

米国高速炉廃材を用いた照射下ミクロ組織の非破壊検査技術開発 (1) 実験的検討

Development of non-destructive inspection technique for microstructures
under irradiation using decommissioned materials
(1) An experimental approach

原子燃料工業株式会社	匂坂	充行	Mitsuyuki SAGISAKA	Member
原子燃料工業株式会社	江藤	淳二	Junji ETOH	Member
原子燃料工業株式会社	松永	嵩	Takashi MATSUNAGA	Member
原子燃料工業株式会社	枝川	文哉	Humiya EDAGAWA	
原子燃料工業株式会社	磯部	仁博	Yoshihiro ISOBE	Member
東京大学	沖田	泰良	Taira OKITA	Member

Abstract

Development of methods of detecting degradation of irradiated reactor structural materials is required for successful operation of nuclear power plants. Ultrasonic waves, currently used as a non-destructive technique to detect cracks, change as a result of interacting with microstructural components and can be employed to measure radiation-induced changes in microstructure. Bulk-averaged measurements of microstructural changes can be determined using ultrasonic velocity, attenuation and back-wall echo, while backscattering echoes can provide information on the depth-dependent profiles of microstructural changes. The result of quantitative evaluation of the relationship between the microstructure and the ultrasonic signal have a good agreement between ultrasonic measurements and the spatial variations in density changes, as well as swelling arising from microscopy-observed voids and carbides.

Keywords: non-destructive inspection, ultrasonic, irradiation damage, microstructure, backscatter, structural material, fast reactor

1. 緒言

高速炉材料として使用されるオーステナイト系ステンレス鋼では、中性子照射による照射硬化、延性低下などの材料劣化が構造物の重要な寿命制限因子の一つであることから、照射によるミクロ組織変化を定量的に評価することは、炉内構造物の健全性及び余寿命評価を行う上で重要である^[1]。

これまで原子力プラントなどの健全性評価のために、超音波法をはじめ各種の非破壊的検査手法が適用されてきた。特に、超音波法は、き裂などのマクロな欠陥を検出することを目的とした適用例は多い。しかし、照射劣化の要因であるボイドの発生や炭化物の析出などのミクロ組織変化を非破壊で定量的に評価する手法の開発が課題であった。また、ミクロ組織変化の定量は、材料劣化の初期の段階から損傷量を検出できる可能性があるため、余寿命の予測精度を向上させ、構造物の信頼性向上に資することが期待される。

本研究開発では、米国高速実験炉である EBR-II の廃材を用いて、構造材の照射による材料劣化を検出する手法として、劣化の要因であるボイドや炭化物のようなミクロレベルの組織変化を検出する非破壊検査技術の開発を行った。具体的には、超音波の音速、底面波の解析による構造物の平均的なミクロ組織の定量評価技術、及び、後方散乱波の解析による構造物深さ方向のミクロ組織分布の定量評価技術の開発を行った。

本報では、まず EBR-II 廃材の照射環境について調査した結果を述べた後、中性子照射下で形成するボイド、炭化物などミクロ組織と超音波信号との関係を明らかにするために実施したミクロ組織観察及び超音波試験について述べる。最後に、超音波信号と照射下ミクロ組織の関係について、実験的に検討を行った。

2. 非破壊検査技術開発

2.1 EBR-II 廃材の概要

本技術開発で用いる照射された試験体である EBR-II 廃材（以下、照射ブロック材と呼ぶ）の概要について述べる。照射ブロック材は、米国高速実験炉 EBR-II

連絡先: 匂坂充行、〒590-0451 大阪府泉南郡熊取町
朝代西1-950、原子燃料工業株式会社
E-mail: sagisaka@nfi.co.jp

(Experimental Breeder Reactor -II) の炉心サブアセンブリー内で反射材として用いられていた構造材 U9807 を構成していた、六角柱形状の部品である。EBR-II は、アイダホ州アイダホフォールズに建設された電気出力 20MW のナトリウム冷却炉であり、1963 年に臨界に達し、1994 年まで運用された。

