

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 25 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420865

研究課題名(和文)原子炉構造材の強度劣化評価に資する照射欠陥-転位相互作用の研究

研究課題名(英文)The research of interaction between irradiation defects and dislocation for evaluating mechanical degradation of nuclear structural materials

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、照射により生じる組織要素の硬化因子パラメータの定量評価を行い、損傷発達過程に伴う強度特性変化を予測評価した。イオン照射した各種Bcc金属にTEM内引張その場観察法を用いて引張変形中の照射欠陥と運動転位の動的相互作用を観察し、その結果ポイドの障害物強度は材料因子の影響を受けず、ポイド径のみに依存する値であることがわかった。

軽水炉炉内構造物のステンレス鋼の中性子照射による転位チャンネル形成機構解明のためステンレス鋼中に導入した照射欠陥と転位の相互作用を調べた。転位チャンネル形成場において積層欠陥を含む転位拡張・収縮を繰り返す運動と急激な積層欠陥拡張運動の2つのパターンが観察された。

研究成果の概要(英文)：A method of in-situ measurement of dislocation behavior during tensile test in TEM column was adopted for obtaining values of the obstacle strength parameter for defect clusters in order to evaluate lifetime of nuclear materials. It provides the accurate analysis for evaluating irradiation hardening quantitatively. The cavity size dependence of obstacle barrier factor is not change so much for the type of bcc metals. The dislocation motion to create a dislocation channel in ion-irradiated SUS304 steel was directly observed during tensile deformation test. Two types of dislocation behavior were observed on the formation of dislocation channel; (1) A zig-zag motion of extended dislocation with expansion and shrink repeatedly during dislocation propagation through irradiated area and (2) A rapid expansion of stacking fault with wide width after the high stress was applied in the irradiated area.

研究分野：原子力材料学

キーワード：ポイド-転位相互作用 照射硬化 転位チャンネル 障害強度因子 照射欠陥集合体 TEM内引張 分子動力学計算

1. 研究開始当初の背景

軽水炉の健全性評価向上や高速増殖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健全性評価予測技術が求められている。このため原子力構造材料(オーステナイト鋼、フェライト鋼(特に高クロム鋼))の開発に伴い、材料の環境強度試験や照射試験が実施されており実験データの蓄積が行われてきた。一方、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の選択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熱時効に伴う組織粗大化や、中性子照射に伴う欠陥組織発達の定量化が必要であり、これらのデータの蓄積も充実しつつあるが、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、たとえばボイド)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することにより、計算機シミュレーションによる損傷組織発達に適正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。

「TEM 内引張試験『その場』観察」は申請者のグループで培われた手法であり、バナジウム合金や圧力容器鋼の照射脆化で多くの成果を得た。電顕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ものである。この結果、巨視的な機械試験により評価した硬化量と、電顕内その場観察結果から評価した値の間に極めてよい一致を得ることが出来た。この手法を用いてこれまでに BCC 金属の純バナジウムにおいてボイドに対する転位障害強度因子の大きさはボイド径サイズに対して依存せず一定である事が明らかになった。BCC 金属であり剛性率の異なる純バナジウムと純鉄において、転位-ボイド相互作用についてボイドの転位障害強度因子を求めたところ、同じボイド径サイズで同程度の転位障害強度因子を持つ事が 2013 年夏季に明らかになった。この結果は同一の結晶構造を持つ金属あるいは合金であれば、ボイドのサイズに依存せず同一の障害強度因子を示す事になり、ボイド形成による照射硬化量を予測する障害強度因子パラメータを BCC 結晶を持つ合金種によらず決定できる事を意味する。特に高速炉構造材や核融合炉材料などのフェライト鋼炉内構造材やダイバータ用タングステン合金における照射硬化・脆化を予測する上で重要な知見となる。

