

平成22年 6月 1日現在

研究種目：若手研究 (B)
研究期間：2008～2009
課題番号：20760588
研究課題名 (和文) 磁氣的物理量と照射脆化の相関データベースに基づく脆化予測法の開発
研究課題名 (英文) Prediction of irradiation embrittlement based on database
of relationship between magnetic properties and irradiation embrittlement
研究代表者
小林 悟 (KOBAYASHI SATORU)
岩手大学・工学部・助教
研究者番号：30396410

研究成果の概要 (和文)：米国カリフォルニア大学サンタバーバラ校 (UCSB) の協力の下、中性子照射済み原子炉圧力容器鋼材の磁気計測を実施し、中性子照射脆化と磁氣的物理量の相関データベースの構築を進めた。磁気マイナーループ法に基づく実験データ解析結果から、磁氣的物理量において、降伏応力変化と同様な照射条件依存性が観測された一方、二つの異なる磁気特性変化メカニズム (銅リッチ析出物形成、応力緩和) を考慮したモデル解析から、磁気特性の脆化寄与成分と降伏応力変化量の間に正の比例関係が見つかった。以上の結果は、磁氣的物理量の計測により、銅リッチ析出物形成による照射硬化の評価が可能であることを示している。

研究成果の概要 (英文)：A database of relationship between magnetic properties and irradiation embrittlement has been developed by magnetic measurements on neutron-irradiated nuclear reactor pressure vessel steels under a cooperative research with University of California Santa Barbara U.S.A. Analysis of magnetic minor hysteresis loops revealed that the magnetic properties exhibit a similar trend to yield stress changes under various alloy-irradiation conditions. In addition, model analysis assuming two mechanisms which affect magnetic properties, i.e. formation of Cu-rich precipitates and stress relaxation, showed that magnetic property increases due to Cu-rich precipitation is linearly proportional to yield stress changes. These observations indicate that yield stress changes, which are related to irradiation hardening, can be evaluated by magnetic measurements.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2009年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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、格子欠陥、脆化予測

1. 研究開始当初の背景

我が国の国民生活の維持と経済社会の発展を支える上で、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、

現在、設計当初の想定運転期間を超えるプラントが生じ始め、原発の老朽化問題に直面している。今日のエネルギー情勢のもとでは原発の運転期間延長は止むを得ない状況であ

る。原子炉中枢部の圧力容器における照射脆化を評価する方法として、シャルピー衝撃試験による破壊検査が唯一確立された方法である。しかし、運転期間の延長に伴う監視試験片の不足が懸念されており、代替検査法として、信頼性が高い新たな非破壊検査法の確立が最重要課題となっている。

この背景の下、我々は、科研費基盤研究(S) [平成 14～18 年度]、原子力安全基盤調査研究 [平成 16～18 年度]の二つの大型研究事業を通して、磁気的手法の確立と発展に向けた研究活動を行ってきた。具体的には磁気ヒステリシス・マイナーループ法を用い、磁気的物理量と中性子照射脆化の相関を、鉄二元系～四元系モデル合金及び圧力容器鋼を対象に調べてきた。

特に、鉄モデル合金の結果から、以下の点が明らかになった。

- 1) 中性子照射量と共に、磁気的物理量は最大で 30%減少する。減少量は、照射脆化のキー元素である銅、ニッケル、マンガンの含有量に比例して増大する。
- 2) 照射脆化の指標である降伏応力と磁気的物理量は反比例の関係を示す。

この結果は、磁気的物理量と照射脆化が一对一に対応し、磁気マイナーループ法が照射脆化評価法として有用であることを示す。しかし、A533B 型圧力容器鋼の照射中その場磁気計測及び過去の相関データベースによると、実際の圧力容器鋼材の磁気的物理量の照射量依存性は単純ではない。例えば、A533B 鋼のその場磁気計測では、磁気的物理量が照射初期に急激に増大後、ゆっくり減少する振る舞いが観測されている。

しかし、一方では磁気的物理量が銅・ニッケルのキー元素の含有量に対し系統的变化を示す結果も得られており、圧力容器鋼材でも磁気マイナーループ法が有効である可能性を示している。そのため、磁気的物理量を照射脆化評価法として応用するには、特に圧力容器鋼材に注目した継続的な相関データベースの構築が必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、以下の二点を目的としている。

- (1) 照射済み圧力容器鋼材の系統的磁気計測を行い、磁気的物理量と照射脆化の相関データベースを完全なものにする。
- (2) データベースをモデル解析することで、磁気的物理量に基づく照射脆化予測式の開発を進める。

