^{-2} Torr. This lower limit was two to three orders of magnitude higher than the hydrogen pressure in sodium.
- (3) The experimentally determined bubble rising velocity in sodium agreed well with the theoretical prediction.
- (4) The detection rate of cover gas hydrogen that was not dissolved into sodium was determined to be about 20%, and that of hydrogen dissolved into sodium to be about 80% with the present test vessel.
- (5) The hydrogen dissolution rate during the water injection tests was higher than that of the hydrogen injection tests.

1*) Plant Safety Section, FBR Safety Engineering Division, O-arai Engineering Center, PNC.

2*) Fast Breeder Reactor Development Project, PNC.

3*) Energy and Environment Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry.

4*) Naka Works of Hitachi, Ltd.

5*) Energy Development Division, Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

6*) Nuclear Engineering Lab., Toshiba Corporation.

7*) Mitsubishi Atomic Power Industries Co., Ltd.

目 次

1 はじめに	1
2 試験装置	2
2.1 CGHMタンク	2
2.1.1 CGHMタンクの構造	2
2.1.2 CGHMタンク壁面の温度制御	3
2.1.3 SWAT-2 装置の系統	3
2.2 ガス注入装置	4
2.3 気泡検出器	5
2.3.1 気泡検出器の検討	5
2.3.2 気泡検出器の主な仕様	6
2.4 カバーガス中水素計の特性	7
2.4.1 較正試験	7
2.4.2 拡散膜の水素透過率	7
2.4.3 イオンポンプの排気速度	8
3 アルゴンガス中水素挙動試験	9
3.1 試験	9
3.2 試験解析	11
3.3 考察	13
4 バックグラウンド水素濃度測定試験	14
4.1 試験条件および試験方法	14
4.2 試験結果	14
4.3 考察	15
5 気泡の上昇速度	18
5.1 解析モデル	18
5.2 試験結果	20
5.2.1 水中試験	20
5.3 ナトリウム中試験	21
5.4 考察	22
6 ナトリウム中注水素試験	23
6.1 試験方法及び条件	23
6.2 試験結果	23

6.3 試験結果の考察.....	25
7 ナトリウム中注水試験.....	29
7.1 試験条件.....	29
7.2 試験結果.....	29
7.3 試験結果の考察.....	30
8 まとめ.....	33
参考文献.....	34
付録-I ニッケル膜の水素透過率の算定法についての考察.....	83

1. はじめに

高速増殖原型炉「もんじゅ」蒸気発生器（以下 SG）において小リーク・ナトリウムー水反応事故が発生した場合に、これを早期に検出するためのリーク検出計の1つとしてカバーガス中水素計がある。これはリークの発生点が下降管のスタグナント領域、伝熱流動領域の上部の場合、あるいはナトリウムの流動が停止した場合での水リークを検出するのに非常に有効であり、内外で種々の型式のものが開発されている。⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾ 動力炉・核燃料開発事業団（以下 PNC）で主として小リーク・ナトリウムー水反応試験装置（以下 SWAT-2 試験装置）を使用して開発された PNC 型ナトリウム中水素検出計⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾ に引き続き、その設計方針および同型の真空部品を採用して、ニッケル膜およびその加熱ヒータをカバーガス中に設置する型のカバーガス中水素計が開発され、その仕様、構造および基本的性能が報告された。⁽⁷⁾

実機 SG での検出特性図を作成し、また種々の運転下においてもその検出特性からリーク規模および発生した位置を推定し、リーク時運転法を確立するためには、ナトリウム中に浸漬された伝熱管の水リークにより発生した水素ガスが、カバーガス中水素計によって検出されるまでに振舞う種々の挙動を定量的に把握することが必要である。このために、SWAT-2 試験装置に専用の容器を新設し、その上部に上記のカバーガス中水素計を設置して既設のナトリウム中水素計と共に使用され、ナトリウム／カバーガス体系下での水素ガスの挙動－主として移動速度とナトリウム中溶解割合－を調査する試験が実施された。

本報告書は、この試験結果を報告するもので、次の内容から構成されている。

- 水素計の性能特性 (第 2 章)
- アルゴンガス中での水素ガスの移行速度 (第 3 章)
- 気液平衡時におけるカバーガス中水素濃度のレベル (第 4 章)
- ナトリウム中の気泡上昇速度およびこれを測定する気泡検出器の説明 (第 2, 5 章)
- ナトリウム中注水素試験 (第 6 章)
- ナトリウム中注水試験 (第 7 章)

2. 試験装置

ナトリウム／カバーガス体系での水素ガス挙動を定量的に把握するために、蒸気発生器安全性試験室、小リーク・ナトリウム－水反応試験装置（SWAT-2）にカバーガス中水素計を設置してナトリウム中水素計と共に運転し、各種の試験が計画された。

そのため、次のような装置改造、装置製作を行なった。

- (1) SWAT-2 ループを改造し、カバーガス中水素計試験タンク（以下「CGHMタンク」と記述する）の増設
- (2) ナトリウム中へ水素ガスおよび水を正確な注入率で注入するためのガス注入装置の新設
- (3) ナトリウム中での水素気泡の上昇速度を測定するための気泡検出器の新設

本章では、製作したCGHMタンク、ガス注入装置、気泡検出器について述べる。また、カバーガス中水素計の特性についても述べる。

2.1 CGHMタンク

SWAT-2 装置では、反応容器を持ち、小リーク・ナトリウム－水反応試験およびナトリウム中水素計開発試験に使用されてきた。しかし、既設の反応容器を使用して本試験を実施する場合ナトリウムの深さ、流速の不足および容器壁面温度コントロール、気泡検出器の取付、ナトリウム液面調整等が難しい。そのため、既設の反応容器と並列にカバーガス中水素計用の有液面タンク設置することとした。

2.1.1 CGHMタンクの構造

図2.1にCGHMタンクの構造を示す。

CGHMタンクは上部（主にカバーガス部）を12^Bステンレスパイプ、下部（主にナトリウム部）を4Bステンレスパイプで製作し、ナトリウム液面を上下させることにより、ナトリウム液面の表面積を変化させることが可能である。以下に主な仕様を示す。

構	造	上部フランジ型タンク
材	質	SUS 304
外径×肉厚 (mm)		上部 Ø318.5 mm × t10.3 mm 下部 Ø114.3 mm × t6 mm
長	さ	全長 6600 mm 上部 1344.4 mm 下部 4900 mm レジューサ部 355.6 mm

全 内 容 積 146 l

カバーガス部容積 91 l (ナトリウム液面FL+7700時)

109 l (ナトリウム液面FL+7000時)

2.1.2 CGHMタンク壁面の温度制御

CGHMタンク壁面温度は、カバーガス部壁面に付着したナトリウムミストによる水素ガスの吸脱着に重要な影響を与えるため、正確に制御する必要がある。そのため予熱用ヒータは、12Bパイプ部に3本、レジューサ部に1本、4Bパイプ部に4本とし、それぞれのヒータは壁面に取付けた熱電対によりサイリスタ制御される。またヒータ容量は、壁面温度を500°Cに加熱可能な容量である。以下にその仕様を示す。

電 源 AC 100 V

容 量 12^B パイプ部 1.07 kw, 0.97 kw, 0.86 kw
(上部より)

レジューサ部 0.56 kw

4Bパイプ部 1.24 kw × 4本

形 状 シース型ヒータ (シース材質: SUS316)

2.1.3 SWAT-2装置の系統

図2.2にCGHMタンク設置後のSWAT-2装置のフローシートを示す。

CGHMタンク使用時には、反応容器のナトリウム入口部はメクラとし、ナトリウムループから反応容器を切り離して使用する。またナトリウム中の検出計としては、CGHMタンクの入口側にOHモジュール、出口側にPNC型ナトリウム中水素計と配素計ループが接続されている。

2.2 ガス注入装置

ナトリウム中での気泡の上昇速度、および水素気泡の溶解挙動を知るために、ナトリウム中のガスの注入量を正確に測定しなければならない。そのため、図2.3に示すガス注入装置を作成した。

F_1 , F_2 はコントローラ付質量流量計、 F_3 はコントローラなしの質量流量計で V_2 のニードルバルブで流量をコントロールする。 F_4 はノズル保護のためのリードガスラインで面積式流量計である。 V_{11} ラインは、ノズルが閉そくした場合の高圧バージライン、 V_6 ラインは、ガス放出ラインである。 V_{13} , V_{14} , V_{15} からはそれぞれ、CGHMタンク内の注水素ノズルへ配管されている。

以下にガス注入装置の仕様について述べる。

(1) 質量流量計

メー カ	上島製作所
名 称	サーマルマスフローメータ
流 量	0.2～10 cm ³ /min・NTP (コントローラ付) 0.6～30 cm ³ /min・NTP (コントローラ付) 4～200 cm ³ /min・NTP (コントローラ付) 0.2～10 ℥/min・NTP (コントローラ付)
	8～400 ℥/min・NTP (コントローラなし) F_3
 F_1 , F_2

上記流量計のうち F_1 , F_2 にはコントローラ付の4台の中から試験条件に適合する2台を選んで使用する。これにより、注水素率は、 1×10^{-6} g/secより 1.5×10^{-2} g/secの範囲で選択することが可能である。

(2) 面積式流量計 F_4

メー カ	流体工業株式会社
流 量	50～500 cm ³ /min・NTP アルゴン

(3) 配管 材 料

材 質	SUS 304
口 径	外径Φ 6.35 mm × 内径Φ 4.35 mm

2.3 気泡検出器

ナトリウム中、カバーガス中の水素の挙動を解析するため必要な要因として、ナトリウム中における気泡の上昇速度がある。しかし、ナトリウム中での気泡上昇速度を実測した例が殆んどないため、気泡検出器を開発し、気泡上昇速度を測定した。ここでは、気泡検出器について述べる。

2.3.1 気泡検出器の検討

気泡検出の方法として接触式などの比較的簡単なものが使用されてきた。

しかし、検出精度が悪く気泡上昇速度を求めるためには不向きである。また、超音波技術を利用した方式も考えられるが、本方式の開発には実用上、幾つかの問題があり、開発費用、期間にも制約があるため、以下に述べる電磁誘導式について開発を進めることにした。

今回、気泡上昇速度を測定する対象はCGHMタンクの下部管の直径約100mm(4Bパイプ)のステンレス鋼管内の気泡を検出するもので、気泡の最小径を約10mm程度とした。

以下、電磁誘導式で4Bパイプ内の気泡を検出することが可能か検討する。図2.4は気泡検出器の構成を示すものである。パイプをはさんで2個のステンレスボビンに巻かれた1次コイルと2次コイルを配置し、同様のコイルを上・下に2組取付ける。上・下4個の1次コイルは直列に接続され、交流定電流電源で励磁される。

励磁周波数は磁束のナトリウム侵透深さを大きくとるためと、外部磁界の周波数と区別するために20Hzを選定した。

2次コイルには1次コイルが作った磁界により2次電圧が誘起される。上・下の2個の2次コイル信号はそれぞれ和となるように接続し、信号処理回路に入力して、上の2次コイルと下の2次コイルの信号の差を増幅して、レコーダに記録する。上・下の2次コイルの気泡による差信号は気泡の大きさに比例し、下記のように大略求められる。

(1) 気泡の面積効果

$$\frac{S_2}{S_1} = \frac{\pi \cdot 1^2 / 4}{\pi \cdot 11.4^2 / 4} \approx 1 \times 10^{-2}$$

S_1 : 検出コイル面積 (直径11.4cm)

S_2 : 気泡断面積 (直径1cm)

(2) 気泡による磁路長差効果

$$\frac{\ell_2}{\ell_1} = \frac{1}{50} = 2 \times 10^{-2}$$

ℓ_1 : 磁束の平均通路長 (約50cm)

ℓ_2 : 気泡の直径 (1 cm)

(8) 気泡による信号成分

気泡が無いときの信号量を e_0 とすると 1 cm の気泡が検出コイル部を通過するために生ずる信号変化量 e_s は

$$e_s = e_0 \times \frac{S_2}{S_1} \times \frac{\ell_2}{\ell_1} = 2 \times 10^{-4} e_0$$

したがって、 $e_0 = 1 V$ の時約 200 μV の信号が得られる。

以上述べたように e_s は非常に微弱であるが、上・下の 2 次コイルを同一巻数として、かつ差動信号とすることにより、 e_0 成分を打消し、気泡信号 e_s のみを取出すようにした。

信号処理回路で必要な増幅率は出力電圧を 5 V として、約 10^5 倍となる。

実際には、1 次コイルと 2 次コイルの巻数比を大きくすることにより、増幅率を減らすことが可能である。

なお、外部磁界の外乱、上・下の 2 次コイルの信号の位相調整等を考慮して信号処理回路は設計される必要がある。

2.3.2 気泡検出器の主な仕様

気泡検出器の主な仕様

(1) 1 次コイル励磁仕様

周 波 数	20 Hz
励磁電流電圧	0.2 A, 120 V
駆動 方式	定電流駆動
負荷範囲	300 ~ 600 (Ω)

(2) 信号処理回路仕様

増 幅 率	10 ~ 10^5 倍
出 力	0 ~ 5 V DC
応答時間	100 msec
ノッチフィルタ	50 Hz

検出コイル部差動信号位相補償回路内蔵

(3) 検出コイル仕様

上・下コイル間隔	1 m
1 次コイル巻数	3000 回
2 次コイル巻数	7000 回
線 材	ポリイミド被覆銅線

線 経 1 次コイル $\varnothing 0.3\text{ mm}$ 2 次コイル $\varnothing 0.18\text{ mm}$
 ポ ピン 内径 6 cm 外径 11 cm
 厚さ 1.5 mm
 材質 SUS 316

図 2.5 は電磁誘導式ナトリウム中気泡検出器のブロックダイヤグラムを示す。図 2.6 は気泡検出信号の 1 例を示す。信号は気泡が下の検出器を通過するとき正側に、上の検出器を通過するときは負側に出る。検出コイルは保溫を外し、直接ナトリウム配管に接近して取付け、感度の向上を図った。この状態でナトリウム温度 500°C まで測定が可能である。

2.4 カバーガス中水素計の特性

カバーガス中水素計の較正試験はガス中試験 Run 6001 (ナトリウムミスト無し) と Run 6002 (ナトリウムミスト有り) について実施した。

較正試験としては水素計の特性確認のために数点の濃度で試験し、さらにナトリウムーカバーガス体系 (ナトリウムミスト中) での結果も得られたので合わせて述べる。

2.4.1 較正試験

較正試験に先立って、ガス加熱器の特性を確認するための煙の上昇試験、超高電離真空計の測定子の断線による真空系の大気開放などがあり、水素計を工場から納入後、特性に変化が生じることが考えられた。そのため、CGHMタンクに水素計を設置後、静的平衡圧力を測定して較正曲線を求めた。⁽⁷⁾

図 2.7 は動的平衡圧力 (P_N) と静的平衡圧力 (P_{GH}) の関係を示すものである。

Run 6001 試験には工場試験時の結果も合せて示している。この結果から真空系の大気開放後も特性に変化がないことがわかる。一方 Run 6001 と Run 6002 試験とは違いが明瞭でナトリウムミストがある場合は動的平衡圧力が高くなっている。これは拡散膜表面の酸化物や不純物等がナトリウムミストにより洗浄されたためと思われる。図から求めた較正式を以下に示す。

(1) ガス中較正式

$$P_{GH} = 5.38 \times 10^5 P_N^{1.3} \quad (\text{Torr}) \quad (2.1)$$

(2) ナトリウム中較正式

$$P_{GH} = 3.58 \times 10^5 P_N^{1.3} \quad (\text{Torr}) \quad (2.2)$$

2.4.2 拡散膜の水素透過率

今回カバーガス中水素計で使用しているニッケル拡散膜で PNC 型ナトリウム中水素計に使用している拡散膜と異なる点は下記の 2 点である。

(1) 拡散膜の製作方法はナトリウム中水素計ではプレス加工であるがカバーガス中水素計では

旋盤加工による削り出しである。

(2) 形状が試験管状で厚さが 0.025 cm (ナトリウム中水素計では 0.05 cm) である。

図 2.8 はニッケル膜の水素透過率の値である。水素透過率の算定には次式によった。(付録 I 参照)

$$K = \frac{d/A \cdot C_{NP} (P_N - P_{IP})}{P_{GH}^{1/2}} \quad (2.3)$$

K : 水素透過率 ($\text{cm}^2 \cdot \text{Torr}^{1/2}/\text{sec}$)

d : ニッケル膜厚さ (= 0.025 cm)

A : ニッケル膜面積 (= 19.9 cm^2)

C_{NP} : オリフィスコンダクタンス (= 3.3 ℓ/sec)

P_N : 超高電離真空計部圧力 (Torr)

P_{IP} : イオンポンプ部圧力 (Torr)

P_{GH} : カバーガス中水素分圧 (Torr)

水素透過率 K は超高電離真空計とシュルツ型電離真空計の単体較正精度、イオンポンプの排気速度および各測定精度の影響を受ける。図 2.8 から、水素透過率は若干の圧力依存性が見られる。 P_{GH} と K の関係を求めた実験式が下式である。

ナトリウムミストなしの場合

$$K = 1.6 \times 10^{-4} P_{GH}^{0.29} (\text{cm}^2 \cdot \text{Torr}^{1/2}/\text{sec}) \quad (2.4)$$

ナトリウムミストありの場合

$$K = 2.5 \times 10^{-4} P_{GH}^{0.29} (\text{cm}^2 \cdot \text{Torr}^{1/2}/\text{sec}) \quad (2.5)$$

この結果は従来のナトリウム中水素計について求められている結果⁽⁸⁾ とほぼ同じである。

2.4.3 イオンポンプの排気速度

イオンポンプの排気速度は前項で述べた水素計の較正曲線を左右する。本水素計ではイオンポンプ入口部にオリフィスを設け、排気速度の影響は約 1/10 になるように設計されている。図 2.9 は Run 6002 で得られた超高電離真空計圧力 P_N とイオンポンプ電流から求めたイオンポンプ部圧力 P_{IP} の関係を示す図である。イオンポンプに付けたオリフィスコンダクタンスは $C_{OF} = 3.31 \ell/\text{sec}$ であるため、 P_N と P_{IP} から次式によりイオンポンプの排気速度 S_p が求められる。

$$S_p = C_{OF} (P_N - P_{IP}) / P_{IP} (\ell/\text{sec}) \quad (2.6)$$

図中の実線は $S_p = 35 \ell/\text{sec}$ のイオンポンプ排気速度の定格値を示す。図中、測定値のバラツキは、計器の零点移動や読み取り誤差などによるものと思われる。

3. アルゴンガス中水素挙動試験

カバーガス中水素計の水リーク検出性能を評価するためには、アルゴンカバーガス系内の水素の挙動を知る必要がある。しかし、カバーガス中の水素挙動は(1)カバーガス空間でのアルゴンガスの流れ、(2)アルゴンガス中の水素の拡散、(3)ナトリウムミストと水素の相互作用、(4)容器壁蒸着ナトリウムへの水素の吸脱着等により複雑に変化することが予想され、さらにカバーガス中水素計が比較的新しいものであり、実験データが乏しいため、現在までのところ定量的な評価はなされていない。

ここでは、実験およびその解析を容易なものとするため、ナトリウムミストの存在しない状態で注水素実験を行ない、水素計の応答からカバーガス空間での水素の挙動を評価した。

3.1 試験

3.1.1 試験条件

実施した試験条件を表3.1に示す。本試験は、Run 6001B-1からRun 6001B-5まで計5回のケースが実施された。

試験パラメータは、注水素量、CGHMタンク内アルゴンガス温度、注水素位置、ニッケル膜温度である。

Run 6001B-1はタンク内アルゴンガス温度が常温での試験であるため、ニッケル膜温度を300°Cに設定したものである。注水素は操作上の不都合があり3回に分けて行われた。

Run 6001B-2はCGHMタンク内アルゴンガス温度が200°C一定で、ニッケル膜温度を500°Cに設定したものである。注水素量は0.1 gである。

Run 6001B-3はCGHMタンク内アルゴンガス温度及びニッケル膜設定温度はRun 6001B-2の場合と同じであるが、注水素量を0.5 gに増加したものである。

Run 6001B-4はCGHMタンク内アルゴンガス温度およびニッケル膜設定温度はRun 6001B-2及びRun 6001B-3の場合と同一であり、注水素量はほぼRun 6001B-2の場合と同じ0.05 gであるが、注水素位置が、他のケースのようにCGHMタンク下部(CGHMタンクフランジ面から6 m)ではなく、容器上部(CGHMタンクフランジ面から4 mm)としたものである。

Run 6001B-5はCGHMタンク内アルゴンガス温度を上部200°C、下部300°Cとしたものであり、その他の条件はRun 6001B-2とほぼ同一である。CGHMタンク内のアルゴンガス温度分布は、図3.1に示したとおりである。CGHMタンク上部は、カバーガス中水素計の主ヒータの影響により温度が高くなっている。

3.1.2 試験結果

Run 6001B-1～B-3 および Run 6001B-5 のカバーガス中水素計の応答曲線を図 3.2 に示す。本図の縦軸は、カバーガス中水素計の動的モードにおける超高電離真空計の指示より、カバーガス中の水素分圧を求め、各時刻における水素濃度上昇分の比 $C(t) - C(t_0)$ / $C(t_0) - C(0)$ ($C(t)$: 時刻 t の水素濃度, $C(t_0)$: 時刻 $t = 0$ (注水素開始時) の水素濃度, $C(t_f)$: 試験終了時の水素濃度) として無次元化したものである。

Run 6001B-4 は、容器上部に注水素したケースで、注水素中にカバーガス中水素計が応答を始めたこと、および CGHM タンク上部に充満した水素が下方へ拡散する過程のデータは採取しなかったことから、図 3.2 にはこのケースのカバーガス中水素計の応答曲線は掲載していない。

Run 6001B-1 は、タンク内温度が室温であり、ニッケル膜温度が 300°C であった。この試験では、注水素の不手際により、注水素が 3 回に分けて行なわれたが、1 回目、2 回目はうまく注入できなかつたので、応答曲線の時刻は、3 回目注入開始時を時刻 $t = 0$ としてプロットした。

Run 6001B-2, 3, 5 は、ニッケル膜温度が 500°C であり、注水量、タンク内温度をパラメータに取った試験である。3 種の試験を比較するため、図 3.3 に水素濃度変化を、図 3.4 に縦軸を注水素量より求めた想定濃度 $C(\infty)$ を使用して、各時刻における水素濃度上昇分の比として試験結果を示す。また、表 3.2 に各ケースの想定濃度、カバーガス中水素計が応答を開始した時間、および試験終了時の超高電離真空計部圧力等を示す。

Run 6001B-2, 3, 5 の応答開始時間について比較すると、B-2, B-5 は、ほぼ同じ時間であるが、B-3 は約 $\frac{1}{2}$ の時間となっている。

また、容器内水素濃度上昇率は、応答開始後、B-2 はほぼ同じ曲線を示しているが、B-5 は明らかに上昇率は大きくなっている。約 2300 秒後に、上昇率が変化している。次に、最終到達濃度を比較すると、B-5 試験は、想定濃度以上に上昇して、10000 秒以後減少している。B-3 試験では、想定濃度の 37% 以上には上昇せず B-5 と同様、10000 秒以後減少している。一方、B-2 試験では、測定終了時 (16500 秒後) まだ上昇傾向であるが想定濃度の約 60% であり、100% まで上昇しないと思われる。この、未検出の割合は、注水素量が大きい B-3 試験の方が大きくなっているが、原因として水素計の較正曲線は、シュルツ型電離真空計の動作範囲である 1 Torr 以下 (約 1000 ppm 以下) で得られたものを使用しているため、1000 ppm 以上の濃度での、較正曲線のズレているためであると考えられる。

以上、Run 6001B-2, 3, 5 の試験結果より、次のようなことがわかる。

- (a) 水素計応答開始時刻は、注水素量が大きいほど早く、水素ガスのかたまりの持つ浮力の影響を受けたと考えられる。
- (b) 水素計部における、水素濃度上昇率には、注水素量の影響ではなく、タンク内の温度分布の影響を受けている。すなわち、タンク内の対流により、水素ガスの混合が促進されたと考えられる。

3.2 試験解析

アルゴンガス中の水素ガスは、純分子拡散で混合すると仮定して、解析を行う。

解析を簡略化するため、右図に示すように、

長さ ℓ の容器（長さ方向を X とする）において
時刻 $t = 0$ で $X = 0$ から $X = h$ まで濃度 $C = C_0$ 、
 $X = h$ から $X = \ell$ まで濃度 $C = 0$ の状態から一
次元の拡散で容器内の濃度が均一化する場合に
ついて考える。容器内の水素濃度の変化を表わ
すと、

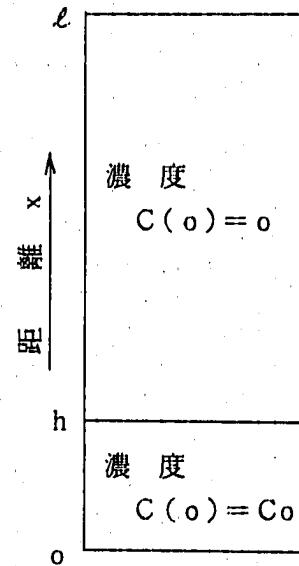
$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (3.1)$$

C : 水素濃度

x : 距離

t : 時刻

D : 拡散係数



水素注入時 ($t = 0$) の水素濃度分布

となり、初期条件、境界条件は

$$\left. \begin{array}{l} C(0) = C_0 \quad (0 \leq x \leq h) \\ C(0) = 0 \quad (h < x \leq \ell) \end{array} \right\} \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial C}{\partial x} = 0 \quad (x=0, x=\ell) \quad (3.3)$$

(3.1) 式を (3.2), (3.3) の条件で解くと、 X の位置 ($h < x < \ell$) の時刻 t における濃度 $C(t)$ は

$$C(t) = C_0 \left[\frac{h}{\ell} + \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} \sin \frac{n\pi h}{\ell} \exp \left(-\frac{Dn^2\pi^2}{\ell^2} t \right) \cos \frac{n\pi x}{\ell} \right] \quad (3.4)$$

となる。そこで、 x の位置での濃度変化、 $C(t) - C(0)/C(\infty) - C(0)$ を求めると、

$$C(\infty) = C_0 \cdot \frac{h}{\ell}, \quad C(0) = 0 \text{ であるから}$$

$$\begin{aligned} \frac{C(t) - C(0)}{C(\infty) - C(0)} &= \frac{C(t)}{C(\infty)} \\ &= 1 + \frac{\ell}{h} \cdot \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} \sin \frac{n\pi h}{\ell} \exp \left(-\frac{Dn^2\pi^2}{\ell^2} t \right) \cos \frac{n\pi x}{\ell} \quad (3.5) \end{aligned}$$

一方、拡散係数Dは次式によって求められる。⁽¹⁹⁾

$$\ln(PD) = \ln 0.0235 + 1.519 \ln T - \ln(\ln 4.88 \times 10^7 / T)^2 - 39.8 / T \quad (3.6)$$

P : 圧 力 (atm)

D : 拡 散 係 数 (cm^2/sec)

