

JAERI-M

8807

中性子照射したハステロイ-Xの
高温における延性低下

1980年4月

渡辺 勝利・小川 豊・菊地 正彦・近藤 達男

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

中性子照射したハステロイーXの高温における延性低下

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

渡辺 勝利・小川 豊・菊地 正彦・近藤 達男

(1980年2月28日受理)

中性子照射したハステロイーXの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、歪速度、熱中性子照射量および核変換によるヘリウム生成との関係を調べた。 (n, α) 反応によるヘリウム生成に関しては、 $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 反応に加えて、比較的近年になって発見された $^{58}Ni(n, \gamma)^{59}Ni$ $(n, \alpha)^{56}Fe$ 2段反応にも着目して脆化とのかかわりを検討した。

得られた結果を要約すると次のとおりである。(1)照射により高温延性は著しく低下し、しかも試験温度の上昇とともにその傾向は強まる。(2)熱中性子照射量が $10^{22} n/cm^2$ に達すると破断延性は $900^\circ C$ において約 3.5 %, $1000^\circ C$ においては約 1.5 %以下となることが予測された。(3)照射による延性低下のしきい照射量は $900^\circ C$ において $6 \times 10^{16} n/cm^2$, $1000^\circ C$ において $2 \times 10^{16} n/cm^2$ と予測された。

これらの結果を高温ガス炉の制御棒用部材に適用し、実用上の問題について検討を加えた。

Ductility Loss of Neutron-Irradiated Hastelloy-X at Elevated Temperatures

Katsutoshi WATANABE, Yutaka OGAWA, Masahiko KIKUCHI and Tatsuo KONDO
Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 28, 1980)

Ductility loss of neutron-irradiated Hastelloy-X at elevated temperatures was examined by post-irradiation slow tensile test. The results were analyzed as functions of test temperature, strain rate, thermal neutron fluence and the associated helium generation due to nuclear transmutation.

In addition to the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ reaction, the contribution of helium generation due to the two-step reaction $^{58}\text{Ni}(\text{n},\gamma)^{59}\text{Ni}(\text{n},\alpha)^{56}\text{Fe}$ at higher fluences was considered. Irradiations were made mostly at 60°C, followed by high-temperature tensile tests; the effects of irradiation temperature were examined separately.

The post-irradiation ductility generally decreased with temperature increase up to 1000°C. Extrapolations of the results of irradiation at 60°C gave the apparent fracture ductility values of 3.5% at 900°C and 1.5% at 1000°C. Threshold thermal neutron fluences for the ductility loss were also predicted as 6×10^{16} and $2 \times 10^{16}\text{n/cm}^2$ at 900°C and 1000°C, respectively.

Ductility loss was increased when the irradiation was made at temperatures equivalent to the tensile test conditions. The results are discussed in connection with the application of Hastelloy-X for control rod sheath material in high temperature gas-cooled reactor.

Key words : Hastelloy-X, Helium Generation, Helium Embrittlement,
Nuclear Transmutation, Ductility Loss,
Threshold Thermal Neutron Fluence, Neutron Irradiation,
High Temperature

目 次

1. 序	1
2. 実験方法	2
3. 結 果	2
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速度依存性	2
3. 2 高温延性におよぼす熱中性子照射量の影響	3
4. 考 察	3
4. 1 高温の機械的性質におよぼす試験温度の影響	3
4. 2 高温延性の低下と核変換によるヘリウム生成の関係	4
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	6
5. 結 言	6
謝 辞	7
参考文献	8

CONTENTS

1. INTRODUCTION.....	1
2. EXPERIMENTAL PROCEDURES	2
3. RESULTS	2
3.1 Test Temperature and Strain Rate Dependence of Mechanical Properties at Elevated Temperatures	2
3.2 Effects of Thermal Neutron Dose on High Temperature Ductility	3
4. DISCUSSION	3
4.1 Influence of Test Temperature on High Temperature Ductility	3
4.2 Loss of High Temperature Ductility caused by Helium Production due to Transmutation Reaction	4
4.3 Prediction of Irradiation Embrittlement at High Dose Ranges , and Evaluation of Threshold Dose on Ductility Loss.....	6
5. SUMMARY	6
ACKNOWLEDGMENTS.....	7
REFERENCES.....	8

1. 序

中性子照射したニッケル基合金およびステンレス鋼は約650℃以上の温度域では核変換作用によって生じたヘリウムにより延性の低下を生じる。本研究はハスティロイ-Xおよび硼素を低減した同種材料について、中性子照射による高温延性の低下すなわちヘリウム脆化を検討したものである。

次にこれまでの材料の照射効果研究の概況を述べる。原子炉用構造材料の中性子照射効果の研究は、機械的性質の変化を中心に数多くなされてきている。近年は高温における照射の問題が重要性を増し、なかでも高速炉を対象にしたボイドスウェーリング、照射クリープ特性などの高速中性子($E > 0.1 \text{ MeV}$)による原子変位効果をもとにした問題に対する研究が広く行われている。高速炉においては高速中性子束が熱中性子束に比べて比率が大きく、通常4桁程度大きいことと、その照射量の絶対値が大きいことが問題の根本にある。これに対して、高温ガス炉を含めた熱中性子炉では熱中性子束の割合が大きく、通常高速中性子束の数倍ないしは1桁程度大きい。熱中性子は原子変位効果がないので、従来あまり研究の対象にならなかったが、高温ではその核変換作用によって生じる元素が問題となる。例えば構造材料中に通常3~10ppm程度含まれている不純物の硼素に ^{10}B と ^{11}B があり、このうち ^{10}B は熱中性子と4000 barn(1 barn = 10^{-24} cm^2)という大きな核変換反応の断面積をもっているため、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ の核変換反応によりヘリウムを発生する。この場合、ハスティロイ-Xでは 10^{19} n/cm^2 照射で、 10^{-7} 原子分率程度のヘリウムを生じる。このような微量のヘリウムは温度が低い場合には材料の性質に影響が少ないが、物質移動の活発となる高温域では高温変形の進行に伴って結晶粒界などの脆化が著しくなることが知られている。⁽¹⁾⁽²⁾

現在、高温ガス炉の構造材料には鉄基またはニッケル基合金が起用される傾向にある。その使用条件は例えば日本において進められている多目的高温ガス炉の概念設計では800~900℃において制御棒用部材がうける熱中性子照射量はロッドの寿命期間中~ 10^{21} n/cm^2 、炉心に近い熱しゃへいライナー材でのそれは1000℃において $10^{17} \sim 10^{18} \text{ n/cm}^2$ と想定されている。また西ドイツにおける高温ガス炉では制御棒用部材には熱中性子照射量~ 10^{22} n/cm^2 までの耐用が期待されている。700℃をこえる温度域での熱中性子環境下の材料挙動はまだ知見が少ないので高温ガス炉用の材料を含めて800~1000℃において $10^{17} \sim 10^{22} \text{ n/cm}^2$ の条件下での強度特性を把握することは重要な意味をもっている。

本研究は中性子照射した通常のハスティロイ-Xおよびボロン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、特に延性の低下について試験温度、歪速度および熱中性子照射量依存性を調べたものである。特にこれまで熱中性子照射にもとづくヘリウム脆化については、合金中の硼素の核変換を主要因子として材料の脆化を検討したものが多かったが、⁽³⁾本研究で

※ 別にヘリウム中耐食性を改良したハスティロイ-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。

はこの反応に加えて比較的近年になって発見された、照射量が高くなるに従って寄与の著しくなる⁵⁸ Ni (n, γ) ⁵⁹ Ni (n, α) ⁵⁶ Fe 2段反応によるヘリウム生成にも着目し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および高照射量域における延性についても推定を行ってみた。

