

実機ステンレス鋼溶接金属のフェライト相とオーステナイト相のミクロ組織と引張特性

Microstructures and tensile properties of ferrite and austenite phases in stainless steel welds used in PWRs

三浦 照光 (Terumitsu Miura) *¹ 福村 卓也 (Takuya Fukumura) *²

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii) *¹ 福谷 耕司 (Koji Fukuya) *¹ 瀬戸 仁史 (Hitoshi Seto) *³

要約 加圧水型原子炉にて熱時効条件下で長期間使用されたステンレス鋼溶接金属のうち中性子照射を受けた材料と受けていない材料を用いて、熱時効と照射によるステンレス鋼溶接金属の脆化挙動を調べた。ミクロ組織と組成を三次元アトムプローブと透過型電子顕微鏡を用いて調べた結果、フェライト相ではCrのスピノーダル分解とMn-Ni-Siクラスターの形成が両方の材料で確認され、照射を受けた材料ではMn-Ni-Siクラスターの形成の促進と転位ループ等の照射欠陥の形成が認められた。硬化の主要因となるスピノーダル分解については、照射による明確な促進は認められなかった。また、オーステナイト相では、照射を受けた材料で照射欠陥とNi-Siクラスターの形成が認められた。フェライト相とオーステナイト相の引張特性を超微小引張試験で調べた結果、両相ともに照射を受けた材料では受けていない材料よりも高い耐力と引張強さが認められた。オーステナイト相の照射による耐力増加は、試験片のサイズ効果を仮定したオロワンモデルを用いて評価したミクロ組織変化に基づく硬化量と良く一致した。

キーワード ステンレス鋼溶接金属, 熱時効, 中性子照射, アトムプローブ, 超微小引張試験

Abstract Embrittlement behavior of austenitic stainless steel welds due to thermal aging and neutron irradiation was investigated using two stainless steel welds obtained from pressurized water reactors for the long-term aging condition; one was neutron-irradiated and the other was unirradiated (representing thermal aging). Microstructure analysis conducted by atom probe tomography and transmission electron microscopy showed that spinodal decomposition and formation of Mn-Ni-Si clusters had occurred in the ferrite phase of both welds, and that promotion of Mn-Ni-Si clustering and formation of radiation-induced defects such as dislocation loops had occurred in the irradiated weld. For spinodal decomposition which is a dominant factor for hardening, no apparent acceleration under neutron irradiation was identified. In the austenite phase, formation of radiation-induced defects and Ni-Si clusters was confirmed in the irradiated weld. Micro-tensile testing for both ferrite and austenite phases revealed that the irradiated weld had higher yield and tensile strengths than the thermally aged weld for both phases. The difference in yield strength between irradiated and thermally aged welds for the austenite phase could be explained by the radiation-induced microstructure change using the Orowan model which assumes specimen size effects on yield strength.

Keywords stainless steel weld, thermal aging, neutron irradiation, atom probe tomography, micro-tensile testing

1. はじめに

オーステナイト系ステンレス鋼の溶接金属（以下、ステンレス鋼溶接金属）はフェライト相とオー

ステナイト相から成る2相組織であり、軽水炉の運転温度条件では casting オーステナイト系ステンレス鋼（以下、casting ステンレス鋼）と同様にフェライト相でスピノーダル分解と析出相の形成を生じ、熱脆

*¹ (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

*² 元(株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所 現 関西電力(株)

*³ 日本核燃料開発(株)

化する可能性がある。ステンレス鋼溶接金属におけるフェライト相の体積率は5～15%であり、鑄造ステンレス鋼の10～25%と比較して少なく、熱脆化による機械的性質への影響は比較的小さいと考えられる。しかし、オーステナイト系ステンレス鋼は炉内構造物に多用されており、その溶接金属で中性子照射と熱時効が重畳し、脆化が促進される可能性が考えられる。加圧水型原子炉 (Pressurized water reactor, PWR) の炉心その溶接部では、60年運転における中性子照射量は 1×10^{22} n/cm² (E > 0.1 MeV) と想定されており⁽¹⁾、損傷量では数 dpa以上に達する。また、鑄造ステンレス鋼についても、下部炉心支持構造物等で炉心周辺部に使用されている場合は、 10^{20} n/cm² (E > 0.1 MeV) オーダーの中性子照射を受ける可能性がある。米国においては炉心その外周側の溶接部付近で亀裂指示が確認された事例⁽²⁾もあり、軽水炉の運転長期化に伴い、熱時効と照射によるステンレス鋼溶接金属の脆化挙動の把握が望まれる。

ステンレス鋼溶接金属や鑄造ステンレス鋼の照射脆化については、米国原子力規制委員会 (Nuclear Regulatory Commission, NRC) や米国電力研究所 (Electric Power Research Institute, EPRI) より、収集したデータに基づくレビュー⁽³⁾⁽⁴⁾が報告されている。ステンレス鋼溶接金属の照射データは限られるが、照射による破壊靱性の低下や耐力の増加が認められる。また、PWRや沸騰水型原子炉 (Boiling water reactor, BWR) の廃炉材を活用した引張試験や破壊靱性試験の結果も報告されている⁽⁵⁾⁽⁶⁾。これらのデータを見ると、照射による破壊靱性の低下や耐力の増加はおよそ1 dpaから顕著になり、10 dpaまでには飽和する傾向にある。また、母材や熱影響部 (Heat-affected zone, HAZ) よりも溶接金属の方が破壊靱性は低く、耐力は高い傾向が認められる。ステンレス鋼溶接金属の照射脆化に関連する先行研究については次章に追記する。

破壊靱性や耐力等の機械的性質の変化はマイクロ組織の変化に起因するため、熱時効と照射による脆化挙動の理解には、マイクロ組織変化の把握が重要になる。フェライト相では熱時効によりスピノーダル分解とG相の形成が生じるが、照射を受ける場合にこれらのマイクロ組織変化に及ぼす影響を理解する必要がある。Chenら⁽⁷⁾は鑄造ステンレス鋼のフェライト相について、熱時効後に中性子照射をすると硬さが増加し、スピノーダル分解のVパラメータや溶質

原子クラスタの形成量と硬さが相関することを報告している。また、阿部ら⁽⁸⁾は熱時効を施した316Lステンレス鋼溶接金属について、熱時効単独では有意なマイクロ組織変化は認められないが、 2×10^{18} n/cm²の中性子照射が加わるとスピノーダル分解とMn-Ni-Siクラスタの形成が認められ、照射を受けることでスピノーダル分解や溶質原子クラスタの形成が加速される可能性を報告している。照射を受けると熱時効単独に比べてマイクロ組織変化が加速され、より硬化すると考えられるが、ステンレス鋼溶接金属の機械的性質の変化とマイクロ組織の変化の関係を検討した報告は少ない。この一因として、フェライト相の体積率が比較的小さいステンレス鋼溶接金属では幅1 μm程度の細かい網目状にフェライト相が分布していることが多く、フェライト相とオーステナイト相を区別した機械的性質の評価は、超微小硬さ試験を用いても難しい場合があることが考えられる。

これまでにINSSでは、熱時効と照射によるステンレス鋼溶接金属の脆化挙動を理解するため、PWRにて320℃で92,000時間時効された316Lステンレス鋼溶接金属と324℃で110,000時間かけて3 dpaまで中性子照射された304ステンレス鋼溶接金属について、フェライト相のマイクロ組成を三次元アトムプローブ (Atom probe tomography, APT) で調べ、照射を受けるとG相の前駆体と考えられるMn-Ni-Siクラスタの形成促進が認められるものの、スピノーダル分解については大きな照射影響がないことを報告している⁽⁹⁾。本研究では、ステンレス鋼溶接金属の脆化挙動に関する理解を深めるため、この材料について、マイクロ組織を透過型電子顕微鏡 (Transmission electron microscope, TEM) でさらに詳細に調べるとともに、オーステナイト相についてもマイクロ組成をAPTで調べた。また、超微小引張試験によりフェライト相とオーステナイト相の引張特性を個別に調べ、マイクロ組織変化との関係を検討した。なお、本報告ではフェライト相のAPT測定⁽⁹⁾についてもまとめて報告する。

2. 照射ステンレス鋼溶接金属の照射脆化に関連する先行研究

本章では、ステンレス鋼溶接金属の照射脆化に関連する先行研究を追記する。ChopraとRaoは⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾、ステンレス鋼溶接金属と鑄造ステンレス鋼の熱脆化

と照射脆化による破壊靱性のデータをそれぞれ整理し、炉内構造物の評価のための予測式を報告している。高速炉や軽水炉で照射されたステンレス鋼溶接金属について、破壊靱性値 J_{Ic} はおよそ0.3 dpa以上から照射による低下が顕著になり、6~8 dpa以上で飽和傾向を示す下限式を示している。照射量に対する破壊靱性値の傾向は铸造ステンレス鋼についても同様であり、また、铸造ステンレス鋼ではフェライト相の照射脆化は0.1 dpaでおおむね完了するが、オーステナイト相の照射脆化は0.3 dpa以上で顕著になることが報告されている⁽¹¹⁾。

