

液体金属ナトリウム中の鉛ビスマス
溶解挙動に関する熱化学基礎研究

—鉛ビスマス共晶合金のナトリウム中溶解度の測定—
「先行基礎工学研究成果報告書」

(研究報告)

2005年3月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division ,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu , Tokai-mura , Naka-gun , Ibaraki 319-1184 ,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2005

液体金属ナトリウム中の鉛ビスマス溶解挙動に関する熱化学基礎研究

— 鉛ビスマス共晶合金のナトリウム中溶解度の測定 —

(研究報告)

田代 優*

要 旨

高速増殖炉実用化戦略調査研究では、鉛ビスマスを中間熱媒体とした二次系簡素化概念が候補の一つとして提案されている。本研究では実用化戦略調査研究で鉛ビスマスのナトリウム中への溶解挙動を実験により明らかにすることを目的としている。ナトリウム中の鉛ビスマスの溶解度測定試験には J 型カプセルを用い、600℃から 150℃の温度で溶解度を測定した。

その結果、以下のことが明らかとなった。

1. ナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度曲線は、250℃～150℃の温度域で $\log S = 4.77 - 1858/T$ (K) と整理できることが分かった。
2. ナトリウム中の鉛ビスマスに由来するビスマスの溶解度は、600℃から 300℃の高温域と 300℃未満の低温域で二つの溶解度曲線となり、600℃から 300℃の高温域では $\log S = 4.99 - 3449/T$ (K)、250℃～150℃の低温域では $\log S = 0.211 - 611/T$ (K) と整理できることが分かった。
3. ナトリウム上澄み液をサンプリングした後のカプセル内に残った残渣の XRD 結果から、全ての試験温度について残渣中には主に BiNa_3 および $\text{Pb}_4\text{Na}_{15}$ が存在していることが分かった。
4. 本溶解度測定試験で得られた結果から、ナトリウム中の鉛ビスマスの成分元素である鉛およびビスマスの溶解挙動のモデルを提案した。

*大洗工学センター 要素技術開発部 熱化学安全試験グループ 客員研究員

(茨城大学 工学部 機械工学科 助手)

Fundamental Thermochemistry Research on the Lead-Bismuth Eutectic
Dissolution Behavior in Sodium
- Solubility Measurement Test for Lead-Bismuth Eutectic in Sodium -

Suguru TASHIRO*

Abstract

In the “Feasibility Studies on Commercialized Fast Reactor System”, the new concept of utilizing lead-bismuth as an intermediate coolant is proposed for simplification of secondary sodium cooling system. In this study, the solubility of the lead-bismuth eutectic in the liquid sodium was measured by using J-shaped capsule within the range of the temperature from 150 to 600°C, for the purpose to understand the dissolution behavior.

As the result of the experiment, the followings were clarified.

1. The solubility of lead in the liquid sodium-lead-bismuth system is expressed as a function of temperature in the form, $\log S=4.77-1858/T(K)$, in the range of 250-150°C.
2. The solubility of bismuth in the liquid sodium-lead-bismuth system is expressed as a function of temperature in the form,
 $\log S=4.99-3449/T(K)$, in the range of 600-300°C,
 $\log S=0.211-611/T(K)$, in the range of 250-150°C.
3. The XRD analyses of the residue in the experiments indicated that the principal reaction products are BiNa_3 and $\text{Pb}_4\text{Na}_{15}$.
4. Based on the experimental and analyses results, the model of the dissolution behavior in liquid sodium are proposed for the lead and bismuth which are the elements of the lead-bismuth eutectic.

* Visiting Research Fellow, Thermochemistry Safety Engineering Group,
Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center
(Assistant, Department of Mechanical Engineering, Ibaraki University)

目 次

1. 緒言	1
2. 試験装置および試験方法	2
2. 1 試験装置	2
2. 2 試料の調整	2
2. 3 試験方法	2
2. 4 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化	3
2. 5 低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験	3
2. 6 ナトリウム中鉛の溶解度測定	4
2. 7 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定	4
2. 8 溶解度測定試験終了後のカプセル内残渣の XRD による分析	4
2. 9 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定中のカプセルの X線透過撮影	4
3. 試験および分析結果	6
3. 1 溶解および拡散時間の検討	6
3. 2 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験	6
3. 3 低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験	7
3. 4 ナトリウム中鉛の溶解度測定試験	7
3. 5 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験	8
3. 6 溶解度測定試験終了後のカプセル内残渣の XRD による分析結果	8
3. 7 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定中のカプセルの X線透過撮影	8
4. 考察	9
4. 1 ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系溶解度測定試験結果 とナトリウム-鉛およびナトリウムビスマス二元系の溶解度曲線の比較	9
4. 2 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定試験結果とナトリウム- 鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較	9
5. 結言	11
謝辞	13
参考文献	14

図表目次

図 2-1	本試験で使用した J 型カプセルの概略図	15
図 2-2	溶解度測定試験方法の概略図	16
図 3-1	ナトリウム中の LBE 成分元素の鉛とビスマスの濃度と保持時間の関係	23
図 3-2	ナトリウム中ヨウ素の溶解挙動の経験式とナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の濃度の時間変化測定試験から得た加熱温度と保持時間の関係	24
図 3-3	ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度 (600℃～300℃)	26
図 3-4	低温域 (300℃未満) ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度	28
図 3-5	ナトリウム中鉛の溶解度 (195℃)	29
図 3-6	ナトリウム中ビスマスの溶解度	30
図 3-7	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (150℃)	31
図 3-8	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (200℃)	32
図 3-9	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (300℃)	33
図 3-10	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (400℃)	34
図 3-11	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (500℃)	35
図 3-12	溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (600℃)	36
図 3-13	X線透過撮影試験結果	37
図 4-1	本試験で得られたナトリウム中鉛およびビスマスの溶解度とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較	38
図 4-2	ナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度 (600℃～150℃) とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較	39
表 2-1	ICP 発光分光分析装置の測定条件	17
表 2-2	ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験条件	18
表 2-3	ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化の試験条件	19
表 2-4	低温域におけるナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定試験条件	19
表 2-5	ナトリウム中鉛の溶解度測定試験条件	20
表 2-6	ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験条件	20
表 2-7	残渣の XRD 分析を行ったカプセルの溶解度測定条件	21
表 2-8	X線回折試験の測定条件	21

表 2-9	直管カプセルを用いたナトリウム中の鉛ビスマス溶解度測定試験中の 濃度分布観察試験条件	22
表 2-10	直管カプセルによるX線透過試験条件	22
表 3-1	ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化の試験結果	23
表 3-2	ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験の実施内容と化学分析結果	25
表 3-3	低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験の実施内容と 化学分析結果	27
表 3-4	ナトリウム中鉛の溶解度測定試験の実施内容と化学分析結果	29
表 3-5	ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験の実施内容と化学分析結果	30

1. 緒言

高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究フェーズ I では、ナトリウム-水反応排除による経済性の向上を目標に二次冷却系簡素化概念の候補が検討・提案された。ここでは、蒸気発生器伝熱管に水リークが生じて、ナトリウム-水反応が発生しにくい新型蒸気発生器の設計および中間熱媒体を検討している。これらの蒸気発生器の設計では、伝熱管の破損に伴って二次冷却材の鉛ビスマスが一次冷却材のナトリウム中に漏洩することが想定される。¹⁾

熱化学安全試験グループでは、高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究フェーズ II の一環として、ナトリウム中における鉛ビスマスの移行挙動を実験的に確認することを目的に研究が行われている。しかし、その基礎的現象を把握するための Na-Pb-Bi 三元状態図については報告がなく、ナトリウムと鉛ビスマスの間の反応の有無についても、ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマスの各二元系状態図がそれぞれ報告されているのみであり、相状態に関する基礎的なデータの蓄積が必要不可欠である。

平成 15 年度は、前年度 DSC 試験で把握できなかったナトリウム高濃度域の相関係²⁾を明らかにすることを目的にナトリウム中の鉛ビスマスの溶解度測定試験を実施した。溶解度測定試験には、①ナトリウム上澄み液と反応生成物の分離が容易であることが DSC 試験結果から予測されること、②ナトリウムと鉛ビスマスを構成する鉛およびビスマスの原子量が約 10 倍あることから、他の溶解度測定方法ではナトリウム中に鉛やビスマスが飽和するのにより時間がかかるため、ナトリウム中におけるヨウ素の溶解度測定で実績のある J 型カプセルを用いる試験方法を採用した。

平成 16 年度は、平成 15 年度に行ったナトリウム中の鉛ビスマスの溶解度測定試験において溶解度データが得られなかった低温域 (300℃未満) の溶解度測定を実施した。この低温域の溶解度は状態図作成および二元系の溶解度データとの比較をする上でも非常に重要であり、学術的に意味のあるデータである。平成 15 年度の低温域の溶解度測定試験において大量に生成した反応生成物によってナトリウム上澄み液が分離できなかった結果を踏まえて試験条件の再考を行い、ナトリウム上澄み液が分離可能な組成比の条件下で溶解度測定試験を実施した。さらに、本試験結果とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線³⁾を比較するため並びにナトリウム中のビスマスと鉛の共存効果を明らかにするために、ナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系についても溶解度測定試験を実施した。また、試験中のカプセル中の元素の分布状態を確認するために X 線透過試験によるカプセル中の鉛ビスマスの分布状態の観察や溶解度測定後にナトリウム上澄み液を採取し、カプセルに残った残渣について X 線回折試験を実施した。

これらの結果より、金属ナトリウムと鉛ビスマスの溶解挙動、特に高ナトリウム濃度側のナトリウム中鉛ビスマス成分元素である鉛およびビスマスの溶解度を明らかにする。

2. 試験装置および試験方法

2. 1 試験装置

試験装置は、ナトリウムと鉛ビスマスを充填したカプセル、これを収納するホルダー、両者を加熱する電気炉、電気炉の温度調節を行う制御装置、カプセルの温度を監視する温度記録装置から構成される。

カプセルは図 2-1 に示すように、SUS316 ステンレス鋼製の逆 T 字形の部分に、同じく L 字形の部分のスウェージロックで接合し、接合時の外見が逆 J 字形を示す容器である。加熱中カプセルを均一温度に保持するために SUS316 ステンレス鋼製のホルダーに同時に 3 本のカプセルを納めた。カプセルの温度は、シース型熱電対をホルダーに挿入して測定した。鉛ビスマス中の鉛およびビスマスを飽和したナトリウム溶液と鉛ビスマスとナトリウムの反応生成物とを分離するために、カプセルを電気炉およびホルダーごと約 110° 回転させる。そのために電気炉は回転軸で支持し、回転ハンドルで炉体を傾け、ストッパーで任意の回転角度に止められる構造になっている。

2. 2 試料の調整

試料には試薬特級のナトリウムとレアメタリック社製 99.99% の鉛ビスマスを用いた。ナトリウムはオイルから取り出して油分を除き、他の金属による汚染を避けるためにセラミックス製ナイフを用いて高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス中で表面の酸化物層を取り除いて用いた。鉛ビスマスはインゴット状の試料表面の酸化物層を同グローブボックス中でドリルを用いて穴を開けて取り除いた後、その穴の奥の酸化していない部分をドリルで切削することによって生じた切粉を試料として用いた。

カプセルの逆 T 字形部および逆 L 字形部は、エタノールによる脱脂および水洗いして乾燥させた。逆 T 字形部にグローブボックス内で天秤を用いて種々の重量比でナトリウムと鉛ビスマスを秤量・充填を行い、高純度アルゴンガス雰囲気下で逆 L 字形部とスウェージロックによりリークタイトに締め付けて、大気中に取り出した。

2. 3 試験方法

2. 2 試料の調整でナトリウムおよび鉛ビスマスを充填した J 型カプセルを用いて溶解度測定試験を実施した。図 2-2 に示すように J 型カプセルの逆 T 字形の部分を下にして電気炉内のカプセルホルダーにセットして、液体ナトリウム中の鉛ビスマスがカプセル内で一番低い位置になるように電気炉を約 30 度傾ける。この状態で所定の温度 (600°C ~ 150°C) に加熱してナトリウム中に鉛ビスマスの成分元素が溶解・飽和するまで保持する。所定の加熱時間保持したのち、電気炉を 110° 回転して図 2-2 の試料サンプリング時に示すようにカプセルの逆 T 字形の部分から L 字形の部分へナトリウム上澄み液を移して電気炉の電源を切って炉中で放冷する。冷却後、カプセルを L 字形部の

