

## 中性子照射した純鉄および圧力容器鋼の磁気特性と照射欠陥の関係

鎌田, 康寛  
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター

菊池, 弘昭  
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター

小林, 悟  
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター

荒, 克之  
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター

他

<https://doi.org/10.15017/27063>

---

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 137, pp.151-155, 2009-09. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

# 中性子照射した純鉄および圧力容器鋼の 磁気特性と照射欠陥の関係

鎌田 康寛\*<sup>1</sup> 菊池 弘昭\*<sup>1</sup> 小林 悟\*<sup>1</sup> 荒 克之\*<sup>1</sup> 高橋 正氣\*<sup>1</sup>  
渡辺 英雄\*<sup>2</sup> 吉田 直亮\*<sup>2</sup> 海老根 典也\*<sup>3</sup> 鈴木 雅秀\*<sup>3</sup>

(2009年7月31日受理)

## Relation between Magnetic Properties and Irradiation Defects in Neutron Irradiated Iron and Reactor Pressure Vessel Steel

Yasuhiro KAMADA, Hiroaki KIKUCHI, Satoru KOBAYASHI, Katsuyuki ARA, Seiki TAKAHASHI

Hideo WATANABE, Naoaki YOSHIDA, Noriya EBINE, Masahide SUZUKI

E-mail of corresponding author: *kamada@iwate-u.ac.jp*

### Abstract

Development of nondestructive evaluation (NDE) techniques for neutron irradiation embrittlement of reactor pressure vessel (RPV) steels is of global interest for the aging management of existing nuclear power plants. Magnetic measurement is one of the promising NDE techniques because of its sensitivity to various types of lattice defects. To establish such a technique, it is important to clarify the relationships between irradiation defect structures, and the mechanical and magnetic properties. Specimens of pure iron and A533B-type RPV steel were neutron-irradiated up to  $5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1$  MeV) at 563K. During irradiation, magnetic hysteresis curves were continuously measured. Vickers hardness and Charpy impact tests were conducted before and after irradiation. Coercive force of pure iron increased with increasing neutron fluence, whereas that of RPV-steel showed different behavior. These phenomena were explained by the difference of defect structures observed by TEM.

**Key words** : Irradiation embrittlement, Reactor Pressure Vessel Steel, Coercive force, Non-destructive evaluation

## 1. 緒言

エネルギー安定供給・温暖化防止政策の観点から原子力発電の重要性が再注目される中、高経年化プラントの維持管理が重要な課題となっている。原発の心臓部と言える原子炉圧力容器は、運転中に照射脆化が進む。そのため、圧力容器内に装荷した容器と同材質の監視試験片によるシャルピー衝撃試験(破壊試験)を実施することで健全性を確保している。経済的問題から、現在、原発の長期運転が計画されているが、それに伴う監視試験片の欠乏が懸念されている。その対策として衝撃試験後の未破断部を溶接し再利用した再生試験片の活用が考えられている。一方、脆化の進行を非破

壊に評価できれば試験片欠乏の心配が全く無くなり、さらに圧力容器自体の直接評価も原理的に可能となる。

純鉄や鋼の磁気特性は、転位や析出物などの格子欠陥に敏感であり、それらの欠陥密度が増加すると、保磁力などの磁気パラメータが増加することが知られている<sup>1)</sup>。このことから、磁気計測は照射脆化の非破壊評価の有力な候補の一つと考えられ、幾つかのグループが研究を進めてきた。しかし、圧力容器鋼の保磁力は中性子照射により増加する報告と減少する報告とがあり、統一的な見解は得られていなかった<sup>2,3)</sup>。中性子照射実験は原子炉設備やホットラボ施設が必要な特殊実験であり、照射量依存性に関するデータ数が少ないことも未解明の一因と考えられ、系統的实验が必要であった。そのような背景のもと、純鉄と圧力容器鋼について、中性子照射中の連続磁気計測を実施するとともに、照射後で機械特性を評価した。さらに照射後試料の損傷組織を詳しく調べ、照射に伴う磁気特性変化のメカニズム

