



## 4. 共存性研究の最前線

### 4.1 水冷却固体増殖ブランケットにおける共存性研究

廣瀬 貴規, 谷川 尚

日本原子力研究開発機構

(原稿受付: 2010年6月1日)

水冷却固体増殖ブランケットについては、構造材である低放射化マルテンサイト鋼と中性子増倍材並びに燃料増殖材との共存性に関する研究の現状について概説した。冷却水との共存性に関しては、構造材の超臨界圧水中における腐食挙動、加圧水中における流動加速腐食現象および腐食反応により発生する水素の透過挙動に関する最近の研究成果を概説した。

#### Keywords:

water cooled solid breeder TBM, blanket system, lithium ceramic, beryllium alloy, reduced-activation ferritic/martensitic steel, compatibility, corrosion, flow assisted corrosion, visualization of flow, finite elemental analysis, hydrogen permeation

#### 4.1.1 はじめに

第2章の図1に示した水冷却固体増殖ブランケットでは除熱とトリチウム増殖効率の観点から構造材は薄肉であることが要求される。固体増殖ブランケットでは、中性子増倍材としてベリリウムおよびその合金の微小球、燃料増殖材としてリチウム酸化物の微小球を用いる。増殖材と増倍材はブランケット内に層状に充填され、両者は冷却管付きの隔壁で仕切られる。この隔壁は低放射化マルテンサイト鋼の薄板および薄肉管を溶接したメンブレン構造であり、その薄肉管の肉厚は1 mm程度を見込んでいる。したがって、この管では、外表面は増殖・増倍材との共存性、内側表面は冷却水との共存性の検討に基づき、腐食しるを決定する必要がある。これまでのところ、これらの評価は非照射環境における試験に留まっており、照射下での評価は現在進行中の固体増殖ブランケット体系を模擬した核分裂炉内試験の結果を待たなければならない[1, 2]。以下では、これまでに報告されている非照射環境における共存性の評価結果について述べる。

#### 4.1.2 中性子増倍材／トリチウム増殖材との共存性

##### (1) 中性子増倍材との共存性

中性子増倍材である金属ベリリウムは、構造材との接触部分に脆い金属間化合物 ( $\text{Be}_2\text{Fe}$ ) を形成することが報告されている[3]。この脆化層の厚さは800℃において100時間の接触の後、10  $\mu\text{m}$ に達する。一方、ベリリウムにバナジウムやチタンを7 at.%添加し合金化することで、この脆化層の形成速度はベリリウムの約1/5まで低減できること

[4-6]、600℃以下では、反応層の形成がないことが報告されている。したがって、構造材は、中性子増倍材との接触部分の温度を600℃以下に保つこと、金属元素を添加した増倍材を用いることで良好な共存性が確保できる見通しが得られている。

##### (2) 燃料増殖材との共存性

燃料増殖材による構造材の腐食は、増殖材から遊離したリチウムが水酸化物を形成することによるアルカリ腐食が問題となる。市販のマルテンサイト鋼9Cr-1Moと $\text{Li}_2\text{O}$ の共存性を550℃のヘリウムガス流動環境で評価したところ、ヘリウム中の水分濃度1 ppmでは、鋼表面の腐食層の厚さは15  $\mu\text{m}$ で飽和した。一方、水分濃度93 ppmの条件では、飽和傾向は認められず、腐食層の成長速度は1 ppmの場合の2倍に達することが報告されている[7]。防食対策としては、水分濃度の低減、遊離リチウムの低減、および使用温度の管理が極めて有効である。リチウムの遊離は雰囲気中の水素による増殖材のLi蒸気圧の増加に起因することから、遊離する量のリチウムを予め添加した増殖材の開発が進められている[8]。増殖材からリチウムが離れる量は、使用温度が100℃下がる毎に1/10となる[9]。したがって、構造材温度が300℃程度となるPWR相当の冷却条件では、上記の腐食量は1/100まで低減される。したがって、固体増殖材による構造材料の腐食は、リチウム添加した先進材料を用いてPWR条件で使用する限り、問題にならないといえる。

