

イオン照射したステンレス鋼におけるすべりと損傷組織の相互作用

Interaction between Slips and Damage structures in Ion-irradiated Stainless Steels

三浦 照光 (Terumitsu Miura)* 藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)* 福谷 耕司 (Koji Fukuya)*

要約 Fe イオン照射したステンレス鋼を用いてすべりと損傷組織の相互作用を調べ、鋼種による相互作用の違いについて検討した。また、He イオン照射と比較し、すべりと損傷組織の相互作用についてより詳細に検討した。SUS316, SUS304 ステンレス鋼の溶体化熱処理材に 300°C で最大 10dpa まで 2.8MeVFe²⁺ イオンを照射し、300°C において変形速度 10⁻⁷/s で 2% の塑性変形を加えた。変形に伴い表面に現れる粗大なすべり線と断面のマイクロ組織からすべりと損傷組織の相互作用を評価した。Fe イオン照射では、照射による損傷組織の形成は SUS316 と SUS304 で同程度であり、損傷領域の硬さにも大きな違いはなかったが、すべり線間隔の増加量は SUS304 の方が大きくなった。He イオン照射と比較すると、照射欠陥の数密度が低く、硬さやすべり線間隔も小さかった。これらのデータを検討した結果、すべりと損傷組織の相互作用は、単一の鋼種では、イオン種によらず、損傷組織を構成する照射欠陥の種類や平均直径および数密度に依存し、欠陥形成によるせん断強度の増加値が損傷領域の硬化やすべり線間隔の増加とほぼ対応することがわかった。SUS304 が SUS316 に比べて同一の損傷状態ですべりをより強く抑止するのは、積層欠陥エネルギーがより小さいことが関係していると推察された。

キーワード イオン照射, ステンレス鋼, 照射誘起応力腐食割れ, ミクロ組織, すべり, 照射欠陥, 積層欠陥エネルギー

Abstract The interaction between slips and damage structures in irradiated stainless steels and its difference between SUS316 and SUS304 stainless steels were investigated using Fe ion-irradiated stainless steels. The result was compared to He ion-irradiations to examine the interaction. Solution annealed SUS316 and SUS304 specimens were irradiated by 2.8MeV Fe²⁺ ions at 300°C up to 10dpa at damage peak depth and were tensiled at a deformation rate of 10⁻⁷/s to 2% plastic deformation at 300°C. The interaction was evaluated by observations of coarse slip lines on the surface and deformation microstructures. The damage structures and hardness of damage region were almost the same between SUS316 and SUS304 specimens under Fe ion-irradiations, however, the slip line spacing more widened in SUS304 after the irradiations. The number densities of irradiation defects constituting the damage structures were low, therefore, the hardness of the damage regions and slip step spacing were small in Fe ion-irradiated specimens compared in He ion-irradiated specimens. The interaction depended on kind, diameter and number density of the defects constituting the damage structures in the same manner between Fe and He ion-irradiations in each material. The hardness increase and slip line spacing increase could be estimated by using the shear strength increase calculated from microstructural data. The prevention of dislocation sliding became strong in SUS304 compared in SUS316, probably due to lower stacking fault energy in SUS304.

Keywords ion irradiation, stainless steel, IASCC, microstructure, slip, irradiation induced defect, stacking fault energy

1. はじめに

照射誘起応力腐食割れ (irradiation assisted stress corrosion cracking, IASCC) は、一般に応力腐食割れを起こしにくいとされるステンレス鋼に、中性子

照射による材料の化学組成やマイクロ組織の変化に起因して生じる応力腐食割れである。IASCC の発生はバツルフォーモルトなどの中性子線量が高くなる炉内構造物で報告されており、軽水炉の高経年化を考える上で重要な検討課題の一つとなっている。

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

IASCC に関する研究は 1980 年代中頃から本格的に行われており、照射による粒界組成の変化や組織の硬化との関連が研究されているが、その機構については未だ不明な点が多い⁽¹⁾⁻⁽³⁾。近年、IASCC の発生および進展には、照射によるステンレス鋼の変形の局所化によって粒界に応力が集中することが重要な役割を持つと考えられている⁽³⁾。照射による変形の局所化と照射組織、変形条件との関係を解明し、ステンレス鋼の照射後の変形挙動を把握することが IASCC 機構を解明する上で重要である。

照射された金属の変形挙動に関する研究は古くから行われており、照射に伴って金属の変形が照射によって導入された欠陥集合体と転位運動との相互作用によって形成される転位チャンネルに局所化することが知られている⁽⁴⁾。しかし、これらの多くは純金属の変形挙動に関する研究であり、軽水炉の運転条件に該当した温度条件での実用ステンレス鋼の変形挙動については未解明な点がある。橋本らや Bailat らは、約 300°C で中性子照射したステンレス鋼を約 300°C で変形させた場合、変形は転位チャンネルに局所化するとともに、部分的には双晶変形によって変形が進展することを報告している⁽⁵⁾⁽⁶⁾。我々の研究では、軽水炉内で照射されたステンレス鋼を用いて変形挙動について調べており、照射量の増加に伴って転位チャンネルの間隔が増加すること、粗大な転位チャンネルと粒界の相互作用によって粒界はく離が発生することを明らかにしている⁽⁷⁾。中性子照射材を用いた研究では試料の放射化や照射条件が限られるなどの問題があり、試料が放射化せず、照射量や照射温度を高精度かつ比較的容易に変えて実験が行えるイオン照射を用いた研究も行われている。我々の研究では、照射ステンレス鋼の変形の基礎的挙動を調べることを目的として、He⁺イオンを照射したステンレス鋼を用いて、変形挙動に対する照射量、温度、変形速度の影響や鋼種による変形挙動の違いについて調べており、損傷量の増加に伴って転位チャンネルの間隔が増加し、変形がより局所化すること、変形の局所化は温度や変形速度の影響を受けること、SUS304 では SUS316 に比べて変形がより局所化する傾向があることを報告している

⁽⁸⁾。また、He イオン照射では照射量の増加に伴って高密度の He バブルが形成され、すべりと損傷組織の相互作用に強く影響することがわかった。本報告では、He バブルのない中性子照射により近い状態でのすべりと損傷組織の相互作用を調べることを目的に、Fe²⁺イオンを照射したステンレス鋼を用いて、変形に伴い表面に現れるすべり線と断面のミクロ組織からすべりと損傷組織の相互作用を評価し、鋼種による相互作用の違いについて検討を行った。また、He⁺イオン照射の結果と合わせて、すべりと損傷組織の相互作用についてより詳細な検討を行った。

2. 実験方法

2.1 試験片

供試材には溶体化熱処理 (1050°C × 0.5h + 水冷) を施した SUS316 と SUS304 を用いた。表 1 に化学組成を示す。SUS316 と SUS304 の平均粒径はそれぞれ 40 μ m と 85 μ m であった。供試材より作製した小型引張試験片の形状を図 1 に示す。試験片加工には放電加工を用いた。ゲージ部 (試験片中央の平行部) を SiC#1200 までの研磨と粒径 3 μ m のダイヤモンドおよびコロイダルシリカによるバフ研磨で鏡面とした。最表面の加工層の除去は、40% 硫酸 + 60%

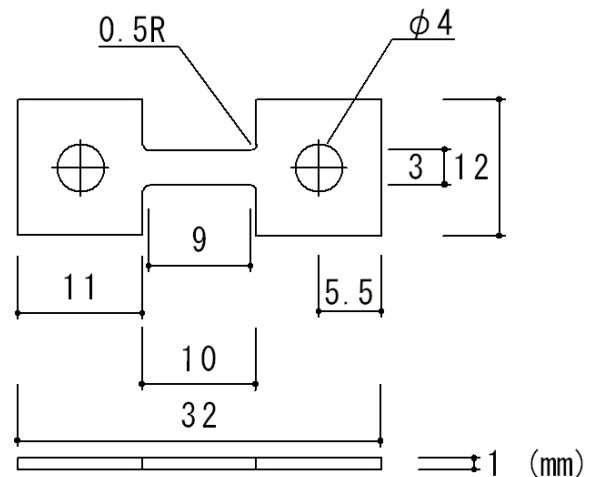


図1 小型引張試験片の形状

表1 供試材の化学組成 (wt%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Fe
SUS316	0.048	0.44	1.42	0.024	0.0005	11.05	16.47	2.08	balance
SUS304	0.040	0.31	1.59	0.031	0.001	9.21	18.34	0.37	balance

