

論 文

ラジオアイソトープによる高炉炉壁の侵蝕調査(I)*

富永在寛**・八塚健夫***・庄野四朗****

Measurement of the Wear of a Blast Furnace Brick Work with the Radioactive Isotope (I).

Arihiro Tominaga, Takeo Yatsuzuka and Shiro Shono

Synopsis:

To measure the wearing state of a blast-furnace brick-work during its operation, a test method using a radioactive isotope (Co^{60}) was investigated. In this report, some basic investigations which include the measurement of absorption coefficients of the blast furnace construction materials, determination of the burying amounts of Co^{60} , and experiments with a brick-work model are described.

I. 緒 言

高炉炉壁の煉瓦積はその操業中、内部の高い熱と装入物による磨耗、種々の化学反応などにより徐々に侵蝕され、結局この侵蝕の進行が高炉の寿命を決定する大きな因子になっている。最近ではこの侵蝕を防止するためカーボン煉瓦の使用、冷却函の増加などを行ない効果をあげているが、さらに進んで高炉操業中にその侵蝕状況を知ることができれば、侵蝕防止の対策をたてることもでき、また新しく高炉を建てる際の参考になつて高炉の炉命延長に役立つところが大きいと思われる。

これまで高炉操業中に炉壁煉瓦積の侵蝕状況を調査するためには、炉壁の温度上昇から推定する方法と煉瓦積に孔をあけ実測をする方法の2法が採用されていた。しかしながら前者は非常に大雑把な結果しか得ることができず、また後者は炉壁を弱めるため、あまり多くの個所で実施することはできない。

近年、原子力の平和利用が盛んになるとともに、高炉炉壁の侵蝕状況をラジオアイソトープを利用して非破壊的に調査することが考え出され、1951年 E.W. Voice によりこの方法に関する基礎実験が報告された¹⁾。その後各国においてこの種の実験が行なわれ、R. Mintrop and E. Roemer²⁾、A. M. Samarin³⁾、J. Holzhey⁴⁾ などにより報告されている。

当所においても第1高炉(旧第10高炉)改修に際し、炉壁煉瓦積にラジオアイソトープを埋込み、操業中に煉瓦の侵蝕状況を調査することを計画し、高炉構築材料の

吸収係数の決定、アイソトープ埋込量および埋込方法の検討、その他2, 3の基礎実験を行なつたのでその結果につき報告する。

II. 測定原理

高炉炉壁煉瓦にラジオアイソトープを埋込み、その侵蝕状況を測定するにはつぎの2方法がある。

(1) 銑鉄または鉍滓中の放射能を検出する方法: これは侵蝕により煉瓦積から脱落したラジオアイソトープが銑鉄または鉍滓中に混つて炉外に排出される時期を、これらの試料の放射能を検出することにより知るものであるが、この方法についてはすでに当所で行なっている高炉装入物降下時間の測定実験から少量のアイソトープでも測定可能であることが明かである⁵⁾。しかしながら、この方法では炉壁に多数埋めた場合どの位置のアイソトープが脱落したかを知ることができない。これを知るには脱落時期が明かに異なる位置に埋込むか、またはエネルギーの違うものを埋込み銑鉄または鉍滓中に現われた放射能のエネルギー分析からそのアイソトープの種類すなわち埋込位置を知ることが必要である。しかし実際はこのように多種類のアイソトープを使用することは困難である。この方法の長所は使用するアイソトープの量が少なくてすむことである。

