

JAERI-Review

2000-014



JP0050844



熔融金属鉛・ビスマス技術における腐食、水反応、ポロニウム揮発率
及びBi資源量の調査・検討

2000 年 10 月

高野 秀機・滝塚 貴和・北野 照明*

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute



5580400-01

W91V98-193AL

010-0008



本報告は、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

5580400-01

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

溶融金属鉛・ビスマス技術における腐食、水反応、ポロニウム揮発率 及び Bi 資源量の調査・検討

日本原子力研究所東海研究所中性子科学研究センター

高野 秀機・滝塚 貴和⁺・北野 照明^{*}

(2000 年 8 月 4 日受理)

原研が計画している加速器駆動核変換システム (ADS) における液体ターゲット及びブランケット冷却材の第 1 候補は、液体金属鉛・ビスマスである。溶融鉛・ビスマスの使用に関するメリットは、不活性、低中性子吸収断面積、低融点(125°C)、高沸点(1670°C)であること及びボイド反応度係数が負になることであるが、反面、鋼材腐食が顕著であると言われており、腐食試験データ等が不足しているという重要な欠点がある。本調査検討では、鉛及び鉛・ビスマスを用いた国内外の使用実績のある施設を調査し、材料腐食、水反応、伝熱・流動特性、化学毒性などの観点から、各施設がどのように対応しているかを実用経験及び文献などを調査して検討したものである。さらに、ポロニウムの揮発と影響及びビスマスの資源量について検討したものである。

主な調査結果は以下のようなものである：

- (1) 国内の精錬所での長期に渡る(約 17 年)使用実績があり、溶融 Pb-Bi の自然対流、温度約 400°C の条件下では、伝熱管材(1 Cr-0.5 Mo 鋼)の Pb-Bi による腐食は無視できるほど小さいことが確認された。
- (2) ロシアでは、約 50 年間の開発経験と原子力潜水艦における使用実績があり、酸素濃度調整(10^{-7} ~ 10^{-5} % 質量)により Cr-Si 系材料の酸化被膜を調整することにより、腐食をほぼゼロにすることが可能とされている。しかし、体系的にまとめた腐食データは少なく、放射線損傷場でのデータ取得も含めてデータの整備が望まれる。
- (3) 高温 Pb-Bi との水反応については、液滴落下モデルでの実験からは雰囲気圧力が高くなると急激に相互作用は抑制される。しかし、ADS の二次系削除モデルにおいては、液体金属中への水の連続注入モデル実験による相互作用を評価する必要がある。
- (4) Po は Pb-Bi 中では PbPo を形成し、Po 単体より揮発率は数桁小さい。さらに、大気中では揮発率が低下する。従業員及び環境への影響については、Po よりも他の FPs が支配的である。
- (5) Bi の資源量は、確認埋蔵量 26 万トンであり、ロシアを含めた未確認埋蔵量は約 10 倍と推定されており、ADS の資源量として十分である。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

+ エネルギーシステム研究部

* 三井造船(株)

Investigation of Corrosion, Water Reaction, Polonium Evaporation and Bismuth Resource in Liquid Metal Lead-Bismuth Technology

Hideki TAKANO, Takakazu TAKIZUKA⁺ and Teruaki KITANO *

Center for Neutron Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 4, 2000)

Lead-bismuth is the first candidate material for liquid metal target and coolant of fueled blanket system in accelerator-driven system (ADS) researched at JAERI. Advantages of the lead-bismuth utilization are non-active material, very low capture cross section, low melting point of 125 °C and high boiling point of 1670 °C, and beside coolant void reactivity become negative. But problems are due to the high corrosivity to most of the structural materials and the corrosive data are scarcity. In this report, corrosivity, reaction with water, thermal-hydraulics, chemical toxicity etc. are studied by investigating some facilities utilized and researched really for lead or lead-bismuth. And, furthermore, polonium evaporation rate and bismuth resource are investigated. Main results obtained are as follows:

- (1) In a refinery, there are enough employment experience for liquid Pb-Bi in period of about 17 years and not corrosion for the thermal conductive materials (1Cr-0.5Mo steel) used under the condition of natural convection with temperature around 400 °C.
- (2) In Russia, extensive experience in the use as Russian submarines and in R & D during about 50 years are available. And as a result, it will be able to lead approximately zero corrosion for Cr-Si materials by adjusting oxygen film with oxygen concentration control between 10^{-7} to 10^{-5} % mass. However, the corrosion data are not enough systematically collected involving them in radiation dose field.

+ Department of Nuclear Energy System

* MES, Ltd

(3) In liquid-dropping experiment, it is shown that interaction between water and high temperature liquid Pb-Bi is reduced steeply with rising of atmosphere pressure. But, in order to design the second circuit removal model of ADS, the interaction should be evaluated by water continuous injection experiment.

(4) Polonium forms PbPo in Pb-Bi, and the evaporation rate become less three factor than that of Po, and furthermore, the rate decreases in the atmosphere. The effects of Po on employee and environment will not be dominant in comparison with those of fission products.

(5) In Bi-resource, a confirmed amount will be 260,000 ton and an estimated amount will become ten times of the confirmed ones by including resources in Russia. This shows there are enough amounts for ADS developments.

Keywords: Lead-bismuth, Corrosion, Water Reaction, Polonium, Bismuth Resource

This is a blank page.

目 次

1. はじめに	1
2. 国内における精錬所での Pb-Bi の使用経験	1
3. ロシアにおける Pb-Bi と Pb の使用経験及び計画中の Pb-Bi ターゲット実験 ..	17
4. Pb-Bi の特性調査	34
4. 1 材料腐食	34
4. 2 水反応	55
4. 3 伝熱・流動特性	72
4. 4 化学毒性	92
4. 5 ビスマス純度の物性値への影響	99
5. ビスマスの資源量	104
6. ポロニウムの揮発率	116
7. まとめ	128
謝辞	129
付録 A. 精錬所施設の生産プロセスの概要	130

Contents

1. Introduction	1
2. Employment Experience for Pb-Bi at Refinery in Japan	1
3. Employment Experiment for Pb-Bi and Pb in Russia and Planned Pb-Bi Target Experiments	17
4. Investigation of Pb-Bi Properties	34
4.1 Corrosion	34
4.2 Water-reaction	55
4.3 Thermal-hydraulics	72
4.4 Chemical Toxicity	92
4.5 Effect of Bi-Purity on Pb-Bi Physical Properties	99
5. Bismuth Resource	104
6. Polonium Evaporation	116
7. Concluding Remarks	128
Acknowledgements	129
Appendix A. Outline of Production Process in Refinery Factory	130

1 はじめに

原研が計画している加速器駆動核変換システム（以下では、ADSとした）の液体ターゲット及びブランケット冷却材には、第1候補として鉛・ビスマスあるいは鉛溶融金属が挙げられている。溶融鉛・ビスマスあるいは溶融鉛の使用に関しては、不活性であること及びボイド反応度係数が負になる等大きなメリットがあるが、反面、鋼材腐食が顕著であると言われており、腐食試験データ等が不足しているという重要な欠点がある。本検討では、鉛及び鉛・ビスマスを用いた国内外の使用実績のある施設を調査し、材料腐食、水反応、伝熱・流動特性、化学毒性、純度の影響などの観点から、各施設がどのように対応しているかを実用経験及び文献などを調査して検討したものである。さらに、ポロニウムの生成と影響及びビスマスの資源量について検討したものである。

2. 国内における精錬所での Pb-Bi の使用経験

溶融鉛を相当量扱っている国内施設としては、精錬所、鉛インゴット生産工場、鉛加工工場があり、製品用途として蓄電池、鉛管、鋳物、はんだなど多種多様である。一方、溶融鉛・ビスマスそのものについては、我が国は外販鉱石を基にビスマス生産(年数百トンレベル)をしており、インゴット工場にて鉛・ビスマスのインゴット生産を僅かに行っている。用途としては、機械、部品加工用の型枠部材、はんだ、解融栓等である。その他、ビスマスとして、金属鉱業、医薬品、化粧品など化学工業、半導体等電子工業への利用がある。研究所、大学などにおいては、溶融鉛・ビスマスを用いて、伝熱流動特性を中心とした試験装置が過去、あるいは、現在においていくつか存在している。

本調査では、長年に亘って、相当量の流動鉛の取扱いを動力ポンプ、容器等を用いて行っており、さらに溶融鉛・ビスマスを熱媒体とした熱交換器を用いての廃熱利用による発電なども行われている国内精錬所を主たる調査対象とした。

2. 1 検討対象施設の概要

国内において溶融鉛および溶融鉛・ビスマスを相当量扱っている施設として非鉄金属製錬分野の施設があるが、本章ではその代表的な例として、亜鉛および鉛の製錬施設について調査した結果を報告する。

調査の対象となった製錬所は 1969 年に操業を開始し、1971 年には早くも月間 7101 ton の亜鉛を生産するに到った。これは、当時としては、一つのプラントとの生産量としては世界でも最高レベルであったと言う。1980 年当時における当施設の実産能力は月産、亜鉛 7000 ton、粗鉛 2500 ton、硫酸 13500 ton、カドミウム 25 ton であったが、その後も、現在に至るまで引き続き生産が継続されている。

本製錬所の生産プロセスでは、亜鉛と鉛の原料精鉱が熔鉱炉で焙焼される。この熔鉱炉から亜鉛の蒸気を含んだ高温の排ガスが排出されるが、この高温排ガスを冷却するための熱媒体として大量の溶融鉛が循環使用されている。この冷却工程では、冷却媒体である溶融鉛は高温排ガスとの直接接触により、高温ガスの熱を吸収して温度が上昇する。これを冷却するために、当初は冷却水が用いられたが、1982 年には、この熱を有効利用するために高温溶融鉛から熱回収するための廃熱回収ボイラが設置され、これによって溶融鉛の温度制御が行われると同時に、回収された熱量による発電が開始された。この発電出力の容量は 4300kW であり、現在も引き続き運転が継続されている。

この廃熱回収ボイラは高温の溶融鉛の流れの中にボイラ伝熱管を浸漬して伝熱を行う方式であるが、直接、溶融鉛に高温の伝熱管を接触させると、溶融鉛中に含まれる粗亜鉛が高温高圧の伝熱管を腐食させ、水漏れなどが発生する恐れが有り危険である。そこで伝熱管と高温の溶融鉛が直接接触しないように伝熱管と高温の溶融鉛の間に隔壁を設け、隔壁を介して伝熱が行われる方式とし、この隔壁と伝熱管の間に鉛・ビスマス合金が伝熱媒体として充填される構造が採用された。

鉛・ビスマス合金を使用したボイラ用熱交換器の設計に関する基本的な考え方などについて報告する。本製錬所の生産プロセスの概要、溶融鉛の使用条件については、付録 A に示す。

2. 2 溶融鉛冷却用廃熱回収ボイラおよび発電設備の仕様および構造

2.2.1 溶融鉛冷却用廃熱回収ボイラの開発経緯

本製錬プロセスにおいて、熔鋳炉後流のコンデンサーにおける冷却媒体である熔融鉛を冷却するための熱交換器として、従来は水冷伝熱管を熔融鉛に浸漬する方法が採用されていた。本方式では水の顕熱上昇を利用して冷却するものであるから、大量の冷却水を必要とし、かつ吸収熱を有効利用することは困難である。

そこで、蒸気ボイラによってこの熱を回収し、有効利用するための検討が 1979 年に開始された。その内容は

- ① 熔融亜鉛が溶解した熔融鉛による伝熱面の腐食対策
- ② 高圧のボイラ水が漏洩した場合の安全対策
- ③ 熔融鉛の温度を制御するためのボイラ伝熱面積制御方法
- ④ 熔融鉛からボイラ伝熱面への伝熱特性の把握

等であった。

その後、これらの検討結果を受けて、廃熱回収ボイラおよび発電設備が建設され、1982 年に運転が開始された。

2.2.2 発電設備のプロセスフロー

図 2-1 に本発電設備のプロセスフローを示す。コンデンサーで加熱された熔融鉛は鉛ポンプによってクーリングロンダーに汲み上げられ、クーリングロンダー内を流れて、ボイラ伝熱面によって冷却されたあと、熔融鉛から析出した粗亜鉛が分離、抽出され、再びコンデンサーに戻される。

一方、パネル状に構成されたボイラ伝熱面は過熱器部と蒸発器部からなり、蒸気発生量と蒸気温度がバランスするように浸漬伝熱面積量が調整される。伝熱面パネル内には図 2-2 に示すように、上下に蛇行する伝熱管が設けられており、この伝熱管の内部を飽和水と飽和蒸気の混合物ないしは過熱蒸気が流れる。蒸発器パネル(28 枚)と過熱器パネル(12 枚)の構造は基本的には同一である。

蒸発器部ではボイラ水が汽水分離ドラムから取り出され、強制循環ポンプによって各蒸発器パネルに供給される。蒸発器パネルの浸漬される位置によって鉛温度が異なるために、各蒸発器パネルにおける吸収熱量が異なってくるので、各パネル毎に入口に流量制限オリフィスを設け、最適な循環水供給量分布となるように調整されている。蒸発器パネル内では熔融鉛の熱を吸収して蒸気が発生するが、蒸発器パネル内ではボイラ水は汽水混合物として流れ、いずれの部分でも飽和温度で一定である。

蒸発器パネルから出た汽水混合物は汽水ドラムに入り、ここで汽水分離される。ボイラ水から分離された蒸気は過熱器パネルに入り、高温の溶融鉛から熱を吸収して過熱蒸気となり、蒸気タービンに供給される。

蒸気タービンに供給された蒸気は全量復水される。復水器は冷却塔で冷却された冷却水が循環使用されている。

2.2.3 廃熱回収ボイラの特徴

2.2.3.1 伝熱パネルの構造

1) 伝熱管腐食対策の概要

(1) 冷却水による冷却とボイラによる熱回収の腐食対策に関する相違点

溶融鉛自体は熱媒体として使用される場合もあり、酸化鉛の融点(888℃)に近い750℃以下の温度では図 2-3¹⁾に示すように、伝熱管の腐食は工業的にはそれほど問題とならないが、本プラントのように溶融鉛中に亜鉛が溶解している場合には、この亜鉛による腐食が問題となる。

溶融鉛を冷却するための熱交換器の熱媒体として 100℃以下の冷却水を使用する場合、熱交換器伝熱管の表面温度は鉛の融点(327.4℃)以下となり、伝熱管表面には鉛の凝固層が生成される。したがってこの場合には、溶融鉛の中に亜鉛が溶解している場合でも、伝熱管の表面が鉛や亜鉛の凝固層によって保護される。したがって冷却水を用いた伝熱管の場合には腐食は大幅に軽減され、実用的には腐食はそれほど問題とならず、ボイラを設置するまでは直接伝熱管をクーリングロンダーに浸漬する方式で溶融鉛の冷却が行われてきた。

ところが、ボイラによって溶融鉛から熱回収する場合には、内部の流体温度が高くなり、上記のボイラの蒸気圧力(16atg(1.67Mpa))における飽和温度は 203℃、過熱器内の蒸気温度は 203℃から 410℃の範囲となる。この場合、伝熱管の表面温度は溶融鉛の温度によっても変わってくるが鉛の融点を超えてきて、溶融鉛が直接伝熱管の表面に接触することとなる。したがって、ボイラで熱回収する場合には伝熱管の腐食対策を講じておく必要がある。

(2) ボイラで熱回収する場合の安全を考慮した伝熱管パネルの概要

伝熱管が腐食し噴破して、内部の高圧水が溶融鉛中に噴出した場合、蒸気爆発を起こす危険もある。このような事故を避けるために本ボイラ用熱交換器では 図 2-4 に示すように、伝熱管の外側に 2 重にケーシングを設けて、伝熱管と溶融鉛が

直接接触するのを避け、これらのケーシングを介して溶融鉛から熱吸収を行う構造が採用されている。

2) 外箱ケーシングの概要

(1) 外箱ケーシングの寿命にたいする考え方

ケーシングは保護ケーシングと外箱ケーシングからなる。外箱ケーシングは 0.1m/s 程度の流速で流れる溶融鉛に直接接触している。そのために外箱ケーシングは壁面近傍の物質移動が多く、温度も高温となり最も厳しい条件に晒されている。また、溶融鉛の温度を制御するために伝熱面は頻繁に溶融鉛中に浸漬されたり、引き上げられたりするので、厳しい熱応力が繰り返し加えられる。したがって外箱ケーシングの、ある程度の損耗は避けられず、消耗品として適当な時期に交換されることを前提としている。

(2) 外箱ケーシングのライニング

溶融鉛中に溶解した亜鉛は溶融鉛の温度の低下に伴って析出してくるが、この場合鉛と亜鉛の比重差によって亜鉛が鉛の上層に浮いてくる。そのために、溶融金属側の腐食性は溶融鉛の表層で激しい。この腐食を軽減するために外箱ケーシングの上部で溶融鉛の表層に接する部分を耐火物でライニングし耐食性を高めている。また、外箱ケーシングの最下部は伝熱面の浸漬、引き上げ時の熱応力の変動が最も厳しいので、この部分も最上部と同様に耐火物でライニングされている。

(3) 外箱ケーシングの材質

外箱ケーシングの材質は鋼板は SUS316L、ライニング用耐火材は耐磨耗性の高い粘土質耐火物が用いられている。その耐火物の性質を表 2-1 に示す。

表 2-1 ライニング用耐火材の性質

最高使用温度		1200℃
圧縮強さ	(110℃×24 時間保持後)	34.3Mpa
熱伝導率	(400℃にて)	0.45 kcal/mh℃
化学成分	SiO ₂	59%
	Al ₂ O ₃	30%
比重量		1850 kg/m ³

3) 保護ケーシングの概要

保護ケーシングは万一伝熱管が破孔し管内の飽和水ないしは蒸気が噴出した場合でも、飽和水や蒸気が直接溶融鉛の中に噴出しないように十分な構造強度を持つことが必要である。そのためには腐食も十分に低く抑えられなければならない。また全体をコンパクトにするために伝熱性能は高く保っておく必要がある。このために次のような配慮なされている。

(1) 保護ケーシング構造に関する配慮事項

①保護ケーシングと伝熱管の隙間に低融点金属である鉛・ビスマス合金を伝熱媒体として充填

充填材として鉛・ビスマス合金が選定された理由として次のような点が上げられる。

- a.融点が低い。Pb と Bi の混合比率が 44.5:55.5 のとき融点は 125℃、沸点は 1670℃である。ボイラ蒸発器における伝熱管温度は圧力 16atg(1.67Mpa)の飽和水を流したとき 203℃となる。この温度であれば、例えば鉛を用いた場合、鉛の融点が 327℃であるから鉛が凝固して、伝熱管と保護ケーシングの間の細部に入っていくことが出来ない。保護ケーシングおよび伝熱管を 327℃以上に加熱しておけば充填可能であるが、常時の起動時の加熱操作などで特別な配慮が必要となってくる。例えば、最初にボイラ水を通さないで伝熱パネルを溶融鉛の中に浸漬するとパネルの温度は鉛の融点以上となり、溶融鉛を充填することが可能であるが、これはいわゆるボイラの空焚きであり、ボイラの寿命を縮めることとなる。このような観点から、充填材の融点が低いということは重要な因子である。
- b.300℃～500℃では蒸気分圧が低く、大気に開放してもロスが少ない。このことは、鉛・ビスマス合金を擁する保護ケーシングを密閉構造とする必要がなく、大気圧で 사용할ことが出来るので容器の強度が低くてもよく、構造が簡単で、取り扱いが容易となる。
- c.熱伝導率がガスや一般の鉱物に比べると高い。(但し、金属の中では Bi の熱伝導率は最も低い部類に属するので、鉛・ビスマス合金の熱伝導率も低く、鉛とビスマスの混合割合にもよるが 200℃で 8～9 kcal/mh℃程度であり、これはセラミックスである SiC の熱伝導率に匹敵する。)
- d.ビスマス自体は凝固時の体積膨張が大きい(凝固に伴って 3.35%程度体積膨張する)ことで知られているが、鉛とビスマスの混合割合によって、凝固時の体

積膨張・収縮を調整することが出来る。(ビスマス量が 48～55%の範囲では体積変化は殆どゼロに出来る。また 48%以下では凝固時には体積収縮する²⁾)
これは鉛・ビスマス合金の容器にたいして無理な応力を生ぜしめないと言う点で大きな特徴の一つである。

②保護ケーシングの内部に仕切り壁を設け、これを保護ケーシング側板の補強ステーとして保護ケーシングの強度を上げる。

保護ケーシングには図 2-4 に示すように伝熱管の間に、伝熱管パネルを横切って仕切り壁が設けられている。この仕切り壁は伝熱管パネルの両側面のケーシングに溶接によって強固に取り付けられており、両側板の補強ステーとして機能している。保護ケーシングの内部で伝熱管が破孔した場合、伝熱管内の高圧の飽和水や蒸気が保護ケーシングの内部に噴出し、一部は充填材である鉛・ビスマスと接触して、さらに蒸発し保護ケーシング内の圧力を上昇させる。

保護ケーシングの上部は図 2-5 に示すように大気に開放されており、内部に放出された水や蒸気はこの通路を経て大気に放出されるが、特に、飽和水が噴出した場合には、高温の鉛・ビスマスの熱を瞬時に吸収して瞬間的には発生蒸気量が放出蒸気量を大きく超えて、保護ケーシング内の圧力を急激に上昇させる。本ボイラではこの圧力上昇を 1 MPa と想定し、保護ケーシングはこれに耐えるような強度とされている。

③上記の仕切り壁によって囲まれる区画の容積を小さくし、一区画内の鉛・ビスマス合金の量を少なくして、万一、飽和水などが噴出しても、瞬時に飽和水が吸収するエネルギーを少なくして、蒸気爆発のような瞬時の現象に関与するエネルギー量を低く抑える。

上記②で仮定したように保護ケーシング内の蒸発管が破孔して、飽和水が噴出した場合、この飽和水が接触する溶融金属の量が多いほど、飽和水が蒸気になる量が多くなる。したがって、蒸気爆発のような危険な現象が発生しやすくなり、万一、そのような事故が発生した場合に被害が大きくなる。そこで、噴出した液体に接触する溶融金属の量を少なくしておくことが好ましい。そのような観点から、上記②の保護ケーシングの内部の仕切り壁で区切られた区画内の容積を小さくし、一区画内の溶融金属の量を少なくするような構造が採用されている。

ちなみに、本ボイラの場合には一区画内の溶融金属の保有熱量の 5%が飽和水

の蒸発に使われたとすると、外部への蒸気放出は皆無であったとしても、ケーシングの変形によって一区画の容積が 5 % 増加すれば、ケーシング内の圧力上昇は 10kg/cm^2 以下で収まる事となる。

(2) 保護ケーシングの材質

保護ケーシングの材質として炭素鋼（溶接構造用鋼板：SM 材）が用いられている。

(3) 保護ケーシングの損傷の有無の管理

保護ケーシングが損傷した場合、これを放置しておくとは危険である。したがって保護ケーシングが常時健全であることを監視しておく必要があるが、これは次のような方法によっている。

伝熱管パネルの常時の運転中は、保護ケーシング内の鉛・ビスマスの充填液面レベルは熔融鉛の液面よりも若干高めに設定しており、常時、この鉛・ビスマスの充填液面レベルを計器によって監視している。もし保護ケーシングが損傷した場合、保護ケーシング内の鉛・ビスマスがロンダー内の熔融鉛側に流出し、鉛・ビスマスの液面が低下するのでこれを検知することによって、保護ケーシングの損傷を知ることが出来る。

4) 伝熱管の概要

伝熱管は図 2-2 に示すように上下に蛇行するパネルとして構成されている。蒸発器と過熱器は内部流体や温度条件が異なるが、同一形状・材質としている。

いずれもパネル伝熱管サイズは外径 48.6mm、管厚さ 4.5mm、材質は STBA22（1Cr-0.5Mo 鋼）である。また、1 パネルあたり 15.56m の伝熱管が 2 本並列で配置されている。

5) 外箱ケーシングと保護ケーシングの隙間の充填

外箱ケーシングと保護ケーシングの間には 6mm の隙間が設けられている。伝熱パネルの熱貫流率を高めるためには、この隙間に熔融金属などが充填される必要がある。本伝熱パネルではこの隙間にロンダー内の熔融鉛が外部から進入するように、外箱ケーシングの低部に孔が開けられており、伝熱パネルを浸漬するにつれて熔融鉛が隙間に流れ込む構造となっている。

伝熱パネルには蒸発器パネルと過熱器パネルがあるが、蒸発器パネルでは伝熱管

内の流体温度は 203℃であり、鉛の融点より低い温度であるが、これを 500℃の溶融鉛中に浸漬すると、伝熱パネル内の温度分布は図 2-6 に示すようになる。すなわちパネル内の伝熱抵抗による温度勾配によって溶融鉛が隙間に進入可能な温度となる。

2.2.3.2 伝熱面パネルの浸漬数量制御機構

本プラントではロンダー出口の溶融鉛の温度が約 400℃で一定に制御されなければならない。このための手段として、本プラントではロンダーに浸漬する伝熱パネルの数を増減する方法が採用されている。そのための構造を図 2-7 に示す。

伝熱面パネルは電動の駆動装置によって上下に移動される。伝熱パネルの供給されるボイラ水や過熱蒸気の連絡管はスイベルジョイントを用いた可撓管が用いられている。

蒸気発生量と蒸気温度上昇のバランスは蒸発器パネルと過熱器パネルの浸漬数を変えることによって調整されている。

2.2.4 廃熱回収発電設備の運転経過

本発電プラントは 1982 年に運転を開始して以来、連続して運転が続けられている。この間、外箱ケーシングは伝熱性能を低下させるので、途中で使用を中止したとか、鉛ビスマスの漏洩も何回か経験されたなどのいくつかの問題はあったようであるが、プラント全体として運転の継続が妨げられるような問題は発生していない。

伝熱パネルは一定時間運転すると、その表面に堆積物の層が形成され、伝熱性能が低下する。そのために一定時間運転したあと、管内流体の流れを停止し伝熱管パネルの温度を雰囲気温度まで上げる。これによって堆積物の層はほぼ除去され、当初の状態に復帰する。このような運転を行うことによって伝熱面の汚れや、スケール生成による性能低下はほぼ回避されている。

伝熱管は定期的にサンプリングし検査されているが、腐食による減肉は無いことが確認されている。

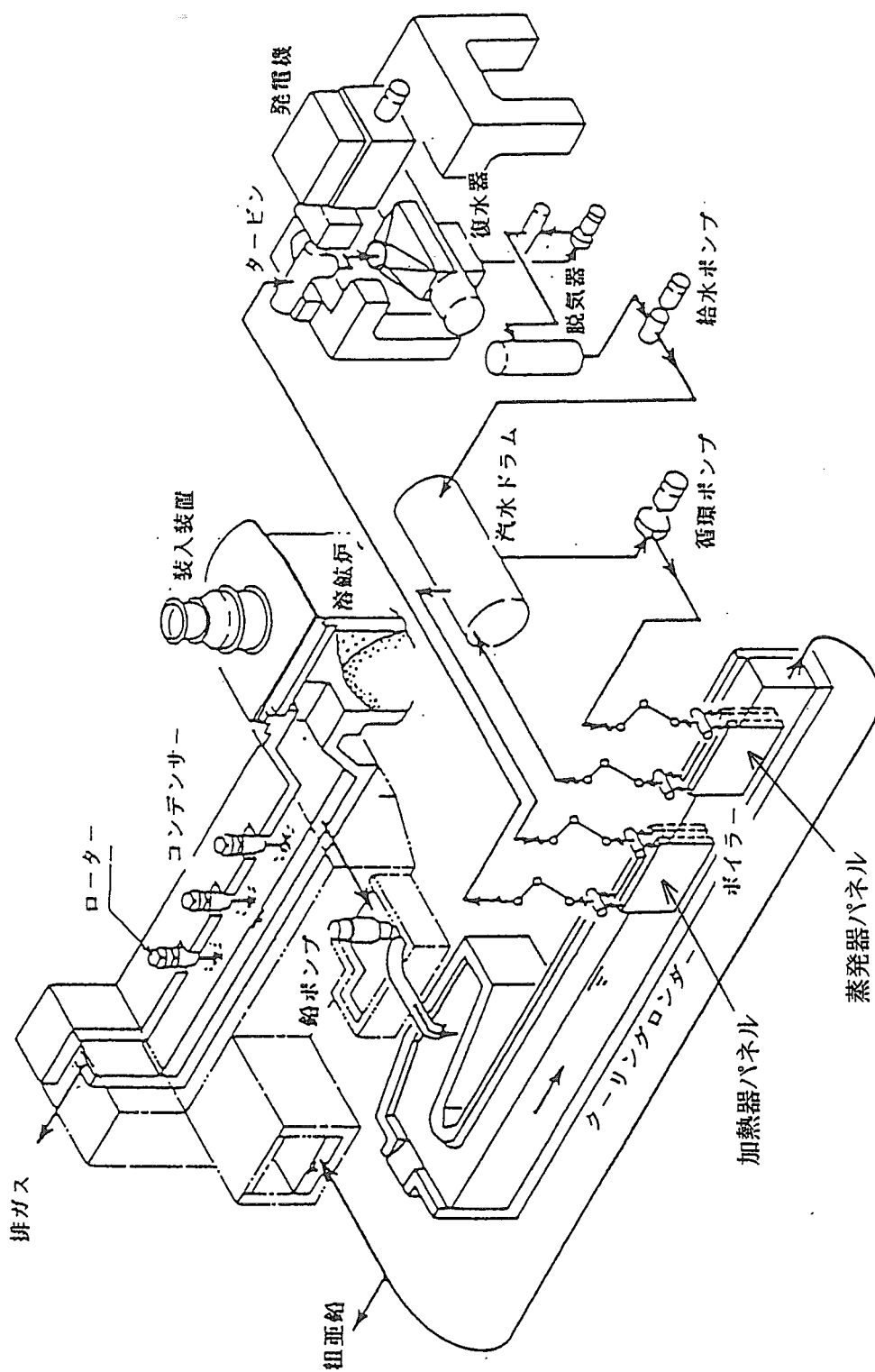


図 2-1 発電設備のプロセスフロー

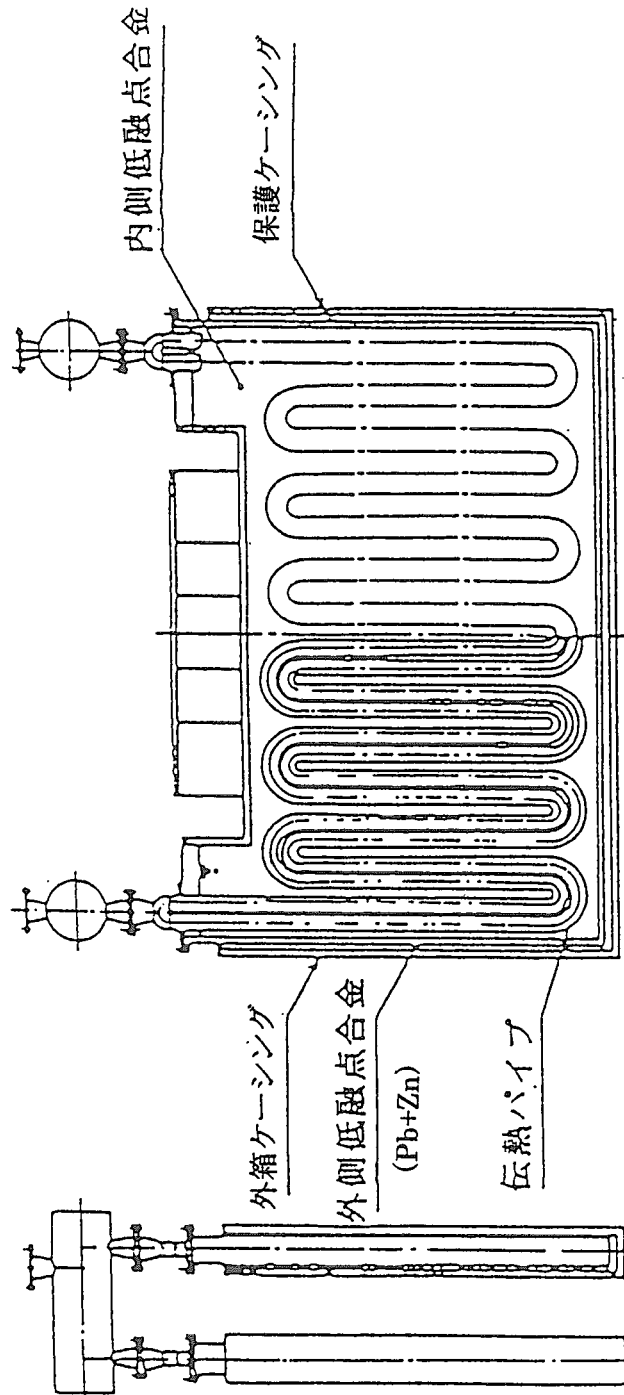


図 2-2 伝熱パネル断面図

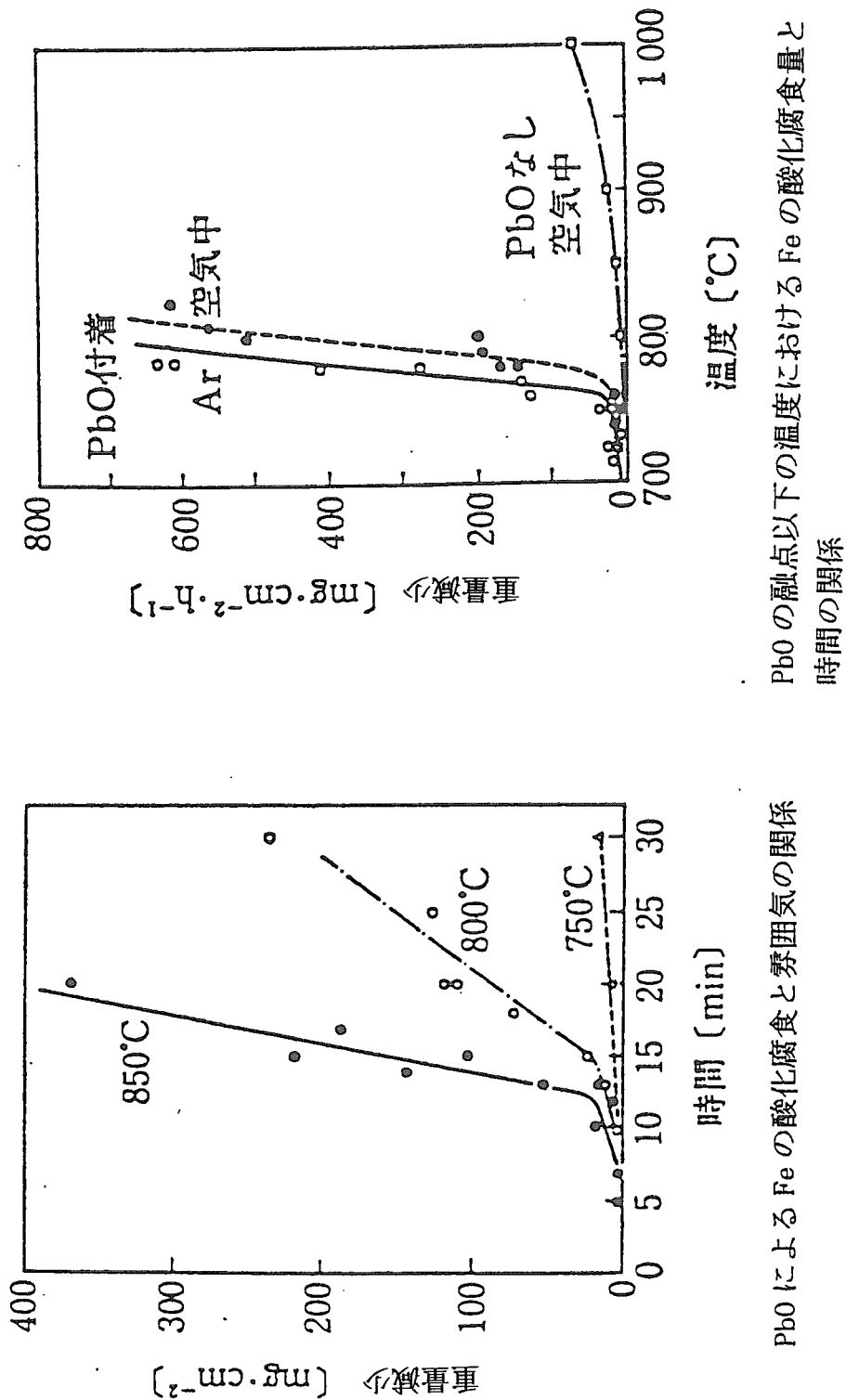


図 2-3 酸化鉛による鉄の腐食特性 [出典：原田良夫、腐食防食協会編、金属材料の高温酸化と高温腐食、丸善、1982]

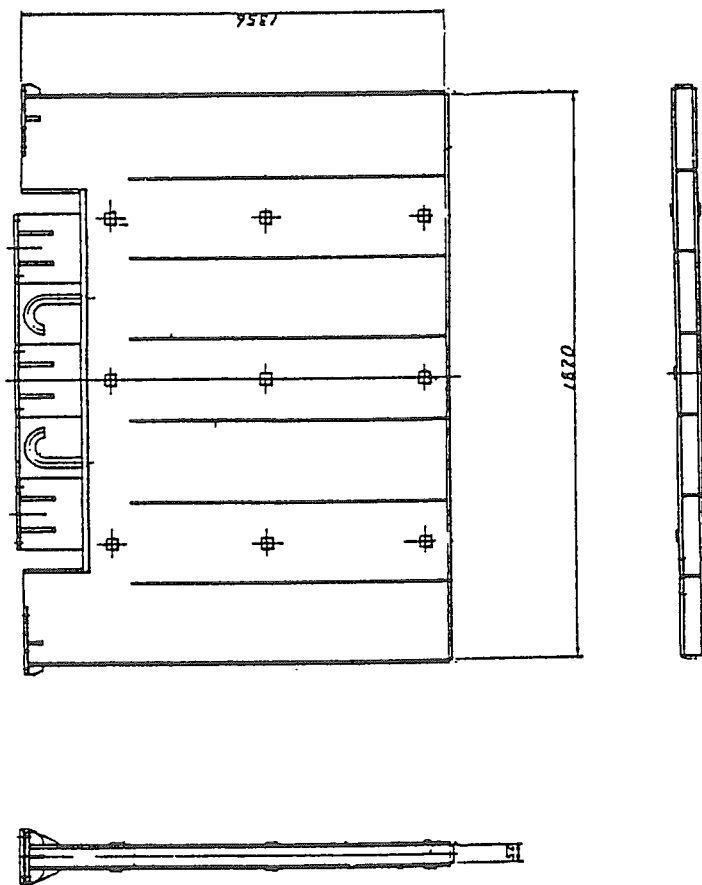


図 2-4 伝熱パネル保護ケーシングの構造

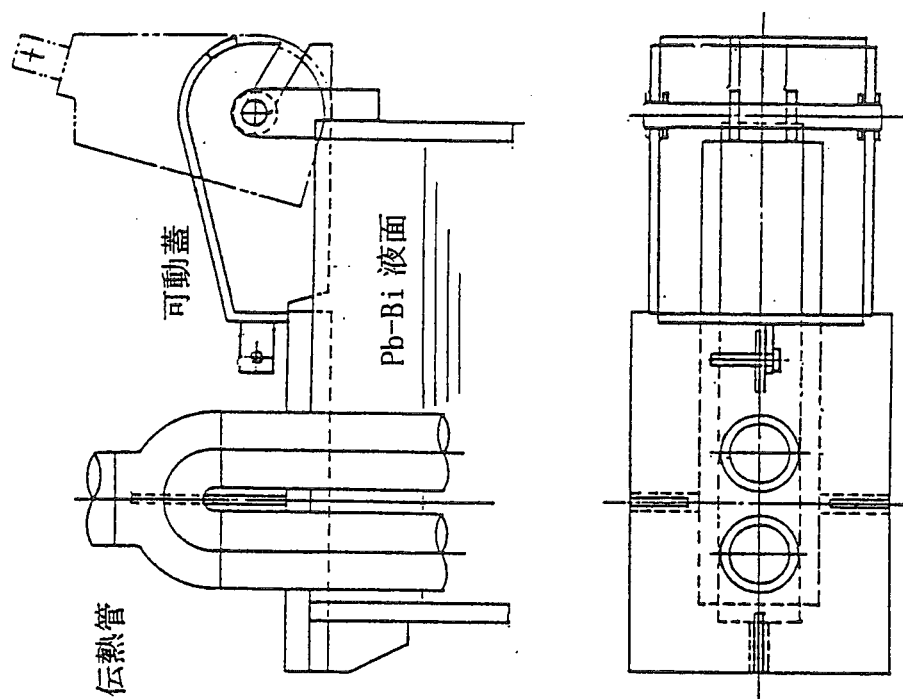


図 2-5 伝熱パネル保護ケーシングの大気開放部の構造

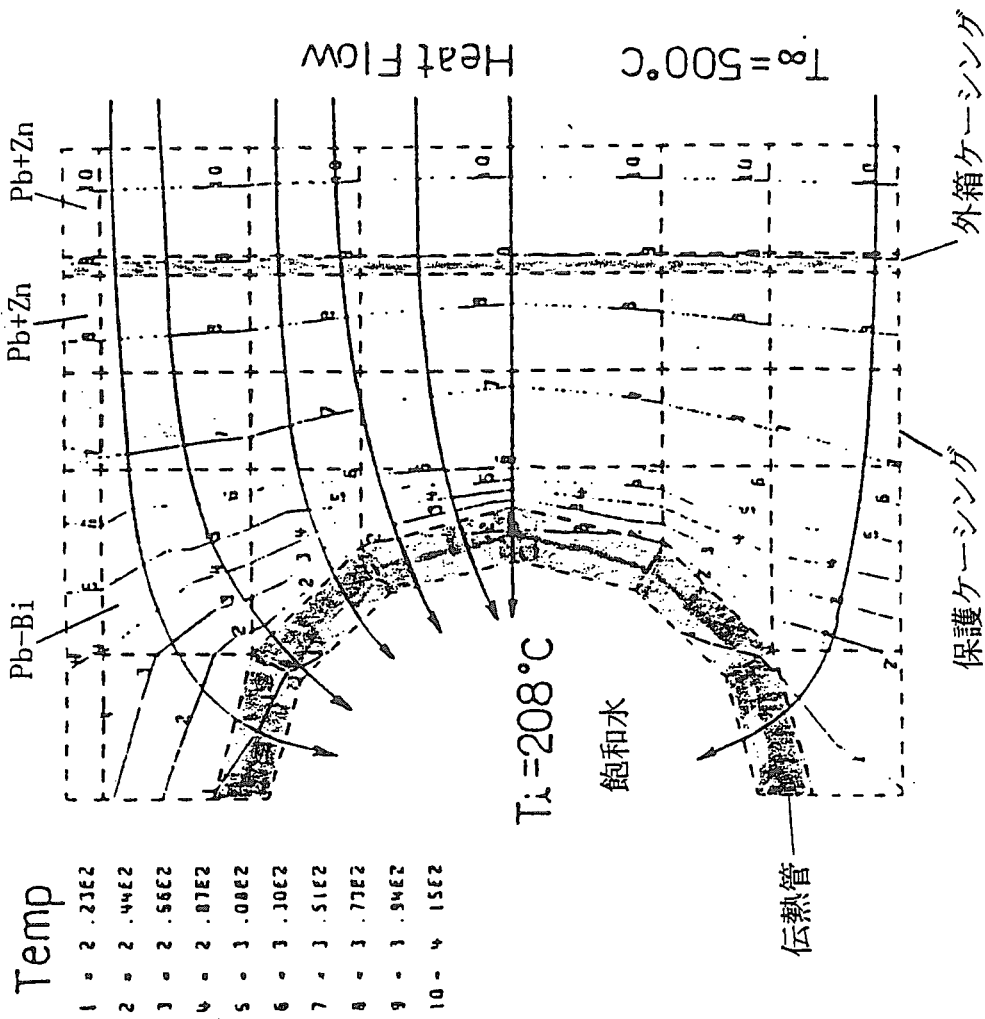


図 2-6 伝熱パネル内の温度分布の解析結果の一例

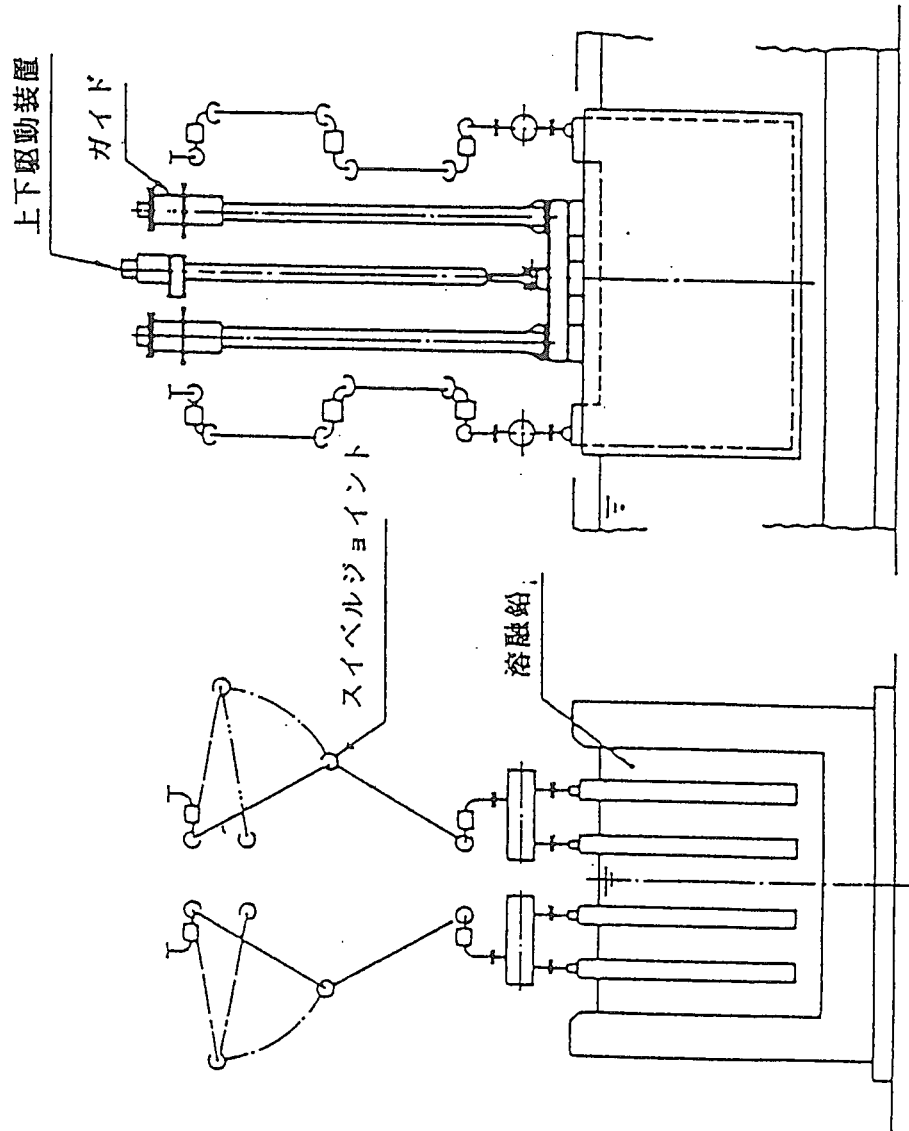


図 2-7 伝熱パネルの浸漬量制御機構

3. ロシアにおける Pb-Bi と Pb の使用経験及び計画中的の Pb-Bi ターゲット実験

国外における溶融鉛及び溶融鉛・ビスマスの取扱いは、特に、原子力の分野においては、原子炉冷却材（液体金属燃料の分野を含む）及び核破砕ターゲットとしての利用の2つに分けられる。原子炉冷却材としての取り扱いの歴史は古く、1950年代にさかのぼることができる。鉛系溶融金属を冷却材としての開発は、ロシア及び米国において当時活発に行われていたが、米国がその開発を断念した後は、ロシアにおいて、溶融鉛・ビスマスを冷却材とした原子力潜水艦の開発が進み、又、この経験を生かして、現在、陸上原子炉の開発、設計も行われている。

