

照射されたステンレス鋼の陽電子消滅寿命計測

蔵元, 英一

九州大学応用力学研究所 : 教授

佃, 昇

九州大学応用力学研究所 : 助教授

青野, 泰久

九州大学応用力学研究所 : 助手

竹中, 稔

九州大学応用力学研究所 : 文部技官

<https://doi.org/10.15017/4743747>

出版情報 : 應用力學研究所所報. 60, pp.167-184, 1984-09. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



照射されたステンレス鋼の陽電子消滅寿命計測

蔵 元 英 一* 佃 昇†
青 野 泰 久‡ 竹 中 稔§

概 要

四種類のステンレス鋼 (316, JPCA, HT-9, JFMS) について主として低温電子線照射後, 室温より上で等時焼鈍を行い陽電子消滅寿命計測により回復過程を追求した. 寿命スペクトルは通常の 3 成分解析が行なわれ, 第 2 成分が照射で導入された原子空孔の挙動を示していると考えられる. オーステナイト系の 316 と JPCA では 250°C 付近を中心に第 2 成分の減少消滅が見られ, フェライト系の HT-9, JFMS では 150°C 付近で同様の傾向が見られたがこれは原子空孔がシンクへ移動消滅したものと考えられる. 電子線のエネルギーが 28 MeV の時も 2.5 MeV の時もあまり差はなく, 又 55 MeV の C^{5+} イオンの照射後も JFMS の場合には同様の結果を示した. これらの結果はオーステナイト系とフェライト系ステンレス鋼のボイドスエーリングの差異を考える上で重要な方向付けを与える.

Key words: Stainless steel, Electron irradiation, C ion irradiation, Positron, Positron annihilation lifetime, Vacancy, Isochronal annealing, Void swelling.

1. は じ め に

最近, 高速増殖炉や核融合炉の構造材料の候補にオーステナイト系およびフェライト/マルテンサイト系のステンレス鋼があげられているが¹⁾, 高温重照射下での挙動をより詳しく調べることが必要不可欠である. 照射下での材料の挙動をミクロにみると原子レベルの欠陥の生成, 集合, 消滅の過程である. すなわちフレンケル対の挙動がすべての基礎になっている. ところが現在ステンレス鋼に関して原子空孔および格子間原子の移動エネルギーすら明らかにされていない. わずかに Fe-Ni-Cr 鋼について低温照射後の電気抵抗測定によってある程度の情報が Dimitrov 等によって得られているのみである²⁾³⁾. 特に高温重照射で問題になるボイドスエーリングの現象においては, 原子空孔の移動エネルギーの大きさが非常に重要な役割を果たしている. 本報告においては原子空孔の挙動を追跡するのに最も良い手段と考えられている陽電子消滅計測法を用いて, 照射導入されたステンレス中の原子空孔の移動温度を求めた結果について記す. 特にオーステナイト系ステンレス鋼とフェライト/マルテンサイト鋼の

* 九州大学教授, 応用力学研究所

† 九州大学助教授, 応用力学研究所

‡ 九州大学助手, 応用力学研究所

§ 文部技官, 九州大学応用力学研究所

差についてボイドスエーリングとの関連から議論する。

2. 試料および実験方法

表1に用いられた各種ステンレスの合金組成を示す。JPCAはJapanese Prime Candidate Alloyの略であり、通常の316鋼のNi量を13%から16%に上げてオーステナイト相を安定化させ、又Tiを添加して耐照射性を増加させるように設計された改良ステンレス鋼である。JFMSはJapanese Ferritic Martensitic Steelの略であり、炭素量が少ないので二相合金になっている。HT-9は通常のフェライト/マルテンサイト鋼でありマルテンサイト一相である。熱処理条件を表2に示す。

表1 各種ステンレス鋼の合金組成

	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Al	Ti	B	Nb	Co	Fe
316	0.077	1.00	1.81	0.029	0.003	0.03	13.60	16.20	2.46	0.03	0.089	0.0032	0.04	0.01	bal
	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	Ti	B	Nb	N	Fe		
JPCA	0.06	0.53	1.79	0.027	0.009	14.57	16.22	2.37	0.24	0.0035	—	—	bal		
	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	W	V	Fe				
HT-9	0.20	0.33	0.63	0.004	0.006	0.56	12.93	1.04	0.56	0.30	bal				

(wt %)

JFMS	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Nb	N
	0.05	0.67	0.58	0.009	0.006	0.94	9.85	2.31	0.12	0.06	0.01

表2 熱処理条件

Thermal Treatment	
JPCA	Solution-Annealed at 1050°C in Vacuum for 1 hr. +Fast Furnace-Cooled to R. T.
JFMS	Austenitized at 1050°C in Vacuum for 1 hr. +Fast Furnace-Cooled to R. T. +Tempered at 750°C in Vacuum for 2 hrs. +Fast Furnace-Cooled to R. T.

電子線照射は京大原子炉ライナック (LINAC-KURRI) (28 MeV, 15 μ A/cm²) と原研高崎ダイナミトロン (2.5 MeV, 15 μ A/cm²) で共に液体窒素中にて行われた。照射量は前者で 6×10^{18} e/cm², 後者で 1×10^{18} e/cm² 程度である。夫々 10^{-3} , 10^{-4} dpa 程度の total dose になる。照射後測定直前まで液体窒素中に保存された。

陽電子消滅寿命計測は米国オーテック社製の時間分解能 235 psec の装置にて行われた⁴⁾。得られた寿命スペクトルは大型計算機により三成分解析が最小自乗法に従って行われた。測定は室温で行われ 400°C まで 75°C おきに等時焼鈍 (20 分) が行われその都度寿命測定が行われた。

3. 測定結果と解釈

図1に316ステンレス鋼の陽電子消滅寿命スペクトルを28 MeV 電子による照射前と後を一緒に示す。明らかに照射後の方が傾斜がゆるくなっており、すなわち寿命の長い成分が含まれている。これは照射で導入された原子空孔によることは疑いの余地がない。400°C まで20分ずつ75°C おきに等時焼鈍をして同様の測定を室温で行った結果を図2に示す。三成分解析を行った結果を図3に示す。第2成分、すなわち原子空孔の数が250°C 付近を中心に減少していることがわかる。従って原子空孔が移動してシンクに消滅して行く過程を示していると考えられる。図4、5にJPCA に対する同様の測定結果を示す。図5からわかるように第2成分の減少、すなわち原子空孔の移動消滅が316鋼の場合と同様に250°C を中心に生じている。従って Ti が0.25%含まれていることが原子空孔の移動温度にそれ

