

EBR-II 廃材を用いた高速炉構造材健全性評価に関する研究開発

(受託者) 国立大学法人 東京大学

(研究代表者) 沖田 泰良 人工物工学研究センター

(再委託先) 原子燃料工業株式会社、株式会社原子力エンジニアリング

(研究開発期間) 平成 21 年度～ 23 年度

1. 研究開発の背景とねらい

本研究開発では、液体 Na 冷却 FBR を対象とし、構造材料の健全性評価手法確立に資する技術開発を行うことを目的とする。研究開発の全体像を包括する図 1 に基づいて具体的実施事項を示す[1]。米国液体 Na 冷却高速実験炉 EBR-II において約 12 年間反射材として使用されたオーステナイト系ステンレス鋼照射ブロック材を用いて、構造材の照射下マイクロ組織変化を検出する非破壊検査技術開発を行う (図 1(2))。また、同一試料に対して、マイクロ組織観察と機械的特性試験を行い (図 1(3))、非破壊検査で得られる信号と物性変化の関係についてマイクロレベルで明らかにする (図 1(4))。その結果に基づいて、マクロ特性とマイクロ組織を結びつけるモデル、長期間照射による材料劣化を予測するモデルの構築を行う (図 1(5))。更に試験炉で得られてきた照射下マイクロ組織、機械的特性変化データを集積し (図 1(1))、照射ブロック材データとの比較により、その相違の要因について明らかにする (図 1(6))。これらに基づいて、FBR 構造材の健全性評価手法確立に資する (図 1(7))。

本研究開発で得られた非破壊検査技術や材料劣化予測モデル、微小試験片とブロック材の照射挙動相違に関する知見等は、FBR 炉心材料、既存軽水炉や次世代軽水炉、他型革新炉の照射下における構造材料の照射劣化予測・評価にも資する要素技術であることが期待される。

2. 研究開発成果

以下には 3 年度間に得られた研究成果のうち、特筆すべき事項の一部を示す。

(a) 液体 Na 冷却 FBR 実機廃材を用いた系統的な照射後試験

本研究開発で使用した二つの照射ブロック材を図 2 に示す。これらは、304 系オーステナイト系ステンレス鋼で、ブロック 3 が炉心中央部で最大約 33dpa、ブロック 5 は上端部で最大 5dpa 程度、上端で 0.1dpa オーダーの照射を受けた試料である。これらの試験片は、表面放射線量が $\sim 22\text{mSv/h}$ と極めて高いが、アイダホ国立研究所から Westinghouse Electric Company に搬送しホットセル試験を行った。この結果、2 つのブロック材に対して、それぞれ側面と断面からの超音波データをセットで 10^4 点以上取得した。加えて、寸法計測、曲がり測定、線量測定、密度測定、粒径分布測定、TEM 観察、shear

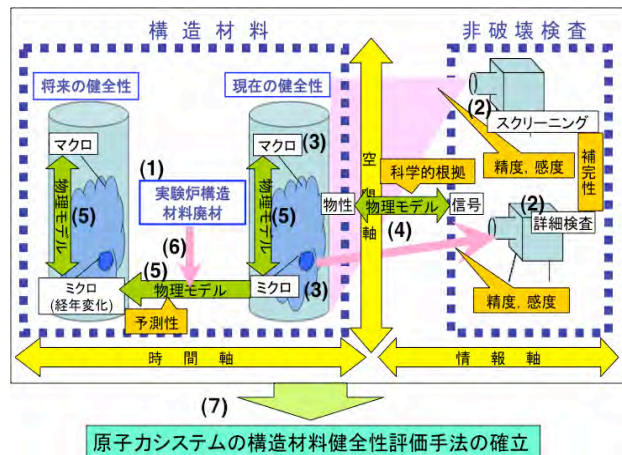


図 1 構造材料健全性評価に資する検査のあり方に関する全体像

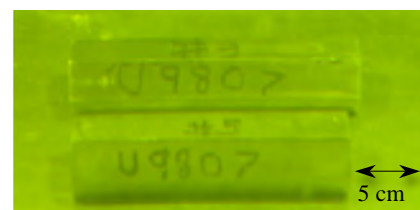


図 2 照射ブロック材外観 (上:ブロック 3, 下:ブロック 5)

punch 試験の一連の系統的な実験を行うことに成功した。高放射線量の中性子照射材を対象として、これ程多岐に亘る照射後試験を行った例は極めて稀であり、本研究開発により液体 Na 冷却 FBR 環境下における照射材の貴重なデータを得ることができた。また、それらを系統的に纏めることで、超音波信号とマイクロ組織の関係について、実験的に明らかにすることに成功した。