T : 絶 対 溫 度 ($^{\circ}\text{K}$)

上式より、各試験における拡散係数を求めると、B-1試験では、 $0.28 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、B-2～5試験では、 $0.67 \text{ cm}^2/\text{sec}$ となる。

したがって、(3.5)式を用いて、試験条件での濃度変化は、 $\ell = 600 \text{ cm}$ （注水素位置より容器上部フランジまでの距離）、 $h = 10 \text{ cm}$ （水素注入直後には水素はかたまりであるとする）、 $X = 550 \text{ cm}$ （カバーガス中水素計断熱筒入口までの距離）として求めることができる。計算結果を図3.2中の曲線①、②に示す。本図より明らかなように応答時間は、実験より約10倍遅くなっているが、上昇曲線の形は、B-3とほぼ一致している。

上記解析では、容器形状および水素ガスのかたまりの持つ浮力等を考慮していない。試験容器は、下部で 4^{B} であり、上部は 12^{B} である。また、注入された水素ガスの体積は、試験条件下で約 $350 \text{ cc} \sim 3500 \text{ cc}$ となり、 4^{B} 部では、かたまりとなって、浮力の影響を受けることが考えられる。このため、 4^{B} 部は、浮力の影響で水素ガスが上部へ移動すると仮定して、 $\ell = 150 \text{ cm}$ 、 $h = 10 \text{ cm}$ 、 $X = 100 \text{ cm}$ 、 $D = 0.665 \text{ cm}^2/\text{sec}$ として計算を行なった結果を図3.2中の曲線③で示す。この曲線と、Run 6001 B-3の試験結果と比較すると応答開始時刻、上昇曲線の形は、ほぼ一致している。また、先に解析した曲線②を平行移動したものであることがわかる。

3.3 考 察

試験結果および解析より、本試験での水素のガス中挙動として次のことが判る。

- (a) 水素は純粋な分子拡散というより、容器内の何らかの巨視的な流れにのって移動している。
その原因としては、水素のかたまりのもつ浮力およびガスの温度による対流が考えられる。
また、断熱筒内の流れにより吸い込まれて応答が早くなることも考えられる。
- (b) 応答速度は注水素量が多い程早い。これは水素のかたまりのもつ浮力が大きいためと考えられる。

- (c) ガス中の水素濃度上昇率は注水素量が多い程大きいが、容器内のガスに流れがある場合は、ミキシング効果によりさらに大きくなる。

以上のことから、実機蒸気発生器のカバーガス空間での水素検出評価に際して次のことが判明した。

- (a) 実機のガス空間では、各部の温度差がかなりついている為、対流がありミキシング効果が期待出来る。従って、水素検出計の応答時間が早く、しかもガス中の水素濃度上昇率が大きいことが予想される。ところが、初期通水時等のガス空間の温度差が小さい場合はミキシング効果が少ないと考えられる。従ってカバーガス中水素計の応答時間の評価に際し、ガスの対流によるミキシング効果を考慮する必要がある。
- (b) カバーガス中水素計の応答時間の評価に際して分子拡散の効果は無視して差支えない。

4. バックランド水素濃度測定試験

バックランド水素濃度測定試験は、実機蒸気発生器のカバーガス中のバックランド水素濃度を推定するための基礎データを得ることを目的に、Run 6002 試験として実施した。

4.1 試験条件及び試験方法

ナトリウムカバーガス体系において、水素の移行は次の2点が考えられる。

- (a) ナトリウム液面 \leftrightarrow カバーガス間の水素移行
- (b) カバーガス部ナトリウム（壁面付着ナトリウムおよびナトリウムミスト） \leftrightarrow カバーガス間の水素移行

カバーガス中の水素濃度は、上記移行現象の速度に依存する。この速度に影響を及ぼすパラメータを考えると、(a)に対しては、ナトリウム温度、ナトリウム中水素分圧、ナトリウム液面表面積等、(b)に対しては、カバーガス温度、カバーガス部壁面表面積等が考えられる。従って本試験では、ナトリウム温度、カバーガス温度、コールドトラップ温度をパラメータとしてカバーガス中水素分圧及びナトリウム中水素分圧を測定した。各試験に共通する主な試験条件を下記に示す。

ナトリウム循環流量 200 l/min

ナトリウム中水素計及びカバーガス中水素計ニッケル膜温度 500 °C

CGHMタンク内カバーガス圧力 1.0 kg/cm² G

CGHMタンク内ナトリウム液位 FL + 7700 mm

カバーガス中水素濃度の測定は、動的測定モードで、試験条件を設定後数時間放置して、イオンポンプ電流、超高電離真空計の指示が充分安定した後（最適測定レンジで指示変化が1時間にフルスケールの0.5%以下）、静的測定モードに切換え、静的平衡圧力を測定して、カバーガス中水素分圧を求めた。ナトリウム中水素分圧は、PNC型ナトリウム中水素計により測定した。

4.2 試験結果

各試験の条件及び試験結果をまとめた表を表4.1～4.3に示す。表4.1は、カバーガス部温度を300 °C、コールドトラップ温度を120 °C一定とし、ナトリウム温度をパラメータとして300～500 °Cに変化させた結果である。表4.2は、ナトリウム温度を450 °C、コールドトラップ温度を120 °C一定とし、カバーガス部温度をパラメータとして、300～500 °Cに変化させた時の結果である。表4.3は、ナトリウム温度を450 °C、カバーガス部温度を300 °C (Run 6002-2-7, 8のみ400 °C) 一定とし、コールドトラップ温度をパラメータとして120～180 °Cに変化させた時の結果である。以上の結果を図4.1～4.3にまとめた。図中の矢印は試験の順番を示している。また、数字は試験番号を示している。

図4.1～4.3に共通する特徴を以下に挙げる。

- (1) 気液平衡を仮定すると、カバーガス中の水素分圧（図中では静的平衡圧と記述している。）はナトリウム中の水素分圧と一致するはずであるが、各試験はいずれもカバーガス中の水素分圧はナトリウム中より2～3オーダ高いものとなっている。
- (2) カバーガス中の水素分圧は、各試験毎には充分安定した後に測定したにもかかわらず、全体的には、試験時間とともに減少している。

図4.1に示した試験の前半では、ナトリウム温度の高低によりカバーガス中水素分圧はそれぞれ減少増大する。しかし後半では、変化は少なく、ほぼ一定値を示している。

図4.2には、カバーガス温度の上昇および下降にともないカバーガス中水素分圧がそれぞれ上昇および下降する傾向が明らかに表わされている。

図4.3からは、カバーガス中水素分圧がナトリウム中の水素分圧によらないことが理解される。

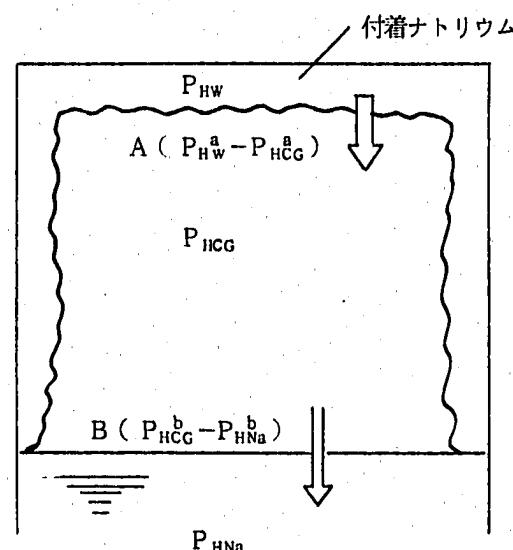
4.3 考 察

前記試験結果から、以下の点が明らかとなった。

- (1) 一連の試験では、試験の経過とともに徐々にカバーガス中水素分圧が減少する。特にCGHMタンクに初めてナトリウムをチャージした直後の試験（図4.1の前半）では、その傾向が著しい。
- (2) ある程度運転を継続すると、カバーガス中水素分圧は一定の値に近づくが、気液平衡を仮定した値より2～3オーダ大きい。
- (3) カバーガス中の水素分圧は、ナトリウム温度およびナトリウム中の水素分圧にあまり影響されず、本試験体系でカバーガス温度300°C、圧力1kg/cm²gのとき、 $3 \sim 4 \times 10^{-2}$ Torrとなる。
- (4) カバーガス中の水素分圧は、カバーガス温度とともに増大減少し、本試験体系ではカバーガス温度を300°Cから500°Cに上昇させると、約1オーダ水素分圧が上昇する。

上記した傾向を説明するため、右図に示すよ

うなモデルを考える。すなわち、CGHMタンクの上部フランジや内壁面にNaHとして付着した水素は、温度によって決まる解離圧でHに解離し、カバーガス空間に放出される。カバーガス空間で混合された水素はナトリウム液面を通してナトリウム側に吸収される。このとき次の式が成立する。



$$V_{OG} \frac{dP_{HOG}}{dl} = A(P_{HW}^a - P_{HOG}^a) - B(P_{HOG}^b - P_{HNa}^b) \quad (4.1)$$

ここに

P_{HOG} : カバーガス中水素分圧

P_{HW} : NaHの解離圧

P_{HNa} : ナトリウム中水素分圧

V_{OG} : カバーガス体積

A, B : 比例係数

a, b : 反応機構による定数(通常0.5あるいは1)

本試験の範囲では、カバーガス中水素分圧 P_{HOG} は、NaHの解離圧 P_{HW} (例えば300°Cで7.7 Torr) より十分小さく、またナトリウム中の水素分圧 P_{HNa} より十分大きい。さらに、水素分圧が時間的に大きく変化しない準定常状態では、(4.1)式の左辺は0となるため、次式が成立する。

$$A \cdot P_{HW}^a - A \cdot P_{HOG}^a - B \cdot P_{HOG}^b = 0$$

すなわち

$$P_{HOG}^a \left(1 + \frac{B}{A} P_{HOG}^{b/a}\right) = P_{HW}^a \quad (4.2)$$

となる。

(4.2)式によれば、カバーガス中の水素分圧は、CGHMタンクに付着したNaHの解離圧すなわちカバーガス温度の高低により、増大あるいは減少する。また、カバーガス中の水素分圧はナトリウム中水素分圧に依存しない。ナトリウム温度の影響は、たとえば温度を上げると、水素が液面を通してナトリウムに吸収される速度が大きくなる。すなわち係数Bが大きくなる。一方それと同時に液面付近のアルゴンガスは過熱されて上昇し、CGHMタンク内の対流を促進してNaHから解離した水素の拡散混合をうながす。すなわち係数Aが増大する。その結果AとBとの増大の効果は相殺され、カバーガス中の水素分圧はナトリウム温度にあまり影響されないことが考えられる。

上記した結果の考察は、本試験体系に対してなされたものであるが、同様の傾向は実機SGに対しても成立するものと考えられる。

一方、50MW蒸気発生器試験施設において実施された注水素試験⁽¹⁷⁾で蒸発器カバーガス中の水素濃度が測定されており、その結果によると、カバーガス中水素分圧は最低で 3×10^{-2} Torr (ナトリウム温度450°C, カバーガス温度380°C, コールドトラップ温度110°C) であった。このデータは、数日間同一運転条件で運転した結果得られたものであり、本試験体系で得られた

値とほぼ同一である。また、ANLにおけるカバーガス中水素に関する研究報告⁽¹⁸⁾によれば、(i)カバーガス中の水素分圧はコールドトラップ温度に強く依存し、ナトリウム中水素分圧よりも高い(図4.4)、(ii)カバーガス中の水素分圧はナトリウム温度の上昇とともに高くなり、400°C付近で同分圧のナトリウム温度依存性に変曲点が生じる(図4.5)とされている。しかし、今回の試験では、カバーガス中の水素分圧は 2×10^{-2} Torr以上であり、ANLの報告より1オーダー高く、上記(i)、(ii)の現象は見られなかった。この原因は今後の検討課題であるが、1つには、実験装置の大小の差が上げられるだろう。すなわち、ANLの試験はナトリウム全容量約4lと非常にコンパクトな装置であり、気液平衡に達する時間が短い事が原因であるかもしれない。換言すれば、本試験体系では、もっと長期間、同一試験条件で試験を行なえばバックグラウンド水素濃度はもっと低下するであろう。

5. 気泡の上昇速度

5.1 解析モデル

小リーク・ナトリウムー水反応で発生する水素ガス気泡の上昇速度を推定するための簡単な解析モデルを作成した。

気泡の上昇速度は、気泡の大きさ、形状、周囲の構造などの影響を受け、その上昇速度を正確に計算することは容易ではない。特にナトリウムー水反応により発生する水素ガス気泡は、大きさの異なる多数の気泡が存在すると考えられ、これらが合体や分離などの相互干渉をしながらナトリウム中に溶解していくという非常に複雑な挙動をする。

ここでは、まず単一気泡の挙動を解析するモデルを作成し、これを実験的に検証することにより将来の多気泡モデルに拡張していくことを考える。

(1) 単一気泡の挙動モデル

液体中に存在する単一気泡の上昇速度は、気泡の持つ浮力と液体の抗力のつり合いによって求められる。気体の浮力 F_V は

$$F_V = g \cdot V_B \cdot (\rho_l - \rho_g) \quad (5.1)$$

で表わされ、液体の抗力 F_R は次式で表わされる。

$$F_R = C_D \cdot A_P \cdot \frac{\rho_l \cdot U_B^2}{2} \quad (5.2)$$

ここに

A_P : 気泡の上昇方向投影面積

C_D : 抗力係数

g : 重力加速度

V_B : 気泡体積

U_B : 気泡上昇速度

ρ_g : 気体の密度

ρ_l : 液体の密度

気泡の浮力と抗力はつり合うため (5.1) 式と (5.2) 式を等しいとおいて気泡上昇速度を求めると

$$U_B = \sqrt{\frac{2 \cdot g \cdot V_B \cdot (\rho_l - \rho_g)}{C_D \cdot A_P \cdot \rho_l}} \quad (5.3)$$

となり、液体と気体の密度差、 $\rho_1 \gg \rho_g$ を考えると (5.3) 式は

$$U_B = \sqrt{\frac{2 \cdot g \cdot V_B}{C_D \cdot A_P}} \quad (5.4)$$

となる。抗力係数 C_D と気泡の形状に依存する投影面積 A_P に関しては、液体の物性と気泡上昇速度に依存することが知られており、種々の液体について実験的に求められている。⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾

液体の物性は Morton 数

$$M = \frac{g \cdot \mu_1^4}{\rho_1 \cdot \sigma_1^3} \quad (5.5)$$

ここに μ_1 : 液体の粘性係数

σ_1 : 液体の表面張力

を指標として使用し、気泡の上昇速度は気泡レイノルズ数

$$Re_B = \frac{D_B \cdot U_B}{\nu_1} \quad (5.6)$$

ここに D_B : 気泡直径

ν_1 : 液体の動粘性係数

を指標として使用することが多い。

本解析モデルの抗力係数 C_D には、種々の静止液体中を上昇する気泡の上昇速度から実験的に求めた只木ら⁽¹¹⁾ の整理式を使用した。

$$\left. \begin{array}{ll} 8 > M^{0.068} > K & C_D = 18 \cdot Re_B^{-0.82} \\ 6 > K > 8 \cdot M^{0.068} & C_D = 0.076 \cdot K^{1.82} \\ 16.5 > K > 6 & C_D = 1.25 \cdot K^{0.26} \\ K > 16.5 & C_D = 2.6 \end{array} \right\} \quad (5.7)$$

ここで $K = Re_B \cdot M^{0.23}$

気泡の投影面積 A_P を決める気泡形状は、気泡の大きさに依存し、小さい気泡は球形を保つが、体積が増加するにつれて楕円体から笠形（きのこ形）に変るといわれている。⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾

この場合の気泡形状と体積および表面積の関係を表 5.1 に示す。

只木ら⁽¹¹⁾ は実験的に、気泡の球相当直径と気泡レイノルズ数の関係を求めており、本解析モデルではこの整理式を使用した。

球 形

$$2 > K \quad D_B/a = 1.0$$

楕 圆 体

$$6 > K > 2 \quad D_B/a = 1.14 \cdot K^{-0.176}$$

$$16.5 > K > 6 \quad D_B/a = 1.36 \cdot K^{-0.28}$$

笠形(きのこ形)

$$K > 16.5 \quad D_B/a = 0.62$$

(5.8)

ここに $K = Re_B \cdot M^{0.23}$

$$D_B : 球相当直径 = \left(\frac{6V_B}{\pi} \right)^{1/3}$$

$$a : 投影直径 = \left(\frac{A_P}{\pi} \right)^{1/2}$$

以上の式から流体中の初期気泡体積あるいは相当直径を与えると、(5.4)～(5.8)式から気泡の上昇速度が計算される。

(2) 物性の検討

解析モデルに使用している実験式は、種々の流体による実験から求められているといえ、それらはすべて水や有機液体などによって代表される透明な液体によるものであり、液体金属による実験はない。気泡挙動に影響を与える流体の物性を、水、有機液体(代表例)、ナトリウムについて比較したものが表5.2である。ナトリウムは多少表面張力が大きい程度で、各物性ともこれらの実験式が適用できる水や有機液体とそれほど相違はない。したがって、この解析モデルは十分妥当性があると考えてよいであろう。

(3) 計算結果

以上の解析モデルを用いて、ナトリウム中における单一気泡の上昇速度と気泡の相当直径の関係を求めたものを図5.1に示す。ナトリウム温度が200°Cと500°Cの場合について計算しているが上昇速度のナトリウム温度依存性は大きくない。

上昇速度は相当直径が約15mmあたりで極小値をもっていることが判る。

5.2 試験結果

5.2.1 水中試験

ナトリウム中での気泡上昇速度測定試験を行う前に、水中での予備試験を行なった。この試験の目的は、

- (1) 気泡検出器の性質上、上下のセンサコイル間の気泡は1個以下が望ましい。そのため、ガス注入装置からの最適注入量の確認
- (2) 気泡体積-ノズル径の関係の確認
- (3) 水中での気泡の挙動の確認

試験方法は、図5.2に示すように長さ約5.5m、内径約5.5mmの透明ポリカーボネイトチューブの中に水を入れ、底近くのノズルよりアルゴンガスを注入して気泡の挙動を観察した。ノズルの向きは下向きとし、水面近くまで上昇した気泡を数十個メスシリンドラに捕獲して体積を求めた。また上昇速度は、媒体が水であるため、電磁誘導式気泡検出器による気泡検出ができ

ないので、目視により 1 m の標点間の通過時間から求めた。標点はノズルの上約 1 m と 2 m に設定した。注水素ノズルは、直徑 4.35 mm, 8 mm, 12 mm の 3 種類を製作し実験を行なった。

試験結果を表 5.3 に示す。気泡上昇速度は、3 種類のノズル径による差違はなかった。

一方、目視による観察では、気泡はノズルから安定して発生し、上昇途中での分離、結合等の変化も起らなかった。また気泡形状はいずれも笠形で予備解析の結果と一致した。

5.3 ナトリウム中試験

水中試験において、使用ノズルからの発生気泡の均一性と最適実験条件が確かめられたため、アルゴンガスおよび水素ガス注入による発生気泡の上昇速度測定試験が実施された。本試験の目的は、扱いの容易なアルゴンガスを主として用い、気泡上昇速度の各種パラメータの依存性を求め、解析モデルの妥当性を検証することである。

(1) 試験方法

試験はガス注入装置（2.2 節参照）により、水中試験で使用された 3 種類のノズルを用いナトリウム中にガスを注入した。

気泡上昇速度は 1 m 間隔で設置された電磁誘導式気泡検出器（2.3 節参照）の間の気泡通過時間より求め、気泡体積はガス流量と気泡発生頻度より平均体積を求めた。

試験のパラメータは、ノズル径、気泡（カバーガス）圧力、ナトリウム流速、ナトリウム温度、注入ガスの種類である。

(2) 試験条件と試験結果

試験条件と試験結果を表 5.4 に示す。各試験パラメータの範囲は以下の通りである。

ノズル径	4.35, 8.0, 12.0 mm
気泡圧力	0.45 ~ 2.35 kg/cm ² G
ナトリウム流速	0 ~ 21.3 cm/sec
ナトリウム温度	200 ~ 500 °C
注入ガス流量	9 ~ 0.8 cm ³ (NTP)/min
ガスの種類	アルゴン、水素

このうち、4.35 mm 径のノズルについては気泡検出ができなかった。上昇速度は数 10 個の気泡が 1 m 間隔の気泡検出器を通過する時間の平均から求めたが、各気泡の上昇速度の分布はたとえば図 5.3 に示すような正規分布の形をしており、変動幅も小さい。

また気泡検出器は、ナトリウム温度 500 °C まで満足に作動し、各気泡の識別性も非常に良好であったし、気泡発生頻度も安定しており均一な径の気泡が発生していることをうかがわせた。

(3) 解析結果との比較

図 5.4 に測定された気泡上昇速度と、5.1 節の解析モデルで計算された上昇速度の比較を示

す。図中の実線はナトリウム流速ゼロの場合の解析結果を示し、破線は 5.3 cm/sec の場合もある。実験上気泡径の範囲を大きくとれなかったため明確には言えないが、解析結果との一致は良好である。ただ、解析では上昇速度に気泡径の依存性が若干みられるのに対し、実験ではほとんど変化がない。また水素ガスとアルゴンガスの違いは上昇速度に影響しないようである。

次にナトリウム流速の効果をみたものを図 5.5 に示す。気泡上昇速度の減少ぶんとナトリウム流速の増加分は完全に一致しており（図中の実線）、気泡の相対速度はナトリウム流速にかかわらず一定であると言える。

そのほか、気泡圧力、ナトリウム温度に関してはほとんど影響がなく、解析的にもその結果を裏付けている。

5.4 考 察

単一気泡のナトリウム中上昇速度を計算する解析モデルを作成し、それをナトリウム中試験によって確かめた。この結果、測定された気泡径の範囲はあまり広くないが、解析と実験の一致は良好である。

また、ナトリウム流速の効果に関しては、気液間の相対速度が静止流体中の気泡上昇速度に等しいということが示され、ナトリウム流速による気泡の変形や上昇経路の変化はあまりないと考えてよい。

その他の実験パラメータ、たとえばナトリウム温度やガスの種類の影響はみられなかった。

この解析モデルを、小リーク・ナトリウムー水反応による発生水素気泡の挙動や溶解割合を計算できるようなモデルに拡張する場合には、以下のようなモデルの改良をする必要があろう。

○ 構造物（壁面）の効果

せまい流路における気泡の上昇速度は、広い流路に比べて一般的に小さくなる。これは気泡周囲の液体の下向きの速度が大きくなることや、気泡が周囲の構造物に接触することなどによる。この相互干渉は気泡径が流路直径の約 $1/10$ 程度以上大きくなると無視できなくなると言われている。実際の蒸気発生器のナトリウム流路には、多数の伝熱管群が密集しており、この効果を考慮する必要があろう。

○ 多気泡の効果

実際のナトリウムー水反応では、異なった径の多数の気泡が連続的に発生すると考えられ、気泡間の合体や分裂などの相互干渉があり、その現象をミクロに記述するのは不可能である。したがって、ある気泡径分布を仮定し、その挙動をマクロ的にとらえるようなアプローチが必要となろう。

6. ナトリウム中注水素試験

ナトリウム-水反応によって発生する水素ガスのナトリウム中の溶解割合、カバーガス中の検出割合等を評価するための基礎データを蓄積する目的でナトリウム中注水素試験を行なった。

6.1 試験方法及び条件

試験は、ガス注入装置（2.2節参照）により、ナトリウム中気泡上昇速度測定試験に使用した3種類のノズルおよび、0.3, 0.5 mmのノズルを用いて水素ガスを注入した。注入方法は、ガス注入装置-ノズル間の配管中に一定量の水素ガスを蓄めた後、一定流量のアルゴンガスで追し出す方法とした。

試験のパラメータは、ノズル径、ナトリウム温度、注水素率、ノズル位置である。試験パラメータ及び主な試験条件を以下に示す。

ノズル径	0.3, 0.5, 4.35, 8.0, 12.0 mm
ナトリウム温度	200, 270, 330, 400, 500 °C
注水素率	6.13×10^{-5} , 5.37×10^{-3} , 2.32×10^{-3} g/sec
ノズル位置	ナトリウム液面下 3710, 2700 mm
ナトリウム循環流量	25 l/min
CGHMタンク内カバーガス圧力	0.2 kg/cm ² G
CGHMタンク内カバーガス温度	ナトリウム温度と同一
CGHMタンク内ナトリウム液位	FL + 7700 mm
ナトリウム中水素計及びカバーガス中水素計ニッケル膜温度	500 °C
全注水素量	0.0134 g

6.2 試験結果

表6.1に注水素試験の試験条件と試験結果を示す。表中の試験結果の各項目は次のように定義した。

(1) ナトリウム中水素濃度

試験前 C_{Na} : 注水素直前のナトリウム中水素濃度であり、MK-IIナトリウム中水素計の超高真空圧力計の読みと較正式より求めた。

較正式は次式を使用した。

$$C_{Na} = 3.0 \times 10^4 \cdot P_{GNa}^{0.751} \quad (6.1)$$

C_{Na} : ナトリウム中水素濃度 ppm

P_{GNa} : 超高真空圧力計の読み Torr

試験後 C_{Na_f} : 注水素後に静定したナトリウム中水素濃度であり、 C_{Na_i} と同様較正式より求めた。

水素検出割合 ϕ_{Na} : ナトリウム中水素計によって検出された水素の総量と全注水素量の比であり、次式より求めた。

$$\phi_{Na} = \frac{(C_{Na_f} - C_{Na_i}) \cdot V_{Na} \cdot \rho_{Na} \times 10^{-6}}{W_{H_2}} \times 100\% \quad (6.2)$$

V_{Na} : 系内ナトリウム容積 245 l

ρ_{Na} : 系内ナトリウム平均密度 g/l

W_{H_2} : 全注水素量 0.0134 g

(2) カバーガス中水素分圧

試験前 P_{H_1} : 注水素直前のカバーガス中水素分圧であり、カバーガス中水素計の超高真空圧力計の読みと較正式より求めた。

較正式は次式を使用した。

$$P_{H_1} = 1.93 \times 10^6 \cdot P_{Gc}^{1.32} \quad (6.3)$$

$$P_{H_2} = 2.57 \times 10^7 \cdot P_{Gc}^{1.33} \quad (6.4)$$

P_{H_1}, P_{H_2} : カバーガス中水素分圧 Torr

P_{Gc} : 超高真空圧力計の読み Torr

P_{H_1} は試験番号 1 ~ 11 までに、 P_{H_2} は 12 ~ 23 に使用する。この理由は試験番号 11 の後、カバーガス中水素計のイオンポンプ取換により、イオンポンプ-超高真空圧力計間のオリフィスガスケットを取りはずしたためである。

試験後 P_{Hf} : 注水素後に生じたカバーガス中水素分圧の最大値であり、 P_{H_1} と同様較正式より求めた。

水素検出割合 ϕ_{Gc} : カバーガス中水素計によって検出された水素の総量と全注水素量の比であり、次式により求めた。

$$\phi_{Gc} = \frac{(P_{Hf} - P_{H_1}) \cdot V_G}{31.18 \cdot (T_G + 273) \cdot W_{H_2}} \times 100\% \quad (6.5)$$

