

液体金属中腐食挙動における照射影響に関する研究

Influence of irradiation on the liquid metal corrosion behavior

大久保 成彰
Nariaki Okubo

友部 政勝
Masakatsu Tomobe

原子力機構

(概要) 本研究では、ADS の炉内機器の第一候補材である T91 鋼 (フェライト鋼) に対して、Fe イオン照射後、酸素濃度の異なる鉛ビスマス液体金属中にて浸漬試験を行い、液体金属中材料腐食に及ぼす照射の影響を評価した。

キーワード: 液体金属 腐食 酸化皮膜 照射 ADS

1. 目的

原子力発電所から出る使用済み核燃料を核変換し、長寿命放射性物質の減容及び有害度を低減するために研究開発が進められている加速器駆動システム (ADS) では、炉心部の冷却材と核破砕中性子源を兼ねる液体物質として、液体鉛ビスマス共晶金属 (LBE) を用いる。LBE 中では、溶存酸素濃度に依存して、材料腐食が大きく変化するため、LBE 中の鉄鋼材料の腐食挙動の把握は各炉内機器の設計には不可欠である。このように材料と LBE との共存性は、ADS を構成する高強度陽子加速器側の高真空と炉心部を隔てる安全上最も重要な機器の一つであるビーム窓の健全性 (寿命) を左右するため、ADS 実現に向けた重要な研究課題の一つである。LBE 中の材料腐食挙動に及ぼす酸素濃度の影響については最近調べられつつあるが、未照射の実験データが多く、中性子照射の腐食挙動への影響はその困難さからほとんど調べられていない。本研究では、イオンビームを用いた ADS 中性子の模擬照射により、LBE 中材料腐食挙動へ及ぼす照射の影響を調べることを目的とする。今回は、炉内機器の第一候補材である T91 鋼 (フェライト鋼) に関して、照射量、LBE 中酸素濃度をパラメータとし、Fe イオン照射した結果について報告する。

2. 実施方法

ADS ビーム窓候補材である T91 鋼に、MT チャンバーにてイオン照射を行った。照射温度は ADS の設計温度の中心温度である 450°C とし、タンデム加速器による 10.5 MeV-Fe イオンを用いて、中性子による弾き出し損傷を模擬し、照射損傷量は、試料表面にて 4 及び 8 dpa (displacement per atom: 弾き出し損傷量の指標単位) になるように照射を行った。試験片のサイズは、幅 5 mm × 長さ 20 mm × 厚さ 0.5 mm であり、試料の半面を Al フォイルでマスクすることにより、同一試料上にて、照射及び未照射部とした。図 1 に、(a) 照射ホルダー及び試料の写真、(b) 試料断面の模式図及び SRIM コードにより計算した照射損傷の深さ分布を示す。イオン照射後、溶存酸素濃度を、Ar+5%H₂ 混合ガス及び酸素ポンプによる LBE 中酸化還元反応の調整により、10⁻⁴ wt% 程度 (飽和酸素濃度)、10⁻⁶ wt% 程度 (中間酸素濃度) 及び 10⁻⁹ wt% 程度 (低酸素濃度) にそれぞれ一定に制御した LBE 浸漬槽を用いて、照射温度と同温度である 450°C の LBE 中にて、400 時間程度の

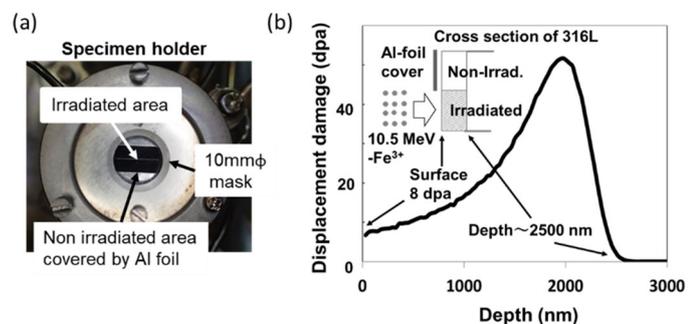


図 1 (a) 試料ホルダー写真及び (b) 照射損傷の深さ分布

浸漬試験を行った。浸漬試験後、樹脂埋め断面研磨の後、走査型電子顕微鏡 (SEM) により試料表面腐食層の断面組織観察を行い、また、EDS により、表面酸化皮膜断面の元素分析も実施した。一部

の試験片については、LBE を溶解除去し、X 線回折による酸化皮膜の同定を実施した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

高崎研にて Fe イオン照射後に、JAEA 東海にて、同温の LBE 中にて約 400 時間の浸漬試験を行った。その結果、T91 鋼においては、照射による酸化皮膜形成に未照射との違いは見られなかった。図 2 に、8 dpa 照射後に、飽和酸素濃度の LBE 中で浸漬した試料に対して、断面 SEM 観察及び EDS 線分析を行った結果を示す。未照射及び照射部とも同様の酸化皮膜形成挙動を示しており、XRD 解析と EDS 分析結果を比較した結果、外層は Fe_3O_4 であり、内層は $(Fe, Cr)_3O_4$ であることが分かった。LBE 中における鉄鋼材料の酸化皮膜形成挙動は、以下の機構でおおよそ生じることが知られている。外層と内層の間に浸漬前(元)

