

海塩粒子飛来量簡易測定法の開発に関する研究

滝下貴行*、清水恒輝*、中安文男*

Research on the development of a simple measuring method for the amount of airborne sea salt particles

Takayuki Takishita*, Kouki Shimizu*, Fumio Nakayasu*

Dry gauze method stipulated in JIS is to measure the amount of airborne sea salt particles. JIS dry gauze method takes a lot of time and work during preparation and analysis. Considering alternative methods of JIS dry gauze method, in this study we have developed several simple methods for airborne sea salt particles measuring. The methods developed are deposition methods, corrosion quantity method and corrosion current method.

Keywords: Sea salt, JIS dry gauze method, Deposition method, Corrosion quantity measurement

1. 緒言

我が国のエネルギー自給率は他の先進国に比べて非常に低く、エネルギー資源を海外から輸入している現状である。エネルギー危機に陥らないために、準国産エネルギーとされる原子力発電所の稼働が必要である。

しかしながら、原子力発電所は使用済原子燃料の処分問題を抱えている。2011年3月11日の東日本大震災以前から処分方法、処分地などの研究開発がなされている。使用済原子燃料は崩壊熱による発熱があるため原子力発電所の使用済燃料保管施設で冷却のため数年間保管される。図.1に示すように使用済原子燃料の貯蔵方法は湿式（プール方式）と乾式（キャスク方式）の2種類あり、中間貯蔵は再処理施設への移送を考慮し、乾式（キャスク方式）で行われる予定である。

乾式キャスク方式とは使用済原子

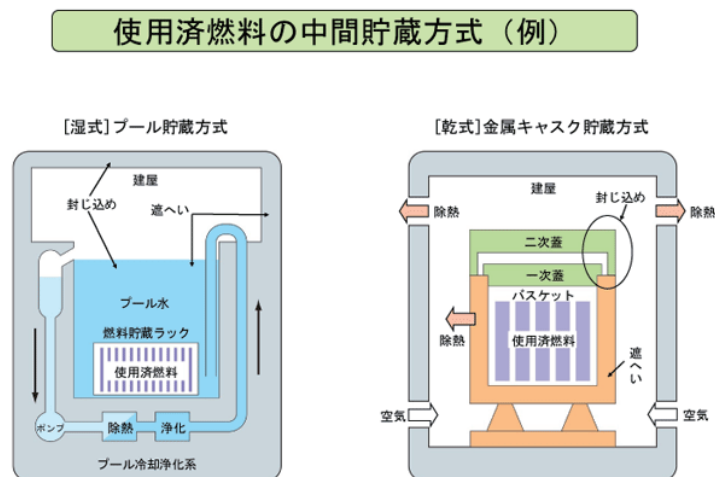


図. 1 貯蔵方式の違い

* 原子力技術応用工学科

燃料を鋼製のキャスクに納め、外部から取り込んだ自然風による自然冷却を行う方式である。施設は沿岸部に建設される予定のため自然冷却を行うと、吸気口から海塩粒子が入り、最終的にはキャスク構造物が腐食する可能性^{1,2)}がある。海塩粒子の侵入を低減するために、フィルターを設置することが考えられているが、フィルターを設置すると自然風の流入が少なくなるという欠点がある。フィルターの性能評価のため、フィルターを設置した場合の海塩粒子通過量の測定が必要である。この測定には JIS で定められたドライガーゼ法で行われていた。しかしこの方法は準備から解析までの間に多くの手間がかかる。本研究では JIS のドライガーゼ法に代わる方法を検討した。これをドライガーゼ法代替実験と称する。

また、沿岸部からの距離と飛来海塩粒子径との相関評価も行った。

2. 試験装置（暴露試験装置）

本実験は福井県あわら市の沿岸部海岸線から約 130m 離れた地点に図. 2 のような暴露試験装置を設置して実験を行った。暴露試験装置は、風が北西から南東方向へ抜けるように開口部が設けてある。

