

*Journal of the Institute of Nuclear Safety System*  
2011, Vol.18, 198-210

## イオン照射下引張応力ステージの開発と照射脆化に及ぼす 応力影響の研究

Development of a Tensile Testing Device under Ion Irradiation and Study on Effect of  
Stress on Radiation Embrittlement

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)

福谷 耕司 (Koji Fukuya)

笠田 竜太 (Ryuta Kasada)

木村 晃彦 (Akihiko Kimura)

大久保 忠勝 (Tadakatsu Ohkubo)



株式会社 **原子力安全システム研究所**

Institute of Nuclear Safety System, Incorporated

〒919-1205 福井県三方郡美浜町佐田64号

Tel 0770-37-9100 Fax 0770-37-2008

URL <http://www.inss.co.jp>

# イオン照射下引張応力ステージの開発と照射脆化に及ぼす 応力影響の研究

Development of a Tensile Testing Device under Ion Irradiation and Study on Effect of  
Stress on Radiation Embrittlement

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)\*<sup>1</sup> 福谷 耕司 (Koji Fukuya)\*<sup>1</sup> 笠田 竜太 (Ryuta Kasada)\*<sup>2</sup>  
木村 晃彦 (Akihiko Kimura)\*<sup>2</sup> 大久保 忠勝 (Tadakatsu Ohkubo)\*<sup>3</sup>

**要約** 照射脆化に対する外部応力の影響に関し照射によるミクロ組織変化に着目した研究はほとんど見当たらない。本研究では、照射脆化に及ぼす外部応力の影響を確認することを目的に、曲げ応力を付与した試験片に京都大学エネルギー理工学研究所のイオン照射施設 (DuET 施設) を使って Fe イオン照射実験を行った。また、DuET 施設で使用可能な負荷応力レベルと温度を高精度に制御できるイオン照射下引張応力ステージを開発し、外部応力の影響を継続して研究している。本報告では、曲げ応力下照射実験で確認された照射硬化とミクロ組織変化に対する外部応力の影響を示すと同時に、開発したイオン照射下引張応力ステージの詳細とこれまでに得られたデータを示した。これまでの実験から、耐力以下の応力下で照射した場合では応力の増加に伴い硬化量が減少することが明らかになり、その原因として外部応力が溶質原子クラスタの形成・成長を抑制することにより照射硬化が小さくなることが考えられた。

**キーワード** 原子炉容器鋼, 照射脆化, 照射硬化, イオン照射, アトムプローブ分析, TEM 観察, 溶質原子クラスタ, 転位ループ

**Abstract** Relatively little attention has been paid to the simultaneous effects of radiation and stress on microstructural evolution related to radiation embrittlement of reactor pressure vessel steels. In the present study, Fe ion irradiation experiments were carried out for bent specimens of A533B steel using the tandem ion accelerator in the Dual-Beam Facility for Energy Science and Technology (the DuET facility) at Kyoto University to characterize hardening and microstructure evolution in reactor pressure vessel steels under irradiation and stress. A tensile testing device under ion irradiation for the DuET facility was developed and the study on effect of stress on radiation embrittlement was started using the tensile testing device. The present paper showed the dependence of the external stress on the irradiation hardening and the influence of the external stress on the microstructure evolution appeared by the irradiation experiments for the bent specimens, and introduced the detail of the tensile testing device under ion irradiation. From the obtained results, the radiation-induced hardening decreased with increasing stress to the yield strength, and application of tensile stress would control hardening by suppressing the solute cluster nucleation and growth.

**Keywords** reactor pressure vessel steels, radiation embrittlement, radiation hardening, ion irradiation, atom probe analysis, TEM observation, solute cluster, dislocation loop.

## 1. はじめに

軽水型発電用原子炉の原子炉容器鋼の照射脆化は重要な高経年化事象の一つである。このため、非常に多くの研究が行われ、延性-脆性遷移温度の上昇

や上部棚エネルギーの低下に関するデータの蓄積とこれを用いた現象論的な脆化予測式の改良が行われてきた<sup>(1)~(5)</sup>。また、脆化因子の実体が次第に明らかになるにつれ、物理学的な脆化機構に立脚したより精度の高い予測式の開発が求められ、脆化予測モ

\*1 原子力安全システム研究所 技術システム研究所  
\*2 京都大学 エネルギー理工学研究所  
\*3 物質・材料研究機構

デルと予測式が提案される<sup>(6)</sup>とともに、原子炉容器鋼の中性子照射脆化予測に関する国内規格 (JEAC4201) へも反映されている<sup>(7)</sup>。

現在、照射脆化は、原子炉容器に使用されている A533B 鋼等の低合金鋼の場合、ナノメートル・スケールの極めて微細な材料変化、例えば銅 (Cu) リッチクラスタの形成や、マンガン (Mn) とニッケル (Ni)、シリコン (Si) が集積したクラスタの形成、マトリックス損傷の形成、リン等の不純物の粒界への偏析等に起因すると考えられている<sup>(8)(9)</sup>。このため、最新の分析手法である高分解能透過型電子顕微鏡 (high resolution transmission electron microscope, HR-TEM)、小角中性子散乱 (small angle neutron scattering, SANS)、陽電子消滅 (positron annihilation, PA)、3次元アトムプローブ (three dimensional atom probe, 3DAP)、オージェ電子分光分析 (Auger electron spectroscopy, AES) 等を用いて研究が行われている<sup>(10)~(19)</sup>。通常、照射実験に供される材料は外力の影響を受けない状態で照射場に置かれる。そのため、実機の監視試験片や研究炉等で照射された材料を用いたこれまでの研究で得られた知見は、いわゆる応力フリーの状態のものといえる。

現実には、構造材料は、ほとんどの場合、様々な種類の外力 (応力) の影響下で使用される。このような応力下での照射挙動は応力を与えない場合における挙動と異なる場合があることが知られており、代表的な事象にボイドスエリングや照射下クリープが挙げられる。このため、中性子照射されたオーステナイト系ステンレス鋼のマイクロ組織に対する応力の影響がボイドスエリングや照射下クリープを理解するために研究されている<sup>(20)~(22)</sup>。照射損傷に対する外部応力の影響に関する研究は、圧力管を用いた炉内照射試験<sup>(21)</sup>や超高压電子顕微鏡内での引張応力下の照射試験<sup>(23)(24)</sup>、軽イオンや重イオンによる引張応力下の照射試験<sup>(25)~(28)</sup>により行われてきた。これらの研究から引張応力の付与がマイクロ組織発達に影響してボイドスエリングや照射下クリープを促進することが明らかになっている。

原子炉容器鋼の照射脆化に及ぼす応力の影響については、1960年代に延性-脆性遷移温度の上昇に対する影響を調べた幾つかの報告がある<sup>(29)~(31)</sup>。NicholsとHarries<sup>(29)</sup>により行われた予ひずみを与えた原子炉容器鋼試料を中性子照射した結果では明確な予ひずみの効果は認められていない。これに対

