

放射線照射した原子炉材料表面のイオンビーム表面分析法による研究

ION BEAM ANALYSIS OF THE SURFACE OF NUCLEAR MATERIALS IRRADIATED WITH RADIATION RAY

倉橋慎太郎[#], 奥田修一, 秋吉優史

Shintaro Kurahashi[#], Shuichi Okuda, Masahumi Akiyoshi

Osaka Prefecture University

Abstract

Fuel cladding having zirconium as a major component is irradiated during fission reactor in high-temperature and high-pressure environment. As waterside corrosion progresses, the fuel cladding becomes brittle for oxygen and hydrogen diffusion in oxide layer formed on the zirconium. Research on the mechanism of oxygen and hydrogen diffusions was conducted. However, the studies on the change in the surface of zirconium irradiated with ionizing radiation mostly has not proceeded so far. The purpose of our study is to investigate the change in the surface of nuclear materials irradiated with ionizing radiation by use of ion beam analysis. As ionizing irradiation and ion beam analysis, we used the ⁶⁰Co γ radiation facility of OPU Radiation Research Center and the 1 MeV electrostatic accelerator.

1. 緒言

原子炉燃料を長時間使用することは放射性廃棄物の発生量低減に繋がり、原子炉燃料再処理施設や放射性廃棄物処理場の設備容量を縮小できる。そのためには燃料被覆管の耐久性を上げる必要があり、長年研究開発が行われている^[1]。

原子炉の燃料被覆管に用いられる材料においては、軽水によって酸化腐食反応が進みにくく、中性子および熱効率を損なわない特性が要求される。主に、1) 中性子反応断面積が小さいこと、2) 熱伝導率が大きいこと、3) 軽水に腐食されにくいこと、4) 照射劣化を起こしにくいこと、5) 核燃料と反応しないこと、などが挙げられる^[2]。以上の特性を持つ材料として、現在多くの原子炉では、すず (Sn)、クロム (Cr)、ニッケル (Ni)、鉄 (Fe) といった添加元素を含むジルコニウム合金 (Zr) が用いられている^[2]。特に熱中性子吸収断面積が 0.18 barn と他の材料に比べ非常に小さいので、熱中性子の損失が少ない。この特性は原子炉の炉心材料として用いる場合に利点である。

原子炉燃料被覆管は炉内において高温高圧の条件下に加え、核分裂反応に伴う放射線に晒される。被覆管材料の主成分である Zr と軽水による酸化腐食反応が進むことで発生する水素や酸素は被覆管に吸収され、材料脆化の原因となる^[3]。これまで材料の特性向上や腐食挙動改善の研究が進められてきたが、酸素や水素などの拡散機構は十分に解明されていない^[4]。また、放射線環境下で、金属の酸化腐食反応の変化についての研究が必要である。水素および酸素といった元素の情報が得られる優れた方法の一つであるイオンビームによる表面分析法を用いて、表面状態を調べる研究

はこれまでほとんど行われていない。本研究では、粒子線励起 X 線分析法(PIXE)、ラザフォード後方散乱分析法(RBS)、弾性反跳粒子検出法 (ERDA)、核反応法 (NRA) を利用する。そして、材料表面における水素および酸素の情報を得ることでその挙動および放射線照射の影響を評価する。

2. 実験方法

2.1 Zr 試料

今回の実験では、フルウチ化学株式会社製純度 99.2 % の Zr を使用した。材料の寸法は、 $9 \times 9 \times 1 \text{ mm}^3$ である。未照射および大気中で γ 線照射した試料を用意した。

2.2 Co-60 を線源とする γ 線照射実験

⁶⁰Co の γ 線照射実験は、放射線環境下における金属表面の変化を調べるために行った。実験では、大阪府立大学放射線研究センター^[5]の γ 線照射施設を使用した。 γ 線照射の線量率 8.5 kGy/h で、30 分間試料に照射した。つまり、 γ 線照射の線量は 4.2 kGy である。

2.3 RBS 分析法による測定

後方散乱スペクトルの計算により測定配置を最適化した。RBS の測定実験により、材料の表面状態を評価した。イオンビーム分析に関しては、大阪府立大学の 1 MeV 静電加速器を用いて行った。1 MeV 静電加速器のビー

[#] my106001@riast.osakafu-u.ac.jp

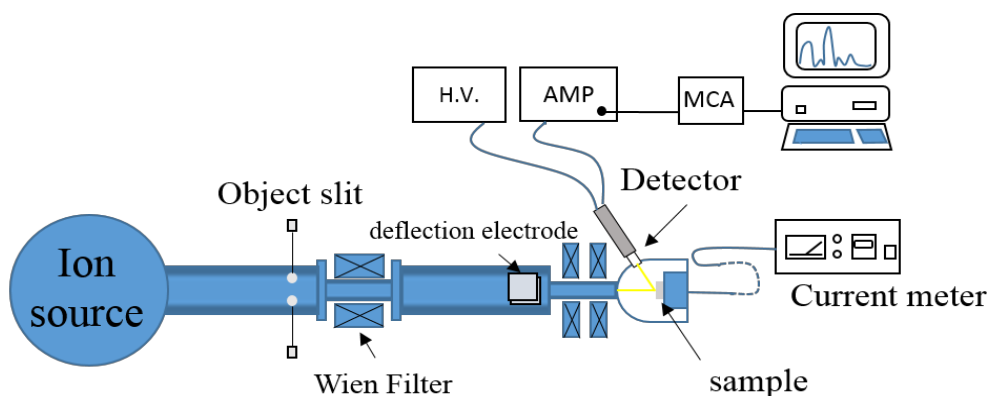


Figure 1: Schematic diagram of the 1 MeV electrostatic accelerator and the beam-transport system.

