

先進原子力材料の開発と展望

木村 晃彦*

1. はじめに

原子力材料を語る上で、福島県における原発の津波災害に触れずにはおられない。津波を受けた原発は、現在冷温停止状態に達し、安定してはいるものの、水素爆発がもたらした放射能による環境汚染は今後も予断を許さない。基幹エネルギーの在り方、例えば、今後、原子力とどう向き合っていくべきかの議論・討論が様々な場で行われているが、ここでは、先般の被災に関連し、今後、材料研究者として、どのように原子力材料研究を進めるべきかについて、現状を整理すると共に、将来展望について述べてみたい。

2. 震災後の原子力を取り巻く国際動向

我が国に限らず、地球規模でのエネルギーの安定供給と地球温暖化対策のためには、エネルギーの高効率利用が不可欠である。特に近年は、CO₂の排出削減において、原子力エネルギーに対する期待が大きく、その利用はグローバルなエネルギー施策と考えられていたが、今回の事故は世界各国に多かれ少なかれ影響を及ぼしている。

東日本大震災以降の原子力政策に関する国際動向(平成22年(2010)度科学技術基礎調査等委託「世界の原子力事情に関する調査」、2011年5月10日、内閣府、原子力政策担当室)によれば、原子力先進国(米国、フランス、ロシア、韓国等)においては、「原子力エネルギーは、重要なエネルギー源として位置付けられ、一層の安全性向上を図りつつ、その利用を維持する」とされている。原子力拡大国(中国、インド等)においては、「短期的には、原子力拡大の動きは停滞する可能性はあるものの、長期的には安全性向上を図りつつ、開発促進を継続する」との見解が示されている。また、新規導入国(トルコ、ベトナム等)においても「安全性向上を図りつつ、当該計画を推進する」とされている。一方、原子力回帰国(ドイツ、イタリア等)においては、「原子力への回帰の動きは失われ、脱原子力を目指す」とされている。

現在(2011年5月)建設中の原子炉としては、中国の6基

○1980年代
欧州4社: ブラウン/ボベリー、アセア、フラマトム、シーメンス
米国4社: WH、GE、C-E、パブコック/ウィルコックス
日本3社: 三菱重工、東芝、日立製作所



1980年代: 原子力事業の縮退
2005年以降: 原子力カルネッサンス

○現在
三菱重工 & AREVA、東芝 (& WH)、日立 & GE

図1 国際原子力プラントメーカーの推移。

を含め、5か国で14基が新たに着工され、今後は世界で合計75基、約7,600万kWが建設予定である。中国とインド、およびロシアでの拡大が目覚ましく、75基のうち4割にあたる30基が中国のプロジェクトによるものである。新たに着工あるいは建設許可が下りた14基の内訳は、中国の6基、インドの4基、ロシアの2基、ブラジルの1基となっている。

このような国際動向の中で、高い原子力技術力を持つとされているプラントメーカーの世界3大グループ(三菱重工 & AREVA、東芝 (& Westinghouse)、日立製作所 & GE)のいずれにも日本企業が含まれており(図1参照)、近年の原子力エネルギー開発における我が国の世界競争力は群を抜いている。さらに、原子力材料の研究・開発に関しては、素材を提供する我が国のメーカーによる大型鋳塊の製造や長寿命化の技術開発など、鉄鋼材料の製造技術において世界を大きくリードする業績を示してきたことは良く知られている。

原子力に係る材料開発という観点からは、大きく2つの考え方が示されている。まず、軽水炉の高経年化に伴う材料課題克服のための開発と、次に、その延長として次世代の原子力発電プラント用材料の開発である。具体的にあげれば、前者は、既存材料の高経年化に伴う材料挙動評価や予測、材料劣化の非破壊検査法、劣化材料の補修技術、交換用の新素材の開発などであり、後者は、さらに苛酷な照射環境(先進原子力システム)に耐える「革新的な材料」の開発があげられる。

* 京都大学教授; エネルギー理工学研究所(〒611-0011 宇治市五ヶ庄)
Prospect of Advanced Nuclear Materials R&D; Akihiko Kimura (Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Uji)
Keywords: radiation tolerance, oxide dispersion strengthened steel, nano-oxide particle
2012年12月12日受理