(b) 極めて低い積算線量におけるボイド形成

図3には、ブロック5最上端部で観察されたボイド像を示す。この領域では、約415°Cで供用され、12年以上の照射においても積算線量が0.1dpaオーダーである。極めて低い積算線量でこれまでボイドが形成されないと考えられていた領域であるにも関わらず[2]、半径10nm程度のボイドが比較的高密度(10^{20}m^{-3} オーダー)で観察された。これは、低照射速度によるボイド形成促進に起因すると考えられる[3]。このことは、特に、FBR炉容器等を対象とした場合においても、ボイドが形成することを示唆しており、今後の保全計画や設計に反映すべき貴重な知見である。

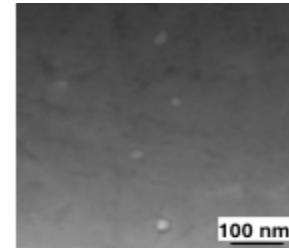


図3 ブロック5最上端部で観察されたボイド像 (~0.1 dpa, ~415°C)

(c) 超音波信号変化解析を用いた照射下マイクロ組織・深さ分布定量予測シミュレータの構築

試験材中に超音波が入射した際に得られる反射波には、照射下で形成するボイド、炭化物、転位などマイクロ組織を反映した信号が含まれている。超音波に関する弾性波動論に基づきマイクロ組織と超音波の相互作用を定量化し[4,5]、マイクロ組織の深さ分布を非破壊的に検出するためのモデルを構築した。

照射下マイクロ組織が複合的に一様分布する場合のマイクロ組織検出検討の一例として、(1) 転位密度 $1 \times 10^{15} \text{m}^{-2}$ 、(2) 炭化物生成による0.6%体積減少、(3) ボイドスエリングによる1.3%体積増加、が発生した場合について解析を実施した。図4には、(1)~(3)に示したマイクロ組織が生じた試料に対して、10MHzをピーク周波数とする超音波を入射させた場合の信号変化を示す。図では、7MHzと13MHzのみを示したが、マイクロ組織の複合変化を検出するパラメータを複数抽出し、その変化を解析することにより、各々のマイクロ組織について定量化が可能である。

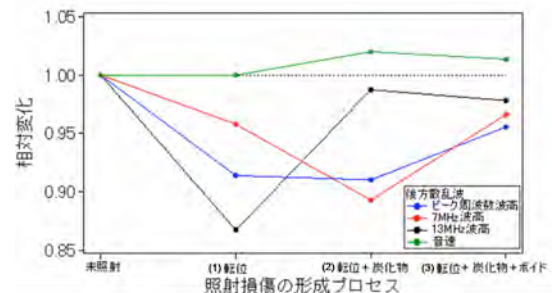


図4 マイクロ組織の複合変化による各超音波パラメータの推移

構造材料では、マイクロ組織が深さ方向に不均一である場合も検討する必要がある。本研究開発では、後方散乱波周波数分布の6-9MHzにおける強度比に着目して、深さ方向のマイクロ組織勾配を検出する手法の構築を行った。図5には、深さ方向のスエリング分布に関して、実験結果

