

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 15 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820453

研究課題名(和文)低熔点合金を利用した自動開孔フィルターの創成

研究課題名(英文)Development of automatic vent filter using low-melting-point alloy

研究代表者

酒瀬川 英雄 (Sakasegawa, Hideo)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門 六ヶ所核融合研究所・副主任研究員

研究者番号：00566250

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：2011年の福島第一原発事故においてベント設備が十分に機能しなかったことは事故の深刻化を招いたことの一つとして認識されている。このためベント設備の改善は安全対策の一つとして意義深い。本研究はこの改善に貢献するための低熔点合金を含浸した金属製多孔質フィルターの創成を目的として、Sn-Bi系合金を含浸した酸化物分散強化型鋼製フィルターを研究開発した。これはある温度(共晶点)以上になれば低熔点合金が溶け出して自然開孔、自動的にベント機能が発現する、また、放射性セシウムや放射性ヨウ素に対しても多孔質フィルターのコールドトラップ効果によりその外部放出を低減する効果も期待できるものである。

研究成果の概要(英文)：The malfunction of venting system was a reason which worsened the accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant in 2011. Consequently, the improvement of venting system is important as a safety measure in nuclear power plants. The purpose of this research is to develop a porous metallic filter impregnated with a low-melting-point alloy. A filter made of Oxide Dispersion Strengthened steel, which has an attractive corrosion resistance and a superior high temperature strength, impregnated with a Sn-Bi alloy was developed. This impregnated filter becomes porous at temperatures higher than the melting point of the low-melting-point alloy and it can automatically vent the reactor pressure vessel. In addition, the external emission of radioactive iodine and cesium can be reduced by the effect of cold trap.

研究分野：材料工学

キーワード：フィルター 低熔点合金 焼結金属 原子炉 自動ベント機能 コールドトラップ効果

1. 研究開始当初の背景

東京電力福島第一原発事故においてはベント設備が理想的に機能しなかったことが旧原子力安全・保安院から報告されている[1]。

具体的には、電源喪失のためベント弁が完全な開状態とはならなかったこと、そして、ベント配管の最後にあるラプチャーディスク[2]の設定圧力が高すぎ作動しなかったことが報告されている。このため、ベント設備の改善は原子力発電の今後の安全対策の一つとして重要視されている。

これに対して本研究は低融点合金を含浸した金属製多孔質フィルターの研究開発をする。図1に示したように、これはある一定温度以上になれば含浸した低融点合金が溶けだして開孔する、つまり、自動的にベント機能が発現するものである。電源喪失時にも機能が期待できるものであり、温度条件が適当であれば開孔するため外部からの加熱により人為的に開孔でき、既存のラプチャーディスクよりもそのベント機能を制御しやすいものである。さらにこの弁そのものが多孔質フィルターであるため、放射性セシウムや放射性ヨウ素の放出に対してコールドトラップ機能を持ち、それらの拡散の抑制も期待できる。

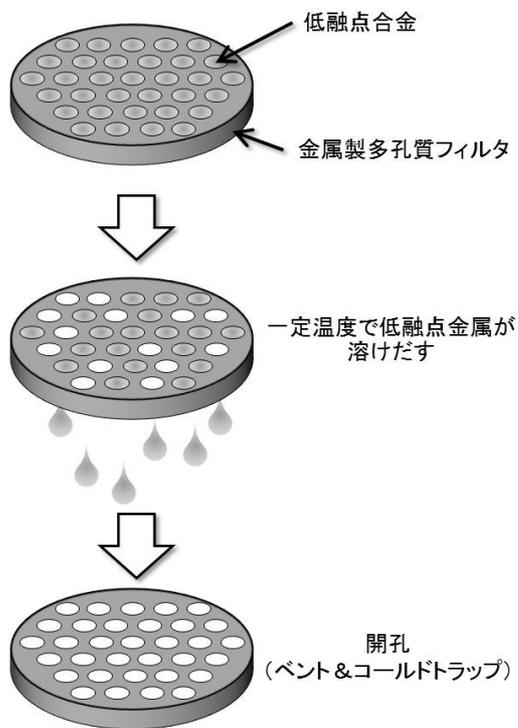


図1 低融点合金を含浸した金属製多孔質フィルターの自動ベントのしくみ

2. 研究の目的

本研究は図1に示したような低融点合金を含浸させた金属製多孔質フィルターの創成を目的とする。

フィルター材料としては高速炉の燃料被

覆管や核融合炉のブランケットの構造材料として利用される酸化物分散強化型鋼(ODS鋼: Oxide Dispersion Strengthened steel)を利用した。この材料はこれまでの原子力鉄鋼材料にない魅力的な耐照射特性と高温強度を持つ、しかしながらこの材料製作には粉末冶金技術を用いるため材料中に空隙が残存しやすいというデメリットがあった(図2)。これらの空隙は構造材料としては欠陥となり強度特性上は望ましくないものであるが[3]、本研究は逆にこの空隙を意図的に導入した多孔質のフィルターの製作を試みた。

