

機関番号：82118  
 研究種目：基盤研究(S)  
 研究期間：2007～2010  
 課題番号：19106017  
 研究課題名(和文) 材料損傷機構の実験および理論による包括的研究と高エネルギー量子ビーム場用材料開発  
 研究課題名(英文) Comprehensive study on material damage mechanism by experimental and theoretical methods and development of materials for high-energy quantum-beam field  
 研究代表者  
 川合 将義 (KAWAI MASAYOSHI)  
 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・名誉教授  
 研究者番号：10311127

**研究成果の概要(和文)：**高エネルギー高強度陽子ビーム場の材料は、強烈な熱衝撃や放射線によって損傷を受ける。衝撃損傷過程と影響を実験的に調べ、その緩和法を導いた。また放射線損傷を理論的に評価するコードを開発した。さらに、損傷に強い材料として従来の材料に比べて強度の4倍高く室温で延性を持つタングステン材と耐食性が4倍高いステンレス鋼を開発した。衝撃実験における応力発光材を用いた定量的な方法を考案し、実用化の目処を得た。

**研究成果の概要(英文)：**The material in a high energy intense proton beam field receives damage due to an intense thermal shock and radiation. A shock damage process and influence were investigated experimentally and the easing method was drawn. Moreover, the simulation code which evaluates a radiation trauma theoretically was developed. Furthermore, our grain boundary engineering method has succeeded the four times increase in corrosion resistivity of various austenite stainless steels. New tungsten material developed with a ultra-fine grain powder has four times higher toughness than that of commercial tungsten and does ductility even at a room temperature. The quantitative method using the stress luminescence material in a shock experiment was devised to improve a material dynamics study.

#### 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	35,100,000	10,530,000	45,630,000
2008年度	29,100,000	8,730,000	37,830,000
2009年度	12,500,000	3,750,000	16,250,000
2010年度	9,100,000	2,730,000	11,830,000
総計	85,800,000	25,740,000	111,540,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学、原子力学

キーワード：陽子、中性子源、放射線損傷、衝撃損傷、材料開発

#### 1. 研究開始当初の背景

J-PARC の建設が進み、核破砕中性子源である水銀標的の製作が進んでいた。しかるに陽子ビームパルス入射の熱衝撃によって水銀標的の容器にピッチング損傷が生ずるといふ緊急問題が判明した。また、長寿命の放射性廃棄物の核消滅用の標的では、長期運転に伴う放射線損傷が原子炉以上に甚大であることが分かり、その評価法が重視されるに至った。そこで上記問題に対応した強い材

料や損傷緩和法の開発の必要性が認識された。

#### 2. 研究の目的

(1) 水銀容器の衝撃損傷の緩和システム開発のため損傷の機構を解明する。

(2) 衝撃や放射線ならびに腐食に強い材料を開発する。

(3) 原子炉や核融合炉より生成が多い2次粒子を含めた放射線損傷について実験的に調べる。また、実験では得られない条件での損傷も評価するため、理論評価法を開発する。

(4) ADS窓材の腐食研究を行い、窓材選択と腐食制御技術を確立する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 材料の衝撃損傷研究

水銀標的のピッティング損傷研究のため、電磁式衝撃試験装置と超高速カメラを用いて水銀中のバブル挙動を観察し、損傷機構を考察した。高速の衝撃研究を目指した先端の実験技術として応力発光材とホプキンソン衝撃棒法を組み合わせた実験法を考案し試行した。

#### (2) 材料開発

核破砕中性子源の3要素である標的、構造、窓の材料を対象に最新のナノテク技術の材料処理技術法を採用して開発を行った。また、レーザー照射により表面修飾を通じて新材料開発の基礎試験を行った。

#### (3) 放射線損傷研究

実機データ採取のためスイスのポールシェラー研究所のSINQで照射された材料の機械特性等を測定し、放射線損傷を調べた。また、北大のマルチビーム照射施設にレーザを組み込み、放射線損傷シミュレーション実験を行った。実験を補うためのマルチスケールモデルに基づく理論的研究とコード開発を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 衝撃損傷評価

