

炉内構造物の予防保全に向けた照射誘起応力腐食割れ挙動に与える残留応力の影響評価手法の検討

Study on preventive maintenance of core structural components by evaluating the influence of residual stress on irradiation assisted stress corrosion cracking behavior

原子力機構	原子力基礎工学研究部門	三輪 幸夫	Yukio MIWA	non-member
原子力機構	原子力基礎工学研究部門	近藤 啓悦	Keietsu KONDO	non-member
原子力機構	原子力基礎工学研究部門	大久保 成彰	Nariaki OKUBO	non-member
原子力機構	原子力基礎工学研究部門	加治 芳行	Yoshiyuki KAJI	non-member

This study proposed an evaluation method of damage occurrence of core structural materials by simulation model. Irradiation assisted stress corrosion cracking (IASCC) is one of the damage modes among aged core components. IASCC was thought to be caused by material degradation such as losses of workability due to radiation hardening and corrosion resistance due to radiation-induced segregation and residual stress due to welding, then the influence of residual stress on both radiation hardening and radiation induced segregation was examined by ion-irradiation experiments. Not only the residual stress change due to radiation creep was affected by residual stress and dose, but also the material degradation was affected. This was modeled and the damage occurrence by IASCC in a shroud type component during reactor operating life was estimated by means of FEM calculation based on the models of the material degradation and residual stress.

Keywords: IASCC, core structural material, damage occurrence, residual stress, radiation hardening, radiation-induced stress relaxation, radiation-induced segregation, preventive maintenance,

1. 緒言

原子炉の高経年化対策として炉内構造物の経年劣化をふまえた信頼性・健全性評価が重要である。経年劣化による構造物の損傷モードの1つに照射誘起応力腐食割れ (IASCC) が挙げられている[1]。照射誘起応力腐食割れは、弾き出し損傷で生じる照射硬化と局所的化学組成変化が材料の塑性変形挙動や脆性及び腐食挙動に影響を与え材料が劣化した結果生じると考えられている。加えて、割れの発生には応力が必要であり、溶接残留応力が主に寄与していると考えられている。この溶接残留応力は照射クリープにより使用期間中に緩和する一方、構造物は周囲から拘束を受けているためにクリープ変形などにより新たな応力が発生する場合もあり、割れの発生を予測することを困難にしている。しかし、材料劣化の程度のみで割れの発生を推定し、構造物損傷の予防保全活動を行うことは合理的ではない。

本検討では、溶接残留応力のような初期残留応力が

連絡先:三輪幸夫、〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4、腐食損傷機構研究グループ、電話: 029-282-6082、e-mail:miwa.yukio@jaea.go.jp

存在する場合の照射誘起応力緩和と照射硬化および照射誘起偏析による耐食性劣化に及ぼす残留応力の影響をイオン照射試験データに基づきモデル化し、炉内構造物のある部位について材料劣化と残留応力の時間変化の関係を有限要素法によりシミュレーションし、IASCC 発生挙動の予測を行う。このような照射による複合的な作用を考慮することで、合理的な予防保全活動を実施できる材料損傷評価法の開発を行うことを目指した。

2. 照射の複合作用を考慮した材料損傷評価法の概念図

IASCC を生じさせる材料劣化の因子として、構造物が中性子照射による弾き出し損傷を受けて生じる照射硬化による脆化のような塑性変形挙動の変化と照射誘起偏析による局所耐食性の劣化が考えられている。これらは使用期間中に Fig.1(a)に示すように、使用時間 (照射量) の増加と共に材料の劣化度を増加させてゆくが、その時間変化挙動は異なる。残留応力は照射誘起応力緩和により低下してゆくが、クリープ変形やスエリングが変形を拘束された構造物に新たなひずみを

生じさせ残留応力を発生させる可能性も考えられる。

IASCCの発生に関しては、これらの照射硬化、照射誘起偏析及び残留応力変化（照射誘起応力緩和とスエリング）が各々ある条件を満たす場合と考えた。これまで材料の照射試験データの傾向から Fig.1(b)のような挙動が予測され、単純に長時間使用後ほどIASCCによる損傷感受性が高まるのではない可能性が考えられる。また、構造物のように温度、照射量及び残留応力の分布を持つ場合には条件を満たす部位は時間経過と共に複雑に変化する可能性も考えられる。一方、損傷の起こり易さが個別の材料劣化に影響されると考える現在の設計法では、照射硬化の程度によって決まることとなり材料寿命を過小評価する可能性が考えられる。

