

実験的アプローチからの 計算科学への貢献

– オーステナイト鋼の照射劣化を対象として –

沖田泰良¹, 板倉充洋², 宮代聡³, 菊池大朗³,
佐野貴士³, 磯部仁博⁴, 匂坂充行⁴, 江藤淳二⁴

1. 東京大学 人工物工学研究センター
2. 日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター
3. 東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻
4. 原子燃料工業株式会社 エンジニアリングサービス部

本発表の主な内容

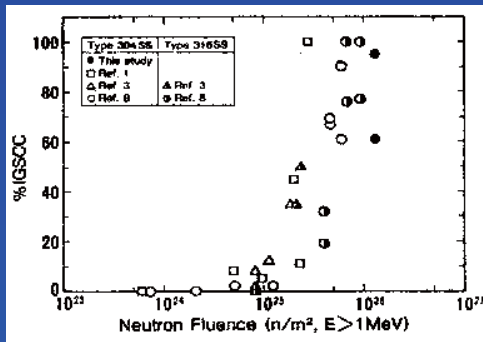
1. 照射下マイクロ組織発達と機械的特性の
関係を記述するモデル構築
2. 応力負荷・照射環境下での材料変形挙
動に関するモデル化
3. 照射下マイクロ組織変化検出のための非
破壊検査技術開発

照射下ミクロ組織発達と機械的特性の 関係を記述するモデル構築 (1)

照射誘起応力腐食割れ

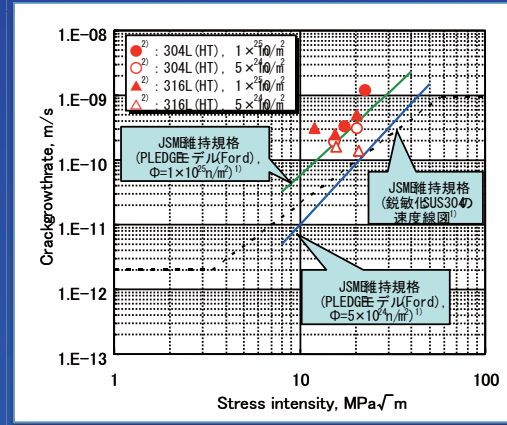
IASCC: Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking

BWR



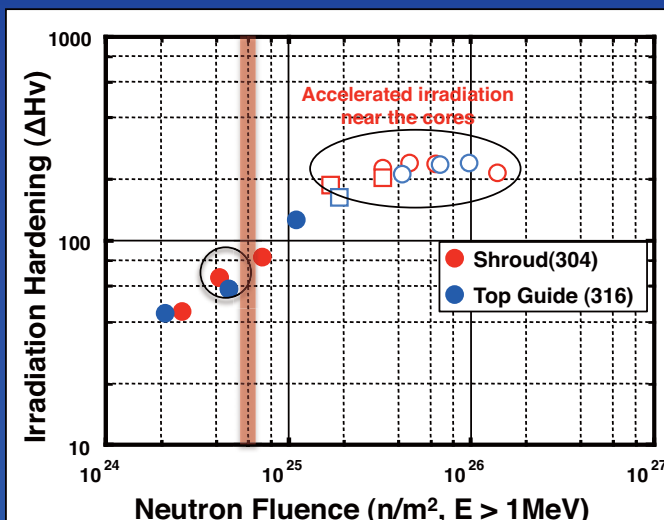
しきい値を有し、長期間の供用で顕在化する可能性が高まる現象である。

M. Kodama et al., 1993

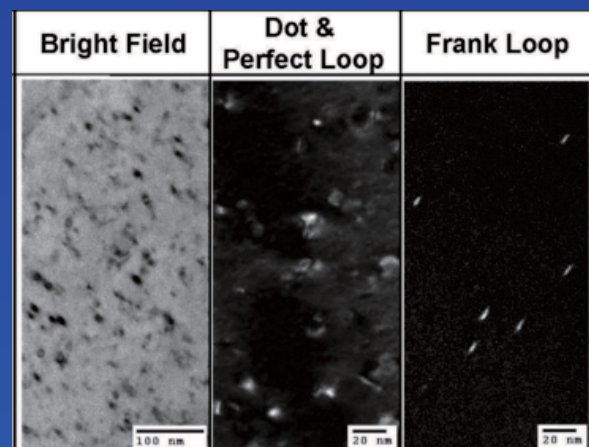


- ・ 実機材データと試験炉データでは、き裂進展速度に大きな相違がある。
- ・ ミクロメカニズムに基づき、IASCCを解明し予測するモデル構築が求められている。

照射下ミクロ組織発達と機械的特性の 関係を記述するモデル構築 (2)



304 SS irradiated to 4.5×10^{24} n/m²



IASCCしきい線量付近まで照射された実機廃材TEM観察により、転位ループが支配的な照射誘起ミクロ組織であり、照射硬化の主因であると考えられる。

照射下ミクロ組織発達と機械的特性の関係を記述するモデル構築 (3)

