

[H27-1]

加速器を利用した照射材料挙動モデルの構築と微小試験法の開発

Modeling of microstructural evolution in irradiated materials by using ion accelerator and development of experimental method with miniature specimen

低合金鋼の照射損傷組織に及ぼす熱負荷の影響

Effect of heat load on irradiation damage structures in low alloy steels

橋本直幸^{A)}, 後藤俊太^{A)}
Naoyuki Hashimoto^{A)}, Shunta Goto^{A)}
A) Hokkaido University

Abstract

In order to investigate the influence of heat load on mechanical properties and microstructure change, we conducted in-situ experiment of aging and irradiation for a model alloy (Fe-1.15Mn-0.45Mo-0.40Ni) by a multi-beam high voltage electron microscope. Electron-irradiation resulted in the formation of black dots and some of them seemed to grow and change to dislocation loops and some did not. Furthermore, the aging at 500°C for the electron-irradiated sample exhibited the shrinkage or disappearance of black dots and small loops (< 10 nm). From these results, it is suggested that the heat load would cause the release of interstitial atoms from small loops into the matrix, and then the interstitial flow into a relatively large loop around them.

Keyword: Low alloy steel, In-situ experiment, annealing, high voltage electron microscope

1. はじめに

高経年化を迎えている軽水炉構造材の安全性評価には、軽水炉圧力容器の照射脆化は最も重要な研究課題の 1 つである。沸騰水型軽水炉(BWR)の通常運転時における圧力容器鋼の温度は 288 °C であるが、シビアアクシデントによる冷却系統停止時には、この温度を超える高温にさらされることが予想され、本来の圧力容器鋼の健全性を損なう可能性がある。本研究では、シビアアクシデント時の高熱負荷が圧力容器鋼の照射損傷組織に与える影響を調査した。

2. 実験方法

低合金鋼の基本組成である Fe-0.75Mn-0.47Mo-0.45Ni モデル合金をアーク溶解により作製し、機械および電解研磨によって電子線照射実験用薄膜試料とした。照射実験は、超高圧電子顕微鏡(HVEM)を用いた電子線照射その場観察及びイオン加速器による Fe³⁺イオン照射とした。電子線照射実験は、照射温度 290°C、損傷速度 3.0×10^{-4} dpa/s、損傷量最大 0.2 dpa の条件で行った後、照射温度を 500 °C に上昇させて熱時効を施した。この間、照射による材料の損傷組織および熱時効による損傷組織の継時変化を精査した。また、イオン照射実験は、イオンビーム照射施設にて照射温度 300°C、最大 0.1 dpa まで行い、照射後に汎

用電子顕微鏡で組織観察を行った。

3. 結果・考察

Figure 1 に、290 °C で電子線照射した際の照射損傷組織の継時変化を示す。損傷量 0.05 dpa で直径 5 nm 以下の欠陥クラスター(ブラックドット)が形成した。このブラックドットは、損傷量の増加に伴って成長して転位ループへ変化するものと、全く成長しないものがある。また、290 °C で電子線照射した試料を 500 °C で熱時効すると転位ループの数密度の減少と平均サイズの増加が観られ、転位ループのサイズ分布が大サイズ側へシフトした。この現象は、熱時効中の微小ループの消滅と、マトリクス中に放出された格子間原子の転位ループへの流入により説明される。一方、高温低損傷速度で追加照射を行った場合、転位ループの数密度の減少および平均サイズの増大はより顕著となる。これは、高温での熱時効と照射による点欠陥の導入の相乗効果と推察される。

4. 参考文献

[1] K. Fukuya, K. Ohno, H. Nakata, S. D. Dumbill, "Microstructural evolution in medium copper low alloy steels irradiated in a pressurized water reactor and a material test reactor" *J. Nucl. Mater.* **312** (2003) 163-173.

