

**平成27年度科学研究費助成事業（特別推進研究）自己評価書**  
**〔追跡評価用〕**

平成27年4月24日現在

|                           |  |                                       |           |
|---------------------------|--|---------------------------------------|-----------|
| <b>研究代表者<br/>氏名</b>       | 長谷川 雅幸   | <b>所属研究機関・<br/>部局・職<br/>(研究期間終了時)</b> | 東北大学・名誉教授 |
| <b>研究課題名</b>              | 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   |                                       |           |
| <b>課題番号</b>               | 17002009   |                                       |           |
| <b>研究組織<br/>(研究期間終了時)</b> | 研究代表者 長谷川 雅幸（東北大学・名誉教授）<br><br>研究分担者 永井 康介（東北大学・金属材料研究所・教授）<br>畠山 賢彦（東北大学・金属材料研究所・助教）<br>外山 健（東北大学・金属材料研究所・助教）<br>松川 義孝（東北大学・金属材料研究所・助教） |                                       |           |

**【補助金交付額】**

| 年度     | 直接経費       |
|--------|------------|
| 平成17年度 | 113,200 千円 |
| 平成18年度 | 138,300 千円 |
| 平成19年度 | 47,293 千円  |
| 平成20年度 | 29,300 千円  |
| 平成21年度 | 25,900 千円  |
| 総計     | 353,993 千円 |

## 1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか

特別推進研究によってなされた研究が、どのように発展しているか、次の(1)~(4)の項目ごとに具体的かつ明確に記述してください。

## (1) 研究の概要

(研究期間終了後における研究の実施状況及び研究の発展過程がわかるような具体的内容を記述してください。)

## a. 研究の背景・目的

内外の原子力発電では、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。それらをさらに稼働(再稼働)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の脆化・硬化とその原因となる微視的機構を解明することが強く期待されている。このような研究のためには、実際に稼働中の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(クラスター)、照射欠陥およびそれらと不純物との複合欠陥、粒界偏析など)を明らかにするとともに、それらと照射による機械的性質の劣化(脆化・硬化)との関連を解明し、今後の照射脆化の制御・予測への提案を行うことが不可欠である。

そのためには、単純なモデル合金や当該材料(A533Bなど)の中性子照射研究を行うのみならず、実際の発電炉RPVの監視試験片を入手し、研究を行うことが欠かせない。しかしながら我が国では、実機監視試験片(試験後の残材)も公的学術機関には提供されていないのが現状である。そこで我々は、ベルギー王立原子力研究所(SCK)より、**ベルギーの発電炉 Doel-1, 2, 4 炉**などの監視試験片(以降、いずれも残材)(4号機のRPV鋼は日本製鋼製で我が国の軽水炉のものと同じ)を入手し、研究を進めてきた。特推研究期間後は、さらに**フィンランド VTT より Loviisa 1号炉(旧)ソ連型の加圧水炉**の監視試験片(照射劣化を回復させるため、**照射後“in-service 焼鈍”・再照射した試料**)、次いでSCKより、最近(第4回目の試験)延性脆性遷移温度(DBTT)に予期せぬ増加が認められた**ベルギー-Tihange2号炉**の監視試験片を入手し、微視的構造変化を調べるとともに機械的性質の変化と比較検討を行う目的で研究を進めている。以下に特推研究期間後の主な研究の進展の概略を述べる。

## b) フィンランド Loviisa 1号炉(Cr濃度が高い、Vが添加されている)(溶接材)

最初の照射(I)では、Cu, Mn, Ni, Si, Pに富む溶質原子ナノクラスター(GRNC)が形成するが、焼鈍(475°C、100時間)(IA)によって、一部のそれらは残存し粗大化するが大部分は消失する。IおよびIAの硬化(脆化)は、これらのGRNCで定量的に説明できる。再照射(IAI)でもやはり、GRNCが生ずるがそれらは微細で数密度は低くIAIの硬化(脆化)の約半分しか説明できない。陽電子消滅の結果を参照すると、残りの約半分の硬化はマトリックス欠陥(転位ループ)によると思われる。このように焼鈍後の再照射では脆化・硬化の機構が異なってくる。

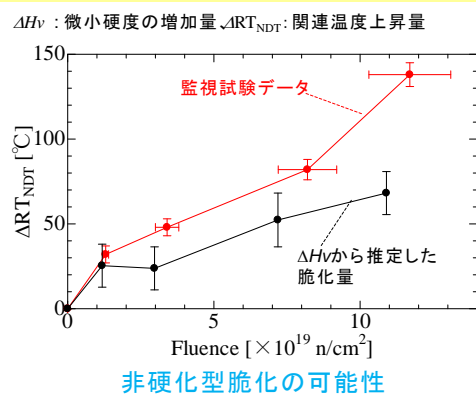
## c) ベルギー-Tihange-2号炉(オランダ製のRPV鋼、有害なCu不純物濃度は低い)(溶接材)

