

Y₂O₃を分散させたフェライト鋼の 高温における分散強化機構

吉澤 明展*・藤田 剛志*²・吉田 冬樹*³・中島 英治*³

Dispersion Hardening Mechanism of Y₂O₃ Dispersed Ferritic Steel at High Temperature

Akinori YOSHIZAWA, Takeshi FUJITA, Fuyuki YOSHIDA and Hideharu NAKASHIMA

Synopsis : The threshold stress for high temperature deformation of Oxide Dispersion Strengthened (ODS) Ferritic Steel was measured by stress abruptly loading (SAL) test at 923K and was compared with the Orowan and void-hardening stresses calculated from dispersion parameters. It was found that the threshold stress obtained by SAL test decreased from the Orowan stress to the void-hardening stress as the time elapsed under load. Therefore, it is concluded that the originating mechanism of the threshold stress comes from the Srolovitz mechanism in this steel. From these results, the origin of strength anisotropy of ODS Ferritic Steel are discussed.

Key words : steel for elevated temperature service ; plastic deformation ; creep ; threshold stress ; Orowan stress ; void-hardening stress ; oxide dispersion strengthened alloy.

1. 緒言

高速増殖炉の燃料被覆管は、中性子による照射を受ける環境で使用されるため、耐照射損傷性に優れていることが望まれる。フェライト鋼はこの耐照射損傷性に優れていることが知られており、次世代の燃料被覆管材料として有望視されている。また、燃料被覆管は、高温(約923K)のNa冷却材と接触し、核分裂生成物による内圧クリープ条件下で使用されるため、高温で高強度を有する必要がある。本材料は高い耐照射損傷性と高温強度を実現するために、フェライト鋼に高温でも安定な酸化物による分散強化が施された材料である。しかし、この酸化物分散強化型(Oxide Dispersion Strengthened, 以下ODS)フェライト鋼の高温における分散強化機構は解明されておらず、高温強度を定量的に評価できる段階に至っていない。

ところで、現在までの分散強化の基礎研究によれば、分散強化材の強度は母相の強度としきい応力の和として評価できる¹⁾。ここでしきい応力とは転位が粒子間を通過するのに必要な応力で、転位と粒子の相互作用に強く依存する。したがって、ODSフェライト鋼の分散強化機構を明らかにするためには、この相互作用を知る必要がある。転位と粒子の相互作用は電子顕微鏡を用いて高温で直接観察することができ、最近開発されたクリープ応力負荷時の瞬間

ひずみに着目した応力瞬間負荷法²⁾を用いれば、電子顕微鏡観察より短時間でしきい応力の直接測定と相互作用の判別をすることが可能である。そこで、本研究ではこの応力瞬間負荷法を用いて、ODSフェライト鋼のしきい応力を測定するとともに、分散強化理論を用いてしきい応力を定量的に評価し、実測のしきい応力と比較した。さらに、ODSフェライト鋼の高温破壊強度としきい応力とを比較し高温破壊機構についても考察した。

2. 実験方法

2.1 試験片

実用が検討されているODSフェライト鋼燃料被覆管は、製管時の強加工により、長手方向と幅方向の結晶粒径がそれぞれ3.93μmと0.34μmでアスペクト比が11と加工方向に長く伸びた結晶粒形態を有することが知られている。そこで、本研究では熱間鍛造と熱間圧延の条件を考慮し、燃料被覆管と同様な結晶粒形態を有するように作製された被覆管模擬材(板状圧延材)を用い、しきい応力の測定を行った。この被覆管模擬材は(株)神戸製鋼所より供与されたもので、その作製の手順の詳細は以下に示す通りである。

まずアルゴンガスアトマイズにて作製したφ75μm以下の合金粉末と、酸化物粉末(Y₂O₃)をアトライター(MA-10DX)

平成8年3月8日受付 平成8年7月15日受理 (Received on Mar. 8, 1996; Accepted on July 15, 1996)

* 九州大学大学院生 (現:新日本製鐵(株)) (Graduate Student, Kyushu University, now Nippon Steel Corp.)

* 2九州大学大学院生 (現:(株)日軽金) (Graduate Student, Kyushu University, now Nippon Light Metal Co., Ltd.)

