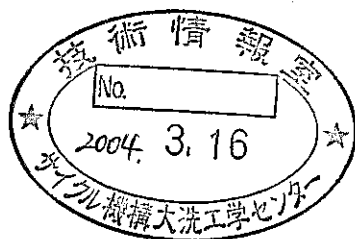


9Cr-ODS マルテンサイト鋼の重照射下
における損傷組織発達機構の解明
(核燃料サイクル公募型研究業務委託報告書)

2004年1月



京都大学 エネルギー理工学研究所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division ,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu , Tokai-mura , Naka-gun , Ibaraki 319-1184 ,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2004

9Cr-ODS マルテンサイト鋼の重照射下における 損傷組織発達機構の解明

木村 晃彦*

要旨

高速増殖炉燃料被覆管材料としてサイクル機構で開発が行われている 9Cr-酸化物分散強化 (ODS) マルテンサイト鋼の耐照射性能の評価およびその機構解明を目的とした研究を行った。中性子照射は高速実験炉「常陽」および米国オークリッジ研究所 (ORNL) の HFIR (High Flux Isotope Reactor) を用いて行った。また、照射下での損傷組織の評価及び核融合炉ブランケット構造材料への応用の検討を行うため、イオン照射を用いて 9Cr-ODS マルテンサイト鋼中におけるヘリウムの挙動を調べた。

9Cr-ODS マルテンサイト鋼は、極めて耐中性子照射性能に優れており、照射に伴う強度の上昇が延性の低下を招かないという、従来の金属材料には観察されなかった現象を初めて見出した。照射後の変形挙動と組織観察からこの現象のメカニズムとしては、酸化物分散粒子が転位源を活性化することによって、チャンネルすべりが抑制されることを提案した。また、照射下における鋼組織の回復が酸化物分散粒子により抑制されるため、優れた高温強度特性が照射下においても維持されることが判明した。さらに、ヘリウムの脱離挙動を調べ、9Cr-ODS マルテンサイト鋼においては、マルテンサイト組織の回復が遅滞し、ヘリウムバブルの成長が抑制されることを明らかにした。

すなわち、ODS 鋼の構成要素となっている酸化物粒子は、元々存在する組織や照射損傷組織の熱的安定性を高める役割を果たしていると考えられる。

以上より、9Cr-ODS マルテンサイト鋼は耐照射性能及び耐ヘリウム脆性に優れており、高速炉燃料被覆管や核融合炉ブランケット冷却管として極めて有望な材料であると結論される。

本報告書は、「核燃料サイクル公募型研究」で実施した研究成果に関するものである。
核燃料サイクル開発機構担当課室：システム技術開発部 核燃料工学グループ

* 京都大学 エネルギー理工学研究所

Mechanism of Radiation Damage Evolution in 9Cr-ODS Martensitic Steels

Akihiko Kimura*

Abstract

Radiation resistance of 9Cr-oxide dispersion strengthening (ODS) martensitic steels developed by Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) as fuel clad material of fast breeder reactors as well as fusion blanket structural materials was assessed and the mechanism controlling the resistance to irradiation damage formation was investigated. Neutron irradiations were performed in Fast Experimental Reactor 'JOYO' and High Flux Isotope Reactor 'HFIR' in ORNL. Helium behavior in the 9Cr-ODS martensitic steel was also investigated after helium ion irradiations in order to estimate the resistance to irradiation damage formation and apply the 9Cr-ODS martensitic steel developed for fuel clad in FBR to fusion engineering.

The 9Cr-ODS martensitic steel was rather highly resistant to neutron irradiations, and it was found that they showed the irradiation-induced hardening accompanied by no reduction of ductility that was not the common for the previous metallic nuclear materials. The behavior was explained in terms of suppression of channeling deformation due to activation of dislocation sources by oxide particles. It was also shown that in the 9Cr-ODS martensitic steel, the oxide particles played a role in the suppression of recovery of the martensitic structure at high temperatures. Furthermore, the 9Cr-ODS martensitic steel has a big capacity for trapping helium and suppressing helium-induced grain boundary embrittlement.

It is considered that the oxide particles stabilize the substrate and radiation structures, consequently sustain a high resistance to irradiation damage formation.

Thus, it is concluded that the 9Cr-ODS martensitic steel is totally most adequate for the utilization as fuel clad material for FBR as well as cooling pipe material for fusion blankets.

This work was performed by Kyoto University under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Nuclear Fuel Research Group, System Engineering Technology Division,
Oarai Engineering Center

* Institute of Advanced Energy, Kyoto University

目 次

1. 緒言	1
1.1 研究の背景と目的	1
1.2 研究の必要性	2
1.3 到達目標	2
1.4 研究の内容	3
1.4.1 中性子照射試験	3
1.4.2 イオン照射試験	3
1.4.3 総合評価	4
1.5 研究の実施方法	4
1.5.1 試験片作製	4
1.5.2 中性子照射	4
(1) 常陽照射 (サイクル機構)	4
(2) HFIR 照射 (京大)	4
(3) 照射後試験	4
(4) 加速器による重イオン照射およびヘリウム/重イオン同時照射 (京大)	5
(5) 総合解析・評価	5
1.6 研究の現状と期待される成果	5
2. 研究成果	6
2.1 耐中性子照射性能評価と照射損傷組織形成機構の解明 (1) —JOYO 照射実験	6
2.1.1 中性子照射前後における微細組織観察	7
(1) 照射前組織	7
(2) 照射後組織	7
a) 組織回復挙動	8
b) キャビティ形成挙動	8
c) 分散粒子安定性	9
d) 析出物形成挙動	9
2.1.2 ODS 鋼のリング引張強度	9
(1) 非照射材のリング引張特性	10
(2) 照射材のリング引張特性	10
2.2 耐中性子照射性能評価と照射損傷組織形成機構の解明 (2) —HFIR 照射実験	11
2.2.1 照射前の微細組織観察	11
2.2.2 照射後引張特性	11

2.3 ODS 鋼におけるヘリウム脱離挙動	12
2.3.1 ヘリウムと欠陥	12
2.3.2 昇温脱離測定	13
2.3.3 150eV-ヘリウム照射	13
(1) 昇温脱離スペクトル	13
(2) 各温度域に於けるヘリウム放出割合	14
(3) 各温度域に於けるヘリウムの放出量とその照射量依存性	14
2.3.4 8keV-ヘリウム照射	15
(1) 昇温脱離スペクトル	15
(2) 各温度域に於けるヘリウム放出割合	16
(3) 各温度域に於けるヘリウム放出量	16
2.3.5 ヘリウム脱離挙動	17
(1) ODS 鋼におけるヘリウムの脱離ピーク	17
(2) ODS 鋼と JLF-1 鋼におけるヘリウム放出挙動の比較	17
(3) He 注入エネルギー依存性	19
(4) ヘリウム捕獲に及ぼす転位の影響	19
(5) ヘリウムバブル形成の MD 計算	20
2.4 2 重イオンビーム照射実験	21
2.4.1 照射装置	21
2.4.2 ボイドスエリングに及ぼすヘリウムの影響	21
3. 研究成果のまとめ	22
3.1 ODS 鋼の微細組織	22
3.2 耐中性子照射脆化	22
3.2.1 照射硬化挙動	22
3.2.2 照射軟化挙動	22
3.3 耐ヘリウム脆化	23
3.3.1 酸化物分散粒子の役割	23
3.3.2 ヘリウム脆化査定	23
4. 結言	23
5. あとがき	24
参考文献	24

図表目次

表 2-1	ODS 鋼の化学成分 (wt.%)	26
表 2-2	観察試料の照射条件	26
表 2-3	ODS 鋼被覆管(M93、F95)の照射条件およびリング引張試験条件	27
表 2-4	透過型電子顕微鏡観察結果	27
表 2-5	150eV 照射のまとめ	27
表 2-6	8keV 照射のまとめ	28
表 2-7	転位密度の異なる 4 種類の純鉄	28
表 2-8	マルテンサイト組織中のヘリウム捕獲数量の見積もり	29
表 2-9	ODS 鋼と JLF-1 (RAFS) 鋼における照射硬化挙動の比較	29
写真 2-1	各供試材の照射前組織(低倍)	30
写真 2-2	各供試材の照射前組織(高倍)	30
写真 2-3	各供試材の照射後組織(低倍)	31
写真 2-4	各供試材の照射後組織(高倍)	31
写真 2-5	397°C 照射 F94 材で観察された未固溶析出物とその周辺組織	32
写真 2-6	ODS 鋼中の鋼組織と酸化物分散粒子の透過電子顕微鏡写真	32
写真 2-7	異なる転位密度を持つ純鉄試料	33
写真 2-8	シングルイオン照射および 2 重イオンビーム照射した JLF-1 鋼 の照射後組織	33
図 2-1	リング引張試験片	34
図 2-2	マルテンサイト系およびフェライト系 ODS 鋼の照射前の引張特性	34
図 2-3	マルテンサイト系 ODS 鋼の照射後の引張特性	34
図 2-4	フェライト系 ODS 鋼の照射前の引張特性	35
図 2-5	室温における引張特性に及ぼす中性子照射効果	36
図 2-6	JLF-1 鋼の室温における引張特性に及ぼす中性子照射効果	36
図 2-7	ODS 鋼および JLF-1 鋼の照射硬化	37
図 2-8	ヘリウムの深さ方向の分布	37
図 2-9	各エネルギーに於けるヘリウムと空孔量の比	37
図 2-10	照射量対放出量	38
図 2-11	150eV で $2 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	38
図 2-12	150eV で $2 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	38
図 2-13	150eV で $2 \times 10^{19} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	38
図 2-14	150eV で $2 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	38
図 2-15	150eV で $2 \times 10^{19}, 10^{20} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	39

図 2-16	$10^{17}, 10^{18}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合 の試料依存性	39
図 2-17	$10^{19}, 10^{20}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合 の試料依存性	40
図 2-18	各温度域に於ける放出割合の照射量依存性	41
図 2-19	150eV の各温度域に於ける He 放出量	42
図 2-20	8keV で $2 \times 10^{17}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-21	8keV で $2 \times 10^{18}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-22	8keV で $2 \times 10^{19}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-23	8keV で $2 \times 10^{20}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-24	8keV で $2 \times 10^{21}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-25	8keV で $2 \times 10^{22}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射	43
図 2-26	8keV で $10^{19}, 10^{20}, 10^{21}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの低温部分の昇温脱離挙動	44
図 2-27	$10^{17}, 10^{18}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合 の試料依存性	45
図 2-28	$10^{19}, 10^{20}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合 の試料依存性	45
図 2-29	$10^{21}, 10^{22}\text{He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合 の試料依存性	46
図 2-30	各温度域に於ける放出割合の照射量依存性	46
図 2-31	各温度域に於ける放出割合の照射量依存性	47
図 2-32	NT 材, 炉冷材, JLF-1 の各温度域におけるヘリウム放出量	48
図 2-33	ODS 鋼および JLF-1 鋼のヘリウム昇温脱離スペクトル	49
図 2-34	各温度域におけるヘリウムの放出割合	49
図 2-35	150eV および 8keV 照射における He および照射欠陥分布の模式図	50
図 2-36	ODS 鋼と JLF-1 鋼のヘリウム脱離挙動の比較	50
図 2-37	9Cr-ODS 鋼炉冷材のヘリウム放出挙動におけるヘリウム 注入エネルギー依存性	51
図 2-38	ヘリウム脱離スペクトルに及ぼす転位密度の影響	51
図 2-39	MD 計算による空孔集合体における空孔数とヘリウム - 空孔クラスター 形成エネルギーの関係	52
図 2-40	各種サイズのヘリウムクラスターと He および V の結合エネルギー	52
図 2-41	2 重イオンビーム照射装置	53
図 2-42	TRIM 計算によるヘリウムとはじき出し損傷量の深さ方向分布	53
図 2-43	JLF-1 鋼におけるボイドスエリングの損傷量依存性	53

1. 緒言

1.1 研究の背景と目的

高速増殖炉の経済性向上のためには、原子炉建設費の低減、炉心の高温化によるプラント熱効率の向上とともに、燃料の高燃焼度化によるサイクルコストの低減が不可欠である。特に燃料集合体の高燃焼度化は製造体数や再処理体数の削減による廃棄物量の低減を達成できるという極めて重要な効果を有している。「もんじゅ」の高燃焼度炉心は、取り出し平均燃焼度が約 80GWd/t であるが、実用化段階ではその倍に近い 150GWd/t 以上の平均燃焼度が要求されており、その場合に被覆管が受ける中性子損傷量は 200dpa 以上に及び、かつ、使用温度も上昇するため、被覆管に課せられる使用条件はますます過酷なものとなっており、その結果、材料特性に高い目標値が設定されている。このような高い目標の特性が要求される被覆管にオーステナイト鋼を適用することは、耐スエリング性の観点から好ましくないため、より耐スエリング性に優れた長寿命の高性能炉心材料の実現が望まれている。フェライト系鋼は耐スエリング性に優れており、イットリア (Y_2O_3) を微細分散して高温強度を高めた酸化物分散強化型 (ODS) フェライト・マルテンサイト鋼はこの目標を達成するための最も有望な候補材料と考えられる。

この考え方に従って、サイクル機構では ODS フェライト・マルテンサイト鋼を開発し、最近では冷間圧延で被覆管を製造できるようになり、また製造した被覆管は目標強度に近い優れた高温強度を有することが報告されている。しかし、欧州では照射脆化が顕著になる等のため、ODS フェライト鋼の開発を断念したことを踏まえると、サイクル機構の ODS フェライト・マルテンサイト鋼の実用化見通しを評価する上での最大の課題は、200dpa 以上の重照射下における強度・破壊特性の良好さと鋼組織の相安定性であり、その評価を早急に行う必要がある。しかし、200dpa を「常陽」MK-III の中性子照射で達成しようとする約 8 年もかかるため、実用化見通しの判断は 2010 年以降に先延ばしになり、さらにその結果に基づき合金成分や製造法の改良を施すことが必要となった場合には、ODS フェライト・マルテンサイト鋼の実用化、ひいては高燃焼度運転の実用化時期はさらに大幅に遅れることになる。一方、申請者がこれまでに行ってきた低放射化フェライト鋼の照射研究においては、70dpa 程度までの照射硬化・脆化機構が明らかとなっており、損傷組織・強度特性相関が明らかとなっている。

このような現状に鑑み、本研究では、低放射化フェライト鋼の重照射研究¹⁾⁻¹¹⁾で得られている照射効果機構および照射相関の基礎的知見ならびに材料評価の手法を最大限に活用して、ODS フェライト・マルテンサイト鋼の重照射下における耐照射性および相安定性の評価を 3 年間の短期間において実施することを目的とする。申請者は核融合炉材料である低放射化フェライト鋼の照射研究から、Cr-rich 相を形成しない 9%Cr-マルテンサイト鋼が中性子照射下における耐照射性および相安定性に優れていることを明らかにし、それらが高密度の転位と微細な炭化物やラス境界を有するマルテンサイト組織が照射欠

陥の有効なシフトとして働くことによると結論している^{11, 8)}。この結果を踏まえ、本研究では、9Cr-マルテンサイト鋼の化学成分をベースとし、より多量のシフトを包含する ODS 鋼に着目し、 Y_2O_3 を微細分散することにより高温強度の改善を目指した 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の照射下における材料挙動評価を行う。比較的照射量までの中性子照射試験と短期間に重照射が得られるイオン照射試験を併用することにより、重照射下での損傷組織発達機構とその材料特性への影響を解明し、核燃料サイクル開発機構における実用化材料の効率的な開発・評価に貢献することを最終目的としている。この研究を遂行するためには、先ず、カスケード損傷の形成と反応、および点欠陥ならびにヘリウムと点欠陥集合体の成長に着目した損傷組織発達の素過程を理解し¹²⁾⁻¹⁵⁾、次に、ミクロ的損傷組織のマクロ的材料特性に及ぼす影響を機構論的に明かにすることにより、材料照射効果のインテグレーション・モデリングを行うという、いわゆる統合的照射相関法の構築という革新的な技術開発が要求される。点欠陥 - ヘリウム相互作用解析による ODS 鋼の相安定性について検討を加える。

1.2 研究の必要性

現在サイクル機構内で実施されている実用化戦略調査研究においては、取り出し平均燃焼度 150GWd/t 以上は必須であり、そのための被覆管材料として、重照射下での材料特性と高温強度特性に優れた ODS 鋼の早期開発が前提条件になっている。特に、本材料は「常陽」MK-III (2004 年頃) からの照射試験が計画されており、200dpa に到達するまでには約 8 年間の長期間を要する。この照射試験を効率的に行うためには、照射試験に先立つ今後 3 年間に 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の耐照射性をあらかじめ評価し、実用化の見通しを得ておくことが肝要であり、さらにその結果に基づき候補材料を選定することが極めて重要となる。そのためには短期間で 200dpa までの重照射を得ることができるイオン照射を活用して重照射下における材料挙動と相安定性を評価し、統合的照射相関法を用いることにより、数十 dpa の中性子照射データと 200dpa のイオン照射データから中性子重照射下における材料挙動を予測する必要がある。

1.3 到達目標

燃料設計の観点からサイクル機構で設定されている 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の材料強度および耐照射性の目標値は以下の通りである。

(非照射データ)

- ・引張強度 (700°C) : 300MPa 以上
- ・均一伸び (全使用温度) : 1%以上
- ・クリープ強度 : 120MPa 以上 (1 万時間)、108MPa 以上 (3 万時間)

(照射データ)

- ・スエリング：5%以下（200dpa）
- ・延性脆性遷移温度：150℃以下

本研究においては、中性子照射とイオン照射を併用して、照射下相安定性に係わる以下の項目を評価することにより、中性子で 200dpa まで照射された 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の強度・延性特性を評価・予測して上記設計値に対する達成度を見極める。

- ・照射効果機構解明
 - a) 硬化機構（格子間原子型欠陥集合体および空孔型欠陥集合体の役割）
 - b) 高温軟化機構（組織回復における格子欠陥の役割）
 - c) スエリングと相変化の機構（第2相析出挙動の解明）
 - d) 脆化機構（硬化型、粒内析出および粒界偏析（析出）型の分類と機構解明）
 - e) 破壊様式（延性破壊、脆性（へキ開及び粒界）破壊）
 - f) 照射温度、照射量、照射速度依存性
- ・照射効果インテグレーション・モデリング
 - a) カスケード損傷の形成モデル
 - b) 点欠陥及び点欠陥集合体の反応モデル
 - c) 照射損傷組織の発達モデル
 - d) 材料挙動モデル

1.4 研究の内容

1.4.1 中性子照射試験

酸化物分散粒子として Y_2O_3 を添加した 9Cr-ODS マルテンサイト鋼ならびに比較のために 12Cr フェライト系 ODS 鋼を作製し、5ないし 20dpa までの中性子照射を高速中性子支配の「常陽」と熱中性子支配の米国 ORNL の HFIR を用いて行う。照射温度は、照射硬化及び脆化が顕著となると予想される 300℃程度の低温度域から、通常フェライト鋼の使用限界温度とされる 575℃までの高温域までとする。照射後試験として引張試験、硬さ測定、衝撃試験、SEM および TEM 観察を行い、相安定性および強度・破壊特性を評価するとともに、照射損傷組織と機械的特性の相関を求め、照射効果機構を解明する。

1.4.2 イオン照射試験

加速器（京大・エネ研）を用いて、5ないし 20dpa 程度までの中性子照射レベルから 20ないし 200dpa 程度の重照射までのイオン照射実験を照射量、照射温度、損傷速度お

よび He/dpa をパラメータとして実施し、硬さ試験および TEM 組織観察より欠陥構造の変化に伴う微細組織発達と強度特性変化との関係を求め、中性子照射材との比較により中性子-イオン照射相関を明かにし、中性子重照射下における損傷組織発達挙動ならびに材料特性を予測する。ヘリウム脱離挙動を調べることにより、ODS 鋼の照射欠陥やヘリウム捕獲サイトに関する基礎知見を得る。

1.4.3 総合評価

上記中性子照射およびイオン照射の結果に基づき、カスケード損傷の形成から点欠陥および欠陥集合体反応をモデル化した損傷組織発達とそれに伴うマクロ的材料特性変化を予測するインテグレーション・シミュレーションコードを開発する。また本コードを用いて 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の 200dpa に至る重照射下における相安定性および機械的強度特性を予測する。

1.5 研究の実施方法

1.5.1 試験片作製

9Cr-ODS マルテンサイト鋼、比較材としての 12Cr フェライト系 ODS については、サイクル機構にて試験片を作製し、参照標準材用の焼入れ焼戻し調質鋼は京大にて作製する。試験片加工は、それぞれの担当材料に対して、担当箇所が行う。

1.5.2 中性子照射

(1) 常陽照射 (サイクル機構)

照射温度：390°C、465°C、520°C、550°C、575°C

照射量：3~15dpa

(2) HFIR 照射 (京大)

照射温度：300°C、500°C

照射量：5 dpa

合わせて照射条件 (照射量、温度、He 生成量など) の詳細評価を行う。

(3) 照射後試験

a. 常陽照射材 (サイクル機構)

リング引張試験、TEM 観察

b. HFIR 照射材 (京大)