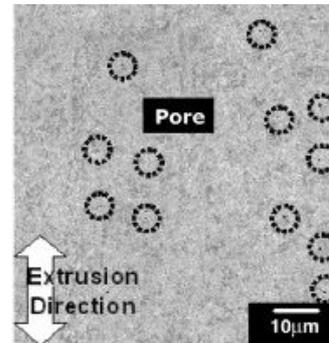


図2 ODS鋼中の空隙の一例[3]

続いて低融点合金の含浸についてははんだとして商用化されているSn-Bi系の低融点合金の利用を試みた。この合金はSnを含むことからフィルターの主構成元素であるFeとの濡れ性も良いことが状態図から判断でき化学組成の調整によって融点も調整可能なため[4]、原子炉格納容器内の異常時温度変化に対応できるものだからである。さらに液体よりも固体の密度の方が大きくなる異常液体であるBiを含むことから、多孔質フィルターの空隙を隙間なく充填できることが期待されたためである。

3. 研究の方法

金属製多孔質フィルターの製作はODS鋼中の空隙率に対する焼結時の温度と圧力の調査と最適化を行い、具体的には見かけ密度5 g/cm³程度の金属製多孔質フィルターの製作を目標とした。原料は日本原子力研究開発機構で研究開発したODS-F82H鋼粉末を用いた[5]。

つぎに製作した多孔質フィルターの空隙に含浸する低融点合金としてすでに商用はんだのSn-Bi系低融点合金を利用して[4]含浸を実施した。

なお上記の研究開発を遂行する上での具体的な工夫として下記を実施した。

【 研究報告例の充実している原料をフィルター材料として選択】

金属製多孔質フィルターの原料としてはこれまでに十分な研究報告例のあるODS-F82H鋼粉末を用いた。これまでこの粉

末は高速炉や核融合炉の構造材料としての利用が考えられ空隙率がゼロとなるように制御された条件下で熱間固化されてきた。このことはどのような条件で空隙がどの程度残存するかどうか（本研究では導入させられるか）、知見が充実していることを意味する。

【 低融点合金（はんだ）の専門の研究者・技術者との綿密なディスカッション】

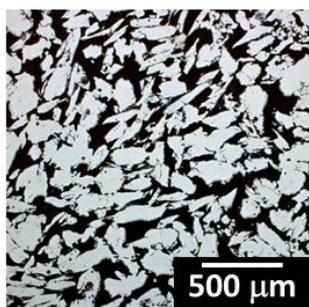
金属製多孔質フィルターに含浸する低融点合金は商用はんだを利用した。ここでは Sn-Bi 系合金を利用したが、これは含浸方法の最適化や低融点合金の化学組成調整による融点の最適化について、はんだの研究開発をする研究者・技術者の助言を仰ぎながら実施できるからである。

4. 研究成果

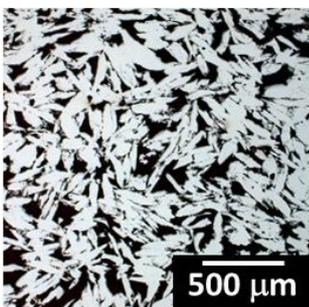
【 金属製多孔質フィルターの製作】

ODS-F82H 鋼メカニカルアロイング粉末を 20 MPa（一方向加圧） 950°C （ダイス温度）、30 min の条件にて放電プラズマ焼結した。放電プラズマ焼結法の採用理由は通常の固化・焼結法や熱間等方加圧法に比べて短時間に焼結が可能であり ODS-F82H 鋼の組織構造（とりわけ強度強化因子の酸化物分散粒子の分散状態）に影響をより及ぼし難く、最終製品のフィルター強度をより制御しやすくなる方法だからである。