3. 材料開発における照射研究

次世代炉材料に課せられる要件の中で最も重要視される耐照射性能の付与のための技術開発においては、高い照射量までの照射効果挙動を確認しておく必要がある。具体的には、対象となる照射環境下での照射効果の照射量依存性および照射温度依存性を明らかにしておくことがあげられる。照射効果は、照射前後における材料特性や性能の変化によって示される。照射前の熱影響評価においては、一般に温度が低い場合は、材料組織変化は小さいが、温度が高くなると、熱時効に伴う組織変化と材料のマクロ挙動変化が生じるようになる。場合によっては、熱的影響が照射影響を凌駕する場合も当然あり得る。

通常、照射効果は、熱的平衡状態への組織変化を促進する場合と非平衡組織を誘起創成する場合の二つに分類される。前者は、照射により、組織変化の担い手である空孔(あるいは格子間原子)が多量に導入されることによる。このことは、式(1)を見れば明確である。式(1)は熱的な組織変化の速さの度合いを示す固体中の原子の拡散係数(D)を表している(D_0 : 前指数項, k : ボルツマン因子, T : 温度(K)). 拡散の活性化エネルギー(E)は、空孔の形成エネルギー(E_F)と移動のエネルギー(E_M)の和で表され、式(1)から拡散係数は、空孔濃度と空孔移動頻度の積に比例することが判る。非照射の場合は、空孔濃度はその温度における熱平衡濃度であるが、照射下では照射による原子の弾き出し損傷として形成される空孔の濃度が熱平衡濃度に比べ、格段に大きくなるため、拡散係数が大きくなり、組織変化が促進されることになる。一方、もう一つの点欠陥である格子間原子も組織変化に寄与するが、使用温度において空孔に比べ易動度が大きく、照射環境や材料の影響を受けにくい。

$$D = D_0 \exp\{-(E_F + E_M)/kT\} \quad (1)$$

熱平衡組織に漸近する過程は、ある程度の予測が可能である。一方、非平衡組織の創成においては、組織は照射により誘起されるものであり、多くの場合、予測不能の現象を伴う場合が多い。全く新しい材料の実用化に際しては、非平衡組織創成の現象を確認しておく必要性が高くなる。すなわち、材料の実用化に向け、その特性や性能に関する確証を得るためには、想定される照射条件下における材料挙動を確認しておく必要がある。

前述したように、照射効果の照射量依存性は材料開発における最大の関心事であるが、照射効果の種類により、その重要性は異なる。図2は、照射硬化およびポイドスウェリング(体積膨張)の照射量依存性を模式的に示している。照射硬化に関しては、低照射領域において急激な変化が生じているが、ある照射量において飽和する傾向を示している。これに対し、ポイドスウェリングの場合は、低照射量領域においてはほとんど変化が認められないが、ある照射量を超えると変化量が顕著になる。この照射量依存性の挙動は、照射温度が異なると変化し、照射硬化の場合、照射温度の低下に従い、

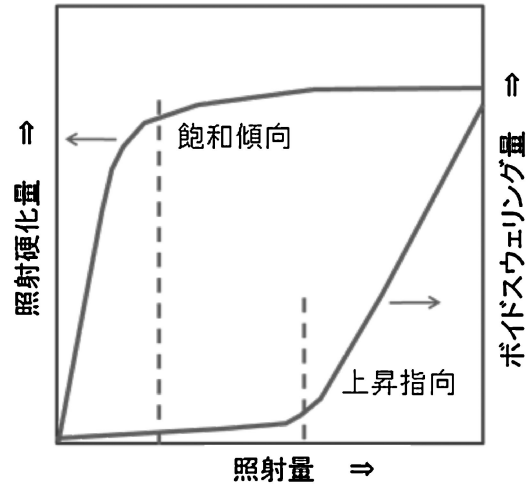


図2 照射硬化量およびポイドスウェリング量の照射量依存性の模式図。

照射硬化量が増大し、飽和する照射量は小さくなる傾向を示している。照射硬化のように、低照射量のデータから高照射量における飽和レベルの値を予測できる場合は、高照射量までの照射データを取得する意義はそれ程高くは無い。一方、ポイドスウェリングは、高照射量の領域において急激に上昇するため、その閾値など、高照射量領域における照射データの重要性は高くなる。ヘリウム脆化などの核変換生成物の影響などに関しても、照射量の増大に伴い核変換生成物が蓄積していくため、高照射量領域においてその影響が顕著になっていく。

