

学位論文題名

高エネルギー電子線照射下における
非平衡粒界偏析挙動の定量的解析

学位論文内容の要旨

工業用材料として幅広い分野で使用実績を誇るステンレス鋼は、現在、稼働中の原子炉においても主要な構造物用材料としての役割を果たしている。しかしながら、原子炉のような過酷な中性子照射環境下での使用により、通常では現れない材料劣化が生ずる。特に、軽水炉プラントに使用されているオーステナイト系ステンレス鋼は、高温高圧水中における照射により、照射促進応力腐食割れ(IASCC)を生じることから、安全と長寿命化の観点から重要な研究課題となっている。IASCCの発生は、結晶粒界近傍における局所的なCr原子の枯渇と密接に関連しており、その偏析機構の解明と定量的な評価、および照射誘起偏析を軽減した材料開発への指針が必要である。本研究では、ステンレス鋼における溶質原子の照射誘起偏析挙動の抑制機構を探求し、優れた耐照射特性を有する材料開発に対する指針を得ることを目的として、照射による原子の弾き出しに伴う点欠陥の生成から、各種点欠陥反応、点欠陥の拡散により誘起される溶質原子の偏析までの一連の過程に関して反応速度論的なモデルを構築し、計算により照射誘起偏析の動的挙動、および照射条件依存性を明らかにし、さらに、高エネルギー電子線照射下での照射誘起偏析挙動実験とモデル計算結果との比較から、ステンレス鋼における溶質原子偏析挙動を定量的に評価した。

本論文は7章から構成されている。

第1章では、原子炉構成材料に関する研究背景と課題、さらに本研究の目的、及び本論文の構成について述べた。

第2章では、現在まで行われてきた照射損傷過程、およびそれに起因した種々の照射誘起現象に関する理論的研究の概略を述べた。特に、照射により生成される過剰点欠陥により誘起される諸現象に着目し、これらの機構論を理論式を用いて解説した。

第3章では、照射効果、特に照射誘起偏析現象に対する現象論的なモデル化について述べた。本研究におけるモデル化手法の特徴は、照射による点欠陥対の生成から、それらの移動に伴う種々の点欠陥反応、および点欠陥と溶質原子との相互作用ならびに照射誘起溶質原子拡散による偏析までの一連の過程の反応速度論に基づいた連立微分方程式による記述である。

第4章では、上記の速度論モデルを用いた計算により、Fe-Cr-Ni三元合金における照射誘起偏析挙動の照射条件依存性を検討している。結晶粒界上における溶質原子の偏析量は、照射温度の上昇に伴い単調な増加傾向を示すが、一定温度(偏析ピーク温度)以上になると、偏析領域からの溶質原子の熱的拡散が生じ、温度と共に減少する。また、これら照射条件と各種材料パラメータに着目し解析した結果、原子空孔の拡散に関連するパラメータが照射誘起偏析挙動を支配する重要な因子であることを明らかにした。さらに、各種粒子線照射における照射相関特性を、損傷速

度の相違に基づき検討した。その結果、損傷速度の低下に伴い照射誘起偏析の温度依存性は低温側へとシフトすることが明らかとなった。

第5章では、電子線照射下で観察された照射誘起偏析挙動を包括的モデルを用い定量的に検討した。電子線照射下において、結晶粒界近傍で著しい溶質原子濃度変化が測定され、同時に、転位欠乏帯が形成されることを実験、およびモデル計算から明らかにした。さらに、結晶粒界近傍における照射誘起偏析現象と転位欠乏帯形成の相関性の解析から同一の熱活性化過程に起因した現象であることを見いだした。一方、これらの現象は結晶粒界構造に大きく依存することが実験的に観察された。傾角粒界を構成する粒界転位による点欠陥シンク効果を考慮したモデル計算に基づき予測した照射誘起偏析挙動は、実験的に観察された照射誘起偏析の傾角依存性と一致することから、結晶粒界上における溶質原子偏析量の単調な増加は傾角の増加によることを確認した。さらに、特定の方位関係を有する低 Σ 対応粒界では、結晶粒界における照射誘起偏析が著しく抑制されることが実験的に認められ、照射誘起偏析は結晶粒界構造と密接に関連する粒界エネルギーが重要な役割を果たすと結論した。また、特定の粒界面方位関係を有する結晶粒界を照射すると、照射により粒界移動現象が誘起された。この現象について、結晶粒界へ流入した過剰点欠陥の粒界面上での再配列による結晶粒成長であると仮定しモデル計算した結果、粒界移動の動的挙動、および移動後の粒界近傍における溶質原子濃度分布共に実験と良い一致を示した。さらに、結晶粒界上での原子再配列に寄与する格子間原子の割合は、粒界面上でのNi原子濃度と同程度であることから、格子間原子として流入したNi原子の粒界面上での再配列に基づくエピタキシャル的な成長が粒界移動を律速していることを明らかにした。これより、結晶粒界の優先的な点欠陥の吸収、並びに粒界エネルギーを軽減させるような粒界面上でのアンダーサイズ原子の再配列が照射誘起偏析の主要な機構であると結論した。

