

原子炉構造材の強度劣化評価に資する照射欠
陥-転位相互作用の研究

福元 謙一

福井大学附属国際原子力国学研究所

原子炉構造材の強度劣化評価に資する照射欠陥・転位相互作用の研究

福元謙一

福井大学附属国際原子力国学研究所
〒914-0055 福井県敦賀市鉄輪 1-2-4
fukumoto@u-fukui.ac.jp

軽水炉の健全性評価向上や高速増殖炉の実用化に向けて、予防保全対策まで含めた炉内構造材の健全性評価予測技術が求められている。このため原子力構造材料の開発に伴い、材料の環境強度試験や照射試験が実施されており実験データの蓄積が行われてきた。一方、安全性実証の観点から安全マージンを見込んだ保守的な実験データの選択による経験則から規制が制定されているが、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。照射組織においては組織発達の中で各組織成分（転位、析出物や照射欠陥）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。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正な硬化因子の重みを加え、高精度の定量的な組織硬化量が評価され、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。

本研究では材料強化評価手法として「電子顕微鏡内 (TEM) 引張試験『その場』観察法」により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的評価を行っている。この手法は申請者グループで培われた手法であり、バナジウム合金や圧力容器鋼の照射脆化で多くの成果を得た。TEM 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、TEM 内その場観察結果から評価した値の間に極めてよい一致を得ることが出来た。この手法を用いてこれまでに各種 BCC 金属 (V, Mo, α -Fe) においてボイドに対する転位障害強度因子の大きさはボイド径サイズに対して依存せず一定である事が明らかになった。この結果は同一の結晶構造を持つ金属あるいは合金であれば、ボイドのサイズに依存せず同一の障害強度因子を示す事になり、ボイド形成による照射硬化量を予測する障害強度因子パラメータを合金種によらず決定できる事を意味する [1,2]。特に高速炉構造材や核融合炉材料などのフェライト鋼炉内構造材やダイバータ用タンゲステン合金における照射硬化・脆化を予測する上で重要な知見となる。

本研究で得られた実験データに基づき、ボイド・転位相互作用による照射硬化機構を明らかにするため、分子動力学的手法 (MD) を用いて BCC 結晶格子内に導入された空孔型欠陥集合体と転位要素片の動的相互作用の計算機模擬実験を行っている。結晶ポテンシャルには報告されている既存のポテンシャルを用い、MD 法計算コードは LAMMPS-MD シミュレーターを用いる。現在 Fe 中にボイド型欠陥を導入し、らせん転位あるいは刃状転位を結晶中に運動させてボイド・転位相互作用過程と変形機構について検証している。

本講演では現在まで得られた「TEM 内引張試験『その場』観察法」を用いてイオン照射した BCC 純金属中に形成されたボイドに対して転位運動に対する硬化因子測定手法の紹介と得られたボイド・転位相互作用について説明する。また純 Fe 中のボイドに対する転位挙動の MD 計算結果を併せて示し、実験結果に対する計算機実験結果の比較を通して硬化因子の定量評価について考察する。

また現在進行しているイオン照射した SUS304 鋼中の照射欠陥・転位相互作用研究について紹介し、今後の研究展開について示す。

[1] K. Tougou, K. Nogiwa, A. Shikata and K. Fukumoto, Materials Transactions, 54 (2013) 1095-1101

[2] K. Tougou, K. Nogiwa, K. Tachikawa, K. Fukumoto, J. Nucl. Mater., 442 (2013) 350-353

第28回CCSEワークショップ
原子力材料における計算科学研究と原子スケールモデリングによる新展開

原子力構造材の強度劣化評価に資する 照射欠陥－転位相互作用の研究

福元謙一

福井大学附属国際原子力工学研究所

1

研究の背景

原子力エネルギーの安全性向上に対する材料の課題

軽水炉の高経年化、高速炉・核融合炉の重照射による材料の健全性が問題

➡ 損傷組織発達に伴う機械的性質変化の相関則の
高精度化

原子炉材料の運用に伴う照射硬化が
高速炉・核融合炉の設計デザインを決める重要な因子

従来の研究の特徴

機械的性質

照射材の微細組織観察



微細組織観察による静的な
パラメータを取得

➡ 運動転位と照射欠陥の相互作用に関する知見は得られなかった。

2

研究の目的

本研究の特徴

機械的性質

照射材の挙動観察



TEM内引張『その場』観察法により動的なパラメータを取得

TEM内引張『その場』観察法

転位の挙動および照射欠陥との相互作用を微視的スケールで動的に観察



微視的欠陥(キャビティ, 析出物)の障害物因子の定量化を行い, 相関性パラメータである「**障害物強度 α** 」を高精度に求める

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

$\Delta\sigma$: 照射による強度増加
 b : 転位のバーガスベクトル
 M : テイラー因子 μ : 剛性率
 N : 欠陥数密度 d : 欠陥サイズ
 α : 障害物強度

精度のよい相関パラメータを得ることができていない

3

TEM内引張「その場」観察による研究報告例

変形挙動の直接観察により・・・

- ・運動転位と照射欠陥の相互作用(障害物強度 α)の定量的な評価。
- ・欠陥種の違いによる、動的相互作用メカニズムの解明。
- ・計算機シミュレーションにより報告されている相互作用の信頼性の確認。

▽運動転位の挙動に関する知見を直接観察により得る手法として研究例は多数。

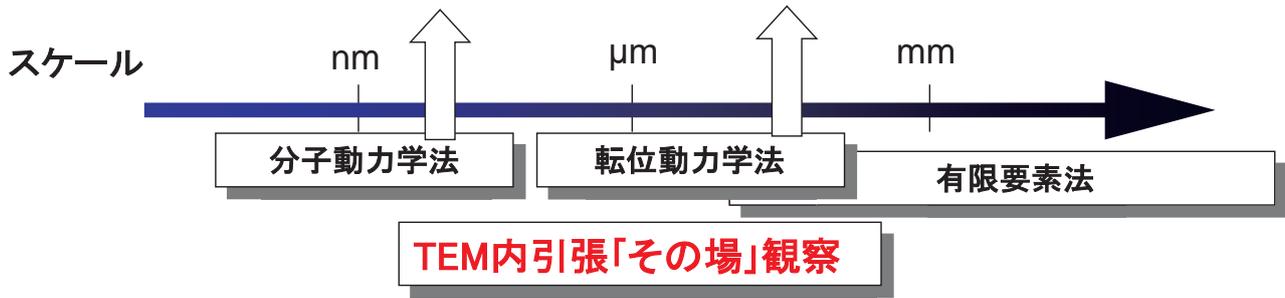
単結晶金属における変形機構の研究など Matsui and Saka et al (1974), Kubin (1979)

▽運動転位と障害物に関する研究例

- ・ODS鋼における酸化物粒子と運動転位との相互作用の研究: Haussler et al (2001) など
- ・Fe-Cu合金中のCu析出物と運動転位との相互作用の研究: Nogiwa et al (2002, 2007) など
- ・Cu中のフランクグループと運動転位との相互作用の研究: Robach et al (2003) など
- ・FCC金属中のSFTと運動転位との相互作用の研究: Matsukawa et al (2005) など
- ・Cu-Co合金中のプリズマティックグループと運動転位との相互作用の研究
: Matsukawa et al (2011) など