4. 酸化物分散強化鋼の開発

核融合炉の開発においては、高エネルギー中性子照射による材料の結晶格子の弾き出し損傷および核変換ヘリウムによる材料劣化が懸念されており、それらに耐える構造材料の開発が不可欠である⁽¹⁾。また、高速炉の開発においても、高燃焼度燃料被覆管の開発が重要視され、ここでも材料開発がシステム実現の鍵を握っている⁽²⁾。核融合炉や高速炉の環境は、軽水炉に比べ、より高温であると共に、高い照射量の中性子照射を受けるため、高温高強度、高温耐食性および耐照射性能に優れた構造材料の開発が期待されている。また、米国の TerraPower 社(Principal Owner: Bill Gates)は、劣化ウランを使用し、最長100年間燃料交換なしで運転することの可能な Traveling Wave Reactor (TWR) と呼ばれる次世代型原子炉の研究開発⁽³⁾を行っており、ここでも高性能の燃料被覆管の開発が必須とされている。

酸化物分散強化鋼(Oxide Dispersion Strengthened Steels: ODSS)は高温高強度化を狙ったナノスケールの酸化物粒子を高密度に分散させたマルテンサイト系およびフェライト系の鉄鋼材料であり、優れた強度特性を示すとともに、耐照射性能に優れていることが判明しており、世界各国において実用化を目指した照射下実証試験が進められている⁽⁴⁾。

(1) 耐照射性能付与

通常のフェライト鋼(Reduced Activation Ferritic Steels: RAFS)と ODSS の照射影響を比較した場合、最も特徴的な相違は、引張伸びに及ぼす照射の影響である。図 3 は、RAFS(12Cr-Ferritic steel)と ODSS(12Cr-ODS steel)の室温における引張挙動に及ぼす熱中性子炉(High Flux Isotope Reactor: HFIR)照射(300°C, 2.8 dpa[†])の影響を示しており、照射により RAFS の伸びが顕著に低下しているが、ODSS の伸びはほとんど変化していないことがわかる。

一般に、材料は硬くなると脆くなることが知られているが、ODSS の照射硬化においてはそれが当てはまらない。この室温での現象は、照射影響が延性破壊を促進することで説明される。通常、伸びの減少が認められれば、脆化が生じたと表現される。しかし、脆化はあくまでも破壊挙動から判定されるべきであり、単純に伸びの減少から脆化が生じたとは言いがたい。延性破壊の促進は、くびれ現象の促進であり、そこでは塑性変形が局所的に生じている。この実験事実に基づくと、ここでの照射脆化は「局所的な塑性変形の促進による伸びの減少」として説明される。ODSS においては、ナノサイズの微細な酸化物粒子が局所的な塑性変形を抑制することで、伸びの低下がほとんど見られなかったと解釈することができる⁽⁵⁾。以上の考察は、照射影響のメカニズムに関するもので、高速炉(450°C, 14 dpa)あるいは熱中性子炉(300°C, 2.8 dpa)での照射後のいずれにおいても共通する現象である。12Cr-ODS 鋼を高速炉で照射した場合(450°C, 14 dpa)は、約 50 MPa の照射硬化が見られている。RAFS に比べ、照

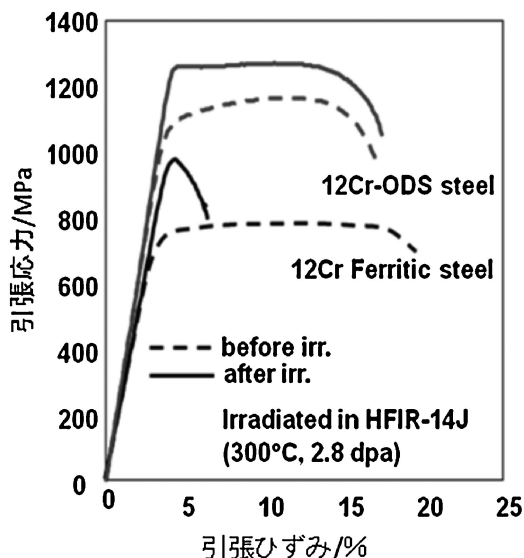


図 3 12Cr ferritic steel (RAFS) および 12Cr-ODS steel (ODSS) の引張変形挙動に及ぼす HFIR 照射の影響。

[†] dpa (displacement per atom): 原子の弾き出し損傷量を示す単位で、軽水炉の炉心材料で数 10 dpa, 核融合炉ブランケット材料では数百 dpa の照射損傷を受けると試算されている。

