

# 中性子照射による原子炉容器鋼材のミクロ組織変化

## Microstructural Evolution in Reactor Pressure Vessel Steel under Neutron Irradiation

大野 勝巳 (Katsumi Ohno)\* 福谷 耕司 (Koji Fukuya)\*

**要約** 中性子照射脆化は、原子炉容器の主要な経年劣化事象の一つであり、原子力発電所の高経年化に向けて、容器鋼材の照射によるミクロ組織変化の詳細を把握することは重要である。本研究では、中性子束の効果を調べるため、実際の監視試験片および研究炉で照射した原子炉容器用低合金鋼(A533B鋼)の試料を対象に、照射に伴って生じるミクロ組織変化を中性子小角散乱、アトムプローブ等の最新の組織観察技術により調べた。その結果、銅リッチな析出物の生成、粒界への不純物元素の偏析など、脆化因子として考えられている組織変化を確認した。そして、析出物の直径など、得られた定量的データをもとに機械的性質の予測を行い、照射に伴う硬化をほぼ再現することができた。

**キーワード** 原子炉容器, 中性子照射脆化, 低合金鋼, ミクロ組織, 中性子小角散乱, アトムプローブ

**Abstract** Understanding microstructural changes in reactor pressure vessel steels is important in order to evaluate radiation-induced embrittlement, one of the major aging phenomena affecting the extension of plant life. In this study, actual surveillance test specimens and samples of reactor vessel low-alloy steel (A533B steel) irradiated in a research reactor were examined using state-of-the-art techniques to clarify the neutron flux effect on the microstructural changes. These techniques included small angle neutron scattering and atom probes. Microstructural changes which are considered to be the main factors affecting embrittlement, including the production of copper-rich precipitates and the segregation of impurity elements, were confirmed by the results of the study. In addition, the mechanical properties were predicted based on the obtained quantitative data such as the diameters of precipitates. Consequently, the hardening due to irradiation was almost simulated.

**Keywords** Reactor vessel, neutron irradiation, embrittlement, low-alloy steel, microstructure, small angle neutron scattering, atom probe.

## 1. はじめに

軽水型発電炉では、炉心部は原子炉容器内に収納されている。原子炉容器は原子炉の安全上極めて重要であり、交換不可能な1次冷却系圧力バウンダリを形成している。原子炉容器のうち、炉心に比較的近い部分は中性子照射を受けるので、中性子照射効果、とくに脆化について十分対策を講じておく必要がある。

原子炉容器の中性子照射脆化については、1950年代から脆化機構や脆化予測の研究が続けられてきて

おり、脆化の予測法には中性子フルエンスと機械的特性の関係についての多数のデータから求められた予測式が各国で用いられている。一方、近年の材料組織観察手法の発展に伴い、物理的な脆化機構の解明を目的とする研究が進められており、脆化機構に基づいた予測式の検討も進められている。<sup>(1)</sup>

我が国においては、加圧水型炉と沸騰水型炉を通じた原子炉容器鋼材の中性子照射データに基づく予測式<sup>(2)</sup>が日本電気協会の規定(JEAC 4201)として示されているが、これは脆化の機械的特性すなわちマクロの現象に基づいて策定された統計的予測手法

\* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

となっている。しかしながら、原子力発電所の高経年化に向けては、原子炉容器鋼材の照射によるミクロ組織変化を詳細に調べ、機構論の観点から照射による材料挙動を把握することが重要であると考えられる。

低合金鋼の照射脆化は、ミクロには照射により形成される銅リッチな析出物や欠陥クラスター、マイクロポイド等によって生じると考えられている。物理的脆化モデルでよく知られたものに、Fisherらのモデル<sup>(3)</sup>やOdetteのモデル<sup>(4)</sup>があるが、いずれも脆化による降伏強さの上昇はマトリクス損傷によるものと銅リッチな析出物によるものの組合せに起因しているとするものである。また、非硬化型の脆化メカニズムとして結晶粒界へのリンの偏析がある。<sup>(5)</sup>

物理的脆化モデルの開発においては、これらのミクロな内部欠陥の発達を定量的に測定・評価する研究が不可欠である。そのような定量的手法として電界放出銃型走査透過電子顕微鏡 (FEG-STEM)、アトムプローブ (AP)、中性子小角散乱 (SANS) などの測定技術が最近使用できるようになっている。しかしながら、高い照射量での実用鋼を用いた測定例は数少なく、その多くは中性子束の高い研究炉を使ったものである。特に、実際に発電用原子炉で照射された監視試験片を観察した例は見当たらない。

この場合の中性子束はやや低いので、これにより同じ中性子フルエンスでも中性子束の効果が確認できる。

本研究では、PWR原子炉容器で使用されている低合金鋼 (A533B鋼) の高照射量での照射挙動を把握することを目的として、研究炉 (高速中性子束  $5.0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ) と発電用原子炉 (高速中性子束  $7.8 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ) で照射した試料 (最大高速中性子フルエンス  $6.8 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ,  $E > 1 \text{ MeV}$ )

を対象として、FEG-STEM, AP, SANSによりミクロ組織を調べた。この中には中性子フルエンスが約  $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  の使用済監視試験片が含まれている。なお、試料は初期の発電用原子炉で使用されている比較的銅濃度の高い二種類の鋼材を対象とした。

最後に、機構論的脆化予測モデルを開発するための検討として、得られた測定データを用いて照射による硬化の予測を試みた。

## 2. 試験方法

### 2.1 試料と照射条件

本研究で用いた試料は、実機で使用されているA533B鋼であり、未照射材と照射材からなる。試料の照射条件と化学組成を表1に示す。照射試料のうち、A1は実際に発電用原子炉で照射された監視試験片であり、それ以外は米国Michigan大学フォード炉 (FNR) で照射されたものである。中性子束はFNRの方が約2桁大きい。なお、高速中性子フルエンスは、監視試験片については<sup>238</sup>Uドジメータ、FNR照射試料についてはFeドジメータにより測定したものである。

表1 試料とその成分

	試料 ID	照射条件 ( $E > 1 \text{ MeV}$ )		化学組成 (wt.%)							
		中性子束 $\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$	中性子フルエンス $\text{n/cm}^2$	Cu	Ni	P	Si	Mn	Mo	Cr	C
母材 A	未照射	-	-	0.12	0.58	0.014	0.25	1.20	0.54	0.08	0.25
	A1	$7.8 \times 10^{10}$	$3.1 \times 10^{19}$								
	A2	$5.0 \times 10^{12}$	$6.8 \times 10^{19}$								
母材 B	未照射	-	-	0.16	0.55	0.011	0.29	1.45	0.50	0.11	0.17
	B1	$2.3 \times 10^{12}$	$3.3 \times 10^{19}$								
	B2	$5.0 \times 10^{12}$	$5.8 \times 10^{19}$								