##### ① 水銀標的のピッティング損傷機構解明

水銀標的のピッティング損傷の機構とその抑制のためのヘリウムバブル注入が実際に利くこと、そして如何に利くかを実験的に明らかにした。図1に代表的な結果を示す。

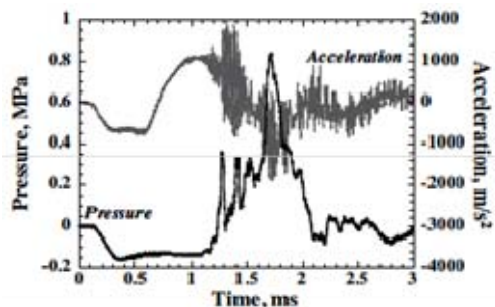


図1 衝撃後の内圧と加速度の変化

衝撃後内圧が $-0.15$  MPa 以下になった0.4msで水銀バブルが発生し、1.2ms以降バブルが消えるとともにマイクロジェット発生に伴う加速度と圧力の鋭いピークと圧力が発生している。この時ピッティング損傷が起きている。解析によればマイクロジェット

の与える局所的な衝撃力は1GPaにも及ぶ。一方、ヘリウムバブルを注入すると、内圧が水銀バブル発生の際とも考えられる $-0.15$  MPaより下がらず、ピッティングの恐れがなくなる。

この成果は、ピッティング損傷緩和システム開発で参考とされた。

##### ② Hopkinson 棒試験法の高度化

電磁衝撃試験で与えられない高速度の衝撃速度の研究のため、Hopkinson棒を用いた実験法の高度化を計った。この実験法は負荷応力評価式の限界から弾性変形に留まっており、破壊に至る塑性変形まで扱うのは難しい。本研究では、応力発光材と超高速カメラを用いることにより、材料に与えられた応力・歪み分布を定量的に評価できる技術が使える事を示した。図2に直径2cm、長さ3cmの円柱状アルミ試料表面に貼った応力発光材が、円柱軸方向に衝撃を受けた後の発光の時間変化を示す。発光強度の時間変化は、衝撃強度の速い変化を十分に追従している事が分り、この方法の適用性が評価できた。

このことにより、今後、破壊挙動が実験的にも明らかになり、破壊力学の発展に寄与できるものと思われる。

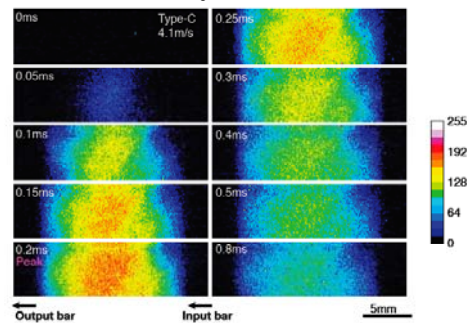


図2 アルミ表面の応力発光材の発光の時間的な変化

##### ③ 材料表面多重化による損傷緩和法

水銀標的の容器や窓のピッティング損傷を緩和する方法として、材料表面の改善法を試みた。表面を硬化することにより一時的に損傷を抑えられるが、入射ビームパルスが100万個になると却って損傷が酷いことが分ったので、表面の衝撃を緩和する軟材を挟み込む構造を考案し、その効果を実験的に確かめた。軟材としては金箔を採用した。数値計算上は、表面の衝撃を吸収して緩和作用を認めた。しかし、電磁衝撃試験の結果、100万回ぐらいで修飾しないものと同程度の損傷であるが、それ以上では効果が期待できないことが分った。

