

照射欠陥形成による内部応力の照射誘起応力腐食割れへの影響

Influence of internal stress by irradiation defect formation on irradiation assisted stress corrosion cracking

京都大学	大野 健太郎	Kentaro ONO	Student member
京都大学	中筋 俊樹	Toshiki NAKASUJI	Student member
京都大学	阮 小勇	Xiaoyong RUAN	Student member
京都大学	陳 昱婷	Yuting CHEN	
京都大学	森下 和功	Kazunori MORISHITA	Member
QST	渡辺 淑之	Yoshiyuki WATANABE	

Abstract

The prediction of the initiation and propagation of irradiation-assisted stress corrosion cracking is one of the issues for aging countermeasures in nuclear power plants, and it is desirable to improve the accuracy of the prediction. In recent years, theoretical calculations have shown that irradiation defects introduced by neutron irradiation generate internal stress. Therefore, in this research, we calculate the increase of internal stress using the molecular dynamics method when irradiation defects are formed in the metal material, and investigate the relationship between the irradiation-assisted stress corrosion cracking and the internal stress due to the formation of irradiation defects.

Keywords: irradiation assisted stress corrosion cracking, internal stress, irradiation defect, reactor internals

1. 緒言

原子力発電所の構造物はその運用に伴って経年劣化が進行し、特に多くの中性子照射を受ける炉内構造物では、照射誘起応力腐食割れ (IASCC) が発生することが問題となっている。例えば、PWR では、IASCC が原因となるバップルフォーマボルトの損傷が多数確認されている[1]。また、BWR では制御棒のシース等が割れる原因が IASCC とされている[2]。現在、IASCC による重大な損傷は確認されていないものの、IASCC の発生や進展のメカニズムは十分に解明されていない。き裂の進展速度の評価を小さく見積もっていた場合、炉内構造物の破壊につながり非常に危険である。進展速度評価を大きく見積もって

た場合は経済的な面で損失が生じる。そのため、その評価の精度を高めることは原子力発電所の高経年化対策において非常に重要である。

応力腐食割れ(SCC)は、腐食性の環境に置かれた金属材料に引張応力が発生することで生ずる現象であり、その発生要因として材料、応力、環境の3つが考えられる。中性子照射は SCC の3要因に大きな影響を与えるため、その影響を調査することは重要である。

また、近年 Dudarev らによって、中性子照射によって導入された照射欠陥が材料の内部に応力(内部応力)を発生させることが理論計算より示された[3]。この論文では、中性子照射によって形成される欠陥分布や内部応力などのミクロな情報から、マクロな応力やひずみを推定するモデルが提案されている。現在の応力拡大係数 K の評価には、残留応力やプラントの運転中に作用する応力が考慮されているものの、照射欠陥形成による内部応力は加味されていない。

連絡先:大野健太郎, 〒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
E-mail:ono.kentaro.47x@st.kyoto-u.ac.jp

そこで、本研究では、照射欠陥形成による内部応力がき裂先端近傍の応力場に与える影響を明らかにしてき裂進展の評価制度を高めることを目標とし、その基礎研究として金属材料中に照射欠陥が形成された場合の内部応力の上昇を分子動力学法を用いて計算した。そして、照射欠陥による内部応力が応力拡大係数およびき裂進展速度評価に与える影響を議論した。

2. 研究方法

まず、分子動力学法を用いて、純鉄およびタングステン中に格子間原子(SIA)と空孔が形成された場合について計算を行った。シミュレーションボックスは $10a_0 \times 10a_0 \times 10a_0$ の bcc セルとし、総原子数は 2000 とした。ポテンシャルには純鉄には Mendev[4] のものを、タングステンには Marinica[5] のものを用いた。そして、以下の手順で計算を行った。

まず以下の式より、欠陥を導入した時の弾性双極子力テンソルを求めた。ここで、弾性双極子テンソルとは、ある欠陥とその欠陥が作る弾性場を関連付ける、欠陥周りの応力場をエネルギーの次元で表したものであり、欠陥周辺の変位場の異方性を表すことができる。

