

中性子照射した原子炉容器鋼材の照射後焼鈍試験

Investigation of Neutron Irradiated Reactor Vessel Steels using Post-irradiation Annealing Techniques

中田 早人 (Hayato Nakata)* 福谷 耕司 (Koji Fukuya)*

要約 マトリックス損傷は、原子炉容器鋼材の中性子照射脆化の主要な要因の一つであると考えられており、その実体は点欠陥集合体と想定されているものの、電子顕微鏡やアトムプローブの観察では確認されていない。本研究では、マトリックス損傷に対し感度の高い陽電子消滅測定法を照射後焼鈍試験および硬さ試験と組み合わせ、加圧水型発電用原子炉の監視試験片と研究炉で照射した実用鋼材に適用し、マトリックス損傷の回復挙動、硬化への寄与について調べた。その結果、高フルエンスの研究炉照射材は欠陥量が多く硬化も大きいものの、中性子束の高い研究炉照射で生成される欠陥は熱安定性が低く硬さに対する寄与は発電用原子炉での照射材に比べて小さいことがわかった。硬化に対するマトリックス損傷分の寄与は最大でも30%程度であると推定された。

キーワード 原子炉容器, 中性子照射脆化, マトリックス損傷, 焼鈍, 陽電子消滅測定法

Abstract The matrix damage is known to be a major factor that contributes to embrittlement and hardening of irradiated reactor vessel steels, and is assumed to be composed of the point defect clusters. However field emission gun scanning transmission electron microscopy (FEGSTEM) and atom probe (AP) could not detect any evidence of the matrix damage. In this study, post irradiation annealing experiments combining positron annihilation lineshape analysis (PALA) and hardness experiments were applied to an actual surveillance test specimen and a sample of reactor vessel steel irradiated in a material test reactor (MTR), in order to investigate the matrix damage recovery behavior and its contribution to hardening. It was confirmed that higher fluence increased the hardness and the volume fraction of open volume defects and that higher flux decreased the thermal stability of matrix damage and the effect on hardening. The contribution of matrix damage to hardening could be estimated to be below 30%.

Keywords reactor vessel, neutron irradiation embrittlement, matrix damage, annealing, positron annihilation

1. はじめに

中性子照射脆化は、原子炉容器鋼の主要な経年変化事象の一つであり、軽水炉の長寿命化に当たっては、この照射脆化の程度を精度よく予測するために脆化機構に基づく予測手法の開発が必要となる。

中性子照射脆化は、マトリックス損傷、銅リッチの析出物、リンの結晶粒界への偏析によると考えられており⁽¹⁾、当研究所においても物理的な脆化モデル

による脆化予測手法を開発するため、中性子照射による原子炉容器鋼材のミクロ組織変化を詳細にとらえる研究を進めている。これまでにPWR原子炉容器で使用されている低合金鋼(A533B)を研究炉と発電用原子炉で照射した試料について電界放射銃型走査透過電子顕微鏡、アトムプローブ、小角中性子散乱法を用いてそのミクロ組織を調査した結果を報告した⁽²⁾。銅リッチの析出物およびリンの粒界偏析については確認できたものの、空孔集合体や格子間

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

原子型転位ループなどの点欠陥集合体と想定されているマトリックス損傷については前述の手法では確認できなかった。一方、陽電子消滅法は間接的な測定手法ではあるが、空孔型の欠陥に対して感度が高く、特に照射後焼鈍実験と組み合わせることでマトリックス損傷の性質をより詳細に調べることができる⁽³¹⁴⁾。

本研究では、マトリックス損傷の回復挙動と硬化への寄与を把握することおよび中性子束の効果を把握することを目的として、照射材の等時焼鈍を行い陽電子消滅測定と硬さ試験を行った。

2. 試験方法

2.1 供試材および照射条件

用いた供試材は、実機で使用されている A533B 鋼である。前報では、供試材として A 材、B 材を用いたが、ここでは中性子束の効果を把握するために照射条件の異なる試料が得られる A 材を用いた。化学組成と照射条件をそれぞれ表 1、2 に示す。試料のうち A 1 は実際に加圧水型発電用原子炉 (PWR) で照射された監視試験片であり、A 2 は米国ミシガン大学フォード炉 (FNR) で照射されたものである。照射温度はいずれも約 290 °C である。

