

機関番号：14301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：平成20年度～平成22年度

課題番号：20560773

研究課題名（和文） 原子炉压力容器鋼におけるナノ析出物の形成に
及ぼす損傷速度の影響研究課題名（英文） Effects of Damage rate on formation of Nano-Precipitates
In Reactor Pressure Vessel

研究代表者

徐 虬 (Xu Qiu)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：90273531

研究成果の概要（和文）：

原子炉压力容器鋼のモデル合金に対して、京都大学原子炉実験所の研究炉の損傷速度が2桁違う3つの照射設備を用いて573Kで中性子照射を行う。損傷速度はそれぞれ 3.8×10^{-10} 、 1.5×10^{-8} と 5×10^{-8} dpa/sであった。最大照射量は0.016dpaであった。いずれの照射においても銅のナノ析出物が形成されたことが分かった。銅のナノ析出物及び原子空孔集合体の形成・成長は損傷速度に依存する。銅のナノ析出物の形成は損傷速度の増加と共に遅くなるが、銅のナノ析出物の成長は損傷速度の増加と共に速くなる。従って、压力容器鋼の脆化が損傷速度の減少と共に顕著になる。

研究成果の概要（英文）：

The formation of Cu precipitates and point defect clusters was investigated in two Fe-Cu binary model alloys, Fe-0.3Cu and Fe-0.6Cu, irradiated at 573 K at three different damage rates, namely 3.8×10^{-10} , 1.5×10^{-8} and 5×10^{-8} dpa (displacements per atom)/s, up to about 1.6×10^{-2} dpa. Results of positron annihilation experiments indicated that Cu precipitates were formed in these irradiations with different damage rates. The growth of Cu precipitates does not increase monotonously with increasing irradiation dose, but it rather depends on the nucleation and growth of microvoids. It is also clear that the nucleation and growth of microvoids are influenced by the irradiation dose rate.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
20年度	2,200,000	660,000	2,860,000
21年度	700,000	210,000	910,000
22年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力材料・核燃料

1. 研究開始当初の背景

原子力発電所の長寿命化は経済的に大きなメリットがあるため、各国とも経年劣化対応を中心した技術開発を精力的に進めている。経年変化が問題となる最も重要な機器は、原

子炉の安全性を事実上決定しかつ使用期間中の交換が不可能な原子炉压力容器である。原子炉压力容器の重要な経年変化現象としては中性子照射による压力容器鋼の照射脆化であるが、材料中に不純物として含まれて

いる銅のナノ析出による圧力容器鋼の脆化が特に問題視されている。銅のナノ析出物の形成に伴う原子炉圧力容器の劣化の解明が圧力容器の寿命の予測だけではなく、新しい材料の開発にも役に立つ。近年、特に原子レベルの情報が見える3次元アトムプローブや陽電子消滅ガンマ線同時計測ドップラーブロードニングなどの装置の開発と共に、照射による銅のナノ析出物形成の機構について盛んに調べてきた。例えば、われわれは陽電子寿命測定法及び陽電子ドップラーブロードニング法により中性子照射したFe-Cu合金におけるCu析出物形成の照射量依存性及び高温での安定性を調べた (*Phys. Rev. B* 73, 134115 (2006); *Phil. Mag. Lett.* 88, 353-362 (2008) & 87, 65-74 (2007); *Phys. Stat. Sol. (C)* 4, 3573 (2007))。陽電子ドップラーブロードニング法により電子顕微鏡でまったく見えない微細なCuの析出物の形成がはっきり示されていた。また、Cu析出物形成での原子空孔の役割が明らかになった。

2. 研究の目的

圧力容器鋼の開発や寿命の評価には中性子照射または加速器を用いた重イオン照射により加速照射が行われてきた。損傷速度が損傷組織の発達に影響を与えるため、昔から損傷組織の発達の損傷速度性についても調べられてきた。しかしながら、照射温度が厳密に制御された中性子照射した試料に対して、上記のような新しい実験手法により銅のナノ析出に及ぼす損傷速度の影響についてのデータがほとんど無い。本研究では、原子炉圧力容器鋼およびそのモデル合金に対して、京都大学原子炉実験所の研究炉の損傷速度が2桁違う3つの照射設備を用いて中性子照射を行う。損傷速度は 10^{-8} から 10^{-10} まで2桁である。照射後、陽電子寿命測定法、陽電子ドップラーブロードニング法及び微小硬度計により銅のナノ析出物の形成と機械性質変化に及ぼす損傷速度の影響について調べる。

