

令和 5 年 5 月 12 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02640

研究課題名（和文）磁気1次反転曲線を用いた原子炉材料の中性子照射脆化評価の有用性の検証に関する研究

研究課題名（英文）Evaluation of neutron irradiation embrittlement in nuclear reactor materials by magnetic first-order reversal curves

研究代表者

小林 悟（Kobayashi, Satoru）

岩手大学・理工学部・教授

研究者番号：30396410

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、保磁力分布や相互作用分布を同時に評価可能な磁気1次反転曲線（FORC）法による照射硬化の磁気的評価の可能性を検証した。誘導起電力型のFORC測定装置を用いて、計9種類・8照射条件について、約150個の試料のFORC測定を実施した。殆どの試料で、FORC図上で明瞭な単一FORC分布ピークが観測された一方、FORC分布ピークの位置及び幅が照射量に依存することが分かった。FORC法を用いることで、照射誘起ナノスケール欠陥密度の増大効果だけでなく、その空間分布特性も捉えることが可能であることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

照射脆化の非破壊評価技術の開発は緊急課題であり、その中で磁気的手法は有用な手法の一つとして長年研究されてきている。1条件あたり1つの磁気パラメータを得る従来法に対して、1条件あたり2次元のFORC図情報を得る本手法により、照射誘起ナノスケール欠陥の形成過程に関する情報を、磁気的不均一性や磁気相互作用の観点から付加的に取得可能であることが分かった。照射硬化などの材料劣化の非破壊評価法として、磁気的手法の有用性の高さを示した本成果は、学術的及び社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：In this study, the possibility of evaluating irradiation hardening for reactor pressure vessel steels was examined using first-order reversal curve (FORC) method, which can simultaneously evaluate coercivity and interaction field distribution. Using FORC measurement equipment which employs induced voltage method, approximately 150 samples, with variable alloy-irradiation condition, were measured. For almost samples, a pronounced single FORC peak was observed in the two-dimensional FORC diagram and its position and width are found to depend on neutron fluence. By using the FORC method, a morphology of irradiation-induced nanoscale defects may be inspected in addition to an increase of their density.

研究分野：磁気工学

キーワード：照射硬化 圧力容器鋼 磁気特性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原発を安全に長期利用するには、特に原子炉圧力容器鋼の高中性子照射量領域までの照射脆化機構の解明、並びに、信頼性ある照射脆化評価法と寿命予測法の確立が必要不可欠である。現在、主に材料試験炉を用いた加速照射試験により蓄積した機械特性データベースを基に、照射脆化評価・予測法の開発が行われている。高照射量領域では圧力容器鋼に含まれる Mn 元素等が脆化に付加的に寄与することが明らかになっており、高照射量領域も含めた照射試験が急がれている。しかし、国内唯一の材料試験炉の廃炉が決定し、我が国の本分野の学術的進展の停滞は避けられない。従って、海外の材料試験炉を用いた照射試験を実施しつつ、国内外の既存の照射済み試験片の有効活用も必要不可欠な状況である。

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事項の 1 つであり、従来のシャルピー衝撃試験に代わる非破壊評価技術の開発も緊急課題となっている。有効な解決策として、磁気的手法に基づく非破壊評価法が提案されているが、特に高照射量領域の磁気特性のデータ蓄積は十分でなく、更なる測定による学問的基盤の構築が急がれる。我々は、高照射量領域までの照射脆化と磁気特性の相関データベース構築を進める中で、中性子照射条件及び試料組成に依存した磁気パラメータ変化を見出した一方、従来の磁気特性を用いた照射脆化評価の困難性も浮き彫りになってきた。原子炉圧力容器鋼は中性子照射されると、ナノスケール欠陥(銅リッチ析出物、空孔型欠陥など)が核生成・成長するため、一般に降伏応力などの機械特性は中性子照射量に対して比例関係を示すが、磁気特性の場合、回復(転位の再配列、格子間原子の拡散等による格子歪み緩和など)による微細組織変化も付加的に大きく寄与する。従って、磁気特性を照射脆化評価法に適用するには、照射硬化に寄与するナノスケール欠陥の影響のみを分離し評価することが必要不可欠である。