衝撃試験，硬さ測定，引張試験，疲労試験、SEM 観察，TEM 観察，
陽電子寿命測定
(東北大学金属材料研究所大洗施設にて実施)

(4) 加速器による重イオン照射およびヘリウム／重イオン同時照射 (京大)

照射条件を精緻に制御した照射実験を行い、照射相関法構築のための基礎的データを収集する。特に空孔型欠陥集合体の役割に着目し、第 2 相析出及びボイド形成過程に関する基礎的知見を得る。

試験項目：TEM 観察、焼鈍によるヘリウム放出測定

- a. 照射温度依存性
- b. 照射量依存性
- c. 照射速度依存性
- d. He/dpa 依存性

(5) 総合解析・評価

照射効果や強度特性予測を計算機シミュレーションにて行い、中性子で 200dpa 照射した場合の損傷組織発達、および機械的特性を評価する。

1.6 研究の現状と期待される成果

耐照射性に優れた ODS 鋼の開発は、国の内外において研究が行われてきた。本研究で申請の ODS 鋼^{15)~19)}は、高速増殖炉材料開発として行われているが、近年の活動としては、核融合炉材料開発として、米国を始め、ドイツおよび我が国においても研究が一段と活性化されてきている。特に、従来の研究では、クロム量が 13%程度のいわゆるマルテンサイト系ステンレス鋼の開発に重点が置かれてきたが、これまでの材料照射研究からそれらの ODS 鋼は、照射下における相安定性に欠けており、より優れた ODS 鋼の開発が望まれている。これまでの申請者による研究等から、世界的な情勢として、9%クロム鋼が照射下で最も優れた相安定性、ひいてはクリープや疲労などの高温強度特性を示すと期待されることから、9%Cr マルテンサイト系 ODS 鋼の開発と照射下挙動研究が開始されようとしている。本申請はそれらの先駆的研究として位置付けられる。

本研究により、まず、9Cr-ODS マルテンサイト鋼の照射硬化・脆化機構および点欠陥集合体の発達過程とそれらに及ぼす各種照射条件の影響が明らかになり、中性子照射-イオン照射効果相関に関する基礎的知見が得られる。この結果に基づき、中性子重照射下における相安定性および強度・破壊特性の予測及び評価が可能となり、当該鋼の実用化炉心材料としての成立性ならびに実現性が確認される。さらに、酸化物分散強化鋼における照射損傷組織発達の素過程および照射欠陥捕獲サイトに関する基礎的情報が得られ、当該鋼の照射下挙動を予測するためのインテグレーション・モデリングが可能となる。

特に、相安定性に顕著な影響を与える空孔およびそれらの欠陥集合体の挙動とヘリウムの影響が解明され、ODS マルテンサイト鋼の耐照射特性向上に向けた材料開発上の指針が得られ、より優れた高速増殖炉用炉心材料の開発が可能となることが期待される。

また、高温強度特性に優れた ODS フェライト-マルテンサイト鋼の開発は、高速増殖炉用被覆管材料にとどまらず、火力発電プラントに代表される高温構造材料としての利用価値が極めて高い。特に、Cr 量が 10%以下であるマルテンサイト系 ODS 鋼は Cr-rich 相の形成が長時間運転時にも生じないことが期待され、長寿命の高温構造材料として貴重であり、火力発電プラントの高効率運転に貢献すると期待される。

高温強度と耐照射性に優れた 9Cr-ODS マルテンサイト鋼の開発技術は、核融合炉材料開発に応用されるものであり、本研究で構築される損傷組織発達と照射効果のインテグレーション・モデリングもまた、核融合炉材料の照射研究に十分適用可能な技術である。

2. 研究成果

2.1 耐中性子照射性能評価と照射損傷組織形成機構の解明 (1) —JOYO 照射実験

高速炉被覆管や核融合炉ブランケット構造材料は、過酷な中性子照射による材料劣化、特に照射硬化・脆化が懸念されている。ここでは、中性子照射の強度特性に及ぼす影響を明らかにし、ODS 鋼の優れた耐照射性能機構および損傷形成機構解明のために行った研究成果について述べる。

・供試材

鋼種：9Cr マルテン系 M93 (イットリア 0.35w t %)

比較材 12Cr フェライト系 F95 (イットリア 0.24w t %)

(Ti, W はほぼ同等 表 1 参照)

・照射条件

リグ：SVIR-1

照射温度：397～534℃

高速中性子照射量：0.5～3.0 x 10²⁶n/m² (E>0.1MeV)

照射位置：000

照射期間：34cy (100MW) ～35cy (100MW) 119EFPD

・試験条件及び試験方法

引張速度：0.1mm/min (一定)

試験温度：照射温度の対して±25℃間隔で設定し、均熱は各試験温度±3℃以内とした。

標点間距離：2.0mm

応力評価：照射前の左右平行部の断面積の和を試験片公称断面積として応力評価した。

2.1.1 中性子照射前後における微細組織観察

9Cr マルテンサイト系 ODS 鋼および 12Cr フェライト系 ODS 鋼の中性子照射下での組織安定性を確認することを目的として、高速実験炉「常陽」にて中性子照射した各 ODS 鋼の微細組織観察を行った。供試材は、表 2-1 に示す 3 鋼種である。

M93 は Ar 雰囲気中でメカニカルアロイングを行った 9Cr マルテンサイト系 ODS 鋼であり、F94 と F95 はそれぞれ He 雰囲気および Ar 雰囲気中でメカニカルアロイングを行った 12Cr フェライト系 ODS 鋼である。中性子照射に供した試料はこれら材料の最終熱処理まま材であり、冷間加工は行っていない。上記試料を、炉心材料照射用反射体 SVIR-1 に装荷し、高速実験炉「常陽」により中性子照射した。照射期間は「常陽」第 34～35 サイクル(119 E. F. P. D.)、装荷アドレスは 000 である。表 2-2 に各試料の照射条件の詳細を示す。

(1) 照射前組織

写真 2-1 および写真 2-2 に各供試材の照射前組織を示す。マルテンサイト系の M93 では比較的大きな粒界および粒内析出が認められる。これらの析出物は概ね 50nm より大きいものであり、EDS 分析の結果、Fe-Cr-W 系の析出物であることを確認している。その他、粒内には数 nm～25nm 程度の細かい析出物が均一に分散している。これは薄膜試料の EDS 分析より Ti-Fe-Y-O 系の析出物であることを確認しており、 Y_2O_3 分散粒子であると考えられる。また粒内に直径数 nm 程度のバブルが確認された。転位組織は微細かつ高密度であった。

再結晶処理を行ったフェライト系の F94 と F95 は、ほぼ同じ微細組織となっている。組織は概ね再結晶したものであったが、一部再結晶していない転位密度の高い結晶粒が残存していた。また結晶粒は一方向に細長く伸びた形状をしており、製管加工の影響が残っていると推定される。この伸長した結晶粒の長手方向に沿って、数は少ないものの、30～500nm 程度の塊状析出物が認められた。この析出物を EDS 分析したところマルテンサイト系の M93 と同様に Fe, Cr, Ti, W を含むことが確認された。また、数 μm 程度の非常に大きな粒子が観察された。分析の結果 Cr-rich の粒子であり、その大きさが非常に大きいため、未固溶の合金原料粉末粒子である可能性が高い。分散粒子は数 nm～10nm 程度のものが粒内に均一に分布している。M93 と同様に結晶粒内にバブルが形成しており、数 nm 程度のバブルが粒内全体に、また数 10nm 程度のバブルが結晶粒の長手方向に並んで形成していることが認められた。バブルの形成は M93 に比べて顕著であり、また Ar-MA 材である F95 に比べ He-MA 材である F94 の方がより多く形成しているように見受けられる。

(2) 照射後組織

写真 2-3 および 2-4 に各供試材の照射後組織を示す。M93 では照射温度が高くなるに従い照射前より存在していたバブルが幾分成長し、観察により認められる数も多くなる傾向があるが、全体的な傾向として今回観察した試料の照射条件では照射前後で

微細組織に大きな差は認められない。フェライト系の F94 および F95 についても、バブル組織の変化以外に照射前後で微細組織に大きな差は認められない。バブルは照射温度が高くなるに従い成長することが明確に認められる。その傾向は He 雰囲気中でメカニカルアロイングを行った F94 の方が顕著であり、一部ポイドへ転換して成長しはじめていると考えられるものも認められた。これらのバブル組織はメカニカルアロイングによりマトリックスにガス元素が混入するため形成すると考えられるが、各供試材での組織の違いより、メカニカルアロイング後の熱処理および、例えば転位組織のような照射前から存在する点欠陥シンク量の差が、照射中のバブル成長に大きな影響を与えているものと推測される。

以下、得られた組織データから、組織回復挙動、キャビティ形成挙動、分散粒子安定性及び、析出物形成挙動について述べる。

a) 組織回復挙動

照射後試料の転位組織は照射前と大きく変わらず、全ての照射条件において、マルテンサイト系の M93 ではネットワーク転位が高密度に観察され、フェライト系の F94 及び F95 では顕著な転位密度の上昇は認められない。基本的にマトリックス中に分散している酸化物粒子とマトリクス界面が点欠陥シンクと働き点欠陥密度が低くなるため、照射による転位組織の増殖が抑制されたものと考えられる。また、F94 及び F95 で特有な転位組織として、397°C で照射された試料において未固溶析出物と考えられる非常に粗大な析出物の近傍に $\phi 10\sim 30\text{nm}$ の小径のパーフェクトループが認められた。

結晶粒の照射による成長等は、F94 及び F95 の 534°C 照射試料以外には特に認められていない。その一方で F94 及び F95 の 534°C 照射試料は、未照射材及び他の照射条件の試料に比べて結晶粒が細かく、1~8 μm 程度の円状の結晶粒となっていた。再結晶フェライト系 ODS を高温照射した場合に結晶粒が未照射材に比べ微細化する理由については、現状明らかではない。

b) キャビティ形成挙動

マルテンサイト系の M93 では照射温度が高くなるに従い照射前より存在していたバブルが幾分成長し、観察により認められる数も多くなる傾向があるが、全体的な傾向として今回観察した試料の照射条件では照射前後でキャビティ組織に大きな差は認められない。その一方で、フェライト系の F94 および F95 では、バブルは照射温度が高くなるに従い成長することが明確に認められる。その傾向は He 雰囲気中でメカニカルアロイングを行った F94 の方が顕著であり、一部ポイドへ転換して成長しはじめていると考えられるものも認められた。これらキャビティ組織はメカニカルアロイングによりマトリックスにガス元素が混入するため形成すると考えられ、混入ガス種、メカニカルアロイング後の熱処理及び、例えば転位組織や分散粒子といった照射前から存在する点欠陥シンク量の差が、照射中のバ

ブル成長に大きな影響を与えているものと推定される。

この推定を裏付けるものとして、写真 2-5 に示すように F94 の照射試料に未固溶析出物と考えられる非常に粗大な析出物の近傍で顕著なキャビティ形成が認められていることがあげられる。前項で述べたように、この未固溶析出物近傍の転位組織発達は他の領域と異なっており、点欠陥密度が局所的に高くなっている可能性がある。その結果、転位組織の発達とキャビティ形成・成長が生じたものと考えられる。未固溶析出物近傍で点欠陥密度が局所的に高くなる理由については、この析出物近傍の組織が複雑で確認することが困難であるが、分散粒子密度が低くなっており有効に働く点欠陥シンクが少ない可能性が考えられる。M93 及び F95 において未固溶析出物の有無に係わらず局所的なキャビティ成長が認められなかった理由として、混入しているガス種が He に比べて拡散しづらい Ar であること、M93 についてはそれに加えて照射前の段階から高い転位密度を有していたことがあげられる。

c) 分散粒子安定性

薄膜試料及びレプリカ試料の観察から、未照射材で認められた分散粒子と考えられる直径数 nm～25nm 程度の細かい粒内析出物は、全ての照射後試料において明確な変化は認められなかった。特に成長や分解する兆候も認められず、今回の照射条件の範囲では酸化物粒子は安定であったといえる。

d) 析出物形成挙動

薄膜試料及びレプリカ試料の観察から、未照射材と比較して、全ての鋼種において分散粒子を除く粒内析出および粒界析出の双方で顕著な変化は認められない。ただしマルテンサイト系の M93 では、過飽和炭素の拡散に起因すると考えられる炭化物の成長傾向と、534°C 照射の照射前から存在していた炭化物の海面付近に Laves 相に近い組成を有する析出第二相が形成する傾向が認められた。

2.1.2 ODS 鋼のリング引張強度

9Cr-ODS マルテンサイト鋼 (M93) 被覆管の照射後の基本的な強度・延性特性を把握することを目的として、高速実験炉「常陽」SVIR-1 で照射した材料試験片についてリング引張試験を行った。試験は JNC 大洗・照射材料試験施設の試験

セル内に設置されたインストロン型引張試験機を用いて実施した。リング引張試験片の照射条件は、照射温度：397～534°C、高速中性子照射量： $0.5 \sim 3.0 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) である。また、比較として非照射材についても試験を実施した。図 2-1 にリング引張試験片形状を示した。

(1) 非照射材のリング引張特性

図 2-2 に M93 非照射材の降伏応力 (0.2%オフセット耐力)、一様伸び及び破断伸びと試験温度の関係を示す。比較材である 12Cr フェライト系 ODS 鋼 (F95) 非照射材の結果を合わせて示す。非照射材の強度特性としては、各試験温度において 9Cr-ODS マルテンサイト鋼のほうが、12Cr フェライト系 ODS 鋼よりも強度が高いことが分かった。これは、主としてイットリア粒子の含有量が多いことによると考えられる。また、伸びについては、一様伸びは降伏応力に対応して 9Cr-ODS マルテンサイト鋼のほうが 12Cr フェライト系 ODS 鋼よりも小さい傾向があるが、破断伸びは両者でほぼ同等であった。

(2) 照射材のリング引張特性

M93 および M95 照射材の降伏応力、引張強さ、一様伸び及び破断伸びと試験温度の関係を非照射材と比較して図 2-3 および 2-4 に示す。M93 (マルテンサイト系) ODS 鋼照射材の降伏応力、引張強さはともに 400、450、500℃では非照射材よりも強度が高く、525℃ではほぼ同等もしくはやや高い結果となった。強度上昇の程度は試験温度の上昇に伴って小さくなる傾向であった。本結果から M93 では概ね 530℃程度の照射温度範囲では照射硬化による強度上昇が生じていることが分かった。しかし、照射硬化量は小さく、最低温度の 400℃においても高々 50MPa 程度の照射硬化を示しただけである。一方伸びに関しては、照射材の一様伸びは、全試験温度範囲において非照射材と同様であったが、破断伸びは、400、450℃では非照射材と同等であったものの、500、525℃では非照射材に比較して低下する傾向が見られた。しかし、この全伸びの低下は試験片の加工精度に依存するため、本来は伸びの低下を伴わない可能性がある。通常の引張試験法による照射後特性を確認する必要があり、これについては、HFIR 照射材の照射後試験結果の項において再度検討を加える。

M95 (フェライト系) ODS 鋼においては、照射による変化が小さいためか、照射の影響を同定するのはやや困難である。照射により降伏応力は軟化している傾向に見えるが最大引張応力は増大の傾向にある。また、伸びに関してもその変化は極めて小さいことが判明した。

酸化物粒子を含まない通常の低放射化フェライト鋼においては、450℃以上での中性子照射はマルテンサイト組織の回復を促進し、照射軟化現象の生じることが知られているが、ODS 鋼においては、照射軟化現象は抑制されており、これは酸化物粒子がラス境界や転位の運動障壁となって回復を抑制することによると考えられる。これについては、後に詳細に考察する。

2.2 耐中性子照射性能評価と照射損傷組織形成機構の解明（2）—HFIR 照射実験

2.2.1 照射前の微細組織観察

照射前における三種類の酸化物分散強化鋼の透過型電子顕微鏡観察の結果を写真2-6に示す。この観察の結果と鶴飼らや小弥らの観察の結果判った、其々の試料の結晶粒径等を表2-4に示す。FC材は、フェライト単相であり、基本的には転位運動の障害となる組織としては炭化物および酸化物粒子のみである。一方、NT材および炉冷材の鋼組織はマルテンサイトであり、高密度の転位も含んでいる。酸化物粒子の分散状況を比較すると、FC材において、より微細で高密度の分散粒子の存在していることが判明した。強度特性評価結果（後述）と比較すると、フェライト系 ODS 鋼（FC材）の方がマルテンサイト系 ODS 鋼（NT および炉冷材）に比べ、高い強度を示しており、ODS 鋼における強度特性支配因子が酸化物分散粒子の密度、すなわち、分散粒子間隔と密接に関連していることを示唆している。

本試料に於ける ODS マルテンサイト鋼中の分散粒子の粗大化の理由としては、製造過程における酸素分圧や材料中の全酸素量の相違によると考えられる。

・供試材

鋼種：9Cr マルテン系 M92（イットリア 0.30w t %）

12Cr フェライト系 MM0219（イットリア 0.23w t %）

比較材：JLF-1 鋼（9Cr マルテンサイト鋼）

・照射条件

リグ：HFIR-MMB-11J, 12J, 14J

照射温度：300°C, 500°C

損傷量：5dpa

・試験条件及び試験方法

引張速度：0.2mm/min（一定）

試験温度：室温および照射温度

2.2.2 照射後引張特性

ODS 鋼の 300°C および 500°C 照射後の室温における引張試験結果を図 2-5 に示す。低放射化マルテンサイト鋼（JLF-1）鋼については、図 2-6 に示した。JLF-1 鋼は、照射温度が 300°C の場合には降伏応力が增大するとともに伸びが減少する、いわゆる照射脆化を示しめしており、この結果は従来の多くの実験結果と一致している。一方、ODS 鋼の場合は、伸びの減少を伴わない照射硬化という、JLF-1 鋼に比べ全く異なる現象が新たに見出された。フェライト系およびマルテンサイト系のいずれの ODS 鋼においても約 250MPa の顕著な照射硬化が認められるが、硬化に伴う伸びの減少が全く見られない。

これは、従来の金属材料には認められなかった現象であり、ODS 鋼に特徴的な現象であるといえる。ODS 鋼においては、酸化物粒子が転位の運動に対する障害として作用し、その強度を高めることが知られている。JLF-1 鋼では、照射損傷組織が照射後の強度特性を支配するが、それらの損傷組織は塑性変形の進行とともに運動転位に吸収されて後続の運動転位に対する障壁とはならないため、局所的な変形領域、すなわち変形帯が形成され、延性破壊が促進されることによりネッキングが進展し、伸びが低下する。一方、ODS 鋼においては、酸化物粒子が存在するために、先頭の運動転位が照射欠陥を吸収しても酸化物粒子が障害となり転位を捕獲するため、後続の転位に対して運動障害となり、変形帯の形成が抑制されるために、伸びの低下が生じないと考えられる。すなわち、ODS 鋼においては、照射は延性低下を引き起こさずに強度を高めるという好ましい効果を引き起こしている。これは、延性脆性遷移温度に対する照射効果影響を調べることによって確認されよう。

500℃照射の影響については、フェライト系 ODS 鋼においては照射後の軟化が認められるが、マルテンサイト系 ODS 鋼においては照射の影響はほとんど認められない。JLF-1 鋼においては、照射による軟化現象が同様に認められ、この軟化は照射によるマルテンサイト組織の回復に起因するとされている。マルテンサイト系 ODS 鋼において照射軟化が見られなかった理由としては、酸化物粒子がマルテンサイト組織を安定化し、その回復を抑制することによると考えられる。この推察は、先のヘリウム昇温脱離試験結果とも一致している。

照射温度において引張試験した場合の照射硬化を図 2-7 に示す。300℃および 500℃のいずれの温度においても照射は硬化を引き起こしている。照射硬化量はフェライト系 ODS 鋼において小さい値を示している。本実験結果からは、フェライト系 ODS 鋼がより照射硬化を引き起こしにくいと言える。透過電子顕微鏡による組織観察結果は、フェライト系 ODS 鋼中の酸化物粒子のサイズおよび数密度はマルテンサイト鋼に比べ、小さく高いことが判明している。両鋼種の非照射材の降伏応力を比較すると、フェライト系 ODS 鋼の降伏応力はマルテンサイト系 ODS 鋼に比べ、約 250MPa 高い。ODS 鋼の降伏応力のモデル式に従い、分散粒子間隔による降伏応力の違いを見積もると、マルテンサイト系 ODS 鋼の 750MPa に対しフェライト系 ODS 鋼では 940 ないし 1070MPa となり、実験データの 1020MPa に近い値となっており、ODS 鋼の降伏応力が分散粒子間隔に依存していることを示唆している。

2.3 ODS 鋼におけるヘリウム脱離挙動

2.3.1 ヘリウムと欠陥

ヘリウムの昇温脱離測定を行うにあたり、加速器を用いてヘリウム照射を行った。照射エネルギーは 150eV と 8keV である。鉄のはじき出しの敷居エネルギーを 40eV として

