九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

アルミナ分散強化型銅合金の内部組織変化に及ぼす 温度変動効果

隅野, 裕也 九州大学総合理工学府先端エネルギー理工学専攻

渡辺, 英雄 _{九州大学応用力学研究所}

吉田, 直亮 九州大学応用力学研究所

https://doi.org/10.15017/14560

出版情報:九州大学大学院総合理工学報告.28(2),pp.241-245,2006-09.九州大学大学院総合理工学府 バージョン: 権利関係:

アルミナ分散強化型銅合金の内部組織変化に及ぼす 温度変動効果

隅野 裕也^{*1[†]},渡辺 英雄^{*2},吉田 直亮^{*2}

(平成18年7月31日 受理)

Influence of Stepwise Change of Irradiation Temperature on Microstructural Evolution of Alumina Dispersion Strengthened Copper Alloys

Yuya SUMINO, Hideo WATANABE, Naoaki YOSHIDA

†E-mail of corresponding author : *sumino@riam.kyushu-u.ac.jp*

To investigate the effect of varying temperature irradiation on alumina dispersion strengthened copper alloys GridCop CuAl15, it were irradiated with 2.4MeV Cu ions up to 30dpa under 473K and 673K constant temperature and periodic temperature variation in the region of 473K to 673K. TEM observation of CuAl15 before irradiation revealed microstructure decorated high density of precipitates. After 30dpa at 673K constant temperature, voids were formed in CuAl15. However, the strongly dependence of grain size on void formation was observed. On the other hand, by periodic temperature irradiation, the number density of voids in CuAl15 was decreased as compared with 673K constant temperature irradiation. The result of CuAl15 is in good agreement with that of pure copper irradiated under same irradiation conditions.

Key words : CuAl15 , Varying Temperature Irradiation , Microstructure , Pure Copper , ODS

1.緒 言

国際熱核融合実験炉 (ITER) におけるプラズマ対 向機器であるダイバーターは,核融合反応で生じる荷 電粒子の入射による高い熱負荷や高エネルギー中性子 照射に曝される.高エネルギー中性子などが材料中に 入射すると,原子のはじき出しを生じ内部組織変化等 の照射損傷を生じる.この結果,機械的性質の劣化な ど金属材料固有の材料物性の低下や体積膨張(以下, スエリング)などの問題が起き,炉材料としての機能 が著しく低下する.従って,ダイバーター機器および その冷却に必要なヒートシンク材料は,高熱伝導性や 熱応力に耐えうる高強度を有し,更に中性子照射への 耐久性などの性質が要求される.

アルミナ分散強化型銅合金 (Oxide Dispersion Strengthened Copper Alloy) は,高温強度,耐スエリ ング特性および中性子照射による熱伝導率の低下が小 さいなどの理由から,ITER におけるダイバーターヒ

*2応用力学研究所

ートシンク候補材として注目されている [1-3]. ODS 銅合金については、これまでにも中性子およびイオン 照射により照射前後の内部組織について調べられてお り,以下のことが明らかになってきている [4-10].照 射温度が 573K 以下における照射後の内部組織は,転 位ループや積層欠陥四面体 (SFT) など微細な欠陥集 合体が高密度に形成されるが,スエリングの原因とな るボイドは形成されない.一方,673K 以上では,微 細な欠陥集合体の形成が減少し、ボイドが形成される. これらの結果より,欠陥形成の温度依存性は,同様の 条件下において照射された純銅の結果とよく一致して いるが,ボイド形成については,純銅と比較して非常 に低密度で局在化したボイド組織になることが報告さ れている.ODS 銅合金のボイド形成については,照射 欠陥とアルミナ粒子の相互関係や照射前の熱処理条件 などから様々な議論がされているが,未解決な部分が 多い.また, ITER ではプラズマをパルス的に燃焼さ せるため, 炉材料は一定温度ではなく温度変動条件下 において高エネルギー中性子照射に曝される.照射中

^{*1} 先端エネルギー理工学専攻博士後期課程

の温度変動が内部組織変化に及ぼす影響については, これまでにも研究されており,損傷組織の形成が一定 温度条件のように単純でないことが明らかになってい る [11,12].しかしながら,そのメカニズムは,不明 な点が多い.また,ダイバーターヒートシンク候補材 料である ODS 銅合金の内部組織変化に及ぼす温度変 動効果については,ほとんど調べられていない.