2. 研究の目的

本研究では「TEM 内引張試験『その場』観察」を用いて、

- ① 同じ結晶構造で異なる剛性率を持つ各種 BCC 純金属中(V,α-Fe,Mo,W など)に導入した照射欠陥と転位の相互作用を TEM 内引張『その場』観察実験と分子動力学計算機実験から明らかにする、
- ② 軽水炉炉内構造物のステンレス鋼の中性子照射による転位チャンネル形成機構解明のためステンレス鋼中に導入した照射欠陥と転位の相互作用を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

BCC 純金属であるバナジウム、鉄およびモリブデン、FCC 合金である SUS304 ステンレス鋼の薄板から試料を切り出し、10x2mm 板材試料を作製する。作製された各試験片を京大エネルギー理工学研究所の DuET 加速器照射装置及び若狭湾エネルギー研究センターのマイクロ波イオン源イオン注入装置およびタンデム加速器を用いてイオン照射する。

① BCC 純金属を用いたイオン照射実験

純バナジウム、純鉄および鉄モリブデンで照射温度は 600~700°Cで行う。若狭湾エネルギー研究センターのイオン注入装置で、イオン種水素とヘリウムで、照射エネルギーは 190keV である。照射電流は 10μA で照射時間は 30 秒~5 時間(ヘリウムイオン照射による損傷量換算で 0.01~6dpa 相当@損傷ピーク位置深さ 800nm)で照射を行う。損傷組織定量データ(組織の性状、サイズ、数密度)から組織要素の特定を行いやすい条件を実験・観察結果から選択し、試験片を作製する(例えばボイド:空孔型集合体であれば高温で照射線量が大きい条件、転位ループ:低~中温領域、照射線量は 0.1~0.5dpa 程度)。

② ステンレス鋼を用いたイオン照射実験

SUS304 鋼で照射温度は 300°Cで行う。京大エネルギー理工学研究所の DuET 加速器照射装置で、イオン種は Fe で、照射エネルギーは 6.4MeV である。イオン照射による損傷量換算で 0.1~1dpa 相当@損傷ピーク位置深さ 600nm で照射を行う。

TEM 内引張『その場』観察試験

試験片作製は TEM 内引張試験片試料作製法を基に行う。TEM 内引張ホルダーを用いるが、引張時の応力測定を行う必要があるため応力測定可能な試料ホルダーを作製・購入した。TEM 内引張試験は福井大学産学官連携本部の広角領域観察用 CCD カメラを装備した透過型電子顕微鏡 JEM-2100 を用いた。観察時の動画は同 TEM 内のイメージプロセッサと同期記録可能なソフトウェアを介して PC 上に記録保存される。

記録後解析用 PC 上で静止画・動画解析を行い、運動転位と相互作用している障害物を転位線上のカズプとして検出し、カズ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動的に評価する。本研究では、この様子から障害物強度 α を算出することで、転位に対するボイドの硬化量の定量的評価を行った。

照射欠陥による照射硬化は、照射欠陥が運動転位の障害物として作用することに起因していると考えられている。障害物と反応した転位線は、その障害機構により転位挙動が妨げられ図 1 に示すように円弧状に張り出す。ここで、粒子の両側の角度が ϕ になると転位の線張力により障害物に力 f が働く。この状態から更なる応力が印加されることで、転位の張り出しがさらに大きくなり、張出角: ϕ が減少すると障害物に作用する力 f が増加する。その後、張出角がある角度に達し転位が障害物をせん断する場合、このときの張出角 ϕ_c を臨界張出角という。ここで、線張力 T は材料固有の値であることから、障害物の運動転位に対する抵抗力は式(3)のように数値化されており、この値を障害物強度とした。