大強度中性子源用核破砕ターゲット材料としての鉛系溶融金属の利用経験は国内ではなく、国外でも僅かである。スイスのPSI(ポールシェラー研究所)のSINQ及びロスアラモス国立研究所のATW用鉛・ビスマステストループ等、いくつかの機関において、実験などが行われている。また、加速器駆動システムの液体ターゲット材料として鉛・ビスマスの使用がいくつか計画されている。

以下では、原子炉冷却材としての国外取扱施設としてロシア IPPE 研究所(Institute of Physics & Power Engineering)及びロシア RDIPE 研究所(Research and Development Institute of Power Engineering)を、核破砕ターゲット施設として欧州、米国及び原研の現状の施設計画を中心に述べる。

3.1 原子炉関連施設

3.1.1 IPPE 研究所

(1) IPPE の概要

IPPE 研究所は、モスクワの南西約120kmにある研究科学都市オブニンスク市にある。IPPE は、ロシア原子力省(MINATOM)の管理下にある独立研究法人である。MINATOM は、傘下に原子力に関する全ての機関(発電所の建設会社まで)を支配する巨大な省であり、関係する人数は、100万人とも言われ、国家の中の国家とも称されている。

ロシアにおける液体金属冷却材に関する研究は、研究の歴史、研究の質、量の全てにおいてオブニンスクの IPPE に集約されている。IPPE の現在の職員数は、約5,000で20以上の研究、開発ネットワークの中心的役割を担っている。エンジニアリング業務は、Gidropress, OKBN に依頼している。

液体金属開発については、1953年より実施しており、アルカリ金属の方は、BR-1 から BN-600 まで、また、人口衛星の NaK 等種々実機の導入実績を有する。液体重金属冷却の方は、開発は、アルカリ金属と平行して行われてきたが、広く知られなかった。この数年、国内外の状況の変化に伴い、富に発表する傾向にある。

IPPEには、7つのDivisionがあり、鉛・ビスマス開発関係には、そのうちReactor Department, Thermophysics Department, Materials & Technology Department, Fundamental Physics Process Departmentの4つの部署が関連している。

(2) IPPEの鉛・ビスマスに関する実績

IPPEは、1次冷却材に鉛・ビスマスを用いた原子力潜水艦用原子炉を開発し、延べ80炉年の運転実績を有する。鉛・ビスマスの研究は、1952年に開始した。米国も同時期にNa冷却炉、鉛・ビスマス冷却炉の開発を開始したが、鉛・ビスマスは腐食の問題で、Naは高速炉利用として開発を進めたが、Pu核不拡散政策及び経済性のため断念している。

鉛・ビスマスを用いた原子力潜水艦で、ロシアにおいて過去に建造されたものは8基ある。そのうち1基(645プロジェクト)は原子炉を2基有するものである。705プロジェクトの原子力潜水艦がNATOではアルファ型と呼ばれている。この原子力潜水艦の配置を図3.1-1に、原子炉構造の概要を図3.1-2に示す。この他に陸上における原型炉がIPPE (Obninsk)とNITI (Sosnovy Bor)にある。

IPPE研究所では、鉛・ビスマス冷却の原子力施設を製造する段階で、種々の研究が行なわれ科学的工学的問題は解決されたとしている。これらの成果は以下のとおりである。

1) 伝熱流動

低いプラントル数である鉛・ビスマスの伝熱流動について実験及び研究が行なわれ、伝熱特性に関する不純物の研究も行なわれた。伝熱流動に関する0次元、1次元コードが評価された。これらのコードは流速及び温度場を予測することができ、どのような体系でも良く一致している。

2) 冷却材品質維持管理技術

不純物の質量輸送、腐食生成物及びこれらの組み合わせについて研究がなされた。冷却系のスラッグの発生及び腐食の効果を最小限にするため、自由酸素の濃度が制限値内に収まるような制御及び管理が行なわれている。

3) 構造材

鉛・ビスマス中における種々の鉄鋼の腐食—侵食強度、物理的、機械的、工学的及び放射線的特性が、種々の運転条件(温度、流速、温度効果、構造材の組み合わせ)、不純物の濃度及び組成に関して得られている。構造材中に許容される物質の腐食強度に対する影響が研究された。これらの研究により、600℃までの温度で長期間使用可能な主要な構造材を選定することができた。

4) 放射線安全

冷却材に含まれる ^{210}Po のエアロゾルに関する研究が行なわれた。冷却系開放時において安全な作業方法を構築した。また、修理作業や冷却材漏洩時に放射能を低減化する方法も開発された。

5) 1次冷却系の固化溶解問題

固化するときに問題となる、相変化及び発生応力に関する研究が行なわれた。ヒートア

ップするとき及び冷却するときの方法及び温度条件によって溶解、固化時における構造材の損傷を防止している。

低い化学的反応性、高沸点、低中性子吸収率及び高核破碎中性子生成率により、鉛・ビスマスは原子炉及び加速器駆動プラントに適している冷却材であると考えられる。

現在IPPE研究所では、強制循環ループを用いて、反応試験及び材料腐食に関する研究を行なっている。これらは冷却材研究室と材料技術研究室において実施されている。材料技術研究室に設けられている試験装置の概略仕様を表3.1-1に示す。また、熱流動試験装置の外観を図3.1-3に示す。

表 3.1-1 強制循環ループ型試験装置の仕様

◎ 材料、コーティング材評価、温度因子評価
◎ 概略寸法：4m×4m×5m
◎ Pb-Bi 量：1.5～2 ton
◎ 高温部温度：Max. 650℃
◎ 低温部：Min. 180～270℃（冷却器出口）
◎ ポンプ：電磁ポンプ（高温試験時）or 遠心ポンプ（通常試験時） （エロージョン対策としてコーティング）
使用温度：Max. 420℃、流速：1.7～2 m/sec
◎ バルブ：Na用と同じ (Max. 500℃)
◎ 計測：流量計/電磁流量計、温度/シース熱電対
◎ 構造材：ロシア開発材料
◎ 酸素濃度計測、酸素濃度制御を実施

IPPE研究所では、上記のように、熱流動、熱物理試験を目的とした装置及び材料開発試験を目的とした装置を常時7～8基稼動させており、所外との研究委託との関連から装置の組立、解体を任意に実施している。IPPE研究所（一部、LANLのループを含む）のループ装置の一覧を表3.1-2にまとめた。

表 3.1-2 IPPE研究所の鉛・ビスマスループ一覧表

設備名称	使用目的	冷却材	温度 (℃)	冷却材流速 (m ³ /h)	冷却材体積 (m ³)
IPPE CBT-3M	熱水力	Pb-Bi	160-450	20	0.1
IPPE ICP	腐食	Pb・Pb-Bi	160-650	6	0.1
IPPE TT-1M	腐食	Pb-Bi	240-600	6.5	0.18
IPPE TT-2M	質量移行	Pb-Bi	270-650	5	0.2
IPPE CM-1	腐食質量移行	Pb-Bi	270-650	2.5	0.1
IPPE CU-2M	腐食質量移行	Pb-Bi	270-650	2	0.1
LANL Test loop	熱水力	Pb-Bi	140-450	22	0.24

(3) IPPEの開発炉

IPPE研究所では、鉛・ビスマスを用いた陸上原子炉として、種々のものを提案している。これらを以下に示す。これらの中で、SVBR-75は最も検討の進んだ原子炉である。SVBR-75の仕様を表3.1-3に示す。また原子炉の構造を図3.1-4に示す。

1) TES-M

可動モジュラー型、電気出力1MW、1次冷却材自然対流、2次系流体：空気、燃料寿命10-15年

2) Angstrom'

可動モジュラー型、電気出力6MW、熱供給量12Gcal/h、12分割プラットフォーム組立式、1次冷却材強制循環、空冷式タービンコンデンサー冷却方式、燃料寿命6年、5000人までの住人に熱・電力を供給

3) Cruise-50

浮遊型、電気出力50MW、12分割プラットフォーム組立式、強制循環式完全構造、蒸気圧力5.6MPa、燃料寿命6年、淡水化にも使用可

4) SVBR-75

NVNPP(Novovoronezh)のVVER-440(電気出力44万キロワット)3、4号機のデコミッショニングに伴い、SGの跡地に建設を計画、電気出力75MWの鉛・ビスマス高速炉

5) BRUS-150, 220, 300

核変換処理、核兵器用Puの使用を目的とする原子炉で、褐色炭から自動車燃料を製造することに使用する。電気出力はそれぞれ150MW、220MW、300MW。

6) Open nuclear fuel cycle

高速炉は、濃縮度の低いものまたは減損したものを使用することができるので、燃料の使用効率が従来のものより優れている。オープンサイクルでは、再処理施設及び関連施設の建設及び運転が不要になり、原子力プラントのシステムとしての安全性、社会生態学的に寛容であり原子力施設が社会的に容認されやすくなり、支出を押さえ、Puの広がる危険性をなくすことになる。

7) 溶融金属ターゲット加速器駆動システム

重金属を使用した陽子加速器のターゲットは、核破砕により発生する中性子が多いことに利点がある。高いエネルギー密度から熱を取り除くため液体金属ターゲットを使用することが必要である。従って、鉛・ビスマスまたは鉛がターゲットとして最も良いものと考えられる。

表 3.1-3 SVBR75の主要な仕様

熱出力	2 6 8	MW
電気出力	7 5	MW
蒸気発生能力	4 8 7	t o n / h
蒸気圧力	3 . 2 4	M P a
蒸気温度	2 3 8	℃
給水温度	1 9 2	℃
1 次冷却材流量	1 1 . 1 8	t o n / s
炉心寸法 (D×H)	1 . 6 4 5 × 0 . 9 m	
燃料棒数	1 2 , 6 1 8	
制御棒数	3 7	
炉心平均熱出力	1 3 5	MW / m ³
燃料棒平均出力	約 2 2	k W / m
燃料交換期間	約 6 ~ 7	年
燃料種類	U O ₂	
²³⁵ U 重量	1 . 4 7 6	t o n
平均濃縮度	1 5 . 6	%
蒸気発生器 (S G) 数	2	基
蒸発器数 (1 S G 当たり)	6	基
蒸発器寸法 (D×H)	約 0 . 6 × 4	m
1 次冷却系系統数	2	
1 次循環ポンプ出力	4 0 0	k W
1 次循環系圧力	約 0 . 5	M P a
炉心寿命	約 5 0	千時間
1 次冷却材体積	1 8	m ³
原子炉容器寸法 (D×H)	4 . 5 3 × 6 . 9 2 m	

A.V.Zrodnikov et al., Shore Small Power NPP with Lead-Bismuth cooled Reactor without on-site refueling., N'oceen 2000, Feb. 21- 22 2000, Tokyo

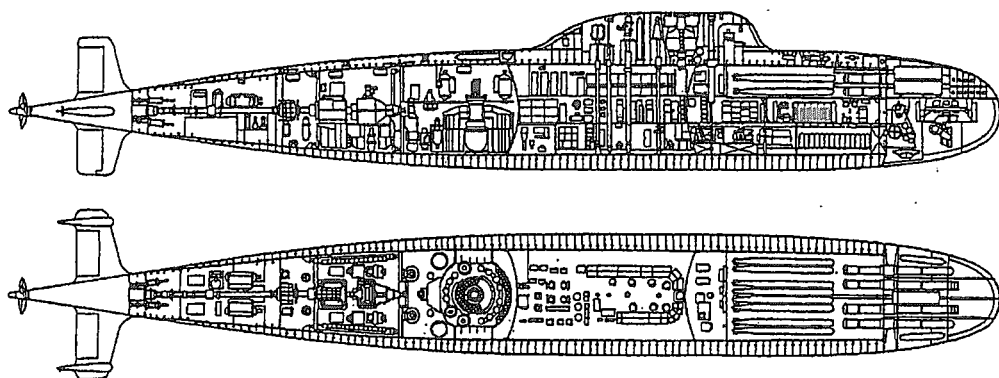


図 3.1-1 原子力潜水艦（705プロジェクト）配置図

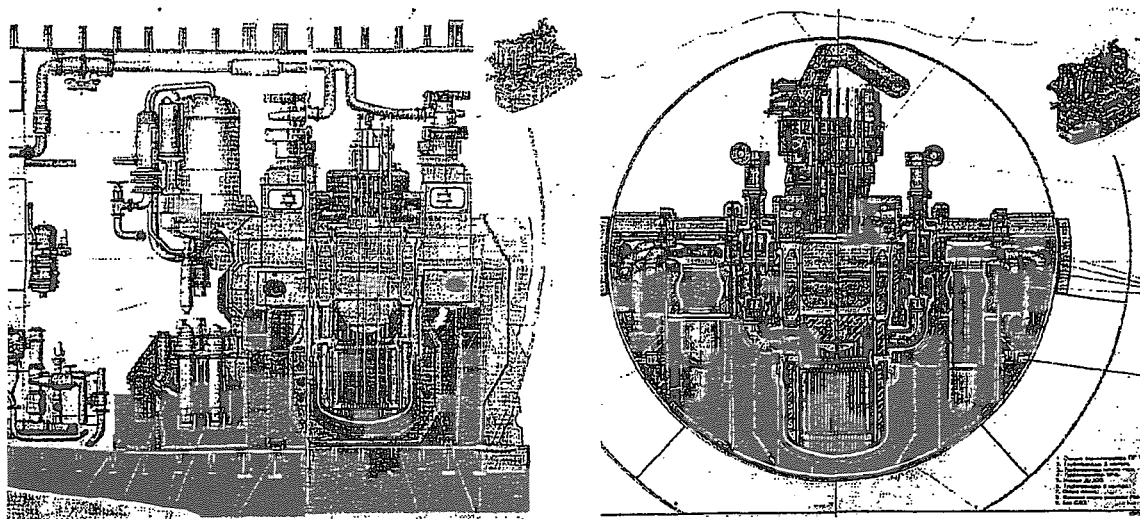
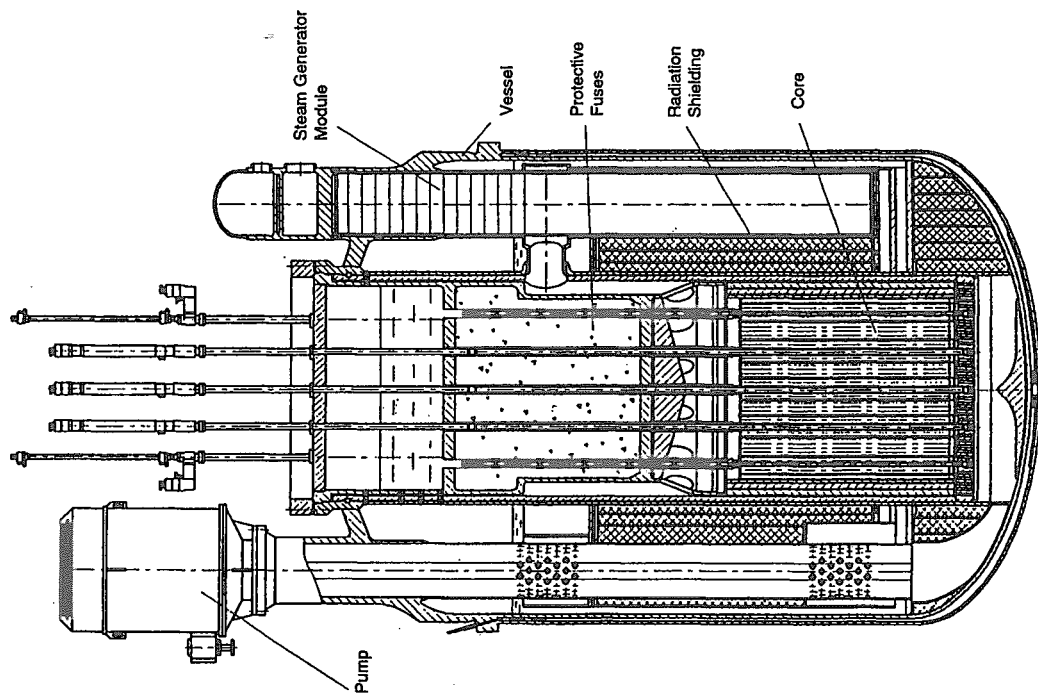


図 3.1-2 原子力潜水艦（705プロジェクト）原子炉構造外略図



Reactor Installation Module SVBR-75

図 3.1-4 SVBR-75 の構造図

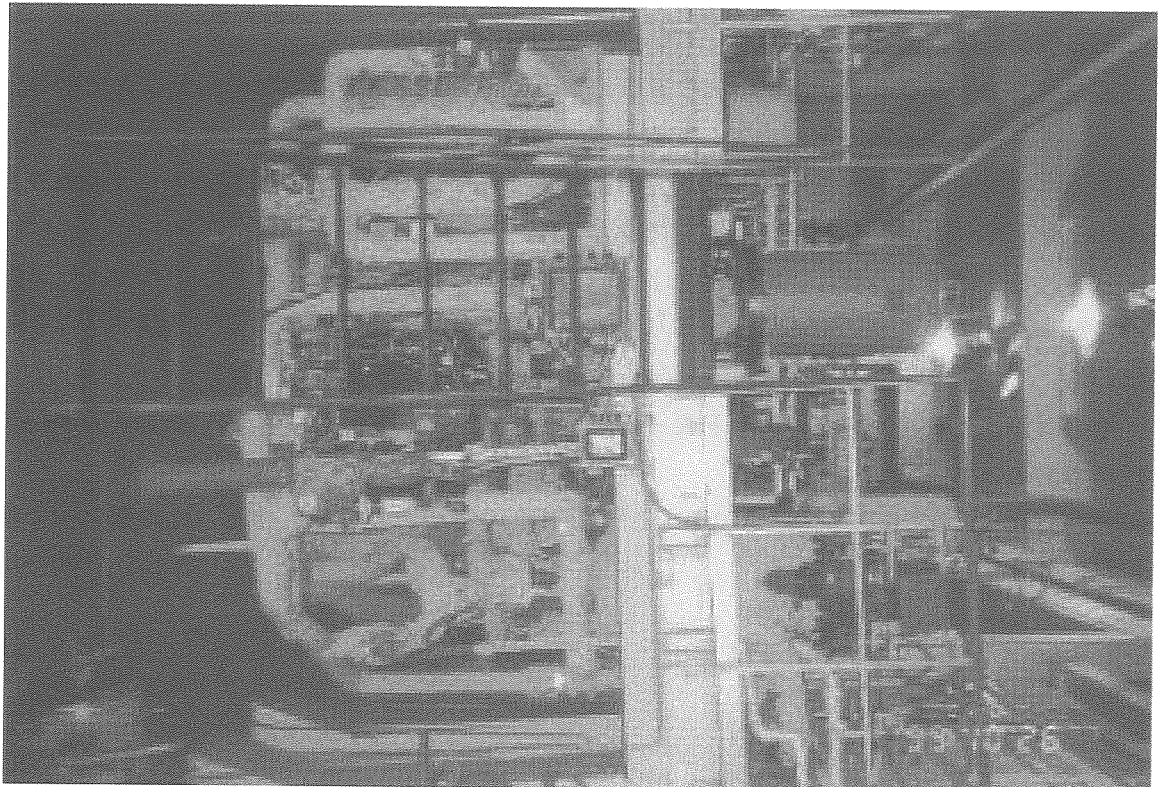


図 3.1-3 ループ試験装置外観図

3. 1. 2 RDIPE (Research and Development Institute of Power Engineering)

(1) RDIPEの概要

ロシア連邦の重金属炉開発に関し、上記IPPE研究所のもう一方の旗頭としてRDIPEがある。RDIPEは、研究開発機関というよりむしろエンジニアリング機関であり、重金属炉として、IPPEが鉛・ビスマス炉開発を進めているのに対し、鉛炉の開発を推進している。鉛ループ試験装置などもサンクトペテルブルグにもっており、さらに大規模な研究開発の必要性がある場合には、前述のIPPE研究所などにも委託している。

RDIPEの鉛炉開発の背景には、21世紀における世界のエネルギー需要の増大化、その半分以上を原子力にまかなうことの必要性、中長期的に高速炉がクローズアップされること、鉛・ビスマス炉では、そのビスマス資源の乏しさから世界のエネルギー需要を賄えないこと、さらに鉛・ビスマス炉はポロニウムの問題があること等により鉛炉が今後世界のエネルギー需要を満たす最も適した炉になるのは必然であると考えており、ロシア原子力省も鉛炉の推進を積極的に支援している。

一方、鉛炉の開発課題として、鉛の融点が高いことから、耐腐食性材料開発及び冷却材品質管理の困難さ、凍結防止などエンジニアリングの課題等があげられるが、この数年のうちに諸課題を解決するとしている。

(2) RDIPEの開発炉

RDIPEは、鉛炉として以下の炉の開発及び検討を進めている。

BREST-300は、電気出力300MWeの鉛炉であり、設計は全て終了している。クローズド燃料サイクルを前提としており、燃料は、窒化物燃料であり、乾式再処理の検討をデミトロフグレード(RIAR)研究所にて実施している。本炉の建設を7～8年後に開始するとしているが、詳細計画は未定である。

BREST-1200は、電気出力1200MWeの鉛炉であり、他炉とのコスト比較用に設計を行っているものであり、ナトリウム炉はもとより、軽水炉より安く建設できるとしている。

そのほか、LFR-600, LFR-1200も検討しているが、現状、概念のみの検討段階である。

表 3.1-4 は、BREST-300及び1200の主要な仕様を、また、その概念図を図 3.1-5 に示した。

表 3.1-4 B R E S T の主要な仕様

Technical Characteristics Reactors BREST-300 and BREST-1200

Characteristic	BREST-300	BREST-1200
Thermal power, MW	700	2800
Net electric power, MW	300	1200
Number of FA in the core	185	332
Core diameter, mm	2300	4755
Core height, mm	1100	1100
Fuel element spacing, mm	13.6	13.6
Fuel element diameter, mm	9.1; 9.6; 10.4	9.1; 9.6; 10.4
Core fuel	UN+PuN	UN+PuN
Core fuel load, t	16	63.9
Load of Pu/(²³⁹ Pu+ ²⁴¹ Pu), t	2.1/1.5	8.56/6.06
Fuel lifetime, yrs	5	5÷6
Refueling interval, yrs	1	1
Inlet/Outlet lead temp., °C	420/540	420/540
In.(water)/Out.(steam) temp., °C	340/520	340/520
Maximum cladding temp., °C	650	650
Maximum lead velocity, m/s	1.8	1.7
Lead flow rate, t/s	40	158.4
Efficiency, %	43	43
Core breeding ratio (CBR)	~1	~1
Effects of reactivity, % $\Delta k/k$:		
power	0.16	0.15
total (max) reactivity margin	0.35	0.31
β_{ef}	0.36	0.34
Lifetime, yr	60	60

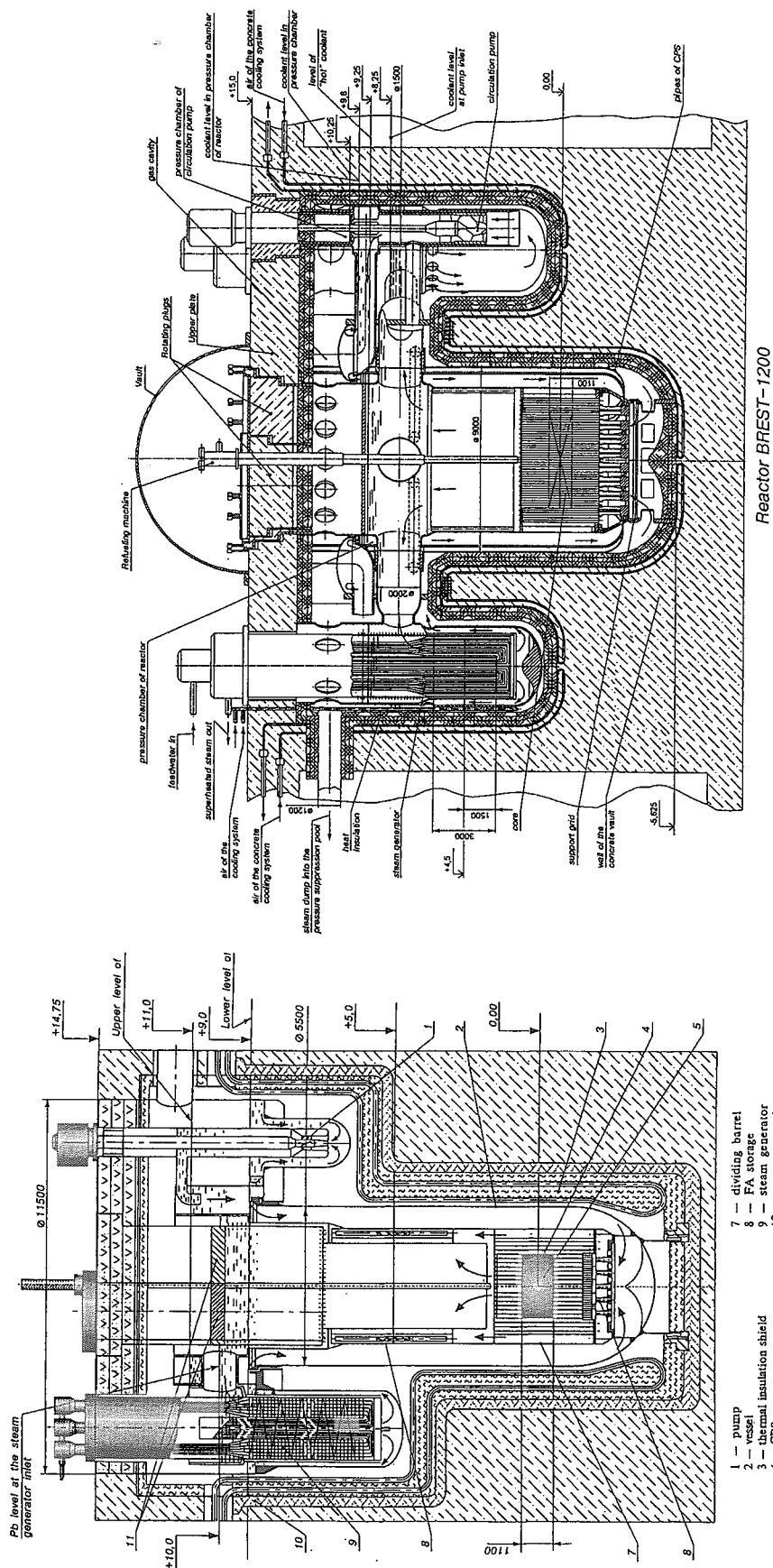


図 3.1-5 BREST-300 及び BREST-1200 の概念図

3. 2 核破砕ターゲット実験計画

(1) MEGAPIE(Megawatt Pilot Experiment)プロジェクト

フランス CEA は SPIN 計画及び GEDEON 計画のもとで ADS 研究開発を進めている。現在検討している概念は、ターゲットには鉛・ビスマスを用いる。CEA は FBR 研究開発に関連して、液体金属技術に経験が豊富であり、鉛・ビスマスループ (PLOMBIERES) を建設して、9 Cr-1Mo 鋼を中心とした材料の腐食実験及び精製実験を行なう予定である。また、CEA は IPPE と研究協力 (labo-to-labo) により鉛・ビスマス技術情報の取得を行なっている。

スイス PSI は、当初 SING に鉛・ビスマス自然対流ターゲットを構想し、熱流動、腐食コンポーネント技術等の研究開発を行なってきたり、 $0.2 \text{ m}^3/\text{min}$ 、 250°C の鉛・ビスマスループを有する。今後の中性子強度増強のため、鉛・ビスマスは最も重要な将来オプションと考えている。このため及び ADS ターゲット開発のため、LiSoR 実験計画を提案している。これは、表 3.2-1 に示すターゲット諸元及び実験条件であり、現実的な設計、材料による陽子ビーム照射・液体鉛・ビスマス強制循環パイロットターゲットを製作し、SING ターゲットステーションに設置し、核破砕中性子源として運転、照射後試験を行ない、ADS のターゲット・冷却材としての適性に関するデータを取得すること並びに鉛・ビスマスターゲット／冷却 ADS の開発・設計に必須のデータベース (鉛・ビスマスターゲットの性能・運転データ及び鉛・ビスマス中の材料データ) を構築することを目的としている。PSI の陽子加速器及び関連実験施設配置図を図 3.2-1 に、また、計画中の鉛・ビスマスターゲットを含めた SING ターゲットの概念図を図 3.2-2 に示した。

(2) TC-1(Target Complex 1)プロジェクト

米国 LANL はこれまでに多様な ADS 概念を提案してきたが、ほとんどの概念はターゲットに鉛・ビスマスを用いるものであり、現在の概念では冷却材にも鉛・ビスマスを用いている。

LANL は熱流動及び材料腐食の研究のため、鉛・ビスマスループ (最高温度 450°C 、最大流量 $22 \text{ m}^3/\text{h}$ 、インベントリ 0.24 m^3) を製作し、実験を行なっている。試験期間は 5 年を予定しており、計装制御技術の進展、熱流動特性試験、対流・循環試験及び材料確認試験を行なう。試験ループの配置を図 3.2-3 に、設置状況を図 3.2-4 に示す。

LANL は ISTC Project #559 を支援している。また、IPPE/EDO-GP と研究協力 (labo-to-labo) を行なっている。本プロジェクトでは、IPPE 研究所でターゲットループを製作し、LANL で陽子加速器を用いた照射試験を実施する計画である。ターゲットループの概念を図 3.2-5 に示す。DOE が ATW の技術開発指針 (Road Map) を作成、議会に提出し、2000 年度予算 9M\$ にて、今後 6 年の基礎 (Science-based) R&D が実施される。LANL におけるターゲット諸元及び実験条件を表 3.2-2 に示す。ここでは、R&D まで含めて検討されているが、ターゲットを中心とした鉛・ビスマス技術開発が重要課題とされている。とくに、陽子照射及び流動鉛・ビスマス環境中での窓材料性能 (溶接健全性、

核破碎生成物の影響、照射後材料特性、腐食など）の不確定さが大きく、最重要課題であるとしている。

表 3.2-1 MEGAPIE プロジェクトにおけるターゲット諸元及び実験条件

ターゲット寸法	φ 192×500h
ターゲットアセンブリー寸法	φ 200×2000+ φ 400×2000 (全長 4m)
陽子ビーム	570MeV-1.8mA (垂直上向き入射) (現状 0.85mA)
窓材料	9 Cr-1Mo 鋼*
熱負荷	6 0 0 k W
鉛・ビスマス流量	—kg/s
鉛・ビスマス温度	340℃以下
鉛・ビスマスポンプ	EMP
2 次冷却材	水 (0.8MPa 以下)
2 次冷却材流量	—kg/s
2 次冷却材温度	80℃以下
現状	実験計画策定作業中
スケジュール	2000 年：プロジェクトを開始 2003 年末：SINQ に試験用ターゲットシステムを設置 2004 年：照射試験運転照射後試験・検査
2000-2001	研究開発、設計
2001	予備安全評価、設計
2002-2003	製作及び試験
2004	照射試験運転
2005	照射後試験・検査

*：推定材料

表 3.2-2 TC-1 プロジェクトにおけるターゲット諸元及び実験条件

ターゲット寸法	約 $\phi 200 \times 600$ h
ターゲットアセンブリー寸法	約 $1\text{m} \times 1\text{m} \times 4\text{m}$
陽子ビーム	800MeV-1.25mA (水平入射)
窓材料	EP 8 2 3
窓厚さ	1.5mm
照射損傷	60dpa、He4200appm、H ₂ 21700appm
熱負荷	6 0 0 k W
鉛・ビスマス流量	41kg/s
鉛・ビスマス温度	235-335℃以下
鉛・ビスマスポンプ	EMP
2次冷却材	水 (3.5MPa 以下)
2次冷却材流量	6.6kg/s
2次冷却材温度	200-220℃以下
現状	ISCT Project #559 として IPPE が照射実験用 1 MW 鉛・ビスマスターゲットの設計・製作・熱流動試験を実施中。LANL、EU、スウェーデンが支援している。
スケジュール	1998 年：予備概念設計 1998-1999 年：実験研究 1998-1999 年：詳細工学設計 1999 年：製作 1999-2000 年：組立・試験
-1999/12	測定・制御系製作・試験
-2000/3-5	IPPE ターゲット試験
2000/8	LANL ヘターゲット搬入
-2001/3	周辺系統設計・製作
2000/3-2000/10	アウトオブビーム試験準備
-2002/5	ターゲット技術解析 (イオンビーム材料照射実験を含む 20 ヶ月)
2001/10-2002/9	実験エリア整備
2002/2-11	ターゲット設置
2003/1-6	イオンビーム照射実験 (1.5 ヶ月は低出力・防護系試験)
2003/7-2004/10	照射後試験 (冷却、除染、処分を含む)

(3) 原研の ADS ターゲット実験施設計画

原研は OMEGA 計画のもとで ADS 研究開発を進めている。現在検討している第 1 候補概念は鉛・ビスマス冷却システムで、ターゲットにも鉛・ビスマスを用いる。統合計画のもとで、ADS 開発の基礎物理・工学実験研究を行なう核変換実験施設の建設を予定している。この施設は、未臨界体系での物理実験施設と材料・熱流動特性データ実験のための工学実験施設に分けられる。工学実験施設の設計及び建設のために、材料共存性、熱流動、精製等の研究及び機器開発を目的としたアウトオブビームの鉛・ビスマスループの製作・実験も予定している。

鉛・ビスマスターゲット／冷却 ADS の実験システムを実現するためには、窓等の材料の照射損傷及び腐食、窓の除熱、核破砕生成物の蓄積などの技術的課題を解明し、技術的成立性を総合的に実証する MW 級の試験が最終的には必要である。この開発は 2 段階に分けて実施し、第 1 期のターゲットとしては 200 kW、第 2 期のターゲットとしては 2 MW が考えられている。これらのターゲット諸元及び実験条件を表 3. 2-3 に示す。

200kW ターゲット実験では、ビーム入射窓の機能試験、液体鉛・ビスマスターゲットの構造特性試験及び熱流動特性試験、ビーム入射窓及び燃料集合体候補材料の液体鉛・ビスマス中での照射試験を行なう。また、鉛・ビスマスターゲット中での核破砕生成物の生成量及びループ中での分布データの取得、鉛・ビスマスターゲットの基本的な核特性（中性子収率、スペクトル等）等の測定を行なう。また、第 2 期の 2 MW ターゲットの設計、建設及び運転に必要なデータ及び経験の蓄積、人材の育成を図る。

2 MW ターゲット実験では、流動鉛・ビスマスターゲットの構造特性の試験及び熱流動特性の試験、核破砕特性の試験、核破砕生成物生成・移行の評価、ビーム窓及び燃料サブアセンブリー用候補材料の照射試験、精製系の試験、鉛・ビスマスループ主要機器特性の試験、保守・交換性の試験、ビーム窓及びターゲットの設計概念の確認、信頼性と安全性の確認を行なう。また、将来の実験システムあるいは実証システムの開発のための技術基盤として、鉛・ビスマスターゲットの設計、建設及び運転の経験を蓄積する。

表 3.2-3 原研におけるADSターゲット諸元及び実験条件

ターゲット寸法	約 $\phi 150 \times 600$ h (第1期ターゲット)
陽子ビーム特性	600MeV-0.33mA-25Hz (第1期、水平入射) 1 GeV-2mA-25Hz (第2期)
熱負荷	120 kW (第1期) 1.2 MW (第2期)
鉛・ビスマス流速	2m/sec
鉛・ビスマス温度	330-430°C以下
鉛・ビスマスポンプ	電磁式ポンプ
試料照射量	10dpa/year
現状	計画策定及び施設設計中

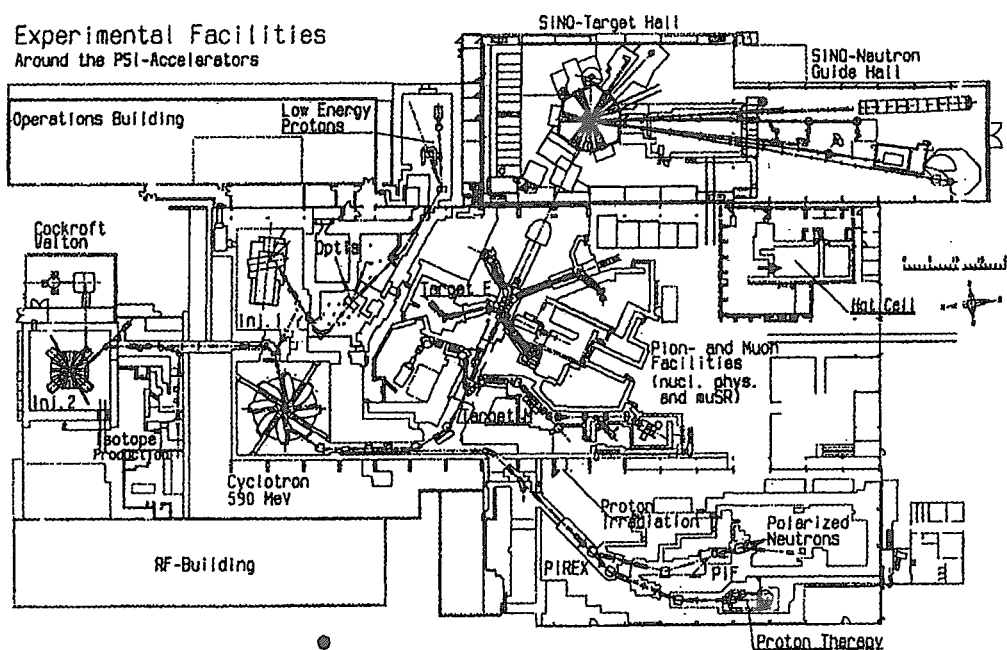


図 3.2-1 PSI 陽子加速器及び関連施設配置図

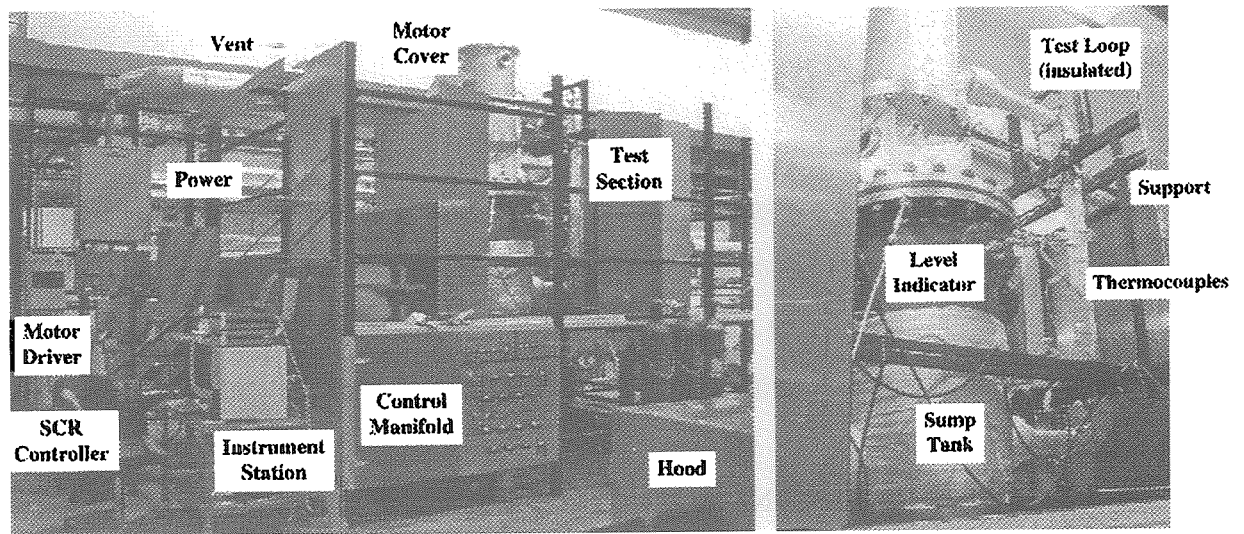
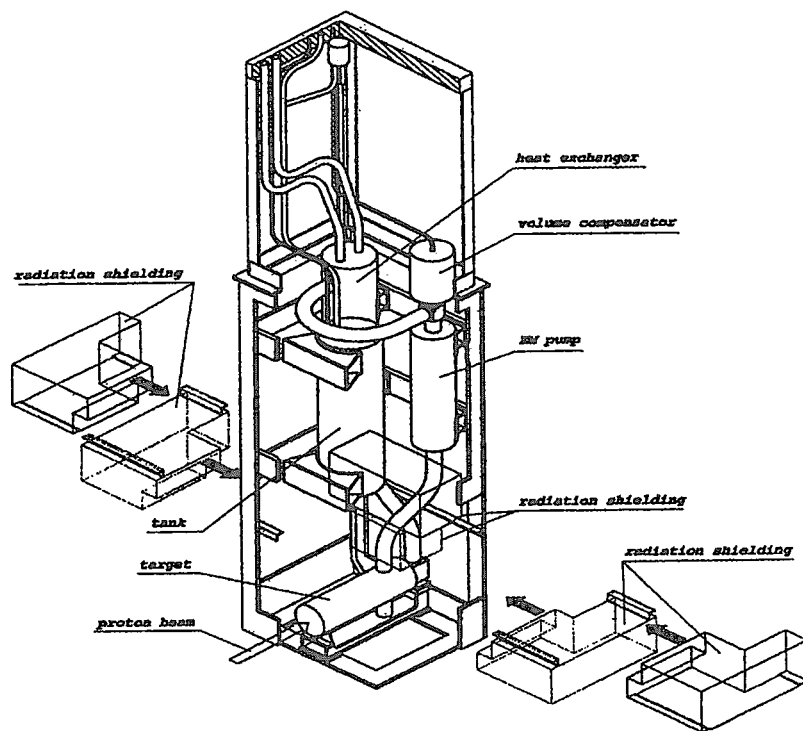


図 3.2-4 LANL コールドループ設置状況



Target circuit of 1-MW power

図 3.2-5 LANL ターゲットループ概念図

4.Pb-Bi の特性調査

4.1 材料腐食

(1) はじめに

液体金属による腐食は、水溶液などの腐食にみられる電気化学的反応過程ではなく、金属元素の液体金属中への溶解が主原因である。

したがって、冷却材として使われる液体金属がその熱回収のために、高温部と低温部を循環する場合、高温部で溶解した元素が低温部で飽和濃度になり析出する質量移行現象が生ずる。

