

液体鉛ビスマス共晶合金中の酸素濃度測定実験 －酸素センサー製作と静的環境での測定－

Measurement Experiment of Oxygen Concentration in Liquid Lead-Bismuth Eutectic
－Fabrication of Oxygen Sensor and Measurement under Static Condition－

菅原 隆徳 山口 和司

Takanori SUGAWARA and Kazushi YAMAGUCHI

原子力科学研究部門

J-PARCセンター

核変換ディビジョン

Nuclear Transmutation Division

J-PARC Center

Sector of Nuclear Science Research

August 2015

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

液体鉛ビスマス共晶合金中の酸素濃度測定実験

- 酸素センサー製作と静的環境での測定 -

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門

J-PARC センター 核変換ディビジョン

菅原 隆徳、山口 和司※

(2015 年 6 月 24 日受理)

液体鉛ビスマス共晶合金 (LBE) を用いた加速器駆動核変換システム (ADS) や J-PARC 核変換実験施設 (TEF) の ADS ターゲット試験施設 (TEF-T) 等の LBE 試験ループにおける LBE 中酸素濃度測定に資するため、酸素センサーを製作し、静的環境で飽和酸素濃度条件下における LBE 酸素濃度測定実験を行った。製作した Pt/Air 型、Bi/Bi₂O₃ 型の 2 種類のセンサーのうち、Pt/Air 型センサーについては、350 °C から 450 °C の LBE 温度条件下で理論値とほぼ同じ起電力が得られた。ある程度の個体差は認められるものの、起電力値のばらつきも少なく、今後 LBE ループなどでの利用を考える上で、有望な概念が得られた。

Measurement Experiment of Oxygen Concentration in Liquid Lead-Bismuth Eutectic - Fabrication of Oxygen Sensor and Measurement under Static Condition -

Takanori SUGAWARA and Kazushi YAMAGUCHI※

Nuclear Transmutation Division
J-PARC Center
Sector of Nuclear Science Research
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 24, 2015)

The oxygen sensors to measure the oxygen concentration in liquid LBE (lead-bismuth eutectic) were fabricated for future use in LBE-cooled ADS (accelerator-driven system) or LBE test loops. Two types of oxygen sensors were fabricated and used for the measurement under the oxygen saturated condition. Through the measurement experiment, it was confirmed that the electromotive force (EMF) from Pt-type sensor was reliable under 350 °C to 450 °C LBE temperature. The Pt-type sensor will be the first candidate for the use in LBE test loops.

Keywords: Lead-Bismuth Eutectic (LBE), Oxygen Concentration, Oxygen Sensor, Accelerator-Driven System (ADS), J-PARC, Transmutation Experimental Facility (TEF)

※ Collaborating Engineer

目 次

1. 緒言	1
2. 実験概要	3
2.1 測定理論	3
2.2 酸素センサーの構造	7
2.3 測定装置	10
2.4 測定条件	10
3. 測定結果	12
3.1 Pt 型センサー	12
3.2 Bi 型センサー	15
3.3 測定結果のまとめ	17
4. 結言	18
謝辞	19
参考文献	20

Contents

1. Introduction	1
2. Outline of the experiment	3
2.1 Theory of measurement	3
2.2 Structure of oxygen sensor	7
2.3 Measuring equipment	10
2.4 Condition of measurement	10
3. Measurement results	12
3.1 Pt/Air type sensor	12
3.2 Bi/Bi ₂ O ₃ type sensor	15
3.3 Summary of measurement results	17
4. Conclusion	18
Acknowledgment	19
References	20

List of Tables

Table 2.2.1	ジルコニア管 (ZR-8Y) の成分表	8
Table 2.2.2	センサー製作の各段階 (Step)	8
Table 3.3.1	測定結果のまとめ	17

List of Figures

Fig. 1	LBE 温度、酸素濃度と酸化物形成の関係	2
Fig. 2.1.1	固体電解質を用いた酸素濃度測定の原理	4
Fig. 2.1.2	固体電解質を用いた LBE 用酸素センサーの原理	4
Fig. 2.1.3	酸素センサーの概念（左：Pt 型センサー、右：Bi 型センサー） . .	5
Fig. 2.1.4	Pt 型センサーの温度と起電力の関係	6
Fig. 2.1.5	Bi 型センサーの温度と起電力の関係	6
Fig. 2.2.1	酸素センサーの概念図	8
Fig. 2.2.2	Pt 型センサーの外観（左から ID#1, #4, #9）	9
Fig. 2.2.3	Bi 型センサーの外観（左から ID#1, #4, #9）	9
Fig. 2.3.1	酸素濃度測定装置の外観	10
Fig. 2.3.2	LBE ポットの外観	11
Fig. 2.3.3	測定体系の概念図	11
Fig. 3.1.1	Pt 型センサー Step1 の測定結果	13
Fig. 3.1.2	Pt 型センサー Step2 の測定結果	13
Fig. 3.1.3	Pt 型センサー Step3 の測定結果	14
Fig. 3.2.1	Bi 型センサー Step1 の測定結果	15
Fig. 3.2.2	Bi 型センサー Step2 の測定結果	16
Fig. 3.2.3	Bi 型センサー Step3 の測定結果	16

1. 緒言

日本原子力研究開発機構（JAEA）では、使用済み核燃料中の高レベル放射性廃棄物（HLW：High Level Waste）から分離されるマイナーアクチノイド（MA: Minor Actinide）の核変換を目的として、加速器駆動核変換システム（ADS: Accelerator-Driven System）の研究開発を行っている¹⁻³⁾。JAEA で検討している ADS は、核破砕ターゲットおよび冷却材として液体鉛ビスマス（LBE: Lead Bismuth Eutectic）を用いることを想定している。LBE は、中性子の減速能が低く、熱伝導に優れていることから、高速中性子を利用する核変換システムの冷却材として有望である。また融点が低い（125℃）、沸点が高い（1670℃）、化学的に不活性であるといった特徴が挙げられる。一方で、鋼材に対する腐食性が高く、構造材との共存性が課題となっている。

LBE による材料腐食については、LBE 中の酸素濃度を適切な値に制御することで、腐食を防止できることが知られている⁴⁾。**Fig. 1** に LBE 温度と酸素濃度（ C_o ）そして酸化物形成の関係を示す。ある温度において酸素濃度が高くなると、酸化鉛（PbO）が形成され、これは LBE ループなどにおいて閉塞の原因となる。一方、酸素濃度が低くなると、構造材から酸化鉄（ Fe_3O_4 ）が溶解し、これにより構造材が腐食する。現在、JAEA で検討している ADS では、運転時の LBE 温度を 300 – 500℃ の範囲で使用することを想定している。すなわち酸素濃度を 10^{-5} から 10^{-7} wt% 程度に保つことによって、冷却材 LBE による鋼材腐食を防ぐことが可能となる。酸素濃度を制御するためには、それを測定するための LBE 中酸素濃度測定用センサー（以下、酸素センサー）が必要となる。