近年、磁気 1 次反転曲線(FORC : First-Order-Reversal-Curves)を用いた測定手法が着目を浴びている。材料内部特性を平均化する従来の磁気測定法では、1 条件(例えば照射量)あたり 1 個の磁気パラメータ(保磁力、飽和磁化など)が対応する。それに対し、FORC 法では、磁場振幅が小さい多数のマイナーループ反転曲線を解析に用いるため、1 条件に対して、保磁力分布と相互作用分布を軸とした二次元マップ(FORC 図)を描画できる。従って、FORC 測定により、中性子照射に伴う複合的な微細組織変化を FORC 図上で同時に追跡し、且つ、独立に定量評価できる可能性がある。

2. 研究の目的

国内外の関連施設が保有する原子炉圧力容器鋼の中性子照射材を系統的に FORC 測定することによって、中性子照射に伴う複合的な微細組織変化と FORC 図との相関を定量的に明らかにし、FORC 法の照射硬化の非破壊評価法としての有用可能性を検証する。

3. 研究の方法

現在の FORC 測定は振動試料型磁力計(VSM)などの大型装置を用いたものが殆どである。しかし、大型装置を照射材を保管する専用施設へ搬入しての測定は現実的でない。本研究では、誘導起電力法を用いた小型 FORC 測定装置を整備する。具体的には棒状試料専用治具(精密検出コイル附属)や計測システム等で構成される測定装置を整備する。

組成が単純な純 Fe 及び Fe-1wt%Cu 合金、原子炉圧力容器鋼モデル合金の高照射量中性子照射材を用いる。測定装置を東北大学金研・大洗施設などの専用施設に搬送し、系統的に照射材の FORC 測定を実施する。

4. 研究成果

誘導起電力法を用いた FORC 測定装置を整備した。測定試料の専用治具への固定方法は FORC 図の形状に影響するため、試料の設置方法の最適化を行った。

東北大学金研・大洗施設に保管済みの中性子照射試料の FORC 測定を実施した。測定試料は、純鉄、圧延率が異なる Fe-1wt%Cu 合金が 3 種類(圧延率 0, 10, 20%)、IAEA 標準試料である圧力容器鋼モデル合金の JRQ、ロシア型圧力容器鋼が 2 種類(VVER440, VVER1000)、A533B 型圧力容器鋼モデル合金で Cu 含有量が異なる 3 種類(LG, LH, LI)であり、照射条件は 8 条件(照射温度 300、最大照射量 9.7×10^{19} n/cm²)である。試料間のばらつきを考慮し、各照射条件あた

り 2 ~ 3 試料測定を行った。未照射試料も含めて約 150 個の試料を測定した。試料 1 個あたりの FORC 測定時間は約 10 分であり、従来の大型装置を用いた場合と比較して大幅な測定時間短縮となっている。なお、当初計画では、海外共同研究先であるハンガリー・エネルギー研究所が所有する中性子照射材の FORC 測定も実施予定であったが、コロナ禍により実施不可能となったため、本研究では大洗施設所有の照射材の測定に注力した。

再現性が高い測定データを得る一方で、測定時期の違いにより、FORC の解析パラメータに若干のばらつきが生じることが分かった。実験のフィードバックを行うため、大洗施設での測定は数回に分けて実施（毎年 3 回程度）したが、ノイズレベルなどの測定環境の違いが影響している可能性もある。より精密測定可能な治具及び装置改良が必要と考える。しかしながら、若干のばらつきの中でも中性子照射量に対する系統的な FORC パラメータの材料依存性が観測された。