3. 研究の方法

圧力容器鋼のモデル合金Fe-0.3CuとFe-0.6Cuに対して、京都大学原子炉実験所の研究炉を用いて、573Kで中性子照射を行った。損傷速度はそれぞれ 3.8×10^{-10} 、 1.5×10^{-8} と 5×10^{-8} dpa/sであった。最大照射量は0.016dpaであった。照射後、陽電子寿命測定法、陽電子ドップラーブロードニング法により銅のナノ析出物の形成を調べた。また、微小硬度計により硬さの測定も行った。

4. 研究成果

(1) 一般的に、損傷速度が増加すると、点欠陥格子間原子と原子空孔の密度が増加す

る。欠陥集合体の形成は点欠陥の密度に依存し、点欠陥の増加と共に速くなる。一方、高密度の点欠陥の存在により点欠陥の長距離拡散が妨げられ、欠陥集合体の成長は難しくなる。陽電子ドップラーブロードニングの結果からいずれの照射においても銅のナノ析出物が形成されたことが分かった。また、銅のナノ析出物の形成は照射量との関係は単純ではなく、原子空孔集合体の形成・成長にも依存する。銅のナノ析出物の形成・成長過程は三段階に分かれる。照射によって形成された原子空孔の移動により銅のナノ析出物が形成される。そして、銅のナノ析出物に原子空孔が集まり、原子空孔集合体が形成される。集まった原子空孔の量の増加と共に、原子空孔集合体が成長する。銅は成長した原子空孔集合体の表面に集まり、銅のナノ析出物は成長する。銅のナノ析出物及び原子空孔集合体の形成・成長は損傷速度に依存する。銅のナノ析出物の形成は損傷速度の増加と共に遅くなるが、銅のナノ析出物の成長は損傷速度の増加と共に速くなる。従って、圧力容器鋼の脆化が損傷速度の減少と共に顕著になる。これらの結果をまとめた論文を投稿し、*Phil. Mag.*雑誌に発表される予定である。

(2) すべての照射条件において、硬さ変化は銅濃度の高いほど大きい結果となった。また、銅濃度の高いほど損傷速度による差が大きくなっていることが分かった。これは低損傷速度において銅の析出が促進されていることを示している。引張試験の結果も硬さ実験と同様の傾向、すなわち、損傷速度の遅いほど0.2%耐力の変化が大きいと同じ照射条件では銅濃度の高いほど0.2%耐力の変化が大きいという傾向が見られる。

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 27 件)

(1) Q. Xu, X.Z. Cao, K. Sato, T. Iwai and T. Yoshiie: A study of Vacancy-Type Defects in Amorphous and Crystalline FeBSi Alloys after He Ion Irradiation. *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有, 225 (2010) 012059.

(2) K. Sato, Q. Xu and T. Yoshiie: Positron Annihilation Coincidence Doppler Broadening Measurements of Irradiation-Induced Precipitation in Ni-Sn Alloys. *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有, 225 (2010) 012047.

(3) K. Kuriyama, K. Matsumoto, K. Kushida and Q. Xu: Persistent Photoconductivity and Photo-Responsible Defect in 30 MeV-Electron Irradiated

Single Crystal ZnO. 29th International Conference on the Physics of Semiconductors, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1199, pp.89-90 (2010).

(4) K. Sato, T. Yoshiie and Q. Xu: Interaction between Sn Atoms and Vacancies in Neutron-Irradiated Ni-Sn Alloys by Positron Annihilation Spectroscopy. J. Japan Inst. Metals, 査読有, Vol. 74 (2010) 572-577 (in Japanese).

(5) T. Yoshiie, K. Sato, Q. Xu, M. Komatsu, M. Futakawa, T. Naoe and M. Kawai: Defect Structures in Nickel and SUS304SS Formed by the Collapse of Cavitation Bubbles. J. Nucl. Mater. 査読有, 398 (2010) 227-231.

(6) Q. Xu, X.Z. Cao, K. Sato, K. Mori and T. Yoshiie: Retention and Thermal Desorption of Helium in Amorphous and Crystalline FeBSi Alloys. Phil. Mag. Lett. 査読有, 90 (2010) 131-137.