Orowan モデル

ミクロ組織と硬化を結びつける従来型モデル

$$\Delta\sigma_y = \alpha \mu M b \sqrt{Nd}$$

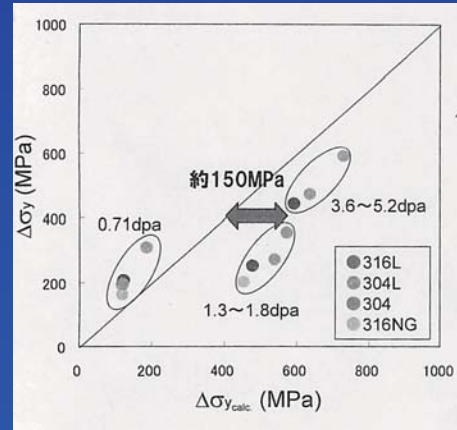
ミクロ組織の転位運動に対する抵抗を表す係数

実験データからのフィッティングで一定値を決定してきた。

Orowanモデルの適用条件

- ・ 転位の障害物としてのミクロ組織は、相互作用によっても形状や位置等を変えない。
- ・ 転位は交差すべりをせず、基本的に平面すべりが支配的である。

$\Delta\sigma_y$ に対する実測値とOrowanモデル値の比較

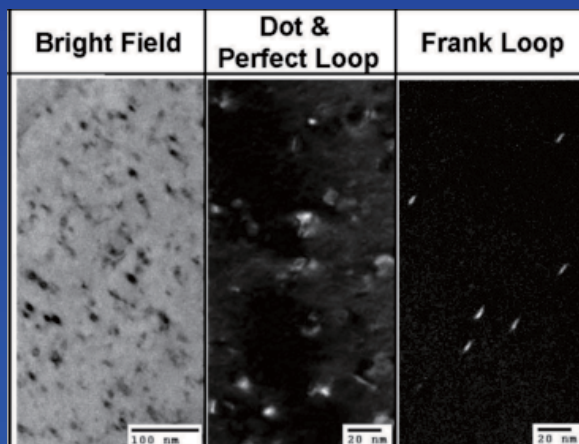


$\Delta\sigma_y$ 実測値とOrowanモデルによる値には、150MPa程度の隔りがある。

従来型Orowanモデルを適用することが困難である。

照射下ミクロ組織発達と機械的特性の関係を記述するモデル構築 (4)

304 SS irradiated to $4.5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$



- ・ 詳細なTEM観察により、転位ループは格子間原子型 (I-loop) のみではなく、空孔型 (V-loop) も存在することが明らかとなった。

弾性論に基づくひずみ場相互作用のみを考慮すると、I-loopとV-loopは転位との相互作用に関して対称的である。



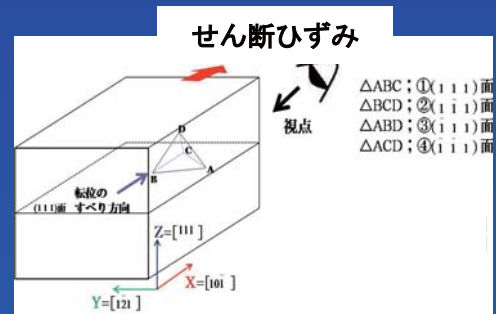
硬化予測のためのミクロ・マクロ相関モデルに新たに取り入れるべき因子をナノメカニズムに基づいて明らかにする。

分子動力学法(MD)を用いた計算手法

原子間ポテンシャル	CuのEAMポテンシャル
Frank loopのBurgers vector	$b=a_0/3\langle 111 \rangle$
転位の種類	$b=a_0[10\bar{1}]/2$ の刃状転位
計算温度	100 [K]
せん断ひずみ速度	2.0×10^7 [s ⁻¹]
計算セルサイズ	X 61.3[nm], Y 39.8[nm], Z 37.6[nm]
境界条件	X, Y軸方向は周期境界、Z軸方向は自由境界

オーステナイト鋼と同様に
低SFEの面心立方金属

計算モデルの模式図



考慮した動的挙動に関する因子

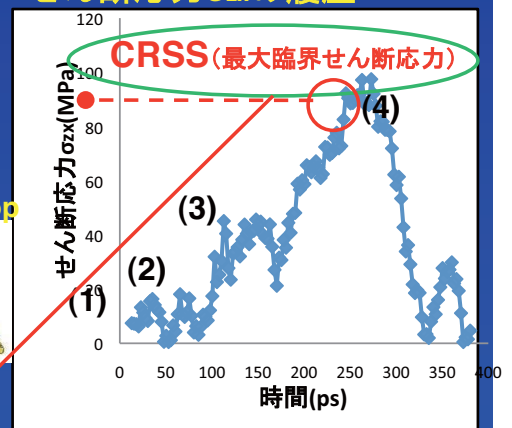
- 1) ループの性状 : I-loop / V-loop
- 2) ループ半径 : 1.0 ~ 4.0nm
- 3) ループ面の方位 (habit plane) : ① (111)面, ② (1-11)面, ③ (-111)面