廃炉材を活用した研究報告では、Jenssenら⁽⁵⁾がZorita（スペインの廃炉PWR）の炉心そこの溶接金属（308溶接金属、1.2~1.9 dpa）の引張試験と破壊靱性試験の結果を報告しており、溶接金属の延性と破壊靱性値は同じ照射量の母材よりも低い傾向にあると評価されている。また、Barseback 2号機（スウェーデンの廃炉BWR）の炉心シュラウド（304鋼相当、1 dpa）の引張試験の結果がZoritaの炉心そこの引張試験データと合わせて報告⁽⁶⁾されており、どちらも溶接金属の方が母材やHAZよりも耐力が高い傾向にあり、また、炉心そこの溶接金属は炉心シュラウドよりも耐力が高い。

BWR材については、Oskarshamn 1および2号機（スウェーデンのBWR）の制御棒ハンドル（304L鋼、12 dpa）とジェットポンプライザー管（304鋼、0.6~1 dpa）の母材と溶接金属についての引張試験と破壊靱性試験の結果がMRP-79 Rev.1⁽¹²⁾に引用されており、母材と溶接金属では引張特性は大きく変わらないが、破壊靱性値は溶接金属の方が低い傾向が認められる。また、旧原子力安全基盤機構の「照射誘起応力腐食割れ（Irradiation assisted stress corrosion cracking, IASCC）評価技術」事業では、BWRの炉内構造物の溶接継手を対象に材料試験炉（Japan Materials Testing Reactor, JMTR）で中性子照射が行われ、引張試験とIASCC進展試験が実施されている⁽¹³⁾。この報告では、耐力は照射前と0.8~2 dpaの照射後とともに溶接金属が母材やHAZよりも高いが、照射による耐力増加は母材やHAZの方が大きくなっている。照射量が1 dpaを超える高照射側での耐力の増加や破壊靱性の低下には、フェライト相の影響は小さく、オーステナイト相での照射脆化が強く影響している可能性が考えられる。

マイクロ組織変化に関する報告については、JMTR

で中性子照射された原子炉压力容器の内面クラッドの引張試験とシャルピー試験および破壊靱性試験の結果が日本原子力研究開発機構（Japan Atomic Energy Agency, JAEA）から報告⁽¹⁴⁾されており、照射による耐力増加と延性低下が認められるとともに、マイクロ組織ではフェライト相でスピノーダル分解とG相の形成が確認されている⁽¹⁵⁾。Pareigeら⁽¹⁶⁾は熱時効された铸造ステンレス鋼について、巨視的硬度（オーステナイト相+フェライト相）とスピノーダル分解のVパラメータとの間に線形関係を報告している。また、藤井と福谷⁽¹⁷⁾は熱時効とイオン照射された308Lと316Lステンレス鋼溶接金属について、フェライト相のナノインデンテーション硬さとスピノーダル分解のINNパラメータおよび溶質原子クラスタの体積分率との関係を議論している。熱時効によるフェライト相の硬化についてはスピノーダル分解が支配的に寄与していると考えられるが、照射を受けた場合の硬さとマイクロ組織との相関関係については明確な結論は得られていない。

3. 試験方法

3.1 供試材

供試材には、実機PWRで使用された炉内計装用フラックスシングルチューブ（Flux thimble tube, FTT）の先端に溶接された端栓溶接部と主冷却材管（Main coolant pipe, MCP）の溶接部を用いた。以下、それぞれをFTT材とMCP材とする。FTT材は、316ステンレス鋼製FTTに304ステンレス鋼製端栓をフィラー無しでタングステンイナートガス（Tungsten inert gas, TIG）溶接したものであり、324°Cで111,000時間使用され、3 dpa（ 7×10^{-9} dpa/s）の中性子照射を受けている。MCP材は、蒸気発生器出口のSCS14A製エルボと316ステンレス鋼製セーフエンドを316LフィラーによりTIG溶接したものであり、320°Cで92,000時間の熱時効を受けているが、中性子照射は受けていない。

3.2 ミクロ分析

3.2.1 TEM 観察

FTT材よりツイングジェット電解研磨法で薄膜試料を作製し、フェライト相とオーステナイト相のミ

クロ組織をTEM（日立ハイテクノロジーズ製HF-2000）を用いて調べた。

MCP材についても、FTT材と同様にマイクロ組織観察用の薄膜試料を作製し、フェライト相のマイクロ組織を調べた。なお、薄膜試料の作製には、JAEA敦賀廃止措置実証部門 新型転換炉原型炉ふげんの高経年化分析室（ホットラボ）に設置された集束イオン／電子ビーム加工観察装置（Focused ion beam / Scanning electron microscope, FIB-SEM, 日立ハイテクノロジーズ製NB5000）を用いた。FIB加工により薄膜試料に導入されるダメージ層については、2 kVのGaイオンビームで薄膜試料を最終加工することで低減した。また、マイクロ組織観察には、同ホットラボ設置の走査型透過電子顕微鏡（Scanning transmission electron microscope, STEM, 日立ハイテクノロジーズ製HD2700）を用いた。

MCP材のオーステナイト相については、熱時効のみではマイクロ組織や組成に変化を生じないと考えられることから、TEM観察および次項のAPT測定は実施していない。

3.2.2 APT測定

FTT材のフェライト相とオーステナイト相およびMCP材のフェライト相からFIB加工によりマイクロ試料を採取し、その一部を切断して、タングステン製の針状試料の先端にFIB装置のタングステン蒸着機構を用いて固定した。その後、試料の先端を曲率50 nm程度の針状にFIB加工し、APT測定用の試験片とした。

APT測定には、ふげんのホットラボに設置された局所電極型3次元アトムプローブ（CAMECA製LEAP 3000X HR）を用いた。標準の測定条件は、レーザーパルスモード、試料温度35 K、レーザー出力0.2 nJ、パルス周波数250 kHzである。収集したデータについて、質量／電荷比ごとに元素の種類を決定し、3次元像形成処理によりアトムマップを構築した。

3.3 超微小引張試験

ふげんのホットラボのFIB-SEMを用いて、図1に示すゲージ部寸法が $2.4 \times 0.3 \times 0.3 \mu\text{m}$ と $8 \times 1 \times 1 \mu\text{m}$ の超微小引張試験片（以下、S型試験片とL型

試験片）をFTT材とMCP材のフェライト相とオーステナイト相について作製した。なお、S型試験片の形状はフェライト相の幅（約 $0.3 \mu\text{m}$ ）を考慮して決定した。L型試験片については、これまでにイオン照射された低放射化フェライト鋼の引張特性評価に用いており、未照射材では通常の引張試験で測定される値と近い耐力が測定されている⁽¹⁸⁾。フェライト相についてはS型試験片で試験し、オーステナイト相については試験片のサイズ効果を検討するため、S型とL型の両方の試験片で試験した。なお、引張方向については指定せずに試験を行った。

引張試験はFIB-SEM装置内にて室温で実施した。超微小引張試験の概略図と試験前の走査イオン顕微鏡（Scanning ion microscope, SIM）像を図2に示す。試験方法の詳細はこれまでに報告している⁽¹⁹⁾。本研究では、S型試験片には梁部の寸法が $225 \times 5 \times 4 \mu\text{m}$ でバネ定数が60 N/mのマイクロ梁を使用し、L型試験片には梁部の寸法が $225 \times 7 \times 7 \mu\text{m}$ でバネ定数が580 N/mのマイクロ梁を使用した。

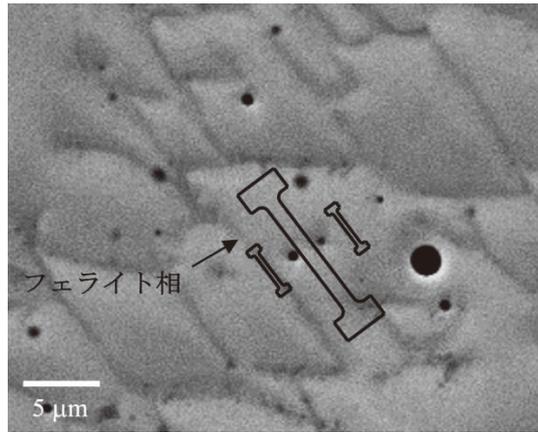
引張中の試験片のSIM像を 512×512 ピクセルの解像度で毎秒20コマで録画し、試験片の形状変化とマイクロ梁の変位を記録した。試験片にかかる荷重は、マイクロ梁の変位とバネ定数から線形弾性論により計算した。SIM像の録画条件と荷重と伸びの分解能を表1に示す。試験後、破面をSEM（日立ハイテクノロジーズ製SU-70）で観察して破壊の様子を調べた。

