

低合金鋼電子線照射材の熱起電力測定における 測定値補正法

Correction Method for Thermoelectric Power Measurement of Electron-Irradiated Specimens of Low Alloy Steel

上坊寺 克郎 (Katsuo Joubouji)*

要約 低合金鋼電子線照射材の熱起電力測定においては目的とする接触点の温度差として電極間の温度差を測定しているが両者は必ずしも一致しない。そこで、熱伝導率が $0.024\sim 0.091\text{W/mm}\cdot\text{K}$ の範囲にある7種類の材料の測定結果を利用して、測定値の補正方法を検討し、試験片の寸法と熱伝導率の影響を考慮した補正式を作成した。また、測定時の系の熱伝導解析より試験片の配置と被測定領域の関係を検討し、本研究で対象とする試験片寸法では、試験片の電極間に位置する範囲の情報のみが測定値に含まれると考えて問題ないことを確認した。以上を踏まえて、低合金鋼の電子線照射材の測定を行い、照射損傷が大きくなると熱電能が大きくなることを確認し、 22mdpa の損傷量における熱電能の変化量として $0.82\mu\text{V}/\text{C}$ が得られた。

キーワード 熱電能, 熱伝導率, 熱伝導解析, 低合金鋼, 電子線照射

Abstract In thermoelectric power measurement technique for electron-irradiated specimens of a low alloy steel, the measured temperature difference between the hot and cold electrodes usually does not agree with the temperature difference between the hot and cold junction. Therefore a correction method for the measurement was investigated in this study using seven kinds of materials with thermal conductivity ranging from $0.024\text{W/mm}\cdot\text{K}$ to $0.091\text{W/mm}\cdot\text{K}$. And an expression was obtained for the effect of dimensions and thermal conductivity of the specimen. In addition, the relation between the measured area and the position of the specimen was examined by thermal analysis of the system consisting of a specimen and electrodes. It has been confirmed that the measured value includes the information of only the region of the specimen between the electrodes. Based upon the above, the thermoelectric power of electron-irradiated specimens of low alloy steel was measured. It was found that thermoelectric power increased with increasing irradiation dose and the increment of thermoelectric power at 22mdpa reached up to $0.82\mu\text{V}/\text{C}$.

Keywords thermoelectric power, thermal conductivity, thermal analysis, low alloy steel, electron irradiation

1. はじめに

原子炉容器は炉心を内包するとともに1次冷却材の圧力バウンダリを構成する重要機器の一つであり、ステンレス鋼を内張りした低合金鋼から成る。低合金鋼については供用期間中に中性子照射により遷移温度の上昇と上部棚エネルギーの低下が生じること(中性子照射脆化)が知られており⁽¹⁾, あらかじめ炉内に挿入された原子炉容器と同一の材料から製作された監視試験片を計画的に取り出して破壊試験を

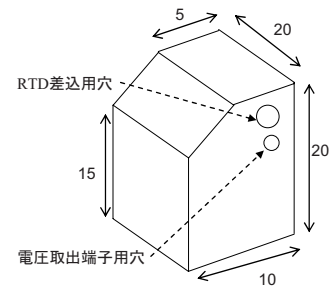
実施し、健全性が維持されていることを確認している^{(2)~(5)}。しかし、当初予定の供用期間の延長に伴い、炉内に装備されている監視試験片に不足が生じる可能性があり、その対策として、使用済監視試験片の再生等⁽⁶⁾⁽⁷⁾の研究が進められた。また、監視試験片の脆化の非破壊的な評価手法の研究^{(8)~(16)}も実施されている。

原子力安全システム研究所では、鑄造2相ステンレス鋼の熱時効の非破壊評価に用いた熱起電力法⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾の適用を検討しているが、熱起電力法による照射

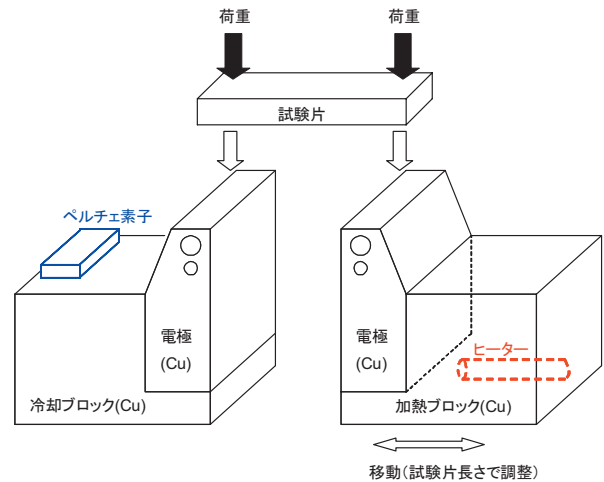
* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

脆化の非破壊評価に関連して、低合金鋼の熱起電力が照射量に対して敏感に反応することが報告されている⁽¹⁴⁾⁽¹⁶⁾。そこで、照射に伴い熱起電力が変化することを確認するため、低合金鋼の電子線照射材⁽¹⁹⁾の熱起電力を測定した。電子線照射材は中性子照射材に比べれば取扱いが容易で、実験室における測定も可能である。

ところで、熱起電力は異種金属を2点で接触させて接触点間に温度差を与えると生じる電位差であり、この電位差の温度差に対する比、すなわち、1℃あたりの熱起電力（熱電能）を非破壊評価に使用する。熱起電力測定装置では、異種金属を測定試料と2つの電極で構成し、電極間に温度差を与えて生じる電位差を測定する。しかし、一般には電極温度を測定するセンサの検出端は電極と測定試料の接触点と一致しないため、熱電能を求めるに当たり測定値の補正が必要とされ^{(20)~(22)}、また、電極と測定試料からなる系の熱伝導解析より、測定値の補正に測定試料の熱伝導率や電極との位置関係が影響することが確認されている⁽²³⁾。ここでは、低合金鋼の電子線照射材の熱起電力測定に備えて実施した測定値の補正方法の検討結果とそれを基に得られた低合金鋼の電子線照射材の熱起電力を報告する。



(a) 電極形状



(b) 電極付近の構成

図1 準備した測定部

2. 熱起電力測定装置

2.1 装置概要

今回準備した測定部の主な構成を図1に示す。この測定部は既存の熱起電力測定装置⁽¹⁷⁾⁽²³⁾の測定部と取り替えて使用する。測定部が装備する2つの電極は同一形状をし、電極温度はそれぞれヒータを内蔵した加熱ブロックとペルチェ素子を貼り付けた冷却ブロックからの伝熱により制御される。また、試験片と電極の接触状態を良好に維持するために錘と梃子を利用し、電極上に位置する試験片の上方から片側の電極当たり約130Nの荷重を負荷する。