(7) X.Z. Cao, Q. Xu, K. Sato and T. Yoshiie: Migration Behavior of Vacancies in Electron Irradiated Fe-Cu Alloys. Phys. Stat. Sol. (c) 6, 査読有, No. 11 (2009) 2355-2358.

(8) K. Sato, T. Ihara, H. Sakurai, T. Yoshiie and Q. Xu: Comparison of Interaction between Cu Precipitate and Vacancy in Fe using First-Principle Calculations and Empirical N-Body Potential Calculations. Comp. Mater. Sci. 査読有, 47 (2009) 521-525.

(9) Q. Xu, X.Z. Cao, K. Sato, T. Yoshiie and T. Iwai: He Bubble Formation and Emission of He in Irradiated Fe. Phys. Stat. Sol. (c) 6, 査読有, No. 11 (2009) 2336-2338.

(10) T. Yoshiie, X.Z. Cao, Q. Xu, K. Sato and T.D. Troev: Damage Structures in Austenitic Stainless Steels during Incubation Period of Void Swelling. Phys. Stat. Sol. (c) 6, 査読有, No. 11 (2009) 2333-2335.

(11) M. Doyama, Y. Kogure, M. Inoue, T. Kurihara, Y. Miyake, K. Nishiyama, K. Shimomura, T. Yoshiie, Y. Hayashi, Q. Xu, X.Z. Cao, M. Matsuya and M. Fujinami: Transmission Positron Microscopes, Application of Imaging Plates to Positron, Electron and Muon Research and a Proposal for a Strong Positron Source at J-PARC. Phys. Stat. Sol. (c) 6, 査読有, No. 11 (2009) 2471-2475.

(12) Rahman Abu Zayed Mohammad Saliquir, T. Awata, N. Yamashita, Y. Inada,

K. Oshima, Q. Xu and K. Atobe: Optical Vibronic Spectra in Reactor Neutron Irradiated α -Al₂O₃. Physics Procedia, 査読有, 2 (2009) 551-557.

(13) K. Kuriyama, K. Matsumoto, Y. Suzuki, K. Kushida and Q. Xu: Persistent Photoconductivity and Thermally Stimulated Current Related to Electron-Irradiation Induced Defects in Single Crystal ZnO Bulk. Solid State Commun. 査読有, 149 (2009) 1347-1350.

(14) T. Yoshiie, K. Sato and Q. Xu: Temperature Dependence of Dislocation Bias Factors in Metals. Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res., B, 査読有, 267 (2009) 2971-2975.

(15) Rahman Abu Zayed Mohammad Saliquir, T. Awata, N. Yamashita, Q. Xu and K. Atobe: Optical Vibronic Emission Spectra for Irradiation Induced F Aggregate Centers in Single Crystal α -Al₂O₃. Radiat. Eff. Defects Solids, 査読有, 164 (2009) 692-698.

(16) Q. Xu, K. Sato and T. Yoshiie: Interaction of Tritium Plasma and Defects in Tungsten Irradiated with Neutrons. J. Nucl. Mater., 査読有, 390-391 (2009) 663-666.

(17) C. He, T. Yoshiie, Q. Xu, K. Sato, S. Peneva and T.D. Troev: Detection of Hydrogen in Neutron-irradiated Nickel using Positron Lifetime Spectroscopy. Phil. Mag. 査読有, 89 (2009) 1183-1195.

(18) H. Kuroiwa, K. Fukumoto, M. Narui, H. Matsui and Q. Xu: Mechanical Properties of Neutron-irradiated Vanadium Alloys in A Liquid-sodium Environment. J. Nucl. Mater., 査読有, 386-388 (2009) 594-597.

(19) Q. Xu, T. Yoshiie and K. Sato: Effects of Hydrogen and Helium Produced by Transmutation Reactions on Void Formation in Copper Isotopic Alloys with Neutrons. J. Nucl. Mater., 査読有, 386-388 (2009) 363-366.

(20) Q. Xu, T. Yoshiie and M. Okada: Positron Annihilation of Vacancy-type Defects in Neutron-irradiated 4H-SiC. J. Nucl. Mater., 査読有, 386-388 (2009) 169-172.