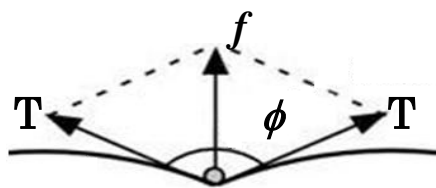


図 1. 障害物と反応した転位の張り出し

$$f = 2T \cdot \cos\left(\frac{\phi}{2}\right) \quad (1) \quad \begin{array}{l} f: \text{転位に作用する力} \\ T: \text{線張力} \end{array}$$

$$T \cong \frac{\mu b^2}{2} \quad (2) \quad \begin{array}{l} \phi: \text{張出角} \\ \mu: \text{剛性率} \\ b: \text{バーガースベクトル} \end{array}$$

$$\alpha = \cos(\phi_c / 2) \quad (3) \quad \alpha: \text{障害物強度}$$

4. 研究成果

(1) BCC 純金属中のボイド(バブル)-転位相互作用

図 2 に 800°C で 0.2dpa のヘリウム照射した後に追加熱処理 1100×20h を施した純モリブデン中でのバブルと運動転位の相互作用の反応過程観察写真を示す。平均ボイド径 14nm のバブルが形成され、転位運動によりバブル-転位相互作用が観察された。イオン照射材で複数の運動転位が TEM 観察像の同じ箇所にてピン止めされているところが観察され、バブルなどの障害物が存在する領域で運動転位のピン止めの生成が示された。一部観察でピンニング領域にボイドコントラストが得られた。ピン止めされた転位は、引張応力後に特定の時間後障害物から外れ移動することが示された。

ピン止め点にて転位線がスパイラル形状になっている形状や、ボイド上にてダイボール形成後ピン止め点を引きずりながら移動している転位運動を確認した。

本実験の結果から、ボイド径の増加に従っ

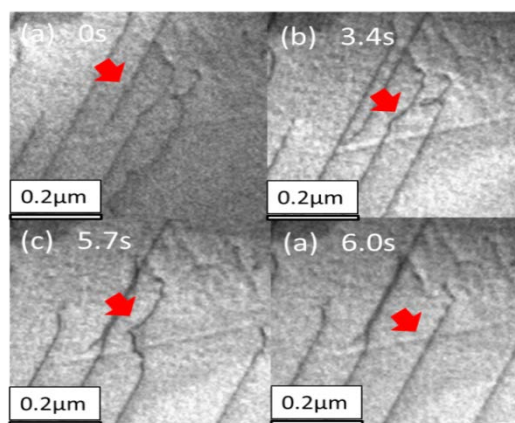


図 2: 純モリブデン照射材(照射温度 800°C + 追加熱処理)における運動転位の挙動

て障害物強度が増加していることがわかった。ここで、Kumar らによる報告[1]によると、純 Fe 中に存在するボイドの臨界分解せん断応力はボイド径に比例するとされている。また Foreman らの報告[2]においてせん断応力の障害物強度依存性が明らかにされている。以上のことから、本実験で得られた結果は機械的特性試験や MD 計算機シミュレーションなどにて報告されているボイド径により臨界せん断応力が変化するという従来の理解を支持する形となった。

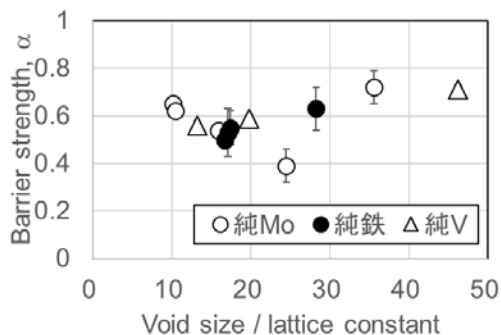


図 3: BCC 各種金属中のキャビティにおけるキャビティ径/バーガースベクトル規格値と障害物強度の相関

BCC 純金属におけるキャビティ(ボイド)の障害物強度のサイズ依存性との比較を行い、照射欠陥の障害物強度に関する定義について検討を行った。その結果を図 3 に示す。図 3 ではキャビティ径の大きさを規格化するために格子定数で各キャビティ径を除している値を横軸に示す。純鉄、純バナジウムおよび純モリブデン中に発生したボイドの障害物強度において測定誤差の範囲内で同様のサイズ依存性を持っていることがわかった。この結果からボイドの障害物強度は材料因子の影響を受けず、ボイドの径や障害物形状のみに依存する値であることがわかった。したがって、同様のボイドが導入された材料の硬化量は母材の性質にかかわらず常に一定の比率であるとした Stoller らによる報告[3]を TEM 内