最近、Tihange-2号炉のRPV監視試験で予期せぬ脆化が報告され、**安全の範囲内であるとは言えその原因究明が急務となっている**。第1回( $1.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ )~第3回( $7.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ )の監視試験の照射硬化は、照射によって生じたCu, Mn, Ni, Si, P溶質原子クラスターおよびマトリックス欠陥によることが分かった。第2回目( $3.0 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ )以降では照射硬化に対応しないDBTTの上昇(非硬化型の脆化)も付随することが分かった。特に第4回の監視試験ではこの傾向が著しい。これが最近報告された予期せぬDBTTの急上昇に対応しているであろう。この非硬化型の脆化は炭化物やマルテンサイト相などの形成・成長や界面劣化に関係していると推測される(現在研究進行中)。

## d) その他

- i) RPVの溶接内張りステンレス(2相ステンレス)の熱時効や中性子照射によるCrスピノーダル分解分布変調( $\delta$ フェライト中)の変化を明らかにした。
- ii) 重照射ステンレス304中の粒界近傍でのNi, Si, Pの濃縮とCrの欠乏を明らかにした。
- iii) 陽電子消滅を用いたCuナノクラスター(析出物)や不純物-原子空孔集合体の新たな実験手法の開発を行った。
- iv) 結晶粒界の分子動力学シミュレーション法の開発と小角粒界、ねじれ粒界やそこでの転位の運動の解析を行った。
- v) Fe中のCuの拡散係数と固溶限の精密測定。RPVの低温(使用温度(約300°C))でも使えるこれらの物性値は非常に重要でありながら不足していた。

ベルギー加圧水型炉Tihange2監視試験データと硬化量の比較



## 1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか（続き）

(2) 論文発表、国際会議等への招待講演における発表など（研究の発展過程でなされた研究成果の発表状況を記述してください。）

## 論文発表（2010年以降）：RPV鋼の研究分野別代表論文

- 1) T. Toyama, F. Takahama, A. Kuramoto, H. Takamizawa, Y. Nozawa, N. Ebisawa, M. Shimodaira, Y. Shimizu, K. Inoue, Y. Nagai: Scripta Mater. **83** (2014) 5-8, “The diffusivity and solubility of copper in ferromagnetic iron at lower temperatures studied by atom probe tomography”. [Fe中Cuの拡散係数、固溶限（CuはRPV鋼中の有害不純物元素）]
- 2) A. Kuramoto, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue, Y. Nozawa, M. Hasegawa, M. Valo: Acta Mater. **61**(2013)5236-5246, “Microstructural changes in a Russian-type reactor weld material after neutron irradiation, post-irradiation annealing and re-irradiation studied by atom probe tomography and positron annihilation spectroscopy.” [Loviisa2号炉RPV]
- 3) A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Yoshiie, Y. Nishiyama: J. Nucl. Mater. **425** (2012) 65-70, “Post-irradiation annealing behavior of microstructure and hardening of a reactor pressure vessel steel studied by positron annihilation and atom probe tomography.” [第一、二世代RPV鋼(A533B)、JMTR照射後焼鈍]
- 4) T. Toyama, Z. Tang, K. Inoue, T. Chiba, T. Ohkubo, K. Hono, Y. Nagai, M. Hasegawa: Phys. Rev. B **86** (2012) 104106-1~7, “Size estimation of embedded Cu nanoprecipitates in Fe by using affinitively trapped positrons.” [Feマトリックス中のサブナノCu析出物の寸法計測（新手法）]
- 5) K. Inoue, Y. Nagai, Z. Tang, T. Toyama, Y. Hosoda, A. Tsuto, and M. Hasegawa: Phys. Rev. B **83** (2011) 115459, “Time evolution of positron affinity trapping at embedded nanoparticles by age-momentum correlation.” [照射欠陥と不純物元素複合体同定の新手法開発]
- 6) T. Takeuchi, A. Kuramoto, J. Kameda, T. Toyama, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Ohkubo, T. Yoshiie, Y. Nishiyama and K. Onizawa: J. Nucl. Mater. **402** (2010) 93-101, “Effects of chemical composition and dose on microstructure evolution and hardening of neutron irradiated reactor pressure vessel steels”. [第一、二世代RPV鋼(A533B)、JMTR照射、照射量依存性]
- 7) T. Takeuchi, J. Kameda, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Matsukawa, Y. Nishiyama, K. Onizawa: J. Nucl. Mater. **425** (2012) 60-64, “Microstructural changes of a thermally aged stainless steel submerged arc weld- overlay cladding of nuclear reactor pressure vessels.” [RPVオーバレイレイクラッドの微視構造（スピノーダル変調など）]

