

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20560777

研究課題名(和文) 原子力用構造材料中のヘリウム気泡成長に及ぼす応力付加の影響

研究課題名(英文) Influence of Applied Stress on Helium Bubble Growth in Nuclear Structural Materials

研究代表者

山本 徳和 (YAMAMOTO NORIKAZU)

独立行政法人物質・材料研究機構・環境・エネルギー材料萌芽ラボ・主席研究員

研究者番号：70354199

研究成果の概要(和文)：革新的原子炉および核融合炉における構造材料候補である Fe-Ni-Cr オーステナイト合金、低放射化フェライト鋼の耐ヘリウム脆化特性の向上に資するために、ヘリウム気泡組織に及ぼす高温での応力付加の効果を調べた。ヘリウム脆化が臨界気泡説で起こることを示唆する結果を得た。また、粒内析出物のヘリウム捕獲を利用した脆化防止の効果が限られたものであり、粒界での気泡成長を抑制することが重要であることが分かった。

研究成果の概要(英文)：So as to improve the helium-embrittlement-resistance of candidate structural materials for innovative nuclear fission reactors and fusion ones, such as Fe-Ni-Cr austenitics and reduced activation ferritic steels, the evolution of helium bubble microstructure has been investigated under the stress at high temperatures. The embrittlement seemed to occur as described by critical bubble theory. It has been elucidated that the prevention of bubble growth at grain boundaries should be effective to the suppression of the embrittlement while helium capturing on intragranular precipitates provides little advantage.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学(原子力材料学)

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力材料、構造材料、照射損傷、ヘリウム脆化、低放射化フェライト鋼、オーステナイト、イオン照射、クリープ

1. 研究開始当初の背景

将来のエネルギー安定供給の一翼を担うことが期待されている高速増殖炉、超臨界軽水炉等の革新的原子炉や核融合炉では、炉心部やプラズマの近傍で使用される材料の内部で、材料構成原子と中性子との核変換反応によってヘリウムが発生し、それが材料の結晶粒界に集積して、ヘリウム脆化と呼ばれる粒

界脆化を引き起こすことが知られており、当然のことながら、特に構造材料において問題視されている。中でも高温で起こるヘリウム脆化は、炉の運転上限温度を決定する因子のひとつであり、最終的には経済的成立性にも影響を及ぼすものとして、これらの炉の開発に当たって解決すべき重要な材料課題として認識されている。

このような状況下で、粒界に存在するヘリウム気泡を脆化の原因とみなす幾つかの理論モデルが、有力な説として提示されてきた。しかしながら、これらを検証するための実験的研究の多くは、気泡の平均サイズや数密度といった統計的代表的値を用いて議論しており、気泡のサイズ分布を基にした精緻な検討は少なかった。また、ほとんどの場合において、研究対象が応力を付加しない単純な熱時効材や材料試験を終えた破断試験片であり、ヘリウム気泡の形成、成長に対する高温での応力付加の影響に関しては、十分な情報が得られているとは言い難かった。

2. 研究の目的

上で列記した炉の構造材料候補において、核変換ヘリウムが凝集して出来たヘリウム気泡、特に高温ヘリウム脆化の原因として有力視されている粒界ヘリウム気泡、の成長過程に及ぼす温度、付加応力、時間の効果を調べる。

また、これら気泡の組織について得られた定量データに検討を加え、耐ヘリウム脆化特性に優れた材料の開発に有益な知見を得る。

3. 研究の方法

供試材は Fe-15Ni-15Cr 及び Fe-25Ni-15Cr の組成に M(C, N) 型炭窒化物生成元素である V, Ti, Nb 等を加えたオーステナイト合金、ならびに低放射化フェライト鋼の代表鋼種である F82H-IEA 材 (Fe-8Cr-2W-V, Ta 鋼) であった。前者は高速増殖炉や超臨界軽水炉における燃料被覆管等の炉心材料を指向したもので、M(C, N) の界面がヘリウム気泡の優先核生成場所として機能することによるヘリウム捕獲効果を利用して、脆化抑制が期待できる。また、後者は原型炉以降の核融合炉で第一壁/ブランケット構造材料の最有力候補であり、完全なマルテンサイト組織になっている。

これらの材料に、実炉内での核変換ヘリウム生成を模擬するために加速器による α 線照射を行ってヘリウムを注入した後、クリープ試験機を用いて応力を付加した試験片に対して透過電子顕微鏡観察を実施して得た画像を解析した。その際、統計的な精度を確保するため、画像データは3個またはそれ以上の結晶粒および結晶粒界から採取した。

