

原子炉容器鋼中の溶質原子クラスタ形成に対する Ni の影響

Effect of Ni on Solute Atom Clustering in Reactor Vessel Steels

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii) *¹

福谷 耕司 (Koji Fukuya) *¹

要約 原子炉容器鋼に中性子照射で形成する溶質原子クラスタの形成機構を明らかにすることを目的に、原子炉容器鋼のモデル合金である Fe-Mn-Ni 合金および Fe-Mn 合金に対して、Fe イオン照射試験とアトムプローブ分析を実施し、低照射量での溶質原子クラスタ形成に対する Ni の影響を調べた。照射量 0.026dpa ではクラスタの大きさと密度に Ni 濃度による違いはほとんどないが、照射量の増加に伴い Ni 濃度が高いほどより小さなクラスタが高密度に形成した。また、照射量の増加に伴いクラスタ中の Ni 濃度も増加する傾向があった。これらの結果は照射により誘起された Ni の集積が溶質原子クラスタを安定化するとともに、高照射領域で Ni が溶質原子クラスタの形成を促進し照射脆化に寄与することを示唆する。

キーワード 照射脆化, 原子炉容器, アトムプローブ, 溶質原子クラスタ

Abstract To investigate the influence of Ni on the solute atom clustering in the reactor vessel steels irradiated by neutrons, ion-irradiation experiment was carried out using Fe-1.5Mn-xNi alloys with Ni concentration, x between 0 and 2 wt%. Specimens irradiated by iron ions at 290°C to 0.16 dpa were examined by atom probe tomography. At an irradiation dose of 0.026 dpa, there was almost no difference in the size and number density of the clusters depending on the Ni concentration, but as the irradiation dose increased, smaller ones formed at higher number densities as the Ni concentration increased. In addition, the Ni concentration in the cluster tended to increase as the irradiation dose increased. These results indicated that the accumulation of Ni induced by irradiation stabilizes the solute atom clusters, and that Ni promotes the formation of solute atom clusters in the high irradiation region and contributes to irradiation embrittlement.

Keywords radiation embrittlement, reactor vessel, atom probe tomography, solute atom cluster.

1. はじめに

軽水型発電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吸収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^{(1)~(4)}。また、脆化因子が次第に明らかになるにつれて、物理的な脆化機構に立脚した予測式の開発が進められ^{(5)~(8)}、国内では 2007 年に日本電気協会の電気技術規格 JEAC4201「原子炉構造材の監視試験方法」が改訂された⁽⁹⁾。原子炉容器に使用されている A533B 鋼等の低合金鋼では、ナノメートル (nm) ・スケールの極めて微細な溶質原子クラスタの形成やマトリックス損傷と呼ばれる照射欠陥集合体の形成が照射脆化因子であり、照射脆化機構の解明には材料組成や照射条件が異なる場合の照射マイクロ組織変化を把握して、それら

の硬化への寄与度を明らかにすることが重要である。最近の研究から、溶質原子クラスタとして銅 (Cu)、マンガン (Mn)、ニッケル (Ni)、シリコン (Si) が集積したクラスタが形成されること、マトリックス損傷として格子間原子型の転位ループが形成されることが明らかになっている^{(10)~(13)}。また、溶質原子クラスタの組成が材料の組成に依存すること、形成したクラスタの体積率によって硬化量を比較的良好に整理でき、脆化の主要因は溶質原子クラスタの形成であると考えられることが報告されている⁽¹²⁾⁽¹³⁾。しかし、溶質原子クラスタ、特に Cu を含まない Mn-Ni-Si クラスタ等の形成機構や、転位ループのクラスタ形成核としての役割、クラスタを構成する個別元素のこれらへの影響については十分に解明されていない。

脆化予測の高度化の動向については、九州電力株式会社玄海発電所 1 号機等、加圧水型原子炉 (pressurized water reactor, PWR) で得られた長時

*1 (株) 原子力安全システム研究所 技術システム研究所

間の監視試験データにおいて、規格 JEAC4201-2007 に基づく予測を上回る傾向にある場合があった。このため、最新の監視試験片の測定結果と加速照射による高照射量データを加えると同時に、高照射量のデータに重み付けし、高照射量領域の予測精度を上げた係数の設定による予測式の見直しが進められ、「2013年追補版」として改訂されている⁽¹⁴⁾。さらに、2013年以降にも高照射量の監視試験データが蓄積されており、これを反映した JEAC4201 の改訂も検討され始めている⁽¹⁵⁾。次回改訂でもマイクロ組織変化も踏まえた精緻な予測が取り入れられると考えられ⁽¹⁶⁾、高照射量までの脆化機構を確認していくことが重要であり、溶質原子クラスタを構成する Cu, Mn, Ni, Si の個別元素の脆化に対する影響を理解することも必要である。

そこで、溶質原子クラスタを構成する Cu, Mn, Ni, Si の個別元素のマイクロ組織変化と硬化に対する影響を調べるために、低 Cu 濃度の実用低合金鋼の化学組成を模した Fe-1.5Mn-0.5Ni-0.25Si 合金をベースにした原子炉容器鋼モデル合金 10 種を 290°C でイオン照射した後、硬さを測定して照射硬化挙動を調べるとともに、アトムプローブ (atom probe tomography, APT) 分析で硬化因子を調べた⁽¹⁷⁾。その結果、すべての試料に溶質原子クラスタの形成が確認され、球状のクラスタに加えて、棒状の Mn や Mn/Ni のクラスタの形成が認められた。Fe-1.5Mn-xNi 合金系では、Ni 濃度が高くなるほどループ状の Mn/Ni の集積が顕著になり、Mn 単独の集積は減少する傾向があった。これは Ni の添加が転位ループの形成を促進し、その転位ループに Mn が集積することで、Mn の単独の集積・クラスタ化が抑制されたと考えられた。また、Fe-1.5Mn-xSi 合金系では、Si 濃度の増加に伴い Mn クラスタが認められなくなるとともに、ループ状の Si の集積が顕著になる傾向が認められた。Fe-1.5Mn-xNi 合金では Ni と Mn が共に転位ループに集積することが見られたが、Fe-1.5Mn-xSi 合金では Si のみが転位ループに集積した。Si が共存すると、Si と転位ループ等の点欠陥シंकとの反応が先行することで Mn の集積は抑制され

