

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：17102
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2016～2019
課題番号：16H04633
研究課題名(和文) 圧力容器鋼に形成されるレイトブルーミング相の同定と脆化への役割に関する研究

研究課題名(英文) Effects of late blooming phases on radiation induced hardening in pressure vessel steels

研究代表者
渡辺 英雄 (Watanabe, Hideo)

九州大学・応用力学研究所・准教授

研究者番号：90212323
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：原子炉圧力容器の中性子照射による照射脆化要因としては、1) 溶質原子(銅原子等)クラスター並びに2) 転位ループが指摘されている。本研究は、収差補正機能を有する電子顕微鏡を用いて、BR2にて290℃で中性子照射された銅濃度の異なる各種モデル合金や実機材料を観察・分析した。その結果、本手法にて転位ループ及び微小クラスターの同時観察が可能であり、また試料の焼鈍実験からそれぞれの要因の量的な考察並びにそれらクラスターの熱安定性についての議論が可能であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子力発電所の寿命は法令により40年を目途にとされているが科学的な根拠がない。原子炉供用中で交換が出来ず、炉の寿命評価に不可欠な圧力容器の照射脆化メカニズム解明並びに高精度の余寿命評価手法の向上を目的として本研究を実施しています。中性子による照射脆化の要因には、欠陥(格子間原子並びに空孔)が集合(転位ループ)及び金属の構成元素が集合(溶質原子クラスター)が存在するが、双方のサイズが数ナノメートル程度であり、通常の電子顕微鏡では材料の磁性の影響により観察が不可能であった。本研究では、収差補正機能を有する分析電子顕微鏡を用いてそれらのクラスターを同時に観察・分析し、脆化メカニズムの解明に貢献した。

研究成果の概要(英文)：The neutron irradiation of Fe-based reactor materials leads to an increase in ductile-to-brittle transition temperature with a decrease in upper shelf energy. It is well known that Cu content has a strong influence on the phenomenon. In contrast, mechanical property studies for steels exhibit dominant loops in the embrittlement of both low-Cu steels and high-Cu steels at high fluences.

To determine the effects of dislocation loops and CRPs on radiation hardening in those steels, neutron irradiation was conducted on model alloys. The neutron irradiation was performed in BR2 at 290 °C up to a dose of 4.1×10^{24} n/m². After irradiation, the microstructure was observed and analyzed by spherical aberration-corrected TEM and STEM combined with EDS, using a JEOL ARM200FC. This technique enabled simultaneous observation of ~10 nm CRPs and dislocation loops.

Radiation-induced hardness due to neutron irradiation was estimated by measuring the size and density of clusters.

研究分野：原子力材料

キーワード：照射脆化 高経年化 原子炉圧力容器

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子炉压力容器照射脆化機構の解明には、その要因となる溶質原子クラスター並びに転位ループの直接観察が不可欠であるが、高分解能観察並びに分析は通常の TEM では観察できない。本研究では収差補正機能を有する電子顕微鏡にてこれらの要因を直接観察することにより、照射誘起硬さの絶対値との比較・評価が可能でないと考えた。

2. 研究の目的

高経年化原子炉の高精度の余寿命評価並びに照射脆化メカニズムの解明を目的としている。特に、高照射領域で形成される Mn Ni クラスター並びに高照射領域で形成されるこれらの元素の濃化したレイトブルーミング相の確認とこれが照射誘起硬さ変化に及ぼす影響について考察する。

3. 研究の方法

銅濃度の異なる各種モデル合金並びに実用合金の中性子照射をベルギー・BR2 原子炉を用いて 290 °C にて高照射 (約 0.4dpa) 程度まで照射し、収差補正電子顕微鏡を用いた組織・組成分析を行い溶質原子クラスター並びに転位ループの同時観察を行った。また数密度・サイズを測定結果から照射に伴う硬さ上昇を評価するとともに、実験より得られた硬さと比較検討を行った。Mn, Ni が添加された合金についても同様の観察を行った。

