

機関番号：13401

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20560763

研究課題名 (和文) 低放射化バナジウム合金の照射後熱処理による機能修復

研究課題名 (英文) Recovery of mechanical property in low-activation vanadium alloys in post-irradiation heat treatment

研究代表者

福元 謙一 (FUKUMOTO KENICHI)

福井大学・附属国際原子力工学研究所・教授

研究者番号：30261506

研究成果の概要 (和文)：照射脆化を示す中性子照射された低放射化バナジウム合金の熱処理を行い、照射硬化を低下・緩和させる健全性を回復させる最適熱処理条件を探索し、500℃で10～20時間の真空焼鈍により延性回復が生じることが明らかになった。この延性回復は欠陥集合体内部からガス不純物が脱離することにより欠陥集合体の運動転位に対する障害強度因子が低下し、転位の抵抗力の低下による局所変形破壊から均一変形による破壊に遷移したためであると考えられた。

研究成果の概要 (英文)：In order to improve the irradiation embrittlement of low activation-induced V-4Cr-4Ti alloy after neutron irradiation below 300C, a research for post-irradiation heat treatment for neutron-irradiated vanadium alloys was conducted. It was found that an anneal treatment at 500C for 10 to 20 hours in a vacuum was required to make the ductility of irradiated vanadium alloys recovered in tensile test after the anneal treatment. The recovery of ductile behavior in irradiated vanadium alloys is caused by the transition of deformation mode from rapid local necking deformation to uniform deformation due to the reduction of barrier strength factor for defect clusters. It was considered that the reduction of barrier strength factor for defect clusters against dislocation motion during deformation was brought by desorption of interstitial gas impurities from defect clusters after anneal treatment as the interstitial impurities had been absorbed in dislocation core in the as-irradiated ones.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	700,000	210,000	910,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	2,300,000	690,000	2,990,000

研究分野：原子炉材料

科研費の分科・細目：核融合学

キーワード：低放射化バナジウム合金、照射脆性、熱回復、補修技術

## 1. 研究開始当初の背景

低放射化バナジウム合金(V-4Cr-4Ti)は先進型核融合炉の第一壁およびブランケットの候補材である。バナジウム合金は低誘導放射能、高温強度そして高温下での耐照射損傷性の点で他の候補材料に対して優れた点を示している。一方でバナジウム合金は400°C以下で0.5dpa (dpa : はじき出し損傷量) 以上の中性子照射により著しい照射硬化が生じ、照射脆化することが知られている。低温での照射脆化を改善することが出来れば、バナジウム合金の核融合炉使用運転温度領域を現在の400-700°Cから低温側に拡張することができ、安全性及び経済性に優れた核融合炉ブランケットシステムを提案することができる。

申請者はバナジウム合金の照射下特性について研究を行っており、中性子照射による低温照射脆化機構について高密度の欠陥集合体形成による転位運動抵抗の増加から、局所的な転位運動集中による塑性不安定性が著しい延性低下を引き起こすことを明らかにした。この高密度微細欠陥集合体形成による欠陥集合体分布と、欠陥への不純物の固着による欠陥自身の転位運動に対する障害強度が増大することの相乗効果により、著しい照射硬化と転位チャネリング発生による局所の変形集中が起こると考えている。このため、低温照射による照射硬化を緩和するためには、①欠陥集合体分布を変化させるための試料調整、②高純度化による欠陥集合体自身の障害強度の低下、が重要であると考えた。

バナジウム合金の高純度化による低温照射脆化の抑制については、高純度材を用いてHFIR-17J 低温中性子照射実験を行い、照射硬化の抑制が可能であることを最近示した[1]。一方で照射後焼鈍試験から損傷組織粗大化の研究を行い、欠陥集合体の数密度およびサイズを熱処理により変化させることによって、照射硬化を緩和する方策を講じた[2]。この結果照射脆化を示したバナジウム合金において600°C以上で照射組織の回復が生じることが確認された。しかしながら損傷組織変化と機械的性質の回復の相関性については十分に明らかではなく、特に機械的性質に及ぼす熱処理効果のメカニズムについては明らかではないと感じている。また熱処理による損傷組織変化に伴う機械的性質の回復・修復の理解のためには、変形時の損傷組織と転位との相互作用や変形時の転位運動に対する損傷組織の抵抗力について明らかにしなければならないと考えている。工学的な問題として核融合炉ブランケットシステムでは600°C以上の温度領域での熱時効などの熱処理システムを構築することは難しく、冷却材を利用した内熱式の加熱システムなどの