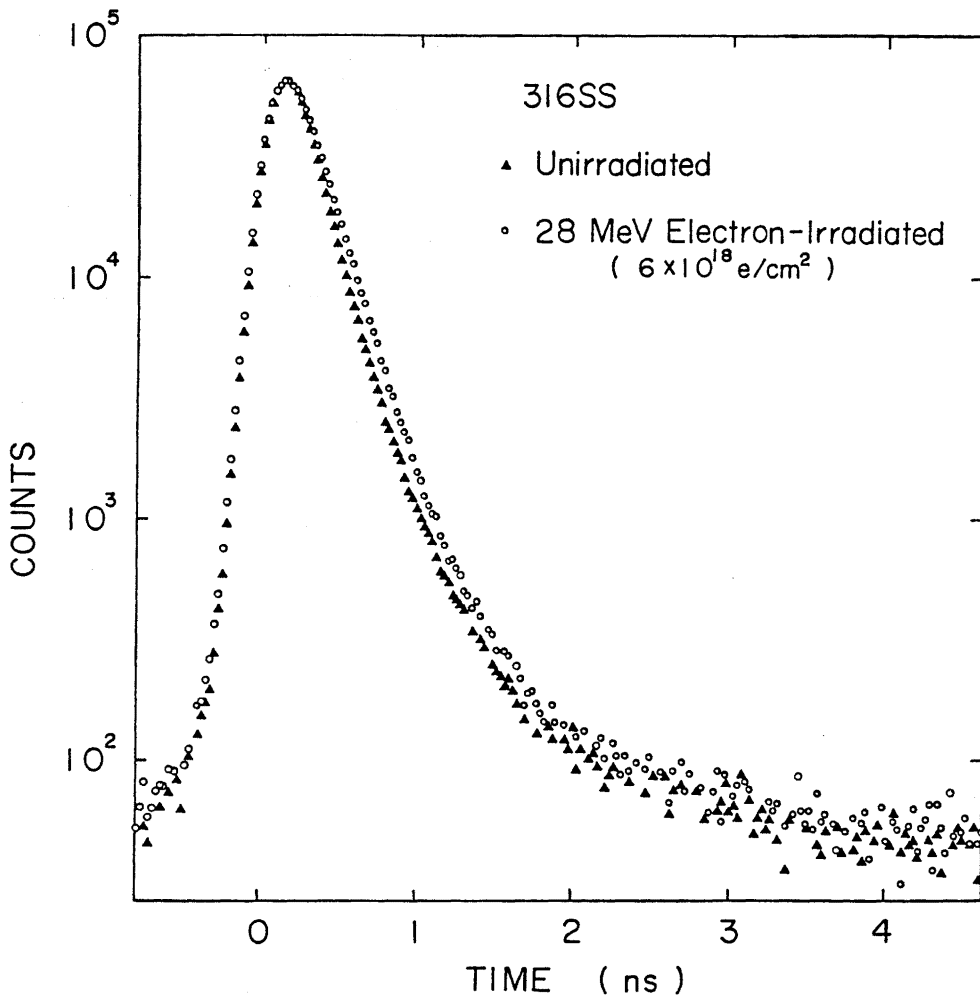


図1 316 ステンレス鋼の陽電子消滅寿命スペクトルに対する電子線照射効果

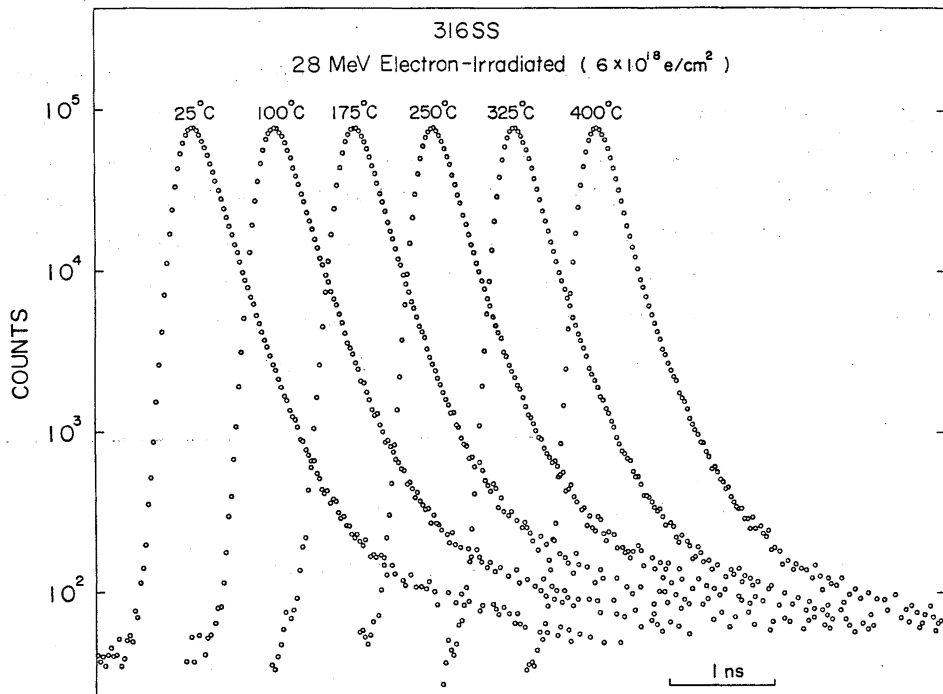


図2 電子線照射された 316 ステンレス鋼の陽電子消滅寿命スペクトルと等時焼鈍効果

ほど大きな影響を与えていないことがわかる。これは Ti が単体で存在しているのではなく TiC の形をとっているためと考えられる。

次にフェライト/マルテンサイト鋼である HT-9 の 28 MeV 電子による低温照射後の同様の測定結果を図 6, 7 に示す。 I_2 の減少, すなわち原子空孔の移動及びシスクへの消滅が 150°C を中心に生じていることがわかる。HT-9 の場合にはマルテンサイト相になっている割合が 1 に近いと考えられるが, それが約 0.5 と考えられる JFMS の場合の同様の結果を図 8, 9 に示す。この場合にも原子空孔の移動消滅は 150°C を中心に生じていることがわかる。すなわちマルテンサイト相の多少にかかわらず原子空孔の移動の活性化エネルギーはそれほど変わらないことを示している。

図 10, 11 に JFMS を 2.5 MeV 電子線による低温照射した後の同様の測定結果を示す。この場合にも 28 MeV 電子線照射の場合と同様に 150°C を中心に原子空孔の移動消滅が生じている。28 MeV 電子線照射の場合にはカスケードが存在しており, 2.5 MeV 電子線照射の場合にはそれが存在していないので上記の結果は原子空孔の移動消滅温度はフレンケル対の生成形態にあまり強くは依存していないことを示している。

図 12, 13, 14 に 55 MeV の C^{5+} イオンを JFMS に照射した時の飛程と損傷の深さ分布を TRIM コード⁵⁾を用いて計算した結果と照射後の陽電子消滅寿命測定結果を示す。 C^{5+} の飛程が約 30 μm であるのに対し陽電子は 100 μm 以上の深い所まで分布して入ると考えられるので, 照射欠陥についての

