

動的観察手法を用いたイオン照射ステンレス鋼中の 照射欠陥の強度への寄与の研究

Hardening contribution of irradiation defects in ion-irradiated stainless steels
using in-situ observation tensile deformation

福井大院工
福井大原子力研
MHINS

福井真音
福元謙一
梅原弘平

Maoto FUKUI
Ken-ichi FUKUMOTO
Kohei UMEHARA

Student-member
Member

Abstract

In-situ TEM observation during tensile deformation test for an ion-irradiated SUS316L steel was performed to investigate a dislocation interaction with irradiation-induced defect clusters. Hardening contribution of irradiation-induced defect clusters such as solute atom clusters was estimated with experimental methodology using dislocation pinning behavior during tensile deformation. The utilization method of the in-situ TEM observation technique for hardening evaluation for irradiated materials was also discussed.

Keywords: in-situ TEM observation、 ion irradiation、 dislocation behavior、 stainless steel、 solute atom cluster

1. 緒言

原子炉内構造材として使用されているオーステナイト系ステンレス鋼では、中性子照射で形成される照射欠陥が運動転位をピンニング（ピン留め）し、転位が張り出しアンピンニングする過程で運動を阻害することで照射硬化をもたらす。照射硬化は照射誘起応力腐食割れの原因になることが知られており、構造物の健全性維持の観点から課題である。軽水炉の運転条件下のステンレス鋼では、照射欠陥としてフランクループ（FL）、ブラックドット（BD）、溶質原子クラスター（SC）の3種が主として確認される。照射硬化評価のためには、各照射欠陥の材料強度への寄与を理解することが必要である。しかしながらSCは通常のTEM観察が困難であり、現在は三次元アトムプローブ（3DAP）観察がほぼ唯一の実験手法であるが、手法自体に課題もあり、データの蓄積は未だ不十分である。

動的観察手法であるTEM内引張「その場」観察は、運動転位を直接観察できる特徴を生かして、通常のTEM観察では観察できない微視的情報を得ることが可能である。しかし観察及び試料作製に高度な技術と経験が必要なものもあり、SCに対する評価手法として一般には用いられてきてはいない。

本研究では中性子照射を模擬したイオン照射で、ステンレス鋼に照射欠陥を導入し、TEM内引張「その場」観察を実施した。観察では線張力モデルに基づいて運動転位をプローブのように扱い、照射欠陥との相互作用に着目することで障害物間隔を算出した。SCの材料強度への寄与を評価することと、SCの新たな評価手法としてTEM内引張「その場」観察の利用を検討することを本研究の目的とした

2. 実験方法

オーステナイト系ステンレス鋼であるSUS316L鋼を供試材として用いた。試料形状は11.5mm×2.2mm×0.2mmの短冊状であり、両端に引張時固定用の穴がけられている。1100°Cで2時間、真空雰囲気、空冷の条件で熱処理を実施した。イオン照射は京都大学エネルギー理工学研究所DuET施設のタンデム加速器を用いて実施した。重イオン且つセルフイオンであるFe³⁺を用いた。照射条件を表1に示す。

TEM内引張「その場」観察は、九州大学超顕微解析研究センターの超高圧電子顕微鏡JEM-1300NEFと短軸傾

表1 イオン照射条件

照射番号	入射イオン	入射エネルギー [MeV]	照射温度 [°C]	照射時間 [min]	最大損傷量 [dpa]	最大損傷深さ [μm]
1	Fe ³⁺	6.4	300	120	7.1	1.6
2	Fe ³⁺	6.4	200	300	22.5	1.6

連絡先: 福元謙一、〒914-0055 福井県敦賀市鉄輪 1-3-33、福井大学附属国際原子力工学研究所、
E-mail: fukumoto@u-fukui.ac.jp

斜加熱引張ホルダーを使用して実施した。試料を長手方向に引張り、孔周辺を塑性変形させることで転位運動を発生させ、その様子をその場観察した。通常のTEMで観察が可能な照射欠陥であるFLとBDの情報を得るために、引張後試料を加工し、福井大学の透過型電子顕微鏡JEM-2100TMを用いてTEM観察を実施した。SCの情報に関しては、原子炉廃止措置研究センターのLEAP3000XHRによる3DAP観察を用いて求めた