* 昭和34年4月本会講演大会において発表

** 別府化学工業株式会社, 工博

*** 富士製鉄株式会社釜石製鉄所, 製鉄部

**** " 研究所

(2) 埋込んだアイソトープの放射能を炉壁外から検出する方法: これは煉瓦積中に、その放射線が十分炉壁外に達するだけ強い放射能を持ったラジオアイソトープを埋込み、その放射線を炉壁外で測定し、放射能の消滅によつてその位置まで侵蝕が進行したことを知る方法である。これは各埋込位置で測定するため、アイソトープ相互の影響のない範囲なら多数埋込むことができるので、侵蝕状況を詳細に調査することができる。上述の Voice, Mintrop, Samarin または Holzhey の報告はいずれもこの方法を採用している。しかしこの方法の欠点は放射線が炉壁材料により吸収されるため、埋込みアイソトープの放射能を相当強くしなければならぬことで、例えば Voice は1個約 10mc, Mintrop は最大 150 mc, Holzhey は最大 350 mc の Co^{60} を埋込んでいる。さらにこの方法ではアイソトープを埋込んだ煉瓦が膨脹その他により変形し埋込位置と鉄皮との距離が変化すると炉壁外の放射線の強さが変化するため検出不能になることがあり、実際 E. W. Voice はその例を報告している。

これらの2方法のいずれを採用するかは実験の条件により異なるが、本研究では(2)の方法を主体とし(1)の方法を補助的に用いることとした。

III. 放射線源の選択

このような実験目的に使用するラジオアイソトープはつぎの各条件を満足するものが望ましい。

- (1) 透過能力の強い放射線を放出するもの。
- (2) 半減期の長いもの、すなわち 6~7 年にわたり測定できるもの。
- (3) 煉瓦積内で溶融および蒸発しないもの。
- (4) 高炉内雰囲気中で化学反応を起さないもの。
- (5) 銑鉄または鉍滓によく溶解するもの、なるべく銑鉄のみに溶解するもの。
- (6) 価格の安いもの。

これまで行なわれたこの種の実験はすべて Co^{60} を使用しているが、これは Co^{60} が上記の条件にもつともよく適合するためである。すなわち Co^{60} は 1.17 および 1.33 Mev のガンマー線を放射し、半減期 5.3 年、融点 1,492°C である。Co の蒸発については T. E. Dancy が実験を行なった結果、その蒸気圧は非常に低く、数年の間は顕著な量の蒸発は認められないと報告している。さらに Co は銑鉄中に容易に溶解し、鉍滓中には全く入らない。しかも Co の放射断面積は大きく原子炉中で熱中性子により容易に Co^{60} を造ることができる

ため価格も安く 1 mc 約 1,500~2,000 円である。

これらの理由から本研究においても Co^{60} を使用したが、上記のような利点を持つ半面、放射線障害を起すおそれも大きいため、その使用量はできるだけ少なくすることが必要である。

IV. 各種物質の吸収係数の測定

すでに述べたように炉壁に埋込んだ Co^{60} の放射線を炉壁外で測定するためには埋込試料と炉壁外にある検出器の間にある煉瓦、スタンプ材および鉄皮による放射線の吸収に打勝つ放射能を持つものを埋めなければならない。したがって Co^{60} の埋込量を定めるためには、これらの高炉構築材料による放射線の吸収率をあらかじめ知ることが必要である。これについては上述の Voice その他の研究者が測定した結果を報告しているが、これは使用物質によつて特有のものであるから、当所で使用する材料について測定することが必要であると考え、数種の高炉使用材料について吸収係数の測定を行なった。

ガンマー線が物質により吸収される場合その減衰の割合は次式で表わされる。

$$I = I_0 e^{-\mu t} \dots\dots\dots (1)$$

式中 I_0 は初めのガンマー線の強さ、 I は厚み t の物質を透過した後の強さで、 μ はその物質特有の吸収係数である。物質の厚み t を cm で表わせば μ は線吸収係数であり、 g/cm^2 で表わせば質量吸収係数となる。

(1) 式から $\log I$ と t とは直線関係にあることがわかり、その直線の勾配から μ を求めることができる。

測定は Fig. 1 に示すように Co^{60} 線源と検出器の間の距離を一定としておき、その間に測定物質の層をおき層の厚みを変えて透過線量を計数した。

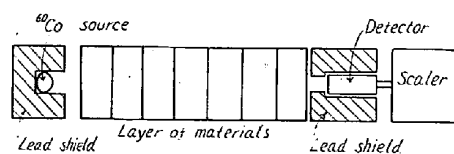


Fig. 1. Schema of absorption test.