4. Forefront of Compatibility Study

4.1 Compatibility Issues for Water Cooled Solid Breeder Blanket

HIROSE Takanori and TANIGAWA Hisashi

corresponding author's e-mail: hirose.takanori@jaea.go.jp

### 4.1.3 冷却水との共存性

#### (1) はじめに

低放射化マルテンサイト鋼と冷却水の共存性は、本誌80巻7号で詳細な解説がなされている[10]。解説では、PWR条件の冷却水中では、低放射化マルテンサイト鋼は全面腐食され、応力腐食割れ（SCC）のような局所的な腐食に起因する損傷が生じにくいことが指摘された。さらに、注意を払うべき事象として、1)溶接などの製造工程における熱履歴の影響、2)水温・水質の影響などが挙げられた。本稿では、これらの事象に加えて、冷却水の流動およびトリチウム透過挙動に及ぼす腐食反応の影響に関する最近の取り組みについて説明する。

#### (2) 熱履歴の影響について

製作工程における低放射化マルテンサイト鋼の熱履歴は、第一壁製作工程である熱間等方圧加圧（HIP）、溶接および溶接後熱処理の影響が主である。第一壁は冷間圧延により製作した1.5 mm厚の矩形管を第一壁の“コ”の字形状としたものを、板で挟み込み、1100℃/150 MPa/2時間の条件で接合し製作する。接合後熱処理として、960℃×30分、750℃×60–90分の熱処理を施工するが、これらの熱処理は低放射化マルテンサイト鋼の通常の焼きならし、焼き戻し熱処理に相当し、HIP後の熱履歴は所謂受け入れ状態と同様である[11]。第一壁は継ぎ目のない矩形管を用い、第一壁の流路にはHIPおよび溶接等の接合部がないことから、腐食特性に対する製作工程における熱履歴の影響は無視できるといえる。

増殖ブランケットでは、冷却水配管の接続、箱構造の製作において溶接は不可欠であるので冷却水に面する溶接線を最小にとどめるよう設計を行っている。例えば、4.1.1で述べた増殖増倍層用隔壁では、リブと管の溶接にはファイバーレーザー溶接を用いて、溶接金属の管内面への貫通を防止し、溶接熱影響も外側表面の極一部に留めている[12]。冷却材流路を内蔵する側壁では、ドリル加工による工法を採用し、溶接部が冷却水に面しない構造を採用している[13]。したがって、増殖ブランケットにおいて、冷却水に面する溶接部分は、第一壁、増殖増倍層用隔壁と冷却水マニフォールドの接続部に限定される。低放射化マルテンサイト鋼溶接部の腐食特性については、720℃で溶接後熱処理したTIG溶接材の溶接金属、熱影響部および母材部の腐食試験結果では、320℃/15 MPa/溶存酸素濃度2.8 ppbの条件では、部材間で顕著な特性の違いがないことが示されている[14]。

#### (3) 水温・水質の影響について

水温水質の影響としては、高エネルギー変換効率オプシオンである超臨界圧水における腐食試験および応力腐食割れ感受性試験の結果が報告されている[15]。380℃から580℃の超臨界圧水中で、低ひずみ速度引張試験を実施した結果、SCC感受性は観察されなかった。腐食試験後の試験片表面の分析から、F82Hの腐食機構は全面高温酸化によるものであった。同鋼は中性子照射環境における組織安定性の観点から、耐食性向上に有効なクロム量を市販鋼より減らした8%Crであるが、その重量変化は図1に示すよ