硬化が小さくなる機構が考えられた。一方で、Mn を含まない合金ではクラスタの数密度が低く、Mn が溶質原子クラスタの形成に強く影響することが示唆された。ただし、照射実験は、深さ 600 nm での照射量が 1 dpa から 5 dpa の範囲であり、PWR の原子炉容器の 60 年運転を想定した場合の照射量 0.1 dpa に比べて高い照射量条件である。このため、溶質原子クラスタの形成の初期過程への個別元素の影響というよりはむしろ、ループ状の Mn や Ni, Si の集積が観察されていることから、照射マイクロ組織変化のかなり進んだ状態での影響を明らかにした結果と考えられる。

そこで、本研究では、溶質原子クラスタ形成に対する Ni の影響を調べることを目的にして、Ni 濃度を 0 から 2 wt% の範囲で変化させた Fe-1.5Mn-xNi 合金 4 種に、可能な限り低い損傷速度 (1×10^{-5} dpa/s) で、低照射量 (最大 0.16 dpa) のイオン照射実験を行った。これにより、溶質原子クラスタの形成の初期過程を把握し、照射脆化に対する Ni 影響を調べた。

2. 実験方法

2.1 供試材

本研究で用いた材料は、原子炉容器鋼モデル合金の Fe-Mn-Ni 合金および Fe-Mn 合金である。表 1 に化学組成を示す。

試験片形状は、長さ 4 mm、幅 2 mm、厚さ 0.4 mm の板状である。イオンを照射する面は、エメリー紙 #1200 まで湿式研磨した後、粒径 3 μm のダイヤモンドでバフ研磨した。さらに、コロイダルシリカ 0.02 μm でダイヤモンド研磨による変質層を取り除いた。

2.2 イオン照射

イオン照射は京都大学イオン照射設備 DuET で実施した。照射には、6.4 MeV の Fe³⁺イオンを用いた。照射温度は 290°C であり、深さ 600 nm での損傷速度は

表 1 試料の化学組成 (wt%)

Alloy	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cu	O	N	Fe
FeMn	0.004	<0.01	1.54	0.001	0.002	<0.01	<0.01	0.0040	0.0004	Bal.
FeMn0.5Ni	0.003	<0.01	1.51	0.001	0.001	0.53	<0.01	0.0040	0.0006	Bal.
FeMn1Ni	0.004	<0.01	1.66	0.001	0.002	1.01	<0.01	0.0038	0.0005	Bal.
FeMn2Ni	0.003	<0.01	1.59	<0.001	0.002	1.98	<0.01	0.0059	0.0003	Bal.

1.4×10^{-5} dpa/s である。損傷量は 0.026 dpa, 0.074 dpa, 0.158 dpa の 3 条件とした。なお、照射量はイオン注入解析用ソフトウェア SRIM2006 を用い⁽¹⁸⁾、純 Fe を仮定してはじき出しエネルギーを $E_d = 40$ eV とし て計算した。

2.3 硬さ測定

硬さは、超微小押し込み硬さ試験機 (ELIONIX ENT-2100) を用い、ナノインデンテーションにより押し込み深さ 300 nm で測定した。6.4 MeV Fe^{3+} イオン照射では、ピーク損傷深さは約 1500 nm であり、最大深さは約 2000 nm である。照射材では超微小硬さ測定の押し込み深さの 4 倍程度の深さ領域が塑性変形し、この領域の硬さの平均値が測定される。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のみの硬さを得た。また、20 個以上の結晶粒に対して測定を行い、結晶方位と圧子との幾何学関係による硬さの測定値への影響を平均化した。

2.4 アトムプローブ測定

APT測定には、日本原子力研究開発機構の敦賀廃止措置実証部門新型転換炉原型炉ふげんの管理区域内にある高経年分析室に導入された CAMECA 社製の LEAP3000XHR を用いた。測定はレーザーパルスモードで行い、試料温度は -208°C 、レーザー出力は 0.2 nJ とした。

測定用の針状の試料は、集束イオンビーム (focused ion beam, FIB) 加工装置 (HITACHI 製 NB5000) 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 ($2 \times 2 \times 10 \mu\text{m}$) を切り出した後、タングステン (W) ニードルの先端に W 蒸着で固定し、リング状にビームを走査して試験片を削り円錐状に加工した。なお、加工の進行に伴いリングの大きさとイオンビームの強度と加速電圧を小さくすることで、加工ビームの影響を極力排除し先端径 $0.1 \mu\text{m}$ の針状に加工した。

APT測定で収集したデータは、質量/電荷比ごとに元素の種類を決定し、各元素の 3 次元像形成処理 (測定したデータからアトムマップを再構成するコンピュータ処理) を行った。多くの元素において、質量/電荷比は元素固有の値となり、Fe-Mn 合金ではすべての同位体を分離して評価が可能である。一方、Fe-Mn-

Ni 合金では、質量が 58 の Fe と Ni を分離できない。そこで、便宜上、元素 58 として解析を行った。なお、3 次元像形成処理においては、アトムマップの z 方向長さを最適化するために、電界蒸発場 (Evaporation Field) 30.0 V/nm とアトムマップの伸長係数 (Image Compression Factor) 1.65 を用いた。