2. 実験方法

用いた試料の化学組成をTable 1に示す。比較されるハステロイーXに比べて低硼素材(Hastelloy-LB)は一般的市販材の平均に比べて $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{10}$ 程度の硼素を含む材料である。いづれの材料も溶体化処理材を用い、試料の平行部寸法は $3\phi \times 30\ell$ mmとした。照射はJRR-2およびJMTRを用いて行った。Table 2に照射条件を示す。熱中性子照射量は 2.7×10^{17} n/cm²から 2.0×10^{21} n/cm²までにおよんでいる。また、ここで便宜的に照射温度が300 °C以下を低温照射、820 °C以上を高温照射とし、以下ではこの区分に従って述べる。引張試験条件は700～1000°Cにおいて歪速度0.17%/min, 0.67%/minおよび33.3%/minとした。また引張試験時の真空度は(1～4) × 10⁻⁶ torrである。

3. 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速度依存性

Fig. 1に高温照射したハステロイーXの破断伸びと試験温度の関係を示す。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ール材(照射材がう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上昇するのに対して、照射材では試験温度の増加とともに破断伸びは低下する。

Fig. 2に引張強さと試験温度の関係を示す。非照射材および照射材のいずれも試験温度の増加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づれの温度域でも殆んど認められない。Photo. 1に照射材の引張破断後の破断部および均一伸び部の光顕による観察結果を示す。これより結晶粒界において多数のクラックが認められ、また均一伸び部での結晶粒の変形は全く認められず、顕著な粒界破壊の様相を呈していることが明らかである。Fig. 3に高温照射したハステロイーXの破断伸びと歪速度の関係を示す。800 °Cの場合を除き、歪速度の低下とともに破断伸びは一様に減少することがわかる。Fig. 4に引張強さと歪速度の関係を示す。歪速度の減少とともに引張強さは低下し、その傾向は温度によって著しい差異はない。一般に非照射材でも高温では歪速度の低下により強度は低く観測されるようになるが、照射材では延性の低下が著しく、結局、低歪速度ほど照射効果が顕著となるといえる。

はこの反応に加えて比較的近年になって発見された、照射量が高くなるに従って寄与の著しくなる⁵⁸ Ni (n, γ) ⁵⁹ Ni (n, α) ⁵⁶ Fe 2段反応によるヘリウム生成にも着目し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および高照射量域における延性についても推定を行ってみた。

2. 実験方法

用いた試料の化学組成をTable 1に示す。比較されるハステロイーXに比べて低硼素材(Hastelloy-LB)は一般的市販材の平均に比べて $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{10}$ 程度の硼素を含む材料である。いづれの材料も溶体化処理材を用い、試料の平行部寸法は $3\phi \times 30\ell$ mmとした。照射はJRR-2およびJMTRを用いて行った。Table 2に照射条件を示す。熱中性子照射量は 2.7×10^{17} n/cm²から 2.0×10^{21} n/cm²までにおよんでいる。また、ここで便宜的に照射温度が300 °C以下を低温照射、820 °C以上を高温照射とし、以下ではこの区分に従って述べる。引張試験条件は700～1000 °Cにおいて歪速度0.17%/min, 0.67%/minおよび33.3%/minとした。また引張試験時の真空度は(1～4) × 10⁻⁶ torrである。

3. 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速度依存性

Fig. 1に高温照射したハステロイーXの破断伸びと試験温度の関係を示す。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ール材(照射材がう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上昇するのに対して、照射材では試験温度の増加とともに破断伸びは低下する。

Fig. 2に引張強さと試験温度の関係を示す。非照射材および照射材のいづれも試験温度の増加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づれの温度域でも殆んど認められない。Photo. 1に照射材の引張破断後の破断部および均一伸び部の光顕による観察結果を示す。これより結晶粒界において多数のクラックが認められ、また均一伸び部での結晶粒の変形は全く認められず、顕著な粒界破壊の様相を呈していることが明らかである。Fig. 3に高温照射したハステロイーXの破断伸びと歪速度の関係を示す。800 °Cの場合を除き、歪速度の低下とともに破断伸びは一様に減少することがわかる。Fig. 4に引張強さと歪速度の関係を示す。歪速度の減少とともに引張強さは低下し、その傾向は温度によって著しい差異はない。一般に非照射材でも高温では歪速度の低下により強度は低く観測されるようになるが、照射材では延性の低下が著しく、結局、低歪速度ほど照射効果が顕著となるといえる。

はこの反応に加えて比較的近年になって発見された、照射量が高くなるに従って寄与の著しくなる⁵⁸ Ni (n, γ) ⁵⁹ Ni (n, α) ⁵⁶ Fe 2段反応によるヘリウム生成にも着目し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および高照射量域における延性についても推定を行ってみた。

2. 実験方法

用いた試料の化学組成をTable 1に示す。比較されるハステロイーXに比べて低硼素材(Hastelloy-LB)は一般的市販材の平均に比べて $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{10}$ 程度の硼素を含む材料である。いづれの材料も溶体化処理材を用い、試料の平行部寸法は $3\phi \times 30\ell$ mmとした。照射はJRR-2およびJMTRを用いて行った。Table 2に照射条件を示す。熱中性子照射量は 2.7×10^{17} n/cm²から 2.0×10^{21} n/cm²までにおよんでいる。また、ここで便宜的に照射温度が300 °C以下を低温照射、820 °C以上を高温照射とし、以下ではこの区分に従って述べる。引張試験条件は700～1000°Cにおいて歪速度0.17%/min, 0.67%/minおよび33.3%/minとした。また引張試験時の真空度は(1～4) × 10⁻⁶ torrである。

3. 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速度依存性

Fig. 1に高温照射したハステロイーXの破断伸びと試験温度の関係を示す。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ール材(照射材がう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上昇するのに対して、照射材では試験温度の増加とともに破断伸びは低下する。

Fig. 2に引張強さと試験温度の関係を示す。非照射材および照射材のいづれも試験温度の増加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づれの温度域でも殆んど認められない。Photo. 1に照射材の引張破断後の破断部および均一伸び部の光顕による観察結果を示す。これより結晶粒界において多数のクラックが認められ、また均一伸び部での結晶粒の変形は全く認められず、顕著な粒界破壊の様相を呈していることが明らかである。Fig. 3に高温照射したハステロイーXの破断伸びと歪速度の関係を示す。800 °Cの場合を除き、歪速度の低下とともに破断伸びは一様に減少することがわかる。Fig. 4に引張強さと歪速度の関係を示す。歪速度の減少とともに引張強さは低下し、その傾向は温度によって著しい差異はない。一般に非照射材でも高温では歪速度の低下により強度は低く観測されるようになるが、照射材では延性の低下が著しく、結局、低歪速度ほど照射効果が顕著となるといえる。

3.2 高温延性におよぼす熱中性子照射量の影響

Fig.5にハステロイ-Xの破断伸びと熱中性子照射量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こう配は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した場合とを比べてみる。Fig.6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の関係を示す。低温照射に比較して高温照射では 10^{17} n/cm^2 程度の低照射量では破断伸びの差は余りないが、照射量の増加とともに差が大きくなる。すなわち、高温照射した場合の方が、照射の積算が延性低下に効く割合が大きい。Fig.7にボロン量の異なる通常のハステロイ-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の関係を示す。照射量 $2.4 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ では通常材のハステロイ-Xの破断伸びに比べて低硼素材のそれはかなり大きいが、照射量 $4.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ では両者ともほぼ同じとなり硼素を低減した効果はみられなくなる。

