

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：11201

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22760670

研究課題名（和文） 高中性子照射量領域における原子炉压力容器鋼の磁気特性

研究課題名（英文） Magnetic property of highly neutron-irradiated nuclear pressure vessel steels

研究代表者

小林 悟（KOBAYASHI SATORU）

岩手大学・工学部・准教授

研究者番号：30396410

研究成果の概要（和文）：高中性子照射量領域における原子炉压力容器鋼の照射脆化に伴う磁気特性変化のメカニズムを解明するため、照射脆化のキー元素の含有量を系統的に変えた压力容器鋼材について長時間熱時効実験を実施した。熱時効温度および組織に依存した保磁力の熱時効時間依存性が観測された。それらの結果から、中性子照射に伴う磁気特性変化は、銅析出物形成、回復の促進効果、およびマトリックスの格子歪み緩和の複合効果により解釈でき、特にその効果の優位性は材料の初期組織に強く依存することを見出した。

研究成果の概要（英文）：Long-term thermal aging experiments on reactor pressure vessel steels with variable key elements have been performed in order to elucidate mechanism of magnetic property changes due to neutron irradiation embrittlement in the high fluence regime. Aging time dependence of coercivity, depending on aging temperature and initial microstructure was observed. From these results, it was concluded that magnetic property changes can be due to a combined effect of the formation of Cu precipitates, recovery process, and relaxation of lattice strain in the matrix, and the major cause is strongly dependent on initial microstructure of the steels.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	900,000	270,000	1,170,000
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

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：磁性、原子力エネルギー、脆化予測

1. 研究開始当初の背景

エネルギー資源の乏しい我が国の経済社会の発展を支える上で、軽水炉原子力発電プラントは最も重要な社会基盤構造物の一つである。しかし、平成22年には運転時間が40年を超える原発プラントが現れ始め、原発高経年化時代に直面している。我が国のエネルギー情勢やプラントの新規立地の困難性

を考慮すると、原発の長期利用は避けられない。安全・安定に原発を維持するため、原子炉構造材料、特に压力容器鋼の中性子照射による材質劣化（照射脆化）のメカニズムの解明と寿命予測法の確立が急務となっている。一方、照射脆化を定期的に評価するための監視試験片不足も懸念されており、従来のシャルピー衝撃試験（破壊検査）に代わる評価技

術の開発も緊急課題となっている。

これまでの研究は、材料試験炉を用いた加速照射試験（約 30 年までの運転時間の照射量に相当）が大部分であり、膨大な機械特性の蓄積データを基に照射脆化評価・予測法の開発が行われている。しかし、高照射量領域では、压力容器鋼に含まれる Mn 元素等が脆化に顕著に寄与し始めることが明らかになっており、原発の長寿命化を見据えた更なる照射試験が急がれている。しかし、現在、国内唯一の材料試験炉（日本原子力開発機構 JMTR）が補修により平成 22 年度末まで長期休止中のため、データ蓄積は捗っていない。一方、原子力先進国である米国では、60 年以上の超長期運転を念頭に Beyond60 事業が平成 21 年から始まり、平成 22 年秋から照射試験が開始される。

監視試験片不足問題に対しては、試験済み試験片を溶接して再利用する方法が進められている。しかし、溶接による照射硬化の回復効果や再生試験片の数に限りがあることなど課題点も多い。一方、非破壊検査法は有効な解決策として期待されるが、データ蓄積に基づく学問的基盤は構築されていない。

これまで我々は、照射脆化と磁性の相関データベース構築を進める中で、格子欠陥に対する磁性の高感受性を反映し、照射量及び照射脆化のキー元素（Cu、Ni、Mn）の含有量に依存して磁氣的物理量の挙動が大きく変化することを見出してきた。その反面、機械特性では殆ど無視できた応力緩和効果により、材料の初期状態に依存して保磁力が減少することも判明した。磁氣的に照射脆化を評価する上で、応力緩和効果を分離するための定量的評価法の確立が重要と考え、照射前初期状態が異なる照射済み試料群の相関データベース化を推進した。その中で、対数型の応力緩和項と Avrami 型核成長理論に基づく指数関数型の脆化項を考慮したモデルにより、磁性変化を定量的に評価できることを示し、照射初期の脆化の主要因である Cu 析出物形成に伴う保磁力の増加量が降伏応力変化（照射脆化）と一対一に対応することを突き止めた。しかし、本モデルは約 30 年の運転期間相当の照射材のデータベースに基づくものであり、高照射量領域での特定元素による脆化効果は考慮されていない。

