

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 27 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630487

研究課題名(和文)電子線カップリング照射による照射試料の再利用に関する研究

研究課題名(英文)Additional electron irradiation on neutron irradiated model alloys

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) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：原子炉材料研究には、中性子照射実験が可能な研究炉が必要であるが、東電の事故以降国内では全ての材料試験炉が停止状態にあり、安全研究の推進に大きな障害となっている。本研究は、以上の様な状況に鑑み、過去に照射済みの照射試験片(RI)を最大限に活用する為に、試験片を微小加工した後に管理区域外に取り出し可能なレベルまで試験片を加工し、規制庁の許可を得た後に、BR2で290、 5.0×10^{24} (n/m²)まで照射済みのFe-0.6Cuモデル合金の電子線照射を室温にて行い、転位ループの型判定を行った。その結果、中性子照射で形成された転位ループの殆どは格子間原子型の転位ループであることが判明した。

研究成果の概要(英文)：The neutron irradiation of Fe based fission reactor materials lead to an increase in the ductile-to-brittle transition temperature (DBTT) with a decrease in the upper shelf energy. It is well known that the Cu content has a strong influence on the embrittlement phenomena; especially, the Cu-rich precipitates have been thought to be directly responsible for the embrittlement. To study the effect of dislocations loop and Cu-rich precipitates at high fluencies on radiation hardening in those steels, neutron irradiation has been conducted for Fe-0.6wt%Cu alloy. The neutron irradiation was performed in BR2 at 563K up to the dose of 5.7×10^{24} (n/m²). To know the nature of dislocation loops, additional electron irradiation was performed at room temperature. By this procedure, dislocation loops formed at 563K was identified to be interstitial type.

研究分野：原子力材料

キーワード：原子炉圧力容器 照射脆化 銅クラスター

1. 研究開始当初の背景

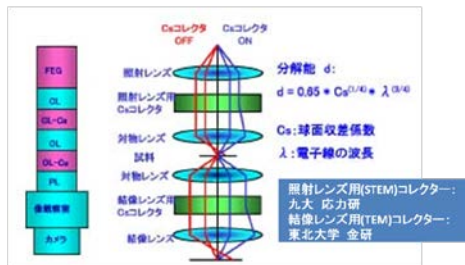
材料照射研究用の原子炉が長期に亘り停止する状況で、既存照射済みの試験片を再利用する必要がある。本研究は、中性子済みの鉄系モデル合金に対して、電子線照射を行い照射前後の組織を TEM 及び STEM-EDS による観察・分析を実施した。

2. 研究の目的

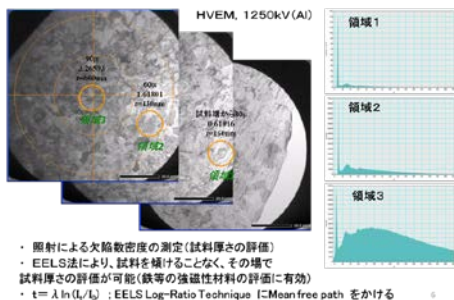
転位ループの性質の判定 (I、V 型) は、照射環境下での、材料挙動の理解するうえで重要である。本研究では、中性子済み試験片の電子線を室温で実施することにより判定した。評価対象として Fe-0.6Cu (06M-4BR, 290°C, $5.0 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$) 合金を用いた。

3. 研究の方法

BR2 にて照射された試料の内部観察には、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内に設置された 200kV の TEM と九州大学病院地区 RI センター内に設置した収差補正機能付き電子顕微鏡 (ARM200 FC) を利用した。電子顕微鏡はレンズを用いて結像する装置であり、電子線の波長と各種のレンズの球面収差により像の分解能が決まる。レンズの収差は電気的に補正が可能で、どのレンズに補正機能を付加させるかで顕微鏡の特性が変わる (下図参照)。



RI センターに設置された電子顕微鏡は、1) 照射レンズに補正機能。2) 電子線源として冷陰極タイプを採用することにより、ビームの集束機能とエネルギー分解能を高めている。分析機能としては、Energy Dispersive Spectroscopy (EDS) 並びに Electron Energy Loss Spectroscopy (EELS) 機能があり、固体・金属材料の精密観察並びに低元素からの成分分析、極微小領域における元素マッピングが可能である。高経年化炉の寿命評価には、これらクラスターのサイズと数密度の評価が不可欠であり、これには EELS による測定方法を用いた。これにより試料を傾けることなくその場での膜厚測定が可能となった。