EBR-II 炉内の模式図を Fig.1 に示す。U9807 は 5 体の六角柱形状のブロック材とブロック材を格納するラッパー管により構成されている。ブロック材の外観を Fig.2 に示す。ブロック材及びラッパー管はいずれも同一組成の SUS304 により製作された。U9807 は 12 年以上の期間 EBR-II の内部で照射を受けており、構造材内部ではマイクロ組織変化が生じ、材料劣化が進行していることが予想された。

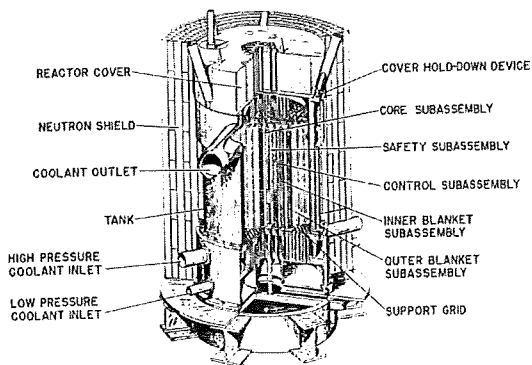


Fig.1 Schematic diagram of the EBR-II reactor

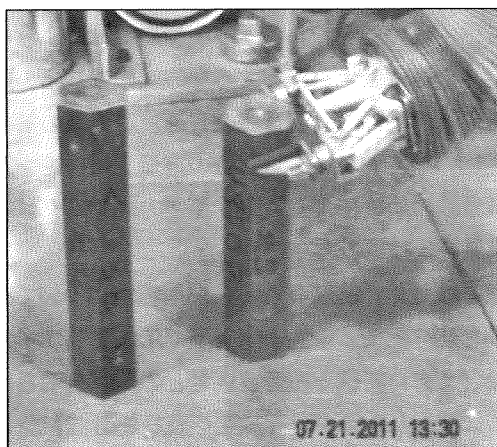


Fig.2 Appearance of irradiated Block materials

2003 年にアルゴンヌ国立研究所においてブロック材が U9807 から取り出され、炉心下部に位置していたブロック材から順に、Block1~Block5 までの番号が付けられた^[2]。EBR-II の炉心高さ位置と各ブロック材の配置の概略図を Fig.3 に示す。

本研究開発で用いる照射ブロック材は Block 3 と

Block5 であり、Block3 は、炉心に最も近い高さに設置していたものであり、Block5 は炉心より高い位置に設置されていたものである。

Block3 及びBlock5 の照射条件について詳細調査を実施し、照射温度、照射量、照射履歴、寸法変化等の情報を整理した。調査結果のうち、ラッパー管の軸方向における照射温度、照射量をそれぞれFig.4及びFig.5に示し^[3-4]、調査結果のまとめを Table.1 に示した。