リン酸溶液を用いた電解研磨によって行った。

2.2 イオン照射

イオン照射には東京大学重照射研究設備のタンデトロン加速器を用いた。照射イオンは 2.8MeV の Fe^{2+} イオンを用いた。弾き出しエネルギーを 40eV として損傷計算コード SRIM-2006⁽⁹⁾を用いて評価した損傷のピーク深さは約 800nm であり、最大深さは約 1400nm であった。また、Fe の注入ピーク深さは約 950nm であった。照射は試験片のゲージ部片面にのみ行い、照射温度は 300℃、イオンフラックスは約 $5 \times 10^{11}/\text{cm}^2/\text{s}$ とした。損傷ピーク深さにおける損傷速度は約 $5 \times 10^{-4}\text{dpa}/\text{s}$ である。損傷ピーク深さの損傷量で最大 10dpa まで照射を行った。Fe の注入量は最大照射量である 10dpa 照射時においても注入ピーク深さで約 0.27at% と少なく、Fe 注入による組成変化の影響は無視できると考えられる。本研究では試料の損傷量を損傷ピーク深さでの値で定義する。

2.3 照射後試験

(1) 損傷組織観察

試験片断面と損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織を透過型電子顕微鏡 (Transmission electron microscope, TEM) HITACHI HF-3000 を用いて観察した。断面観察は 1, 10dpa 照射した SUS316 と 5dpa 照射した SUS304 について行った。損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織観察は 1, 5 および 10dpa 照射した SUS316 と 5dpa 照射した SUS304 について行った。イオン照射では損傷速度および損傷量が深さ方向に分布を持つため、損傷組織の形成は深さ方向に異なる。本研究では照射による損傷組織の形成を、損傷ピーク深さ近傍の損傷組織で定量評価した。

TEM 観察試料は集束イオンビーム (Focused ion beam, FIB) 加工装置 HITACHI FB-2000A を用いて作製した。断面観察では、FIB 加工によって試験片表面から $4 \times 16\mu\text{m}$ の領域を深さ $10\mu\text{m}$ まで切り出し、FIB 加工装置内のマイクロサンプリング機構を用いて Mo メッシュに固定し、TEM 観察用の薄膜を深さ方向に FIB 加工した。損傷ピーク深さ近傍の組織観察では、試験片表面から切り出した $10 \times 15 \times 13\mu\text{m}$ の領域について、損傷ピーク深さ近傍を薄膜に加工した。FIB 加工によるダメージ層は極低

エネルギー Ar イオンビームスパッタリング装置 (日本フィジテック GENTLE MILL) を用いて、1keV および 300eV の Ar イオンビームによるスパッタリングによって除去した。薄膜の厚さは、電子線で薄膜に穴を開け、試料を傾斜させた際に観察される表面と裏面の穴の中心間距離と試料の傾斜角度から計算した。

(2) 硬さ測定

損傷領域の硬さを評価するため、ナノインデンテーション装置 (株式会社エリオニクス製 ENT-1100) を用いた。一般に、硬さ測定では押し込み深さの約 4 倍に相当する領域の平均的な硬さが測定されるが、ナノインデンテーションによる微小領域の硬さ測定でも同様であることが報告されている⁽¹⁰⁾。本研究では押し込み深さを 150nm として硬さ測定を実施し、試験片ごとに 40 点以上の測定を行った。

2.4 変形試験

温度および雰囲気制御可能な引張試験装置 (東伸工業株式会社製 アルゴン雰囲気中 SSRT 試験装置) を用いて、Ar ガス雰囲気において変形試験を実施した。変形温度は 300℃、変形速度は $10^{-7}/\text{s}$ とし、塑性変形量は 2% とした。ゲージ部の変形量は試験前に硬度計を用いて形成した圧痕間隔の変化量から求めた。

2.5 変形後試験

(1) 表面観察

変形試験後の試験片表面をデジタルマイクロスコープ (株式会社キーエンス製 VHX-200) を用いて観察し、表面に生じたステップの応力軸に対する角度と平均間隔を結晶粒ごとに測定し、100 個の結晶粒について角度と平均間隔を得た。

(2) 変形後のマイクロ組織観察

変形試験後の試験片断面のマイクロ組織を、TEM を用いて観察した。観察は、未照射および 10dpa 照射した SUS316 と 5dpa 照射した SUS304 について行った。試験片表面より応力軸に対してほぼ垂直な表面ステップを選び、前述の FIB 加工法で TEM 観察試料を作製し、観察を行った。TEM 観察試料は

それぞれの試料について2つずつ作製した。

3. 実験結果

3.1 損傷組織

図2に1, 10dpa照射したSUS316と5dpa照射したSUS304の変形前の断面を, $B=[011]$, $g=[\bar{2}00]$ の観察条件で撮影した明視野像を示す。表面から深さ約1150nmまでの領域に見られる細かな黒い点はイオン照射による損傷を示しており, 転位ループとブラックドットと呼ばれるループ状および点状の像を示す欠陥集合体である。また, 空孔の集合体であるボイドの形成も観察された。表面より深さ約50nmまでに見られる損傷はFIB加工によるダメージである。観察試料の膜厚は100nm未満である。1dpa照射したSUS316では深さ約650nmから約1050nmにかけて損傷によるコントラストが強くなっており, 損傷のピーク深さが850nm近傍にあったと考えられる。SRIM-2006を用いて計算した損傷ピーク深さは約800nmであり, 計算結果と観察結果は良く一致している。

図3に5dpa照射したSUS304の変形前の断面を, $\{111\}$ 面上の積層欠陥に起因したストリークによって観察した暗視野像を示す。図3中の白く短い線状のコントラストは転位ループを示している。観察試

料では, 深さ方向に対する損傷組織の変化を詳しく評価するため, 表面から深さ方向へ垂直に薄膜を加工せず, 垂直方向に対して 60° の角度から薄膜をFIB加工している。そのため, 図3の縦方向は実際の深さの2倍となっている。表面近傍では大きさが10nm程度までの小さい転位ループが形成しており, 深さが増加するにつれて大きさが増加し, 深さ850nm近傍では30nm程度の転位ループが観察された。それ以上の深い領域では転位ループの大きさは連続的に小さくなった。転位ループの数については, 表面近傍から深さが増加するにつれて増加し, 深さ850nm近傍で最も多くなったが, 膜厚が表面近傍に比べて深さ850nmでは約2倍あることを考慮すると, 深さ方向に対する転位ループの数の変化は小さかった。

図4に1, 5および10dpa照射したSUS316の変形前の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織の観察例を示す。図4の上段は $\{111\}$ ストリークによる暗視野像であり, 転位ループの像を示している。中段および下段はそれぞれ $1\mu\text{m}$ のアンダーフォーカスおよびオーバーフォーカスで撮影したボイドの吸収コントラスト像である。SUS316では, 1dpaの照射によって直径が10nm程度までの転位ループと1nm程度のボイドが形成した。照射量の増加に伴って30nm程度まで転位ループの直径が増加したが, ボイドの大きさは変化しなかった。

