

## 研究論文

# 低誘導放射化フェライト鋼 F82H のガス放出特性

尾 高 憲 二, 佐 藤 修

(株式会社日立製作所)

大 塚 道 夫

(株式会社日立製作所)

阿 部 哲 也, 原 重 充, 高 津 英 幸, 榎 枝 幹 男

(日本原子力研究所)

(1997年 6 月 4 日受理)

## Outgassing Characteristics of F82H Ferritic Steel as a Low Activation Material for Fusion Reactor

ODAKA Kenji, SATOU Osamu, OOTSUKA Michio\*,

ABE Tetsuya\*\*, HARA Shigemitsu\*\*, TAKATSU Hideyuki\*\* and ENOEDA Mikio\*\*

*Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd., Tsuchiura, Ibaraki 300, Japan*

*\*Hitachi Works, Hitachi, Ltd., Hitachi-shi, Ibaraki 317, Japan*

*\*\*Naka Fusion Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Ibaraki 311-01, Japan*

(Received 4 June 1997)

### Abstract

Outgassing characteristics of F82H ferritic steel as a low activation material for the blanket of fusion device were investigated. A test chamber was constructed by welding F82H ferritic steel plates. The inner surface of the chamber was buffed and electropolished. The test chamber was degassed by the prebaking at temperature of 350 °C for 20 h in vacuum. Then outgassing rates of the test chamber were measured by the throughput method as a function of pumping time for the cases that the test chamber was baked and not baked. The typical outgassing rate after baking at 250 °C for 24 h was  $3 \times 10^{-9}$  Pa·ms<sup>-1</sup> and it seems that this value is sufficiently small to produce pressures at least as low as  $10^{-9}$  Pa in the vacuum chamber made of F82H ferritic steel. In the pump-down of the test chamber without baking after exposure to air, the outgassing rate decreases with pumping time and reached  $1 \times 10^{-7}$  Pa·ms<sup>-1</sup> at  $t = 10^5$  s. The activation energy of hydrogen in bulk diffusion in the F82H ferritic steel was measured and found to be 7 kcal/mol.

### Keywords:

F82H ferritic steel, outgassing characteristics, activation energy of hydrogen in bulk diffusion

### 1. はじめに

日本原子力研究所では、自己点火条件の達成、プラズマの長時間安定保持および原型炉用ブランケットを含む各種炉心工学試験を目的として、国際核融合実験炉 (ITER) の計画を進めている。ITER では、炉内でプラ

ズマを直接に囲むブランケットはステンレス鋼 (SUS316) で製作されるが、実験炉の次の原型炉では高い中性子束に曝されるため、ステンレス鋼では耐中性子照射特性が不十分である。また、放射性廃棄物低減の観点から、低誘導放射化材料が望まれる。このため、バナ

ジウム合金や SiC 複合材 (ニカロン) 等の新しいプラケット材料の検討が進められており、低誘導放射化フェライト鋼 F82H はその有力な候補の一つである。

F82H (8Cr-2W-0.2V-0.04Ta-Fe) は日本原子力研究所と日本鋼管が共同開発した材料で、機械的特性についてはこれまでにさまざまな研究[1]が行われている。真空特性については、鈴木ら[2]は小さな試験片を用いて、昇温脱離法による素材のガス放出測定を行っている。阿部ら[3]は、F82H を内貼りしたステンレス鋼製真空容器を用いて、プラズマ放電実験をおこなっている。しかし、真空容器としての F82H からのガス放出特性については検討が行われていない。本研究は F82H を用いて真空容器を作成し、実際の真空排気過程におけるガス放出速度を測定することにより、ガス放出速度に対するベーキング (真空排気中の加熱脱ガス処理) の温度、排気の繰り返し等の効果を調べた。過去にこの材料について真空用の適切な前処理の方法は示されていないので、オーステナイト系ステンレス鋼に用いられる表面処理および予備ベーキングの方法[4-7]を適用した。F82H のガス放出速度は、ベーキングしない場合とした場合とについて排気時間の関数として測定された。以下に実験結果を示すとともに、従来のわれわれのステンレス鋼の測定結果と比較することによって、F82H の超高真空材料としての評価を行う。

