

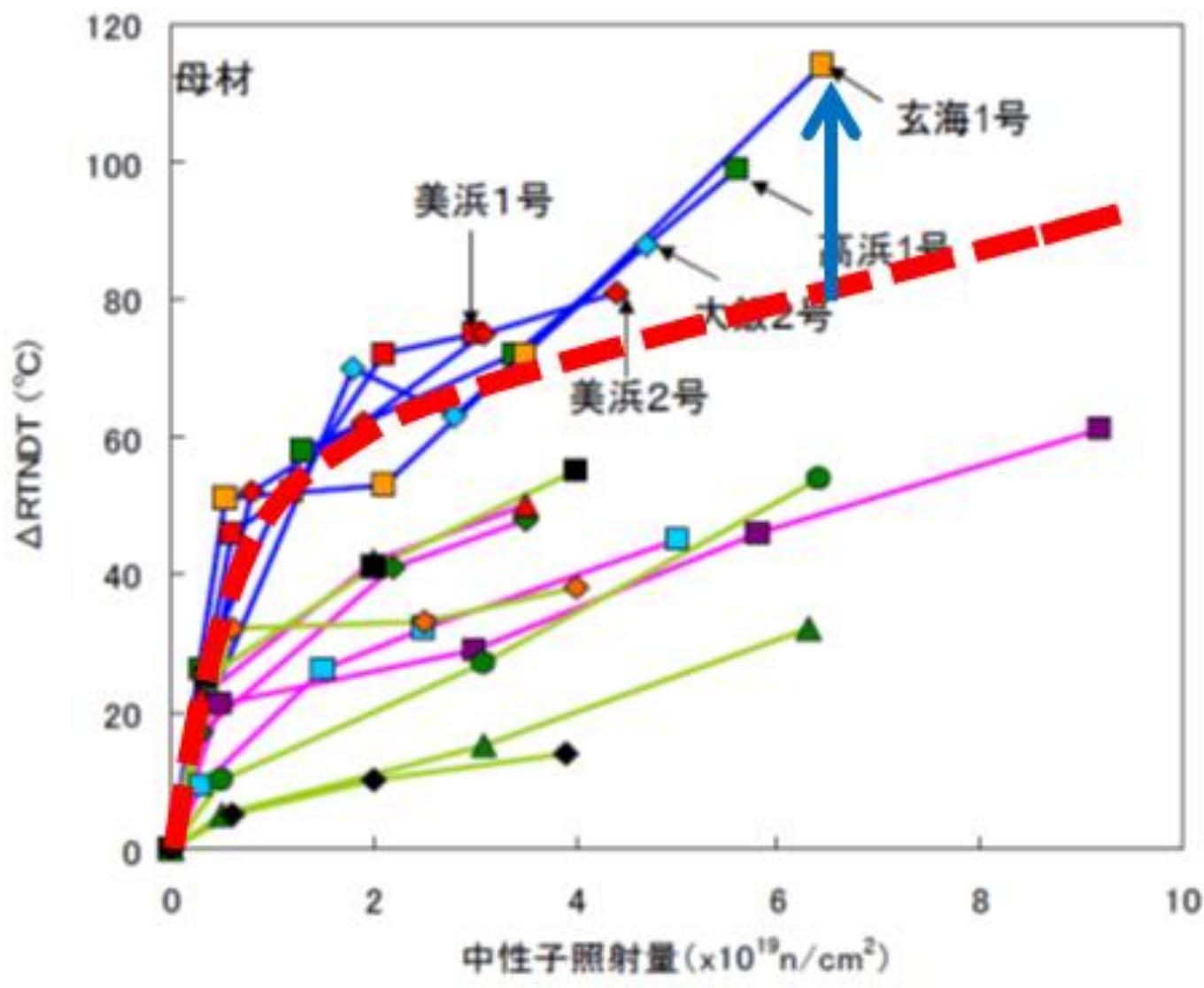
照射下における原子炉圧力容器鋼 の点欠陥挙動に関する考察

京都大学原子炉実験所
義家敏正

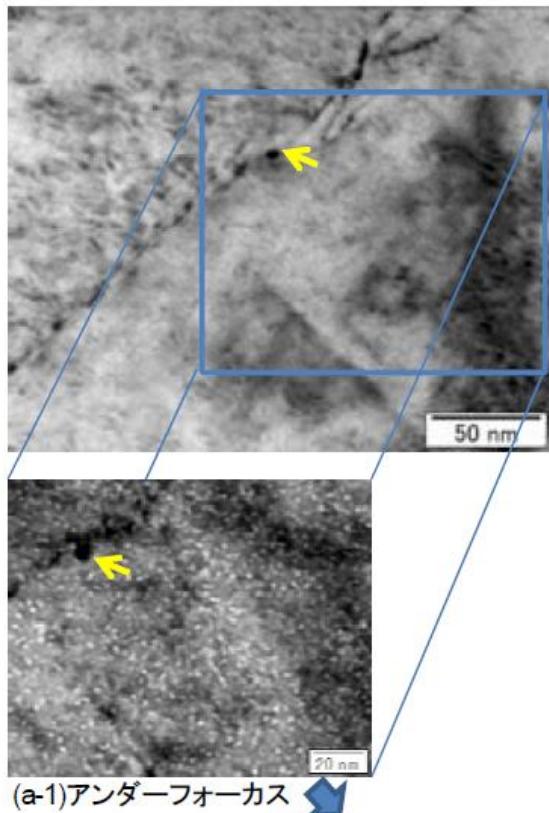
背景

- 原子力安全・保安院の「高経年化技術評価に関する意見聴取会」で公開されている多くのデータは原子炉圧力容器鋼の照射脆化を考える上で貴重なものである。特に最近の原子炉圧力容器鋼のサーベランス試験片のRTNDT上昇と照射損傷構造との関連は自明でないことが明らかになった。例えば九州電力玄海1号機の最近2回の結果では、3次元アトムプローブや透過電子顕微鏡観察結果には大きな差がないのに、RTNDTは大幅に上昇している。析出や偏析は観測されているが、**点欠陥集合体の量は非常に少ない。特に原子空孔集合体に関する情報がない。**