4. 試験結果

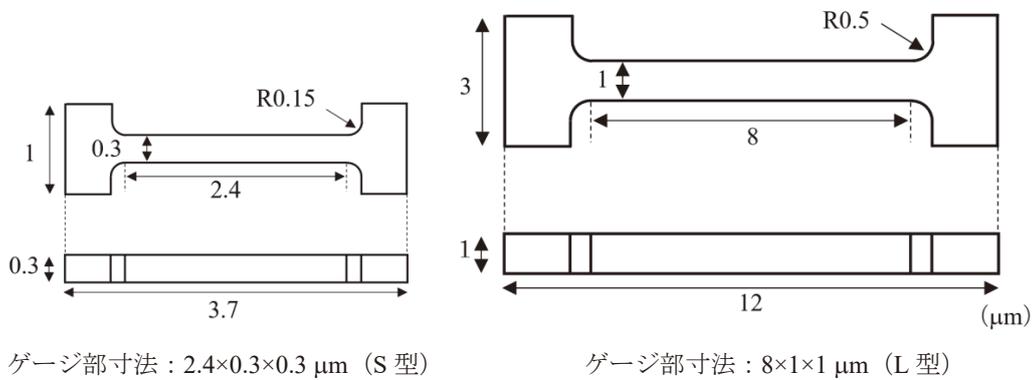
4.1 ミクロ分析

4.1.1 TEM観察

FTT材のフェライト相のマイクロ組織をTEM観察した結果、図3(a)に示すように、ドット状欠陥、完全転位ループおよびキャビティが観察された。ドット状欠陥と完全転位ループについては、電子線の入射方位を $[001]$ 近傍とし、電子線回折図形における $g = [200]$ のスポットを用いて、 $g / 3g$ の条件でウィークビーム暗視野法を用いて結像し観察した。また、キャビティについては、アンダーフォーカスで明視野像を観察した。なお、同一視野についてオーバーフォーカスで取得したTEM像と比較することによってキャビティを識別した。析出相につ



(a) 試験片の作製位置の例



(b) 試験片寸法

図1 超微小引張試験片の作製位置の例と寸法

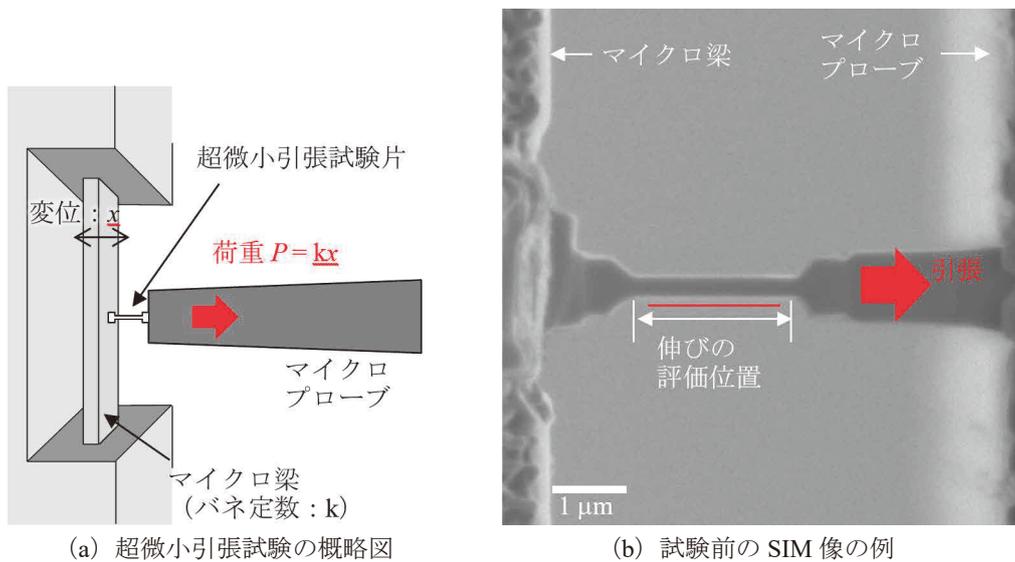


図2 超微小引張試験の概略図と試験前の SIM 像の例

いては、電子線の入射方位を [001] 近傍として電子線回折図形を取得したが、析出相によるスポットは認められなかった。析出相による回折スポットが現れる位置 ($g = [200]$) のスポットと透過波によ

るスポットとの間) に対物絞りを挿入して結像し、暗視野像を取得したが、析出相によるコントラストは観察されなかった。観察された組織を定量評価した結果を表2に示す。

表1 超微小引張試験のSIM像の録画条件と荷重と伸びの分解能

相	試験片	視野範囲 (μm)	ピクセルサイズ (nm)	分解能	
				荷重 (μN)	伸び (%)
フェライト	S型	7.23 × 7.23	14	0.84	0.7
オーステナイト	S型	7.23 × 7.23	14	0.84	0.7
	L型	14.45 × 14.45	28	17	0.4

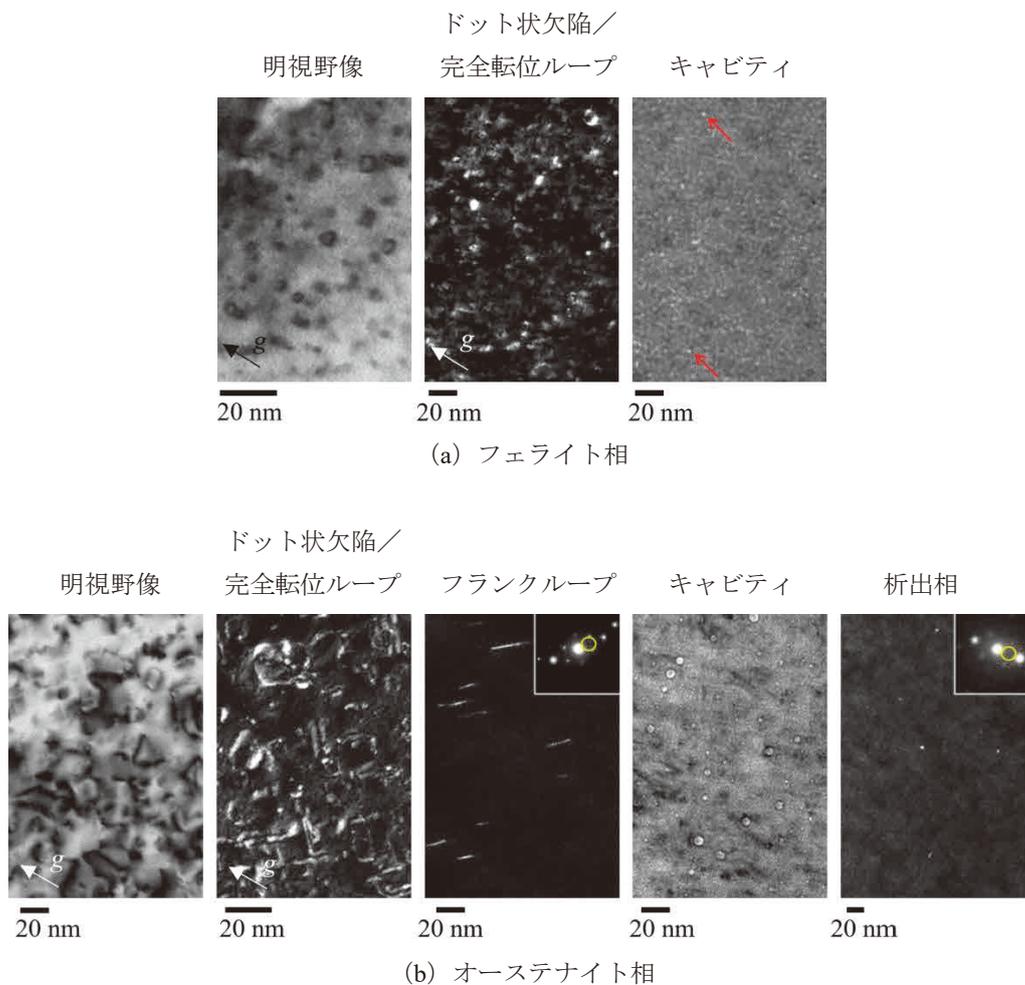


図3 FTT材のマイクロ組織
析出相の結像に用いた対物鏡位置にはγ相とG相からの回折スポットを含む

表2 TEM観察によるFTT材のマイクロ組織の評価結果

相	マイクロ組織	平均直径 (nm)	数密度 (×10 ²³ m ⁻³)
フェライト	完全転位ループ/ ドット状欠陥	3.2	1.6
	キャビティ	2.9	0.19
	ドット状欠陥	2.4	0.84
オーステナイト	完全転位ループ	9.1	0.68
	フランクループ	12.8	0.33
	キャビティ	3.2	0.55
	析出相	5.1	0.013

FTT材のオーステナイト相のマイクロ組織をTEM観察した結果、図3(b)に示すように、ドット状欠陥、完全転位ループ、フランクループ、キャビティおよび析出相が観察された。ドット状欠陥と完全転位ループおよびキャビティについては、フェライト相と同じ観察条件で観察した。フランクループについては、電子線の入射方位を [011] 近傍とし、rel-rod法を用いて結像し観察した。析出相については、フェライト相と同じく、電子線の入射方位を [001] 近傍として電子線回折図形を取得したところ、析出相によるスポットは認められなかったため、g =