(照射温度約 290 )

### 2.2 分析方法

本研究では、照射脆化の要因としての銅リッチ析

出物を定量的に調べるため以下の手法を用いた。これら複数の手法から得られたデータを相互に照らし合わせて分析評価した。マトリクスの元素分析は、FEG-STEMで行った。析出物のサイズはSANSで、析出物成分はAPとFEG-STEMで測定した。また、粒界の元素分析をFEG-STEMとオージェ電子分光分析(AES)で行った。

#### (1) FEG-STEM (電界放出銃型走査透過電子顕微鏡)

薄膜試料に絞った電子ビームを照射し、発生する特性X線スペクトルの分光を行って局所領域の組成分析を行う方法であり、微細析出物やマトリクス、粒界の化学成分情報が得られる。

本研究では、VG社製HB501を使用した。3mmの円板試料を電解研磨し薄膜試料を作製した。分析ビーム径は2nmとした。粒界偏析の分析のため、分析領域の厚さをEELSで測定した。また、測定データ処理には多変数統計データ分析(MSA)を適用した。

#### (2) AP (アトムプローブ)

針状試料の表面から原子を一原子層ずつ電界蒸発させ、それらを検出器でとらえることにより、原子レベルで元素の種類と各原子の空間的分布に関する情報が得られる。

本研究では、電解研磨で針状試料を作製し、英国Oxford大学のOPoSAP(Optical Position Sensitive Atom Probe)によりAP分析を実施した。高温で生じることが知られている銅の選択的な蒸発を防ぐため、分析中は試料温度を60K以下に保った。

#### (3) SANS (中性子小角散乱)

低速中性子ビームを試料に入射し、散乱後の中性子の小角散乱の角分布を測定することにより、照射によって生成される析出物の粒子サイズや成分に関するデータを得ることができる。

本研究でのSANS測定は、フランス・グルノーブルのLaue-Langevin研究所(ILL)の32mSANS装置(D11)を用いて実施した。試料には10×10×2mmの板状試料を用いた。入射中性子の平均波長は0.45nm(4.5 Å)であった。また、測定は各試料ごとに、磁界がある

場合とない場合で実施した。

#### (4) AES (オージェ電子分光分析)

電子ビームを試料に当て、試料から発生するオージェ電子を検出器で捕らえ、元素を同定する。

本研究では、VG社製310-Fを使用した。粒界へのリンの偏析程度を調べるため、作製したミニチュア衝撃試験片(2×2×10mm)をAES真空チャンバ内で-140℃まで冷却し真空中で衝撃破壊させた。この破壊面から粒界破面を選定し、5keVの電子ビームで分析した。

### 3. 試験結果

#### 3.1 マトリクス成分と析出物

##### 3.1.1 マトリクス成分

FEG-STEMで測定したマトリクスの成分分析結果を図1に示す。母材A、Bともマンガン、ニッケルは照射による濃度変化が顕著ではないが、銅は照射により明らかにマトリクス中から減少しているのが分かる。中性子フルエンスとの関連でみると、銅の濃度は、中性子フルエンスが約 $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ で0.1wt.%以下に減少しており、フルエンスが約2倍となっても、銅濃度が照射量の増加とともに減少するような傾向は見受けられない。このことは、ある照射量以上ではマトリクス中の銅濃度がほとんど変化しないことを示唆している。

##### 3.1.2 析出物

###### (1) 析出物の成分

試料A1中のAPによる元素空間分布の測定例を図2に示す。この図の角柱の寸法は10×10×40nmに相当する。

銅原子の分布を見ると、明らかに濃度の高い場所が2か所存在しているのが分かる。それらの直径は約2nmである。マンガン、ニッケル、リンの分布図においても濃度の高い場所の存在が2か所認められ、