海外では、主にドイツおよびベルギーで酸素センサーの開発が行われている。ドイツ、カールスルーエ工科大学（KIT）では、Pt/Air 型（説明は次章。以下、Pt 型）および Bi/Bi₂O₃ 型（説明は次章。以下、Bi 型）のセンサーを開発し、CORRIDA と呼ばれる LBE ループにおいて、45,000 時間以上の測定実績を上げている⁵⁾。ベルギー原子力研究センター（SCK・CEN）では、100MW 熱出力の ADS 建設を目指した MYRRHA プロジェクト⁶⁾が進行中である。MYRRHA は MA 核変換は行わず、照射炉として用いることを目指しているため、燃料には MA を用いず MOX 燃料を用いるが、冷却材には LBE を用いることから、LBE 中の酸素濃度の測定・制御は重要な課題となっている。SCK・CEN では、Bi 型センサーを中心に研究開発⁷⁾を進めており、複数の LBE ループを用いて MYRRHA に資するための研究開発を行っている。

日本では、LBE による材料腐食の研究を行うため、Pt 型の酸素センサーが製作され、用いられていた^{8,9)}。しかしながら、これらのセンサーは静的環境下で材料腐食試験を行うために開発されたものであり、LBE 流動化で測定することを念頭に開発されていなかった。またこの時のセンサーそのものが残っておらず、当時の情報を引き継いで再製作を行うのは難しい状況にあった。

一方で、ADS の研究開発に資するため、J-PARC において「核変換実験施設（TEF: Transmutation Experimental Facility）¹⁰⁻¹⁴⁾」の建設が予定されており、特に核破砕ターゲットに関する試験研究を行う ADS ターゲット試験施設（TEF-T: ADS Target Test Facility）¹¹⁾については、

そのモックアップループを製作し試験運転を行う予定となっている。しかしながら、前述の通り、独自の酸素センサー技術を持っていなかったことから、酸素濃度を測定せずにループを運転する可能性があった。モックアップループ運転時に酸素濃度を測定するため、また将来の TEF-T 運転時に JAEA 独自の酸素センサーを供給するため、改めて酸素センサーの開発、製作を行い、その性能試験として、まずは静的環境下での酸素濃度測定実験を実施した。

第2章では実験の概要として、測定の理論を簡単に説明し、製作した酸素センサーや実験条件などを説明する。第3章では測定結果を示し、第4章では本実験のまとめ、および今後の課題を述べる。

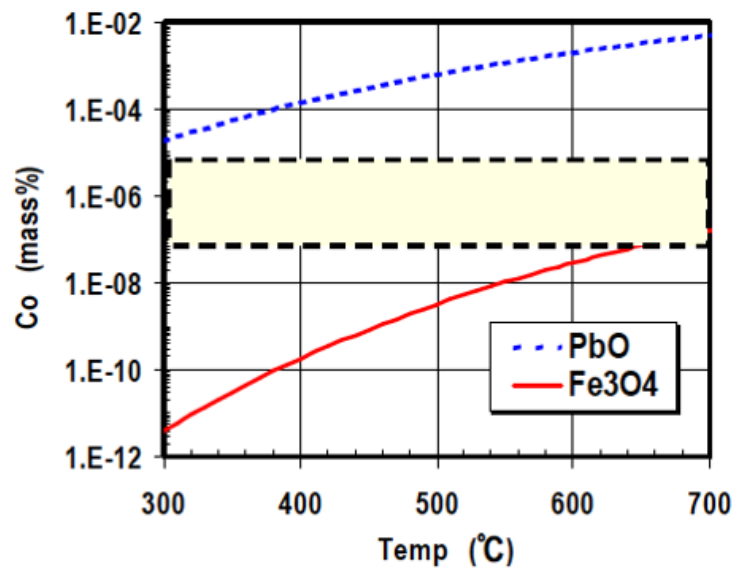
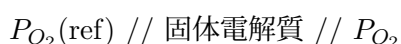


Fig. 1 LBE 温度、酸素濃度と酸化物形成の関係

2. 実験概要

2.1 測定の理論

液体 LBE 中の酸素濃度を求めるため、酸素イオン伝導体であるジルコニア固体電解質を用いた酸素濃度電池を構成し、そこで生じる電位差を測定することで、酸素濃度を推定する。**Fig. 2.1.1** に固体電解質を用いた酸素濃度測定の原理を示す¹⁵⁾。異なる酸素濃度の媒質間に固体電解質をおいた場合、酸素イオンの伝導により以下のガルバニ電池が構成される。



ここに、 $P_{O_2}(\text{ref})$ は参照極側の酸素分圧、 P_{O_2} はもう一方の媒質中の酸素分圧であり、固体電解質を介して酸素イオンが移動する。この電池の起電力 E は、以下の Nernst の式から求められる。

$$E = \frac{RT}{4F} \ln \frac{P_{O_2}(\text{ref})}{P_{O_2}} \quad (2.1)$$

ここに R はガス定数、 T は温度 [K]、 F はファラデー定数である。 $P_{O_2}(\text{ref})$ が既知の時、起電力 E を測定することで、 P_{O_2} を求めることが可能である。

この原理を液体 LBE に用いる場合の原理を **Fig. 2.1.2** に示す。この図では、固体電解質としてイットリア安定型ジルコニア (YSZ)、参照極として Pt/Air を用いる場合を示している。参照極側の Pt で酸素に電子が供給され、酸素イオンが生じ、YSZ を伝導する。LBE 側の YSZ 表面では、酸素イオンは酸素原子として溶解し、自由電子が生じる。

この原理を踏まえ、本研究では、ドイツ、ベルギーなどで実績がある Pt 型および Bi 型の酸素センサーを対象として、製作および測定を行った。**Fig. 2.1.3** に両センサーの概念図を示す。どちらのセンサーについても、試験管形状の YSZ を用い、その中に電極を入れ、LBE 側との電位差を測定する仕組みとなっている。Pt 型については、YSZ の内面に Pt を塗布し、外気を取り入れて参照極とする構造になっている。この場合、空気が欠乏しないため、YSZ が破損しない限り使用することが可能であるが、YSZ 破損時には LBE が外部へ漏洩する可能性がある。Bi 型については、YSZ の中に Bi と Bi_2O_3 を混合した粉末を入れ、これを密封することで使用する。この場合、YSZ 破損時の LBE 漏洩の可能性は大幅に低くなるが、酸化ビスマスの酸素が徐々に減少するため、封入する Bi/ Bi_2O_3 の量でセンサーの寿命が決まる。