第6章では、実際に原子炉で使用されている実機材を想定したモデルと、それに基づく計算から、原子炉での照射誘起偏析挙動の定量的予測を試みた。実用鋼に含有される微量添加合金元素の挙動に着目し、これら添加元素による点欠陥トラップ効果を考慮した速度論モデルを構築した。前述の機構に基づいたモデル計算による理論的な予測から、点欠陥トラップ元素が存在すると、溶質原子の照射誘起偏析は抑制され、その傾向は添加元素濃度、および点欠陥と添加元素の結合エネルギーの増加と共に顕著となることを明らかにした。また、電子線照射下における照射誘起偏析挙動の観察結果との比較から、モデル計算結果から実用鋼における溶質原子偏析挙動が予測できることを明示した。

第7章には、以上の結果を総括としてまとめた。

以上、本論文はこれまで未解決であった照射誘起偏析について、照射条件、および各種材料パラメータ依存性を明確にし、包括的な計算モデルにより照射下で生ずる偏析現象の機構の解明と偏析挙動に対する定量化モデルを提案した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 高 橋 平七郎
副 査 教 授 石 井 邦 宜
副 査 教 授 大 貫 惣 明
副 査 教 授 毛 利 哲 夫

学 位 論 文 題 名

高エネルギー電子線照射下における 非平衡粒界偏析挙動の定量的解析

ステンレス鋼は、原子炉による照射による主要な構造材料として利用される場合、照射損傷効果として、原子炉の照射による点欠陥の生成、拡散、析出、および照射誘起偏析の挙動が、原子炉の寿命に大きく影響を及ぼす。本論文では、照射誘起偏析の挙動を定量的に解析し、照射効果の予測と材料の寿命予測に貢献することを目的とする。

第1章は、原子炉材料に対する課題と背景について述べている。

第2章は、従来までの材料の照射損傷過程、及びそれに起因した種々の照射誘起現象に関する理論的研究の概略をまとめている。

第3章では、照射効果、特に照射誘起偏析を現象論的にモデル化する手法について示した。本研究におけるモデル化においては、照射により導入される点欠陥の生成と移動過程における種々の点欠陥反応、及び点欠陥と溶質との相互作用により誘起される一連の拡散過程を反応速度論に基づく連立微分方程式により記述している。

第4章では、上記の速度論モデルに基づく計算により、Fe-Cr-Ni三元合金における照射誘起偏析挙動に及ぼす基本的因子を検討し、結晶粒界上における溶質の偏析量は、照射温度の上昇に伴い増加し、一定温度で最大の偏析量を示した後、さらに高温で減少することを示した。偏析量に及ぼす照射条件、並びに材料因子に着目し解析した結果から、原子空孔の拡散が照射誘起偏析に重要な支配因子で

あることを明らかにした。また、損傷速度の異なる各種高エネルギー粒子線照射誘起偏析の温度依存性を検討し、損傷速度の低下に伴う第5章では、電子線照射実験から得られた偏析濃度分布と内部組織変化を考慮した偏析モデルを検討した。電子線照射により、結晶粒の近傍で顕著な溶質濃度変化が誘起され、同時に過剰格子間原子の集合が実験的観察とモデル計算により確認された。また、この転位欠乏領域と粒界近傍の誘起偏析分布との間に明瞭な相関性があることを見出し、その活性化エネルギーは点欠陥と溶質の相互作用を伴う照射促進拡散が律速であることを明らかにした。

第6章は、実用ステンレス鋼に含有する微量添加元素と点欠陥との相互作用を考慮した速度論モデルの構築について記述した。点欠陥をトラップする元素の添加により照射誘起偏析は抑制され、添加元素濃度の増加、及び点欠陥と添加元素との結合エネルギーの増加に伴い、その効果は顕著となることを確認した。また、電子線照射実験的モデル計算と鋼における溶質の偏析挙動を定量的に一致させること、また、その効果は顕著となることを確認した。さらに、原子炉稼働条件を模擬した解析とステンレス鋼での実測溶質濃度分布と定量的に一致させること、また、その効果は顕著となることを確認した。

著者は、材料因子、照射環境因子を考慮した機構を基に照射誘起偏析を定量的に予測できるモデルを提唱し、核分裂炉照射誘起偏析挙動の基礎的に明らかにしたもので材料工学に貢献する授与資格があるものと認めらる。