検出器は初め神戸工業製 PC-8 型 GM 計数管 (GM 131) を、後に同 PS-1 型シンチレーション計数管 (NaI 結晶, 1" ϕ $\times$ 1") を使用し、計数器は神戸工業製 SA-5 A 型 100 進法計数装置を使用した。測定結果を Fig. 2 に示し、これらの結果から各物質の吸収係数を求めた結果を Table 1 に示す。比較のためこれまでに報告されている線吸収係数を Table 2 に示した。

われわれの測定値をこれらの値と比較すると、高炉煉瓦は Voice による値を除き大体一致しており、これは

Table 1. Absorption coefficients of B.F. materials by authors.

Materials	B.F. brick	Carbon brick	Steel plate	Sinter ore	Coke breeze
Linear absorption coeff. (cm ⁻¹)	0.104	0.073	0.35	0.075	0.025
Mass absorption coeff. (cm ² /g)	0.047	0.044	0.045	0.045	0.050

Table 2. Linear absorption coeff. (cm⁻¹) by others.

Materials	B.F. brick	Carbon brick	Steel plate	Sinter ore	CoKe
By E. W. Voice ¹⁾	0.060	0.060	0.35	0.053	0.014~18
" R. Mintrop <i>et alii</i> ²⁾	0.097	0.057	0.34	—	—
" J. Holzhey ⁴⁾	0.092	0.051	0.41	—	—

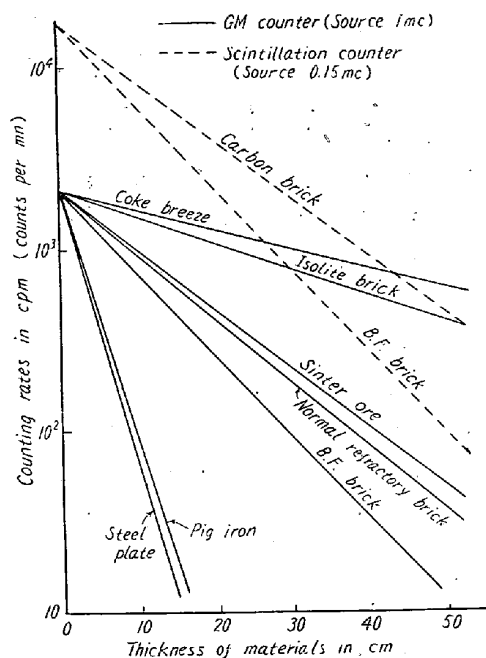


Fig. 2. Results of absorption test.

Voice の値が明らかに低すぎると考えられる。カーボン煉瓦はそれぞれ多少の違いはあるが、これは焼結鉄、コークスと同様に品質の違いによるものと思われる。鋼板についてはいずれも良く一致している。

なお、高炉シャフト煉瓦をシンチレーション計数管で測定すると煉瓦自身がかなりの放射線を出していることがわかった。すなわち計数管の前に煉瓦 (228×151×768 mm 5.7 kg) を順次重ねて行くと Table 3 のような計数が得られた。

Table 3. Radioactivities of B.F. bricks.