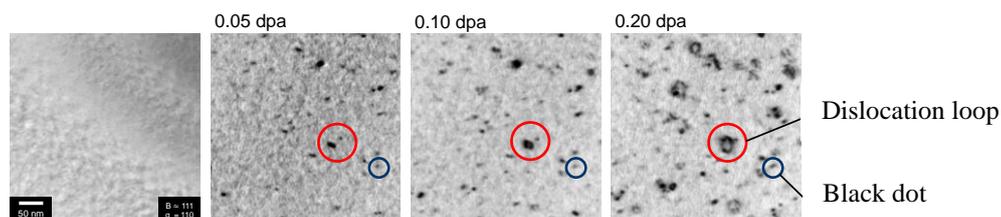


Figure 1 Microstructural evolution in Fe-0.75Mn-0.47Mo -0.45Ni electron-irradiated at 290 °C

[H27-1]

電子照射下での格子間原子集合体の一次元運動に対する残留不純物の影響

Effect of Residual Impurities on One-Dimensional Migration of Interstitial Clusters under Electron Irradiation

阿部陽介^{#,A)}, 佐藤裕樹^{B)}, 大久保成彰^{A)}

Yosuke Abe^{#,A)}, Yuhki Satoh^{B)}, Nariaki Okubo^{A)}

^{A)} Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency

^{B)} Faculty of Engineering, Hiroshima Institute of Technology

Abstract

We examined the effect of residual impurities introduced during annealing for specimen preparation on one-dimensional (1D) migration of self-interstitial atom (SIA) clusters in iron under electron irradiation at 300 K by in situ observation using high-voltage electron microscopy. The 1D migration distance was found to depend on the annealing procedure: distribution of the distance slightly decreased by bulk annealing, and significantly decreased by standard annealing, indicating that impurities acting as traps for one-dimensionally migrating SIA clusters may increase by thermal diffusion during annealing.

Keyword: self-interstitial cluster (SIA), one-dimensional (1D) migration, annealing, high voltage electron microscopy

1. はじめに

高エネルギー粒子照射下では、カスケード損傷で直接形成される格子間原子 (SIA) 集合体が一次元(1D)運動により損傷領域から離脱する一方で原子空孔は三次元拡散により散逸し、これら散逸機構の違いが損傷組織発達を律則すると考えられている。これまでに我々は、超高圧電子顕微鏡を用いた電子照射下その場観察により、室温から 110K までの低温での 1D 運動機構のモデルを提案してきた^[1]。本研究では、試料作製の際の熱処理に起因する残留不純物が格子間原子集合体の 1D 運動に与える影響を調べた。

2. 実験方法

用いた試料はブロック状の高純度鉄で、以下の 3 種類の方法で作製し、超高圧電子顕微鏡を用いて室温での電子照射により格子間原子集合体を導入し、その 1D 運動距離の分布を比較した。

- 熱処理は行わず、機械研磨の後に電解研磨 (as-received)
- ブロック状のまま熱処理を行い、機械研磨の後に電解研磨 (bulk anneal)
- 厚さ 0.1mm まで圧延後 3mm φ ディスクに打ち抜き、熱処理を行った後に電解研磨 (standard anneal)

3. 結果と考察

データ解析により得られた格子間原子集合体の 1D 運動距離の分布に与える熱処理の影響を Fig. 1 に示す。熱処理を行わない試料 (as-received) に比べると、ブロック状のまま熱処理した場合 (bulk anneal) では 1D 運動距離はやや短くなった。さらに、標準的試料作製法 (standard anneal) では、1D 運動距離が著しく短くなることが明らかとなった。歪みを除去し結晶粒を成長させる目的で行う熱処理中に何らかの不純物を