これらの酸素センサーの起電力 E [mV] と酸素濃度 C_o [wt%] については、以下の関係が得られている。Pt 型については¹⁵⁾、

$$E^{\text{sat}} = 1129 - 5.858 \times 10^{-1} T \quad (2.2)$$

$$E = 791 - 4.668 \times 10^{-1} T - 4.309 \times 10^{-2} T \cdot \ln C_o \quad (2.3)$$

Bi 型については⁴⁾、

$$E^{sat} = 137 - 0.067T \quad (2.4)$$

$$E = -323 + 0.23T - 0.0431T \cdot \ln C_o \quad (2.5)$$

ここで、添え字の *sat* は飽和時を意味し、温度 *T* は絶対温度 [K] である。これらの理論値をプロットしたものを Fig. 2.1.4 および Fig. 2.1.5 に示す。

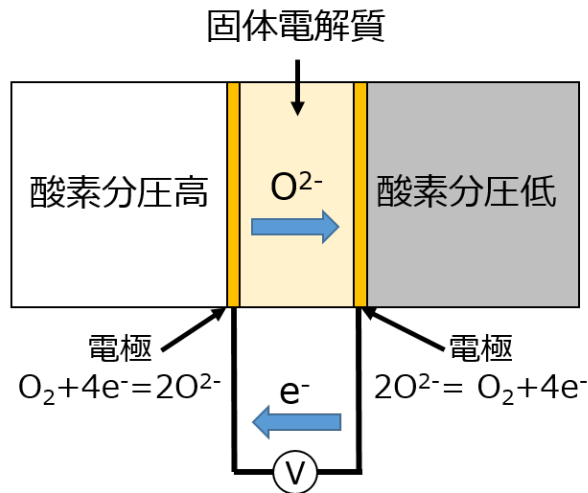


Fig. 2.1.1 固体電解質を用いた酸素濃度測定の実理

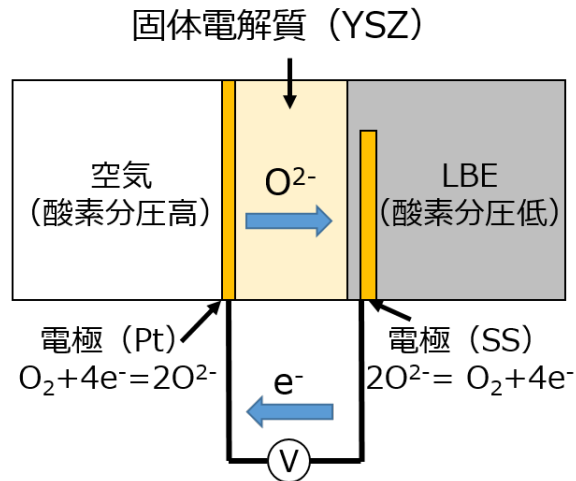


Fig. 2.1.2 固体電解質を用いた LBE 用酸素センサーの実理

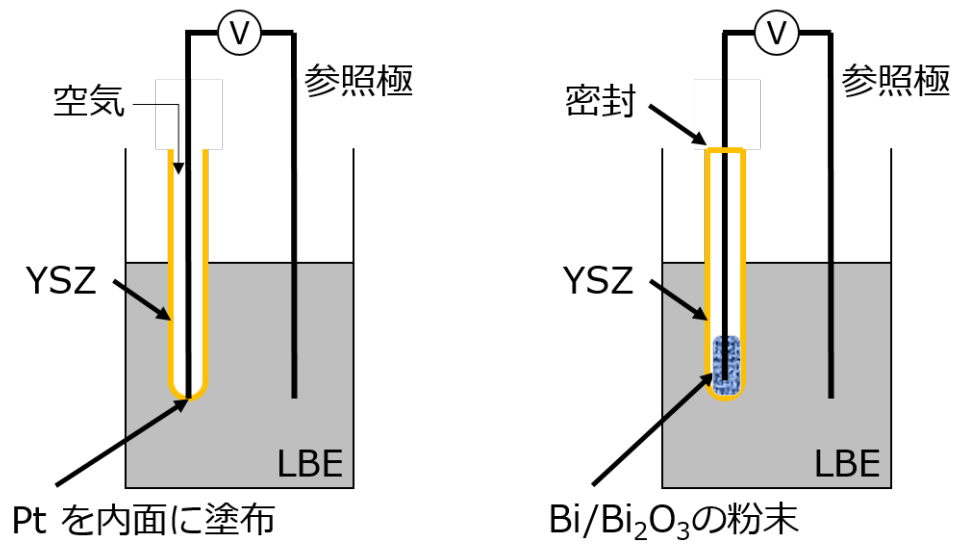


Fig. 2.1.3 酸素センサーの概念 (左：Pt 型センサー、右：Bi 型センサー)

