

# 原子炉容器構造材料の微視的損傷機構の解明を通じた脆化予測モデルに関する研究開発

研究代表者 永井 康介 国立大学法人東北大学金属材料研究所  
参画機関 国立大学法人東北大学、国立大学法人京都大学  
研究開発期間 平成24年度～27年度

## 1. 研究開発の背景とねらい

原子炉容器は原子炉の寿命を決める事実上交換不可能な構造部材であり、中性子照射による脆化は原子炉の安全性にとって最重要課題である。脆化の度合いは炉内に装荷した監視試験片によって確認されているが、福島第一原発事故に前後して、運転開始後40年前後経過した高経年化原子炉の監視試験データが現行の予測式を大幅に上回る脆化を示す例が報告され始め、その原因の解明が喫緊の課題となっている。本研究は原子炉の安全性にとって最も重要な原子炉容器に関して、中性子照射による微視的な照射損傷機構を最新のナノ解析手法を駆使して解明し、それに基づいた照射脆化予測モデルを構築することを目的とし、以下の研究開発を行う。

1. 実機監視試験片を最新の分析手法（3次元アトムプローブ（3D-AP）法や陽電子消滅法など）を駆使して解析し、脆化の主要因とされる溶質原子クラスター（SC）やマトリックス欠陥（MD）の脆化への寄与を正しく理解するとともに、SC、MD以外の脆化要因を検討する。また、実機に加えて、照射条件がより整えられている京都大学原子炉（KUR）、材料試験炉（JMTR）等の照射材も活用し、照射欠陥生成過程と析出・偏析過程の解明と照射速度依存等の知見を得る。
2. 脆化機構解明においてSCとMDの形成の関連性の理解が鍵である。そのために、空孔型照射欠陥の同定とその周辺の組成分析を同時に行うことができる陽電子消滅時間-運動量相関測定（AMOC）法を開発する。本方法を継続的に多くの試料を測定するためには高強度陽電子源が必要になるが、京都大学原子炉（KUR）用いた新しい高強度陽電子源を開発し、それを活用する。
3. 以上の実験的知見を基に、計算機シミュレーションや統計解析手法等を駆使して、照射損傷発達過程のモデリングと微視的構造変化と機械的特性をつなぐモデリングを行うことにより、より信頼性の高い脆化予測モデルを構築する。

## 2. 研究開発成果

初年度である24年度の主な成果は、以下の通りである。

### 2.1 陽電子消滅AMOC法の開発

陽電子消滅法は、従来、欠陥検出が可能な陽電子寿命法と析出物等の元素分析が可能なドップラー広がり法が別々に用いられていたが、AMOC法はそれらの相関を明らかにする新しい方法である。元素固有の高運動量域の運動量分布に着目し、その消滅時間依存性を調べることで、消滅時間に依存した元素同定が可能であり、これによって陽電子捕獲サイト（空孔型照射欠陥や析出物）の同定とその周辺の組成分析を同時に行うことができる。図1にAMOC測定装置の概略を示す。原子炉容器モデル合金Fe-0.3CuのAMOCテスト測定の結果（図2）に示すように、計測システムの開発を完了した。