## 2. ガス放出速度測定装置

Fig. 1 に、今回用いたスルー putt 法のガス放出速度測定装置の概要を示す。一端を封止したフェライト鋼試験容器 (以下フェライト鋼容器と記す) のもう一方の端に、直径 10 mm の円孔 (コンダクタンス約  $0.01 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ ) のオリフィスを介してステンレス鋼 SUS304 製の計測容器が取り付けられている。計測容器にはバイトン O リングシールのゲートバルブを介し排気速度  $0.34 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  のターボ分子ポンプ (TMP : ライボルト社製 TURBO-VAC 340M) が取り付けられている。図には示していないが、TMP の排気口にはロータリーポンプ (RP : アルカテル社製 PASCAL 2015, 排気速度  $250 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ) が接続されている。また、フェライト鋼試験容器および計測容器には、ベーキング用のシースヒータが貼り付けられ、その外側には断熱用のアルミ箔が数枚重ねて巻付けられている。オリフィス上流の圧力  $P_1$  測定用の真空計は、フェライト鋼容器の中央部に取付けられたステンレス鋼製の超高真空用フランジ (コンフラット (CF) フランジ, 外径 70 mm のもので CF70 と記す。以下同

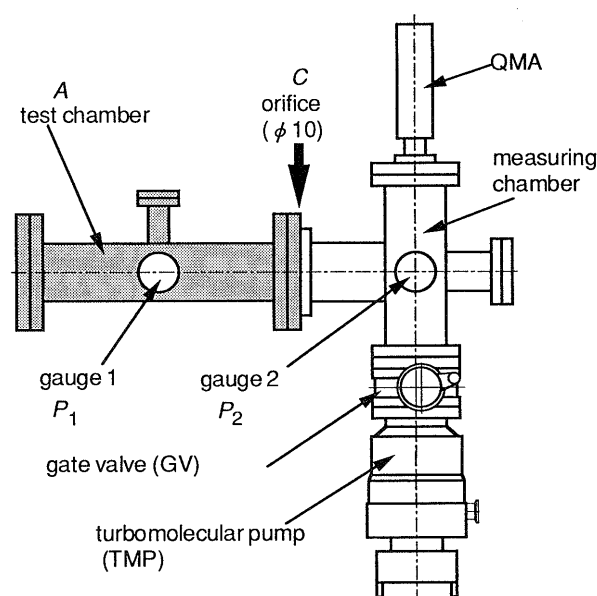


Fig. 1 Schematic diagram of a test chamber made of low activation F82H ferritic steel.

じ表記を用いる) のうちの 1 つに設置された。オリフィス下流の圧力  $P_2$  測定用の真空計は、計測容器の中央部分にある CF70 フランジポートに設置された。真空計はガス放出が少ないエクストラクタゲージ (熱陰極型電離真空計の 1 種, ライボルト社製 IE514) を用い、予めスピニングロータゲージとの比較により感度校正を行った。計測容器には残留ガス成分測定のための四重極質量分析計 (QMA : インフィコン社製 Quadrex 200) が取付けられている。

試験容器は Fig. 2 に示すように、4 枚のフェライト鋼 F82H の板 ( $400 \times 106 \times t 7.5$ ) を溶接し、両端にステンレス鋼製の CF203 フランジを溶接する構造とした。容器の中央には圧力測定等のために、ステンレス鋼製の CF70 フランジを有するポートが 3 個取り付けられている。溶接はすべて TIG 溶接を用いた。溶接棒は F82H で造られた専用のものを、フェライト鋼-フェライト鋼およびフェライト鋼-ステンレス鋼の両方の接合部分に用いた。製作にあたっては、まずフェライト鋼板の片面 (容器の内面) をバフ研磨し、ステンレス鋼フランジおよびポートと組み合わせて溶接した。フェライト鋼板同士の接合部分は容器内部から溶接することが困難なため、外側から溶接を行い、十分に溶け込ませて溶融部が内部表面に達するように (うらなみを形成) した。次に容器全体を、リン酸主体の電解液を用いて電解研磨した。この容器を、真空炉中で  $10^{-4} \text{ Pa}$  台の雰囲気中で  $350^\circ \text{C}$  に