\*1 岩手大学工学部  
附属金属材料保全工学研究センター

\*2 九州大学応用力学研究所

\*3 日本原子力研究開発機構

の検討をおこなった。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料作製と中性子照射実験

压力容器鋼の照射脆化の一因に Cu リッチ析出物の形成が挙げられるため<sup>4,5)</sup>、Cu 含有量が重要因子となる。本研究では、日本の初期原発の压力容器鋼の Cu 濃度に近い A533B 鋼を用いるとともに、比較試料として純鉄を用意した。A533B 鋼は所定の熱処理(ノルマ 880℃×60min 空冷、テンパー 670℃×80min 空冷)を施した板材試料(板厚 15mm、JFE テクノリサーチ製)から、純鉄はニラコ製の 4N 冷間圧延板から、それぞれ試験片を切り出した後、ひずみ取り熱処理(真空中 700℃×60min 炉冷)を行った。Table 1 に A533B 鋼の化学組成をまとめた。両試料について、磁気測定用のドーナツ型試験片(外径 26mm、内径 18mm、厚さ 4mm)、硬度試験片(10×10×5mm)、TEM 観察用円板(外径 3mm、厚さ 0.1mm)を、A533B 鋼についてはフルサイズの V ノッチ・シャルピー試験片(55×10×10mm)を用意した。それらの試験片を専用照射キャプセル(02M-72A および 03M-43A)に装着し、He 置換を行った。キャプセルサイズは外径 60mm、試験片格納部の長さがおおよそ 1200mm となっており、フルエンスモニタ、熱電対、ヒータが取り付けられている。温度の制御には、ヒータ温度制御と真空温度制御とを併用した。

照射実験は、原子力研究開発機構(JAEA)の材料試験炉(JMTR)を用いて行った。高速中性子(E>1MeV)の総照射量の目標値を  $5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  とし、JMTR O-7 照射孔で 4 サイクル照射を 2 回行った(60 年運転した原発の压力容器壁の照射量は、PWR で  $10^{19} \text{ n/cm}^2$  台、BWR で  $10^{18} \text{ n/cm}^2$  台)。それぞれの照射実験を 151-154 および 157-160 の 4 サイクルで実施した。総照射時間は約 4 ヶ月である。Table 2 に各キャプセルの、高速中性子照射量と中性子束の中心軸方向ピーク値を示す。照射中温度は BWR と同じ 290℃と設定した。

Table 1 Chemical composition of A533B steel (wt.%)

C	Si	Mn	P	Cu	Ni	Cr	Mo
0.19	0.19	1.47	<0.003	0.16	0.64	0.14	0.51

Table 2 Neutron fluence and flux at peak position

	fluence ( $\text{cm}^{-2}$ )	flux ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )
02M-72A	$5.4 \times 10^{19}$	$5.6 \times 10^{12}$
03M-43A	$5.3 \times 10^{19}$	$5.3 \times 10^{12}$

### 2.2 照射中の連続磁気計測

中性子照射中の連続磁気計測を実施するため、ドーナツ状試料に励磁用と磁束密度検出用のコイルを 100 回巻いた。コイルの耐照射性を考えて、照射実験での温度計測に用いられる MI ケーブルを利用した。即ち、励磁および検出コイルとして、ステンレス細管中に酸化マグネシウム絶縁体で埋め込んだ 0.5 mm □ の銅線およびコンスタンタン線を用いた。このような特殊コイルを用いたため、本実験で発生できる最大の磁界強さは 2 kA/m であった。原子炉内に挿入した照射キャプセルから MI ケーブルを引き出し、専用計測システムに接続して、次のように照射中の連続磁気計測を実施した。

まず、試料を磁化するために、ファンクションジェネレータから 0.05 Hz の三角波信号を出力し、電力増幅器を通して励磁コイルに通電した。検出コイルの電圧信号と、励磁コイルに直列接続した標準抵抗両端の電圧信号を、増幅器・ローパスフィルタを通した後、AD コンバータによりデジタル化し、パーソナルコンピュータに取り込んだ。LabVIEW を用いた自作の制御・解析プログラム上で、検出コイルの電圧を積分することで磁束密度  $B$  を算出し、標準抵抗の電圧から算出される印加磁場  $H$  とあわせることで、 $B$ - $H$  曲線を求めた。

一般に強磁性体の磁気特性は温度に依存するため、連続磁気計測を実施する上で、試料温度を一定に保つことが重要となる。本実験では、ドーナツ型試験片に細穴をあけて熱電対を埋め込み、温度監視と温度のフィードバック制御を行った。Fig.1 に磁気計測の際に測定した各試験片の温度を示す。A533B 鋼では  $289 \pm 1.5^\circ\text{C}$ 、純鉄では  $290 \pm 1^\circ\text{C}$  で制御できた。