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合金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。ハステロイ合金でのそれは歪速度によっても異なるが概ね700 °C近傍において観測される。⁽⁷⁾⁽⁸⁾このような非照射材の挙動に対して、照射材での挙動はある関連性が認められており、この谷より高温側で照射材の場合は延性の上昇ではなく試験温度の増加とともに延性が低下する。これは照射により生じたヘリウムは金属中ににおいて殆んど溶解度をもたず、また易動度も低いが高温で変形が起ると運動する転位や原子空孔にトラップされて易動度が高まりマトリックスおよび結晶粒界に集積して気泡を形成することと関係があるとされている。この場合、粒界におけるヘリウム気泡形成の外部応力効果として、外部応力（引張応力）に対して垂直に位置している粒界のヘリウム気泡の密度と平均直径は著しく增加することが確認されている。⁽⁹⁾このことと高温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、Photo.1に示した結果からもクラックは概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、結晶粒界において形成されたヘリウム気泡は粒界脆化を助長し、外部応力作用下では粒界流動などさらに変形が進むと応力場と協合作用のもとに結晶粒界の三重点などでキャビティを発生してやがて粒界破壊することが観察されている。この粒界破壊をもたらすヘリウム気泡の形成は当然熱活性化過程であり、また粒界流動の傾向も温度の上昇に伴って大きくなると考えられる。したがって、照射材の粒界脆化は高温ほど著しくなり、破断延性が低下することは充分妥当性をもつ推論であったが、一方で結晶粒の軟化傾向の増大も期待されるので実験結果でどこまでその

3.2 高温延性におよぼす熱中性子照射量の影響

Fig.5にハステロイーXの破断伸びと熱中性子照射量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こう配は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した場合とを比べてみる。Fig.6に高温照射および低温照射したハステロイーXの900 °Cにおける破断伸びと熱中性子照射量の関係を示す。低温照射に比較して高温照射では 10^{17} n/cm^2 程度の低照射量では破断伸びの差は余りないが、照射量の増加とともに差が大きくなる。すなわち、高温照射した場合の方が、照射の積算が延性低下に効く割合が大きい。Fig.7にボロン量の異なる通常のハステロイー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の関係を示す。照射量 $2.4 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ では通常材のハステロイーXの破断伸びに比べて低硼素材のそれはかなり大きいが、照射量 $4.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ では両者ともほぼ同じとなり硼素を低減した効果はみられなくなる。

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合金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。ハステロイ合金でのそれは歪速度によっても異なるが概ね700 °C近傍において観測される。⁽⁷⁾⁽⁸⁾このような非照射材の挙動に対して、照射材での挙動はある関連性が認められており、この谷より高温側で照射材の場合は延性の上昇ではなく試験温度の増加とともに延性が低下する。これは照射により生じたヘリウムは金属中ににおいて殆んど溶解度をもたず、また易動度も低いが高温で変形が起ると運動する転位や原子空孔にトラップされて易動度が高まりマトリックスおよび結晶粒界に集積して気泡を形成することと関係があるとされている。この場合、粒界におけるヘリウム気泡形成の外部応力効果として、外部応力（引張応力）に対して垂直に位置している粒界のヘリウム気泡の密度と平均直径は著しく増加することが確認されている。⁽⁹⁾このことと高温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、Photo.1に示した結果からもクラックは概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、結晶粒界において形成されたヘリウム気泡は粒界脆化を助長し、外部応力作用下では粒界流動などさらに変形が進むと応力場と協合作用のもとに結晶粒界の三重点などでキャビティを発生してやがて粒界破壊することが観察されている。この粒界破壊をもたらすヘリウム気泡の形成は当然熱活性化過程であり、また粒界流動の傾向も温度の上昇に伴って大きくなると考えられる。したがって、照射材の粒界脆化は高温ほど著しくなり、破断延性が低下することは充分妥当性をもつ推論であったが、一方で結晶粒の軟化傾向の増大も期待されるので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った。結果は少なくとも 1000 °C においても脆性の増大傾向は続いている。

一方、照射による引張強さの変化は非照射材のそれと比べて殆んど差がなく、両者ともに試験温度の上昇とともに減少する。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ヘリウム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" により降伏強さが上るとされている。

すなわち、この場合の硬化量 $\Delta \sigma$ は次のように表わせる。^{(10) (11) (12)}

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

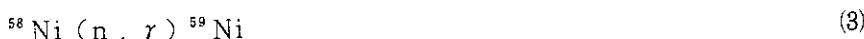
ここで μ はせん断弾性率、 b はバーガースベクトルの大きさ、 l はヘリウム気泡の間隔、 R はヘリウム気泡の半径、 r_d は転位芯の半径である。(1)式より硬化量 $\Delta \sigma$ は気泡の寸法よりも気泡の間隔に強く依存することがわかる。しかしながら、実験結果では照射による強度の増加は殆んどみられない。このことは運動転位に対する障害物として作用し得るような気泡の濃度が少ないこと、すなわち気泡の間隔 l が大きいために硬化が殆んど生じないものと考えられる。以上は一定温度における硬化を説明するものであって、温度依存性を説明するための取扱いは今のところ充分明らかではない。

4.2 高温延性の低下と核変換によるヘリウム生成の関係

これまで熱中性子による核変換にもとづくヘリウムの生成は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、それにもとづいた検討がなされてきた。すなわち、これを反応式で表せば



となる。この場合、¹⁰B の核反応の断面積は 4000 barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$) である。この反応は熱中性子照射量が約 10^{21} n/cm^2 まで続きそれより上では¹⁰B は枯渇して効果は飽和するが比較的照射量の低い領域でのヘリウム脆化を評価する上ではこの反応だけで説明することができる場合が多い。ところが例えば $\sim 10^{21} \text{ n/cm}^2$ を上まわる熱中性子を照射した Ni および Ni を含む Fe 基合金ではヘリウム分析による実測値が(2)式をもとにした予測値を大巾に上回ることが見い出された。すなわち、Ni を例にとればヘリウム生成量は予測値 6.3 appm に対して、⁽⁵⁾ 実測値は 77.3 appm であった。これには Weitman らの提唱している 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、これを反応式で表せば



となる。この場合(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。これら(2)、(3)および(4)式をもとに熱中性子照射量とヘリウム生成量との関係を計算によ

り求め、プロットした結果をFig.8に示す。この結果よりBから生成されるHeは $10^{21} \text{n}/\text{cm}^2$ 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Ni2段反応により生成されるヘリウムはNi基合金やステンレス鋼ではNiが充分にあるので直線的に増加し、高照射量域ではこの反応によるヘリウム生成の方が支配的となる。この反応で生成されるヘリウム量と熱中性子照射量との関係はこの直線の勾配が2であることから、照射量について2乗則が成り立つことがわかる。しかしながら、純Niによる試験データによれば $10^{23} \text{n}/\text{cm}^2$ に近づくにつれて、この関係からは離れてくることが認められている。⁽⁵⁾

Fig.9はFig.5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計算により求めたヘリウム生成量に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ヘリウム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る。このやり方は今後 $10^{22} \text{n}/\text{cm}^2$ 水準の照射脆化を考えるときに重要になってくるであろう。したがって、以上を改めて表現しなおせば破断伸びは照射量の増加、すなわちヘリウム生成量の増大とともに低下し、またこのことは試験温度の上昇によって加速されることになる。

