

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 22 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01915

研究課題名(和文) 低放射化ODS鋼における耐照射脆性のナノ・メゾ組織定量化モデルの構築

研究課題名(英文) Modeling tolerance to irradiation embrittlement of reduced activation ODS steels by quantitative specification of nano-mezo structures

研究代表者

木村 晃彦 (Kimura, Akihiko)

京都大学・エネルギー理工学研究所・研究員

研究者番号：90195355

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：酸化物分散強化(ODS)鋼の耐照射性(照射硬化を受けにくい性質)を材料組織学的に評価する方法を開発した。異なる酸化物粒子を包含する3種類のODS鋼にイオン照射を行い、硬度試験及び高分解能電子顕微鏡観察(HRTEM)により、照射硬化量および照射損傷組織を調べた。照射硬化量はODS鋼の種類、すなわち内包する酸化物粒子の種類、サイズ、数密度に依存することが判った。HRTEM観察の結果、酸化物粒子と母相の界面構造の変化により、照射硬化量が変化することが示唆された。さらに、照射硬化量が界面のモアレ単位パターンサイズと相関のあることが判明し、ODS鋼の耐照射性がTEM組織から定量化できることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

酸化物分散強化(ODS)鋼は耐照射性に優れており、先進原子炉への適用が期待されているが、耐照射性の程度が包含されている酸化物粒子に依存するため、最適な酸化物粒子の開発が不可欠である。本研究では、ODS鋼の耐照射性を定量的に評価する手法を開発した。この結果、原子力材料開発における耐照射性の定量評価が可能になるとともに、将来期待されている安全性に優れ、かつ高効率な原子力発電システムに不可欠な革新的原子力材料の開発指針が明確になった。また、学術的には、耐照射性能発現機構に基づいた性能評価パラメータが変形を担う転位の運動に対する抵抗評価に応用できることを示唆している点が重要である。

研究成果の概要(英文)：A quantitative evaluation method of radiation tolerance of ODS steels was developed on the bases of materials science of microstructure. Irradiation hardening and microstructure evolution in ion-irradiated three ODS steels were investigated by means of nano-indentation tests and high resolution transmission electron microscopy (HRTEM). The hardness test results indicated that the hardening depended on material, namely, the oxide particles of which the chemical compositions, size and number density were different. HRTEM revealed that there was a relationship between the amount of hardening and the interface structure between oxide particle and matrix. Moreover, it was shown that the amount of irradiation hardening can be correlated with the unit size of Moire pattern at the interface of oxide particle and matrix. Thus, the radiation tolerance of ODS steels can be quantitatively evaluated from TEM observation of oxides in the matrix of ODS steels.

研究分野：原子力材料

キーワード：ODS鋼 酸化物粒子 耐照射性 イオン照射

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉や高速炉用の炉内構造材料として ODS 鋼の開発研究が進展するにつれ、ODS 鋼の優れた耐照射脆性が明らかになっている。例えば、ODS 鋼と低放射化フェライト鋼 (F82H) の延性脆性遷移挙動に及ぼす 1000ppmHe 注入の影響を調べた研究では、He 注入により F82H 鋼が極めて顕著な粒界脆化を示すのに対し、ODS 鋼は He 注入による脆化を全く示さず、ODS 鋼の優れた耐照射脆性が確認されている。この耐照射脆性の発現機構を理解することは、ODS 鋼の一層の高性能化のみならず、他の金属材料の耐照射脆性向上にも寄与することから、多くの研究者が耐照射脆性発現機構解明のための基礎研究が必要であることを認識し、国の内外において、ODS 鋼中のナノ酸化物粒子の分布形態を高分解能電子顕微鏡やアトムプローブ等の先端装置により評価し、酸化物粒子と照射欠陥との相互作用を論ずるナノスケールのメカニクスの解明に向けた研究が行われてきた。一方、ODS 鋼の耐照射脆性の検討においては、強度特性とナノ構造を定量的に関連付ける検討が不十分であることは元より、メゾスケールの微細結晶粒の果たす役割の検討も立ち遅れている。ODS 鋼に限らず、他の金属材料の照射脆化を抑制するための材料組織制御における「本質」とは何かという「問い」に回答することで、高エネルギー粒子線照射場での耐性に優れた「耐照射脆化性構造材料」の開発に貢献する。

