

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2017

課題番号：25289346

研究課題名(和文)高照射量照射した原子炉材料における照射脆化の電磁気評価法の適用可能性に関する研究

研究課題名(英文) Possibility of electromagnetic method for evaluation of irradiation embrittlement for highly irradiated nuclear reactor materials

研究代表者

小林 悟 (Kobayashi, Satoru)

岩手大学・理工学部・准教授

研究者番号：30396410

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 9,400,000円

研究成果の概要(和文)：高照射量中性子照射した原子炉压力容器鋼について硬度測定及び種々の磁気計測を行うと共に、中性子小角散乱実験によりナノスケール析出物の形成過程を調べた。全ての測定試料で高照射量領域で磁気特性の減少が観測され、その減少量は脆化のキー元素であるCu析出物の含有量に比例した。この減少量はCu析出物の体積分率と相関を持つことが分かった。中・高照射量では磁気特性は単調減少することから照射脆化の磁気的非破壊評価法として利用できる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：Various types of measurements including hardness, magnetic measurements, small-angle neutron scattering experiments were performed for highly neutron-irradiated nuclear pressure vessel steels. For all measuring samples, magnetic properties were found to decrease in the high neutron fluence regime, and its decrease is large for samples with high Cu content, which is a key element of irradiation hardening. Moreover, its decrease has a relationship with volume fraction of Cu precipitates. Considering that magnetic properties exhibits a monotonic decrease with fluence in medium and high fluence regime, magnetic properties can be used for non-destructive evaluation of irradiation hardening.

研究分野：磁性

キーワード：磁性 中性子照射 非破壊評価 原子炉压力容器鋼

1. 研究開始当初の背景

2011年3月の福島原発事故を機に、日本の原子力政策は大きく転換した。しかし、エネルギーの安定供給、CO₂排出削減という点で、原発は今後も重要な社会基盤構造物であることは明白である。現在、原発の再稼働計画は不透明であるが、運転時間が設計寿命(40年)を超えた原発も存在しており、原発の高経年化問題は今後も避けられない緊急課題事項である。一方、海外では原発利用の大きな流れは変わっていないが、その安全性に対する国民の関心は高まっている。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の照射脆化のメカニズム解明と信頼性ある寿命予測法の確立が必要不可欠である。また、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つである。従来のシャルピー衝撃試験(破壊検査)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。

現在、材料試験炉を用いた加速照射試験(約40年までの運転時間の照射量に相当)を通し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。しかし、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顕著に寄与することが予想されており¹⁾、高中性子照射量の照射試験が急がれている。しかし、国内唯一の材料試験炉(日本原子力開発機構 JMTR)は補修工事、震災後の復旧作業により長期間利用できない状況が続いているため、データ蓄積は捗っていない。原子力先進国の米国では、60年以上の超長期運転を念頭に Beyond60 事業²⁾が進められている。一方、監視試験片不足問題に対しては、有効な解決策として、電磁気的手法に基づく非破壊評価法の応用が提案されてきた。しかし、高照射量領域における電磁気特性のデータは殆どなく、学問的基盤は構築されていない。

2. 研究の目的

本研究では、原子力発電プラントの世界的な超長期利用を念頭に、高中性子照射量領域における原子炉圧力容器鋼の照射脆化と電磁気特性の相関データベースの構築、並びに、電磁気特性変化のメカニズム解明を行うことにより、高照射量領域における照射脆化の電磁気的非破壊評価の適用可能性を検証することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 東北大学・金研の共同利用の下、ベルギー原子力研究所の材料試験炉 BR2 において高照射量の中性子照射試験(照射温度:290、最大照射量: $\sim 1 \times 10^{24}$ n/cm²)を実施する。試料として、米国カリフォルニア大学・サンタバーバラ校(UCSB)、ハンガリー原子力研究所よりそれぞれ供与された A533B 型原子炉圧力容器モデル合金(LG, LH, LJ)、ロシア型圧力容器鋼モデル合金(VVER440, VVER1000)、IAEA 標準材(JRQ)を用いる(表1)。照射脆化のキ元素である Cu, Ni, Mn の含有量が系統的に変化させた試料群である。

Sample name	Cu	Ni	Mn	Cr	Mo
JRQ-LX	0.14	0.84	1.40	0.12	0.50
JRQ-TX					
VVER440-LX	0.09	0.07	0.54	2.70	0.68
VVER440-TX					
VVER1000-LX	0.07	1.26	0.46	2.20	0.50
VVER1000-TX					