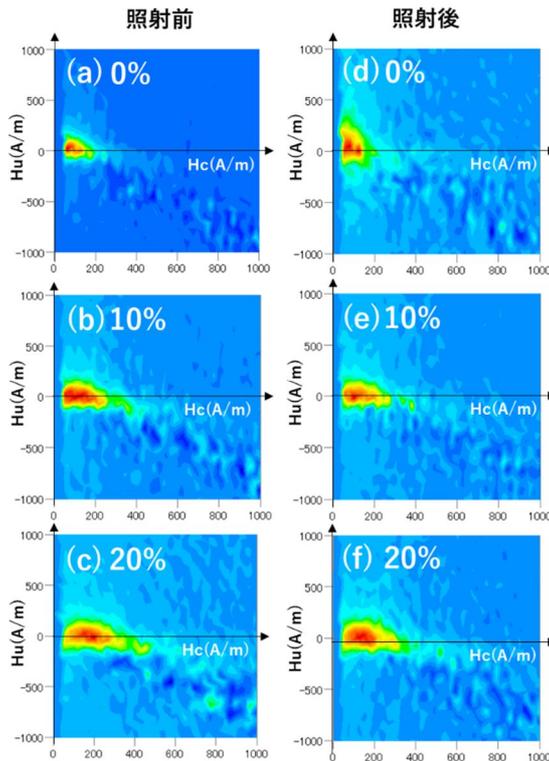


図 1: Fe-1wt%Cu 合金の中性子照射前後の FORC 図。照射量は $9.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 。(a),(d)は圧延率 0%、(b),(e)は圧延率 10%、(c),(f)は圧延率 20%のデータ。

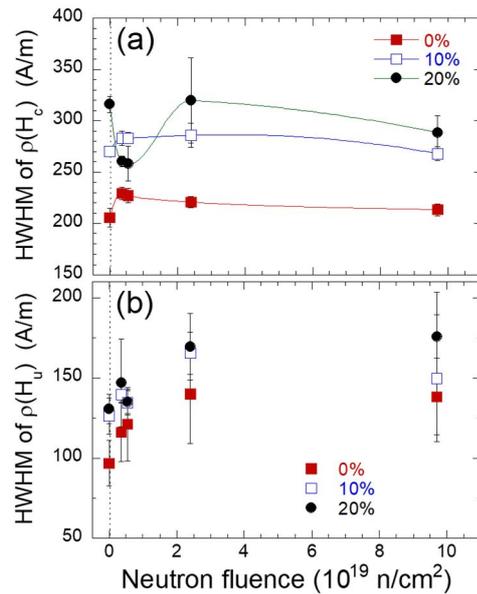


図 2: FORC 分布ピークの(a)保磁力方向、(b) 相互作用磁場方向の半値半幅 (HWHM)の中性子照射量依存性

FORC 測定の有用性を示すため、図 1 に例として、中性子照射前後の Fe-1wt%Cu 合金の FORC 図を示す。全ての照射試料において、明瞭な単一の FORC 分布ピークが観測された。照射前後で顕著な FORC 図の違いはないが、FORC 分布ピークの幅に着目すると、殆どの照射試料で保磁力及び相互作用磁場方向の幅の広がりが観測された。図 2 に、例として、Fe-1wt%Cu 合金における FORC 分布ピークの半値半幅の照射量依存性を示す。全体的な傾向として、保磁力方向の幅は照射量とともに増加後、減少する振る舞いを示す一方、相互作用磁場方向の幅は単調増加を示した。この結果は、異なる磁氣的硬さを持つ領域形成とその領域間の磁氣的相互作用の発現を意味している。一般に、圧力容器鋼が中性子照射されると、Cu 析出物などのナノスケール欠陥が形成することを考慮すると、FORC 分布ピークの保磁力方向の広がりは、磁氣的な不均一性の増大（磁氣的に硬い部分と柔らかい部分が形成・発達）相互作用磁場方向の広がりは、两部分間の磁氣的な相互作用の発達を示唆している。この結果は、FORC 測定により、ナノスケール欠陥の密度の増大効果だけでなく、その空間分布特性も捉えることが可能であることを示している。

