

科学研究費補助金（特別推進研究）公表用資料 〔研究進捗評価用〕

平成17年度採択分

平成20年 3月31日現在

研究課題名（和文） 先端ナノ材料学による原子炉鉄鋼材料
の脆化・劣化機構の解明と制御・予測

研究課題名（英文） Clarification of Embrittlement and Degradation Mechanisms
of Nuclear Steel Materials by Advanced Nano-Materials Science
for Control and Prediction of the Materials Integrity

研究代表者

氏名

長谷川 雅幸 (Hasegawa Masayuki)

所属研究機関・部局・職

東北大学・名誉教授



研究の概要：

原子炉圧力容器（RPV）鋼の照射脆化の主因である Cu 富裕ナノ析出物（CRNP）、マトリックス欠陥（MD）や不純物粒界偏析・析出に関して、最先端の陽電子消滅法と3次元アトムプローブ法を組み合わせ、実機監視試験片や材料試験炉で加速照射した RPV モデル合金試料で起こっているナノ材料組織変化とそれらの照射下での発達を明らかにする。またこれらの機械的性質に与える効果、熱的安定性を調べることで、照射脆化・劣化の解明、予測・制御の提案を行おうとする

研究分野：原子力材料

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子炉圧力容器、照射脆化、陽電子消滅、3次元アトムプローブ

1. 研究開始当初の背景

我が国の原子力発電では、原子炉が30年以上稼働した高経年化原子炉が多くなってきている。それらをさらに約30年稼働させるためには、原子炉圧力容器（RPV）の安全性を一層確実にしなければならない。この点に関し、最先端の材料科学によって、RPV脆化の機構を解明することが強く期待されている。

2. 研究の目的

以上の背景のもと、実際に稼働中の原子炉 RPV 監視試験片を入手し、最近までの約30年間でのナノ組織変化（ナノ析出物、照射欠陥およびそれらと不純物との複合欠陥、粒界偏析）を明らかにするとともに、それらと照射脆化との関連を解明し、今後の照射脆化の制御・予測への提案を行おうとする。

3. 研究の方法

ベルギーで稼働中の原子炉（Doel-1,2,4号炉）の RPV 監視試験片、材料試験炉で加速照射した RPV 鋼材料、さらには Cu、Mn や P など照射脆化に大きな影響を与える不純物元素に注目したモデル合金について、それらの照射によるナノ組織発達を解明しようとする。そのため最先端の陽電子消滅および3次元アトムプローブを駆使し、照射によるナノ組織変化、それに基づく脆化との関係を明らかにしようとする。

4. これまでの成果

ベルギーで稼働中の原子力発電炉（加圧水炉）Doel-1 および2号炉の監視試験片について、約25年間でどのようなナノ組織片かが起こっているかを明らかにしてきた。

図1に、陽電子がサンプリングした電子の運動量分布の低運動量成分（空孔型欠陥の存在によって敏感に増加する）と高運動量成分（Cu ナノ析出物の存在によって増加する）の相関を示す。不純物 Cu 濃度の高い（0.30%Cu）Doel-2 炉では、最初の3年間で Cu ナノ析出物が形成し、その後照射欠陥が次第に蓄積していく。一方 Cu 濃度が低い（0.13%）の Doel-1 炉では、逆の変化をする。

低/高 電子運動量成分強度比の相関

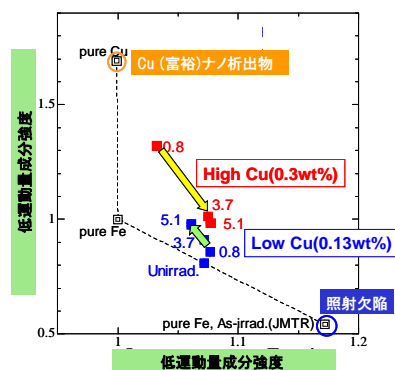


図 1.