4. 研究成果

原子炉压力容器の照射脆化は、中性子照射に伴う各種の溶質元素(主に銅)クラスター並びに転位ループの数密度とサイズに依存する。しかしながら、溶質元素クラスターは数 nm 程度の大きさであり、鉄合金中では、整合性が高い為、通常の TEM 観察では観察が困難である。一方、転位ループには格子間原子 (I) 型と空孔 (V) 型の 2 つのタイプがあり、ループの型を判定する必要があり、脆化機構の解明には溶質クラスターと転位ループを同時に観察することが不可欠となる。図 1 は压力容器

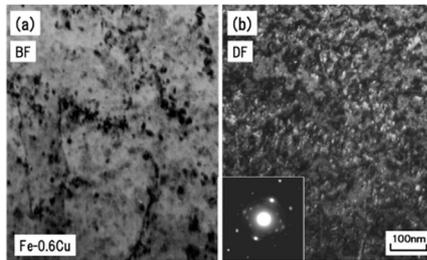


図1 明視野像及び暗視野像

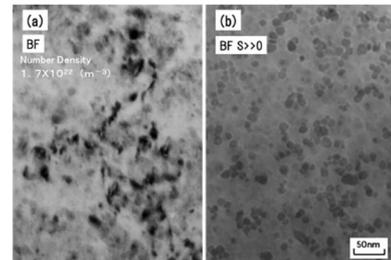


図2 明視野像及びs>>0像

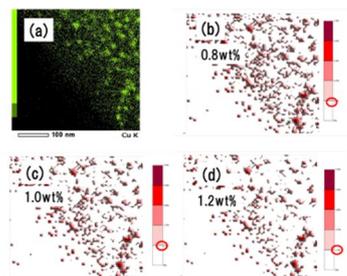


図3 マッピング後の定量分析

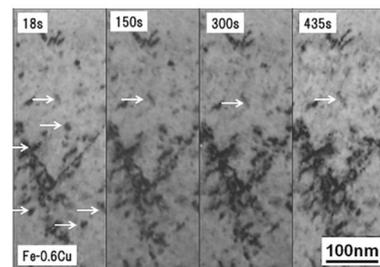


図4 電子線による追照射

鋼モデル合金として Fe-0.6Cu 合金を作製し、BR2 にて 290 °C で 5×10^{24} (n/m²)まで照射した試料の TEM 観察像である。既存の転位に沿って欠陥集合体が多数観察されている。

Fe-0.6Cu 合金では、銅クラスターのサイズが 10nm 程度であるため、図 2 に示す様に回折コントラストを変更させて、数密度を測定することが可能となる。収差補正原子分解能電子顕微鏡 (JEM-ARM200FC) による銅クラスターのマッピングでは、図 2 から測定された数密度の情報を基に定量分析を行い、銅クラスター分布の再評価が可能となった。九州大学では、事業所境界の変更により、微量の RI 試料は超高压電子顕微鏡による再照射も可能となり、図 4 に示す様に室温で 1.0MeV の電子線照射により、その結果ほとんどの転位ループが成長していることにより、格子間型と推測されている。

中性子線照射による引張特性の変化を測定するために BR2 にてモデル合金試料を中性子線照射のあと引張試験を実施した。これまでの研究から Si の添加濃度が高くなるに従って 0.2%耐力上昇幅が大きくなっており Si の添加により照射による脆化が促進されていることが分かる。図 5 (Mn 濃度依存性) 図 6 (Ni 濃度依存性) に示す。これらの結果より、照射により、すべての試料で照射により 0.2%耐力点の上昇がみられ、伸びが低下する。Ni と Mn の添加濃度の上昇により、0.2%耐力はいずれも上昇する。添加量が増大し 1.4%程度になると照射量依存性がほとんどない。これは、脆化の原因となる転位ループ並びにクラスターの数密度が既に飽和している事を示唆している。熱処理後の硬さ変化並びに電子顕微鏡観察から、それぞれの回復温度を評価し、Mn, Ni クラスター・銅を含むクラスター・転位ループの分解する温度領域を評価した。

