

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

(受託者) 国立大学法人東北大学

(研究代表者) 永井康介 金属材料研究所

(再委託先) 国立大学法人京都大学

(研究期間) 平成 24 年度～27 年度

1. 研究の背景とねらい

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、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、真の脆化機構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、主として以下の研究開発を行った。

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-Atom Probe: 3D-AP）法や陽電子消滅法、透過電子顕微鏡法など）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（Solute Cluster: SC）やマトリックス欠陥（Matrix Defect: 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。特に、従来よく理解されていない MD の実体解明とその脆化への寄与を明らかにし、高照射量領域での脆化の主因を明らかにする。
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（Age- Momentum Correlation: 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. これまでの研究成果

2.1 3D-AP 法や新しい透過電子顕微鏡法による高照射量の監視試験片の新たな照射脆化機構の解明

本研究では、様々な種類の監視試験片の解析を行ったが、ここでは最も重要な結果を導いた、ある欧州加圧水炉監視試験片についての結果をまとめる。図 1 に第 1 回から第 4 回監視試験片の 3D-AP 結果を示す。照射初期の第 1 回、第 2 回では SC の形成がほとんど見られなかったのに対して、約 $7 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ の照射量になると第 3 回では、SC（Ni-Mn-Si クラスター）が顕著に観察された。しかし、さらに照射が進んだ第 4 回（約 $1 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ ）では SC には大きな変化はなかった。図 2 には、この解析結果から導かれる SC による硬化（脆化）の寄与を示すが、この傾向、すなわち高照射量領域で飽和する傾向は、図 2 に一緒に示された硬化の実測値の傾向（高照射量領域でさらに硬化が進む傾向）とはことなることが明らかになった。

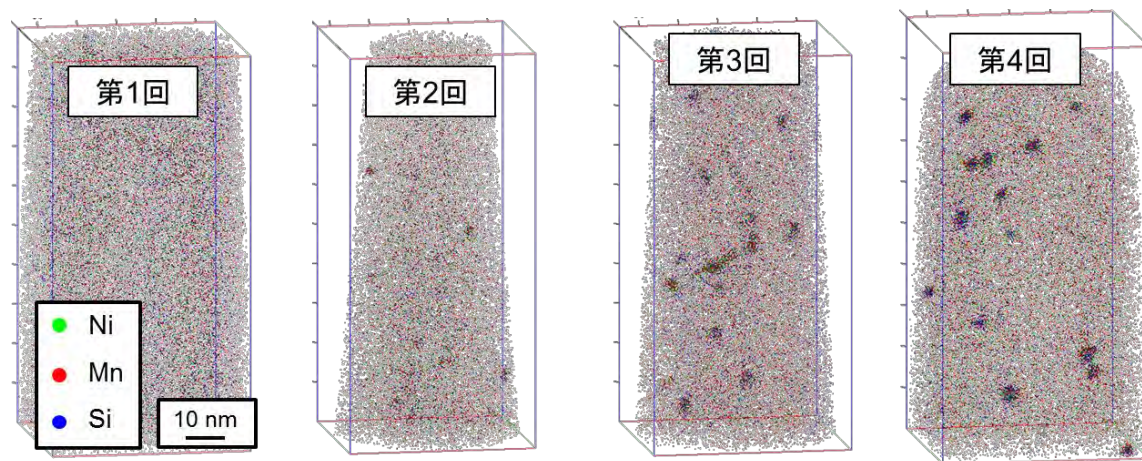


図 1： 欧州加圧水炉監視試験片の 3D-AP 解析結果

このような、高照射量領域での SC ではない脆化主因を明らかにするために、透過電子顕微鏡法で新しい方法、ウィークビーム (WB) STEM 法を開発した。本手法は、広範囲・高精度の転位組織のイメージングを高い安定性を持って行うことを可能にし、上記の監視試験片に適用した。その結果、 $5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ を超える高照射量領域 (第 3 回、第 4 回監視試験) では、図 3 に示すように、従来報告されていたよりも 1 桁程度も高い数密度の微小転位ループが形成していることを初めて明らかにした (別途、収差補正 TEM による高分解能解析によって、主として格子間原子型 $1/2\langle 111 \rangle$ ループであることを確認)。高照射量では、高密度の転位ループが照射硬化 (脆化) に大きく寄

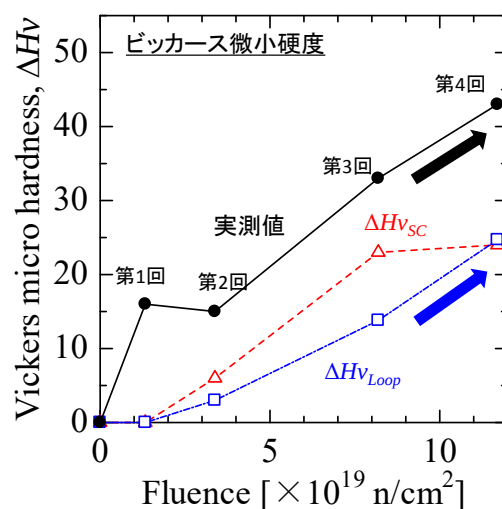


図 2： 欧州加圧水炉監視試験片の照射硬化の実測値 (黒)、3D-AP 結果による SC の寄与 (赤) および WB STEM 法による MD (転位ループ) の寄与 (青)

