

氏 名 宮澤 健

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 1658 号

学位授与の日付 平成26年3月20日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学専攻  
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 微量イットリウム添加バナジウム合金の機械的性質と中性子・重  
イオン照射による変化

論文審査委員 主 査 教 授 室賀 健夫  
准教授 長坂 琢也  
准教授 坂本 隆一  
教 授 福元 謙一 福井大学  
准教授 笠田 竜太 京都大学

論文内容の要旨  
Summary of thesis contents

論文題目：微量イットリウム添加バナジウム合金の機械的性質と中性子・重イオン照射による変化

1. 本研究の背景と目的

低放射化バナジウム合金(V-4 wt%Cr-4 wt%Ti 合金)は核融合炉用ブランケット構造材料として期待されている。バナジウム合金の使用温度上限・下限はそれぞれ高温強度・照射脆化で定められ、現状 700 °C と 450 °C 付近と見込まれている。使用温度域の拡張はブランケットのエネルギー変換効率を向上させる。

450 °C 以下の照射脆化の原因は、照射欠陥及び照射誘起析出物による照射硬化である。照射硬化は侵入型不純物(C, N, O)濃度とともに大きくなる。これは照射欠陥と不純物が複合体を形成し安定化するため、そして不純物元素で構成される Ti-CON 析出物が高密度に照射誘起析出するためである。

V-4Cr-4Ti 合金では、あらかじめ熱処理で侵入型不純物を Ti-CON 析出物として合金母相から除去し、さらにその析出物は適度に成長させて数密度を減らすことで硬化を抑制している。しかし、O は C, N に比較して合金母相に残留しやすく、熱処理後もなお照射硬化に寄与すると考えられる。そのため、O との化学的親和力が Ti よりも強い Y を添加して、母相の O をさらに低減させる試みが行われてきた。実際に、Y 添加合金では 400 °C の中性子照射後引張試験で、照射硬化の軽減と延性の向上が確認され、使用温度下限を下げられるとの期待がある。

しかし、Y 添加合金の照射データはほとんどなく、Y 添加の効果が低温側でどこまで有効なのか、さらに高照射量まで有効なのかは明らかになっていない。また、低温照射脆化を改善できても、硬化因子が無くなれば高温強度低下が懸念される。高温強度を低下させずに低温側の照射脆化を抑えることにより初めて、使用温度域を広げられる。

そこで本研究では、Y 添加合金を試作して中性子照射前後の機械特性を評価し、構造材料としての適用性、及び Y 添加の効果を検討することを目的とした。さらに、中性子照射実験では照射量が限られるため、高照射量での照射硬化は重イオン照射実験によって求めた。ただし、重イオン照射試験で中性子照射相当の照射硬化を求めるには新しい手法の開発が必要であり、本研究ではこれに取り組んだ。

2. Y 添加が機械的性質と O 不純物の挙動に及ぼす影響

V-4Cr-4Ti、V-4Cr-4Ti-0.15Y を基本組成として、その O 濃度を 0.008~0.36 wt% の範囲で変化させた。室温では、Y 添加、無添加合金の間に引張強度の差はなかった。一方、高温引張試験の結果、Y 添加により 700 °C 以上の引張強度が低下することが判明した。無添加合金では、転位への侵入型不純物の集積、すなわち動的歪み時効が起きていることを示すセレーションが 700 °C で観察された。Y 添加合金の引張曲線では 700 °C 以上になるとセレーションが消失したことから、動的歪み時効による硬化が失われて強度が低下したと理解できる。セレーション発生の熱活性化エネルギーを求めたところ、O 不純物の拡散エネルギーと同程度になり、Y 添加による影響はなかった。一方、析出物の分析により、Y 添加合金の Ti-CON 析出物は Y を含有していることが分かった。700 °C 以上で動的歪み時効が消失したのは、Y 含有 Ti-CON 析出物がより多くの O を吸収することで、母相の O 濃度が低下したためと考えられる。

700 °C の引張強度から米国機械工学会の基準で Y 添加合金の許容設計応力を評価したところ 85

(別紙様式 2)  
(Separate Form 2)

MPa と求まった。バナジウム合金ブランケットにおける代表的な設計例によると負荷応力は 35 MPa であり、これに比較して十分大きい。この温度域ではクリープ強度も許容設計応力を定める因子であるため、その評価が必要ではあるが、少なくとも引張強度の低下については構造材料として許容範囲であることを確認できた。一方衝撃試験により、Y 添加合金は O 濃度が低いときはもちろん、0.27 wt%まで多量に O が混入しても、構造材料の健全性を保つのに十分な衝撃エネルギーを示すことが明らかとなった。よって、Y 添加合金にはブランケット構造材料としての適用性が十分あるといえる。

### 3. Y 添加が中性子及び重イオン照射硬化に及ぼす影響

ベルギー・モル研究所の材料試験炉 BR-2 を用いて中性子照射試験を行った。照射温度は 60 °C であり、弾き出し損傷量は 0.18~0.5 dpa である。引張試験では、Y 添加の有無に関わらず、同程度の照射硬化と延性の低下が確認された。衝撃試験においても、Y 添加の有無に関わらず、同程度の衝撃エネルギーの低下が確認された。