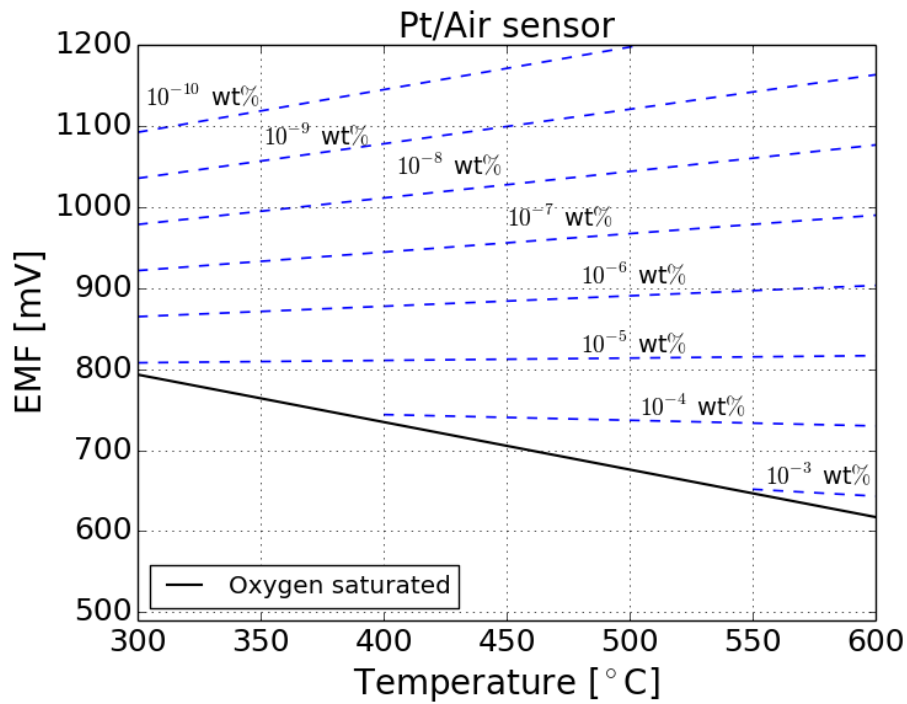


Fig. 2.1.4 Pt 型センサーの温度と起電力の関係

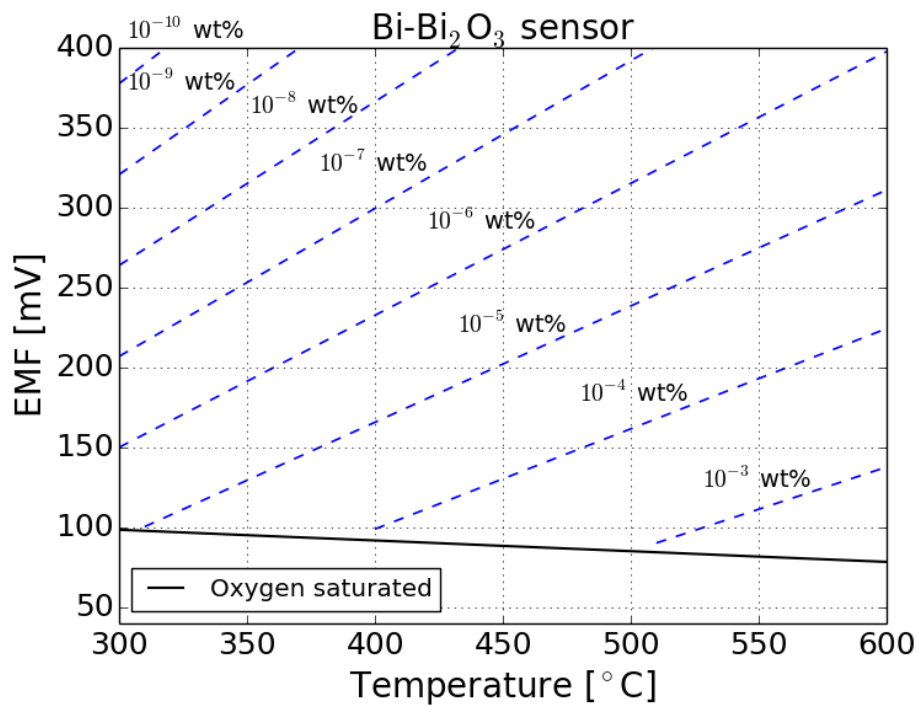


Fig. 2.1.5 Bi 型センサーの温度と起電力の関係

2.2 酸素センサーの構造

製作した酸素センサーは、試験管型の YSZ と、それを固定し容器などに据え付ける構造部から構成される。YSZ については外径 6mm、内径 4mm のジルコニア管（ニッカトー製、ZR-8Y）を採用した。ジルコニア管の成分表を **Table 2.2.1** に示す。構造部は 140mm 程度の長さの SUS316 管を用い、YSZ との接合については金ロウを用いた。測定時の容器への据え付けには、スウェジロック（外径 1/2"）を用いている。酸素センサーの概念図を **Fig. 2.2.1** に示す。YSZ および構造部の中に電極を通し、BNC コネクタと接続する構造となっている。

Pt 型と Bi 型の違いは以下の通りである。

- Pt 型は、YSZ 管の内部に Pt ペーストを塗布し、これと電極が接触する。電極には SUS304 ワイヤ（直径 1mm）を用いた。また構造部については、外気が YSZ 内部に入る構造とした。
- Bi 型は、YSZ 管に Bi/Bi₂O₃ の粉末を入れ、そこに電極を通した。ただし電極と YSZ は直接接触しないようにしている。この電極には Mo ワイヤ（直径 1mm）を用いた。Bi と Bi₂O₃ の割合については、ドイツ、ベルギーなどの知見をもとに、重量比で 95:5 となるよう調整した。また構造部については、外気が YSZ へ入らない構造とした。

酸素センサーの製作は、Pt 型および Bi 型それぞれについて三段階に分けて行った。すなわち一段階毎にセンサーを製作し、LBE による実液試験を行い、その試験結果をもとに改善点を次の設計に反映させた。各段階（step）の製造本数および特徴を **Table 2.2.2** にまとめる。次章に結果を示すが、Step1 での測定結果があまり良くなかったことから、Step2 で幾つかの変更を行った。Pt 型については、Pt ペーストの塗布面積が微弱な電位差を検出する上で重要と考え、YSZ の内側にも塗布することとした。Bi 型については、粉末量を増やすことで改善を図ることを考えた。またどちらについても、Step1 では製作上の理由で、電極と BNC の間に銅のリード線を入れていた。しかしながら、微弱な電位差を測定する上で、電極間に材料の異なる物質をいくつも間に挟むのは適切ではないと考え、この部分を無くして製作を行った。Step3 については、Pt 型については LBE 漏洩を考慮して構造部の改善を行った。しかしながら、酸素センサーの出力の点からは、Pt 型、Bi 型ともに Step2 と同じ性能のものを製作している。各センサーの外観を **Fig. 2.2.2** および **Fig. 2.2.3** に示す。どちらについても各 Step のセンサー（ID #1, #4, #9）を示している。Pt 型センサーの #9 は、取り付け用の治具がついているが、基本的には Step2 の #4 と同じ外観となっている。

Table 2.2.1 ジルコニア管 (ZR-8Y) の成分表

組成	含有量 [%]
SiO ₂	0.1
TiO ₂	0.1
ZrO ₂ (+HfO ₂)	85.4
Al ₂ O ₃	0.7
Fe ₂ O ₃	< 0.1
Y ₂ O ₃	13.6
CaO	< 0.1
MgO	< 0.1

Table 2.2.2 センサー製作の各段階 (Step)

Step	製作数 (ID)	Pt 型	Bi 型
1	2 (1,2)	電極の先端のみに Pt ペースト塗布	Bi 粉末量 * ¹ は #1 が 2.4g、#2 が 1.2g
2	2 (3,4)	YSZ 先端内側にも Pt ペースト塗布 電極-BNC 間の部品を減らす	Bi 粉末量を 4.0g 電極-BNC 間の部品を減らす
3	5 (5-9)	LBE 漏洩に配慮した構造部	Step2 に同じ

