



## 照射損傷評価のための遠隔操作式振動試料型磁力計の開発

### Development of Remote Operated Vibrating Sample Magnetometer for Evaluation of Irradiation Damage

原子力機構	高屋 茂	Shigeru TAKAYA	Member
原子力機構	山県 一郎	Ichiro YAMAGATA	
原子力機構	市川 正一	Shoichi ICHIKAWA	
原子力機構	永江 勇二	Yuji NAGAE	Member
原子力機構	若井 栄一	Eiichi WAKAI	
原子力機構	青砥 紀身	Kazumi AOTO	Member

The remote operated vibrating sample magnetometer (VSM) for neutron irradiated samples has been developed. The maximum range of applied magnetic field is more than  $\pm 0.5/\mu_0$  A/m, and the resolution of magnetic moment is higher than  $5 \times 10^{-8}$  A·m<sup>2</sup>. The hysteresis loops of neutron irradiated samples were measured by this VSM, and the relationships between dose, which is one of representative irradiation parameter, and magnetic properties such as magnetic coercive force were examined. As result, it was revealed that there are good correlations between them. This fact shows the possibility of nondestructive evaluation of irradiation damage by using VSM.

**Keywords:** Nondestructive Evaluation, Neutron Irradiation, Magnetic Property, SUS316, Austenitic stainless steel.

## 1. 緒言

原子炉容器や炉内構造物等のように比較的低放射線環境下に長時間継続的にさらされ、かつ寿命中の交換が困難な鉄鋼材料構造物に対して、その照射損傷を適切に把握し管理することは、プラントの経年評価や健全性確保のために重要である。これまでの研究により、照射損傷指標のひとつとして、弾き出し損傷量の有効性が示されている[1-3]。例えば、宮地らは、中性子照射した SUS316 について 400℃ と 500℃ にて引張試験を実施し、弾き出し損傷量とともに破断伸びが漸減し、0.2% 耐力が漸増することを示している[1]。したがって、弾き出し損傷量を非破壊で評価できる手法が開発されれば、高経年化原子力プラントの健全性確保に貢献するものと期待される。

我々はこれまでに、磁気特性が微細組織や局所的な化学組成等の変化に敏感であり、非破壊非接触での測定が可能であることに着目して、代表的な原子炉構造

材料である SUS304 鋼及び SUS316 鋼について、永久磁石を用いて試料を着磁した後に、フラックスゲートセンサを用いて残留磁化に起因する漏えい磁束密度を測定し、その結果と弾き出し損傷量との関係を調べてきた。その結果、弾き出し損傷量とともに漏えい磁束密度が大きくなることを明らかにした[4]。なお、磁気余効により着磁からの経過時間に依存して残留磁化が変化することが懸念されるが、一部の試験片について着磁と測定を繰り返し実施した範囲では、有意な漏えい磁束密度の変化は認められず、本手法が十分実用性を有していることがわかった。以上のように、漏えい磁束密度測定による弾き出し損傷量評価の可能性を示した[4]。但し、SUS316 鋼については、2~5 dpa 以下の弾き出し損傷量では、漏えい磁束密度の増加を確認することができず、漏えい磁束密度が増加するためのしきい値が存在する可能性が示唆された。Stanly らも、振動試料型磁力計 (VSM) の一種を用いた測定により、高速中性子 ( $E > 0.1$  MeV) フルエンスの増加とともに、磁化が大きくなることを報告しているが、彼らの結果からも約 6 dpa に磁気特性変化のしきい値が存在する可能性が示されている[5]。以上のように、フラックスゲートセンサを用いた漏えい磁束密度測定による弾き

連絡先:高屋茂、〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002、日本原子力研究開発機構次世代原子力システム研究開発部門炉心・構造材料グループ、電話: 029-267-4141、e-mail:takaya.shigeru@jaea.go.jp