Fig.10はFig.7との関連において各照射条件におけるヘリウム生成量を通常のハスティロイ-Xと低硼素材について比較したものである。硼素を3.8ppm含むハスティロイ-Xに対して、硼素を1.1ppm含む低硼素材では $2.4 \times 10^{19} \text{n}/\text{cm}^2$ の照射では前者に比べて高い破断伸びを示している。これはこの照射量域では ^{10}B からの核変換によるヘリウムの生成が ^{58}Ni 2段反応にもとづくヘリウムの生成より支配的で、このため硼素量の低い方がヘリウム脆化が少ないことになるものと見てよいであろう。すなわち、低硼素材における ^{10}B からの核変換によるヘリウム生成量はハスティロイ-Xにおけるそれと比較して約 $\frac{1}{3}$ 程度少ない。これに対して、照射量が $4.3 \times 10^{20} \text{n}/\text{cm}^2$ で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 ^{10}B から生じるヘリウムの占める割合も勿論大きいが、 ^{58}Ni 2段反応にもとづくヘリウムの生成量が相対的に高くなる。この後者の反応はNi量と照射量に依存し、そして両者の合金はそのNi量がほぼ同じである。したがって、この照射条件下では両者の合金の生成されるヘリウムの全量はより低い照射量の場合に比べてその差が少なくなり、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。おそらくこの種の延性低下にはある程度以上のヘリウム濃度に達すると脆化が著しいために実質的に飽和が起ると考えることができよう。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単発ミクロクラックが寄与しており、実質的には結晶粒の変形はゼロに近いことがわかっている。⁽¹³⁾

Fig.11はハスティロイ-Xおよび同種の照射をうけた304ステンレス鋼について破断伸びとヘリウム生成量との関係を比べたものである。材料も試験条件も異なるがヘリウム量の増加とともに延性低下の傾向は両者ともよく類似していることが注目される。一方、 ^{58}Ni 2段反応によるヘリウム生成量は合金中のNi量と照射量に依存し、また高照射量域でのヘリウム生成はこの反応によるものが支配的であることから、一般にはFe基合金の方がNi基合金よりも比較的Ni含有量の少ないとにより脆化に対する抵抗性が大きいと考える傾向がある。ただし、Fig.11についてみると、304ステンレス鋼については照射前の材料の延性が不明であり照射中の熱履歴も関与してくるので、照射後の延性の絶対値同志の比較では照射感受性を評価することができない。そしてさらに、ヘリウムの生成量のみで合金の照射脆化感受性が決まるわけ

ではなく、一定のヘリウム生成に対して合金によって脆化感受性が異なると考えるのが妥当であろう。一般に高Ni材料は照射による高温の延性の低下が激しく、単にヘリウム生成量によるというよりは、粒界割れ感受性がFe基合金よりも大きいなどの特性を検討する必要がある。

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.5における測定結果を外挿することにより 10^{22} n/cm^2 以上の照射量域における延性の低下を予測する試みを行った。特に熱中性子炉における実用上の照射量のほぼ上限にあたる 10^{22} n/cm^2 域における脆化の問題は重要である。

照射量が 10^{22} n/cm^2 に達すると数字の上では破断伸びは 900 °C の場合には約 3.5 % 以下、1000 °C の場合には 1.5 % 以下となる。これらの値はいづれも歪速度に依存するので、ある幅をもって考える必要があることは勿論である。一般に高温延性の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。既に先に述べた早発き裂の寄与もあり、このことはハスティロイ系の材料においても顕著である。従って、 10^{22} n/cm^2 照射域における破断伸び値のうちの少なくとも均一伸び値の占める割合は極めて少なく、何らかの改良を与えないかぎり実用性ははなはだ低いと言わざるを得ない。

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しきい照射量を推定することも可能である。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をうける部材の耐久性評価の上で重要な問題である。すなわち、現在の高温ガス炉では熱しゃへいライナー材などの設計上有用な知見として参考になるであろう。この外挿結果によれば 900 °C の場合には $6 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ 、1000 °C の場合には $2 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ の照射量の附近に延性低下のしきい値があることがわかる。すなわち、 $2 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ 以上の熱中性子をうける部材は許容応力や寿命を考える場合に照射環境を何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が言える。この 10^{16} n/cm^2 は一般の照射脆化問題におけるしきい値と比べると著しく低い。ちなみに、軽水炉圧力容器用鋼において脆化の観測されるのは約 10^{18} n/cm^2 ($E > 1 \text{ MeV}$) である。これは脆化の機構がHeの生成によるものほか、変形温度がきわめて高いことが要因となっており、高温炉特有の問題と考えるべきである。実用上の仮定で考察してみると、いま仮りに延性材として破断伸び 10% を設計上の一応の目安とすれば、硼素を特に低減しないハスティロイ-Xは 900 °Cにおいて $1 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ を照射量に対する使用上の上限とすることも一つの見方となろう。さらに保守的には 900 ~ 1000 °C における高温照射の場合には Fig.6 からも明らかのように $1 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ を使用限界とみなし、前者の場合に比較して一層条件を厳しくとることもあり得よう。ただし、基準とする延性値の目安は 10 % に限ってはいないので、その値の設定によって当然許容照射量も変化する。

5. 結 言

- (1) 照射により高温延性は著しく低下し、また 1000 °Cまでの範囲で試験温度の上昇とともに

はなく、一定のヘリウム生成に対して合金によって脆化感受性が異なると考えるのが妥当であろう。一般に高Ni材料は照射による高温の延性の低下が激しく、単にヘリウム生成量によるというよりは、粒界割れ感受性がFe基合金よりも大きいなどの特性を検討する必要がある。

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.5における測定結果を外挿することにより 10^{22} n/cm^2 以上の照射量域における延性の低下を予測する試みを行った。特に熱中性子炉における実用上の照射量のほぼ上限にあたる 10^{22} n/cm^2 域における脆化の問題は重要である。

照射量が 10^{22} n/cm^2 に達すると数字の上では破断伸びは 900°C の場合には約 3.5% 以下、 1000°C の場合には 1.5% 以下となる。これらの値はいづれも歪速度に依存するので、ある幅をもって考える必要があることは勿論である。一般に高温延性の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。既に先に述べた早発き裂の寄与もあり、このことはハスティロイ系の材料においても顕著である。従って、 10^{22} n/cm^2 照射域における破断伸び値のうちの少なくとも均一伸び値の占める割合は極めて少なく、何らかの改良を与えないかぎり実用性ははなはだ低いと言わざるを得ない。

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しきい照射量を推定することも可能である。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をうける部材の耐久性評価の上で重要な問題である。すなわち、現在の高温ガス炉では熱しゃへいライナー材などの設計上有用な知見として参考になるであろう。この外挿結果によれば 900°C の場合には $6 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ 、 1000°C の場合には $2 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ の照射量の附近に延性低下のしきい値があることがわかる。すなわち、 $2 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ 以上の熱中性子をうける部材は許容応力や寿命を考える場合に照射環境を何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が言える。この 10^{16} n/cm^2 は一般の照射脆化問題におけるしきい値と比べると著しく低い。ちなみに、軽水炉圧力容器用鋼において脆化の観測されるのは約 10^{18} n/cm^2 ($E > 1 \text{ MeV}$) である。これは脆化の機構がHeの生成によるものほか、変形温度がきわめて高いことが要因となっており、高温炉特有の問題と考えるべきである。実用上の仮定で考察してみると、いま仮りに延性材として破断伸び 10% を設計上の一応の目安とすれば、硼素を特に低減しないハスティロイーXは 900°C において $1 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ を照射量に対する使用上の上限とすることも一つの見方となろう。さらに保守的には $900 \sim 1000^\circ\text{C}$ における高温照射の場合には Fig.6 からも明らかのように $1 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ を使用限界とみなし、前者の場合に比較して一層条件を厳しくとることもあり得よう。ただし、基準とする延性値の目安は 10% に限ってはいないので、その値の設定によって当然許容照射量も変化する。

5. 結 言

- (1) 照射により高温延性は著しく低下し、また 1000°C までの範囲で試験温度の上昇とともに

にその傾向は強まる。

- (2) 照射材の延性は歪速度の減少とともに低下する。
- (3) ヘリウム脆化は低照射量域では¹⁰B の核変換によるヘリウムによるが、高照射量になるにしたがって⁵⁸Ni 2段反応によるヘリウムの効果が支配的となる。
- (4) 热中性子照射量が 10^{22} n/cm^2 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 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, 1000 °C域で 10^{16} n/cm^2 附近と予測された。