端から約 30mm のところでパイプカッターで切断した。切断パイプの重量測定後に、水蒸気分解を行いナトリウム等を溶液化した。切断したパイプは乾燥後、再度重量測定を行い、重量差からナトリウム上澄み液量を算出した。溶液化した試料について ICP 発光分光分析法を用いて定量分析を行った。分析にはパーキンソンエルマ製 OPTIMA300 を用いた。測定条件を表 2-1 に示す。平成 15 年度に実施したナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の溶解度測定では、全てナトリウム中の鉛ビスマス充填量が 40wt. % で試験を実施した。ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定の試験条件を表 2-2 に示した。

2. 4 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化

溶解度測定では溶質が拡散して溶媒中に飽和していることが必要である。溶質中の溶媒原子の拡散現象がそれぞれの溶質および溶媒の状態に依存し、原子種による違いでは拡散係数のオーダーが大きく変わることが考え難いことから、過去に行われたナトリウム中のヨウ化ナトリウムの溶解度測定結果をもとにその加熱・保持時間の推算を実施した。

2.2 および 2.3 の試料の調整および試験方法を用い、600℃におけるナトリウム中の鉛ビスマス成分元素である鉛およびビスマスの濃度変化を調べた。試験条件を表 2-3 に示す。溶融状態のナトリウムの自己拡散係数からの拡散距離を見積もると、拡散距離は近似的に $(D \cdot t)^{0.5}$ で求まることが知られている⁴⁾。これにナトリウムの自己拡散係数 $4.19 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ (at 98℃) を代入して時間で整理すると 100 時間で 39mm、200 時間で 55mm、300 時間で 67mm 移動すると推算できる。カプセルの逆 T 字部の長さは 60mm なので 300 時間以上をかけると拡散距離上は飽和に十分な距離を動くと考えられる。しかし、実際に平衡状態に達するには更なる時間が必要であることが予測される。そこで、600℃において概ね拡散距離がカプセルの長さの 2 倍になる時間である 500h 以上保持して、ナトリウム中の鉛およびビスマスの濃度変化の測定試験を実施した。

この試験結果と過去に行われたナトリウム中のヨウ化ナトリウムの溶解度測定で得られた温度と飽和に必要な加熱保持時間の関係式から、本試験の加熱保持時間の推算を行った。

2. 5 低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験

平成 16 年度には、平成 15 年度とは異なる実験条件で、低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験を実施した。平成 15 年度の低温域の溶解度測定試験においては大量に生成した反応生成物によってナトリウム上澄み液が分離できなかったため、この結果を踏まえて試験条件の再考を行い、ナトリウム上澄み液が分離可能な組成比の条件下で再度溶解度測定試験を実施した。この低温域の溶解度データはナトリウム-鉛-ビスマス三元状態図の作成とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度データとの比較をする上でも非常に重要であり、学術的に有意なデ

ータである。

平成 15 年度に行った溶解度測定試験結果から、ナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度はナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系のそれぞれの溶解度データに近い値を示すことが分かった。一方、300℃未満の低温域では反応生成物が大量に生成したため、ナトリウム上澄み液のサンプリングが出来ず、溶解度データを得ることが出来なかった。平成 16 年度はこれらの結果から、ナトリウム中に充填する鉛ビスマスの量をビスマスの充填量がナトリウム-ビスマス二元系の溶解度データの約 3 倍の量になるように鉛ビスマスをナトリウム中に充填した。300℃未満の低温域におけるナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定の試験条件を表 2-4 に示す。

2. 6 ナトリウム中鉛の溶解度測定

ナトリウム-鉛二元系の溶解度データ³⁾は、Borgstedt らによって整理式 $\log S=6.1097-2636/T(K)$ (250℃~120℃) と報告されている。本試験の溶解度測定試験結果をこの二元系の溶解度データと比較するために、2.2 および 2.3 の試料の調整および試験方法を用いて J 型カプセルを用いたナトリウム-鉛二元系の溶解度測定試験を行った。試料の鉛はレアメタリック社製 99.999%のものを、ナトリウムは試薬特級のものをを用いた。実験条件を表 2-5 に示す。

2. 7 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定

鉛と同様にナトリウム-ビスマス二元系の溶解度データ³⁾は、Borgstedt らによって整理式 $\log S=5.67-4038/T(K)$ (650℃~290℃) および $\log S=2.15-2103/T(K)$ (290℃~125℃) と報告されている。本試験の溶解度測定試験結果をこの二元系の溶解度データと比較するために、2.2 および 2.3 の試料の調整および試験方法を用いて J 型カプセルを用いたナトリウム-ビスマス二元系の溶解度測定試験を行った。試料のビスマスはレアメタリック社製 99.999%のものを、ナトリウムは試薬特級のものをを用いた。実験条件を表 2-6 に示す。

2. 8 溶解度測定試験終了後のカプセル内残渣の XRD による分析

溶解度測定試験終了後、カプセル内の残渣について XRD による分析を実施した。カプセルの T 字部をパイプカッターを用いて切断し、内部の残渣(ナトリウムと反応生成物の混合物)を高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス中で取り出した。これをナトリウムの酸化や潮解による変質を避けるために真空ホルダーを用いて XRD に供した。XRD 試験に供した試料の試験条件を表 2-7 に XRD 分析測定条件を表 2-8 に示す。

2. 9 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定中のカプセルの X線透過撮影

溶解度測定試験中のカプセル内部のナトリウムの反応生成物の分布状態を観察する

ためにX線透過撮影を実施した。溶解度測定試験と同じ実験条件で直管のステンレス製カプセルにナトリウムと鉛ビスマスを充填して、加熱・保持後、冷却油中にてクエンチしてカプセル内部の濃度分布を固定した。その後、カプセルのX線透過試験を実施した。試験条件を表 2-9 に示す。ここでは低温域である 250℃でX線透過撮影を用いた濃度分布の観察を実施した。X線透過撮影条件を表 2-10 に示す。

3. 試験および分析結果

3. 1 溶解および拡散時間の検討

表 3-1 および図 3-1 に 600℃における加熱・保持時間と鉛ビスマス成分元素の濃度の関係を示す。ナトリウム中の鉛の濃度は 500h で若干低い値を示すが、700h 以上ではほぼ一定の値を示すことが分かった。また、ナトリウム中のビスマスも鉛と同様に 700h 以上加熱・保持するとナトリウム中の濃度に変化がないことが分かった。これらの結果、および溶融状態のナトリウムの自己拡散係数からの拡散距離を推算した結果から、600℃では、ナトリウム中の鉛ビスマスの成分元素である鉛およびビスマスは 700h 以上保持するとナトリウム中に飽和することが分かった。

J型カプセルを用いたナトリウム中のヨウ化ナトリウムの溶解度測定では、宮原により飽和濃度に達するまでに必要な加熱時間 d (日) を表す $\ln d = 3.8 - 2.3 \times 10^{-3} T$ なる経験式が報告されている⁵⁾。ここで、 T は温度 (℃) である。ナトリウムに対するヨウ素はイオン結合性を示し、鉛およびビスマスとは拡散状態に違いがあると考えられるが、ヨウ素は鉛やビスマスと同様に、ナトリウムに対してほぼ 10 倍の原子量を持つことから、この経験式の時間に対する傾きを用いて本試験の加熱保持時間の推算を行った。図 3-2 にこれらの結果を示す。この結果、保持温度が 500℃では 1000h 以上、400℃では 1200h 以上、300℃では 1600h 以上、200℃では 2000h 以上保持して溶解度測定試験を実施した。

3. 2 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験⁶⁾

表 3-2 および図 3-3 にナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定試験結果を示す。図 3-3 は縦軸にナトリウム中の鉛およびビスマスの溶解度を横軸の温度の逆数に対してアレニウスプロットした結果である。溶解度測定試験は各温度において同時に 3 本のカプセルを用いて測定を実施し、試験結果の再現性を確認している。

図 3-3 よりナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度は、600℃から 300℃の範囲で、溶解度試験温度に関係なく大凡 22wt.% の溶解度を示した。これはナトリウム中に充填した鉛ビスマスに含まれる鉛の量であり、ナトリウム中に全ての鉛が溶解していることを示している。

一方、ナトリウム中の鉛ビスマスに由来するビスマスの溶解度は、600℃で約 13wt.%、300℃で約 0.1wt.% であり、温度が下がるとビスマスの溶解度は減少することが分かった。

600℃から 300℃の範囲における各温度下の溶解度のバラツキは小さく、良好な再現性で溶解度を測定できたことが分かった。尚、実験番号#11 のカプセルの測定結果は、同試験条件下で行った#10 および#12 の試験結果と鉛、ビスマスともに大きく違うことが分かった。この原因として、このカプセルへのナトリウムもしくは鉛ビスマスの充填

量を間違った可能性が考えられる。このため、このデータを図 3-3 にプロットしていない。

今回使用した J 型カプセルを用いた溶解度測定試験法では、600℃～300℃までの温度域において再現性の高い結果が得られた。一方、300℃未満の低温域ではナトリウム上澄み液をサンプリングすることが出来ず、溶解度を測定することが出来ないことが分かった。

3. 3 低温域 (300℃未満) のナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験

表 3-3 および図 3-4 に低温域ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定試験結果を示す。図 3-4 は縦軸にナトリウム中の鉛およびビスマスの溶解度を横軸の温度の逆数に対してアレニウスプロットした結果である。高温域と同様に溶解度測定試験は各温度において同時に 3 本のカプセルを用いて測定を実施し、試験結果の再現性を確認している。

平成 15 年度に行った溶解度測定試験結果をもとに、ナトリウム中に充填する鉛ビスマスの量をビスマス重量でナトリウム-ビスマス二元系の溶解度データ値の約 3 倍の量になるようにナトリウム中の鉛ビスマスの充填量を変えて溶解度測定試験を実施した。この結果、250℃、195℃、150℃の全ての試験温度で試料のサンプリングが可能となった。

図 3-4 から、ナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度は、温度が下がると溶解度も減少していることが分かった。本試験で得られた溶解度は 250℃で約 16wt. %、195℃で約 6wt. %、150℃で約 2wt. %を示し、各温度下で得られた試験結果はバラツキが少なく、再現性が高いことが分かった。

一方、ナトリウム中の鉛ビスマスに由来するビスマスの溶解度は各温度で得られた試験結果のバラツキが大きいことが分かった。尚、#26 のカプセルで得られた 150℃の結果、#24 のカプセルで得られた 195℃の結果および#29 のカプセルで得られた 250℃の結果は同時に得られたそれぞれの温度の溶解度測定結果に比べて桁違い大きいまたは小さい値を示すことが分かった。これらのカプセルの加熱中の炉内位置や試験方法に大きな違いはないが、同試験条件で試験を実施した他のデータに比べてバラツキが大きいことから図 3-4 にプロットしていない。

また、ナトリウム中の鉛とビスマスの溶解度はビスマスに比べて鉛が 2 桁以上高い値を示すこと、ビスマスに比べて鉛の溶解度曲線は傾きが大きいことが分かった。

3. 4 ナトリウム中鉛の溶解度測定試験

表 3-4 および図 3-5 にナトリウム中鉛の溶解度測定結果を示す。本試験で平成 15 年度に実施したナトリウム中鉛ビスマスの成分元素の溶解度測定試験結果および平成 16 年度に実施した低温域における溶解度測定試験結果とナトリウム-鉛二元系の溶解度

データを比較するために、195℃におけるナトリウム中鉛の溶解度測定を実施した。195℃でJ型カプセルを用いて溶解度を測定した結果、約7wt.%の溶解度を持つことが分かり、同時に測定した3点のデータのバラツキが小さいことが分かった。