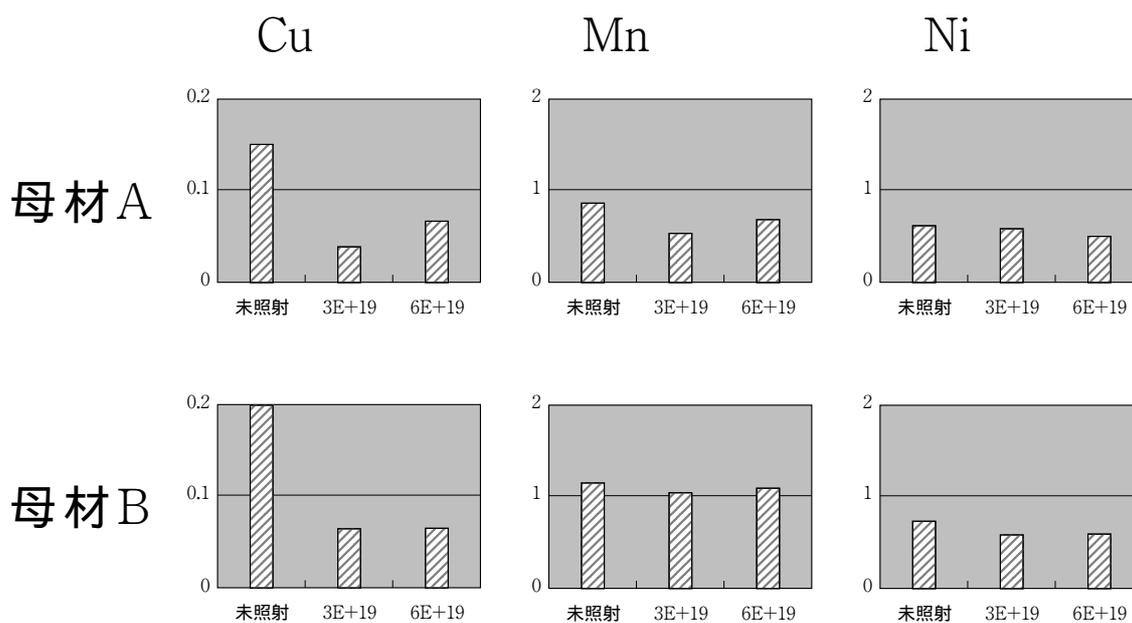


図1 マトリクス中の銅，マンガン，ニッケル濃度の変化（縦軸；濃度wt.% 横軸；中性子フルエンス $n/cm^2$ ）

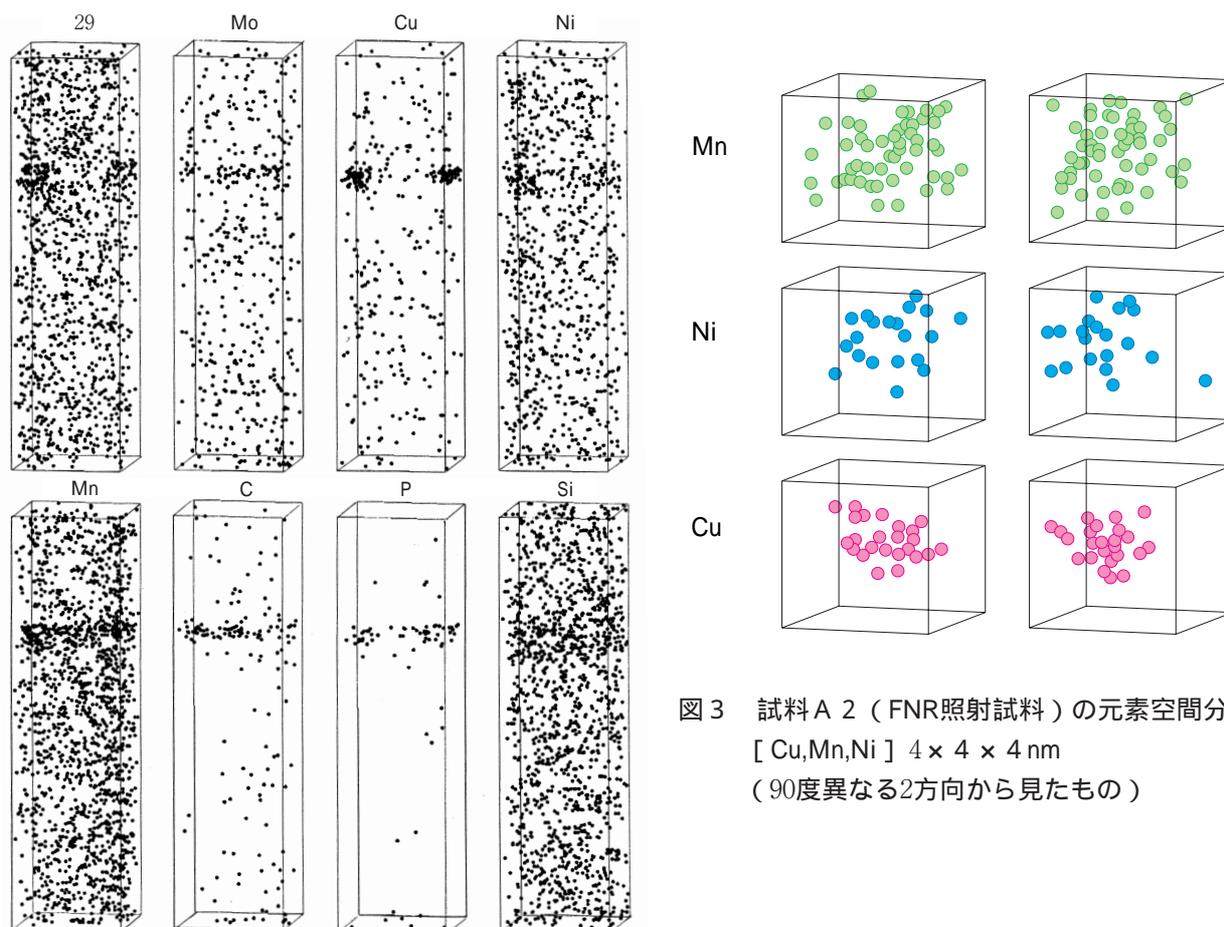


図2 試料A1（監視試験片）中の元素空間分布  
 $10 \times 10 \times 40$ nm

図3 試料A 2（FNR照射試料）の元素空間分布  
[ Cu,Mn,Ni ]  $4 \times 4 \times 4$  nm  
(90度異なる2方向から見たもの)

その位置は銅の場合と一致している．従って，銅，マンガン，ニッケル，リンが集合し析出物となっていると考えられる．また，炭素とモリブデンは，上述の二つの析出物の間に集合しているのがわかる．

試料A2においても，同様に銅リッチな析出物が観察された．図3に析出物中の銅，マンガン，ニッケルの空間分布を90度異なる2方向から見たものを示す．銅が析出物の中心に集まっており，マンガン，ニッケルは，銅より外側まで広がりがあがる．

マトリクス中に観察された析出物の成分を，FEG-STEMとAPで分析した．測定結果を表2に示す．

ここで，APによる測定データは試料当たり二つの析出物中のそれぞれ1.5×1.5×1.5 nmの体積に対するものであり，一方FEG-STEMデータは2nmのピ

ーム径で試料当たり十数個の析出物を測定したものである．このように測定範囲に差があり，データ数も少ないが，四つの照射試料では，いずれの析出物も銅リッチであり成分構成も同様であった．なお，リンについては，APでは検出されていないことから析出物の周辺に存在しているものと考えられる．

(2) 析出物のサイズ分布

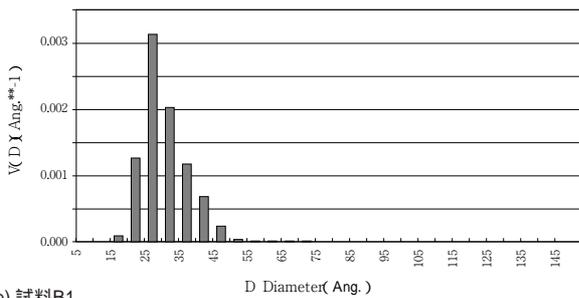
SANSによる照射材試料の析出物サイズ分布を図4に示す．分布を求めるに当たっては，Maximum entropy法を用いた．また，各試料の析出物サイズ分布から計算した析出物の平均直径を表3に示す．母材Aでは，中性子束が小さく照射量も少ないA1のほうが平均直径が大きくなっている．

表2 析出物成分 (主成分である鉄を除いた成分比)

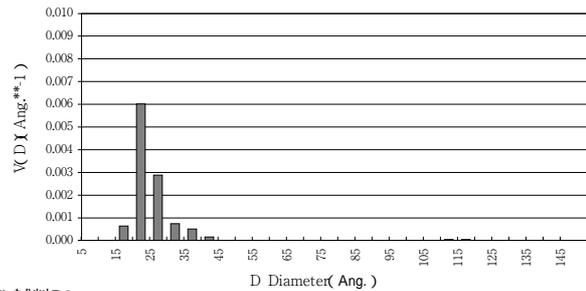
(at.%)