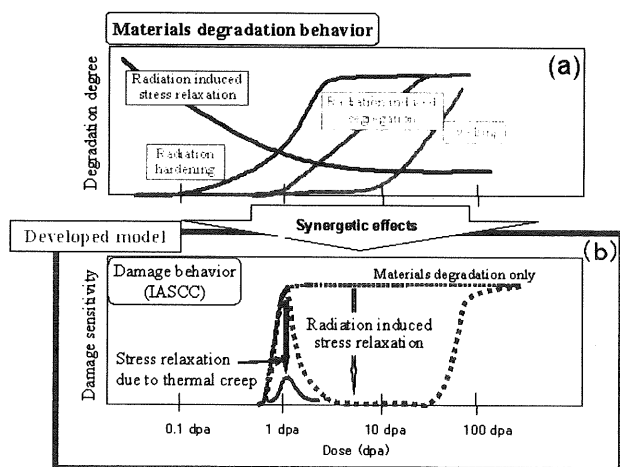


Fig.1 Modeling of material degradation considering synergistic effects of radiation damage on IASCC susceptibility [2]

3. イオン照射試験によるデータ取得と材料劣化挙動のモデル化

3.1 イオン照射試験と照射後試験

本研究では炉内構造物の材料に広く使用されている SUS316L 鋼を用いて照射試験データを取得した。使用した材料の化学組成は C:0.008, Cr:17.72, Ni:12.86, Mo:2.30, Si:0.40, Mn:0.82, P:0.025, S:0.0011 (wt.%)である。試験片は 1030℃で 30min 保持した後、水焼き入れを行った溶体化熱処理材である。室温及び 300℃での降伏応力及び引張強さはそれぞれ、242 及び 565MPa と 163 及び 449MPa である。

溶接残留応力が存在する条件下での照射損傷を模擬するため、Fig.2 に示す曲げ変形を付与した表面にイオ

ン照射試験を行うこととした。曲げ変形量は、BWR シュラウドの溶接部近傍に生じていた引張及び圧縮残留応力を生じさせるレベルとし、+7%、+2%、ゼロ及び-2%の塑性ひずみ量を与えた。イオン照射試験は、原子力機構高崎量子科学研究所 TIARA のトリプルビーム照射試験装置を用い、12MeV の Ni イオンを 330 及び 400℃の照射温度で平均弾き出し損傷量が 1、6、12 及び 45dpa となるまで照射した。この条件による弾き出し損傷領域は深さ方向に対して Fig.3 に示す分布を持ち、非常に浅い (~3µm) 領域に留まる。この領域での照射硬化、照射誘起偏析、スエリング及び照射誘起応力緩和を測定するためそれぞれ、ナノインデントと透過型電子顕微鏡、電気化学的腐食試験と 3 次元アトムプローブ、原子間力顕微鏡及び X 線応力回折法を用いた。

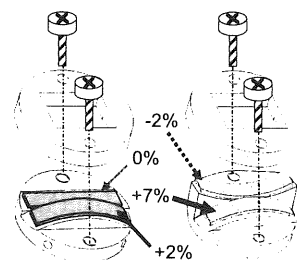


Fig.2 Irradiation jigs for bent beam specimens with different levels of initial residual stress.

To apply an initial residual stress corresponding to 7% tensile strain, specimens tensioned to +5% were additionally bent to produce 2% plastic strain.

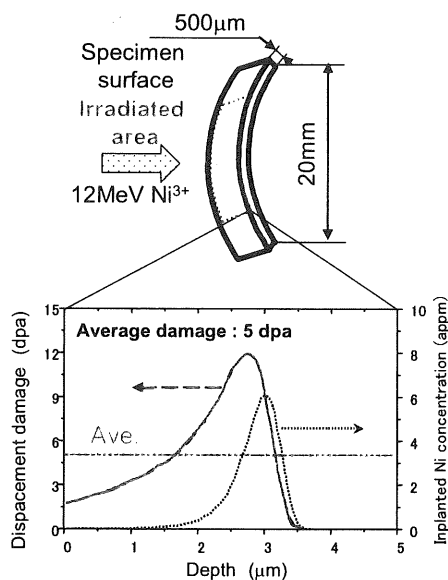
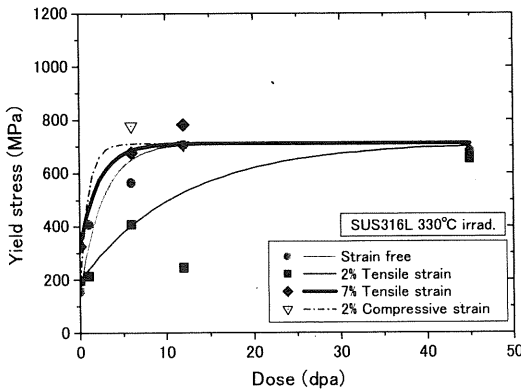


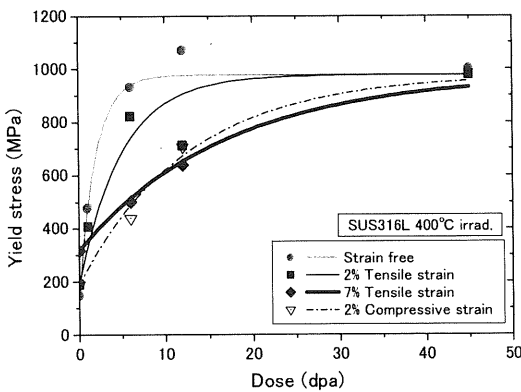
Fig.3 Irradiated area and damage depth profile

3.2 材料劣化挙動の照射量依存性とモデル化

Fig.4 には 330 及び 400°C 照射における照射硬化挙動の照射量依存性を示す。初期残留応力を与えるために曲げにより付与した塑性ひずみ量の違いにより、降伏応力が飽和する照射量が異なる結果が得られた。この塑性ひずみ量の違いによる影響は、照射温度で異なり、またひずみ量との間に線形関係は観察されなかった。



(a) Irradiation at 330°C



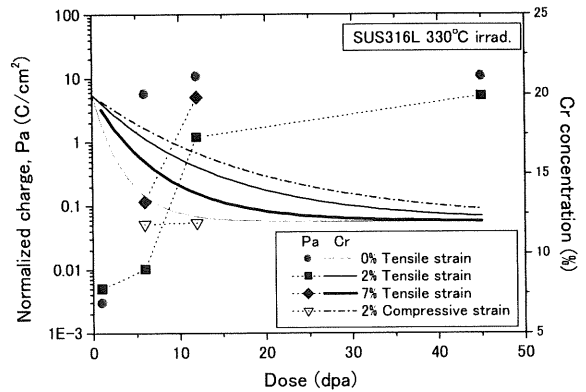
(b) Irradiation at 400°C

Fig.4 Dose dependence of radiation hardening

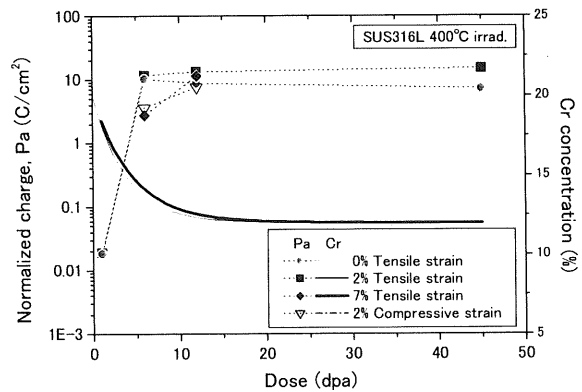
本研究の照射温度域では弾き出し損傷で照射欠陥が形成され、これが転位の運動の障害となり硬化を生じることから、このようなマイクロ組織発達挙動を反応速度論でモデル化した場合の一般的な形を照射硬化挙動の塑性ひずみ量の違いにより、降伏応力が飽和する照射量が異なるという挙動は現状では機構論的にはモデル化されていないため、式(1)の係数の b に反映させることとした。得られた結果は、中性子照射材のデータベースと比較し、照射速度などの影響を特に考慮しなくても良いことが考えられた[2]。

$$\sigma_{0.2} = \sigma_{0.2}(\epsilon_{pre}) + A[1 - \exp(-b \cdot dpa)] \quad (1)$$

Fig.5 には 330 及び 400°C 照射における照射誘起偏析挙動の照射量依存性を示す。照射量の増加と共に、照射誘起偏析部位での溶解により生じる再活性化電気量 (Pa) は増加し飽和する結果が得られた。また、付与した塑性ひずみ量による影響が見られ、照射硬化と同様照射温度で異なり、ひずみ量との間に線形関係は見られなかった。



(a) Irradiation at 330°C



(b) Irradiation at 400°C

Fig.5 Dose dependence of radiation-induced segregation

3次元アトムプローブで測定した粒内の点欠陥における照射誘起偏析挙動の違いに比べ再活性化下電気量の変化が大きいことから、電気量変化挙動の主たる違いは粒界での照射誘起偏析挙動の違いに起因する粒界腐食挙動の違いを示していると考えられた。これらの照射温度範囲では、粒界での照射誘起偏析には弾き出し損傷で生じた空孔とCrやMoの耐食性に寄与する原子との優先位置交換による逆カーケンドール効果であるため、この拡散挙動を反応速度論でモデル化した場合の式(2)を用いた。ここで、 β は塑性ひずみによりCr濃度低下が飽和する挙動を反映する係数とした。この β は照射硬化で仮定した b と関連性は見られなかった。

得られた結果は、中性子照射材のデータベースと比較し、照射速度などの影響を特に考慮しなくても良いことが考えられた[2]。

$$C_{Cr} = C_{Cr,sat} + \alpha \exp(-\beta \cdot dpa) \quad (2)$$

Fig.6には330及び400℃照射における照射誘起応力緩和挙動の照射量依存性を示す。熱応力緩和試験により得られた熱クリープの影響を差し引いた正味の照射クリープによる寄与分を示してある。照射量の増加と共に、残留応力が低下する結果が得られた。また、付与した塑性ひずみ量による影響が見られ、照射硬化と同様に照射温度で異なり、ひずみ量との間に単純な線形関係は見られなかった。

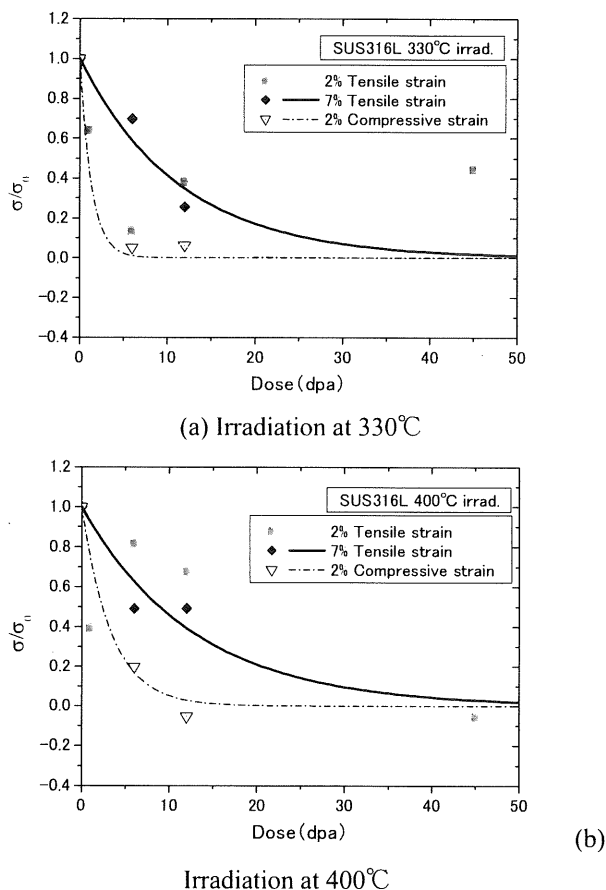


Fig.6 Dose dependence of radiation-induced stress relaxation

照射誘起応力緩和挙動の照射量依存性は式(3)により近似した。ここで、Cは塑性歪み量の影響を反映する係数とした。Eはヤング率である。

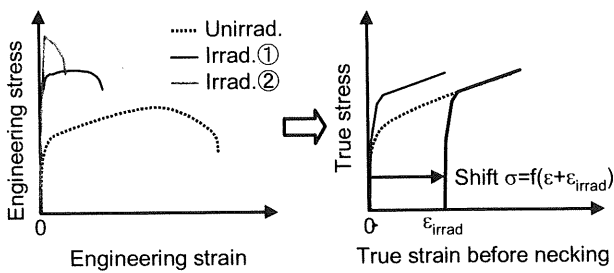
$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \exp(-C \cdot E \cdot dpa) \quad (3)$$

スエリングに関しては、初期残留応力の影響が観察されなかった。これは、本研究で対象とする温度がスエリングを生じるのに十分でないことと、一般にスエリングは潜伏期間を経て重照射後に顕著な成長挙動を示すが、その時点では初期残留応力が照射誘起応力緩和で消失しているためであろうと考えられた。従って、本研究のモデル化では、参考文献[4]の応力が存在しない場合でのスエリングの式を用いた。

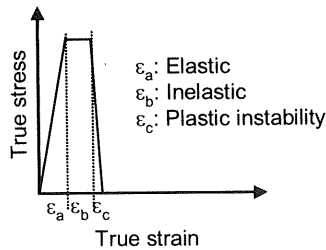
4. シミュレーションによる炉内構造物でのIASCC発生挙動の検討

4.1 照射硬化により応力-ひずみ関係が変化する挙動のモデル化

本研究で対象とする照射温度域では、照射による降伏応力の増加と均一伸びの低下が生じ、さらに工学的応力-ひずみ曲線では加工硬化の低下が生じることが知られている。しかし、応力-ひずみ関係を真応力-真ひずみ関係で表すと、照射硬化による降伏応力増加分に相当するひずみを考慮した場合、Fig.7(a)に見られるようなSwift型の構成方程式の概念が当てはまることが報告されている[5,6]。この関係を用いることで、照射硬化した場合の真応力-真ひずみ関係を、全ての照射条件においてデータを取得することなく表すことが出来る。照射硬化が十分大きく図中のIrrad.②の場合のように、降伏直後にくびれを生じ塑性不安定性を生じる場合にも上記の関係が成立するが[5,7]、IASCC挙動はこの様な塑性変形挙動を示す材料では異なる発生応力基準が考えられたため本研究ではこれを別の事象として扱った。Fig.7(b)に真応力-真ひずみ挙動を示す。この様な挙動を示すのは、降伏応力が照射硬化により非照射材が塑性不安定を生じる応力つまり最大引張強さを真応力値に換算した応力(しきい応力値)になる場合であり、照射材の降伏応力はしきい応力値以上に上昇することが出来る[8]。この様に、降伏応力を判断基準とし、照射による降伏応力の増加分をひずみに換算することで、照射硬化した材料の応力-ひずみ関係を非照射材の応力-ひずみ関係を用いて単純に示すモデルとした。



(a) In ductile condition



(b) In semi-ductile condition

Fig.7 Modeling of stress-strain curves of irradiation-hardened materials

4.2 IASCC 発生条件のモデル化

IASCC 発生条件は、照射量の関係から考慮して、①しきい照射量から 3dpa 程度までは照射誘起偏析による耐食性劣化が重要な役割を演じ、②それ以上の照射量では照射硬化による変形挙動が重要な役割を演じることが考えられた[8]。後者の条件では、材料の応力-ひずみ関係が Fig.7(b)の場合となる。この挙動は、3dpa 以上の照射においても照射温度が異なることで均一伸びを失っていない材料では、IASCC が耐食性劣化の影響で発生していると考えられる結果[9]とも一致する。

上記の検討から、本研究では IASCC 発生に関して 2 つの条件分けを行った。まず、照射量の低い領域では照射誘起偏析が重要であるため、照射誘起偏析により粒界 Cr 濃度が 16wt.%以下になること、また定ひずみ速度引張試験及び定荷重試験での結果から降伏応力以上の応力を受けていること[10]を必要条件とした。一方、照射量が高い場合には、マクロ的には弾性変形下で IASCC が発生しているため、定荷重試験の結果から降伏応力の 0.4 倍以上の応力を受けていることを必要条件とした[10]。この場合、十分に照射を受け照射誘起偏析による粒界 Cr 濃度も 16%以下に低下しているが、腐食があまり重要でない PWR 環境条件下でも IASCC が発生している[11]ため必要条件には加えなかった。

4.3 炉内構造物での IASCC 発生挙動シミュレ

ーションコード

本研究では、主たる炉内構造物であるシュラウドを模擬した内直径 3.5m、肉厚 50mm、高さ 3.2m 薄肉円筒構造物の 1/16 モデルをシミュレーションに用いた。上下は固定端とした。この構造物には、上下 1/4 の高さの位置に周方向の溶接部を模擬した部位を設定し、その部位には溶接残留応力分布をシュラウドでの例[12]を参考に与えた。Fig.8 に残留応力分布を示す。また、溶接線から上下方向に 10mm 離れた位置の溶接残留応力が生じている箇所幅 100 μ m、深さ 50 μ m の半楕円欠陥を付与した。

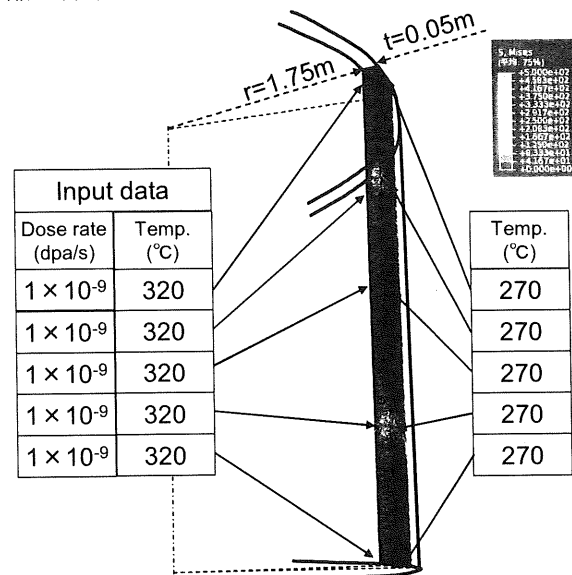


Fig.8 Residual stress, dose rate and temperature distribution in shroud type structural model

シミュレーションにおいては、各部位の照射温度及び照射量によって変化する照射硬化、照射誘起偏析、照射誘起応力緩和及びスエリングを時間変化毎に計算し、構造物内での変形と応力を有限要素法により計算した。各計算ステップにおいて、4.2 で述べた照射量により変化する IASCC 発生条件と逐次比較し、IASCC 発生条件を満足した場合には、欠陥先端近傍の節点を解放することによりき裂進展解析を実施した。このシミュレーションコードの流れを Fig.9 に示す。

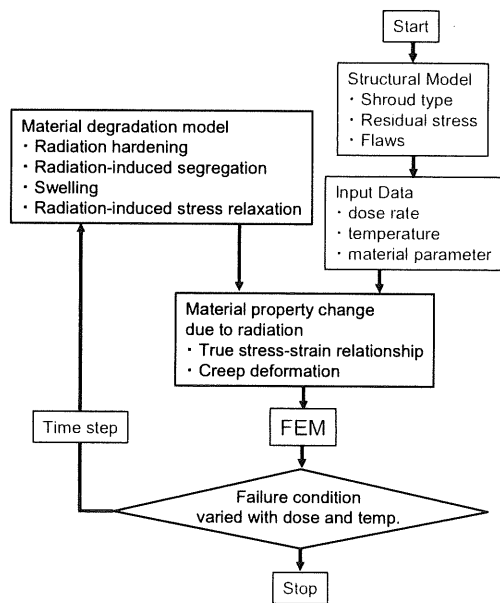


Fig.9 Flow diagram of simulation code

4.4 シミュレーション結果

Fig.10 に欠陥先端部での残留応力の使用期間中における変化を示す。Case 1, 2 及び 3 はそれぞれ、照射クリープを考慮しない場合、照射クリープを考慮した場合、照射クリープを考慮し且つ残留応力により照射硬化及び照射誘起偏析挙動が変化すること考慮した場合を示す。照射クリープを考慮した場合には 0.5 年程度の照射によりき裂先端の残留応力は降伏応力値よりも低くなり塑性変形を起こさないため、IASCC が発生困難となる。この時間は、照射クリープ等を考慮しない場合に比べて約 1/6 に低下した。

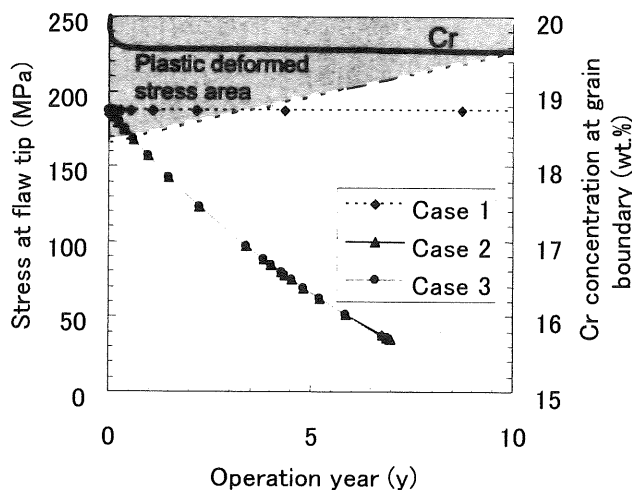


Fig.10 Calculated stress and corrosion resistance (Cr concentration) change at flaw in shroud type component during reactor operation

5. 結言

- 1) 残留応力により照射硬化及び照射誘起偏析挙動の照射依存性が変化することが分かった。
- 2) 照射硬化、照射誘起偏析及び照射誘起応力緩和挙動の残留応力と照射量の影響をモデル化し、使用期間に渡り炉内構造物の変形挙動を有限要素法により計算するシミュレーションコードを開発した。
- 3) シミュレーションコードを用いることにより、IASCC 発生し易さを、き裂先端の残留応力、照射誘起偏析などを考慮して定量的に評価できることを明らかにした。

謝辞

本研究は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、独立行政法人日本原子力研究開発機構が実施した平成 19 年度「照射の複合作用を考慮した新しい材料損傷評価法の開発」の成果を含みます。

参考文献

- [1] 例えば「高経年化対応ロードマップ」
- [2] Y. Miwa et al., J. Solid Mech. And Mater. Engi., Vol.2, 2008, pp.145-155.
- [3] T. Muroga et al., J. Nucl. Mater., Vol.174, 1990, pp.282-288.
- [4] TT. Claudson et al., Nucl. Appli. Tech., Vol.9, 1970, pp.10-23.
- [5] S. Jitsukawa et al., J. Nucl. Mater., Vol.191-194, 1992, pp.790-794.
- [6] Y. Miwa et al., Proc. 12th Int. Conf. Environmental Degradation of materials in Nuclear Power Systems -Water Reactors-, 2005, pp.319-326.
- [7] T. Taguchi et al., J. Nucl. Mater., Vol.335, 2004, pp.457-461.
- [8] 三輪幸夫、「原子力用鉄鋼材料の照射誘起応力腐食割れに関する研究」、東北大学学位論文、2003.
- [9] T. Tsukada et al., J. Nucl. Mater.,
- [10] Y. Miwa et al., Proc. 15th Int. Conf of Nucl. Engi., 2007, paper No. ICONE-15-10709.
- [11] K. Fukuya et al, J. Nucl. Sci. Tech., Vol.43, 2006, pp.159-173.
- [12] 原子力安全・保安院、原子力発電設備の健全性評価などに関する小委員会(第4回)資料4-2-1, 2003