

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、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-Atom Probe: 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（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。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（Kyoto University Reactor: KUR）、材料試験炉（Japan Material Testing Reactor: 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（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、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や陽電子消滅法等を駆使した照射材のナノ組織分析

これまでに、ベルギーDoel-2炉（欧州加圧水炉）、フィンランドLoviisa-1炉（旧ソ連型VVER炉）、アルゼンチンAtucha炉（加圧重水炉）など、様々なタイプの実機監視試験片に加えて、JMTRやKURといった研究炉による照射材のナノ組織分析を行ってきた。その結果、照射速度効果、不純物Cu濃度の効果、熱中性子の効果（スペクトル効果）、硬化を伴わない脆化因子である粒界偏析などを明らかにしてきた（詳細は参考文献(1)を参照のこと）。さらに、従来の脆化予測式より大幅に越える脆化を示している監視試験片（ベルギーTihange-2炉、溶接材、第1回から第4回監視試験片）を新たに入手し分析を進めた。図1に3D-APによるSCの観察例を示す。

本試料はCu不純物濃度が比較的低い材料であり、SCは主としてNi-Mn-Siを主成分としている。

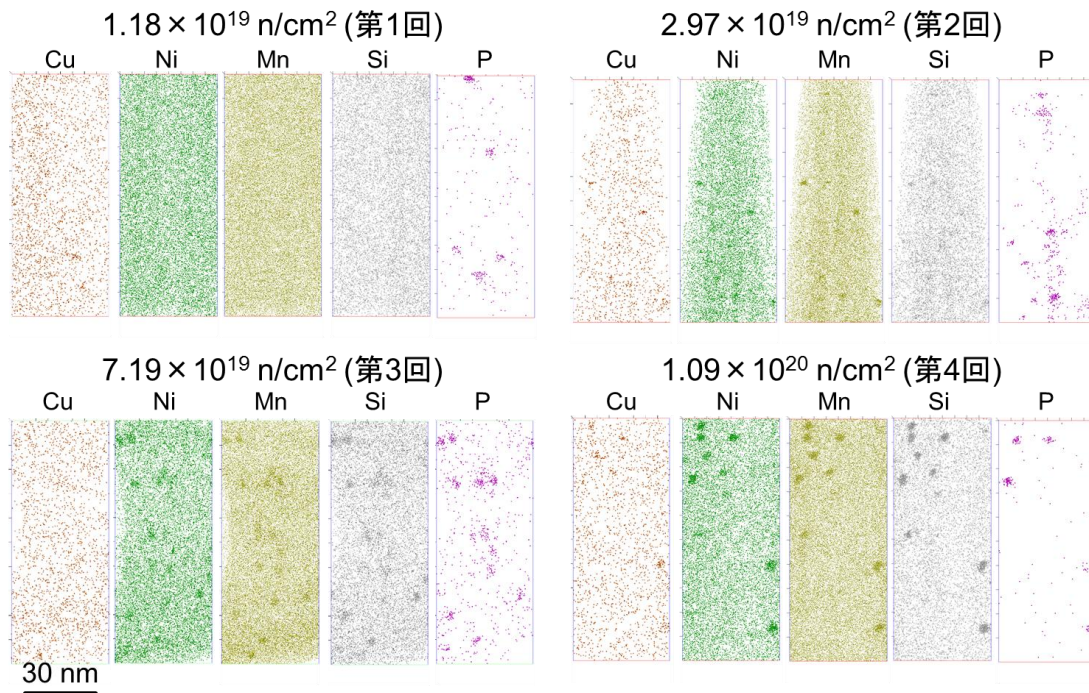


図 1 : Tihange-2 炉監視試験片の 3D-AP 観察結果

第 1 回、第 2 回監視試験片では、SC があまり形成していないが、第 3 回、第 4 回監視試験片で多量に形成していることがわかる。図 2 に、ピッカース微小硬さ試験による照射硬化の実測値と、上記 3D-AP データを基に評価した SC による硬化の関係を示す。これにより、低照射量領域では硬化の主因は SC ではないこと、すなわち MD が支配的であること、高照射量領域では、MD に加えて SC が大きな割合を占めることがわかった。上記の結論は、3D-AP と相補的な陽電子消滅測定でも裏付けられた。従来の研究では、照射硬化は SC が支配的であるとされてきたが、本研究による結果は、高精度の脆化予測には MD の寄与も無視できないことを明確に示している。