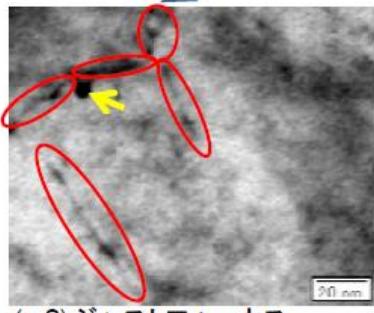
予測を超える照射脆化



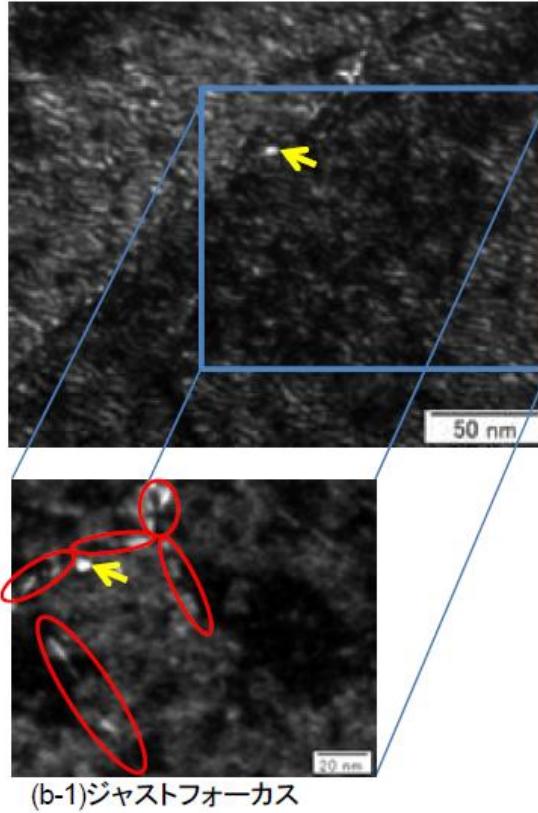
(a) 明視野像



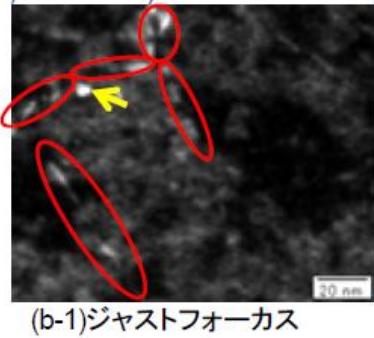
(a-1)アンダーフォーカス



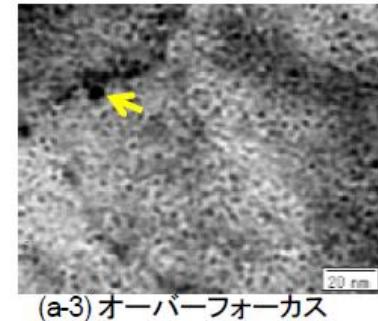
(a-2) ジャストフォーカス



(b) 暗視野像



(b-1) ジャストフォーカス



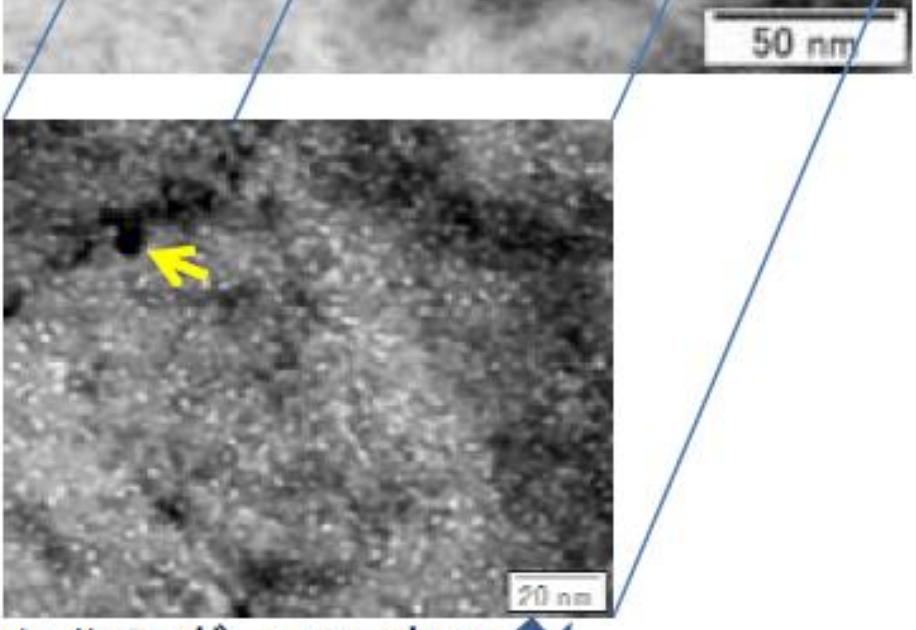
(b-2) オーバーフォーカス

高経年化技術評価に
関する意見聴取会

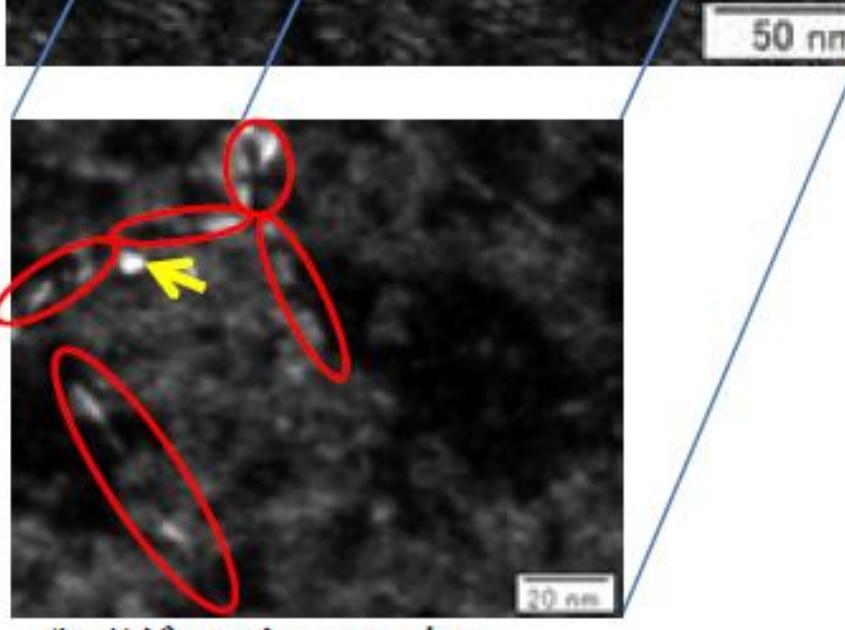
資料 2 - 2

平成 24 年 3 月 6 日
九州電力株式会社

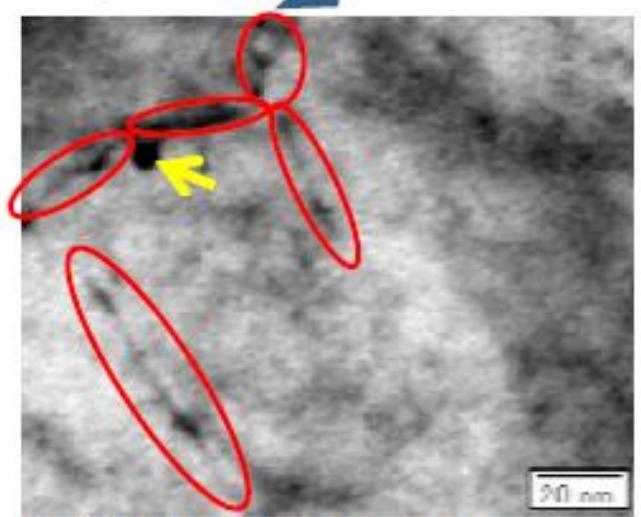
図 TEM 観察時のフォーカス調整



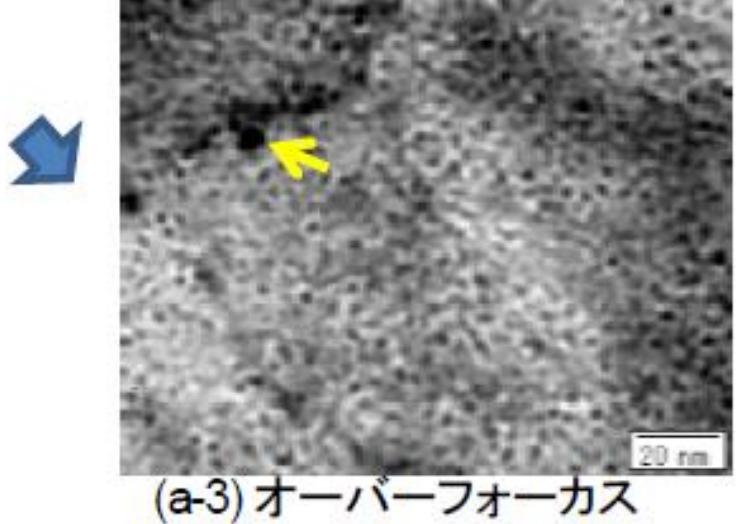
(a-1)アンダーフォーカス



(b-1)ジャストフォーカス

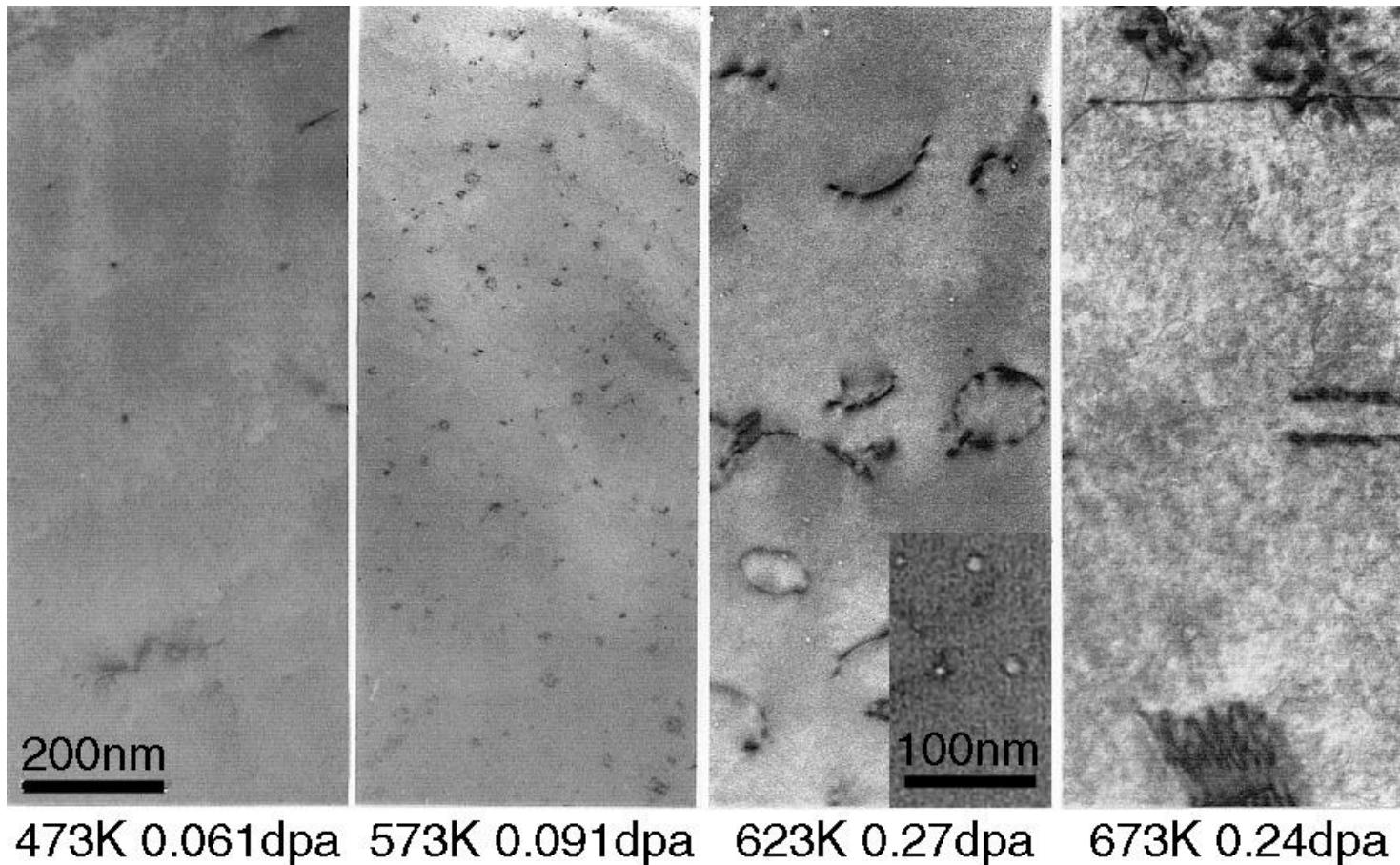


(a-2) ジャストフォーカス



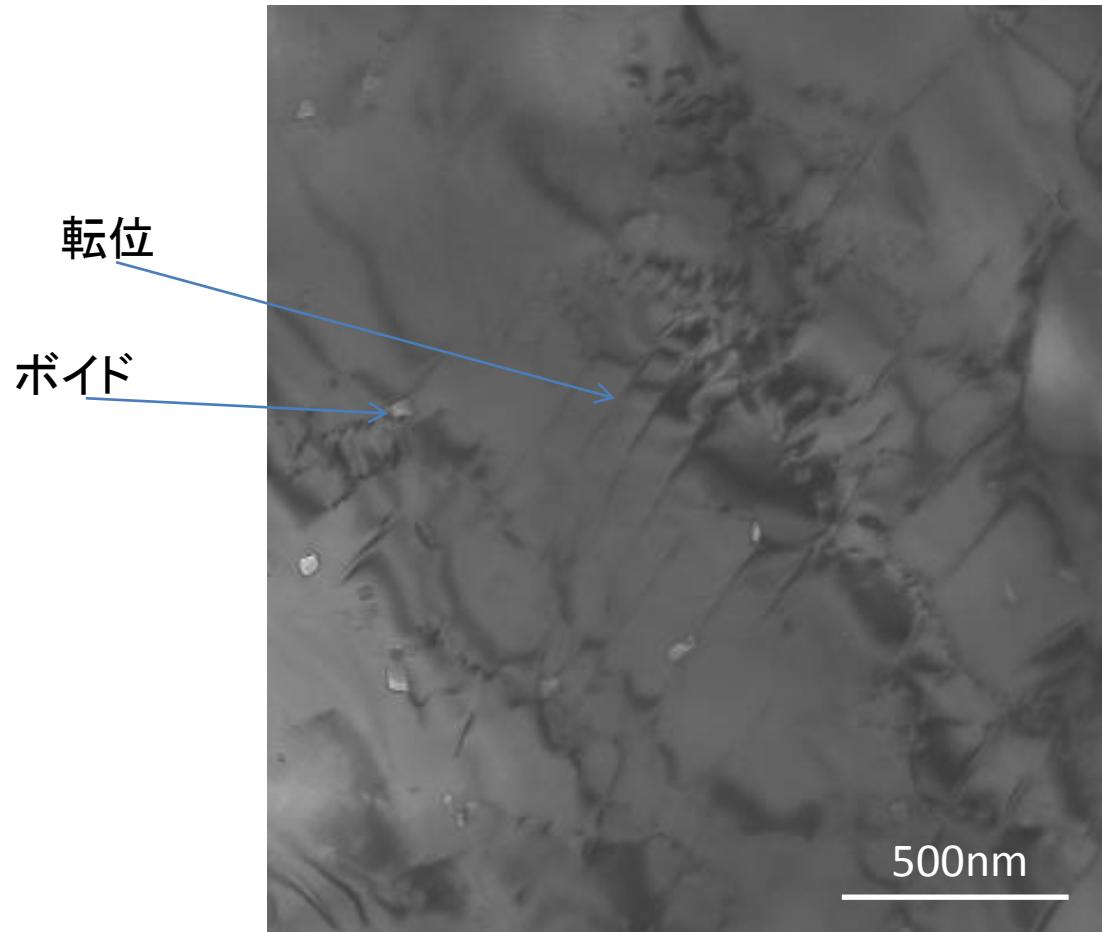
(a-3) オーバーフォーカス

Fe, JMTR, 573K



中性子照射した原子炉圧力容器鋼

290°C、0.06dpa



363K以下で中性子照射したオーステナイト系ステンレス鋼とそのモデル合金のS316鋼の損傷組織

試料	τ_{av} (ps)	τ_1 (ps)	τ_2 (ps)	I_2 (%)
Ni	271 ± 1	161 ± 2	403 ± 4	46 ± 1
Fe-Cr-Ni	183 ± 1	169 ± 1	486 ± 28	4 ± 1
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo	176 ± 1	135 ± 8	195 ± 4	67 ± 9
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si	177 ± 1	128 ± 8	193 ± 3	73 ± 7
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si-Ti	176 ± 1	114 ± 9	187 ± 2	82 ± 4
Ti添加改良型316	154 ± 1	50 ± 3	174 ± 1	84 ± 1
SUS316	181 ± 1			
SUS304	185 ± 1			

363K以下でBR-2を用いて約0.2dpaまで中性子照射した試料の陽電子寿命測定結果。測定は全て室温。 τ_{av} は平均寿命、 τ_1 、 τ_2 、 I_2 はそれぞれ短寿命、長寿命、長寿命の強度。

573Kで中性子照射したオーステナイト系ステンレス鋼とそのモデル合金のS316鋼の損傷組織