2.2 熱電能算出のための計測値補正

測定時の回路は図2に示すように、高温側電極、試験片、低温側電極、導線部、電圧計から構成される。相対熱起電力の符号は電流が低温側で試験片から導線側に流れるような起電力が発生するときに正と定義されるので⁽²⁴⁾、 $T_H > T_1$ 、 $T_2 > T_C$ 、 $T_H >$

$T_R > T_C$ とすると、電圧計で測定される値 $\Delta V_m (= V_+ - V_-)$ は以下ようになる。なお、式中の各記号は図2に示す通りである。

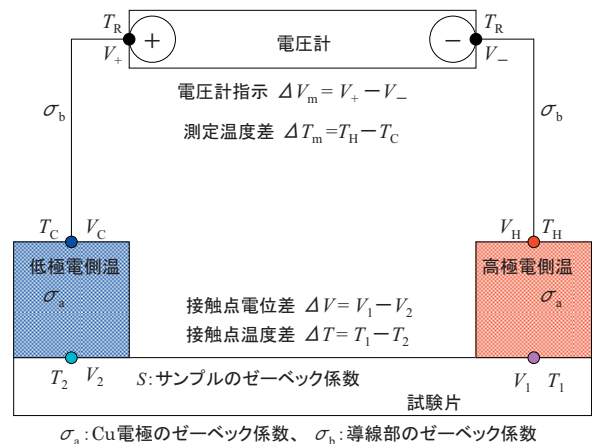


図2 測定時の回路

$$\begin{aligned}
\Delta V_m &= V_+ - V_- \\
&= (\text{高温側導線部起電力}) \\
&\quad + (\text{高温側電極部起電力}) \\
&\quad + (\text{サンプルの熱起電力}) \\
&\quad + (\text{低温側電極部起電力}) \\
&\quad + (\text{低温側導線部起電力}) \\
&= -\sigma_b(T_H - T_R) + \sigma_a(T_H - T_1) \\
&\quad + S(T_1 - T_2) + \sigma_a(T_2 - T_C) - \sigma_b(T_R - T_C) \\
&= (\sigma_a - \sigma_b)\Delta T_m + (S - \sigma_a)\Delta T
\end{aligned} \quad (1)$$

従って、試験片の電極 (Cu) に対する相対熱電能 ($TEPCu \equiv S - \sigma_a$) は、

$$TEPCu \equiv S - \sigma_a = \frac{\Delta T_m}{\Delta T} \left(\frac{\Delta V_m}{\Delta T_m} - \sigma_a + \sigma_b \right) \quad (2)$$

ところで、電極と同じ材料 (Cu) をサンプルとすれば上式の左辺は 0 となるはずである。ゆえに、

$$\sigma_a - \sigma_b = \frac{\Delta V_m}{\Delta T_m} \Big|_{\text{Sample=Cu}} \equiv Cu0 \quad (3)$$

また、熱電能は温度により変化するが、測定する温度範囲において、 $\Delta V_m / \Delta T_m$ の温度特性が傾き α の直線で表せると仮定すると基準温度を T_{ref} 、測定温度を T として、

$$\frac{\Delta V_m}{\Delta T_m} \Big|_T = \frac{\Delta V_m}{\Delta T_m} \Big|_{T_{\text{ref}}} + \alpha(T - T_{\text{ref}}) \quad (4)$$

従って、基準温度 T_{ref} における電極 (Cu) に対する相対熱電能 ($TEPCu_{\text{ref}}$) は、温度 T における測定値 ΔV_m 、 ΔT_m により、以下の通り算出される。

$$TEPCu_{\text{ref}} = \beta \left(\frac{\Delta V_m}{\Delta T_m} \Big|_T - \alpha(T - T_{\text{ref}}) - Cu0 \right) \quad (5)$$

$$\text{なお、} \beta \equiv \frac{\Delta T_m}{\Delta T} \Big|_{T_{\text{ref}}} \quad (6)$$

ここで、温度変化率 α はサンプル毎に実測することにより式 (4) から得られる。また、 $Cu0$ はゼロ点に相当し、Cu をサンプルとして実測することにより得られる。実際に Cu 試験片を測定すると試験片の平均温度を T_{av} (°C) として、

<実機配管用測定装置と組み合わせた場合>

$$Cu0 = 4.48 \times 10^{-3} T_{\text{av}} - 1.78 \times 10^{-1} \quad (\mu\text{V}/^\circ\text{C}) \quad (7)$$

<監視試験片用測定装置と組み合わせた場合>

$$Cu0 = 2.31 \times 10^{-3} T_{\text{av}} - 9.83 \times 10^{-2} \quad (\mu\text{V}/^\circ\text{C}) \quad (8)$$

が得られた。以上より、基準温度 T_{ref} における測定温度差と接触点温度差の比 β が決まれば、熱電能算出のための補正式が決定する。なお、 $\beta = 1$ とならないのは、電極温度を測定するセンサの検出端と接触面の間に生じる温度変化や接触面における温度ギャップのためである。電極と試験片からなる系の熱伝導解析より、電極と試験片の位置関係や試験片の熱伝導率が β に影響することが確認されている⁽²³⁾。今回は熱回路の概念を用い、実際の測定結果から β の値を算出する。

2.3 測定温度差と接触点温度差の比

2.3.1 熱回路の概念の導入

測定時の系から空気中への放熱が無視できるとすると、高温側電極と低温側電極の間の熱回路は、高温側電極の熱抵抗 R_{HT} 、高温側電極と試験片の接触熱抵抗 R_{contH} 、試験片の熱抵抗 R_{Samp} 、試験片と低温側電極の接触熱抵抗 R_{contC} 、低温側電極の熱抵抗 R_{CT} が直列接続した状態に相当する。電極と試験片の接触面間を流れる熱流と電極間を流れる熱流とは一致し、接触面間の温度差は $T_1 - T_2$ 、電極間の温度差は $T_H - T_C$ であるので、

$$\frac{T_1 - T_2}{R_{\text{Samp}}} = \frac{T_H - T_C}{R_{\text{HT}} + R_{\text{contH}} + R_{\text{Samp}} + R_{\text{contC}} + R_{\text{CT}}} \quad (9)$$

と表わすことができる。よって、測定温度差と接触点温度差の比 β は、

$$\begin{aligned}
\beta &= \frac{T_H - T_C}{T_1 - T_2} \\
&= 1 + \frac{R_{\text{HT}} + R_{\text{contH}} + R_{\text{contC}} + R_{\text{CT}}}{R_{\text{Samp}}}
\end{aligned} \quad (10)$$