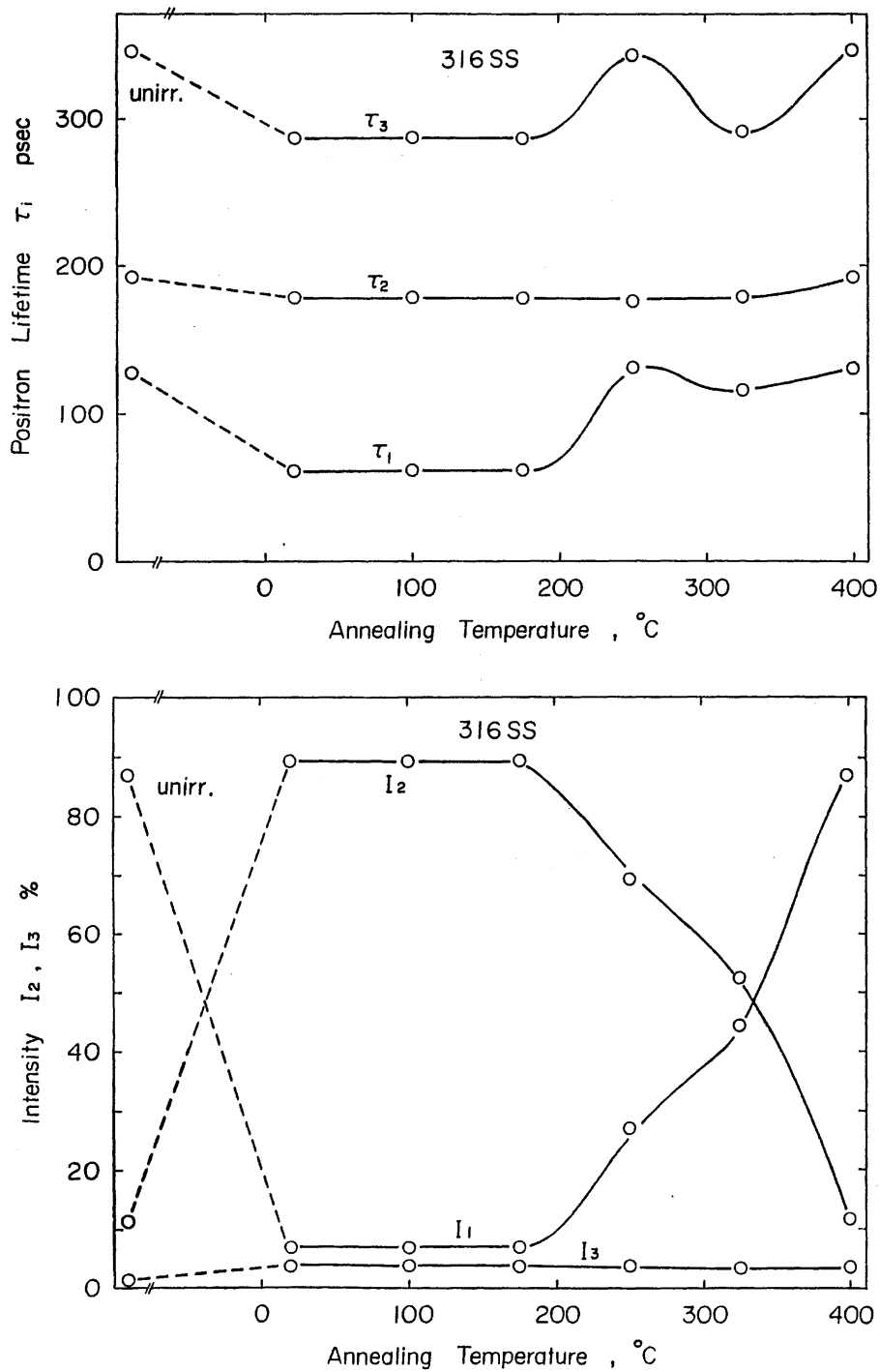


図3 電子線照射された316ステンレス鋼の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

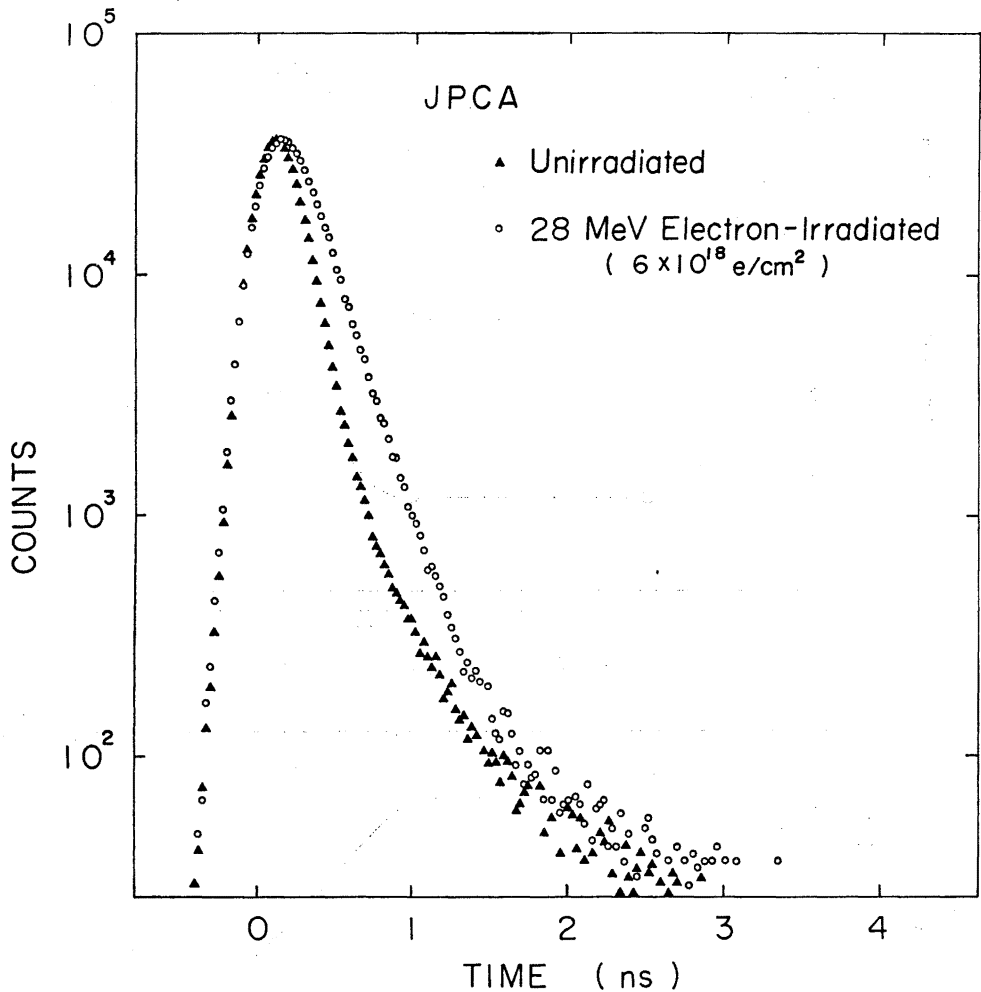


図4 JPCA の陽電子消滅寿命スペクトルに対する電子線照射効果

情報を得るには効率は良くないが電子線照射の時と同様な結果が得られた。すなわち I_2 の減少する温度は約 150°C である。

原子空孔の移動エネルギーを求めるにはさらに等温焼鈍を行わなければならない。しかし原子空孔がシンクに消滅するまでのジャンプ数を1000と仮定して $1000 = \nu t \exp(-E_m^v/kT)$, ($\nu=10^{13} \text{ sec}^{-1}$, $t=1200 \text{ sec}$) の関係から原子空孔の移動エネルギー E_m^v を求めるとオーステナイト系では $T=250^\circ\text{C}$ に対して $E_m^v=1.36 \text{ eV}$, フェライト系では $T=150^\circ\text{C}$ に対して $E_m^v=1.1 \text{ eV}$ が得られる。Dimitrov 等³⁾ も Fe-Ni-Cr系に対して $1.15 \text{ eV} \sim 1.33 \text{ eV}$ 程度の値を電気抵抗測定から得ている。

1.33 eV の値を使ってポイトスエーリングを JPCA について計算すると図15のようになる。損傷速度は HVEM に合わせてあるが 600°C 付近にスエーリングピークが見られる。これは図16に示す JPCA のスエーリングの温度依存性と矛盾しない。

