

# 平成18年度「敦賀「原子力」夏の学校」

## 「原子力に係る先進的研究開発」

### 中性子照射による材料劣化機構の解明

～最先端分析装置を用いたナノ・スコピックなアプローチ～

(株)原子力安全システム研究所  
技術システム研究所  
高経年化研究センター  
藤井 克彦

# 内 容

## 1. 中性子照射の影響

- 中性子照射による材料の損傷
- 中性子照射による材料の劣化事象

## 2. 原子炉容器鋼の照射脆化機構

トピック:

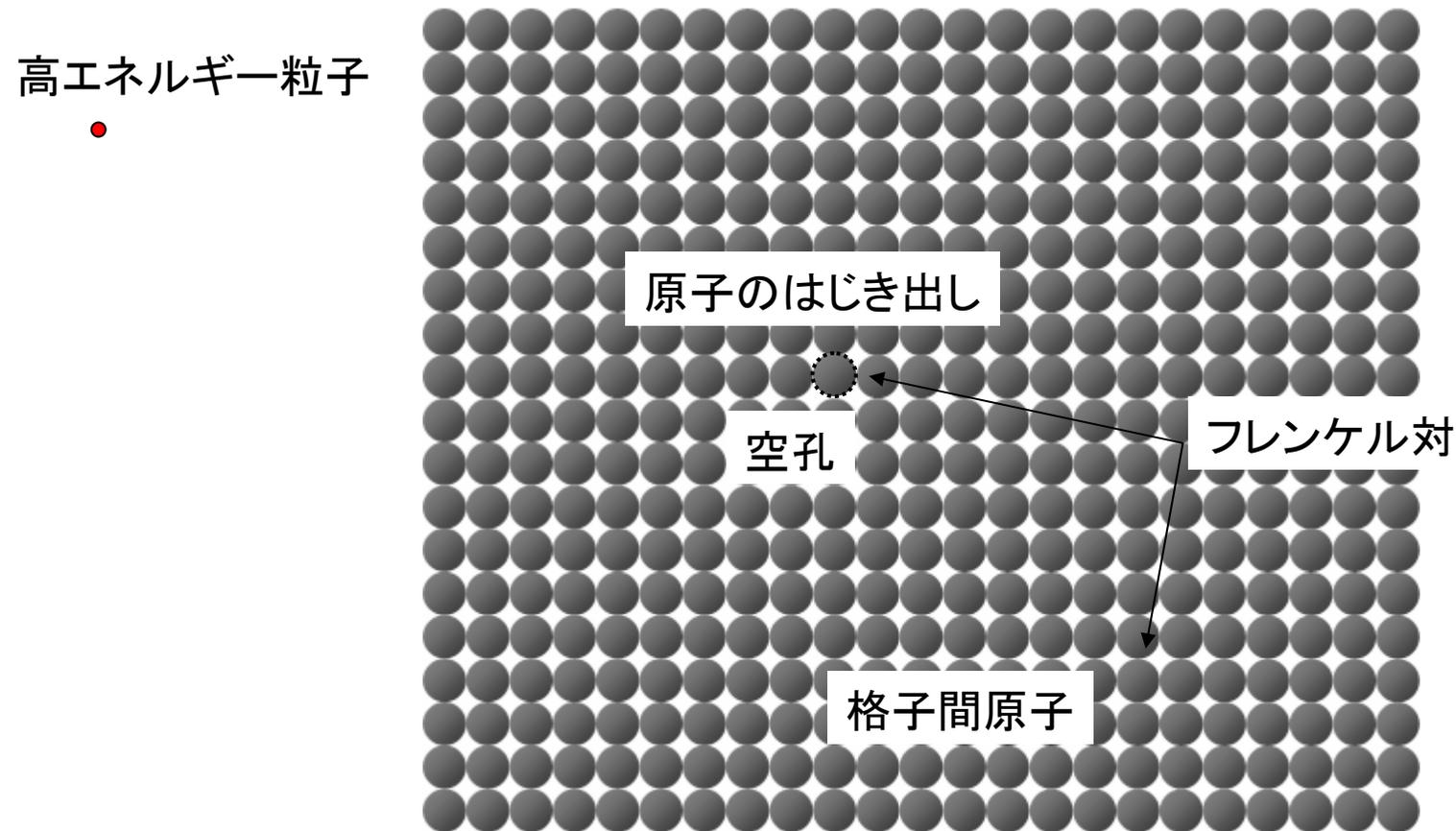
シミュレーション照射(イオン照射)を活用した研究

- 高分解能透過電子顕微鏡
- 3次元アトムプローブ

# 照射損傷形成の基礎課程(1)

## 高エネルギー粒子によるはじき出し損傷

はじき出しによるフレンケル対(空孔+格子間原子)の生成

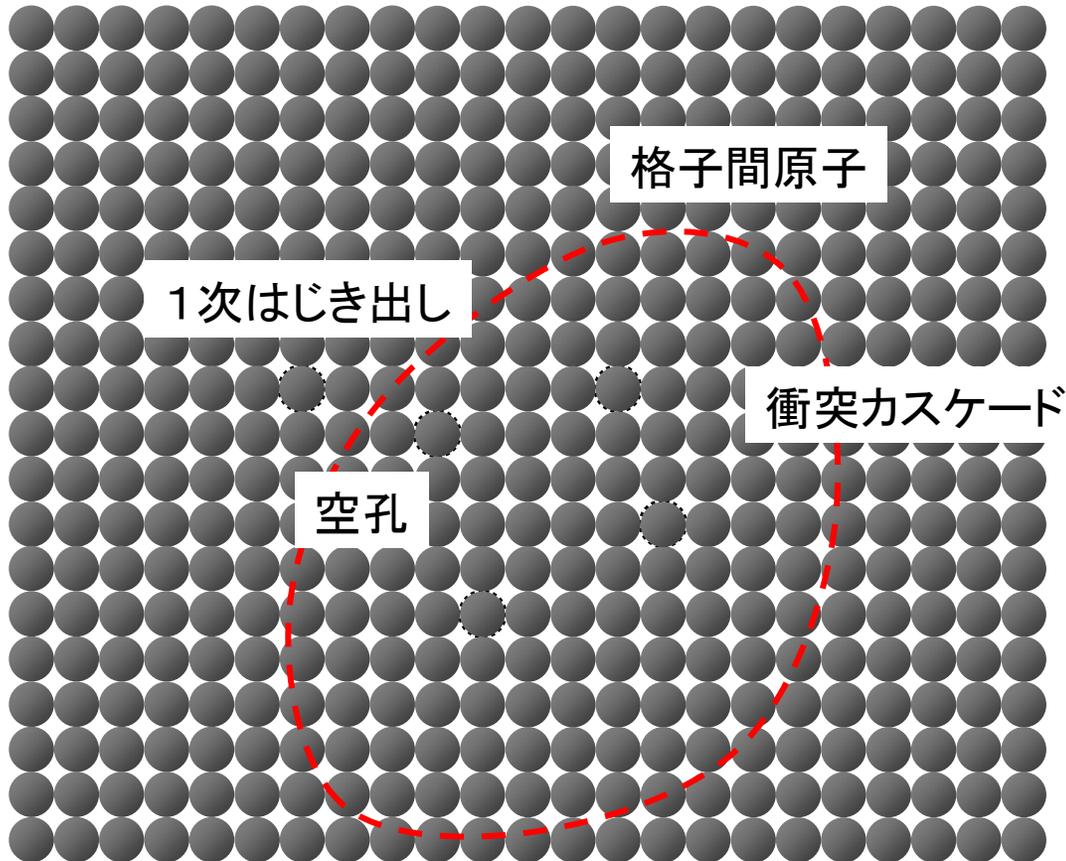


# 照射損傷形成の基礎課程(2)

## 高速中性子によるはじき出し損傷

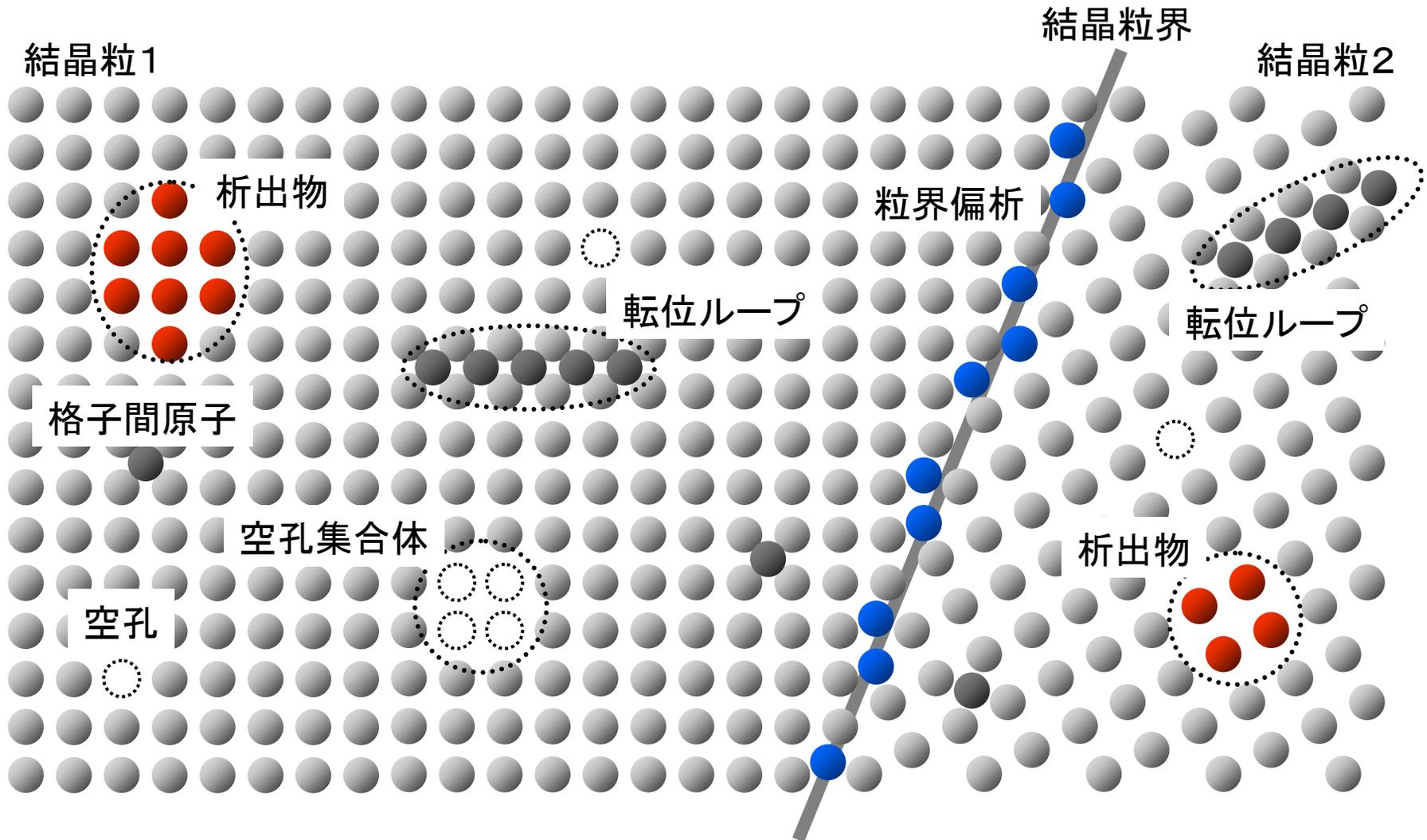
はじき出し衝突の連鎖によるカスケード損傷の形成

高速中性子

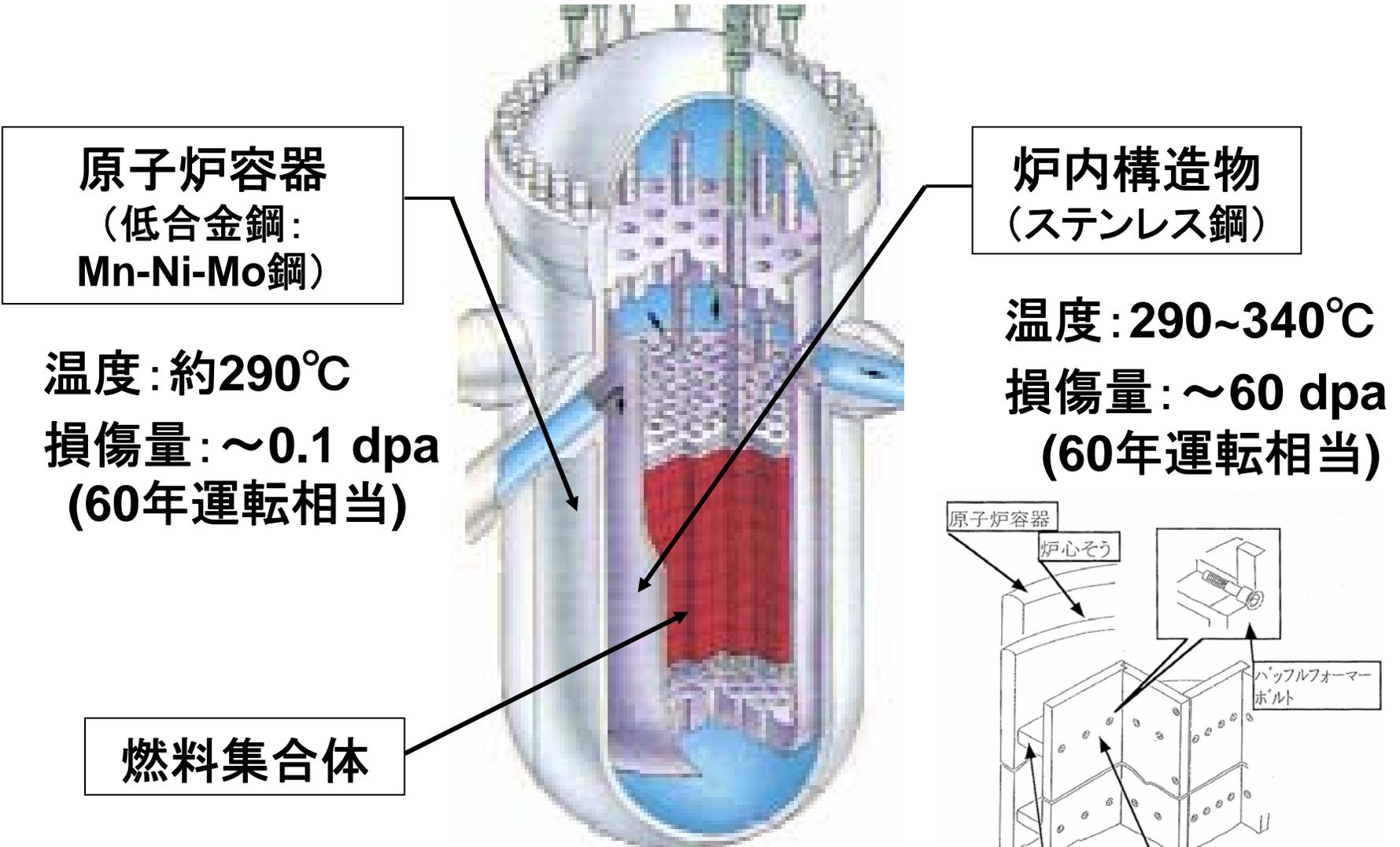