⇒キャビティ(バブルやボイド)を対象とした、「その場」観察による報告例は、皆無。

- ・分子動力学 Harry and Bacon (2002), Osetsky and Bacon (2003), Marian et al (2003), Hatano and Matsui (2005), Nomoto et al (2005), Terentyev (2012)
- ・転位動力学 Foreman and Makin (1966), Bacon (1976), Ghoniem(2000, 2002), Rong (2005), Monnet (2006)



- ・計算結果そのものが妥当であるのか？
 - ・計算において考えるべきパラメータは網羅されているのか？
- ※近年、交差すべりなどの、3次元的な知見が報告。

⇒実験的な知見による証明が必要不可欠

装置(TEM内引張「その場」観察法について)

TEM内引張「その場」観察法: TEM本体、引張ホルダー、動画撮影用のCCDカメラを用いる。



TEM本体



引張ホルダー

引張方式	モータ駆動による 1方向引張
引張量	2 mm以下
引張速度	0.05~0.5mm/sec, 連続可変
最大引張荷重	500g
試料装填数	1 枚



試料取り付け部

A部拡大図



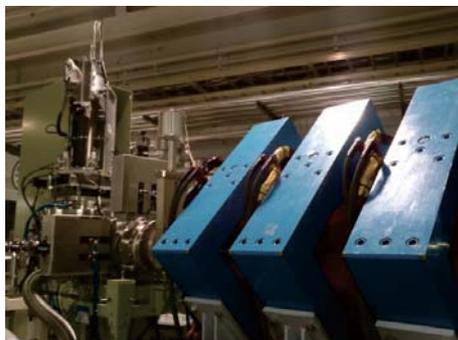
引張量表示部

B部拡大図

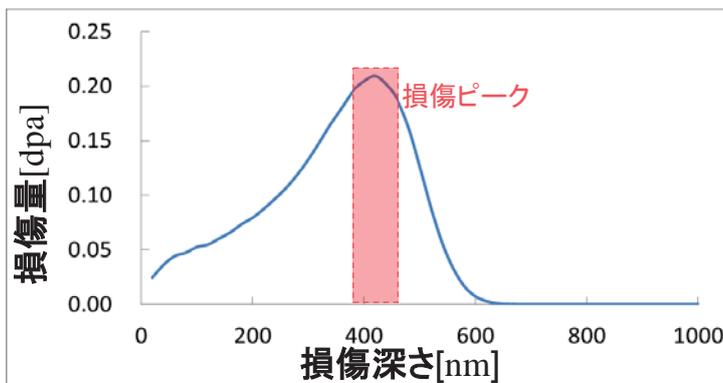
実験方法 イオン照射による照射欠陥の導入

“Experimental approach to determine the barrier strength factor for mobile dislocation against void and He bubble in ion-irradiated Mo”,
TMS 2015 144th ANNUAL MEETING & EXHIBITION MARCH 15-19, 2015 • Orlando, FL, USA

純MoへのHおよびHe注入によるボイド/バブルの障害強度因子の測定
- 若狭湾エネルギー研究センターイオン注入装置による照射欠陥導入



イオン注入装置
(若狭湾エネルギー研究センター)



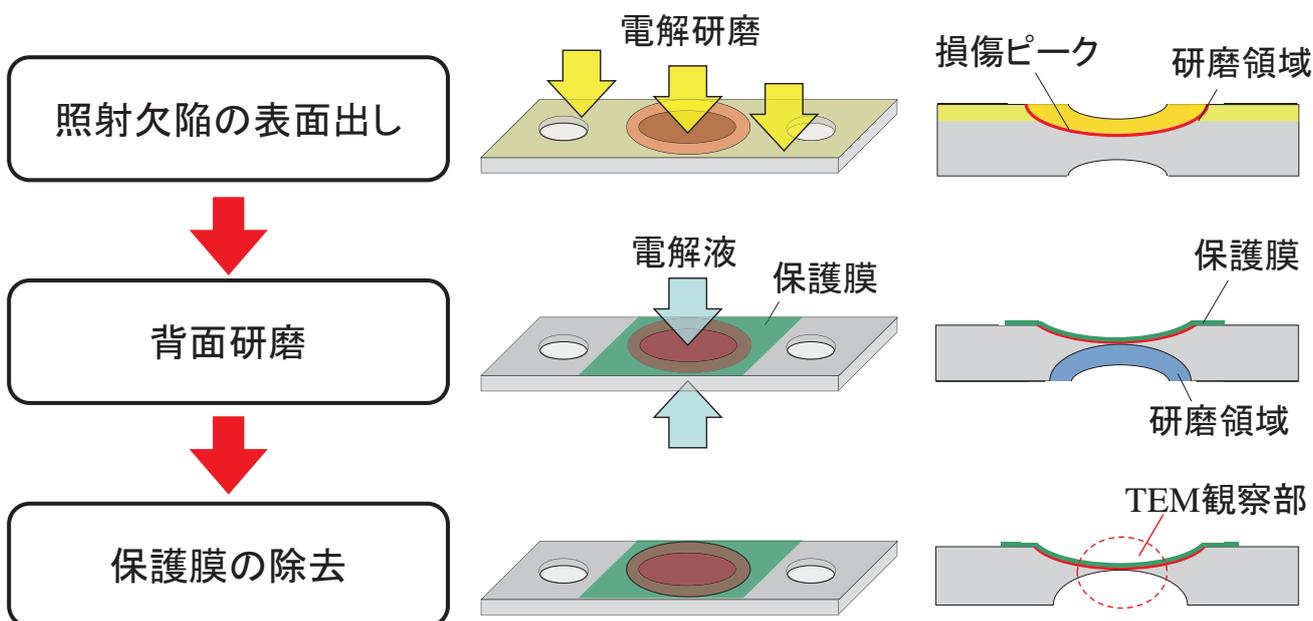
SRIM-2008を用いたHe⁺照射による損傷深さ分布

イオン種	加速電圧 [keV]	電流密度 [$\mu\text{m}/\text{cm}^2$]	照射温度 [$^{\circ}\text{C}$]	照射時間 [sec]	ピーク位置損傷量 [dpa]	損傷ピーク深さ [nm]
He,H	190	10	600~800	80~800	0.2	400

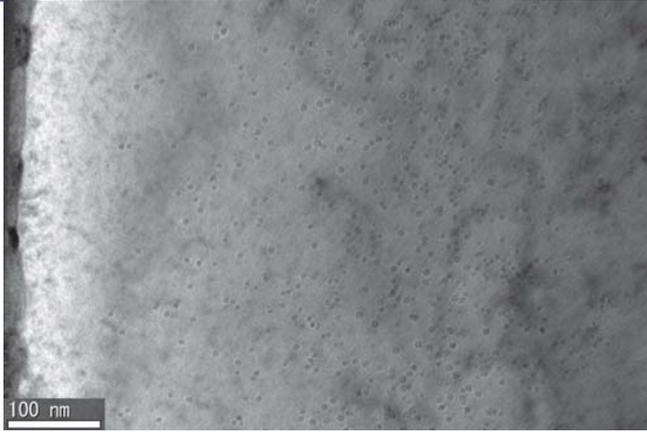
試料作製(薄膜化)