して、Reynolds<sup>(30)</sup>は耐力の20%の一定応力を付与した状態で A302-B 鋼を照射し応力の効果が認められたことを報告している。また、HawthorneとLoss<sup>(31)</sup>によれば耐力の80%の応力下で A350-LF1 鋼の鍛造材と A302-B 鋼の母材を照射しても明確な応力の効果は認められないことが報告されている。応力の影響が認められた場合でもその効果が小さいことや、供用中に原子炉容器に作用する外力は主として内圧に起因すると仮定すれば耐力の約20%程度の比較的小きな値が想定されるために、応力の影響は小さいと考えられてきた。ただし、照射脆化を引き起こすナノメートル・スケールの極めて微細な材料変化に対する応力の効果を、先に示した最新の分析手法で直接調べた研究はない。

そこで、照射脆化に及ぼす外部応力の影響を確認することを目的に、曲げ応力を付与した試験片に京都大学エネルギー理工学研究所のイオン照射施設 (DuET 施設) で Fe イオン照射実験を行った<sup>(32)</sup>。また、DuET 施設で使用可能な負荷応力レベルと温度を高精度に制御できるイオン照射下引張応力ステージを開発し、外部応力の影響の研究に着手している。本報告では、曲げ応力下照射実験で確認された照射硬化とマイクロ組織変化に対する外部応力の影響を示すと同時に、開発したイオン照射下引張応力ステージの詳細とこれを用いてこれまでに得られたデータを報告する。

## 2. 曲げ応力下での照射脆化に及ぼす応力の影響

### 2.1 実験方法

#### 2.1.1 供試材

供試材として Cu 含有量が 0.16 wt% の A533B 鋼材を用いた。化学組成を表 1 に示す。290℃での耐力は 570 MPa である。なお、この材料では、これまでの研究から、中性子照射や電子線照射、重イオン照射により非常に微細な溶質元素クラスタと転位ループが形成されることが確認されている<sup>(33)~(37)</sup>。

表 1 A533B 鋼の化学組成 (wt%)

C	Si	Mn	P	Ni	Cr	Mo	Cu	Fe
0.18	0.29	1.45	0.011	0.55	0.11	0.50	0.16	Balance

2.1.2 曲げ応力下照射ステージ

材料に応力を付与する方法の一つに曲げがある。この方法は、実際の応力状態が不明確であることや、照射中の応力緩和が懸念されるという欠点もあるが、比較的簡便に従来の照射ステージを流用して実験が可能である。このため、応力効果を確認するための試験として曲げ応力下でのイオン照射試験を実施した。

図1に平板曲げの例を示した。板厚を  $h$  とし、板の中央面（中立面）を  $z$  座標の  $z=0$  にとり、板の変形前後で以下の仮定：(1) 変形前に板の中央面に垂直な平面は変形後も垂直を保つ、(2) 中央面は板の変形後もひずみ  $0$  を保つ、(3) 板の面に垂直方向の垂直応力は他の応力と比較して十分小さい、が成り立つとすると、 $z=z$  での  $x$  方向の垂直ひずみ  $\varepsilon_x$  は、

$$\varepsilon_x = \frac{(\rho+z)d\theta - \rho d\theta}{\rho d\theta} = \frac{z}{\rho}$$

で表わされる。また、 $\sigma_z=0$  であるから、フックの法則より

$$\varepsilon_x = \frac{1}{E}(\sigma_x - \nu\sigma_y), \quad \varepsilon_y = \frac{1}{E}(\sigma_y - \nu\sigma_x)$$

と表される。ここで、 $\nu$  はポアソン比であり、 $E$  はヤング率である。ここで、長方形板を円筒形に曲げる場合には、 $\varepsilon_y=0$  であるから、 $\sigma_y = \nu\sigma_x$  となる。したがって、

$$\varepsilon_x = \frac{1-\nu^2}{E} \sigma_x$$

より

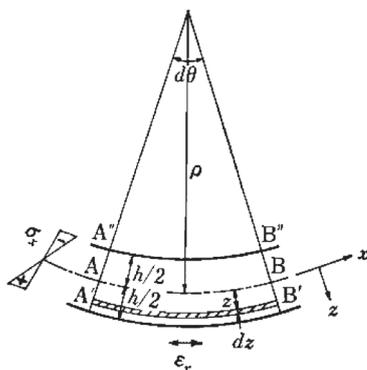


図1 薄板の曲げ応力

$$\sigma_x = \frac{E}{1-\nu^2} \varepsilon_x = \frac{E}{1-\nu^2} \cdot \frac{z}{\rho}$$

となる。

数 MeV のエネルギーの重イオン照射においては、表面から数  $\mu\text{m}$  の深さまでの領域のみが損傷を受けるとともに、その領域が試験対象領域となる。試料の厚さが損傷領域の深さに比べて十分に厚い場合には、最外面での  $\sigma_x$  が負荷応力となる。この場合には、 $z$  は板厚  $t$  を用いて  $z=t/2$  で表わされる。すなわち、

$$\sigma_x = \frac{E}{1-\nu^2} \cdot \frac{t/2}{\rho}$$

により応力が表され、板厚  $t$  と曲率半径  $\rho$  を組み合わせることで負荷応力をコントロールすることができる。

DuET 施設においては、外径  $\phi 35 \text{ mm}$  の照射ステージ（赤外線加熱ホルダー）が使用される。今回はこのホルダーに取り付け可能な曲げ照射治具を設計・製作した。図2に製作した曲げ応力下照射ステージの外観を示す。取り付けられている試験片の大きさは  $5 \times 16 \text{ mm}$  であり、同時に3枚の試験片の照射が可能である。



図2 曲げ照射ステージの外観

試験片を固定する面は曲率半径  $\rho = 50 \text{ mm}$  の凸形状であり、先に示した表面の曲げ応力と板厚  $t$  と曲率半径  $\rho$  の関係から、板厚  $t(\text{mm})$  と応力  $\sigma(\text{MPa})$  には以下の関係が成り立つ。

$$t = 4.5 \times 10^{-4} \cdot \sigma$$

ここでは、低合金鋼に対する一般的な値として  $\nu = 0.33$ ,  $E = 200 \text{ GPa}$  を用いた。

### 2.1.3 曲げ応力下でのイオン照射実験

室温で曲げ照射治具に試験片を取り付ける際の応力が 250 MPa, 500 MPa, 750 MPa になるように板厚を調整した 3 枚の試験片を照射した。板厚はそれぞれ 0.11, 0.22, 0.33 mm である。なお、板厚の調整は湿式の機械研磨により行い、照射面はコロイダルシリカを用いて鏡面研磨の後、化学研磨で最終表面処理した。

イオン照射には、6.4 MeV の  $\text{Fe}^{3+}$  イオンを用いた。照射温度は 290°C であり、深さ 600 nm での損傷速度を  $1 \times 10^{-4}$  dpa/s として照射量 1 dpa まで照射した。なお、損傷量の計算には SRIM2006 を用い<sup>(38)</sup>、純鉄を仮定してはじき出しエネルギーを  $E_d = 40$  eV とした。なお、600 nm の深さ位置での注入 Fe イオンの量は最大 0.001 at% であり、無視できる量であった。

試料温度は赤外線放射温度計により計測した。図 3 に試験片表面温度の測定例を示した。試験片全体でほぼ均一な輻射があり、均一な温度分布であることが分かる。また、+マークで示した点が温度の測定点であり、4 点の平均値を温度として記録した。また、損傷速度はイオンビーム量を 30 分間隔で測定して評価した。