材料	試料 I D	中性子フルエンス n/cm <sup>2</sup>	C u		M n		N i		P	
			STEM	AP	STEM	AP	STEM	AP	STEM	AP
母材 A	A1	3.1 × 10 <sup>19</sup>	36 ± 9	55,48	28 ± 12	28,22	32 ± 13	17,29	4 ± 6	NA
	A2	6.8 × 10 <sup>19</sup>	46 ± 10	48,71	17 ± 12	23,17	24 ± 2	29,13	11 ± 6	NA
母材 B	B1	3.3 × 10 <sup>19</sup>	36 ± 13	52,42	30 ± 12	16,15	28 ± 14	26,27	6 ± 6	0,0
	B2	5.8 × 10 <sup>19</sup>	47 ± 12	54,39	17 ± 15	23,22	24 ± 3	20,26	12 ± 8	0,0

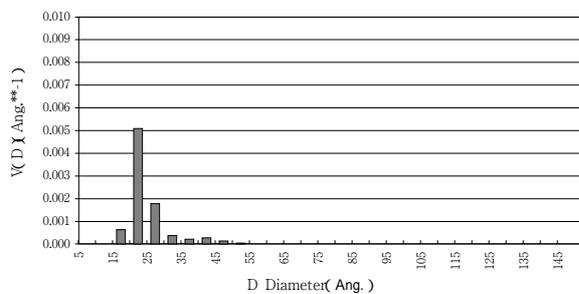
a) 試料A1



c) 試料A2



b) 試料B1



d) 試料B2

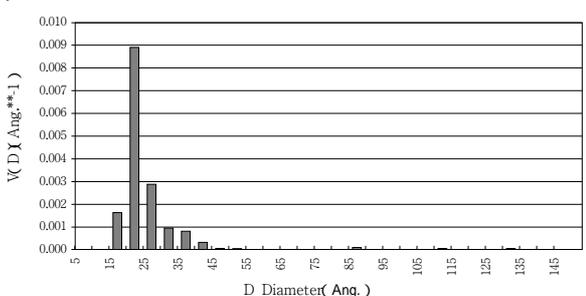


図4 析出物のサイズ分布 (体積割合 VS 析出物直径)

表3 析出物サイズ

材料	試料ID	中性子フルエンス (n/cm <sup>2</sup> )	析出物の平均直径 (nm)
母材 A	A1	3.1 × 10 <sup>19</sup>	2 . 6
	A2	6.8 × 10 <sup>19</sup>	2 . 1
母材 B	B1	3.3 × 10 <sup>19</sup>	2 . 1
	B2	5.8 × 10 <sup>19</sup>	2 . 1

表4 析出物分析結果

試料	平均直径 (nm)	A ratio	析出物成分仮定値 (at%)	析出物の体積割合	析出物の数密度 10 <sup>23</sup> /m <sup>3</sup>	マトリクス中の残留Cu (at%)
A1	2.6	2.87	15Cu7Mn6Ni4Si	0.00381	4.13	0.10
A2	2.1	3.07	11Cu4Mn4Ni1Si	0.0046	9.46	0.11
B1	2.1	3.06	11Cu10Mn11Ni	0.0053	10.84	0.13
B2	2.1	2.71	11Cu10Mn11Ni	0.0064	13.24	0.11

### (3) 析出物の数密度

FEG-STEMやAPの測定結果とSANSで測定したA ratioに基づいて析出物成分を仮定し、FEG-STEMで測定したマトリクス中の残存銅量と矛盾しないよう求めた析出物の体積割合と数密度を表4に示す。

なお、A ratioは、SANSで試料にかけた磁界 (> 1 Tesla) に垂直に測定した散乱断面積と平行に測定した散乱断面積から求められるものであり、中性子が散乱される時の核的散乱と磁氣的散乱の和の核的散乱に対する比で与えられる。これは、析出物の化学組成に対する制約条件を与えることになる。

## 3.2 粒界成分

FEG-STEMにより測定した粒界成分のプロファイルの例を図5に示す。この図では、クロム以外のリン、ニッケル、マンガン、モリブデン、銅の偏析が認められた。全試料の粒界の偏析分析結果を図6に示す。図の縦軸は monolayer coverageで、粒界を一

つの原子面として考え、その原子面に占める各元素の割合を表したものである。この測定では、1試料当たり3点の測定を行った。

リンは低合金鋼中で偏析を生じやすく、粒界脆化を引き起こすことが知られている。図6から、リンの偏析程度は分析した粒界によってバラツキがあるものの、中性子照射量の増加とともに偏析量がわずかに増加する傾向を持つと判断される。なお、一部のデータにmonolayer coverageが非常に高いものがあつたため、このような高い偏析を示す粒界の割合がどの程度あるのかを確認することを目的として粒界破面のAES測定を実施した。測定は、1カ所当たり粒界破面の2 μm × 2 μmの面積について行った。AES測定結果をFEG-STEMデータと併せて図7に示す。データの広がり大きいのが、全体の傾向としてリンの偏析は照射量の増加とともにわずかに増加しているのが分かる。中性子フルエンスの高い試料 (約 6 × 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>) の粒界へのリンの偏析は、高く見積もっても15% monolayer coverage程度であつた。

