

流動鉛ビスマス共晶合金中腐食試験技術に関する研究
— 平成14年度共同研究成果報告書 —
(研究報告)

2003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)
2003

流動鉛ビスマス共晶合金中腐食試験技術に関する研究

—平成14年度共同研究成果報告書— (研究報告)

高橋 実*、関本 博*

要 旨

鉛ビスマス冷却高速増殖炉の一次冷却材およびナトリウム冷却型高速増殖炉の蒸気発生器中間熱媒体に鉛ビスマスをとして用いる場合、鉛ビスマス中における炉心材料および構造材料の腐食挙動の評価が必要である。そのために本研究では鉛ビスマス中の材料腐食試験技術の確立を目的としている。

平成14年度は、東京工業大学原子炉工学研究所における鉛ビスマス 循環実験装置を用いた材料腐食試験により、(a) 鉄鋼材料の流動鉛ビスマス中における腐食試験方法、(b) 流動鉛ビスマス中の酸素制御技術、および(c) 高温、高流速鉛ビスマス流動試験技術について検討を行った。

得られた結果を以下に要約する。

- (1) 鉛ビスマス中材料腐食試験を通じて、試験片の製作・試験部挿入方法、試験片取り出し後の洗浄方法および試験片の重量損失およびSEM/EDX断面分析方法を確立した。
- (2) 1000時間腐食試験を2回行い、鉛ビスマス腐食試験によるODS、F82H、SUH-3等の12種類の既存鋼の重量損失、腐食層（鉛ビスマス侵食）、鉛ビスマス付着層およびエロージョンの発生状況を把握した。
- (3) ジルコニア固体電解質方式の構造上熱応力と熱衝撃を受けにくい酸素濃度計を開発し、鉛ビスマス中酸素濃度を容易に測定できることを確認した。
- (4) 酸素濃度制御法として水蒸気を含ませたアルゴン・水素混合ガスの鉛ビスマス中吹込み方式を採用し技術的問題点を把握した。
- (5) 鉛ビスマス 循環実験装置の鉛ビスマス凝固および漏洩対策技術を蓄積した。
- (6) 鉛ビスマス 循環実験装置の低温部に酸化物または腐食生成物が析出し、流量低下およびループ閉塞が生ずる場合の対策技術を蓄積した。
- (7) 電磁流量計にMIケーブル型電極とチューブ型電極を適用しその性能を確認した。

* 東京工業大学 原子炉工学研究所

Study on Corrosion Test Techniques in Lead Bismuth Eutectic Flow
- Joint Research Report in JFY2002 -

Minoru TAKAHASHI * and Hiroshi SEKIMOTO *

Abstract

The evaluation of corrosion behaviors of core and structural materials in lead bismuth eutectic is one of the key issues for the utilization of lead bismuth eutectic as a coolant of the primary loops of lead bismuth cooled fast breeder reactors (FBRs) and the intermediate heat transport media of new-type steam generators of the sodium cooled FBRs. The purpose of the present study is to establish corrosion test techniques in lead bismuth eutectic flow.

The techniques of steel corrosion test and oxygen control in flowing lead bismuth eutectic, and the technologies of a lead bismuth flow test at high temperature and high velocity were developed through corrosion test using a lead bismuth flow test loop of the Tokyo Institute of Technology in JFY2002.

The major results are summarized as follows:

- (1) Techniques of fabrication, mount and rinse of corrosion specimens, measurement method of weight loss, and SEM/EDX analysis method have been established through lead bismuth corrosion test.
- (2) Weight losses were measured, corrosion and lead bismuth-adhered layers and eroded parts were observed in two 1000 hr-corrosion tests, and the results were compared with each other for twelve existing steels including ODS, F82H and SUH-3.
- (3) An oxygen sensor made of zirconia electrolyte structurally resistant to thermal stress and thermal shock was developed and tested in the lead bismuth flow loop. Good performance has been obtained.
- (4) An oxygen control method by injecting argon and hydrogen mixture gas containing steam into lead bismuth was applied to the lead bismuth flow loop, and technical issues for the development of the oxygen control method were extracted.
- (5) Technical measures for freezing and leakage of lead bismuth in the flow loop were accumulated.
- (6) Technical measures for flow rate decrease/blockage due to precipitation of oxide and corrosion products in a low temperature section of the lead bismuth flow loop were accumulated.
- (7) Electromagnetic flow meters with MI cable electrode type and tubular electrode type were tested in the lead bismuth loop, and the performances were compared with each other.

* Research Laboratory for Nuclear Reactors in Tokyo Institute of Technology

目 次

1. はじめに	1
2. 鉄鋼材料流動鉛ビスマス中腐食試験方法	2
2.1 緒言	2
2.2 腐食試験片	2
2.2.1 第2回腐食試験用試験片と配置	2
2.2.2 第3回腐食試験用試験片と配置	2
2.3 試験条件	3
2.3.1 第2回腐食試験の試験条件	3
2.3.2 第3回腐食試験の試験条件	3
2.4 試験片および試験片ホルダーの洗浄	4
2.5 腐食試験後の試験片の分析	5
2.5.1 重量変化の測定	5
2.5.2 試験片の表面及び断面状態の観察と分析	6
2.6 結言	7
3. 酸素制御技術	8
3.1 緒言	8
3.2 酸素濃度制御方法	8
3.3 酸素センサー	9
3.4 改良型酸素濃度計による起電力測定方法	12
3.4.1 酸素濃度制御時の起電力測定	12
3.4.2 腐食試験(酸素濃度制御なし)時の起電力測定	13
3.5 結言	14
4. 鉛ビスマス流動試験技術(1)	14
4.1 緒言	15
4.2 瞬時停電による循環ループの鉛ビスマス凝固と漏洩	15
4.3 循環ループの循環性能の問題	16
4.4 循環ループの循環性能回復操作	16
4.5 機械的ループ閉塞と回復操作	17
4.6 結言	18
5. 鉛ビスマス流動試験技術(2)	19

5.1 緒言	19
5.2 改良型電磁流量計の構造	20
5.3 使用初期の改良型電磁流量計の性能	20
5.4 長時間使用後の電磁流量計の性能	21
5.5 電磁流量計の電極棒交換	22
5.6 結言	22
6. おわりに	22
謝辞	25
参考文献	26

図表リスト

Table 2.1 第 2 回腐食試験試験片の元素成分	27
Table 2.2 第 3 回腐食試験試験片の元素成分	28
Table 2.3 第 3 回腐食試験試験片の寸法	29
Table 2.4 表面粗さの違い	29
Table 2.5 試験片の体積と洗浄容器の容積	30
Fig.2.1 試験片の寸法と設置方法	28
Fig.2.2 表面粗さの異なる試験片	29
Fig.2.3 試験片の洗浄装置	30
Fig.2.4 試験片の洗浄容器	31
Fig.2.5 試験片のグリセリンによる洗浄手順	31
Fig.2.6 第 2 回腐食試験後の試験片の重量変化	32
Fig.2.7 第 3 回腐食試験後の試験片の重量変化	33
Fig.2.8 SCM420 の表面・断面写真と断面の元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	34
Fig.2.9 ODS の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	35
Fig.2.10 F82H の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	36
Fig.2.11 STBA26 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	37
Fig.2.12 STBA28 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	38
Fig.2.13 NF616 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	39
Fig.2.14 HCM12 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	40
Fig.2.15 HCM12A の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)	41
Fig.2.16 SUS316 の表面・断面写真と断面の成分ごとの分析結果 (第 2 回腐食試験)	42
Fig.2.17 試験片ホルダーに装荷した状態の腐食試験後の表面写真 (第3回腐食試験)	43
Fig.2.18 SEM による試験片の断面写真(第3回腐食試験)	44

Fig.3.1 改良型酸素濃度制御系の系統図	45
Fig.3.2 酸素濃度計の概観	46
Fig.3.3(a) 酸素濃度計の全体図	47
Fig.3.3(b) 酸素濃度計の詳細図	47
Fig.3.4 改良型酸素濃度計の起電力の時間変化	48
Fig.3.5 酸素濃度起電力と鉛ビスマス温度の時間変化	48
Fig.3.6 酸素濃度計の起電力と鉛ビスマス流量の時間変化	49
Fig.4.1 停電後のループ各部の温度変化と流量変化	50
Fig.4.2 鉛ビスマス温度と電磁流量計指示値の時間変化	50
Fig.4.3 電磁流量計の校正試験結果	51
Fig.4.4 還元した鉛ビスマスを循環させたときの流量の時間変化	51
Fig.4.5 ダンプタンク吹き込み後の流量変化	52
Fig.4.6 鉛ビスマス流量急減時の流量と加熱器温度の時間変化	52
Fig.4.7 流量増加過程	53
Fig.5.1 改良型電磁流量計	54
Fig.5.2 改良型電磁流量計の流量校正結果	54
Fig.5.3 改良型電磁流量計の起電力の温度依存性	55
Fig.5.4 長時間使用後の流量計指示値と温度の時間変化	55
Fig.5.5 MI ケーブル型電極棒交換後の電磁流量計の流量校正結果	56

1. はじめに

鉛ビスマス冷却型高速増殖炉の冷却材およびナトリウム冷却型高速増殖炉の蒸気発生器中間熱媒体として鉛ビスマス共晶合金(以下、鉛ビスマス)の利用が検討されている。鉛ビスマスを利用するこれらのプラントの成立性を評価するためには、鉛ビスマスと炉心・構造材料の共存性に問題がないことを立証する必要がある。

共存性を立証するための材料の要件として、腐食とエロージョン、鉛ビスマスの浸透による材料強度低下、中性子照射損傷があげられる。高温部で溶解した金属元素が低温部で析出し流路閉塞と機器性能の低下をもたらすことも問題である。

このような腐食とエロージョンの問題を解決するためには、鉛ビスマス循環ループの設計・製作・運転から、腐食試験片の取り付け・洗浄・検査までの材料腐食試験技術、鉛ビスマス中の金属元素の溶解・輸送・析出現象、酸素濃度の制御・計測技術、さらには鉛ビスマス用電磁ポンプと電磁流量計の性能まで、試験技術全般にわたる課題を整理し、解決しておく必要がある。

そこで本研究では、(1)流動鉛ビスマス中の鋼材の腐食試験および流体工学試験に関する基礎技術開発およびその確立に資する技術的知見の整理、(2)材料試験後の処理(洗浄、分析)に関する基礎技術開発およびその確立に資する技術知見の整理の2点を目的として、2年度計画で以下の研究を実施する。

【平成 13 年度】

- (1) 流動鉛ビスマス試験基礎技術の開発（初起動時課題、酸素濃度を除く各種計測・制御システムの課題）
- (2) 鋼材腐食試験方法の開発（実際の試験方法の提案と課題整理、試験後処理技術提案と課題整理、具体的試験結果）
- (3) 酸素濃度制御技術の開発（制御方法の提案と課題整理）

【平成 14 年度】

- (1) 高温、高流速鉛ビスマス流動試験技術の提案（課題整理含む）
- (2) 鉄鋼材料流動鉛ビスマス中腐食試験方法の提案
- (3) 酸素制御技術の提案

本報告は、このうちの平成 14 年度研究成果に関してまとめたものである。

2. 鉄鋼材料流動鉛ビスマス中腐食試験方法

2.1 緒言

高温の鉛ビスマス冷却材と共に存性のよい炉心材料および構造材料を開発するため、鉛ビスマス循環実験装置(東工大原子炉工学研究所)を用いて鋼材の腐食試験を行ってきた。これまでに第1回試験で高クロム鋼や高速炉用材料を含む各種鋼材の流動鉛ビスマス中(温度 550°C、流速 2m/s、酸素濃度 4.9×10^{-7} wt%)における 959 時間の腐食試験を実施した。その結果、SUS316 で Ni の溶出による腐食が激しく、低クロム鋼よりも高クロム鋼のほうが腐食が抑制されることがわかった。この原因は表面の Cr_2O_3 の防護酸化被膜形成にあると解釈された。

平成 14 年度は鉛ビスマスに対する耐腐食材料を開発するため、第 2 回、第 3 回の 1000 時間材料腐食試験を行った。その試験方法と試験結果について述べる。

2.2 腐食試験片

2.2.1 第 2 回腐食試験用試験片と配置

試験部にモリブデン製試験片ホルダーを挿入し、このホルダー内に複数の異なる試験片を挟み込むことにより、同一の温度・流速条件下で流動鉛ビスマスに露出し、腐食挙動を相対比較している。これまでに火力プラントおよび高速炉、核融合炉等のために開発された既存鋼を試験片として用いて腐食試験を行ってきた。

第 2 回腐食試験に用いた試験片の材料組成を Table 2.1 に示す。第 1 回腐食試験で用いた材料のほかに ODS、F82H、STBA28、NF616、HCM12、HCM12A を新たな試験片として加えている。ODS はフェライト系ステンレス鋼の高温強度を高めたものである。F82H は核融合炉用に開発された低放射化フェライト鋼である。STBA28、NF616、HCM12、HCM12A は火力発電所のボイラー構造材として開発され、高温高圧に強い材料である。

装荷した試験片の順番は上流側から次の通りである。

①SCM420 → ②ODS → ③F82H → ④STBA26 → ⑤STBA28
→ ⑥NF616 → ⑦HCM12 → ⑧HCM12A → ⑨SUS316 → ⑩SCM420

①から⑨までの試験片は、寸法が縦 15mm、横 10mm、厚さ 2mm であり、4 枚 1 組として装荷した(Fig.2.1)。また、⑩の SCM420 は①の SCM420 と流れ方向の位置による腐食挙動の違いを調べるためにものである。⑩の SCM420 は寸法が縦 15mm、横 15mm、厚さ 2mm であり 3 枚 1 組としている。

2.2.2 第 3 回腐食試験用試験片と配置

第3回腐食試験で用いた試験片の組成をTable 2.2に示す。第1回および第2回腐食試験に使用した試験片のほかにマルテンサイト系耐熱鋼であるSUH3を加えた。SUH3はSiを多く含んでおり、鉛ビスマス中で試験片表面にシリコン酸化物を形成しやすいため、これが腐食の防護被膜となって腐食抑制に有効と考えられる。

試験片ホルダーに装荷した試験片の順番は上流から次のとおりである。

①HCM12A→②SUH3→③STBA26→④NF616→⑤SUS430
 →⑥SUS405→⑦SUS316→⑧F82H→⑨ODS→⑩SCM420
 →⑪SUS430→⑫HCM12→⑬SUS316→⑭STBA28→スペーサー

試験片の寸法をTable 2.3に示す。⑫,⑬,⑭の試験片は、腐食とエロージョンに及ぼす表面粗さの影響を調べるため3種類の異なる表面粗さをもつ試験片である(Fig.2.2)。表面粗さの違いをTable 2.4に示す。

2.3 試験条件

2.3.1 第2回腐食試験の試験条件

第2回腐食試験における試験条件は以下のとおりである。

試験時間	: 1000 時間
高温部(試験部) 温度	: 550°C
低温部温度	: 400°C
試験部鉛ビスマス流速	: 2m/sec
550°C 平衡酸素濃度	: 3.6×10^{-7} wt%
酸素濃度制御条件	: 水素・水蒸気・アルゴンの混合ガス吹き込み 流量 66l/min、水素・水蒸気分圧比 0.22~0.24 常温の水中コラム(37°C)をバーリング

鉛ビスマス中の酸素濃度を制御するため水素・水蒸気・アルゴンの混合ガスを上記の条件で膨張タンク内の 400°C の鉛ビスマス中に連続的に吹き込んだ。550°Cにおける平衡酸素濃度の予測値は上記の値になる。試験部の下流の鉛ビスマス中に固体電解質酸素センサー(参照極側流体:空気)を挿入し酸素濃度を測定した結果、145 時間後以降予測値と測定値が一致した。

2.3.2 第3回腐食試験の試験条件

第3回腐食試験における試験条件は以下のとおりである。

試験時間	: 1000 時間
高温部(試験部)温度	: 550°C
低温部温度	: 400°C
試験部鉛ビスマス流速	: 1m/sec
初期酸素濃度	: 4.9×10^{-7} wt% (180°Cの飽和酸素濃度)
酸素濃度制御条件	: 無し

180°Cの鉛ビスマスをダンプタンクから循環系に充填し、水素・水蒸気・アルゴンの混合ガスを鉛ビスマス中に吹き込まなかったため、初期酸素濃度は 180°Cの飽和酸素濃度に等しいとみなした。試験部の下流の鉛ビスマス中に固体電解質酸素センサー(参照極側流体:ビスマスとビスマス酸化物)を挿入し酸素濃度を測定した。その結果は 3.4.5 に述べる。

2.4 試験片および試験片ホルダーの洗浄

鉛ビスマスに露出させた試験片を試験部から取り出して腐食状態の分析を行うためには、表面に付着した鉛ビスマスを除去する必要がある。

- (1) 腐食試験前後の試験片の重量変化から腐食量を評価する場合には鉛ビスマスを表面から完全に除去しなければならない。
- (2) 表面の酸化膜の状態を観察する場合には酸化膜を残して、そのほかの鉛ビスマスを除去する必要がある。

このような洗浄は、試験片および試験片ホルダーをナトリウム、水銀等の液体金属、シリコンオイル、グリセリンまたは酢酸に浸漬させて行う。

第1回腐食試験終了後の鉛ビスマスの洗浄には Na を使用した。Na を 200°Cに加熱することで、試験片表面の鉛ビスマスを融解させ、また Na への Pb と Bi の溶解により試験片に侵入した鉛ビスマスを除去する効果があった。しかし、Na での洗浄は Na に酸素の還元作用があるため、鋼材表面に形成されている酸化物を溶解させてしまう。第 2 回目以降の腐食試験では試験片表面に形成される酸化物層を観察するため、酸化物層を除去しないようにグリセリンにより洗浄を行った。グリセリンは常温において液体であり、沸点が高く Na のように化学的に活性でないため取扱いは容易である。

洗浄装置の全体図(支持台を含む)を Fig.2.3 に示す。洗浄容器は Fig.2.4 に示すように SUS304 鋼製の縦置き円管(外径 34.0mm、内径 27.6mm、長さ 1000mm)であり、試験片ホルダーを Na またはグリセリンに浸漬できる。洗浄液を廃棄しやすいように上部から 200mm の位置の左右対称に取手が取り付けられている。カバーガスとして不活性ガスである窒素ガスを使用し、ガス吸気口を下部から 650mm の位置、排気口を上部から 75mm の位置に付けた。洗浄装置には 200W のフレキシブルヒーターを上部と下部に各1本巻きつけ、温度監視のために洗浄

装置の外管壁に熱電対を設置し、その周りを保溫材(グラスウール)で覆った。ヒーターの電圧制御用に0～130Vの電圧調節器を用いた。

試験片が挟み込まれている試験片ホルダーを洗浄容器に挿入した状態でグリセリン液面が下端から550mmになるようにするには、約144ccのグリセリンが必要である(Table 2.5)。グリセリンの量は目盛り付きのステンレスビーカーを用いて測定した。

洗浄手順は以下のとおりである(Fig.2.5)。

- I. グリセリン洗浄用容器内を窒素で置換する。
- II. 試験片ホルダーの入っている容器からグリセリン洗浄用容器に試験片ホルダーを移し替える。
- III. 洗浄用容器に約150ccのグリセリンを注入する。このとき、目視で試験片ホルダーがグリセリン中に浸漬していることを確認する。
- IV. 温度の状況をモニターするためにデータロガー(サーモダックE)を起動する。
- V. 洗浄容器下部ヒーターに80Vの電圧をかけ、容器を200°Cまで昇温させる。同時に洗浄容器カバーガス空間内に窒素ガスをページし続ける。
- VI. 洗浄容器の温度が200°Cに達したら電圧を50Vに下げ、およそ10分間その状態を保持する。この時、温度が過度に低下するならば電圧を調整し温度が200°C程度で一定に保つ。
- VII. 10分後試験片ホルダーを上下させ、付着している鉛ビスマスを振り落とす。
- VIII. 下部ヒーターの電圧を切り、試験片ホルダーを容器最上部まで引きあげ、およそ20分間冷却する。
- IX. 試験片ホルダーを洗浄容器から取り出す。この時、試験片ホルダーに鉛ビスマスが付着していてホルダーが開かない場合にはV～VIIIの作業を繰り返す。
- X. 取り出した試験片ホルダーは清浄な紙か布の上に置き、巻きつけてあるワイヤーをはずして試験片を取り出す。
- XI. 電気炉にステンレス製ビーカーをセットし、グリセリンを適量注ぎ、200°Cまで加熱する。
- XII. 取り出した試験片一つ一つをビーカー内のグリセリンで洗浄する。
- XIII. 試験片を純水で超音波洗浄を行う。
- XIV. 試験片の水分をよく拭き取り、あらかじめ材料名を記入したビニール袋に入れデシケーター内に真空状態で保管する。

