

# 高経年化対策に必要な材料照射相関則の構築

## Establishment of the irradiation correlation rules of reactor materials towards the advanced plant life management

京大エネ理工研	森下 和功	Kazunori Morishita	Member
京大エネ科(院)	山本 泰功	Yasunori Yamamoto	Non-Member
京大エネ科(院)	泉 裕太	Yuta Izumi	Non-Member
京大原子炉(PD)	渡辺 淑之	Yoshiyuki Watanabe	Non-Member

Establishment of irradiation correlation rules is emphasized here to be realized for predicting material's behavior during irradiation precisely, which may play an important role to make the advanced plant life management of light water reactors, including the extensive maintenance technology for aged reactor pressure vessel (RPV) steels and for high burn-up fuels.

**Keywords:** radiation damage process of materials, multiscale modeling, irradiation correlation

### 1. はじめに

軽水炉高経年化対策のひとつに、原子炉压力容器鋼の中性子照射脆化対策がある。これは、中性子照射によって徐々に劣化する原子炉压力容器鋼に対する保全計画策定を意味するが、このとき必要になる技術課題が「照射下材料挙動の予測」である。要するに、放射能漏洩に対する第3の壁としての役割を今後も原子炉压力容器が担い続けるかどうかを科学的に合理的な方法で推定することである。あるいはまた、軽水炉燃料の高度利用においても、照射下材料挙動の予測技術が求められている。すなわち、今後燃焼度を高めていくことが想定される軽水炉燃料においては、これまでにない高燃焼度を経験してもなお健全であり、また、核的な性質だけでなく、燃料集合体という構造体としての機能も健全であり続ける必要がある。安全上、そうした健全性が、実際に高燃焼度を経験するよりも前に保証されない限り、燃焼度を上げることはできない。そのため、予測技術によって、高燃焼度にあっても材料の挙動が安全であることを事前に示す必要がある。

### 2. 照射下材料挙動予測

照射下材料挙動を予測する方法には、大きく分けると2つある。ひとつが「代替照射場」を使った方法である。これは、材料試験炉などのように、中性子束や中性子エネルギーが実際とは異なる照射場を利用する

方法である。例えば運転開始60年後の材料劣化の程度を知りたいとしても、実際の照射場を使ったのでは、材料照射データの取得に60年もかかってしまう。そこで、中性子エネルギーや中性子束の高い代替の「加速」照射場を使うことにより、60年よりも短い年数で材料照射データを取得する。しかしながら、こうした代替照射場を利用するには、「加速」照射の影響をいかに評価するか、また、代替照射のデータをもとに、実際の照射場での材料のふるまいをどのように予測するか、などの方法論を明らかにしておかねばならない。

照射下材料挙動のもうひとつの方法が、「モデリング&シミュレーション」を基盤とする方法である。前々回の学術講演会[1]でも報告したように、照射下材料挙動は時間的にも空間的にもマルチスケールな現象であり、その複雑さゆえに、現状では、計算機シミュレーションのみですべてを予測することは不可能である。

現行の原子炉压力容器鋼中性子照射脆化予測式[2]は、「モデリング&シミュレーション」技術をベースに、実機の压力容器鋼サーベイランス試験片データをもとに作成されている。「モデリング&シミュレーション」技術からの知見を利用することによって、科学的合理性を持たせるとともに、実機試験片データへのフィッティングによって、現実的な予測を行っている。今後の課題としては、既知の物理モデルしか予測式に織り込めないという点をいかに克服するかである。「いまだ明らかになっていない物理現象があるかもしれない」という点をいかに考慮するかが問題になる。

### 3. 照射相関則

#### 3-1 照射下材料挙動を予測とは？

こうした材料挙動予測の問題を考えると、そもそも

連絡先: 森下和功, 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄, 京都大学エネルギー理工学研究所, 電話: 0774-38-3477, E-mail: morishita@iae.kyoto-u.ac.jp

照射下材料挙動の経時変化をいかに整理すべきか？という課題（以下に述べる、いわゆる“横軸”の問題）に突きあたる。図1は2つの照射場AとBで得られた材料劣化の時間変化を模式的に示している。縦軸は材料の脆さなどに相当する。一般に、中性子束や中性子エネルギーなどが異なれば、材料劣化の進行具合も異なるので、図では、照射場Aと照射場Bの劣化の程度がそれぞれ重ならないように書いてある。例えば、照射場Bが実機の環境であり、照射場Aが加速照射（材料試験炉）の環境であるとする。実機（照射場B）での材料挙動の未来を知りたいのであるが、照射場Bを使い続けても、60年後の材料挙動は60年経過しないとわからない。そこで、照射場A（加速照射場）のデータを使って、照射場Bの材料挙動を図2のように予測したいと考える。果たして、そのためには、横軸としてどのようなパラメータ（照射関連パラメータ）を用いればよいか？