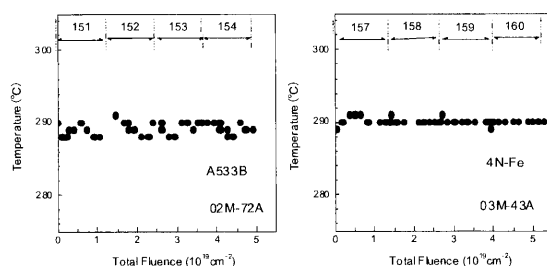


Fig. 1 Temperature of the specimens during irradiation

### 2.3 機械特性および照射欠陥評価

機械特性評価として、ビッカース硬さ試験を行った。荷重 1kg、荷重時間 30s で、各試験片について 5 点測定し、それらの平均値を最終的な硬さの値として採用した。照射前試料は JFE テクノリサーチで、照射後試料は JAEA・大洗ホットラボで試験を実施した。

A533B 鋼については、延性脆性遷移温度領域でシャルピー衝撃試験を行い、遷移曲線の変位から照射に

よる遷移温度のシフト量を評価した。照射キャプセルのスペースの制約から試験片数が限られており、その中で脆性破壊から延性破壊を示す試験温度範囲を網羅する必要があることから、1 本ずつ試験結果を見ながら温度範囲を設定した。12 本のフルサイズ試験片を用いて照射前試料については JFE テクノリサーチで、照射後試料については JAEA・大洗ホットラボで衝撃試験を実施した。

照射損傷組織の観察には、東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター管理区域内に設置された透過型電子顕微鏡 (JEOL2000 FX) を使用した。

### 3. 実験結果

#### 3.1 磁気特性の照射量依存性

中性子照射中に純鉄および A533B 鋼の  $B-H$  ループ測定の連続測定を行った<sup>6)</sup>。Fig. 2 に保磁力の照射量依存性をまとめた。ここで、A533B 鋼は本実験の印加磁場で飽和していないが、ループ幅の半分を保磁力と考えた。純鉄の保磁力は単調に増加したが (Fig. 2 (a))、A533B 鋼では照射初期に増加後、緩やかに減少した (Fig. 2 (b))。格子欠陥が磁壁運動の障害物になると考えると、照射量の増加とともに保磁力は増加すると予想される。従って、純鉄の結果は予想と一致したが、压力容器鋼では照射初期を除き予想と異なる保磁力の減少が確認された。このような複雑な挙動は、その場計測による連続的なデータ収集により初めて明らかにされたことである。この結果は、压力容器鋼の場合、磁壁運動が妨害される機構と促進 (または回復) する機構との2つが、照射欠陥の形成時に存在していることを示している。

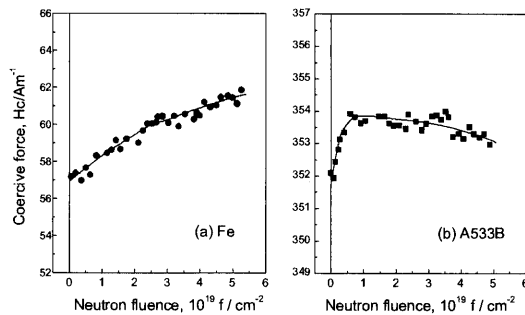


Fig. 2 Fluence dependence of the coercive force

#### 3.2 照射前後での機械特性の変化

Table 3 に照射前後での硬度をまとめた。純鉄および

A533B 鋼ともに照射によりビッカース硬度が増加した。特に Cu リッチ析出物の形成が予想される A533B 鋼で大きな硬度増加が見られた。Fig. 3 に A533B 鋼の衝撃試験の結果を示す。吸収エネルギー曲線は照射により高温側へ移動するとともに、上部棚エネルギーの減少が確認できた。吸収エネルギー  $T_{41J}$  の遷移温度のシフト量は  $78.1^{\circ}\text{C}$  と見積もられた。ここで、国内原発の脆化監視試験で使われている JEAC4201 予測式<sup>7)</sup>、

$$\Delta RT_{NDT} = [CR_R] \cdot [FF_R]_{(f)}$$

$$[CR_R] = -16 + 1210 \times P + 215 \times \text{Cu} + 77 \times \sqrt{\text{Cu} \times \text{Ni}}$$

$$[FF_R]_{(f)} = f^{(0.29 - 0.04 \log f)}$$

$$P, \text{Cu}, \text{Ni} : (\text{mass } \%) \quad (\text{Cu} < 0.05 \rightarrow \text{Cu} = 0.05)$$