以下の式より、各原子にかかる力と位置ベクトルの関係から欠陥を導入した時の応力場を求めた。

$$\sigma_{ij} = \frac{1}{2} \sum_{a,b} \frac{r_{ab,i} \otimes f_{ab,j}}{\Omega_0}$$

ここで、 $r_{ab,i}$ は ab 二原子間の位置ベクトル、 $f_{ab,j}$ は a によって b にかかる力ベクトル、 Ω_0 は原子体積である。

次に、参考文献の Dudarev らによって導かれた式より、双極子テンソルを求めた。

$$P_{kl} = - \int_{V_{cell}} \sigma_{kl} dV = -V_{cell} \overline{\sigma_{kl}}$$

ここで、 P_{kl} は弾性双極子力テンソル、 V_{cell} はセルの体積、 $\overline{\sigma_{kl}}$ は計算セルにおける応力の平均である。

3. 結果・考察

3.1 弾性双極子力テンソルの計算結果

タングステン中に空孔を導入した場合の双極子力テンソルの計算結果を以下の Table.1 に示す。また、空孔を導入した位置を Fig.1 に示す。

双極子力テンソルの対角成分は静水圧成分であり、垂

Table1. Elastic dipole tensor of vacancy in tungsten. All the values are in eV units.

	W
n=1	$\begin{pmatrix} -1.08 & 0 & 0 \\ 0 & -1.08 & 0 \\ 0 & 0 & -1.08 \end{pmatrix}$
n=2 (第一隣接)	$\begin{pmatrix} -2.28 & 0.44 & 0.44 \\ 0.44 & -2.28 & 0.44 \\ 0.44 & 0.44 & -2.28 \end{pmatrix}$
n=2 (第二隣接)	$\begin{pmatrix} -5.75 & 0 & 0 \\ 0 & -2.40 & 0 \\ 0 & 0 & -2.40 \end{pmatrix}$
n=3	$\begin{pmatrix} -6.33 & 0 & 0.55 \\ 0 & -2.85 & 0 \\ 0.55 & 0 & -2.85 \end{pmatrix}$
n=4	$\begin{pmatrix} -6.33 & 0 & 0 \\ 0 & -2.47 & 0 \\ 0 & 0 & -6.33 \end{pmatrix}$
n=5	$\begin{pmatrix} -5.89 & 0 & 0.04 \\ 0 & -5.90 & 0 \\ 0.04 & 0 & -5.90 \end{pmatrix}$
n=6	$\begin{pmatrix} -5.98 & 0 & 0 \\ 0 & -10.05 & 0 \\ 0 & 0 & -10.05 \end{pmatrix}$

