

照射温度変動下の欠陥反応過程

吉田, 直亮
九州大学応用力学研究所 : 教授

徐, 虬
九州大学大学院総合理工学研究科 : 博士課程

渡辺, 英雄
九州大学応用力学研究所 : 助教授

<https://doi.org/10.15017/4744003>

出版情報 : 應用力學研究所所報. 78, pp.155-171, 1995-10. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



照射温度変動下の欠陥反応過程

吉田直亮^a 徐 虬^b
渡辺英雄^c

概 要

RTNS-IIでのD-T中性子の二段温度変動照射, FFTF/MOTAによる原子炉照射, JMTRでの改良型温度制御中性子照射, 交番温度変動照射, さらに高エネルギーイオン照射などの温度変動環境下での照射損傷形成に関するこれまでの研究から得られた実験結果を, 欠陥反応速度式を用いた欠陥蓄積に関する計算結果と比較する事により, 温度変動下の損傷組織の形成を律速する基本的な欠陥反応過程を明らかにした. 照射中に試料温度が変動すると原子空孔や格子間原子などの欠陥反応過程を担う点欠陥の移動度が変化するため, 照射下での欠陥濃度が変動する. 新しい温度での平衡濃度に移行する過程で一時的に欠陥蓄積のバランスが崩れるため, 一定温度照射下では見られないような欠陥集合体の収縮, 成長が起こり, 損傷組織の形成に大きな影響を与える. 特に, 温度を低温から高温に大きく変動させた場合や交番的に変動させた場合には顕著な影響が現れる. 温度変動下での照射損傷は, 常に交番的な温度変動環境下にある核融合炉の炉内材料にとっては特に重要である.

Key words: fusion material, austenitic stainless steel, neutron damage, cyclic temperature irradiation, microstructural evolution, RTNS-II, FFTF/MOTA, JMTR

1. 緒 言

点欠陥の主たる移動機構は熱活性化過程であるため, 粒子線照射による損傷組織の発達は照射時の試料温度に極めて強く依存する. 従って, 従来のほとんどの照射実験は, 試料温度一定のもとで行われ, 温度を重要な実験パラメータとして現象が整理されてきた. 一般的な金属材料を一定条件の下で照射すると欠陥集合体が結合力を失う高温は別として, まず動きやすい格子間原子が移動・合体し格子間原子型の転位ループが形成される. 転位ループの密度は照射強度, 温度などの条件に依存するが, 一旦発生

^a九州大学教授、応用力学研究所

^b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博士課程
(現 京都大学原子炉実験所助手)

^c九州大学助教授、応用力学研究所

したループは格子間原子を更に吸収し成長を続け、特殊な場合を除き照射中に収縮することはない。動きの遅い原子空孔も適当な温度領域ではポイトなどの集合体を形成する。照射条件一定のもとでは、いずれの場合も欠陥集合体の発生、成長は単調に推移し、一旦成長したものが収縮するような複雑な挙動は示さない。しかしながら一方では超高圧電子顕微鏡 (HVEM) を用いた照射実験¹⁾ などから、たとえ短期間でも照射中に試料の温度を大きく変化させた場合には損傷組織が一変し、上述のような単純なプロセスでは理解できない現象が起こることが早くから認識されていた。同様な現象は一定温度条件下での照射とされてきた従来の原子炉照射実験においても少なからず起こっており、原子炉照射実験のデータを解釈する上で大きな問題となることが Kiritni²⁾ によって指摘され、この問題についてその後活発な研究が進められている³⁻⁹⁾。さらに、最近日本原子力研究所材料試験炉 (JMTR) において照射温度を周期的に変動させる交番温度変動照射が世界に先駆けて実施されるにいたり¹⁰⁾、温度変動時の照射損傷について本格的な研究が開始された。

本論文では、著者らの行ってきた温度変動照射に関連する FFTF/MOTA 照射, RTNS-II での D-T 中性子二段温度変動照射, JMTR での改良型温度制御照射, 交番温度変動照射, さらに高エネルギーイオン照射などで得られた実験結果を欠陥反応速度式を用いた欠陥蓄積に関する数値計算と比較することにより、温度変動下の損傷組織の形成を律速する基本的な欠陥反応過程を議論する。

2. 原子炉照射実験に見られる温度変動効果

図 1 は FFTF-MOTA サイクル 11 において 20% 冷間加工した Fe-16Cr-17Ni 合金を 873K で約 36dpa 照射した際の損傷組織である⁹⁾。大きく成長したボイドの他に、原子空孔の集合体である積層欠陥四面体が大量に形成されている。しかしながらこれとは対照的に、殆ど同じ条件で照射したサイクル 10 では、ポイトの他に、格子間原子型転位ループが形成され、異なった現象を示している。この差は原子

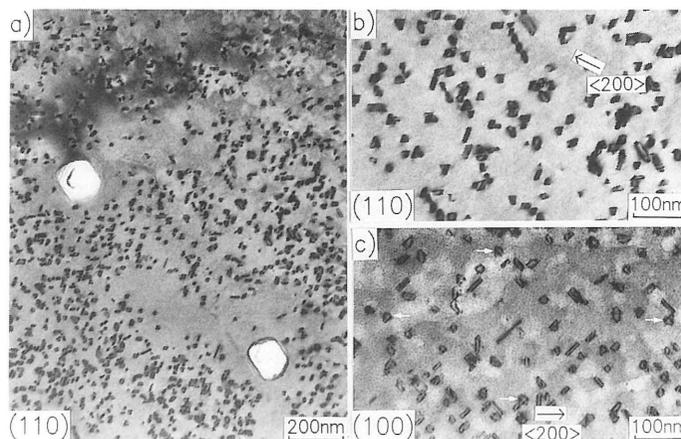


図1 FFTF/MOTA サイクル11において、873K、36dpa の中性子照射を受けた Fe-16Cr-17Ni (20% CW) 合金の損傷組織。

炉停止時の温度履歴の違いによるものと考えられる。即ち、図2に示すように、通常の停止法で終了したサイクル10では、原子炉出力の漸減に伴い、試料温度が徐々に低下し、格子間原子型転位ループが発生しやすい573-723Kの間で相当の照射(0.1dpa程度)が加わるため、873Kで成長したボイドの間に転位ループが発生したものと考えられる。これに対して、サイクル11ではいわゆるスクラムで停止したため、高温での照射中に蓄積していた原子空孔やその微小複合体が冷却途中で移動・合体したのではないかと考えられる。

