

粒界制御法適用による高信頼性原子炉材料の開発

受託者	国立大学法人北海道大学
研究代表者	坂口 紀史 大学院工学研究院
再委託先	独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人東北大学、国立大学法人熊本大学、新日鐵住金株式会社
研究開発期間	平成23年度～25年度

1. 研究開発の背景とねらい

従来の材料開発においては、さまざまな元素の添加による特性向上が中心に行なわれ、高温強度や耐照射特性の改善等が図られてきたが、それからブレークスルーするためには、これまでとは異なる発想による材料開発が必要となる。さらに、レアアース問題に代表される元素戦略の観点からも、合金元素の添加に頼らない材料開発が必要不可欠である。本事業では粒界制御法に着目し、元素添加など組成を変えることは一切行わず、加工・熱処理という冶金学の基本処理のみで材料組織を制御する材料開発手法を提唱する。これにより、既開発の原子炉材料各種の素材をそのまま用いて、それらの特性を飛躍的に改良した画期的な高信頼性原子炉材を開発する。

本課題では、粒界工学の第一人者、鉄鋼メーカー、原子力材料研究者の協力体制のもと、耐照射特性に優れた原子力材料の開発を目指し、粒界工学に基づく粒界制御技術による既存の原子炉用鉄鋼材料各種の高性能化を実証することを第一の目標とする。今回の研究開発では、高温安定性が期待されているニッケル基合金に着目し、高温・高照射線量に曝される際に問題となる粒界脆化による延性低下を粒界制御技術で抑制可能であることを実証する。さらに、次世代型原子炉炉心材料として使用が見込まれるフェライト/マルテンサイト鋼に対する粒界制御技術の確立を目指し、その指導原理を明らかにしていくことが本研究の第二の目標である。

2. 研究開発成果

2. 1 照射脆化に強い粒界制御ニッケル基合金の開発

商用ニッケル基合金である PE16 合金に対して、3%の冷間圧延後に 1325K で熱処理を加えることで、他に例を見ない 90%を超える高い対応粒界率を有する粒界制御ニッケル基合金の作製に初めて成功した(図1)。試作した粒界制御ニッケル基合金は非常に高い耐粒界腐食性を有することが腐食試験により明らかとなり、さらに EBSD 粒界性格分布マップと画像解析ソフトウェアによる解析より、ランダム粒界のパークレーション確率と対応粒界率との間に明瞭な相関性が示され、対応粒界導入による粒界腐食抑制機構を実証した。次に、試作した粒界制御ニッケル基合金に対し He イオン照射試験を実施し、ランダム粒界に沿った He 割れの進展が $\Sigma 3$ 、 $\Sigma 9$ 対応粒界との三重点で効率的に止められることを微細組織観察より明らかとし(図2)、ニッケル基合金に粒界制御を施すことでランダム粒界に沿った脆性割れの進展を対応粒界で効率的に防止可能であることを組織学的に立証した。粒界制御ニッケル基合金に対する硬さ試験と引張試験のデータから、粒界制御適用による結晶粒粗大化に起因した硬さの低下、 γ' 析出物の析出による硬さの増加、冷間加工度の増加に伴う硬さの増加が起こることが分かった(図3)。また、粒界制御処理を施すことでわずかな引張強度特性の低下と引張延性の増加が生じるが、粒界制御ニッケル基合金は標準材と比較しても十分な強度特性を保持しており、粒界制御前の結晶粒径を最適化することで標準材と

同等以上の強度特性を有する粒界制御ニッケル基合金開発への見通しを得た。さらに、中性子回折によるマクロな歪測定を粒界制御ニッケル基合金に対して初めて実施し、溶質元素が母相に固溶した際に生じる固溶歪のほうが時効熱処理処理後の γ' 析出物の整合歪より大きいことが冷中性子透過率の変化より明らかとなった(図4)。

