

[16019]

軽水炉炉内機器の事故時温度履歴推定に向けた照射後微細組織 温度履歴データベース構築

Estimation of microstructural changes of LWR core internal components by heating during severe accident –temperature/microstructure database-

橋本健吾^{A)}、野口耕平^{A)}、大久保成彰^{B)}、實川資朗^{A)}
Kengo Hashimoto^{A)}, Kohei Noguchi^{A)}, Nariaki Okubo^{B)}, Shiro Jitsukawa^{A)}
^{A)} National Institute of Technology, ^{B)} Japan Atomic Energy Agency

Abstract

Fe-ions and He-ions have been irradiated on 316 ss to 1 dpa at 10appmHe/dpa. Annealing at temperatures of 400oC to 750oC reduced the number density and increased in size of irradiation produced interstitial loops. The microstructural change is suggesting the total number of interstitial atoms is not strongly affected by annealing for 10000 s.

Keyword: 316ss, severe accident, temperature history, irradiation, interstitial loops, annealing, microstructure,

1. はじめに

炉内機器材料は中性子などによる照射損傷を受けると微細組織の変化を生じる。これが熱履歴を受けると特徴的な微細組織を形成する。このことから逆に、微細組織の情報から、事故時の熱履歴などの推定に利用できる知見が得られる可能性があると考えられる。実際、類似の手法は、TMI-II の圧力容器の熱履歴の推定に使われた[1]。このような手法の利用は、福島第一原発などでの過酷事故の解析に有用であろう。さらに、硬さなどを通じ、炉内機器の残存強度推定の手がかりにもなろう。このような手法の可能性について検討するために、10MeV の鉄イオンなどを 316 鋼などの試料に照射し、系統的に熱履歴を与えた透過電子顕微鏡試料を FIB 及びナノミリング装置にて作製し、微細組織への熱履歴の影響を評価した。

2. 実験 (Experimental)

・試料: 試料には 6mm×3mm×0.75mm の短冊状の溶体化処理した Kobelco 製の 316 鋼(化学組成; 0.013C-0.47Si-17.4Cr-12.6Ni-1.55Mn-2.5Mo-0.025P-0.001S-0.1N-Fe)を用いた。

・イオン照射: 量研機構高崎の TIARA 施設にて、10MeV の Fe³⁺イオンと、1MeV の He⁺イオンを照射した。照射温度は主に 300℃とし、照射量は、主に Fe³⁺による弾き出し損傷量を 1dpa、He⁺の量は、弾き出し損傷速度との関係で約 10appmHe/dpa とした。なお、この He⁺注入量は、Ni の 2 段反応、しばしば添加されている B 中の 10B などからの核変換による生成を想定したもので、今後、パラメータとして扱うものとする。

・焼鈍: 試料を真空封入し 400℃から 750℃の範囲、300 秒から 30000 秒の時間で焼鈍を行った。

・電子顕微鏡用薄膜試料の作製: 焼鈍により熱履歴

が加えられた試料から、ナノテクノロジープラットフォーム事業により FIB (Hitachi SMF2000)及びナノミリング装置により、厚さが 0.1µm 程度の電子顕微鏡試料を作製した(NIMS 下村氏他による)。なお、ナノミリングの使用は、FIB 加工時に導入された、試料表面のスパッタ層などの損傷層の除去を目的としたものである。

・電子顕微鏡観察: 作製した薄膜試料を 200kV の加速電圧の透過電子顕微鏡(JEOL200FXII)にて観察した。格子間原子型転位ループの観察は、主に、 $g = \langle 200 \rangle$ で行った。

3. 結果と考察 (Results and discussion)

図 1 に、焼鈍温度 400℃から 750℃、焼鈍時間 300s から 10000s の範囲の照射後焼鈍を行った微細組織の例を示す。言うまでもなく、高温側、長時間側でクラスターの数密度が減少し、転位ループなどの大きさが増加している。

図 1 などの結果をまとめると、転位ループの数密度は、照射したままの時の 4×10^{23} 個/m³ 程度から 1×10^{22} 個/m³ 程度に減少し、それに伴い、大きさは 6nm 程度から 200nm 程度に増加した。このように、転位ループの状態は、焼鈍の温度や時間に対応して敏感に変化を示すことから、加えて言えば、限られた報告例しか無いが、中性子照射材における焼鈍による微細組織変化に似ていることが指摘できる[2, 3]。これらのことから原子炉の事故時における温度履歴推定への適用可能性があると言える。

但し、図 2 に示すように、焼鈍温度が異なっても焼鈍時間によっては同一の「数密度-大きさ」値をとるため、温度と時間を独立に推定することに問題がある。従って、他の微細組織要素、例えば異なった焼鈍挙動を示すとの報告[2]が有る空孔集合体の評価も有用と考える。一方、事故時に高温に曝された時間は限られているため(100 時間程度であろう)、これ

[16019]