転位ループと転位の相互作用による照射硬化

相互作用における
特徴的な挙動



せん断応力 σ_{zx} の履歴

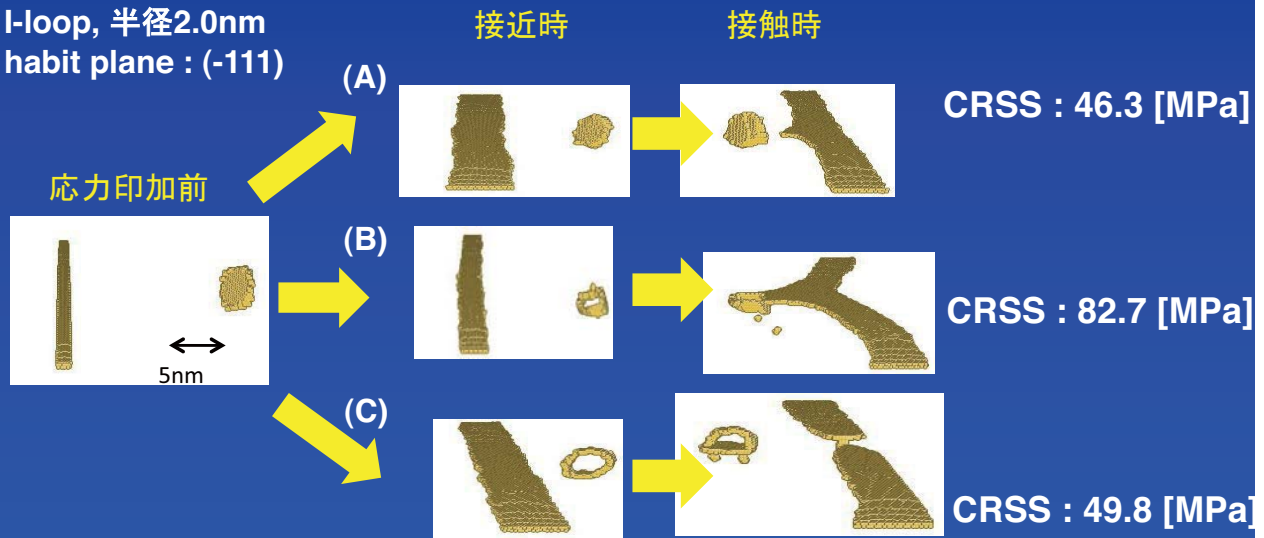


CRSSが降伏応力の増分 $\Delta\sigma_y$ に対応する
(Orowanモデルでは転位運動の障害に関する係数 α に対応)

動的挙動・CRSSの解析から照射硬化予測モデル構築を行う。

熱統計力学的等価 条件下における動的挙動の相違

I-loop, 半径2.0nm
habit plane : (-111)

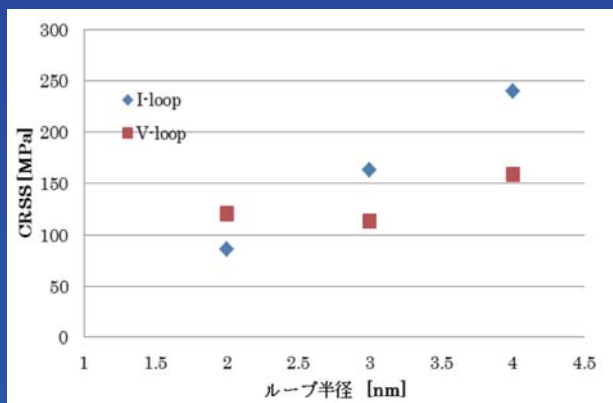


- 熱統計力学的に等価な条件下において、初期条件のわずかな相違のため相互作用形態・硬化に著しい相違が生じることが明らかとなった。
- 決定論的手法であるMD計算を用いても、統計的取り扱いにより物性値変化などを求めていく必要がある。

転位ループの性状による硬化の相違

CRSSのループ半径依存性

habit plane: (-111)面のI-loop・V-loopと刃状転位との相互作用の場合



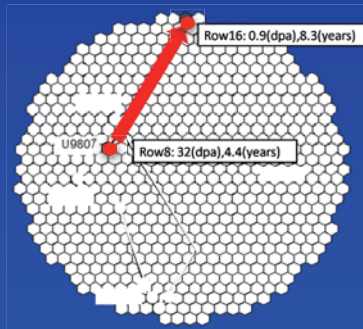
- 転位通過時のCRSSは、I-loopとV-loopで異なることが明らかになった。
- I-loopとV-loopでは、CRSSのループ半径に対する依存性が異なることも明らかになった。

I-loopとV-loopは、弾性論では符号が異なるのみで等価な欠陥として扱われるが、区別して扱う必要性が示された。

高速増殖炉炉内材料における照射劣化 (1)

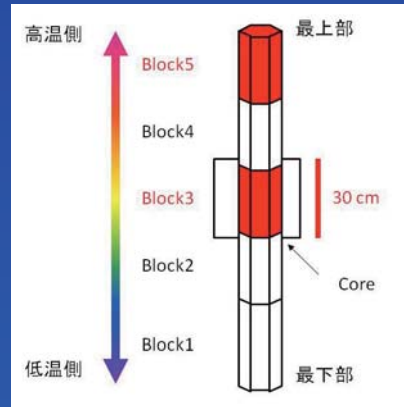
MEXT プロジェクト (FY21~FY23)