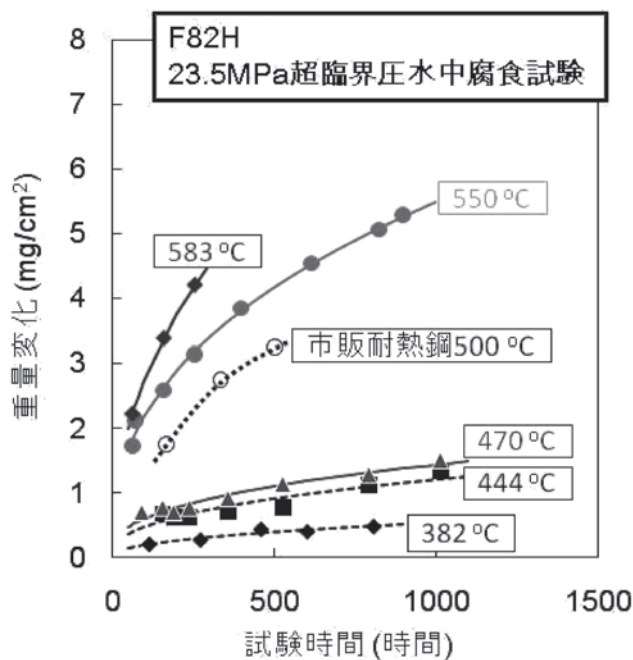


図1 超臨界圧水中の低放射化マルテンサイト鋼（F82H）の重量変化。

うに市販耐熱鋼と同等であり、時間と共に飽和する傾向が得られた[16]。腐食試験片の断面観察の結果、この飽和傾向は表面に形成された安定な酸化物（マグネタイト）が鉄元素の酸化を妨げることに起因する。地金から溶出した鉄イオンはマグネタイトを介して表層に移動、沈着するため、鋼の腐食反応層は、外側からブロック状の酸化物、マグネタイト、鉄が溶出した鉄欠乏層に分類される。F82Hの元の表面は、マグネタイトと鉄欠乏層界面であることから、腐食による減肉は鉄欠乏層の厚さを評価することで決定される。重量変化の経時変化と鉄欠乏層の厚さから、550℃の超臨界圧水中におけるF82Hの腐食減肉量は1年あたり40 μmと見積もられる。この見積もりは流動の影響がない冷却水中での値であり、ブランケットにおける5 m/sもの流動環境下での影響を評価することが必要である。

#### (4) 原子力機構における最近の取り組み

##### a. 流動加速腐食の評価

原子力機構では、流動環境下での腐食特性を評価するために、PWR条件の冷却水中で試験片を回転させる試験装置を開発し、評価に着手した。直径100 mm、厚さ5 mmの円盤状試験片を回転させ、試験片の端部に5 m/sの流動を模擬する試験を実施した。流動のない環境で試験した試験片は全面が高温酸化し、重量の増加が認められたが、毎分1000回転した試験片は半径20 mm以上（流速毎秒2 m/s以上に相当）の領域では、表面に酸化物が形成されなかった（図2）。これは、流体からのせん断力による酸化物の剥離、物質移動の促進、沈着の阻害などの機構によるものと考えられるが、今後、長時間の試験を行うことで、流動加速腐食現象の理解が深まるものと期待される。

##### b. 腐食生成物が水素透過に及ぼす影響の評価

水冷却方式のブランケットにおける構造材料の腐食現象は、これまで述べてきた課題以外にも、トリチウムの透過

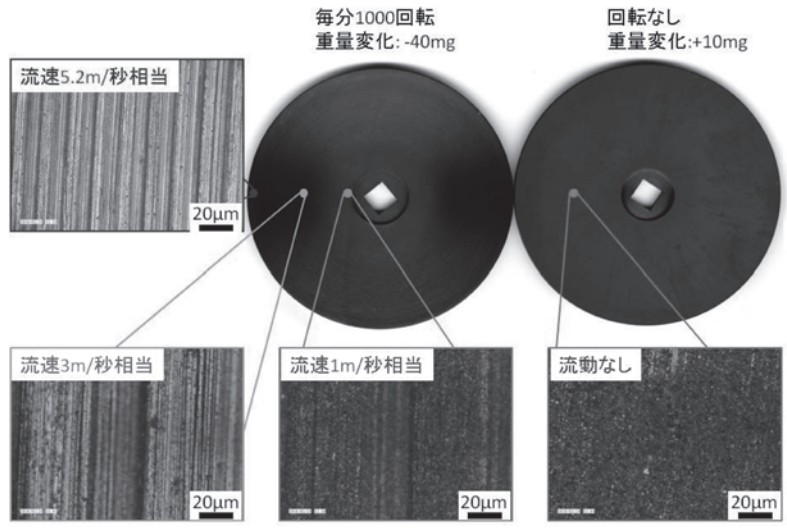


図2 低放射化鋼 F82H の流動加速腐食 (300°C/15 MPa/溶存酸素濃度 20 ppb 以下で28時間保持).