利用を考えたとき400~500°Cが加熱上限温度であると考えられるため、出来るだけ低温での熱処理条件で機能修復が行えるシステムであるべきと考える。このため熱処理システムの構築が可能な熱処理条件を提示する必要がある。

申請者のグループはバナジウム合金に対してHFIR、ATR、JMTRなどで100°Cから400°Cで0.1dpa~数dpa程度の中性子照射を実施しており、脆性挙動を示す照射試験片を多く有している。これらの試料に対して適切な熱処理を行い、硬さ試験および引張試験による機械的性質変化に関する研究を行い、熱処理による機械的性質変化をTEMによる損傷組織観察から損傷回復過程との相関を得ることにより熱処理システム構築可能な熱処理条件を探索する指針を得ることが出来ると考えた。

以上のことから低放射化バナジウム合金の低温照射脆化材の熱処理による損傷組織回復過程と機械的性質の回復・修復に関する研究を行い、損傷組織変化への熱影響や、機械的性質回復を律則する相関則について明らかにし、熱処理による機械的性質回復・修復のための最適条件を明らかにすることが重要であると考えた。

## 2. 研究の目的

HFIR、ATR、JMTRなどで100°Cから400°Cで0.1dpa~数dpa程度の中性子照射を行った試料の熱処理を行い、TEMによる損傷組織変化と硬さ試験および引張試験による機械的性質変化について研究を行う。

熱処理による損傷組織粗大化傾向の定量化を行い、対応する機械的性質変化(硬さの回復、降伏応力の低下、延性の増加)の相関性について明らかにして機械的性質回復の機構について明らかにする。照射脆化に対する最適な回復・修復熱処理条件を予測し、核融合炉ブランケットシステムとして合理的な熱処理条件を提示する。

## 3. 研究の方法

V-4Cr-4Ti合金のSSJ引張試験片

(0.25mm(t) x 1.2mm(w) x 5mm(l))を用い、熱処理条件として1000°Cで2hrの真空熱処理を行った。照射条件は常陽で400~700°Cの温度範囲にて0.5~5dpaの中性子照射を行った。ATRで照射温度は228°C、4.7dpa、HFIRで照射温度は307°C、6dpaの中性子照射を行った。熱時効処理は東北大金研大洗センター及び京大原子炉にて行った。熱時効は2時間~50時間の範囲で行い、

その後引張試験ならびに微細組織観察を行った。微細組織観察は引張試験済み試料から透過型電子顕微鏡 (TEM) 試料を作製した。TEM 観察は東北大金研大洗センター及び京大原子炉にて行った。参照として非照射材の熱時効実験を福井大学で行った。V-4Cr-4Ti 合金の板材から引張試験片を打ち抜き、熱処理および熱時効を行い、引張試験ならびに微細組織観察を行った。

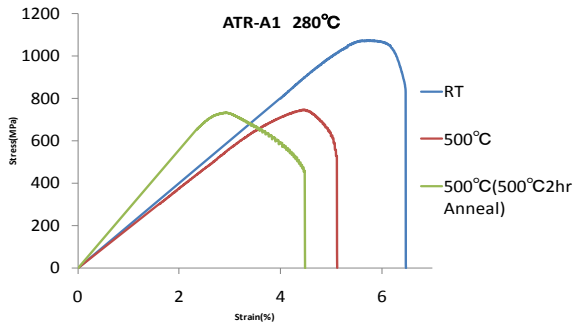


図 1 : ATR-A1 で照射された V-4Cr-4Ti 合金の応力歪み曲線。試験温度は室温、500°C、500°C2 時間焼鈍後 500°C。

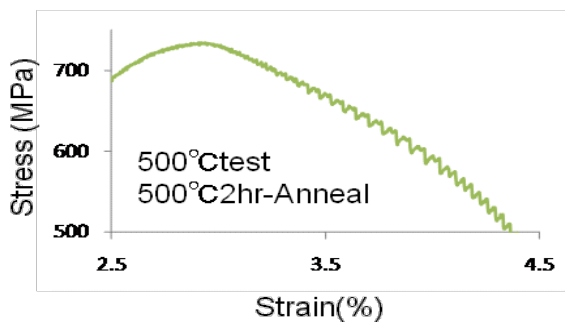


図 2 : ATR-A1 で照射された V-4Cr-4Ti 合金に対して 500°C2 時間焼鈍後 500°Cにて引張試験を行った際に応力-歪み線上に発生した動的ひずみ時効。