温度が設定値に達していない低温段階での照射は、照射開始(再開)時にも起こり照射量としては停止時よりむしろ多い。実際、100Kを越えるような照射温度の大きな変動は例えばサイクル10では6回発生したことが記録されている。873Kでは本来核発生し難い格子間原子型転位ループが、温度低下時の照射で繰り返し発生するため、転位のバイアス効果が長期にわたり維持されボイドの成長が促進された可能性もあり、観察された現象が果して873Kでの本来の損傷を示しているのかどうか、真剣に検討する必要がある。

原子炉の起動時及び停止時の温度変動を取り除き、設定された温度での本来の照射効果を明らかにすることを目的として、JMTRにおいてヒータを用いた改良型の温度制御法が開発され、最近多くの興味ある結果が報告されている^{3,6,10-13}。図3はFe-16Cr-17Ni合金及びそれに微量のPまたはTiを添加した合金を従来の温度制御法および改良型の温度制御法によりそれぞれ673Kに制御し24日間(0.1dpa程度)中性子照射した際の損傷組織を比較したものである^{11,13}。図4は両制御法での照射開始時及び終了時の試料温度履歴を比較したもので、従来型の制御では原子炉の出力の増加あるいは減少に依存して温度が上下するのに対し、改良型では原子炉を稼働させる直前から最後の段階まで、試料温度が一定に保たれていることがわかる。従来型の温度制御照射において、試料温度が設定値以下での損傷量は全体のわずか3%程度であるにも関わらず、いずれの合金においても、従来型温度制御照射では改良型に比べ、転位ループ密度が2~3倍高い。これは従来型制御照射では核発生率の高い低温から照射が開始されるため、転位ループ密度が改良型温度制御照射より高くなったものと考えられる。転位ループの核生成は照

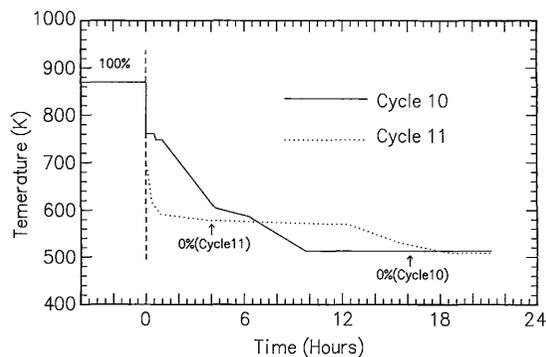


図2 FTF/MOTA サイクル10および11の照射終了時の温度履歴。図中の数値は出力の割合を示す。

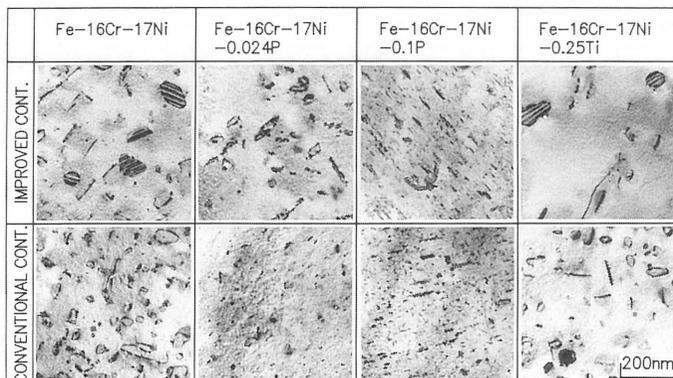


図3 種々の Fe-Cr-Ni 合金の改良型温度制御照射と従来型温度制御照射による損傷組織，照射温度：673K，損傷量：約0.1dpa.

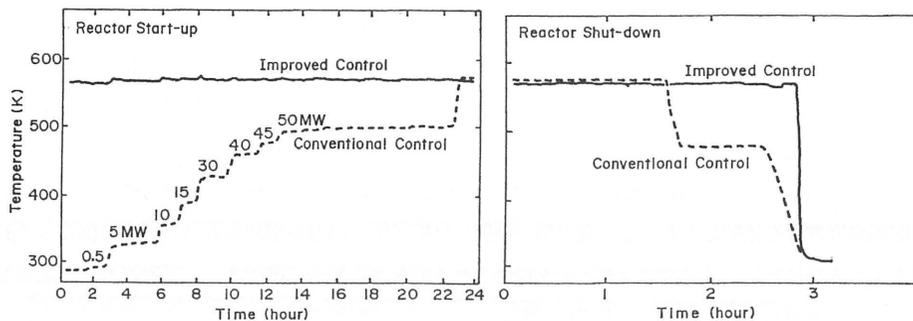


図4 改良型温度制御照射と従来型温度制御照射の照射開始時の温度履歴。

射の極初期に活発に起こるため，たとえ短期間であっても初期段階で異なる温度で照射されればその影響が残る可能性が高い。

3. RTNS-II による D-T 中性子の二段温度変動照射

米国ローレンスリバモア国立研究所の強力 D-T 中性子源 RTNS-II を用い，一度照射した試料を異なった温度条件で再度照射する二段温度変動照射実験を実施した。損傷量は 0.01dpa 程度と低いものの，予想外の現象が観察されるなど，中性子照射下の照射温度変動が損傷組織形成に極めて大きな影響を与えていることが示された。以下 Ni の実験結果について述べる。

図5は Ni を写真中に記したそれぞれの温度で 14MeV 中性子を 10^{22} n/m² 程度照射した際に形成される照射欠陥の電子顕微鏡写真 (g=(200)ウィークビーム暗視野像) である¹⁴⁾。写真が示すように形成される欠陥の種類には明瞭な温度依存性が見られる。すなわち，473K (200°C) 以下の低温領域では格子間原子型の転位ループと SFT が形成されるのに対し，それ以上の温度ではそれらは急激に減少し，723K (450°C) 以上の高温領域ではそれらは全く形成されなくなり代わってポイドが発生する。従って点欠陥