## 国際会議招待講演（2010年以降）の主なもの

- 1) Y. Nagai, T. Toyama, M. Hasegawa, T. Ohkubo, A. Almazouzi, E. van Walle, R. Gerard: “Evolution of Nano-structures in Pressure Vessel Steels in the Course of Irradiation,” 5<sup>th</sup> Forum on New Materials, CIMTEC 2010, Jun. 13-18, 2010, Montecatini Terme, Italy.
- 2) Y. Nagai: “3D Atom Probe Field Ion Microscopy and Positron Annihilation Complementary Use for Materials Research”, 12<sup>th</sup> International Workshop on Slow Positron Beam Techniques, Aug. 1-6, 2010, Magnetic Island, Australia.
- 3) Y. Nagai, A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, M. Hasegawa: “Positron annihilation study of neutron-irradiated nuclear reactor pressure vessel (RPV) steels and their model alloys”, 10<sup>th</sup> International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC-10), Smolenice, Slovakia, Sep. 5-9, 2011.
- 4) Y. Nagai, A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, M. Hasegawa: “Impact of irradiation-induced defects on prediction of irradiation embrittlement of nuclear reactor pressure vessel steels: - Role of positron annihilation study -”, ICPA-16, Aug. 19-24, 2012, Bristol, UK .
- 5) M. Hasegawa, Y. Nagai, A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, K. Inoue: “Positron annihilation study of neutron-irradiated nuclear reactor pressure vessel (RPV) steels and model radioactive waste glasses”, Positron in Materials, Medicine and Industry (Positron 2012), BARC, Trombay, India.
- 6) Y. Nagai: “Material Degradation by Neutron Irradiation in Light Water Reactors Studied by Atom Probe Tomography and Positron Annihilation”, PRICM-8, Aug. 4-9, 2013, Waikoloa, Hawaii.
- 7) Y. Nagai: “Study of nuclear materials by using positron annihilation and atom probe tomography”, SLOPOS2013, Sep. 15-20, 2013, Technical University of Munich, Germany.
- 8) Y. Nagai, K. Inoue, T. Toyama, K. Nagumo, Y. Shimizu, N. Ebisawa, M. Hasegawa: “Nuclear material studies by positron annihilation spectroscopy,” 11<sup>th</sup> International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC-11), Cidade de Goa, India, November 9-14, 2014.

## 1. 特別推進研究の研究期間終了後、研究代表者自身の研究がどのように発展したか（続き）

## (3) 研究費の取得状況（研究代表者として取得したもののみ）

代表者は、特別推進研究3年目（H19年度）からは、定年後の名誉教授として本研究を実行した。そのため特別推進研究後は、新たな研究費申請を行わなかった。その後の研究は、代表者担当研究部門の後任教授となった永井康介（本特別推進研究分担者）が引き続いて行っている。参考までに永井康介教授の研究費取得（単年度平均1000万円以上（間接経費を含む））を以下に列記する。

## A. 科学研究費助成事業（科研費）

- i) 永井康介（代表）、**基盤研究（A）**（2009～2011年）経費総計：45,890,000円  
“アトムプローブによる原子炉材料の粒界偏析の原子レベル観察と粒界劣化機構の解明”。
- ii) 永井康介（代表）、**基盤研究（A）**（2012～2015年）経費総計：46,410,000円  
“先端ナノ組織分析による事故時加熱環境を考慮した原子炉構造材料の劣化機構解明と予測”。

## B. 科学研究費助成事業以外

- i) 永井康介（代表）、（文部科学省）独立行政法人科学技術振興機構（JST）、**原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ**（2010～2012年）経費総計：60,609,452円  
“原子炉圧力容器オーバーレイクラッドの劣化機構に関する研究”。
- ii) 永井康介（代表）、（文部科学省）公益財団法人原子力安全研究協会、**原子力システム研究開発事業（安全基盤技術研究開発）**（2012年～2015年）経費総計：174,239,455円  
“原子炉圧力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”。