#### (2) 材料開発

材料開発は、日本が得意とするナノテク技術と熱処理技術に基づき、他の追随を許さない。

### ① 超高耐食性ステンレス鋼の開発

通常の多結晶金属材料は、劣化損傷が粒界を起点として発生し粒界に沿って伝搬することも多く、粒界劣化現象が材料特性を決める場合も少なくない。オーステナイト系材料は、耐熱耐食性に優れ、発電や化学プラントなどで非常に過酷な環境で使用されるが、粒界劣化現象の克服が大きな課題として残されている。本研究では、汎用のオーステナイト系ステンレス鋼に粒界工学に基づく加工熱処理を適用し、粒界劣化現象に対して強い抵抗性を有する対応粒界の多い超高対応粒界密度材料の作製に成功した。即ち、SUS304、304L、316、316L、321、347 型オーステナイト系ステンレス鋼およびインコネル 625 ニッケル合金に対して加工熱処理条件の最適化を探索し、いずれも 85%以上の極めて高い対応粒界密度を有する粒界工学制御材料を作製する条件を見出した。SUS304 および SUS316 鋼の粒界工学制御材料は初期母材に比べて腐食速度が 1/4 以下となり、顕著に高い耐腐食性を示した。また、3次元の粒界腐食伝搬を阻止するには 80%以上の対応粒界密度が必要であること、燐濃度を変化させた試験で過不働態粒界腐食の抑制にも粒界工学は有効であることが認められた。さらに、応力腐食割れ抑制効果が認められた。そして、最も重視した溶接熱影響部の粒界腐食に対して粒界工学制御材の顕著な抑制効果を実証した。

対応粒界密度の高い材料は、腐食に弱いランダム粒界を分断するため、放射線損傷や高温クリープに対しても高い性質を持つことが実験的に確認された。これらの成果は、核破碎中性子源だけでなく、放射線誘起の応力腐食割れ (IASCC) が問題になる原子炉材料としても有望であることを意味する。

### ② 超高強度タングステン材の開発

タングステン (W) は、高融点で中性子生成が高く熱伝導も高いため固体標的の最有力材であるが、照射脆化、再結晶脆化、低温脆化の欠点を持っている。本研究では、W-1.1%

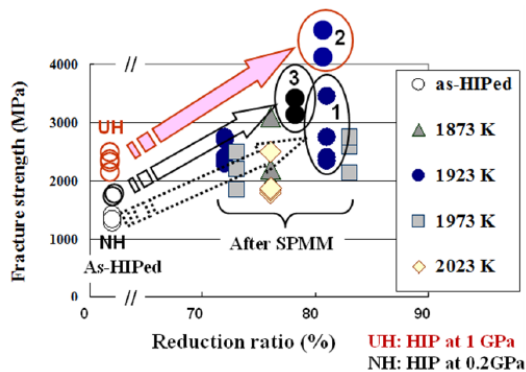


図3 1 GPaの超高圧HIPにより破壊靱性が4000MPaのタングステン材料を実現

TiC を基にメカニカルアロイング (MA) と HIP 等の粉末冶金法によりで比較的高温での高速中性子や高エネルギーHe 照射に対する耐性に優れた超微細結晶材を作製し、さらにその HIP 材に対して高温超塑性発現を利用した組織制御による再結晶強化、即ち高靱性の材料は、室温で曲げ延性を示す一方、図3に示すように破壊靱性が従来タングステンの1000MPaの4倍強い。また、上述したように超化処理を施すことによって上記の欠点を克服する超高強度タングステン材を開発した。この超微細結晶材の基本的な性質から放射線損傷にも強さが期待できる。

### ③ カーボンナノチューブ複合材の開発

カーボンナノチューブの引張強度と熱伝導度が非常に優れている点に着目し、カーボンナノチューブとアルミナの複合材の開発に成功した。即ちカーボンナノチューブ混合割合 2.5 - 15%の材料と、さらに混合割合を空間的に変化させた傾斜材料を開発できた。今後、ADS 標的の窓材としての利用が期待される。

