

[18020]

## 炉内機器の損傷組織への熱影響

-福島第一原発の炉内の事故時温度推定精度を向上させるために-

### Estimation of microstructural changes of LWR core internal components by heating during severe accident

橋本拓実<sup>A)</sup>、野口耕平<sup>A)</sup>、高橋憲人<sup>A)</sup>、井岡郁夫<sup>B)</sup>、大久保成彰<sup>B)</sup>、實川資朗<sup>A)</sup>  
Takumi Hashimoto<sup>A)</sup>, Kohei Noguchi<sup>A)</sup>, Kent Takahashi<sup>A)</sup>, Ikuo Ioka<sup>B)</sup>, Nariaki Okubo<sup>B)</sup>, Shiro Jitsukawa<sup>A)</sup>  
<sup>A)</sup> National Institute of Technology, <sup>B)</sup> 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 400°C to 750°C 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. Annealing at a higher temperature of 1000°C caused to form cavities.

**Keyword:** 316ss, severe accident, temperature history, irradiation, interstitial loops, cavity, 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。この微細組織は、熱履歴を受けると特徴的な変化を生じる。このことから逆に、事故炉の部材の微細組織を評価することで、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と考えられる。実際、類似の手法は、TMI-II の压力容器の熱履歴の推定と、破損までの余裕の推定に使われた[1]。

このような手法の利用は、必要となるサンプルの体積が極めて少なく済むため、福島第一原発のように、炉内の機器へのアクセスが難しい場合には、特に、有用と考えられるため、本研究を行なっている。事故時の温度などの推定は、過酷事故過程の解析に重要であろう。加えて、転位密度、或いは、ナノ硬さ硬さ(微小な試料に適用できる)などを通じた塑性流動応力の推定の可能性がある。これは、炉内機器の残存強度推定の手がかりにもなり、安全な廃炉作業の実施に貢献できると期待する。

このような、微細組織から温度履歴についての情報を取得する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、微細組織への焼鈍条件の影響を評価した。

#### 2. 実験 (Experimental)

・試料: 試料には 6mm×3mm×1mm の短冊状の溶体化処理した 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。なお、この 316 鋼は、Kobelco 製の原子力グレードの鋼である。

・イオン照射: 量研機構高崎の TIARA 施設にて、

10MeV の Fe<sup>3+</sup>イオンと、1MeV の He<sup>+</sup>イオンを照射した。照射温度は主に 300°Cとし、照射量は、主に Fe<sup>3+</sup>による弾き出し損傷量を 1dpa、He<sup>+</sup>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<sup>+</sup>注入量は、Ni の 2 段反応、しばしば添加されている B 中の <sup>10</sup>B などからの核変換による生成を想定したもので、パラメータの一つとして扱う。

・焼鈍: 試料を真空封入し 400°Cから 1000°C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: 焼鈍した試料から、FIB(JIB-4000 型を使用、一部、物質・材料研究機構などのナノテクノロジープラットフォーム事業で SMF-2000 型を使用)により、厚さが 0.1µm 程度の薄膜電子顕微鏡試料を作製した。なお、一部の試料については、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て、ナノミリングを使用した。

・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=<200>で行った。また、キャビティの観察では、回折条件からのずれ(s)を大きくした。

#### 3. 結果と考察 (Results and discussion)

Figure 1 に、イオン照射により導入される弾き出し損傷及び He 量のイオン入射面からの深さ分布を示す。観察は、主に、深さが 1µm 程度の領域で行なった。

Figure 2 に、550°Cで、1000s 及び 10000s 焼鈍を行

[18020]

なった場合の組織、さらに、温度 650°C 及び 750°C で 300s 焼鈍を行なった場合の組織を示す。このように、温度及び時間に従い、300°C の照射で導入された転位ループ(回折コントラストから、大半は、格子間原子型と思われる)の大きさは増加し、数密度は減少した。

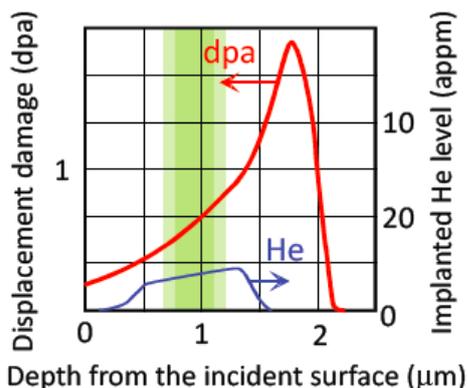


Fig. 1 Depth dependence of displacement damage and implanted He atom levels introduced by the ion-irradiation

化に似ていることが指摘できる[2, 3]。このような、炉内機器の鋼材における、焼鈍条件への微細組織の敏感な変化は、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ことを示す。

Fig.4 に示されているように、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。このため微細組織から、温度と時間を独立に推定することは困難である。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]が有る空洞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、主に、ジルカロイ水反応の発生期間に限られると考えられるため(3 時間程度との解析結果が示されている)、これを考慮すれば、格子間原子型転位ループの観察結果のみからでも、温度範囲の特定が可能とも考えられる。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となると期待できよう。