となる。試験片の熱抵抗は、試験片の熱伝導率を λ 、長さを L 、板幅を w 、板厚を d (熱流の断面積は wd となる) とすると、

$$R_{\text{Samp}} = \frac{1}{\lambda} \frac{L}{wd} \quad (11)$$

と表せる。また、高温側電極と低温側電極の形状と素材は全く同一なので、

$$R_{\text{HT}} = R_{\text{CT}} \equiv R_{\text{E}} \quad (12)$$

$$R_{\text{contH}} = R_{\text{contC}} \equiv R_{\text{CONT}} \quad (13)$$

とおける。従って、

$$\begin{aligned} \beta &= 1 + \frac{2(R_{\text{E}} + R_{\text{cont}})}{R_{\text{Samp}}} \\ &= 1 + 2(R_{\text{E}} + R_{\text{CONT}}) \lambda \frac{wd}{L} \end{aligned} \quad (14)$$

となる⁽²⁵⁾。式(14)からは熱伝導解析の結果が示した β の試験片の熱伝導率に対する依存性を確認できるが、さらに試験片の寸法にも影響されることが分かる。

2.3.2 β の算出

式(14)により β の表式は得られたが、式中の熱抵抗 R_{E} 、 R_{CONT} を特定するのは容易でない。一方、式(5)より、

$$\frac{\Delta V_{\text{m}}}{\Delta T_{\text{m}}}\bigg|_{\text{T}} - \alpha(T - T_{\text{ref}}) - Cu_0 = \frac{TEPCu_{\text{ref}}}{\beta} \quad (15)$$

となるが、この左辺は測定が可能である。そこで、複数の材料の厚さを変えた試験片の測定結果を式(15)に当てはめて β および $TEPCu_{\text{ref}}$ を求めることにした。表1に示す7種類の材料について、 $1 \times 10 \times 55$ (mm), $3.3 \times 10 \times 55$ (mm), $5 \times 10 \times 55$ (mm), $10 \times 10 \times 55$ (mm)の4個の試験片をそれぞれ用いた。使用する材料の選定では、低合金鋼の熱伝導率 $0.03 \sim 0.05 \text{ W/mm} \cdot \text{K}$ ⁽²⁶⁾を包含することを念頭においた。なお、表中の熱伝導率はレーザーフラッシュ法により得られた室温付近での値である。

測定では、基準温度 T_{ref} を 26.85°C 、高温側電極の目標温度を 33°C 、低温側電極の目標温度を 21°C とした。また、試験片と電極の接触状態を系の状態が

表1 使用した材料の諸元

材料名称	組成	熱伝導率 (W/mm · K)
<純金属>		
Fe	Fe 99.99%	0.0791
Ni	Ni 99.99%	0.0909
<低合金鋼>		
VS	Fe-0.19% C-0.30% Si -0.010% P-0.008% S -1.45% Mn-0.25% Cr -0.56% Ni-0.59% Mo-0.09% Cu	0.0403
< Fe 系合金 >		
5Cu	Fe-0.48% Cu	0.0682
2Cu	Fe-0.19% Cu	0.0720
CR1	Fe-10% Cr	0.0327
MI	Fe-5% Cr-5% Ni	0.0242

安定するのに十分な時間(900~3,600秒)維持して過渡期と考えられる期間のデータを採用しないことにより、出来る限り正確な結果を得るよう努めた。例として、図3にNiの $10 \times 10 \times 55 \text{ mm}$ 試験片の測定結果を示す。この例では測定開始後1,800~3,600秒のデータを採用した。

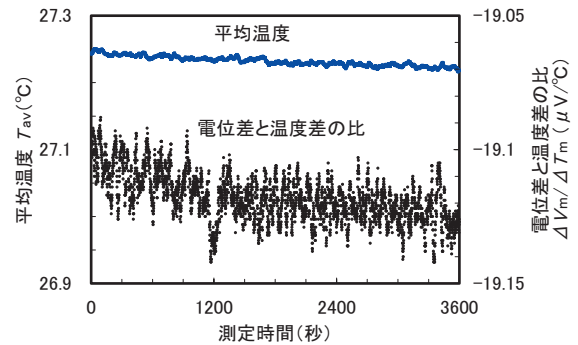


図3 測定結果例：Ni ($10 \times 10 \times 55 \text{ mm}$ の試験片)

(1) 温度変化率の測定

各試験片について式(4)で定義する温度変化率 α を決定するため、高温側電極の目標温度を30, 33, 40°C の3通りとし、1つの目標温度につき2回の測定を実施した。そして、各試験片について得られる6回の測定結果を直線近似し、その傾きを当該試験片の α とした。例として図4にNiにおける結果を示す。この場合、 $26 \sim 30^\circ\text{C}$ の範囲に限ると電位差と温度差の比 $\Delta V_{\text{m}}/\Delta T_{\text{m}}$ の温度特性を直線近似することに問題ないことが分かる。

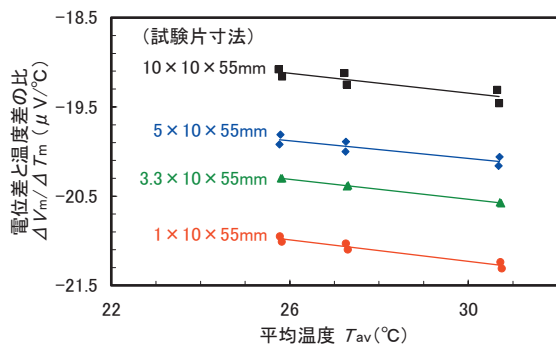


図4 温度変化率 α の測定：Ni

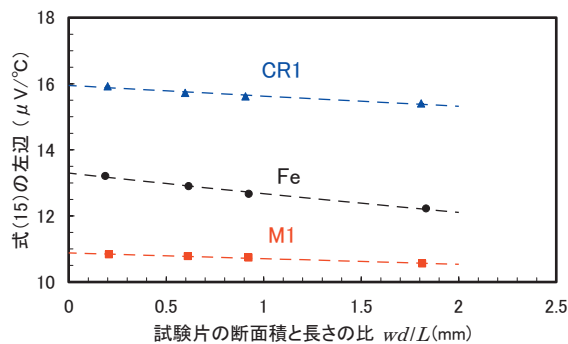
(2) 試験片寸法と熱伝導率の影響

これまでの測定結果を整理し、測定値に対する試験片寸法の影響を明らかにする。各試験片について、式(15)の左辺を計算し、試験片の断面積と長さの比 (wd/L) と比較した結果を図5に示す。図5は、試験片の断面積と長さの比が大きくなると式(15)の左辺の絶対値が小さく(即ち、 β が大きく)なって、熱伝導率が高いとその変化量が大きくなることを示し、式(14)が示唆する結果と一致している。そこで、最小2乗法を用いて各試験片の測定結果を式(15)に適用し、図5中の点線で示される曲線を得た。各材料の26.85°Cにおける相対熱電能 $TEPCu_{ref}$ は以下ようになった。