# 照射損傷形成の基礎課程(3)

## 照射による材料内部の組織変化



# 加圧水型原子炉(PWR)構造物と照射環境



dpa: displacement per atom (はじき出し損傷量)  
1 dpa  $\cong$   $1 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>

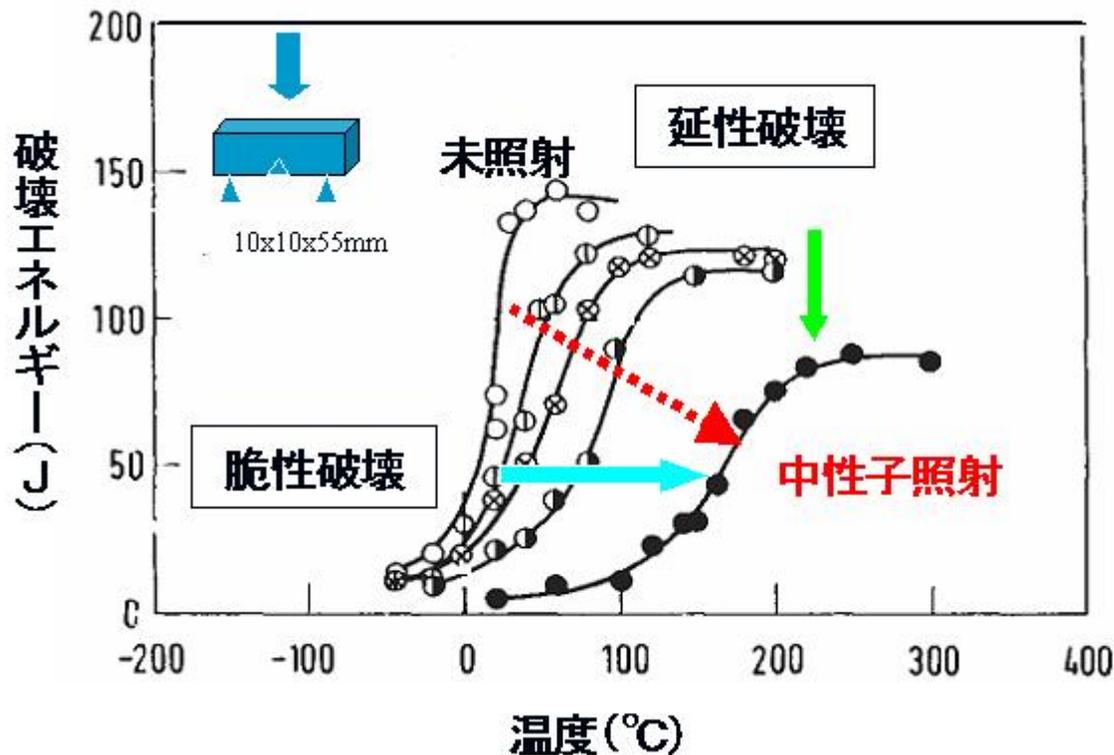
# 高経年化における中性子照射の影響

- ・燃料周辺の構造物は多量の中性子を受け、性質が変化する
- ・高経年化により中性子照射量が増加し、性質変化も大きくなる
- ・性質変化を的確に予測し、評価・点検・対応が必要

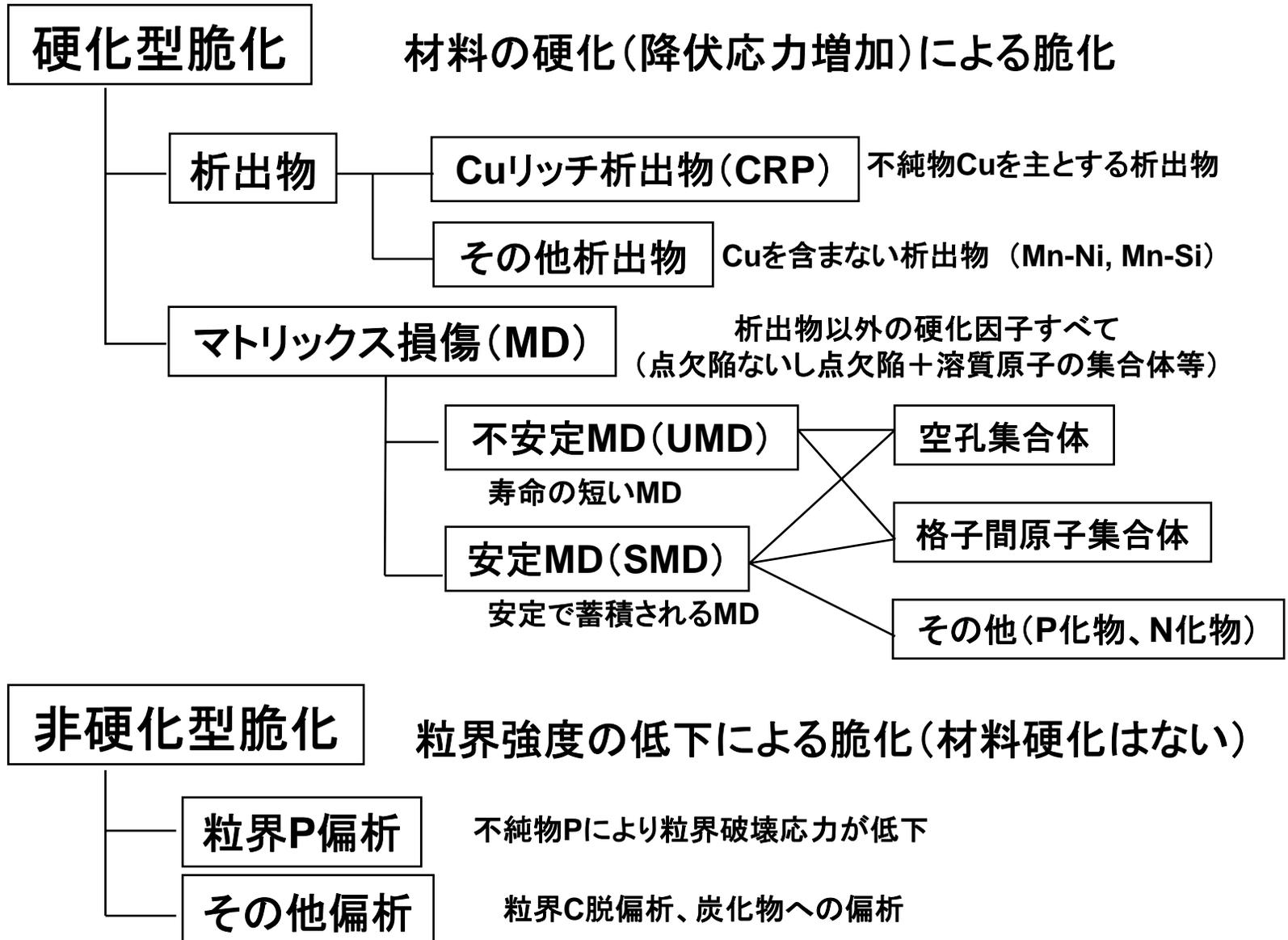
| 機 器               | 照射劣化事象                           |
|-------------------|----------------------------------|
| 原子炉容器<br>(低合金鋼)   | ・照射脆化                            |
| 炉内構造物<br>(ステンレス鋼) | ・照射誘起応力腐食割れ<br>(IASCC)<br>・スエリング |