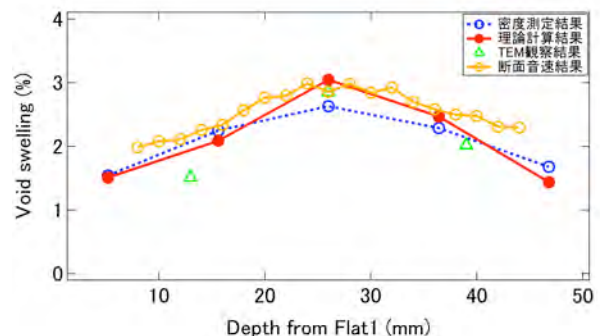


図5 ボイドスエリング深さ分布に関する実験結果と理論計算の比較

と理論計算の比較を示す。側面からの超音波信号により理論的に算出したスエリングの深さ分布は、実験結果と極めて良く一致することがわかる。本手法により、深さ方向に勾配を有する材料に対して、マイクロ組織分布を求めることが可能となった。

本研究開発では、これまでも必要性が認められながらも技術的に困難であったマイクロ組織を非破壊的に検出する技術の構築に成功した。これは、現在特許申請中であり、FBR 構造材のみならず、他型原子炉への適用、他分野への展開等様々な発展性があり、また汎用性も高い技術である。

(d) オーステナイト系ステンレス鋼を対象とした原子間ポテンシャルの構築

オーステナイト系ステンレス鋼は、3種類の主要元素が Fe, Cr, Ni から構成され、またそれらがランダムに配置する複雑さ故、その分子シミュレーションの元となる原子間ポテンシャル構築は困難であった。近年、欧米を中心にオーステナイト系ステンレス鋼の原子間ポテンシャル構築の試みが行われている一方で[6,7]、我が国ではこのような取り組みはなされて来なかった。本研究では、Fe, Cr, Ni を実用鋼に対応する割合でランダムに配置した系を対象とした電子構造計算を行い、電子密度分布、構造緩和等に関する検討を行った（一例を図6に示す）。これらに基づいて、FCC 構造の相安定性と格子定数、及びそれらの性質への合金元素の影響を再現する原子埋め込み型原子間ポテンシャルの開発に成功した。オーステナイト系ステンレス鋼を対象とした原子間ポテンシャルのプラットフォームは出来上がったことは大きな成果であり、今後更なる精緻化が期待される。

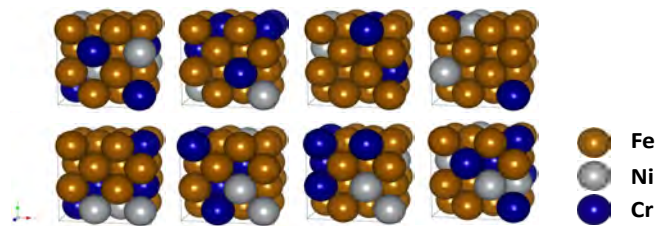


図6 Fe, Cr, Ni を対象とした多数回の構造緩和計算

本研究開発では、この他、欠陥挙動を取り入れた照射劣化経時変化モデルの構築、オーステナイト系ステンレス鋼に相当する低積層欠陥エネルギーを有する FCC 金属における欠陥形成過程の解明並びに

照射硬化予測モデルの構築、スエリングと照射条件をインプットデータとしてボイドサイズ分布と照射硬化を推定する手法の開発等、材料劣化物理モデル構築に関して数々の成果を挙げることに成功した。

(e) 照射効果に関する試料片サイズ効果

従来の照射データに於いては、主に照射条件を制御した実験炉で微小試験片を用いてラボデータが取得されてきた。これらのラボデータを集積し、本研究開発で得られた実機材データとの比較することで、照射下マイクロ組織発達に及ぼす試験片サイズ効果に関して検討を行った。図7には、304系オーステナイト系ステンレス鋼 FBR 照射材で観察されたボイドデータからブロック材温度に相当する $420 \pm 50^\circ\text{C}$ の範囲のデータを抽出し、照射量を横軸としてプロットした結果を示す。この温度範囲に限定すると、ボイド数密度はほぼ照射量に従って増加し約 10dpa 付近で飽和する傾向にあること、またデータのバラツキはブロック材とラボデータではなくむしろこれら温度の相違に起因することが明らかとなった。一方、ブロック材5で得られたデータは、ラボデータと比較するとボイド平均径が極めて高いことがわかる。このことは、低照射速度で長期間照射を受けることによりボイド成長が促進されたためである。これらより、照射下マイクロ組織発達に及