* 3九州大学大学院総合理工学研究科 (Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, 6-1 Kasugakoen Fukuoka 816)

を用いて回転速度 $3.7s^{-1}$ で173ksのメカニカルアロイング処理した。得られた混合粉末を軟鋼缶に封入し673K-0.13Paの条件で脱気処理した後、180MPaの静水圧下で1423K-3.6ksHIP処理した。さらに1423Kで熱間鍛造、熱間圧延を施して被覆管模擬板材とした。この時の加工度は実用の燃料被覆管の加工度とほぼ等しい。その結果得られた被覆管模擬板材の結晶粒のアスペクト比は11以上で、燃料被覆管のものとはほぼ一致していた。この圧延材の化学分析値はTable 1に示す通りである。

これらより機械加工により平行部長さ12mm、断面積 $4 \times 0.4mm^2$ の板状試験片を圧延方向と平行に採取した。このように応力軸と結晶粒の配向方向を一致させたのは、粒界すべりの影響を取り除くためである。

2・2 応力瞬間負荷試験

応力瞬間負荷試験は高剛性高応答速度の電気油圧式試験機、島津サーボパルサーEHF-2型³⁾を改良した試験機によって行った。荷重は容量5kNのせん断型ロードセル、変位は $\pm 0.2mm/V$ のL.V.D.T.を用いて測定した。荷重と変位の信号の記録にはデジタルメモリー(アナライジングレコーダーAR1100, 横河電機社製)を用い、両信号を時間間隔1msで記録した。試験温度は燃料被覆管の使用温度である923Kとし、約 $7 \times 10^{-3}Pa$ の真空中で行った。試験片の加熱には3分割された抵抗加熱炉を用い、試験中の温度変動および試験片の平行部に沿っての温度差を $\pm 2K$ 以内に制御した。

試験は約15MPaの応力を負荷した状態から負荷応力を徐々に増し、しきい応力と考えられるポイド強化応力⁴⁾やオローワン応力⁵⁾よりも十分に大きい約300MPaまで増加させて行った。それぞれの段階において応力負荷に要した時間

は約100msであった。Fig. 1は実測した荷重と変位の時間変化を示したものである。両信号にはノイズが含まれているが、このノイズによる測定誤差はひずみで $\pm 2.6 \times 10^{-5}$ 、応力で $\pm 3.7MPa$ であり、今回のしきい応力の測定においては無視できる程度のものである。

2・3 ポイド強化応力とオローワン応力

ポイド強化応力とオローワン応力は、すべり面上での粒子表面間距離 $\bar{\lambda}$ を用いて評価した。 $\bar{\lambda}$ はすべり面上における平均粒子中心間距離 \bar{l}_s と平均粒子半径 \bar{r}_s を用いて

$$\bar{\lambda} = 1.25\bar{l}_s - 2\bar{r}_s \dots\dots\dots (1)$$

と表わされる。ここで係数1.25は分散粒子が母相中に無秩序に分布していると仮定し、粒子の平面における規則正方形分布を無秩序分布に変換するときの変換係数で、ForemanとMakin⁶⁾が計算機シミュレーションによって求めた値である。吉田ら⁷⁾は本合金中の Y_2O_3 粒子の無秩序分布について検討し、 Y_2O_3 粒子は母相中にほぼ無秩序に分布していることを明らかにしている。したがって、式(1)中で係数1.25は精度よく適用できると判断される。

Fig. 2は本研究で用いたODSフェライト鋼圧延材中の Y_2O_3 粒子を透過電子顕微鏡観察して得られた分散粒子の半径 r のヒストグラムである。 \bar{l}_s と \bar{r}_s はそれぞれ分散粒子の大きさの分布を考慮して

$$\bar{l}_s = \sqrt{\frac{2\pi}{3f} \frac{\bar{r}^3}{\bar{r}}} \dots\dots\dots (2)$$

$$\bar{r}_s = \frac{\pi}{4} \frac{\bar{r}^2}{\bar{r}} \dots\dots\dots (3)$$

によって評価することができる⁸⁾。ここで f は粒子の体積分率で、Table 1に示した組成と Y_2O_3 の密度($4.84 \times 10^3 kg/m^3$)より求めた。得られた f は0.65%である。さらに、 \bar{r} 、 \bar{r}^2 および \bar{r}^3 はそれぞれ r 、 r^2 および r^3 の平均値である。Fig. 2の Y_2O_3 粒子の大きさの分布より求めた \bar{r} 、 \bar{r}^2 および \bar{r}^3 、さら