## 2. 研究の目的

本研究は、低放射化 ODS 鋼の耐照射脆性発現機構を定量的に明らかにしようとするもので、ODS 鋼の耐照射脆性発現に寄与する複数の主な因子を抽出し、各因子の効果（寄与率）を定量的に示すことで、低放射化 ODS 鋼における耐照射脆性のナノ・メゾ組織定量化モデルを構築するとともに、他の金属材料にも適用できる耐照射脆性付与の材料科学的指針を示すことを目的とする。

## 3. 研究の方法

照射前及びイオン照射後の ODS 鋼の中から、組成を変化させることで、酸化物粒子の種類、分布形態（サイズや数密度）および母相との整合性を変化（ナノ組織制御）させた 3 種類の評価対象 ODS 鋼を選択する。一部の ODS 鋼は、再結晶処理を施しており、結晶粒径および結晶粒形状（アスペクト比）だけを変化（メゾ組織制御）させた照射済み再結晶 ODS 鋼を分別する。これらの照射済み ODS 鋼に対し、照射硬化測定および TEM 観察を実施し、耐照射脆性とナノ・メゾ組織相関を明らかにする。また、照射前後における OP/M 界面および結晶粒界におけるひずみ場を高分解能 TEM による組織観察に基づいて評価し、照射欠陥の捕獲に伴うひずみ緩和について調べる。これらの評価結果に基づき、照射欠陥の捕獲強度を定量的に記述する手法を開発する。

- 1) 酸化物粒子の分布形態に基づいた照射影響の定量化（ナノスケール組織定量化）
- 2) 耐照射脆性評価モデルの構築

#### 4. 研究成果

- 異なる酸化物粒子を内包する酸化物分散強化鋼、1) (Y, Ti) ODS, 2) (Y, Al) ODS and 3) (Y, Zr) ODS の組織観察を行った結果、各 ODS 鋼の主な酸化物粒子は、それぞれ、1) Y<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub> および Y<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>、2) YAM、YAP、YAH、3)  $\delta$ -phase (Y<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>) および defect fluorite (Y<sub>2</sub>Zr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>) であることが判った。
- 耐照射性を評価するため、6.4 MeV Fe イオンを 200°C において 10 dpa まで照射した。照射損傷量の増大に伴い、酸化物粒子のサイズおよび数密度が減少し、その理由として照射による酸化物粒子の溶解が考えられる。
- 酸化物粒子の照射による溶解の程度を酸化物粒子の体積分率で評価すると、Y-Zr-O < Y-Ti-O < Y-Al-O となった (図 1 参照)。