なお、実験温度(照射およびクリープ温度)は、オーステナイト合金については 873 K および 923 K、F82H-IEA 鋼に関しては 823 K とした。これらは、それぞれの材料について対応する炉での想定最高使用温度に相当する。

4. 研究成果

(1) Fe-Ni-Cr オーステナイト合金

図1に Fe-Ni-Cr オーステナイト合金で観察された典型的なヘリウム気泡を例示する。

数 nm から数十 nm の気泡が粒界(写真の左上から右下にかけて斜めに存在)および粒内に広範囲に分布していることが分かる。

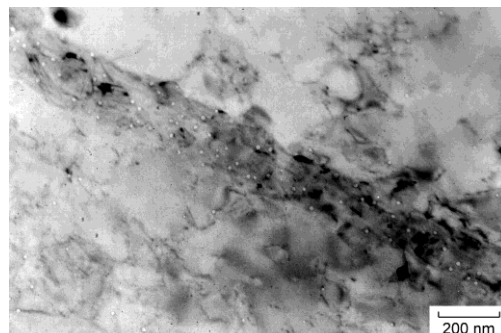


図1 Fe-15Ni-15Cr 中のヘリウム気泡。

これらの気泡のうち、ヘリウム脆化と密接に関わると思われる粒界気泡のサイズ分布が、応力付加時間によってどのように変化するかを示したのが図2である。保持時間が長くなるにつれて気泡半径 (r_{GB}) は増加する傾

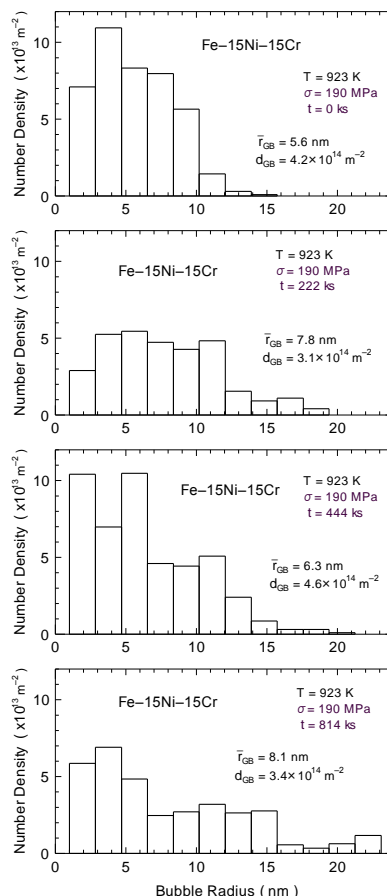


図2 Fe-15Ni-15Cr 合金中の粒界ヘリウム気泡分布の時間変化(注入ヘリウム量: 500 appm, 試験温度: 923 K, 付加応力: 190 MPa)。

向にあるが、評価精度を鑑みると、数密度 (d_{GB})には有意な変化はみられなかったと判断される。この実験条件 ($\sigma=190$ Mpa, $T=923$ K)で粒界気泡の臨界半径を理論的に算定すると 9.4 nm となり、これより大きい気泡はエネルギー的に不安定となって際限なく成長し、最終的に粒界破壊を引き起こすと考えられる。この 9.4 nm という値を念頭に図2のサイズ分布をみると、時間の進行に従ってこれ以上の半径を持つ気泡が増加していたことが見て取れる。この事実は、気泡の成長速度が臨界サイズを超えた後に早くなったことを示しており、本実験で用いたオーステナイト合金が全てヘリウム脆化を起こして粒界破壊したと相まって、ヘリウム脆化が臨界気泡の不安定成長によって起こったことを示唆している。

図3に粒界ヘリウム気泡組織と粒界一付加応力間の角度との間の関係を示す。図中の θ は付加応力と粒界の法線方向の角度を意味し、 θ の値がゼロのときは応力は粒界に垂直に働く。図から分かるように、気泡の平均

