

論文

ハステロイ-X の高温における中性子照射脆化

渡辺 勝利*・小川 豊*²・近藤 達男*²Neutron Irradiation-Induced Embrittlement in Hastelloy-X
at Elevated Temperatures

Katsutoshi WATANABE, Yutaka OGAWA, and Tatsuo KONDO

Synopsis :

Ductility loss of neutron-irradiated Hastelloy-X at elevated temperatures has been examined by post irradiation tensile test. The results were analysed as a function of test temperature, strain rate, thermal neutron fluence and the associated helium content. The contribution of helium production due to the $^{58}\text{Ni}(n, \gamma)^{59}\text{Ni}(n, \alpha)^{56}\text{Fe}$ reaction in addition to the $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ reaction was considered.

The results obtained are summarized as follows :

- (1) The post irradiation ductility decreased with strain rate decrease and test temperature increase up to 1 000°C.
- (2) As for the helium embrittlement attributed to (n, α) -reaction, the $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ reaction was dominant at lower fluences, and Ni-two step reaction became predominant with fluence increase.
- (3) Extrapolations of the results of irradiation at low temperature gave the ductility values of about 3.5% at 900°C and about 1.5% at 1 000°C for the thermal neutron fluence of 10^{22}n/cm^2 .
- (4) The threshold thermal neutron fluences for embrittlement were estimated as $6 \times 10^{16}\text{n/cm}^2$ at 900°C and $2 \times 10^{16}\text{n/cm}^2$ at 1 000°C, corresponding to the calculated atomic helium fractions of 9.4×10^{-10} and 3.2×10^{-10} , respectively.

1. 緒 言

金属材料が中性子照射によつて受ける損傷には大別して、ノックオン効果による原子変位損傷と核変換効果によつて材料中に新たに作られる He などの生成元素の介在によつてもたらされるものがある。照射損傷の研究の多くは原子変位損傷に集中しているのに対し、核変換効果の方は問題がとくに高温変形時の破壊挙動の変化などに限られるためか比較的研究が少ない。高温原子炉の構造材料の長期の健全性を検討するにはクリープや低サイクル疲労などの特性が重要であり、それらは一般に変形速度のきわめて低い荷重条件下におかれるために、歪み速度依存の大きい核変換生成物による脆性に大きく支配される。

現在、我が国や西ドイツなどで開発中の高温ガス炉 (HTGR) の構造材料には Ni 基耐熱合金が起用される傾向にある。炉心制御材のように照射環境下で用いられる材料は 600~900°C の高温下におかれることが想定され、これらの場合、熱中性子にもとづく核変換作用によつて合金中に生じる He による脆性が問題となる¹⁾。

Ni 基耐熱合金やステンレス鋼中には通常不純物として 3~10 ppm 程度の B が含まれる。B には ^{10}B と ^{11}B の同位元素があり、このうち存在比 18.8% の ^{10}B は熱中性子と 3 838 barn (1 barn = 10^{-24}cm^2) という大きな核変換反応の断面積をもち、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ の核変換反応により He を発生する。例えば、高温ガス炉に最もよく適合するとされる Ni 基の AMS-code No. 4112 (ハステロイ-X) またはナイモニック PE-16 相当では 10^{19}n/cm^2 の熱中性子照射で、 10^{-7} 原子分率 (以下での He 量についてはすべて原子分率で表すものとする) 程度の He を生じる。この程度の He は温度が低い場合には材料に与える影響が少ないが、物質移動の活発となる高温域では変形時に結晶粒界割れを助長する。これによつて起こる延性低下は高温になるほど顕著になることが知られている²⁾³⁾。

本研究は中性子照射した通常ハステロイ-X および B 量を低減した同種材料[†] について、高温における機械的性質、とくに延性の低下について試験温度、歪み速度

† 別に He 中耐食性を改良したハステロイ-XR と称する改良材を開発したが、本材料はその改良過程で作製した実験合金である。

昭和 56 年 4 月本会講演大会にて発表 昭和 56 年 6 月 1 日受付 (Received June 1, 1981)

* 日本原子力研究所東海研究所 (Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, 2-4 Aza-Shirane, Shirakata, Tokaimura Naka-gun 319-11)

** 日本原子力研究所東海研究所 工博 (Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute)

Table 1. Chemical composition of specimens.

Chemical Compositions of Specimens (w/o), B;ppm

	C	Mn	Si	P	S	Cr	Co	Mo	W	Fe	Al	Ti	Ni	N	B
Hastelloy-X	0.06	0.60	0.43	0.007	0.005	21.49	0.98	8.82	0.53	18.03	0.41	0.03	Bal.	0.027	3.8
Hastelloy-LB*	0.08	0.65	0.03	0.005	0.005	21.98	0.05	8.81	0.54	18.35	0.02	0.02	Bal.	0.005	1.1

* An experimental heat of Hastelloy-X with low boron content

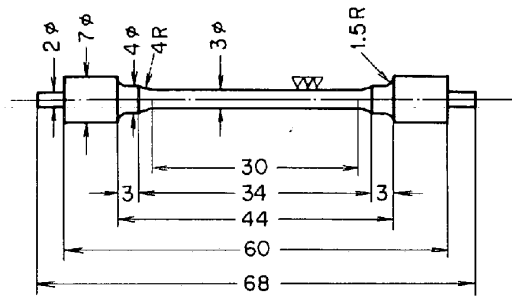


Fig. 1. Geometry of specimen.