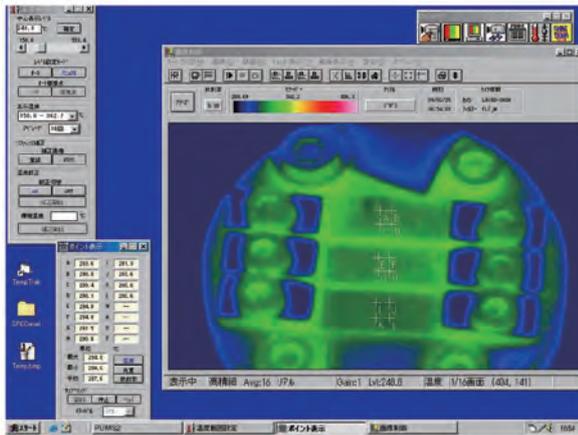


図 3 赤外線放射温度計による試験片表面温度の測定例

### 2.1.4 試験

#### (1) 硬さ測定

硬さは、超微小硬さ測定機 (ELIONIX ENT1100) を用い、ナノインデンテーションにより室温で測定した。6.4 MeV の Fe イオン照射では、損傷深さは

1500 nm である。超微小硬さ測定では押し込み深さの 4 倍の深さ領域が塑性変形し、この領域の硬さの平均値を測定する<sup>(39)</sup>。今回の測定では押し込み深さを 300 nm とすることで損傷領域 (深さ 1500 nm) のみの硬さを測定した。硬さは最大荷重と最大押し込み深さから計算した。なお、測定は各試料に対して 40 点以上行った。また、応力なしあるいは応力を 500MPa および 750MPa 負荷した状態で 290°C で 10,000 秒真空中に保持した未照射の試料についても、イオン照射期間中の熱時効による影響を調べるために硬さ測定を実施した。

#### (2) XRD 応力測定

曲げ応力を用いて応力の効果を調べる場合、イオン照射中の応力緩和を明らかにする必要がある。このため、イオン照射前後で X 線回折 (XRD) 応力測定を行い、イオン照射による応力緩和の程度を調べた。XRD 応力測定装置 (Rigaku Model MSF-3 M) を用いて、曲げ応力下照射ステージに試料を取り付けた状態で測定した。30kV の Cr-K $\alpha$  線を X 線源とし、測定は  $\theta - 2\theta$  法により室温、大気中で行った。測定領域は試料中央部の  $2 \times 2$  mm の領域とした。

#### (3) TEM 観察

TEM 観察は、応力なし照射材および 500MPa の応力を負荷した照射材 (以下 500MPa 照射材と記す) を対象として、加速電圧 300kV の FE-TEM (HITACHI HF-3000) を用いて行った。試料は、FIB 加工装置 (HITACHI FB-2000A) を用いて作製した。FIB のマイクロサンプリング機構を用いて微小サンプル ( $20 \times 20 \times 10 \mu\text{m}$ ) を切り出した後、Mo 製の TEM 観察用メッシュに固定した。次に、表面から 600 nm の深さを薄膜に加工した。なお、FIB 加工に伴い薄膜表面に形成される加工層は極低エネルギー Ar イオンスパッタリング装置 (日本フィジテック GENTLE MILL Model IV5) により 1 kV と 150 V の電圧条件でスパッタリングを行い除去した。転位ループ等のマイクロ組織観察には、通常の明視野観察と Weak-beam 法<sup>(40)</sup>による暗視野観察を用いた。

#### (4) 3DAP 測定

3DAP 分析は、応力なし照射材および 500MPa 照射材を対象として、(独)物質・材料研究機構のレーザーパルス誘起型的位置敏感型 3 次元アトムプローブを使用して実施した。分析は試料温度 50 K で行っ

た. イオン照射材の試料については, 表面近傍に限定される損傷領域を分析する必要があるため, 集束イオンビーム (focused ion beam, FIB) 加工装置 (HITACHI FB-2000A および FB-2100) を用いて試験片を作製した. FIB のマイクロサンプリング機構を用いて微小サンプル ( $2 \times 2 \times 20 \mu\text{m}$ ) を切り出した後, アトムプローブ測定用の試料ホルダーに固定し, FIB の任意形状加工機構を用いて表面から 600 nm の深さが針先端の分析領域になるように加工した. なお, 各試料について  $1 \times 10^6$  原子以上を測定し, 原子マップを作成した. なお, イオンを質量分析して検出するアトムプローブ分析では同一質量数の同位体を分離できない. このため, Fe-58 と分離できない Ni-58 については, 主要成分の Fe 元素のバックグラウンドを多く含むため, 今回の Ni の評価に使用しなかった.

## 2.2 結果および考察

### 2.2.1 硬さ測定

硬さの測定結果を図 4 に示した. 照射によりピークを示す硬さの値が 100 程度増加するとともに, 分布が未照射に比べて広がる傾向があり, いずれの応力負荷条件でも照射硬化が生じていることが確認された. 1dpa までの照射材の硬さの平均値を荷重応力値で整理した結果を図 5 に示す. 荷重応力の増加

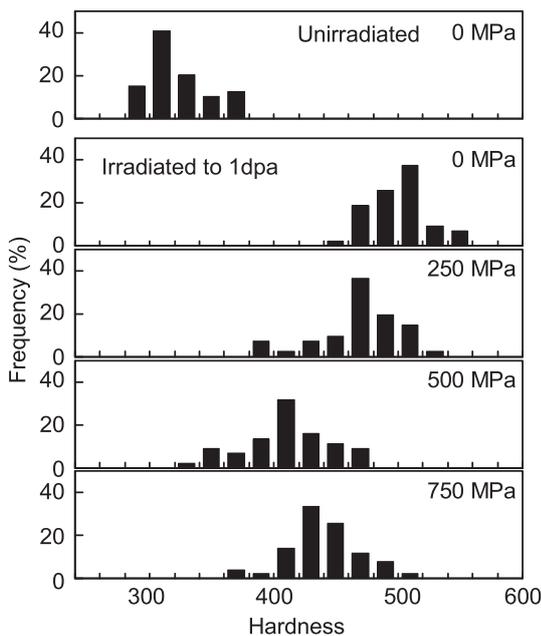


図 4 曲げ応力下照射による硬さ変化

に伴い硬さは減少する傾向が認められたが, 耐力以上の荷重応力では硬さは増加した. 一方, イオン照射を伴わない場合には顕著な硬さの変化は認められなかった. 耐力以下では加工硬化を生じないため, 今回の 1/2 耐力と耐力相当の荷重応力での硬さの違いは, 応力負荷条件下での照射では照射硬化が抑制されたと考えられた. ただし, 750MPa 応力負荷材ではイオン照射を伴わない場合でも僅かな硬さの増加が見られ, 加工硬化によるものと考えられる. この結果から, 照射下での耐力の 1.5 倍相当の応力負荷での硬さの増加は加工効果が一因と考えられた.