〔4. これまでの成果（続き）〕

しかしながら、Doel-1、-2 炉の監視試験片の機械的性質はこの間ほぼ一定であることから、脆化・硬化の原因となる Cu ナノ析出物、照射欠陥の形成・成長に差異はあるものの両者の寄与の和として与えられる機械的性質に大きな差異はないことが判明した。

最先端の 3 次元アトムプローブ（Pulse Laser Local Electrode Atom Probe: Laser LEAP）を導入し、約 25 年間にわたる Cu などのナノ析出物、結晶粒界偏析（・析出）などのナノ組織変化・発達の詳細を調べた。Cu ナノ析出物の形成に関しては、陽電子消滅の結果と良く一致した。大傾角粒界近傍の LEAP 観察の結果、照射前で既に C および P、3 年間の照射で Mo、Cu、さらに 25 年間（図 2）では加えて Si、Mn および As が粒界偏析（Cu は粒界析出）することが明らかとなった。

粒界脆化をもたらすと思われる P や As などの偏析発展挙動の解明は、今後の高年化原子炉の照射脆化に関し一層重要になると思われる。

第 2 世代の圧力容器鋼材料（Cu 濃度が 0.05% に低減されている。日本製）の Doel-4 炉監視試験片では、約 25 年間の照射後もナノ析出物は全く観察されなかった。しかしながら照射硬化・脆化は Doel-1、2 炉のその約半分程度起こっている。

Cu ナノ析出物の極初期過程を調べる新たな陽電子消滅法の開発を行った。その 1 つは 2 次元角相関法であり、Cu ナノ析出物にとらえられた陽電子が与える運動量分布の Smearing を利用する方法であり、これによって、直径約 0.5nm の Cu ナノ析出物が検出できる。また陽電子寿命・運動量相関法によってそれらの数密度を求めることが出来る。

Fe-Cu-X モデル合金について、材料試験炉で照射を行い、Mn 添加による異常な硬化を見いだした。電子顕微鏡やアトムプローブでは検出できない微小な照射欠陥と Mn の複合体が存在し、異常な硬化をもたらすと示唆される。

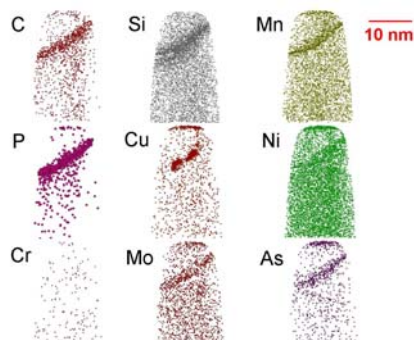


図 2.

5. 今後の計画

- 1) Doel 炉などの監視試験片のナノ材料解析をさらに進展させる。特に不純物濃度の低い第 2 世代の RPV 鋼試験片の照射脆化の原因、粒界・界面偏析を調べる。
- 2) 材料試験炉において、ほぼ同一の照射条件で加速照射した監視試験片材料の試料やモデル合金試料のナノ組織、機械的性質の変化の系統的関係を求める。
- 3) 上記など基に、RPV 鋼の脆化・劣化とナノ組織の関係の解明、脆化制御・予測の提案を目指す。

6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

- 1) T. Toyama, Y. Nagai, Z. Tang, M. Hasegawa, A. Almazouzi, E. van Walle, R. Gerard : Acta Mater. **55** (2007) 6852-6860, “Nanostructural evolution in surveillance test specimens of commercial nuclear reactor pressure vessel studied by three dimensional atom probe and positron annihilation”.
- 2) Y. Nagai, T. Toyama, Y. Nishiyama, M. Suzuki, Z. Tang and M. Hasegawa: Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 261920-1~3, “Kinetic of irradiation-induced Cu precipitation in nuclear reactor pressure vessel steels”.
- 3) 永井康介, 長谷川雅幸: 日本物理学会誌 **60** (2005) 842-849, 「自己探索プローブである陽電子による物質内部のナノ領域分析」(解説).
- 4) 永井康介, 外山健, 長谷川雅幸: 金属 **77** (2007) 1333-1338, 「最新のナノ組織解析技術による脆化機構の解明 —陽電子消滅法と 3 次元アトムプローブによる監視試験片の解析—」(解説).
- 5) K. Inoue, F. Yano, A. Nishida, T. Tsunomura, T. Totama, Y. Nagai, M. Hasegawa: App. Phys. Lett. **92** (2008) 103506-1~3, “Monolayer segregation of As atoms at the interface between gate-oxide and Si substrate in a metal-oxide-semiconductor field effect transistor by three-dimensional atom-probe technique”.

ホームページ

<http://wani.imr.tohoku.ac.jp>