7

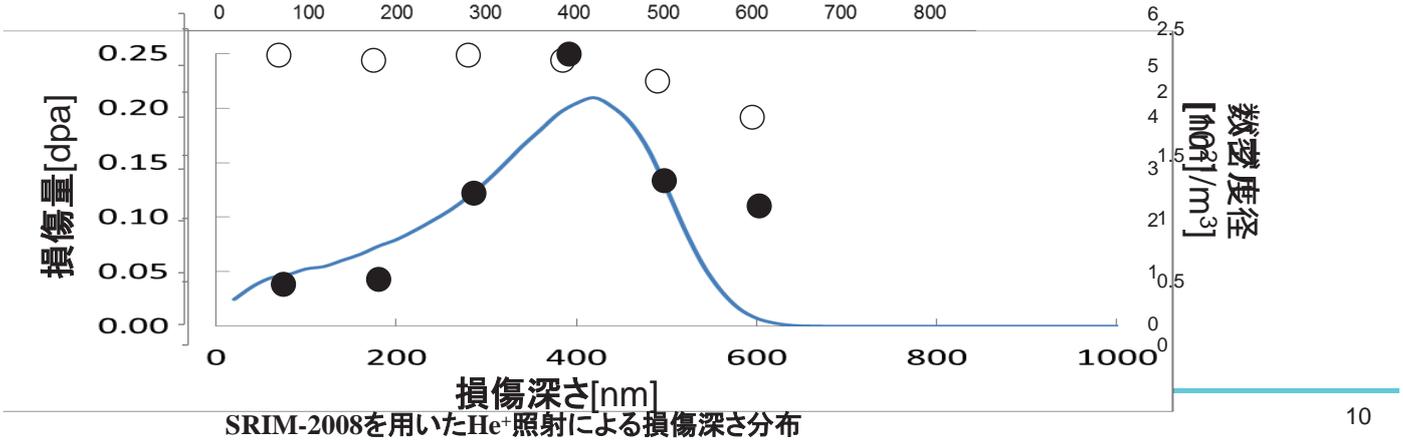
TEM観察するためには、観察部位の厚さを100nm程度にする必要がある。
テヌポール(Tenupol-3)による薄膜加工



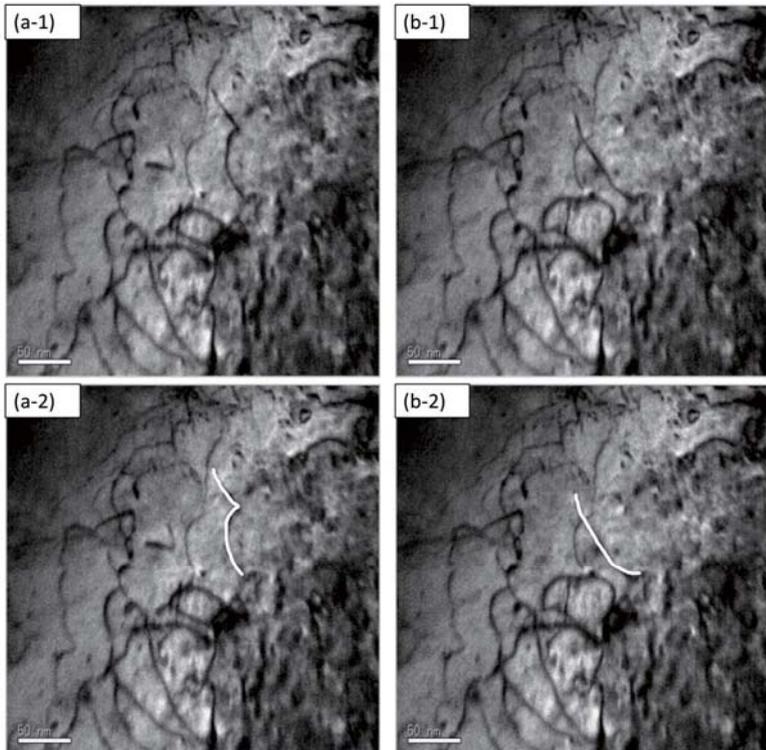
実験結果 FIB加工によるバブル分布測定



数密度は計算での損傷ピーク位置で最大。
ボイド径はほぼ均一。



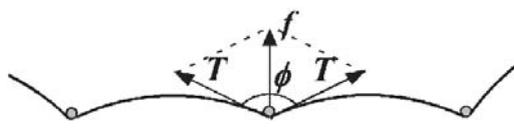
実験結果



g ↓

ヘリウム照射材(650° C, 0.2dpa)における運動転位の挙動
 (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したもの

実験結果 ～障害物強度 α の算出～



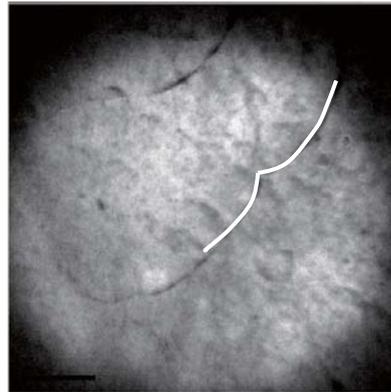
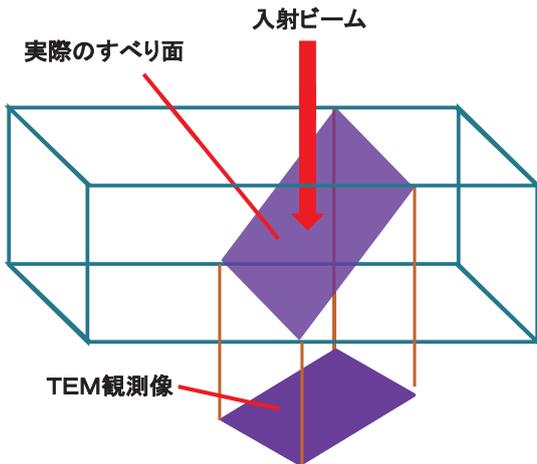
障害物と反応した転位の張り出し