が試料に導入され、格子間原子集合体の 1D 運動を阻害することが示唆される。この要因となる残留不純物を同定することが今後の課題である。

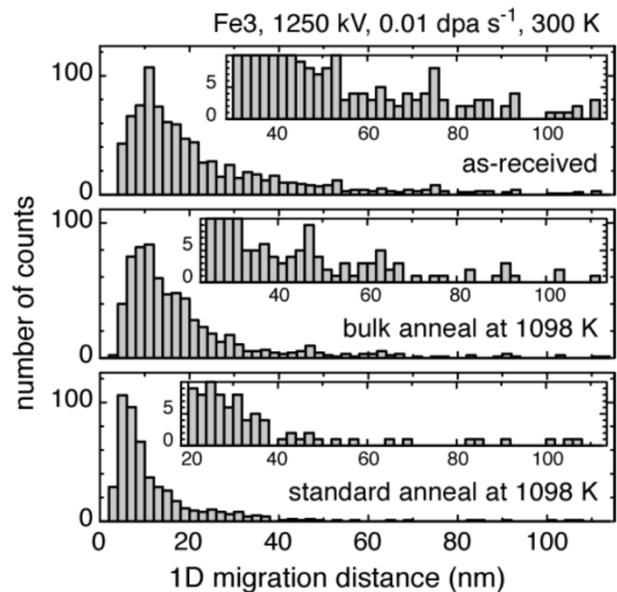


Figure 1. The distributions of 1D migration distance of SIA clusters observed for specimens prepared by: (a) as-received, (b) bulk anneal, and (c) standard anneal.

参考文献

- [1] Y. Satoh, Y. Abe, et al., “Vacancy effects on one-dimensional migration of interstitial clusters in iron under electron irradiation at low temperatures”, *Philos. Mag.*, 96, 2219-2242, 2016

[H27-1]

分子動力学法を用いた FCC 金属におけるボイド-転位相互作用の定量化

MD simulations to quantify the interaction between a void and dislocation in FCC metals

土井原 康平¹, *沖田 泰良², 板倉 充洋³

¹東大・工, ²東大・人工物工学研究センター, ³日本原子力研究開発機構

分子動力学法を用いて、FCC 金属における刃状転位-ボイド相互作用過程を定量化した。部分転位がボイドから分離する過程を取り入れることで、弾性論を用いた硬化モデルが適用できることを明らかにした。

キーワード：オーステナイト鋼，分子動力学，刃状転位，照射硬化，ボイド

1. 緒言

照射下微細組織のうち、ボイドは照射硬化に及ぼす影響が大きい。そのミクロ要因解明を目的とした実験・計算的検討が、従来から行われてきた。しかし、FCC 金属に於いては、分子動力学 (MD) で算出される硬化と弾性論を用いた予測 (BKS モデル)^[1]に大きな相違が生じることが課題であった^[2]。特にオーステナイト鋼では、積層欠陥エネルギー (SFE) が低く転位は 2 本の部分転位に広く拡張している上、低照射量からボイドが頻りに観察されるため、原子レベルの挙動に基づいてボイド形成に伴う硬化を定量化する手法の構築が求められる。本研究では、ボイド径、SFE、温度を変化させたボイド-刃状転位相互作用過程を MD 法によって解析し、ボイド形成に伴う硬化を弾性論で記述する手法の確立を目的とする。

2. 計算方法

本研究の MD 計算では、LAMMPS を用いた^[3]。SFE が 14.6 – 186.5 mJ/m² と変化する一方、その他の物性値はほぼ等しい 6 つの FCC 金属原子間ポテンシャル^[4]を用い、x [10-1] 44.1 or 77.1 nm, y [1-21] 40.1 nm, z [111] 25.2 nm, x 軸 y 軸方向周期境界, z 軸方向自由境界の計算セルを設定した。初期条件として $b = a_0/2$ [10-1] の刃状転位、及び重心が転位のすべり面上に存在するようにボイドを配置した。温度 100 – 700 K, ボイド直径 2.0 – 8.0 nm と変化させた計算を行い、その応力履歴から臨界分解せん断応力 (CRSS) を算出した。

3. 結果と考察

図 1 に、ボイド直径 4.0 nm における CRSS の SFE 依存性を示す。オーステナイト鋼に相当する低 SFE では、拡張幅が広いため部分転位が時間差を伴ってボイドから分離する (図 2 (a))。この場合の CRSS は、BKS モデルで 1 本の部分転位を b としたモデル (図 1 (i)) と極めて良い一致を示す。一方、高 SFE では、2 本の部分転位が同程度湾曲しほぼ同時にボイドから分離する (図 2 (b))。この場合の CRSS は、2 本の部分転位を b としたモデル (図 1 (iii)) と一致する。従来は、完全転位を用いた検討のみ (図 1 (ii)) が行