これまで、液体金属として Na を用いた高速炉プラントが実証されているが、Na は主要な金属元素である Fe, Ni, Cr 等の溶解度が小さいので、構造材としてはステンレス鋼が使用されている。一方、消滅炉で計画されている鉛・ビスマスは、特に Ni の溶解度が大きいことが知られており、使用環境によってはステンレス鋼の適用が不可能な場合も予想される。

金属元素が溶解する場合、その飽和濃度と溶解速度が重要な因子になる。

各元素の溶解濃度は、液体金属種類・温度により決まってくる。

溶解速度は、表面生成物から液体金属へ溶出する過程が律速と考えられるが、この表面状態が種々の工学的因子（温度、温度差、構造、流速、酸素等の不純物濃度、インヒビターなど）によって大きく異なり、腐食原因や腐食速度等の判定に重大な影響を与えている。

構造材として使用される金属材料は、供用期間中所定の強度を有していなければならない。したがって、元素の溶出・液体金属の侵入による結晶構造の変化・亀裂進展や脱炭などによる強度低下についても検討しなければならない。

ここでは、鉛・ビスマス共晶合金を中心とした熔融金属による材料腐食に関して、(1) 熔融金属中への鋼材元素の溶解度、(2) 強制循環ループ内での腐食速度と防食技術、(3) 腐食に及ぼす熔融金属中の不純物、特に酸素含有量の影響、(4) 熔融鉛・ビスマス中での材料特性 についての調査結果を報告する。

(2) 金属元素の溶解

熔融金属(鉛、ビスマス、鉛・ビスマス)中への各種金属元素の溶解度については比較的多くの報告例がある。特に、構造材料として重要な Fe、Cr、Ni の溶解度に

関するデータを以下に示す。表 4.1-1^[4.1-1]には 700℃における各種溶融金属に対する Fe、Cr、Ni の溶解度を示した。従来の冷却材である Na と比較して、鉛やビスマスはこれらの元素の溶解度が大きい。鉛・ビスマス合金も同様であると考えられ、鋼材に対する腐食性が強いと予想される。表 4.1-2^[4.2-2]は溶融鉛、鉛・ビスマス、ビスマスに対する Fe、Cr、Ni、Cu などの溶解度を示しており、表 4.1-3^[4.2-2]は溶融ビスマスに対する各種金属元素の溶解度を温度の関数として整理した結果である。

IPPE(Institute of Physics and Power Engineering)では、鉛・ビスマス合金中に対する Fe、Ni、Cr の溶解度(wt%)を下式で示している^[4.1-3]。

$$\text{Log } C(\text{Ni}) = 1.53 - 843/T$$

$$\text{Log } C(\text{Cr}) = -0.02 - 2280/T$$

$$\text{Log } C(\text{Fe}) = 2.1 - 4380/T$$

$C(\text{Ni})$: Ni の溶解度 $C(\text{Cr})$: Cr の溶解度 $C(\text{Fe})$: Fe の溶解度

T : 温度(K)、400～900℃

また、BNL(Brookhaven National Laboratory)では、溶融鉛・ビスマス合金中への Fe の溶解度を下式で整理しており、IPPE の報告とほぼ一致している⁴⁾。

$$\text{Log } C(\text{ppm Fe}) = 6.15 - 4610/T$$

$C(\text{ppm Fe})$: 鉛・ビスマス合金中への Fe の溶解度 (wtppm)

T : 温度(K)、約 500～800℃

構造材料の主要成分である Fe、Cr、Ni の溶解度を整理した結果を図 4.1-1～図 4.1-4 に示す。図 4.1-1、2 は溶融ビスマス中への溶解度をまとめた結果であり、図 4.1-3、4 は溶融鉛・ビスマス中への溶解度を整理した結果である。また、図 4.1-1、3 は溶解度をアレニウスプロットで示しており、溶解度は温度の指数関数であらわされることを意味している。各種元素の溶解度の値は文献により異なるが、以下の傾向があることが理解できる。

① 温度の影響

Fe、Cr、Ni の溶解度は鉛・ビスマス合金の温度上昇とともに増加する。300

～500℃の範囲では温度が 100℃上昇することにより、溶解度はおよそ 1 桁大きくなる。また、500～700℃の範囲では鉛・ビスマス合金の温度が 100℃上昇することにより、溶解度は約 5 倍前後上昇する。

② 熔融金属の影響

熔融金属としてはビスマスへの溶解度がもっとも大きく、鉛への溶解度がもっとも小さい。鉛・ビスマス合金はビスマスと鉛の中間の溶解度を持ち、ビスマスの 1/5～1/10 程度の溶解度である。

③ 金属元素の影響

金属元素では Ni の溶解度がもっとも大きく、ついで Cr、Fe の順である。特に、Ni はビスマスとの化学的親和力が強く Ni-Bi 系の金属間化合物を形成する。温度範囲により異なるが、熔融ビスマスや熔融鉛・ビスマスに対する Ni の溶解度は Cr や Fe の溶解度と比較して 3 桁前後大きい。

これらの結果から Ni を含むオーステナイト系材料は、鉛・ビスマス冷却材に対して適用しづらいことが理解できる。材料の構成元素において溶解度差を有する場合、溶解度差に起因して材料表面の組成や組織が変化することが報告されている。特定元素の選択溶出と同時に液体金属の侵入、特に粒界へのしみこみが生じ、固相表面が海綿状に変質するとの報告もある。例えば、熔融ビスマス中の Cr 含有鋼の腐食形態は、溶解度差に起因した Fe、Cr の溶出と粒界腐食型の腐食が進行するとの報告もある^[4.1-4]。また、Ni を含有するオーステナイト系ステンレス鋼では Ni の選択的な溶出が生じ、材料表面が Fe-Cr 系の多孔質なフェライト相を形成することが知られている^[4.1-5]。

表 4.1-1 700℃の液体金属中における Fe、Cr、Ni の溶解度 (at%) [4.1-3]

液体金属	元 素			液体金属	元 素		
	Fe	Cr	Ni		Fe	Cr	Ni
Al	2	0.35	4	Na	n	N	n
Bi	0.012	0.15	63	Pb	n	0.5	3
Cd	n	n	30	Sb	5	13	7
Hg	n	n	0.05	Sn	1.5	2	14
In	—	—	9	Te	—	—	10
Li	n	n	0.019	Tl	—	—	1~2
Mg	0.04	—	20	Zn	4	3~5	5

n : <0.01 at%

表 4.1-2 各種金属元素の溶融鉛、鉛・ビスマス、ビスマスへの溶解度 [4.1-2]

Solute	Pb		Pb-Bi		Bi	
	ppm	Temp. °C	ppm	Temp. °C	ppm	Temp. °C
Cu	3600	500[31]	7200	500[12]	14,800	500[19,20]
Fe	6.7	700[12]	33	700[12]	125	700[17]
	2.6	600	10	600	50	600
	0.8	500	2.3	500	15	500
Cr	730	600[44]	—	—	150	600[35]
Ni	5370	600[44]	—	—	66,000	600[35]
Co	10.2	600[45]	—	—	450	600[13]
	—	—	300	600[12]	3,700	600[13]
Zr	—	—	329	600[12]	3,215	600[35]

表 4.1-3 各種金属元素の溶融 Bi への溶解度の温度関数

Group in periodic table	Element	Solid in equilibrium with liquid	Solubility equation $\log_{10} (a/o \text{ solute}) = A - B/T$		a/o solute at 441°C (1/T = 1.4)
			A	B	
IIa	Be	Be	-0.13	2750	~0.00012 *
	Mg	Mg ₃ Bi ₂	4.01	1990	16.9
	Ca	CaBi ₃	6.84	4240	8.27
	Sr	SrBi ₃	4.65	2665	8.22
	Ba	BaBi ₃	3.17	1580	9.00 *
IIIa	Al	Al	3.29	1992	3.02
IVa	Si	Si	-	-	~0.0007
	Ge	(Ge ?)	3.24	2570	0.44
IIb	Y	?	2.37	2690	0.0402
	La	LaBi(?)	2.93	2330	0.496
	Ce	CeBi ₂	3.08	2520	0.358
	Pr	Pr _x Bi _y	2.21	1955	0.412
	Nd	Nd _x Bi _y	2.97	2550	0.267
	Sm	Sm _x Bi _y	4.46	3250	0.826
	Yb	Yb _x Bi _y	4.00	2400	4.35 *
	Lu	Lu _x Bi _y	2.43	2860	0.0267
	Th	Th ₃ Bi ₅	3.30	3410	0.0252
IVb	U	UBi ₂	2.529	2240	0.247
	Ti	Ti _x Bi _y	2.68	2230	0.369
	Zr	Zr _x Bi _y	3.05	2780	0.1455
Vb	Hf	Hf _x Bi _y	2.166	2000	0.234
	V	V	1.15	2520	0.0041
	Cb	Cb	0.47	2160	0.00286
VIb	Ta	Ta	-	-	ND
	Cr	Cr	2.86	3580	0.00739
	Mo	Mo	-	-	ND
VIIb	W	W	-	-	ND
	Mn	MnBi	4.06	1985	18.9
	Re	Re	-	-	ND
VIII	Fe	Fe	2.26	3490	0.0024
	Ru	Ru	-0.56	808	0.0202
	Os	Os	-	-	ND
	Co	(Co ?) **	0.926	1520	0.0620
	Rh	RhBi ₄	4.22	2460	5.53
	Ir	Ir	-	-	≥0.082
	Ni	NiBi	2.93 ***	1400 ***	9.3 *
	Pd	PdBi ₂	2.95	1170	20.6
	Pt	(PtBi ₃ ?)	3.015	1655	5.02

* Extrapolated as follows: Be from 600°, Ba from 370°, Yb from 425°, and Ni from 480° ([9] shows peritectic at 469°).

** No intermetallic compound shown [9]. However, abrupt change in ΔH , and microstructures taken during the work on Co and Ge suggest that compounds between these solutes and Bi may exist.

*** Measurements were made only in NiBi-Bi region.

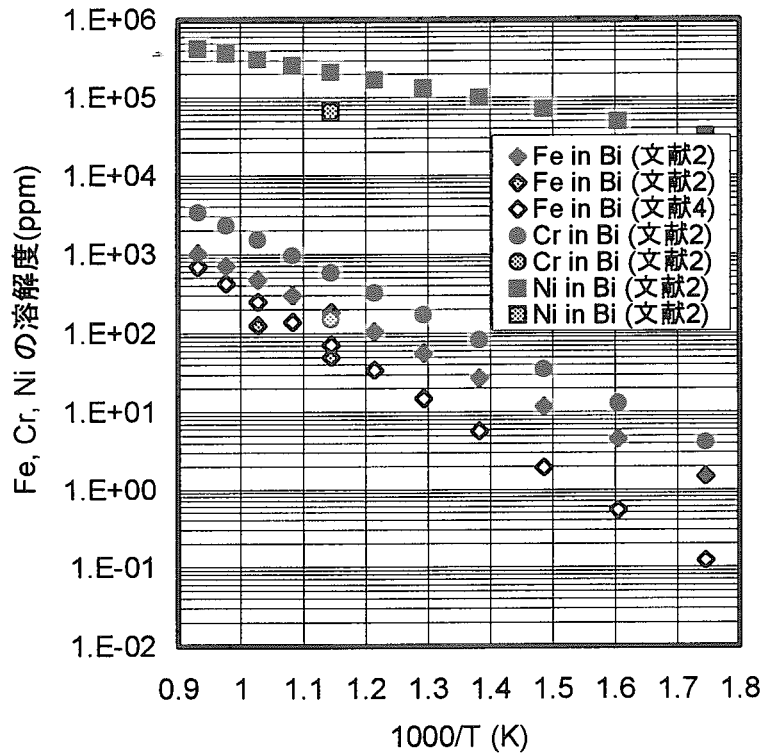


図 4.1-1 溶融 Bi 中への Fe, Cr, Ni の溶解度 (アレニウスプロット)

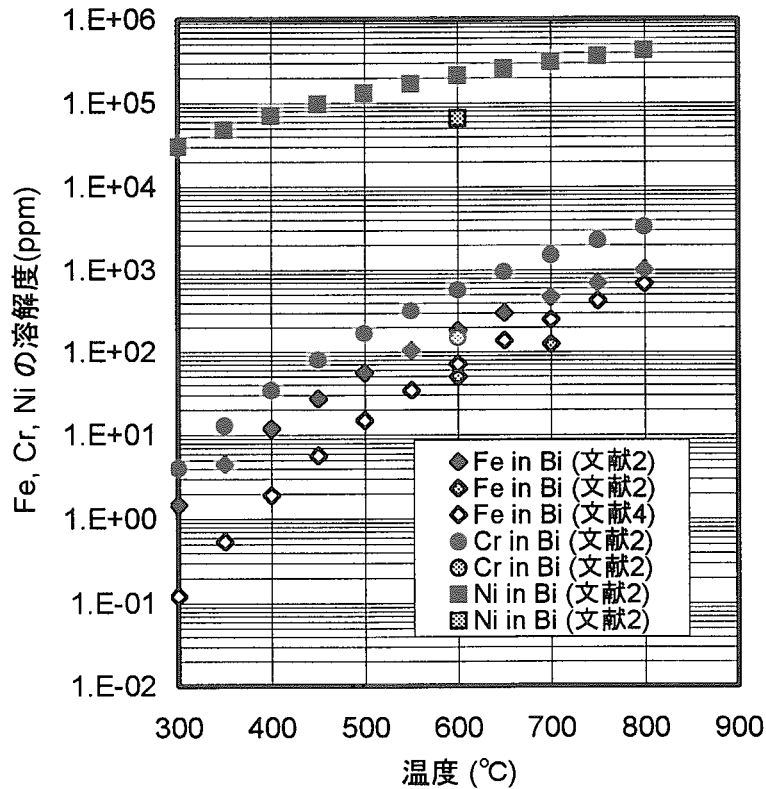


図 4.1-2 溶融 Bi 中への Fe, Cr, Ni の溶解度

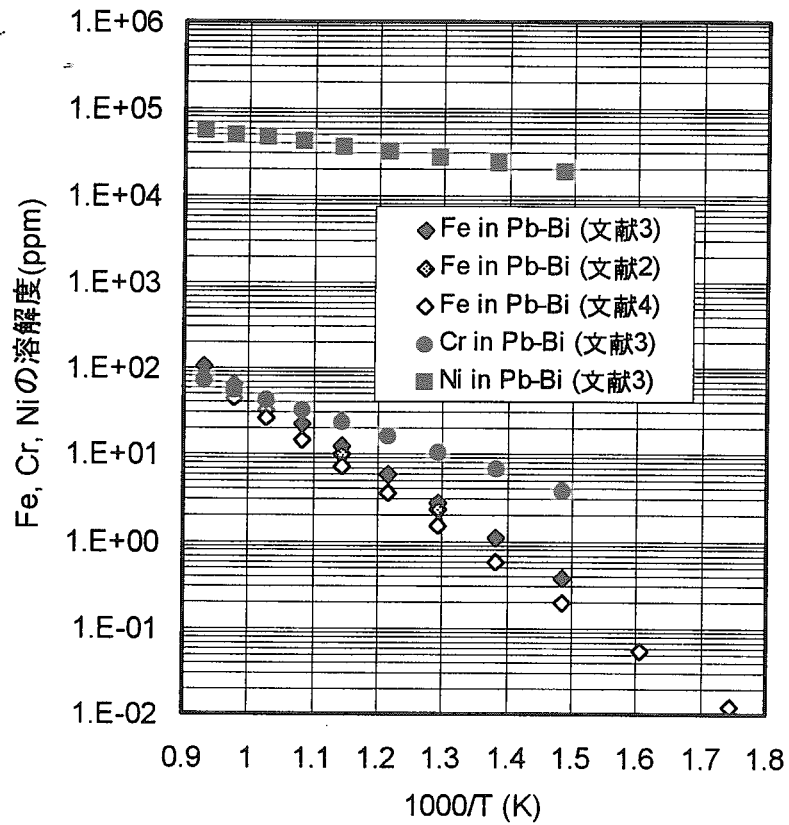


図 4.1-3 溶融 Pb-Bi 中への Fe, Cr, Ni の溶解度 (アレニウスプロット)

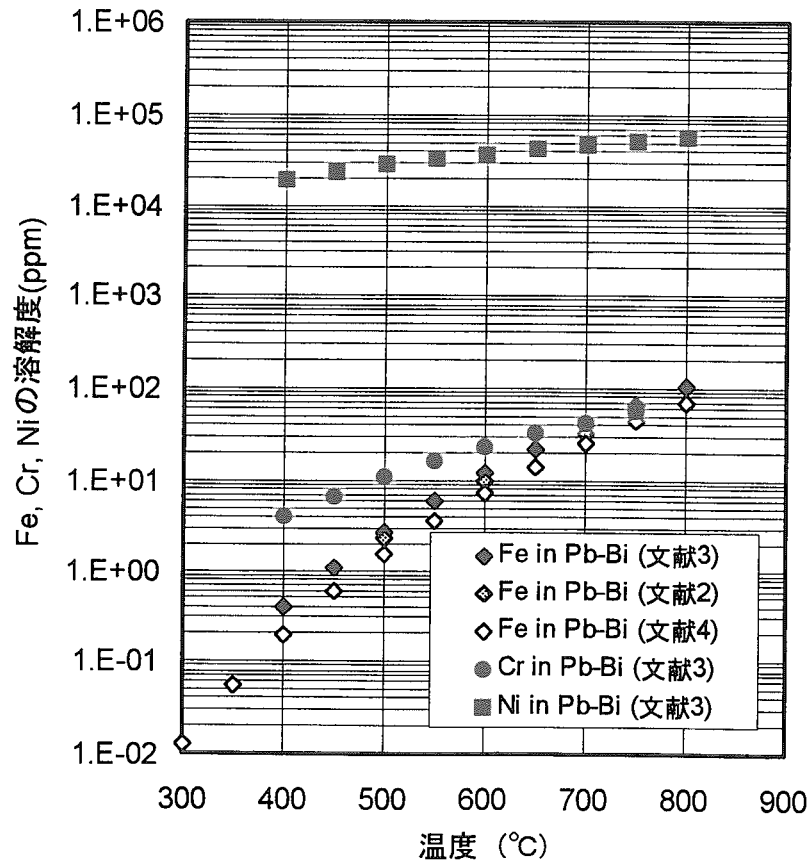


図 4.1-4 溶融 Pb-Bi 中への Fe, Cr, Ni の溶解度

(3)循環ループ内の腐食速度

(3-1) L. Giancarli らの報告 (文献[4.1-6])

強制循環ループ内の材料の腐食に対しては種々因子が影響を与える。前述の溶解度に加えて、熔融金属の流速、ループ内最高温度、高温部－低温部間の温度差、材料組成などが材料腐食に対する主要因であると考えられる。

ロシアやヨーロッパにおいて、冷却ループ用構造材料として低放射化マルテンサイト鋼である MANET 鋼 (材料組成は表 4.1-4 に示す)が開発された。この MANET 鋼を用いて Pb-17Li 液体金属中での長期腐食試験を実施し、450～500℃の範囲で管材料からの腐食の影響はなく、その溶解損失はわずかであると報告している。また、流速 0.3m/sec での乱流化における材料腐食速度として下記の経験則を得ている。

$$\text{Log}(dx) = 12.34 - 10960/T$$

dx : 管壁の腐食厚み $\mu\text{m/h}$

T : 温度 (K)

この式によると、例えば 723K(450℃)では $15\mu\text{m/年}$ の減肉が予想される。

表 4.1-4 MANET 鋼の化学組成

元 素	C	Cr	Ni	Mo	V	Nb	Si	Mn
Wt%	0.13	10.6	0.87	0.77	0.22	0.16	0.37	0.82

元 素	S	P	B	N	Al	Co	Cu	Zr
Wt%	0.004	0.005	0.0085	0.003	0.054	0.01	0.015	0.053

(3-2) Omesh. K. Chopra らの報告 (文献[4.1-5])

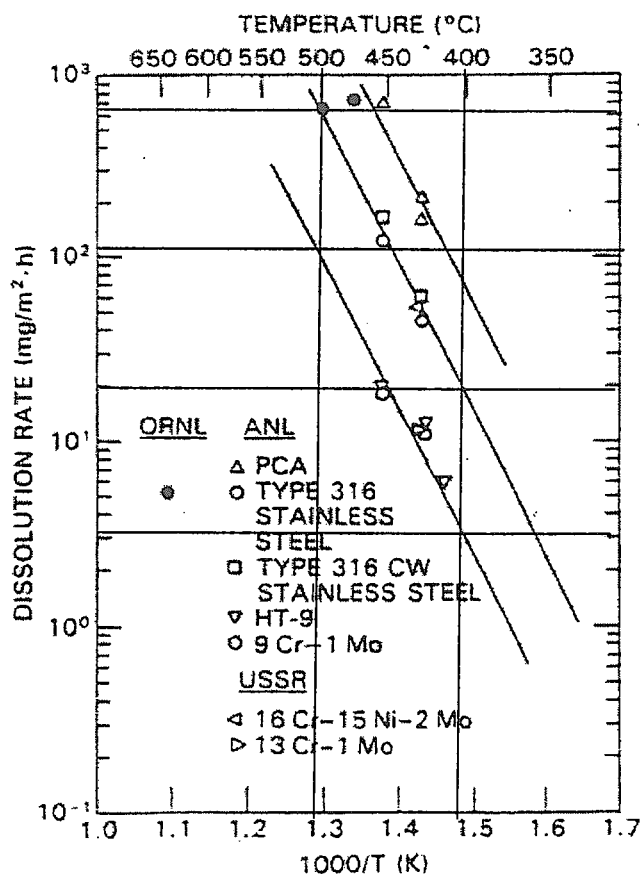
材料の腐食速度に対する液体金属の流速の影響に関しては、Na 中の腐食速度の経験則として下式が報告されている。

$$R \propto (2.97 + 2.71V)$$

R : 腐食速度、V : 液体金属流速(m/sec)

上式より腐食速度は流速に比例すると予想される。Pb-17Li 液体金属の強制循環ループ中での各種材料の腐食速度を図 4.1-5 に示す。図 4.1-5 では腐食速度に及ぼす流速の影響を上式により補正している。腐食速度は液体金属温度の関数としてアレニウスプロットで表現できる。これは、腐食速度も溶解度の現象と同様、温度上昇とともに指数関数的に増加することを意味している。

また、腐食速度は高 Ni 合金である PCA がもっとも大きく、ついでオーステナイト系ステンレス鋼の SUS316、フェライト系材料である HT9(12Cr-1Mo 鋼)や 9Cr-1Mo 鋼の順である。ロシア製の 16Cr-15Ni-2Mo 鋼は SUS316 と、13Cr-1Mo 鋼は 9Cr-1Mo 鋼と同程度の腐食速度であることがわかる。



Ni 含有オーステナイト鋼: 650 μ m/年(500°C)

Cr-Mo 鋼: 120 μ m/年(500°C)

Ni 含有オーステナイト鋼: 23 μ m/年(400°C)

Cr-Mo 鋼: 3.5 μ m/年(400°C)

図 4.1-5 流動 Pb-17Li 中での各種鋼材の腐食速度のアレニウスプロット
(流速 1.5m/s に標準化)

(3-3) 木下らの報告 (文献[4.1-7])

木下らは、熱対流ループ試験により熔融鉛・ビスマス中における 2.25Cr-1Mo 鋼と 9Cr-1Mo 鋼の腐食について評価した。試験装置の概略を図 4.1-6 に示す。直接接触型の蒸気発生器を想定し、熔融鉛・ビスマスへ水蒸気を注入している。高温部の温度は 500℃、流速は 0.02m/sec(計算値)である。1 年間の浸漬した後、組織観察により腐食状況を調査した。1 年間浸漬した試験片の表面状況を図 4.1-7.1、7.2 に示す。組織観察の結果、材料表面に酸化膜が付着するものの腐食などの問題はないと報告している。材料表面(最外層)では鉛・ビスマス、酸素の濃縮が 30~40 μm 程度認められ、鉛・ビスマス系の酸化膜が付着していると考えられる。さらに、その内側においても酸素濃度は上昇しており、Fe-Cr 系の酸化物(材料の酸化)が生じていると考えられる。断面 EPMA 観察の結果によるとこの酸化物の厚みは約 40 μm 前後である。このような酸化皮膜の形成は水蒸気注入による鉛・ビスマス中の酸素濃度の増加に起因している。水蒸気注入により酸化物が生成したという報告から判断すると、後述する BNL の腐食試験とは異なり高酸素濃度側の試験結果であると考えられる。酸化皮膜の形成により材料の腐食が抑制できたと推定されるが、皮膜の成長や剥離など酸化皮膜の安定性に対する検討も必要であると考えられる。

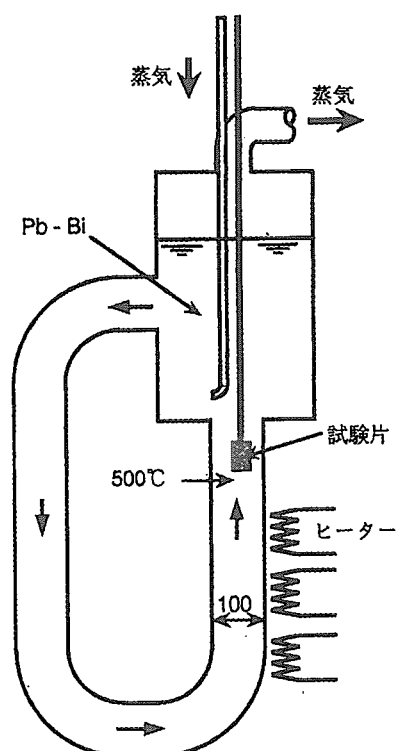


図 4.1-6.熱対流ループ試験装置外観図

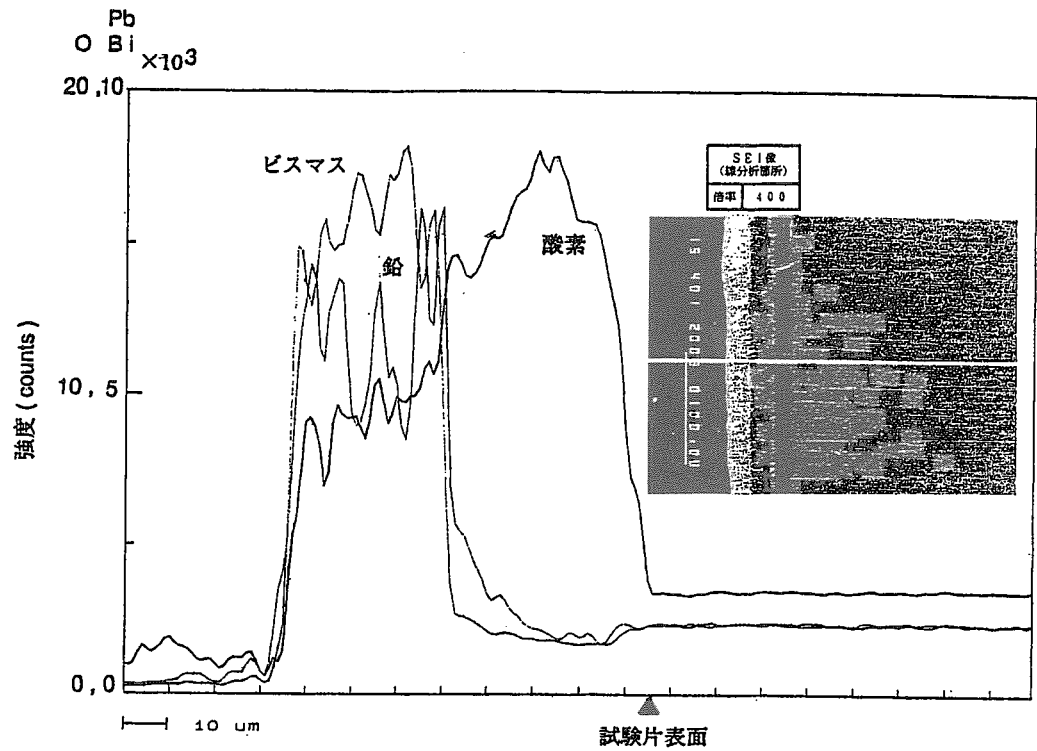


図 4.1-7.1 2.25Cr-1Mo 鋼の腐食試験結果 (溶融鉛・ビスマス合金中)

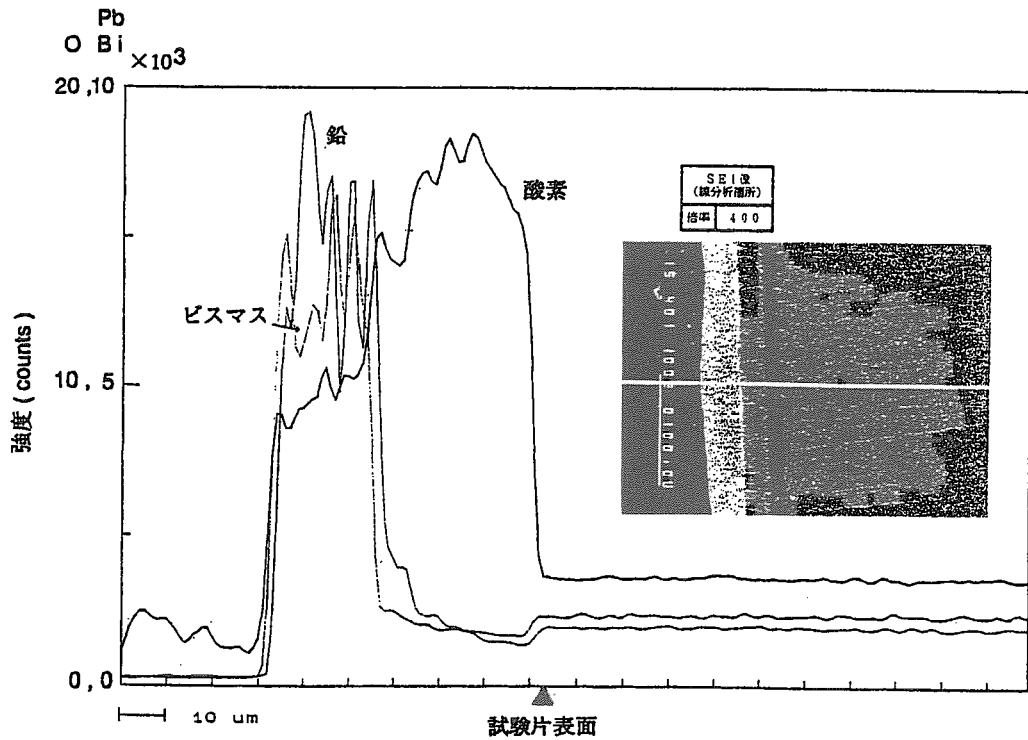


図 4.1-7.2 Mod.9Cr-1Mo 鋼の腐食試験結果 (溶融鉛・ビスマス合金中)

(3-4) A. J. Romano らの報告 (文献[4.1-4])

BNL では図 4.1-8 に示す熱対流ループ試験装置を用いて、熔融ビスマスや鉛・ビスマスによる材料腐食、防食技術に関する系統的な研究を実施した。ループの全高は 15 インチ、全幅は 8 インチであり、配管径は 1/2 インチである。炭素鋼、Cr-Mo 鋼、オーステナイト系ステンレス鋼について、熔融金属流速約 0.015m/sec、試験部最高温度(T_{max}): 400~650℃、ループ内の温度差(ΔT): 40~200℃の条件下で腐食試験を行い、以下の知見を得た。

- 温度差を持つループ内の腐食のメカニズムは、高温部での金属元素の溶解と低温部での析出による質量移行である。
- したがって、系内最高温度が高いほど、温度差が大きいほど腐食は激しい。
- 熔融金属の腐食性はビスマス、鉛・ビスマス、鉛の順である。
- 鋼材の耐食性は、炭素鋼>低合金鋼(Cr-Mo 鋼)>高 Cr 鋼>オーステナイト系ステンレス鋼 の順である。
- 熔融ビスマスや鉛・ビスマスによる腐食に対しては、Zr や Ti のインヒビター添加が有効であり、ループ内の最高温度や系内温度差を高くすることができる。
- Zr や Ti の防食効果は、材料中の N や C と反応して材料表面に $ZrC(TiC)$ や $ZrN(TiN)$ の保護皮膜を形成することであり、皮膜形成には一定濃度以上の Zr、Ti が必要である。

試験結果の要約を表 4.1-5 に示す。熔融鉛・ビスマスに対してインヒビターを添加しない場合の適用限界は T_{max} : 400℃、 ΔT : 200℃であり、1.25Cr-0.5Mo 鋼において腐食は認められず、10000 時間の使用が可能であったと報告している。ただし、腐食試験後の組織試験の結果では約 20 μm の粒内腐食が認められていた。

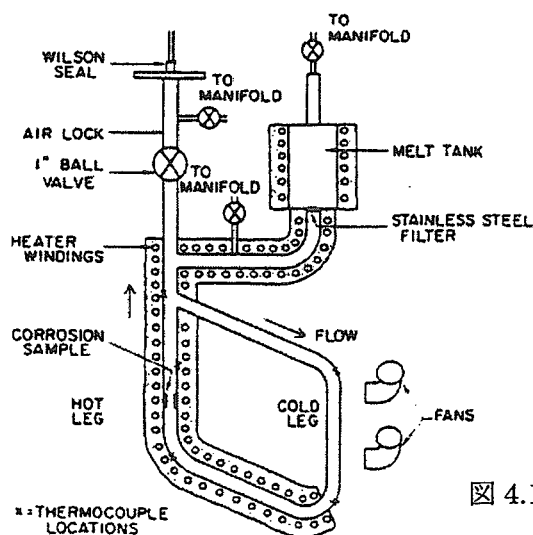


図 4.1-8.熱対流ループ試験装置外観図

表 4.1-5 溶融ビスマス、鉛・ビスマスに対する各種鋼材の耐食性

液体金属				材 料				
	最高 温度	ΔT	inhibitor	Sever corrosion		corrosion	No corrosion	
				<1000hr	<5000hr	5000hr	5000hr	10000hr
Bi	500	100	Zr					Croloy0.5
	525	125	Zr					Croloy2.25
	550	40	なし	Croloy2.25 Croloy5 Si				
		150	なし	SUS304				
		75	Th	Croloy2.25				
		125	Te					
		150	Ti					
		100	Ti		Croloy2.25			
		30	Zr					Croloy5 Si
		100	Zr			Croloy2.25		Croloy1.25
		125	Zr		Croloy5 Si	Croloy0.5		
		150	Zr		Croloy2.25	Croloy1.25		Carbon steel
		190	Zr	Croloy2.25				
	600	100	Zr			Croloy2.25		
	650	150	Zr		Carbon steel		Croloy1.25	
			High Zr				Carbon steel	
Pb-Bi	400	200	なし					Croloy1.25
	500	200	Ti or Zr				C-steel	
	550	150	なし		Croloy1.25			
	600	150	Ti or Zr				C-steel	
	625	125	なし	Croloy1.25				
	650	150	Zr				C-steel	C-steel Croloy1.25
		300	Ti				Croloy1.25	
Pb	550	450	Zr?					Croloy2.25

1) 温度、温度差はおのこの大きい程、腐食も大きい。

2) インヒビターは、Zr, Ti が腐食防止に有効。

3) Zr 等がないと、ビスマス中で使える材料はない。鉛・ビスマス中で温度が低い場合、Croloy1.25 が使える。

4) Cr 量が少ないほど、耐食性が増す傾向がある。

付表 各材料の化学組成

材 料	C	Mn	S	P	Si	Cr	Mo
Croloy 0.5	0.1-0.2	0.3-0.6	Max.0.045	Max.0.045	0.1-0.3	0.5-0.8	0.45-0.66
Croloy 1.25	Max.0.15	0.3-0.6	Max.0.030	Max.0.030	0.05-0.1	1.0-1.5	0.45-0.66
Croloy 2.25	Max.0.15	0.3-0.6	Max.0.030	Max.0.030	Max.0.5	1.9-2.6	0.87-1.13
Croloy 5Si	Max.0.15	0.3-0.6	Max.0.030	Max.0.030	1.0-2.0	4.0-6.0	0.45-0.65

しかしながら、材料表面に生成した ZrC や ZrN 保護膜の安定性やインヒビター濃度の管理の点で、実用化には至らなかった。

強制循環ループ装置や熱対流ループ装置による腐食試験の結果から、材料の腐食速度について整理した結果を図 4.1-9、10 に示す。インヒビターを用いない場合、熔融鉛・ビスマスに対する 1.25Cr-0.5Mo 鋼の適用限界温度は、おおよそ下記のとおりであると考えられる。

許容腐食速度 $5 \mu\text{m/年}$: 350°C

許容腐食速度 $20 \mu\text{m/年}$: 400°C

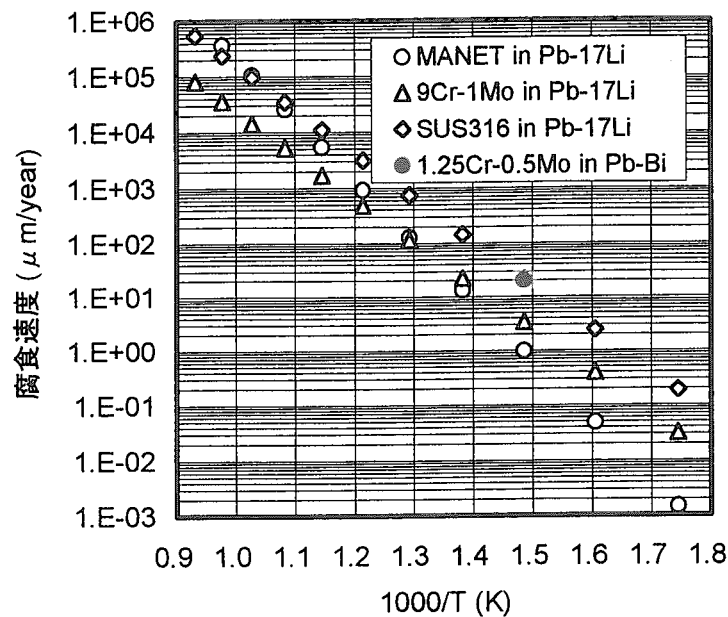


図4.1-9 各種鋼材の熔融金属中での腐食速度(アレニウスプロット)

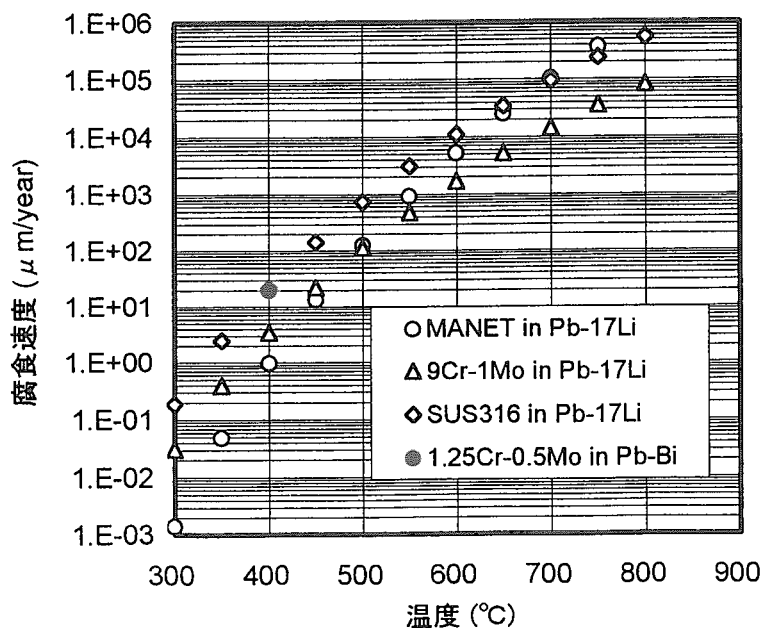


図4.1-10 各種鋼材の熔融金属中での腐食速度

(4) 材料腐食に及ぼす鉛・ビスマス中の酸素含有量の影響

鉛・ビスマス中の酸素含有量は2つの観点から重要である。第1点は、冷却材の清浄度管理の点からであり、酸素含有量はある値以下に制御する必要がある。第2点目は材料腐食の点からである。材料(鋼材)表面に保護性の酸化皮膜を形成し、材料腐食を抑制するためには、ある値以上の酸素含有量が必要である。鉛・ビスマス冷却材中の適正酸素濃度についてNaとの比較例を図4.1-11^[4.1-8]に示す。

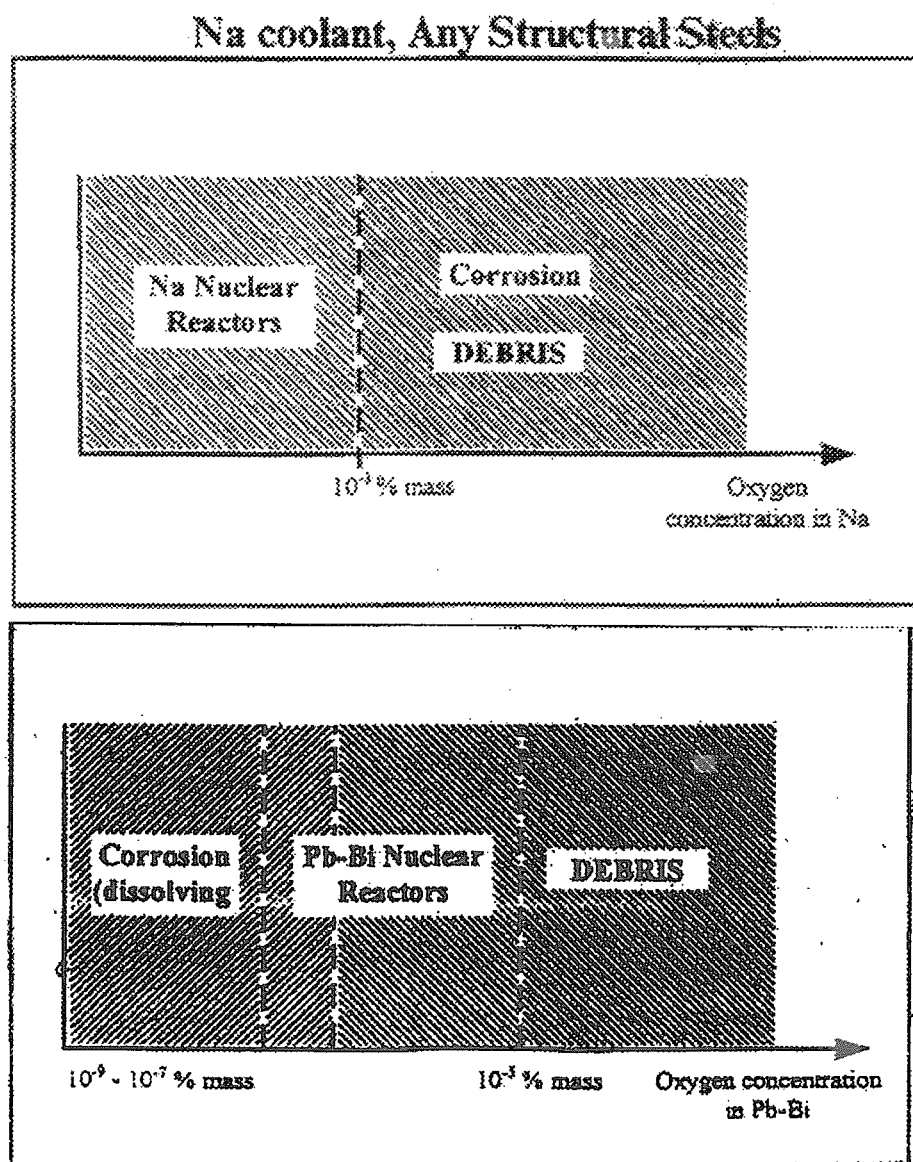


図 4.1-11 鉛・ビスマス冷却材及び Na 冷却材中の適正酸素濃度

図 4.1-11 から判断すると、Na 冷却材では酸素濃度を $10^{-3}\text{mass\%}$ 以下に制御すれば良いと考えられる。表 4.1-1 に示したように Na 中への鋼材成分の溶解度が低い

ので、低酸素濃度側での溶解による鋼材の腐食は問題にならないと予想される。したがって、Na 冷却材では酸素濃度の上限値が示されているのみであり、鋼材もほとんど全ての鋼材が適用できると考えられる。Na 中の酸素濃度が高い場合には、鋼材表面に形成された酸化皮膜が高温部において Na と複合酸化物を形成し、低温部で析出することが報告されている^[4.1-9]。低酸素濃度側における鋼材成分の溶解とは異なる高酸素濃度側での腐食である。酸素濃度の上限値は Na 冷却材の酸化による Na_2O の発生と複合酸化物形成による腐食の観点から決まると考えられる。Na 冷却材ではコールドトラップを利用した純化(酸素濃度制御)が可能であり、冷却材中の酸素濃度は大きな問題ではないと考えられる。