$$f = 2T \cos\left(\frac{\phi}{2}\right)$$

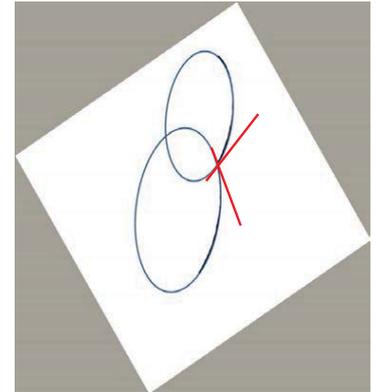
f : 障害物に作用する力
 T : 転位の線張力
 ϕ : 張り出し角

$$\alpha = \cos\left(\frac{\phi_c}{2}\right)$$

α : 障害物強度
 ϕ_c : 臨界張出角



(a) 転位の張り出し画像

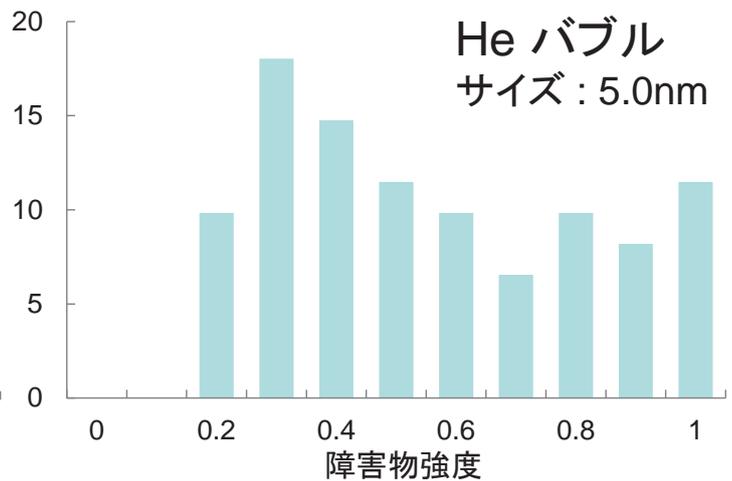
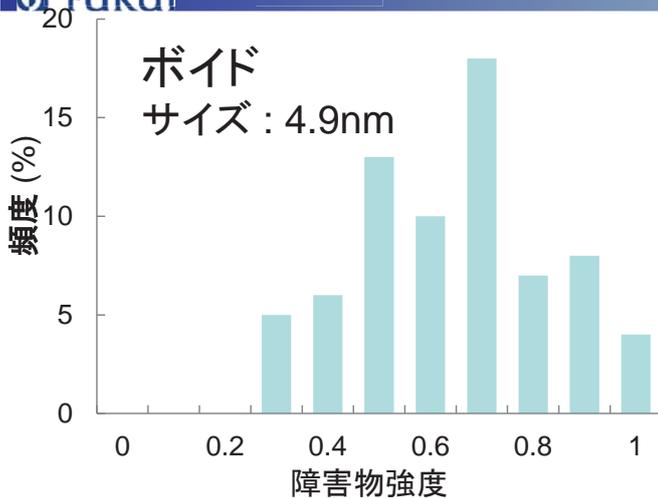


(b) 画像補正および張出角の測定

観測面と実際のすべり面の関係

張り出し角の測定

実験結果 ボイド/バブルの障害強度因子測定



欠陥	キャビティサイズ(nm)	数密度(/m ³)	障害物強度 α
ボイド	4.9	2×10^{21}	0.59 ± 0.03
He バブル	5.0	8×10^{21}	0.54 ± 0.02

同サイズのボイドとバブルの障害物強度因子はほぼ同じ

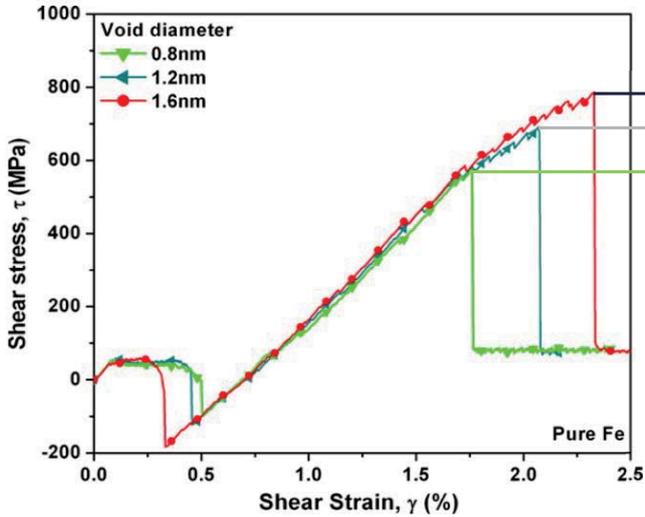
～バブルとボイドの障害物強度 α の比較～

計算機シミュレーションにおいて

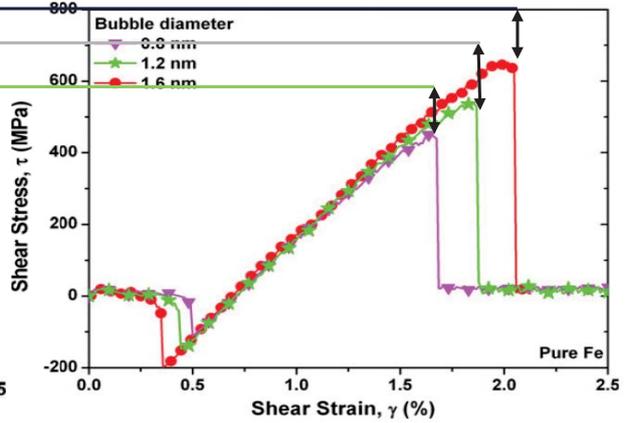
転位のボイドに対する臨界せん断応力はバブルのものより大きい



過去の文献だけでなく、計算機実験も同時に行って確認



ボイドの応力-歪み曲線

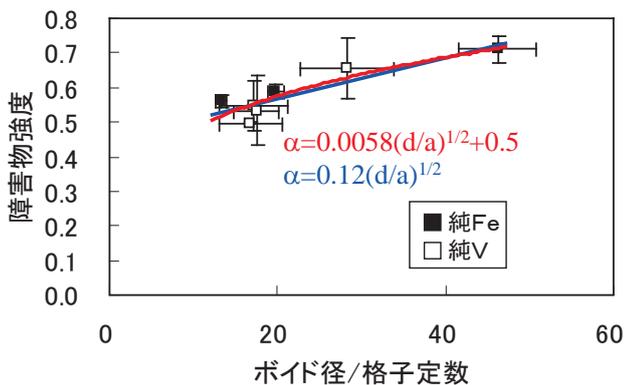
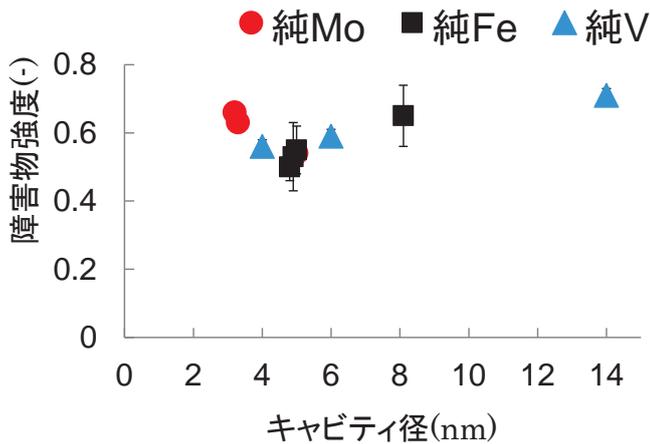


バブルの応力-歪み曲線

[4]. N.Naveen Kumar, P.V.Durgaprasad, B.K.Dutta, G.K. Dey, Computational Materials Science53 (2012) 258-267

