

漏えい磁束密度測定による照射誘起応力腐食割れ感受性評価

Evaluation of Sensitivity to Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking
by Measurement of Leakage Magnetic Flux Density

原子力機構	高屋 茂	Shigeru TAKAYA	Member
原子力機構	根本 義之	Yoshiyuki NEMOTO	Member
東北大学	内一 哲哉	Tetsuya UCHIMOTO	Member
住金テクノ	櫻田 理	Satoshi KEYAKIDA	Member

In a previous study, authors showed experimentally the correlation between leakage magnetic flux density and irradiation assisted stress corrosion cracking susceptibility of high purity model austenitic stainless steels. This study aimed to investigate mechanism of the correlation. Tensile test at elevated temperature and aging test were conducted on materials simulating irradiation-induced segregation, and leakage magnetic flux density was measured before and after these tests in order to study the influence of chemical composition change and lattice defect to leakage magnetic flux density. Furthermore, dependency of magnetic moment on lattice constant was evaluated by first principle calculation. As result, it was shown that leakage magnetic flux density of irradiated materials is thought to increase in severe irradiation-induced segregation region.

Keywords: IASCC, Material Deterioration, Austenite Stainless Steel, Nondestructive Evaluation, Leakage Magnetic Flux Density, Flux Gate Sensor, First Principle Calculation.

1. 緒言

軽水炉において、高経年化対策の重要性が再認識されている。また、より過酷な照射環境及び高温環境で使用される超臨界圧水冷却型高速炉等の次世代型原子炉についても、高経年化対策は重要な問題となることが予想される。考慮すべき高経年化事象のひとつとしては、照射誘起応力腐食割れ (IASCC) が挙げられる。著者らのこれまでの研究により、オーステナイト系ステンレス鋼高純度モデル合金に関して、IASCC 感受性と漏えい磁束密度の間に相関があることが実験的に示されている[1]。このことから、漏えい磁束密度測定により、IASCC 発生前の予兆段階において、その材料劣化を非破壊的に評価できる可能性がある。ただし、中性子照射による漏えい磁束密度の増加の機構や、漏えい磁束密度の増加と IASCC 感受性の増加の相関の原理については、まだ不明な点が多い。そこで、本研究では、IASCC の主原因のひとつであると考えられている結晶粒界近傍における照射誘起偏析や格子欠陥が、磁気特性に及ぼす影響を調べるために、照射誘起偏析模擬材を用いて歪み量をパラメータとした高温環境下引張試験及び比較のための熱時効試験を実施し、漏えい磁束密度の測定を行った。さらに、化学組成変化や

空孔が磁気モーメントに与える影響を評価するために、第一原理計算を実施した。

2. 試験方法

2.1 試験片

供試材は、オーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 の結晶粒界における中性子照射偏析をバルク全体の化学組成で模擬した材料（照射誘起偏析模擬材）を用いた。化学組成を Table 1 に示す。通常の SUS304 鋼と比較して、Cr 濃度が約 10 wt% と低いこと、逆に Ni 濃度が 30 wt% と高いことが特徴である。なお溶体化処理は、1100°C での 30 分間保持及び水冷により行っている。

引張試験片形状を Fig.1 に示す。引張軸が圧延方向に、漏えい磁束密度測定面が圧延面に一致するように、素材板厚中央部から試験片を採取した。

引張試験条件を、Table 2 に示す。漏えい磁束密度変化の歪み量依存性を調べるために、公称歪み 10%、20% 及び 30%までの各中断試験を実施した。試験温度は 650°C とし、昇温時間を約 35 分、引張開始前の均熱時間を 25 分とした。

また、磁束密度変化に対する引張試験中の高温環境下保持のみによる影響を評価するために、引張試験と

Table 1 Chemical compositions (wt%)

C	Si	Mn	Cr	Ni	N	Fe
0.034	3.02	1.02	10.3	30.0	0.003	Bal.