# 原子炉容器鋼の照射脆化

- ・低合金鋼は低温で脆性破壊を起こす
- ・中性子照射を受けると
  - 脆性破壊する温度が上昇する
  - 破壊のエネルギーが低下する
- ・中性子照射量が増加すると脆化が大きくなる(飽和傾向)

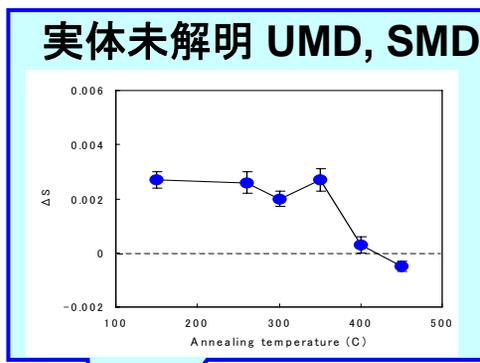
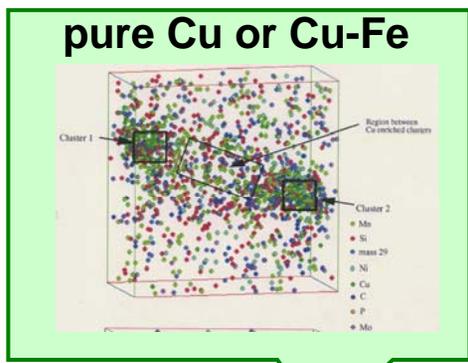


# 照射脆化因子に関する最近の理解



# 照射脆化因子の理解の現状

- ・ Cuリッチ析出物 → 測定でき、ある程度理解されている
- ・ マトリックス損傷 → 低Cu材から寄与がわかるが実体不明
- ・ Late-blooming 相 → 予想がある(Mn-Ni)、実体は不明
- ・ 粒界偏析 → 測定できるが寄与が不明



実体未説明  
Ni-Mn析出物？

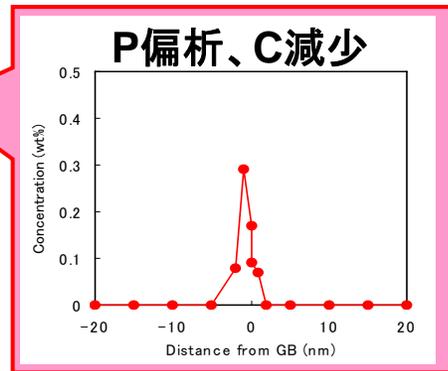
照射脆化

Cuリッチ析出物

マトリックス損傷

Late-blooming 相

粒界偏析



中性子照射量

# 原子力安全システム研究所の取組み

## 実機材料の劣化メカニズムの解明

### 内容

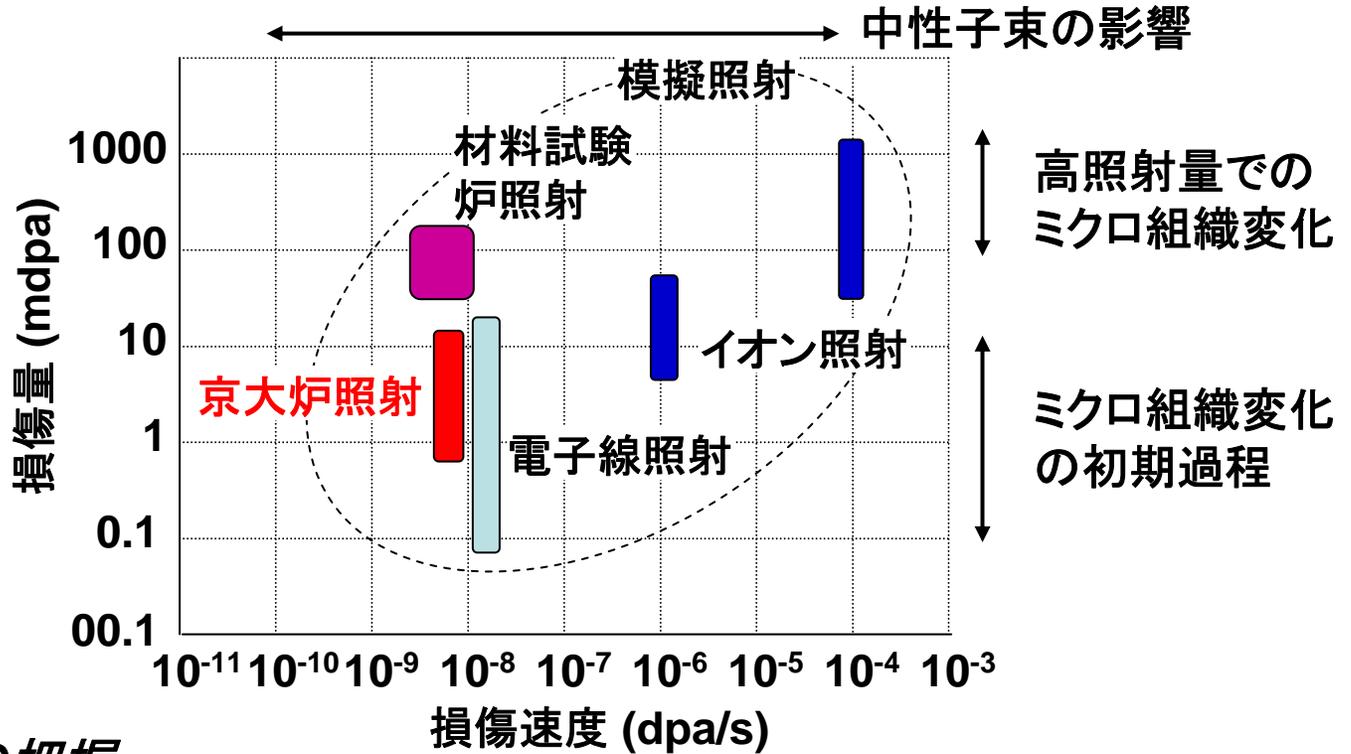
- ・ 材料中でおこるミクロ組織の変化の把握
- ・ その変化が材料劣化を引き起こす過程の解明
- ・ 変化と劣化を記述する理論モデルの構築

### 方法

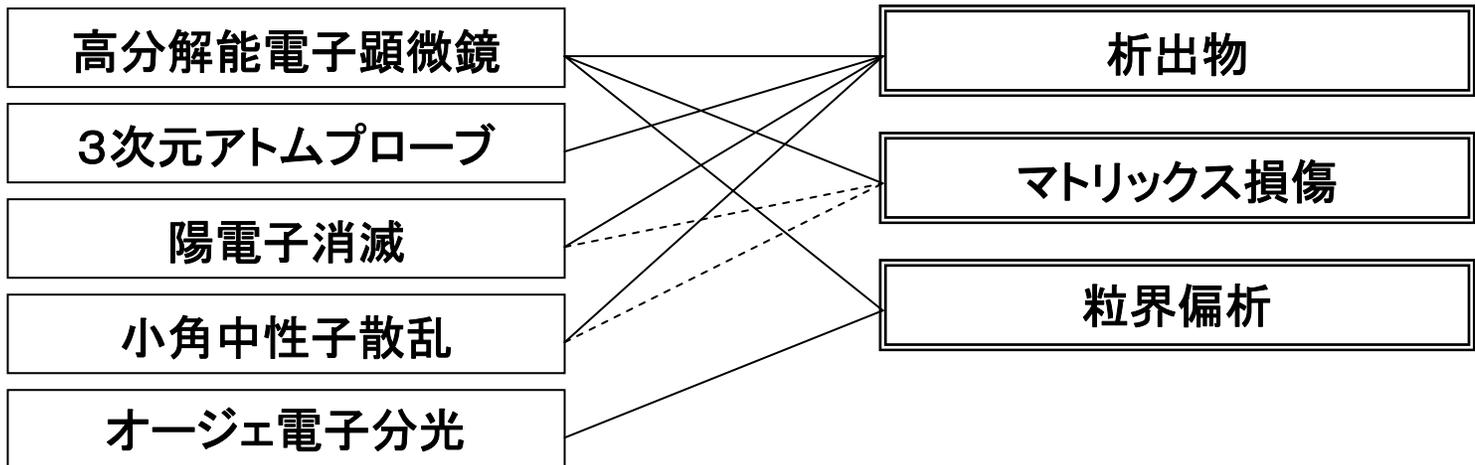
- ・ ナノスケール分析が可能な最先端分析手法  
(アトムプローブ、HRTEM、陽電子消滅等)
- ・ 多様な照射手段の活用  
(イオン照射、電子照射、研究炉照射等)
- ・ 理論モデルによる現象のシミュレーション