試料	τ_{av} (ps)	τ_1 (ps)	τ_2 (ps)	I_2 (%)
Ni	140 ± 1	111 ± 1	364 ± 4	12 ± 1
Fe-Cr-Ni	155 ± 1	103 ± 1	424 ± 3	17 ± 1
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo	134 ± 1	103 ± 1	339 ± 4	13 ± 9
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si	124 ± 1	95 ± 1	196 ± 5	25 ± 2
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si-Ti	122 ± 1	84 ± 2	169 ± 3	39 ± 2
Ti添加改良型316	130 ± 1	50 ± 5	136 ± 1	87 ± 1
SUS316L	133 ± 1	59 ± 6	139 ± 1	87 ± 2
SUS316	130 ± 1	61 ± 7	135 ± 1	88 ± 2
SUS304	129 ± 1	60 ± 7	134 ± 1	88 ± 2

573KでKURを用いて 1.6×10^{-3} dpaまで中性子照射した試料の陽電子寿命測定結果。測定は全て室温。 τ_{av} は平均寿命、 τ_1 、 τ_2 、 I_2 はそれぞれ短寿命、長寿命、長寿命の強度。

573K中性子照射したオーステナイト系ステンレス 鋼とそのモデル合金のS316鋼の損傷組織

試料	T_{av} (ps)	T_1 (ps)	T_2 (ps)	I_2 (%)	T_3 (ps)	I_3 (%)
Ni	195 ± 1	54 ± 7	154 ± 3	70 ± 1	433 ± 7	17 ± 1
Fe-Cr-Ni	233 ± 1	39 ± 5	164 ± 2	68 ± 1	511 ± 5	21 ± 1
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo	273 ± 1	46 ± 4	162 ± 3	55 ± 1	523 ± 4	29 ± 1
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si	148 ± 1	47 ± 2	157 ± 1	79 ± 1	489 ± 33	2 ± 1
Fe-Cr-Ni-Mn-Mo-Si-Ti	156 ± 1	53 ± 2	161 ± 1	72 ± 1	549 ± 14	4 ± 1
Ti添加改良型 316	148 ± 1	—	—	—	—	—
SUS316L	149 ± 1	—	—	—	—	—
SUS316	149 ± 1	—	—	—	—	—
SUS304	146 ± 1	—	—	—	—	—

573KでBR-2を用いて約0.20dpaまで中性子照射した試料の陽電子寿命測定結果。測定は全て室温。 T_v は平均寿命、 T_1 、 T_2 、 T_3 、 I_2 、 I_3 はそれぞれ短寿命、中間寿命、長寿命、中間寿命と長寿命の強度。