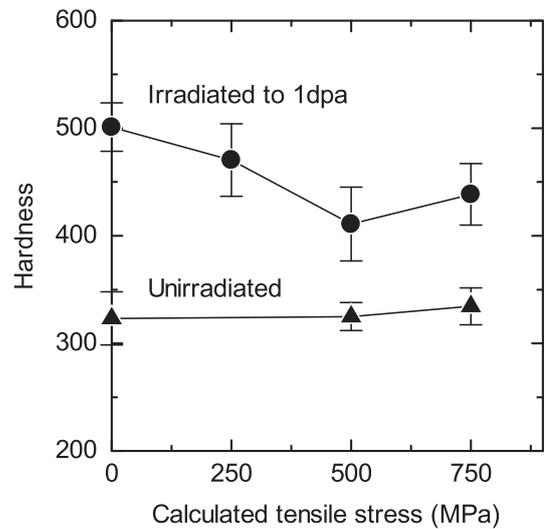


図 5 応力による硬さの変化

### 2.2.2 XRD 応力測定

図 6 にイオン照射前後の応力の変化を示した. イ

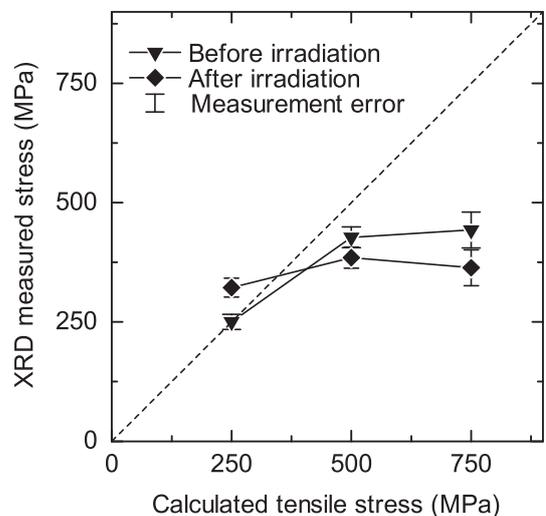


図 6 イオン照射前後の応力の変化

オン照射の前と後に測定した応力に差はなく、照射中に有意な応力緩和は生じておらず、照射期間中に引張応力が作用していたことが確認された。なお、応力の計算値 750MPa の試料で測定値が計算値より著しく小さいのは、耐力を超えて塑性変形したためである。

### 2.2.3 TEM 観察

図 7 に応力なし照射材と 500MPa 照射材を TEM 観察した結果を示した。電子ビームの入射方向は [011] であり、回析ベクトル  $g$  は 011 である。ともに黒い点状のコントラストで示された転位ループが観察される。解析の結果、観察された転位ループのバーガス・ベクトルは  $\langle 100 \rangle$  と同定された。転位ループのサイズ分布、平均直径、数密度を図 8 に示した。応力負荷条件下では転位ループのサイズは大きくなるが、数密度は減少する傾向が得られた。この結果から、応力は転位ループの成長を促進するが形成は抑制する効果があると考えられる。

観察された転位ループによる硬化を Orowan モデルにより検討した。転位ループ形成による硬化量  $\Delta\sigma_{md}$  は次式で与えられる。

$$\Delta\sigma_{md} = \alpha G b \sqrt{N \cdot d}$$

ここで、 $N$  は転位ループの数密度、 $d$  は転位ループの平均直径、 $G$  は Fe マトリックスのせん断係数、 $b$  はバーガス・ベクトルの大きさ、 $\alpha$  は欠陥の種類により異なる定数である。本検討では、微細な転位ループに対して一般的に用いられる  $G = 49$  GPa、 $b = 0.25$  nm、 $\alpha = 0.4$  を用いた。観察された転位ループの数密度と平均直径より計算した硬化量を表 2 に示した。耐力 ( $\Delta\sigma_y$ ) とビッカース硬さ ( $\Delta HV$ ) の換算は  $\Delta\sigma_y = k \cdot \Delta HV$ 、 $k = 3.6$  で行い、ビッカース硬さとナノインデンテーション硬さ ( $\Delta H$ ) は  $\Delta HV$

$= \alpha(P) \cdot \Delta H$ 、 $\alpha(P) = 0.55$  で行った。転位ループによる硬化量は測定値の 30% 程度であり、観察された転位ループのみでは硬化を説明できないことが確認された。その他の硬化因子として、溶質クラスタや観察限度以下の大きさの極めて微細な転位ループ等の照射欠陥が想定される。

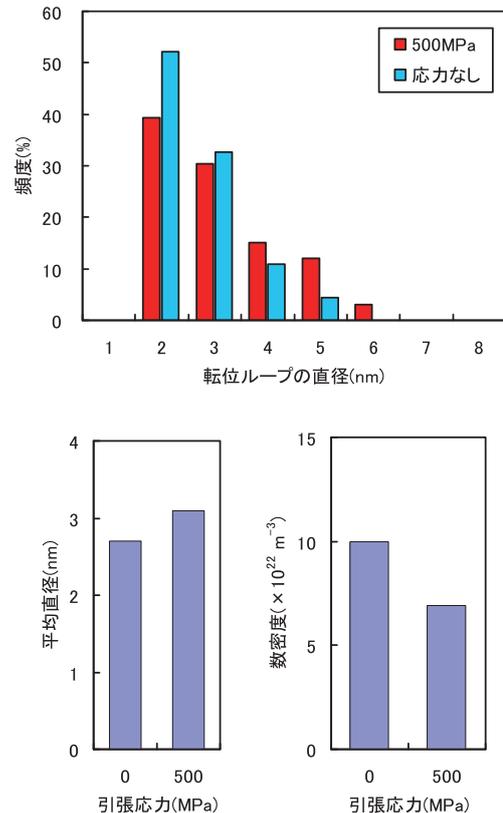


図 8 転位ループのサイズ分布、平均直径、数密度

表 2 観察された転位ループによる硬化量

応力 (MPa)	転位ループ			$\Delta\sigma_y$ ( $\Delta H$ から計算)
	密度 ( $\text{m}^{-3}$ )	直径 (nm)	$\Delta\sigma_{md}$ (MPa)	
0	$1.0 \times 10^{23}$	2.7	81	352
500	$6.9 \times 10^{22}$	3.1	72	170

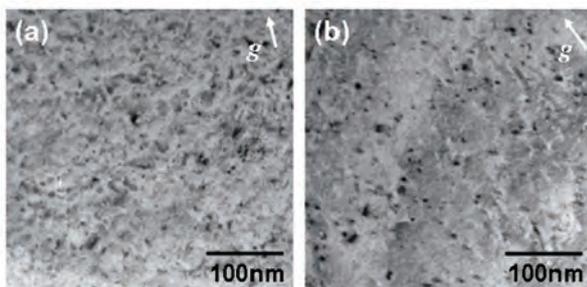


図 7 TEM 観察結果。  
(a) 応力なし照射材, (b) 500MPa 照射材

### 2.2.4 3DAP 測定

3DAP で測定した応力なし照射材と 500MPa 照射材の原子マップを図 9 に示した。Si-Mn-Ni が集積した溶質クラスタが形成されていることが観察された。応力なし照射材でも同様なクラスタが観察された。図 10 にクラスタのサイズ分布、平均直径、数密度、体積率を比較して示した。応力下ではクラスタの大きさは小さく、密度も減少する傾向が確認さ

れた。この結果から、応力は溶質クラスタの成長を抑制するとともに生成も抑制することが考えられた。

転位ループと比較すると、直径は同程度であるが、数密度は溶質クラスタが40倍程度大きい。転位ループの形成による硬化を検討したOrowanモデルで溶質クラスタの形成による硬化量を $\alpha=0.4$ と転位ループと同じ硬化係数を仮定して計算すると、応力なし照射材は444MPa、500MPa照射材は353MPa、

