

原子力システム研究開発事業 – 基礎研究開発分野 –
若手対象型 事後評価総合所見公表用フォーマット

| <p>研究開発課題名（研究機関名） モデル・データ・検査融合に基づく炉内材料劣化に関する研究開発（国立大学法人東京大学）</p> <p>研究開発担当者 機関名：国立大学法人東京大学 総括代表者：沖田泰良 機関名：原子燃料工業株式会社 代表者：磯部仁博</p> <p>研究期間及び予算額 平成17年度～平成19年度（3年計画） 78,713 千円</p> | |
|--|--|
| 項目 | 要 約 |
| <p>1. 当初の目的・目標</p> | <p>本研究開発では、材料挙動予測モデル、照射データモデル、非破壊検査技術の3つの技術を個々に開発し、高度化するのみならず、材料劣化予測の観点から融合させる。それにより、実証的データの存在しない領域で使用される革新炉炉内構造材料の照射劣化を評価する手法を構築し、魅力的な革新炉実現のため、炉内構造材料の安全性の維持並びに信頼性の確保に寄与することを目的とする。</p> <p>本研究開発では、対象材料をフェライト系ステンレス鋼とオーステナイト系ステンレス鋼とし、以下の具体的項目を実施する。</p> <p>(1) 材料挙動予測モデルの構築</p> <p>① フェライト系ステンレス鋼の照射硬化モデルの開発 フェライト系ステンレス鋼を対象として、線形弾性論と分子動力学法を用いて、ミクロな観点から転位と照射欠陥の相互作用を評価し、マクロ特性である照射硬化の予測モデルを構築する。また、予測モデルと照射データモデルの比較により、予測モデルの高度化を行う。</p> <p>② オーステナイト系ステンレス鋼のスエリングモデルの開発 オーステナイト系ステンレス鋼を対象として、ミクロな観点からポイド形成、成長等を取り入れた照射下ミクロ組織発達モデルを構築する。また、予測モデルと照射データモデルの比較により、予測モデルの高度化を行う。</p> <p>(2) 照射データモデルの構築</p> <p>① フェライト系ステンレス鋼の照射硬化に関する照射データモデルの構築 フェライト系ステンレス鋼の照射硬化に関するデータを集積する。また、照射硬化に影響を及ぼす重要な因子を抽出し、予測モデル高度化に資する照射データモデルを構築する。</p> <p>② オーステナイト系ステンレス鋼のスエリングに関する照射データモデルの構築 オーステナイト系ステンレス鋼のスエリングに関するデータを集積する。また、スエリングに影響を及ぼす重要な因子を抽出し、予測モデル高度化に資する照射データモデルを構築する。</p> <p>(3) スエリング非破壊検査技術の開発 オーステナイト系ステンレス鋼のスエリング非破壊検査を行うた</p> |

| | |
|---|---|
| | <p>めの計測技術を構築する。中性子照射ディスク材に対して電気抵抗変化測定を、中性子照射ブロック材に対して電気抵抗変化測定と超音波物性変化を測定する。非破壊検査試験で得られる物性変化を材料挙動予測モデルに基づいて解析し、物性変化とスエリングの相関を検討する。</p> <p>本研究で構築する照射硬化予測モデルは、従来の計算機能力の発達にのみ依存してきたマルチスケールモデルとは異なり、照射欠陥と転位の長距離相互作用を計算する上で線形弾性論を適用し、近距離相互作用を計算する分子動力学法（MD法：Molecular Dynamics）と組みあわせる手法を用いる。これにより、現段階の計算機能力でも可能で、更に照射硬化の予測に必要な長距離相互作用も取り入れたモデルを構築することが本研究開発の大きな独創性である。また、照射データを集積するのみならず、それらを材料劣化予測モデルの観点から見直すデータモデル構築に独創性がある。加えて、スエリングの非破壊検査技術は、未だ確立されておらず、革新性のある技術である。</p> <p>このように、モデル・データ・検査技術の3つを材料劣化予測の観点から相互補完し、融合することによる評価手法は、これまで保全学の学術体系を構築してきた我々のグループの独創性であり、これにより構造材料の健全性を高い信頼性で評価する手法確立に資することができる。</p> |
| <p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> ・当初予定の成果 ・特筆すべき成果 ・副次的な成果 ・論文、特許等 | <p>【事業項目1】材料挙動予測モデルの構築</p> <p>①フェライト系ステンレス鋼の照射硬化予測モデルの開発</p> <p>BCC 金属における照射硬化のミクロな要因である転位と照射欠陥の相互作用を取り扱うモデルを構築した。BCC 金属における照射欠陥の大半は可動であるため、転位と照射欠陥の相互作用に関しては、ひずみ場を介した長距離相互作用と共に、直接接触などの短距離相互作用をモデル化する必要がある。本研究開発においては、長距離相互作用を取り扱う従来型の手法である弾性論を改良し、より短距離相互作用に対しても適用可能な改良型線形弾性論を構築し、フェライト系ステンレス鋼に適用した。一方で、短距離相互作用を取り扱うための分子動力学法（以下MD法）コードを作成し、照射欠陥と転位の相互作用に関する計算を行った。</p> <p>これらの結果、MD法と改良型線形弾性論は、照射欠陥の安定位置に関する計算結果で非常に良い一致が得られ、原子レベルのシミュレーションと連続体としての取り扱いに関して整合性を保つことが可能であることがわかった。これは、世界で初めて得られた非常に重要な知見であり、照射硬化に関するマルチスケールモデル構築に大きな貢献をすることができた。</p> <p>一方、照射データモデルで得られた知見より、透過型電子顕微鏡（以下TEM）を用いても殆ど照射欠陥が観察されないような低照射量においても、顕著な照射硬化が観察されることが明らかとなった。これは、らせん転位が格子間原子クラスター（以下SIAクラスター）を長距離相互作用により引きつけ、らせん転位の交差すべりによりSIAクラスターを</p> |