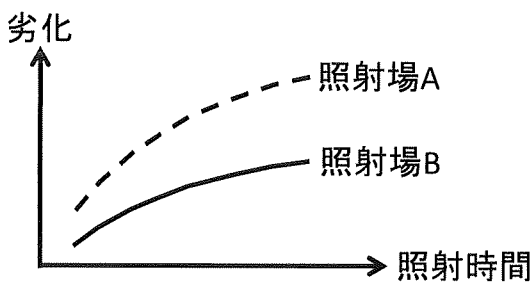


図1 材料照射劣化の経時年化の模式図

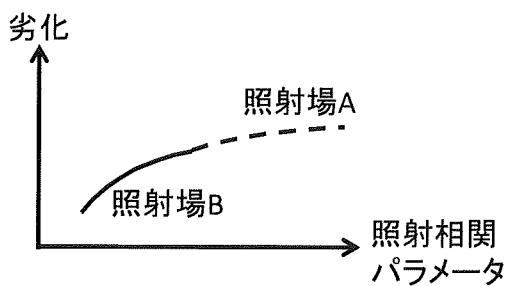


図2 加速照射場Aを使って、照射場Bの材料挙動を予測する。

現在、材料に対する照射量の単位として dpa (displacement per atom) が広く使われている。dpa は、もともとこうした照射関連パラメータとしての役割を持たされたものであった。しかしながら、一般的には、

必ずしも図2の理想形にはならず、図3のようなことが多くみられる。これでは、照射場Aのデータを使って照射場Bでの材料挙動を予測することはできない。同一 dpa で比べたとき、材料試験炉などの加速照射の方が実機よりも必ず劣化が進んでいるというのであれば、いわゆる「安全側の評価」が可能である。しかし、実際は逆の傾向が出ることも多く、もはや dpa は、当初の目的（照射関連パラメータ）を離れ、単なる「照射量のめやす」でしかなくなっている。

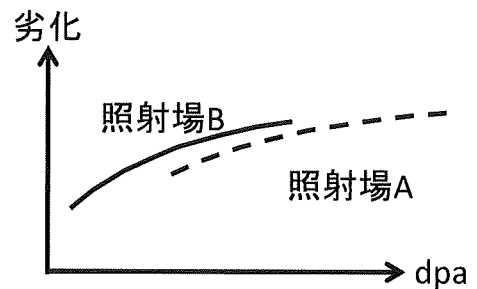


図3 照射場によって異なる損傷速度 dpa/s

### 3-2 そもそも dpa とは？

照射量単位 dpa は、次式によって評価される。

$$dpa = \iiint \phi(E, t) \cdot \frac{d\sigma(E, E_p)}{dE_p} \cdot \nu(E_p) dE_p dE dt \quad (1)$$

ここで、 $\phi$  は入射エネルギー  $E$  の中性子フラックス、 $d\sigma/dE_p$  は、エネルギー  $E$  の中性子がエネルギー  $E_p$  の原子（材料内の標的原子）をはじき出す確率（微分散乱断面積）、 $\nu$  はエネルギー  $E_p$  の一次はじき出し原子の影響によって生成される全はじき出し原子数である。中性子フラックスが時間にあまり依存しない場合は、式(1)は、

$$dpa/s = \iint \phi(E) \cdot \frac{d\sigma(E, E_p)}{dE_p} \cdot \nu(E_p) dE_p dE \quad (2)$$

のようになる。ただし、式(1)の両辺を照射時間で割っている。

式(2)には、照射場特有の中性子束や中性子エネルギーの情報が含まれているので、照射場固有の「単位時間あたりのはじき出し原子生成能力」を表すと考える

ことができる。要するに、照射場をスカラー量で定量化した、一種の指標である。その評価に関与する原子はじき出し現象は、ピコ秒程度の時定数をもつ現象である。

### 3-3 照射劣化を決めるのは？

次式(3)は、照射によって形成する格子欠陥濃度の時間変化を表す反応速度式である。例として、原子空孔濃度の場合を示した。

$$\frac{dC_V}{dt} = P - DV^2C_V - RC_V - KC_V \quad (3)$$

右辺第1項  $P$  は、欠陥生成率で、上述の dpa/s (照射場を定量化した指標) が相当する。右辺第2項は拡散項、第3項は消滅項、第4項は欠陥集合体形成項である。要するに、中性子の照射によって材料中に生成したはじき出し欠陥は、材料中を拡散し、時に消滅(再結合やシンク消滅)しながら、集合体を形成していく。右辺第1項がピコ秒程度の現象を反映しているのに対し、右辺第4項はマイクロ秒とかミリ秒以上の時定数をもつ現象である。また、これまで材料劣化と言ってきたのは、照射によって引き起こされる材料マイクロ構造変化、すなわち、右辺第4項に起因する現象である。要するに、「照射による材料劣化を dpa で整理する」とは、ピコ秒の現象(右辺第1項の  $P$ ) を指標として、ミリ秒以上のマイクロ組織変化(右辺第4項)を表現していることにほかならない。

