

高速中性子照射された Nb-1Zr 合金の内部組織に及ぼす熱処理の効果

安永, 和史
九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻

渡辺, 英雄
九州大学大学院総合理工学研究所

室賀, 健夫
核融合科学研究所

吉田, 直亮
九州大学大学院総合理工学研究所

<https://doi.org/10.15017/17420>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 18 (4), pp.303-307, 1997-03-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :

高速中性子照射された Nb-1Zr 合金の 内部組織に及ぼす熱処理の効果

安 永 和 史* ・ 渡 辺 英 雄**

室 賀 健 夫*** ・ 吉 田 直 亮**

(平成8年9月19日受理)

The Influence of Heat Treatments on Neutron Irradiated Nb-1Zr Alloy

Kazufumi YASUNAGA, Hideo WATANABE,

Takeo MUROGA and Naoaki YOSHIDA

The microstructural evolution of neutron irradiated Nb-1Zr alloy at 693-1003K to doses as high as 47.2dpa has been investigated. At all irradiation conditions, strong void swelling resistance was found. In the cold worked and aged specimens, voids of about 50nm diameter were observed at lower temperature (693K) and higher temperature ranges (918-1003K), but not at intermediate temperature ranges (744-842K). The void density increased with dose at all irradiation conditions. The swelling behavior obtained by density measurements was revealed to be rather complex, depending on irradiation temperature and dose. The complex role of starting condition on both microstructural evolution and density changes are presumably due to phase-related changes during irradiation.

1. 緒 言

Nb 合金は、スエリング特性や照射下クリープ特性、高温強度、熱応力等の機械的特性に優れており、核融合炉における第一壁での使用を想定した研究が、加速器を用いたイオン照射実験等により行われてきた。

第一壁材料は、重照射や高熱負荷にさらされるが、Nb-1Zr 合金は、Mo や TZM 等と同様に高融点金属であることから短期的な目標としては ITER のダイバータ板として、また長期的には核融合炉の実現へ向けた材料の照射特性に関するデータの蓄積が重要であると考えられる。しかしながら、これまでの Nb 合金の研究は主に焼鈍材について行われており、熱処理温度及び冷間加工の効果については不明な点が多く十分な評価がなされていない。そこで本研究では、それらの効果が、照射損傷組織にどのような影響を与えるかを明らかにする事を目的として、焼鈍後時効材及び冷間加工後時効材の二種類の初期条件の異なる Nb-1Zr 合金に対して高速中性子照射を照射量及び照射温度を変化させて行った。照射後、照射条件の違いが転位密度及び、寸法安定性の観点から重要であるボイドスエリング量に及ぼす影響を与えるのかについて調べた。

さらに、密度測定によるスエリング量と内部組織の観察から得られたボイドスエリング量との関係について考察する事により照射下での相安定性についての検討を行う。

2. 実験方法

2.1 試料及び照射条件

本研究に用いた試料は、熱処理及び加工条件の異なる二種類の Nb-1Zr 合金である。それらの試料は、米国の Pacific Northwest Laboratory (PNL) より提供され、電顕試料用に 3mmφ、0.25mm 厚に成型されたものである。熱処理及び加工条件は、それぞれ 1033K で 1 時間焼鈍後 593K で 2 時間時効をしたもの (AA 材) 及び 1033K で 1 時間焼鈍後 20% 冷間加工し、その後 593K で 2 時間時効をしたもの (CA 材) である。高速中性子照射は FFTF/MOTA を用いて行われ、照射温度については 693K~1003K の範囲で合計五種類、照射量は、最大約 100dpa (ステンレス鋼における計算値、Nb-1Zr 合金では、その約 114% に相当すると考えられる) であり、照射条件の詳細を **Table 1** に示す。照射後、これらの試料をテヌポールを用い、ツイジェット研磨法にて電解研磨を行い、電子顕微鏡観察用の薄膜試料とし、200keV 透過型電子顕微鏡を用いて内部組織の観察を行った。内部組織の写真により、転位密度及びボイドスエリング量を求め、密度測

*高エネルギー物質科学専攻博士後期課程

**総合理工学研究所

***核融合科学研究所

Table 1 Irradiation condition of Nb-1Zr specimens.

