

[15020]

## 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

### Microstructure-temperature history relations of LWR structural materials for the analysis severe accident process

實川資朗 <sup>#,A)</sup>, 青木勇斗 <sup>A)</sup>, 吉永啓太 <sup>A)</sup>, 鈴木茂和 <sup>A)</sup>, 寺田耕輔 <sup>A)</sup>,  
大久保成彰 <sup>B)</sup>, 井岡郁夫 <sup>B)</sup>

Shiro Jitsukawa <sup>#,A)</sup>, Yuuto Aoki <sup>A)</sup>, Keita Yoshinaga <sup>A)</sup>, Shigekazu Suzuki <sup>A)</sup>, Kosuke Terada <sup>A)</sup>,  
Nariaki Okubo <sup>B)</sup>, Ikuo Ioka <sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> Faculty of Mechanical engineering, National institute of technology Fukushima college, Iwaki, Fukushima

<sup>B)</sup> Department of nuclear science and engineering, Japan Atomic Energy Agency, Tokai-mura, Ibaraki, Japan

#### Abstract

Annealing temperature strongly affected microstructure and nano-hardness of an ion-irradiated austenitic alloy, indicating that microstructure and hardness of specimens with limited sizes obtained from the reactor core may supply evidences to estimate the temperature during the LWR accident; significance of microstructure and hardness database. High cooling rate during accident might result in reduced fracture toughness of containment vessel steels.

**Keyword:** LWR, severe accident, structural materials, irradiation, microstructure, temperature history, ion-irradiation

#### 1. はじめに

東日本大震災に際し福島第一原発は燃料の溶融と核分裂生成物の環境への放出と言った過酷事故を生じ、これに並行して炉心部の機器は損傷を受けたと考えられる。すなわち、この事故の過程で機器材料は、事故時までの運転中に生じた中性子照射の影響に加え、溶融燃料による熱影響を受け、その結果、強度特性は大きく変化したものと推定される(格納容器などでは、照射の影響は小さいが安全性上の重要性は高い)。しかし、現在のところ、加熱のみによる軽水炉材料の特性変化の推定に限っても、ほとんど報告が示されていない。

炉心部の機器材料は、中性子などによる照射損傷のため微細組織に変化を生じる。これが熱履歴を受けると特徴的な微細組織を形成するので、逆に、微細組織から熱履歴(最高温度)などを細かく推定し得る。圧力容器内機器の材料、例えばオーステナイトステンレス鋼については、核変換で導入される He 原子の影響により、比較的低い温度域から融点近くまでの範囲で、微細組織に多様な変化が生じるので、広い範囲の温度履歴推定が可能になる。このような手法の実用化は、軽水炉の過酷事故過程の解析に有用と推定される。中性子照射損傷の影響は限られるが(稼働期間が短かったなどのため)、炉心溶融を起こした米国のスリーマイル島 2 号機の圧力容器の残存裕度評価のために、実際に採取した試料の硬さや微細組織から温度履歴が推定された例がある[1]。

事故過程解析は、格納容器破損への裕度などの過酷事故のマーzin評価を通じ、軽水炉安全性確保の

ために重要であり、さらに炉内に残存する機器の強度推定等を行うことで、廃炉作業の安全な遂行にも重要性を持つ。この点では、福島第一原発の 1 号機については、溶融した燃料が圧力容器のペDESTAL 外に広がった可能性が指摘されており[2]、建屋や格納容器の残存強度への熱影響について関心が持たれており、このように主に熱影響であるが、圧力容器外の機器材料の残存強度への事故時の影響の評価も重要である。本研究では、この領域も含めて、事故後の機器の微細組織や強度について評価する。このような検討により、事故解析等の手段を増やし、安全で確実な廃炉に資することを目的とする。

#### 2. 実験の方法と結果

##### 2.1 圧力容器内機器用オーステナイト鋼

###### 1) イオン照射

10MeV の Fe<sup>3+</sup> と 1MeV の He<sup>+</sup> を高崎の TIARA 施設にて同時照射した。He<sup>+</sup> については、ディグレーダーを用い、深さ方向に、0.5-1.5 $\mu$ m の範囲で、なるべく均一の濃度になるようにした。

照射量は、深さが 1 $\mu$ m の場所で、Fe<sup>3+</sup> については弾き出し損傷量が 0.1-10dpa(主に 1dpa)とした(弾き出し損傷速度を 0.05dpa/min 程度とした)。このとき、He<sup>+</sup>量は、10appmHe/dpa の速度となるようにした。照射温度は、室温(加熱無し)及び 300 $^{\circ}$ Cとした。