一方、温度範囲は不明だが、鉛・ビスマス冷却材中の酸素含有量は $10^{-5} \sim 10^{-7}$ (あるいは 10^{-9}) mass% に制御する必要があると報告されている。酸素含有量 10^{-5} mass% は、冷却材である鉛・ビスマスの鉛が酸化しない酸素濃度の上限を示しており、これ以上の酸素濃度では冷却材中に PbO (スラッジ) が生ずることを意味していると考えられる。一方、 10^{-7} mass% (あるいは 10^{-9} mass%) は、鋼材表面に生じた保護性酸化皮膜が安定に存在する酸素濃度の下限値であると考えられる。これ以下の酸素濃度では、保護皮膜の分解反応が生ずることを意味しており、保護性酸化皮膜が消失して鋼材の腐食が進むことになる。酸素濃度の下限値は保護性酸化皮膜の種類により異なると考えられる。酸化物生成自由エネルギーが Fe_3O_4 より低い酸化物(酸化皮膜)は、低酸素分圧下でも安定に存在する。酸素濃度の下限値が 10^{-7} mass% と 10^{-9} mass% の 2 種類あるのは、鋼材の種類(鋼材成分)により保護性酸化皮膜の形成が異なるためであろうと考えられる。通常、保護性酸化皮膜は主として Fe_3O_4 であり、酸素濃度の下限値は 10^{-7} mass% に相当すると予想される。 Fe_3O_4 より安定な酸化物である Cr_2O_3 などを含む酸化皮膜は、酸素濃度 10^{-7} mass% 以下でも安定に存在する。この酸化皮膜が安定に存在する領域が 10^{-9} mass% 以上に対応するのではないかと考えられる。

ロシア(IPPE)では鉛・ビスマス中の酸素量を制御することにより、冷却材の管理と防食を達成している。

鉄系材料の表面に保護性酸化皮膜を付与することにより、熔融鉛に対する耐食性を高める点に関しては、その他の文献においても示唆されている^[4.1-10]。特に、低酸素ポテンシャル下で酸化皮膜を形成するアルミニウムのような元素の合金化は、熔融鉛に対してさらに効果的な防食作用を示すとの報告もある^[4.1-10]。

鉛・ビスマス中の酸素量の上限は、酸素量の固溶限により決まる。すなはち、固溶限を越えた酸素はPbOとして酸化物の形態で析出する。鉛・ビスマス合金中及び鉛中の酸素の固溶酸素量を下式^[4.1-3]に示すが、酸素量はこの値以下にする必要がある。

$$\log Cs = 1.2 - 3400/T \quad (\text{鉛・ビスマス合金 : } 400 \sim 700^\circ\text{C})$$

$$\log Cs = 3.2 - 5000/T \quad (\text{鉛 : } 400 \sim 700^\circ\text{C})$$

Cs : 酸素の固溶限 (mass%)

T : 温度 (K)

鉛・ビスマス中の酸素活量と適正酸素濃度の一例を図 4.1-12^[4.1-11]に示す。

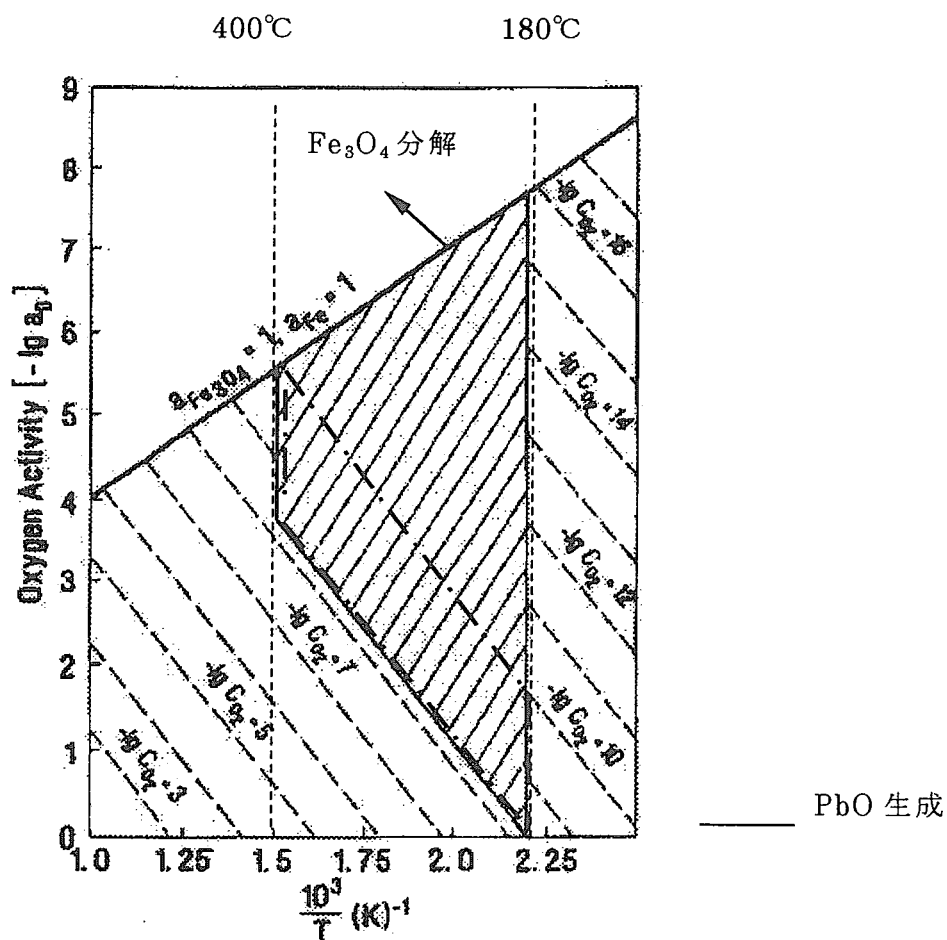


図 4.1-12 鉛・ビスマス中の酸素活量と適正酸素濃度の関係

図中の縦軸は酸素活量(a_o)の対数を示しており、横軸は絶対温度の逆数を示している。また、点線は温度と酸素活量に対応する酸素濃度を示している。ところで、酸素活量 a_o は下式に示すように酸素濃度と固溶限との比で与えられる。

$$a_o = C_o / C_s$$

a_o : 酸素活量、 C_o : 酸素濃度、 C_s : 酸素の固溶限

縦軸の $0(-\log a_o = 0)$ は酸素濃度が固溶限に達したこと ($C_o = C_s$ 、 $a_o = C_o / C_s = 1$) を意味し、この酸素濃度以上で PbO が生成する。たとえば、 PbO が生成しないためには 400°C ($1000/T = 1.485$) では C_o は 10^{-5} mass% 以下、 180°C ($1000/T = 2.2$) では C_o は 10^{-8} mass% 以下を満足する必要がある。したがって、高温部 400°C -低温部 180°C の非等温ループを想定した場合、 PbO の生成を防止する観点から酸素量を 10^{-8} mass% 以下にする必要があることがわかる。

図中の実線は、保護性酸化皮膜である Fe_3O_4 が安定に存在する (Fe が溶出しない) 酸素濃度の下限値を示しており、この酸素濃度以下では保護性酸化皮膜の分解により腐食が生ずる。図 4.1-12 より、 Fe_3O_4 が安定に存在するための酸素濃度として、 400°C では 10^{-10} mass% 以上必要であり、 180°C では約 10^{-16} mass% 以上であることがわかる。高温部 400°C -低温部 180°C の非等温ループを想定した場合、 Fe_3O_4 の保護性皮膜による防食という観点では、酸素量を 10^{-10} mass% 以上にする必要がある。

$180^\circ\text{C} \sim 400^\circ\text{C}$ の範囲において、 PbO の生成の防止と Fe_3O_4 による防食を満足する酸素濃度は図中の 1 点鎖線で表すことができる ($10^{-10} \sim 10^{-8}$ mass% である) と考えられる。

(5) 溶融金属環境下での材料強度特性

溶融鉛、ビスマス、鉛・ビスマス環境下での材料強度特性の変化については文献 9 に要約されている。その概要を以下にまとめる。

- アルムコ鋼や低合金鋼(4145 鋼(1%Cr 鋼))の延性は、 200°C から 400°C の範囲で急激に低下する。延性の低下は 350°C 近傍で最も顕著である。
- 引張強度も連続的に低下し、 400°C で最小となる。
- これらの環境下では脆性的な亀裂の成長により、破断が生ずる。
- 種々の鋼の疲労強度に関する研究が行われた。溶融鉛・ビスマス共晶合金によ

り粒界侵食が生じ、疲労強度がかなり低下することが確認された。

- 鋼材表面に酸化皮膜を形成することにより鉛・ビスマス中での材料劣化(疲労強度の低下)を防止することができる。
- 周波数の制御も疲労強度の低下防止に効果的である。溶融鉛・ビスマス中での疲労試験において、歪み速度 $5.3 \times 10^{-3}/s$ では疲労強度は大幅に低下するが、歪み速度 8.0×10^{-6} では大気中と同様の結果であった。高周波数の応力下では粒界拡散が加速されるためであり、低歪み速度下では局所での応力緩和を生じるので、溶融金属による粒界拡散が発生しない。

(6) まとめ

溶融鉛・ビスマスによる鋼材腐食の調査を行い得られた知見を下記にまとめる。

- (1) 溶融鉛・ビスマスの鋼材元素の溶解度、腐食性は従来の冷却材である Na より激しい。
- (2) 非等温系における溶融鉛・ビスマスの鋼材腐食は、高温部での鋼材元素の溶出と低温部での析出による質量移行である。
- (3) 鋼材元素の主要成分である Fe、Cr、Ni の溶解度は Ni が最も大きく、ついで Cr、Fe の順である。したがって、Ni を多く含有するオーステナイト系鋼材は溶融鉛・ビスマスに腐食されやすく、適用が限定される。
- (4) 鋼材表面に保護皮膜を形成することにより、防食効果が期待できる。保護皮膜としては酸素濃度制御による酸化皮膜の形成と Zr などのインヒビター添加による ZrC あるいは ZrN 皮膜形成の 2 種類がある。後者は、皮膜の安定性(耐剥離性)の点で実用化に至らなかった。
- (5) 保護皮膜による防食を実施しない場合、炭素鋼および Cr-Mo 鋼の適用限界温度は 400℃前後である。
- (6) 鉛・ビスマス冷却材の清浄度管理と酸化皮膜形成による防食の観点から、鉛・ビスマス中の酸素濃度には適正範囲がある。
- (7) 溶融鉛・ビスマス環境下では機械的特性が低下する。具体的には延性、引張強度、疲労強度の低下が認められた。

溶融鉛・ビスマス中の酸素濃度制御は、鋼材の防食と冷却材の清浄度管理の観点から非常に重要である。しかしながら、鉛・ビスマス中の適正酸素濃度については

異なる報告がある [4.1-3],[4.1-8],[4.1-11]。適正酸素濃度の決定に関しては、酸素の固溶限や鉛・ビスマス中の酸素あるいは PbO と Fe との反応などに関して精度の高い熱力学データが必要であり、詳細な調査と検討を要する。また、実用面では鉛・ビスマス中の酸素濃度を計測する技術や酸素量制御技術(脱酸-還元)に関する検討が必要となる。

さらに、鉛・ビスマス中においては材料強度が低下するとの報告があるが、低下の程度や腐食との相互作用などについても調査していく必要があると考えられる。

保護性酸化皮膜による防食を適用することにより、温度範囲は限定されるが、 Ni を含むオーステナイト系の材料が適用できる可能性もある。材料腐食に関しては、酸素濃度を制御した環境下での腐食データを取得し、鋼材の種類毎に腐食形態と適用限界温度などを明らかにする必要がある。また、酸素濃度を制御した熔融鉛・ビスマス環境下での材料強度劣化の有無や照射劣化との相互作用などの評価を実施する必要があると考えられる。

参考文献

- [4.1-1]関西原子力懇談会：「液体金属技術の先進原子力応用に関する調査」平成 11 年 3 月
- [4.1-2]J.R.Weeks： “Lead, Bismuth, Tin And Their Alloys As Nuclear Coolants”, Nuclear Engineering and Design 15, (1971), p.362-372
- [4.1-3]B.F.Gromov etc.： “The Problem of Technology of Heavy Liquid Metal Coolants, (Lead-Bismuth, Lead), HLMC-98
- [4.1-4]A.J.Romano etc.： “ The Investigation of Container Materials for Bi and Pb Alloys Part 1 Thermal Convection Loops”, BNL811(T-313)
- [4.1-5]Omesh K.Chopra etc.： “Liquid Metal Corrosion”, Fusion Technology Vol.8, Sept., (1985), 1956-1969
- [4.1-6]L.Giancarli etc.： “ Water-Cooled Pb-17Li DEMO Blanket Line”, CEA Rapport DMT 95/505 SERMA/LCA/1801
- [4.1-7]木下ら：「FBR 用直接接触伝熱型 SG の成立性評価」、電力中央研究所報告 /総合報告 T49、平成 9 年 6 月
- [4.1-8] V.I.Chitaykin： “Status of ATW Technology and Research Needs from Perspective of MINATOM”, ATW workshop, Washington, D.C., Feb 16-

18,1999

- [4.1-9] 鈴木：「溶融金属中における金属材料の腐食挙動」、鉄と鋼、Vol.75、
No.11(1989)、p.35-p.46
- [4.1-10] P.F.Tortorelli, "Corrosion and Compatibility Considerations of Liquid
Metals for Fusion Reactor Application", Journal of Nuclear Materials
103 & 104 (1981), p.621-632
- [4.1-11] B.F.Gromov etc., "Physical-Chemical Principles of Lead-Bismuth
Coolant Technology", Liquid Metal Systems, (1995), p.339-343

4.2 水反応

(1) はじめに

ADS においては、鉛・ビスマスを用いて炉心冷却を行い、その熱をさらに水に伝える中間熱媒体の役割を果たす。水に伝えられた熱で蒸気を発生させ、核エネルギーを電気に変換する。ここで、鉛・ビスマスは伝熱管を介して熱交換するので、通常鉛・ビスマスと水が接触することは起こらない。しかし、係る設備の安全性の観点からは、何らかの原因により、伝熱管から流出したあるいは伝熱管内に侵入した鉛・ビスマスとが直接接触した場合の両者の相互作用について検討しておくことが必要と考えられる。

伝熱管が破れる原因としては、

- ・鉛・ビスマスによる伝熱管材料の腐食
- ・地震等による伝熱管破断

などが、また鉛・ビスマスと水との相互作用としては、

- ・高温の鉛・ビスマスと水が直接接触することにより水が瞬間的に蒸発して圧力が急激に上昇する“水蒸気爆発”現象
- ・両者の反応により生成する酸化物による二次的現象（可能性の推定）
- ・高温の鉛・ビスマスと水の接触で発生する水素と鉛・ビスマスの反応

などが想定される。

(2) 水反応の可能性

電力中央研究所（電中研）では、高速増殖炉用の直接接触伝熱型蒸気発生器の可能性を検討しており〔文献 4-2-1〕、この直接接触型蒸気発生器では鉛・ビスマスと水との直接接触伝熱により熱交換することが想定されている。

このようなことが検討される背景には、ナトリウム-水反応対策設備削減による建設コスト削減という要求がある。従来型蒸気発生器では、伝熱管を介して水と熔融ナトリウムが熱交換するため、安全面から伝熱管破損が起こった場合を想定した万全の対策が必要となっている。電中研方式の蒸気発生器では、高速炉炉心除熱にはナトリウムを用いるが、その一次冷却ナトリウムで熔融鉛・ビスマスを加熱し、その鉛・ビスマス中に直接水を吹き込んで蒸気を発生させる方式である。ここでは、前述の伝熱管破断どころか、鉛・ビスマスと水を直接接触させることを狙っている訳である。考案の蒸気発生器と運転条件を参考に図 4.2-1 に示す。

電中研では、水蒸気爆発の可能性の検討、鉛・ビスマスと水との反応による酸化

物発生抑制法、伝熱特性などを検討しており、以下の結論（一部）を得ている。

- ・計画の圧力・温度条件下では蒸気爆発が発生する可能性は非常に小さい
- ・鉛・ビスマスと水の直接接触により生成する酸化物は、水中に水素を溶かし込むことで抑制できることを実験的に確認した
- ・直接接触伝熱型熱交換器の特性上、高い熱効率の達成が困難である

ここで、蒸気爆発の可能性が小さいことが指摘されている。彼らは、熔融鉛・ビスマス溜めの表面に水滴を落下させる“滴下モード”での実験を実施しており、雰囲気圧力を高めた場合にはスプラッシュ現象（水蒸気爆発）が起こらないと言う結果を根拠としている。

ロシアの Institute of Physics and Power Engineering 関連の文献 [4-2-2] においては、粒子加速器駆動炉において鉛・ビスマスの使用を検討している。その中では、「鉛および鉛・ビスマスは、酸素・水・水蒸気との相互作用が比較的弱いため、熔融金属ループの破断、熔融金属冷却材と空気の接触、蒸気発生器内での熔融金属の漏洩等に伴った爆発現象・火災は起こらない」と述べている。

これらの様に、鉛・ビスマスと水との相互作用・反応は起こり難いものとされている様である。鉛・ビスマスと水が反応して酸化物が発生することは、言えば“緩やかな現象”であり、それ自体が急激な支障を引き起こすことが少ないと判断される。しかし、鉛・ビスマスと水との接触による水蒸気爆発の可能性は、その誘起する結果からも重要なものであり、完全にその事象発生の可能性が否定されたとは言い難いと考えられる。

従って、以下では水蒸気爆発の可能性に関する調査と結果の概要について述べる。

(3) 水蒸気爆発に関する調査

A. 水蒸気爆発発生²⁾の一般的メカニズム

水蒸気爆発の詳細な発生機構に関する定説は、現象が非常に短時間で起こる急速なものであるため未だ確立されていないが、図 4.2-2 に示すモデルが概括的な発生機構として研究者の合意を得ているとされている（文献 [4-2-3]）。

すなわち、

- (1) 高温液体と低温液体が相互粗混合状態と呼ばれる初期状態にあり、混合されているものの安定した蒸気膜で隔離されている。（初期粗混合）
- (2) 熱的あるいは機械的誘因が作用(triggering)して、蒸気膜が崩壊し両液体が直接接触する。（膜沸騰の不安定化）
- (3) その結果、斉時的に大量蒸気発生を起こし蒸気爆発に至る。（微混合と急速伝熱ならびに伝播）

というものである。従って、相互粗混合状態、蒸気膜崩壊誘因とが必要条件と考えられている。

図 4-2-2 に示す様に、蒸気膜崩壊によって引き起こされる“液液接触”から“急速な蒸気生成”に至る過程において、2つの代表的なモデルがある。一つが Fauske による“自発核生成モデル”であり、他方が Board & Hall による“圧力誘起デトネーションモデル”である。

A-1. 自発核生成モデル

液液接触時の境界温度(T_i)が低沸点液体（水）の自発核生成温度(T_{sn})より高いことが必要条件である。

- (1) $T_i < T_{sn}$ の場合や、系の圧力が臨界圧力より高い場合は蒸気発生が無く蒸気爆発は発生しないこととなる。
- (2) しきい温度として自発核生成温度よりライデンフロスト温度あるいは膜沸騰下限温度とすべきとの意見もある。

A-2. 圧力誘発デトネーション

図 4.2-3 が、このメカニズムの概略を示している（文献 [4-2-3]）。初期圧力トリガが蒸気膜を崩壊させ、その結果発生した衝撃波が粗混合状態の2液の中を通過し、密度差による伝播速度の違いで微粒子化(fine-scale-fragmentation)が発生すると考えている。

このモデルが成立するためには、微粒子化に要する時間が衝撃波通過時間より短い必要があるが、系に依存し場合に依っては衝撃波を維持する条件が満足されないと言う批判もある。別の研究では、充分速く微粒子化が起こるもののテイラー型不安定性が支配的と言う報告もあり、微粒子化のメカニズムについても議論がある。

微粒子化モデルの中に蒸気膜崩壊モデルがある。このモデルは、直接接触が生じ、膜沸騰から遷移沸騰へと伝熱機構が移行する時の大量の蒸気発生で微粒子化する violent boiling モデルが代表的で、高温液体の融点が低温液体の膜沸騰下限温度より高い場合、高温液体温度が低温液体の臨界温度より高い場合は微粒子化が発生しないことになる。

B. 水蒸気爆発の実験事実

[1] Akiyoshi ら (文献 [4-2-4])

この文献では、蒸気膜中に非凝縮性気体があれば、蒸気爆発が抑制されることを議論しており、水中にスズの熔融液滴を落下させて実験している。スズ温度を 400～800℃にとり、水温度を 20～80℃まで 20℃刻みに変化させている。非凝縮性気体があれば蒸気爆発が抑制されること確認している。水温が 80℃では蒸気爆発が発生しないと報告。

[2] 木下ら (文献 [4-2-1])

本文献は FBR 用蒸気発生器を、鉛・ビスマス-水の直接接触熱交換で行おうとする場合の各種問題点等の報告。

蒸気爆発に関しては、熔融鉛・ビスマス液面に水滴を落下させる実験をしている。鉛・ビスマス温度、水滴温度、雰囲気圧力をパラメータとしている。鉛・ビスマス温度が自発核生成温度～臨界温度に相当する約 400～500℃の範囲でスプラッシュ現象が起こり、雰囲気圧力が高いとスプラッシュ現象は発生しないと報告している。

計画の FBR 用蒸気発生器の運転圧力が 10 MPa にもなるため、蒸気爆発は起こり得ないと結論づけている。

滴下モード水蒸気爆発試験装置の概要を図 4.2-4 に、実験結果の一例としてスプラッシュ現象発生条件を図 4-2-5 に示す。

[3] Matsumura ら (成合理論／文献 [4-2-5])

線形不安定性に基づく蒸気爆発の発生限界を求めて、熔融スズ液滴落下試験での

結果と比較している。実験では落下高さの影響が大きい。結果は図 4.2-6 で、基本的に TIZ (Thermal Interaction Zone/図 4.2-7) の範囲と考えられる。

[4]宮崎ら (文献 [4-2-6])

鉛-水系で、熔融鉛滴下、水注水の 2 通りの実験を鉛温度 400~800℃、水温度 20~飽和温度の条件で行い、熔融鉛落下では蒸気爆発なし、水注水では一部発生した (図 4.2-8)。但し、確率的要素も含まれている。

[5]熔融金属における水蒸気爆発 (文献 [4-2-7])

多くの実験結果がまとめられており、以下の結論が得られている。

- (1) 蒸気爆発の発生は確率的で、同一条件でも発生する場合としない場合がある。
 - (2) 接触のさせ方で、発生確率と状況が変化する。
 - (3) 衝撃を与えることで発生確率は高まる。
 - (4) 接触から爆発発生までに遅れがある。
 - (5) 蒸気爆発が発生した場合は、高温液は細粒化・広表面積化して凝縮している。
 - (6) 圧力を高めると蒸気爆発は発生しない。
 - (7) 蒸気爆発を発生させる高温液温度に上限・下限がある。
 - (8) 低温液温度にも上限・下限があり、飽和温度に近くなると蒸気爆発は起こり難くなる。
 - (9) 高温液表面温度が凝固点以下になれば、蒸気爆発は起こり難い。
 - (10) 蒸気膜中の非凝縮性気体の存在は、蒸気爆発を抑制する効果がある。
 - (11) 小規模実験の結果をそのまま大規模事象に適用出来ない場合がある。
- この様に現象的にはかなり詳しく蒸気爆発の挙動が把握されていると言える。

C. 水蒸気爆発の形態

日本原子力研究所報告の文献 [4-2-8] では、水蒸気爆発が起こる形態には、(1)滴下モード、(2)層状モード、(3)注入モード (冷却材注入、高温物注入) があるとしている。これらの内、滴下モード水蒸気爆発に関する実験的研究はかなり実施されているが、注入モードでの研究は多くないとしている。

この分類に従えば、B 節での文献 [4.2-4], [4.2-1], [4.2-5], [4.2-6] の実験結果は、全

て滴下モードでの研究結果である。

D. 文献調査のまとめ

調査の結果から以下が得られた。

- (1) 滴下モードの検討はかなり実施されているが、その他のモードに関する検討例は少ない。
- (2) 滴下モードの結果では、高温液のある温度範囲において蒸気爆発が発生する、低温液温度においても同様の発生温度範囲がある。
- (3) 圧力が高くなると蒸気爆発は発生しない。
- (4) 蒸気爆発のメカニズムについては、概略については同意されてはいるが、詳細では幾つかの意見があり、どの考え方が正しいとは言えない。
- (5) 蒸気爆発によるエネルギー変換率・発生圧力に関するデータはあまり多くない。
- (6) 実験結果に基づいて実際の現象を予測する場合には、慎重を期する必要がある。

(4) 核変換炉で想定される水蒸気爆発

A. 水蒸気爆発のモード

未臨界核変換炉の概略フローの一例を、図 4.2-9 に示す。例として、熔融金属(330～430℃)と水(220～285℃、70 atg)が接触する形態は、冷却管に亀裂が生じるあるいは破断することで熔融金属中に水が(連続的に)噴出する場合と想定することが出来る。熔融重金属冷却高速炉の場合でも蒸気発生器の位置づけは、同じと想定される。すなわち、起こり得る水蒸気爆発モードは、冷却材注入モードである。

この冷却材注入モードでの水蒸気爆発に関する研究は、滴下モードでのそれと比較して多くはない。文献[4-2-8]には、熔融スズ中に水を注入する場合の研究のレビューが示されており、滴下モードの場合と同じ様にある特定の温度範囲で水蒸気爆発が観察されたとされている。その実験装置の模様を図 4.2-10 に示す。

B. 核変換炉固有の鉛・ビスマス-水の接触形態

図 4.2-9 に示した炉において、熔融金属と水が接触する形態では以下のことが想定される。

- (1) 二次冷却材循環圧力を高く設定しているため、冷却伝熱管に破断等が生じ

た場合、加圧飽和水である冷却材はフラッシュし、蒸気発生があると考えられる。これによる攪拌効果も考えられる。

(2) 基本的に連続的に冷却材が熔融金属中に噴出するので、噴流に依る攪拌効果がある。

(3) 冷却材が噴出する雰囲気圧力は、熔融金属の水頭圧力はあるが、場所によってはあまり高くない。(蒸気爆発の可能性が高くなる)

従って、ここで想定される現象は、今まで研究されてきた実験的研究と異なっていると考えられる。すなわち、(1)液滴一個を滴下する様な滴下モードの接触ではない、(2)連続注入による機械的攪拌効果があると想定される、(3)雰囲気圧力が特に高くない場合もあり、(4)加圧飽和水の注入でフラッシュ現象が起こると想定される、と言った特徴があると考えられる。

この様な状況を考えると、文献[4-2-1]に述べられている滴下モード実験から得られた結論を基にした圧力が高い場合には水蒸気爆発の可能性は小さいとしていることを、そのまま適用できるか検討の必要があると考えられる。

以上に示したとおりADSでは、冷却材である鉛・ビスマスとSGにて熱交換する水が、漏洩事故等で万一接触する場合、水との急激な相互作用生じているデータはいくつか得られているが、発生条件は必ずしも明確ではない。

過去に水との急激な相互作用は種々研究されており、様々の知見が得られている。熔融金属に水滴をあるいは水に熔融金属滴を落とす実験では、熔融金属のある温度範囲で水との急激な相互作用が起こり、雰囲気圧力が高められると急激な相互作用が抑制されるという結果が得られている。しかしこのような現象は高速であるため、発生のメカニズムが完全に解明されている訳ではない。

ADSで、高温熔融金属と被加熱材が接触する場合は、熔融金属中に水が噴出する事が想定され、接触モードは注入モードである。

注入モードにおける水との急激な相互作用は、落下モードなどと比較して研究例が少ない。従って今後加速器駆動核変換システムの開発に際して安全性の観点から、注入モードにおける現象の解明が望まれる。

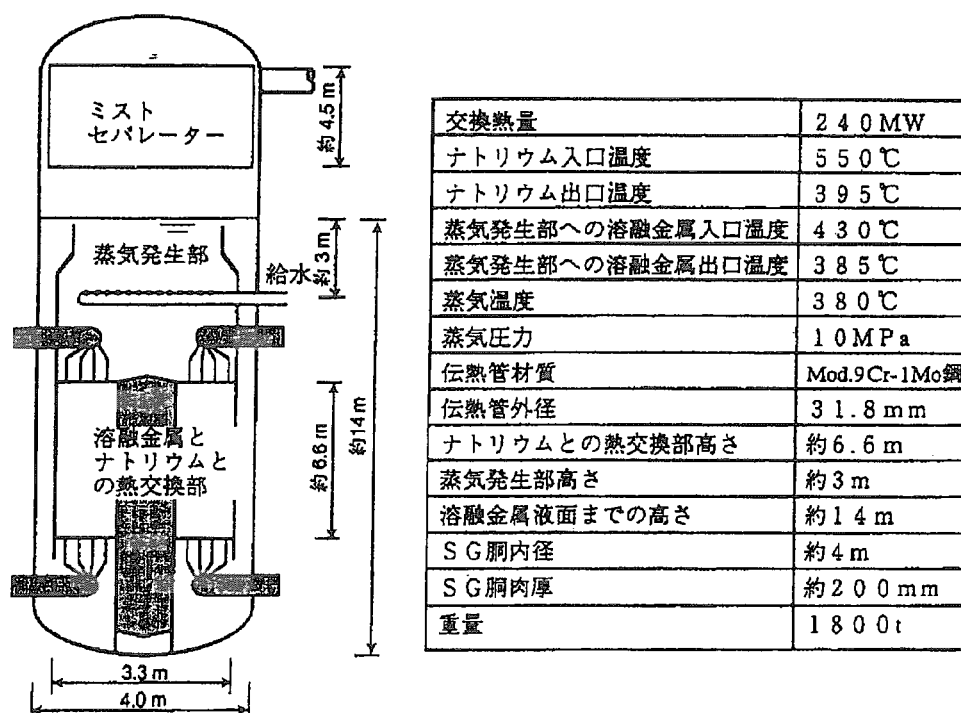


図 4.2-1 高速炉用直接接触型蒸気発生器の概要

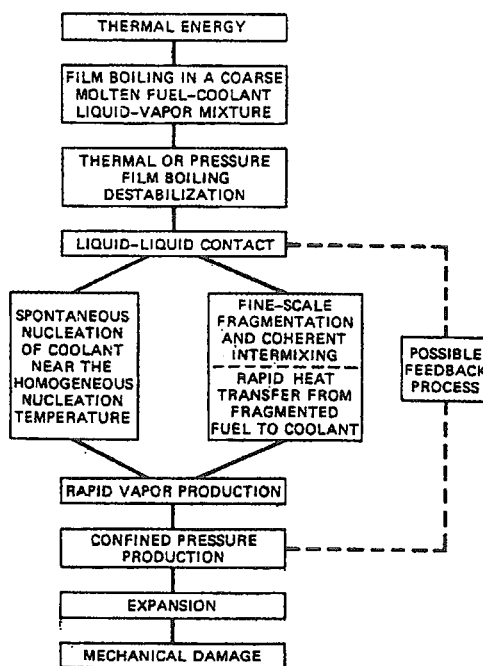


図 4.2-2 蒸気爆発機構の概略

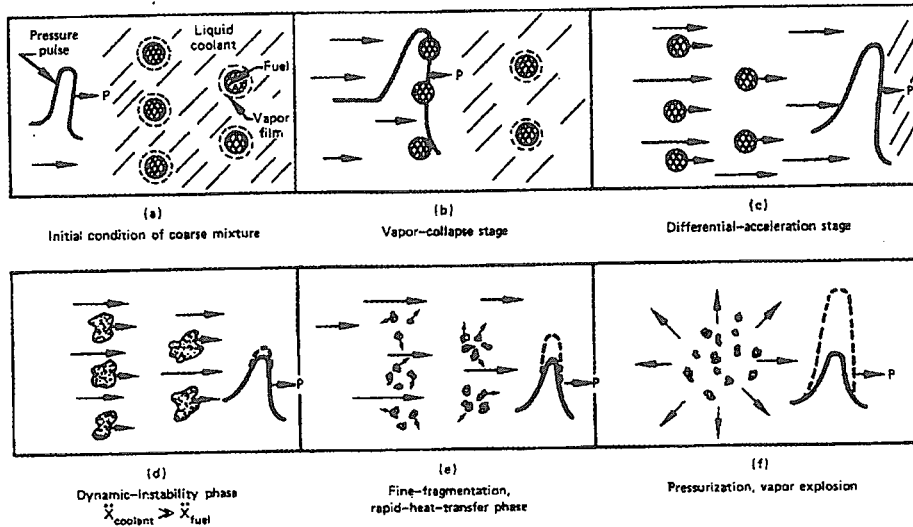


図 4.2-3 圧力誘起デトネーションモデルの概要

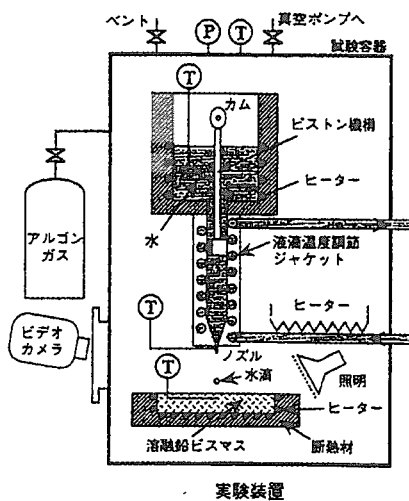


図 4.2-4 蒸気爆発試験装置

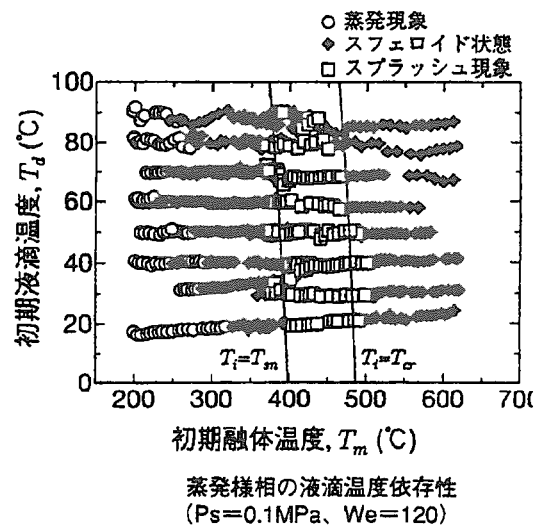


図 4.2-5 スプラッシュ現象発生条件

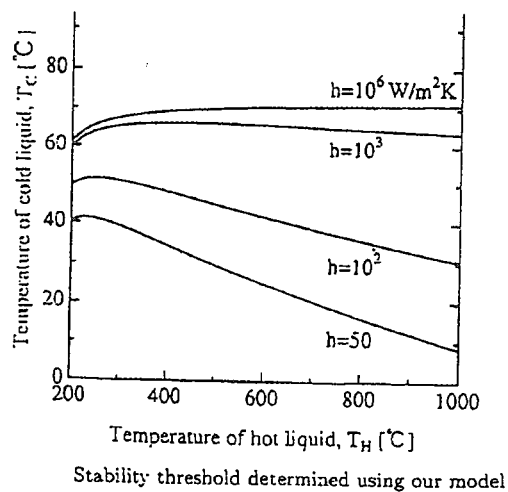


図 4.2-6 理論予測（線より下で爆発発生）

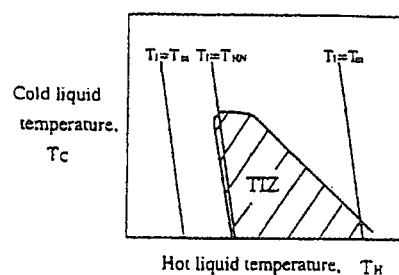


図 4.2-7 TIZ の概念図

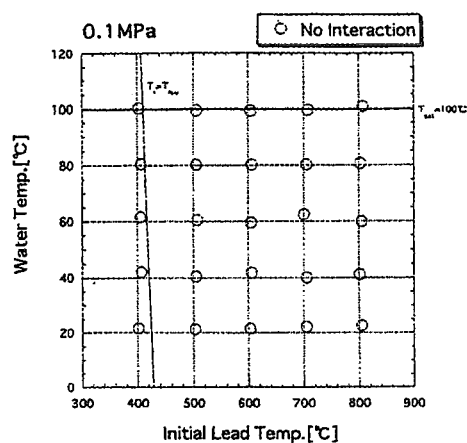


図 4.2-8(a) 溶融鉛落下試験結果

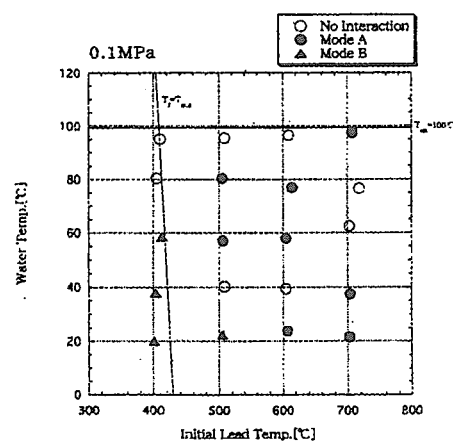


図 4.2-8(b) 水注水試験結果

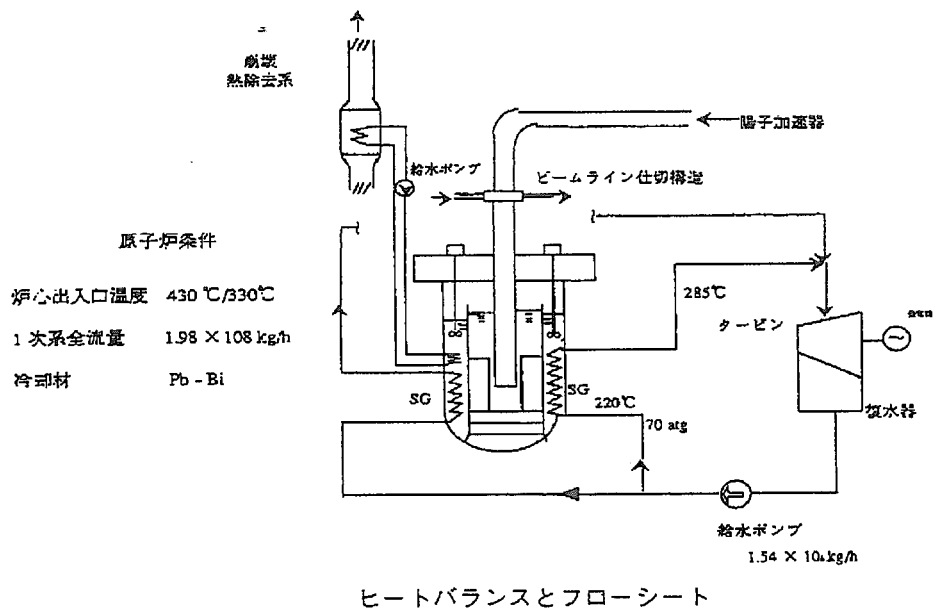


図 4.2-9 核変換炉のフロー（例）

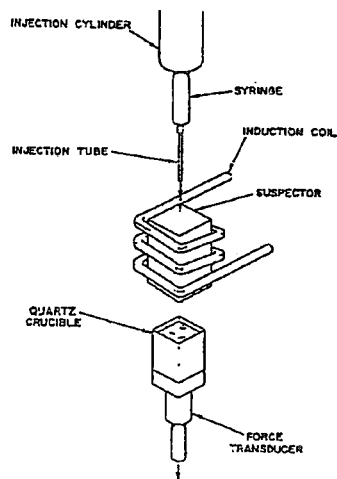
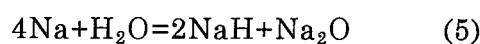
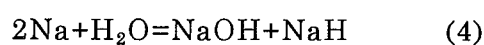
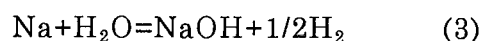
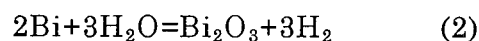
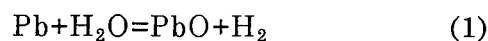


図 4.2-10 冷却材注入モードで蒸気爆発試験

(5) その他の反応

純 Pb、純 Bi と水との反応に関して平衡熱力学計算により評価した結果を以下に示す。反応は下式を想定し、水素の発生量について Na との比較を行った。Na は水との量比、温度範囲で数種類の反応形態が予想される。ここでは下記の 3 種類の反応を仮定した。平衡計算であるため、100℃以上では、水是水蒸気としている。



各反応により生成する水素量の計算結果を図 4.2-11 に示す。

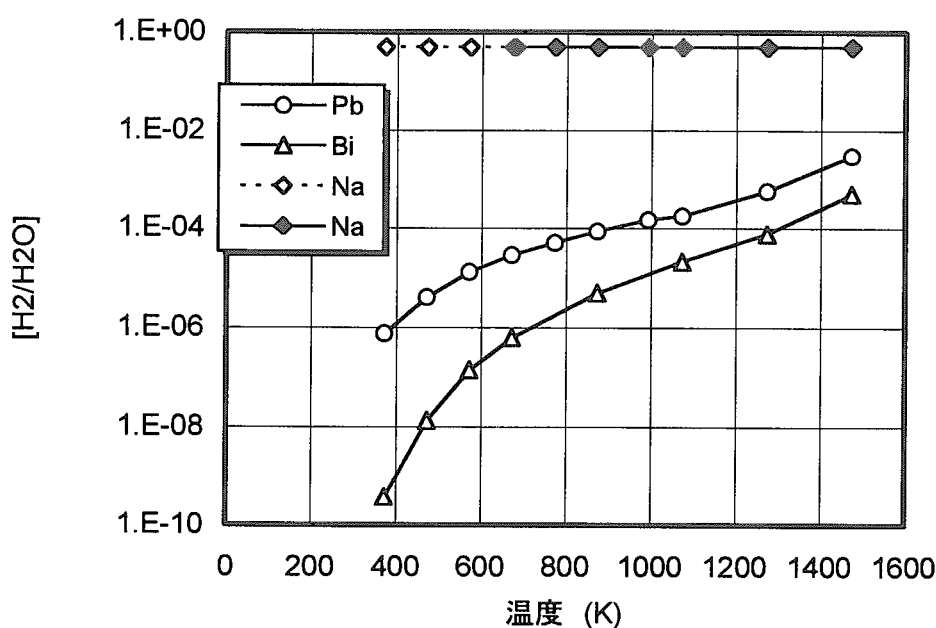


図 4.2-11 Pb、Bi、Naと水との反応による水素発生量

図の縦軸は水に対する水素の発生量を、横軸は温度(K)を示している。水素発生量は温度上昇とともに増加しており、Bi より Pb の方が多くの水素を発生することがわかる。また、500℃において Pb、Bi が水 1mol と反応して発生する水素量は、それぞれ約 5×10^{-6} mol、 2×10^{-6} mol と非常に少ない。Pb-Bi 共晶合金も同様であると考えられる。一方、Na では約 400℃以上において NaH の分解反応($\text{NaH} = \text{Na} + 1/2\text{H}_2$)が生ずるため、水 1mol に対して 0.5mol の水素が発生する。また、400℃以下においても(3)の反応により 0.5mol の水素が発生する可能性がある。

(1)から(3)の反応を想定して、500℃における水との反応性を比較した結果を図4.2-12に示す。横軸は反応の平衡定数の対数(反応のしやすさ)を、縦軸は反応のエンタルピー(反応の大きさ)を示している。Pb、Biの平衡定数は 10^{-4} 以下である。このことからPb及びBiの水との反応性はNaと比較して極端に低いと予想される。水との反応によるエンタルピーもNaに比べて著しく小さく、大きな発熱を伴う反応は生じないと予想される。Pb-Bi共晶合金も同様であると考えられ、水との化学的反応性はNaと比較して著しく低いと予想される。

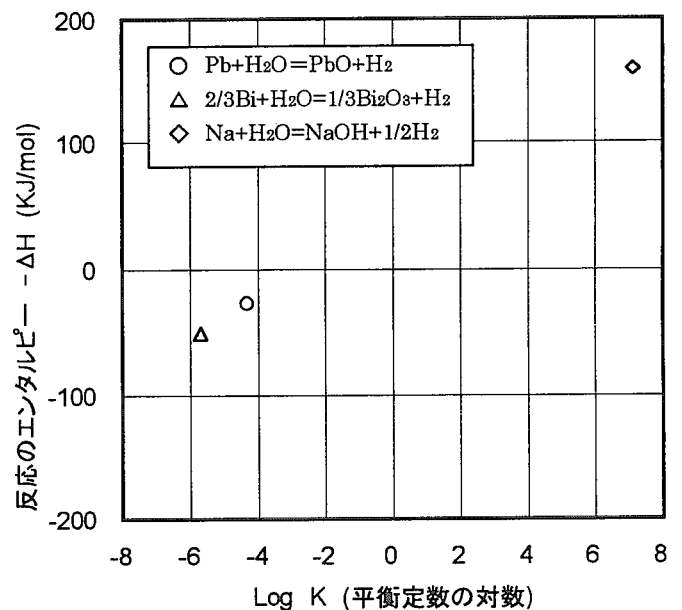


図4.2-12 Pb、Bi、Naの反応性の比較 (500℃)