		693K	744K	842K	918K	1003K
CA	Cycle 5	15.0dpa	11.4dpa	15.0dpa	11.5dpa	11.5dpa
	Cycle (5+6)	50.3dpa	38.2dpa	38.5dpa	38.5dpa	38.5dpa
AA	Cycle (5+6)	47.2dpa	32.2dpa	40.8dpa	40.8dpa	

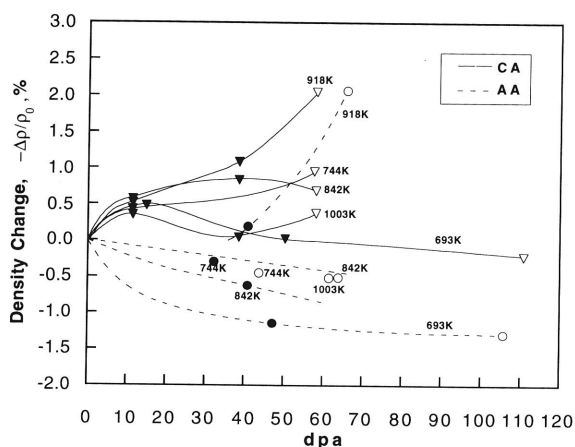


Fig. 1 Density changes observed in Nb-1Zr Specimens after irradiation.

定の結果との比較を行った。

3. 実験結果

3.1 密度測定

Fig. 1 は, F.A. Garner¹⁾ により与えられた Nb-1Zr 合金の密度測定によるスエリング量の照射温度及び照射量依存性を示すグラフである。縦軸がスエリング量, 横軸が照射量である。密度測定は, immersion density technique を用いて行われ, その精度はスエリング量の $\pm 0.15\%$ である。FFTF 照射の cycle 7 の MOTA 1D において短時間 (約50分) の温度上昇が起こり, その制御からそれ以降の照射温度が目的とする温度に対し低くなってしまった為, 内部組織の観察結果は **Fig. 1** に黒く印をつけたものについてのみ述べる。

グラフから, 実線で示されている冷間加工を加えた試料では, 照射の初期段階において約0.5%の体積の増加が見られる。これは照射温度に依存しないことから, ボイドスエリングと同時に何らかの相変態がマトリックス中に起こったものと予想される。照射量が増加すると, この試料では, 照射温度の違いによりスエリング量の様子が大きく異なることがわかる。まず, 照射温度が744K, 842K, 918K では, 照射の進行と共にスエリング量が一樣に増加し続け, その増加量は918K が最も高いことがわかる。それに対し, 照射温度が693K や1003K では, スエリング量は, いったんは増加するものの, 後に減少に転じ, 非常に低いスエ

リング量しか観察されないという特異な振る舞いを示す。

破線で表されている熱処理のみを施した試料では, 正のスエリング量が観察されるのは, 照射温度918Kのみである。特徴的なことに, この温度においては, 冷間加工を加えた試料と同様のスエリング傾向を示す。しかし, その他の照射温度においては, 全体的に照射量によらず負のスエリング量が観察されている。体積の減少の度合いは, 照射温度が744K, 842K, 1003K では0.5%程度と大きな違いはないものの, 693Kでは約1.0%であり, なんらかの原因によるマトリックスの収縮が他の温度に比べて顕著であると考えられる。

これらの事実から, Nb-1Zr 合金は, 熱処理及び加工条件の違いによりスエリング量の様子が大きく異なることがわかる。しかし, 密度測定によるスエリング量では, ボイドによるスエリング量と相変態等の他の原因によるスエリング量を分離する事ができない。そこで更に, これらの試料の内部組織の観察により密度測定によるスエリング量と内部組織との関係について明らかにする事によりスエリング量の原因についての検討を加えていく。

3.2 Nb-1Zr 合金 (CA 材, AA 材) の照射前の内部組織

Fig. 2 (a), (b) は, それぞれ Nb-1Zr 合金の AA 材, CA 材の照射前の内部組織である。AA 材, CA 材共に, 転位の存在が確認された。両材共に転位の残る組織になっている理由は, 1033K での溶体化処理温度及び 593K での時効処理温度は, 一般的に転位の回復が起こると考えられる $0.5T_m$ (Nb-1Zr 合金では, 約1370K に相当) に比べて低い為であろう。転位密度はそれぞれ, $4.1 \times 10^{14} (m^{-2})$, $4.9 \times 10^{14} (m^{-2})$ であり, 20%の冷間加工を加えた CA 材の方が多少 AA 材に比

