

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23561024

研究課題名(和文)照射点欠陥の実効濃度に及ぼすマトリックス微細組織の影響に関する定量的評価と実験的

研究課題名(英文) Quantitative evaluation and experimental verification on the effect of matrix microstructure on effective concentration of radiation point defect

研究代表者

山下 真一郎 (YAMASHITA, SHINICHIRO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部・研究副主幹

研究者番号：10421786

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：新規原子力材料開発に資する合理的な材料設計指針を導き出すことを目的に、原子力用オーステナイト系ステンレス鋼のベース組成である、Fe-Cr-Ni系3元モデル合金等を用いた電子線照射実験その場観察及び中性子照射材の照射後組織観察等の実験研究から、実効点欠陥濃度や点欠陥フラックスの定量的な評価を行い、ポイドスエリング開始時期(潜伏期間)の延伸や照射誘起偏析抑制等に有効な材料学的因子(添加合金元素、析出物など)を抽出した。

研究成果の概要(英文)：To provide a guidance for a reasonable material design to help developing new nuclear material, Fe-Cr-Ni ternary model alloy, each of which are main components of austenitic stainless steel, and high Ni alloy were investigated by means of in-situ observation during electron irradiation and microstructural observation for neutron-irradiated samples. Concentration and flux of point defect were quantitatively evaluated and then effective factors (minor additives and precipitate etc) of material engineering for suppressing radiation-induced segregation and retarding onset of void swelling were successfully extracted.

研究分野：原子力材料工学

キーワード：原子力材料・核燃料 照射損傷

1. 研究開始当初の背景

材料の照射損傷研究は、純金属を対象とした原子空孔や格子間原子の格子欠陥挙動の素過程と各種原子力用合金材料における、点欠陥集合体であるボイドや転位ループ形成、あるいは結晶粒界での偏析挙動の溶質原子（不純物）と点欠陥との相互作用をベースに展開されている。しかし、合金元素である溶質原子と照射導入点欠陥との相互作用は、実際に作用する照射点欠陥の有効濃度に実効支配されるが、**照射損傷に関するこれまでの国内・国外における研究**は、スエリング、照射誘起応力腐食割れ、照射硬化など照射誘起現象に関する現象論的解釈が主体的であり、それ故、原子力材料開発に対する研究成果の反映は極めて試行錯誤的であり、中性子をはじめとする高エネルギー粒子線照射環境での材料中の格子欠陥挙動の定量的解析が欠如しているため、原子力関連材料の新規開発を困難にしている。これまで実験的な多くの優れた研究、例えば、耐ボイドスエリングや照射誘起偏析抑制機構に関して、合金元素の原子サイズ効果を中性子照射、電子線照射、及びイオン照射実験により解明し、第3合金元素として、IVa族元素のハフニウム(Hf)、ジルコニウム(Zr)等の単独、又は複合添加がスエリングや粒界偏析に極めて有効であることを明らかにした研究(引用文献)は、現在でも高く評価されているが、それら抑制効果に関する真の機構解明は現在も解明されていない。また、高速炉材料の長寿命化には、ボイドスエリングが開始する潜伏期間の遅延が材料学的課題であるが未だ解決されていない(引用文献)。これらいずれの照射事象は、照射で導入される熱平衡以上の過剰な点欠陥と材料素地(マトリックス)微細組織との相互作用に基本的に起因する。

2. 研究の目的

本研究では、従来の研究では全く明らかにされていなかった、原子力材料における実効点欠陥の濃度の定量的評価とマトリックス微細組織の影響を実験的な検証により、新規材料開発に対する合理的な指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究の主眼とする、点欠陥実効濃度は結晶粒界近傍で形成される点欠陥集合体無形成領域幅の実験的な実測から、解析理論式を用いて、マトリックス微細組織との関連から定量的に評価するもので、実施計画は、大きく2つに分担して実施する。

(その1); 既に中性子照射した材料における結晶粒界近傍に於けるボイド無形成帯幅の測定を結晶粒界方位差の効果を考慮して照射温度、照射量の関数として、原子空孔有効濃度を算出し、中性子照射条件と当初材料のマトリックス微細組織との関連を調べる。

(その2); 中性子照射材と同一組成材料に

ついて、超高压電子顕微鏡により、照射温度100 から700 の照射温度(軽水炉と高速炉照射温度範囲を想定)でボイド(原子空孔)又は転位ループ(格子間原子)の粒界近傍での集合体無形成過程をリアルタイムでその場観察し、集合体無形成帯の大きさの温度依存性から集合体形成に關与する点欠陥移動の熱力学的パラメータ、実効点欠陥濃度を求め、これらパラメータに及ぼす材料のマトリックス微細組織(合金成分、添加合金効果、及び照射誘起析出など)の影響を体系的かつ定量的に整理し、原子炉照射および電子線照射データとの比較相関から新規原子炉材料開発のための設計指針を確立する。

4. 研究成果

316系ステンレス鋼におけるボイド欠乏帯幅及び実効空格子濃度等に及ぼす添加元素の効果を調査することを目的として、SUS316L及びSUS316Lベースの微量元素添加鋼(Zr, V, Ti)に対して電子線照射下で形成したそれぞれのボイド欠乏帯幅を実験的に測定し、各鋼種の空格子移動エネルギーの文献値を使用して、実効空格子濃度ならびに空格子フラックスを評価した(引用文献)。これらの結果と、実機材PNC316(SUS316LにP, Ti, Si, Nb等の微量元素を添加した改良鋼)の実効空格子濃度ならびに空格子フラックスのデータを比較し、鋼種毎に実効点欠陥濃度及び点欠陥フラックスが異なることを示し、特に各鋼種間の空格子フラックスの関係は、それらの耐ボイドスエリング特性の関係と一致することが明らかとなった。このことから、本評価方法は、材料のボイドスエリング抑制に有効な添加元素を抽出するための効果的な方法として活用され得ることを示した。

