

## — その2 照射脆化予測法 —

電力中央研究所 曾根田 直樹 関西電力 坂口 昌平 九州電力 野崎 剛

本シリーズの第1回では、原子力発電所の主要な機器である原子炉圧力容器（以下、圧力容器）において最も重要な経年劣化事象である中性子照射脆化について、事象の説明、照射脆化の予測法、圧力容器の安全性の評価方法などについて概要を解説した。第2回の本稿では、照射脆化の予測法について、その変遷、照射脆化が起きる原因に関する最近の理解、現在国内で用いられている脆化予測法の概要などについて述べる。

### 脆化予測法とは

圧力容器に使用されている鋼材の強度を切欠きを有する試験片を用いて測定すると、高温域で高く（延性）、低温域では低く（脆性）なり、延性から脆性に強度が変化する温度域（延性脆性遷移温度）が存在する（図1）。中性子照射を受けると、この延性脆性遷移温度が高温側にシフトする（遷移温度の上昇）とともに、高温域での強度が低下する（上部棚靱性の低下）ことが知られている。この現象を総称して照射脆化と呼ぶ。

運転中のプラントの安全性を確保するために、遷移温度の上昇と上部棚靱性の低下は定期的に取り出される監視試験片を試験することで確認するとともに、数式を用

いてこれらの脆化量を計算し予測している。圧力容器の安全性では特に遷移温度の上昇量が重要となることから、狭い意味では、遷移温度の上昇の予測法のことを脆化予測法と呼ぶ。本稿では特に断らない限り遷移温度の上昇量を脆化量、またその予測法を脆化予測法と呼び、以下ではこの方法について中心的に説明したい。

### 照射脆化研究と脆化予測法開発の変遷

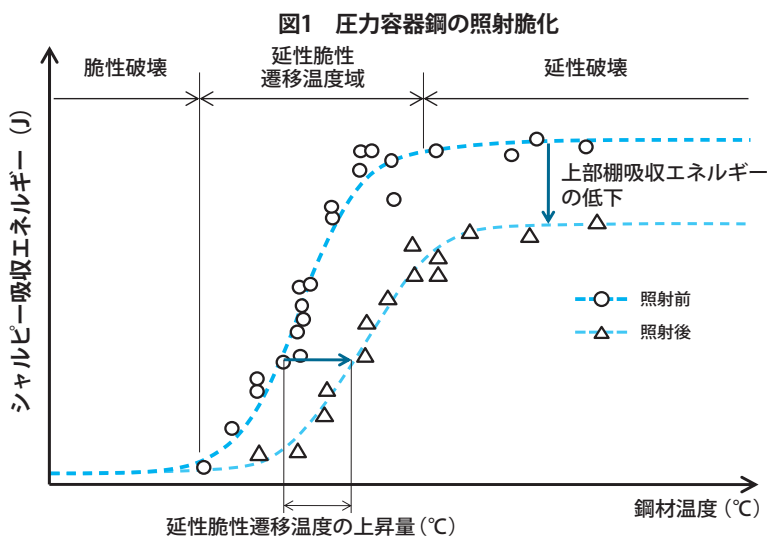
圧力容器鋼の照射脆化については1940年代から研究が行われており、中性子照射により材料の強度が変化することが知られていた。60年代終わりから70年代初めにかけて、鋼材中の不純物である銅の量が

多いと脆化量が大きくなることが明らかとなり、次いで銅の含有量の多い鋼材では銅とニッケル（これは添加元素）が相互作用することで脆化量にニッケルの影響が表れること、なども分かってきた。

このような知見を踏まえて、米国では脆化予測法が規格や指針に定められるようになってきた。73年には米機械学会で銅の含有量と照射量から脆化量を見積もるための予測線図が定められた。その後、75年に米原子力規制委員会（NRC）が、鋼材に含まれる元素の量から計算される化学成分項と、中性子の照射量から計算される照射量項を掛け合わせた形式の脆化予測式を規定した。銅とニッケルを考慮した米国の現在の予測法は88年に策定された。

