原子力発電プラントの寿命延長に伴う圧力容器鋼の照射脆化評価および予測

における材料課題の抽出と対策に関する研究

京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦, 笠田竜太, 薮内聖皓 東北大学金属材料研究所 松井秀樹

1. はじめに

わが国のエネルギー政策上,軽水炉発電プラントの長寿命化は避けられない。軽水炉発電プラント の長寿命化においては、プラント構造材料、特に圧力容器の健全性を効率的かつ精度よく評価・検査 し、健全であることの材料学的な根拠を示すことが重要である。そのためには、高経年圧力容器の照 射脆化支配因子(メカニズム)を解明し、監視試験や非破壊検査などの健全性検査方法の有効性を材 料工学的に証明し,将来の原子カエネルギーの高効率利用に向けて,万全の安全対策を講じておくこ とが肝要である。

そこで本研究では、先ず、軽水炉圧力容器の長寿命化に伴う照射脆化に関わる材料課題を抽出し、 次に寿命延長時の長期間にわたる照射下における材料挙動予測を高精度で行うための照射脆化支配因 子を解明する。さらに、得られた材料学術基盤に基き、照射脆化予測と非破壊検査法の有効性と在り 方について統合的に検討し、原子炉材料学術基盤を「原子カエネルギーの高効率安全利用」に資する ことを目的とする。本研究は、原子炉発電プラントの長寿命化に対応した高経年軽水炉圧力容器の照 射脆化に関する材料学術基盤の形成と照射脆化予測ならびに非破壊検査法の在り方を研究の対象とす る。研究の内容としては、以下の5項目からなる。研究の流れの順に示す。

- 1) 圧力容器の照射脆化支配因子の解明
- 2) 上記の各要素因子の脆化に対する寄与の度合いの評価
- 3) 長寿命化に伴う支配因子の寄与率変化の検討
- 4) 照射脆化予測のための材料学術基盤形成
- 5) 材料学術基盤に基いた各種非破壊検査方法の有効性と在り方の統合的検討

2. 研究計画

初年度は、中性子照射データのうち中性子量が1x10¹⁹以上1x10²⁰n/cm²未満の範囲におけるマンガンの照射 脆化に及ぼす影響を明らかにするとともに、従来、材料試験炉(JMTR)や韓国の試験炉を用いて我々が蓄 積してきた照射脆化データに基づき、圧力容器鋼(A533B[15], cl.1:日本製鋼所作製)における照射脆化 の照射量依存性について検討する。あわせて、不純物銅や格子間型転位ループなどの各要素因子による照 射脆化の照射量依存性を明らかにする。

照射及び照射後焼鈍に伴う材料組織変化を現有設備である最新鋭の分析装置や観察装置を用いて詳細に調べ,照射脆化の各要素因子を特定する。電気抵抗測定に関しては,新たに装置を整備し,高精度の測定を行い,支配因子の特定に利用する。また,次年度以降の照射データ取得のため,高照射領域までの材料照射を行う。以下に具体的な実施項目を示す。

- 1) 原料および材料製造調達(実機模擬材および鉄基モデル合金の作製)
- 2) 照射用試験片の加工(衝撃試験,引張試験,電気抵抗測定,3D-APFIM,TEM,陽電子寿命)
- 3) 中性子照射後実験(東北大学金属材料研究所にて実施。一部は京都大学エネルギー理工学研究所 RI実験室にて実施)
- 4) イオン照射後実験
- 5) 非破壊検査法の原理と実態の調査

次年度は、圧力容器鋼の高照射領域における照射脆化支配因子を抽出する。特に、マンガンおよび不 純物銅の脆化への寄与の程度について調べ、高照射領域における脆化寄与の度合いの照射量依存性を 解明する。平成 16 年度の研究成果(中性子照射量が 1x10²⁰n/cm²未満のデータ)と比較しながら、照 射脆化予測と非破壊検査法のあり方を検討するための材料学術基盤を形成する。