イオン照射による弾き出し損傷と He 原子の深さ分布を Fig. 1 に示す。ここで、弾き出し損傷分布などの評価には SRIM コードを用いた。

###### 2) オーステナイト鋼

用いたオーステナイト鋼は、コベルコ科研から提供頂いた 316NG 鋼(0.013C-0.47Si-17.4Cr-12.6Ni-

[15020]

1.55Mn-2.5Mo-0.025P-0.001S-0.1N-Fe)である。溶体化処理状態(1050℃にて 30 分間保持し急冷)で用いた。鋼材を 20×6×3mm に成形し、20×6mm の面を研磨し(電解研磨まで)、次いで、厚さが 1mm となるようにスライスして、照射に供した(寸法は 6×3×1mm である)。

### 3)硬さ試験

硬さ試験にはナノインデンテーション法を用いた。硬さ試験は、ビームの入射方向に並行に、照射面に行った。このため、得られた硬さ値は、深さ依存性を含むので、硬さ試験時の押し込み深さが硬さ値によらず一定値になるように試験を行った。このため、試験荷重は、押し込み深さが 0.6μm 程度となるように選定した(1gf 付近となった)。

照射前後の硬さは、弾き出し損傷量が 1dpa の試料で、照射前は 1.5GPa 程度、照射後は、2.5-3GPa 程度となった。

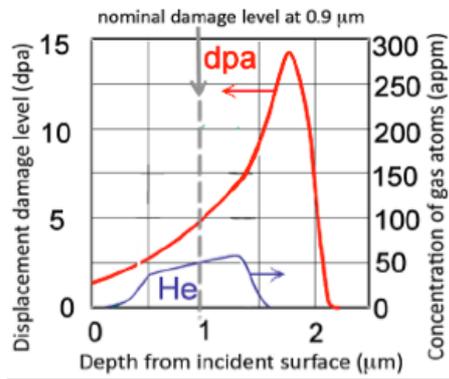


Fig.1 Depth distributions of the displacement damage and He concentration

The displacement damage level is of 1dpa at the depth of 1 micro-meter.

### 4) 熱履歴付与 事故時には、様々な熱履歴が加わったと考えられ

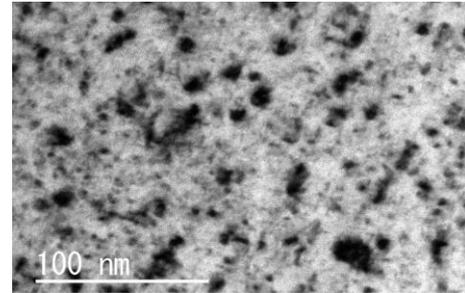
る。一方、微細組織や硬さなどへの影響は、最高温度とその持続時間で主に支配され、さらにマルテンサイト変態を伴う場合には冷却速度などにも強く影響を受けると考えられる。温度範囲は融点までの様々な場合が想定されるが、高温が持続した時間は数週間に限られるようであるため、それまでの時間を想定すればよいように思われる。

ここでは、想定される様々な温度履歴のうちから、比較的低い温度である 400℃と、微細組織変化の速度が高くなる場合の例として 750℃とで、それぞれ 0.5 時間保持した場合の結果を示す。このような熱履歴を与えた結果、硬さについては、400℃×0.5 時間で 40%程度の回復が、750℃×0.5 時間で 80%以上の回復を示した。400℃での回復量が大いだが、この場合、主に硬化をもたらす格子間原子型転位ループの密度が高かったためとも考えられるがさらなる検討を要する。

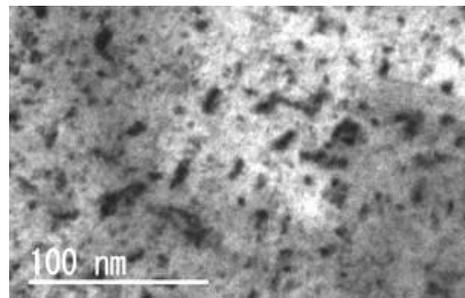
### 5) 微細組織観察

透過電子顕微鏡による微細組織観察を行った。電子顕微鏡試料を集束イオンビーム装置により、照射+熱履歴試験片から採取した。

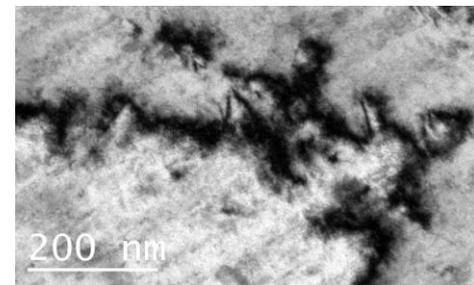
採取した試験片を JEOL2100 型及び JEOL2000FXII 型により透過電子顕微鏡観察を行った。結果の例を Fig.2 に示す。