[200] のスポットと透過波によるスポットとの間に対物絞りを挿入して結像し観察した。回折スポットが認められなかったために観察された析出相を同定できないが、対物絞りを挿入した箇所は γ' 相とG相からの回折スポットが現れる箇所とおおよそ一致している。このため、析出相は γ' 相やG相を含むものと推察される。観察された組織を定量評価した結果を表2に示す。

MCP材のフェライト相のマイクロ組織のSTEM観察結果を図4に示す。電子線の入射方位を[001]近傍として電子線回折図形を取得したところ、析出相によるスポットは認められなかった。図4(a)は明視野像であり、図4(b)は $g = [200]$ のスポットと透過波によるスポットとの間に対物絞りを挿入して結像した暗視野像である。暗視野像観察からは、析出相によるコントラストは観察されなかった。

4.1.2 APT測定

FTT材のフェライト相とオーステナイト相およびMCP材のフェライト相について得られたアトムマップの例を図5に示す。なお、アトムマップの z 方向長さを最適化するため、3次元像形成処理において、材料の電解蒸発に必要な電界強度(Evaporation field, EF)と試験片の先端形状による電気力線の圧縮因子(Image compression factor, ICF, EFとともにアトムマップの Z 方向長さや X - Y 面の広がり具合に影響する)は、FTT材についてはEF = 30.0 V/nmとICF = 1.65を、MCP材についてはEF = 33.0 V/nmとICF = 1.1を用いた。

FTT材のフェライト相では、Feリッチな α 相とCrリッチな α' 相へのスピノーダル分解に加え、Ni

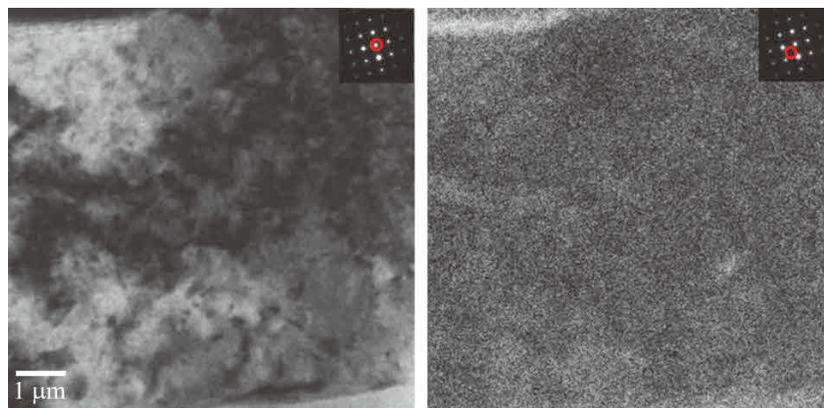
とSiとMn原子が明確に濃縮している様子がアトムマップに認められた。Ni/Si/Mn原子が濃縮している位置ではCr原子の濃度は低く、Cr原子はこれらの溶質原子クラスタでは濃縮していない。また、Cu原子もNi/Si/Mn原子と同じ位置で濃縮している様子があり、Cuリッチクラスタを形成していると考えられる。

FTT材のオーステナイト相では、Si原子が明確に濃縮している様子がアトムマップに認められ、同じ位置でNi原子の濃縮とFeとCr原子の減少が確認された。SiとNi原子が濃縮している場所ではCu原子も濃縮している様子があり、フェライト相と同様に、Cuリッチクラスタを形成していると考えられる。Ni-Siクラスタの形成は、照射されたオーステナイトステンレス鋼では広く報告^{(20)~(25)}されており、最近のデータによるとSi原子の濃縮領域の形状は多岐に渡り、球状や線状の他にもリング形状をしている場合や、原子の濃縮の程度が弱い場合は一部が重なっているような例も報告されている。Si原子は転位線や転位ループ等のシンクにも偏在していると考えられる。

MCP材のフェライト相については、FTT材のフェライト相と同様に、スピノーダル分解とNi/Si/Mn原子が濃縮している様子がアトムマップに認められた。Ni/Si/Mn原子と同じ位置にCu原子が濃縮している様子は認められなかった。

・溶質原子クラスタの評価

測定結果に対して、マキシマム・セパレーション法⁽²⁶⁾に基づいた再帰的検索手法を用いて溶質原子クラスタ解析を行った。解析手法の詳細については、これまでに報告している⁽²⁵⁾。本解析では、Siをク



(a) [001]晶帯軸からの明視野像 (b) 透過波と $g = [200]$ 間の暗視野像

図4 MCP材のフェライト相のマイクロ組織

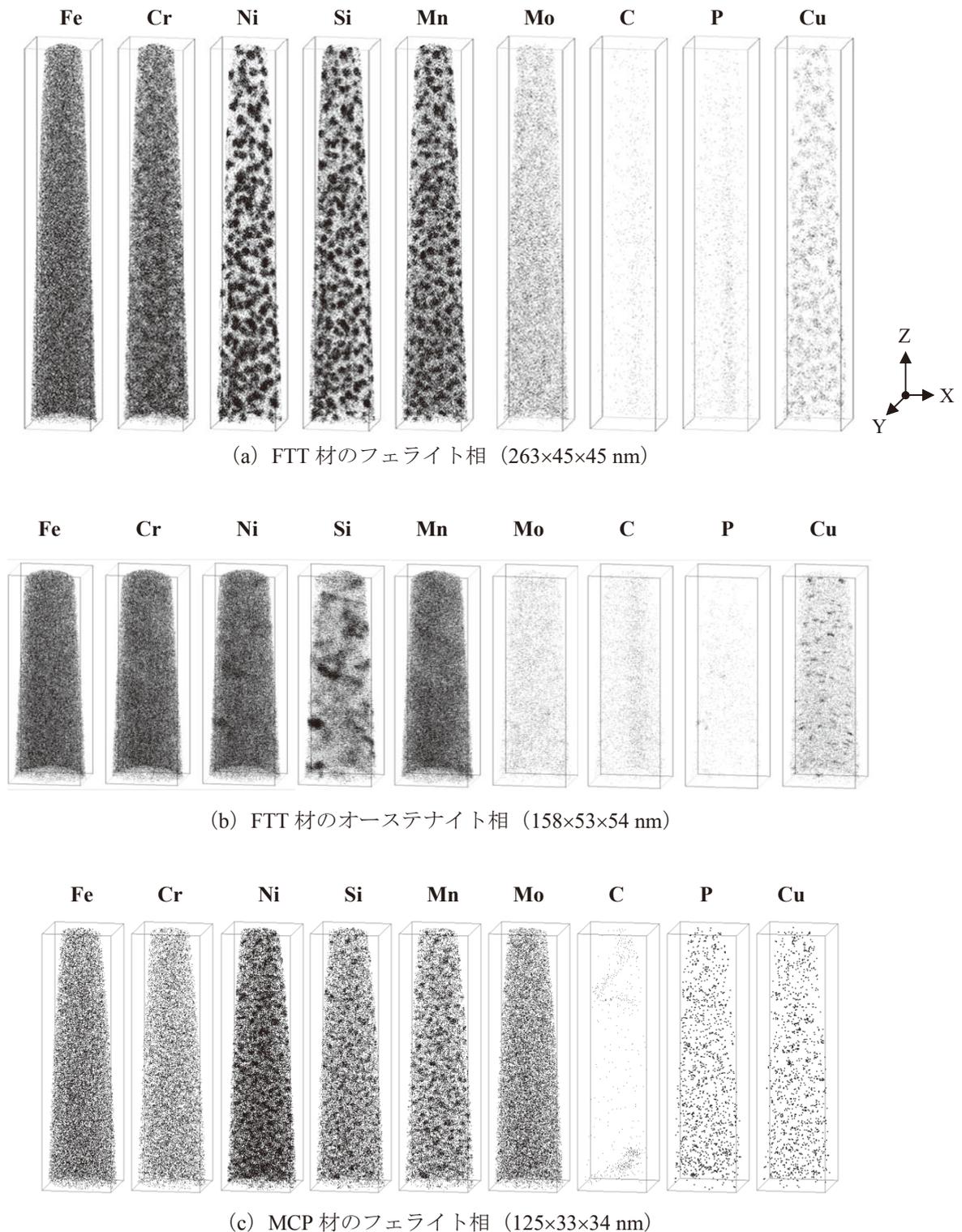


図5 アトムマップの例

ラスタのコア元素と定義し、コア原子の抽出に用いるしきい距離には0.7 nmを用い、コア原子が20個以上のものをクラスタとして取り扱った。また、周辺原子の抽出に用いるしきい距離には0.5 nmを用いて周辺原子を含めたクラスタを抽出した。最後に、周辺原子のうち0.5 nm以内にSiもしくはNiが

3個未満しかないものを取り除いた。FTT材のオーステナイト相については、抽出されたクラスタの形状をアトムマップで1つずつ確認し、球状とリング状の2種類に分類した。球状のクラスタはいわゆるNi-Siクラスタと考えられる。一方、リング状のクラスタはフランクループや完全転位ループへの偏析