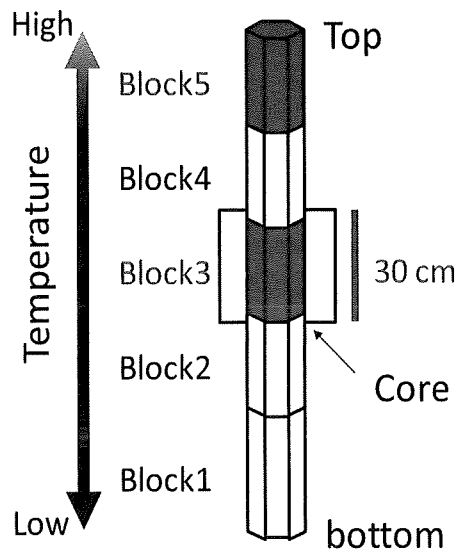


Fig.3 Schematic view of core height and Block positions

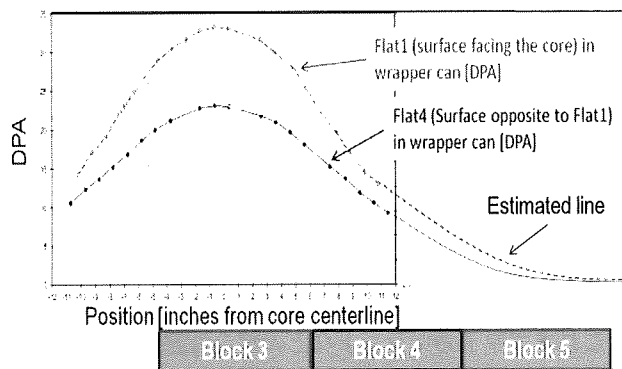


Fig.4 Dose distribution of irradiated Block materials

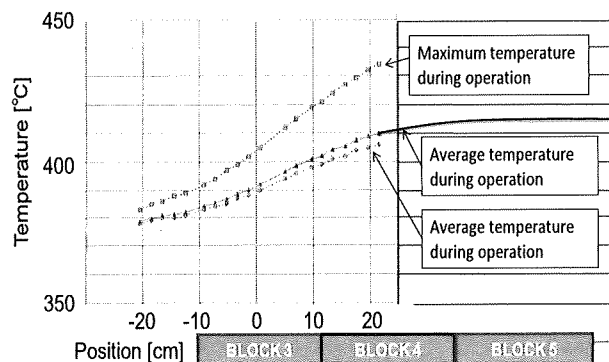


Fig.5 Temperature distribution of irradiated Block materials

Table.1 Summary of investigation of Block

Block ID	Block 3	Block 5
Face to face thickness [mm]	52.37	52.37
longitudinal length [mm]	243.28	217.5
Irradiation dose	Flat1: 26 - 33	0 - 5
	Flat4: 20 - 23	(Estimated value)
Average temperature [°C]	370~410	415 (Estimated value)

2.2 ミクロ組織観察

照射ブロック材に対する詳細試験として、ミクロ組織観察を実施することにより、超音波信号とミクロ組織との関係について検討が可能になる。特に、本照射ブロックは面間距離が 50 mm 程度あり、照射量や温度勾配など、複合的かつ経年変化する環境下で使用されていたため、照射ブロック材内部方向（以下、深さ方向と記載）においても、照射下ミクロ組織が偏在する可能性がある。したがって、照射ブロック材の深さ方向にミクロ組織観察を行った。

ミクロ組織観察を行うための照射ブロック材切り出し箇所の概略図を Fig.6 に示す。なお、後述する超音波試験にも用いる切り出し材（以後、スライス材と記載）の識別番号も記載する。

Fig.6 のように、Block3 のスライス材は、原子炉下部方向からそれぞれ 3A~3E と識別番号を振った。同様に、

Block5 のスライス材は、原子炉下部方向からそれぞれ 5A~5D と識別番号を振った。

Block3 のスライス材のうち、3E、3D は最も照射量が高く、Fig.4 からわかるように、炉心に向いた面と反対の面で照射量の違いがあることから、照射ブロック材内部に照射下ミクロ組織分布は均一ではない可能性がある。したがって、3E、3D は 1 面から 12.5 mm、25 mm、37.5 mm の深さで、ミクロ組織観察を行った。Block5 のスライス材は、0~5 dpa 程度の照射量が予測されているため、5A、5B は 12.5 mm、25 mm の深さで、5C、5D は 25 mm の深さで、それぞれミクロ組織観察を行った。

ミクロ組織観察の定量結果は、Table.2 に記載した。Table.2 より、炭化物の析出量は、Block3 と Block5 においても、また深さ方向においてもほぼ同等の値となり、深さ方向にほとんど分布が見られなかった。