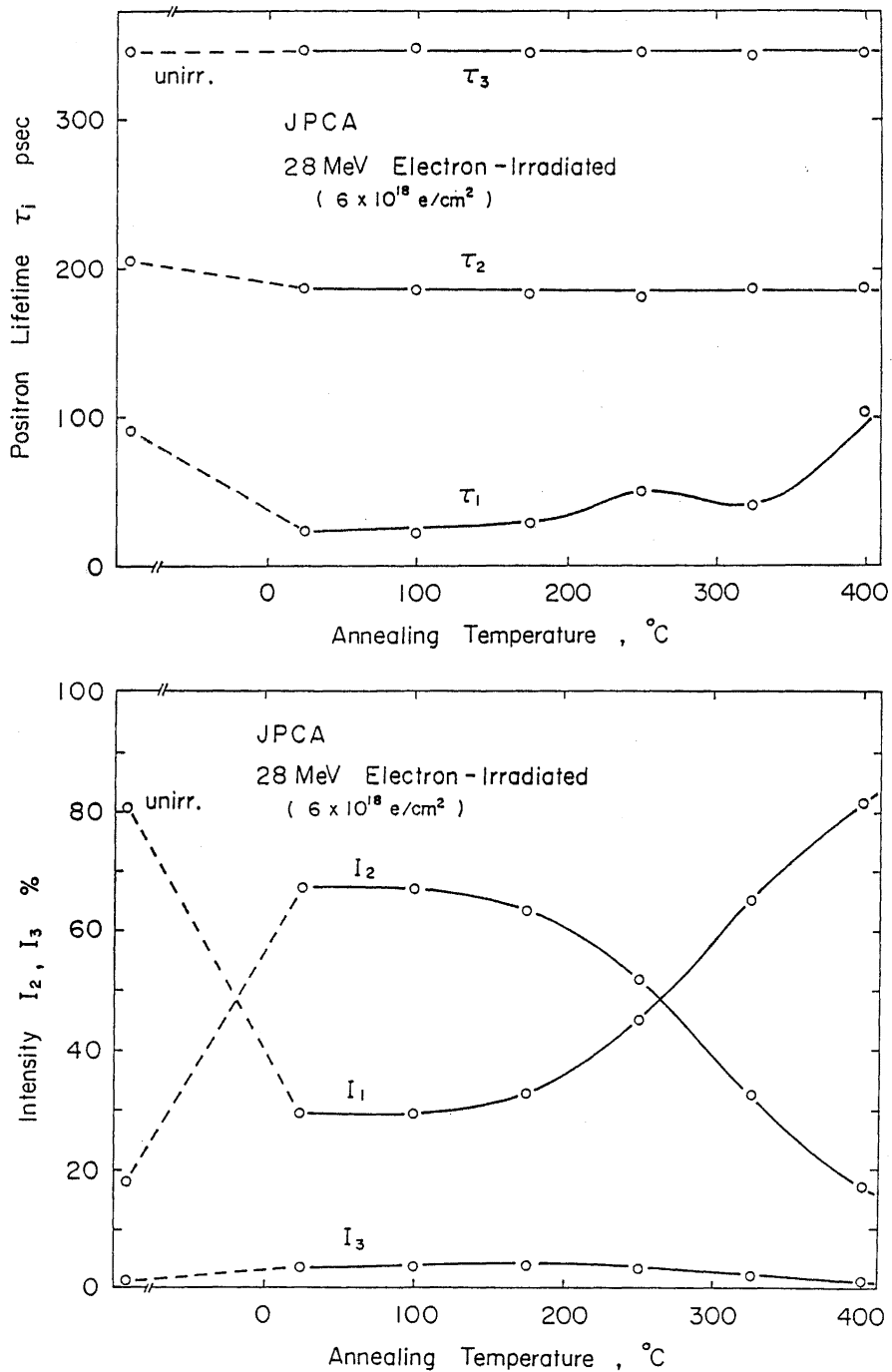


図5 電子線照射された JPCA の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

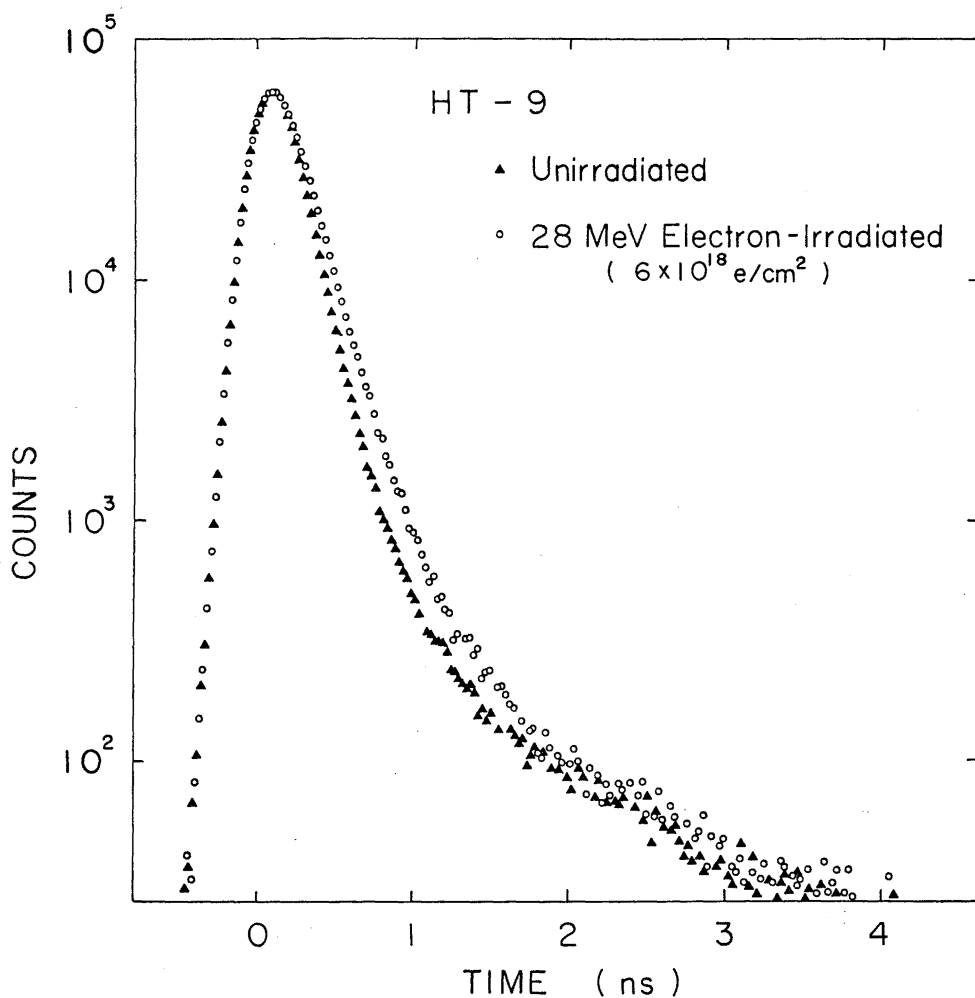


図6 HT-9 の陽電子消滅寿命スペクトルに対する電子線照射効果

フェライト系ステンレス鋼はボイドスエーリングが非常に小さいことで有名であるが、ここで陽電子消滅寿命測定から得られた結果では原子空孔の移動エネルギーはむしろフェライト系の方が小さいのでこれから説明することはできない。Wolfer 等⁶⁾ が最近指摘しているように、BCC 結晶では本質的に転位のバイアス効果が弱いことが低スエーリングの原因であるという考えも重視しなければいけない。さらに上で示した陽電子のデータの照射前の I_2 の値はフェライト系の方がオーステナイト系よりも大きいことにも注目しなければならない。この原因はフェライト/マルテンサイト系のステンレス鋼中では lath boundary が多く転位密度も高く、カーバイト等も多いことと考えられる。これらは照射欠陥に対してシンクとして働くものが多く低スエーリングの一因と考えられる。今後詳しい組織観察が望まれる。

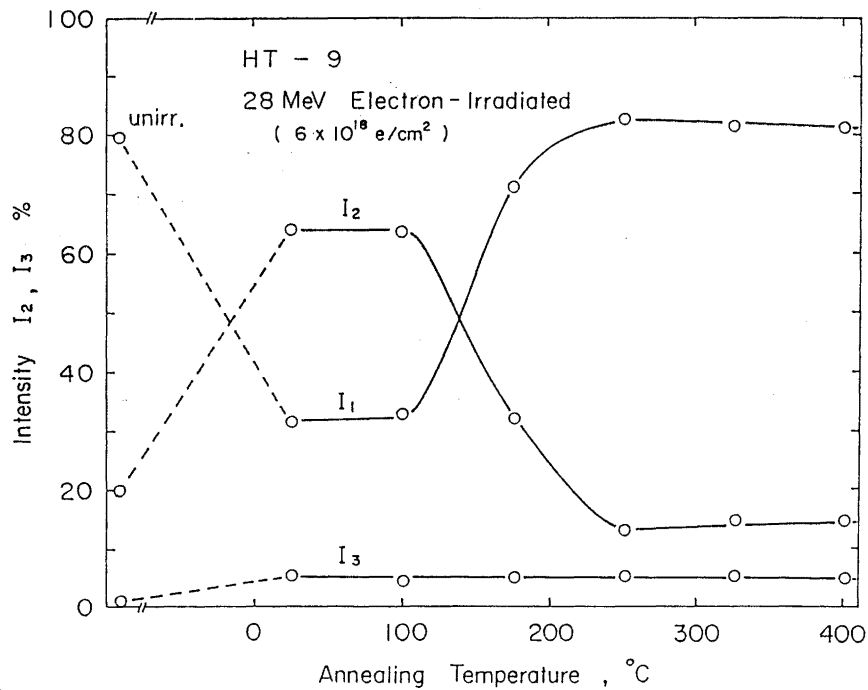
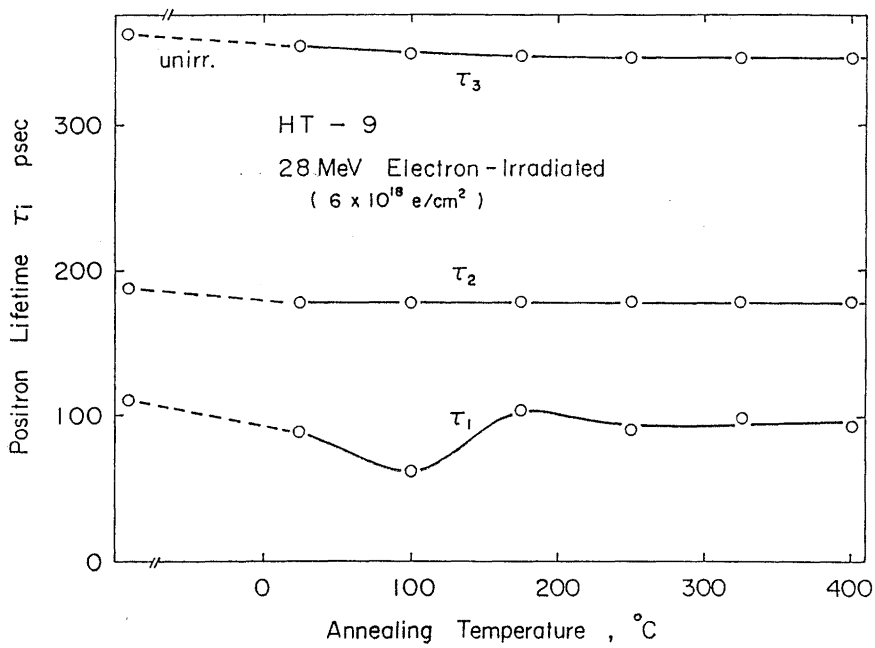


