

# 原子炉用材料の長寿命化の為の 損傷挙動に関する基礎的研究

## 学位論文内容の要旨

現在、我々が利用しているエネルギー源は、水力、および化石燃料である石油、石炭、天然ガスなどが主なものであるが、これらの資源には限りがあり、また、これらのエネルギー源利用に伴う地球規模の環境悪化が懸念されている。このような情勢の中で太陽光の利用、風力発電、波力発電、燃料電池等の利用も増えつつある。また、原子力発電によるエネルギー供給率が高まりつつあり、さらには新エネルギー源開発の動きが活発化している。現在、世界各国の商業用原子炉として圧倒的に多く使用されている核分裂炉は、軽水炉と呼ばれる形式のものである。この様な原子炉は、今後もしばらくの間各国で使用されていくものと考えられる。しかし、最近新たな原子力発電所の建設が諸般の事情により困難な状態にあり、既存の炉の長寿命化は避けて通れない状況にある。炉の長寿命化達成、および信頼性、安全性の向上の為には解決しなくてはならない問題が残されている。そこで、炉の長寿命化を目指した材料の損傷挙動を明らかにする目的で、中性子照射のシミュレーションとして超高压電子顕微鏡およびイオン加速器を用いた。実験方法は、3 種の方法で行い、超高压電子顕微鏡にて電子線照射し照射点欠陥の導入、核変換反応生成 He を模擬する方法としてイオン加速器による He イオンの注入を行った。この際、電子線/He 同時照射、He 注入後電子線照射の方法を用いた。

第一章は、研究の背景と、原子炉の長寿命化を目的とした場合に生じる問題点を論じ、照射損傷に関する材料研究の概要を述べた。

長時間の使用により損傷した構造材料の修理、交換には溶接が不可避であり、溶接後の損傷挙動を明らかにする必要がある。その場合、溶接法の違い、すなわち熱履歴の違いによりその後の損傷挙動が異なることが予想される。また、損傷組織に及ぼす損傷速度の影響、核変換反応により生成される He の効果を明らかにする必要がある。このような観点から、第二章では、現在実機で使用されているオーステナイト系ステンレス鋼を試料として実験した結果を述べた。その結果、溶接の際の冷却速度が高い場合、また、同じ照射量でも損傷速度が低い場合、スエリングが高くなることが明らかとなった。さらに、He はスエリングを増加させることが明らかとなった。

フェライト鋼は、オーステナイト鋼に比較して耐照射性が良いことが報告されており、炉の長寿命化実現のためにフェライト鋼の使用が検討されている。しかし、フェライト鋼は、高温強度等に問題があることが指摘されている為、酸化物粒子を分散強化した ODS フ

ェライト鋼の使用が検討されている。第三章では、イットリアを分散強化した ODS 鋼試料を作製し、さらに微量元素として Ti, Nb, V, Zr を添加し、耐照射性に及ぼす効果を検討した。その結果、イットリア粒子は照射に対して安定であり、ODS 鋼はボイドスエリングも低く耐照射性の良いことが明らかとなった。また、Ti 添加試料でスエリングがもっとも低く、耐照射向上には Ti の添加が効果的であることが明らかとなった。さらに、He はスエリングを増加させることも明らかとなった。

高エネルギーの中性子照射を受ける炉材は、照射により放射化され、照射量の増加に伴いその放射化が増大する。構造材料の修理、交換の際に炉材の放射化が強いと作業が困難となる。オーステナイト系ステンレス鋼中の Ni は長寿命核種を生じる為、Ni を低放射化元素である Mn に置換した Fe-Cr-Mn オーステナイト鋼の導入が検討されている。第四章では、14 種の組成の異なる Fe-Cr-Mn 鋼を作成し、相安定性、耐照射、機械的強度、および He の影響を検討した。その結果、Fe-(13~15)Cr-(15~17)Mn-0.2C-0.3Si-1Ni-(0.2~0.3)N の組成の試料の相安定性が良好であることが明らかとなった。中でも Fe-12.5Cr-16.5Mn-1Ni に W, V を添加した 83N 試料は、引張試験において SUS304 より高い引張強度、伸びを示した。電子線照射により高密度で微細なボイドの形成が認められるが、スエリング値は 10dpa 照射後で 0.04%程度であり、耐照射性も高いことが明らかとなった。He が存在する場合、ボイド平均径が増大し、スエリングが増加することが明らかとなった。また、523K 以上の時効では、炭化物が析出し、その結果耐照射性が低下した。従って、使用温度は 473K 以下が望ましいと思われる。