# 脆化因子発達の基礎過程の研究

照射条件



脆化因子の把握



# 高照射量でのマイクロ組織変化の把握

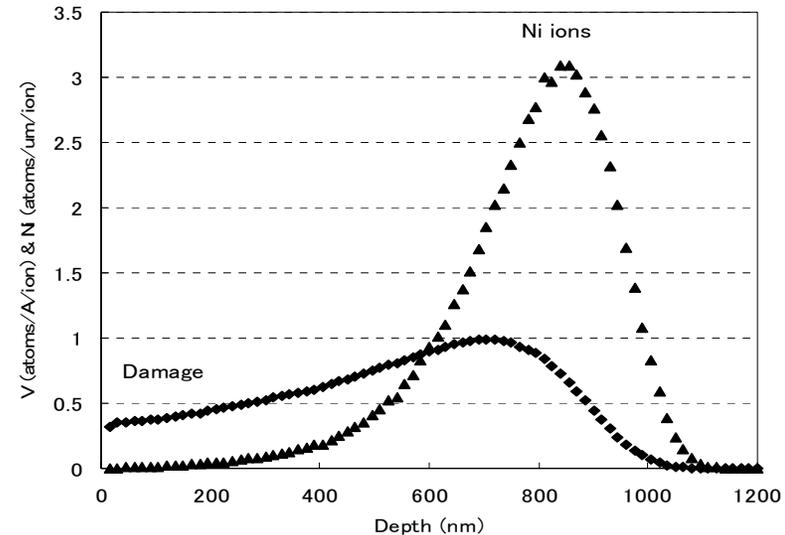
## - 供試材

低Cu A533B鋼

## - イオン照射(温度 290°C)

3MeV Fe<sup>2+</sup>, 1x10<sup>-6</sup>dpa/s, <50mdpa

3MeV Ni<sup>2+</sup>, 1x10<sup>-4</sup>dpa/s, <1000mdpa



## - TEM観察

- 集束イオンビーム(FIB)加工装置による試料作製
- 高分解能透過型電子顕微鏡(HR-TEM)による観察

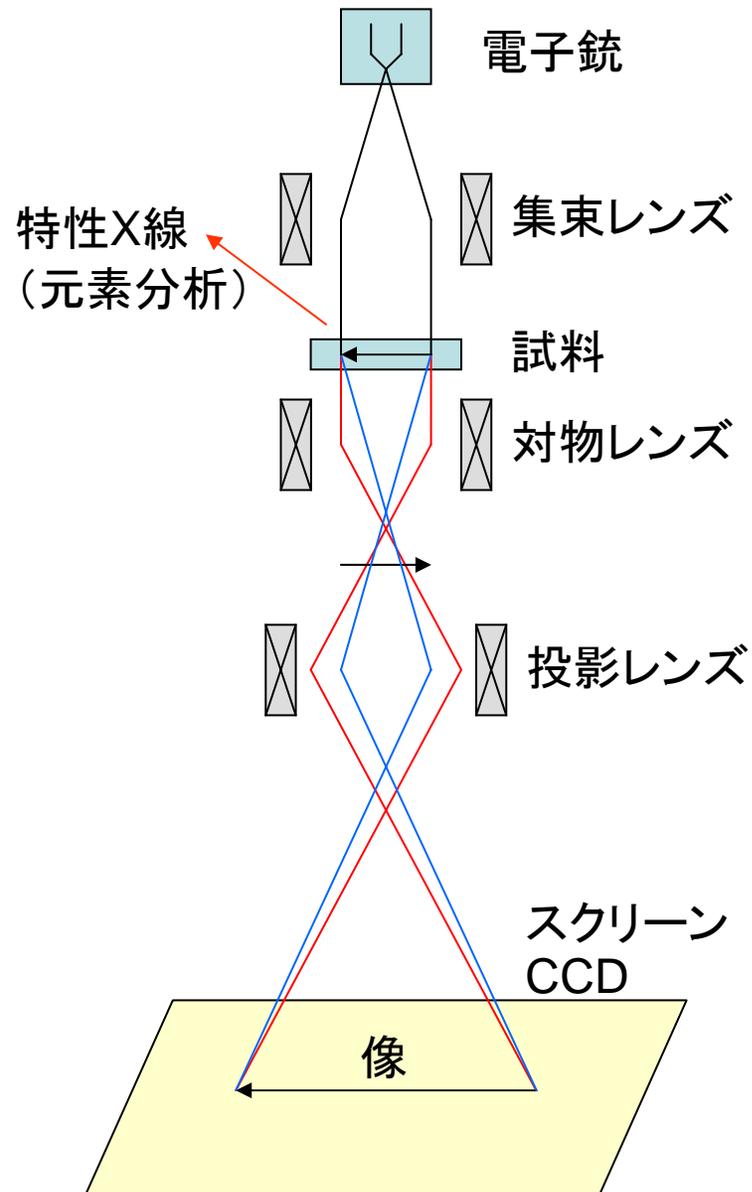
## - アトムプローブ分析

- 集束イオンビーム(FIB)加工装置による試料作製
- 3次元アトムプローブによる分析

# 透過型電子顕微鏡



Hitachi HF-3000



# FIBマイクロサンプリング機構を用いたTEM試料作製法

マイクロ  
サンプリング

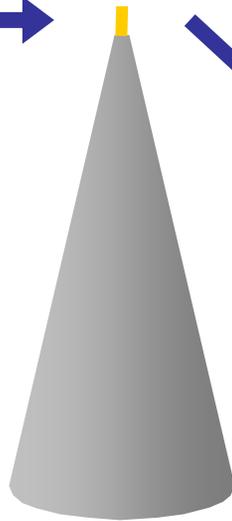
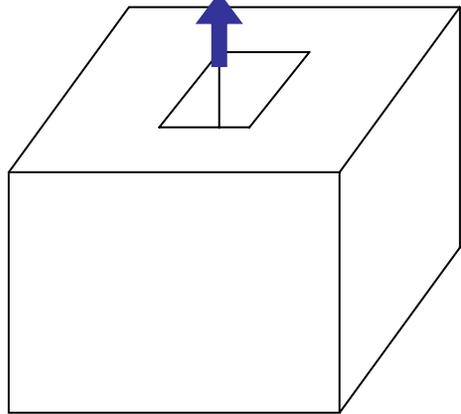
W-ニードル先端  
に取り付け

FIB加工

TEM観察

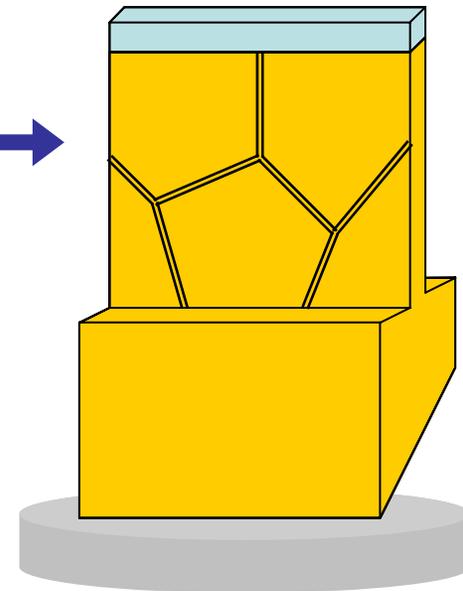
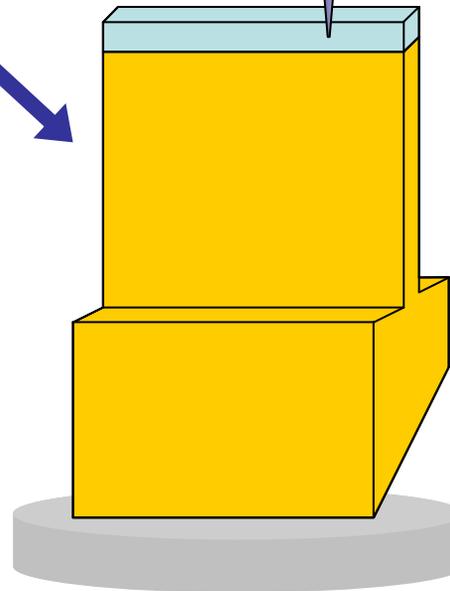
デポ層(保護層)