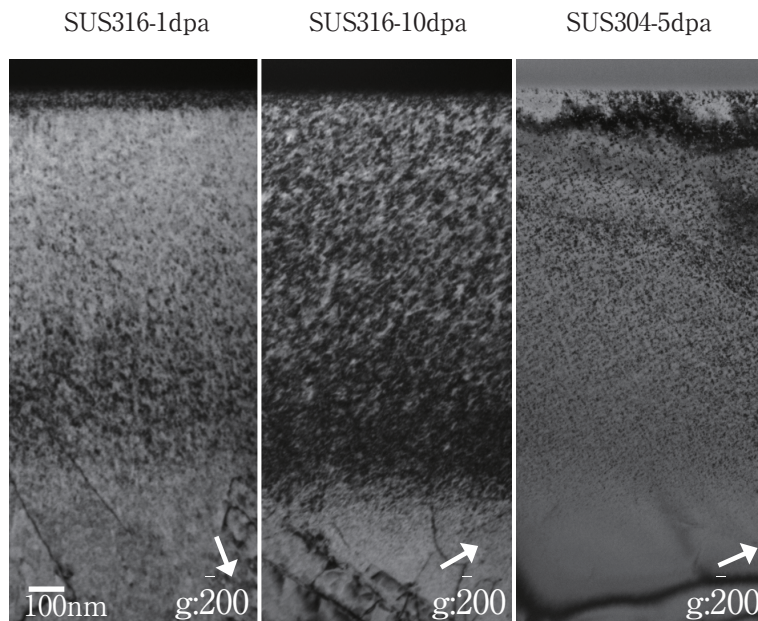


図2 1, 10dpa照射したSUS316と5dpa照射したSUS304の変形前の断面のマイクロ組織

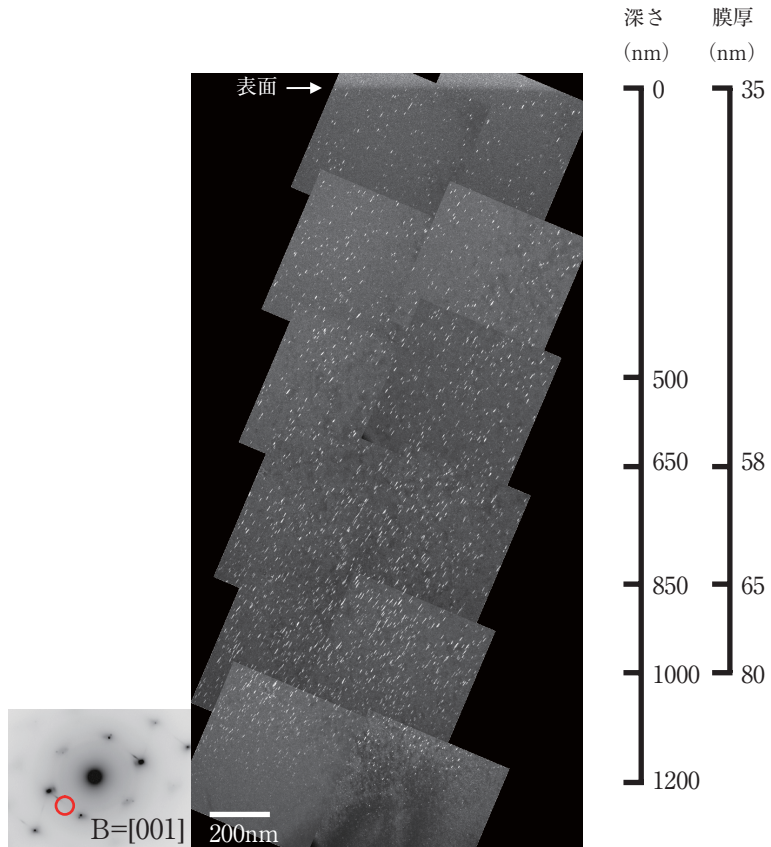


図3 5dpa照射したSUS304における転位ループの深さ方向分布

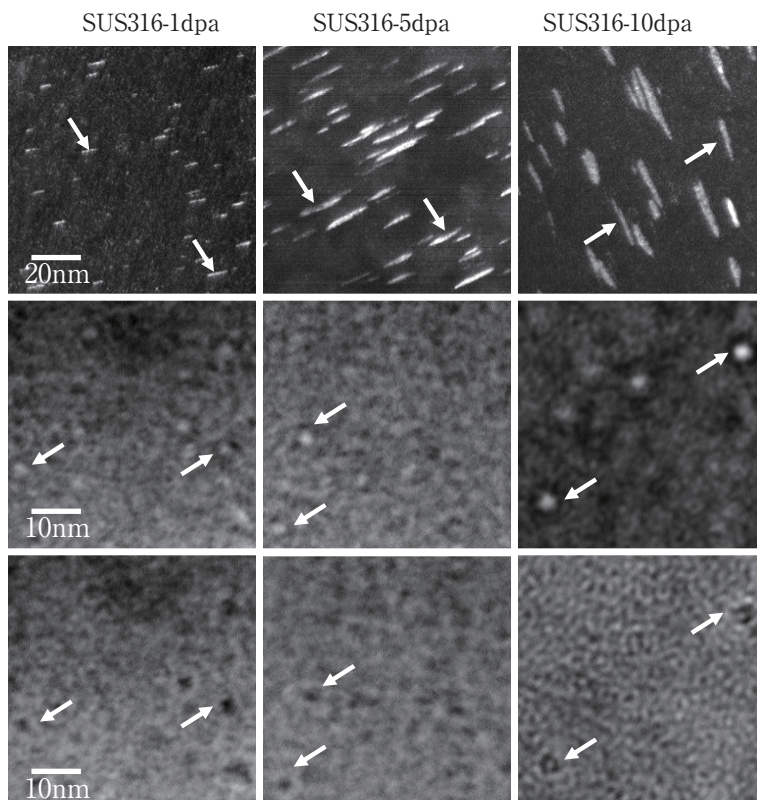


図4 Fe^{2+} イオン照射したSUS316の損傷ピーク深さ近傍におけるマイクロ組織 (上段: $\{111\}$ ストリークによる暗視野像, 中段: アンダーフォーカス像, 下段: オーバーフォーカス像)

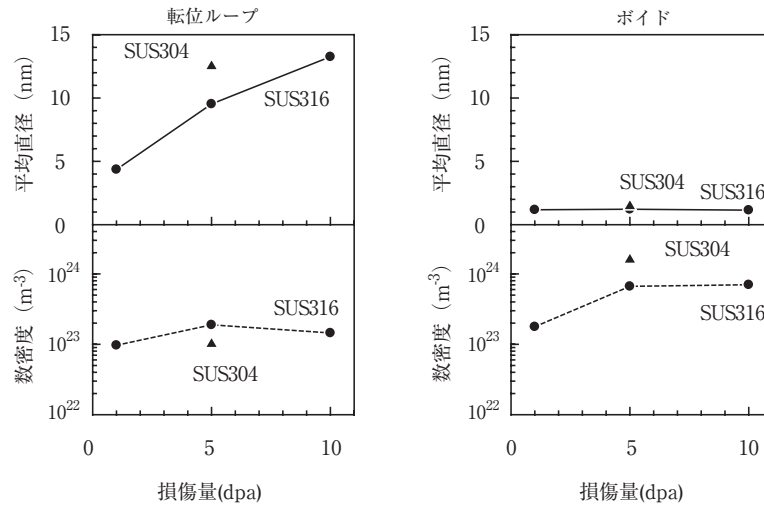


図5 SUS316とSUS304の損傷ピーク深さ近傍における転位ループとボイドの平均直径と数密度の損傷量依存性

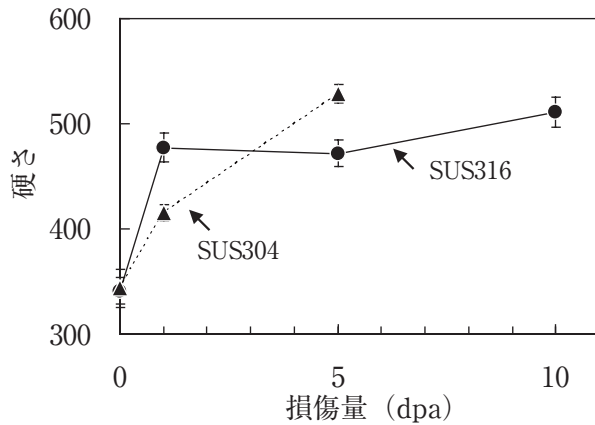


図6 SUS316とSUS304の未照射領域および損傷領域の硬さ

図5に1, 5および10dpa照射したSUS316と5dpa照射したSUS304の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織より測定した転位ループとボイドの平均直径と数密度を示す。本研究では、ブラックドットについては欠陥の大きさが2nm以下と小さく、また、数密度が $10^{22}/\text{m}^3$ オーダーと少ないことから変形挙動に対する影響は小さいと考え、定量的な評価は行っていない。SUS316では損傷量の増加に対して、転位ループの平均直径は約4nmから約14nmまで増加したが、数密度の変化は小さく、約 $1 \times 10^{23}/\text{m}^3$ ~約 $2 \times 10^{23}/\text{m}^3$ の間で一定であった。ボイドの平均直径は約1nmから変化しなかったが、数密度は約 $2 \times 10^{23}/\text{m}^3$ から約 $7 \times 10^{23}/\text{m}^3$ まで増加し、10dpaでは飽和傾向を示した。SUS304では、5dpa照射後のSUS316と比較して転位ループの直径は大きい、数密度は低く、また、ボイドの直径は同じであるが、

数密度は高くなった。しかし、5dpa照射したSUS316とSUS304の照射欠陥の大きさと数密度の差は小さく、SUS316とSUS304では同程度の損傷組織が形成されることがわかった。

3.2 硬さ

図6にSUS316とSUS304の未照射での硬さと照射後の損傷領域の硬さを示す。SUS316では、1dpaの照射によって硬さが大きく増加したが、1dpa以上では硬さの増加量は小さくなった。SUS304については、未照射での硬さはSUS316と同じであったが、1dpa照射後の硬さはSUS316に比べて小さく、5dpa照射後の硬さはSUS316より大きくなった。しかし、SUS316とSUS304では照射後の硬さの違いは小さく、照射による硬さの増加量は同程度であった。

3.3 表面ステップ

図7に変形試験後の試験片表面のデジタルマイクロスコープによる観察例として、10dpa照射したSUS316の試験片表面を示す。変形によって各結晶粒ではステップが生じており、応力軸に対するステップの角度は結晶粒ごとに異なった。ステップの間隔は同一粒内においてサブミクロンオーダーから数 μm まで幅を持っており、各結晶粒での間隔の平均値も約 $1\mu\text{m}$ から数 μm まで幅を持って分布した。