3. 研究の方法

多数の照射試験片を有する米国・カリフォルニア大学サンタバーバラ校(UCSB)の協力の下、磁気計測装置をUCSBに持ち込み、計 6 週間 (2 週間×3 回)磁気計測を実施した。

(1) 測定試料、照射条件

照射脆化のキー元素の銅 (0-0.8wt%)およびニッケル(0.0-1.3 wt%)の含有量、フラックス強度(0.1-0.9×10¹² cm⁻²s⁻¹)、照射量(0-3.3×10¹⁹ cm⁻²)、照射温度(270、290、310℃)を系統的に変えたA533B型圧力容器鋼(LV材)および商業炉基材(CWP材)の中性子照射済み小型引張試験片(条件数130、試料数約160)を測定に用いた。

表1、2にそれぞれLV材、CWP材の組成を示す。このLV材は10種類からなり、日本及び欧米の軽水炉の原子炉圧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圧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4種類ある。

Sample	Cu	Ni	Mn	Mo	P	C	Si	S
LA	0.40	0.00	1.37	0.55	0.005	0.14	0.22	<0.015
LB	0.40	0.18	1.35	0.55	0.005	0.14	0.22	<0.015
LC	0.41	0.86	1.44	0.55	0.005	0.14	0.23	<0.015
LD	0.38	1.25	1.38	0.55	0.005	0.19	0.23	<0.015
LG	0.00	0.74	1.37	0.55	0.005	0.16	0.22	<0.015
LH	0.11	0.74	1.39	0.55	0.005	0.16	0.24	<0.015
LI	0.20	0.74	1.37	0.55	0.005	0.16	0.24	<0.015
LJ	0.42	0.81	1.34	0.55	0.005	0.16	0.13	<0.015
LK	0.80	0.81	1.13	0.55	0.005	0.13	0.13	<0.015
LO	0.41	0.86	1.44	0.55	0.005	0.14	0.23	<0.015

表 1 : LV 材の組成 (wt%)

Sample	Cu	Ni	Mn	Cr	Mo	P	C	Si
JRQ	0.14	0.82	1.40	0.12	0.50	0.019	0.18	0.25
HSS102	0.14	0.67	1.55	0.04	0.53	0.009	0.23	0.20
A302B	0.14	0.20	1.20	0.24	0.60	0.015	0.21	0.28
A508	0.06	0.80	1.30			0.005		0.01

表 2 : CWP 材の組成 (wt%)

(2) 磁気測定方法

高精度の磁気測定を行うには、通常、試料形状はリング型が望ましい。しかし、試料加工が困難であるため、小型引張試験片形状に合わせた磁気測定装置開発が必要である。そのため、図1に示すような試料測定用ジグを用いて測定を行った。

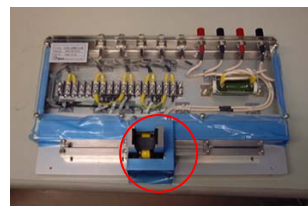


図 1: UCSB に持ち込んだ測定用ジグ。丸の部分はプローブ部を示す。

装置は、バイポーラ電源、信号発生器、計測ボックス（アンプ、フィルター）、制御用パソコン、試料測定用ジグからなる。試料測定用ジグはプローブ部、試料の挿入・取出機構部および電気ケーブル接続端子部から構成されている。

プローブ部は、励磁コイルボビン、磁気ヨーク、BH コイルボビンおよび測定試料から構成されている。上下の磁気ヨークを用いて試験片を挟み込むことにより閉磁路回路を形成し反磁界効果を低減している。また、照射材をスムーズに出し入れできるように、試料スライド機構を採用している。

信号発生器で1Hzの三角波電圧を生成、バイポーラ電源で増幅することで、励磁コイルに三角波電流を通電し試料を磁化している。試料内の磁場、磁束密度は、それぞれ試料表面に設置したHコイル、Bコイルで検出した。検出信号は計測ボックス内でそれぞれ10000倍、100倍に増幅、50Hz以上のノイズを除去された後、A/Dコンバータによりデジタル信号に変換される。信号はパソコンに取り込まれBHループを得る。

本測定では、最大磁場振幅8 kA/mの範囲で磁場振幅が異なる磁気マイナーループ群を測定し、格子欠陥密度に敏感なマイナーループの磁気物理量を決定した。次に、本手法の解析法について述べる。