出し損傷量評価については、低照射量域での評価に課題が示された。同評価においては、残留磁化状態で漏えい磁束密度の測定を行っているが、磁気特性変化に基づく弾き出し損傷量評価の低照射量域での適用性を検討するためには、低照射量の照射試料について、残留磁化だけでなく飽和磁化や保磁力など他の磁化特性についても評価を実施し、磁気特性変化のための弾き出し損傷量のしきい値の存在の有無や、低照射量域での弾き出し損傷量と磁化特性の関係を明らかにする必要がある。

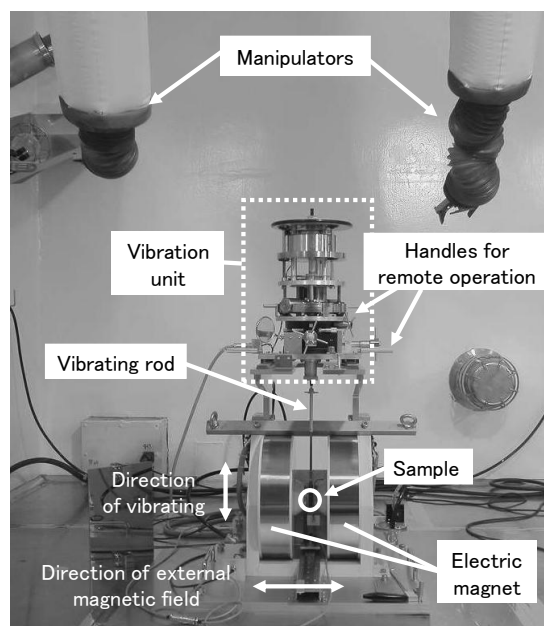
飽和磁化、残留磁化、保磁力等の磁化特性は磁化曲線から評価することができる。磁化曲線を詳細に分析するための装置としては、例えば、リング状の試験片に対して磁場印加用と磁化測定用の二つのコイルを巻きつけた磁束計が挙げられるが、マニプレータを用いて遠隔で正確にコイルを巻くのは極めて困難である。そこで、本研究では VSM を採用した。ここで VSM とは、均一な外部磁界中で試料を振動させることにより発生する誘導起電力から、試料の磁化を測定する装置である。試料に直接コイルを巻く必要がないため、磁束計に比べて測定が容易であると期待される。但し、市販の VSM では、ホットセル内への設置やマニプレータを用いた遠隔操作は不可能である。そこで、新たに照射試料用の遠隔操作式 VSM を開発することとした。

また、中性子スペクトルは原子炉によって異なっている。磁気特性を用いて、中性子スペクトルに依らずに弾き出し損傷量を評価可能か検討するために、SUS316 鋼を対象として、日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」（高速中性子炉）及び研究用原子炉「JRR-3」（熱中性子炉）を利用して、各原子炉での単独照射試験と両原子炉を使った組み合わせ照射試験を実施し、照射試料を磁気特性測定に供した。組み合わせ照射については、順序効果を検討するため、常陽→JRR-3、JRR-3→常陽の双方向の照射試験を実施した。

## 2. 遠隔操作式 VSM の開発

図 1 に、製作した遠隔操作式 VSM の外観写真を示す。装置の劣化抑制、保守管理の容易さ、装置を破棄する際の放射性廃棄物量の低減のために、試料の近傍に配置する必要のある外部磁界を発生させるための電磁石や試料を振動させるための加振器等の測定部と、試料の近傍に配置する必要のない制御用 PC をはじめ

とする制御部の二つに装置を分離させた構造とし、測定部をホットセル内に、制御部をホットセル外の操作室内に設置することとした。また、測定試料は、図 1 (a) 中に示した振動棒の先端に取り付けられているが、この試料の振動部先端への取り付けや、試料を電磁石間の中心へと移動させるための位置調整作業等の測定に係る作業を、マニプレータを用いた遠隔操作によって



(a) Measurement unit (set in a hot cell).



(b) Control unit (set in an operation room).

Fig.1 Photograph of a remote operated VSM.

