

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：31103

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21360462

研究課題名（和文） レーザー衝撃法を用いたヘリウム粒界脆化直接測定

研究課題名（英文） Direct measurement of helium embrittlement on grain boundary by laser shock method

研究代表者

佐藤 学 (SATOU MANABU)

八戸工業大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：40226006

研究成果の概要（和文）：

原子力発電所の高経年化、核燃料の高燃焼度化に伴う核変換ヘリウムの影響、特に粒界脆化への影響を明らかにすることが原子炉の安全な運用のために求められています。レーザー衝撃試験技術を高度化し、特に再現性にかかる調査研究によって、検出されるべき、結晶粒界強度低下の検出限界や精度を明らかにし、ヘリウム粒界脆化直接測定への道筋を示しました。

研究成果の概要（英文）：

It is necessary to clarify the influence of the nuclear transmutation helium on the grain boundary embrittlement of the materials from the viewpoint of utilization of the high-burnup nuclear fuels and the viewpoint of the plant life management of the power station of safer operation. A laser shock spallation method was developed, by research activity concerning especially reproducibility, the detection limit and accuracy of reduction of grain boundary strength were clarified, and the feasibility to direct measurement of helium grain boundary embrittlement was shown.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2010年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2011年度	2,600,000	780,000	3,380,000
総計	12,600,000	3,780,000	16,380,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力工学

キーワード：ヘリウム脆化、異種材料界面、界面強度、レーザー衝撃試験

1. 研究開始当初の背景

原子力発電所の高経年化、核燃料の高燃焼度化に伴い原子炉の炉内構造材料では核変換により生ずるヘリウムの影響について明らかにすることが原子炉の安全な運用のため求められています。また、保守のための再溶接によってキャビティーへの成長する場所があることも指摘されています。より

高エネルギーの中性子に曝される高速増殖炉あるいはより高温で使用される高温ガス炉、高温かつ高エネルギー中性子に曝される核融合炉では、さらにヘリウムの影響は注目すべき重要な材料因子です。

これまで多数の研究者によりヘリウム脆化の事象が合金組成、ヘリウム量、温度などをパラメータにして事象の発生する場合は

あることが指摘されてきました。しかしながら粒界脆化についてヘリウムがどこにどれだけある場合にどのような頻度で発生するか、あるいはどの場所で発生するかを特定する取り組みまでには至っておりません。

ヘリウム脆化がどこで生じるかを知るためには特定の粒界面の強度がヘリウムに存在状態によってどのように変化するかを知ることが必要です。ヘリウムの分布をモデル化して有限要素法で界面の応力分布を推定したり、界面でのヘリウム分布を透過型電子顕微鏡で定量化したりする試みは国内外で行なわれてきました。しかしながら粒界面の強度測定に適用できる技術はこれまでになく、技術的なブレークスルーが求められています。本研究は種々の界面強度測定方法として原理的な適用可能性が確認されてきた新しいレーザー衝撃試験法によりヘリウム粒界脆化の課題解決にブレークスルーをもたらそうとするものです。

2. 研究の目的

モデル結晶粒界の作製方法を確立し、ヘリウムイオン照射を用いて結晶粒界へのヘリウム添加を行い、ヘリウム脆化したモデル結晶粒界を作製する方法を明らかにすること、このモデル結晶粒界を用いてレーザー衝撃による方法で界面強度を評価できることを示すこと、ヘリウムの存在状態などをパラメータとしてヘリウム粒界脆化の機構モデルを明らかにすることを当初目的としました。なお、ヘリウム添加実験は、想定した加速器が地震等で利用できなくなったため添加実験は実施しませんでした。粒界の界面強度を直接測定しようとする試みに必要な基礎的な技術開発を行いました。ヘリウム粒界脆化直接測定への道筋を示しました。