(3) 磁気マイナーループ解析法

磁場振幅 H_0 を徐々に増加させ、 $H_0 = 6\text{kA/m}$ までの磁場範囲でマイナーループ群を測定した。例として、図2にLA材の未照射試料のマイナーループ群を示す。

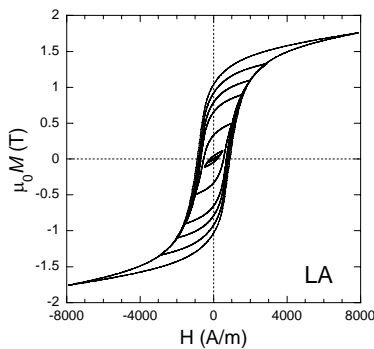


図2: 磁気マイナーループ群の測定例

振幅が異なる個々のマイナーループについて最大磁化、ヒステリシス損失(ループ面積)をそれぞれ M_a^* 、 W_F^* と定義すると、ブロッホ磁壁移動が非可逆的である磁場領域において、これら変数間に以下の「べき」のスケールング則が成り立つ。

$$W_F^* = W_F^0 \left(\frac{M_a^*}{M_S} \right)^{n_F} \quad (1)$$

ここで、 M_S は飽和磁化である。べき指数 n_F は約1.5であり、強磁性体の種類や格子欠陥に依存しない。式(1)中の磁気物理量 W_F^0 は、格子欠陥密度に比例する磁気物理量である。本研究では、 W_F^0 の組成・照射条件依存性及び W_F^0 と降伏応力変化（データはUCSB提供）の相関に注目する。

4. 研究成果

(1) 磁気物理量の組成・照射条件依存性

図3にLV材の代表的な試料における磁気物理量の変化量 ΔW_F^0 の中性子照射量依存性を示す。

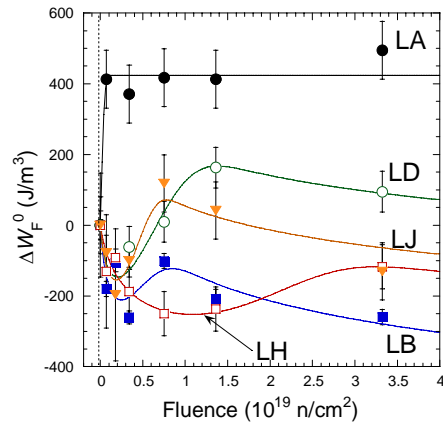


図3: LV材における磁気物理量の変化量 ΔW_F^0 の中性子照射量依存性。実線は式(2)の最小二乗フィットを示す。

キー元素の含有量に依存して、降伏応力と同様、磁気物理量の振る舞いも大きく変化することが分かった。以下に主要な結果をまとめる。

- ① Ni を含まず Cu を多く含む場合、磁気物理量は照射初期に急激に増加し、その後、照射量と共に緩やかに増加する。
- ② Ni を含む場合、 $0.3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 以下の照射量で磁気物理量は一度減少した後、増加する傾向を示す。
- ③ 照射量 $0.3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 以降の磁気物理量の増加量は Cu 含有量に比例する。

以上のような振る舞いは、CWP材においても観測された。

(2) 磁気物理量のモデル解析

照射による機械特性変化の要因として、銅リッチ析出物、マンガン・ニッケル析出物、転位ループ等の照射欠陥が挙げられる。これらの欠陥は通常、ブロッホ磁壁のピン止め中心となり磁壁移動を妨げるので、磁気物理量は照射量、Cu、Ni量と共に増加すると予想される。実際、図3に示す様に Cu、Ni を含む試料では、照射初期の W_F^0 の減少後の増加量は Cu 含有量に比例する。しかし、殆ど全ての試料で、照射初期および照射後期に磁気

的物理量の減少が観測されていることから、銅リッチ析出物等の照射欠陥形成による脆化メカニズムの他、磁氣的物理量の減少（応力場減少）に寄与する別のメカニズムを考慮する必要がある。応力場の減少を説明するメカニズムとして、以下の可能性が考えられる。

- 1) 転位近傍での照射欠陥の生成・成長による転位がもつ応力場の緩和
- 2) 析出物形成に伴うマトリックス中の固溶原子濃度の減少による格子歪み緩和
- 3) 残留応力の緩和

本研究では、磁氣的物理量の増加分、減少分をそれぞれ照射脆化（銅リッチ析出物形成）、応力緩和によるものと考え、Avrami 型核成長理論に基づく指数関数型の脆化項と対数型の応力緩和項を考慮した以下のモデル式を仮定した。

$$\Delta W_F^0 = \Delta W_F^p \{1 - \exp[-(F_p \phi t)^\beta]\}^{1/2} - S \ln(1 + F_s \phi t) \quad (2)$$