2.5 廉食試験後の試験片の分析

2.5.1 重量変化の測定

腐食試験後の試験片の重量変化を評価するため、グリセリン洗浄後の試験片の重量を測

定し、試験前後の重量の変化量を腐食面の面積で除し、単位面積あたりの重量損失を求めた。第2回腐食試験と第3回腐食試験の結果をそれぞれ Fig.2.6、Fig.2.7 に示す。ここで負の値は重量増加を示している。

第2回腐食試験結果では、重量損失が大きい SCM420 と F82H は激しいエロージョンを起こしていることを目視で確認した。一方、重量が増加している試験片の多くは後述するように表面に腐食層を形成していた。これは腐食層に比重の大きい鉛とビスマスが浸入したことによるものと考えられる。上流と下流の SCM420 を比べると下流のほうが重量損失のほうが小さいことがわかった。これは、上流側で鋼材のある元素が溶解すると鉛ビスマス中でその元素の熱力学的ポテンシャルが大きくなるため、下流側でその元素が溶解し難い状態になるためと考えられる。

第3回腐食試験結果では、Fig.2.7 に示すように目視で確認できるほどのエロージョンは発生せず、第2回腐食試験の結果と同様に SCM420 と F82H と NF616 の重量損失が大きかった。HCM12A も重量損失が大きいが、エロージョンを受けやすい流れの上流端部にあるため他の試験片とは条件が異なることによるものと考えられる。また、SUS316 と STBA28 は第2回、第3回腐食試験ともに重量の増加傾向を示した。

第3回腐食試験における表面粗さの影響の結果については、HCM12、SUS316、STBA28 は SUS316 を除き①の表面が滑らかなものは重量増加傾向を示し、②の表面が粗いものは重量減少傾向を示した。HCM12 の③は異常な重量増加を示しているため、洗浄不十分による鉛ビスマス付着の可能性が考えられる。

2.5.2 試験片の表面及び断面状態の観察と分析

第2回腐食試験後の試験片表面観察のため試験片ホルダーに設置したままの状態で写真を撮影した。その後、走査型電子顕微鏡(SEM)により表面・断面の映像を撮影し、エネルギー分散型X線分析装置(EDX)により断面の線分析を行った。ホルダー設置状態の写真、SEM による表面・断面の写真および EDX による断面の線分析の結果を試験片ごとに Fig.2.8 から Fig.2.16 に示す。

第3回腐食試験後の試験片も、はじめに表面観察のため試験片ホルダーに設置したままの状態で写真を撮影した。その結果を Fig.2.17 に示す。SEM、EDX については現在、分析中であるが、一部の試験片についての SEM による断面写真を Fig.2.18 に示す。

第2回腐食試験の試験片の表面及び断面の写真と EDX による断面の成分分析の結果から、試験片のコロージョンやエロージョンに以下の特徴が見られた。

- ① フェライト系低合金鋼である SCM420 は激しいエロージョンを起こし、表面に腐食層も形成された。
- ② タングステンを比較的多く含む ODS、F82H、NF616、HCM12、HCM12A では表面に腐食層は形成されていないが、鉛ビスマスの付着層を形成していた。その付着層ではタングス

テンが試験片中より増加していた。特に F82H はエロージョンによる重量損失の割合も大きかった。

- ③ SUS316 はタンクステンを含まない材料で唯一、鉛やビスマスの付着層を形成していた。また腐食層も形成しており、その層において Fe の割合が若干増加している。
- ④ 腐食層を形成した試験片には鉛やビスマスの浸入が見られる。

以上の結果から考察すると、タンクステンを含む試験片はその表面でタンクステンと鉛とビスマスの酸化物を形成している可能性がある。F82H のエロージョンを考えると、その酸化物は試験片表面から剥がれやすいため、試験片表面に保護膜が形成されにくく、エロージョンを受けやすい状態になっていると考えられる。

第 3 回腐食試験の試験片の表面写真によると、エロージョンを起こしている試験片は無く、第 2 回腐食試験に比べ、エロージョンを起こしにくい試験条件であったということが分かる。SEM による断面写真を見ると、試験片表面に腐食層と思われる層を形成している試験片が多く見られる。第 2 回腐食試験では ODS、F82H、NF616 に腐食層は見られなかったが第 3 回腐食試験では腐食層が観察された。これは本試験条件が、エロージョンを起こしにくく、腐食層が母材表面から剥がれ難い状態であったと考えられる。

2.6 結言

腐食試験により以下の結果が得られた。

- (1) SCM420 と F82H と NF616 の重量損失が大きく、SUS316 と STBA28 は重量増加を示した(第 2 回試験、第 3 回試験)。
- (2) SCM420 は上流より下流のほうが重量損失のほうが小さく、上流側の溶解元素が下流側で溶解し難い可能性がある(第 2 回試験)。
- (3) SCM420 と F82H は激しいエロージョンを起こした(第 2 回試験)。F82H は酸化物が剥離しやすいためエロージョンを受けやすい。SCM420 は表面に腐食層が形成され鉛とビスマスが浸入した。エロージョンは発生せず、エロージョンによる腐食層の母材表面からの剥離が起こりにくかった(第 3 回腐食試験)。
- (4) SUS316 を除き HCM12、SUS316、STBA28 は表面が滑らかなものは重量が増加し、表面が粗いものは重量が減少した(第 3 回腐食試験)。
- (5) タンクステンを多く含む ODS、F82H、NF616、HCM12、HCM12A では表面に鉛ビスマス付着層を形成しタンクステンが試験片中より増加した(第 2 回試験)。SUS316 はタンクステンを含まない材料で唯一、鉛やビスマスの付着層を形成し、Fe の割合が若干増加した腐食層も形成した(第 2 回試験)。
- (6) 腐食層を形成している試験片が多い(第 3 回試験)。第 2 回腐食試験では ODS、F82H、NF616 に腐食層は見られなかったが第 3 回腐食試験では腐食層が観察された。

今後の課題を以下に述べる

(1) 酸化膜の分析方法

EDX では試験片表面に生成した酸化膜内の酸化物を測定することが困難である。酸化物は共有結合により構成されているので、共有結合を持つ物質の検出が可能なラマン分光分析装置による酸化物の分析を検討中である。

(2) 鉛ビスマス中に溶解した金属元素の分析方法

鉛ビスマス中に溶解した金属元素が腐食に影響する可能性があるため、腐食を定量的に評価するためには、溶解している金属元素を定量する必要がある。現在、定量分析法として、誘導結合高周波プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES)により鉛ビスマス中に溶解した金属元素の分析法を検討している。

3. 酸素制御技術

3.1 緒言

鉛ビスマス循環ループ内の酸素濃度を最適条件に保つことが鋼材の腐食防止と PbO 等の酸化物生成防止のために重要である。そこで鉛ビスマス循環実験装置の膨張タンク内の鉛ビスマス中に水素・水蒸気・アルゴン混合ガスを吹き込むことによる酸素濃度制御法について試験した。また、試験部下流の高温部にジルコニア固体電解質型酸素センサーを設置し、その性能試験を実施した。この酸素濃度制御条件下で第 2 回腐食試験を行ったところ、一部の試験片にエロージョンが生じた。この原因として、酸素濃度を低くしたために鋼材表面の酸化被膜が除去され腐食が促進されたと解釈し、酸素濃度を高く保つことができるよう水素・水蒸気・アルゴン混合ガス吹き込み系を改造した。以下にその方法と結果について述べる。

3.2 酸素濃度制御方法

アルゴンと水素の混合ガスを水槽内にバブリングさせて所定の水蒸気を含ませ、水素と水蒸気の分圧比を所定の値になるようにして、膨張タンク内の鉛ビスマス中に連続的に吹き込む方式を採用した。吹き込まれたガスは鉛ビスマス中を通り抜けた後、膨張タンクのカバーガス内に停留した後、外部に放出される。これにより吹き込みガス中の酸素ポテンシャルと平衡するように鉛ビスマス中の酸素ポテンシャルが変化し、長時間吹き込みの後には鉛ビスマス中の酸素ポテンシャルが目標値に達して一定になる。

従来の吹き込み方式ではアルゴンと水素の混合ガスを常温の水中コラム(実験中およそ 37°C)に通しを、この温度の水蒸気分圧に相当する水蒸気を混合ガスに含ませた。この吹き込み方式では、ガス中の酸素ポテンシャルを腐食試験部温度 550°C の平衡値から求めた。しか

し、膨張タンク内の 400°C の鉛ビスマス中に吹き込みを行っているため、酸素ポテンシャルの算定に当っては、400°C の平衡値を用いなければならない。その場合にはこの吹き込み条件では酸素ポテンシャルが所定の値より相当低くなることがわかった。吹き込みガス中の酸素ポテンシャルを適正值にするためには、水蒸気分圧を高められるように 60°C 程度の温水中に混合ガスを通さなければならない。

そこで、酸素濃度制御のための吹き込みガス系を改良した。その系統図を Fig.3.1 に示す。改良した系統では混合ガスをタンク内の温水に下から上に通すことによりバブリングさせてアルゴンと水素の混合ガスに湿分をより多く含ませるようにしている。タンクの温度調整により湿分の制御が可能であり、従来よりも湿分制御が簡易になっている。湿分の監視はバブリングタンクのすぐ後に位置する湿分計で行う。

吹き込み部である膨張タンクの温度(400°C)に近い温度でチューブ内を通すことにより 400°C の平衡酸素ポテンシャルに近くするため、 $\text{Ar}+\text{H}_2+\text{H}_2\text{O}$ の混合ガスを 200°C に加熱した SUS316 チューブに通してから 400°C で流動する膨張タンク中の鉛ビスマス中に吹き込んだ。

3.3 酸素濃度センサー

鉛ビスマス中の酸素濃度をオンラインで測定可能な酸素濃度計を開発するため、ジルコニア固体電解質の起電力を測定する手法を採用している。この方法は、固体電解質の片側表面に酸素ポテンシャルが既知のガスまたは液体を接触させ(参照極)、他方の表面に被測定物である鉛ビスマスを接触させて、両面間の化学ポテンシャルの差から生ずる起電力を測定するものである。

酸素濃度センサーで発生する起電力は次のネルンストの式で表される。

$$E = \frac{RT}{4F} \ln P_{O_2(\text{ref})} - \frac{RT}{4F} \ln P_{O_2(\text{Pb-Bi})} \quad (3.1)$$

ここで E は酸素計起電力(V), $P_{O_2(\text{ref})}$ は参照極の酸素分圧, $P_{O_2(\text{Pb-Bi})}$ は溶融金属中の平行酸素分圧, R は気体定数(J/K), T は温度(K), F はファラデー定数(C/mol)である。

これまでに参照極として空気($P_{O_2(\text{ref})}=0.21$)を用いていた。後述するように酸素濃度計の改良を行い、参照極に酸素が飽和した状態の液体ビスマスとビスマス酸化物の混合物を使用することにした。その場合、酸素濃度計起電力 E と鉛ビスマス中酸素濃度(wt%)の関係は次のように表される。

$$E = \frac{1}{2F} \left(\frac{\Delta G^\circ_{Bi_2O_3}}{3} \right) - \frac{1}{2F} \left(0.45 \Delta G^\circ_{PbO} + \frac{0.55}{3} \Delta G^\circ_{Bi_2O_3} + RT \ln \frac{C_{O_2}}{C_S} \right) \quad (3.2)$$

ここで C_{O_2} は鉛ビスマス中の酸素濃度(wt%), ΔG°_{PbO} は PbO、 $\Delta G^{\circ}_{Bi_2O_3}$ は Bi_2O_3 の標準生成自由エネルギー変化(J/mol)である。鉛ビスマス中の酸素溶解度 C_s (wt%)はロシアのデータによれば次式で表される。

$$\log C_s = 1.2 - \frac{3400}{T} \quad (3.3)$$

従来の固体電解質酸素濃度計には下記のような問題点があった。

- 1) 鉛ビスマスの温度は 500°C以上であるがセンサーのシール部はシール材の耐熱温度であるおよそ 100°Cまで水等で冷却され、センサーの製造可能な最大長さは 20cm 程度であるので、固体電解質酸素センサーには軸方向に 400°C/20cm の大きな温度勾配が生じ、熱応力により破損しやすい構造にある。
- 2) 鉛ビスマスの液位を上昇させてセンサーに接触させる場合、センサー底部の温度を溶融金属の温度差を数°C以下に制御して低速度で液位を上昇させなければ熱衝撃による破損を防止できない。そこで、センサーの内部に熱電対付き内挿ヒーターを挿入して加熱によりセンサー底部の温度を制御することとカバーガス圧による液位制御が必要であった。
- 3) このような低速の液位上昇により溶融金属をセンサー底部に接触させる方法では、溶融金属の自由表面に蓄積された不純物（以下、スラグと称す）がセンサーの表面に付着しやすく、スラグ中の溶存酸素濃度は溶融金属中の溶存酸素濃度と異なるため、誤った起電力を発生し溶融金属中の溶存酸素濃度を正確に測定できない。
- 4) センサーが破損した場合、溶融金属が参照電極側に漏れて固化するため、溶融金属循環ループの運転を停止して、固体電解質酸素濃度測定装置を分解し、固化した溶融金属を除去しなければ、固体電解質酸素センサーを交換できない。

そこで次の観点から改良を行った。

- ① 酸素センサーの固体電解質に機械的、熱的衝撃が加わらないようにする。特に固体電解質が溶融金属に接触する際に、熱的衝撃による亀裂が生じないようにする。
- ② 溶融金属中のスラグが固体電解質に付着しないようにする。
- ③ 上記①の観点から、熱応力の問題を回避するため、装置取り付け部のシールとその冷却を不要にする。
- ④ センサーの交換をしやすくする。

問題点を解決する着眼点は以下の通りである。

- ① 热応力と熱衝撃で破損しやすい固体電解式酸素センサーを小型で短いものに、装置内部に投入することにより装置取り付け部のシールとその冷却を不要にする。これにより固体電解式酸素センサーの温度を均一化させ熱応力を回避する。

- ② 参照電極用に溶融金属と金属酸化物の混合物を用い、内部に挿入する電極棒を十分長くして外部へ取り出すシール部を高温の装置本体から十分離れた位置に設ける。
- ③ センサーを溶融金属の流路内に挿入して流動する溶融金属と常時接触させる。これにより、溶融金属の接触・非接触による熱衝撃を回避する。また、流動状態の溶融金属と接触しているため、スラグの蓄積とセンサー表面への付着を回避できる。
- ④ センサーの保護容器をねじ込み式により取りつけることにより、センサーを交換しやすくする。

問題点を解決した改良型酸素濃度計の外観写真を Fig.3.2 に示し、酸素濃度計の模式図を Fig.3.3 に示す。

固体電解質酸素センサーは、内部にビスマスとその金属酸化物の混合物が参照電極（溶融金属参照電極）として納められ、金属製の電極棒（モリブデン）が挿入されたもので、流入孔付きの金属製円筒容器内に納められ、円筒型のセンサー押えで下方に押さえられて、溶融金属の流れる流路に挿入される。これにより、センサーは溶融金属の流れにさらされ、スラグの付着が回避される。この金属製円筒容器は本体フランジ部に溶接された金属製円筒⑯に下方からねじ込まれているため、このねじ込みを緩めることによりセンサーを用意に交換できる。電極棒と金属製円筒の間は電気絶縁シールで固定される。十分長い電極棒を用いることにより絶縁シール部分を高温の装置本体から十分離れた位置におくことができ、強制冷却を行わなくても絶縁シールの耐熱温度以下の温度に保たれる。本装置の周囲には電気ヒーターが巻かれ、断熱材で覆われて保温される。これにより、センサーと溶融金属は一様温度に保たれるので、熱応力による破損を防止することができ、しかも高温溶融金属は常時流入孔⑯を通過して金属製円筒容器の内部に流入しセンサーと接触しているので熱衝撃は加えられない。鉛ビスマスと接触するカバーガスはカバーガス流入出口から供給され、あるいは外部に吸引される。本装置の蓋板フランジに熱電対ウェルが溶接され、この熱電対ウェルの内部に熱電対が挿入され、カバーガスの温度が監視される。鉛ビスマスの温度がカバーガスの温度と若干異なるため、鉛ビスマスの液位が上昇して鉛ビスマスが熱電対ウェルの下端に接触すると、温度指示値が急変する。この場合には、カバーガス流入出口からカバーガス圧を調整し、鉛ビスマスの液位を下げる。これにより、鉛ビスマスが固体電解質酸素センサーの内部に流入し参照電極の酸素濃度に影響を及ぼすことを防止する。

本体部分は SUS316 製で、その中にマグネシア・イットリア系固体電解質の坩堝型センサーが挿入されている。そのセンサー内には参照極となるビスマスと酸化ビスマスの混合物が入れられている。酸化ビスマスの割合は全体の 5wt%である。センサーの浮き上がり防止のため SUS304 製のセンサー押さえがのせてある。参照電極用金属内挿入棒にはモリブデンワイヤー(直径 1mm)を使用しており、短絡防止のため参照電極から絶縁シールまでセラミック中空管内

を通じてある。カバーガスは高純度のアルゴンガスである。鉛ビスマス循環中、カバーガス空間の液位が上昇することがあり、熱電対ウェルの下端に達すると熱電対による温度測定値が上昇するので液位が上昇していると判定できる。その場合、アルゴンガスを吹き込みカバーガスを加圧することにより液位を下降させる。熱電対ウェルの下端は固体電解質センサーの上端より下側にあるため、熱電対温度上昇後、速やかに液位を下降させるようにすればセンサー内部への鉛ビスマスの流入を防止できる。酸素濃度計のフランジ部シールにはSUS316製のメッキなしメタル中空Oリングを用いた。また、モリブデンワイヤーの外部取り出し部のシールにはコンプレッションフィッティングを用い、シール材質はテフロンとした。

改良したことによる利点は、

- ① 固体電解質を金属円筒下部で支えるので、電解質固定用のOリングが必要でないため、その冷却の必要もなく、ループの昇温に合わせて酸素濃度計本体および固体電解質センサーも同時に昇温される。そのため温度差による熱応力を受けにくい構造になっている。酸素センサーの固体電解質に機械的、熱的衝撃が加わらなくなる。特に固体電解質が溶融金属に接触する際に、熱的衝撃による亀裂が生じない。
- ② 固体電解質センサーが鉛ビスマスの流れ場中にあるので、滞留の無い状態での酸素濃度の測定が可能となっている。鉛ビスマス中のスラグが固体電解質酸素センサーに付着しない。
- ③ 固体電解質酸素センサーの装置取り付け部のシールとその冷却が不要になる。
- ④ 固体電解質酸素センサーの交換をしやすくなる。

3.4 改良型酸素濃度計による起電力測定方法

3.4.1 酸素濃度制御時の起電力測定

改良型酸素濃度計を鉛ビスマス循環実験装置の腐食試験部下流の高温部に取り付け、以下の試験条件で酸素濃度計起電力を測定した。

試験時間	: 約 160 時間
酸素濃度計部温度	: 525°C
膨張タンク温度	: 400°C
鉛ビスマス流量	: 3.8 l/min
初期酸素濃度	: 4.9×10^{-7} wt% (180°Cの飽和酸素濃度)
酸素濃度制御条件	: Ar+3%H ₂ ガス 10ml/min + Arガス 350ml/min
	露点計指示値 50°C ($P_{H_2} / P_{H_2O} = 5.33 \times 10^{-3}$)

上記条件において式4.1と次式

$$\frac{1}{2}RT \ln P_{O_2} = \Delta G_{H_2O}^0 - RT \ln \frac{P_{H_2}}{P_{H_2O}} \quad (3.4)$$

より、酸素濃度計起電力 E は次式から計算される。

$$E = \frac{1}{2F} \left(\frac{\Delta G_{Bi_2O_3}^0}{3} - \Delta G_{H_2O}^0 + RT \ln \frac{P_{H_2}}{P_{H_2O}} \right) \quad (3.5)$$

