

オーステナイト系ステンレス鋼照射ブロック材を用いた照射下マイクロ組織の非破壊検査技術開発

Development of non-destructive inspection technique for microstructures under irradiation using austenitic stainless steel blocks

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	匂坂 充行	Mitsuyuki SAGISAKA	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	磯部 仁博	Yoshihiro ISOBE	Member
Radiation Effects Consulting	フランク ガーナー	Frank GARNER	
東京大学	沖田 泰良	Taira OKITA	Member

Abstract

Ultrasonic testing was conducted on two long (218-245 mm), Type 304 stainless steel blocks with a hexagonal cross-section (50 mm face-to-face thickness) that were removed from the reflector region of the decommissioned EBR-II reactor. Ultrasonic testing is one of the widely used non-destructive testing techniques for material characterization. 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. 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. These results clearly demonstrate that ultrasonic techniques can be used to nondestructively measure the microstructures across a thick component.

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

1. 緒言

高速炉の炉心構造材料として使用されるオーステナイト系ステンレス鋼は、長期間にわたり高温環境下で中性子の照射を受けると、照射中に生成される原子空孔の集合によりボイドスエリングを生じ、材料の寸法変化や劣化を引き起こすことはよく知られており、過大なスエリングが発生すれば変形や応力腐食割れなどの影響が現れる可能性がある¹⁾。従って、中性子照射によって生じるボイドなどのマイクロ組織変化を定量的に評価することは、炉心構造材料の健全性及び余寿命評価を行う上で重要な課題であり、構造材料の信頼性の向上に資する非破壊検査技術の開発が期待される。

超音波法は材料内部の欠陥や損傷を非破壊で評価できる手法として原子力プラントなどにおいて適用例は多く、き裂などの比較的マクロな欠陥の検出に利用されている。しかし、中性子照射によって材料内部に発生したボイド

などのマイクロ組織変化を非破壊で定量的に評価することが課題であった。

本研究では、超音波を用いて照射による構造材料内部のマイクロ組織変化を定量的に評価する非破壊検査技術の開発を行った。具体的には、米国高速実験炉である EBR-II(Experimental Breeder Reactor -II)において反射材として供されてきたオーステナイト系ステンレス鋼照射ブロック材に対して超音波試験を実施し、材料内部に発生したマイクロ組織変化を非破壊で定量的に評価した。また、密度測定及び透過型電子顕微鏡により組織観察を実施し、超音波試験によるマイクロ組織の定量性について評価した。

2. 試験方法

2.1 供試材

本研究で用いた供試材は、米国高速実験炉 EBR-II にて反射材として供されてきた 304 ステンレス鋼冷間加工材である。Table 1. に未照射材の化学成分を示す。

供試材は、EBR-II 炉心第 8 列で 4 年間照射され、その後第 16 列に移動された集合体 U9807 を構成していたブロ

ック材である。U9807 はブロック材を格納するラッパー管及び 5 体の六角形状のブロック材で構成されており、炉心下部に位置していたブロック材から順に、Block 1～Block 5 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. 1 に示す。これら照射ブロック材は、軸位置に依存して照射温度範囲 370～420°C で照射され、損傷量は最大 33dpa であった^[3,4]。また、Fig. 2 の面毎の照射量のグラフから、照射ブロック材の 3, 6 面はほとんど照射量に差がないことから炉心コアに対して同じ向きをしていたと考えられる。本研究では照射温度、照射量に基づいて、最もコアに近く照射量が大きい Block3 を選定し、マイクロ組織の定量を実施した。選定した照射ブロック材の詳細を Table 2. に示す。

Table 1. Chemical composition of the archive material (wt %).

Alloy	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe
Type 304	0.056	0.43	1.57	0.027	0.03	881	19.26	Balance

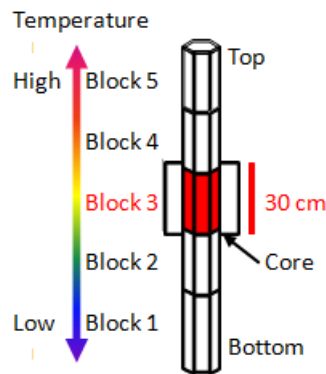


Figure 1. Schematic diagram of block stacking position with respect to core height.