図 3 に製作した多孔質フィルターの断面写真を示した。



(a) 加圧方向に垂直な断面



(b) 加圧方向に平行な断面

図 3 多孔質フィルターの断面写真

かさ密度 $5.2 \sim 5.7 \text{ g/cm}^3$ で大きさ $\phi 15 \times 2t$ mm の多孔質フィルターであり、このかさ密

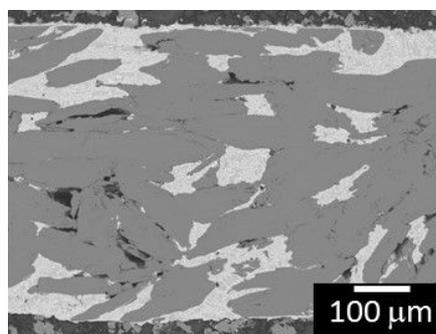
度は商用化されている SUS 製フィルターと同程度のかさ密度であり 40 %弱の空隙率となる[6]。

【 低融点合金の含浸】

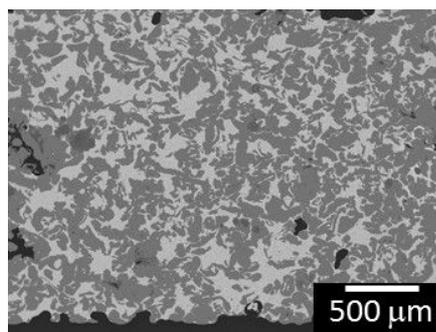
製作した金属性多孔質フィルターに Sn-Bi 系低融点合金の含浸を試みた。表 1 にその含浸条件の概要を示して図 4 にはその代表的結果を示した。

表 1 含浸方法 (ODS-F82H 鋼フィルター)

No.	表面仕上げ	方法	結果
1	電解研磨	ディップ式	部分表面のみ
2	フラックス使用	ディップ式	全体表面のみ
3	フラックス使用	ディップ式 加圧処理	全体内部まで



(a) ODS-F82H 鋼製フィルター



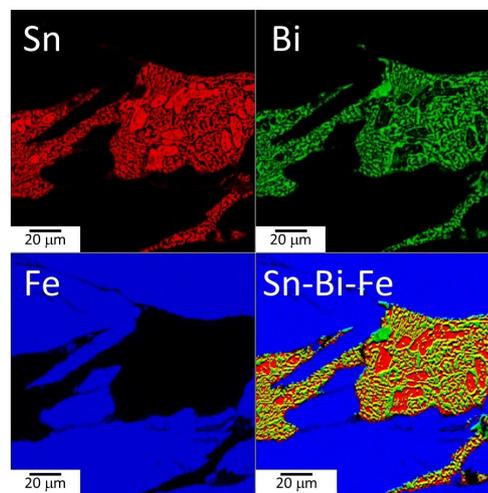
(b) SUS316L 製フィルター

図 4 Sn-Bi を含浸したフィルターの厚さ断面の組成像

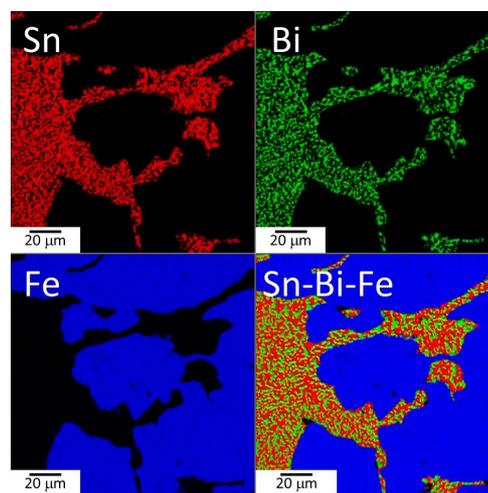
表 1 の No. 1 では電解研磨仕上げしたフィルターに対してディップ法（溶融合金にそのまま漬ける方法）で含浸を試みたが部分的に濡れただけであり、その濡れた部分でもフィルターの内部までほとんど含浸していなかった。そこで No. 2 のようにフラックス（表面活性剤：日本スベリア社製 NS23）を用いた。これにより濡れ性が著しく改善してディップされたフィルター表面は完全に濡れた。