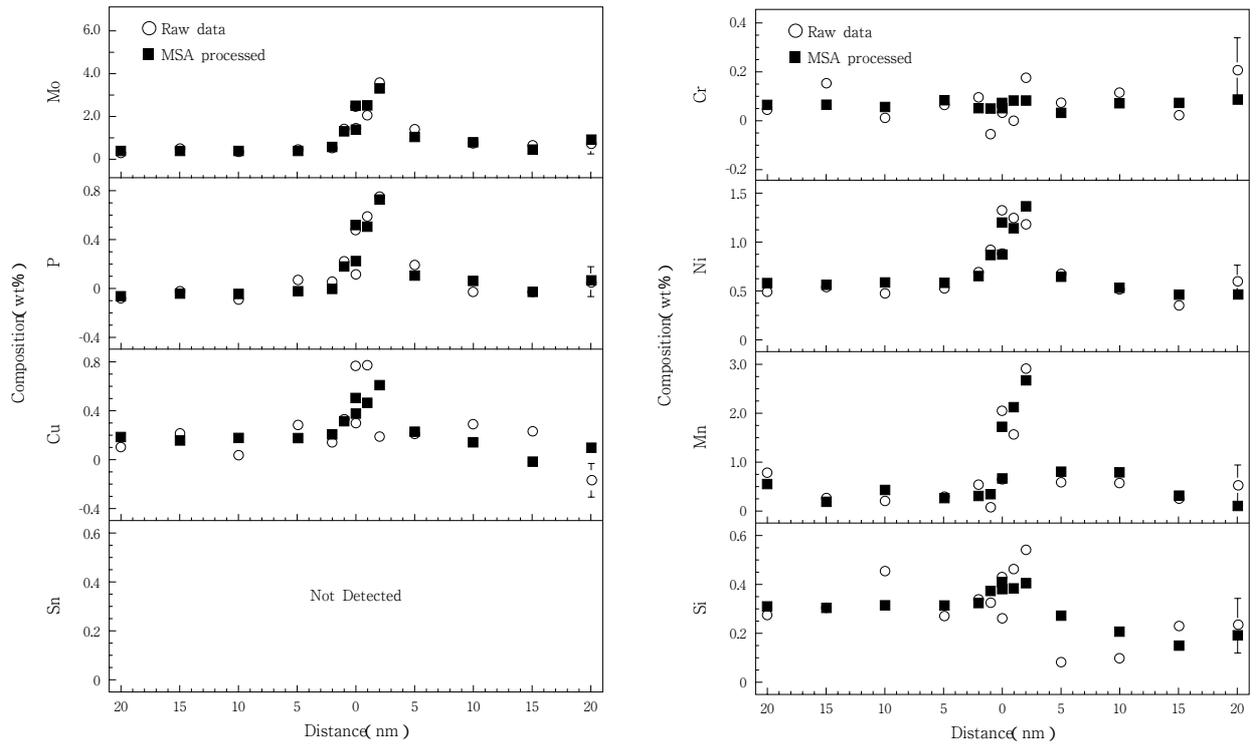


図5 粒界の成分プロファイル ( 試料B 1 )

