

論文題目 原子炉压力容器鋼中の照射欠陥の挙動と経年劣化に関する研究

氏名 村上 健太

1. 序論

軽水炉の安全上最も重要な機器の一つである原子炉压力容器では、供用中の中性子照射脆化によって破壊靱性が低下する。長期供用時の健全性を十分に前もって評価するには、監視試験等から得られた情報に基づいて、照射脆化を予測することが必要である。従って、経年劣化管理の対象となるプラント群に適した脆化予測法の開発と、状況の変化や知見の拡充に沿った脆化予測法の改良が必要である。

本研究は、照射脆化に影響を与える様々な因子のうち、これからのわが国の原子炉において丁寧に扱う必要が生じる可能性のある因子を抽出し、その因子による影響を、他の因子と区別して精緻に実験的に測定することによって知見を拡充することで、照射脆化法の持続的な発展に寄与するものである。

複数の実験条件を精緻に制御する照射試験として、イオン照射法が古くから使われている。本研究では、イオン照射を用いて精緻な実験を設計することで、照射技術や評価法の進歩に貢献する事も目指す。

2. 照射脆化に関する研究課題の抽出

わが国における照射脆化の主因は、原子炉压力容器鋼材のマトリクス中で溶質原子が濃化した「溶質原子クラスタ」の形成であると考えられている。従来は、その固溶限の低さから、鋼中に不純物元素として含まれる銅が濃化すると考えられていた。しかし、わが国の監視試験材の系統的なマイクロ組織観察の結果、銅と共に、ニッケル、マンガン、シリコンが濃化し、直径 3 ナノメートル程度のクラスタを形成することが明らかになった¹。銅濃度が低い鋼材においては、 $3 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ 以上の照射を受けたとき、銅を含まず、ニッケル、マンガン、シリコンだけが濃化したクラスタが形成することも示された¹。

現在の脆化予測法²は、国内の監視試験結果とマイクロ組織観察結果に基づき、脆化メカニズムを考慮して式化されている。入力パラメータは、環境の条件として照射量と照射速度、照射温度であり、材料の条件として銅とニッケルの含有量である。

本研究では、以下の三つの課題を解決することを目的とする。

課題 1 銅を含まずニッケルやマンガンを含む溶質原子クラスタの形成過程を明らかにすること

銅を含まないクラスタの形成メカニズムについては、未解明の部分が多い。わが国の脆化予測法²では、溶質原子の転位ループへの偏析としてモデル化されている。一方で、カスケード損傷の冷却過程で溶質原子が集合する可能性を指摘する研究者もいる³。

課題 2 クラスタ発達に対するシリコンの影響を明らかにすること

材料試験炉で 10^{23} n/m^2 オーダで照射された圧延鋼では、照射量の増加と共にクラスタ中のシリコン含有量が増加することが、脆化予測法改訂後に明らかになった⁴。わが国の原子炉压力容器ではシリコン濃度にある程度分布があり、シリコン濃度を考慮することで、長期的な予測性能の向上が考えられる。

課題 3 ミクロ組織発達に対する材料の不均質さの影響を明らかにすること

わが国の脆化予測法²は、鋼種（母材 / 溶接金属 / 溶接影響部、圧延鋼板 / 鍛造品）の区別を入力パラメータとして持たない。鋼種の違いは、マトリクスの不均質さ（つまり金属組織）に影響を与える。

もしマトリクスの不均質さによってマイクロ組織の発達に違いが生じるならば、鋼種の違いを入力パラメータに考慮する事によって、脆化予測法の精度向上が期待できる。

3. 照射欠陥の移動に対する溶質原子の影響

3.1 研究の方針

溶質原子クラスタの形成は、溶質原子と点欠陥の拡散過程に支配される。拡散過程に影響を与える因子として、溶質原子の濃度に加え、照射温度や照射速度等がある。照射速度はクラスタの性状に大きく影響を与えることが知られているが、実機と同等の環境を実験的に再現することはできない。そこで、溶質原子濃度が変化したときに、拡散過程自体がどのように変化するかを精緻に調べることで、照射速度の影響と切り離して、溶質原子の影響を抽出することにした。

