新しく炭素材料実験を始める人のために

照射損傷効果 —寸法変化と照射クリープ特性—

奥 達雄*

Effects of Radiation Damage -Dimensional Changes and Irradiation Creep Properties-

Tatsuo Oku*

1. はじめに

原子炉などの放射線を発生する機器・装置を構成する構造物は、中性子その他の放射線を受ける。特に原子炉では核燃料の近くの材料はさまざまなエネルギーと種類の放射線を受けることになる。放射線の発生源としては原子炉以外に加速器などもあるが、ここでは、構造物で特に問題になる特性、すなわち、寸法変化、熱伝導率、熱膨張係数、ヤング率、照射クリープ係数、機械的強度などの中で、基本的に重要でかつ黒鉛特有の特性すなわち、寸法変化と照射クリープ特性に限ってその測定・評価の方法を解説することにしたい。その他の特性もちろん重要ではあるが、それぞれの特性測定・評価のところで、詳しく述べられるはずであり、それらを放射性物質に適用することになる。したがって、放射性物質に応用する場合の特別な技術的問題はあるが、それは、これから説明する部分と共通の問題でもあるので、それらを参考にしていきたい。

2. 照射欠陥と照射量

炭素材料の中でも比較的高純度・高強度の黒鉛材料が高温ヘリウムガス冷却型原子炉において多量に使用されているので、多結晶性黒鉛材料を中心に熱分解黒鉛の照射損傷効果などを含めて説明する。原子炉の中では、ウランなどの核燃料の原子核反応によっていろいろなエネルギーの中性子、 α 線（ヘリウム原子核）、 β 線、 γ 線などの放射線が多量に発生する。これらの放射線粒子によって黒鉛材料はその結晶部分の構造が乱れ、多量の格子欠陥が発生する¹⁾。欠陥の種類としては、基本的なものとして格子間原子と空孔（いわゆるフレンケル対）、原子濃度が希薄になった希薄帯（depleted zone）、中性子の通過する通路に沿ってできる熱スパイク、これらの複合欠陥およびそれらの集合体などがある。黒鉛材料の重要な特性に影響を与える格子欠陥は、主にほぼ100keV以上の高速中性子によって生じる。また、2次的な欠陥として転位や積層欠陥

なども考えられる。したがって、黒鉛材料に入射した高速中性子の数を計測することが重要である。高速中性子の照射によって生じた各種欠陥の大きさと数は、単位面積当たりに入射する高速中性子の数に依存する。この単位面積当たりの中性子の数は、通常中性子照射量（neutron fluence）または単に照射量（fluence）と呼ばれる。これに対して、中性子または他の放射線によって弾き飛ばされた原子に注目し、生成した欠陥としてのフレンケル対の数の元の原子数に対する割合をdpa（displacement per atom）またはDPAと書くのが普通であり、これは照射損傷のパラメータとして用いられる。このパラメータは中性子以外の放射線の影響およびそれらも含めて考える場合は特に有用である。諸特性に及ぼす効果の程度は入射した放射線粒子の数ではなく、材料中に生じた欠陥の量（数と大きさ）に大きく依存するからである。

3. 寸法変化・照射クリープ特性などの意義^{2),3)}

黒鉛材料は原子炉などの構造物材料として使用される場合、原子炉の中心部分に近いほど多量の放射線特に高速中性子を受けることになる。使用期間の経過とともに材料の諸特性が変化し、当初予定していた機能を果たせなくなる可能性が予測されるとき、その構造物はそのとき寿命となり、交換可能であれば交換しなければならず、また永久構造物であれば、その時期が全体の寿命を支配することになる。例えば、構造物として寿命であると考えられる時期というのは、黒鉛材料にき裂が発生するか、部分的に破壊を生じるときである。これは、黒鉛構造物中に発生した応力とその材料の破壊強度に達したかあるいは欠陥の先端部での応力拡大係数とその材料の破壊靱性値に達したということである。したがって、黒鉛構造物の使用期間中に発生した応力が時間の経過とともにどのように変化し、破壊強度に対する余裕度がどのように変わっていくかを使用前に予測しておくことが大事である。それによって構造物の寿命をあらかじめ予測することができる。これが

