

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 22 年 6 月 7 日現在

研究種目：若手研究 (A)  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19686058  
 研究課題名 (和文) 中性子照射した原子炉压力容器鋼の非接触電磁超音波共鳴測定  
 研究課題名 (英文) Non-contact EMAR measurement of neutron-irradiated RPV steels  
 研究代表者  
 鎌田 康寛 (KAMADA YASUHIRO)  
 岩手大学・工学部・准教授  
 研究者番号：00294025

研究成果の概要 (和文)：中性子照射材測定用の EMAR 計測システムの開発に成功した。照射模擬材として Fe-Cu 合金の熱時効材を用いた系統的实验を行い、EMAR 特性と銅析出過程でのマトリックス組織変化の関係を明らかにした。計測システムをホットラボ施設に搬送・設置し、中性子照射した原子炉压力容器鋼の EMAR 計測を実施した。照射に伴う EMAR 特性の変化挙動を明らかにし、非破壊脆化評価の可能性について検討を行った。

研究成果の概要 (英文)：EMAR measurement system for neutron-irradiated materials was developed. Systematical experiments using thermally-aged Fe-Cu alloys clarified the relation between EMAR characteristics and matrix structural changes during Cu precipitation process. Using the measurement system at hot-lab facilities, EMAR characteristics of neutron-irradiated RPV steels were examined and the feasibility of EMAR method for nondestructive evaluation of irradiation embrittlement was discussed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	11,100,000	3,330,000	14,430,000
2008 年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2009 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
総計	18,300,000	5,490,000	23,790,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：照射脆化、超音波、格子欠陥、金属物性、非破壊検査

## 1. 研究開始当初の背景

近年、各種社会基盤構造物の高経年化に伴い、機器構造物の健全性の評価技術開発が求められている。原子力発電所では压力容器 (RPV: Reactor Pressure Vessel) の中性子照射脆化問題があげられる。これまでは運転開始時に装荷した監視試験片を用いた破壊型の脆化評価が実施されてきたが、運転期間の延長に伴い試験片不足が懸念される。現在、破壊試験後の破片を溶接で再利用する再生試験片の活用が計画されているが、この場合も試験片数は有限である。非破壊評価技術が確立されれば、現状の方法と併用することで信頼

性の向上が期待できるとともに、試験片不足を根本的に解決できる。

照射脆化の原因は化学組成や照射条件の違いに依存し様々であるが、銅を不純物として含む旧型 RPV 鋼や溶接時に銅が混入した場合には、照射による銅析出物の形成が主因と言われている。銅析出物は、塑性変形時に転位の移動を妨げるため、降伏応力が上昇して脆化する。一般に格子欠陥の形成は、様々な物性に影響を与えるため、脆化原因の欠陥形成に敏感な物性に着目することで脆化の非破壊評価が可能になると考えられる。転位の弦モデル (Granato-Lücke モデル) によると、

格子欠陥の形成は可動転位の運動を妨げるので、超音波減衰の低下や見かけの音速増加を引き起こすとされる。照射した純金属の超音波減衰が弦モデルで上手く説明されているが、中性子照射した压力容器鋼では相矛盾する報告も存在し複雑である。本研究では、従来型の圧電素子によるパルスエコー法と異なり、接触媒体が不要で高精度な超音波特性計測が可能と考えられる電磁超音波共鳴法(EMAR:Electromagnetic Acoustic Resonance)を利用した。中性子照射した压力容器鋼のEMAR特性を調べた。照射脆化の非破壊評価法の可能性について検討した。

## 2. 研究の目的

中性子照射した压力容器鋼のEMAR計測を実施するための専用計測システムを開発して、照射によるEMAR特性の変化挙動を明らかにするとともに、そのメカニズムを解明することを目的として研究を進めた。

## 3. 研究の方法

放射化した中性子照射材を手でつかむことはできない。強い磁場を活用するEMAR法では通常磁石を使う。放射化した試験片(強磁性)が磁石に吸着すると着脱処理が困難となる。電磁石の活用が解決策の一つだが、機器が大型化するためホットラボ施設での搬送・設置面で不適である。これらを考慮した照射材用の計測システムの開発を行った。

初期の原発RPV鋼は不純物銅濃度が比較的高く、銅析出物の形成が照射脆化の主因と言われる。開発した計測システムを用いて、まず岩手大において、熱時効により銅を析出させたFe-Cu合金照射模擬材のEMAR特性を調べた。その後、2か所のホットラボ施設(東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター(大洗施設)および米国カリフォルニア大学サンタバーバラ校(UCSB))に装置を搬送・設置し、中性子照射材のEMAR計測を実施した。