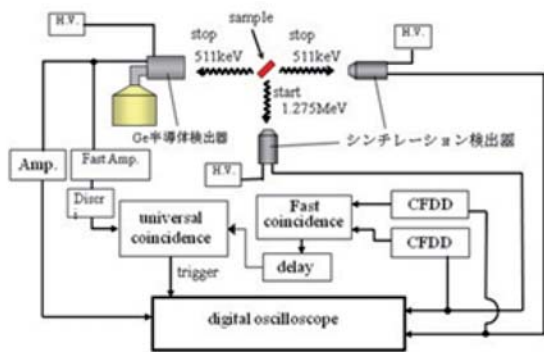


図 1 : AMOC 測定装置の概略図

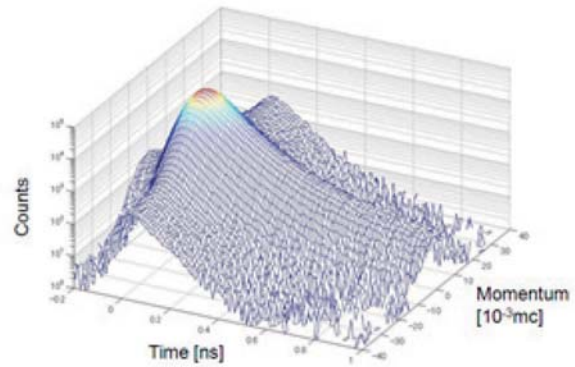


図 2 : 原子炉容器モデル合金 Fe-0.3Cu の AMOC テスト測定の結果

## 2. 2 KUR を用いた高強度陽電子源の開発

2. 1 の AMOC 装置の陽電子源は  $^{22}\text{Na}$  線源を用いているが、強度が弱く計数率は高々 10cps 程度であり、精度の高いデータを取るためには 1 スペクトルに数週間かかってしまう。このため、本研究では、KUR-B1 孔を用いて高強度の陽電子ビームを生成して、それに上記の AMOC 測定システムを適用する計画である。今年度は、ビームラインの設置を行った。

図 3 にビームラインの全体図を示す。炉内 (図の左側) の  $\gamma$  線を W コンバータに照射し陽電子-電子対生成によって陽電子を生成させる。その際、W コンバータの周囲に Cd を配置し、 $(n, \gamma)$  反応によって  $\gamma$  線を増強し、より高強度の陽電子を発生させる。W コンバータで発生した陽電子は白色高エネルギーであるため、これを W 薄膜を利用して減速して単色化し、数段のレンズによって引き出した後、ソレノイドコイルの磁場で最終的に試料チェンバまで輸送する。設計に際しては、耐震性や放射線の十分な遮蔽などにも細心の注意を払い、図 4 に示すようなビームラ

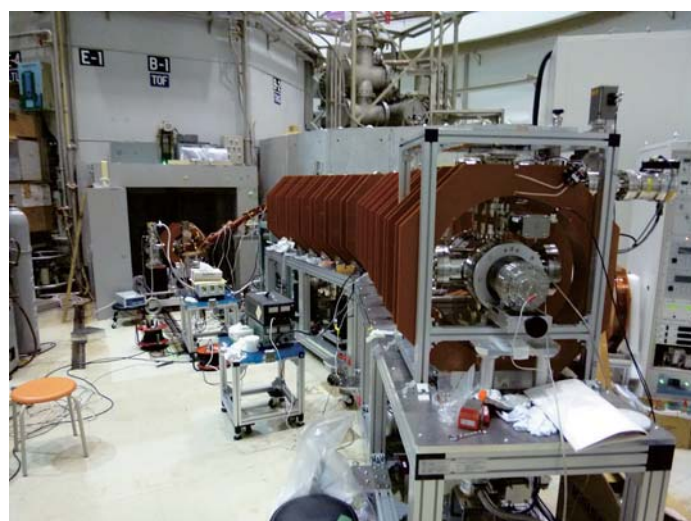
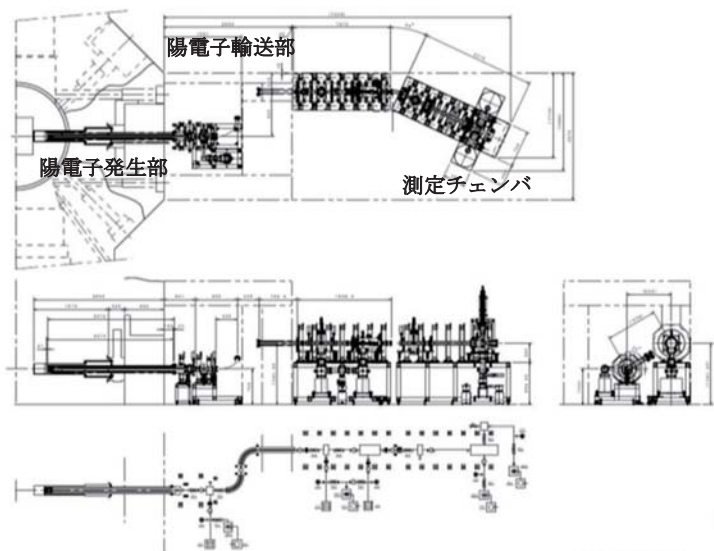