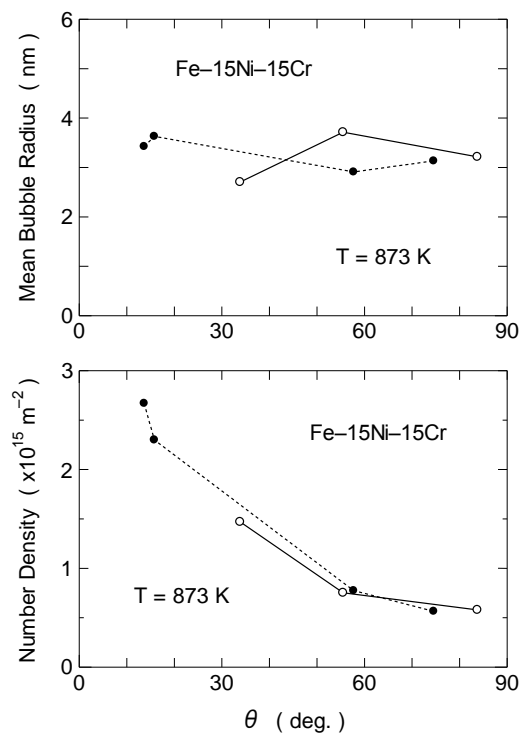


図3 Fe-15Ni-15Cr 合金中の粒界ヘリウム気泡の平均半径(上図)および数密度(下図)と粒界一付加応力間角度の関係。

半径には有意な変化が認められなかったものの、応力が付加される方向が粒界の垂線方向に近づくにつれて数密度が数倍に渡って増加した。従って θ の小さい粒界では、大きい粒界に比べて、臨界半径を超える気泡の数

密度が高いと推察される。このことは、ヘリウム脆化を起こして破断した試験片の側面観察において応力と垂直に近い粒界で他の粒界よりもクラックが多かったという以前の観察結果と整合しており、このような粒界で先行して破壊が開始するものと思われる。

一方、粒内のヘリウム気泡については、ほとんどのものが転位、析出物界面、双晶面等の拡張格子欠陥上に存在していた。特に析出物界面は、最も効果的な気泡の優先核生成場所として機能していた。これら粒内気泡について臨界半径を計算評価してみると、観察された全ての気泡がこれ以下のサイズであった。そこで、これらの気泡がエネルギー的な安定状態にあると仮定して、個々の大きさの気泡に内包されるヘリウムの原子数を計算で求め、これと観察されたサイズ分布から粒内に存在するヘリウム原子の密度を算出した。この結果とヘリウム気泡の最有力捕獲場所である析出物の数密度との相関を表したのが図4である。両者の間には正の相関があ

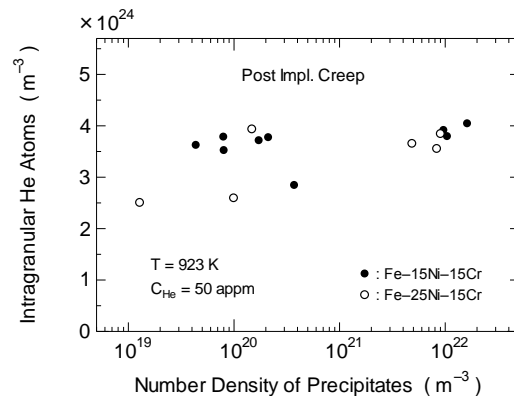


図4 Fe-Ni-Cr 合金の結晶粒内におけるヘリウム原子密度と析出物数密度との相関(注入ヘリウム量: 50 appm, 試験温度: 923 K)。

り、粒内析出物がヘリウムの粒界への移動の妨げになっていたことは十分に推察されるが、析出物密度が約3桁に渡って変化しても、粒内ヘリウムの原子密度は概ね2倍弱しか増加していないことが分かる。また、同様の計算で粒界のヘリウム原子密度を計算し、粒内での計算結果と併せて評価すると、多くの場合においてヘリウムの粒内存在率が90%を超えている。従って、粒内捕獲によってヘリウムの粒界への蓄積を抑制すべく、粒内析出物の高密度分散を実現しても、その効果は限定的であり、粒界での気泡成長を抑えてして臨界サイズ以上の気泡の出現を阻止することがより重要であると考えられる。

(2) 低放射化フェライト鋼

F82H-IEA 鋼で観察されたヘリウム気泡の

典型例を図5に示す。なお、この図では結晶粒界が中央で横方向に存在している。

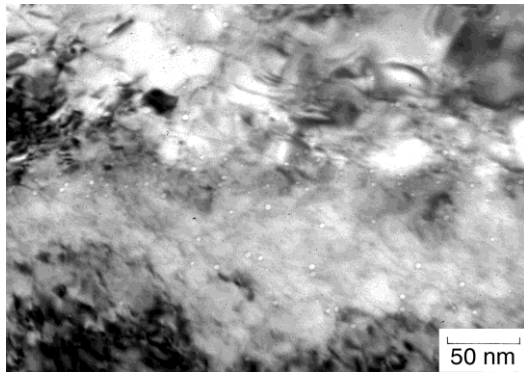


図5 低放射化フェライト鋼(F82H-IEA)中のヘリウム気泡。

Fe-Ni-Cr オーステナイト合金と同じく、粒内および粒界にヘリウム気泡がまんべんなく析出していたが、図1と図5を比べると明らかのように、実験温度が低かったこともあるが、F82H-IEA 鋼の方が気泡サイズが小さかった。