3.5 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験

表3-5および図3-6にナトリウム中ビスマスの溶解度測定結果を示す。本試験で平成15年度に実施したナトリウム中鉛ビスマスの成分元素の溶解度測定試験結果および平成16年度に実施した低温域における溶解度測定試験結果とナトリウム-ビスマス二元系の溶解度データを比較するために、500℃と195℃におけるナトリウム中ビスマスの溶解度測定を実施した。500℃および195℃でJ型カプセルを用いて溶解度を測定した結果、500℃では約4wt.%であることが、195℃では約0.01wt.%であることが分かった。それぞれの温度で同時に測定した3点のデータ間のバラツキは小さく、再現性のあるデータが得られた。

3.6 溶解度測定試験終了後のカプセル内残渣のXRDによる分析結果

溶解度測定試験終了後、ナトリウム上澄み液を分離してJ型カプセル逆T字部に残ったナトリウムおよび反応生成物についてXRDを用いて分析を行った。図3-7～図3-12にX線回折の結果を示す。縦軸はX線回折強度の(カウント値)の絶対値、横軸には回折角度(2θ)である。

本試験終了後の試料についてX線回折法を用いて生成相の定性分析を行った結果、どの温度においても主に BiNa_3 および $\text{Pb}_4\text{Na}_{15}$ が存在し、同時に三元化合物と推定される未知相が僅かに共存していることが分かった。しかし、これらのXRD結果は溶解度測定試験終了時にナトリウム上澄み液をサンプリングしたものが炉中で冷却固化したもののXRDチャートとなっているために、必ずしも溶解度測定試験中の反応生成物の状態を反映しているものではない。

3.7 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定中のカプセルのX線透過撮影

図3-13に直管型カプセルのX線透過試験の結果を示す。図中に示される2枚の画像はX線の照射角度を変えて撮影した結果である。

カプセルのX線透過写真においてカプセル底部付近が白く写っている部分が鉛およびビスマスとナトリウムの反応生成物であり、その上部のコントラストが薄い部分がナトリウム上澄み液の部分である。ナトリウム上澄み液中やその自由表面には反応生成物による偏析や浮遊物は見当たらず、ナトリウム上澄み液は均一の溶液であったことが分かった。

4. 考察

4. 1 ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系溶解度測定試験結果とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較

報告されているナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系のそれぞれの溶解度曲線³⁾と本試験結果の比較を行うために、J型カプセルを用いてナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系について溶解度測定試験を行った。図4-1にこれらの結果をまとめて示す。縦軸はナトリウム中の鉛およびビスマスの溶解度を示し、横軸の温度の逆数に対してアレニウスプロットした結果を示す。図中の▲は本試験で得られたナトリウム中鉛の溶解度測定試験結果、●は同じく本試験で得られたナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験結果である。同図中の右上の実線はナトリウム-鉛の溶解度曲線 $\log S = 6.1097 - 2636/T$ (K) を示し、図中左下の二本の実線はナトリウム-ビスマスの溶解度曲線で、高温域では $\log S = 5.67 - 4038/T$ (K)、290℃未満の低温域では $\log S = 2.15 - 2103/T$ (K) となることが報告されている³⁾。これはナトリウム-ビスマス二元系では平衡相が290℃以上ではNa₃Bi、290℃以下ではNaBiが安定な平衡相となるため、290℃で相転移することに起因している⁷⁾。

図4-1の結果から、本試験条件で得られたナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマスの溶解度曲線は一桁以内ではほぼ一致していることが分かった。

しかし、ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系のそれぞれの溶解度曲線の報告は古く、その後分析機器の精度が著しく向上したこと等を考えるとそれぞれの溶解度曲線の精度については再測定等の検討が必要であると考えられる。

4. 2 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定試験結果とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較

平成15年ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定結果、平成16年度に実施した低温域のナトリウム中鉛ビスマス成分元素の溶解度測定結果、ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線³⁾をまとめて図4-2に示す。同時にJ型カプセルを用いて測定を実施したナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度測定試験も示している。縦軸はナトリウム中の鉛およびビスマスの溶解度を示し、横軸の温度の逆数に対してアレニウスプロットした結果である。

本試験で得られたナトリウム中鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度は、300℃以上の温度域で試験温度に関係なく大凡22wt.%の溶解度を示した。これはナトリウム中に充填した鉛ビスマスに含まれる鉛が全てナトリウム中に溶解していることを示している。このことは二元系の溶解度曲線を300℃以上の温度域まで外挿すると理解できる。300℃未満の低温域では250℃で約16wt.%、195℃で約6wt.%、150℃で約2wt.%という溶解度

を示し、二元系の溶解度曲線に近い値であることが分かり、ナトリウム中の鉛ビスマス由来の鉛の溶解挙動はナトリウム-鉛二元系の溶解挙動と同じであると考えられる。本試験で得られたナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度曲線は、250℃～150℃の温度域で $\log S=4.77-1858/T$ (K) と整理できる。

一方、ナトリウム中の鉛ビスマスに由来するビスマスの溶解度は、600℃から 300℃の高温域と 300℃未満の低温域で二つの溶解度曲線となり、600℃から 300℃の高温域では $\log S=4.99-3449/T$ (K)、250℃～150℃の低温域では $\log S=0.211-611/T$ (K) と整理できることが分かった。高温域で得た溶解度は各温度で測定した 3 点の値にバラツキが小さいのに比べて、低温域ではバラツキが大きいことが分かった。また、本試験で得られたナトリウム中の鉛ビスマス由来のビスマスの溶解度曲線は、ナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線と同様に 300℃付近を境にして高温域と低温域で溶解度曲線が異なる点で一致していることが分かり、ナトリウム中の鉛ビスマス由来のビスマスの溶解挙動はナトリウム-ビスマス二元系の溶解挙動と同じであると考えられる。しかし、本試験で得られたナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛およびビスマスの溶解度曲線とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線を比較すると鉛およびビスマスの高温域では比較的近いが、ビスマスの低温域で異なることが分かった。この原因として溶解度測定試験中にナトリウム上澄み液の自由表面に鉛やビスマスを含む反応生成物が偏析・浮遊して上澄み液サンプリング時に同伴することが考えられる。このことを検証するために溶解度測定試験と同じ実験条件でX線透過撮影を実施した。その結果、ナトリウム上澄み液には反応生成物の偏析や浮遊が見られないことが分かり、本試験方法の有効性が確認できた。

また、本試験で取得したナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛およびビスマスの溶解度データと本試験で取得したナトリウム中鉛およびナトリウム中ビスマス二元系の溶解度測定試験結果はほぼ一致している。したがって、前節でも述べたようにナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の精度については再測定等の検討が必要であると考えらる。また、ナトリウム上澄み液をサンプリングした後のカプセル内に残った残渣の XRD 結果から、全ての試験温度について残渣中には主に BiNa_3 および $\text{Pb}_4\text{Na}_{15}$ が存在していることと、三元化合物と推定される未知相が僅かに共存していることが分かった。

これらの結果と本溶解度測定試験で得られた結果から、ナトリウム中の鉛ビスマスの成分元素の溶解はナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解挙動とナトリウム-鉛-ビスマス三元化合物中の鉛およびビスマスの溶解度挙動が同時に起きていることが考えられる。このために、ナトリウム中鉛ビスマスの成分元素の溶解度はナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度より若干高い（見かけの）溶解度を示していると考えられる。

5. 結言

平成 15 年度および平成 16 年度は、平成 14 年度の DSC 試験で把握できなかったナトリウム高濃度域の相関係を明らかにすることを目的に、ナトリウム中の鉛ビスマスの溶解度測定試験を実施した。溶解度測定試験には、①ナトリウム上澄み液と反応生成物の分離が容易であることが前年度行った DSC 試験結果から予測されること、②ナトリウムと鉛ビスマスを構成する鉛およびビスマスの原子量が約 10 倍あることから、他の溶解度測定方法ではナトリウム中に鉛やビスマスが飽和するのにより時間がかかるため、ナトリウム中におけるヨウ素の溶解度測定で実績のある J 型カプセルを用いる試験方法を採用した。

平成 16 年度は、平成 15 年度に行ったナトリウム中の鉛ビスマスの溶解度測定試験において溶解度データが得られなかった低温域（300℃未満）の溶解度測定を実施した。平成 15 年度の低温域の溶解度測定試験において大量に生成した反応生成物によってナトリウム上澄み液が分離できなかった結果を踏まえて試験条件の再考を行い、ナトリウム上澄み液が分離可能な組成比の条件下で溶解度測定試験を実施した。さらに、本試験結果とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線³⁾を比較するためとナトリウム中のビスマスと鉛の共存効果を明らかにするために、ナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系についても溶解度測定試験を実施した。また、試験中のカプセル中の元素の分布状態を確認するために X 線透過試験によるカプセル中の濃度分布の観察や溶解度測定試験終了後にカプセルに残った残渣について X 線回折試験を実施した。その結果、以下のことが明らかとなった。

1. ナトリウム中の鉛ビスマスに由来する鉛の溶解度曲線は、250℃～150℃の温度域で $\log S=4.77-1858/T$ (K) と整理できることが分かった。
2. ナトリウム中の鉛ビスマスに由来するビスマスの溶解度は、600℃から 300℃の高温域と 300℃未満の低温域で二つの溶解度曲線となり、600℃から 300℃の高温域では $\log S=4.99-3449/T$ (K)、250℃～150℃の低温域では $\log S=0.211-611/T$ (K) と整理できることが分かった。
3. 本試験条件で得られたナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度とナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマスの溶解度曲線は一桁以内でほぼ一致していることが分かった。
4. ナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系のそれぞれの溶解度曲線の報告は古く、その後分析機器の精度が著しく向上したこと等を考えるとそれぞれの溶解度曲線の精度については再測定等の検討が必要であると考えられる。

5. ナトリウム上澄み液をサンプリングした後のカプセル内に残った残渣の XRD 結果から、全ての試験温度について残渣中には主に BiNa_3 および $\text{Pb}_4\text{Na}_{15}$ が存在して入ることが分かった。

6. 本溶解度測定試験で得られた結果を総合して考察すると、ナトリウム中の鉛ビスマスの成分元素の溶解はナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解挙動とナトリウムに対するナトリウム-鉛-ビスマス三元化合物中の鉛およびビスマスの溶解度挙動が同時に起こっていることが考えられる。このために、ナトリウム中鉛ビスマスの成分元素の溶解度はナトリウム-鉛およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度より若干高い（見かけの）溶解度を示していると考えられる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、要素技術開発部・熱化学安全試験グループの宮原信哉グループリーダー、浜田広次サブリーダー、大野修司チームリーダーおよび斉藤淳一チームサブリーダーのご助言・ご協力を頂いた。ここに深く感謝の意を表します。また、試験および分析において、多大なるご助力を頂いた、東興機械工業株式会社の鈴木和右氏および株化研の吉田茂氏に心より感謝します。

参考文献

- 1) 堀 徹、川崎信史、笠井重夫、此村 守、“ナトリウム冷却炉の二次系簡素化概念に関する研究—平成 12～13 年度の研究成果のまとめ—”、JNC TY9400 2002-018、(2003)
- 2) 田代 優、宮原信哉、浜田広次、“鉛ビスマス—ナトリウム反応実験(3)：ナトリウムと鉛ビスマス共晶合金の相関係”、日本原子力学会「2003 年秋の大会」、H47
- 3) H. U. Borgstedt et al., “Applied Chemistry of the Alkali Metals”, pp. 180-182
- 4) 日本金属学会、“金属データブック改訂 3 版”、(1993)
- 5) 宮原信哉、“高速炉一次冷却系におけるヨウ素の移行に関する研究”、茨城大学大学院博士論文、(1996)
- 6) 田代 優、斉藤淳一、大野修司、“鉛ビスマス—ナトリウム反応実験(5)：ナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の溶解度”、日本原子力学会「2004 年秋の大会」、G38
- 7) ナトリウム教育委員会、“ナトリウム技術読本”、JNC TN9410 2005-011、p. 1. 2-14、(2005)