固着させる。これらの過程でらせん転位上に形成したヘリカル構造が、外力に対して非常に強い変形抵抗となることがわかった。これが照射硬化の主たる原因であって、特に TEM で観察できないような微小な SIA クラスターとらせん転位の相互作用が大きな照射硬化をもたらすことが世界で初めて解明され、硬化メカニズムの解明・モデル化に大きなブレイクスルーをもたらすことができた。

②オーステナイト系ステンレス鋼のスエリング予測モデルの開発

オーステナイト系ステンレス鋼の高温における照射劣化であるスエリングの予測を行うため、照射下マイクロ組織発達モデルを構築した。従来の研究により、オーステナイト系ステンレス鋼は、スエリング潜伏線量以上の照射量においては、定常スエリング率 1%/dpa で一定であることが知られているため、特にスエリング潜伏線量予測に資するモデル構築を行った。照射下マイクロ組織発達モデルのうち物理的機構・計算科学双方において最も難易なボイド形成過程と成長過程の連続性に重点を置いて、Fokker-Planck 法とモンテカルロ法を組み合わせることにより、様々な照射条件下におけるボイドサイズ分布を計算するモデルを作成した。特に、Fokker-Planck 法における計算に確率微分方程式を用いることによって、従来想定していたものより効率のよいコードを作成することに成功し、計算コスト削減を達することができた。

本研究開発で作成したコードを用いて、照射データが比較的充実している約 400°C において、様々な照射速度での照射量依存性を計算した結果、ボイド密度は比較的照射量で飽和傾向にあること、低照射速度で径の大きいボイドが形成することなどが再現でき、スエリング予測モデル高度化を行うことができた。

本研究開発で作成したコードは、核形成と成長を効率よく連続的に取り扱うことが可能であり、析出物形成過程などにも適用可能な形成コードである。

【事業項目 2】照射データモデルの構築

①フェライト系ステンレス鋼の照射硬化に関する照射データモデルの構築

本研究開発では、照射硬化予測モデル高度化の観点から、フェライト系ステンレス鋼のうち、特に純 Fe や Fe-Cr 合金のようなモデル合金を中心に、中性子照射による降伏応力の上昇などのデータを集積した。また、革新炉炉内構造材料の候補材として精力的に材料開発・改良が行われている Eurofer や ODS 鋼に関しても降伏応力上昇のデータを集積した。この結果、不純物を低減させた純 Fe においても、比較的低温、低照射量で急激な降伏応力の上昇が観察されることがわかった。これを照射硬化予測モデルに引用することで、微小な SIA クラスターとらせん転位の相互作用が照射硬化の主たる要因であることを解明することに寄与した。

②オーステナイト系ステンレス鋼のスエリングに関する照射データモ

デルの構築

本研究開発では、スエリング予測モデル構築と高度化の観点から、オーステナイト系ステンレス鋼のうち、主に Fe-Cr-Ni 三元系モデル合金や微量添加元素含有モデル合金を中心に、ボイド数密度やボイド径など照射下マイクロ組織発達データを集積した。この結果、ボイド数密度は照射速度、Ni 含有量に強く依存するが、Cr 含有量にはあまり依存しないこと、ボイド数密度は比較的照射量から飽和する傾向が強いことなどがわかった。これらより、照射初期に形成し、照射量と共に成長していくボイドがスエリングの主たる決定因子であり、ボイド形成を詳細に取り扱うモデルが不可欠であることを明らかにし、スエリング予測モデルに引用することができた。