## 4. 研究成果

### (1) 照射材EMAR計測システムの構築

金研大洗施設および米国UCSBのホットラボ施設に装置を搬送することを想定し、図1のような2つのコンパクトなセンサ(I型:板厚共鳴、II型:全体共鳴)を開発した。

I型センサは板厚方向での共鳴を利用しており、板状試料の計測に適した汎用性の高いセンサである(図2)。2対のNdFeB磁石(10×10×15mm)上に、超音波励起・検出用の2対の8巻スパイラルコイル(幅10mm)を設置した。磁束閉じ込めのため磁石裏面に鉄片をつけエポキシ樹脂で固めた。放射化試験片の表面剥離やそれによる汚染を防ぐためビニールで2重に覆い、さらに両者の間に

PETシートを挟み、試験片の着脱が容易にできる工夫をした。

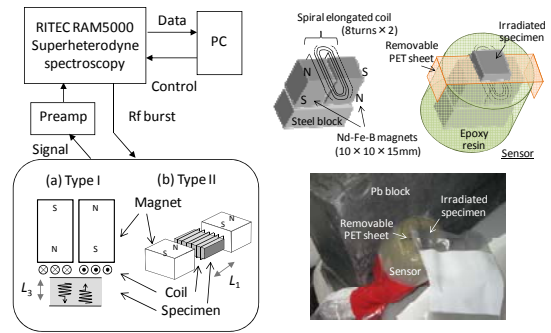


図1 2種類のセンサと EMAR計測システム

図2 開発したI型センサ(上)と照射材(下)

II型センサは試験片をコイルで覆い静磁場中に設置して利用する(図3)。様々な共鳴モードを利用した弾性特性の解析ができ、さらに減衰係数の高精度測定ができる点に特徴を持つ。小型試験片を切出す必要があり厳密には非破壊評価と言えないが、高精度という点で基礎研究上の利点は大きい。本研究では既照射の小型試験片を使うため、切出し作業無しにこのセンサが適用できる。試験片周りに2対の15巻コイルを置き、エポキシ樹脂で固めた。一方、センサとは別に2組のNdFeB磁石を組み合わせた器具を作り、その静磁場空間内に中心部に空洞があるウレタン材を設置した。試験片を挿入したコイルセンサをウレタン空洞部に入れ宙に浮かせ、非接触高精度測定を実施した。照射材測定時には汚染防止のためビニールで厳重に磁石を覆った。

開発したセンサをRITEC-RAM5000に接続することで、照射材用計測システムの構築に成功した(図1)。このシステムにより、照射模擬材・照射材のEMAR特性を調べた。

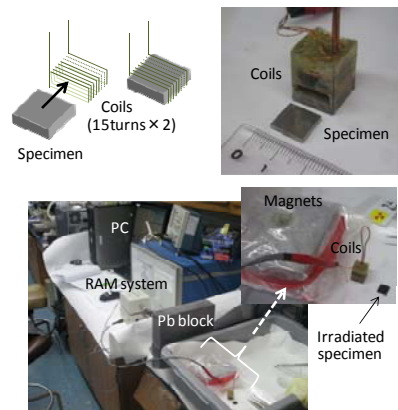


図3 開発したII型センサー(上)と米国UCSBに搬送・設置した計測システム(下)

### (2) Fe-Cu照射模擬合金のEMAR特性(岩手大) Fe-1wt.%Cu合金を溶解後、1123Kから水急

冷し過飽和固溶体を作製した。それらを 773K で等温焼鈍し銅析出させ照射模擬材とした。図 4 にビッカース硬度・導電率・EMAR 特性（II 型センサにより共鳴スペクトルを計測。試料サイズ：12.1×11.5×2 mm）の熱時効時間依存性を示す。硬度は 1k min でピークを示しており、銅析出物形成を直接的に反映している（核形成と成長・結晶構造変化（bcc→fcc）・粗大化）。一方、導電率は時効時間と共に増加して純鉄の導電率に近づき、ピーク挙動は見られない。Fe-Cu 過飽和固溶体の抵抗率は銅濃度に比例して増加する（銅原子による散乱効果）。このことから、熱時効による導電率の増加は、析出過程で生じるマトリックス中の固溶銅原子濃度の低下を反映していると考えられる。他方、共鳴周波数は、硬度と異なり導電率と類似の増加傾向を示した。共鳴周波数は弾性定数に関係することから、マトリックスの固溶銅濃度低下に伴う弾性定数変化を反映した可能性がある。第一原理計算によると、bcc Fe-Cu 合金の弾性定数は銅濃度低下により増加することが報告されている。別に実施した等時焼鈍実験でも同様のメカニズムが成立することを確認した。超音波減衰係数は熱時効により緩やかに増加した。転位の弦モデルに基づく単純な予想（欠陥形成による減衰の低下）と異なる結果で、例えば銅固溶濃度の減少により、転位運動の促進効果が原因として挙げられる。このように照射模擬実験から、EMAR 特性はマトリックス組織変化の影響を強く受けることが明らかとなった。