V_G : カバーガス部容積 l

T_G : カバーガス部温度 °C

カバーガス中水素分圧上昇率による水素検出割合 ϕ_{rc} :

カバーガス中の水素分圧は注水素率が低い場合注水素中一定の上昇率で増加する。この上昇率と注水素率より、次式で求めた検出割合である。

$$\phi_{rc} = \frac{R_{CO}}{G_{H_2}} \quad (6.6)$$

$$R_{CO} = \frac{\Delta P_{H_2} \cdot V_0}{31.18 \cdot (T_0 + 273)} \times 100 \% \quad (6.7)$$

R_{CO} : 単位時間あたりのカバーガス中水素ガス増加率 g/sec

ΔP_{H_2} : 単位時間あたりのカバーガス中水素分圧増加率 Torr/sec

G_{H_2} : 注水素率 g/sec

6.3 試験結果の考察

(1) ナトリウム中水素計による水素検出割合

図6.1にナトリウム中水素計による水素検出割合とナトリウム温度の逆数との関係を示す。今回の注水素試験では、ナトリウム中水素計による水素検出割合の下限は約2%（水素濃度で1 ppb）であるため、水素濃度の変化が検出されなかった試験については、1.5%以下として矢印で示した。

水素検出割合は、ナトリウム温度が高いほど高くなっている、ナトリウム温度に依存することがわかる。また、注水素率も水素検出割合に影響を与えていていることがわかる。すなわち、注水素率の低い試験 (6.13×10^{-5} g/sec) では、気泡は1秒間に1～3個発生しており、気泡相互の影響はほとんどないものと考えられ、気泡上昇速度測定試験で得られた気泡上昇速度、気泡径であると考えられる。一方、注水素率の高い試験 ($5.37 \sim 2.32 \times 10^{-3}$ g/sec) では、気泡は連続的に多数発生している。いわゆる気泡流となっていると考えられる。この気泡流の状態では、単気泡の時に比べ気泡の相互干渉による、気泡上昇速度の増加や、気泡の合体による気泡表面積の相対的な減少が起き、ナトリウム中への水素の溶解量が減少したものと考えられる。

(2) カバーガス中水素計による水素検出割合

図6.2にカバーガス中水素計による水素検出割合とカバーガス温度の逆数との関係を示す。本図には、試験前後のカバーガス中水素分圧の差から求めた水素検出割合 ϕ_{CO} とカバーガス中水素分圧の上昇率から求めた水素検出割合 ϕ_{rc} の2つの水素検出割合が求められる試験については、水素検出割合に巾を持たせてプロットした。また、ナトリウム温度500°C（カバーガス温度480°C）の場合の水素検出割合は0.04%であったが、1%以下として矢印で示した。

本図から、カバーガス中水素計による水素検出割合は、カバーガス温度が高いほど低くなっている、ナトリウム中水素計による水素検出割合と逆の傾向を示している。一方、注水素率の違いによる、水素検出割合の違いは、ナトリウム中水素計による水素検出割合ほど顕著に現わ

れていないが、カバーガス温度400°C付近では注水素率が大きい方が水素検出割合が高くなっている。

(3) ナトリウム中水素計およびカバーガス中水素計による水素検出割合の関係

ナトリウム中水素計による水素検出割合とカバーガス中水素計による水素検出割合との関係を図6.3に示す。図中実線で示した曲線は両水素計による検出割合の合計が100%となる線である。試験結果は、図中の実線（理想値）と大きく離れている。図中破線は、ナトリウム中水素計による水素の絶対検出量は全体の80%，カバーガス中水素計による水素の絶対検出量は全体の20%であるとした曲線である。すなわち、 $\phi_{Na}/0.8 + \phi_{UG}/0.2 = 100\%$ となる曲線である。試験結果はこの破線とよく一致しており、データのバラツキも±15%以内である。また、注水素率の違いによる検出割合の違いは現われていない。これらの事より、今回の注水素試験の体系においてナトリウム中水素計では、ナトリウム中へ溶解した水素の約80%，カバーガス中水素計では、カバーガス空間へ出て来た水素（未溶解水素）の約20%が検出可能であると考えられる。この原因は、ナトリウム中水素濃度では、CGHMタンクの構造上、ナトリウムのタンクへの入口がナトリウム液面より約1m下にあり、ナトリウム入口より上部のナトリウムは静止しているため、その部分で溶解した水素はループ途中にある水素計では検出できないものと考えられる。一方カバーガス中水素濃度では、カバーガス空間へ出た水素は、タンク内カバーガス部壁面の蒸着ナトリウムやナトリウムミストに吸着されるため、検出量が減少するものと考えられる。

(4) 水素ガス気泡の溶解割合

水素ガスのナトリウムへの溶解割合は、今まで報告例⁽¹²⁾⁽¹³⁾が少ない。ここでは、まずWhittingham⁽¹³⁾の溶解速度式について考察を行う。

Whittinghamは水素ガスのナトリウム中への溶解速度を次式で与えている。

$$\log_{10} K_a = 4.17 - 4130/T_K \quad (6.8)$$

K_a ：水素ガス溶解速度 $\text{cm}^3 \text{NTP} \cdot \text{cm}^{-2} \text{Na} \cdot \text{atm}^{-1} \text{sec}^{-1}$

T_K ：ナトリウム温度 K

したがって、水素ガス気泡がナトリウム中を△L上昇する時の体積減少量△V_Bは、

$$\Delta V_B = K_a \cdot P \cdot S_B \cdot \frac{\Delta L}{U_B} \quad (6.9)$$

P：気泡圧力 atm

U_B ：気泡上昇速度 cm/sec

S_B ：気泡表面積 cm^2

となり、ナトリウム中溶解割合φは

$$\phi = \sum \Delta V_B / V \quad (6.10)$$

V : 全注水素量

で表わされる。

U_B , S_B , は 5.1 項の気泡上昇速度の解析に使用した式を使用して、試験番号 2 ~ 6, 8 ~ 11, の場合について、解析を行う。解析を行う注水素試験は、気泡相当直径、気泡上昇速度が、5 章の解析と実験で確認されており、また注水素率が小さいため、気泡は 1 個毎に安定して発生しており、気泡自体の分裂、合体の影響を無視できる。

解析の結果、各ケースの溶解割合は、試験結果のナトリウム中水素検出割合と大きく異なっており、溶解速度が大きすぎることがわかった。そのため、溶解速度に係数 η を求めた。表 6.2 にその結果を示す。同表より、 η の値は、0.1 ~ 0.24 の間にあることがわかる。また、ナトリウム温度 500 °C の場合においては、 $\eta = 0.1$ とした場合でも溶解割合は 100 % となり、実験においても 100 % 溶解したと考えられる。

次に、日本機械学会ナトリウム加熱蒸気発生器調査研究分科会の報告⁽¹²⁾による、溶解割合式について考察を行う。上記報告では、溶解割合 ϕ は以下の式で表わしている。

$$\phi = 1 - \left\{ 1 - \frac{k \cdot \rho_1 \cdot (W_s - W_\infty) \cdot L}{\rho_g \cdot r_0 \cdot U} \right\}^3 \quad (6.11)$$

k : 物質移動係数 cm/sec

 ρ_1 : ナトリウムの密度 g/cm³ ρ_g : 水素気泡の密度 g/cm³ W_s : 気泡の接しているナトリウムの水素濃度 W_∞ : 気泡から離れた位置のナトリウムの濃度

L : 気泡発生点の深さ cm

 r_0 : 気泡の初期半径 cm

U : 気泡の上昇速度 cm/sec

そして、SWAT-2 のナトリウム-水反応試験結果から、気泡半径 r_0 、気泡上昇速度 U 、物質移動係数 k の実験式を求めている。すなわち、 $K = 0.01 \text{ cm/sec}$, $r_0 = G^{0.7}/2$ (G : 水リーケ率 g/sec), $U = 130 - u$ (u : ナトリウム流速) としている。しかし、前述したように、気泡径、気泡上昇速度が確認されているケースがあるので、(6.11) 式を使用して、物質移動係数 k を求めた結果を表 6.3、図 6.4 に示す。図 6.4 より、物質移動係数には、若干の温度依存性が見られるが、ナトリウム温度が 330 °C 以上では 0.01 としてよいことがうかがえる。データのバラツキは、測定値のバラツキとナトリウム中溶解水素の検出割合が 0.8 であるとした事によるものと思われる。また、500 °C の場合の物質移動係数の値は、400 °C の場合より低くなっているが、溶解割合を 100 % 以上とすれば 0.01 以上となる。

以上、気泡径、気泡上昇速度が実験により得られた試験ケースについてナトリウム中への水

素の溶解割合について検討を行なったが、今後、気泡径気泡上昇速度が実験により得られなかったケースについても解析を行なう予定である。

7. ナトリウム中注水試験

ナトリウム中注水試験は、注水素試験と同一時期に 0.3 φ, 0.5 φ ノズルを使用して水（蒸気）1 g をナトリウム中へ注入する試験を4回行なった。注入法は、内径 1.022 φ, 長さ 4810 mm のステンレスパイプ中に水 1 gを入れ、これをヒータで加熱後、ガス注入装置からのアルゴンガスで押し出す方法とした。

7.1 試験条件

試験条件は、0.5 φ ノズルでナトリウム温度 270 °C および 400 °C, 0.3 φ ノズルでは 330 °C および 400 °C とした。注水率は、0.5 φ ノズルで 4.6×10^{-2} g/sec, 0.3 φ ノズルで 2.0×10^{-2} g/sec とした。

主な試験条件を以下に示す。

ノズル径	0.3, 0.5 mmφ
ナトリウム温度	270, 330, 400 °C
注水率	$2 \times 10^{-2}, 4.6 \times 10^{-2}$ g/sec
ノズル位置	ナトリウム液面下 2700 mm
ナトリウム循環流量	25 ℥/min
CGHM タンク内カバーガス圧力	0.2 kg/cm ² G
CGHM タンク内カバーガス温度	ナトリウム温度と同一
CGHM タンク内ナトリウム液位	FL + 7700 mm
ナトリウム中水素計及びカバーガス中水素計ニッケル膜温度	500 °C
全注水量	1 g

7.2 試験結果

表 7.1 に注水試験の試験条件と試験結果を示す。表中の試験結果の各項目は次のように定義した。

(1) ナトリウム中水素濃度

試験前 C_{NaI} : 注水試験直前のナトリウム中水素濃度である。

試験後 C_{Naf} : 注水試験後に静定したナトリウム中水素濃度である。

検出水素量 W_{HNa} : ナトリウム中水素計によって検出された、水素の総量であり、次式より求めた。

$$W_{HNa} = (C_{Naf} - C_{NaI}) \cdot V_{Na} \cdot \rho_{Na} \times 10^{-6}$$

V_{Na} : 系内ナトリウム容積 245 ℥

ρ_{Na} : 系内ナトリウム平均密度 g/l

W_{HNa} : 検出水素量 g

(2) カバーガス中水素分圧

試験前 P_{Hf} : 注水試験直前のカバーガス中水素分圧である。

較正式は次式を使用した。

$$P_H = 2.57 \times 10^7 \cdot P_{GO}^{1.33}$$

P_H : カバーガス中水素分圧 Torr

P_{GO} : 超高真空圧力計の読み Torr

試験後 P_{Hf} : 注水試験後に生じたカバーガス中水素分圧の最大値である。

検出水素量 W_{HCG} : カバーガス中水素計によって検出された水素の総量であり、次式より求めた。

$$W_{HCG} = \frac{(P_{Hf} - P_{Hi}) \cdot V_G}{31.18 \cdot (T_G + 273)}$$

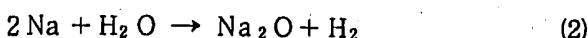
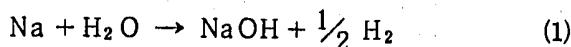
注水の途中経過は、ガス注入装置の流量計でモニタが可能であり、蒸気からアルゴンガスに変化すると、流量計の指示も変化する。この結果、注水率は、初期の試験条件と同じ注水率で注入されたことが確認された。また、注水総量は、注水継続時間より求めたものである。試験番号W-2の試験においては、注水途中で完全にノズルが閉塞し、注水総量は、0.73gであった。あとの3ケースの試験においては、流量計の指示よりノズル閉塞は起らなかったが、W-4の試験は、総注水量は0.89gと予定より約1割少なかった。

7.3 試験結果の考察

ナトリウム中注水試験は、4回行なっただけであるので、ナトリウム-水反応時のナトリウム-カバーガス体系での水素挙動を完全に把握することは困難であるが、ナトリウム中水素計およびカバーガス中水素計での水素検出割合、発生水素ガス量についての考察を行なう。

(1) ナトリウム中水素計およびカバーガス中水素計での水素検出割合

ナトリウム水反応が起きた場合、反応は



であり、上記(1)の反応はナトリウム温度がNaOHの融点である318.4°C以下の場合、(2)の反応はナトリウム温度が318.4°C以上の場合に支配的であるといわれている。⁽¹⁴⁾そこで試験は318.4°C以下で行なったケースもあるが、ここでは(2)の反応だけが起きるとする。すなわち水1gに対して水素は0.111g発生し、注水率を注水素率に換算すると、 $4.6 \times 10^{-2} g H_2 O / sec$ は $5.1 \times 10^{-3} g H_2 / sec$ 、 $2 \times 10^{-2} g H_2 O / sec$ は $2.2 \times 10^{-3} g H_2 / sec$ となる。この値

を用いて、ナトリウム中水素計およびカバーガス中水素計での水素検出割合（検出水素量／発生水素量）を求めた結果が表7.2である。

図7.1、図7.2にナトリウム中水素計とカバーガス中水素計による水素検出割合と温度の関係の図を示す。これらの図には、6章で述べたナトリウム中注水素試験のうち注水素率、ノズル口径、ナトリウム温度等の条件が同じような試験の結果も合わせて示している。図7.1より、ナトリウム中水素計での水素検出割合は、注水試験の方が数倍高くなっている。一方、50 MW蒸気発生器試験施設において実施されたミドルレグ注水試験⁽¹⁵⁾ 及び注水素試験⁽¹⁶⁾ の結果では、ナトリウム温度が300～350°C以上では、水素検出割合は、注水、注水素試験共ほぼ同じとなっているが、200°Cの注水、注水素試験では水素検出割合は注水試験の方が高くなっている。今回のSWAT-2での試験と同じ傾向を示している。

カバーガス中水素計での水素検出割合は、図7.2より注水試験の方が注水素試験より低くなっているが、検出割合の差は大きくない。

(2) 発生水素ガス量について

6章で述べたように、注水素試験において、水素検出量は、ナトリウム中水素計では溶解水素の80%，カバーガス中水素計では未溶解水素の20%しか検出できないことが判明した。注水試験においても水素検出量は同じ割合であるとしてトータル水素量を求めた結果を表7.3に示す。各項目は以下の式で求めた。

$$W_{HTNa} = W_{HNa} / 0.8$$

$$W_{HTCG} = W_{HOG} / 0.2$$

$$W_{HT} = W_{HTNa} + W_{HTCG}$$

$$\phi_t = W_{HT} / W_{H_2O} \cdot \frac{2}{18}$$

W_{HTNa} ：ナトリウム中溶解水素量 (g)

W_{HNa} ：ナトリウム中水素計での検出水素量 (g)

W_{HTCG} ：カバーガス中水素量 (g)

W_{HOG} ：カバーガス中水素計での検出水素量 (g)

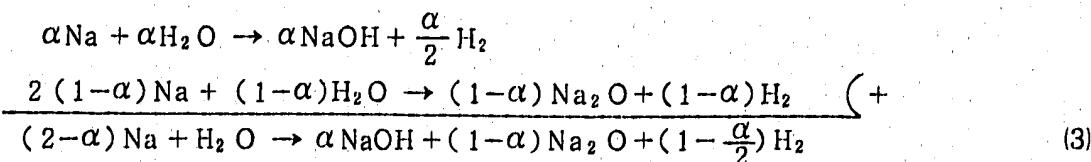
W_{HT} ：トータル水素量 (g)

ϕ_t ：トータル水素検出割合

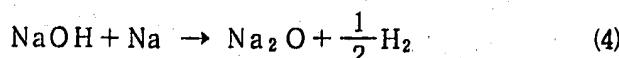
W_{H_2O} ：全注水量 (g)

一方、ナトリウム-水反応においては、モル転換比という係数が使われる。このモル転換比Fは、前項の(1)と(2)の反応が両方同時に起きるとした場合、水1モルから発生する水素ガスのモル数である。

すなわち、



で表わされる反応式において、モル転換比Fは $(1 - \frac{\alpha}{2})$ で表わされ、1よりFは0.5である。また上記反応で発生したNaOHは、そのままではナトリウム中水素計で検出されないが、NaOHの融点以上の500°Cに加熱されることにより、



の反応が起り、ナトリウム中水素計で検出される。そして、トータルの水素検出割合は、(4)の反応が完全に起きるとすれば100%となるはずである。ところが、表7.3より、トータル水素検出割合は、ナトリウム温度が400°C試験では、ほぼ100%であるが、ナトリウム温度が330°Cと270°Cの2ケースの試験ではナトリウム中水素計で溶解水素の80%，カバーガス中水素計で未溶解水素の20%しか検出されない(図6.3による)という仮定が約±15%の誤差を含むことを考慮しても100%とならない。この原因を推測すると、この2ケースの試験は、NaOHの融点近くか、融点以下の温度条件であり、上記(3)式の反応で発生したNaOHの一部は、ノズル付近へ付着(ノズル閉塞の原因)したり、固体のまま、ナトリウムより重いため、ナトリウム中水素計までの途中の配管に沈殿、付着したためであると考えられる。

一方、400°Cの試験では、NaOHが発生しても融点以上であるため、ナトリウム中水素計へ出て来たものと思われる。以上、ナトリウム-水反応における水素ガスの挙動について述べてきたが、今回の4ケースだけで全てを解明することは難しく、今後の試験が待たれる。

8. ま　と　め

直接挿入型カバーガス中水素計を SWAT-2 装置に設置し、ナトリウム中水素計とともに、ナトリウム／カバーガス体系下での水素ガスの挙動を研究するための試験を行ない、得られた成果は以下の通りである。

- (1) 直接挿入型カバーガス中水素計の性能は安定しており、水素濃度測定用として充分な機能を持つ。
- (2) アルゴンガス中の水素ガスの挙動は、分子拡散より水素ガスのかたまりの持つ浮力および容器内の対流によるミキシング効果の方が支配的である。
- (3) ナトリウム／カバーガス体系下でのカバーガス中のバックグラウンド水素濃度は、カバーガス温度の変化に影響を受けるが、ナトリウム温度、ナトリウム中水素濃度には、ほとんど影響を受けない。
- (4) カバーガス中水素分圧は、ナトリウム中水素分圧より 2～3 オーダー高く、 10^{-2} Torr 以下には下がらなかった。
- (5) ナトリウム中単気泡の気泡径－上昇速度の関係は、解析と実験がよく一致した。
- (6) 注水素試験の結果、今回の試験の体系では、カバーガス中へ出た水素ガスの検出割合は約 20 % であった。また、ナトリウム中で溶解した水素ガスの検出割合は約 80 % であった。
- (7) 水素ガス単気泡のナトリウム中への溶解割合は、ナトリウム温度に依存するが、溶解速度は Whittingham の溶解速度⁽¹³⁾ の約 $\frac{1}{4}$ ⁽¹²⁾ であった。また物質移動係数を使用した溶解割合式は、気泡径、気泡上昇速度に実験値を使用した場合、ほぼ実験と一致した。
- (8) 水素ガス多気泡のナトリウム中への溶解割合は、単気泡に比べ低くなる。
- (9) 注水試験の結果、ナトリウム中水素計での水素検出割合は、注水素試験に比べ数倍高くなる。ナトリウム／カバーガス体系での水素挙動について得られた研究成果は、まだ定性的な部分も多いので、実機 SG に対応できるような定量的なデータを得るために、現在も試験を実施中である。最後に、ナトリウム／カバーガス体系での水素挙動試験を実施するに当って貴重な助言を寄せられた、元蒸気発生器開発部堀雅夫部長、プラント安全工学室山田敏夫主査、高速実験炉部原子炉二課井上設生の各氏に感謝の意を表す。なお、試験の実施、データの整理等、東興機械工業（株）派遣員の手で行なわれた事を付記する。

参考文献

- (1) 宮地, 足立, 法月, 玉山「50 MW 蒸気発生器試験施設における水リーク検出システム評価
試験一第4報—直接式Ni隔膜型カバーガス中水素計の開発」 PNC SN941 78-36
(1978.3)
- (2) J. L. Quinet and L. Lannou "Leak Detection by Hydrogen Measurements in
Sodium and Argon—Application to the Super Phenix Scale Model—" IAEA
Specialists' Meeting on Leak Detection and Location in LMFBR Steam
Generators, Dimitrovgrad USSR (June 1978)
- (3) P. M. Magee et.al., "LMFBR Steam Generator Leak Detection Development
in the U. S." ibid.
- (4) 鐘ヶ江, 池本, 大後, 井上, 堀「PNC型ナトリウム中水素検出計1号機—小リーク・ナトリ
ウム・水反応試験研究 第14報—」 PNC SN941 78-85 (1978.6)
- (5) 鐘ヶ江, 池本, 大後, 井上, 堀「PNC型ナトリウム中水素検出計2号機—動的室・静的室分
離型—(小リーク・ナトリウム・水反応試験研究—第15報)」 PNC SN941 78-91
(1978.7)
- (6) 黒羽, 井上, 大後, 佐藤「オリフィス付ナトリウム中水素計の性能特性試験および最適設計
の検討(リーク検出計開発試験—第1報)」 PNC SN941 79-188 (1979.10)
- (7) 黒羽, 奥村, 佐藤他「直接挿入型隔膜式カバーガス中水素計の開発(リーク検出計開発試験
—第3報)」 PNC SN941 78-91 (1978.7)
- (8) 鐘ヶ江, 池本, 橋口, 堀「ニッケル膜—イオンポンプ型ナトリウム中水素検出計におけるニ
ッケル膜および真空部最適設計法」 SN941 76-30 (1976.3)
- (9) Haberman, W. L. and Morton, R. K., Proc. Amer. Soc. Civ. Engr. 80-387
(1954)
- (10) Peeble, F. N. and Garber, H. J., Chem. Engng. Progr., 49-2 (1953)
- (11) 只木眞力, 前田四郎, 化学工学, 25-4 (1961)
- (12) 日本機械学会Na—加熱蒸気発生器調査研究分科会「高速増殖炉蒸気発生器の安全性, 信頼
性向上に関する調査研究」 SJ254 75-02 (1975)
- (13) A. C. Whittingham "The Liquid Sodium-Hydrogen System and Kinetic
Measurements in The Temperature Range 610-677 °K" RD/B/N2550,
Aug. 1974
- (14) 根井, 氏原, 大内, 他「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—」 PNC SN943 73-02 (1973.8)

- (15) 小杉, 仲井, 金子, 恵本「50 MW蒸気発生器試験施設における水リーク検出システム評価
試験 第7報-注水試験-」 PNC SN941 81-23 (1981.4)
- (16) 法月, 鐘ヶ江, 池本, 小杉, 玉山「50 MW蒸気発生器試験施設における水リーク検出シス
テム評価試験 第5報-注水素試験-」 PNC SN941 78-50 (1978)
- (17) 錦見, 黒羽, 高橋, 奥村「50 MW蒸気発生器試験施設における水リーク検出システム評価
試験 第8報-注水素試験Ⅱ-」 PNC SN941 81-259
- (18) 姫野「米国, アルゴンヌ国立研究所留学報告」 PNC SN960 79-12
- (19) 日本機械学会「伝熱工学資料改訂第3版」

表 3.1 試験条件

項目 試験ケース No.	注水素					圧力 (atg)	容器内アルゴンガス											カバーガス中水素計		備考
	ノズル No.	ノズル 位置	率 (g/sec)	時間 (sec)	量 (g)		1*	2*	3*	4	5	6	7	8	9	10	11	ガス入口 温度(℃)	Ni膜温 度(℃)	
1 Run 6001B-1	1	容器下部 (0.3φ)	0.01	3.5	0.035	185	120	163	200	10	10	10	12	22	25	40	95	58	300	
	2		0.01	5	0.05	185	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60	300	
	3		0.01	50	0.5	1.90	127	188	202	10	10	10	12	25	28	47	106	67	300	
2 Run 6001B-2	2 (1.0φ)	容器下部	0.005	20	0.1	1.85	305	373	373	198	199	202	200	198	202	222	252	232	500	
3 Run 6001B-3	2 (1.0φ)	容器下部	0.01	50	0.5	1.80	304	382	381	198	200	202	202	198	200	215	234	220	500	
4 Run 6001B-4	3 (1.0φ)	容器下部	0.008	60	0.05	1.77	195	197	203	195	200	200	200	195	195	195	193	198	500	サブヒータ のみで加熱
5 Run 6001B-5	2 (1.0φ)	容器下部	0.005	10	0.05	1.80	310	382	380	298	279	259	232	213	213	227	249	236	500	自然対流を 考慮

*) カバーガス中水素計断熱筒内温度

表3.2 試験結果

項目 試験ケース No	注水素量 ⁽¹⁾ (g)	想定濃度 (Vppm)	カバーガス中水素計応答時間(sec)			100%応答時 ヌードゲージ出力 ×ゲージファクタ3.6 (Torr)	
			応答開始	50%応答	100%応答		
1	Run 6001B-1	0.550	16000	1500 ⁽²⁾	5400	11000	1.69×10^{-5}
2	Run 6001B-2	0.717	3344	500	3000	22000	1.16×10^{-4}
3	Run 6001B-3	0.4717	22391	250	1200	8000	3.53×10^{-4}
4	Run 6001B-4	0.0324	1538	-	-	-	1.30×10^{-4}
5	Run 6001B-5	0.0227	1192	450	2200	6000	9.0×10^{-5}

(1) 注水素量は注水素配管内残留分を差引いたもの。

(2) 3回目の注水素より。

表4.1 ナトリウム温度をパラメータとした時の試験条件及び結果

Run. No.	測定日時	ナトリウム温度 (°C)	静的平衡压 (Torr)	
			ナトリウム中 水 素 計	カバーガス中 水 素 計
6002-1-1	6月18日 8時	296	2.11×10^{-4}	3.84×10^{-1}
6002-1-2	6月18日 22時	370	2.11×10^{-4}	3.83×10^{-1}
6002-1-3	6月19日 12時	471	1.76×10^{-4}	7.11×10^{-2}
6002-1-4	6月20日 2時	506	1.79×10^{-4}	3.19×10^{-2}
6002-1-5	6月20日 22時	418	1.28×10^{-4}	8.53×10^{-2}
6002-1-6	6月21日 15時	329	1.19×10^{-4}	1.59×10^{-1}
6002-2-1	6月22日 12時	448	1.20×10^{-4}	3.63×10^{-2}
6002-1-7	6月27日 2時	354	1.21×10^{-4}	3.93×10^{-2}
6002-1-8	6月27日 11時	390	1.17×10^{-4}	3.19×10^{-2}