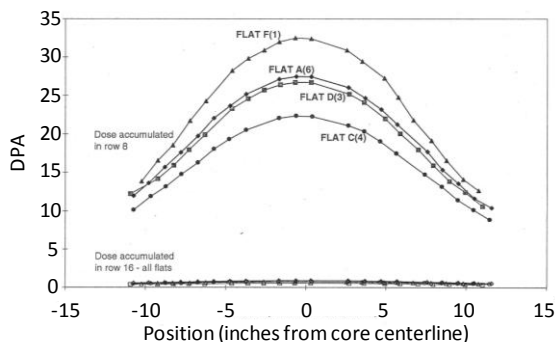


Figure 2. Calculated dose distribution for four faces of U9807 hex-duct for axial height range of Block 3.

Table 2. Summary of investigation of Block

Block ID	Block 3
Face to face thickness [mm]	52.37
longitudinal length [mm]	243.28
Irradiation dose	Flat1: 26 - 33
	Flat4: 20 - 23
Average temperature [°C]	370 ~ 410

2.2 超音波試験

超音波試験は、米国 Westinghouse のホットセルにて実施し、中心周波数 10MHz の超音波プローブを用いて水浸法にて測定を行った。測定では、材料への超音波の入射角度を遠隔で操作可能なゴニオメータを用い、入射角を $\pm 0.004^\circ$ で制御した。また、材料の測定位置を遠隔で制御可能な XY ステージを用いて、0.1 mm 以下の精度で測定した。超音波試験は、まず照射ブロック材の側面から軸方向に測定した。その後、照射量が大きな部分から厚さ 25 mm のコイン材を切り出し、深さ方向の分布を定量評価するために切り出した断面から測定を実施した。

2.3 密度測定及びマイクロ組織観察

米国 Westinghouse のホットセルにて、照射ブロック材に対して密度測定及びマイクロ組織観察を実施した。まず密度測定は、液浸法にて測定を行い、照射ブロック材から軸方向に厚さ 25 mm のコイン材を切り出し、合計 5 試料について密度測定を行った。密度測定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. 3 に示す。Block 3 から切り出したコイン材は、原子炉下部方向からそれぞれ 3A～3E と識別番号を振った。次に、軸方向における密度測定及び超音波試験結果から、深さ方向に密度測定を行う試料を選定し、厚さ 10 mm の 5 試料を深さ方向に切り出して密度測定を行った。

マイクロ組織観察は、Philips CM30 透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて、加速電圧 250 keV で測定を行った。TEM 観察用試料は密度測定に用いた試料から直径 3mm のディスクを深さ方向に 3 箇所打ち抜いて作製した。密度測定及びコイン材断面における超音波試験結果から、コイン材 3D、3E に対して 1 面から深さ 12.5mm、25mm、37.5mm の 3 深さでマイクロ組織観察を行った。

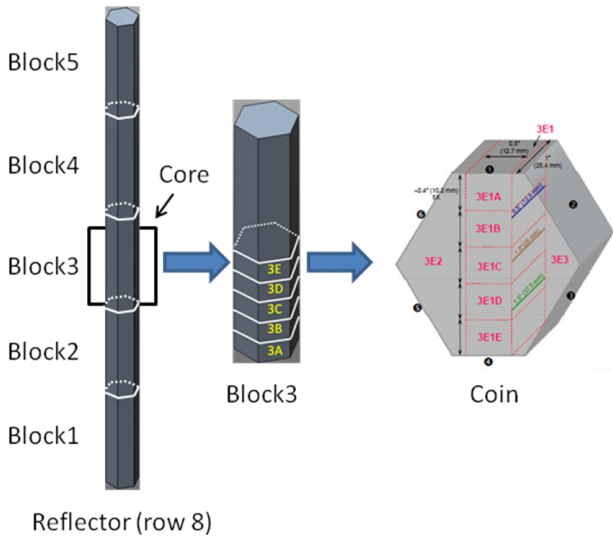


Figure 3. Cutting from Blocks 3 for density and microstructural examination. Strips were cut from flat 1 to flat 4 for density measurements and later subdivided into five smaller chunks for density and electron microscopy measurements. Coin 3E is shown above as an example.

3. 結果と考察

3.1 超音波試験

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^[5-10]。まず、照射量が比較的高いBlock3の1面から軸方向に測定した超音波音速結果をFig.4に示す。Fig.4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、ボイドの発生による音速の低下が見られた。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。

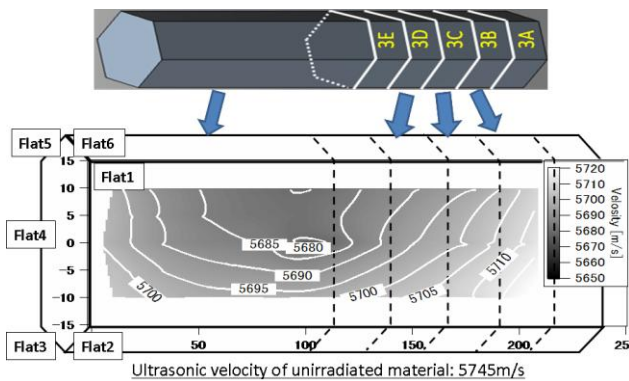


Figure 4. Ultrasonic velocity measurements along the longitudinal directions of Block 3.

照射ブロック材の軸方向における超音波試験結果から、照射量が高く音速の低下が著しい箇所からコイン材 3D を切り出し、また比較のために音速の低下が比較的小さい箇所からコイン材 3B を切り出し、切り出した断面から超音波試験を実施した。結果を Fig.5 に示す。コイン材 3D の音速分布は、中心部で最も音速が遅く、5 面側まで音速の遅い領域が分布していることがわかる。この音速低下の5,6 面側への偏りは、Fig. 4 の照射ブロック材の軸方向の音速測定結果と一致していることがわかる。また、照射ブロック材の周囲は冷却材と接していた一方で、ブロック材の内部は照射による γ 熱によって周囲に比べて照射時の温度が高く、ボイドの発生が中心部で促進されたものと考えられる^[11-14]。同様に、コイン材 3B では、コイン材 3D と比較して音速低下は小さいが、中心部で最も音速が遅く、5 面側まで音速の遅い領域が分布している結果が得られた。

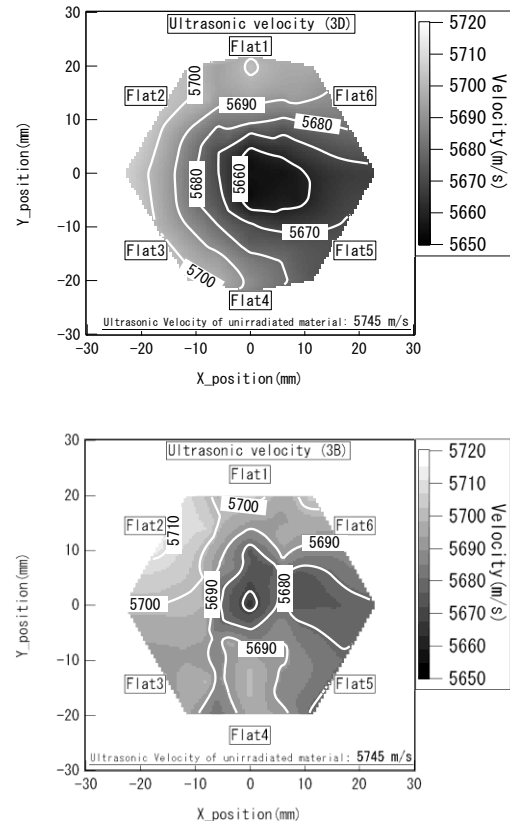


Figure 5. Ultrasonic velocity measurements across the surfaces of coins 3B and 3D.

3.2 密度測定及びマイクロ組織観察

照射ブロック材の軸方向に切り出したコイン材の密度測定結果を Table 3. に示す。Fig. 4 の軸方向における音速結果と同様に、コイン材 A から E の方向へ未照射材からの密度が低下する結果が得られた。次に、軸方向における密度測定及び超音波試験結果から、コイン材 3A、3E に対して深さ方向に密度測定を行った。結果を Table 4. に示す。Fig. 5 のコイン材断面における音速結果と同様に、側面 1 からの深さが 26mm である中心部で最も密度が低下する結果が得られた。以上の結果を踏まえて、深さ方向にマイクロ組織が分布していると推測されるコイン材 3D、3E の深さ方向にマイクロ組織観察を実施した。Fig. 6, 7 にコイン材の代表的な微細組織写真を示し、Table 5. にマイクロ組織の定量結果を示す。ボイドの発生量は密度測定結果と同様に中心部で最大である結果が得られた。一方で、 $M_{23}C_6$ タイプの炭化物の析出が認められたが、深さ方向にほとんど分布が見られなかった。

Table 3. Average density changes of coins due to irradiation.

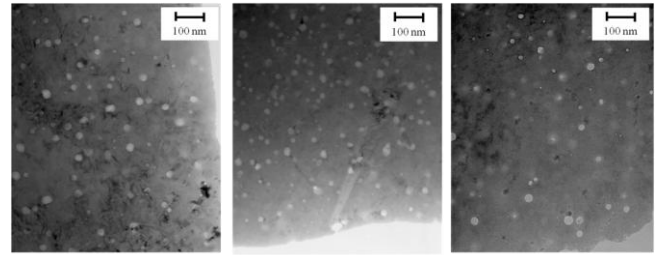
	3A	3B	3C	3D	3E
$\Delta V/V$ (%)	-1.35	-1.55	-1.76	-1.86	-1.94

Table 4. Average density changes in the depth direction of coins due to irradiation.

	Depth from Flat 1 (mm)				
	5	16	26	36	47
3E	-1.56%	-2.3%	-2.7%	-2.34%	-1.71%
3A	-1.12%	-1.41%	-1.72%	-1.63%	-1.34%

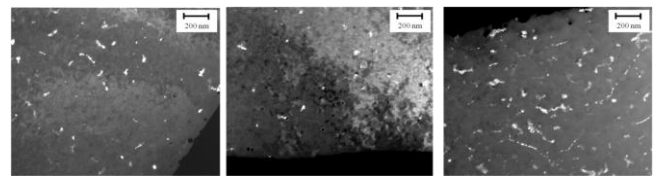
Table 5. Summary of TEM observation results

Coin Identity	Depth from Flat 1 (mm)	Void			Precipitate		
		Swelling (%)	Concentration ($10^{21}m^{-3}$)	Average Diameter (nm)	Swelling (%)	Concentration ($10^{21}m^{-3}$)	Average Diameter (nm)
3E	125	1.84	220	20	0.46	0.71	14
	25	2.76	260	22	0.44	0.91	15
	37.5	1.95	290	20	0.52	1.10	16
3D	125	1.18	230	18	0.13	0.71	14
	25	2.94	1.70	28	0.05	0.91	15
	37.5	2.08	3.20	23	0.73	1.10	16



(a) 12.5 mm (b) 25.0 mm (c) 37.5 mm

Figure 6. Voids observed in 304 stainless steel in Blocks 3. Depth was measured from flat 1.



(a) 12.5 mm (b) 25.0 mm (c) 37.5 mm

Figure 7. Carbide precipitates observed in 304 stainless steel coins cut from Blocks 3.

3.3 照射下マイクロ組織の定量

非破壊でマイクロ組織を定量的に評価することは、炉心構造材料の健全性及び余寿命評価を行う上で重要な課題であり、これまでボイドなどのマイクロ組織の超音波音速への影響を評価した多くの研究がなされてきた^[5-10]。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を定量的に扱った研究は少ない。そこで、本研究では、前報において導出した照射下マイクロ組織と超音波音速の関係式^[14-20]を用いて、炭化物及びボイドの分離・定量を行った。また、密度測定及びマイクロ組織観察結果と比較し、超音波試験によるマイクロ組織の定量性を評価した。

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

E : 材料の縦弾性係数, ρ : 密度, ν : ポアソン比
 s : ボイド体積率 c : 炭化物体積率 ρ_0 : 初期密度

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

Table 5.のマイクロ組織観察結果から、ボイドは深さ方向に分布を持つが、炭化物は深さ方向にほとんど分布を持たないことがわかっている。そこで、炭化物が深さ方向に0.45%で一定に分布していると仮定して、コイン材3Dの断面における音速結果からボイドスエリングを定量し、密度測定及びマイクロ組織観察結果と比較した。結果をFig. 8に示し、Fig. 9に1,4面方向におけるボイドスエリング量を密度測定及びマイクロ組織観察結果と比較した結果を示す。定量したボイドスエリング分布は密度測定及びマイクロ組織観察結果と概ね一致する結果が得られ、相違は0.3%以下であった。

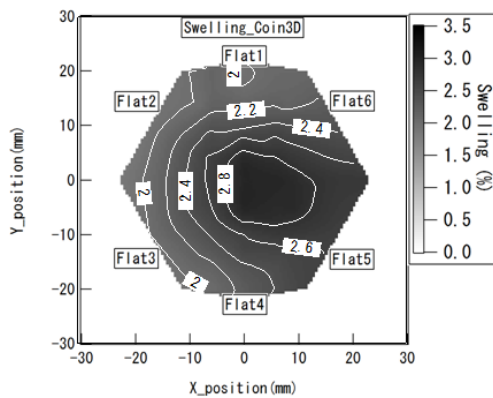


Figure 8. Distribution of void swelling across the surfaces of coin 3D.

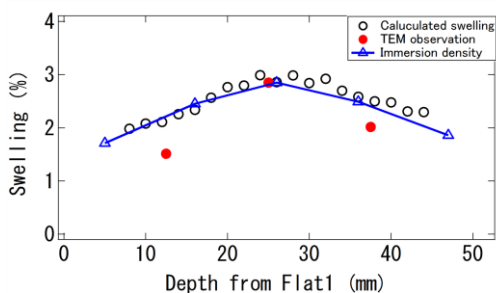


Figure 9. Calculated void swelling distribution of coin 3D (face 1 to face 4) compared with density measurement and microscopy evaluations.

前述の解析では、炭化物の発生量を深さ方向に一定であると仮定してボイドスエリングの定量を行ったが、密度測定及び超音波音速結果から、炭化物及びボイドを分離・定量することも可能である。Fig. 10に示す未照射材からの密度及び超音波音速の変化率から、式(1),(2)の関係式を用いて定量した結果をFig. 11に示す。TEM観察におけるマイクロ組織の局所的なバラツキの範囲内(±10%)で一致する結果が得られた。

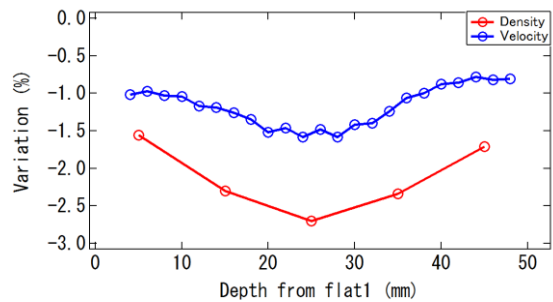


Figure 10. Density and velocity change from that of archive material in coin 3D (face 1 to face 4).

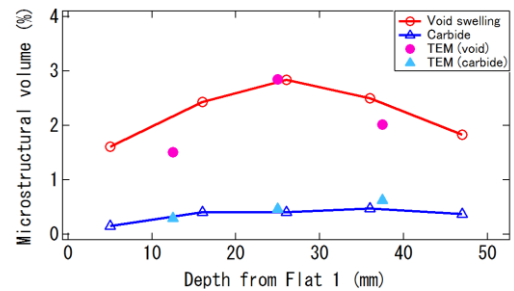


Figure 11. Calculated microstructure contributions (open points) and TEM observation (solid points) of void swelling and carbide precipitation.

