金属材料の照射損傷とその対策

三 島 良 績*

1. 原子力施設の金属材料におこる照射損傷

原子力施設に使われる金属材料におこる照射損傷 (radiation damage) は、原子力の発生のもとになる原子核の反応によって発生する中性子などの高エネルギーの粒子が、炉心を構成する材料の原子に衝突し、これによってその材料の構造が乱され、構造欠陥が造成されることによっておこる。一般に損傷といえる程度の変化が金属材料におこるのは、それが固相、つまり結晶固体である場合で、おこる損傷の程度は衝突する粒子のもつエネルギーによって変わる。

現用されている核分裂原子炉と将来の実用が目指されている核融合炉とでは照射損傷に寄与する粒子の内、たとえば中性子のエネルギーを比べても大差があり、核融合炉ではその外にイオンなどの重粒子の照射もあるために、筆者のいわゆる重照射効果が問題になる。照射損傷の機構については本誌の読者には余り解説を要しないと思われるが⁽¹⁾、金属結晶中の原子に、その結晶内での原子間の結合エネルギーと同等程度以上のエネルギーをもった粒子がとび込んでぶつかると、これをはじき出すことができる。金属の結晶中では、格子点の原子は正に荷電しているから、イオンのように荷電のあるものは電氣的斥力の妨げによって原子核まで到達しにくい、中性子のような荷電していない粒子は到達することができ、 10^{-13} J (MeV) 台のエネルギーをもついわゆる高速中性子は格子点の原子のはじき出し (knock on) をおこす。核分裂原子炉の燃料の核分裂で生じるのは高速中性子であるが、これが軽い原子核に当たって、いわゆる減速 (moderate) されて低いエネルギーになったものを熱中性子という。原子炉の中には種々のエネルギーをもった中性子があるので、炉心で使う材料はこれら中性子の照射を受けるが、これによって起こるいわゆる核反応には大別して、(1) 核分裂、(2) 吸収、(3) 散乱の3つがあり、それぞれの起こる確率をその反応の断面積 (cross section) という。核分裂 (fission) を起こす原子核は限ら

れており、熱中性子で有効に核分裂するのは、U-233, U-235 と Pu-239 だけである。こういう原子核を含む材料を核燃料 (nuclear fuel) という。高速中性子はそのエネルギーが大きいため、これ以外の数種の核種の核分裂が起こるが、現今までに使われている核分裂原子炉は、大部分熱中性子により、U-235 を核分裂させるときに出るエネルギーを利用する熱中性子炉である。これに対し、十数年後には実用される高速炉では、高速中性子による核分裂を利用する。

構造材料に使われるような金属材料に問題となるくらいの損傷効果があらわれるのは、高速中性子で積算 10^{18} nvt 台以上照射されたときであるが、熱中性子を吸収して核変換によりヘリウムなどの気体元素を発生するボロンをふくむ材料の場合には高速中性子束は低くてもヘリウム損傷を考慮しなくてはならない。

照射損傷の内容、損傷を受けた材料のふるまい、その対策とも自身の中で核分裂がおこる燃料材と構造材とではちがってくるし、構造材でも使用部分で事情が若干異なるので、以下、各項に分けてのべることにする。

2. 核分裂原子炉の燃料体での照射損傷とその対策

核分裂原子炉での熱源は燃料体の中にある燃料物質の核分裂である。核分裂がおこると、核分裂生成物 (fission product, 略して FP) と呼ばれる別の核種がいろいろとび出して来るが、これらは核燃料材の結晶格子中を走り抜けて、その構成原子をはじき出したり、通路の近辺の原子にエネルギーを与えて、局部加熱したような効果を与えたりした後、ついにはエネルギーを失って止まって、不純物原子となる。また、表面近くで生じた FP 原子は、直接核燃料体外にとび出すこともあり、反跳 (recoil) といわれる。また、FP の中で気体原子になる Kr, Xe は、集まって泡を作って燃料体のふくれ (swelling) を起こし、中性子吸収の大きい核種の FP がたまると、核分裂用の中性子を無駄食いして連鎖反応の継続を困難にする (毒作用という)。このような燃料心材をくるんで、FP が冷却系にもれ出ないようにしている燃料被覆 (fuel cladding) は中性子照射を受けるし、心材を被覆にくるんだ燃料棒 (板、球のこともある)、およびこれを必要数集めた燃料体の構成材も照射効果を受ける。