3. 結果

3.1 硬さ測定

各モデル合金に対して測定された硬さを図 1 に示す。未照射材 (図中 0 dpa) の硬さは Ni の添加量に伴い増加する傾向がある。すべての合金で照射硬化が認められた。図 2 に照射による硬さの増加量を Ni 濃度に対して示した。低照射量の 0.026 dpa 照射では Ni 濃度の増加に伴い硬さの増加量は小さくなる傾向が認められた。また、0.074 dpa 照射でも Ni 濃度の増加

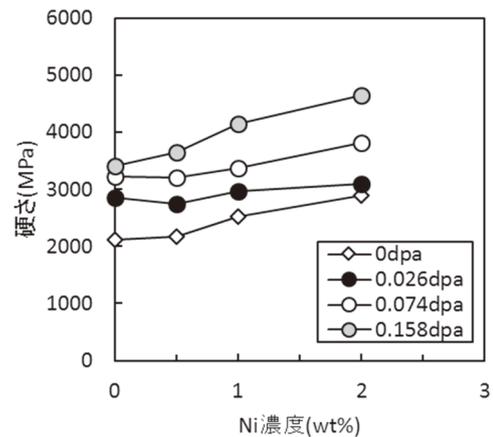


図1 硬さの測定結果

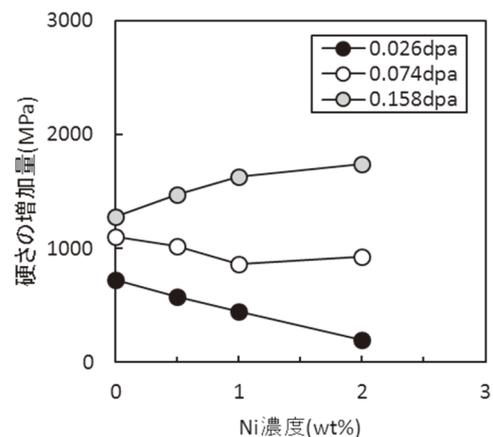


図2 硬さの増加量とNi濃度の関係

に伴い硬さの増加量は小さくなる傾向が認められたが、その減少傾向は小さくなった。一方、照射量 0.158 dpa では、Ni 濃度の増加に伴い硬さの増加量は大きくなる傾向であった。この結果は、Ni 濃度により照射によるマイクロ組織変化が異なり、照射量依存性も異なることを示唆する。

3.2 アトムプローブ測定

図3に、0.158 dpa照射されたFeMn2Ni合金試料を例にアトムマップを示した。球形のMnとNiが集積した溶質原子クラスターの形成が認められる。また、Niが濃化したのと同じ場所で元素58の濃化も認められる。これは溶質原子クラスターに含まれる元素58の多くがNiであることを示唆する。そこで、溶質原子クラスターの解析では、元素58をNiとして取り扱った。

すべての試料でMnとMn/Niのクラスターの形成が確認された。図4に、各照射量における溶質原子クラスターの形成に対するNi濃度の影響をMnとNiのアトムマップで比較した図を示す。アトムマップは微細なクラスターが識別しやすいように厚さ5 nmで切り出したものである。微細な溶質原子クラスターが高密度に形成していることが分かる。また、照射量が増加するとともに溶質原子クラスターの形成が促進され、Ni濃度が高くなるほどクラスターが微細になる傾向が認められた。

溶質原子クラスターを定量的に検討するため、再帰的探査アルゴリズムに基づくクラスター解析を行った。なお、Niのみが集積した溶質原子クラスターは今回観察されなかったため、Mnをクラスターのコア原子と仮定してクラスターの抽出を行った。ここでは、互いの距離

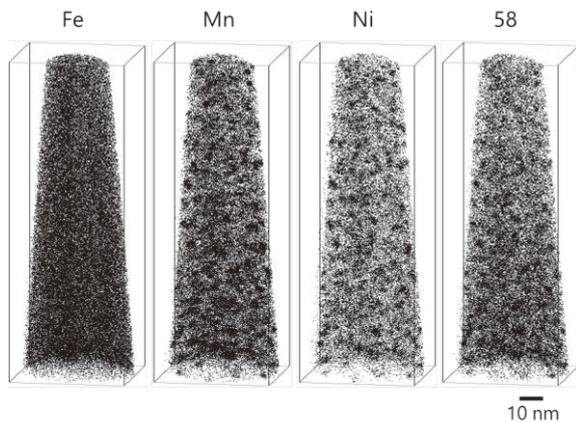
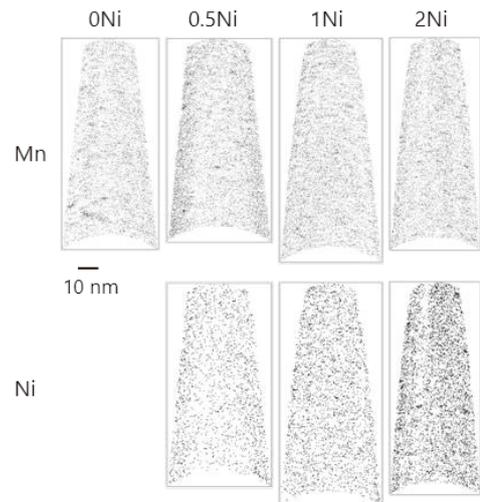
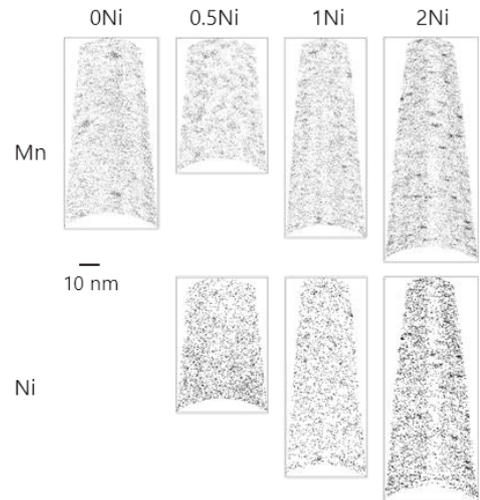


