

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19K05326

研究課題名(和文)原子力材料健全性評価に資する動的変形挙動/照射硬化への熱活性化影響の研究

研究課題名(英文)Dynamic Deformation Behavior for Nuclear Material Integrity Assessment/Study of Thermal Activation Effects on Irradiation Hardening

研究代表者

福元 謙一 (Fukumoto, Ken-ichi)

福井大学・附属国際原子力工学研究所・教授

研究者番号：30261506

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：イオン照射した原子力構造材料を用いた室温～200℃までの温度範囲で変形に伴う転位運動および転位-照射欠陥相互作用の動的変形組織観察実験から、運動転位性状変化と障害抵抗強度解析による照射欠陥の内部応力温度依存性による熱活性化過程を通して、微視的スケールからの照射硬化量の定量的評価を行った。この結果、溶質原子クラスターは運動転位に対しては強い障害強度因子を持つ介在物としては機能せず、その数密度の大きさによって照射硬化に寄与すること実験的に示された。また室温と250℃での引張挙動による転位-照射欠陥相互作用に大きな変化は見られず、転位-欠陥相互作用における熱活性化状態変化が見られないことがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子力エネルギーの平和利用による原子力発電から安定した電力供給を行うため、炉内構造材料の健全性評価予測技術が求められている。現在まで安全性実証の観点から安全マージンを見込んだ保守的な実験データによる経験則から規制が制定されているが、現象に基づいたモデル化による機構論的な予測手法開発は十分ではない。材料強度変化などの予測を行う上では経年劣化による材料パラメータ変化や、中性子照射に伴う欠陥組織発達の定量化が必要である。照射組織においては組織発達の中で各組織成分の直接的な硬化因子を測定することにより、高精度の定量的な組織硬化量が評価され、照射硬化・脆化による材料健全性評価手法の構築が可能となる。

研究成果の概要(英文)：The dynamic deformation microstructure observation experiments of dislocation motion and dislocation-irradiation defect interaction during deformation of ion-irradiated nuclear structural materials in the temperature range from room temperature to 200 °C were carried out. The quantitatively evaluation for irradiation hardening were obtained from a microscopic scale through the thermal activation process by the internal stress temperature dependence of irradiation defects based on the change in motion dislocation properties and hardening strength analysis. The results showed experimentally that solute atomic clusters do not function as inclusions with a strong barrier strength factor for kinetic dislocations, but contribute to irradiation hardening. No significant change in the dislocation-irradiation defect interaction was observed in the tensile behavior at RT and 250 °C, indicating that there is no change in the thermally activated state of the dislocation-defect interaction.

研究分野：原子力学

キーワード：照射硬化・脆化 イオン照射 原子力材料 透過型電子顕微鏡 引張試験その場観察 転位-照射欠陥相互作用

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

材料の経年劣化や中性子照射による材料中の照射劣化、特に照射誘起延性脆性温度遷移(照射誘起 DBTT)の上昇は、原子炉の寿命を決定する大きな事象である。軽水炉の高経年化対策を含めた健全性評価向上や次世代原子炉の実用化に向けて、予防保全対策まで含めた炉内構造材料の照射硬化・脆化に対する健全性評価予測技術とその高度化が求められている。

材料劣化の基となる材料強度変化などの予測を行う上では経年変化に伴う組織変化や、中性子照射に伴う欠陥組織発達の定量化が必要である。しかし硬化量を算定する上で各組織要素の硬化因子の導出には統計的な根拠のみによる場合が多く、直接的に測定されていない。照射組織においては組織発達の中で各組織成分(転位、析出物、照射欠陥)の量的変化あるいは質的变化に伴う劣化事象の顕現化が知られている。各組織要素の直接的な硬化因子を測定し、計算機シミュレーションによる損傷組織発達に適切な硬化因子の重みを加え、高精度の定量的な組織硬化量が評価され、照射硬化・脆化による材料健全性評価手法の構築が可能となる。

申請者が提案する「電子顕微鏡(TEM)内引張試験『その場』観察」はTEM内で引張試験を行いながら『その場』観察することにより、転位と相互作用している障害物を転位線上のカスプとして検出し、カスプの頂角を測定することにより転位障害物としての強度を評価する手法である。この結果、マクロ的な機械試験により測定した硬化量と、電顕内その場観察結果から評価した値のあいだに極めてよい一致を得ることに成功しており、一般性のある極めて有用な方法である。

このTEM内引張試験『その場』観察技術により、現在まで硬化因子を求めることにより圧力容器鋼やBCC金属の照射硬化量の定量化に貢献してきた。しかしながらその試験法の複雑さにより従来のTEM内引張組織観察は室温での試験に集中しており、低温から高温の広範囲な温度領域での転位挙動に関する知見は少ない。しかしながら照射環境は高温領域であり、DBTT現象は非照射下では室温以下で生じる熱的過程の現象である。このため照射硬化・脆化現象を正確に捉えるためには低温から高温におけるTEM内引張『その場』観察の実験場が必要となる。