液体金属冷却材とコンクリートとの反応に関しては、下記の反応形態が考えられる。

- ① コンクリート中の水分と液体金属冷却材との反応
- ② コンクリート原料(セメント、砂、碎石など)が液体金属冷却材により還元される反応
(液体金属冷却材がコンクリートにより酸化される反応)
- ③ コンクリート原料と液体金属冷却材が複合酸化物を形成する反応
- ④ 漏洩した液体金属冷却材が大気中で酸化し、この酸化物がコンクリート原料と複合酸化物を形成する反応

各反応形態について検討した結果を以下に示す。

- ① コンクリート中の水分と液体金属冷却材の反応

前述の水との反応と同様であり、Pb-Bi共晶合金の反応性は極めて低いと予想される。また、コンクリート中の結晶水に対しては、さらに反応性が低くなると考えられる。

- ② コンクリート原料(セメント、砂、碎石など)が液体金属冷却材により還元される反応

(液体金属冷却材がコンクリートにより酸化される反応)

液体金属がコンクリートにより酸化されるか否かは、酸化物の標準生成自由エネルギー ΔG° (酸化物の安定性) を比較することにより判断できる。 ΔG° が小さいほど酸化物として安定であり、酸化されやすい。液体金属冷却材である Pb、Bi、Na の ΔG° を図 4.2-13 に示す。図 4.2-13 には、コンクリートの原料である $3\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$ 、 $2\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2$ 、 $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ (セメントの主原料) や SiO_2 、 Al_2O_3 、 Fe_3O_4 (砂の原料) の ΔG° も併せて表示した。図の横軸は温度 (K) を示し、縦軸は酸化物の安定性の指標である ΔG° を示している。

Bi 酸化物 (Bi_2O_3) と Pb 酸化物 (PbO) は他の酸化物より ΔG° が大きい。また、コンクリート (砂) の成分と考えられるその他の複合酸化物 ($\text{ZrO}_2 \cdot \text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$ 、 $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) の ΔG° も Pb 酸化物、Bi 酸化物より小さく安定である。このことは Bi や Pb がコンクリートと接触しても酸化反応が生じにくいことを意味している。Pb-Bi 共晶合金も同様に、コンクリートによる酸化反応は生じにくいと予想される。

一方、 Na_2O は Fe_3O_4 より ΔG° が小さく、コンクリート中に Fe_3O_4 が含まれた場合、Na の酸化反応が生ずると予想される。

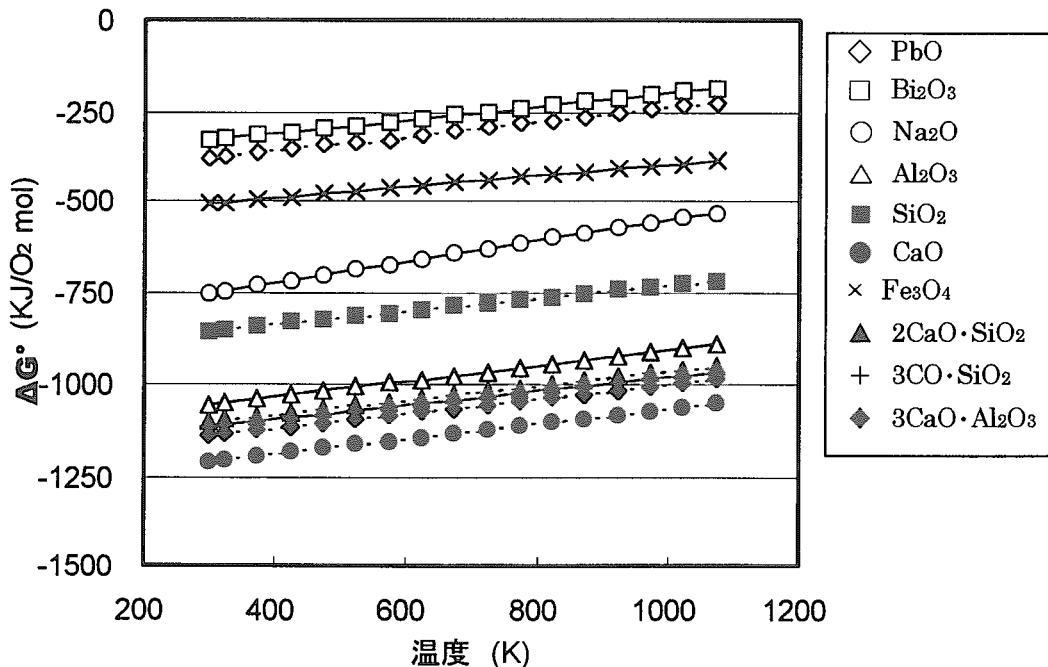


図4.2-13 各種酸化物の標準生成自由エネルギー

③ コンクリート原料と液体金属冷却材が複合酸化物を形成する反応

調査した範囲では、Pb あるいは Bi がコンクリート原料と反応して複合酸化物を形成する反応は、認められなかった。同様に、Pb-Bi 共晶合金が複合酸化

物を形成する反応がおこる可能性は低いと考えられる。一方、Na はコンクリート原料と反応して種々の複合酸化物を形成する。500℃におけるコンクリート原料との反応の一例を表 4.2-1 に示す。表 4.2-1 には各反応の Log K(平衡定数の対数)と ΔH (エンタルピー：負の値をとる場合、発熱反応)を示した。SiO₂ や Fe₃O₄ と複合酸化物を形成する反応においては、平衡定数、反応のエンタルピーともに大きい。したがって、コンクリート中に SiO₂ や Fe₃O₄ が含まれる場合、激しい発熱をともなった反応が予想される。

表 4.2-1 Na とコンクリート原料との反応の一例 (500℃)

コンクリート原料	反応式	Log K (平衡定数の対数)	ΔH (kJ/mol)
SiO ₂	$3\text{SiO}_2 + 4\text{Na} = 2\text{Na}_2\text{SiO}_3 + \text{Si}$	20.5	-386.9
Al ₂ O ₃	$2\text{Al}_2\text{O}_3 + 3\text{Na} = 3\text{NaAlO}_2 + \text{Al}$	2.5	-63.9
Fe ₃ O ₄	$\text{Fe}_3\text{O}_4 + 4\text{Na} = 2\text{Na}_2\text{FeO}_2 + \text{Fe}$	26.7	-439.1

④ 漏洩した液体金属冷却材が大気中で酸化し、この酸化物がコンクリート原料と複合酸化物を形成する反応

500℃における PbO、Bi₂O₃、Na₂O とコンクリート原料との反応を表 4.2-2 に示す。調査した範囲では、Bi₂O₃ が複合酸化物を形成する反応は認められなかった。また、PbO に関しても、SiO₂ との反応により PbSiO₃ を形成する反応が認められただけである。PbSiO₃ を生ずる反応では平衡定数、 ΔH ともに低く、反応が生じたとしても穏やかな反応であろうと考えられる。一方、Na₂O はコンクリート原料と反応して種々の複合酸化物を形成する。平衡定数、反応のエンタルピーともに大きく、コンクリート中に SiO₂、Al₂O₃、Fe₃O₄、Ca₂SiO₄ が含まれる場合、激しい発熱をともなった反応が予想される。

Pb および Bi について水やコンクリートとの化学反応を平衡熱力学計算により検討した。実験データではないが、これらの結果から判断すると、Pb-Bi 共晶合金では激しい反応は生じないであろうと予想される。

以上の結果、その他の反応としては以下のとおりまとめられる。

平衡熱力学計算により熔融 Pb-Bi 共晶合金と水及びコンクリートとの反応性について Na との比較を実施した。平衡熱力学計算であるため速度的な考慮はしていない点や純 Pb、純 Bi の熱力学データを用いているなどの仮定はあるが

以下の結論を得た。

- ① Pb-Bi 共晶合金の水(水蒸気)との反応による水素発生量は、極少量(500℃において水 1 モルに対して水素発生量は 10^{-4} モル以下)であり、Na 比較してはるかに少ないと考えられる。
- ② 水との反応性を反応の平衡定数とエンタルピーから推定すると、Pb-Bi 合金は Na と比較して非常に不活性であると考えられる。
- ③ コンクリートとの反応を酸化物の標準生成自由エネルギーと反応の平衡定数、エンタルピーから判断すると、熔融 Pb-Bi 共晶合金とコンクリートが接触した場合、激しい反応は起こらないであろうと考えられる。

以上のことから熔融 Pb-Bi 共晶合金は水及びコンクリートに対して反応性は低いと予想される。

表 4.2-2 液体金属酸化物とコンクリート原料との反応の一例 (500℃)

液体金属 酸化物	コンクリート 原料	反応式	Log K	ΔH (kJ/mol)
PbO	SiO ₂	SiO ₂ +PbO=PbSiO ₃	1.2	-17.0
Na ₂ O	SiO ₂	SiO ₂ +Na ₂ O=Na ₂ SiO ₃	15.5	-228.5
	Al ₂ O ₃	Al ₂ O ₃ +Na ₂ O=2NaAlO ₂	13.0	-178.8
	Fe ₃ O ₄	Fe ₃ O ₄ +2Na ₂ O=2NaFeO ₂ +Na ₂ FeO ₂	15.6	-223.3
	Ca ₂ SiO ₄	Ca ₂ SiO ₄ +Na ₂ O=2CaO+Na ₂ SiO ₃	6.4	-88.9

参考文献

- [4-2-1] 木下 泉、西 義久、古谷 正裕；「FBR 用直接接触伝熱型 SG の成立性評価」、電力中央研究所報告／総合報告 T49、平成 9 年 6 月
- [4-2-2] A.V.Bezonosov, K.B.Veshnyakov and V.E.Serov; "Basic Concepts for the Liquid-Metal Target Loop for Accelerator-Controlled Reactors", Atomic Energy, Vol.81, No.3, pp.647-650, 1996
- [4-2-3] A.W.Cronenberg; "Recent Developments in the Understanding of Energetic Molten Fuel-Coolant Interactions", Nuclear Safety, Vol.21, No.3, pp.317-337, 1980
- [4-2-4] R.Akiyoshi, S.Nishio and I.Tanasawa; "A study on the effect of

- non-condensable gas in the vapor film in vapor explosion", Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.33, No.4, pp.603-609, 1990
- [4-2-5] K.Matsumura and H.Nariai; "Self-Triggering Mechanism of Vapor Explosions for a Molten Tin and Water System", J. of Nuclear Science and Technology, Vol.33, No.4, pp.298-306, 1996
- [4-2-6] 日本原子力産業会議関西原子力懇談会 ; 「液体金属技術の先進原子力応用に関する調査 (最終報告書)」、平成 11 年 3 月
- [4-2-7] 三井造船社内資料「蒸気爆発」、p.330-345
- [4-2-8] H.Park, N.Yamano, Y.Maruyama, K.Moriyama, T.Kudo and J.Sugimoto; "Reviews of Experimental Studies on Various Geometrical Contact Modes in Vapor Explosion", 日本原子力研究所 JAERI-Review 96-018, 1996

4. 3 伝熱・流動特性

(1) 熔融液体金属の一般的伝熱・流動特性

文献 [4-3-1] に、執筆時点における“液体金属の熱伝達（相変化なしの場合）”に関する広範な解説が見出される。この中に、液体金属の熱伝達に関する基本事項が記述されており、この文献に示されている結果を中心として、液体金属における熱伝達の概要を以下にまとめる。

A. 液体金属と普通流体の熱伝達の比較

普通流体では、乱流の場合、熱が巨視的には主として流れの乱れによって輸送されるのに対して、液体金属の場合はその熱伝導率が大きいために、さらに熱伝導による熱輸送が加わると言う大きな違いがある。

乱流境界層の速度分布を図 4.3-1 に示す。壁面から摩擦層、遷移層、乱流域と三つの部分に分類できる。普通流体の場合であれば、乱流域における熱輸送は乱流の渦運動が支配的であるが、液体金属の場合は乱流域でも熱伝導そのものによる熱輸送が無視できない程度の効果を持っている。円管内乱流の温度分布に対するプラントル数の影響を、図 4.3-2 に示す。熱伝導による熱輸送の結果プラントル数が小さくなれば、壁面温度の影響がより中心部分まで及んでいることが分かる。

A-1. 加熱条件の違いによる熱伝達特性に対するプラントル数の影響

熱流束一定の条件で加熱した場合と、温度一定で加熱した場合とでの熱伝達率の違いは、プラントル数が小さくなるほど拡大する傾向にある。(図 4.3-3)

普通流体の場合は、加熱条件の違いによる差は空気の場合でも 5 % 程度以下であるが、プラントル数が小さい場合は、熱流束一定の条件の方が約 30 % 程度大きくなることもある。但し、流速が大きくなれば（レイノルズ数が大きくなれば）、その差は小さくなる傾向である。

A-2. 温度助走区間に及ぼす影響

図 4.3-4 に温度助走区間長さに対するプラントル数・レイノルズ数の影響を示す。プラントル数が小さくなって液体金属の場合に近づくと、流速が小さい場合は大きな差がないものの、流速が大きくなれば流れ方向における熱伝導による熱輸送の効果が顕著になり、温度助走区間が伸びることが示されている。

B. 円管内熱伝達理論式と実験結果の比較

液体金属の場合の円管における熱伝達相関式として、Martinelli-Lyon の式と言う理論式が提案されている。しかし、この式から予想される熱伝達率と各種実験結果には大きな違いがあり、大抵の場合 Martinelli-Lyon の式は大きな値を与えていた。

$$Nu = 7 + 0.025Pe^{0.8}$$

この違いを説明するために以下に列記する各種検討が実施された。

- ・液体金属と固体壁の濡れ性
- ・壁面の酸化膜、異物質層による熱抵抗
- ・封入ガスの混入による影響
- ・溶存酸素および酸化物の影響
- ・渦温度伝導率と渦動粘性係数の比の効果

最初から4項目までは実験面での検討であり Martinelli-Lyon 式との違いを考慮するものであるが、最後の項目は Martinelli-Lyon 式の妥当性を検討しようとするものである。

結論としては、主として溶存酸素濃度の影響があると推定されている。実験結果の例を図 4.3-5 に示す。図からも分かるとうり、溶存酸素量が 0.003% 以上になると清浄な場合と比較して熱伝達率が低下する。検討の結果液体金属と壁面境界における熱抵抗が、ほぼ摩擦層の厚さに比例し、その摩擦層内に液体金属より小さい熱伝導率を持つ酸化物の微小粒子が澱んでいると推定されている。

また、封入ガスの影響も若干含まれるとしている。

C. 液体金属の熱伝達率

文献[4-3-1]では、前節の円管内熱伝達率に加えて、自然対流（広い空間、狭い流路）、二重円管、平行平板、棒束における熱伝達率が議論されている。

原子炉あるいは核変換炉においては、液体金属が円管内を流動する場合よりも、伝熱管管群あるいはヘリカルコイル伝熱管の外部流れでの熱伝達が重要となる。

棒束に平行な流れでの熱伝達を、図 4.3-6 と図 4.3-7 に示す。図 4.3-7 は配列ピッチの影響を示す。同一流量の場合、三角配列の方が約2倍以上良い。直交流の場合を図 4.3-8、4.3-9 に示す。

電中研では、鉛・ビスマスを中間熱媒体とした高速増殖炉用熱交換器の検討を実施しており（文献[4-3-2]）、その中で単管の外側熱伝達率の計測を実施した。結果を図 4.3-10 に示すが、ナトリウムに関する同様の実験結果と比較して、約 10 ～ 20 % 程度低い熱伝達率であった。この原因は、鉛・ビスマスの濡れ性が悪いため生じたもので、鉛・ビスマスの場合は既存の熱伝達相関式を適用する場合は注意すべきであるとしている。

D. 鉛・ビスマスの熱物性値

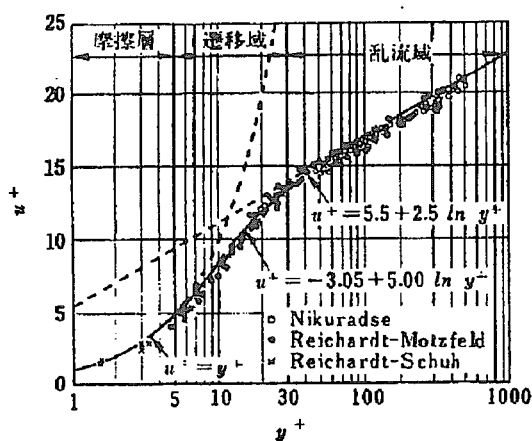
熱流動特性を評価する上で必要になる流体の熱物性値は、次の諸量である。

- ・ 密度
- ・ 粘性係数
- ・ 比熱
- ・ 熱伝導率
- ・ 体積膨張率

その他に、動粘性係数、温度伝導率、プラントル数が必要になる場合も想定されるが、これらは上記の物性値より評価可能である。これらは、伝熱工学資料（改訂第 4 版）に主要な温度における値が示されている。なお、体積膨張率は、密度の温度変化の逆数であらわされるので、既知のデータとした。

次に、鉛・ビスマス熔融金属を熱交換媒体とする伝熱機器を設計する場合に、既存の伝熱相関式を用いる時は、採用する相関式のデータがどのような状況で採取されたものであるか、十分に注意する必要があるであろう。すなわち、熔融金属中の溶存酸素濃度に熱伝達が影響されると考えられているからである。（実験で採取されるデータは、仮に溶存酸素で境界層内に酸化物粒子がある場合であれ、固体酸化皮膜がある場合であれ、それらの影響を含んでいると理解するのが妥当と考えられる。）

なお、実験によって伝熱特性を求める場合には、溶存酸素濃度をパラメータとするのでなければ意味がないであろう。ただ、酸素濃度を酸化皮膜が成長しない（腐食を起こさない）、ある限られた（実際に適用される）条件とすべきと考える。仮に、実験データが酸素濃度制御が行われずに採取されたことが明らかであれば、低い熱伝達率が推定されることになるので、安全側の設計となろうが、程度の問題であり、実条件での伝熱相関式が必要なことは当然である。これらは、今後明確にすべき課題と考える。



乱流境界層における速度分布

図 4.3-1 乱流境界層の速度分布

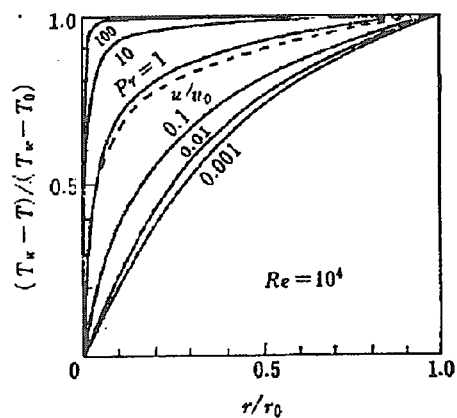
円管内乱流における速度分布と
温度分布
 r_0 : 円管半径, r : 管壁からの距離

図 4.3-2 円管内流れの温度分布

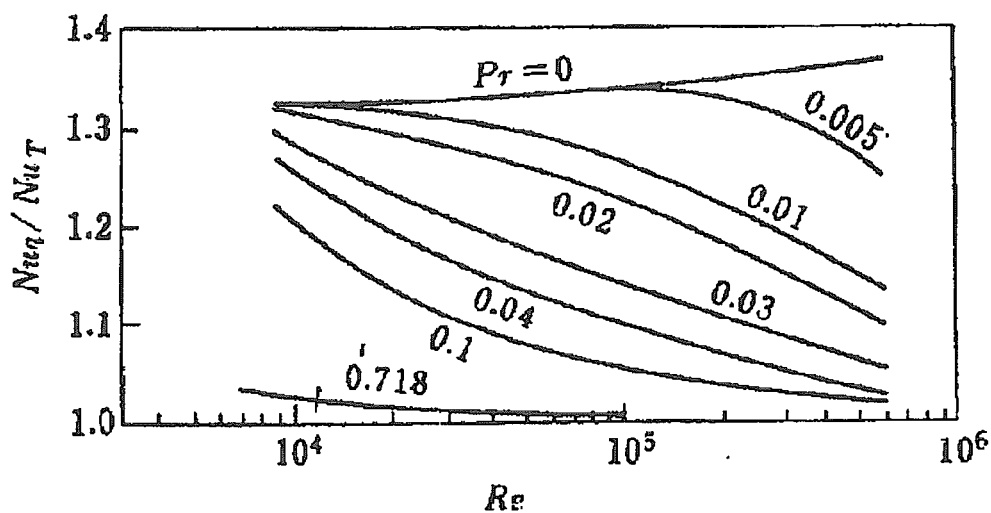
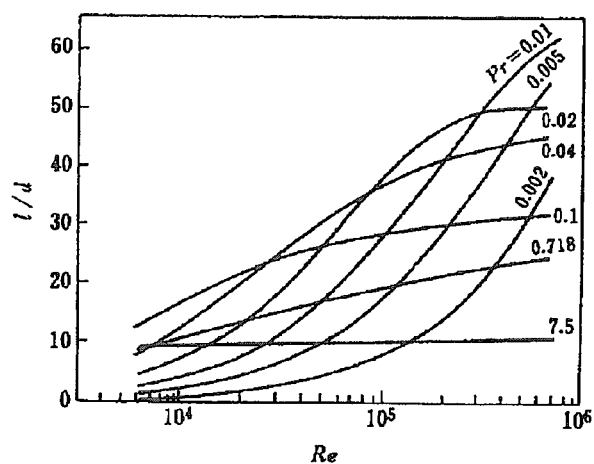
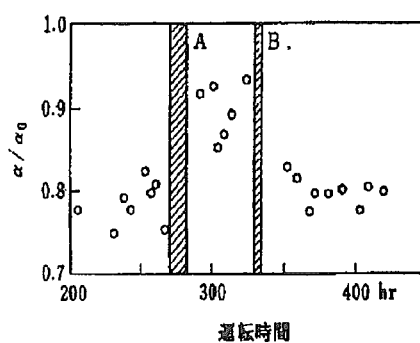
熱流束一定の場合の Nu 数 (Nu_q) と壁面温度一定
の場合の Nu 数 (Nu_T) の比に及ぼす Re 数および
 Pr 数の影響

図 4.3-3 加熱条件の熱伝達に与える影響



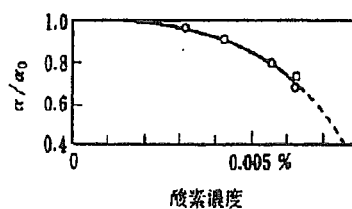
壁面温度一定の円管内流における Nu 数が発達した円管内流の Nu 数の 1.02 倍になるまでの助走区間距離に及ぼす Re 数および Pr 数の影響

図 4.3-4 温度助走区間長さに対するプラントル数の影響



A : フィルターで清浄化された NaK
B : 酸化物を加えた NaK

(1)

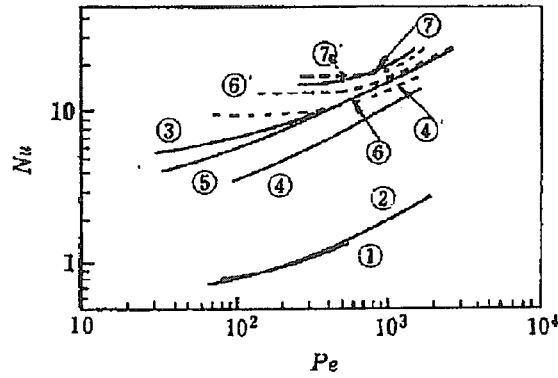


α/α_0 : 清浄化された NaK に対する熱伝達率の比

(2)

NaK の熱伝達に及ぼす酸化物と酸素濃度の影響

図 4.3-5 溶存酸素の熱伝達への影響



- 配列 P/d
- ① 四角 1.0 実験値
Ушаков и др. (Hg, NaK-S.S.)
 - ② 三角 1.0 実験値
Субботин и др. (Hg, NaK-S.S., NaK-Cu)
 - ③ 三角 1.2 実験値
Борищанский и др. (Na-Cu)
 - ④ 三角 1.2 実験値
Субботин и др. (Hg-S.S.)
 - ④' 三角 1.2 計算値 Dwyer .
 - ⑤ 三角 1.5 実験値
Борищанский и др. (Na-Cu)
 - ⑥ 三角 1.5 実験値
Субботин и др. (Hg-S.S.)
 - ⑥' 三角 1.5 計算値 Dwyer
 - ⑦ 三角 1.75 実験値 Kalish et al (NaK-S.S.)
 - ⑦' 三角 1.75 計算値 Dwyer

図 4.3-6 棒束の熱伝達（平行流）

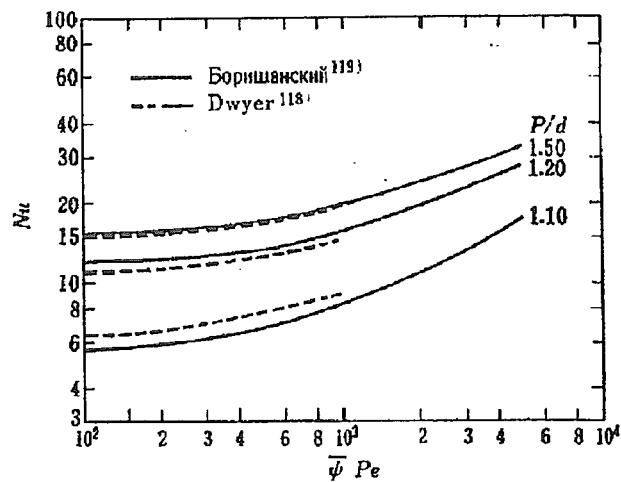
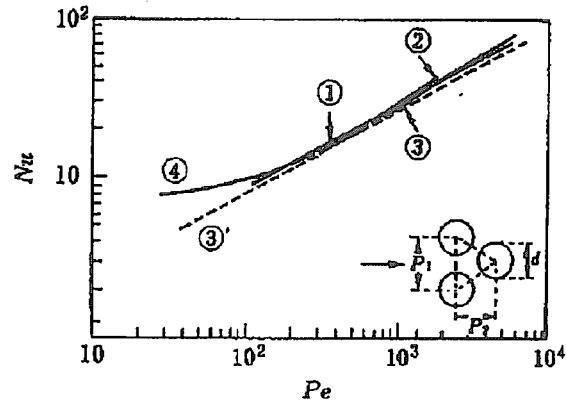


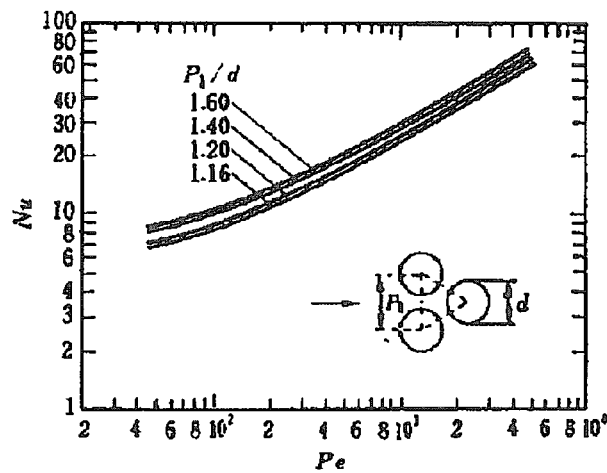
図 4.3-7 配列ピッチの影響（平行流）



棒束における直交流の熱伝達
(三角型配列)

	P_1/d	P_2/d	
① 実験値	1.20, 1.2, 1.3, 1.44, 1.5		
	Субботин и др. (Hg-Ni)		
② 実験値	1.38	1.19	Ное et al (Hg-Cu)
③ 実験値	1.38	1.19	Ricard et al (Hg-Cu, Cr)
③' 計算値	1.38	1.38	Нгу
④ 実験値	1.45	1.00	
	Борщанский и др. (Na-S.S.)		

図 4.3-8 棒束の熱伝達（直交流）



棒束における直交流の熱伝達に及ぼす P_1/d の影響（三角型配列）

図 4.3-9 配列ピッチの影響（直交流）

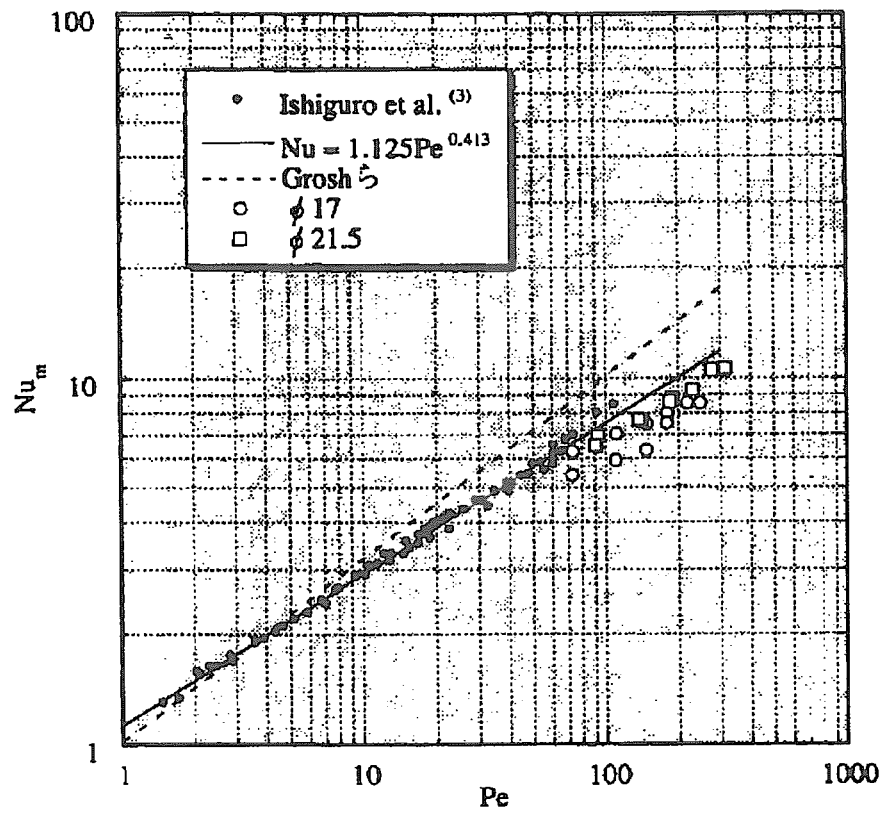


図 4.3-10 鉛・ビスマス中での単管まわりの熱伝達

(2) 製錬所廃熱回収システムにおける伝熱流動特性

1) 概要

本章では第2章で述べた国内取扱い施設の熔融金属からの熱回収時の伝熱特性について調査した結果について述べる。

本熱回収設備を設置するにあたり、熔融金属からの熱回収を行うための熱交換器の必要伝熱面積を決定するために小型試験設備、中型試験設備、実機規模試験設備の3通りの伝熱試験が行われた。

小型試験設備では熔融金属からの熱回収の可能性や問題点を把握するための基礎試験が行われた。中型試験設備では実際の熱交換器を設計するための基本的な伝熱特性を把握するための試験が行われた。また、実機規模試験設備では実機に用いられる熱交換器とほぼ同じ大きさ、構造の試験設備によって、実機の性能を予測するための試験が行われた。以下にそれぞれの内容について述べる。

2) 小型試験設備による基礎試験

a. 試験設備と試験条件

試験用の熱交換器の構造を図4.3-11に示す。伝熱管内流体を水、管外流体を熔融金属とし、熔融金属が管軸に直交して流れる形式のものであった。

水と高温流体の熱的な流動方式は向流とし、水は入口では常温、出口では過熱蒸気となる条件で試験が行われた。また、熔融金属は実際にロンダー内を流れている高温熔融鉛がそのまま用いられて熱交換器を通過し冷却される方式とされた。

小型試験設備による試験条件は表4.3-1のとおりであった。

表 4.3-1 小型試験設備計画条件

高温流体	種類	高温熔融	鉛+亜鉛
	入口温度	4 2 0	°C
	流量	1 0 0	t/h
低温流体	種類	水	
	入口温度	2 0	°C
	出口温度	3 7 0	°C
	出口圧力	0 . 4 5	MPa
	流量	5 0 0	kg/h

b. 試験結果

上記試験装置によって熱交換器における熱貫流率を求めた。その結果を図 4.3-12 に示す。なお、本試験時の条件は下記のとおりであった。

表 4.3-2 小型試験設備試験条件

熔融金属流速

節炭器部	0.040 m/s
蒸発器部	0.026 m/s
過熱器部	0.026 m/s

水側流速

節炭器部	0.52 m/s
蒸発器部	—
過熱器部	113 m/s

試験結果を評価するための熔融金属側の熱伝達率の計算は Dwyer, O.E. の実験式 [4.3-4] に依った。

本試験結果に依れば、蒸発部および過熱部では計算結果と試験結果が比較的良く合うことが分かった。節炭器部では試験結果は計算結果よりもかなり低い値となったが、これは節炭器部では管内流体の温度が低く、管表面温度が熔融金属の凝固点よりも低いために、厚い凝固した金属層が形成された結果ではないかと推察された。

本試験によって、基本的には熔融金属からの熱回収は可能であること、既存の伝熱計算式でほぼ妥当な伝熱性能が計算可能であることが確認された。

3) 中型試験設備による伝熱性能把握試験

a. 試験設備と試験条件

高温熔融金属から熱回収を行うための熱交換器を設計するための伝熱性能を予測するための最大の問題は、熔融金属から伝熱面への熱伝達率の予測法である。この熱伝達率を把握するために図 4.3-13 に示すような試験用の熱交換器を用いて試験が行われた。すなわち、本熱交換器は実機で採用した構造と同様の高温熔融金属に接する伝熱面は実機を想定して、鋼板製の平板状の箱体とし、この箱体の中に上下に蛇行する伝熱管を配し、箱体と伝熱管の隙間には Pb-Bi (50%) が充填され、この伝熱管に水を通して平板を冷却する構造が採用された。

試験はこの平板熱交換器を2枚用いて、これをロンダー中に流れている高温熔融鉛の中に直接浸漬して、その伝熱特性を測定した。合計の伝熱面積は 3.8m^2 試験時の流体条件は下表のとおりであった。

表 4.3-3 小型試験設備試験条件

熔融鉛温度	485 °C
冷却水流量	0.9 t/h
冷却水入口圧力	12 ata
冷却水出口圧力	10 ata
冷却水入口温度	24 °C
冷却水出口温度	179 °C (飽和温度の汽水混合物)
熔融金属流速	0.1 m/s

本試験で測定された平均の Heat flux は $14.5 \times 10^4 \text{ kcal/m}^2\text{h}$ であった。

また、熔融金属の温度は 485°C で一定とおき、水側は予熱部と蒸発部に分けて、それぞれの部分の対数平均温度差と伝熱面積から、それぞれの部分の熱貫流率が求められた。すなわち、予熱部および蒸発部の熱貫流率は外表面基準でそれぞれ約 $400 \text{ kcal/m}^2\text{h}^\circ\text{C}$ および約 $500 \text{ kcal/m}^2\text{h}^\circ\text{C}$ 程度であった。この熱貫流率の値は次のような手順によって計算でも求められたが、結果的には計算結果と実験結果は比較的良く一致した。

- ① 水側の熱伝達率は公知の計算式を用いて求める。
- ② 熔融金属側の熱伝達率は Sparrow & Gregg の式^[4.3-5]によって求める。

本式は平板における強制対流熱伝達に関する理論解の近似式で、 $0.006 < \text{Pr} < 0.03$ の範囲で適用可能な式であるが、垂直平板としての考慮(自然対流の影響にたいする考慮)はなされていない。また流れとしては層流域を扱ったものであるが、本装置では伝熱平板の全域にわたって局所 $\text{Re}_x < 3.2 \times 10^5$ を満たしているので、問題無いものとされた。また隣り合う伝熱パネル間の影響、前後の伝熱パネル間の影響は無視された。

- ③ 鋼製箱体表面から Pb-Bi を経由して内部の伝熱管内面へ到る壁面の伝熱抵抗は FEM 解析によって求める。

- ④ 以上の値を用いて熱貫流率を求める。

この実験によって確認された上記の熱貫流率決定手法を用いて、実用機の伝熱面

の大きさ、構造の原案が決定された。

4) 実機規模試験設備による伝熱性能確認試験結果

a. 試験設備と試験条件

実用機では蒸発器用と過熱器用のそれぞれの伝熱パネルが用いられた。各伝熱面パネルの吸収熱量は上記の試験によって確認された熔融金属側の熱伝達率の式および壁面の伝熱抵抗値を用いて求められた。

また、蒸発器パネルは外径 50.8 φ mm の伝熱管が用いられたが、各伝熱面パネルのサイズは蒸発管出口の汽水混合物中の蒸気のクオリティ（乾き度）や管内圧力損失が許容値内に収まるように伝熱管長、管内流速、供給水量が選ばれ、さらに上下に蛇行する蒸発管内で汽水分離がおこらないような管内流速となるように決められた。過熱器パネルも外径 50.8 φ mm の伝熱管が用いられたが、出口蒸気温度が所定の値となるように蒸気流量と吸収熱量がバランスし、管内圧力損失が適正な値となるように過熱器パネルのサイズが決められたが、結果的に蒸発器パネルと同一のサイズ、構造が採用された。

この実機の伝熱パネルとほぼ同一サイズの試験機によって、再度確認のために伝熱試験が行われた。その条件は表 4.3-4 に示されるものであった。

表 4.3-4 実機規模試験設備試験条件

熔融鉛温度	485 °C
冷却水流量	0.94 t/h
冷却水入口圧力	10 ata
冷却水出口圧力	8 ata
冷却水入口温度	24 °C
冷却水出口温度	173 °C（飽和温度の汽水混合物）
熔融金属流速	0.1 m/s

b. 試験結果

本試験で測定された平均の Heat flux は 18.8×10^4 kcal/m²h であり、中型試験設備よりもやや高い値が計測されたが、概ね所期の結果が得られた。したがって、実機にたいしてはこの寸法、構造を採用すれば良いことが確認された。

以上の一連の伝熱試験は短時間に行われたものであり、熔融金属に接する伝熱面

の酸化などによる伝熱抵抗の変化までは確認されていない。ただ、本装置では伝熱面積が可変となっており、経年変化によって伝熱性能が低下してきた場合、ロンダーに浸漬する伝熱面積を増加することによって性能低下分をカバーすることが出来るようになっている。

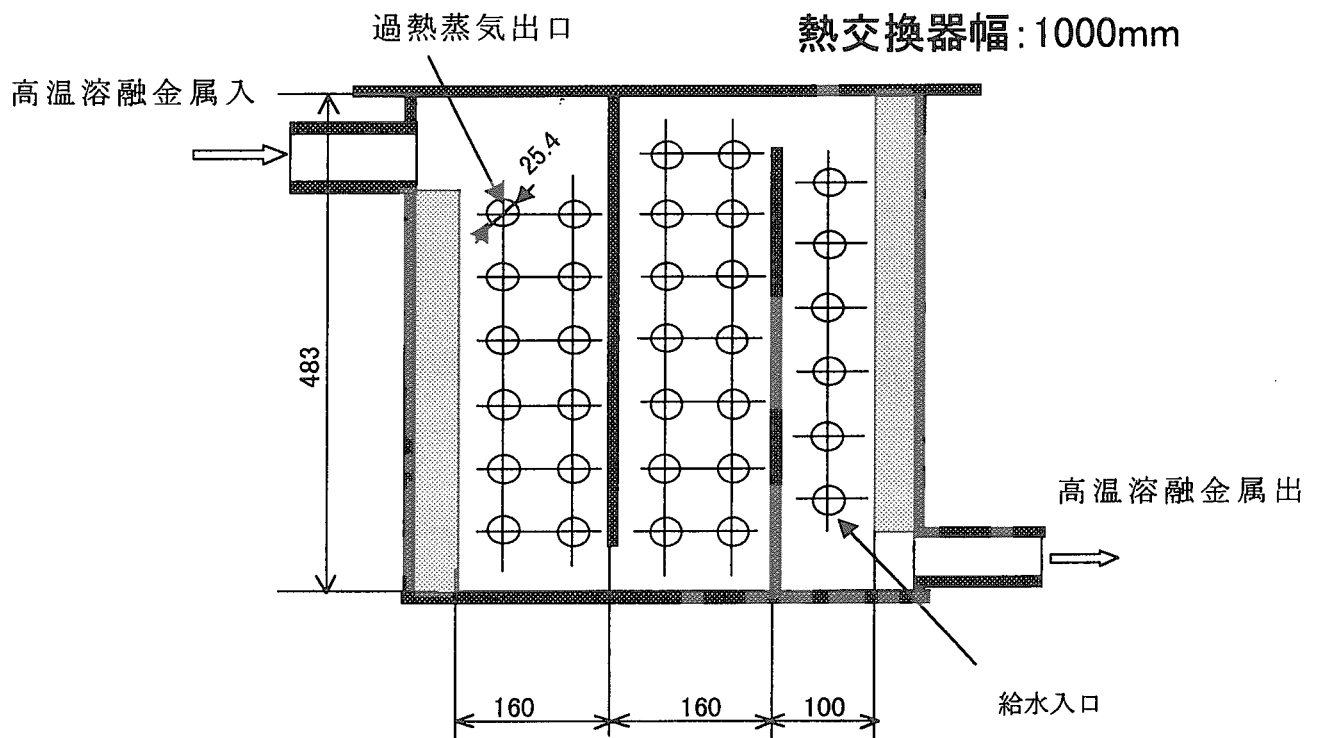


図 4.3-11 小型試験装置概念図

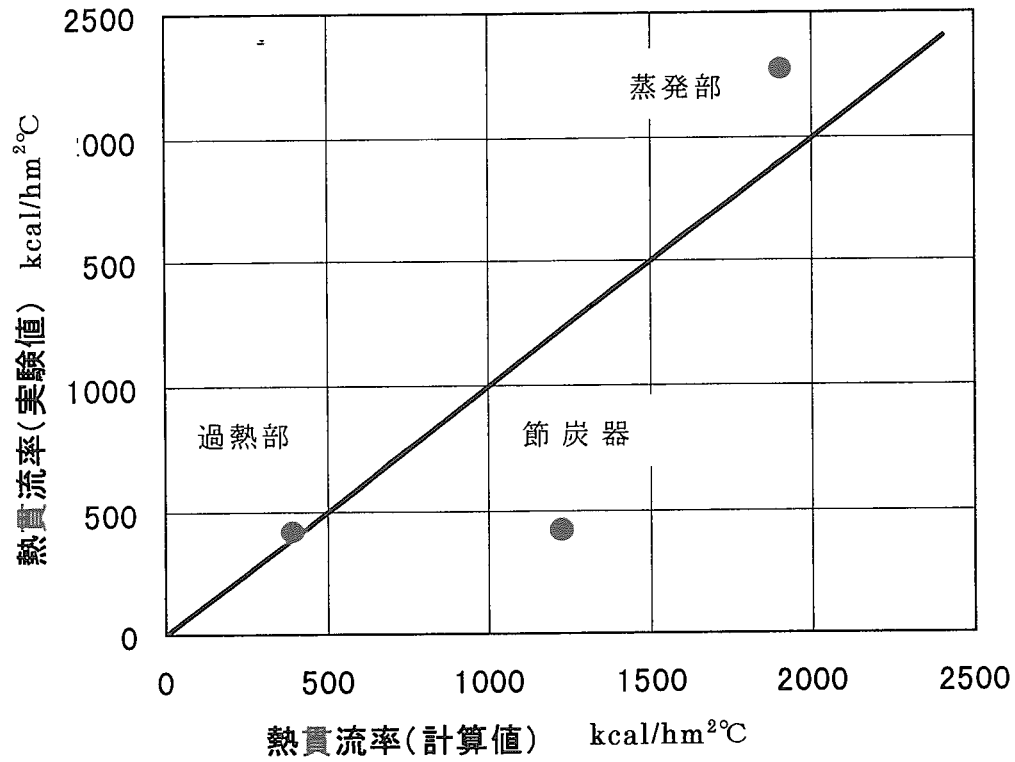


図 4.3-12 小型試験装置による熱貫流の測定
結果と計算結果の比較

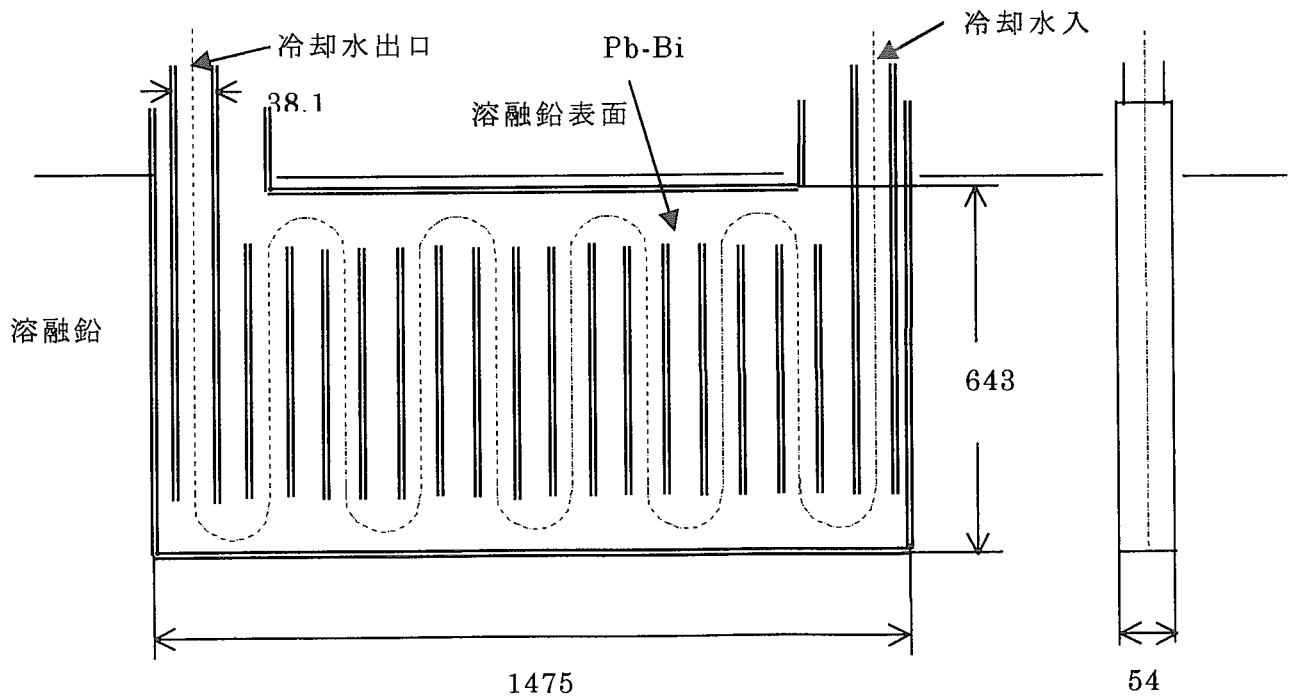


図 4.3-13 中型試験装置概念図

(3) ロシアの研究報告に示された伝熱・流動特性

ここでは、文献 [4-3-3] に示されている Institute of Physics and Power Engineering (IPPE) において実施された、液体金属の伝熱・流動特性に関する研究の概要を述べる。この文献には具体的な伝熱・流動特性の相関式が示されていないが、IPPE の研究概要が把握できる。