および熱中性子照射量依存性を調べたものである。これまで熱中性子照射にもとづく高温脆化については、材料中のBの核変換を主要因子として脆化挙動を検討したものが多かったが⁴⁾、本研究ではこの反応に加えて比較的近年になつて発見された照射量が高くなるにしたがつて寄与の著しくなるNi 2段反応によるHe生成^{5)~7)}を考慮に入れて脆化との関係を検討した。さらに、一連の結果から照射による延性低下のしきい照射量の推定および高照射量域における延性の外挿値についても検討を行った。

2. 実験方法

2.1 材料および試験片

用いた材料は化学組成を Table 1 に示す二種とし、いずれも熱間鍛造による直径 12 mm の丸棒を 1 180°C、30 min 保持後水冷の溶体化状態で用いた。比較される標準材のハステロイ-X に対して低硼素材は一般の市販材の平均値に比べて 1/3~1/10 程度の B を含む材料である。これらの材料の溶体化処理後の結晶粒度は前者が ASTM, No. 4, 後者が ASTM, No. 5 である。引張用試験片はキャプセル照射を行う関係から Fig. 1 に示すような小型のもので平行部は 3φ×30 mm とした。なお、試験片のつかみ部における凸部は高温での照射を行う場合のやき付防止のためのものである。したがつて、低温における照射の場合には当然この部分は不要である。

Table 2. Irradiation condition of specimens.

Irradiation Condition

REACTOR	IRRADIATION POSITION	THERMAL NEUTRON DOSE (n/cm ²)	TEMPERATURE (°C)
JMTR	L-13	2.7×10 ¹⁷	< 300
JMTR	L-13	2.2×10 ¹⁸	< 300
JRR-2	VT-9	2.4×10 ¹⁹	60
JRR-2	VT-1	4.3×10 ²⁰	60
JMTR	K-11	2.0×10 ²¹	50
JRR-2	VT-1	2.7×10 ¹⁷	900
JRR-2	VT-1	6.0×10 ¹⁹	820, 940
JMTR	K-11	2.0×10 ²¹	1000

2.2 中性子照射

中性子照射はいくつかの異なる積算照射量を与えるために濃縮ウラン重水型の研究用 2 号炉 (JRR-2) および濃縮ウラン軽水型の材料試験炉 (JMTR) を用いて行つた。Table 2 に照射条件を示す。熱中性子照射量は 2.7×10¹⁷ n/cm² から 2.0×10²¹ n/cm² までの範囲で数段階をとつた。照射キャプセルは開放型キャプセル、水力ラビットおよび高温計測制御型キャプセルとを用いた。したがつて、結果的には照射温度が 300°C 未満のもの (低温照射と称する) および 820°C 以上のもの (高温照射と称する) との二種の試験片群に分けることができる。引張試験は 700~1000°C の高温で行つたので、実質的に低温照射では照射温度の若干の変動は無視できるのに対し、高温照射では照射中の固体内反応を考慮して照射温度を重視した。なお、先に述べたように本研究には大別して三種類のキャプセル照射法⁸⁾を併用している。それぞれの特色は次のように要約される。

(1) 開放型キャプセル照射法

原子炉冷却水による試料の直接冷却を行うもので、このため試料温度は 50~60°C となる。

(2) 水力ラビット照射法

密封型キャプセルの一種であるラビットに試料を封入して、これを水流力を利用して炉心に挿入および取り出しを行うものである。したがつて、(1)項の場合の照射法と比べて温度はある程度上昇するが、比較的短時間の照射ができる利点がある。

(3) 高温計測制御型キャプセル照射法

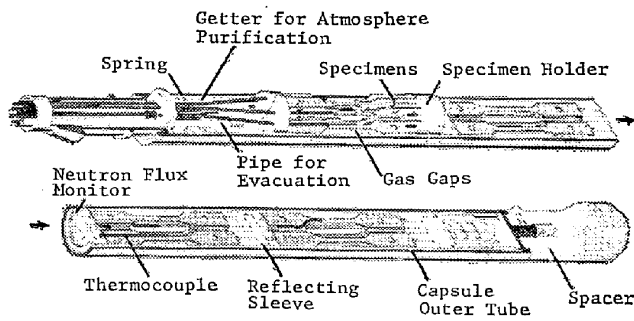


Photo. 1. High temperature irradiation capsule.