謝　　辞

原子炉照射の実施にあたっては 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たってはホットラボ課（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。

にその傾向は強まる。

- (2) 照射材の延性は歪速度の減少とともに低下する。
- (3) ヘリウム脆化は低照射量域では¹⁰B の核変換によるヘリウムによるが、高照射量になるにしたがって⁵⁸Ni 2段反応によるヘリウムの効果が支配的となる。
- (4) 热中性子照射量が 10^{22} n/cm^2 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 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, 1000 °C域で 10^{16} n/cm^2 附近と予測された。

謝　　辞

原子炉照射の実施にあたっては 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たってはホットラボ課（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。

参 考 文 献

- 1) R.S. Barns, Nature, 206 (1965) 1307
- 2) D.R. Harries, J.Bri.Nucl.Energy Soc., 5 (1966) 74
- 3) J.O. Stiegler and J.R. Weir,Jr., Ductility (Paper presented at a Seminar of the American Society for Metals), p.311 American Society for Metals Metal Park,Ohio (1967)
- 4) J. Weitman et al, Trans.ANS., 13 (1970) 557
- 5) A.A. Bauer and M. Kangilaski, J.Nucl.Mater., 42 (1972) 91
- 6) I.R. Birss and W.E. Ellis, BNES European Conference on Voids formed by Irradiation of Reactor Materials, (1971) 339
- 7) 渡辺他, 未発表
- 8) M.A. Arkoosh and N.F. Fiore, Met.Trans., 3 (1972) 2235
- 9) H. Trinkaus and H. Ullmaier, Phil.Mag., 39 (1979) 563
- 10) P. Coulomb and J. Friedel, Dislocations and Mechanical Properties of Crystals (Edited by J.C. Fisher et al), p.555 John Wiley & Sons,Inc. New York (1957)
- 11) P. Coulomb, Acta Met., 7 (1959) 556
- 12) D.R. Olander, TID-26711-P1 (1976)
- 13) 小川, 渡辺, 石本, 大塚, 近藤, 学振123委員会研究報告, 19 (1978) 311
- 14) J.R. Weir et al, CONF-680419 (1968)

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.	—	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

Table 2 Irradiation condition of specimens

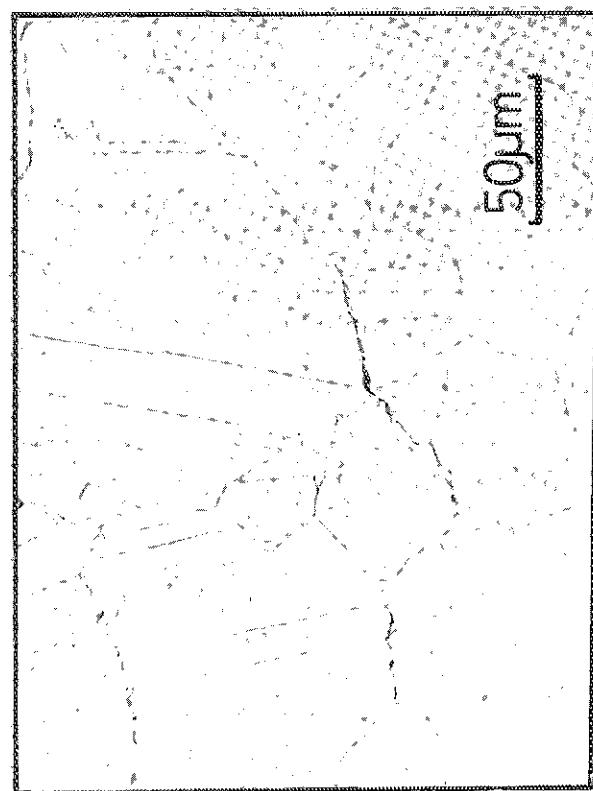
IRRADIATION CONDITION

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-I	4.3×10^{20}	60
JMTR	K-II	2.0×10^{21}	50
JRR-2	VT-I	2.7×10^{17}	900
JRR-2	VT-I	6.0×10^{19}	820, 940
JMTR	K-II	2.0×10^{21}	1000

Hastelloy - X



FRACTURED REGION



UNIFORM ELONGATION REGION

IRRADIATION CONDITION	TEST CONDITION
THERMAL NEUTRON DOSE	$6 \times 10^{19} \text{ N/cm}^2$
TEMPERATURE	900 °C

STRAIN RATE 0.67%/MIN

Photo. 1 Microstructures of the fractured and uniform elongation region post tensile testing in irradiated Hastelloy-X

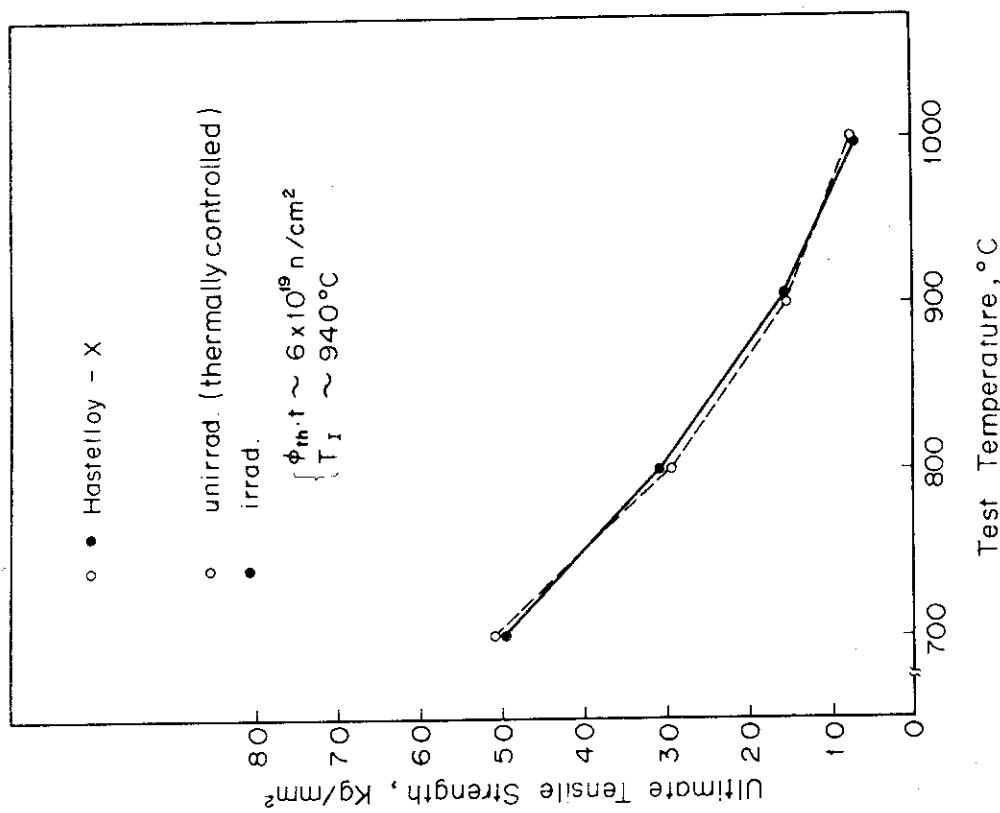


Fig. 2 Ultimate tensile strength versus test temperature for unirradiated and irradiated Hastelloy-X