ここで、 ϕt は照射量、 ΔW_F^p は銅リッチ析出物による ΔW_F^0 の最大(飽和)値、 F_p 、 F_s は ϕt のスケール変数、 b は 5-95%の析出が起こる ϕt の幅を決定する変数、 S は応力の緩和レート、は ϕt のスケール変数を示す。各試料における ΔW_F^0 の照射量依存性を式(2)で最小二乗フィットし、銅リッチ析出物形成に伴う磁氣的物理量の飽和値 ΔW_F^p を決定した。

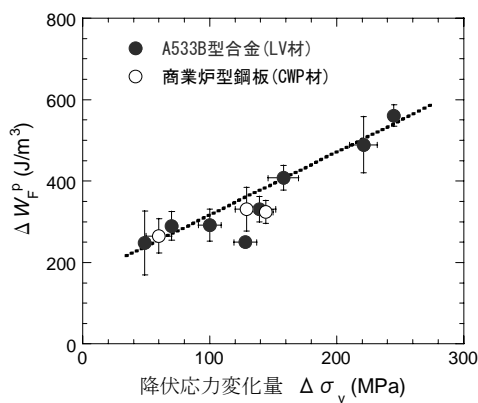


図 4: 磁氣的物理量の脆化成分の飽和値 ΔW_F^p と降伏応力変化量の関係

その結果、図 4 に示す様に、A533B 型压力容器鋼および商業炉型鋼板共に、磁氣的物理量の飽和値 ΔW_F^p が降伏応力変化と正の比例関係を示し、両者が一対一に対応することが分かった。

この結果は、磁氣的物理量の計測とそのモデル解析により、銅リッチ析出物形成に伴う降伏応力変化（照射脆化の度合い）を評価できることを示している。

(3) 磁氣的物理量の計測による脆化評価の展望

降伏応力および硬度は銅リッチ析出物及び MnNi リッチ析出物密度に比例するため、全ての照射試料で照射量とともに降伏応力及び硬度は増加する。一方、磁氣特性の場合、二つの中性子照射メカニズムが競合し、磁氣的物理量にピークが現れる。また、キー元素の含有量が同等な試料間においても、磁氣的物理量の照射量依存性が異なる場合がある。これは機械特性と磁氣特性で各々の格子欠陥に対する感度が異なるとともに、磁氣特性は下地組織にも敏感なためである。

多くの場合、磁氣的物理量は極大を示すため、その絶対値自身から照射脆化の度合いをユニークに決定することはできない。しかし、本研究で示した様に、モデル解析により脆化成分が分離可能であることから、照射初期より継続的に磁氣特性をモニターし、同時にモデル解析を実施することで、脆化の進行度の評価及び脆化予測が磁氣的に可能である。

現在、磁性に基づく正確な照射脆化予測式の確立に向け、磁氣的物理量と機械特性の相関データベースに基づく定量的モデリングを進めている。本予測式の構築により、現在稼働中の商業炉の压力容器鋼の現時点での脆化評価と今後の脆化予測が原理的に可能になると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 4 件)

- ① 小林悟、菊池弘昭、鎌田康寛、高橋正氣、荒克之、磁気ヒステリシス法による強磁性材料の経年劣化評価 -原子炉压力容器鋼の照射脆化評価への応用-、第 159 回日本鉄鋼協会春期講演大会フォーラムシンポジウム、2010 年 3 月 29 日 (筑波大学)
- ② 小林悟、山本琢也、D. Klingensmith、菊池弘昭、G.R. Odette、高橋正氣、鎌田康寛、A533B 鋼の磁気特性における中性子照射と残留応力の影響、日本金属学会第 145 回秋期大会、2009 年 9 月 16 日 (京都大学)
- ③ S. Kobayashi, H. Kikuchi, S. Takahashi, Y. Kamada, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G.R. Odette, Neutron irradiation embrittlement in Fe-based model alloys studied by magnetic hysteresis measurements, The 14th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive

Evaluation、2009年7月23日（米国デイトン）

- ④ 小林悟、山本琢也、D. Klingensmith、菊池弘昭、G.R. Odette、鎌田康寛、高橋正氣、压力容器鋼の磁気特性における添加元素及び初期状態の影響、九州大学・応用力学研究所研究集会、2009年7月10日（九州大学）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小林 悟 (KOBAYASHI SATORU)

岩手大学・工学部・助教

研究者番号：30396410