容易にできるように、ジグの製作や装置の各所へのハンドルやつまみの取り付けを行った。外部磁界強度の測定は、通常、ホール素子を利用したガウスメータによって行われるが、半導体であるホール素子は、照射試料の測定中に放射線にさらされることにより特性が変化し、測定精度が劣化する恐れがある。そのため、本 VSM では、ガウスメータは照射試料が無い状態で装置の校正を行う場合にのみ用い、照射試料の測定の際には、予め調べた印加電流と発生磁界強度の関係を用いて電流値から発生磁界強度の推定が行えるようにした。

製作した装置の仕様を表 1 に示す。また、主な性能確認試験の結果を以下に示す。なお、本性能確認試験は、一部を除き、装置を操作室内へ搬入後、測定部をホットセル内に設置する前に実施した。

磁化測定部の感度については、試料を振動棒に取り付けず、振動棒だけの状態で、印加磁界を  $\pm 0.5/\mu_0$  A/m の範囲で変化させて、磁気モーメントの測定を行い評価した。結果を図 2 に示す。振動棒の極微弱な磁気モーメントに起因すると思われるわずかな変化が認められるものの、その変化量は、 $5 \times 10^{-8}$  A·m<sup>2</sup> よりも小さく、磁化測定部の感度は、それよりも良いことがわかる。

電流値から推定した発生磁界強度とガウスメータによる測定値を比較した結果を図 3 に示す。ガウスメータによる測定結果から、 $0.5/\mu_0$  A/m 以上の磁界を発生可能であることがわかる。また、電流値からの推定値とガウスメータによる測定値の差が 2% 以内であり、電流値から精度よく発生磁界強度を推定可能であることがわかる。

以上のような性能確認試験を実施し、開発した遠隔操作式 VSM が、仕様を満たすことを確認した後、測定部の配線を取り外し、ホットセル内への搬入及び設置を行った。測定部の配線は操作室側からホットセル内に引き込み、再度接続した。

SUS316 の受入れ材について、今回製作した遠隔操作式 VSM の測定部をホットセル内に設置した後に測定した結果と、同一試験片をほぼ同等の性能を有する通常の VSM を用いて測定した結果を図 4 に示す。測定結果はよく一致しており、今回、照射試料を測定するために行った測定部と制御部の分離、マニプレータ操作ハンドル等の付加、電流値からの発生磁界推定、及び測定部のホットセル内への設置が、測定結果に与える影響は無視できることが確認できた。

Table 1 List of the specifications of remote operated VSM.

Magnetization measurement unit	
Range	Variable in the range from $\pm 1 \times 10^{-6}$ to $\pm 0.2$ A·m <sup>2</sup> .
Sensitivity	$\leq 5 \times 10^{-8}$ A·m <sup>2</sup>
Magnetic field measurement unit	
Range	$\pm 0.5/\mu_0$ A/m
Linearity	Within $\pm 2\%$
Sensitivity	Within $\pm 2\%$
Electromagnet	
Maximum magnetic field	$\geq 0.5/\mu_0$ A/m at the center
Uniformity	$\pm 1\%/10$ mmDSV
Diameter of magnetic cores	55 mm $\phi$

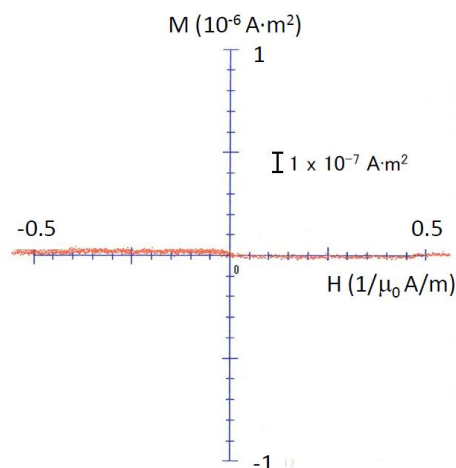


Fig. 2 Sensitivity of magnetization measurement unit.