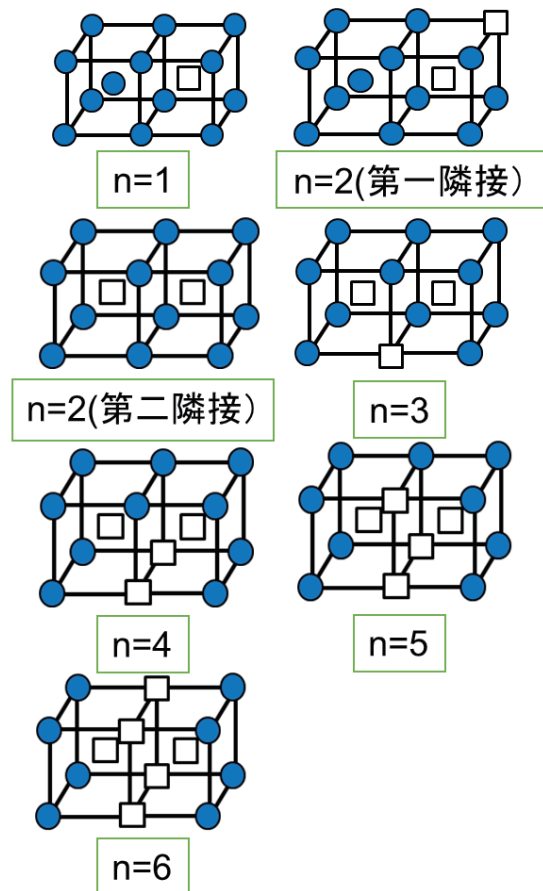


Fig.1 Position of vacancy

直応力を発生させ、非対角成分は偏差応力を表し、物体の凹みのような変形を発生させる。欠陥の数が1,2の第二隣接の場合、4,6の時は対角成分のみが現れる。また、対角成分の値は欠陥の数によらず負となっており、空孔が生じた場合には引張応力が発生し、体積が減少すると考えられる。非対角成分は欠陥の配置に応じて現れ、その双極子テンソルの値は対角成分より小さくなっている。その値は、欠陥の配置に関係していると考えられ、配置により斜めにシュリンクする成分がある場合にのみ、せん断力を表す非対角成分が現れる。また、クラスターのサイズが大きくなるにつれて対角成分の絶対値が大きくなっており、発生する応力が大きくなっている。

次に、タングステン中に SIA クラスターが発生した場合の結果を Table.2 に示す。また、SIA を導入した位置を Fig.2 に示す。

SIA の場合も空孔と同様に欠陥の配置によってどの成分に値が現れるかが決まっている。対角成分の値は正であり、各成分の値は空孔の場合よりも大きくなっている。つまり、SIA が形成された場合は空孔が生じた場合よりも強い応力場が生じ、圧縮場になると予想できる。また、空孔の場合と同様に欠陥のサイズが大きくなるにつれて、各成分の値が大きくなっており、より強い応力場が形成されているといえる。

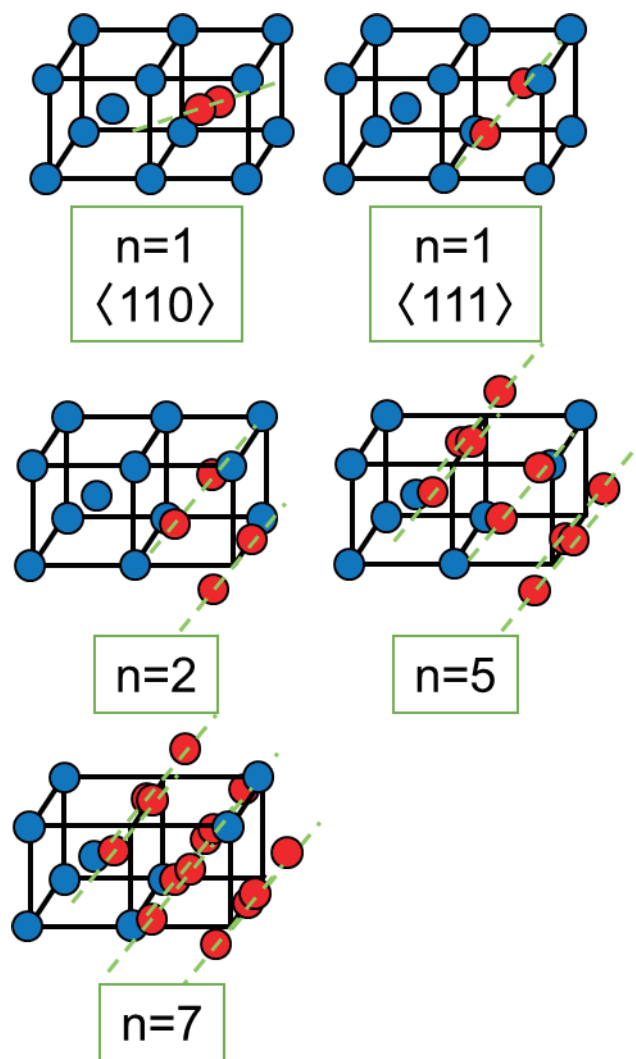


Fig.2 Position of SIA

Table.2 Elastic dipole tensor of SIA in tungsten. All the values are in eV units.

