

研究目的と内容

- 安全上最も重要かつ交換できない原子炉压力容器の健全性を確認するためには、中性子照射脆化により低下する破壊靱性を評価する必要がある。すなわち、破壊靱性評価手法の整備、中性子照射による材料特性の変化の把握、及び照射脆化メカニズムに立脚した照射脆化予測が必要である。
- 微小試験片を用いた破壊靱性試験、中性子照射されたステンレスオーバーレイクラッドの破壊特性、及び照射脆化メカニズムに関する最近の研究成果を紹介する。

原子炉压力容器の健全性評価

<加圧熱衝撃事象(PTS)>

原子炉压力容器内面の母材表面にき裂を想定。評価の精緻化のため、ステンレスオーバーレイクラッドの取り扱いが議論されている。

破壊に対する抵抗力

PTS時、応力拡大係数の曲線(K_I)と破壊靱性遷移曲線(K_{Ic})が交差しないことを確認する。

監視試験

シャルピーシフトと破壊靱性シフトが同等と仮定。少数の破壊靱性試験との組み合わせにより、照射後の破壊靱性遷移曲線を破壊靱性データの下限包絡線として評価する。

③ ステンレスオーバーレイクラッドの破壊特性に及ぼす中性子照射効果の把握

① ばらつきを考慮した直接的な破壊靱性評価手法の整備
② 照射脆化メカニズムの解明

① 微小試験片を用いた破壊靱性試験

<破壊靱性マスターカーブ(MC)法>

MC: 破壊靱性中央値の温度依存性の曲線
 $K_{Ic}(med) = 30 + 70 \times \exp(0.019 \times (T - T_0))$

試験前に疲労予き裂を導入。試験後に破面からき裂長さを測定。

恒温槽による試験温度制御

クリップゲージによる開口変位測定

へき開破壊が生じるまでの荷重と荷重線変位を計測し、破壊靱性値を算出

シャルピー破断片

試験後の監視試験片(シャルピー破断片)から採取可能な微小破壊靱性試験片(0.16T-CT)を用いて、MC法による破壊靱性評価が可能であることを明らかにする。

0.4T, 0.16T-CT共、評価された参照温度 T_0 は1T-CTと同程度(評価誤差の範囲内)であり、小型試験片を用いて評価したMCは1T-CT試験片のものと同値である。

➢ マスターカーブは破壊靱性中央値の温度依存性を規定する曲線であり、形状は鋼材によらず不変である。

➢ ある設定温度で複数の試験を行い、寸法効果補正により1インチ厚(1T-CT)試験片相当の破壊靱性値の中央値を求める。次に、破壊靱性値の中央値を通るようにMCを描く。

➢ MC上の100MPa√mの点に対応する温度が参照温度 T_0 となる。

➢ 破壊靱性のばらつきを破壊確率として定量的に評価可能。

➢ 微小試験片を用いて、ばらつきを考慮した破壊靱性評価が可能であることを示した。¹⁾

1) T. Tobita, Y. Nishiyama, T. Ohtsu, M. Udagawa, J. Katsuyama, K. Onizawa, Proc. ASME Pressure Vessels and Piping Conf., PVP2013-97897(2013). 原子力規制庁からの委託事業「軽水炉燃料材料詳細健全性調査」の成果を含む

② 照射脆化メカニズム

➢ 中性子照射による原子炉压力容器鋼の微細組織の変化を調べる。

<照射脆化による破壊靱性シフト>

Steel A									
C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Cu	Mo	
0.19	0.30	1.30	0.015	0.010	0.68	0.17	0.16	0.53	

3次元アトムプローブ法により得られた原子マップ。Cuは低照射量から比較的大きなクラスターが形成されている。

溶質原子クラスターの構成元素の割合。照射量の増加に伴いFeは減少し、特に高照射量においてSiとNiの割合が増加する。

➢ 照射脆化の要因は、溶質原子クラスターと照射欠陥集合体が転位の運動を妨げることによる材料の硬化と考えられている。

➢ 3次元アトムプローブ法による微細組織の観察により、照射脆化の原因となる溶質原子クラスターの形成と成長を確認した。²⁾

2) T. Takeuchi, et al., Journal of Nuclear Materials Vol. 402, pp. 93-101(2010)

③ ステンレスオーバーレイクラッドの破壊特性

➢ 原子炉压力容器ステンレスオーバーレイ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、破壊靱性等の材料データを取得する。

<ステンレスオーバーレイクラッド>

ステンレス鋼の肉盛溶接

オーステナイト相に δ -フェライト相の柱状組織が存在(約10%)