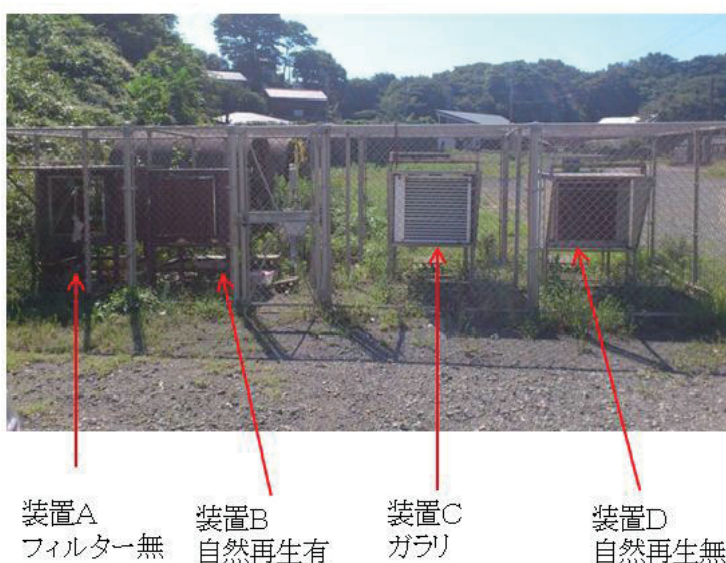


図. 2 暴露試験装置

3. 実験目的

3-1 フィルター再生試験

使用済原子燃料中間貯蔵はメンテナンス頻度を抑えるため、乾式キャスク方式を採用している。空冷のため外気導入を行っているが、環境汚染因子である海塩粒子が流入して内部構造およびキャスクが腐食してしまう恐れがある。それを防ぐためにフィルターを設置して環境汚染因子の流入を低減する。

しかしフィルターは目詰まりを起し、定期的に交換が必要になる。そこで雨を利用してフィルターの付着物を洗浄し、捕集性能が回復するフィルターを開発し、その性能確認を行った。

3-2 ドライガーゼ法代替実験

3-2-1 非腐食試験片による海塩粒子定量法

JIS ドライガーゼ法では、ドライガーゼプレート作成に時間がかかる。さらに測定地点を増やしたり、測定量を増やしたりすると非常に時間がかかってしまう。この行程を簡素化できれば、その分多くの測定などを行うことが可能になる。

3-2-2 腐食標準試験片による海塩粒子定量法

JIS ドライガーゼ法の行程の中で最も手間と時間がかかるのは、回収後の分析である。この作

業は拘束時間が非常に長い。簡易化できれば別の作業が可能となり効率化が図れる。

3-3 飛来海塩粒子径評価

海から飛来する海塩粒子は、海岸線に近ければ近いほど多くなると報告³⁾されている。本実験では、日本海沿岸地区（あわら海岸）での、海岸線からの距離と飛来海塩粒子径の関係を評価した。

4. 実験方法

4-1 フィルター再生試験

同じ仕様のフィルターを2つ準備して、あわら海岸にある暴露試験装置にそれぞれ設置した。図.3に示す自然再生を可能にした装置では、フィルターに風雨が直接当たるように設置した。図.4に示す自然再生を制限した装置では、フィルターへ雨が直接当たらないように設置した。

4-2 ドライガーゼ法代替実験

4-2-1 非腐食試験片による海塩粒子定量法

ドライガーゼを設置した場合と、同一の暴露条件となるように、図.5に示す100×100mmのガラス板と400番、2000番仕上げの2種のステンレス板を準備した。

これらの非腐食試験片を、図.6に示すように、暴露試験装置に1か月設置し海塩粒子を付着させた。蒸留水を含ませて絞ったガーゼで試験片の表面を拭き取った。回収後、イオンクロマトグラフで解析を行った。試験片に付着した海塩粒子量の評価をするためにJISドライガーゼ法を標準として比較を行った。

4-2-2 腐食標準試験片による海塩粒子定量法

ドライガーゼ法と同一の暴露条件を得るために100×100mmの炭素鋼製の腐食標準試験片を作成した。1面のみ腐食されるように、背面、側面に油性ペンキで防錆処理を施した。油性ペンキ



図.3 試験装置（自然再生可能）



図.4 試験装置(自然再生制限)

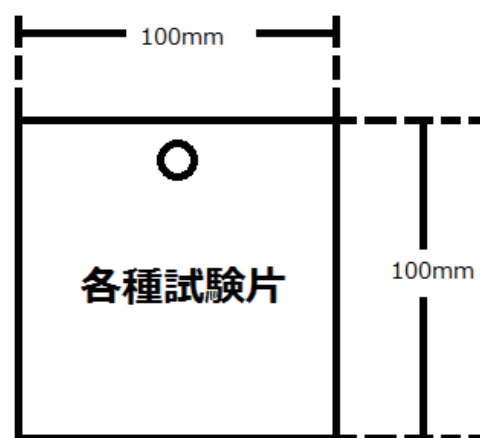


図.5 各種非腐食試験片の寸法

が乾燥した後、電子天秤にて重量測定を行った後、図6に示すように設置した。

1か月後に腐食標準試験片を回収し、塩酸とヘキサメチレンテトラミンの混合溶液に数時間浸して、錆取りを行った。その後、試験片を、混合溶液より回収し、付着している溶液をキムワイプなどでふき取って重量を測定し、腐食減量と比較した。