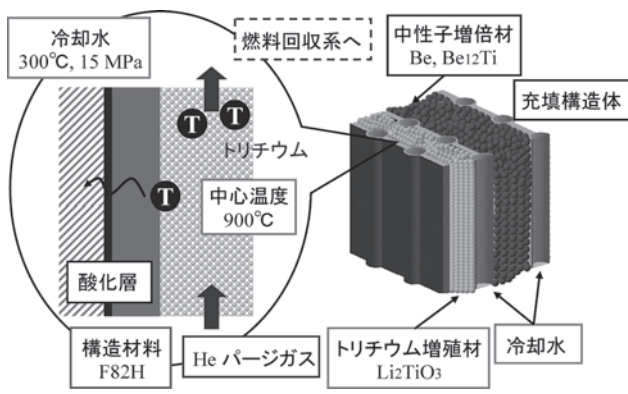


図3 固体増殖・水冷却方式のブランケットにおけるトリチウムの透過.

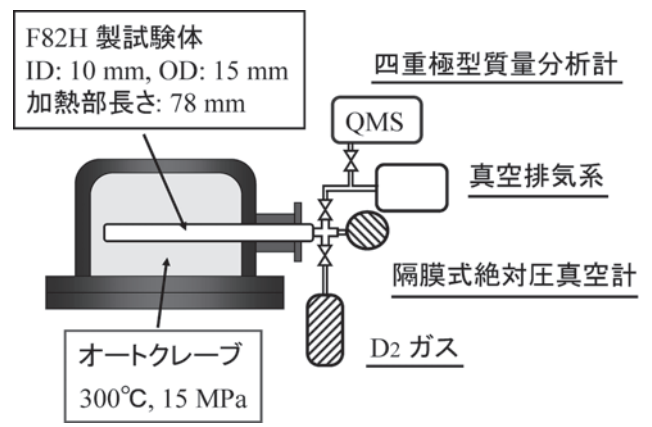


図4 高温高圧水下の水素透過挙動試験装置.

挙動に大きな影響を及ぼすと考えられる点で重要である。増殖材料中に生成したトリチウムは、トリチウムの分圧が最大で1 Pa 程度になるように流量を調整したHe パージガスによって回収することが想定されている。この際、図3に示すように構造材料を通して冷却水側へトリチウムが透過することが懸念される。最近の検討では、低放射化マルテンサイト鋼 F82H 製冷却管の温度を 325°C と仮定した場合に、増殖材料中で生成したトリチウムの約 1% がパージガスから冷却水へと透過すると評価されている [17, 18]。トリチウム増殖比 (TBR) を確保する点では、この程度の透過量は致命的な問題ではなさそうである。一方で、安全性や経済性を考慮すると、冷却水中のトリチウム濃度をなるべく低く抑えたいという要求が生じる。このため、セラミックス系の被覆材料を構造材料の表面に塗布することが検討されており、透過速度の低減率として 1/300 程度の実績が得られている [19]。

ところで前述の透過量評価では、清浄な F82H 試料を用いた透過試験の結果を参照している [20]。金属表面に形成した酸化層によって、水素同位体の透過速度が大きく減少することは一般に知られており、F82H の場合にも大気への暴露で形成したわずかな酸化層の存在によって透過速度

が 1 桁程度低下するという報告がある。しかし、表面に形成する酸化層の組成や状態 (例えば緻密さ) は腐食環境によって大きく異なるため、実際のブランケットの運転環境下で、トリチウムの冷却水への透過がどの程度低減されるかは明らかにされていない。様々な取り組みが進められているが、ここでは一例として、原子力機構で進められている PWR 条件の冷却水中における水素の透過実験を紹介する。