$$f : 10^{19} \text{ n/cm}^2$$

を用いて遷移温度のシフト量の妥当性について考える。シフト量  $\Delta RT_{NDT}$  は、化学成分による係数  $[CR_R]$  と中性子照射量に依存する係数  $[FF_R]$  の2つから構成されている。本研究で用いた A533B 鋼の化学組成と照射量を代入し計算した、シフト量の照射量依存性を Fig. 4 に示す。本研究で得られた実験値は計算値とほぼ等しく、これまでの報告の压力容器鋼の脆化挙動と矛盾しないことが確認された。この予測式に従い、本研究で用いた A533B 鋼の脆化が進行しているとする、照射量の増加とともに遷移温度のシフト量は増大していると考えられ、Fig. 2 (b) に示した保磁力の変化挙動と異なることがわかる。

Table 3 Vickers hardness of the specimens

	Fe	A533B
unirradiated	60.3	201.0
irradiated	76.0	251.3

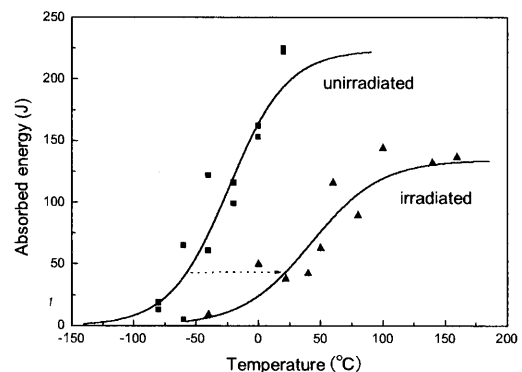


Fig. 3 Charpy energy absorption curves

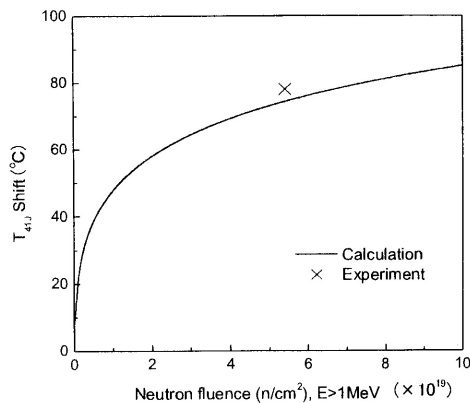


Fig. 4 Fluence dependence of the  $T_{411}$  shift

### 3.3 照射後の試料の組織観察

Fig. 5 に損傷組織の透過型電子顕微鏡像を示す<sup>8)</sup>。純鉄では 50nm を超える転位ループが低密度に形成していることを確認した (Fig. 5 (a))。異種元素をほとんど含まない純鉄では、欠陥成長が組織変化の支配因子となり、このような損傷組織が形成したと考えられる。一方、A533B 鋼ではマトリクス内での欠陥形成に加えて、もともと存在する転位の近傍に微細欠陥クラスター (転位ループおよび Cu リッチ析出物) が形成していることを確認した (Fig. 5 (b))。刃状転位はその周りに圧縮および引張の応力場を有する。弾性エネルギーを低減させるため、応力場を打ち消すように転位近傍に微細欠陥クラスターが形成したと考えられる。転位近傍での欠陥形成は A533B 鋼のイオン照射実験でも確認されている<sup>8)</sup>。

Fig. 2 で示した純鉄の保磁力の増加挙動は、転位ループの成長に伴う磁壁移動度の低下により説明できる。A533B 鋼の保磁力の挙動と照射欠陥との関係については、次節で考察する。

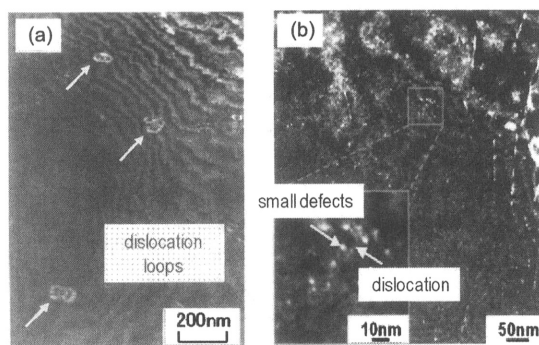


Fig. 5 TEM images of irradiated (a) Fe and (b) A533B

## 4. 考察

これまで圧力容器鋼の磁気特性の研究では、保磁力

は照射により増加する報告と減少するという一見、矛盾する報告があった<sup>2,3)</sup>。それに対して、中性子照射中の連続磁気計測を実施することにより、保磁力の増加と減少の2つの変化傾向が生じ得ることを初めて明らかにした。この結果は、照射欠陥の形成時に磁壁運動の妨害機構と促進(あるいは回復)機構の2つが本質的に存在することを示唆している。