・ 照射による欠陥数密度の測定 (試料厚さの評価)
 ・ EELS法により、試料を傾けることなく、その場で試料厚さの評価が可能 (鉄等の強磁性材料の評価に有効)
 ・ $t = \lambda \ln(I_0/I_t)$: EELS Log-Ratio Technique に Mean free path をかける

4. 研究成果

(1) 電子線照射前観察

これまでの知見から、高フルエンス領域 ($5.0 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$) では、下図に示す様にモデル合金 (Fe-0.6Cu) や 0.19wt%Cu% 程度の銅を含む材料 (A533B(B)) では、銅クラスターに加え高密度の格子間原子型の転位ループが観察されている。

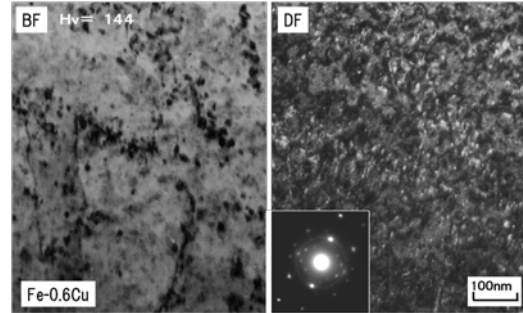


図1 Fe-0.6Cu の内部組織 (転位)

一方、銅クラスターは上で示した転位コントラストでは確認が出来ない。これは、銅クラスター周辺の歪が小さいためである。下の図はブラック条件からずらして撮影したものである。直径 10 ナノメートル程度のクラスターが確認されている。STEM-EDS 法を用いた元素マッピングから銅クラスターの数密度測定方法について考察を行った。モデル合金では、銅クラスターが TEM 法により観察出来ることを利用して、Fe-0.6Cu 合金の銅クラスターの数密度とサイズを測定する。次に、STEM-EDS の結果より銅の定量分析を行い、クラスター数密度が TEM によって得られた数密度とほぼ一致するように銅濃度に対する閾値を求めた。

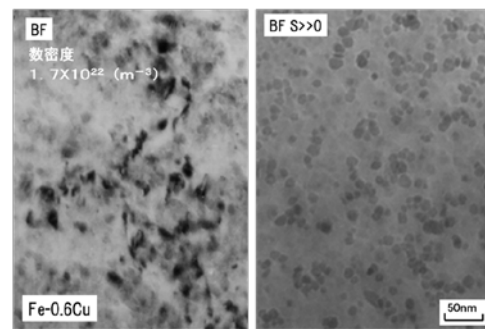


図1 Fe-0.6Cu の内部組織 (S>>0)

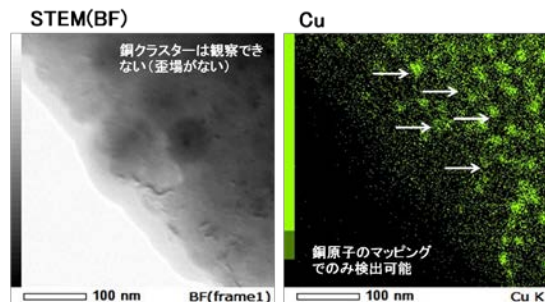


図2 STEM-RDS によるマッピング (銅)

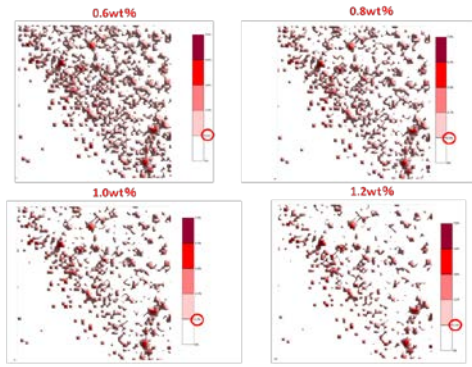


図3 クラスタ解析 (Fe-0.6Cu)

(2) 電子線照射後観察

本研究に用いる超高压電子顕微鏡は管理区域外に設置されている。中性子照射済み試験片は放射性物質であるため持ち出しには特別の許可が必要となる。本研究では、電子線照射に先立ち、原子力規制庁に下限数量の申請を行い、平成24年12月に許可を得た。その後、学内内規の整備を行い、平成25年6月に完了して実験を開始した。また、申請にはRI登録施設と持ち出し場所が同一敷地内(事業所内)であることが必要であり、事業所境界の見直しを実施した(下図参照)。



図4 申請の為の事業所境界の設定

以上の経緯を経て、上記の Fe-0.6Cu 合金の電子線照射を室温にて実施した。これは同合金の室温で空孔がほとんど移動しない現象を利用して、中性子照射済みの試験片に電子線照射した結果、中性子照射で形成されたほとんどの転位ループのサイズが増加し、格子間原子型の転位ループであることが判明した(下図参照)。

