

酸化物分散強化型フェライト鋼の製造過程における酸化物分散粒子分布
の放射光その場観察に基づく析出機構の解明 II
Clarification of deposition mechanism of oxide particle distribution in oxide
dispersion strengthened ferritic steel under high temperature by in-situ
observation with synchrotron radiation II

菖蒲敬久^a, 井上賢紀^a, 金思雄^a, 大塚智史^a,
皆藤威二^a, 山下真一郎^a, 佐藤眞直^b
Takahisa Shobu^a, Masaki Inoue^a, Sa-Woong Kim^a, Satoshi Ohtsuka^a,
Takeji Kaito^a, Shinichiro Yamashita^a and Masugu Sato^b

^a(独)日本原子力研究開発機構, ^b(財)高輝度光科学研究センター
^aJAEA, ^bJASRI

高速増殖炉用燃料被覆管として開発が進められている酸化物分散強化型鋼の最重要因子であるナノサイズ酸化物粒子の析出・変態機構を明らかにするため、材料生成過程である高温中における SAXS 測定を行った。25keV で Pilatus 検出器を用いた測定から、ODS 鋼中に発生するナノ結晶粒に関連する散乱パターンの観測に成功した。

キーワード： 高速増殖炉(FBR)、酸化物分散強化型フェライト(ODS)鋼、X 線回折法、
X 線小角散乱法、その場同時観察

背景と研究目的：

高速増殖炉の高燃焼度化および冷却材高温化に向けて開発された燃料被覆管用酸化物分散強化型(9Cr-ODS)鋼には、最高約 700°C の出口温度、最大 250dpa のはじき出し損傷という過酷な環境に曝されるため、高温・中性子照射環境下における高いクリープ強度特性および優れた耐照射特性が要求される。ここで、前述を満たすために最も重要な因子となるのが微細かつ緻密に分散されたナノサイズ酸化物による分散強化であるが、酸化物粒子の製造時および使用時の挙動は必ずしも明瞭になっていないため、製造プロセスとナノ組織の相関を機構論的に解明しなければならないのが現状である。

そこで本研究では、分散強化の最も重要な因子であるナノサイズ酸化物粒子の析出・変態機構を明らかにするため、材料生成過程である高温中における XRD および SAXS 同時測定による評価技術を確認し、各試料のナノ組織を定量的に評価することによって、マトリックス効果や酸化物粒子の体積率およびサイズ分布を総合的に評価する。そして、ここで得られた知見を活用しつつ、2nm 程度の超微細酸化物粒子を一定に分散させることによって安定された品質の 9Cr-ODS 鋼被覆管の量産化が可能になると期待している。

実験：

実験は BL19B2 第 3 ハッチで行った。エネルギーは 25keV を使用した。入射 X 線はそれぞれミラーによる集光および高調波をカットし、さらに入射直前でスリットによる整形を施して 0.2mm² を試料に照射した。なお、試料直前には上流スリットからの回折線をカットするために φ1mm のコリメータを設置した。受光側には単管を設置し、空気散乱によるバックグラウンド除去を行った。検出器には Pilatus_100K を使用し、一度に広い逆格子空間測定をリアルタイムで行った[1]。レイアウトを図 1 に示す。

試験片には熱処理を施していない ODS 鋼を使用し、φ0.3mm のキャピラリーに詰めた状態で、本実験用に開発した放射光汎用型電気に設置して測定を行った。昇温測定は 2 回行い、その条件は図 2 に示す通りである。測定は、その間 1 時間露光を基本として適当なタイミングで実施した。

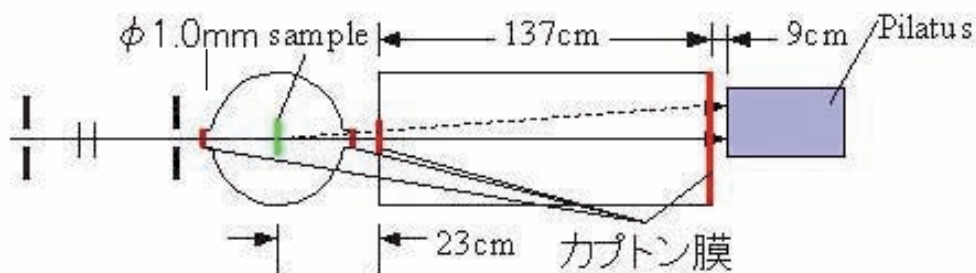


図1. 実験レイアウト.