(a) 100nm



(b) 100nm



(c) 200nm

Fig. 2 TEM images of 316NG stainless steel (a) as irradiated (at 300°C), (b) annealed at 400°C for 0.5h and (c) annealed at 750°C for 0.5h.

Fig. 2 中のコントラストには、FIB 時の Re-deposited particles からのものも含まれるが、750℃での焼鈍により、転位ループの数密度が下がり、ループの大きさが著しく増加したことが分かる。400℃の焼鈍による変化は見えにくい、小さいプールの大きさが増加傾向を示した。

このように、特に照射で導入された微細組織が、照射後の熱影響により大きく変わることが分かり、このような「微細組織などのマップ」を用意することで、事故時の熱履歴などの推定に寄与できる可能性があることが分かる。

[15020]

## 2.2 格納容器鋼の強度への熱影響

1) 格納容器鋼など 福島第一原発で使用された格納容器鋼は SGV480

(0.1C-0.25Si-1.0Mn-0.2Ni-0.1Mo-Fe、焼き鈍し材)とされている。しかし、アーカイブ材を含めて入手は困難である。このため東北大学から提供を受けた SA738B 鋼 (0.09C-0.20Si-1.45Mn-0.005P-0.001S-0.26Cu-0.55Ni-0.04Cr-0.23Mo-0.04V-0.02Nb、焼き入れ、焼き戻し材)、JFE 製(三立総業より)の STS370 鋼(焼き鈍し材、0.14C-0.17Si-0.49Mn-0.008P-0.005S-Fe) などを使用した。

このうち SA738B 鋼は、第一原発よりも新しい炉の格納容器鋼として使用されており、強度などが高い降であるのに対して、STS370 鋼はパイプ材であるが、焼き鈍し材であること及び化学組成にも近い点があり、似た点が多い傾向を持つ。

2) 強度試験 構造の強度評価の手法として、しばしば、2 パラ

メータ法の利用が推奨される[3]。これは、2 つの代表的な破壊の様式である延性破断と亀裂の進展とを、同時に扱うことができ、他の方法、例えば、2 倍勾配法などに比べて、より精度の高い破壊条件の評価が行えるためである。事故を生じた炉の構造物は、もはやエネルギー生産機には使われないのであるから、安全性に配慮した上で、マージンを減じた、或は、限界に近い基準で扱われることが合理的である。この点では、比較的精度の高い扱いが可能な 2 パラメータ法の適用、或は、さらに精度の高い方法が適当と考えられる。

構造物の破壊評価法として 2 パラメータ法を用いる場合には、少なくとも、(i) 加工硬化挙動の評価を含む引張特性、及び(ii) 破壊靭性値(線形及び弾塑性破壊靭性特性)を評価する必要がある。そこで、可能な範囲でこれらの特性の評価を試みる。

3) 熱履歴 事故時に著しい高温状態が継続した期間は、せい

ぜい数週間程度であり、従って、熱履歴が加わった時間は数 100 時間を大きく越えるとは考えられない。温度は、熱時効が早く生じ始める温度域である 400℃以上で、融点以下の範囲となるが、加えて、オーステナイト温度域からの急冷によるマルテンサイト変態の発生についても検討が必要である。これは、マルテンサイト変態に伴い、強度は上がるが靭性が低下する傾向が強いからである。もちろん、マルテンサイト変態が生じるような冷却速度が生じる可能性は高くないが、スリーマイル島の過酷事故時には、圧力容器の温度が注水で急速に下がり、圧力容器の底が抜けずに済んだ可能性が指摘されており、また、安全性に影響する事柄であるため、一定の詳しさでの評価が必要と考えられる。