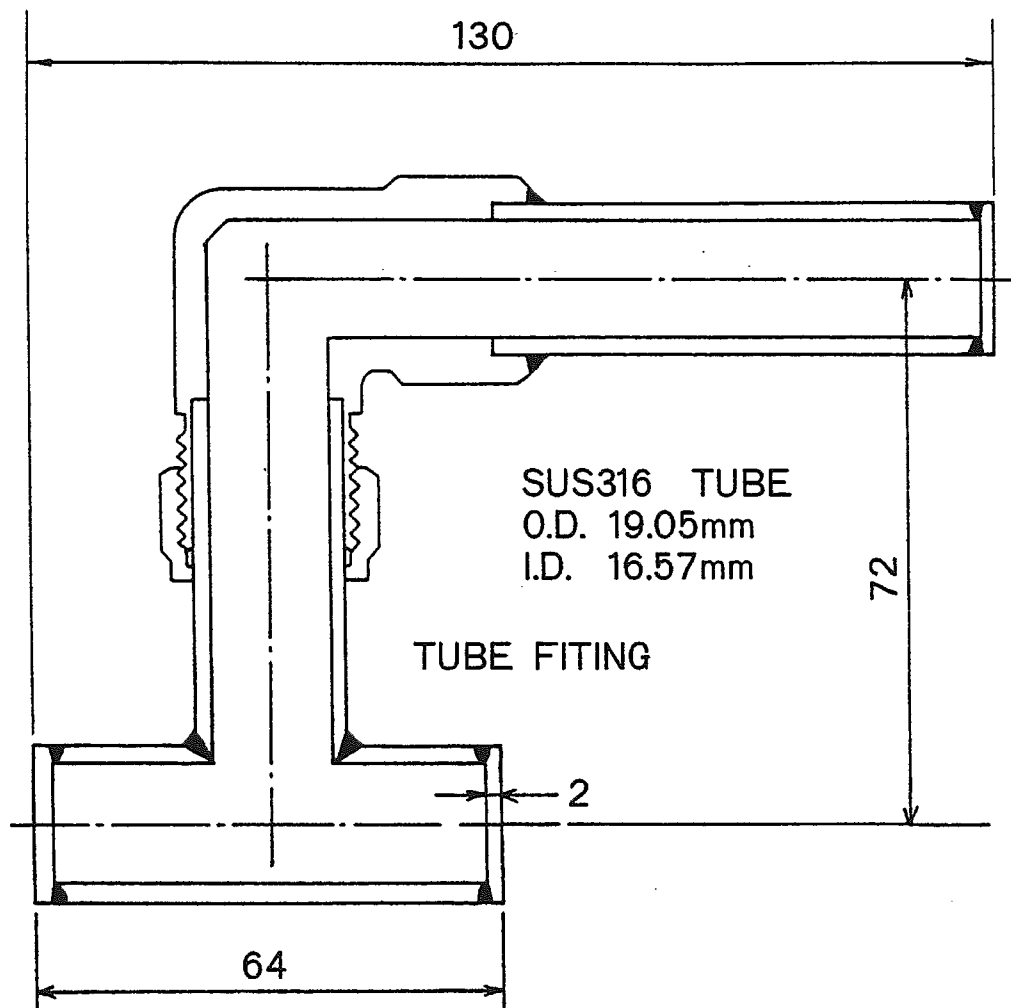


図 2-1 本試験でを使用した J 型カプセルの概略図

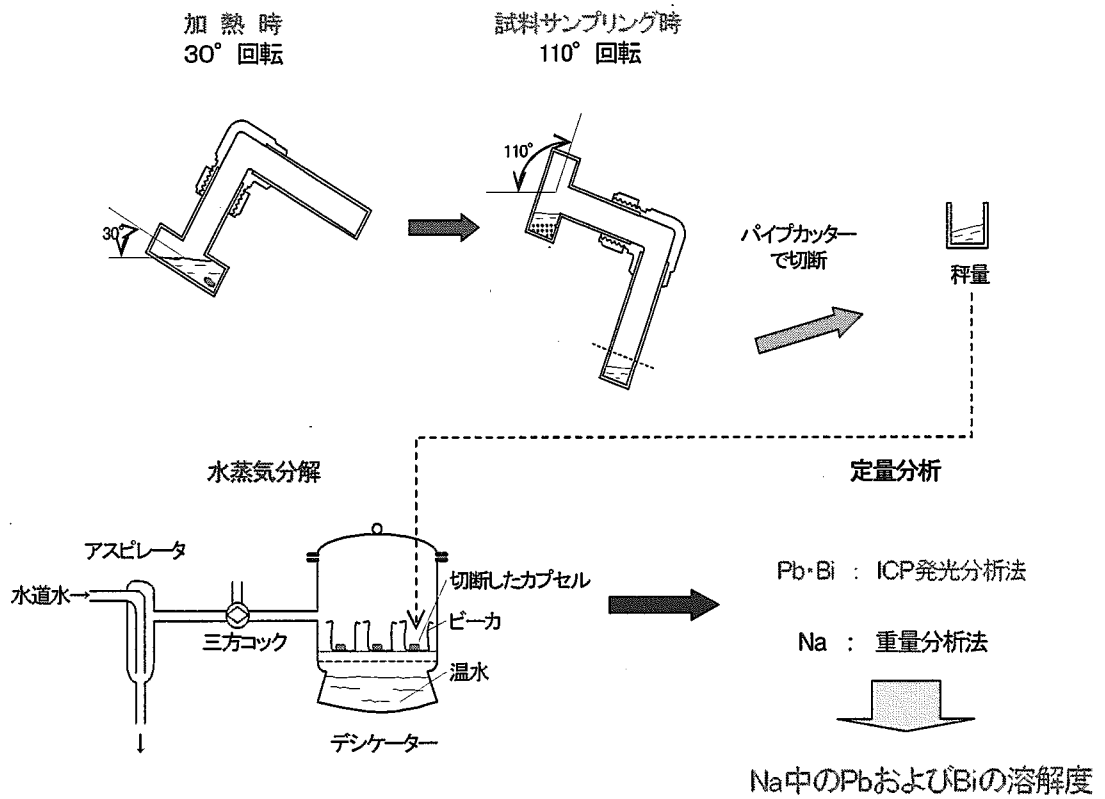


図 2-2 溶解度測定試験方法の概略図

表 2-1 ICP 発光分光分析装置の測定条件

測定波長	Na : 589.592nm
	Pb : 220.353nm
	Bi : 223.061nm
分析モード	定量
測定モード	検量線法
走査モード	積分法
積分時間	200ms

表 2-2 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (℃)	保持時間 (h)
#1	6.0153	4.0073	40.0	600	500
#2	6.0408	4.0156	39.9	600	700
#3	6.0298	4.0322	40.1	600	1000
#4	6.0089	4.0126	40.0	600	1000
#5	6.0046	4.0047	40.0	600	1000
#6	6.0142	4.0149	40.0	600	1000
#7	6.0057	4.0008	40.0	500	1000
#8	6.0028	4.0016	40.0	500	1000
#9	6.0035	4.007	40.0	500	1000
#10	6.0054	4.0024	40.0	400	1000
#11	6.0034	4.0002	40.0	400	1000
#12	6.0024	4.0007	40.0	400	1000
#13	5.9995	3.9987	40.0	300	1200
#14	5.9991	3.9994	40.0	300	1200
#15	6.0016	4.0019	40.0	300	1200
#16	6.0006	4.0015	40.0	200	1600
#17	6.0019	4.0004	40.0	200	1600
#18	5.9998	4.0005	40.0	200	1600
#19	6.0021	3.9998	40.0	150	2000
#20	6.0016	3.9997	40.0	150	2000
#21	5.9997	3.9997	40.0	150	2000

表 2-3 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化の試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 Na (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
#1	6.0153	4.0073	40.0	600	500
#2	6.0408	4.0156	39.9	600	700
#3	6.0298	4.0322	40.1	600	1000
#4	6.0089	4.0126	40.0	600	1000
#5	6.0046	4.0047	40.0	600	1000
#6	6.0142	4.0149	40.0	600	1000

表 2-4 低温域におけるナトリウム中鉛ビスマス成分元素の
溶解度測定試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
#22	6.9993	1.2361	15.0	195	2270
#23	7.0027	1.2362	15.0	195	2270
#24	7.0006	1.2357	15.0	195	2270
#25	7.0003	0.7772	10.0	150	2270
#26	7.001	0.7772	10.0	150	2270
#27	7.0017	0.7767	10.0	150	2270
#28	7.0006	2.9998	30.0	250	1600
#29	7.005	3.0013	30.0	250	1600
#30	7.001	2.9997	30.0	250	1600

表 2-5 ナトリウム中鉛の溶解度測定試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛 充填量 (g)	鉛の 重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
#34	7.2	0.7997	10.0	195	1800
#35	7.2002	0.8004	10.0	195	1800
#36	7.2007	0.8002	10.0	195	1800

表 2-6 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	ビスマス 充填量 (g)	ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
#31	8.0003	0.008	0.1	195	1800
#32	8.0006	0.0081	0.1	195	1800
#33	8.0008	0.0081	0.1	195	1800
#37	7.2002	0.8005	10.0	500	1000
#38	7.2005	0.8005	10.0	500	1000
#39	7.2006	0.8008	10.0	500	1000

表 2-7 残渣の XRD 分析を行ったカプセルの溶解度測定条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
#5	6.0046	4.0047	40.0	600	1000
#8	6.0028	4.0016	40.0	500	1000
#11	6.0034	4.0002	40.0	400	1000
#14	5.9991	3.9994	40.0	300	1200
#17	6.0019	4.0004	40.0	200	1600
#20	6.0016	3.9997	40.0	150	2000

表 2-8 X線回折試験の測定条件

X線発生条件		X線回折条件	
線源	Cu	データ測定範囲	10° ~ 90°
波長	1.54056Å	スキャン軸	2θ / θ
ゴニオメータ	横型ゴニオメータ	サンプリング間隔	0.02°
管電圧	40kV	スキャン速度	2° /min.
管電流	35mA	発散スリット	1.00°
		散乱スリット	1.00°
		受光スリット	0.15mm

表 2-9 直管カプセルを用いたナトリウム中の
鉛ビスマス溶解度測定試験中の濃度分布観察試験条件

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)
T1	6.9994	3.0007	30.0	250	770
T2	6.9998	3.0007	30.0	250	770
T3	7.0003	3.0003	30.0	250	770

表 2-10 直管カプセルによる X 線透過試験条件

撮影方法	直接投影
X 線線発生装置	(株)理学電機 携帯用 X 線装置 RF-300EGM
照射距離	900mm
照射条件	280kV、5mA、1.0min.

表 3-1 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素濃度の時間変化の試験結果

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)	分析結果 ナトリウム (wt. %)	分析結果 鉛 Pb (wt. %)	分析結果 ビスマス (wt. %)
#1	6.0153	4.0073	40.0	600	500	69.7	20.7	9.6
#2	6.0408	4.0156	39.9	600	700	66.4	21.6	12.1
#3	6.0298	4.0322	40.1	600	1000	未分析	未分析	未分析
#4	6.0089	4.0126	40.0	600	1000	64.1	21.7	14.2
#5	6.0046	4.0047	40.0	600	1000	67.7	21	11.3
#6	6.0142	4.0149	40.0	600	1000	66.3	20.1	13.6