3. 結果と考察

照射実験①試料にて、エッジオン転位チャンネル（バンドを真横から見たときの転位チャンネル）が形成する様子を、照射実験②試料にて、線状に見られる運動転位を動的観察することができた。①試料では約50nmが、②試料では約31nmの障害物間隔であった。

表2 FL及びBDの平均直径と体積数密度

	フランクループ		ブラックドット	
	平均直径[nm]	体積数密度[m^{-3}]	平均直径[nm]	体積数密度[m^{-3}]
照射①試料	6.3	4.3×10^{22}	3.2	5.8×10^{22}
照射②試料	8.4	3.7×10^{22}	2.7	1.0×10^{23}

引張後のTEM観察で、relrod法により結像させたFLと、WBDF法により結像させたBDから、欠陥数と平均直径を計測した。以上のデータから体積数密度を算出した。表2に各値を示す。

溶質原子クラスタのデータは照射①試料に対して実施した3DAP観察結果の原子マップから、溶質原子のSiがクラスタリングしていることが分かった。算出した体積数密度と平均直径を表3に示す。照射②試料では3DAP観察ができなかったため、類似の条件で報告されている文献[1]と、照射①試料での3DAP観察結果から値を参照した。同様に表3に示す。

障害物となる照射欠陥は一般に三次元的にランダムに分布する。このときの障害物間隔 L_0 は次式で近似される。

$$L_0 = 1/\sqrt{dN_v} \quad (1)$$

ここで N_v は障害物の体積数密度、 d は直径である。

照射①試料においてエッジオン転位チャンネル形成の動的観察で求めた障害物間隔と、引張後TEM観察及び3DAP観察結果から(1)式で算出した障害物間隔を比較し、次に、照射②試料において線状に見られる運動転位の動的観察で求めた障害物間隔と、引張後TEM観察及び文献から(1)式で算出した障害物間隔を比較する

その結果、FLとBDが障害物として機能し、さらに

表3 照射①及び照射②試料におけるSCの平均直径と体積数密度。照射②試料の値は推測値。

	平均直径[nm]	体積数密度[m^{-3}]
照射①試料	2.6	4.3×10^{23}
照射②試料	3.6	9.2×10^{23}

表4 照射①試料において想定される障害物間隔の比較

記号	導出手法	照射欠陥種	障害物間隔[nm]
	TEM内引張その場観察	?	50
A	TEM観察	FL	60
B	TEM観察	FL&BD	47
C	TEM観察+3DAP	FL&BD&SC	25

表5 照射②試料において想定される障害物間隔の比較

記号	導出手法	照射欠陥種	障害物間隔[nm]
	TEM内引張その場観察	?	31
A	TEM観察	FL	57
B	TEM観察	FL&BD	41
C	TEM観察+3DAP(文献)	FL&BD&SC	17

一部のSCが転位にピンギングしている可能性があることが示唆される。しかし動的観察時に、明確に結像されていないピンギング点は確認できなかった。またSCのデータは文献等からの参照値である。以上を考慮し、TEM内引張「その場」観察で存在を確認できる照射欠陥として、エッジオン転位チャンネル形成の動的観察から考察される、FLとBDであることが支持される。

本研究では、原子炉内構造材であるSUS316L鋼に対してFeセルフイオン照射をすることで、材料中に照射欠陥を導入し、TEM内引張「その場」観察を行い、硬化量評価手法としての有効性を検討した。

観察では、エッジオン転位チャンネル形成と線状に見られる運動転位をその場観察し、障害物間隔等に注目することで、存在を確認できる照射欠陥の種類がFLとBDであることを特定した。照射硬化量評価では、TEM内引張「その場」観察と他の手法との併用が有効であると言える。また、FLに析出するSCの硬化量への寄与の評価が、TEM内引張「その場」観察で可能であることが示唆された。

参考文献

[1] 藤井克彦, 福谷耕司, INSS Journal Vol.26 (2019), pp.89-97.