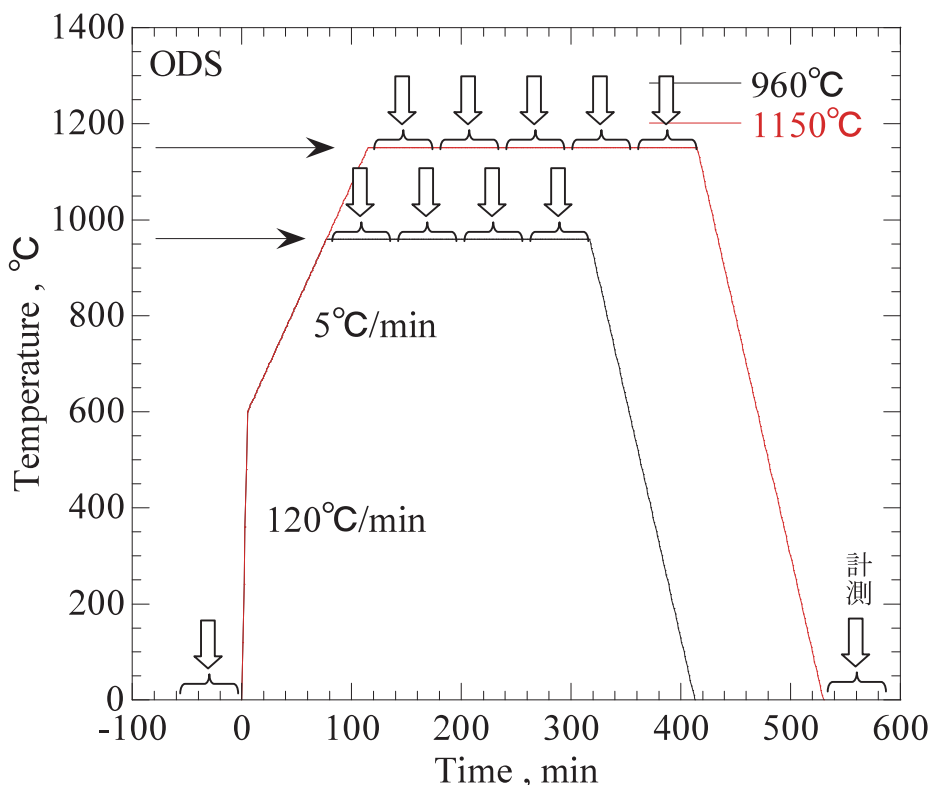


図2 温度上昇条件

結果および考察：

○960°C昇温測定

図3に960°Cまで熱しながら測定したスペクトルを示す。as-MAは加熱前に1時間露光したスペクトル、960_1hから_4hは960°Cで1時間露光したスペクトル、RTは冷却後に1時間露光したスペクトルである。ここで、960_2hと_3hが他のスペクトルに比べて大きく異なっているが、これは試料位置が大きく動いてしまったためである。それ以外の4つのスペクトルを比較すると、ほとんど変化が見られず、この温度では酸化物はほとんど生成していないと考えられる。

○1150°C昇温測定

図4に1150°Cまで熱しながら測定したスペクトルを示す。as_MAは加熱前に測定したスペクトル、1150_1hは1150°Cで試料位置を確認後から1時間分測定したスペクトル、1150_2hから4hは試料位置を確認せず続けて1時間ずつ3回測定したスペクトル、1150_5hは1150°C到達後4h後、つまり1150_4h測定終了後に改めて試料位置を確認してから1時間分測定したスペクトル、RTは室温に戻してから試料位置を確認後に測定したスペクトルである。as_MAと1150_1hを比較すると、後者ではqの小さいところで傾きに若干の変化が現れており、これは酸化物が生成されだしているためであると考えられる。1150_2hから1150_4hに関しては、図3同様試験片が動いてし