*1: Bi と Bi₂O₃ を合わせた量

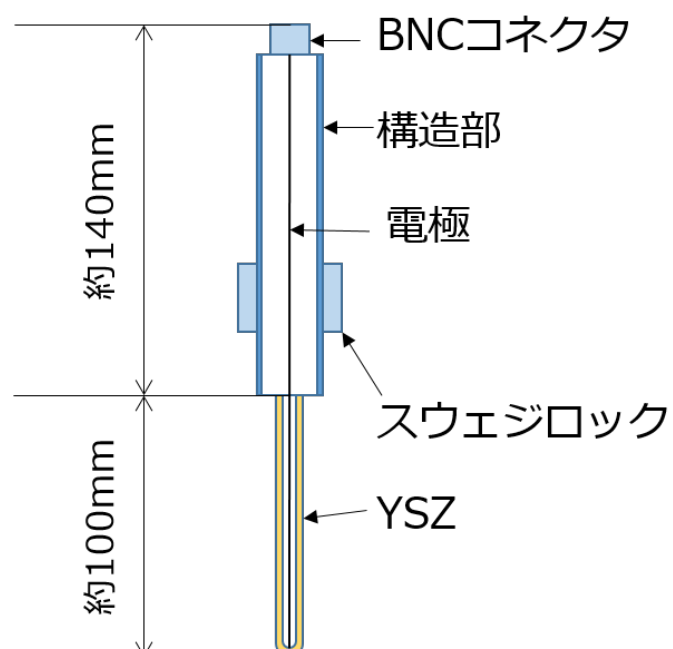


Fig. 2.2.1 酸素センサーの概念図



Fig. 2.2.2 Pt 型センサーの外観 (左から ID#1, #4, #9)



Fig. 2.2.3 Bi 型センサーの外観 (左から ID#1, #4, #9)

2.3 測定装置

酸素濃度の測定には、酸素濃度測定装置を用いた。これは、SUS316製の小型LBEポットにLBEを入れて酸素センサーを設置し、電気炉でLBEポットを加熱することで、ある温度条件の酸素濃度を測定するための装置である。電気炉は5台あり、LBE温度で最大600℃までの測定が可能である¹。また3種類のガス（Ar、Ar+5%O₂、Ar+4%H₂）を用いることが可能であり、Ar+5%O₂を用いることでLBEの酸化、Ar+4%H₂を用いることで還元を行うことが可能である。

酸素濃度測定装置の外観およびLBEポットの外観をそれぞれFig. 2.3.1およびFig. 2.3.2に示す。また、LBEポットを用いた測定体系の概念図をFig. 2.3.3に示す。LBEポットには、酸素センサー、参照極（SUS316）、熱電対が設置され、LBEの酸素濃度および温度を測定する。



Fig. 2.3.1 酸素濃度測定装置の外観

2.4 測定条件

今回の測定では、LBE中の酸素濃度が飽和した状態で、幾つかの温度条件における酸素センサーの起電力を測定し、理論値との比較を行った。LBEをポットに入れた後、電気炉により加熱を行い、LBE温度が250℃程度になったところで、酸素センサーをLBEに浸漬した。カバーガスとしてArガスを常時供給しながら、LBE温度を25℃刻みで最大450℃まで変化させ、起電力の測定を行った。

¹2015年5月現在、鉛中毒予防規則に則り、LBE温度は最大450℃までと自主規制している。



Fig. 2.3.2 LBE ポットの外観

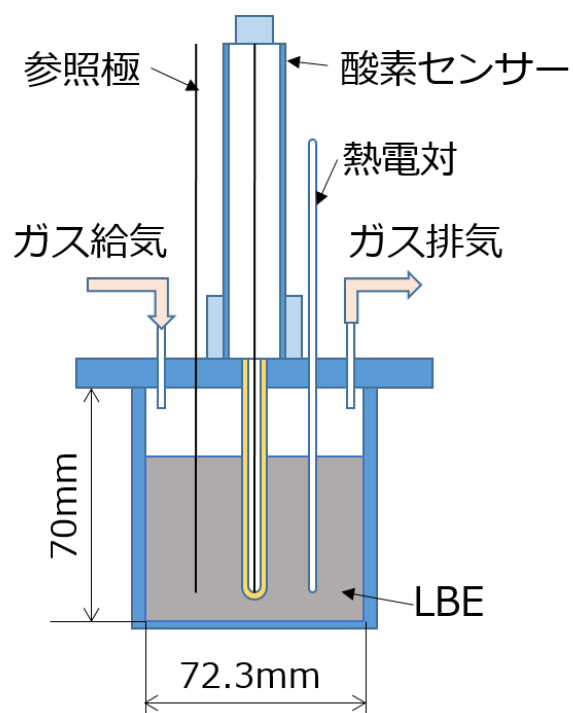


Fig. 2.3.3 測定体系の概念図

3. 測定結果

3.1 Pt 型センサー

Fig. 3.1.1 から **Fig. 3.1.3** に各 Step の Pt 型センサーの測定結果を示す²。

Fig. 3.1.1 に示すように、Step1 では製作した 2 本のセンサー両方について、どちらについても起電力値のばらつきが大きい結果となった。ただし、450℃ではどちらのセンサーも理論値に近い起電力となっている。

Step2 の測定結果を **Fig. 3.1.2** に示す。前章で述べたとおり、Step2 では YSZ 管の内側に Pt ペーストを塗布し、電極となる部分の面積を増やすとともに、電極-BNC 間の部品を減らした。#3 のセンサー³については測定開始時から破損し、測定できなかったものの、#4 のセンサーについては、理論値と良く合う起電力を得た。この結果については、ばらつきも非常に少なく、信頼性の高い起電力が得られた。

Fig. 3.1.3 に Step3 の測定結果を示す。Step2 の結果が良好であったため、前章で述べたとおり Step3 のセンサーについては、測定に関わる部分は Step2 のままで製作を行った。Step3 においても、#6 が測定開始時に破損したため、残り 4 本の測定結果をプロットしている。この図から、#9 以外のセンサーについては、理論値とほぼ同じ出力値が得られたことが確認できる。#7 の 350℃の値が、少し理論値から外れているが、Pt 型センサーは高温（450℃以上）での使用が推奨されているため、この温度域での差は許容できる。#9 の結果については解釈が難しいが、温度が上昇することで YSZ や内部の電極、構造部などが膨張することで、電極の接触がずれたことが一つの原因として考えられる。

以上から、Pt 型センサーについては、Step2、Step3 のセンサーにより、酸素飽和下における理論値とほぼ同じ出力値が得られることを確認した。

²センサー出力は LBE 温度を変化させた後、温度変化に追従して変化するため、温度設定変更後、数時間から十数時間その LBE 温度を保持しながらセンサー出力を記録し、次の温度設定に変更した。この時、温度設定変更後約 1 時間分の起電力値は棄却してデータ整理を行っている（Bi 型センサーについても同様）。またエラーバーは、測定中の起電力値の振れ幅（ 1σ ）を示している。