図. 7 アルミニウム試験片の設置箇所

4-4 海塩粒子径評価

小さく切断したアルミニウム試験片を図.7に示す海岸線から約5m、100m、130mに約2時間設置した。回収後、図.8に示す走査型電子顕微鏡（SEM）で海塩粒子を付着させたアルミニウム試験片を観察し、どの程度の量が飛来しているか、海塩粒子の大きさは、どの程度かを観察した。

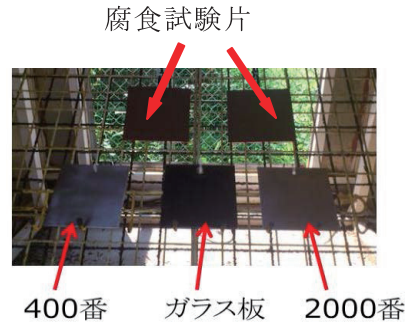


図. 6 非腐食標準試験片及び腐食試験片



図. 8 走査型電子顕微鏡

表. 1 フィルター再生試験結果

期間	自然再生有り (mg/m ² /Day)	自然再生無し (mg/m ² /Day)
5/23~6/6	1.49	4.74
6/6~7/11	2.49	2.82
7/11~7/18	12.85	9.08
7/18~8/21	2.81	1.02
8/21~10/5	1.36	2.62
10/5~11/8	12.66	10.70

5. 実験結果

5-1 フィルター再生試験

フィルター再生試験の結果を表.1 及び図.9に示す。同図から明らかなように、海塩粒子飛来量の変化はなかった。これは、フィルターが自然再生をしなかったということを示している。

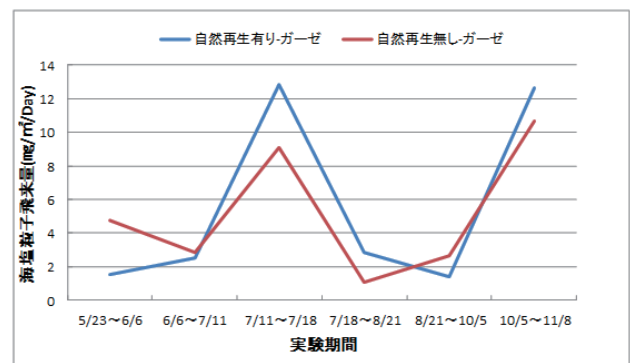


図. 9 フィルター再生試験結果

5-2 ドライガーゼ法代替実験

5-2-1 非腐食試験片による定量法

暴露試験装置A（フィルターを使用していない装置）に設置した、ドライガーゼと非腐食試験

表.2 暴露試験装置Aの海塩粒子飛来量

	フィルタ無-ガーゼ (mg/m ² /Day)	フィルタ無-400 (mg/m ² /Day)	フィルタ無-2000 (mg/m ² /Day)	フィルタ無-Glass (mg/m ² /Day)
7/18~8/21	25.41	0.32	0.35	0.29
8/21~10/5	71.19	0.10	0.80	0.67
10/5~11/8	96.01	1.27	1.29	1.36
11/8~12/5	171.15	1.59	1.57	1.28
相関係数		0.84	0.95	0.83

表.3 暴露試験装置Bの海塩粒子飛来量

	自然再生有り-ガーゼ (mg/m ² /Day)	自然再生有り-400 (mg/m ² /Day)	自然再生有り-2000 (mg/m ² /Day)	自然再生有り-Glass (mg/m ² /Day)
7/18~8/21	2.81	0.34	0.33	0.26
8/21~10/5	1.36	0.52	0.50	0.58
10/5~11/8	12.66	1.37	0.88	1.98
11/8~12/5	20.02	1.82	3.27	2.97
相関係数		0.98	0.90	0.99