最終年度までに得られた成果に基き,寿命延長時の照射脆化予測として,従来の予測式にマンガン の寄与を取り入れた新たな予測式の導出を行う。長寿命化の際の照射脆化に関する材料学術基盤に基 づき,各種非破壊検査法の可能性と限界について考察し,検査法の有効性と在り方について材料学と 検査技術の観点からの統合的検討を行う。

3. 研究経過

3-1. マンガン影響

これまでに我々は、鉄二元系合金の中性子照射硬化挙 動を調べ、Fe-Mn合金が種々の鉄二元系合金の中でも極 めて顕著な照射硬化を示すことを見出した。Mnは軽水炉 圧力容器鋼の添加元素の中で最も添加量が多く、照射硬 化への寄与が大きいにも関らず、維持基準に不可欠な照 射脆化予測式の対象元素になっていない。また、Mnの影 響は比較的高照射量域(10¹⁹n/cm²以上:運転年数 30 年 以上)において顕著になる傾向を示しているため、長寿 命化に対応する照射量域における照射量依存性を詳細 に調べておく必要があるため、これまでにFe-Mn系合金 の照射硬化挙動およびその照射量依存性を明らかにす る実験を実施してきた。照射硬化量の照射量依存性の結 果を図1に示す。横軸は中性子フルエンスである。Fe-Mn を除くすべての合金元素において、照射硬化の中性子フ ルエンス依存性は確認されなかった。すなわち、Fe-Mn 以外の合金における照射硬化は既に飽和状態にあると 考えられる。特に顕著な照射硬化を示しているのは Fe-Cu合金であるが、実験範囲内の照射量において一定 の値を示しており、Cuの照射促進析出が当該実験の照射 量以下で既に終了していることを示唆している。



図 1:純鉄および鉄合金の中性子照射硬化量の 照射量依存性(JMTR 温度制御照射、290℃)。

表1: JMTR 照射によって純鉄と Fe-Mn 合金中に 形成された転位ループの平均サイズ及び数密度

Material	平均サイズ(nm)	数密度(×10 ²⁰ m ⁻³)		
pure-Fe	24. 5	3.0		
Fe-Mn	5. 3	330		

Fe-Mnに関しては、照射硬化量は 5.3×10¹⁹n/cm²付近を境に顕著に増加することが判明した。鉄中のMnの 固溶度は高く、照射後の電気抵抗測定実験結果からはMnの照射誘起析出は考えにくい。そこでTEM観察した 結果、Fe-Mn合金においては極めて高密度で微細な転位ループが形成されており、純鉄と比較すると、平均 直径が 1/5 であり、数密度は 100 倍に及んでいることが判明した(表1参照)。

3-2. マンガン影響と照射脆化予測

日本電気協会が定めている現行の照射脆化予測式を式(1)および(2)に示す。式(1)および(2)はそれぞれ、 圧力容器鋼の母材および溶接金属に対するものである(JEAC 4201-2004:付録)。これらの式においてMn は評価対象外であることがわかる。原子炉圧力容器鋼はいわゆる低合金鋼であり、合金元素の中で最も多 量に含まれている元素はMnであるにも拘らず、その影響は考慮されていない。なお、A533B圧力容器鋼の成 分を表 2 に示す。また、従来のMn影響に関する研究は少ない。その理由の一つにMn影響の発現する中性子 照射量が比較的大きいことが上げられる。これまでのJMTRを用いた照射実験結果は、Mn影響が発現するた めには中性子照射量が 5x10¹⁹ n/cm²以上で無ければならないことが判明しており、それ以下の照射量ではMn 影響を観察することはできない。すなわち、通常、我が国の軽水炉圧力容器が 30 年間に蒙る中性子照射量 は最大でおよそ 3 ないし 5x10¹⁹ n/cm²であることから、それ以下の照射量領域において中性子照射量 は最大でおよそ 3 ないし 5x10¹⁹ n/cm²であることから、それ以下の照射量領域において中性子照射量は最大 1x10²⁰ n/cm²に達することになり、まさにMn影響が発現し、顕著になると予想されることから、マンガン影 響評価のための調査研究が重要になっている。

$$\Delta RT_{NDT} = [CF] \cdot f^{0.29-0.04 \log f} - \dots - \dots - (1)$$

$$[CF] = -16 + 1210 \cdot P + 215 \cdot Cu + 77\sqrt{Cu \cdot Ni}$$

$$\Delta RT_{NDT} = [CF] \cdot f^{0.25-0.10 \log f} - \dots - \dots - (2)$$

$$[CF] = 26 - 24 \cdot Si - 61 \cdot Ni + 301\sqrt{Cu \cdot Ni}$$

Cu, Si, Ni, P: content (wt%) of atoms, f: neutron fluence (x1019n/cm2, E>1MeV)