また、以上の成果を下記の国際会議で発表した。“Radiation Induce Hardening of A533B under Neutron Irradiation” H. Watanabe, T. Tanaka, Y. Kamada, 4th Nuclear Materials Conference, NuMat2016, Montpellier, France (平成28年11月8日)

以上の手法を実用合金にも適応する。これまで判別が不可能であった実用合金中に形成されるクラスターに応用することを今後検討する予定である(図6-7)。

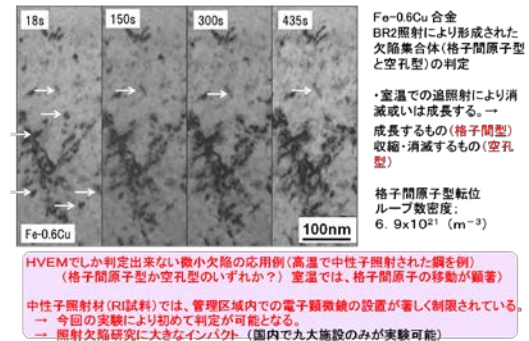


図5 電子線の追照射 (室温)

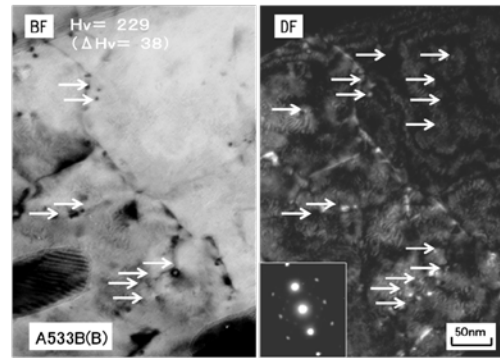


図6 A533B の内部組織

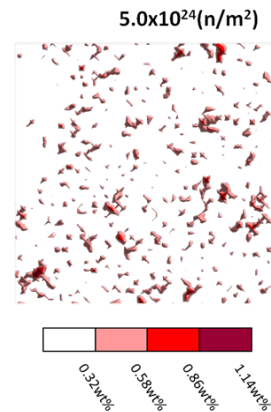


図7 銅クラスター解析(A533B)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① H. Watanabe, T. Muroga, T. Nagasaka, “Effects of Irradiation Environment on V-4Cr-4Ti Alloys”, Plasma and Fusion Research: Regular Articles, Vo.12(2017) 2405011-1-5, 査読有
DOI: 10.1585/pfr.12.2405011
- ② H. Watanabe, A. Arase, T. Yamamoto, P. Wells, T. Onishi, G. R. Odette, “Hardening and Microstructural Evolution of A533B Steels Irradiated with Fe Ions and Electrons” Journal of Nuclear Materials 471(2016) 243-250, 査読有
DOI: 10.1016/j.nuclmat.2015.12.045

[学会発表] (計 19 件)