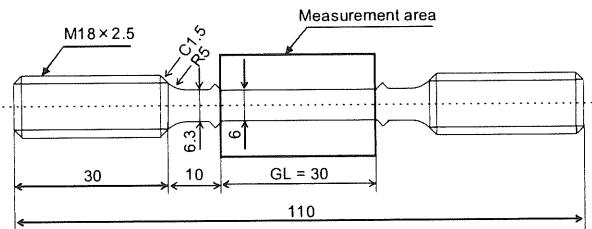
Fig.1 Dimensions of tensile test specimen ($t = 4$)

Table 2 Tensile test conditions

Temperature	650°C
Strain rate	0.3%/min (0~3%) 7.5%/min (>3%)
Interruption condition (Nominal strain)	10%, 20%, 30%
Environment	In Air

同一の加熱炉で、同一形状の試験片を用い、熱時効試験を実施した。熱履歴条件は、公称歪み 30%までの引張試験時の条件に一致させた。

2.2 漏えい磁束密度測定

引張試験及び熱時効試験の前後に、Fig.1 に示す範囲において漏えい磁束密度分布の測定を行った。測定の前に変動交流磁場を用いて試験片を消磁し、その後、上下 1 対の永久磁石間に試験片を保持することによって板厚方向への着磁を行った。永久磁石による磁場の強さは、0.25 T 程度である。着磁後、フラックスゲート型磁気センサを用いて、室温にて残留磁化状態での漏えい磁束密度の板厚方向成分の測定を実施した。試験片表面—センサ間距離は 0.5 mm とした。センサの分解能は、約 1 μT である。

2.3 第一原理計算による磁気モーメント評価

照射欠陥（空孔）導入による漏えい磁束密度変化の可能性を検討するために、SUS304 の主要元素である Fe、Cr、Ni の 3 元素について、磁気モーメントの格子

定数依存性を評価した。結晶構造は、SUS304 と同じ面心立方格子構造とした。磁気モーメントの原因として、スピン磁気モーメントのみを考慮すると[2]、磁気モーメント(M)と、UP スピンをもつ電子の数 (n_{\uparrow})、DOWN スピンをもつ電子の数 (n_{\downarrow}) の間には、次の関係が成り立つ。

$$M = \mu_B (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) \quad (1)$$

ここで、 μ_B はボア磁子である。

なお本計算では、擬ボテンシャルと密度汎関数法を用いた平面波展開により第一原理計算を実施する市販のソフトウェア「Advance/PHASE」を利用した[3]。また、第一原理計算により求められる磁気モーメントは絶対零度における値である。

3. 結果

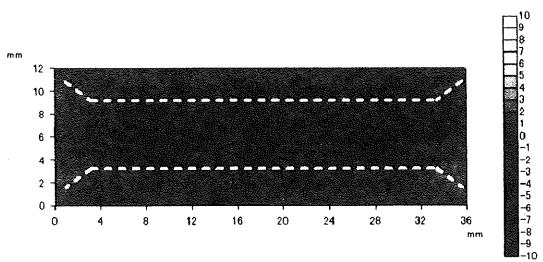
3.1 漏えい磁束密度測定試験

Fig.2(a)–(e)に、10-30 材の受入れ材、熱時効材、引張試験中断材(公称ひずみ:10、20、30%)に関する残留磁束密度測定結果をそれぞれ示す。なお、図中の点線に挟まれた領域に試験片が存在している。

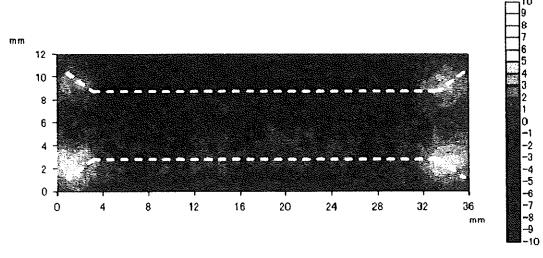
Fig.2(a)から、受入れ材の漏えい磁束密度は環境磁場とほぼ同等であることがわかる。一方、熱時効材では、環境磁場に比べ残留磁束密度がわずかに 1 μT 程度増加していた。さらに、引張試験材では、3~4 μT 程度まで漏えい磁束密度が増加し、試験片平行部の識別が明確にできるほどまでになっている。センサの分解能は約 1 μT であるため、この差は十分有意なものである。ただし、中断時の公称歪みの違いによる漏えい磁束密度の変化は特に認められなかった。このことから、歪みが漏えい磁束密度変化に与える影響は、10%までに飽和したものと考えられる。