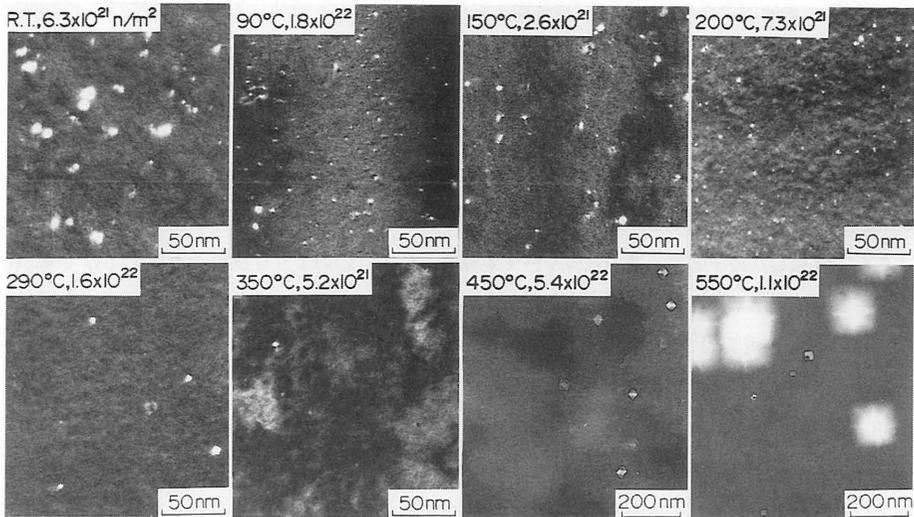


図5 種々の温度で14MeV中性子(RTNS-II)を照射したNiにおける損傷組織。暗視野ウィークビーム条件。

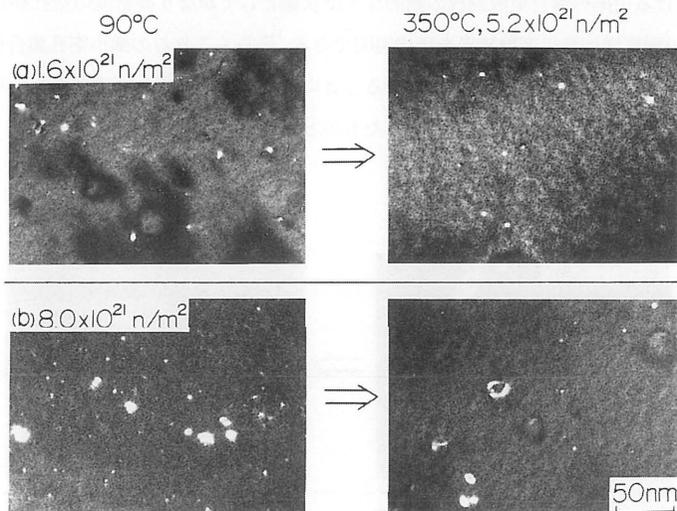


図6 RTNS-IIによるNiの二段温度変動照射, 前段照射; 363K, 後段照射; 623K, 暗視野ウィークビーム条件。

の移動度が大きく異なる温度領域, また形成される二次欠陥の種類が異なる温度領域の間を試料温度が変動する場合には損傷組織の顕著な変化が期待される。

図6はNiにおける低温領域から高温領域へと温度を変えた場合の温度変動照射効果を示すもので, 363Kで照射した試料(左写真)と, その後さらに623Kで再照射した試料(右写真)の損傷組織を比較

した。363Kでの照射で発生する格子間原子型の転位ループとSFTは共にその殆どが623Kでの照射で消滅しそれに代わってポイドが発生しているが、363Kでの照射量が多い(b)の場合には生き残ったと思われる転位ループが大きく成長している。Niの転位ループやSFTは623Kでは熱的に消滅することはなく、623Kでの再照射によって消滅したものと考えられる。

図7および図8は高温領域での563Kで照射したNi試料を原子空孔は動くものの移動度の低い423Kで再照射したときの損傷組織を示したものである。563K照射では微小なSFTの他に20-30nmの大きさまで成長した格子間原子型の転位ループが観察される。このような試料を温度を下げて423Kで照射すると図9に示すように格子間原子型転位ループは縮小し、ポイドは逆に成長する(図8)。これらの現象は、423Kの再照射で原子空孔が格子間原子に対して過剰に存在したことを示すものであり、それらがどのような機構で供給されたのかを明らかにする必要がある。

563Kで照射した試料のピッカース硬度の増加量の実験値(■)と、電子顕微鏡によって観察された欠陥(SFT、転位ループ、ポイド)から求めた計算値(実線)を図10に示した。実験値は計算値より2~3倍高く、硬度には影響を与えるが電子顕微鏡では観察できない極めて微小な欠陥が蓄積されている可能性を示唆している。図11は原子空孔と格子間原子の両者の集合を考慮した欠陥反応速度論により求めた空孔集合体のサイズ分布をいくつかの照射時間について示したものである。この実験に対応する 10^8 secでは照射下における欠陥の離合集散過程の動的な平衡状態としてかなり高密度の空孔集合体が存在し、この量は図10の硬度増加量の実験結果をほぼ説明できる。恐らくこれらの微小空孔集合体は423Kでの再照射において、格子間原子と反応し、縮小することによって移動可能な原子空孔となり、格子間原子型転位ループの縮小やポイドの成長をもたらしたものと考えられる。