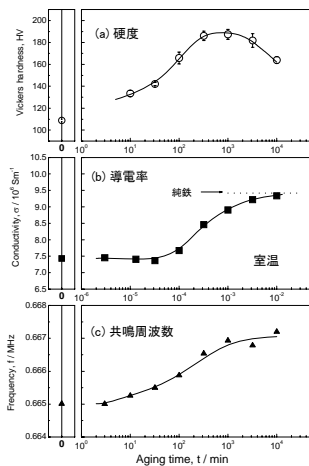


図 4 Fe-1%Cu 合金の硬度・導電率・共鳴周波数の熱時効時間依存性

(3)中性子照射 RPV 鋼の EMAR 特性（大洗）  
 東北大金研大洗施設ホットラボに専用装置を持ち込み、実験を行った（図 5）。試料は日本の初期原発 RPV 鋼の銅濃度に近い Sp.1 (Cu0.14%) と Sp.2 (0.12%) を用い、未照射材 a と、照射温度 290°C、照射量  $5 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$  の照射材 b（共に  $10 \times 7 \times 5 \text{ mm}$ ）を用いた。

図 6 に照射材（Sp.1-b）の共鳴スペクトルを示す。丸印と逆三角印で示した 2 種類の周期的なピークが多数みられる。これらは試験片の幅  $w$  と厚さ  $t$  方向で横波による共鳴が生じた結果であり、横波音速を  $v_t$  とすると共鳴周波数は次式で与えられる。

$$f_n = (2n+1) \cdot v_t / 2w \quad (n = 0, 1, 2, \dots) \quad (1)$$

$$f_m = 2m \cdot v_t / 2t \quad (m = 1, 2, \dots) \quad (2)$$

(1)式からの横波音速を算出した結果、Sp.1-a で 3225m/s、Sp.1-b で 3223m/s ( $n = 10$ ) となり、照射により 0.06% の音速減少が見られた。一方、Sp.2 材では照射材で 0.04% の音速増加が見られた。いずれも変化量は非常に小さく、両者の違いは寸法測定誤差に起因すると考えられる。図 7 に  $n = 2$  の共鳴周波数で測定した Sp.1 の減衰曲線を示す。照射による顕著な違いは見られなかった。

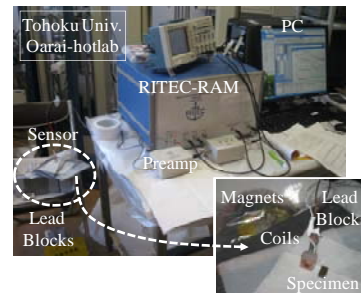


図 5 東北大金研大洗ホットラボに設置した計測システムと照射材

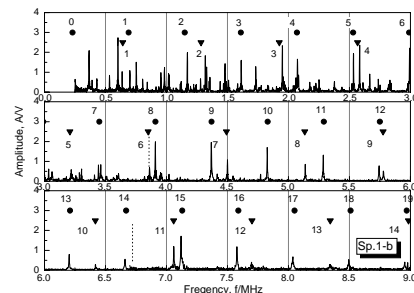


図 6 照射材の共鳴スペクトル

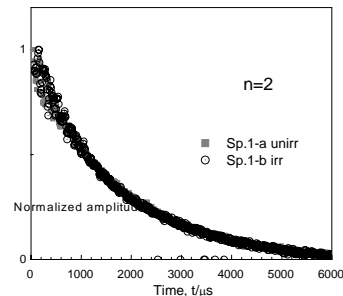


図 7 未照射材・照射材の減衰曲線

(4)中性子照射 RPV 鋼の EMAR 特性（UCSB）  
 本研究では UCSB の Odette 教授グループのご厚意により、ミシガン大学の実験炉で照射

した RPV 鋼モデル合金 (Cu 含有量 0.42%) の EMAR 計測を実施した。試験片には中性子小角散乱実験用の小片を利用し、未照射材 (T0) と照射材 (T4 : 290°C,  $0.75 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ ) の 2 種類の試験片を使用した。I 型、II 型の両センサを用いて共鳴スペクトルを測定したが、いずれも音速の増加が見られた (表 1)。しかし変化量は小さく、試験片寸法の測定誤差や平行度の違いに十分注意する必要がある。同一試験片を用いて照射前後で圧電素子による超音波共鳴測定した実験では、照射により音速増加が確認されており、今回の結果はそれと矛盾しない。減衰係数については顕著な変化は見られなかった (図 8)。

表 1 未照射材・照射材の共鳴周波数と横波音速

	$n_1$	$f_{n1}$ (MHz)	$n_2$	$f_{n2}$ (MHz)	$v_t$ (m/s)
T0	3	0.9498	14	3.8882	3206.3
T4		0.9524		3.9013	