3. 研究の方法

実施項目は以下の通りです。

- 1) 固相拡散接合によるモデル界面の作製
- 2) 接合試験片の研磨による薄膜化
- 3) レーザー衝撃試験法を用いたモデル試料の界面強度測定
- 4) モデル試料測定での応力負荷条件の決定
- 5) 金属薄膜試験片の作製方法の高度化
- 6) 金属薄膜試験片の応力負荷評価の高度化
- 7) レーザー出力評価の高度化
- 8) レーザー衝撃試験による評価手法の改善
課題の抽出

(1) レーザー衝撃試験法

レーザー衝撃試験法はパルスレーザー照射により試料に弾力波を発生させ、接合界面の破壊の有無から強度を測定する手法です。レーザー衝撃試験法で接合強度を測定する

ためには、まず接合していない試料に高出力パルスレーザーを照射し、その試料背面の変位速度を干渉計により測定する実験と、次に接合試料に高出力パルスレーザーを照射し、接合層の剥離の有無を確認する実験を行う必要があります。本研究で用いたレーザー衝撃試験装置を図1に示します。レーザー衝撃

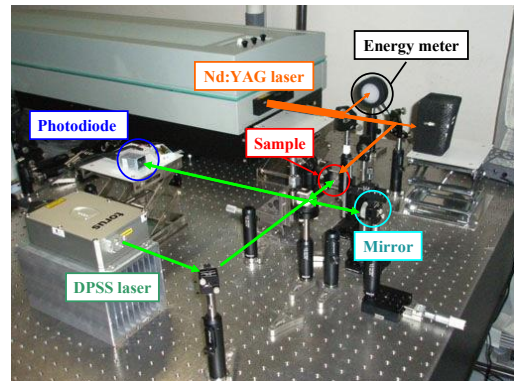


図1 レーザー衝撃試験のための装置外観

試験装置は大きく二つの構成に分けることができます。一つは図2に示す試料に高出力パルスレーザーを照射することで試料中に

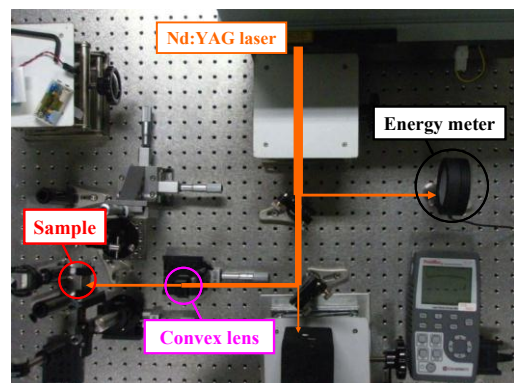


図2 弾力波を発生させる装置外観

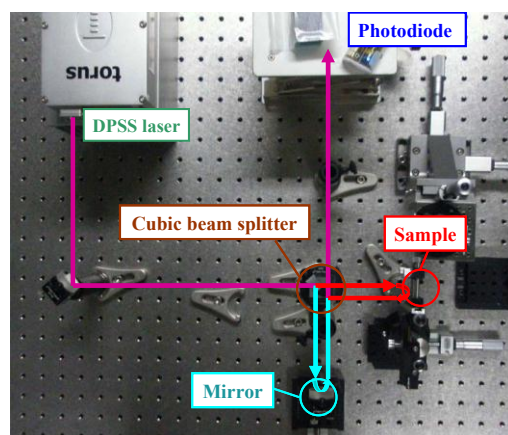


図3 変位速度測定のための干渉装置外観

応力波を発生させる系、もう一つは図3に示す連続レーザーを利用した干渉計です。本研究では高出力パルスレーザーとして最大出力1600mJ、パルス幅7nsのQスイッチNd:YAGレーザー(Continuum社製 Powerlite Precision II Scientific Laser System)を用い、干渉計の連続レーザーとして波長532nmでシングルモードの半導体励起固体(DPSS)レーザー(Laser QUANTUM社製 torus)を用いました。

(2) 高温固相拡散接合によるモデル界面の作製の例

モデル界面のひとつとして、高温固相拡散接合によって界面を作製しました。組み合わせた金属試料は銅、ニッケル、チタンとしました。図4に示すように円板状試験片の接合面を鏡面まで研磨した後3枚を重ね3MPaの荷重を荷し、真空中900°Cで2時間保持しました。

