

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：502-1 原子炉材料，環境劣化，照射効果，評価・分析技術

2025年9月11日(木) 17:35 ~ 18:40 G会場(北九州国際会議場3F 33会議室)

[2G19-22] 圧力容器鋼2

座長:渡邊 英雄(東北大)

17:35 ~ 17:50

[2G19]

Effect of Irradiation Temperature on Mn-Ni-Si Clusters in RPV Model Alloys 03

*陳 心潤¹、Shihua Qiao²、Liang Chen²、Takeshi Toyama³、Koji Inoue³、Bo Li¹、Tatsuya Suzuki⁴、Kenta Murakami¹ (1. The University of Tokyo、2. Shanghai JIAOTONG University、3. Tohoku University、4. Nagaoka University of Technology)

17:50 ~ 18:05

[2G20]

第一原理計算に基づく軽水炉圧力容器鋼のモデリング

*王 抱朴¹、末吉 功汰¹、祝 梁帆¹、CHEN Yuting¹、森下 和功¹、福元 謙一²、岩切 宏友³ (1. 京大、2. 福井大、3. 琉大)

18:05 ~ 18:20

[2G21]

原子炉圧力容器鋼におけるFeMnNi(Cu)クラスター形成プロセスの分子動力学解析

*CHEN YUTING¹、祝 梁帆¹、王 抱朴¹、森下 和功¹、福元 謙一² (1. 京大、2. 福井大)

18:20 ~ 18:35

[2G22]

軽水炉圧力容器鋼におけるNi-Si-Mn析出物

既往研究の実験結果と最新計算状態図の整合性

*松川 義孝¹、熊野 秀樹²、竹内 章³、森下 和功⁴、山口 正剛⁵、牟田 浩明⁶、笠田 竜太⁷、吉田 健太⁷、吉川 美奈子² (1. 熊本大、2. 中部電力、3. 兵庫県立大、4. 京都大、5. 原子力機構、6. 大阪大、7. 東北大)

18:35 ~ 18:40

座長持ち時間

Effect of Irradiation Temperature on Mn-Ni-Si Clusters in RPV Model Alloys 03

*Xinrun Chen¹, Shihua Qiao², Liang Chen², Takeshi Toyama³, Koji Inoue³, Bo Li¹, Tatsuya Suzuki⁴, Kenta Murakami¹

¹The University of Tokyo, ²Shanghai JIAOTONG University,

³Tohoku University, ⁴Nagaoka University of Technology

This study presents the third report in a series of investigations on irradiation-induced Mn-Ni-Si (MNS) cluster evolution in reactor pressure vessel (RPV) steels. Building on previous presentations at AESJ-2024 annual meetings, this work focuses on new insights into the interaction between irradiation-induced defects and MNS clusters, based on advanced STEM-EDS and atom probe tomography analyses under various irradiation temperatures.

Keywords: reactor pressure vessels, Mn-Ni-Si precipitates, irradiation hardening, atom probe tomography

1. Introduction

Embrittlement of reactor pressure vessel (RPV) steels under high neutron fluence is known to be closely associated with the formation of nano-scale Mn-Ni-Si (MNS) clusters. These clusters are observed in both high- and low-Cu steels; however, due to their extremely small size (typically a few nanometers), the detailed evolution process remains insufficiently understood. To gain deeper insight into the clustering and structural evolution of MNS phases, we utilized a RPV model alloy with intentionally elevated Mn, Ni, and Si concentrations, subjected to 2.8 MeV Fe²⁺ ion irradiation at temperatures ranging from 573 to 698 K up to 0.9 dpa. The effect of irradiation temperature on irradiation-induced hardening and cluster formation was partially reported in AESJ2024-Annual conference. In this extended study, we focus on the spatial solute distribution within and surrounding each MNS cluster, in conjunction with defect structures observed by STEM-EDS, to investigate the interaction between irradiation-induced defects and MNS clustering. Specifically, we aim to elucidate the role of dislocation loops in the nucleation and growth of Mn-Ni-Si clusters at different temperatures.

2. Experimental

Thin film specimens were prepared using focused ion beam (FIB) milling, followed by flash electro-polishing in a solution of 98% methanol and 2% perchloric acid at 20 V and 213 K to remove surface damage and reduce thickness to ~100 nm. STEM-EDS characterization (Talos F200X G2) was conducted to analyze precipitate composition and associated defect structures. Dislocation loops and black dots were observed using bright-field (BF) and dark-field (DF) techniques, and precipitate structure was investigated via weak-beam dark-field (WBDF) imaging. To quantitatively analyze solute distribution within clusters, regions of interest (ROI) shaped as cylinders and cubes passing through the cluster centers were extracted using IVAS software from 3D atom probe (3D-AP) datasets.

