

令和 6 年 6 月 18 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01857

研究課題名（和文）照射欠陥挙動の測定技術で原子炉材料の劣化における線量率効果を解き明かす

研究課題名（英文）Measurement Technology for Irradiation Defect Behavior Reveals Dose Rate Effects in Reactor Material Degradation

研究代表者

村上 健太（Murakami, Kenta）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・准教授

研究者番号：50635000

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：原子力材料の中性子照射劣化における線量率効果を効率的にスクリーニングする方法を開発した。原理的には、中性子による二回の擾乱の時間及び空間的な相関に着目し、その重畳確率を評価するという考え方を取っている。低温照射と残留電気抵抗率法による古典的な拡散モデルを最新のはじき出し評価法を使ってレビューしたところ、照射欠陥による自由電子の散乱を、照射欠陥密度の不均質さを踏まえて考慮する必要があるが示された。加速器結合型TEMを用いて、バルク照射とその場観察の組み合わせ照射を試行したところ、既存の照射欠陥に対する追加照射による欠陥の吸収され方が、材料中の微量元素に応じてユニークな線量率依存性を示すことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって、金属の格子欠陥の研究に関する基盤的な実験設備を維持し、技術（特に、照射下における転位ループのin-situ実験技術）を発展させることができた。これらの設備及びノウハウは、共同利用施設として全国のユーザに公開されている。

照射影響における線量率の効果に関して得られた知見は、軽水炉を長期間使用する際に留意すべき経年劣化事象の評価に役立っていることができる。特に、原子炉圧力容器の中性子照射脆化については、本研究のような理論や劣化モデルに基づく研究と、産業界で実施されている実際のプラントのデータに基づく研究を、上手く組み合わせて丁寧な評価を行うことが期待される。

研究成果の概要（英文）：An efficient screening method for dose rate effects in neutron irradiation degradation of nuclear materials has been developed. The principle of the method is to focus on the temporal and spatial correlation between two neutron-induced disturbances in the material, and to evaluate their superposition probabilities.

The classical diffusion model based on low-temperature irradiation and the residual electrical resistivity method is reviewed using the latest displacement damage evaluation method, which indicates that the scattering of free electrons by irradiation defects should be taken into account based on the heterogeneity of the irradiation defect density.

Combination irradiation of bulk irradiation and in-situ observation in stainless steels was performed using an accelerator-coupled TEM. The absorption of defects by additional irradiation to existing dislocation loops shows a unique dose-rate dependence with the dependence on the trace elements in the material.

研究分野：原子力工学、固体物理学

キーワード：原子力材料 イオンビーム 照射欠陥

1. 研究開始当初の背景

原子炉の構造材料として利用される金属は、供用期間中に高速中性子の照射を受けて変化することが知られている。通常、経時変化の程度は、高速中性子の積算照射量を使って指標される。劣化の根本原因は放射線によって結晶格子を構成する原子がはじき出されることであり、積算照射量ははじき出し数と概ね比例するからである。しかし、同等の放射線照射量を与えても線量率(時間当たりの照射量)が違う場合、異なる劣化の仕方や程度を示すことがあり、これを線量率効果という。線量率効果が疑われると、長期運転時の材料劣化の程度を加速試験によって事前に確認し難くなるという問題がある。

既往研究では、線量率を「熱化した照射欠陥の時間当たりの形成量」を決める要素と見なし、その後の過程を拡散方程式等によってモデル化してきた。このアプローチでは、熱化した照射欠陥が材料中に連続的にかつ均質に導入されることを仮定することになる。しかし実際には、局所的で高濃度な格子欠陥の導入と、その拡散・回復とが、断続的に生じている。実験室レベルの照射研究では、短時間に大量の照射欠陥を導入することが多いので、欠陥形成を連続的に扱うことに不都合はなかった。しかし、実際の原子力システムで緩やかに進行する材料劣化では、教科書的な線量率効果モデルと試験結果との乖離が指摘されるようになった。