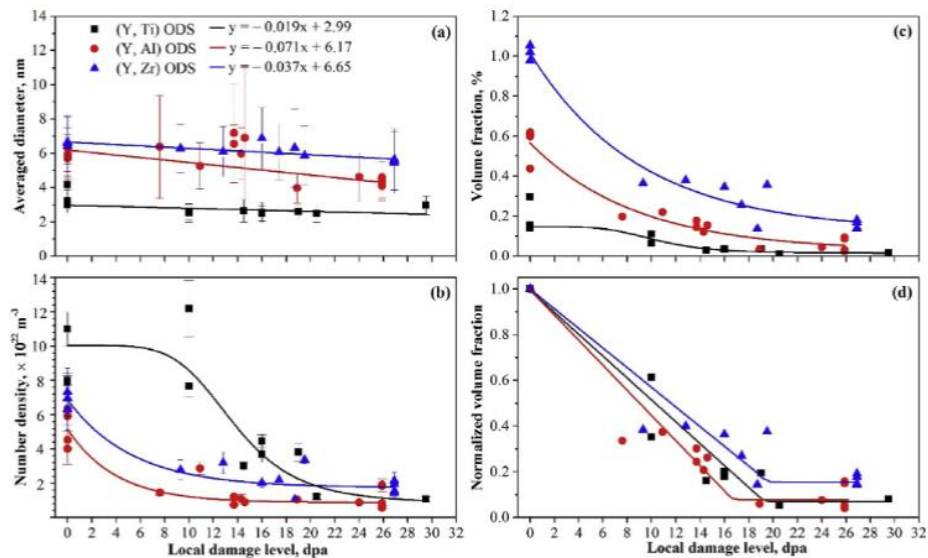


図 1 (a) 平均直径, (b) 数密度, (c) 体積分率, (d) 規格体積分率の照射損傷量依存性

- 次世代原子力システム用構造材料として期待されている 3 種類の酸化物分散強化鋼 (FeCr-Ti-ODS 鋼、FeCrAl-ODS 鋼、FeCrAl-Hf-ODS 鋼) の酸化物粒子を高分解能電子顕微鏡で観察した結果、以下の成果が得られた。
  - Hf 添加した ODS 鋼の酸化物粒子のサイズは比較的小さく、直径が 2–10nm の範囲にサイズ (直径) のピークが存在した。Hf 無添加の ODS 鋼と比較すると、Hf 添加鋼では、酸化物粒子と母相の界面における整合性が顕著に改善されていることが判った。
  - Hf 添加 ODS 鋼における酸化物粒子の種類を同定した結果、内包する酸化物粒子は、1) Y<sub>2</sub>Hf<sub>2</sub>O<sub>7</sub> タイプ (anion-deficient fluorite) : 51%、2) Y-Al 複合酸化物 : 32%、3) Y-Ti 複合酸化物 : 17% であり、Y-Al 複合酸化物が主体となる Hf 無添加材とは顕著に異なることが判った。すなわち、Hf 添加は、Y-Al 複合酸化物の形成を抑制することが判明した。
  - 高分解能 TEM により異なる酸化物粒子のモアレパターンを観察した結果を図 2 および表 2 (Y-Hf 複合酸化物) および図 3 および表 3 (Y-Ti 複合酸化物) に示す。酸化物粒子と母相の界面構造に依存し、モアレパターンが異なり、単位パターンの大きさが照射硬化量と相関することが示唆された。

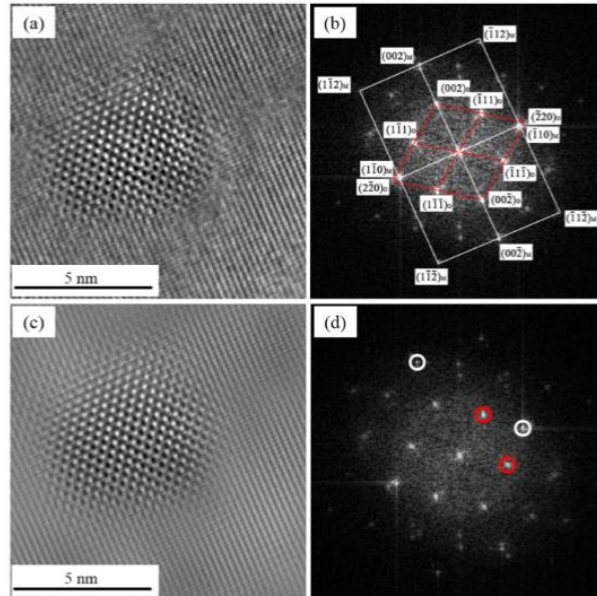


図2(a) HRTEM of an Y<sub>2</sub>Hf<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 酸化物 (直径約 5.2 nm) , (b) FFT 図  
(c) FFT フィルター像 (a) , (d)FFT フィルター回折像.

表1 図2の酸化物粒子の格子面間距離及び面角度

d (Å), $\alpha$	$d_1[\bar{1}11]$	$d_2[\bar{1}11]$	$d_3[220]$	$d_4[002]$	$\alpha_{12} (^{\circ})$	$\alpha_{13} (^{\circ})$	$\alpha_{23} (^{\circ})$
Measured	$3.09 \pm 0.07$	$3.06 \pm 0.07$	$1.91 \pm 0.07$	$2.67 \pm 0.07$	$70.5 \pm 0.2$	$35.5 \pm 0.3$	$35.0 \pm 0.3$
Y <sub>2</sub> Hf <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	3.00	3.00	1.84	2.60	70.53	35.265	35.265

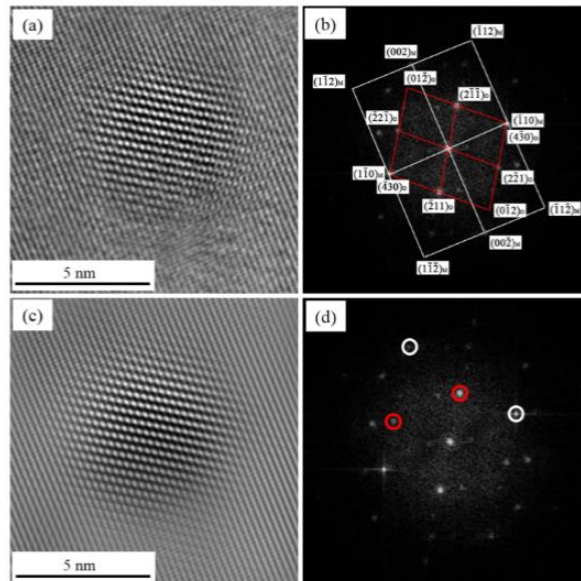


図3(a) HRTEM of an Y<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub> 酸化物 (直径約 5.0 nm) , (b) FFT 図  
(c) FFT フィルター像 (a) , (d)FFT フィルター回折像.