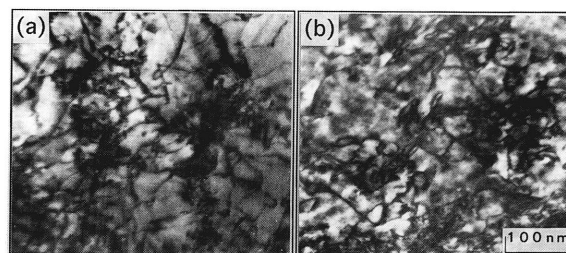


Fig. 2 Microstructures of unirradiated Nb-1Zr specimens. (a) AA (b) CA

べて高い値が得られた。

3.3 Nb-1Zr 合金の損傷組織観察

Fig. 3 は、高速中性子照射された Nb-1Zr 合金の熱処理のみを施した AA 材の照射量32.2-47.2dpa における損傷組織の照射温度 (693-1003K) 依存性である。写真の上段及び下段は、それぞれ転位コントラスト及びボイドコントラスト条件で撮影された写真である。直径約50-100nm の大きなボイドが、低温 (693-744K) 領域では観察されており、高温 (918K) 領域では約2nm の非常に小さなボイドが見られる。744Kでは写真からは見えにくい、密度の低い大きなボイドと高

密度の小さなボイドが同時に存在する。転位密度は高温(918K)領域において、若干の減少が観察されるが、低温領域から高温領域まで高い転位密度を保つ傾向がある。

Fig. 4 は、熱処理後に冷間加工を加えた CA 材の損傷組織のボイドコントラストである。上段及び下段は照射量が異なり、それぞれ11.5-15.0dpa と38.2-50.3dpa となっている。横には、照射温度 (693-1003K) をとっている。写真から分かるように、ボイドは、低温(693K)及び高温(918-1003K)領域では観察されるが、AA 材と同様にボイドの全く観察されない

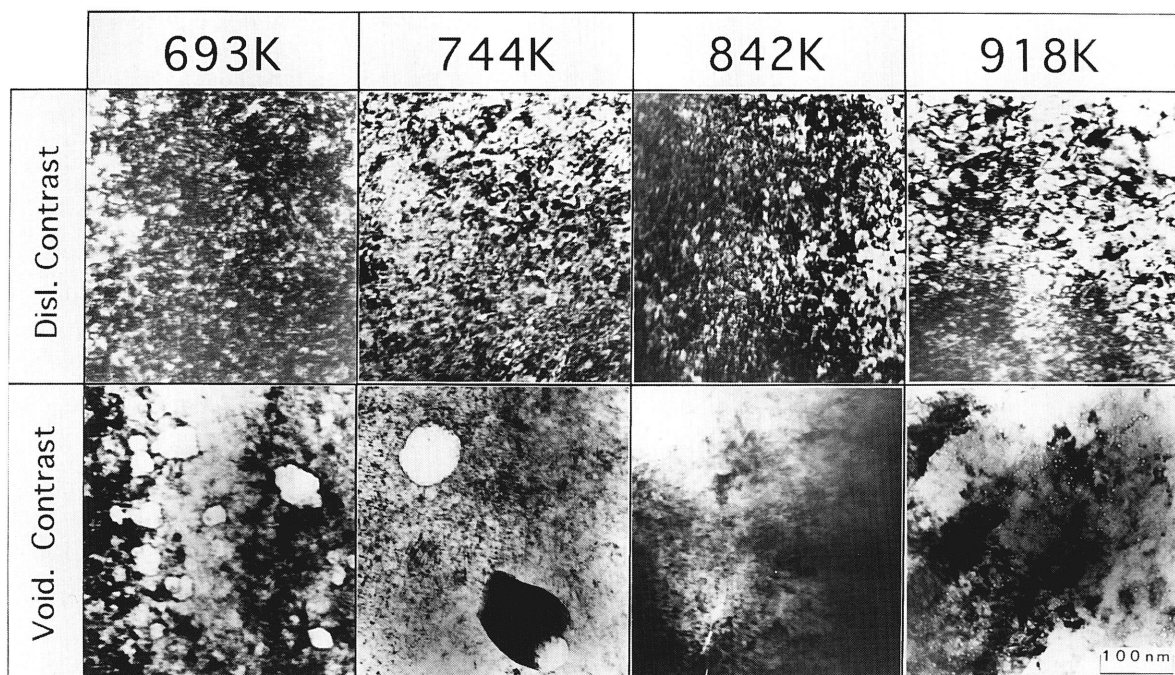


Fig. 3 Microstructure of Nb-1Zr Specimens (AA) irradiated at 693-918K to 32.2-47.2dpa.

