

平成 16 年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究状況報告書

ふりがな		たかはし せいき					
研究代表者氏名		高橋 正氣		所属研究機関・部局・職		岩手大学・工学部・教授	
研究課題名	和文	中性子線照射による原子炉構造材料の経年劣化と磁化過程の相関に関する研究					
	英文	Correlation between degradation and magnetic properties under neutron irradiation in nuclear reactor materials					
研究経費 16年度以降は内約額 金額単位：千円	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	総合計	
	41,300	19,900	11,200	6,600	5,900	84,900	
研究組織（研究代表者及び研究分担者）							
氏名	所属研究機関・部局・職		現在の専門		役割分担（研究実施計画に対する分担事項）		
高橋 正氣	岩手大学・工学部・教授		固体物理学		研究総括、磁気特性評価		
越後谷 淳一	岩手大学・工学部・教授		材料組織学		金属組織評価		
鎌田 康寛	岩手大学・工学部・助教授		磁気工学		磁気特性評価、照射実験		
菊池 弘昭	岩手大学・工学部・助教授		磁気工学		検査機器開発、照射実験		
旗福 寛	岩手大学・工学部・助教授		計測工学		検査機器開発		
吉田 直亮	九州大学・応用力学研究所・教授		エネルギー材料工学		照射欠陥、損傷評価		
小島 史男	神戸大学・自然科学研究科・教授		逆問題解析学		逆問題解析		
藤原 耕二	岡山大学・工学部・助教授		磁気工学		検査機器開発、電磁場解析		
荻 博次	大阪大学・基礎工学研究科・助教授		超音波工学		超音波特性評価		
当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）							
<p>本研究は、原子炉構造材料の中性子線照射による経年劣化と磁化過程の相関を明らかにし、亀裂発生前の材料劣化の新しい非破壊検査法を確立することを目的とする。経年劣化の非破壊検査法の研究は、従来、微小亀裂の発見及び亀裂形状・大きさの特定を目的としていた。しかし、特に原子炉中樞部の圧力容器の場合、亀裂発生は原発の運転停止を意味し、突発的な運転停止により大きな経済的損失を被る。さらに微小亀裂が生じた状態で緊急炉心停止処置がとられた場合、圧力容器の破損という大事故につながる可能性もある。亀裂発生前の劣化評価が可能になれば、これらの経済性・安全性の問題が解決できる。この問題は原発の長寿命化が進む状況下で早急な対応が求められている。</p> <p>亀裂発生前の劣化評価には、格子欠陥の非破壊評価法の確立が不可欠である。我々は磁性に着目し研究を進め、転位（塑性変形時に導入される格子欠陥）密度に敏感な磁気パラメータ（国内・国外特許申請）を発見し、その有効性を示してきた。しかし、実際の圧力容器の劣化は複雑で、照射損傷により様々な形態の格子欠陥（空孔、格子間原子、転位ループ、ヴォイドの形成、銅原子の析出など）が形成し、それらが複合的に作用して照射脆化を引き起こす。これら多様な格子欠陥に対して、転位を想定して構築した我々の方法が適用できるかどうか必ずしも明らかでない。</p> <p>以上の背景のもと、本研究では岩手大学において模擬実験などの原理的研究および専用測定装置開発を進めるとともに、原子力研究所材料試験炉（JMTR）施設を利用し、磁気特性・機械特性・内部組織に及ぼす中性子線照射の影響を調べる。また照射前後の計測だけでなく、照射中のその場磁気計測を試み、磁気特性変化を連続的に調べる。この種の研究は国内外を通じて初めての試みである。実験結果をもとに照射損傷と磁性の相関に関するメカニズムを解明し、原子炉圧力容器の磁気的非破壊検査方法の基礎を確立させる。圧力容器鋼の他にも、照射誘起・熱鋭敏化応力腐食割れが大きな問題となっているステンレス鋼やインコネル合金に対しても、材料劣化の磁気的非破壊検査の可能性について検討する。</p>							

これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

岩手大学と日本原子力研究所（原研）の2カ所を中心に研究を進めている。それぞれについて平成14年度・15年度の研究経過状況を以下にまとめる。

平成14年度・岩手大学

照射脆化模擬材として冷間圧延した炭素鋼の圧延率の違いによるシャルピー延性脆性遷移温度および磁気パラメータの関係を調べ、両者の間に良い相関があることを明らかにした。シャルピー試験片専用磁気計測装置を完成させた。平板用のヨーク型非破壊磁気計測装置を作製し性能確認を行うとともに計測データの逆解析問題に関する基礎的検討を行った。室温以上で圧縮変形したステンレス鋼の磁気測定を行い、マルテンサイト変態（M変態）に及ぼす温度因子の影響について明らかにした。インコネル600合金及び690合金の磁性を調べ、600合金の磁気的非破壊検査法を発見した。における組織観察、相の同定、配向性評価の際に、初年度購入したSEM及びXRD装置を活用した。

平成14年度・原研

原研東海研究所・大洗研究所および東北大金研材料試験炉施設の照射実験の専門家と情報交換・検討を重ねて、平成15年度予定の照射実験用キャプセルの設計を行った。キャプセルは特注で2個のリング状試料のその場磁気計測が可能な設計とした。製作は助川電気工業に依頼し、年度末にキャプセル部品製作が完了した。

平成15年度・岩手大学

鉄単結晶・多結晶・A533B鋼について、マイナーヒステリシス法に基づく磁気的物理量の結晶粒径依存性、転位密度依存性について明らかにした。照射脆化模擬材としてFe-Cu合金の熱時効材を用意し、Cuの析出と磁気特性の相関について検討した。シャルピー試験片専用磁気計測装置にホールセンサーを設置し性能の向上に取り組んだ。平板用のヨーク型非破壊磁気計測装置を用いた実験を行い、磁気cパラメータの逆解析問題について検討した。ステンレス鋼およびインコネル600合金の応力腐食割れの原因となる熱鋭敏化と磁気特性の関係を明らかにした。ステンレス鋼の照射誘起偏析材の磁気特性を明らかにした。ステンレス鋼の疲労材に対する磁気的非破壊検査法を発見した。照射前のA533B鋼の磁気特性・機械特性・構造・超音波特性を評価した。磁気特性については温度依存性(室温～照射予定温度290)を調べた。

平成15年度・原研

助川電気工業に依頼し、1回目照射試験用キャプセルの部品の組立を行った。平成16年1月末に照射試験を開始し、世界で初めて中性子照射中の圧力容器鋼のその場磁気特性計測に成功した。現在も照射中で平成16年7月に照射が終了する予定である。第2回目照射試験用(平成17年1月照射開始予定)のキャプセルの部品設計・製作を行った。

表1 研究経過の一覧

	岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター		日本原子力研究所		
	圧力容器鋼およびその模擬材		中性子照射実験		
	基礎実験	装置開発	ステンレス鋼および インコネル合金・基礎実験	1回目照射	2回目照射
14年度	冷間圧延材の磁気・機械特性	シャルピー試験片専用装置開発 ヨーク型装置開発 及び逆問題解析	SUS鋼のM変態の温度依存性 インコネル600及び690合金の磁性	キャプセルの設計・部品製作	
15年度	鉄単結晶・多結晶・A533B鋼のマイナーヒステリシス解析 熱時効Fe-Cu合金の磁性 照射前A533B鋼の磁気・機械・超音波特性、構造評価、A533B鋼の磁性の温度依存性	シャルピー試験片専用装置の改良 ヨーク型装置の性能評価及び逆問題解析	熱鋭敏化材の磁性 照射誘起偏析模擬材の磁性 SUS鋼疲労材の磁性	キャプセル部品の組立 [H16.1月より7月まで] 照射実験・その場磁気計測	キャプセルの設計・部品製作

注：太字の , , については、次項に詳細を記した。

特記事項 (これまでの研究において得られた、獨創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。)