Fig.1

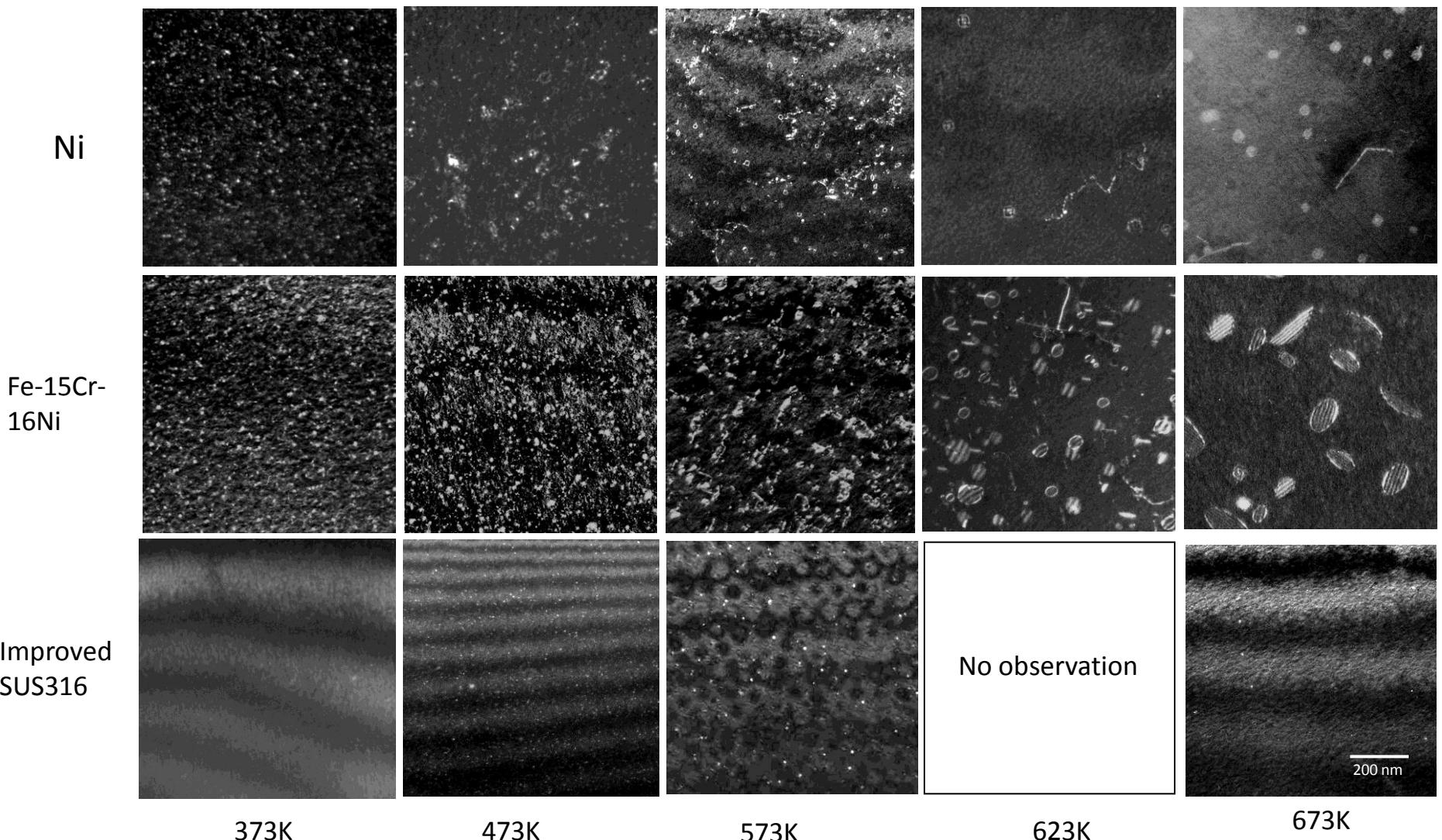
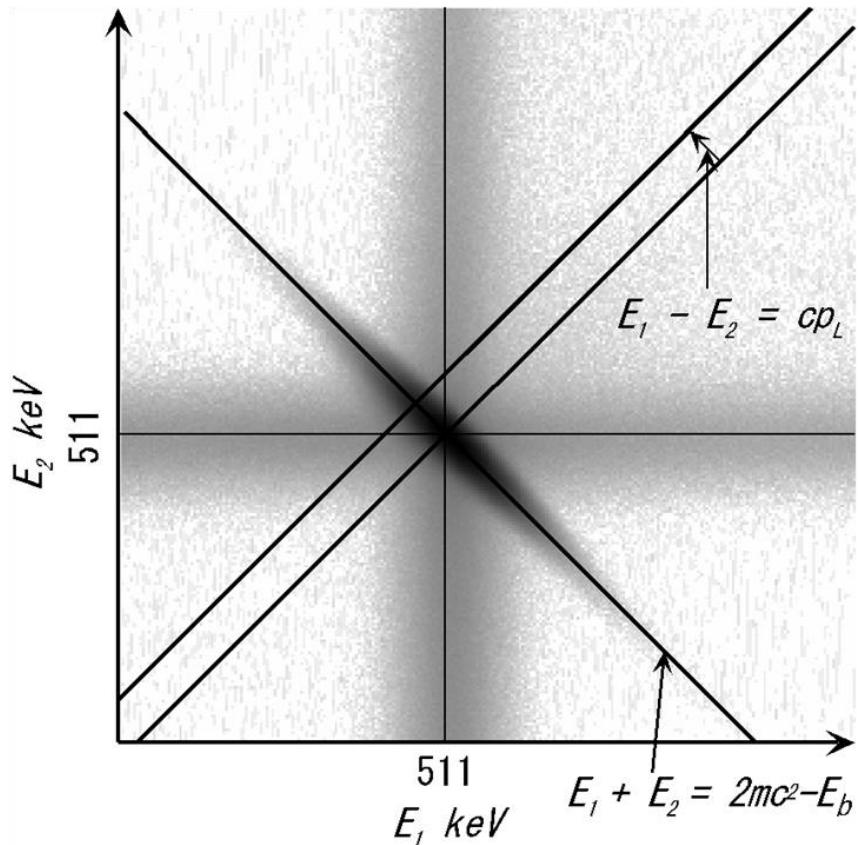
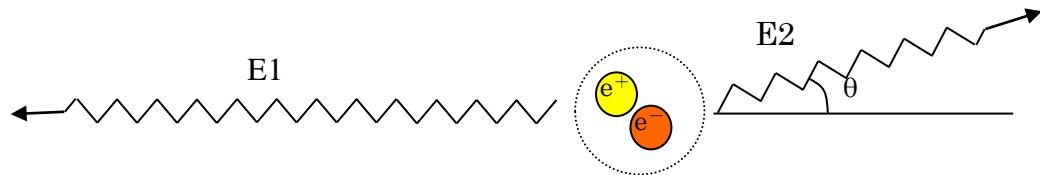


Fig.1 Temperature dependence of defect structures of bulk specimens in Ni, Fe-15Cr-16Ni and improved SUS316 irradiated by the JMTR to 1.1×10^{24} n/m³, 2.5×10^{23} n/m³, 3.7×10^{23} n/m³, 1.1×10^{24} n/m³, 9.6×10^{23} n/m³ at 373K, 473K, 573K, 623K and 673K, respectively. Defect structures of improved SUS316 was not observed at 623K.