* 東京大学教授；工学部原子力工学科
Effect of Irradiation and its Remedy on Metallic Materials; Yoshitsugu Mishima (Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, University of Tokyo, Tokyo)
1978年2月1日受理

(1) 燃料心材

燃料心材におこる照射損傷は格子欠陥造成によるものと、FPの蓄積によるものとがある。前者では、金属ウラン燃料のような異方性材では特に甚しいが、いわゆる照射成長(irradiation growth)がおこる。このため塑性加工して成形し集合組織をもっているウラン棒では甚しい伸張がおこって炉心特性を損うので、(1)一旦 β 範囲に加熱してから急冷して集合組織を消し、乱方位の α にするいわゆる β 焼入れ、(2)加工集合組織のない铸造棒材を使う方法の両法が対策として考えられ、現用のCalder Hall型発電炉(わが国では東海1号炉)のウラン燃料棒ではこの双方が利用(铸造でつくり β 処理する)されている。

FPの蓄積は固体の中の原子数がふえることになるから、燃焼のすすむにつれて図1の下方の点線のように体積をますが、この効果は非常に高燃焼度まで使う高速炉燃料以外ではそう大きくない。熱中性子炉の燃料で問題になるFP効果は、それよりも気体FPによる泡発生で、固体内に気泡が析出することによってスエリングとよぶふくれがおこり、燃料体の中味がふくれるので被覆も強制的にふくらされて太る。金属ウラン燃料はFPガスを全部包有するために、使用温度が α ウラン領域中でも高温になるにつれて図1のようになかなか大きくふくれるため、金属ウラン燃料を表面温度723 K辺で使う発電炉で問題になり、CO₂冷却型動力炉の初期にその対策が研究された。

図1 α 相領域内の比較的高温で照射した金属ウランのスエリングと燃焼度(Harwell 研究所)。

結局成功したスエリング防止策は、(1)フランスの炭酸ガス冷却発電炉のEDF炉に実用された1at% Mo添加によるKr, Xe原子の拡散引とめと、(2)イギリスのいわゆるadjusted uraniumで実用された微量のFe, Al, Cを加えての析出分散相による気泡の分散の2方法で、これによりそれぞれ発電炉として4000 MWd/t程度またはそれ以上の燃焼度を達成した。

またウラン燃料棒の照射成長への追従には、被覆のマグノックス管(Mg合金)を、燃料棒に25.4 mm(1 in)間

隔に刻んだラチェットよけ溝に外圧をかけてめりこませることと、六方晶マグネシウム合金のクリープ変形に伴う粒界での間隙生成(cavitation)の防止としての粒度の調整(使用温度領域別に粗粒材と微粒材を使い分けること)で対処して成功している。

軽水炉では二酸化ウランの粉末を加圧成型焼結して理論密度(TD)が90%台のペレットをつくり、これをジルカロイというジルコニウム合金の管に一列に充填した燃料棒を正方形型に束ねた燃料集合体が用いられるようになった。焼結ペレットは金属燃料に比べはるかに延性が少ない上に二酸化ウランの熱伝導率は金属ウランの1/10なので、ペレットの中心と表皮の間の温度差は千数百Kに及び、発生する大きい熱応力でペレットはヒビ割れる。このためFPガスは短い距離を拡散すれば割れ表面に出て放出されるので金属ウランほどスエリングしないが、それでも燃焼度が増すにつれて図2⁽²⁾の3点破線のようにふくれてゆく。