「EBR-II廃材を用いた高速炉構造材健全性評価に関する研究開発」

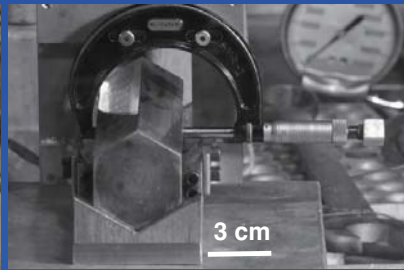


炉心配置図

- 米国高速実験炉EBR-IIの反射体を構成していたブロック体
- Block 3, 及びBlock 5をホットセル試験対象とする



高さ方向配置図

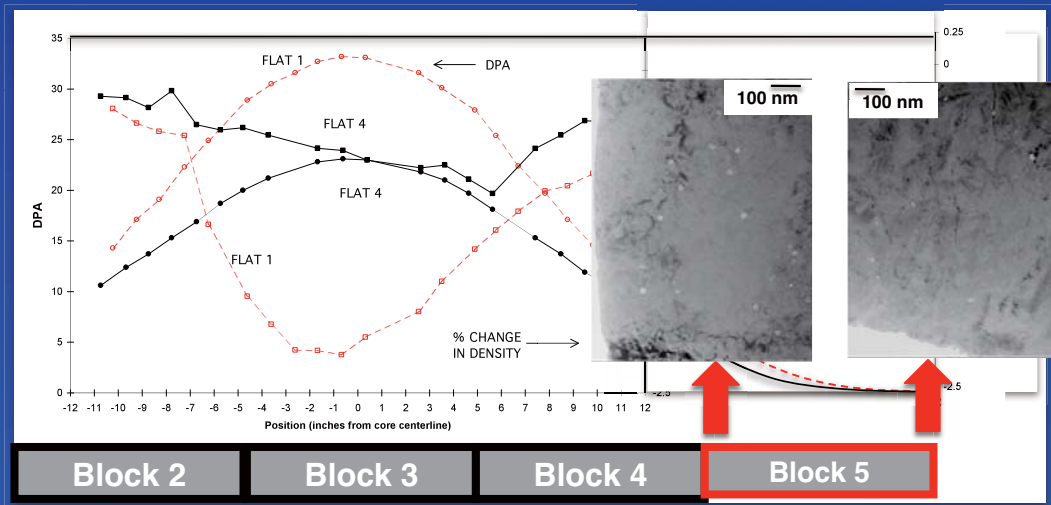


Block 3試験材の外観

高速増殖炉炉内材料における照射劣化 (2)

MEXT プロジェクト (FY21~FY23)

「EBR-II廃材を用いた高速炉構造材健全性評価に関する研究開発」



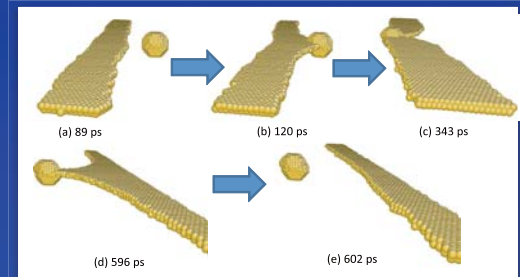
- 極めて積算照射量が低い領域においても、ポイドが観察された。
- 低照射速度で長期間照射を受けたことによるポイド形成促進が要因と考えられる。