これらのうち粒内に存在する気泡については、大多数のものが、オーステナイト合金と同様に、転位や析出物界面、ラス境界といった拡張格子欠陥上に存在するようであった。

図5に示されるように、F82H-IEA 鋼の結晶粒界にも小さな気泡が高密度で分散していた。同鋼は磁性体であり、かつ気泡が小さいために気泡サイズ分布の評価が困難であったが、気泡半径および数密度とも高温での応力付加時間に対する顕著な依存性は認められないようであった。図6は823 Kで252 MPaの応力をかけてクリープ試験を行った破断

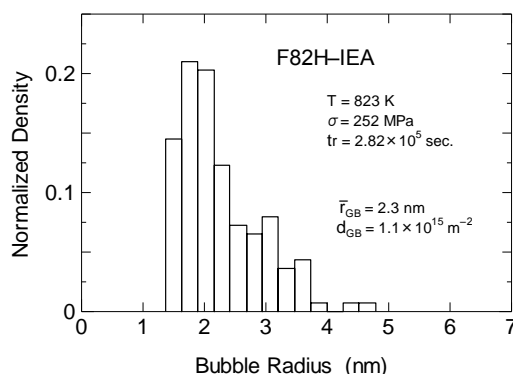


図6 ヘリウム注入後クリープ破断したF82H-IEA 鋼中の粒界気泡サイズ分布(注入ヘリウム量:1000 appm, 試験温度:823 K, 付加応力:252 MPa)。

試験片から得られた粒界気泡のサイズ分布を示したものである。理論計算によると、この試験条件下での粒界における臨界気泡半径は7.4 nmとなる。この値を図6のサイズ分布と照合すると、クリープ破断時においても臨界半径を超える粒界気泡が出現していなかったことが分かる。この観察結果は、本実験においてF82H-IEA 鋼がヘリウムを含有した状態でも完全な粒内延性破壊で破断してヘリウム脆化を発現しなかった事実と整合している。

以上、本研究で取得したヘリウム気泡サイズ分布に及ぼす高温での応力付加の影響についての定量データを解析、検討することによって、ヘリウム脆化の理論モデルの検証や耐ヘリウム脆化特性に優れた材料を開発するに当たっての指針の抽出に寄与できる可能性が示された。今後の展開としては、本研究の結果を踏まえてヘリウム気泡成長を定式化し、ヘリウム脆化の発現予測や寿命予測に進めることが考えられる。また、当研究で用いた透過電子顕微鏡による気泡サイズ分布評価においては、実験的な制約から特に粒界気泡に関して標本数が限られていることから、この点を改善する新たな手法の開発も研究課題として挙げられる。

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)

[学会発表] (計3件)

- ① 山本徳和、村瀬義治、高濃度ヘリウムを含有するF82H鋼の長時間クリープ特性、日本金属学会、2010年9月27日、北海道大学(札幌市)
- ② N. Yamamoto, Y. Murase, J. Nagakawa, Long-Term Creep Properties of F82H-IEA Heat Implanted with 1000 appmHe, 14th Int. Conf. on Fusion Reactor Materials (ICFRM-14), 2009年9月10日、札幌コンベンションセンター(札幌市)
- ③ 山本徳和、村瀬義治、永川城正、高濃度ヘリウムを注入したF82H-IEA材のクリープ特性、日本金属学会、2009年3月29日、東京工業大学(東京都)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山本 徳和 (YAMAMOTO NORIKAZU)
 独立行政法人物質・材料研究機構・環境・エネルギー材料萌芽ラボ・主席研究員
 研究者番号: 70354199

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

村瀬 義治 (MURASE YOSHIHARU)

独立行政法人物質・材料研究機構・環境・
エネルギー材料萌芽ラボ・主任研究員

研究者番号：10354193

永川 城正 (NAGAKAWA JOHSEI)

独立行政法人物質・材料研究機構・環境・
エネルギー材料萌芽ラボ・グループリーダー

研究者番号：60354198

(従事期間：2008～2009)