

ジルコニウム合金酸化膜中の酸素と水素の拡散

Diffusion of oxygen and hydrogen in zirconium alloy oxide films

*阪本 巧人¹, 山口 佳奈¹, 高木 郁二¹, 高橋 克仁², 坂本 寛²

¹京大, ²NFD

ジルカロイ 2 の酸化膜内における酸素 (O-18) と水素 (H-2) の拡散挙動を核反応法 (NRA) により調べた。酸素の拡散は 2 つの経路があることが示唆され、水素の拡散係数は深さに依存することが分かった。

キーワード：ジルカロイ，水素脆化，拡散，核反応法，酸化膜

1. 緒言

軽水炉燃料被覆管の水素脆化を定量的に評価するためには、表面酸化膜内における水素の拡散機構を知る必要がある。本研究では、水素と酸素の拡散の関連[1]を調べるため、H-2(D) と O-18 の濃度分布を測定し、拡散係数を求めた。

2. 実験及び結果

試料はジルカロイ 2 を 673 K、12 MPa の軽水蒸気下で 90 時間酸化した後、O-18 水と重水の混合水の蒸気下で 6 時間酸化して作製した。生成した酸化膜厚は蒸留水で 1.4 μm 、混合水で 0.1 μm であった。O-18 については 750~900 keV の陽子を照射し、 $^{18}\text{O}(\text{p}, \alpha)^{15}\text{N}$ の核反応を用いて、D については 1.7 MeV の ^3He を照射し、 $\text{D}(^3\text{He}, \text{p})^4\text{He}$ の核反応を用いて、それぞれの深さ方向分布を得た。拡散方程式を用いて深さ方向分布を解析し、拡散係数を求めた (図 1, 図 2)。

3. 考察

従来、 ZrO_2 中の酸素の拡散係数は二種類あることが知られていたが、1 つの試料で 2 つの経路があることが今回の実験で初めて分かった。拡散係数は速い経路で $3.0 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ 、遅い経路で $4.3 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$ であった。水素の拡散については、表面から約 0.5 μm までは拡散係数が $5.3 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ 、それより深い領域では $2.4 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{s}$ であった。酸素の速い経路における拡散係数と水素の浅い領域における拡散係数がほぼ同じ値であることは、水素と酸素の拡散に何らかの関連性があることを示唆している。

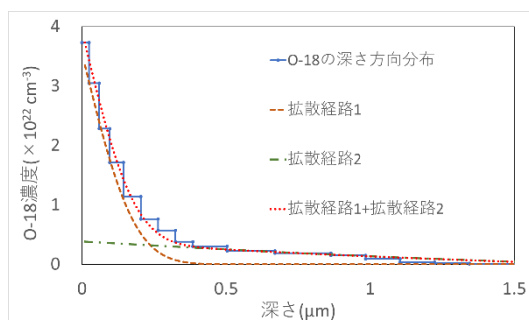


図 1 O-18 の深さ方向分布と拡散方程式による解析結果

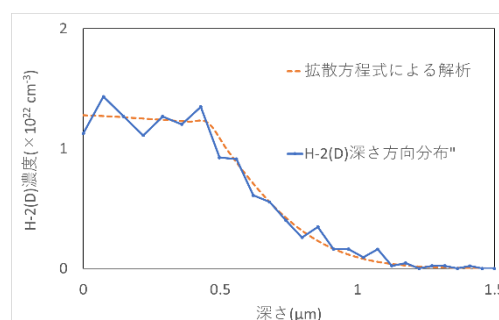


図 2 H-2(D)の深さ方向分布と拡散方程式による解析結果

参考文献

[1] T.Kato et al., Journal of Nuclear Materials, 494(2017) 79-86.

*Takuto Sakamoto¹, Kana Yamaguchi¹, Ikuji Takagi¹, Katsuhito Takahashi², Kan Sakamoto²

¹Kyoto Univ., ²NFD.