試験条件：カバーガス温度	300 °C
コールドトラップ温度	120 °C
カバーガス圧力	1 kg/cm ² g

表4.2 カバーガス温度をパラメータとした時の試験条件及び結果

Run. No.	測定日時	カバーガス温度 (°C)	静的平衡圧(Torr)	
			ナトリウム中 水蒸計	カバーガス中 水蒸計
6002-2-1	6月22日12時	296	1.20×10^{-4}	3.63×10^{-2}
6002-3-1	6月23日 0時	350	1.21×10^{-4}	8.96×10^{-2}
6002-3-2	6月23日16時	423	1.27×10^{-4}	1.59×10^{-1}
6002-3-3	6月24日 4時	492	1.17×10^{-4}	2.38×10^{-1}
6002-3-4	6月25日 3時	450	1.22×10^{-4}	1.23×10^{-1}
6002-3-5	6月25日10時	326	1.25×10^{-4}	2.57×10^{-2}

試験条件：ナトリウム温度	450°C
コールドトラップ温度	120°C
カバーガス圧力	1 kg/cm ² g

表4.3 コールドトラップ温度をパラメータとした時の試験条件及び結果

Run. No.	測定日時	コールドトラップ 温 度 (°C)	静的平衡圧 (Torr)	
			ナトリウム中 水 素 計	カバーガス中 水 素 計
6002-2-1	6月22日12時	120	1.20×10^{-4}	3.63×10^{-2}
6002-2-2	8月 2日 21時	140	4.07×10^{-4}	5.96×10^{-2}
6002-2-3	8月 3日 10時	160	1.71×10^{-3}	5.44×10^{-2}
6002-2-4	8月 4日 14時	180	6.42×10^{-3}	5.04×10^{-2}
6002-2-5	8月 5日 6時	150	7.40×10^{-4}	4.69×10^{-2}
6002-2-6	8月 5日 23時	120	9.32×10^{-5}	4.09×10^{-2}
6002-2-7	8月 6日 7時	120	7.81×10^{-5}	6.78×10^{-2}
6002-2-8	8月 6日 21時	180	5.50×10^{-3}	5.77×10^{-2}

試験条件：ナトリウム温度 450°C
 カバーガス温度 300°C
 (2-7, 2-8のみ 400°C)
 カバーガス圧力 $1\text{ kg/cm}^2\text{ g}$

表 5.1 気泡形状と体積および表面積

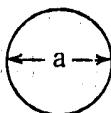
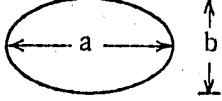
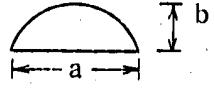
形 状	体 積 V_B	表 面 積 S_B
球 形 	$V_B = \frac{1}{6} \pi a^3$	$S_B = \pi a^2$
椭 圆 体 	$V_B = \frac{1}{6} \pi a^2 b$	$S_B = \frac{1}{2} \pi \left\{ a^2 + \frac{a b^2}{2 \sqrt{a^2 - b^2}} \cdot \log \left(\frac{a + \sqrt{a^2 - b^2}}{a - \sqrt{a^2 - b^2}} \right) \right\}$
笠形 (きのこ形) 	$V_B = \frac{1}{6} \pi b \left(\frac{3}{4} a^2 + b^2 \right)$	$S_B = \pi \left(\frac{1}{2} a^2 + b^2 \right)$

表 5.2 水, 有機液体, ナトリウムの物性比較

流 体	比 重 量 (kg/m ³)	粘 性 係 数 (kg·s/m ²)	表 面 張 力 (kg/m)
水 (20°C)	998	1.02×10^{-4}	7.39×10^{-3}
アセトン (20°C)	790	3.5×10^{-5}	—
ナトリウム (300°C)	880	3.52×10^{-5}	1.81×10^{-2}

表 5.3 水中予備試験結果

ノズル直径 [mm]	ノズル部背圧 [kg/cm ² G]	ノズル部 気泡体積 [cc]	ノズル部気泡 相当直径 [mm]	気泡上昇速度 [m/sec]
4.35	0.55	0.15	6.7	22.8
8	0.55	0.32	8.5	22.3
12	0.55	0.66	10.8	23.4

ノズル位置：水面下 5245mm

表 5.4(1) ナトリウム中気泡上昇試験結果

番号	ノズル径 (mmØ)	気泡圧力 (kg/cm ² G)	Na流速 (cm/sec)	Na温度 (°C)	ガス流量 (cm ³ /minNTP)	気泡体積 (cm ³)	相当直径 (cm)	平均上昇速度 (cm/sec)	備考 (使用ガス)
1	8.0	0.5	0	200	2.06	0.45	0.95	27.3	Ar ガス
2	"	1.3	"	"	4.12	0.57	1.03	29.1	"
3	8.0	2.35	"	"	6.18	0.55	1.02	29.4	"
4	12.0	0.5	"	"	3.09	1.09	1.28	27.6	"
5	"	1.3	"	"	5.36	1.23	1.33	28.6	"
6	12.0	2.35	"	"	9.06	1.25	1.34	28.1	"
7	8.0	0.45	5.3	"	1.65	0.49	0.98	23.1	"
8	"	"	10.7	"	1.65	0.49	0.98	17.2	"
9	"	"	10.7	"	1.24	0.50	0.99	17.5	"
10	"	"	10.7	"	0.82	0.35	0.87	16.8	"
11	"	"	16.0	"	1.24	0.43	0.94	11.4	"
12	"	"	21.3	"	1.24	-	-	5.8	"
13	"	"	21.3	"	0.82	0.33	0.86	6.1	Ar ガス
14	8.0	"	5.3	"	1.65	0.55	1.02	23.0	H ₂ ガス

表 5.4(2) ナトリウム中気泡上昇試験結果

番号	ノズル径 (mmØ)	気泡圧力 (kg/cm ² G)	Na流速 (cm/sec)	Na温度 (°C)	ガス流量 (cm ³ /minNTP)	気泡体積 (cm ³)	相当直径 (cm)	平均上昇速度 (cm/sec)	備考 (使用ガス)
15	12.0	0.45	5.3	200	3.09	1.16	1.30	22.4	Ar ガス
16	"	"	10.7	"	1.65	1.04	1.26	16.5	"
17	"	"	16.0	"	"	0.90	1.20	11.3	"
18	"	"	21.3	"	"	0.94	1.21	5.7	"
19	"	"	5.3	"	"	1.39	1.38	21.7	H ₂ ガス
20	8.0	"	"	267	1.55	0.51	0.99	22.4	Ar ガス
21	"	"	"	330	1.67	0.50	"	21.8	"
22	"	"	"	395	1.70	0.46	0.96	22.1	"
23	"	"	"	504	1.42	0.43	0.94	21.8	"
24	12.0	"	"	270	3.20	1.08	1.27	22.0	"
25	"	"	"	340	3.00	1.12	1.29	21.9	"
26	"	"	"	396	3.00	1.05	1.26	22.0	"
27	"	"	"	500	2.67	0.99	1.24	21.7	"

表 6.1 ナトリウム中注水素試験条件および結果

試験番号	ナトリウム温 度 ℃	試 験 条 件						試 験 結 果						カバーガス中水素分圧上昇率による検出割合 $\phi_{rc}\%$	
		ノズル径 mm Ø	注 水 素 率 G_{H_2} g/sec	ノズル位置 (Na液面下) mm	カバーガス			ナトリウム中水素濃度			カバーガス中水素分圧				
					圧 力 kg/cm ² G	温 度 T ₀ ℃	部 容 積 V ₀ L	C _{Na} PPb	C _{Naf} PPb	Ø _{Na} %	P _{H₂} Torr	P _{H₂} Torr	Ø _{CO} %		
1	207	1.2	6.13×10^{-5}	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.180	19.3	93.1	270	270	0	0.044	0.284	11.4	25.7	
2	269	1.2	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.190	25.9	93.1	181	183	2.0	0.241	0.747	21.2	29.4	
3	330	1.2	"	3710 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.229	31.5	88.2	205	214	14.8	0.476	0.951	17.0	20.5	
4	330	1.2	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.201	31.9	93.1	255	268	20.6	0.047	0.477	16.0	15.2	
5	402	1.2	"	3710 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.200	38.3	88.2	193	231	59.6	0.085	0.255	5.5	4.2	
6	500	1.2	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.233	48.0	93.1	202	254	79.0	0.025	0.026	0.04	0.0	
7	199	8	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.224	19.2	93.1	234	234	0	0.050	0.163	5.4	10.3	
8	270	8	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.196	26.0	93.1	288	288	0	0.189	0.653	19.4	28.7	
9	340	8	"	3710 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.197	31.2	88.2	221	231	16.2	0.484	0.866	13.8	17.6	
10	396	8	"	3710 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.210	39.8	88.2	231	268	56.6	0.240	0.408	5.3	1.6	
11	500	8	"	3710 ⁺⁰ ₋₇₀	0.170	48.0	93.1	235	286	77.2	0.034	0.035	0.04	0.0	
12	201	4.35	"	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.195	19.4	93.1	197	197	0	0.038	0.467	20.5	20.1	
13	270	4.35	"	2700 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.195	25.9	88.2	176	179	4.0	0.121	0.628	20.2	18.7	
14	270	4.35	5.37×10^{-3}	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.193	26.0	93.1	204	205	1.9	0.131	0.722	24.8	-	
15	330	4.35	6.13×10^{-5}	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.191	31.5	93.1	180	187	10.8	0.160	0.628	17.8	19.2	
16	401	4.35	"	2700 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.193	38.5	88.2	190	225	54.6	0.200	0.451	8.1	4.6	
17	405	4.35	5.37×10^{-3}	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.199	38.2	93.1	229	239	15.7	0.202	0.661	15.6	-	
18	195	0.5	"	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.228	19.5	93.1	190	190	0	0.019	0.367	16.6	-	
19	270	0.5	"	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.204	26.0	93.1	197	198	1.9	0.098	0.546	18.7	-	
20	332	0.5	"	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.199	31.7	93.1	191	193	3.8	0.367	0.795	16.2	-	
21	402	0.5	"	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.202	38.4	93.1	198	204	9.2	0.062	0.467	13.8	-	
22	330	0.3	2.32×10^{-3}	2700 ⁺⁰ ₋₇₀	0.197	31.6	93.1	224	227	5.4	0.135	0.605	17.8	-	
23	399	0.3	"	2700 ⁺⁷⁰ ₊₀	0.199	38.5	88.2	192	203	16.7	0.061	0.538	15.3	-	

表6.2 水素ガス溶解割合の検討

試験番号	ノズル径 mmØ	ナトリウム温度 °C	ナトリウム中水素 溶解割合(*) %	Ka 値 $\text{cm}^3 \text{NTP}/\text{cm}^2 \cdot \text{atm} \cdot \text{sec}$	Ka 値による溶解 割 合 %	η	$Ka \cdot \eta$
2	12	269	2.5	3.55×10^{-4}	16	0.15	5.3×10^{-5}
3	12	330	18.5	2.09×10^{-3}	63	0.23	4.8×10^{-4}
4	12	330	25.8	2.09×10^{-3}	63	0.33	6.9×10^{-4}
5	12	402	74.5	1.13×10^{-2}	100	0.27	3.1×10^{-3}
6	12	500	98.7	6.72×10^{-2}	100	< 0.1	$< 6.7 \times 10^{-3}$
8	8	270	< 2.0	3.67×10^{-4}	20	< 0.1	$< 3.7 \times 10^{-5}$
9	8	340	20.3	2.71×10^{-3}	79	0.16	4.3×10^{-4}
10	8	396	70.8	9.92×10^{-3}	100	0.2	1.9×10^{-3}
11	8	500	96.5	6.72×10^{-2}	100	< 0.1	$< 6.7 \times 10^{-3}$

(*) ナトリウム中水素溶解割合は、未検出分（静止したナトリウムによる）を考慮したものである。

表6.3 水素ガス気泡の溶解割合の検討

試験番号	ノズル径 mmØ	ナトリウム温度 °C	ナトリウム中水素 溶解割合(*) %	気泡径 cm	気泡上昇速度 cm/sec	(6.11)式による 物質移動係数cm/s	K=0.01とした時の 溶解割合 %
2	12	269	2.5	1.3	22	4.2×10^{-3}	6
3	12	330	18.5	1.3	22	9.1×10^{-3}	20
4	12	330	25.8	1.3	22	1.3×10^{-2}	20
5	12	402	74.5	1.3	22	1.5×10^{-2}	58
6	12	500	98.7	1.3	22	7.7×10^{-3}	100
8	8	270	<2.0	1.0	23	2.7×10^{-3}	7
9	8	340	20.3	1.0	23	6.8×10^{-3}	25
10	8	396	70.8	1.0	23	1.1×10^{-2}	67
11	8	500	96.5	1.0	23	5.4×10^{-3}	100

(*) ナトリウム中水素溶解割合は、未検出分（静止したナトリウムによる）を考慮したものである。

表7.1 ナトリウム中注水試験条件及び結果

試験番号	試験条件								試験結果					
	ノズル径 mmφ	ナトリウム 温度 ℃	注水率 g/sec	注水総量 g	ノズル位置 (Na液面下) mm	カバーガス 圧力 kg/cm ² G	カバーガス 温度 ℃	カバーガス 部容積 ℓ	ナトリウム中水素濃度			カバーガス中水素分圧		
									試験前 C_{Na} PPb	試験後 C_{Na} PPb	検水素量 C_{HNa} g	試験前 P_{Hf} Torr	試験後 P_{Hf} Torr	検水素量 W_{HCG} g
W-1	0.5	270	4.61×10^{-2}	1.00	2700^{+0}_{-70}	0.198	260	93.1	199	352	0.029	0.129	1.685	0.0087
W-2	0.3	330	1.98×10^{-2}	0.73	2700^{+0}_{-70}	0.197	317	93.1	216	372	0.029	0.331	1.425	0.0055
W-3	0.5	402	4.56×10^{-2}	1.00	2700^{+0}_{-70}	0.204	386	93.1	303	572	0.049	0.118	2.153	0.0092
W-4	0.3	399	1.97×10^{-2}	0.89	2700^{+70}_{+0}	0.201	384	88.2	236	489	0.046	0.052	1.592	0.0066

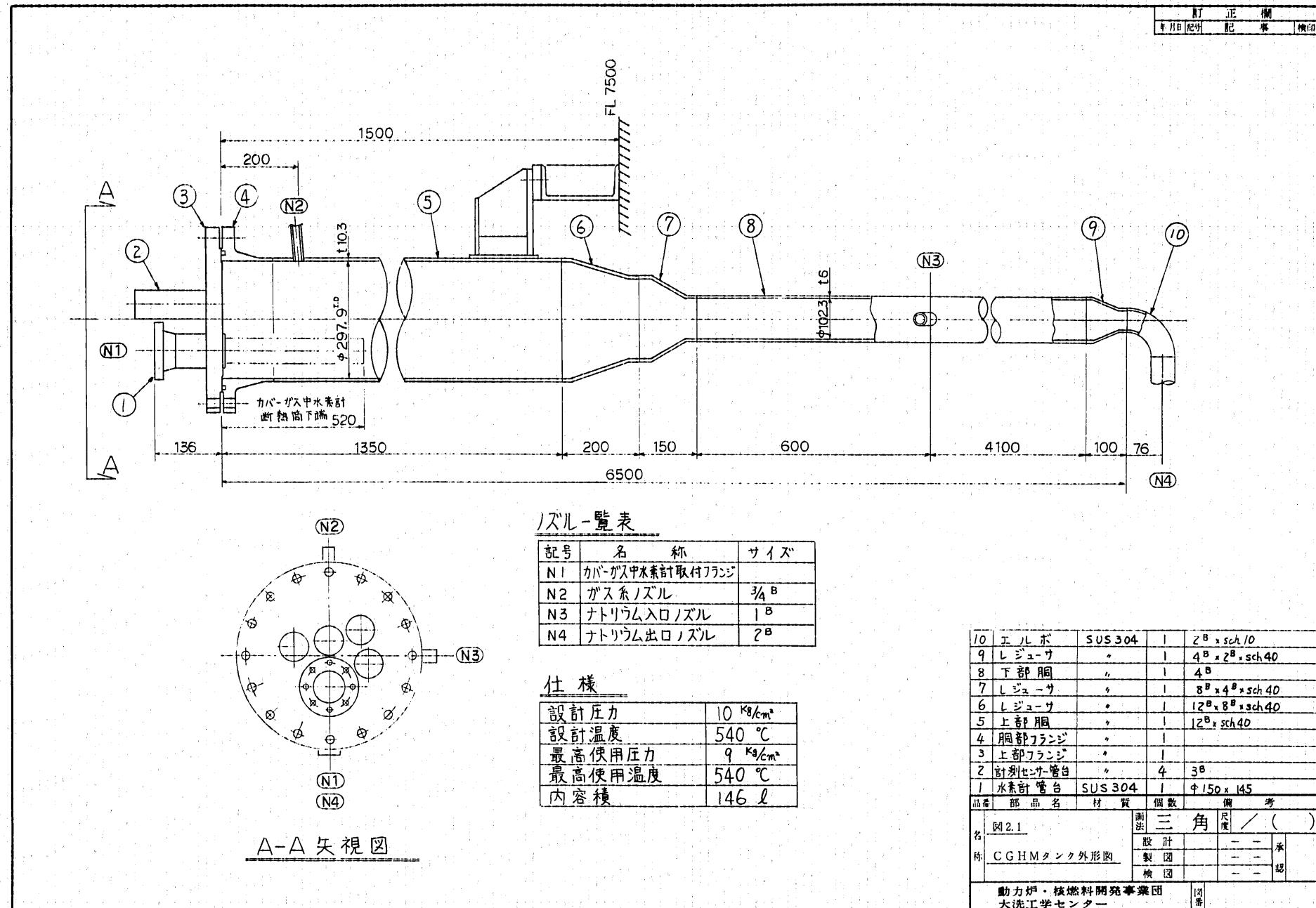
(注) W-2 試験は注水途中でノズル閉塞

表7.2 注水試験における水素検出割合
(水1モルから水素1モル発生するとした場合)

試験番号	ナトリウム温度 °C	ノズル口径 mmØ	注水素率 gH ₂ /sec	注水総量 g	全注水素量 g	ナトリウム中水素計 水素検出割合 %	カバーガス中水素計 水素検出割合 %
W-1	270	0.5	5.1×10^{-3}	1	0.111	26.1	7.8
W-2	330	0.3	2.2×10^{-3}	0.73	0.081	35.8	6.8
W-3	402	0.5	5.1×10^{-3}	1	0.111	44.1	8.3
W-4	399	0.3	2.2×10^{-3}	0.89	0.099	46.5	6.7

表7.3 注水試験における発生水素ガス量

試験番号	ナトリウム温度 °C	ノズル口径 mmØ	全注水量 $W_{H_2} \text{ g}$	ナトリウム中 溶解水素量 $W_{HTNa} \text{ g}$	カバーガス中 水素量 $W_{HTCG} \text{ g}$	トータル水素量 $W_{HT} \text{ g}$	トータル水素 検出割合 $\phi t \%$
W-1	270	0.5	1	0.036	0.044	0.080	72
W-2	330	0.3	0.73	0.036	0.028	0.064	79
W-3	402	0.5	1	0.061	0.046	0.107	97
W-4	399	0.3	0.89	0.058	0.033	0.091	92



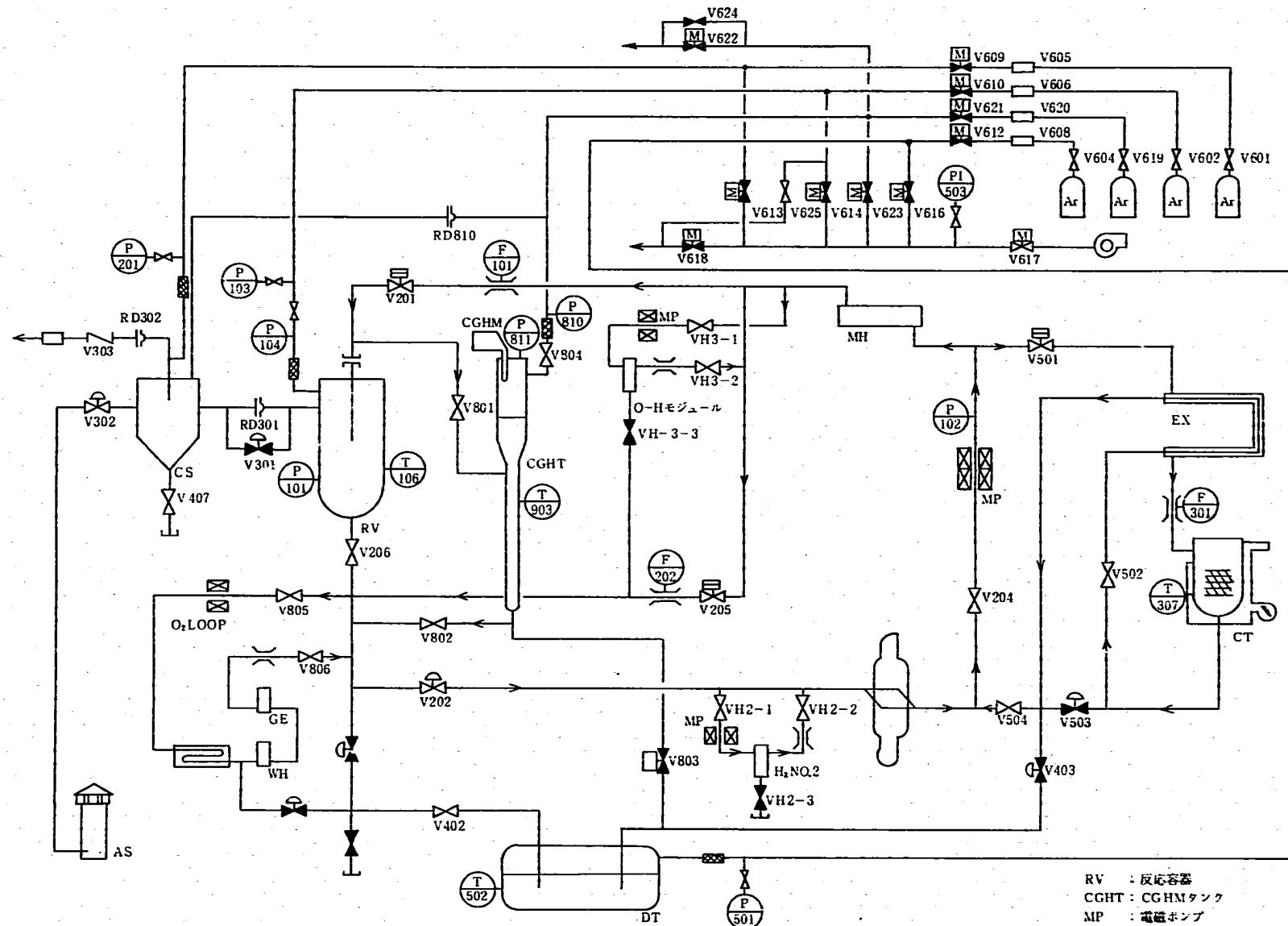


図 2.2 SWAT-2 装置 フロー・シート

RV	：反応容器
CGHT	：CGHMタンク
MP	：電磁ポンプ
CT	：コールドトラップ
DT	：ダンプタンク
MH	：ヒータ
CGHM	：カバーガス中水素計
H ₂ NO ₂	：ナトリウム中水素計

