

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24860025

研究課題名(和文)原子力鉄鋼材料のミクロ組織発達モデル化に資する照射欠陥挙動分析手法の開発

研究課題名(英文)Development of analysis method for irradiation defects behaviors to evaluate microstructure in reactor materials

研究代表者

村上 健太 (Murakami, Kenta)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50635000

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円、(間接経費) 660,000円

研究成果の概要(和文)：低温(<70 K)でイオン照射された原子炉圧力容器モデル合金における照射欠陥の蓄積と回復の挙動、および照射欠陥の回復に伴う溶質原子の移行の挙動を、残留抵抗の測定によって半定量的に評価し、ミクロ組織の発達をモデル化する手法を開発した。具体的には、イオン照射実験に必要な薄膜試料の調整や、薄膜化が残留抵抗に与える影響の定量評価を行った。また、鉄基合金におけるはじき出し損傷あたりの残留抵抗率の増加が、純鉄の場合と比較して5割程度大きい事を見出した。多元系合金における残留抵抗率が二元系と比較して著しく大きい事も示された。これらの結果は、電気抵抗率の変化に基づいてミクロ組織の発達を推定する基盤となる。

研究成果の概要(英文)：Migration of solute atoms in reactor pressure vessel (RPV) model alloys which were ion-irradiated at < 70 K was studied correlated with the accumulation and recovery of irradiation defects using residual resistivity measurement. Thinning method of specimens, that is required for ion irradiation, was developed. And the effect of thinning to the residual resistivity was evaluated as the function of specimen's thickness. Irradiation-induced resistivity per displacement in iron based alloys is about 50 % larger than that in pure iron. Residual resistivity in ternary alloys is much higher than the binary alloys, so that it indicates the existence of small clusters. These information is the basis to evaluate the microstructure evolution using resistivity measurement.

研究分野：原子力学

科研費の分科・細目：核燃料・原子力材料

キーワード：原子炉材料 照射 照射損傷 イオン照射 原子炉圧力容器

1. 研究開始当初の背景

原子炉で使用される鉄鋼材料の内部では、供用期間中に中性子照射を受けることによりミクロ組織が発達し、機械的特性が変化することが知られている。工学的には、過去のデータを相関式の形にまとめて、供用年数毎の機械的特性変化を把握するとともに、監視試験を実施するなどして、健全性を確認している。一方、相関式の構築に際しては、照射劣化のメカニズムを把握することが必要であり、そのための研究が精力的に実施されている。

報告者は、平成 22 年度に、全国大学共同利用施設である東京大学大学院工学系研究科原子力専攻重照射損傷研究設備（通称 HIT）に設置された低温照射チャンバを改良して、原子炉圧力容器モデル合金における照射損傷の回復ステージを電気抵抗率法により測定した。その結果、三元系以上のモデル合金においては、二元系の鉄基希薄合金（これについては固体物理学の観点で幾つかの信頼できる既往研究がある）とは明らかに異なる回復挙動が見られること、室温以下程度の低い温度領域において、導入したフレンケル対あたり数十個の溶質原子がマトリクスから消失していると考えられること、（つまり微小なミクロ組織が形成されている可能性が高いこと）を示す、残留抵抗率の変化挙動を得た。

この手法によって系統的にデータを取得し、照射相関式の構築に資する技術基盤を確立するには、低温イオン照射を用いることによる制約条件（薄膜化の影響評価、欠陥の深さ分布やカスケード損傷の影響評価等）が必要であること、多元系合金における回復ステージの解釈を深化させる必要があること、等の課題がある。また、HIT は東日本大震災によって著しい被害を受けたことから、設備の復旧（照射ができるようにすること）、復興（単に修繕するのではなく、過去の経験を踏まえて実験の精度が上がるような改良を施すこと）に関するプラクティカルな課題もあった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、上述の背景を踏まえ、実験パラメータ（特に温度評価）の精度を向上させる、薄膜化や多元系合金化に伴う残留抵抗率への影響を明らかにすることにより、電気抵抗率法によるミクロ組織発達挙動の評価手法の信頼性を向上させるとともに、残留抵抗率の変化挙動を導入されたはじき出し損傷の関数として整理することにより、実機における損傷速度効果を整理することに役立つ知見を得ること、と設定した。