照射硬化に対するボイドの障害物強度の位置づけ

照射硬化を評価する上でのボイドの障害物強度を定量的に評価



ボイドの導入による機械的性質変化 [3]

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

$\Delta\sigma$: 照射による降伏応力増加
 α : 障害物強度因子
 b : 転位のバーガースベクトル
 M : テイラー因子 μ : 剛性率
 N : 欠陥数密度 d : 欠陥サイズ

転位がボイドを通過するために必要な力 [8]

$$\Delta E = \frac{\mu b^2 d}{12}$$

ΔE : 自己エネルギーの変化量
 μ : 剛性率
 b : バーガースベクトル
 d : ボイド径

[3]. R.E. Stoller, S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater (2000)

[8]. 木村宏, "材料強度の考え方", (1998), アグネ技術

障害物強度: 微視的影響 \leftrightarrow 巨視的影響

$$\Delta\sigma \propto \alpha \cdot \Delta E$$

障害物強度 α は剛性率 μ に依存しない
 欠陥の導入状況が障害物強度に影響



ボイドの障害物強度は剛性率の影響を受けずボイドの径に依存

計算方法

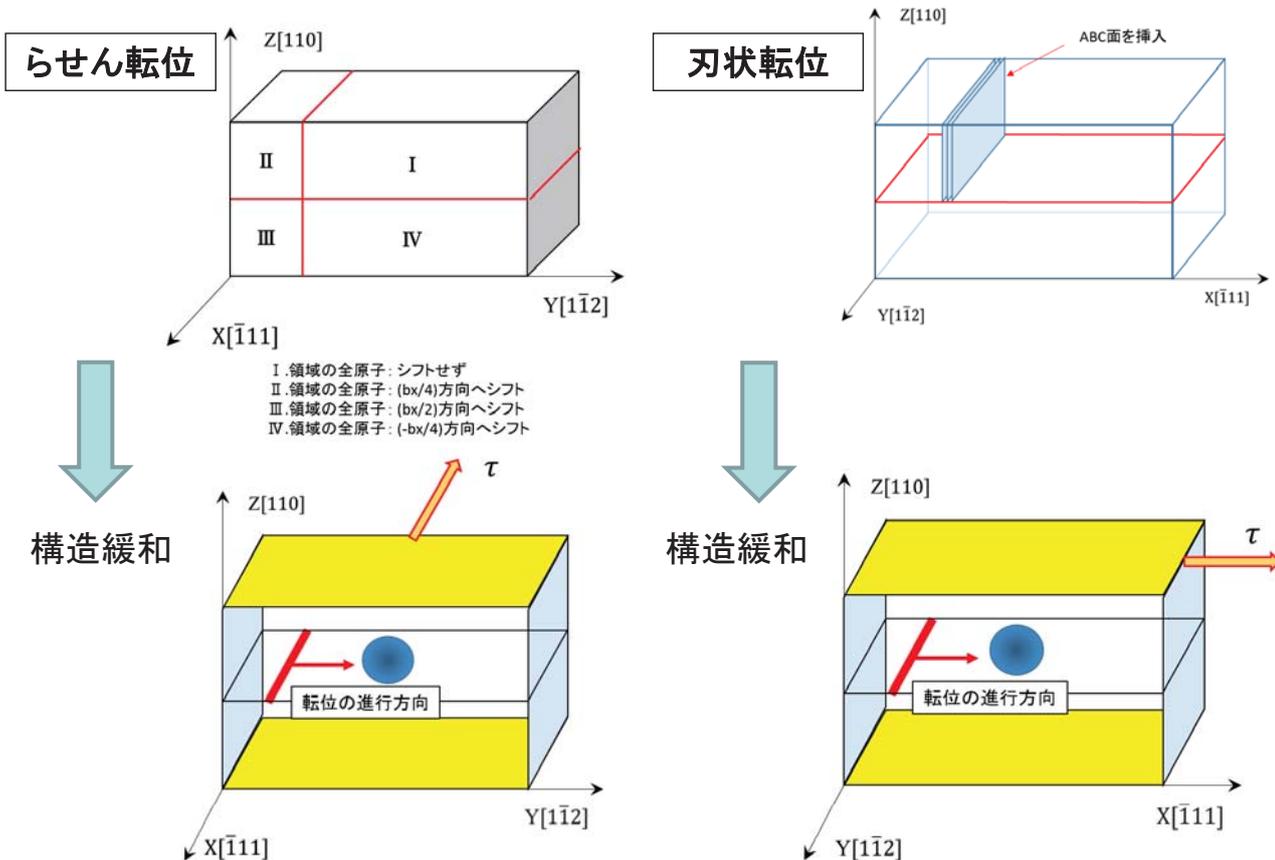
表 刃状・らせん転位のMDシミュレーション条件

材料モデル	BCC純Fe
計算コード	LAMMPS [2]
原子間ポテンシャル	EAM (Mendelevら [3])
軸方向	X $[\bar{1}11]$ Y $[1\bar{1}2]$ Z $[110]$
Time step(fs)	1
温度(K)	0, 50
アンサンブル	NVE
温度制御法	速度リスケーリング法

[2] S. J. Plimpton, J Comp Phys, 117, 1-19 (1995).

[3] M.I. Mendelev et al., Phil. Mag., 83 3977-3944 (2003)

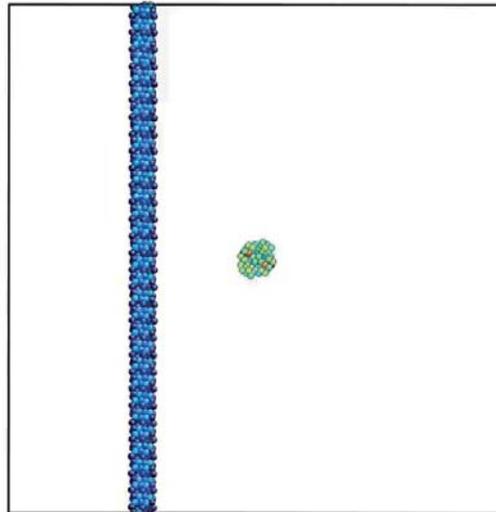
計算方法



計算結果 (刃状転位-ボイド)