式 3.5において酸素濃度計部温度 525°Cについて解くと、起電力は $E=0.25V$ となることが予想された。しかし、試験を行った結果は Fig.3.4 に示すとおり実測値はこの時の制御目標値 $E=0.25V$ と大きく異なり、 $E=$ 約 0.4V を示していた。式 3.2 より $E=0.25V$ および 0.4V のときの酸素濃度はそれぞれ 2.3×10^{-6} wt%および 2.8×10^{-8} wt%であり、制御目標値と測定値に 2 枠の違いがあった。しかし、式 3.5 を吹込み部温度 400°Cに対して解くと、起電力は $E=0.26V$ であり、この時の酸素濃度は式 3.2 より 7.8×10^{-8} wt%となる。この酸素濃度に対して式 3.5を温度 525°Cで解くと、制御予測起電力は $E=0.37V$ となり、実測値との誤差は 10%以内であると評価できる。

3.4.2 腐食試験（酸素濃度制御なし）時の起電力測定

第 3 回腐食試験における酸素濃度計起電力の測定結果について述べる。試験条件は以下のとおりである。

試験時間	: 1000 時間
高温部(試験部) 温度	: 550°C
低温部 温度	: 400°C
試験部鉛ビスマス流速	: 1m/sec
初期酸素濃度	: 4.9×10^{-7} wt% (180°Cの飽和酸素濃度)
酸素濃度制御条件	: 無し

試験開始から 250 時間までの酸素濃度計起電力と鉛ビスマス温度の変化を Fig. 3.5 に示す。約 90 時間経過するまで、起電力は 0.20V でほぼ一定であった。その後、循環流量の調整を行った後から起電力の増加が始まり、約 170 時間経過後から起電力が 0.42V でほぼ一定となった。起電力 0.20V, 0.42V での酸素濃度は式 3.2 よりそれぞれ、 1.3×10^{-5} wt%, 2.0×10^{-8} wt%である。それぞれの酸素濃度は鉛ビスマス充填温度から予測した酸素濃度 4.9×10^{-7} wt%から大きくずれている。Fig. 3.5 において鉛ビスマス温度は測定中、ほぼ一定であるから酸素濃度計起電力が変化したことに対して関係していないと考えられる。

試験開始から 250 時間までの酸素濃度計起電力と鉛ビスマス流量の変化を Fig. 3.6 に示す。酸素濃度の変化と鉛ビスマス流量の変化に相関が見られる。まず、試験開始から 90 時間までは起電力が予測値より低い(酸素濃度は高い)値を示したが、この時、流量が増加していることから配管内に堆積していた酸化物や腐食生成物が鉛ビスマス中に溶出し酸素濃度が高く保たれたと考えられる。この時、酸素濃度が平衡しているが、流量の増加は続いているので、酸化物の溶解よりも腐食生成物の溶解が大きく、流路閉塞が改善されている状態と考えられる。90 時間から 170 時間までの起電力の増加(酸素濃度の減少)に対して流量はほぼ一定であることから、鉛ビスマス中へ溶解する酸化物に対して、堆積する酸化物の量のほうが多くなったと考えられる。170 時間以降の飽和状態は酸化物の溶解と堆積の間に平衡状態が達成され、一定で緩やかな流量減少が起こっていることから、高温部から低温部への一定速度の質量移行が生じていると考えられる。250 時間以降もこの状態が継続した。

3.5 結言

主な結果と今後の課題を以下に述べる。

(1) 酸素濃度計

鉛ビスマス循環ループによる酸素濃度制御試験の結果から、改良型酸素濃度計の測定値が予測値に近いことが確かめられたが、今後再現性の確認が必要である。酸素濃度計の性能を評価するためには、鉛ビスマスの容量が小さく吹き込みによる酸素ボテンシャルの応答時間が短い小型装置(ポット試験装置、小型ループ)を用いて試験を行う必要がある。

(2) 酸素濃度制御法

水素・水蒸気混合ガスの吹き込みによる酸素濃度制御は、鉛ビスマス中に気泡を巻き込むなどして、循環ループに悪影響を及ぼす可能性がある。また、吹き込み箇所に酸化物が蓄積し流路閉塞を起す可能性がある。そこで今後、ループにバイパスラインを設け固体の酸化鉛を挿入し、酸素濃度計の起電力からバイパス流量と固体酸化鉛の温度を調節することにより、鉛ビスマス中酸素濃度を一定に保つようとする酸素濃度制御の性能評価が必要である。

(3) 循環ループ内酸素消費量の評価

酸素濃度制御を行わない場合、循環ループ内の酸素は酸化物として鋼材表面に析出し、析出と溶出の平衡が取れるようになるまで減少すると考えられる。鉛ビスマス中酸素濃度の減少量を評価し、酸素濃度制御を行わない場合の腐食抑制の見地から最適初期酸素濃度を検討する必要がある。

4. 鉛ビスマス流動試験技術(1)

4.1 緒言

鉛ビスマスの取扱技術はロシアから多数報告されているが、鉛ビスマス循環ループを用いて技術を確証し新たな技術課題を見出して解決していかなければ、鉛ビスマス冷却炉の開発を進展させることはできない。そのため、鉛ビスマス循環ループの運転を正常に継続するための技術的経験を蓄積することは重要である。

鉛ビスマスの循環では流体中の不純物と酸素の濃度管理が重要である。酸化物や腐食生成物の析出等によりポンプなどの狭い流路で閉塞が生ずると圧力損失が増加して所定の循環流量がえられなくなる。また、循環中に停電により予熱ヒータの投入電力が停止すると、鉛ビスマスの温度が低下して循環ループ内で凝固し、再融解時の鉛ビスマスの膨張により配管等に過大な応力が加わり、配管やシール部が破損する。

これまでに循環ループの閉塞と漏洩が生じ、この対策を講じるため装置の改造を行った。本節では瞬時停電によって生じた鉛ビスマス循環ループの運転上の経験とその後に講じた対策について述べる。

4.2 瞬時停電による循環ループの鉛ビスマス凝固と漏洩

鉛ビスマス循環ループを高温部 525°C、低温部 400°C で運転中に瞬時停電が発生し予熱ヒーターの電源が停止した。そのときの循環ループ温度と流量の時間推移を Fig.4.1 に示す。鉛ビスマス循環ループ運転状態の経緯について述べる。

- ① 酸素濃度計の性能試験のため鉛ビスマスを循環させた。
 - i) アルゴン・水素・水蒸気混合ガスを流量 200ml/min で膨張タンク内鉛ビスマス中に連続吹き込み
 - ii) 試験部下流部の酸素濃度計出力を連続測定
- ② 瞬時停電(2002 年 8 月 26 日午前 1 時 30 分)が発生し、予熱ヒーターおよび加熱器がトリップした。
- ③ 停電の回復と同時に電磁ポンプが再起動し循環が継続された。しかし、予熱ヒーターの電源は回復しなかったためループ内の鉛ビスマス温度は低下しつづけた。
- ④ 停電発生から約 3 時間後に鉛ビスマス温度が凝固温度(125°C)に達したため、ループ内で鉛ビスマスの凝固が始まり循環が停止した。
- ⑤ 凝固後、電磁ポンプは過負荷状態を維持していたため電磁ポンプ部の温度は高温になっていた。
- ⑥ 停電発生から 8 時間半後、ループ内で凝固した鉛ビスマスを融解させるためループ温度を上昇させた。
- ⑦ 鉛ビスマスを融解させ循環が可能になったことを確認し、鉛ビスマスのドレンを行った。運転停止中に、加熱器入口にあたるループの高温部配管と低温部配管をつなぐフランジ部

シール(メタル中空 O リング)に少量の鉛ビスマスが漏洩していた。漏洩の原因として、鉛ビスマスが融解する際に体積が膨張したことが考えられる。

4.3 循環ループの循環性能の問題

鉛ビスマス漏洩部の配管とフランジを交換復旧し循環試験を行った。その時の流量と鉛ビスマス温度と時間との関係を Fig.4.2 に示す。本循環ループの初期性能試験時に電磁ポンプ印加電圧 68V, 電流 21A で 6l/min の鉛ビスマス流量が得られた。しかし、今回は 400°C の安定運転状態で同程度のポンプ印加電流条件でわずか 2l/min の電磁流量計出力電圧しか得られなかつた。この原因として

- (i) 循環ループの流路閉塞による実際の流量低下
- (ii) 電磁流量計の性能低下による出力電圧の低下

が考えられる。

Fig.4.2 によると一定のポンプ電流・電圧で温度の降下とともに電磁流量計出力電圧も降下しているため、この原因として電磁流量計出力電圧の温度依存性が考えられる。しかし、後述するように電磁流量計の使用初期に出力電圧の温度依存性がほとんど無く、温度によらず一定の出力電圧を示していた。

4.4 循環ループの循環性能回復操作

1) 電磁流量計の電極棒交換

電磁流量計の電極棒(第 2 回腐食試験から使用)を新品と交換し校正試験を行った。その結果を Fig.4.3 に示す。鉛ビスマス流量と電磁流量計出力電圧の関係は原点を通る直線状にほぼ収束していることから、電磁流量計の校正曲線の妥当性を確認できた。

2) ドレン

この流量計校正試験の際、膨張タンク圧とダンプタンク圧を同圧にしてドレンを行う通常の方法ではドレン速度が非常に遅く、定格流量 6l/min までのデータが取得できなかつたため、

膨張タンク圧力 0.3MPa

ダンプタンク圧 0.02MPa

に差圧をつけてドレンを行つた。このドレン中に差圧を一定に保つた。

この電磁流量計校正試験の後、再び鉛ビスマスの循環を電磁ポンプ出力 68V, 21A、鉛ビスマス温度 250°C で行ったが、鉛ビスマス流量は 2.4l/min が最大であった。

3) 流量回復対策

以上の結果からループ内流路に閉塞が生じていると判断し、以下の流量回復対策を実施し

た。ループ内閉塞の原因の一つとして、酸化物が流路内に堆積し流動抵抗を増加させていると推定した。堆積した酸化物の除去方法として、鉛ビスマスを酸素未飽和状態にしループ内を循環させることにより酸化物を鉛ビスマスで還元し酸化物を溶かし出すこととした。

- i) 鉛ビスマスを全量ドレンしたダンプタンクを 400°C に保ち、その鉛ビスマス中に Ar-3%H₂ ガスを 400 ml/min で 20 時間吹込み鉛ビスマスを還元した。
- ii) その後、直ちに循環ループに鉛ビスマスを充填し循環を行った。充填温度は 400°C とし、鉛ビスマスの循環温度も 400°C としてループ内に温度差をつけなかった。この時の鉛ビスマス流量の変化を Fig.4.4 に示す。循環開始から 3 時間あまりで約 0.21/min 流量が増加した。この結果から酸素未飽和状態の鉛ビスマスをループに循環させることはループ内流路の閉塞状態の改善に効果的であると判断した。
- iii) さらに大きな効果を得るため、鉛ビスマスを循環させた状態で膨張タンク部に直接 Ar-3%H₂ ガスを 200 ml/min で吹き込んだ。この状態を 15 時間ほど続けたが、予想に反して改善効果は得られず流量は約 0.21/min 減少した。この結果から膨張タンクへの Ar-3%H₂ ガスの直接吹き込みは、何らかの理由によりループを閉塞させる方向に作用すると判断した。
- iv) そこで閉塞改善に有効なダンプタンク内吹き込み還元方式を再度行った。吹き込みはダンプタンク内液温度 400°C、Ar-3%H₂ ガス 400ml/min で 6 時間、Ar-5%H₂ ガス 400ml/min で 18 時間行い、400°C でチャージして循環をした。その流量推移の結果を Fig.4.5 に示す。約 28 時間の循環で 0.11/min の流量の減少が見られ、今回は流路閉塞の改善効果が見られなかった。

以上の閉塞対策を講じた結果として、流量 3l/min(試験部流速 1m/sec) で鉛ビスマスを循環し材料腐食試験を実施可能と判断し、この流量で高温部 550°C、低温部 400°C、1000 時間の鉛ビスマス循環腐食試験を開始することとした。

4.5 機械的ループ閉塞と回復操作

この状態から腐食試験を開始すべく、まず鉛ビスマスを 180°C で循環ループにチャージして循環を開始し、ループ全体を 50°C/hr で 400°C まで昇温した。その後、ループ高温部を 400°C 以上に昇温をするため加熱器とブロワーを起動してまもなく、Fig.4.6 に示すように流量が急激に減少し、ほぼ完全な閉塞状態に陥り、そのため加熱器部に滞留した鉛ビスマス温度が急上昇し、加熱器温度“高”警報にて加熱器が自動停止した。

この原因として、急激な流量の減少であり、加熱器と冷却器ブロワーの起動という機械的な振動が発生した直後の現象であったことから、流路管内壁に固着していたクラッドが振動により剥がれ落ち、閉塞部を完全に塞ぐことになったと推定した。そこで電磁ポンプ出力を何度も上下させた結果、少流量ながら鉛ビスマスが循環したので循環させながら温度を降下させ

250°Cでドレンを行った。

閉塞を起こした日の後日から、ループ状態を改善するため、ループ内のクラッド等の固形浮遊物を除去するという観点から、次の操作を行った。

- (i) 鉛ビスマスを 180°Cの低温でチャージし
- (ii) 電磁ポンプ出力 72V,21A で循環させながら 400°Cまで昇温し、4~5 時間循環させる。
- (iii) 400°Cのままで循環を止め、膨張タンクを 0.2MPa、ダンプタンクを 0.02MPa に調整し、ドレンバルブを一気に全開にし、鉛ビスマスをドレンする。

この操作により、鉛ビスマスが勢い良く循環時の逆流をし、付着した固形物をはがし、ダンプタンクに押し流す効果があると考えた。400°Cまで昇温した理由は高温であるほうが付着した固形物がはがれやすくなると考えたためである。

この操作を 3 度行った結果を Fig.4.7 に示す。循環開始時の流量に大きな改善が見られた。初日に 2.6l/min であったが 2 日目には 2.9l/min になり、3 日目には 3.1l/min を越えるまでになり、約 0.5L/min の改善となった。400°C循環時の流量には大きな改善は見られなかったが、初日と 3 日目を比べると 0.15l/min ほど改善した。

この状態で第 3 回腐食試験を実施すべく、運転を開始したところ、急激な閉塞を起こすことなく、ループ運転状態を所定の試験条件に設定することができた。その試験条件は以下のとおりである。

試験部流速 1m/sec(流量 3l/min)
高温部 550°C
低温部 400°C
膨張タンク圧 0.02MPa
初期酸素濃度 5×10^{-7} wt% (式 3.3 より算出)
試験時間 1000 時間

4.6 結言

以上の要点を以下に述べる。

- (1) 瞬時停電による鉛ビスマスの凝固・閉塞が起ったため、その後の融解により鉛ビスマス循環ループを復旧したが、フランジ部メタル中空 O リングに漏洩が生じた。漏洩部配管を交換し復旧した。
- (2) 鉛ビスマスの循環において定格流量 6l/min の初期性能が得られず、ポンプ定格印加電圧・電流条件で 2l/min の流量計出力電圧しか得られなかった。
- (3) 電磁流量計の電極棒を新品と交換し校正試験を行い妥当な校正曲線が得られた。
- (4) 膨張タンクとダンプタンクに差圧をつけてドレンを行い最大鉛ビスマス流量 2.4l/min に回復させた。

- (5) ダンプタンク(400°C)の鉛ビスマス中に Ar-3%H₂ガスを 400 ml/min で 20 時間吹込み鉛ビスマスを還元した、直ちに循環ループに鉛ビスマスを充填し循環を行ったところ約 0.2l/min 流量が増加した。
- (6) 鉛ビスマスを循環させた状態で膨張タンク部に直接 Ar-3%H₂ガスを 200 ml/min で 15 時間吹き込んだが流量は約 0.2l/min 減少し、ループを閉塞させる方向に作用した。
- (7) 以上の閉塞対策を講じた結果として、最大流量が 3l/min (試験部流速1m/sec) まで回復した。
- (8) 循環開始後(高温部 400°C)、加熱器とブロワーを起動してまもなく流量が急激に減少しほぼ完全な閉塞状態に陥ったので、電磁ポンプ出力を増減した結果、少流量ながら鉛ビスマスが循環したので循環させながら温度を降下させ 250°Cでドレンを行った。鉛ビスマスを 180°Cでチャージし 400°Cまで昇温し、4~5 時間循環させ、膨張タンク—ダンプタンク間差差圧で一気に鉛ビスマスをドレンした。この操作を 3 度行った結果を循環開始時の流量に大きな改善が見られた。

今後の課題を以下に述べる。

(1) 循環ループ各所の腐食量および不純物堆積量の評価

過去約 3000 時間の腐食試験により、ループ高温部の構造材の腐食が進行していると考えられる。これまでの実験結果をもとに腐食量の再評価を行いループの健全性を示す必要がある。また、低温部、とくに電磁ポンプ部の腐食生成物および酸化物による堆積量を腐食量から再評価する必要もある。

(2) 電磁ポンプ性能の改善および他形式のポンプの採用の評価

腐食生成物および酸化物の堆積量の評価により現状の電磁ポンプ状態を予測し、今後、腐食試験による使用で閉塞を起こすまでの時間を評価する必要がある。また、閉塞状態の改善操作(還元性鉛ビスマスの循環、大きな差圧を付けたドレン、電磁ポンプの配線換えによる逆循環など)により、ポンプ使用可能期間がどれほど延長するかということも検討する必要がある。さらに、電磁ポンプ以外のポンプ形式(機械式ポンプ、ガスリフトポンプ等)の使用も考慮に入れ、それら形式のポンプの使用条件なども検討することが必要である。

5. 鉛ビスマス流動試験技術(2)

5.1 緒言

鉛ビスマス循環実験装置の製作初期に用いた電磁流量計は、電極表面に形成する酸化被膜が原因と考えられる接触抵抗による起電力の温度依存性を示した。そこで接触抵抗の影響を除くため電磁流量計の改良を行った。

5.2 改良型電磁流量計の構造

以下に示す2種類の改良型電磁流量計を製作し、鉛ビスマス循環実験装置に設置した。

- ① 接触抵抗の安定化対策として、チューブ電極型電磁流量計(Fig.5.1(a))
- ② 接触抵抗を無くす対策として、MIケーブル電極型電磁流量計(Fig.5.1(b))

チューブ型では、流路壁から水平円管(内径16.1mm、肉厚2.8mm)を取り出し、その両端に電極線を差し込む設計である。円管内を鉛ビスマスで満たし、先端部の鉛ビスマスを固化させることで電極において接触抵抗が変化しなくなると考えた。

MIケーブル型では、円錐型(角度45°)の先端部に厚さ $1\mu\text{m}$ の下地金メッキとその上にロジウムメッキを施したSUS316製の電極芯線(直径0.75mm)を、電極と同様のメッキを先端部に施したMIケーブル(被覆直径3.2mm)内に挿入し、先端部間隙をアロンセラミックC(主成分:シリカ、熱膨張係数 $13\times10^{-6}/^\circ\text{C}$)で固定する設計となっている。こうすることで電極芯線は溶融鉛ビスマス以外から電気的に絶縁されているので、流路壁で発生する起電力の影響を除去することができ、また表面がロジウムメッキされているので電極表面に酸化物が形成されず、接触抵抗がなくなると考えた。また形式ではMIケーブル被覆からも起電力を取り出せる。磁場形成のために永久磁石(磁束密度 $B=0.181\text{T}$)を用い鉛直一様磁場を印加している。

5.3 使用初期の改良型電磁流量計の性能

2種類の電磁流量計の流量校正は膨張タンク内の鉛ビスマス液面降下速度と電磁流量計の出力電圧の関係を求める方法で行った。膨張タンク内の鉛ビスマス液面下降と共に、膨張タンクとテスト部をつなぐ配管内とテスト部内の液位も下降するため、液位下降に伴う全鉛ビスマス容積変化を計算して校正に用いた。鉛ビスマスを 250°C の温度で充填し、 250°C で流量校正を行った。

流量計の校正手順は次のとおりである。

- I. ペンレコーダー(ユニコーダー)、電圧電流計、ストップウォッチを準備する。ユニコーダーは電圧電流計で校正し、その後、電磁流量計電圧測定ラインにつなぐ。
- II. フラッシング運転のI～VIIIまでの手順と同じ操作を行う。ただし、IIのダンプタンク温度は 250°C に設定する。
- III. 液面レベル計のLランプが点灯すると“液面レベル高”警報が発るのでV-2を閉じ、警報ブザーを止める。
- IV. 膨張タンク圧とダンプタンク圧を同調する。
- V. ユニコーダーの記録を開始し、V-2を適当な開度に調節する。
- VI. 液面レベル計のLランプ消灯と同時にストップウォッチで時間の測定を始める。
- VII. 液面レベル計のMランプの消灯と同時にストップウォッチを止める。同時に、V-2を