### ④ 超微細結晶粒ステンレス鋼の開発

超微細結晶粒タングステンが、耐放射線損傷特性等に良好な性質を持っていることを鑑みて同様なステンレス鋼の開発を試みた。基本的には、タングステン同様に TiC を加えて MA 法と HIP 法により製作した。製作した材料は、材料照射炉 JMTR にて照射試験を行い、応力・歪曲線、硬度の変化がきわめて少ないこと、粒界およびその近傍で、照射欠陥形成が著しく抑制されることが分った。また、超高压電子顕微鏡による 1 MeV 電子線照射により、開発材は市販 SUS316L 材に比べ照射により形成される転位の密度はきわめて少なく、ボイドの形成による体積膨張 (スエリング) も 1/5 以下であり、照射に対して極めて良好であることが分った。

①、④の成果から明らかなように超微細結晶粒は、耐放射線損傷特性の良い材料開発に有効な手法であることが分り、今後の材料開発に推薦できる。また、本研究によって卓越した性質の材料が開発できたが、未だ実験室規模である。そのため、今後の課題は、実用化を目指しての研究である。そのうち粒界工学制御材の研究が JST の原子力イノベーション研究として始まっている。

### (3) 放射線損傷実験

#### ① 実機データの採取

スイスのポールシェラー研究所に研究員と機材を送り込み、同所の核破碎中性子源場での照射実験 (STIP 実験) で照射した材料の機械特性および材料組織観察を行った。測定

内容は、核破砕中性子源の候補材である Au 合金及び Pt 合金の陽子照射による機械的強度特性のである。また、東海ホット施設でオーステナイト鋼 JPCA のスエリング量評価を得た。また、陽電子による照射損傷材料の損傷評価も実施し、その有効性を検証した。

## ② 照射シミュレーション実験

粒界制御処理した各種のオーステナイト鋼を対象に、北大のマルチビーム照射施設にて電子線照射試験を行い、照射前後の微細組織変化を TEM 観察した。またイオン加速器による He イオン照射実験も併せて行い、粒界近傍における偏析挙動を調査し、対応粒界では偏析が十分に抑制されることを明らかにし、粒界制御材が IASCC(放射線誘起の応力腐食割れ)を抑制できる見込みを得た。図4に例示する。

レーザー照射したシリコン材料の超高压電子顕微鏡によるその場観察により材料損傷に影響の大きい原子空孔の挙動を明らかにできた(プレス発表)。この方法を他の材料に適用して、材料損傷のデータベース構築に寄与できよう。

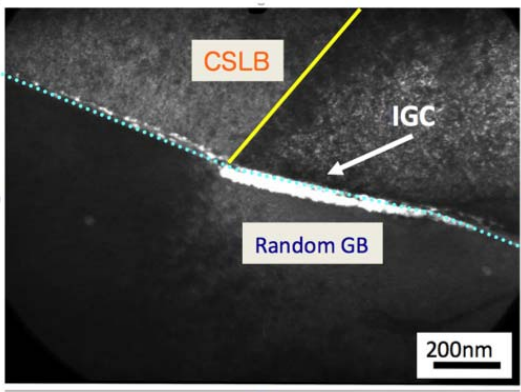


図4 粒界制御した改良ステンレス鋼を陽子ビーム照射後の TEM 写真。ランダム粒界に粒界内腐食(IGC)が見られるが、対応粒界には腐食は見られない

## ③ 照射損傷の理論的解析：コードシステムの開発

高エネルギー粒子の照射による核反応過程から材料のマクロ的な性質の変化まで追う材料損傷の評価コードシステムのひな形を作成した。コードは、図5に示すマルチスケールモデルに基づくもので、 $10^{-20}$ 秒台の核反応によってできた PKA スペクトルをもとに照射された材料の点欠陥の形成、成長に伴う点欠陥の集合体形成、また逆の消滅過程、さらに材料強度を決める転位形成とその後の挙動を模擬して最終的な数秒から月オーダーのマクロ的な性質としての材料強度を照射量の関数として計算できる。コードは、単結晶モデルであり、途中のモデルも粗いが、