原子炉压力容器の内面には、約5mmの厚さでステンレス鋼が肉盛溶接されている(以後クラッド)。

➢ 10²⁰/cm²レベルの中性子照射試験データは無い。

クラッド材の弾塑性破壊靱性値は温度依存性を示すが、中性子照射後においても大きな変化は生じない。

➢ クラッドの中性子照射による破壊靱性の低下が小さいことを確認すると共に健全性評価に必要な材料データを取得した。³⁾

3) T. Tobita, M. Udagawa, Y. Chimi, Y. Nishiyama, K. Onizawa, Journal of Nuclear Materials, Vol. 452, pp. 61-68(2014)

まとめ

- 監視試験片から採取可能な微小試験片による破壊靱性評価法の整備とともに、照射脆化に係る微細組織や機械的性質に関するデータの取得を進めた。これらの研究成果は、破壊靱性評価手法の高度化に向けた学協会規格の改定などに貢献するものである。
- 今後は既存照射材を利用した照射後試験、及び再稼働するJMTRを利用した材料照射試験により、照射後破壊靱性データの拡充を進める予定である。

原子炉圧力容器鋼の破壊靱性評価手法の高度化に関する研究

独立行政法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター
材料・構造安全研究ユニット 材料・水化学研究グループ

1. 概要

原子炉圧力容器鋼の破壊靱性評価手法の高度化のために、微小試験片を用いた破壊靱性試験、照射脆化メカニズム等に関する研究を行っています。

2. 背景

原子炉圧力容器鋼のき裂進展に対する抵抗力、すなわち破壊靱性は、低温では低く遷移温度域で増加する温度依存性を示します。この遷移温度が中性子照射により高温側へシフトする現象を中性子照射脆化といいます。安全上最も重要かつ交換できない原子炉圧力容器の健全性を確認するためには、運転に伴う中性子の照射により変化する破壊靱性の温度依存性(破壊靱性遷移曲線)を評価することが必要です。中性子照射脆化を把握するため、運転開始前からあらかじめシャルピー衝撃試験片等を原子炉内に装荷しておき、計画的に取り出して監視試験を行っています。ここでは、シャルピー遷移温度の上昇量と破壊靱性の温度シフトが等しいとして、照射前に得られている破壊靱性データを高温側へシフトさせたデータと、数本の破壊靱性監視試験片から得られた破壊靱性データを組み合わせ、全データの下限を包絡するように評価時期の破壊靱性遷移曲線を設定しています。ここで、データの下限包絡による設定法では破壊靱性遷移曲線の形状が試験数や破壊靱性のばらつきに影響されると考えられるため、試験済みの監視試験片を有効利用した科学的・合理的な破壊靱性下限の設定法の整備が必要です。さらに評価時期の破壊靱性は、照射脆化予測により同様の手法で評価されるため、照射脆化メカニズムの検討も重要です。また、原子炉圧力容器の健全性評価においては、容器内面にき裂が存在すると想定して、加圧熱衝撃事象(PTS)で生じる荷重によるき裂進展力よりも材料の破壊靱性が上回ることを確認しています。ここで、原子炉圧力容器の内面には耐蝕性の確保のために約 5mm の厚さでステンレス鋼が肉盛溶接されています(ステンレスオーバーレイクラッド。以後クラッド)。クラッド下の圧力容器母材にき裂を想定する場合には、クラッドの材料特性がき裂進展力の評価にも影響するため、中性子照射後のクラッドの破壊特性等材料データが必要になります。

3. 研究成果

(1)微小試験片を用いた破壊靱性試験

破壊靱性下限を科学的・合理的に設定する方法として、マスターカーブ(MC)法と呼ばれる破壊靱性評価法の利用が有効です。MC法は、1インチ厚コンパクト(IT-CT)試験片の破壊靱性の分布の中央値の温度依存性を一本の指数型曲線で表現する手法であり、破壊靱性下限を破壊確率として設定することができます。本研究では、試験後のシャルピー衝撃監視試験片を再利用して製作可能な微小破壊靱性試験片(4mm厚、0.16T-CT)を用いて、MC法により破壊靱性の評価が可能であることを明らかにしました。

(2)照射脆化メカニズム

原子炉圧力容器鋼の照射脆化の要因は、溶質原子クラスターと照射欠陥集合体が転位の運動を妨げることによる材料の硬化と考えられています。JMTRを用いた照射試験と3次元アトムプローブ法による微細組織の観察により、溶質原子クラスターの形成と成長を確認しました。例えば、高照射量ではクラスター中にSiとNiの占める割合が大きくなることがわかりました。

