

再処理機器異材接合継手の放射線分解水素吸収挙動の検討

Radiolytic Hydrogen Absorption Behavior of Dissimilar Metal Joint
for Nuclear Reprocessing Plant

石島 暖大¹⁾

上野 文義¹⁾

Yasuhiro ISHIJIMAI

Fumiyoshi UENO

¹⁾ (国研) 日本原子力研究開発機構

(概要)

核燃料再処理施設で使用されているジルコニウム/タンタル/ステンレス鋼異材接合継ぎ手の放射線分解水素が発生する硝酸溶液中での水素吸収挙動を明らかにするため、異材接合材に対して硝酸浸漬環境下でのガンマ線照射試験を実施し、水素吸収量および水素分布を評価した。その結果、放射線分解水素は異材接合継ぎ手を構成する材料の内、ジルコニウムに吸収されることが明らかとなった。また、硝酸環境中における γ 線照射下の引張試験で異材接合材は明確な水素ぜい化を示さなかった。

キーワード：核燃料再処理、ジルコニウム、タンタル、放射線分解水素、水素ぜい化

1. 目的

常圧で高濃度の沸騰硝酸溶液を取り扱う核燃料再処理機器では、このような環境で耐食性に優れるジルコニウムおよびステンレス鋼が構造材料として採用されている。また、ジルコニウム製機器とステンレス鋼製機器との接続は、ジルコニウム、タンタル、ステンレスで構成される異材接合継手が採用されている。

一方、ジルコニウム及びタンタルは水素を吸収し易い金属として知られており(1, 2)、放射線分解により発生した水素が金属中に吸収され水素ぜい化を引き起こす環境割れ発生が懸念されるため、ジルコニウム/タンタル/ステンレス鋼異材接合材における水素吸収挙動を検討することは重要であると考えられる。

しかしながら、異材接合継手の水素吸収特性評価は電気化学的手法を用いた水素吸収手法が用いられており、実機環境に則した、放射線分解水素による水素吸収及びその挙動評価は行われていないのが現状である。そこで本研究では、異材接合継手における放射線分解水素の吸収及び脆化挙動を明らかにするため、異材接合継手に対してガンマ線照射施設を利用しガンマ線環境下における硝酸中浸漬水素吸収試験および定荷重引張試験を実施した。

2. 実施方法

供試材として、再処理施設で用いられているものと同等のジルコニウム/タンタル/ステンレス異材接合継手を用いた。硝酸中水素吸収試験片の形状は10x10x1mmの平板とした。また引張試験片は、ゲージ部寸法が ϕ 8mmのダンベル型とした。

試験片は表面を#1200までエメリー紙で研磨し、研磨後エタノール超音波洗浄により脱脂後試験に供した。

γ 線源は、高崎量子応用研究所内コバルト照射棟のNo.2セルに設置されているCo-60線源を用いた。水素吸収試験における照射線量率は7 kGy/hとし、照射時間は1000時間とした。硝酸濃度は1 mol/Lとし、溶液温度は室温とした。また、比較として純水中でも水素吸収試験を実施した。

定荷重引張試験における照射線量率は3kGy/hとし、照射時間は1000時間とした。硝酸濃度は1 mol/L、溶液温度は室温、試験応力を200MPaとした。

水素吸収量試験後の吸収量は、昇温脱離ガス分光(TDS)法により水素放出曲線を室温~800°Cまでの温度で取得し、水素放出曲線の面積として測定した。TDSでの昇温速度は10°C/minで実施した。水素放出挙動の比較として、0.9%NaCl水溶液中において10mA/cm²にて1hrの電気化学的水素チャージを実施した異材接合材も、照射材と同様のTDS法による水素放出曲線を取得した。

水素吸収試験後の水素分布の評価は二次イオン質量分析イメージング法(2D-SIMS)を用いて実

施した。分析視野はジルコニウム/タンタル界面を中心とした $250 \times 250 \mu\text{m}$ の領域を選択した。SIMS における測定元素は、ジルコニウム、タンタル、および水素とした。

3. 結果及び考察、今後の展開等

図1に、TDS測定により得られた、 γ 線照射下における水素吸収試験後の異材接合材からの水素放出曲線を示す。水素放出曲線のピーク温度より、放射線分解水素は異材接合材に吸収されるとともに、その大部分は 400°C 以上で放出されることから、水素化物として存在していることが示唆される。