3. 研究の方法

については、未照射試料を用いた実験により達成可能である。具体的には、まず HIT の低温照射チャンバを復興し、多数の

薄膜試料を作成して残留抵抗率を測定し、残留抵抗率に対する薄膜化の影響、溶質原子の影響を定量化することとした。

試料は、パルスレーザー蒸着法を用いて作成された。これは、ターゲット材にレーザーを照射して表面を蒸発させ、それを液体窒素温度に冷却した絶縁性の平滑な基板で捕集して薄膜化する手法である。一般的にターゲット材と同じ組成の薄膜が得られるが、高真空中で実施することによりガス状不純物の除去効果も期待できる。

については、照射欠陥の導入が必要になる。HIT で新たな照射実験の実施を希望していたが、加速器の復旧が進まないことが問題であった。そこで、HIT 管理部に協力して加速器の復旧作業に取り組むのに並行して、得られた知見を用いて過去のデータの再評価を行い、研究期間内に最低限の新知見を得られるようにした。

4. 研究成果

に関しては、温度センサを増やして試料中での温度勾配を把握することができた。結果として、放射熱の影響による試料の温度変化を予測できるようになり、過去のデータの中から（温度センサの読みは同じだが）平均温度の異なる可能性のあるものをスクリーニングするための方法論を確立した。

に関して、純鉄における残留抵抗率の変化を図 1 に示す。報告者は、膜厚が小さくなるほど、自由電子が表面で散乱する可能性が高くなることから残留抵抗率が増加すると予想していた。一方、鉄鋼材料が磁性体であることから薄膜化の影響は無視できると考える研究者もあり、この点を明確にする必要があった。評価の結果、膜厚におおよそ反比例する形で残留抵抗率の増加がみられることが明らかとなり、純鉄においても自由電子の表面散乱が確認された。

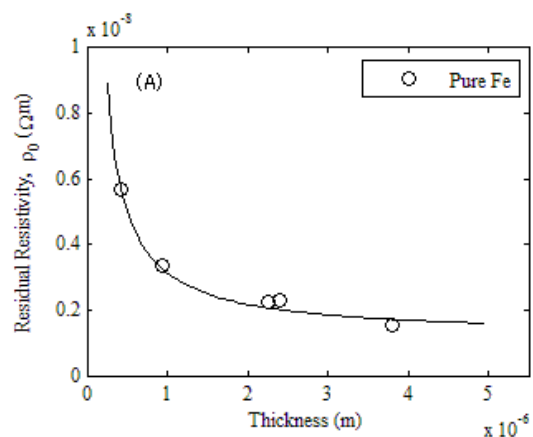


図 1 純鉄の残留抵抗率の膜厚依存性

バルク状の鉄置換型溶質原子の希薄二元系合金においては、溶質原子が残留抵抗率に与える影響は、単位量あたり 10^{-6} m のオーダーであることが古くから知られている。薄

膜化した場合の溶質原子の影響を確認した結果が、図2である。溶質原子濃度と残留抵抗率の間には正の相関があり、薄膜化した場合もバルクと同じ傾向が表れることが確認された。薄膜化した鉄中のニッケルによる残留抵抗率増分は単位量あたり 2.4×10^{-6} m, マンガンは 2.8×10^{-6} m と評価されたが、これらはバルクにおける既往研究とほぼ同じ値である。

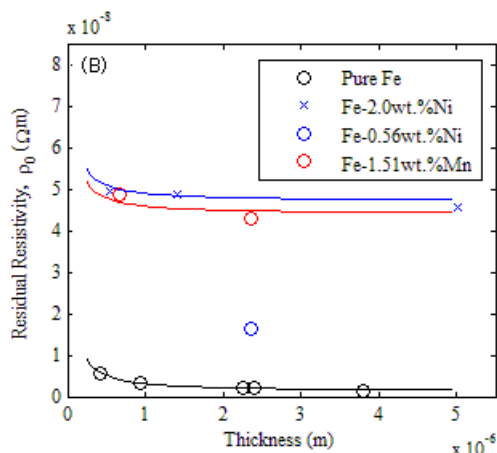


図2 鉄基二元系合金における薄膜化と溶質の影響

最後に、多元系合金における残留抵抗率を二元系合金と比較したところ、図3に示す通り合金組成から予想される値と比較して、数%程度大きな残留抵抗率を示すことが明らかとなった。これは、磁区等の形成の影響も考えられることから、試料中の磁場を制御するようチャンバを改造することとした。