この研究の一環において観察時の解析手法の改良により高精度な運動転位の性状決定(らせん転位と刃状転位、すべり系の推定)ができることを見出した。この技術により運動中の転位性状決定の簡易化から動的変形観察時における適正な転位種の運動のモニタリングが可能となった。この技術によりBCC金属でみられる低温から高温への温度上昇に伴うDBTT挙動に関して転位挙動変化から遷移現象の機構解明が可能になる。この実験計算統合解析によるDBTT変化予測は原子力圧力容器鋼の照射・高経年化によるDBTT上昇予測手法や核融合炉構造材料の照射硬化・脆化の定量化とその予測手法の開発に貢献できる。

## 2. 研究の目的

イオン照射した各種原子力材料に対して低温から高温までの温度領域でTEM内引張試験『その場』観察技術を用いて転位挙動や照射欠陥・転位相互作用を観察することにより、転位-照射欠陥相互作用の動的観察から照射欠陥の内部応力の温度依存性を求め、照射欠陥分布に依らない照射硬化現象の温度依存性(非熱活性化過程と熱活性化過程の弁別)を明らかにして照射硬化メカニズム解明とその定量化に資する。

## 3. 研究の方法

オーステナイト系ステンレス鋼であるSUS316L鋼を供試材として用いた。試料形状は11.5mm×2.2mm×0.2mmの短冊状であり、両端に引張時固定用の穴がけられている。成型時の歪み除去と結晶粒粗大化のために、1100℃で2時間、真空雰囲気、空冷の条件で熱処理を実施した。試料表面の平滑化のためにジェット電解研磨装置TenuPol5を用いて研磨を実施した。

イオン照射は京都大学エネルギー理工学研究所DuET施設のタンデム加速器を用いて実施した。重イオン且つセルフイオンであるFe<sup>3+</sup>を使用するため、ステンレス鋼における中性子照射の模擬として適切である。照射条件として6.4MeV Feイオンにより照射温度200~300℃、はじき出し損傷量は7~25dpaで最大損傷深さは1.6μmであった。イオン照射は、深さ方向に損傷量の分布が形成され、最大損傷量及び損傷ピーク深さはモンテカルロシミュレーションコードSRIM2008で求めた。

照射した試料を、照射欠陥が存在する限られた領域を残しながら、TEM観察が可能な厚さまで薄膜化する必要がある。本研究では二種類の電解研磨を用いており、自作の電解槽装置を使用し、研磨液には硫酸メタノール(1:5)、液温3℃、電流1Aで研磨時間を設定し実施した。研磨速度は約0.1μm/sであることが分かった。TenuPol5を用いて試料中心に孔を貫通させ、孔の周辺が薄くなることを利用して薄膜化を実施した。

TEM 内引張「その場」観察は、九州大学超顕微解析研究センターの超高圧電子顕微鏡 JEM-1300NEF と短軸傾斜加熱引張ホルダーGATAN672 を使用して実施した。加速電圧が 1250kV と高いため、厚い試料の観察が可能であること、バックグラウンド強度が低下し像質が向上すること等の利点があり、実験の成功率を上げることができると考えた。観察は照射温度より 50 低い環境で実施した。試料を長手方向に引張り、孔周辺を塑性変形させることで転位運動を発生させ、その様子をその場観察した。引張ホルダーは単軸であるため、TEM 観察する中で結像に制限がある。通常の TEM で観察が可能な照射欠陥である FL と BD の情報を得るために、引張後試料を加工し、二軸傾斜ホルダーEM-31630 と福井大学の透過型電子顕微鏡 JEM-2100TM を用いて TEM 観察を実施した。SC の情報に関しては、照射①試料では原子炉廃止措置研究センターの LEAP3000XHR による 3DAP 観察を、照射②試料では文献データ及び照射①試料のデータから平均値を求めて参照した。

#### 4. 研究成果

イオン照射した原子力構造材料を用いた室温 ~ 200 までの温度範囲で変形に伴う転位運動および転位-照射欠陥相互作用の動的変形組織観察実験から、運動転位性状変化と障害抵抗強度解析による照射欠陥の内部応力温度依存性による熱活性化過程を通して、微視的スケールからの照射硬化量の定量的評価を行った。

SUS316L 鋼に京都大学工能理工研の DuET 施設の加速器による重イオン照射を行った。その後 TEM 観察用薄膜化した後、TEM 内引張「その場」観察は九州大学の超高圧電子顕微鏡にて 250 で実施した。転位チャネルの形成過程を動画で撮影し、障害物である照射欠陥と運動転位の相互作用を観察した。TEM 内引張後に試料を加工し、TEM を用いて照射欠陥のうちフランクグループ (FL) とブラックドット (BD) の数密度とサイズを測定した。