Trim Codeによりヘリウムの飛程等を計算した結果を図 2-8 に示す。なお Trim Code は二体衝突のみを考慮しており、おおよその深さ方向の分布を調べるのに妥当である。この図より照射エネルギー150eV の場合空孔は形成されず、表面のごく近傍にしかヘリウムが入っていないのに対し、8keV では最大で 100nm、また 30~60nm 付近に多くのヘリウムが入っているのがわかる。次に図 2-9 に Trim Code の計算による各エネルギーに対するヘリウム量と空孔量(実際は DPA だが、DPA は空孔量に比例するとみなした)の比を表したグラフを示す。このグラフからわかるように、150eV では照射によって空孔が形成されないため、空孔量に対してヘリウム量が多く、8keV では、照射によって空孔が形成されるため、空孔量がヘリウム量に対して多く、He/DPA が 1 以下となる。すなわち今回の実験では、ヘリウムに十分空孔が供給される条件とそうでない条件で実験を行った。

2.3.2 昇温脱離測定

まず初めに各照射量における放出量を表したグラフを図 2-10 に示す。縦軸に放出量、横軸に照射量をどちらも対数で示した。

この図より 10^{20} 以下の照射量に於いては照射されたヘリウムは全て昇温によってすべて放出されているものと考えられる。一方、 10^{21} , 10^{22} では、照射量に対して放出量が 1 桁小さくなっているのが特徴的である。これに関しては後に検討する。照射量に比べて放出量が多くなっている場合があるがこれは、装置内に残留したヘリウムや、照射の際のイオンビームの変動による照射量の誤差が起因するものと考えられる。

2.3.3 150eV-ヘリウム照射

(1) 昇温脱離スペクトル

次に其々の照射量の 150eV で照射した際の昇温脱離スペクトルを図 2-11 から 2-14 に示す。照射量が 10^{17} , 10^{18} , 10^{19} , 10^{20} He⁺/m² の順である。この量を打ち込まれた領域に於けるヘリウム濃度に換算すると、それぞれ、 6×10^{-4} , 10^{-3} , 10^{-2} , 10^{-1} at% と見積られる。このグラフは、縦軸が放出割合(各温度毎の放出量を全放出量で割ったもの)、横軸は温度である。なお 10^{17} 乗のグラフはそのままだと見にくいいため隣接 3 点平均によりスムージングを施してある。また 19 乗, 20 乗に於いては、低温部分のスペクトルが殆ど見えないので低温部分を拡大して図 3-15 に示した。

17 乗においては、試料によるスペクトルの違いは殆ど観察されなかった。このスペクトルの主なピークとして 200°C 付近, 400°C, 900°C 付近, 1100°C 以上が挙げられるが、他の温度域に於いても多かれ少なかれヘリウムの放出は生じている。

次に 18 乗に於いては、100°C, 500°C, 650°C, 900°C, 1100°C 付近にピークが見られる。試料による違いは、JLF-1 のみ 100°C 付近のピークが見られないが、その他は殆ど同じ

スペクトルを示している。

次に 19 乗のグラフであるが、ピークは 100°C, 250°C (JLF-1 のみ), 600°C 付近, 900°C, 1100°C 付近に存在する。2 種類の ODS 鋼のピークには殆ど違いは観察されなかったが、JLF-1 はやや異なるスペクトルを示しており、800°C 以上の高温における二つのピークの内高温側のピークが主体的と成っている。また、この傾向は 10^{18} の時も垣間見られる。

20 乗では低温部分は 19 乗と同じく 100°C, 250°C (JLF-1 のみ) にピークが見られる。また 600°C 付近にもピークが観察されるが、19 乗とは異なり、炉冷材でその放出割合が高くなっている。高温部では、ODS 鋼では 900°C 付近と 1150~1200°C, JLF-1 では 1000°C 付近にピークが観察される。

(2) 各温度域に於けるヘリウム放出割合

本章ではピークが存在する温度域毎に放出割合を示したグラフを図 2-16 から 2-18 に示す。温度域は、~400°C, 400~500°C, 500~600°C, 600~800°C, 800~1000°C, 1000°C~ に分けてある。まずは試料依存性から観察する。図 2-16 の照射量 17 乗のグラフでは、三種類の材料による各温度域の放出割合には殆ど違いは見られない。また 800°C 以上の高温域に於いて 60% 程度が放出されている。次に 18 乗のグラフを見ると、二つの ODS 鋼はほぼ同じ傾向を示している。しかし、JLF-1 は、800°C 以下では他の二種類の材料と違いは見られないが、高温部分では異なる傾向を示し、1000°C 以上の割合が大きく成っている。図 2-17 の 19 乗に於いても 18 乗のものと同じく、800°C 以下では三つの試料で割合に差は殆ど見られないと共に、800 度以上では、JLF-1 のみやや異なる傾向を示す。最後に 20 乗の放出割合であるが、NT 材と JLF-1 はほぼ同じ傾向を示しているが、炉冷材は他の材料と比較して中温域 (500~800°C) における放出割合が高くなっている。

次に試料毎の放出割合の照射量依存性を示したグラフが、図 2-18 である。このグラフより、炉冷材の照射量 20 乗を除いて、照射量の増加と共に 800°C 以上の高温域に於ける放出割合が増加し、高温における放出が主体的となっている事が判る。800~1000°C と 1000°C~ の放出割合には照射量による傾向は見られない。

(3) 各温度域に於けるヘリウムの放出量とその照射量依存性

各温度域に於けるヘリウムの放出量を図 2-19 に示す。縦軸に放出量、横軸に照射量を対数でとってある。温度の分け方は、放出割合のグラフと同じである。

低温域から見ていく。400°C 以下では、三種類の試料共に照射量に対して放出量がほぼ $1/2$ 乗に比例して増加しており、放出量は炉冷材がやや高い値を示している。400-500°C においては、二種類の ODS 鋼においてグラフの傾きが JLF-1 と比較してやや大きくなっている。JLF-1 は $1/2$ 乗よりやや傾きが小さい。このため、高照射量において ODS 鋼の放出量が JLF-1 の放出量より高い。特に炉冷材においてこの傾向が強く見られる。500-600°C と 600~800°C においても同じような傾向が見られ、600~800°C では、

ODS 鋼はほぼ 1 乗に比例して放出量が増加している。800~1000°Cに於いては、NT 材、炉冷材共に 1 乗に比例して放出量が増加しており、JLF-1 より放出量がいぶ高い値を示している。JLF-1 も傾きが増しており、1/2 と 1 乗の間である。1000°C以上では、三つの材料ともほぼ 1 乗に比例して増加している。結果をまとめたものを表 2-5 に示す。

2.3.4 8keV - ヘリウム照射

(1) 昇温脱離スペクトル

本章では、8keV で照射した場合の昇温脱離スペクトルを図 2-20~25 に示す。図 2-20 から順に照射量 10^{17} , 10^{18} , 10^{19} , 10^{20} , 10^{21} , $10^{22}\text{He}^+/\text{m}^2$ のスペクトルである。縦軸は放出割合、横軸は温度である。尚 10^{17} のグラフは 150eV の場合と同じように隣接三点平均によりスムージングを施してある。また 19 乗, 20 乗, 21 乗に於いては、低温部分のスペクトルが殆ど見えないので低温部分を拡大したものを図 2-26 に示す。

17 乗においては、100°C付近に於いて ODS 鋼のみ放出ピークが観察される点を除いて、三つの試料にスペクトルの違いは殆ど観察されない。この 100°Cのピークは、他の照射量においても ODS 鋼のみで観察されている。その他の主なピークは、800°C以上の領域でだらだらと放出している。低温部分に於いても放出されているが、それぞれの割合が小さいため、同定が困難である。

次に 18 乗であるが、先程述べた ODS 鋼のみで観察される 100°Cのピーク以外の温度域では、三つの試料で違いは殆ど無く、200~300°C, 400°C, 550°C, 800°C, 1050°C付近にピークが見られる。ただ、JLF-1 のみ 860°C付近に比較的大きなピークが存在する。

照射量 19 乗に於いては、これまでと異なり NT 材と炉冷材のスペクトルにやや違いが観察される。ピーク位置は、NT 材は 100°C, 400°C, 550°C, 800°C, 1100°Cであるが、炉冷材は 100°C, 500°C, 650°C, 900°C, 1100°C付近にピークが観察された。また JLF-1 は 250°C, 600°C付近, 900°C, 1100°Cにおいてピークが観察された。ただし低温部分のピークは非常に小さく高温における放出が主体的である。この傾向は、20 乗, 21 乗においても同じことが言える。

次に 20 乗のスペクトルについて述べる。この照射量では、NT 材と炉冷材のスペクトルに殆ど違いは無い。ODS 鋼のピーク位置は、100°C, 400~600°C, 900°C, 1150°Cに存在する。また NT 材は 800°C付近にもピークがある。JLF-1 は、300°C, 600°C付近, 900°C, 1050°Cに放出ピークが存在する。

続いて 21 乗であるが、9Cr-ODS (NT 材, 炉冷材) では 100°C, 850°Cにはっきりとしたピークが見られるが、その他にも 400~600°Cや 1000°C付近において放出している。また 12Cr-ODS では、800 以下の低温部のスペクトルは 9Cr のものと変わらないが、それ以上の温度域では、1100°Cにピークが見られる。JLF-1 では、300~600°Cにかけてだらだらと放出しており高温部では 1050°C付近にピークが存在する。

最後に 22 乗であるが、之はこれまでと異なり全ての試料で低温域に放出ピークが存

在し、その割合も高い。ピーク温度は100℃、250℃(炉冷材のみ)、400℃、と1000℃以上の高温域に存在する。

(2)各温度域に於けるヘリウム放出割合

次に150eVの場合と同じように温度域毎に分けて放出割合を示したグラフを図2-27～2-29に示す。温度域は、150eVの場合と同じである。

まず17乗のグラフから見ていく。17乗ではNT材で400℃以下の放出割合がやや大きいが、その他の点は三つの試料とも同じような傾向を示している。800℃以上の高温域からの放出が主体的であり全体の60%強を占めている。次に18乗であるが、二つのODS鋼に殆ど違いは観察されない。JLF-1は400℃以下の割合が他の二種類と比較して低くその分1000℃以上の放出割合が高くなっている。中間の温度域は他の二種と殆ど違いは見られない。この照射量でも800℃以上の高温域での放出が60%以上を占めている。続いて19乗のグラフであるが、二種類のODS鋼では、600～800℃の温度域でやや違いが見られるが後はほぼ同じ傾向を示している。一方JLF-1は1000℃以上における放出割合が非常に高くなっており全体の90%程度を占めている。20乗の場合は、三種類とも800℃以下の放出割合は非常に小さく、いずれも10%以下である。また、ODS鋼では800～1000℃の領域の放出割合が比較的高いのに比べてJLF-1では殆ど1000℃以上の温度域で放出している。最後の21乗のグラフでは、20乗の場合と同じように800℃以下の温度域における放出割合は非常に小さく5%程度である。またNT材と炉冷材、特に炉冷材では800～1000℃の温度域の放出割合が高いのに比べて、JLF-1とFC材、特にFC材では1000℃以上の温度域での放出割合が高い。22乗は、これまでとの照射量のものとはまったく異なっており、四種類全ての試料で低温部分から放出が主体的となっており、全ての試料で少なくとも70%が500℃以下の温度域で放出されている。特に400℃以下の放出割合が高い。

続いて、各試料の放出割合の照射量依存性について述べる(図2-30, 2-31)。

NT材では、21乗までは照射量の増加と共に800℃以下の放出割合は減少している。また1000℃以上の温度域からの放出も20乗を除いて照射量の増加と共に増加している。22乗では先程も述べたように500℃以下の低温域における放出が主体的となっている。炉冷材に於いても、18乗で800℃以下の放出割合が高くなっている点を除いてNT材と同じ傾向を示し、照射量の増加と共に800℃以下の放出量は低下している。次にJLF-1であるが、前の二種類と同じように800℃以下の放出割合は照射量の増加とに従って低下している。前の二種類の試料と異なる点は、1000℃以上の放出割合が高い事であり、特に19乗～21乗では90%近くがこの温度域から放出されている。

(3)各温度域に於けるヘリウム放出量

ここでは、各温度域に於けるヘリウムの放出量について述べる。図2-32はNT材、炉冷材、JLF-1の各温度域におけるヘリウム放出量を示したグラフである。縦軸にヘリウ

ム放出量、横軸にヘリウム照射量を何れも常用対数で示している。22 乗照射したものはそれまでの照射量のものと比較して明らかに異なる傾向を示しているのでこのグラフからは省いてある。また 21 乗のデータも照射量に対して放出量が一桁小さいのでこのグラフからは省く。尚、三本の点線は、傾きの緩やかな方から (10^{15} , 10^{15}) を通る 1/2 乗, 1 乗, 2 乗の直線である。

まずは 400°C 以下のグラフであるが、三つの試料に殆ど違いは見られず、照射量の 1/2 乗に比例して放出量が増加している。400~500°C に於いても 400°C 以下と傾向は変わらず、三つの試料に違いは見られず、1/2 乗に比例して増加している。500~600°C に於いても上の二つの温度域と同じ傾向を示している。次に中段右図の 600~800°C の温度域であるが、この温度域では JLF-1 は低温域と同じく 1/2 乗に比例して増加しているが、ODS 鋼はやや傾きが増加しており、高照射量において放出量が JLF-1 より多くなっている。800~1000°C の温度域では、600~800°C で見られた傾向が強まり、ODS 鋼では 1~2 乗に比例して増加しており、高照射量では ODS 鋼の放出量が JLF-1 の放出量よりかなり高くなっている。最後に 1000°C 以上であるが、この温度域では 3 つ試料ともほぼ 1 乗に比例して放出量が増加している。また照射量によらず JLF-1 の放出量が ODS 鋼の放出量を上回っている。

8keV 照射の結果をまとめたものを表 2-6 に示す。

2.3.5 ヘリウム脱離挙動

(1) ODS 鋼におけるヘリウムの脱離ピーク

9Cr-ODS 鋼のヘリウム脱離ピーク温度に着目すると、炉冷材および NT 材のいずれにおいても 1200°C までの昇温中に 5 つの放出ピークが存在している。これまでの鉄鋼材料のヘリウム昇温脱離研究からは、温度の低い方から peak-A から E とすると、以下のような解釈が可能である。

peak-A (100°C) : 表面からの脱離 (物理吸着ヘリウム)

peak-B (500°C) : 空孔 - ヘリウム対からの脱離

peak-C (800°C) : マルテンサイト組織からの脱離

peak-D (900°C) : α - γ 変態に伴う脱離

peak-E (1100°C) : He バブル移動に伴う脱離

Peak-C は、純鉄や低放射化フェライト鋼においては明瞭に現われてこないため、ODS 鋼に特有のピークであると考えられるが、12Cr-ODS 鋼においてはこれまでのところ明瞭なピークが認められていない。

(2) ODS 鋼と JLF-1 鋼におけるヘリウム放出挙動の比較

9%CrODS 鋼と JLF-1 (9%Cr) 鋼のヘリウム注入後脱離スペクトルおよび各温度域における放出割合をそれぞれ、図 2-32 および 2-33 に示す。図 2-32 は、左から順に照射量

10^{18} , 10^{19} , $10^{20}\text{He}^+/\text{m}^2$ の脱離スペクトルである。照射温度は室温であり、ヘリウムイオンのエネルギーは 8keV である。縦軸は放出割合、横軸は温度である。

まず、2 種類の ODS 鋼間の放出挙動については、放出温度に若干の差が見られるのみで、ヘリウム放出挙動に顕著な差は認められない。個々の放出ピークの解釈は、昨年度の報告書に記載したとおりであり、ここでは、JLF-1 鋼との相違に着目する。600°C 以下の低温側における放出は、単一空孔や転位に捕獲されたヘリウムの放出と考えられているが、全放出量に対する割合は、図 2-34 に示すように小さい。特に、ヘリウム注入量が 10^{19} 乗台以上では 800°C 以上におけるヘリウムの放出割合は、ODS 鋼では 80% 以上、JLF-1 鋼では 90% 以上にも及んでいる。

マルテンサイト系 ODS 鋼と JLF-1 鋼のヘリウム放出挙動における顕著な相違は、800°C 以上の高温域においてみられ、ODS 鋼では 800°C から 1000°C にかけてのヘリウム放出割合が 70% に及ぶ場合があるが JLF-1 鋼においては、5% から 10% と極めて小さい。

ODS 鋼（フェライト系およびマルテンサイト系）と JLF-1 鋼のヘリウム脱離挙動の相違を理解するため、スペクトルを模式的に示すと図 2-35 のようになる。各温度域におけるヘリウム脱離機構を模式図中に示す。前述したように、マルテンサイト系 ODS 鋼と JLF-1 鋼間での相違は 800°C から 1000°C にかけて顕著である。一方、ODS 鋼でもフェライト系では、JLF-1 鋼のスペクトルに近づく。マルテンサイト系 ODS 鋼に於いては、この温度域においてヘリウム放出を生じるためのヘリウム捕獲サイトが存在することを示している。酸化物分散粒子とマトリックス界面は有効な捕獲サイトになりうることが想定されるが、フェライト系 ODS 鋼ではこの温度域におけるヘリウム放出が顕著ではないことから、酸化物分散粒子が直接的なヘリウム捕獲サイトでは無いことを示唆している。9Cr-ODS 鋼と JLF-1 鋼に共通な組織としては、いずれもマルテンサイト組織（ラス境界、パケット境界、高密度転位および炭化物）を含んでいることである。JLF-1 鋼のマルテンサイト組織は、650°C 以上においてはラス境界が消失したり転位密度が低下するいわゆるマルテンサイトの回復現象の生じることが知られている。JLF-1 鋼の 600°C から 800°C にかけて生じるヘリウム脱離は、マルテンサイト組織の回復に伴うものであることが伺えられる。800°C から 1000°C にかけてはヘリウム脱離が生じない。これは α/γ 変態に伴うマルテンサイト組織の崩壊によると考えられる。 γ 域において温度が上昇し、1000°C 以上になると最大放出量を示すヘリウム脱離が生じる。この温度域における脱離ピークはいずれの鋼においても観察されており、成長したヘリウムバブルの移動に伴う大量脱離と考えられている。

一方、同じマルテンサイト組織を有するマルテンサイト系 ODS 鋼においては、800°C から 1000°C にかけてもヘリウムの脱離が生じている。これは、酸化物分散粒子が α/γ 変態を抑制し、さらにマルテンサイト組織の回復を抑制したことによると推察される。実際、 α/γ 変態点は JLF-1 鋼に比べ約 40°C 上昇していることが判明している。また、この ODS 鋼におけるマルテンサイト組織の安定性は、後述する中性子照射効果の実験結果から明らかである。

(3) He 注入エネルギー依存性

ヘリウム注入エネルギーが 150eV と 8keV の場合とでの大きな相違は、注入深さと弾き出し損傷の有無であり、注入深さは Trim コード計算によるとそれぞれ 10 および 100nm である。図 2-36 に、その状況を模式的に示す。150eV では、ヘリウム注入に伴う照射欠陥の導入はない。すなわち、表面から深さ 10nm の範囲に最大 60%のヘリウムが存在する。一方、8keV 照射の場合は深さ約 100nm の範囲にヘリウムが最大 6% 存在し、損傷欠陥（空孔）数もヘリウムとほぼ同程度が生き残るとされている。このような状況の下でのヘリウム脱離挙動を比較したスペクトルを図 2-37 に示す。この図から明らかなように、両者間の相違はほとんど見られない。すなわち、見かけ上、照射欠陥すなわち空孔の存在はヘリウムの脱離挙動にほとんど影響を与えない。

一方、特に高温では熱平衡空孔の存在を検討する必要があるため、その影響について定量的な考察を加える。

BCC 鉄中の熱平衡空孔濃度を図 2-37 右図に示した。800°Cにおける熱平衡空孔濃度は、空孔の形成エネルギーを 1.7eV とすると、 10^{19} 乗のヘリウム照射時のヘリウム濃度に比べても、約 4 桁低い値である。すなわち、ヘリウム脱離挙動に対して大きな影響を与えるとは考えにくい。しかし、空孔の形成エネルギーを 1eV とすると、空孔濃度は顕著に増大し、注入ヘリウム量にほぼ等しい値に達する。ヘリウムの挙動が空孔の強い影響を受けることはヘリウムと空孔および空孔・ヘリウム集合体の相互作用に関わる MD 計算結果から明らかである。すなわち、150eV でのヘリウム照射により試料表面領域（10nm）に高濃度ヘリウム領域が形成され、その領域における空孔の形成エネルギーが著しく低下し、空孔濃度が上昇したと考えることができる。

(4)ヘリウム捕獲に及ぼす転位の影響

ODS 鋼や 9Cr 実用鋼の優れた耐照射性およびヘリウム脆化特性を担っていると考えられる転位の格子欠陥及びヘリウムに対する捕獲効果を明らかにするため、イオン加速器を用いてヘリウム単独およびヘリウムと欠陥の同時注入を行い、その後の昇温に伴うヘリウムの放出挙動に及ぼす転位の影響を調べた。表 2-7 は、実験に用いた試料の条件であり、冷間加工により、試料中に転位及び空孔を導入した（CW 材）後、それぞれの条件で焼鈍し、転位密度を変えてある。転位組織を写真 2-7 に示す。転位密度の上昇による加工硬化を評価するため、硬度測定を行った結果が示した。また、陽電子消滅試験を行い、空孔の存在を確認した結果、冷間加工材には空孔の存在すること、および焼鈍材にはいずれの条件下においても空孔がほとんど存在しないことが判明している。転位密度は、表の上から順に低下している。