750MPa照射材は346MPaであり、転位ループから計算された応力なし照射材の81MPa、500MPa照射材の72MPaに比べて大きい。これより、溶質クラスタが硬化の主要因であることが確認された。一般に硬化量と良い相関が認められている溶質クラスタの体積率は、応力なし照射材では0.016、500MPa照射材では0.007であり、ナノインデンテーション硬さの増加と良い相関が認められた。

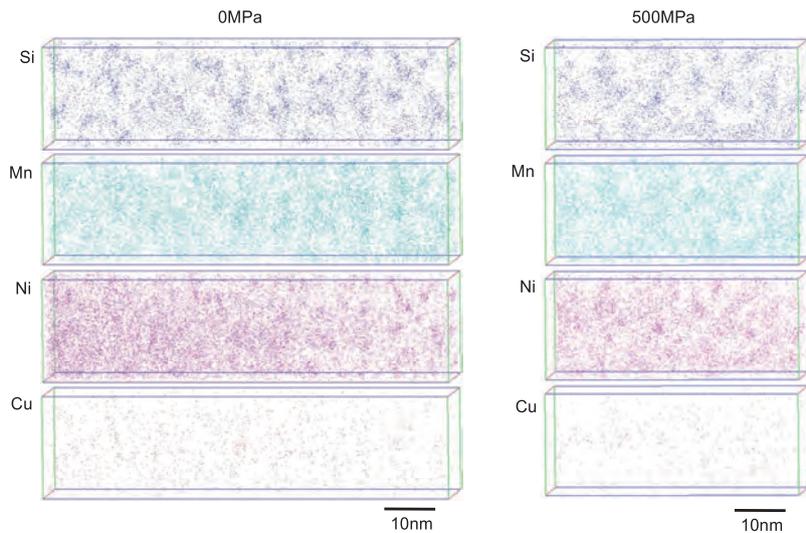


図9 応力なし照射材と500MPa照射材の原子マップ

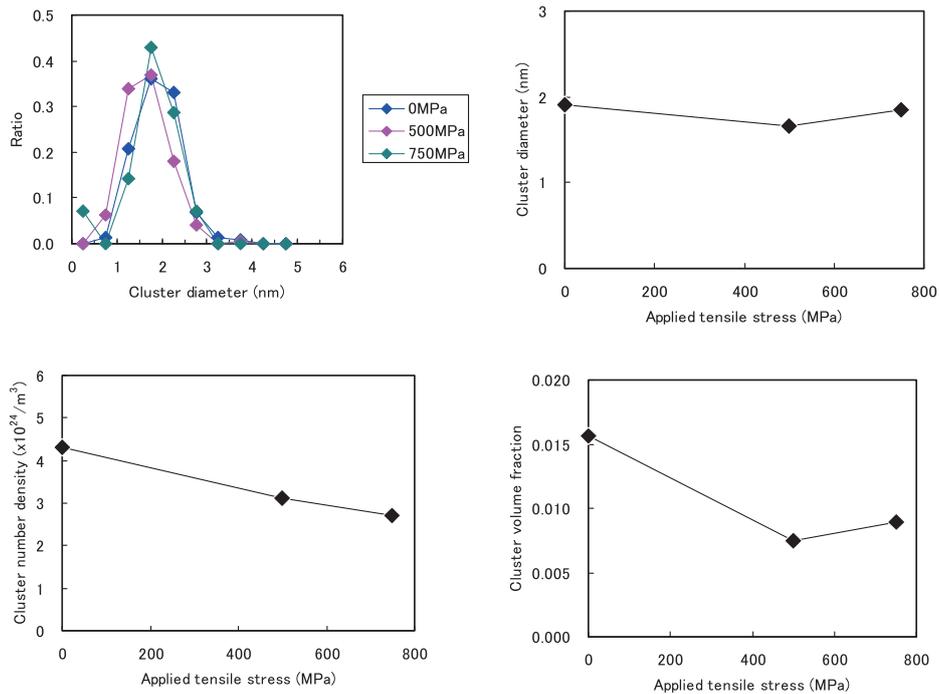


図10 クラスタのサイズ分布, 平均直径, 数密度, 体積率

### 2.2.5 曲げ応力下照射の影響

曲げ応力を付与した低合金鋼を Fe イオン照射して照射硬化とマイクロ組織変化に対する応力下照射の基礎的影響を調べた結果、耐力以下の応力レベルの違いで、照射硬化量に違いが生じることが認められた。TEM 観察の結果、応力なし照射材、500MPa 照射材とともに転位ループが観察され、そのサイズは応力下で大きくなり密度は減少する傾向が確認された。また、3DAP 分析の結果、Si-Mn-Ni が集積した溶質クラスタの形成が確認された。応力下照射でクラスタのサイズと密度が小さくなる傾向が認められ、クラスタの体積率も減少した。ただし、形成したクラスタの組成は Fe-(3-5)Mn-(5-6)Ni-(7-11)Si-(0.3-0.8)Cu であり、応力による明確な違いは認められなかった。応力下照射でクラスタの形成・成長が抑制されることを示した結果は硬さの測定結果と一致しており、応力下照射ではマイクロ組織変化が抑制され硬化量が減少する可能性が示唆された。

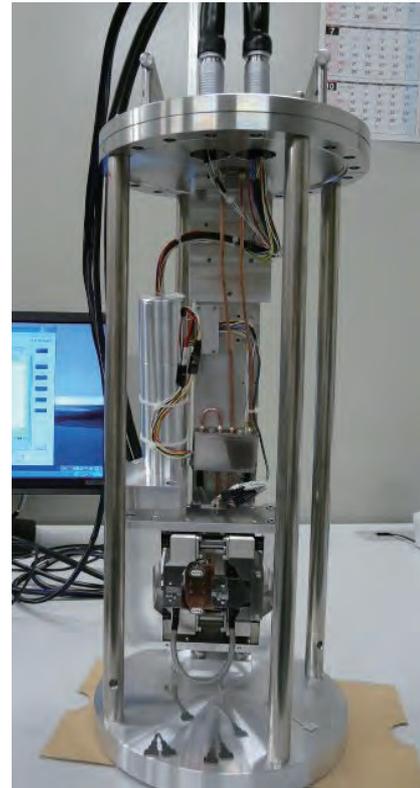
## 3. 引張応力下での照射脆化に及ぼす応力の影響

### 3.1 イオン照射下引張応力ステージ

京都大学イオン照射設備 DuET で使用可能なイオン照射下引張応力ステージを開発した。図 11 にステージの外観写真を示した。小型引張試験片の引張軸は鉛直方向に対して垂直となる。加熱部のヒータユニットについては、変形部の照射温度を均一に保つために、試料に直接接触させる方式を採用している。加熱部については、ヒーター部に取り付けた熱電対によって温度を制御する。また、試料にスポット溶接した K 熱電対により試料温度の計測が可能になっている。また、照射領域表面を DuET 施設に既設のサーモグラフィによって常時監視することを可能とするレイアウトとなっている。また、引張試験時の荷重と変位は随時計測され、荷重一定試験や、変位速度一定試験を行うことが可能な仕様となっている。