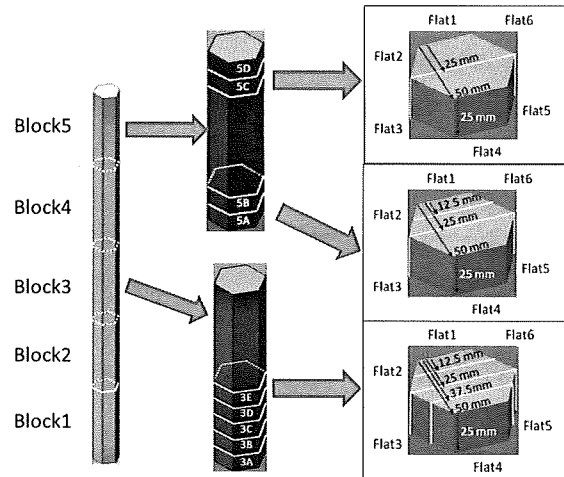


Fig.6 Process of Cut out of irradiated Slice materials

Table.2 Summary of microstructural observations for the investigated blocks

Slice material ID	depth form Flat1	carbide			void		
		volume ratio [%]	number density [m-3]	diameter [nm]	volume ratio [%]	number density [m-3]	diameter [nm]
3E	12.5	0.46	7.1E+20	14	1.84	2.2E+21	20
	25	0.44	9.1E+20	15	2.76	2.6E+21	22
	37.5	0.52	1.1E+21	16	1.95	2.9E+21	20
3D	12.5	0.13	7.1E+20	14	1.18	2.3E+21	18
	25	0.50	9.1E+20	15	2.94	1.7E+21	28
	37.5	0.73	1.1E+21	16	2.08	3.2E+21	23
5A	12.5	0.34	1.2E+21	10	0.52	8.0E+20	19
	25	0.31	6.4E+20	12	0.47	8.0E+20	18
5B	12.5	0.32	1.2E+21	10	0.31	4.6E+20	19
	25	0.39	6.4E+20	12	0.47	5.9E+20	21
5C	12.5	0.40	6.3E+20	13	0.29	4.2E+20	18
5D	25	0.48	6.3E+20	13	0.23	3.0E+20	17

一方、ボイドの発生量は、照射量に比例して Block3 のスライス材の方が大きくなっている。また、3E、3D の深さ方向においては、ボイド分布が中心付近で最大となる分布となっていることが分かる (Fig.7)。この結果は、 γ 熱によって照射ブロック材内部に温度分布が生じており、中心付近でボイドの発生が促進された可能性を示唆している。

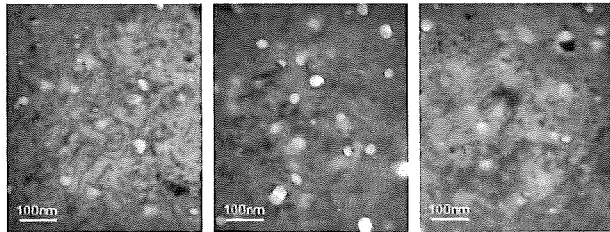


Fig.7 Microstructure observation in the depth direction of the 3D (right: 12.5 mm, center: 25 mm, left: 37.5 mm)

2.3 超音波測定試験

2.3.1 超音波音速解析

照射材中の超音波の音速は、ボイドの発生により低下し、炭化物の析出により上昇することが知られている^[9]。そこで本項では、超音波測定の音速解析について述べる。

まず、照射量が比較的高い Block3 の 1 面から測定した超音波音速結果を Fig.7 に示す。Fig.7 より、全体的に Block3 の超音波音速は、未照射材の音速である 5745 m/s より遅い結果となっており、炭化物の析出よりボイドの発生が主であることを示している。また、音速が遅い領域が 5、6 面側に偏っていることから、5、6 面側が炉心に向いていたと推測される。

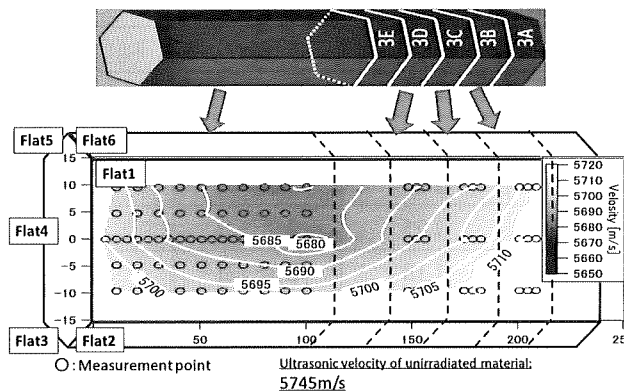


Fig.7 Ultrasonic velocity of Block3

次に照射ブロック内部の音速分布について、スライス材の切断面より測定した結果を示す。3D、3B、5C の切断面の音速分布を Fig.9、Fig.10、Fig.11 に示す。