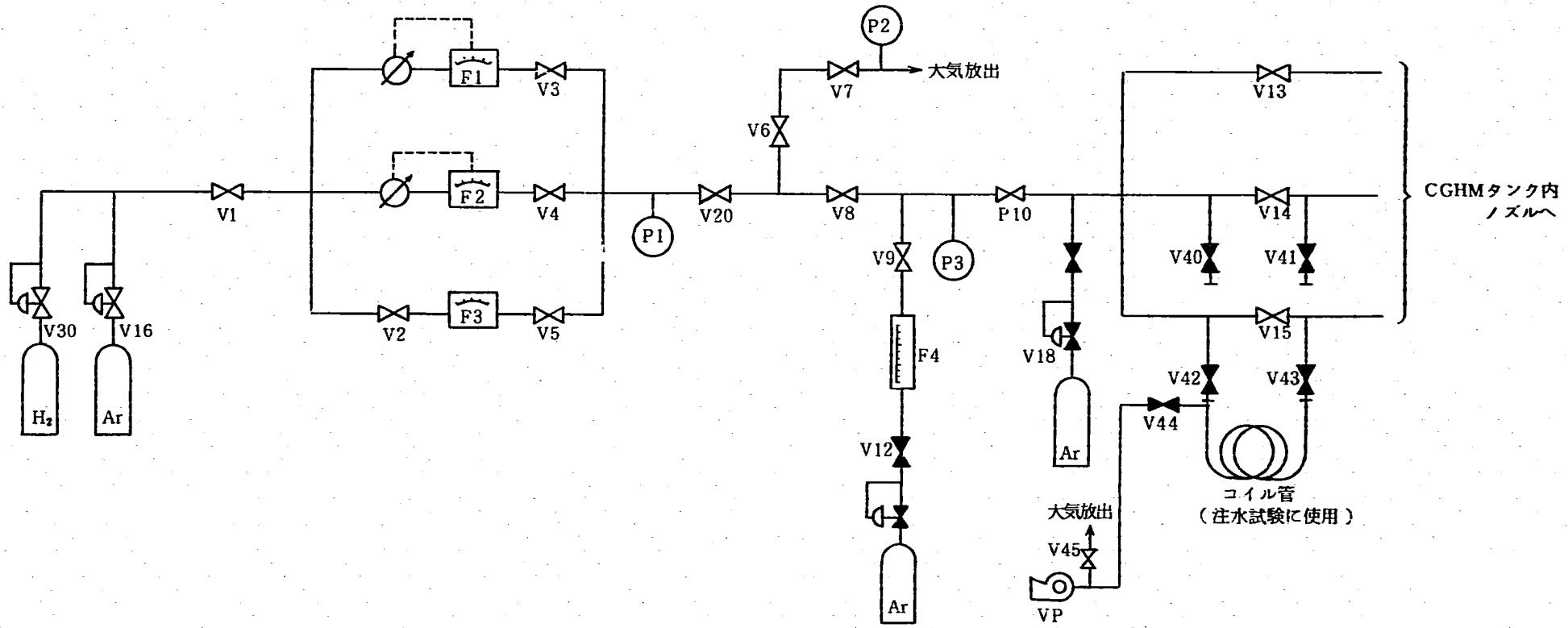


図 2.3 ガス注入装置フローシート

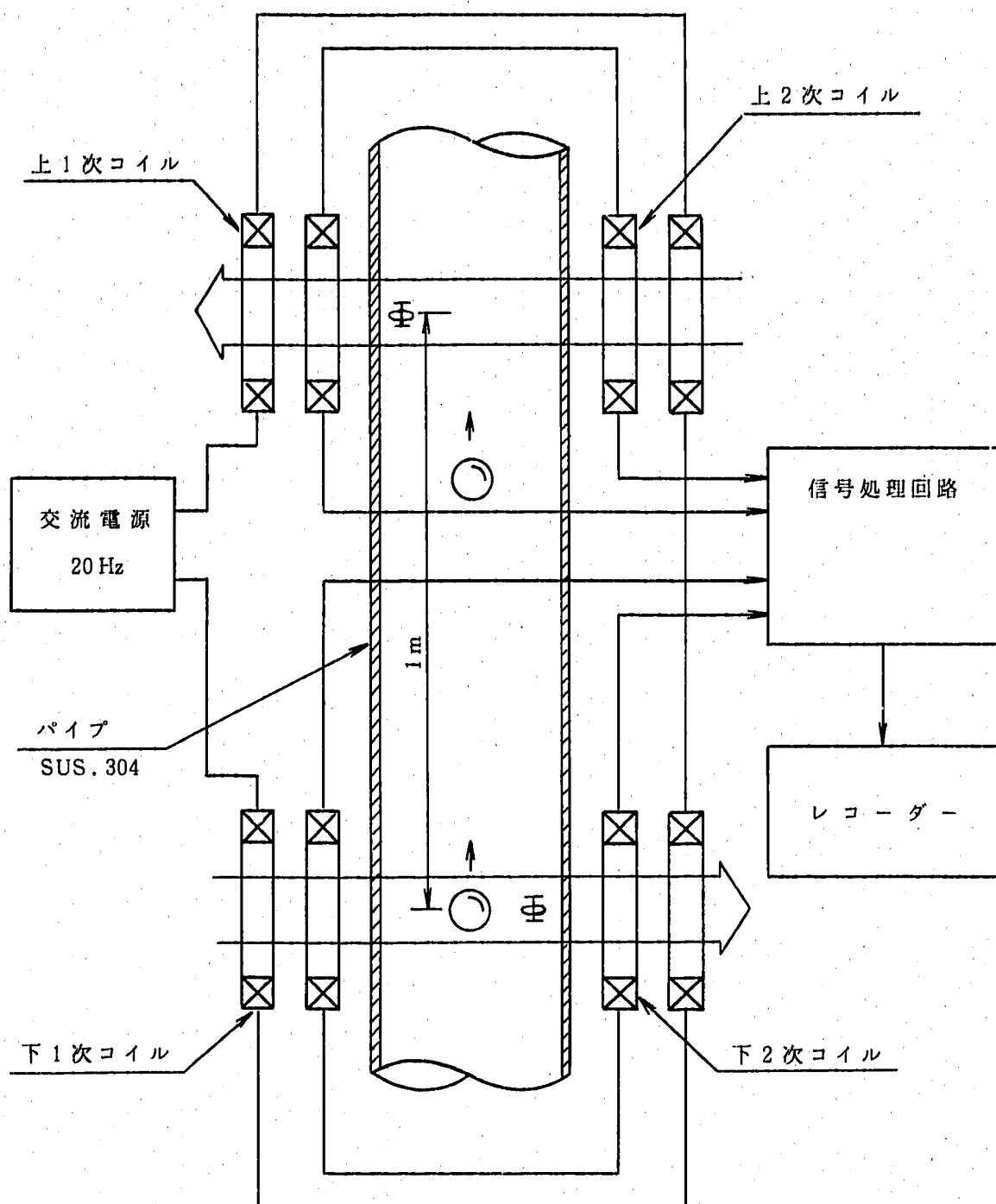


図 2.4 気泡検出器

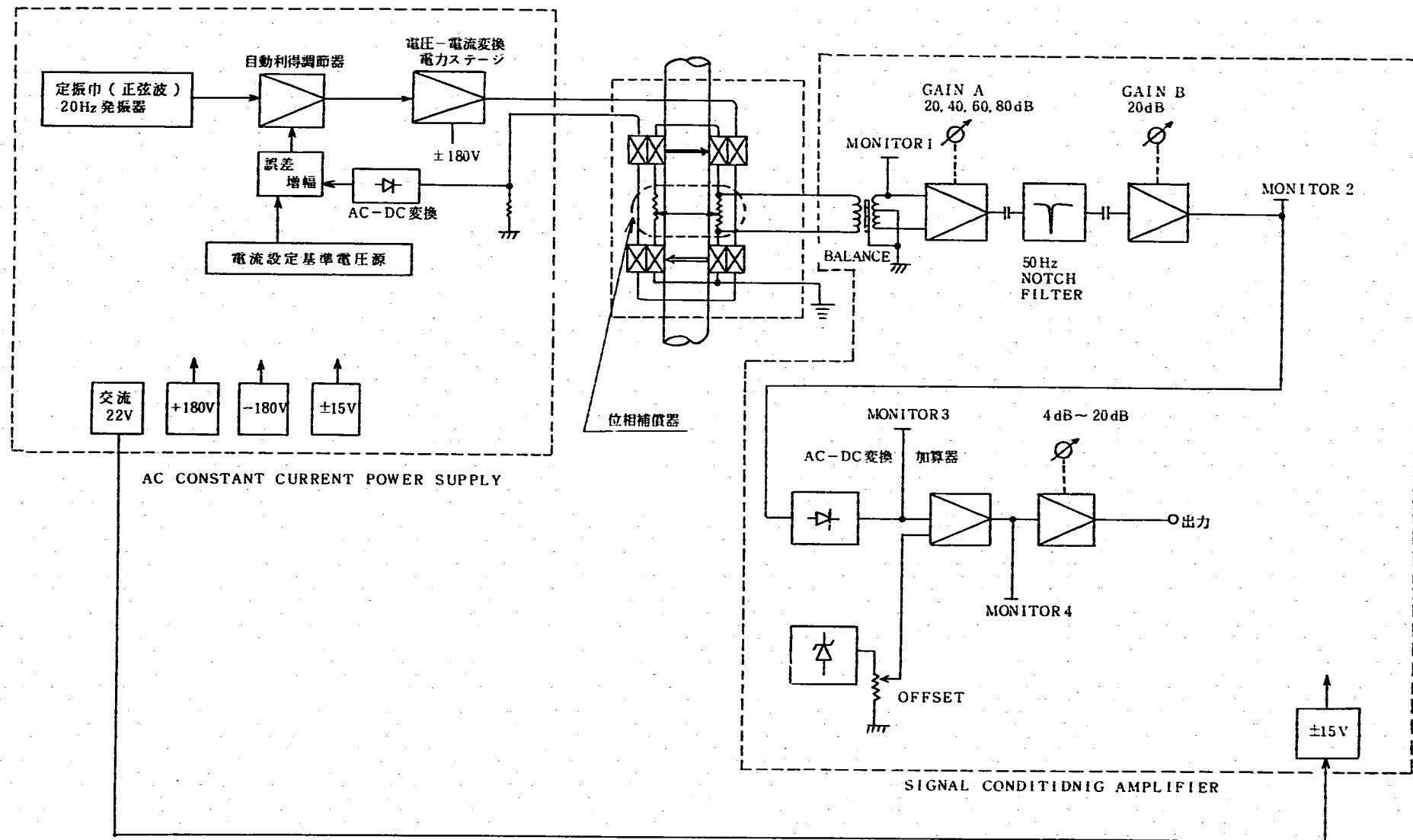


図 2.5 電離誘導式 Na 中気泡検出器総合ブロックダイアグラム

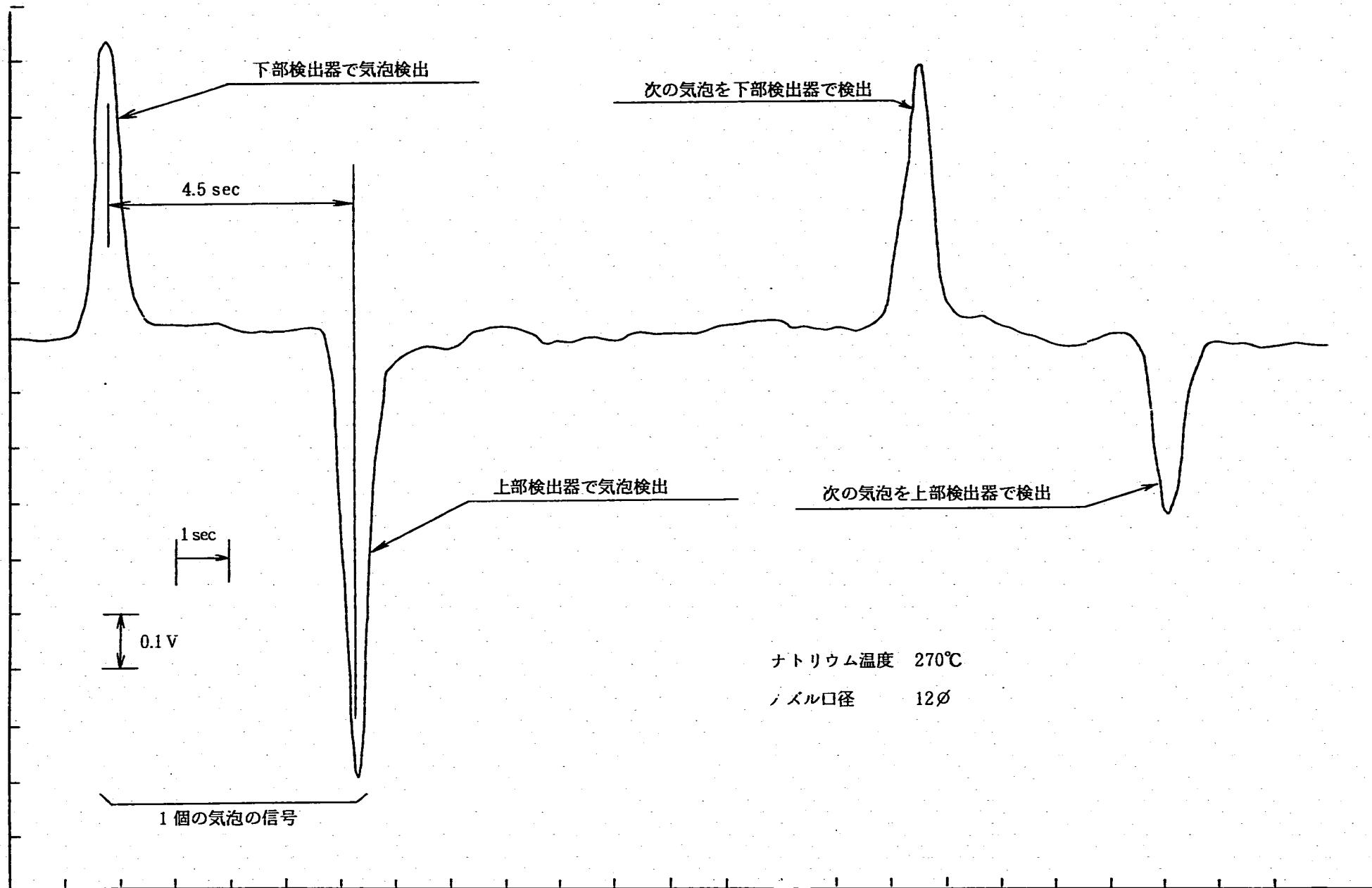


図 2.6 気泡検出信号の一例

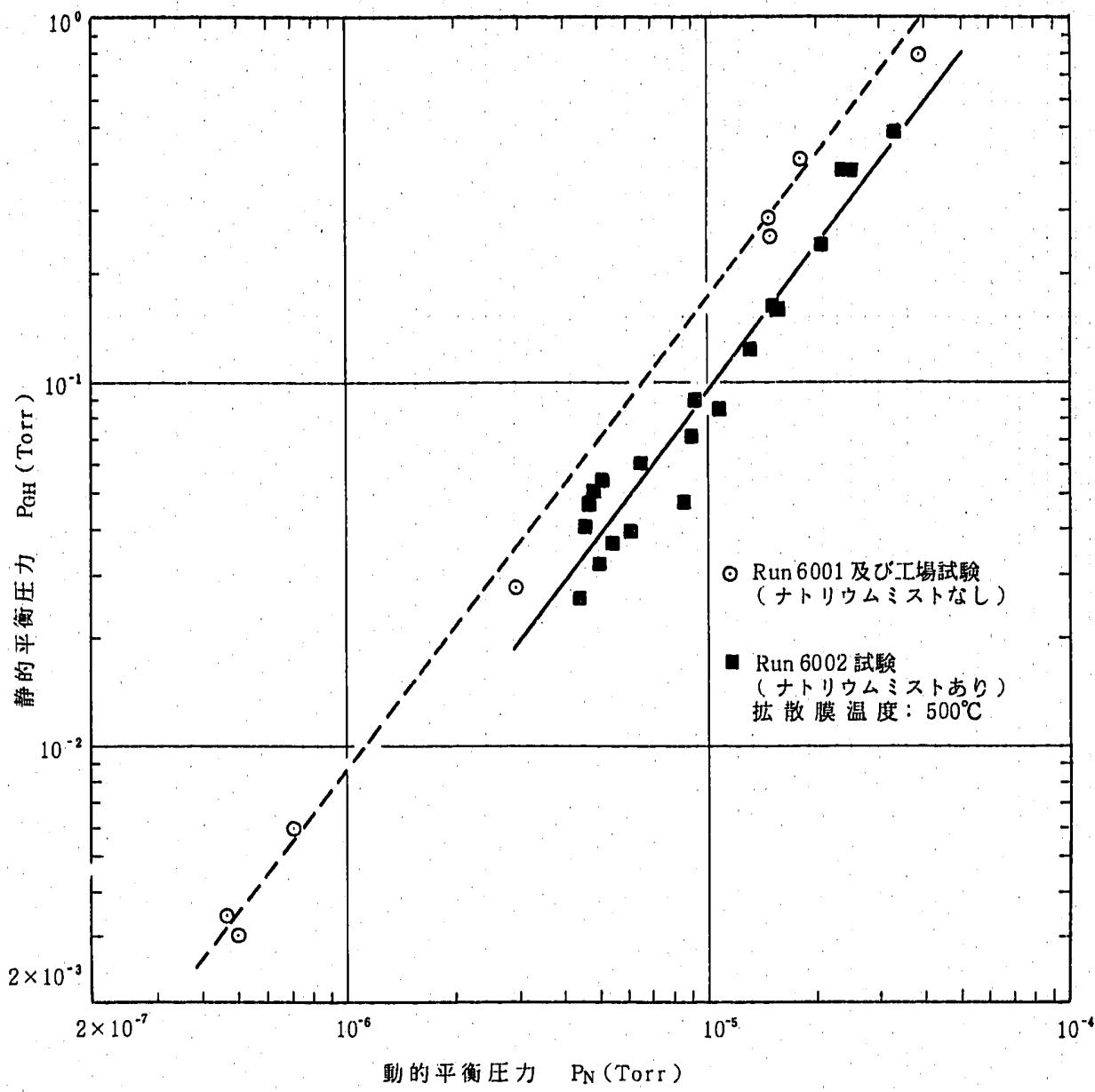


図 2.7 カバーガス中水素計較正曲線

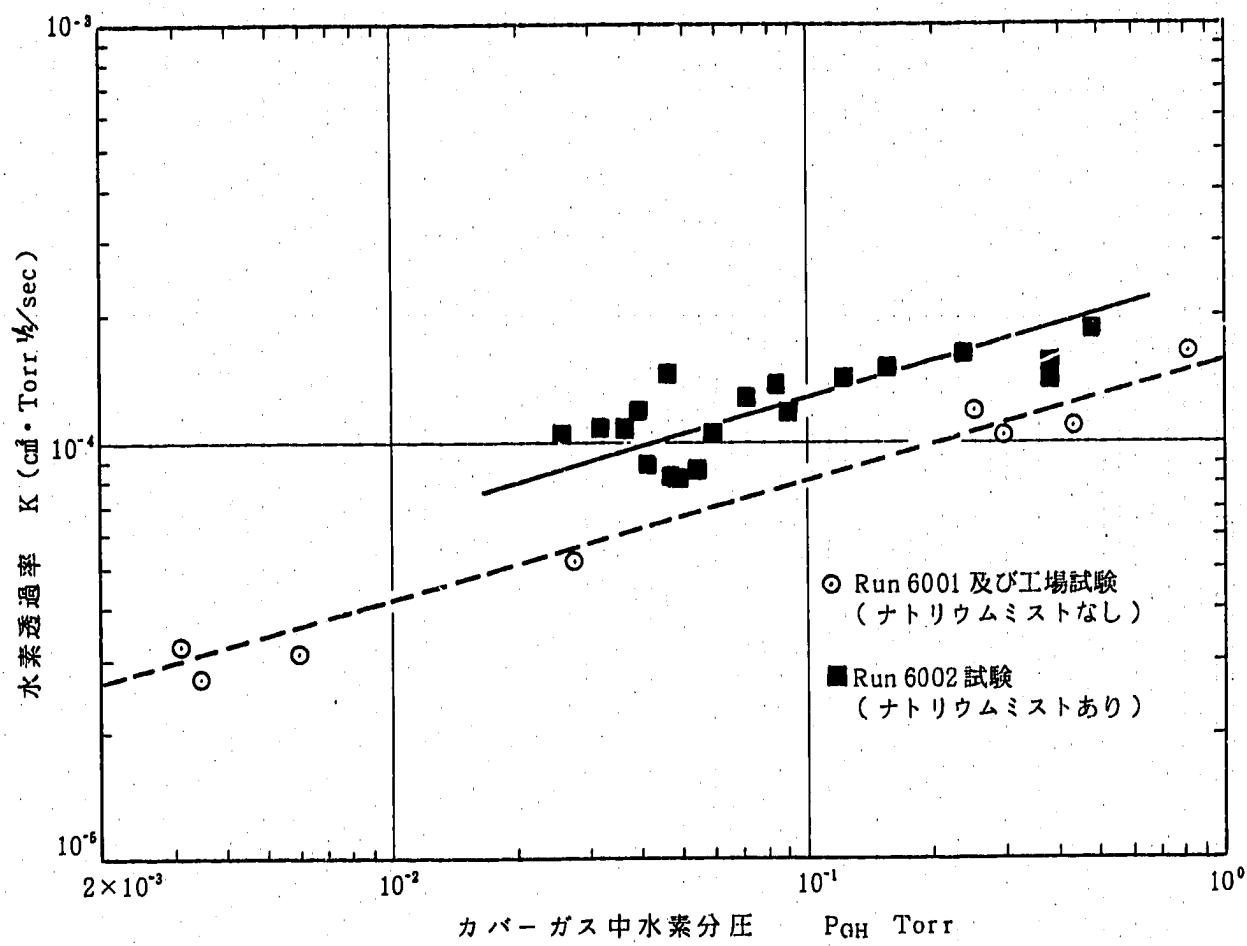


図 2.8 ニッケル膜の水素透過率

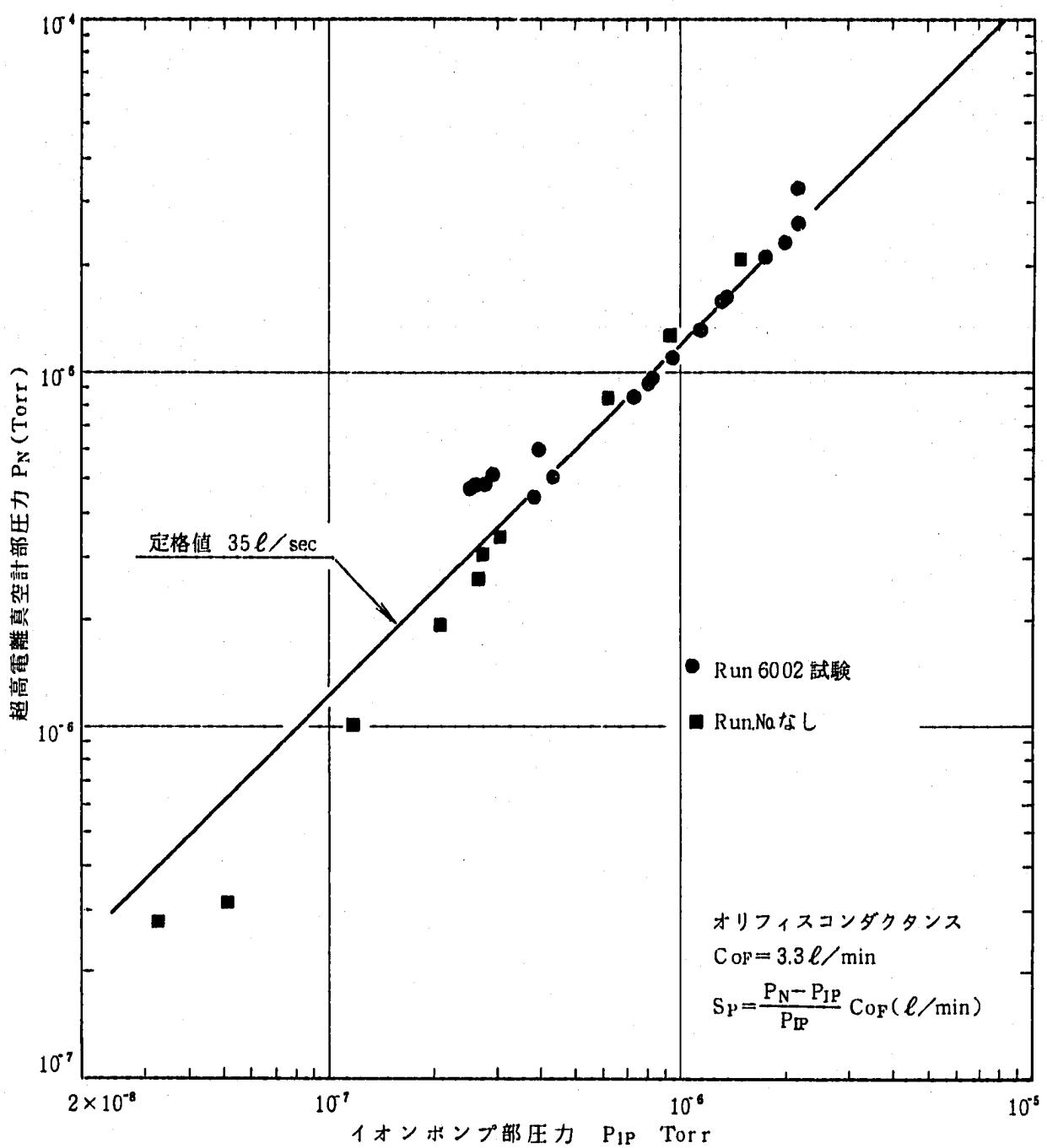


図 2.9 イオンポンプ部圧力と超高電離真空計圧力の関係

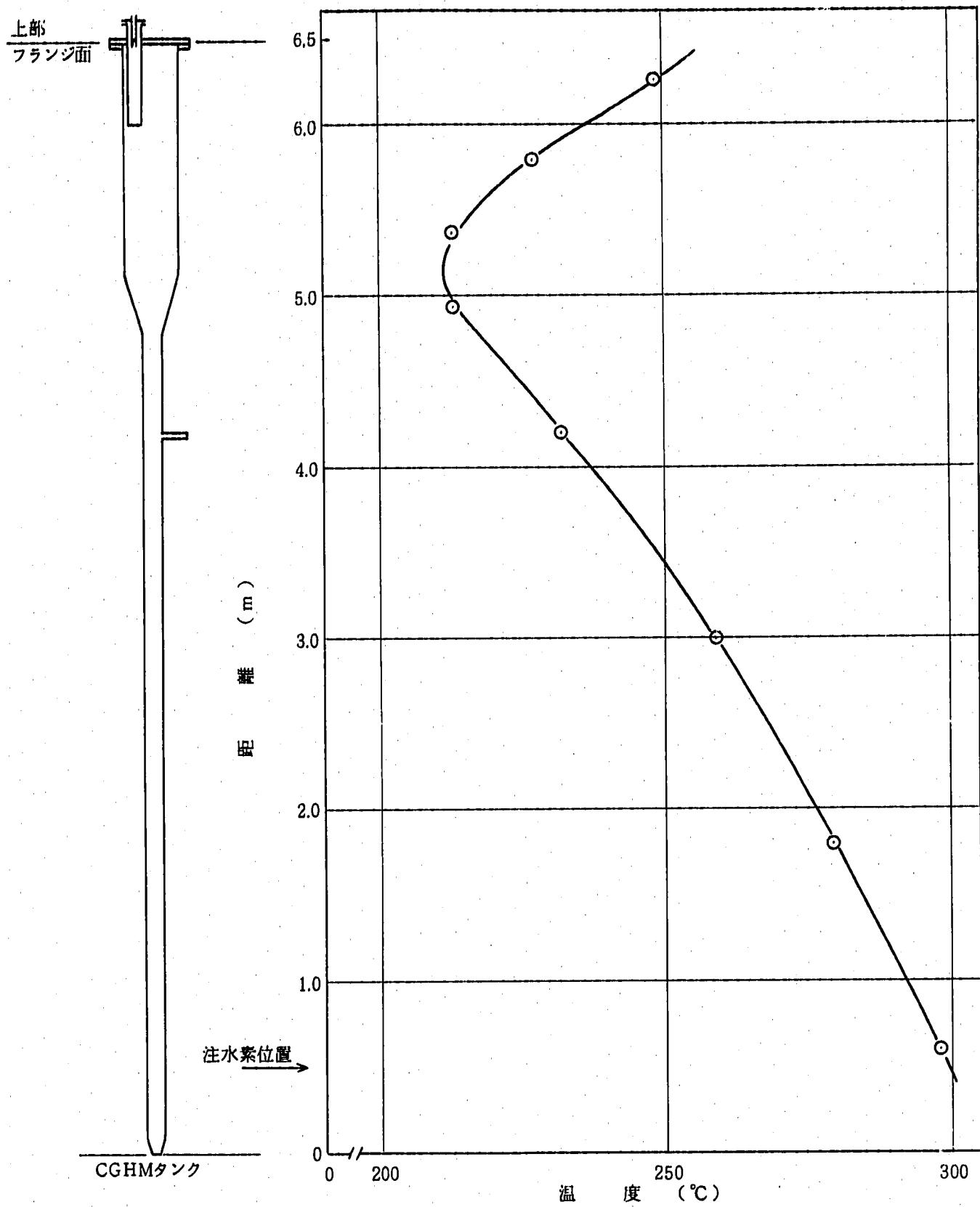