例えば  
結晶粒界



厚さ:  
100nm程度

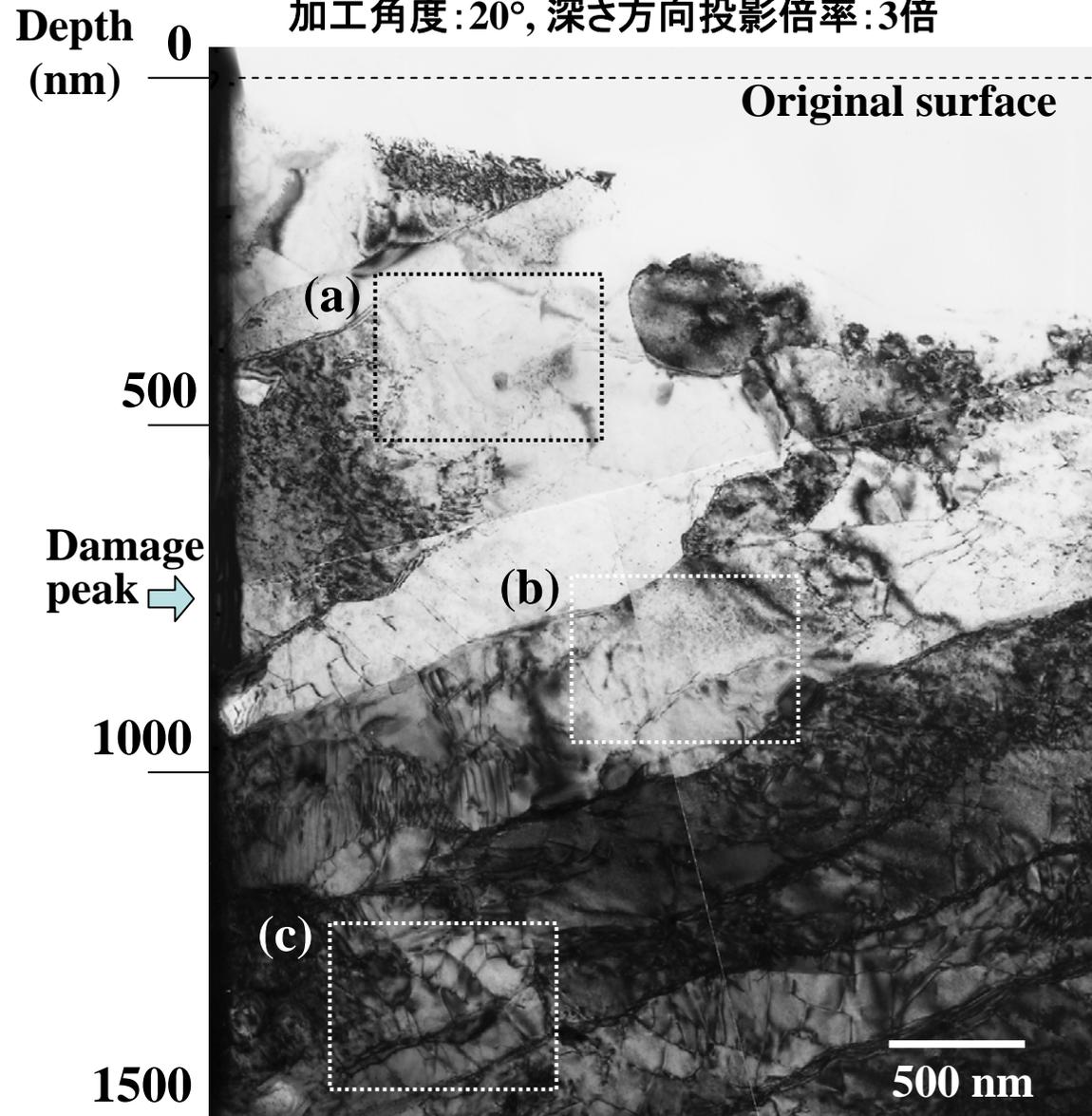
FIB



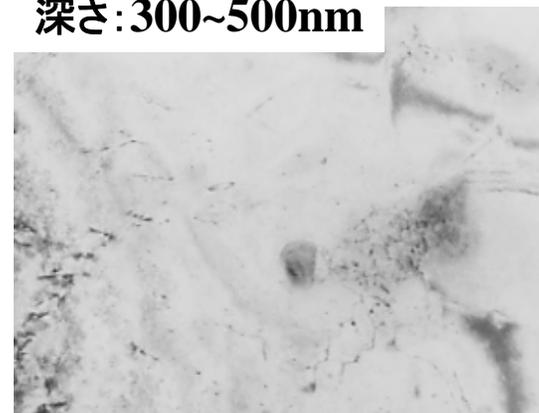
# 断面方向からの組織観察

1000 mdpa 照射試料

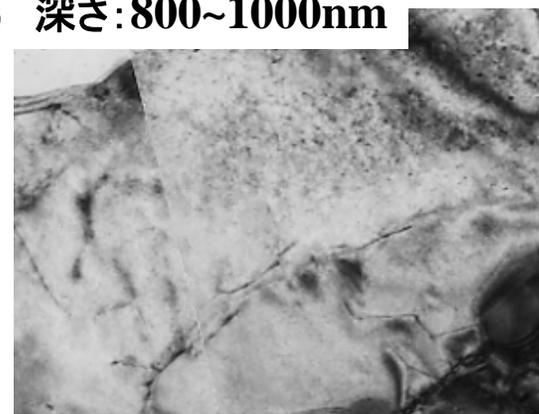
加工角度: 20°, 深さ方向投影倍率: 3倍



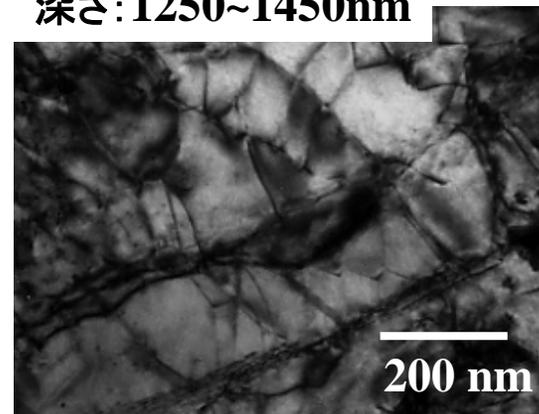
(a) 深さ: 300~500nm



(b) 深さ: 800~1000nm

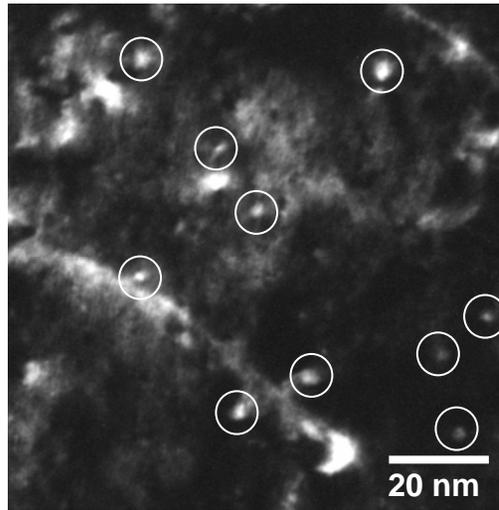


(c) 深さ: 1250~1450nm

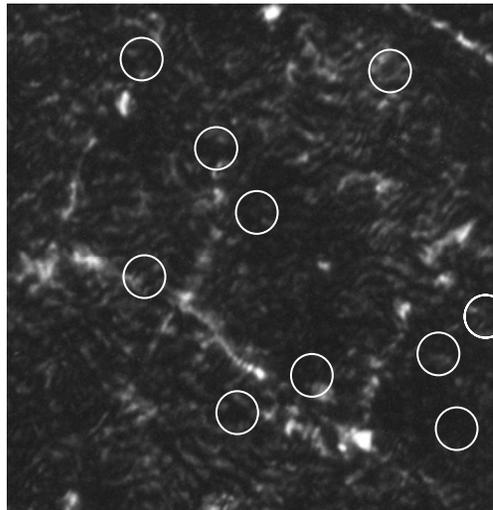


# マトリクス損傷の実体(1)

- $b = a\langle 111 \rangle$  の転位ループが形成
- 照射後焼鈍での変化は小さく、格子間原子型と考えられる

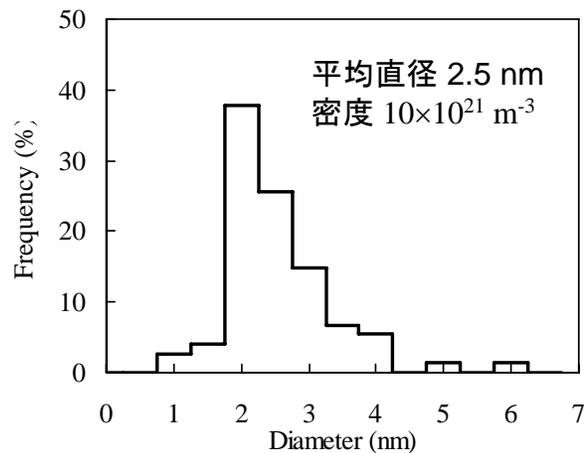


$g = 011$  near  $z = 011$

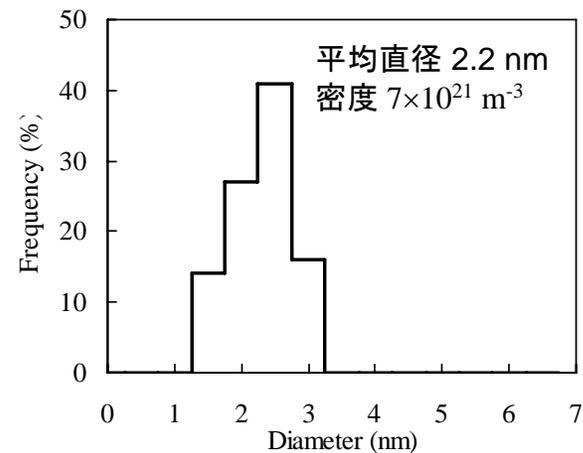


$g = 200$

1000mdpa照射材



照射後焼鈍  
400°Cx30分



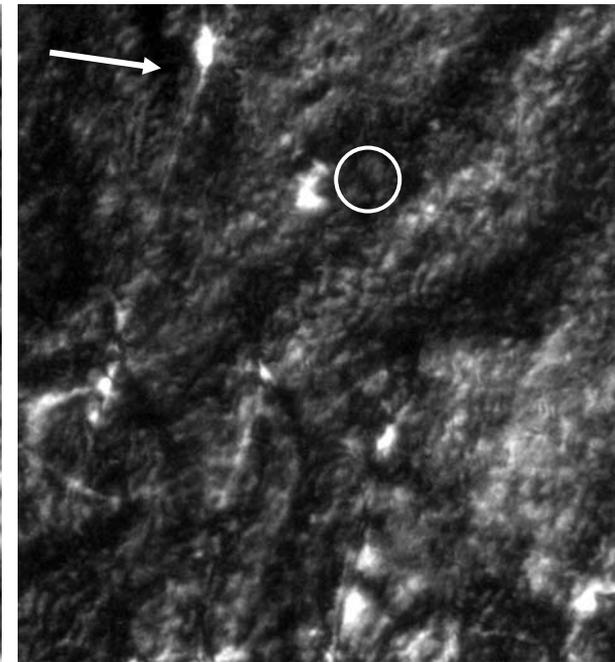
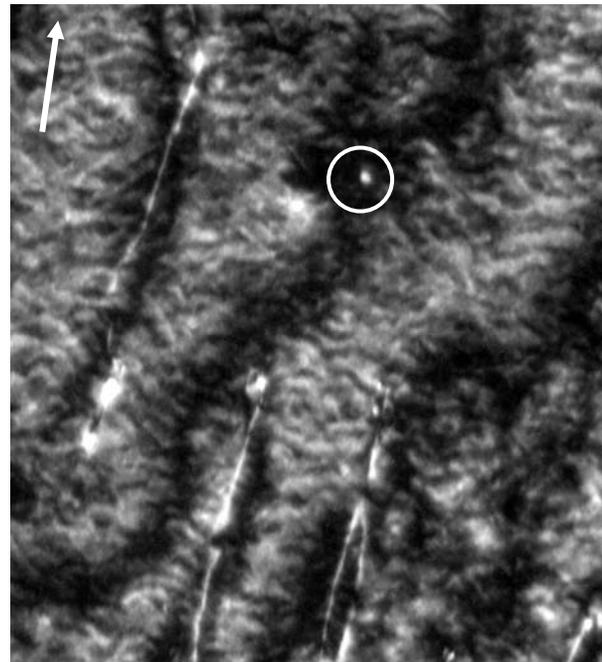
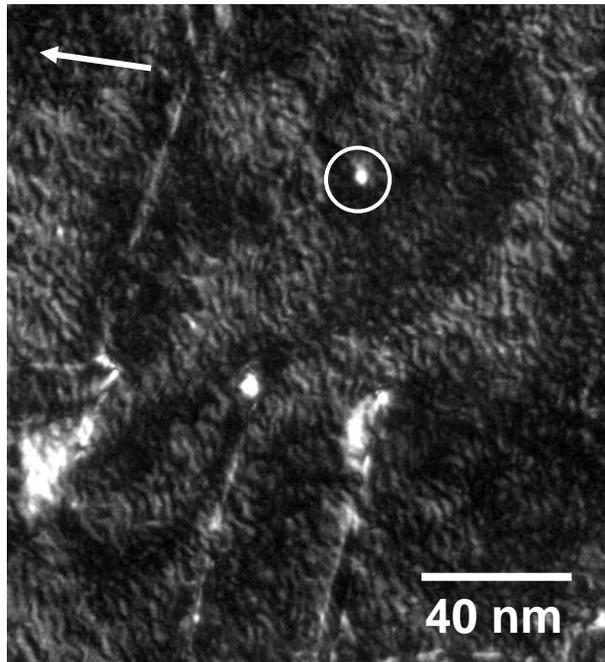
## マトリクス損傷の実体(2)

- 50 mdpaでも転位ループを確認(2 nm,  $3 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ )
- 照射量の増加で密度が増加

$g = 020$  near  $z = 001$

$g = 110$

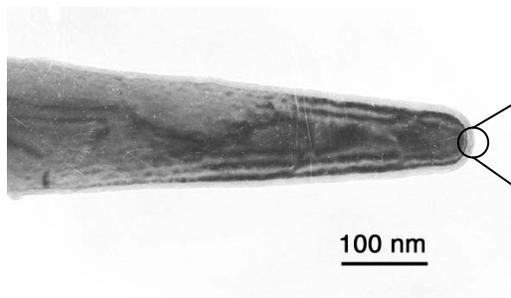
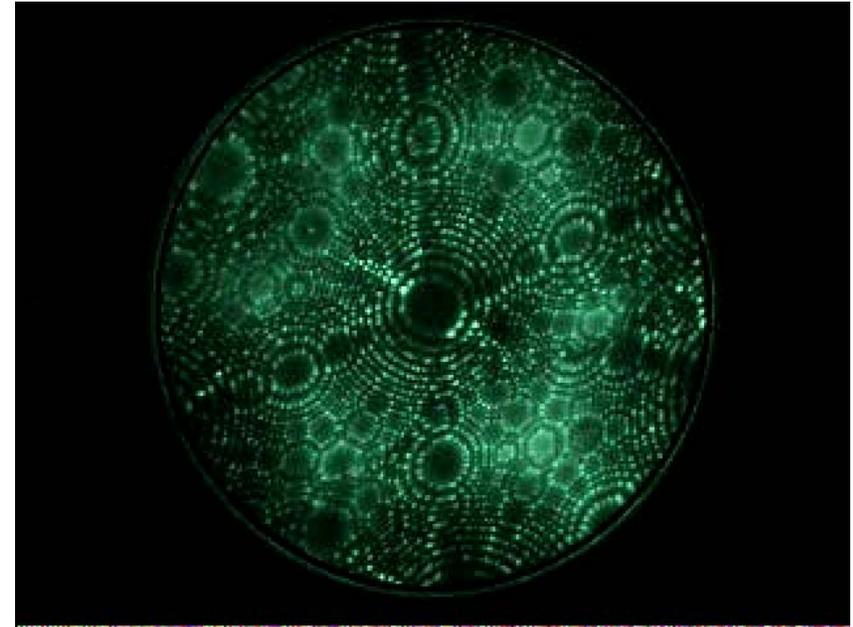
$g = 200$