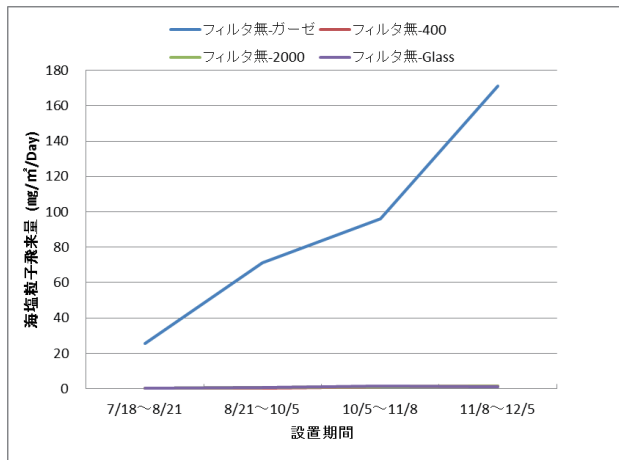


図.1 0 暴露試験装置Aの海塩粒子飛来量

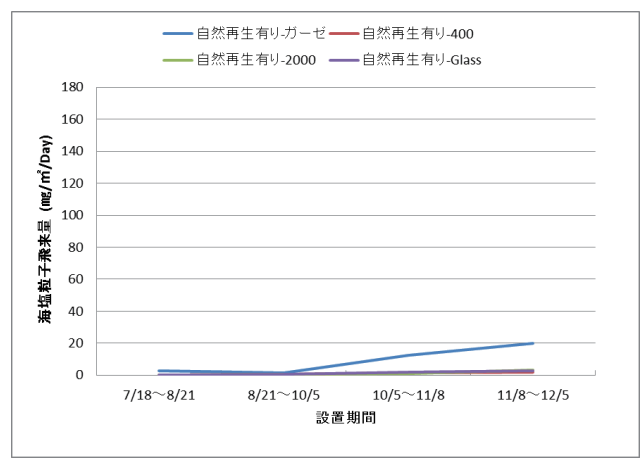


図.1 1 暴露試験装置Bの海塩粒子飛来量

表.4 暴露試験装置Cの海塩粒子飛来量

	ガラリ-ガーゼ (mg/m ² /Day)	ガラリ-400 (mg/m ² /Day)	ガラリ-2000 (mg/m ² /Day)	ガラリ-Glass (mg/m ² /Day)
7/18~8/21	1.03	0.45	0.65	0.66
8/21~10/5	4.01	1.20	1.45	1.46
10/5~11/8	25.36	1.20	1.09	1.06
11/8~12/5	40.89	10.57	3.51	3.41
相関係数		0.84	0.81	0.80

表.5 暴露試験装置Dの海塩粒子飛来量

	自然再生無し-ガーゼ (mg/m ² /Day)	自然再生無し-400 (mg/m ² /Day)	自然再生無し-2000 (mg/m ² /Day)	自然再生無し-Glass (mg/m ² /Day)
7/18~8/21	1.02	2.56	2.09	0.25
8/21~10/5	2.62	0.71	0.96	1.52
10/5~11/8	10.70	1.01	1.12	1.12
11/8~12/5	36.11	2.67	3.52	4.77
相関係数		0.48	0.82	0.95

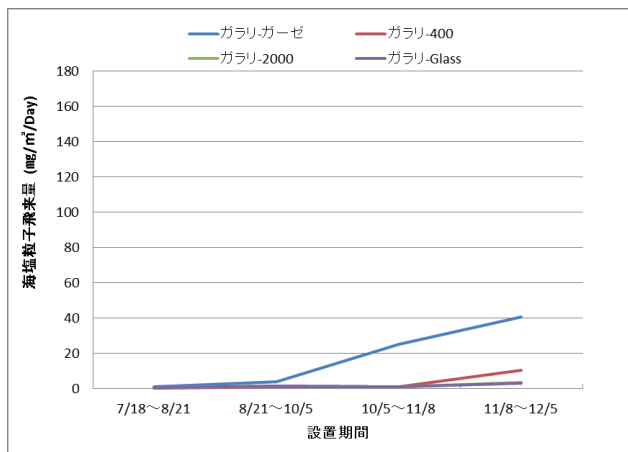


図.1 2 暴露試験装置Cの海塩粒子飛来量

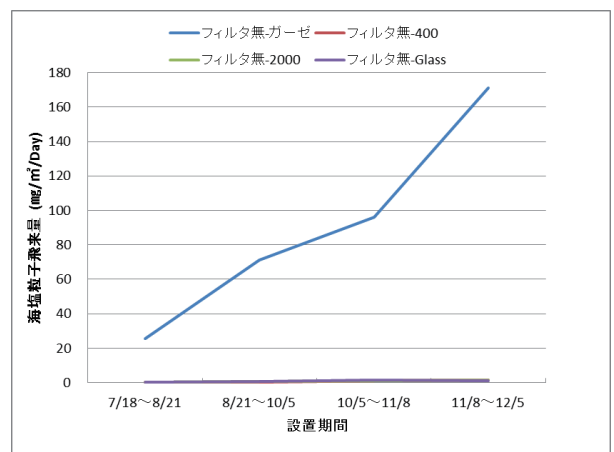


図.1 3 暴露試験装置Dの海塩粒子飛来量

片（ステンレス鋼：最終仕上げを 400 番及び 2000 番で行った試験片、ガラス試験片の計 3 種）の比較を表.2 及び図.1 0 に示し、暴露試験装置 B の結果を表.3 及び図.1 1 に、暴露試験装置 C の結果を表.4 及び図.1 2 に、暴露試験装置 D の結果を表.5 及び図.1 3 に示した。ただし、いずれの場合も、相関係数はドライガーゼ法と比較した値である。