図2 焼しまりとスエリングの重畳効果としてのペレットの体積変化(Assmann, Stehle⁽²⁾)。

しかし一方、焼結ペレットの組織中にある孔の移動合体によりペレットの密度は上り出し、最初は速やかに、やがて飽和する形で焼しまり(densification)が図2中の破線のようにおこる。そしてこの焼しまりの程度は図中の(c)と(f)で分かるように、孔がある程度以上あらいと小さい。そこで両効果の合成として、ペレットの体積は燃焼初期には一度縮み、反転して膨張に転じて図2の実線のように変わる。被覆管とペレットの外径の間には当初若干のすき間(gap)があるが、燃焼度の中期以降にふくれによりこのすき間がうめられるとペレットと被覆は接触し、以後はペレットのふくれが増すにつれて被覆は変形を強要される。ペレットのスエリングのおこり方は端面近くで大きいので、最初円柱形のペレットはつぶみ形になるように変形し、両端面のところがまっ先に被覆管にふれてくいとむので、被覆管は外からみるとここが竹の節のようにせり出すリッジングをおこし、このくいとみ以後はスエリングにもとづくペレット長さの増加につれて、被覆管は長さも伸ばされる。このようにペレ

トと被覆が接触して互いに作用を及ぼし合うことが、ペレット-被覆相互作用(PCI-pellet-clad interaction)である。

元来金属に比べて低い二酸化ウランの熱伝導度は照射により図 3⁽³⁾に示すように低下する。しかしその効果は最も下の曲線でわかるように 773 K 以上では全く回復してしまう。発電用の軽水炉(LWR)の使用状態のペレットの温度は表皮部でも約 873 K、中心は 2500 K 台になっているから、この状態での熱伝達を考える上にはペレットの熱伝導度への照射効果は考えなくてよいのである。

図 3 二酸化ウランペレットの照射による熱伝導度の変化と照射温度の関係 (Lyons, et al.⁽³⁾)。

(2) 被 覆 材

被覆材も結晶固体なので、照射による欠陥造成で硬化し、延性は低下するが、実用被覆材ではその延性低下で燃料被覆に破損がおこって中にたまっている FP が冷却材中にリークするようなことのない材料がえらばれているので、この延性低下自体は支障ない程度であるが、一方照射はクリープを促進し、ときには被覆材自身または中の合金元素の核反応による気体元素の発生で、被覆のスエリングをおこす。被覆材の生地は金属の融点に対し、使用温度が上がるほど、硬化と延性低下の方の照射損傷は回復軽減されるが、クリープが問題になる温度になるので、照射によるクリープ促進が問題になり、スエリングはその結晶格子中でガス原子の集合と泡形成のしやすい温度で最大になり、それ以上では逸出するために軽減される。

金属ウラン燃料では前項にのべたように燃料棒の照射成長につき合うマグノックス被覆のクリープ変形がおこり、軽水炉では大きい冷却水圧力と FP ガスによる内圧との差でジルカロイ被覆管は径をしばる方向にクリープ変形する。このクリープは照射で促進される。この対策としてはジルカロイでも粒度調整で対処している。

ジルカロイは図 4⁽⁴⁾に示すように照射により成長するが、この成長は冷間加工を加えるほど大きい。また高速

図 4 ジルカロイ-4 の 555 K 辺での照射による成長と冷間加工度と照射量との関係 (Adamson⁽⁴⁾)

炉の被覆材であるオーステナイト・ステンレス鋼(316 など)や PE 16 では成分元素の (n, α) , (n, p) 反応やボイド形成により被覆のスエリングがおこり、延性が低下する。ベリリウムは一昔前に熱中性子炉の被覆材の候補とされたが、ベリリウム自身が $(n, 2n)$ 反応でヘリウムを発生してスエリング脆化するため実用できなかった。これらスエリング(またはヘリウム損傷)の対策を考えるには前項の金属ウランのスエリング阻止の成功が参考となるが、使用温度と被覆材生地金属の融点との事情から見て、ベリリウムでは成功せず、ステンレス鋼では Ti 添加による炭化物分散がある程度成功している。

(3) 燃 料 体

中味の燃料と被覆の双方の成長とその相互干渉の合成効果で、たとえば軽水炉の燃料棒は線出力密度を上げてゆくと、図 5⁽⁵⁾のように、最初は被覆管の伸びに応じて伸びるが、PCIの開始とともにペレットの伸びに引ずられて今までよりはげしく伸びてゆく。