No. of brick	0	1	2	3	4	5	6
Activity (cpm)	213	472	554	550	578	581	575

これはおそらく煉瓦中に含まれている K⁴⁰ (半減期 1.3 × 10⁹ 年, β, γ 放出) によるものと思われるが、実際の高炉では鉄皮の外側で測定すればこの影響は少ないものと考えられる。しかしながら高炉が古くなるとシャフト下部に KCN が沈積してくるため影響が大きくなるおそれがあり、これを防ぐには測定個所と同じレベルで同じ条件で自然計数測ることが必要であろう。

V. Co⁶⁰ 埋込量の検討

Voice および Mintrop の行なつた実験では煉瓦積の 1 個所に 1 個のアイソトープを埋込んだが¹⁾²⁾, Samarin および Holzhey は 1 個所に中心線に沿って深さを変えて 2 個または 3 個の試料を埋込んでいる³⁾⁴⁾。このようにすると、外壁で検出される放射能の強さは各々のアイソトープ単独の場合の和として示されるため放射能の減少から炉壁侵蝕の度合を半連続的に測定することができる。

炉壁に埋込むアイソトープの量は検出精度の点からはなるべく放射能の強いもの程よいが、すでに述べたように Co⁶⁰ は放射線障害を起しやすいため、検出可能な限度でできる限り少量にすることが望ましい。そこで前に求めた吸収係数を用いてその最低必要放射エネルギーを計算した。放射線源の単位時間当りの崩壊数は統計的に変動するため、計数器による計数率も当然変動する。全計数を N とすればその標準偏差は $\pm\sqrt{N}$ である。そこで今 i 個の放射線源による計数と $(i+1)$ 個による計数との間にどれだけの差があつたら $(i+1)$ 番目の線源による計数の存在を確認することができるかについて検討してみる。

自然計数を x , i 番目までの放射線源による計数の和を y_i , $(i+1)$ 番目のもののみによる計数を Δy_{i+1} とす

れば, $y_{i+1} = y_i + \Delta y_{i+1}$ (2)

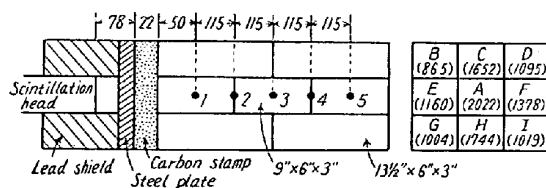
10分間測定した結果から 99% の水準で y_{i+1} と y_i の間の有意差を認めるためには

$$\Delta y_{i+1} \geq \{(\sqrt{x+y_i} + \sqrt{x+y_i+\Delta y_{i+1}})/\sqrt{10}\} \times 3 \cdot 25 \dots\dots\dots (3)$$

これを解けば

$$\Delta y_{i+1} \geq 1 \cdot 02 \{2\sqrt{x+y_i} + 1 \cdot 02\} \dots\dots\dots (4)$$

昭和 33 年改修を行なった当所第 1 高炉 (旧第 10) の改修後のシャフト部煉瓦積は Fig. 3 に示すような構成であり, 図に示すような 5 個所に Co^{60} を埋めシンチレーション計数器で炉壁鉄皮の外から測定しようとする場合, 最も大きい計数の差を必要とするのは 1~4 の計数の和と 1~5 の計数の和との間である. 自然計数を 700 cpm とし, 1~4 の各試料がそれぞれ 100 cpm の計数を与えるとすれば (4) 式に $x=700$, $y_i=400$ を入れて $\Delta y_{i+1} \geq 68 \cdot 7$ すなわち, 5 の試料は 70 cpm 程度の計数があれば 99% の有意水準でその存在を確認できる. したがってここでは各試料とも 100 cpm の計数を与えるように計算を行なった.



(註) 図中上部数字のうち左から 78, 22, 50 は 100, 50, 115 の誤り
Fig. 3. Schema of brick-work of No.1 B.F. shaft.