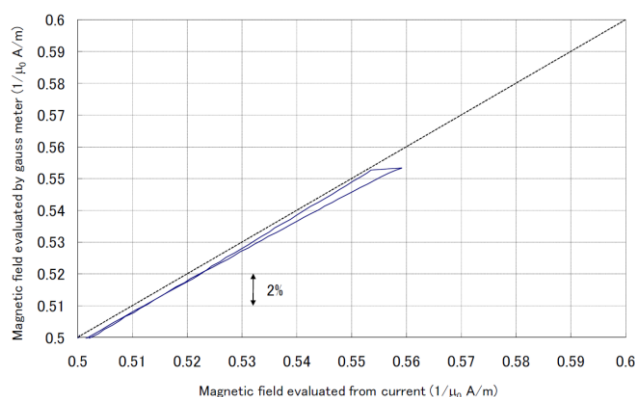


Fig. 3 Relationship between magnetic fields evaluated from current and by gauss meter.

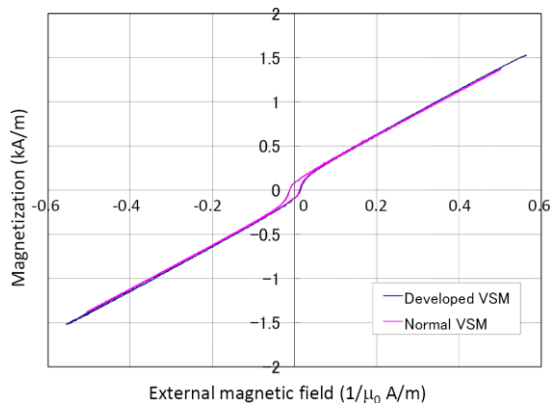


Fig. 4 Comparison of hysteresis loops of SUS316 measured by the developed remote operated VSM and a normal VSM.

### 3. 遠隔操作式 VSM による弾き出し損傷評価可能性の検討

#### 3.1 実験方法

供試材として SUS316 鋼を用いた。化学組成を表 2 に示す。また試験片形状を図 5 に示す。

中性子照射試験は、日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」及び研究用原子炉「JRR-3」を用いて、各炉での単独照射及び両炉を用いた組み合わせ照射を実施した。照射試験の雰囲気は、不活性ガス(Ar, He)中とした。弾き出し損傷量は最大で、約 1.65 dpa となった。また、照射温度は JRR-3 単独照射材 (467°C) を除き、550±15°Cであった。

照射試験後、試験片を 6.5 mm 長さに切断し、遠隔操作式 VSM による測定に供した。試験片の長手方向が印加磁場方向と一致するように試験片をセットし、最大印加磁界は、約 0.5/μ₀ A/m とした。

#### 3.2 実験結果

磁化曲線測定結果を図 6 に示す。いずれの試験片の磁化曲線もヒステリシスを有しており、わずかであるが強磁性的な性質を示している。また、最大印加磁界である約 0.5/μ₀ A/m でも、磁化は飽和には至っていない

Table 2 Chemical composition of SUS316 (wt%)

C	Si	Mn	P	S	Cu
0.01	0.59	0.84	0.026	0.003	0.26
Ni	Cr	Mo	V	N	Fe
11.19	16.87	2.23	0.08	0.08	bal.

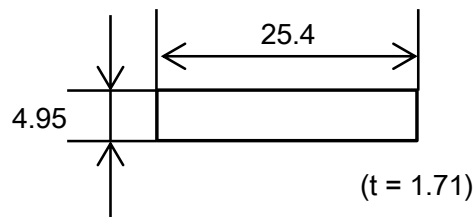


Fig. 5 Dimensions of the sample. (unit: mm)

いことがわかる。ただし、印加磁界が約 0.1/μ₀ A/m 以上では、印加磁界を大きくして行く過程での磁化と、印加磁界を小さくしていく過程での磁化は、ほぼ等しくヒステリシスが無視できる程度に小さくなっていることから、得られた磁化曲線はメジャーループの一部であると見なすことができる。

次に、磁化曲線から、単位体積当たりの残留磁化、0.5/μ₀ A/m における磁化及び保磁力を求め、弾き出し損傷量との関係を調べた結果を図 7 に示す。なお、0.5/μ₀ A/m における磁化は、今回の測定の印加磁界範囲では飽和に至らなかったため、飽和磁化に対応する値として評価した。まず、図 7(a)を見ると、残留磁化はいずれの照射試料でも 0.1×10³ A/m 程度と小さく、また、弾き出し損傷量との相関は認められなかった。これまでに実施してきたフラックスゲートセンサを用いた漏えい磁束密度測定は、永久磁石による着磁後の残留磁化状態で行っていたことから、この結果は、約 2~5 dpa 以下の弾き出し損傷量の試験片で漏えい磁束密度変化が認められなかった結果と一致している。