ボイドと転位の相互作用による照射硬化

刃状転位とボイドの相互作用

転位通過によってボイドの上下で僅かなずれが確認されたが、これ以外の顕著な変化は確認されなかった。

Orowanモデル適用可能



刃状転位と半径1.0nmのボイドの相互作用

らせん転位とボイドの相互作用

らせん転位が交差すべりによってすべり面を変える様子が確認された。

Orowanモデル適用には、慎重な検討の必要がある。

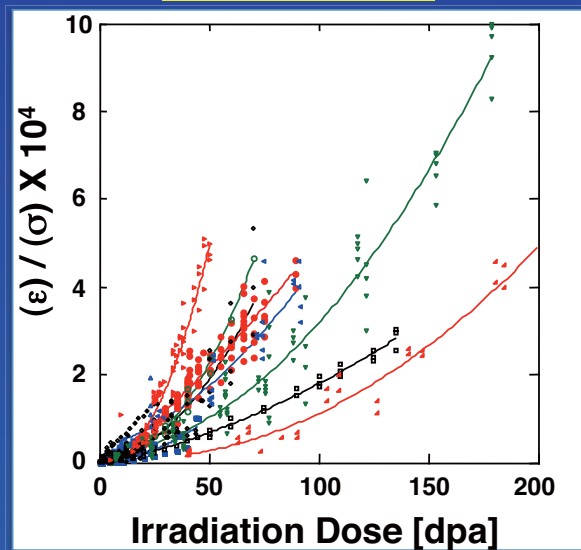


らせん転位と半径1.0nmのボイドの相互作用

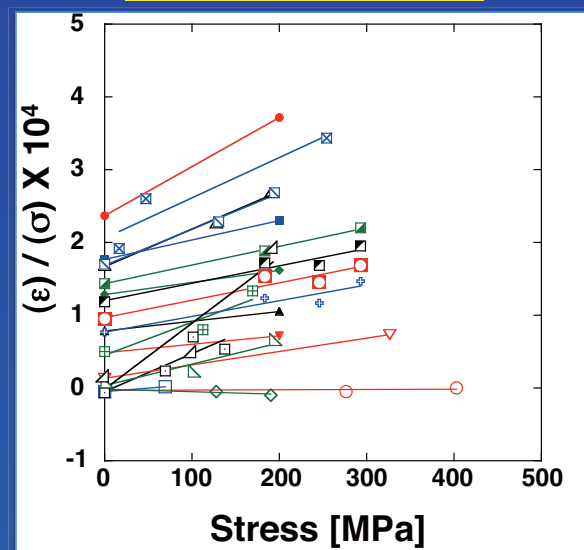
ボイド形成による体積増加のみならず、
延性低下も課題となる可能性がある。

応力負荷・照射環境下での寸法不安定性 に関するデータベース構築

照射下クリープ

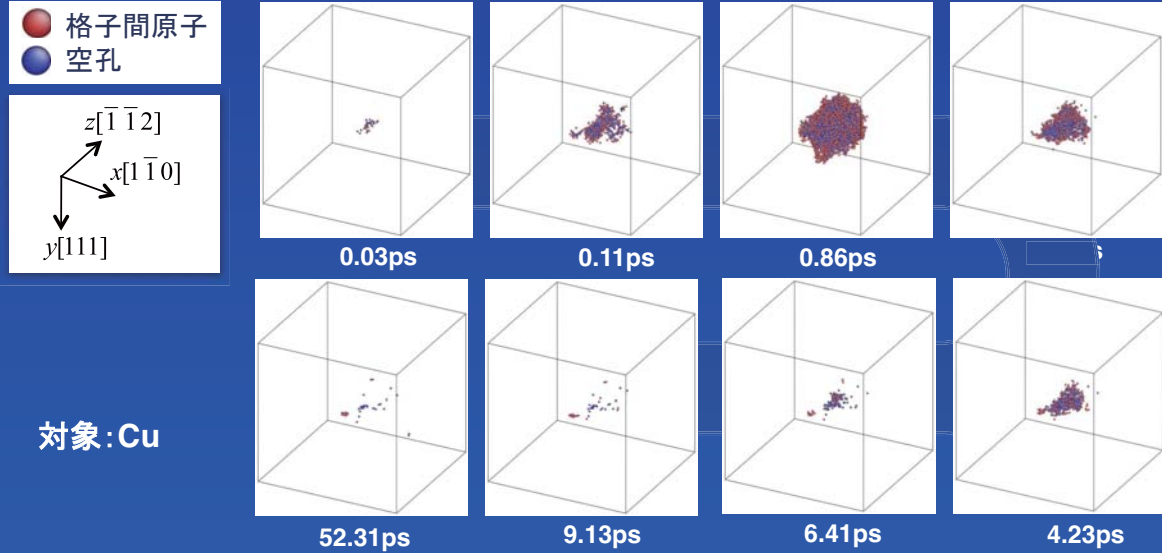


応力促進スエリング

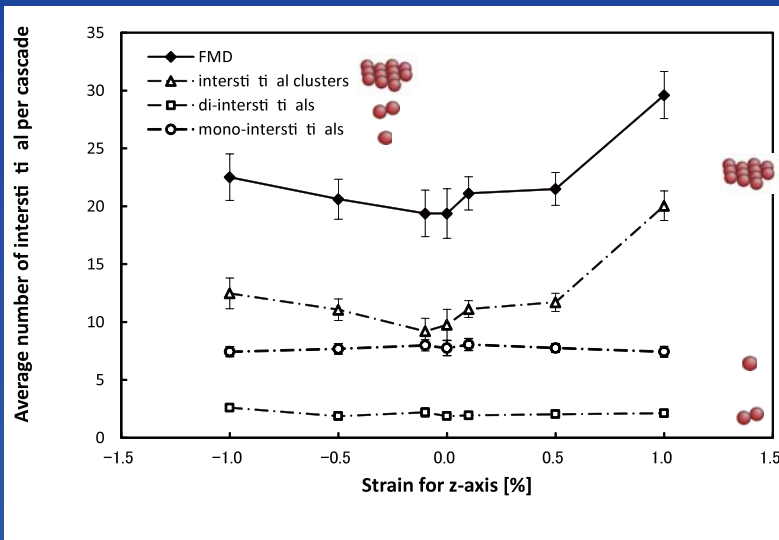


照射欠陥形成過程に及ぼす応力の影響

外部ひずみを印加した場合の欠陥形成過程の再現結果の一例



照射欠陥形成過程におけるひずみ付与の影響



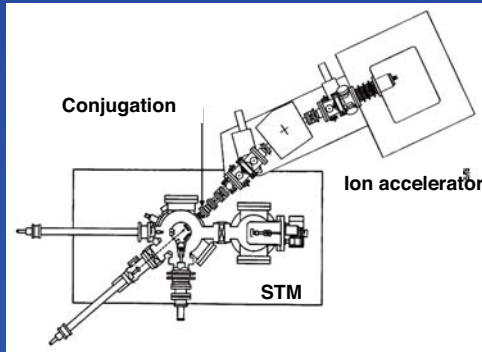
欠陥生成効率の増加は、
欠陥集合体に含まれる
点欠陥数増加によるも
のである。

点欠陥・2量体につい
ては欠陥増加は確認され
なかった。

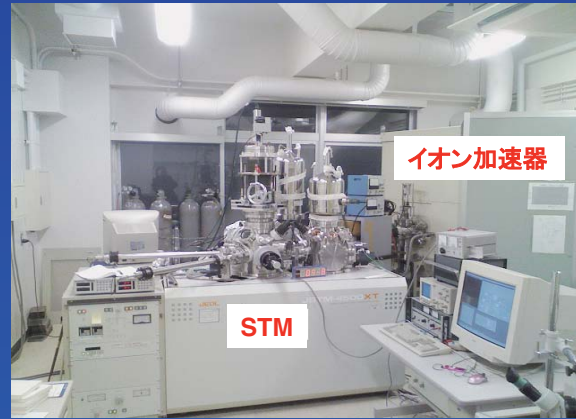
- 欠陥生成率は単軸応力印加によって増加した。
- 引張応力・圧縮応力双方で増加傾向が確認された。