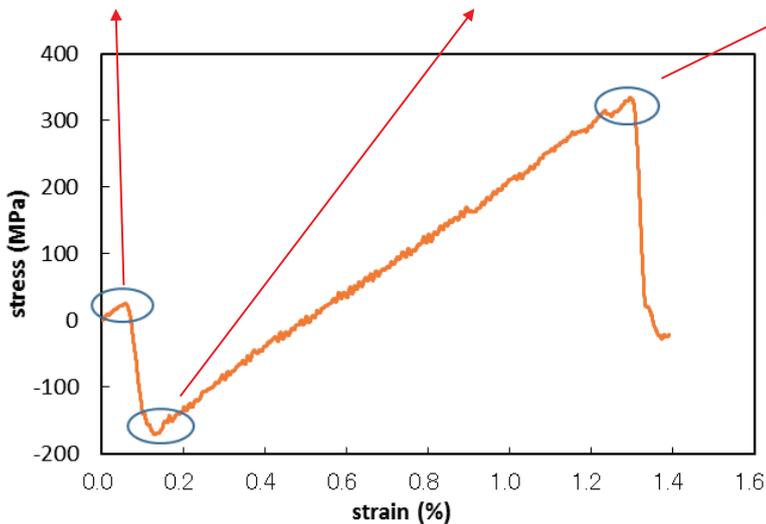
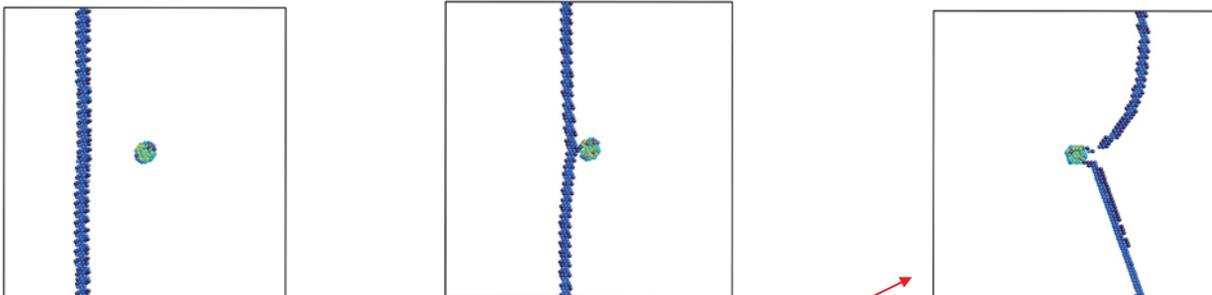
動画

セルサイズ : $20.3 \times 20.9 \times 11.8(\text{nm}^3)$
ボイド径 : 1 nm
ひずみ速度 = $2.14 \times 10^7/\text{s}$



18

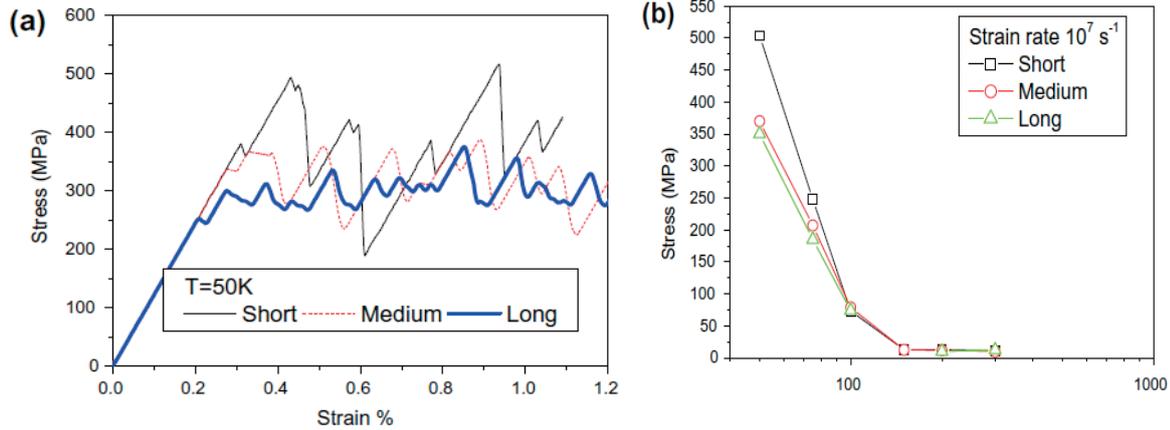
計算結果 (刃状転位-ボイド)



セルサイズ : $20.4 \times 21.1 \times 11.7(\text{nm}^3)$
原子数 : 475,200 atoms
ひずみ速度 : $4.27 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$
ボイド径 : 1 nm

19

考察 (刃状転位-ボイド)



50K, ひずみ速度 $10^7 s^{-1}$ での異なる周期境界長さ(転位長さ)を用いた応力-ひずみ線図[4]

本計算値	⇒ 最大せん断応力	334 MPa
文献値	⇒ 最大せん断応力	約200~400 MPa

同程度

本計算手法の妥当性を証明

[4] D.A. Terentyev, Yu. N. Osetsky, D.J. Bacon., Acta Materialia 58 (2010) 2477-2482

計算結果 (らせん転位-ボイド相互作用)

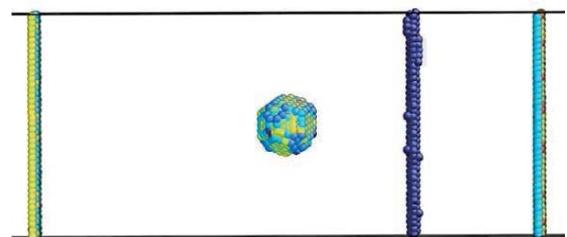
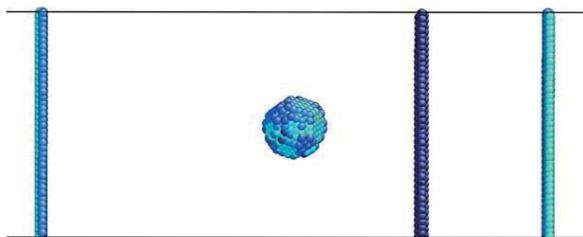
温度依存性

動画

セルサイズ : $10 \times 22.4 \times 12.8$ (nm³)
 ボイド径 : 2 nm
 ひずみ速度 = $7.84 \times 10^7/s$

0K

50K

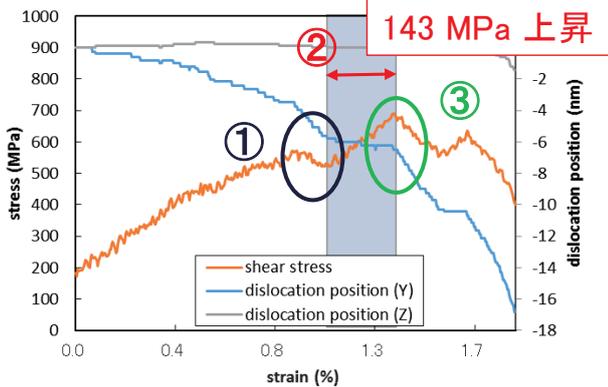


計算結果 (らせん転位-ボイド相互作用)