に対応すると考えられる。

クラスタの大きさは、クラスタの回転半径(Radius of gyration)に $2\sqrt{5/3}$ を乗じたギニエ直径(Guinier diameter) で定義した⁽²⁷⁾。なお、クラスタの数密度の算出には抽出された全てのクラスタを用いたが、大きさと組成の評価には測定領域の縁にクラスタの一部がかかるものは、クラスタの全体が含まれていない可能性があるため除外した。

APT測定により明らかにされた溶質原子クラスタの平均直径と数密度を表3に示す。FTT材のフェライト相では、比較的大きな溶質原子クラスタが認められた。FTT材のオーステナイト相については、球状のクラスタの平均直径と数密度を示した。フェライト相と比べて平均直径は小さく、数密度は1桁少なかった。なお、リング状のクラスタについては、直径は10 nmを超えており、数密度は $6.0 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ であり、球状のクラスタと比較して一桁以上少なかった。MCP材のフェライト相では、比較的小さな溶質原子クラスタが数多く形成していた。

溶質原子クラスタの組成については、サイズによる明確な変化は認められなかった。平均組成(at%)は、FTT材のフェライト相とオーステナイト相ではそれぞれ50.4 Fe-11.4 Cr-25.2 Ni-6.2 Si-5.9 Mnと50.2 Fe-12.0 Cr-22.8 Ni-12.8 Si-1.1 Mnであり、MCP材のフェライト相では46.7 Fe-18.6 Cr-21.1 Ni-5.2 Si-5.9 Mnであった。フェライト相における溶質原子クラスタのMn/Ni/Si比は、FTT材とMCP材とともに、おおよそ1:4:1であった。また、溶質原子クラスタのNi, Si, Mn濃度は、母相の組成と比較して5倍程度に濃縮したものであった。FTT材のオーステナイト相については、Ni/Si比はおおよそ2:1であり、母相の組成と比較した溶質原子クラスタのNiとSi濃度はそれぞれ3, 13倍の濃縮比であった。

・スピノーダル分解の評価

FTT材とMCP材のフェライト相については、Crのスピノーダル分解の程度をCr濃度の頻度分布か

ら評価するVパラメータ法⁽²⁸⁾とCr-Cr原子間距離の頻度分布から評価する第一近接分布解析法⁽²⁹⁾の2つの方法で検討した。Vパラメータ法では、Cr濃度の頻度分布をCr原子がランダムに分布していると仮定した場合の頻度分布と比較してスピノーダル分解の程度を評価するが、微細な溶質原子クラスタが形成している場合、見かけ上ランダムな濃度分布とは異なる値と比較することになり、溶質原子クラスタの形成による影響が含まれる可能性がある。一方、第一近接分布解析法では、Cr原子の短距離秩序を調べるため、溶質原子クラスタの形成の影響は含まれにくい。なお、これらの分析は、溶質原子クラスタの原子を差し引いたアトムマップに対して実施した。

Vパラメータについては、FTT材で0.98、MCP材で0.65であった。また、1NNパラメータについては、FTT材で0.133、MCP材で0.131であった。なお、詳細は報告済みである⁽⁹⁾。APT測定により明らかにされたスピノーダル分解のデータを表3に示す。

4.2 超微小引張試験

引張試験時のSIM像の例を図6に示す。なお、SIM像中の赤線は、試験片が引張軸から逸れていないことを確認するために用いた線である。試験片の多くは掴み部の近傍で破断した。

図2に示した伸びの評価位置で評価したゲージ部の伸びと応力の関係を図7に示す。伸びの分解能は、S型試験片については0.7%であり、L型試験片については0.4%である。応力はマイクロ梁の変位から算出した荷重を試験前のゲージ部断面積で除して求めており、試験後の試験片をSEM観察して未変形部から試験片の厚さと幅を評価して断面積を求めた。試験時の引張速度は $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ であった。

FTT材のフェライト相の試験片は、860 MPaで降伏し、最大応力(引張強さ)1,210 MPaまで伸びて破断した。全伸びは3.4%であった。FTT材のオー

表3 APT測定による溶質原子クラスタの平均直径と数密度およびVパラメータと1NNパラメータの評価結果

材料	相	平均直径 (nm)	数密度 ($\times 10^{23} \text{ m}^{-3}$)	Vパラメータ	1NNパラメータ
FTT	フェライト	5.7	10.8	0.98	0.133
	オーステナイト	3.7	2.0	-	-
MCP	フェライト	3.3	45.0	0.65	0.131

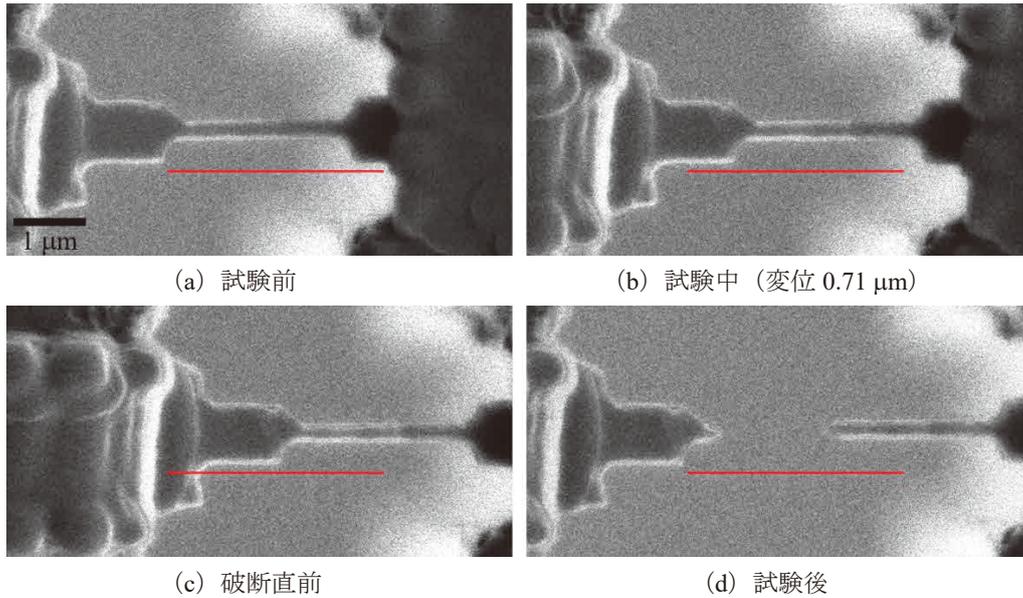


図6 引張試験時のSIM像の例 (FTT材のフェライト相, S型試験片)

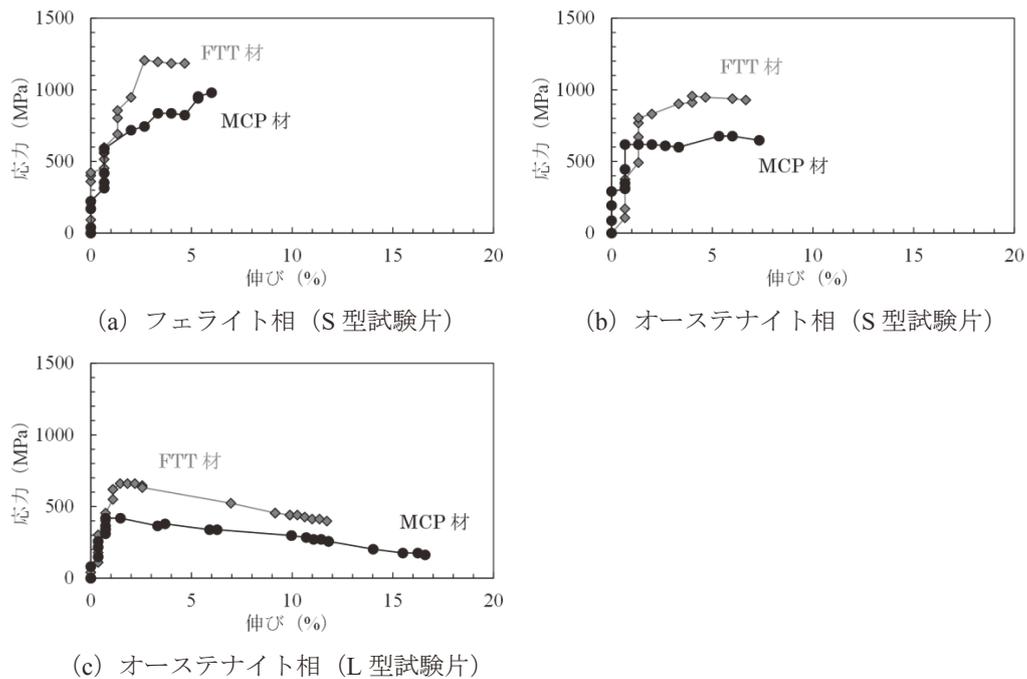


図7 応力-伸び線図

ステナイト相では, S型試験片については800 MPaで降伏し, 引張強さは960 MPa, 全伸びは5.4%であった. L型試験片については620 MPaで降伏し, 引張強さは660 MPa, 全伸びは10.6%であった. 表4に引張特性の評価結果を示す. フェライト相は, オーステナイト相と比較して強度が高く, 伸びが小さい傾向が認められた. また, オーステナイト相では, 小さい試験片の方が強度が高く, 破断時の伸びが小さくなった.