一方、0.5/μ₀ A/m における磁化については、図 7(b) に示すように、照射炉や単独/組み合わせ照射及び組み合わせ照射の際の照射順序に依らず、弾き出し損傷量とともに増加することがわかった。飽和磁化も同様に、弾き出し損傷量に伴い増加していると予想される。この結果から、中性子照射により新たに磁性相が生成されているものと考えられる。

最後に、図 7(c)に、保磁力と弾き出し損傷量の関係を示す。保磁力についても、照射炉や単独/組み合わせ照射及び組み合わせ照射の際の照射順序に依らず、弾き出し損傷量とともに単調に減少することが明らかになった。一般に磁化率が大きくなると、保磁力が小さくなる傾向があることが知られている[6]。保磁力近傍での磁化率と保磁力の関係を図 8 に示す。この図から、弾き出し損傷に伴う保磁力の低下についても、磁化率の増加が一部影響していることがわかる。また、磁化

率の増加については、図 7(b)に示した結果から、弾き出し損傷により新たに磁性相が生成したことによるものであると考えられる。

なお、VSM を用いて磁化曲線を測定する場合、結果は、試験片内部の磁化  $M$  に起因する反磁界  $H_d$  の影響を受ける。すなわち、印加磁界を  $H_{ex}$ 、試験片内部での有効磁界を  $H_{eff}$  とすると、(1)式の関係が成り立つ。

$$H_{eff} = H_{ex} - H_d = H_{ex} - NM \quad (1)$$

ここで、 $N$  は試験片形状によって定まる反磁界係数である。(1)式より、内部磁化がゼロとなる磁界強度を表す保磁力以外の特性については、反磁界の影響を受けていることがわかる。したがって、値の比較を行う際には、試験片形状が一致していることに注意する必要がある。なお、反磁界の影響は磁化が大きいくらい大きいことから、図 7(b)に示した  $0.5/\mu_0$  A/m における磁化は、今後、反磁界の影響を考慮することにより、弾き出し損傷量による変化がより明確になる可能性があると考えられる。

以上の結果から、フラックスゲートセンサを用いた漏えい磁束密度測定による弾き出し損傷量評価について、低照射領域での適用性に課題が示された原因として、残留磁化状態で測定を実施していたことが挙げられること、また今回開発した遠隔操作式 VSM を用いて印加磁界中の磁化と保磁力を評価すれば、中性子スペクトルに依らずに、2 dpa 以下の低照射領域であっても弾き出し損傷量を評価できる可能性があることを示すことができた。

#### 4. 遠隔操作式 VSM を用いた弾き出し損傷量評価技術の提案

前節での検討により、今回開発した遠隔操作式 VSM を用いて得られる磁気特性のうち、磁界印加中磁化及び保磁力が、弾き出し損傷量と良い相関を持つことが明らかになった。このことから、遠隔操作式 VSM を用いた弾き出し損傷量評価技術として次のような方法が考えられる。

まず、サーベイランス試験片について、遠隔操作式 VSM を用いて磁化曲線を測定し、磁界印加中の磁化及び保磁力を評価する。次に、それぞれの特性と弾き出し損傷量の関係から、独立に弾き出し損傷量を評価する。最後に、両者を比較し、保守的な値を弾き出し損