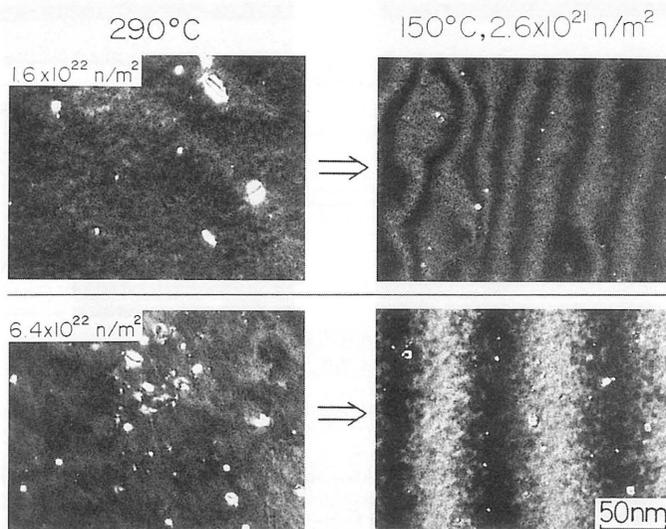


図7 RTNS-IIによるNiの二段温度変動照射、前段照射；563K、後段照射；423K、暗視野ウィークビーム条件。

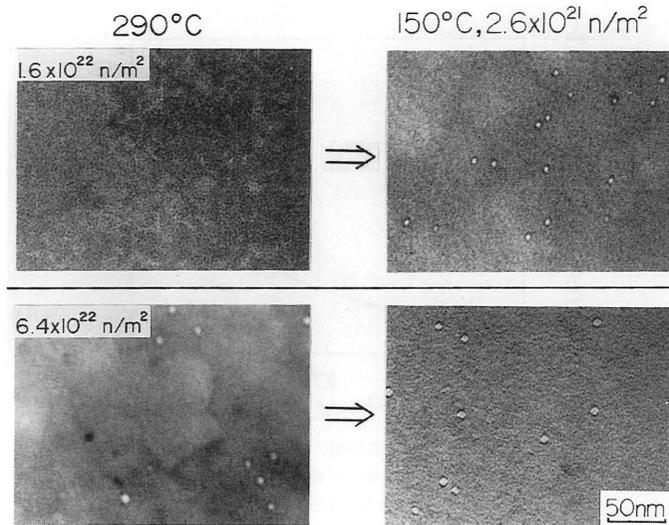


図8 RTNS-IIによるNiの二段温度変動照射、前段照射；563K、後段照射；423K。明視野ポイドコントラスト条件。

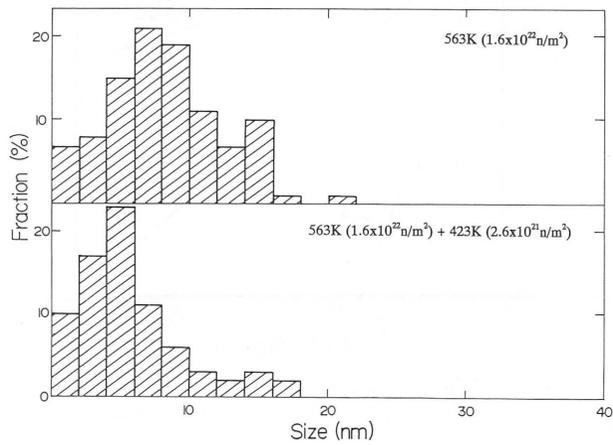


図9 RTNS-IIを用いたNiの563K/423Kの二段温度変動照射による格子間原子型転位ループのサイズ分布変化。

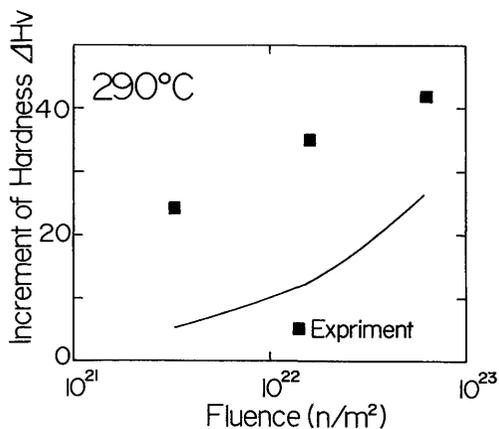


図10 RTNS-IIにより563Kで14MeV中性子を照射されたNiのビッカース硬度、■：実験値、実線；電子顕微鏡で観察された欠陥より評価した計算値。

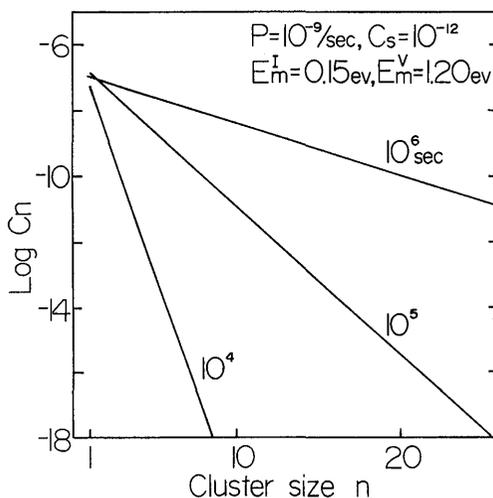


図11 欠陥反応速度論より求めたRTNS-II照射下のNiにおける空孔集合体のサイズ分布 (563K)。

4. JMTRにおける交番温度変動中性子照射

1992年3月、JMTRにおいて、世界で初めて交番温度変動下での原子炉中性子照射が実施された¹⁰⁾。473K/673K, 573K/673K, および573K/723Kの温度の組み合わせにより、各温度において44時間保持する矩形波動的な温度変動が6回繰り返された。

Fe-16Cr-17Ni合金が473K-673Kの一定温度照射および473K/673K, 573K/723Kの交番温度変動照射を受けた時の典型的な損傷組織を図12および13に示した¹⁵⁾。温度変動照射では転位ループ密度の高

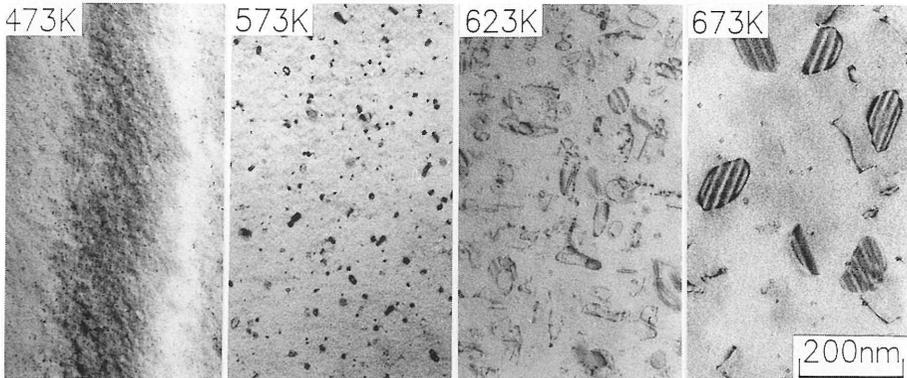


図12 Fe-16Cr-17Ni 合金における JMTR での一定温度照射による損傷組織 (明視野転位コントラスト像)

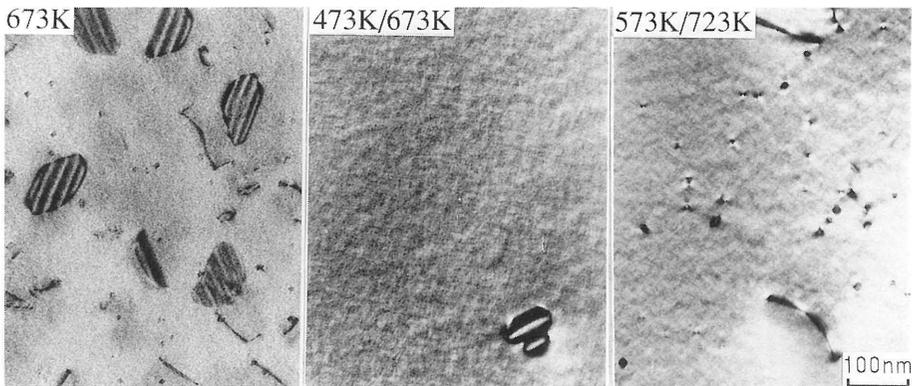


図13 Fe-16Cr-17Ni 合金における JMTR での一定温度照射 (673K) および交番温度変動照射 (473K/673K、573K/723K) による損傷組織 (明視野転位コントラスト像)。

い 473K, 573K での照射を受けることから, これまでの単純な理論からは 673K 一定での照射より転位ループ密度が高いことが予想されたが, 結果はまったく逆で, 転位ループの発生は強く抑制されていた. また, 交番温度変動照射では図 14 に見られるようにボイドの発生も同時に抑制された. 図 15 は 473K で中性子照射した試料を 873K まで 100K おきに等時焼鈍した際の欠陥集合体の変化を示したものである. 873K では 90% 以上の欠陥が消滅するものの, 673K ではほぼ 100%, 773K では 75% 以上の欠陥が残存している. このことは温度変動照射において低温時に形成された欠陥集合体が焼鈍により消滅する可能性は低いことを示している. 6. で議論するように, 温度を周期的に上下することにより, 空孔および格子間原子の集合・分解が繰り返され, 欠陥集合体の密度が低く押さえられたものと考えられる. 上述の結果は, 温度を適当な範囲, 周期で積極的に変動させることにより, 照射効果によって欠陥の蓄積を軽減できる可能性があることを示唆するもので, 損傷の低減法としても興味深い.