閉じ、ユニコーダーの記録を止める。

- VIII. 測定時間、バルブ開度、電磁流量計温度を記録する。
- IX. 再び鉛ビスマスを L レベルまで充填し、IV～VII の操作を、バルブ開度を変えて 5, 6 回繰り返す。(*)
- X. V-1 を全開にし、次に V-3 を開き鉛ビスマスをドレンする。
- XI. フラッシング運転と同じ手順でループを停止する。
- XII. ノートに記録したデータから電磁流量計起電力に対する実流量の校正直線を作成する。
- XIII. 得られた流量校正曲線の結果を用いて、制御盤の流量表示機器およびパソコンへのデータ取り込み用データロガー(CADAC21)の設定値を変更する。

(*)バルブの開度を大きくしてもドレン速度が遅い場合がある。6l/min 以上の流量が出ていなければ次の操作を行う。

1. 膨張タンク圧を 0.16MPa、ダンプタンク圧を 0.30MPa に調整し、充填を行う。
2. 液位が L レベル達したら、ダンプタンクの Ar ガスを放出し、ダンプタンク圧を膨張タンク圧に同調させる。このとき、同調ラインは開いてはいけない。
3. バルブ V-2 を適当な開度にし、ドレンを行う。この時、ダンプタンク圧と膨張タンク圧が同調するように、ダンプタンクは Ar ガスの放出を、膨張タンクは Ar ガスの供給をバランスよく行う。

2 種類の電磁流量計の流量校正結果を Fig.5.2 に示す。また、電磁流量計起電力と温度との関係を Fig.5.3 に示す。以上の流量校正試験結果から、MI ケーブルタイプの電極棒の応答性が良く、起電力の温度依存性もほとんど示していないことがわかる。そこで鉛ビスマスの流量測定には MI ケーブルタイプの電極棒を使用することとした。ただし、このタイプのものは先端部のメッキが鉛ビスマス中に溶解した場合、再び温度依存性を示すと考えられる。

5.4 長時間使用後の電磁流量計の性能

第 2 回腐食試験(1000 時間)で使用した改良型電磁流量計の性能を調べるため、停電による配管破損個所の配管交換後に、鉛ビスマスを 180°C で循環ループに充填し循環を行った。電磁ポンプ印加電圧を 68V、電流を 21A とした。

その時の電磁流量計表示流量と電磁流量計部鉛ビスマス温度の時間変化を Fig.5.4 に示す。

- (i) 循環開始初期における鉛ビスマス温度が 250°C から 400°C にまで昇温中の流量は一定にならず流量の減少傾向を示した。
- (ii) 鉛ビスマス温度を 400°C の一定に保つと、表示流量も緩やかな減少傾向を示すようになり、循環開始から 15 時間経過後は約 2l/min を示し一定になった。
- (iii) その後、鉛ビスマス温度を 400°C から 250°C まで降下させると、温度の降下にした

がって流量も減少した。

このような温度降下時に表示流量が減少する結果から、改良型電磁流量計においても長時間使用後は温度依存性を示すことがわかった。

5.5 電磁流量計の電極棒交換

その後、MI ケーブル型電磁流量計の電極棒を新しいものに交換し、再び流量校正を行った際の、鉛ビスマス流量と電磁流量計起電力との関係を表す Fig.5.5 に示す。このデータは原点を通る直線状に収束しており、流量計の性能は良好であると判断できるため、電極棒交換後の流量計は正確な値を示すものである。

5.6 結言

本研究により以上の結果が得られた。

- (1) MI ケーブル型とチューブ型の 2 種類の電磁流量計の流量校正結果を行い、MI ケーブルタイプの電極棒の応答性が良く、起電力の温度依存性もほとんど示していないことがわかった。このタイプのものは先端部のメッキが鉛ビスマス中に溶解した場合、再び温度依存性を示すと考えられる。
- (2) 鉛ビスマスを 180°C で循環ループに充填し、電磁ポンプ印加電圧 68V、電流 21A で循環を行った。その結果 MI ケーブル型電磁流量計表示流量は鉛ビスマス温度を 250°C から 400°C まで昇温中減少し、鉛ビスマス温度を 400°C の一定に保つと、表示流量も緩やかに減少して 15 時間経過後約 2l/min の一定になった。その後、鉛ビスマス温度を 400°C から 250°C まで降下させると、温度の降下にしたがって流量も減少した。
- (3) MI ケーブル型流量計の性能は良好であると判断できるため、電極棒交換後の流量計は正確な値を示した。

以上の結果から次の課題が考えられる。

- (1) 長時間の使用後にも温度依存性を示さない電磁流量計の開発が必要である。
- (2) 電極棒先端のメッキ方法ではメッキ溶解後では確実に温度依存性を示すためチューブタイプ電磁流量計の改良も考慮に入れる。
- (3) 電磁流量計以外の形式(ターゲット式、超音波、オリフィス式)の流量計の採用も評価する必要がある。

6. おわりに

平成 14 年度は、東京工業大学原子炉工学研究所における鉛ビスマス 材料腐食試験装

置を用いた材料腐食試験により、(a) 鉄鋼材料の流動鉛ビスマス中における腐食試験方法、(b) 流動鉛ビスマス中の酸素制御技術、および(c)高温、高流速鉛ビスマス流動試験装置について検討した。以下に第2章から第5章の結論を述べる。

第2章の結論

- (1) SCM420とF82HとNF616の重量損失が大きく、SUS316とSTBA28は重量増加を示した(第2回試験、第3回試験)。
- (2) SCM420は上流より下流のほうが重量損失のほうが小さく、上流側の溶解元素が下流側で溶解し難い可能性がある(第2回試験)。
- (3) SCM420とF82Hは激しいエロージョンを起こした(第2回試験)。F82Hは酸化物が剥離しやすいためエロージョンを受けやすい。SCM420は表面に腐食層が形成され鉛とビスマスが浸入した。エロージョンは発生せず、エロージョンによる腐食層の母材表面からの剥離が起りにくかった(第3回腐食試験)。
- (4) SUS316を除きHCM12、SUS316、STBA28は表面が滑らかなものは重量が増加し、表面が粗いものは重量が減少した(第3回腐食試験)。
- (5) タングステンを多く含むODS、F82H、NF616、HCM12、HCM12Aでは表面に鉛ビスマス付着層を形成しタングステンが試験片中より増加した(第2回試験)。SUS316はタングステンを含まない材料で唯一、鉛やビスマスの付着層を形成し、Feの割合が若干増加した腐食層も形成した(第2回試験)。
- (6) 腐食層を形成している試験片が多い(第3回試験)。第2回腐食試験ではODS、F82H、NF616に腐食層は見られなかつたが第3回腐食試験では腐食層が観察された。

第3章の結論

(1) 酸素濃度計

鉛ビスマス循環ループによる酸素濃度制御試験の結果から、改良型酸素濃度計の測定値が予測値に近いことが確かめられたが、今後再現性の確認が必要である。酸素濃度計の性能を評価するためには、鉛ビスマスの容量が小さく吹き込みによる酸素ポテンシャルの応答時間が短い小型装置(ポット試験装置、小型ループ)を用いて試験を行う必要がある。

(2) 酸素濃度制御法

水素・水蒸気混合ガスの吹き込みによる酸素濃度制御は、鉛ビスマス中に気泡を巻き込むなどして、循環ループに悪影響を及ぼす可能性がある。また、吹き込み箇所に酸化物が蓄積し流路閉塞を起す可能性がある。そこで今後、ループにバイパスラインを設け固体の酸化鉛を挿入し、酸素濃度計の起電力からバイパス流量と固体酸化鉛の温度を調

節することにより、鉛ビスマス中酸素濃度を一定に保つようとする酸素濃度制御の性能評価が必要である。

(3) 循環ループ内酸素消費量の評価

酸素濃度制御を行わない場合、循環ループ内の酸素は酸化物として鋼材表面に析出し、析出と溶出の平衡が取れるようになるまで減少すると考えられる。鉛ビスマス中酸素濃度の減少量を評価し、酸素濃度制御を行わない場合の腐食抑制の見地から最適初期酸素濃度を検討する必要がある。

第4章の結論

- (1) 瞬時停電による鉛ビスマスの凝固・閉塞が起ったため、その後の融解により鉛ビスマス循環ループを復旧したが、フランジ部メタル中空Oリングに漏洩が生じた。漏洩部配管を交換し復旧した。
- (2) 鉛ビスマスの循環において定格流量6l/minの初期性能が得られず、ポンプ定格印加電圧・電流条件で2l/minの流量計出力電圧しか得られなかった。
- (3) 電磁流量計の電極棒を新品と交換し校正試験を行い妥当な校正曲線が得られた。
- (4) 膨張タンクとダンプタンクに差圧をつけてドレンを行い最大鉛ビスマス流量2.4l/minに回復させた。
- (5) ダンプタンク(400°C)の鉛ビスマス中にAr-3%H₂ガスを400ml/minで20時間吹込み鉛ビスマスを還元した、直ちに循環ループに鉛ビスマスを充填し循環を行ったところ約0.2l/min流量が増加した。
- (6) 鉛ビスマスを循環させた状態で膨張タンク部に直接Ar-3%H₂ガスを200ml/minで15時間吹き込んだが流量は約0.2l/min減少し、ループを閉塞させる方向に作用した。
- (7) 以上の閉塞対策を講じた結果として、最大流量が3l/min(試験部流速1m/sec)まで回復した。
- (8) 循環開始後(高温部400°C)、加熱器とブロワーを起動してまもなく流量が急激に減少しほぼ完全な閉塞状態に陥ったので、電磁ポンプ出力を増減した結果、少流量ながら鉛ビスマスが循環したので循環させながら温度を降下させ250°Cでドレンを行った。鉛ビスマスを180°Cでチャージし400°Cまで昇温し、4~5時間循環させ、膨張タンク-ダンプタンク間差差圧で一気に鉛ビスマスをドレンした。この操作を3度行った結果を循環開始時の流量に大きな改善が見られた。

第5章の結論

- (1) MIケーブル型とチューブ型の2種類の電磁流量計の流量校正結果を行い、MIケーブルタイプの電極棒の応答性が良く、起電力の温度依存性もほとんど示していないことがわかった。このタイプのものは先端部のメッキが鉛ビスマス中に溶解した場合、再び温度依

存性を示すと考えられる。

- (2) 鉛ビスマスを 180°Cで循環ループに充填し、電磁ポンプ印加電圧 68V、電流 21A で循環を行った。その結果 MI ケーブル型電磁流量計表示流量は鉛ビスマス温度を 250°Cから 400°Cまで昇温中減少し、鉛ビスマス温度を 400°Cの一定に保つと、表示流量も緩やかに減少して 15 時間経過後約 2l/min の一定になった。その後、鉛ビスマス温度を 400°Cから 250°Cまで降下させると、温度の降下にしたがって流量も減少した。
- (3) MI ケーブル型流量計の性能は良好であると判断でき、電極棒交換後の流量計は正確な値を示した。

謝辞

本研究の遂行にご協力いただきました澤田直樹氏（元東工大大学院生）、石川幸太郎氏（元東工大大学院生）、近藤正聰氏（東工大大学院生）、羽田晃次氏（東工大非常勤講師、NDF）、Dr. Suizheng Qiu（中国、西安交通大学）、鈴木正氏（元東工大研究支援推進員）、吉田晋氏（元東工大研究支援推進員）、矢野豊彦氏（東工大教授）、今井雅三氏（東工大技官）、並びに新型炉技術開発（株）、助川電気工業（株）、三菱重工業（株）、核燃料サイクル開発機構の各位に深く謝意を表します。

参考文献

- (1) 高橋実, 関本博, 「流動鉛ビスマス共晶合金中腐食試験技術に関する研究—平成13年度共同研究成果報告書(研究報告)」 JNC TY9400 2002-015 (2002).
- (2) M. Takahashi, M. Igashira, T. Obara, H. Sekimoto, K. Kikuchi, K. Aoto and T. Kitano, "Studies on Materials for Heavy-Liquid-Metal-Cooled Reactors in Japan," Proc. of 10th International Conference on Nuclear Engineering, April 14-18, 2002, Arlington, Virginia, USA, ICONE10-22166.
- (3) M. Takahashi, H. Sekimoto, K. Ishikawa, T. Suzuki, K. Hata, S. Qiu, S. Yoshida, T. Yano and M. Imai, "Experimental Study on Flow Technology and Steel Corrosion of Lead Bismuth," Proc. of 10th International Conference on Nuclear Engineering, April 14-18, 2002, Arlington, Virginia, USA, ICONE10-22226.
- (4) M. Kondo, K. Hata, M. Takahashi, "Design of Material Strength Test in Lead-Bismuth Flow," Proc. of 10th International Conference on Nuclear Engineering, April 14-18, 2002, Arlington, Virginia USA, ICONE10-22736.
- (5) 高橋実, 吉田晋, 関本博, 羽田晃治, 星有一, 「鉛ビスマス冷却炉の開発に関する基礎研究 VIII. 直接接触沸騰水型鉛ビスマス冷却高速炉の酸化鉛生成抑制」日本原子力学会「2002年秋の大会」M37, Vol. 2, P. 413 (いわき明星大学、9月14日~16日) (2002).
- (6) 高橋実, 祁影霞, 吉田晋「鉛ビスマス流れによる鋼材の腐食現象に関する研究」, 日本機械学会2002年度年次大会 1930, pp. 275-276 (2002).
- (7) 澤田直樹, 高橋実, 近藤正聰, 「鉛ビスマス循環ループのポンプ・流量計の開発」, 日本原子力学会「2003年春の年会」(佐世保) K25, Vol. 2, (2003), P. 516.
- (8) 高橋実, 近藤正聰, 吉田晋, 澤田直樹, 松崎淳, 「鉛ビスマス用耐熱応力型酸素濃度計の開発」, 日本原子力学会「2003年春の年会」(佐世保) L68, Vol. 2, (2003), P. 597.
- (9) 高橋実, 内田正治, 長田博夫, 笠原芳幸, 羽田晃治, 「鉛ビスマス冷却直接接触沸騰水型小型高速炉(PBWFR)の概念検討」, 日本原子力学会「2003年春の年会」(佐世保) G24, Vol. 2, (2003), P. 336.
- (10) S. Uchida, H. Osada, Y. Kasahara, M. Takahashi, K. Hata, "A Feasibility Study on the Pb-Bi Cooled Direct Contact Boiling Water Fast Reactor," Proc. of 11th International Conference on Nuclear Engineering, Tokyo, JAPAN, April 20-23, 2003, ICONE11-36320.

Table 2.1 第2回腐食試験試験片の元素成分

No	Material	Cr	Mo	W	Mn	V	Nb	Si	Others
1、 10	SCM420	0.9 -1.2	0.15 -0.3	-	0.6 -0.9	-	-	0.15 -0.35	-
2	ODS	11.72	-	1.99	-	-	-	-	0.29Ti -0.23Y ₂ O ₃ -0.18Y
3	F82H	7.70	-	1.94	0.16	0.16	-	0.11	0.01Ti -0.01Cu
4	STBA26	9	1	-	0.3 -0.43	-	-	0.25 0.43	-
5	STBA28	8.6	1.0	-	0.4	0.2	0.08	0.4	-
6	NF616	8.8	0.3	1.9	0.5	0.2	0.07	0.3	-
7	HCM12	12.1	1.1	1.0	0.5	0.3	0.09	0.3	-
8	HCM12A	12.0	0.3	1.9	0.5	0.2	0.05	0.3	0.9Cu
9	SUS316	16 -18	2-3	-	<0.2	-	-	<0.1	10-14Ni

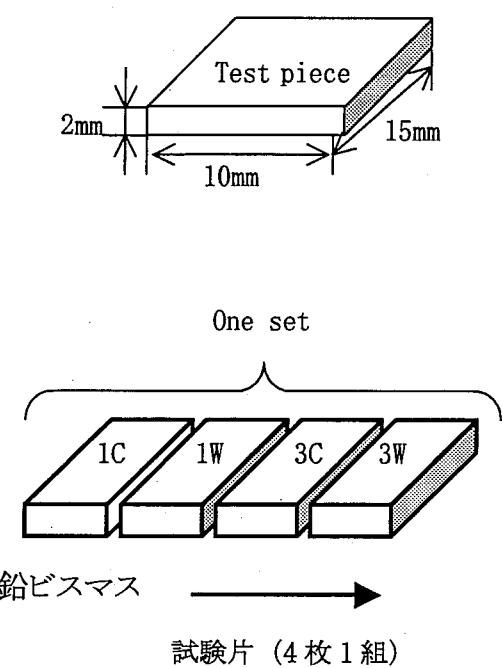


Fig. 2.1 試験片の寸法と設置方法

Table 2.2 第3回腐食試験試験片の元素成分

	Cr	Mo	W	Mn	V	Nb	Si	その他
HCM12A	12.0	0.3	1.9	0.5	0.2	0.05	0.3	0.9Cu
SUH3	10.39	0.72	-	0.49	-	-	1.90	-
STBA26	9	1	-	0.3~0.43	-	-	0.25~0.43	-
NF616	8.8	0.3	1.9	0.5	0.2	0.07	0.3	-
SUS430	18	-	-	1	-	-	0.75	-
SUS405	11.5~14.5	-	-	1	-	-	0.15~0.35	0.01Al
SUS316	16~18	2~3	-	<0.2	-	-	<0.1	10~14Ni
F82H	7.70	-	1.94	0.16	0.16	-	0.11	0.01Ti 0.01Cu
ODS	11.72	-	1.99	-	-	-	-	0.29Ti, 0.23Y2O3 0.18Y
SCM420	0.9~1.2	0.15~0.3	-	0.6~0.9	-	-	0.15~0.35	-
HCM12	12.1	1.1	1.0	0.5	0.3	0.09	0.3	-
STBA28	8.6	1.0	-	0.4	0.2	0.08	0.4	-

Table 2.3 第3回腐食試験試験片の寸法

	①HCM12A	②SUH3	③STBA26	④NF616	⑤SUS430
厚さ(mm)	2.3	2.3	2	2.3	2
横(mm)	15	15	15	15	15
縦(mm)	30	30	55	10	55
	⑥SUS405	⑦SUS316	⑧F82H	⑨ODS	⑩SCM420
厚さ(mm)	2	2.3	2.3	2.3	2
横(mm)	15	15	15	15	15
縦(mm)	10	30	10	10	55
	⑪SUS430	⑫HCM12	⑬SUS316	⑭STBA28	
厚さ(mm)	2	2.3	2.3	2.3	
横(mm)	15	15	15	15	
縦(mm)	10	10	10	10	

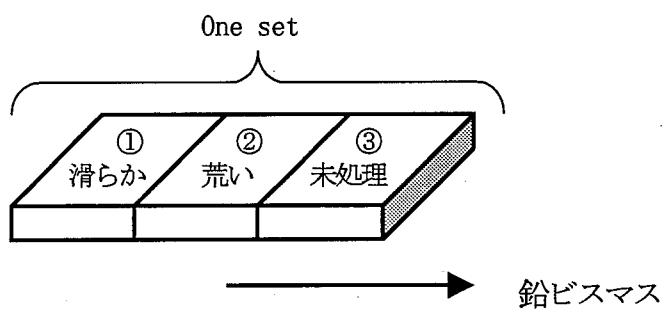


Fig. 2.2 表面粗さの異なる試験片

Table 2.4 表面粗さの違い

	①滑らか	②荒い	③未処理
HCM12	R _a =1.49	R _a =9.06	R _a =7.23
SUS316	R _a =1.60	R _a =7.33	R _a =8.36
STBA28	R _a =2.41	R _a =7.15	R _a =3.70

$$\text{算術平均荒さ } R_a = \frac{1}{l} \int_0^l |f(X)| dx$$

Table 2.5 試験片の体積と洗浄容器の容積

	(cm ³)
試験片の体積	12
試験片ホルダーの体積	171
試験片+試験片ホルダー	183
洗浄容器 (液面 550mm の場合)	327
必要なグリセリンの量 (液面 550mm の場合)	144