5-2-2 腐食標準試験片による海塩粒子定量法

各暴露試験装置に設置した腐食標準試験片とドライガーゼ法の比較結果を表.6 及び図.1 4 に示した。腐食減量と海塩粒子飛来量の間には、ある種の相関がある。

表.6 腐食標準試験片とドライガーゼ法との比較結果

	期間	腐食減量 (g/day)	海塩粒子 (mg/m ² /day)
装置A	6/6～8/21	0.014	96.41
	8/21～10/5	0.051	71.19
	10/5～11/8	0.068	96.01
	11/8～12/5	0.043	171.15
装置B	6/6～8/21	-0.001	18.15
	8/21～10/5	0.014	1.36
	10/5～11/8	0.009	12.66
	11/8～12/5	0.008	20.02
装置C	6/6～8/21	0.007	11.15
	8/21～10/5	0.024	4.01
	10/5～11/8	0.028	25.36
	11/8～12/5	0.019	40.89
装置D	6/6～8/21	0.010	12.92
	8/21～10/5	0.015	2.62
	10/5～11/8	0.009	10.70
	11/8～12/5	0.010	36.11

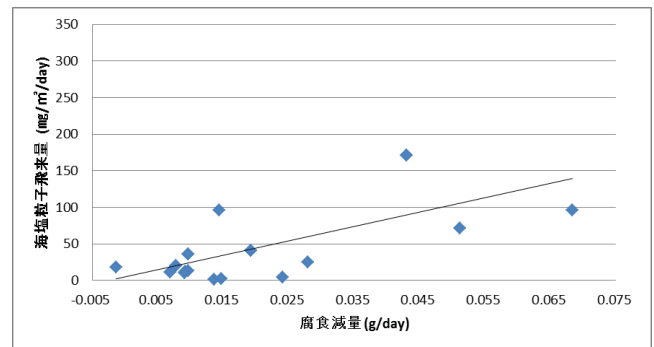


図.1 4 腐食標準試験片とドライガーゼ法との比較結果

5-3 海塩粒子径評価

アルミニウム試験片に付着した海塩粒子について、設置個所である海岸線から約 5m、約 100 m 及び約 130m の地点での観察結果を図.1 5 に示した。

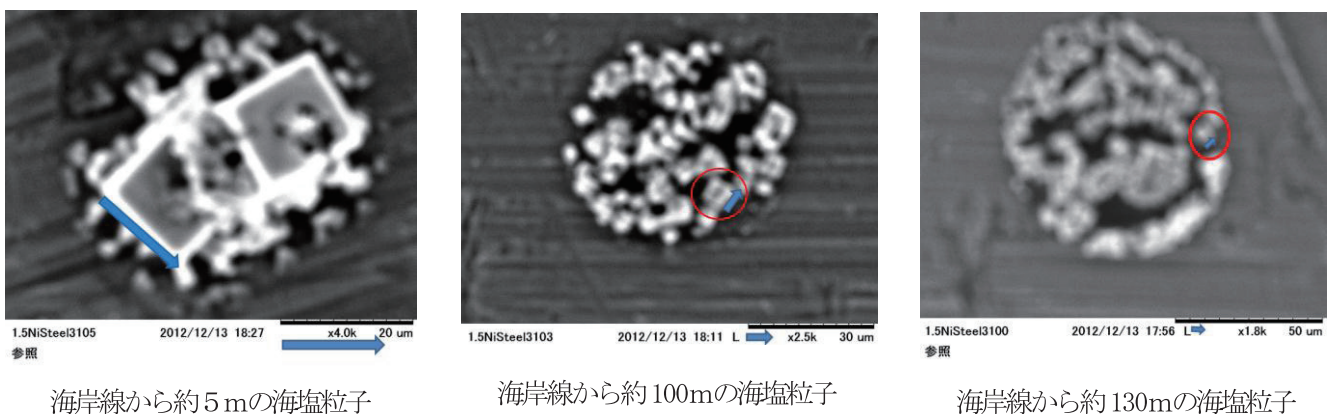


図.1 5 海岸からの距離による飛来海塩粒子径比較

図 1 5 から明らかなように、約 5 m 地点での飛来海塩粒子径は最大で 16 μ m であり、約 100m 地点及び 130m 地点での粒子径は、最大 6 μ m、最大 5 μ m であった。

6. 考察

6-1 フィルター再生試験

図.9 に示したように、実験に使用した再生可能フィルターと使い捨てフィルターの間には、海塩粒子捕捉量の明らかな変化は見られず、使用した再生可能フィルターは、自然雨によって、再生しないという結果が得られた。使い捨てフィルター（従来型フィルター）は、粘着性のある繊維を編み込んで制作したものであるが、再生可能フィルターは、表面が滑らかな繊維を使用し付着した海塩粒子の脱落が容易になることを期待していた。