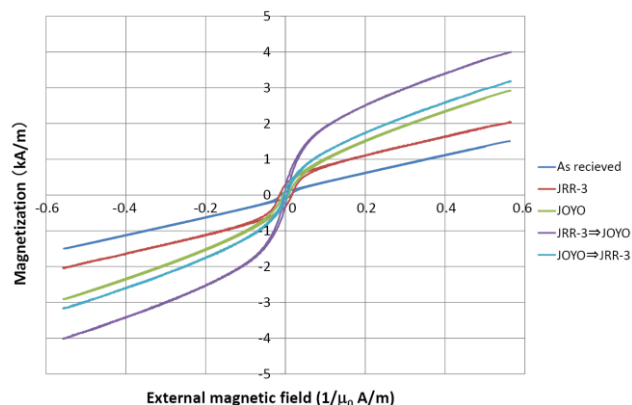


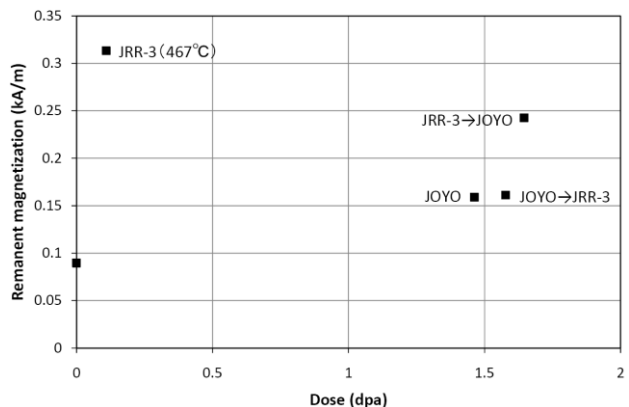
Fig. 6 Hysteresis loops of the neutron irradiated samples.

傷量の最終的な評価結果として採用する。二つの磁気特性を用いて評価することで、単一の磁気特性を用いた評価よりも信頼度の高い評価が可能になる。さらに、遠隔操作式 VSM の測定は比較的短時間で終わるため、複数の試験片について測定を実施すれば、より信頼性の高い評価が行えるものと期待される。また、遠隔操作式 VSM は非破壊測定であるため、測定後にサーベイランス試験片を原子炉内に戻すことができる。これにより、限られた試験片本数でもプラントの全寿命期間に渡って弾き出し損傷量を評価することが可能になり、また同一試験片を用いて繰り返し評価することで、材料に起因するばらつきなく弾き出し損傷量の経時変化を把握することが可能になる。

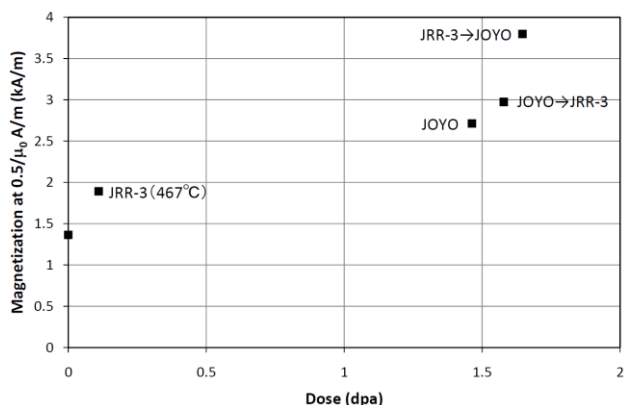
#### 5. 結言

実炉照射材の測定が可能な遠隔操作式 VSM を開発し、整備した。性能確認試験を実施した結果、仕様の性能を有していることを確認した。

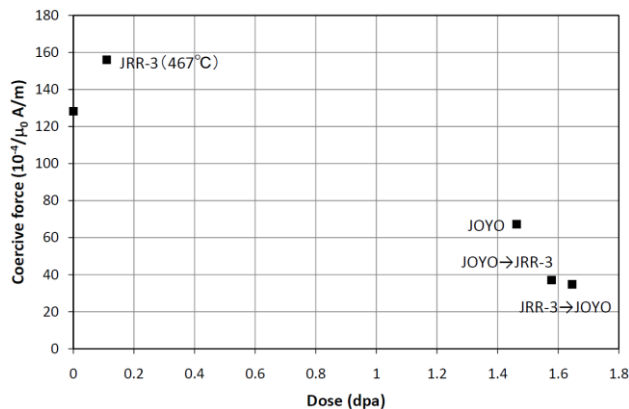
さらに、常陽と JRR-3 を用いて単独照射または組み合わせ照射を実施した SUS316 の磁化曲線を、遠隔操作式 VSM により測定し、得られた各種磁気特性と弾き出し損傷量の関係を検討した。その結果、約 2 dpa までの低照射量域において、残留磁化については弾き出し損傷量に伴う有意な変化は認められなかったが、磁界印加中磁化については弾き出し損傷量とともに増加すること、また保磁力については減少することが明らかになった。照射炉の違いによる影響は認められなかった。従って、遠隔操作式 VSM を用いて評価した磁界印加中磁化及び保磁力に基づき、中性子スペクトルに依らずに約 2 dpa 以下の弾き出し損傷量を評価できる可能性がある。