高温化の達成のためには核反応にもとづく γ 加熱^{†2}によるが、試料とキャプセル外筒間に封入されたHeガス層の圧力を変えることによつて試料の温度制御を行うものである。また、中性子束が低い場合には γ 加熱が余り期待できないのでヒータ加熱を補助的に用いるが、これは試料周囲に配置したヒータの出力調節によつて試料温度を制御するものである。

これらの代表例として、Photo. 1にJMTRを用いた場合の高温照射キャプセルを例示する。本キャプセルは板状試料の照射に用いたものであるが、棒状試料の場合も全く同様である。

2.3 照射後試験

引張試験条件は試験温度 700~1000°C において歪み速度 0.17%/min, 0.67%/min および 33.3%/min を歪み速度依存性の検討のために用いたが、基本的な歪み速度としては 0.67%/min を用いた。また、引張試験時の真空度は $(1\sim4) \times 10^{-6}$ torr とした。

本研究においてはHe生成による破壊の歪み速度感受性が著しく高まり、しかも低速度変形下で起こる現象であることを考慮してJISなどで規定された二段の歪み速度変換は行わず終始同一速度で試験を行つた。また、伸びの測定は遠隔操作上の制約からブルロード変位を示す記録チャート上の荷重-変位曲線から応力-伸び曲線を求めたが、これにはJIS標準型試験片による標点間伸びとの対応を予め非照射材で求め、補正を加える方法をとつた⁹⁾。

3. 実験結果

3.1 高温における機械的性質の試験温度依存性および歪み速度依存性

(1) 試験温度依存性

Fig. 2 に高温照射したハステロイ-X の破断伸びと試験温度との関係を示す。照射により延性が著しく低下していることが明らかである。しかも、非照射コントロ

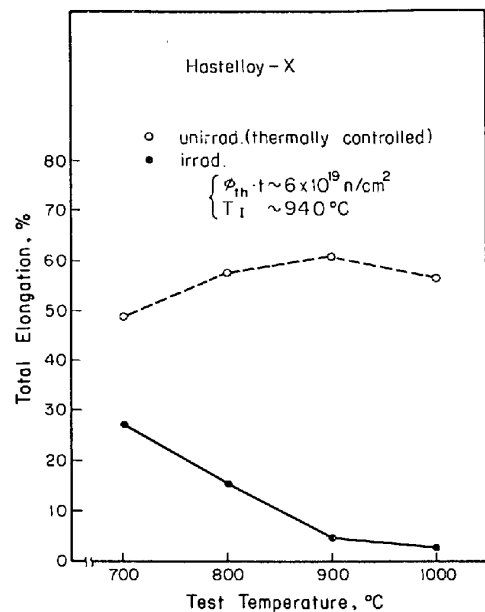


Fig. 2. Total elongation versus test temperature for unirradiated and irradiated Hastelloy-X.

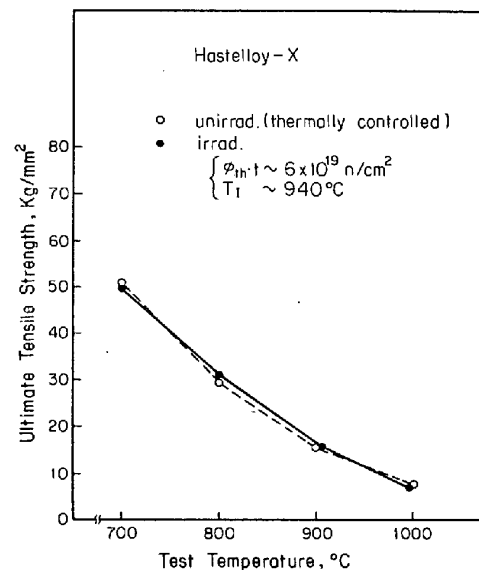


Fig. 3. Ultimate tensile strength versus test temperature for unirradiated and irradiated Hastelloy-X.

ール材 (照射材が受けたと同じ熱履歴を与えたもの) は、800~900°C において破断伸びが増加するのに対して、照射材ではこれとは対照的に試験温度の上昇とともに減少する。Fig. 3 に引張強さと試験温度との関係を示す。非照射材および照射材のいずれも試験温度の上昇とともに引張強さは減少する。非照射材に比べて照射材の破断伸びの著しい低下とは対照的に、照射による引張強さの変化はいずれの温度域でもほとんど認められない。

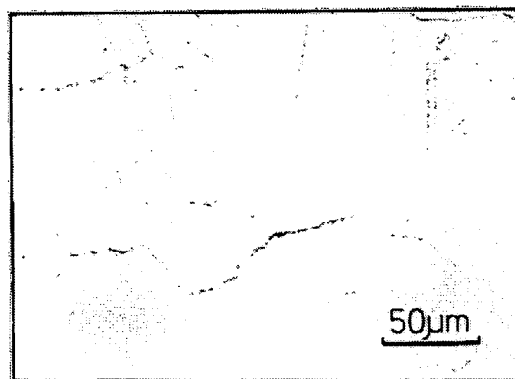
Photo. 2 に照射材の引張破断後の破断部および均一伸び部の顕微鏡による観察結果を示す。これより明らかなよ

^{†2} 中性子と原子核反応により生成した γ 線が、物質との相互作用によつてそのエネルギーが吸収される結果、物質が加熱されること。

Hastelloy - X



Fractured Region
Irradiation Condition
Thermal Neutron Does $6 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$
Temperature 940°C



Uniform Elongation Region
Test Condition
Temperature 900°C
Strain Rate $0.67\%/ \text{min}$

Photo. 2. Microstructures of irradiated Hastelloy-X after tensile testing.