崩壊数 N_0 の放射線源から距離 D にある計数管により得られる計数 I は次式により与えられる.

$$I = G \cdot K \cdot B \cdot N_0 \cdot e^{-\sum \mu_i d_i} / D^2 \dots\dots\dots (5)$$

式中 G はジオメトリー係数で計数管と線源の間の立体角により定められ, K は計数装置の計数効率, B は放射線の散乱に対する補正係数である. μ_i と d_i は線源と計数管の間にある種々の物質のそれぞれの吸収係数と厚みである. $G \times K \times B$ は既知の強さの線源を用いて実験的に求めることができる. この実験では $0 \cdot 15 \text{ mc}$ の線源を $72 \cdot 3 \text{ cm}$ の距離で測定して $1 \cdot 5 \times 10^4 \text{ cpm}$ を得た. また Fig. 3 から煉瓦の厚みを $d \text{ cm}$ とすれば $D = d + 15$ これらの値および前に求めた吸収係数からこの実験では (5) 式はつぎのように書き直すことができる.

$$I = N_0 \times (14 \cdot 1) \times e^{-(0 \cdot 97 + 0 \cdot 09d)} / (d + 15)^2 \dots\dots\dots (6)$$

したがって $I = 100 \text{ cpm}$ を与える線源の強さは

$$N_0 = (d + 15)^2 \cdot e^{(0 \cdot 97 + 0 \cdot 09d)} / (0 \cdot 141) \dots\dots\dots (7)$$

(7) 式から Fig. 3 の 1~5 の放射能を計算すると

Table 4 のようになる.

Table 4. Radioactivities of Co^{60} calculated.

Specimen No.	1	2	3	4	5
Distance from detector (cm)	26.5	38.0	49.5	61.0	72.5
Radioactivities of Co^{60} (μC)	1.00	6.35	27.7	89.5	367

表に見られるように非常に少量の Co^{60} でよい. しかし, 高炉炉命の終るまで検出可能であるためには 7 年後にこの量があることが必要であり, 半減期から計算すると, 埋込みの時にはこれらの値の約 2.5 倍量が必要である. この値は安全上からも十分低いので検出精度をあげるためさらにその倍, すなわち Table 4 の値の約 5 倍の放射能を持つ Co^{60} 試料を埋込むこととした.

VI. 模 型 実 験

新第 1 高炉建設に使用する煉瓦, カーボンスランプ材および鉄皮を用いて, Fig. 3 に示すようなシャフト煉瓦積の模型を作り, これを用いて 2, 3 の基礎実験を行なった.

(1) 上記の計算に基づいて, Table 4 の値の約 5 倍の放射能を持つ Co^{60} 試料を作り, 炉壁模型の所定の位置に入れ, その放射能を測定した.

試料は 1 mc の Co^{60} wire を少量の銑鉄に溶解し, これから錐で銑鉄粉を作り, その $0 \cdot 5 \sim 1 \text{ g}$ を内径約 2 mm の石英管で再溶解して得た長さ約 10 mm の銑鉄試料を使用した. この試料の放射能が所要の値になるように初めの銑鉄量を加減した.

この試料をそのまま煉瓦に埋込むと化学作用を受けるおそれがあり容器に入れなければならないが, この容器としてこれまでシリカ, アルミナリ, または特殊鋼²⁾のカプセルが使用されている. しかし化学作用および熱に対する抵抗から考えれば熔融アルミナが最もすぐれているのでわれわれも Voice と同じく熔融アルミナの開封カプセルを使用した. すなわち上記のようにして作った Co^{60} 含有銑鉄試料を内径 4 mm , 長さ 15 mm の熔融アルミナ管に入れたものを埋込んだ.

しかし高炉に埋込む場合 Fig. 3 のように 5 個の試料を埋込むと 1 個所で煉瓦 2~3 個に埋込むこととなり, 埋込作業上困難となるので, 中央の 9 in. 煉瓦のみに埋込むこととし, Fig. 3 の No. 2, 3 および 4 の 3 個の試料のみを作り基礎実験を行なった. これらの放射能はそれぞれ $0 \cdot 038$, $0 \cdot 117$ および $0 \cdot 400 \text{ mC}$ である. こ

れらを炉壁模型に入れて測定した結果を Table 5 に示す。

Table 5. Counts of specimens burried in the model brick-work.