引張『その場』観察法による転位-ボイド相互作用を用いて証明することができた。また、ボイドの分布状態に対する障害物強度の増分 $\Delta\alpha_{\text{void}}$ はボイド径 4~14nm の範囲において 0.02nm^{-1} 程度であることが示された。

(2) BCC 純金属中のボイド(バブル)-転位相互作用の計算機実験研究

(1)の実験研究で得られたらせん転位・刃状転位とボイドの相互作用を明らかにするために、分子動力学(MD)シミュレーションを用いて、BCC 純 Fe 中の刃状転位・らせん転位とボイドの原子レベルの動的反応機構の解析を目的とし、温度と転位接触位置をパラメータとして計算した。計算コードには LAMMPS、材料モデルには BCC 純 Fe、ポテンシャルには、Mendeleev ポテンシャルを採用した。スーパーセル中に転位とボイドを挿入し転位をボイドに横切らせた。温度依存性では、100K、50K、0K の条件で計算を行い、らせん転位とボイドの相互作用の温度依存性を評価した。しかし、らせん転位がボイドを横切る際に張り出しが観察できなかったため、ボイドを離脱する際の応力をもって温度依存性を評価し、知見を得ることができた。しかし、温度依存性についてはまだ不透明なことが多く条件を拡充してより詳細に検証する必要がある。

転位接触位置依存性では、ボイドを 13 層分に分割し、それぞれに転位を挿入し、ボイドを横切らせ、刃状転位では障害物強度、らせん転位ではボイド離脱時の応力をもって転位接触位置の依存性を評価した。刃状転位においては、転位接触位置がボイド中心において障害物強度が最大となり、ボイド中心を離れるほど障害物強度が小さくなっていく傾向を観察した。らせん転位においては、張り出しが観察されないため転位接触位置の依存性について不透明なことが多い。今後 TEM 内引張『その場』観察実験と計算機実験におけるらせん転位の挙動の違いについて、計算機実験の手法の見直しや、らせん転位挙動による変形機構について検討を行っていく必要がある。

(3) SUS 鋼中の転位チャンネル形成過程の TEM 内引張『その場』観察実験研究

図 4 は 190keV-He で 300°Cにて 0.05dpa 照射した SUS304 鋼の TEM 内引張『その場』観察事件の観察例を示す。図より転位が積層欠陥を伴った拡張転位の形で伝播している様子が観察された。この時、転位ループに部分転位がピン止めされていることによる断続的な動きが見られ、ZIG-ZAG 反応によって積層欠陥の拡張・収縮が見られた。図4のように後方部分転位の収縮、続いて前方部分転位の拡張を繰り返しながら拡張転位が伝播し、この転位運動は非照射材では観察されなかったことから照射材特有の転位運動であった。この運動は応力印加によって前

方部分転位が欠陥をせん断し前進すると同時に後方部分転位の前進運動を促進する拡張転位の運動に起因する。拡張転位とループの相互作用において、一般的には前方部分転位がループをせん断した際に形成するジョグが、後方部分転位の前進運動にとって障害物となるため後方部分転位の運動に対して高応力が必要となる。照射下での高密度の欠陥集合体形成による可動転位への高応力負荷により上記の運動が断続的に発生すると考えられる。図 3 の運動を停止後、さらに応力を印加すると、前方部分転位のみが運動し瞬間的に積層欠陥を拡大させる様子を観察した。この現象は照射量および変形量の増加に伴い転位の分離から広領域積層欠陥の形成が容易になったと考えられる。以上のような照射後変形試験のその場観察において、転位チャンネル形成場において積層欠陥を含む転位拡張・収縮を繰り返す運動と急激な積層欠陥拡張運動の 2 つのパターンが観察された。この結果、転位チャンネル形成は、拡張転位と欠陥集合体の反応による欠陥集合体の吸収と高応力下での欠陥集合体吸収が高速で進むことが示された。今後、高温領域あるいは低温領域での SUS 鋼中の欠陥集合体と拡張転位の相互作用運動の TEM 内引張『その場』観察から欠陥集合体-転位相互作用の熱活性化反応過程および転位反応の詳細について明らかにし、転位チャンネル形成に必要なしきい応力や、転位チャンネル発生のための欠陥集合体の形成分布条件について求めてゆく。この成果を通して、ステンレス鋼の照射脆化予測における損傷組織変化と変形挙動の相関則の高精度化に寄与していく。