MCP材のフェライト相の試験片は, 590 MPaで降伏し, 引張強さは980 MPa, 全伸びは5.3%であった. MCP材のオーステナイト相では, S型試験片については620 MPaで降伏し, 引張強さは680 MPa, 全伸びは6.6%であった. なお, 620 MPaを負荷した時点で加工硬化を伴わない伸びが確認されたが, 試験中に負荷した最大応力680 MPaで引張強さを評価した. L型試験片については, 試験片は420 MPaで降伏し, 加工硬化せずに伸びて破断した.

表4 超微小引張試験による引張特性の評価結果

材料	相	試験片	耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	全伸び (%)
FTT	フェライト	S型	860	1,210	3.4
		L型	620	660	10.6
	オーステナイト	S型	800	960	5.4
MCP	フェライト	S型	590	980	5.3
		L型	420	420	15.9
	オーステナイト	S型	620	680	6.6

全伸びは15.9%であった。表4に引張特性の評価結果を示す。フェライト相とオーステナイト相では耐力は同程度であったが、フェライト相の方が引張強さは高く、伸びがやや小さくなった。オーステナイト相では、FTT材と同様に、小さい試験片の方が強度が高く、破断時の伸びが小さくなった。

試験片破面のSEM像の例を図8に示す。全ての試験片で破面は比較的平坦であり、単一のすべり面にすべり変形が集中して起こり、せん断破壊により試験片が破断したことが確認された。破面の近傍には別のすべりによる段差が認められ、これらは同じ指数のすべり面ですべった跡であった。

5. 考察

5.1 熱時効と照射によるマイクロ組織変化

FTT材 (324 °C, 111,000時間, 3 dpa) とMCP材 (320 °C, 92,000時間) のマイクロ組織を比較し、

熱時効と照射によるマイクロ組織変化を検討する。TEM観察で明らかにされたマイクロ組織のデータは表2に、APT測定により明らかにされた溶質原子クラスタとスピノーダル分解のデータは表3に示した。

5.1.1 フェライト相

FTT材では比較的小さな転位ループとキャビティの形成がTEM観察により確認された。MCP材ではこれらのマイクロ組織は認められなかったことから、照射により導入された欠陥であることが確認された。また、G相の形成については、TEM観察ではFTT材とMCP材でともに確認されなかったが、APT測定ではMn-Ni-Siクラスタの形成がFTT材とMCP材でともに確認されており、これらはG相の前駆体であると考えられる。溶質原子クラスタの組成比は、FTT材ではMn : Ni : Si = 6 : 25 : 6であり、MCP材ではMn : Ni : Si = 6 : 21 : 5であり、G相の

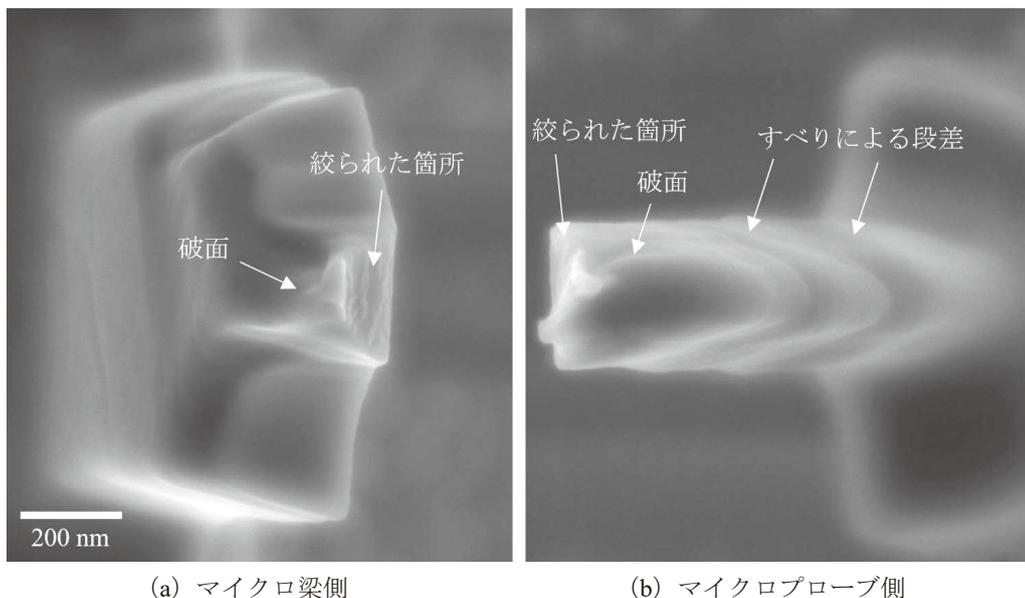


図8 破面のSEM像の例 (FTT材のフェライト相, S型試験片)

組成比 (M : Ni : Si = 6 : 16 : 7, M=Mn, Mo) と比較的矛盾しない。FTT材で確認された溶質原子クラスタは、MCP材と比較して平均直径が大きく、数密度が小さかった。溶質原子クラスタの体積率は、FTT材では0.105であり、MCP材の0.075と比較して大きく、FTT材における溶質原子クラスタの形成過程は、MCP材と比べて促進されていることが示唆される。FTT材での照射欠陥の形成と溶質原子クラスタの形成の促進は、照射を受けた材料では受けていない材料よりも硬化することを示唆する。

Crのスピノーダル分解については、FTT材とMCP材で共通して認められた。スピノーダル分解のVパラメータはFTT材の方がMCP材よりも値が大きく、照射を受けることでスピノーダル分解が進んでいることを示唆するものの、INNパラメータではFTT材とMCP材で大きな違いは認められなかった。熱時効中のスピノーダル分解の進展は、温度や時間、MoやC等の組成等の様々なパラメータに依存することが知られている⁽²⁰⁾⁽³⁰⁾。FTT材とMCP材は同様の供用温度と時間履歴であるものの、Mo濃度はMCP材の方が高いことから、中性子照射がスピノーダル分解を加速する可能性も示唆される。阿部ら⁽⁸⁾の報告では、中性子照射がフェライト相のスピノーダル分解を加速させる可能性が示唆されているが、本研究で使用した材料と比べて比較的低温かつ短時間で熱時効(275℃, 8,000時間)された材料で評価されており、熱時効のみでは明確なスピノーダル分解は確認されていない。本研究で使用した材料のような長期間の供用等により熱時効のみでもスピノーダル分解が十分進む状態においては、照射を受けてもスピノーダル分解がさらに大きく加速される可能性は小さいと考えられる。スピノーダル分解の観点からは、照射を受けた材料と受けていない材料で硬化に明確な違いは生じないと考えられる。

フェライト相では熱時効によりCrのスピノーダル分解が生じるとともにMn-Ni-Siクラスタが形成しており、照射を受けた場合はMn-Ni-Siクラスタの形成が促進されるとともに照射欠陥が形成されたが、スピノーダル分解への影響は明確ではなかった。照射を受けることで熱時効単独に比べてより硬化すると考えられるが、その照射硬化には照射欠陥の形成と溶質原子クラスタの促進が寄与すると考えられる。

5.1.2 オーステナイト相

FTT材では転位ループとキャビティおよび析出相の形成がTEM観察により確認された。これらのマイクロ組織は、照射されたオーステナイトステンレス鋼では典型的に認められる組織であった^{(31)~(33)}。キャビティの形成量から計算したスエリング量は0.94%であり、無視できるレベルであった。また、G相あるいは γ' 相を含む析出相の形成がTEM観察で確認された。析出相の数密度は、APT測定で認められた球状の溶質原子クラスタよりも2桁少なく、APTで確認された溶質原子クラスタの大部分はG相や γ' 相の前駆体であると考えられる。これらの照射欠陥や溶質原子クラスタの形成は、照射を受けた材料のオーステナイト相を硬化させる要因である。

球状の溶質原子クラスタの平均直径や数密度および平均組成は、中性子照射された316ステンレス鋼について報告されている溶質原子クラスタのデータ⁽²⁵⁾と類似していた。また、転位ループ等の点欠陥クラスタへのNiとSiの偏析と考えられるリング状の溶質原子クラスタも認められた。リング状の溶質原子クラスタは、直径はTEM観察で認められた完全転位ループやフランクループと近いものの、数密度は1桁少なかった。これは一部の転位ループにNiやSiが偏析していることを示唆する。最近、馬淵ら⁽³⁴⁾はNiやSiが偏析することで転位ループ等の照射欠陥の硬化係数が増大する(より硬い欠陥になる)可能性を報告している。リング状の溶質原子クラスタの形成は照射されたオーステナイトステンレス鋼でも認められているが^{(20)~(25)}、転位ループへの偏析挙動や偏析した転位ループが硬化に及ぼす寄与については十分には理解されておらず、APT測定とTEM観察を同じ視野(位置)で実施する等の高度な実験による検討が今後必要である。