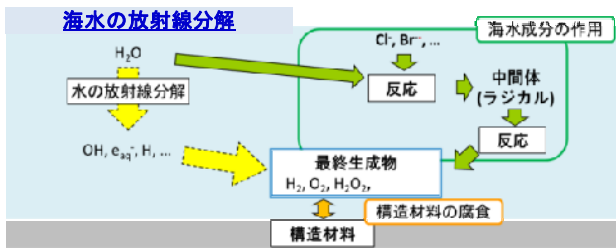
(3)ステンレスオーバーレイクラッドの破壊特性

原子炉圧力容器ステンレスオーバーレイクラッドを模擬した材料を製作して高照射量領域まで中性子照射試験を行い、健全性評価に必要な引張特性や破壊靱性値等の材料データを取得しました。また、高照射量においても破壊靱性の低下が小さいことを確認しました。

海水成分を含む水の放射線分解について実験と計算の両面から調べ、水質の予測を行うとともに放射線分解データセットの整備を行っています。

背景

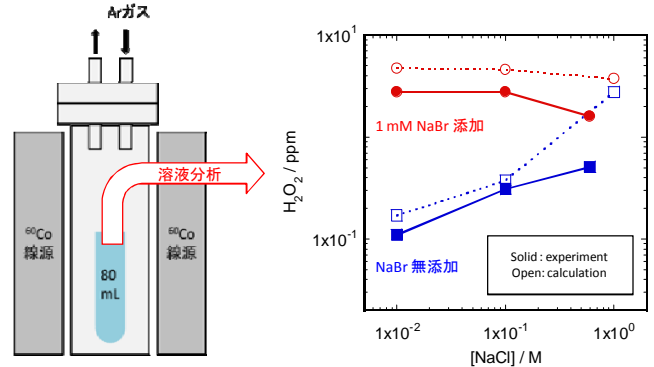
福島第一原子力発電所事故時に海水が炉内や使用済燃料プールの冷却のために注入された。炉内は線量率が高く、注入された水は放射線分解を起こしていると考えられる。このような環境の材料に対して、塩分と水の放射線分解生成物の両方による腐食要因を考える必要がある。また、使用済燃料の中間貯蔵におけるキャニスタ表面への飛来塩分付着の影響など、海塩と放射線が重畳する腐食環境は福島原子力発電所事故に限ったものではなく、材料の健全性の観点から重要な研究テーマとなっている。本研究では、海水成分を含む水の放射線分解についてモデル計算による予測を行うとともに、計算結果の実験的検証を進めている。また、計算精度向上を目的とした既往のデータの見直しも行っている。



NaCl, NaBr水溶液へのガンマ線照射実験

計算による予測の妥当性を示すため、⁶⁰Coを用いた水溶液へのガンマ線照射を行い、照射後の水分解生成物の濃度を測定

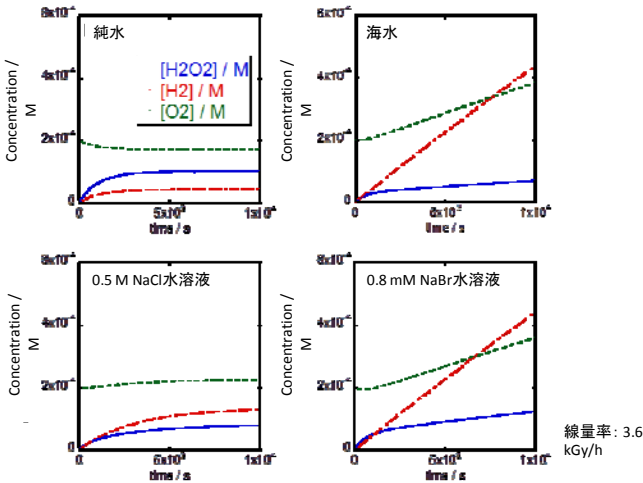
- 濃度やpHの変化に対して、計算結果は実験結果をよく再現した。(低pH条件等一部の水溶液に対しては一致が悪い)
- 鉄鋼材料を浸漬させた実験も実施し、材料の腐食速度と計算から示される酸化物(酸素、過酸化水素)の生成挙動との間に相関があることを確認した。



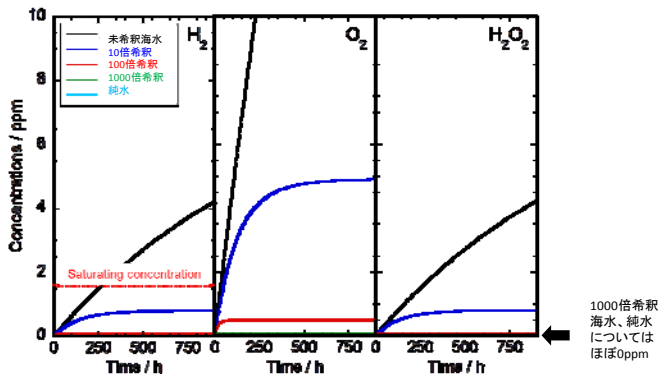
海水の放射線分解モデル計算

海水中に含まれる各イオンを含む水の放射線分解のモデル計算を実施し、個々のイオンの作用について推測

- 海水中に微量に含まれる臭化物イオン(Br)が酸素や水素等の水分解生成物の発生に大きな影響を与えるということが示された。



- 未希釈の海水からの水素発生量は飽和溶解度を越えることが示された。
- 100倍程度希釈することにより、生成物の発生量が純水と同程度にまで抑制されることを評価した。