照射欠陥の拡散を抑制する事の可能な低温(<70 K)で 1MeV H⁺を原子炉圧力容器鋼材のモデル合金へ照射して、欠陥を導入し、その後等時焼鈍することにより、格子間原子型、空孔型などの拡散機構を分離しながら、少しずつ照射欠陥を拡散させ、各々の過程に対する溶質原子の影響を調べた。拡散挙動の観察には、主に電気抵抗率測定法を使用した。電気抵抗率は、格子振動による自由電子の散乱が無視できるなら、欠陥や溶質原子の濃度に比例することが知られており、各因子の比例係数も既知である⁵。

3.2 純鉄における欠陥挙動

1MeV H⁺ 照射された pure Fe における照射欠陥の拡散挙動を、先行研究^{6,7}と比較しながら、明らかにした。低温照射後に等時焼鈍を行うと、移動活性化エネルギーものから順に欠陥が拡散することにより、電気抵抗率の回復段階が観測される。今回の実験では、低温側から Stage I_D (相関再結合)、Stage I_E (格子間原子の自由な移動)、Stage II (微小な格子間原子集合体の自由な移動)、Stage III_A (近接空孔の集合)、Stage III_B (空孔の自由な移動) が観測された。

3.3 Fe-Ni-Mn 系における溶質原子クラスタの形成過程

まず、Fe-0.7Ni 合金 と Fe-1.4Mn 合金の欠陥挙動を pure Fe と比較して、ニッケルとマンガンが拡散過程に与える影響を明らかにした。図 1 に電気抵抗率の等時焼鈍変化率を示す。何れの合金でも Stage I_D が減少するが、これは溶質原子によって、格子間原子の相関再結合が阻害されたことを示している。代わりに Stage II_{Ni}, II_{Mn} が発現する。これらは格子間原子と溶質原子の複合体 (基本的に混合亜鉛) の移動である。また、Fe-1.4Mn 合金では、Stage III_c と Stage III_d が発現した。これは空孔がマンガン原子に捕捉されて拡散が阻害され、Stage III_c と III_d の発現する温度で解放されることを示す。これらの結果から、ニッケルとマンガンの単独での添加により、格子間原子の長距離の拡散を促進することと、

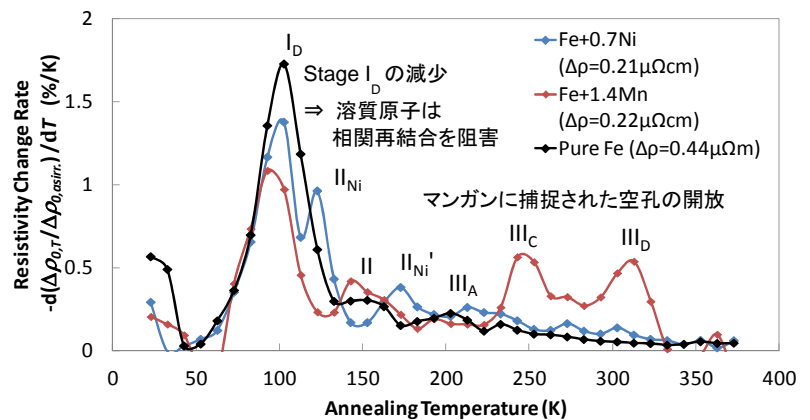


図 1 二元系合金の電気抵抗率の等時焼鈍変化。

(照射: 1 MeV H⁺ at <70 K, 測定: 12 K, 焼鈍: ΔT = 10 K, Δt = 600 s)

空孔の実質的な移動活性化エネルギーを増加させることが、明らかになった。

次に、Fe-0.7Ni-1.4Mn 合金の欠陥挙動を二元系合金と比較して、ニッケルとマンガンの重畳効果を明らかにした。電気抵抗率の温度依存性を図 2 に示す。二元系合金では 370 K までの焼鈍で、電気抵抗率が未照射の水準となる。一方、Fe-Mn-Ni 合金では、200 K までの焼鈍で、未照射以下の水準まで電気抵抗率が低下する。これは、マトリクスから溶質原子が失われたこと（溶質原子クラスタ形成か、粒界等への偏析）を意味する。粒径と拡散距離の比較から粒界偏析とは考えにくい。また、転位ループ等への偏析とも少し異なる。200K までにマトリクスから取り去られる溶質原子の数は、移動に寄与する照射欠陥の 10 倍以上になるからである。従ってこの現象は、ニッケルとマンガンが溶質原子クラスタを形成したことを示すものである。