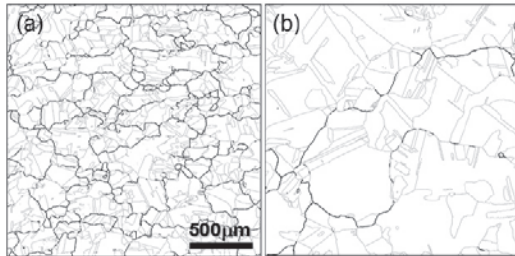


図1 PE16合金の粒界性格分布
(a) 未処理材、(b) 粒界制御材

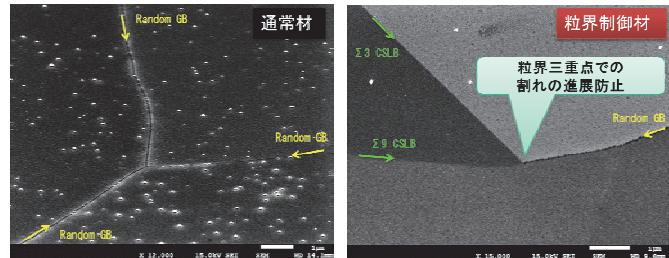


図2 Heイオン照射したPE16合金の粒界割れ
(a) 未処理材、(b) 粒界制御材

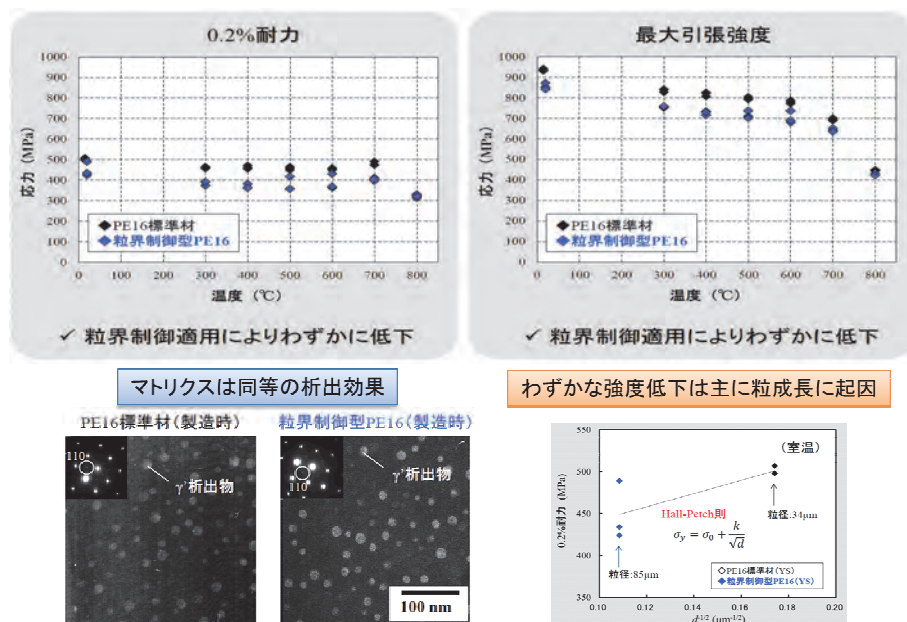


図3 粒界制御したPE16合金の強度特性

PE16合金における冷中性子透過率の2次元マッピング

厚み補正した冷中性子透過率

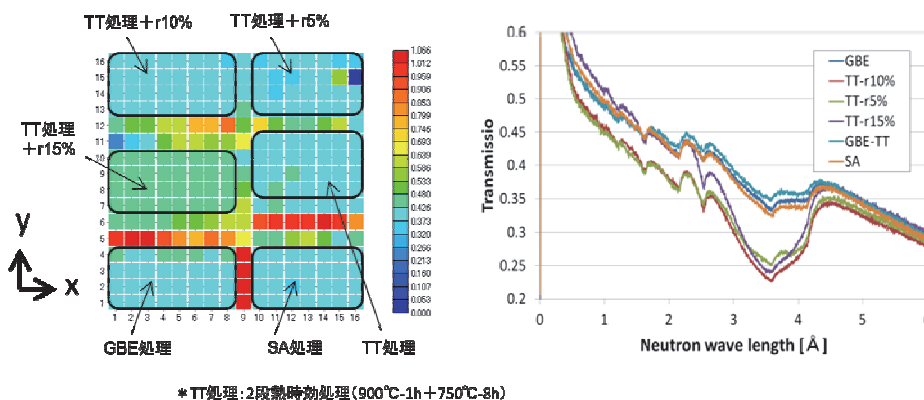
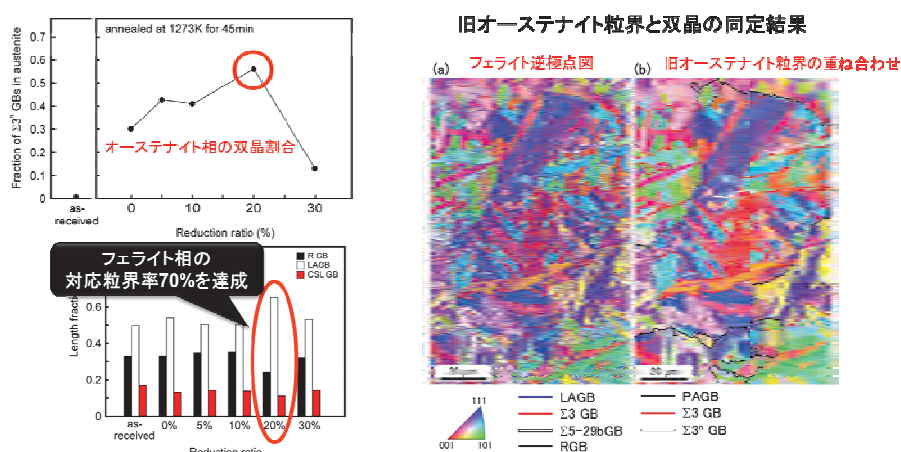


図4 PE16合金の冷中性子透過率2次元マッピングと厚み補正した冷中性子透過率

2. 2 フェライト鋼における粒界制御技術の確立

フェライト鋼は高温において FCC 構造のオーステナイト相に変態するため、オーステナイト温度域での加工熱処理により、粒界制御ニッケル基合金の場合と同様にオーステナイト相中の結晶粒界の制御は原理的に可能である。また、マルテンサイト相 (M 相) とオーステナイト相とはある一定の結晶学的な方位関係を有するため、オーステナイト相中に導入された双晶界面や対応粒界は、マルテンサイト変態の後も整合性の良い対応粒界になる頻度が高くなると考えた。以上の仮定に基づき、各種フェライト鋼の加工熱処理による組織変化を調査した結果、ラスマルテンサイト微細組織、特に、粒界性格分布は、相変態前の旧オーステナイト相の粒界微細組織と密接に関連することが明らかとなった。