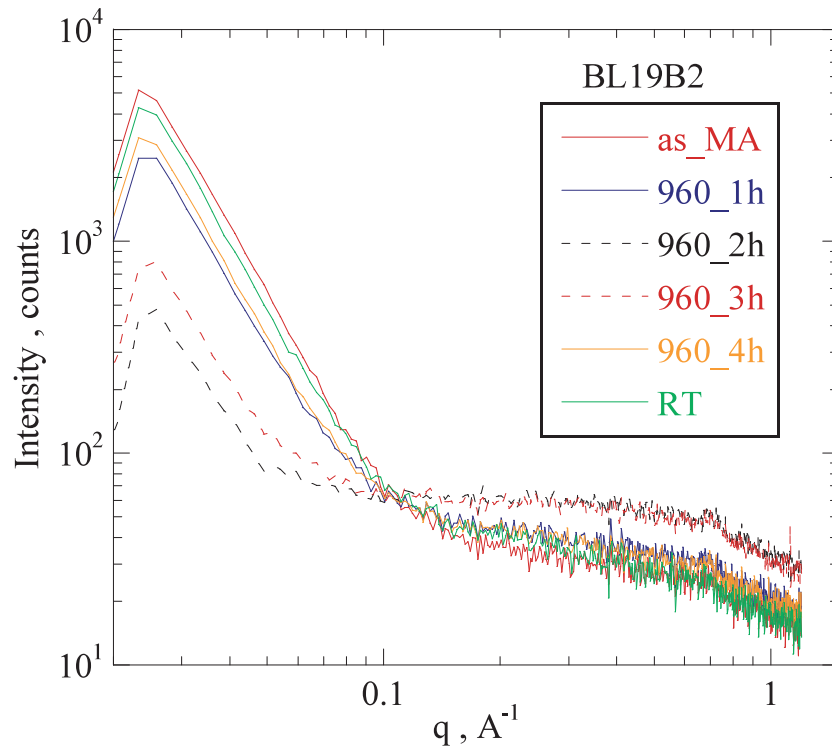


図3 960°C昇温過程中の SAXS スペクトル

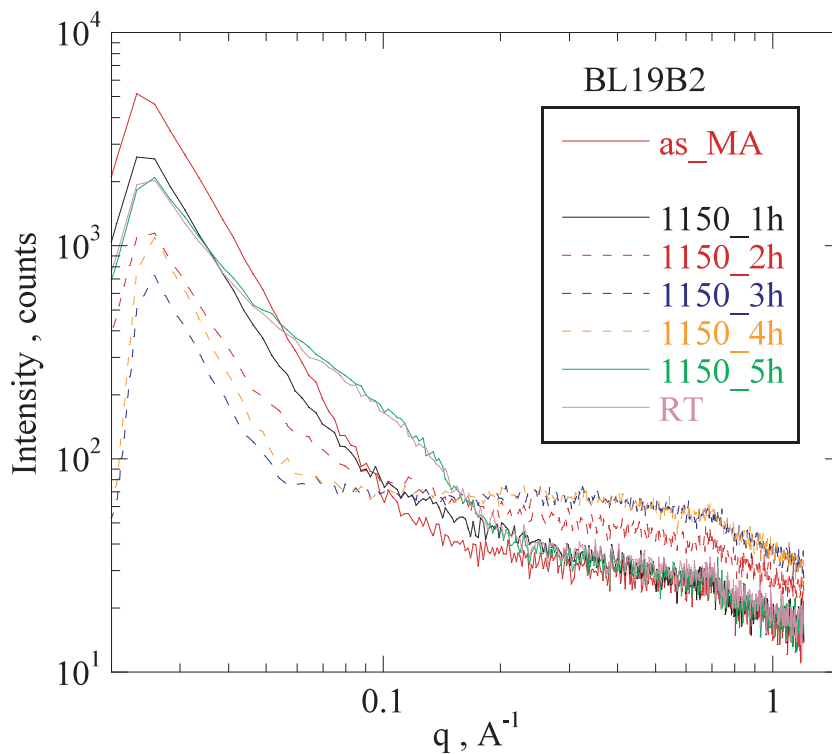


図4 1150°C昇温過程中の SAXS スペクトル

まったために非常に大きな変化が見られる。最も注目すべきは、試料位置を再調整した 1150_5h であり、 q が 0.1 付近で大きく膨らんでいることがわかる。これは、おそらく試料中の酸化物が大きく成長したためではないかと推察される。今後きちんと解析を行うことでこのあたりを明らかにすることができると考えている。

結論・今後の課題：

BL19B2 を用いて、ODS 鋼に関する高温その場観察小角散乱測定を実施した。結果を以下に示す。

1. 高温実験においては、試験片が動く可能性が非常に高いため、試料位置をきちんと合わせる必要があり、それができれば、Pilatus でも十分に小角散乱測定ができる。
2. 960°Cにおいては、特に大きな変化は見られなかった。
3. 1150°Cにおいては、時間変化に伴い q が 0.1 付近の傾きの絶対値が小さくなる傾向が示され
今後、定量的な議論を行うためにより短い時間での測定を実施する。そのためには入射 X 線の強度の向上、および試験片形状の改良が必要となる。後者に関しては、非常に薄いガラス容器を使用し、幅広い入射 X 線の利用により散乱強度の向上を図る予定である。これによりこれまで実現できていない XRD 測定が可能かどうかを検討するとともに、ODS 鋼における酸化物分散粒子の発生条件を明らかにしていく。

参考文献：

- [1] H. Toyokawa, M. Takagaki, T. Uruga, H. Tanida, Y. Terada and K. Shinoda, Ionizing Radiation, Japan, Vol. 35, No.1, to be published (2009).