表2:軽水炉圧力容器鋼の成分元素

element	С	Si	Mn	Ni	Мо	Cu	Р	S
wt%	<0.25	0.15- 0.30	1.15-1.50	0.40- 0.70	0.45- 0.60	<0.12	<0.015	<0.018

図2は、A533B 鋼の材料試験炉及び実機サーベイランスデータである。本研究において観察された Fe-Mn 合金のフルエンス依存性における閾値は圧力容器鋼のそれに一致してはいないが、閾値を超えて急激に増 加する傾向は極めて類似している。閾値の大きさを比較すると、高 Cu 圧力容器鋼(0.02dpa)、低 Cu 圧力容 器鋼(0.04dpa), Fe-Mn 合金(0.08dpa)と合金系が 複雑になるほど, また, 銅濃度が増大するほど小 さくなる傾向がみられる。白抜きの三角で示した データは不純物銅濃度の低い圧力容器鋼の照射 脆化サーベイランス結果である。JEAC 4201-1991 から見積もった値(太い実線)から外れているが、 照射脆化が急激に顕著になる傾向は不純物銅濃 度の高い場合と極めて類似している。すなわち、 JEAC の予測式では、閾線量以上の挙動を精度良 く予測することができない。

△DBTT の値が 50℃程度ならば、予測式からの ずれは大きくないため、実際の運転に支障をきた すことは無いと推測されるが、科学的根拠に基づ いた予測式を開発し、可能な限り高精度で照射脆 化を予測することの意義は大きい。

3-3. 当面の課題

2 元系の鉄モデル合金で観察された照射硬化 促進機構が鋼において観察されるかを確認する必要が ある。すなわち、鋼に特有のベイナイト組織や他の溶 質元素や不純物の影響などが対象となる。特に、

1) 炭素の影響(ベイナイト組織、空孔捕獲効果)

2) 不純物銅の影響

3) Niの影響(Mnよりは小さいが同様に鉄の照射硬化を促進する) に関しては、詳細な調査研究が必要である。

4. 研究成果

本研究では Fe-Mn 系合金における照射硬化に及ぼす第3元素の影響を明らかにするとともに、当該合金 における照射硬化機構を解明することを目的として、鉄モデル合金を以下の手順で作製し、JMTR を用いた 照射実験を行った。

(実験方法)

Fe-1Mn-X合金を溶体化処理した後、氷水中に急冷した。引張試料およびTEM試料を作製し、JMTRにて 中性子照射を行った。照射温度は290℃である。照射温度は290℃である。 フルエンスモニターやキャプ セル中の試料装填位置から各キャプセルの照射量を見積もった結果、それぞれ、小さい方から、6.5 x 10¹⁹、 1.0 x 10²⁰n/cm²である。照射後、室温にて引張試験を引張速度、6.67 x 10⁻⁴/sで行った。TEMにて照射後の 組織観察を行った。

(実験結果)

純鉄および各合金の応力ひずみ曲線に及ぼす中世者の影響を図3に示す。純鉄およびFe-0.1Mn合金においては70MPa程度の照射硬化が観察され、照射量にほとんど依存していない。一方、マンガン量が1.0 および 1.5%のFe-Mn二元系合金やFe-1.5Mn-X三元系合金では、極めて顕著な照射硬化が高照射量(1.0x10²⁰n/cm²)でのみ観察された。第3元素の影響に着目すると、NiはFe-1.5Mnの照射硬化量を低減するのに対しCuは逆にわずかではあるが増大させる傾向にある。この結果から、NiやCuの存在下においてもMnによる照射硬化促進が生じることが判明した。