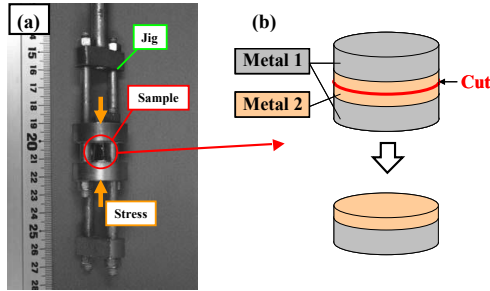


図4 固相拡散接合による試験片の作製概略

(3) 界面強度の評価手順

応力波によって試料中に加えられる応力 $\sigma(t)$ は変位 $u(t)$ を用いて一般的に式(1)のように表すことができます。

$$\sigma(t) = \rho c_f^2 \frac{\partial u}{\partial x} \quad (1)$$

ここで ρ は接合層の密度、 c_f は接合層中の縦波速度です。式(2)に時間依存の一次元波動方程式を示します。

$$c_f^2 \frac{\partial^2 u_f}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 u_f}{\partial t^2} \quad (2)$$

応力波は自由端反射をすることから、次の境界条件を満たします。

$$\begin{cases} \sigma(x=0, t) = 0, \\ v(x=0, t) = 2v(t) = V_0(t) \end{cases} \quad (3)$$

ここで x は自由面からの位置、 $V_0(t)$ は自由面の変位速度です。この条件を満たすように式(2)を解くと次のように表すことができます。

$$\begin{cases} u(x, t) = u_f \left(t + \frac{x}{c_f} \right) + u_f \left(t - \frac{x}{c_f} \right), \\ v(x, t) = \frac{\partial u}{\partial t} = v_f \left(t + \frac{x}{c_f} \right) + v_f \left(t - \frac{x}{c_f} \right) \end{cases} \quad (4)$$

よって、試料中に負荷される応力は式(5)のようになります。

$$\begin{aligned} \sigma(x, t) &= \rho c_f^2 \frac{\partial u}{\partial x} = \rho c_f \left\{ v_f \left(t + \frac{x}{c_f} \right) - v_f \left(t - \frac{x}{c_f} \right) \right\} \\ &= \frac{1}{2} \rho c_f \left\{ V_0 \left(t + \frac{x}{c_f} \right) - V_0 \left(t - \frac{x}{c_f} \right) \right\} \end{aligned} \quad (5)$$

$x = h$ を代入することで接合層厚さが h の試料の界面に加わる応力は次のようになる。

$$\sigma(x=h, t) = \frac{1}{2} \rho c_f \left\{ V_0 \left(t + \frac{h}{c_f} \right) - V_0 \left(t - \frac{h}{c_f} \right) \right\} \quad (6)$$

本試験ではNd:YAGレーザーの照射により接合界面が破壊する最小の応力を接合強度と定義することとしました。

4. 研究成果

研究の方法に示したように、レーザー照射による表面変位速度の測定が接合界面すなわち結晶粒界強度を評価する上で精度よく測定すべき事項です。いくつかの接合材料に対して測定し、また接合層の厚さをヘリウムイオン注入が可能な厚さまで研磨することができることを確認しました。ここでは銅とニッケルを基板材料とした場合の表面変位速度の測定例を示し、ヘリウム注入による粒界脆化直接測定の可能性を示します。

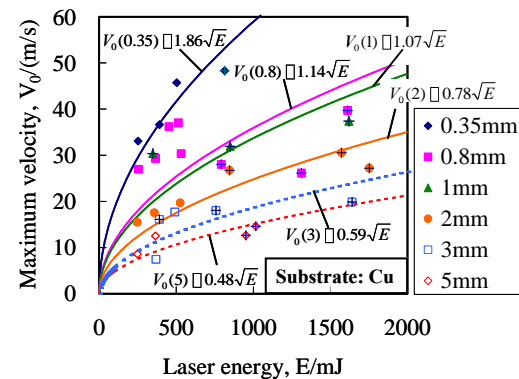


図5 銅基板の最大変位速度のレーザー出力依存性

図5いくつかの厚さの銅基板に対して種々のエネルギー出力でパルスレーザーを照射した場合の表面変位速度の測定結果をレー

レーザー出力の関数としてまとめたものです。レーザー出力のほぼ1/2乗で変位速度が増加します。また厚さにも依存し、薄い試験片で変位速度が高くなっています。図6は同様にチタンを基板とした場合の結果です。同一出力条件では表面変位速度は銅に比べ高くなっています。