イオン加速器連結型STMを用いた高空間分解能 表面観察によるMD計算妥当性評価 (1)

STM : Scanning Tunnel Microscope, 走査型トンネル顕微鏡



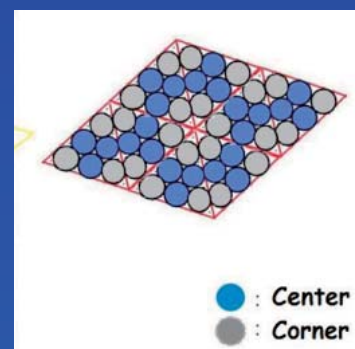
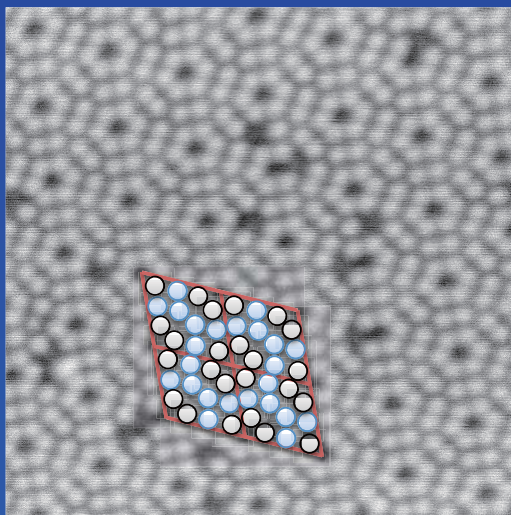
@ our laboratory



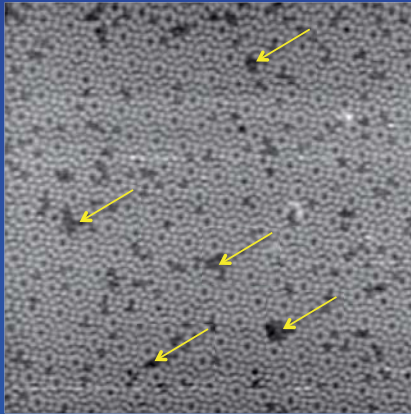
世界でも数台しかない極めて貴重な装置である！

イオン加速器連結型STMを用いた高空間分解能 表面観察によるMD計算妥当性評価 (2)

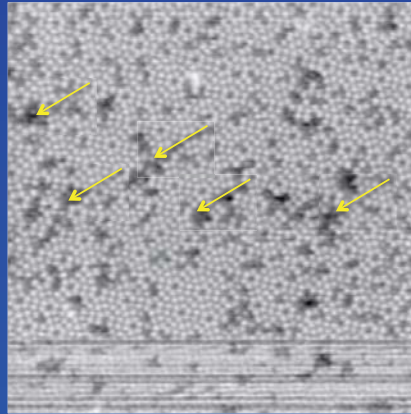
Si N型半導体, (111) 7 x 7 再構成表面



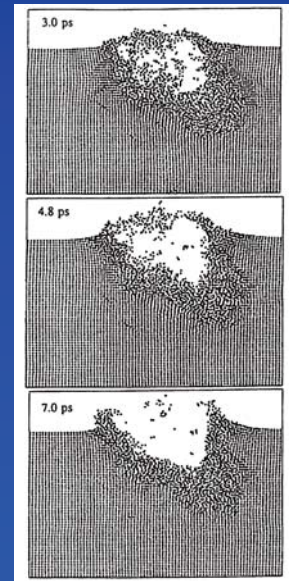
イオン加速器連結型STMを用いた高空間分解能 表面観察によるMD計算妥当性評価 (3)



30 keV Ar+



50keV Ar+ 10nm



表面のはじき出し損傷に
関するMD計算
20 keV Au+ -> Au

表面照射欠陥を原子レベルの空間分解能で
個々に分離し、定量化することに成功した。

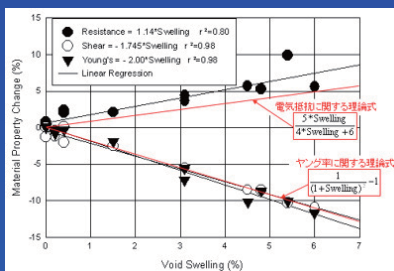
超音波信号と材料特性変化の関係 (1)

マクロ特性

- 密度、弾性係数
- スエリング



- 入射した超音波の音速変化、
底面波の減衰が起こる。



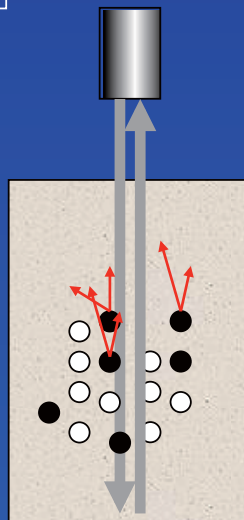
スエリングと物性値の関係
(理論式と実験結果の比較評価)

マイクロ組織

- 結晶粒界、ポイド、析出物
- 格子欠陥、磁壁



- 相互作用により、超音波の吸収、
散乱が起こる。
- 後方散乱波の変化、底面波の
減衰等として観測される。



$$(\lambda + 2\mu)\text{grad div } \vec{S} - \mu \text{curl curl } \vec{S} = \rho \frac{\partial^2 \vec{S}}{\partial t^2}$$