3D の音速分布は、スライス材中心に音速の遅い領域が

集中していることから、ボイドが中心付近に集中して発生していることがわかり、この結果は TEM 観察の結果と整合している。

3B の音速分布も、スライス材中心に音速の遅い領域が集中しているが、3D と比較するとその変化の割合は小さい。

5C の音速分布は、スライス材内部において大きな変化は見られないが、未照射材の音速と比較して音速が 0.3% 程度高くなっていることがわかる。この音速変化から、Block5 ではボイドの発生より炭化物の析出のほうが超音波音速に影響を及ぼしていることがわかる。

以上の結果より、本実験は超音波音速とマイクロ組織について定性的な関係を捉えていることがわかる。しかし、得られた音速分布は、ボイド、炭化物などのマイクロ組織の影響を含んだ分布となっており、個々のマイクロ組織の分布を定量的に評価したものではない。したがって、2.4 節では超音波音速測定結果とマイクロ組織観察結果の定量的な関係についてさらに詳しく述べる。

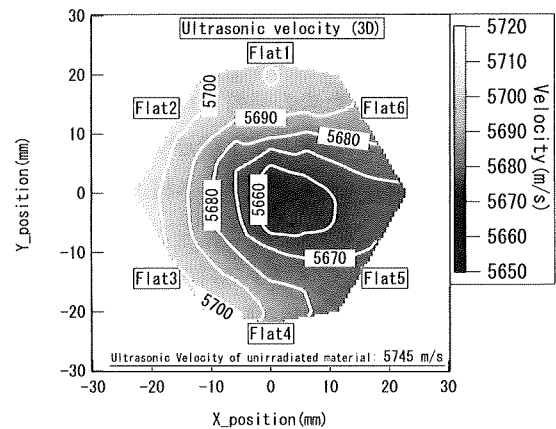


Fig.9 Ultrasonic velocity between the cutting plane (3D)

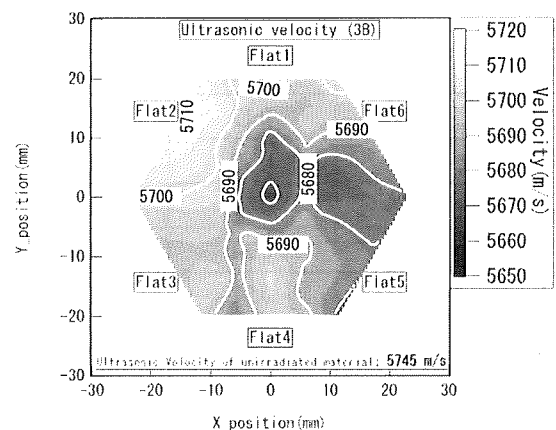


Fig.10 Ultrasonic velocity between the cutting plane (3B)

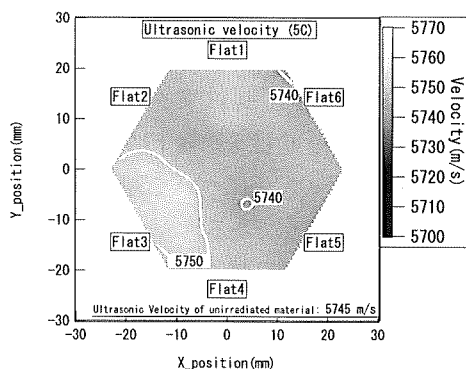


Fig.11 Ultrasonic velocity between the cutting plane (5C)

2.3.2 後方散乱波解析

照射材中の超音波は、中性子照射により生じたボイドなどによって散乱され、後方散乱波として検出される。その信号の変化を捉えることにより、照射ブロック材内部のマイクロ組織変化分布を検出できる可能性がある。そこで、本項では、後方散乱波解析について述べる。

まず、後方散乱波の解析手法について述べる。例として、後方散乱波の超音波信号を Fig.12 に示す。後方散乱波の変化は非常に微小な変化であり、周波数に依存するため、信号の微小変化を周波数ごとに捉えるために、FFT解析を行った。また、深さ方向の変化を捉えるため、FFT解析範囲 (12 mm) を深さ方向に移動させながら、深さごとの後方散乱波の周波数分布を得た (Fig.13)。この周波数分布のうち、6-9 MHz 間の信号強度を積分した値を後方散乱波の積分強度と定義し、深さ 18 mm の位置で規格化した値を積分強度比とした。