Sample name	Cu	Ni	Mn
LG	0.00	0.74	1.37
LH	0.11	0.74	1.39
LJ	0.42	0.81	1.34

表 1: 測定試料の組成

照射後試料を東北大学・金研大洗施設に移送し、照射後実験(硬度試験、磁気測定)を実施する。照射効果を精度良く捉えるため、同一試料について、照射前後に磁気測定を実施する。

(2) 熱脆化の影響を調べるため、上記の A533B 型モデル合金、ロシア型モデル合金の未照射材について、原子炉圧力容器の運転温度 290、並びに、熱脆化促進温度 500 において 3 万時間まで長期熱時効実験を行う。熱時効変化を精度良く調べるため、同一試料について熱時効と測定(硬度測定、磁気測定)を繰り返す。

(3) 磁気特性結果を微細組織の観点から理解するため、照射後および熱時効試料について中性子小角散乱実験を行い、析出物形成の照射量や試料の組成依存性を調べる。実験は、ドイツ・ミュンヘン MLZ 研究所、ハンガリー原子力研究所で行う。

4. 研究成果

(1) 照射条件が異なる A533B 型圧力容器鋼とロシア型 VVER 圧力容器鋼の約 80 片の試験片について、硬度測定、磁気マイナーループ測定、メジャーループ測定、初磁化率測定を実施した。

A533B 型モデル合金では、過去の結果と同

様、照射量とともに硬度は増加し、特に Cu 含有量が多い試料で大きな増加量を示した。一方、ロシア型モデル合金も同様、増加を示すが、その増加量は A533B 型モデル合金と比較して小さいことが分かった。

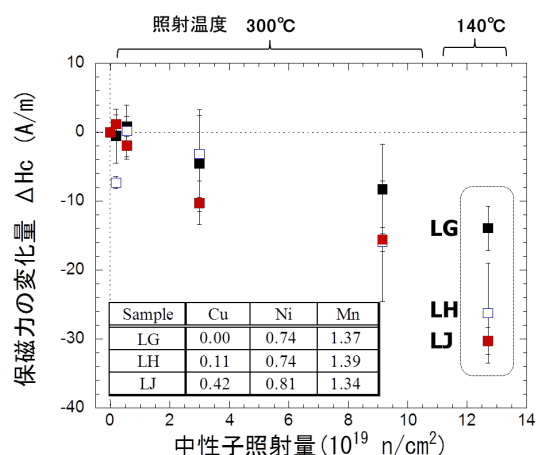


図 1: 保磁力の変化量の中性子照射量依存性 (A533B 型モデル合金)

磁気測定の代表的な例として、図 1 に A533B 型モデル合金における保磁力の変化量の中性子照射量依存性を示す。低照射量領域 ($< \sim 1 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$) で、照射直後に極大を示した後、緩やかに減少する振る舞いが観測された。この結果は、過去の A533B 型モデル合金の結果と一致する。更に照射量を増加すると、引き続き減少傾向を示し、照射温度 300 での最大照射量 ($\sim 9 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$) では、特に Cu 含有量が多い試料で保磁力の減少量が大きいことが分かった。照射温度 140 でも同様に Cu 含有量に依存した減少が観測されたが、低温照射はより保磁力を減少させる傾向があるように見受けられる。このような磁気特性の減少効果はマイナーループ係数などの他の磁気的物理量でも観測されたが、高照射量領域までの変化量は 5% 程度以下で、硬度の変化量と比較すると小さいことが分かった。しかしながら、中・高照射量域では磁気特性が単調減少していること、即ち、脆化と負の相関を持っていることを考慮すると、その減少量を通して、照射脆化を磁気的に非破壊評価できる可能性がある。

(2) 熱脆化による電磁気的特性変化のメカニズムを明らかにするため、組成を系統的に変えた 16 種類の A533B 鋼について 290 と 500 において長期熱時効実験を実施した。500 熱時効材では、特にフェライト組織を有するモデル合金で保磁力の大きな減少が

観測された。これは回復による影響を示唆している。一方、290 熱時効材では硬度及び保磁力ともに照射材と比較して大きな変化は観測されなかった。この結果は、290 高温下の中性子照射下では、熱脆化よりも中性子照射によって、図 1 の減少効果 (回復) が促進されることを示唆している。

(3) ロシア型モデル合金の熱時効材、研究成果 (1) の磁気測定で用いた照射材について中性子小角散乱実験を行った。熱時効材ではナノスケール欠陥の形成は確認できなかった。一方、中性子照射材では特に Cu 含有量が多い試料で、高照射量領域で 2nm 程度のナノスケール欠陥の形成を確認した。この結果は、Cu 析出物の体積分率と保磁力の減少量が相関していることを示唆している。