尚、転位組織は、ボイド組織形成に大きな影響を与えるマイクロ組織であり、本研究により、転位密度の測定が可能な非破壊検査技術の開発が今後必要となりうることが示唆された。

上記二つの研究開発成果より、単にデータ数を増やすデータベース構築や実験のみならず、予測モデルとの融合によりどのようなデータが必要であり、どのような材料因子・照射因子が劣化を予測するために重要であるかを明らかにするデータモデルの構築は、革新炉内構造材料のみならず、他の原子力プラントシステムの材料健全性評価や巨大人工物構造材の設計には欠かすことができない概念であることを示すことができた。

【事業項目 3】 スエリング非破壊検査技術の開発

①照射ディスク材を用いたスエリング非破壊検査

オーステナイト系ステンレス鋼の中性子照射ディスク材（3mm φ，厚さ約 0.25mm）を用いて、照射に伴う電気抵抗変化を直流法と交流法によって非破壊的に測定し、スエリングとの相関を評価した。その結果、電気抵抗変化は、スエリングと共に増加し、スエリングとほぼ一次関数の関係にあることがわかった。また、直流法で得られた結果と交流法で得られた結果は、ほぼ一致することが確認できた。これらを通じて、スエリング非破壊検査技術の誤差を極力低減することに成功した。

本研究開発により、微小試験片の厚み、欠け等の形状因子は測定時の精度に直接的な影響を及ぼし誤差の主たる原因となりうることがわかった。これにより、革新炉で微小試験片によるスエリング非破壊検査を行う場合、試料形状に注意を要すること、及びアーカイブ材を確保することが望ましいことがわかった。

②照射ブロック材を用いたスエリング非破壊検査、マイクロ組織観察とスエリング測定

ロシア高速炉 BN-600 の配管（直径 9.5cm，肉厚 2.0cm）から切り出したオーステナイト系ステンレス鋼の中性子照射ブロック材を用いて、照射量が異なる 5 つの部位に関して、電気抵抗測定及び超音波測定による物性値変化を求めた。また同一試料に対し、TEM を用いたマイクロ組織観察及びスエリング測定を行った。電気抵抗測定と超音波測定によるスエリ

ング評価値は、おおむね良い一致をみることがわかった。マイクロ組織観察により、照射欠陥であるボイドの他、照射誘起で形成した析出物が観察され、非破壊検査試験で得られた物性値変化に対して、析出物の効果を取り入れることによって、スエリング評価を高度化することが可能となった。

【事業全体】を通じて

(1) フェライト系ステンレス鋼の照射硬化に関する研究開発

本研究開発では、改良型線形弾性論を BCC 金属に適用すると同時に、MD コードを作成しそれを用いて計算することで、転位と SIA クラスタに関して、長距離相互作用から短距離相互作用まで整合性を保ちながら評価するマルチスケールモデル構築に成功した。また、BCC 構造の Fe を対象として、転位と SIA クラスタの相互作用に関して網羅的な計算を行った。更に、高純度 Fe の中性子照射下で低照射量からの急激な降伏応力の増加は、材料設計とシステム設計上、解決すべき課題であることが照射データモデル構築により解明された。これは、TEM 分解能以下の微小な SIA クラスタがらせん転位と長距離相互作用により引きつけられ、らせん転位の固着することで応力負荷時に大きな変形抵抗となるためである。この機構解明は、本事業で開発した計算コードを用いて得られた世界で初めての大きな成果であり、照射硬化予測に関して大きなブレイクスルーをもたらすことができた。この機構に基づいて、今後の材料設計・材料補修に対する指針、新材料開発の方向性に対して、貢献することができた。具体的には、らせん転位と照射欠陥の相互作用を如何にして妨げるか等、らせん転位の挙動を検討することによって、照射硬化を抑制しうる魅力的な構造材料を提供できると考えられる。また、本研究開発によって、今後の材料照射試験のあり方についても方向性を与えることができた。これまで、ナノ・ミクロスケールにおける照射挙動とマクロスケールの現象である機械的特性変化を結びつけるため、TEM によりマイクロ組織情報を得、同等試料の機械的特性変化試験を行い、それらを経験則に従って結びつける研究が行われてきた。しかし、TEM 観察可能な照射欠陥と TEM 空間分解能以下の照射欠陥では、らせん転位との相互作用が全く異なり、微小な欠陥が照射硬化の主たる要因となりうることが本研究開発により解明された。このため、フェライト系ステンレス鋼に於いては、TEM 観察可能な照射欠陥と機械的特性を従来型の経験則で結びつける研究は、物理的に課題があることがわかった。フェライト系ステンレス鋼を含む BCC 金属では、らせん転位に引き寄せられ、固着した照射欠陥の定量評価を行うことで、照射硬化の解析が可能であることが本研究開発の総合的結果として明らかとなった。今後は、不純物や添加元素を含む実用合金の照射硬化をモデルによってどのように定量評価していくかが課題である。