3.2 第一原理計算による磁気モーメント評価

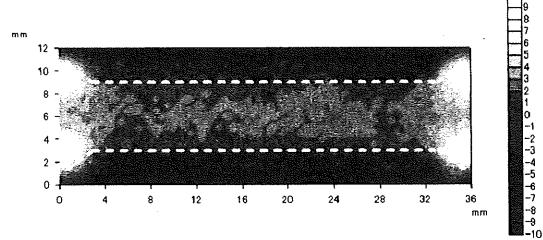
Fe、Cr、Ni の 3 元素に関する磁気モーメントの格子定数依存性を Fig.3 に示す。ここで、SUS304 の格子定数は、約 3.59 Å である。Fe、Cr については、格子定数



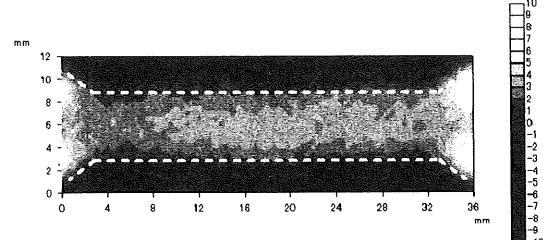
(a) As-received sample



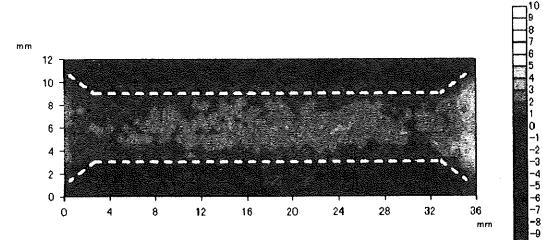
(b) Aged sample



(c) Interrupted tensile test specimen (nominal strain: ~10%)



(d) Interrupted tensile test specimen (nominal strain: ~20%)



(e) Interrupted tensile test specimen (nominal strain: ~30%)

Fig.2 Leakage magnetic flux density (unit: μ T)

があるしきい値以下では磁気モーメントは変化しないが、しきい値以上では格子定数が大きくなるにしたがって磁気モーメントが増加することが示された。一方、Niについて評価した格子定数の範囲においては、格子定数とともに磁気モーメントが単調に増加することが示された。このことから、いずれの元素についても、空孔が導入されて局的に格子定数が広がった場合に、磁気モーメントは変わらないか、あるいは大きくなる傾向があることがわかった。

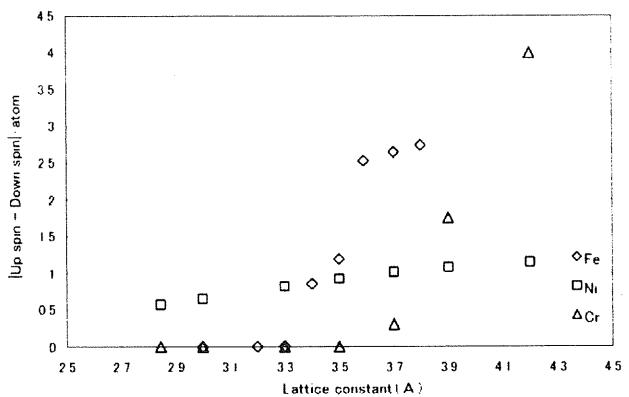


Fig. 3 Dependency of magnetic moment on lattice constant

4. 考察

照射誘起偏析模擬材について、熱時効後に漏えい磁束密度が増加することが示された。著者らは、SUS304鋼について、熱時効により結晶粒界にCr炭化物が析出し、その近傍のCr濃度が低下した領域において、マルテンサイト変態開始温度が上昇した結果、同領域に強磁性体であるマルテンサイト相が生成されることを明らかにしている[4]。しかしながら、オーステナイト相安定化元素であるNiの濃度が30 wt%と高い10-30材については、同機構により残留磁束密度の増加を説明することは困難である。著者らはまた、Ni基合金であるインコネル600について熱時効による磁気特性の変化を調べており、この場合、熱時効により形成されたCr濃度低下領域において、もともと室温以下であったキュリー温度が室温以上まで上昇することにより、磁気力顯微鏡を用いて結晶粒界近傍で磁化が観察できるようになることを報告している[5]。Feを主とするFe-Cr-Ni-3元系合金に関するキュリー温度のCr濃度及びNi濃度依存性については、Bozorthの文献[6]に示されている。これによると、Ni濃度が30 wt%の場合のキ