Table 1. Chemical composition of ODS rolled sheet. (wt%)

Fe	C	Ti	W	Y	O	N	Y_2O_3	Ex.O
bal.	0.022	0.49	2.74	0.31	0.190	0.005	0.39	0.106

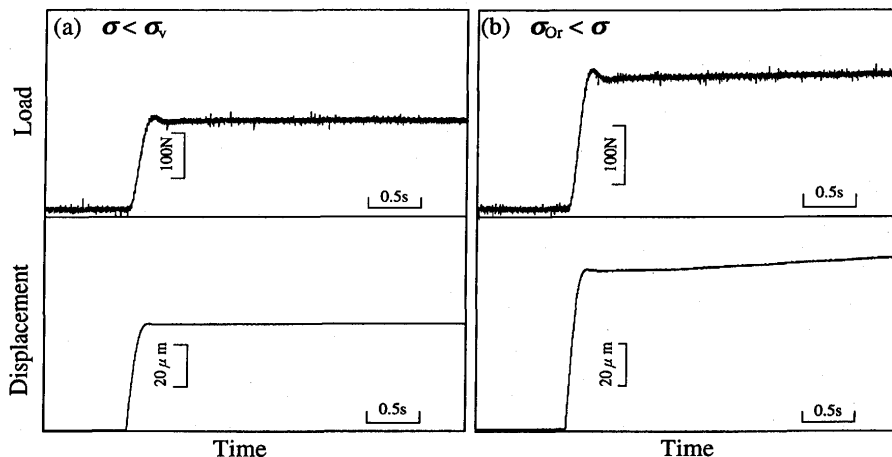


Fig. 1. Examples of recorded load and displacement time curves of the ODS rolled sheet specimen at 923K.

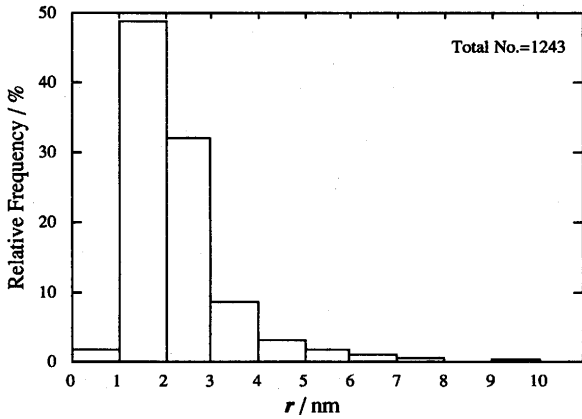


Fig. 2. Histogram for the size distribution of Y₂O₃ particles in the ODS rolled sheet specimen.

Table 2. Dispersion and related Parameters in ODS rolled sheet.

$\bar{r}/10^{-9}\text{m}$	$\bar{r}^2/10^{-18}\text{m}^2$	$\bar{r}^3/10^{-26}\text{m}^3$	$\bar{r}_s/10^{-8}\text{m}$	$\bar{r}_s^2/10^{-9}\text{m}^2$	$\bar{\lambda}/10^{-7}\text{m}$	fl%
2.4	8.0	5.3	8.4	2.6	1.0	0.65

に \bar{r}_s , \bar{r}_s^2 および $\bar{\lambda}$ をTable 2にまとめて示す。

ボイド強化応力 σ_v とオローワン応力 σ_{or} は、粒子間を張り出した転位間の相互作用を考慮したScattergoodとBaconの理論^{4,5)}にもとづき

$$\frac{\sigma_v}{E} = A_v \frac{Mb}{4\pi(1+\nu)\bar{\lambda}} \left[\ln\left(\frac{\bar{D}}{r_0}\right) + B \right] \dots\dots\dots(4)$$

$$\frac{\sigma_{or}}{E} = A_{or} \frac{Mb}{4\pi(1+\nu)\bar{\lambda}} \left[\ln\left(\frac{\bar{D}}{r_0}\right) + B \right] \dots\dots\dots(5)$$