オーステナイト相では、熱時効のみでは有意なマイクロ組織変化が生じないと考えられることから、照射を受けることで硬化し、その硬化には照射欠陥と溶質原子クラスタの形成が寄与すると考えられる。

5.2 熱時効と照射による引張特性の変化

中性子照射を受けると、フェライト相では転位ループ等の照射欠陥が形成されるとともに、溶質原子クラスタの形成が熱時効単独に比べて促進される

ことが示唆され、オーステナイト相では照射欠陥と溶質原子クラスタの形成が認められた。本節では、熱時効と照射によるマイクロ組織変化をもとに、引張特性の変化を検討する。

5.2.1 引張特性の比較

超微小引張試験での引張特性を比較する際には、幾つかの技術的に考慮すべき点がある：(1) 供用前（未照射／未時効）の材料は入手できていないこと、(2) 単結晶からなる試験片であること、(3) S型試験片は細い網目状のフェライト相を含めるために非常に薄く（厚さ：0.3 μm）、引張試験の結果に及ぼす試験片のサイズ効果が大きいこと、(4) 試験片サイズが小さいため、ひずみ速度が比較的高いこと、(5) 伸び測定における分解能が試験中のSIM像の分解能により低いこと（0.4～0.7%）。

(2) については、オーステナイト相のL型試験片の応力-伸び線図で単結晶試験片の典型的な挙動が認められた。この試験では、すべりの開始まで応力が増加し、その後、応力はほとんど増加せずすべり変形が継続して破断に至った。一方、S型試験片では加工硬化と同様の応力の増加を示したが、その原因については良く分かっていない。(3) については、FTT材とMCP材でともに、オーステナイト相の耐力にS型とL型の試験片で～200 MPaの差が認められた。この系統的な違いは、試験片のサイズ効果の結果であると考えられる。小さな試験片では内包される欠陥の数が減少するため、転位の増殖機構であるフランク・リード源となる転位の張り出しの間隔が広くなり、転位の増殖、すなわち塑性変形に必要な応力が高くなり、S型試験片ではL型試験片より高い耐力を示す。このため、同じ型の試験片のデータをFTT材とMCP材で比較することにした。

FTT材のフェライト相の耐力は、MCP材のフェライト相よりも270 MPa高かった。また、FTT材のオーステナイト相でも、S型とL型の両方の試験データで、MCP材よりも耐力は200 MPa高かった。MCP材のオーステナイト相では製造時のマイクロ組織が維持されていると考えられることから、オーステナイト相の耐力に認められた200 MPaの差の大部分は照射硬化に対応する可能性が高いと考えられる。また、フェライト相で認められた耐力の違い(270 MPa)についてもフェライト相の照射硬化に対応すると考えられ、FTT材とMCP材の供用前のフェ

ライト相の初期強度が同等であったと仮定すると、現在のFTT材の試験片は、中性子照射を受けることで熱時効単独のMCP材よりも高い硬化を引き起こしたことを示唆する。これはマイクロ組織の傾向とも対応する。

5.2.2 ミクロ組織と引張特性の関係

FTT材とMCP材の供用前の材料は入手できなかったため、機械的性質の変化とマイクロ組織の変化の関係を厳密に議論することはできない。よって、本項では2つの溶接金属の耐力の相対的な違いを、マイクロ組織データに基づいて計算したせん断応力の変化と定性的に比較する。なお、超微小引張試験片は単結晶であったため、本計算は多結晶の試験片ではなく単結晶について行っていることを注記する。

オーステナイト相については、マイクロ組織は転位ループ、キャビティ、溶質原子クラスタ等のよく知られた照射誘起欠陥で構成されていた。このような欠陥の硬化への寄与（せん断応力の増加 $\Delta\tau$ ）は、次式で示す欠陥*i*のサイズ（ d_i ）と数密度（ N_i ）を使用したオロワン機構に基づく硬化モデルによって推定できる。

$$\Delta\tau = \sqrt{\sum \Delta\tau_i^2}, \quad \Delta\tau_i = \alpha_i \mu b \sqrt{N_i d_i} \quad (1)$$

ここで、 α_i は欠陥*i*の硬化係数、 μ はせん断弾性率（76 GPa）、 b はバーガーズベクトル（0.255 nm）である。

マイクロ組織データと想定した硬化係数を使用した、FTT材のオーステナイト相におけるせん断応力の増加 $\Delta\tau$ の計算結果を表5に示す。この計算では、TEMで観測される析出相の数密度はAPTで観測される溶質原子クラスタの数密度よりもはるかに少ないため、その寄与を無視した。計算された $\Delta\tau$ は208 MPaであった。 $\Delta\tau$ を単結晶のシュミット因子（最大値）で除算し、耐力の増加 $\Delta\sigma_y$ を求めた。なお、引張方向を特定して試験していないことから、シュミット因子は0.45と仮定した。 $\Delta\sigma_y$ は462 MPaであった。

FTT材とMCP材の供用前のオーステナイト相の初期強度が同等であったと仮定すると、超微小引張試験で認められたFTT材とMCP材のオーステナイト相の耐力の差200 MPaは、計算されたFTT材の照射硬化量462 MPaと一致しない。この不一致の原因として、試験片のサイズ効果の現れ方が未照射材と照射材で異なる⁽³⁵⁾ことが影響していると考え

表5 FTT材のオーステナイト相におけるせん断応力の増加の計算結果

マイクロ組織	平均直径 (nm)	数密度 ($\times 10^{23} \text{ m}^{-3}$)	α_i	$\Delta\tau_i$ (MPa)
ドット状欠陥	2.4	0.84	0.2	55
完全転位ループ	9.1	0.68	0.2	96
フランクループ	12.8	0.33	0.4	159
キャビティ	3.2	0.55	0.2	51
溶質原子クラスタ	3.7	2.0	0.1	53
Total $\Delta\tau$				208

られる。照射材では照射欠陥やNi-Siクラスタが形成されているため、試験片が小さくなくても内包される欠陥の数が未照射材に比べて多く、フランクリン源となる転位の張り出しの間隔が広くなることによる試験片のサイズ効果が、未照射材に比べてより小さな試験片になるまで現れにくい。

単結晶の316Lステンレス鋼の室温での引張試験データ⁽³⁶⁾を参考に、試験片のサイズ効果がない場合のオーステナイト相の耐力を150 MPaと仮定すると、MCP材のオーステナイト相では、S型試験片で470 MPa、L型試験片で270 MPaの耐力増加がサイズ効果により生じていることになる。また、FTT材についてはS型試験片で180 MPa (S型とL型の耐力の差)の耐力増加がサイズ効果により生じているが、L型試験片では生じていないと仮定する。この場合のFTT材の耐力は、照射硬化量462 MPaにサイズ効果がMCP材よりも小さくなる分を差し引くと、MCP材よりもS型試験片で172 MPa、L型試験片で192 MPa高くなる。これは超微小引張試験の実測値 (S型試験片で180 MPa、L型試験片で200 MPaの違い)と近い。試験片のサイズ効果を適切に設定することで、超微小引張試験によりマイクロ組織変化に基づく耐力の変化を評価できることが示唆された。なお、L型試験片を用いた低放射化フェライト鋼の超微小引張試験⁽¹⁸⁾では、未照射材でも試験片のサイズ効果が明確に認められなかったが、低放射化フェライト鋼ではラス境界等の微細な組織が試験片が小さくとも維持されており、照射材のように試験片のサイズ効果が現れ難かった可能性が考えられる。

一方、フェライト相については、Crのスピンodal分解が硬化の主な原因であることが知られているが、スピンodal分解の硬化への寄与を推定するための物理的な相関法は、まだ十分に確立されていない。本研究で示したMCP材のフェライト相の耐力とVパラメータがFTT材と比較してともに低い

傾向は、Pareigeら⁽¹⁶⁾によって報告された铸造ステンレス鋼の硬さとVパラメータとの間の線形相関と一致する。しかし、Vパラメータでは、溶質原子クラスタが形成されている場合にはその影響を含んで評価される可能性があることに注意する必要がある。フェライト相における耐力増加とマイクロ組織変化との相関関係を確立するには、更なる検討が必要である。

6. まとめ

熱時効と中性子照射によるステンレス鋼溶接金属の脆化挙動を理解するため、PWRにて熱時効条件下で長期間使用されたステンレス鋼溶接金属のうち中性子照射を受けた材料と受けていない材料について、マイクロ組織をAPTとTEMで調べるとともに、フェライト相とオーステナイト相の引張特性を超微小引張試験で調べ、マイクロ組織と引張特性の関係を検討した。その結果、以下のことが分かった。