2. 研究の目的

本研究では、高中性子照射量領域における応力緩和、Cu 析出物形成、及び特定元素による脆化が磁気特性変化に与える可能性を調べるため、原子炉压力容器鋼の運転温度で

ある 290℃、及び、脆化促進温度の 500℃において長期熱時効実験を行い、磁気特性と機械特性の熱時効依存性を系統的に調べた。

3. 研究の方法

(1) 測定試料

米国・カリフォルニア大学サンタバーバラ校 (UCSB) から供与された A533B 型压力容器鋼 (LV 材および CM 材)、商業炉基材 (CWP 材)、及び Fe-Cu-Ni-Mn 合金 (OV 材) について、原子炉压力容器の運転温度 290℃、および析出物形成の促進温度 500℃の 2 つの温度について約 8000 時間の長期熱時効実験を実施した。サイズが約 $12 \times 2 \times 2 \text{mm}^3$ の棒状試料を石英管に真空封入し電気炉にて熱時効を行った。尚、500℃の熱時効実験は CM 材、OV 材についてのみ実施した。

Series	Sample	Cu	Ni	Mn	Cr	Mo	P	C	Si
LV	LA	0.40	0.00	1.37	0.06	0.55	0.005	0.14	0.22
	LB	0.40	0.18	1.35	0.06	0.55	0.005	0.14	0.22
	LD	0.38	1.25	1.38	0.07	0.55	0.005	0.19	0.23
	LG	0.00	0.74	1.37	0.05	0.55	0.005	0.16	0.22
	LH	0.11	0.74	1.39	0.05	0.55	0.005	0.16	0.24
	LI	0.20	0.74	1.37	0.05	0.55	0.005	0.16	0.24
	LJ	0.42	0.81	1.34	0.085	0.55	0.005	0.16	0.13
CWP	JRQ	0.14	0.82	1.40	0.12	0.50	0.019	0.18	0.25
	HST02	0.14	0.67	1.55	0.04	0.53	0.009	0.23	0.20
CM	CM11	0.34	0.85	1.64	0.02	0.53	0.006	0.15	0.18
	CM19	0.42	0.85	1.63	0.01	0.51	0.005	0.16	0.16
	CM20	0.43	1.69	1.63	0.02	0.50	0.006	0.16	0.16
OV	OV7	0.10	1.60	1.60					
	OV17	0.20	1.60	1.60					

表 1： 測定試料の組成 (wt%)

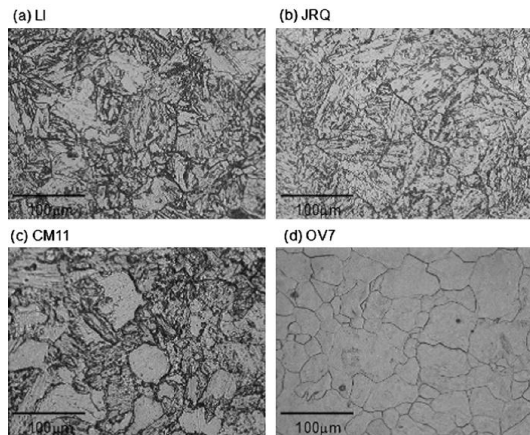


図 1： LV, CWP, CM, OV 材における代表的な試料の組織写真

表 1 に用いた試料の組成を示す。LV 材及び CM 材は日本及び欧米の軽水炉の原子炉压力容器に広く使われている A533B 鋼をベースとし、主に Cu、Ni の含有量を系統的に変えた压力容器鋼モデル合金である。CWP 材は、IAEA