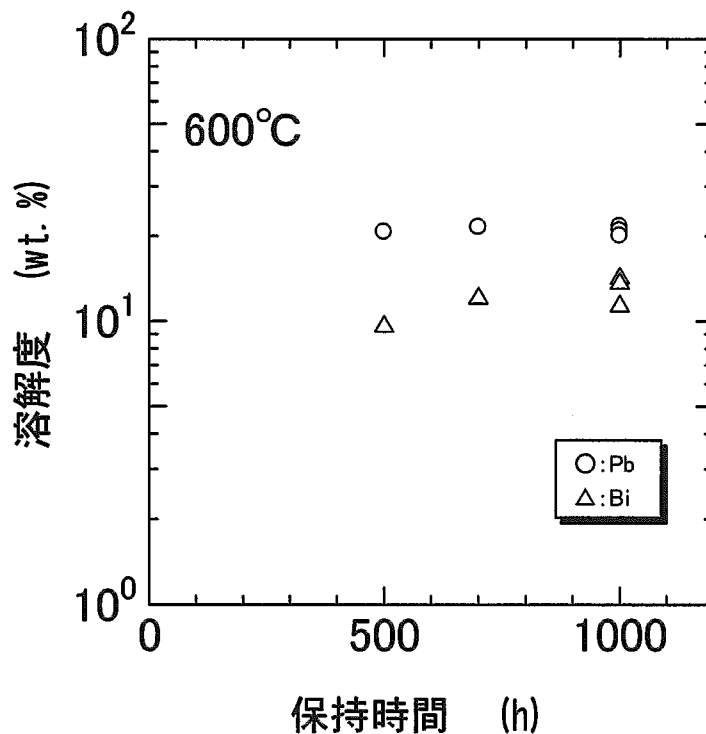


図 3-1 ナトリウム中の LBE 成分元素の鉛とビスマスの濃度と保持時間の関係

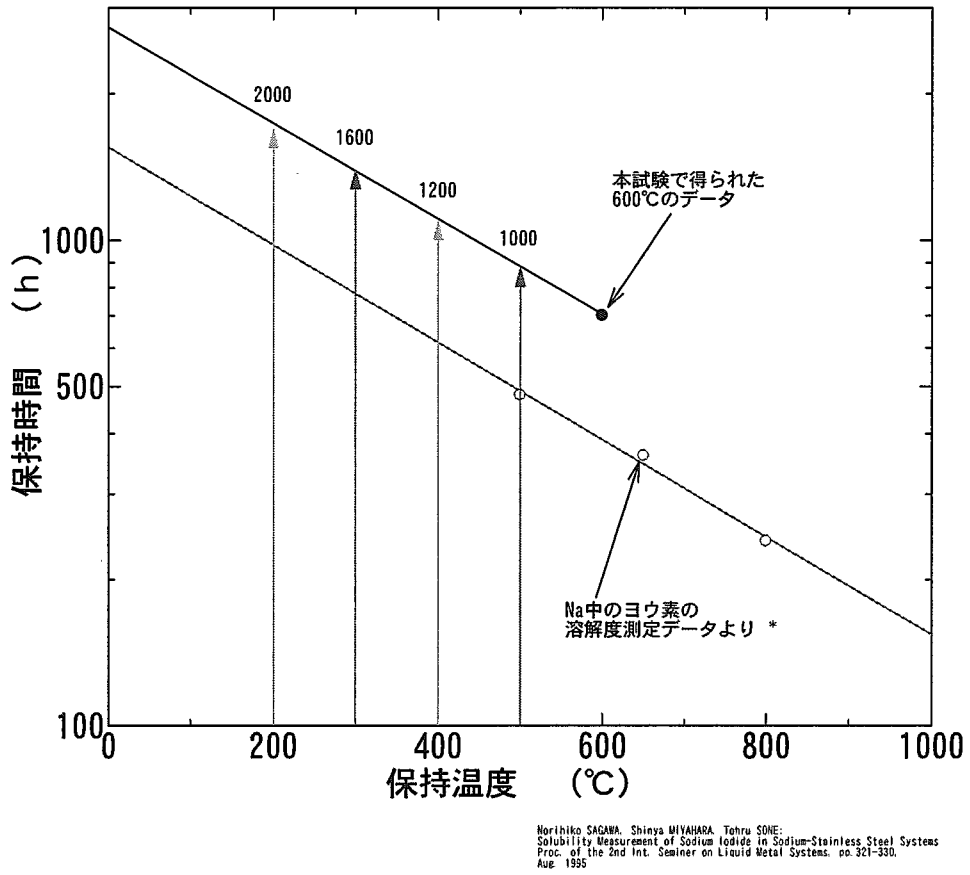


図 3-2 ナトリウム中ヨウ素の溶解挙動の経験式とナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の濃度の時間変化測定試験から得た加熱温度と保持時間の関係

表 3-2 ナトリウム中鉛ビスマスの溶解度測定試験の実施内容と
化学分析結果

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (℃)	保持時間 (h)	分析結果 ナトリウム (wt.%)	分析結果 鉛 (wt.%)	分析結果 ビスマス (wt.%)
#1	6.0153	4.0073	40.0	600	500	69.7	20.7	9.6
#2	6.0408	4.0156	39.9	600	700	66.4	21.6	12.1
#3	6.0298	4.0322	40.1	600	1000	未分析	未分析	未分析
#4	6.0089	4.0126	40.0	600	1000	64.1	21.7	14.2
#5	6.0046	4.0047	40.0	600	1000	67.7	21	11.3
#6	6.0142	4.0149	40.0	600	1000	66.3	20.1	13.6
#7	6.0057	4.0008	40.0	500	1000	76.6	19.7	3.8
#8	6.0028	4.0016	40.0	500	1000	77.7	18.8	3.5
#9	6.0035	4.007	40.0	500	1000	75.1	21.1	3.8
#10	6.0054	4.0024	40.0	400	1000	77.5	21.8	0.7
#11	6.0034	4.0002	40.0	400	1000	95.6	4.3	0.1
#12	6.0024	4.0007	40.0	400	1000	78.1	21.3	0.6
#13	5.9995	3.9987	40.0	300	1200	77.4	22.5	0.1
#14	5.9991	3.9994	40.0	300	1200	77.3	22.6	0.1
#15	6.0016	4.0019	40.0	300	1200	77.2	22.6	0.2
#16	6.0006	4.0015	40.0	200	1600	測定不能	測定不能	測定不能
#17	6.0019	4.0004	40.0	200	1600	測定不能	測定不能	測定不能
#18	5.9998	4.0005	40.0	200	1600	測定不能	測定不能	測定不能
#19	6.0021	3.9998	40.0	150	2000	測定不能	測定不能	測定不能
#20	6.0016	3.9997	40.0	150	2000	測定不能	測定不能	測定不能
#21	5.9997	3.9997	40.0	150	2000	測定不能	測定不能	測定不能

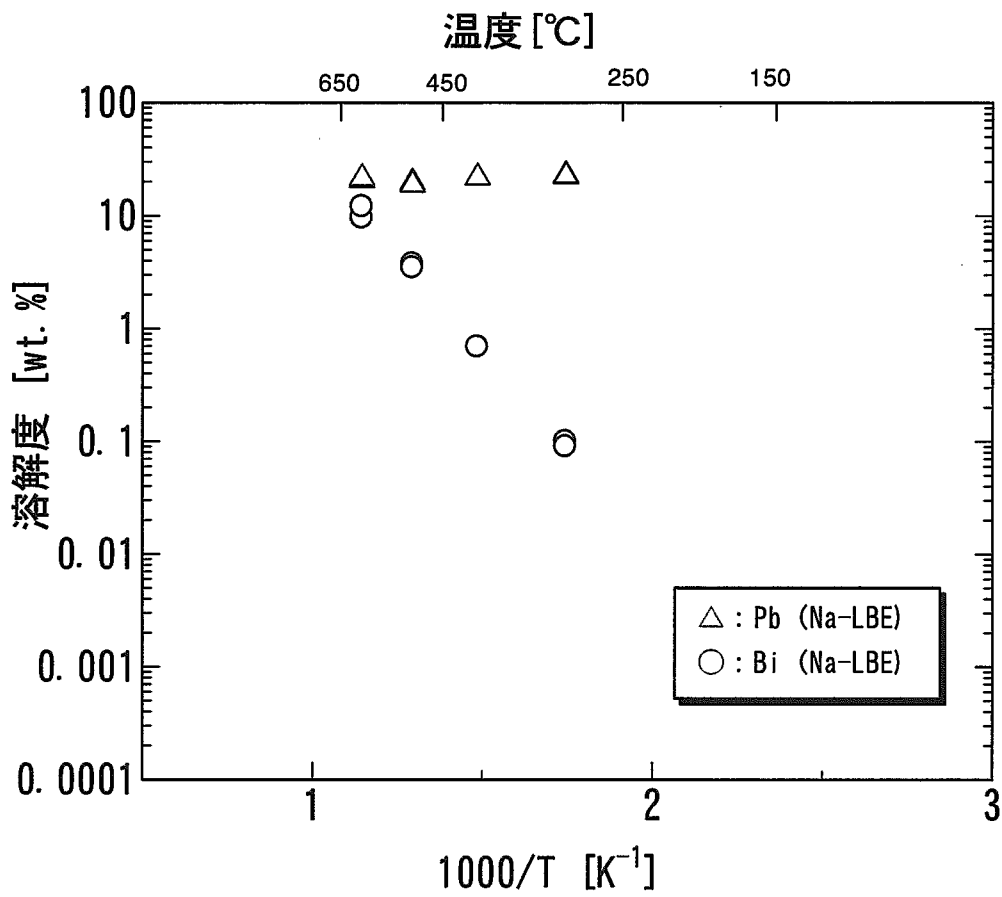


図 3-3 ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度
(600°C ~ 300°C)

表 3-3 低温域（300℃未満）のナトリウム中鉛ビスマスの
溶解度測定試験の実施内容と化学分析結果

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛ビスマス 充填量 (g)	鉛ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)	分析結果 ナトリウム (wt%)	分析結果 鉛 (wt%)	分析結果 ビスマス (wt%)
#22	6.9993	1.2361	15.0	195	2270	93.42	6.49	0.1
#23	7.0027	1.2362	15.0	195	2270	93.46	6.42	0.1
#24	7.0006	1.2357	15.0	195	2270	92.97	6.46	0.5
#25	7.0003	0.7772	10.0	150	2270	97.57	2.35	0.07
#26	7.001	0.7772	10.0	150	2270	97.22	2.5	0.28
#27	7.0017	0.7767	10.0	150	2270	97.63	2.33	0.04
#28	7.0006	2.9998	30.0	250	1600	82.74	17.06	0.2
#29	7.005	3.0013	30.0	250	1600	83.47	16.48	0.05
#30	7.001	2.9997	30.0	250	1600	83.79	16.1	0.11

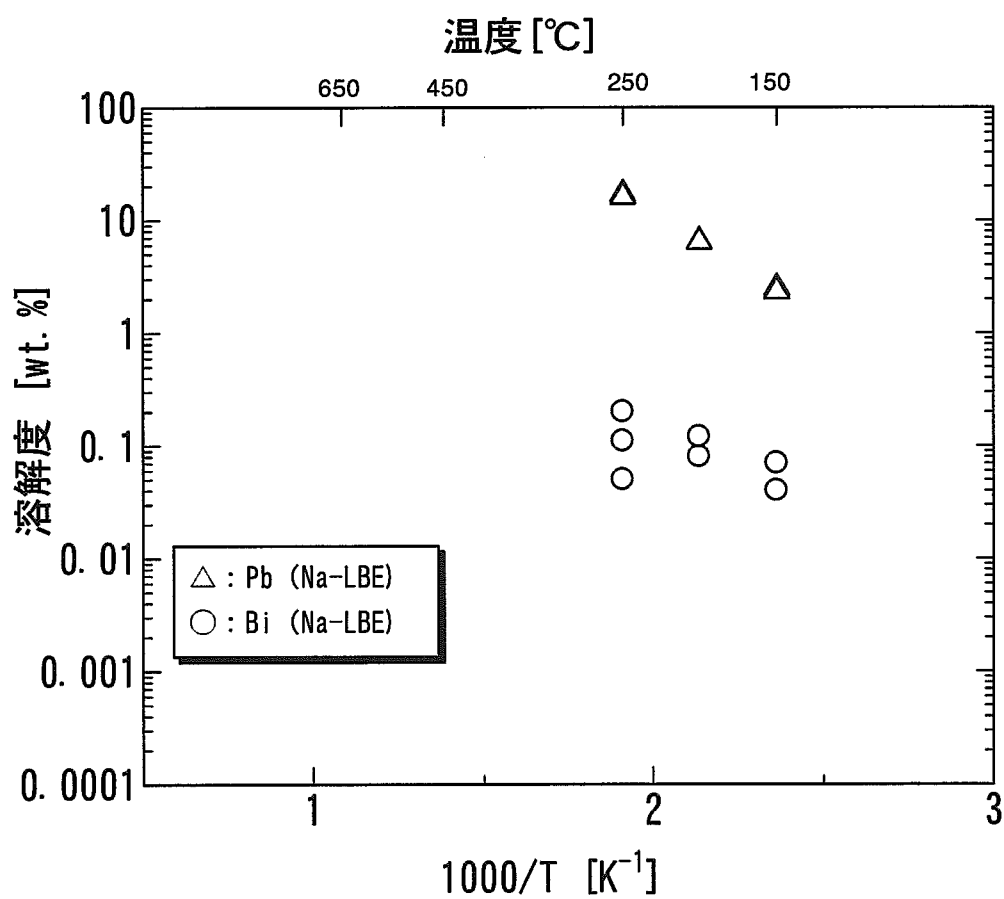


図 3-4 低温域 (300°C 未満) ナトリウム中鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度