以上の解析手法により、スライス材 3D と 3B について後方散乱波の積分強度比を算出した (Fig.13)。Fig.13 より、スライス材の中心である 25 ~ 30 mm 付近において、3B より 3D の積分強度比が大きく変化していることが分かる。音速測定結果より、3D は 3B に比べてボイドの分布が急になっていることから、このような変化が生じたものと考えられる。

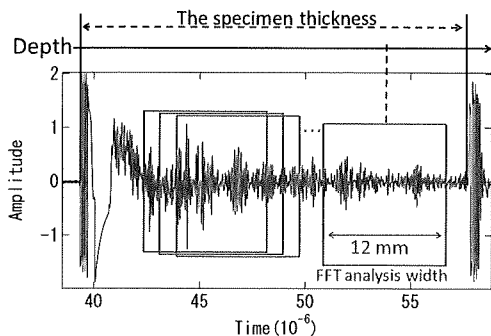


Fig.12 Schematic diagram of the analysis of backscatter

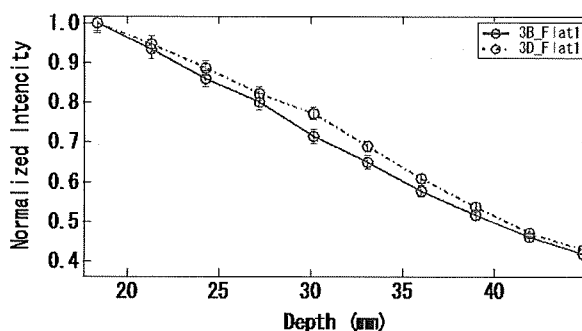


Fig.13 Normalized intensity of the backscatter (measurement from flat1 in 3B and 3D)

2.4 照射下マイクロ組織の定量手法

マイクロ組織変化と超音波信号との定量的な関係を明らかにする上では、ボイド発生、炭化物析出が材料特性に及ぼす影響を把握する必要がある。特に照射下マイクロ組織と密接に関連している材料特性は、密度及び縦弾性係数である。密度と照射下マイクロ組織の関係は、ボイドの発生によって密度は減少し、炭化物の析出によって密度は増加することが知られている⁶⁾。しかしながら、炭化物とボイドが共存する照射環境下において、炭化物析出による影響を含めた照射下マイクロ組織と縦弾性定数の関係を定量的に扱った研究は少ない。

そこで本節では、マイクロ組織観察の定量結果と超音波音速測定結果を用いて、マイクロ組織変化と材料特性との定量的な関係を導出する。超音波音速と材料特性の関係を式(1)に示す。

$$V = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}} \quad (1)$$

E : 材料の縦弾性係数, ρ : 密度, ν : ポアソン比

まず、マイクロ組織変化と密度の関係について述べる。ボイドの発生による密度の減少は明らかであるが、炭化物析出による密度の上昇は、Spitznagel らは固溶炭素がマトリックスから抜け出ることによって母材の格子間定数の減少し、密度が上昇すると理論的に評価している⁷⁾。照射下マイクロ組織と密度の関係を式(2)に示す。

$$\rho = \rho_0(1 - s + 0.33c) \quad (2)$$

s : ボイド体積率 c : 炭化物体積率 ρ_0 : 初期密度

次にマイクロ組織変化と縦弾性係数について述べる。縦弾性係数はボイドの発生により減少し、炭化物の析出により増加することが知られているが、定量的に評価した研究は少ない。

そこで、マイクロ組織変化と縦弾性係数の関係を式(3)のように定義し、超音波測定とミク

ロ組織の定量結果を基に関係式を明らかにした。

$$E(s, c) = (1 - As + Bc)E_0 \quad (3)$$

s: ボイド体積率 c: 炭化物体積率 E_0 : 初期縦弾性係数
 ミクロ組織観察結果と超音波測定結果のまとめを Table.3 に記載する。なお、ミクロ組織の定量結果は、スライス材ごとに平均値を用いており、超音波音速は1-4面間の音速測定結果を用いた。Table.3 の値を基に重回帰分析を行い、式(3)の係数を算出結果、式(4)を導出した。