そこで,本研究では,ODS 銅合金の内部組織変化に 及ぼす温度変動効果を調べ,そのメカニズムを明らか にすることを目的とした.

2.実験方法

本実験では,SCM Metal社製アルミナ分散強化型銅 合金Grid Cop CuAl15 (Al₂O₃をAl換算で0.15wt%含 有)を用いた.低速カッターにより厚さ約0.15mmの 板に切り出し後0.1mm程度まで機械研磨を行い,電解 研磨を施したものを照射試料とした.

重イオン照射には九州大学応用力学研究所設置の HVEE社製タンデム型加速器を用い,エネルギー 2.4MeV Cu²⁺照射を行った.照射条件は,473Kおよび 673K-定温度で,照射量30dpaまで照射を行った.ま た,Fig.1に示すように,全照射量を変化させず,473K



Irradiation Dose (dpa)

Fig.1 Schematic view of 4cycles temperature variation in the case of 30dpa



Fig.2 Range of damage and incidented copper ion distribution calculated by the TRIM-3D code

0.75dpa/673K 6.75dpa照射を連続して4回繰り返す4 サイクル温度変動照射も行った.また,比較材として Jonson-Matthey 社製高純度 (99.999%) 銅を用い, 照射量を1dpaとし同様の照射実験を行った.イオン照 射では,照射欠陥の大部分が照射表面近傍に形成され るため,TRIM-3D codeを用いて本実験条件における 損傷量の深さ分布を計算した (Fig.2).図より, 2.4MeV Cu²⁺をCuに照射した場合,損傷ピークが 400nm程度に形成されることがわかる.従って,照射 後全ての試料について損傷ピーク付近を観察するため, 表面より400nm付近を背面研磨法により薄膜化し,透 過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて内部組織観察を実施 した.

3. 結果および考察

3-1. 純 銅

純銅に473Kおよび673K-定温度および4サイクル 温度変動において,1dpa照射後の微細組織を暗視野像 により観察した結果をFig.3に示す.473Kでは,微細 な格子間(以下,I)型および原子空孔(以下,V)型の



Fig.3 Comparison of the small defect structures irradiated in pure copper by constant temperature and 4cycle temperature variation irradiation.



Fig.4 Comparison of the void structures irradiated in pure copper by constant temperature and 4cycle temperature variation irradiation.

転位ループに加えSFTなど微細欠陥集合体が高密度に 形成された.TEM像より算出した転位ループおよび SFTの数密度は、それぞれ2.0x10²³/m³、1.9x10²²/m³ であった.しかしながら,照射温度を上昇させた673K では,そのような微細欠陥集合体はほとんど形成され ず,473K照射と比較すると減少している.673K一定 照射後における転位ループおよびSFT数密度は, それ ぞれ2.4x10²²/m³, 1.3x10²²/m³であった.473K照射と 比較して,転位ループ数密度は約1桁減少していたの に対し,SFT数密度はほとんど変化しておらず欠陥組 織におけるSFTの割合が増加していた.一方,4サイ クル温度変動照射では、473K照射中において形成され ていると考えれる微細欠陥集合体の多くが消滅してお リ,673K照射後と同様に微細な欠陥集合体の数密度が 非常に減少していた 測定された転位ループ数密度は, 673K照射後よりも更に減少し1.3x10²²/m³.また,SFT 数密度においては,約1桁減少しており1.9x10²¹/m³で あった.

Fig.4に,明視野像を用いて観察したボイド組織を同様にして示す.一定温度照射では,673K照射後においてボイドが形成されていた.数密度および平均サイズは,それぞれ1.1x10²⁰/m³,62nmであった.また,こ



Fig.5 Microstructure before unirradiated ODS copper alloy



Fig.6 Comparison of microstructure of ODS copper alloy irradiated to 30dpa under constant temperature and periodic temperature variation irradiation.