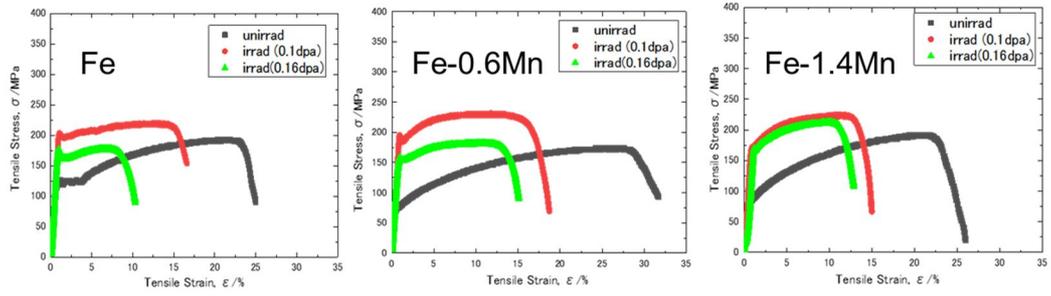


図 5 引張特性変化の Mn 濃度依存性

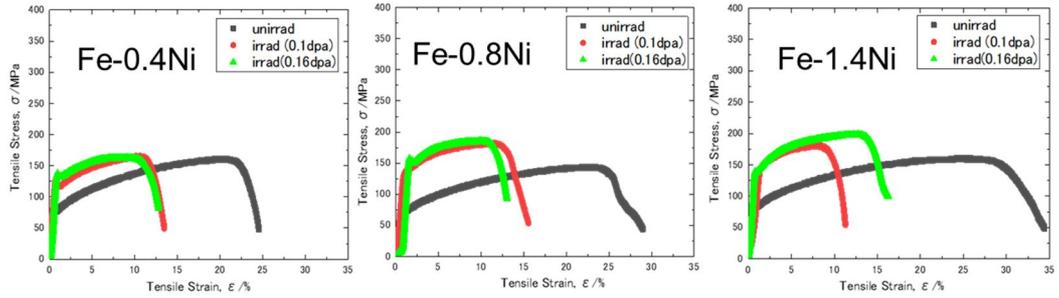


図 6 引張特性変化の Ni 濃度依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Watanabe Hideo, Takahashi Katsuhito, Yasunaga Kazufumi, Wang Yun, Aono Yasuhisa, Maruno Yusaku, Hashizume Kenichi	4. 巻 55
2. 論文標題 Effects of an alloying element on a c-component loop formation and precipitate resolution in Zr alloys during ion irradiation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1212 ~ 1224
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00223131.2018.1486244	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 -
1. 著者名 Watanabe Hideo	4. 巻 57
2. 論文標題 Analysis of Defect Clusters Formed in Neutron Irradiated Fe-0.6Cu Alloy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materia Japan	6. 最初と最後の頁 613 ~ 613
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/materia.57.613	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 -
1. 著者名 Inoue Toshihiko, Sekio Yoshihiro, Watanabe Hideo	4. 巻 58
2. 論文標題 Austenite-based Stainless Steel Irradiation Behavior of the Precipitate and Void Swelling	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Materia Japan	6. 最初と最後の頁 92 ~ 92
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/materia.58.92	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 -
1. 著者名 相原 雄太, 鎌田 康寛, 村上 武, 小林 悟, 渡辺 英雄	4. 巻 81
2. 論文標題 クラッド付圧力容器鋼の磁気ヒステリシス統制とピッカース硬さの相関	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本金属学会誌	6. 最初と最後の頁 475 ~ 479
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 -

1. 著者名 Nagasaka Takuya, Fu Haiying, Kometani Nobuyuki, Miyazawa Takeshi, Muroga Takeo, Watanabe Hideo, Yamazaki Masanori, Toyama Takeshi	4. 巻 72
2. 論文標題 Impact Property of Low-Activation Vanadium Alloy NIFS-HEAT-2 After Electron Beam Welding and Neutron Irradiation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Fusion Science and technology Fusion Science and technology	6. 最初と最後の頁 645 ~ 651
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/15361055.2017.1352428	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 -