- ① 相原雄太、鎌田康寛、村上武、小林悟、渡邊英雄、クラッド付き原子炉圧力容器鋼の磁気特性、日本金属学会 2017 年春期講演大会、平成 29 年 3 月 15 日、首都大学東京南大沢キャンパス (東京都八王子市)
- ② 佐久間幸城、渡邊英雄、鎌田康寛、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、日本原子力学会九州支部講演会、平成 28 年 12 月 3 日、九州大学筑紫キャンパス (福岡県春日市)
- ③ 鎌田康寛、諸武煥、J. N. Mohapatra、村上武、小林悟、渡邊英雄、中性子照射および熱時効した FeCr 合金の微細組織と硬度および磁気ヒステリシス特性の関係、第 25 回 MAGDA コンファレンス、平成 28 年 11 月 24 日、桐生市市民文化会館 (群馬県桐生市)
- ④ H. Watanabe, T. Tanaka, Y. Kamada, Radiation Induce Hardening of A533B under Neutron Irradiation, 4th Nuclear Materials Conference, NuMat2016、平成 28 年 11 月 8 日、Montpellier, France
- ⑤ Y. Kamada, M. Je, J.N. Mohapatra, T. Murakami, S. Kobayashi, H. Watanabe, Effect of Pre-deformation on Microstructures, Hardness, and Magnetic Properties of Thermally Aged Fe-Cr Binary Alloys, 4th Nuclear Materials Conference, NuMat2016、平成 28 年 11 月 8 日、Montpellier, France
- ⑥ Y. Kamada, T. Kabutomori, J. N. Mohapatra, S. Kobayashi, H. Watanabe, Nanoscale-structures and Magnetic Properties of Neutron and Ion irradiated Fe-Cr Binary Alloys, 4th Nuclear Materials Conference, NuMat2016、平成 28 年 11 月 7 日、Montpellier, France
- ⑦ 鎌田康寛、村上武、小林悟、菊池弘昭、渡邊英雄、電子線照射した純鉄の照射欠陥と磁壁の直接観察、日本金属学会 2016 年秋期講演大会、平成 28 年 9 月 22 日、大阪大学豊中キャンパス (大阪府豊中市)
- ⑧ 諸武煥、鎌田康寛、村上武、小林悟、渡邊英雄、Fe-20%Cr 合金の硬度と磁気特性に与える中性子照射と熱時効の影響、日本金属学会 2016 年秋期講演大会、平成 28 年 9 月 21 日、大阪大学豊中キャンパス (大阪府豊中市)
- ⑨ 渡邊英雄、鎌田康寛、収差補正電子顕微鏡を用いた放射性材料の分析、第 11 回核融合連合講演会、平成 28 年 7 月 14 日、九州大学伊都キャンパス (福岡県福岡市西区)
- ⑩ 渡邊英雄、低放射性 V 合金の組織発達における照射雰囲気の影響、記念シンポジウム” エネルギー社会における材料の役割~最新の成果と展望、平成 28 年 1 月 29 日、北海道大学 (北海道札幌市)
- ⑪ H. Watanabe, T. Nagasaka, T. Muroga, Environmental Effects on V-4Cr-4Ti Alloy during Irradiation, The 25th International Toki Conference、平成 27 年 11 月 3 日、セラトピア土岐 (岐阜県土岐市)
- ⑫ T. Muroga, H. Watanabe, T. Miyazawa, T. Nagasaka, Microstructural and Microchemical Evolution of V-4Cr-4Ti under Heavy Ion Irradiation, The 25th International Toki Conference、平成 27 年 11 月 3 日、セラトピア土岐 (岐阜県土岐市)
- ⑬ T. Okano, H. Watanabe, Naoaki Yoshida, H. Kurishita, Effects of Hydrogen and Helium on Heavy Ions Irradiation Damage in Nanostructured Tungsten, ICFRM-17、平成 27 年 10 月 12 日、Eurogress Aachen, Germany
- ⑭ T. Muroga, T. Miyazawa, T. Nagasaka, H. Watanabe, Correlation of Microstructural Evolution in V-4Cr-4Ti by Heavy and Neutron Irradiation, ICFRM-17 平成 27 年 10 月 12 日、Eurogress Aachen, Germany
- ⑮ H. Watanabe, T. Miyazawa, T. Nagasaka, T. Muroga, The Microstructure and Hardness Changes of Y Doped V-4Cr-4Ti Alloys After Neutron Irradiation, ICFRM-17、平成 27 年 10 月 12 日、Eurogress Aachen, Germany
- ⑯ 宮澤 健、長坂 琢也、渡邊英雄、重イオン及び中性子照射による V-4Cr-4Ti 合金の組織発達と照射相関、日本金属学会 2015 年秋期講演大会 (第 157 回)、平成 27 年 9 月 17 日、九州大学伊都キャンパス (福岡県福岡市西区)
- ⑰ 鎌田康寛、兜森 達彦、諸 武煥, J. n. Mohapatra, 小林 悟, 渡邊英雄、Fe-20%Cr 合金の硬度と磁気特性に与える熱時効と中性子照射の影響、日本金属学会 2015 年秋期講演大会 (第 157 回)、平成 27 年 9 月 17 日、九州大学伊都キャンパス (福岡県福岡市西区)
- ⑱ 渡邊英雄、鎌田康寛、大西 隆敬、収差補正電子顕微鏡を用いた先進炉材料開発、日本金属学会 2015 年秋期講演大会 (第 157 回)、平成 27 年 9 月 17 日、九州大学伊都キャンパス (福岡県福岡市西区)
- ⑲ H. Watanabe, Analysis of Radiation Induced Nano-cluster in Fe Based Structural Alloys, The 6th International Symposium of Advanced Energy Science ~Towards the Realization of Zero-Emission Energy~, 平成 27 年 9 月 2 日、京都大学宇治キャンパス (京都府宇治市)

[図書] (計 0件)

[その他]

ホームページ等 なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡邊 英雄 (WATANABE Hideo)
九州大学 応用力学研究所 准教授
研究者番号： 90212323

(2) 研究分担者

鎌田 康寛 (KAMADA Yasuhiro)
岩手大学 理工学部 教授
研究者番号： 00294025