❖ Corresponding Author, E-mail: oku@u-air.ac.jp
放送大学・茨城学習センター：〒310-0056 茨城県水戸市文京2-1-1 茨城大学内
The Ibaraki Study Center, The University of the Air : 2-1-1, Bunkyo, Mito, Ibaraki 310-0056, Japan

安全設計を行うということの内容の1つである。

この発生応力には、構造物内の温度分布あるいは熱膨張係数の分布に基づく熱応力、照射誘起寸法変化の温度・場所依存性に基づく照射誘起応力、地震応力などが主なものである。地震応力は外部から負荷される応力であるが、他の2つは内部応力である。金属材料の場合、熱応力はクリープ現象によって緩和される。また、金属材料では、中性子照射によって黒鉛材料の場合のような大きな寸法変化は見られない。黒鉛材料では1500℃以下ではクリープ現象は見られないが、中性子照射下であれば150℃程度以上でクリープ現象が観察されるという特徴がある⁴⁾。このことは中性子照射下でなければクリープによる応力緩和は期待できないが、中性子照射下で応力を受ければ照射下クリープ現象によって応力の緩和が期待できて、き裂の発生や破壊は遅れることが予想される。これが金属材料と黒鉛材料とで大きく異なる点である。すなわち、言い換えれば、金属材料におけるクリープ現象は照射によって加速されるという点は黒鉛材料と同じである。しかし、これは金属材料では、応力緩和以上の弱点となり、構造物の機能低下を招く可能性がある。一方、黒鉛材料では、照射クリープ現象が起こることによって発生応力が緩和され、破壊を免れるか、あるいは破壊の時期を延長させることが期待できる。このように、黒鉛材料における照射クリープ現象は金属材料とまったく逆の効果をもっていることがわかる。

発生応力に影響を与える主な特性は、熱伝導率、熱膨張係数、ヤング率、ポアソン比、寸法変化、照射クリープ係数などであり、これらの特性の構造物内での位置、温度、照射量依存性に関するデータが発生応力の評価にとって必要である。これらの特性の中で黒鉛材料に特有なものが寸法変化と照射クリープ係数である。

発生応力が評価できた場合、その応力によってき裂の発生または破壊の発生がないかどうかということは、破壊靱性値または引張・圧縮強さなどの機械的強度を超えないかどうかで決まる。したがって、破壊靱性値や強度も重要な特性であるが、ここでは、黒鉛に特有の特性に限ることとする。

4. 照射試験⁵⁾⁻⁹⁾

材料の中性子照射試験は通常材料試験用原子炉、例えば、日本のJMTR (Japan Material Test Reactor)、オランダのHFR (High Flux Reactor) などにおいて実施される。材料に中性子を照射するため、原子炉内に挿入する容器のことをキャプセルまたは照射キャプセルと呼んでいる。キャプセルの外形と寸法は、その原子炉の材料照射用の孔の大きさによって決まるが、普通断面の直径は50mmから100mmの間である。その孔の中にさらに試験片専用の小さな容器を用いる場合もある。キャプセルの全体の長さは照射用試験片の置ける位置が核燃料の存在する場所付近と一致させる必要があるので、500mm～600mmぐらいである。これも原子炉の燃料の大き

さに依存する。照射クリープ試験以外の場合は、断面内の熱伝導ができるだけよくなるように、黒鉛ブロックに試験片のサイズよりわずかに大きな孔を空けておき、そこに試験片になるべくたくさん挿入するように設計する。