燃料棒を束ねた燃料体では、その骨格を形成する材料と燃料棒との間に照射下の伸びの差があるとき、これを摺動でにげるなどの処置を設計で講じないと燃料体の変形がおこる。Westinghouse 型の PWR の燃料棒に曲り(bowing)が発生したのは、燃料体の骨格をつくる制御棒案内シムプル管と燃料被覆管とが同じジルカロイ-4 ではあったが、前者が焼なまし材、後者がひずみとり焼なまし材と質別のちがいがあったために、後者の照射下の伸びが大きく、これを十分調整するだけの処置がとれていなかったためであった。燃料棒を規定間隔において束ねるには、格子状のグリッド、または支持格子に取付けたばねまたは格子板から打出したばねで各燃料棒を適度におさえて支えるが、このばね材のインコネルは燃料棒からうける反力により照射クリープをおこして形がくずれ、拘束力は燃焼度のすすむにつれて劣化する。それでこの事情を予め考慮して最初の形状をきめる。

図5 二酸化ウラン燃料在中のジルカロイ被覆管の伸びと燃焼度の関係(市川他⁽⁵⁾)

3. 核分裂原子炉の構造材の照射損傷とその対策

第1章でものべたように、一般の金属材料で照射効果が目立ち出すのは積算照射量で 10^{18} nvt 台であるから、核分裂のおこっている炉心から余り遠くにある部材では事実上照射損傷は問題にならず、したがって対策も必要がない。また、使用温度が高いほどさらに照射効果は回復の方向にゆくので、いっそう問題にならなくなる。このため、燃料以外で構造材料の照射効果が問題になるのは、炉心容器の材料および、容器の中にあつて燃料体を支える架台その他の炉心構成材だけである。そこでここではこの内代表的な例についてのべるに止める。

(1) 炉容器材

軽水炉は冷却材の軽水を液体で使うために沸騰水型(BWR)で90気圧、加圧水型(PWR)で160気圧ほどに加圧する要があり、炉心容器は圧力容器となるが、使用温度が約600 Kまでなので、一般のボイラー用鋼板を強度設計だけで使用できる温度(<748 K)に当たっているため厚肉の低合金鋼が用いられ、当初のA 302よりA 302 B, A 533とすすみ、アメリカではA 542または

543が実用され出している。このためフェライト鋼の特色であるNDT(脆性遷移)温度の照射による上昇が問題で、製造の際不純物量を調整してNDT温度を下げるとともに、照射による上昇分については、圧力容器とともに金からとった試験片を圧力容器の内側に入れて、現品より照射効果に関しては先に年をとるようにし、これを適時に取出して衝撃試験してその脆化の進行を先行確認する監視試験(surveillance test)が対策としてとられている⁽⁸⁾。しかし最近のBWRではジェットポンプを導入したために燃料領域と圧力容器壁との間隔が昔の型より狭り、今日では50万kW級で寿命中の照射量 1.4×10^{18} nvt, NDT温度上昇28 K以下となり、炉が大きくなるにつれてこの照射量はさらに下って110万kWで 3.8×10^{17} nvtになる。これに対しPWRでは50万kWで 3.40×10^{19} nvtの照射量で約150 KのNDT温度上昇がある。この結果NDT温度が373 Kをこえる場合には、別に加熱してNDT温度に安全温度を加えた温度以上にしてから加圧する。116万kW級PWRではNDT温度の上昇は94 Kに下がっている。このようなNDT+(33または67 K)という方式はPelliniの吸収エネルギー・ベースの考え方であるが、最近ASMEではこれを線型破壊力学の考えを入れた、いわゆる関連適合温度 RT_{NDT} を判定基準とする方式に改めた。わが国の基準も近くこれにならって改められる。

高速炉ではナトリウムを常圧で使うので炉心容器は圧力容器ではなく、またオーステナイトのステンレス鋼を使うので照射によるNDT温度上昇の問題はない。

(2) 新型転換炉(ATR)の圧力管

約80気圧の冷却材の内圧をうけて炉の耐用年数の30年間573 Kで使われるので、径を太らせる内圧クリープがおり、これが照射で加速される。圧力管にジルカロイを使うと強度上冷間加工したものになるが、ジルカロイは冷間加工によるクリープ促進効果が大きく、もうひとつの候補合金であるZr-2.5 Nb合金の熱処理材よりクリープ速度が大きくなる。このためわが国のATRではZr-2.5 Nbを採用し、さらに監視試片を圧力管内側に入れるため、中空部のある特殊燃料体を開発して、その中空部に試片を入れた。その上ある時期には圧力管の実体1本を抜出して衝撃試験片をとっての確認もするという対策をとっている。