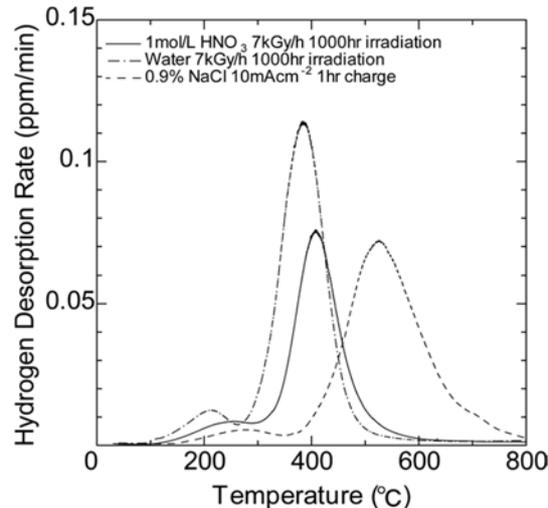
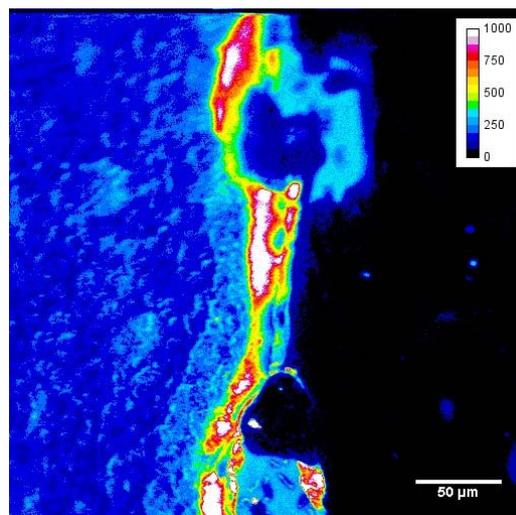
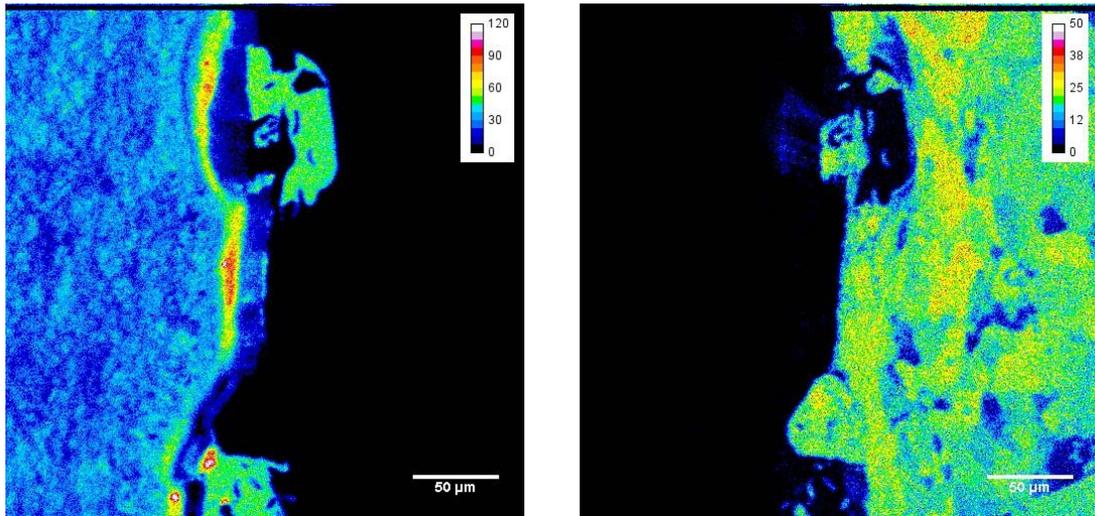