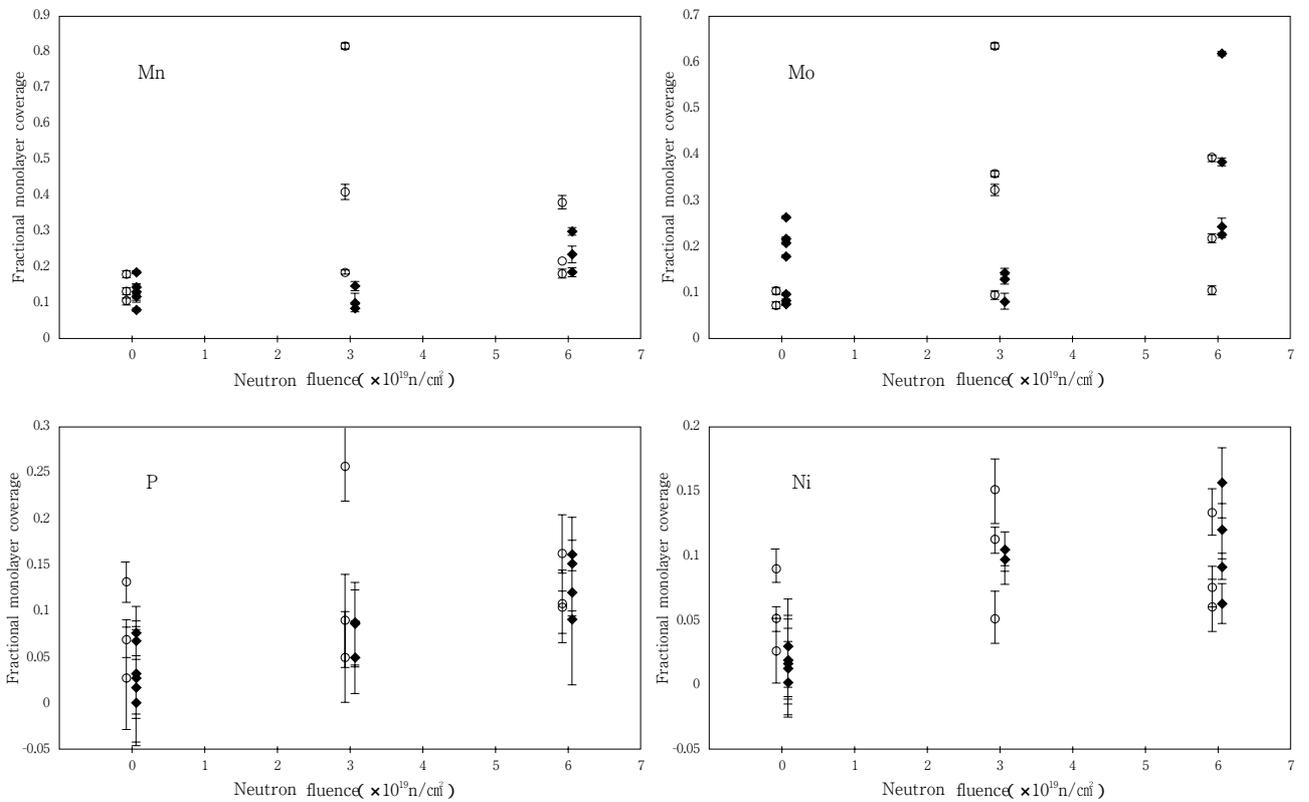


図6 粒界偏析分析結果 ( 偏析量 VS 中性子フルエンス )  
 は母材 A , は母材 B

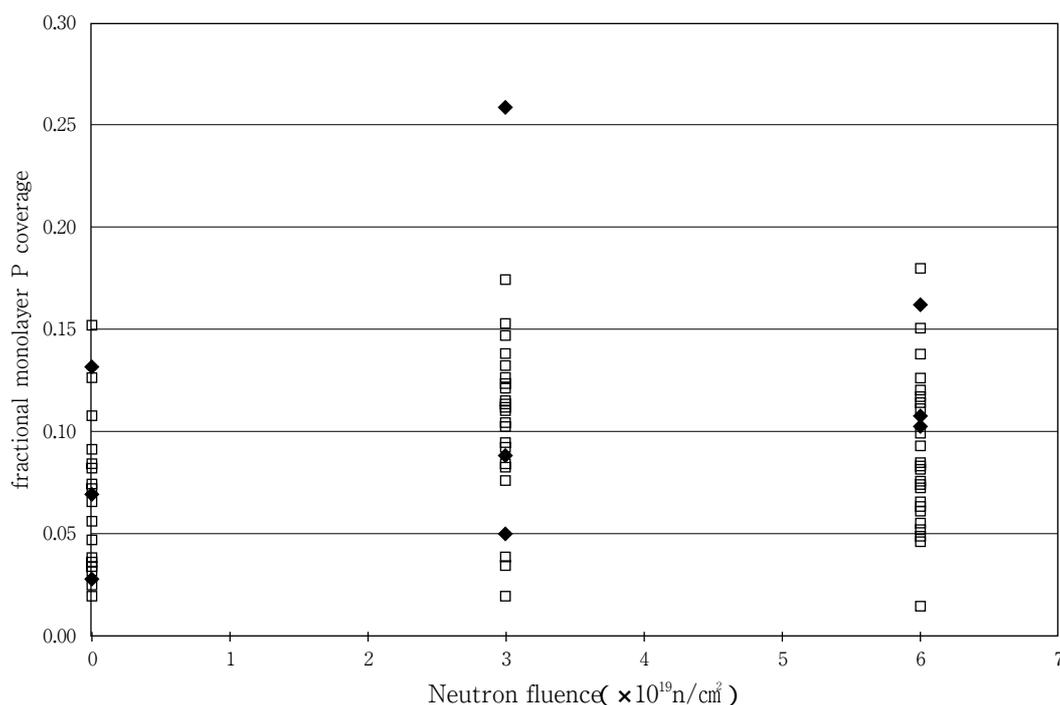


図7 AES,FEG-STEMによるリン偏析量測定結果(母材B)  
 はAESデータ, はFEG-STEMデータ

#### 4. 考察

##### (1) 析出物

析出物のサイズと数密度について、本研究で得たデータに類似したBuswellらの研究<sup>(6)</sup>のデータを加えたものを図8に示す。彼らの研究の試料もA533B鋼であり、成分は本研究の試料とほぼ同一である(Cu;0.14% Ni;0.59% P;0.02% Mn;1.47% Mo;0.55% Si;0.28%)。また、照射は英国PLUTO炉で実施され、中性子束 $3.8 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、温度290で行われているため、本研究の研究炉照射と同様の照射条件と見なした。Buswellらはさらに、SANS, AP, FEG-STEMを本研究とほぼ同じ精度で行っている。

$10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ オーダの中性子束で照射した三つの試料の析出物サイズは、中性子フルエンスにかかわらず平均直径が2.1nmであり、照射とともにサイズが大きくなる傾向は見られない。一方、 $10^{10} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ オーダの中性子束で照射された監視試験片試料の析出物平均直径は2.6nmとやや大きい。この差は中性

子束の差によるものである可能性があり、同一材料、同一照射量で確認していく必要がある。しかし、中性子束に2桁の差があるにもかかわらず、その差は大きくない。なお、図中に示した各試料の析出物の成分値は、APIによる実測値である。

析出物の数密度は中性子フルエンスの増加とともに増えるが、 $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 以上の照射量で飽和している。また、数密度の絶対値は、銅含有量の高い材料(ここでは母材B)の方がその値は大きくなっており、銅含有量が高いほど析出物の生成量が多くなっている。

以上のことから、銅リッチな析出物は、 $10^{19} \text{ n/cm}^2$ 以上の照射量ではそれ以上成長せず、析出物の生成はほぼ終了段階にあるといえる。また、銅含有量は析出物の生成量に影響していることが分かった。

##### (2) 粒界偏析

中性子フルエンスの高い試料(約 $6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ )の粒界へのリンの偏析量(monolayer coverage)は

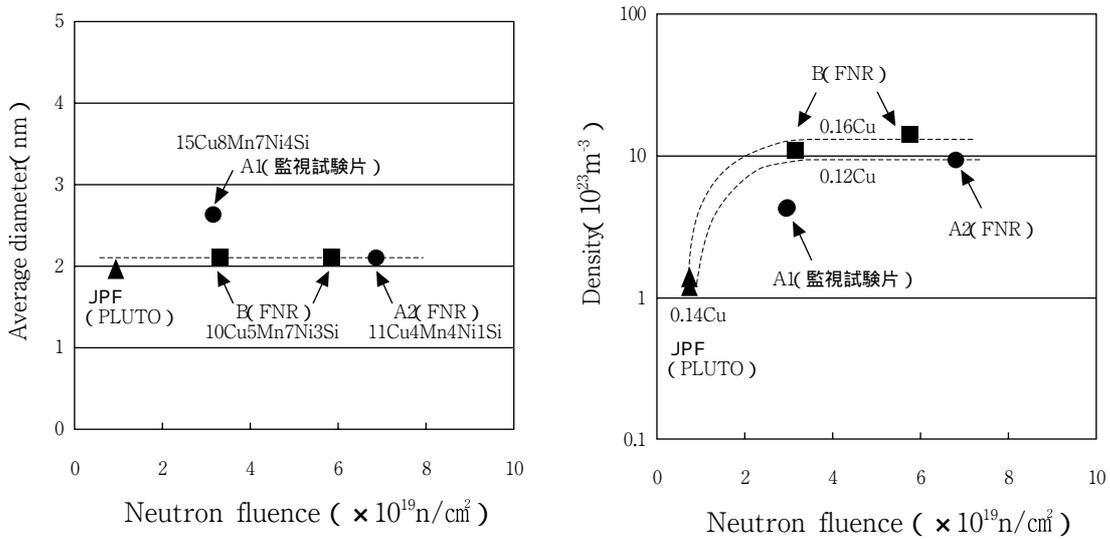


図8 析出物平均直径と数密度のフルエンス依存性は本研究， はBuswell他<sup>(6)</sup>

15%程度であったが、これが問題となる偏析量かどうかは、現在原子炉容器鋼材の粒界脆性破壊に関するデータが殆どないため判断は難しい。しかし、A533B鋼についてリンの偏析量とDBTT（延性 - 脆性遷移温度）の関係を調べたデータがある。<sup>(5)</sup>これを図9に示すが、ここではリンの偏析量15%のときのDBTT（吸収エネルギー；80 J）は、0 程度になっている。原子炉容器鋼材の脆化予測に用いられるDBTTは吸収エネルギーが41 Jとなる温度が用いられることから、41 Jをベースに考えると偏析量15%のときのDBTT（吸収エネルギー；41 J）は、0 よりさらに低い温度になると考えられる。

一方、今回研究に使用した二つの鋼材（母材Aおよび母材B）のDBTT（吸収エネルギー；41 J）は、 $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  のフルエンスで40 を上回る温度となっており、リンの偏析量15%から推定され

るDBTTと大きな差があることから、リンの粒界偏析は生じるもののそのレベルは低く、へき開破壊に先立って粒界脆性破壊を生じさせるほど影響の大きいものではないと考えられる。