によって求めた。ここで A_v は、

$$A_v = \frac{(1+\nu\sin^2\phi)}{1-\nu} \cos\phi \dots\dots\dots\text{らせん転位}$$

$$A_v = \frac{(1-\nu-\nu\sin^2\phi)}{1-\nu} \cos\phi \dots\dots\dots\text{刃状転位}$$

で、 A_{or} は、

$$A_{or} = \frac{1}{1-\nu} \dots\dots\dots\text{らせん転位}$$

$$A_{or} = 1 \dots\dots\dots\text{刃状転位}$$

である。また、 B は

$$B = 0.6 \dots\dots\dots\text{らせん転位}$$

$$B = 0.7 \dots\dots\dots\text{刃状転位}$$

Table 3. Orowan stress and void-hardening stress in ODS rolled sheet.

σ_{or}/MPa		σ_v/MPa	
$r_0=b$	$r_0=3b$	$r_0=b$	$r_0=3b$
192	135	163	114

である。式中の M はテラー因子⁹⁾でbcc金属では2.0[†]、 b はバーガースベクトルの大きさ(α -Feの $b=0.248\text{nm}$ を用いる)、 ν はポアソン比、 \bar{D} は $\bar{\lambda}$ と $2\bar{r}_s$ の調和平均、 r_0 は転位芯のcut-off半径、 ϕ は転位がボイドから離脱するときの臨界角⁴⁾である。温度923Kにおける α -Feのポアソン比 $\nu=0.334$ ¹⁰⁾を用いると、 ϕ はらせん転位の場合は0.802rad(46°)、刃状転位の場合は0.331rad(19°)となる。また、 E はヤング率で、923Kにおける α -Feの値143.5GPaを用いた。さらに、ボイド強化応力とオローワン応力は、刃状転位とらせん転位の場合の値を幾何平均したものとし、 r_0 には b と $3b$ を用いた。式(4)と(5)よりボイド強化応力とオローワン応力の比は、 $\sigma_v/\sigma_{or} \approx 0.85$ となる。Table 2に示した分散パラメーターより式(4)と(5)を用いて求めたボイド強化応力とオローワン応力の大きさをTable 3に示した。

3. 実験結果

3・1 しきい応力

Fig. 1 (a)はボイド強化応力以下に相当する荷重、(b)はオローワン応力以上に相当する荷重を負荷した場合の応力瞬間負荷試験の結果の例である。(a)では応力負荷状態が経過しても変位は増加しないが、(b)では時間とともに変位が増加することがわかる。

Fig. 3は一連の負荷に伴う変位の変化から、負荷直後と1~4s経過後における応力とひずみの関係を求めプロットしたものである。図中にはTable 3に示したボイド強化応力とオローワン応力の範囲も斜線領域で示してある。また、破線は応力とひずみの弾性的比例関係である。図より明らかなように負荷直後では矢印A以上で測定点は弾性的比例関係を示す破線より上側にある。これはA点以上の応力では転位が粒子間を通過したために塑性ひずみが生じたことを意味している。したがって、応力負荷直後のしきい応力はA点の175MPaである。また、負荷後1s, 2s, 3sおよび4sではしきい応力はB点の150MPaである。さらに、A点とB点で示したしきい応力はオローワン応力やボイド強化応力の理論値の範囲内にあるが、A点はオローワン応力に、B点はボイド強化応力に比較的近い。また、A点とB点のしきい応力の比は150MPa/175MPa ≈ 0.86 であり、すでに述べた理論値の

† 本合金は圧延面が{001}で圧延方向が<110>の発達した集合組織を有しているため、ランダム配向した時のテラー因子(M)2.0を用いることには矛盾がある。しかし、しきい応力の理論値の評価には転位芯半径の不確定さによる誤差があり、この誤差はテラー因子の誤差よりも大きい。そこで、本研究では M に2.0を用いた。

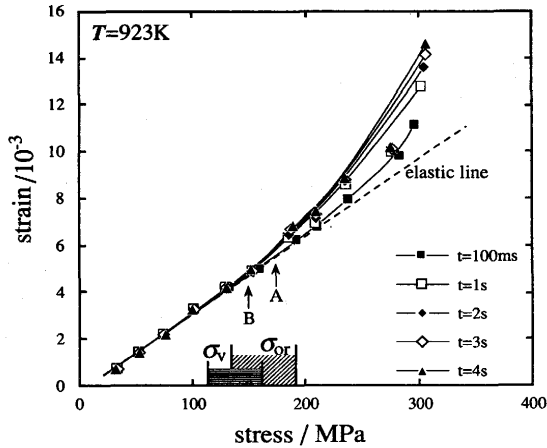


Fig. 3. The relation between creep stress and instantaneous strain of the ODS rolled sheet specimen at 923K.

