

原子力機器用鉄クロム系材料の相分離現象に関する基礎的研究

(受託者) 国立大学法人京都大学

(研究代表者) 笠田竜太 エネルギー理工学研究所

(研究開発期間) 平成22年度～23年度

1. 研究開発の背景とねらい

本事業では、原子力機器材料として用いられる鉄クロム系合金の経年劣化事象として重要な熱時効脆化に関連する相分離現象とその照射影響の理解を進めるために、イオン加速器照射実験と相分離過程を支配する拡散過程のモデル化を軸とした研究を進めるとともに、新たな相分離検出法としての陽電子消滅測定法の適用性について検証することを目的とする。

本研究開発の背景は、クロム含有量が約12～90%の鉄クロム系材料を320～540℃程度の温度範囲で長時間時効すると、硬さや引張強度が増加し、延性や靱性が著しく低下する熱時効脆化現象、すなわち「475℃脆化」と呼ばれる経年劣化事象である。軽水炉機器材料においては、一次冷却材管・継手、ポンプ、弁の耐圧部等に使用されている2相ステンレス鋼（鉄-クロム-ニッケル合金）が、軽水炉の運転温度である300℃近辺においても長時間の熱時効により相分離を生じ、脆化することが判ってきており、高経年化技術評価審査事象として破壊力学的な検討が詳細に行われている。また、軽水炉圧力容器鋼の内表面には防食の観点から2相ステンレス鋼がクラッド材として使用されており、中性子照射量は低いものの熱時効脆化に及ぼす照射影響は興味深い課題である。高速炉開発に目を向けると、燃料被覆管やラッパー管用の材料として検討されているPNC-FMSや酸化物分散強化（ODS）鋼は9～15%程度のクロムを含有するフェライト-マルテンサイト系材料であるため、熱時効脆化や照射脆化は経年劣化事象として重要な研究課題である。このように、軽水炉や高速炉において、鉄-クロム系合金は広く照射環境下で用いられており、当該材料の本質的な特性である475℃脆化現象に対して照射損傷がどのように、そしてどの程度影響するのかについて基礎的知見を得ることは、これらの原子力機器の安全・安心・高効率利用に寄与するものと考えられる。

2. 研究開発成果

(1) 鉄クロム合金の相分離による脆化に及ぼす照射影響に関する研究

当初の目標の通り、時効脆化に及ぼすクロム量の影響に関して、従来よりも幅広い組成範囲における硬さの変化を系統的に取得した。また、望外の成果として、本事業における鉄クロム合金系のビッカース硬さとナノインデンテーション硬さの相関から、研究代表者が提案している新しいナノインデンテーション硬さの解析モデルの妥当性を確認し、イオン照射材評価法として確立することができた。図1は、本手法によって得られたビッカース硬さ（イオン照射材については換算値、時効材については実測値）の時効時間或いは照射時間依存性である。本結果をもとに、相分離の照射効果モデルを検討したところ、照射誘起点欠陥の導入による原子拡散の照射促進に基づく相分離モデルが475℃照射における照射硬化の促進を良く説明できることを示したため、当初の目標は達成されたと言える。一方、時効材に対するイオン照射実験から示唆された相分離の照射回復現象は当モデルの適用外の現象であることも確認した。このことは、固体材料における非平衡定常状態の発現が示唆されるものであり、今後の照射効果研究における重要な課題を提示した成果であると考えている。