## (4) 特別推進研究の研究成果を背景に生み出された新たな発見・知見

- i) **中性子フラックスが低いコルダーホール型原子炉**の原子炉圧力容器（RPV）照射脆化は、原子炉中性子照射によるものでなくて長期間高温（使用温度約240℃）に保持されたための熱時効効果によること、一方軽水炉では中性子照射（コルダーホールに比べて3桁高いフラックス）によって生じた照射欠陥（マトリックス欠陥）や不純物。Cu不純物原子のナノクラスター（析出物）によることを示した。
- ii) **ベルギー-Doel-1, 2炉のRPV（第一世代材料）**監視試験片を調べ、照射初期にCu富裕ナノクラスター（析出物）CRNCが形成し、その後徐々に粗大化すること、また空孔数個からなる欠陥も形成しその後蓄積していくことを示した。また照射線量増加に伴うCRNC内の種々の元素（Cu, Ni, P, Si）濃縮や分布の変化の詳細を明らかにした。さらに**Doel-4炉RPV（高純度化処理によって有害な不純物Cu, P, S濃度を低く抑えた第二世代材料：日本製鋼製）**では、Doel-1, 2炉に比べて、照射欠陥形成や不純物・溶質元素原子クラスターの形成が低く抑えられ、従って硬化・脆化も少ないことが分かった。
- iii) **フィンランドのロシア型原子炉 Loviisa-1炉**の監視試験片の照射・照射後焼鈍（475℃100時間）・再照射状態試料（\*）の解析を行った結果、最初の照射では、Cu富裕ナノクラスター-CRNCが脆化の主原因である。焼鈍後の再照射ではCRNCの寄与は少なくなり、マトリックス欠陥の寄与が主になることが分かった。このように焼鈍によって脆化の機構に差異が生ずることが分かった。
- iii) **ベルギー-Tihange-2**のRPV監視試験（第4回：約70年間の照射 $1.2 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ に相当するフルエンス）で延性-脆性遷移温度（関連温度）の予期せぬ上昇（照射前に比べて138℃上昇）（詳細な検討の結果安全と判断される範囲内ではある）が最近報告された。この急激な上昇は、従来の硬化型脆化では説明できず、非硬化型脆化（粒界脆化でもない）の可能性がある（本評価資料p-2-1参照）（現在研究進行中）。
- iv) 不純物・溶質元素原子と照射欠陥複合体を化学分析する新実験法（**陽電子寿命・運動量相関測定**）、Cu（サブ）ナノ析出物（CNP）を検出してその寸法を求める新手法（**陽電子消滅2次元角相関測定**を利用）を開発した。

（\*）この焼鈍処理は、照射脆化が著しいロシア型原子炉RPVの脆化を”in-service”で回復させるために行われた処理である。

## 2. 特別推進研究の研究成果が他の研究者により活用された状況

特別推進研究の研究成果が他の研究者に活用された状況について、次の(1)、(2)の項目ごとに具体的かつ明確に記述してください。

(1) 学界への貢献の状況（学術研究へのインパクト及び関連領域のその後の動向、関連領域への関わり等）

- a) 本研究グループの成果、特に圧力容器（RPV）監視試験片（残材を利用）に関するものは、試験片提供国（ベルギー、フィンランド）のみならず、EU 諸国で高く評価されてきている。その結果、本グループは、この分野の EU プロジェクト PERFECT などの準メンバーとなったり、ベルギーの RPV 脆化問題諮問委員会のメンバー（永井教授）となっている。ベルギー（SCKCEN など）やフィンランド（VTT）では、軽水炉 RPV 鋼の照射脆化の機構解明や傾向曲線（Trend Curve）検討に本研究の成果が参考となっている
- b) ベルギー王立原子力研究所（SCKCEN）研究炉（BR-2）を利用した材料照射（全国大学共同利用）  
我が国の大学などの研究者は、原子力研究開発機構（JAEA）の材料試験炉（JMTR）などで材料の照射を行い、そこに隣接する東北大学金属材料研究所・附属量子エネルギー材料科学国際研究センター（大洗センター：大学共同利用としては我が国唯一の設備）の放射線管理区域で照射後実験を行っている。JMTR は改修工事を行っていたが、東日本大震災後は耐震補修工事とその認可は未了で現在にいたっている。そのため JMTR 照射（中性子照射）を行えない状態が続いているが、本研究での共同研究がもととなって、ベルギー SCKCEN の BR-2 炉を用いた照射を行うことにより、当分の間全国共同利用照射として、JMTR の代替照射を行えるようになってきている。これは、本研究グループと SCKCEN の材料科学グループ（当時の部長 Eric van Walle 教授（現所長））の共同研究に基づいた強い信頼関係によってスムーズに行えたものである。
- c) また、本研究グループの成果は米国のグループ（Odette 教授、カリフォルニア大学サンタ・バーバラ校）からも高く評価され、共同研究（RPV 鋼の照射脆化機構と傾向解明）を開始するに至っている。
- d) 国際会議運営委員  
永井教授は、本研究成果などの業績が認められ以下の国際会議などの運営委員となっている。
- i) RPV 等の照射効果に関する最も権威ある国際会議 IGRDM (International Group of Radiation Damage Mechanisms) のマイクロストラクチャ・モデリング) 分科の TAC (オーガナイザー)
- ii) 米国 MRS の照射効果に関するシンポジウムのオーガナイザー