これらの試料に、弾き出し損傷の生じない 150eV-He を注入した後、1 K/sec の速度で昇温した場合のヘリウムの脱離スペクトルの 1 例を図 2-38 に示す。転位密度依存性が顕著に発現している温度域を示した。ほぼ 550°C 付近に顕著な脱離ピークが見られ、ピーク高さは転位密度の上昇につれて高くなっていることから、このピークは、

転位にトラップされたヘリウムが放出される過程に相当していると考えられる。また、このピークは、空孔などの欠陥が同時に注入される 8keVHe 注入時においても同様に見られることから、転位は、照射欠陥が存在する場合においてもヘリウムの有効なトラップサイトとなることが判明した。すなわち、弾き出し損傷とヘリウム生成の生じる核融合炉環境下におけるヘリウムの挙動を論じる場合には、フェライト鋼中のマルテンサイト組織に含まれる高密度の転位による捕獲効果を考慮する必要がある。また、当然のことながらこの捕獲効果の限界、すなわち転位によるヘリウム捕獲の飽和量に関する調査が必要であり、粒界ヘリウム脆化を引き起こす臨界の粒界ヘリウム量と密接に関係すると考えられる（表 2-8 参照）。

(5)ヘリウムバブル形成の MD 計算

ODS 鋼のヘリウム脱離スペクトルのうち、600 から 800°C にかけての放出は種々のサイズのヘリウムバブルからのヘリウムの脱離によるものと考えられる。また、1,100°C に大きなピークが存在するが、これはヘリウムバブル移動に伴う脱離現象と考えられる。これらの挙動は、純鉄や JLF-1 鋼にも共通して観察されるものであり、ヘリウムバブルとヘリウム原子や空孔の相互作用、すなわち、結合力を分子動力学手法に基づき、導出した。

計算に用いた原子間ポテンシャルを以下に列挙する。

- ・ Fe-Fe: Ackland Finnis-Sinclair type N-body potential
- ・ He-He: ZBL-Beck potential
- ・ Fe-He: Wilson & Johnson potential

また、計算実施の際の条件として、

- 1) Parrinello-Rahman 圧力制御
- 2) 周期的境界条件
- 3) 計算に含まれる原子数 : 10ax10ax10a (2000atoms)

計算により求めたパラメーター

- ・ He_nV_n クラスターの形成エネルギー
- ・ He_nV_n クラスターにおけるヘリウムの結合エネルギー
- ・ He_nV_n クラスターにおける空孔の結合エネルギー

図 2-39 は、MD 計算による空孔集合体における空孔数とヘリウム - 空孔クラスター形成エネルギーの関係を示している。この計算結果によると、He-V クラスターの形成エネルギーはそのサイズに関わらず、He/V の値が 1 の時に最小になり、ヘリウムの数が空孔より大きくなると形成エネルギーは増大し、逆に小さくなるとヘリウムの無い空孔集合体の値に漸近する傾向が見られる。

次に、これらのクラスターとヘリウムあるいは空孔の結合エネルギーを計算した結

果を図 2-40 に示す。横軸は、He/V の値であり、縦軸は結合エネルギーである。まず、空孔の結合エネルギー（◆）に着目すると、He/V の増大につれて上昇し、特に 1 以上では顕著な増加を示す。一方、He の結合エネルギー（□）は、He/V の増大につれて低下する。注目したいのは、結合エネルギーの大きさで、最低でも 2eV の値を示していることであり、ヘリウム原子は空孔にきわめて強く捕獲されていることを示している。したがって、一端 He-V クラスタが形成されるとヘリウムの脱離はかなりの高温（600°C 程度）になるまで生じないことが予想される。一方、転位に捕獲されたヘリウムは 550°C 前後において脱離する。550°C から 800°C にかけては、ヘリウムクラスタからの脱離が生じると考えられる。また、マルテンサイト系 ODS 鋼や JLF-1 鋼は転位の他に、ラス境界、ポケット境界、炭化物などのマルテンサイト組織を有しており、ODS 鋼の場合はそれらに酸化粒子が加わる。JLF-1 鋼の 600 から 850°C にかけて、および ODS 鋼の 600 から 1,000°C にかけてのヘリウム脱離スペクトルは、マルテンサイト組織の回復に伴って、ラス境界やポケット境界に捕獲されたヘリウムが脱離したものと考えるのが妥当である。ODS 鋼のマルテンサイト組織からの脱離が高温側まで続く理由については、既に考察したとおりである。

2.4 2重イオンビーム照射実験

2.4.1 照射装置

図 2-41 は、核融合環境を模擬するための重イオンとヘリウムイオンを同時に照射する装置である。重イオンとしては、鉄イオン (6.4 MeV Fe³⁺) を用いている。ヘリウムイオン (1.0 MeV He⁺) は、Degradar を用いて、照射量の均一化を行っている。He/dpa は、15 appm He/dpa、Flux は 1×10^{-3} dpa/s (深さ 850nm)、照射量は 40-90 dpa、照射温度は 703 K, 743 K, 823 K とした。現在、ODS 鋼を対象とした 200 dpa を目指した照射実験を継続している。

図 2-42 に、本実験条件での TRIM 計算によるヘリウムとはじき出し損傷量の深さ方向分布を示す。Dual 領域がいわゆる 2重ビーム照射領域に相当する。

用いた材料は、マルテンサイト系 ODS 鋼 (93M) およびフェライト系 ODS 鋼 (95M)、および比較のための JLF-1 鋼である。

2.4.2 ボイドスエリングに及ぼすヘリウムの影響

写真 2-8 は、比較材である JLF-1 鋼にシングルビーム (左) および 2重ビーム照射 (右) した場合のボイドスエリングを示している。シングルビーム照射に比べ、2重ビーム照射の場合はボイドスエリングの大きいことがわかる。図 2-43 は、スエリングの照射量依存性である。中性子照射材に比べスエリングが顕著になっているが、スエリング速度に大きな差は見受けられない。

3. 研究成果のまとめ

3.1 ODS 鋼の微細組織

フェライト系およびマルテンサイト系 ODS 鋼中の酸化物分散粒子のサイズは、直径が 2-8nm であり、粒子間距離は数十 nm である。当該鋼における強度特性評価は、粒子間距離に密接に関係している。本実験で用いた ODS 鋼では、フェライト系 ODS 鋼の酸化物分散粒子のほうが細かく、高密度に分散しており、強度が高い結果となっている。

3.2 耐中性子照射脆化

3.2.1 照射硬化挙動

ODS 鋼の照射硬化量は、JLF-1 鋼に比べ小さく(表 2-9 参照)、照射硬化・脆化を生じにくい。注目すべき点は、従来の金属材料のほとんどが照射硬化に伴い、伸びが顕著に減少することが判明しているが、ODS 鋼においては伸びの低下がほとんど生じていない。すなわち、照射が材料の延性を損なわず、さらに高強度化をもたらすという、きわめて珍しい現象が確認された。今回の実験では、最大照射量が 20dpa であり、200dpa の照射量における挙動が課題となっているが、従来のデータは比較的相変化を起こしやすい材料においても照射硬化が 10dpa 程度で飽和することを示しており、相変化の起こしにくい ODS 鋼においては、100dpa を超える照射量で顕著な硬化に転ずることは考えにくいとするのは妥当であろう。

3.2.2 照射軟化挙動

通常フェライト鋼においては、照射温度が 400℃を超えると、照射の影響は照射硬化から照射軟化に転じ、500℃においては顕著な軟化を生じるのに対し、ODS 鋼における軟化は小さい。これは、酸化物分散粒子がマルテンサイト組織を熱的に安定化するためと考えられる。また、たとえマルテンサイト組織の回復が生じたとしても強度特性の主要な支配因子が酸化物分散粒子であるならば、顕著な軟化現象は生じないと考えられる。

以上のように、ODS 鋼は極めて耐照射性能に優れており、照射環境が今後ますます厳しくなる先進原子炉においては、その利用価値がさらに大きくなると予想される。本研究では、加速器を用いての重照射研究が可能であったが、延性評価にはやはり中性子照射によるバルク材での評価が不可欠である。

3.3 耐ヘリウム脆化

3.3.1 酸化物分散粒子の役割

中性子照射硬化やヘリウム脱離挙動の実験結果は、ODS 鋼中の分散粒子とマトリックス界面は、照射欠陥やヘリウムの集合場所には適さないことを示唆している。これは、酸化物分散粒子界面が照射損傷の形成場所になりにくく、破壊の起点になる可能性が小さいことを意味している。一方、酸化物分散粒子は、マルテンサイト組織を安定化することにより、材料の相安定性を高めることに貢献していると考えられる。

3.3.2 ヘリウム脆化査定

低放射化フェライト鋼が核融合炉ブランケット第1候補構造材料とされている理由は、当該鋼が有するマルテンサイト組織が照射欠陥やヘリウムを吸収してそれが集合・成長することによって形成される照射損傷組織の発達を抑制することが知られているためである。酸化物分散粒子は、マルテンサイト組織を安定化することによりこれらの効果がより高温まで機能するように振舞うため、ODS 鋼においては、さらにヘリウム脆化は生じにくくなると予想される。

4. 結言

高速増殖炉燃料被覆管材料として開発研究が行われている酸化物分散強化 (ODS) 鋼の耐照射性能の確証試験およびその機構解明を目的とした研究を行い、以下のことが判明した。

- 1) マルテンサイト系 ODS 鋼は、極めて耐中性子照射性能に優れており、照射に伴う強度の上昇が延性の低下を招かないという、従来の金属材料には観察されなかった現象が見出した。
- 2) 照射下における鋼組織の回復が酸化物分散粒子により抑制されるため、優れた高温強度特性が照射下においても維持されることを明らかにした。
- 3) ODS 鋼においては、マルテンサイト組織の回復が遅滞し、ヘリウムバブルの成長が抑制されることを明らかにした。

JNC-ODS 鋼は、耐照射性能及び耐ヘリウム脆性に優れており、高速炉燃料被覆管や核融合炉ブランケット構造材料として極めて有望な材料であると考えられる。

5. あとがき

イオン照射による実験は、現在（平成 15 年 5 月 9 日現在）20dpa まで終了しているが、当初の計画の 200dpa には及ばない。これは、研究期間中に放射性物質の管理にかかわる法改正が行われ、京都大学エネルギー工学研究所の照射施設を管理区域とする必要性が指摘され、その許可を受けるため、照射実験が 1 年間できなかつたことによるものである。契約期間は平成 14 年度で終了するが、今後、さらに研究を継続し、200dpa 照射データを取得する。

参考文献

- 1) A. Kimura, M. Narui, T. Misawa, H. Matsui and A. Kohyama, "Dependence of Impact Properties on Irradiation temperature in Reduced Activation Martensitic steels", J. Nucl. Mater., 258-263 (1998), pp1340-1344.
- 2) A. Kohyama, Y. Kohno, M. Kuroda, A. Kimura, F. Wan, "Production of Low Activation Steel: JLF-1, Large Heats- Current Status and Future Plan", J. Nucl. Mater., 258-263 (1998), pp1319-1323.
- 3) A. Kimura, R. Kasada, M. Yamamoto, T. Morimura and A. Koya, "Factors Controlling Kinetics of Hydrogen Embrittlement of Intermetallic Compounds", Proc. of ECOMAP'98, 1998, pp347-350
- 4) R. Kasada, A. Kimura, H. Matsui, M. Hasegawa and M. Narui, "Effects of Varying Temperature Irradiation on the Neutron Irradiation Hardening of Reduced Activation 9Cr-2W Martensitic Steels", J. Nucl. Mater., 271-272(1999)360
- 5) R.L. Klueh, D.S. Gelles, S. Jitsukawa, A. Kimura, G.R. Odette, B. van der Schaaf and M. Victoria, "Ferritic/Martensitic Steels – Overview of Recent Results", J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 455-465.
- 6) S. Jitsukawa, M. Tamura, B. van der Schaaf, R.L. Kleuh, A. Alamo, C. Petersen, M. Schirra, P. Spaetig, G.R. Odette, A.A. Tavassoli, K. Shiba, A. Kohyama and A. Kimura, "Development of an Extensive Database of Mechanical and Physical Properties for Reduced-Activation Martensitic Steel F82H", J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 179-186.
- 7) Kasada, R., Kimura, A., Matsui, H., and Narui, M., "Enhancement of Irradiation Hardening by Nickel Addition in the Reduced-Activation 9Cr-2W Martensitic Steel," *Journal of Nuclear Materials*, vols. 258-263, 1998, pp. 1199-1203.
- 8) A. Kimura, R. Kasada, K. Morishita, R. Sugano, A. Hasegawa, K. Abe, T. Yamamoto, H. Matsui, N. Yoshida, B.D. Wirth and T.D. Rubia, "High Resistance to Helium Embrittlement in Reduced Activation Martensitic Steels", J. Nucl. Mater. 307-311

- (2002) 521-526.
- 9) Kimura, A., Gelles, D. S., Kohyama, A., and Puigh, R. J., "Dimensional Changes and Microstructure of In-Pile Crept Ferritic-Martensitic Steel," *Materials Transactions, JIM*, vol. 34, No. 11, 1993, pp. 1075.
 - 10) Rieth, M., Dafferner, B., and Rohrig, H. D., "Embrittlement Behavior of Different International Low Activation Alloys after Neutron Irradiation", *Journal of Nuclear Materials*, vols. 258-263, 1998, pp. 1147.
 - 11) Klueh, R. L., and Maziasz, P.J., "Effect of Irradiation in HFIR on Tensile Properties of Cr-Mo Steels," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 187, 1992, pp. 43-54.
 - 12) A. Kimura, R. Kasada, R. Sugano, A. Hasegawa and H. Matsui, "Annealing behavior of irradiation hardening and microstructure in helium-implanted reduced activation martensitic steel", *J. Nucl. Mater.*, 283-287 (2000) 827
 - 13) R. Sugano, K. Morishita, H. Iwakiri and N. Yoshida, "Effects of Dislocation on Thermal Helium Desorption from Iron and Ferritic Steel", *J. Nucl. Mater.* 307-311 (2002) 941-945.
 - 14) R. Kasada, A. Kimura, T. Morimura, A. Hasegawa, "Assessment of Helium Embrittlement of Reduced-Activation 9Cr Martensitic Steels", *Proc. of ECOMAP'98*, 1998, pp625-628
 - 15) S.Ukai, T.Nishida, H.Okada, T.Okuda, M.Fujiwara and K.Asabe, "Development of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels for FBR Core Application (I) Improvement of Mechanical Properties by Recrystallization Processing" *J.Nucl.Scie. and Technol.*, Vol.34, No.3, P.256, 1997
 - 16) S.Ukai, T.Nishida, T.Okuda and T.Yoshitake, "Development of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels for FBR Core Application (II) Morphology Improvement by Martensite Transformation" *J.Nucl.Scie. and Technol.*, Vol.35, No.4, P.294, 1998
 - 17) S.Ukai, T.Nishida, T.Okuda and T.Yoshitake, "R&D of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic-Martensitic Steels for FBR" *J.Nucl.Mater.*, 258-263(1998)1745
 - 18) S.Ukai, T.Yoshitake, S.Mizuta, Y.Matsudaira, S.Hagi and T.Kobayashi "Preliminary Tube Manufacturing of ODS Ferritic Steels with Recrystallized Structure" *J.Nucl.Scie. and Technol.*, Vol.36, No.8, P.710, 1999
 - 19) S.Ukai, S.Mizuta, T.Yoshitake, T.Okuda, S.Hagi, M.Fujiwara and T.Kobayashi "Tube Manufacturing and Characterization of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels, *J.Nucl.Mater.*, 283-287(2000)

表 2-1 ODS 鋼の化学成分 (wt.%)

鋼種	C	Si	Mn	P	Ni	Cr	Ti	W	Y ₂ O ₃	Ex.O	N	Ar
M93	0.12	0.02	0.036	0.003	0.022	8.99	0.20	1.94	0.35	0.06	0.01	0.0033
F94	0.058	0.03	0.049	0.004	0.025	11.78	0.30	1.93	0.24	0.04	0.01	0.0003
F95	0.056	0.03	0.048	0.003	0.025	11.72	0.31	1.92	0.24	0.04	0.01	0.0038

表 2-2 観察試料の照射条件

鋼種	試料 No.	照射温度(°C)	高速中性子照射量 ($\times 10^{26}n/m^2$)
M93	L7M1T	397	0.5
	L7M2T	454	2.8
	L7M3T	497	3.0
	L7M4T	515	2.5
	L7M5T	534	1.4
F94	L7F1T	397	0.5
	L7F2T	454	2.8
	L7F3T	497	3.0
	L7F4T	515	2.5
	L7F5T	534	1.4
F95	L7F1AT	397	0.5
	L7F2AT	454	2.8
	L7F3AT	497	3.0
	L7F4AT	515	2.5
	L7F5AT	534	1.4

表2-3 ODS鋼被覆管(M93、F95)の照射条件およびリング引張試験条件

照射試験	照射量*	照射温度、℃	装荷試験片
「常陽」SVIR-1	0.5~3.0	397~534	・リング引張試験片 ・スエリング試験片(TEM組織観察用)

*) $\times 10^{26}$ n/m²(E>0.1MeV)

リング引張試験

試験温度; 400、450、500、550℃

引張速度; 0.1mm/min 一定

表 2-4 透過型電子顕微鏡観察結果

	母相組織	結晶粒径	分散粒子の粒径	粒子間平均距離
FC材	フェライト	短軸径: 3~10 μ m 長軸径: 10~50 μ m	2~5nm	21nm
NT材	マルテンサイト	3 μ m	3~4nm	30nm
炉冷材	マルテンサイト	6 μ m	3~8nm	25nm

表 2-5 150eV照射のまとめ

	ピーク温度(℃)	放出割合の照射量依存性	放出量の照射量依存性
NT材	100, 400, 500, 600, 900, 1100	・照射量の増加と共に 800℃以上の高温域の放出 が主体的に(20乗では 90%)	・低温域では照射量の1/2乗に 比例し温度が上昇すると傾き が増加(800℃以上は1乗に比 例)
炉冷材	NT材と同じ	・NT材と同じ傾向 ・20乗のみ500~800℃の 割合が高い	・傾向はNT材と同じだが、 800℃以下では放出量はNT材 より大きい
JLF-1	250, 450, 600, 900, 1050	・800℃以下はODS鋼と同じ傾向 ・1000℃以上の割合が高い	・400℃以下と1000℃以上では ODS鋼と同じ傾向だが、その 他の温度域は傾きが小さい

表 2-6 8keV 照射のまとめ

	ピーク温度(°C)	放出割合の照射量依存性	放出量の照射量依存性
NT 材	100, 400, 500 ~600, 850 付 近 1100	・照射量の増加と共に 800°C 以下の放出割合低下 ・22 乗では 500°C 以下の放出割合高	・600°C 以下では照射量に対して凡そ 1/2 乗に比例して増加 ・600°C 以上は傾きが増加
炉 冷 材	NT 材とほぼ同 じ	・NT 材と同じ傾向	・NT と同じ傾向
JLF-1	250, 600 付近, 900, 1050	・800°C 以下は ODS 鋼と同じ傾向 ・1000°C 以上の割合が高い(19 乗以上では 90% 程度)	・600°C 以下では ODS 鋼と同じ傾向 ・600~1000°C において傾きが ODS 鋼より小さい
FC 材	100, 400, 500 ~600, 1100	・21 乗では 1000°C 以上の割合が大半(90% 以上) ・22 乗では 500°C 以下の放出割合高	・データ不足のため言及できず

表 2-7 転位密度の異なる 4 種類の純鉄

	Vickers hardness	Positron lifetime (psec)
CW (cold worked)	180	148
PR1 (anneal: 400°C, 2h)	110	—
PR-2 (anneal: 600°C, 12h)	74	110
FA (anneal: 800°C, 2h)	62	110

表 2-8 マルテンサイト組織中のヘリウム捕獲数量の見積もり

Defect Structures	Characteristic Numbers		Trap Site	He
			Lattice Site	Trap Site
Grain Boundaries	Grain Size	30 μm	≈10ppm	1~3
Lath Boundaries	Lath Size	3 μm	≈100ppm	1~3
Dislocations	Density	$3 \times 10^{17}/m^2$	≈1000ppm	1~3
Precipitates	-	-	-	1~3
V-clusters	Density Average Size	$3 \times 10^{21}/m^3$ 2 nm	500ppm	1~300
Total	-	-	1610ppm	1610~ 18330ppm

He/Trap site Ratio (Binding Energy)

---- enrichment (increase in the trapping capacity)

---- temperature dependent

表 2-9 ODS 鋼と JLF-1 (RAFS) 鋼における照射硬化挙動の比較

Reactor	Irr. Temp dpa		ODS		RAFS	
			9Cr-ODS	12Cr-ODS	9Cr	8Cr
HFIR*1	573K 2.7dpa	Hardening (MPa)	220	150-200	230	550
		Embrittlement	none	none	1/3	1/4
	773K 2.7dpa	Hardening (MPa)	none	- 80	- 40	-
		Embrittlement	none	none	small	-
JOYO FFTF HFIR*2	673K 15dpa	Hardening (MPa)	50	none	50	50
		Embrittlement	none	none	none	none
	773K 15dpa	Hardening (MPa)	50	Softening?	- 100	-80
		Embrittlement	none	none	none	none