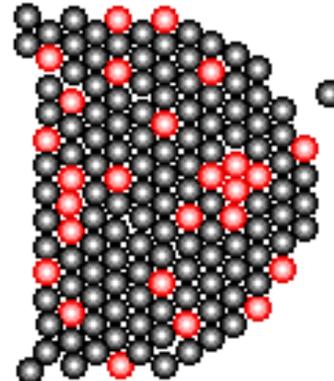
**実用鋼での転位ループ形成をTEMで直接観察した世界初のデータ**

# 3次元アトムプローブ

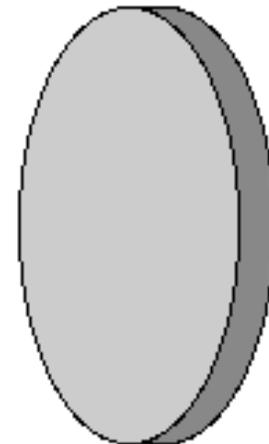
Field ion microscope image



FIM specimen

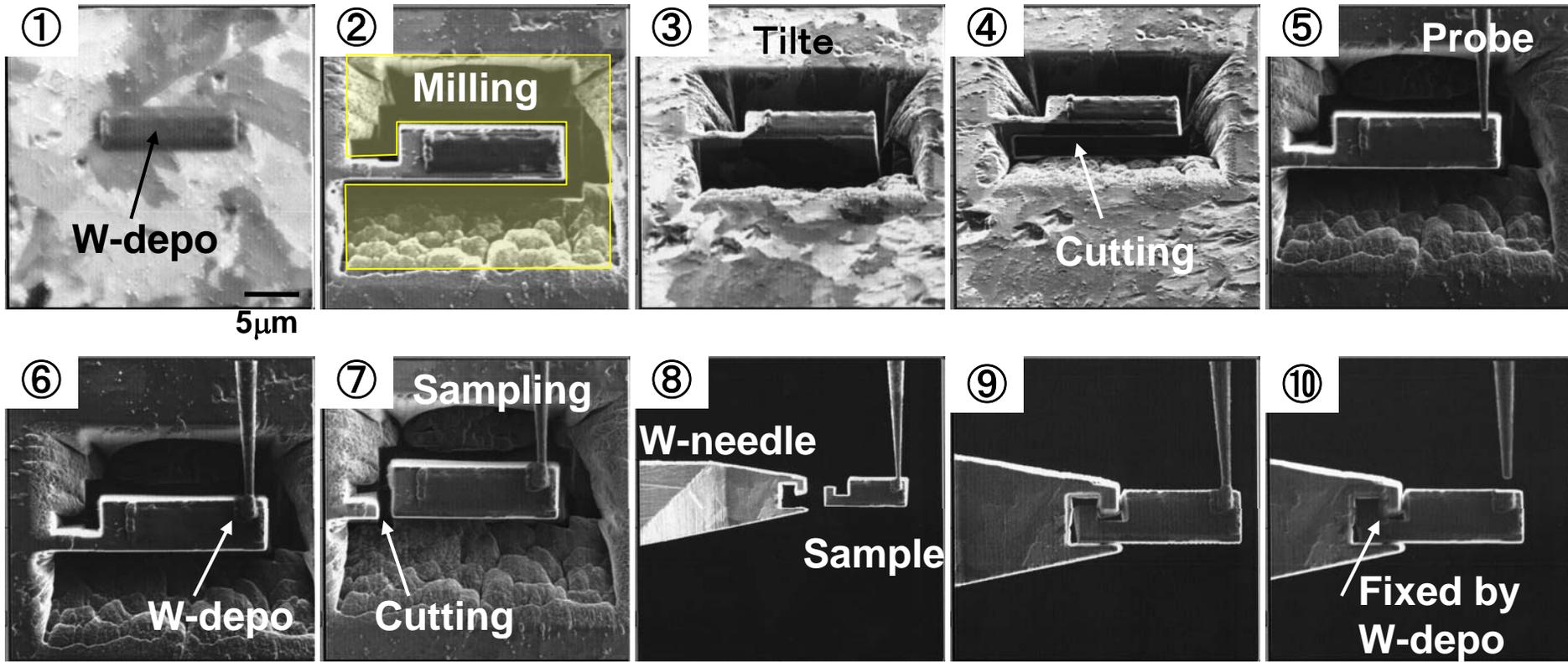


Position sensitive detector



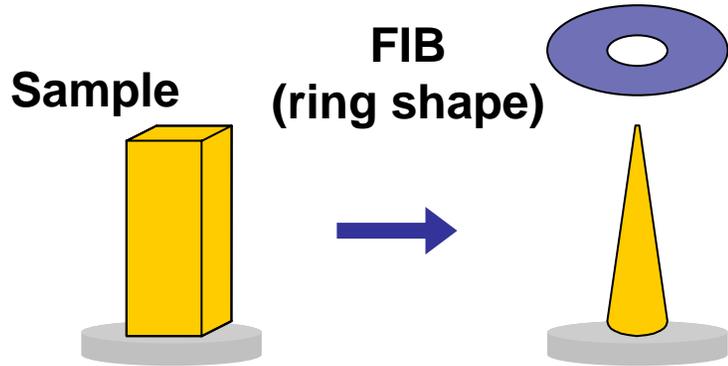
# 集束イオンビーム(FIB)加工による試料作製(1)

## Step 1: FIB micro-sampling

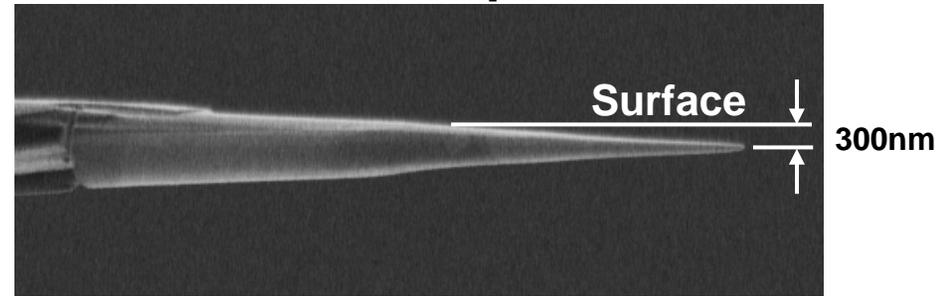


# 集束イオンビーム(FIB)加工による試料作製(2)

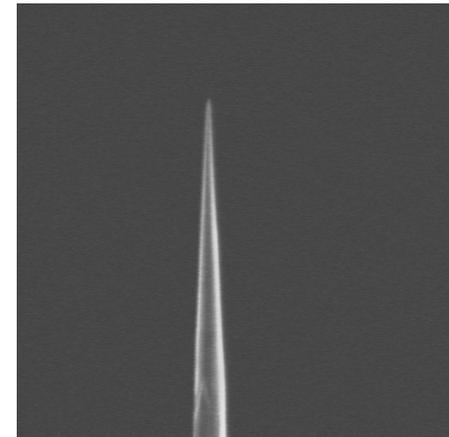
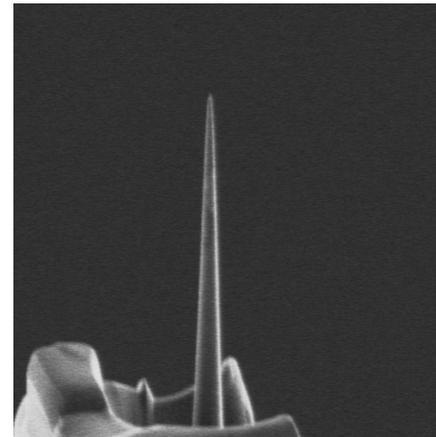
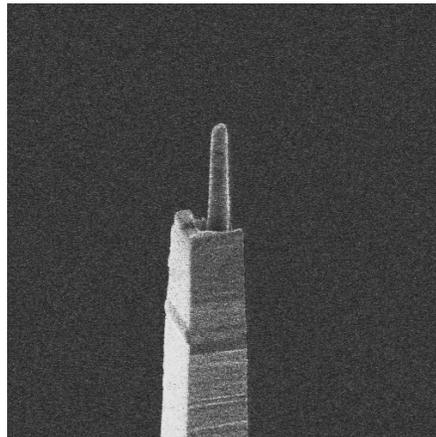
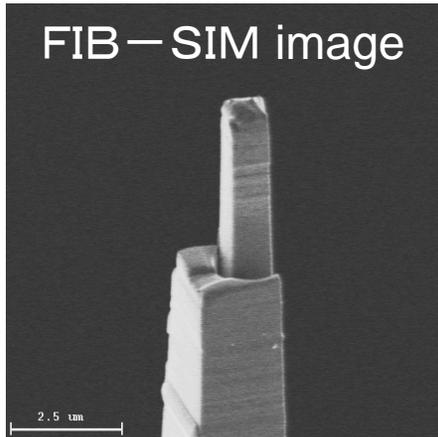
## Step 2: FIB polishing



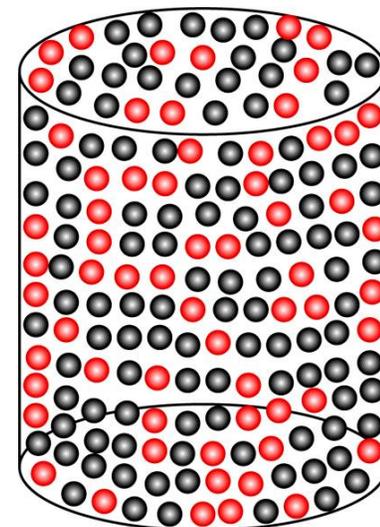
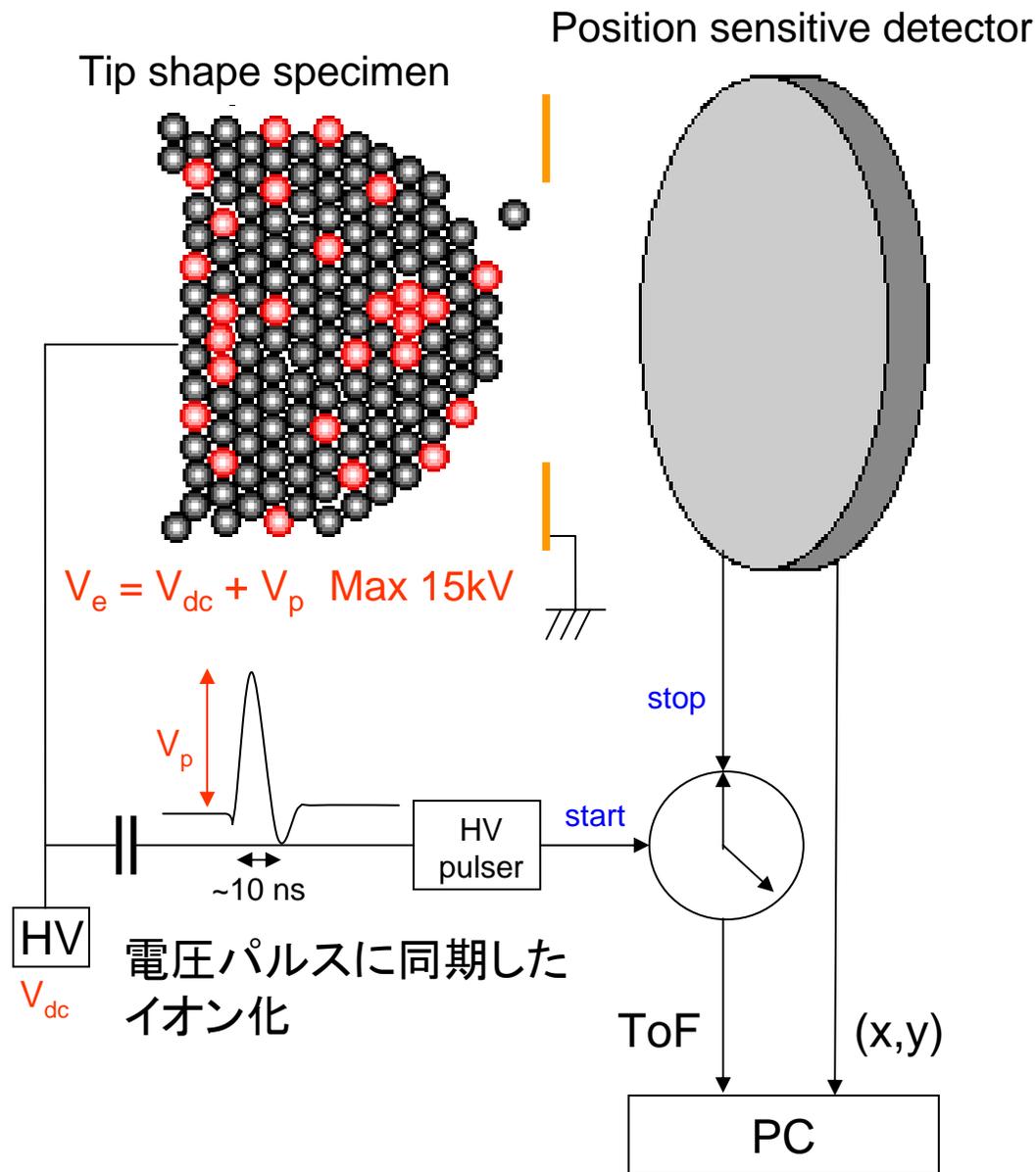
Final shape