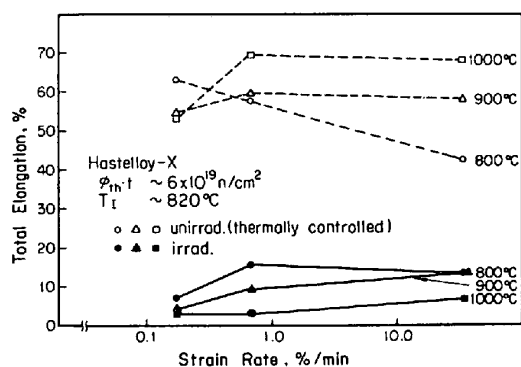


Fig. 4. Total elongation versus strain rate for unirradiated and irradiated Hastelloy-X.

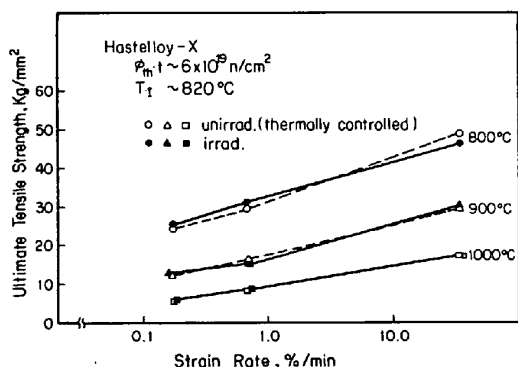


Fig. 5. Ultimate tensile strength versus strain rate for unirradiated and irradiated Hastelloy-X.

うに、結晶粒界において多数の割れが認められる。また、均一伸び部において注目されることは結晶粒自体の変形がほとんど認められないことである。結局、顕著な粒界型破壊が延性低下の原因であるとともに、わずかに認められる伸びもその大部分が均一変形によるものではなく、早発き裂の開口に伴って起こったものと推定される。

(2) 歪み速度依存性

Fig. 4 に高温照射したハステロイ-Xの破断伸びと歪み速度との関係を示す。照射材に注目すると、おおまかには歪み速度の減少により破断伸びが低下する傾向にあり、照射効果は低歪み速度ほど著しくなることがわかる。Fig. 5 に同じく引張強さと歪み速度との関係を示す。歪み速度の減少とともに引張強さは一様に低下し、その傾向は各試験温度において著しいが、照射の有無による差異はない。結局、照射材の特色は低歪み速度下で延性の低下が著しく、したがって照射効果を的確に観測するには、高温低歪み速度引張が適しているといえるが、試験時間の能率を考慮するならば、 $0.67\%/ \text{min}$ 程度が実用的であると判断される。

3.2 高温延性におよぼす熱中性子照射量の影響

(1) 高温延性と照射温度

Fig. 6 に低温照射したハステロイ-Xの破断伸びと熱中性子照射量との関係を両対数プロットで示す。 900°C における破断伸びは照射量の増加とともに直線的な低下を示す。 1000°C における場合も同様の傾向を示すが、照射量の増加に対する延性低下の割合は 900°C の場合のそれと比べて若干大きい。次に照射時の温度が照射後試験温度と近い高温照射と低温照射後高温引張を行った場合とを比べてみる。Fig. 7 に高温照射および低温照射したハステロイ-Xの 900°C における破断伸びと熱中性子照射量との関係を示す。低温照射の結果に比べて高温照射のそれでは 10^{17} n/cm^2 程度の低照射量では破断伸びの差はあまり見られないが、高照射量になると差が大きくなる。これから少なくとも高温照射の方が延性低下が著しく、しかも照射量の積算が延性低下に効く割合が大きくなる傾向があると考えられる。この場合、高

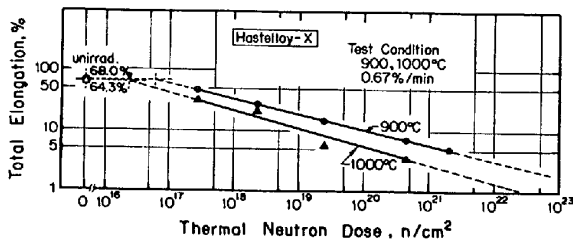


Fig. 6. Effect of thermal neutron dose on the total elongation of Hastelloy-X at test temperature of 900 and 1000°C.

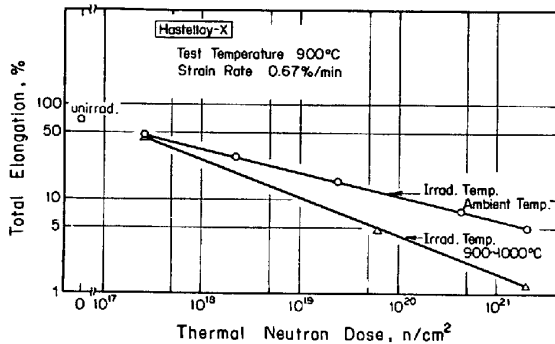


Fig. 7. Total elongation versus thermal neutron dose for Hastelloy-X at different irradiation temperatures.