A. 論文 [4-3-3] の要約

液体金属の熱流動特性に関する研究は、鉛・ビスマス冷却材ならびにナトリウム冷却高速増殖炉に関連して 1950 年代に開始された。

まず、1950 年代半ばに 150kW BNTF (BR-2) 高速増殖炉が IPPE に建設され、水銀が除熱に用いられた。この原子炉の熱流動特性検証のために”水銀研究室”が設置され、熱伝達に関する実験は水銀を用いて行われた。鉛・ビスマスを用いた原子炉における熱伝達のモデリングのためにも、プラントル数が似通っているという理由で水銀が広く使われた。その後、鉛・ビスマス合金の熱伝達も研究され、さらにアルカリ金属を用いた実験設備が、高速増殖炉の燃料集合体の伝熱特性を計測しモデルと比較するために開発された。

液体金属の伝熱特性研究のために、微細な熱電対とそれを伝熱壁に埋め込む手法、特殊なダイナミックセンサー・full head センサー、実験設備の tangential 応力をより正確に計測するためのプレストン管などの計測法の開発も行われた。フロンやプロパンの少量のガストレーサーを加えて冷却材の空気との混合状態を計測する方法、液体金属の局所流速を電磁気的手法によって計測する手法も開発された。そして、水・液体金属などの非圧縮性流体の流動特性は、空気を用いた実験でモデル化できることも確認された。

一般性を持つデータを得ることを可能とする様に、様々な流路での乱流特性の広範な研究を行った。これらのデータは現在でも有用であり、使われている。

実験的に初めて、複雑な流路の壁面に垂直方向での液体金属の速度と温度の分布が、quasi-universal であることが明らかとなった。この universality は、壁面に垂直方向での変化に比較して流れ方向でのそれが小さいことを示し、半経験的解析手法を構築する基礎となった。滑らかなあるいはリブ付き燃料バンドルでの流動

JAERI-Review 2000-014

抵抗、熱伝達、層流・乱流における液体金属冷却の燃料棒温度の不均一分布を記述する簡単な解析手法ならびに一般的相関式が提案された。

液体金属における熱伝達は、ある特殊性を有しており、例えば液体金属の場合、熱伝達壁と冷却材の間の温度差が大きいことが特徴である。このため、燃料集合体の温度場は、熱伝達率ではなく主として局所の冷却材流量分布に依存する液体金属の加熱によって決定される。液体金属で熱除去を行う場合は、実験でも示されているが、冷却材流れ中にそして流路の壁面で、温度振動が観察される。これらの温度変動が構造物の強度に及ぼす効果の評価は行われていない。

液体金属流中の温度分布ならびに壁温度の計測から、壁面で接触熱抵抗があることが確認されている。その接触熱抵抗は、冷却材中の不純物量に依存し、この接触熱抵抗を評価する式が提案されている。液体金属を清浄化することで、この接触熱抵抗をなくすことが出来るが、冷却材中の不純物が飽和状態に達した場合熱伝達率は約1.5～2倍程度小さくなる。

低プラントル数の流れで起こる乱流から層流への滑らかな遷移が、管路や燃料集合体での液体金属の熱伝達における一つの特徴である。

流れ方向での速度・温度の大きな不均一が、狭い滞留域を有する流路において発生する。(密に配置された燃料集合体、偏心したリング状隙間など) その様な流路では、十分に発達した乱流の場合であっても、相当水力直径は特性長さとなり得ない。すなわち、一般的には相当水力直径を用いて円管について得られた関係式を適用することが可能であるが、この場合はその様な取り扱いはできない。液体金属中の温度分布は顕著な“層流”特性を持っているので、液体金属で冷却される管群における温度分布においては正にこれが当てはまる。

密に配置された燃料集合体において、互いに接している場所では熱流が無く、局所的な過熱が起これると予測される。液体金属は熱伝導率が高いので、温度を均一化する作用があると信じられているが、このことが正しいのは液体金属が流れていない時のみである。実験的・数値解析的研究から、複雑な流路における燃料棒の熱移動においては、熱物性の温度依存性を考慮する必要があると理解されている。密に配置された燃料棒の周りに発生する温度不均一は、レイノルズ数がほぼ同じ条件の場合、熔融金属冷却であっても水冷却であってもそれほど変わらない。それは、液体

金属の場合はペクレ数が小さく、水の場合はそれが相当程度大きくなるからである。規則配置の燃料棒における液体金属による熱除去に伴う熱伝達係数、温度不均一に関する実験的・解析的研究から得られた一般的相関式では熱物性の効果を考慮している。

原子炉燃料集合体の液体金属冷却、特に dispenser 型原子炉では、燃料集合体間での熱的安定性がないことが分かっている。燃料の中心部分では準安定であり、無限に燃料棒が配列されていると想定して熱流動特性を検討できる。燃料の周辺部分、特に角部などでは温度の不均一が起こり得るので、熱移動を二次元と仮定した解析法は適用不可能である。

セルの間での熱・物質移動に多大の関心が払われてきており、原子炉炉心の全体的な熱流動特性を問題にする場合、いわゆる“Shooting-through”効果について考慮する必要がある。鉛・ビスマス冷却の高速増殖炉での原子炉水力学モデルでは、個々の循環ループからの冷却材流れは炉心でそれぞれの限られた部分のみを流れ、互いに混じり合うことはないことが示されている。混合を期待することは、あまりに理想的かつ楽観的なものと言わなくてはならない。目下のところ、dispenser-free 型の炉心あるいは別の機構で混合を起こさせる分離 dispenser 型燃料集合体出口での温度を均一化させることは不可能のように見える。

チャンネル間移動係数が、局所熱流動特性例えば温度スポットあるいは温度不均一などの計算において重要な役割を果たし始めている。滑らかなあるいはリブ付き燃料棒、螺旋状にワイヤを巻き付けた燃料棒束などの物質・熱伝達に関する広範な研究の結果、解析手法を開発すること・適切な相関式を求めることが可能となった。ワイヤを巻き付けた燃料棒に関するチャンネル間交換係数が、互いに接するリブを持つ燃料棒の場合より高いことが分かっている。逆方向の流れを生み出す逆方向に向いたワイヤ巻きが、最も有効であり、ワイヤ巻きで作られる空間のために燃料集合体中の冷却材の流れが複雑となる。

燃料集合体あるいは holder-free 型炉心流路における閉塞の効果に関する数多くの実験データが蓄えられている。これらのデータは数値解析法の検証データとなり、それに基づいて数値解析コードが開発されている。

Experimental Design Office of Machine Building と連携して実施した高速増殖炉の中間熱交換器の熱流動特性に関する解析的・実験的研究によって、熱交換器内

で起こる複雑なプロセスを理解することが可能となった。中間熱交換器における様々な形状の bottom collector の水力学的研究を基礎とした一般化がなされている。また、それらの水力学的特性を評価するための簡単な工学的手法が開発されており、collector を最適化することが可能である。その研究を通して、従来の文献に示された結果がしばしば特殊なものであることが分かった。

head collector の構造開発は、計算とハンドブックのデータにのみ頼るべきではなく、例として、BN-350 の蒸気発生器の collector は中央に入口パイプと、2つの equalizing array を備えた丸い底を持っていが、field channel の中央部に入る入り口での流速が、平均速度の数倍にも達することが見出されている。そのような構造の場合、equalizing array は実験のみをベースとして決定された。

鉛・ビスマス冷却の原子炉炉心、例えば高速増殖炉 BOR-60、BN-350、BN-600 の炉ならびに BN-800 の設計、宇宙用の原子炉における熱流動特性研究は、要素（燃料棒）の変形を考慮して、種々のスケールのモデルで実施された。その結果、鉛・ビスマス原子炉炉心の温度場を計算するための幾つかのコードが開発されている。例えば、MIF コードは、様々の形態の燃料棒隙間、燃料集合体の形状、不均一熱発生、セル間の熱・物質移動の効果を考慮可能である。

様々のスケールのモデルにおける鉛・ビスマス冷却原子炉での水力学的研究の結果、容器下部の下向きスロットから底部圧力室への冷却材入り口部で、トロイダル渦に加えて安定な水平方向平面渦が起こりうることが示された。これらの渦は、炉心に入る冷却材流量を小さくするとともに、流れの安定性を弱め、冷却材中に浮遊する不純物の局所濃度を高める効果を持っている。この効果のために、簡素化したセクターモデルによって実験することは不適切である。

流路壁の粗さが水力学的特性に与える影響についても広範に研究されており、実験結果が一般化され、実用的な関係式が求められている。流れに直交するリブの形で設けた大きな突起を持つ流路の様な複雑な系においてでさえ、冷却材流れが計算できる半経験的手法も開発されている。連続的に配置された流動抵抗の効果に関する研究も開始されている。流動損失の観点から、燃料棒の間隔の効果も検討された。流路に沿った速度プロファイルの準安定化をもたらす効果が注目されている。鉛・ビスマス合金を使った原子炉の安全制御系における別形態の流路の熱流動特性が、幾何形状を最適化する目的で詳しく研究されている。

多年にわたり広範に実施された研究にも拘わらず、熱物理の観点から見れば液体金属原子炉は、今だに確立されたものではない。流路における複雑な流れ、大スケール渦を考慮した大きな容器内の流れ、あるいは冷却材の層状化効果における局所の熱流動的乱流特性を計算する新しい手法の開発が求められている。

大きな問題の一つが、浸漬した熱交換器を用いて原子炉内で発生する residual heat を上部チェンバーでの自然循環で除去する方法である。その様な機器は、高速増殖炉の非常停止時における受動的熱除去システムと呼ばれ、欧州の高速増殖炉、中国の実験炉、日本の原子炉で用いられている。その様なシステムの研究に関するロシアの経験は少ない。しかし、次世代炉ではその様なシステムは不可欠であろう。こうした理由で、高速増殖炉の上部チェンバーでの自然循環による緊急熱除去に関するモデルの構築と、その熱流動プロセスに影響する相似則とその他の因子を確定することが望まれている。

また、今まで高速増殖炉全体での複雑な流路における温度振動には殆ど関心が払われていなかった。原子炉個々のユニットは、周期的な熱応力の効果のために正常に機能しないことが知られているので、これは実用上重要な問題である。その様な研究は、冷却材流れにおける振動の固体壁への伝達、解析モデルの実験的検証などの理論的研究を含んでおり、温度振動を解析するコードの開発、壁表面での計測を行う手法の開発などが必要である。

(4) まとめ

熔融金属の熱伝達は、その熱伝導率が高いことすなわちプラントル数が小さいことが特徴であり、熱輸送において乱流における乱れに加えて、熱伝導による熱輸送が加わる。

熔融金属と普通流体での熱伝達の違いは、熱流束一定条件と温度一定条件での熱伝達率に比較的大きな差があること、温度助走区間が長くなる傾向にあることなどである。

熔融金属の円管内熱熱伝達理論式(Martinelli-Lyon の式)と実験データとの違いが長い間検討された結果、今では溶存酸素濃度の影響が大きいと推定されている。

また、熔融金属における自然対流、二重円管、平行平板、棒束における熱伝達率など広い範囲に亘る伝熱相関式が得られているが、特に鉛・ビスマスについては“濡

れ性”の悪さの故に、従来からの伝熱相関式の利用には慎重になるべきである。

参考文献

- [4.3-1] 佐野川好母；「液体金属の熱伝達」、伝熱工学の進展 Vol.1、pp.109-172、1973、養賢堂発行
- [4.3-2] 西 義久、木下 泉；「FBR用革新型熱交換器の大きさの算定」、電力中央研究所報告／研究報告 T98061、平成11年5月
- [4.3-3] P.A.Ushkov；“Thermohydraulic Investigations of Liquid-Metal Reactors”, Atomic Energy, Vol.80, No.5, pp.344-347, 1996
- [4.3-4] 日本機械学会,伝熱工学資料改定第3版、p.74、1975
- [4.3-5] 甲藤好郎、伝熱概論、p66、養賢堂、1969

4.4 化学毒性

(1) 人体に及ぼす影響

1) 鉛の一般的特性

金属鉛は空気中で容易に酸化し、表面に緻密な被膜を生じて空気を遮断することから、それ以後の酸化の進行は停止される。このため、一般に鉛は不活性の金属と考えられている。

鉛は塩酸とはゆっくりと反応し PbCl_2 の沈殿を生ずる。硝酸とは容易に反応し、 Pb(II) となる。酢酸のような有機酸とも反応し水溶性の化合物を作る。ビスマスは酸化力のない酸に対しては安定であるが、硝酸、熱硫酸、王水には酸化され溶ける。

金属鉛、鉛合金を加熱溶解すると、約 500°C から鉛の蒸気が発生し、空気中の酸素によって酸化されて、酸化鉛の微細粒子(ヒューム)を形成する。したがって、 500°C 以上に加熱する工程では、この蒸気やヒュームにより中毒の危険性が高まる。

有機鉛(四エチル鉛)はガソリンに添加するアンチノッキング材として知られているが、その急激な毒性のため、災害性の強いものとしても知られている。

四エチル鉛は甘い不快な臭気を持つ液体で、沸点 199°C 、蒸気圧 $0.27\text{mmHg}(@20^\circ\text{C})$ 、揮発性が高く水に不溶である。脂溶性であるため皮膚や粘膜からたやすく吸収される。血中では大部分が血漿の脂質部分と結合しており、これは血液脳関門を容易に通過し、脳に高濃度に移行すると言われている。

四エチル鉛中毒は(金属鉛と異なり)急性中毒の形で発症し、曝露してから発症する期間が短いほど重篤で死亡することも多い。

四エチル鉛は肝で三アルキル鉛に分解され水溶性となりさらに無機塩まで分解される。なお、現在ではガソリンは無鉛化されており一般に接することはない。また、通常の鉛工業では関係しないため、以降では金属鉛について報告する。

2) ビスマスの一般的特性

ビスマスは空気中では安定、高温で青白い炎をあげて燃え酸化物 Bi_2O_3 となる。酸化力のない酸、アルカリ水溶液には不溶。ハロゲンとは直接反応し、硝酸、熱硫酸、王水には酸化され溶ける。一般的な用途として、医薬品(胃薬)や触媒、半導体等に用いられている。

ビスマスの毒性についての記述は見当たらないが、一般に触れる機会が少ないためと考えられる。鉛と同じく直接その粉じんやヒュームにふれることの無いよう、取扱い時の注意を払う必要があると思われる。

3) 鉛の吸収、蓄積、排泄、

鉛を扱う作業場(一般的には精練、蓄電池、塗料、鉛製品の製造、ハンダ付けなど)では、鉛は粉じんまたはヒュームの形で存在し、気道から人体に入り経路が大半である。呼吸器から吸入された鉛のおよそ 40-50% が肺に取り込まれる。血流中の鉛は大部分が赤血球とともに存在し、全身の臓器や組織に運ばれる。特に骨への蓄積の割合が多く 90% を占め、大部分は不活性の形で沈着

すると言われている。

吸入される鉛の一部は、鉛で汚染された手指による喫煙や飲食の機会に、経口的に摂取される場合もある。消化管からの鉛の吸収は 5-10% で、残余は糞便とともに排泄される。

鉛の排泄は主として腎臓を経て尿中に排泄される。

血中鉛濃度と検査所見および中毒症状には相関がある(図 4.4-1)。一般的に、血中鉛濃度が $80 \mu\text{g/dl}$ を超えると鉛中毒が起こるとされている。

鉛の生物学的半減期(体内濃度がはじめの半分になる期間)は、1 ヶ月程度のオーダーである。平衡濃度に達するのはこの生物学的半減期の 7~8 倍と言われており、従って一定の鉛を吸収し続けると半年ぐらい体内濃度は上昇し続けた後、平衡濃度に達することになる。この間にかなりの鉛が蓄積する。

通常の生活においても、過去の鉛(塗料、鉛管、ハンダ等)により鉛に汚染されているのがふつうであるが、血中鉛濃度は $10 \mu\text{g/dl}$ 以下にするよう求められている。(US EPA #402-K-93-007, Apr. 1995)

4)中毒症状

鉛中毒は個人差が大きいが、通常急性中毒はまれであり、慢性中毒が圧倒的に多い。

a)初発症状

一般に鉛中毒で早期に出現するのは全身倦怠感と易疲労感であり、イライラするようになる。これが続くと、頭痛、不眠、食欲不振を訴えるようになり、さらに暴露が続くと腹部症状が出現してくる。

鉛中毒では多彩な自覚症状を訴え、非特異的であることから他の病気と間違えられ易い。

b)主要症状

鉛中毒の 3 主徴は、貧血、腹部症状、神経症状である。一般的傾向として、貧血が出現し、それに腹部症状(便秘、下痢、食欲不振、膨満感、嘔吐、鈍痛、仙痛)が加わる。さらに進行した状態では神経症状(末梢神経障害:垂れ手等、中枢神経障害:頭痛、めまい、その他)が出現すると言われている。

5)検査、診断および治療

鉛中毒予防規則では後述のように、健康診断で血中鉛の測定、尿中のデルタアミノレブリン酸の測定が義務づけられており、医師が必要と認めたときは、貧血検査、赤血球中プロトポフィリンの測定を行なうこととなっている。

鉛中毒の診断では、鉛の暴露歴と造血系への影響が最も重要と言われている。

治療の第一歩は、鉛暴露からの離脱であり、軽症例ではこれのみで十分である。血中鉛濃度が $70 \mu\text{g/dl}$ 以上あるいは中毒症状のある場合には治療を行なうこととなる。

有症者に対して、Ca-EDTA その他により除鉛を行なう。

(2)衛生管理

1)法規制

鉛による公害・中毒を防止するため、鉛中毒予防規則(後述)が定められているが、その他次のような法規が定められている。

○環境基本法「環境基準」

人の健康の保護に関する環境基準(環境水) 鉛: 0.01mg/l 以下

大気についての鉛は指定されていない。

土壌については「溶出基準」(土壌(g)の 10 倍量の水(ml)で溶出)があり、0.01mg/l 以下

○大気汚染防止法

鉛およびその化合物は「ばい煙」の中の「有害物質」に指定されており、排出規制がある。

ばい煙の排出基準は、国が一元的に定める一般排出基準があるが、ばいじんおよび有害物質は条例により、都道府県上乗せ基準を設定できる。

本法に定める適用施設および排出許容濃度を表 4.4-1 に示す。

冷却材としての使用は適用施設とはならないが、冷却材が大気に開放される場合、装填、排出作業等を行なう場合には、排気のモニタリング等ができる必要がある。

○水質汚濁防止法

排水基準 鉛 0.1mg/l 以下

2)労働安全衛生法「鉛中毒予防規則」(昭和 47 年労働省令第 37 号)

2-1)適用施設

適用となる鉛業務およびその作業を表 4.4-2 に示す。

また、適用除外となる作業として、450℃かつ 50l 以下の溶解、遠隔操作による作業、清掃作業および健康障害の恐れが少ない作業が挙げられている。

冷却材としての Pb を使用する工程は適用施設にないが、鉛合金等の製造、修理等の作業工程の一部ととらえることもできる。

この場合、規則第 9 条では、以下の設備要件を定めている。

- ①鉛もしくは鉛合金の熔融、鋳造、溶接、溶断もしくは動力による切断もしくは加工または鉛削鋼の鋳込を行なう屋内作業場所に、局所排気装置を設けること。
- ②鉛または鉛合金の切りくずを一時ためておくときは、そのための場所を設け、またはこれらを入れるための容器を備えること。
- ③鉛等または焼結鉛等の熔融または鋳造を行なう作業場所に、浮渣をいれるための容器を備えること。
- ④熔融した鉛または鉛合金が飛散するおそれのある自動鋳造機には、熔融した鉛または鉛合金が飛散することのないように覆い等を設けること。
- ⑤屋内の作業場所の床は、真空そうじ機を用いて、または水洗によって容易にそうじできる構造のものとすること。

これら要件の中で、上記①の局所排気装置。上記②。上記④の飛散のおそれのある場合には覆いを設ける。上記⑤が対応する設備要件になると考えられる。

また、1トン以上の金属の溶解炉、局所排気装置を設置する設備は労働基準署に計画の届け出を行なうこととなっている。

2-2)局所排気、換気設備

局所排気装置等については、概略以下の具備要件がある。

- ①フード等は、鉛等の蒸気または粉じんの発生源ごとに設けること。
- ②局所排気装置、炉等から排気される鉛等を含有する気体を排出する設備には、ろ過除じん方式の除じん装置またはこれと同等以上の性能を有する除じん装置を設ける。
排気される鉛の濃度が 0.15mg/m^3 以下である場合は設けなくてもよい。
- ③局所排気装置、全体換気装置または排気筒の排気口は屋外に設けること。
- ④局所排気装置等の性能は、そのフードの外側における鉛の濃度が 0.15mg/m^3 を超えないものとする能力を有すること。
- ⑤局所排気装置等は、労働者が鉛業務に従事する間、それらの装置を稼働させること。

2-3)管理および測定

鉛中毒を防止するため、日常の適正な管理が必要であるが、その規定の概要はつぎのものである。

①鉛作業主任者

作業場ごとに鉛作業主任講習修了者のうちから、鉛作業主任者を選任し、所定の事項を行なわせる。

②局所排気装置等の自主定期検査

一年ごとに一回、所定の事項について自主検査を行い結果を記録し3年保管。

③点検

はじめて使用する時、または修理等を行なったときは所定事項について点検すること。

④測定

作業場所について、毎年一回以上定期的に鉛の濃度を測定、記録し3年保管。

測定の結果は作業環境評価基準に従って、管理の状態に応じ、第1～3管理区分に区分することにより結果の評価を行ない記録保管する。第3管理区分の場合は直ちに改善措置を講ずる。第2管理区分は必要な措置を講ずるよう努める。

2-4)健康管理その他

①健康診断

鉛業務に従事する労働者は、雇入れ時、配置替え時およびその後6ヶ月以内ごとに1回定期的に所定項目について健康診断を行なう。項目は医師の診断により追加的に行なうもの、省略できるものがある。

②医師の意見聴取義務

③鉛健康診断結果報告義務

所轄労働基準監督署長に提出

④鉛作業の期間または従事しなくなってから4週間以内に、症状が認められ、または症状を訴

える労働者に、速やかに医師による診断を受けさせる。

⑤保護具等

鉛装置の内部における作業には、有効な呼吸保護具および保護衣類を使用させる。

その他所定の作業についても同様。

(3)化学毒性についてのまとめ

上述のように、鉛を 450℃以上に加熱溶融する場合や切削等の微細な粒子を発生させるようなケースでは、これらを吸引しないよう。また、衣服や手指に付着した場合は、これらを間接的に吸引しないようにすることが、重要である。また、作業途中での飲食等もしてはならない。

各規制その他から、Pb-Bi 冷却材を扱う施設の要件は、次のものと考えられる。

1)設備

- ①冷却材の投入・払出等で開放部を有するエリアは局所排気ができるようにすると共に、床部にはトレイを置き、落下飛散した場合の回収が行なえるようにする。
- ②系統の排気、カバーガスの排気はろ過フィルターを経由してから排気系統に接続する。
- ③装置等は万一の冷却材飛散が生じた場合でも、作業員が立入るエリアに冷却材が飛散することのないよう覆いを設ける。また、装置の設置してある室は換気を行なう。
- ④排水および排気は鉛濃度を定期的に測定できるものとする。

2)局所排気装置等

- ①局所排気装置等は自主定期検査を行なう。
- ②除じんフィルタの交換は粉じんが飛散することのない方式とする。
- ③排気および鉛を扱うエリアの鉛濃度を定期的に測定記録評価する。

3)管理体制等

- ①鉛作業主任者を選定し、所定の管理(作業指揮、日常点検等)を実施する。
- ②有害物質の取扱等に対する教育を実施する。

4)その他

- ①6ヶ月以内ごとに健康診断を実施する。
- ②清掃、補修等に使用する呼吸保護具、保護衣類を常備する。

参考文献(化学毒性関係)

- [4.4-1] 労働省安全衛生部労働衛生課編 新／衛生管理 中央労働災害防止協会
[4.4-2] 金属中毒の健康管理 (財)産業医学振興財団

表 4.4-1 ばい煙施設(令別表第 1 のうち鉛に関連するもの)

大気汚染防止法

施設番号	施設名	規模	排出基準
9	窯業製品の製造の用に供する焼成炉及び溶解炉	①火格子面積 1m^2 以上 ②バーナの燃焼能力 50 l/h 以上(重油換算) ③変圧器の定格容量 200 kVA 以上 上記のいずれかであること。	$20\text{ mg/m}^3\text{N}$
14	銅、鉛又は亜鉛の精錬の用に供する焙焼炉(ペレット焼成炉を含む)、溶鉱炉(溶鉱用反射炉を含む)、転炉、溶解炉および乾燥炉	①原料の処理能力 0.5 トン/h 以上 ②火格子面積 0.5 m^2 以上 ③羽口面断面積 0.2 m^2 以上 ④バーナの燃焼能力 20 l/h 以上 上記のいずれかであること。	$10\text{ mg/m}^3\text{N}$ (30*1)
24	鉛の第2次精練(鉛合金の製造を含む)又は鉛の管板若しくは線の製造の用に供する溶解炉	①バーナの燃焼能力 10 l/h 以上(重油換算) ②変圧器の定格容量 40 kVA 以上	$10\text{ mg/m}^3\text{N}$
25	鉛蓄電池の製造に供する溶解炉	①バーナの燃焼能力 4 l/h 以上(重油換算) ②変圧器の定格容量 20 kVA 以上	$10\text{ mg/m}^3\text{N}$
26	鉛系顔料の製造の用に供する溶解炉、反射炉、反応炉、及び乾燥施設	①容量 0.1 m^3 以上 ②バーナの燃焼能力 4 l/h 以上(重油換算) ③変圧器の定格容量 20 kVA 以上 上記のいずれかであること。	$10\text{ mg/m}^3\text{N}$

*1)左記施設の乾燥炉を除く、規模③、④のもの。

ばい煙の測定

有害物質については、排気ガス量が、 $4\text{ 万 m}^3/\text{h}$ 以上 2ヶ月に 1 回以上
 $4\text{ 万 m}^3/\text{h}$ 未満 年に 2 回以上

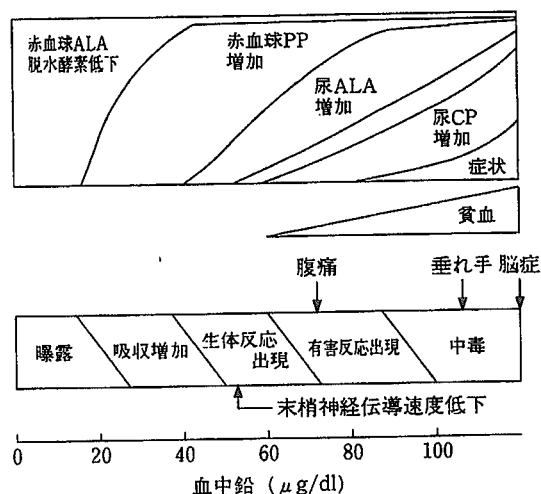


図 4.4-1 血中鉛濃度からみた検査異常及び症状の重症度

表 4.4-2 鉛中毒予防規則による適用施設等(参考文献[1])

設 備 等	鉛 業 務 作 業	イ	ロ	ハ	ニ	ホ	ヘ	ト	令別表 4第8	同 左 第9	同 左 第10	同 左 第11	チ	リ	ヌ	ル	ヲ	令別表 4第17	ワ
		鉛の製錬、精錬	銅等の製錬、精錬	鉛蓄電池等	電線等	鉛合金等	鉛化合物	鉛ライニング	含鉛塗料のかき落とし等	鉛装置内業務	鉛装置の解体	転写紙	含鉛塗料等	はんだ付け	釉薬	絵付け	焼入れ等	文選・植字	清掃
局 所 排 気 装 置 お よ び 用 後 処 理 装 置	焙焼	⊗																	
	焼結	⊗																	
	溶鋳	⊗	⊗																
	転炉		⊗																
	溶融	●	⊗	●	○	●	●	○					⊗				●		
	鋳造(込)	●	●			●	●						○						
	焼成	⊗	⊗				⊗												
	粉碎	●	●	●			●						●						
	破砕	●							○		○								
	混合	●	●	●			●						●						
	ふるい分け	●	●	●			●						●						
	容器詰め	●	●	●			●												
	加工			○		○													
	組立て			○															
	溶接			○		○		○	○		○								
	溶断			○		○		○	○		○								
	切断			○		○													
	練粉		●				●						●						
	煨焼						⊗												
	攪拌						●												
	溶着							○											
	溶射							○											
	蒸着							○											
	仕上げ							●											
	加熱								○										
	圧延								○										
	粉碎等											●							
	はんだ付け													○					
	施釉														○				
	絵付け															○			
作業主任者		×	×	×	×	×	×	×	×	×	×								
測定及び評価		×	×	×	×	×	×	×	×	×	×						×		
健康診断		②	②	②	②	②	②	②	②	②	②	②	②	①	①	①	②	①	②

- (注) 1. ⊗印は、当該装置および当該装置に設置を規定した局所排気装置に用後処理装置の設置を規定しているもの。
 2. ●印は、当該作業場に局所排気装置および用後処理装置の設置を規定しているもの。
 3. ○印は、当該作業場に局所排気装置の設置を規定しているもの。
 4. ×印は、選任、実施について規定しているもの。
 5. 健康診断欄の数字は、健康診断実施回数を示したものであること。

4. 5 ビスマス純度の物性値への影響

ビスマス及び鉛の液体金属に関し、ビスマスの含有率の影響について、密度、粘性率、動粘性率、定圧比熱、熱伝導率、熱拡散率及びプラントル数に関する温度の影響についてまとめた。^[4.5-1]ビスマス及び鉛の組成は、それぞれの純金属および共融合金（鉛45%、Bi55%）とした。これらの金属の融点、沸点は表4.5-1のとおりであり、密度、粘性率等の温度変化は図4.5-1から図4.5-2に示したとおりである。

表4. 5—1 ビスマス、鉛の融点及び沸点

	B i	P b	P b—B i
分子量	208.9804	207.19	208.19
融点 (K)	544.6	600.7	397
沸点 (K)	1750	2010	1943

密度の温度変化は、図4.5-1に示したとおりである。鉛・ビスマスの密度はビスマス及び鉛の中間付近にあり、それぞれ温度の変化に対し直線的に変化する。粘性率及び動粘性率の温度変化を図4.5-2及び図4.5-3に示す。鉛・ビスマスの温度変化の傾向は密度の場合と同様にそれぞれの純金属の中間付近になるが、低温になると急激に高い値を示す。定圧比熱の結果を図4.5-4に示す。各金属は、温度変化に対し変化が少なく、接近した値になっている。熱伝導率及び熱拡散率の温度変化を図4.5-5及び図4.5-6に示す。ビスマスの値は、融点から一旦急激に大きくなり、その後緩やかに減少する。鉛は単調に減少する。一方、鉛・ビスマスは単調に上昇する傾向にある。プラントス数の変化を図4.5-7に示す。各金属の値は、温度の上昇に伴い減少し、鉛・ビスマスの値はビスマス及び鉛の中間程度の値になっている。

以上に示したとおり、ビスマス及び鉛の液体金属に関し、ビスマスの含有率の影響についてまとめた。鉛・ビスマスの密度、粘性率、動粘性率定圧比熱及びプラントル数は、含有率に応じそれぞれの純金属の間の値になると考えられる。一方、熱伝導率及び熱拡散率は含有率との相関は見られない。従って、これらの値を使用する場合は慎重に検討を行なう必要がある。

参考文献

[4.5-1]日本機化学会、伝熱工学資料改定第4版、1986年、日本機化学会

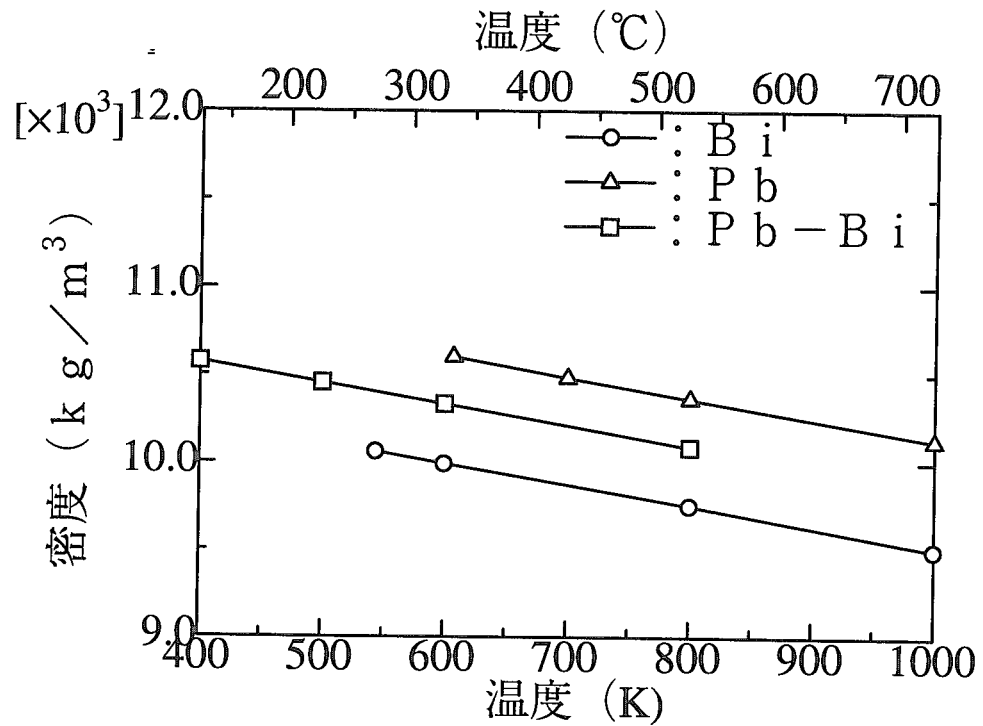


図 4.5-1 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの密度変化

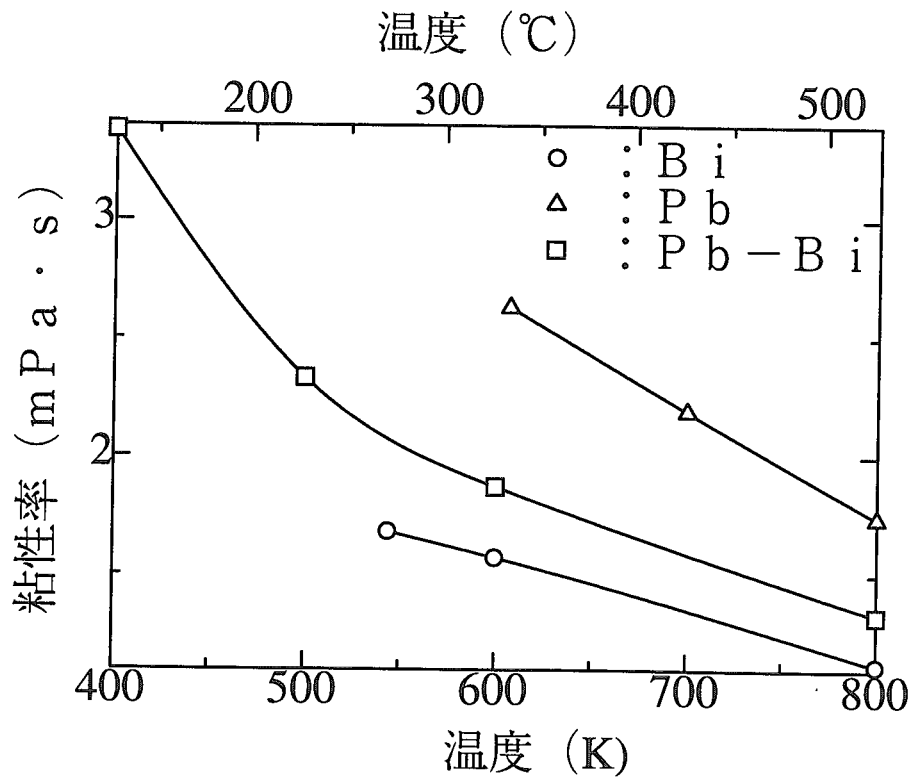


図 4.5-2 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの粘性率変化

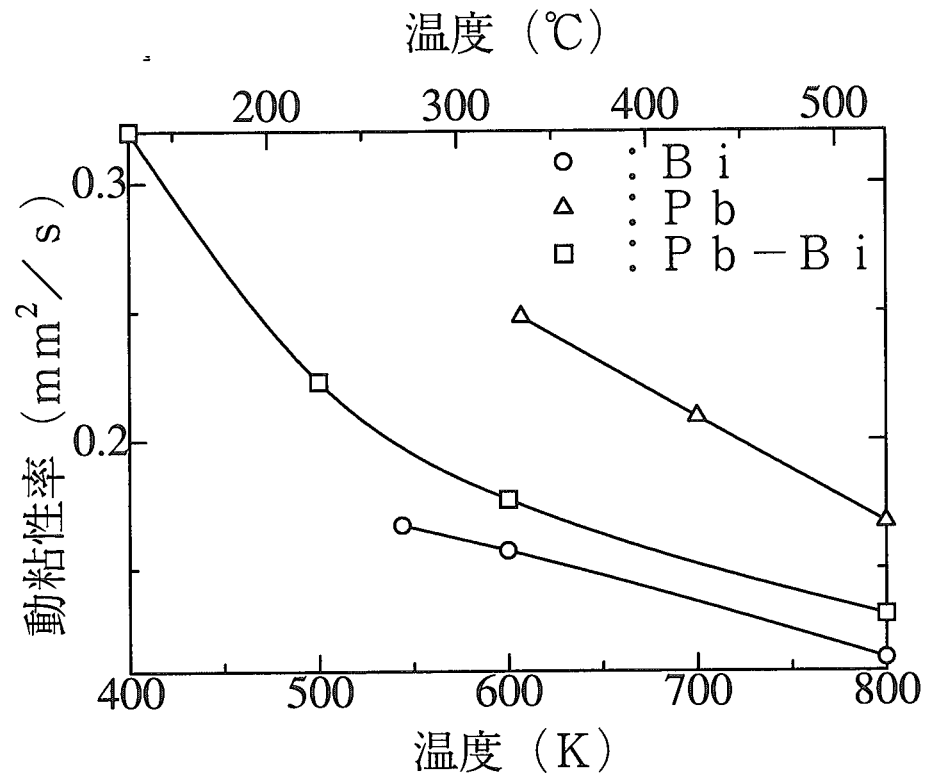


図 4.5-3 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの動粘性率変化

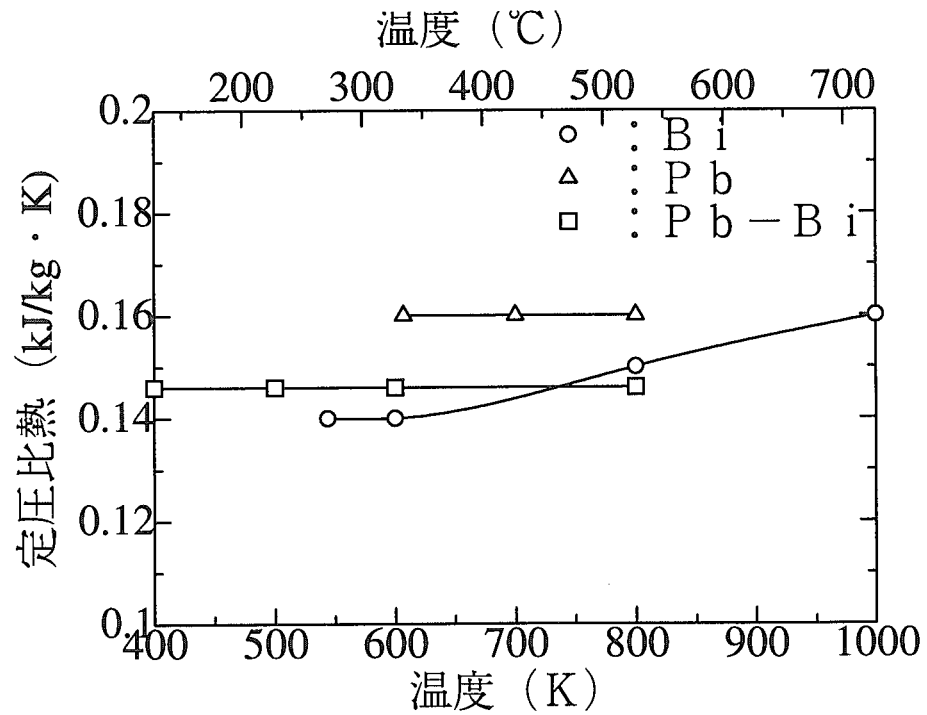


図 4.5-4 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの定圧比熱変化

JAERI-Review 2000-014

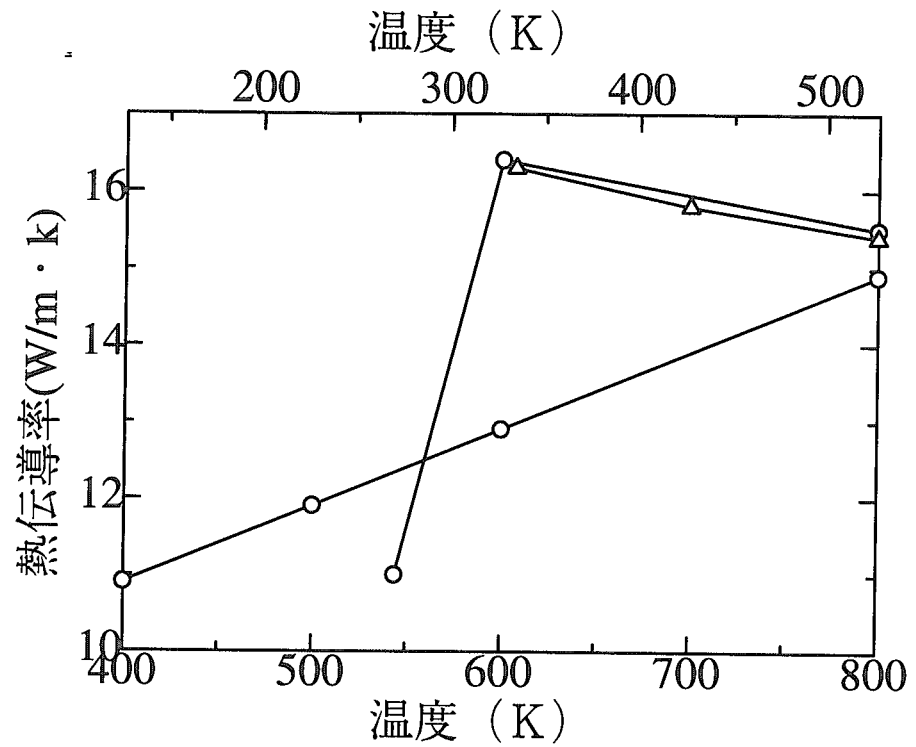


図 4.5-5 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの熱伝導率変化

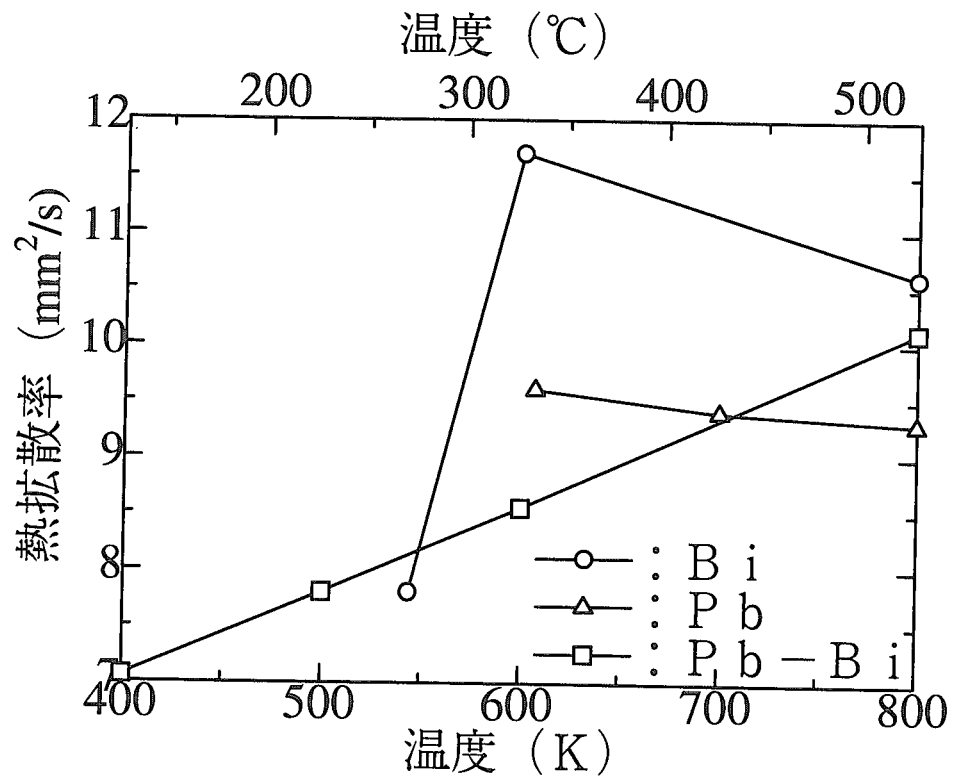


図 4.5-6 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスの熱拡散率変化

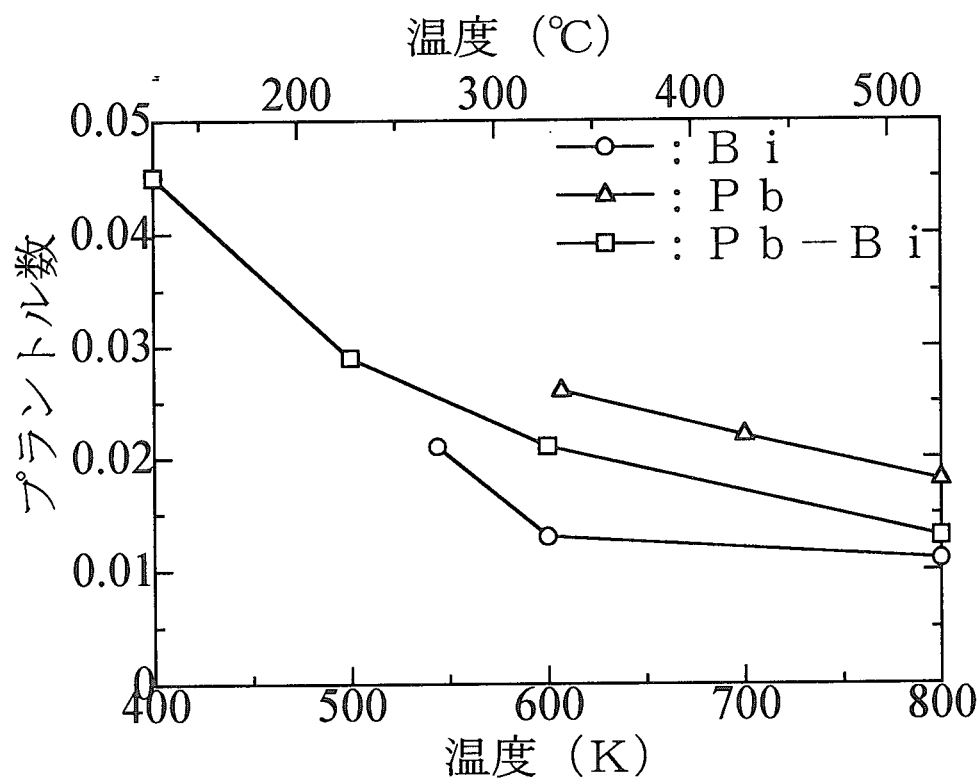


図 4.5-7 温度による鉛、ビスマス、鉛・ビスマスのプラントル数変化

5. ビスマスの資源量

(1) 概要

鉛及びビスマスについて埋蔵量及び生産方法、増産見通しについて検討を行なった。検討に際し、本章では以下のとおり用語を定義する。これらの関係は図5.1に示したとおりである。