Fe-Ni-Mn 合金と二元系合金では、相関再結合は同程度発現している。もしクラスタ形成にカスケード損傷の冷却過程が寄与しているなら、相関再結合以下の温度域で、電気抵抗率の回復挙動に違いが生じるはずである。従って、クラスタ形成にカスケード損傷が影響を与えるという仮説は、否定される。

このクラスタ形成は、格子間原子型の照射欠陥の拡散に誘起されると判断できる。溶質原子の析出が 200 K 以下で発現するからである。また、空孔型の拡散はクラスタの成長に寄与していると判断できる。空孔が自由に移動を始める温度でも電気抵抗率の低下は継続するからである。

3.4 クラスタ発達における Si の影響

前節で説明した三種類の合金に対する 0.3wt.% のシリコンの添加効果を、同様の手法で研究した。ほとんどの結果は、照射欠陥-溶質原子複合体における溶質原子の一部が、ニッケルやマンガンからシリコンへ置き換わったことで説明可能であった。

例外的に、Fe-Ni-Si 合金の高温側では、新たな溶質原子の挙動が発現した。図 3 に電気抵抗率の等時焼鈍変化を示す。空孔が活発に移動を開始する 290 K 以上で、Fe-Ni-Si 合金では大きな電気抵抗率の低下が生じる。電気抵抗率は未照射の水準を大きく下回っており、溶質原子クラスタの形成が示唆される。つまり、(転位ループ等の)照射欠陥の存在する環境では、熱平衡状態では観察されないニッケルとシリコンのクラスタが形成されることが示唆された。

4. ミクロ組織発達に対する材料不均質さの影響

4.1 研究方針

金属組織に起因するメゾスケールのマトリクスの不均質さによって、照射効果の違いが発現するか否

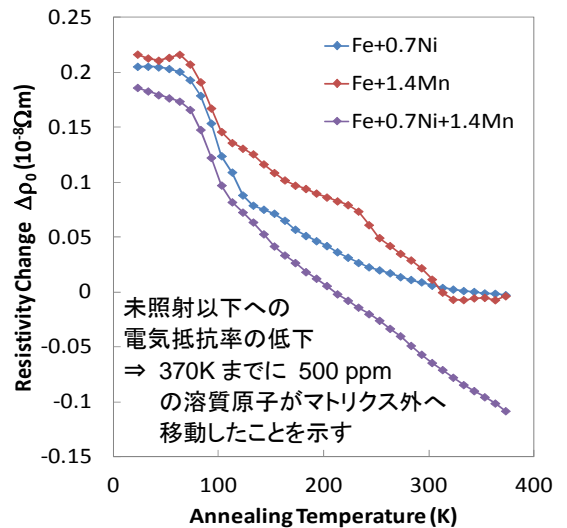


図 2 Fe-Ni-Mn 合金の回復段階。

(照射: 1 MeV H⁺ at <70 K, 測定: 12 K, 焼鈍: ΔT= 10 K, Δt= 600 s)

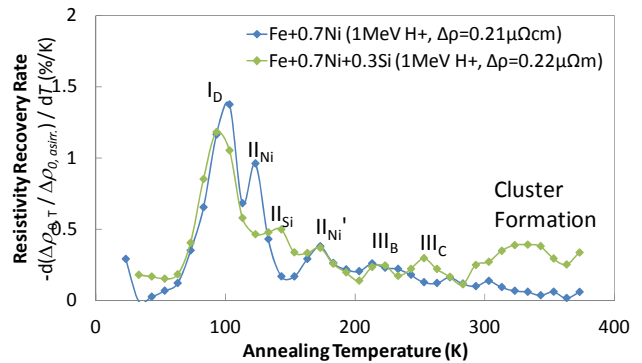


図 3 Fe-Ni-Si 合金の電気抵抗率の等時焼鈍変化。

(照射: 1 MeV H⁺ at <70 K, 測定: 12 K, 焼鈍: ΔT= 10 K, Δt= 600 s)