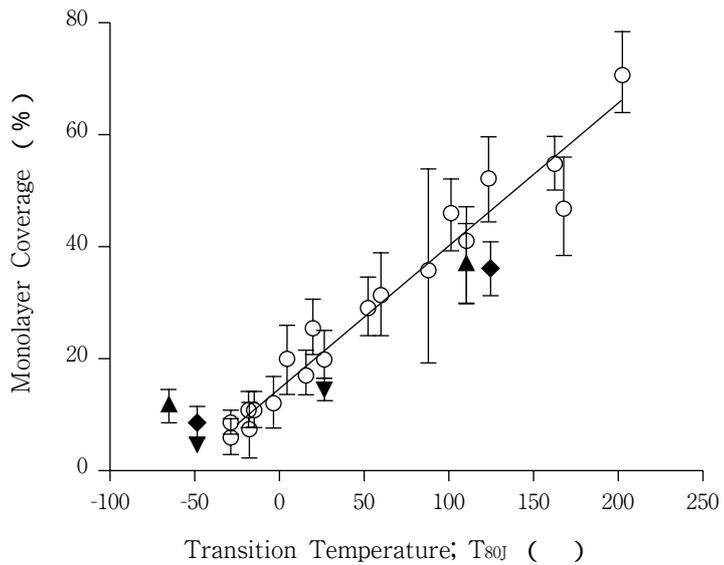


図9 粒界へのリン偏析量とDBTTの関係（McElroy他<sup>(5)</sup>）

以上のことから，以降の脆化予測モデルには，リンの粒界偏析による非硬化型の脆化は組み込まないこととする。

### (3) 硬化の予測

照射脆化の指標である DBTTの機構論的モデル化では，耐力増加量  $\sigma_{ys}$  との比例関係 ( $DBTT = \sigma_{ys}$ ) が用いられている。そこで，得られたミクロ組織データを用いてモデル計算を行い，同一材料の常温の引張試験から得られている耐力増加量についてその予測を試みた。ここでは，硬化には「銅リッチ析出物」と「転位・点欠陥等のマトリクス損傷」の二つの因子が寄与していると仮定した。

#### a. 析出物の寄与

測定で得られた析出物サイズの値と析出物数密度を用い，Russel-Brown式により析出物による寄与分 ( $\sigma_{ppt}$ ) を計算することができる。<sup>(7)</sup>

ここでは，析出物のせん断弾性係数に  $3.4 \sim 3.6 \times 10^{10} \text{Nm}^{-2}$  を，マトリクスのせん断弾性係数に  $4.9 \times 10^{10} \text{Nm}^{-2}$  を用いた。

(Russel-Brown式)

$$\begin{aligned} \sigma_{ppt} &= F_s \cdot \sigma_{ys} \\ &= G b / L (1 - E_1^2 / E_2^2)^{3/4} \\ E_1 / E_2 &= [G_1 \log(r/r_0)] / [G_2 \log(R/r_0)] + \log(R/r) / \log(R/r_0) \end{aligned}$$

$F_s$  : シュミット係数 (= 2.5)

$\sigma_{ys}$  : せん断応力 (MPa)

$E_1$  : 析出物中の転位の単位長さ当たりのエネルギー

$E_2$  : マトリクス中の転位の単位長さ当たりのエネルギー

$G_1$  : 析出物のせん断弾性係数 ( $3.6 \times 10^{10} \text{Nm}^{-2}$ )

$G_2$  : マトリクスのせん断弾性係数 ( $4.9 \times 10^{10} \text{Nm}^{-2}$ )

$b$  : バーガーズベクトル (= 2.5 nm)

$r_0$  : 転位のinner cutoff radius (=  $2.5 \times b$ )

$R$  : 転位のouter cutoff radius (=  $1000 \times r_0$ )

$r$  : 析出物半径 (nm)

$L$  : interparticle spacing (=  $1.77r / V_f^{1/2}$ )

$V_f$  : 析出物の体積割合

#### b. マトリクス損傷の寄与

照射損傷は，マトリクス中に小さな転位ループ，格子間原子のクラスタ，空孔などの形で蓄積する。これらは転位の移動に対する障害物として働き，それらが生み出す硬化には次の関係があることが知られている。<sup>(8)</sup>

$$\sigma_{dam}(t) = A F_T (t)^{1/2}$$

ここで  $F_T = 1.869 - 4.57 \times 10^{-3} T$   
 $T$  ; 照射温度

$A$  は，材料定数で実験によるフィッティングの結果定まるものである。適切な材料データベースから評価すべきであるが，本研究のデータ点数が中性子フルエンスで 2 点しかないため，銅を含まずマトリクス損傷だけで硬化していると考えられる C-Mn 鋼のデータに基づいて  $1 \times 10^{-8}$  を  $A$  値として用いた。

#### c. 機械的特性の予測値と測定値との比較

上述した二つの寄与は，硬化モデルを検討するうえで適切に組み合わせる必要がある。ここでは二つの硬化因子を線形加算する場合と相乗平均をとる場合の 2 ケースで計算し，試料の機械的特性データ (測定値) と比較した。

各々の予測値 (計算値) および測定値を表 5 に，これらをプロットしたものを図 10 に示す。図 10 に示されるとおり相乗平均の方が測定値に近い結果となった。

実測の析出物データを用いて Russel-Brown モデルで計算した  $\sigma_{ppt}$  は， $3 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$  の中性子フルエンスでは  $\sigma_{ys}$  と同等以上となっているが， $6 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$  でも  $\sigma_{ppt}$  はそれほど大きくなるしない。

しかし、 $6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$  のフルエンスでは  $\sigma_{ys} > \sigma_{ppt}$  ことができる。一方、マトリクス損傷による硬化は、となり、マトリクス損傷の寄与が表れているとみる 純鉄などで知られるように、銅の有無にかかわらず

表5 降伏強さ上昇予測値と測定値との比較 (MPa)

試料	中性子フルエンス ( $\text{n/cm}^2$ )	$\sigma_{ppt}$	$\sigma_{dam}$	予測値		測定値 $\sigma_{ys}$
				線形和 +	相乗平均 $(\sigma_{ppt}^2 + \sigma_{dam}^2)^{1/2}$	
母材	未照射	0	0	0	0	0
A	A1	$3.1 \times 10^{19}$	94	29	123	93
	A2	$6.8 \times 10^{19}$	99	43	142	-
母材	未照射	0	0	0	0	0
B	B1	$3.3 \times 10^{19}$	107	31	138	91
	B2	$5.8 \times 10^{19}$	117	42	159	131