図 16 は一定温度照射および交番温度変動照射を受けた Fe-16Cr-17Ni-0.25Ti 合金の損傷組織を比較

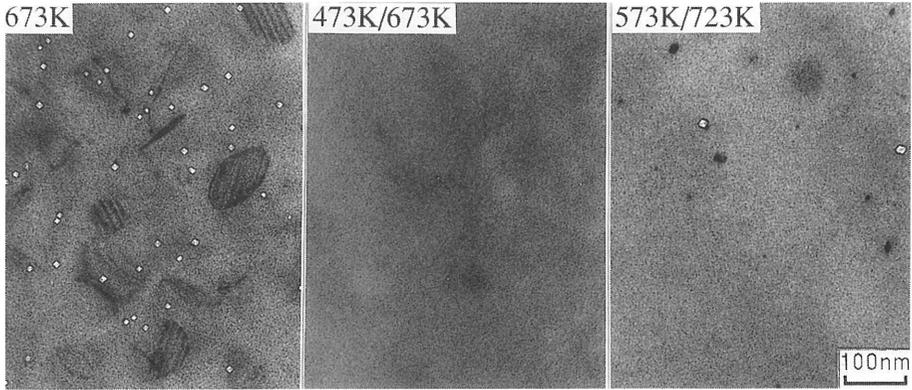


図14 Fe-16Cr-17Ni 合金における JMTR での一定温度照射 (673K) および交番温度変動照射 (473K/673K、573K/723K) による損傷組織 (明視野ポイドコントラスト像)。

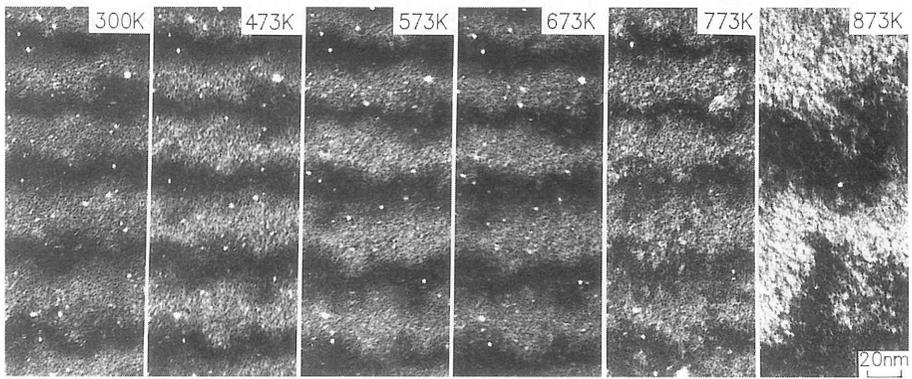


図15 473k における JMTR 中性子照射により発生した欠陥集合体の焼鈍による消滅。(暗視野ウィークビーム条件)

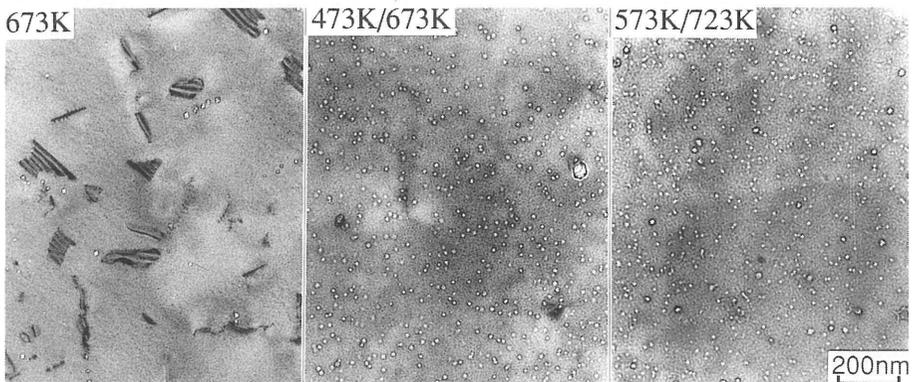


図16 Fe-16Cr-17Ni-0.25Ti 合金における交番温度変動照射効果 (明視野ポイドコントラスト条件)。

したものであり、温度変動による点欠陥の集合・分解は極めて微妙な欠陥のバランスの上に成り立っていることを物語っている。すなわち、交番温度変動照射により、格子間原子型転位ループの発生が抑制される点は図13のFe-16Cr-17Ni合金と同じであるが、多量のポイドが形成されている点が特徴的である。ポイドスエリング量はすでに1.5% (10%/dpa) に達しており、空孔の集合が異常に促進されたことがわかる。恐らく微量に添加されたTi原子が関与しているものと思われるが、どのようなメカニズムが働いているのか、また照射量が増えた場合ポイドは更に成長するのか、しないのか、これからの検討課題である。

5. 高エネルギー Ni イオン照射実験

温度変動時の点欠陥の挙動を更に詳しく調べるため、高純度 Fe-16Cr-17Ni 合金を試料とし、タンデム加速器を用いて、 Ni^{3+} イオン (4MeV) の二段温度変動照射 (473K/773K, 573K/773K) と損傷組織のリファレンスとなる 473K, 573K, 773K での一定温度照射を行った¹⁶⁾。温度変動照射では低温で照射した後、一旦イオンビームを止め 15 分程度で所定の温度まで昇温し、直ちにイオン照射を再開した。照射後まず照射面側から損傷ピーク (深さ 550nm 程度) まで研磨し、この面を保護した後、背面から更に片