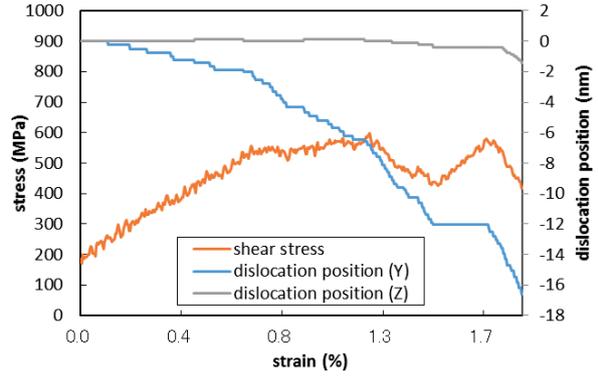
らせん転位-ボイド間の動的相互作用

セルサイズ : $10 \times 22.4 \times 11.8$ (nm³)
 T = 50 K
 ひずみ速度 = 8.54×10^7 s⁻¹

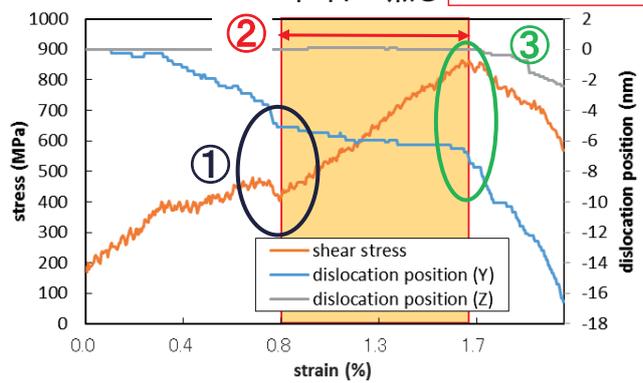
- ① ボイド入り口でらせん転位-ボイド間に引力が働く
- ② ボイドはらせん転位運動を妨げる障害物になる
- ③ ボイド出口でせん断応力が最大になる



ボイド径 1 nm



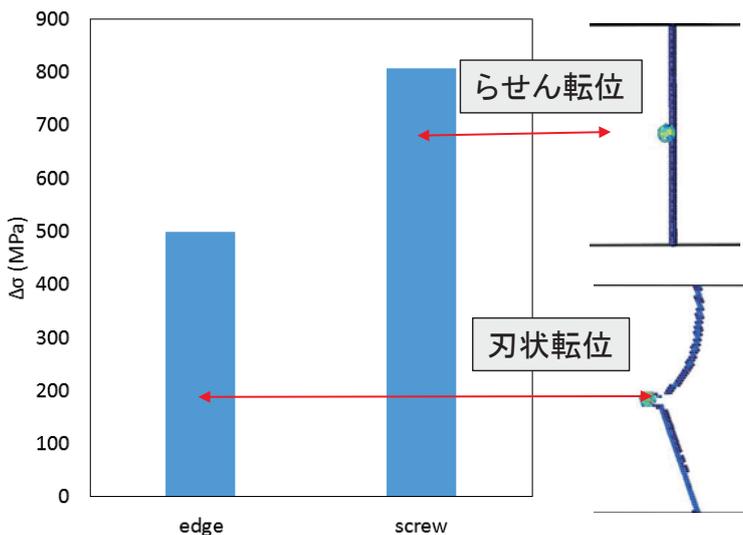
ボイド無し 398 MPa 上昇



ボイド径 2 nm

22

計算結果 (らせん転位・刃状転位-ボイド)



OKでの刃状転位とらせん転位のボイドでのせん断応力の増加 $\Delta\sigma$ (MPa)

ボイドでの応力増加量 $\Delta\sigma$
 らせん転位 > 刃状転位

転位の張り出し
 刃状転位 > らせん転位

BCC金属の強い温度依存性

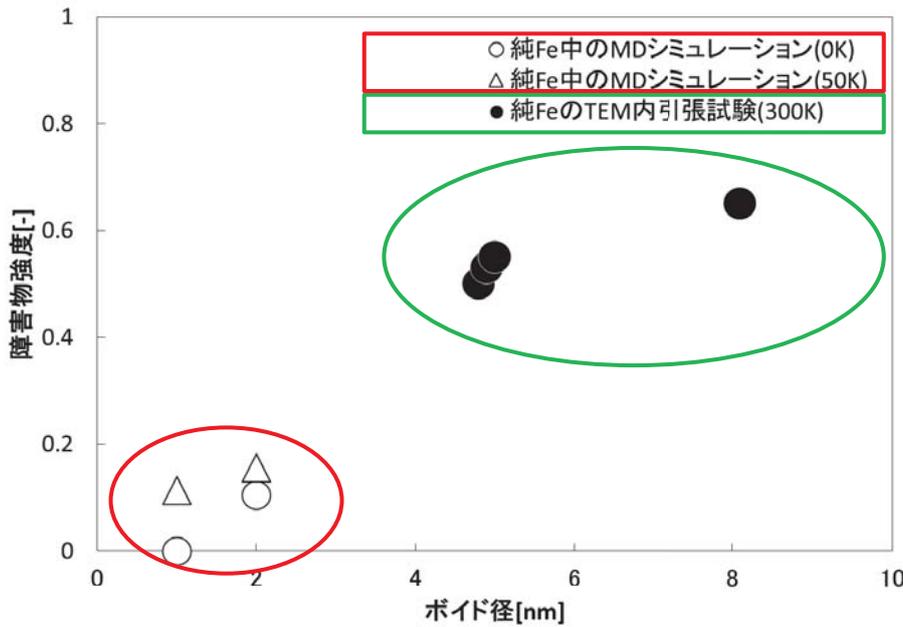
- ・緩和の再検討
- ・有限温度で計算する

そもそも...