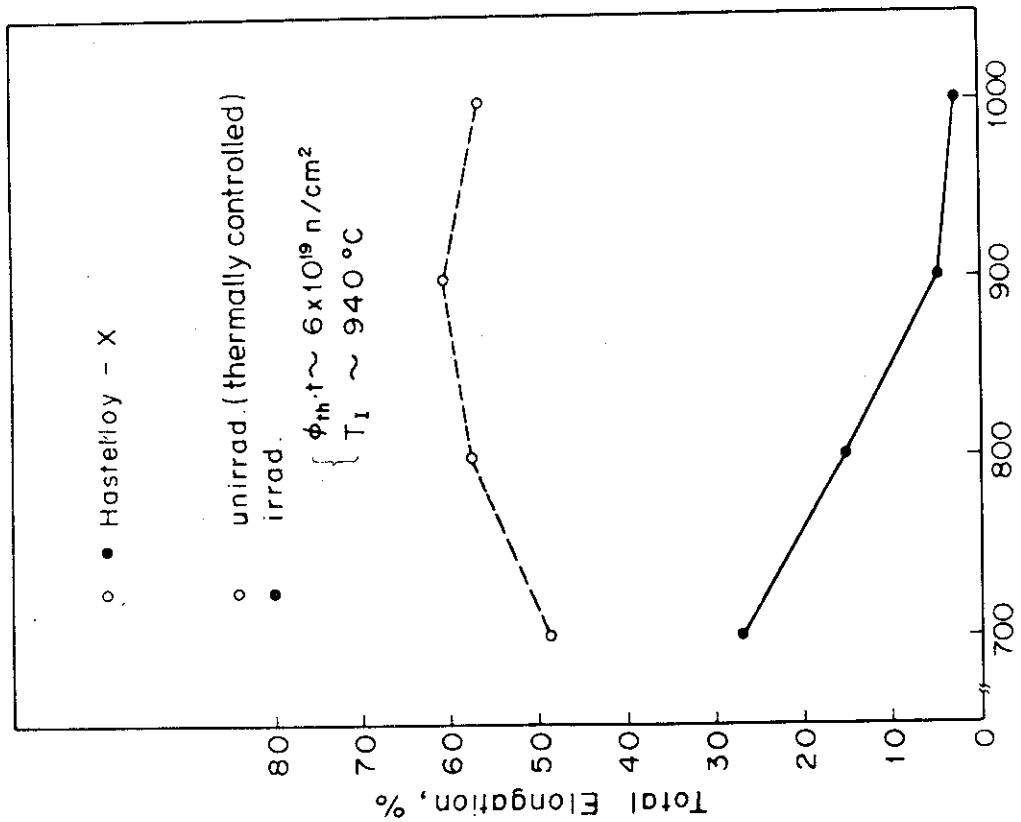


Fig. 1 Total elongation versus test temperature for unirradiated and irradiated Hastelloy-X