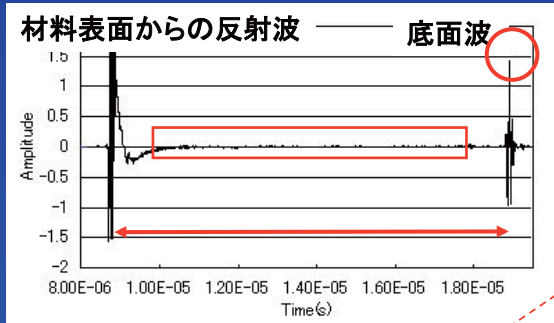
λ, μ : Laméの定数

ρ : 密度、 \vec{s} : 変位ベクトル

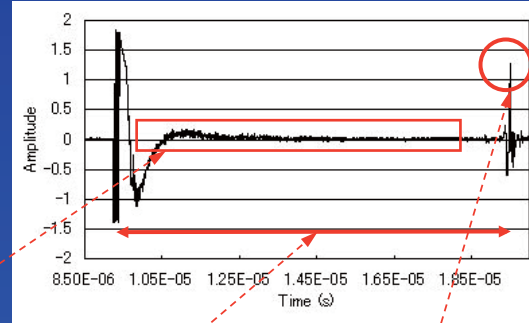
散乱に関する波動方程式

超音波信号と材料特性変化の関係 (2)

散乱体 少



散乱体 多



後方散乱波の変化
(波高, 周波数分布)

深さ方向のマイクロ組織分布

音速の変化

底面波の変化
(波高, 周波数分布)

深さ方向の材料特性変化平均値

モデル構築のための理論的検討 (1)

超音波の減衰

- 結晶粒 (界面において超音波が散乱) ... 一部は後方散乱波として観測

Rayleigh散乱領域(超音波波長 >> 結晶粒径)における多結晶体に入射した縦波の減衰係数(超音波が進む距離に応じた減衰の大きさ) α_L

$$\alpha_L = \frac{8\pi^3 V f^4 A^2}{375 \rho^2 v_L^8} \left[2 + 3 \left(\frac{v_L}{v_T} \right)^5 \right]$$

V : 結晶粒の体積 f : 超音波の周波数
 v_L : 縦波音速 v_T : 横波音速
 A : 音響異方性

縦波の減衰の度合いは、 $V f^4 \approx D^3 f^4$ (D は結晶粒の平均径)に比例して増大

- ポイド・析出物 (界面において超音波が散乱) ... 一部は後方散乱波として観測

Rayleigh散乱領域におけるポイドが分布した材料内における縦波の減衰係数 α_v

$$\alpha_v = \frac{1}{2} n C \cdot (\pi a^2) \cdot g \cdot \left(\frac{2\pi f}{v_L} a \right)^4$$

a : ポイド半径 n : ポイド数密度
 C, g, v_L, v_T : 散乱体により決まる定数

- 転位 (超音波が吸収される)

Granato-Lucke 転位弦モデルに基づく減衰係数 α

$$\alpha(\omega) = 8.68 \times 10^{-6} \frac{4\mu b^2}{\pi^4 C} \Lambda L^2 \omega_0 \left[\frac{(d/\omega_0) (\omega/\omega_0)^2}{[-(\omega/\omega_0)^2] + (\omega/\omega_0)^2 (d/\omega_0)^2} \right]$$

A : 転位密度 L : 平均転位長さ
 ω_0 : 転位の固有振動数

モデル構築のための理論的検討 (2)

超音波の後方散乱波

超音波入射点からの距離 x の後方散乱波の ω 成分を $P(x, \omega)$ とすれば、

$$P(x, \omega) = CP_0(\omega) \sqrt{\left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right)_{L, \pi}} \exp(-2\alpha x)$$

$P_0(\omega)$: ω 成分の入射超音波音圧 α : 減衰係数

・ 結晶粒による微分断面積

$$\left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right) = \frac{1}{4\pi} \frac{8\pi^3 V f^4 A^2}{375 \rho^2 v_L^8} \left[2 + 3\left(\frac{v_L}{v_T}\right)^5\right]$$

V : 結晶粒の体積 f : 超音波の周波数
 v_L : 縦波音速 v_T : 横波音速
 A : 平均音響異方性

・ ボイドによる微分断面積

$$\left(\frac{d\gamma}{d\Omega}\right) = \frac{k^4}{(4\pi)^2} \left[\frac{\Delta\rho \cos\theta}{\rho} - \frac{\Delta\lambda + 2\mu \cos^2\theta}{\lambda + 2\mu} \right]^2 |S_L|^2 + \frac{K^4}{(4\pi)^2} \frac{K}{k} \frac{\mu}{\lambda + 2\pi} \left[\frac{k\Delta\mu \sin 2\theta}{K\mu} - \frac{\Delta\rho \sin\theta}{\rho} \right]^2 |S_T|^2$$