照射クリープ試験の場合、荷重を付加する機構によってキャプセルの構造が異なってくるが、ここでは、照射前後のひずみ測定から照射クリープ特性を評価する引張型照射クリープ試験について主として説明する。このほか、収縮拘束型あるいは荷重-変位同時計測型などの方法がある。Fig.1は寸法測定用試験片①と引張型クリープ試験片②の寸法、形状を示している。この例では、照射クリープ試験用キャプセルには、引張型試験片がシリーズに7本(断面積: $3.6 \times 3.6 \text{ mm}^2$; 2本, $4.0 \times 4.0 \text{ mm}^2$; 3本, $4.4 \times 4.4 \text{ mm}^2$; 2本)、無負荷試験片が引張試験片の断面平行部の部分に3本で合計21本挿入されている⁵⁾。断面内には4個の無負荷試験片が装荷できるが、1本分の部分には中性子束測定用のフラックス・モニター(後述)が挿入されている。キャプセルの概要をFig.2に示す^{5), 7)}。荷重は上部のペローズを通じてヘリウムの圧力によって一定荷重(18kg)が付加されるようになっている。700℃以上で照射試験を行うため、試験片の周りに巻かれているヒーターと原子炉内のγ線による加熱によって温度を制御するようになっている。これによって500℃～1000℃の照射試験が制御可能である。しかし、キャプセルの軸方向の温度分布は原子炉の軸方向の中性子束の分布を反映してキャプセルの中心部分が高く、上下の端部が低くなるという傾向がある。試験片の温度と中性子照射量の測定評価の例をFig.3に示す⁸⁾。試験片の温度はキャプセルの外筒に取り付けた熱電対の示す温度とあらかじめ原子炉の外筒で測定しておいたキャプセル外筒と試験片との間の温度差を考慮して推定された。照射温度は686～984℃であった。

Fig.1 Geometry of specimens for irradiation tests.

Fig.2 Irradiation creep capsule for tensile type specimens.

5. 照射後試験に際して注意すべきこと

照射試験片は原子炉内の放射線(特に熱中性子)との核反応によって放射化し、放射性物質となっている。高純度の原子炉用黒鉛材料でもわずかのコバルトなどから ^{60}Co などの放射性物質を生じ、 γ 線を放出する。これは人体に影響を及ぼすので、放射化の程度は小さくても通常の実験室で取り扱うことはできない。必ず、放射能を測定し、一定のレベル以上の場合には(原子炉で照射した場合ほとんどそうである)放射性物質取り扱い施設の中で放射線の適当な遮蔽材料を用いてなるべく放射線を浴びないように短時間で実験を終了するように計画することが重要である。また、実験に際しては、放射線取り扱い施設の放射線管理者の指示に従って行動することが必要である。

6. 中性子照射量の測定評価^{6), 9)}

炭素材料を原子炉などの照射装置で一定時間照射した場合、高速中性子を単位面積当たりどれだけ浴びたかということを評価するには、材料の照射位置での高速中性子束を測定することが必要である。高速中性子束は、通常高速中性子と核反応して陽子を放出するような金属材料、例えばニッケル、鉄などが利用される。すなわち、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 、 $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ と

Fig.3 Irradiation temperature and neutron fluence distributions in the capsule. (Capsule No.=83M-2A)

Fig.4 Lattice defects in graphite introduced by radiation.

いう核反応を用いて、放射性核種 ^{58}Co (半減期70.8日)と ^{54}Mn (半減期312.3日)の β^+ 壊変(放出 β 線)を測定し、それぞれの核種の生成量から高速中性子束を推算するものである。中性子束はエネルギーに依存するので、通常実測値に基づく計算されたエネルギー依存性(これを普通エネルギースペクトルという)を用いてエネルギーについて積分された中性子束を求め、それに照射時間を乗じて中性子照射量が得られる。

Fig.2のキャプセルによる照射試験の場合、鉄ワイヤーを中性子束測定用の材料(フラックス・モニターという)として使用し、 $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ 反応によって生じる ^{54}Mn の量から中性子束を求めることにより、中性子照射量を評価している。その結果は $8.90 \times 10^{24} \sim 1.82 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 29 \text{ fJ}^*$)であった。