ここでは、受け入れ材、650℃で 100 時間時効、1000℃から急冷した鋼について評価を行った結果を示す。

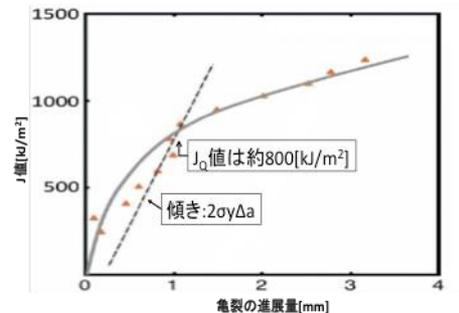
### 4) 引張特性

SA738B 鋼受け入れ材の降伏応力、引張強さ、全伸びは、520MPa、610MPa、20%程度で、溶接金属部も同様であった。STS370 鋼については、それぞれ、320MPa、560MPa、35%程度であった。650℃での時効材の室温での特性は、受け入れ材と同様であった。1000℃からの急冷材については、強度の増加が生じ、降伏応力は、いずれの鋼材についても 800MPa 程度となった。

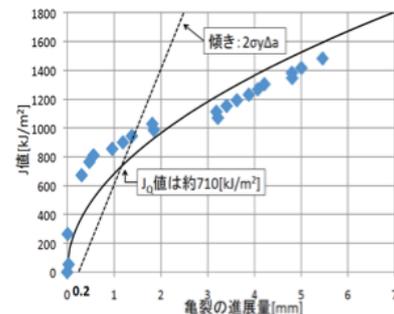
### 5) 破壊靭性値

入手した鋼材の寸法の制限から、SA738B 鋼については、厚さが 10mm の 0.4TCT 試験片を、STS370 鋼については、厚さが 15-17mm の CT 試験片(幅 W=40mm の 0.8TCT 試験片)を用いた。

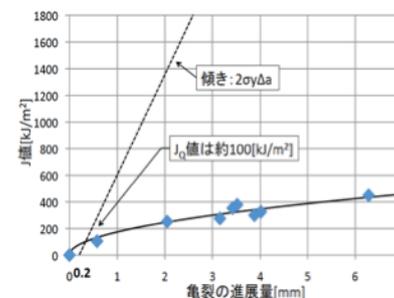
試験は除荷コンプライアンス法を用い、結果から、J-R 曲線を取得した。例を、Fig. 3 に示すが、1000℃からの急冷材で靭性値の変化が明らかである。



(a) SA738B 受け入れ材



(b) STS370 受け入れ材



(c) STS370 急冷材

Fig. 3 SA738B 及び STS370 鋼の J-R 曲線

[15020]

### 3. 結論

#### 3.1 圧力容器内機器用オーステナイト鋼 イオン照射

材に熱履歴を与えて、硬さ及び微細組織の変化を評価した。熱履歴に対して微細組織及び硬さが明瞭な変化を示し、これより、過酷事故を生じた炉から、相当するようなサンプルが取得できれば、極めて微小な試験片からでも、事故時の温度履歴についての有力な情報が得られる可能性が確認できた。このため、これに資する、照射+熱影響材の微細組織-ナノ硬さデータベースなどは意義を持つと考えられる。

#### 3.2 格納容器鋼の強度への熱影響

2 パラメータ法での破壊評価などを想定し、引張特性及び破壊靱性値を評価した。時効材の特性は、受け入れ材に近かったが、急冷材については硬化と破壊靱性値の低下が生じた。言うまでもないが、オーステナイト域の温度から急冷された場合には、亀裂の進展が生じやすくなることに留意する必要がある。

謝辞 本研究の相当部分の遂行は、文部科学省の「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」によるものである。また、東北大学での同プログラムで準備した鋼材の一部を供給頂いた(SA738B 鋼)。鋼材の一部については、コベルコ科研からご提供を頂いた。FIB及び透過電子顕微鏡観察には、日本電子株式会社、物質材料研究機構、東北大学のお世話になった。

### 参考文献

- [1] 例えば、Korth, G. E., OECD-NEA-TMI-2 Vessel Investigation Project. Metallographic and Hardness Examinations of TMI-2 Lower Pressure Vessel Head Samples, TMI V(92)EG01, Idaho National Engineering Laboratory, January 1992.
- [2] 例えば、鈴木俊一(IRID)、「福島第一廃炉関連研究の状況と課題について」、IRID 研究開発部、平成 25 年 11 月(p.14)
- [3] 例えば、(i)日本原子力技術協会「BWR 炉内構造物点検評価ガイドライン(シュラウド)」、(ii)日本機械学会の維持基準の付録 E