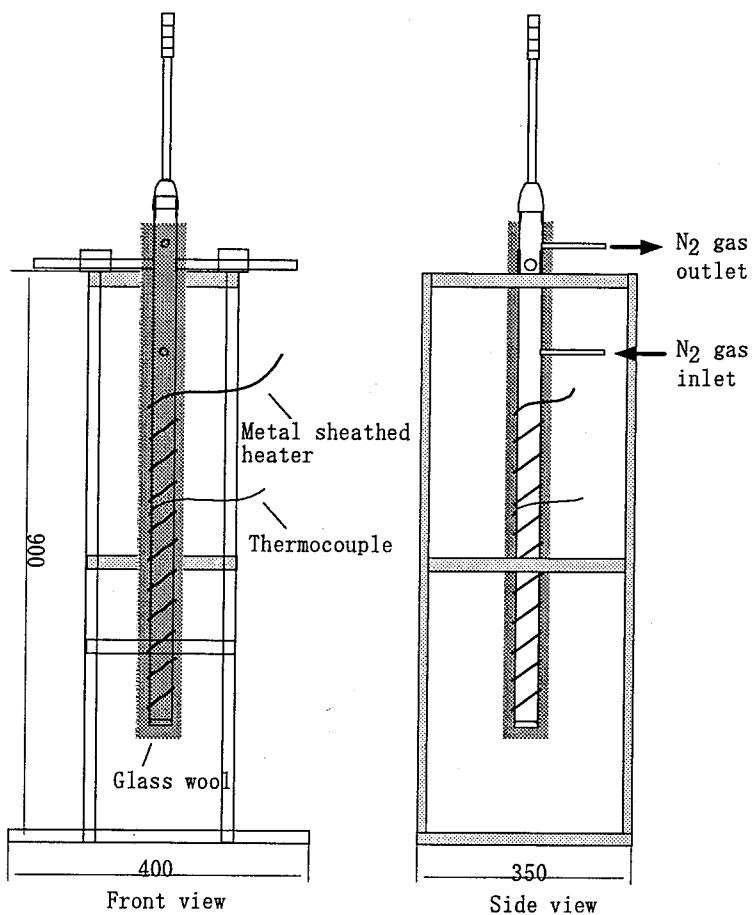
Pb-Bi washer
(Made of SUS304)Working temperature:200°C
Washing liquid:Na(sodium)

Fig. 2.3 試験片の洗浄装置

材質：SUS304

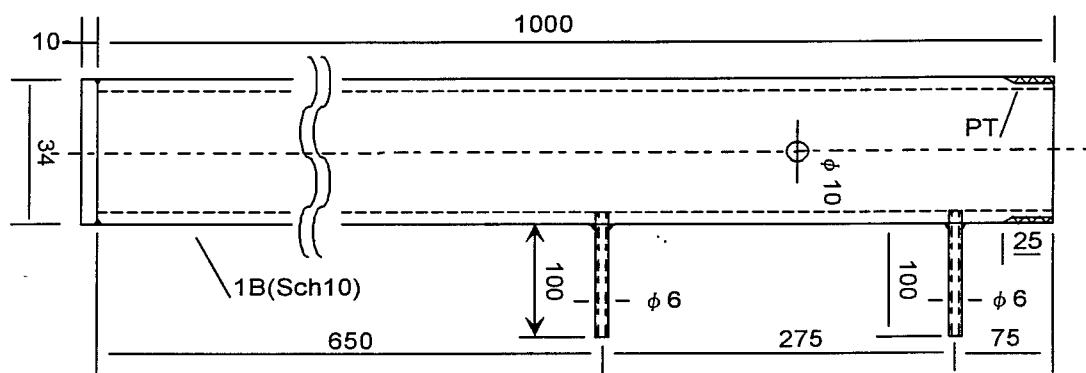


Fig. 2.4 試験片の洗浄容器

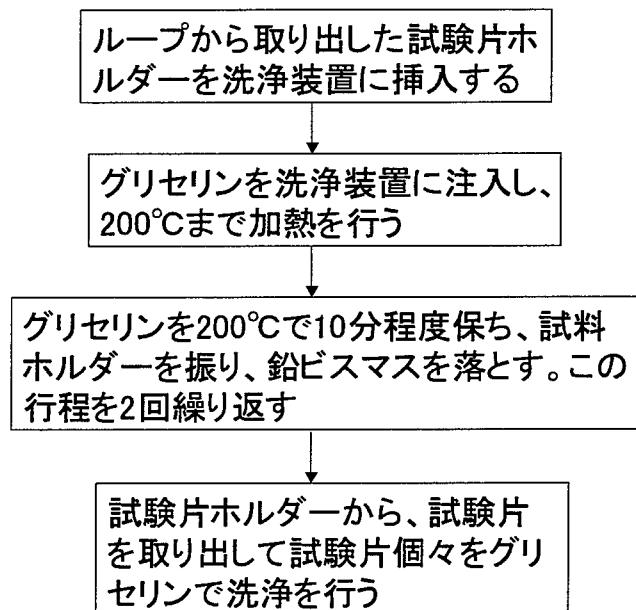


Fig. 2.5 試験片のグリセリンによる洗浄手順

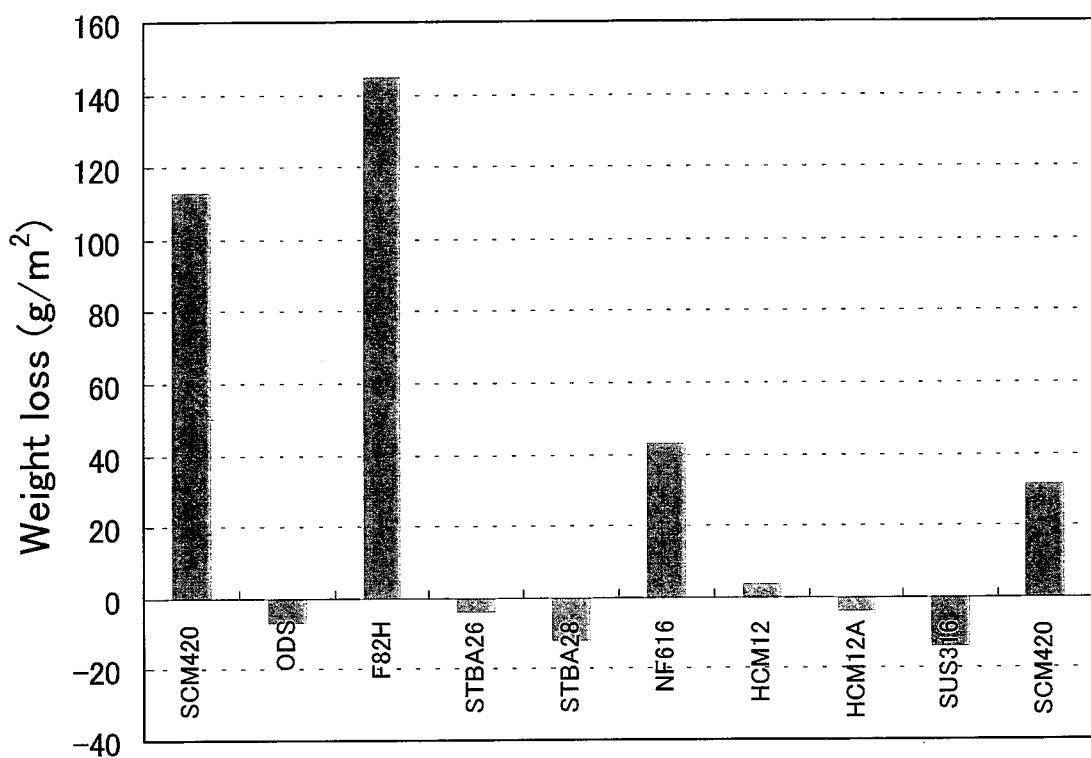


Fig. 2.6 第2回腐食試験後の試験片の重量変化

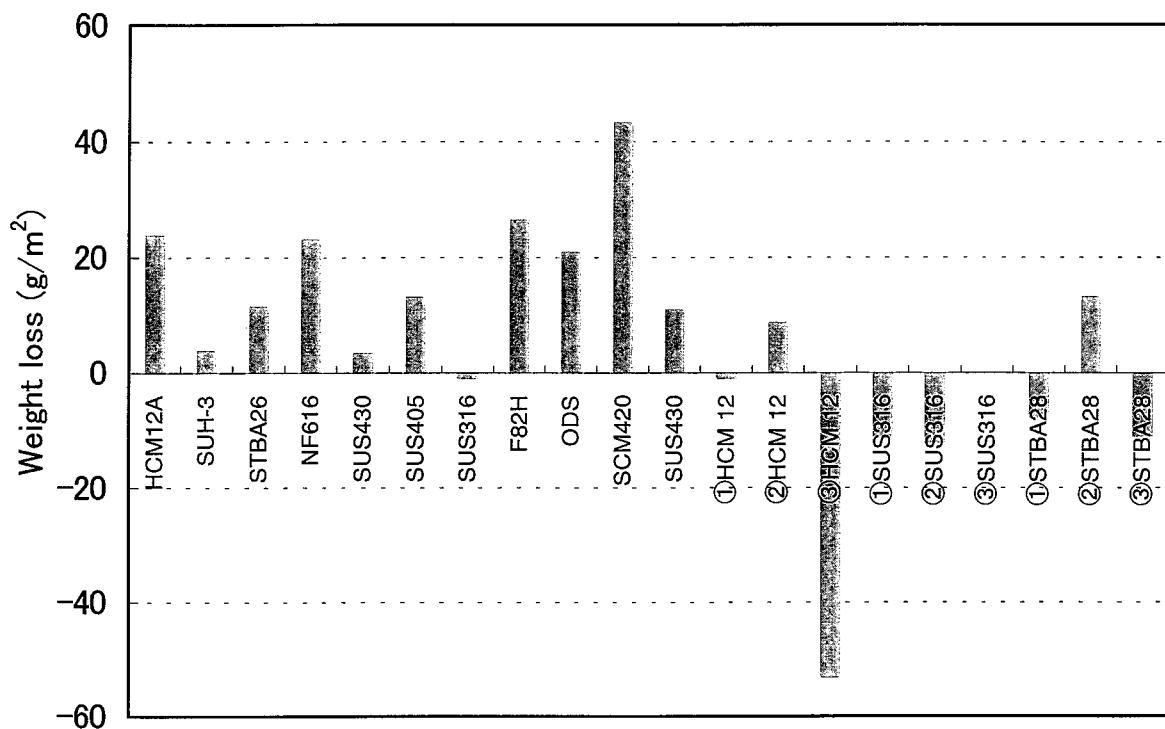
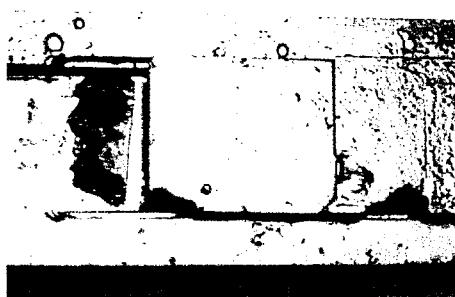
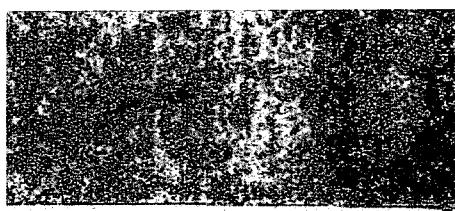


Fig. 2.7 第3回腐食試験後の試験片の重量変化



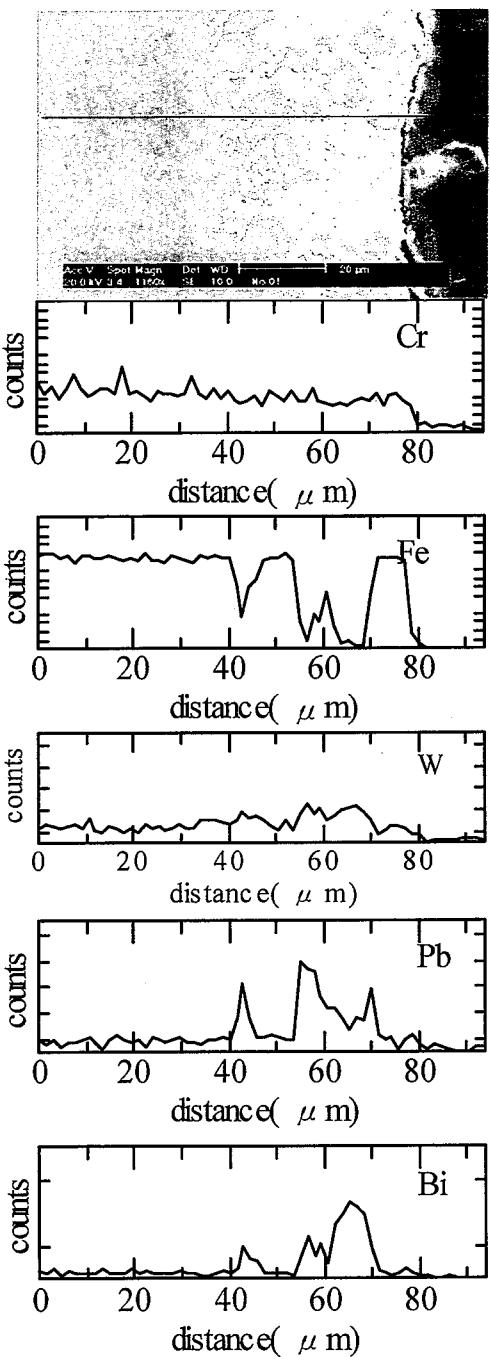
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真



(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

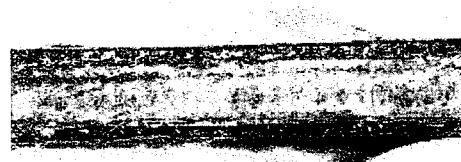
Fig. 2.8 SCM420 の表面・断面写真と断面の元素成分分析結果（第 2 回腐食試験）



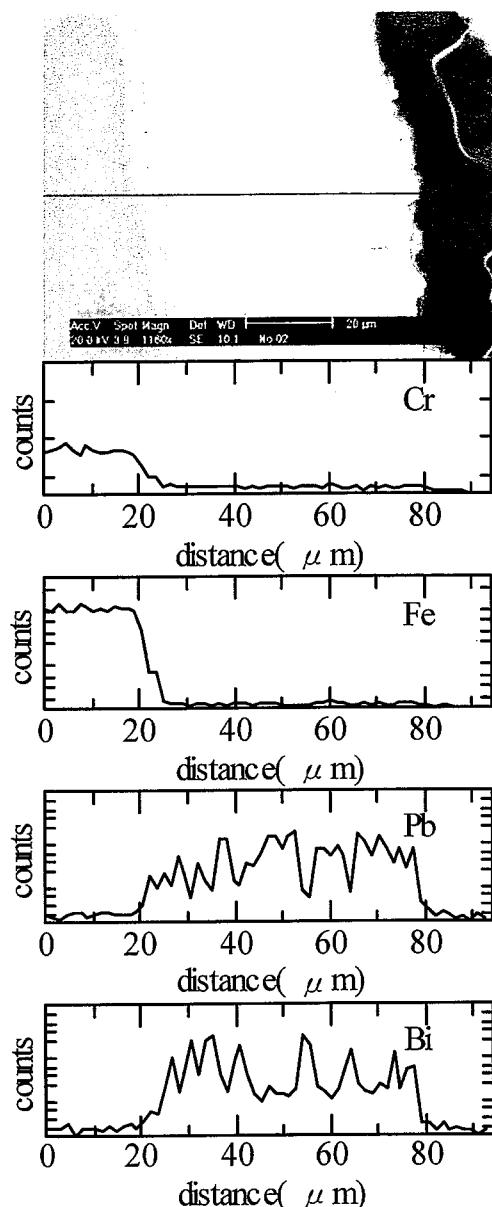
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真

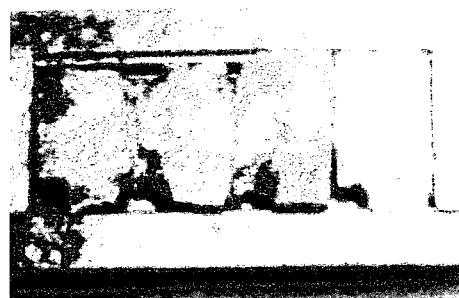


(c) 断面の写真



(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

Fig. 2.9 ODS の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)



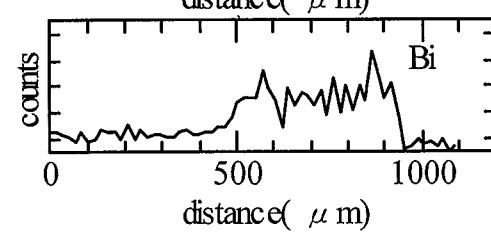
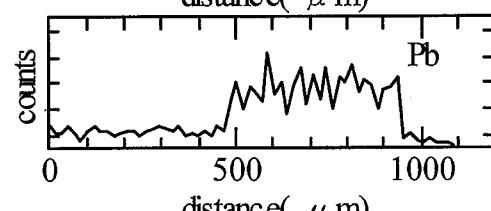
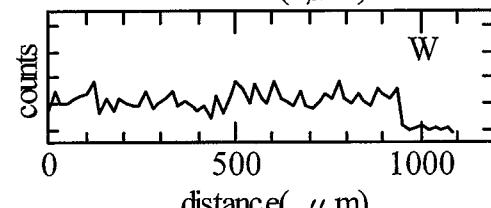
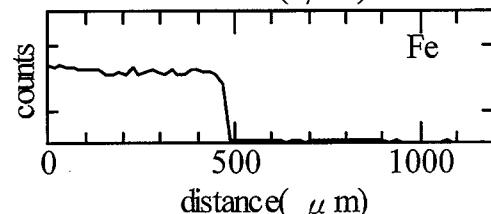
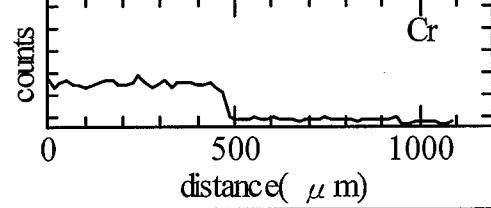
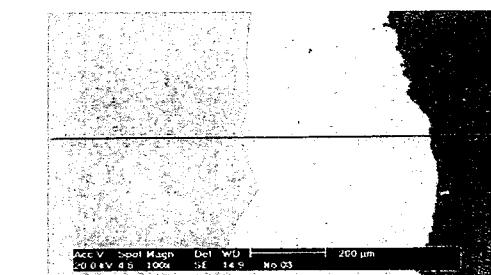
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真



(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

Fig. 2.10 F82H の表面・断面写真と断面元素成分分析結果（第 2 回腐食試験）



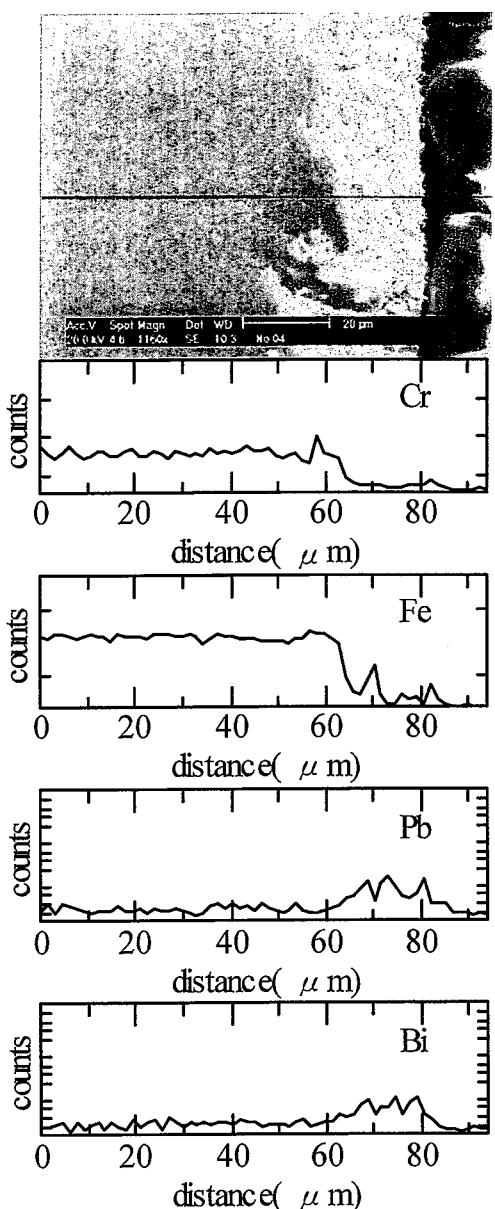
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真