温照射では積算照射量が高いことは高温下に保持される時間も長いことを考慮に入れなければならない。

(2) 合金中のB含有量の影響

Fig. 8 にB含有量の異なる二つの材料、すなわち標準材としてのハステロイ-X と低硼素材の両者について破断伸びと熱中性子照射量との関係を示す。照射量 $2.4 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ではハステロイ-X の破断伸びに比べて低硼素材のそれはかなり大きい。このことはこの照射量域ではBの低減が脆化の軽減に有効であることを実証している。照射量が $4.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ では両者とも破断伸びはほぼ同じとなる。すなわち、Bを低減した効果は見られなくなる。

4. 考 察

4.1 高温の機械的性質におよぼす試験温度の影響

一般にハステロイ合金などオーステナイト系材料の延性はこれを試験温度の関数としてみると中間温度において延性の極小値を示すことが多い¹⁰⁾¹¹⁾。ハステロイ-Xでのそれは歪み速度によっても異なるが、おおむね700°C近傍において観測される¹²⁾。非照射材がこのような挙動を示すのに対して、照射材ではこれと対照的にこの谷より高温側では延性の上昇はなく試験温度の増加とともに延性が低下する。このことは観測された延性低下が上記の谷よりも高温側の変形機構と密接にかかわりあっていることを示すものと考えられる。

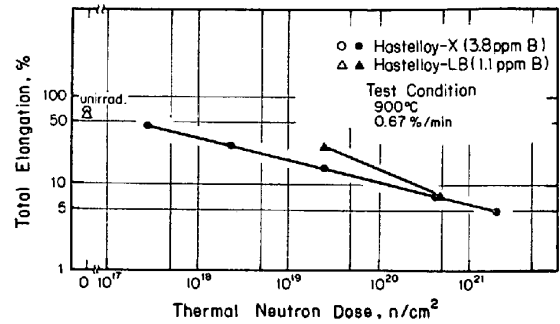


Fig. 8. Effect of thermal neutron dose on the total elongation of Hastelloy-X and Hastelloy-LB.

照射により生じたHeは金属組織中に分散介在する形となるが、溶解度は極めて低く、また易動度も低い。したがって、高温で変形が起る際に運動する転位や点欠陥にトラップされることによつて移動し、やがてマトリックス中の析出物との界面や結晶粒界などの不連続部に集積して気泡を形成する¹³⁾。この場合、結晶粒界に形成されたHe気泡は破壊の核形成と伝播に寄与し、これに伴つて著しい脆化の促進が起こる事実が指摘されている¹⁴⁾。結晶粒界におけるHe気泡形成と外部応力との関係は引張応力に対して傾角の大きい結晶粒界においてHe気泡の密度と平均直径が顕著に増加することが確認されている¹⁵⁾。このことと高温低速変形途上で発生して破壊の核となる、いわゆる粒界のキャビティの発生とは密接に関連していると考えられる。Photo. 2に示した結果からもクラックはおおむね引張応力方向に垂直に形成されていることがわかる。すなわち、高温変形に伴つて結晶粒界に形成されたHe気泡は粒界脆化を助長する素地を作るが、温度が高いほど外部応力作用下の変形に粒界流動の占める割合が大きくなることから、変形が進むにつれて例えば結晶粒界の三重点におけるキャビティの発生、き裂への発展の過程を経て粒界破壊に到るものと考えられる。また、この粒界破壊の促進をもたらすHe気泡の形成も熱活性化過程であることから粒界流動と同様に温度の上昇に伴つて著しくなるものと推測される。一方で高温となれば通常ならば結晶粒の軟化傾向の増大も期待されるが、高温照射によつて起こる固体内の変化は炭化物や平衡相の析出、Heの存在による硬化などの可能性もあり実験結果でどこまでその傾向がみられるかを調べる必要があつた。得られた結果からは少なくとも1000°Cにおいても粒界破壊による脆性の増大傾向が優勢となることを示した。

照射による引張強さの変化は非照射材のそれと比べてほとんど差がなく、両者とも試験温度の上昇とともに一様に減少した。一般に照射による強度特性の変化として

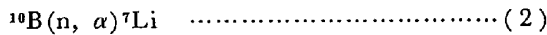
はマトリックス中に形成された He 気泡が運動転位に対する障害物として作用して、いわゆる “obstacle hardening” により強度が増加する可能性があるとしてされている。すなわち、硬化量 $\Delta\sigma$ は次のように表される^{16)~18)}。

$$\Delta\sigma = \frac{\mu b}{2\pi l} \ln\left(\frac{R}{r_d}\right) \dots\dots\dots (1)$$

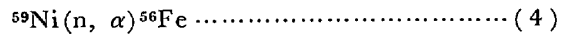
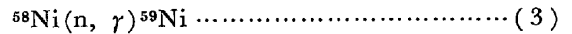
ここで μ はせん断弾性率、 b はバーガースペクトル、 l は He 気泡の間隔、 R は He 気泡の半径、 r_d は転位芯の半径である。この関係式より硬化量 $\Delta\sigma$ は気泡の寸法よりもその間隔に強く依存することがわかる。しかしながら、実験結果では照射による強度の増加はほとんどみられない。このことは関係式(1)にしたがって推測すれば、運動転位に対して障害物として作用し得るような気泡の濃度が低いこと、すなわち気泡の間隔 l が大きいために硬化がほとんど生じないものと考えられる。以上は一定温度における照射硬化を定性的に考察したものであるが、温度依存性についてはそれぞれの濃度における変形の支配因子の寄与の仕方が異なり、歪み速度をはじめいくつかの要因との関係も単純ではないと考えられる。