われてきたが、MD 法で求まる部分転位の挙動を取り入れることで、ボイド形成に伴う硬化を弾性論で予測可能であることが明らかとなった。

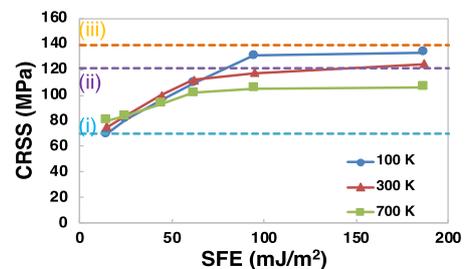


図 1: CRSS の SFE 依存性

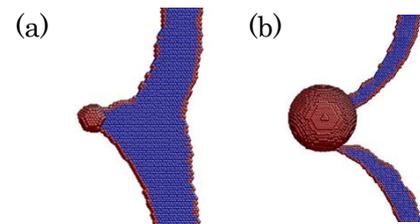


図 2: ボイドから分離時における転位の湾曲, (a)低 SFE, (b)高 SFE

参考文献

- [1] D.J. Bacon et al., Philos. Mag. 28 (1973) 1241.
- [2] Y.N. Osetsky et al., Philos. Mag. 90 (2010) 945.
- [3] V. Borovikov et al., Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. 23 (2015) 055003.
- [4] LAMMPS Molecular Dynamics Simulator <<http://lammps.sandia.gov/>>
Kohei Doihara¹, *Taira Okita² and Mitsuhiro Itakura³
¹School of Engineering, University of Tokyo, ²Research into Artifacts, Center for Engineering, University of Tokyo, ³JAEA-CCSE

[H27-1]

炉内機器用オーステナイト鋼の損傷組織への熱影響

Estimation of microstructural changes of austenitic alloys for LWR core internal components by heating during severe accident

野口耕平^{A)}、文元太郎^{A)}、山下幸人^{A)}、卜部光也^{A)}、高橋憲人^{A)}、田代 司^{A)}、大久保成彰^{B)}、實川資朗^{A)}
K. Noguchi^{A)}, T. Fumimoto^{A)}, Y. Yamashita^{A)}, K. Urabe^{A)}, K. Takahashi^{A)}, T. Tashiro^{A)}, N. Okubo^{B)}, S. Jitsukawa^{A)}
^{A)} National Institute of Technology Fukushima College, ^{B)} Japan Atomic Energy Agency

Abstract

Fe-ions and He-ions have been irradiated on 316 ss to 1 dpa at 10appmHe/dpa. Annealing at temperatures of 400oC to 750oC reduced the number density and increased in size of irradiation produced interstitial loops. The microstructural change is suggesting the total number of interstitial atoms is not strongly affected by annealing for 10000 s.

Keyword: 316ss, severe accident, temperature history, irradiation, interstitial loops, annealing, microstructure.

1. はじめに

炉内機器材料は中性子などによる照射損傷を受けると微細組織の変化を生じる。これが熱履歴を受けると特徴的な微細組織を形成する。このことより、微細組織の情報から、事故時熱履歴などの推定に利用できる知見が得られると考える。実際、類似の手法は、TMI-II の压力容器の熱履歴の推定に使われた[1]。このような手法の可能性について検討するため、10MeV の鉄イオンなどを 316 鋼試料に照射し、系統的に熱履歴を与え、透過電子顕微鏡試料により微細組織を観察し、熱履歴の影響を評価した。

2. 実験 (Experimental)