(21) K. Sato, K. Inoue, T. Yoshiie, Q. Xu, E. Wakai, C. Kutsukake and K. Ochiai: Positron Annihilation Lifetime Measurements of Vanadium Alloy and F82H Irradiated with Fission and Fusion Neutrons. J. Nucl. Mater., 査読有, 386-388 (2009) 203-205.

- (22) Q. Xu, T. Yoshiie and K. Sato: Formation of Cu Precipitates and Vacancy Clusters in Neutron-irradiated Fe-Cu Alloys. Phil. Mag. Lett. 査読有, 88 (2008) 353-362.
- (23) M. Doyama, A. Kogure, M. Inoue, T. Kurihara, X. Cao, M. Matsuya, T. Yoshiie, Y. Hayashi, Q. Xu and M. Fujinami: Transmission Position Images Using Imaging Plates. Appl. Sur. Sci. 査読有, 255 (2008) 89-92.
- (24) N. Nitta, Y. Ohoka, K. Sato, Q. Xu, Y. Hayashi, T. Yoshiie and M. Taniwaki: Surface Sink Effects on Void Formation in GaSb and InSb under Ion Irradiation. Materials Transactions. JIM, 査読有, Vol. 49, No. 7 (2008) 1546-1549.
- (25) K. Sato, K. Tsukamoto, Y. Yamashita, Q. Xu, T. Yoshiie and D. Troev: Detection of Hydrogen in Vacancies and Voids in Nickel by Positron Annihilation Lifetime Measurement. Transactions of the Materials Research Society of Japan, 査読有, 33 (2008) 263-266.
- (26) T. Yoshiie, Q. Xu, K. Sato, K. Kikuchi and M. Kawai: Reaction Kinetics Analysis of Damage Evolution in Accelerator Driven System Beam Windows. J. Nucl. Mater., 査読有, 377 (2008) 132-135.
- (27) Y.X. Wang, Q. Xu, T. Yoshiie and Z.Y. Pan: Effects of Edge Dislocation on Interstitial Helium and Helium Cluster Behavior in α -Fe. J. Nucl. Mater., 査読有, 376 (2008) 133-138.

[学会発表] (計 23 件)

- (1)Ni におけるヘリウムの放出に及ぼす添加元素効果
徐 虬、曹興忠、佐藤絢一、義家敏正
日本金属学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 25 日、北海道大学)
- (2)金属の照射損傷構造からの点欠陥過程の抽出
義家敏正、佐藤絢一、曹興忠、徐 虬
日本金属学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 25 日、北海道大学)
- (3)イオン照射により GaSb 及び InSb に形成される構造のフラックス依存性
長谷川季也、新田紀子、保田英洋、佐藤絢一、徐 虬、義家敏正、谷脇雅文
日本金属学会 2010 年秋期大会 (2010 年 9 月 25 日、北海道大学)
- (4)ニッケルの強度に及ぼすヘリウムの影響
山崎裕之、徐 虬、曹興忠、佐藤絢一、川端祐司、義家敏正
日本金属学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 25 日、北海道大学)