日本では80年代に照射脆化に関する大規模な国家プロジェクト研究が実施され、その成果を基に米国の脆化予測式に倣った脆化予測が開発された。この結果は日本電気協会の「JEAC4201-1991」として規格化され、国内軽水炉の照射脆化予測に用いられてきた。

これらの式はいずれも、従来知見と材料データの統計解析に基づき式の形をある程度定めた上で、データを再現できるように式の係数を決めるという手順で作られた



ものであり、いわば「現象論的脆化予測法」ということができる。

一方、照射試験を通じて種々のデータが蓄積される中、照射脆化がどのような原因で生じているのか、化学成分への依存性はどのような理由で生じるのかなど、いわゆる照射脆化のメカニズムの研究も並行して精力的に行われてきた。不純物の銅の原子は鋼材の中で塊を作りやすい性質を持っていることから、銅を多く含む鋼材中では中性子照射によって銅の塊の形成が進むこと、また中性子が鋼材に入射することによって金属の結晶にひずみが生じることなどが80年代に明らかになった。90年代に入ると、アトムプローブ法と呼ばれる金属中の原子1つひとつの種類と位置を測定することのできる技術などの利用により照射脆化のメカニズムに関する従来知見が大幅に精緻化された。

これらの研究の進展に伴い、現象論的な脆化予測法の流れとは別に、メカニズムの理解に基づき式の形を定め、照射脆化を予測しようとする試みも80年代から並行して行われてきた。98年に発表された、Eason、Wright、Odetteによる米国の予測法(EWO法)はこのような研究の集大成の1つといえ、「機構論的予測法」の代表例である。

EWO法では、照射脆化が銅を含む析出物(塊)とマトリックス損傷(後述)の2種類の金属組織変化により生じるとした。また、実験によって確認されてきた照射温度や照射速度の影響も予測式に組み込まれた。式の形は現象論的な脆化予測法より複雑なものとなったが、監視試験データを精度よく予測することが可能になり、また照射脆化という現象

に対する説明性が大幅に向上した。この予測式はその後改良が重ねられ、2007年に開発された最新版が米国の規制に反映されている。

日本では、JEAC4201-1991の国内脆化予測式の開発後、多くの新たな監視試験データが蓄積され、91年版の予測精度に改善の余地があることが次第に明らかになってきた。これを受けて、電気事業者と電力中央研究所は04年から国内軽水炉の監視試験片の最新技術によるマイクロ組織の詳細調査を実施した。また05年から実施された原子力安全基盤機構の国家プロジェクトでは、材料試験炉で照射された压力容器鋼の系統的なマイクロ組織観察研究が実施された。これらの研究により、日本の压力容器鋼材の主流である銅含有量が比較的少ない鋼材も含めて照射脆化のメカニズムが明らかになってきている。また精緻な計算機シミュレーションなども考慮することで、特に照射速度が遅いことが脆化に与える影響が明らかとなった。さらにこれらの成果に基づき、新たな脆化予測法が開発されるに至った。次節でこの現状について少し詳しく述べる。

### 脆化メカニズムの理解の現状

1990年代からの共通のコンセンサスとして、銅を中心とする析出物(以下、「銅濃縮クラスター」あるいは「クラスター」)、マトリックス損傷、燐の粒界偏析などが主要な要因であると考えられてきた。前二者は金属を变形しにくくすることによって脆化に寄与するのに対し、燐の粒界偏析は金属の結晶と結晶の境目(粒界)で金属の破壊を生じやすくすることによって脆化に寄与する。これまで欧州や日本で行われてきた系

統的な研究から、中性子照射による燐の粒界偏析は燐の量によらず必ず生じるものの、これが破壊に影響するのは燐の量が極端に高い場合だけであり、日本や米国、西欧の压力容器では問題とならないことが分かっている。そこで、以下では銅濃縮とマトリックス損傷について述べる。