かを明らかにするために、結晶粒毎の臨界せん断応力と相関の強いマイクロメートルサイズの微小押し込み試験に着目した。押し込み試験を多数回実施して、硬さ分布がどのように変化するかを調べた。

2.8MeV Fe²⁺イオンを 563K で照射し、照射量と照射速度を系統的に変化させて、添加元素濃度の異なる三種類の原子炉圧力容器鋼用圧延鋼板母材において、硬さ分布の照射量依存性を評価した。

4.2 材料の不均質さによる硬さ分布の変化

銅含有量の高い二種類の鋼板では、照射硬化が試料の位置によって不均質に生じることが明らかになった。典型的な例を図4に示す。硬さの分布は照射量の増加と共に一旦広がるが、その後は1 dpa までの照射によって再び狭くなる。分布を丁寧に追うと、二段階で照射硬化が起きているように見られる。第一段階は0.1 dpa 程度までに生じるもので、先行研究²との比較から、銅を多く含む析出物の形成によるものだと考えられる。このとき、硬さ分布の広がりは大きくなる。照射量の増加と共に、再び0.5~1 dpa で再度硬化が観測される。このとき硬さ分布の上位側はほとんど移行せず、硬さ分布の下位側のみが硬さの大きい方へ移行する。この現象は、第一段階で大きく硬化したマトリクスでは、第二段階の硬化が少ないことを示唆するものである。

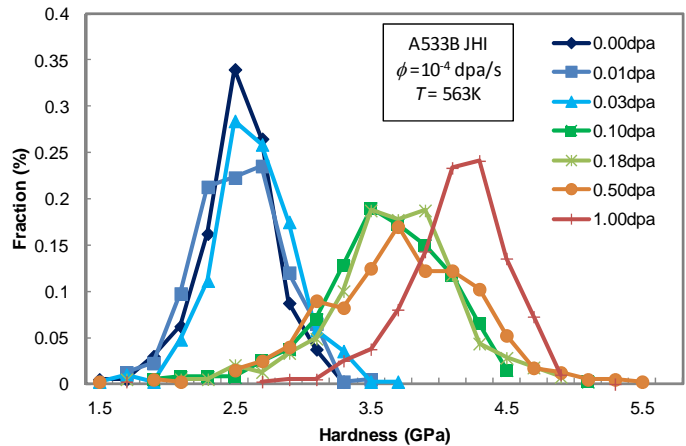


図4 A533B JHI 鋼の硬さ分布の照射量依存性

銅濃度の低い一種類の鋼板では、硬さ分布の特徴的な変化は観測されなかった。このことから、材料不均質さによるマイクロ組織発達の違いは、銅濃度の高い溶質原子クラスターの形成と関連していると推察される。

5. 結言

課題1: ニッケルとマンガンのクラスター形成が、カスケード損傷の冷却過程ではなく、格子間原子型の拡散過程によって、誘起されることを明らかにした。

課題2: シリコンの添加効果について、(転位ループ等の)照射欠陥の存在する条件において、ニッケルとシリコンの重畳効果により、溶質原子クラスターが形成されることを明らかにした。

課題3: 金属組織の違いに起因する材料不均質さについて、銅濃度の高い溶質原子クラスターの形成に影響を与える可能性が示唆された。

参考文献

- 1) 曾根田直樹, 他, *CRIEPI report* Q06019, 2006.
- 2) 日本電気協会, 「原子炉構造材の監視試験方法」 JEAC 4021-2007(2010年追補版). 2010年10月.
- 3) 石野葉, 他, 「寿命・余寿命予測と材料」 p. 211, 裳華房, 2006年.
- 4) 原子力安全基盤機構, 「高照射量領域の照射脆化予測に関する報告書」, 2009年12月.
- 5) F. Maury, *et. al.*, *J. Physics: Condens. Matter* **2** (1990) p. 9291~9307.
- 6) T. Takaki, *et. al.*, *Radiation Effects* **79** (1983) p. 523~541.
- 7) H. Matsui, *et al.*, *J. Nuclear Materials* **155-157** (1988) p. 1284~1288.