世界に先駆けて全ての過程を含めて評価できるようにした意義は高いものと思われる。

今後、モデルの改良と多結晶も扱えるように高度化し、実験データ解析を通じて検証し、さらに材料損傷のデータベースを構築することが残されている。

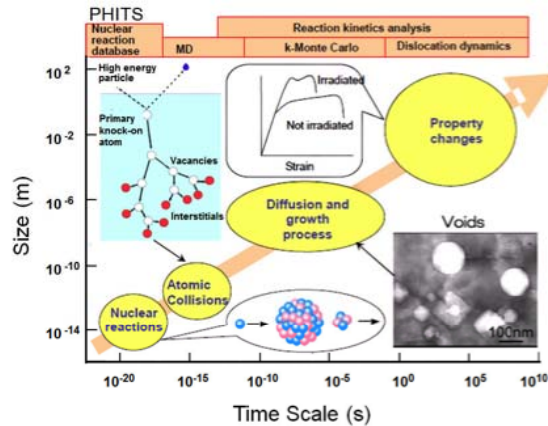


図5 放射線損傷を評価するためのマルチスケールモデル

## (4) ADS 窓材研究

窓材の照射損傷について、スイス核破砕中性子源装置で照射したオーステナイトステンレス鋼 JPCA の照射後試験を行い、入射陽子と派生する中性子等の混合照射場における材料データベースを従来の 12dpa から 20 dpa までの高照射量に拡張することができた。また、破面の電子顕微鏡観察の結果、実施した全試験において破壊は粒内で生じたことが明らかとなった。

冷間加工したオーステナイトステンレス鋼を、流動鉛ビスマスループ中に挿入して、腐食試験を行った。腐食面を XRD、SEM、SPM で調べた結果、冷間加工材の腐食は、溶体化処理材で起こるフェライト化が起こり難く、ピット生成も限定的で耐食性が向上していることがわかった。さらに調べたところ、冷間加工処理は、マグネタイト層の形成を促進し、高温強度も強化するという二重の利点を持つことを示した。

腐食試験材に対して SPM の表面ポテンシャル測定法を用いれば新たに形成された腐食層とオリジナルの母材の境界を識別可能なことがわかり、機構解明と耐食性の改善研究を進展が見込まれる。

## (5) その他 派生技術

本研究を実施する過程で、以下の目的外であるが特筆すべき成果も得られた。

### ① ビームプロファイルモニター

応力発光材の機能向上のためにイオンビーム照射実験を行ったところ、応力発光材がビームにより強く発光する現象を得た。その

特性を利用して、イオンビームのプロファイルモニターとしての特性を実験的に評価した。その結果、4桁のビーム強度の変化に対して直接視覚的に測定できることが確認できた。

## ② レーザー表面修飾による材料機能の賦与

半導体シリコン表面上に 10-100 ナノメートル (nm: 100 万分の 1mm) サイズの表面ドット列がパルスレーザー照射を行うにつれ、図 6 に示すように一斉にレーザー波長よりも短く周期的に配列形成されることを世界で初めて見出した。さらに、その形成過程をレーザー超高压電子顕微鏡を用いてレーザー照射しながら観察確認することに成功し、レーザー照射下での安定構造をとるために起こる自己組織化現象であることをつきとめた。

これらのドットパターン様はレーザー照射条件によって制御することが可能であること、材料によらずおこる普遍的な現象であることも見出し、機能性デバイス材料開発への新たな道が拓けた。文科省ナノテク支援の「ナノネット 5 大成果」に選出された。

[http://nanonet.mext.go.jp/modules/news/article.php?a\\_id=1278](http://nanonet.mext.go.jp/modules/news/article.php?a_id=1278)