Positron annihilation coincidence Doppler broadening measurements

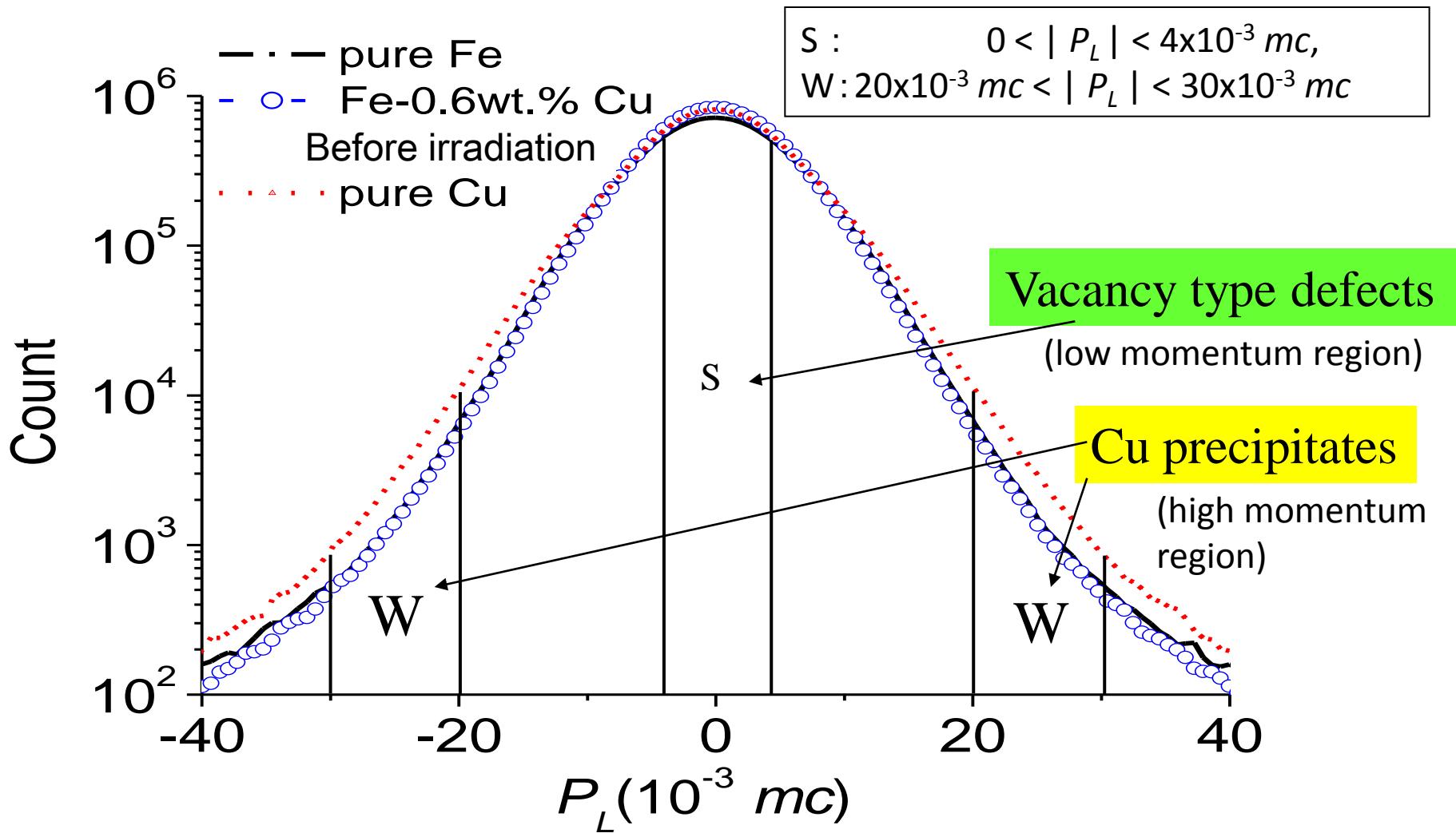


CDB spectrum

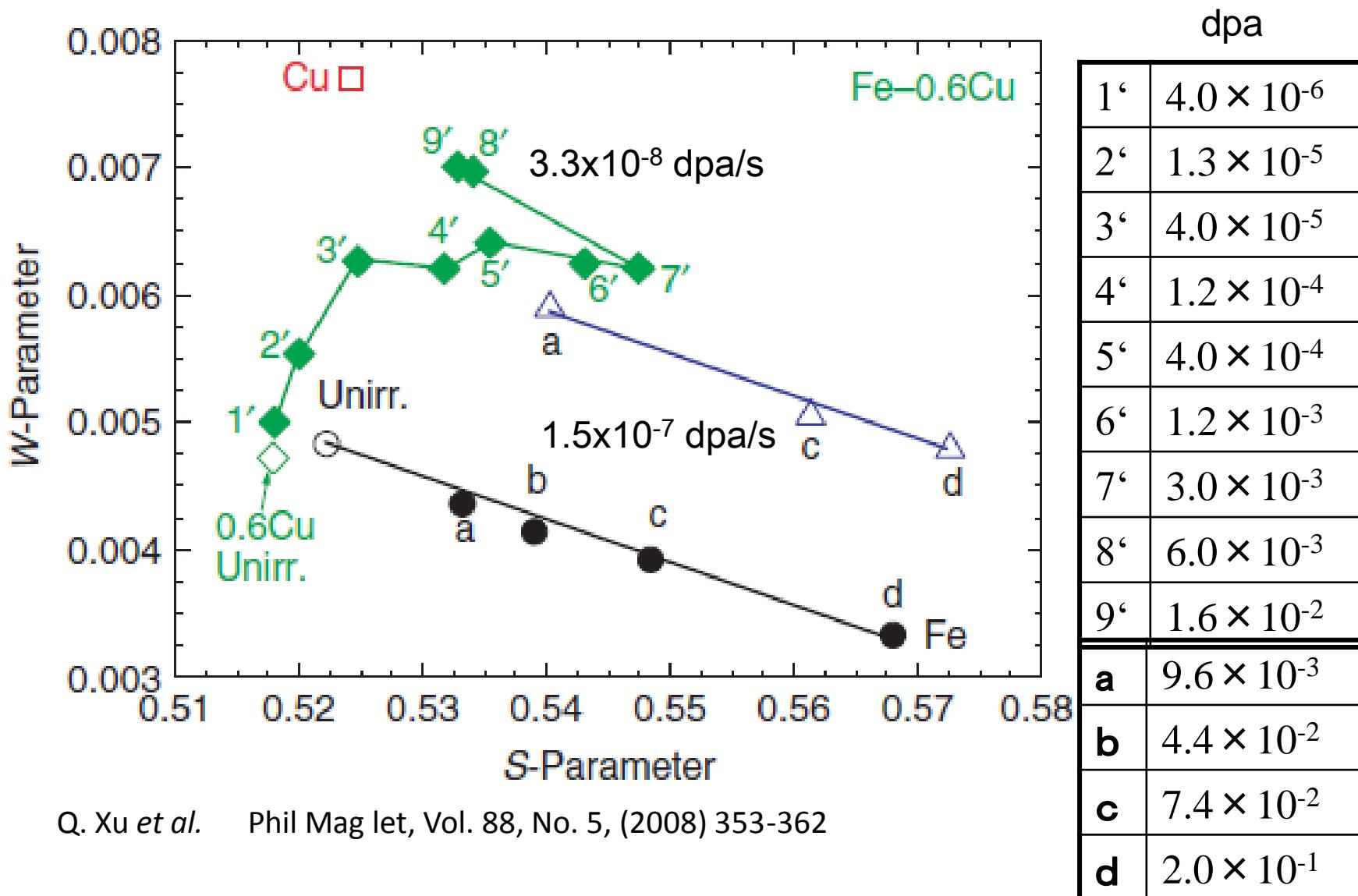
E_1, E_2 : two emitted γ ray energy
 p_L : Momentum of electrons

m : electron rest mass
 c : light velocity
 E_b : binding energy of electrons with bulk

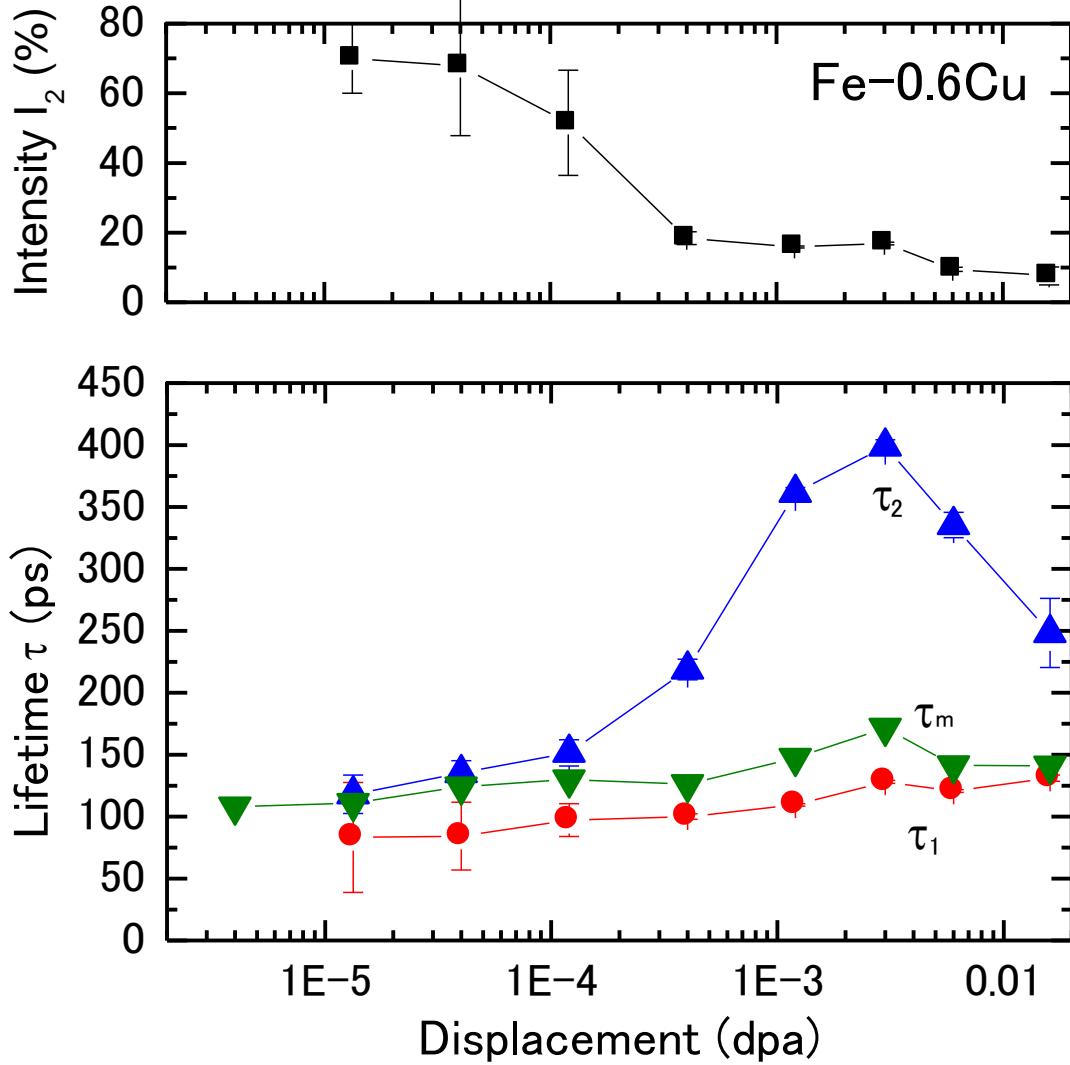
S-parameter & W-parameter



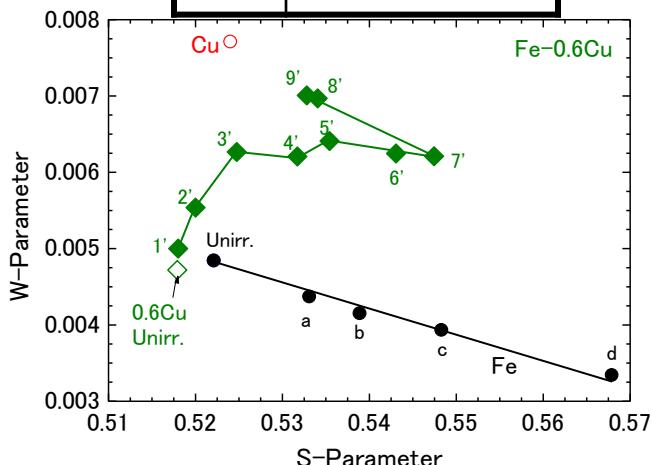
Coincidence Doppler broadening Measurements of Neutron irradiated Fe-0.6wt.%Cu at 573K