比 $\sigma_v/\sigma_{or} \approx 0.85$ に非常に近い。これらのことより、しきい応力は応力負荷後の時間の経過とともに変化したものと考えられる。このようなしきい応力の変化は、粒子上の転位の応力場の緩和に伴う転位と粒子の相互作用の変化によって説明することができる。

転位と粒子の相互作用には斥力型と引力型とがあるが、前者の相互作用では転位の粒子間通過機構はオローワン機構あるいは転位の上昇運動による粒子乗り越え機構、後者ではスロロビッツ機構¹¹⁾である。転位と粒子の引力型相互作用は粒子と母相間の界面すべりや体拡散が起こることによって粒子上での転位の応力場の緩和が生じた結果、粒子表面が転位にとって結晶の自由表面のように作用することによって起こる。ここで、もし緩和が完全に起こり得ないほど短時間に応力を負荷すると、転位と粒子の相互作用は斥力型であり、時間の経過とともに緩和が進行し、相互作用が引力型に変化することになる。その結果、しきい応力はオローワン応力からボイド強化応力に変化する。本研究で得られたしきい応力の変化はこのような転位と粒子の相互作用の変化に対応しているものと考えられ、 Y_2O_3 を有するフェライト鋼のしきい応力はクリープ条件のような緩和が起こり得る条件下では、ボイド強化応力であると結論される。

4. 考察

4.1 被覆管状試料のクリープ破断強度の異方性

Fig. 4は、本研究に用いた被覆管模擬板材とほぼ同様な組成 (Table 4に示す) を有するODSフェライト鋼燃料被覆管試作材の単軸クリープ破断試験と内圧クリープ破断試験の結果である¹²⁾。それぞれの応力負荷の方向はFig. 4中に示した通りである。内圧強度は単軸強度よりも著しく低いことが分かる。本研究により Y_2O_3 を有するフェライト鋼のしきい応力はボイド強化応力であることが明らかとなったので、

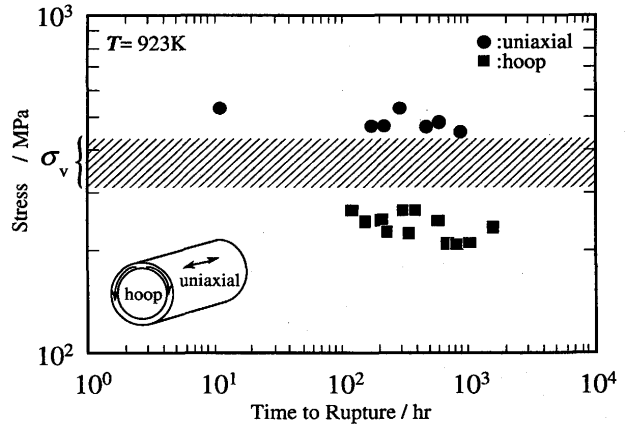


Fig. 4. Creep rupture property of the ODS tube specimen at 923K¹²⁾.

Table 4. Chemical composition of ODS tube¹²⁾. (wt%)

Fe	C	Ti	W	Y	O	N	Y ₂ O ₃	Ex.O
bal.	0.045	0.52	2.81	0.27	0.186	0.015	0.34	0.113

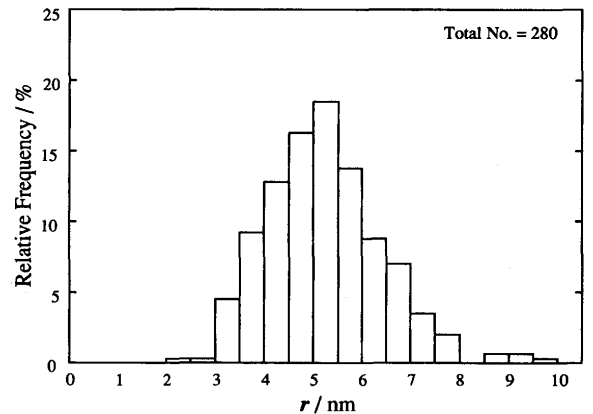


Fig. 5. Histogram for the size distribution of Y_2O_3 particles in the ODS tube specimen.