1. 著者名 Y. Matsukawa, T. Takeuchi, Y. Kakubo, T. Suzudo, H. Watanabe, H. Abe, T. Toyama, Y. Nagai	4. 巻 116
2. 論文標題 The two-step nucleation of G-phase in ferrite	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Acta Materialia	6. 最初と最後の頁 104-113
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/J.actamat.2016.06.013	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 -

1. 著者名 MUROGA Takeo, MIYAZAWA Takeshi, NAGASAKA Takuya, WATANABE Hideo	4. 巻 11
2. 論文標題 Correlation of Microstructural Evolution in V-4Cr-4Ti by Heavy Ion and Neutron Irradiations	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research Plasma and Fusion Research: Regular Articles	6. 最初と最後の頁 2405007 ~ 2405007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.11.2405007	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 -

1. 著者名 WATANABE Hideo, MUROGA Takeo, NAGASAKA Takuya	4. 巻 12
2. 論文標題 Effects of Irradiation Environment on V-4Cr-4Ti Alloys	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research Plasma and Fusion Research: Regular Articles	6. 最初と最後の頁 2405011 ~ 2405011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.12.2405011	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 -

〔学会発表〕 計28件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 渡邊 英雄
2. 発表標題 九州大学・応用力学研究所における原子力材料照射影響評価の取り組み
3. 学会等名 日本保全学会 第15回学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hideo Watanabe
2. 発表標題 Microscopy of irradiated nuclear materials Radiation induced embrittlement of RPV steels due to irradiation
3. 学会等名 Hungarian-Japanese Workshop
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yasuhiro Kamada, Satoru Kobayashi, Hideo Watanabe
2. 発表標題 Ion-irradiation effects on magnetic properties of Fe-based alloys
3. 学会等名 Hungarian-Japanese Workshop
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤田 敏之、平林 潤一、片山 義紀、鹿野 文寿、橋本 直幸、渡邊 英雄
2. 発表標題 低合金鋼の熱時効によるCu析出挙動
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋季講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Watanabe, Y. Goya, T. Turu, T. Yamamoto, Y. Kamada
2. 発表標題 EFFECT OF CU ON RADIATION INDUCED HARDENING OF A533B UNDER NEUTRON IRRADIATION
3. 学会等名 JCS-14 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 入江 拓也、田中 智成、渡邊 英雄
2. 発表標題 Mn・Ni添加モデル合金の中性子照射による引張特性の変化
3. 学会等名 日本原子力学会2018年秋の大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 合屋 佑介、都留 拓也、渡邊 英雄、山本 琢也
2. 発表標題 照射による原子炉圧力容器鋼のCu,Ni添加効果と熱処理による回復挙動
3. 学会等名 日本原子力学会2018年秋の大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 合屋佑介、都留拓也、渡辺英雄、山本琢也
2. 発表標題 原子炉圧力容器鋼モデル合金における照射硬化と熱処理による回復挙動
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第37回研究発表講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡邊 英雄、入江 拓也、合屋 佑介
2. 発表標題 压力容器モデル合金の中性子照射効果
3. 学会等名 日本原子力学会2019年春の年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋 克仁、樋口 徹、坂本 寛、牟田口 嵩史、渡邊 英雄
2. 発表標題 Zr合金酸化膜の水素脱離挙動に及ぼす照射損傷の影響
3. 学会等名 日本原子力学会2019年春の年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平林 潤一、藤田 敏之、小林 徳康、片山 義紀、鹿野 文寿、橋本 直幸、後藤 俊太、渡邊 英雄
2. 発表標題 照射脆化因子の形成の伴う低合金鋼の電磁気特性変化
3. 学会等名 日本金属学会2019年春季講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡邊 英雄
2. 発表標題 高経年化原子炉压力容器の余寿命 高精度評価に関する研究