	W
n=1 <110>	$\begin{pmatrix} 53.78 & 13.16 & 0 \\ 13.16 & 53.78 & 0 \\ 0 & 0 & 52.89 \end{pmatrix}$
n=1 <111>	$\begin{pmatrix} 37.32 & 16.58 & 16.58 \\ 16.58 & 37.32 & 16.58 \\ 16.58 & 16.58 & 37.32 \end{pmatrix}$
n=2	$\begin{pmatrix} 67.85 & 34.38 & 35.82 \\ 34.38 & 73.78 & 34.38 \\ 35.82 & 34.38 & 73.78 \end{pmatrix}$
n=5	$\begin{pmatrix} 190.86 & 93.46 & 93.46 \\ 93.46 & 181.84 & 92.57 \\ 93.46 & 92.57 & 190.86 \end{pmatrix}$
n=7	$\begin{pmatrix} 276.25 & 131.85 & 131.85 \\ 131.85 & 276.25 & 131.85 \\ 131.85 & 131.85 & 276.25 \end{pmatrix}$

Table.3 に純鉄に空孔クラスターを導入した場合の双極子力テンソルの計算結果を、Table.4 に純鉄に SIA クラスターを導入した場合の計算結果を示す。

タングステンの場合と同様に空孔の静水圧成分は負であり、SIA の静水圧成分は正となった。このことから、空孔が形成した場合は体積が減少し、SIA が形成された場合は体積が増加することが予想される。純鉄の場合は、値は異なるもののタングステンの場合とほぼ同じ成分に値が現れる。また、SIA クラスターの双極子テンソルの各成分の値はタングステンより小さく、空孔の双極子テンソルの書かう成分の値の絶対値はタングステンより大きい。クラスターのサイズが同じ場合、各成分の値の絶対値の大きさは SIA の方が大きいため、欠陥が形成されるとトータルとして圧縮応力場ができるといえ、欠陥の形成により体積増加が起こると予想できる。

Table.3 Elastic dipole tensor of vacancy in Fe. All the values are in eV units.

	Fe
n=1	$\begin{pmatrix} -2.31 & 0 & 0 \\ 0 & -2.31 & 0 \\ 0 & 0 & -2.31 \end{pmatrix}$
n=2 (第一隣接)	$\begin{pmatrix} -4.23 & 0.63 & 0.63 \\ 0.63 & -4.23 & 0.63 \\ 0.63 & 0.63 & -4.23 \end{pmatrix}$
n=2 (第二隣接)	$\begin{pmatrix} -6.33 & 0 & 0 \\ 0 & -5.79 & 0 \\ 0 & 0 & -5.79 \end{pmatrix}$
n=3	$\begin{pmatrix} -7.09 & 0 & 1.36 \\ 0 & -6.68 & 0 \\ 1.36 & 0 & -6.68 \end{pmatrix}$
n=4	$\begin{pmatrix} -7.84 & 0 & 0 \\ 0 & -7.59 & 0 \\ 0 & 0 & -7.84 \end{pmatrix}$
n=5	$\begin{pmatrix} -8.66 & 0 & -1.05 \\ 0 & -9.01 & 0 \\ -1.05 & 0 & -9.01 \end{pmatrix}$
n=6	$\begin{pmatrix} -9.66 & 0 & 0 \\ 0 & -10.73 & 0 \\ 0 & 0 & -10.73 \end{pmatrix}$

Table.4 Elastic dipole tensor of SIA in Fe. All the values are in eV units.

	Fe
n=1 (110)	$\begin{pmatrix} 15.29 & 3.80 & 0 \\ 3.80 & 15.29 & 0 \\ 0 & 0 & 18.47 \end{pmatrix}$
n=1 (111)	$\begin{pmatrix} 15.29 & 0 & 0 \\ 0 & 18.47 & 3.80 \\ 0 & 3.80 & 15.29 \end{pmatrix}$
n=2	$\begin{pmatrix} 26.78 & 9.47 & -0.99 \\ 9.47 & 26.78 & 0.99 \\ -0.99 & 0.99 & 31.89 \end{pmatrix}$
n=5	$\begin{pmatrix} 70.97 & 22.56 & 8.52 \\ 22.56 & 71.75 & 13.50 \\ 8.52 & 13.50 & 74.05 \end{pmatrix}$
n=7	$\begin{pmatrix} 87.73 & 31.90 & 33.43 \\ 31.90 & 89.14 & 36.82 \\ 33.43 & 36.82 & 99.93 \end{pmatrix}$