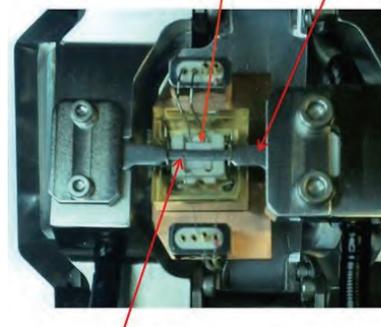
引張試験装置としてのスペックは、最高試料温度は 500℃、ロードセルで測定可能な最大荷重は 2kN であり、引張速度の設定範囲は 0.02 ~ 10  $\mu\text{m}/\text{sec}$  である。図 12 に小型引張試験片の形状を示した。ゲージ部の寸法は長さ 10mm、幅 2mm、厚さ 1mm

(a) 引張応力下照射ステージの概観



(b) 引張試験部の構成

小型引張試験片  
ヒータ



試料温度計測用熱電対

図 11 イオン照射下引張応力ステージの外観

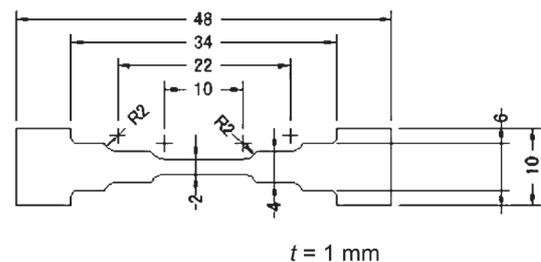


図 12 小型引張試験片の形状 (単位 mm)

であり、試験片の固定や温度制御用のヒーターの取り付けのために比較的複雑な形状を有する。

## 3.2 実験方法

### 3.2.1 供試材

低合金鋼 (0.16%Cu 材) と Fe-0.6wt%Cu モデル合金を供試材として用いた。低合金鋼は表 1 に化学組成を示した材料と同じものである。室温での耐力は低合金鋼が約 500MPa であり、Fe-0.6wt%Cu 合金が約 115MPa である。これらの材料から、図 12 に示した小型引張試験片を作製し、照射面はコロイダルシリカで鏡面研磨の後、フッ酸による化学研磨を施して最終処理した。

### 3.2.2 引張応力下照射実験

3.1 項で述べた引張応力ステージを用いて、京都大学エネルギー理工学研究所 DuET 施設でイオン照射実験を行った。1.7MV タンデム加速器によって加速された 6.4MeV の Fe<sup>3+</sup> イオンビームによって、DuMIS と呼ばれる照射チャンバー内に設置した引張応力ステージ上の引張試料のゲージ部を中心に照射試験を行った。損傷速度はビーム量を 30 分間隔で測定して記録した。照射量は、SRIM 計算コードより求め、表面から 600nm の深さで 1dpa、損傷速度は  $1 \times 10^{-4}$  dpa/s とした。

照射温度は、 $290 \pm 10^\circ\text{C}$  および室温であり、試料各部の温度はサーモグラフィによって計測した。図 13 に照射時の温度履歴と負荷履歴の例を示す。290°C での照射は、ゲージ部の照射温度を均一に保つように、試料にヒータユニットを背面から直接接触させて照射温度を一定に保持した。室温での照射は、ヒータユニットを作動させずに行った。途中ビームチェック時の変動はあるものの、50°C 以下での照射が実施されている。

引張試験時の荷重と変位は随時計測される。本研究では、照射時の荷重を耐力の 50% となるように制御した引張応力下イオン照射実験を行った。

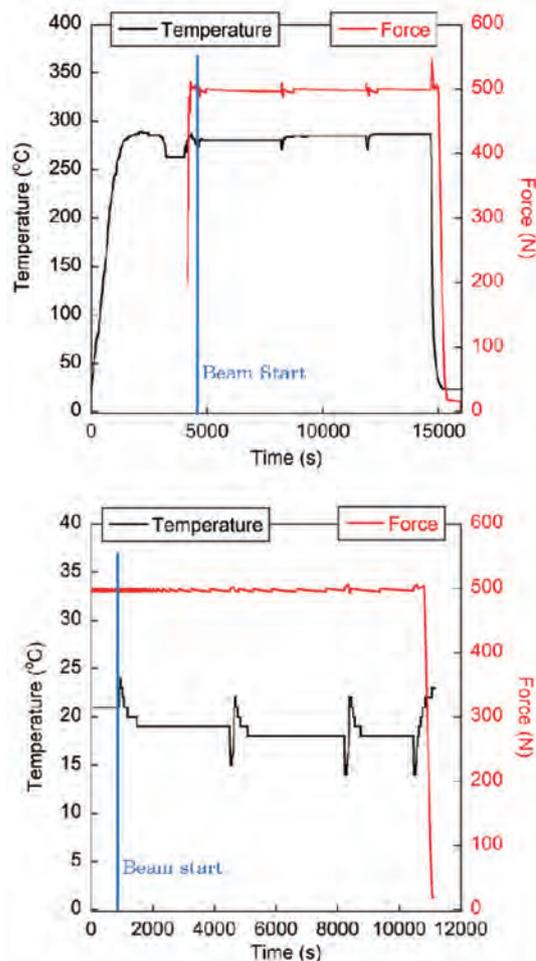


図 13 290°C および室温における引張荷重負荷照射時の試験片の温度履歴と負荷履歴

### 3.2.3 ナノインデンテーション試験

照射前後の強度特性変化を調べるために、ナノインデンテーション試験を行った。ナノインデンテーション試験には、京都大学エネルギー理工学研究所に設置されている Agilent Technologies 社製 Nano-Indenter G200 (以降 G200) を用いた。G200 の特徴は、通常の超微小押込試験装置で用いられる除荷弾性法に加えて、連続剛性測定 (Continuous Stiffness Measurement; CSM) 法が可能である点である。CSM 法では、大きなスケールの直流荷重負荷に小さな振動を与える。その結果として発生する変位の振動成分並びに変位と荷重の位相差を測定することにより、あらゆる測定点での接触剛性  $S$  とダンピング  $D_s$  を計算することができる。したがって、1 回の押し込みにより圧子の変位の関数として連続的に弾性率と硬さを求めることができる。

### 3.3 結果および考察

図 14 に、温度 290°C において照射した低合金鋼および Fe-0.6Cu 合金の引張応力下照射前後のナノインデンテーション硬さ試験による押し込み深さ依存性を調べた結果を示す。両材料ともに、照射後のナノインデンテーション硬さの増加、すなわち照射硬化が見られた。低合金鋼の照射後のナノインデンテーション硬さの深さ依存性は複雑であり、応力負荷照射条件では、複雑さを増しているように見られる。低合金鋼の非照射材におけるナノインデンテーション硬さの深さ依存性は、Fe-0.6Cu 合金と同様に比較的単純であるため、このような複雑さは組織不均一性に起因する照射硬化感受性の違いが影響している可能性が考えられる。Fe-0.6Cu 合金については、照射材についても、笠田らによって提案されている

Nix-Gao モデルと複合硬さモデルによって解析可能であり、図 15 のように背面影響が表れる臨界深さ  $h_c$  は 300nm 以上であることがわかった。よって、従来のナノインデンテーション試験における押し込み深さ 300nm という設定により、正しくイオン照射領域の硬さを測定できていることが明らかになった。

CSM 法によって取得した複数点 (10 ~ 15 点) の連続データの中から、押し込み深さ 300nm における硬さの平均値を求めた結果を表 3 および図 16 に示す。照射硬化に対する応力依存性は 290°C と室温照射とで同様であり、低合金鋼、Fe-Cu 合金ともに応力下で照射した方が硬化量が減少した。この傾向は曲げ応力下照射の応力効果と同じであり、外部引張応力が溶質原子クラスタの形成・成長を抑制したことが示唆された。今後、3DAP 分析と TEM 観察によりマイクロ組織を評価する予定である。