暴露試験装置には、風に乗って砂が飛来しているが、フィルターは、風雨によって洗浄され、フィルターに付着した砂は、脱落していると考ええる。

6-2 ドライガーゼ法代替実験

6-2-1 JIS ドライガーゼ法

比較評価のためのベースとなる方法として、JIS Z 2382「大気環境の腐食性を評価するための環境汚染因子の測定」で定められている JIS ドライガーゼ法を使用した。2 枚重ねにしたガーゼを開口部 100×100mm の枠に固定するが、これをドライガーゼプレートと称し、風雨が直接当たらない場所に設置する。自然風によって飛来した海塩粒子がドライガーゼに付着する。ドライガーゼプレートはポリエチレン袋に回収し、保管する。これを、水に浸出させた後、浸出水中のイオンをイオンクロマトグラフィーを用いて定量し、飛来した海塩粒子量とする。

6-2-2 非腐食試験片による海塩粒子定量法

いずれの場合も強い相関結果が得られた。その結果を図. 16, 17, 18 及び 19 に示す。但し、表. 5 及び図. 19 に示すように、自然再生無しの 400 番で仕上げたステンレス板では、相関係数が 0.48 と、他に比べて低い値となった。ズレは 1 点のみであるため、特異点ではないかと考える。その他いずれの場合にも、強い相関が得られたことから、換算係数を算出することで非腐食試験片で、海塩粒子飛来量を推定可能と考える。