図 3.1 Run 6001B-5 CGHM タンク内温度分布

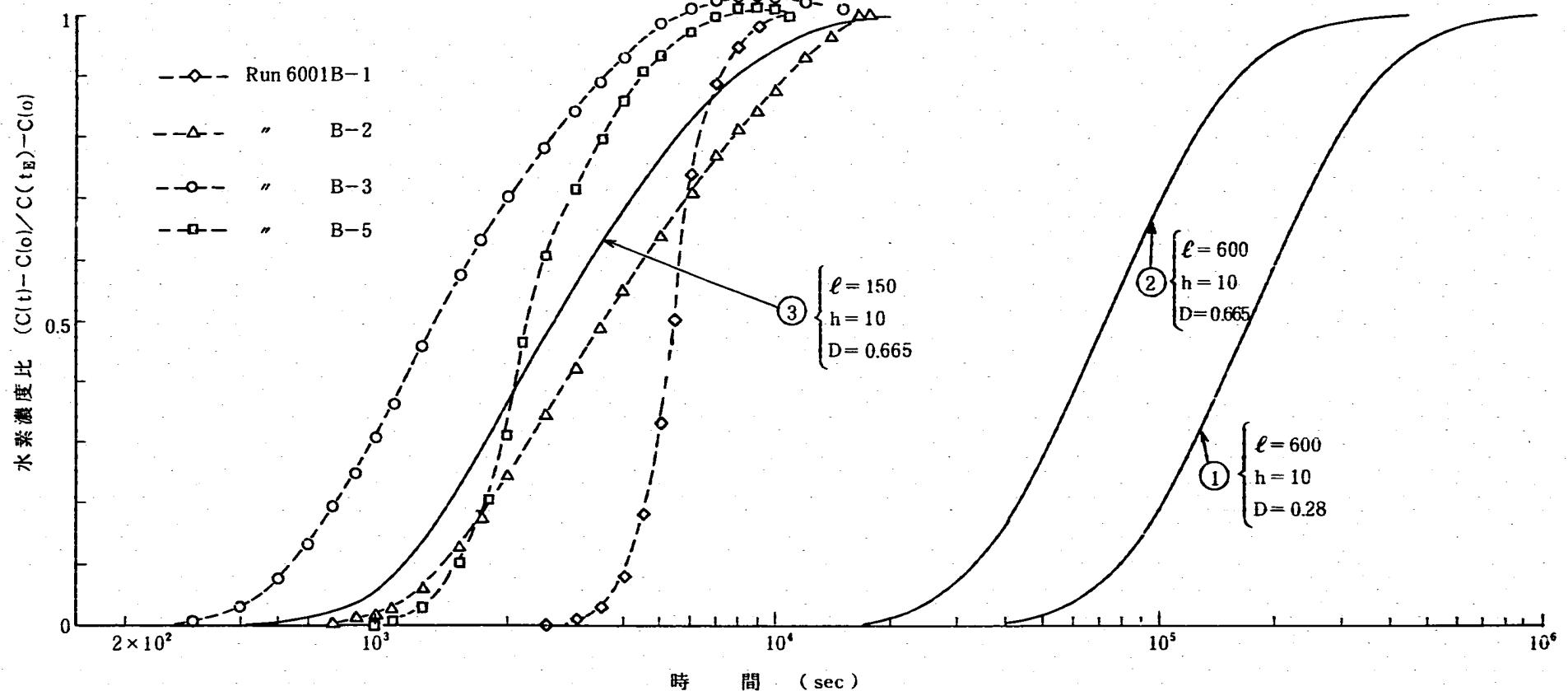


図 3.2 カバーガス中水素計応答曲線

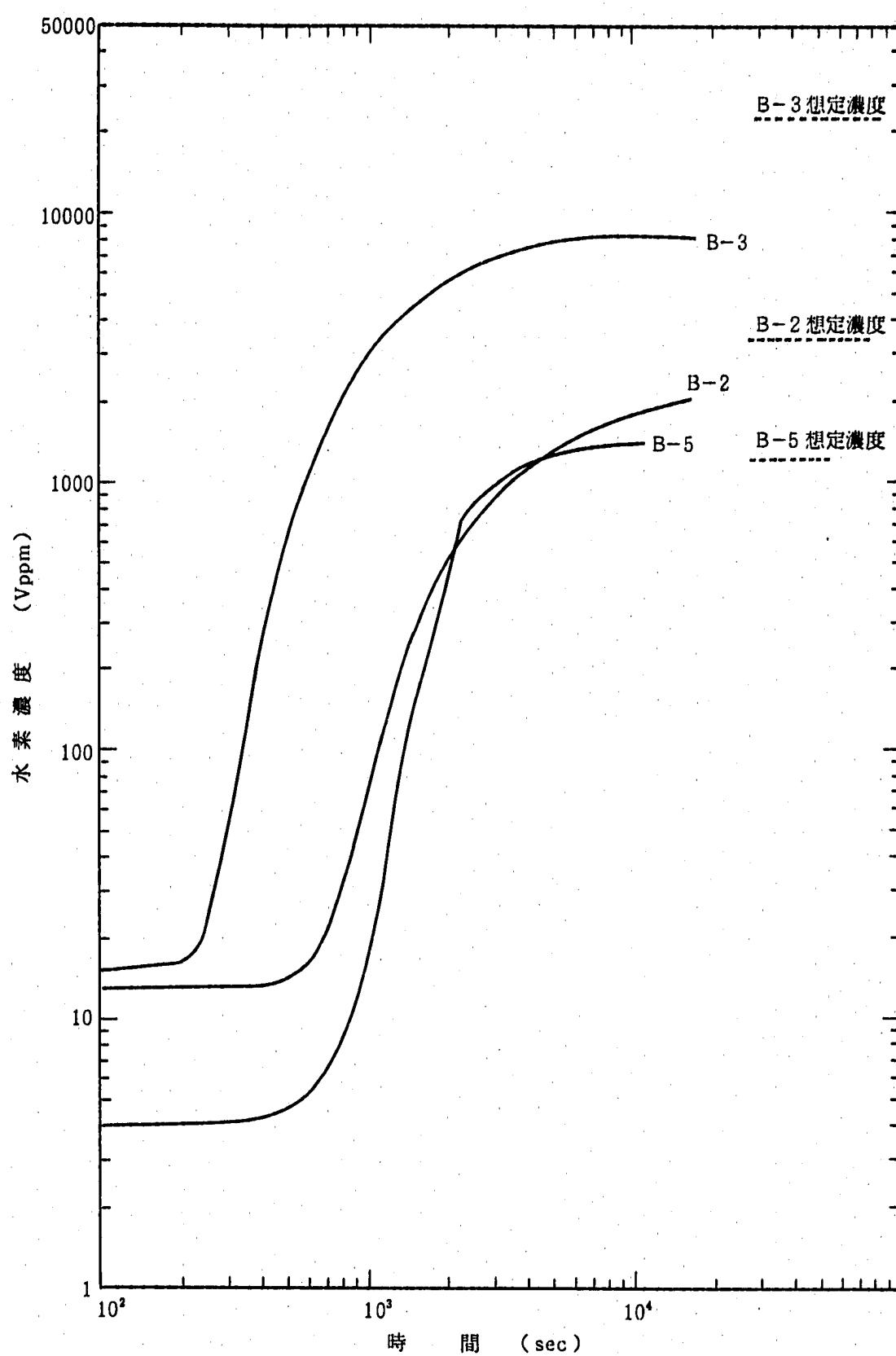


図 3.3 カバーガス中水素計応答曲線

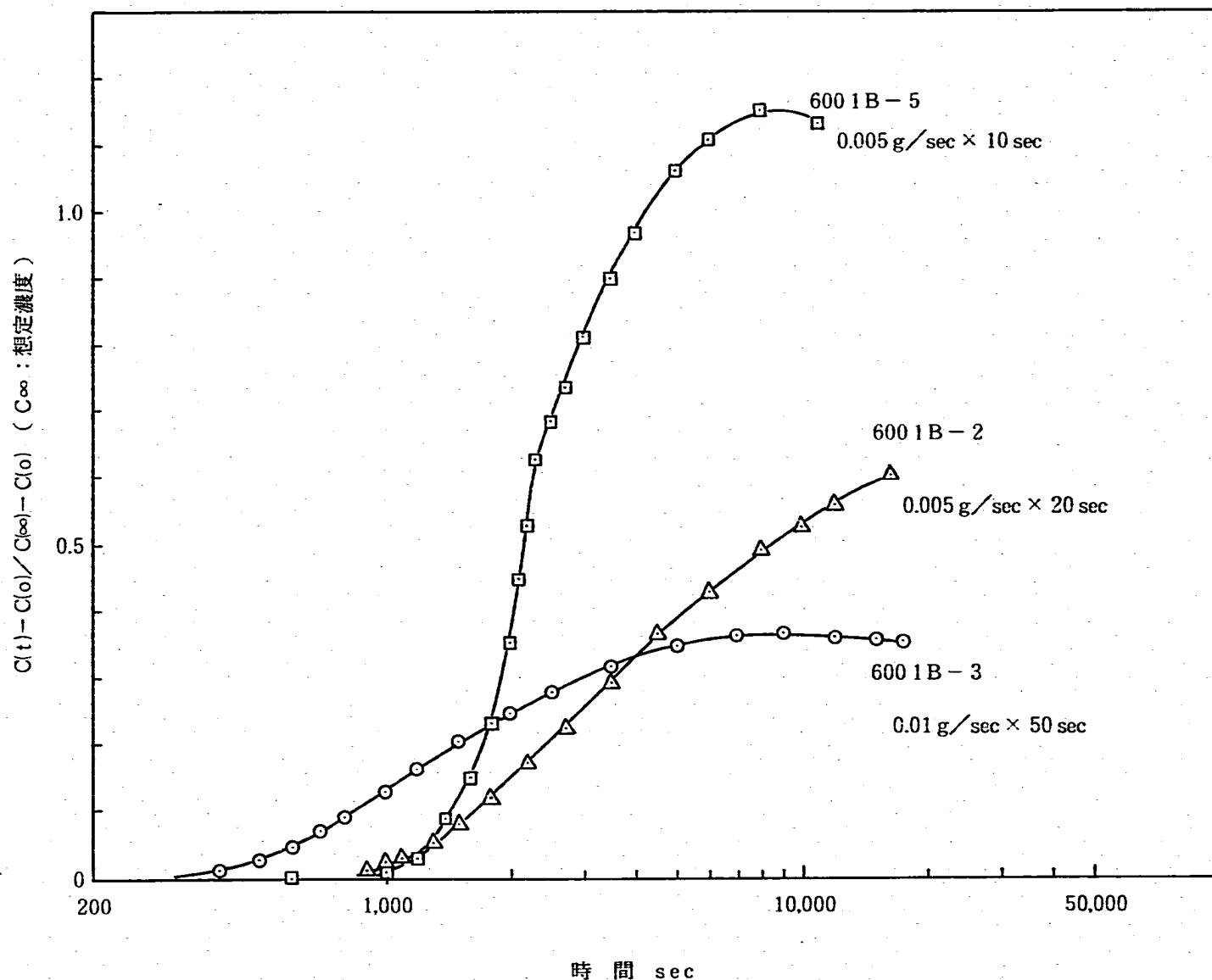


図 3.4 カバーガス中水素計応答曲線（想定濃度基準）

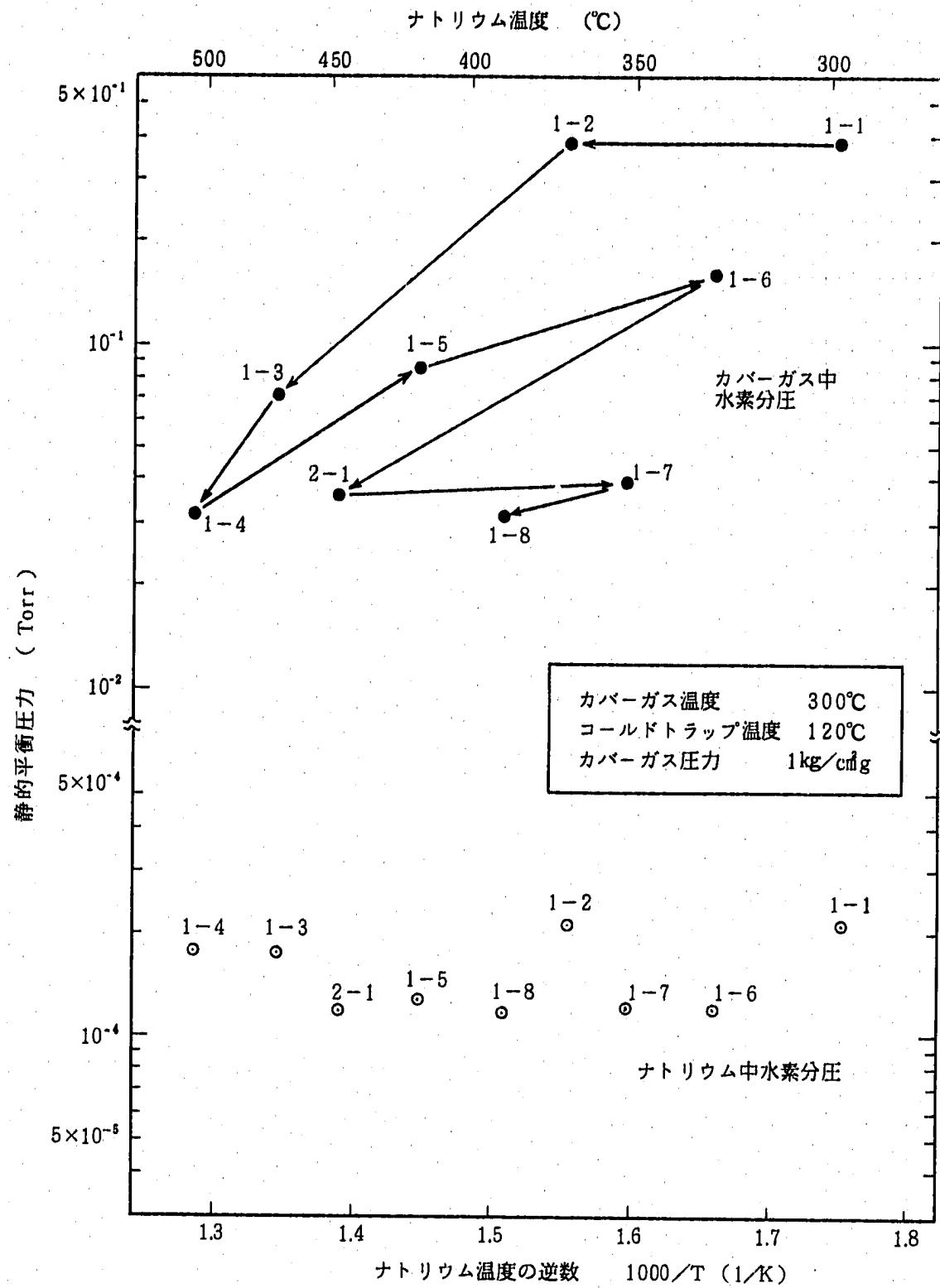


図 4.1 バックグラウンド測定試験結果(ナトリウム温度パラメータ)

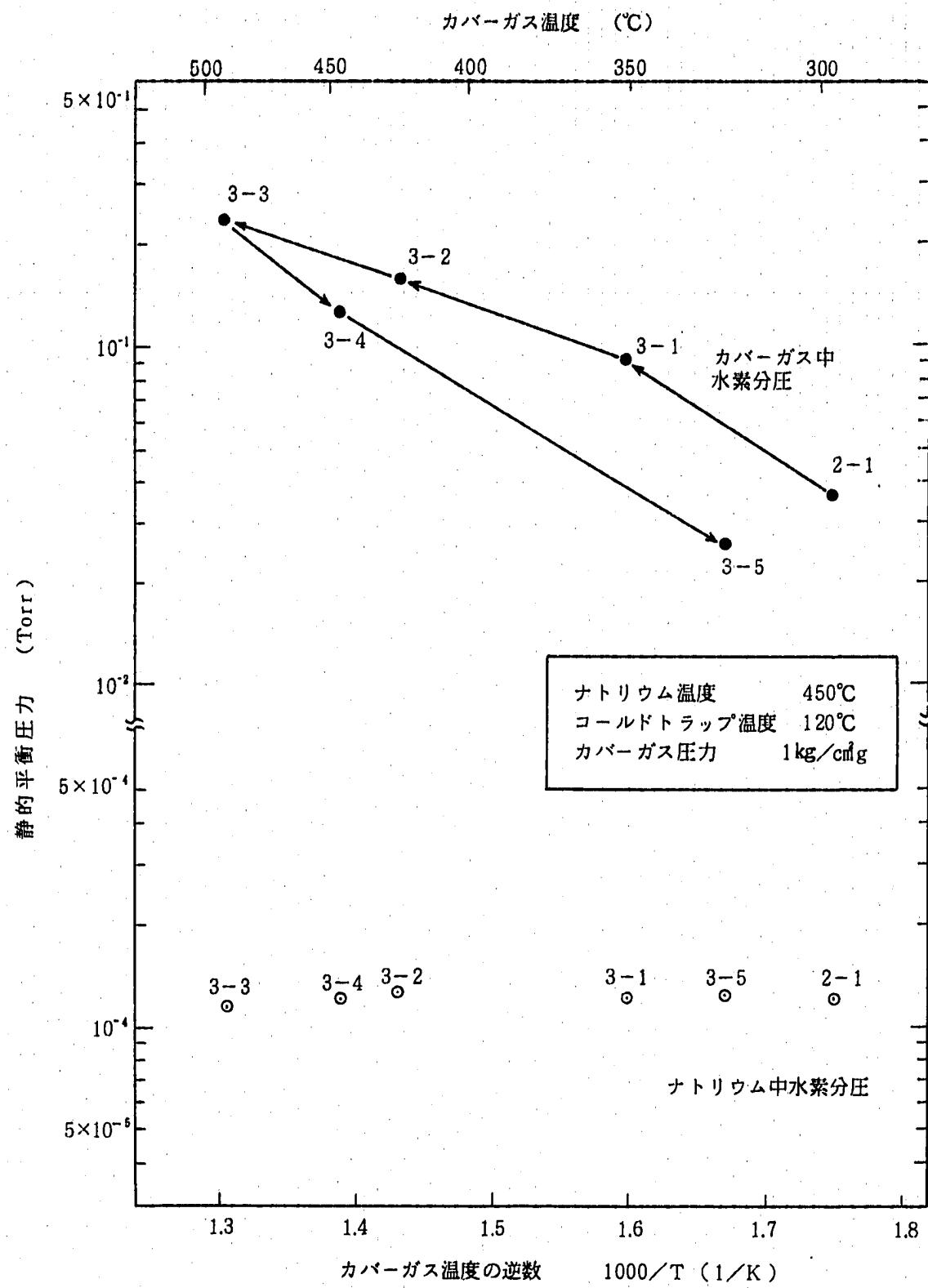


図 4.2 バックグラウンド測定試験結果（カバーガス温度パラメータ）

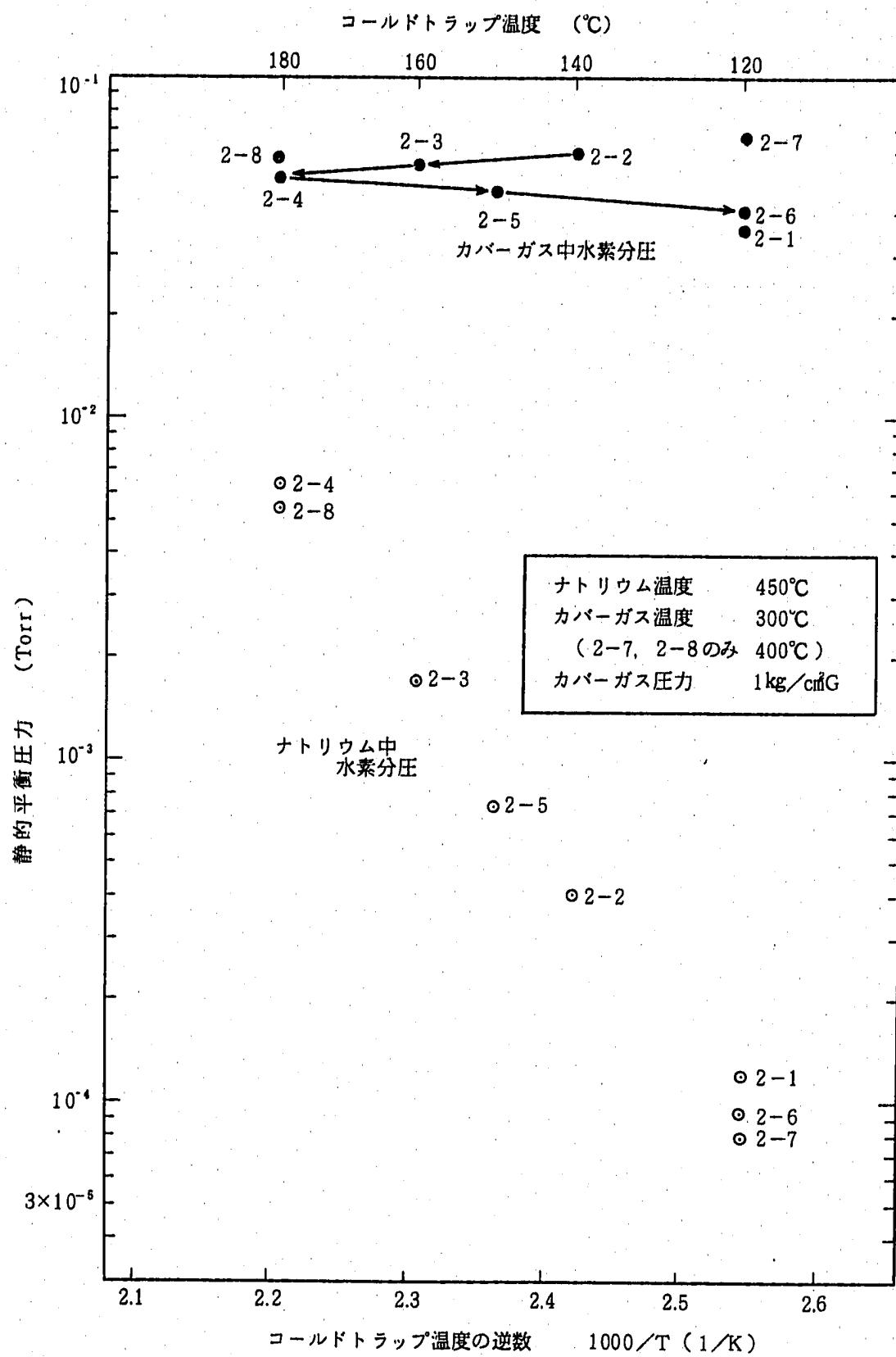


図 4.3 バックグラウンド測定試験結果(コールドトラップ温度パラメータ)