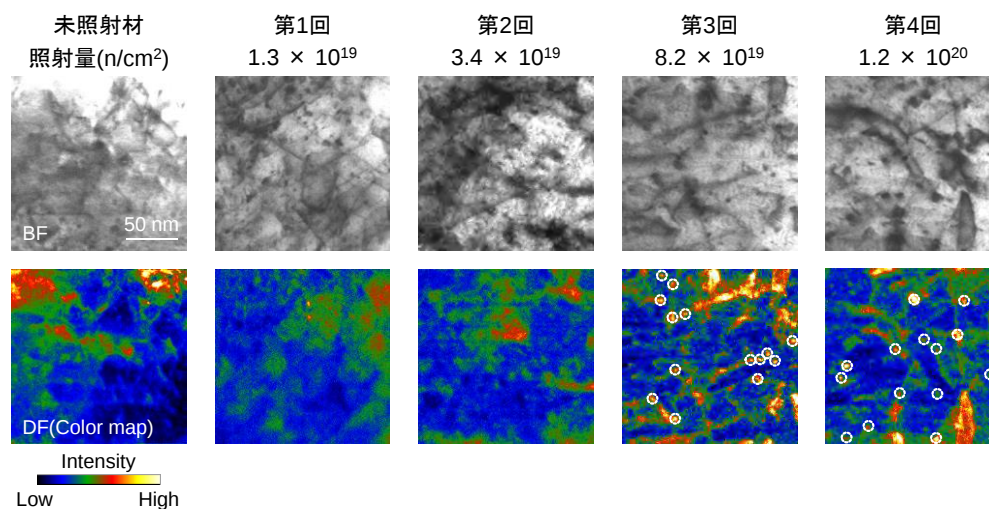


図 3： WB STEM 法による MD (転位ループ) の観察結果

与し、脆化予測で無視できない主要な硬化(脆化)要因であることを明らかにした(図2参照)。なお、硬化を伴わない脆化の主因と考えられる粒界偏析を3D-APを調べたが、粒界脆化を引き起こすほどの高濃度のP偏析は生じていないことも定量的に確認した。

本研究では、上記監視試験片の他にも、旧ソ連型VVER炉、重水炉などの監視試験に加えて、材料試験炉照射試料も相補的に分析を行い、熱中性子効果、照射前組織の効果、照射速度効果など多くの因子について影響評価を行った。また3D-APを用いて、脆化予測において直接重要なパラメータとなる鉄中のCuの拡散定数および固溶限を、より原子炉温度に近い温度で評価した。

2.2 KURを用いた高強度陽電子源の開発と陽電子消滅AMOC測定によるSCとMDの関連性の解明

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。AMOC法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。AMOC測定を高精度で行うためにKURを用いた高強度低速陽電子ビームラインの開発を行った[1]。図4に完成したビームラインと蛍光板付きMCPで観測された陽電子ビームスポット像を示す。得られた陽電子ビーム強度は1MW及び5MW運転時にそれぞれ 1.4×10^6 及び 6.2×10^6 e⁺/sであった。さらに、ビームラインの重要構成要素であるパルス化装置と高輝度化装置の性能評価を電子ビームで行ったところ(図5)、パルス幅135psが得られるとともに、初期ビーム径15mmが2.9mmに縮小され、それぞれ十分な性能を有していることが示された。新規制基準適合審査によりKURがプロジェクト期間内に再稼働しなかったため、測定システムをKURに設置しKURが稼働すればAMOC測定ができることを確認するとともに、東北大の測定装置を用いて、監視試験片試料等の照射材料の長時間にわたるAMOC測定を行い、以下の成果を得た。