3. Results and Discussion

STEM-EDS observations revealed that MNS clusters frequently nucleate at or near dislocation loops formed during irradiation. IVAS analysis demonstrated a steep solute gradient, with the highest Mn-Ni-Si concentrations at the cluster core, gradually decreasing outward. These results suggest that the formation and growth of MNS clusters are strongly influenced by the evolution of irradiation-induced defects, particularly dislocation loops. Furthermore, the dependency of MNS cluster features on irradiation temperature appears to correlate with changes in defect structure and mobility, indicating that defect – solute interactions play a crucial role in the clustering process.

4. Conclusion

This study confirms that irradiation temperature significantly influences the microstructural evolution of MNS clusters in RPV model steels. The observed coupling between dislocation loop formation and MNS precipitation emphasizes the importance of defect-assisted nucleation mechanisms. These findings provide valuable input for understanding embrittlement behavior in RPV steels and contribute to the refinement of predictive models for long-term reactor operation.

第一原理計算に基づく軽水炉压力容器鋼のモデリング

Modeling of Light Water Reactor Pressure Vessel Steel Based on First-Principles Calculations

*王 抱朴¹、末吉 功汰¹、祝 梁帆¹、CHEN Yuting¹、森下 和功¹、福元 謙一²、岩切 宏友³

¹京都大学, ²福井大学, ³琉球大学

Fe-Mn-Ni-Si 系材料における軽水炉压力容器鋼の照射損傷挙動を解明するためには、高精度な原子間ポテンシャルの構築が求められる。本研究では、そのために必要な多様な構造に対して第一原理計算を行い、エネルギーなどの物理量を取得した。機械学習に用いるデータセットとしての多様性および網羅性を評価した。

キーワード：軽水炉压力容器鋼, 照射損傷, 第一原理計算

1. 緒言

軽水炉压力容器鋼は、原子炉の中心構造材として、極めて過酷な中性子照射環境下においても長期間にわたる高い構造健全性が要求される材料である。その照射環境では、材料内部にナノスケールの欠陥や析出物が形成され、機械的特性の劣化、すなわち脆化や硬化といった現象を引き起こすことが知られている。これらの照射損傷挙動は原子レベルで進行するため、そのメカニズムを理解し、将来的な健全性評価や寿命予測に繋げることが重要な課題となっている。中でも Fe-Mn-Ni-Si 系合金は、軽水炉鋼に含まれる代表的な元素を含む多元系であり、照射下における微細構造変化や力学的性質の変動といった観点から注目されている。照射脆化の理解を深める上で、この系に対する原子レベルのシミュレーションの有用性が期待されている。このようなシミュレーションを実行するためには、分子動力学 (Molecular Dynamics, MD) や格子キネティックモンテカルロ (Kinetic Lattice Monte Carlo, KLMC) といった手法が有効であるが、それらの計算には対象材料に適した高精度な原子間ポテンシャルが必要不可欠である。特に、近年の機械学習技術の発展に伴い、注目されているニューラルネットワークポテンシャル (Neural Network Potential, NNP) は、第一原理計算に匹敵する精度と高い計算効率を両立する点で有望視されている。

しかしながら、NNP の性能はその学習に用いるデータの質と多様性に大きく依存しており、信頼性の高い第一原理計算に基づく学習データの整備が不可欠である。本研究では、Fe-Mn-Ni-Si 系材料を対象とし、密度汎関数理論 (Density Functional Theory, DFT) に基づく第一原理計算により、NNP 構築に資するポテンシャルエネルギー、原子間力等のデータを系統的に取得することを目的とする。得られたデータセットは、今後の研究において NNP を構築し、それを MD や KLMC シミュレーションに適用することで、照射脆化を含む材料特性変化の予測・評価を可能とするための基盤情報として活用されることが期待される。

2. 計算方法と結果

本研究では、VASP コード[1, 2, 3]を用いて Fe-Mn-Ni-Si 系材料に関する第一原理計算を実施した。初期検証として、凝集エネルギーと格子定数などの基礎物性、および欠陥形成エネルギーなどの欠陥物性を算出し、既存の実験値や他の計算値との比較を通じて計算の妥当性を確認した。その後、Fe-Mn-Ni-Si 系におけるランダム固溶構造や空孔・格子間原子を含む欠陥構造、歪み・体積変化を伴う構造など、多様な照射損傷に対して構造のエネルギーおよび原子間力を系統的に取得し、機械学習に用いるデータセットを構築した。得られたデータは、対称性関数値の分布図による可視化を通じて、データセットのカバレッジ確認にも活用している。当日は、それらの可視化結果についても併せて報告する。

参考文献

[1] Kresse G., et al., Comput. Mater. Sci., 6 (1996) 15. [2] Kresse G., et al., Phys. Rev. B, 54 (1996) 11169.