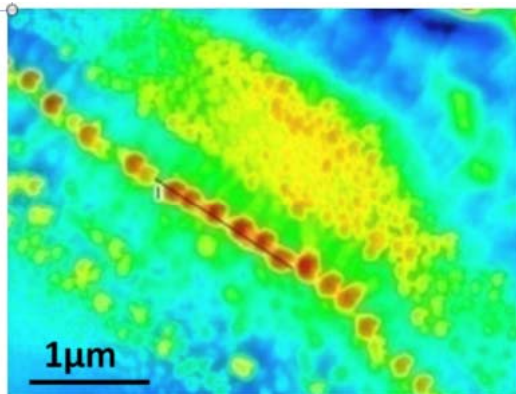


図 6 レーザー照射後のその場観察 AFM 像

## 5. 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕 (計 138 件)

- ① Masayoshi Kawai, Hiroaki Kurishita, Hiroyuki Kokawa, et al., “Development of Advanced Materials for Spallation Neutron Sources and Radiation Damage Simulation Based on Multi-Scale Models” J. Nucl. Mater. (2011), 査読有. doi:10.1016/j.jnucmat.2011.11.023.  
(科研費研究中材料開発と理論研究概要: 最強タングステンや高耐食ステンレス鋼の開発、世界初の原子核反応から機械特性変化までの多段モデルを扱った放射線損傷評価コードの開発)
- ② H. Kokawa, Potential of grain boundary engineering to suppress welding degradations of austenitic stainless

steels, Science and Technology of Welding and Joining, 16-4 (2011), 357-362, 査読有.

doi: 10.1179/1362171811Y.00000000021

(耐食性が 4 倍強い粒界工学制御ステンレス鋼の溶接部での高耐食性)

- ③ S. Saito, K. Kikuchi, D. Hamaguchi, et al.,

“Tensile mechanical properties and microstructure of a stainless steel irradiated up to 19 dpa in the Swiss Spallation Neutron Source”, J. Nucl. Mater. (2011), 査読有.

doi: 10.1016/j.jnucmat.2011.11.028

(ステンレス鋼の核破砕場照射特性で、20 dpa までのデータが取得できた)

- ④ H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, et al., “Development of re-crystallized W-1.1%TiC with enhanced room-temperature ductility and radiation performance”, Journal of Nuclear Materials, 398 (2010) 87-92, 査読有.

(従来座の 4 倍強く室温塑性を持つ超高靱性タングステンの開発)

- ⑤ Masatoshi Futakawa, Takashi Naoea and Masayoshi Kawai, Mercury Cavitation Phenomenon in Pulsed Spallation Neutron Sources, Proc. of 18<sup>th</sup> Int. Symposium on Nonlinear Acoustics, Stockholm, 7-10 July 2008, 197-200, AIP Conf. Proceedings 1022 (2008), 査読有.

(水銀標的の孔食現象を明らかにした研究)

### 〔学会発表〕 (計 92 件)

- ① 川合将義、栗下裕明、粉川博之、他、高エネルギー量子場の材料損傷機構研究と高性能材料の開発、日本原子力学会「2010 春の年会」、(1) - (11) シリーズ発表、つくば、(2010)
- ② 渡辺精一、粉川博之、川合将義、他、オーステナイト系ステンレス鋼における照射効果ならびに腐食挙動に及ぼす粒界性質依存性、日本金属学会、2009 年 3 月 31 日、「第 12 回優秀ポスター賞」受賞

### 〔その他〕

ホームページ:

<http://research.kek.jp/group/newmaterials/index.html>

### プレス発表: 2 件

- ① 2011 年 12 月 13 日レーザーで原子の空孔集合体成長の観察実験に成功
- ② 2010 年 10 月 28 日レーザー照射でナノドット一斉配列発見、リアルタイム観察実験に成功