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 6 件)

S. Kobayashi, K. Miura, Y. Narita, S. Takahashi, Magnetic investigations of steel degradation using a magnetic hysteresis scaling technique, *Metals*, 査読有、8巻、2018、2/1-12. <https://doi.org/10.3390/met8010002>

S. Kobayashi, R. Kawagoe, H. Murakami, Simultaneous magnetic investigations of Cu precipitation and recovery in thermally aged Fe-Cu alloy by first-order-reversal-curves, *AIP Advances*, 査読有、8巻、2018、056720/1-5. <https://doi.org/10.1063/1.5007349>

S. Kobayashi, F. Gillemot, A. Horvath, M. Horvath, L. Almasy, Q. Tian, A. Feoktystov, Investigation of effects of long-term thermal aging on magnetization process in low-alloy pressure vessel steels using first order reversal curves, *AIP Advances*, 査読有、7巻、2017、056002/1-6. <https://doi.org/10.1063/1.4973605>

S. Kobayashi, F. Gillemot, A. Horvath, M. Horvath, L. Almasy, Effect of long-term thermal aging on magnetic hysteresis for low-alloy pressure vessel steel, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、903巻、2017、012049/1-3. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/903/1/012049>

S. Kobayashi, T. Yamamoto, D.

Klingensmith, G.R. Odette, H. Kikuchi, Y. Kamada, Effect of neutron flux on magnetic hysteresis in neutron irradiated pressure vessel steels, IEEE Transactions on Magnetics, 査読有、50巻、2014、6200104/1-4.
DOI: 10.1109/TMAG.2013.2286401

I. Tomas, G. Vertesy, S. Barroso, and S. Kobayashi, Comparison of four NDT methods for indication of reactor steel degradation by high fluences of neutron irradiation, Nuclear Engineering and Design, 査読有、265巻、2013、201-209.
<https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.06.020>

[学会発表](計8件)

村上宏明、小林悟、鎌田康寛、山本琢也、D. Gragg, G.R. Odette、高照射量で中性子照射された原子炉压力容器モデル合金の磁気特性、日本金属学会第162回春期講演大会、2018年3月19日、千葉工業大学

小林悟、山本琢也、D. Klingensmith, D. Gragg, G.R. Odette, F. Gillemot, A. Horvath, L. Almasy, 鎌田康寛、菊池弘昭、中性子照射された原子炉压力容器鋼の磁気ヒステリシス特性--現在の理解と問題点、今後の方向性--、平成29年度材料照射研究会、2018年1月10日、京都大学

S. Kobayashi, R. Kawagoe, H. Murakami, Simultaneous magnetic investigations of Cu precipitation and recovery in thermally aged Fe-Cu alloy by first-order-reversal-curves、62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2017年11月7日、David Lawrence Convention center (ピッツバーグ、アメリカ合衆国)

村上宏明、小林悟、鎌田康寛、山本琢也、D. Gragg, G.R. Odette、磁気1次反転曲線を用いた原子炉压力容器鋼の微細組織評価、日本金属学会第161回秋期講演大会、2017年9月6日、北海道大学

S. Kobayashi、Small-angle neutron scattering study of neutron-irradiated reactor pressure vessel steels; characterization of nano-scale defects and their influence on the magnetic properties, Hungary-China symposium on neutron scattering, 2017年8月28日、MTA Research Institutes (ブダペスト、ハンガリー)

村上宏明、小林悟、鎌田康寛、山本琢也、D. Klingensmith, D. Gragg, G.R. Odette、長期熱時効した A533B 型压力容器鋼の磁気ヒステリシス特性、日本金属学会第160回春期講演大会、2017年3月15日、首都大学

S. Kobayashi, F. Gillemot, A. Horvath, M. Horvath, L. Almasy, Q. Tian, A. Feoktystov, Investigation of effects of long-term thermal aging on magnetization process in low-alloy pressure vessel steels using first order reversal curves、61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2016年11月1日、New Orleans Marriott hotel (ニュー・オーリンズ、アメリカ合衆国)

小林悟、渡辺智哉、吉田築、A. Horvath, F. Gillemot, M. Horvath, L. Almasy、長期熱時効した原子炉压力容器鋼の磁気特性、日本金属学会第159回秋期講演大会、2016年9月21日、大阪大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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

(2) 連携研究者

鎌田康寛 (KAMADA YASUHIRO)
岩手大学・理工学部・教授
研究者番号：00294025

菊池弘昭 (KIKUCHI HIROAKI)
岩手大学・理工学部・准教授
研究者番号：30344617