TEM 内引張「その場」観察で形成過程を確認でき、たびたび照射欠陥が障害物となり、転位チャネル形成が静止する様子を確認することができた (図 1)。

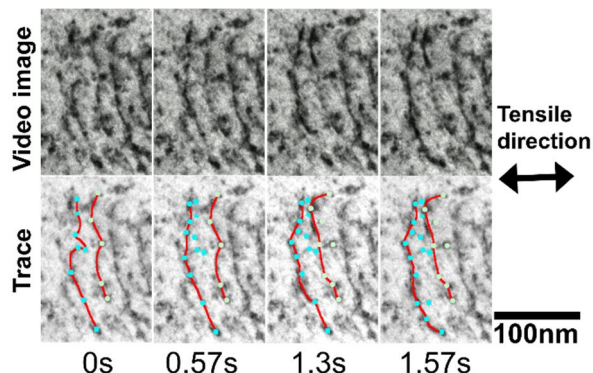


図 1 Time-sequential changes in dislocation motion for irradiation sample 2. Upper photos show the corrected images in which the image is normal to the slip plane of dislocations. Bottom photos show the trace images of dislocation and defects that are pinned/depinned. The red lines represent dislocation lines; blue and green dots represent pinning/depinning points.

引張後に実施した TEM 観察結果から、FL と BD の障害物間隔を求めた。また他研究より、一般的に TEM では観察ができないとされている溶質原子クラスタ (SC) の数密度と平均直径をアトムプローブを用いて観察し、溶質原子クラスタの障害物間隔と各障害物間隔を比較し、運動転位をピン留めした照射欠陥の種類を同定した。これより、FL と BD の組み合わせが該当すると確定できた (図 2)。

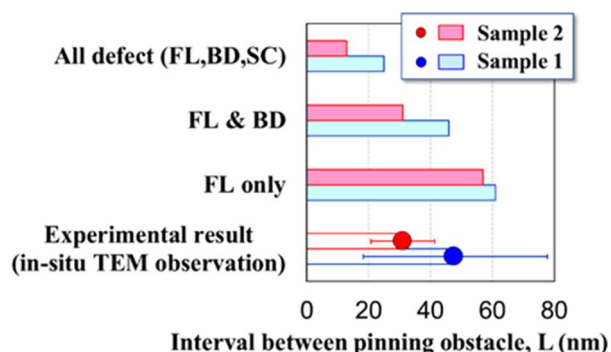


図2 Obstacle intervals observed in irradiation samples 1 and 2. Obstacle type is classified into three types: all defects including FL, BD, and SC; FL and BD; and FL only. Experimental data of jump distance from in-situ TEM observation were shown as deep blue and deep red for samples 1 and 2, respectively.

この結果、溶質原子クラスタは運動転位に対しては強い障害強度因子を持つ介在物としては機能せず、その数密度の大きさによって照射硬化に寄与すること実験的に示された。また室温と250 °Cでの引張挙動による転移-照射欠陥相互作用に大きな変化は見られず、この温度範囲で転位-欠陥相互作用における熱活性化状態変化が見られないことがわかった。本研究結果として国際学術論文1件の受理があげられる。

“Dynamic Interaction between Dislocation and Irradiation-Induced Defects in Stainless Steels during Tensile Deformation”, K-i. Fukumoto, K. Umehara and K. Yabuuchi, *Metals*, 12, (2022) 762-(p9), <https://doi.org/10.3390/met12050762>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Fukumoto Ken-ichi, Umehara Kohei, Yabuuchi Kiyohiro	4. 巻 12
2. 論文標題 Dynamic Interaction between Dislocation and Irradiation-Induced Defects in Stainless Steels during Tensile Deformation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Metals	6. 最初と最後の頁 762 ~ 770
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/met12050762	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 梅原弘平、福元謙一
2. 発表標題 TEM内引張「その場」観察を用いたイオン照射ステンレス鋼における照射欠陥評価
3. 学会等名 顕微鏡学会第63回シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 梅原弘平、福元謙一
2. 発表標題 動的観察によるイオン照射ステンレス鋼中の照射欠陥と強度の相間についての研究
3. 学会等名 日本金属学会鉄鋼協会北陸信越支部講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 福井真音、東郷広一、福元謙一
2. 発表標題 TEM内引張「その場」観察法による純タングステンの転位挙動に関する研究
3. 学会等名 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部 令和元年度連合講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福井真音、東郷広一、福元謙一
2. 発表標題 TEM内引張「その場」観察法による純タングステンの 転位挙動に関する研究
3. 学会等名 材料照射研究会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関