* fJ =フェムト・ジュール, $1 \text{ fJ} = 10^{-15} \text{ J}$ のこと

7. 寸法の測定

黒鉛材料に対する中性子照射によって黒鉛結晶中に格子欠陥を生じ、その欠陥の種類と形態・数は照射量、照射温度に依存して変化する。その様子をモデル的に示したのがFig.4である¹⁰⁾。結晶中の欠陥による結晶の構造変化によって結晶の形状が変化し、一般にc軸方向に伸びて、a軸方向には縮んでくる。その材料が異方性であれば、単結晶の特性がそのまま外形の変化に現れる。多結晶の場合、結晶子の向きと結晶性のあまりよくないバインダー部分および気孔部分があるために

Fig.5 Dimensional changes of highly oriented pyrolytic graphite (HOPG) irradiated at various temperatures in the range 150-650°C.

ふるまいはそれほど単純でなく、一般に照射の初期にはc軸方向の伸びは気孔部分に吸収されてa軸方向の収縮がバルクの変形に現れる。すなわち、寸法と体積は減少する。照射が進むにつれて最小値を経て寸法と体積は増加し始める。

高度に配向した熱分解黒鉛 (HOPG) のかなり高照射量までの寸法変化の測定例をFig.5に示す¹¹⁾。c軸方向には膨張し、a軸方向には収縮する様子がはっきり示されている。照射温度が低いほど大きな膨張が観察される。多結晶黒鉛材料では高温でもすべての方向に大きな収縮が見られ、体積は照射により減少し、言い換えれば密度が増加することになる。ここで、EDNはEquivalent DIDO Nickel Fluenceの略でDNE、NDEと書くこともある。英国のハーウェル研究所にあるDIDO炉の円筒孔で照射したときの照射量を基準にしているもので、0.18MeV=29fJ以上のエネルギーの中性子照射量との関係は図の下部に記されているとおりで、EDNで測った照射量の約1.6倍が29fJ以上の中性子の照射量に相当するということになる¹²⁾。

照射による寸法変化の測定に用いられる試験片は、測定装置や、試験素材の大きさなどによって異なるが、直径または一辺の長さが5~10mmで長さが25~50mm程度のものがよく用いられる。異方性が認められるような材料の場合、2~3方向から試験片を採取する。1種類の照射条件について5~20個の試験片が使用される。ばらつきを考慮してできるだけ多くの試験片を試験に供するようにしたほうが高精度のデータが得られる。しかし、荷重-変位同時計測型照射クリープ試験の場合、1キャプセルで1本の試験片しか装荷できないのが普通である。

長さの測定は、通常のマイクロメータまたは光学式マイクロメータを用いて中性子照射試験の前後で行われる。例えば、4×4×39mm³の試験片の場合、通常、長さの測定後超音波伝播速度(V, 5MHz程度の振動数の超音波を用いる)と見かけ密度(ρ)を測定し、次式からヤング率(E)を求める。

$$E = \rho V^2$$

超音波伝播速度の測定装置としては、Kraut-Krämer社製の超音波探傷器(USL-32など)、三菱電機(株)製の超音波探傷器(FD-1800)などがある。振動子がついている探触子は直径10mm程度以下のパルスタイプのものを用いたほうがよい。また、振動数は、黒鉛材料では依存性が大きいので、1MHz以上のものを用いる¹³⁾。最終的には、この試験片で4点曲げ試験を実施して廃棄処分にする。あるいは、再照射試験が可能である場合には、この試験片を破壊試験をすることなく再照射し、さらに高照射量における測定を実施することができる。この場合試験片が最初から放射性物質であるので、キャプセルに装荷するのに適当な設備を必要とする。

8. 照射クリープ試験と測定・評価^{7), 8)}

クリープ試験片に対する長さの測定は、Fig.1の全長(80mm)、つかみ部の長さ($L_0=50\text{mm}$)、平行部の長さ($L_{g0}=42\text{mm}$)を照射試験の前後で測定する。