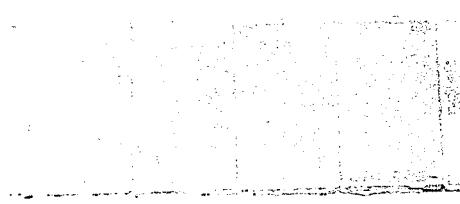


(c) 断面の写真



(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

Fig. 2.11 STBA26 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果（第 2 回腐食試験）



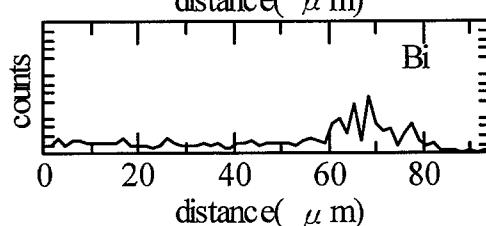
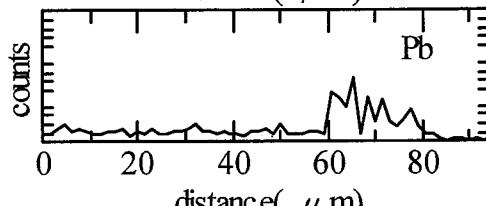
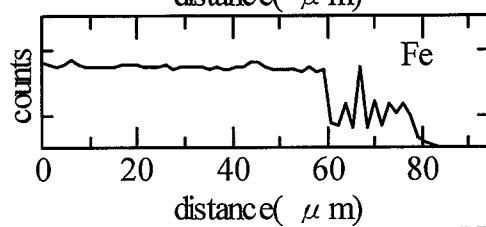
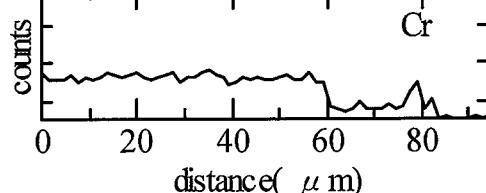
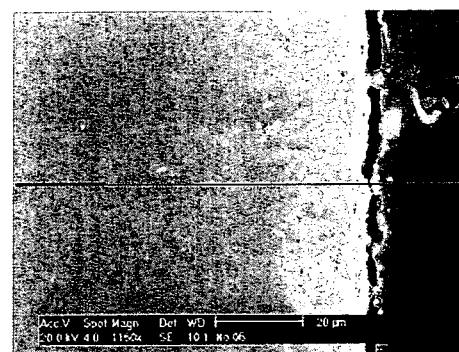
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真

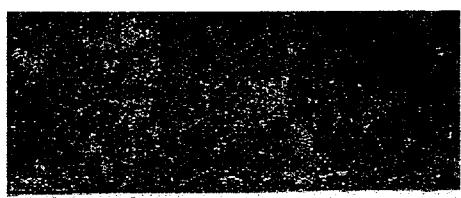


(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

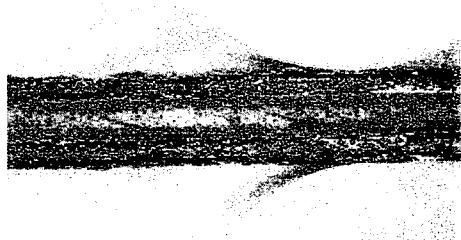
Fig. 2.12 STBA28 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)



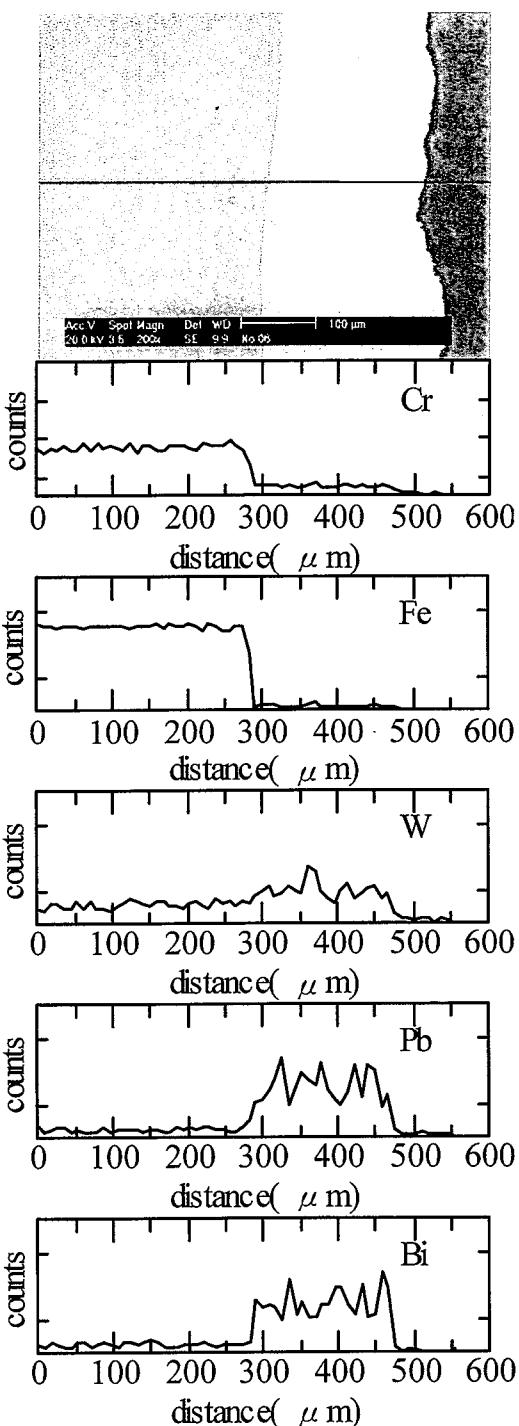
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真



(d) SEMによる断面写真とEDXによる成分ごとの線分析の結果

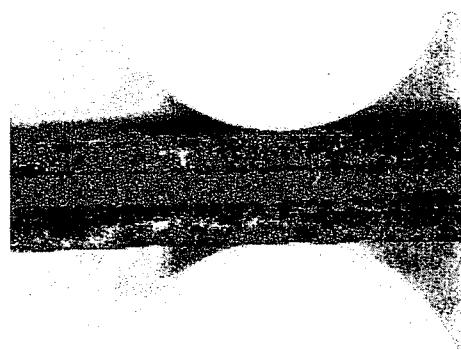
Fig. 2.13 NF616 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第2回腐食試験)



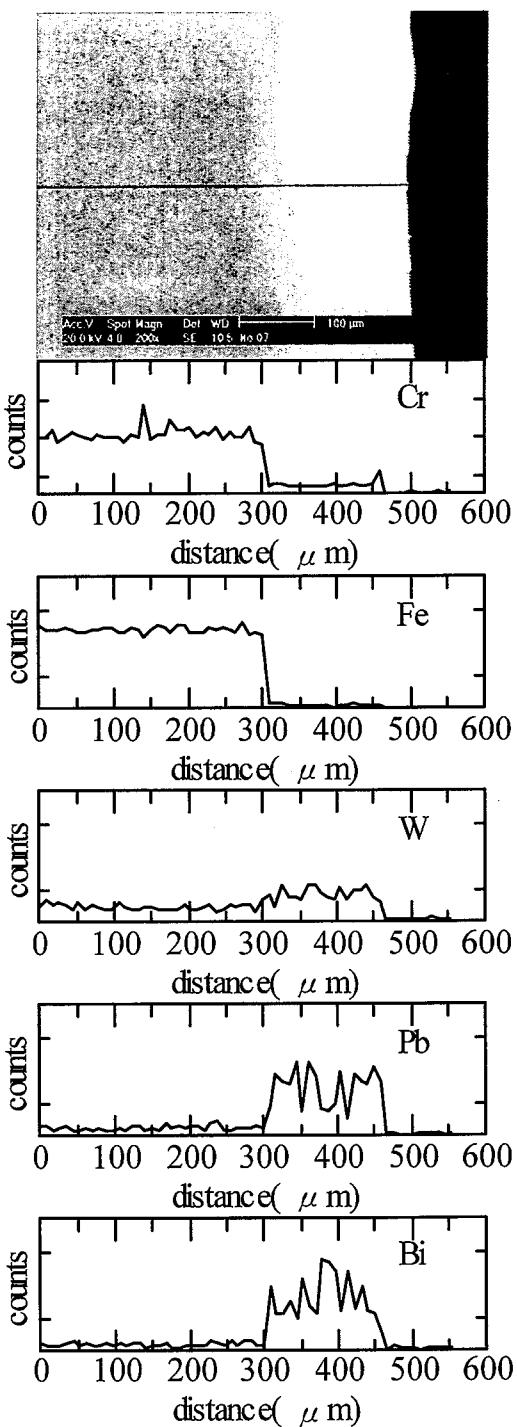
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真

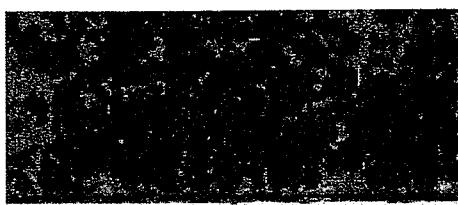


(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

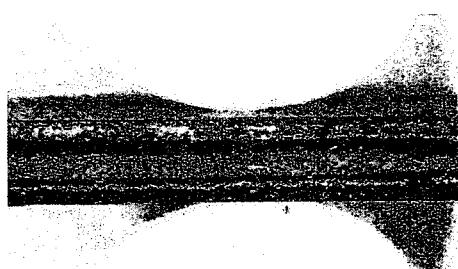
Fig. 2.14 HCM12 の表面・断面写真と断面元素成分分析結果（第 2 回腐食試験）



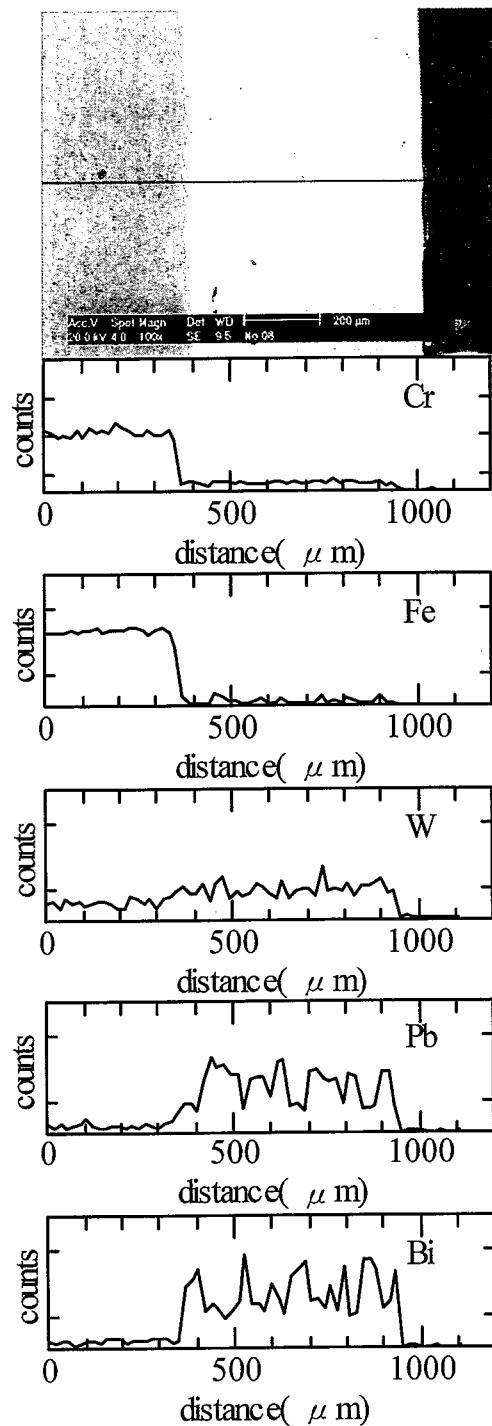
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真



(d) SEM による断面写真と EDX による成分ごとの線分析の結果

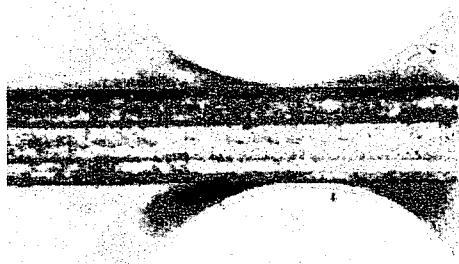
Fig. 2.15 HCM12A の表面・断面写真と断面元素成分分析結果 (第 2 回腐食試験)



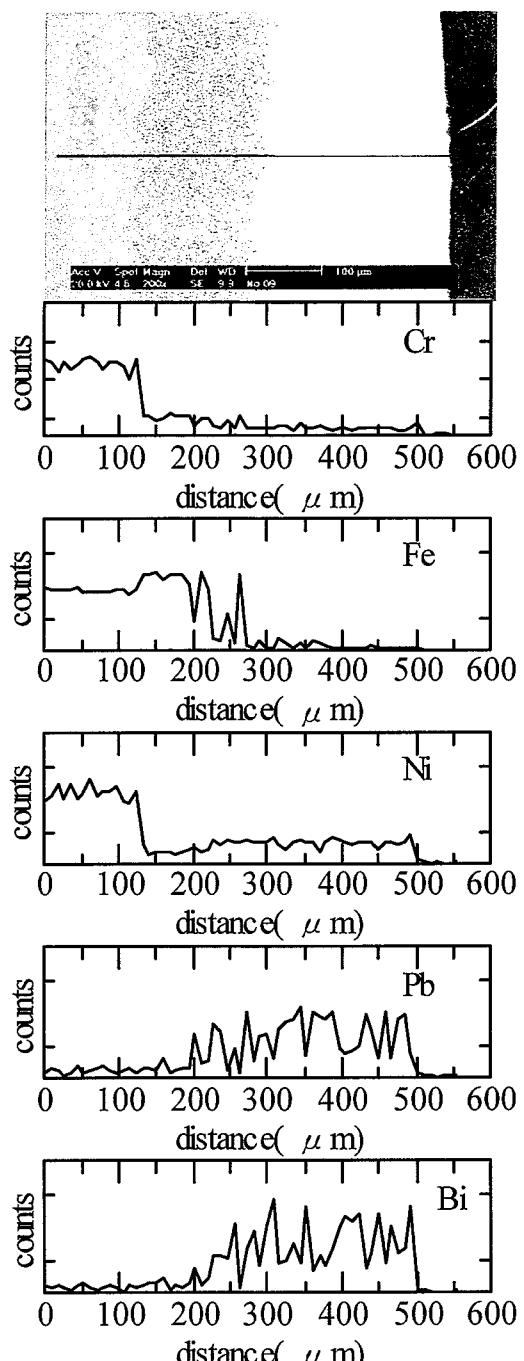
(a) 試験片ホルダーにセットしたままの状態の写真



(b) 表面の写真



(c) 断面の写真



(d) SEMによる断面写真とEDXによる成分ごとの線分析の結果

Fig. 2.16 SUS316 の表面・断面写真と断面の成分ごとの分析結果(第2回腐食試験)

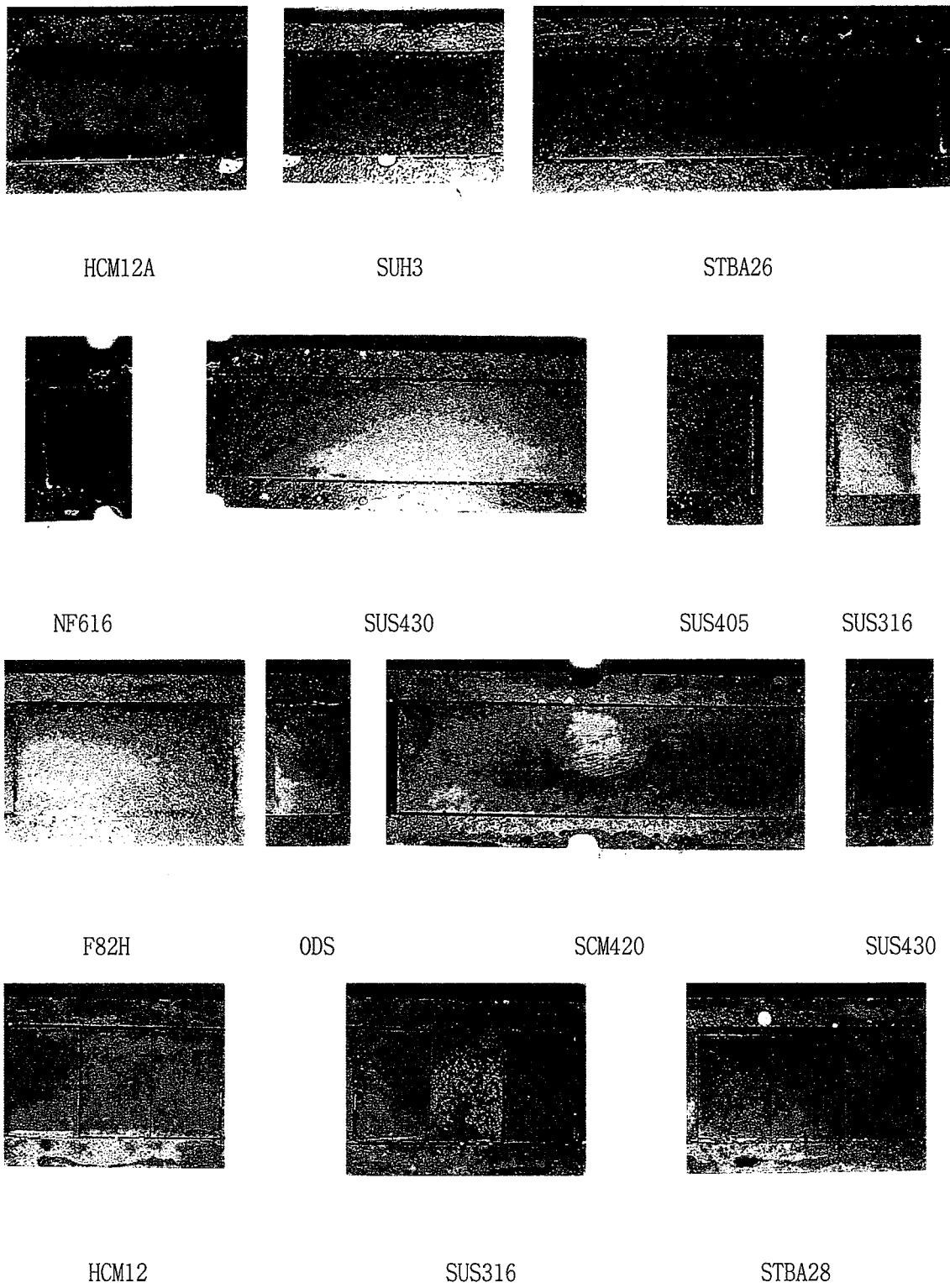
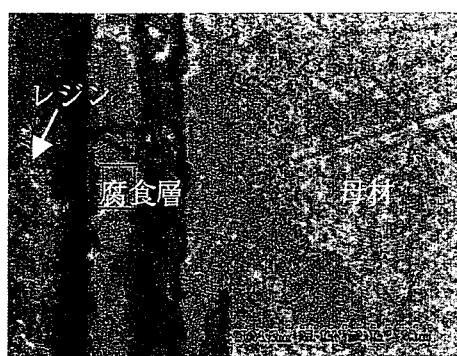


Fig. 2.17 試験片ホルダーに装荷した状態の腐食試験後の表面写真（第3回腐食試験）



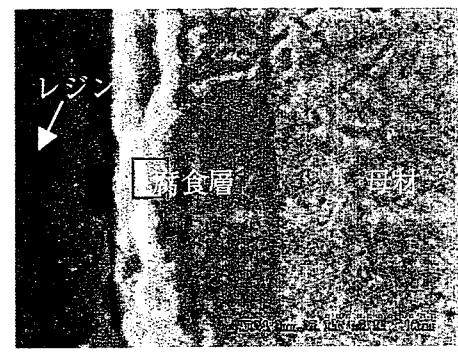
F82H



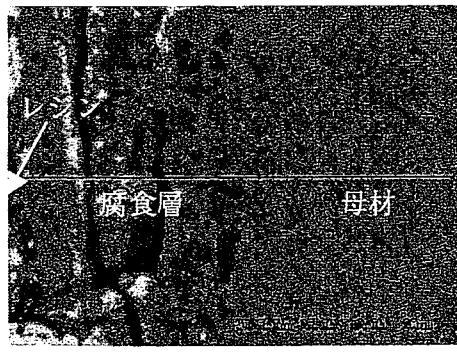
HCM12



NF616



ODS



SCM420



SUS405

Fig. 2.18 SEMによる試験片の断面写真(第3回腐食試験)