#### 4. 研究成果

常陽で 400~700°C の温度範囲にて 0.5~5dpa 照射した V-4Cr-4Ti 合金の室温および試験温度近傍の高温引張試験を行った。400~450°C では 800MPa を越える著しい照射硬化と極端な延性低下が見られた。高温引張試験では極端な延性低下現象にもかかわらず急激な応力降下・上昇のセレーション現象 (動的歪み時効現象) が見られた。500°C 以上の照射温度では極端な延性低下などは見られず、高温引張試験においても 10% 程度の均一伸びを示したため、450°C 以

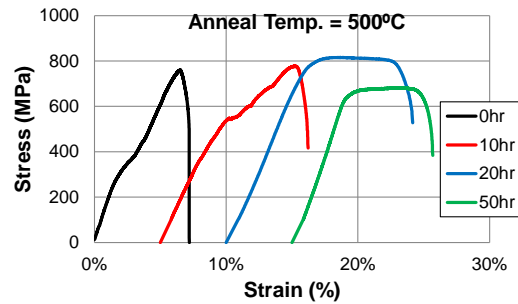


図 3 : HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金の応力歪み曲線。試験温度は室温、焼鈍温度は 500°C で焼鈍時間は、0、10 時間、20 時間、50 時間。

下の照射試料においてのみ焼鈍による回復実験が有効であることが示された。照射後組織観察から照射硬化に寄与する欠陥は 400°C 以下では微小な欠陥集合体であり明確な析出物形成は見られないが、450°C 以上では TiO 型の円板状析出物形成が照射硬化に寄与する欠陥であった。このため 400-450°C を境に組織回復のための焼鈍条件を変化させる必要がある。焼鈍温度回復について短時間での組織回復をはかるため 500°C 近傍での熱処理を中心に熱処理実験を行った。

図 1 は ATR-A1 で照射された V-4Cr-4Ti 合金の応力歪み曲線で、室温引張試験、500°C 引張試験、500°C2 時間焼鈍熱処理後引張試験である。室温及び 500°C 試験では伸びが見られずすぐに破断に至るが、500°C 熱処理引張試験では降伏後にすぐに最大引張強度に達するがその後の局所変形伸びが見られた。更にセレーション現象が最大引張応力に達した以降に顕著に観察された。図 2 にセレーション挙動部の拡大図を示す。セレーション挙動が最大引張応力に達したあとに観察されたのは、降伏時に発生した転位チャンネル内で転位の増殖運動が生じ、転位チャンネル内での転位の集団運動が生じていることが示される。更に最大引張応力後の局所変形の進展は二次すべりの発生や欠陥と運動転位の相互作用が生じているためと考えられる。500°C 焼鈍における損傷回復は従来の研究では小さいものと考えられていたが室温引張試験で評価されていたため高温での塑性変形の回復が生じていることを見いだせなかった、と考えられる。

常陽、ATR 照射材を用いた研究から 500°C における熱処理焼鈍時間の依存性について HFIR 照射材を用いた熱処理を行い、引張試験および TEM 観察を行った。図 3 は HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金の応力歪み曲線を示す。試験温度は室温、焼鈍温度は 500°C で焼鈍時間は、0~50 時間で行っ

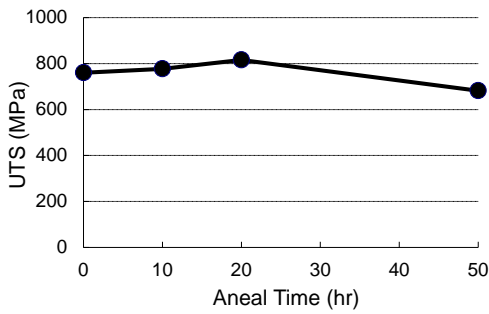


図 4 : HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金引張試験による最大引張強度の焼鈍時間依存性