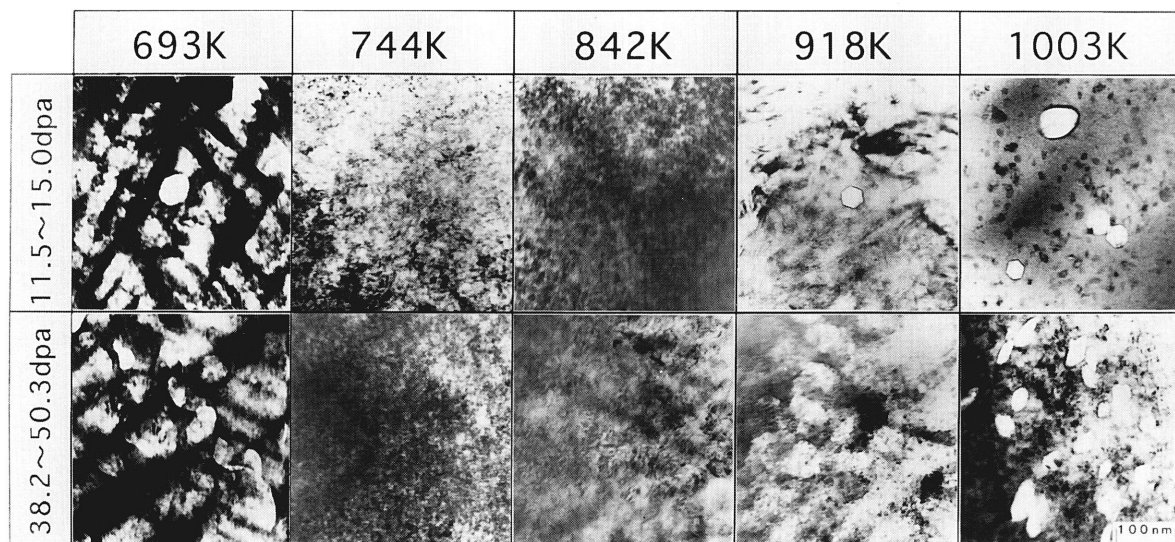


Fig. 4 Microstructure of Nb-1Zr Specimens (CA) irradiated at 693-1003K, imaged in void contrast.

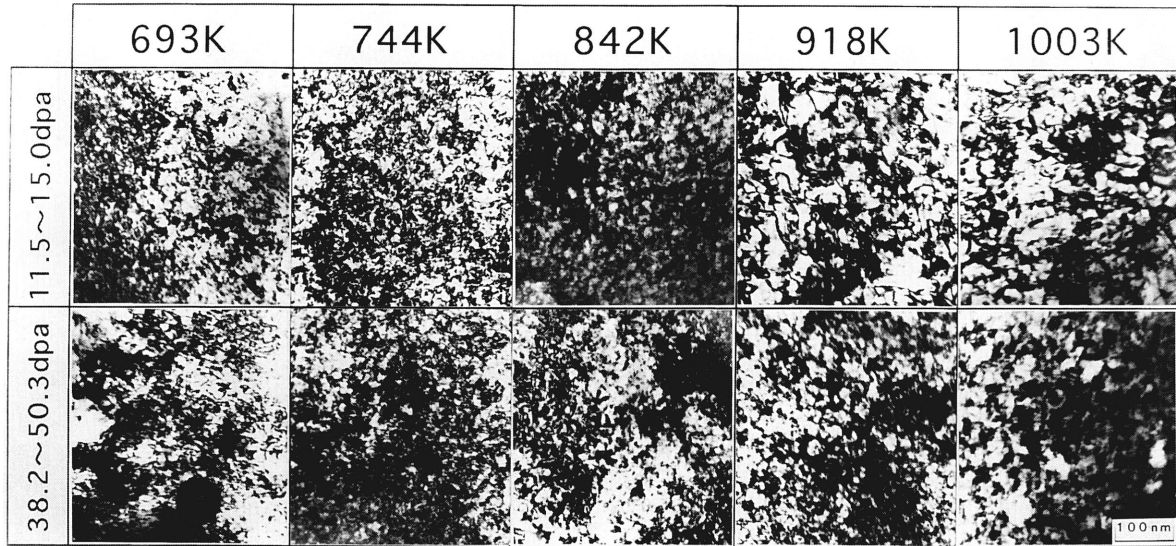


Fig. 5 Microstructure of Nb-1Zr Specimens (CA) irradiated at 693-1003K, imaged in dislocation contrast.