Cu リッチ析出物は照射の早い段階で急速に形成すると言われており<sup>5)</sup>、照射初期の保磁力の増加はそれに対応していると考えられる。一方で、TEM 観察により確認された転位近傍での欠陥クラスターの形成にも注意が必要である。A533B 鋼はもともと転位密度が高い。転位まわりの応力場は弾性磁気相互作用により磁壁の運動を妨害するため、純鉄に比べて保磁力の絶対値は大きい。このような A533B 鋼において、照射により転位近傍に欠陥クラスターが形成し、もともと存在する転位の応力場が小さくなると、保磁力は減少すると予想される。同様の現象が、冷間圧延により転位密度を高めた Fe-Cu 合金過飽和固溶体の熱時効実験においても確認されており<sup>9)</sup>、このような機構により照射による保磁力の減少が生じたと考えられる。

純鉄では、保磁力は照射量モニタリングの指標として適しているのに対して、圧力容器鋼では保磁力が増加・減少する2つの機構が存在しており、それらをどのように取り扱うかが、非破壊脆化評価に応用するための課題と言える。増加・減少量を欠陥形成と対応させて解析するには、数 nm サイズの微細欠陥クラスターと磁壁(鉄の磁壁幅は約 40nm)との相互作用機構の詳しい検討が必要である。そのための実験として、系統的な照射実験の実施が容易なイオン照射が有効と考えられ、イオン照射した鉄単結晶薄膜の磁壁移動の直接観察を現在進めている<sup>10)</sup>。

## 5. まとめ

中性子照射中の純鉄と圧力容器鋼の連続磁気計測に成功した。純鉄の場合、保磁力は照射とともに増加したのに対して、圧力容器鋼の場合、増加と減少挙動を示す2つの変化機構が存在することが明らかになった。TEM 観察により、圧力容器鋼にもともと存在した転位の近傍で微細欠陥クラスターが形成していることを確認した。照射に伴う保磁力の減少は、転位まわりの応力場の減少に反映していると考えられる。

## 謝辞

本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金(基盤研究 S, No.141020345)並びに、東北大学金属材料研究所共同利用研究、九州大学応用力学研究所共同利用研究により行われている。JAEA・ホットラボの皆様方に感謝致します。

## 参考文献

- 1) H. Kronmüller and M. Fähnle : Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids, (Cambridge University Press, UK, 2003)
- 2) S. H. Chi, K. O. Chang, J. H. Hong, I. H. Kuk, and C. O. Kim, J. Appl. Phys. **85** (1999) 6043.
- 3) W. J. Shong, J. F. Stubbins, J. G. Williams, J. W. Rogers, and M. Giacobbe, ASTM Special Technical Publication **1228** (1994) 215.
- 4) 木村晃彦, 永井康介, 藤井克彦, 西山裕孝, 曾根田直樹, 日本原子力学会誌, 50, pp.630-634, (2008)
- 5) K. Fukuya, K. Ohno, H. Nakata, S. Dumbill, and J. M. Hyder, J. Nucl. Mater. 312, pp. 163-173, (2003)
- 6) S. Takahashi, H. Kikuchi, K. Ara, N. Ebine, Y. Kamada, S. Kobayashi, and M. Suzuki, J. Appl. Phys. 100, pp.023902/1-6, (2006)
- 7) (社)日本電気協会技術規定 JEAC4201-2004
- 8) 渡辺英雄, 今村武史, 増渕俊児, 吉田直亮, 鎌田康寛, 高橋正氣, 九州大学応用力学研究所所報, 133, pp.161-165, (2007)
- 9) Y. Kamada, S. Takahashi, H. Kikuchi, S. Kobayashi, K. Ara, J. Echigoya, Y. Tozawa and K. Watanabe, Journal of Materials Science, 44, pp.949-953, (2009)
- 10) Y. Kamada, H. Watanabe, S. Mitani, J. Echigoya, H. Kikuchi, S. Kobayashi, N. Yoshida and K. Takanashi, Materials Transaction (2009) *in press*