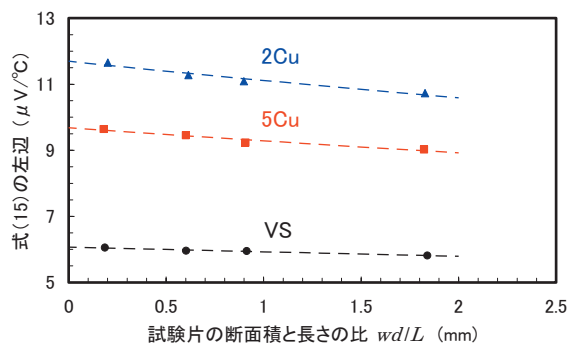
Fe : 13.3 ($\mu V/^\circ C$)	Ni : -21.1 ($\mu V/^\circ C$)
VS : 6.07 ($\mu V/^\circ C$)	5Cu : 9.68 ($\mu V/^\circ C$)
2Cu : 11.7 ($\mu V/^\circ C$)	M1 : 10.9 ($\mu V/^\circ C$)
CR1 : 16.0 ($\mu V/^\circ C$)	

ところで、FeとNi、Cuの300K (26.85°C)における絶対熱電能の文献値⁽²⁷⁾よりFeとNiのCuに対する相対熱電能はそれぞれ $13.17\mu V/^\circ C$ 、 $-21.33\mu V/^\circ C$ と計算されるため、今回得られた値の誤差は約1%となる。他の材料については比較すべき文献値が見当たらないので同様の評価はできないが、Fe、Niの例から判断して妥当な値が得られたと考える。また、試験片の断面積と長さの比 (wd/L) に掛かる係数 $2(R_E + R_{CONT})\lambda$ (/mm) を熱伝導率により整理すると図6が得られ、最小2乗法を用いて次式を得た。

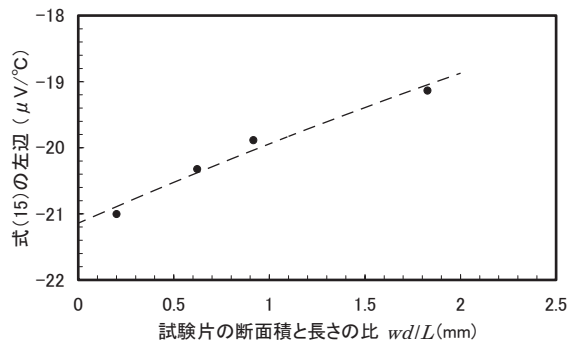
$$2(R_E + R_{CONT})\lambda = 6.20 \times 10^{-1}\lambda + 9.14 \times 10^{-4} \quad (16)$$



(a) M1, CR1, Fe



(b) VS, 5Cu, 2Cu



(c) Ni

図5 試験片寸法の影響

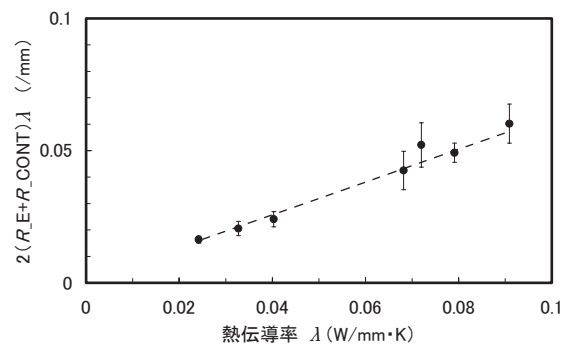


図6 熱伝導率の影響

以上より、測定温度差と接触点温度差の比 β に対する試験片の寸法と熱伝導率の影響が評価できることになり、今回準備した測定部を用いる測定における熱電算出のための補正式 (5) が決定した。ただ、今回使用した試験片では $wd/L < 1.9$ であり、この条件を外れる場合は β の適合を確認することが必要と考える。一方、熱伝導率に関しては、今回の結果が低合金鋼の熱伝導率の範囲を包含する材料の測定結果を基にしていることから、低合金鋼全般の測定に適用したとしても問題ないと考える。

2.4 被測定領域の判定

ゼーベック効果により生じる電位差は温度差がなければ発生しないため、測定される電位差は試験片中で温度変化の大きい領域の熱電能に強く影響される。高温側電極が円錐形の場合は接触面積が小さく、電極突端近辺の 1, 2mm 程度の領域で温度変化の大半が生じるが⁽²⁰⁾、今回の測定部では高温側電極が試験片と広範囲に接触する形であり、温度変化が生じる領域、即ち、被測定領域に違いがあることが予想される。そこで、有限要素法を用いた熱伝導定常解析により、測定時の試験片内部の温度分布を計算して被測定領域を確認した。

計算モデルは図7であり、系の対称性を利用して計算範囲を実際の系の半分に抑えている。試験片の材質は Fe で $1 \times 10 \times 55$ (mm) と $10 \times 10 \times 55$ mm の 2 通り、電極は Cu で形状を実物に合わせて、電極温度測定用センサの検出端は試験片との接触面から 3mm 下方になる。熱伝導定常解析には汎用構造解析コード ABAQUS⁽²⁷⁾ を使用した。計算に使用したパラメータを表3に示すが、確定できないパラメータは適当な仮定を置いて決めている。

図8に $10 \times 10 \times 55$ mm の試験片の場合に得られ

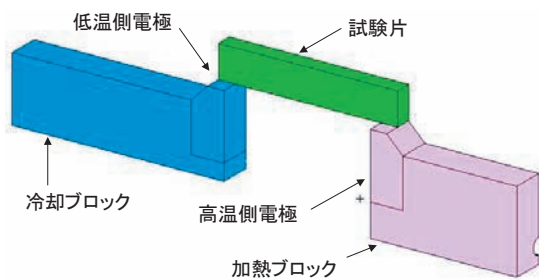


図7 系の対称性を利用した計算モデル ($10 \times 10 \times 55$ mm 試験片の場合)