中間温度(744-842K)領域が存在する。この傾向は、照射量によらず、CA 材では、照射量が増加するにつれてボイド数密度が増加している。ボイドの直径は、693K 及び1003K については、照射量の増加による変化はほとんどない。これに対し918Kでは、微細なボイドも観察されるが、平均直径が19nm から80nm とかなり増大している。

Fig. 5 は、Nb-1Zr 合金の CA 材の転位組織を示すものである。転位密度は、照射温度の増加につれて減少しており、ボイドの存在する低温(693K)領域では高く、高温(918-1003K)領域では低い事が分かる。この事実から、低温及び高温領域でのボイドの発生機構には、違いがあるものと予想される。

4. 考 察

電子顕微鏡写真によりボイドスエリング量と転位密度を求め、それらを AA 材(実線)及び CA 材(破線)により照射温度に対してプロットしたものが Fig. 6 及び 7 である。AA 材は、ボイドの存在する温度領域が低温側(693K,744K)と高温側(918K)の二つの領域に分かれている。転位密度は、CA 材に比べ高温領域にいたるまで高い値を保つ傾向がある。

一方 CA 材も、AA 材と同様にボイドの存在する温度領域が、低温側(693K)と高温側(918K,1003K)の二つの領域に分かれており、照射量の増加によりボイドスエリング量が上昇していることが分かる。低温側(693K)での転位密度は、ボイドが観察されない中間温度領域(744K,842K)に比べほとんど変化していない、それに対してボイドが観察される高温側(918K, 1003K)では照射温度の上昇につれて転位密度の減少が見られる。これらの事から低温領域では、

高温側とは異なるボイドの発生機構が働いているものと考えられる。低温領域でボイドが観察される理由は

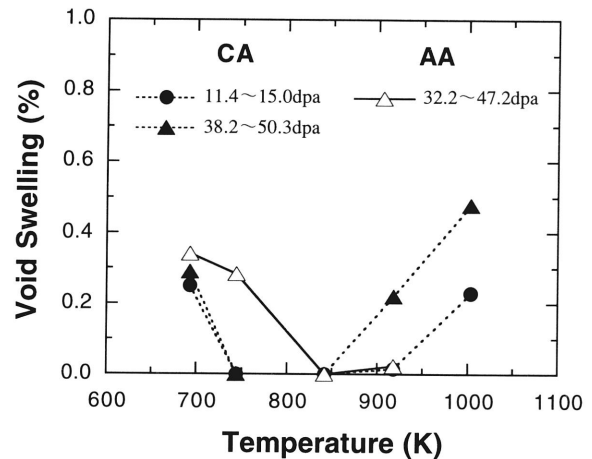


Fig. 6 Temperature dependence of void swelling in Nb-1Zr alloy.

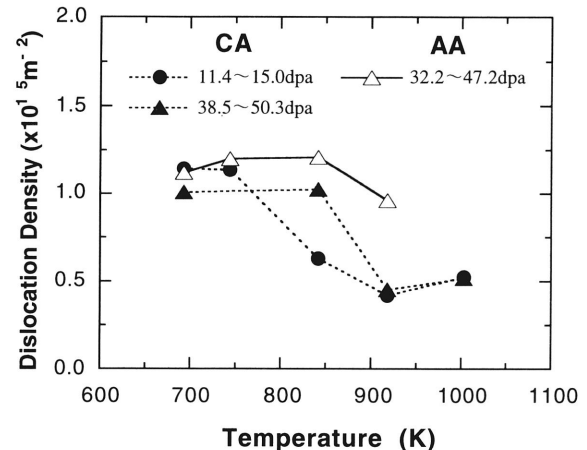


Fig. 7 Temperature dependence of dislocation density in Nb-1Zr alloy.

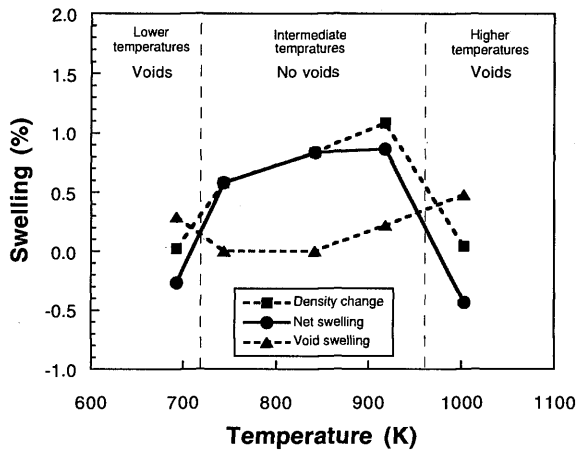


Fig. 8 Relationship between apparent (net) and actual swelling in the CA specimen at 38.2-50.3dpa.