図8に未照射のSUS316と10dpa照射したSUS316および5dpa照射したSUS304の応力軸対

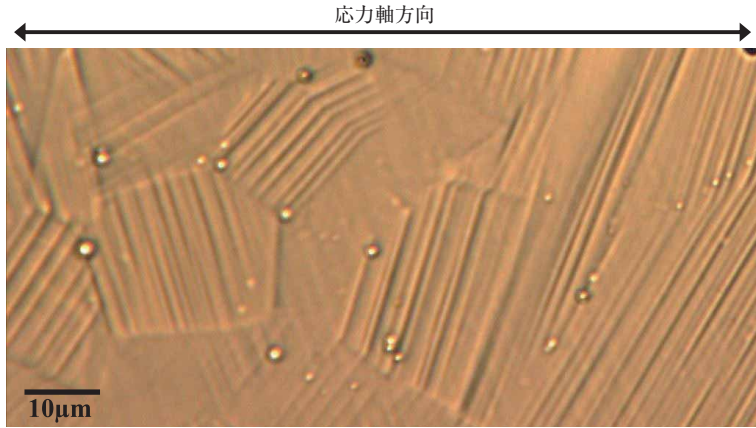


図7 2%変形試験後の10dpa照射したSUS316の表面ステップの例

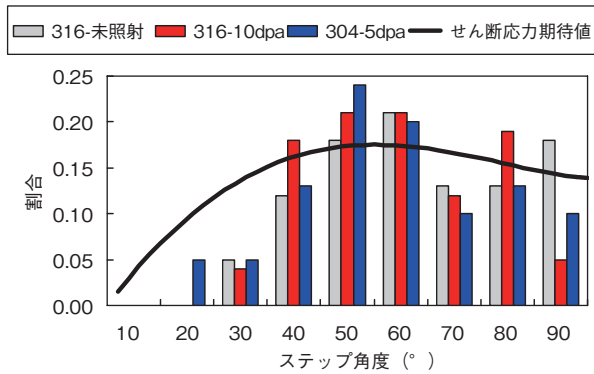


図8 表面ステップの応力軸に対する角度とせん断応力の期待値の相対分布

するステップの角度分布を示す。ステップ角度は、照射の有無や鋼種の違いに依らず、45°付近をピークとした同じ分布傾向を示した。本試験で変形させた他の試験片についても、観察されたステップの角度は全て図8に示される角度分布と同じ分布傾向を示した。図8には、表面で見られるすべり線の応力軸に対する角度ごとに求めた、一様な引張応力を加えた場合のせん断応力の期待値を同時に示した。ステップ角度の分布傾向はせん断応力の期待値の計算結果と比較的良く一致しており、ステップの形成はすべりによって支配されたものであると考えられる。

図9にSUS316とSUS304の表面ステップ平均間隔の変化を示す。SUS316では、照射によってステップ間隔が増加し、10dpaまでの照射による増加量は約10%であった。SUS304については、未照射でのステップ間隔はSUS316と同程度であったが、照射による間隔の増加量はSUS316よりも大きく、5dpaの照射によって約30%増加した。

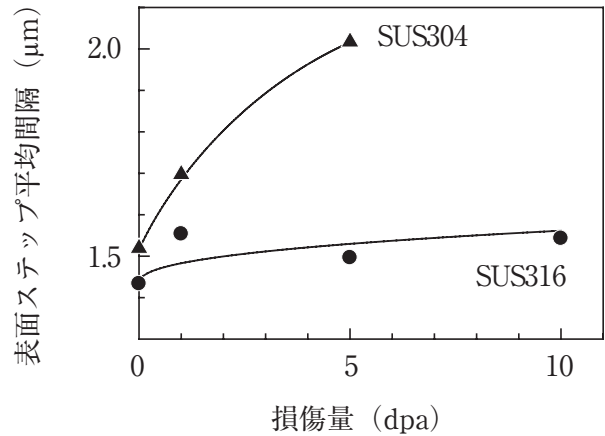


図9 SUS316とSUS304の表面ステップ平均間隔の損傷量依存性

3.4 変形後のマイクロ組織

(1) SUS316

図10および図11にSUS316のステップ断面のマイクロ組織を観察した例を示す。図10は未照射のSUS316であり、上段は $B=[011]$, $g=[\bar{2}00]$ の観察条件で撮影した明視野像を、下段は上段の明視野像中に示した①の部分をも $[011]$ 晶帯軸より撮影した明視野像を示す。図11は10dpa照射したSUS316であり、上段は $B=[011]$, $g=[\bar{2}00]$ による明視野像を、下段は上段の明視野像中に示した①の部分を試料の傾斜角度を変えて撮影した転位チャンネルの像を示す。

未照射のSUS316では、すべりを担う転位がすべり方向に配向しており、それらの転位によって表面にステップが形成された。観察される転位が直線状

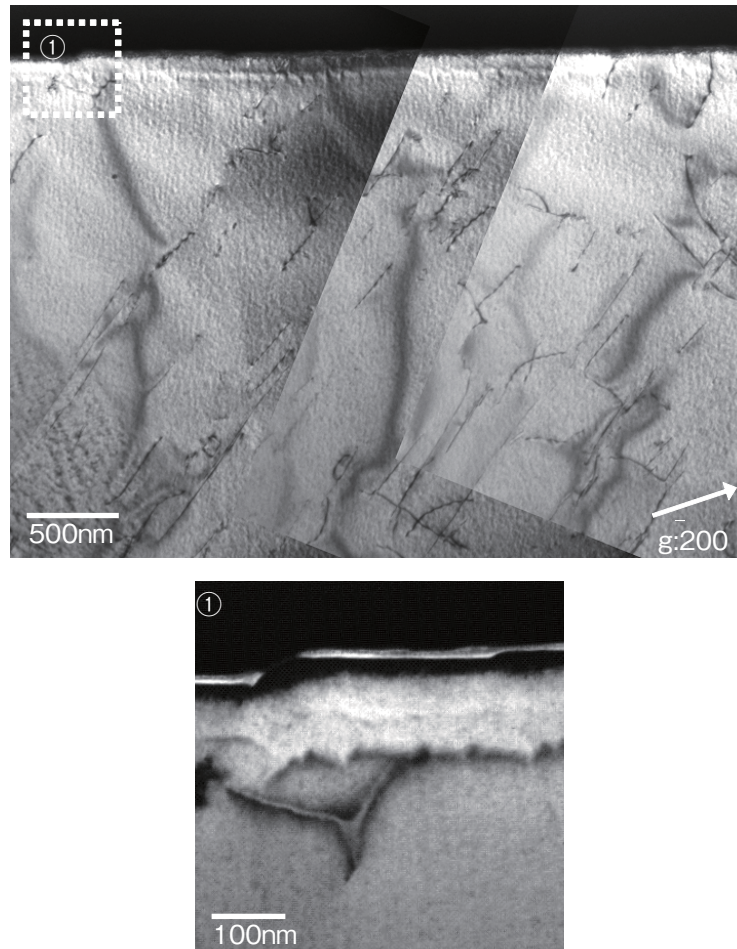


図10 未照射のSUS316の変形後のマイクロ組織
(上段：B=[011], $g=[200]$ による明視野像, 下段：[011]晶帯軸からの明視野像による拡大図)

ではなくジグザグになっているのは、転位が観察試料を斜めに貫通しているためである。転位のピルアップは生じておらず、転位の運動が阻害されている様子は観察されなかった。表面に形成されたステップには、10nm程度の段差を持つ微細なステップと数10nm程度の段差を持つ粗大なステップがあり、ステップ同士の間隔は平均約300nmであった。これらのステップの内、粗大なステップについてはデジタルマイクロスコープによって観察された表面ステップと対応していたが、微細なステップについては対応しておらず、10nm程度の段差のステップについてはデジタルマイクロスコープによる表面観察では判別できないことがわかった。

10dpa照射したSUS316では、損傷領域に転位チャンネルと呼ばれるすべりによって照射欠陥が除去された幅10nm程度の薄い板状の領域が、転位の通過した跡に形成された。転位チャンネルの一部は表面まで到達せずに損傷領域内で止まっており、す

べりは試料内部から表面に向けて生じたこと、すべりの一部が損傷組織によって阻害され、損傷領域内で停止したことがわかった。損傷領域を抜けた転位は表面に40nm~50nmの段差を持つ粗大なステップを形成しており、未照射のSUS316で観察された段差の小さい微細なステップは観察されなかった。図11に示した観察視野では3つのステップが形成されており、試料を[011]晶帯軸より観察して計測したそれぞれの段差は、左のステップから約40nm、約50nmおよび約40nmであった。ステップ段差から計算した各ステップでのすべり量はそれぞれ46nm、58nmおよび46nmであり、面心立方金属におけるバーガスベクトルの大きさが0.255nmであることから、各ステップでは約180個~約230個の転位がすべったことに対応する。微細なステップの形成が観察されなかったことから、転位の数が少ないすべりは損傷領域を通過することができず、粗大なステップを形成する転位の数の多いすべりは損傷領域