- (5)陽電子消滅分光法による水素チャージされた Ni に及ぼす水素の影響
竹安恵一、佐藤絢一、徐 虬、義家敏正
日本金属学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 25 日、北海道大学)
- (6)ヘリウムイオン照射された Fe の低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定
佐藤絢一、徐 虬、義家敏正、木野村淳、大村高正、笠田竜太、木村晃彦、森下和功
日本金属学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 26 日、北海道大学)
- (7)陽電子寿命測定による 30MeV 電子線照射後セラミックスの欠陥導入状態評価
秋吉優史、高木郁二、土田秀次、義家敏正、徐 虬、佐藤絢一、森山裕丈
日本原子力学会 2010 年秋期大会
(2010 年 9 月 15 日、北海道大学)
- (8)ヘリウム照射した FeBSi 合金における空孔型欠陥の形成
徐 虬、曹興忠、佐藤絢一、義家敏正、岩井岳夫
第 47 回アイソトープ・放射線研究発表会
(2010 年 7 月 9 日、東京日本科学未来館)
- (9)ベリリウム金属間化合物の照射効果
柴山環樹、木下博嗣、坂口紀史、渡辺精一、谷津茂男、岸本弘立、野上修平、佐藤学、長谷川晃、長坂塚也、徐 虬、岩切宏友、中道勝、安堂正己、西谷健夫
第 8 回プラズマ核融合連合講演会
(2010 年 6 月 10 日、岐阜県高山市市民文化会館)
- (10)Ni-Au 合金における格子間原子集合体の拡散の計算機シミュレーション
佐藤絢一、義家敏正、徐 虬
物理学会 2010 年春期大会
(2010 年 3 月 20 日、岡山大学 津島キャンパス)
- (11)ヘリウムの放出と金属の結晶性
徐 虬、曹興忠、佐藤絢一、義家敏正
日本金属学会 2010 年春期大会
(2010 年 3 月 30 日、筑波大学筑波キャンパス)
- (12)中性子照射された Ni 二元系合金の照射誘起析出物の形成
佐藤絢一、義家敏正、徐 虬
日本金属学会 2010 年春期大会
(2010 年 3 月 30 日、筑波大学筑波キャンパス)
- (13)オーステナイト系ステンレス鋼の原子空孔の焼鈍挙動
宮脇健志、曹興忠、佐藤絢一、義家敏正、徐 虬
日本金属学会 2009 年秋期大会
(2009 年 9 月 15 日、京都大学吉田キャンパス)
- (14)高エネルギー粒子照射されたオーステナイト系ステンレス及びそのモデル合金の損傷構造の比較
石岡真一、曹興忠、佐藤絢一、徐 虬、義家敏正、土田秀次
日本金属学会 2009 年秋期大会

(2009年9月15日、京都大学吉田キャンパス)
(15)水銀中に発生する圧力波による Ni 及びステンレス鋼のピッティング損傷構造

義家敏正、佐藤紘一、徐 虬、小松正雄、二川正敏、直江崇、川合将義

(2009年9月15日、京都大学吉田キャンパス)
日本金属学会 2009 年秋期大会

(16)FCC 金属におけるヘリウム放出と欠陥との相関

徐 虬、曹興忠、佐藤紘一、義家敏正

日本金属学会 2009 年秋期大会

(2009年9月15日、京都大学吉田キャンパス)

(17)照射時熱拡散率評価に向けた陽電子消滅法による中性子照射後セラミックス試料の評価

秋吉優史、高木郁二、土田秀次、義家敏正、

徐 虬、佐藤紘一、森山裕丈

日本原子力学会 2009 年春期大会

(2009年3月23日、東京工業大学大岡山キャンパス)

(18)Fe におけるヘリウムと刃状転位の相互作用

徐 虬、王月霞、義家敏正

日本金属学会 2009 年春期大会

(2009年3月28日、東京工業大学大岡山キャンパス)

(19)Ni 中のボイドの陽電子寿命消滅に及ぼす He ガスの影響

湯沢直史、曹興忠、徐 虬、義家敏正

日本金属学会 2009 年春期大会

(2009年3月28日、東京工業大学大岡山キャンパス)

(20)GaSb の照射欠陥構造の計算機シミュレーション

櫻井寿、佐藤紘一、徐 虬、義家敏正、二田紀子、谷脇雅文

日本金属学会 2009 年春期大会

(2009年3月28日、東京工業大学大岡山キャンパス)

(21)Fe-Cu 合金における Cu 析出物の形成に及ぼす照射速度の影響

徐 虬 義家敏正

日本金属学会 2008 年秋期大会

(2008年9月23日、熊本大学黒髪キャンパス)

(22)オーステナイト系ステンレス鋼のボイド成長潜伏期間における損傷

義家敏正、徐 虬、佐藤紘一

日本金属学会 2008 年秋期大会

(2008年9月23日、熊本大学黒髪キャンパス)

(23)Optical Vibronic Spectra for Irradiation Induced Lattice Defect in Single Crystal α -Al₂O₃

Rahman Abu Zayed Mohammad Saliqur, T. Awata, N. Yamashita, Y. Inada, K. Oshima, K. Atobe and Q. Xu

日本物理学会 2008 年秋期大会

(2008年9月23日、山形大学小白川キャンパス)

6. 研究組織

(1)研究代表者

徐 虬 (Xu Qiu)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：90273531

(2)研究分担者

義家 敏正 (Yoshiie Tosimasa)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号：20124844