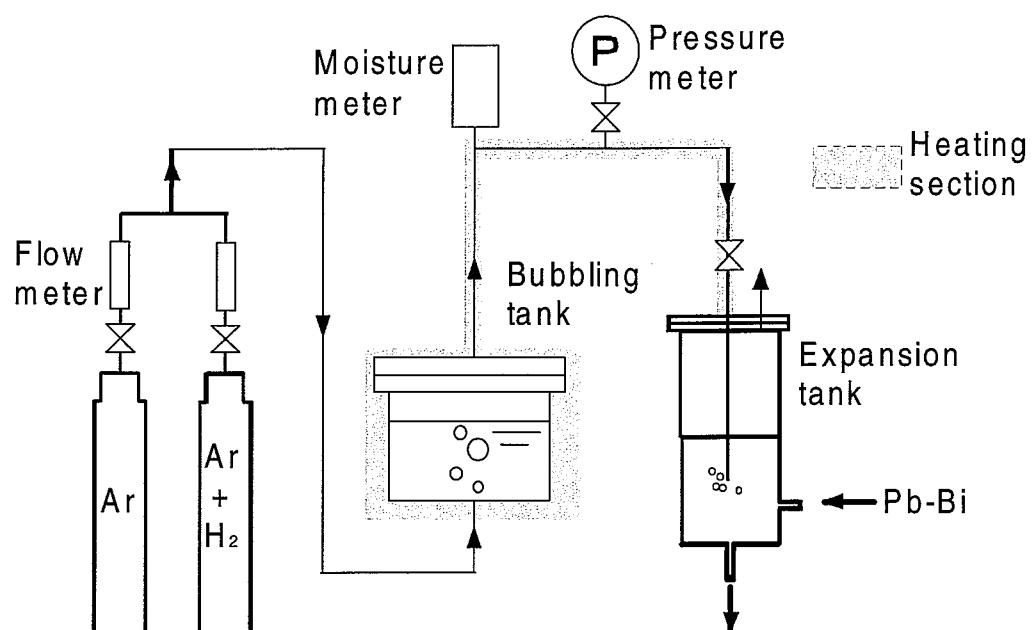


Fig. 3.1 改良型酸素濃度制御系の系統図

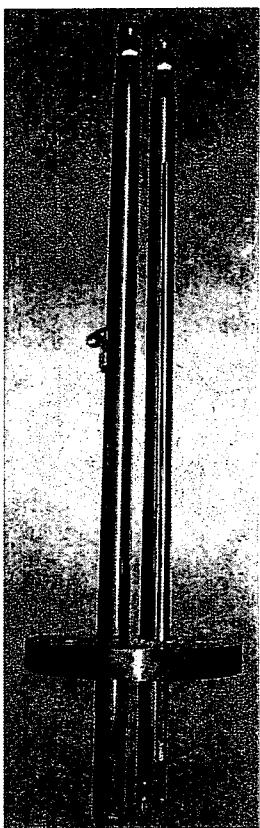


Fig. 3.2 酸素濃度計の概観

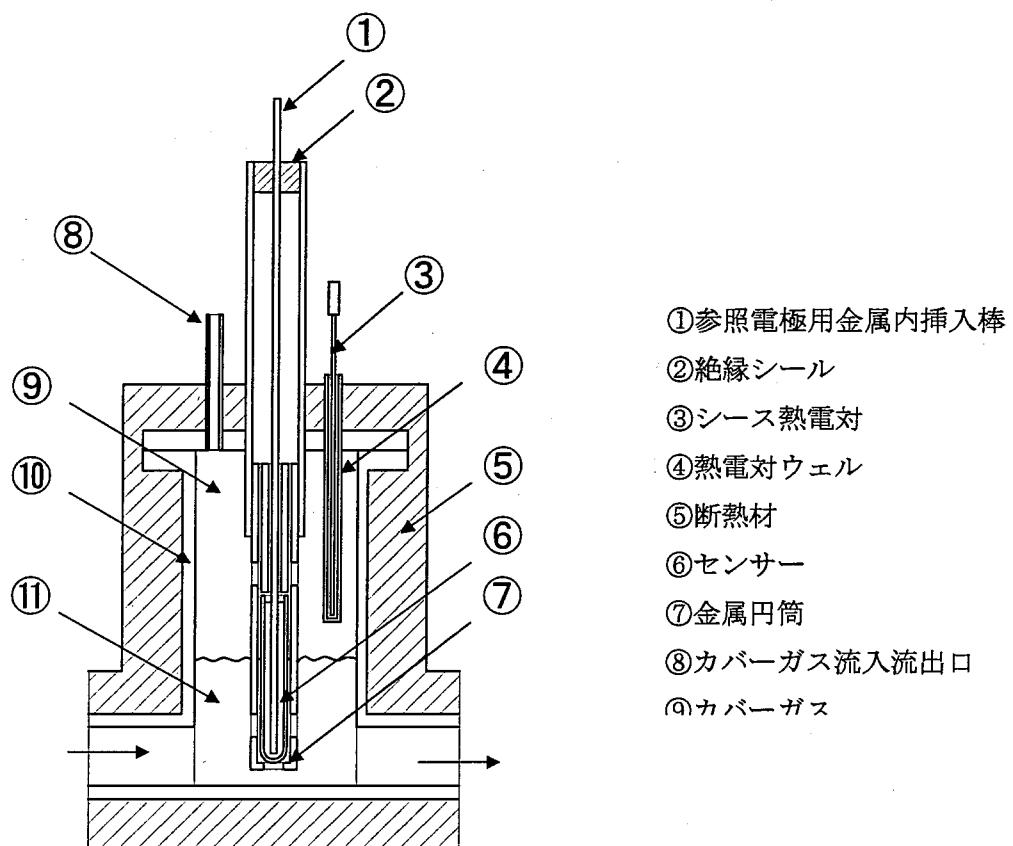


Fig. 3.3(a) 酸素濃度計の全体図

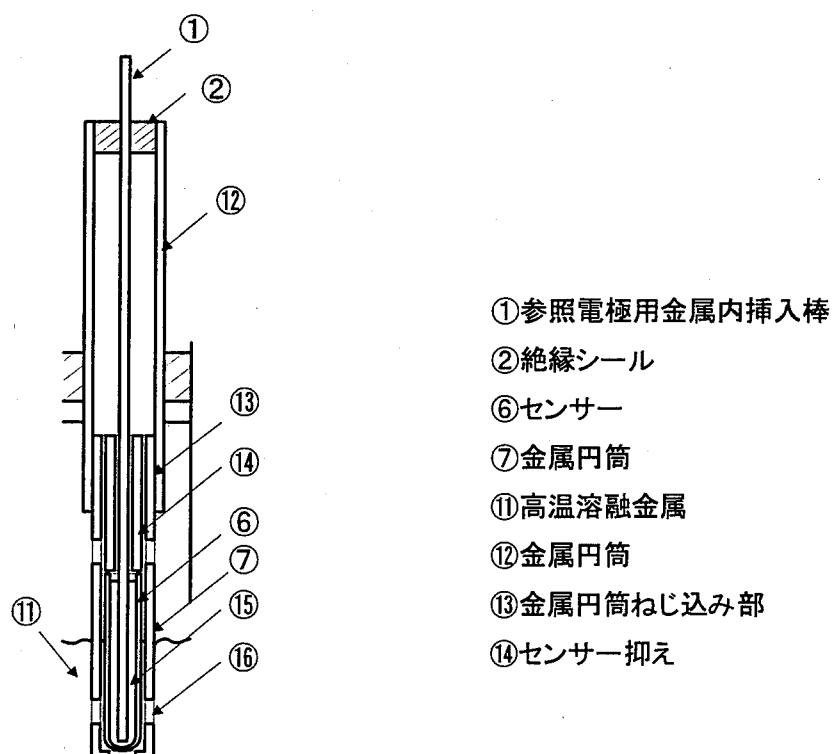


Fig. 3.3(b) 酸素濃度計の詳細図

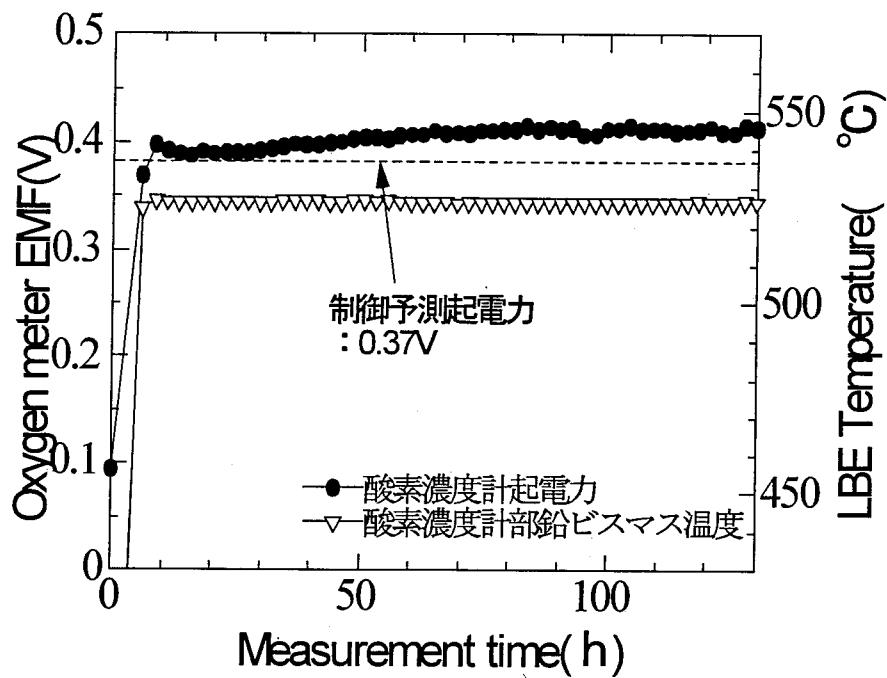


Fig. 3.4 改良型酸素濃度計の起電力の時間変化

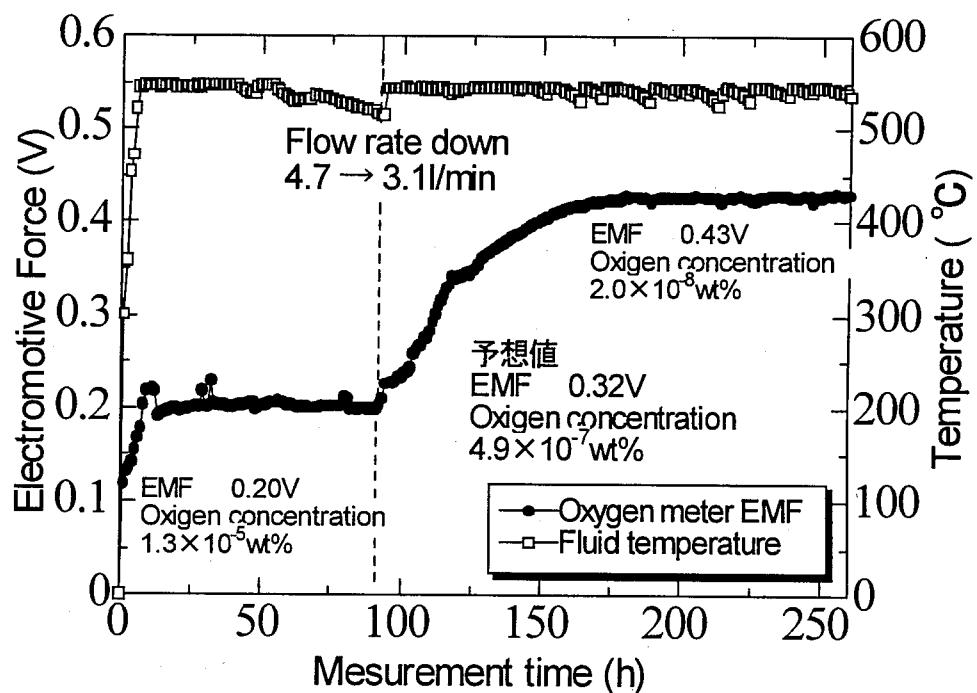


Fig. 3.5 酸素濃度起電力と鉛ビスマス温度の時間変化

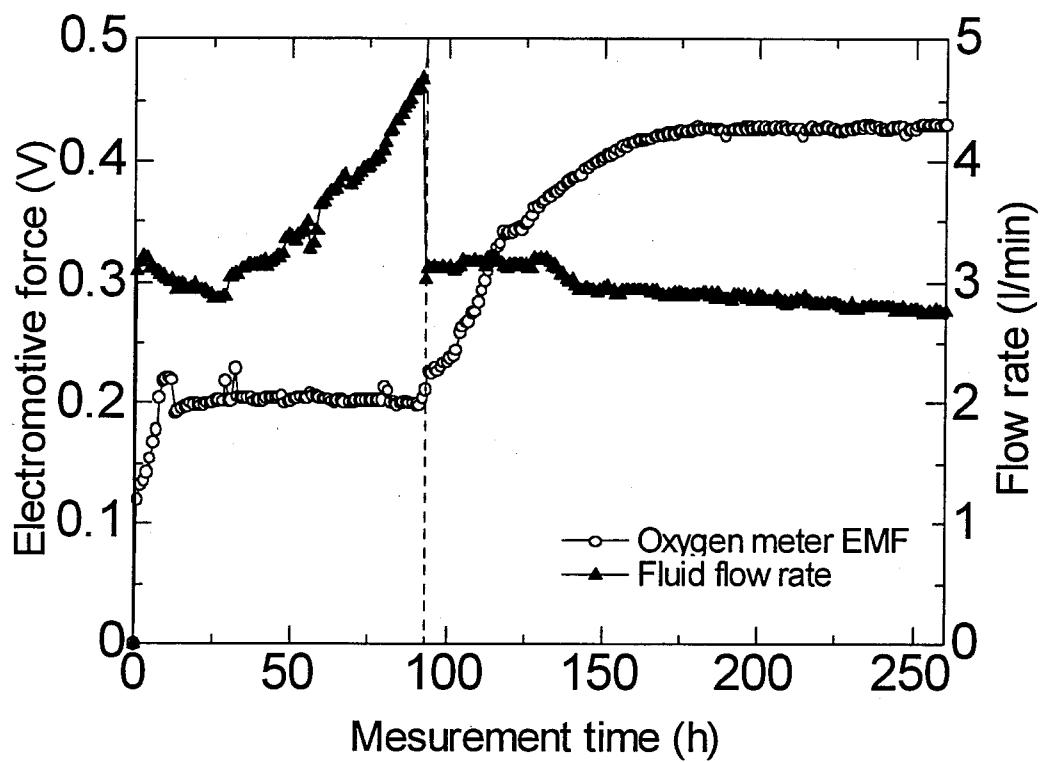


Fig. 3.6 酸素濃度計の起電力と鉛ビスマス流量の時間変化

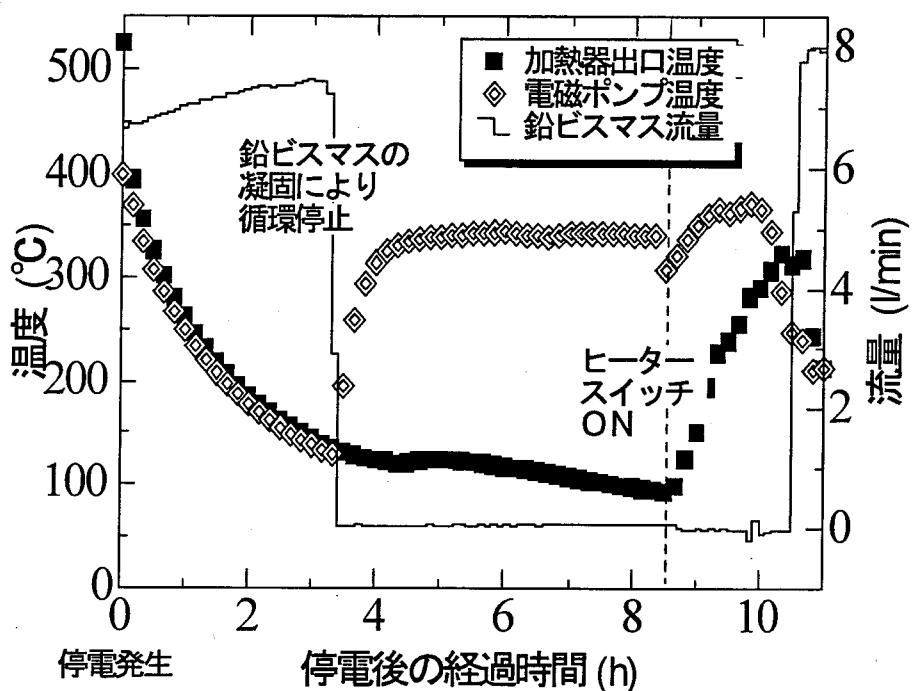


Fig. 4.1 停電後のループ各部の温度変化と流量変化

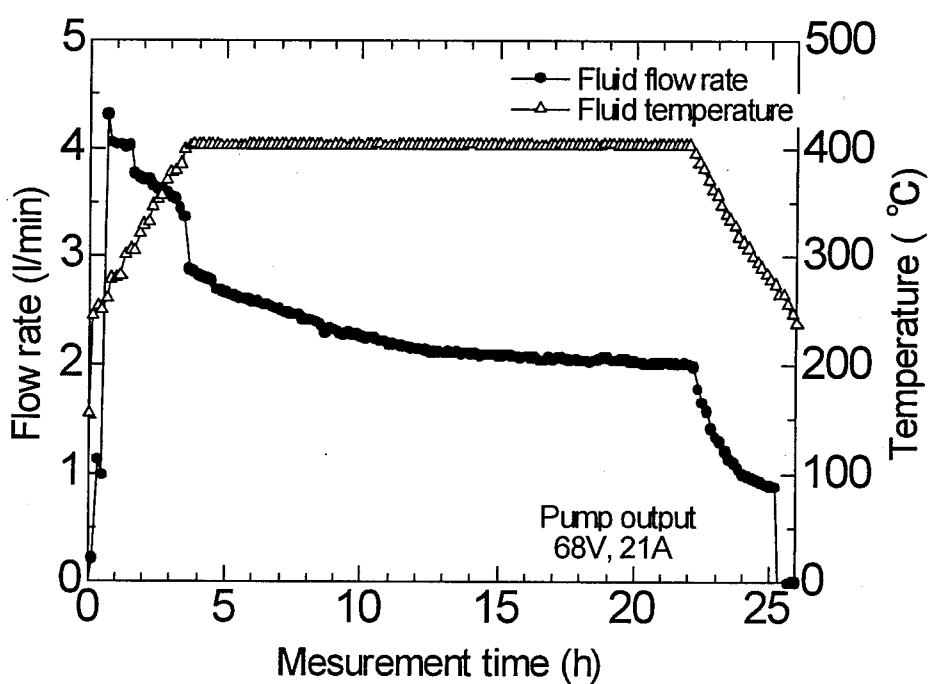


Fig. 4.2 鉛ビスマス温度と電磁流量計指示値の時間変化

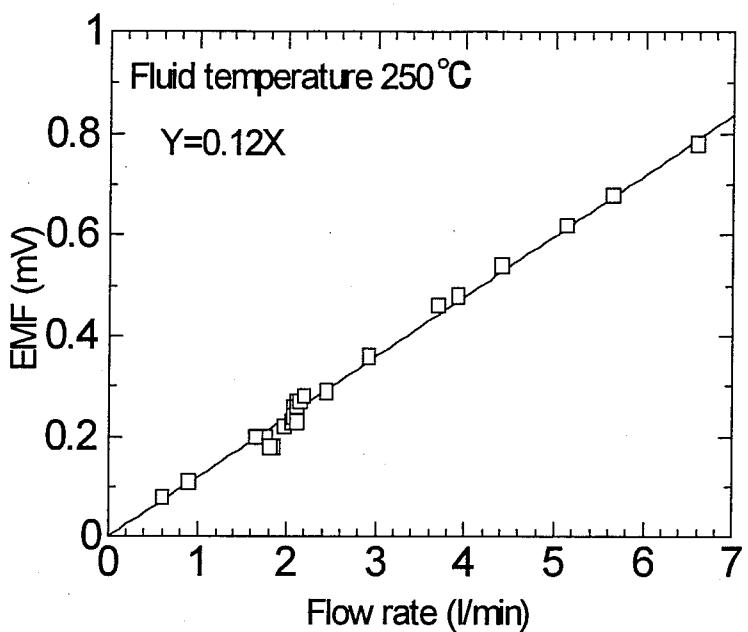