Fe-15Cr-xNi系モデル合金(x=20, 25, 30, 35)、炭室化物析出強化型Fe-15Cr-40Ni、' / '析出強化型Fe-15Cr-43Ni、及びNimonic PE16におけるボイド欠乏帯幅及び実効空格子濃度等に及ぼす初期Ni濃度及び析出物の効果を調査することを目的として、それぞれの鋼種に対して中性子照射及び電子線照射下で形成したボイド欠乏帯幅を実験的に測定し、実効空格子濃度及び空格子フラックスを評価した(引用文献)。Fe-15Cr-x15Ni(x=15, 20, 25, 30, 35)モデル合金の中性子照射材(約450、18dpa程度まで)における結果から、初期Ni量の増加に伴いボイド欠乏帯幅が増加し、鋼種毎に実効空格子濃度及び空格子フラックスが異なることが示され、高Ni化に伴う耐スエリング特性向上の評価に資する効果的な方法として活用され得ることが示された。また、炭室化物析出強化型Fe-15Cr-40Ni、' / '析出強化型Fe-15Cr-43Niの中性子照射材(約450、50dpa程度まで)及び'析出強化型PE16の中性子照射材(約450、

125 dpa 程度まで)に対するボイド欠乏帯幅の評価においては、炭窒化物析出強化型 Fe-15Cr-40Ni においてボイド欠乏帯が形成したが、それ以外の鋼種ではボイド形成が認められず、ボイド欠乏帯が形成されなかった。これは析出物の効果により照射欠陥の多くが析出物シンクに吸収され、ボイド形成に至らなかったことによるものと考えられ、炭窒化物析出強化型 Fe-15Cr-40Ni については照射後微細組織観察により炭窒化物の形成が確認されなかったことから、析出物シンクが照射の影響で消失したことによりボイド形成が促進され、粒界近傍でボイド欠乏帯が形成されたと推察される。これらの実験結果から、ボイド欠乏帯の形成に及ぼす析出物の効果に関する知見として、照射下安定性の高い析出物種を分散させたマトリックス組織ではボイド欠乏帯は形成しないが、照射により不安定化し再固溶するような析出物種を含むマトリックス組織ではボイド欠乏帯が形成することを示した。

、で得られた成果により、ボイド形成、及び照射誘起偏析抑制のための、マトリックス組織を的確に制御する新たな材料開発設計に資する有用な知見を提示した。

<引用文献>

T Kato, H Takahashi, M Izumiya, Effects of systematic modification with oversized elements on void formation in 316L austenitic stainless steel under electron irradiation, Materials Trans., JIM, 32(1991), 921-930

伊藤正彦、ほか；日本原子力学会誌、30 (1998) 1005-1019

Yu. V. Konobeev, A. V. Subbotin, N. N. Bykov and V. I. Tscherbak, Effect of Additional Minor Elements on Accumulation Behavior of Point Defects under Electron Irradiation in Austenitic Stainless Steels, Phys. Status Solidi A 29 (1975) K121K124.

N. Sakaguchi, S. Watanabe and H. Takahashi, Heterogeneous dislocation formation and solute redistribution near grain boundaries in austenitic stainless steel under electron irradiation, Acta Mater. 49 (2001) 11291137.

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

Yoshihiro Sekio, Shinichiro Yamashita, Norihito Sakaguchi, Heishichiro Takahashi, Void denuded zone formation

for Fe-15Cr-15Ni steel and PNC316 stainless steel under neutron and electron irradiations, Journal of Nuclear Materials, 査読有, 458, (2015) 355-360

Y. Sekio, S. Yamashita, N. Sakaguchi and H. Takahashi, Effect of Additional Minor Elements on Accumulation Behavior of Point Defects under Electron Irradiation in Austenitic Stainless Steels, Mater. Trans., 査読有, Vol.55 (2014) 438-442

〔学会発表〕(計 3 件)

Y. Sekio, S. Yamashita, N. Sakaguchi and H. Takahashi, Evaluation of the irradiation-induced point defect flux on austenitic stainless steels using an in-situ observation technique during electron irradiation, The third Workshop On TEM With In-Situ Irradiation (WOTWISI-3), 2013 年 7 月 11 日 ~ 2013 年 7 月 12 日, 北海道大学(札幌)

Y. Sekio, S. Yamashita, N. Sakaguchi and H. Takahashi, Void denuded zone formations under electron irradiation in austenitic stainless steels modified with oversized elements, The Nuclear Materials Conference, NuMat2012, 2012 年 10 月 22 日 ~ 2012 年 10 月 25 日, 大阪/日本

Y. Sekio, S. Yamashita, N. Sakaguchi and H. Takahashi, The Effects of Irradiation Defect Distribution and The Steel Compositions on Void Denuded Zone Formations during Neutron irradiation and Electron Irradiations, 2nd Joint IAEA-EC Topical Meeting, 2012 年 4 月 16 日 ~ 2012 年 4 月 20 日, イスブライタリア

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

山下 真一郎 (YAMASHITA, Shinichiro)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 大洗研究開発センター
福島燃料材料試験部・研究副主幹
研究者番号：10421786

(2) 研究分担者

坂口 紀史 (SAKAGUCHI, Norihito)
北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授
研究者番号：70344489

関尾 佳弘 (SEKIO, Yoshihiro)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・福
島研究開発部門 大洗研究開発センター
福島燃料材料試験部・研究員
研究者番号： 70565689