図4に装置の概念図を示す。PWR の冷却水条件 (300°C, 15 MPa) を再現できるオートクレーブ中に F82H 製の筒状の試験体を挿入している。試験体は絶対圧真空計とともに封じ切ることができる構造であり、バルブを介してガス導入系、質量分析器を備えた真空排気系と接続している。試験体に重水素ガスを封入し、水環境への透過に伴う絶対圧の減少を計測することで透過速度を評価している [20]。現状では測定精度に問題があるが、酸化の進行に伴う透過速度の減少が確認されている。また、この試験の過程では、試験体の水環境側における酸化反応によって生じた水素が試験体の内側へと透過することも確認されている。すなわち、運転時のブランケットにおいては、増殖材料側から冷却水側へのトリチウムの移行と、腐食によって生成した水

素の逆方向の移行とに注目する必要がある、どちらも構造材料の腐食反応と密接に関係している。今後は、このような実環境に近い条件の実験と、その理解のために必要となる素過程の解明とを相補的に進めていくことが重要だと考えられる。

#### 参考文献

- [ 1 ] A.J. Magielsen, J.H. Fokkens, J.B.J. Hegeman, M.S. Stijkel and J.G. Van Der Laan, *Proc. 13th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interaction* (2006) 224.
- [ 2 ] G. Kizane, J. Tilks, A. Vitins and J. Tilks Jr., *Proc. The 12th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interaction* (2006) 153.
- [ 3 ] H. Kawamura, M. Kato, E. Ishitsuka, S. Hamada, K. Nishida and M. Saito, *Fus. Eng. Des.* **29**, 475 (1995).
- [ 4 ] K. Tsuchiya, Y. Namekawa and T. Ishida, *J. Nucl. Mater.* **386-388**, 1056 (2009).
- [ 5 ] K. Tsuchiya, H. Kawamura and T. Ishida, *J. Nucl. Mater.* **367-370** (2007).
- [ 6 ] K. Tsuchiya, M. Uchida and H. Kawamura, *Fusion Eng. Des.* **81**, 8-14, 1057 (2006).
- [ 7 ] Chopra and D.L. Smith, DOE/ER-0045/11 (1984) 205.
- [ 8 ] T. Hoshino, M. Yasumoto, K. Tsuchiya, K. Hayashi, H. Nishimura, A. Suzuki and T. Terai, *Fusion Eng. Des.* **82**, 2269 (2007); S. Suzuki, K. Yamaguchi, T. Terai and M. Yamawaki, *Fusion Eng. Des.* **49-50**, 681 (2000).
- [ 9 ] Y. Miwa, T. Tsukada and S. Jitsukawa, *J. Plasma Fusion Res.* **80**, 551 (2004).
- [ 10 ] T. Hirose, K. Shiba, T. Sawai, S. Jitsukawa and M. Akiba, *J. Nucl. Mater.* **329-333**, 324 (2004).
- [ 11 ] H. Tanigawa, T. Hirose, K. Shiba, R. Kasada, E. Wakai, H. Serizawa, Y. Kawahito, S. Jitsukawa, A. Kimura, A. Kohyama, H. Mori, N. Nishimoto, R.L. Klueh, M.A. Sokolov, R.E. Stoller and S.J. Zinkle, *Fusion Eng. Des.* **83**, 1471 (2008).
- [ 12 ] T. Hirose, H. Tanigawa, M. Enoeda, H. Ogiwara and Y. Kawahito, *JAEA-Conf 2009-006*, 303 (2009).
- [ 13 ] Y. Miwa, K. Kondo *et al.*, *private communication*.
- [ 14 ] T. Hirose, K. Shiba, M. Enoeda and M. Akiba, *J. Nucl. Mater.* **367-380**, 1185 (2007).
- [ 15 ] M. Nakamichi *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **386-388**, 692 (2009).
- [ 16 ] M. Harada *et al.*, *Kobe Steel Engineering Reports* **53**, 92 (2003).
- [ 17 ] H. Tanigawa *et al.*, *Nucl. Fusion* **49**, 055021 (2009).
- [ 18 ] M. Nakamichi *et al.*, *Fus. Eng. Des.* **82**, 2246 (2007).
- [ 19 ] E. Serra *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **245**, 108 (1997).
- [ 20 ] 谷川 尚 他：高温高圧水中の F82H における水素透過挙動のその場測定，日本原子力学会2008年秋の大会。