4. 核融合炉に使用する材料の照射損傷

現在の核融合研究はその反応を制御しつつ続ける実験にもまだ成功していないから、核分裂原子力の1942年12月2日以前の状態である。したがって、動力源としての核融合炉が将来設計されるときどのような型式なり、材料仕様なりになるかを予測することはできない。しか

図6 核分裂原子炉と核融合炉の炉心の対比(石野⁽⁶⁾)。

し図6⁽⁶⁾に核分裂炉との炉心の事情を対比して示すように、最も内側の第1壁が照射効果の点では最も酷しいと考えられる。ここで起こる現象については未経験の事象も多いので、材料部門がすべての工学部門の先頭を切ってこの場合の照射効果についての研究をはじめるべきものとされ、すでに各国でその努力がはじまっている。

第1壁の使用温度は当初は1273 Kともいわれたが、その後実情に合わせて若干下げる設計になっているので、高融点金属の合金の外耐熱合金と今までいわれるものも候補になっているが、核分裂炉の場合のJMTRのように、実条件よりはげしい重照射を浴せられる核融合炉を先につくって実験的に2.24 pJ(14 MeV)の中性子の外イオンなどの照射効果をしらべることはまずできない

のが弱味である。このため照射損傷理論と格子欠陥論などに基づいた損傷予言の電算機コードを開発し、シミュレーション実験などで照合(fitting)できる範囲でその妥当性を確認の上、実炉条件下のふるまいに外挿するということに、ソフトウェアの開発努力が重要である。本項では紙数の点で今日までの研究状況を詳述できないが、本年2月に開かれる二度の研究会に総説がなされるから、ご関心の向きはその予稿集をよんで頂きたい⁽⁷⁾。このような知見の現状であるから、まだ対策を材料側でたてるまでには至っていないが、現在工業的に入手可能な材料で、完全に予測される実用条件に耐えられそうなものは、残念ながらないようである。

文 献

- (1) 例えば、三島良績編著：核燃料工学，同文書院，(1972)，第3章。
- (2) H. Assmann and H. Stehle：Reaktortagung, Karlsruhe, (1973)，409。
- (3) M. F. Lyons, et al.：Nucl. Eng. Design, 21 (1972)，167。
- (4) R. B. Adamson：ASTM STP, (1977)。
- (5) M. Ichikawa, et al.：J. Nucl. Sci. Tech., 8 (1976)，528。
- (6) 石野 栞：学振第122原子炉材料研究委員会昭和50年度第1回研究会資料，(1975)。
- (7) 石野 栞：第16回原子力総合シンポジウム予稿集，(1978・2月)，81；核融合連合講演会(1978・2月)，特別講演 No. 8。
- (8) 古平恒夫，藤村理人：第16回原子力総合シンポジウム予稿集，(1978・2月)，90，93。

「ノート」から

主要国のエネルギー研究開発組織等

	エネルギー研究開発政府資金 (億円/年)	組 織			エネルギー研究開発長期計画
		エネルギー政府責任機関	エネルギー研究開発責任機関	規制責任機関	
日 本	1,000(昭和50年度一般会計)	通 産 省	原子力委員会 科学技術庁 通産省他	原子力委員会 科学技術庁 通産省、環境庁他	原子力開発利用長期計画(原子力委員会) サンシャイン計画(通産省)
アメリカ	5,400(1976会計年度)	連邦エネルギー庁	エネルギー研究開発庁	原子力規制委員会 環境保護庁	エネルギー研究開発5ヶ年計画 1975~1979 3兆円
西ドイツ	1,500(1975会計年度)	連邦経済省	連邦研究技術省	連邦内務省	原子力4ヶ年計画(1973~1976) 6,100億円 非原子力4ヶ年計画(1974~1977) 1,500億円
フランス	2,100	産業研究省	同 左	産業研究省 厚生省	1975年2月に決定されたエネルギー中央計画の一環として、研究開発を推進している
イギリス	1,050	エネルギー省	同 左	雇 用 省	エネルギー省において研究開発計画を策定中
カナダ	660	エネルギー鉱山資源省	同 左	同 左	