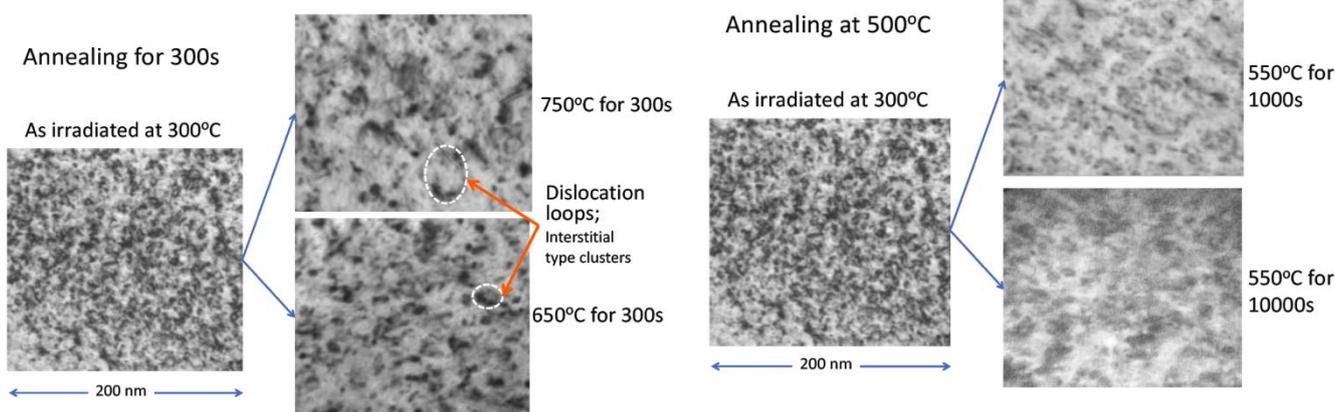


Fig. 2 Microstructural changes during annealing at temperatures of 550°C, 650°C and 750°C

500°C、650°C 及び 750°C での転位ループの大きさ(直径)の時間変化を Fig.3 に示すが、このように転位ループの大きさは、保持時間の 1/2 乗に従うようである。これは、焼鈍による転位ループの大きさの増加の駆動力が、転位の自己エネルギーであることを示唆する。

400°C から 750°C、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 Fig.4 に示す。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。

Fig.2、Fig.3 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  $4 \times 10^{23}$  個/m<sup>3</sup> 程度から  $1 \times 10^{22}$  個/m<sup>3</sup> 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。同様な知見は、報告例は限られるが、中性子照射材における焼鈍による微細組織変

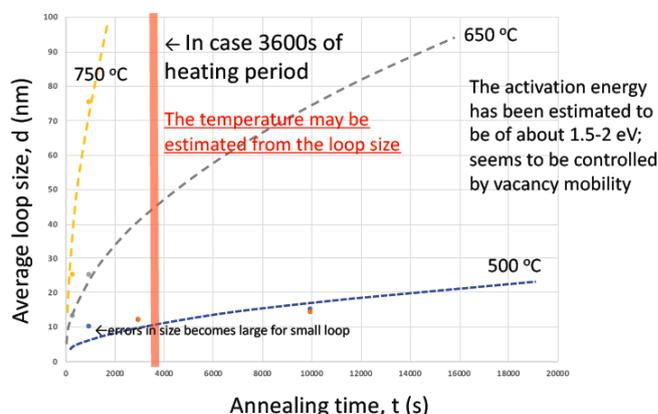


Fig.3 Loop growth behavior during annealing

微細組織変化のうち、Fig.4 からわかるように、転

[18020]

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、他方についても推定できることになる。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したところ、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た。しかし、注目すべきことに、Fig.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することで、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。

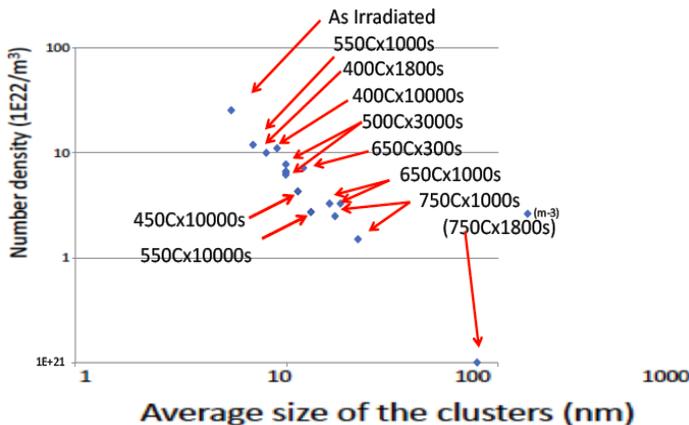


Fig. 4 Change of the size and the number density of loops

さらに、高い温度領域での微細組織変化の観察を行った。1050°Cで 3000s 保持した試料中に、キャビティの生成が観察された。イオン照射で導入した He 量が限られることもあり、数密度は低く ( $1 \times 10^{22}/\text{m}^3$  程度)、大きさも小さい (20nm 程度) が、キャビティの生成が検出された (未発表のため、画像は省略する)。転位ループの焼鈍挙動からは、推定できる温度範囲が 800°C程度に限られるが、キャビティに着目すれば、適用できる温度範囲をさらに広げることができると考えられる。

#### 4. まとめ (Summary)

- (1) 316 鋼にイオン照射で導入された転位ループの数密度と大きさは、焼鈍条件に従い変化を生じた。
- (2) 焼鈍により、転位ループの数密度が減るとともに、大きさが増加した。焼鈍温度が 400°Cから 750°Cの範囲では、この関係は、温度によらず同様の関係を示

した(両対数のプロットは単一の直線に従った)。  
(3) 以上から、事故時に高温になった時間が推定できれば、微細組織から、温度の値が推定できることがわかる。

(4) 750°Cを超える温度の範囲については、生成するキャビティの大きさや数密度から、焼鈍温度(事故時の温度に対応)が推定できる可能性がある。

#### 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. Shiraiishi, 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。