銅濃縮クラスターを実験的に調べるには、前述のアトムプローブ法が有効である。この観察技術では、極めて鋭利な針状の微小試験片を作製し、その先端にパルス電圧をかけることで原子を針の先端表面から1つずつ剥がし、それを検出器で捕らえて原子の位置と種類を決める(図2)。特に2000年代になってからの飛躍的な技術革新によって、アトムプローブ法が元素の分布を調べる上で欠かせない手法となった。

中性子照射を受けた銅含有量が比較的多い鋼材では、銅原子同士が塊(銅濃縮クラスター)を作る様子が明確に捉えられた(図3)。ただしこれらクラスターには、銅原子よりも多くのニッケル、マンガン、シリコンといった元素が同時に集まっていることも明らかになった。さらに銅の含有量が非常に少ない鋼材では、銅を含まないニッケル・マンガン・シリコンだけからなるクラスターが形成され、これが脆化に寄与している

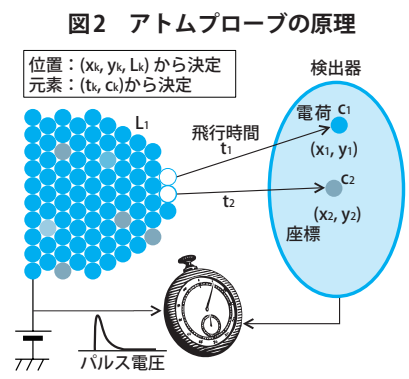
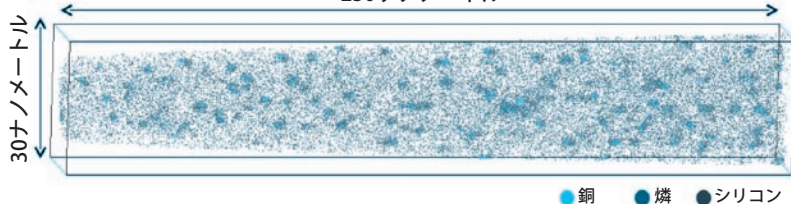


図3 銅含有量の多い鋼材中のクラスターの形成  
230ナノメートル



ということもアトムプローブ法による観察で初めて明らかになった。また、同じ照射量まで短時間で照射した場合と時間をかけてゆっくり照射した場合とでは、後者の方がクラスターの直径が大きくなることも明らかになった。計算機シミュレーションを用いた研究から、非常にゆっくり照射する場合には、運転温度に長時間(20～30年)晒されることの影響が顕在化することも分かった。

一方のマトリックス損傷については、透過電子顕微鏡や陽電子消滅法により実験的に調べることができる。マトリックス損傷の素性は照射の条件によって変わり得るが、これまでの研究から、軽水炉の運転条件で形成される転位ループ(本来の結晶格子の位置からはじき出されて原子と原子の間に入り込んだ鉄原子が円盤状に並んでできた結晶のひずみ)である可能性が高いことが分かってきた。

ところで照射脆化のメカニズムを知る上では、これらの微細な金属組織変化とシャルピー衝撃試験で測定される脆化量との関係が重要である。これまで蓄積されてきたマイクロ組織と材料強度のデータベースから、クラスター中に含まれる銅の多寡によらず、クラスターの体積の合計が材料の体積に占める割合(クラスター体積率)が脆化量と非常によい相関を持つことが分かった。不純物の銅が多い鋼材ではクラスターが

形成されやすいため、結果として銅が多いとクラスター体積率が増加し、脆化量が大きくなると考えられる。

マトリックス損傷が基本的に転位ループによるものであるとすれば、オロワンモデルと呼ばれる方法によって脆化への寄与を見積もることができる。実験から得られた転位ループの密度や大きさに基づく評価からは、マトリックス損傷の寄与は必ずしも大きくないという結果が得られている。