以上の様に、材料中の He はスエリングに大きな影響を与えることが明らかとなったが、He を含有するオーステナイト系ステンレス鋼を溶接補修する際、溶接時に割れを生じる事が報告されている。この割れのメカニズムは、核変換反応により生じた He が、溶接時の熱および発生した応力により粒界で He バブルを形成し、溶接終了後の冷却過程で生じる引張応力のために粒界破壊するものである。また、圧力容器鋼は He 生成量が少なく、溶接時の He の影響については研究がなされていない。しかし、長寿命化に伴い He の生成量も増加することから、検討する必要があると考える。このような観点から、第五章では試料として、SUS304 および SUS304L と、圧力容器鋼である SQV-2A を用いて、超高圧電子顕微鏡とイオン加速器により、電子線/He 同時照射を行い、そのマイクロ組織変化を検討し、その後電子顕微鏡内で加熱実験を行いその過程をその場観察した。その結果、573K での同時照射では点欠陥集合体のみが形成され、973K まで約 50 分間での昇温では、957K 近傍で急激に粒内、粒界に He バブルが多数形成された。973K まで約 5 分間での昇温では、粒内、粒界に He バブルが多数形成されたが、遅い昇温速度の場合に比較してバブルの数密度は低く、平均径は小さい。また、粒界部に形成されたバブルは、粒内のものに比較してそのサイズが大きく、このようなバブルが形成されることは、溶接補修時に割れを生じる可能性のあることが示唆される。これらのバブルは同時照射領域のみに形成が認められた。

SUS304, SUS304L を同時照射した結果、照射中に He バブルの形成が認められた。SUS304 を 950K まで 110 分間で昇温した場合、700K 近傍から析出物が形成され、その後の加熱で成長が認められた。それに伴い、He バブルは数密度が減少し、平均径は増加した。SUS304L を 950K まで 110 分間で昇温した場合、950K 近傍で急激に析出物が形成され、He バブルの

数密度が減少した。これらの析出物は  $M_{23}C_6$  であることが同定された。この様に、短時間で析出物が形成されることは、溶接時に割れを引き起こす可能性があることが明らかとなった。

# 学位論文審査の要旨

主査	教授	石井邦宜
副査	教授	毛利哲夫
副査	教授	工藤昌行
副査	教授	大貫惣明
副査	教授	市野瀬英喜

学位論文題名

## 原子炉用材料の長寿命化の為の 損傷挙動に関する基礎的研究

現在、世界各国で使われている商業用原子炉の85%は軽水を熱中性子の減速材とする核分裂炉である。核反応は概ねオーステナイト系ステンレス鋼製の容器の中で行われ、炉はこれを取り囲む強固な構造体とからなっている。反応容器は高エネルギー粒子等により、スパッタリング、ブリスタリング、スエリング、偏析、相変化、核変換効果、など様々な照射誘起・促進アタックを受ける。このため、原子炉本体は所定期間使用後の退役が義務づけられている。しかし、最近新たな原子力発電所の建設が諸般の事情により困難な状態にあり、既存の炉の長寿命化が要請されるようになってきた。炉の信頼性と安全性をさらに高めた上で長寿命化を図るには、まず原子炉構造材料の損傷問題を材料学的に解決する必要がある。その上で維持補修に伴う影響と留意事項について明らかにすることが求められる。本研究は、実炉の中性子照射による損傷条件を実験室的に再現する手法として、点欠陥の導入を超高圧電子顕微鏡を用いた電子線照射による点欠陥導入に代え、また、核変換反応により生成したHeを模擬する方法としてイオン加速器によるHeイオンの注入に代替してシミュレーションを行い、照射損傷の基本的挙動と新たな材料開発に応用した結果について述べてものである。

