称号及び氏名 博士(工学) 飛田 徹

学位授与の日付 2014年3月31日

論 文 名 「原子炉圧力容器の健全性に影響を及ぼす照射脆化と その評価手法に関する研究」

論文審査委員 主査 岩瀬 彰宏

副查 中平 敦

副査 奥田 修一

副查 堀 史説

論文要旨

原子炉圧力容器は高温・高圧の水を内包する重要機器であり、放射性物質の閉じ込め障壁として設計、製作段階で高い信頼性が要求されるとともに、運転開始後はその健全性が十分に維持される必要がある。原子炉圧力容器の材料には、低合金鋼である Mn-Mo-Ni 鋼が用いられており、冷却水による腐食を防ぐため胴部内面にはステンレス鋼が内張されている(ステンレスオーバーレイクラッド、以下、クラッドと呼ぶ。)。原子炉圧力容器の破壊に対する抵抗力は、原子炉の運転中に炉心からの高速中性子等を受けることにより低下する。

炉心で発生した中性子等の放射線は、材料を構成する原子と衝突あるいは相互作用して原子をはじき出し、格子欠陥すなわち格子間原子と空孔の対を生成する。高速中性子の場合には、はじき出しエネルギーが高いため、連鎖反応的に原子が弾き飛ばされるカスケード損傷が生じる。このとき格子間原子と空孔の多くは再結合して消滅するが、ある割合の格子欠陥は集合して残る。これらの集合体は照射量が増えると共に成長を続け、転位ループや空孔集合体を形成する。また、空孔や格子間原子の移動に伴い材料中の不純物原子も移動し、合金成分とともに集合体を形成する。これら欠陥集合体や銅(Cu)に代表される不純物の集合体は、材料のすべり変形の障害物として作用し、材料の硬化や、破壊靭性の低下の指標の一つである延性脆性遷移温度(DBTT)の上昇が生じる。これらの現象を照射脆化という。

DBTT の上昇量は、鋼材の化学成分、中性子照射量などからなる脆化予測式により計算されている。また、炉内にはプラントの運転開始時に原子炉圧力容器と同一の材料から製作された監視試験片が装荷されており、これを計画的に取り出して試験を実施することで、破壊靭性の低下傾向を把握している。一方、原子炉圧力容器の健全性評価において最も厳しい条件として、加圧水型原子炉においては加圧熱衝撃事象を想定している。ここでは、原子炉圧力容器の内面にき裂を想定し、内圧に加え緊急炉心冷却水による原子炉圧力容器内面の急冷によって発生する応力から、き裂先端の応力拡大係数を評価する。この応力拡大係数が、照射脆化により低下した原子炉圧力容器鋼の破壊靭性値を上回らないことをもって健全と評価する。

原子炉圧力容器の健全性評価の高度化に寄与することを目的に、本研究では、照射脆化予測、監視試験、破壊靭性評価、健全性評価のそれぞれの項目のうち、材料的なアプローチとして照射脆化メカニズム及び照射脆化評価手法に関する検討を行ってきた。すなわち、γ線の照射脆化への寄与、非破壊的な照射脆化評価、監視試験片からの直接的な破壊靭性評価、ステンレスオーバーレイクラッドの機械的特性評価に関して検討を行ったものである。各章の具体的な内容は以下の通りである。

2章では、脆化予測式において考慮されていない γ 線の照射脆化への寄与に関して検討した。照射量として原子のはじき出し数(displacement per atom、dpa)を評価した場合、総 dpa に占める γ 線の寄与割合は、原子炉圧力容器内面においてわずか数%である。しかしながら、高速中性子が大規模なカスケード損傷を引き起こすのに対し、 γ 線によるはじき出しは空孔-格子間原子の対を生じるため、dpa で比較した場合に高速中性子よりも単空孔の生成効率は 10 倍以上高い可能性がある。本研究では、単空孔との位置交換により移動して集合体(クラスター)を形成し材料の硬化要因となる Cu に着目し、Fe-Cu モデル合金を用いて高エネルギー電子線照射試験、並びに比較のための中性子照射試験を行った。 γ 線による原子のはじき出しのメカニズムは、コンプトン散乱による反跳電子によるはじき出しであり、電子線照射は γ 線の模擬照射として全く同等なものである。機械的特性としての硬さの測定を行い、中性子小角散乱法を用いて Cu クラスターの観察を行った。電子線照射と中性子照射では、形成された Cu クラスターのサイズと数密度が異なるものの、硬化モデルによる計算値は実測値に良く一致することを示した。照射量として dpa を基準に比較すると、電子線照射と中性子照射による硬化量の差は小さく、 γ 線の照射硬化が dpa を基準に比較すると、電子線照射と中性子照射による硬化量の差は小さく、 γ 線の照射硬化が dpa を基準に比較すると、電子線照射と中性子照射による硬化量の差は小さく、 γ 線の照射硬化が dpa を基準に対域高速中性子と同様に評価できることを明らかにした。

3章では、照射硬化と電気抵抗率の相関について検討した。2章と同様に、不純物である Cu の影響に着目した Fe-Cu モデル合金を用いて、高温での電子線照射及び熱時効試験を行った。電気抵抗率及び硬さの測定、3次元アトムプローブ法を用いた微細組織観察を行い、これらを相互に関連付けるためのメカニズムの検討を行った。電子線照射材、熱時効材ともに、硬化量は Cu クラスターの体積分率 V_f に比例することを示した。また、電子線による照射硬化と電気抵抗率の低下も Cu クラスターの体積分率 V_f を通じて相関があることを明らかにした。この結果、電子線照射による照射硬化は、電気抵抗率低下の平方根に比例するという関係が得られ、電気抵抗法によって原子炉圧力容器鋼の硬化を評価できる可能性を示した。

