

[19019]

炉内機器の損傷組織と強度への熱影響

-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 the microstructural and strength changes of LWR core internal components by heating during severe accident

橋本拓実^{A)}、高橋憲人^{A)}、井岡郁夫^{B)}、大久保成彰^{B)}、實川資朗^{A)}
Takumi Hashimoto^{A)}, Kent Takahashi^{A)}, Ikuo Ioka^{B)}, 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 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. Proof stress levels are estimated from the microstructural components.

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号機の压力容器の熱履歴推定と、破損までの余裕の評価に使われた[1]。

このような手法では、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、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と思われる。加えて、転位密度、或いは、ナノ硬さ(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が行える。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などの情報を取得する手法の可能性を検討するために、10MeVの鉄イオンなどを316鋼試料に照射し、系統的に熱履歴を与えた透過電子顕微鏡試料をFIB装置などにて作製し、微細組織への焼鈍条件の影響を評価している(イオン照射で導入される微細組織の焼鈍挙動は、中性子照射導入組織の応答と類似している[2, 3])。さらに、微細組織データに基づき、マルチスケールモデルにより、塑性流動応力の推定を行う[4]。

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Fe³⁺イオンと、1MeVのHe⁺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: 試料を石英管に真空封入し400°Cから1000°Cの範囲、300秒から30000秒の範囲で焼鈍した。

・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

[19019]

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 1 μm 程度の領域(1dpa 及び 10appmHe 程度)で行なった。

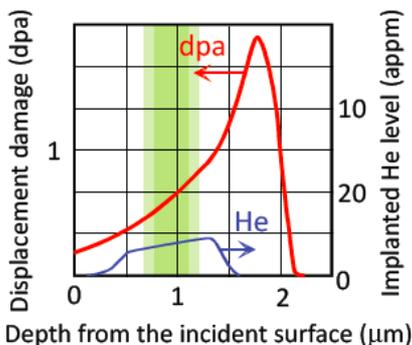


Fig. 1 Depth dependence of displacement damage and implanted He atom levels introduced by the ion-irradiation

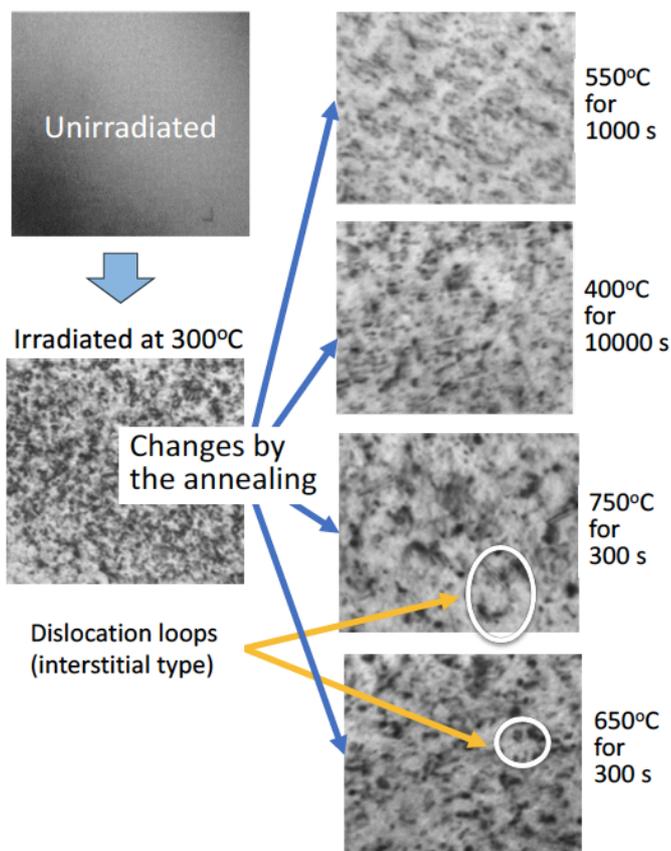


Fig. 2 Microstructural changes during annealing at temperatures of 550°C, 650°C and 750°C

Figure 2 に、550°C で、1000s 及び 10000s 焼鈍を行なった場合の組織、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(回折コントラストの特徴から、大半は、格子間原子型)の大きさは増加し、数密度は減少した。

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。

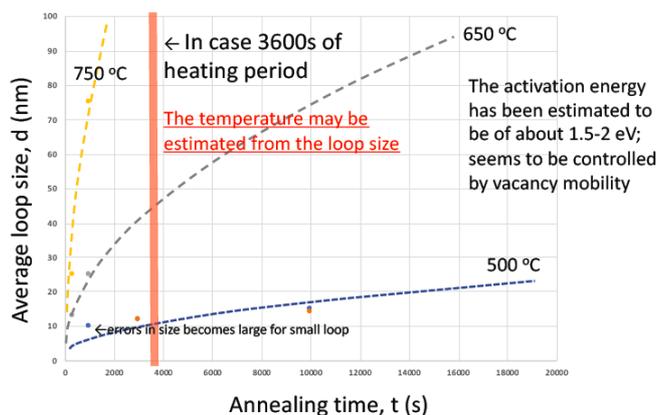


Fig. 3 Loop growth behavior during annealing

照射後焼鈍を 400°C から 750°C、及び 300s から 10000s の範囲の行った場合の微細組織の例を 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。

