

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360426

研究課題名(和文)高速炉構造材の熱時効・照射による強度劣化機構の実験的研究

研究課題名(英文) Experimental approach for hardening mechanism of fast reactor structural materials due to thermal ageing and irradiation

研究代表者

福元 謙一 (Ken-ichi, Fukumoto)

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) 12,300,000円、(間接経費) 3,690,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では材料評価手法としてTEM内引張試験その場観察法により熱時効および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、熱時効および損傷発達過程に伴う高温強度特性変化を予測評価した。Bcc金属の純Vおよび純Feでの研究結果から運動転位と空孔型欠陥集合体であるボイドの相互作用が直接観察され、材料因子による障害物強度について測定した。その結果、ボイドによる照射硬化は母材の剛性率などに依存せず、ボイド形状因子が硬化量に対して支配的であることが示された。上記手法を用いた信頼性の高い原子力構造材料寿命評価解析手法を確立した。

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 ion-irradiated SUS316L steels and bcc metals including pure V and pure Fe in order to evaluate lifetime of nuclear materials. It provides the accurate analysis for evaluating irradiation hardening quantitatively. We succeeded to observe the direct interaction between void and mobile dislocation clearly and the obstacle barrier factor was derived for pure V and pure Fe. The obstacle barrier factor was ranged from 0.5 to 0.7 for 4nm to 14nm of void size with increase rate of 0.02/nm independent of metal species. Striking agreement was obtained for previous study. The results will be used to improve the accuracy of life time analysis for developing theoretical model method based on the microscopic-macroscopic correlation during irradiation with the accurate obstacle barrier factor.

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：照射硬化 TEM内引張その場観察 転位挙動 高速炉材料 キャビティー・ボイド 照射欠陥

1. 研究開始当初の背景

高速増殖炉の実用化に向けて高温・照射環境における構造材料の使用から、高温・重照射に対する耐久性が材料開発に要求される。改良型 316FR 鋼や高クロム鋼などの材料開発に伴いこれらの材料の高温強度試験や照射試験などが JAEA を中心に行われてきたが、実験データの蓄積による経験則からの安全性実証が主であり、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。クリープ組織や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)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(例えばクリープにおける Z 相や照射下における Laves 相)。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切な硬化因子の重みを加えることにより、高精度の定量的な組織硬化量評価が可能となり、クリープ疲労損傷や照射硬化・脆化による材料健全性評価手法の構築が可能となる。

申請者が提案する「電子顕微鏡内引張試験『その場』観察」は過去本研究者グループが所属した研究グループで培われた手法であり、圧力容器鋼の照射脆化で多くの成果を得た[1,2]。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あいだに極めてよい一致を得ることが出来た。この方法は材料の種類を選ばず、また照射硬化のみならず一般の粒子分散による材料強化機構の評価の上でも、一般性のある極めて有用な方法である。この手法は本手法を高速炉用改良型 SUS316FR 鋼および高クロム鋼の高速炉環境下におけるクリープ損傷組織発達および照射損傷組織発達による材料健全性評価に適用することにより、実用炉に向けた高温重照射場における構造材料寿命評価解析手法に適用できるとの着想に至った。

2. 研究の目的

改良型 SUS316FR 鋼や高クロム鋼の各組織要

素(転位、粒界、析出物、照射欠陥集合体)の転位運動に対する障害強度因子(硬化因子)を測定する。電顕内引張試験『その場』観察試験用試料を作製する。作製する試験片は、熱時効試験から析出物などの第二相を形成した試料や、イオン加速器による重照射による欠陥集合体(ポイド、バブル)導入や析出物反跳分解による再編化された損傷組織による試料を準備する。作製された試料の組織について、陽電子消滅法や超微小硬度硬さ試験、従来の TEM 観察試験などにより組織情報を予め取得する。電顕内引張試験『その場』観察試験による、運動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動的に評価する。得られた強度から各組織要素の絶対硬化因子強度を導出し、各種特性変化挙動の予測評価手法に反映させる。

3. 研究の方法

所有する SUS316FR 鋼、高クロム鋼および BCC 純金属であるバナジウム及び純鉄から試料を切り出し、10x2mm 板材試料及び TEM 観察用 3mm ディスク試験片を作製する。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を用いてイオン照射する。照射温度は SUS316FR 鋼で 500~700、高クロム鋼、純バナジウムおよび純鉄では 400~700 で行う。イオン種は水素とヘリウムで、照射エネルギーは 190keV である。照射電流は 10 μ A 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(例えばポイド: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)。試験片作製は H22 年度までにモリブデン、バナジウム合金などで確立されている 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動的に評価する。本研究では、この様子から障害物強度を算出することで、転位に対するボイドの硬化量の定量的評価を行った。