4.2 高温延性の低下と核変換による He 生成量との関係

これまで熱中性子による核変換にもとづく He の生成は次式で表されるような主として構造材料中の微量の B によるものがよく知られている。



そして、いくつかの研究結果は B の含有量、分布などにもとづいて延性低下の検討が行われてきた¹⁹⁾²⁰⁾。 ^{10}B の熱中性子との核反応の断面積は 3838 barn と大きく、照射によつて起こる核変換は他の構成元素ないしは不純物元素に比べて圧倒的に高い効率で進行するために、わずかの含有量でもその影響は大きい。しかしながら、後にも述べるように照射量が約 10^{21} n/cm^2 に到ると存在している ^{10}B のほとんどが消費され、それより上では ^{10}B の効果は飽和する。したがって、比較的照射量の低い領域での He 脆化を評価する上ではこの反応だけを考慮することによつて現象の説明がほぼ可能であるといえよう。ところが約 10^{21} n/cm^2 を上まわる熱中性子を照射した純 Ni および Ni を含む Fe 基合金では He 分析による実測値が(2)式をもとにした予測値を大幅に超えることが見出された。すなわち、純 Ni を例にとれば He 生成量は予測値 6.3×10^{-6} に対して、実測値は 77.3×10^{-6} であつた。これには WEITMAN ら⁵⁾ の提唱した Ni 2 段反応を導入することにより説明することが可能である。すなわち、この反応式は次のように表される。



ここで、(3)式における核反応の断面積は 4.4 barn、(4)式におけるそれは 13 barn である。一方、(2)式ならびに(3)(4)式で表される核変換反応にもとづいて生成される He 原子の数 N_{He} はそれぞれ次の関係式によつて表される。

$$N_{\text{He}} = N[1 - \exp(-\sigma\phi t)] \dots\dots\dots (5)$$

$$N_{\text{He}} = \frac{1}{2}\sigma_1 + \sigma_2 N(\phi t)^2 \dots\dots\dots (6)$$

ここで、(5)式は ^{10}B にもとづくもので、 N は照射前の ^{10}B の原子数、 σ は核反応の断面積 (3838 barn)、 ϕ は熱中性子束、 t は照射時間である。また(6)式は(3)(4)式で表される Ni 2 段反応にもとづくもので、 σ_1 は(3)式に示す核反応の断面積 (4.4 barn)、 σ_2 は(4)式に示す核反応の断面積 (13 barn)、 N は照射前の ^{58}Ni の原子数であり、 ϕ および t は前述の(5)式の場合と同様である。以下の結果で述べる He 生成量はこれら(5)、(6)式をもとにして計算により求めたものである。

Fig. 9 に熱中性子照射量と He 生成量との関係を示す。この結果より B から生成される He は 10^{21} n/cm^2 の照射で約 98% となり、その後飽和値に到達する。これに対して、Ni 2 段反応により生成される He は直線的に増加し、高照射量域ではこの反応による He 生成の方が支配的となる。この反応で生成される He 量と熱中性子照射量との関係は BAUER ら⁷⁾ によれば両対数プロットにおいてその直線のこう配が 2 であることから、照射量との間に 2 乗則が成り立つことが実験的にも確認され、また照射量が 10^{23} n/cm^2 に近づくにつれてこの関係から僅かながらはずれてくるとされている。

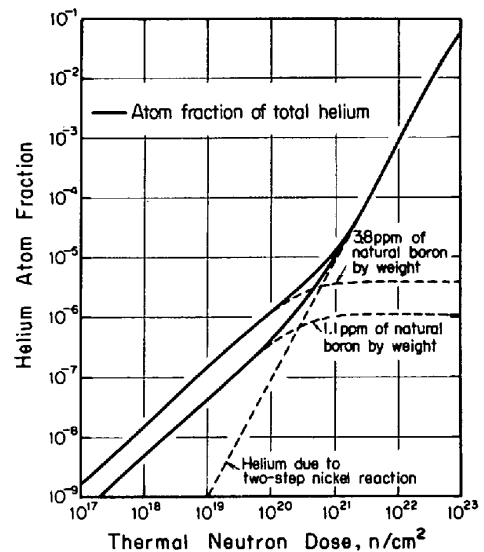


Fig. 9. Helium production in Hastelloy-X and Hastelloy-LB resulting from transmutation reactions.

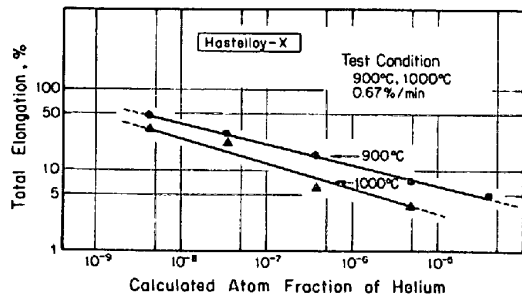


Fig. 10. Effect of calculated helium concentration on the total elongation of Hastelloy-X.