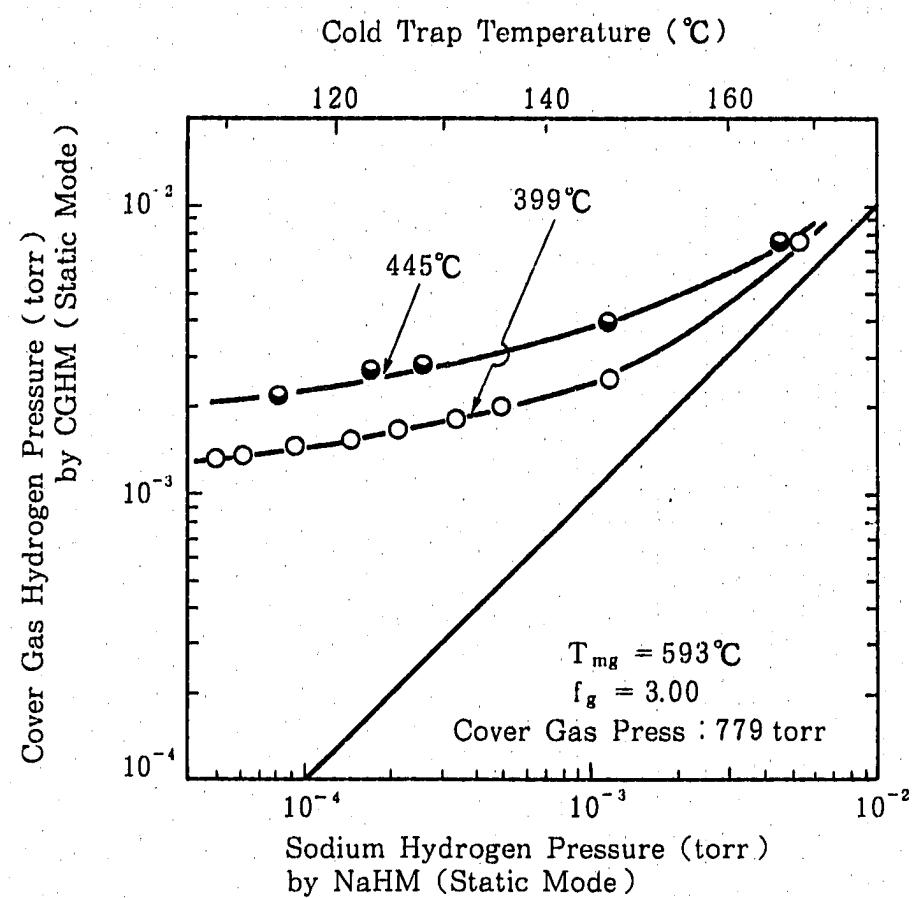


図 4.4 Hydrogen Pressures in Na and Cover Gas

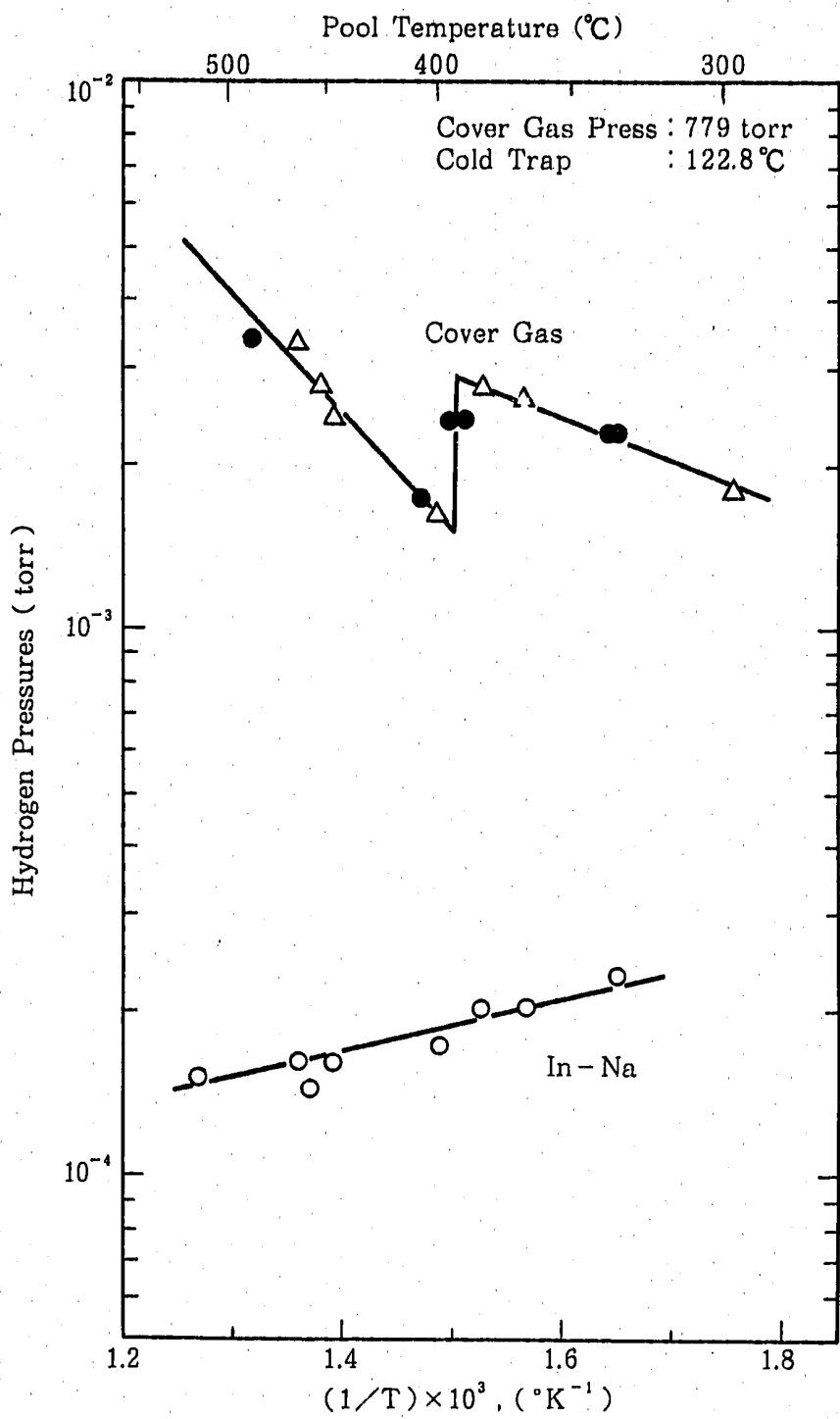


図 4.5 Hydrogen Pressures in Cover Gas and Na as a Function of Pool Temperature

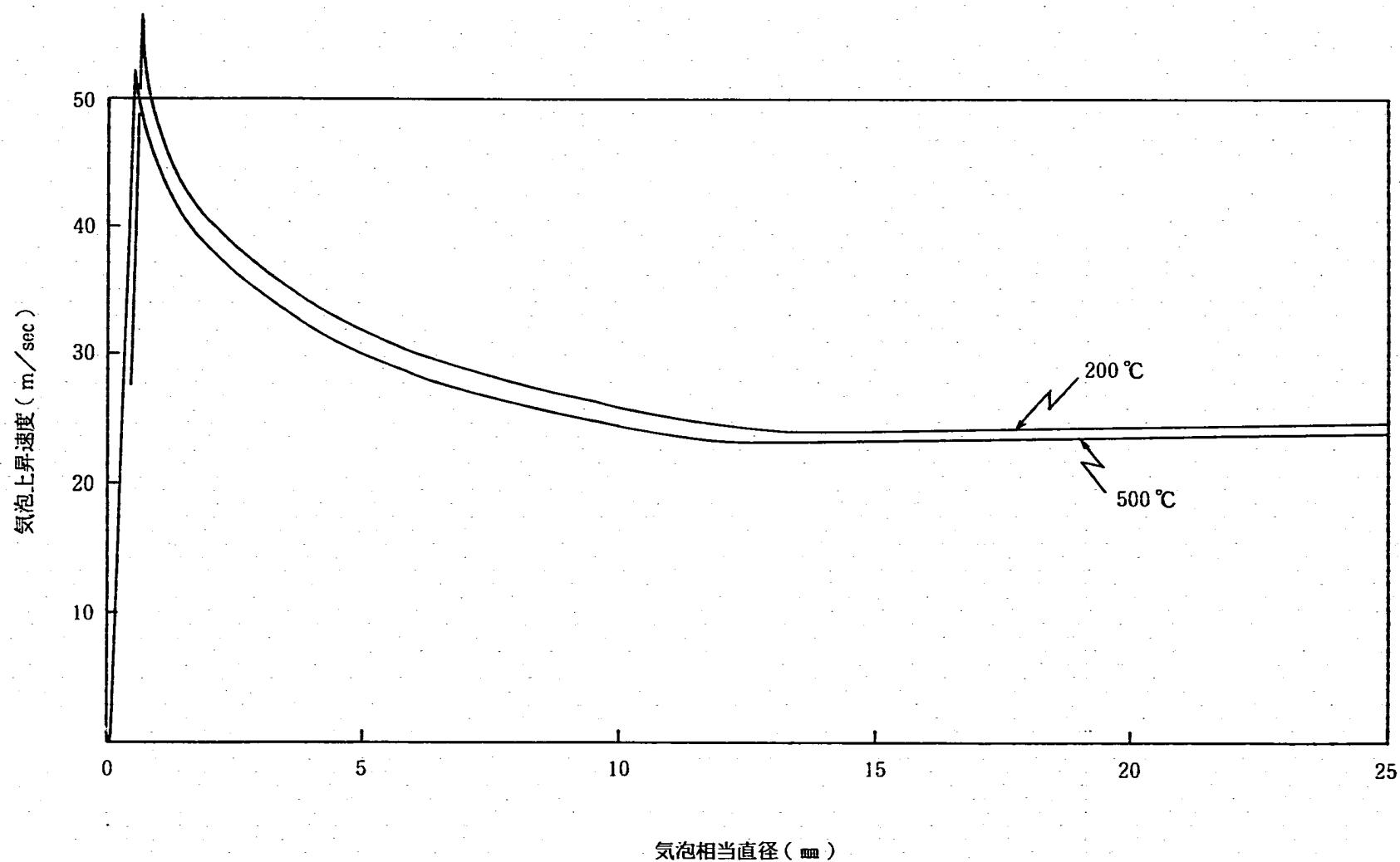


図 5.1 気泡上昇速度と気泡直径の関係(単一気泡)

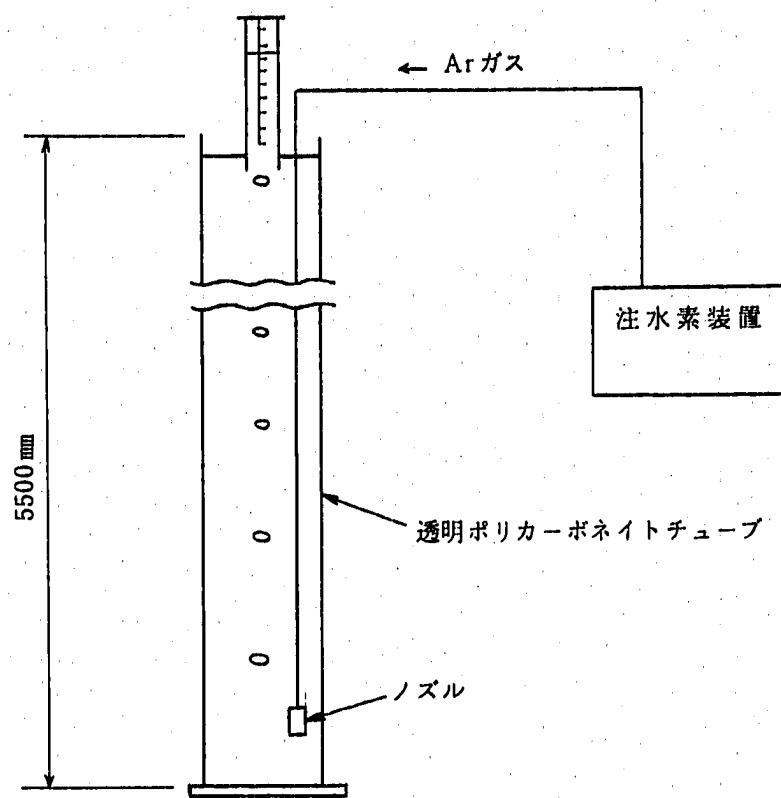


図5.2 水中予備試験概略

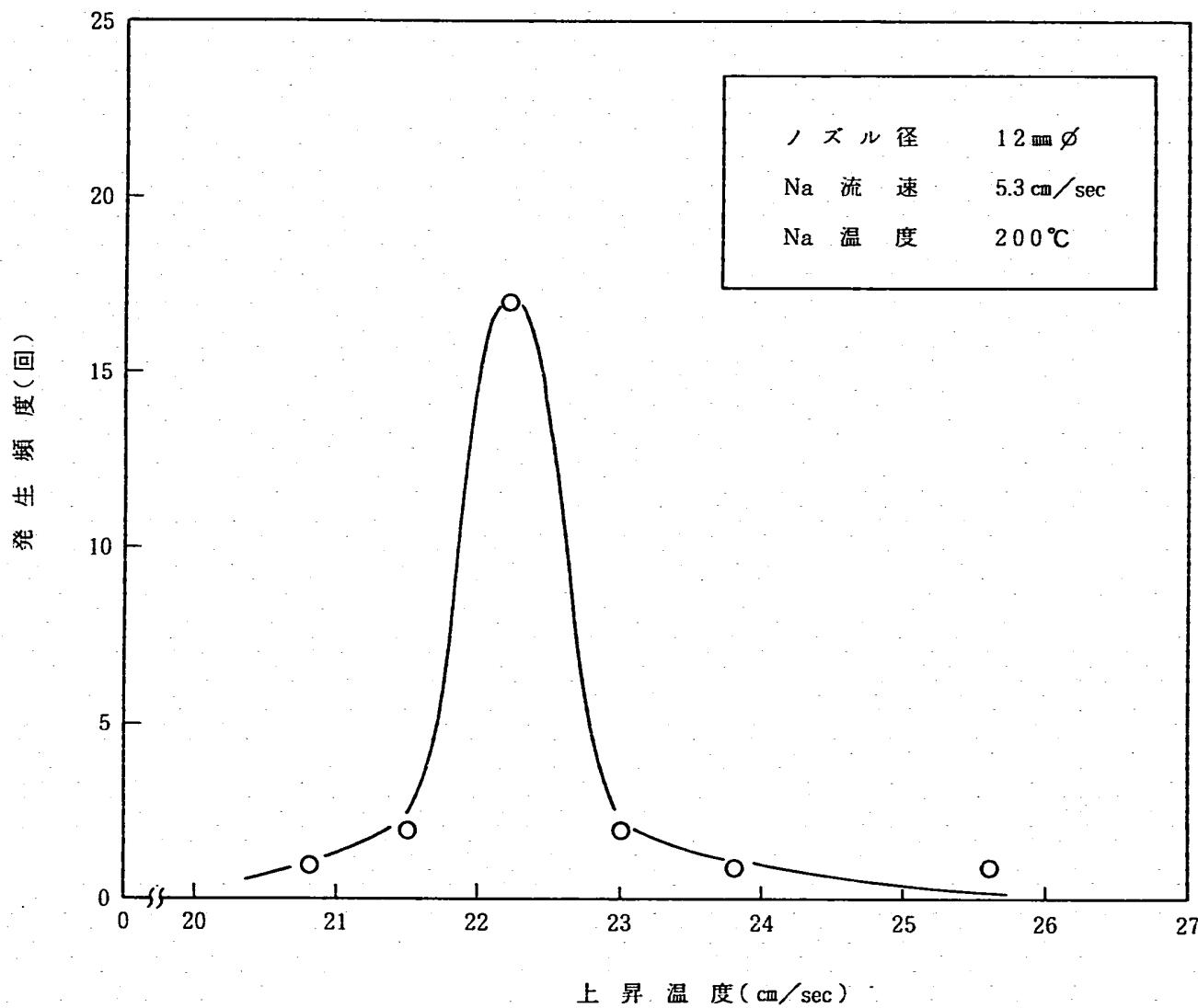


図 5.3 気泡上昇速度と発生頻度の関係

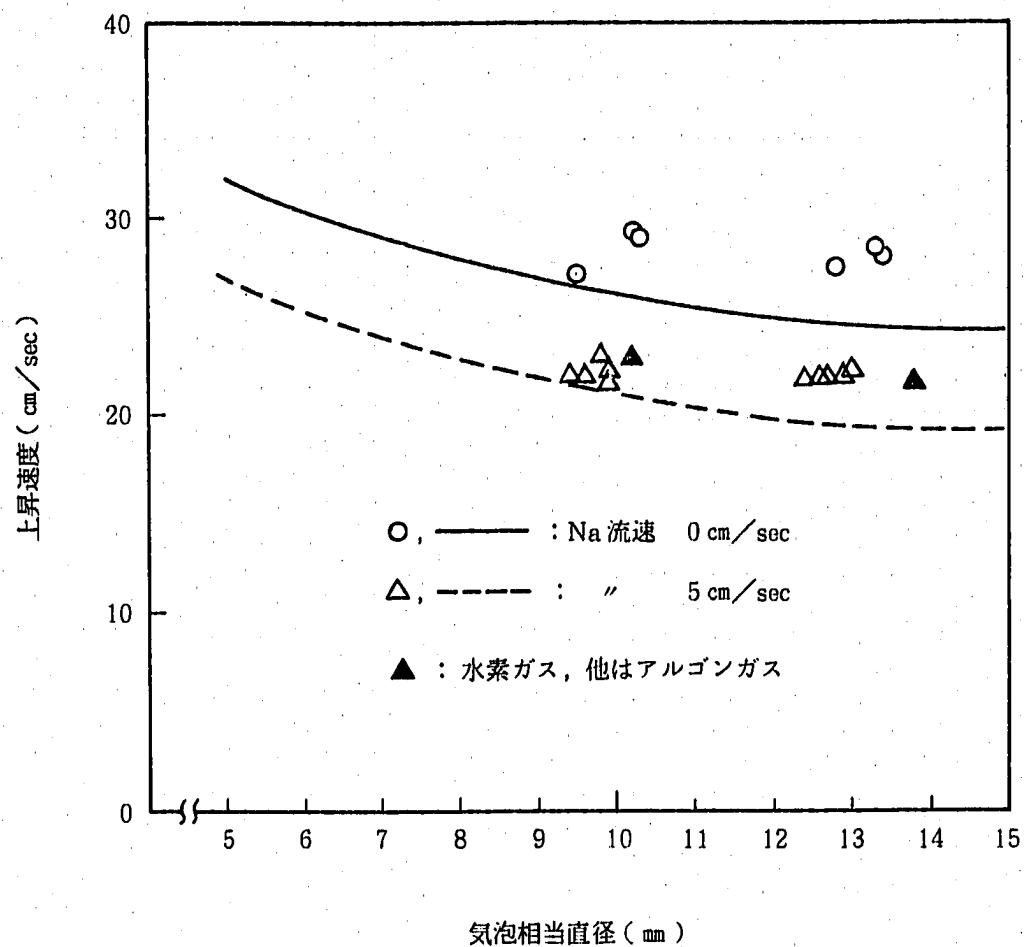


図 5.4 気泡上昇速度－解析と測定結果の比較－

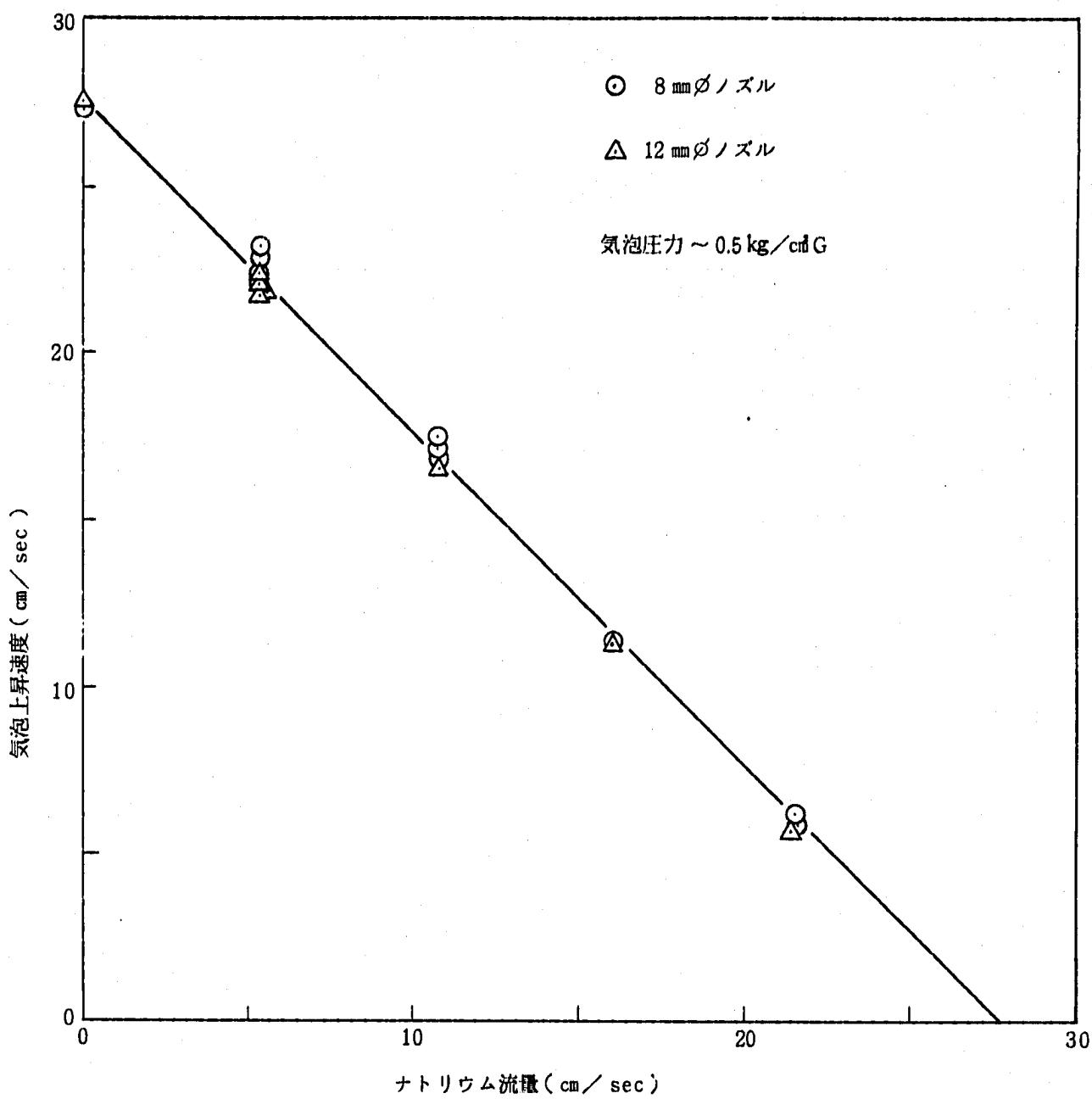


図 5.5 気泡上昇速度とナトリウム流速の関係

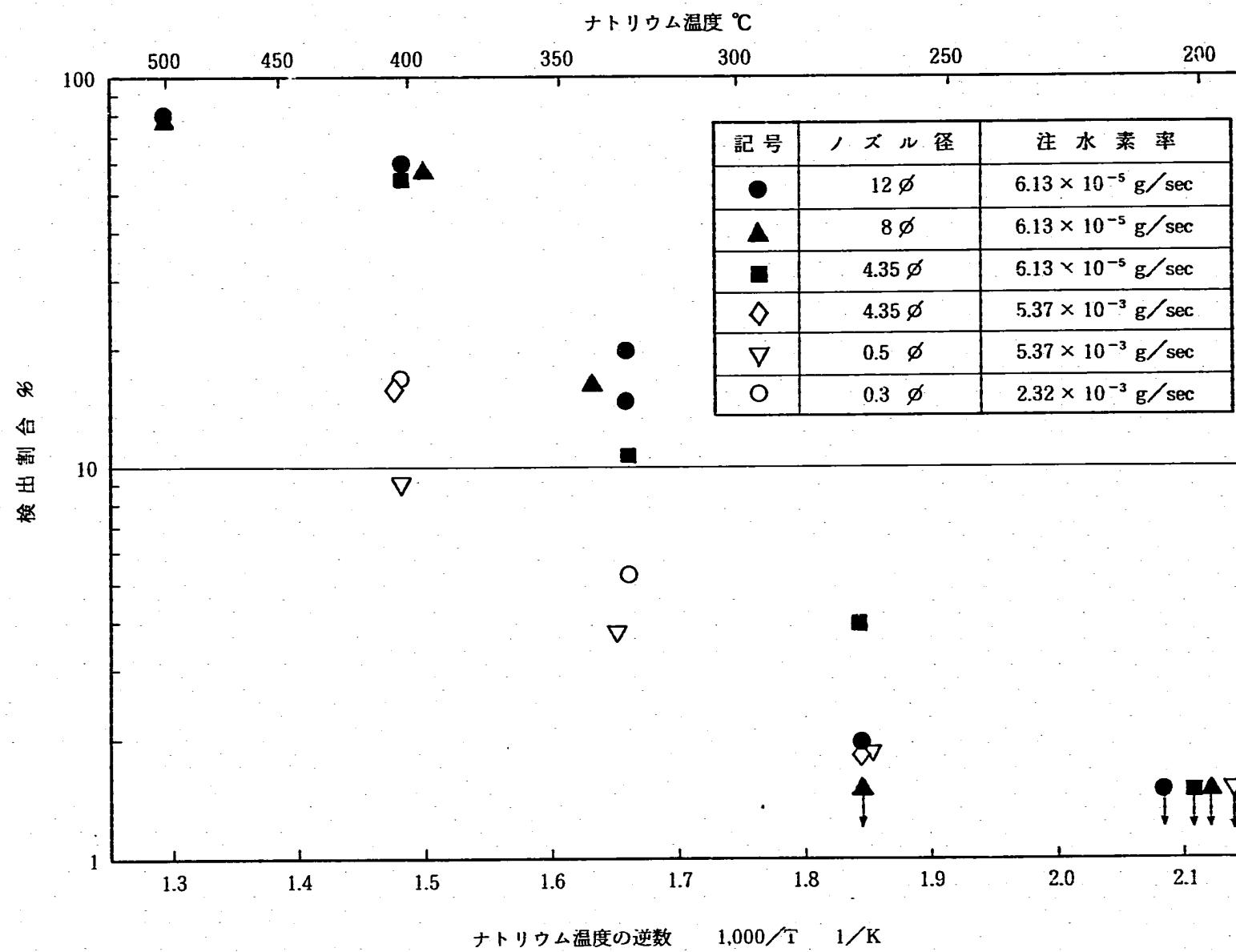


図 6.1 ナトリウム中水素計による水素検出割合

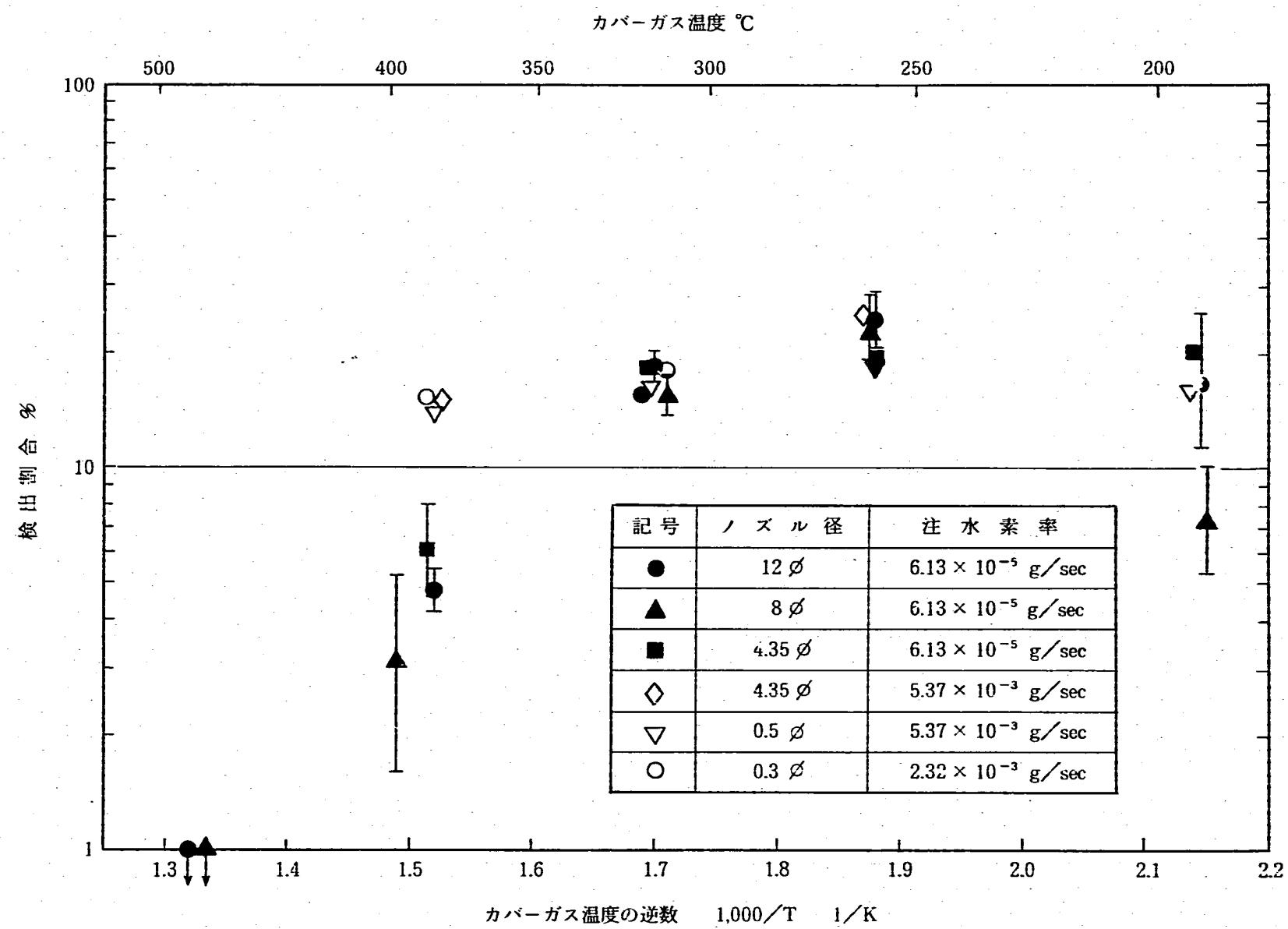


図 6.2 カバーガス中水素計による水素検出割合

記号	ノズル径	注水素率
●	12φ	6.13×10^{-5} g/sec
▲	8φ	6.13×10^{-5} g/sec
■	4.35φ	6.13×10^{-5} g/sec
◆	4.35φ	5.37×10^{-3} g/sec
▽	0.5φ	5.37×10^{-3} g/sec
○	0.3φ	2.32×10^{-3} g/sec