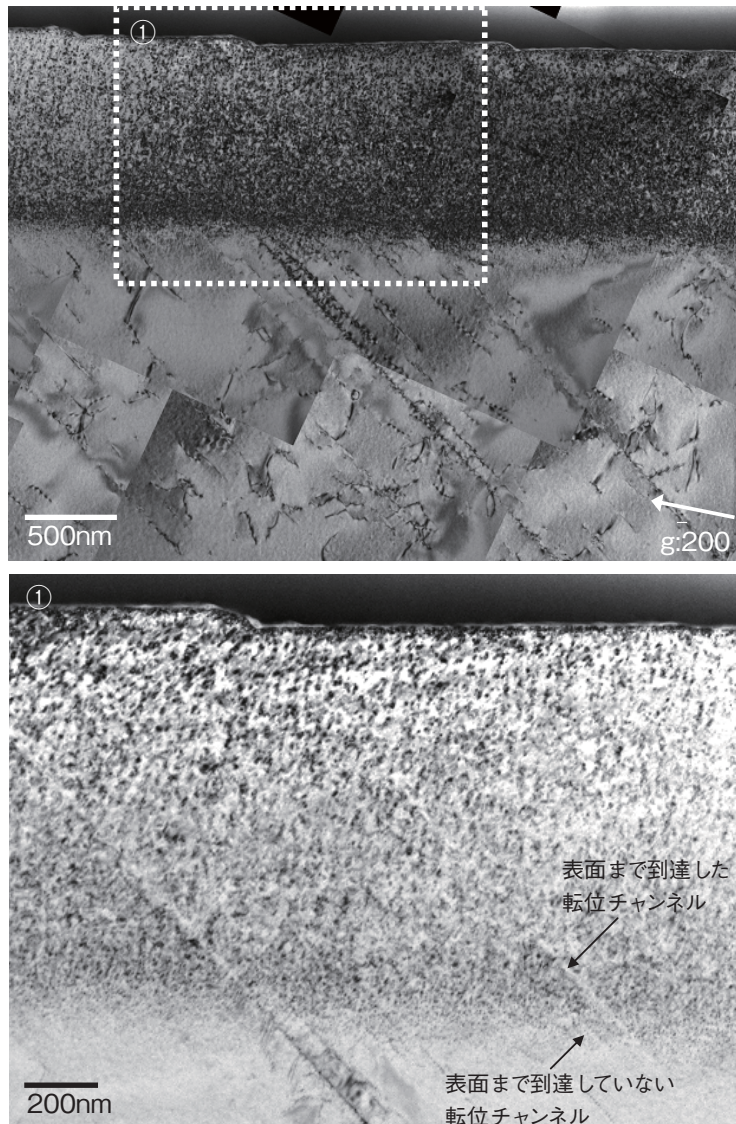


図11 10dpa 照射した SUS316 の変形後のマイクロ組織
(上段： $B=[011]$, $g=[200]$ による明視野像, 下段：傾斜角度を変えた明視野像)

を通過することができたと考えられる。また、転位チャンネル内には照射欠陥がないため、表面まで到達した転位チャンネルにすべりが集中し、表面に形成されるステップの段差は未照射に比べて増加したと考えられる。照射による SUS316 のステップ間隔の増加量が約 10% と小さかったことから、粗大なステップを形成するすべりの多くは損傷組織によって停止せずに表面まで到達したと考えられる。

(2) SUS304

図 12 に 5dpa まで照射した SUS304 のステップ断面を、 $B=[011]$, $g=[200]$ による観察条件で撮影した明視野像を示す。10dpa 照射した SUS316 と同様に、試料内部から表面へ平均約 300nm 間隔ですべ

りが生じており、すべりによって損傷領域内に幅 10nm 程度の転位チャンネルが形成された。転位チャンネルの一部は損傷領域内で停止し、損傷領域を抜けて表面まで到達したすべりでは約 20nm~60nm の段差を持つ粗大なステップが形成された。照射による SUS304 のステップ間隔の増加量は約 30% であることから、SUS304 では粗大なステップを形成する転位数の多いすべりについても一部が損傷組織によって停止したと考えられる。

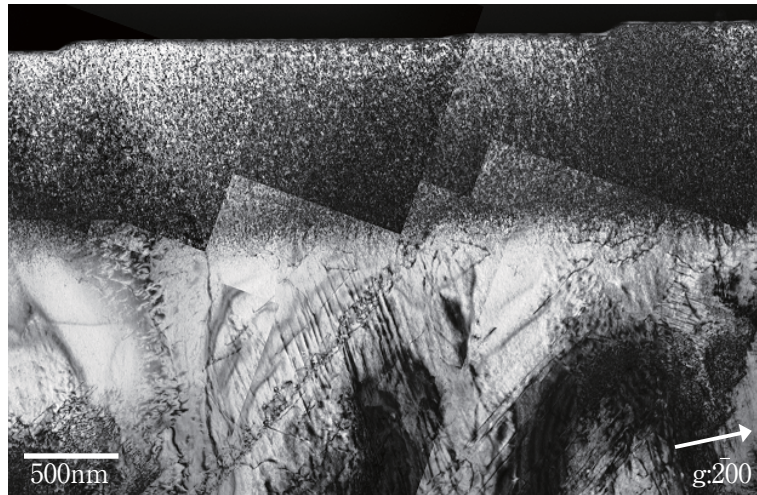


図12 5dpa照射した SUS304 の変形後のマイクロ組織

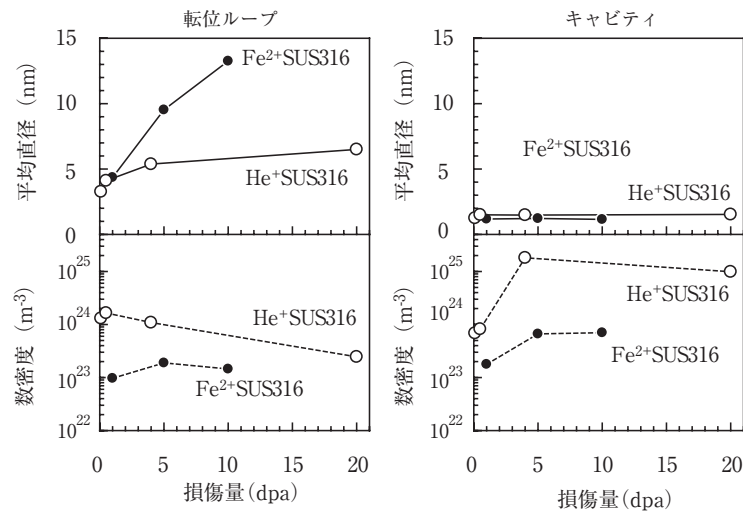


図13 SUS316 の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織の Fe²⁺ イオン照射と He⁺ イオン照射の比較

4. 考察

4.1 Fe イオン照射材と He イオン照射材の比較

本研究で実施した Fe²⁺ イオン照射では、ステンレス鋼中に転位ループとボイドが形成された。前回の報告⁽⁸⁾で用いた He⁺ イオン照射では、転位ループと He バブルが損傷組織として形成され、照射量の増加に伴って He バブルが高密度に形成された。Fe²⁺ イオン照射材に形成されたボイドは、照射によって導入された空孔が集まって形成したものであり、その形成や成長は損傷の深さ方向分布に沿うと

考えられる。しかし、He⁺ イオン照射材に形成された He バブルは、照射によって注入された He が空孔および他の He を吸収して形成したものであり、数密度は損傷ピーク深さ近傍で最大となったが、大きさは He の蓄積ピーク深さ近傍で最大となった。このように、Fe²⁺ イオン照射材と He⁺ イオン照射材では損傷組織を構成する照射欠陥の種類や分布状況が異なっている。

(1) SUS316

図13に SUS316 の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織についての Fe²⁺ イオン照射と He⁺ イオン照射の比較を示す。照射欠陥の平均直径については、He⁺ イオン照射に比べて Fe²⁺ イオン照射では、損傷量

が増加するにつれて転位ループの大きさが約2~3倍大きくなっているが、キャビティ（ポイドとHeバブルの総称）では同程度であった。数密度については、転位ループ、キャビティともに約1桁低かった。Fe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射における照射欠陥の種類や大きさ、数密度の違いは、照射イオンのエネルギーや損傷速度、また注入されるイオンの影響によるものである。特にHe⁺イオン照射では損傷速度が損傷ピーク深さで 1.7×10^{-3} dpa/sであり、Fe²⁺イオン照射と比較して約3.4倍速い。損傷速度の増加によって、転位ループでは大きさが減少し、数密度が増加する傾向が知られており⁽¹¹⁾、キャビティでは大きさおよび数密度が減少することが報告されている⁽¹²⁾。また、He⁺イオン照射では注入されるHeが転位ループやキャビティの形成に影響を与えることが報告されており、Ni³⁺イオンとHe⁺イオンの同時照射では、He/dpaの上昇に伴って転位ループの大きさが減少するとともに数密度が増加し、キャビティの数密度も増加することが報告されている⁽¹³⁾。