九州大学のタンデム型加速器を用いて 2.4 MeV の Cu<sup>2+</sup>イオン照射を行った。照射温度は 200 °C であり、弾き出し損傷量は 0.76~7.6 dpa である。Cu イオンの飛程は 0.95 μm である。表面近傍の照射硬化の評価には超微小押し込み硬さ試験法を用いた。その結果、Y 添加の有無に関わらず同程度の照射硬化を確認した。

微細組織観察の結果、中性子照射、重イオン照射いずれにおいても Y 添加の有無に関わらず転位ループが観察された一方、照射誘起析出は観察されなかった。

過去の研究では、Y 添加による照射硬化・照射脆化の軽減が 400 °C で報告されている。しかし本研究の成果から、60 °C あるいは 200 °C では Y 添加の効果は無いことが明らかになった。400 °C での照射硬化の主因は照射誘起の Ti-CON 析出であり、Y 添加にはこれを抑える効果がある。しかし本研究の成果によると、200 °C 以下では照射誘起析出は発生せず、照射硬化の主因は転位ループであった。Y 添加は侵入型不純物を減らし照射誘起析出を抑えるが、転位ループ生成そのものに不純物は関与しないため、Y 添加の効果が現れなかったと考えられる。よって、Y 添加による照射硬化の軽減は照射誘起析出が支配的な温度域でのみ有効で、その限界は 200~400 °C の間にある。

### 4. 中性子照射と重イオン照射の相関

重イオン照射試料の超微小押し込み硬さ試験で得られる表面近傍の照射硬化を中性子照射試料の引張試験で得られる照射硬化と直接比較することは従来不可能であった。その障害となっていたのは、押し込み硬さ試験で観察される表面から 1 μm 程度の領域での異常な硬化現象である。Nix と Gao は、圧子との接触面では拘束された状態で局所的大変形が起こることから、引張試験等で自由表面を持つ試験片が均一に変形するときと比較して、より高密度の転位が接触面近傍に導入されるとして、これを説明した。本研究では、この Nix-Gao モデルを材料構成式に反映させて有限要素法解析を行うことにより、表面硬化現象を計算で再現することに成功した。これにより、重イオン照射後押し込み試験による照射硬化と中性子照射後引張試験による照射硬化を直接比較することが可能になった。

同じ弾き出し損傷量での照射硬化は重イオン照射の方が中性子照射よりも大きいことが明らかになった。重イオン照射実験の照射硬化を計算で再現するためには、照射量 0.76 dpa の場合で 750 MPa の照射硬化を仮定する必要がある、これは中性子照射実験による照射硬化 340 MPa の 2.2 倍である。この原因としては、注入イオンが中性子よりも効率的に照射欠陥を生成する過程、及び高損傷速度である重イオン照射では照射欠陥の核生成が促進され結果的に欠陥数密度が増える過程を考えると説明できる。

(別紙様式 2)  
(Separate Form 2)

## 5. 総括

本研究では、低放射化バナジウム合金の機械特性、照射特性に及ぼす Y 添加の効果を明らかにした。Y 添加による合金母相からの O 不純物除去は、室温での固溶硬化には影響しないが、高温での動的歪み時効を消失させ強度低下を招く。しかし、その程度は構造材料としては許容範囲である。Y 添加合金の衝撃特性が良好であったことも合わせ、ブランケット構造材料としての適用性は十分にある。従来 Y 添加は 400 °C の照射硬化・照射脆化を軽減することが分かっていたが、本研究では 60 °C、0.5 dpa までの中性子照射、200 °C、7.6 dpa までの重イオン照射ではその効果が無いことを明らかにした。Y 添加効果の限界は 200~400 °C の間にあるといえる。本研究ではまた、重イオンによる材料表面の照射硬化を抽出し、中性子による照射硬化と直接比較できる新たな手法の開発に成功した。そして、同じ弾き出し損傷量では重イオン照射の方が中性子照射より照射硬化が大きいことを見出した。

論文題目：微量イットリウム添加バナジウム合金の機械的性質と中性子・重イオン照射による変化

バナジウム合金(V-4 wt%Cr-4 wt%Ti 合金)は誘導放射能の低い核融合炉用ブランケット構造材料として期待されている。バナジウム合金の使用温度上限・下限はそれぞれ高温強度・照射脆化で定められ、現状 700°Cと 450°C付近と見込まれている。使用温度域を広げることができれば、ブランケットのエネルギー変換効率を向上させることが可能である。申請者は低放射化バナジウム合金の低温照射硬化によって引き起こされる照射脆化を改善するため、酸素親和力の大きいイットリウム(Y)を添加した合金を試作し、強度・組織、照射硬化の評価を通じてY添加効果を明らかにし、Y添加バナジウム合金の核融合炉ブランケット構造材料としての適用性に見通しを得た。高照射量の照射特性の評価にあたっては、重イオン照射後の材料表面の強度分布をシミュレーションで模擬し、照射硬化を抽出して、中性子照射後引張試験による照射硬化と直接比較できる新たな手法の開発に成功した。

