

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 30 日現在

機関番号：51601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2011～2014

課題番号：23561022

研究課題名(和文) 超高照射量領域での原子炉材料の力学挙動の実験 / モデルによる推定

研究課題名(英文) Behavior of nuclear reactor materials at high damage levels investigated by ion-irradiation and point defect reaction models

研究代表者

實川 資朗 (Jitsukawa, Shiro)

福島工業高等専門学校・その他部局等・教授

研究者番号：80354835

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：中性子照射は、材料に弾き出し損傷と希ガス原子などの不純物を導入する。オーステナイト鋼などに、2重イオンビーム加速器で弾き出し損傷量200dpa及びヘリウム量20000appmまで照射を行い、硬化の照射量依存性などを検討した。100℃以下では0.1dpa以下の低い照射量で硬化したが、温度と共に硬化をもたらす照射量が増えた。ヘリウム原子は、10000appm以上でオーステナイト鋼に付加的な硬化をもたらすことを示した。弾き出し損傷による硬化の照射量依存性について、反応速度論及び点欠陥集合体の捕獲半径により近似的に表現するモデルを開発し、高い損傷量までの材料の応力-歪み関係を推定する手法を構築した。

研究成果の概要(英文)：High-energy neutrons introduce displacement damages and transmutation produced impurity atoms (e.g. He atoms) in nuclear reactor materials. Irradiation with Fe and He ions on austenitic and martensitic steels to damage levels of 200 dpa and 20000 appm have been carried out to investigate the effect of temperature on the damage level dependence of hardening and reduction of toughness. Below 100oC, specimens exhibited hardening well below 0.1 dpa. However, the damage levels of hardening increased with temperature to 1 dpa level at 400oC. He atoms also introduce additional hardening with about <1000 appm and <10000appm for martensitic and austenitic steels, respectively. The displacement damage level dependence of hardness of austenitic steels seems to be modeled by rate theory with capture radius concept of dislocations for the point defects and small defect clusters. By using the model, a method to estimate stress-strain relations as a function of damage level has been also developed.

研究分野：工学

キーワード：原子力エネルギー 構造・機能材料 格子欠陥 加速器 モデル化 照射損傷 微細組織 硬化

## 1. 研究開始当初の背景

実現が期待されている高速炉や核融合発電装置等の炉心部の材料は、多量な高エネルギー中性子の照射による損傷を受ける。最近、核融合発電装置の炉心機器(ブランケット等)の構造材料に、照射による弾き出し損傷にして1000dpa(dpa; 材料の原子1個当たりが格子位置から弾き出され、点欠陥が生じる回数)を越える、極めて高い損傷に耐えることが求められる設計例が示され、このような検討が求められるようになった(これまでは100-200dpaの損傷量が達成目標)。

一方、軽水炉及び高速炉では、少なくとも炉心の形状及び機能を保つ機器(炉内構造物等で、交換を前提としない)が受ける弾き出し損傷量は、これまで低い値に留まるとされて来た(燃料集合体については、損傷速度は高いが使用期間が限られるため累積損傷量は余り高くない)。しかし、この見方は強く変更を迫られつつ有る。軽水炉については福島第一原子力発電所事故の影響で緊急性は少し減じたが、しかし、使用期間の延長などの必要性から、加圧水型炉で約60dpaに達する損傷量まで、材料の強度特性が、機器の健全性が確保できる範囲に留まるよう期待されるようになった。現在は、より高い損傷量(100dpa等)での耐久性確保も求められる方向にあり、さらに福島原発の事故の影響から、安全性の確保の要求が厳しくなり、検討すべき範囲は広くなりつつある(照射の影響などに要求される評価精度などを確保するため照射損傷の理解の重要性が増しつつある)。

高速炉については、常陽での炉内構造物の使用条件に基づけば、反射体、遮蔽体については、場所によって100dpaを優に越える損傷量まで、健全性確保が期待されることになる。

このように、近い将来、炉心構造物等に対する耐照射性の要求が、現状の数10dpaから100dpaの範囲を越え、炉型や機器によっては、数100dpaから1000dpaを越える範囲となる状況が生じつつ有り、この方向はさらに強まりつつある。しかし、このような超高照射量領域での材料の力学的挙動については評価例が無かった。