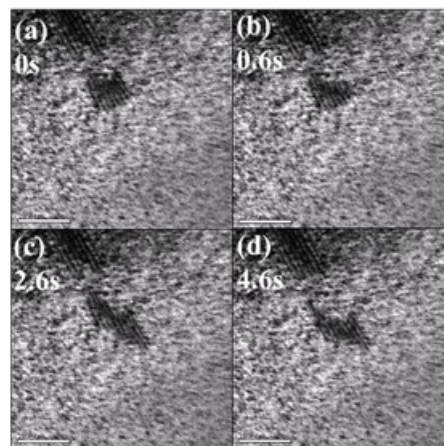


図 4: SUS304 鋼照射材(照射温度 300°C、0.05dpa)における転位挙動

まとめ

同じ結晶構造で異なる剛性率を持つ各種 BCC 純金属中(V, α -Fe, Mo, W など)に導入した照射欠陥と転位の相互作用を TEM 内引張『その場』観察実験と分子動力学計算機実験を行った。BCC 純金属におけるキャビティ(ボイド)の障

害物強度のサイズ依存性との比較を行い、照射欠陥の障害物強度に関する定義について検討を行った。ボイドの障害物強度は材料因子の影響を受けず、ボイドの径や障害物形状のみに依存する値であることがわかった。

らせん転位・刃状転位とボイドの相互作用を明らかにするために、分子動力学(MD)シミュレーションを用いて、BCC 純 Fe 中の刃状転位・らせん転位とボイドの原子レベルの動的反応機構の解析を目的とし、温度と転位接触位置をパラメータとして計算した。刃状転位では温度効果や転位とボイドの接触位置依存性が求められたが、らせん転位はボイドとの反応が生じなかったため実験結果と大きく異なる挙動傾向を示した。

軽水炉炉内構造物のステンレス鋼の中性子照射による転位チャンネル形成機構解明のためステンレス鋼中に導入した照射欠陥と転位の相互作用を調べた。転位チャンネル形成場において積層欠陥を含む転位拡張・収縮を繰り返す運動と急激な積層欠陥拡張運動の2つのパターンが観察された。

参考文献

- [1]. N. Naveen Kumar, *Computational Materials Science* 53 (2012) 258-267.
- [2]. A.J.E. Foreman, *Acta. Metall.*, 3 (1955) 322.
- [3]. R.E. Stoller, S.J. Zinkle, *J. Nucl. Mater.*, 283-287 (2000)349-352

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 1 件)

“Dose dependence of irradiation hardening of neutron irradiated vanadium alloys by using temperature control rig in JMTR”, K. Fukumoto, T. Onitsuka, M. Narui,, *Nuclear Materials and Energy*, 9 (2016) 441-446 査読有、<http://dx.doi.org/10.1016/j.nme.2016.03.010>

[学会発表](計 16 件以上)

- ① 「分子動力学シミュレーションを用いた純 Fe 中のらせん転位とボイドの相互作用の研究 (4)」谷口啓介、鬼塚貴志、鈴木知明、福元謙一、日本金属学会春期講演大会 2017 年 3 月 東京都八王子市
- ② 「分子動力学シミュレーションを用いた純 Fe 中の転位とボイドの相互作用の研究」谷口啓介、鬼塚貴志、福元謙一、鈴木知明、日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部・連合講演会 2016 年 12 月 金沢市
- ③ 「純 Mo 中の引張変形中の微細組織解析による障害物強度因子の測定」下村修潤、東郷広一、鬼塚貴志、福元謙一、石神龍哉、藪内聖皓、木村晃彦、日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部・連合講演会 2016 年 12 月 金沢市
- ④ 「イオン照射したステンレス鋼における運動