表 3-4 ナトリウム中鉛の溶解度測定試験の実施内容と化学分析結果

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	鉛 充填量 (g)	鉛の 重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)	分析結果 ナトリウム (wt%)	分析結果 鉛 (wt%)
#34	7.2	0.7997	10.0	195	1800	92.68	7.32
#35	7.2002	0.8004	10.0	195	1800	93.05	6.95
#36	7.2007	0.8002	10.0	195	1800	93.02	6.98

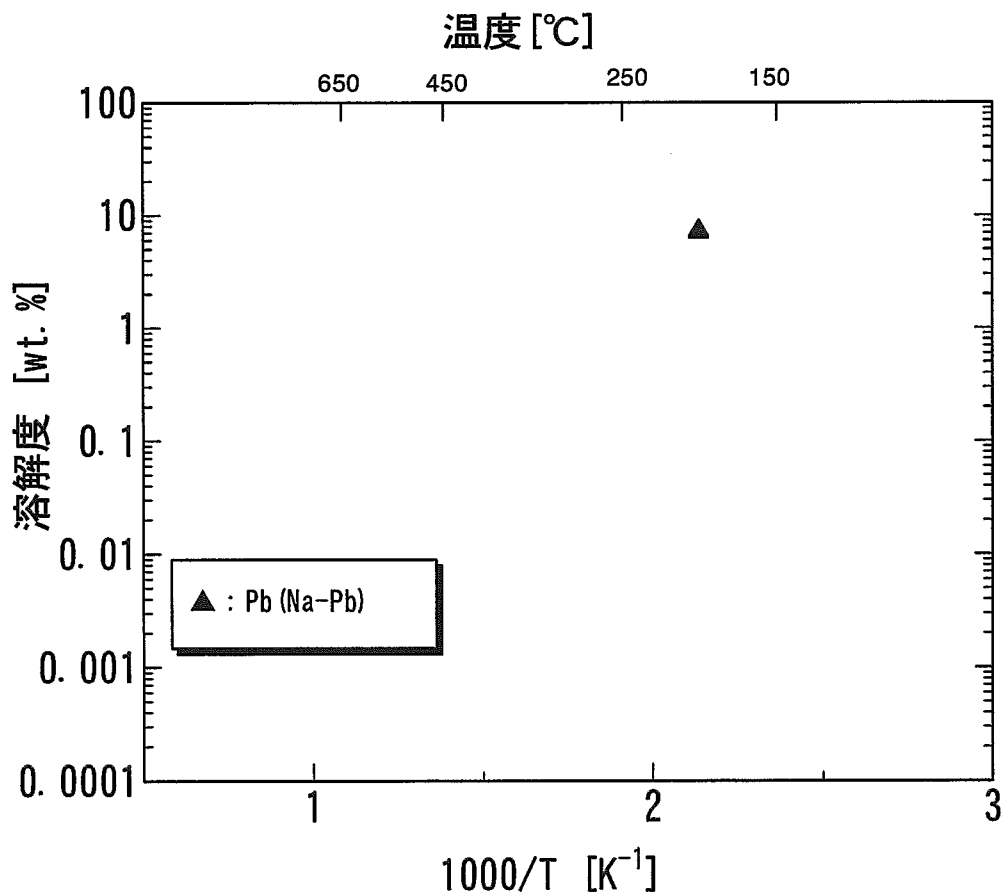


図 3-5 ナトリウム中鉛の溶解度 (195°C)

表 3-5 ナトリウム中ビスマスの溶解度測定試験の実施内容と
化学分析結果

Capsule No.	ナトリウム 充填量 (g)	ビスマス 充填量 (g)	ビスマス の重量比 (wt%)	保持温度 (°C)	保持時間 (h)	分析結果 Na(wt.%)	分析結果 Bi(wt.%)
#31	8.0003	0.008	0.1	195	1800	99.987	0.013
#32	8.0006	0.0081	0.1	195	1800	99.991	0.009
#33	8.0008	0.0081	0.1	195	1800	99.992	0.008
#37	7.2002	0.8005	10.0	500	1000	95.83	4.17
#38	7.2005	0.8005	10.0	500	1000	96.06	3.93
#39	7.2006	0.8008	10.0	500	1000	95.98	4.02

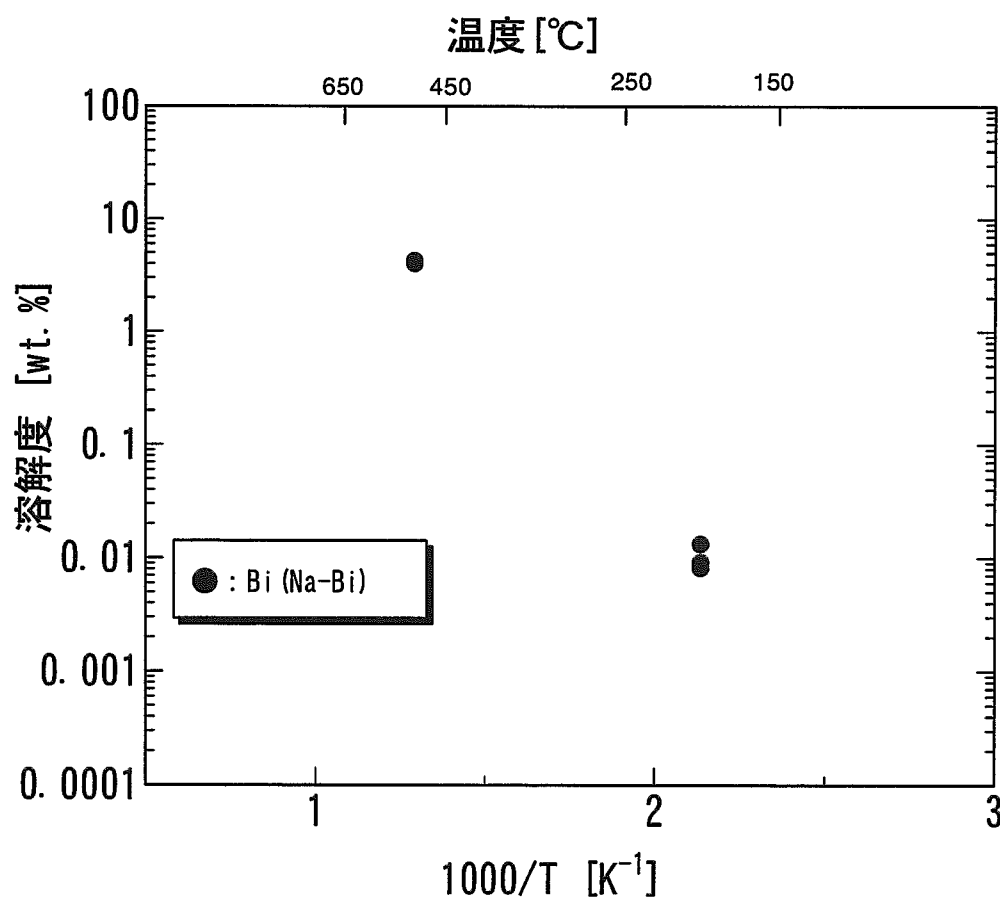


図 3-6 ナトリウム中ビスマスの溶解度

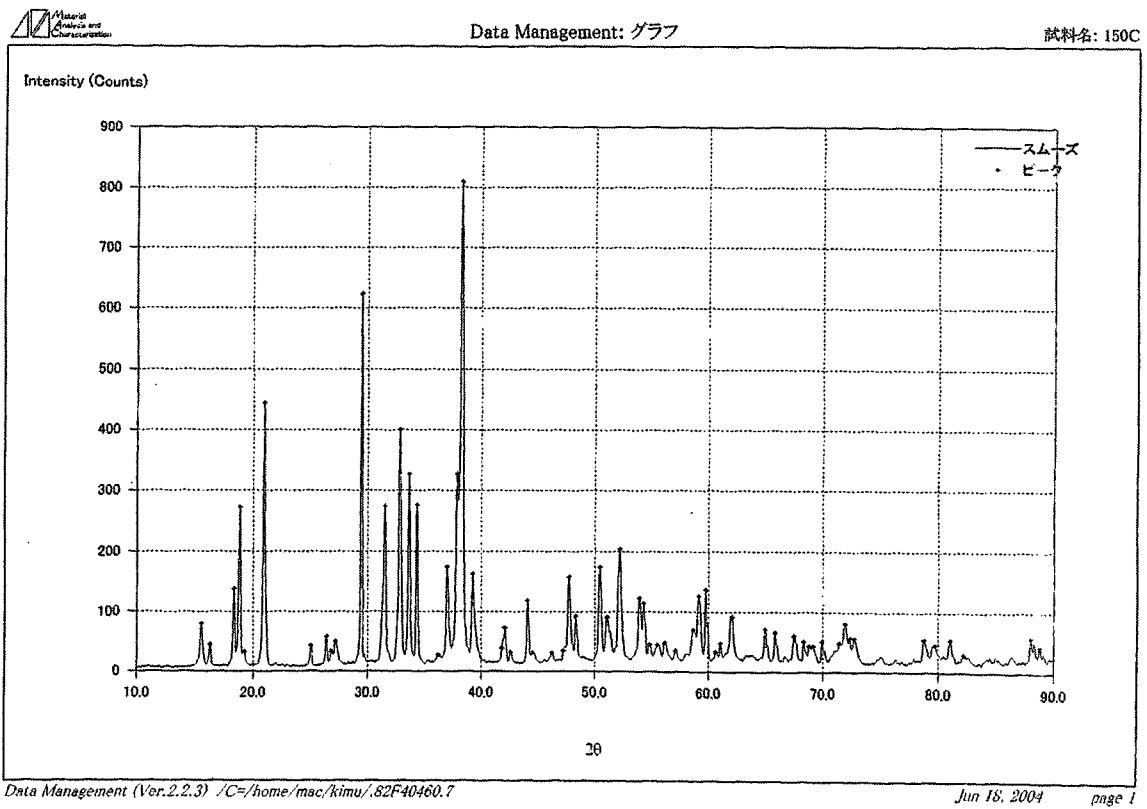


図 3-7 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (150℃)

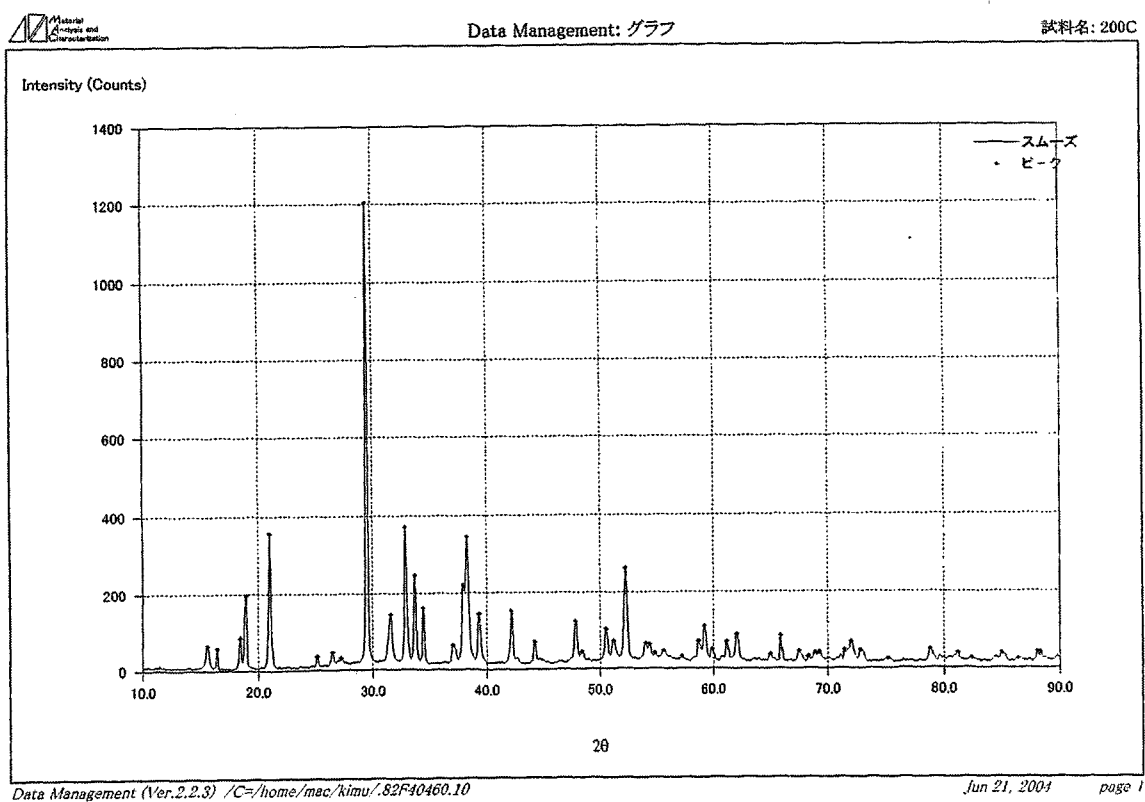


図 3-8 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (200℃)