射温度はやや高いが、硬化量は RAFS の約 200 MPa に比べ、かなり小さく照射による変化の少ないことから、ODSS は耐照射性能に優れていることが判る。熱中性子炉において、300°C で 3 dpa 照射した ODSS の照射硬化量は約 100 MPa であり、照射温度を考慮しても、ODSS は RAFS 鋼に比べ、耐照射性能が良い。中性子スペクトルや照射速度の相違もあるが、高速炉と熱中性子炉を用いた中性子照射実験における照射硬化挙動に顕著な差はみられていない。このような現象は、照射量が 1 dpa に満たない材料試験炉 (Japan Materials Test Reactor: JMTR) 照射においても観察されている⁽⁴⁾。

ODSS と RAFS の耐照射性の大きな相違は、ヘリウム脆化挙動にも見られている。核融合炉のブランケット構造材料として RAFS を使用した場合、中性子照射による核変換反応で生じるヘリウムの生成速度は約 15 atppm/dpa とされており、数年の運転でヘリウム生成量は 1000 atppm を超える。図 4 は、RAFS (F82H 鋼) および ODSS (15Cr-ODS 鋼) のミニサイズ衝撃試験片 (1.5 × 1.5 × 20 mm³) の V-notch 部に 1000 atppm のヘリウムを注入し、延性脆性遷移挙動を調べた結果を示している⁽⁶⁾。ヘリウム注入の前後において、RAFS は DBTT が顕著に上昇し、ヘリウムが注入された領域の破壊様式は注入前のへき開破壊から粒界破壊へと破壊様式が変化している。一方、ODSS では延性脆性遷移挙動および破壊様式にほとんど変化が見られず、極めて高い耐ヘリウム脆化特性を持つことがわかる。ODSS の優れた耐性は、ナノスケールの酸化物粒子と母相の界面のほとんどが半整合 (図 5 参照) であり⁽⁷⁾、それらの界面がヘリウム原子を捕獲し、ヘリウムの粒界上での析出を妨げることによることが判明している⁽⁸⁾。

(2) 酸化物粒子の相安定性と Fe/Cr 二相分離

酸化物分散強化鋼を原子力材料として使用する場合、その優れた性能を発現させているナノスケール酸化物粒子の微細

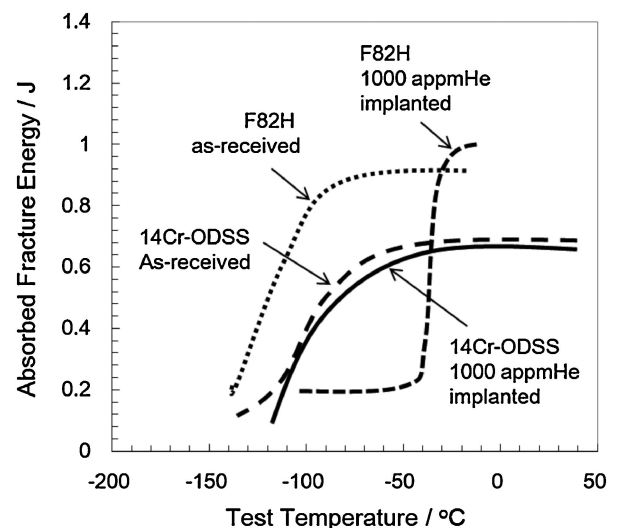


図 4 F82H (RAFS) および 14Cr-ODSS の延性脆性遷移挙動に及ぼすヘリウム注入の影響。

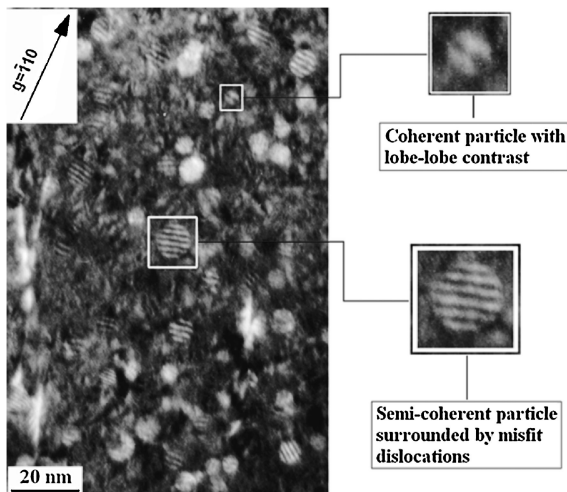


図5 15Cr-4Al-ODSS中の(Y, Al)酸化物粒子(整合及び半整合)のTEM組織⁽⁷⁾.