[3] Kresse G., et al., Phys. Rev. B, 59 (1999) 1758.

*Baopu Wang¹, Kota Sueyoshi¹, Liangfan Zhu¹, Yuting Chen¹, Kazunori Morishita¹, Kenichi Fukumoto² and Hiroto Iwakiri³

¹Kyoto Univ., ²Fukui Univ., ³Ryukyus Univ.

原子炉圧力容器鋼における FeMnNi(Cu) クラスター形成プロセスの分子動力学解析

Molecular Dynamics Analysis of FeMnNi(Cu) Cluster Formation Process in Reactor Pressure Vessel Steels

*Chen Yuting¹, 祝 梁帆¹, 王 抱朴¹, 森下 和功¹, 福元 謙一²

¹京都大学, ²福井大学

本研究では、分子動力学法を用いて FeMnNiSi(Cu)合金中のクラスターをシミュレーションし、各クラスター構造の安定性や形成エネルギーなどの特性を分析した。シミュレーション計算を通じて、クラスターの成長過程を明らかにする。

キーワード : FeMnNi (Cu) 合金, クラスター構造, クラスターの成長過程, 分子動力学, 統計分析

1. 緒言

原子炉圧力容器 (RPV) 鋼の寿命および安全性を評価する上で、材料の照射脆化挙動の理解は極めて重要である。近年の研究により、照射下で Mn-Ni-Si クラスターが形成され、それが脆化の主要因となることが示されている。特に、これらのクラスターは材料の結晶構造に影響を及ぼし、材料を脆化させる主要因となっている。そのため、原子力材料の研究では、Mn-Ni-Si 析出物の核形成および成長プロセスの理解が重要な課題とされている。クラスターの成長は形成エネルギーに影響され、その値はクラスターの微視構造に依存するため、構造とエネルギーの相関を明らかにすることが、脆化挙動の理解に不可欠である。本研究では、分子動力学 (MD) シミュレーションを用いて、Fe-Mn-Ni-(Cu)合金中に形成されるクラスターの構造と成長過程を明らかにすることを目的としています。

2. 方法

本研究では、Bonny の Fe-Mn-Ni ポテンシャル[1]によって、鉄系合金の二元合金クラスターに関するシミュレーションを行った。第三隣接距離内の格子点で置換型の欠陥を含むクラスターを調査し、すべての可能なクラスター構造を列挙した。分子動力学法により、構造アニーリングシミュレーションプロセスを通じてクラスター構造の最適化を行い、クラスターの形成エネルギーを計算した。

3. 結論

図1はクラスターサイズごとの形成エネルギー分布を示しており、縦軸がエネルギー (eV)、横軸がサイズで、棒グラフが各エネルギーに属するクラスター数、実線が平均値、点線が最小値を表す。図から同じサイズでも構造差により形成エネルギーに幅があり、その幅は元素によって異なり、Fe 中の Mn クラスターは非常に集中した範囲なのに対し、Cu や Ni クラスターでは広く分布することが分かる。より大きなサイズのクラスターに関する結果については、発表の時に改めて詳細を説明する。

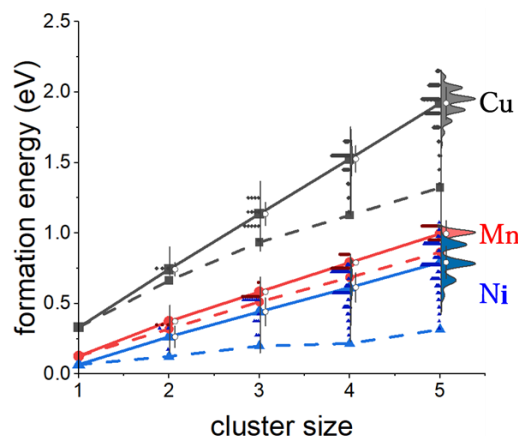


図1 各サイズクラスターの異なる構造における形成エネルギー分布

参考文献

[1] G. Bonny, et al. 2013 Journal of Nuclear Materials, 442(1-3), 282-291.

* Yuting Chen¹, Liangfan Zhu¹, Baopu Wang¹, Kazunori Morishita¹ and Kenichi Fukumoto²

¹ Kyoto Univ., ² Univ. of Fukui.