HFIR*1: tensile test at RT

JOYO, FFTF, HFIR*2: tensile test at irradiation temperature

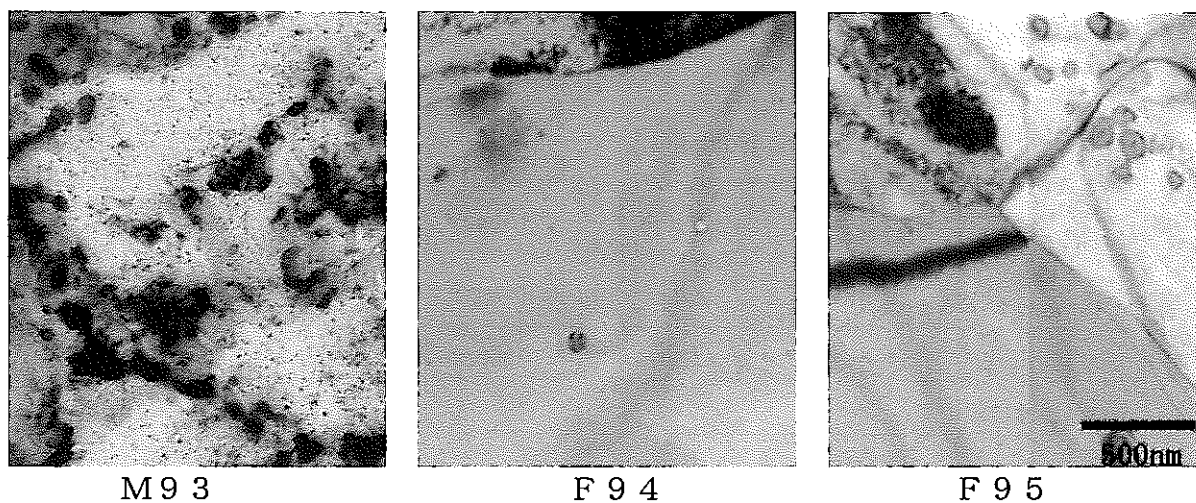


写真 2-1 各供試材の照射前組織(低倍)

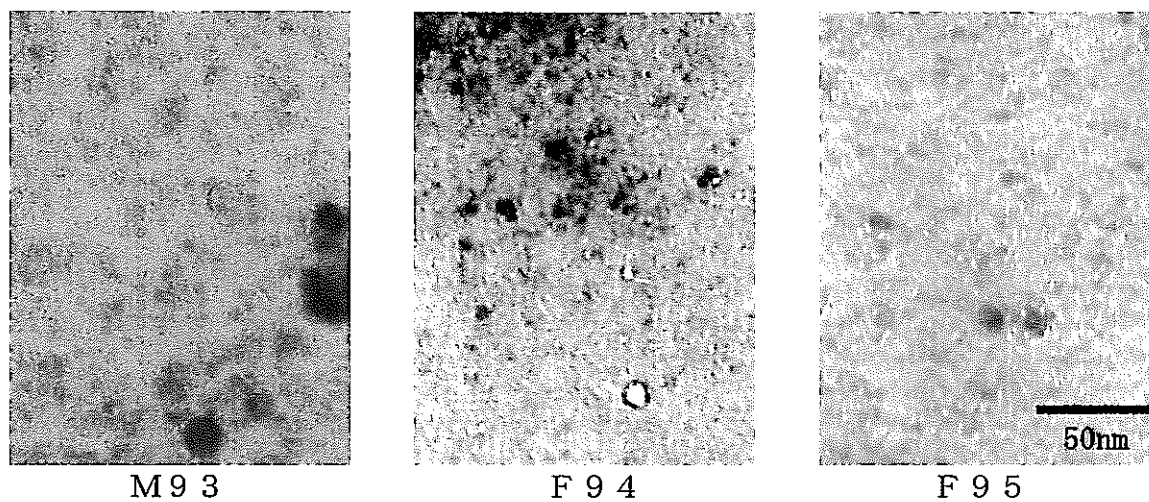
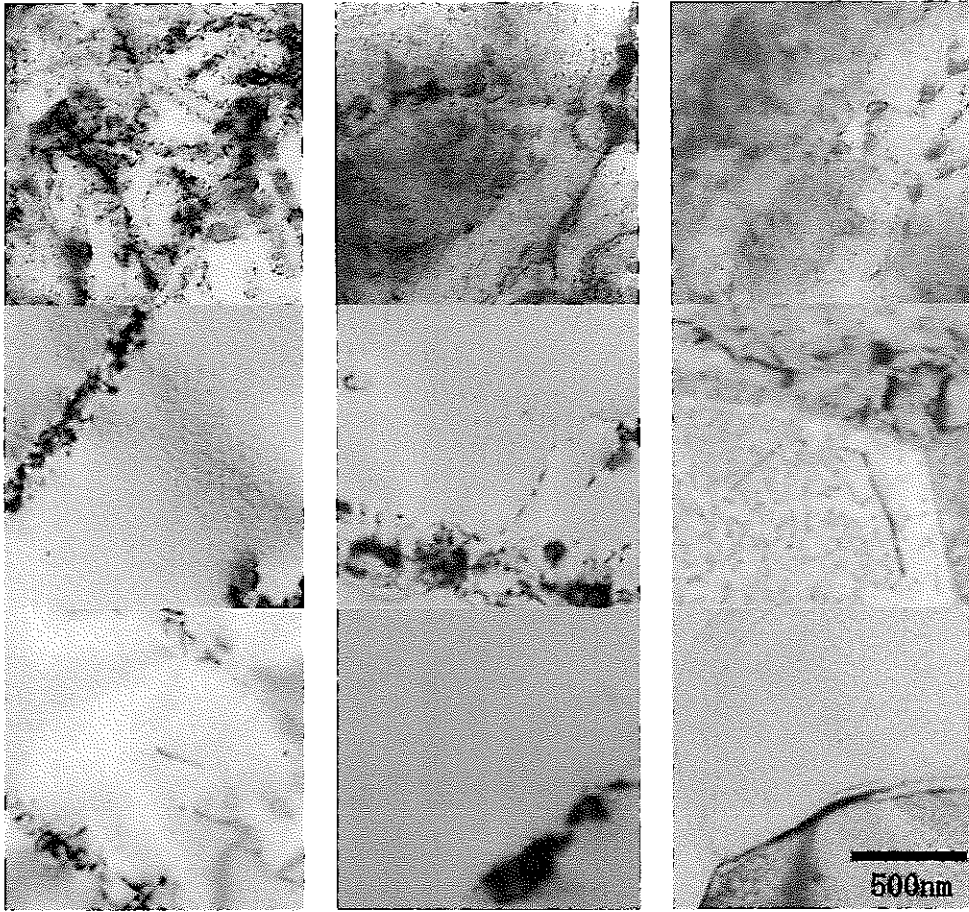


写真 2-2 各供試材の照射前組織(高倍)

M93

F94

F95



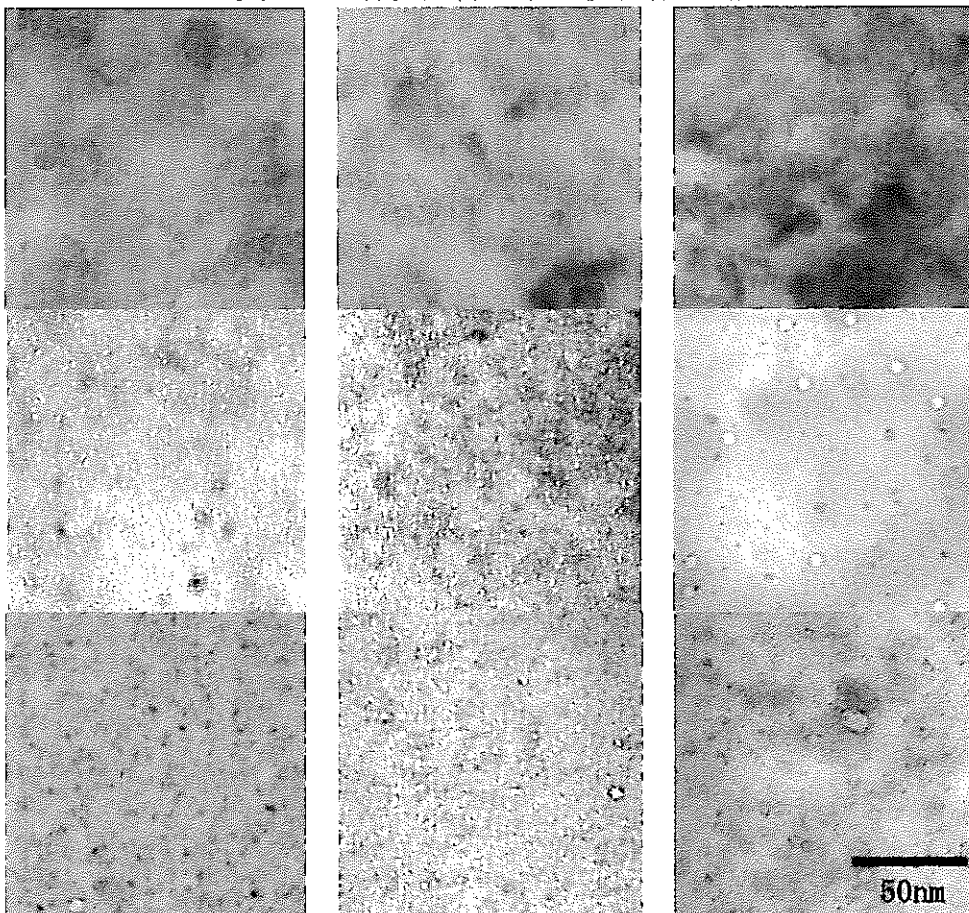
454°C, 2.8×10^{26} n/m² 497°C, 3.0×10^{26} n/m² 534°C, 1.4×10^{26} n/m²

写真 2-3 各供試材の照射後組織(低倍)

M93

F94

F95

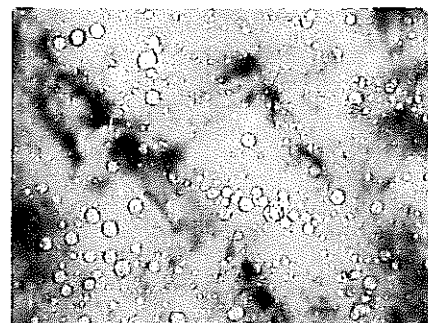


454°C, 2.8×10^{26} n/m² 497°C, 3.0×10^{26} n/m² 534°C, 1.4×10^{26} n/m²

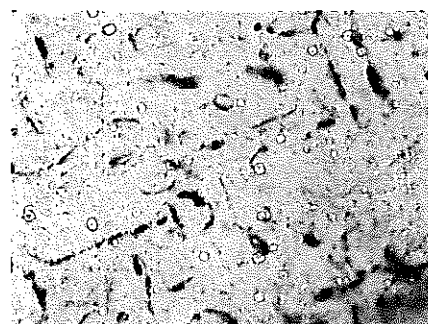
写真 2-4 各供試材の照射後組織(高倍)



未固溶析出物とその周辺組織



バブルの状態



バブルと転位像

写真 2-5 397°C照射 F94 材で観察された未固溶析出物とその周辺組織。未固溶析出物と考えられる粗大な析出物の近傍で顕著なキャビティ形成が認められる。

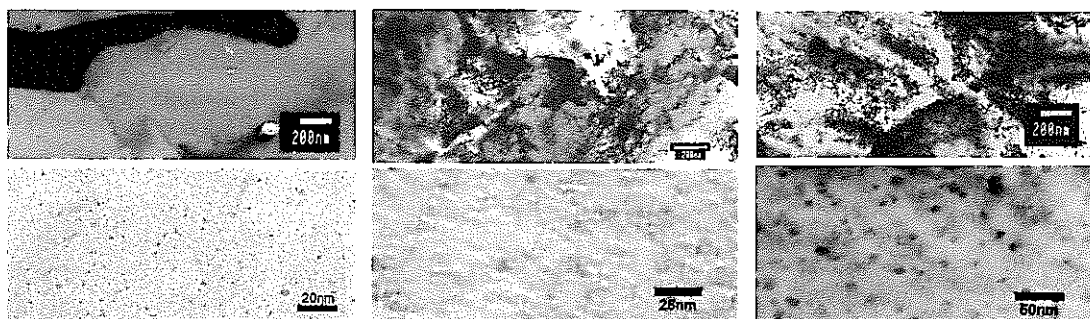


写真 2-6 : ODS 鋼中の鋼組織（上段）と酸化物分散粒子（下段）の透過電子顕微鏡写真（左：FC材，中央：NT材，右：炉冷材）

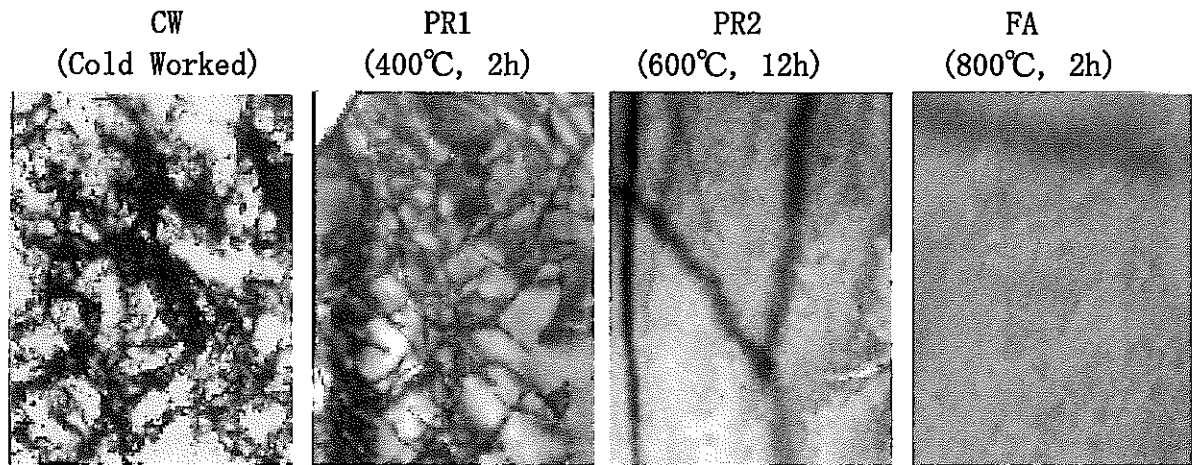


写真 2-7 異なる転位密度を持つ純鉄試料

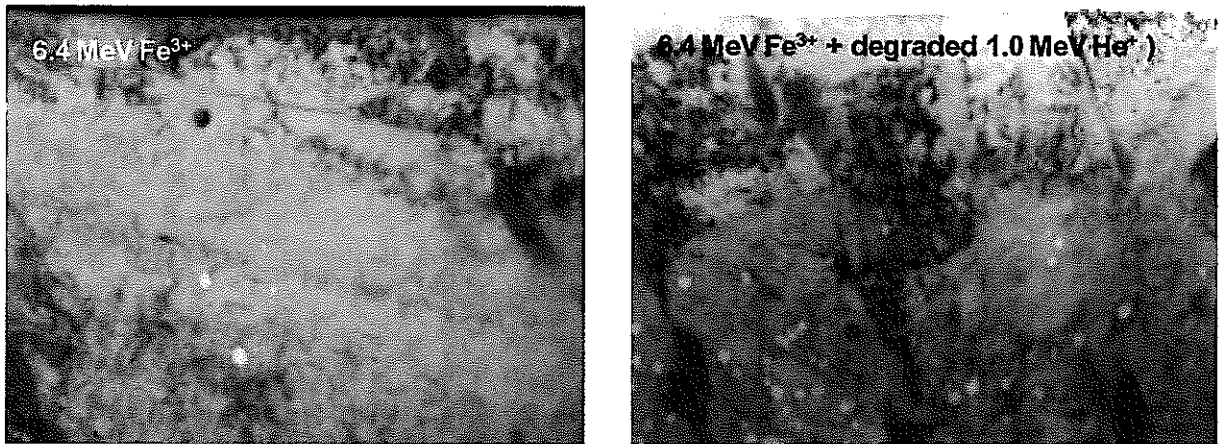


写真 2-8 シングルイオン照射(左)および2重イオンビーム照射した JLF-1 鋼の照射後組織 (743K, 60dpa) by Ogihara, IAE, Kyoto University

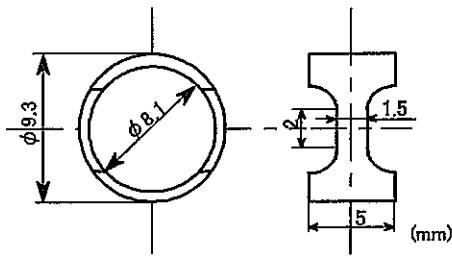


図2-1 リング引張試験片

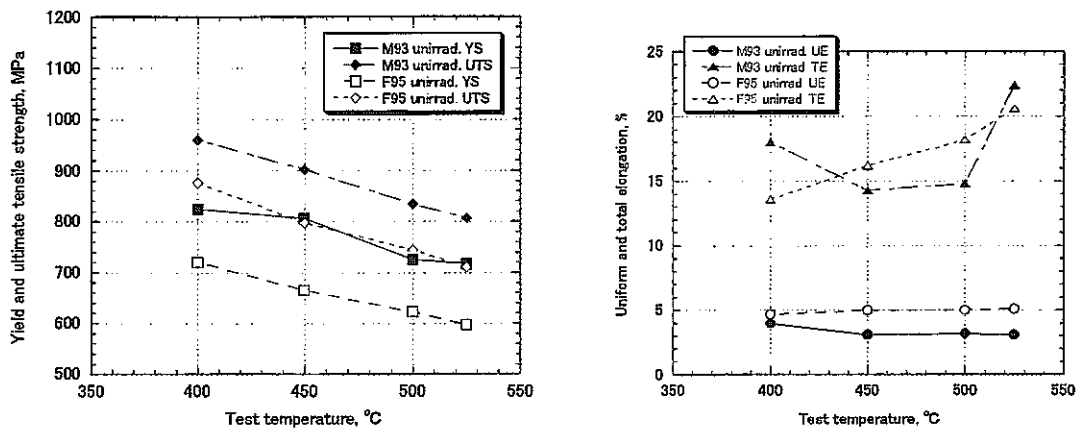


図 2-2 : マルテンサイト系およびフェライト系 ODS 鋼の照射前の降伏応力 (YS) および最大引張応力 (UTS) の試験温度依存性 (左)。同じく均一伸び (UE) および全伸び (TE) の試験温度依存性。

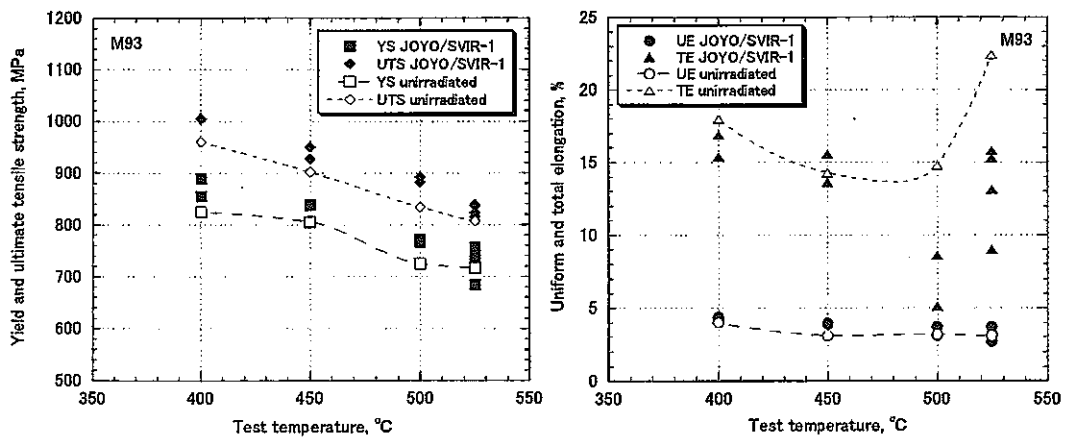


図 2-3 : マルテンサイト系 ODS 鋼の照射後の降伏応力 (YS) および最大引張応力 (UTS) の試験温度依存性 (左)。同じく均一伸び (UE) および全伸び (TE) の試験温度依存性。いずれの照射温度においても約 50MPa の照射硬化が観察された。伸びに関しては、均一伸びに変化が認められないが、全伸びが 500°C と 525°C に限って見られる。