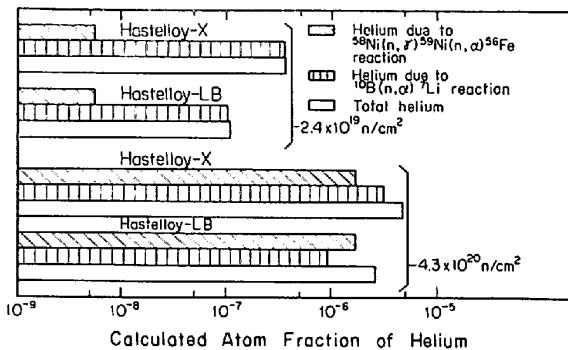


Fig. 11. Comparison of concentration in helium produced by the transmutation reactions in Hastelloy-X and Hastelloy-LB.

Fig. 10 は Fig. 6 との関連において破断伸びに対し、横軸の熱中性子照射量を (5), (6) の関係式から計算により求めた He 生成量になおしてその関係をプロットしなおしたものである。この結果は破断伸びと He 生成量との関係が一定のべき関数関係になっていると見ることができ、本研究で用いた照射水準ではいまだ顕著な差はなくても、このような整理の仕方は今後 10^{22} n/cm² 水準の照射脆化を考える場合に重要になってくるであろう。以上の結果は高温引張破断伸びの低下が照射量の増加、すなわち He 生成量の増大とともに著しくなり、またこのことは試験温度の上昇に伴って加速されると結論される。

Fig. 11 は Fig. 8 との関連において各照射条件における He 生成量の計算値を B 含有量の異なる 2 ヒートの Hastelloy-X について比較したものである。B を 3.8 ppm 含む場合と 1.1 ppm に減らした低硼素材とでは 2.4×10^{19} n/cm² の照射を受けたときは前者に比べて後者は明らかに高い破断伸びを示している。これはこの照射量域では ¹⁰B からの核変換による He 生成の方が、Ni 2 段反応による He 生成を上まわることから、含有 B 量が脆化を支配すると見ることができ、この二つの材料の場合、与えた照射量では低硼素材中の ¹⁰B からの核変換による He 生成量は他方と比較して約 1/3 程度少

ない。これより約 1 桁高い照射量、 4.3×10^{20} n/cm² を与えた場合については両者の破断伸びはいずれも低下してほぼ同じ値となる。この照射量域では ¹⁰B から生じる He の占める割合も依然少なくはないが、Ni2 段反応にもとづく He の生成量が相対的に高くなる。この反応は当然 Ni 量に依存するが、比較する材料の Ni 量がほぼ等しく照射条件も同じであるから両方で生成される He 全量はより低い照射量の場合に比べて合金間の差が少なくなり、このことが破断延性の差をなくしたことと関連しているものと考えられる。このように Ni による反応が急速に比率を増し、しかも He の存在量が大きくなれば脆化の程度も飽和に近づくと考えられるので、もはや B の含有量の多少の差は大きな意味をもたなくなつてくるものと判断される。ちなみに、この飽和に相当する領域での見かけの伸びは、実際は試料全体にわたる結晶粒界での早発マイクロクラックの寄与であり、実質的には結晶粒の変形は零に近いことを確かめている²¹⁾。

4.3 高照射量域における脆化の予測と延性低下のしきい照射量

Fig. 6 における測定結果を外挿することにより 10^{22} n/cm² 以上の照射量域における延性低下を予測することを試みた。とくに、高温ガス炉の制御器材など熱中性子炉の炉心部材の実用上の照射量のほぼ上限にあたる 10^{22} n/cm² 域における脆化の問題は重要である。照射量が 10^{22} n/cm² に達すると図から明らかのように見かけの破断伸びは 900°C の場合には約 3.5% 以下、1000°C の場合には約 1.5% 以下となる。これらの値はいずれも歪み速度に依存するので、ある幅をもつて考える必要があることはもちろんである。一般に Hastelloy-X のようなオーステナイト系材料では高温の変形挙動は塑性不安定性に達した後の変形量の方が均一変形量に比べてかなり大きいことを特徴とする。すでに、先に述べたように照射の影響で結晶粒界において早発き裂が起こることは、均一変形量をより短縮させる結果になっている。したがって、 10^{22} n/cm² 照射量域における破断伸び値のうちから少なくとも均一伸び値の占める割合は極めて少なく、実用上はなんらかの対策を必要としよう。

一方、高照射量域における外挿結果と同様にして、低照射量域における外挿結果から延性低下の現れるしきい照射量を推定することが可能である。このしきい値は原子炉の構造材料で低水準ながら中性子照射を受ける部材の耐久性評価の上で重要な問題であり、とくに高温化とともにしきい値が低下することが予測される。例えば、現用の蒸気発生用高温ガス炉では炉心に近い部分の熱しやへいライナー材など交換の困難な部材について設計上