## 2. 特別推進研究の研究成果が他の研究者により活用された状況（続き）

(2) 論文引用状況（上位10報程度を記述してください。）

## 【研究期間中に発表した論文】

| No | 論文名  | 日本語による簡潔な内容紹介   | 引用数 |
|----|--|---|-----|
| 1  | T. Toyama, Y. Nagai, Z. Tang, M. Hasegawa, A. Almazouzi, E. van Walle, R. Gerard: <b>Acta Mater.</b> <b>55</b> (2007) 6852~6860, "Nanostructural evolution in surveillance test specimens of commercial nuclear reactor pressure vessel studied by three dimensional atom probe and positron annihilation".  | ベルギー-Doel-1, -2 炉の圧力容器 (RPV) 監視試験片 (約 3~30 年稼働) の解析を行い、照射初期に Cu 富裕ナノクラスターが形成し、その後徐々に粗大化すること、空孔数個からなる欠陥も形成しその後蓄積していくことを示した。  | 38  |
| 2  | T. Takeuchi, A. Kuramoto, J. Kameda, T. Toyama, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Ohkubo, T. Yoshiie, Y. Nishiyama and K. Onizawa: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>402</b> (2010) 93~101, "Effects of chemical composition and dose on microstructure evolution and hardening of neutron irradiated reactor pressure vessel steels".   | 材料試験炉 (JMTR) で加速照射した圧力容器鋼材 (A533B: Cu 不純物濃度の高いものと低いもの) に関して、不純物原子クラスターおよびマトリックス欠陥の形成の照射量依存性を示すとともに照射硬化との関係を明らかにした。          | 17  |
| 3  | Y. Nagai, T. Toyama, Y. Nishiyama, M. Suzuki, Z. Tang and M. Hasegawa: <b>Appl. Phys. Lett.</b> <b>87</b> (2005) 261920-1~3, "Kinetic of irradiation-induced Cu precipitation in nuclear reactor pressure vessel steels".  | コルダナーホール型発電炉 (ガス炉: 中性子束は軽水炉に比べて約 3 桁低い) 監視試験片の解析を行い、強度の増加は、照射硬化と言うより熱時効の影響であることを明らかにした。                                     | 14  |
| 4  | J.B. Yang, Y. Nagai, Z.G. Yang, M. Hasegawa: <b>Acta Mater.</b> <b>57</b> (2009) 4874~4881, "Quantization of the Frank-Bilby equation for misfit dislocation arrays in interfaces."  | ミスフィット転位列を持つ相間界面ならびに粒界に対する Frank-Bilby 方程式の定式化を検討した。  | 10  |
| 5  | Z. Tang, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue, Z. Q. Zhu, and M. Hasegawa: <b>J. Phys.: Condens. Matter</b> <b>20</b> (2008) 445203-1~5, "Size-Dependent Momentum Smearing Effect of Positron Annihilation Radiation in Embedded Nano Cu Clusters."   | Fe 中の Cu ナノクラスター中の陽電子消滅の結果得られる 2 次元角相関運動量分布のボケは、ナノクラスター寸法に逆比例することを示すとともにそのことの理論的考察を行った。                                     | 9   |
| 6  | M. Hasegawa, Z. Tang, Y. Nagai, T. Chiba, E. Kuramoto, and M. Takanaka: <b>Phil. Mag.</b> <b>85</b> (2005) 467~478, "Irradiation Induced Vacancy and Cu Aggregations in Fe-Cu Model Alloys of Reactor Pressure Vessel Steels: State-of-the-Art Positron Annihilation Spectroscopy".  | Fe 中のナノ Cu 原子集合体 (体心立方構造) 中の陽電子局在、陽電子消滅運動量分布を示すとともにそれらを利用したナノ Cu 原子集合体の検出を論じた。  | 9   |
| 7  | Z. Tang, Y. Nagai, K. Inoue, T. Toyama, T. Chiba, M. Saito and M. Hasegawa: <b>Phys. Rev. Lett.</b> <b>94</b> (2005) 106402-1~4, "Self-energy correction to momentum-density distribution of a positron-electron pair".  | 陽電子消滅から求められる運動量分布の LDA (局所電子密度近似) に対する自己エネルギー補正 (GW 多体効果) を論じるとともに 2 次元角相関運動量分布 (実験) に適用した。                                 | 9   |
| 8  | Y. Nagai, T. Toyama, Z. Tang, K. Inoue, T. Chiba, M. Hasegawa, S. Hirose and T. Sato: <b>Phys. Rev. B</b> <b>79</b> (2009) 201405-1~4 (R) ( <b>Rapid Comm.</b> ), "Interactions between Fermi surfaces and Brillouin zone boundaries and phase stability of embedded metallic nanoparticles."<br>※Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology June 8, 2009 号にセレクトされた | 各種の金属中の埋め込み粒子 (析出物) の陽電子消滅 2 次元角相関運動量分布から、析出物の Fermi 面とブリルアン帯の相互作用を考察し、その析出物の結晶構造と化学組成を論じた。                                 | 6   |
| 9  | J.B. Yang, Y. Nagai, M. Hasegawa and Yu.N. Osetsky: <b>Phil. Mag.</b> <b>90</b> (2010) 991~1000, "Atomic scale modeling of {110} twist grain boundaries in $\alpha$ -iron: Structure and energy properties".   | Fe 中のねじれ粒界に関し、構造とエネルギーを分子動力学シミュレーションによって論じた。  | 6   |
| 10 | T. Toyama, N. Tsuchiya, Y. Nagai, A. Almazouzi, M. Hatakeyama, M. Hasegawa, T. Ohkubo, E. van Walle, R. Gerard: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>405</b> (2010) 177~180, "Irradiation-induced changes of the atomic distributions around the interfaces of carbides in a nuclear reactor pressure vessel steel."  | ベルギー-Doel-4 炉の RPV 監視試験片 (約 12 年間稼働) (日本製鋼製 A533B、高純度化された材料) に関して、ナノ MnFeCrMo 炭化物を調べ、照射によって炭化物中の Mn が濃縮、炭化物界面への P 濃縮が促進された。 | 3   |