(1) ヒステリシスマイナーloop法の発見

ヒステリシスマイナーloopの解析から格子欠陥の情報を得ることが出来る新しい磁氣的物理量を発見した(特許申請中。次項の学術論文リスト(1)および(6))。この新しい物理量は従来のいわゆるメジャー・loop測定(数百 Oe 以上の印加磁界)により得られる物理量である保磁力に比べ、格子欠陥に対する情報量が多い。即ち、20 Oe 以下の低磁界を用いるため、ブロッホ磁壁との相互作用の弱い様々な格子欠陥についても敏感であると考えられる。また励磁が低磁界の発生で十分なため計測装置開発の観点からも有利である。これまでも低磁界での磁化測定の研究報告はあるが、我々が提案するマイナーloop法は従来のものと全く異なり、印加磁界や振幅強度が変数として含まれておらず、印加磁界の任意性を取り除くことに成功した点に大きな特徴がある。

我々のマイナーloop法では、擬保磁力 H_c^* 、擬レマネンス B_R^* 、等の 8 個の物理量を導入し、振幅磁界 H_a を変えて得られたそれらの物理量を整理することで、低磁界の磁化過程で重要となるブロッホ磁壁移動のポテンシャルプロファイルを導出する(図1)。このポテンシャルは様々な格子欠陥の形成により大きく変化する。これまで鉄単結晶・多結晶・圧力容器鋼 A533B を塑性変形材についてマイナーloop法の優位性を示しており、新しい磁氣的破壊検査法として非常に有望である。

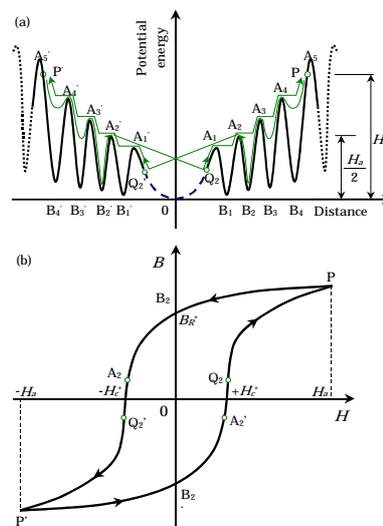


図1 (a)ブロッホ磁壁移動のポテンシャルプロファイルと(b)ヒステリシスマイナーloopの模式図(論文(2)より)

(2) 照射中その場磁気計測の成功

耐熱性および耐照射性を考慮して MI ケーブル材の励磁・検出コイルを巻いたドーナツ形状の A533B 鋼試料を照射キャプセル内に設置した。照射キャプセルから信号ケーブルを引き出し、原子炉建屋内に設置したデジタル磁気計測装置に接続した(図2)。H16年1月末より照射実験を開始し、振幅磁界を次々と変えたマイナーloopを測定した(図3)。原子炉運転中には周囲から様々な電気ノイズが侵入するが、複数のフィルターを組み合わせることでそれらの除去に成功し、世界で初めて A533B 鋼の照射中の磁気計測に成功した。この計測の成功により照射に伴う磁性変化の連続的評価が可能となった。現在も照射中であり、H16 年秋以降の照射後試験の結果とあわせて照射損傷と磁性の関係を解明する。

(3) シャルピー衝撃試験片専用磁気計測装置の開発

磁気ヨーク、試料支持棒、試験片により閉磁回路を構成し、試験片周りに励磁コイルおよび磁束密度検出コイル、磁界検出コイル、ホールセンサーを配置した専用磁気計測装置を開発し、照射前の圧力容器鋼の磁気計測に成功した(図4)。フルサイズ・シャルピー試験片の磁気計測が可能であるほか、照射により放射化した試料を取り扱うためホットセルにおいてコンピューターで遠隔操作可能である点に特徴がある。平成16年度以降の照射後実験においてホットセル内で使用する予定である。この装置開発の成功により、実際の商業用原子炉で用いられている監視試験片の計測も技術的に可能となった。