国際会議主催: 2008 年 10 月 19~24 日,

第9回核破砕材料工学の国際ワークショップ (IWSMT-9), 於北大学術交流会館

核破砕中性子源用材料研究会の実施: 4回

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

川合 将義 (KAWAI MASAYOSHI)  
高エネルギー加速器研究機構・名誉教授  
研究者番号: 10311127

### (2) 研究分担者 (7名)

渡辺 精一 (WATANABE SEIICHI)  
北海道大学・エネルギー変換マテリアル研  
究センター・教授

研究者番号: 60241353

粉川 博之 (KOKAWA HIROYUKI)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号: 10133050

川崎 亮 (KAWASAKI AKIRA)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号: 50177664

長谷川 晃 (HASEGAWA AKIRA)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号: 80241545

栗下 裕明 (KURISHITA HIROAKI)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号: 50112298

菊地 賢司 (KIKUCHI KENJI)

茨城大学・フロンティア応用原子科学研  
究センター・教授

研究者番号: 70354769

(H20: 連携研究者)

義家 敏正 (YOSHIE TOSHIMASA)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号: 2012844

### (3) 連携研究者 (14名)

神山 崇 (KAMIYAMA TAKASHI)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造  
科学研究所・教授

研究者番号: 60194982

(H19~H20: 研究分担者)

原 信義 (HARA NOBUYOSHI)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号: 40111257

(H19: 研究分担者)

山村 力 (YAMAMURA TSUTOMU)

東北大学・工学研究科・名誉教授

研究者番号: 80005363

二川 正敏 (FUTAKAWA MASATOSHI)

日本原子力研究開発機構・J-PARC セン  
ター・研究主席

研究者番号: 90354802

(H19: 研究分担者)

深堀 智生 (FUKAHORI TOKIO)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工  
学研究部門・研究主席

研究者番号: 50354783

(H19: 研究分担者)

斎藤 滋 (SAITO SHIGERU)

日本原子力研究開発機構・J-PARC セン  
ター・副主任研究員

研究者番号: 60354776

前川 克廣 (MAEKAWA KATSUHIRO)

茨城大学・工学研究科・教授

(H19 研究分担者)

研究者番号: 20126329

伊藤 高啓 (ITO TAKAHIRO)

豊橋技術科学大学・工学研究科・助教

研究者番号: 00345951

後藤 琢也 (GOTO TAKUYA)

同志社大学・理工学部・准教授

研究者番号: 60296754

(H19: 研究分担者)

佐藤 紘一 (SATO KOICHI)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号: 30378971

橋本 敏 (HASHIMOTO SATOSHI)

大阪市立大学・工学研究科・名誉教授

研究者番号: 50127122

(H19: 研究分担者)

寺澤 倫孝 (TERASAWA MICHITAKA)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研  
究所・名誉教授

研究者番号: 20197792

渡辺 幸信 (WATANABE YUKINOBU)

九州大学・大学院総合理工学研究院・教授

研究者番号: 30210959

(H19: 研究分担者)

徐 超男 (XU CAO-NAN)

産業技術総合研究所・九州センター・チ  
ームリーダー

研究者番号: 70235810

### (4) 研究協力者 (20名)

石野 栞 (ISHINO SHIORI)

東京大学・名誉教授

柴山 環樹 (SHIBAYAMA TAMAKI))

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号: 10241564

坂口 紀史 (SAKAGUCHI NORIHITO)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号: 70344489

島川 聡司 (SHIMAKAWA SATOSHI)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工  
学研究部門・副主任研究員

直江 崇 (NAO TAKASHI)

日本原子力研究開発機構・J-PARC セン  
ター・研究員

研究者番号: 00469826

岩瀬 宏 (IWASE HIROSHI)

高エネルギー加速器研究機構・放射線科  
学センター・助教

研究者番号: 00469876

兼子 佳久 (KANEKO YOSHIHISA)

大阪市立大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 40283098

岸田 逸平 (KISHIDA IPPEI)

大阪市立大学・工学研究科・助教

竹中 信幸 (TAKENAKA NOBUYUKI)

神戸大学・工学部・教授

仲井 清眞 (NAKAI KIYOMICHI)

愛媛大学・理工学研究科・教授