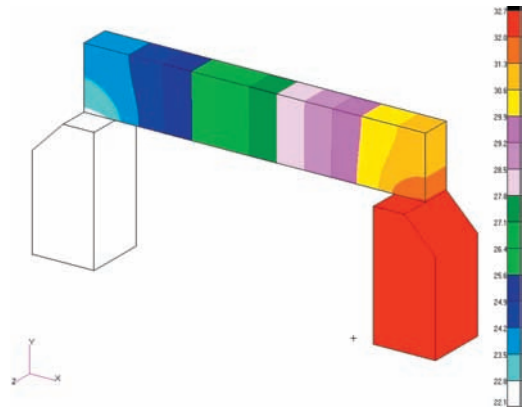
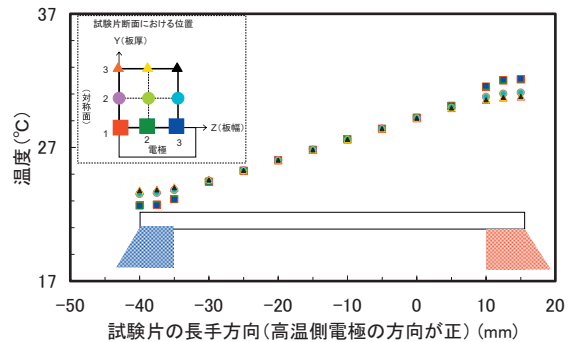
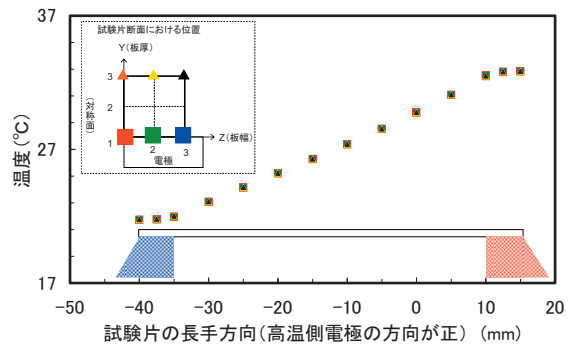


図8 系の温度分布 ($10 \times 10 \times 55$ mm 試験片の場合)



(a) $10 \times 10 \times 55$ mm 試験片



(b) $1 \times 10 \times 55$ mm 試験片

図9 試験片内部の温度分布

た系の温度分布を示すが、2つの電極はほぼ一定の温度となり、試験片内に温度分布が生じていることが分かる。図9では試験片内部の温度分布を板厚方向と板幅方向の数通りについて示す。これより、電極間の領域では試験片の板厚に関わらず、試験片断面における温度の違いは見られず、長手方向に比例した分布となることが分かる。試験片の板厚が大きいと電極近辺の断面方向で温度分布が見られるが僅

表3 熱伝導定常解析に使用したパラメータ

Fe 試験片の熱伝導率 (W/mm・K)	0.0791
Fe 試験片の密度 (kg/mm ³)	7.74×10^{-6}
Fe 試験片の比熱 (J/g・K)	450
Cu 電極の熱伝導率 (W/mm・K)	0.397
Cu 電極の密度 (kg/mm ³)	8.93×10^{-6}
Cu 電極の比熱 (J/g・K)	386
外気と電極・試験片の熱伝達係数 (W/mm ² ・K)	2.5×10^{-5}
電極と装置筐体の接触熱伝達係数 (W/mm ² ・K)	2.5×10^{-6}
荷重負荷時の試験片と電極の接触熱伝達係数 (W/mm ² ・K)	0.1
電極と温度制御ブロックの接触熱伝達係数 (鉛直方向) (W/mm ² ・K)	0.025
電極と温度制御ブロックの接触熱伝達係数 (水平方向) (W/mm ² ・K)	0.005

かである。従って、今回準備した測定部を用いて得られる測定値には、2つの電極に挟まれた領域の情報がほぼ均等に含まれると考えられ、算出される熱電能は被測定領域全体の平均と見なすことができる。

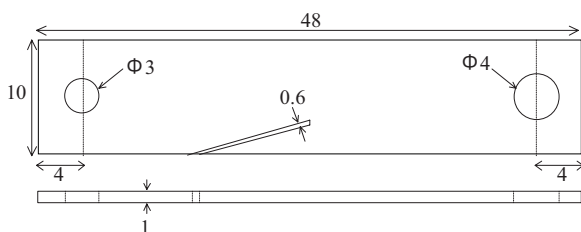
3. 低合金鋼電子線照射材の熱起電力測定

3.1 供試体

供試体の低合金鋼の組成を表4に示す。試験片は図10に示すように、 $1 \times 10 \times 48$ mmで両端に電子線照射時の試験片固定用穴があり、 10×48 mmの片面には試験片温度計測用の熱電対取り付け痕がある。また、電子線照射時に発生するオゾンによる酸化防止のために表面に $2\mu\text{m}$ のCrメッキが施されている。電子線照射（電子線のエネルギーは5MeV）は原子燃料工業（株）の電子加速器（RHODOTRON）によって実施した⁽²⁹⁾。今回測定した試験片は6枚で、試験片の照射損傷量は0~22mdpa、照射時の試験片の平均温度は $240 \sim 300^\circ\text{C}$ である。

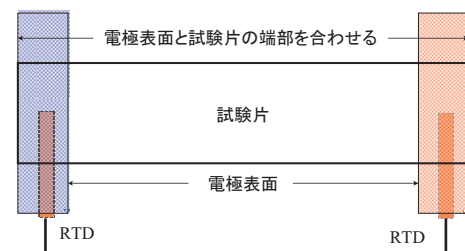
表4 供試体の材料組成⁽²⁹⁾ (単位: wt%)

C	Mn	Si	P	Ni	Cr	Mo	Cu
0.25	1.20	0.25	0.014	0.58	0.08	0.54	0.12

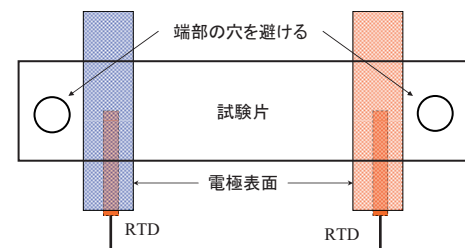
図10 試験片形状⁽²⁹⁾

3.2 測定方法の変更に伴う影響の検討

電極温度測定用センサの検出端は電極上表面の中央下に位置している。そのため、2.3節における熱電能算出の補正式決定のために実施した測定では、図11(a)で示すように電極上表面の外側端部と試験片端部を合わせ、電極上表面の中央付近を試験片で完全に覆った状態で実施した。今回の試験片を同様に取り扱うと、端部の穴が電極表面の中央付近に位置してセンサの検出端付近の電極上表面が空気に触れる形となり、測定に影響することが懸念された。そこで図11(b)に示すように、電極上表面の外側