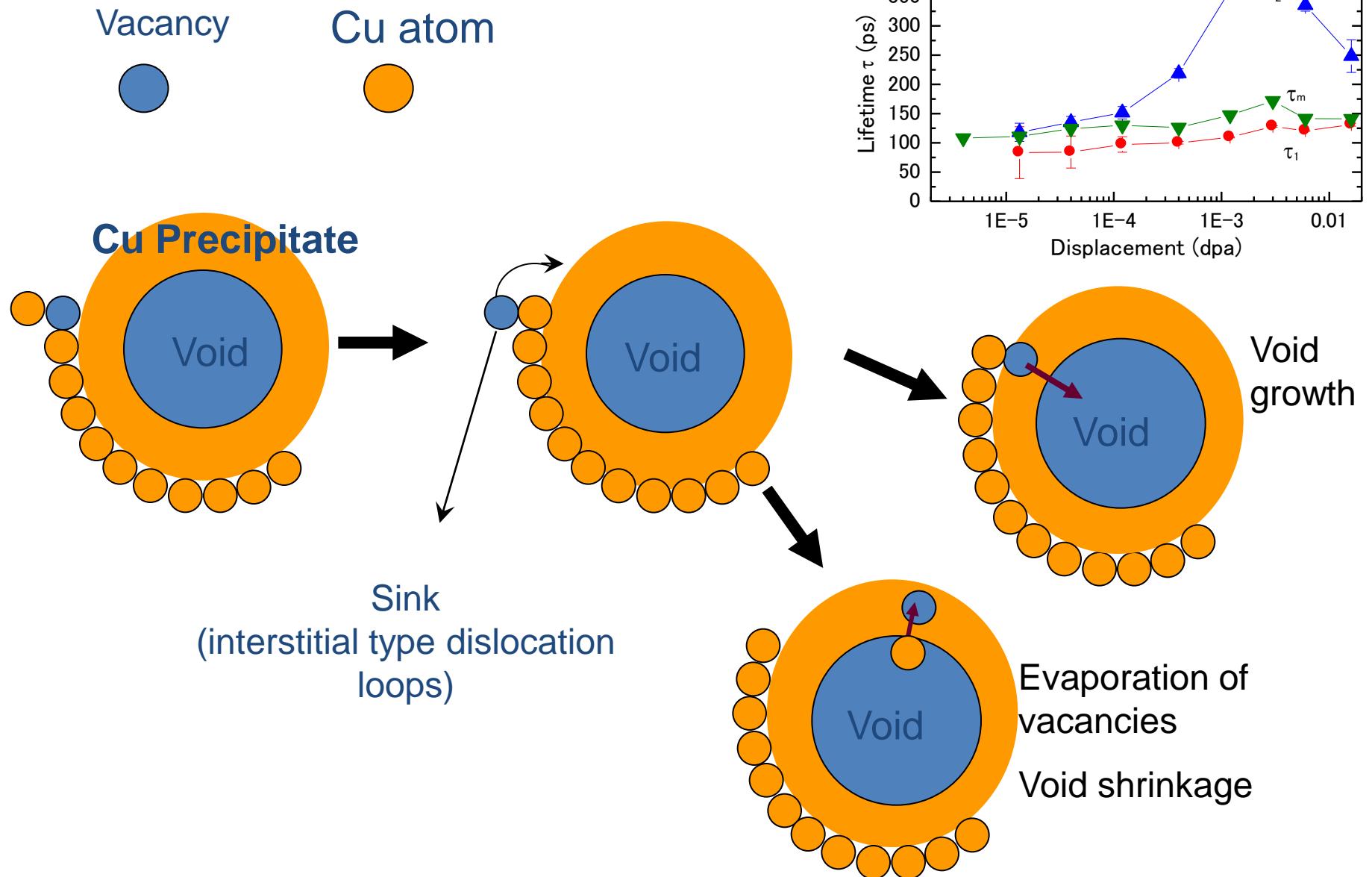
Positron Annihilation Lifetime of Neutron Irradiated Fe-0.6wt.%Cu, 573K



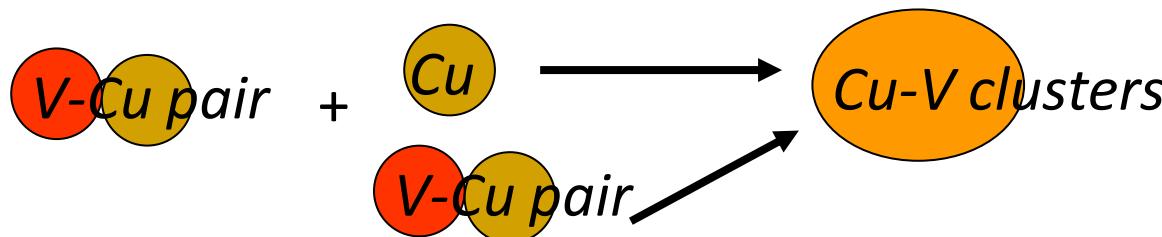
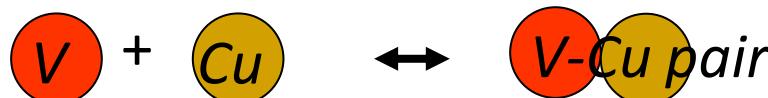
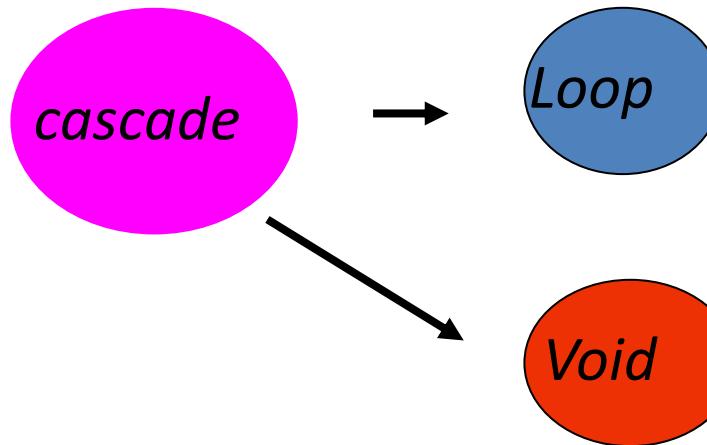
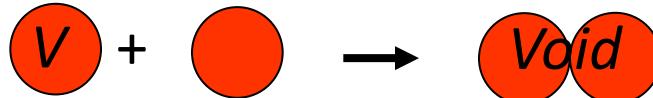
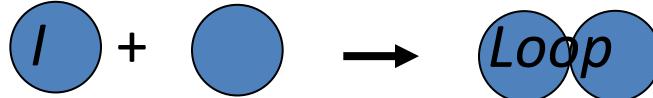
1'	4.0×10^{-6}
2'	1.3×10^{-5}
3'	4.0×10^{-5}
4'	1.2×10^{-4}
5'	4.0×10^{-4}
6'	1.2×10^{-3}
7'	3.0×10^{-3}
8'	6.0×10^{-3}
9'	1.6×10^{-2}



Shrinkage of Voids During Irradiation at 573K



Model description (1)



Model description (2)

Mobile defects: interstitials, vacancies, vacancy-Cu pairs

Clusters: interstitial type dislocation loops, voids, Cu-vacancy clusters

Thermal dissociation: vacancy-Cu pairs, voids

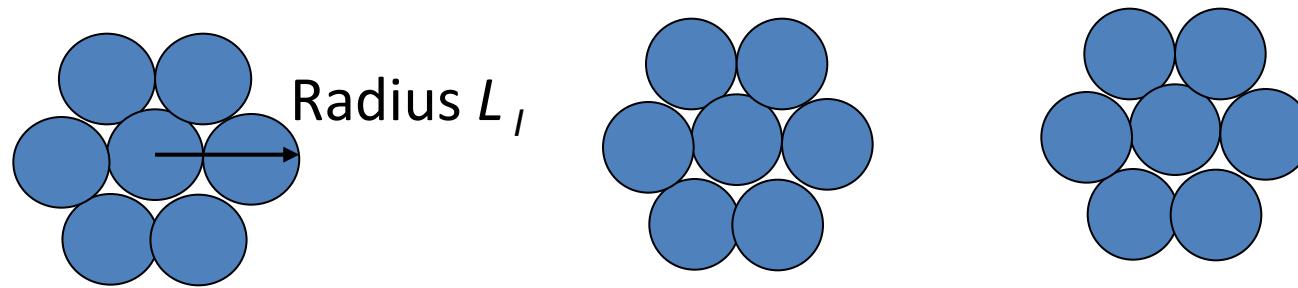
No interaction of interstitials with Cu

Nucleation of clusters: di-interstitials, di-vacancies and directly in cascades.

Materials parameters: Fe

Model description (3)