図7 電子線照射された HT-9 の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

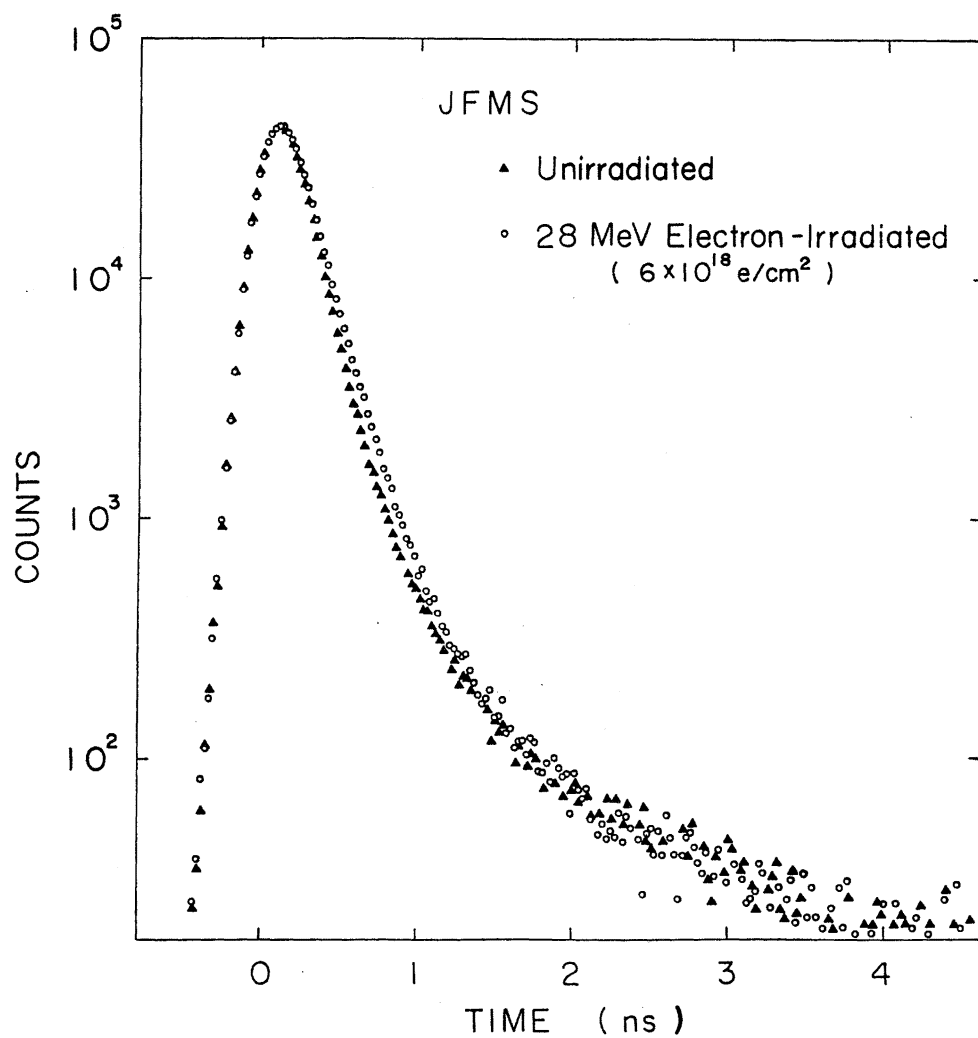


図8 JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルに対する電子線照射効果

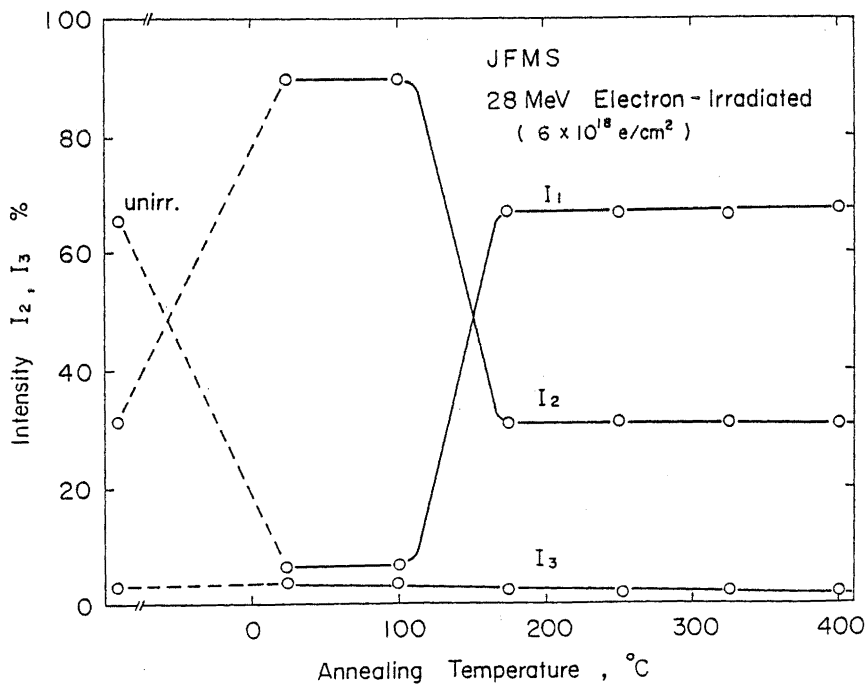
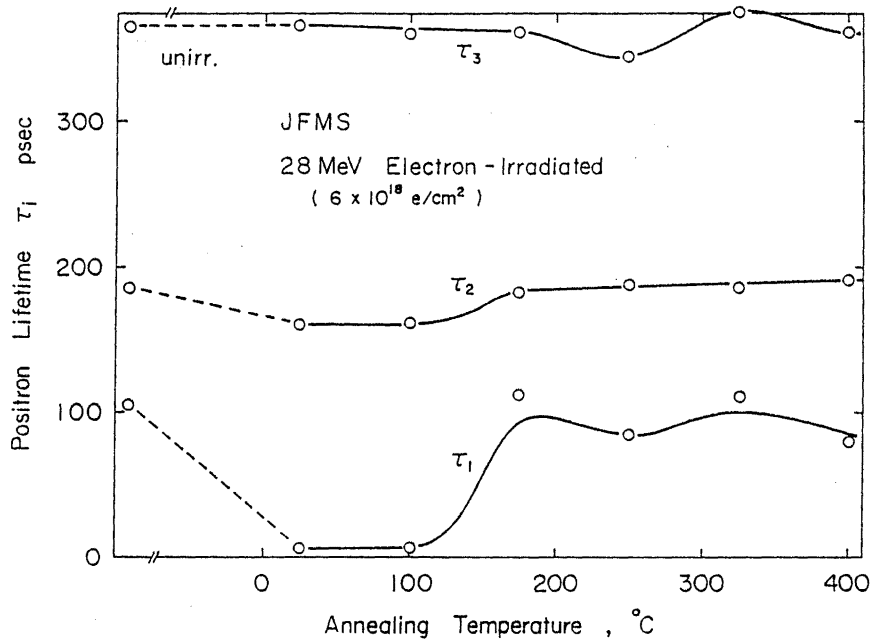