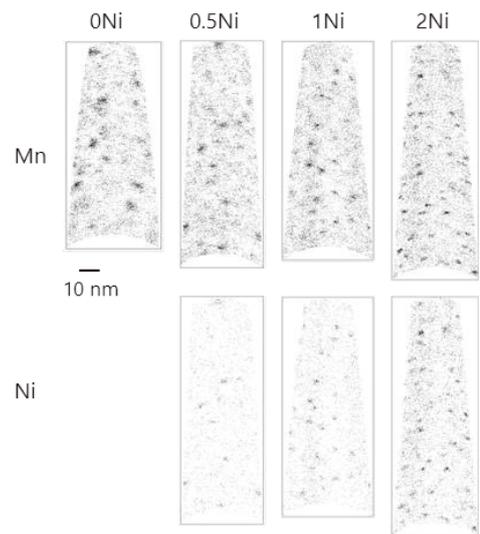
図3 アトムマップの例
0.158 dpa照射 FeMn2Ni合金試料



(1) 照射量 0.026 dpa



(2) 照射量 0.074 dpa



(3) 照射量 0.158 dpa

図4 溶質原子クラスター形成に対する照射量とNi濃度の影響

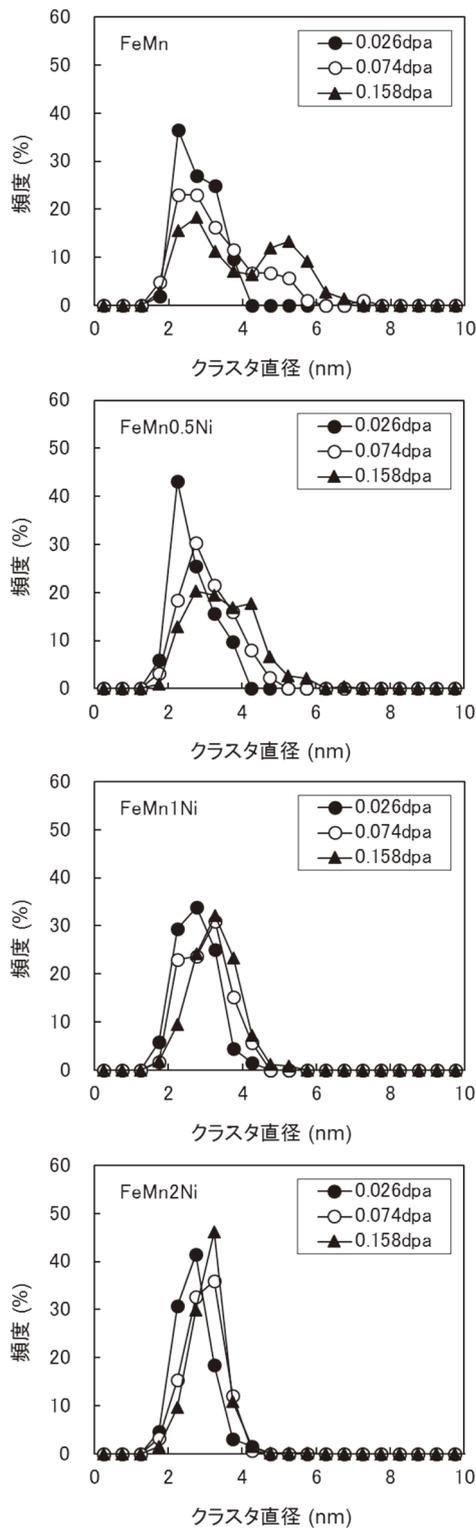


図5 各合金試料での溶質原子クラスタのサイズ分布の照射による変化

が 0.8 nm 以下で 20 個以上の Mn が集積した状態にあるものをクラスタのコアと判断した。さらに、0.5 nm 以内の距離にコア原子が 3 個以上ある Mn 以外の原子をクラスタに帰属する原子として評価した。

図 5 には、各合金試料における照射量による溶質原子クラスタのサイズ分布の変化を示した。FeMn 合金試料では、照射量が 0.026 dpa では直径が 2 から 4 nm で 3 nm に大きさのピークを持つ Mn クラスタのみが存在するが、照射量の増加に伴い直径が 5 nm の位置に新たなピークを生じるようになり、0.158 dpa の照射では直径が 3 nm と 5 nm にピークを持つクラスタが同程度存在するようになる。これは照射初期に形成した溶質原子クラスタの一部が成長したことを示唆する。一方、FeMn0.5Ni 合金試料では、照射量の増加に伴いクラスタのサイズ分布が広がるとともに、ピークが大きい側にシフトする傾向があるが、FeMn 合金試料に見られたような明確なバイモーダルなサイズ分布とはならない。さらに、Ni 濃度が増加すると、照射量が増加してもサイズ分布はほとんど変化せず、ピークが大きい側にわずかにシフトするのみである。また、Ni 濃度が 0.5 から 2.0 wt% の範囲では、Ni 濃度の増加に伴いクラスタのサイズ分布の幅が狭くなる傾向があり、より大きさがそろった溶質原子クラスタが存在していることを示す。これらの結果から、Ni の添加には照射初期に形成する溶質原子クラスタを安定化する寄与があり、Ni 濃度が高くなるほどその影響が大きくなることが示唆される。

図 6 には、同一の照射量での溶質原子クラスタの数密度分布に対する Ni 濃度の影響を比較した。なお、縦軸は全体の数密度にサイズの頻度分布をかけたものである。照射量が 0.026 dpa では、溶質原子クラスタの直径ごとの数密度の分布に、合金による顕著な違いは認められない。しかし、照射量の増加に伴い Ni 濃度による違いが明確に認められるようになり、Ni 濃度が高いほどクラスタの数密度は増加した。これは、Ni の添加が溶質原子クラスタを安定化するのみならず、形成を促進する寄与があることを示す。この結果は Ni 濃度が高い原子炉容器鋼でより照射脆化が進むという中性子照射材での知見と一致する。