すなわち、旧オーステナイト相における双晶界面頻度を高めることにより旧オーステナイト粒界の対応粒界率を高めることが可能であり、加工熱処理条件の最適化により、マルテンサイト相における対応粒界率がパーコレーションしきい値の 70%を超える粒界制御フェライト鋼の作製に世界で初めて成功した(図5)。本研究で提唱した粒界制御手法は、従来フェライト鋼に対して適応されていた制御法とは一線を画すものであり、機構論的な裏付けに基づく粒界制御法を確立した。さらに、試作した粒界制御フェライト鋼に対し各種腐食試験を実施したところ、粒界制御により液体金属中での脆化を抑制できることが実証された(図6)。水蒸気腐食環境下においては、酸化皮膜直下に形成される脱炭層およびそれに伴う表面付近での軟化層の幅が粒界制御により縮小されることが示された(図7)。さらに、粒界制御後の焼き戻し条件を最適化することにより、通常材と比較して遷移クリープ域のクリープ速度が1桁低下することも明らかとなり(図8)、本研究で提示した粒界制御手法はフェライト鋼の特性を著しく改善する可能性を秘めていることを明示した。



3. 今後の展望

本研究で開発した粒界制御ニッケル基合金は、中性子照射環境下で問題となる種々の粒界劣化現象に対して優れた耐性を有することが期待でき、今後さらに材料試験炉を用いるなど材料内に均一な照射損傷組織を導入することで、中性子照射下における各種特性を評価することが重要である。さらに、本研究では対応粒界率 70%を超える粒界制御フェライト鋼の作製に世界で初めて成功し、いくつかの腐食環境下では優れた耐食性を有することを実証した。また、粒界制御後の