FIB - SIM image



# 電圧パルス型3次元アトムプローブ(従来型)

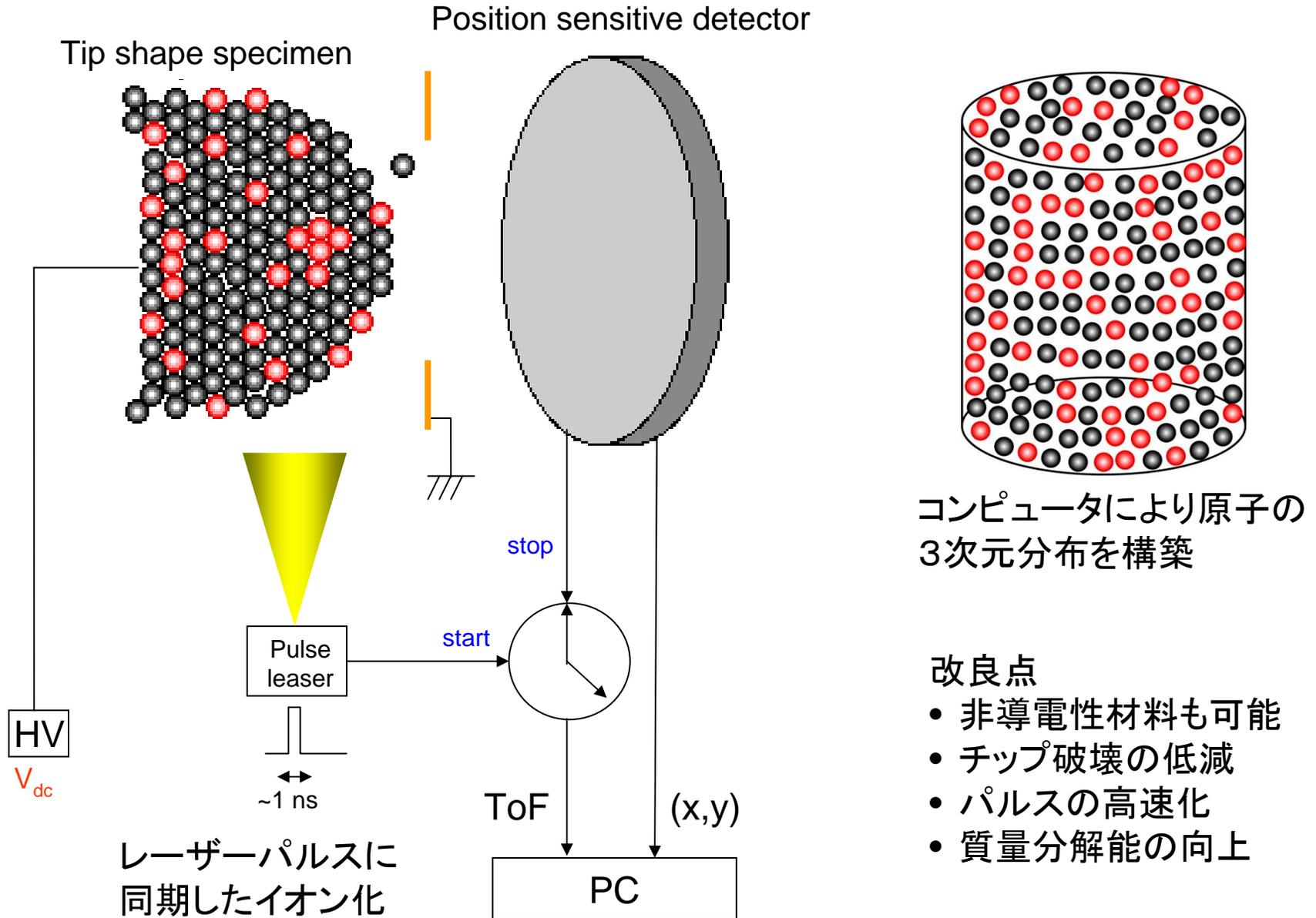


コンピュータにより原子の3次元分布を構築

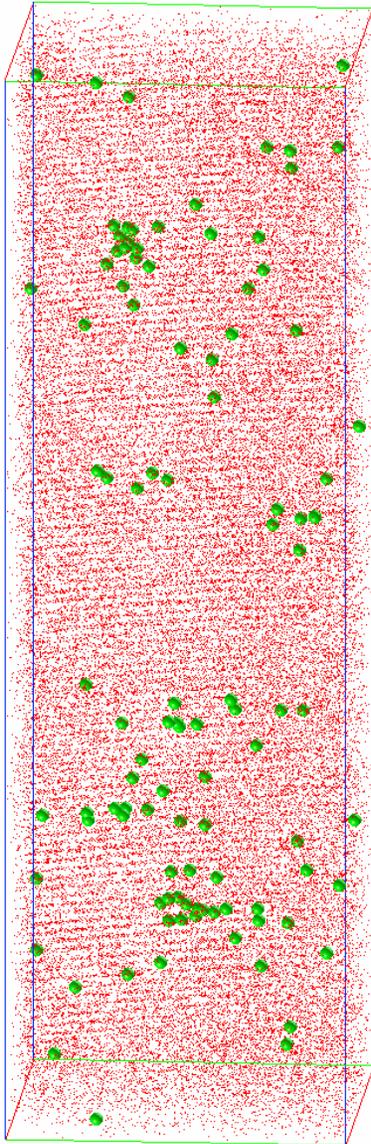
## 問題点

- 導電性材料のみ
- $V_p$ による力  
チップが破壊しやすい
- パルスの高速化の限界

# レーザーパルス型3次元原子プローブ(最新型)

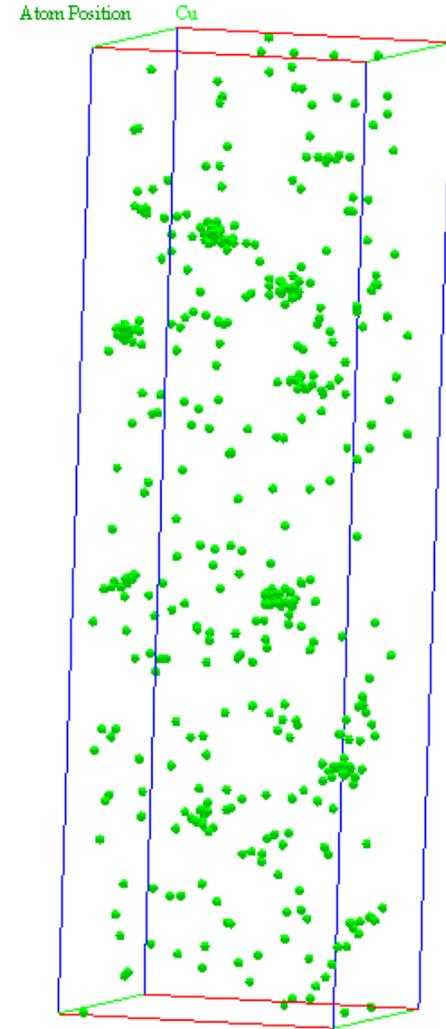


# 3次元アトムプローブ 原子マップ



赤点: Fe原子  
緑点: Cu原子  
(大きく表示)