図14にSUS316の損傷領域の硬さについてのFe²⁺イオン照射とHe⁺イオンの比較を示す。硬さの測定方法および測定条件は共通である。Fe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射では損傷の最大深さやピーク深さが異なるが、硬さを測定した領域の平均的な損傷量は損傷ピーク深さの損傷量の約1/2であった。He⁺イオン照射に比べてFe²⁺イオン照射では硬さの増加量が小さく、10dpaのFe²⁺イオン照射と0.1dpaのHe⁺イオン照射では硬さは同程度であった。

一般に、損傷領域の硬さと照射欠陥の平均直径や数密度には相関があることが知られている⁽¹⁴⁾。イオン照射では損傷組織や損傷領域の硬さが深さ方向に異なるため、特定の深さのマイクロ組織と損傷領域の平均的な硬さは厳密には相関しない。しかし、前回報告したHe⁺イオン照射の結果では、損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織のデータを用いて損傷領域の硬さを整理することが可能であった。SUS316の損傷組織と硬さの関係について、Fe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の違いを検討するため、損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織よりオロワンモデルに従ってせん断強度の増加値を計算し、損傷領域の硬さの増加量との関係について比較を行った。図15に比較結果を示す。せん断強度の増加値は以下の式より求めた。

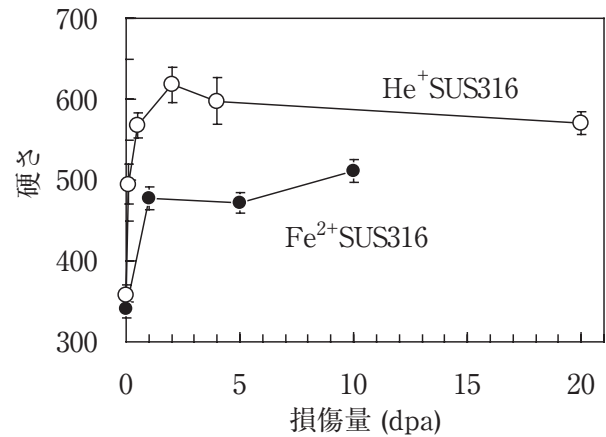


図14 SUS316の損傷領域の硬さのFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較

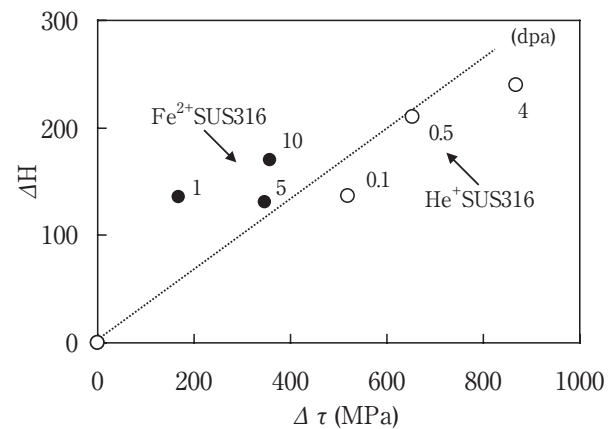


図15 SUS316の損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と硬さの増加量の関係のFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較

$$\Delta\tau = \sqrt{(\Delta\tau_l)^2 + (\Delta\tau_c)^2} \quad (1)$$

$$\Delta\tau_l = \alpha_l G b \sqrt{N_l d_l} \quad (2)$$

$$\Delta\tau_c = \alpha_c G b \sqrt{N_c d_c} \quad (3)$$

ここで $\Delta\tau$ は転位ループとキャビティによるせん断強度の増加値であり、 $\Delta\tau_l$ と $\Delta\tau_c$ はそれぞれ転位ループとキャビティによる寄与分である。 N_l 、 N_c および d_l 、 d_c はそれぞれ転位ループとキャビティの平均直径および数密度であり、損傷ピーク深さ近傍で測定した値を用いた。硬化係数 α_l 、 α_c は欠陥の平均直径から判断してそれぞれ0.4と0.2とし⁽¹⁵⁾、転位のバーガースベクトルの大きさ b は0.255nmとした。損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値

($\Delta\tau$) の増加に対して損傷領域の硬さの増加量 (ΔH) は増加しており, Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射では照射欠陥の種類や大きさ, 数密度が異なるが, 損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値を用いて損傷領域の硬さの増加量を整理可能であることがわかった. He^+ イオン照射に比べて Fe^{2+} イオン照射ではせん断強度の増加値が小さいが, これは主に転位ループとボイドの数密度が低いことによるものであり, 損傷領域の硬さも比較して小さいことがわかった.

図 16 に SUS316 の表面ステップ平均間隔についての Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射の比較を示す. ステップ間隔の増加量は, Fe^{2+} イオン照射では 10dpa 照射後で約 10% であったが, He^+ イオン照射では 4dpa 照射後で約 30%, 20dpa 照射後では約 60% であり, Fe^{2+} イオン照射によるステップ間隔の増加量は小さい.

Fe^{2+} イオン照射した SUS316 と比較するため,

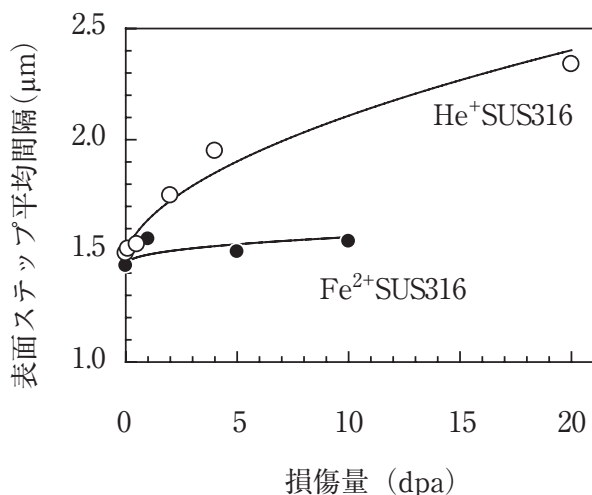


図 16 SUS316 の表面ステップ平均間隔の Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射の比較

4dpa まで He^+ イオンを照射した SUS316 の変形後のマイクロ組織を再観察した. 図 17 にステップ断面のマイクロ組織を, [011] 晶帯軸より撮影した明視野像を示す. Fe^{2+} イオン照射と同様に, 試料内部から表面へすべりが生じ, 損傷領域にはすべりによって転位チャンネルが形成された. He 注入ピーク深さ近傍では, すべりの進展に双晶形成が伴った. 一部の転位チャンネルは損傷領域内で停止し, 損傷領域を抜けた転位チャンネルでは表面に粗大なステップが形成された. 損傷領域内で停止した転位チャンネルの一部では長大な転位のピルアップが観察されており, 転位数の多いすべりについても一部が損傷組織によって停止したと考えられる.

損傷組織の形成によってすべりの一部が停止し, 表面ステップ間隔が増加することから, すべりが停止している深さの損傷組織と照射後の表面ステップ平均間隔は対応すると考えられる. 前回報告した He^+ イオン照射の結果では, 損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値を用いて表面ステップ平均間隔を整理することが可能であった. SUS316 の損傷組織とステップ間隔の関係について, Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射の違いを検討するため, 損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と表面ステップ平均間隔の関係について比較を行った. 図 18 に比較結果を示す. せん断強度の増加値の増加に対して表面ステップ平均間隔が増加しており, 損傷領域の硬さと同じく, Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射でのステップ間隔を損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値を用いて整理可能であることがわかった. ステップ間隔の増加量はせん断強度の増加値が約 700MPa までは約 10% であるが, それ以上のせん断強度の増加値では大きく増加する傾向が見られた. 4dpa まで He^+ イオン照射した SUS316 では He バブルが高密度に形成されており, ステップ間隔の増加

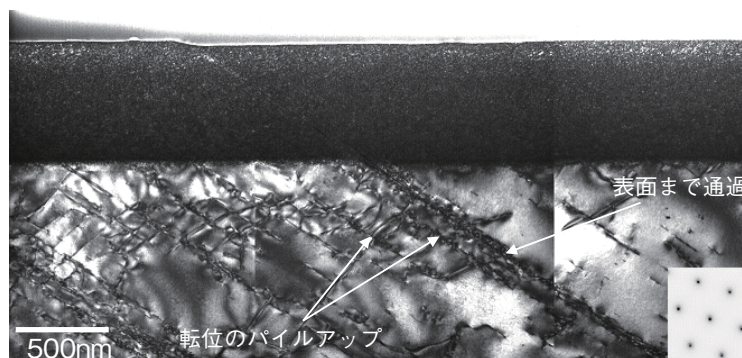


図 17 4dpa まで He^+ イオンを照射した SUS316 の変形後のマイクロ組織

には He バブルが強く寄与していると考えられる。He バブルは転位ループと異なり、すべりによってせん断されるが除去されないため、すべりによって転位ループが除去された後もすべりを阻害し続けることが報告されている⁽¹⁶⁾。Fe²⁺イオン照射ではせん断強度の増加値が小さいため、He⁺イオン照射に比べてステップ間隔の増加量が小さいことがわかった。

