課題番号 <u>2021A-CO9</u> 利用区分 成果公開(学術)

# 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 成彰柴田 晃友部 政勝Nariaki OkuboShibata AkiraMasakatsu Tomobe

#### 原子力機構

(概要)本研究では、ADSの炉内機器の候補材の一つであるステンレス鋼に対して、Feイオン照射後に、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、液体金属中腐食による表面や 断面腐食形態に及ぼす照射の影響を評価した。

<u>キーワード</u>:液体金属 腐食 酸化皮膜 照射 ADS

## <u>1. 目的</u>

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、材料腐食挙動が変化するため、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。鉄鋼材料と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温度や酸素濃度の 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、中性子による原子のはじき出し損 傷を良く模擬でき、制御性の優れた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、炉内機器の候補材の一つであ る SS316L 鋼(ステンレス鋼)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 後に、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、液体金属中腐食による表面や 断面腐食形態に及ぼす照射の影響を評価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 316L 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℃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)試料断 面の模式図及びSRIMコ ードにより計算した照 射損照の深さ分布を示 す。イオン照射後、図1 (b)に低酸素濃度の場 合を示すが、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<sup>-4</sup> wt%程度(飽和



#### 課題番号 2021A-C09 <u>成果公開(</u>学術) 利用区分

酸素濃度)及び 10<sup>-9</sup> 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℃の LBE 中にて、400 時間程度の浸漬試験を行った。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、 SEM による表面形態の観察、EDS マッピング、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

試料表面にて8 dpa まで、450℃にて自己イオ ン(鉄イオン)を照射し、照射後に450℃、低酸素 濃度(図2(b)に示すように10-8~10-9 wt.%)に 調整した LBE 中に約 330 時間浸漬試験を行った結 果、マスクされた未照射部表面は酸化せず、一方、 照射部表面は鉄やクロムの酸化物で覆われてい た。図2は、照射済み316Lの低酸素濃度LBE 中腐 食試験後に LBE を除去した後の表面 SEM 像であ り、それぞれ、(a) 4dpa、(b) 8dpa の照射損傷量 である。図2(a),(b)ともに、照射-未照射部の 境界線が明確に区別できたことから、低酸素濃度 においても表面腐食形態に照射の影響があるこ とが示された。また、4 dpa 照射部では斑模様が 観察されたが、照射量が8 dpa まで増えると、均 一な表面形態に変化した。表面 EDS 分析により、 図2(a)の白い斑模様の内側は、鉄、クロム、酸素 が含まれ、図2(b)のように照射量が8 dpa まで増 えると、鉄、クロム、酸素に加えて、ニッケル、鉛、 ビスマスが複合して含まれていることが分かっ た。未照射部では、酸化に十分な酸素濃度がないた め、図2(a)にNiマッピング測定結果を示すが、 Ni の欠乏した局部腐食(ピッティング腐食)が観 察された。次に、同試料(4及び8 dpa 照射材)の 断面 SEM 観察結果を図3に示す。両試料ともに、図 2において未照射部のSEM像にコントラストの濃い 領域として観察された、Ni が欠乏したピッティン グ腐食の断面が確認され (AsB 検出器は組成の違い



### 図2 照射済み316Lの低濃度LBE 中腐食試験後表面 SEM 像 (a) 4dpa (b) 8dpa

上図は照射-未照射境界領域、下図は各領域の拡大像を示す。 (a) 下図左側に、Ni 元素マッピングを示すが、黒い斑点はNi 欠乏箇所であり、(a), (b)ともに未照射部分に観察される。

樹脂	樹脂
未照射部(4 dpa ) 2 μm	照射部(4 dpa) 2 μm
樹脂	樹脂
未照射部(8 dpa ) 2 μm	照射部(8 dpa) 2 μm

図3 照射済み316Lの低濃度LBE 中腐食試験後断面 SEM 像 (a), (b)は未照射部及び照射部であり、上図が4 dpa、下図が 8 dpa である。SEM 検出器は、(a):AsB(b):SE をそれぞれ用 いた。

に敏感)、ピッティングの各サイズは、幅約 100~300nm ø 、深さ約 100~150 nm であった。今回の 316L 鋼 に含まれる Ni や Cr 元素は、高温の LBE 中に 0.1~2%程度固溶することが知られており、低酸素濃度の LBE 中浸漬により、316L 表面にある不導体皮膜等の酸化皮膜が還元され、Ni が LBE 中に溶解したため、未照射 部には酸化物形成は見られず、局部腐食が生じたと考えられる。一方、照射部には、厚さ140 nm 程度の酸 化皮膜が形成していた。ここで酸化に用いられた酸素は、図2(b)の酸素濃度のグラフにある、最初の10% 程度の浸漬初期の酸素と考えられるが、照射部では効率的に少量の酸素と反応することにより酸化物が形 成したと考えられる。4 dpaの照射領域に形成された斑模様(酸化物)の面積は照射面積の約70%であり、 8 dpa では、ほぼ全面を占め、厚さ約 230mm 程度の酸化皮膜が形成したことから、照射損傷量が増えると、 酸化皮膜形成も増えると考えられる。以上のことから、316Lにおいて自己イオン照射による弾き出し損傷 付与後においては、LBE 中浸漬試験により、酸素濃度が低く、Ni の溶出が進むような浸漬条件にもかかわら ず、照射部では微量な酸素を照射欠陥(空孔や格子間原子やその集合体である、キャビティや転位ループ) を介して酸素拡散を促し、表面酸化が促進されたと考えられる。