11 × 11 × 35 nm



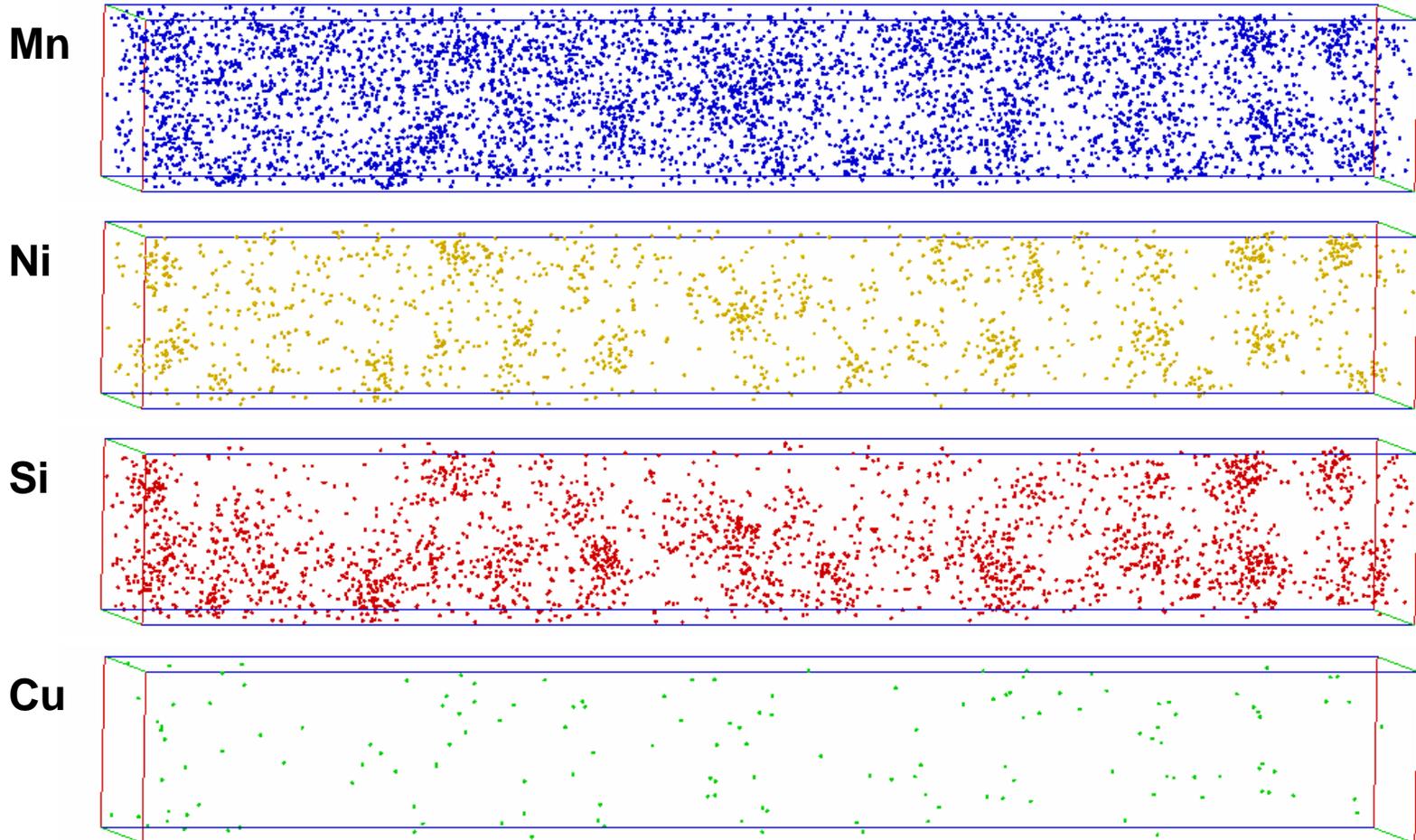
サイズ: 12×14×40 nm

# イオン照射による析出物の形成(1)

Leaser 3DAP analysis

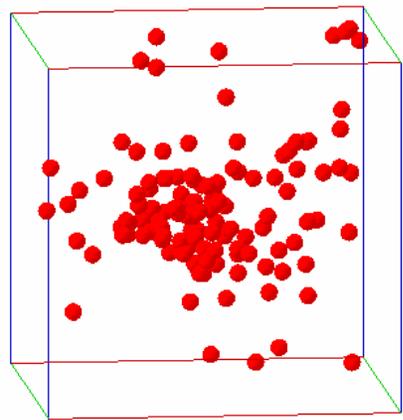
1000 mdpa @ 290°C

Mn/Ni/Siが集積した析出物の形成

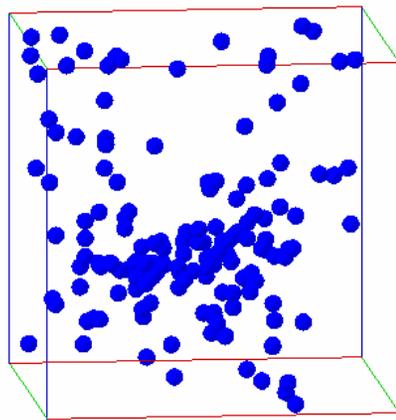


13x13x100 nm

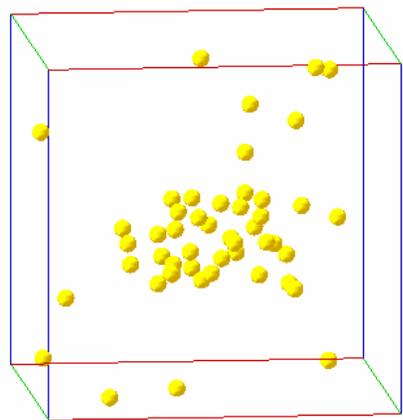
# イオン照射による析出物の形成(2)



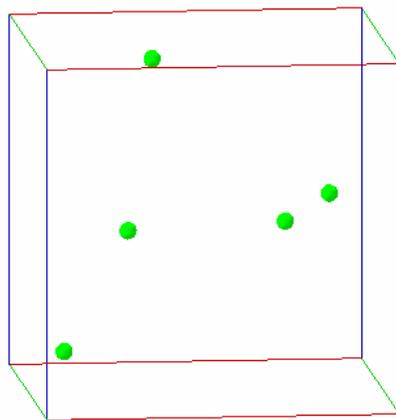
**Si**



**Mn**

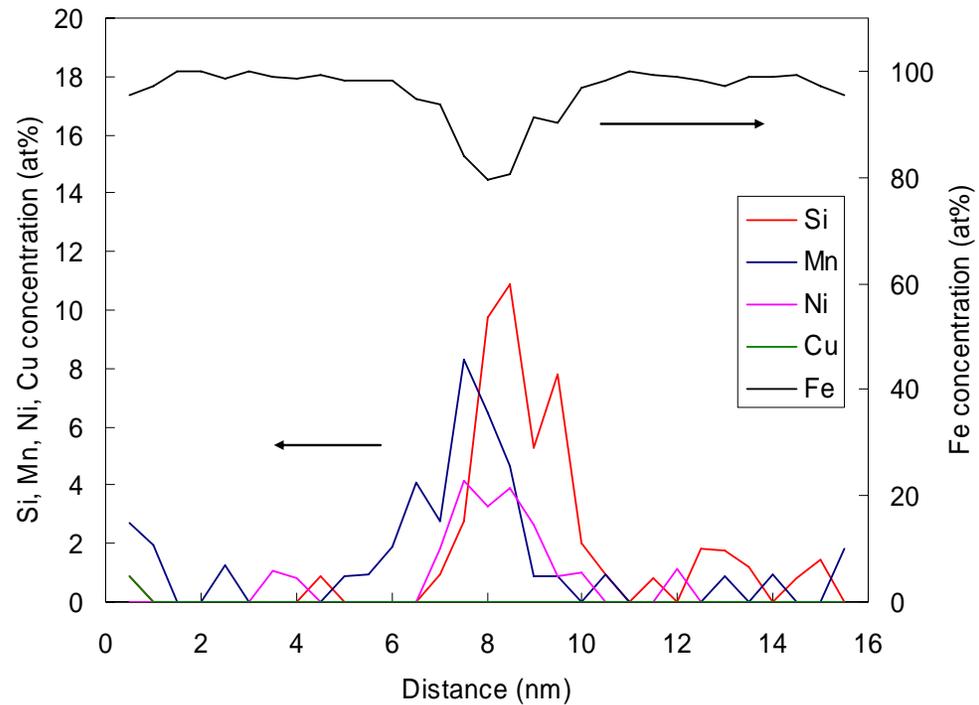
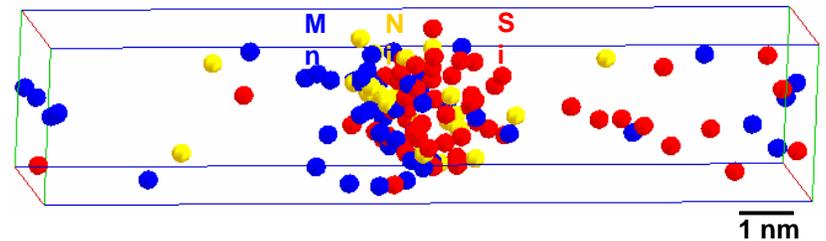


**Ni**



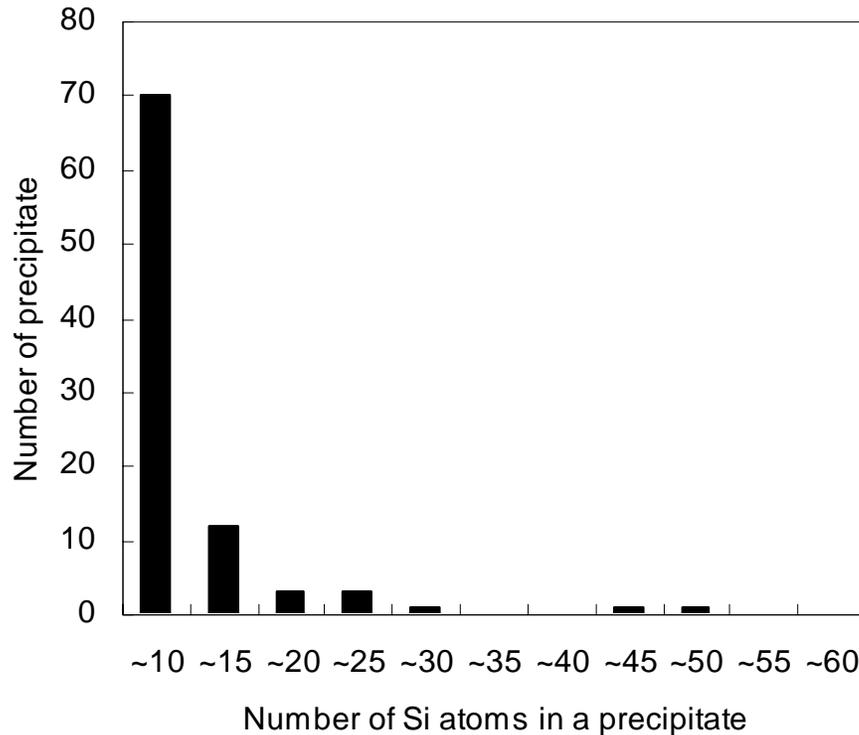
**Cu**

Box size: 8×8×8 nm

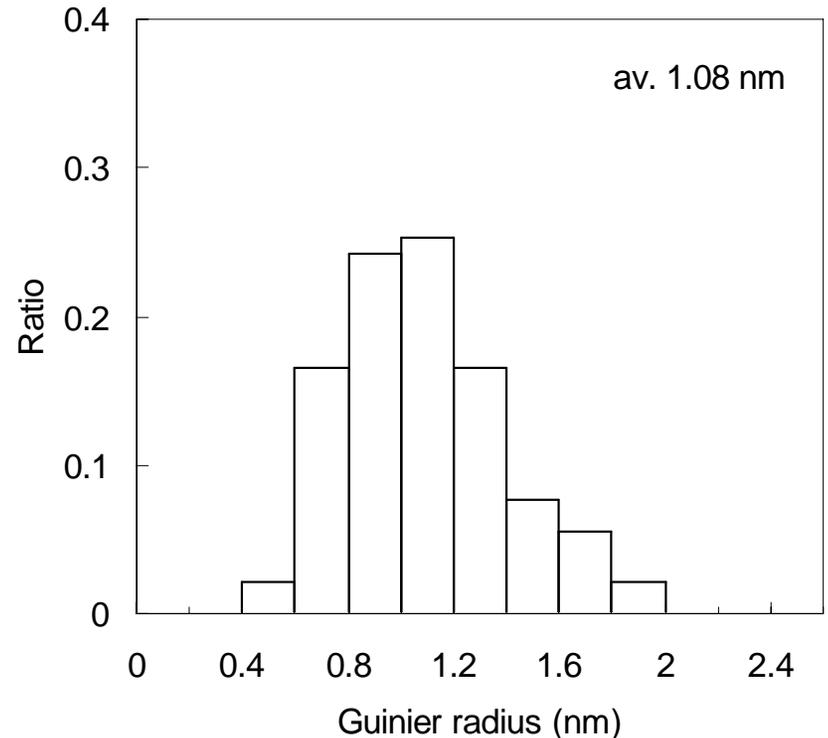


# イオン照射による析出物の形成(4)

## 析出物を形成するSi原子の数



## 析出物のサイズ分布



**Guinier radius of clustering Si atoms**

**Clustering Si atoms**

**Si-Si < 0.7nm & Number Si ≥ 5**

## まとめ

- ◆ イオン照射により高照射量でのミクロ組織変化を把握
  - マトリックス損傷として転位ループが形成
  - Mn/Ni/Siリッチ析出物の形成
- ◆ 今後の課題
  - 形成過程と脆化への寄与度の解明
  - 中性子照射との関係の理解

最先端の分析装置(HR-TEM, 3DAP etc.)を用いることで、ナノメートルスケールでの材料の組織変化が分析可能  
ただし、最先端のデータを得るには試験上の工夫が多く必要