$\sigma_{ppt}$  ; 析出物の寄与  
 $\sigma_{dam}$  ; マトリクス損傷の寄与

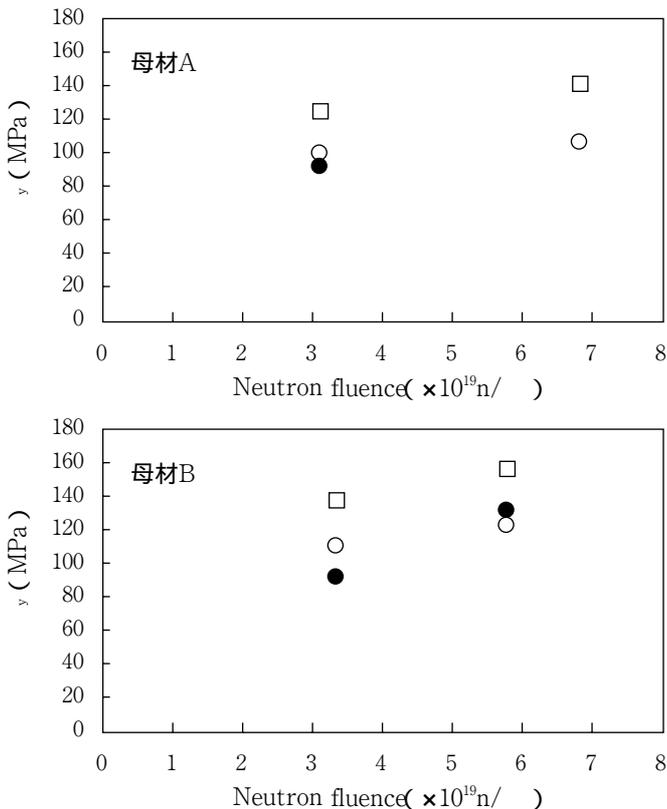


図10 硬化因子の重ね合わせ試算値と測定値  
 測定値, 線形和, 相乗平均

低い照射量から現われる。よって、このような  $\sigma_{ys}$  への寄与を適切に表すには、相乗平均を用いるのが適していると考えられる。(9)

ただし、以上の硬化予測モデルを確度の高いものにしていくには次のような課題がある。

- (1) 研究に用いた試料のうち、発電用原子炉で照射した試料は1点のみであり、中性子束の影響をみるためのさらなるデータの取得が望まれる。
- (2) マトリクス損傷について、今回経験式を用いたが、損傷の実体を実験的に解明し、銅析出物と同様な硬化モデルを開発することが望まれる。
- (3) データ点数が不十分である。他機関の取得データも含め、広範囲なデータの比較検証が望まれる。
- (4) 照射量の指標として、今回は高速中性子フルエンスを用いたが、はじき出し損傷量 (dpa) による評価の有効性を確認することが望まれる。

#### 4. まとめ

原子炉容器で使用されている低合金鋼A533B鋼の未照射材と照射材のミクロ分析を行い以下の知見を得た。

- ( 1 ) 照射材には、平均直径が約2nmの銅リッチな析出物が確認された。この析出物は、高速中性子フルエンスが $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ から $6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ に増加してもほとんど成長しない。また、数密度は $3 \sim 6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ のフルエンスではほぼ飽和する傾向にある。以上のことから、実用鋼の銅リッチな析出物は、 $3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 以上の高速中性子フルエンスではほぼ定常状態になっていると考えられる。
- ( 2 ) 銅含有量が大きい場合には、銅リッチな析出物の密度が高い。
- ( 3 ) 中性子束の低い監視試験片では、銅リッチな析出物の直径がわずかに大きく、密度が低い傾向が認められた。
- ( 4 ) 中性子フルエンスの増加とともに粒界へのリンの偏析量が増加している。フルエンスが $6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ のときのmonolayer coverageは15%程度であり、粒界脆性破壊を生じさせるレベルには至っていないと考えられる。
- ( 5 ) 測定結果を用いた析出物による硬化分と、文献式を用いたマトリクス損傷による硬化分を用いて耐力増加量を予測してみた。測定値と比較すると、それぞれの硬化分を相乗平均するのが適している。

以上のように、試料の数が少なく、そのため中性子フルエンスや中性子束のパラメータも限定されたが、実機鋼材の貴重なミクロ組織データを得ることができた。また、それをもとにして機械的特性を機構論的に予測する手がかりが得られた。

#### 文献

- ( 1 ) E.D.Eason, J.E.Wright and G.R.Odette, "Improved Embrittlement Correlations for Reactor Pressure Vessel Steels", NUREG/CR-6551, ( 1998 ).
- ( 2 ) 電気技術規程 JEAC 4201「原子炉構造材の監視試験方法」
- ( 3 ) S.B.Fisher, J.E.Harbottle and N.Aldridge, "Radiation Hardening in Magnox Pressure Vessel Steels", Trans.R.Soc.Lond, Vol.A315, 301-332 ( 1985 ).
- ( 4 ) G.R.Odette, "The Effect of Flux on the Irradiation Hardening of Pressure Vessel Steels", Effects of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM STP 1175, ( 1993 ).
- ( 5 ) R.J.McElroy, C.A.English, A.J.Foreman, G.Gage, J.M.Hyde, P.H.N.Ray and I.A.Vatter, "Temper Embrittlement, Irradiation Induced Phosphorus Segregation and Implication for Post-Irradiation Annealing of Pressure Vessels", Effects of Radiation on Materials:18th International Symposium, ASTM STP 1325, 296-316 ( 1999 ).
- ( 6 ) J.T.Buswell, W.J.Phythian, R.J.McElroy, S.Dumbill, P.H.N.Ray, J.Mace, R.N.Sinclair, "Irradiation-induced microstructural changes, and hardening mechanisms, in model PWR reactor pressure vessel steels", Journal of Nuclear Materials 225, 196-214 ( 1995 ).
- ( 7 ) K.C.Russel and L.M.Brown, "A Dispersion Strengthening Model Based on Differing Elastic Moduli Applied to the Iron-Copper System", Acta Metallurgica, vol.20, ( 1972 ).
- ( 8 ) J.T.Buswell and R.B.Jones, "The Modeling of Radiation Hardening and Embrittlement in Magnox Mild Steel Submerged-Arc Welds", Effect of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM STP 1175, 424-443 ( 1993 ).
- ( 9 ) G.E.Lucas, "The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels", Journal of Nuclear Materials 206, 287-305( 1993 ).