転位と照射欠陥の相互作用」松原正典、東郷広一、福元謙一、鬼塚貴志、石神龍哉、日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部・連合講演会 2016 年 12 月 金沢市

- ⑤ “In-situ Observation Study of Dislocation Channel Formation in Tensile Test for Ion-Irradiated Stainless Steels”, M. Mastubara, K. Togo, T. Onitsuka, R. Ishigami and K. Fukumoto, 2016 International Conference on Maintenance Science and Technology (ICMST 2016) 2016 年 11 月 深圳(中国)
- ⑥ 「TEM内引張「その場」観察法による純 Mo 中のバブル転位相互作用の実験的研究」下村修潤、東郷広一、福元謙一、鬼塚貴志、日本金属学会秋期講演大会 2016 年 9 月 大阪府豊中市
- ⑦ 「分子動力学シミュレーションを用いた純 Fe 中のらせん転位とボイドの相互作用の研究 (3)」谷口啓介、鬼塚貴志、福元謙一、鈴木知明、日本金属学会秋期講演大会 2016 年 9 月 大阪府豊中市
- ⑧ 「原子力構造材の強度劣化評価に資する照射欠陥－転位相互作用の研究」、福元謙一、第 28 回 CCSE ワークショップ、2016 年 3 月 千葉県柏市
- ⑨ 「分子動力学シミュレーションを用いた純 Fe のらせん転位とボイドの相互作用の研究 (2)」鬼塚貴志、大久保学、福元謙一、鈴木知明、日本金属学会春期講演大会 2016 年 3 月 東京都
- ⑩ 「TEM内引張「その場」観察法による純 Mo 中のボイド／バブル転位相互作用の実験的研究」、下村修潤、河瀬宇宙、松原正典、東郷広一、鬼塚貴志、福元謙一、日本金属学会・日本鉄鋼協会 北陸信越支部・連合講演会 2015 年 12 月 富山市
- ⑪ “Dose dependence of irradiation hardening of neutron irradiated vanadium alloys by using temperature control rig in JMTR”, Ken-ichi Fukumoto, Takashi Onitsuka and Minoru Narui, ICFRM-17, 2015 年 11 月 Aachen(Germany)
- ⑫ 「分子動力学シミュレーションを用いた純 Fe 中のらせん転位とボイドの動的相互作用」、大久保学、鬼塚貴志、福元謙一、鈴木知明、日本金属学会秋期講演大会 2015 年 9 月 福岡市
- ⑬ “Experimental approach to determine the barrier strength factor for mobile dislocation against void and He bubble in ion-irradiated Mo”, Uchu KAWASE, Ken-ichi FUKUMOTO, Takashi ONITSUKA, Kimihiro NOGIWA, Koichi TOGO, TMS2015 144th ANNUAL MEETING, 2015 年 3 月、Orland(USA)
- ⑭ 「BCC 金属におけるキャビティ-転位相互作用の研究」、福元謙一、「原子力材料の照

射効果」専門研究会、2014年12月、大阪府熊取町

- ⑮ “In-situ TEM observation of dynamic interaction between dislocation and cavity in BCC metals in tensile deformation”, K. Tougou, A. Shikata, U. Kawase, K. Nogiwa, T. Onitsuka, K. Fukumoto, Numat2014, 2014年10月, Clearwater(USA)
- ⑯ 「He照射した純Moにおけるキャビティと運動転位の相互作用」、河瀬 宇宙, 東郷 広一, 鬼塚 貴志, 野際 公宏, 福元 謙二, 日本金属学会 2014年秋季大会、2014年9月 名古屋市

[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

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

(2)研究分担者

鈴木 知明 (Suzudo Tomoaki)
日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究員
研究者番号: 60414538

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

なし