図 4 : 陽電子ビームラインの外観

インの設置を行った。

### 2. 3 3D-AP 等を駆使した照射材のナノ組織分析

燐および硫黄などの粒界偏析による粒界脆化や破壊の起点となる炭化物などの脆化への寄与の有無を確認するため、より広い範囲の特定部位を選択して3次元アトムプローブ(3D-AP)用の針状試料の作製を可能とするFE-SEMつきFIBを整備し、それをを用いた3D-AP針状試料の作製及び3D-APテスト測定(実機監視試験片の粒界観察)に成功した。

さらに、既存の装置群(3D-APや陽電子消滅装置)を活用して、JMTR照射材、海外炉監視試験片の分析を行った。JMTR照射材に関しては、照射速度、照射温度等を精度良くそろえ、2桁にわたる幅広い照射量領域の試料(多段他分割引き上げ照射試料)を用いて、SCとMDの脆化への寄与を評価した結果、従来の予測式ではSCに比べてほとんど寄与がないとされていたMDの寄与が、高照射量領域ではSCと同程度もあることが明らかになった

(図5参照)。

海外の監視試験片分析に関しては、今年度はVVER-440型のフィンランドの原子炉Loviisaの監視試験片を調べた。この原子炉容器は我が国のPWR、BWRとは、材料の組成や照射速度等が異なるが、主な照射脆化機構は同様である。さらに興味深いのは、一度使

用した後、脆化を回復させるためにその場焼鈍を行い、再び使用(再照射)していることである。図6に最初の照射I、照射後焼鈍IA、焼鈍後再照射IAIの3D-AP結果を示す。最初の照射によってCu、Si、Mn、Ni(一部P)からなるSC(Cu富裕析出物)が高密度に形成されるが、焼鈍によってその多くが消失し粗大化したSCが僅かに残る。再照射によって、再び微細なSCが形成される。このように、照射前の材料の状態によって照射による微細組織の変化が大きく異なる可能性があることがわかった。