(2) オーステナイト系ステンレス鋼のスエリングに関する研究開発

本研究開発では、オーステナイト系ステンレス鋼を対象として、微小試験片を用いた電気抵抗測定による試験、ブロック材を用いた電気抵抗

測定・超音波測定による試験により、非破壊検査技術を確立した。また、測定に影響を及ぼす因子を明確化させ、測定誤差を低減させることに成功した。更に、物性値変化を TEM 観察によるマイクロ組織と対応させることによって、広範囲におけるスエリングの非破壊検査技術の高度化を行うことができた。特に、析出物など第二相が存在する場合の検討を詳細に行い、本研究開発で開発した技術は、析出物密度が高い照射試料に対して有効であることがわかった。これらの結果、微小試験片で得られる局所領域の劣化測定とブロック材で得られる広範囲の劣化測定を相互に補完させることによって、合理的且つ信頼性の高い非破壊検査技術となることがわかった。また、従来のモデルでは取り入れることが困難であったボイド形成と成長過程の連続性を保った照射下マイクロ組織発達の予測モデルを構築し、マイクロ組織発達に関する照射データモデルと比較することにより、照射速度の影響等を再現することができた。

ボイド形成やそれに伴うスエリングは、未照射材の熱処理や僅かな照射条件の相違等により影響を受ける。今後は、添加元素、不純物元素の影響も取り入れて、非破壊検査で測定されたスエリングが更なる照射でどのように進行してゆくか、照射データモデルと予測モデルで明らかにしていく必要がある。

論文、特許等については、以下のとおりである。

【論文発表】

- ① T. Okita, N. Sekimura, “The elastic interaction between an edge dislocation and a loop in BCC systems”, *Journal of Nuclear Materials*, 367-370 (2007) 368.
- ② S. Fujita, T. Okita, E. Kuramoto, N. Sekimura, “A study of the interaction between irradiation induced-defect and a line dislocation in bcc-iron”, accepted for publication in *Journal of Nuclear Materials*

【投稿予定】

- ① T. Okita, S. Fujita, E. Kuramoto, N. Sekimura, “The interaction mechanisms between a screw dislocation and an SIA cluster in BCC-iron”, to be submitted to *Acta Metallurgica*
- ② S. Fujita, T. Okita, N. Sekimura, “The comparison of an SIA cluster behavior near an edge dislocation between the MD simulation and the elastic theory”, to be submitted to *Acta Metallurgica*

【口頭発表】

- ① 沖田泰良、関村直人、“線形弾性論を用いた BCC 系における刃状転位と転位ループの相互作用に関する研究” 日本原子力学会 2006 年秋の大会
- ② 沖田泰良、関村直人、磯部仁博、“モデル・データ・検査融合に基づく