表2 図3の酸化物粒子の格子面間距離及び面角度

d (Å), $\alpha$	$d_1[21\bar{1}]$	$d_2[22\bar{1}]$	$d_3[012]$	$d_4[430]$	$\alpha_{12} (^{\circ})$	$\alpha_{13} (^{\circ})$	$\alpha_{23} (^{\circ})$
Measured	$2.99 \pm 0.07$	$2.71 \pm 0.07$	$1.91 \pm 0.07$	$2.20 \pm 0.07$	$81.3 \pm 0.2$	$43.0 \pm 0.2$	$38.3 \pm 0.1$
Y <sub>2</sub> TiO <sub>5</sub> (O)	2.91	2.65	1.83	2.13	81.17	42.825	38.345

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 6件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Dou Peng, Qiu Lanlan, Jiang Shaomin, Kimura Akihiko	4. 巻 523
2. 論文標題 Crystal and metal/oxide interface structures of nanoparticles in Fe <sub>71</sub> Cr <sub>20</sub> Ti <sub>9</sub> Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ODS steel	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 320 ~ 332
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2019.05.015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Gao Jin, Yamasaki Yuuki, Song Peng, Huang Yen-Jui, Yabuuchi Kiyohiro, Kimura Akihiko, Sakamoto Kan, Yamashita Shinichiro	4. 巻 528
2. 論文標題 Dose dependence of ion irradiation effects on 12Cr-6Al-ODS steel with electron-beam weld line	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 151858 ~ 151858
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2019.151858	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Dou Peng, Sang Wei, Kimura Akihiko	4. 巻 523
2. 論文標題 Morphology, crystal and metal/oxide interface structures of nanoparticles in Fe <sub>71.5</sub> Cr <sub>20</sub> W <sub>8</sub> Ti <sub>9</sub> Al <sub>2</sub> Zr <sub>0.5</sub> Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ODS steel	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 231 ~ 247
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2019.05.055	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Noh Sanghoon, Kimura Akihiko	4. 巻 529
2. 論文標題 Transient liquid phase bonding of ODS ferritic steel with a physical vapor deposited boron thin layer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 151888 ~ 151888
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2019.151888	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Peng Song, Jin Gao, Kiyohiro Yabuuchi, Akihiko Kimura	4. 巻 511
2. 論文標題 Ion-irradiation hardening accompanied by irradiation-induced dissolution of oxides in FeCr(Y, Ti)-ODS ferritic steel	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 200, 211
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yoosung Ha, Akihiko Kimura	4. 巻 9
2. 論文標題 Effect of Cold Rolling on Recrystallization Behavior of Al-free and Al-added 15Cr-ODS Ferritic Steels	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystals	6. 最初と最後の頁 145,160
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 Akihiko Kimura, P. Song, J. Gao, Y.J. Huang, K. Yabuuchi, P. Dou
2. 発表標題 Keys for radiation tolerance of ODS steels for advanced nuclear systems -- Phase stability under ion-irradiation--
3. 学会等名 NEA International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-5)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jin Gao, Kiyohiro Yabuuchi, Akihiko Kimura, Kan Sakamoto, Shinichiro Yamashita
2. 発表標題 Neutron irradiation effects on EB-welded Fe-12Cr-6Al ODS steel
3. 学会等名 NEA International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-5)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Peng Song, Kiyohiro Yabuuchi and Akihiko Kimura
2. 発表標題 Ion irradiation induced phase stability of three ODS ferritic steels strengthened by (Y, Ti), (Y, Al) and (Y, Zr) oxide particles
3. 学会等名 NEA International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-5)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	藪内 聖皓  (Yabuuchi Kiyohiro)  (70633460)	京都大学・エネルギー理工学研究所・助教   (14301)	
研究分担者	岩田 憲幸  (Iwata Noriyuki)  (40397534)	久留米工業高等専門学校・材料システム工学科・教授   (57101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------