

材料部会セッション

材料照射研究の次の10年に向けたアクションプラン
Action Plan for the Next Decade of Material Irradiation Research

(2) 軽水炉炉内構造材料のミクロ組織観察手法の高度化

(2) Improvement of Microstructure Observation Method of LWR Core Internal Materials

*藤井 克彦¹¹原子力安全システム研究所

軽水型発電プラントの炉内構造物材料として使用されるオーステナイトステンレス鋼は、多量の中性子の照射を受けるとミクロ組織やミクロ組成の変化を生じ、照射誘起応力腐食割れ (IASCC) や靱性の低下を引き起こす場合があることが知られている。このためステンレス鋼の照射効果を解明することを目的として、主として透過型電子顕微鏡 (TEM) によるミクロ組織とミクロ組成の評価が行われ、転位ループやブラックドット、キャビティ、 γ' 析出物が形成すること、これらの大きさや数密度は照射温度や損傷速度等の照射条件により影響を受けることが知られている。また、照射誘起偏析による結晶粒界でのニッケル (Ni) やシリコン (Si) の濃化やクロム (Cr) の欠乏等についても多くの測定がなされ、ステンレス鋼の照射変化に関するデータベースが構築されている。

アトムプローブトモグラフィー (APT) は、特にナノ組織の定量的評価に有効な手法で、針状に加工した試料に強い電界を印加させることにより試料最表面の原子を1つ1つイオン化脱離する電界蒸発を利用し、原子レベルの空間分解能で元素を3次元マッピングする方法である。従来の元素分析で用いられてきた TEM/STEM でのエネルギー分散型 X 線分光法 (EDX) では、2次元中で密な原子の偏析しか確認できなかったものが、APT の導入により3次元中で原子の偏析が確認できるようになった。原子力材料研究の分野では、原子炉圧力容器の照射脆化因子であるナノメートルサイズの溶質原子クラスタの定量評価や2相ステンレス鋼の熱脆化因子であるスピノーダル分解の定量評価等に適用され優れた成果を上げている。近年、照射ステンレス鋼に対して APT 測定が試みられ、溶質原子クラスタの形成や照射誘起偏析に関して報告されつつある。このうち、加圧水型原子炉 (PWR) で照射されたステンレス鋼に対する APT 測定に関する報告は、Etienne らによるバップルフォーマボルト (15%冷間加工 316 ステンレス鋼、照射温度 360°C、照射量 12 dpa) の分析⁽¹⁾と Toyama らによる燃料ラッパー板 (304 ステンレス鋼、照射温度 300°C、照射量 24 dpa) の分析^(2,3)、Fujii らによる炉内計装用フラックスシンプルチューブ (15%冷間加工 316 ステンレス鋼、照射温度 305~323°C、照射量 3~74 dpa) の分析⁽⁴⁾ 等ある。Etienne らは、結晶粒内にシリコン (Si) が濃縮した領域と Ni-Si が濃縮したクラスタが形成していることを報告しており、フランクループや転位への Ni や Si の偏析による形成機構を指摘している。Toyama らは、Ni-Si が濃縮した析出物が TEM で観察されるフランクループの10倍の数密度で形成し、一部の析出物はマンガン (Mn) とリン (P) を含むことを報告している。Fujii らは、Ni-Si クラスタが形成し、直径が 6~10 nm 程度の比較的大きなものと直径が 3~4 nm の小さなものからなること、高照射量でのみ Mn と P が集積した大きなクラスタが存在することを報告している。ただし、Ni-Si クラスタは TEM では観察が難しく、また IASCC や脆化へ寄与が不明であり、より詳細な分析が求められている。さらに、照射ステンレス鋼の APT 測定データの数はまだ少なく、材料と照射条件も限られており、同じ材料で中性子照射量の異なるいわゆる照射量依存性を直接検討できるデータは少ない。また、炭化物マトリックスの界面の照射による変化も材料劣化につながると考えられるが、このような局所領域の3次元の組織・組成変化を分析することは従来法では難しく、APT が適用できる可能性がある。

*Katsuhiko Fujii¹¹Institute of Nuclear Safety System, Inc.

ただし、APT 測定結果は絶対値を与えるものではなく、アトムマップの構築やクラスタの抽出は研究者により異なる方法が取られる場合があることには注意を払う必要がある。現在その影響を検討するため、照射ステンレス鋼に対する国際的なラウンドロビン研究も進行中である⁽⁵⁾。

また、APT で観察される溶質原子クラスタと TEM で観察される照射損傷組織との関係や硬化への寄与はよくわかっていない。このため、APT 測定用に針状に加工した試験片を TEM 観察した後、APT 測定を行い、粒界等をマーカーにして TEM 像とアトムマップを直接比較して、損傷組織とクラスタの関係を明らかにする取り組みを行われている。

APT 以外では、球面収差補正装置 (CS コレクタ) が搭載された TEM/STEM により EDS の元素マッピングの性能が格段に向上してきており、ナノメートルサイズのクラスタの観察も可能になってきている。これにより、損傷組織とクラスタとの関係が解明されることが期待され、APT との組み合わせにより理解が深まることが期待される。ただし、元素マップの定量的な評価法は確立されてはおらず、APT マップの評価とともに異なるデータを直接比較する場合には注意を要する。

参考文献

- (1) A. Etienne, B. Radiguet, P. Pareige, J.-P. Massoud, C. Pokor, "Tomographic atom probe characterization of the microstructure of a cold worked 316 austenitic stainless steel after neutron irradiation," J. Nucl. Mat. 382 (2008) 64-69.
- (2) T. Toyama, Y. Nozawa, W. Van Renterghem, Y. Matsukawa, M. Hatakeyama, Y. Nagai, A. Al Mazouzi, S. Van Dyck, "Irradiation-induced precipitates in a neutron irradiated 304 stainless steel studied by three-dimensional atom probe," J. Nucl. Mat. 418 (2011) 62-68.
- (3) T. Toyama, Y. Nozawa, W. Van Renterghem, Y. Matsukawa, M. Hatakeyama, Y. Nagai, A. Al Mazouzi, S. Van Dyck, "Grain boundary segregation in neutron-irradiated 304 stainless steel studied by atom probe tomography," J. Nucl. Mat. 425 (2012) 71-75.
- (4) K. Fujii, K. Fukuya, "APT analysis of neutron-irradiated stainless steels," Proc. 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP2017), Fukui & Kyoto, April 24-28 (2017) Paper17398.
- (5) E.A. Marquis, V. Araullo-Peters, Y. Dong, A. Etienne, S. Fedotova, K. Fujii, K. Fukuya, E. Kuleshova, A. Lopez, A. London, S. Lozano-Perez, Y. Nagai, K. Nishida, B. Radiguet, D. Schreiber, N. Soneda, M. Thuvander, T. Toyama, F. Sefta, P. Chou, "On the use of density-based algorithms for the analysis of solute clustering in atom probe tomography data," Proc. 18th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, TMS (2017) 881-897.