照射後試験は、どのような試験であっても炭素材料では、その放射能の大きさに応じて適切な場所での取り扱いが必要である。もし、高純度の原子炉用黒鉛材料の場合には、不純物が少なく、原子炉で照射した場合でも放射能があまり強くないので、非密封の放射性物質を取り扱うことのできる実験室においてピンセットなどを用いて人体に対する被曝をなるべく少なくするように注意を払いながら上記の測定を未照射材料と同じように行えばよい。

照射クリープひずみと照射クリープ係数は次のように算出する。まず、応力σを照射量Φまで受けた照射クリープ試験片の照射クリープひずみは次式で表されるものと仮定する。

$$\varepsilon_c = \frac{\sigma}{E_0} \{1 - \exp(-b\Phi)\} + K\sigma\Phi \quad (1)$$

ここで、第1項は遷移クリープひずみ、第2項は2次クリープひずみ、 E_0 は照射前の試験片のヤング率、 b は定数、 K は照射クリープ係数である。今、クリープ試験片の平行部のひずみを ε_{gp} (Fig.1の L_{g0} 部のひずみ)寸法測定用試験片(無負荷試験片)のひずみを ε_d とすれば、平行部(L_{g0} 部)について照射クリープひずみ ε_c は

$$\varepsilon_c = \varepsilon_{gp} - \varepsilon_d \quad (2)$$

によって表される。照射クリープ係数 K は(1)式と(2)式から次の式で表される。

$$K = \frac{\varepsilon_{gp} - \varepsilon_d}{\sigma\Phi} - \frac{1}{E_0\Phi} \{1 - \exp(-b\Phi)\} \quad (3)$$

平行部とつかみの間のRの部分も荷重を受けてわずかながらクリープするはずである。この部分のクリープひずみを ε_c' とすれば、

$$\varepsilon_c' = \frac{P}{A(x)E_0} \{1 - \exp(-b\Phi)\} + K \frac{P}{A(x)} \Phi = \varepsilon_p(x) - \varepsilon_d \quad (4)$$

ここで、 P はFig.1の試験片が受ける荷重、 $A(x)$ はFig.1の x における断面積である。つかみの間の長さ L_0 の変化を ΔL_0 とし、平行部とつかみの間の長さを x_0 ($=4.0\text{mm}$)とすれば、 $L_{g0} = L_0 - 2x_0$ となり、次式が成り立つ。

$$\Delta L_0 = L_{g0}\varepsilon_{gp} + 2 \int_0^{x_0} \varepsilon_p(x) dx \quad (5)$$

次に(1)、(2)および(4)式から $K\Phi$ を消去すれば、次式が得られる。

$$\varepsilon_p(x) = \frac{A_0}{A(x)} (\varepsilon_{gp} - \varepsilon_d) + \varepsilon_d \quad (6)$$

ここで、 $A_0 = P/\sigma$ である。(6)式を(5)式に代入して(5)を ε_{gp} について解けば

$$\varepsilon_{gp} = \frac{\Delta L_0 + 2(A_0 I_0 - x_0)\varepsilon_d}{L_{g0} + 2A_0 I_0} \quad (7)$$

となる。ここで、

$$I_0 = \int_0^{x_0} \frac{1}{A(x)} dx \quad (8)$$

である。(7)式を(3)式に代入すれば照射クリープ係数 K は次式で表される。

$$K = \frac{\Delta L_0 + 2(A_0 I_0 - x_0)\varepsilon_d}{\sigma \Phi (L_{g0} + A_0 I_0)} - \frac{\varepsilon_d}{\sigma \Phi} - \frac{1}{E_0 \Phi} \{1 - \exp(-b\Phi)\} \quad (9)$$

ここで、定数 b の値は過去のデータから $0.25 \times 10^{-23} \text{ (n/m}^2, E > 29\text{fJ)}^{-1}$ という値が得られているので、 Φ が 10^{25} n/m^2 ($E > 29\text{fJ}$)程度の場合この指数項は無視できる。そこで、ここでは $1 - \exp(-b\Phi) \approx 1$ として K の値を求めることができる。