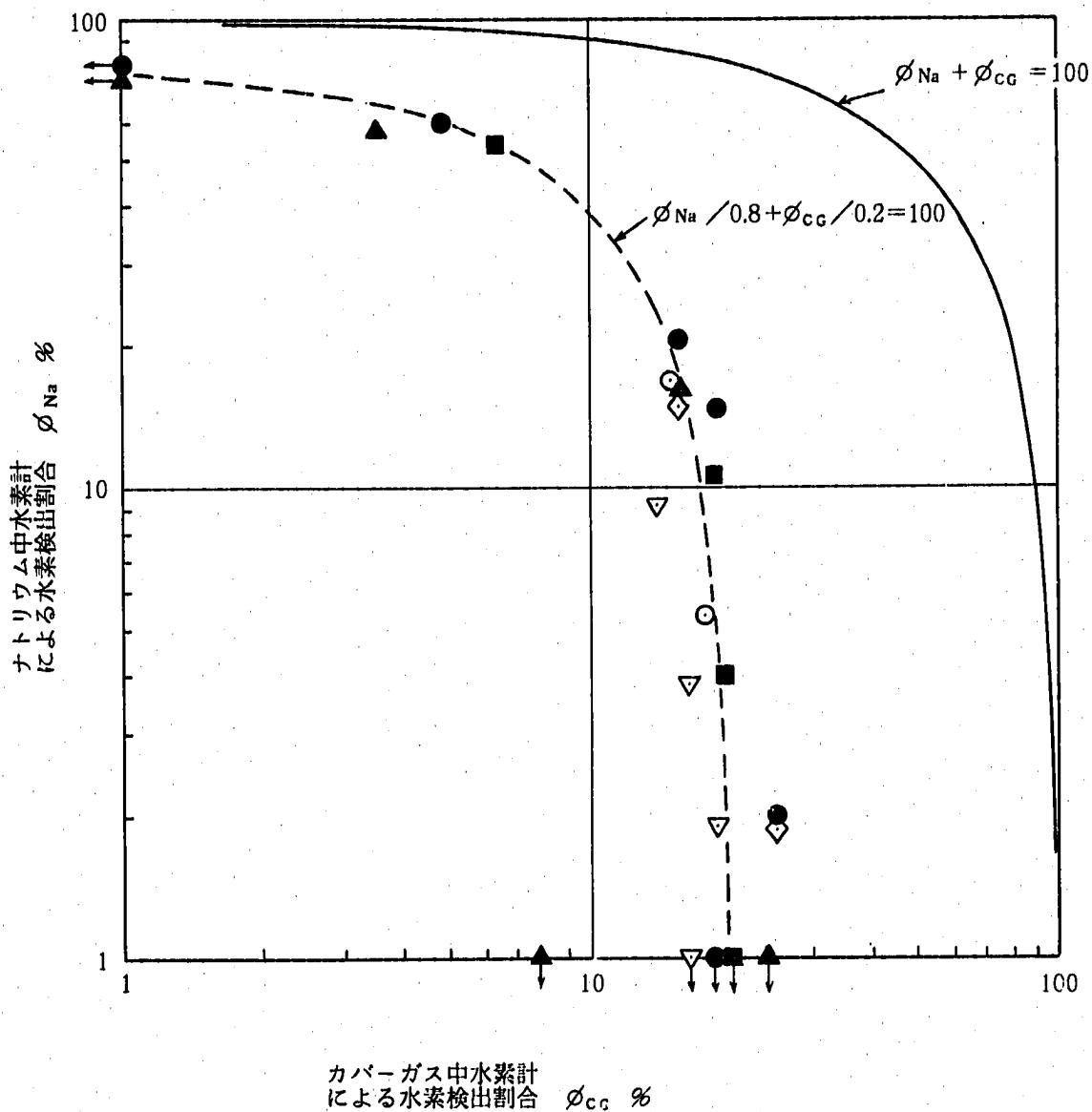


図 6.3 ナトリウム中水素計およびカバーガス中水素計による水素検出割合の関係

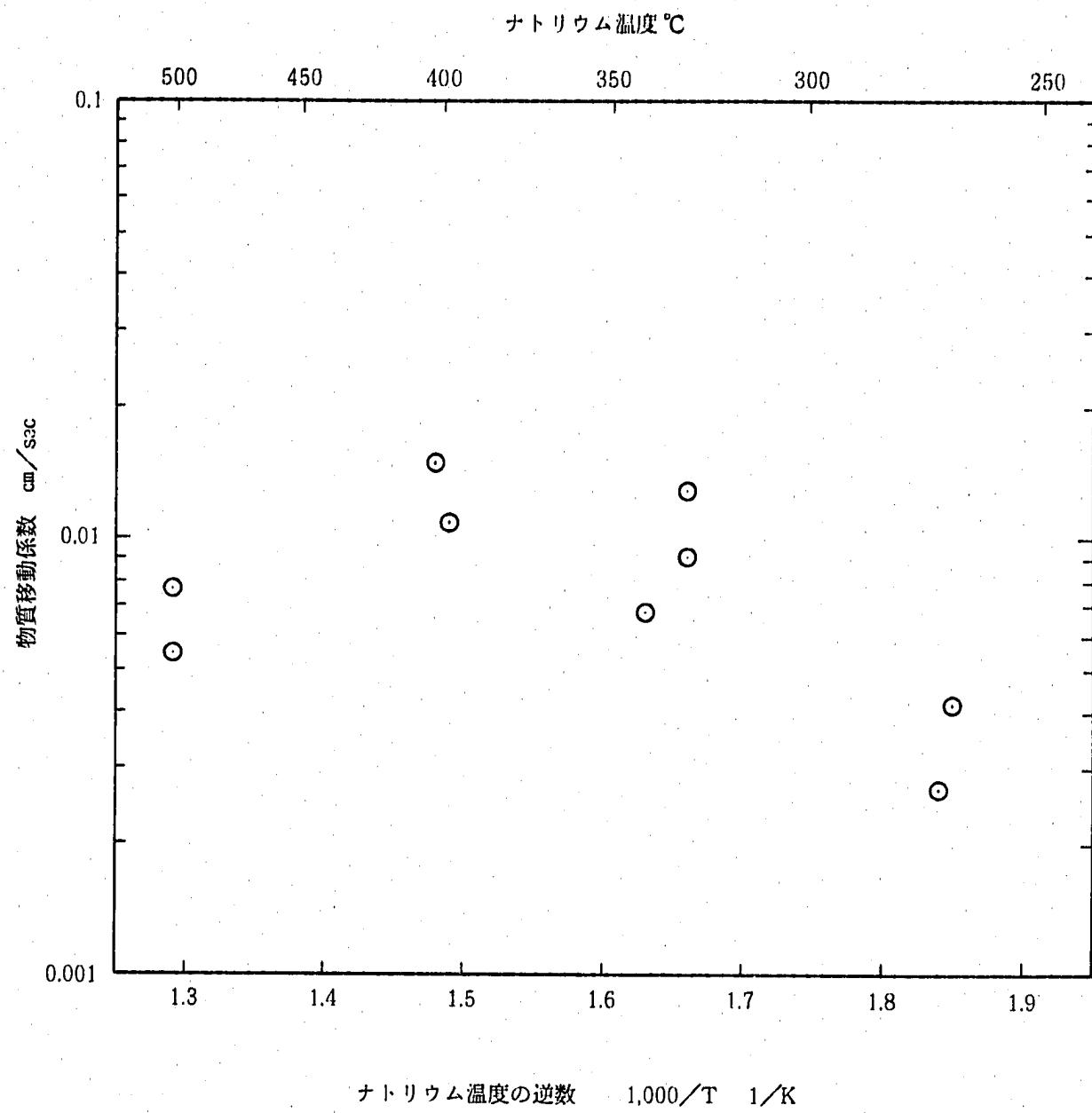


図 6.4 物質移動係数

記号	ノズル径	注水素率	備考
▼	0.5 φ	5.1×10^{-3} g/sec	注水試験
●	0.3 φ	2.2×10^{-3} g/sec	
▽	0.5 φ	5.4×10^{-3} g/sec	注水素試験
○	0.3 φ	2.3×10^{-3} g/sec	

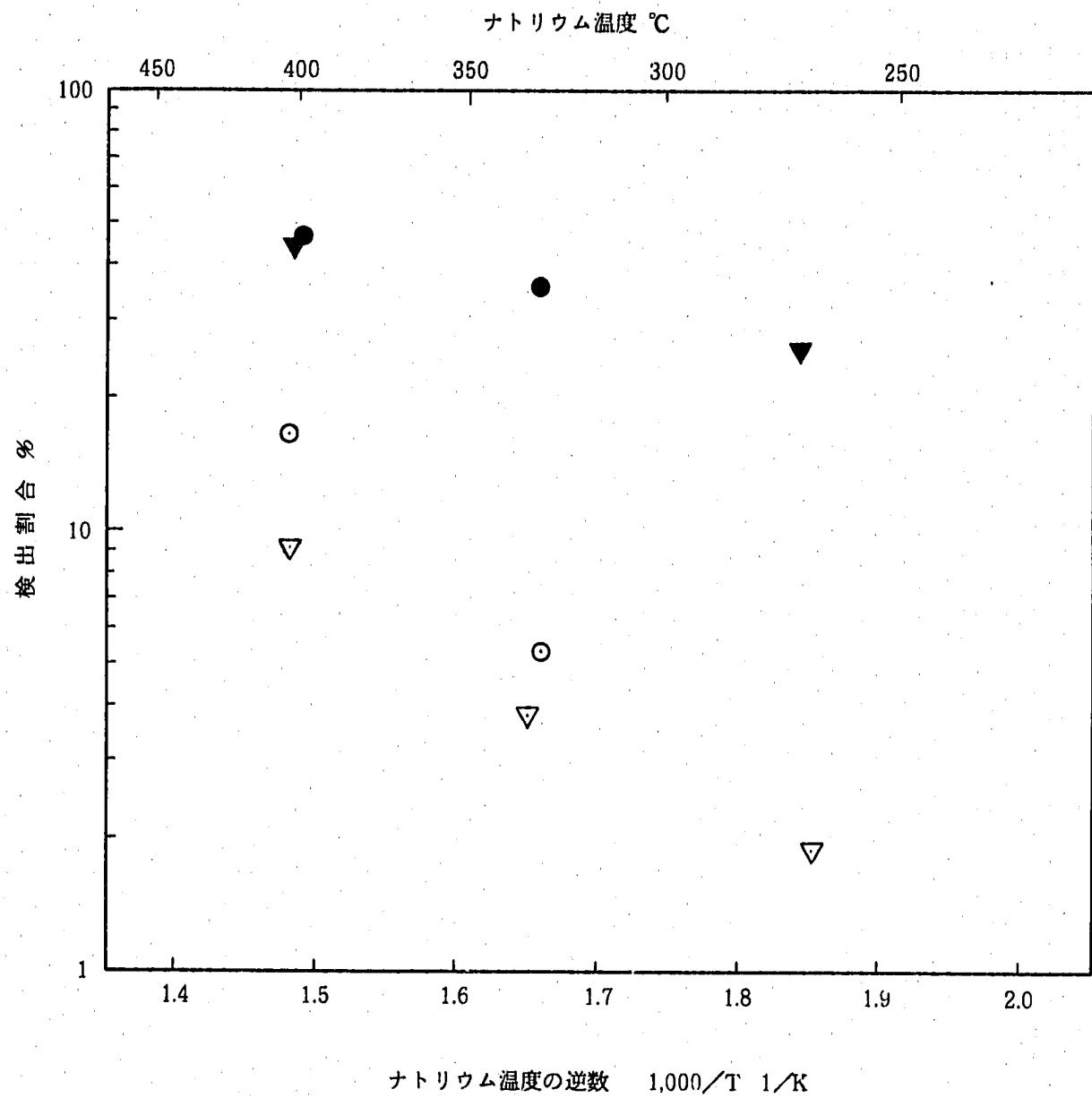


図 7.1 注水試験のナトリウム中水素計検出割合

記号	ノズル径	注水素率	備考
▼	0.5 ϕ	5.1×10^{-3} g/sec	注水試験
●	0.3 ϕ	2.2×10^{-3} g/sec	
▽	0.5 ϕ	5.4×10^{-3} g/sec	注水素試験
○	0.3 ϕ	2.3×10^{-3} g/sec	

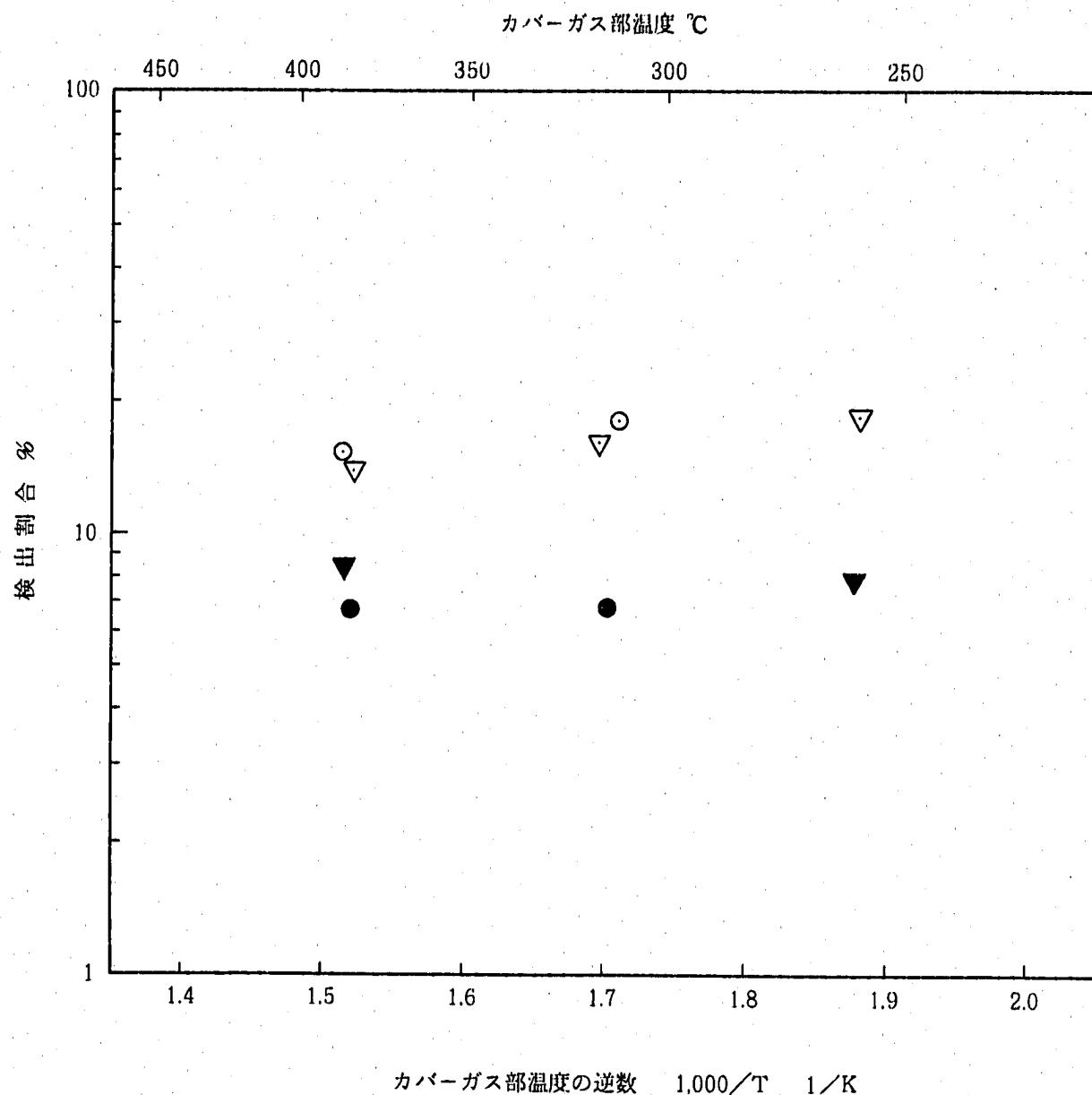
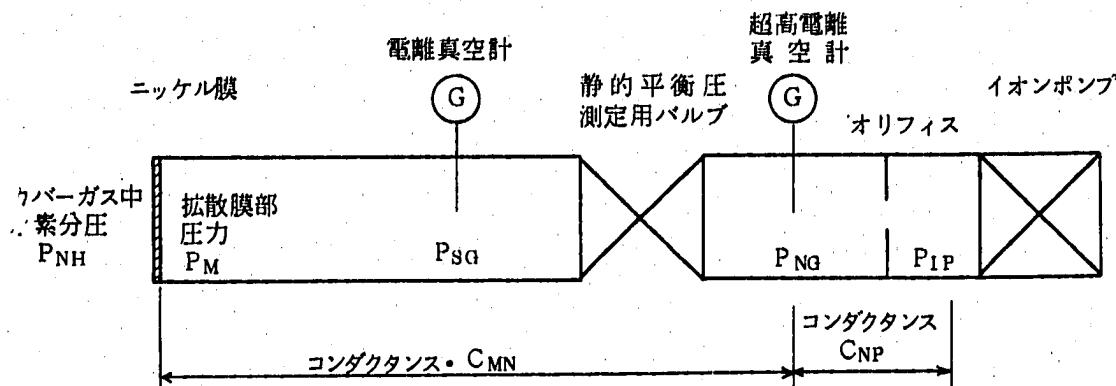


図 7.2 注水試験のカバーガス中水素検出割合

付録一 I ニッケル膜の水素透過率の算定法についての考察

1. 真空系における関係式

カバーガス中水素計における真空系の概念図は以下のとおりである。



1.1 動的平衡圧力測定時における関係式

ニッケル拡散膜を透過する水素の流量を Q_H とすると

$$Q_H = K \cdot \frac{A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P_M^{1/2}) \quad (1.1)$$

$$Q_H = C_{MN} (P_M - P_{NG}) \quad (1.2)$$

$$Q_H = C_{NP} (P_{NG} - P_P) \quad (1.3)$$

K : ニッケル膜水素透過率 (Torr^{1/2} · cm² / sec)

A : " 面積 (cm²)

d : " 厚さ (cm)

以上の関係式が成り立つ。この場合、真空系壁面からの放出ガスは充分少なく、また、真空計の自己排気能力も Q_H に比べ充分小さいことが条件である。

1.2 静的平衡圧力測定時における関係式

静的平衡圧力測定時には、静的平衡圧力測定バルブは閉なっている。

$$V \frac{dP_M}{dt} = K \cdot \frac{A}{d} (P_{NH}^{1/2} - P_M^{1/2}) - S_F \cdot P_{SG} \quad (1.4)$$

$$P_M = P_{SG} \cdot F_t \quad (1.5)$$

V : ニッケル膜-バルブ間の容積 (cm³)

S_F : 真空計の自己排気速度 (cm^3/sec)

F_t : サーマルトランスピレーション補正值

$$F_t = \frac{A \cdot P_{SG}^2 + B \cdot P_{SG} + C \sqrt{P_{SG}} + 1}{A \cdot P_{SG}^2 + B \cdot P_{SG} + C \sqrt{P_{SG}} + \sqrt{T_2/T_1}}$$

$$A : 1.24 \times 10^5 D^2/T^2$$

$$B : 8.00 \times 10^2 D/T$$

$$C : 10.6 \cdot \sqrt{D/T}$$

D : ニッケル膜-電離真空計間の配管の内径 (mm)

$$T : T_2 + T_1/2 \quad (\text{K})$$

$$T_2 : \text{ニッケル膜部温度 (K)}$$

$$T_1 : \text{電離真空計部温度 (K)}$$

以上の関係式が成り立つ。この場合も真空系壁面からの放出ガスは充分小さいことが条件である。

2. 従来用いていた水素透過率の算定法

2.1 動的平衡圧力、静的平衡圧力より求める方法

上記 (1.1), (1.2), (1.3) 式より, P_M , Q_H を消去すると

$$K = \frac{d/A \cdot C_{NP} \cdot (P_{NG} - P_{IP})}{P_{NH}^{1/2} - \left(1 + \frac{C_{NP}}{C_{MN}} \left(1 - \frac{P_{IP}}{P_{NG}}\right)\right)^{1/2} \cdot P_{NG}^{1/2}} \quad (2.1)$$

となり, $P_{NG}^{1/2} \ll P_{NH}^{1/2}$ より

$$K = d/A \cdot C_{NP} \cdot (P_{NG} - P_{IP}) / P_{NH}^{1/2} \quad (2.2)$$

となり, 動的平衡圧力 P_{NG} , イオンポンプ電流より求めるイオンポンプ部圧力 P_p および静的平衡圧力 P_{NH} より求めることができる。

2.2 静的平衡圧測定時間から求める方法

上記 (1.4) 式において, 真空計の自己排気速度を無視できるとすると, $S_F = 0$ とおき, $t = 0$ のとき $P_M = 0$ の初期条件で解くと

$$\sqrt{\frac{P_M}{P_{NH}}} + \ln \left(1 - \sqrt{\frac{P_M}{P_{NH}}} \right) = - \frac{K \cdot A}{2 \cdot V \cdot d \cdot P_{NH}^{1/2}} \cdot t \quad (2.3)$$

の解が得られる。したがって, P_M/P_{NH} となる時間 $t \text{ sec}$ より K を求めることができる。

2.3 水素透過率の算定

上記(2.2)式を用いて水素透過率を求めた結果は、本文で述べたが、(2.3)式を用いてKを求めると、約3~4割低い値が得られる。

この原因を考えると、

- (1) (1.4)式を解く時、真空計の自己排気速度SF=0としている。
- (2) 拡散膜部圧力PMは測定することができないので、PSGを測定してPMを求めるが、(1.4)式を解く時、Ft_tを考慮していない。

以上、2点の原因が考えられるので、以下にFt_t、SFを考慮して水素透過率の算出法について検討を行う。

3. 静的平衡圧力測定時における圧力上昇曲線より求める方法

(1.4)式から、(2.2)式、(1.5)式を用いて、PNH_t、PMを消去すると

(1.4)式は

$$V \cdot DF \cdot \frac{dPSG}{dt} = \frac{K \cdot A}{d} \left(\frac{d/A \cdot C_{NP} (P_{NG} - P_{IP})}{K} - F_t^{1/2} \cdot P_{SG}^{1/2} \right) - SF \cdot P_{SG}$$

$$DF = \frac{(V \cdot PSG)^{1/2} - 1}{(A \cdot PSG^2 + B \cdot PSG + C \sqrt{PSG} + \sqrt{T_2/T_1})^2} + F_t$$

(3.1)

となり、整理すると、

$$K = \frac{d}{A \cdot F_t^{1/2} \cdot P_{SG}^{1/2}} \left\{ C_{NP} (P_{NG} - P_{IP}) - SF \cdot P_{SG} - V \cdot DF \cdot \frac{dP_{SG}}{dt} \right\}$$

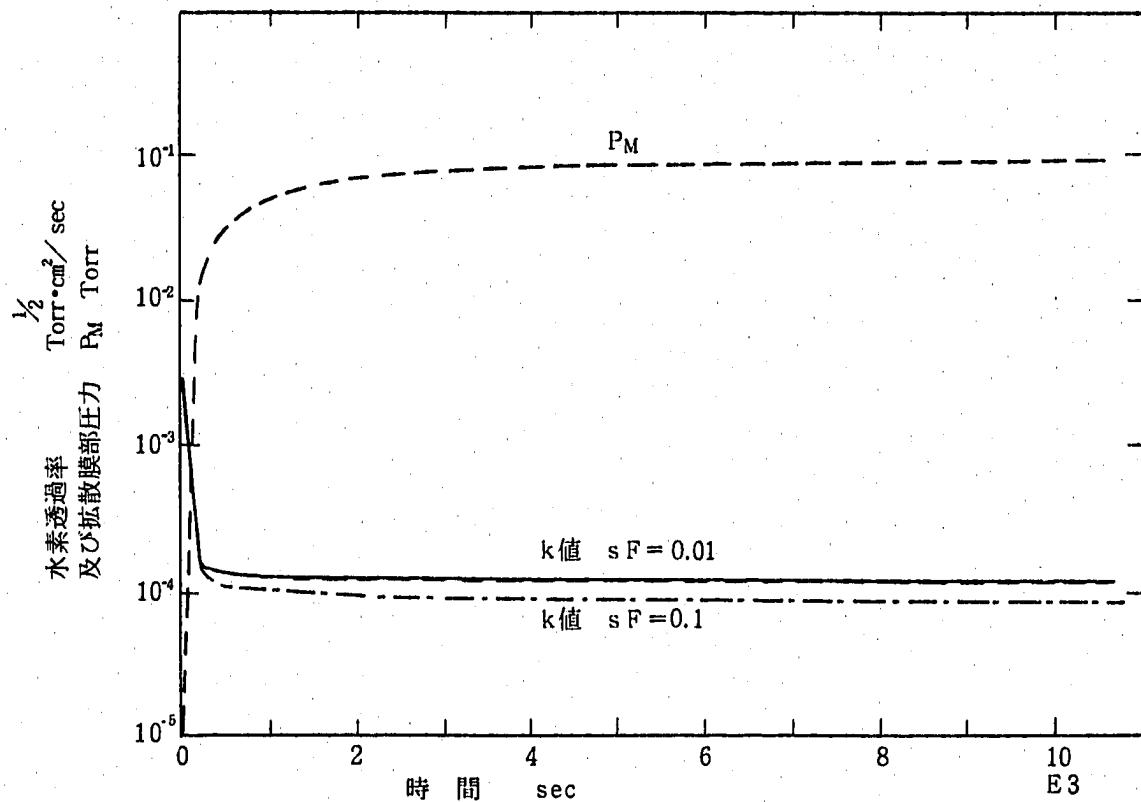
(3.2)

となり、K値は、動的平衡圧力測定時の超高電離真空計部圧力、イオンポンプ部圧力、及び静的平衡圧力測定時の静的平衡圧力測定用バルブを閉とした後の電離真空計部圧力の上昇曲線よりdP_{SG}/dt、P_{SG}を求めることにより算定できる。上記(3.2)式を使用して、バックグラウンド測定試験(Run 6002試験)において測定した静的平衡圧力上昇曲線より水素透過率を(*¹)求めた例を付図-1に示す。真空計の自己排気速度は1.5 cc/secという報告があるが、この値を使用すると、K値は負となり、実情に合わなくなる。そこでSFをパラメータとして、Run 6002、Run 6001試験について計算した結果、SF < 0.2 cc/secとなつたため、付図-1では、SF = 0.1, 0.01としている。付図-1より、K値は静的平衡圧力測定用バルブを閉とした直後を除いて、ほとんど一定であり、(2.2)式を用いて求めたK値とはほぼ同一である。また、他のRun 6002、Run 6001試験ケースについても同様の結果が得られた。

(3.2) 式は、 $dP_{SG}/dt = 0$ (静的平衡状態) の時には、

$$K = \frac{d}{A \cdot F_t^{1/2} \cdot P_{SG}^{1/2}} \left\{ C_{NP} (P_{NG} - P_{IP}) - SF \cdot P_{SG} \right\}$$

となり、 $F_t^{1/2} P_{SG}^{1/2} = P_{NH}^{1/2}$ であり、 $SF = 0$ とすれば (2.2) 式と一致する。



付図-1 (3.2)式による水素透過率の計算例

4. まとめ

以上、ニッケル膜の水素透過率の計算式をまとめると

$$(1) K = d/A \cdot C_{NP} (P_{NG} - P_{IP}) / P_{NH}^{1/2} \quad (2.2)$$

$$(2) \sqrt{P_M/P_{NH}} + \ell \ln \left(1 - \sqrt{P_M/P_{NH}} \right) = \frac{-K \cdot A}{2 \cdot V \cdot d \cdot P_{NH}^{1/2}} \cdot t \quad (2.3)$$

$$(3) K = \frac{d}{A \cdot F_t^{1/2} \cdot P_{SG}^{1/2}} \left\{ C_{NP} (P_{NG} - P_{IP}) - SF \cdot P_{SG} - V \cdot D_F \cdot \frac{dP_{SG}}{dt} \right\} \quad (3.2)$$

となる。これら3つの計算式のうち、(3.2)式を使用して、静的平衡圧力の上昇曲線から求める方法か、(2.2)式を使用する方法がよいと思われる。

(*) 鎌ヶ江、大後、池本、井上「リーク検出計開発研究プログレスレポート（その1）（小リーク・ナトリウム水反応試験研究 第12報）」 PNC SN941 77-190 (1977.11)