3.2 緩和体積の計算結果

次に、求めた双極子テンソルを以下の式を用いてひずみ量に相当するものに直すことで、緩和体積を求めた。

$$\Omega_{rel} = S_{mmkl} P_{kl}$$

ここで、 Ω_{rel} は緩和体積、 S_{mmkl} は弾性コンプライアンステンソルである。タングステン欠陥一つ当たりに対する緩和体積を Fig.3 に、純鉄欠陥一つ当たりに対する緩和体積を Fig.4 に示す。

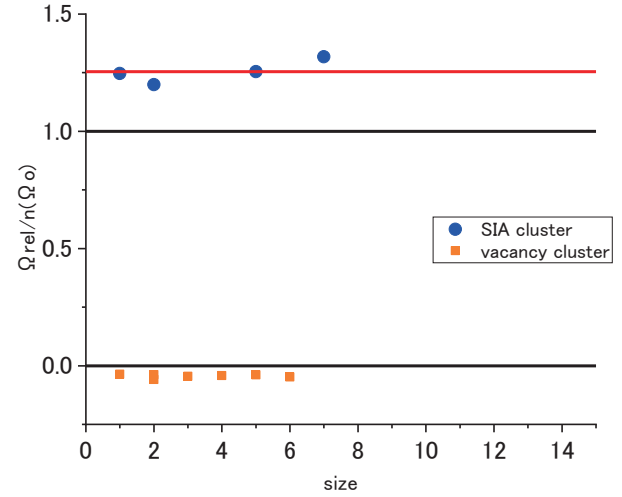


Fig.3 Relaxation volume of irradiation defects in tungsten.

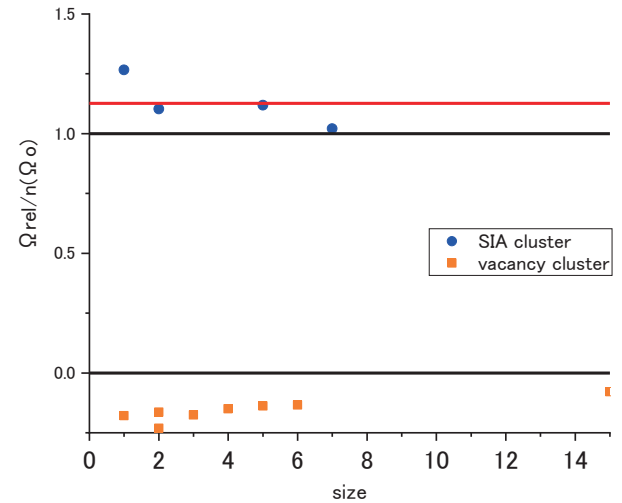


Fig.4 Relaxation volume of irradiation defects in Fe.

図のオレンジ色の点は空孔が形成された場合の緩和体積を表す。タングステン、純鉄のどちらにおいても空孔クラスターの緩和体積は 0 に近い値を示すことから、空孔の緩和体積への影響は小さいといえる。また、図の青の点は SIA が形成された場合の緩和体積を、赤線は緩和体積量の平均値を表す。SIA が形成された場合、タングステン

では原子体積一つ分の体積よりも約 25%、純鉄では約 12%緩和体積が大きくなることが分かった。タングステン、純鉄の両方で、どのサイズの欠陥でも体積に対する寄与は SIA の方が大きく、同じサイズの欠陥が形成された場合には体積増加が起こるといえる。また、タングステンと純鉄を比較すると、SIA による体積増加の影響はタングステンの方が大きく、空孔による体積減少の影響はタングステンの方がわずかに小さいことから、同一の欠陥構造を持つ場合、タングステンの方が大きく体積が増加するといえる。