ところで、Fig.1の試験片の場合、 I_0 は断面が一辺 a の正方形なので、

$$A(x) = (8 + a - 2\sqrt{16 - x^2})^2 \quad (10)$$

であるから、これを(8)式に代入すれば I_0 の値が得られる。

無負荷試験片および引張型照射クリープ試験片の寸法と無負荷試験片のヤング率の測定例をTable 1に示す。寸法変化 ε_d の平均値は無負荷試験片に対する3個の値の平均値であり、ヤング率 E_0 の平均値も同様である。平行部のひずみ ε_{gp} 、照射クリープひずみ ε_c および(8)式の積分値 I_0 の値の例をTable 2に示す。これらの表の値と(9)式を用いて照射クリープ係数を求めた例がTable 3に示されている。これらの表の値はすべて照射前後における室温での寸法変化から求めた値であるが、実際の高温照射実験中の値は熱膨張係数を考慮して計算すればよい。熱

Table 1 Dimensional changes in unloaded and tensile creep specimens due to neutron irradiation and Young's modulus of unirradiated specimens.

Specimen Number	Neutron Fluence 10^{24} n/m^2 $E > 29\text{fJ}$	Irradiation Temperature $^{\circ}\text{C}$	Applied Stress σ/MPa	Cross-sectional Area A_0/mm^2	Length Before Irradiation L_0/mm	Length After Irradiation L/mm	Dimensional Change $(L-L_0)/L_0$ $=\varepsilon_d/10^{-3}$	Average ε_d $/10^{-2}$	Young's Modulus Before Irradiation E_0/GPa	Average E_0 $/\text{GPa}$
3_2_6	8.90	756	9.05	19.510	49.995	50.196	4.0204	—	—	—
3211			0		40.019	39.998	-0.5248	-0.05747	8.98	8.98
3212			0		40.025	40.003	-0.5497		9.39	
3213			0		40.025	39.999	-0.6496		8.58	
3_1_1	12.3	918	9.03	19.541	50.005	50.252	4.9395	—	—	—
3111			0		40.021	39.997	-0.5997	-0.06996	8.57	8.49
3112			0		40.021	39.986	-0.8745		8.57	
3113			0		40.020	39.995	-0.6247		8.32	
2_3_1	15.4	928	10.9	16.160	50.011	—	—	—	—	—
2311			0		40.013	39.982	-0.7747	-0.10329	9.02	8.96
2312			0		40.014	39.972	-1.0496		8.91	
2313			0		40.018	39.967	-1.2744		8.94	
2_2_1	17.4	964	10.9	16.144	50.013	—	—	—	—	—
2211			0		40.009	39.946	-1.5746	-0.15828	9.53	9.37
2212			0		40.010	39.939	-1.7746		9.53	
2213			0		40.021	39.965	-1.3993		9.06	
2_1_1	18.2	974	11.0	16.104	49.991	50.279	5.7610	—	—	—
2111			0		40.021	39.936	-2.1239	-0.22156	9.47	9.47
2112			0		40.018	39.926	-2.2990		9.32	
2113			0		40.020	39.931	-2.2239		9.62	
1_2_1	17.5	984	13.5	13.065	50.049	50.524	9.4907	—	—	—
1211			0		40.022	39.938	-2.0988	-0.24069	9.73	9.86
1212			0		40.029	39.904	-3.1227		10.24	
1213			0		40.017	39.937	-1.9992		9.60	
1_1_2	15.0	939	13.5	13.057	50.058	50.397	6.7721	—	—	—
1111			0		40.029	39.960	-1.7238	-0.09743	9.75	9.69
1112			0		40.028	39.964	-1.5989		9.62	
1113			0		40.029	40.045	0.3997		9.71	

Table 2 Irradiation creep strain.

