

[22054]

軽水炉炉内機器の事故時温度履歴推定に向けた 照射後微細組織－温度履歴データベース構築 2

Development of Microstructure - Thermal History Database for Estimation of Temperature History to Reactor Components in Accident

古谷一幸^{A)}, 安堂正己^{B)}, 若井栄一^{C)}, 實川資朗^{A)}
Kazuyuki Furuya^{A)}, Masami Ando^{B)}, Eiichi Wakai^{C)}, Shiro Jitsukawa^{A)}

^{A)} NIT-Hachinohe

^{B)} QST-Rokkasho

^{C)} JAEA-Tokai

Abstract

The irradiation damage of innovative materials of iron-based high entropy alloy (HEA) Fe-Mn-Cr-V-Al-C has been investigated. Dual ion beams of Fe³⁺ and He⁺ ion irradiation for the HEA was performed to 0.1 and 1 dpa at 300°C under 100 appm-He / dpa. Irradiation hardening behavior was measured by nanoindentation. The formation of dislocation loops was observed in the HEA irradiated at 300°C to 1 dpa by a transmission electron microscope, and the average diameter and number density were about 21 nm and 4x10²¹ m⁻³, but the irradiated HEA showed no irradiation hardening and slight softening about 0.4 GPa. It can be speculated that this would be due to irradiation-induced nanoscale concentration changes and strain relaxation in the HEA. High-resolution transmission electron microscopy revealed that no crystal lattice distortion was observed in the HEA.

Keyword: HEA, Low activation materials, Radiation hardening, Nano-indentation, Microstructure

1. はじめに

原子炉内機器の材料は、中性子等による照射損傷のため微細組織に変化を生じる。これが熱履歴を受けると特徴的な微細組織を形成するので、逆に、微細組織から熱履歴などを推定し得る。このような手法の実用化は、福島第一原発の事故解析などに有用であり、さらに炉内に残存する機器の強度推定等を行うことで、廃炉作業の安全な遂行へも重要性を持つ。そこで、原子炉内機器の事故時温度履歴の推定に向けた、照射後微細組織－温度履歴データベース開発の一環として、炉内材料の微細組織に対する照射効果を調べている。

今回、前回の照射において照射量不足が懸念された炭化ホウ素に対し、追加のヘリウムイオン照射を行った。また、開発中の低放射化高エントロピー合金 (HEA) に対し、鉄イオンとヘリウムイオンの同時照射が微細組織へもたらす照射効果についての予備的検討を行った。

2. 実験手法

表 1 の組成の鉄基高エントロピー合金を高周波溶解法で溶解し、真空中で鋳造した。均質化処理後、大気中 1150°C で 2 時間熱処理し、水冷した。さらに 800°C で 10 分間熱処理し、再び水中で急冷した。

照射は、QST 高崎量子応用技術研究所の TIARA 施設においてデュアルイオンビームで行った。試料は、10.5 MeV の Fe³⁺イオンと 1.05 MeV の He⁺イ

オンの同時デュアルイオンビームで、深さ 1 μm で 0.1 dpa と 1.0 dpa (原子あたりの変位) まで照射された。Fe³⁺イオンビームはタンデム加速器で、He⁺イオンビームはシングルエンド加速器で発生させた。Fe³⁺イオンの損傷ピークは約 1.75 μm であり、ヘリウム原子による照射は約 0.85~1.30 μm の深さ範囲で注入するように制御した^[1,2]。これは、SRIM2000 コード^[3]を用いた計算に基づいて、アルミニウム箔のエネルギーを用いることで達成した。核破碎中性子源 (SNS) ターゲット容器の構造材料のシミュレーション照射におけるヘリウム濃度の dpa に対する比 (appm / dpa) は約 100 appm He / dpa であるため、本実験でも約 100 appm He / dpa の条件で照射を行った。照射硬化およびスウェリング挙動に及ぼすヘリウム原子の影響を調べるため、照射温度は 300°C と 500°C、損傷速度は約 7.25 × 10⁻⁴ dpa / s で行った。

照射後、バーコビッチ型圧子を装荷したナノインデントャーによるナノ硬さ測定を行った。本測定では圧痕深さを 395 nm で制御し、照射試料の照射領域と非照射領域でそれぞれ約 100 点ずつ測定した。また、試料の透過電子顕微鏡観察を行った。観察にあたり、マイクロピックアップシステムを備え、30 kV から 5 kV で作動する Ga イオン銃を装荷した集束

Table 1: Chemical composition of HEA (at %)

Fe	Mn	Cr	V	Al	C	Cu	Mg	Na	Si
Bal.	20.7	15.4	10.2	10.0	0.6	0.001	0.001	0.001	0.004

[22054]

イオンビーム (FIB) 加工装置を用いて試料を薄片化した。続いて、FIB 加工時に試料表面に導入された損傷を、0.5 kV の Ar⁺イオンビームで除去した。

3. 実験結果及び考察

図 1 に示すように、300°C 照射では、0.1 及び 1 dpa では照射硬化は生じていない。一方、500°C 照射では 1 dpa で照射硬化がわずかに生じているようである。

この照射実験では、損傷ピークで約 3 dpa に相当する照射を行った。300°C 照射では 0.1 dpa でわずかに軟化する傾向が見られた。この傾向は 1 dpa でも同様であった。一方、500°C の照射では、0.1 dpa でわずかに軟化し、1 dpa でわずかに硬化した。いずれの温度でも、軟化は照射の初期段階で起こるようである。通常の鉄基材料では、300°C で 1 dpa レベルの照射損傷を受けると、著しい照射硬化挙動が観察されるのが普通であるが、この鉄基高エントロピー合金の強度変化は全く異なることがわかった。