Table 5. Dispersion and related Parameters in ODS tube.

$\bar{l}_s/10^{-8}m$	$\bar{r}_s/10^{-9}m$	$\bar{\lambda}/10^{-7}m$
4.4	5.3	0.45

Fig. 4の試料のボイド強化応力を評価した。

Fig. 5は抽出レプリカ法を用いて平面上での粒子の大きさの分布を求めて得られたヒストグラムである。抽出レプリカ法で観察される粒子の大きさの平均値は \bar{r}_s である。また、粒子中心間距離 \bar{l}_s は単位面積当たりの粒子数 N_s より

$$\bar{l}_s = \frac{1}{\sqrt{N_s}} \dots \dots \dots (6)$$

によって評価できる。これらの値を式(1)に代入して $\bar{\lambda}$ を求めた。得られた分散パラメーターをまとめてTable 5に示す。

また、これらの分散パラメーターから前述の方法でボイド強化応力の理論値を求めた。得られた値は $\sigma_v = 308\text{MPa}$ ($r_0 = 3b$)、 $\sigma_v = 417\text{MPa}$ ($r_0 = b$)であった。この値をFig. 4中に斜線領域で示した。

図より、短時間の破断強度は σ_v よりも大きいことが、破断時間が長くなるにつれてボイド強化応力に収斂していることが分かる。本来、しきい応力は結晶粒内の転位が粒子間を通過するのに必要な応力であるので、クリープ破断応力と一致するとは考えにくい。しかし、粒内を運動した転位が粒界でクラックを形成すると考えると破断強度は粒内の転位の運動のしきい応力に近いものになるであろう。これが正しければ分散粒子の体積分率を制御することによってクリープ破断強度も制御できることを意味している。一方、内圧強度はしきい応力よりも著しく低いことから、この条件では転位の運動以外の変形が支配的であることを示唆している。

5. 結論

Y₂O₃粒子を分散させたフェライト鋼のしきい応力を応力瞬間負荷試験によって測定し、分散強化機構を検討した結果、以下の結論が得られた。

しきい応力が時間に依存して変化すること、その変化前

後のしきい応力の大きさの比がほぼ分散強化理論から予想される値であることからY₂O₃を有するフェライト鋼の高温変形における転位と分散粒子の相互作用は引力型であり、しきい応力の発現機構はスロロビッツ機構であることが明らかとなった。

本研究は動力炉・核燃料開発事業団の委託研究により実施した。また、吉永日出男九大名誉教授には適切なお指導を頂いた。ここに特記して感謝の意を表す。

文 献

- 1) 例えば、中島英治、吉永日出男：鉄と鋼，**9** (1991), 1399.
- 2) 吉田冬樹，菅元淳二，中島英治，吉永日出男：日本金属学会誌，**58** (1994), 613.
- 3) 吉永日出男：金属，**49** (1979) 4, 15.
- 4) R.O.Scattergood and D.J.Bacon: Acta Metall., **30** (1982), 1665.
- 5) R.O.Scattergood and D.J.Bacon: Phil. Mag.A, **31** (1975), 179.
- 6) A.J.E.Foreman and M.J.Makin: Phil. Mag., **14** (1966), 911.
- 7) 吉田冬樹，野口邦広，中島英治，吉永日出男：第112回日本金属学会講演概要，(1993), 367.
- 8) 葉 英華，中島英治，栗下裕明，後藤正治，吉永日出男：日本金属学会誌，**52** (1988), 1246.
- 9) G.I.Taylor: J.Inst.Met., **62** (1938), 307.
- 10) D.J.Dever: J.Appl. Phys., **43** (1972), 3293.
- 11) D.J.Srolovitz, R.A.Perkovic-Luton and M.J.Luton: Phil.Mag. A, **48** (1983), 795.
- 12) S.Ukai, M.Harada, H.Okada, M.Inoue, S.Nomura, S.Shikakura, T.Nishida, M.Fujiwara and K.Asabe: J.Nuclear Materials, **204** (1993), 74.