Fe²⁺イオン照射した SUS316 と He⁺イオン照射した SUS316 の比較から、すべりと損傷組織の相互作用は、損傷組織を構成する照射欠陥の種類や大きさ、数密度に依存していることがわかった。また、損傷組織の形成による硬化や表面に現れる粗大なすべり線間隔の増加は、せん断強度の増加値とほぼ対応していることがわかった。He⁺イオン照射した

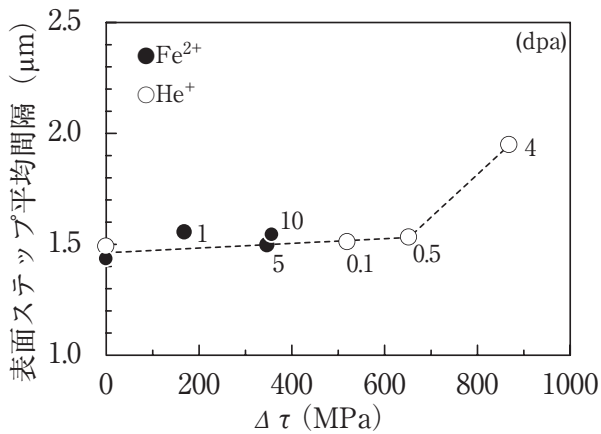


図 18 SUS316 の損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と表面ステップ平均間隔の関係の Fe²⁺イオン照射と He⁺イオン照射の比較

SUS316 に比べて Fe²⁺イオン照射した SUS316 では、主に転位ループとポイドの数密度が低いことによって損傷領域の硬さや照射によるステップ間隔の増加量が小さく、損傷組織によって停止するすべりも転位数の少ないものに限られることがわかった。

(2) SUS304

図 19 に SUS304 の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織についての Fe²⁺イオン照射と He⁺イオン照射の比較を示す。4dpa の He⁺イオン照射に比べて 5dpa の Fe²⁺イオン照射では、転位ループの平均直径は約 2 倍大きい、キャビティでは同程度であり、数密度については転位ループで約 1/3、キャビティで約 1/5 であった。SUS304 でも SUS316 と同様に、He⁺イオン照射と比べて Fe²⁺イオン照射では、転位ループの平均直径は大きくなるが、転位ループとポイドの数密度は低くなる傾向があると考えられる。

図 20 に SUS304 の損傷領域の硬さについての Fe²⁺イオン照射と He⁺イオン照射の比較を示す。硬さの測定方法および測定条件は SUS316 と同じである。He⁺イオン照射では、Fe²⁺イオン照射と比較して低損傷量から硬さが大きく増加しているが、2dpa 程度から硬さの増加が飽和し、5dpa の Fe²⁺イオン照射と 4dpa の He⁺イオン照射では硬さが同じであった。5dpa までの Fe²⁺イオン照射では、硬さの増加について飽和傾向は見られなかった。

図 21 に SUS304 の表面ステップ平均間隔についての Fe²⁺イオン照射と He⁺イオン照射の比較を示す。硬さと同様に、He⁺イオン照射では、Fe²⁺イオン照射と比較して低損傷量からステップ間隔が大きく増

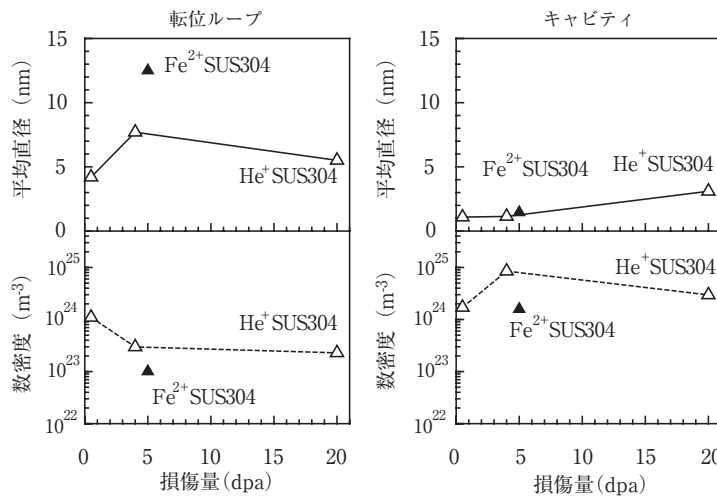


図 19 SUS304 の損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織の Fe²⁺イオン照射と He⁺イオン照射の比較

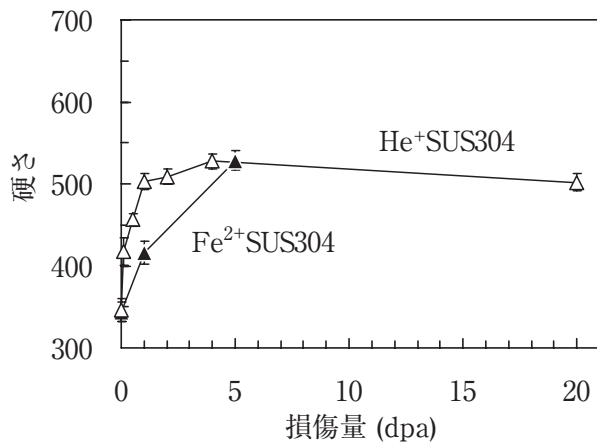


図20 SUS304の損傷領域の硬さのFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較

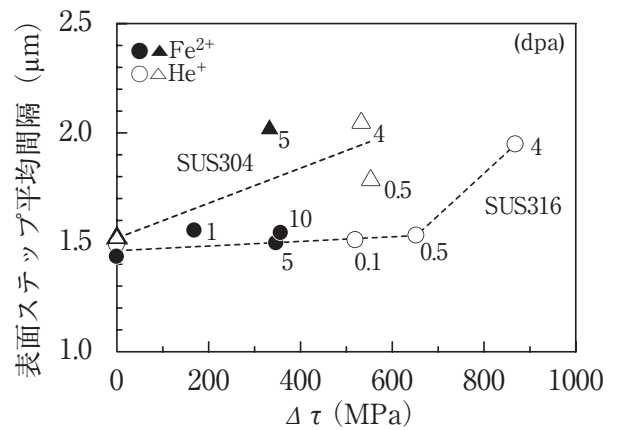


図22 SUS316とSUS304の損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と表面ステップ平均間隔の関係のFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較

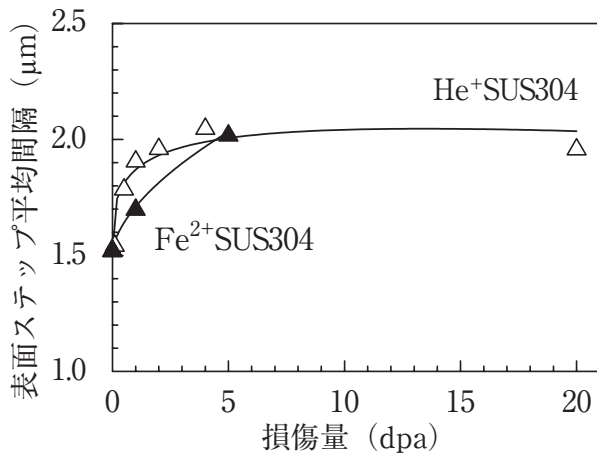


図21 SUS304の表面ステップ平均間隔のFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較

加しているが、2dpa程度から飽和傾向が見られ、5dpaのFe²⁺イオン照射と4dpaのHe⁺イオン照射ではステップ間隔は同程度であった。5dpaまでのFe²⁺イオン照射では、硬さと同様に、ステップ間隔の増加について飽和傾向は見られなかった。

図22にSUS304の損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と表面ステップ平均間隔の関係についてのFe²⁺イオン照射とHe⁺イオン照射の比較を示す。図22中には次節において行う比較のため、図18に示したSUS316での比較結果を同時に示す。せん断強度の増加値の増加に対してステップ間隔が増加しており、SUS304についても損傷ピーク深さ近傍のマイクロ組織のデータを用いて表面ステップ平均間隔が整理可能であることがわかった。SUS304では小さいせん断強度の増加値からステップ間隔が増加す