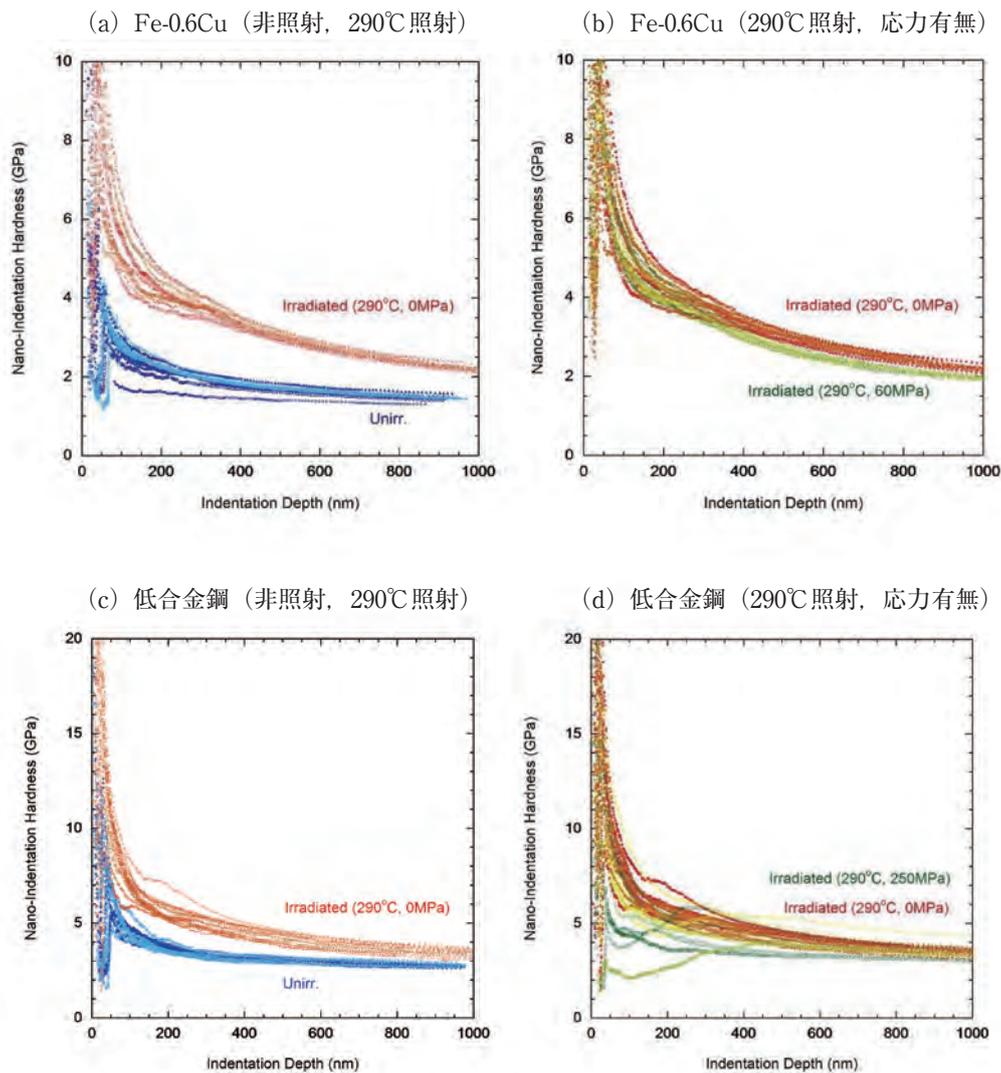


図 14 非照射材および 290°C 照射材におけるナノインデンテーション硬さの押し込み深さ依存性

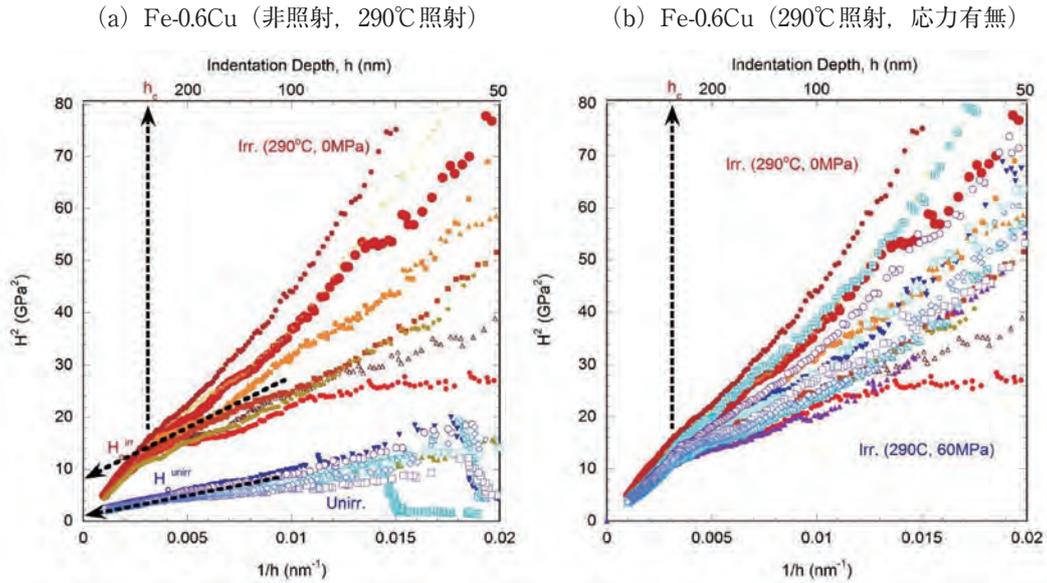


図 15 Fe-0.6Cu 合金の非照射材および 290°C 照射材におけるナノインデンテーション硬さの Nix-Gao モデルと複合硬さモデル解析結果

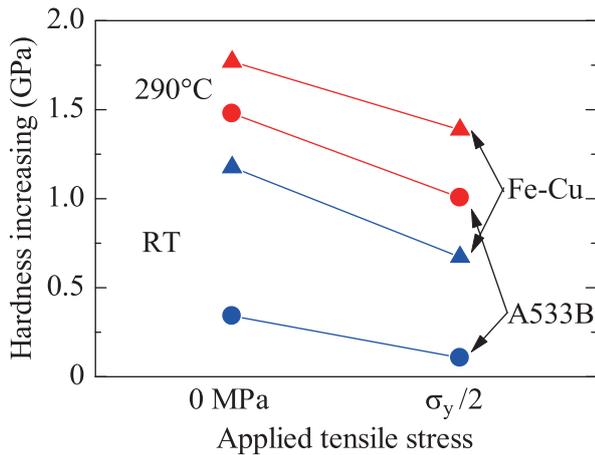


図 16 引張応力下照射による硬さ変化

表 3 引張応力下照射による硬さの変化

供試材	照射温度 (°C)	引張負荷条件 (MPa)	硬さ (GPa)
低合金鋼	Unirrad.	0	3.30
		~50(RT)	4.96
	290	0	4.46
		250	5.07
Fe-0.6Cu	Unirrad.	0	1.94
		~50(RT)	4.07
	290	0	3.51
		60	3.77
	290	0	1.94
		60	3.56