ム輸送系を Figure 1 に示す。加速器の測定条件を Table.1 に示す。ビーム分析のプローブイオンは水素を使用した。水素イオンは、入射エネルギー950 keV、ビーム径は約 1 mmφ、ビーム電流は 0.7-0.8 nA であった。

Table 1: Measurement Condition

加速イオン	H ⁺ , He ⁺
加速電圧	≦1 MeV
ビーム径	約 1 mmφ
ビーム電流	約 0.8 nA
二次電子抑制 バイアス電圧	正 125V

3. 結果と考察

単一の Zr および原子炉内を想定して材料表面に厚さ 1.6 μm の ZrO₂ 被膜が存在すると仮定した計算結果と、実験結果を、Figure 2 に示す。横軸は散乱粒子のエネルギー、縦軸は粒子数を表す。表面で散乱された粒子のエネルギー913 keV を境に、スペクトルは立ち上がっているが、エネルギーストラグリングおよび検出器の分解能に対応する広がりが見られる。そのエネルギー分解能は半値幅で約 2.1 keV である。

900 keV 付近における計算結果と実験結果のスペクトルの違いは、表面粗さや試料表面に酸素 (O)、炭素 (C)、窒素 (N)、ハフニウム (Hf)、鉄 (Fe)、クロム (Cr) といった不純物の影響によるものと考えられる。700~800keV 付近におけるスペクトルの違いは、多重散乱の影響であると考えられる。また、実験結果において酸素の信号が確認できなかった。試料表面に酸化膜が 1.6 μm ほど形成さ

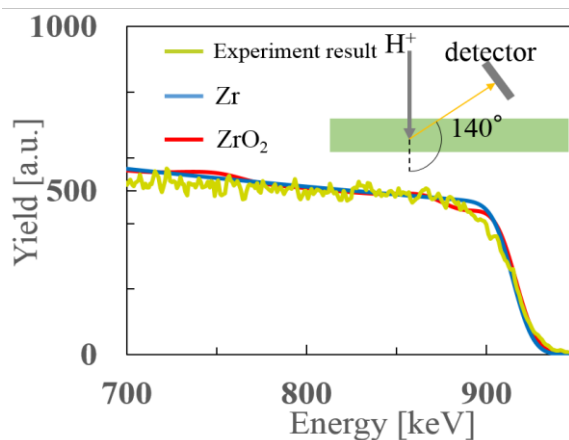


Figure 2: RBS spectrum of spectral calculation and experiment.

れていないと考えられる。

γ線照射前後の試料に対する実験結果を Figure 3 に示す。Figure 1 と同様に横軸は散乱粒子のエネルギー、縦軸は粒子数を表す。スペクトルはほぼ重なっており、違いは確認できなかった。大気中で4.2 kGy の γ線を試料に照射しても表面が酸化されるこ

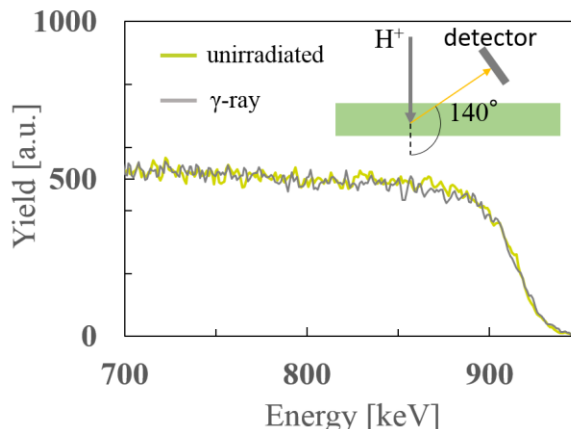


Figure 3: RBS spectrum of two samples before and after irradiation.

ともなく変化しないことがわかった。

4. まとめと今後の課題

原子炉燃料被覆管材料である Zr は、軽水による酸化腐食されながら高線量の放射線に晒される。放射線が金属の表面状態の変化に影響を与えるかどうかを調べるために材料の表面に 4.2 kGy の $^{60}\text{Co}-\gamma$ 線を大気雰囲気下で照射した。

イオンビーム分析法のひとつである RBS 分析で材料の測定を行い、表面状態の変化を調べた。イオンビームに関しては 1 MeV の静電加速器を用いた。

結果として、4.2 kGy の $^{60}\text{Co}-\gamma$ 線の照射前後の材料の表面状態に差がないことがわかった。大気雰囲気下で $^{60}\text{Co}-\gamma$ 線照射しても酸化が促進されないことが明らかになった。

今後は、水に浸けた状態やアルカリ腐食中で $^{60}\text{Co}-\gamma$ 線照射を行うなど条件を変える。そして、イオンビーム分析で表面状態の情報についてさらに詳しい情報を得ることで、放射線環境下の腐食に関する系統的な知見を得る。また、長時間測定して測定感度を高め、またプローブイオンを水素からヘリウムに変えて、よりエネルギー分解能を向上させて測定する予定である。

本研究の一部は、2015 年度 KEK 大学等連携支援事業の支援によって行われた。

参考文献

- [1] ジルコニウム合金ハンドブック 日刊工業新聞社(2010).
- [2] 原子炉材料 日刊工業新聞社(1960).
- [3] Y. Udagawa, et al, Acta Materialia **58**, 3927 (2010).
- [4] K. Takai, SCAS NEWS **30**, 3 (2009).
- [5] 大阪府立大学地域連携研究機構放射線研究センター,
<http://www.riast.osakafu-u.ac.jp/facility/co60.html>