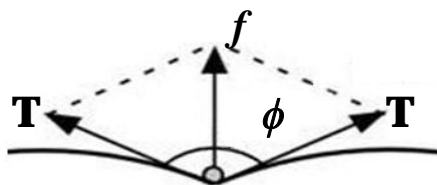


図 1. 障害物と反応した転位の張り出し

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

$$T \cong \frac{\mu b^2}{2} \quad (2) \quad \begin{array}{l} \phi: \text{張出角} \\ \mu: \text{剛性率} \end{array}$$

$$\alpha = \cos(\phi_c / 2) \quad (3) \quad \begin{array}{l} b: \text{バーガースベクトル} \\ \alpha: \end{array}$$

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のように張り出す。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。

4. 研究成果

(1) SUS316FR 鋼

SUS316FR 鋼を用い、京大エネルギー工学研究所の DuET 照射試験装置にて 6.4MeV Fe⁺ イオンを 500 にて、ピーク位置損傷量 1dpa で照射した。照射後電子顕微鏡内で引張試験を常温で行い試料薄膜内の転位運動の動的「その場」観察を行った。この照射条件では転位ループが形成された。TEM 内引張試験により欠陥集合体が掃破されて欠陥が集合しない帯状の組織が形成され、その中を転位が運動するいわゆる転位チャネリング運動が観察された。図2に形成された転位チャネリング組織について示す。しかしながら当初目的としていた運動転位と単一欠陥集合体の相互作用の直接観察はなされなかった。

(2) 純バナジウム

純バナジウムを 0.2mm 厚圧延材から、11.5mm × 2.5mm の形状に機械加工して、

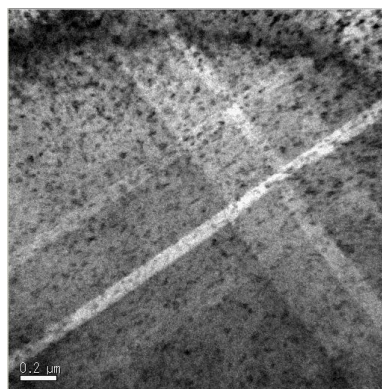


図 2: 6.4MeV Fe イオン照射した SUS316FR 鋼の TEM 内引張試験時に形成された転位チャネリングの組織写真。

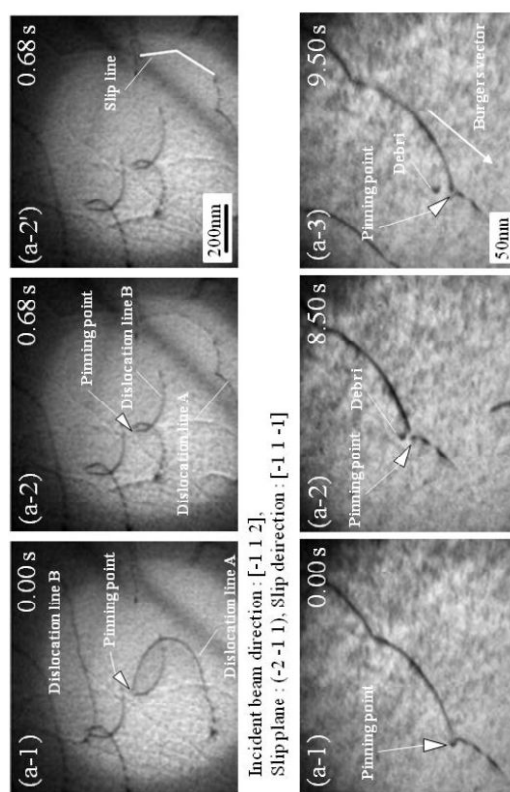


図 3 : 純バナジウム中のボイドと転位の相互作用過程観察写真(左)ボイドによるピン止めからの転位の張り出し過程。(右)ボイド上でのオロワン機構による転位運動過程

1100 × 8hr にて熱処理した。He⁺イオンを照射温度 600 、加速電圧 190keV の条件にて、照射量 0.2dpa と 0.4dpa の 2 条件で照射した。ヘリウムバブルサイズを大きくするため 1100 で 2 時間の追加熱処理した。照射後電解研磨法にて試料を作製した後、TEM 内引張試験「その場」観察を行い、障害物強度のサイズ依存性を調べた。

図3に純バナジウム中でのボイドと運動転位の相互作用の反応過程観察写真を示す。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(図3右)。一方で運動転位とヘリウムバブルやボイドとの相互作用では、同一すべり面における反応以外に交差すべりなどを起こし運動転位が他のすべり面に移動していると思われるものが確認された。