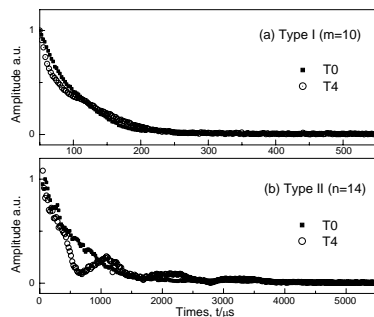


図 8 未照射材・照射材の減衰曲線

#### (5) 変化機構と非破壊脆化評価の可能性

Fe-Cu 模擬材の実験から銅析出過程での音速変化はマトリックスの弾性特性変化を強く反映することがわかった。RPV 鋼の照射による音速 (共鳴周波数) 変化は Fe-Cu 模擬材に比べて小さかった。これは RPV 鋼の不純物銅濃度は模擬材に比べて少なく、固溶濃度変化量が小さいことによる。さらにベイナイト組織を有する RPV 鋼では、微細な炭化物など可動転位のピン止め源となる初期欠陥がもともと多いため、照射により顕著な減衰係数変化が見られなかったと考えられる。本研究により、照射によるマトリックス状態の変化を通し、銅析出挙動を間接的に捉え、脆化進行を評価する可能性を示すことができたが、実際に応用する上では計測精度のさらなる向上などの工夫が必要である。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 11 件)

- ① Y. Kamada, T. Ohtani, H. Kikuchi, S. Kobayashi, Elastic properties of thermally aged Fe-Cu model alloys measured by EMAR method, *Studies in Applied Electromagnetic and Mechanics*, Vol.32, (2009) pp.266-270. 査読有

- ② 鎌田康寛, 菊池弘昭, 小林悟, 荒克之, 越後谷淳一, 中性子照射した圧力容器鋼の磁気・超音波特性, 非破壊検査, Vol.58 (2009), No.9, pp.380-38. 査読無
- ③ 鎌田康寛, 圧力容器鋼の照射脆化と超音波特性, 検査技術, 13 (2008), pp.50-54. 査読無
- ④ Y. Kamada, 他 3 名, Evaluation of irradiation embrittlement in RPV steels by EMAR method, *Proc. Symposium on Ultrasonic Electronics*, Vol.30 (2009) pp.19-20. 査読無
- ⑤ 鎌田康寛, 菊池弘昭, 小林悟, 大谷俊博, 電磁超音波共鳴法による熱時効 Fe-Cu 合金の Cu 析出挙動評価, 超音波テクノ, Vol.21, no.6 (2009), pp.87-90. 査読無
- ⑥ T. Ohtani, F. Yin, Y. Kamada, Creep-induced microstructural change and acoustic characterization in a Cr-Mo-V steel, *JJAP*, Vol. 47, No.5B (2008) pp.3916-3921. 査読有
- ⑦ Y. Kamada, 他 4 名, Copper precipitation process of thermally aged Fe-Cu alloys evaluated by EMAR method, *Proc. Symposium on Ultrasonic Electronics*, Vol.29 (2008) pp.49-50. 査読無

ほか 4 件

〔学会発表〕 (計 17 件)

- ① 鎌田康寛, 他 6 名, 中性子照射脆化した圧力容器鋼・モデル合金の超音波共鳴特性, 第 17 回超音波による非破壊評価シンポジウム, 2010.1.29, きゅりあんホール, 東京.
- ② Y. Kamada, 他 7 名, Comparison of round-robin NDE results on impact test pieces of model specimens simulating irradiation embrittlement, 13<sup>th</sup> APCNDT, 2009.11.11, PACIFICO Yokohama.
- ③ 鎌田康寛, 他 6 名, 中性子照射した圧力容器鋼およびモデル合金の弾性定数の超音波共鳴法による測定, 日本機械学会年次大会, 2009.9.16, 岩手大学, 盛岡.
- ④ 千種成彦, 鎌田康寛, 他 3 名, 電磁超音波共鳴法による Fe-Cu モデル合金の時効析出挙動の評価, 日本機械学会年次大会, 2009.9.16, 岩手大学, 盛岡.
- ⑤ Y. Kamada, 他 5 名, Round-robin NDE testing for charpy impact specimens of cold-rolled and thermally aged Fe1wt.%Cu alloys, 17<sup>th</sup> WCNDT, 2008.10.25-28, 上海, 中国.
- ⑥ 鎌田康寛, 他 3 名, FeCu 合金および S15C 鋼のラウンドロビン試験 -超音波特性-, 日本鉄鋼協会春季講演大会, フォーラムシンポジウム, 2008.3.27, 武蔵工業大学, 東京.

ほか 11 件

#### 6. 研究組織

研究代表者

鎌田 康寛 (KAMADA YSUHIRO)

岩手大学・工学部・准教授

研究者番号 : 00294025