2.2 試験方法

照射後焼鈍試験は、照射で形成された欠陥が照射温度よりも高温で焼鈍されると分解等の変化を起こ

し、硬度等の材料特性が変化する現象を測定する方法である。この方法によれば、各種欠陥の熱安定性を調べることができ、またそれぞれの硬化寄与分を推定できる。本研究では、試料を 250 °C から 450 °C の範囲で等時焼鈍を行って、硬さ測定と陽電子消滅測定を行い、照射により生じた欠陥がどの程度硬化に寄与していたかを推定し、マトリックス損傷の寄与を分離する。

焼鈍は、10 × 10 × 2 mm の試料を用い、酸化を防止するためにタンタル箔で包んで真空炉にて行った。250 °C から 450 °C まで 50 °C 間隔で 30 分間焼鈍し、各温度での焼鈍終了後に室温で硬さ測定と陽電子消滅測定を行った。硬さは 20kg のピッカース硬度計で測定した。

陽電子消滅測定として、消滅ガンマ線エネルギースペクトルを検出するドップラー拡がり法を用い、陽電子源には Ge-68 を、測定器はゲルマニウム半導体検出器を用い、AEA テクノロジー社で開発された PALA (Positron Annihilation Lineshape Analysis) システムを使用した。空孔型欠陥を主体としたマトリックス損傷にトラップされた陽電子は、外殻電子と消滅する確率が高いので、消滅ガンマ線のドップラー拡がりには狭幅成分となり、この中央部分を全カウントで割った S パラメータを用いて評価する。また、ドップラー拡がりの裾野成分を全体のカウントで割って規格化したものが W パラメータであり、内殻電子との消滅の量により変化するもので、欠陥に対して S パラメータと逆の増減を示す。パラメータの絶対値は装置の構成によって変化するもので、ばらつきを減少させるため同じシステムで測定した照射

表 1 A 材の化学組成

	Cu	Ni	P	Si	Mn	Mo	Cr	C
wt.%	0.12	0.58	0.014	0.25	1.20	0.54	0.08	0.25

表 2 照射条件

		中性子束 n/ /s (E > 1MeV)	中性子フルエンス n/ (E > 1MeV)
A 材	A 1	7.8×10^{10}	3.1×10^{19}
	A 2	5.0×10^{12}	6.8×10^{19}

材と未照射材のパラメータの差から以下の式で求められる変化分により評価した．

$$S = S(\text{試料}) - S(\text{未照射材})$$

$$W = W(\text{試料}) - W(\text{未照射材})$$

3. 試験結果

3.1 硬さ試験結果

焼鈍による硬さの回復挙動を図1に示す．なお未照射材の硬さは208である．照射のままの状態での硬さは，A1(監視試験片)より中性子フルエンスの大きいA2(FNR照射試料)の方が大きい．A1, A2材とも350までは焼鈍による硬さの回復は見られないが，400において回復が始まっている．450の最終の焼鈍後においても回復が見られるが，回復の程度はフルエンスの大きいA2の方が大きい．

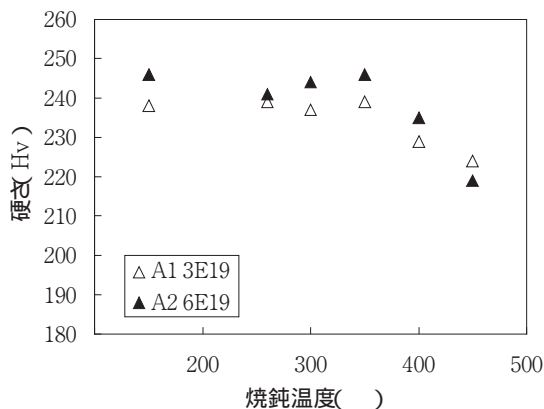
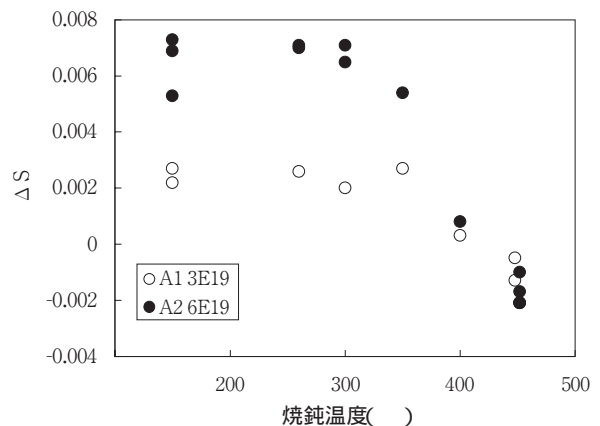