Concentration of interstitial type dislocation loops; C_{IC}

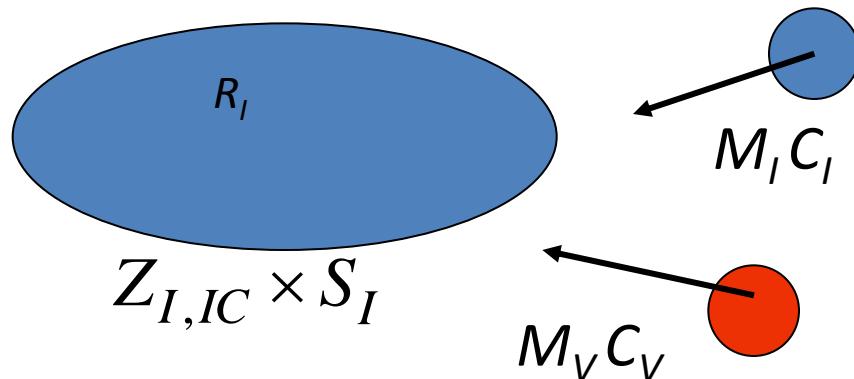


Total interstitials in interstitial type dislocation loops : R_I ,

$$R_I = C_I \times \pi L_I^2$$

Total sink efficiency of interstitials in dislocation loops : S_I ,

$$S_I = C_{IC} \times 2\pi L_I$$



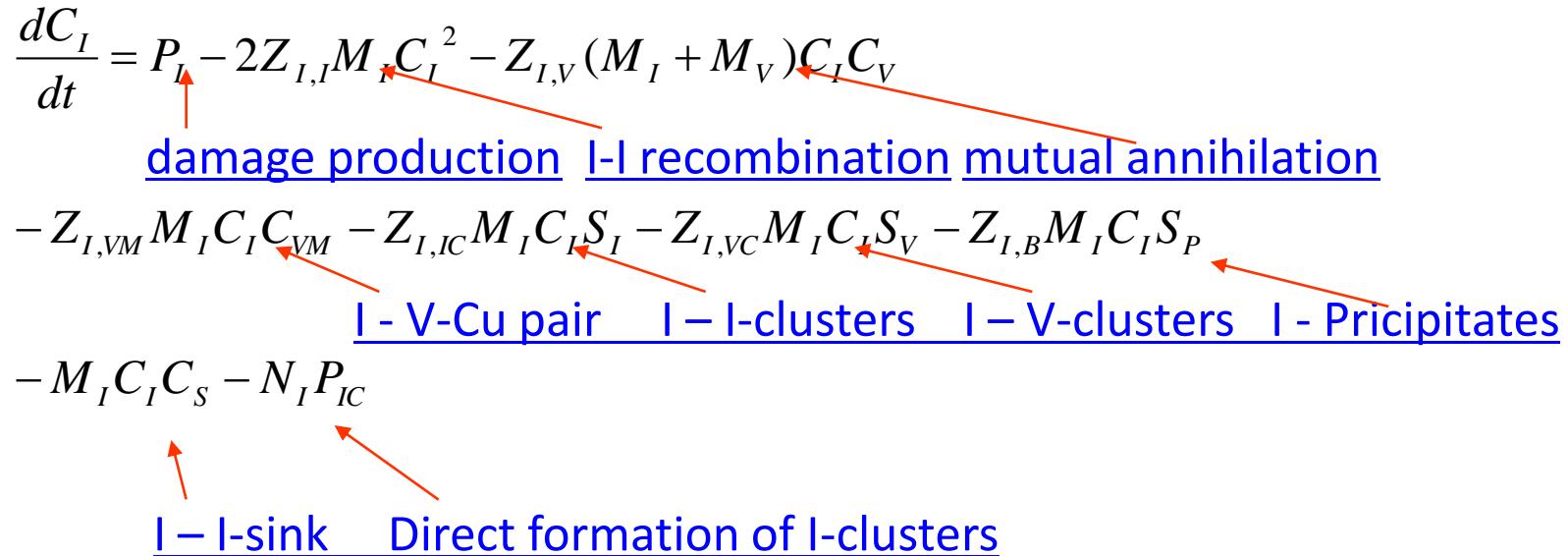
Rate equations (1)

The change of concentration of interstitial C_I (fractional unit).

C_V : vacancy concentration

Z : cross section of the reaction

M : mobility of point defects



Rate equations (2)

The change of vacancy concentration C_V

$$\begin{aligned}\frac{dC_V}{dt} = & P_V - 2Z_{V,V}M_V C_V^2 - Z_{I,V}(M_I + M_V)C_I C_V - Z_{V,VM}(M_V + M_{VM})C_V C_{VM} \\ & - Z_{V,V}M_V C_V S_V - Z_{V,IC}M_V C_V S_I - Z_{V,B}M_V C_V S_P - Z_{V,M}M_V C_V C_M \\ & + B_{VM}M_V C_{VM} + B_{VP}VM_V C_{VM} - M_V C_V C_S - N_V P_{VC}\end{aligned}$$

The change of vacancy-Cu pairs

$$\begin{aligned}\frac{dC_{VM}}{dt} = & -Z_{I,VM}C_I C_{VM} - Z_{V,M}(M_V + M_{VM})C_V C_{VM} \\ & - 2Z_{VM,VM}M_{VM}C_{VM}C_{VM} - Z_{VM,M}M_{VM}C_{VM}C_M - B_{V,VM}M_V C_{VM} \\ & - M_{VM}C_{VM}S_I + M_{V,M}C_{VM}S_V\end{aligned}$$

Rate equations (3)

Total sink efficiency of clusters

$$S_V = (48\pi^2 R_V C_{VC}^2)^{1/3}$$

$$S_I = 2(\pi R_I C_{IC})^{1/2}$$

$$S_P = (48\pi^2 (R_{PV} + R_{PM}) C_{PC}^2)^{1/3}.$$

Concentration of defect clusters

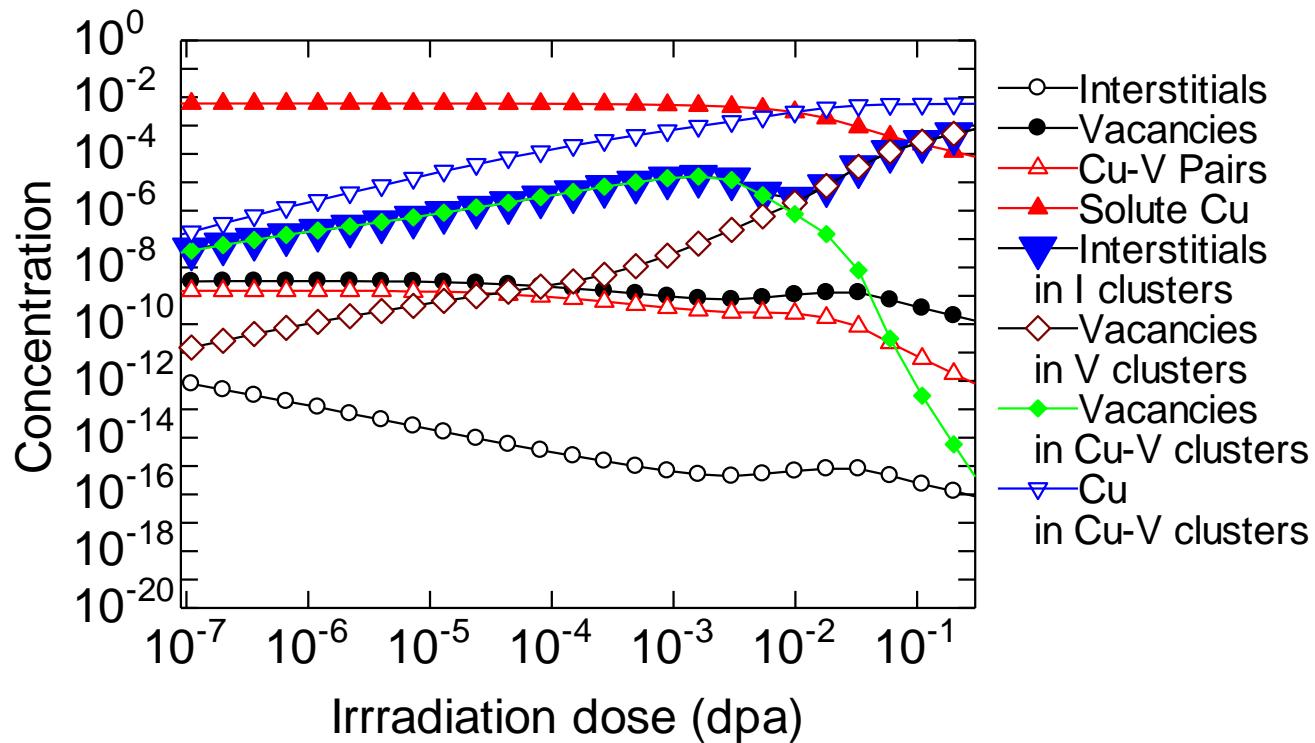
$$\frac{dC_{IC}}{dt} = P_{IC} + Z_{I,I} M_I C_I^2$$

$$\frac{dC_{VC}}{dt} = P_{VC} + Z_{V,V} M_V C_V^2$$

$$\frac{dC_{PC}}{dt} = Z_{V,VM} (M_V + M_{VM}) C_V C_{VM} + Z_{VM,VM} M_{VM} C_{VM} C_{VM} + Z_{Vm,M} M_{VM} C_{VM} C_M$$