## 【研究期間終了後に発表した論文】

| No | 論文名  | 日本語による簡潔な内容紹介  | 引用数 |
|----|--|--|-----|
| 1  | T. Takeuchi, J. Kameda, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Matsukawa, Y. Nishiyama, K. Onizawa: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>425</b> (2012) 60~64, "Microstructural changes of a thermally aged stainless steel submerged arc weld- overlay cladding of nuclear reactor pressure vessels."   | <b>原子炉圧力容器 (RPV) の溶接内張りステンレス (Overlay Cladding)</b> に関して、400°C10,000 時間の熱事項処理によって、i) $\delta$ フェライト相中の Cr 濃度揺らぎ (スピノーダル分解) の進行、 $\gamma$ オーステナイト相中の炭化物の形成などを明らかにした。  | 9   |
| 2  | T. Takeuchi, J. Kameda, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Nishiyama, K. Onizawa: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>415</b> (2011) 198~204, "Study on microstructural changes in thermally-aged stainless steel weld-overlay cladding of nuclear reactor pressure vessels by atom probe tomography."  | <b>熱時効処理 (400°C10,000 時間) した RPV 溶接内張りステンレス (Overlay Cladding) 原子炉圧力容器</b> では、 $\delta$ フェライト相中でスピノーダル分解が進行し、硬化の主原因となることを示した。  | 8   |
| 3  | T. Toyama, Y. Nozawa, W. Van Renterghem, Y. Matsukawa, M. Hatakeyama, Y. Nagai, A. Al Mazouzi, S. Van Dyck: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>425</b> (2012) 71~75, "Grain boundary segregation in neutron-irradiated 304 stainless steel studied by atom probe tomography."   | <b>高線量中性子照射された304ステンレス</b> を3次元アトムプローブで調べ、中性子照射による、i) 粒界における Ni, Si, P の濃縮ならびに Cr, Fe の欠乏、ii) 粒内中の Ni, Si 富裕析出物の形成を明らかにした。   | 6   |
| 4  | K. Inoue, Y. Nagai, Z. Tang, T. Toyama, Y. Hosoda, A. Tsuto, and M. Hasegawa: <b>Phys. Rev. B</b> <b>83</b> (2011) 115459-1~5, "Time evolution of positron affinity trapping at embedded nanoparticles by age-momentum correlation."   | マトリックス中のナノ析出物や空孔—不純物の形成過程における化学組成変化を明らかにすることができる新陽電子消滅法を提案した。  | 6   |
| 5  | A. Kuramoto, T. Toyama, T. Takeuchi, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Yoshiie, Y. Nishiyama: <b>J. Nucl. Mater.</b> <b>425</b> (2012) 65~70, "Post-irradiation annealing behavior of microstructure and hardening of a reactor pressure vessel steel studied by positron annihilation and atom probe tomography."                                     | <b>材料試験炉 (JMTR) 照射した (第一世代) RPV 鋼 (A533B)</b> の微視構造及び硬化の照射後焼鈍過程を調べ、空孔型欠陥は約 450°C で、Cu 富裕ナノクラスターは 450 から 600 度にかけて回復することを明らかにした。また硬化の回復はこれらに対応する。   | 6   |
| 6  | T. Toyama, Z. Tang, K. Inoue, T. Chiba, T. Ohkubo, K. Hono, Y. Nagai, M. Hasegawa: <b>Phys. Rev. B</b> <b>86</b> (2012) 104106-1~7, "Size estimation of embedded Cu nanoprecipitates in Fe by using affinitively trapped positrons."   | Fe 単結晶中の Cu ナノ析出物中に捕獲された陽電子の消滅が与える電子—陽電子運動量分布 (2 次元角相関) の Smearing を調べることにより、サブナノ析出物の寸法を求めることができることを示した。   | 5   |
| 7  | A. Kuramoto, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue, Y. Nozawa, M. Hasegawa, M. Valo: <b>Acta Mater.</b> <b>61</b> (2013)5236~5246, "Microstructural changes in a Russian-type reactor weld material after neutron irradiation, post-irradiation annealing and re-irradiation studied by atom probe tomography and positron annihilation spectroscopy." | <b>フィンランド Loviisa-1 号機 (ロシア VVER-440 型加圧水型炉) の RPV 監視試験片 (照射、照射後焼鈍、再照射)</b> の Cu 富裕ナノクラスター (CRNC)、マトリックス欠陥 (MD) (空孔型欠陥) および照射硬化を調べ、照射後の硬化は主として CRNC によること、焼鈍でそれら CRNC および硬化はほぼ回復すること、しかし再照射後の硬化は MD によることを示した。 | 4   |
| 8  | J.B. Yang, Y.N. Osetsky, R.E. Stoller, Y. Nagai, M. Hasegawa: <b>Scripta Mater.</b> <b>66</b> (2012) 761-764, "The effect of twist angle on anisotropic mobility of {110} hexagonal dislocation networks in $\alpha$ -iron."   | 計算機シミュレーションにより、Fe 中の {110} 六方転位網の応力下移動度に対する傾角粒界の効果を明らかにした。   | 3   |
| 9  | T. Toyama, F. Takahama, A. Kuramoto, H. Takamizawa, Y. Nozawa, N. Ebisawa, M. Shimodaira, Y. Shimizu, K. Inoue, Y. Nagai: <b>Scripta Mater.</b> <b>83</b> (2014) 5-8, "The diffusivity and solubility of copper in ferromagnetic iron at lower temperatures studied by atom probe tomography".   | アトムプローブを用いて、強磁性 Fe 中の Cu に関して、従来正確なデータがなかった拡散係数および固溶度を求め、RPV 鋼中の Cu 不純物の挙動 (熱時効や発電用原子炉照射条件下) の基礎データを提供した。  | 1   |
| 10 | T. Toyama, Y. Nagai, A. Al Mazouzi, M. Hatakeyama, M. Hasegawa, T. Ohkubo, E. Van Walle, R. Gerard: <b>Mater. Trans.</b> <b>54</b> (2013) 2119~2124, "Intergranular Segregation in the Pressure Vessel Steel of a Commercial Nuclear Reactor Studied by Atom Probe Tomography."  | <b>ベルギーの Doel-2 号機中 RPV 監視試験片 (5~30 年稼働)</b> の結晶粒界における溶質・不純物元素 C, P, Mn 原子の偏析挙動を明らかにした。  | 0   |