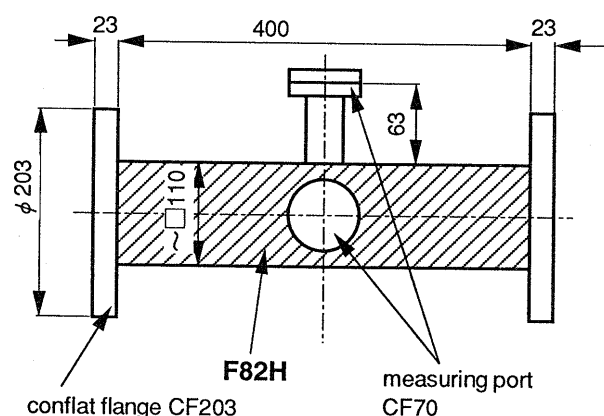


Fig. 2 Experimental apparatus for measuring outgassing rate.

20 h 保持して予備ベーキングを行った。この研磨および予備ベーキングを組み合わせた一連の前処理は、オーステナイト系ステンレス鋼の超・極高真空容器に対する処理として、ほぼ確立された手法である [3-5]。ただしフェライト鋼の脆化を避けるため、予備ベーキング温度はステンレス鋼より 100 °C 低く 350 °C に設定し、加熱時間は 20 h とした。

ガス放出速度の測定においては、オリフィス上流側の試験容器はすべて同じ材料とすることが望ましい。しかし今回は、フェライト鋼材料の厚さが  $t7.5$  と限定されており、超高真空用の CF フランジを作成することができなかった。このため、フェライト鋼の部分は直方体の容器胴部だけとした。フランジ部などのステンレス鋼の表面積に比べてフェライト鋼の表面積を大きくしてガス放出速度の測定精度を高めるため、試験容器内にフェライト鋼板（ $89 \times 200 \times t7.5$ ）を補助試料として 6 枚挿入した。補助試料鋼板は両面ともバフ研磨と電解研磨を行い、真空中で予備ベーキングを行った。この結果、フェライト鋼とステンレス鋼の表面積は、それぞれ  $0.513 \text{ (m}^2\text{)}$  および  $0.064 \text{ (m}^2\text{)}$ （面積比 9 : 1）となった。

### 3. ガス放出速度の測定方法

#### 3.1 スループット法

フェライト鋼真空容器のガス放出速度（単位面積あたりのガス放出量）は、スループット法（オリフィス法）を用いて測定した。スループット法は、試験容器と排気ポンプとの間に微少な開口を有するオリフィスを設置し、オリフィスの上流（試験容器側）および下流（ポンプ側）の圧力  $P_1$  および  $P_2$  (Pa) を測定する。ガス放出速度  $q \text{ (Pa} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$  は次式により算出される。

$$q = \frac{C}{A} (P_1 - P_2) \quad (1)$$

ここで、 $C$  はオリフィスのコンダクタンス ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ )、 $A$  は試験容器の内部面積 ( $\text{m}^2$ ) である。

試験容器の内部面積  $A$  は、フェライト鋼の補助試料を含む内部全表面積である。

#### 3.2 水素の拡散の活性化エネルギー

ベーキングなどの脱ガスを行った金属の板材からの放出ガス速度  $q$  は、拡散係数  $D \text{ (m}^2 \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$  に比例し、 $q_0$  を定数として次式で表される [8]。

$$q = q_0 \cdot D \quad (2)$$

また、拡散係数は拡散の活性化エネルギーを  $E_D \text{ (J} \cdot \text{mol}^{-1}\text{)}$  として、次式で表される。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right) \quad (3)$$

ここで、 $D_0$  は定数 ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )、 $R$  は気体定数 ( $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ )、 $T$  は温度 (K) である。式 (2) および式 (3) より、加熱中のガス放出速度を温度の逆数  $1/T$  に対して片対数プロットすると、その曲線の勾配が  $-E_D/R$  を与えるので、活性化エネルギー  $E_D$  を定めることができる。

## 4. 実験結果並びに検討

### 4.1 試験手順

Table 1 に排気試験の経過を、ベーキング温度とともに記す。測定装置組み立て後の初めての排気試験を 1 回目排気とし、6 回の排気試験を行った。各排気において圧力の測定並びに残留ガスの測定を行い、ガス放出速度の算出を行った。1 回目および 2 回目の排気ではベーキングは行わず、大気開放から室温での排気のみを行った。3 回目および 4 回目の排気では、装置全体のベーキングを 250 °C で 24 h 行った。5 回目排気では水素の拡散の活性化エネルギーを求めるため、フェライト鋼試験容器のみ 100 °C から 250 °C まで 50 °C きざみで順次ベーキングの温度を高くし、それぞれの温度で 24 時間保持し、加熱中のガス放出速度の測定を行った。測定に先立ち高温のフィラメントを有する質量分析計 (QMA) を 300 °C で 24 時間保持して加熱して十分に脱ガスし、装置全体もあわせて 100 °C でベーキングした。真空排気を継続しつつ装置の冷却を待ち、全体が室温に戻った後に加熱温度変化の実験を行った。QMA の脱ガスとともに装置全体をベーキングすることは重要である。この装置全体の

Table 1 Evacuation cycles of the test chamber.

| evacuation cycle | baking                                                                                | exposure time to air |
|------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|----------------------|
| 1st              | no treatment                                                                          | 1hr                  |
| 2nd              | no treatment                                                                          | 1hr                  |
| 3rd              | 250°C × 24hr (QMA: 250°C)                                                             | 1hr                  |
| 4th              | 250°C × 24hr (QMA: 250°C)                                                             | 1hr                  |
| 5th              | prebaking: 100°C (QMA: 300°C)<br>test temp. 100, 150, 200, 250°C<br>24h at each temp. | 1hr                  |
| 6th              | 300°C × 24hr (QMA: 300°C)                                                             |                      |

ベーキングを省略すると、脱ガス後に装置から放出されるガス（主として水）がQMAに再吸着し、脱ガスの効果が失われる。その結果、測定中にフィラメントからの熱によって再吸着したガスがQMAから脱離し、測定精度を低下させるからである。6回目の排気では、装置全体のベーキングを300℃で24時間行った。各排気試験の終了後、フェライト鋼試験容器の中央部に設けた、外径70mmのCF封止フランジを開放して装置内へ大気を導入し、1hの大気開放を行った。

## 4.2 ガス放出速度

### 4.2.1 ベーキング前

1回目から6回目の排気における、排気開始からベーキングまでのガス放出速度をまとめてFig.3に示す。縦軸はガス放出速度、横軸は真空ポンプ起動時刻を基準時刻（ $t=0$  s）とする排気時間である。比較のためにバフ研磨と電解研磨を行い、予備ベーキング（450℃×48時間）を施したステンレス鋼 SUS316 の値[7]を●印で示す。このステンレス鋼容器は $\phi 150 \times 1,100$ の円筒形であり、Fig.1と同様のスループット法の装置を用いてガス放出速度が測定された。F82Hのガス放出速度は、容器製作後初めての排気である1回目排気試験（○）を除いて、実験結果はほぼ1本の曲線にのっている。また、これらのガス放出速度は、●印で示したステンレス鋼の値とほぼ一致している。なお、1回目および2回目の排気において、 $t > 30,000$  sでガス放出速度が一時増加した後減少しているのが見られるが、室温の変化により試験装置全体からのガス放出量が増加したためである。

1回目、3回目、4回目、および6回目排気の、ベーキング前の残留ガスの主要成分である $H_2$ 、 $H_2O$ 、CO、および $CO_2$ の、 $t=12,000$  sにおけるイオン電流値を、Fig.4に示す。ベーキング前のフェライト鋼容器内の残留ガス成分は $H_2O$ が主であり、 $H_2$ 、CO、 $CO_2$ よりも1桁以上大きいことがわかる。一般にステンレス鋼製の