- ・試料: 試料には 6mm×3mm×0.75mm の短冊状の溶体化処理した Kobelco 製の 316 鋼(化学組成: 0.013C-0.47Si-17.4Cr-12.6Ni-1.55Mn-2.5Mo-0.025P-0.001S-0.1N-Fe)を用いた。
- ・イオン照射: 量研機構高崎の TIARA 施設にて、10MeV の Fe³⁺イオンと、1MeV の He⁺イオンを照射した。照射温度は主に 300℃とし、照射量は、主に Fe³⁺による弾き出し損傷量を 1dpa、He⁺の量は、弾き出し損傷速度との関係で約 10appmHe/dpa とした。
- ・焼鈍: 試料を真空封入し 400℃から 750℃の範囲、300 秒から 30000 秒の時間で焼鈍を行った。
- ・電子顕微鏡用薄膜試料の作製: 焼鈍により熱履歴が加えられた試料から、FIB により、厚さが 0.1μm 程度の電子顕微鏡試料を作製した。
- ・電子顕微鏡観察: 加速電圧 200kV の透過電子顕微鏡で、主に、g=<200>にて転位ループ等を観察した。

3. 結果と考察 (Results and discussion)

図 1 に、焼鈍温度 400℃から 750℃、焼鈍時間 300s から 10000s の範囲の照射後焼鈍を行った微細組織の例を示す。言うまでもなく、高温側、長時間側でクラスターの数密度が減少し、転位ループなどの大きさが増加している。

図 1 などの結果をまとめると、転位ループの数密度は、照射したままの時の 4×10^{23} 個/m³ 程度から 1×10^{22} 個/m³ 程度に減少し、それに伴い、大きさは 6nm 程度から 200nm 程度に増加した。このように、転位ループの状態は、中性子照射試料の場合と同様に、焼鈍の温度や時間に対応して敏感に変化を示す[2, 3]。これから原子炉の事故時における温度履歴推定への適用可能性があると言えよう。

なお、図 2 に示すように、焼鈍温度が異なっても焼鈍時間によっては同一の「数密度-大きさ」値をとるが、事故時の高温の持続時間は、ジルカロイ-水反応が盛んに生じた 2-3 時間に限られる推測されるため、事故時における温度履歴推定への適用が可能と期待される。さらに、制御棒などの微細組織解析を併用すれば、より詳しい検討が可能と考えられる。

微細組織変化の見かけの活性化エネルギーは 2.8eV 程度となり、微細組織変化が原子空孔の挙動に従った現象であることが示唆される。しかし、図 1 からは、格子間原子が原子空孔と(再)結合して消滅する。この点について、今後、さらなる検討を加える。

- 参考文献
[1] G.E. Korth, et al., Nucl. Eng. Design 167(1997)267
[2] B.N. Singh, et al., Riso RAE1213, 2001

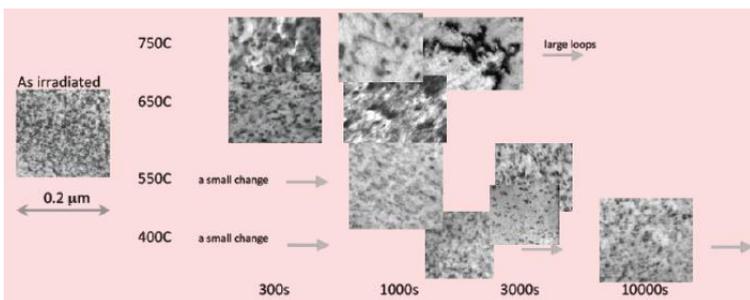


図 1 イオン照射後焼鈍で得られた微細組織

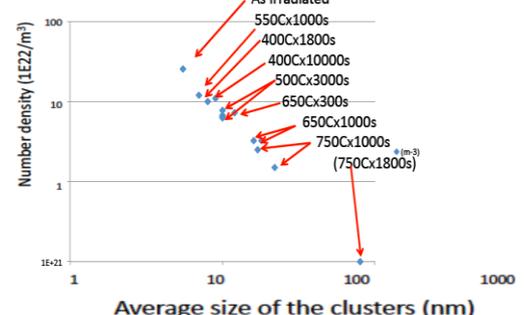


図 2 焼鈍後クラスターの大きさと数密度