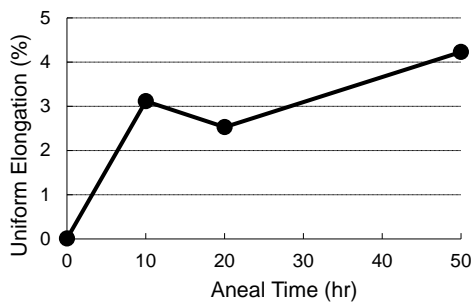


図 5 : HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金引張試験による均一伸びの焼鈍時間依存性

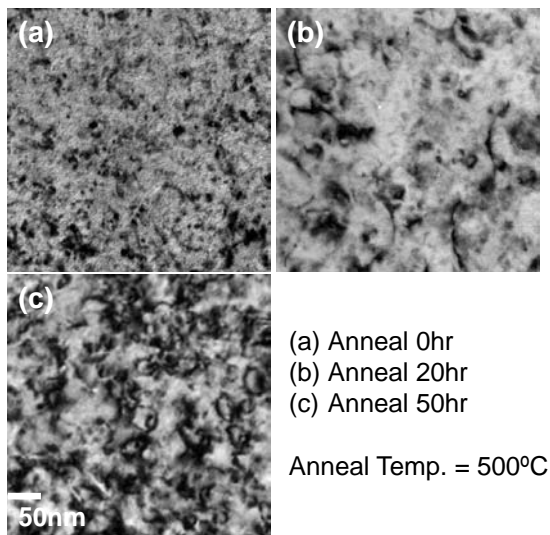


図 6 : HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金の TEM 微細組織の焼鈍時間依存性 (a) 0 時間、(a) 20 時間、(a)50 時間、

た。50 時間に及ぶ焼鈍実験は京都大学原子炉実験所で行い、時間外使用の際は焼鈍炉の TV カメラモニタ監視によって安全を確保して実施した。降伏応力については明瞭に得られなかったため最大引張強度による評価を行った。照射後焼鈍により 20 時間までは最

大引張強度に大きな変化が見られず、焼鈍時間が 50 時間に達したときに照射硬化の低減が見られた。図 4 に引張試験による最大引張強度の照射後焼鈍依存性について示す。一方、均一伸びでは 10 時間の焼鈍において脆性破壊的挙動を示した応力歪曲線において流動応力領域が現れ、20 時間焼鈍においては降伏後の変形領域が明確に現れ、完全弾塑性体変形のようなプラトー領域を示した。50 時間焼鈍においてもこの傾向は継続し、明確な均一伸びの回復が確認された。図 5 に引張試験による均一伸びの照射後焼鈍依存性について示す。これらの試料の未変形部位から試験片を採取し TEM 観察を行った。図 6 に照射後焼鈍材の TEM 微細組織を示す。照射まま材においては転位組織と微小なブラックドットを示す照射欠陥集合体が高密度に存在していた。焼鈍時間が 20 時間に増加すると照射組織の数密度が減少し、焼鈍時間の増加によっても数密度変化は強く見られなかった。焼鈍時間の増加により微小ブラックドットは消滅し、転位ループの成長が継続してみられた。また一部領域で TiO 型の円板状析出物形成が見られたが、局所的領域に限定するものであった。図 7 に照射後焼鈍試料の TEM 微細組織観察から得られる欠陥集合体数密度及び平均直径の焼鈍時間依存性について示す。

ATR 照射材の照射後焼鈍結果において 500°C2 時間焼鈍後の 500°C引張試験において最大引張強度に達した後の絞りが生じている変形においてセレーション挙動が見られた。500°C照射材においては最大引張強度後の変形挙動は局所変形に集中し、変形部にセレーションは見られない。500°C引張試験では非照射材の場合、固溶酸素や固溶窒素などによる Cottrell 雰囲気に転位がトラップされ、応力の増加とともに離脱するサイクルを繰り返すセレーション現象が発生することが知られている。このセレーション現象から 500°C2 時間焼鈍材では材料中に固溶不純物が存在することが考えられる。照射材においてセレーションが観察されない理由として、照射欠陥や高密度転位の転位芯に吸着しているためと考えられる。焼鈍によるセレーション現象の発生は、焼鈍により不純物原子が転位芯トラップサイトから脱離し、固溶不純物として再固溶したものと考えられる。

500°C焼鈍により微小ブラックドットが形成されたが焼鈍時間の増加とともに数密度が減少した。代わって転位ループ組織が顕著に現れたため、微小ブラックドットは照射欠陥集合体としては転位ループであったと推察される。500°C焼鈍における損傷組織解析から損傷組織分布による各要素からの照射硬化因子を求め、照射硬化量を求めたが、大きな変化は見られず、50 時間での照射硬化量