一方、提案者等は、これまでイオン照射装置を用いて、微小な領域(厚さ0.1-2 $\mu\text{m}$ 程度で、数 $\mu\text{m}^2$ の領域)の硬さ及び微細組織変化の評価を、ナノインデンテーション及び透過電子顕微鏡観察により行って来た。イオン照射を用いることで、1000dpaレベルの損傷を材料に与えることができる。また、微細組織変化及び強度特性変化モデルを用いることで(科研費基盤C課題番号20360268などで実施)、ナノインデンテーション及び微細組織観察を含むイオン照射実験の結果から、照射

した材料及び機器の力学的応答を推定することが可能となり、新型炉等の材料開発、炉心部の機器設計、安全性及び経済性評価に向けての材料工学的基盤を形成することができるようになりつつある。

以上のように、超高照射量領域での材料の力学挙動に関する実用的な要請が現れて来たこと、これに実験的及び計算科学的手法により対応できる見通しが、これまでの研究から得られつつ有ること等のため、課題解決を通じ、原子炉材料、格子欠陥研究等に寄与し得ると考え、研究計画を提案することにした。

## 2. 研究の目的

指摘したように、核融合装置の真空容器内機器の構造材料に、従来の想定を大幅に越える1000dpa以上の極めて高い照射損傷への耐久性が求められる傾向が出てきている。軽水炉及び高速炉でも、想定供用期間の延長等に伴い、燃料集合体以外の炉内構造物の材料にも高い耐照射性が求められつつ有り、機器によっては要求値が100dpaを優に越える可能性が有る。一方、>1000dpaの照射例は見当たらないが、イオン照射で到達が可能なので実現を試みる。但し、イオン照射材の強度評価には、試料寸法等の限界があるので、試験法を工夫し、さらに高照射機器の力学挙動推定手法等を開発し、高照射量での機器の健全性を推定し、今後の炉設計等での材料使用条件設定の基盤を提供する。

炉内構造物の使用温度範囲は、炉型に依存するが300から400程度が多い。この温度範囲内で課題となる材料挙動は、主に、照射による硬化(延性及び靱性低下を伴う)となる。これに加えて、炉型によっては核変換生成元素であるHe原子が照射によって材料中に多量に導入され、これが硬化及び脆化(破壊機構の変化を伴う)を助長するとされている。材料によるが、マルテンサイト鋼では数100appmから1000appm以上で影響が生じるとされている。

本研究では、弾き出し損傷がもたらす微細組織変化(高密度の点欠陥集合体の形成による転位密度の上昇)による硬化、及び核変換生成He原子による硬化、これに伴う延性、靱性の低下、破壊機構の変化を伴う脆化を評価の対象とする。照射損傷量は、弾き出し損傷量にして数100dpaまで、Heについては数100appmから10000appm程度までを範囲とする。

評価項目は、ナノインデンテーションによる硬化量に加えて、近似的な手法を加え、破壊挙動の評価までを試みる(照射後の真応力-真歪み関係の推定などによる)。これらから、照射材の強度特性モデルを用いて、構造物の破壊挙動等に対する超高照射量での照射影響を明らかにする。また、計算科学的手法に

関しては、強度特性モデルの他に、特に、高密度で生成する格子欠陥集合体間の相互作用の評価を通じ、弾き出し損傷に由来する硬化が飽和する条件等の評価と機構の推定を行う。

これらを通じて構造材料の使用限界を推定し、今後の炉設計等での材料使用条件設定の基盤を提供すると共に、高密度で生じる格子欠陥集合体間の相互作用の解析を通じ、格子欠陥集合体の安定性に関する学術的な知見を深めることをも目的とする。