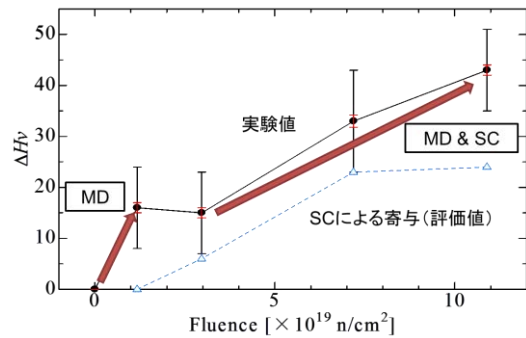


図 2 : Tihange-2 炉監視試験片の照射硬化。実測値と 3D-AP 結果を基にした SC の寄与 (評価値) の比較

また、本監視試験片のうち第 4 回試験片では、SC や MD とは異なり、硬化を伴わない脆化機構の可能性が示唆されたため、粒界偏析の詳細な分析も行った。その結果、P 等の粒界偏析が見られた (紙面の制約で図は省略) が、粒界脆化を引き起こす程度の偏析濃度ではないことが確認された。

2. 2 AMOC 法の開発と KUR を用いた高強度陽電子源の開発

陽電子消滅法は、従来、欠陥検出が可能な陽電

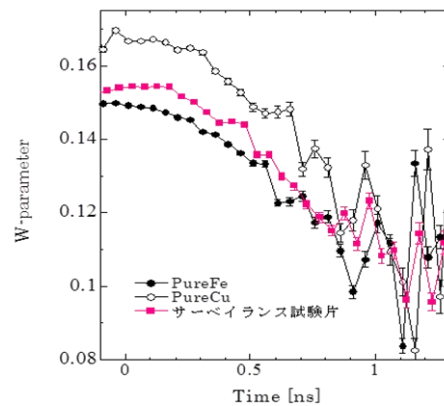


図 3 : 監視試験片の AMOC 結果

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3に監視試験片測定例を示す。陽電子が照射欠陥に捕獲される消滅時間が遅い領域ではCu成分が殆ど検出されなかった。これは、MDとSCの形成は別々に形成されることを示唆している。

上記のAMOC測定を高精度で行うためにKURを用いた高強度陽電子源は完成した。図4に完成したビームラインとビームを示す。また、ビームの高輝度化、パルス化も行った(図4右)。現在、KURは新規規制基準適合審査中であるが、再運転後の陽電子消滅寿命測定、同時係数ドップラー広がり(Coincidence Doppler Broadening: CDB)測定及びAMOC測定の準備が整った。

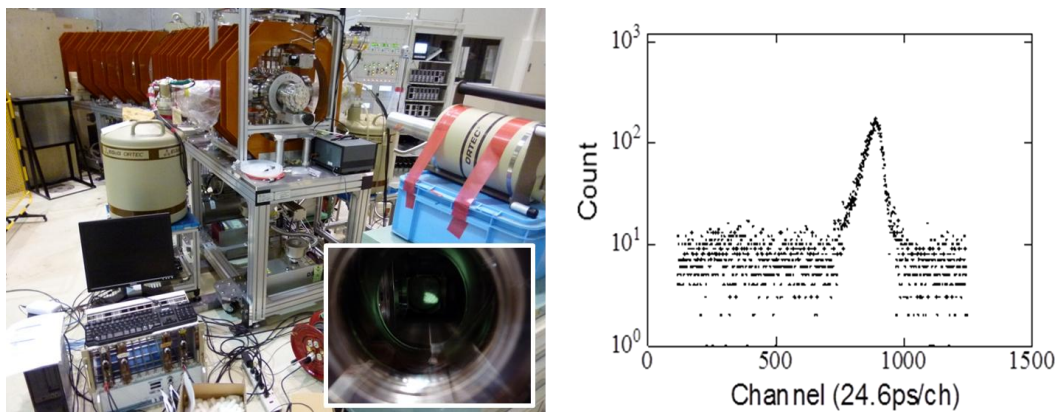


図4: KURの陽電子ビームライン。ビーム形状とパルス化も示す。

2. 3 照射脆化機構に影響する不純物拡散の精密測定

脆化予測において直接重要なパラメータとなるCu不純物の拡散定数や固溶限を、原子レベルの分解能を持つ3D-APを用いて評価を行った。従来のFe中のCuの拡散データは、原子炉稼働温度(300°C程度)より遙かに高温の700°C程度以上だけであったが、本測定によって従来よりも150°C程度も原子炉稼働温度に近い温度での拡散定数の測定に成功した。また、同時に決定した固溶限