(a) Remanent magnetization



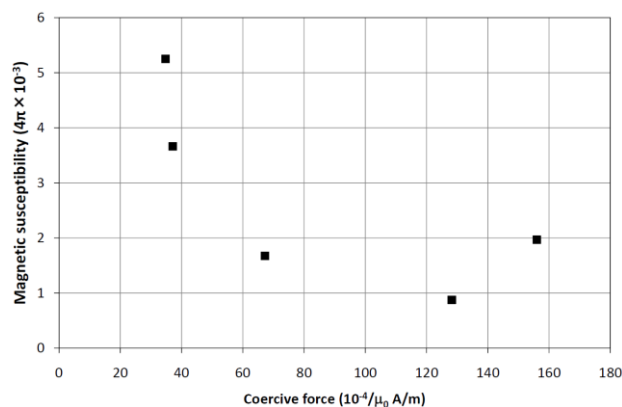
(b) Magnetization at 0.5/μ₀ A/m



(c) Coercive force

**Fig. 7 Relationships between dose and magnetic properties of the neutron irradiated samples.**

以上の知見に基づき、サーベイランス試験片を用いた弾き出し損傷量の非破壊評価技術を提案した。磁界印加中磁化及び保磁力の二つの磁気特性を用いて評価することで、単一の磁気特性を用いて評価した場合よりも信頼度の高い評価が可能になる。また非破壊測定であるために、限られた試験片本数でもプラントの全寿命期間に渡って弾き出し損傷量を評価することが可能になる。



**Fig. 8 Relationship between coercive force and magnetic susceptibility of the neutron irradiated samples.**

### 謝辞

本装置は東英工業株式会社に製作して頂いた。有益な助言を頂いた同社増田宏氏、佐藤真氏に感謝する。本報告の内容は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、独立行政法人日本原子力研究開発機構が実施した平成19年度及び平成20年度「長寿命プラント照射損傷管理技術の開発」の成果です。

### 参考文献

- [1] 宮地紀子、阿部康弘、浅山泰、青砥紀身、鶴飼重治、“ステンレス鋼の引張およびクリープ特性に及ぼす中性子照射効果”、材料、Vol. 46、No. 5 (1997) pp.500-505.
- [2] M.N. Gusev, O.P. Maksimkin, O.V. Tivanova, N.S. Silnaygina, F.A. Garner, “Correlation of yield stress and microhardness in 08Cr16Ni11Mo3 stainless steel irradiated to high dose in the BN-350 fast reactor”, J. Nucl. Mater. Vol. 359 (2006) pp.258-262.
- [3] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubusson, J.P. Massoud, X. Averty, “Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels: experimental investigation and modeling. Part II: Irradiation induced hardening”, J. Nucl. Mater. Vol. 326 (2004) pp.30-37.
- [4] S. Takaya, Y. Nagae, K. Aoto, I. Yamagata, S. Ichikawa, S. Konno, R. Ogawa, E. Wakai, “Nondestructive evaluation of neutron irradiation damage on austenitic stainless steels by measurement of magnetic flux density”, Proc. of the 17<sup>th</sup> international conference on nuclear engineering, Brussels, 2009, ICONE17-75215.
- [5] J.T. Stanley and L.E. Hendrickson, “Ferrite formation in neutron-irradiated austenitic stainless steel”, J. Nucl. Mater. 80 (1979) pp.69-78.
- [6] 近角聰信、強磁性体の物理（上）、裳華房（1978）  
(平成21年9月23日)