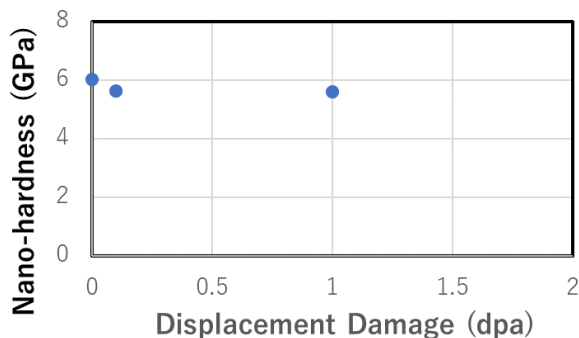


Fig. 1 Nano-hardness changes of HEA irradiated up to 1 dpa at the depth of 1000 nm from the irradiation surface at 300°C under 100 appm He / dpa.

図 2 (a)–2 (c) は、300°C で 1 dpa まで照射した場合に形成された、 $b = (1/2) \langle 111 \rangle$ 型のバーガースベクトルを有する転位ループの明視野像、弱ビーム暗視野像、回折パターンを示す。写真は、照射面から 1000 nm の深さで、011 極付近から $g = 211$ の反射を用いて撮影した。この方向に直交する方向に転位ループは見られず、 $b = \langle 100 \rangle$ 型のバーガースベクトルを持つ転位ループは形成されていないことがわかる。転位ループの平均サイズは約 21.2 nm、数密度は $4.0 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ であった。図 2 (a) に示すように、ヘリウムバブルの形成は観察されなかった。

図 3 は、高分解能電子顕微鏡により撮影した、100 極での結晶構造像である。 $1/2 \langle 111 \rangle$ 型の格子間型転位ループがあり、その周囲と内側に 200 面の格子面が連続して観察できる。結晶格子における転位ループのない母相の配列では、200 面で途切れている部分が多数認められる。このような画像が確認されるのは、ナノ～数十ナノオーダーの領域における局所的な格子の乱れによるものと考えられる。

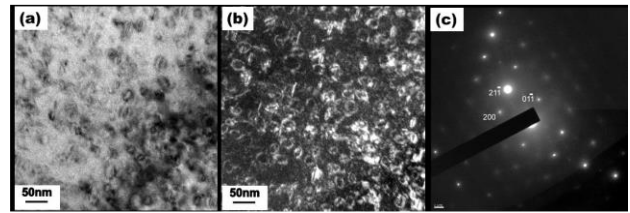


Fig. 2 Dislocation loops with burgers vector of $(1/2) \langle 111 \rangle$ type formed in the HEA irradiated at 300°C up to 1 dpa under 100 appm He / dpa by Fe³⁺ and He⁺ ions. The pictures of (a) bright - field image, (b) weak beam dark - field image, and (c) diffraction pattern were taken from near 011 pole using $g = 211$.

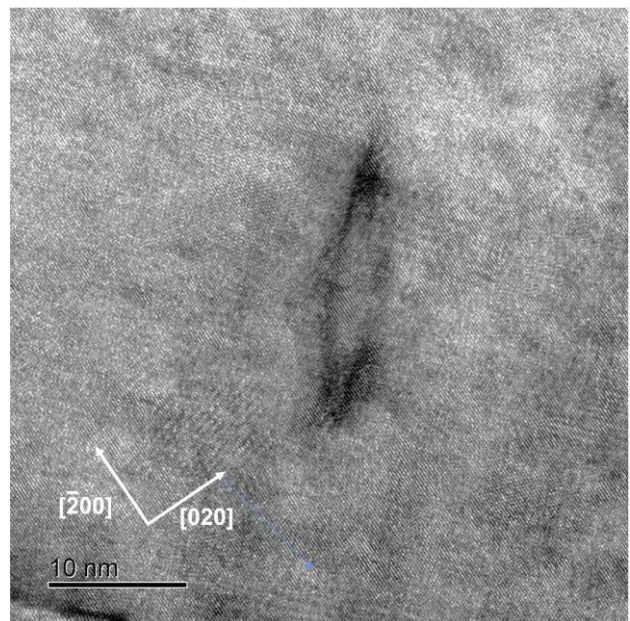


Fig. 3 High-resolution electron microscope image around the dislocation loop with a size about 18 nm formed by irradiation which are taken from the 001 pole.

4. まとめ

鉄基高エントロピー合金 (Fe-Mn-Cr-V-Al-C) の微細組織に対する照射効果の予備的検討を行った。本検討で得られた主な結果を以下に纏める。

- (1) 300°C 照射では照射硬化は起こらず、500°C の 1 dpa 照射では僅かに硬さが増加した。
- (2) 300°C 照射では転位ループが形成された。

参考文献

- [1] E. Wakai, T. Sawai, K. Furuya, A. Naito, T. Aruga, K. Kikuchi, S. Yamashita, S. Ohnuki, S. Yamamoto, H. Naramoto, S. Jistukawa, Effect of triple ion beams in ferritic/martensitic steel on swelling behavior, *J. Nucl. Mater.* 307(2002)278-282.
- [2] E. Wakai, K. Kikuchi, S. Yamamoto, T. Aruga, M. Ando, H. Tanigawa, T. Taguchi, T. Sawai, K. Oka, S. Ohnuki, Swelling behavior of F82H steel irradiated by triple/dual ion beams, *J. Nucl. Mater.* 318(2003) 267-273.
- [3] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solid*, Pergamon Press, New York, 1985.