3. 学会等名 ちゅうでん サイエンス・フォーラム2017 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 H. Watanabe, H. Seki, Y. Kamada
2. 発表標題 Effects of Stress on Growth Behavior of Dislocation Loops in Fe-Mn Alloys under Irradiation
3. 学会等名 ICFRM-18 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 H. Watanabe, T. Tanaka, T. Turu
2. 発表標題 Defect Observation of Cu Clusters and Dislocation Loops by Cs-corrected STEM in Fe-0.6Cu Alloy Irradiated in BR2
3. 学会等名 ICFRM-18 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 合屋佑介、田中智成、都留拓也、渡辺英雄
2. 発表標題 原子炉圧力容器鋼の照射脆化と熱処理による回復挙動
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第36回研究発表講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐久間 幸城、渡辺 英雄、鎌田 康寛
2. 発表標題 廃炉措置プラントを活用した原子炉圧力容器鋼の照射脆化
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第36回研究発表講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 合屋佑介、都留拓也、渡辺英雄、山本琢也
2. 発表標題 IVARモデル合金残材の照射脆化と熱処理による挙動回復
3. 学会等名 ゼロエミッションエネルギー拠点研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡邊 英雄、鎌田 康寛、熊野 秀樹
2. 発表標題 浜岡1号炉モックアップ材の重イオン照射による照射影響評価
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 渡邊 英雄、鎌田 康寛
2. 発表標題 収差補正電子顕微鏡を用いた放射性材料の分析
3. 学会等名 第11回核融合連合講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 渡邊 英雄
2. 発表標題 原子炉圧力容器鋼の中性子照射脆化について
3. 学会等名 第155回破壊力学部門委員会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 H. Watanabe, T. Onishi, T. Tsuru, T. Yamamoto, A. Kimura
2. 発表標題 Analysis of radiation nano-cluster in Fe based structural alloys
3. 学会等名 第7回エネルギー理工学研究所国際シンポジウム
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 渡邊 英雄
2. 発表標題 BR2照射した圧力容器鋼モデル合金の照射効果
3. 学会等名 平成28年度 大洗研究会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 H. Watanabe, T. Tanaka, Y. Kamada
2. 発表標題 Radiation Induced Hardening of A533B under Neutron Irradiation
3. 学会等名 NuMat2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 H. Watanabe, T. Takahashi, Y. Aono, Y. Maruno
2. 発表標題 Effects of Alloying Element in Zr Alloys during Ion Irradiation
3. 学会等名 NuMat2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Y.Kamada, M.Je, J.N.Mohapatra, T.Murakami, S.kobayashi, H. Watanabe
2. 発表標題 Effect of pre-deformation on microstructures, hardness, and magnetic properties of thermally-aged Fe-Cr binary alloys
3. 学会等名 NuMat2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Y.Kamada, T.kabutomori, J.N.Mohapatra, S.kobayashi, H. Watanabe
2. 発表標題 Nanoscale-structures and magnetic properties of neutron and ion irradiated Fe-Cr binary alloys
3. 学会等名 NuMat2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 佐久間 幸城、渡辺 英雄、鎌田 康寛
2. 発表標題 廃炉措置プラントを活用した原子炉圧力容器鋼の照射脆化
3. 学会等名 日本原子力学会九州支部第35回研究発表講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 渡邊 英雄
2. 発表標題 実習の概要報告 TEM観察実習
3. 学会等名 エネ庁人材育成事業・第2回総括研究会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	鎌田 康寛 (Kamada Yasuhiro) (00294025)	岩手大学・理工学部・教授 (11201)	
研究分担者	安永 和史 (Yasunaga Kazufumi) (20404064)	公益財団法人若狭湾エネルギー研究センター・研究開発部・主任研究員 (83401)	
研究分担者	山本 琢也 (Yamamoto Takuya) (50212296)	福井大学・附属国際原子力工学研究所・その他 (13401)	
研究分担者	木村 晃彦 (Kimura Akihiko) (90195355)	京都大学・エネルギー理工学研究所・教授 (14301)	
研究分担者	大澤 一人 (Ohsawa Kazuto) (90253541)	九州大学・応用力学研究所・助教 (17102)	