

## 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 のビーム窓や燃料被覆管の候補材である T91 鋼に対して、トリプスイオン照射後に、鉛ビスマス液体金属中にて浸漬試験を行い、液体金属中の材料腐食挙動に及ぼす照射の影響を調べている。今回、微細組織観察により照射後腐食挙動に影響を及ぼすと考えている空孔欠陥に関して、陽電子消滅寿命測定法を試み、シングル照射に比べてトリプル照射では空孔クラスターがより多く存在していることを示唆する結果が得られた。

キーワード：液体金属 腐食 酸化皮膜 照射 ADS 陽電子消滅測定

### 1. 目的

原子力発電所から出る使用済み核燃料に含まれるマイナーアクチノイド等の長寿命放射性核種を核変換し、減容及び有害度を低減する技術に、加速器駆動システム（ADS）がある。ADS は、主に高エネルギー陽子加速器と未臨界炉から構成されるシステムであり、炉心部の冷却材及び核破砕中性子源として、化学的に安定である液体鉛ビスマス共晶合金（LBE）を用いる。LBE 中の ADS 材料の腐食挙動の把握は炉内機器の設計に不可欠であり、陽子加速器側の高真空と炉心部を隔てる安全上重要な機器の一つであるビーム窓や燃料被覆管の健全性（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。核破砕中性子照射により材料中に核変換で導入される H や He の割合を ADS 照射条件に最適化できる強力な中性子源が存在しないため、ADS 材料の複合照射影響を精度よく推定するためには、トリプスイオン照射による近似評価が有効である。本研究では、イオンビームを用いた ADS 模擬照射（トリプスイオン照射）により、LBE 中材料腐食挙動へ及ぼす照射の影響に関して、微細組織発達過程から調べており、その過程で空孔欠陥集合体と LBE 中腐食挙動に相関関係があることを示す結果が得られつつある。R4 年度は空孔欠陥に着目して照射を行い、新たに陽電子消滅寿命測定を試みた。

### 2. 実施方法

ADS ビーム窓候補材の一つである T91 鋼に、MT チャンバーにてイオン照射を行った。タンデム加速器による 10.5 MeV-Fe イオン（中性子による弾き出し損傷を模擬）、イオン注入装置による 0.38 MeV-H イオン（陽子照射及び核変換生成水素ガスを模擬）及びシングルエンド加速器による 1.05 MeV-He イオン（核変換生成ヘリウムガスを模擬）の 3 つのイオンビームを同時に使用したトリプスイオン照射を、ADS 実機や核変換照射実験施設の照射条件に合わせて行った。また、比較として、核変換生成ガスのない状態、すなわち Fe イオンのみの照射も行った。照射後に、収束イオンビーム加工

（FIB）による TEM（透過型電子顕微鏡）試料を作製し、断面 TEM 観察により微細組織評価を行った。

陽電子消滅寿命測定（PALS）には、 $^{22}\text{Na}$  密封線源を使用した。線源と同程度の大きさである 10mm $\phi$  程度の照射面積が必要になるため、スキャナによりビームを広げ、照射損傷量は、深さ 2 $\mu\text{m}$  付近で約 3.5 dpa（dpa:弾き出し損傷量の指標）に、照射温度は試料表面にて ADS 炉内機器の設計温度の中心である 450 $^{\circ}\text{C}$  に制御して照射を行った。PALS の試料配置を図 1 に模式的に示す。熱処理により欠陥濃度を低くした純 Fe 試料と照射試料により Na 線源を挟み込み、純 Fe と線源（カプトンで封入）からの寿命成分はシングル及

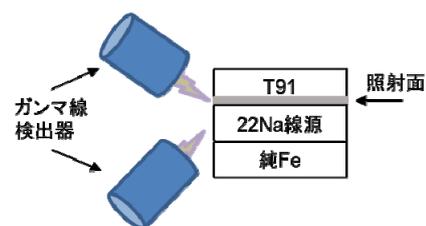


図 1 陽電子寿命測定時の試料の模式図

びトリプル照射のスペクトルデータから同様に取り除いた。ガンマ線検出器 2 台を 90 度の角度で試料に正対させ、陽電子寿命測定を行った。

### 3. 結果及び考察、今後の展開等

ADS ビーム窓材料中における核変換 H や He の生成条件 (75 appmHe/dpa, 560 appmH/dpa) にて照射後に、JAEA 東海にて、陽電子寿命測定を行った。その結果、トリプル照射の場合、空孔クラスターがより多く存在することを示唆する結果が初めて得られた。図 2 に、シングルイオン及びトリプリーオン照射済 T91 鋼の陽電子寿命測定結果を示す。図中の円で示した 400ps 程度の長寿命成分が、シングル照射に比べてトリプル照射により若干長くなっている。長寿命成分は、空孔が複数集まった空孔クラスターに補足された陽電子の消滅に起因していることから、トリプル照射では、照射損傷を受けた表面付近に空孔クラスターがシングル照射よりも多く存在していることを示唆している。図 3 に、シング

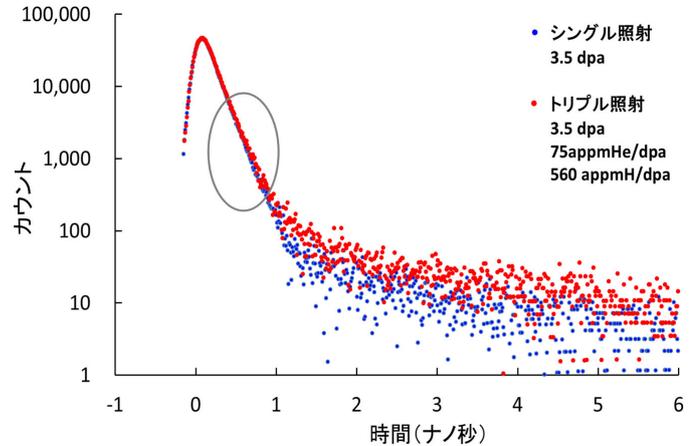


図 2 イオン照射済 T91 鋼の陽電子寿命測定結果

ル及びトリプル照射した試料の、照射表面から深さ 1.0  $\mu\text{m}$  (写真の下側) から 1.6  $\mu\text{m}$  (写真の上側) の範囲から抽出した断面 TEM 写真を示す。照射損傷、He および H の割合は、それぞれ 40 dpa、15 appm He/dpa、および 150 appm H/dpa であり、照射温度は 500°C である。シングル照射の場合、深さ 1.2  $\mu\text{m}$  付近の弾き出し損傷量 40 dpa では明瞭なキャビティ (空孔集合体) は観察されず、深さ 2  $\mu\text{m}$  付近の弾き出し損傷がピーク値に相当する 100 dpa でも観察されなかった。一方、トリプル照射の場合は、900 nm から 1.6  $\mu\text{m}$  の深さ範囲に多数のキャビティが観察された。以上のように、T91 鋼では、シングルイオン照射ではキャビティ (TEM 観察可能なサイズの空孔集合体) が形成されない照射条件においても、トリプル照射によりキャビティ形成が起こり、体積膨張 (スウェリング) を助長する傾向が得られた。この時の照射量は、スウェリングが生じるとされる 10 dpa 以上であることから、陽電子消滅測定用にビームを広げて照射した試料の 3.5 dpa では、照射量としては、スウェリングが生じる前の潜伏時期 (十分な空孔集合体ができる照射量に相当) であると考えられる。Na 線源からの陽電子の飛程は、鉄鋼材料中で 100  $\mu\text{m}$  程度であり、今回のトリプリーオン深さ 1  $\mu\text{m}$  に対する照射欠陥を補足する効率はあまり高くはないが、今回、Na 線源を用いた PALS によって、照射モードによる寿命成分変化の検出が見通せたことから、今後、陽電子の入射エネルギーが可変可能な低エネルギー陽電子ビームを用いた PALS により、照射損傷深さ領域についてより詳細な空孔欠陥に関するデータを取得する予定である。

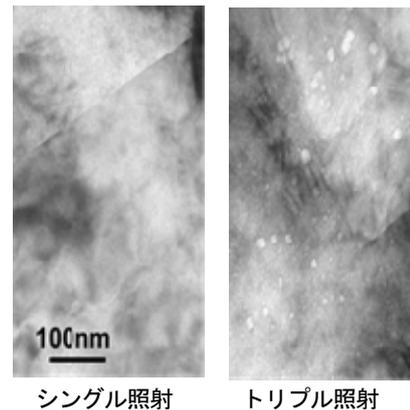


図 3 イオン照射済 T91 鋼の断面 TEM 写真  
 写真上部が 1.0  $\mu\text{m}$ 、下部が 1.6  $\mu\text{m}$  深さ付近