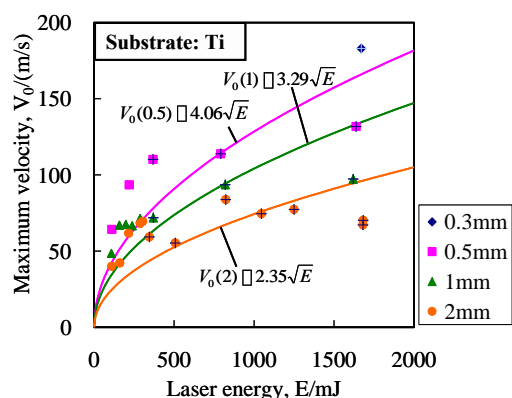


図6 チタン基板の最大変位速度のレーザー出力依存性

以上のように、固相拡散接合によるモデル界面の作製、接合試験片の研磨による薄膜化やレーザー衝撃試験による界面強度評価に関する種々のデータを取得しました。これらを通じて、レーザー衝撃試験技術を高度化し、特に再現性にかかる調査研究によって、検出されるべき、結晶粒界強度低下の検出限界や精度を明らかにし、ヘリウム粒界脆化直接測定への道筋を示しました。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計6件)

- ① Hitoshi Akamatsu, Manabu Satou, Takashi Sato, Amit Jain, Vijay Gupta, Akira Hasegawa, Evaluation of bonding strength between yttria coating and vanadium alloys for development of self-cooled blanket, Journal of Nuclear Materials, 査読有、417、2011、1253-1256
- ② Kazuto Imasaki, Akira Hasegawa, Shuhei Nogami, Manabu Satou, Helium effects on the tensile property of 316FR stainless steel at 650 and 750 C, Journal of Nuclear Materials, 査読有、417、2011、1030-1033
- ③ M. Satou, H.Akamatsu, T.Nagasaka and A.Hasegawa, Evaluation of adhesive strength between vanadium alloys and yttrium oxide by laser shock spallation method, Materials Research Society Proceedings, 査読有、1298、2011、

55-60

- ④ Manabu Satou, Evaluation of Adhesive Strength of Oxide Layer on Carbon Steel at Elevated Temperatures, Materials Research Society Proceedings, 査読有、1215、2010、133-138
- ⑤ M.Satou, H.Akamatsu, A.Hasegawa, MEASUREMENT OF ADHESION STRENGTH OF SOLID-STATE DIFFUSION BONDING BETWEEN NICKEL AND COPPER BY MEANS OF LASER SHOCK SPALLATION METHOD, Shock Compression of Condensed Matter -2009, 査読有、CP-1195、2009、1131-1134

〔学会発表〕(計3件)

- ① Manabu Satou, Measurement of Bonding Strength between Tungsten Coating and Reduced Activation Ferritic Steel, 15 th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2011年10月18日、チャールストン、米国
- ② Manabu Satou, Evaluation of Adhesive Strength Between Vanadium Alloys and Yttrium Oxide by Means of a Laser Shock Method, Materials Research Society 2010 Fall Meeting, 2010年11月30日、ボストン、米国
- ③ Manabu Satou, Adhesion strength between vanadium alloys and ceramics, Tenth Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, 2010年10月21日、京都

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 学 (SATOU MANABU)

八戸工業大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：40226006

(3) 連携研究者

長谷川 晃 (HASEGAWA AKIRA)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80241545

野上 修平 (NOGAMI SHUHEI)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：00431528