2. 研究の目的

そこで、本研究では様々な材料において、線量率効果を効率的にスクリーニングできる手法の開発することを目指すようになった。基本的な考え方は図の通りである。まず、中性子が物質と一回衝突する毎に、その周辺に一定期間の擾乱が生じると考える。短時間のうちに近距離で二回目の擾乱が起きて、二つの擾乱領域が重畳するならば、そこに線量率効果が発現する。

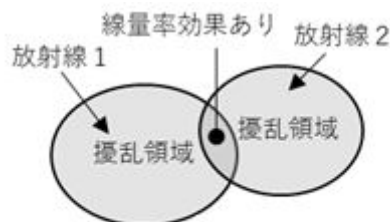


図1 線量率効果の概念図

擾乱の頻度は、物質の中性子散乱断面積によって一意に決まる。つまり中性子線のエネルギースペクトルと物質の組成が分かれば精度良く計算できる。

擾乱領域がだんだん広がって、やがて消滅する過程は、格子欠陥の拡散過程に律速される。純物質等における単一の格子欠陥の拡散速度を実験的に求める手法は存在しているし、鉄などの代表的な物質に対しては既に測定されている。しかし、実用的な材料においては、添加元素や不純物、圧延などの加工履歴等が拡散挙動に大きな影響を与えることが知られている。

従って、線量率効果のスクリーニングには、実用的な材料における照射欠陥の拡散挙動を、合理的に把握できる実験手法を作ることが必要であった。

金属中の格子欠陥や添加元素の拡散速度を測定する伝統的な手法は幾つか知られているが、その多くは様々な理由から、既に使われなくなっている。今回の研究では、そうした伝統的な技法をリノベーションして、研究基盤を再構築することを目指すことにした。研究費の上限を踏まえると、ゼロから新しい実験装置を構築するのが難しいという事情もあった。不確定要素も大きいことを踏まえて、三種類の方法を試行し、何れか一つが成功すれば、研究の目的が達成できるように工夫した。

いずれのアプローチにおいても、中性子線の代わりに入射エネルギーを制御したイオンビームを利用することを計画した。中性子線と物質の散乱断面積は小さいので、小さな実験用試料の特定の位置に擾乱を生じさせるというような制御が難しい。代わりに、中性子によって最初にはじき出された原子(Primary Knock-on Atom)を一つの高エネルギー粒子で模擬するという考え方から従って、イオンビームのエネルギーやビーム量を整理した。

3. 研究の方法

(1) 電気抵抗率法

液体ヘリウム温度における残留電気抵抗率の変化に基づいて、自由電子の散乱因子となる格子欠陥濃度の変化を高感度に検出する方法である。二つの実験装置を改造することで実験環境を整備しようとしたが、後述の理由から効率的に実験ができるまでには至らなかった。

一つ目の装置は、2007年に東海村キャンパスの重照射損傷設備のビームライン2に設置された低温照射装置である。申請者自身が開発に関与した装置であり、12 Kで電気抵抗率法と陽電子消滅法の測定ができるように整備されていた。しかし、2011年の東日本大震災において、ビームラインに接続された加速器本体が損傷し、計測設備は死蔵されることになった。その後も、計測装置としては僅かに利用されてきたが、その利用率を高めることは研究代表者の悲願であった。加速器本体の修理計画があったことから、この装置を利用することを本命として、今回の科研費では、計測設備のメンテナンスを行うと共に、データ収集プログラムやコンピュータを更

新した。しかし、重照射損傷設備自体のインフラの経年劣化により、加速器本堤の修復を当面の間行わないことが決定され、更に従来利用できていた実験用冷却水等の補機設備が利用停止となったことにより、データ収集にすら支障が生じるようになった。

二つ目の装置は、1990年代に整備された AP-FIM(Atom Probe-Field Ion Microscopy)と STM(Scanning Tunnel Microscopy)に附帯している小型イオン注入器である。これにはデュア型の試料冷却設備が附帯しており、液体ヘリウムで 50K 程度まで試料を冷却できる使用であった。この装置を引き取って保全すれば、低温照射は実施できると期待されていた。しかし、実験室に液体ヘリウム回収装置を設置するスペースを確保できなかったこと、及び液体窒素では 120 K までしか試料を冷却できなかったことから、電気抵抗率法のために必要な Stage I 温度以下での照射実験が実施できないことが判明した。