鉄中の Mn の固溶度は高く、照射後の電気抵抗測定実験結果からは Mn の照射誘起析出は考えにくい。そ こで TEM 観察した結果、Fe-Mn 合金においては極めて高密度で微細な転位ループが形成されており、純鉄 と比較すると、平均直径が 1/5 であり、数密度は 100 倍に及んでいることが判明した(図 4)。すなわち、 Mn 影響は高密度の微細な転位ループが形成されることによるが、このメカニズムとしては、Mn は鉄中では オーバーサイズ原子であることから、先ず、最初は Mn が空孔の捕獲場所になり、次に Mn-V 対が格子間原 子の有効な捕獲サイトしての機能を果たすことにより、格子間型転位ループの核生成場所を提供するため と解釈することができる。メカニズムに関しては、計算機シミュレーション実験などで可能性を調査する 必要があろう。図 5 は、TEM 観察から Orowan 式を用いて評価した照射硬化量を示す。

また、格子欠陥は転位と相互作用するため、鋼に特有のベイナイト組織が存在する時の Mn 影響を今後調 べる必要がある。

このように、圧力容器鋼の長寿命化の場合の照射硬化・脆化は、当該鋼に最も多量に含まれている Mn の 影響を強く受けている可能性が指摘される。来年度は、Fe-Mn-C 系の合金を作製し、圧力容器鋼の組織と 類似の組織を持つ場合の挙動を調べる。



図 2: A533B 鋼の材料試験炉及び実機サーベイ ランスデータ



— 58 —

5. まとめ

11.

Fe-Mn 系モデル合金を用い、中性子照射硬化に及ぼす Mn および第三元素の影響を調べ、以下の結果が得られた。

- 1) Mn 量が増えると、Mn の影響が顕著になる. (Mn 量依存性)
- 2) 高照射量で Mn の影響が顕著になる. (照射量依存性)
- 3) 第3元素(Ni, Cu)の影響について
 - I. Fe-1.5Mn-0.7Ni では Fe-1.5Mn に比べ, Mn の影響が小さい.
 - Fe-1.5Mn では見られなかった析出物が存在.
 - Fe-1.5Mn に比べ照射欠陥が粗大かつ低密度に分散.
 - Fe-1.5Mn-0.04Cu では Cu 添加による影響はほぼなかった.
- 4) 照射欠陥が Mn の影響により高照射領域で微細化かつ高密度化することにより、降伏応力が増加 すると考えられる.
- 5) Fe-1.5Mn-0.7Ni では析出物により, 照射欠陥の微細化, 高密度化が妨げられ, Fe-1.5Mn に比べ 降伏応力の増加が抑制されたと考えられる.
- 6) Mn 影響に及ぼす損傷速度の影響の検討が不可欠.

平成18年度は、Fe-Mn系モデル合金の照射硬化に及ぼす炭素の影響について、以下の視点から調査する。 1) ベイナイト組織の影響

2) セメンタイトなどの炭化物の影響

6. 成果発表

(投稿論文)

- 1) R. Kasada, T. Kudo, A. Kimura, H. Matsui, M. Narui, "Effects of Dose and Dose Rate on the Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure vessel Steel", Effects of Radiation on Materials, ASTM STP (in press)
- 2) H. Shibamoto, A. Kimura, H. Matsui, M. Hasegawa, "Proton Irradiation Effects on Irradiation Hardening of Iron Based Model Alloys", Effects of Radiation on Materials, ASTM STP (in press)
- T. Kudo, R. Kasada, A. Kimura, H. Matsui, M. Narui, "Neutron Irradiation Hardening of Iron-Copper Alloys", 12th International Conference of Fusion Reactor Materials (ICFRM-12), December, 2005 (submitted)

学会発表

 A. Kimura, R. Kasada, H. Matsui, M. Narui, "Impact of Manganese on the Evaluation of Irradiation Embritlement of Reactor Pressure vessel Steels", 12th International Group Meeting of Radiation Damage Mechanism, April, 2005