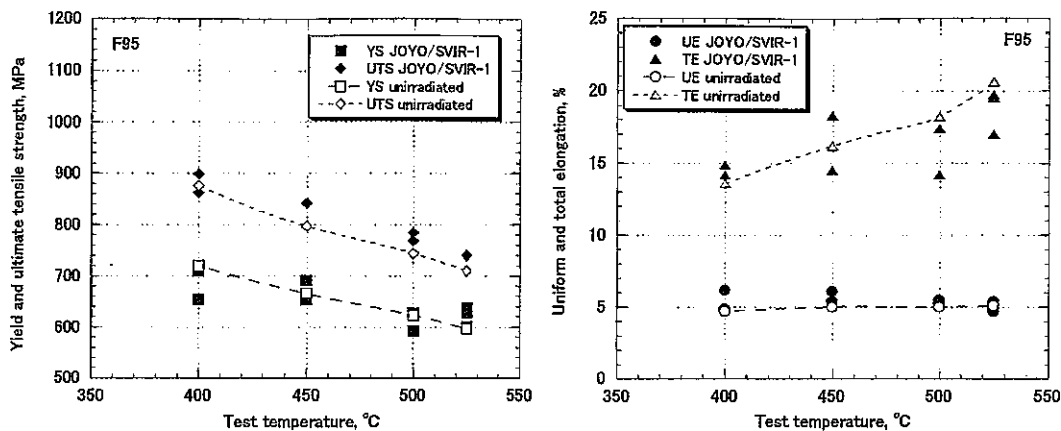


図 2-4: フェライト系 ODS 鋼の照射前の降伏応力 (YS) および最大引張応力 (UTS) の試験温度依存性 (左)。同じく均一伸び (UE) および全伸び (TE) の試験温度依存性。降伏応力に照射軟化の傾向が見られるが、最大引張応力は増大の傾向を示している。伸びに対する照射の影響はほとんど認められない。

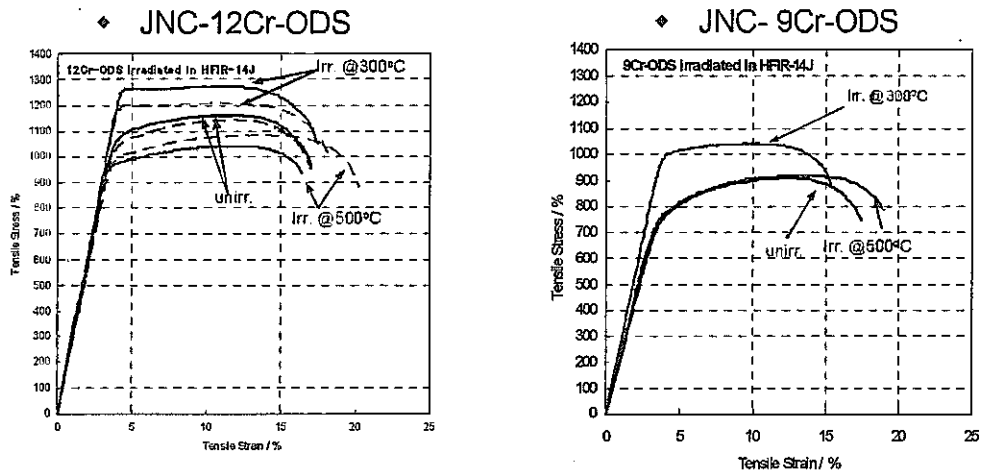


図2-5 室温における引張特性に及ぼす中性子照射効果。フェライト系 ODS 鋼 (左), マルテンサイト系 ODS 鋼 (右)。赤線および青線は, 照射温度がそれぞれ 300°C および 500°C を示す。

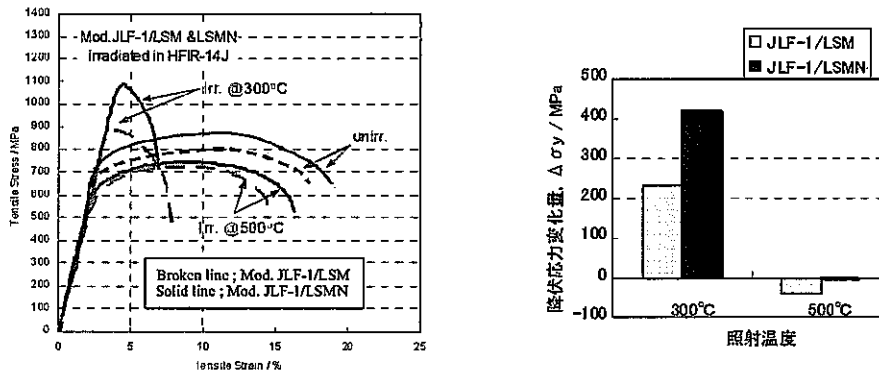


図2-6: JLF-1 鋼の室温における引張特性に及ぼす中性子照射効果。応力歪曲線 (左), 照射硬化量 (右)。実線は, Ni 添加鋼であり, 照射温度が 300°C の場合は, 顕著な効果を示し, 非添加鋼 (破線) に比べ, 照射硬化量は約 2 倍の値を示している。

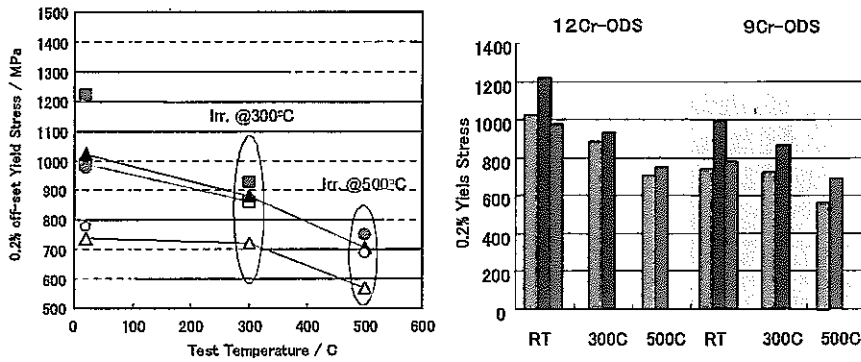


図2-7: ODS 鋼および JLF-1 鋼 (△, ▲) の照射硬化の照射温度・試験温度依存性 (左)。ODS 鋼の照射硬化 (黒: 非照射, 青: 300°C 照射, 赤: 500°C 照射) (右)。

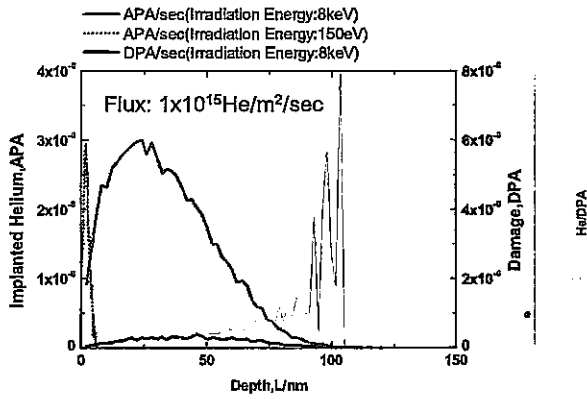


図 2-8 ヘリウムの深さ方向の分布

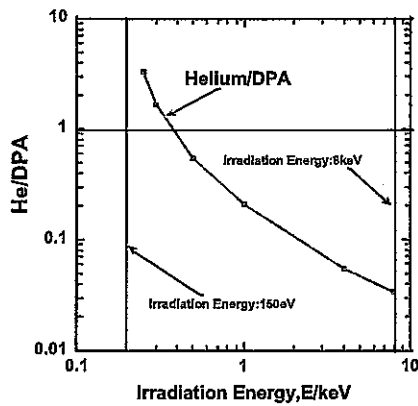


図 2-9 各エネルギーに於けるヘリウムと空孔量の比

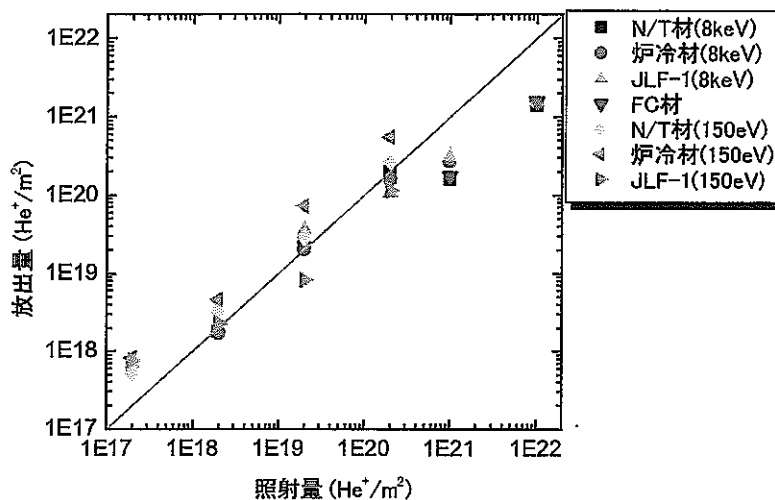


図 2-10 照射量对放出量

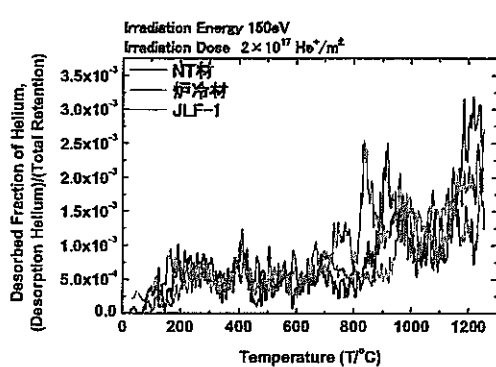


図 2-11 150eV で $2 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

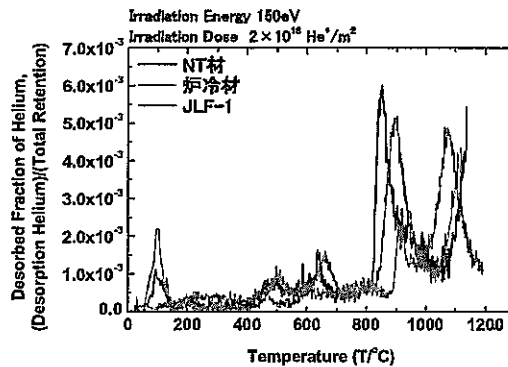


図 2-12 150eV で $2 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

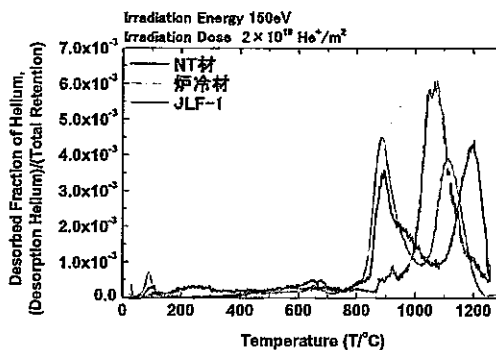


図 2-13 150eV で $2 \times 10^{19} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

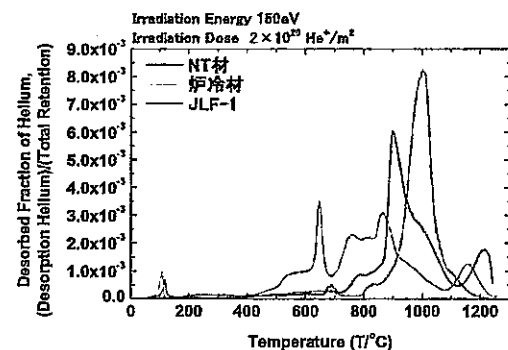


図 2-14 150eV で $2 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

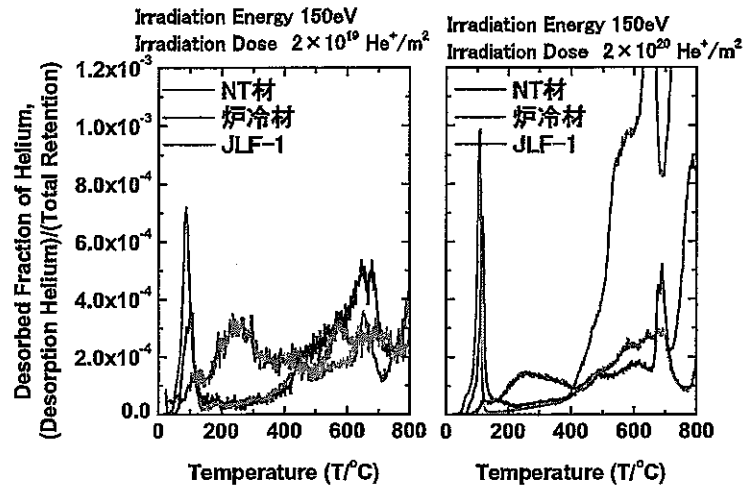


図 2-15 150eV で 2 × 10¹⁹, 10²⁰He⁺/m² 照射

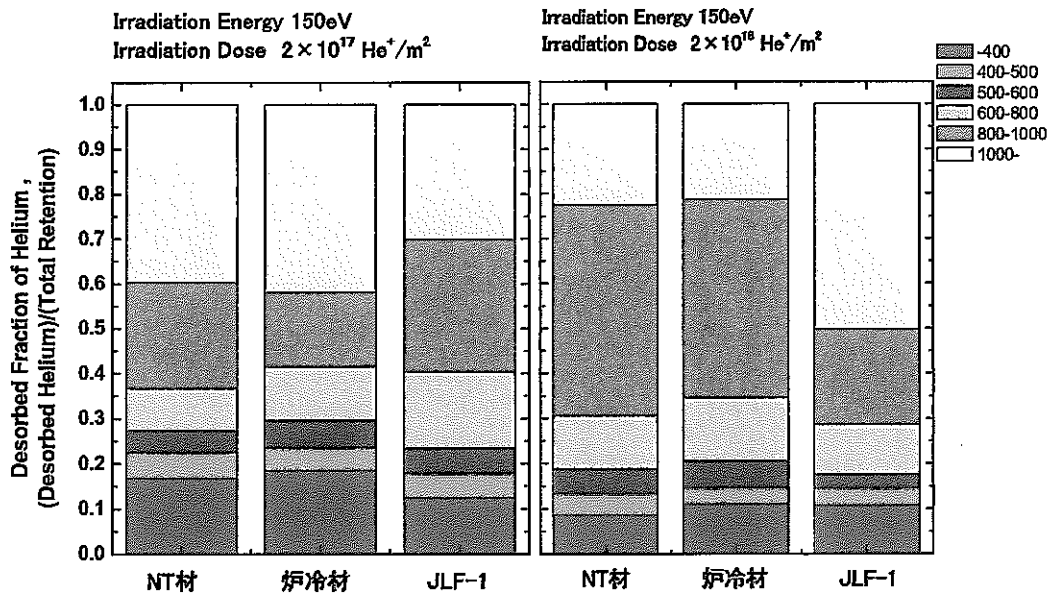


図 2-16 10¹⁷, 10¹⁸He⁺/m² 照射したときの各温度域に於ける放出割合の試料依存性

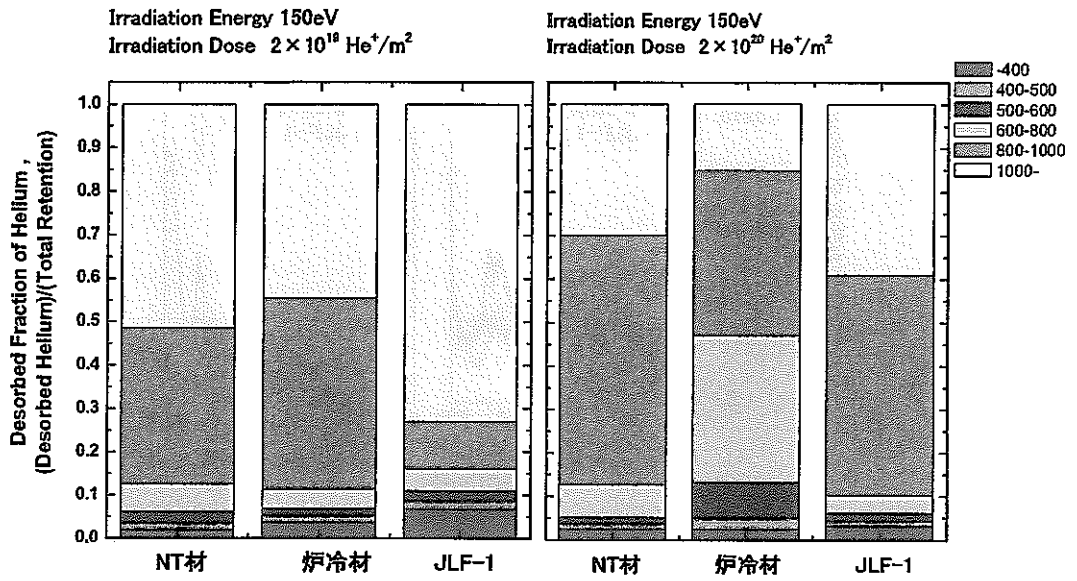


図 2-17 $10^{19}, 10^{20} \text{ He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合の試料依存性

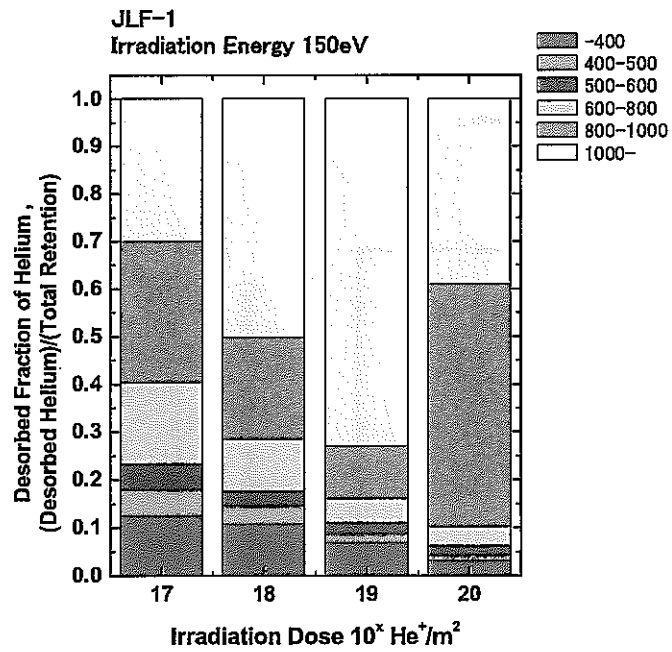
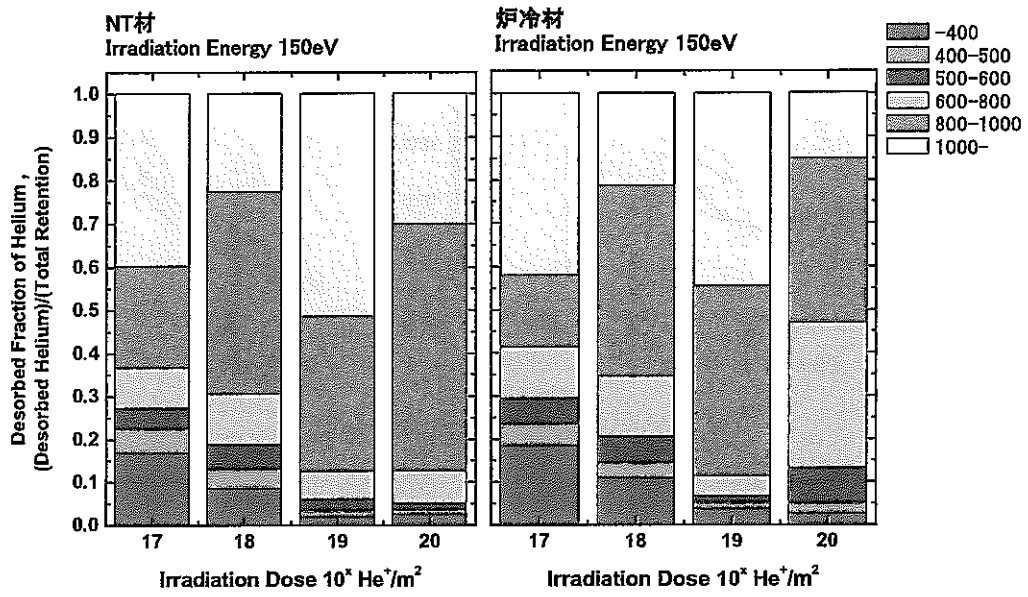