| | |
|--|---|
| | <p>炉内材料劣化に関する研究開発”、日本保全学会第三回学術講演会、2006.7</p> <p>③ 沖田泰良、藤田智、蔵元英一、関村直人、“BCC系における刃状転位と転位ループの相互作用に関する研究”、日本原子力学会 2007 年秋の大会</p> <p>④ 匂坂充行、沖田泰良、磯部仁博、“中性子照射ディスク材及びブロック材を用いた電気抵抗測定の測定”、日本原子力学会 2007 年秋の大会</p> <p>⑤ 沖田泰良、藤田智、関村直人、磯部仁博、“モデル・データ・検査融合による炉内材料劣化に関する研究開発”、日本保全学会第四回学術講演会、2007.7</p> <p>⑥ 沖田泰良、藤田智、蔵元英一、関村直人、“BCC系における刃状転位と転位ループの相互作用に関する研究(2)”、日本原子力学会 2008 年春の大会</p> <p>⑦ 磯部仁博、匂坂充行、沖田泰良、“ブロック材を用いたスエリング非破壊検査技術の開発”、日本原子力学会 2008 年秋の大会</p> <p>⑧ 匂坂充行、磯部仁博、沖田泰良、“ディスク材を用いたスエリング非破壊検査技術の開発”、日本原子力学会 2008 年秋の大会</p> <p>【ポスター発表】</p> <p>① 匂坂充行、沖田泰良、磯部仁博、“中性子照射ディスク材及びブロック材を用いた電気抵抗変化の測定”、日本保全学会第四回学術講演会、2007.7</p> <p>② S. Fujita, T. Okita, E. Kuramoto, N. Sekimura, “A study of the interaction between irradiation induced-defect and a line dislocation in α-Fe”, ICFRM-13, Nice, 2007.12</p> |
| <p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> ・目的・目標の設定の妥当性 ・研究計画設定の妥当性 ・研究費用の妥当性 ・研究の進捗状況 ・研究交流 ・研究者の研究能力 | <p>【目的・目標の設定の妥当性】</p> <p>・原子炉内材料の照射環境における材料挙動予測モデル、照射データモデルおよびスエリング非破壊検査技術をそれぞれ開発・高度化し、それらを融合させて照射劣化を予測できる手法を構築しようという試みは大変意欲的であるが、目的ならびに目標の設定はやや高すぎた可能性がある。</p> <p>【研究計画設定の妥当性、研究の進捗状況】</p> <p>・本事業は計画通り遂行されており、プログラムオフィサーのコメントにより、より有意義な成果が得られるような研究展開が図られたことは評価したい。</p> <p>【研究交流、人材育成、研究者の研究能力、成果】</p> <p>・本事業では、原子炉内環境における材料挙動予測モデル、照射データモデルおよびスエリング非破壊検査技術を開発・融合することにより炉内材料の照射劣化予測手法を構築するなど、当初想定した成果が得られている。</p> |

| | |
|---------|---|
| | <ul style="list-style-type: none"> ・フェライト・マルテンサイト鋼の照射硬化データベースの整理は有効である。また、予測モデルについては独創性があり、1nm以下のサイズの転位ループとらせん転位間の相互作用を調べた結果、らせん転位が微小な転位ループに捕捉される可能性を示したことの意義は大きく、今後の更なる進展を期待する。 ・電気抵抗法を用いたスエリング評価に関し、5%以下のスエリングに対してはもう少し踏み込んだ検討が必要であると考えられる。 ・また、本事業には多くの研究者が従事しており、若手研究者による成果の外部発表も多く、人材育成における成果も上げられたものと評価する。 |
| 4. その他 | <p>・純鉄とFe-Cr合金、フェライト・マルテンサイト鋼の照射硬化支配因子は異なることを認識の上、今後の研究を進めていくことが肝要である。らせん転位は鉄系材料の場合、100℃以下での変形によるひずみはらせん転位の運動により決まり、らせん転位のパイエルス応力はその運動を律速するが、らせん転位は静水圧成分を持たないことから静水圧成分を持った微細な欠陥がその運動に影響を与えることは無いと考えられている。一方、揺らぎで生じた刃状成分が短範囲の静水圧成分の影響を受けてキンク対の形成を促進（軟化）することが知られている。これらの結果との関連や、$a\langle 100 \rangle$バーガースベクトルとの相互作用など、今後、さらに研究を深めてほしい。</p> <p>熱伝導に対する複合的な考え方が成立するための異相のサイズに係る条件があるはずなので、短範囲の相変化による電気抵抗率の変化を表す式を再検討して欲しい。照射による電気抵抗率の変化は、析出相の固溶、固溶相の析出の寄与が大きく、そこに焦点あてるのは妥当である。</p> |
| 5. 総合評価 | <ul style="list-style-type: none"> ・原子力への応用を考えた場合、純鉄とFe-Cr合金、フェライト・マルテンサイト鋼の照射硬化支配因子は異なるため、純鉄で得られた成果を原子力材料に適用するのは飛躍がある。今後、実的な点に目を向けた検討を期待する。 ・実機では、場所によって照射条件が異なるので、革新炉のどこ（炉内、配管等）を対象として研究を進めるのかを明確にしておくことが望ましい。 <p>A) 想定以上の成果が得られ、今後に大いに期待できる。 B) 想定通りの成果が得られ、今後が期待できる。 C) 想定通りの成果が一部得られなかった。 D) 想定通りの成果が全く得られなかった。</p> |