図 7 には、各合金試料についてクラスタの Mn と Ni の組成と大きさの関係を示した。合金の Ni 濃度によらずクラスタの Mn 濃度は 20 から 60 at% の範囲に分布しており、Fe-1.5Mn 合金試料との差は認められない。Fe-1.5Mn 合金試料のクラスタ直径と Mn 濃度の関係の照射量による変化をみると、照射量の増加に伴い Mn 濃度が 30% 程度の大きなクラスタが形成していく様子が認められる。ただし、小さなクラスタの塊には大きな変化は認められない。これに対して、Ni を含む

合金では、成長したクラスタが形成しなくなり、Ni 濃度が高いほどその抑制効果は顕著であった。また、Ni 濃度が高いほどクラスタの Ni 濃度も高くなる傾向があり、照射量の増加に伴い増加する傾向も認められた。これに対して Mn 濃度は照射量が増加しても変化しない。図 8 に各合金に形成する Ni を含まない (Ni 濃度 0 at%) クラスタの割合の照射量による変化を示した。合金の Ni 濃度が高いほど割合は小さい。また、照射量の増加とともに割合は低下した。この結果は、まず照射により Mn の集積を主としたクラスタが形成し、これに Ni が集積するクラスタの形成機構を示唆する。

図 9 に溶質原子クラスタの平均直径、数密度、体積率の比較を示した。平均直径は照射量とともに増加す

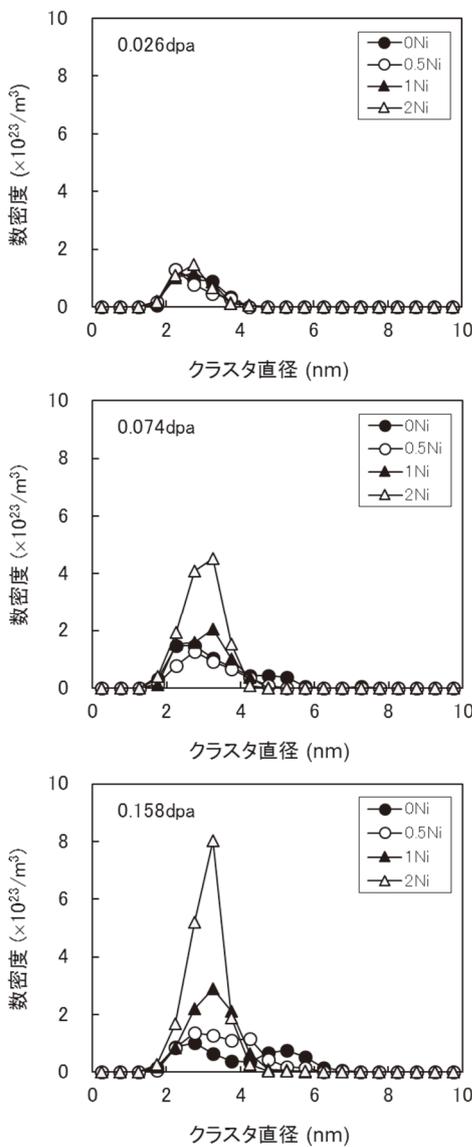


図 6 溶質原子クラスタのサイズ分布に対する Ni 濃度の影響