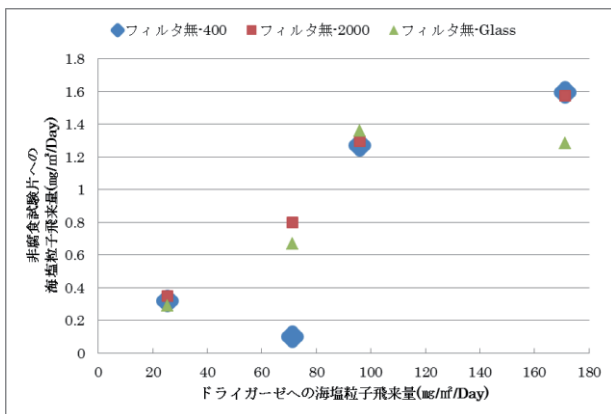


図. 16 装置Aでの非腐食試験片とドライガーゼの相関

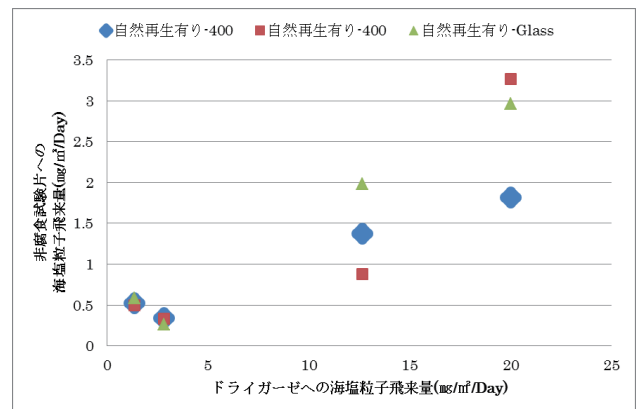


図. 17 装置Bでの非腐食試験片とドライガーゼの相関

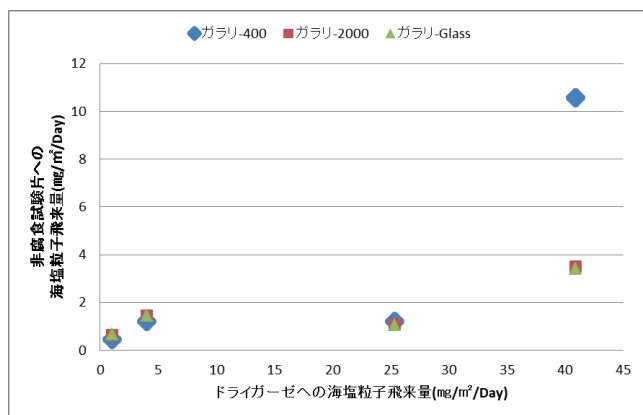


図. 18 装置Cでの非腐食試験片とドライガーゼの相関

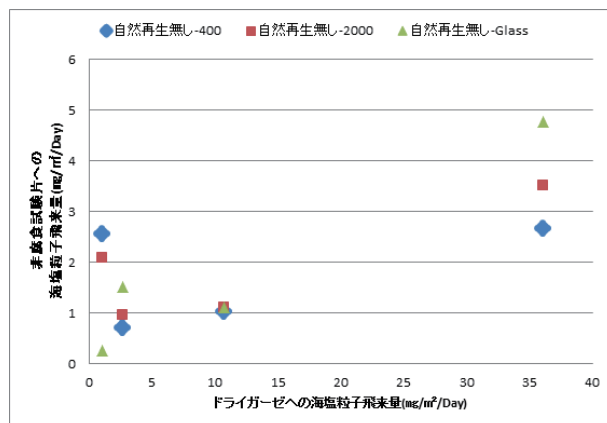


図. 19 装置Dでの非腐食試験片とドライガーゼの相関

7-2-2 腐食標準試験片による海塩粒子定量法

図. 20 に、腐食減量と海塩粒子飛来量の相関を示す。相関係数が 0.71 とある程度の相関がある結果が得られた。金属の腐食は材料の状態、気象因子、環境汚染因子などによって変化するため、ドライガーゼ法及びステンレス鋼及びガラスなどに比べて、海塩粒子以外の環境因子に依存する点が多いのでバラつきが生じたと考えている。

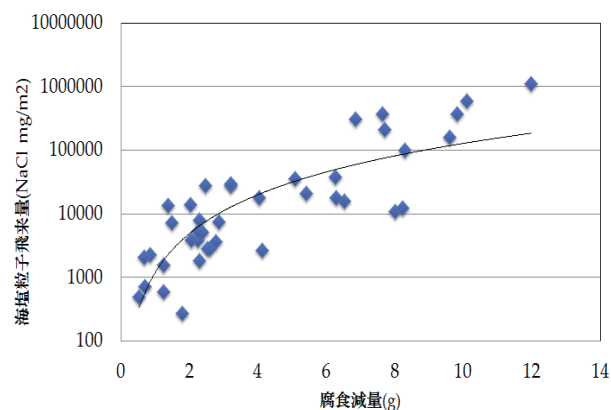


図. 20 腐食減量から海塩粒子飛来量推定

7-2-3 風速からの海塩粒子定量法

図. 21 に風速と海塩粒子飛来量との関連を示すが、相関係数 0.81 と、比較的高い相関となった。なお、横軸の通過風量とは、暴露試験場を吹く風の風速ではなく、フィルターを通過した後（フィルターがない場合は、通過前と同じ風速となる）、暴露試験装置内に流入した風の風速である。

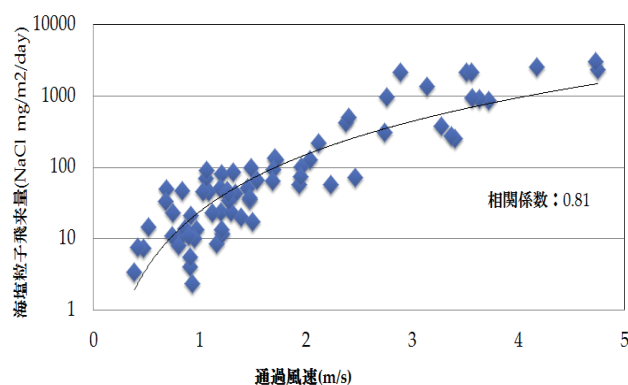


図. 21 フィルター通過後風速と海塩粒子飛来量

7-3 海塩粒子径評価

波と波がぶつかる、雨が海面をたたくなどして、微細なしぶきが空気中へ飛び出す。海塩粒子とは、このしぶきの水分が乾燥し、微小な塩分の固形物となったものである。風が強かったり波が高くなったりすると、よりたくさんしぶきが発生して多くの海塩粒子が発生する。発生した海塩粒子は風に乗って内陸へ飛来する。これが金属に付着すると、腐食が始まる。

海塩粒子は、波のしぶきから水分が乾燥して残った塩化物の固形状のものであるので、これが風に乗って内陸へ飛来する。海塩粒子の粒子径が大きければ大きいほど、多くの風を受けて遠くまで飛ぶと考えられるが、しかし、粒子径が大きくなると重量も増加するため遠くまでは飛ばない、結果的に小さく、軽いものが遠くまで飛ぶことになる⁴⁾。



図. 2.2 塩化ナトリウム結晶

ここで粒子径による重量の増加分を考える。海塩粒子は海水中に存在する塩化ナトリウムである。図. 2.2 に示すように、塩化ナトリウムは面心立方格子なので立方体である。1 辺を a cm とするならば、体積は a^3 となる。ここで、塩化ナトリウムの密度は 2.18g/cm^3 であるので、1 辺が a cm の塩化ナトリウムの重量は $2.18a^3$ となる。つまり重量は 1 辺の 3 乗に比例して増加する。たとえば、設置個所 1 の場合は 1 辺が $16\mu\text{m}$ なので、 $1.6 \times 10^{-3}\text{cm}$ である。重量は 8.8ng となる。次に設置個所 3 の場合は 1 辺が $5\mu\text{m}$ である。重量は 0.14ng となる。直径は、3.2 倍であるが、重量は約 63 倍違うことになる。