リファレンス材 (JRQ)、商業炉の基材からなり、計 2 種類ある。OV 材は銅含有量が異なる 2 種類の試料を使用した。LV、CWP、CM 材の初期組織はベイナイトとフェライトの混合組織、OV 材はフェライト組織を有する (図 1)。

(2) 硬度測定

加重 300g、15 秒間の条件でビッカース硬さ試験を実施した。一試料あたり 10 点測定し、その平均値を測定値とした。

(3) 磁気測定方法

75 turn の励磁コイルを巻き付けた純鉄の磁気ヨークを用い、棒状試料の磁気測定を実施した。波形発生器とバイポーラ電源により生成した周波数 0.05Hz の三角波電流を励磁コイルに通電し磁場を発生、試料を磁化した。磁化に伴う誘起電圧を試料の周りに巻き付けた検出コイル (40 turn) にて検出した。励磁コイルおよび検出コイルの電圧信号を増幅・ノイズ除去後、A/D コンバータを介しパソコンに取り込み、BH ループを得た。本測定では、最大磁場 30 kA/m の範囲で BH ループを測定し、格子欠陥に敏感な保磁力 (磁化がゼロになる磁場) の熱時効依存性を調べた。

4. 研究成果

(1) ビッカース硬さ

熱時効温度 290°C では、原子炉圧力容器鋼 (LV、CWP、CM 材) においては、硬度は 180-210HV の範囲内にあり、有意な熱時効依存性は観測されなかった。それに対し、鉄基モデル合金の OV 材では、熱時効による若干の硬度の上昇が見られた。

一方、熱時効温度 500°C では、圧力容器鋼材および鉄基モデル合金共に、熱時効直後に減少後、一定もしくは若干の増加を示した。

(2) 磁気測定結果

図 2 に熱時効温度 290°C 及び 500°C における保磁力の熱時効時間依存性を纏めた結果を示す。熱時効温度 290°C では、LV 材及び CWP 材は、変化量は非常に小さい (8-24A/m) が熱時効時間と共に緩やかな減少を示した (図 2(a)-2(b))。一方、CM 材、OV 材では保磁力の系統的变化は観測されなかった (図 2(c))。

それに対し、熱時効温度 500°C の場合、CM 材では 1000h 以上の熱時効時間で増加が見られた (図 2(d))。その増加量は、CM19、CM20 でそれぞれ 5%、3% であった。それに対し、OV 材では、保磁力は熱時効直後に急激に減少し、1000h 近傍で最小値をとった後、増加に転じる振る舞いを示した。保磁力の減少量は、OV7、OV17 でそれぞれ 25%、16% であった。