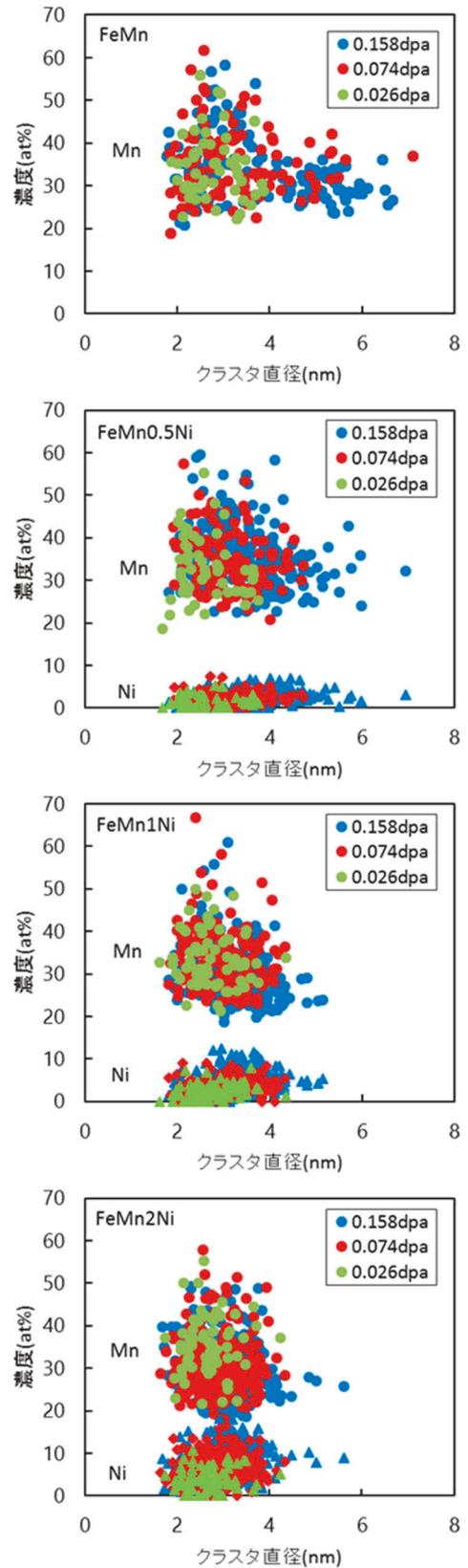


図 7 溶質原子クラスタの大きさと組成の関係

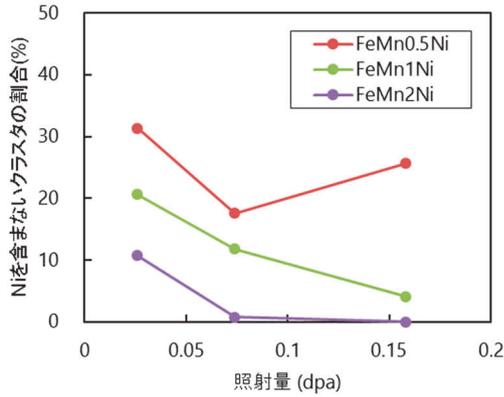


図8 Niを含まないクラスタの割合の照射による変化

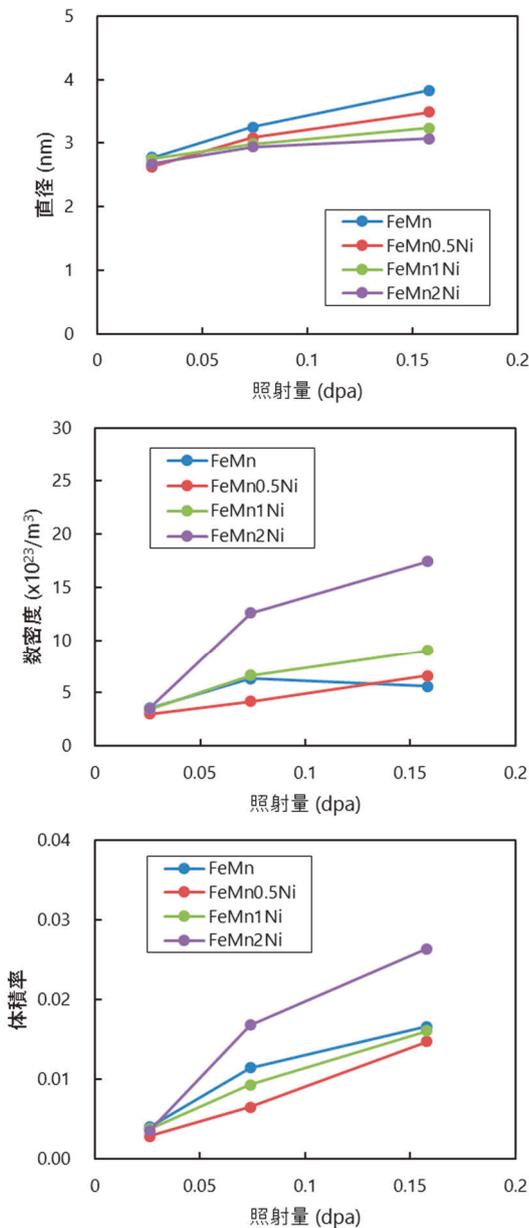


図9 溶質原子クラスタの直径と数密度、体積率の照射による変化

る傾向があった。また、Ni濃度が高くなるほど小さくなった。数密度は、Niを含む合金では、照射量とともに増加する傾向があり、Ni濃度が高くなるほど大きな増加を示した。これに対してNiを含まないFeMn合金試料では、数密度は照射量の増加によりほとんど変化しなかった。図10には、溶質原子クラスタのMn濃度とNi濃度の比較を示した。FeMn合金試料とFeMn0.5Ni合金試料では照射量の増加に伴うMn濃度の変化はほとんどない。これに対して、FeMn1Ni合金試料とFeMn2Ni合金試料では照射量の増加に伴いMn濃度はわずかに減少した。これは、Ni濃度の増加によるためである。1 wt%以上のNi濃度の合金において、照射に伴い溶質原子クラスタの組成が変化していくことが確認された。

4. 考察

FeMnNi合金を290°Cで照射量0.16 dpaまで加速器で可能な最も低い電流密度でイオン照射した結果、硬さの増加とMn-Niが集積した溶質原子クラスタの形成が認められた。図11にクラスタの平均直径と数密度から計