4章では、小型試験片へのマスターカーブ(MC)法の適用性に関する検討を行った。中性子照射による原子炉圧力容器鋼の破壊靱性の変化は、監視試験においてシャルピー試験で求められる DBTT の上昇に等しいと仮定されており、初期の破壊靱性データを DBTT の上昇分だけシフトさせることに

より評価される。直接的な破壊靱性評価のためには監視試験片を利用した破壊靱性試験の実施が必要である。MC 法は、脆性破壊における破壊靱性値のばらつきを最弱リンク理論に基づくワイブル分布にあてはめ、その分布の温度依存性を 1 本の指数型曲線(マスターカーブ)であらわす手法である。本研究では、破壊靱性が異なる数種類の原子炉圧力容器鋼を用いて、監視試験片であるシャルピー試験片と同じサイズの破壊靱性試験片、さらに破断したシャルピー試験片から採取可能な小型の試験片を用いた破壊靱性試験を行い、MC 法における標準サイズの試験片から得られる破壊靭性値との比較を行った。その結果、小型試験片を用いても有効な破壊靱性値が得られ、標準サイズの試験片と同等なマスターカーブによる破壊靭性評価が出来ることを示した。

5章では、原子炉圧力容器の内面に肉盛溶接されているステンレスオーバーレイクラッドの中性子照射による機械的特性の変化ついて検討した。上記のとおり、加圧熱衝撃事象時の健全性評価においては、原子炉圧力容器内面の母材または溶接金属に表面き裂を想定し、脆性破壊の発生を判定する。現在クラッド部は強度部材として考慮されていないが、健全性評価の精緻化のためにはクラッド部を含めた評価について検討する必要がある。ここで、延性材料であるクラッド部の破壊の可能性を検討するためには中性子照射後の弾塑性破壊靱性値が必要である。本研究では、サブマージアーク溶接及びエレクトロスラグ溶接により製作したクラッド材を用いて、高照射量領域まで中性子照射試験を行い、破壊靱性値等の機械的性質の変化について評価を行った。その結果、クラッド材の降伏応力と引張強さは中性子照射により増加し、DBTTは上昇することがわかった。また、クラッド材の弾塑性破壊靱性値(Jic)は温度が上昇するにつれ低下していくこと、中性子照射による Jic の低下は少ない一方で延性き裂進展抵抗は低下することを明らかにした。

6章では、原子炉圧力容器鋼の健全性には直接の関係は無いが、これまでの研究を通して得られた付随的成果として、放射線の一種であるイオン照射を用いた材料の硬さの局所改質について検討を行った。中性子照射や電子線照射と異なり、高エネルギーのイオン照射は、材料表面のごく表層のみに損傷を与える。この性質を利用して、マスキングにより、Fe-Cu モデル合金の材料表層のみを微細に任意の形で、析出硬化させることができることを示した。また、マスキングによる未照射/照射領域境界は非常に明瞭であり、マイクロイオンビームや微細加工されたマスキングを用いることで、 μ **m** レベルの分解能での材料の硬さの局所改質が可能であることが示唆された。

7章では、本論文の結論として本研究の成果を総括した。

審査結果の要旨

原子炉圧力容器は、発電用原子炉において放射性物質の閉じ込め障壁の1つとして重要な機器の1つである。本論文は、原子炉圧力容器鋼の健全性評価の高度化に寄与することを目的に、照射脆化予測、監視試験片、破壊靱性評価に関し、材料分野からの検討を行ったものであり、以下の成果を得ている。

(1) ガンマ線や中性子による圧力容器鋼の照射脆化の線質依存性を、模擬照射としての電

子線照射、実験炉での中性子照射実験により調べた。その結果、照射脆化は線質によらず、はじき出し損総量(**dpa**)を用いて統一的に評価できることが分かった

- (2) **Fe-Cu** モデル合金を用いて、電子線照射による照射硬化と電気抵抗率の相関について 調べた。その結果、照射効果は電気抵抗率変化の平方根に比例するという結果を見出 し、この相関関係を用いることにより、非破壊測定法であり、かつ感度の優れた電気 抵抗測定法を用いた照射脆化評価ができる可能性を示した。
- (3) 監視試験片の有効活用のために、破断した監視試験片から採取可能な小型試験片を作製して破壊靱性試験を行った。その結果を標準サイズの試験片から得られる結果と比較することにより、小型試験片においても破壊靱性評価が十分に可能であることを示した。
- (4) 原子炉圧力容器の内面に肉盛り溶接されている **SUS** オーバーレイクラッドの中性子 照射による機械的特性の変化について検討した。その結果、クラッド材の降伏応力と 引っ張り強さは中性子照射により増加し、延性脆性転移温度は上昇すること、クラッド材の弾塑性破壊靱性値は、温度が上昇するにつれて低下していくこと、中性子照射 による弾塑性破壊靱性値の低下は少ない一方で、延性亀裂進展抵抗は低下すること、 などを明らかにした。

以上の研究成果は、発電用原子炉システムの重要機器の1つである圧力容器の安全性・信頼性に関して、マテリアル工学の立場から有益な結果を提供するものであり、これからの基幹エネルギー確保や、それに伴う産業発展に貢献するところ大である。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識を有することを証したものである。