熱時効温度 290°C、500°C とともに、保磁力変化において、Cu および Ni 等の組成依存性は見られなかった。

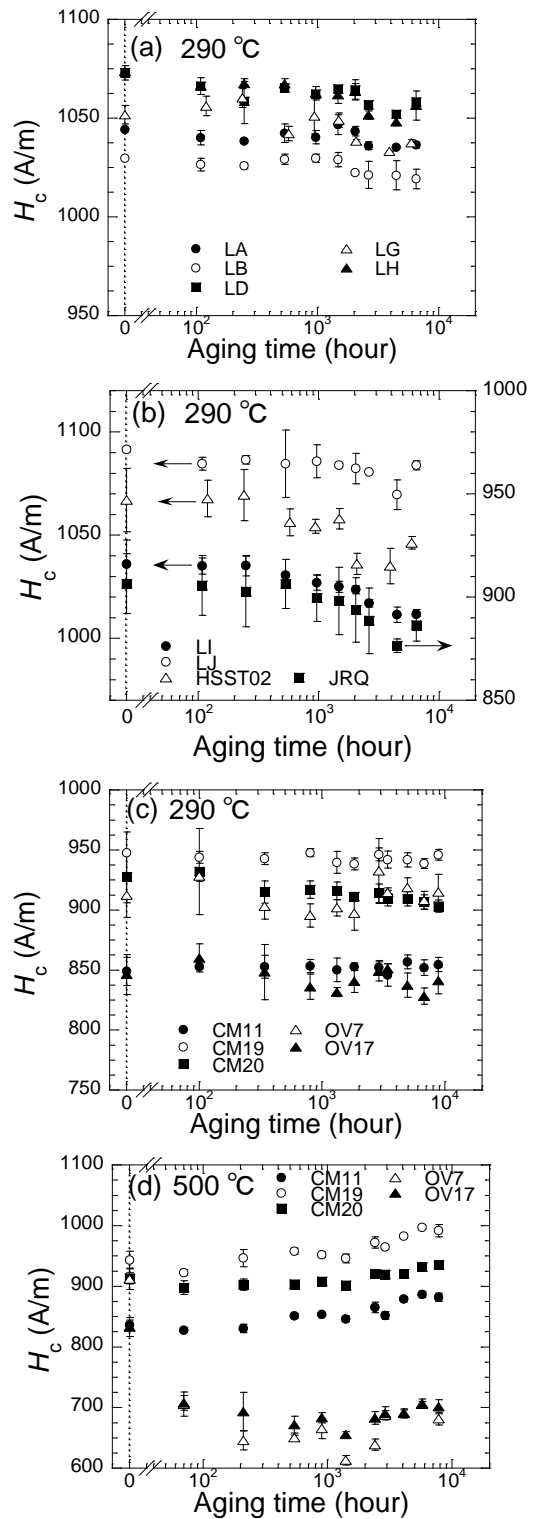


図 2: 熱時効温度 290°C [(a)-(c)] 及び 500°C [(d)] における保磁力の熱時効時間依存性

(3) 結果の解釈

290°C および 500°C の LV、CWP、CM 熱時効材において、硬度は長期熱時効に対し敏感ではなく、その変化は非常に小さいもしくは実験誤差の範囲内であった。一方、OV 材では硬度

に若干の増加が見られ、Cu析出物（もしくはCu-Ni-Mn析出物）の熱促進形成を示唆する結果を得た。

磁気測定で得られるBHループの保磁力は格子欠陥などの内部応力に敏感な磁気特性として広く知られている。析出物に関しては、保磁力はその密度とサイズに比例すると考えられる。290°Cで熱時効した殆どの試料で、保磁力が減少する傾向が多かれ少なかれ観測された。このことは熱時効に伴う磁氣的ソフト化を意味している。このようなソフト化が磁気特性にのみ観測された理由は、磁気特性と硬度の格子欠陥に対する感度の違いを反映している。つまり、ブロッホ磁壁幅（～40nm）が析出物サイズ（数nm）に比べ大きいためと言える。実際に、Fe-Cu熱時効材において、Cu析出物形成に伴う保磁力増加が、回復による保磁力減少により容易にマスクされてしまうことが報告されている。

500°Cで熱時効した場合、CM材、OV材共に、Cu析出物形成を示唆する保磁力増加が熱時効時間1000h以上で観測された。このことは500°Cでは析出物形成が熱的に促進されていることを意味している。なぜ、これに対応した硬度上昇が観測されていないかは不明であるが、全体的な硬度と保磁力の振る舞いは互いに矛盾しない。

ここで、500°Cで熱時効したOV材で観測された保磁力の時効直後の急激な減少について言及する(図2(d))。一般に、保磁力は、ブロッホ磁壁移動による低磁場磁化過程を反映する。この磁化過程は通常、ベイナイト相のような磁氣的に硬い領域よりも、磁氣的にソフトなフェライト相で優先的に起こる。よって、回復過程に伴う転位密度の減少が、ベイナイト相を含むCM材に比べ、フェライト組織を持つOV材で特に、磁気特性変化に顕著な影響を与えたと解釈できる。