る傾向が見られた。

Fe²⁺イオン照射したSUS304とHe⁺イオン照射したSUS304の比較から、SUS316での比較と同じく、硬さやすべり線間隔の増加は損傷組織を構成する照射欠陥の種類や大きさ、数密度に依存しており、すべり線間隔の増加とせん断強度の増加値がほぼ対応していることがわかった。

4.2 SUS316とSUS304の比較

鋼種によるすべりと損傷組織の相互作用の違いを調べるため、本節ではFe²⁺イオン照射したSUS316とSUS304の結果を比較し、He⁺イオン照射したSUS316とSUS304との比較と合わせて検討を行った。

5dpaまでFe²⁺イオン照射したSUS316とSUS304では、損傷組織に大きな違いはなく、硬さも同程度であったが、ステップ間隔の増加量はSUS304の方が大きかった。これらの結果は、損傷組織が同じであってもすべりを抑止する損傷組織の作用がSUS316中に比べてSUS304中では強くなることを示唆する。この傾向は、前回報告したHe⁺イオン照射の結果でも確認されている⁽⁸⁾。He⁺イオン照射したSUS316とSUS304では、照射欠陥の大きさはほぼ同じであったが、数密度はSUS304の方が低い傾向が見られ、損傷領域の硬さも同様に比較して小さかった。しかし、ステップ間隔の増加は4dpaまではSUS304の方が大きく、SUS304ではすべりを抑止する損傷組織の作用が強くなると考えられた。

図 22 に示される SUS316 と SUS304 の損傷ピーク深さ近傍のせん断強度の増加値と表面ステップ平均間隔の関係についての Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射の比較結果では、せん断強度の増加値の増加に対するステップ間隔の増加傾向は SUS316 と SUS304 とで分かれており、SUS304 ではせん断強度の増加値に対してステップ間隔はより大きくなった。この結果は、前述と同様に損傷組織が同じであってもすべりを抑止する損傷組織の作用が SUS304 中では強くなることを示唆する。

SUS316 と SUS304 の損傷組織の形成に対するステップ間隔の増加の違いは、積層欠陥エネルギーの違いが関係していると考えられることを前回報告している。面心立方金属では転位は 2 本の半転位に分かれた拡張転位となっており、2 本の半転位の間隔は積層欠陥エネルギーに反比例している。運動転位が照射欠陥と相互作用する際、らせん転位では交差すべりによって、刃状転位や混合転位では上昇運動によって欠陥を乗り越えて進展することが可能である。しかし、交差すべりや上昇運動を行うためには拡張転位がもとの転位に収縮する必要があり、積層欠陥エネルギーが小さい金属では収縮により大きなエネルギーを要するため、欠陥を乗り越えることが難しくなる。このため、SUS316 に比べて積層欠陥エネルギーの小さい SUS304 では、転位が照射欠陥を乗り越えることが難しく、結果、損傷組織によってすべりが阻害される相互作用が SUS316 に比べて強くなり、損傷組織が SUS316 と同程度であってもステップ間隔がより増加したと推察される。

鋼種によるすべりと損傷組織の相互作用の違いは損傷組織を構成する照射欠陥の種類や大きさ、数密度に影響を受けることが考えられるが、図 22 に示される比較結果では、 Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射のステップ間隔は図中に示されるトレンドラインに沿って変化しており、損傷組織の違いによる影響は小さいと考えられる。

5. まとめ

2.8MeV Fe^{2+} イオン照射した SUS316 と SUS304 ステンレス鋼を用いて変形試験を行い、 He^+ イオン照射の結果と比較し、すべりと損傷組織の相互作用について調べるとともに、鋼種による相互作用の違いについて検討した。

(1) SUS316 の損傷ピーク深さ近傍の損傷組織で

は、損傷量の増加に伴って転位ループの直径とボイドの数密度が増加したが、転位ループの数密度とボイドの直径は一定であった。10dpa の照射後では平均直径が約 14nm、数密度が約 $2 \times 10^{23}/\text{m}^3$ の転位ループと平均直径が約 1nm、数密度が約 $7 \times 10^{23}/\text{m}^3$ のボイドが形成された。SUS304 の照射欠陥の直径と数密度は SUS316 と同程度であった。損傷組織の形成に伴って硬さが増加したが、SUS316 と SUS304 では未照射での硬さは同じであり、照射後の硬さも同程度であった。

(2) SUS316 と SUS304 のステップ間隔は未照射では同程度であったが、SUS316 では 10dpa の照射により約 10% 増加し、SUS304 では 5dpa の照射により約 30% 増加した。損傷領域ではすべりによって転位チャンネルが形成され、一部の転位チャンネルは損傷組織との相互作用によって停止していた。SUS316 では転位数の多いすべりの多くは損傷領域を通過したが、SUS304 では転位数の多いすべりについても一部が損傷組織によって停止した。

(3) He^+ イオンを照射した SUS316 と比較して、 Fe^{2+} イオンを照射した SUS316 では照射欠陥の数密度が低いため、損傷領域の硬さやステップ間隔も小さかった。また、損傷組織によって停止するすべりは転位数の少ないすべりに限られた。 He^+ イオンを照射した SUS304 と比較して、 Fe^{2+} イオンを照射した SUS304 では、SUS316 と同様に照射欠陥の数密度が低く、硬さやステップ間隔の増加傾向が異なった。 Fe^{2+} イオン照射と He^+ イオン照射の比較より、すべりと損傷組織の相互作用は損傷組織を構成する照射欠陥の種類や大きさ、数密度に依存することがわかった。また、損傷領域の硬化量やステップ間隔の増加量は、欠陥形成によるせん断強度の増加値とほぼ対応することがわかった。

(4) SUS316 に比べて SUS304 では損傷組織は同程度であったが、ステップ間隔の増加量は大きくなった。すべりを抑止する損傷組織の相互作用が SUS304 では強くなることが示唆され、原因の一つとして、積層欠陥エネルギーの違いによる影響が推察された。

文献

- (1) 塚田隆, “照射誘起応力腐食割れ (IASCC) の研究動向”, 金属 Vol. 73, No. 8, pp. 750-753 (2003)
- (2) 福谷耕司, “照射誘起応力腐食割れ (IASCC) の機構研究の現状”, 金属 Vol. 73, No. 8, pp. 754-759 (2003)
- (3) G. S. Was, Z. Jiao, J. T. Busby, “Recent Developments in Understanding the Mechanism of IASCC”, *Proc. of Int. Symp. Research for Aging Management of Light Water Reactors*, 8-1 (2007).
- (4) 例えば, 北島貞吉, 篠原和敏, “転位チャンネルリングの立場から見た結晶塑性 中性子照射を中心として”, 日本金属学会会報, 第15巻, 第11号, pp.675-684 (1976).
- (5) N. Hashimoto, S. J. Zinkle, A. F. Rowcliffe, J. P. Robertson, S. Jitsukawa, “Deformation mechanisms in 316 stainless steel irradiated at 60°C and 330°C”, *Journal of Nuclear Materials*, 283-287, pp.528-534 (2000).
- (6) C. Bailat, A. Almazouzi, N. Baluc, R. Schäublin, F. Gröschel, M. Victoria, “The effects of irradiation and testing temperature on tensile behavior of stainless steels”, *Journal of Nuclear Materials*, 283-287, pp.446-450 (2000).
- (7) H. Nishioka, K. Fukuya, K. Fujii, Y. Kitsunai, “Deformation Structure in highly Irradiated Stainless Steels”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 45, pp.274-287 (2008)
- (8) 三浦照光, 藤井克彦, 福谷耕司, 川岸礼佳, 伊藤慶文, “イオン照射したステンレス鋼の変形挙動”, *INSS JOURNAL*, Vol.14, P. 167-183 (2007).
- (9) J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, “The Stopping and Range of Ions in Solids”, Pergamon, New York (1985).
- (10) 微少試験片材料評価技術の進歩, 日本原子力学会「微少試験片材料評価技術」研究専門委員会.
- (11) 先端材料シリーズ, 照射効果と材料, 日本材料科学会編.
- (12) T. Okita, T. Saito, N. Sekimura, F. A. Garner, L. R. Greenwood, “The primary origin of dose rate effects on microstructural evolution of austenitic alloys during neutron irradiation”, *Journal of Nuclear Materials*, 307-311, pp. 322-326 (2002).
- (13) Y. Katoh, Y. Kohno, A. Kohyama, “Dual-ion irradiation effects on microstructure of austenitic alloys”, *Journal of Nuclear Materials*, 205, pp. 354-360 (1993).
- (14) Gary S. Was, “Fundamentals of Radiation Materials Science, Metals and Alloys”, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2007).
- (15) G. E. Lucas, “The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels”, *Journal of Nuclear Materials*, 206, pp.287-305 (1993).
- (16) T. S. Byun, E. H. Lee, J. D. Hunn, “Plastic deformation in 316LN stainless steel characterization of deformation microstructures”, *Journal of Nuclear Materials*, 321, pp.29-39 (2003).