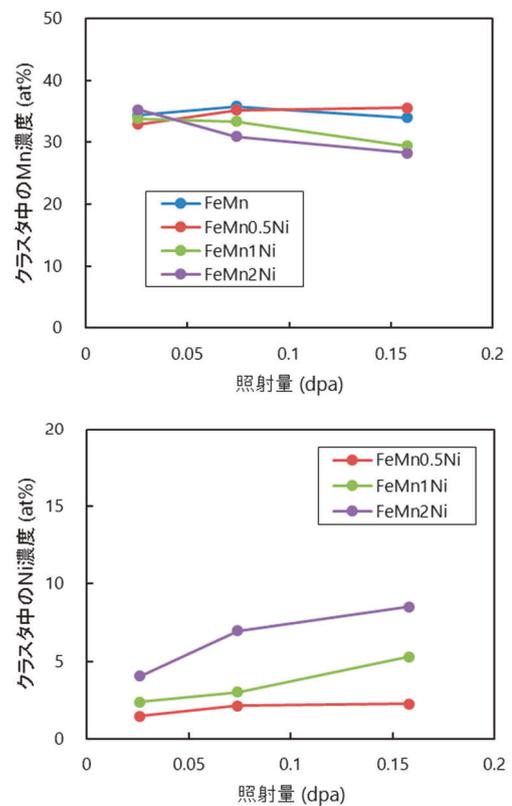


図10 溶質原子クラスタのMn, Ni濃度

算した体積率の平方根と硬さの増加量の関係をまとめて示した。なお、これまでに報告しているMn濃度を0.2から1.9 wt%変化させたFe-Mn合金試料のデータも合わせて示した⁽¹⁹⁾。照射温度は290°Cで、損傷速度は 1.1×10^{-4} dpa/s、照射量は0.12 dpaと1.01 dpaであり、今回の照射と比較して損傷速度と照射量ともに約10倍の照射条件である。合金組成によらずクラスタの形成量と硬さの増加量には比較的良好な相関が認められた。また、FeMn合金試料のデータはFe-Mn合金試料のデータの範囲とよく一致しており、今回の範囲では損傷速度の違いによらず類似のMnクラスタが形成し硬化を生じていることが分かった。また、Niを添加した合金試料のデータもFe-Mn合金試料のデータの範囲とよく一致しており、MnクラスタとMn-Niクラスタで硬化係数に大きな違いがないことを示唆する。ただし、FeMn1Ni合金試料とFeMn2Ni合金試料では高照射量でクラスタの体積率が大きくなると硬化量が大きくなる傾向が認められる。予備的に実施したTEM観察では、図12に示したように、照射量0.158 dpaのFeMn合金試料では3 nmから10 nmの大きさの転位ループが数密度 10^{22} m^{-3} のオーダーで形成していることが認められている。また、より高い照射量までイオン照射したFe-Mn-Ni合金において、Ni濃度が高くなるほどループ状のMn/Niの集積が顕著になり、Mn単独の集積が減少することが報告されている⁽¹⁷⁾。この原因として、Niの添加が転位ループの形成を促進することが提案されている。Niを添加した合金試料において高照射量で硬さが増加する傾向がみられた理由には、転位ループの形成の違いによると推察される。今後、より詳細なTEM

観察を実施し、定量的なTEMデータの評価が必要である。また、JMTR等で中性子照射されたモデル合金による検討も重要と考えられる。

FeMn合金試料について溶質原子クラスタのサイズ分布とMn濃度の変化を調べた結果として、図5と図7に示したように、照射量の増加に伴い直径が4~6 nmで、Mn濃度が30 at%程度でばらつきの小さい溶質原子クラスタが増加していくことが確認されている。また、図9に示したように溶質原子クラスタの数密度は照射量の増加によりほとんど変化しなかった。これらの結果を合わせて考えると、照射の初期に形成したMnクラスタの一部が成長して一定組成の相へ変化していくことが推察される。Fe-Mn合金の平衡状態図によると、イオン照射を行った290°Cでの体心立方晶のFe (bcc-Fe)中のMnの固溶量は約3 wt%であり、Fe-1.5Mn合金試料中のMnは熱力学的には固溶状態にある。しかし、照射により導入される空孔等の点欠陥を考慮した照射による溶解度曲線の移動や不飽和固溶体からの析出が報告されている^{(20)~(22)}。空孔濃度をほぼ一定とみなすことができる定常状態に達した被照射状態では、擬平衡的な状態となり相図が変化することが考えられる。仮に、Mnの固溶限が低下し、一部のMnが析出すると仮定すれば、Mn濃度が40 wt%程度の面心立方晶 (fcc) 相が形成することになる。このfcc相のMn濃度は、照射量の増加に伴い形成する溶質原子クラスタのMn濃度30 at%に近い値である。この仮説によれば、Mnクラスタは照射誘起で形成したことになる。しかし、純Feに比べてFe-Mn合金で転位ループの形成が促進されることが報告されている⁽²³⁾。ま

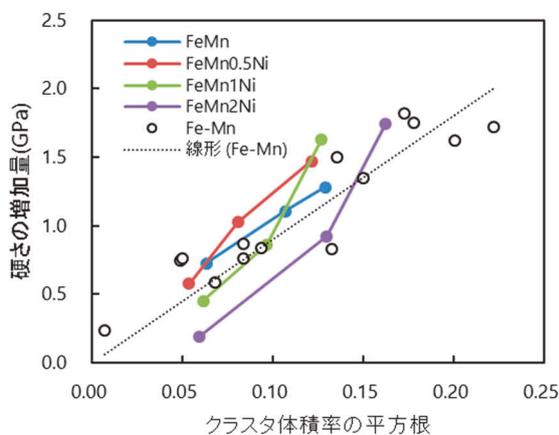


図11 溶質原子クラスタ形成と硬さの増加量の関係

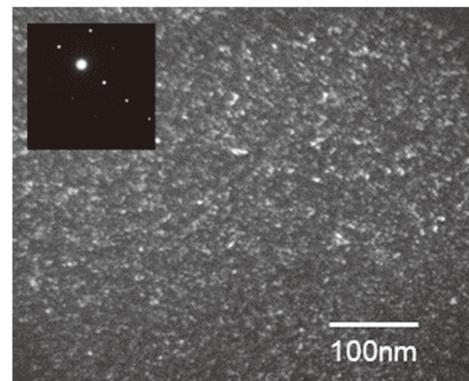


図12 照射量0.158 dpaのFeMn合金試料のTEM暗視野観察結果 (ビームの入射方向は $B=[012]$ 、回折ベクトルは $g=200$)

た, Fe 中に形成した<111>転位ループ内の周辺部に Mn や Si, P が偏析することが密度汎関数理論計算で示されている⁽²⁴⁾. これらを考慮すると, 自己格子間原子 (SIA) ループが形成し, これに Mn が集積することで, 局所的に Mn 濃度が固溶限を上回り, Mn の析出相として Mn クラスタは照射誘起で形成したことになる. どちらの説が正しいかを確認するためには, 転位ループへの Mn 等の偏析を調べる必要がある. 今後, TEM と STEM/EDS を用いた観察により, 転位ループと Mn や Ni の集積との関係を調べるのが重要である. ただし, APT 観察ではループ状の Mn の集積は認められていない.