本論文は6章から構成されており、その成果は以下のように要約できる。

第1章では、原子炉用構造材料の照射損傷に関するこれまでの研究の概要を述べた。さらに、長寿命化を達成するために解決しなければならない問題点を明らかにした上で本論文の目的について述べている。

第2章では、通常使われているオーステナイト系ステンレス鋼の損傷挙動のうち、著者が明らかにした様々な事項についてのべている。すなわち、a) 電子線の単独照射による点欠陥の導入、b) 電子線/He同時照射、c) He注入後電子線照射、の3種の方法を組み合わせて実炉の損傷挙動をシミュレーションする方法を考案し、材料組成、損傷速度、熱履歴、などの影響について明らかにした結果について述べた。Ni

を高濃度に含有した材料はボイドの抑制効果が顕著であること、同じ照射量でも損傷速度が低いほどスエリングが増大すること、照射温度が高いほどボイド数密度と平均径が増しスエリング量が増大することを見いだした。また、溶接補修などに伴う熱影響部の損傷挙動については、熱履歴による影響については、急加熱、急冷、大入熱を受けた部位ほどボイド形成が促進されることを明らかにした。

第3章では、オーステナイト鋼に比較して耐照射性に優れていることがわかっているフェライト鋼について、高温強度の改善を目的として、イットリアを分散強化したODS鋼試料をメカニカルアロイング法により作製した。そして、鋼中のイットリア粒子は照射に対して安定であり、ODS鋼はボイドスエリングも低く耐照射性が良好であることを明らかとした。また、耐照射性のさらなる改善には、Tiの微量添加がスエリングの抑制に有効に働くことを発見した。

第4章では、オーステナイト系ステンレス鋼中のNiを低放射化元素であるMnに置換したFe-Cr-Mnオーステナイト鋼について相安定性、耐照射、機械的強度、およびHeの影響について研究した。Niは長半減期核種を生ずるからである。その結果、Fe-(13~15)Cr-(15~17)Mn-0.2C-0.3Si-1Ni-(0.2~0.3)Nの組成が相安定性に優れていることを見いだした。中でもFe-12.5Cr-16.5Mn-1NiにWとVを微量添加した材料は、引張試験においてSUS304より高い引張強度と伸びを示した。電子線照射により高密度で微細なボイドの形成が認められたが、スエリング値は10dpa照射後でも僅かであり、耐照射性も高いことを明らかにした。この場合もHeが材料中に存在するとボイド平均径が増大し、スエリングが増加する。また、時効処理などにより炭化物を析出させた場合、耐照射性が低下することも明らかにした。

第5章では、既使用の被照射材を溶接補修する場合を想定し、Heを含有する材料を加熱したとき材料内部で生ずるHeの動的挙動について研究した。試料は実機に使用されているオーステナイト系ステンレス鋼SUS304およびSUS304Lと、圧力容器に用いるフェライト鋼SQV-2Aとした。その結果、Heと電子線を同時照射した圧力容器鋼を緩昇温すると950K近傍で急激に粒内と粒界にHeバブルが多数形成される。一方、急昇温では、Heバブルが多数形成されるものの緩昇温に比べて数密度は低く、平均径も小さい事実を明らかとした。なお、粒界部に形成されたバブルは粒内に見られるバブルに比較してサイズが大きく、溶接補修時に割れを生じる原因となることを指摘した。

第6章は本研究の総括である。

これを要するに、著者は、原子炉用構造材料の長寿命化にさいして問題となる損傷挙動について研究し、長寿命化が材料学的に可能であることを明らかにしたものであり、材料工学に貢献するところ大である。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。