(a) 電極表面外側端部と試験片端部を合わせた測定



(b) 試験片端部の穴を避けた測定

図11 測定時の電極と試験片の位置関係

端部を試験片端部より内側に置き、端部の穴を避けて測定した。

3.2.1 β に対する影響

β は式 (14) が示すように試験片寸法により変化するが、電極と試験片の端部を合わせない場合の試験片長さの表し方は不明である。そこで、低合金鋼 VS の厚さ 1mm と 5mm の試験片について、試験片と電極の端部を一致させる場合と一致させない場合の両方について測定し、両者を比較した。表 5 と図 12 に使用した試験片と測定時の位置関係を示す。試験片長さが 25, 35, 45mm の試験片の測定では試験片端部を電極端部と一致させ、55mm の試験片の測定では電極端部の外側に位置するように配置し、短い試験片の場合と電極間距離が一致するようにした。

表 5 試験片と電極との位置関係

試験片の寸法 (mm)	試験片長さ L (mm)	電極間距離 de (mm)
1, 5 × 10 × 25	25	15
1, 5 × 10 × 35	35	25
1, 5 × 10 × 45	45	35
1, 5 × 10 × 55	55	15, 25, 35

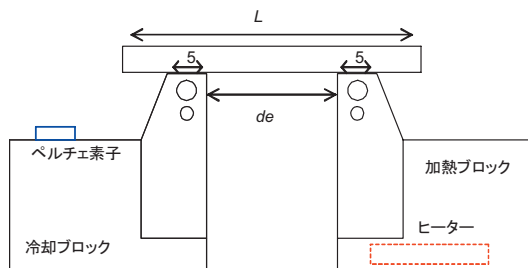


図 12 試験片と電極の位置関係

図 13 に測定により得られた式 (15) の左辺の値を示す。横軸は 25, 35, 45mm の試験片で端部を一致させた場合、縦軸は 55mm の試験片で接触位置を変化させた場合である。これより、電極と試験片の端部を一致させた場合とより長い試験片について電極間距離 de を一致させて電極と試験片の端部を一致させない場合の測定結果がほぼ同等であることが分かる。また、25, 35, 45mm の試験片の測定結果を、それらの寸法から算出される β より予測される測定値 (式 (15) の右辺に相当する) と比較すると図 14

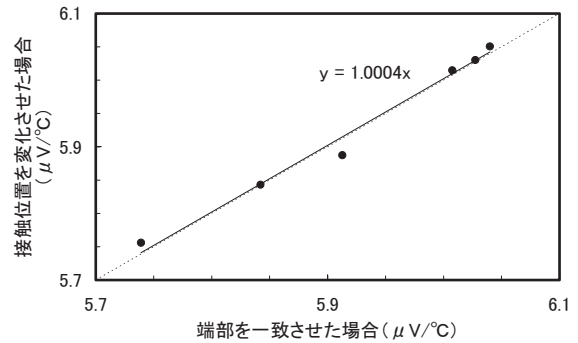


図 13 電極と試験片の接触位置の測定値に対する影響

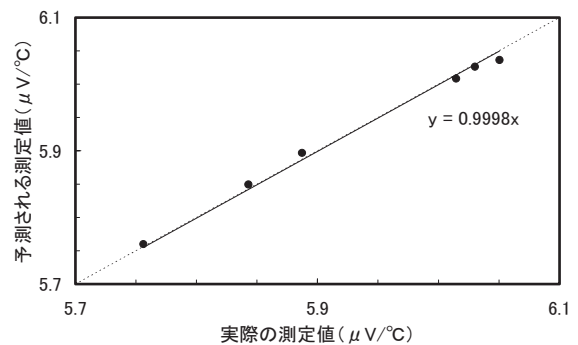


図 14 試験片寸法から予測される値との比較

が得られ、 β の適合が確認できる。従って、試験片と電極の端部を一致させない場合は、式 (14) における試験片長さ L を電極間距離 $de + 10$ (mm) に置き換えることにより β を計算できると判断した。

3.2.2 被測定領域に対する影響

有限要素法を用いた熱伝導定常解析により、試験片と電極の端部を一致させないで測定した場合の試験片内部の温度分布を計算し、被測定領域を確認する。計算モデルを図 15 に示す。試験片の材質は Fe で $1 \times 10 \times 55$ (mm)、電極間距離を 25mm として計算した。使用したパラメータは 2.4 節と同一である。

図 16 に熱伝導解析により得られた測定時の系の温度分布と試験片内部の温度分布を示す。これより、試験片内の温度変化の大半が電極間の領域で生じることが分かり、試験片と電極の端部を一致させた場合と同様である。一方、電極間の温度変動に比べると電極上と電極の外側の領域の温度変化は僅かである。従って、試験片と電極の端部を合わせないで測定した場合の測定値には、電極上と電極の外側の領

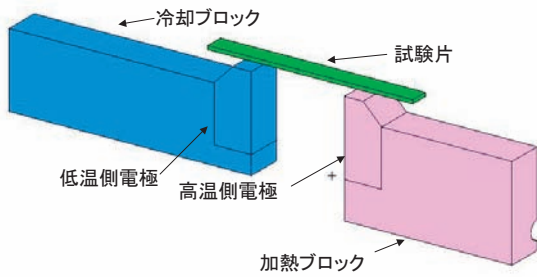
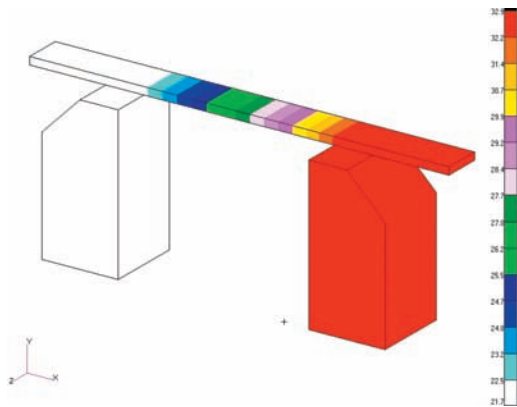
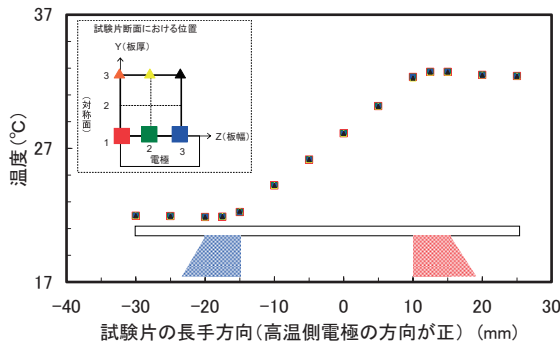