### 国内の脆化予測法

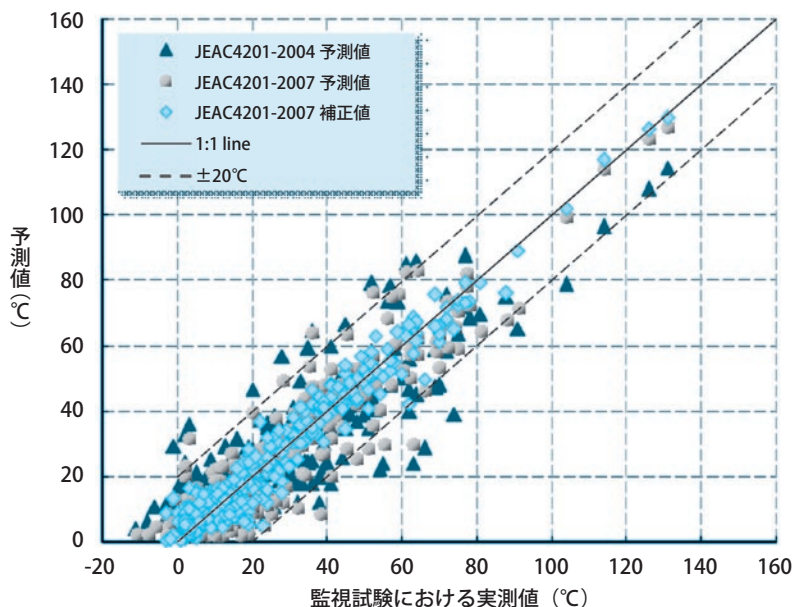
メカニズムに関する上記の理解と、1991年以降2006年末までに新たに蓄積された国内軽水炉の監視試験データベースに基づき、電気事業者と電力中央研究所では新たな脆化予

測法を開発した。この脆化予測法では、従来の現象論的予測法とも、また最近の米国の機構論的予測法とも異なるアプローチが採用されている。

すなわち、まず中性子照射によって鋼材中に生じるマイクロ組織の時間変化を表す連立微分方程式を立て、これを解くことでマイクロ組織変化を予測する。次に得られたマイクロ組織の予測値、すなわちクラスターの体積率や転位ループの数密度を基に、遷移温度の上昇量を計算する。マイクロ組織としては、転位ループを主体とするマトリックス損傷、銅同士が結合し成長することで形成されるクラスター(照射促進クラスター)のほかに、中性子照射下で生じる照射欠陥に銅やニッケルなどの元素が偏析することで形成されるクラスター(照射誘起クラスター)を考慮するなど、アトムプローブなどで得られた知見を取り入れた。

この方法は、従来の脆化予測の方法と全く異なる方法であるが、照射脆化研究により得られた知見を直接

図4 国内脆化予測法と監視試験データの比較



的に予測法の式に反映することのできる方法といえる。また、ミクロ組織変化の実測値と予測値の直接比較によって予測法の基本的なモデルの妥当性を検証できることや、新たな知見が得られた場合に式の改良が容易であることなど、従来の簡易な関数を用いた予測式にはない利点がある。この新たな予測法を用いることで、照射量は少ないものの長い時間をかけてゆっくり照射される条件（沸騰水型軽水炉の条件）での銅含有量の多い鋼材の脆化や、加圧水型軽水炉で高い照射量まで照射された銅含有量の少ない鋼材に対する予測の精度が大幅に向上した。

この脆化予測法は日本電気協会規格「JEAC4201-2007」に反映された後、米国データなどとの比較を通じて国による妥当性の検証が行われ、現在、国内圧力容器の照射脆化の予測法として用いられている。図4は開発当時(06年末)の国内監視試験データと予測値の比較を示したものである。91年に規定された脆化予測法(図

中の04年予測値)と比べて精度が大幅に向上したことが見て取れる。

電気事業者ではこの脆化予測法の開発を機に国内監視試験片のミクロ組織観察を監視試験の一部として実施し、国内監視試験データのデータベース化作業と合わせて脆化予測法の妥当性検証と精度改善に役立てている。