これらの実験的な試行錯誤と並行して、過去に取得された実験データを最新のはじき出し損傷モデルに基づいて解析し、既往研究の結果をレビューするための準備も進めた。これについては、良い成果が出た。

(2) 加速器結合型電子顕微鏡法

イオン加速器と連結された TEM(Transmission Electron Microscopy)を用いて、入射イオンが作る格子欠陥をその場で観察する手法である。これには 2015 年に研究代表者らが重照射損傷設備に設置した装置を利用できる。こちらの装置に対しては、施設側で冷却水等の補機設備の更新作業を実施してくれたため、本研究でも継続的に使用することができた。

今回の実験における工夫は、同一の試料に対して、異なる条件で二回の照射を段階的に実施し、照射欠陥の進展を継続的に分析するというアプローチである。試料には、様々なタイプの原子炉で利用されている 316 ステンレス鋼を使った。1 回目の照射では、バルク状の試料に 450°C の低線量照射を行い、まばらで大きな (直径 $\gg 5$ nm) 格子間原子型の転位ループを形成させた。次に、集束イオンビーム加工機を用いて照射済み試料から TEM 観察可能な膜状の試料を取り出して、異なるフラックスで再度照射を行った。この 2 回目の照射の前後に、TEM を用いて同じ位置を観察し、2 回目の照射における欠陥の成長と収縮を定量的に分析することにした。

(3) ミクロ元素分析

もともとは (1)(2) を考えていたが、別課題の研究の実験への相乗りにより、添加元素の照射による拡散を簡便に測定できないか試行した。元素の拡散定数を測定する伝統的な手法は、二つの異なる元素を接合してから加熱し、両者の混ざり具合を測定する方法である(これを拡散対と呼ぶ)。三次元アトムプローブやナノビームによるオージェ分光を利用する機会があったので、300-400°C でイオン照射された拡散対も計測し、濃度プロファイルの変化から拡散定数を導出できないかを試すことにした。

結果的にこのアプローチはあまり成功しなかった。これは着想時の研究代表者の見落としであったのであるが、拡散対の界面に金属間化合物が形成するか否かで、ナノサイズの濃度プロファイルの形状が大きく変化し、一次的なフィッティングに合わなくなるのである。これは高温で非常に長い範囲にわたって濃度プロファイルを取得する古典的な実験では問題にならないが、1 μm 以下の濃度プロファイルから拡散定数を求める場合にはとても大きな誤差の原因となった。

4. 研究成果

(1) 電気抵抗率法

図 2 は、過去に旧原子力研究所等で測定された純鉄における電気抵抗率の変化を、分子動力学法に基づく経験式から算出した原子のはじき出し数の関数としてプロットしたものである。従来の電気抵抗率法は、はじき出された点欠陥が残留抵抗率に与える影響が一定であると仮定して、はじき出し効率等の計算を行っていた。入射粒子の質量とエネルギーから計算されるはじき出し量と実験値との違いは熱化するまでの間に回復する欠陥に起因すると解釈してきた。しかし、今回の結果から、導入される格子欠陥の書記分布が電気抵抗率に与える影響が大きいことが示された。欠陥がより孤立して分散しているほど、欠陥 1 つあたりが電気抵抗率に与える影響は大きい。これは固体物理学から得られる基本的なイメージとも一致する。