図9 電子線照射された JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

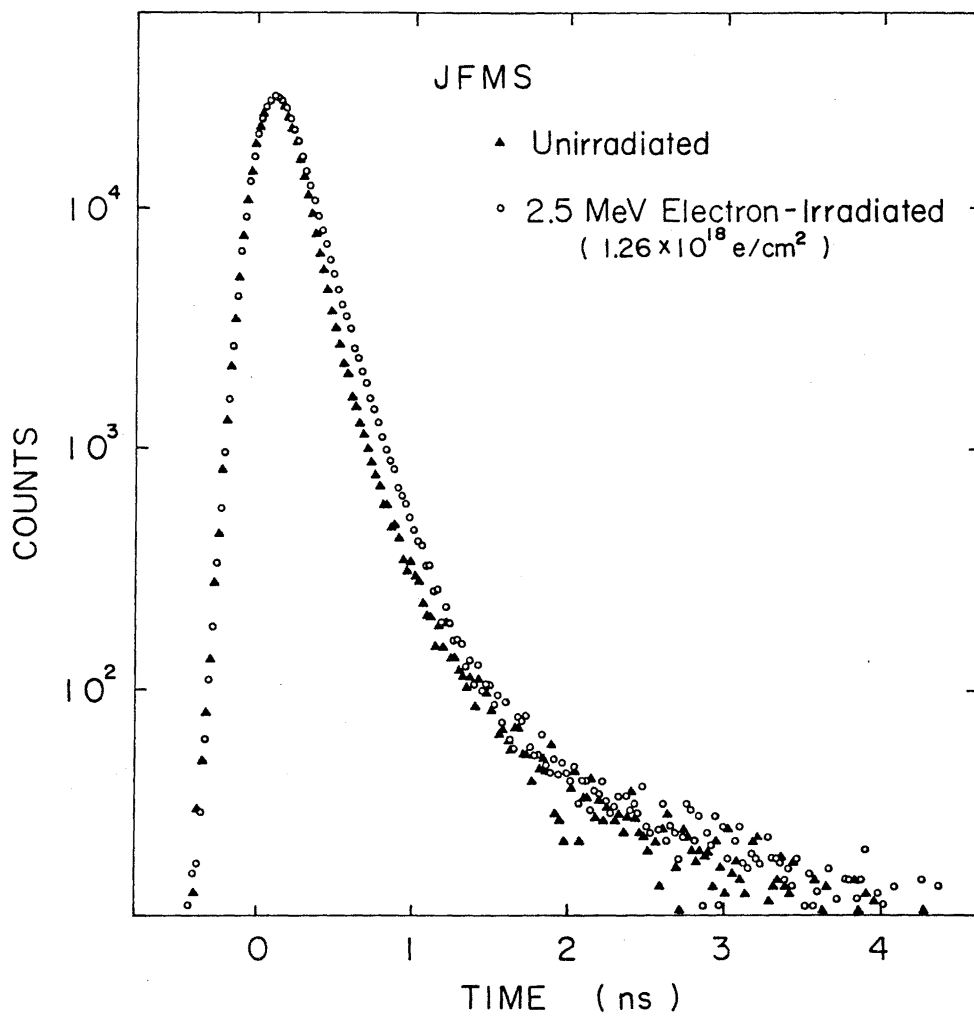


図 10 JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルに対する低エネルギー電子線照射効果

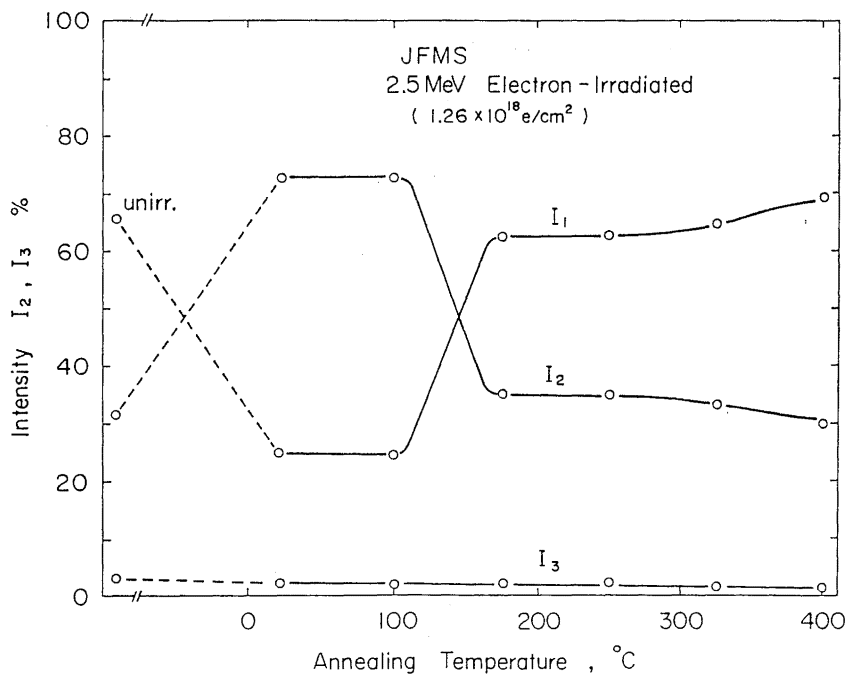
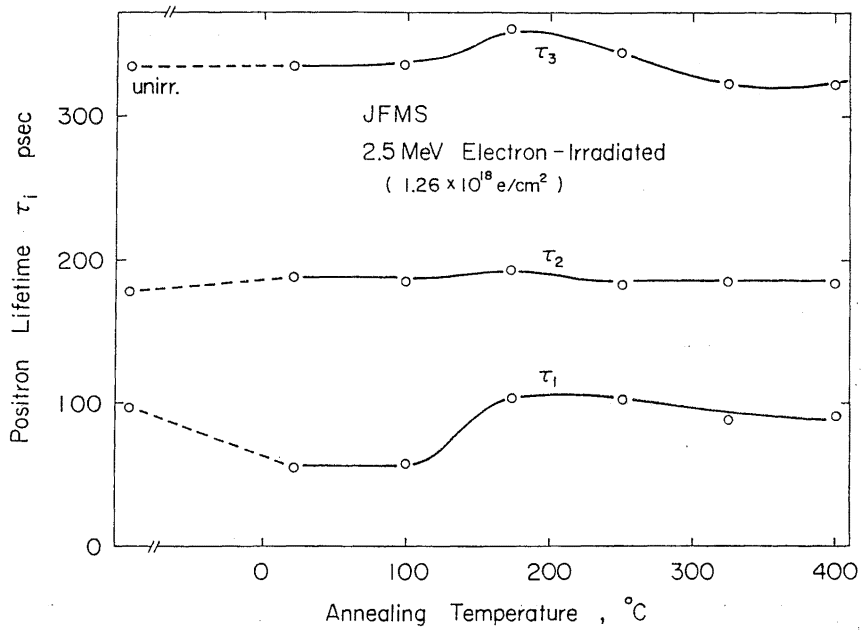