³数字はセンサー ID。**Table 2.2.2** を参照のこと。

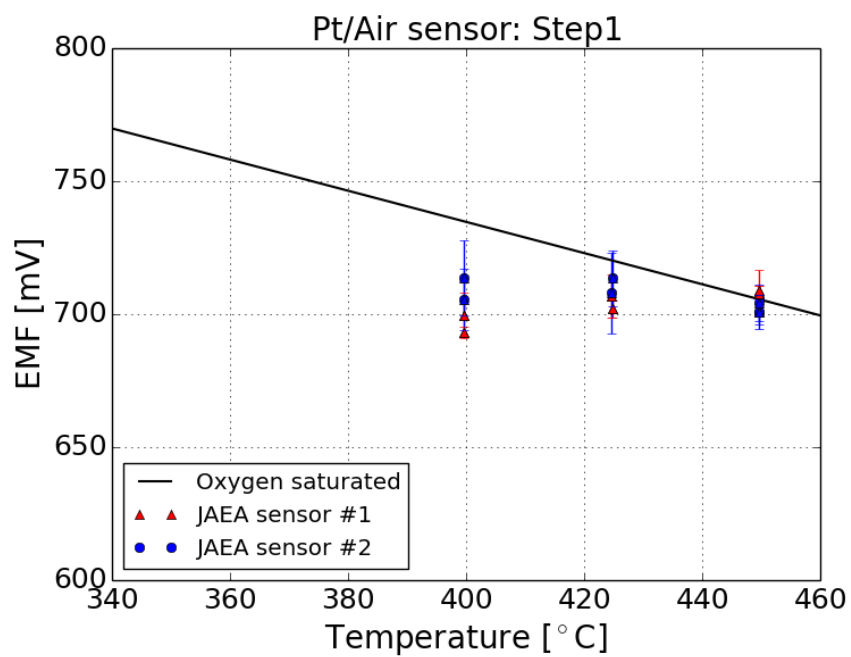


Fig. 3.1.1 Pt 型センサー Step1 の測定結果

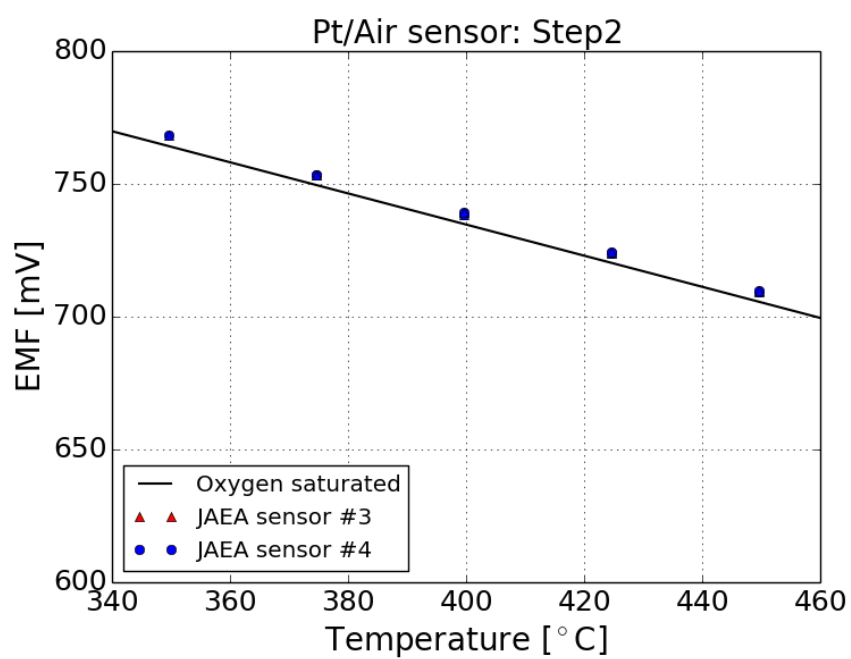


Fig. 3.1.2 Pt 型センサー Step2 の測定結果

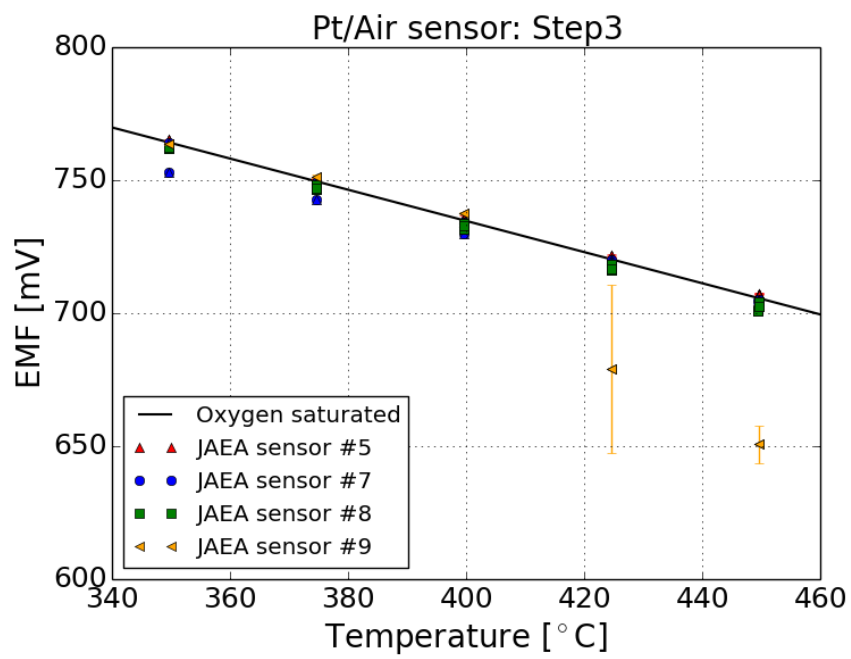


Fig. 3.1.3 Pt 型センサー Step3 の測定結果

3.2 Bi型センサー

各 Step の Bi 型センサーの測定結果を、**Fig. 3.2.1** から **Fig. 3.2.3** に示す。

Step1 については、2 本のセンサーを用いて測定を行った (**Fig. 3.2.1**)。どちらについても、Bi 型センサーで確認される、温度上昇に対して起電力値が減少する傾向が見られなかった。また、絶対値についても理論値から最大で 10 % 以上値が大きい結果となっており、酸素センサーとしての信頼性に欠けることを確認した。

Fig. 3.2.2 に、Step2 の測定結果を示す。Step2 では前章で述べたとおり、Step1 の結果を踏まえて封入する Bi/Bi₂O₃ 量を増やし、電極となる部分の面積を増やした。まず、測定中に#3 の YSZ 部が破損し、測定が不可能となった。#4 のセンサーについても、値のばらつきが大きく、信頼性に欠ける。ただし 450 °C の結果については、#3、#4 ともに理論値に近い出力となった。一般的に LBE 用酸素センサーは高温 (450 °C 以上) であるほど、測定がしやすいと言われていることから、このセンサーについては、450 °C 以上の温度であれば信頼性のある出力が得られる可能性が考えられる。