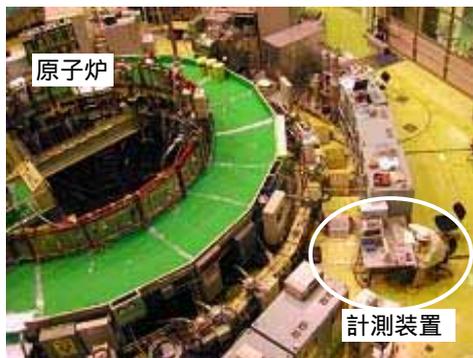


図2. JMTRにおける照射中その場磁気計測の様子

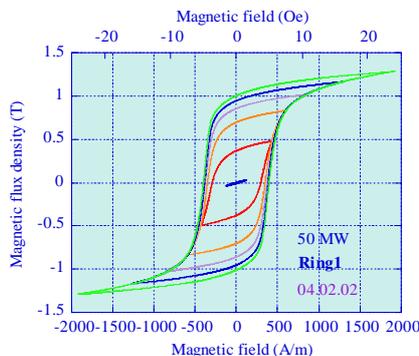


図3. 照射中その場磁気計測による A533B 鋼のマイナーloop



図4. シャルピー試験片専用磁気計測装置

研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(発表予定のものを記入することも可能。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。)

【学術誌発表】添付論文は(1),(6),(8),(10),(16)

- (1) S. Takahashi, L. Zhang, and T. Ueda : "Magnetic hysteresis minor loops in Fe single crystal" J. Phys.: Condens. Matter Vol.15, (2003) 7997-8002.
- (2) 植田晃茂, 沖野裕, 高橋正氣, 越後谷淳一, 鎌田康寛 : "Ni 当量を等しくした SUS304 鋼のマルテンサイト変態" 日本応用磁気学会誌, Vol.27 (2003) pp.607-611.
- (3) K. Mumtaz, S. Takahashi, J. Echigoya, L. Zhang, Y. Kamada and M. Sato : "Temperature dependence of martensitic transformation in austenitic stainless steel", Journal of Materials Science Letter, Vol.22 (2003) pp.423-427.
- (4) K. Mumtaz, S. Takahashi, J. Echigoya, L. Zhang, Y. Kamada and M. Sato : "Detection of martensite transformation in high temperature compressively deformed austenitic stainless steel by magnetic NDE technique", Journal of Materials Science Letter, Vol.38 (2003) pp.3037-3050.
- (5) 八重樫光, 鎌田康寛, 越後谷淳一, 荒克之, 境禎明, 高橋正氣 : "疲労変形した SM490YA 鋼における変形微細組織の磁気測定による非破壊評価", 鉄と鋼 Tetsu-to-Hagane, Vol.89 (2003) pp.61-66.
- (6) S. Takahashi, T. Ueda and L. Zhang : "Minor hysteresis loops and Bloch wall potential in a Fe single crystal" J. Phys. Soc. Japan, Vol. 73, No.1, (2004) pp.239-244.
- (7) S. Takahashi, Y. Sato, Y. Kamada and T. Abe : "Study of chromium depletion by magnetic method in Ni-based alloys" J. Mag. Mag. Mater., Vol.269, (2004) pp.139-149.
- (8) L. Zhang, Y. Kamada, H. Kikuchi, K. Mumtaz, K. Ara, S. Takahashi, M. Sato, and T. Tsukada "Magnetic Transition Temperatures of Some Model Alloys for Simulating Radiation Induced Segregation in Austenitic Stainless Steel", J. Mag. Mag. Mater., Vol.271, (2004) pp.402-408.
- (9) 鎌田康寛, 張樂福, 荒克之, 菊池弘昭, 徳武洋介, 高橋正氣, 塚田隆 : "ステンレス鋼粒界での照射誘起偏析を模擬した合金のマルテンサイト変態と磁性", 日本金属学会会誌, Vol.68, No.2, (2004) pp.122-125
- (10) K. Mumtaz, S. Takahashi, J. Echigoya, Y. Kamada, L. Zhang, H. Kikuchi, K. Ara, and M. Sato "Magnetic Measurements of Martensitic Transformation in Austenitic Stainless Steel after Room Temperature Rolling" Journal of Materials Science, Vol.39 (2004) pp.85-97.
- (11) K. Mumtaz, S. Takahashi, J. Echigoya, Y. Kamada, L. Zhang, H. Kikuchi, K. Ara, and M. Sato "Magnetic Measurements of the Reverse Martensite to Austenite Transformation in a Rolled Austenitic Stainless" Journal of Materials Science, Vol.39 (2004) pp.423-427.
- (12) F. Kojima, K. Ara and S. Takahashi : "Identification of Material Degradation for Nonlinear Electromagnetic Problem" Electromagnetic Nondestructive Evaluation (VIII): T. Sollier, D. Prémel and D. Lesselier (eds.), Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Vol.24, IOS Press (2004) pp.85-92.
- (13) S. Takahashi, T. Nakano, K. Ara, Y. Kamada, H. Kikuchi and M. Sato : "NDE of Pressure Vessel by Magnetic Method" Electromagnetic Nondestructive Evaluation (VIII): T. Sollier, D. Prémel and D. Lesselier (eds.), Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Vol.24, IOS Press (2004) pp.139-145.
- (14) H. Kikuchi, K. Ara, N. Ebine, Y. Sakai, Y. Kamada and S. Takahashi : "A Probe Using a Magnetic Yoke for NDE of Ferromagnetic Steels", Electromagnetic Nondestructive Evaluation (VIII): T. Sollier, D. Prémel and D. Lesselier (eds.), Studies in Applied Electromagnetics and Mechanics, Vol.24, IOS Press (2004) pp.146-152.
- (15) 鎌田康寛, 中野朋和, 高橋正氣, 荒克之, 菊池弘昭, 越後谷淳一, 八重樫光 "冷間圧延鋼のシャルピー衝撃特性と磁化特性の相関", 日本応用磁気学会誌, Vol.28 (2004) pp.409-412.
- (16) S. Takahashi and L. Zhang : "Minor hysteresis loops in Fe metal and alloys" J. Phys. Soc. Japan, (2004) in press.