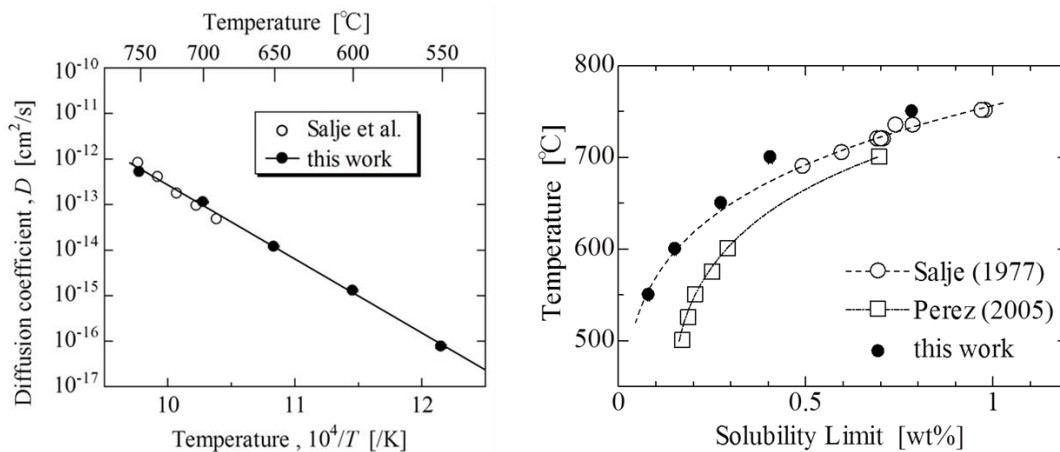


図5: 3D-APによって評価したFe中のCuの拡散定数(左)と固溶限(右)。

は、最近の間接的な方法による値よりも、かなり小さい値であることが明らかになった（以上、図5参照）。これは析出の駆動力が強いことを示す重要な結果である。

2. 4 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

原子炉圧力容器鋼のモデル合金であるFe-0.6wt%Cuの照射誘起析出と、ボイド成長・消滅を解析するために反応速度論に基づく計算コードを作成した。KURの照射条件では、Cuの析出を示すCDB測定の結果を良く再現できた。国内の原子力発電所の公表されている圧力容器鋼の監視試験片の照射損傷構造をシミュレーションするの

に、同じコードで単に照射温度と損傷速度を実機条件に変えただけでは再現できず、反応速度式のパラメータを調整した。図6にその結果を示す。パラメータを変えたことは、Fe-Cuモデル合金と異なり、実機材料（低合金鋼）に含まれる多くの合金元素の効果をとり入れたことに対応する。

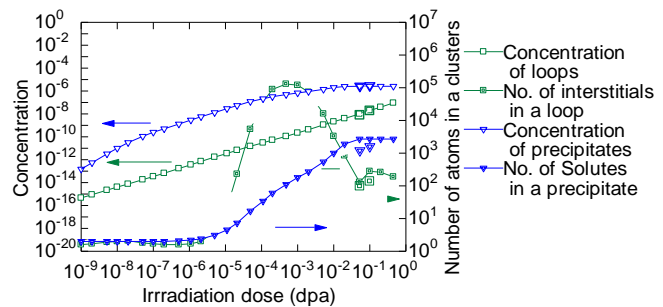


図6：シミュレーション結果と監視試験片のデータ（大きなマーク）との比較。

3. 今後の展望

最終年度である平成27年度は、3D-APやAMOC等を駆使した監視試験片のナノ組織解析、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をさらに進めるとともに、これまで得られた実験結果、理論計算シミュレーションを総合し、より精度の高い脆化予測モデルを構築・提案する。

4. 参考文献

- (1) 永井康介、文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 平成26年度成果報告会資料集 84-89 頁
- (2) T. Toyama, Y. Nagai, A. Al Mazouzi, M. Hatakeyama, M. Hasegawa, T. Ohkubo, E. Van Walle, R. Gerard, “Intergranular Segregation in the Pressure Vessel Steel of a Commercial Nuclear Reactor Studied by Atom Probe Tomography,” Mater. Trans., 54 (2013) 2119-2124.
- (3) 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.
- (4) Q. Xu, K. Sato, T. Yoshiie, T. Sano, H. Kawabe, Y. Nagai, K. Nagumo, K. Inoue, T. Toyama, N. Oshima, A. Kinomura and Y. Shirai, “Positron beam facility at Kyoto University Research Reactor,” Journal of Physics: Conference Series 505 (2014) 012030.
- (5) T. Toyama, F. Takahama, A. Kuramoto, H. Takamizawa, Y. Nozawa, N. Ebisawa, M. Shimodaira, Y. Shimizu, K. Inoue, Y. Nagai, “The diffusivity and solubility of copper in ferromagnetic iron at lower temperatures studied by atom probe tomography,” Scripta Materialia 83 (2014) 5-8.
- (6) 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.