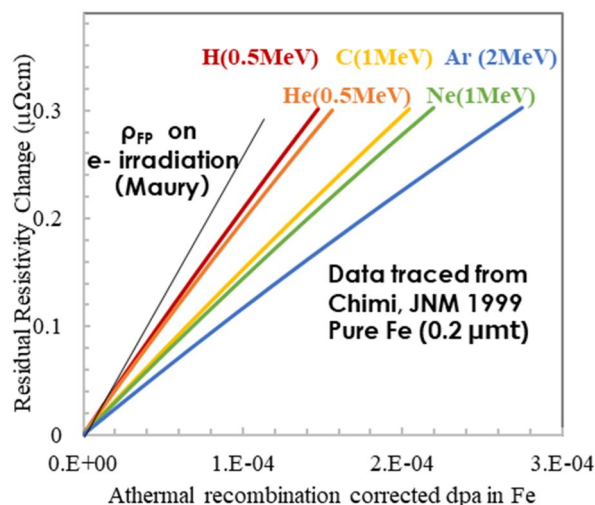


図2 残留抵抗率のはじき出し量依存性

(2) その場観察法

図3に、照射速度によるその場観察の結果の違いを表している。図のa3及びb3から分かるように、転位ループの表面への吸収による消滅は照射量依存性を示しておらず、基本的に熱に律速される過程であった。

ケイ素の添加量を小さくしたステンレス鋼(LS, 図のaのシリーズ)では、一部の転位ループは成長し、別のものは収縮した。全体としては成長するものの方が多いが、特に線量率が低い場合に大きな成長が見られやすかった。転位ループが、後から導入された格子間原子や空孔を吸収することでそのサイズが変化する。成長に寄与する格子間原子は、収縮に寄与する空孔よりも拡散距離が長くなる傾向があるが、線量率の低い状況ではその傾向が顕著であったと解釈できる。逆に、2回目の照射による新しい転位ループの形成は、高線量率のケースで顕著であった。

通常のケイ素添加量の試料(BA, 図のbのシリーズ)でも、概ね前述と同様の傾向が観察された。

線量率が低いほど、欠陥の成長が大きくなることが分かった。一方、線量率が高いと、新しい欠陥が形成する傾向が見られたが、低線量率にしたときの転位ループの成長はケイ素を除いた試料よりも顕著でなかった。これはマトリクス中のケイ素の存在が格子間原子の長距離拡散を阻害するからだと解釈できる。

まとめると、本研究から、擾乱領域の重畳に着目した線量率効果のモデル化を、加速器結合型TEMを用いたその場観察法で、二段階の組合せ照射を行うことにより、効率的に実施できることを確認した。この手法を使うと、添加元素の有無等の細やかな材料の違いによる線量率効果を機構論に基づいて議論することが可能である。従来のモデルで考慮していた事項に加えて、既存の照射欠陥と擾乱領域で生まれる元素の相互作用が重要であるという知見も得られた。