### 3. 研究の方法

イオン照射により、高い速度で弾き出し及びヘリウム原子の両方による損傷を蓄積する。超高照射量の達成には時間を要するため、2年間以上かけて照射量を積み重ねる(マシンタイムにして10日以上)。加えて、照射実験を効率的にするため、実験による照射量依存性評価に加え、計算機シミュレーションでも照射効果の飽和傾向などを推定する。これにより実験の効率化を図る(変化が飽和すれば途中で照射を停止等)。一方、イオン照射では、損傷領域の寸法に限られる。このため、強度評価時の変形モードが圧縮(微小硬さ試験)に偏り、破壊条件評価が不足する。そこで、微小硬さ試験の結果から照射後の真応力-真歪み関係などを推定する方法を開発し、破壊条件の評価能力を強化する。併せて、並行して構築中の材料強度及び機器の力学挙動の推定モデルを適用し、超高照射量領域での機器の健全性を推定する。

これまで指摘したように、イオン照射を用いることで現実的な研究期間内に、材料に高い弾き出し損傷量及びHe量を与える。但し、これにより照射損傷が導入される領域は限られるため(例えば、試料表面から2 $\mu\text{m}$ の深さの領域)、引張特性等で代表される材料の強度特性を求めることは容易でない。そこで、以下を実施することで、超高照射量領域での材料の強度特性等を推定する。

- (i)イオン照射による照射損傷の導入(弾き出し及びHe原子による損傷の導入)
- (ii)ナノインデンテーション法による、照射した極微小領域の硬さ変化の検出
- (iii)極微小領域の硬さ変化などの結果から照射後の真応力-真歪み関係を推定する方法の構築
- (iv)照射材の強度特性モデルによる、照射後強度、延性、さらに機器の力学挙動推定
- (v)照射材の微細組織変化モデル(計算機シミュレーション)に基づく、強度特性変化等の照射量依存性等の推定

これらのうち、照射材の強度特性モデル(機器の力学挙動モデルを含む)及び照射材

の微細組織変化モデルは、提案者がこれまで蓄積して来たイオン照射実験による極微小領域硬さ及び中性子照射材の引張試験等の結果を、照射後微細組織観察結果を介してまとめ、これに計算科学的手法による微細組織変化推定手法を組合せたもので、これをさらに整備する。

### 4. 研究成果

複数の静電型加速器(原子力機構 高崎量子応用研究所 TIARA 施設; 原子力機構の連携重点研究制度にて利用)を用いた2重イオンビーム照射(3重イオンビーム照射も実施した)により、自己イオンである鉄イオン(3価)、核変換生成ガス原子に相当するヘリウムイオン(水素イオンの同時照射も行った)を、弾き出し損傷量のピーク値で0.1dpa(dpaは弾き出し損傷量の単位)から500dpaまで、ヘリウム量については1appmから20000appmまでの広い範囲で照射した。照射温度は、主に、100以下(80程度)及び300としたが、部分的に、200、400での照射も行った。自己イオンである鉄イオンの価数を3価とすることで、10MeVの鉄イオンの照射を実現した。ヘリウムイオンのエネルギーについては、1.05MeVとした。この結果、弾き出し損傷の深さは(イオンの飛程である)、1.8 $\mu\text{m}$ となった。一方、ヘリウムイオンについては(水素イオンも)、ディグレーダーを用いることで、0.8-1.2 $\mu\text{m}$ の深さの範囲に、概ね、均一に分布するようにした。

照射後の硬化の評価には、ナノインデンテーション法を用いた。ナノインデンテーションの条件として、定押し込み深さ法を用い、飛程よりも浅い押し込み深さである1 $\mu\text{m}$ となるようにして硬さ値の測定を行った。さらに、硬さの測定値に、中性子照射材における降伏応力と真応力-真歪み関係のモデルを適用し、照射後の真応力-真歪み関係を導いた。さらに、真応力-真歪み関係から破壊条件を推測し、構造物の破壊条件への照射の効果の評価も行った。

イオン照射による硬さ(ナノインデンテーション)の変化について示す。照射温度が100以下の場合には硬化は比較的少ない照射量から表れ、0.1dpaで飽和値の半分以上に達した。これは材料(316系のオーステナイト鋼、8Cr系マルテンサイト鋼、純ニッケル及び純鉄)に余り依存しない。照射量と硬さ値(概ね10%歪み程度の時の塑性流動応力に相当)の関係を解析すると、100以下では、照射量の1/6乗に従って硬さ値が増すのに対し、400では照射量の1/2乗に従った。但し、少なくともオーステナイト鋼及び純金属については、1~10dpaの範囲で硬さ値は飽和を示した。