### 3-4 照射相関

前節では、普段照射劣化指標として使われる dpa と、照射による材料劣化との間の理論上の関係性を明らかにした。

両者がいつも線形関係にあれば、dpa は定量性にも優れた劣化指標ということもできるのであるが、必ずしもそうした関係があるわけではない。また、両者がいつも同じ非線形関係にあるのであれば、定量性は劣るものの、dpa を指標として材料劣化を整理することは可能である。しかしながら実際は、照射条件などによって両者の関係性は大きく異なり、そのため、図3に示したように、異なる照射場のデータ(材料試験炉などの照射場 A) から必要とする照射場(実機の照射場 B) での材料挙動を予測することは、dpa をベースとする

限り、一般には困難である。

図3に示したように、照射場固有の指標 dpa/s に応じて、材料劣化の dpa 依存性が異なることを、一般に、材料劣化の「損傷速度依存性」などと呼ぶが、上述の理論的立場から言うと、dpa を指標に選んだからこそ、そうした依存性が出現したにすぎないのである。

以上要するに、dpa をあらゆる条件下で適用可能な材料劣化指標とすることはかなり困難である。しかしながら、そうした結論では元も子もないので、今後の照射相関を考える上でもやはり、dpa を基軸にした照射相関則の構築が求められることになろう。それほど dpa は浸透していると思われるからである。

もちろん、こうした議論を重ねると、右辺第1項に基づく dpa ではなく、右辺第4項に基づくパラメータを劣化指標にすればよいという意見もあるだろう。しかしながらそれは、照射によるマイクロ構造変化を理論的にびたりと予測することに他ならないのであって、上述したように材料照射損傷の時間的空間的マルチスケール性の複雑さや材料本来の構造上の複雑さを考えると、それは現状不可能に近い。やはり、dpa をベースにすることの方が、現時点では現実的と言えよう。

### 3-5 dpa/s が材料劣化に与える影響(感度解析)

そこで、上記の反応速度式(3)において、右辺第4項(欠陥集合体形成項)の右辺第1項( $P$ , dpa/s)に対する依存性がいかほどのものであるかの評価(感度解析)を行う。照射場(すなわち、dpa/s の値)が異なると、どれほどマイクロ組織変化(=材料特性劣化の要因)に違いが現れるかを調べるのである。

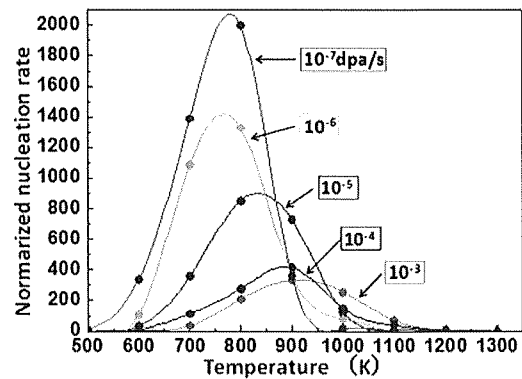


図4 照射によるボイド核発生率の dpa/s 依存性

図4は、照射によってボイド核が発生する率を dpa/s の関数で示したものである。ここでボイドとは、材料内の原子空孔の3次元集合体を指す。これは、照射材料のスエリングや機械特性劣化の要因である。また、本計算結果は、照射損傷プロセスのマルチスケール性を考慮しつつ、モンテカルロ法と反応速度論解析を組合せて求めたものである[3]。もし dpa が上述の「照射相関パラメータ」としてふさわしいものであるなら、図4のそれぞれの曲線は、dpa/s の値に依らずぴったりと一致する。そうなれば、どのような照射場 (dpa/s によって指標化されている) を使っても dpa の値さえ合わせておけば、材料劣化は同じと言えるのである。しかしながら実際は図4のとおりになっている。

照射相関構築のためには、さらなる解析が必要である。

#### 4. まとめ

軽水炉の高経年化に必要な材料挙動予測技術ならびに照射相関について議論した。照射相関則を構築するにはさらなる検討が必要である。また、そのためには、時間的にも空間的にもマルチスケールな視点で材料劣化をモデル化することが必須である。

#### 参考文献

- [1] 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 渡辺淑之, 日本保全学会第6回学術講演会講演要旨, pp. 166-171
- [2] 日本電気協会規格「原子炉構造材の監視試験方法」(JEAC4201-2007)
- [3] 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 泉 裕太, 渡辺淑之, 日本保全学会第7回学術講演会 要旨集, pp. 515-516