明らかではないが、酸素等の不純物元素が転位組織に密接に影響を与えたことによるものとみられる。更に、ボイドの存在する温度領域が AA 材に比べて低温側に移動していることから、上述した不純物元素の効果が、20%の冷間加工により導入された転位組織に影響される事を示唆している。ボイドスエリング量に関しては、AA 材、CA 材共に今回の実験条件においては、1%以下であり良好な結果が得られた。

次に、密度測定によるスエリング量とボイドスエリング量の関係について考察を行う。相変態に関連したと考えられる体積変化を算出するために、密度測定により得られたスエリング量から、内部組織の観察より得られたボイドスエリング量を差し引いた結果を Fig. 8 の実線で示す。この結果は、CA 材の 38.2-50.3dpa の照射量におけるものである。この図から明らかのように、ボイドの観察される低温 (693K) 及び高温 (1003K) 領域でマトリックスの収縮が顕著に起こっており、これが結果的に、これらの温度領域で密度測定によるスエリング量が低く測定されたと理解される。逆に、ボイドの観察されていない中間温度領域 (744K, 842K) では、マトリックスの膨張が起こっており 1%未満の値のスエリング量が観察されている。CA 材に対し、AA 材は 918K を除く温度領域で密度測定によるスエリング量が負になっているが、内部組織の観察により照射温度が 693K 及び 744K においてそれぞれ平均 20nm, 14nm のボイドが観察されていることから、CA 材に比べてマトリックスが収縮する傾向が強いと考えられる。よって、密度測定によるスエリング量は、二つ以上の過程の競合した結果であり、初期条件は少なくともこれらの過程の一つに影響を与えていることも明らかである。ところで、Nb-1Zr は平衡状態図において bcc の単一相である。しかしながら、Nb-1Zr 中の酸素や窒素等の不純物原子が相変態

に影響を与え hcp 相等を誘起させることが以前の研究で報告されている⁶⁾。さらに、相変態は照射によりマトリックス中に導入された点欠陥により促進されることが知られている。今回の研究から、Nb-1Zr 合金を核融合炉の第一壁材料として使用する際には、照射下での相安定性の理解が必要であると考えられる。

5. 結 論

Nb-1Zr 合金の高速中性子照射実験により以下の結果が得られた。

- 1) Nb-1Zr 合金のボイドスエリング量は今回の実験条件において、AA 材、CA 材共に全ての照射温度、照射量において 1%以下であり良好な結果が得られた。
- 2) ボイドの存在する温度領域は、熱処理及び加工条件の異なる二種の両材料で、低温側と高温側の二つの温度領域に分かれている。
- 3) ボイドの観察される温度領域は、CA 材の方が、AA 材に比べて低温側に移動している。
- 4) 転位密度は AA 材では、高温 (918K) 領域において、若干の減少が観察されるが、CA 材に比べ、低温領域から高温領域まで高い転位密度を保つ傾向がある。CA 材では、ボイドの存在する低温 (693K) 領域から存在しない中間温度領域 (744K, 842K) までほとんど変化がなく高いが、ボイドの存在する高温 (918-1003K) 領域では低くなっている。
- 5) 密度測定により得られたスエリング量は、内部組織の観察によるボイドスエリング量とは、量、傾向ともに一致せず、相変態に伴うマトリックスの膨張や収縮の存在が予想される。

謝 辞

本研究は、平成 6 年度総合理工学研究科奨励研究費によって行なわれたものであり、関係各位に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) F.A. Garner, L.R. Greenwood and D.J. Edwards: J. Nucl. Mater., 212-215 (1994) 26-430.
- 2) B.A. Loomis, A. Taylor and S.B. Gerber: J. Nucl. Mater., 56 (1975) 25-37.
- 3) B.A. Loomis and S.B. Gerber: J. Nucl. Mater., 97 (1981) 113-125.
- 4) B.A. Loomis and S.B. Gerber: J. Nucl. Mater., 103&104 (1981) 1193-1198.
- 5) B.A. Rogers Atkins; Trans. AIME 203 (1955) 1034.
- 6) K. Nakai, C. Kinoshita and S. Kitajima; J. Nucl. Mater., 98 (1981) 131.
- 7) K. Nakai, C. Kinoshita, Y. Muroo and S. Kitajima; Phil. Mag., A48 (1983) 215.