軽水炉压力容器鋼における Ni-Si-Mn 析出物： 既往研究の実験結果と最新計算状態図の整合性

Ni-Si-Mn Precipitates in Reactor Pressure Vessel Steels:

Consistency between Existing Experimental Results and the Latest Calculation Phase Diagram

*松川 義孝¹, 熊野 秀樹², 竹内 章³, 吉川 美奈子²,

牟田 浩明⁴, 笠田 竜太⁵, 吉田 健太⁵, 森下 和功⁶, 山口 正剛⁷

¹熊本大学, ²中部電力, ³兵庫県立大学, ⁴大阪大学, ⁵東北大学, ⁶京都大学, ⁷原子力機構

Validity of calculation phase diagrams related to Ni-Si-Mn precipitates in the RPV steel has been closely examined using the latest version of Thermo-calc.

キーワード： 軽水炉, 压力容器, 脆化, 寿命予測, 析出, 状態図

压力容器の照射脆化の主な要因は、不純物（Cu）や合金元素（Ni, Si, Mn）がナノサイズの粒子として析出することであり、脆化予測モデルにおいては析出を原子の拡散過程に基づいて数値解析している。析出のモデリングの難易度は不純物と合金元素で大きく異なる。前者は鋼に固溶できないことが明白であるのに対し、後者は三元素の析出が連動しているため固溶限が不明瞭で、析出量の上限が把握できていない。さらに、合金元素の析出はこれまで慣例として照射誘起析出と呼ばれてきたが、その呼び方は必ずしも正確ではないことが近年明らかになってきた。2021年に Jenkins らは、熱時効材において Ni-Si-Mn 析出物を見出した（Scripta Mater. 191, 126-130）。これは照射下における析出が、熱力学的に本来起こらない反応が誘起されたものではなく、熱力学的に起こりうる反応が促進されたものであることを示唆している。析出物の全てが照射促進に分類されるのか、或いは照射誘起されたものが共存しているのかは未だ明らかではない。それを判定するためには、压力容器鋼の熱力学について、実験と計算の両面から掘り下げて議論する必要がある。本研究では、最新の熱力学データベース（Thermo-calc 2025a, TCFE14, TCNI12）を用い、現時点において計算状態図が既往研究の実験結果をどの程度正確に再現できているのかを調査した。

Thermo-calc を用いて Ni-Si-Mn 析出物について計算する場合は、目的に応じて適宜、データベースを使い分ける必要がある。例えば析出物そのものの融点を計算する場合は、Ni が主成分の一つであるため Ni 基超合金のデータベース（TCNI）を使うことが推奨されているが、鋼における析出を計算する場合は、Fe が主成分であるため鋼のデータベース（TCFE）を使うことが推奨されている。析出を計算する場合は TCFE と TCNI を組み合わせることも可能であるが、このガイドラインに従うと、TCFE を単独で使用するべきということになる。但しそれでは実験結果をうまく再現できない場合があることが明らかとなった。

前述した Jenkins らの熱時効実験で見つかった析出物は、アトムプローブで分析した組成比から判断すると、G 相 $\text{Ni}_{16}\text{Si}_7\text{Mn}_6$ と Γ_2 相 Ni_3SiMn_2 である。Thermo-calc では、TCFE 単独では G 相のみしか析出しなかったが、TCNI を組み合わせると Γ_2 相も析出することが判明した。この傾向は、压力容器鋼の IAEA 参照材として広く用いられている JRQ 材について行った計算でも同様であった。但し JRQ 材で TCNI を組み合わせた場合は、Ni-Si-Mn 析出物の体積分率が Cu 析出物の数倍になるという難点があった。JRQ 材は元々不純物の影響を調査する目的で 1980 年代に作製された参照材であり、Cu と P の含有量が多いという特徴がある。Jenkins らの鋼では Cu 析出物が全く生じなかったが、これは Cu 含有量が微量なためである。当日は VVER-1000 の压力容器鋼（Cr や Mo を多く含む）の計算結果等についても報告する。

This work has been supported by the MEXT Grant-in-Aid (24K08306, 23H01152G1), the ZE Research Program, IAE, Kyoto Univ. (ZE2024A-10) and the GIMRT Program, IMR, Tohoku Univ. (202412-CRKKE-0030, 202412-IRKMA-0032).

*Yoshitaka Matsukawa¹, Hideki Yuya², Akira Takeuchi³, Minako Yoshikawa², Hiroaki Muta⁴, Ryuta Kasada⁵, Kenta Yoshida⁵, Kazunori Morishita⁶, Masatake Yamaguchi⁷

¹Kumamoto Univ., ²Chubu Electric Power Inc., ³Univ. of Hyogo, ⁴Osaka Univ., ⁵Tohoku Univ., ⁶Kyoto Univ., ⁷JAEA