### 3. その他、効果・効用等の評価に関する情報

次の(1)、(2)の項目ごとに、該当する内容について具体的かつ明確に記述してください。

#### (1) 研究成果の社会への還元状況（社会への還元の程度、内容、実用化の有無は問いません。）

原子力発電の安全性を向上させるためには、多くの分野の最先端の科学技術を駆使する必要がある。その内の1つに原子炉圧力容器の老朽化（高経年化）の問題がある。そこでは、長年の原子炉中性子照射による機械的性質劣化（脆化、硬化）を注意深くモニターするとともに、微視的構造変化との関係を明らかにしていく必要がある。そのためには、先ず実際の原子炉圧力容器（RPV）監視試験片を用いた研究が不可欠である。しかしながら、残念ながら我が国では、監視試験片（や試験後残材）は、公的研究機関に提供されないのが現状である。そのため我々は、共同研究を行っていたベルギー王立原子力研究所 van Walle 教授に依頼して、**ベルギー原子炉 Doel-1, 2, 4 炉の監視試験片（残材）（第一世代 RPV 鋼）**を提供していただいた（研究成果の論文発表を前提）。なお Doel-4 の RPV は日本製（日本製鋼）の第二世代 RPV 鋼であり、その照射劣化は我が国の比較的新しい原子炉と同等と予想される。

本特推研究などで、最先端の材料科学実験法などによって、**ベルギー炉 RPV 鋼の研究を始め、学術的な成果を世界に発信したことによって、我が国の電力会社などは、この分野の研究を行わなければならないこと、監視試験片の試験結果の（少なくとも一部）を公表しなければならない状況となった**（実際には未だに一部の結果しか公表されていないが）。このような状況をもたらしたことは、本研究の社会への還元の第一である。

RPV の照射脆化に対する安全性に関する直接的かつ具体的な研究成果としては、**国民の期待にこたえるもの主なものは以下のとおりである。**

- i) 第一世代および第二世代では、脆化の機構とその原因となるナノクラスターやマトリックス欠陥の形成が大きく異なること、
- ii) **フィンランドのロシア型原子炉 Loviisa-1 炉**の監視試験片の照射・照射後焼鈍（475°C100 時間）・再照射状態の研究は、実際の RPV について、脆化を緩和・制御することを目的としての”in-service”処理に関するものである。その結果、最初の照射では Cu 富裕ナノクラスター CRNC が脆化の主原因、再照射では CRNC の寄与は少なく、マトリックス欠陥が脆化の主原因であること。
- iii) **ベルギー Tihange-2** の RPV 監視試験で最近報告された延性-脆性遷移温度（関連温度）の予期せぬ上昇（詳細な検討の結果安全と判断される範囲内）は、従来の硬化型脆化では説明できず、非硬化型脆化（粒界脆化でもない）の可能性があること（本評価資料 p-2-1 参照）（現在研究進行中）。
- iv) このことは、最近報告された**玄海 1 号炉**や**高浜 1 号炉**の予期せぬ関連温度の上昇（\*）とも関係しているかもしれない。我が国の最新の監視試験方法基準 JEAC-4201-2007（2013 追補版）は、脆化の微視的機構（下表）に基づいていると標榜されているが、非硬化型脆化は考慮されていない。