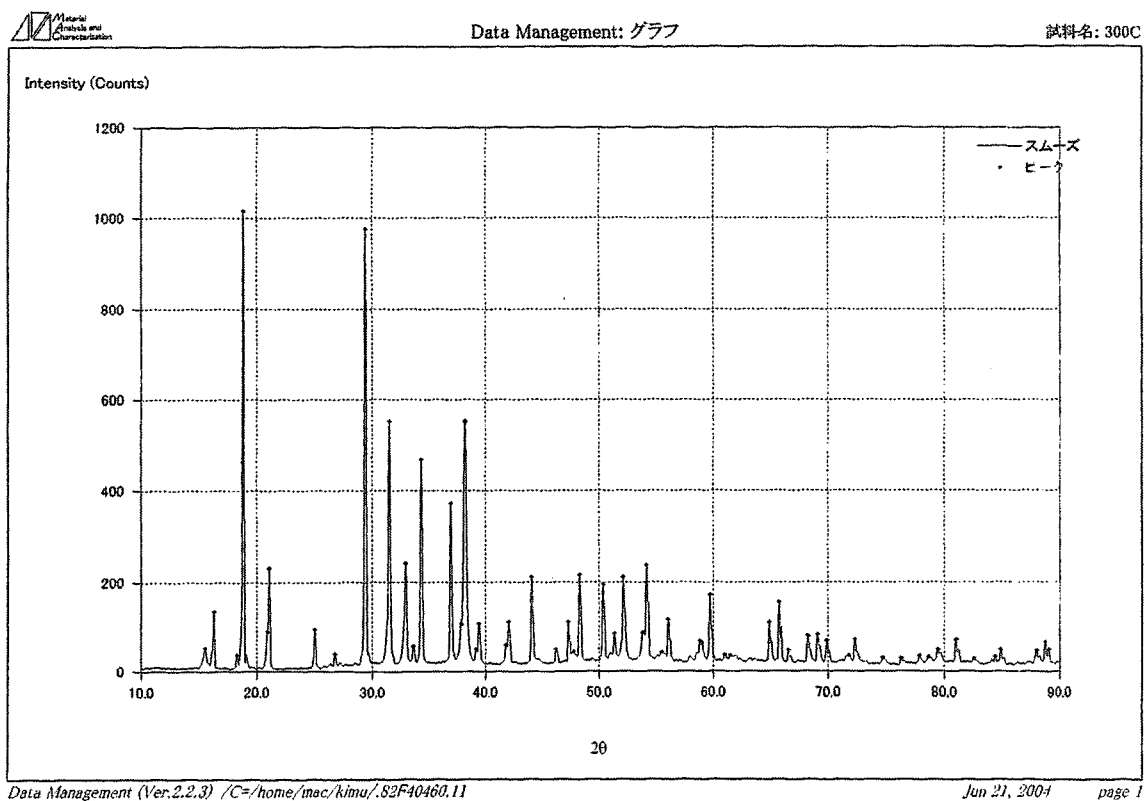


図 3-9 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (300℃)

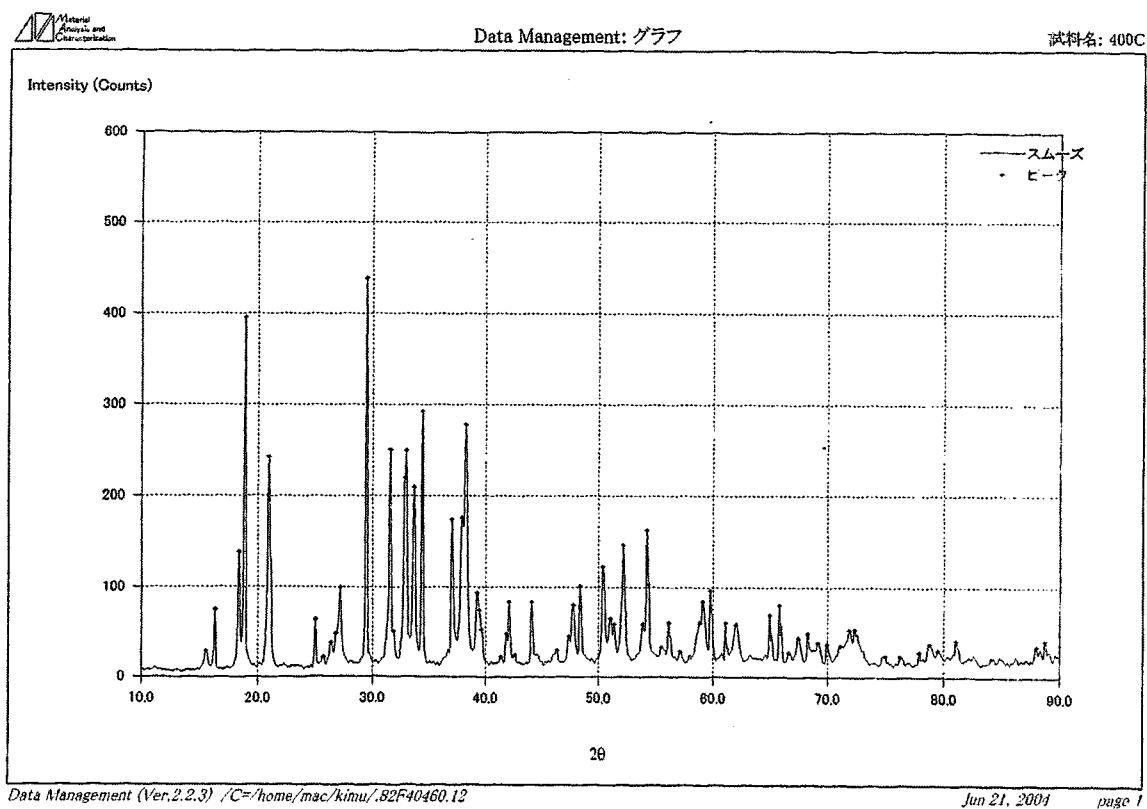


図 3-10 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (400℃)

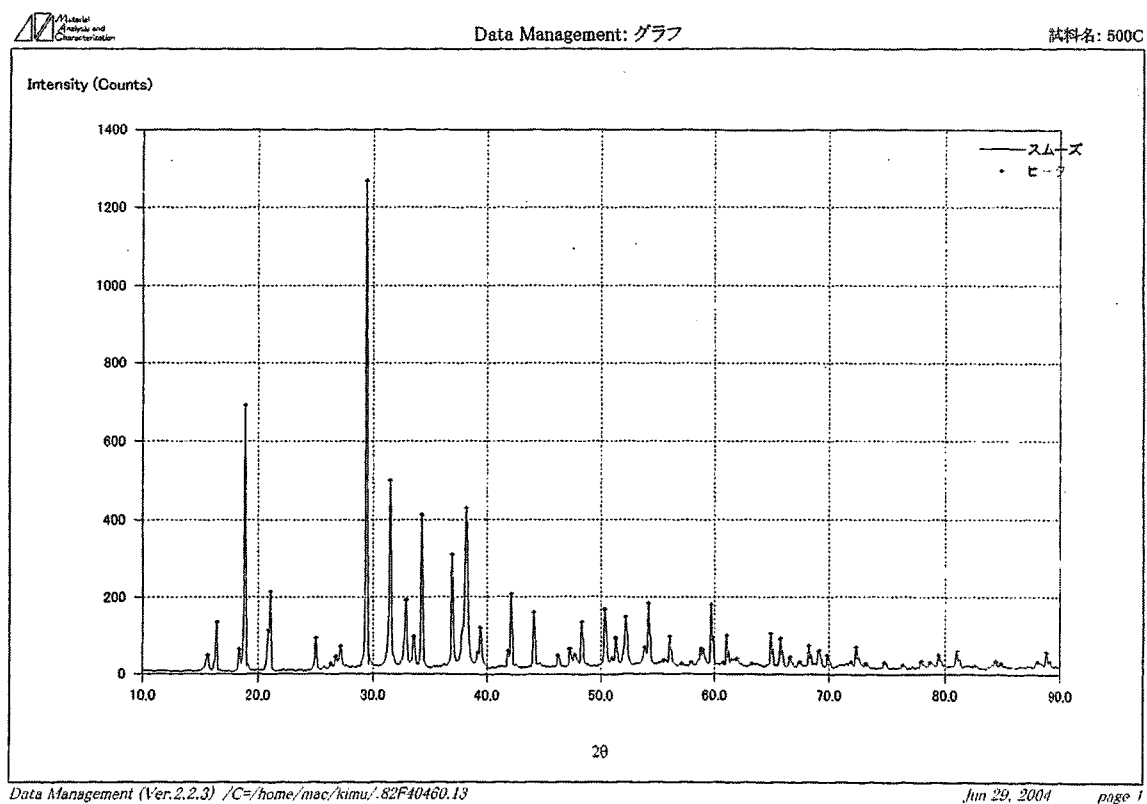


図 3-11 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (500°C)

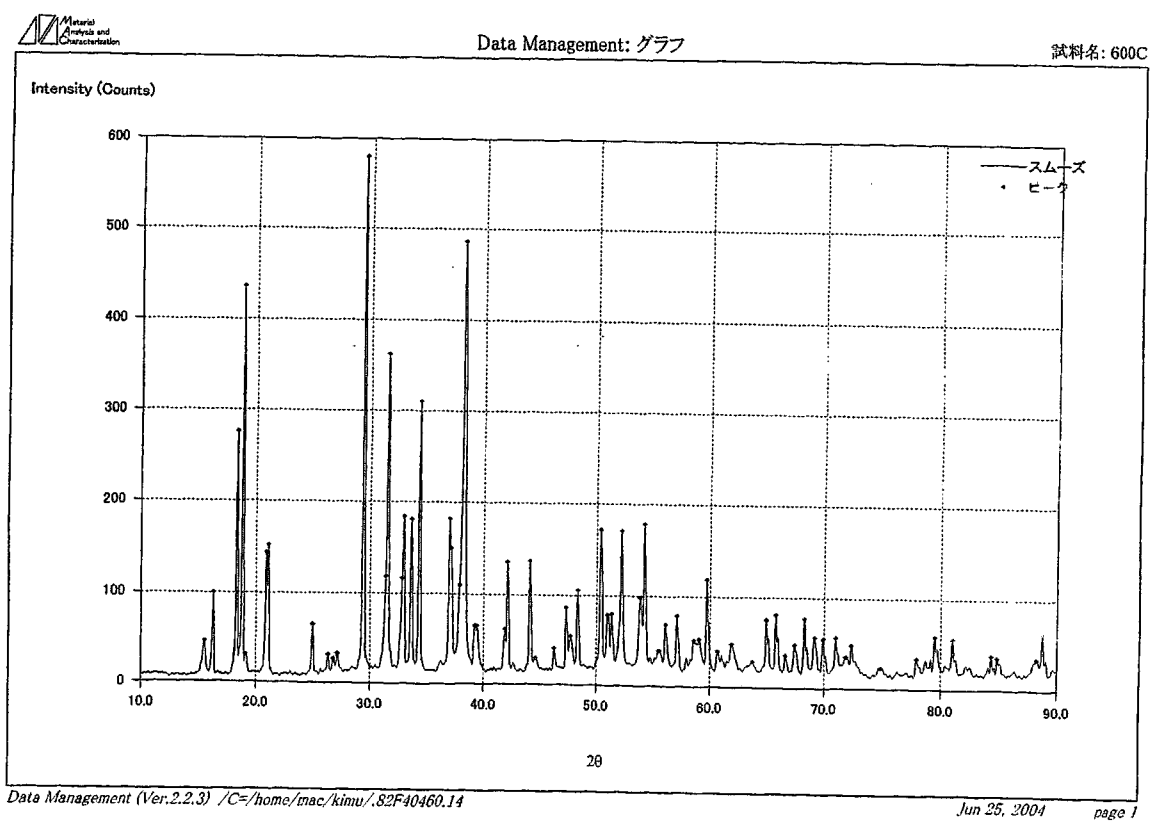


図 3-12 溶解度測定試験終了後の残渣の XRD 分析結果 (600℃)