図 11 低エネルギー電子線照射された JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

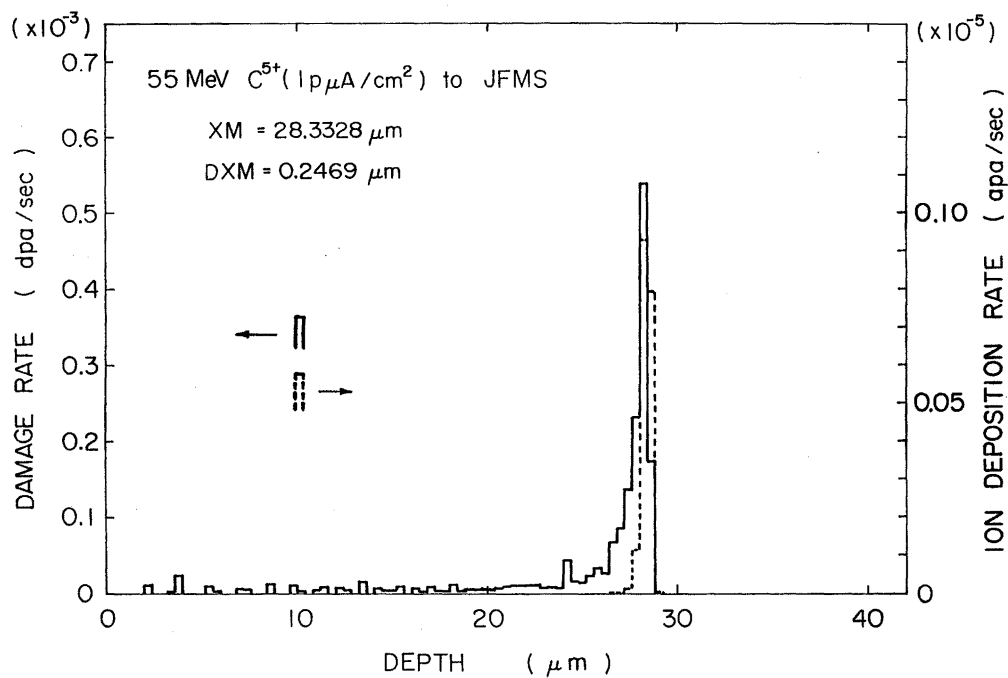


図 12 55 MeV の C^{5+} イオンを JFMS に打ち込んだ時の飛程と損傷の深さ分布 (TRIM コードによる計算結果).

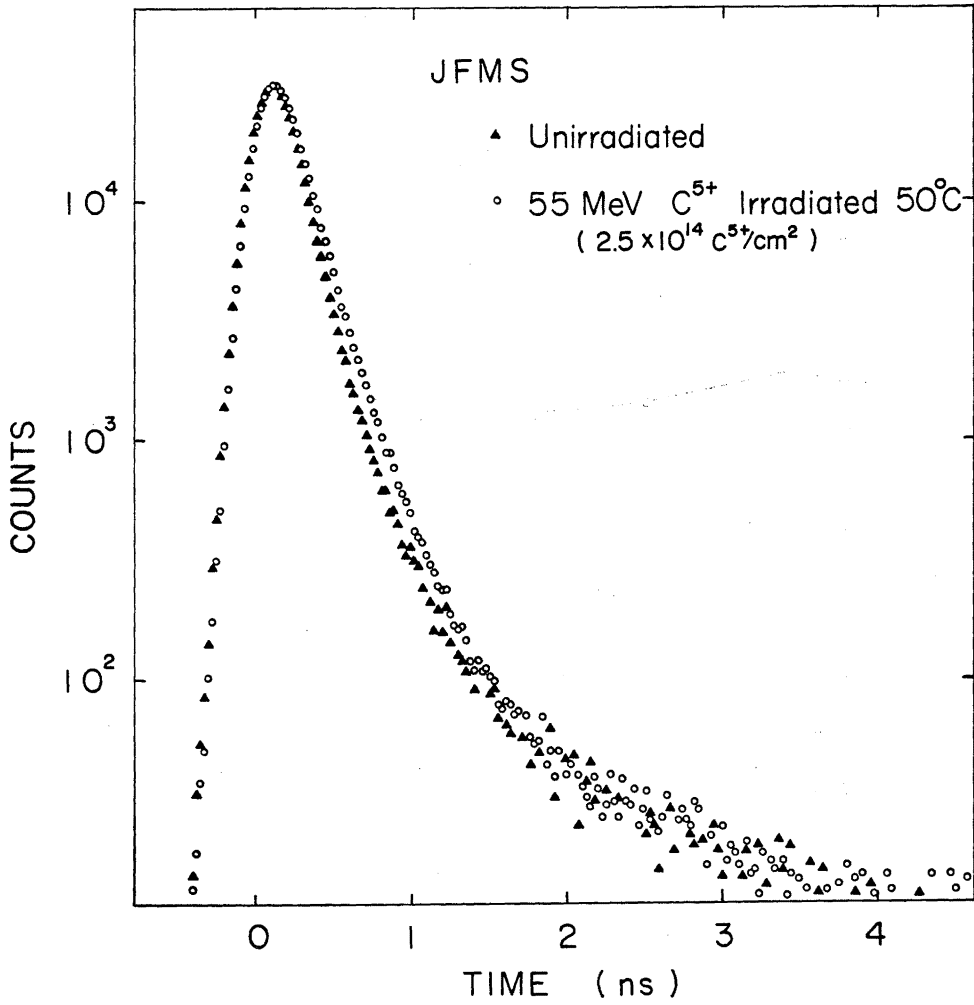


図 13 JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルに対する 55 MeV の C^{5+} イオン照射効果

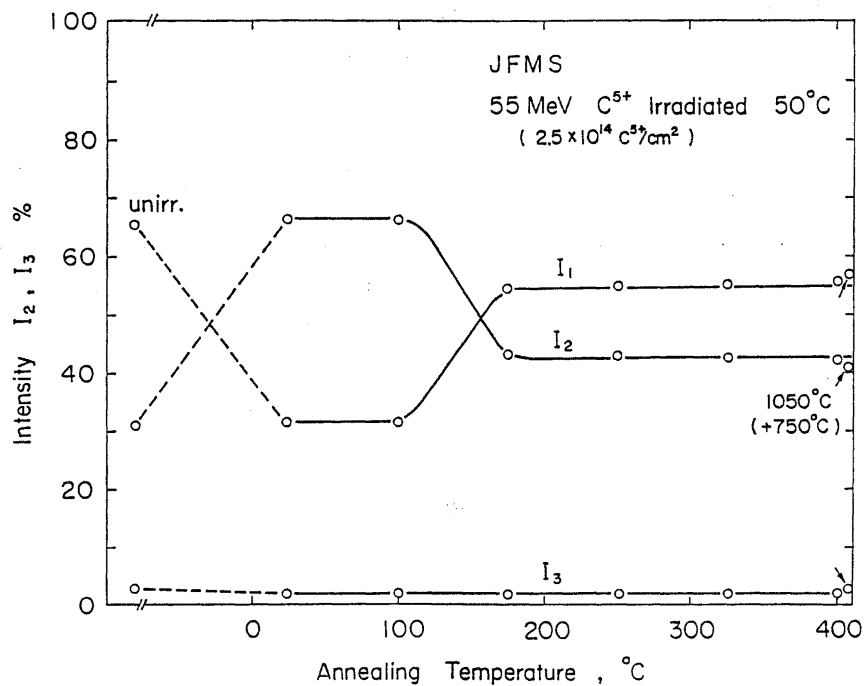
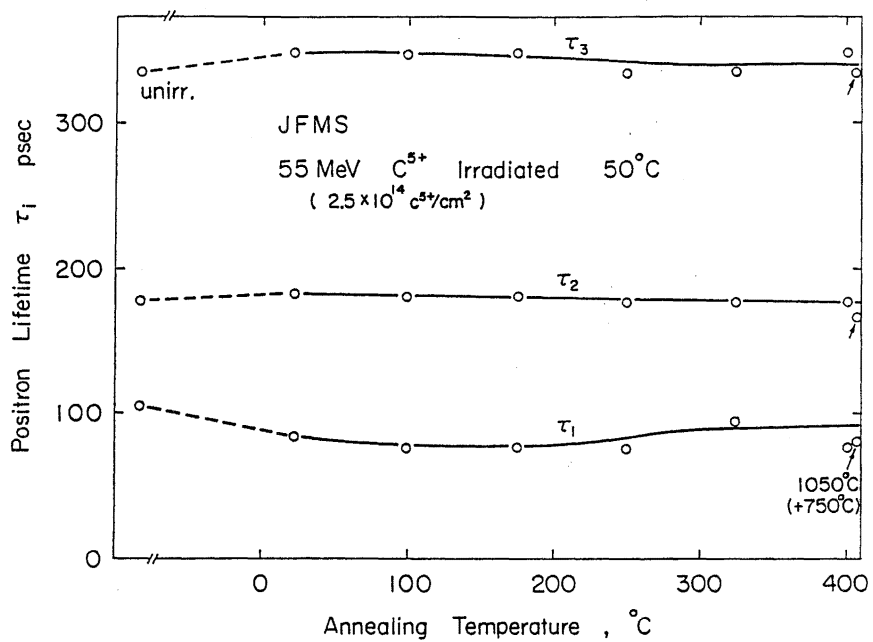