最後に、今回の熱時効材の結果を基に、過去の中性子照射したOV材で観測された保磁力減少のメカニズムについて考察する。OV材の保磁力は中性子照射量と共に減少し、その減少量はCu及びNi含有量に比例することが報告されている。しかし、原子炉圧力容器鋼材(LV, CWP, CM材)ではそのようなキ元素に依存する保磁力減少は見出されていない。もし、その減少が転位に由来する回復効果の場合、今回の熱時効材で観測されたように、保磁力の減少量はCu及びNi含有量に依存しないはずである。過去のOV材のアトムプローブの結果によると、よりCu及びNiを含む中性子照射材において、より高いCu析出物密度が観測されている。一方で、Ni含有量が高い試料は、通常、照射前の保磁力は高い値を示す。これはマトリクス中に固溶したNiが大きな格子歪みを伴うためである。中性子照射下では、Cu析出物（もしくはCu-Ni-Mn

析出物）形成が徐々に進行する一方で、マトリクスにおけるCu及びNiの固溶濃度は低下し格子歪みは緩和する。析出物は通常、ブロッホ磁壁のピン留めサイトとして作用し保磁力増加に寄与するが、マトリクスの格子歪みの緩和は逆に保磁力を減少させる。Cu及びNiの含有量が高いOV材において中性子照射後観測された顕著な保磁力の減少効果を考慮すると、後者の緩和過程がOV材における保磁力減少に顕著に寄与していると解釈できる。特にこの効果は、ベイナイト相を含む原子炉圧力容器鋼材ではなく、フェライト相を有する単純な鉄基モデル合金で顕著に現れると言える。

(4)まとめと今後の展望

本研究の長期熱時効した原子炉圧力容器鋼材および鉄基モデル合金の磁気測定結果とその比較から、中性子照射下における磁気特性変化に対し解釈を与えることができた。しかし、磁気特性変化は単純ではなく、Cu析出物（もしくはCu-Ni-Mn析出物）形成、回復効果、マトリクスの格子歪み緩和が複合的に影響を及ぼす。特に、その優位性は初期組織および組成により変化する。

最近の高照射量中性子照射($>1 \times 10^{20}$ n/cm²)した圧力容器鋼材(JRQ)の磁気測定から、高照射量で保磁力が付加的に増加する振る舞いを世界で初めて観測した。これは高照射量領域でMn元素等が脆化に顕著に寄与し始めることに対応しており、磁気特性が高照射量領域の脆化評価に有効であることを示唆している。今後は、高照射量中性子照射材の系統的な磁気測定を進め、磁気特性と照射脆化のデータベースを構築していくとともに、高照射量領域での回復効果の影響を詳しく検証するための長期熱時効実験を継続的に進めることが必要不可欠である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- ① S. Kobayashi, H. Sato, T. Iwawaki, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, Y. Kamada, and H. Kikuchi, Effect of long-term thermal aging on magnetic property in reactor pressure vessel steels, *Journal of Nuclear Materials*, 査読有, 439巻, 2013, 131-136
<http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.04.012>
- ② S. Kobayashi, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, H. Kikuchi, and Y. Kamada, Magnetic evaluation of irradiation hardening in A533B reactor pressure vessel steels: magnetic hysteresis measurements and the model analysis, *Journal of Nuclear Materials*

、査読有、422巻、2012、158-162
doi:10.1016/j.jnucmat.2011.12.034

- ③ S. Kobayashi, H. Sato, T. Iwawaki, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, Y. Kamada, and H. Kikuchi, Magnetic investigation on thermally aged pressure vessel steels、Journal of Electrical Engineering、査読有、63巻、2012、62-65
http://iris.elf.stuba.sk/cgi-bin/jeeec?act=pr&no=7s_112

[学会発表] (計3件)

- ① S. Kobayashi and S. Takahashi、Current understanding of magnetic property changes in neutron-irradiated NRPV steels、8th meeting of Universal Network for Magnetic Non-Destructive Evaluation、2012年9月5日、SOREA Hutnik1 ホテル (Tatranske Matliare, スロバキア共和国)
- ② S. Kobayashi, H. Sato, T. Iwawaki, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, Y. Kamada, H. Kikuchi、Magnetic investigation on thermally aged pressure vessel steels、Magnetic Measurements 2012、2012年9月4日、SOREA Hutnik1 ホテル (Tatranske Matliare, スロバキア共和国)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小林 悟 (KOBAYASHI SATORU)
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：30396410