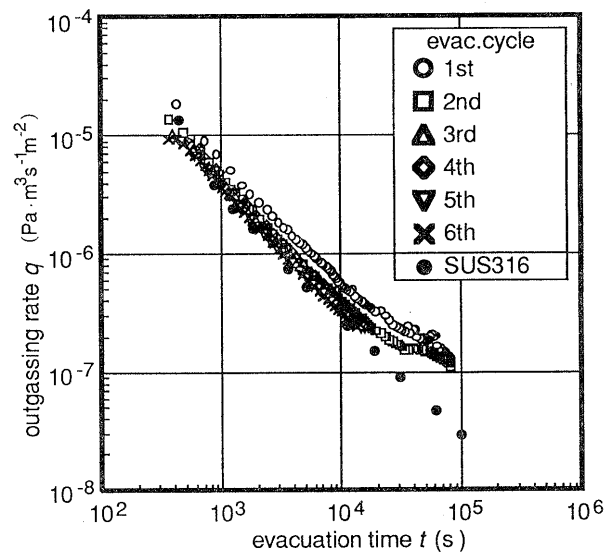


Fig. 3 Outgassing rates of the test chamber before baking as a function of pumping time compared with the data of SUS316 stainless steel[6].

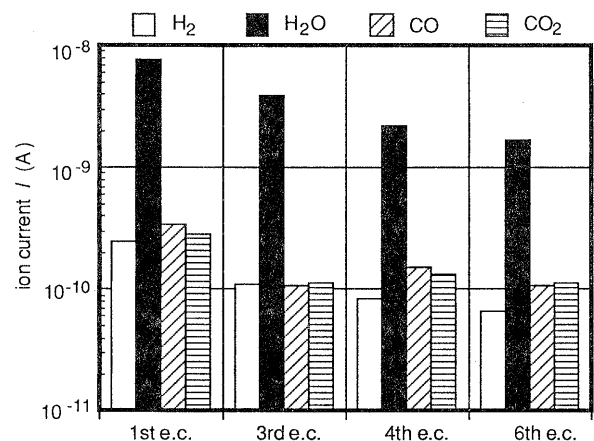


Fig. 4 Residual gas composition in the test chamber before baking.

真空容器においても、大気から排気したときの残留ガスの主な成分は $H_2O$ である[4-7]。

以上のガス放出速度および残留ガスのスペクトルより、大気開放後の排気におけるフェライト鋼容器のガス放出特性は、ステンレス鋼製の超・極高真空容器とよく似ていることがわかる。

### 4.2.2 ベーキング後

3回目から6回目の排気におけるベーキング後のガス放出速度を、Fig.5に示す。ベーキングヒータの停止時刻を基準時刻（ $t=0$  s）としている。5回目排気のデータ（▽）は、QMAの脱ガスにあわせて行った100℃のベーキング後の値を示す。ベーキング温度が300℃と最

も高い6回目排気におけるガス放出速度が低い値を示すが、初めてベーキングを行った3回目の結果 ( $\Delta$ ) もほぼ等しい値となっている。250℃と300℃とではガス放出速度にほとんど違いはないと判断される。4回目の排気の結果は3回目比べて少し大きな値であるが、実験室内の気温が28℃で3回目比べて約3℃高かったことが原因と考えられる。100℃ベーキングを行った5回目の結果が最も大きい値となっているが、ベーキング温度が低いために容器に吸着した水が十分に除去されなかったものと考えられる。

ベーキング後のガス放出速度  $4 \sim 7 \times 10^{-9} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  は、通常の真空試験装置に用いた場合に、 $10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ Pa}$  台の超高真空を発生することのできる値である。フェライト鋼は超高真空の容器材料として、実用に耐えるガス放出特性を有するといえる。

これらのガス放出速度を、ステンレス鋼 SUS316 の  $150^\circ\text{C} \times 24 \text{ hr}$  ベーキング後の値 (●) [7]と比較すると、20~30倍大きい。今回採用したフェライト鋼容器の処理(研磨および真空中予備ベーキング)は、オーステナイト系ステンレス鋼の超・極高真空領域での使用を目指して開発されたもので、必ずしもフェライト鋼に対して最良の処理ではない。フェライト鋼に一層適した処理方法の開発により、ベーキング後のガス放出速度がステンレス鋼に近づけることができると期待される。

3回目から6回目の排気の、ベーキング終了後の残留ガスの主要成分である  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}$ , および  $\text{CO}_2$  の、