必要な知見と考えられ²²⁾, また, 開発途上のプロセス加熱用 VHTR においてはおそらく安全性確保につながる重要課題となるであろう. この外挿結果によれば 900°C の場合には 6×10^{16} n/cm², 1000°C の場合には 2×10^{16} n/cm² の照射量の付近に延性低下のしきい値があることがわかる. この場合のしきい He 量はそれぞれ 9.4×10^{-10} , 3.2×10^{-10} となる. なお, これらの値と STIEGLER ら⁴⁾ によつて得られた値とは極めて近く, 彼らは 700°C において 304 ステンレス鋼について, このしきい He 量が 10^{-10} 付近にあることを報告している. 得られた外挿結果からも明らかのように, 高温になるほど照射しきい値は下り, したがつて 2×10^{16} n/cm² 程度の熱中性子を受ける部材でも許容応力や寿命を考える場合に照射環境をなんらかの形で劣化要因の一つとして考えておく必要があるということを示唆している. 本研究で用いた材料の B 含有量は一般の耐熱合金としては低く, 市販材には 10 ppm を超えるものも珍らしくないので, より広く調べればしきい値のさらに低いものが少なくないであろう.

5. 結 言

中性子照射したハステロイ-X の高温引張変形時の延性について次のことを明らかにした.

(1) 照射により起る延性の低下は 1000°C までの範囲で試験温度の上昇とともに強まった.

(2) 照射材の延性は歪み速度に依存し, 速度の減少とともに低下した.

(3) 延性低下の照射量依存については, 低照射量域では ¹⁰B の核変換による He 生成によるが, 高照射量になるにしたがつて Ni 2 段反応による He の効果が支配的となるものと判断した. したがつて, 材料の B 低減は低照射量域で有効であり, 高照射量域では含有 Ni 量の支配が大きいものと推定した.

(4) 照射量の外挿から, 熱中性子照射量が 10^{22} n/cm² に達すると破断伸びは 900°C において約 3.5% 以下, 1000°C においては約 1.5% 以下となることが予測された.

(5) 照射による延性低下のしきい照射量は 900°C の場合には 6×10^{16} n/cm², しきい He 量 9.4×10^{-10} , また, 1000°C の場合には 2×10^{16} n/cm², しきい He 量 3.2×10^{-10} となることが予測された.

終わりに, 本研究における原子炉照射の実施にあつては, 日本原子力研究所 JMTR および JRR-2 の関係各位によるものであり, また照射後試験の実施にあつてはホットラボ課 (大洗研) およびホットラボ管理室 (東海研) の関係各位によるものであることを付記して, 併せて感謝の意を表します.

文 献

- 1) 近藤達男: 金属学会会報, 13 (1974), p. 1307
- 2) R. S. BARNES: Nature, 206 (1965), p. 1307
- 3) D. R. HARRIS: J. Bri. Nucl. Energy Soc., 5 (1966), p. 74
- 4) J. O. STIEGLER and J. R. WEIR, Jr.: Ductility (1967), p. 311 [ASM]
- 5) J. WEITMAN, N. DÅVERHÖG, and S. FARVOLDEN: Trans. ANS, 13 (1970), p. 557
- 6) I. R. BIRSS and W. E. ELLIS: BNES Europe an Conf. on Voids formed by Irradiation of Reactor Materials, (1971), p. 339
- 7) A. A. BAUER and M. KANGILASKI: J. Nucl. Mater., 42 (1972), p. 91
- 8) JMTR 照射ハンドブック作成委員会: JMTR 照射ハンドブック, (1980), p. 33
- 9) 藤村理人, 近藤達男, 小川 豊, 菊山紀彦, 中島甫: JAERI-memo 5185, (1973)
- 10) M. A. ARKOOSH and N. F. FIORE: Met. Trans., 3 (1972), p. 2235
- 11) W. L. MANKINS, J. C. HOSIER, and T. H. BASSFORD: Met. Trans., 5 (1974), p. 2579
- 12) 渡辺勝利, 近藤達男: 未発表データ
- 13) P. STUDT, C. E. DIXON, and R. BACIARELLI: Report No. RN-S-0365 (1967)
- 14) B. van der SCHAAF, M. I. de VRIES, and J. D. ELEN: Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, ed. by M. L. BLEIBERG and J. W. BENNETT, (1977), p. 307
- 15) H. TRINKAUS and H. ULLMAIER: Phil. Mag., 39 (1979), p. 563
- 16) P. COULOMB and J. FRIEDEL: Dislocations and Mechanical Properties of Crystals, ed. by J. C. FISHER et al. (1957), p. 555 [John Wiley & Sons, Inc.]
- 17) P. COULOMB: Acta Met., 7 (1959), p. 556
- 18) D. R. OLANDER: TID-26711-P1, (1967)
- 19) W. R. MARTIN and J. R. WEIR: ASTM STP 426, (1967), p. 440
- 20) D. R. HARRIS, A. C. ROBERTS, G. T. ROGERS, J. D. H. HUGHES, and M. A. P. DEWEY: Radiation Damage in Reactor Materials, 2 (1969), p. 357 [IAEA]
- 21) 小川 豊, 渡辺勝利, 石本 清, 大塚 保, 近藤達男: 学振 123 委員会研究報告, 19 (1978), p. 311
- 22) D. I. ROBERTS: Private Communication