飽和磁化曲線による従来型測定では、1 照射条件あたり 1 つの磁気パラメータを得るのに対して、FORC 測定では 1 照射条件あたり 2 次元の FORC 図を得られるのが特徴である。FORC 図全体の照射変化を体系的に解析・評価することで、より詳細な微細組織変化情報を得られる可能性があることが、本研究で明らかになった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Kobayashi, H. Murakami, T. Yamamoto, G.R. Odette, A. Horvath, A. Feoktystov, L. Almasy	4. 巻 552
2. 論文標題 Magnetic investigations on irradiation-induced nanoscale precipitation in reactor pressure vessel steels: A first-order reversal curve study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 152973-152973
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2021.152973	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kobayashi Satoru, Kawagoe Riko, Murakami Hiroaki, Ohishi Kazuki, Kawamura Yukihiro, Suzuki Jun-ichi	4. 巻 99
2. 論文標題 Thermal aging effects on magnetisation reversals in a pre-deformed Fe-1wt%Cu alloy studied via first-order reversal curves	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine Letters	6. 最初と最後の頁 217 ~ 225
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/09500839.2019.1660011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Balazsi Csaba, Zine Haroune Rachid Ben, Furko Monika, Czigany Zsolt, Almasy Laszlo, Ryukhtin VasyI, Murakami Hiroaki, Goller Gultekin, Yu cel Onuralp, Sahin Filiz Cinar, Balazsi Katalin, Kobayashi Satoru, Horvath Akos	4. 巻 145
2. 論文標題 Microstructural and magnetic characteristics of ceramic dispersion strengthened sintered stainless steels after thermal ageing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 46 ~ 53
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.fusengdes.2019.05.035	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kobayashi Satoru, Murakami Hiroaki, Horvath Akos, Almasy Laszlo, Gillemot Ferenc, Feoktystov Artem	4. 巻 10
2. 論文標題 Effects of neutron irradiation on magnetic first-order reversal curves in reactor pressure vessel steels	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 015221 ~ 015221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5130414	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 蓬田圭吾, 小林悟, 野村英志, A. Horvath, L. Almasy
2. 発表標題 磁気1次反転曲線による原子炉压力容器鋼の照射硬化評価
3. 学会等名 材料照射研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林悟, 野村英志, 蓬田圭吾
2. 発表標題 Fe-Cuモデル合金の磁気1次反転曲線特性に及ぼす中性子照射効果
3. 学会等名 2022年度大洗・アルファ合同研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 蓬田圭吾, 小林悟, 野村英志, A. Horvath, L. Almasy
2. 発表標題 中性子照射されたロシア型原子炉压力容器鋼の磁気1次反転曲線測定
3. 学会等名 2022年度大洗・アルファ合同研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林悟, 村上宏明, T. Yamamoto, G.R. Odette, A. Horvath, A. Feoktystov, L. Almasy
2. 発表標題 中性子照射されたA533B鋼モデル合金の磁気1次反転曲線及びSANS測定
3. 学会等名 2021年度大洗・アルファ合同研究会
4. 発表年 2021年

1 . 発表者名 S. Kobayashi, S. Baba, Y. Chang
2 . 発表標題 Investigation of microstructural changes in a thermally aged Fe-Cu alloy using a magnetic mixing-frequency technique
3 . 学会等名 GIMRT Joint International Symposium on Radiation Effects in Materials and Actinide Science (国際学会)
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 S. Kobayashi, H. Murakami, A. Horvath, L. Almasy, F. Gillemot, A. Feoktystov
2 . 発表標題 Effects of neutron irradiation on magnetic first-order reversal curves in reactor pressure vessel steels
3 . 学会等名 64th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 C. Balazsi, H.R. Ben Zine, K. Balazsi, L. Almasy, H. Murakami, S. Kobayashi
2 . 発表標題 Microstructural characteristics of ceramic dispersion strengthened sintered stainless steels after thermal ageing
3 . 学会等名 Fifth International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 S. Kobayashi, H. Murakami, F. Gillemot, A. Horvath, L. Almasy
2 . 発表標題 Magnetic investigations on neutron irradiation effects for reactor pressure vessel steels using a first-order reversal curve technique
3 . 学会等名 Fifth International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 小林 悟, 村上宏明, F. Gillemot, A. Horvath, L. Almasy, A. Feoktystov
2. 発表標題 中性子照射材の磁気1次反転曲線測定と今後の展望
3. 学会等名 東北大学金量量子エネルギー材料科学国際研究センター 2019年度大洗アルファ合同研究会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ハンガリー	エネルギー研究所			
カナダ	サスカチュワン大学			