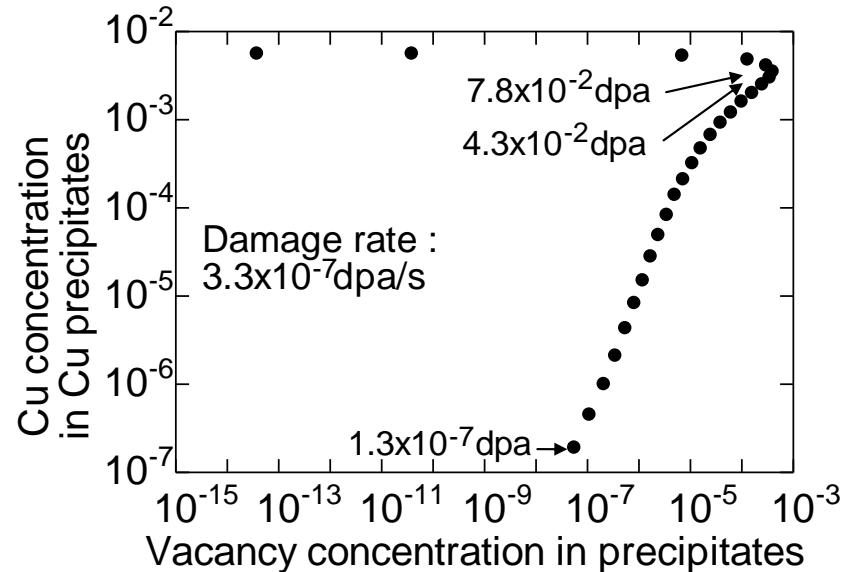
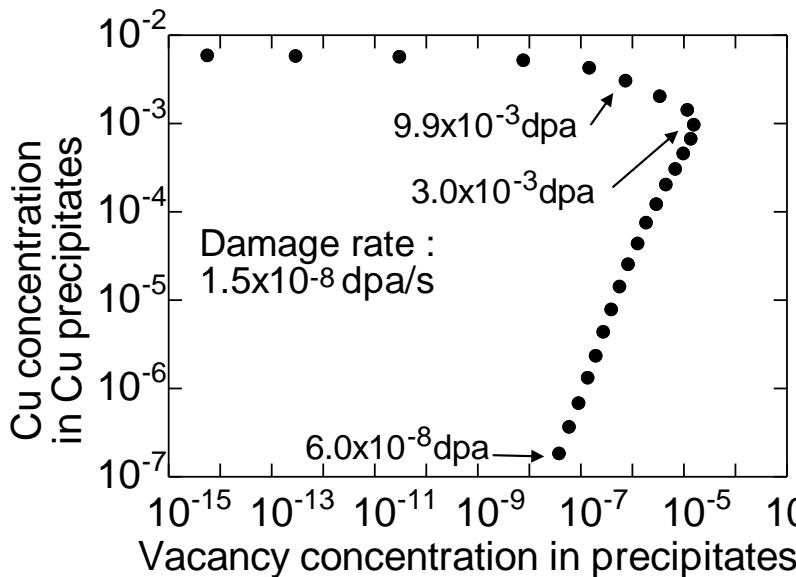
These differential equations were solved numerically using GEAR method developed by Hindmarsh and Byrne.

Reaction kinetic analysis of defect evolution in Fe-Cu with dose rate of 1.5×10^{-8} dpa/s at 573 K

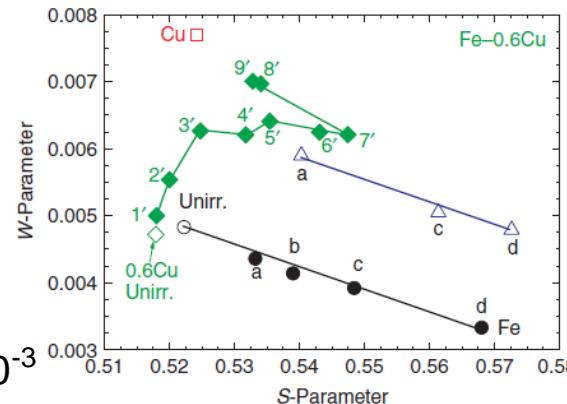


原子空孔とCuの結合エネルギー: 0.1eV

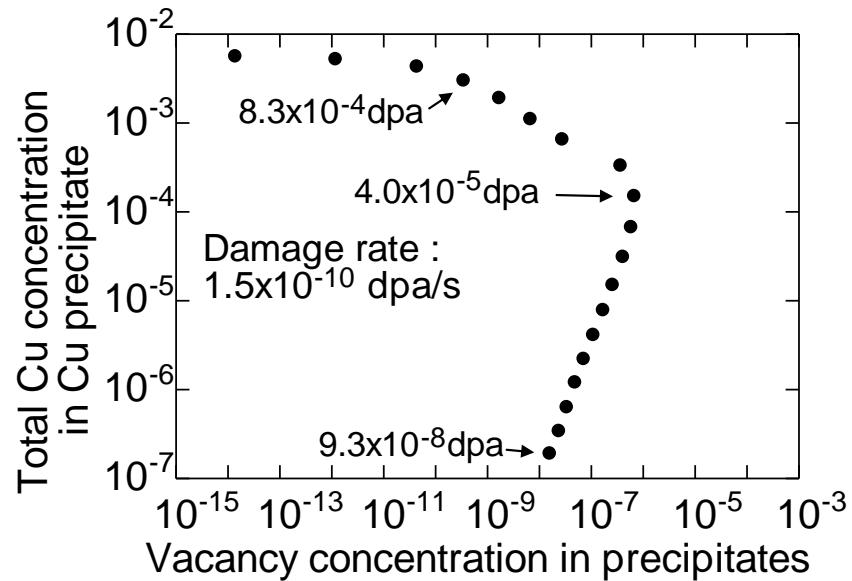
反応速度論に基づいた解析結果(1)



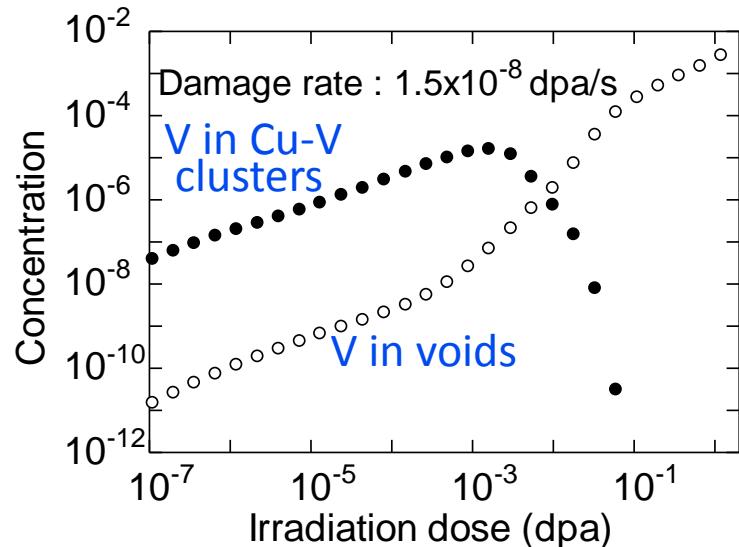
Cu-vacancy クラスター中の
原子空孔濃度とCu濃度



Cu-原子空孔クラ
スターの原子空孔
の結合エネル
ギー : 1.0 eV
マイクロボイド中の
原子空孔の結合工
ネルギー : 1.5 eV

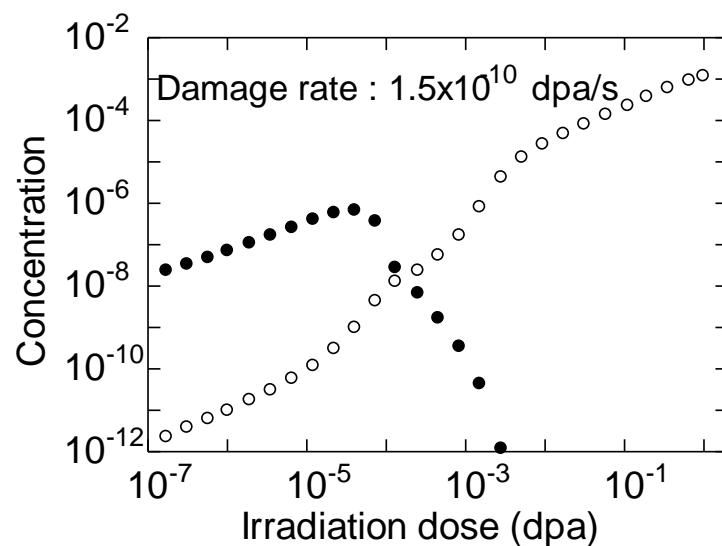
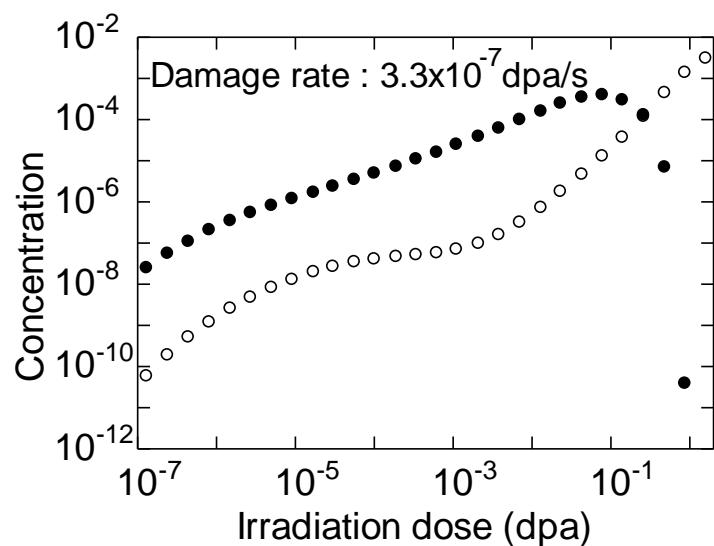


反応速度論に基づいた解析結果(2)



Cu-原子空孔クラスター中の原子空孔とマイクロボイド中の原子空孔

Cu-原子空孔クラスターの原子空孔の結合エネルギー: 1.0 eV
マイクロボイド中の原子空孔の結合エネルギー: 1.5 eV



格子間原子型転位ループのバイアス効果

格子間原子集合体は透過電子顕微鏡で観察されている転位ループだけでなく、NiとMnの析出物の中にも格子間原子型転位ループとして存在するとすべきかもしれない。この場合、NiとMnの転位芯への偏析のためにひずみ場が緩和し、**転位バイアス効果が小さく**、原子空孔のマトリックスへの残存とボイドへの成長が起こり難いとも考えられる。

今後の課題

- ・多くの添加元素の存在する中での原子空孔や格子間原子の挙動の解明
- ・多くの添加元素の存在する中での点欠陥集合体形成の解明
- ・RTNDT上昇は現在検出されている欠陥だけで説明できるか