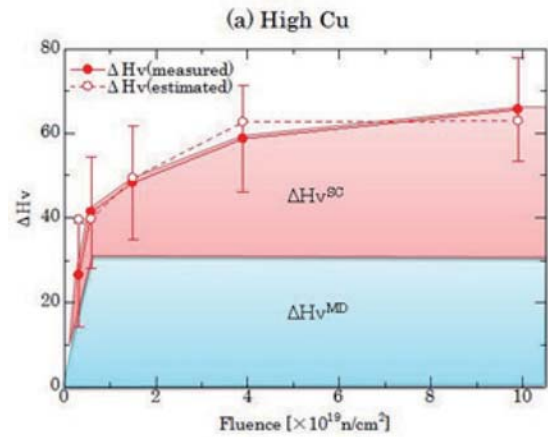


図5: JMTR照射(高Cu)材の照射硬化に対するMDとSCの寄与

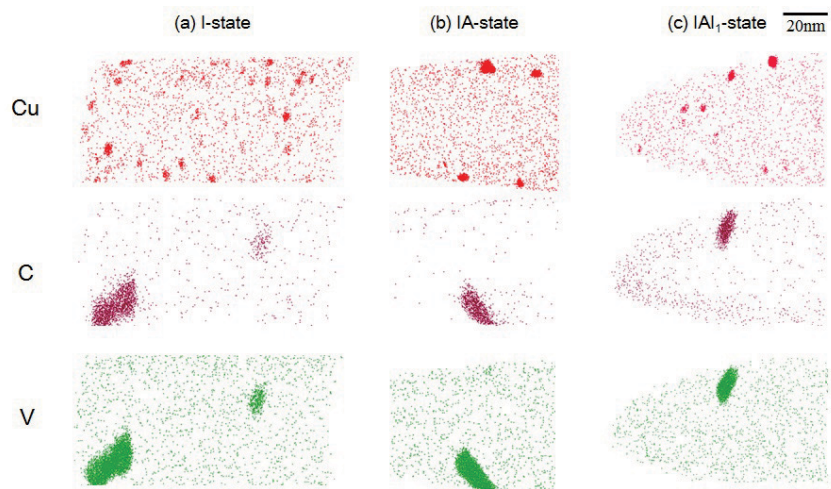


図6: Loviisa炉監視試験片のアトムマップ (a) I材、(b) IA材、(c) IAI材

## 2. 4 照射損傷発達過程のモデリング

ワークステーションを導入(レンタル)し、反応速度論に基づく損傷構造計算を開始した。反応速度論は、反応により時間変化する物理量を1階微分方程式(反応速度式)にして解く手法であり、長時間の損傷構造や照射速度を大幅に変えたシミュレーションが可能である。今年度は、原子炉容器 Fe-Cu モデル合金を対象とし、照射によって形成される Cu 原子と原子空孔の集合体において、Cu と空孔それぞれの濃度を計算し、照射速度依存性を調べた。その結果の一部を図7に示す。発電用原子炉容器鋼を模擬した低い照射速度である  $1.5 \times 10^{-10}$  dpa/s では、加速照射に比べて Cu 原子の析出が加速されることなどを示した。また、この Cu 集合体形成のシミュレーションは、過去の陽電子消滅法の実験結果とよく整合していることも明らかになった。

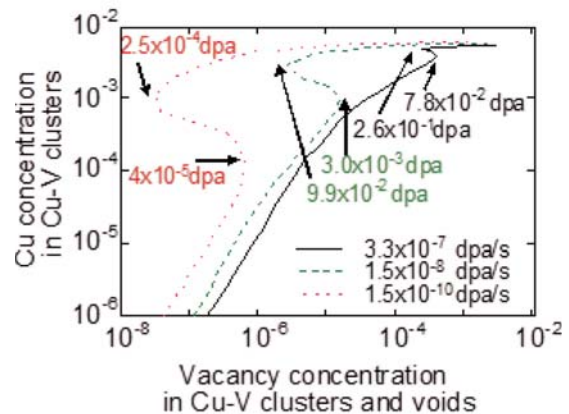


図7 : Cu-原子空孔集合体中の Cu 濃度、Cu-原子空孔集合体とボイド中の原子空孔濃度の照射速度依存性

## 3. 今後の展望

平成 25 年度は、3D-AP 等を駆使した監視試験片のナノ組織解析をさらに進めるとともに、SC の形成機構の理解に不可欠な元素の拡散測定等も行い、理論的知見から実機の理解へ繋ぐ実験を行う。また、KUR の高強度陽電子ビームラインにおいてはパルス化装置を設置する。パルス化によって陽電子が試料に入射した時刻を同定でき、初めて AMOC 測定的前提となる陽電子寿命情報を得ることができるようになる。さらに、照射損傷発達過程のモデリングに加えて、微視的構造変化と機械的特性をつなぐモデリングも進める。

## 4. 参考文献

- (1) A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Yoshiie, Y. Nishiyama, "Post-irradiation annealing behavior of microstructure and hardening of a reactor pressure vessel steel studied by positron annihilation and atom probe tomography," J. Nucl. Mater. 425 (2012) 65-70.
- (2) A. Kuramoto, Y. Nagai, T. Toyama, T. Takeuchi, M. Hasegawa, "Positron annihilation study of neutron-irradiated nuclear reactor pressure vessel steels and their model alloy: Effect of purity on the post-irradiation annealing behavior," Mater. Sci. Forum 733 (2013) 257-263.
- (3) A. Kuramoto, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue, Y. Nozawa, M. Hasegawa, M. Valo, "Microstructural changes in Russian-type reactor weld material after neutron irradiation, post-irradiation annealing and re-irradiation studied by atom probe tomography and positron annihilation spectroscopy," Acta Mater. 61 (2013) 5236-5246.