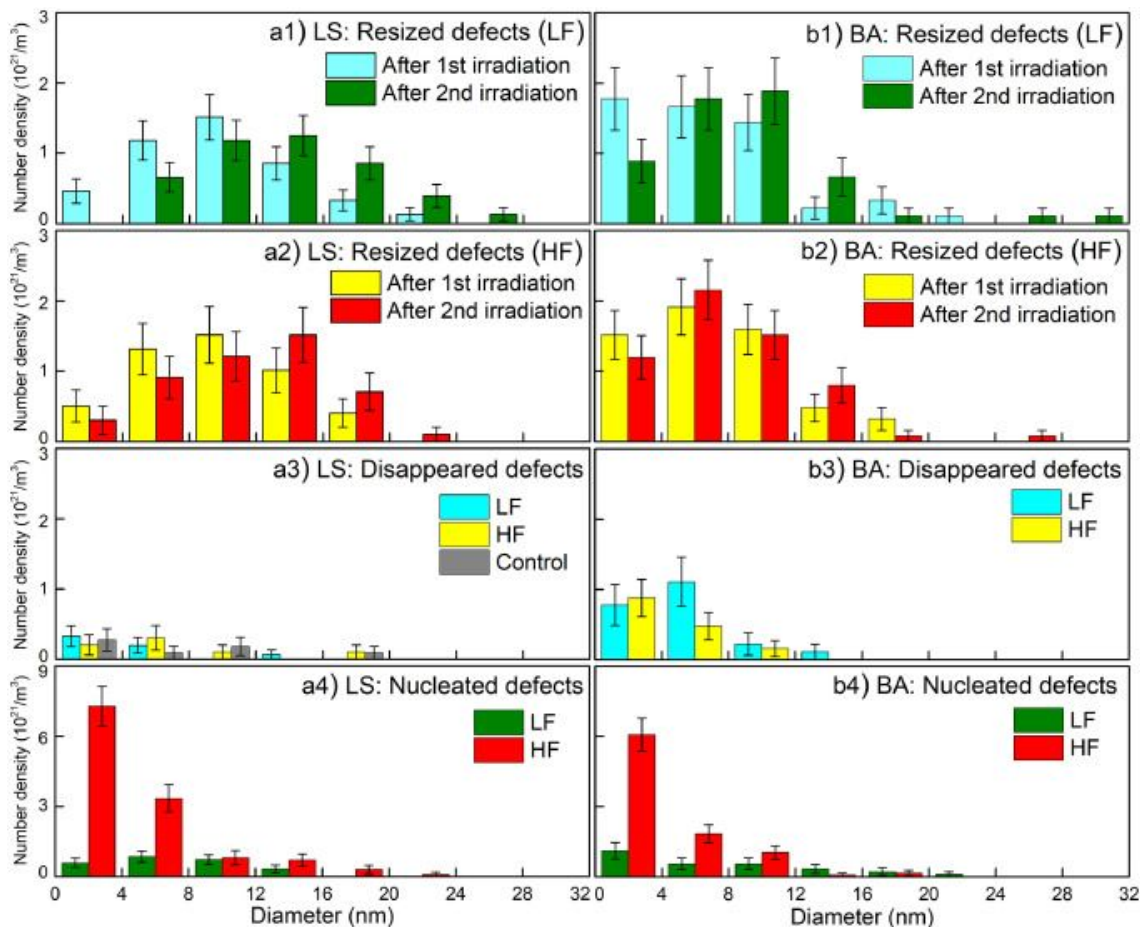


図3 その場観察法によるステンレス鋼の転位ループのサイズ変化

LF/HFはイオン照射速度の区別であり、LF: 1.4×10^{-5} dpa/s、HF: 7.0×10^{-4} dpa を指している。

LS/BAはケイ素濃度の区別であり、LS:低ケイ素合金、BA:ベース合金に対応する。

(D. Y. Chen 他, Scripta Mater. doi.org/10.1016/j.scriptamat.2021.114311 で公表済み)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Chen Dongyue, Murakami Kenta, Dohi Kenji, Nishida Kenji, Chen Liang, Li Zhengcao, Sekimura Naoto	4. 巻 578
2. 論文標題 Formation of Ni-Si clusters and their relationship with dislocation loops in irradiated stainless steels	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 154366
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2023.154366	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 D. Y. Chen, K. Murakami, H. L. Yang, L. Chen, H. Abe, Z. C. Li, N. Sekimura	4. 巻 207
2. 論文標題 Flux effects on point defect behavior by tracking loop evolution using combined irradiation method	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 114311
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2021.114311	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Phongsakorn P. T., K. Murakami, V. N. Luu, B-V-C. Nguyen, L. Chen	4. 巻 559
2. 論文標題 Effect of solute elements (Ni, Mn) in Fe-based alloys on dislocation loop evolution under Fe ²⁺ ion irradiation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 153489
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2021.153489	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nguyen Ba Vu Chinh, Murakami Kenta, Chen Liang, Tom Phongsakorn Prak, Chen Xinrun, Hashimoto Takashi, Hwang Taehyun, Furusawa Akinori, Suzuki Tatsuya	4. 巻 39
2. 論文標題 Interaction of solute manganese and nickel atoms with dislocation loops in iron-based alloys irradiated with 2.8MeV Fe ions at 400 °C	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 101639 ~ 101639
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nme.2024.101639	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計23件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 10件）