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(図3左)や、ボイド上にてダイポ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。相互作用反応数と運動転位とヘリウムバブルやボイドとの相互作用の全反応数(運動転位が障害物にピン止めされ、ピン外れを起こした数)との割合を調べた。交差すべりと二重交差すべりの全反応数に対する割合はボイドサイズが大きくなるにつれ、割合が増加した。また同一すべり面上での運動転位と障害物のカッティング機構による障害物強度を算出したところボイドサイズが大きくなるにつれ、障害物強度の値も増加した。交差すべりの変形確立と障害物強度因子のボイドサイズ依存性を図4に示す。本研究において運動転位とボイドとの相互作用においては、カッティング機構による障害物強度と交差すべりのサイズ依存性が確認され、ボイドの障害物強度のサイズ依存性が実験的手法により得られた。

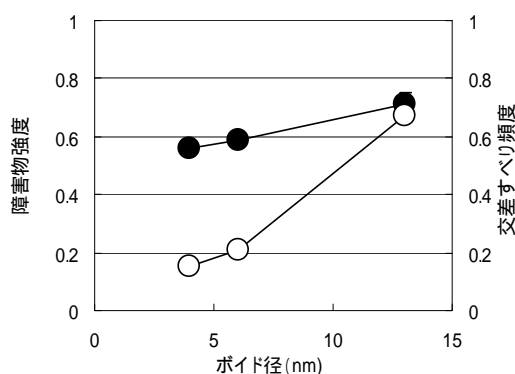


図4 :バナジウム中に形成されるボイドに対する運動転位との相互作用に対する障害物強度因子 (●)と交差すべり発生頻度 (○)のボイド径サイズ依存性

(3) 純鉄

作製した純鉄試料に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

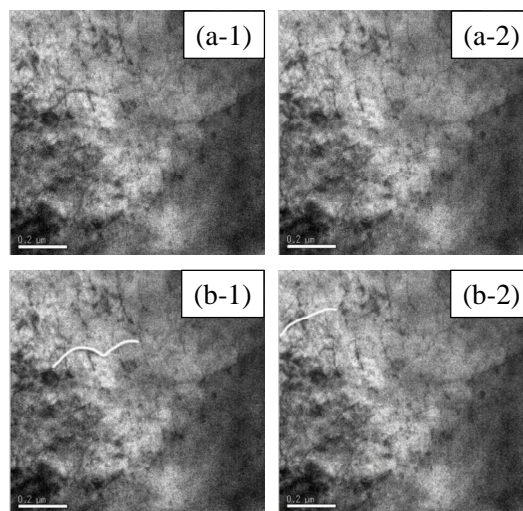


図5 : 純鉄照射材(600 °C, 0.5dpa)における臨界張り出し時の転位線 (a-1): 臨界張り出しの瞬間、(a-2): 通過直後、(b-1), (b-2)は(a-1), (a-2)における対象の転位線を白線でトレース写真。

入装置を用いて照射欠陥の導入を行った。照射条件は加速電圧:190keV、電流密度:10 μ A/cm²、照射温度:500~600 °C、照射時間:40~400sec、ピーク位置損傷量:0.1~1.0dpaのHe⁺イオン照射にて行った。照射後引張変形中の転位挙動をTEM内引張『その場』観察法を用いて観察した。600 °C、0.5dpa照射材観測された臨界張り出しの転位線を図5に示す。これら結果と式(1)を用いて障害物強度の評価を行ったところ、5nm、8nmのボイドに対する障害物強度はそれぞれ0.5、0.7という結果が得られた。

本実験の結果から、ボイド径の増加に従っ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。

純バナジウムにおけるキャピティ(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6に示す。純鉄と純バナジウム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。そこで、ボイドと転位の相互作用における障害機構に関する考察を行った。まず、転位がボイドによるピン止めを通過するた

めに必要な応力を考えた。ポイドは立体的な空洞であり、ポイドと反応した転位はポイドとの反応長さに応じて自己エネルギーが低下する。したがって、ポイドと反応した転位線は安定状態となり、この状態の転位が運動を再開するためには低下したエネルギーを外力により与える必要がある[3]。ここで、転位の自己エネルギーは剛性率に依存するため、ポイドの運動転位に対する障害物としての抵抗力は母材の剛性率の影響を受けると考えられる。次に、本実験で用いた障害物強度の定義について考える。この値は、転位が障害物に作用する力が張出角に依存していることから、転位が障害物を通過する瞬間の張出角により障害物に作用する力が運動転位に対する障害物としての抵抗力であるという考えに基づき、障害物強度を臨界張出角の関数として定義したものである。ここで、式(1)~(3)について考えると、ある角度で張り出した転位により障害物に作用する力は剛性率に依存することがわかる。以上のことから、剛性率の増加によりポイドの転位挙動に対する抵抗力は上昇するが、その影響は線張力の剛性率依存性に吸収され、本研究で用いた定義に基づく障害物強度の値には剛性率の変化に伴う影響が確認されなかったものと考えられる。