### 最新の監視試験データとの比較と今後の進め方

JEAC4201-2007の脆化予測法を制定した時点では、銅含有量の少ない鋼材で最大 $6 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ 程度の照射量であり、銅含有量の多い鋼材で最大 $5 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ 程度の照射量であった。その後、銅含有量の少ない鋼材では $1 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ 程度の照射量のデータが得られ、また銅含有量の多い鋼材でも $6 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ を超える照射量の監視試験データが得られた。銅含有量の少ない鋼材に対しては、JEAC4201-2007の予測値は概ね妥当であるが、照射量が高

く銅含有量の多い鋼材に対しては、予測値が実測値よりも低くなる例が認められるようになった。

その例として、九州電力玄海1号機母材では第4回監視試験での脆化量の実測値がJEAC4201-2007による遷移温度上昇量の予測値(関連温度調整値)を $14^\circ\text{C}$ 上回るという結果が得られた。圧力容器は監視試験片よりも少量の中性子照射しか受けられないため、現時点でのプラントの運転には問題はないが、この脆化の要因を調べるために、九州電力では第4回監視試験片の包括的なミクロ組織観察を実施した。クラスター形成やマトリックス損傷形成の観察結果は概ねデータのばらつきの範囲内であり、これまでの脆化メカニズムの理解から外れるものではないことが確認された。これを受けて電気事業者では、脆化予測法の式の形はそのままとし、最新の監視試験データをデータベースに加えて式の係数の自動最適化を再度試みた。この結果、高照射量での脆化の予測値が改善された(図5)。

今後とも監視試験片のミクロ組織観察などにより照射脆化のモデルの検証を行うとともに、最新の知見を取り込んで脆化予測法を適宜見直していく。



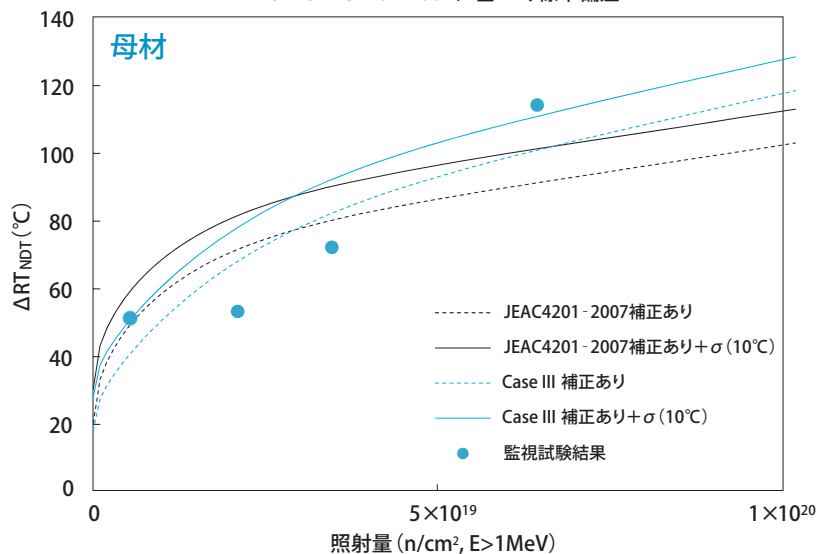
本稿は照射脆化予測の詳細について述べた。圧力容器の安全性を確認するためには、脆化予測を踏まえた圧力容器の構造健全性評価が非常に重要である。連載の第3回目では、構造健全性評価の詳細について述べる。

#### 参考文献

[1] 原子力安全・保安院、「第8回高経年化技術評価に関する意見聴取会」、配布資料10、2012年2月22日。

図5 玄海1号機母材の監視試験データと予測値の比較<sup>[1]</sup>

$\sigma$  : JEAC4201-2007に基づく標準偏差



(注) 縦軸が脆化量を表す。Case IIIの赤い破線と実線が試算した結果