(2) 陽電子消滅法による相分離の検出に関する研究

研究目標に掲げた通り、鉄クロム系合金の相分離過程を検出する方法として、これまでに報告のなかった陽電子消滅測定法を新たに適用することにより、特に時効脆化として機械的特性に変化が生じる以前の相分離の初期過程を検出可能であることを示したことは世界初の成果である。図2は、陽電子消滅同時計数ドップラーブロードニング (CDB) 法によって取得した W パラメータの変化率 (規格化 W パラメータ) をクロム濃度 x (原子分率) に対してプロットしている。W パラメータとは、CDB スペクトルの全カウント数に対する高運動量領域 (ここでは、 $14 \times 10^{-3} \text{mc}$ から $26 \times 10^{-3} \text{mc}$) のカウント数の割合であり、陽電子と内殻電子との消滅に関するパラメータである。本図は、高クロム濃度合金における相分離のみならず、実用的に重要な低クロム合金における相分離も検出できることを示しており、当初目標を越える成果を得られた。イオン照射材については、当初より懸念されていた通り、照射領域が深さ方向において狭いことから相分離を明確に検出することは困難であることが確認された。しかしながら、本質的には陽電子消滅法によって相分離を検出可能であることは示されており、陽電子ビーム装置を利用すれば、イオン照射領域の相分離の検出は可能であると考えている。実際に、本事業外の成果ではあるが、KUR 照射した鉄クロム合金における相分離の照射促進相分離現象を陽電子消滅法によって検出可能であることを示している。

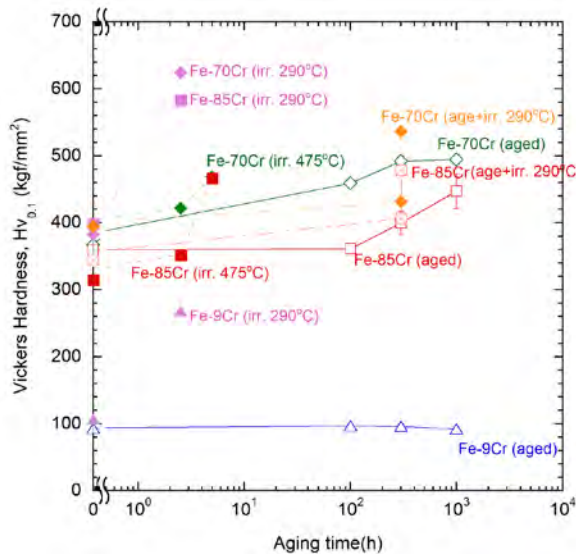


図1 鉄 - クロム合金の硬化の時間依存性とイオン照射の影響

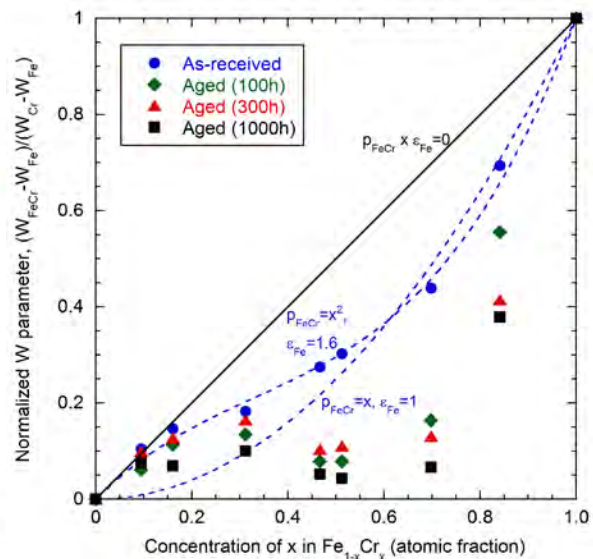


図2 Fe-Cr 二元系合金の規格化 W パラメータの変化率のクロム濃度 x (原子分率) 依存性

3. 今後の展望

本事業計画の終了後、鉄クロム合金の中性子照射実験および照射後試験を進めている。また、第一原理計算によって、鉄クロム合金の鉄サイトにおける陽電子の優先的消滅挙動を実験と理論の両面より明らかにしつつある。本事業で得られた知見と合わせて、鉄クロム合金における陽電子消滅特性に関する論文と、鉄クロム合金における時効・照射硬化特性に関する論文を執筆中である。