図1 照射後焼鈍による硬度の変化

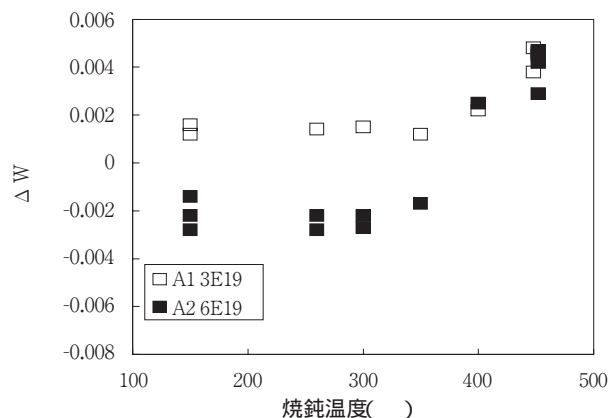
3.2 陽電子消滅測定結果

焼鈍による S および W の回復を図2に示す．焼鈍前の照射のままの状態での S は，フルエンスの大きいA2の方が大きくなっている．これはフルエンスの大きい方が空孔成分が多く生じていることを示している．照射後の250および300焼鈍では，いずれの材料にも回復は見られなかった．A2では350で回復が始まり，400で大きく回復した．A1では350で回復は見られなかったが，

400で回復した．また，A1, A2とも450でも回復が見られたが，Sがゼロ以下になっており，これは焼鈍により銅析出物の再分配が生じているためであると推定される．WもSにほぼ対応した振る舞いを見せている．研究炉(FNR)で照射した，高中性子束でフルエンスの大きいA2の方が，実機のフルエンスの小さいA1よりも熱的に不安定な欠陥が多く生じており，400での焼鈍によってこれらがほぼ消滅するものと考えられる．



a) Sパラメータ $\Delta S = S(\text{試料}) - S(\text{未照射})$



b) Wパラメータ $\Delta W = W(\text{試料}) - W(\text{未照射})$

図2 照射後焼鈍による陽電子消滅パラメータの変化

4. 考察

照射後焼鈍試験の結果を表3に要約する．

表3 照射後焼鈍による硬さとSパラメータの変化

		A 1	A 2
中性子フルエンス (n/cm ²) (E > 1MeV)		3.1 × 10 ¹⁹	6.8 × 10 ¹⁹
中性子束 (n/cm ² /s) (E > 1MeV)		7.8 × 10 ¹⁰	5.0 × 10 ¹²
照射による変化	硬さの上昇分	30	38
	Δ S の上昇分	0.0025	0.0065
焼鈍による変化	硬さの回復温度	400	400
	400 焼鈍後の硬さの回復	9	11
	Δ S の回復温度	400	350
	400 焼鈍後のΔ Sの回復	0.0022	0.0057

本研究により、中性子フルエンスが大きいと照射によるマトリックス欠陥が多く生じていることが確認された。照射後の硬さはマトリックス欠陥と銅リッチ析出物との寄与によるものと考えられる。照射による硬さの増加量を 100 % として、焼鈍による残留硬さの割合を図 3 に示す。図に示すように、400

焼鈍における硬さの回復は、A 1、A 2 とともに約 30% と同程度である。この温度では銅リッチ析出物の変化が少ないと考えられ、これはマトリックス損傷の寄与分の最大値と考えられる。

Sパラメータの回復は、高フルエンスのものが 350 から始まっているが、硬さの回復は、低フルエンスと同じく 400 から始まっている。450 においても回復は起こっている。この傾向は Carter⁽³⁾ の高銅溶接金属の試験結果と同様である。S は 400 でほぼ 0 になることから、400 でマトリックス損傷は消滅したものと考えられる。A2 には、空孔型欠陥を主体とするマトリックス損傷が A1 よりも多く生じているものの、硬さの回復は A1 と同程度であるということは、A 2 の欠陥は熱的に不安定で硬化への寄与が小さいと考えられる。