図 2-18 各温度域に於ける放出割合の照射量依存性

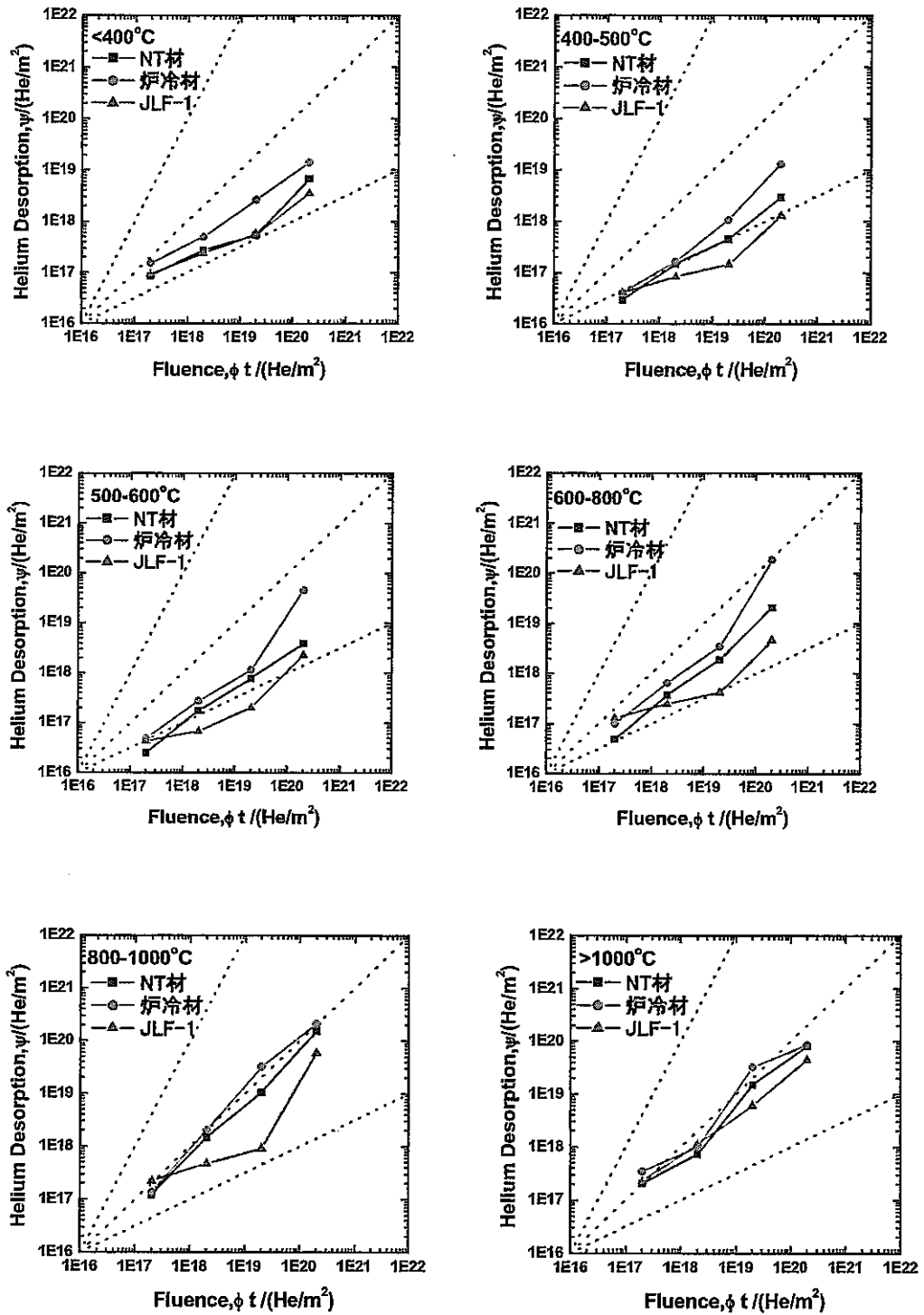


図 2-19 150eV の各温度域に於ける He 放出量

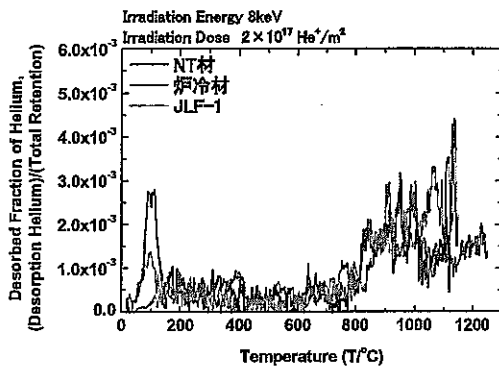


図 2-20 8keV で $2 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

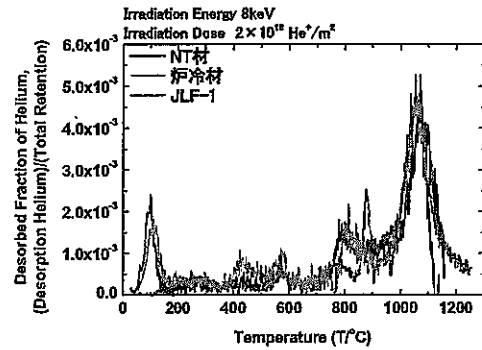


図 2-21 8keV で $2 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

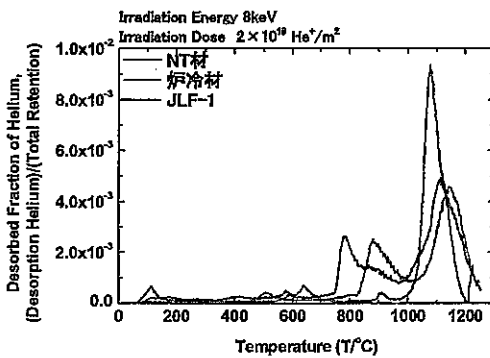


図 2-22 8keV で $2 \times 10^{19} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

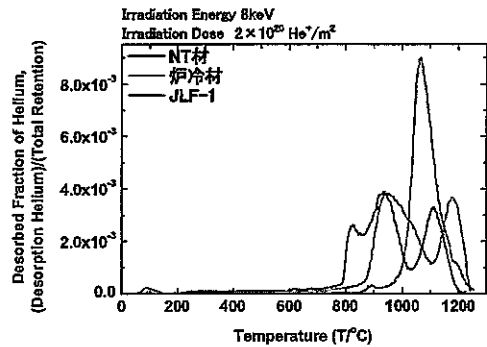


図 2-23 8keV で $2 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

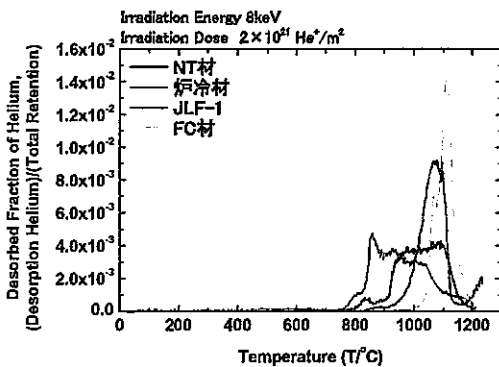


図 2-24 8keV で $2 \times 10^{21} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

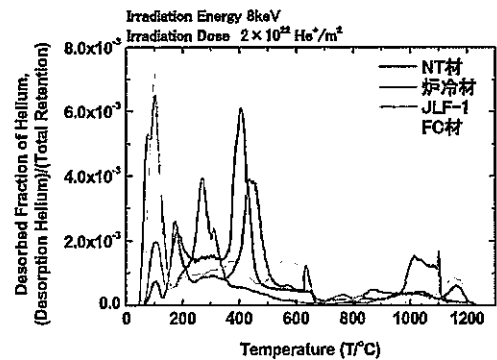


図 2-25 8keV で $2 \times 10^{22} \text{He}^+/\text{m}^2$ 照射

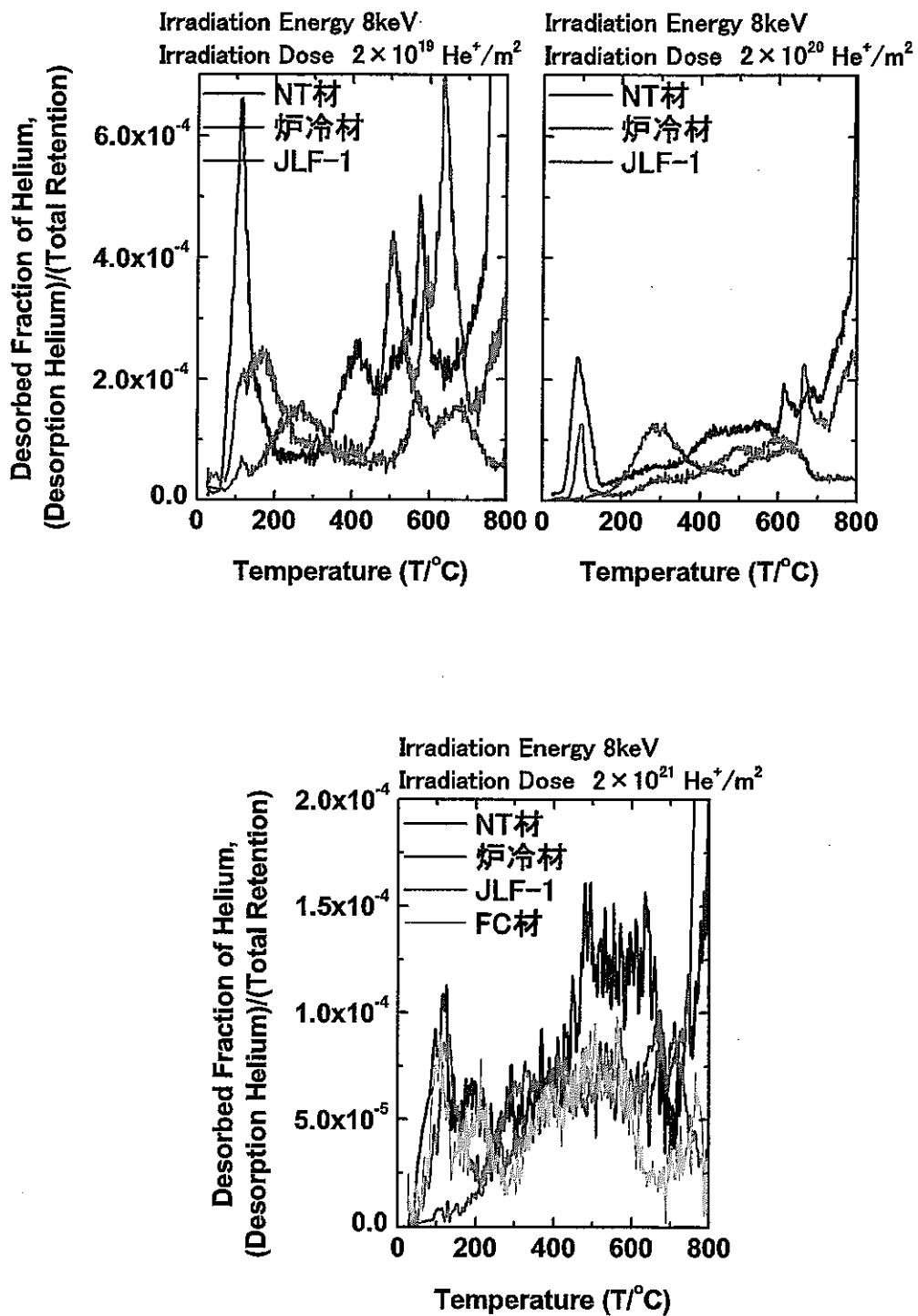


図 2-26 8keV で $10^{19}, 10^{20}, 10^{21} \text{ He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの低温部分の昇温脱離挙動

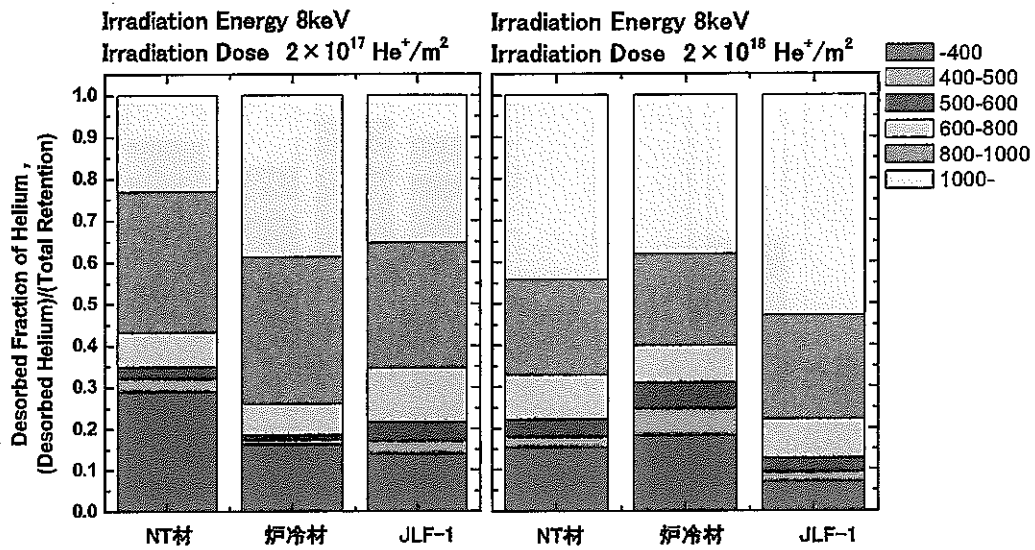


図 2-27 $10^{17}, 10^{18} \text{ He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合の試料依存性

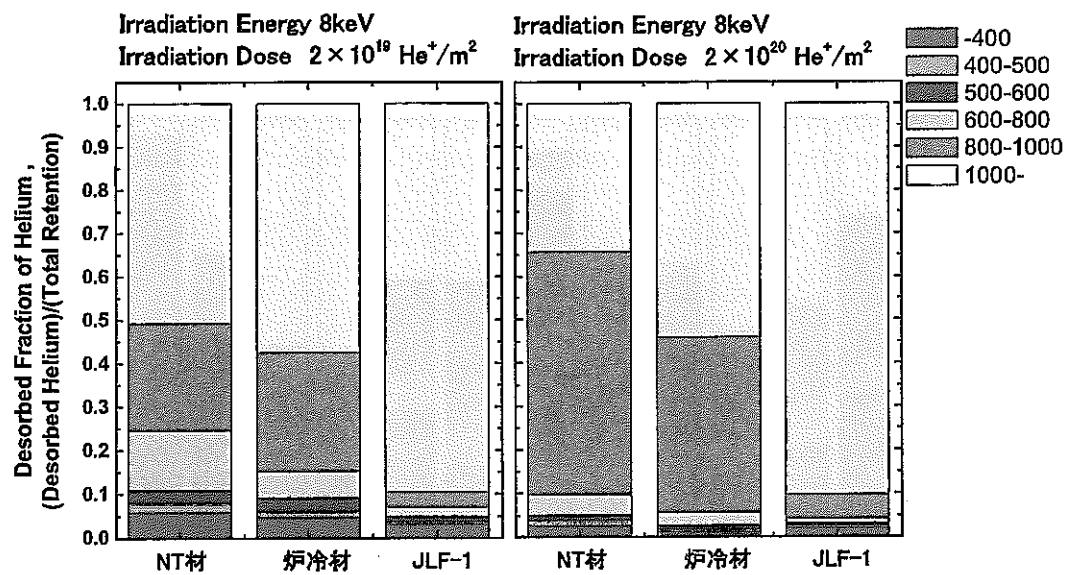


図 2-28 $10^{19}, 10^{20} \text{ He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合の試料依存性