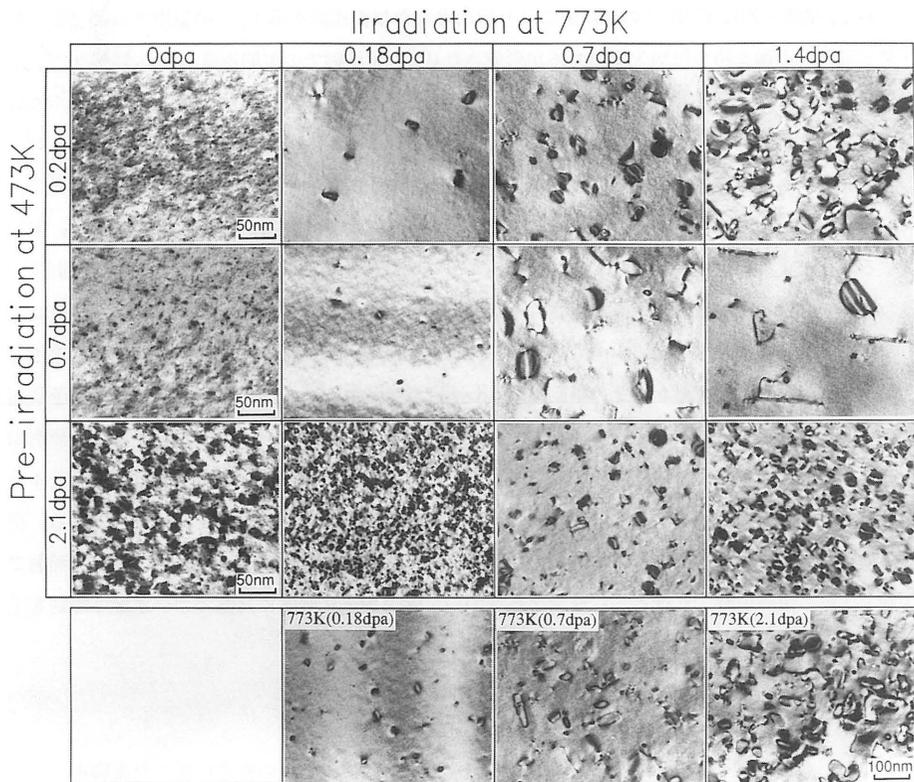


図17 473K で予照射した試料の773K 照射での損傷組織変化、下段は予照射無しの場合。

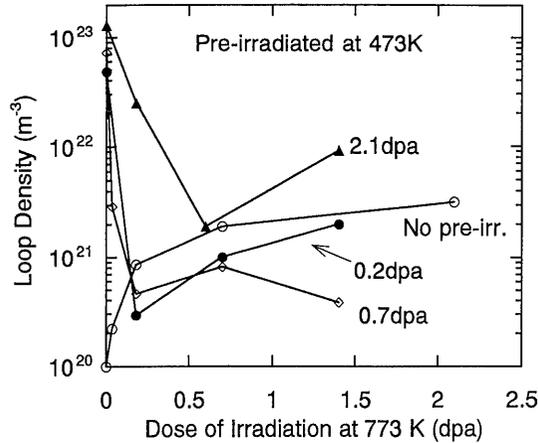


図18 転位ループ密度の773Kにおける追照射量依存性。

面研磨することにより損傷ピーク近傍の薄膜試料を得た。

図17の組写真は473Kで予照射された試料の損傷組織が773Kの再照射でどう変化するかを示したものである。左側一列は473Kでの予照射により形成された損傷組織を示す。この温度では高密度の転位ループと三角形の像を持つ積層欠陥四面体が形成され(0.2dpa照射での欠陥密度 $=4.8 \times 10^{22}/\text{m}^3$)、その密度は照射量とともに増加しサイズも大きくなる。低温予照射後773Kで再照射(0.18, 0.7, 1.4dpa)した損傷組織が右側3列に示されている。また比較のために予照射無しの損傷組織も併せて下段に示した。図18は図17から求めた転位ループ密度を773Kにおける再照射量の関数として示したものである。いずれの場合も予照射で高密度に発生した転位ループは、高温での再照射で一旦大部分が消滅し、照射を継続することによって再び増加に転じるが、転位ループ密度の極小値、極小に達するまでの照射量、その後の増加挙動は予照射量に大きく影響されることが示されている。すなわち、予照射量が0.2dpaと少ない場合、773Kで再照射すると早い段階でほとんどの転位ループが消滅する。その後照射量の増加と共に転位ループは再び増加するが、その挙動は773K一定温度照射とほとんど代わらず低温での予照射量が少ない場合は高温での高照射領域での損傷組織にほとんど影響を与えないことがわかる。予照射量が0.7dpaに増加すると773K照射での損傷組織に明らかな影響が現れる。すなわち、一旦減少したループ密度はその後ほとんど増加することは無く、高温での転位ループの発生が強く抑制されている。更に予照射量が増加すると、転位ループの消滅にも時間がかかり、極小値も大きくなる。2.1dpa予照射で見られるように、予照射時よりはるかに減少するものの、転位ループ密度は高温での一定温度照射を上回るようになる。

6. 考 察

多くの例をあげて述べたように、照射温度の大幅な変動は、損傷組織の発達に様々な影響を与え、起こる現象やその度合いは材料、温度領域、温度幅、変動周期などに強く依存する。これらの現象の発現

機構を解明するためには、温度変動下の欠陥反応過程の詳細を理解する必要があるが、まずその第一歩として、現象を律速する主要過程を特定することが重要であると考えられる。

格子間原子型転位ループの予想外の消滅は、それらの熱的安定性と共に、空孔の挙動にも着目する必要があることを物語っている。NiのRTNS-IIによる二段温度変動照射実験で示されたように、空孔が移動度を持ち、空孔間の結合力が十分な場合には、照射下での動的な平衡状態として相当高濃度の微小空孔集合体が発生する。照射温度や照射強度が変化すると、新しい動的平衡状態への移行が起こり、その過渡期においてこれらの欠陥が過剰空孔の供給源となる場合があることが予測され、その機構として次の二つが考えられる。

(1)高温への昇温時に期待される機構で、集合体が熱的に分解・移動することによって空孔が過剰供給される。

(2)照射下でのみ起こる現象で、3重空孔や4重空孔等の微小空孔集合体が格子間原子や複格子間原子を吸収することによって移動可能な単空孔や複空孔となり、空孔過剰状態を生み出す。

過剰な空孔が供給され、空孔吸収量が格子間欠陥吸収量を上回ると、成長しかけた格子間原子型転位ループは収縮・消滅し、一部の空孔集合体は逆に成長することが期待される。実際にどの程度の現象が起こるかは、単空孔あるいは空孔集合体として蓄積されていた空孔の総量、さらにはそれを決める空孔集合体の結合力によることから、たとえ同じ照射条件でも、材料によって、また、温度によって大きく異なることが予想される。ここでは、Fe-16Cr-17Ni合金について、このような考え方で実験結果を説明できるかどうか欠陥反応速度論を用いて検討する^{16,17)}。