焼戻し条件の最適化により高温強度や耐クリープ特性も改善されることが明らかとなった。今後さらに、フェライト鋼に対する粒界制御処理が有用となる環境とその特性に関する検討を続けるとともに、照射環境下における材料特性についても評価していくことが重要である。

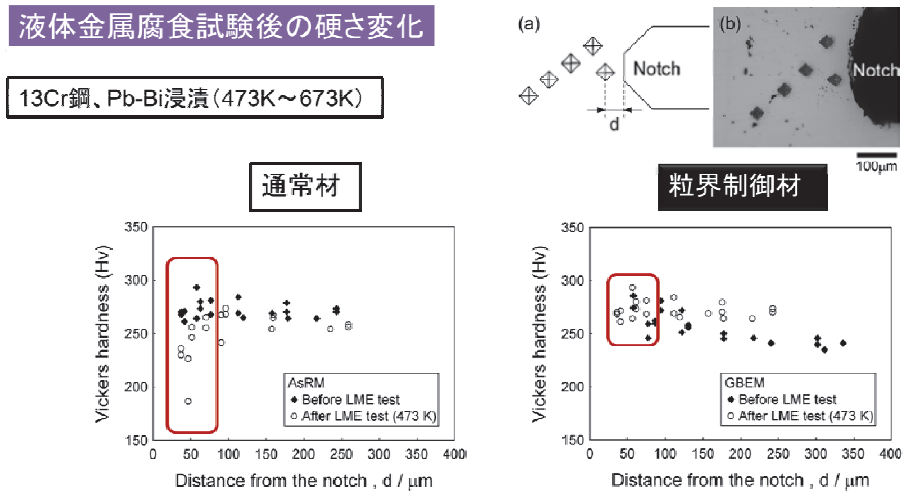


図6 粒界制御フェライト鋼の液体金属腐食に伴う硬さ変化

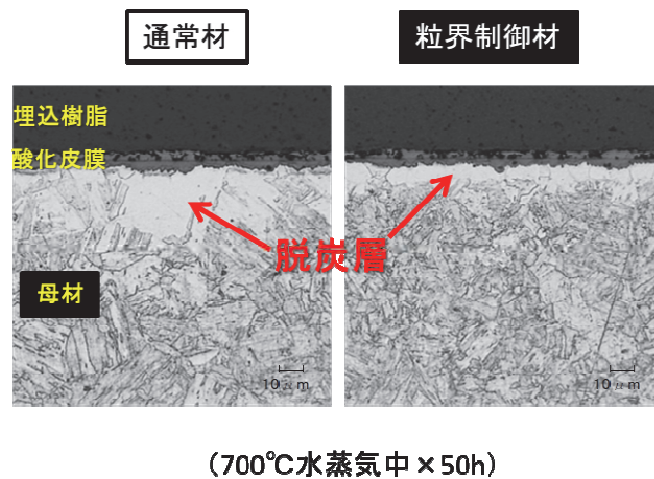


図7 水蒸気腐食したフェライト鋼でみられた脱炭(軟化)層。

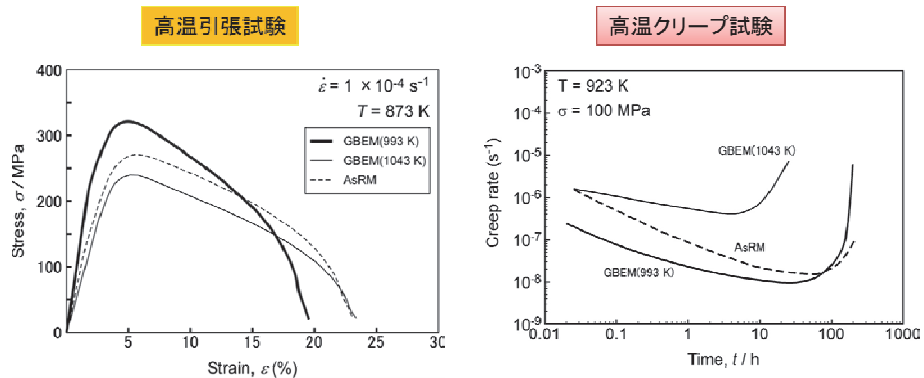


図8 粒界制御フェライト鋼の高温変形挙動。