（\*）玄海 1 号炉の第 4 回監視試験結果の参照温度 98°C（未照射からの上昇は 114°C（下図））は、米国などの安全性目安の 132°C（ただし詳細検討が必要）以下である。

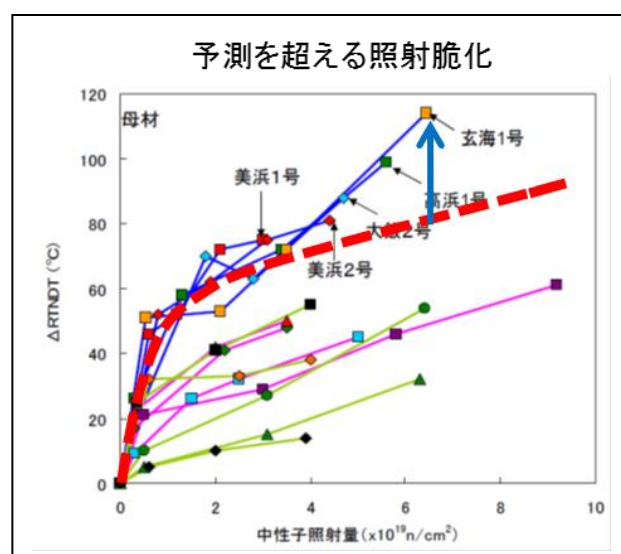
#### RPV の照射脆化の機構

##### A) 硬化型脆化

- a) 不純物・溶質原子のナノクラスター（析出物）
  - i) Cu 富裕ナノクラスター  
Cu 不純物濃度が高い**第一世代 RPV 鋼**
  - ii) Mn, Ni, Si ナノクラスター  
高純度化処理によって Cu, P, S 不純物濃度が低く抑えられた**第二世代 RPV 鋼**
- b) マトリックス欠陥（損傷）
  - i) 転位ループや転位とそれらの不純物複合体
  - ii) 原子空孔集合体（クラスター、ナノポイド）

##### B) 非硬化型脆化

- a) 粒界偏析  
P や S などの不純物の偏析によって粒界強度劣化
- b) (ナノ) 析出物・第 2 相との界面偏析  
ナノ炭化物、ベイナイト、マルテンサイト（?）





**3. その他、効果・効用等の評価に関する情報（続き）****(2) 研究計画に関与した若手研究者の成長の状況（助教やポストク等の研究終了後の動向を記述してください。）****永井 康介 准教授**

2011年4月 教授へ昇任。(2-3)ページに記したように、原子力システム研究開発事業などの大型資金を獲得し、原子炉材料などの研究を精力的に推進している。また関連分野の中心的国際会議の分科マネージャにも選ばれるなど、その業績は国際的にも高く評価されている。

**唐 政 助教・准教授**

2006年10月より、華東師範大学(中国、上海)・教授(米国インテル社からの寄付講座 Zijiang Professor)。半導体を含むナノ材料などの構造、欠陥、電子状態の第一原理計算研究を推進している。昨年発表した論文 Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 172101 は Cover Image & Featured Article に選ばれた。

**井上 耕治 助教**

京都大学工学研究科・助教・講師を経て、2015年2月より、東北大学金属材料研究所・准教授。鉄鋼材料や半導体材料などのナノ構造研究、さらに新しい陽電子消滅実験法の開発研究を行っている。科研費としては、基盤B及び新学術領域研究を獲得している。

**島山 賢彦 助教**

本研究グループより他グループへ異動後、2014年4月より、富山大学大学院理工学研究部・准教授

**外山 健 助教**

2013年4月 講師へ昇任。原子炉鉄鋼材料(圧力容器鋼、ステンレス鋼)の中性子照射損傷や不純物拡散の研究を推進している。科研費としては、若手A研究を獲得している。

**松川 義孝 助教**

原子炉材料工学研究部門へ異動。

**楊 金波 ポストク(本特別推進で雇用)**

特推における研究成果が評価され、共同研究先の米国オークリッジ国立研究所ポストク(2010年)。その後、2014年より、中国科学院金属研究所(Institute of Metal Research Chinese Academy of Sciences: IMR CAS)・教授。主として結晶粒界や転位のなどに関して、分子動力学法を用いた計算機シミュレーションの研究を行っている。