前報⁽²⁾で硬化の予測値をマトリックス損傷分については Buswell らによる経験式⁽⁵⁾を、銅リッチ析出物分については Russel-Brown 式⁽⁶⁾を用いて示したが、S が 0 までの回復分をマトリックス損傷によ

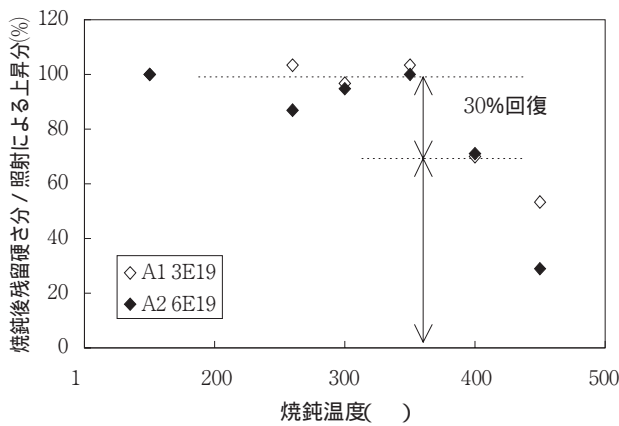


図3 照射硬化に対する回復率

表4 硬化の予測値⁽²⁾

試料	フルエンス (n/cm ²)	予測値 (Mpa)		
		Δ σ _y (ppt)	Δ σ _y (dam)	Δ σ _y
A 1	3.1 × 10 ¹⁹	94	29	98
A 2	6.8 × 10 ¹⁹	99	43	108

$$y = [(\sigma_y(\text{ppt}))^2 + (\sigma_y(\text{dam}))^2]^{1/2}$$

σ_y (ppt) ; 析出物の寄与

σ_y (dam) ; マトリックス損傷の寄与

る硬化，残りを銅リッチ析出物による硬化分と仮定すると，表4から硬化全体に対するマトリックス損傷による硬化分 ($y(\text{dam}) / y$) は約30%となり，図3の結果と一致する．

5. まとめ

原子炉容器で使用されている低合金鋼(A533B)の研究炉と発電用原子炉での照射試料について，焼鈍試験を行い，マトリックス損傷の回復挙動と硬化への寄与について検討し，以下の知見を得た．

- (1) 高フルエンスの研究炉照射材は，マトリックス損傷が多く，硬化も大きい．
- (2) 陽電子消滅測定では，高フルエンスの照射材は350でSパラメータの回復を示すが，低フルエンスの監視試験片は400で回復が始まっている．一方，硬さの回復はいずれの材料でも400で起こっている．このことから，中性子束の高い研究炉照射で生じた欠陥の熱的安定性は低く，硬化への寄与も小さいと考えられる．
- (3) Sが0となる温度での回復量をマトリックス損傷分と仮定すると，マトリックス損傷による硬化の寄与は約30%と考えられ，銅リッチ析出物が硬化の主要因となっていることがわかった．

文献

- (1) W.G.Phythian, C.A.English, " Microstructural Evolution in Reactor Pressure Vessel Steels ", Journal of Nuclear Materials, 205 (1993) 162-177.
- (2) 大野勝巳, 福谷耕司 「中性子照射による原子炉容器鋼材のミクロ組織変化」 INSS Journal, No.7(2000) 100-111.
- (3) R.G.Carter, T.Onchi,N.Soneda,K.Dohi, " Thermal Stability of Matrix Defects in Irradiated Pressure Vessel Steels ";Proc.of Fontevraud , Contribution of materials investigation to the problems encountered in pressurized water reactors, September 1998, p.89.
- (4) M.Grosse, A.Hampel, J.Bohmert, G.Brauer, " Influence of the Irradiation Temperature on the Formation of Defects in Reactor Vessel Steels ", MRS Symp. Proc. Vol. 439: Microstructure Evolution During Irradiation, 1997, p.515.
- (5) J.T.Buswell and R.B.Jones, " The Modeling of Radiation Hardening and Embrittlement in Magnox Mild Steel Submerged-Arc Welds ", Effect of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM STP 1175, 424-443 (1993).
- (6) K.C.Russel and L.M.Brown, " A Dispersion Strengthening Model Based on Differing Elastic Moduli Applied to the Iron-Copper System ", Acta Metallurgica, vol.20, (1972).