このような硬さ-照射量関係の温度依存性

は、主に、点欠陥クラスター(転位ループ)の成長挙動の温度依存性及び稼働転位と点欠陥クラスターの間働く力の温度依存性によるものと推定される(点欠陥クラスターの成長挙動については、並行して開発した微細組織変化コードなどからも推定した)。

高濃度のヘリウムによる付加的硬化が検出された。この付加的硬化は、これまでも知られていたが、今回、材料依存性が強いことを示す明確な結果を取得できた。マルテンサイト鋼は、高温ではヘリウムの影響が比較的現れにくいことが知られている。しかし、このような温度では、約 1000appm を越えるヘリウム量で付加的(弾き出し損傷による硬化に加えて)な硬化を生じることが明瞭になった。これに対して、オーステナイト鋼は、高温でのヘリウム脆性感受性が高いことが知られているが、10000appm レベルに達するまでは硬さに明瞭な変化を生じることが無かった。これらの結果から判断すると、これまで懸念が指摘されてきた、比較的、低温の領域での靱性低下に関しては、マルテンサイト鋼に比べてオーステナイト鋼が大幅な余裕を持ち得ると推定できる。一方、マルテンサイト鋼の照射挙動に関してはヘリウムの影響についての検討が重要であることが明瞭になり、マルテンサイト鋼の機器の使用限界は核変換で生成されるヘリウム原子の量により制限される可能性が高いことが明らかになった。

#### 5. 主な発表論文等

[ 雑誌論文 ] (計 3 件)

Y. Abe, S. Jitsukawa, H. Matsui, N. Okubo and T. Tsukada, " Cluster dynamics simulation on microstructure evolution of austenitic stainless steel and alpha-iron under cascade damage condition ", ASTM STP 1547, pp.313 ~ 338, American Society for Testing and Materials(2013)

S. Jitsukawa, Y. Abe, K. Suzuki, N. Okubo, " Development of models for irradiation-induced changes to microstructures and stress-strain relations of austenitic steels ", ASTM STP 1547, pp.288 ~ 312, American Society for Testing and Materials(2013)

Q. Huang, N. Baluc, Y. Dai, S. Jitsukawa, A. Kimura, et al., " Recent progress of R&D activities on reduced activation ferritic/martensitic steels ", Journal of Nuclear Materials, Volume 442, Issues 1-3, Supplement 1, 2013, November, Pages S2-S8

[ 学会発表 ] (計 3 件)

Y. Abe, S. Jitsukawa, H. Matsui, N. Okubo and T. Tsukada, " Cluster dynamics simulation on microstructure evolution of austenitic stainless steel and alpha-iron under cascade damage condition ", 25th Symposium on the Effects of Radiation on Nuclear Materials, ASTM (2011)

S. Jitsukawa, Y. Abe, K. Suzuki, N. Okubo, " Development of models for irradiation-induced changes to microstructures and stress-strain relations of austenitic steels ", 25th Symposium on the Effects of Radiation on Nuclear Materials, ASTM (2011)

S. Jitsukawa, Nariaki Okubo, Norito Ishikawa and Kazuhiko Suzuki, " Mechanical response of martensitic and austenitic steels after ion-irradiation to high damage levels ", 16th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-16), Beijing, China, 2013

[ 図書 ] (計 0 件)

[ 産業財産権 ]

出願状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年月日 :

国内外の別 :

取得状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

取得年月日 :

国内外の別 :

[ その他 ]

ホームページ等

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

實川 資朗 (JITSUKAWA SHIRO)  
福島工業高等専門学校・教授  
研究者番号：80354835

(3) 連携研究者

大久保 成彰 (OKUBO NARIAKI)  
独)日本原子力研究開発機構・研究副主幹  
研究者番号：60391330

阿部 陽介 (ABE YOSUKE)

独)日本原子力研究開発機構・研究員  
研究者番号：50400403