のときのスエリングは,1.4%であった.一方,4サイ クル温度変動照射においても,673K照射後と同様にボ イドが観察された.しかしながら,4サイクル温度変 動照射では,673K照射と比較してボイドの形成が減少 しており,数密度が約1桁低下し7.7x10¹⁸/m³であった. 一方,平均サイズは91nmと大きく成長していたが, スエリングは,数密度の減少にともない約1桁減少し ていた(0.2%).

3-2. アルミナ分散強化型銅合金 Grid Cop CuAl153-2-1. 照射前の内部組織

Fig.5に照射前のODS銅合金の内部組織を示す.数 密度5.1x10²²/m³,平均サイズ2.1nm程度の微細なアル ミナ粒子が,試料全体に分布していた.また,結晶粒 径は,平均800nmと非常に小さい.結晶粒において密 度は異なるが,製造過程によって導入されたと思われ る加工転位も多数観察された.

3-2-2. 照射後の内部組織

Fig.6にODS銅合金の一定温度および温度変動照射 後の微細組織を示す.473K照射後では,照射前に観察 された高密度なアルミナ粒子に加え,転位ループや SFT等の微小欠陥集合体が多数形成されていた.転位



Fig.7 Number density of small clusters and SFT measured by TEM observation versus irradiation conditions

ループおよびSFT数密度は、それぞれ1.7x10²³/m³およ び3.0x10²¹/m³であった.アルミナ粒子と転位ループを 厳密に区別をするのが困難であるため,転位ループ数 密度はアルミナ粒子も含んでいる.また,673K照射お よび4サイクル温度変動照射後では,473K照射と比較 して微小欠陥集合体が顕著に減少していた .Fig.7に測 定された数密度の照射条件依存性を示す.グラフには, 照射量が1dpaにおける純銅の結果も示してある .ODS 銅合金における転位ループの数密度変化は,純銅の結 果と同様に673Kおよび4サイクル温度変動照射後にお いて473K照射後と比較して約1桁減少している.しか しながら, ODS銅合金におけるSFT数密度は, 照射条 件に関らずほとんど変化しておらず純銅の結果と大き く異なった.特に473K照射後におけるSFT数密度を比 較すると1桁程度低く,ODS銅合金ではSFTの形成が 抑制されていることがわかる.

Fig.8にボイド組織を示す.純銅の結果と同様に 673Kおよび4サイクル温度変動照射後においてボイド が形成されていた.それぞれのボイド組織を広範囲で 観察した結果をFig.9に示す.図より673K照射後にお



Fig.8 Comparison of void structures of ODS copper alloy irradiated to 30dpa under constant temperature and periodic temperature variation irradiation.



Fig.9 Comparison of the void structures irradiated Grid Cop CuAl15 under 673K constant temperature (left) and periodic temperature variation (right).

けるボイド形成は,結晶粒によって大きく異なり,結 晶粒サイズに強く依存していることがわかる.一方, 4サイクル温度変動照射では,673K照射と比較してボ イド数密度が顕著に減少しているがわかる.また,4 サイクル温度変動照射では,673K一定温度照射でボイ ドが形成されている同程度の結晶粒においても,ボイ ドが形成されていないことがわかる.ボイド形成に及 ぼすこのような温度変動効果は,純銅の結果とよく一 致しており,次のようなメカニズムが考えれる.原子 空孔の移動が活発になる673Kでは,照射中に微小サイ ズのボイドが形成されると考えられる.しかしながら,



Fig.10 The mechanism of void formation during periodic temperature variation



Fig.11 Dependence of number density, size and swelling of void in CuAl15 irradiated to 30dpa at 673K constant on grain size



Fig.12 Effects of grain boundary, alumina particles and dislocation on void formation

引き続き行われる473K照射では,照射中の格子間原子 の移動が,原子空孔のそれよりも活発であるため,微 小サイズのボイドが,格子間原子と再結合することに より縮小および消滅すると考えられる.このようなプ ロセスが周期的に繰る返されることにより,ボイドの 核形成自体が抑制され,数密度が減少したボイド組織 が形成されると思われる(Fig.10参照).