本研究ではV-4Cr-4Ti、V-4Cr-4Ti-0.15Yを基本組成として、その酸素濃度を系統的に変化させた合金を試作した。そして、室温~600°Cでは、Y添加合金、無添加合金の間に引張強度の差はないが、700°C以上の高温ではY添加により最大引張強さが低下することを明らかにした。これは、700°C付近では転位への酸素不純物の集積による固着、すなわち動的歪時効が起り強度が増すが、イットリウム添加によりその強化因子が取り除かれたためであることを示した。微細組織の観察と検討より、Yを含むTi-CON析出物が酸素不純物を吸収し、合金母相から除去したことが動的歪時効消失の原因と説明した。一方、米国機械工学会の基準にもとづいて許容設計応力を評価し、700°Cでの引張強度低下は構造材料として許容範囲であることを導き出した。さらに衝撃試験により、Y添加合金は構造材料健全性を保つのに十分な衝撃エネルギーを示すことを示した。以上から、Y添加合金にはブランケット構造材料としての適用性が十分であると結論している。

さらに、低温照射硬化・照射脆化に及ぼすY添加の影響を明らかにするため、中性子照射試験及び重イオン照射試験を行った。その結果、中性子照射 60°C、0.18~0.20 dpa、イオン照射 200°C、0.76~7.6 dpa ではY添加に関わらず同程度の照射硬化と照射脆化が起こることを明らかにした。Y無添加バナジウム合金の使用下限温度は照射脆化によって定まり 450°C付近であるが、Y添加で照射硬化・照射脆化が軽減し、使用下限温度が下げられることが 400°Cまでは報告されていた。本研究では、その効果が少なくとも 200°C以下では無く、使用下限温度が 200°C~400°Cの間にあることを明らかにした。従来の研究によると 400°Cまでの照射硬化の原因は照射誘起析出であるのに対し、本研究では 200°C以下では照射誘起析出は発生せず、照射硬化に寄与するのは転位ループと呼ばれる照射欠陥であることを微細組織観察で示した。そして、Y添加は母相の酸素濃度を減らすので照射誘起析出を抑えることはできるが、転位ループの発生には影響しないことによりこれを説明した。

高照射量の実験には重イオン照射を用いたが、重イオンは材料中での飛程が典型的には 1  $\mu$ m 程度と短いため、超微小押込み試験で照射硬化を評価した。超微小押込み試験では、照射をしなくても表面から 1  $\mu$ m 程度の深さまで特有の硬化現象が現れるため、これと上述の照射硬化を分離することは従来不可能であった。これに対し、本研究では超微小押込み試験特有の硬化現象を説明する Nix-Gao のモデルを実用合金の有限要素法解析に初めて適用し、さらにその解析に照射損傷理論を組み入れて、重イオン照射後の材料表面の強度分布を模擬することにより、照射硬化を分離抽出することに成功した。その結果、同じはじき出し損傷量では重イオン照射の照射硬化の方が中性子照射よりも大きいことを見出した。これに対し、注入イオンが中性子よりも効率的に照射欠陥を生成

(Separate Form 3)

する過程、及び高損傷速度であるイオン照射では照射欠陥の核生成が促進され結果的に欠陥数密度が増える過程を用い説明した。

これらの成果は、構造材料の使用温度範囲を広げ核融合炉ブランケットのエネルギー変換効率を向上させることに寄与するものである。また使用可能温度の限界を見極めることにもつながるものであり、工学的意義が大きい。一方、バナジウム合金の高温強度の発現機構と、それに及ぼすY添加の効果、そしてY添加合金の低温照射硬化のメカニズムを明らかにしたこと、さらに実験とシミュレーションを組み合わせることで照射硬化の新たな解析手法を開発したことは、独創性、新規性に富み、学術的にも高く評価できる。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として十分価値があると判断した。

審査委員会において、申請者は提出論文の内容を詳細に説明した。説明の後、審査委員からは、バナジウム合金における侵入型不純物添加の効果、動的歪時効のメカニズム、イットリウム添加効果の温度依存性、さらに微細組織観察における解析手法の妥当性、他の候補材料と比較したときのバナジウム合金の優位性、計算に組み入れたNixとGaoの理論と照射損傷理論の詳細等に関して様々な質問とコメントが出されたが、それらに対して十分な返答を行った。これらの発表ならびに質疑を通じ、申請者が核融合炉ブランケット構造材料に必要な特性と課題についてよく理解していること、そしてその課題解決のための道筋と見通しについて深い洞察を行っており、今後の発展性が十分あることが分かった。また、核融合炉材料工学及び諸材料理論について、基礎的な理解をしていることも分かった。

公開発表会においては、研究の背景、目的、方法、実験結果、計算結果とその解析、考察等について1時間の発表を行い、引き続いて、出席者による質疑応答が40分間行われた。ここでも明確な発表と質問に対する十分な回答がなされた。発表論文としては、査読つき英文論文（第一著者）として計3編が出版済みであり、1編が現在査読中である。また、国際会議でのポスター発表も5回行っており、英語表現能力も充分であると判断した。