パルスラジオリシス実験

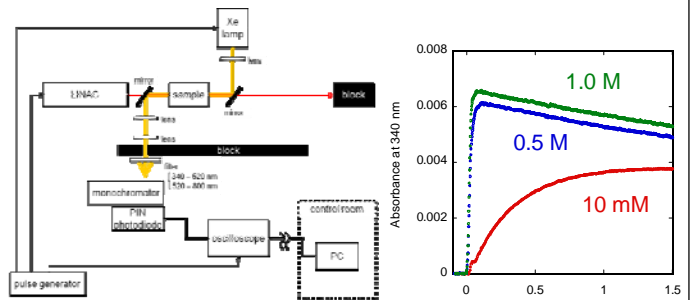
放射線分解過程で起こる化学反応の多くは水分子の励起により生じた不安定なラジカルによる反応である。放射線分解モデル計算の精度向上のため、高時間分解能を有するパルスラジオリシス法を用いて、個々の化学反応の速度定数の再評価を実施した。

パルスラジオリシス実験の概要

- 電子線加速器(LINAC)からパルス電子線を取り出し、試料水溶液に照射
- 瞬間的に生成分解する化学種の挙動を分光学的に測定

NaCl水溶液の照射実験

- Cl⁻とOHラジカルとの反応に由来するラジカルの挙動をマイクロ秒の時間スケールで観測
- 生成、分解の速度を測定することにより、速度定数を評価



まとめと今後の課題

海塩を含む水の放射線分解に関する以下の実験及び解析を実施
水分解生成物の発生挙動解

- 海水中のBrが水の放射線分解に大きな影響を与えており、水素や酸素などの生成が純水の分解と比較して顕著であることが示された。
- 100倍程度希釈することで水分解生成物の発生が抑制されることを示された。

ガンマ線照射実験

- 計算結果の妥当性が示された。
- Brの添加により水分解生成物の濃度が増加することが示された。

パルスラジオリシス実験により個々の反応の見直しを実施

- 幾つかの反応速度定数を見直し、本データを放射線分解モデル計算に反映させることで、計算精度向上を目指す。

海水成分を含む水の放射線分解に関する研究

独立行政法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター

材料・構造安全研究ユニット 材料・水化学研究グループ

1. 概要

海水成分を含む水の放射線分解について実験と計算の両面から調べ、水質の予測を行うとともに放射線分解データセットの整備を進めています。

2. 研究の背景・目的

福島第一原子力発電所事故時に海水が炉内や使用済燃料プールの冷却のために注入されました。炉内は線量率が高く、注入された水は放射線分解を起こしていると考えられます。このような環境下での材料に対して、塩分と水の放射線分解生成物の両方を腐食要因として考える必要があります。また、使用済燃料の中間貯蔵におけるキャニスタ表面への飛来塩分付着による腐食の促進など、海塩と放射線が重畳する腐食環境は福島原子力発電所事故に限ったものではなく、材料の健全性の観点から重要な研究テーマとなっています。

本研究では、海水成分を含む水の放射線分解についてモデル計算による予測を行うとともに、計算結果の実験的検証を進めています。また、計算精度向上を目的とした既往のデータの見直しも行っています。

3. 実施内容

3.1 海水の放射線分解モデル計算

海水中に含まれるイオン(塩化物イオン(Cl^-)、硫酸イオン(SO_4^{2-})、重炭酸イオン(HCO_3^-)、臭化物イオン(Br^-)など)の照射水中での化学反応に関する知見を整備し、海水を想定した混合水溶液の放射線分解モデル計算を実施しました。その結果、水の放射線分解による酸化種(酸素、過酸化水素)や水素の発生に対して Br^- の寄与が大きいことが示されました。さらに、海水を 100 倍程度希釈することにより、これらの発生量を純水の放射線分解と同等の濃度にまで抑制することができるということが示されました。

3.2 ガンマ線照射実験

計算による予測の妥当性を示すため、水溶液へのガンマ線照射を行い、照射後の水分解生成物の濃度を測定しました。実験環境を模擬した計算によって、実験結果をよく再現できることが示されました。

3.3 パルスラジオリシス実験

計算精度向上のため、放射線分解反応の速度定数等の入力パラメータの再評価を行っています。得られたデータを計算に反映し、より良い計算結果の取得を目指しています。