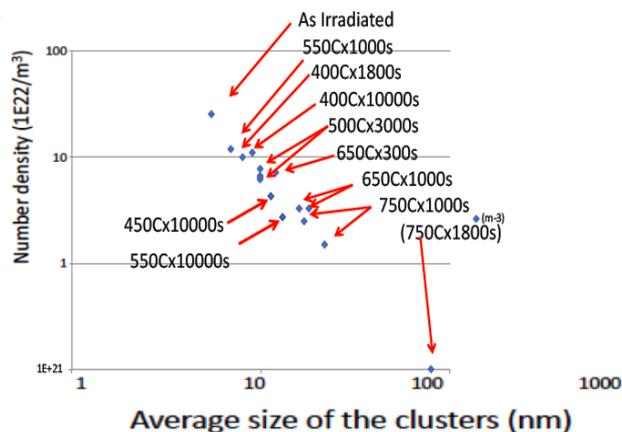


Fig. 4 Change of the size and the number density of loops

Fig.2、Fig.3 などの結果をまとめると、転位ループ

[19019]

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 100nm 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化で知られていることを指摘する[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(数密度と大きさが、互いに従属的)。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、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。

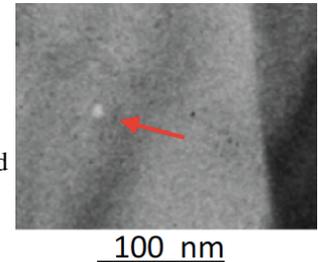
微細組織変化のうち、Fig. 4 に見られるように、転位ループの数密度と大きさの変化は、この範囲では従属的である。従って、どちらか一方に着目すれば、他方についても推定できることになる。数密度の変化の時間依存性は、言うまでもなく時間とともに変化速度は減少傾向を示す。そこで、焼鈍時間を 1000s とした時の変化速度について、その温度依存性を評価したところ、見かけの活性化エネルギーは 2.8eV 程度となり、微細組織変化が原子空孔の挙動に従った現象であることが示唆された。しかし、注目すべきことに、Fig.1 からは、格子間原子が原子空孔と(再)結合して消滅する割合は大きく無いことがわかる(格子間原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である。

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、キャビティーの生成が観察された(Fig 5 に示す)。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、キャビティーの生成が検出された。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 程度までに限られるが、キャビティーに着目すれば、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。

Fig. 5 Cavities were observed to form.

He containing cavities.
The specimen was annealed at 1050°C for 3000s.



微細組織、さらに特定して言えば、転位密度から照射及び焼鈍後の塑性流動応力(耐力に対応)を推定する方法が示されている[4]。ここで、転位密度を転位ループの大きさ d (平均値)と数密度 N_l の積から求める。この場合、耐力(Proof stress) $= (\sigma_0^2 + \Delta\sigma^2)^{0.5}$ とされ ($\sigma_0 = 200\text{MPa}$)、ここで $\Delta\sigma = M\alpha\mu b(N_l d)^{1/2}$ (M Taylor factor $= 3.07$, α barrier strength $= 0.5$ であり、 μ と b は、それぞれ剛性率及びパーガースベクトル)である。このようにして求めた耐力を転位ループの大きさの関数として、Fig. 6 に示す(室温での耐力の推定値である)。なお、Fig. 4 からわかるように、焼鈍温度が、少なくとも 750°C 以下の範囲では、転位ループの大きさ d と転位ループの数密度は、互いに従属的であるので、Fig. 6 では、転位ループの大きさのみの関数として、耐力の推定値を示している。Fig. 6 より、焼鈍無し(As irradiated)では、照射材の耐力は 1000MPa 近くであるが、750°C で 1000s 以上焼鈍すると、300MPa 程度にまで低下する。この場合、核変換生成 He の影響が無視できれば、ほぼ、事故前の照射及び事故後の熱履歴の影響は無く、受入材に近い挙動を示すと考えられる。しかし、He の延性低下への影響は強いことが知られており、この影響も考慮する必要がある。加えて、炭化物などの析出の影響についても留意が必要になるだろうが、これらの生成は焼鈍条件に支配されるので、微細組織からの事故時の温度履歴の推定の重要性は高い。

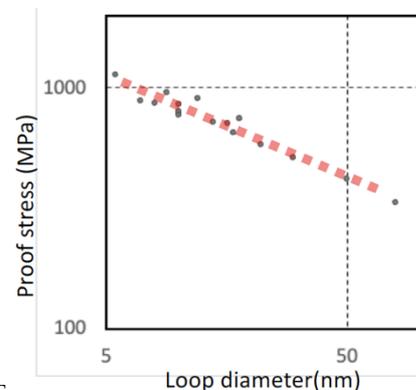


Fig. 6 Estimated proof stress levels after the annealing

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

[19019]

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℃から750℃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℃を超える温度の範囲については、生成するキャビティー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。

(5) 微細組織(主に、転位密度)から、焼鈍前後の塑性流動応力の推定の方法と結果の例を示した。

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
- [4] S. Jitsukawa, et al., ASTM STP1547, ASTM, 2012, pp.288-312

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。