クラスタの数密度がほとんど変化しなかった理由としては, 数密度 $5 \times 10^{23} / \text{m}^3$ からクラスタの平均間隔を算出すると12.6 nmとなり, クラスタの大きさを考慮すると, 8 nm程度, 大きさの2倍程度しか離れて存在しておらず飽和状態にあることが原因であると考えられる. なお, Ni を含む合金試料についても, より高い照射量ではクラスタの存在が飽和し, 数密度は一定になると推察され, 図9に示した数密度の照射量に伴う変化でもその傾向が認められる.

5. まとめ

溶質原子のうち Ni について, 原子炉容器の照射脆化への影響を検討した. 原子炉容器鋼のモデル合金である Fe-Mn-Ni 合金および Fe-Mn 合金に対して, Fe イオン照射試験を実施し, 低照射量での照射マイクロ組織変化への Ni 影響を検討した.

その結果, Mn および Mn と Ni が集積した溶質原子クラスタの形成が低照射量から硬化を生じる主要な因子であることが確認された. さらに, Fe-Mn 合金試料でも Fe-Mn-Ni 合金試料でも溶質原子クラスタの体積率の平方根と硬さの増加量の関係はよく一致しており, Mn クラスタも Mn-Ni クラスタも同等の硬化係数であることが明らかになった. ただし, Fe-Mn-Ni 合金試料では高照射量で硬化量が大きくなる傾向が認められ, Ni 添加による転位ループ形成の促進の影響が示唆された. 今後より詳細な TEM 観察による定量的な検討が必要である.

文献

(1) J.R. Hawthorne, “Demonstration of improved

radiation embrittlement resistance of A533-B steel through control of selected residual elements,” *Proc. International Symposium on Effects of Radiation on Materials*, ASTM STP 484, p.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, “Improved Embrittlement Correlations for Reactor Pressure Vessel Steels,” NUREG/CR-6551 MCS 970501, November 1998.
- (6) ASTM E900-2, “Standard Guide for Predicting Radiation-Induced Transition Temperature Shift for Reactor Vessel Materials, E706 (IIF),” Annual Book of ASTM Standards, Vol.12.02, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA.
- (7) M.E. Kirk, “Schedule and Status: PTS Rulemaking, RG.1.99 Revision, Appendix G Research Activities,” ASTM E10.02 Committee Meeting, Anaheim, CA, USA, January 2007.
- (8) 曾根田直樹, 土肥謙次, 野本明義, 西田憲二, 石野菜, “軽水炉圧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 -, ” 電力中央研究所報告 Q06019 (2007).
- (9) (社)日本電気協会, 「原子炉構造材の監視試験方法 JEAC4201-2007」, 電気技術規程, 原子力編, 2007.
- (10) C. English, J. Hyde, “Recent progress in the understanding of RPV embrittlement,” *Proc. Int. Symp. on Research for Aging Management of Light Water Reactors*, INSS, p.307 (2008).
- (11) M. Hasegawa, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Nishiyama, M. Suzuki, A. Almazouzi, E. van Walle, R. Gerard, “Evolution of Irradiation-Induced Cu Precipitation and Defects in Surveillance Test Specimens of Pressure Vessel Steels of Nuclear Power Reactors: Positron Annihilation and 3

- Dimensional Atom Probe Study,” *Proc. Int. Symp. on Research for Aging Management of Light Water Reactors*, INSS, p.327 (2008).
- (12) N. Soneda, K. Dohi, A. Nomoto, K. Nishida, S. Ishino, “Microstructural analysis of RPV materials and development of mechanism-guided embrittlement correlation method,” *Proc. Int. Symp. on Research for Aging Management of Light Water Reactors*, INSS, p.355 (2008).
- (13) K. Fukuya, K. Fujii, “A study of radiation embrittlement using simulation irradiation,” *Proc. Int. Symp. on Research for Aging Management of Light Water Reactors*, INSS, p.371 (2008).
- (14) (社)日本電気協会, 「原子炉構造材の監視試験方法 JEAC4201-2007 [2013年追補版]」, 電気技術規程, 原子力編, 2013.
- (15) 橋本資教, 野本明義, 西田憲二, “国内監視試験データを用いた照射脆化予測式の改良,” 日本原子力学会 2019年秋の大会 3H06.
- (16) Y. Hashimoto, A. Nomoto, T. Kobayashi, K. Nishida, N. Soneda, “Revision of the microstructure model of the embrittlement trend curve for Japanese RPV surveillance data,” *FONTEVRAUD* 9, September 2018, Avignon, France, paper 00098.
- (17) 藤井克彦, 福谷耕司, “原子炉容器の照射脆化に対する個別元素の影響”, *INSS JOURNAL*, 24, p.109 (2017).
- (18) J.F. Ziegler, J.P. Biersak, *SRIM2006* (Stopping and Range of Ion in Materials). Available from: <http://www.srim.org>.
- (19) 藤井克彦, 福谷耕司, “原子炉容器鋼中の溶質原子クラスタ形成に対する Mn の影響”, *INSS JOURNAL*, 27, p.126 (2020).
- (20) H. Yamauchi, D. de Fontaine, Phase Stability During Irradiation,” J.R. Holland, L.K. Mansur, D.I. Potter, Eds., *The Metallurgical Society of AIME*, 1981, p.73.
- (21) S.I. Maydet, K.C. Russell, “Precipitate stability under irradiation: Point defect effects,” *J. Nucl. Mater.*, 64, p.101 (1977).
- (22) J.L. Bocquet, G. Martin, “Irradiation-induced precipitation: A thermodynamical approach,” *J. Nucl. Mater.*, 83, p.186 (1979).
- (23) K. Yabuuchi, M. Saito, R. Kasada, A. Kimura, “Neutron irradiation hardening and microstructure changes in Fe-Mn binary alloys”, *J. Nucl. Mater.*, 414, p.498 (2011).
- (24) C. Domain, C.S. Becquart, “Solute- <111> interstitial loop interaction in α -Fe: A DFT study,” *J. Nucl. Mater.*, 499, p.582 (2018).