海塩粒子が、空気から受ける力は、面積 a^2 に比例する。風速が一定だとすると、直径 $16\mu\text{m}$ の海塩粒子が受ける力は、直径 $5\mu\text{m}$ の海塩粒子が受ける力の 10.24 倍となるが、質量が約 63 倍大きいので、遠くへ飛ばない。

8. 結言

フィルター（自然再生あり）は、フィルター（自然再生なし）との比較評価においては、明らかなフィルターの再生（海塩粒子捕集性能の回復）の結果を得ることが出来なかった。本実験で使用した再生可能フィルターは、今年度の試験条件下では、自然再生をしない事を確認した。

非腐食試験片による海塩粒子の測定値は、ドライガーゼ法と比較して、絶対値が大きく違っていたが、非常に強い相関があるといえる。換算係数を算出することで十分に定量可能ではある。また JIS 法のドライガーゼ法に比べ、準備時間の短縮が出来る。

腐食標準試験片では、海塩粒子量が増えるにつれて腐食減量も大きくなることが確認できた。腐食は材料の状態、気候・環境因子の影響を受けるため、ドライガーゼ法よりもバラつきが多く生じる結果となった。しかし、腐食標準試験片を用いて、海塩粒子飛来量が定量可能であると考ええる。この方法は JIS 法のドライガーゼ法に比べ、試験片回収後の分析作業が大幅に短縮できた。

非腐食試験片に海塩粒子を付着させ、海塩粒子を観察した結果、海塩粒子粒塊の径は約 $30 \sim 50\mu\text{m}$ だった。しかし個別の粒に着目すると $5 \sim 16\mu\text{m}$ となっていた。海塩粒子の飛来距離は、粒径に依存⁴⁾するが、日本海沿岸の海岸線からの距離と、飛来海塩粒子粒径の相関を把握した。

9. 今後の計画

本研究は、日本海沿岸に立地が予定されている使用済原子燃料中間貯蔵施設への設計データの提供を目的として実施してきている。本研究により次の事が判明している。

- 1) 使用済原子燃料中間貯蔵施設の冷却には、自然冷却が予定されているが、冷却に必要な風量を確保するため、開口部の大きさ、位置（方向）などを検討する必要がある。この場合、立地予定地の、風量、海塩粒子飛来量等の方向依存性が重要な因子となる。
- 2) 開口部に設けるフィルターについては、風量透過率、海塩粒子補足率などを考慮すると、メカニカルフィルター（ガラリ）が最適である。
- 3) 立地予定地域の海塩粒子飛来量を測定するために、本研究で開発した、ステンレス鋼への付着法、ガラスへの付着法及び腐食減量法が有効である。また、風速法については、施設に使用するフィルターの特性（圧力損失、風量透過率の風速依存性）を把握すれば、簡易的に測定可能である。

これらの結果を基に、次年度以降、次の開発を行う予定である。

- 1) 図. 23に示す、今年度基礎試験を行った腐食電流型腐食センサーを用いた、海塩粒子飛来量の測定法の確認試験
- 2) 吸い込み型海塩粒子捕捉法を用いた海塩粒子飛来量の測定法の開発
- 3) 施設使用予定フィルター（メカニカルフィルターを含む）の圧力損失、風量透過率などの精密測定

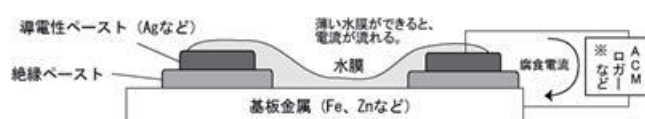


図. 23 腐食電流型腐食センサー

参考文献

- 1) 谷純一、竹田浩文、黛正己、「使用済燃料コンクリート貯蔵用キャニスタ-候補材の塩化物応力腐食割れの特性（その5）-SCC評価および塩分流入低減技術の考案-」、電力中央研究所報告Q06014(2007)
- 2) 竹田浩文、谷純一、「キャニスタ系使用済燃料貯蔵施設における SCC 対策に関する研究（その1）、-塩分流入対策技術および SCC 評価-」電力中央研究所報告 N07030(2008)
- 3) 津田孝雄、廣川健編著、機器分析化学、朝倉書店(2004)
- 4) 野中善政、「海岸における海塩粒子サイズ分布の観測について」、地域産業とエコサイエンス 環境の世紀 - 循環型社会をめざして - 研究成果報告書(2003)

(平成 25 年 3 月 31 日受理)