3.3 応力拡大係数への影響

3.1 節および 3.2 節では、照射欠陥によって内部応力が発生し、その応力場によって体積が増加することが分かった。本節では、き裂先端近傍にある照射欠陥が応力拡大係数に与える影響を議論し、き裂進展速度の評価への影響を考える。

材料中に SIA が形成された時のセルの平均応力を Table.5、空孔が形成された時のセルの平均応力を Table.6 に示す。

Table.5、Table.6 より、照射欠陥周辺には強い応力場が生じている。サイズ 7 の転位ループの場合、欠陥周辺には約 1.4GPa の応力が生じる。また、ステンレス鋼に 1dpa の照射を与えた照射材にはおよそ $1.0 \times 10^{24}/m^3$ の数密度で小さなクラスターが形成される。[6]

Table.5 Average stress of SIA

	W(MPa)	Fe(MPa)
n=1 〈110〉	280	110
n=1 〈111〉	190	110
n=2	370	200
n=5	970	500
n=7	1430	640

Table.6 Average stress of vacancy

	W(MPa)	Fe(MPa)
n=1	-6	-16
n=2(第一隣接)	-12	-29
n=2(第二隣接)	-18	-41
n=3	-21	-47
n=4	-26	-53
n=5	-30	-61
n=6	-45	-71

現在、JSME 維持規格[7]に記載の PWR 環境中のフェライト鋼の疲労き裂進展評価の速度式[8]や炉心シュラウドのステンレス鋼の SCC き裂進展評価の速度式[9]には応力拡大係数 K が関係している。この応力拡大係数は照射欠陥形成による内部応力が考慮されておらず、この内部応力の影響を受ける可能性がある。そして、き裂進展速度の予測にも影響を及ぼす可能性があるため、今後の議論が必要である。

4. 結言

本研究では、原子力発電所の炉内構造物に生じる照射誘起応力腐食割れの進展の予測精度を高めることを目標として、き裂先端近傍に生じた照射欠陥が応力拡大係数に与える影響を調査した。その基礎研究として、金属材料中に照射欠陥が生じた場合の応力場について分子動力学法を用いて計算した。SIA が形成された場合は圧縮応力場が生じ、空孔が形成された場合には引張応力場が生じることが分かった。生じる応力場の大きさは、SIA の方が大きいので、トータルでは圧縮応力場が形成される。この応力場が、き裂進展速度評価に与える影響は今後議論していく必要がある。

参考文献

- [1] 照射誘起応力腐食割れ(IASCC)と研究の動向
塚田隆 Zairyo-to-Kankyo, 52, 66-72 (2003)

- [2] 原子力施設情報公開ライブラリー ニューシア
制御棒のひび等について
<http://www.nucias.jp/nucia/kn/KnTroubleView.do?troubleId=8068>
(最終閲覧日:2019/06/12)
- [3] A multi-scale model for stresses, strains and swelling of reactor components under irradiation
Sergei L Dudarev Nucl. Fusion 58(2018) 126002
- [4] Development of new interatomic potentials appropriate for crystalline and liquid iron
M. I. Mendeleev(2003) Philo. Mag. 83:35, 3977-3994
- [5] Interatomic potentials for modeling radiation defects and dislocations in tungsten
M-C Marinica (2013) Journal of Physics: Condensend Matter, Vol25-39
- [6] 2 相ステンレス鋼の照射効果
藤井克彦、福谷耕司 INSS JOURNAL Vol.19 (2012) NT-10
- [7] 発電用原子力設備規格 維持規格 (2004 年度), JSME
- [8] PWR 炉内構造物点検評価ガイドライン[原子炉容器炉内計装筒](第2 版) 平成 25 年 6 月
一般財団法人 原子力安全推進協会
www.genanshin.jp/archive/coreinternals/data/JANSI-VIP-01.pdf
(最終閲覧日:2019/06/13)
- [9] BWR 炉内構造物点検評価ガイドライン[炉心スプレィ配管・スパーージャ](第2 版)
一般財団法人 日本原子力技術協会
<http://www.gengikyo.jp/archive/pdf/ronaiguide/VIP-15r1.pdf>
(最終閲覧日:2019/06/12)