高エネルギー粒子との衝突により発生した原子空孔と格子間原子は適当な温度が与えられていれば、結晶内を自由点欠陥として移動する。移動中にシンクとなる欠陥（転位、結晶粒界、表面、異符合欠陥など）と出会えば消滅し、同符号の欠陥と出会えばそれらの集合体を形成し結晶中に残留する。この現象を欠陥反応速度論を用いて計算した。高い移動度を持つ格子間原子は転位ループとして集合し成長していくのは当然であるが、移動度の低い原子空孔の集合体も動的な平衡状態として存在する（図11参照）。図19は最初から773Kおよび473Kで照射した場合(a)と473Kで照射した後773Kで再照射した場合(b)の原子空孔および格子間原子の濃度の時間的変化を示したものである。Fe-16Cr-17Ni合金の4MeV Niイオン照射を想定し、照射強度、点欠陥の移動の活性化エネルギーに対して図中に記した値を用いた¹²⁾。後者の場合当然ながら原子空孔濃度が773Kでの照射の初期から高い値をしめすことがわかる。照射下で欠陥集合体が成長するか収縮するかは原子空孔と格子間原子の移動効率（移動度 $M \times$ 欠陥濃度 C ）の大小で決まる。例えば、格子間原子の移動度が高い場合には、格子間原子型転位ループは成長するが空孔集合体は成長できない。図20では図19の二段照射について空孔及び格子間原子の移動効率比 ($MvCv/MiCi$) を示したものである。一定温度での照射では常に格子間原子が優位な状態 ($MiCi \geq MvCv$) となるのに対し、低温で予照射した試料では、原子空孔が優位な状態 ($MiCi < MvCv$) が照射開始からしばらく(100秒程度)続く。すなわち、まず 10^{-2} 秒以下では473Kの照射で高濃度に蓄積した原子空孔が773Kで大きな移動度を得て移動し、 10^{-2} 秒以降は主に複原子空孔が格子間原子と反応し単原子空孔を放出するプロセスによって原子空孔が余分に生み出される。図21は473Kで予照射した後、

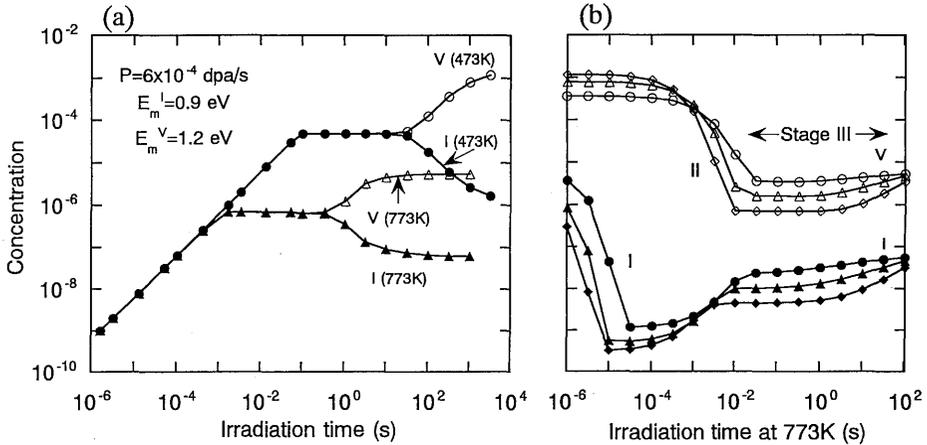


図19 773K および473K で照射した場合(a)と、473K で予照射した後773K で再照射した場合の原子空孔(V) および格子間原子(I)の濃度の時間変化。

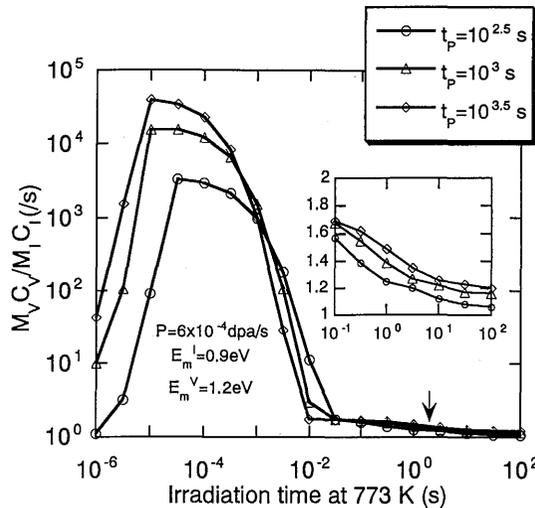


図20 図10(b)における点欠陥の移動効率比 $MvCv/MiCi$ 。

773K で照射をした際の原子空孔のサイズ分布の変遷を示したものである。まず、473K の照射で蓄積された原子空孔 (773K(0s)) が 773K に昇温することにより熱活性化され、小さな原子空孔集合体を作る (773K($10^{0.5}$ s))。さらに照射を続けると空孔と格子間原子の吸収を繰り返すことにより、大きなサイズの空孔が形成されるようになる (773K($10^{1.5}$ s, 10^2 s))。773K 一定温度での照射と比較して大きなサイズの濃度がはるかに高い。原子空孔集合体に集合した原子空孔の総量は低温予照射により蓄積された原子空孔の総量にほぼ等しく、これらの欠陥が高温での再照射下で原子空孔や格子間原子と反応を繰り返しながらより大きな欠陥集合体に姿を変えていったものと考えられる。もし空孔に対し強い吸引相互作用

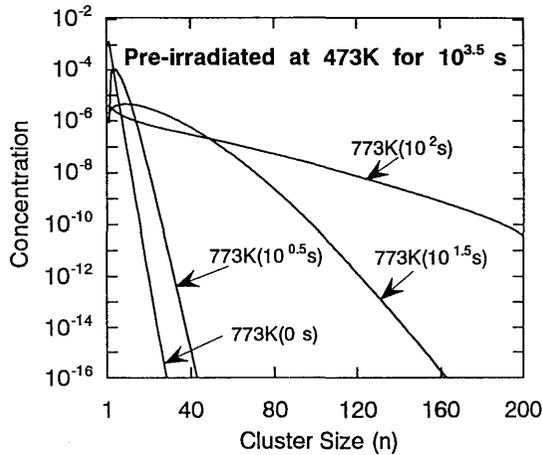


図21 原子空孔集合体のサイズ分布。

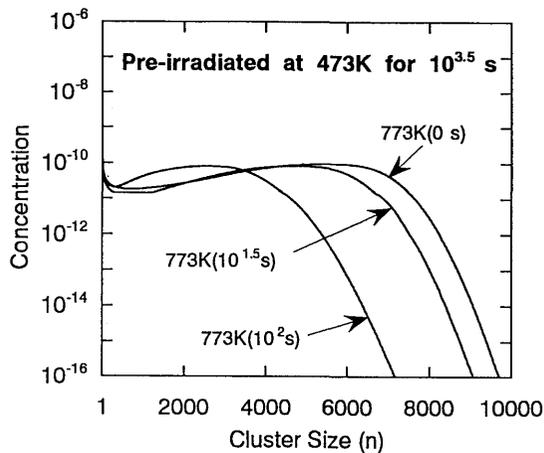


図22 格子間原子集合体のサイズ分布。

を持つような材料であれば、更に積極的に原子空孔の集合体が形成される可能性が考えられる。Ti 微量添加の Fe-16Cr-17Ni 合金の交番温度変動原子炉照射で見られた異常なポイドの発生はおそらくアンダーサイズ原子である Ti 原子が空孔集合体の核発生を助長したために起こったものと考えられる。