ぼす試験片サイズ効果は、 γ 線発熱等に起因する温度およびその勾配が第一因子、照射速度効果が第二因子であることが明らかとなった。これらのことは、今後の照射後試験計画に反映していくべき重要な知見である。

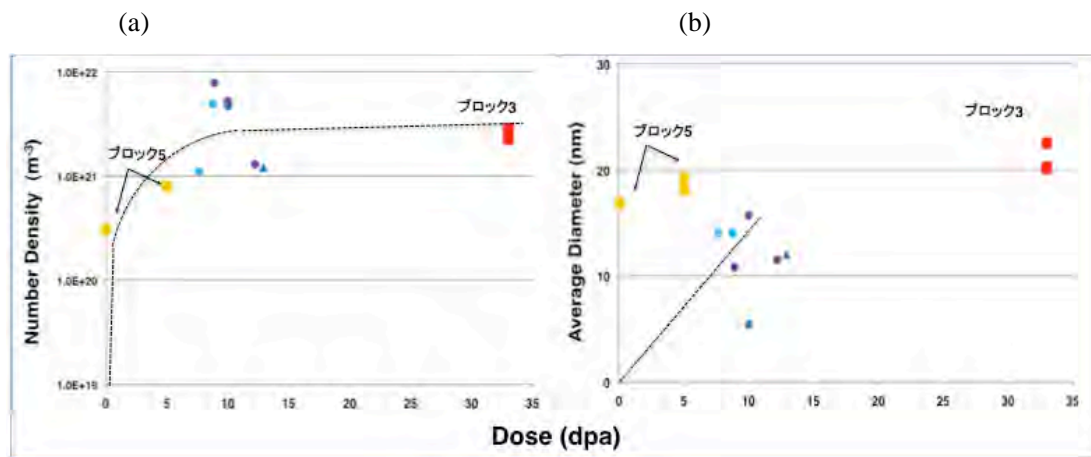


図7 304系オーステナイト系ステンレス鋼FBR照射 $420 \pm 50^\circ\text{C}$ におけるボイドデータに関して照射温度を横軸としたプロット (a) ボイド数密度, (b)ボイド平均径

3. 今後の展望

本研究開発によって構築した非破壊検査、マイクロ組織変化に基づいた物理モデル、データベースを融合させることにより、FBR環境照射下で使用されるオーステナイト系ステンレス鋼の材質変化検出から機械的特性変化の評価、更なる供用における劣化の進行を予測する手法の構築に成功した。これを用いることで、科学的根拠に基づいて適切な時期に適切な箇所を選定し保全計画を策定することが可能となり、原子力プラントの安全性確保と経済性向上の双方へ貢献しうる。また、材質劣化検出のための非破壊検査技術は汎用性が高く、FBR材料の劣化診断に加えて、他型原子炉構造材料への適用を図っていく。

4. 参考

- [1] 「平成20年度高経年化機器の状態監視のための新技術適用性に係る研究報告書」 平成21年2月 NPO法人日本保全学会状態把握新技術適用性研究分科会
- [2] F.A. Garner, Materials Science and Technology, vol. 10A, VCH Publisher, Weinheim, 1994, 419.
- [3] T. Okita, T. Sato, N. Sekimura, L.R. Greenwood, F.A. Garner, J. Nucl. Mater., 307-311 (2002) 322.
- [4] K. Goebbles, Structural Analysis by Scattered Ultrasonic Radiation, Research Techniques in Nondestructive Testing IV, Academic Press, 1990.
- [5] A.B. Bhatia, Journal of Acoustical Society of America, 31, 1, 1959.
- [6] L. Malerba, G.J. Ackland, C.S. Bequart, G. Bonny, C. Domain, S.L. Durarev, C. -C. Fu, D. Hepburn, M.C. Marinica, P. Olsson, R.C. Pasioanot, J.M. Raulot, F. Soisson, D. Terentyev, E. Vincent, F. Willaime, J. Nucl. Mater. 406 (2010) 7.
- [7] T.P.C. Klaver, D.J. Hepburn, G.J. Ackland, Phys. Rev. B 85, 1744111, 2012