Step3 の測定結果を **Fig. 3.2.3** に示す。Bi 型センサー Step3 については、Step2 と同じ構造のセンサーを 5 本製作し、測定を行った。このうち 1 本 (#8) は、測定開始時に破損した。他の 4 本についても、温度と起電力間の定性的な関係が見られず、絶対値も理論値から最大で 10 % 以上差が生じており、酸素センサーとしての信頼性に欠けることを確認した。ただし、450 °C 以上では理論値に近い起電力を出す可能性があり、今後、450 °C 以上の条件で再測定を行う必要がある。

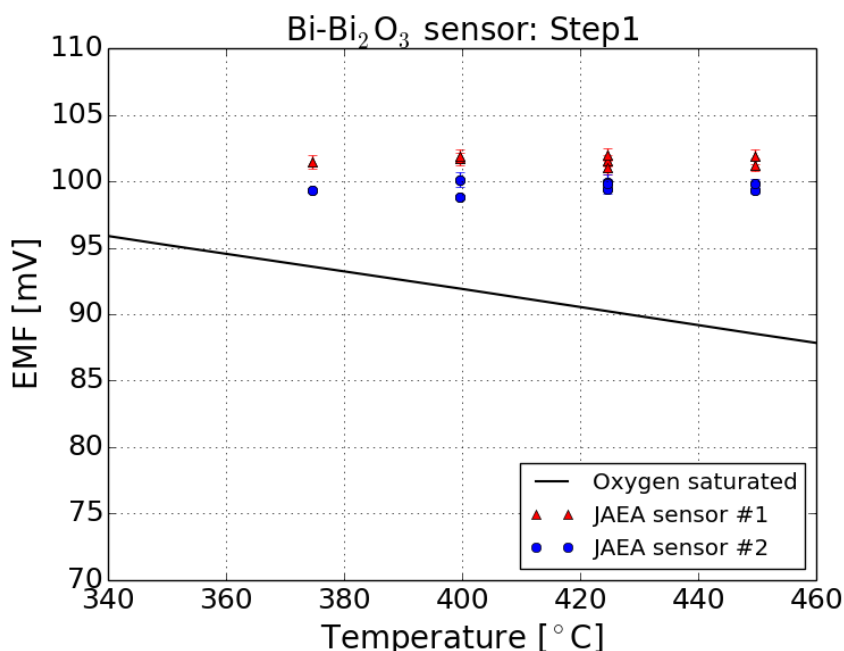


Fig. 3.2.1 Bi 型センサー Step1 の測定結果

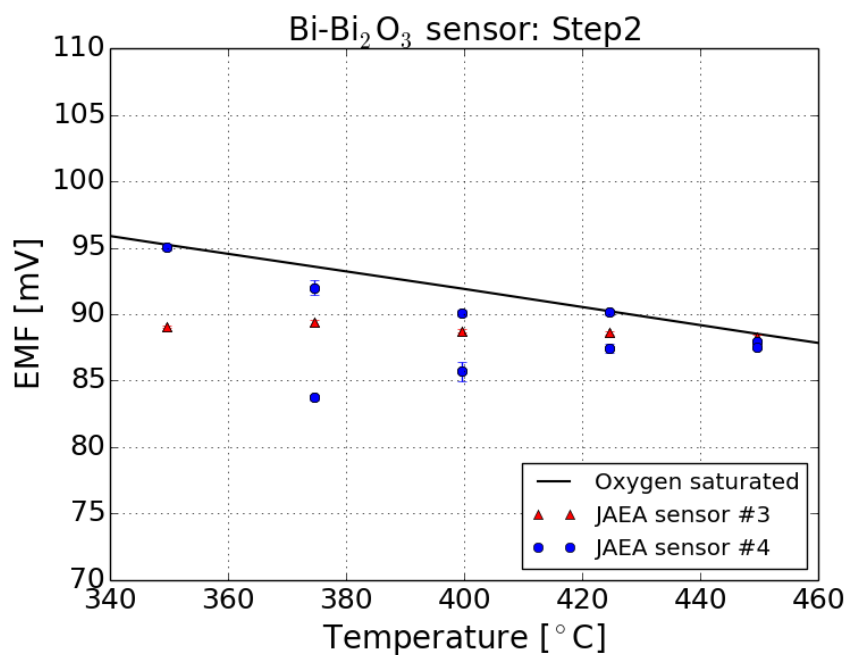


Fig. 3.2.2 Bi 型センサー Step2 の測定結果

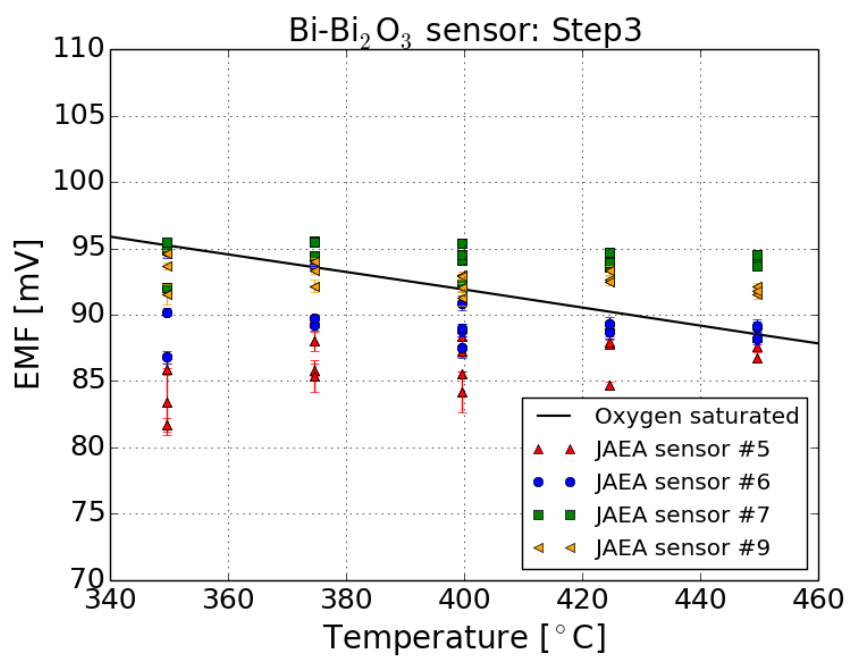


Fig. 3.2.3 Bi 型センサー Step3 の測定結果

3.3 測定結果のまとめ

測定結果を **Table 3.3.1** にまとめる。便宜上、理論値に対して起電力の差が 5%以内の測定結果のものに○を、物理的に破損したものに×を、それ以外のものに△をつけた。

まずどちらのセンサーについても 9 本製作を行い、そのうち 2 本ずつが物理的に破損する結果となった。破損率は 22 % となり、この値は高い。破損は全てのケースで、YSZ 部分の割れによるものである。YSZ の割れに関しては、温度変化による急激な体積膨張が主な原因と考えられる。センサーの構造を再検討するとともに、YSZ そのものについてもより耐久性の高い材料が使用可能かどうか、検討する必要がある。