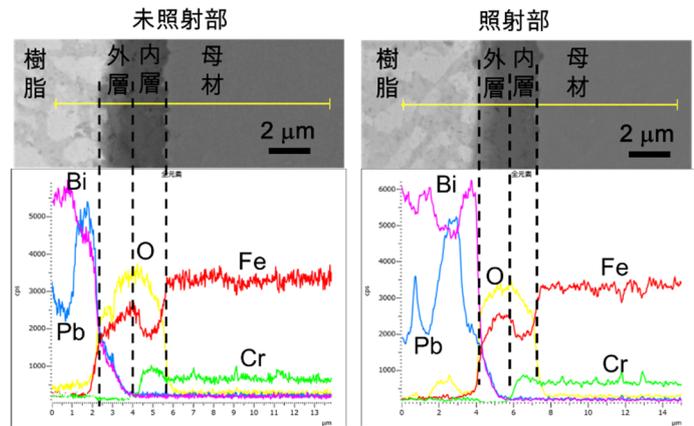


図 2 未照射及び照射領域の断面 SEM 像及び EDS スペクトル
 450°C, 8 dpa, 飽和酸素濃度

表 1 酸化皮膜の厚さ

照射量 (dpa)	低酸素濃度				中酸素濃度				飽和酸素濃度			
	未照射部		照射部		未照射部		照射部		未照射部		照射部	
	外層 (mm)	内層 (mm)	外層 (mm)	内層 (mm)	外層 (mm)	内層 (mm)	外層 (mm)	内層 (mm)	外層 (mm)	内層 (mm)	外層 (mm)	内層 (mm)
4	—	2.17 ± 0.21	—	2.31 ± 0.15	—	—	—	—	1.87 ± 0.28	1.61 ± 0.24	1.74 ± 0.12	1.68 ± 0.08
8	—	—	—	—	2.21 ± 0.14	1.82 ± 0.19	1.29 ± 0.26	1.61 ± 0.13	1.53 ± 0.11	1.22 ± 0.07	1.57 ± 0.06	1.52 ± 0.05

の試料表面が存在し、Fe の LBE 側への外方拡散により、LBE 中の O と反応し、Fe 酸化皮膜を順次 LBE 内に形成していく。一方、並行して材料内では、O の内方への拡散により、Fe と Cr の酸化物を形成していくことにより、結果として 2 層構造の酸化皮膜になる。今までのマシンタイムで照射量を変えた試料を複数用意し（照射損傷量を 4 及び 8 dpa とし）、照射後に低酸素濃度、中酸素濃度及び飽和酸素濃度の各 LBE 中に浸漬した後の、各試料の酸化皮膜厚さを表 1 にまとめた。低酸素濃度では、十分な酸化は生じず、その結果酸化皮膜は 2 層にはならず、Fe, Cr を含む酸化皮膜であった。つまり、低酸素濃度では、Fe の外方拡散による試料表面側への酸化皮膜形成は生じず、LBE 中にわずかに含まれる酸素の内方への拡散により酸化反応が生じていると推測できる。中酸素濃度と飽和酸素濃度を比較した場合、酸化皮膜厚さにおける酸素濃度の影響はほとんど見られなかった。また、未照射部と照射部を比較したところ、照射量の増大にも関わらず、照射後の酸化皮膜厚さに変化はほとんど見られず、外層及び内層の厚さにも照射による影響は見られなかった。今まで、T91 鋼への Fe イオンに He や H を同時に照射を行うと、空孔集合体が形成し、照射後の LBE 中腐食に影響を与える（酸化皮膜形成を促進する）ことが明らかになっている[1]が、今回の照射条件及び酸素濃度範囲では、空孔集合体は形成せず、腐食に大きな影響を及ぼすことがないことが明らかとなった。これは、ADS 炉内機器のうち、陽子線照射や核破砕中性子照射等材料中に核変換生成ガスを発生しない中性子のみが照射される環境にある材料では、腐食への照射影響を考慮する必要はなく、腐食速度（酸化速度）は未照射の腐食予測式[例えば 2]が適用可能と考えられる。今後、トリプル照射を中心に ADS 実機環境に近いデータを取得していく。さらに、照射下では過飽和に空孔が存在するため、照射下の動的な腐食挙動を調べるため、イオン侵入深さの大きいサイクロトロン照射を用いた LBE 中照射が必要である。

4. 引用(参照)文献等

- [1] Okubo, N.; Fujimura, Y. Irradiation Influence on Swelling and Corrosion Behavior of ADS Beam Window Materials, T91 Steels, in Lead Bismuth. Proceedings of the 14th International Workshop on Spallation Materials Technology, JPS Conference Proceedings, 2020, 28 10. 7566/JPSCP. 28. 071001
- [2] L. Martinnelli et al.: "Oxidation mechanism of a Fe-9Cr-1Mo steel by liquid Pb-Bi eutectic alloy (Part I)", Corros. Sci., 50, p.2523 (2008)