図 15 系の対称性を利用した計算モデル



(a) 系の温度分布



(b) 試験片内部の温度分布

図 16 接触位置を変更した場合の温度分布

域の情報を含まずに、2つの電極に挟まれた領域の情報均等に含まれると考えても支障ない。

3.3 測定方法

3.2節で得られた結果を踏まえ、電極上表面の端部が試験片端部の穴の内側に位置するように試験片を配置し、電極間距離 de を順次小さくして測定することにした。これにより試験片両端の穴の影響は無視できる。測定を実施した時の電極間距離 de は

26, 24, 22, 20, 18, 16mmの6通りである。また、測定は $10 \times 48\text{mm}$ の表裏2面のそれぞれを接触面として行い（熱電対取付け痕のある面を裏とする）、計12回の測定結果を平均することにより当該試験片の代表値とした。なお、試験片表面のCrメッキは測定前に研磨によって除去し、その影響を排除した。

ところで、測定対象の低合金鋼の熱伝導率は不明であり β を算出できない。そこで、低合金鋼の熱伝導率が $0.03\sim 0.05\text{W/mm}\cdot\text{K}$ ⁽²⁶⁾ であることから、次節では、 $\lambda = 0.04\text{W/mm}\cdot\text{K}$ として得られる相対熱電能を基準に、 $\lambda = 0.03\text{W/mm}\cdot\text{K}$ として得られる相対熱電能を下限値、 $\lambda = 0.05\text{W/mm}\cdot\text{K}$ として得られる相対熱電能を上限値とした。なお、基準温度 T_{ref} は 26.85°C に設定した。

3.4 測定結果

図17に未照射材の測定から得た測定値の温度変化を示す。これより温度変化率として $-0.019\mu\text{V}/^\circ\text{C}$ / $^\circ\text{C}$ が得られ、照射材に対してもこの値を採用した。これは、基準温度 T_{ref} と測定温度 T_{av} との違いを 0.5°C 以内に抑えるように測定したことにより、基準温度合わせに伴う補正量が小さくなって温度変化率の差異は問題にならないと考えたためである。

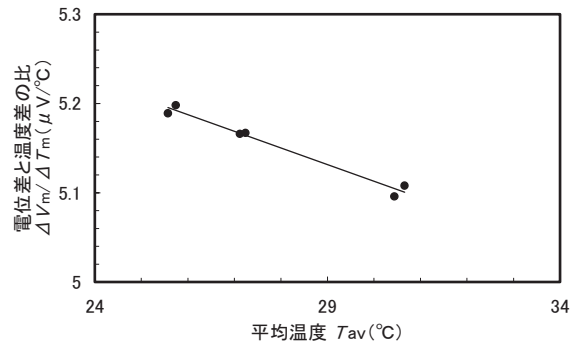
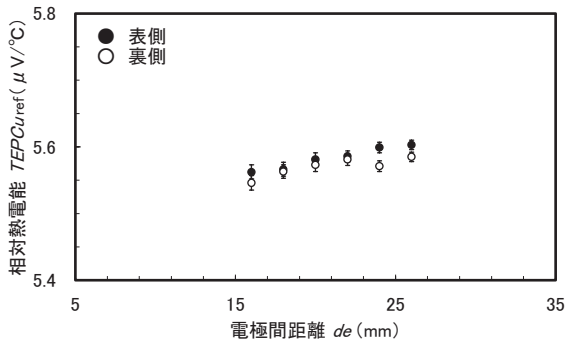
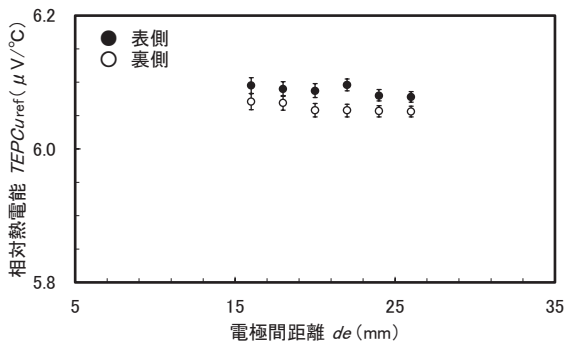


図 17 温度変化率の測定 (未照射材：電極間距離は24mm)

図18に1枚の試験片について実施した12回の測定結果を示す。例として示したのは損傷量が 1mdpa と 22mdpa の試験片の結果である。3.2節における検討から電極間距離 de を小さくすると被測定領域が狭くなり、電子線照射時のビームプロファイル⁽²⁹⁾ との照合より、 $de = 16\text{mm}$ ではビーム強度がピークから約70%以上の範囲、 $de = 26\text{mm}$ ではビーム強度がピークから約40%以上の範囲が被測定



(a) 損傷量 1mdpa の試験片



(b) 損傷量 22mdpa の試験片

図 18 1 枚の試験片における 12 回の測定結果

領域と推定される。しかし、22mdpa の試験片では de が小さくなると相対熱電能が上昇し、1mdpa の試験片では逆の関係となっている。その他の照射試験片の相対熱電能についても de に対する依存性に共通することは確認されなかった。従って、ビームプロファイルを起因とする熱電能の試験片長さ方向の分布は生じていないと考えられる。

ところで、図 18 (b) では表側と裏側での測定結果に差が見られるが、今回測定した 6 枚すべての試験片に関して、表側を接触面とした時の測定結果を横軸、裏側を接触面とした時の測定結果を縦軸に取って比較すると図 19 が得られ、全体として両者に違いは見られなかった。それゆえ、図 18 (b) で見られる表側と裏側での測定結果の違いは偶然誤差と考える。

図 20 に 6 枚の測定結果を損傷量で整理した結果を示す。損傷量の増加に伴って相対熱電能が大きくなっており、損傷量が 22mdpa になると未照射時に比べて $0.82\mu\text{V}/\text{°C}$ の上昇を示した。これは未照射時の相対熱電能 $5.26\mu\text{V}/\text{°C}$ の約 16% に相当し、有意で測定可能な違いである。照射粒子の違いのため単純