分散が照射下で安定であることが必須の条件となる。酸化物粒子の相安定性に関しては、これまでに異なる見解が示されているが、イオン加速器を用いた照射実験では、照射温度650°C、損傷量60 dpa(損傷ピーク値で180 dpa)の照射下においても平均サイズがほとんど変化しないことが観察されている⁽⁹⁾。

Na冷却高速炉の燃料被覆管としては、クロム量が9 mass%および12 mass%のマartenサイト/フェライト系のODSSが開発されているが、これらの材料を超臨界圧水(Super Critical Pressurized Water: SCPW)や鉛ビスマス共晶(Lead Bismuth Eutectic: LBE)中で使用する場合は、その耐食性に大きな難点を抱えており、それを克服するための高クロム化が望まれる。一方、高クロム化は二相分離による熱時効脆化を起し易くするため、脆化の許容できる範囲での高クロム化を行う必要がある。非照射の状態では、二相分離の最も生じやすい温度は475°Cであることはよく知られており、この温度をピークにして低温側および高温側では二相分離は生じにくくなる。また、クロム濃度が13%を超えると接合においても課題が生じてくる⁽¹⁰⁾。

米国の高速炉(Fast Flux Test Facility/Materials Open Test Facility: FFTF/MOTA)を用いた照射実験(12 mass% Crを含んだRAFS)においては、二相分離が中性子照射により促進されることが確認されている。図6は、FFTF/MOTAで373°Cにおいて、約10 dpaまで照射した場合のTEM組織を示している。左図は格子間型転位ループであり、右図の黒い斑点模様はCr-rich相である。Cr-rich相は、格子間型転位ループと同様に、顕著な照射硬化を引き起こす原因となっている。転位ループとCr-rich相の区別が可能であるため、観察された照射硬化におけるそれぞれの寄与を評価すると、ほぼ同等であることが判っている。照射量依存性に着目し、10 dpaと15 dpaの場合とを比較すると、15 dpaの方が照射硬化は大きくなっているが、その差は小さ

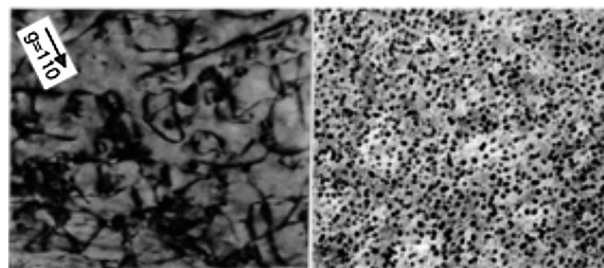


図6 高速炉(FFTF/MOTA)中性子照射した12Crフェライト鋼(RAFS)のTEM組織(左図: 転位組織, 右図: Cr-rich相)。

く、照射硬化は飽和の傾向にあると言える。

5. 材料照射研究への期待

我が国の材料試験炉(JMTR)の特徴は、温度制御照射や途中引き抜き照射が可能であることに代表されよう。JMTR温度制御照射に御尽力された先達に敬意を表し、その恩恵を受けられることの有り難さを再認識したい。RAFSおよびODSSの照射効果および組織変化は照射温度に依存する。照射温度400°C付近を境にして、中性子照射の影響は低温側での硬化から高温側での軟化に転ずる。また、同じ鉄鋼材料でも、ODSSでは、照射温度の影響はRAFSとはその様相を異にしている。照射効果の理解において、照射温度の正確さは絶対的なものであり、照射温度の精度の向上無しに、科学的根拠に基づいた材料の照射効果の理解は不可能であると言っても過言では無い。JMTRの最大の特徴となっている温度制御照射技術は、まさに、材料照射研究における根幹の技術であり、先端技術を駆使した照射後試験機や観察・分析装置、測定機器の存在価値を左右する技術である。この照射技術を効果的に利用することでJMTRの存在意義は飛躍的に高まり、原子炉材料研究の国の内外における拠点としての役割を果たすと期待される。さらに高精度の照射温度制御技術の開発を期待したい。

原子炉の高経年運転においては、原子炉材料の健全性を確認することが不可欠であり、JMTRは科学的な根拠に基づいた健全性予測を可能にするために必要である。科学的根拠に基づいた材料挙動予測が可能になれば、そこから耐照射性能に優れた新材料の開発の指針が見えてくるであろう。次世代炉用の材料開発においては、確認試験として高照射量までのデータベースが不可欠であるが、原子炉を用いた高照射量の照射実験に要する研究期間はあまりに長い。必要なデータベースの性格をよく理解し、低照射量および高照射量で取得すべきデータの意義を明確にして、材料照射研究を行うことが肝要である。

6. 学協会の役割

原子力プラントの建設や運転に係る規格基準または各種標