#### 4. まとめ

照射によるマイクロ組織変化に着目した照射脆化に対する外部応力の影響はこれまでほとんど調べられていなかった。本研究では、照射脆化に及ぼす外部応力の影響を確認することを目的に、曲げ応力を負荷した試験片に京都大学エネルギー理工学研究所のイオン照射施設 (DuET 施設) で Fe イオン照射実験を行った。また、DuET 施設で使用可能な負荷応力レベルと温度を高精度に制御できるイオン照射下引張応力ステージを開発し、外部応力の影響を継続して研究している。これまでに得られた主な成果は

以下のとおりである。

(1) 曲げ応力下照射実験から、耐力以下の応力下で照射した場合、応力の増加に伴い硬化量が減少することが明らかになり、その原因として外部応力が溶質原子クラスターの形成・成長を抑制することにより照射硬化が小さくなることが考えられた。

(2) 開発したイオン照射下引張応力ステージを用いた実験から、耐力以下の応力下で照射した場合、応力の負荷に伴い硬化量が減少することが確認された。

今後、マイクロ組織観察による評価と低 Cu 含有量の鋼材における応力効果も研究する予定である。

## 文献

- (1) J.R. Hawthorne, *Proc. International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 484, 96 (1970).
- (2) ASME Sec. XI Appendix A (1974).
- (3) USNRC Regulatory Guide (R.G.) 1.99 Rev.1 (1977).
- (4) USNRC Regulatory Guide (R.G.) 1.99 Rev.2 (1988).
- (5) E.D. Eason, J.E. Wright, G.R. Odette, NUREG/CR-6551 MCS 970501, November 1998.
- (6) 曾根田直樹, 土肥謙次, 野本明義, 西田憲二, 石野栞, 「軽水炉压力容器鋼材の照射脆化予測法の式化に関する研究－照射脆化予測法の開発－」, 電中研研究報告, Q06019, 平成19年4月.
- (7) 「原子炉構造材の監視試験方法」, JEAC4201-2007, (社)日本電気協会, 電気技術規程, 原子力編, 2007年.
- (8) S.B. Fisher, J.E. Harbottle, N. Aldridge, *Phil. Trans. Roy. Soc.*, **A315**, 301 (1985).
- (9) G.R. Odette, G.E. Lucas, *Rad. Eff. & Defects in Solids*, **144**, 189 (1998).
- (10) M.G. Burke, S.P. Grant, M.K. Miller, *Proc. 4th International Symposium on Environmental Degradation on Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, NACE, p. 2 (1989).
- (11) C.A. English, W.J. Phythian, J.T. Buswell, J.R. Hawthorne, P.H.N. Ray, *Proc. 15th International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 1125, ASTM, p. 93 (1992).
- (12) J.-C. Van Duysen, J. Bourgoïn, C. Janot, J.M. Penisson, *Proc. 15th International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 1125, ASTM, p. 117 (1992).
- (13) P. Auger, P. Pareige, M. Akamatsu, J.-C. Van Duysen, *J. Nucl. Mater.*, **211**, 194 (1994).
- (14) P. Auger, P. Pareige, M. Akamatsu, D. Blavette, *J. Nucl. Mater.*, **225**, 225 (1995).
- (15) S. Miloudi, J.-C. Van Duysen, P. Auger, P. Pareige, *Proc. 7th International Symposium on Environmental Degradation on Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, NACE, p. 1179 (1995).
- (16) P. Auger, P. Pareige, S. Welzel, J.-C. Van Duysen, *J. Nucl. Mater.*, **280**, 331 (2000).
- (17) P. Pareige, P. Auger, S. Welzel, J.-C. Van Duysen, S. Miloudi, *Proc. 19th International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 1366, ASTM, p. 435 (2000).
- (18) A. Hempel, M. Saneyasu, Z. Tang, M. Hasegawa, G. Brauer, F. Plazaola, S. Yamaguchi, F. Kano, A. Kawai, *Proc. 19th International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 1366, ASTM, p. 560 (2000).
- (19) K. Fukuya, K. Ohno, H. Nakata, S. Dumbill, J.M. Hyde, *J. Nucl. Mater.*, **312**, 163 (2003).
- (20) H. R. Brager, F. A. Garner and G. L. Guthrie, *J. Nucl. Mater.*, **66**, 301 (1977).
- (21) D.L. Porter, M.L. Takata, E.L. Wood, *J. Nucl. Mater.*, **116**, 272 (1983).
- (22) F.A. Garner, D.S. Gelles, *J. Nucl. Mater.*, **159**, 286 (1988).
- (23) D.R. Okamoto, S.D. Harkness, *J. Nucl. Mater.*, **48**, 204 (1973).
- (24) N. Igata, Y. Kohno, J. Nishimura, *J. Nucl. Mater.*, **149-143**, 790 (1986).
- (25) H.K. Sahu, P. Jung, *J. Nucl. Mater.*, **136**, 154 (1985).
- (26) J. Nagakawa, H. Shiraishi, M. Okada, H. Kamitsubo, I. Kohno, T. Shikata, *J. Nucl. Mater.*, **133-134**, 497 (1985).
- (27) H. Tanigawa, A. Kohyama, *Proc. 3rd Sino-Japanese Symp. on Materials for Advanced Energy Systems and Fission and Fusion Eng.*, Chengdu, China (1995).
- (28) K. Kondo, Y. Miwa, N. Okubo, Y. Kaji, T. Tsukada, *Proc. 13th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors*, CNS (2007).
- (29) R.W. Nichols, D.R. Harries, *Symposium on Radiation Effects and Neutron Dosimetry*, ASTM STP 341, p. 162 (1963).
- (30) M.B. Reynolds, *Mats. Res. Stand.*, **3**, 644 (1963).
- (31) J.R. Hawthorne, F.J. Loss, *Nucl. Eng. Design*, **8**, 108 (1968).
- (32) K. Fujii, K. Fukuya, R. Kasada, A. Kimura, T. Ohkubo, *J. Nucl. Mater.*, **407**, 151 (2010).
- (33) K. Fukuya, K. Ohno, H. Nakata, S. Dumbill,

- J.M. Hyde, *J. Nucl. Mater.*, **312**, 163 (2003).
- (34) K. Fujii, K. Fukuya, N. Nakata, K. Hono, Y. Nagai and M. Hasegawa, *J. Nucl. Mater.*, **340**, 247 (2005).
- (35) K. Fujii and K. Fukuya, *J. Nucl. Mater.*, **336**, 323 (2005).
- (36) K. Fujii, H. Nakata, K. Fukuya, T. Ohkubo, K. Hono, Y. Nagai, M. Hasegawa, T. Yoshiie, *J. Nucl. Mater.*, **400**, 46 (2010).
- (37) K. Fujii, K. Fukuya, T. Ohkubo, *J. Nucl. Mater.* (2010) in press.
- (38) J. F. Ziegler and J. P. Biersak, SRIM 2006 (Stopping and Range of Ion in Materials).
- (39) Y. Katoh, T. Muroga, T. Iwai, O. Motojima, *J. Japan Inst. Metals*, **61**, 191 (1997).
- (40) D.B Williams, C.B. Carter, Transmission Electron Microscopy, Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York.