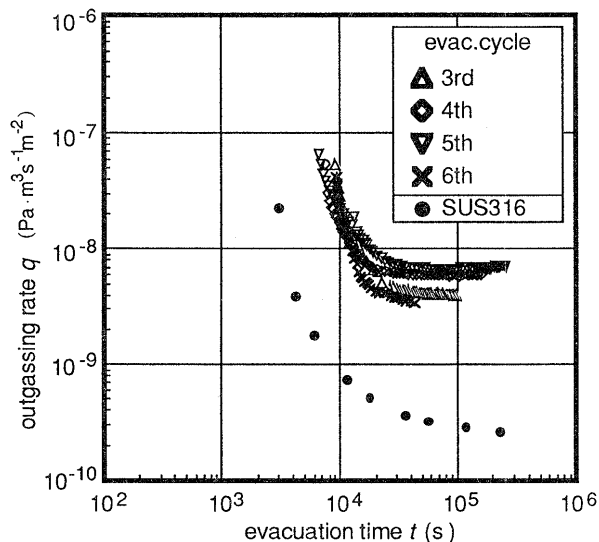


Fig. 5 Outgassing rates of the test chamber after baking compared with the data of SUS316 stainless steel [6].

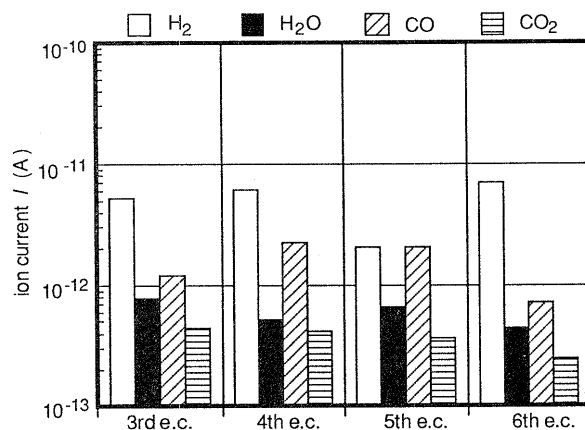


Fig. 6 Residual gas composition in the test chamber after baking.

$t = 72,000 \text{ s}$  (20 h) におけるイオン電流値を、Fig. 6 に示す。どの排気試験においても、 $\text{H}_2$  が最も多く次いで  $\text{CO}$  が多い。ベーキング後の排気におけるフェライト鋼試験容器から放出されるガスの質量スペクトルは、ステンレス鋼製の真空容器と良く似ている [5]。

#### 4.3 水素の拡散の活性化エネルギー

5回目の排気において  $100 \sim 250^\circ\text{C}$  の範囲で  $50^\circ\text{C}$  刻みでベーキング温度を変えた場合の、温度変更時点から  $72,000 \text{ s}$  経過した時点でのガス放出速度を、温度の逆数に対してプロットした結果を Fig. 7 に示す。縦軸はガス放出速度の常用対数である。この直線の傾きを  $\log e$  ( $e$  は自然対数の底) で除した値が  $-E_D/R$  であり、フェライト鋼中のガスの拡散の活性化エネルギー  $E_D$  は、 $7 \text{ kcal/mol}$  と求められる。ベーキング後の残留ガスでは  $\text{H}_2$  が最も多いことから、上で求めた活性化エネルギーはほぼ水素の拡散に対応すると考えられる。Perng ら [9] は、機械研磨したフェライト鋼 (Cr29.5-Ni2.2-Mo3.9) に対する水素の拡散の活性化エネルギーを、 $1.7 \text{ kcal/mol}$  ( $170^\circ\text{C}$  以上) および  $8.1 \text{ kcal/mol}$  ( $170^\circ\text{C}$  以下) と報告している。また、オーステナイト系ステンレス鋼に対しては、 $11.0 \text{ kcal/mol}$  の値を得ている。これらと比較すると、本実験の結果は  $170^\circ\text{C}$  以下での Perng らの結果とほぼ一致し、オーステナイト系ステンレス鋼より小さい。本実験の温度範囲では測定データはすべて1本の直線に乗っており、温度による拡散の活性化エネルギーの変化は見られなかった。合金組成および表面処理の違いによると考えられる。