【国際会議発表】

- (1) S. Takahashi, Y. Kamada, K. Ara and H. Kikuchi : "A New Magnetic NDE Method in INCONEL 600 Alloy" 11th International Symposium on Applied Electromagnetics & Mechanics, 148-149, Versaliies, France, May 2003.
- (2) N. Ebine, M. Suzuki, K. Ara, H. Kikuchi, T. Abe, Y. Kamada, S. Takahashi, K. Fujiwara, "Development of a Device for Measurement of Hysteresis Magnetization Curves of Charpy Impact Test Pieces" 11th International Symposium on Applied Electromagnetics & Mechanics, 148-149, Versaliies, France, May 2003.
- (3) S. Takahashi, T. Nakano, K. Ara, Y. Kamada, H. Kikuchi and M. Sato : "NDE of Pressure Vessel by Magnetic Method" 9th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, Saclay, France, May 2003.
- (4) H. Kikuchi, K. Ara, N. Ebine, Y. Sakai, Y. Kamada and S. Takahashi : "A Probe Using a Magnetic Yoke for NDE of Ferromagnetic Steels", 9th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, Saclay, France, May 2003.
- (5) F. Kojima, K. Ara and S. Takahashi : "Identification of Material Degradation for Nonlinear Electromagnetic Problem" 9th International Workshop on Electromagnetic Nondestructive Evaluation, Saclay, France, May 2003
- (6) S. Takahashi, L. Zhang, Y. Kamada, H. Kikuchi, and K. Ara : "Nondestructive Methods by Minor Hysteresis Loop in Low Carbon Steel", Third Japan-Australia-New Zealand Joint Seminar, Auckland, New Zealand, 22-23 January 2004.

【国内学会発表】

- (1) 久保田理子, 高橋正氣, 鎌田康寛, 菊池弘昭, 荒克之 : Fe-Cu合金におけるCuの時効析出に伴う機械的・磁氣的性質の変化, 第146回日本鉄鋼協会秋期講演大会, 2003.10.12, 北大, 札幌
- (2) 平野浩史, 中野正典, 藤原耕二, 菊池弘昭, 荒克之, 海老根典也, 鎌田康寛, 高橋正氣 : 原子炉圧力容器用鋼A533Bの磁気特性測定, 平成16年電気学会全国大会, 2004.3.17-19, 青山学院大, 相模原.
- (3) 小島史男, 藤岡俊哉, 西山亮, 荒克之, 菊池弘昭, 高橋正氣 : 非線形電磁場逆解析による強磁性材料の劣化進行度分布推定, 第13回 MAGDA コンファレンス, 2003.3.26-27, 東北大, 仙台, 講演論文集 pp.435-438. (他11件)