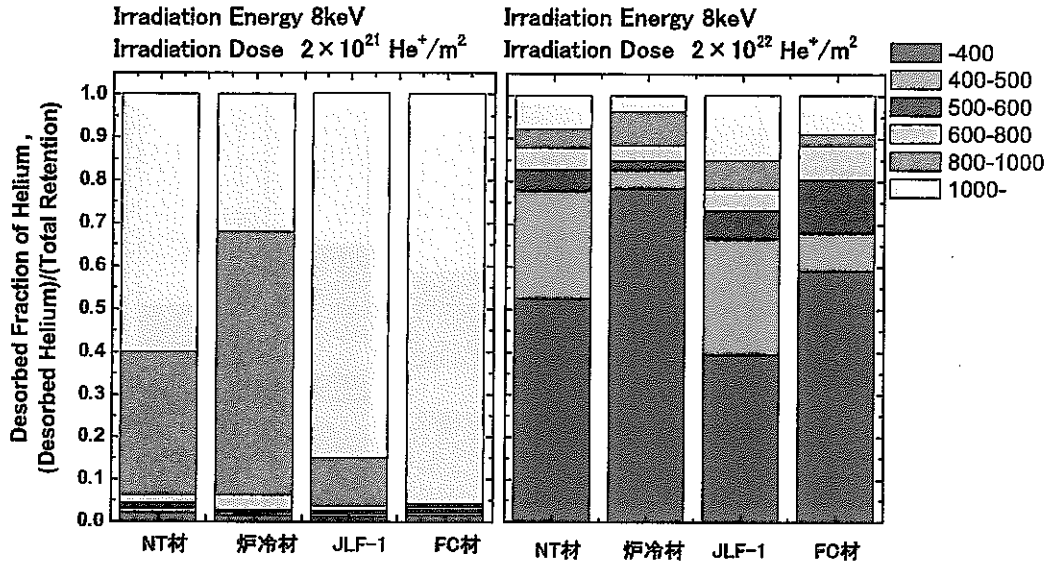


図 2-29 $10^{21}, 10^{22} \text{ He}^+/\text{m}^2$ 照射したときの各温度域に於ける放出割合の試料依存性

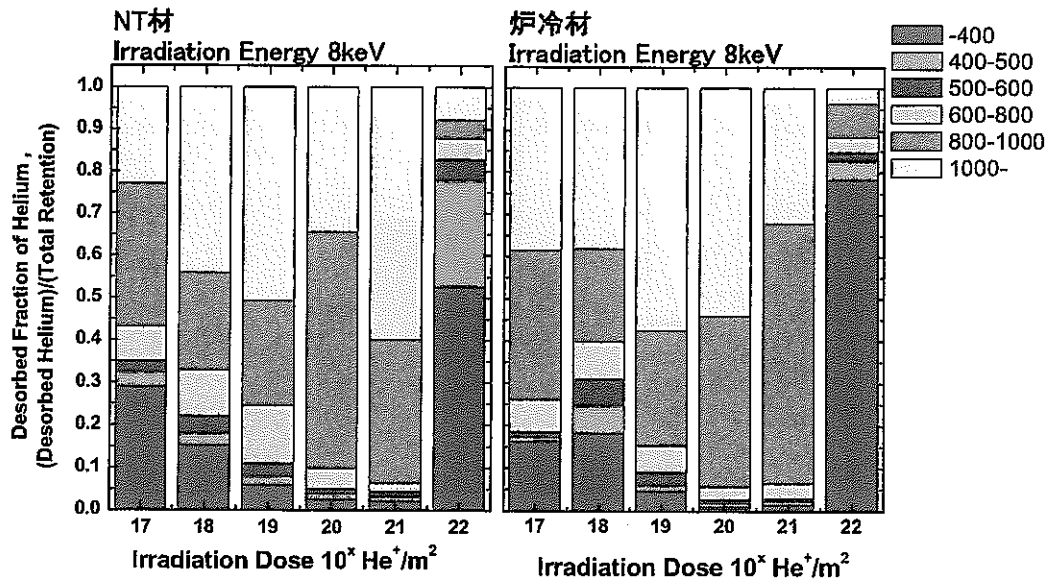


図 2-30 各温度域に於ける放出割合の照射量依存性

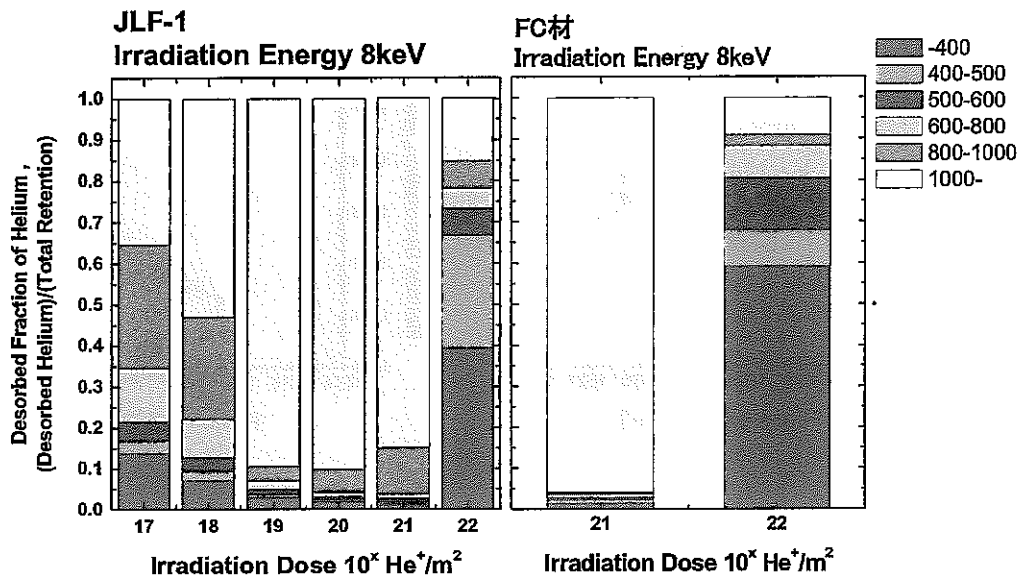


図 2-31 各温度域に於ける放出割合の照射量依存性

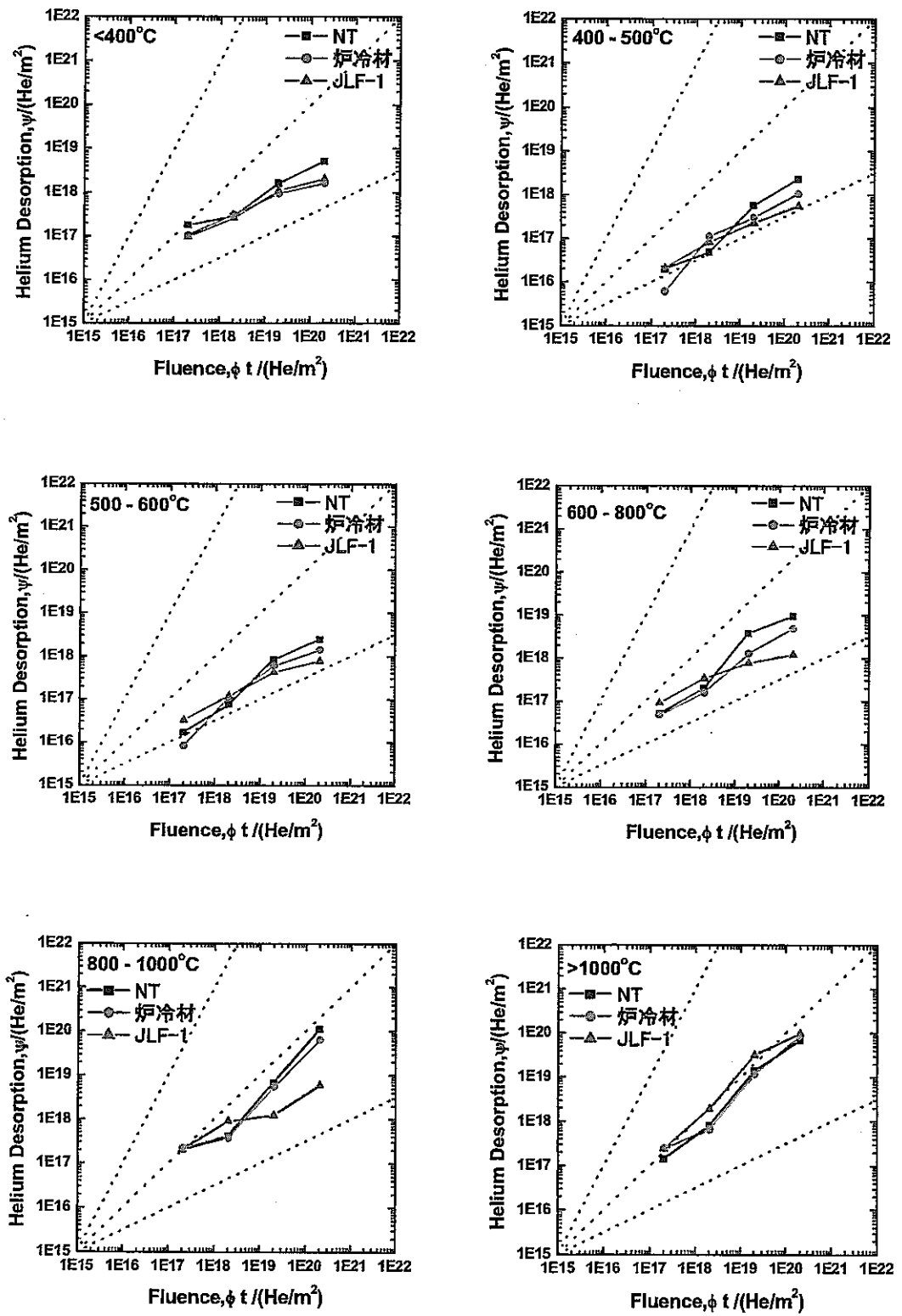


図 2-32 : NT 材, 炉冷材, JLF-1 の各温度域におけるヘリウム放出量

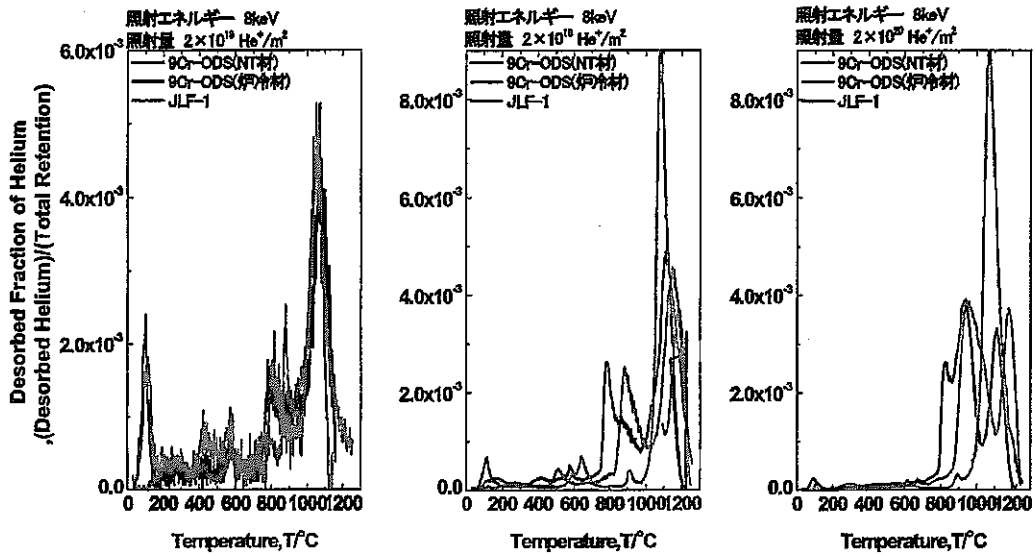


図 2-33 : ODS 鋼 (NT 材, 炉冷材) および JLF-1 鋼のヘリウム昇温脱離スペクトル (左から 10^{18} , 10^{19} , $10^{20}\text{He}^+/\text{m}^2$)

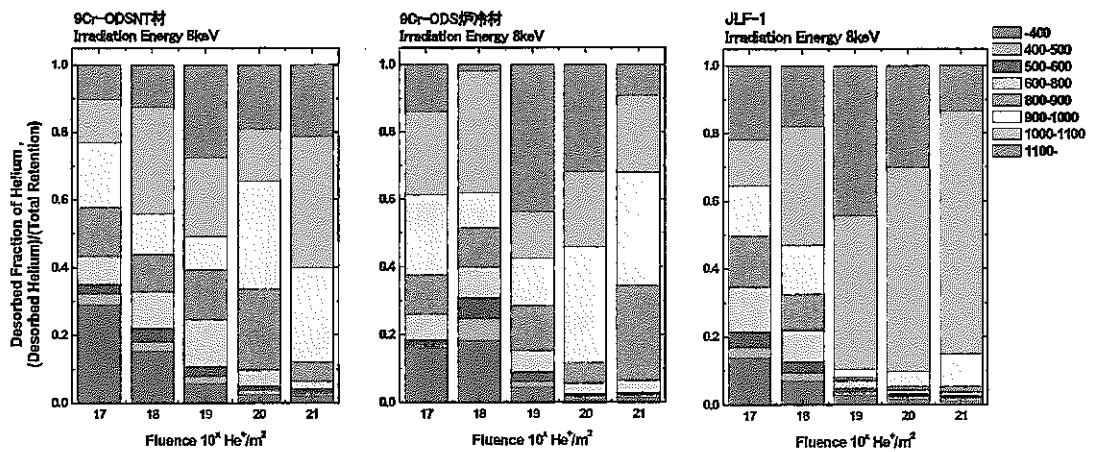


図 2-34 : 各温度域におけるヘリウムの放出割合。左から ODS 鋼 (NT 材, 炉冷材) および JLF-1 鋼。

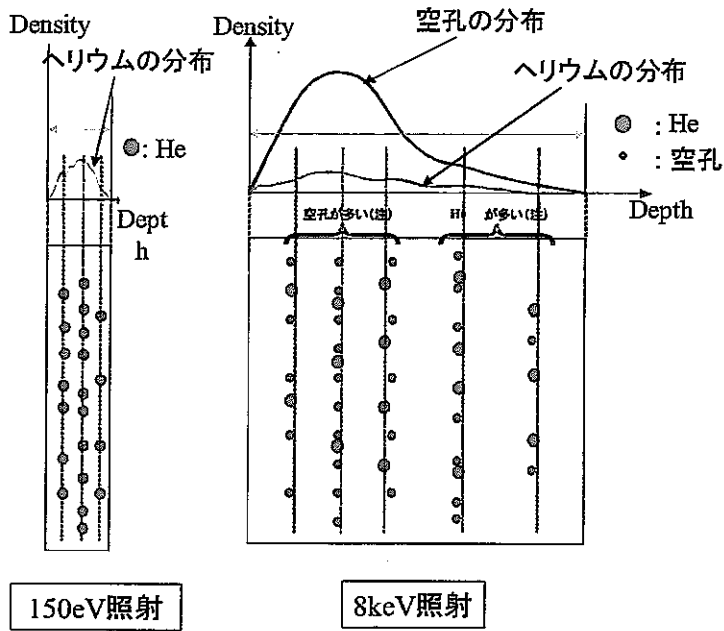


図 2-35 : 150eV および 8keV 照射における He および照射欠陥分布の模式図

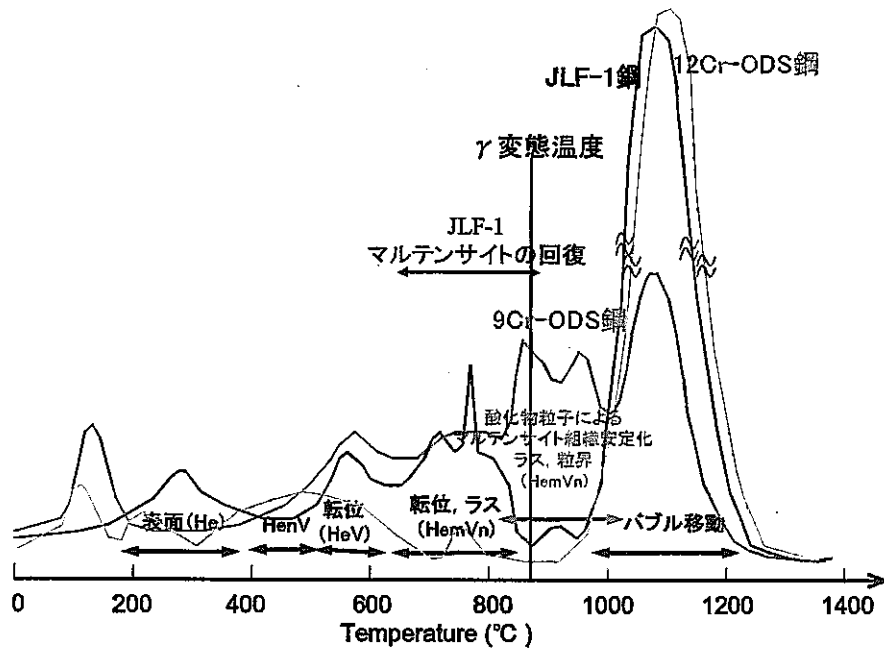


図 2-36 : ODS 鋼 (フェライト系およびマルテンサイト系) と JLF-1 鋼のヘリウム脱離挙動の比較

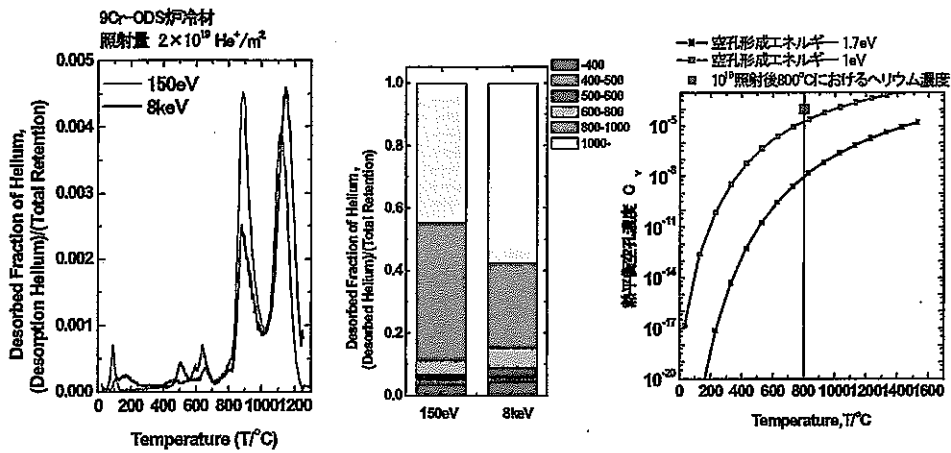


図 2-37 : 9Cr-ODS 鋼炉冷材のヘリウム放出挙動におけるヘリウム注入エネルギー一依存性 (左図), 各温度におけるヘリウム放出割合 (中央) および BCC 鉄中における熱平衡空孔濃度の温度依存性

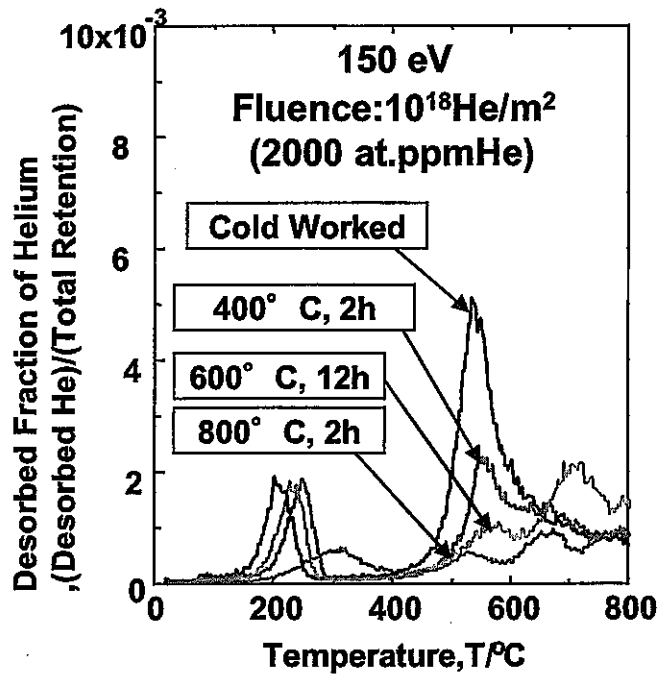


図 2-38 : ヘリウム脱離スペクトルに及ぼす転位密度の影響

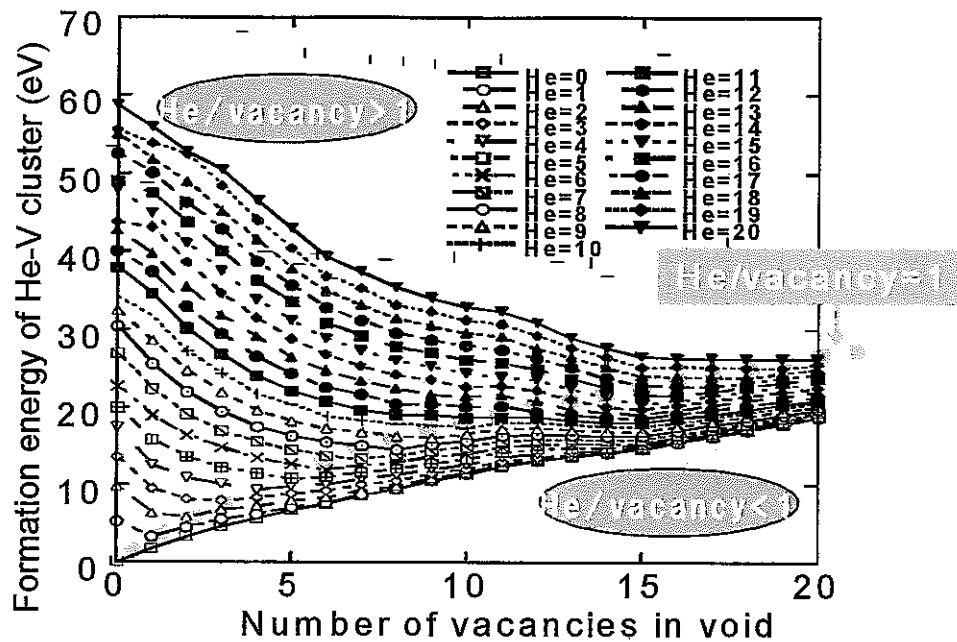


図 2-39 MD 計算による空孔集合体における空孔数とヘリウム-空孔クラスター形成エネルギーの関係

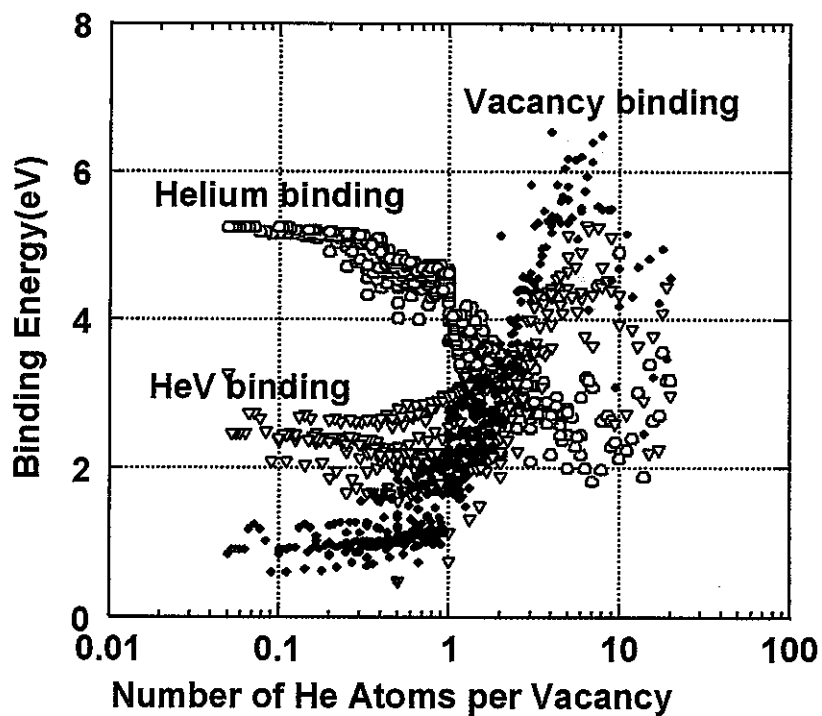


図 2-40 各種サイズのヘリウムクラスター (He_nV_m) と He および V の結合エネルギー。最大数: $n=m=20$

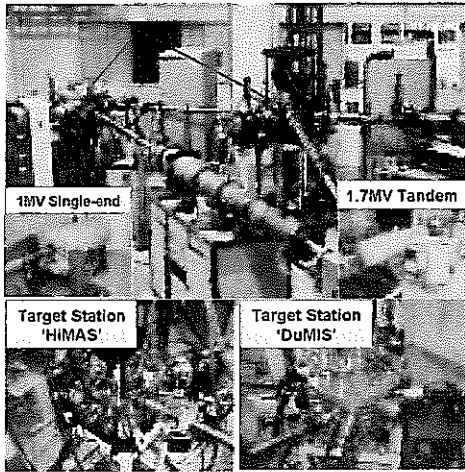


図 2-41 2重イオンビーム照射装置

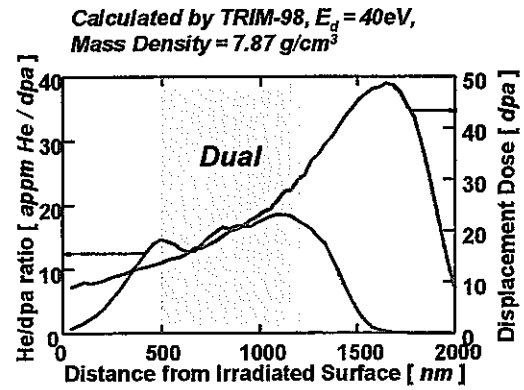


図 2-42 TRIM 計算によるヘリウムとはじき出し損傷量の深さ方向分布。

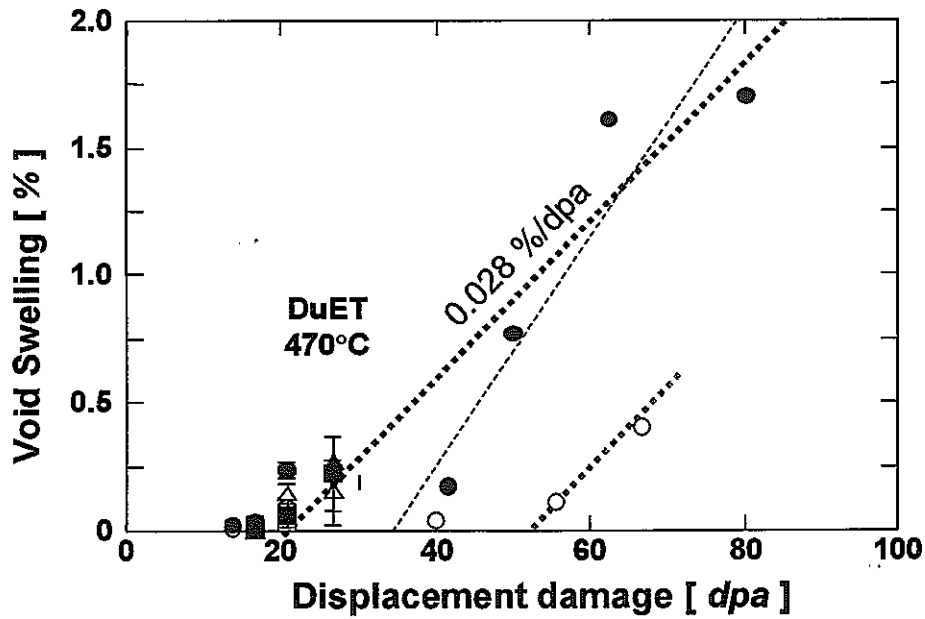


図2-43 JLF-1鋼におけるボイドスエリングの損傷量依存性