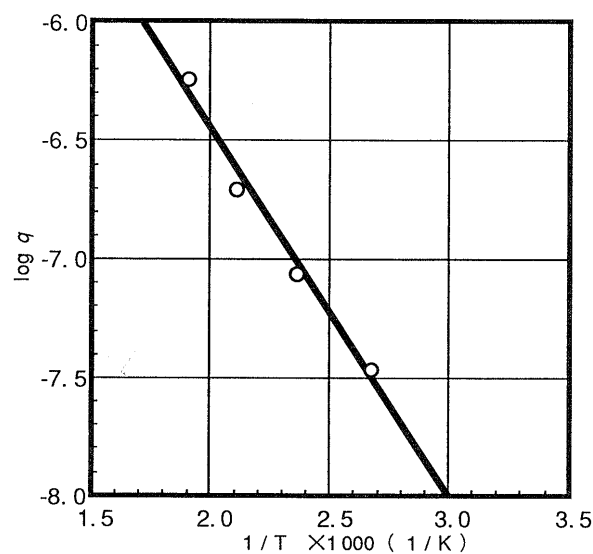


Fig. 7 Arrhenius plot of outgassing rates against heating temperatures of the chamber.

## 5. まとめ

核融合原型炉のブランケットの候補材料とされるフェライト鋼 (F82H) のガス放出特性をしらべるため、試験容器を製作してガス放出速度測定試験を行った。試験容器は前処理として、バフ研磨と電解研磨による表面処理の後、真空中で350℃の予備ベーキングを20h行った。

### 5.1 結論

- (1) 250℃で24時間のベーキング（排気時の加熱脱ガス処理）により、 $10^{-9} \text{ Pa}\cdot\text{ms}^{-1}$  台のガス放出速度が得られた。 $10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ Pa}$  台の超高真空を発生する真空容器の材料としての実用性を有する。
- (2) 排気開始からベーキングまでの、ベーキング前のガス放出速度は、排気試験の際のベーキング温度によらず、同じ値（時間変化）を示した。またこの値は、同じ前処理を行ったステンレス鋼とほぼ同等であった。主な残留ガス成分は水であった。
- (3) ベーキング後のガス放出速度はステンレス鋼に比べ、20~30倍の大きな値であり、主な残留ガス成分は水素であった。

- (4) ガス放出速度の温度依存性から求めた水素の拡散の活性化エネルギーは、およそ7 kcal/molであり、ステンレス鋼 (11.0 kcal/mol) に比べて小さな値であった。

### 5.2 今後の課題

F82H フェライト鋼の、

- (1) 核融合炉への適用を考えた場合は、メッキ等の防錆処理を含めて、大型真空装置に対して実施可能な実用的表面処理方法の開発が必要である。また、炉の in-situ の洗浄方法として放電洗浄等の検討も必要である。
- (2) 超高真空材料としては、表面処理や熱処理の最適化により、ベーキング後のガス放出速度を一層低減する方法を開発することが必要である。

## 謝辞

本研究を行うにあたってフェライト鋼 F82H を提供していただいた、日本原子力研究所東海研究所材料研究部照射解析研究室の菱沼章道室長ならびに芝清之氏に、感謝いたします。

## 参考文献

- [1] H. Hayakawa, A. Yoshitake, M. Tamura, S. Natsume, A. Gotoh and A. Hishinuma: J. Nucl. Mater. 179-181, 693 (1991).
- [2] 鈴木薫, 広畑優子, 日野友明: プラズマ核融合学会第13回秋季講演会予稿集 p203 (1996).
- [3] 阿部充志, 中山武, 浅野克彦, 大塚道夫: プラズマ・核融合学会誌投稿中.
- [4] K. Odaka, Y. Ishikawa and M. Huruse: J. Vac. Sci. Technol. A5, 2902 (1987).
- [5] K. Odaka and S. Ueda: J. Vac. Sci. Technol. A13, 520 (1995).
- [6] 楊一新, 斎藤一也, 稲吉さかえ, 池田佳直, 塚原園子: 真空 36, 234 (1993).
- [7] 小針利明, 上田新次郎, 佐藤修, 松本学, 小林正典, 堀洋一郎: 真空 33, 179 (1990).
- [8] R. Calder and G. Lewin: Brit. J. Appl. Phys. 18, 1459 (1967).
- [9] Tsong-Pyng Perng and C. J. Altstetter: Acta Metall. 5, 1251 (1988).