Table.3 Quantitative results of the microstructure and measurement results of ultrasonic velocity

Slice material ID	volume ratio of void [%]	volume ratio of carbide [%]	Ultrasonic velocity [m/s]
5D	0.23	0.48	5773
5C	0.29	0.40	5774
5B	0.39	0.36	5763
5A	0.50	0.32	5759
3D	2.07	0.45	5696
3E	2.18	0.47	5691

$$V = \sqrt{\frac{(1 - 2.5s + 3.5c)E_0(1 - \nu)}{(1 - s + 0.33c)\rho_0(1 + \nu)(1 - 2\nu)}} \quad (4)$$

式(4)の妥当性確認として、3D 及び 3E の深さ方向のボイド分布評価を行う。各スライス材は、炭化物体積率はほぼ一様であり、ボイド体積率は深さ方向に分布を持っていることが分かっている。そこで、炭化物体積率を一定 (0.4%) と仮定し、3D の断面における音速測定結果と式(4)を用いて、ボイド分布を算出し、TEM 観察から得られたボイド分布との比較を行った。なお、TEM 観察結果は、3D と 3E の定量結果の平均値を用いた。

算出したボイド分布と TEM 観察結果を Fig.14 に示す。ミクロ組織における局所的なバラつきを考慮すれば、断面の音速測定も TEM 観察結果と概ね一致する結果を示し、相違は0.5%以下であった。また、密度測定結果との比較において相違は0.3%以下であった。

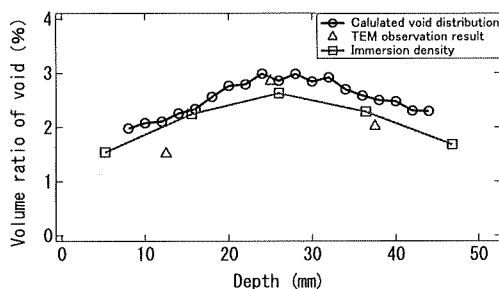


Fig.14 Calculation and measurement of void distribution

3. 結言

本報では、EBR-II 廃材を用いてミクロ組織観察並びに超音波測定試験を行い、中性子照射下におけるミクロな組織変化と超音波信号の関係について実験的検討を行った。その成果は以下の3点である。

- ・ 後方散乱波の解析から、構造物内部の照射下ミクロ組織分布を定量評価し得る可能性が示された。
- ・ 超音波音速の解析による構造物の平均的な照射下ミクロ組織の定量評価技術を開発した。
- ・ 本手法は炉内構造物に対して、全体的な照射劣化状況を把握するスクリーニング検査として、適用可能であると考えられる。

謝辞

本研究は、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において得られた成果の一部であり、ここに謝意を表します。

参考文献

- [1] 吉武庸光, 赤坂尚昭, 堂野前貴子, 宮川俊一他, “12%冷間加工 316 ステンレス鋼の炉内照射損傷に及ぼす低はじき出し損傷速度の影響”, サイクル機構技報 No10 2001. 3
- [2] EBR-II REFLECTOR HEX BLOCK MEASUREMENT, Battele Memorandum No. 8121, 2003.
- [3] F. A. Garner, C. A. Black, D. J. Edwards, J. Nucl. Mater. 245 (1997) 124.
- [4] F. A. Garner et. al. , , International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems
- [5] 鈴木誠也他, “SUS304 のクリープ変形に伴う超音波速度変化”, 日本材料学会, 22, 108
- [6] J. L. Straalsund and C. K. Day, “Effect of Neutron Irradiation on the Elastic Constants of Type-304 Stainless Steel,” Nucl. Tech., 20 (1973) 27.
- [7] J. A. SPITZNAGEL AND R. STICKLER, Correlation Between Precipitation Reactions and Bulk Density Changes in Type 18-12 Austenitic Stainless Steels, Metallurgical Transactions Volume 5, JUNE 1974

(平成 24 年 7 月 25 日)