Specimen Number	Neutron Fluence 10^{24} n/m^2 $E > 29 \text{ fJ}$	Irradiation Temperature $^{\circ}\text{C}$	Applied Stress σ/MPa	Length with a side a/mm	ΔL_0 /mm	L_0 /mm	Cross-sectional Area A_0/mm^2	I_0 /mm $^{-1}$	$A_0 I_0$ /mm	Corresponding $\varepsilon_0/10^{-2}$	ε_{sp} / 10^{-2}	$\varepsilon_c = \varepsilon_{sp} - \varepsilon_0$ / 10^{-2}
3_2_6	8.90	756	9.05	4.4	0.201	41.995	19.510	0.13005	2.5373	-0.05747	0.43060	0.4881
3_1_1	12.3	918	9.03	4.4	0.247	42.005	19.541	0.13005	2.5413	-0.06996	0.52889	0.5989
2_3_1	15.4	928	10.9	4.0	—	42.011	16.160	0.15288	2.4705	-0.10329	—	—
2_2_1	17.4	964	10.9	4.0	—	42.013	16.144	0.15288	2.4681	-0.15828	—	—
2_1_1	18.2	974	11.0	4.0	0.288	41.991	16.104	0.15288	2.4620	-0.22156	0.62840	0.8500
1_2_1	17.5	984	13.5	3.6	0.475	42.049	13.065	0.18258	2.3854	-0.24069	1.03113	1.2718
1_1_2	15.0	939	13.5	3.6	0.339	42.058	13.057	0.18258	2.3840	-0.09743	0.73068	0.8281

Table 3 Irradiation creep coefficient.

Specimen Number	Neutron Fluence 10^{24} n/m^2 $E > 29 \text{ fJ}$	Irradiation Temperature $^{\circ}\text{C}$	Applied Stress σ/MPa	Young's Modulus E_0/GPa	σ/E_0 / 10^{-2}	ε_c / 10^{-2}	Irradiation Creep Coefficient $K/10^{-29}$ [MPa·n/m 2] $^{-1}$	$E_0 \varepsilon_0 / \sigma$	KE_0 / 10^{-23} m^2
3_2_6	8.90	756	9.05	8.98	0.1008	0.4881	4.81	4.842	43.19
3_1_1	12.3	918	9.03	8.49	0.1064	0.5989	4.43	5.629	37.61
2_3_1	15.4	928	10.9	8.96	0.1217	—	—	—	—
2_2_1	17.4	964	10.9	9.37	0.1163	—	—	—	—
2_1_1	18.2	974	11.0	9.47	0.1162	0.8500	3.67	7.315	34.75
1_2_1	17.5	984	13.5	9.86	0.1369	1.2718	4.80	9.291	47.33
1_1_2	15.0	939	13.5	9.69	0.1393	0.8281	3.40	5.945	32.95

Fig.6 Dimensional changes and creep strain of fine-grained isotropic graphite (IG-110) as a function of neutron fluence.

膨張係数に対する温度と照射効果を考慮しても照射クリープ係数に及ぼす影響は小さいので、ここでは、無視している。

Table 2とTable 3に示されている照射による寸法変化(無負荷試験片) ε_d と照射クリープ試験片の平行部のひずみ ε_{sp} および照射クリープひずみ ε_c を中性子照射量(neutron fluence)の関数としてプロットしたのがFig.6である。試験片が応力を受けていなければ、寸法は照射の進行とともに減少することがわかる。しかし、引張応力を受けている場合、平行部の長

Fig.7 Irradiation creep strain normalized by initial elastic strain (σ/E_0) as a function of neutron fluence.

さは応力の方向に伸びていることがわかる。

次に、(1)式から、照射クリープひずみ(ε_c)を初期弾性ひずみ(σ/E_0)で規格化した無次元の値は

$$E_0 \varepsilon_0 / \sigma = 1 - \exp(-b\Phi) + KE_0 \Phi \quad (11)$$

となる。この関係を図に示したのがFig.7の曲線であり、照射量の大きい部分の直線の勾配は KE_0 に相当し、その値が図中に示されている。ヤング率の平均値を用いると、照射クリープ係数 K の値として $4.20 \times 10^{-29} [\text{MPa} \cdot \text{n/m}^2]^{-1}$ が得られる。多くの他の黒鉛材料について過去得られたデータと比較するとFig.8のようになる。微粒等方性黒鉛材料(IG-110)は平均的な照射クリープ係数を示していることが理解できよう。

以上の実験では、照射中一定の引張り荷重を与えて照射後

Fig.8 Irradiation creep coefficient multiplied by initial Young's modulus as a function of irradiation temperature.