を考慮すれば、格子間原子型転位ループの観察結果のみからでも、ある程度まで温度範囲の特定が可能とも考えられ、さらに、他の部材、例えば、制御棒や燃料集合体の微細組織解析を併用することで、より詳しい検討が可能になると期待できよう。

微細組織変化のうち、図 2 からわかるように、転位ループの数密度と大きさの変化は、この範囲では従属的である。従って、どちらか一方に着目すれば良いことになる。数密度の変化の時間依存性は、言うまでもなく時間とともに変化速度は減少傾向を示す。そこで、焼鈍時間を 1000s とした時の変化速度について、その温度依存性を評価すると、見かけの活性化エネルギーは 2.8eV 程度となり、微細組織変化が原子空孔の挙動に従った現象であることが示唆される。しかし、注目すべきことに、図 1 からは、格子間原子が原子空孔と(再)結合して消滅する割合は大きく無いことがわかる(格子間原子型転位ループが集合して数密度が低下したように見える)。このような機構が作動したとすれば、格子間原子生成の活性化エネルギーに従うように思われるが、温度依存性と、そのような機構とは合致しない。この点については、さらなる検討が必要と考えられる。

まとめ

- (1) 316 鋼にイオン照射で導入された転位ループの密度などは、焼鈍条件に従い明瞭に変化した。
- (2) 温度履歴推定の確からしさを高めるためには、空孔集合体を対象に含めると効果的であろう。

参考文献

- [1] G.E. Korth, et al., Nuclear Engineering Design 167(1997)267
- [2] B.N. Singh, D.J. Edwards and P. Toft, Riso RÅE1213, 2001
- [3] K. Shiraishi, K. Fukaya and K. Fukai, JNM119(1983)267

謝辞

本研究の一部は、MEXT「廃止措置研究開発・人材育成プログラム」、科研費 C(課題番号 23561022)、原子力機構 連携重点研究、東京大学 施設利用共同研究、京都大学 低炭素プログラムにより実現できたことを感謝します。

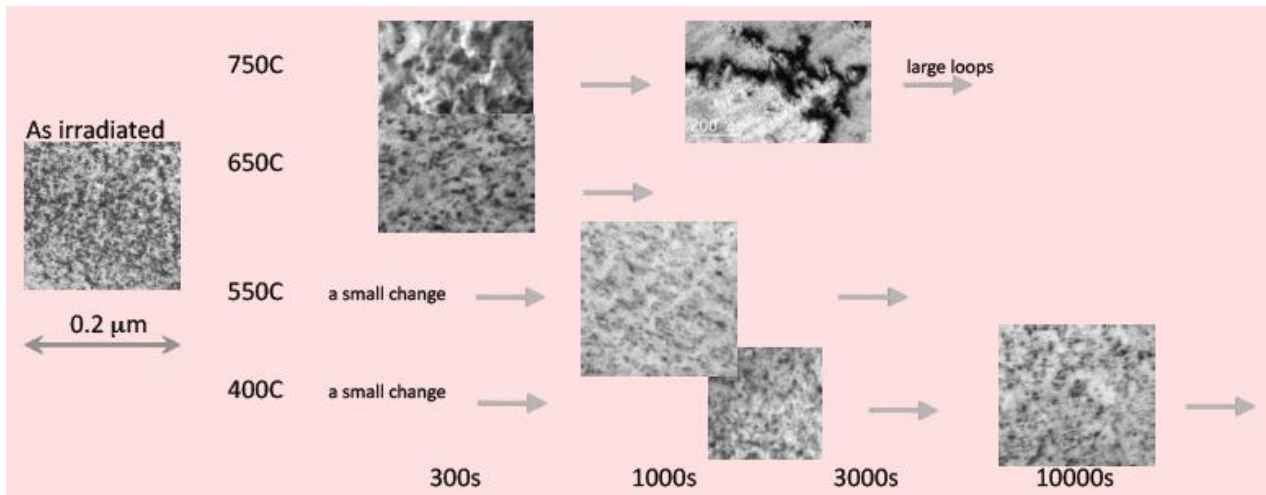
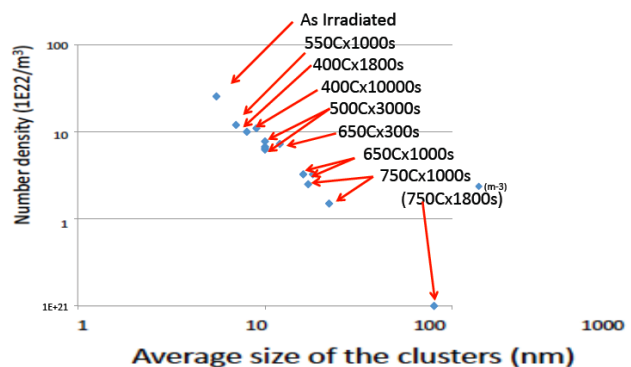


図 1 イオン照射後焼鈍で得られた微細組織

図 2 焼鈍後の格子間原子クラスターの
大きさと数密度の関係



→