Specimen	Total counts (cpm)	Difference
2 + 3 + 4	2,022±45	—
2 + 3	1,572±40	450
2	1,012±32	560
None	90±9.5	922

表から No. 3 および 4 の試料はいずれも計算値に近い計数を与えたが No. 2 はやや高い値を示しており、これは試料の埋込位置が予定位置と変つたこと、2 次放射線の影響などがあるものと考えられる。しかしこの程度の試料強度で十分差が認められることがわかつた。

(2) つぎに計数管の位置の変化による計数変化につき実験を行なつた。前と同じく試料を入れ、その中心線上の点 A を中心として Fig. 3 の右図に示すように上下左右に煉瓦 1 枚ずつずらした点 B～I の 8 点で計数をした。結果は同じく Fig. 3 に記入してある通りである。

(数字は cpm で示す)

これから計数管の位置がずれると計数値が大きく低下し、試料の脱落と誤信するおそれがあり、計数位置を常に一定にする必要があることがわかる。逆に煉瓦の膨脹その他により試料の位置がずれた場合も同様な結果になる。したがつて炉壁侵蝕による試料の脱落の確認は、炉壁外からの計数とともに銑鉄中に現われる放射能の検出により行なうことが必要であろう。しかし、新第 1 高炉はシャフト上部まで多数の冷却函が挿入されているため煉瓦の膨脹はきわめて少ないものと考えられる。

(3) さらに隣接した埋込試料より受ける計数値の影響を求めるため、前記の 3 試料をまとめ (計 0.555mc) これとカーボンプの間の煉瓦厚みを変え、鉄皮の外で計数した結果、自然計数約 110 ± 10.5 cpm に対し距離 1 m で 114 ± 10.7 cpm となり統計誤差内であるから 1 m 以上離して埋込めば隣接試料により計数値が影

響されないことが明らかとなつた。

(4) 終りに煉瓦積み作業の際、炉内で受ける放射能について測定を行なつた。これは Fig. 3 の内壁側の試料埋込線上で煉瓦面と計数管との距離を変えて計数したものでその結果を Table 6 に示す。

Table 6. Activities on the inside of brick-work.

Distance from brick (m)	0	0.5	1
Counting rate (cpm)	101,950	13,450	5,031

すなわち煉瓦面に密接した場合はかなり高い計数を示すが、これは標準試料と比較の結果 0.2 mr/h 程度であり、300mr/week の最大許容量と比較してきわめて少なく、1 個所のみでは障害について問題ないと考えられる。同一レベルに多数埋込むときは問題となるが、不必要に埋込煉瓦に接近しなければこの程度の埋込量ならば安全であろう。

VII. 結 言

以上行なつた種々の基礎実験結果から、これまで行なわれていた実験に比べかなり少量の Co^{60} でも高炉炉壁侵蝕の測定が可能であることがわかつたので、昭和 33 年 8 月改修に入つた当所第 1 高炉の炉壁煉瓦積 11 個所に Co^{60} を含む試料を埋込んだ。この詳細については第 2 報において報告する予定である。(昭和 34 年 8 月寄稿)

文 献

- 1) E. W. Voice: J. Iron Steel Inst., 167 (1951) Feb, 157~61, Steel, 129 (1951), 11, p. 102~7
- 2) R. Mintrop und E. Roemer: Tech. Mitt. Rheinhausen H. W., Dec. (1955), No. 4, p. 218~24
- 3) A. M. Samarin: Report on International Conference on the Peaceful Use of Atomic Energy, 1955, July
- 4) J. Holzhey: Neue Hütte, 2 (1957), Nov., p. 665~70
- 5) 富永, 八塚, 庄野, 沢村: 鉄と鋼, 43 (1957), 9 p. 73~4, 45 (1959), 7, p. 689~94