Fig.9 Irradiation creep strain of pitch coke graphite (P3JHAN) as a function of neutron fluence. (DNE=DIDO nickel equivalent fluence.)

試験片を取り出し、無負荷状態で寸法変化を測定し、照射クリープひずみと照射クリープ係数を計算で求める方法をとっている。しかし、荷重を負荷しながら長さの変化を同時に測定している例(荷重—変位同時計測型)もある。その測定例をFig.9に示す¹⁴⁾。この場合、途中で応力を変化させたりして、ひずみの変化の様子が測定されているが、1本の試験片しか装着できないのが特徴である。

照射による内部微細構造の変化として、微細な気孔が照射欠陥によって埋められる可能性が考えられる。そのことを示す例として照射後水銀気孔径分布の測定結果をFig.10にあげておく。ここでは、照射クリープ試験片についても実験しているので、クリープ効果も示されている。いずれも照射により小さな気孔の割合が減少し、負荷によってさらに気孔の割合の減少を加速していることが推測される。

Fig.10 Results of mercury porosimetry of a semi-isotropic graphite (SM1-24) before and after neutron irradiation.

9. おわりに

黒鉛材料の照射損傷効果には、ここで取り上げたもののほかに微細組織と欠陥の直接観察およびここで特性としてあげたが、詳しく述べなかった、熱伝導率、熱膨張係数、機械的強度特性なども重要である。これらは、それぞれの特性測定実験の項で詳述されるはずであり、照射材についても測定は基本的に違いはない。ただし、試験片が放射性物質であるため、放射線の遮蔽体を介して、直接素手で触らず、ピンセットなどで取り扱うなどの注意が必要である。これらの特性に及ぼす照射損傷効果は第3節で述べたように、発生応力の評価や構造物の健全性評価に大きな影響を与えるという意味で重要である。照射による特性変化のデータについては文献^{3), 4)}を参照していただきたい。

文 献

- 1) S. Ishino, Radiation Damage, UP (1979) The University of Tokyo Press Corp. [in Japanese].
- 2) T. Oku, Useful Utilization of Carbon Raw Materials (1983) pp.186-202, CPC Research Group [in Japanese].
- 3) T. Oku, TANSO 1991 [No.150] 338-353 [in Japanese].
- 4) T. Oku, Introduction to Carbon Materials-Revised Edition-, The Carbon Society of Japan (1984) pp.63-74 [in Japanese].
- 5) T. Oku, K. Fujisaki and M. Eto, JAERI-M (1986) 86-120.
- 6) Division of Nuclear Fuel Research, JAERI-M (1979) 8068.
- 7) T. Oku, K. Fujisaki and M. Eto, J. Nucl. Mater. 152 (1988) 225-234.
- 8) T. Oku, M. Eto and S. Ishiyama, J Nucl Mater 172(1990)77-84.
- 9) H. Rottger, A. Tas, P. von der Hardt and W. P. Voorbraak, EUR5700e (1981).
- 10) B. T. Kelly, Carbon 20 (1982) 3.
- 11) B. T. Kelly, Physics of Graphite, Applied Science Publishers, London (1981).
- 12) M. Hasegawa and Y. Mishima, Reactor Material Handbook (1977) p.368 [in Japanese].
- 13) T. Oku, TANSO 1999 [No.188] 143-146 [in Japanese].
- 14) G. Jouquet, M. Masson, R. Schill, G. Kleist, D. F. Leuschacke and H. Schuster, High Temperatures-High Pressures 9 (1977) pp.151-162.