Fig. 4.3 電磁流量計の校正試験結果

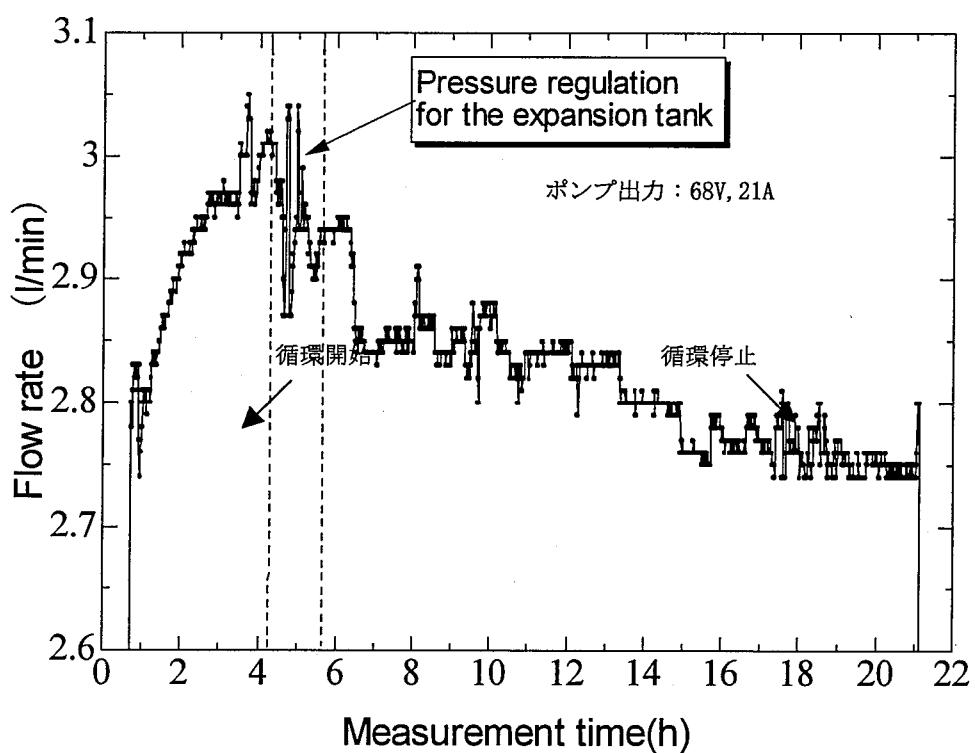


Fig. 4.4 還元した鉛ビスマスを循環させたときの流量の時間変化

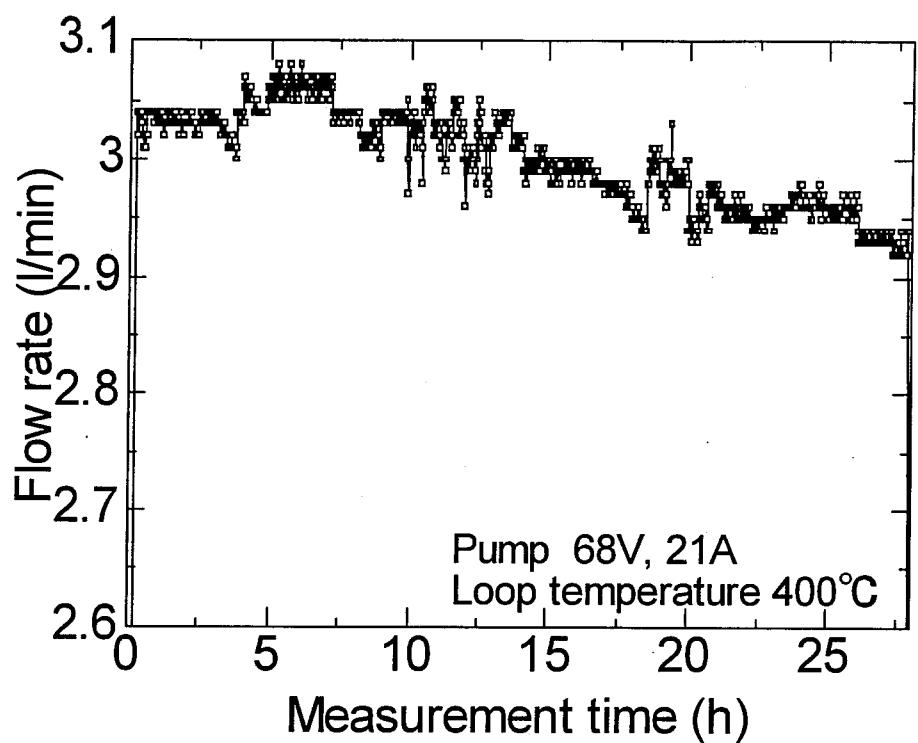


Fig. 4.5 ダンプタンク吹き込み後の流量変化

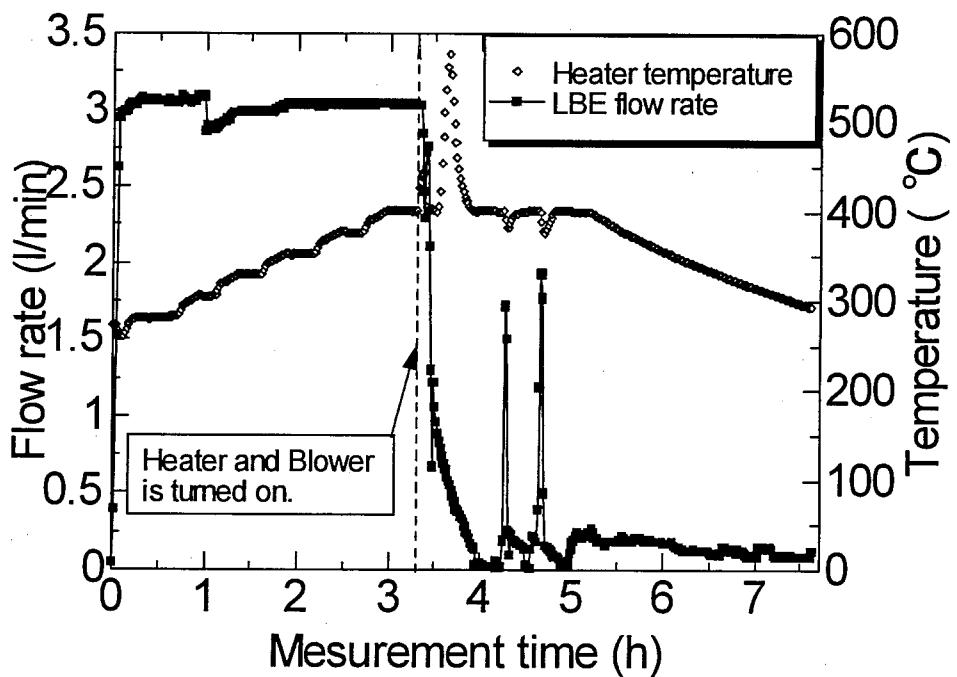


Fig. 4.6 鉛ビスマス流量急減時の流量と加熱器温度の時間変化

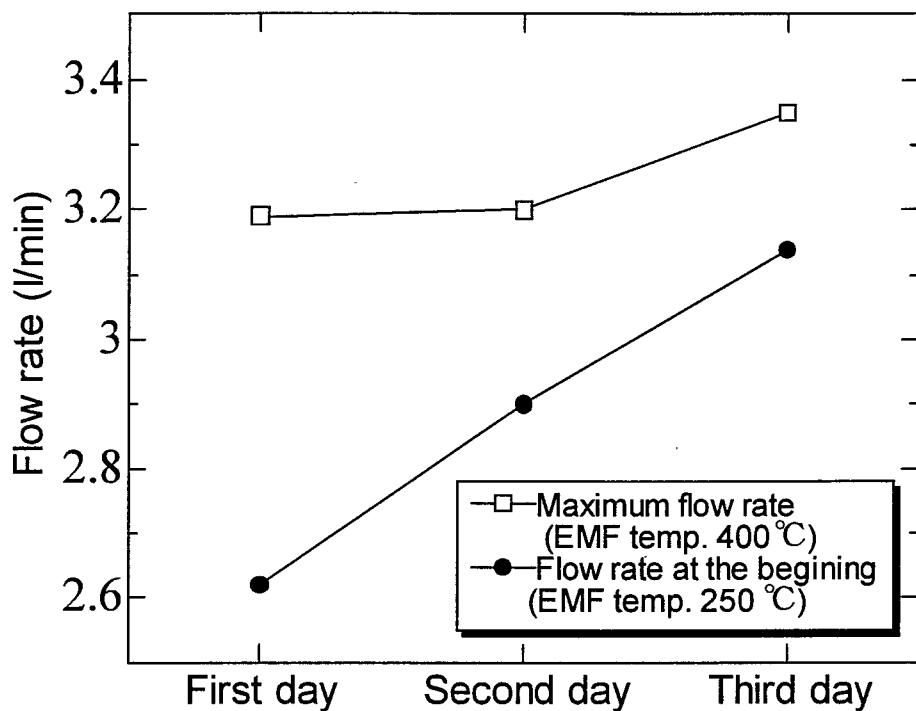


Fig. 4.7 流量增加過程

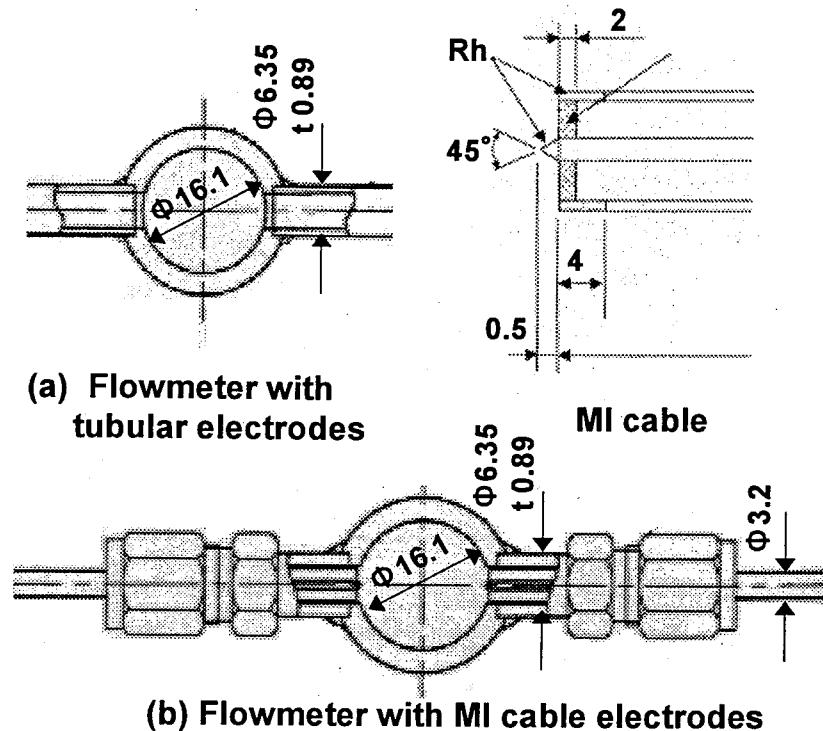


Fig. 5.1 改良型電磁流量計

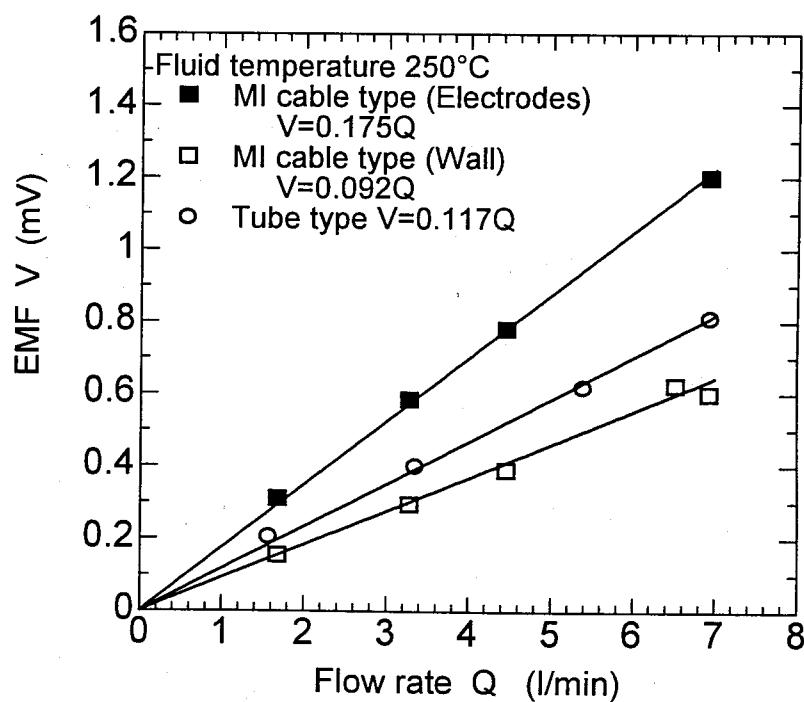


Fig. 5.2 改良型電磁流量計の流量校正結果

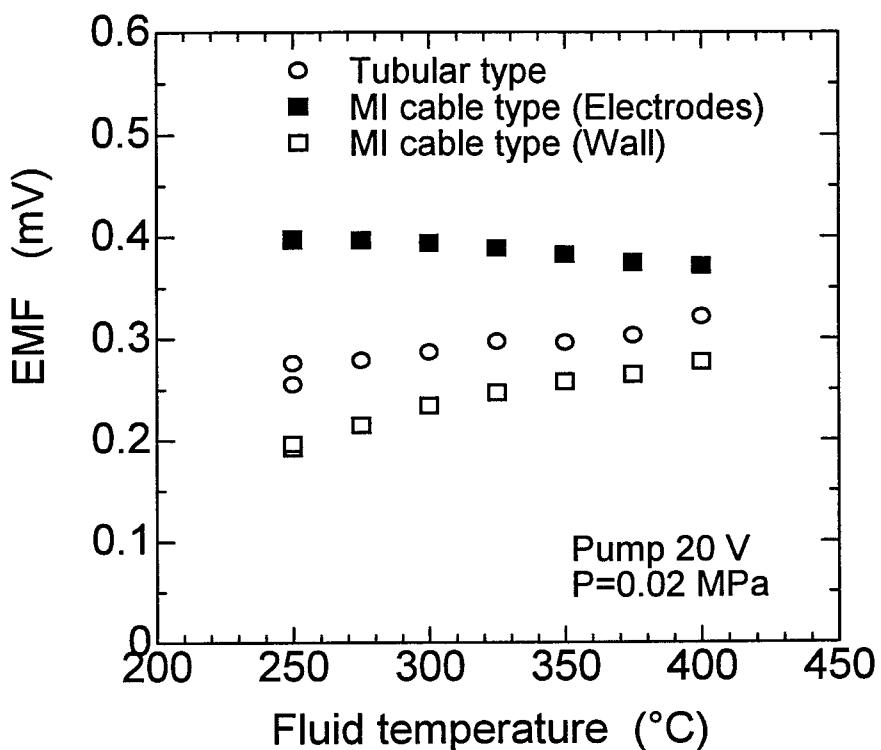


Fig. 5.3 改良型電磁流量計の起電力の温度依存性

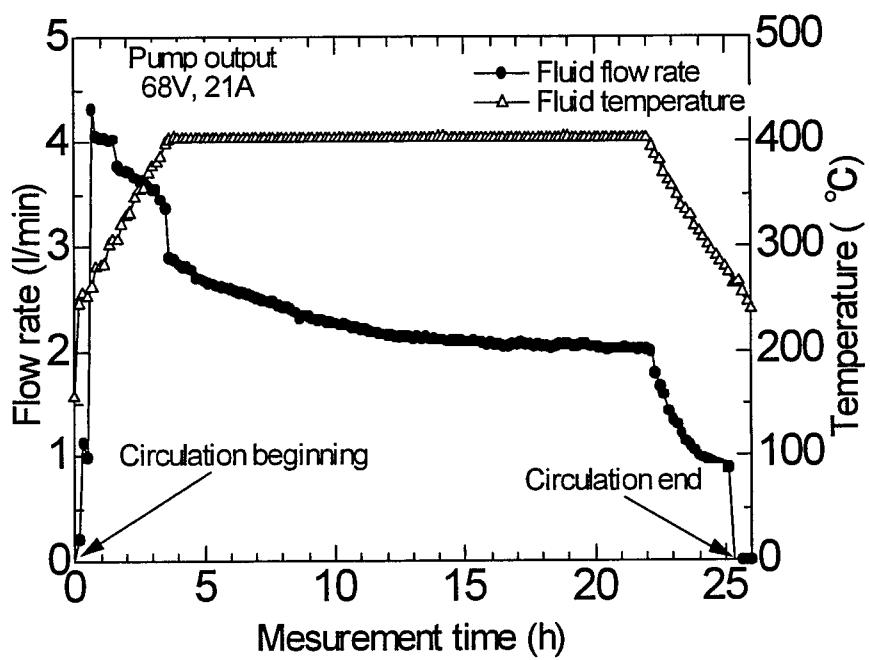


Fig. 5.4 長時間使用後の流量計指示値と温度の時間変化

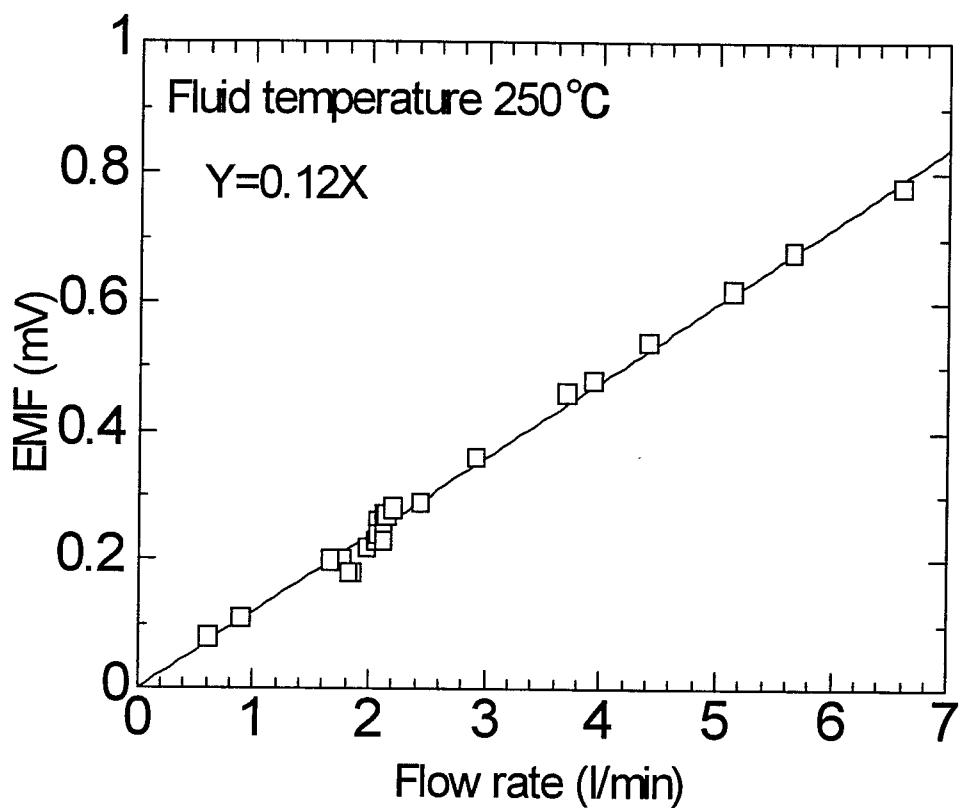


Fig. 5.5 MI ケーブル型電極棒交換後の電磁流量計の流量校正結果