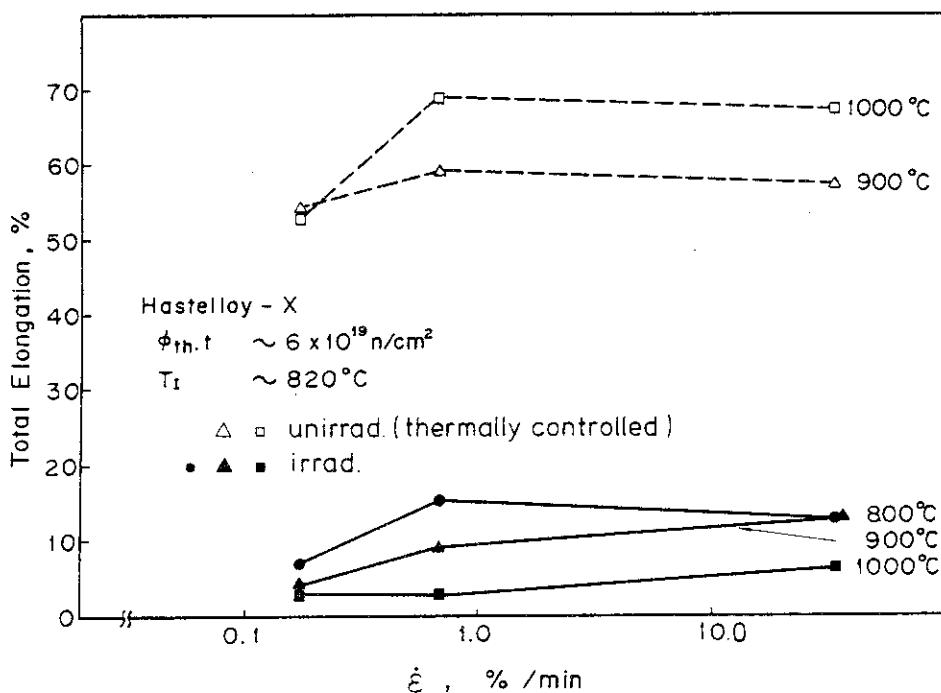


Fig. 3 Total elongation versus strain rate for irradiated Hastelloy-X

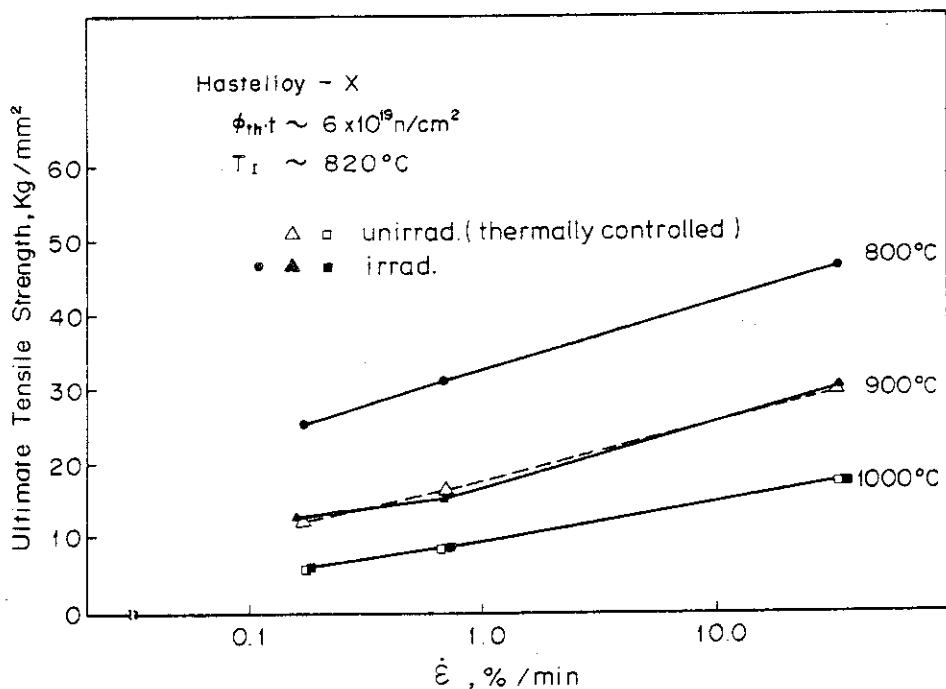


Fig. 4 Ultimate tensile strength versus strain rate for irradiated Hastelloy-X

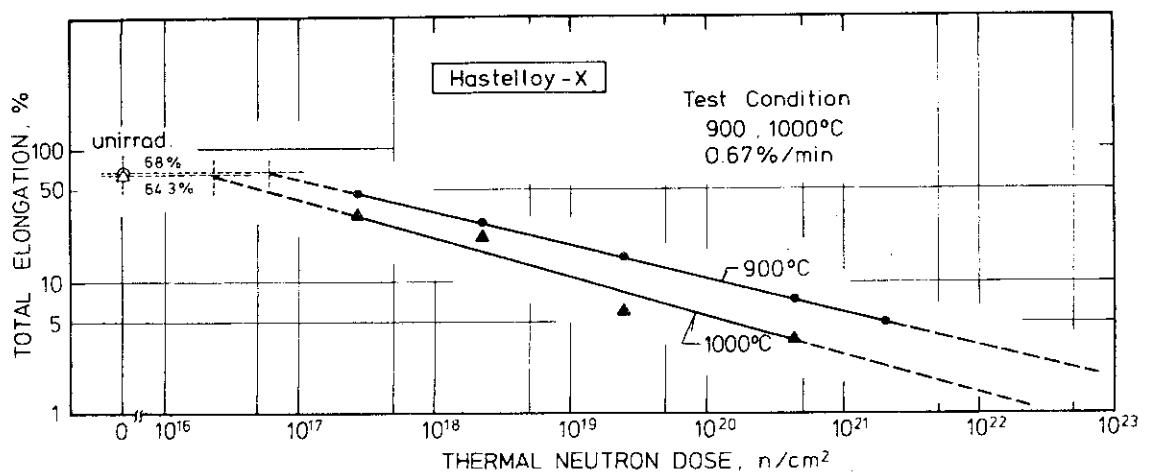


Fig. 5 Effects of thermal neutron dose on total elongation in irradiated Hastelloy-X

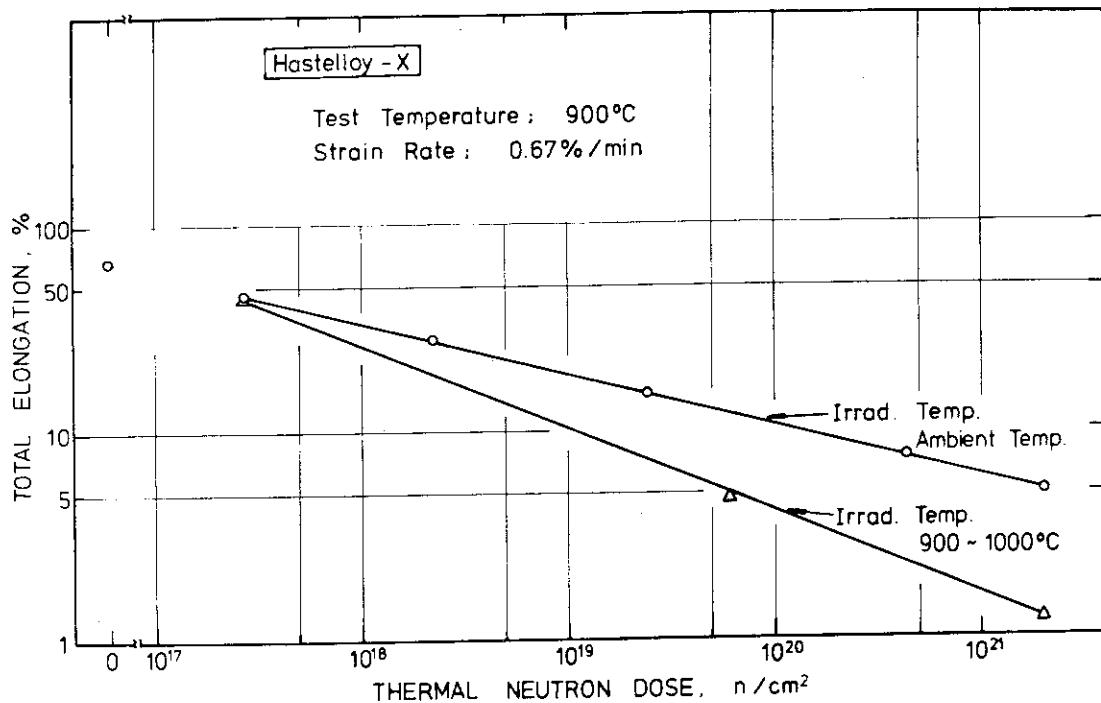


Fig. 6 Total elongation versus thermal neutron dose for irradiated Hastelloy-X at different temperatures

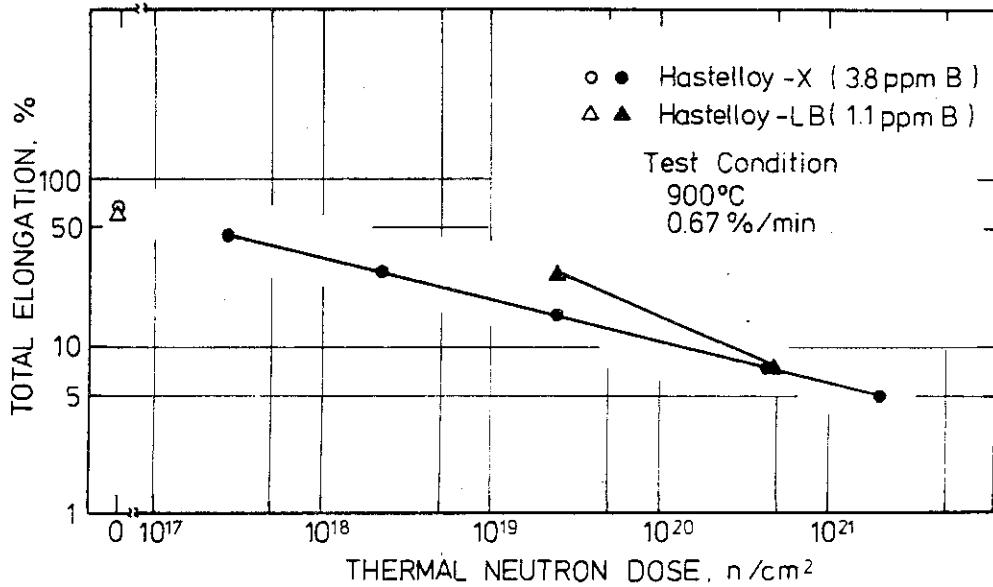


Fig. 7 Effects of thermal neutron dose on total elongation in irradiated Hastelloy-X and Hastelloy-XR

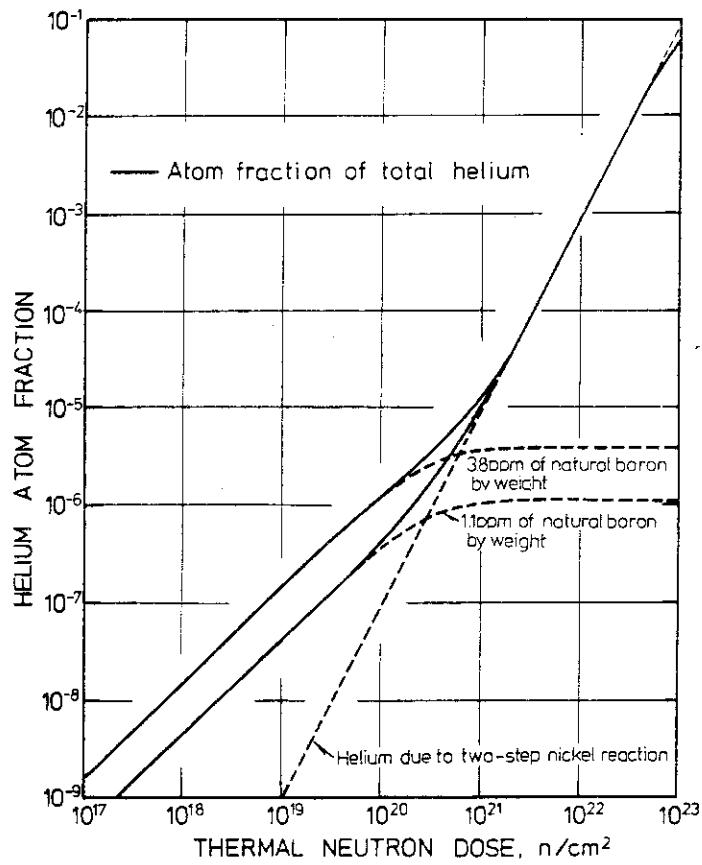


Fig. 8 Relation between helium atom fraction and thermal neutron dose in irradiated Hastelloy-X and Hastelloy-XR