	確認資源		推測値	未確認資源
	確認値			
	実測値	概算値		
経済的領域	A			
経済的限界領域	B			
経済領域以下				
他				

埋蔵量 = A、資源量 = A + B

図5.1 資源量等の用語の関連性説明図

確認資源

場所、等級、品質及び量が、明確な地学的証拠により知られているか評価されている資源とする。確認資源は、経済的なもの、経済的に限界的な領域にあるもの及びこの領域以下のものを含んでいる。地学的確かさからは、経済性領域は、実測値、概算値、推測値に区分けされる。

確認値

実測値と概算値の和とする。

実測値

大きさについては、露頭、塹壕、採掘、ボーリングで、等級及び品質は、詳細なサンプリングを行ない、これらにより量が計算されたものとする。

概算値

量、等級及び品質は実測値と同様に計算されるが、調査、サンプリング及び測定

場所がかなり離れているか、信頼性が劣る所で行われている状態のものとする。確実性の度合いは、実測値より劣るが、観測点間に資源が連続して存在していると確実にみなすことができるものである。

推測値

推測値は、地学的根拠に基づく実測値及び概算値を超えて、資源の連続性を仮定に基づいて求めたものである。推測値はサンプルや測定によって確認されていても必要はない。

資源量

資源量の中には、現在の技術や経済性を超えて、計画段階のもので、合理的に考えて経済性が成り立つ見込みがあるものを含んでいる。資源量は、現在経済的なもの（埋蔵量）、経済的に限界領域にあるもの及び経済的領域以下のものを含んでいる。

埋蔵量

資源量一部で、決められた時期に経済的に抽出可能なものである。生産設備が整っている必要はない。

(2) 埋蔵量の検討

(2-1) 鉛

鉛は自動車業界で広く使用されており、バッテリー、燃料タンク、ハンダ、ベアリング等に用いられている。その他、輸送、通信業界においても弾薬、TV ガラス、遮蔽材等にも用いられている。

主要国における鉛資源量を図 5. 2 に、埋蔵量を図 5. 3 に、鉱山生産量を図 5. 4 に示す。ここに示したとおり、現在の鉛資源量は約 1. 4 億トン、埋蔵量は約 6,500 万トン、鉱山生産量は 300 万トンである。近年、重要な鉛資源は亜鉛、銀、銅に付随している。確認埋蔵量は 15 億トンである。

なお、プラスチックが鉛の代替品として用いられているため、建設業、電線被覆、缶等に使用される量が減少している。また、アルミニウム、錫、鉄及びプラスチックが他の容器や保護被覆材として競争力を持っているし、錫がハンダの代替として用いられてきている。

(2-2) ビスマス

ビスマスは、主に銀、鉛、銅、亜鉛、タングステン鉱石などに伴う副産物として産出される。^[5-1] 通常は、鉛鉱床に付随するが、中国、北朝鮮ではタングステン鉱石、オーストラリアでは銅—金鉱石でも見られる。また、ボリビア、中国では一次産品としても生産されている。^[5-2]

なお、ビスマスは、モリブデン及びタングステンの副産物としても産出は可能であるが、これらは通常経済的ではない。^[5-2]

ビスマスの資源量の推移を図 5. 5 に示す。ここに示されているとおり現在の資源量は約 26 万トンである。過去の推移をみると、1991 年以降、日本の資源量は減少

しているが、中国及びボリビアが増えている。全体の傾向としては、資源量は段階的に上昇する傾向にある。

埋蔵量の推移を図5. 6に示す。この値も資源量と同様に参考文献2)に示されている値である。なお、資源量と異なり、1990年以前のデータははっきりしないので、省略した。

現在の埋蔵量は、約11万トンであり、過去の推移の傾向は、資源量と同様である。

鉱山生産量の推移を図5. 7に示す。ここに示したとおり、1987年を境に一旦減少しているが、最近是中国及びボリビアの増産により徐々に上昇傾向にあり、年間4千トン程度の生産量がある。最近の上昇の原因は、メキシコとボリビアの増加にある。

1984年からの鉱山生産量の積算値と埋蔵量及び資源量の関係を図5. 8に示す。最近の資源量および埋蔵量はそれぞれ約25万トン約10万トンで一定であるが、生産量は着実に増加している。従って、現状は、未確認の資源が十分あり、生産量された量に相当する資源が新たに開発され、新たな資源量及び埋蔵量として補充されているものと考えられる。

(3) 生産方法と増産の見通し

(3-1) 生産方法^[5-1]

ビスマスの主要資源は、銅及び鉛精練の副産物であり、精練によってその粗金属中に残留する。ビスマスはほとんどの鉛鉱に随伴し、精練、精製工程を通じて鉛と行動する。鉛からビスマス除去する方法としては、Betts 電解法及び Betterton-Kroll 法が重要である。

Betts 電解法

粗鉛陽極をケイフツ化鉛及び遊離ケイフツ化水素酸の溶液で電解精製するもので、純度の高い鉛の薄板を陰極とする。このとき、ビスマスその他の不純物は陽極泥として集積され、さらに濾過、乾燥して、溶錬工程に回す。この溶錬で生成した金属を灰吹すると、ビスマスは鉛—アンチモンスラグ及び酸化鉛中にはいる。このスラグを還元して、ビスマス20%あるいはそれ以上含むものとし、さらに精製するためにビスマス工場に送る。

Betterton-Kroll 法

この方法の基礎反応は、 Ca_3Bi_2 、 Mg_3Bi_2 などの高融点化合物の精製であり、これを熔融浴中から溶離しドロスとして除去するものである。この場合、すでに脱銀を行なった鉛（ビスマス0.05%以上を含むもの）に前工程でできたカルシウム及びマグネシウムに富む鉛を加え、生成したドロスをかきとり、必要量のカルシウム—鉛合金と金属マグネシウムを熔融金属中に攪拌しつつ投入する。次にこの熔融物を冷却し、溶離したビスマスドロスをかきとる。この方法によりビスマスは0.025%まで除去することができるが、さらに完全な除去が必要なときは、過剰のカルシウム及びマグネ

シウムと共に少量のアンチモンを加える。濃縮されたビスマスドロスは 25t 程度の溶融鍋で溶融し、溶離によってドロスに随伴してきた鉛と分離する。分離したドロスは塩化鉛あるいは塩素で処理して、カルシウム及びマグネシウムを除去し、さらに Parkes 法で脱銀を行なった後、塩化によって鉛を除去する。最後にカセイソーダで処理すると高純度ビスマス ($\text{Bi} > 99.995\%$) が得られる。

また、電解法によって鉛白を製造する Sperry 法では、ビスマスは陽極泥中に入り副産物として回収される。この他溶融温度で鉛の高い凝固部分からビスマスに富む共晶液を絞り出してビスマスを濃縮する結晶法があるが、殆ど用いられていない。

(3-2) 増産の見通し

鉛 (45%) - ビスマス (55%) を冷却材に用いる ADS で必要とされる冷却材の量は以下のとおり求めると、鉛約 3 万トン、ビスマス 4 万トンとなる。

ADS 炉心容器寸法: $\phi 7.5 \text{ m} \times 16.5 \text{ mH}$ (約 700 m^3)

冷却材重量: 約 7 千トン (鉛: 約 3 千トン、ビスマス: 約 4 千トン)

ADS 製造基数: 10 基

鉛は既に述べたとおり、年間の鉱山生産量が約 300 万トンあり、ADS の使用量は十分に賄える見通しがある。一方、ビスマスは資源量が約 25 万トンであり、年間の鉱山生産量は約 4,500 トンである。従って、資源量としては未確認資源量を考慮すれば十分見通しがあると考えられる。なお、現在の年間の生産量が少ないが、ビスマスを 1 次産出物とする鉱山の開発を行なうことにより増産は可能である。例えば、ロシアにおけるビスマス資源として、年間 1500 トン～2000 トン程度の生産が可能である。また、副産物として産出される特長から、現在回収されていないものを利用することによっても、増産が可能と考えられる。

また、ビスマスの冷却材中の含有率を減少させることも考えられる。ビスマスの含有率が 10% でも融点は約 300°C であり、鉛の融点より低くなる。さらに、炉心容器の構造等を見直し、使用する冷却材の量を減少させることも有力な手段と考えられる。ロシアで計画されている熱出力約 300 MW の高速炉で予定されている冷却材の重量は、約 200 トンである。この高速炉では炉内構造物として遮蔽体が多数設置されている。これらは、鉛ビスマスを用いた原子炉の実績に基づくもので、熱流動に関するデータの蓄積により可能になると考えられる。従って、我が国においても ADS を模擬した装置によるモックアップテスト等を行なうことにより、使用する冷却材の量の削減が可能になると考えられる。

(4) まとめ

以上のとおり、ビスマスの資源量は約 26 万トンであり、年間の生産量は約 4 千 5 百トンである。このデータには、ロシア等の旧ソビエト連邦の国々に存在すると考えられる多くの資源が考慮されていない。これらは需要が伸びることにより開発されるものと考えられる。また、ビスマスは副産物として生産される特長から、現

在使用されていないものを利用することによる増産も可能である。さらに、ビスマスの含有率は共融合金の1/5程度まで減少させることも可能であり、使用量を少なくすることが可能である。これらの点を考慮すると、ビスマスはADSの冷却材として十分な資源量があると考えられる。

参考文献

- [5-1] 希少金属データブック 改訂版、ビスマス (Bi)、金属鉱業事業団
- [5-2] U.S. Geological Survey, Mineral Commodity Summaries, U.S. Department of the Interior

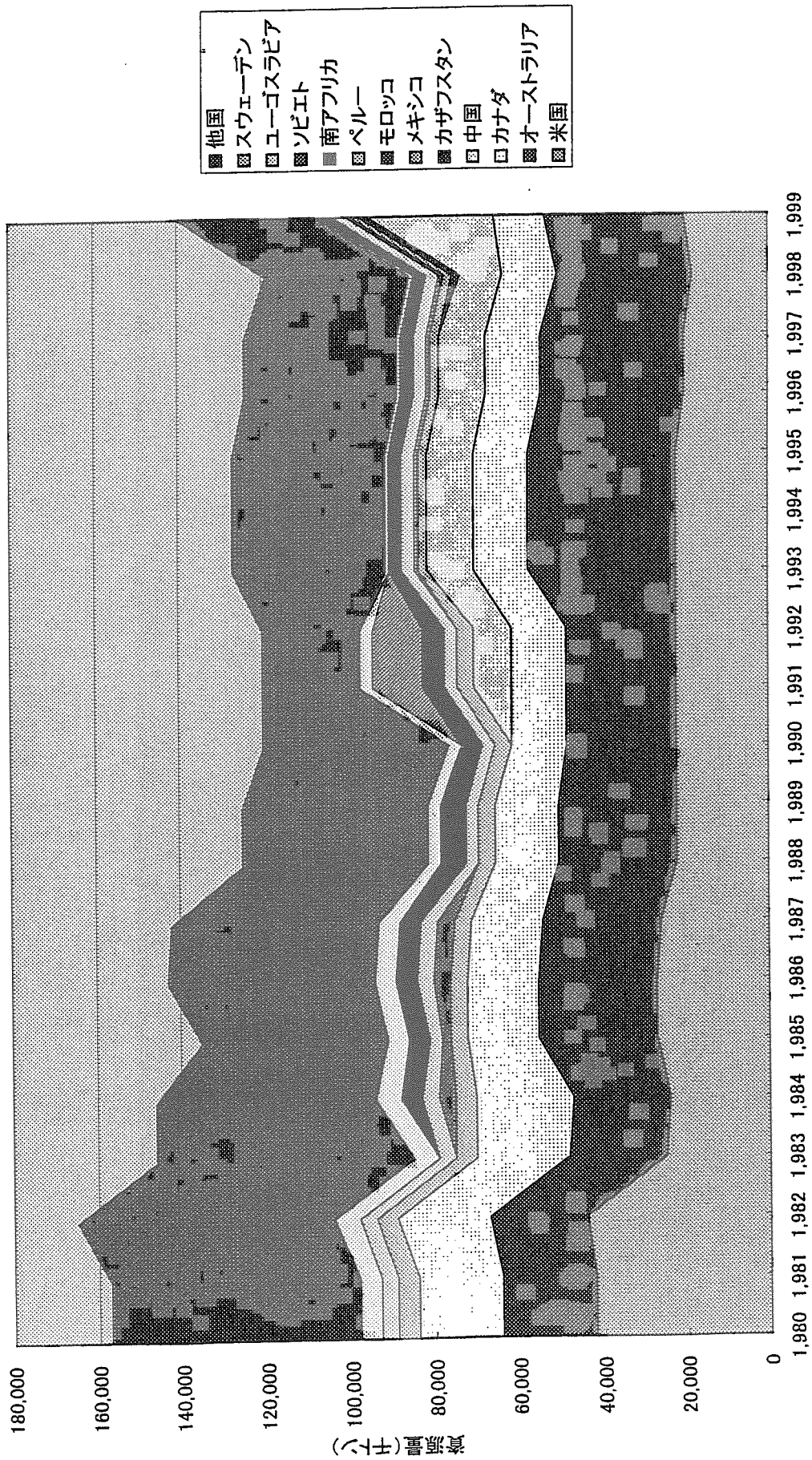


図5. 2 鉛資源量の推移

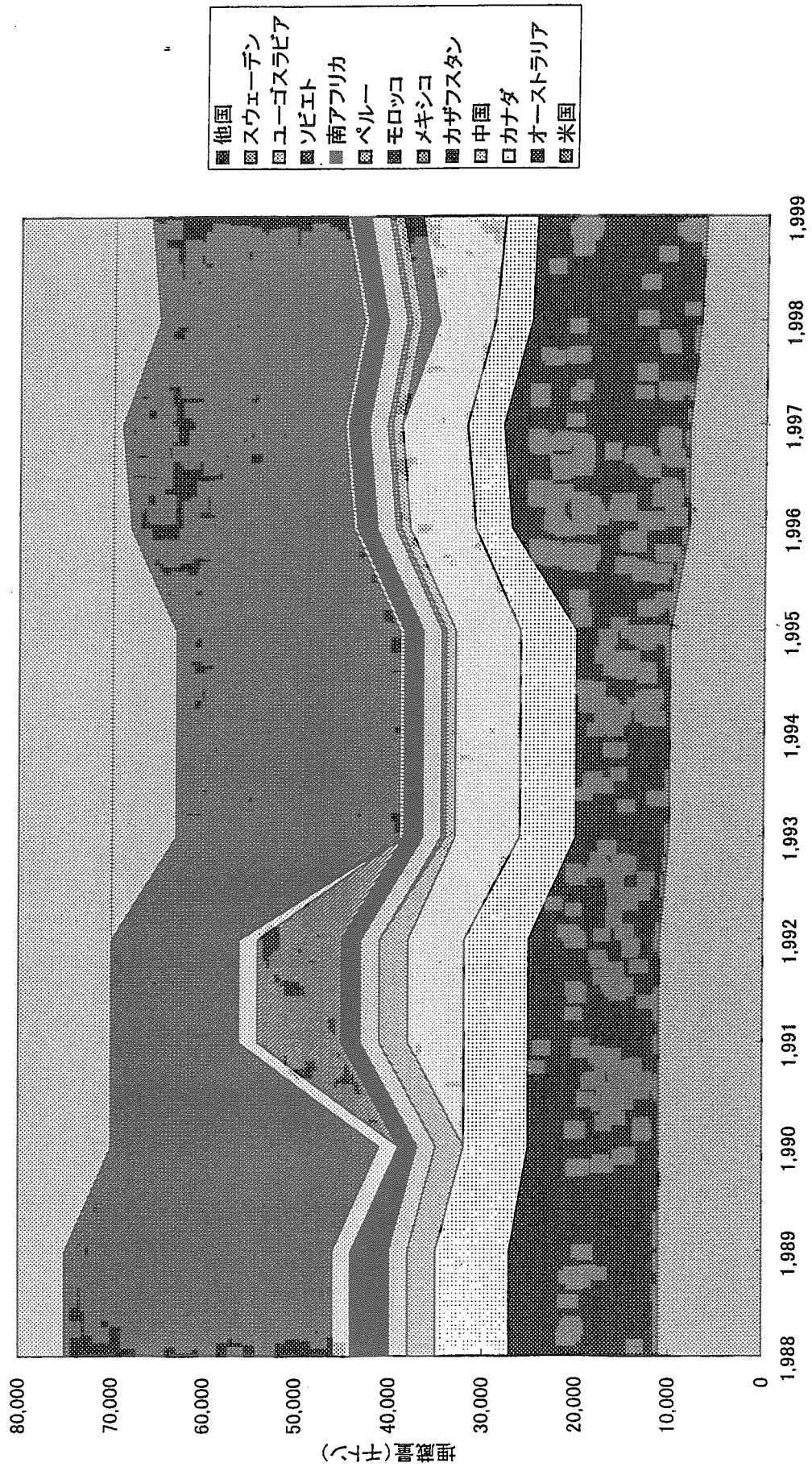


図5.3 鉛埋蔵量の推移

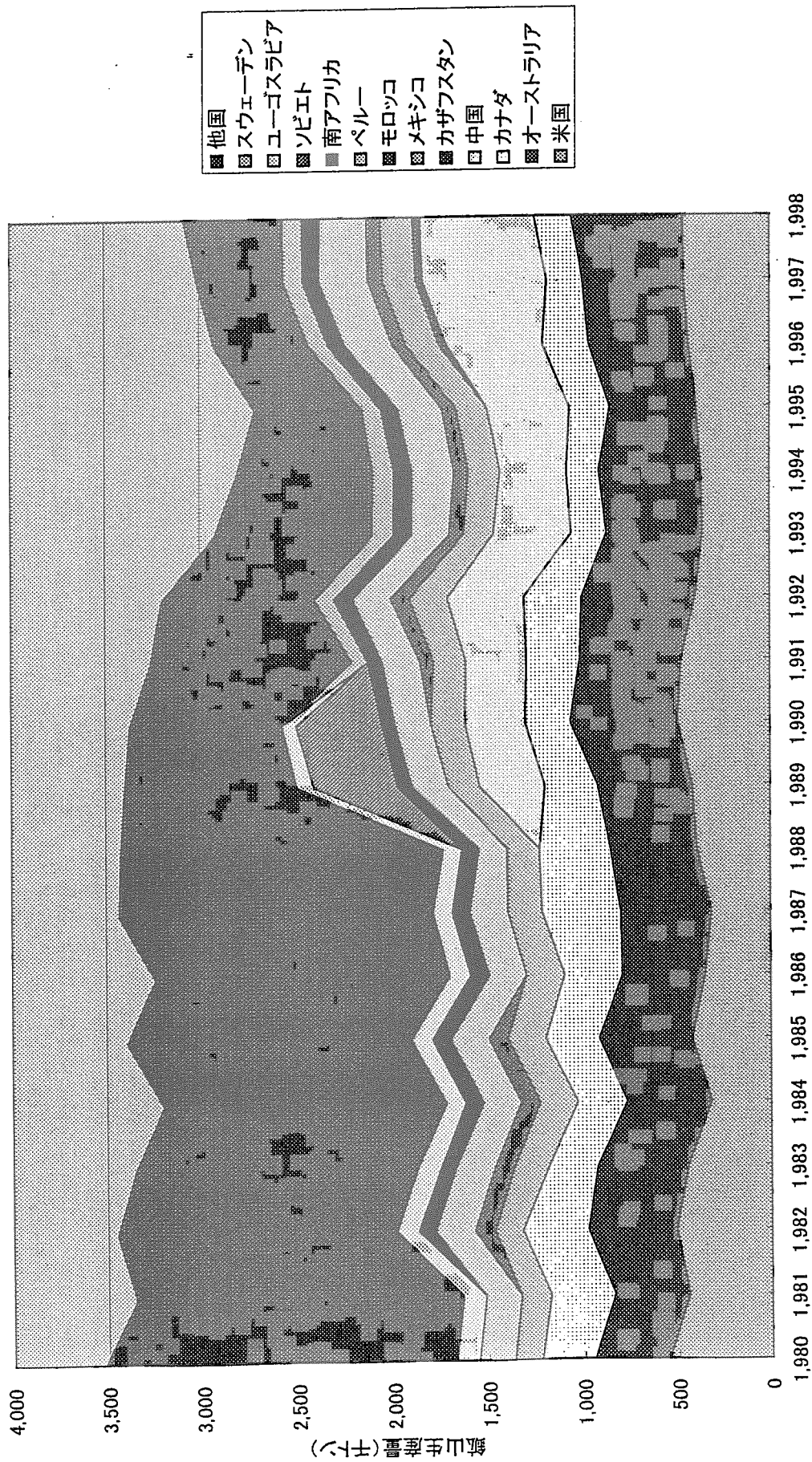


図5. 4 鉛・亜鉛生産量の推移

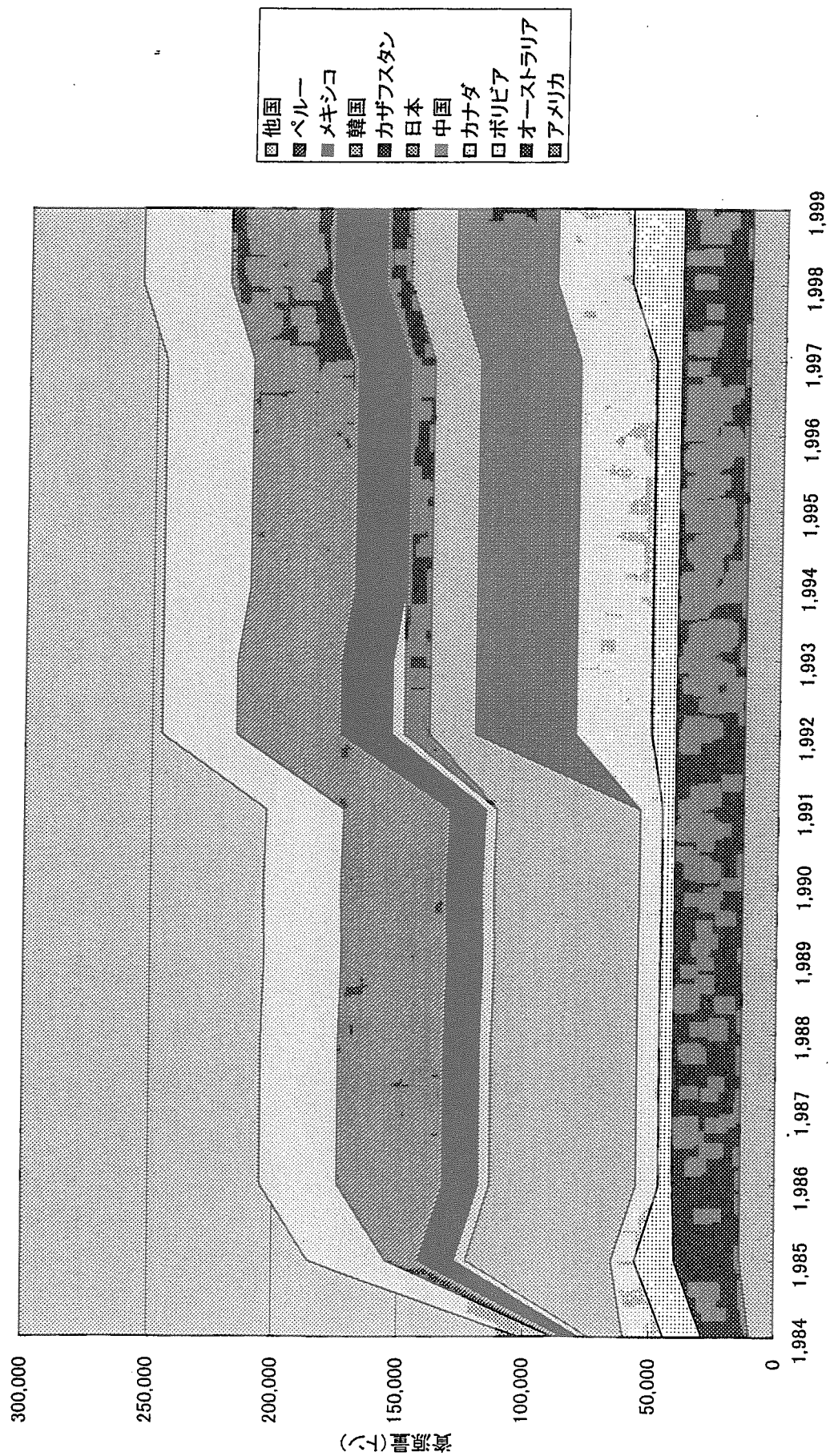


図5. 5 ビスマス資源量の推移

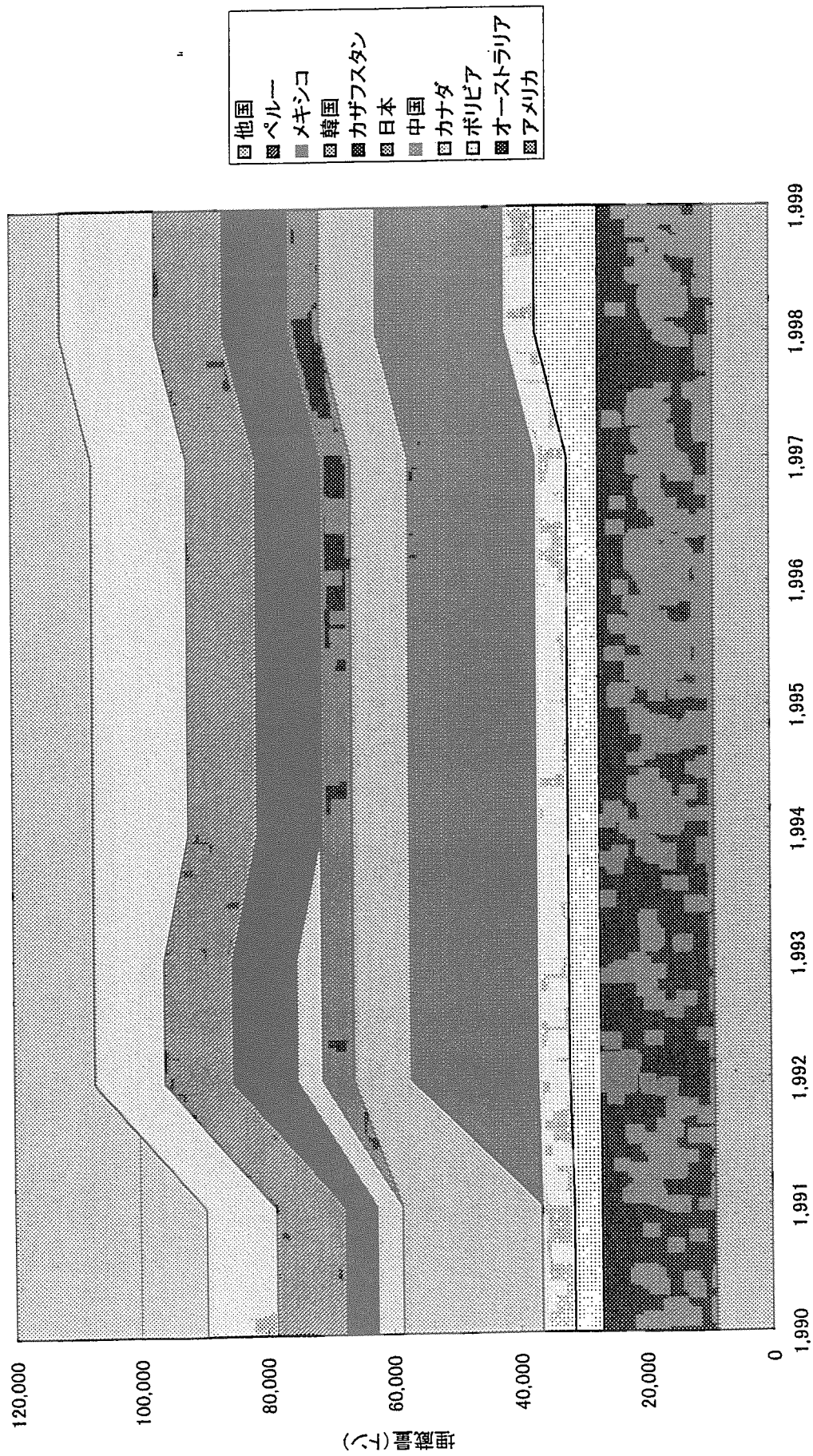


図5.6 プルトニウム貯蔵量の推移

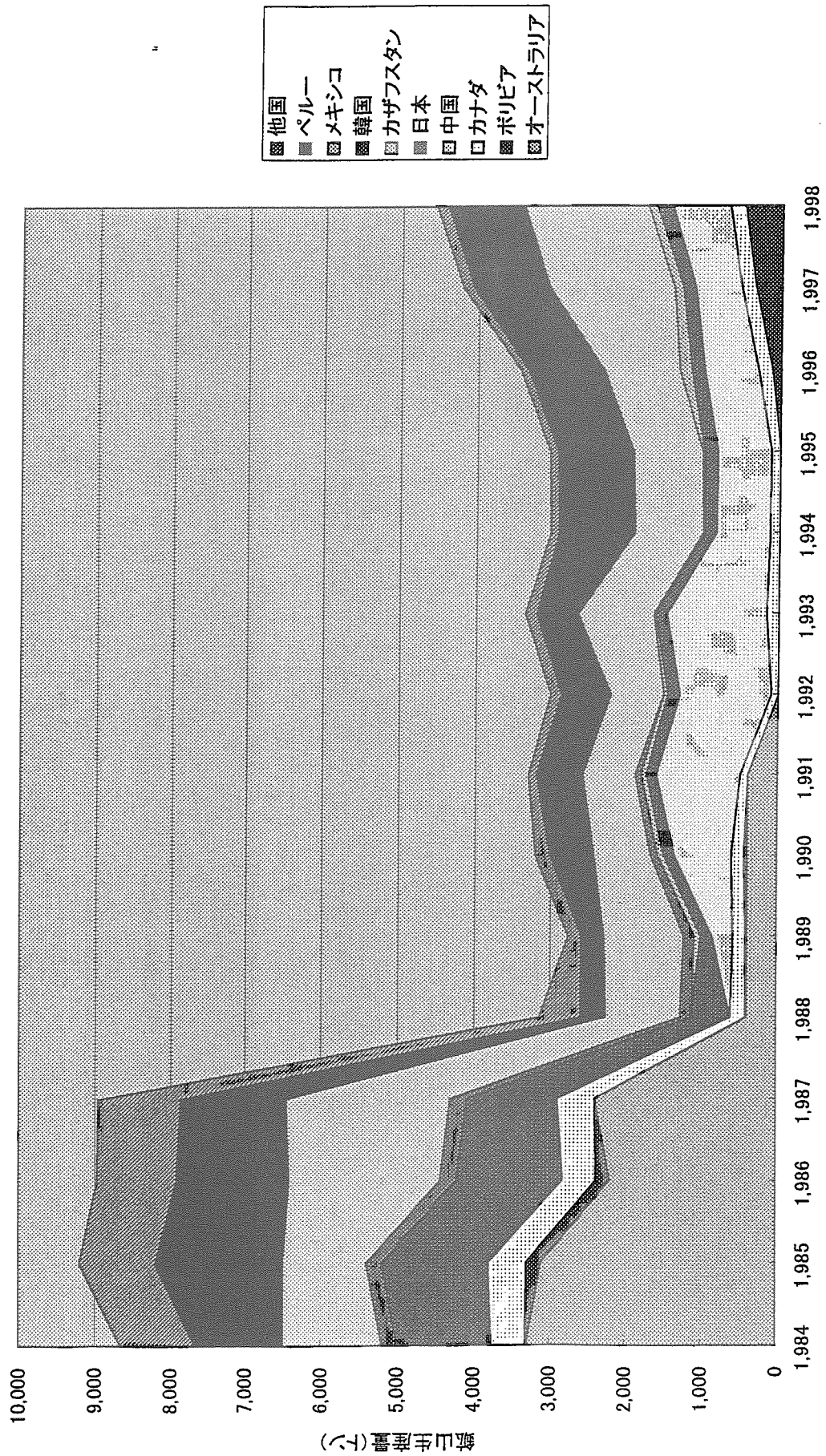


図5.7 ビスマス鉱山生産量の推移

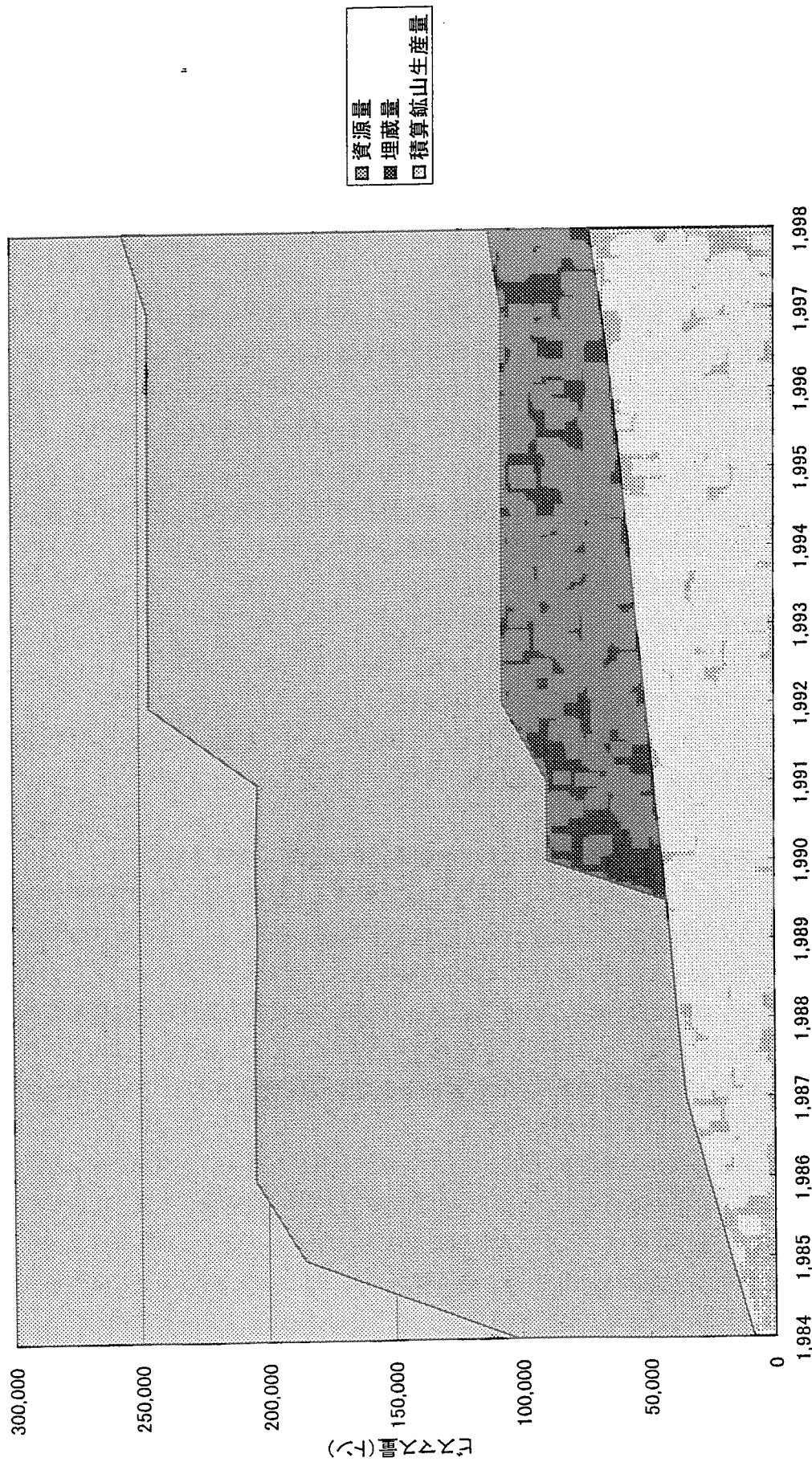


図5.8 ビスマス資源量の比較

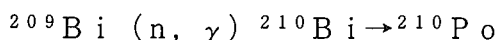
6. ポロニウムの揮発率

(1) 一般的性質

ポロニウムは放射性核種であり、天然には、トリウム系列、ウラン系列、アクチニウム系列として7核種存在する。密度は約 9.4g/cm^3 、融点は 254°C 、沸点は 962°C であり、揮発しやすい性質を有している。化学的にはテルル、セレンと類似であり、物理的にはビスマス、鉛と類似する。^[6-8]

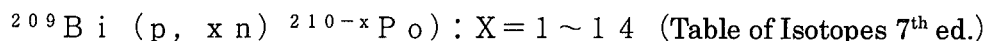
鉛・ビスマスを用いたADSで、ポロニウムが生成される過程は、ビスマスの反応によるものと鉛の反応によるものがある。鉛を冷却材に用いるADSでは、ポロニウムの発生量は鉛・ビスマスを用いるものに比べ、千分の一から1万分の一の強度になる。^[6-5] 従って、鉛・ビスマスを用いたADSにおけるポロニウムの生成は、ビスマスの反応によるものが主となる。ビスマスの自然同位体組成は、 ^{209}Bi が100%である。ADSにおけるPoの主要な生成過程以下のものが考えられ、放射能の生成量と崩壊量のバランスする飽和濃度も評価されている。

a. ビスマスの中性子による放射化



原子炉における飽和濃度： $4 \sim 40 \times 10^{10} \text{Bq/kg}$ ^[6-2]

b. ビスマスと高エネルギー陽子の核反応



加速器のターゲットの飽和濃度： $40 \times 10^{10} \text{Bq/kg}$ ^[6-2]

(2) Poの鉛・ビスマス中における化学形態及び揮発率に関する特性

鉛・ビスマス中においてポロニウムはPbPoを形成する。^{[6-2],[6-5],[6-6],[6-7]}なお、ポロニウムはビスマスと化合し Bi_2Po_3 を形成するが、鉛・ビスマス中ではPbPoの方が安定なため、PbPoのみ存在するようである。^[6-5]

真空中における鉛・ビスマスからのPbPoの飽和蒸気圧及びPo金属単体の飽和蒸気圧を図6.1に示す。^{[6-2],[6-7]}この関係から、飽和蒸気圧は400K～1000Kの範囲で、 $1/T$ に対して直線的に表され、PbPoの飽和蒸気分圧の方が、Poの蒸気分圧に比べ低くなっていることがわかる。

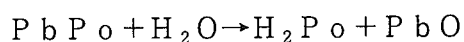
次にPo金属の蒸発率及びの鉛・ビスマスからのPbPoの蒸発率を図6.2に示す。ここに示されているとおり、PbPoの蒸発率はPoの蒸発率より低くなっている。従って、PbPoが鉛・ビスマスで形成されることにより全Poの蒸発が低減化される。しかし、文献[6-6]によると、鉛・ビスマスに含まれるポロニウムのうちPbPoは99.8%であり、蒸発率が $2 \times 10^{-5} \text{Ci/m}^2\text{s}$ であるのに対し、0.2%の単体のポロニウムにより、全体のポロニウムの蒸発率が $6 \times 10^{-5} \text{Ci/m}^2\text{s}$ になる。従って、ポロニウムが蒸発する形態は、単体としてのものが多くなると考えられる。

また、雰囲気が大気圧になると真空中より蒸発率は低下する。文献[6-5]では、これが1000倍程度であるとしている。文献1ではこれに関する実験結果が示されており、250℃で1～5分の1、550℃で400分の1に小さくなるという結果が示されている。なお、250℃の蒸発率はかなり小さいので誤差が大きい可能性がある。

これらの2つの効果を考慮すると、Poの蒸発量は、真空中におけるPo金属の蒸発量に比べかなり小さくなると考えられる。

また、ポロニウムと鉛・ビスマスの蒸発割合をを比較すると、低温では同程度、高温ではポロニウムの割合が高くなる傾向にあることが文献[6-1]で示されている。気化した蒸気を凝縮させたものの成分を分析した結果、250℃では凝縮物のPo濃度は鉛・ビスマスと同じオーダーであったが、550℃ではPoの濃度が3桁高くなった。この傾向を用いてポロニウムの蒸発分離を検討することが可能になる。なお、鉛とビスマスの蒸発率を比較すると250℃では鉛の方が蒸発しやすく、550℃では同程度になるとい実験結果も得ている。

なお、PbPoは水蒸気と反応し揮発性のH₂Poを形成する。この反応式は、以下のとおり表される。



H₂Poの平均寿命は安全側に考えると20分であり^[6-2]、H₂Poの生成率は、換気されている条件で、残留物質中のポロニウム1Bq当たり 2×10^{-9} (Bq/s)である。

(文献[6-2]では、Petryanov et al., Froming and release of gaseous plonium fraction from solid specimens, Report of Russian Academy of Science, 1992, Vol.32, No.3を引用している。)