図 14 55 MeV の C^{5+} イオンの照射を受けた JFMS の陽電子消滅寿命スペクトルの三成分解析結果

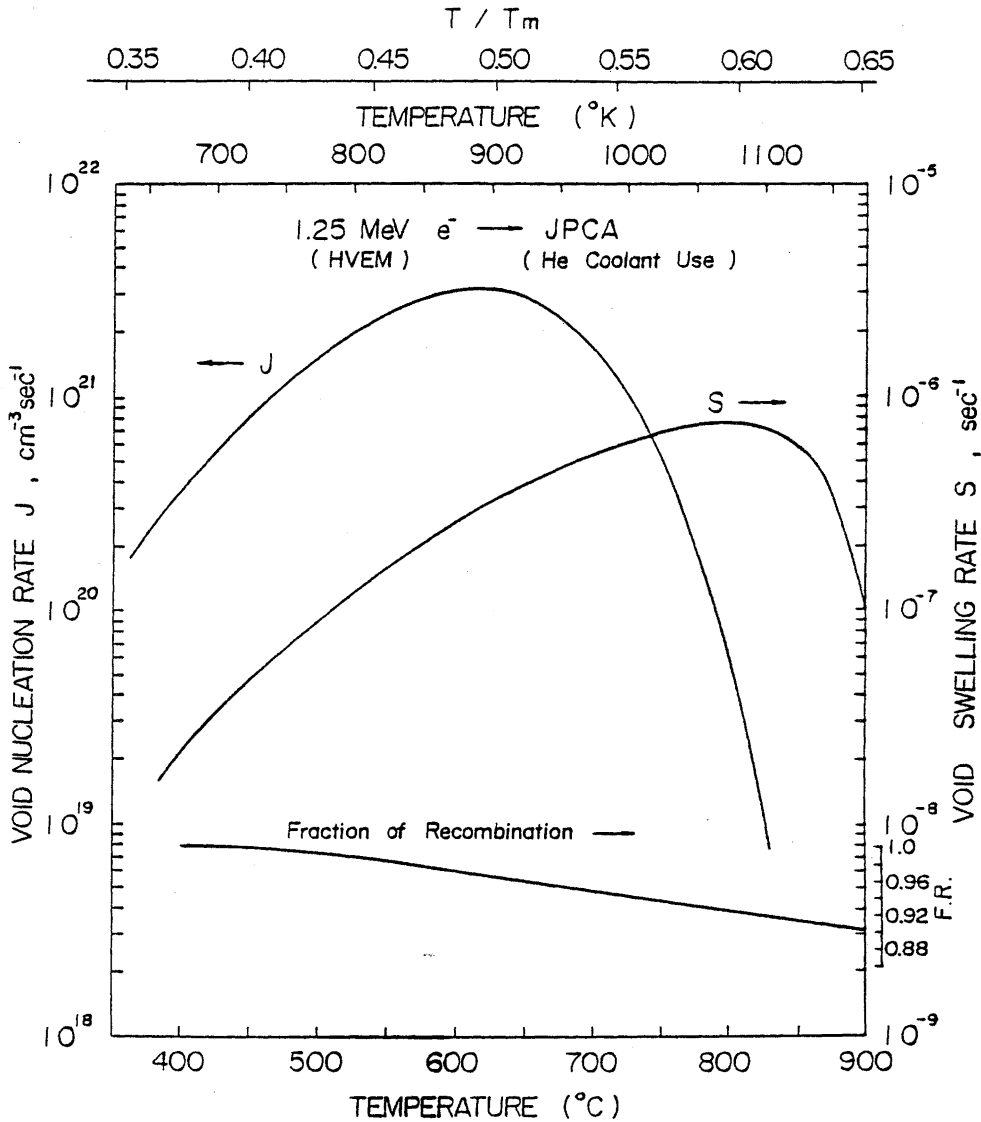


図 15 ポイトスエーリングの温度依存性の計算例 ($E_0=1.33\text{eV}$ として)

謝 辞

本研究を行うにあたり低温電子線照射の際京大原子炉の吉田博行先生に多大のお世話になりましたことを深く感謝致します。又九大 HVEM 室の JEM-1000 を使用するに当り 同室の各氏に御援助頂いたことに心から感謝の意を表します。

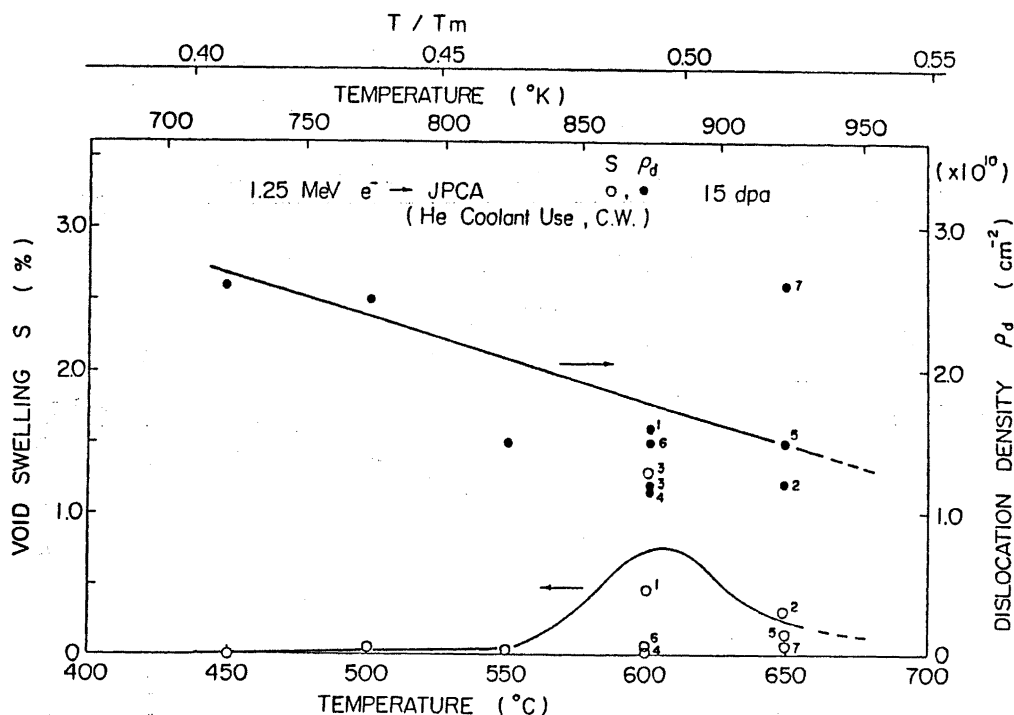


図 16 HVEM 照射によって得られた JPCA のボイドスエーリングの温度依存性

参 考 文 献

- 1) R. E. Gold, E. E. Bloom, F. W. Clinard, Jr., D. L. Smith, R. D. Stevenson and W. G. Wolfer: Materials Technology for Fusion: Current Status and Future Requirements, Nucl. Tech. /Fusion 1 (1981) 169-237.
- 2) O. Dimitrov and C. Dimitrov: Defect Recovery in Irradiated High-Purity Austenitic Fe-Cr-Ni Alloys: Activation Energies and Dependence on Initial Defect Concentration, J. Nucl. Mat. 105 (1982) 39-47.
- 3) C. Dimitrov and O. Dimitrov: Composition Dependence of Defect Properties in Electron-Irradiated Fe-Cr-Ni Solid Solutions, J. Phys. F 14 (1984) 793-811.
- 4) E. Kuramoto, and K. Kitajima: Positron Lifetime Measurements of Electron-Irradiated Iron and Iron-Carbon, Rep. Res. Inst. Appl. Mech. Kyushu Univ. Vol. XXVI, No. 81 (1978) 11-21.
- 5) J. P. Biersack and L. G. Haggmark: A Monte Carlo Computer Program for the Transport of Energetic Ions in Amorphous Targets, J. Nucl. Mat. 174 (1980) 257-269.
- 6) W. G. Wolfer: Theoretical Considerations for the Development of Swelling-Resistant Steels Japan-US Workshop on Radiation Damage in Fusion Structural Materials, Tsukuba (1983).

(昭和 59 年 5 月 31 日 受理)