1. 発表者名 陳 心潤
2. 発表標題 Ion-irradiation Effects on Microstructures in RPV Model Alloys with Higher Mn-Ni-Si Concentrations
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Daoyu Pan
2. 発表標題 Investigating the Impact of Non-normalized Atom Probe Tomography Measurements and its Standardization
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Dongyue Chen
2. 発表標題 Statistical analysis of Ni and Si co-clustering in stainless steels irradiated to low dose
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Detailed analyses of Mn and Ni segregation on dislocation loops in ion irradiated model alloys using Atom Probe Tomography
3. 学会等名 IGRDM-22 (International Group on Radiation Damage Mechanism) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Ion-irradiation Effects on Hardness and Microstructures in RPV Model Alloys with Higher Mn-Ni-Si concentrations
3. 学会等名 Nuclear Materials Conference 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Ion-irradiation Effects on Hardness and Microstructures in RPV Model Alloys with Higher Mn-Ni-Si concentrations
3. 学会等名 International Youth Nuclear Congress 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ba Vu Chinh Nguyen
2. 発表標題 Atom probe tomography analysis of anisotropic distribution of solute elements (Mn, Ni) on irradiated Fe - based model alloy
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Diffusivity of Nickel in Fe under 3MeV Fe Irradiation at 673K Studied by Atom Probe Tomography
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Dongyue Chen
2. 発表標題 Synergistic Effects of Irradiation Flux and Alloy Composition on Point Defect Behaviors by Tracking Loop Nucleation and Growth
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 村上健太
2. 発表標題 規格基準類における役割と関係の整理：学協会とステークホルダーの連携事例
3. 学会等名 日本原子力学会2022年春の年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上健太
2. 発表標題 低温イオン照射による鉄基合金の照射損傷モデルの検証
3. 学会等名 日本原子力学会2022年春の年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上健太
2. 発表標題 より高い Mn-Ni-Si濃度の RPVモデル合金の硬度と微細構造に対するイオン照射効果
3. 学会等名 日本原子力学会2022年春の年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Dongyue Chen
2. 発表標題 Stability and growth of radiation defects influenced by cascade damage at different fluxes
3. 学会等名 日本原子力学会2022年春の年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Recent progress of APT analysis of RPV surveillance materials in the University of Tokyo
3. 学会等名 IGRDM-UPDATE (International Group of Radiation Damage Mechanism) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Reassessment of damage production in iron-based alloys using new primary radiation damage indicators
3. 学会等名 IGRDM-23 (International Group on Radiation Damage Mechanism) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Neutron-Ion Combination Irradiation -Project overview and the first result-
3. 学会等名 IGRDM-23 (International Group on Radiation Damage Mechanism) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Ageing Management Practice and Related R&D of Key Nuclear Materials in Japan
3. 学会等名 1st World Conference on Energy Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kenta Murakami
2. 発表標題 Initiatives of Japan on standardizing new findings on ageing management
3. 学会等名 OECD/NEA Workshop Ageing management considerations in mechanical codes and standards (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Ion-irradiation Effects on Hardness and Microstructures in RPV Model Alloys with Higher Mn-Ni-Si Concentrations
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会(学生連絡会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Dispersed Barrier Hardening Modeling on He Bubbles in Iron-Based Alloys
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Phase Transition and Young Modulus of G Phase (Mn ₆ Ni ₁₆ Si ₇) in Mn-Ni-Si Model Alloys after 1273K Annealing and Irradiation
3. 学会等名 PRICM-11-2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Effect of Irradiation Temperature on Mn-Ni-Si Clusters in RPV Model Alloys
3. 学会等名 IGRDM-23 (International Group on Radiation Damage Mechanism) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Xinrun Chen
2. 発表標題 Effect of Irradiation Temperature on Mn-Ni-Si Clusters in RPV Model Alloys
3. 学会等名 日本原子力学会2024年春の年会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京大学・大学院工学系研究科レジリエンス工学研究センター・村上研究室
<https://www.safety.n.t.u-tokyo.ac.jp/murakami/index.html>
 研究業績はResearchmap から
https://researchmap.jp/murakami_kenta

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	叶野 翔 (Kano Sho) (00742199)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任研究員 (12601)	
研究分担者	鈴木 達也 (Tatsuya Suzuki) (70323839)	長岡技術科学大学・工学研究科・教授 (13102)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	関村 直人 (Sekimura Naoto) (10183055)	東京大学・大学院工学系研究科・教授 / 副学長	
研究協力者	陳 東鉞 (Chen Donyue)	東京大学・大学院工学系研究科・特任准教授	現在は中国・清華大学

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関