キュリー温度は、Cr 濃度が 10%では 0 ℃以下であるが、Cr 濃度が 5 wt%まで低下すると、約 80 ℃まで上昇することがわかる。したがって、照射誘起偏析模擬材について熱時効後に残留磁束密度が増加した原因としては、熱時効により析出した Cr 炭化物近傍の Cr 濃度低下領域において、キュリー温度が室温以上に上昇し、強磁性を示すようになったことが考えられる。

また、高温環境下での引張により、熱時効の場合よりもさらに漏えい磁束密度が増加することが明らかになった。試験温度が 650℃と高温であること、および Ni 濃度が 30 wt%と高いことから、この漏えい磁束密度の増加が、加工誘起マルテンサイト変態によるものであるとは考えられない。ここで、第一原理計算による磁気モーメント評価の結果からは、主要 3 元素とともに、格子定数が大きくなるに従って磁気モーメントが大きくなることが示された。このことは、転位や空孔の導入により、原子間隔が通常より広がった場合に、磁気モーメントが大きくなる可能性を示している。

したがって中性子照射材についても、Cr 濃度 10 wt%、Ni 濃度 30 wt%よりもさらに厳しい照射誘起偏析や、そのような照射誘起偏析領域への空孔導入によって、漏えい磁束密度が増加している可能性があると考えられる。

3. 結言

IASCC の主原因のひとつであると考えられている結晶粒界近傍における照射誘起偏析や格子欠陥が磁気特性変化に及ぼす影響を調べるために、照射誘起偏析模擬材を用いて歪み量をパラメータとした高温引張試験及び比較のための熱時効試験を実施し、漏えい磁束密度の測定を行った。さらに、空孔導入が磁気モーメントに与える影響を検討するために、第一原理計算により磁気モーメントの格子定数依存性を評価した。その

結果、以下のことを明らかにした。

- (1) Cr 濃度 10 wt%、Ni 濃度 30 wt%よりさらに厳しい照射誘起偏析領域において、キュリー温度の上昇により、室温でも強磁性を示すようになり、漏えい磁束密度が増加する可能性があること。
- (2) 照射誘起偏析領域に照射欠陥として空孔が導入されることにより、さらに漏えい磁束密度が増加する可能性があること。

本研究で得られたこれらの知見は、漏えい磁束密度測定による IASCC 感受性の予兆診断の可能性をより高めるものと考えられる。

謝辞

本報告の内容は、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)日本原子力研究開発機構が実施した平成 19 年度「超臨界圧水冷却高速炉の炉内構造材劣化予兆診断技術の開発」の成果です。

参考文献

- [1] S. Takaya, Y. Nagae, T. Yoshiake, K. Aoto, Y. Nemoro, J. Nakano, F. Ueno, T. Tsukada, Short paper proceedings of the 13th International Symposium on Applied Electromagnetics and Mechanics, pp.187-188, 2007.
- [2] 小口多美夫、宮澤弘、まてりあ、Vol.37, p.560, 1998.
- [3]http://www.advancesoft.jp/product/advance_phase/index.html
- [4] S. Takaya, T. Suzuki, Y. Matsumoto, K. Demachi, M. Uesaka, J. Nucl. Mater., Vol.327, No.1, p.19-26, 2004.
- [5] S. Takaya, T. Suzuki, T. Uchimoto, K. Miya, J. Appl. Phys., Vol.91, No.10, pp.7011-7013, 2002.
- [6] R. M. Bozorth, Ferromagnetism, IEEE Press, New York, p.149, 1993.