ρ : 密度 f : 超音波の周波数
 k, K : 横波、縦波の波数 λ, μ : Laméの定数 S_L, S_T : ボイドの幾何的形狀因子

・ 炭化物による微分断面積

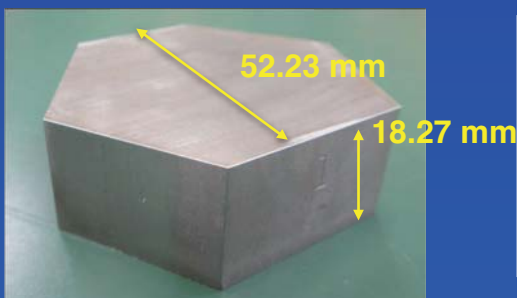
$$\gamma = \frac{4}{9} \cdot (\pi a^2) \left(\frac{uy^2(4-3/z^2) - 4 + 3/x^2}{4 - uy^2(4-3/z^2)} \right)^2 + \frac{40(2+3/x^5)(uy^2-1)}{(2uy^2(2+3/x^2) - r/x^2)} + \frac{1}{3}(u-1)^2 \left(1 + \frac{2}{x^3}\right) \cdot (ka)^2$$

$r = 4x^2 - 9$ $s = 1 + 1/x^3$ $t = 1 + x^2$ $u = \rho_2/\rho_1$ $x = v_{T1}/v_{L1}$ $y = v_{T2}/v_{T1}$ $z = v_{T2}/v_{L2}$ **1: 母相 2: 散乱体 L: 縦波 T: 横波**

モデル構築に必要なパラメータの決定

材料劣化診断シミュレーションモデルの構築に必要な材料パラメータの値を、組織観察及び未照射アーカイブ材より得られた超音波データを用いて決定した。

- ・ ヤング率 E
- ・ Lamé定数 μ, λ
- ・ 横波音速 V_T
- ・ 平均結晶体積 V
- ・ 平均音響異方性 A



未照射アーカイブ材

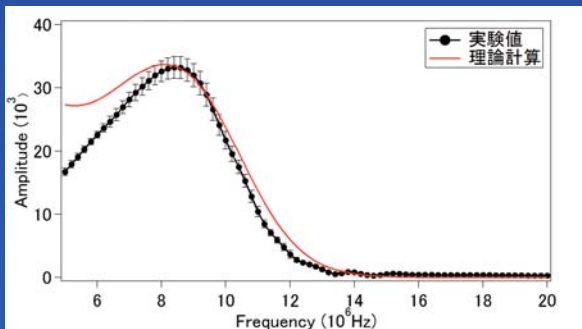
項目	値
寸法	幅: 52.23 mm, 厚み: 18.27 mm
密度	7930 kg/m ³
ポアソン比	0.285 (文献値)

材料劣化診断シミュレーションモデル

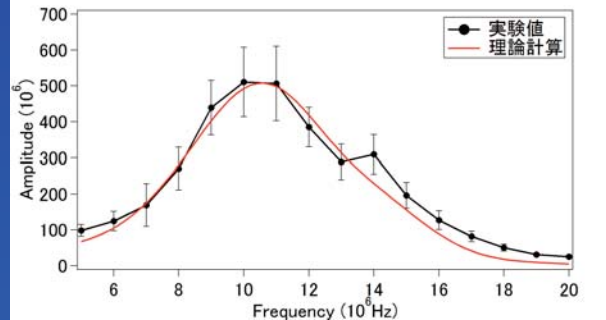
シミュレーションに必要な材料パラメータを決定することにより、照射ブロック材のマイクロ組織変化を超音波信号変化で検出する材料劣化診断シミュレーションの実施が可能となった。

これを用いて、照射下マイクロ組織複合分布の材料劣化診断シミュレーションを行った。

シミュレーション結果：未照射アーカイブ材



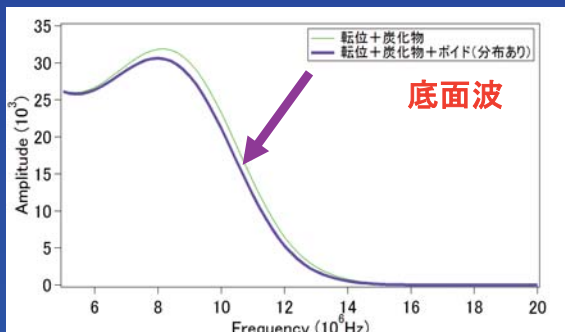
底面波の周波数分布



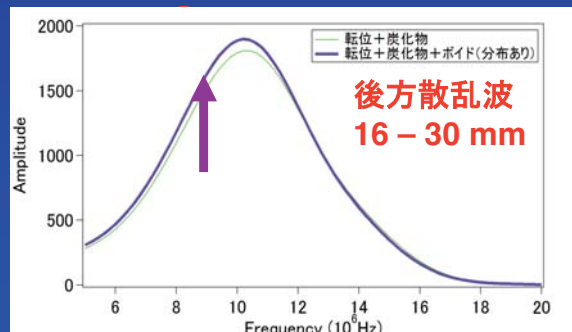
後方散乱波の周波数分布 (9 - 23 mm)

照射下マイクロ組織と超音波信号変化の対応

照射下マイクロ組織変化が複合的に分布する場合の検討の一つとして、以下のように支配的なマイクロ組織を仮定し、超音波信号の変化を模式的に表すことを試みた。



底面波



後方散乱波
16 - 30 mm

ポイド増量による底面波周波数分布の後方散乱波の増大が認められる

転位 ($1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$)

炭化物 (0.6%緻密化)

スエリング (1.3%)

実験的アプローチによるシミュレータの妥当性検証



高速実験炉EBR-II反射材廃材を用いた超音波試験

マイクロ組織: 転位, ボイド, 炭化物



単結晶オーステナイト鋼を用いた
引張試験 in-situ超音波測定

マイクロ組織: 転位