らせん転位と球状介在物の弾性相互作用 $\rightarrow 0$
 刃状転位とは弾性相互作用は有り

23

TEM内引張その場観察実験計測値とMD計算結果の比較



シミュレーション値は実験値よりも低い値

⇒ 温度が実験値よりも低い

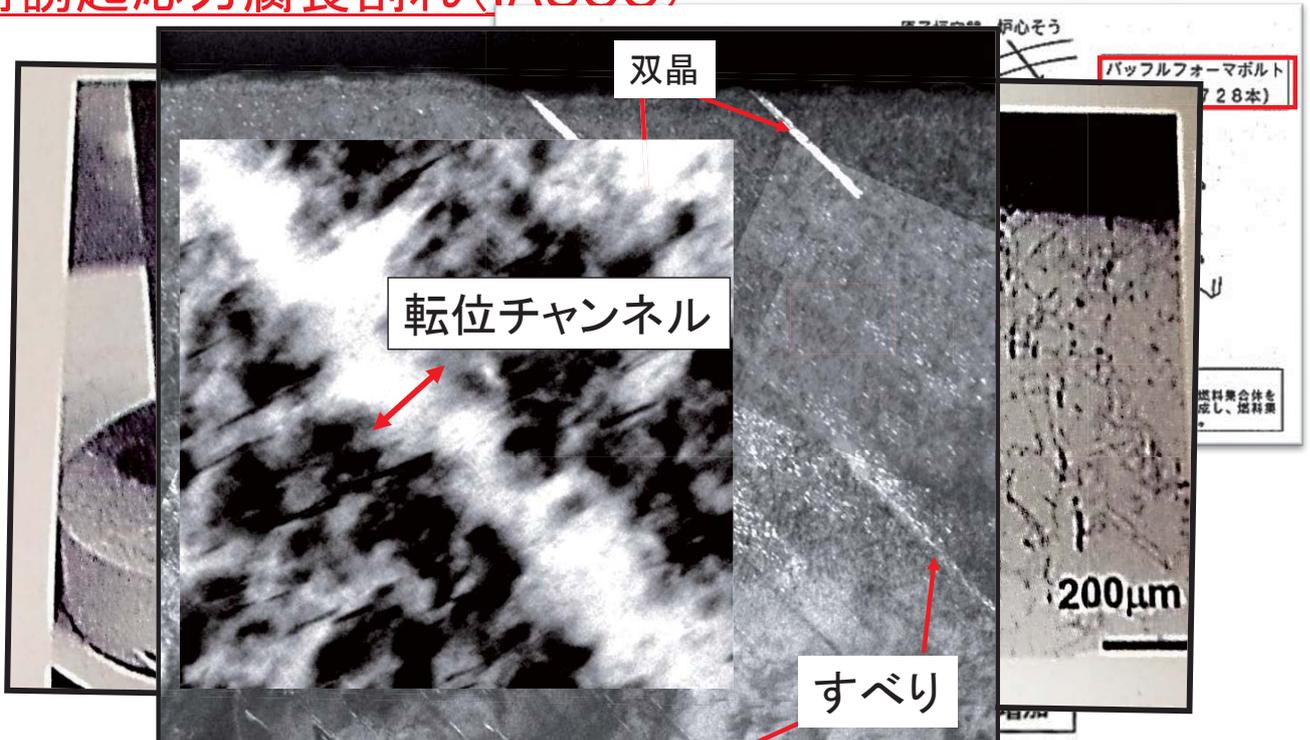
将来的には同じ条件で計算を行えるようにする必要はある

実験への反映
運動転位の性状決定の厳密化が必要

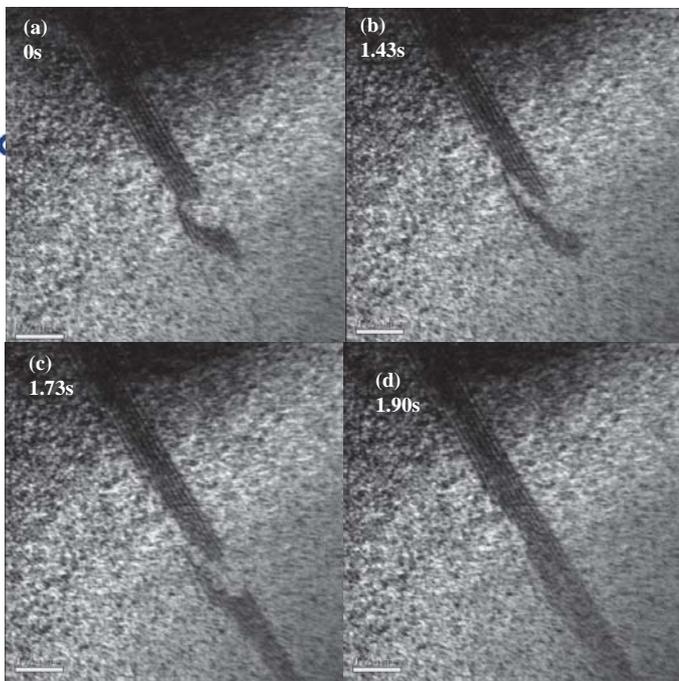
純FeにおけるMDシミュレーションとTEM内引張試験の障害物強度の比較

オーステナイトステンレス鋼の材料劣化事象

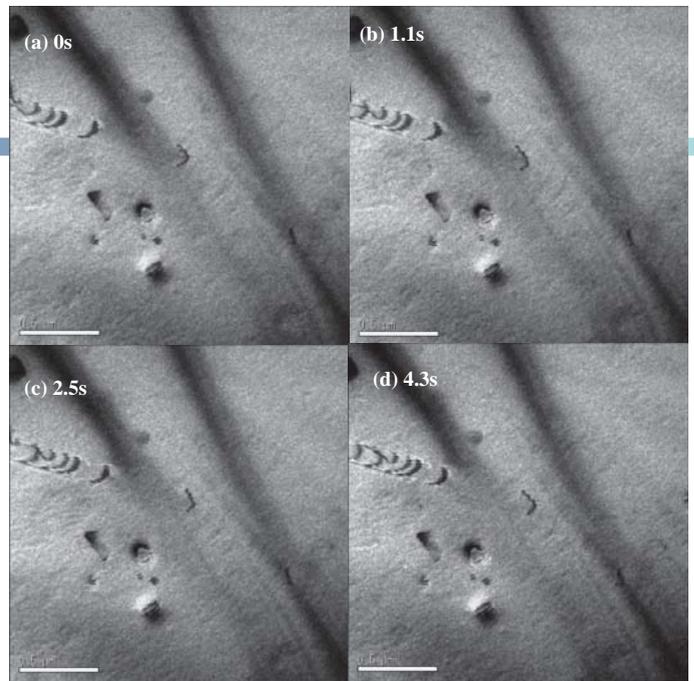
照射誘起応力腐食割れ (IASCC)



変形の大部分は転位チャンネル



照射材で観察された積層欠陥



非照射材で観察された積層欠陥

照射材で観察された転位の特徴

- ・積層欠陥の拡張と収縮の繰り返し⇒欠陥によるピン止め
- ・ピン止めによる不均一形状かつ断続的な動き(照射材)
一方で、円弧状でスムーズな動き(非照射材)
- ・転位のバースト⇒追従かつ瞬間的なすべり

26

MD計算機手法によるFCC金属合金の転位－照射欠陥相互作用研究



ボイド

- ◆ T. Hatano, T. Kaneko, Y. Abe and H. Matsui, Phys. Rev. B, 77, 064108 (2008).

SFT

- ◆ B.D Wirth, V Bulatov, T Diaz de la Rubi, JNM 283–287, 773-777 (2000)
- ◆ Yu.N Osetsky, R.E Stoller, Y Matsukawa, JNM 329–333B, 1228-1232 (2004)
- ◆ Y. Matsukawa, Yu.N. Osetsky, R.E. Stoller, S.J. Zinkle, JNM 351, 285-291 (2006)
- ◆ Y. Matsukawa, G. S. Liu, JNM 425, 54-59 (2012)

フランクグループ

- ◆ Y. Yang, N. Sekimura, H. Abe, JNM 329–333B, 1208-1213 (2008)
- ◆ T. Okita, S. Fujita, Y. Yang, N. Sekimura, JNM 386–388, 188-190 (2009)
- ◆ D. Terentyev, A. Bakaev, JNM 442, 208-217 (2013)
- ◆ D. Terentyev, A. Bakaev, Yu.N. Osetsky, JNM 442, S628-S632 (2013)
- ◆ J-B. Baudouin, A. Nomoto, M. Perez, G. Monnet, C. Domain, JNM 465, 301-310 (2015)

DD計算による転位チャネリング形成についても文献あり
実験結果を説明できる文献データの掘り起こしを進める予定

27

- ◆ 「TEM内引張試験『その場』観察法」を用いてイオン照射したBCC純金属中に形成されたボイド・バブルに対して転位運動に対する硬化因子測定手法を紹介した。
- ◆ 純Fe中のボイドに対する転位挙動のMD計算実験を示し、計算機実験結果の適用性について検討し、TEM内引張試験結果との比較から問題点を示した。
- ◆ イオン照射したSUS304鋼中の照射欠陥-転位相互作用研究について紹介し、今後の研究展開について示した。