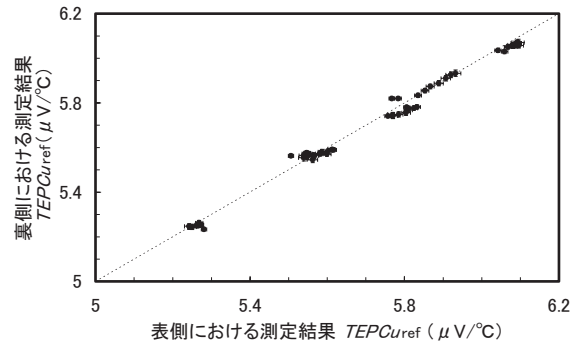


図 19 測定時の接触面と測定結果

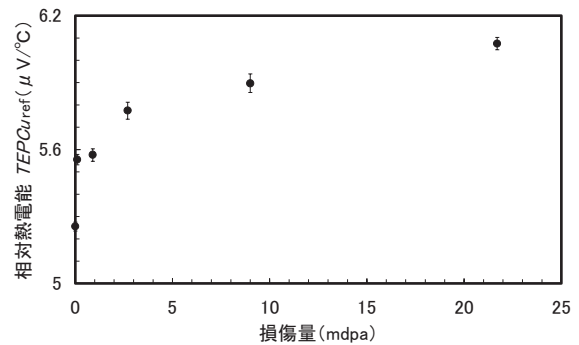


図 20 熱電能と損傷量

に比較することは出来ないが、原子炉容器における損傷量が最大で 0.1dpa 程度であることから、その熱電能にはこれ以上の変化が生じると予想される。ところで、未照射時の相対熱電能は 2.3 節で得られた低合金鋼 VS における値より小さく、損傷量が 22mdpa の場合に同程度の値になっている。これは熱電能が組成により変化することから十分に予想された結果であるが、異なる材料の照射影響を熱電能により比較する際には未照射時の熱電能の違いに注意が必要なることを示している。

以上より、照射に伴い熱電能が変化し、その変化量は十分に測定可能な量であることが確認でき、熱電能が照射に伴う脆化や組織変化に対する有効な指標となる可能性があると考えられる。

4. まとめ

低合金鋼の電子線照射材の熱起電力測定に備えて熱起電力測定において必要となる測定値の補正方法の検討を行い、 $0.024\sim 0.091\text{W}/\text{mm}\cdot\text{K}$ の熱伝導率を持つ材料を利用して試験片の熱伝導率と寸法の影

響を考慮した熱電算出のための補正式を作成した。また、測定時の系の熱伝導解析より試験片の配置と被測定領域の関係を検討し、試験片のうち、電極間の範囲に位置する部位の情報のみが測定値に含まれると考えて問題ないことを確認した。以上を踏まえて、低合金鋼の電子線照射材の測定を実施し、照射損傷が大きくなれば熱電能が大きくなり、熱電能が照射に伴う脆化や組織変化に対して有効な指標となる可能性を持つことが確認できた。今後は、照射に伴う熱起電力変化の要因を組織変化と関連づけて検討していくことが必要となる。

謝辞

電子線照射材の貸出とその取扱いの指導に関して、(株)原子力安全システム研究所の藤井克彦氏に謝意を表します。

文献

- (1) 福谷耕司, 大野勝巳, 中田早人, 原子炉容器鋼の照射組織変化, 原子力安全システム研究所, INSS MONOGRAPHS No.1, p.1 (2001).
- (2) (社)日本電気協会, 原子炉構造材の監視試験方法, JEAC4201-2007 (2008).
- (3) ASTM E 185-98, Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.02., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA.
- (4) (独)原子力安全基盤機構, 高経年化技術評価審査マニュアル 原子炉压力容器の中性子照射脆化, JNES-SS-0507-01 (2006).
- (5) 例えば, (独)原子力安全基盤機構, 高経年化技術評価等報告書に対する技術審査報告書(関西電力株式会社美浜発電所3号機) (2006).
- (6) (独)原子力安全基盤機構, 原子炉压力容器監視試験片の再生に関する調査報告書, JNES-SS-0601 (2006).
- (7) 土肥謙次, 電力中央研究所研究年報 2000年版, pp.2-3 (2000).
- (8) 大岡紀一, 石井敏満, 非破壊検査, **52**, pp.235-239 (2003).
- (9) 鎌田康寛, 高橋正氣, 荒克之他, 日本保全学会第2回学術講演会要旨集, pp.173-174 (2005).
- (10) 中東重雄, 程衛英, 志波光晴他, 技術レビュー, **2**, pp.34-40 (2006).
- (11) M. Delnondedieu, J.F. Coste, H. Hegeman et al., *FISA2003 EU Research in Reactor Safety*, Luxembourg, 10-13 November, (2003).
- (12) G. Dobmann, I. Altpeter, M. Kopp, *Rus. J. Nondestr. Testing*, **42**, pp.272-277 (2006).
- (13) M. Delnondedieu, M. Houze, *Сборник докладов седьмой Российской конференции по реакторному материаловедению*, Димитровград, 8-12 September, (2003).
- (14) B. Acosta, L. Debarberis, A. Rito, *4th International Conference on NDE in Relation to Structural Integrity for Nuclear and Pressurised Components*, London, (2004).
- (15) B. Acosta, F. Sevini, *Nucl. Eng. Des.*, **229**, pp.165-173 (2004).
- (16) M. Niffenegger, K. Reichlin, D. Kalkhof, *PSI Ber.*, **02-11** (2002).
- (17) Y. Kawaguchi, S. Yamanaka, *J. Nondestr. Eval.*, **23**, pp.65-76 (2004).
- (18) 上坊寺克郎, INSS JOURNAL, Vol.13, P.225, (2006).
- (19) K. Fujii, K. Fukuya, N. Nakata et al., *J. Nucl. Mat.*, **340**, pp.247-258 (2005).
- (20) J.F. Coste, J.M. Leborgne, J.P. Massoud et al., *Proc. EPRI workshop on NDE of damage assessment*, La Jolla, USA, (1997).
- (21) J.F. Coste, J.M. Leborgne, J.P. Massoud et al., *Mater. Eval.*, **59**, pp.401-405 (2001).
- (22) 山本淳, JP Patent 2008-51744 (2008).
- (23) 上坊寺克郎, INSS JOURNAL, Vol.15, P.225, (2008).
- (24) 後藤孝, ニューセラミックス, No.11, pp.45-50 (1996).
- (25) L. Simonet, Ph. D. Thesis no. 06ISAL0123, INSA de Lyon, France, (2006).
- (26) 日本金属学会編, 金属データブック 改訂第4版, 丸善, p.131 (2004).
- (27) D.M. Rowe, CRC handbook of thermoelectrics, CRC Press LLC, p.390 (1995).
- (28) ABAQUS ANALYSIS USER'S MANUAL VOLUME II Version 6.6, ABAQUS (2007).
- (29) 藤井克彦, 福谷耕司, 永井康介他, INSS JOURNAL, Vol.10, P.186, (2003).