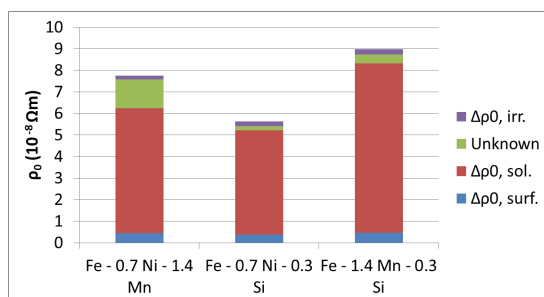


図3 鉄基三元系合金における薄膜化と溶質原子の影響

に関しては、残念ながら研究期間内に新たな照射試験を実現することは叶わなかったが、過去のデータをこの成果に基づいて再評価した結果、興味深い知見が得られた。図4 ははじき出し損傷率に対する照射直後の残留抵抗率を示したものである。明らかに純鉄とそれ以外の合金において、増加のトレンドに違いがみられる。これについては二つの仮説が立てられる。(1) フレンケル対の残留抵抗率への寄与は純鉄において 3×10^{-5} m とされてきたが、合金系においてはこの値が約50%程度高くなる。(2) カスケード損傷内

での欠陥の回復率(つまり欠陥生成効率)が合金系では50%程度高い。現時点では、いずれの仮説がより合理的かを判断する材料を持たないが、本課題は照射実験後に陽電子消滅ガンマ線のスペクトルを分析することにより、容易に判断できると考えている。一刻も早くHITを再稼働し、この点を明らかにさせたい。

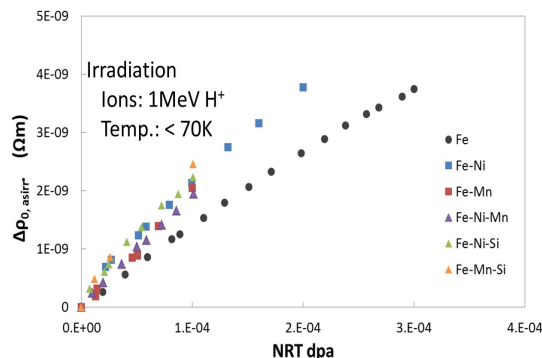


図5 はじき出し損傷に対する残留抵抗率

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4 件)

(査読付き論文) T. Iwai, K. Murakami, T. Iwata, Y. Katano, “Defect formation in iron by MeV ion beam investigated with a positron beam and electrical resistivity measurement”, Nuclear Instruments and Methods in Physics research Section B, 315, p. 153~156, 2013.

(査読付きプロシーディング) K. Murakami, et. al., “Research on degradation in reactor materials using ion accelerators”, 1st International Conference on Maintenance Science and Technology (ICMST 2012), 2 pages, Tokyo, Nov. 2012.

(査読付きプロシーディング) K. Murakami, et. al., “Evaluation of irradiation-induced hardening in reactor pressure vessel steels using nano-indentation technique and ion beams”, 1st International Conference on Maintenance Science and Technology (ICMST 2012), 2 pages Tokyo, Nov. 2012.

(プロシーディング) H. Abe, O. Onizawa, J. Katayama, K. Murakami, T. Iwai, T. Iwata, Y. Katano, N. Sekimura, Y. Nagai, T. Toyama, S. Tamura, “Results from project on enhancement of aging management and maintenance in nuclear power plants – Irradiation embrittlement of RPV steels –”, IAEA-CN-194-072, PLiM 2012, Salt Lake City, Utah, May 2012.

〔学会発表〕(計 2 件)

(国際会議・口頭発表) K. Murakami, et. al.,
“Recovery of ion irradiation-induced
resistivity change in RPV model alloys”,
17th International Group on Radiation
Damage Mechanisms in Pressure Vessel
Steels (IGRDM-17), P084, Embiez Island,
France, May 2013.

(国際会議・口頭発表) K. Murakami, et. al.,
“Analysis of defects migration in RPV
model alloys using low temperature ion
irradiation”, The Nuclear Materials
Conference 2012, Osaka, Oct. 2012.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nuclear.jp/blt>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村上 健太 (MURAKAMI, Kenta)
東京大学・大学院工学系研究科・助教
研究者番号：50635000

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし