

IASCC 感受性の予兆診断手法に関する研究

A Study of Testing Method for Predictive-Monitoring of IASCC Susceptibility

原子力機構	根本 義之	Yoshiyuki NEMOTO
原子力機構	上野 文義	Fumiyoji UENO
原子力機構	永江 勇二	Yuji NAGAE
原子力機構	高屋 茂	Shigeru TAKAYA
原子力機構	吉武 康光	Tsunemitsu YOSHITAKE
原子力機構	青砥 紀身	Kazumi AOTO
原子力機構	塚田 隆	Takashi TSUKADA

This study proposes a predictive monitoring method for irradiation assisted stress corrosion cracking (IASCC) of austenitic stainless steels. High purity model austenitic stainless steels were irradiated up to 1dpa or 5dpa in JRR-3. IASCC susceptibility of the irradiated specimens was determined by scanning electro microscopy (SEM) on fractured surface of the specimens after slow strain rate tensile (SSRT) testing in high temperature water simulating boiling water reactor (BWR) conditions. Magnetic property of these specimens on the grip section was measured by flux gate (FG) sensor. The magnetic parameter seems to depend on IASCC susceptibility. Predictive IASCC monitoring method is proposed to develop by application of this result.

Keywords: IASCC, Austenitic Stainless Steel, FG sensor, SSRT, JRR-3, BWR

1. 緒言

従来の軽水炉においてこれまで経験してきたトラブルの多くは構造材料の損傷に起因するものであり、設計段階で予測できなかつた損傷事例としては応力腐食割れ (SCC) 、照射誘起応力腐食割れ (IASCC) などが挙げられる。これらの事象は現行炉の高経年化、次世代型原子炉における構造材料の高速中性子による過酷な照射環境及び高温環境での使用により、さらに重要な問題となることが予測される。そのため原子炉システムの安全かつ安定的な運転のためには、これらの材料損傷につながる材料劣化を予兆段階で検知し、損傷発生を未然に回避するための技術開発が重要である。

これまでに導入されている原子炉構造材料の劣化診断技術としては、超音波探傷法、渦電流探傷法等が挙げられるが、いずれもすでに構造材料に微細き裂などの損傷が発生した後に検知可能な診断法である。本研究においては、炉内構造材料の損傷発生以前にIASCC感受性の上昇を検知する、予兆診断手法の開発の可能性について検討する。

2. IASCC 感受性と磁気特性の相関性評価

2.1 評価方法

研究に用いた試料は、不純物元素濃度が極力少なくなるように製作した高純度モデルオーステナイト系ステンレス合金(HP304)と、その合金に炭素を約0.1mass%添加した合金(HP304/C)、及びモリブデンを約2.5mass%添加した合金(HP316)である。これらの化学組成をTable 1に示す[1, 2]。以上3種類の組成の合金の1dpa、5dpa 照射材について、高温水中低歪み速度引張り (SSRT) 試験を行った試験片について評価を実施した。試験片形状をFig. 1に示す。JRR-3における照射条件をTable 2に示す。高温水中 SSRT 試験はいずれの試験片についても、歪み速度 $1.7 \times 10^{-7}/\text{s}$ で行った。試験温度及び溶存酸素濃度は1dpa 照射材については573K、32ppm、5dpa 照射材については561K、8ppmで行った。SSRT 試験の後、破断面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察によって粒界破面率を求め、IASCC 感受性の評価を行った[1, 2]。またこれら試験片のつかみ部について、JIS 規格 (JIS G 0580)に基づく電気化学的再活性化 (EPR) 率測定法による腐食試験を行い、またフラックスゲート (FG) センサーによる磁気測定を行った[3-5]。

連絡先:根本義之、〒319-1195茨城県那珂郡東海村白方白根2-4、(独)日本原子力研究開発機構、電話:029-282-5348、e-mail:nemoto.yoshiyuki@jaea.go.jp

Table 1 Chemical compositions (mass%)

ID	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	Ti	Al	N
HP304	0.003	0.01	1.36	0.001	0.0014	18.17	12.27	-	0.01	0.16	0.0014
HP304/C	0.098	0.03	1.39	0.001	0.0020	18.30	12.50	-	<0.01	0.11	0.0016
HP316	0.004	0.02	1.40	<0.001	0.0010	17.21	13.50	2.50	0.01	0.10	0.0020

Fe: balance

Table 2 Irradiation conditions

	Temp. (K)	Fluence, $E > 1\text{MeV}(\text{n}/\text{m}^2)$	Fluence, $E < 0.68\text{eV}(\text{n}/\text{m}^2)$
1dpa	513 ± 10	6.7×10^{24}	3.0×10^{25}
5dpa	543 ± 20	3.5×10^{25}	1.7×10^{26}

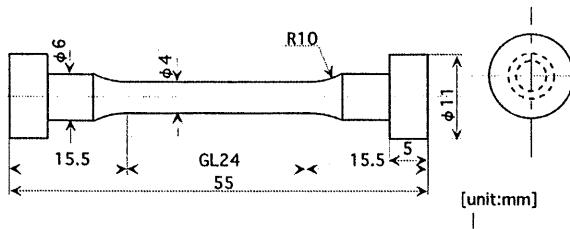


Fig. 1 Shape of specimens

2.2 評価結果と考察

高温水中 SSRT 試験の結果得られた粒界破面率で表した IASCC 感受性と、磁気測定の結果得られた最大漏えい磁束密度との関係を Fig. 2 に示す。各合金で照射量の上昇に伴い IASCC 感受性が上昇しており、同時に最大漏えい磁束密度も上昇し、IASCC 感受性と最大漏えい磁束密度の間には相関がみられた。また組成の異なる 3 種類の合金のデータが、比較的近い範囲内で分布していた。

IASCC 感受性と最大漏えい磁束密度の上昇に共通して寄与すると考えられる要因は複数考えられるが、本研究ではその中で特に、粒界での照射誘起偏析と、粒内での照射欠陥生成に着目した。粒界での照射誘起偏析による Cr 欠乏層の生成は、耐食性劣化をもたらし IASCC 感受性を高めると考えられるが、それによるマルテンサイト相の生成が磁気的性質に寄与する可能性もある [6-11]。また、粒内での照射欠陥の生成は、格子歪などによる磁気的性質の変化をもたらす可能性が考えられ、また同様に照射欠陥生成による照射硬化は

IASCC 感受性を高めると考えられる [11-12]。

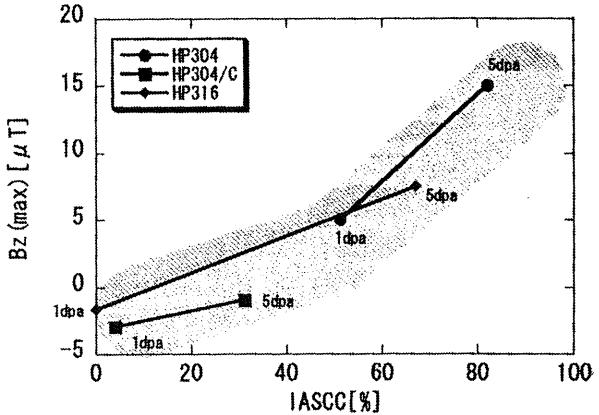


Fig. 2 Relation between IASCC susceptibility and maximum leakage magnetic flux density

Fig. 3 に EPR 率と最大漏えい磁束密度の関係を示す。それぞれの合金で照射による EPR 率の上昇に伴って漏えい磁束密度が上昇した。しかし Fig. 2 に示した IASCC 感受性と最大漏えい磁束密度の関係に比べて、合金ごとの差異が大きくなかった。これは測定された最大漏えい磁束密度が、粒界での Cr 欠乏層生成のみに依存するものではないことを示していると考えられる。このため、従来の熱鋸敏化材の SCC を磁気評価で捉える技術開発に関する研究では、粒界偏析によるマルテンサイト相の生成に着目して研究を進めてきたが [6-7]、照射材の場合は粒界偏析のみで IASCC 感受性と磁気変化の関係を評価するのではなく、その他の照射欠陥等の要因についても検討する必要があると考えられる。

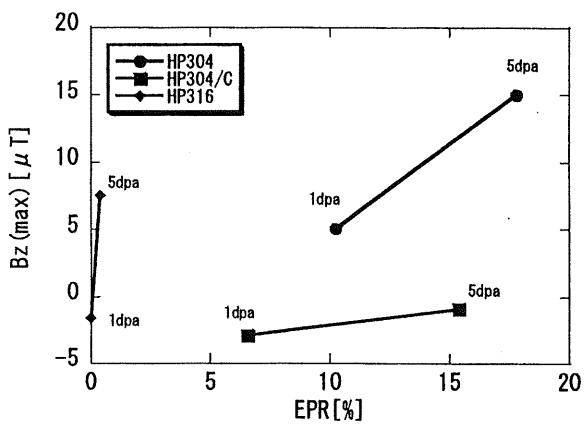


Fig. 3 Relation between EPR ratio and maximum leakage magnetic flux density

次に Fig. 4 に 0.2%耐力と最大漏えい磁束密度の関係を示す。それぞれの合金で照射による 0.2%耐力の上昇に伴って漏えい磁束密度が上昇した。HP304 合金と HP316 合金のデータは比較的近い範囲内で分布したが、HP304/C 合金のデータは離れた位置に分布していた。これは炭素を添加した HP304/C 合金においては炭化物の生成が硬化に寄与するが、磁気的性質には寄与しないためと考えられる。しかし炭素添加量の少ない HP304 合金と HP316 合金のデータが比較的近い範囲内で分布したことから、炭化物の生成が起こりにくい条件では、照射硬化をもたらす照射欠陥の生成が磁気的性質にも影響を及ぼしている可能性があると考えられる。

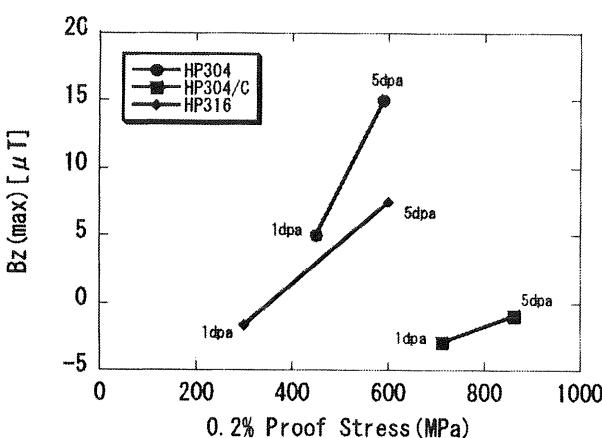


Fig. 4 Relation between 0.2% proof stress and maximum leakage magnetic flux density

IASCCの発生は、粒界偏析等を含む照射欠陥生成、水質などの環境条件、応力条件などの複合効果によって起こると考えられるため、今後より多くの要因について詳細な研究を進めていく必要がある。そのため現在、様々な条件で作成した材料劣化模擬材を用いてSSRT試験、漏えい磁束密度測定の他、導電率測定、渦電流法測定、交流磁化法測定、第一原理計算による磁気評価などを実施中である。

IASCC感受性と最大漏えい磁束密度の間の相関関係について研究を進めることによって、IASCC感受性の予兆診断手法を開発できる可能性がある。また、合金の組成がある程度変化してもIASCC感受性と磁気データが比較的近い範囲内で相関関係を示すとすれば、その手法はより広い範囲に応用可能となるため、今後検討を進めていく必要がある。

3. 結言

- 1) 高純度モデルオーステナイト系ステンレス合金について、FG センサーによる最大漏えい磁束密度と IASCC 感受性との間に相関関係が存在した。この関係は、IASCC 感受性の非破壊診断及び IASCC 損傷の予兆診断に利用できる可能性がある。
- 2) 照射材における最大漏えい磁束密度と IASCC 感受性の相関関係の要因については、粒界偏析以外に照射欠陥等、様々な要因について検討する必要がある。

参考文献

- [1] J. Nakano, Y. Miwa, T. Kohya, T. Tsukada, "Effects of silicon, carbon and molybdenum additions on IASCC of neutron irradiated austenitic stainless steels", Journal of Nuclear Materials, 329-333 (2004) 643-647.
- [2] Y. Miwa, T. Tsukada, S. Jitsukawa, S. Kita, S. Hamada, Y. Matsui, M. Shindo, "Effects of minor elements on irradiation assisted stress corrosion cracking of model austenitic stainless steels", Journal of Nuclear Materials, 233-237 (1996) 1393-1396.
- [3] 上野文義、永江勇二、根本義之、三輪幸夫、高屋茂、星屋泰二、塙田隆、青砥紀身、石井敏満、近江正男、清水道雄、阿部康弘、吉武庸光、中村保雄、山下卓哉、「原研-サイクル機構 融合研究報告書 照射環境における原子炉構造材料の劣化現象に関する研究」JAERI-Reserch 2005-023, JNC TY9400 2005-013.
- [4] 吉武庸光、永江勇二、高屋茂、青砥紀身、星屋泰二、松元慎一郎、上野文義、根本義之、三輪幸夫、塙田隆、重藤好克、「照射済みオーステナイト系ステンレス鋼の磁化特性変化挙動－照射環境における原子炉構造材料の劣化現象に関する研究(第3報)－」、日本原子力学会、2006年春の年会 C08.
- [5] 上野文義、根本義之、三輪幸夫、塙田隆、石井敏満、近江正男、永江勇二、高屋茂、青砥紀身、吉武庸光、星屋泰二、「照射環境における原子炉構造材料の劣化現象に関する研究－(第4報) 照射後オーステナイト系ステンレス鋼の腐食特性変化の検討－」日本原子力学会、2006年春の年会 C09.
- [6] 鎌田康寛、張樂福、荒克之、菊池弘昭、徳武洋介、高橋正氣、塙田隆、「ステンレス鋼粒界での照射誘起偏析を模擬した合金のマルテンサイト変態と磁性」、日本金属学会誌、第68巻、第2号(2004)122-125.
- [7] S. Takaya, T. Suzuki, Y. Matsumoto, K. Demachi and M. Uesaka, "Estimation of stress corrosion cracking sensitivity of type 304 stainless steel by magnetic force microscope", Journal of Nuclear Materials 327 (2004) 19-27.

- [8] R.L. Johnes, G.M. Gordon and G.H. Neils, "Environmental degradation of materials in boiling water reactors", Proc. 4th Int. Symp. Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors (1990) 1-1.
- [9] S.M. Bruemmer, B.W. Arey and L.A. Charlot, "Influence of chromium depletion on intergranular stress corrosion cracking of 304 stainless steel", Corrosion vol.48, No.1, (1992) 42-49.
- [10] S.M. Bruemmer, B.W. Arey and L.A. Charlot, "Grain boundary chromium concentration effects on the IGS SCC and IASCC of austenitic stainless steels", Proc. 6th Int. Symp. Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors (1994) 277.
- [11] 塚田隆, "オーステナイトステンレス鋼の中性子照射誘起応力腐食割れに関する研究", JAERI-Research 98-007 (1998).
- [12] P. B. Nagy, "Opportunities and challenges for nondestructive residual stress assessment", Review of Quantitative Nondestructive Evaluation Vol.25 (2006) 22-37.