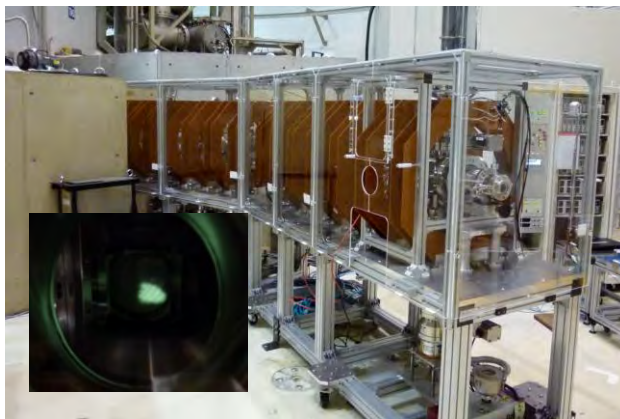


図4: 陽電子ビームラインの写真。左下の写真は蛍光板付きMCPで観測された陽電子ビームスポット像。

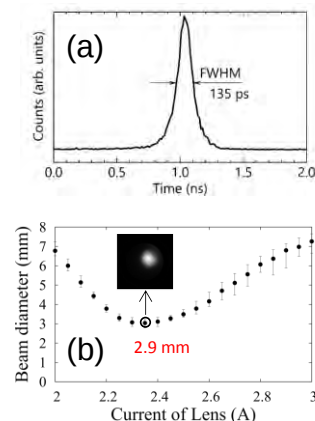


図5: 電子ビームによるパルス化装置(a)と高輝度化装置(b)の評価。

比較的古い第1世代型の原子炉容器に特徴的なCu濃度の高い鋼材(高Cu材)では、早い陽電子消滅時間領域でCu析出物との消滅成分が増加するのに対して、照射欠陥での消滅が支配的である遅い陽電子消滅時間領域では、Cu析出物との消滅成分が少なくなることがわかった。すなわち、照射欠陥に代表されるMDは、主にCuが主成分となるSCとは別サイトに形成されることが示唆された。一方、第2世代型以降のCu濃度の低い鋼材(低Cu材)では、陽電子消滅時間領域によって、

陽電子消滅サイトが変化するような傾向は見られず、MD と SC が同一サイトに形成、すなわち MD と SC の複合体を形成していることが示唆された。このように、原子炉容器鋼の組成によって MD と SC の関連性が異なり、脆化に対する寄与の仕方も異なることが明らかになった。

2.3 照射損傷発達過程および微視的構造変化と機械的特性をつなぐモデリングと新たな脆化機構

反応速度論に基づいて、照射損傷構造発達とその強度特性変化のモデリングを行った。システムを簡素化し、反応速度式の係数を実機での照射結果に合わせることで、モデルの妥当性を検証した[2]。低 Cu 材監視試験片では格子間原子型転位ループが Ni-Mn-Si クラスターの核になるとし、原子空孔により運ばれる溶質原子と格子間原子により運ばれる溶質原子の2種類を考慮すると共に、Ni-Mn-Si クラスターの組成は G-phase ($\text{Mn}_6\text{Ni}_{16}\text{Si}_7$) に近い成分をもつとした。そのため全ての Ni、Mn 及び Si は析出できず、一番マイナーな元素の偏析が終わればクラスターの成長は終了することがわかった。図6はループと Ni-Mn-Si クラスター濃度の照射量依存のシミュレーション結果と、低 Cu 材が用いられているある欧州加圧水炉監視試験片の観察結果の比較である。析出が終了すると同時にループの増加が始まることが分かる。また、高照射量領域では、 μm オーダの亜粒界が多数存在することがわかったが、亜粒界へ S、P や O が偏析すれば、占有率は低くても、それらは溶質原子と相互作用して亜粒界を弱くし、亜粒界の脆化が DBTT 増加に寄与する可能性があることも指摘した。総じて、前述の実験結果をよく説明する結果が得られた。

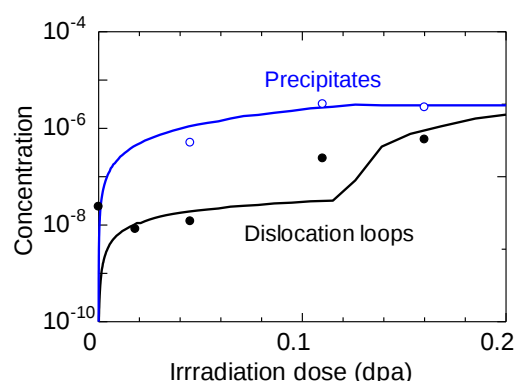


図6: Ni-Mn-Si クラスターと転位ループの濃度のシミュレーション結果(実線)と実験結果(シンボル)の比較。

3. 今後の展望

本研究で開発した手法を国内外の監視試験片に数多く適用することによって、照射脆化モデルを数値化して実用化することができると考えられる。これらは、大学のみではなく産官とも連携して行われるべき研究であり、今後の展開が期待される。また、本研究によって開発された新たな WB STEM 法をさらに発展させ、電子線トモグラフィーと 3D-AP との同時測定する方法を開発している。この方法によって、例えば、ナノサイズの転位ループと溶質クラスターとの3次元実空間イメージングなどが期待でき、様々な原子力材料への応用が期待される。さらに、KUR 原子炉ベースの高強度陽電子ビームラインの開発に成功したが、KUR の運転再開後は、本研究課題に留まらない多くの材料照射損傷研究への応用が期待される。

4. 参考文献

- [1] K. Sato, Q. Xu, T. Yoshiie, T. Sano, H. Kawabe, Y. Nagai, K. Nagumo, K. Inoue, T. Toyama, N. Oshima, A. Kinomura and Y. Shirai, “Development of a mono - energetic positron beam line at the Kyoto University Research Reactor,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 342 (2015) 104 - 107.
- [2] T. Yoshiie, K. Sato, Q. Xu, Y. Nagai, “Reaction kinetic analysis of reactor surveillance data,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 352 (2015) 125-129.