3. 結言

本研究では、米国高速実験炉 EBR-II において反射材として供されてきた照射ブロック材に対して超音波試験を実施し、中性子照射によるマイクロ組織変化と超音波信号の関係から、照射下マイクロ組織を定量的に評価し、以下の結果を得た。

- ① 厚みのある炉心構造材料では、マイクロ組織が深さ方向に分布を持つことが確認された。
- ② 照射ブロック材に超音波試験を実施し、音速分布を得ることでボイドなどの照射下マイクロ組織の分布を明らかにした。
- ③ 密度測定及び超音波音速結果から、炭化物及びボイドを分離・定量評価し得る可能性が示された。

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] (社) 日本金属学界編 金属便覧：第 11 章 原子力材料 (1990)
- [2] EBR-II REFLECTOR HEX BLOCK MEASUREMENT, Battelet 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] K. Kawashima, T. Isomura and S. Ohta, “Characterization of Thermal Degradation of Stainless Steel with Ultrasonic Velocities and Backscattering Noise”, Materials Science Forum, 210-213 (1996) 283
- [7] I. I. Balachov, F. A. Garner, Y. Isobe, M. Sagisaka, and H. T. Tang, “NDE Measurements of Irradiation-induced Void Swelling”, Eleventh International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Systems-Water Reactors (2003) 640-645.
- [8] Straalsund, J. L. and Day C. K., “Effect of neutron irradiation on the elastic constants of Type-304 stainless steel”, Nucl. Tech., 20 (1973) 27.
- [9] Marlowe, M. O. and Appleby, W. K., “Measurements of the effects of swelling on the Young's modulus of stainless steels“, Trans. Amer. Nucl. Soc., 16 (1973) 95.
- [10] A. V. Kozlov, E. N. Shcherbakov, S. A. Averin and F. A. Garner, “The Effect of Void Swelling on Electrical resistance and Elastic Moduli in Austenitic Steels,” Effects of Radiation on Materials, ASTM STP 1447, M. L. Grossbeck, T. R. Allen, R. G. Lott and A. S. Kumar, Eds., ASTM International, West Conshohocken PA, 2004, pp. 66-77.
- [11] F. A. Garner and D. L. Porter, "A Reassessment of the Swelling Behavior of AISI 304L Stainless Steel," Proceedings International Conference on Dimensional Stability and

Mechanical Behavior of Irradiated Metals and Alloys, April 11-13, 1983, Brighton, England, Vol. II, pp. 41-44.

- [12] D. L. Porter and F. A. Garner, "Swelling of AISI Type 304L Stainless Steel in Response to Simultaneous Variations in Stress and Displacement Rate," Effects of Radiation on Materials: Twelfth International Symposium, ASTM STP 870, F. A. Garner and J. S. Perrin, Eds., ASTM, Philadelphia, PA, 1985, pp. 212-220.
- [13] F. A. Garner, and B. J. Makenas, “Recent experimental results on neutron-induced void swelling of AISI 304 stainless steel concerning its interactive dependence on temperature and displacement rate”, Fontevraud-6 Symposium on Contribution of Materials Investigations to Improve the Safety and Performance of LWRs”, 18 - 22 September 2006, Fontevraud, France, pp. 625-636.
- [14] M. Sagisaka, J. Etoh, T. Matsunaga, Y. Isobe, T. Okita, "Development of non-destructive inspection technique for microstructures under irradiation using decommissioned materials (1) An experimental approach", 9th Annual Conference of Japan Society of Maintenology, p71-76 (2012)
- [15] F. A. Garner, B. J. Makenas and S. A. Chastain, " Swelling and creep observed in AISI 304 fuel pin cladding from three MOX fuel assemblies irradiated in EBR-II", J. Nucl. Mater. 413 (2011) 53–61.
- [16] R. Truell, C. Elbaum and B. B. Chick, “Ultrasonic Methods in Solid State Physics”, Academic Press (New York) (1969).
- [17] J. A. Spitznagel and R. Stickler, “Correlation Between Precipitation Reactions and Bulk Density Changes in Type 18-12 Austenitic Stainless Steels”, Met. Trans., 5 (1974) 1259-1522.
- [18] J. Spitznagel, Report No.73-1D4-SWELT-R1, Westinghouse Research Laboratories, Pittsburgh, Pa, 1973.
- [19] J. L. Straalsund, M. M. Paxton, “Thermal Densification of Austenitic Stainless Steel”, Nucl. Tech., Vol.13, p.99 (1972).
- [20] F. A. Garner, W. V. Cummings, J. F. Bates and E. R. Gilbert, "Densification-Induced Strains in 20% Cold-Worked 316 Stainless Steel During Neutron Irradiation," Hanford Engineering Development Laboratory, HEDL-TME-78-9, June 1978.

(平成 25 年 7 月 25)