一方、図 22 に示すように 473K の予照射で形成された格子間原子集合体は 773K での再照射段階で収縮しており実験結果と定性的に良く一致する。

上述の計算結果は、大筋において実験結果を良く説明しており、一見奇妙に見えた温度変動照射下での現象は温度変動により新たな欠陥蓄積のバランスへ移行する際に起こる微小空孔集合体の分解・成長により過渡的に現れる空孔優位状態によってもたらされることがわかった。

原子空孔集合体の形成は温度や物質、照射に用いる粒子線の種類等により異なる。ここでは主に空孔

が殆ど動かない温度領域から良く動く温度領域に温度を変動させた場合について議論したが、動かす温度領域や方向により、また変動の周期の長短により現象が異なることは当然である。原子空孔が集合しやすいオーステナイト鋼や Ni に比べ空孔集合体を作り難いフェライト鋼等では、様子は全く違ったものになることも最近の研究から明らかになりつつある。上述のモデル計算では、カスケード衝突による微小欠陥集合体の直接的な発生は無視している。PKA エネルギーの平均値が高い中性子照射ではカスケード衝突が原空孔集合体の核形成の主機構になる可能性があり、この要素を取り入れた計算を進めていく必要がある。

温度変動下の照射損傷の問題は、運転条件の変動に伴い炉壁温度が変動する核融合炉内材料では特に重要であり、重点研究課題として取り上げていく必要がある。そのためには温度履歴を自在に制御できる原子炉の照射技術を早急に確立するとともに、現象を理解するための基礎研究を系統的に進めなければならない。

7. ま と め

RTNS-II で実施された二段温度変動照射、FFTF/MOTA 照射、JMTR での改良型温度制御照射、交番温度変動照射、さらに高エネルギーイオン照射などの温度変動環境での照射損傷組織形成に関するこれまでの実験結果を整理し、温度変動下での損傷組織の形成を律速する原子レベルでの欠陥反応過程について議論した。

Ni や Fe-Cr-Ni 合金において、原子空孔の移動度の低い低温領域から十分な移動度を持つ高温領域に照射温度を変えた場合、低温で形成された格子間原子型の転位ループの大半は一旦収縮・消滅することが明らかになった。また原子空孔が移動できる温度領域では、高温から温度を下げた場合にも同様のことが観察された。温度を低温領域から高温領域に周期的に変動させた場合、転位ループは発生消滅を繰り返す、蓄積される転位ループは一定温度での照射と比べはるかに少ないものになることが観察された。また空孔に対する吸引相互作用を持つと思われる Ti を添加した Fe-Cr-Ni 合金では、原子空孔の集合体であるボイドの発生が顕著であった。

原子空孔と格子間原子の離合集散過程を表す欠陥反応速度式をもとに、蓄積される欠陥の密度の時間的変化を数値解析することによって、温度変動下の損傷組織は下記のような過程で進行することが明らかになった。すなわち、照射中に試料温度が変化すると欠陥反応過程を担う原子空孔や格子間原子等の点欠陥の移動度が変動するため、照射下での欠陥集合体の平衡濃度が変動する。新しい温度での平衡状態に移行する過程で一時的に欠陥蓄積のバランスが崩れるため、一定温度での照射では見られないような欠陥集合体の収縮、成長が起こり、損傷組織の形成に大きな影響を与える。特に温度を低温から高温に大きく変動させた場合や交番的に変動させた場合には顕著な影響が現れ、格子間原子と微小空孔集合体との反応により一時的に空孔が支配的となり、格子間原子型転位ループの消滅、ボイドの発生が起こる。

温度変動下での照射損傷は、常に交番的な温度変動環境下で使用される核融合炉の炉内材料にとって特に重要な問題であり今後の詳しい研究が望まれる。

参 考 文 献

- 1) M. Kiritani, K. Urban and N. Yoshida, *Radiation Effects* 61 (1982) 117-126.
- 2) M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 60 (1988) 135-141.
- 3) M. Kiritani, T. Yoshiie, S. Kojima, Y. Satoh and K. Hamada, *J. Nucl. Mater.* 174 (1990) 327-351.
- 4) N. Yoshida, H. L. Heinisch, T. Muroga, K. Araki and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 1078-1082.
- 5) N. Sekimura, and S. Ishino, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 542-545.
- 6) M. Kiritani, T. Endoh, K. Hamada, T. Yoshiie, A. Okada, S. Kojima, Y. Satoh and H. Kayano, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 1104-1107.
- 7) N. Sekimura, F. A. Garner and R. D. Griffin, *J. Nucl. Mater.* 191-194 (1992) 1234-1238.
- 8) F. A. Garner, N. Sekimura, M. L. Grossbeck, A. M. Ermi, J. W. Newkirk, H. Watanabe and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 205 (1993) 206-218.
- 9) H. Watanabe, T. Muroga and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 217 (1994) 178-186.
- 10) N. Narui, H. Kurishita, H. Kayano, T. Sagawa, N. Yoshida and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 1665-1670.
- 11) N. Yoshida, Q. Xu, H. Watanabe, T. Muroga and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 191-194 (1992) 1114-1118.
- 12) N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 205 (1993) 344-353.
- 13) 徐 虬, 渡辺英雄, 宮本好雄, 室賀健夫, 吉田直亮, 九州大学応用力学研究所所報 75 (1993) 1-12.
- 14) M. Matsuda, N. Yoshida, T. Muroga and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 962-965.
- 15) N. Yoshida, Q. Xu, H. Watanabe, Y. Miyamoto and T. Muroga, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 471-475.
- 16) Q. Xu, *Doctoral Dissertation, Kyushu University* (1994).
- 17) Q. Xu, T. Muroga and N. Yoshida, to be published