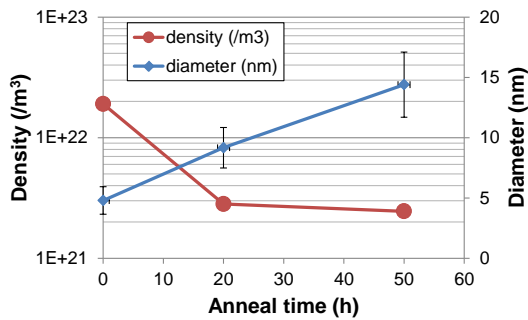


図 7 : HFIR11J で照射された V-4Cr-4Ti 合金の TEM 微細組織の欠陥集合体数密度及び平均直径の焼鈍時間依存性

低下を説明する良い一致を得られなかった。この要因として転位組織と固溶不純物の固着状態の変化に伴う障害物強度因子の変化が考えられる。照射まま材においては転位心に固着され転位運動に対する抵抗力が大きい焼鈍による不純物原子の転位からの離脱により転位運動に対する抵抗力の緩和が生じたため、同一の転位に対する抵抗力を示す障害強度因子が変化したものと考えられる。抵抗力の低下は局所的変形の発生・進行を緩和し、試料全領域での変形進行を促進することにより均一伸びの回復が得られたものと考えられる。以前の研究では 600°C 2 時間で大きな回復が得られることが示されており、本研究において 500°C で 10~20 時間で均一伸びの回復が得られたことは、核融合炉運転モードにおいて起動時及び終了時に 500°C で 10~20 時間のスタンバイ時間が得られればバナジウム合金の照射脆性挙動からの損傷回復が得られる見込みを示すものである。

#### まとめ

ATR および HFIR で 300°C 以下にて 3~5dpa 照射した V-4Cr-4Ti 合金に 500°C 及び 600°C にて真空焼鈍熱処理を行い室温および 500°C での高温引張試験を行った。500°C において 2 時間から 20 時間焼鈍を行うことにより照射硬化量に変化は見られなかったものの、均一伸びの回復が観察された。TEM 観察では焼鈍による内部組織変化は大きく変化していないことから、欠陥集合体数密度・サイズ分布変化によるものではなく欠陥集合体内部の歪み状態やガス不純物の転位の固着からの脱離による欠陥集合体の運動転位に対する障害強度因子が低下などの損傷緩和が原因であることが明らかとなった。600°C の温度で 2 時間、あるいは 500°C の温度で 10~20 時間の

照射後焼鈍により低温照射損傷蓄積の熱回復が生じることから、核融合炉構造材料としてのバナジウム合金の照射下健全性回復手法の基礎的な指針が得られた。

#### 参考文献

- [1] K. Fukumoto, M. Narui, H. Matsui et al., "Environmental effects on irradiation creep behavior of highly purified V-4Cr-4Ti alloys (NIFS-Heats) irradiated by neutrons", Journal of Nuclear Materials, 386-388, 2009, pp.575-578  
 [2] K. Fukumoto, M. Sugiyama, H. Matsui, "Features of dislocation channeling in neutron-irradiated V-(Fe, Cr)-Ti alloy", Journal of Nuclear Materials, 367-370, 2007, pp.829-833

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0)

〔学会発表〕(計 3 件)

- ①岩崎 将大, 福元 謙一, 徐 虫 L, 「低放射化バナジウム合金の低温熱時効による塑性回復の研究」日本原子力学会 2011 年春の大会, 2011 年 3 月 29 日、福井市  
 ②岩崎将大, 福元 謙一, 山崎正徳, 鳴井実, 徐虫 L, 「低温中性子照射したバナジウム合金の高温引張試験におけるセレーション挙動」、第 8 回核融合連合講演会、2010 年 6 月 9 日、飛騨市  
 ③ Y. Kuroyanagi, K. Fukumoto, "Precipitation behavior on mechanical property change for thermal aging heat treatment in V-Cr-Ti alloys", ICFRM-14, 2009 年 9 月 8 日、札幌

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)  
 ○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

福元 謙一 (FUKUMOTO KENICHI)  
 福井大学・国際原子力工学研究所・教授  
 研究者番号：30261506