測定結果そのものについては、Pt 型センサーが有望であるとの結果が得られた。今回製作したセンサーでは、酸素飽和条件に対して、350 °C から 450 °C の LBE 温度条件下で、理論値とほぼ同じ起電力が得られた。ある程度の個体差は認められるものの、起電力値のばらつきも少なく、今後、LBE ループや TEF-T などでの利用を考える上で、有望な概念である。一方で、外気を取り込む構造になっていることから、YSZ 破損時にループ中の LBE が外部へ漏洩しないための対策を講じる必要がある。

Bi 型センサーについては、今回満足のいく結果が得られなかった。どのセンサーについても、理論値を再現せず、理論値間とのばらつきも大きい。電極部の面積がまだ小さいことが理由と考えられるため、YSZ 部の太径化などを行い、改善を図る必要がある。

Table 3.3.1 測定結果のまとめ

ID	Pt 型	Bi 型
1	△*	△
2	△*	△
3	×	×
4	○	△*
5	○	△
6	×	△*
7	○	△
8	○	×
9	△	△

○: 理論値に近い特性（理論値に対しての差が 5%以内）が得られた。△: 破損はしなかったが、理論値と合わない出力が得られた。×: 物理的に破損。

*: 450 °C では理論値に近く、450 °C 以上の温度であれば理論値に近い特性が得られる可能性がある。

4. 結言

将来の LBE 冷却型 ADS、TEF-T および LBE ループにおける LBE 中酸素濃度測定に資するため、Pt 型センサーおよび Bi 型センサーを製作し、飽和酸素濃度下における LBE 酸素濃度測定実験を行った。

Pt 型センサーについては、350 °C から 450 °C の LBE 温度条件下で、理論値とほぼ同じ起電力が得られた。ある程度の個体差は認められるものの、起電力値のばらつきも少なく、今後 LBE ループや TEF-T などでの利用を考える上で有望な概念である。一方で、外気を取り込む構造になっていることから、YSZ 破損時にループ中の LBE が外部へ漏洩しないための対策を講じる必要がある。

Bi 型センサーについては、LBE が外部へ漏洩しにくい構造になっているものの、センサー出力については今回満足いく結果が得られなかった。どのセンサーについても理論値を再現せず、理論値間とのばらつきも大きい。電極部の面積が小さいことが理由と考えられるため、YSZ 部の太径化などを行い、改善を図る必要がある。

また共通の課題として、YSZ の破損率の高さが確認された。両タイプのセンサーについて、それぞれ 9 本を作成し、それぞれ 2 本が破損した（破損率 22%）。センサーの構造を再検討するとともに、YSZ そのものについても、より耐久性の高い材料が使用可能かどうか、検討する必要がある。

謝辞

酸素センサーの製作については、助川電気工業株式会社に御尽力いただきました。また酸素濃度測定装置の製作については、理工科学株式会社に御尽力いただきました。ここに感謝の意を表します。また測定実験においては、J-PARC センター 核変換ディビジョンの各位にご協力いただきました。心より感謝致します。

参考文献

- 1) K. Tsujimoto, T. Sasa, K. Nishihara et al., “Neutronics Design for Lead-Bismuth Cooled Accelerator-Driven System for Transmutation of Minor Actinide”, *J. Nucl. Sci. and Technol.*, **41**, 1, pp. 21-36 (2004).
- 2) K. Tsujimoto, H. Oigawa, N. Ouchi et al., “Research and Development Program on Accelerator-Driven System in JAEA”, *J. Nucl. Sci. and Technol.*, **44**, 3, pp. 483-490 (2007).
- 3) 辻本 和文、西原 健司、武井 早憲 他、“鉛ビスマス冷却加速器駆動システムを用いた核変換技術の成立性検討”、JAEA-Research 2010-012, (2010), 59p.
- 4) “Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies”, OECD/NEA, (2007).
- 5) C. Schroer, O. Wedemeyer, J. Konys, “Aspects of minimizing steel corrosion in liquid lead-alloys by addition of oxygen”, *Nucl. Eng. and Design*, 241, pp. 4913-4923, (2011).
- 6) G. Van den Eynde, E. Malambua, A. Stankovskiya, et al., “An updated core design for the multi-purpose irradiation facility MYRRHA”, *J. Nucl. Sci. and Technol.*, **52**, 7-8, pp. 1053-1057 (2015).
- 7) J. Lim, A. Marien, K. Rosseel et al., “Accuracy of potentiometric oxygen sensors with Bi/Bi₂O₃ reference electrode for use in liquid LBE”, *J. Nucl. Materials*, 429, pp. 270-275, (2012).
- 8) Y. Kurata, M. Futakawa, S. Saito, “Corrosion behavior of steels in liquid lead-bismuth with low oxygen concentrations”, *J. Nucl. Materials*, 373, pp. 164-178, (2008).
- 9) Y. Kurata, Y. Abe M. Futakawa, H. Oigawa, “Characterization and re-activation of oxygen sensors for use in liquid lead-bismuth”, *J. Nucl. Materials*, 398, pp. 165-171, (2010).
- 10) 大井川 宏之、池田 裕二郎、佐々 敏信 他、“核変換実験施設の概念検討 (1) 核変換物理実験施設の概要”, JAERI-Tech 2000-062, (2000), 64p.
- 11) 佐々 敏信、梅野 誠、水野 博 他、“核変換実験施設の概念検討 (2) ADS ターゲット試験施設の概念検討”, JAERI-Tech 2005-021, (2005), 114p.
- 12) 大井川 宏之、前川 藤夫、明午 伸一郎 他、“核変換実験施設の概念検討 (3) 核変換物理実験施設の検討”, JAERI-Tech 2002-037, (2002), 220p.

- 13) 辻本 和文、田澤 勇次郎、大井川 宏之 他、“核変換実験施設の概念検討 (4) 核変換物理実験施設の安全性検討”, JAERI-Tech 2003-085, (2003), 158p.
- 14) 菅原 隆徳、西原 健司、佐々 敏信 他、“核変換実験施設の概念検討 (5) MA 燃料取扱いに関する検討”, JAEA-Technology 2014-044, (2015), 59p.
- 15) Y. Kurata, ”Application of Electromotive Force Measurement in Nuclear Systems Using Lead Alloys”, Electromotive Force and Measurement in Several Systems, Prof. Sadik Kara (Ed.), ISBN: 978-953-307-728-4, (2011).

This is a blank page.

国際単位系（SI）

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	1
比透磁率 ^(b)	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。

(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b)ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。

(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。

(d)ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。

(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。

(f)放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。

(g)単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π /180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π /10 800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π /648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオット	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe≡ (10 ³ /4 π) A m ⁻¹

(a) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15℃」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m