ポイドの障害物強度は材料因子の影響を受けず、ポ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、本実験により得られた結果により、同様のポ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[4]を TEM 内引張『その場』観察法による転位-ポイド相互作用を用いて証明することができた。また、ポイドの分布状態に対する障害物強度の増分： σ_{void} はポイド径 4~14nm の範囲において 0.02nm^{-1} 程度であることが示された。今後、本実験で評価していない BCC 結晶金属・合金のポイド径における転位-ポイド相互作用においても同様の関係が得られるのか検証を行う必要がある。

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]. 木村宏, “材料強度の考え方”, (1998), アグネ技術センター.
- [4]. R.E. Stoller, S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater., 283-287 (2000)349-352

5. 主な発表論文等

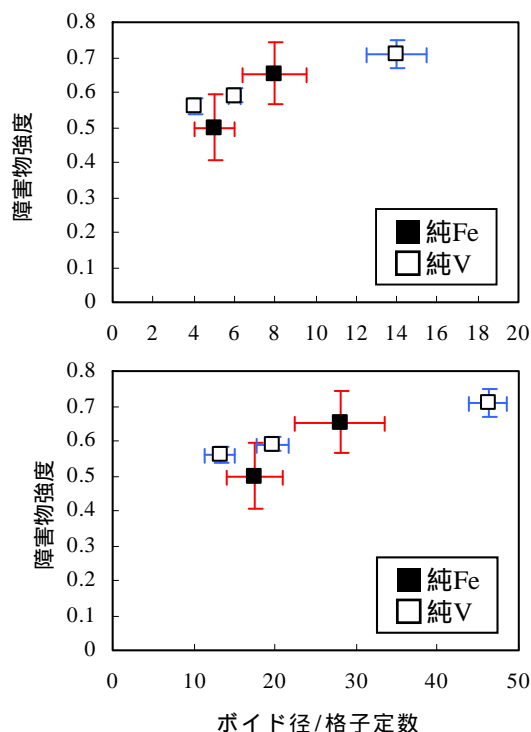


図6：純鉄と純バナジウムのポイド障害物強度の比較
上：ポイド径依存性
下：ポイド径/格子定数依存性

(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 2 件)

- K. Tougou, K. Nogiwa, K. Tachikawa, K. Fukumoto, “Tensile testing study of dynamic interactions between dislocations and precipitate in vanadium alloys”, Journal of Nuclear Materials, 442 (2013) S350-353 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.10.043>
- K. Tougou, K. Nogiwa, A. Shikata, K. Fukumoto, “In-Situ TEM Observation of Dislocation Interaction with Cavity in Ion-Irradiated Pure Vanadium during Tensile Test”, Materials Transactions, 54 (2013) 1095-1101 査読有, <http://dx.doi.org/10.2320/materialtrans.M2013012>

[学会発表](計 6 件)

- 「純バナジウムにおける運動転位と照射欠陥の相互作用に関する研究」、東郷 広一、野際 公宏、四方 章仁、福元 謙一、日本原子力学会関西支部第9回

若手研究者による研究発表会、2013 年
11 月 敦賀市

「純鉄中のボイドと転位の動的相互作用」、四方 章仁, 福元 謙一, 野際
公宏, 東郷 広一, 日本金属学会 2013
年秋期講演大会、2013 年 9 月 金沢市
“ Study of dynamics interaction
between dislocation and bubble in pure
vanadium in tensile test ”, K. Tougo,
K. Nogiwa, A. Shikata, K. Fukumoto,
Numat-2012, Oct. 2012, Osaka/Japan

「純バナジウムの照射欠陥と転位挙動
の動的相互作用」東郷 広一, 福元 謙
一, 野際 公宏, 日本金属学会 2012 年
秋期大会、2012 年 9 月 松山市

“ STUDY OF DYNAMICS INTERACTION
BETWEEN DISLOCATION AND PRECIPITATE
IN VANADIUM ALLOYS IN TENSILE TEST ”,
K. Tougo, K. Tachikawa, K. Nogiwa, K.
Fukumoto, ICFRM-15, Oct., 2011,
Charlston/USA

「純バナジウムでの引張試験による転
位とボイドの動的相互作用の研究」東郷
広一, 福元 謙一, 野際 公宏, 日本原
子力学会 2011 年秋の大会、2011 年 9
月 北九州市

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 件)

〔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

野際 公宏 (Nogiwa Kimihiro)

福井大学・附属国際原子力工学研究所・研
究員

研究者番号：80465989

鬼塚 貴志 (Onitsuka Takashi)

福井大学・附属国際原子力工学研究所・研
究員

研究者番号：90422336