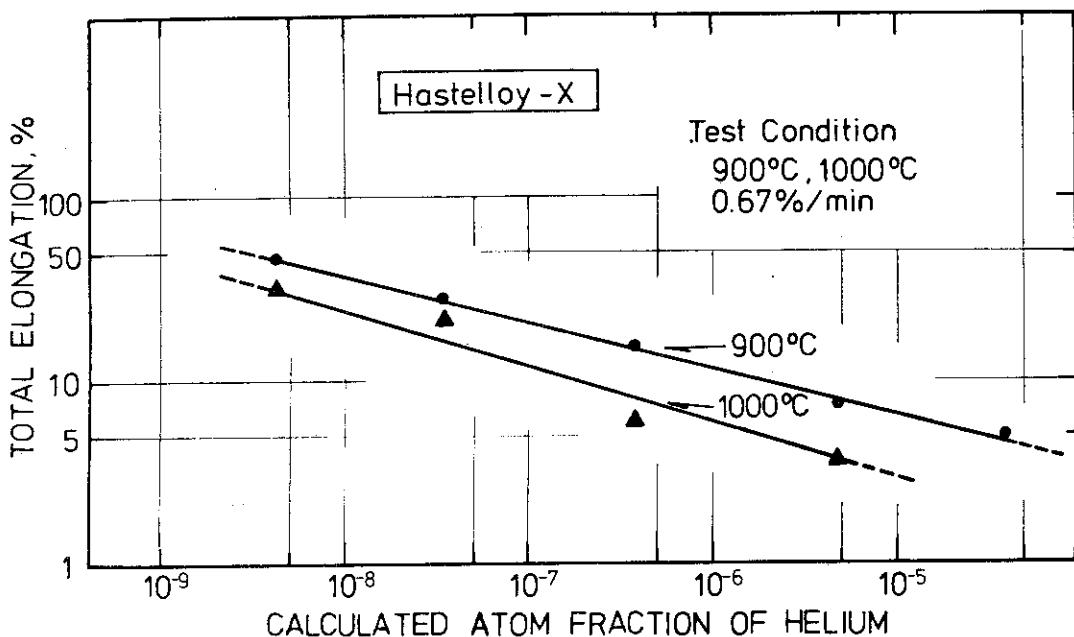


Fig. 9 Effects of helium produced by the transmutation reaction on the reduction in ductility of Hastelloy-X

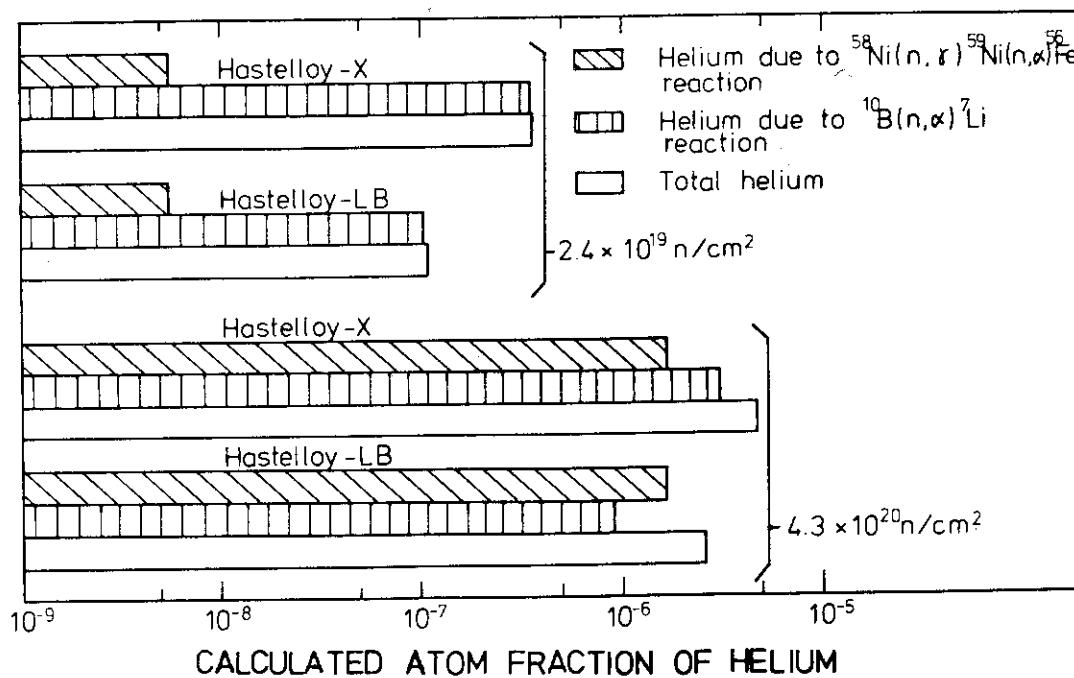


Fig. 10 Comparison of concentration in helium produced by the transmutation reaction in Hastelloy-X and Hastelloy-XR

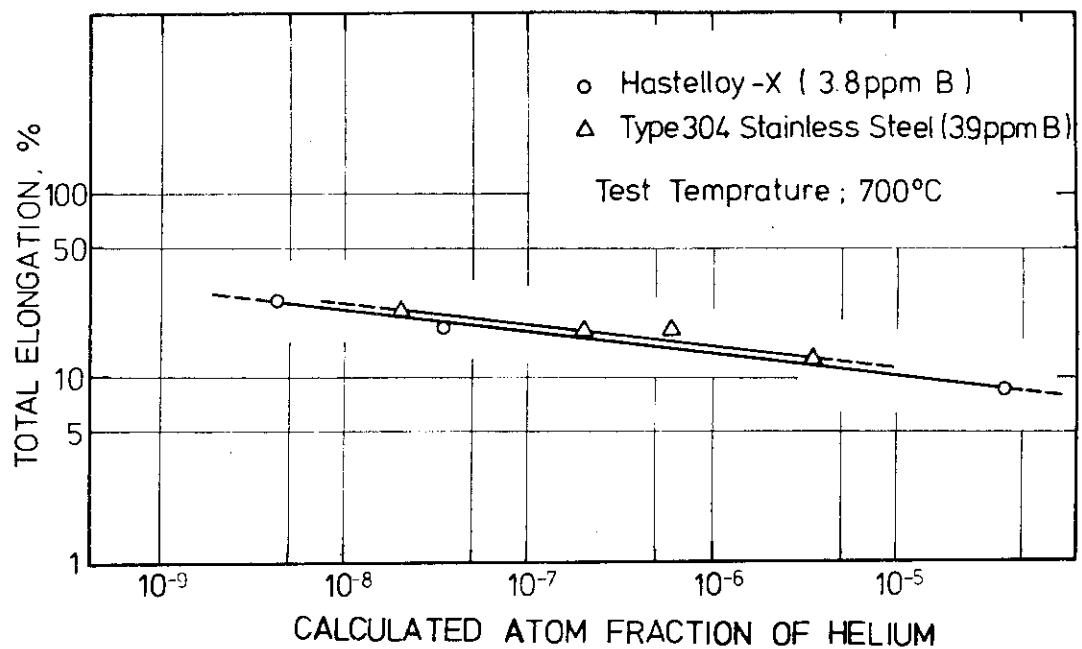


Fig. 11 Effects of helium produced by the transmutation reaction on the reduction in ductility of Hastelloy-X and type 304 stainless steel