- ・ マイクロ組織については、フェライト相ではCrのスピンodal分解とMn-Ni-Siクラスタの形成が両方の材料で認められ、照射を受けた材料ではMn-Ni-Siクラスタの形成の促進と転位ループ等の照射欠陥の形成が確認された。硬化の主要因となるスピンodal分解については、照射による明確な促進は認められなかった。また、オーステナイト相では、照射を受けた材料で照射欠陥とNi-Siクラスタの形成が確認された。
- ・ 引張特性については、フェライト相とオーステナイト相ともに、照射を受けた材料では受けていない材料よりも高い耐力と引張強さが認められた。オーステナイト相の照射による耐力増加は、試験片のサイズ効果を仮定したオロワンモデルを用いて評価したマイクロ組織

変化に基づく硬化量と良く一致した。

- ・ 照射を受けると熱時効単独よりも硬化することがフェライト相とオーステナイト相とともに確認され、ミクロ組織変化の傾向と対応した。

文献

- (1) PWR炉内構造物点検評価ガイドライン [炉心そう] (第2版), 一般社団法人原子力安全推進協会 炉内構造物等点検評価ガイドライン検討会, 平成27年3月 (2015).
- (2) K.J. Amberge, "PWR Core Barrel Cracking Operating Experience in US, MRP-227-A Inspection Findings Summary," NRC-industry Materials Technical Exchange Meeting, Rockville, MD, 2019.
- (3) O.K. Chopra, "Effects of Thermal Aging and Neutron Irradiation on Crack Growth Rate and Fracture Toughness of Cast Stainless Steels and Austenitic Stainless Steel Welds," NUREG/CR-7185, ANL-14/10 (2015).
- (4) Materials Reliability Program: PWR Internals age-Related Material Properties, Degradation Mechanisms, Models and Basis Data - State of Knowledge (MRP-211, Revision 1) , EPRI, 2017.
- (5) A. Jenssen, J. Stjärnsäter, K. Kese, R. Carter, J. Smith, A. Demma, M. Hiser, "Fracture Toughness Testing of an Irradiated PWR Core Barrel Weld, Contribution of Materials Investigations and Operating Experience to Light Water NPPs' Safety," Performance and Reliability, Fontevraud 9, SFEN, 2018.
- (6) A. Jenssen, J. Stjärnsäter, R. Pathania, R. Carter, "Crack Growth in Irradiated Stainless Steel Welds in BWR Environments, Contribution of Materials Investigations and Operating Experience to Light Water NPPs' Safety," Performance and Reliability, Fontevraud 9, SFEN, 2018.
- (7) S. Chen, Y. Miyahara, A. Nomoto, K. Nishida, "Effects of thermal aging and low-fluence neutron irradiation on the mechanical properties and microstructure of ferrite in cast austenitic stainless steels," Acta Materialia, 179 (2019) 61.
- (8) 阿部博志, 渡邊豊, 平田一真, 宮崎孝道, 越石正人, 堀内寿晃, 源聡, "圧力バウンダリ構成部で使用されるステンレス溶接金属の熱時効脆化評価のための基盤技術開発 (6) ステンレス鋼の熱時効硬化挙動ならびに照射材のミクロ組織調査", 日本原子力学会2018年秋の大会, 1C05.
- (9) K. Fujii, H. Nishioka, K. Fukuya, "APT measurement of stainless steel welds after long-term aging and irradiation," Proc. 17th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, CNS, 2015.
- (10) O.K. Chopra, A.S. Rao, "Methodology for Estimating Thermal and Neutron Embrittlement of Austenitic Stainless Steels Welds during Service in Light Water Reactors," J. Pressure Vessel Technology, 138 (2016) 040802.
- (11) O.K. Chopra, A.S. Rao, "Methodology for Estimating Thermal and Neutron Embrittlement of Cast Austenitic Stainless steels during Service in LWRs," J. Pressure Vessel Technology, 138 (2016) 040801.
- (12) Materials Reliability Program: A Review of Radiation Embrittlement for Stainless Steels (MRP-79) - Revision 1, EPRI, 2004.
- (13) 平成20年度照射誘起応力腐食割れ (IASCC) 評価技術に関する報告書, 独立行政法人原子力安全基盤機構, 平成21年9月 (2009).
- (14) T. Tobita, M. Udagawa, Y. Chimi, Y. Nishiyama, K. Onizawa, "Effect of neutron irradiation on the mechanical properties of weld overlay cladding for reactor pressure vessel," J. Nucl. Mater., 452 (2014) 61.
- (15) T. Takeuchi, Y. Kakubo, Y. Matsukawa, Y. Nozawa, Y. Nagai, Y. Nishiyama, J. Katsuyama, K. Onizawa, M. Suzuki, "Effect of neutron irradiation on the microstructure of weld overlay cladding for nuclear reactor pressure vessels," J. Nucl. Mater., 443 (2013) 266.
- (16) C. Pareige, S. Novy, S. Sallet, P. Pareige,

- “Study of phase transformation and mechanical properties evolution of duplex stainless steels after long term thermal ageing,” *J. Nucl. Mater.*, 411 (2011) 90.
- (17) 藤井克彦, 福谷耕司, “オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属のミクロ組織への熱時効と照射の影響”, *INSS JOURNAL* 25 (2018) NT-3.
- (18) T. Miura, K. Fujii, K. Fukuya, “Micro-tensile testing of reduced activation ferritic steel F82H irradiated with Fe and He ions,” *Nucl. Mater. Energy*, 17 (2018) 24.
- (19) 三浦照光, 藤井克彦, 福谷耕司, “中性子照射ステンレス鋼の粒界酸化部の破壊特性の評価”, *INSS JOURNAL*, 25 (2018) NT-5.
- (20) P. Pareige, A. Etienne, B. Radiguet, “Experimental atomic scale investigation of radiation effects in CW316SS and UFG-CW 316SS,” *J. Nucl. Mater.* 389 (2009) 259.
- (21) A. Etienne, B. Radiguet, N.J. Cunningham, G.R. Odette, P. Pareige, “Atomic scale investigation of radiation induced segregation in austenitic stainless steels,” *J. Nucl. Mater.*, 406 (2010) 244.
- (22) Z. Jiao, G.S. Was, “Novel features of radiation-induced segregation and radiation-induced precipitation in austenitic stainless steels,” *Acta Mater.* 59 (2011) 1220.
- (23) T. Toyama, Y. Nozawa, W. Van Renterghem, Y. Matsukawa, M. Hatakeyama, Y. Nagai, A. AlMazouzi, S. Van Dyck, “Irradiation-induced precipitates in a neutron irradiated 304 stainless steel studied by three-dimensional atom probe,” *J. Nucl. Mater.*, 418 (2011) 62.
- (24) P. Chou, N. Soneda, K. Nishida, K. Dohi, E.A. Marquis, Y. Chen, “Microstructure and Fracture Toughness of Irradiated Stainless Steel Retrieved from the Field: the Potential Role of Radiation-Induced Clusters,” *Proc. Fontevraud 8 - Contribution of Materials Investigations and Operating Experience to LWRs' Safety, Performance and Reliability*, Avignon, 2014.
- (25) 藤井克彦, 福谷耕司, “中性子照射ステンレス鋼の溶質原子クラスタ形成”, *INSS JOURNAL*, 23 (2016) NT-5.
- (26) J.M. Hyde, C.A. English, “An analysis of the structure of irradiation induced Cu-enriched clusters in low and high nickel welds,” *Proc. Mater. Res. Soc. Symp.*, vol. 650 (2001) R6.6.1.
- (27) M.K. Miller, “Atom Probe Tomography: Analysis at the Atomic Level,” Kluwer Academic, New York (2000).
- (28) F. Danoix, B. Deconihout, A. Bostel, P. Auger, “Some new aspects on microstructural and morphological evolution of thermally aged duplex stainless steels,” *Surface Sci.*, 266 (1992) 409.
- (29) M. Kato, “Hardening by spinodally modulated structure in b.c.c. alloys,” *Acta Met.*, 29 (1981) 79-87.
- (30) T.G. Lach, A. Devaraj, K.J. Leonard, T.S. Byun, “Co-dependent microstructural evolution pathways in metastable δ -ferrite in cast austenitic stainless steels during thermal aging,” *J. Nucl. Mater.*, 510 (2018) 382.
- (31) G.S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science*, Springer, 2007.
- (32) K. Fukuya, “Current understanding of radiation-induced degradation in light water reactor structural materials,” *J. Nucl. Sci. Tech.*, 50 (2013) 213.
- (33) K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, Y. Kitsunai, “Evolution of microstructure and micro-chemistry in cold-worked 316 stainless steels under PWR irradiation,” *J. Nucl. Sci. Tech.*, 43 (2006) 159.
- (34) 馬淵貴魁彰, 土井武志, 福元謙一, 藤井克彦, “オーステナイト鋼の照射硬化に対する溶質クラスタの影響”, 日本原子力学会2019年秋の大会, 2H07.
- (35) P. Hosemann, C. Shin, D. Kiener, “Small scale mechanical testing of irradiated materials,” *J. Mater. Res.* 30 (2015) 1231-1245.
- (36) 岡本和孝, 近藤保夫, 金田潤也, 吉成明, 青野泰久, “析出強化による単結晶オーステナイト系ステンレス鋼の機械的性質の改善”, *日本金属学会誌*, 63, 6 (1999) 796.