図1 水素吸収試験後の試料における TDS 測定で得られた水素放出曲線

図2(a)から(c)に、2D-SIMS測定により得られた元素分布を示す。この測定結果より、水素吸収試験後の異材接合材では、ジルコニウム/タンタル界面のジルコニウム側において水素が特に多く存在していることが示された。また、界面より離れたジルコニウムにおいても水素が存在していることが明らかとなった。一方、タンタル側では水素の存在は示されなかった。これは、放射線分解水素がジルコニウムに選択的に吸収する事を示唆していると考えられる。この原因として、E.Frommらにより報告(3)されている、酸化皮膜生成による水素吸着確率の低下により説明できると考えられる。すなわち、硝酸溶液の浸漬によりタンタル表面に Ta_2O_5 酸化皮膜が生成されることで、 γ 線照射により発生する放射線分解水素原子がタンタル表面での吸着および内部への吸収が抑制されたためであると考えられる。

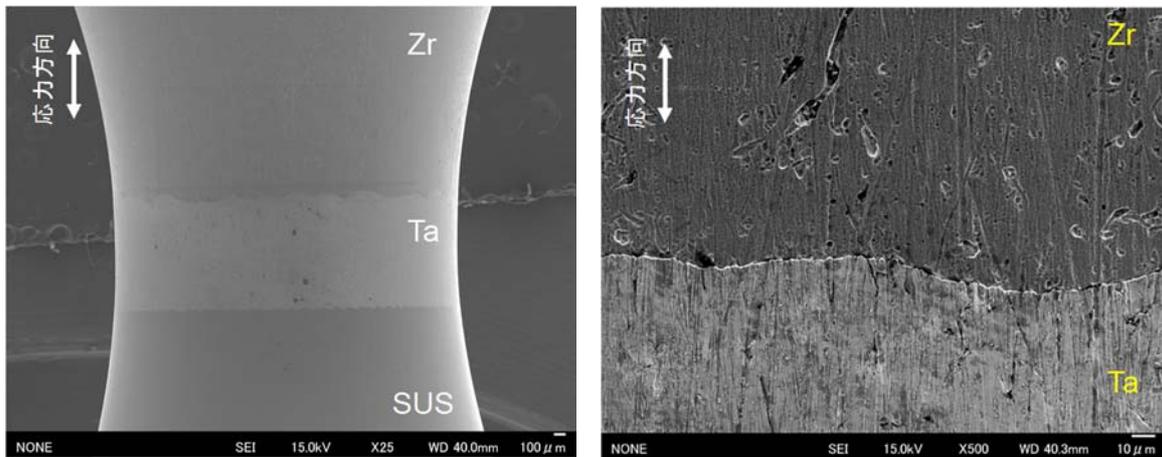


(a) 水素分布



(b) ジルコニウム分布 (c) タンタル分布
 図2 水素吸収試験後の試料における2D-SIMS測定で得られた元素分布

図3(a)および(b)に、 γ 線照射下における定荷重引張試験後の試験片の電子顕微鏡観察写真を示す。1000時間までの引張試験において異材接合材の破断および変形はみられず、またき裂の発生はみられなかった。これは、前述の水素放出試験および水素分布測定からはジルコニウムの水素吸収および水素化物の生成が示唆されたが、試験片ぜい化するほどの水素吸収が無かったためと考えられる。この原因として、ジルコニウム水素化物中での水素拡散速度が極めて小さく(4)、試験片表面に生成した水素化物が水素の内部への拡散を抑制する障壁として作用したと考えられる。



(a) 低倍率(25倍) (b) 高倍率(500倍)
 図3 異材接合材の γ 線照射下引張試験後の外観SEM写真

本試験では1000時間での水素吸収挙動を検討したが、ジルコニウム水素化物における放射線分解水素吸収とその拡散が異材接合材の水素吸収およびぜい化挙動を支配していることを示唆する結果が得られた。そのため、異材接合材の水素ぜい化挙動をより理解するためには、放射線分解水素吸収挙動の時間依存性および水素侵入挙動を解明する必要があると考えられる。そのため、今後の展開としてより長時間の水素吸収試験の実施、および γ 線照射下におけるジルコニウム表面の水素吸収反応を γ 線照射下での電気化学測定法を確立するなどして研究を進める計画である。

4. 引用(参照)文献等

- (1) C. E. COLEMAN et al., J. Less-Common Metals, II(1966)168-185.
- (2) W. A. SPITZIG et al., Material Science and Engineering, **91**(1987)97-104.
- (3) E. FROMM et al., Journal of the Less-Common Metals, **66**(1979)77 - 88.
- (4) E.F.Khodosov: Fizika Metallov i Metallovedenie, **29**(1970) 415-8.