673K一定温度照射後のボイド組織においてFig.9よ り測定されたボイド数密度, サイズおよびスエリング の結晶粒依存性をFig.11に示す .このグラフより ,1µm より小さな結晶粒では,ボイド数密度が非常に低くス エリングも低いことがわかる.一方,1µm以上の結晶 粒になると,数密度が急激に増加しておりボイドの形 成が活発になっている.また,これにともない1µm以 上の結晶粒では,スエリングも増加している.このよ うなボイド形成の結晶粒依存性には,結晶粒界の表面 効果により格子間原子や原子空孔が粒界へと消滅する ために生じる欠陥の欠乏領域が,大きく影響している と考えられる.Fig.12に示すように1µm未満の結晶粒 では,欠陥の欠乏領域が粒全体を占めるためボイドの 形成が抑制される.一方,1µm以上の結晶粒では,そ の内側でボイドが形成されると考えられる .その結果, Fig.9で示された様にボイドの形成が結晶粒のサイズ に強く依存していると思われる.しかしながら,ボイ ドの核形成は,酸素や窒素等の不純物によっても非常 に影響を受けることが知られている.また,ボイドの 成長は,格子間原子や原子空孔の消滅点(以下,中性 シンク) である粒界やアルミナ粒子によっても大きく 左右される.そのため,ボイドの核形成や成長に関し ては、不純物の影響やアルミナ粒子の分布等も考慮し、 今後より詳細に検討する必要がある.

4.結 言

ODS銅合金の内部組織変化に及ぼす温度変動効果 に関する知見を得るため,一定温度および温度変動条 件下において重イオン照射を行った.

- a) 473K照射後では,微細な欠陥集合体が高密度に 形成されていた.しかし,673K照射では,その ような欠陥集合体は,ほとんど形成されておらず 数密度が減少した.このような内部組織変化の温 度依存性は,純銅の結果とよく一致していた.
- b) 純銅と比較してSFTの形成が顕著に抑制されて
 いた.

- c) 673K照射後では,ボイドが形成されていた.し かしながら,その数密度は,結晶粒径に大きく依 存していた.
- d) 温度変動を繰り返した4サイクル温度変動照射では,ボイド形成が顕著に抑制されていた.内部組織変化に及ぼすこのような温度変動効果は,純銅の結果とよい一致を示した.

これらの結果より、CuAl15においても純銅と同様に多 サイクル温度変動によりボイドの形成が抑制されると 考えらえる.しかしながら、CuAl15の場合、結晶粒が 微細であることから、粒界が欠陥の中性シンクとして 有効に作用していることが本研究より明らかになった.

参考文献

- O. K. Harling, G. P. Yu, Grant and J. E. Meyer, J. Nucl. Mater. 103-104 (1981) 127-132
- [2] ITER Joint Central Team, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 3-10
- [3] J. W. Davis, D. E. Driemeyer, J. R. Haines and R. T. McGrath, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 1353-1359
- [4] H. R. Brager, j. Nucl. Mater., 141-143 (1986) 79-86
- [5] R. J. Livak, T. G. Zocco and L. W.Hobbs, J. Nucl. Mater. 144 (1987) 121-127
- [6] N. Wnderka, Y. Yuan, L. Jiao, R. P. Wahi and H.
 Wollenberger, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 1356-1359
- [7] S. J. Zinkle, A. Horsewell, B. N. Singh and W. F. Sommer, J. Nucl. Mater. 195 (1992) 11-16
- [8] Jing Li, Hui Xu, Jinnan Yu, Baoli Wu and Qingfu He, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 945-949
- [9] M. Hatakeyama, H. Watanabe, M. Akiba and N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 307-311 (2002) 444-449
- [10] B. N. Singh, D. J. Edwards, M. Eldrup and P. Toft, J. Nucl. Mater. 249 (1997) 1-16
- [11] M. Kiritani , T. Yoshiie , S. Kojima , Y. Satoh and K. Hamada , J. Nucl. Mater. 174(1990)327-351
- [12] T. Muroga and H. Watanabe , ASTM STP 144 (2004) 753-762