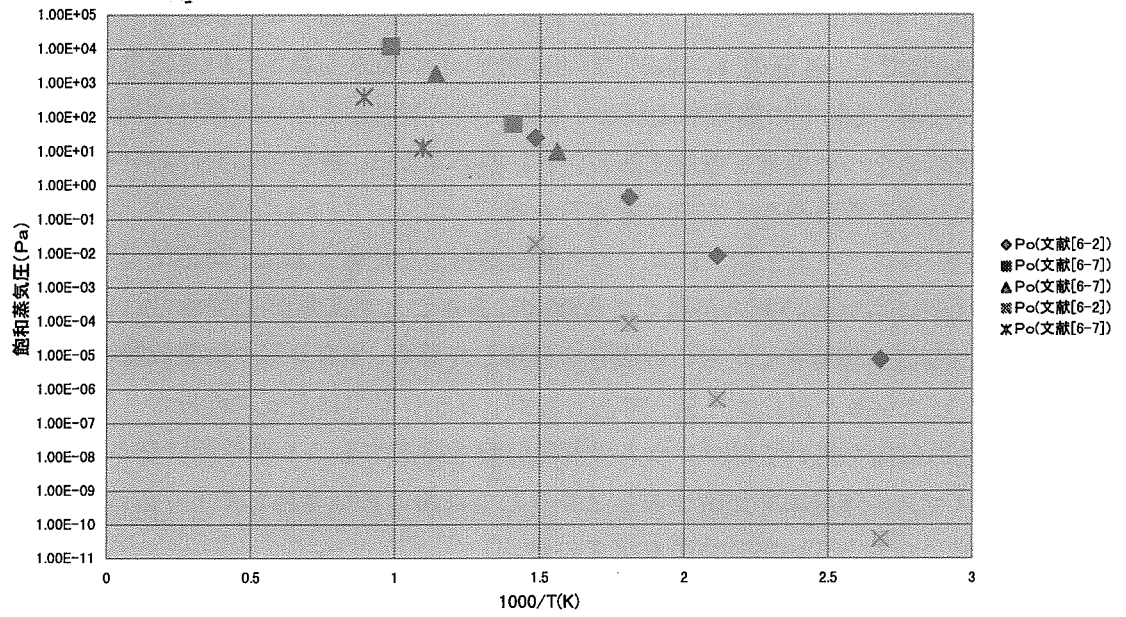


図6.1 PoとPbPoの飽和蒸気圧

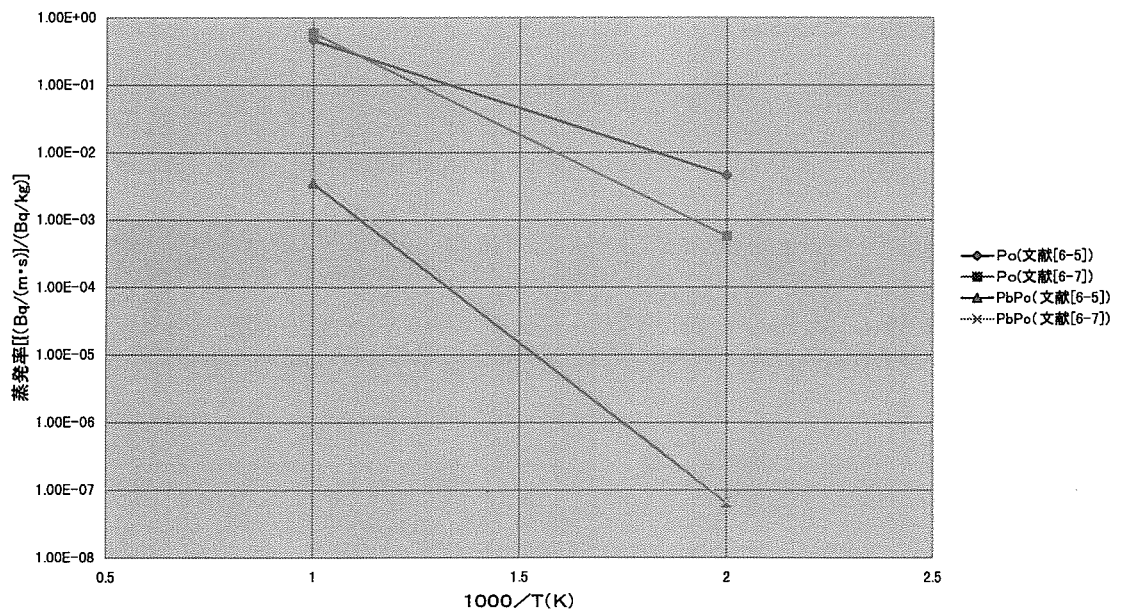


図6.2 LBCからのPbPoの蒸発率とPoの蒸発率

(3) ADSで生成される主なポロニウムの種類と特性

ADSで生成される主なポロニウムの放射能としての特長を表 6.1 に示す。

一例として、ADSで生成されるポロニウムの量が文献[6-5]に示されている。このデータは、15 MWのターゲット出力で、陽子加速電圧1 GeVで、1年間運転した直後の放射能濃度である。このデータをもとに、停止後一定期間の放射能強度変化を求めた。この結果を表 6.2 に示す。

表 2 から、生成されるポロニウムは、 ^{210}Po が最大である。これは、核破碎反応及び未臨界増倍により発生する中性子の放射化により生じたものと考えられる。高エネルギー陽子との核反応で生じるポロニウムは、 ^{206}Po が最大となる。 ^{206}Po の量は、 ^{210}Po とほぼ同じである。一方、停止後の期間が長くなり、1週間程度経つと、考慮すべき放射能は、 ^{210}Po 、 ^{208}Po 、 ^{206}Po のみを考慮すれば十分と考えられる。

表 6.1 ポロニウムの放射能特性

核種	半減期	原子量	崩壊形式	割合 (%)
^{210}Po	138.38 d	209.983	α	100
^{209}Po	102 y	208.982	α	99.74
			E C	0.26
^{208}Po	2.898 y	207.981	α	~100
			E C	0.002
$^{207\text{m}}\text{Po}$	2.8 s	206.983	I T	
^{207}Po	5.7 h	206.982	EC	99.5
			α	~0.01
			β^+	0.5
^{206}Po	8.83d	205.980	E C	94.55
			α	5.45
^{205}Po	1.8h	204.981	E C	99.51
			α	0.49
^{204}Po	3.57h	203.980	E C	99.38
			α	0.62
^{203}Po	33m	202.981	E C	99.89
			α	0.11
^{202}Po	45.0m	201.981	E C + β^+	98
			α	2

表 6.2 ADSで生成されるポロニウムの放射能強度 (Ci) の比較結果

核種	半減期	停止後の期間			
		直後	1時間	1日	1週間
^{210}Po	138.38d	23,100.0	23,095.2	22,984.6	22,304.1
^{209}Po	102y	36.1	36.1	36.1	36.1
^{208}Po	2.898y	2,570.0	2,569.9	2,568.3	2,558.2
^{207}Po	5.7h	17,240.0	15,266.0	931.2	0.0
^{206}Po	8.83d	19,020.0	18,957.9	17,584.0	10,979.1
^{205}Po	1.8h	14,200.0	9,661.6	1.4	0.0
^{204}Po	3.57h	13,760.0	11,331.7	130.3	0.0
^{203}Po	33m	7,700.0	2,183.6	0.0	0.0
^{202}Po	45.0m	5,465.0	2,168.8	0.0	0.0
^{201}Po	15.2m	2,853.0	184.9	0.0	0.0
^{200}Po	11.6m	851.0	23.6	0.0	0.0
合計		106,795.1	85,479.3	44,235.9	35,877.6

計算条件: 15 MW, 1 GeV, 運転期間 1 年

文献[6-4]では、ADSのターゲットの放射性毒性を鉛・ビスマス高速炉及び天然ウランと比較・評価している。

ADSターゲットとしては、以下の2種類のうち、#1を用いている。鉛・ビスマス炉としては、BRUS150（熱出力500MW）であり、天然ウラン鉱石としては、 U_2O_3 1立方メートルである。

ターゲット	L (cm)	D (cm)	E_p , (MeV)	I_p , (mA)	照射期間 (日)
#1	100	50	800	30	365
#2	60	20	800	1.25	91

評価結果を図6.3に示す。これらの毒性は、各放射能の飲料水（ $1m^3$ ）の許容値に対する値の合計として求められており、鉛・ビスマスの値は $1m^3$ の鉛・ビスマスに含まれる放射能を除いて求めている。ここに示したとおり、BRUS炉の放射能は約十年で変化がなくなるが、ADSは緩やかに減少してゆく特長がある。

ADSの放射能と放射性毒性を冷却期間により比較したものを表6.3に示す。ここに示したとおり、冷却期間が短い間は、放射性毒性はポロニウムが支配的になる。冷却期間が1000年程度になると ^{194}Hg が支配的になるが、図6.3に示した通り、初期の毒性に比べ大分小さくなっている。

鉛・ビスマスを用いたADSで発生する揮発性放射性核種は文献4で評価されている。このADSの出力は1000MWtで、運転期間は30年、ブランケットは3年で交換する。加速器の条件は、陽子ビーム出力が30MW、加速エネルギーは800MeVの結果であり、ターゲットのループを独立させている。ここでは、半減期1時間以上の核種を考慮し、ADSで発生するものとしては揮発性核種のPo及びHgを選択している。冷却期間は明らかにされていないが、半減期が1時間程度の核種が含まれているので、停止直後の値と考えられる。ここでは、表6.3の結果と比較するために、365日連続運転後、0.1年、10年及び1000年冷却させたときの核種も合わせて示す。これらの値は表6.4に示すとおりである。ここで示されている核種の生成割合は、Shubin Yu.A., Safety Aspects of Target for ADTT: Activity Volatile Products, Residual Heat Release, ADTT'99の値を比例換算して求めている。

ここに示されているとおり、運転停止後10年程度経過した後の主要な揮発性核種は、 ^{209}Po 、 ^{208}Po 、 ^{194}Hg 、 ^{85}Kr 、 3H となる。

表 6.3

Relative contribution of different nuclides into the total radioactivity and radiotoxicity

Cooling Time, years	Contribution to radioactivity, %		Contribution to radiotoxicity, %	
	Target #1	Target #2	Target #1	Target #2
0.1	Bi-205 (22%)	Bi-205 (22%)	Po-210 (87%)	Po-210 (68%)
	Au-195 (23%)	Au-195 (15%)		
	Os-185 (9%)	Os-185 (8%)		
10	Bi-207 (52%)	Bi-207 (43%)	Po-208 (70%)	Po-208 (68%)
	H-3 (40%)	H-3 (38%)		
1000	Hg-194 (44%)	Hg-194 (44%)	Hg-194 (90%)	Hg-194 (90%)
	Au-194 (44%)	Au-194 (44%)		

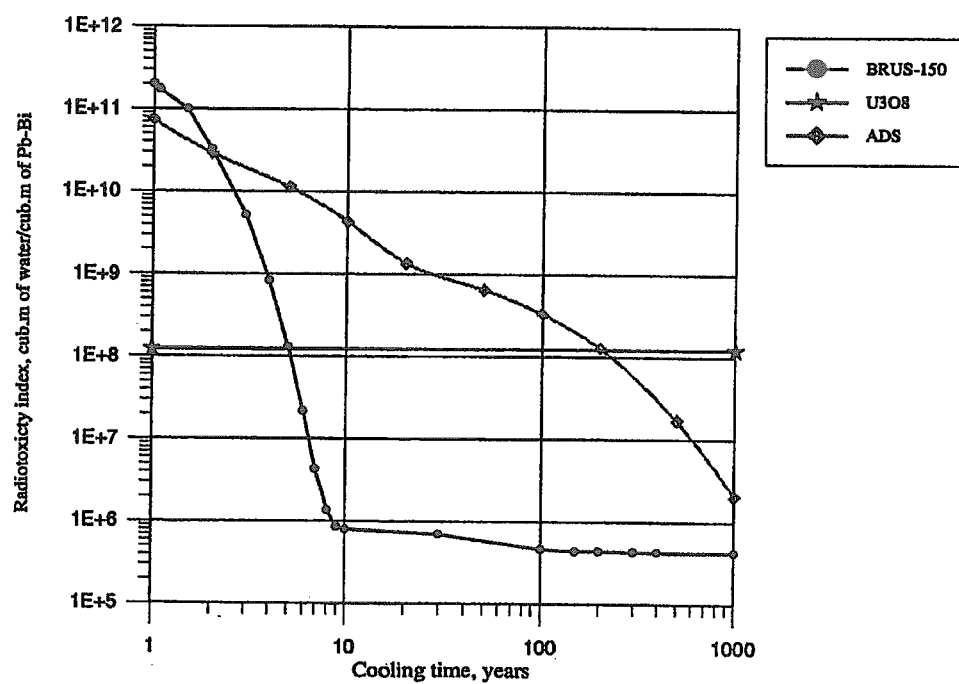


図 6.3 Specific activity of coolant for BRUS-150 and ADS.

表 6.4 ビームパワー: 30MW, エネルギー 800MeV の ADS で発生する放射能

種類	核種	崩壊定数	線源強度		365日運転後の線源強度(Bq/s)			
		1/s	個/s	Bq/s	停止直後	0.1年冷却	10年冷却	千年冷却
生高 すエ ル 放 射 能 の 陽 子 ・ 中 性 子 に よ り タ ー ゲ ッ ト で 発	Po - 210	5.80E-08	5.69E+14	3.30E+07	4.78E+14	3.98E+14	4.53E+06	0.00E+00
	Po - 209	2.15E-10	1.69E+14	3.63E+04	1.14E+12	1.14E+12	1.07E+12	1.21E+09
	Po - 208	7.58E-09	9.13E+14	6.92E+06	1.94E+14	1.90E+14	1.74E+13	2.66E-91
	Hg - 203	1.72E-07	2.15E+14	3.70E+07	2.14E+14	1.24E+14	3.45E-10	0.00E+00
	Hg - 197	3.00E-06	1.68E+16	5.04E+10	1.68E+16	1.31E+12	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 197 m	8.09E-06	1.27E+15	1.03E+10	1.27E+15	1.06E+04	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 195	2.03E-05	1.13E+16	2.29E+11	1.13E+16	1.78E-12	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 195	4.64E-06	1.27E+15	5.89E+09	1.27E+15	5.61E+08	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 194	4.22E-11	1.15E+16	4.85E+05	1.53E+13	1.53E+13	1.51E+13	3.99E+12
	Hg - 193	5.07E-05	3.56E+15	1.80E+11	3.56E+15	1.30E-54	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 193 m	1.63E-05	2.38E+15	3.88E+10	2.38E+15	1.13E-07	0.00E+00	0.00E+00
	Hg - 192	3.97E-05	4.13E+15	1.64E+11	4.13E+15	1.75E-39	0.00E+00	0.00E+00
	Xe - 133	1.53E-06	2.04E+12	3.12E+06	2.04E+12	1.64E+10	0.00E+00	0.00E+00
	Xe - 129 m	9.02E-07	4.73E+12	4.27E+06	4.73E+12	2.75E+11	0.00E+00	0.00E+00
	Xe - 127	2.20E-07	3.80E+13	8.36E+06	3.80E+13	1.90E+13	1.40E-17	0.00E+00
	Xe - 125	1.13E-05	4.33E+13	4.89E+08	4.33E+13	1.45E-02	0.00E+00	0.00E+00
	Xe - 123	9.26E-05	6.18E+13	5.72E+09	6.18E+13	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
	Kr - 88	6.78E-05	1.34E+13	9.09E+08	1.34E+13	1.86E-80	0.00E+00	0.00E+00
	Kr - 87	1.51E-04	2.92E+13	4.41E+09	2.92E+13	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
	Kr - 85	2.05E-09	1.04E+14	2.13E+05	6.51E+12	6.47E+12	3.39E+12	2.84E-16
	Kr - 85 m	4.30E-05	6.61E+13	2.84E+09	6.61E+13	8.47E-46	0.00E+00	0.00E+00
	Kr - 79	5.49E-06	1.51E+14	8.29E+08	1.51E+14	4.57E+06	0.00E+00	0.00E+00
	Kr - 77	1.55E-04	1.49E+13	2.31E+09	1.49E+13	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
	H - 3	1.78E-09	2.53E+16	4.50E+07	1.38E+15	1.37E+15	7.83E+14	3.28E-10
ブ ラ ン ケ ッ ト	放射化	Po - 210	5.80E-08	7.20E+16	4.18E+09	6.04E+16	5.03E+16	5.73E+08
		Hg - 203	1.72E-07	4.40E+11	7.57E+04	4.38E+11	2.55E+11	7.06E-13
	F P	Xe - 135	2.12E-05	8.74E+12	1.85E+08	8.74E+12	8.06E-17	0.00E+00
		Xe - 133	1.53E-06	8.55E+13	1.31E+08	8.55E+13	6.86E+11	0.00E+00
		Kr - 88	6.78E-05	1.18E+12	8.00E+07	1.18E+12	1.64E-81	0.00E+00
		Kr - 85	2.05E-09	2.40E+14	4.92E+05	1.50E+13	1.49E+13	7.82E+12
		Kr - 85 m	4.30E-05	6.82E+11	2.93E+07	6.82E+11	8.74E-48	0.00E+00
		H - 3	1.78E-09	6.20E+15	1.10E+07	3.38E+14	3.37E+14	1.92E+14

半減期 1 時間以上

揮発性核種のうち、Po, Hg のみを考慮(他の寄与は 1% 以下)

ビームパワー: 30MW, エネルギー 800MeV

Shubin Yu.A., Safety Aspects of Target for ADTT: Activity Volatile

Products, Residual Heat Release, ADTTA '99 より比例換算

(4) 影響検討

鉛・ビスマスからのポロニウム蒸発率 (σ_s^k : Bq/s) は、蒸発率に関連するラングミュア (Langmuir) の関係式及びラウル (Raul) の法則より以下のとおり表される。²⁾

$$\sigma_s^k = 4.39 \times 10^{-9} \cdot A_T \cdot \sum_j \{ (F_j \cdot p_{s,j}^k) / \sqrt{(M_k \cdot T_j)} \}$$

ここで、

F_j : 温度 T_j (K) の鉛・ビスマスの表面積 (m^2)

$p_{s,j}^k$: 化学形態 k のポロニウムの温度 T_j (K) における飽和蒸気圧 (Pa)

M_k : 化学形態 k のポロニウムの 1 モル当たりの質量

A_T : ポロニウムの全放射能

この関係式にはカバーガスによる蒸発遮蔽効果が考慮されている。計算で使用するポロニウムの飽和蒸気圧は、図 6-4 に示されているもののうち以下のとおり。

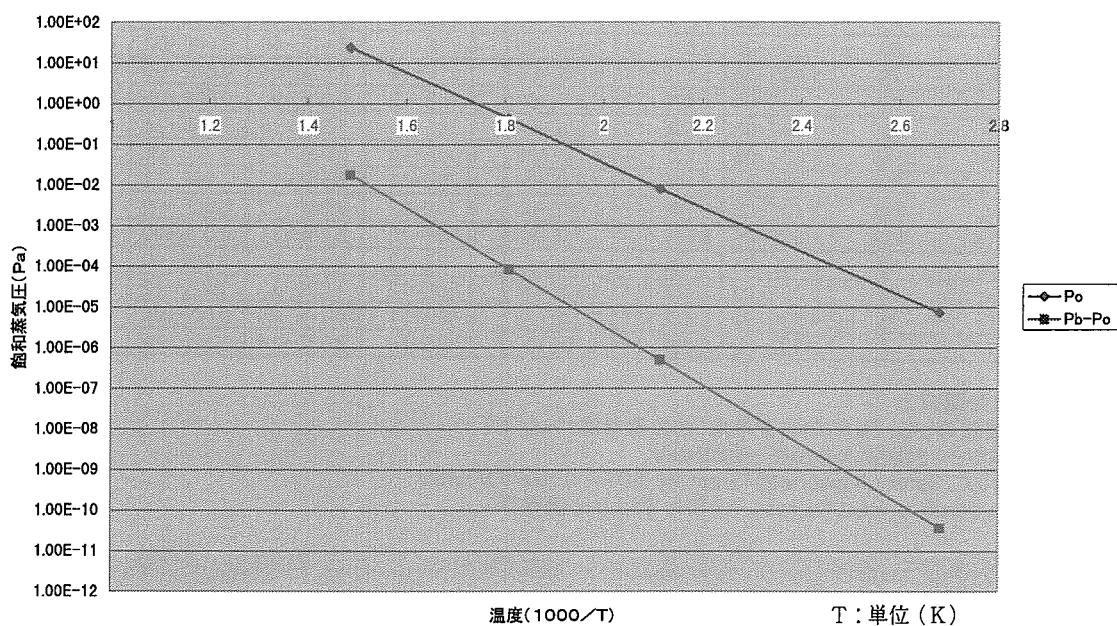


図 6-4 Po、Pb-Po の飽和蒸気圧

S V B R - 7 5 における通常時放射能評価例²⁾

以下の条件において通常時に放出される放射能の影響評価を行なっている。

カバーガス漏洩率: 0.5%/d

鉛・ビスマス中ポロニウム濃度: 4.5×10^{10} Bq/kg

高温部 (400℃) 表面積: $3 m^2$

低温部 (280℃) 表面積: $6.1 m^2$

この結果、ガス層へ移行する放射エネルギーは以下のとおりとなった。

ガス層ポロニウム蓄積総量： $3.58 \times 10^{10} \text{ Bq}$ （主にコールドサーフェスに付着）
 ガス層蒸気ポロニウム： $1.7 \times 10^5 \text{ Bq}$
 ガス層エアロゾルポロニウム： $2.0 \times 10^6 \text{ Bq}$
 ガス層ポロニウムハイドライト： $8.6 \times 10^5 \text{ Bq}$

また、原子炉格納容器内のポロニウム濃度はガスの漏洩率が $0.5\%/d$ 、格納容器内のエアロゾルポロニウムの寿命が1000秒として、 $1.8 \times 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$ であり、従事者の許容濃度 2.7 Bq/m^3 （ 8 Bq/m^3 ）*を十分下回り、一般人の許容濃度 $4.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$ （ $6 \times 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$ ）*並みの値になることが示されている。なお、短半減期核種の影響を考慮すると、表6.2に示したとおり、ポロニウムの濃度は5倍大きくなるが、一般人の許容値の2倍程度の大きさであり、従事者の許容濃度は十分下回っている。

* : カッコ内の数値は日本の許容値を表す。

SVBR-75における設計基準事象を超える事故時放射能評価例²⁾

事故の想定として以下の事象を重ねあわせて考慮している。

- ・ 原子炉建屋破壊
- ・ 閉じ込め機能喪失
- ・ 鉛・ビスマスの大気との直接接触（原子炉容器の蓋無し）
- ・ 通常の熱除去不作動

この結果、事故条件として設定したものは以下のとおりである。

- ・ 鉛・ビスマス温度： 800°C
- ・ 大気との接触面積： 9.1 m^2
- ・ ポロニウム放出時間：24時間
- ・ ポロニウム総放出量： $2.45 \times 10^{11} \text{ Bq}$
- ・ 気象条件：最悪

評価結果を以下に示す。

- ・ 最大放射能濃度(at 1km)： 9 Bq/m^3
- ・ 24時間の吸入量： 180 Bq （許容値： 330 Bq/y ）
- ・ 内部被曝量： 0.5 mSv
- ・ 集積線量： $0.3 \text{ Sv} \cdot \text{man}$ （10km圏内、人口密度： 100 人/m^2 、総人口：3万人）
- ・ 平均線量： 0.01 mSv 以下
- ・ 堆積物からの影響： $27 \text{ Sv} \cdot \text{man}$
- ・ 人的リスクの平均値： $5 \times 10^{-6} \text{ 1/年}$

（リスク係数： $7.3 \times 10^{-2} \text{ 1/(Sv} \cdot \text{man))}$ （RSS-96）

Po汚染の経験^[6-2]

ロシアにおいては、ポロニウムで汚染された鉛・ビスマスの漏洩事故の経験がある。これは、705Kプロジェクトで1982年に発生した。漏洩した放射能の濃度は 10^{10} Bq/kg、重量は2トンであり、原子炉格納容器内の広い範囲にジェット流を伴って飛散した。このときの空气中放射能濃度は 40 Bq/m³、表面汚染密度は最大 10^5 Bq/cm²・sであった。事故処理期間中の空气中放射能濃度は、作業内容により大幅に異なり、 $4 \sim 4 \times 10^3$ であった。作業には、特殊マスク、防護服を使用し、負圧維持による汚染拡大防止で対応した。漏洩した汚染合金は除去し、除染及び汚染表面のポリマー膜コーティングで対応した。

(5) 対応策

通常時運転時は、1次冷却系のガス層の漏洩率を $0.5\%/d$ 以下に保つことで、内部被曝の問題はない。ただし、燃料交換時やメンテナンス時にはポロニウムの対策が必要になる。作業には、特殊マスク、防護服を使用することが必要になり、負圧維持による汚染拡大防止を考慮する必要もある。また漏洩には、汚染合金除去、除染、汚染表面のポリマー膜コーティングが有効である。

また、ADSでは鉛・ビスマス中で発生する長半減期のポロニウムをアルカリで分離する方法が有効であり、 10^4 程度の効率があり、不揮発性の化合物として分離することができるとしている。^[6-9] また、文献5では蒸発分離法とアルカリ分離法の2種類があるが、後者の方が有利であるとしている。これは、前者は蒸発のため高温で広いエリアが必要になるからである。なお、アルカリ分離法を用いる場合は、冷却材は還流される必要があるので、残存するアルカリの精製と酸素濃度の調整が腐食防止のために必要であるとして、今後の開発課題であるとしている。

なお、冷却材に鉛を使用する場合は、ポロニウムの発生量は1000分の1程度になるが、使用する温度が高くなるため蒸発量が増加し、事故時に放出される量は10分の1程度にしかない。^[6-9] また、鉛冷却材には冷却材技術として解決されなければならない事項が多くある。

その他、ADSに必要とされる機能として、ターゲットループの系統分離がある。これは、表4で示されているとおり、ターゲットではよう素、ゼノンが発生するため、燃料棒の破損を早期に検知するために必要とされる条件である。

(6) まとめ

ポロニウムは鉛・ビスマス中ではPbPoを形成し、Po単独の状態より蒸発率は低くなる。さらに大気中では真空雰囲気より蒸発率が低下する。このような性質があるため、ロシアにおいてポロニウムの放出による影響評価を行なった結果、基準値を十分下回るものであった。従業員及び環境に対する影響は、ポロニウム以外のFP等が支配的になると指摘されている。従って、ADSにおいても適切な設計・評価を行なうことにより、施設は設置可能なものであると考えられる。

なお、ポロニウムの分離に関する研究も行われているが、現時点では課題が多く残

されている。現状では溶融金属中に閉じ込め保管する方法が最適と考えられる。

参考文献

- [6-1] R. B. Tupper et al. : "Polonium Hazards Associated with Lead-Bismuth Used as a Reactor Coolant", FR' 91, Kyoto, 1991.
- [6-2] Pankratov D. V. et al. : "Polonium Problem in Nuclear Power Plants with Lead-Bismuth as a Coolant", The report on conference on heavy coolant for NPS, Obninsk, Oct. 5-9, 1998.
- [6-3] Yefimov E. I. et al. : "Radiological Properties of Heavy Liquid Metal Targets of Accelerator Driven System", ADTTA99.
- [6-4] V. I. Levanov et al. : "The Estimation of Radiation Danger of Gaseous and Volatile Radionuclides in ADS with Pb-Bi Coolant", ADTTA99.
- [6-5] Ning Li: "Polonium Hazards and Its Removal from Liquid Metal Target", LANL home page.
- [6-6] Ning Li: "Liquid Lead-Bismuth Technology Development For Accelerator-Driven Transmutation of Waste", AccApp98.
- [6-7] D. V. Pankratov et al. : "Ploniumu problem in lead-bismuth flow target", CONF-9603171, 1996, U. S. DOE report
- [6-8] 理科学辞典 第4版、岩波書店 (1992)
- [6-9] B. F. Gromov et al. , Lead-Bismuth as a perspective coolant for advanced reactors and accelerator-based plants. , Proceedings of the International Topical Meeting on Advanced Reactor Safety, 1994

7. ま と め

原研が計画している加速器駆動核変換処理（核変換）システムの冷却材、ターゲット材に溶融鉛ビスマスあるいは、溶融鉛を使用することを念頭に置いて、それらの特性調査を行った。以下に本報告書のまとめを示す。

- (1) 国内施設としては、溶融鉛及び溶融鉛ビスマスを相当量扱っている製錬施設を中心に調査した。特に、精錬施設で用いられている溶融鉛ビスマス熱交換器については、国内唯一の発電プラントであること、長年に亘って現在に至るまで順調に稼動している設備であること等から、本調査結果は貴重なデータであると言える。
- (2) 国外施設としては、溶融鉛ビスマスを冷却材とした原子炉を開発した実績を有するロシア IPPE 研究所、鉛高速炉開発の実績を有する RDIPE 研究所および世界の核破砕ターゲット施設の計画を中心に調査した。特に、IPPE 研究所は、原子力潜水艦の原子炉としての運転実績のみならず陸上高速炉の冷却材、ターゲット材としての開発実績を有しており、このデータに基づいて、欧州、アメリカが Pb-Bi 流動特性実験及び材料腐食試験を開始している。
- (3) 特性調査として、材料腐食、水反応、伝熱・流動、化学毒性等の観点から調査した。以下では、特性調査の結果を基に、今後の課題をまとめた。

1) 材料腐食

本書では、材料腐食については、広範な文献調査などを実施したが、体系的にまとめた腐食データが少ないことが分かった。溶解度及び冷却材清浄度管理と保護皮膜形成の観点から防食する技術の見通しがあることを明らかにした。今後、適正酸素濃度の決定、熱力学データの整備、冷却材清浄度計測制御設備技術の実現が必要であり、それらを基にした体系的なデータ取得が望まれる。また、鉛・ビスマス環境下、放射線損傷場での材料強度データ取得も重要課題としてあげられる。

2) 水反応

水との急激な相互作用については、溶融金属および水の温度範囲、体系圧力によっては、その可能性があることを示唆したが、注入モデル試験、工学的試験を含め、さらに詰めた検討が必要になるものと考えられる。水素の発生、コンクリートとの反応の影響については、理論的に小さいとしたが、今後、試験などにより確認する必要がある。

3) 伝熱・流動

伝熱特性については、文献によっては、誤差が大きい報告が為されているが、これらは、伝熱面の濡れ性のばらつきが影響していることが考えられ、今後、冷却材の品質清浄度、皮膜の影響等の観点から整理、定量化する必要があるものと考えられる。

4) 化学毒性

鉛・ビスマスを有意量扱う場合、安全衛生管理、規制等の観点から、排気関連設備の完備、管理体制、作業者の健康管理などを充実させた上で実施することが必要である。

5) ビスマス資源

資源については、ADSの使用量については、十分見通しがあることを示した。しかしながら、今後鉛・ビスマス高速炉との関連、ビスマスコスト上昇に伴う影響などが課題としてあげられる。

6) ポロニウム

ポロニウムについては、本書では、揮発率などの研究成果を基にすれば、当初予想された被ばく推定値を大きく下回る評価結果などを紹介した。今後、揮発率の測定評価とそれらに基づいたADS施設設計情報に基づく被ばく評価が必要になるものと考えられる。

本鉛・ビスマス材料に関わる文献は限定されているが、最近、原子力界において、注目されるに伴い、この数年情報量が増える傾向にある。本報告は、限られた文献の他、本文中にて示した国内外の施設の調査等を基にまとめたものである、

謝 辞

本調査は、約1年間に渡って行われたものであり、その間に2回の報告会を開催し、中性子科学研究センターの中性子工学グループとシステム工学グループ及びエネルギーシステム研究部核変換システムグループの方々には大変貴重なコメント、議論をして頂いた。特に、大杉グループリーダ、倉田及び二川主任研究員には、報告書に関しても貴重なコメントを頂いた。ここに深く感謝いたします。

付録 A 精錬所施設の生産プロセスの概要

本製錬所で採用されている亜鉛および鉛の生産プロセスは、ISP 法(Imperial Smelting Process) と呼ばれる英国から導入された技術で、原料精鉱から亜鉛および鉛を一つの熔鉱炉で同時に製錬するプロセスである。

図 A-1 に本精錬所の全体のプロセスフローを示す。また、このプロセスの概念図を図 A-2 に示す。

原料である亜鉛・鉛精鉱は焼結機により焼結され、クラッシャーにより粗砕されて熔鉱炉に供給される。この焼結過程で発生した焼結機排ガスはガス精製系で除塵され、脱硫工程で脱硫された後に大気に放出される。集塵機で捕捉された灰分からカドミウムが副産物の一つとして抽出される。また、脱硫工程で捕捉された硫黄分は硫酸として回収され、更に、石灰石と反応させて、石膏が副生される。

また、本プラントでは粗酸化亜鉛、亜鉛滓などの二次原料と熔鉱炉ドロス(dross:浮粕)の混合物を加熱・成形してブリケット(briquet)化し、これを、焼結工程を経ないで直接、熔鉱炉に供給することも可能である。

熔鉱炉には焼結鉱や製団鉱とコークスが装入され、羽口から熱風が吹き込まれ高温に保持される。この中で焼結鉱中の酸化亜鉛(ZnO)、酸化鉛(PbO) はコークスで還元され、それぞれ金属亜鉛(Zn)と金属鉛(Pb)となる。

このうち鉛は溶融状態で熔鉱炉下部からスラグとともに抜き出されるが、亜鉛は蒸気となって、一酸化炭素、炭酸ガス、窒素ガスなどとともに熔鉱炉から排出され、コンデンサーへ送られる。

コンデンサーの冷却媒体として溶融鉛が用いられる。コンデンサー室の底面では溶融鉛が、ガスの低温側から高温側に向けて流れており、その鉛はコンデンサー室に設けられたロータによって跳ね上げられて、コンデンサー室の空間は鉛ミストが充満した状態となっている。このコンデンサー室の中を熔鉱炉の排ガスが通過する間に排ガスと鉛ミストが熱交換し、排ガスの温度が下がると同時に、排ガス中の亜鉛蒸気は鉛ミスト中に冷却凝縮し、溶融鉛中に溶解される。

コンデンサーから出た高温の溶融鉛は、遠心ポンプでクーリングロンダーと呼ばれる鉛冷却器に汲み上げられ、ここで熱交換器によって約 500°C から約 400°C まで冷却される。この過程で鉛中に溶解していた亜鉛が分離析出し、粗亜鉛として取り出される。コンデンサーおよびクーリングロンダーの概念図を図 A-3 に示す。

この鉛冷却のための熱交換器用冷却媒体として、従来は冷却水が用いられていたが、この熱エネルギーの有効利用のために、現在ではボイラの伝熱管に置き換えられ、ここで発生する蒸気によって発電が行われている。本ボイラの仕様、構造についてはさらに後述する。

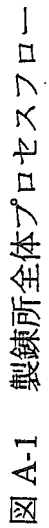
クーリングロンダーで分離された粗亜鉛のうち約 $2/3$ はそのまま鑄造されて蒸留亜鉛とされており、残りの約 $1/3$ は精留塔で精製されて精留亜鉛とされている。

コンデンサーを出た熔鉱炉排ガス中には一酸化炭素などの可燃成分を含んでおり

700kcal/Nm³程度の発熱量をもっているので、このガスはボイラの燃料ガスとして利用され、これによって発生した蒸気も発電用として利用されている。

熔鋳炉の底部から取り出された粗鉛は銅を含んでいるので、脱銅鍋で銅をドロスとして分離したあと粗鉛として鑄造されている。

また、熔鋳炉の底部から取り出されたスラグ中には7%程度の亜鉛が含まれているので、これに重油を吹き込んで亜鉛を気化し、亜鉛を回収した後スラグとして排出されている。



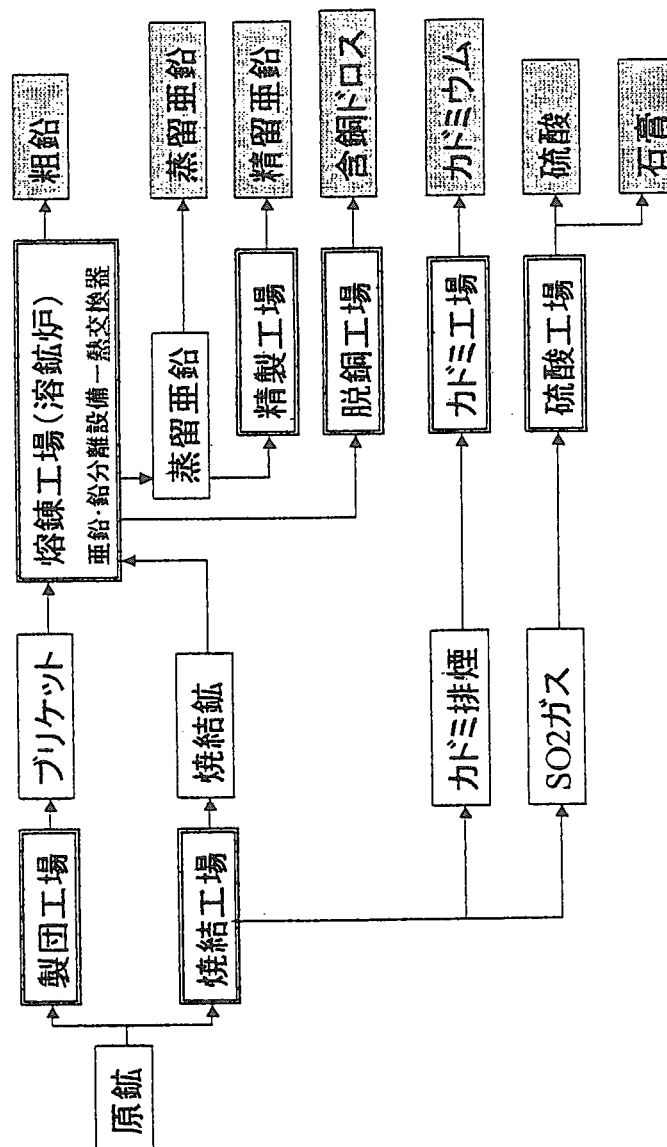


図 A-2 製錬所製品製造プロセス概念図

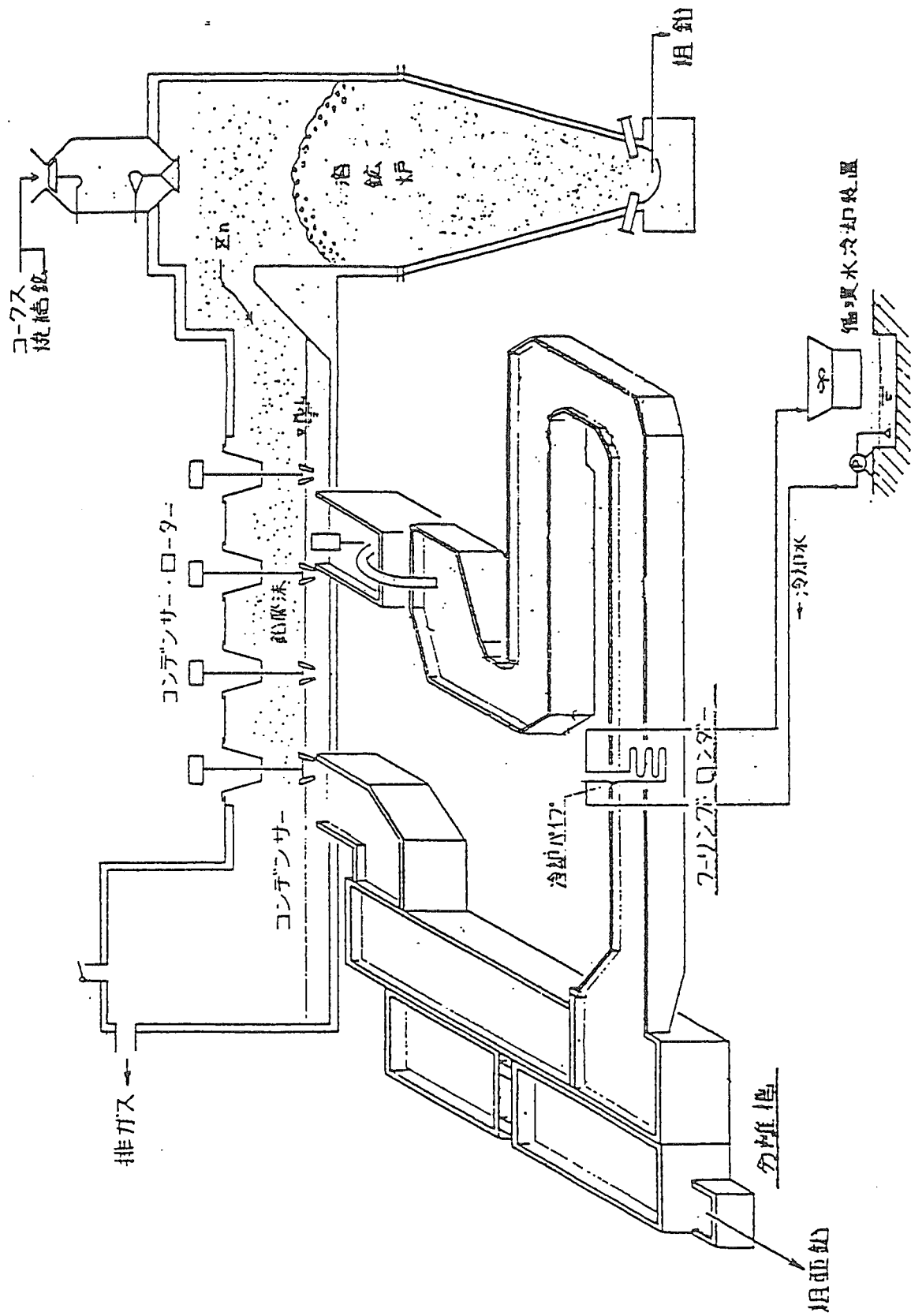


図 A-3 コンデンサーおよびクーリングローダ概念図

国際単位系 (SI) と換算表

表 1 SI 基本単位および補助単位

量	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 量	モ ル	mol
光 度	カ ン デ ラ	cd
平 面 角	ラ ジ ア ン	rad
立 体 角	ステラジアン	sr

表 3 固有の名称をもつ SI 組立単位

量	名 称	記号	他の SI 単位 による表現
周 波 数	ヘ ル ツ	Hz	s ⁻¹
力	ニ ユ ー ト ン	N	m·kg/s ²
圧 力 , 応 力	パ ス カ ル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジ ュ ー ル	J	N·m
工 率 , 放 射 束	ワ ッ ト	W	J/s
電 気 量 , 電 荷	ク ー ロ ン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボ ル ト	V	W/A
静 電 容 量	ファラド	F	C/V
電 気 抵 抗	オ ー ム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁 束	ウ ェ ー バ	Wb	V·s
磁 束 密 度	テ ス ラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘ ン リ ー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光 束	ル ー メ ン	lm	cd·sr
照 度	ル ク ス	lx	lm/m ²
放 射 能	ベ ク レ ル	Bq	s ⁻¹
吸 収 線 量	グ レ イ	Gy	J/kg
線 量 当 量	シーベルト	Sv	J/kg

表 2 SI と併用される単位

名 称	記 号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リ ッ ト ル	l, L
ト ン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表 4 SI と共に暫定的に維持される単位

名 称	記 号
オンGSTローム	Å
バ ー ン	b
バ ー ル	bar
ガ ル	Gal
キ ュ リ ー	Ci
レ ン ト ゲ ン	R
ラ ド	rad
レ ム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表 5 SI 接頭語

倍数	接頭語	記 号
10 ¹⁸	エ ク サ	E
10 ¹⁵	ペ タ	P
10 ¹²	テ ラ	T
10 ⁹	ギ ガ	G
10 ⁶	メ ガ	M
10 ³	キ ロ	k
10 ²	ヘ ク ト	h
10 ¹	デ カ	da
10 ⁻¹	デ シ	d
10 ⁻²	セ ン チ	c
10 ⁻³	ミ リ	m
10 ⁻⁶	マイクろ	μ
10 ⁻⁹	ナ ノ	n
10 ⁻¹²	ピ コ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	ア ト	a

(注)

- 表 1-5 は「国際単位系」第 5 版, 国際度量衡局 1985 年刊行による。ただし, 1 eV および 1 u の値は CODATA の 1986 年推奨値によった。
- 表 4 には海里, ノット, アール, ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- bar は, JIS では流体の圧力を表わす場合に限り表 2 のカテゴリーに分類されている。
- EC 閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHg を表 2 のカテゴリーに入れている。

換 算 表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘 度 } 1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (\text{N} \cdot \text{s} / \text{m}^2) = 10 \text{ P (ポアズ)} (\text{g} / (\text{cm} \cdot \text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2 / \text{s} = 10^4 \text{ St (ストークス)} (\text{cm}^2 / \text{s})$$

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁶	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

$$1 \text{ cal} = 4.18605 \text{ J (計量法)}$$

$$= 4.184 \text{ J (熱化学)}$$

$$= 4.1855 \text{ J (15 °C)}$$

$$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$$

$$\text{仕事率 } 1 \text{ PS (仏馬力)}$$

$$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$$

$$= 735.499 \text{ W}$$

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

浮城金庫録・ヒノキノお徳における腐食 水反底 オロニチノ埋め込み率及びB産腐菌の調査・検討