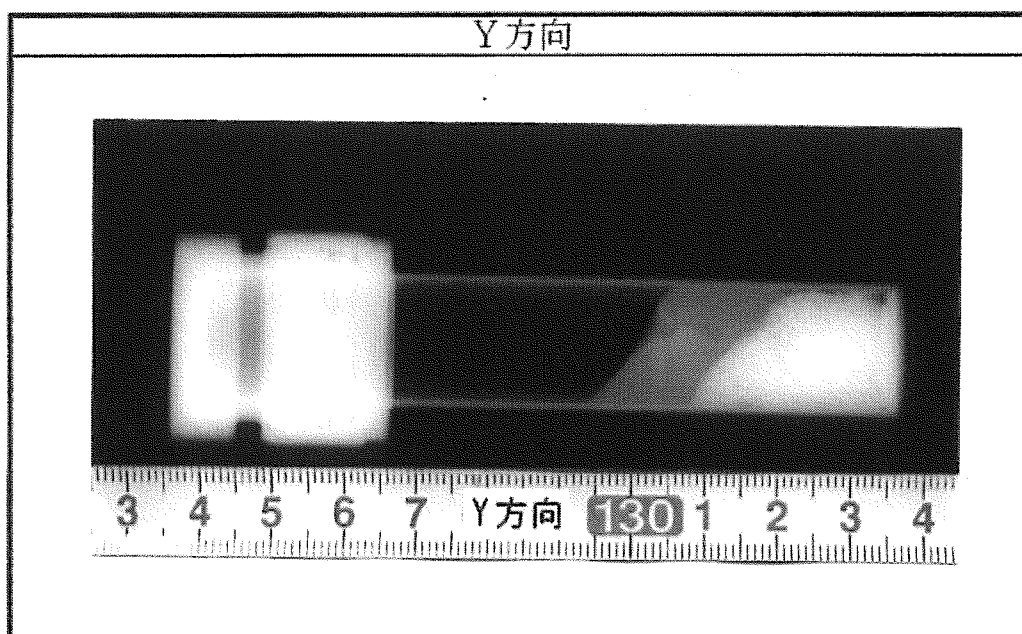
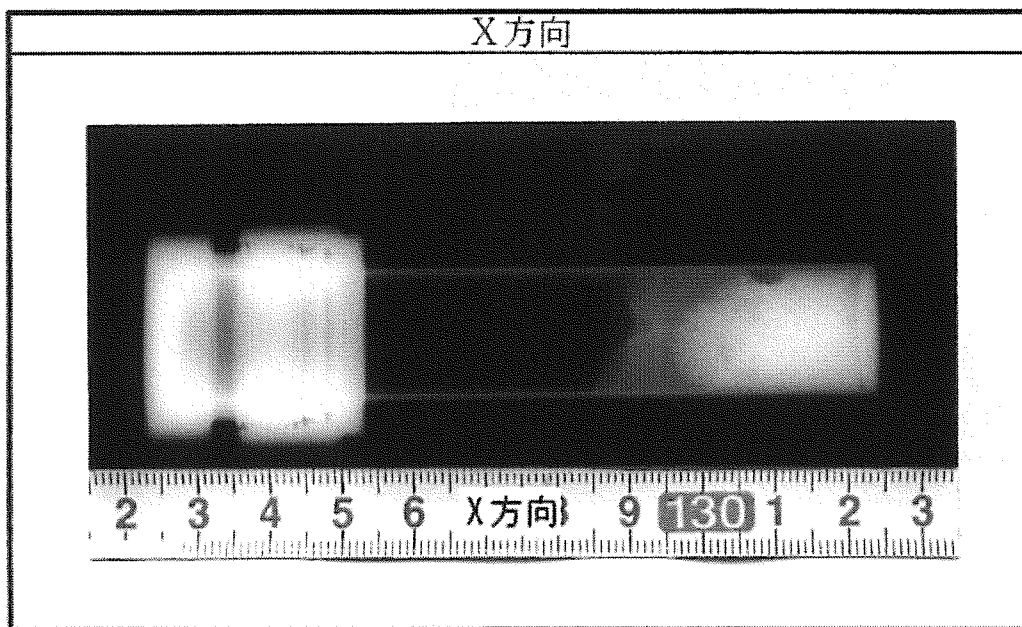
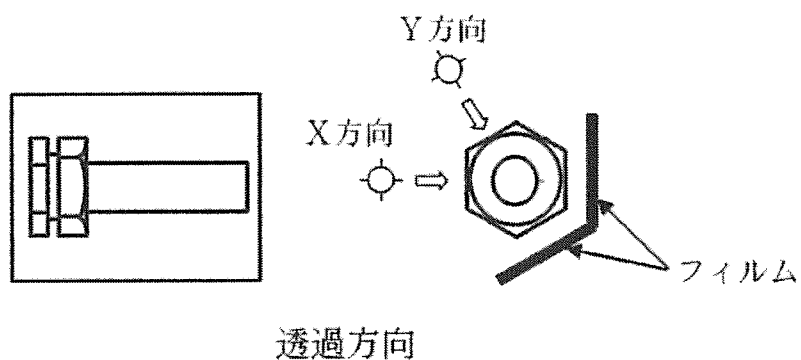


図 3-13 X線透過撮影試験結果

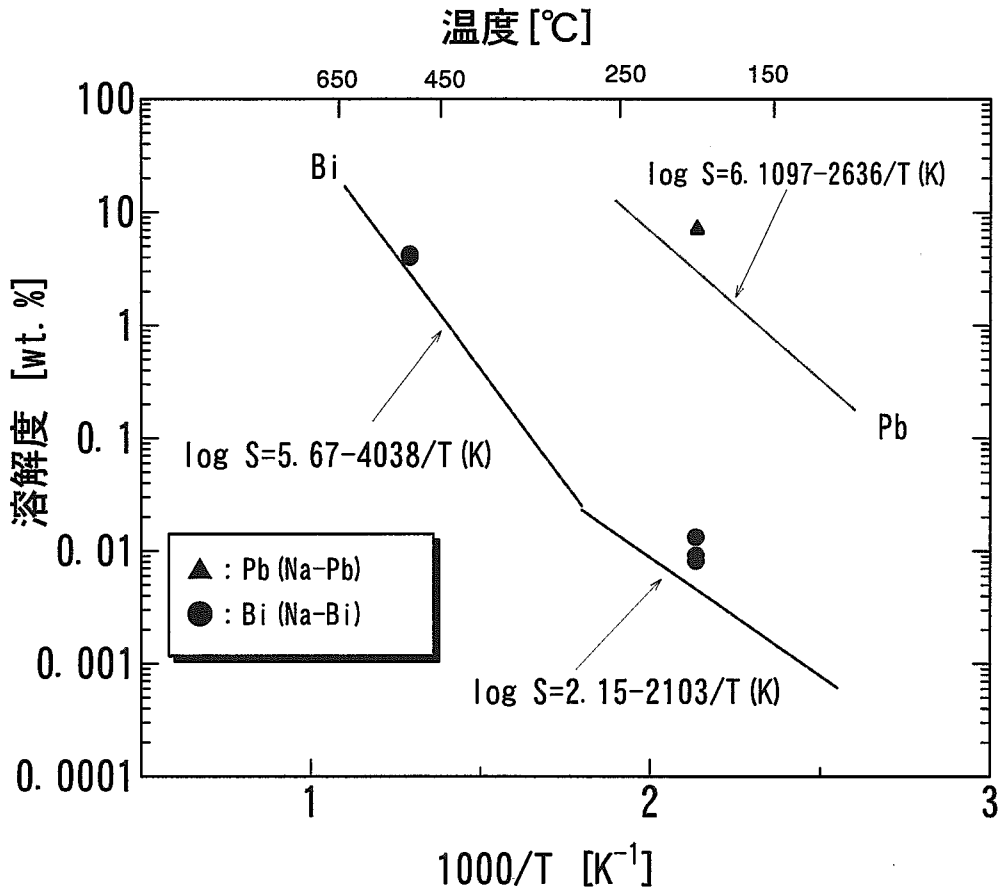


図 4-1 本試験で得られたナトリウム中鉛およびビスマスの溶解度とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較

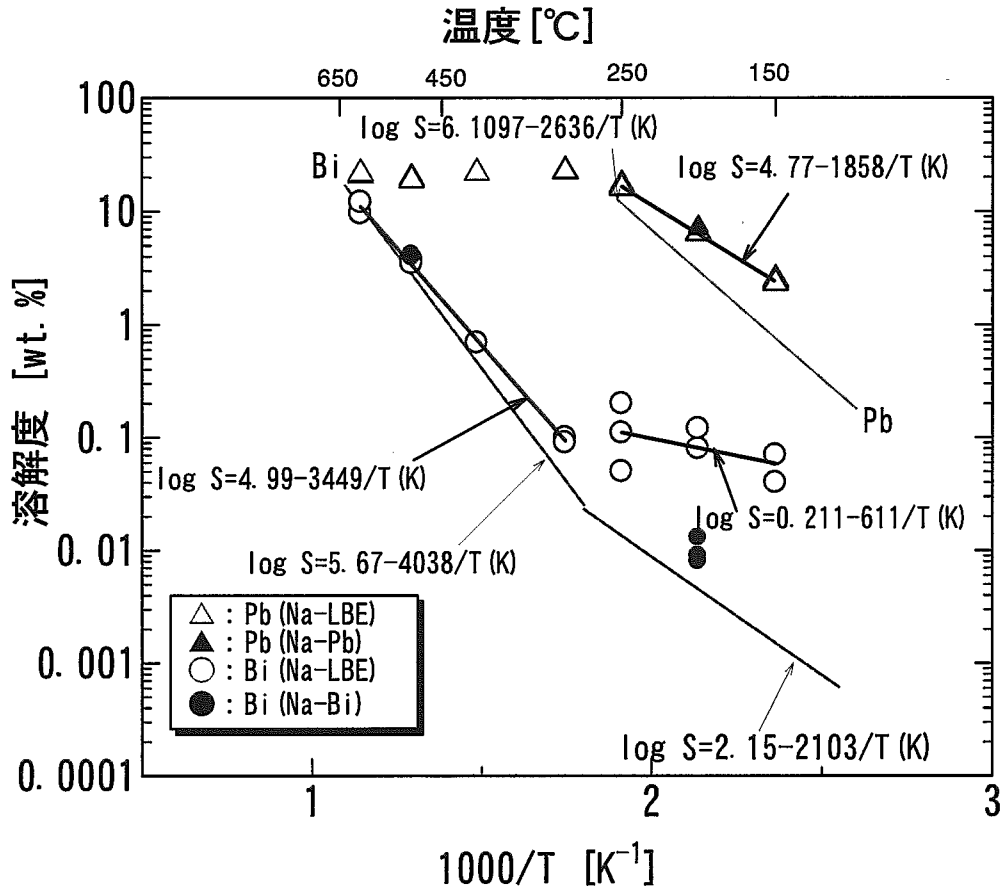


図 4-2 ナトリウム中の鉛ビスマス成分元素の鉛およびビスマスの溶解度 (600 $^{\circ}C$ ~ 150 $^{\circ}C$) とナトリウム-鉛二元系およびナトリウム-ビスマス二元系の溶解度曲線の比較