しかしながら内部にまで完全に含浸した状態でなかった。このため No. 3 では No. 2 の条件でディップした後に加圧処理を 290 bar@150 °C の条件にて行った。この結果が図 4 (a)である。これは走査型電子顕微鏡による組成像に対応するものであり、より明るく白くなるコントラスト部分が Sn-Bi 系低融点合金に対応して、より暗く黒くなる部分が ODS-F82H 鋼製フィルターに対応する。また、同図中の(b)には商用化されている SUS316L 製フィルターに含浸を試みた結果も示した。この SUS316L 製フィルターは ODS-F82H 鋼製フィルターよりも 5 倍程度の厚さであったが加圧処理なしの No. 2 の条件で完全に内部まで含浸できた。これは SUS316L 製のフィルターの空隙率が比較して大きかったこと、そして、ODS-F82H 鋼のようにフレーク状の異形粉ではなくより球形に近い粉末でありフィルター表面に開通しやすい空隙であったため加圧処理がなくとも Sn-Bi 系低融点合金が含浸しやすかったためと考えられる。この SUS316L 製フィルターに関わる知見は ODS-F82H 鋼のメカニカルアロイング粉末の形状制御や空隙率の調整によって、ODS-F82H 鋼製フィルターに対する加圧処理が将来に省ける可能性を与えるものである。

最後に図 4 で内部まで含浸が確認された Sn-Bi 系低融点合金と各フィルターの共存性を調査するために電子プローブマイクロアナライザーで元素マッピングを実施した。フィルターを構成する元素と低融点合金を構成する元素が反応して新たな相が生成することなどあれば、この低融点合金は融点に変化して原子炉格納容器の異常温度域で溶け出さず図 1 に示したような自動ベント機能が発現しない可能性が考えられたためである。逆にフィルターと低融点合金中の元素が反応することがないことが確認されれば自動ベント機能が発現することが裏づけできることになる。図 5 にその元素マッピング結果を示した。ここでは代表的な構成元素である Sn、Bi、および、Fe の結果を示した。図 5(a)では低融点合金の構成元素である Sn と Bi のシグナルが ODS-F82H 鋼製多孔質フィルターの構成元素である Fe シグナルと重なることなく検出された。これより Sn-Bi 系共晶はんだは Fe とほとんど反応することなく含浸されていると判断できた。このことはこの含浸された Sn-Bi 系低融点合金が共晶温度 (139 °C) に達すれば溶融してフィルターが自動開孔するということを意味する。なお繰り返しになるがこの共晶温度は Sn-Bi の化学組成調整によって変化させられてベントの想定温度に調整できるものである。同様に SUS316L 製多孔質フィルターの結果を図 5 (b)に示したが、ここでも含浸された Sn-Bi 系低融点合金が共晶温度に達すれば溶融してフィルターが自動開孔することを裏付ける結果が得られた。またフィルターの他構成元素である W、V、Ta、および、Ni との共存性



(a) ODS-F82H 鋼製フィルター



(b) SUS316L 製フィルター

図 5 Sn-Bi を含浸したフィルターの厚さ断面の組成像

についても問題ないことを確認している。

以上より図 1 に示した自動ベント機能を発現できる低融点合金を含浸させた多孔質金属製フィルターを創成する本研究の目的を達成した。

謝辞

本研究を行うにあたり多大なるご協力をいただきました日本スペリア社に心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1]原子力安全・保安院ホームページ、<http://www.nisa.meti.go.jp/shingikai/800/28/005/5-4.pdf>
- [2]東京電力ホームページ、http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/review/review1_2-j.html
- [3]H. Sakasegawa, et al., Fusion Eng. Des. 81 (2006), 1013.

- [4] (株)日本スペリア社ホームページ、
<http://nihonsuperior.co.jp>
[5]H. Sakasegawa, et al., J. Nucl. Sci. Tech. 51
(2014), 737.
[6]例えば、小段金属(株)ホームページ、
<http://www.kodan.co.jp>

5. 主な発表論文等

[学会発表](計1件)

- H. SAKASEGAWA, H. TANIGAWA, A. KIMURA, “Characterization of Oxide Dispersion Strengthened Reduced Activation Ferritic/Martensitic Steel for DEMO Fusion Reactor”, The 5th International Symposium of Advanced Energy Science ~ Contribution to Zero-Emission Energy ~ , Uji, Kyoto, 2015/9/30 – 10/2.

6. 研究組織

(1)研究代表者

酒瀬川 英雄 (SAKASEGAWA HIDEO)
独立行政法人 日本原子力研究開発機構
核融合研究開発部門 六ヶ所核融合研究所
副主任研究員
研究者番号：00566250