

IASCC 発生に対する溶存水素の影響 Effects of Dissolved Hydrogen on IASCC Initiation

西岡 弘雅 (Hiromasa Nishioka) 福谷 耕司 (Koji Fukuya)
藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii) 鳥丸 忠彦 (Tadahiko Torimaru)



株式会社 **原子力安全システム研究所**

Institute of Nuclear Safety System, Incorporated

〒919-1205 福井県三方郡美浜町佐田64号

Tel 0770-37-9100 Fax 0770-37-2008

URL <http://www.inss.co.jp>

IASCC 発生に対する溶存水素の影響

Effects of Dissolved Hydrogen on IASCC Initiation

西岡 弘雅 (Hiromasa Nishioka)*¹ 福谷 耕司 (Koji Fukuya)*¹
 藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)*¹ 鳥丸 忠彦 (Tadahiko Torimaru)*²

要約 PWR で 38dpa 照射された冷間加工 SUS316 ステンレス鋼を用いて PWR 1 次冷却材模擬水中で単軸定荷重引張試験を実施し、溶存水素の IASCC 発生応力への影響を調べた結果、溶存水素濃度の増加に伴い IASCC 発生応力は低下し、破断時間は短くなる傾向であった。溶存水素濃度 0.5ppm ~ 4ppm の範囲では溶存水素濃度の増加は IASCC 発生の加速要因となることが示唆された。

キーワード ステンレス鋼, 中性子照射, 照射誘起応力腐食割れ, 定荷重試験, 溶存水素

Abstract Effects of dissolved hydrogen (DH) on IASCC initiation of SUS316 stainless steel irradiated up to 38dpa in a PWR were investigated in simulated PWR primary water. IASCC failure stress decreased and the failure time was shorter with increasing DH. DH was confirmed to act as an IASCC accelerator in the range of 0.5 to 4ppm DH.

Keywords stainless steel, neutron irradiation, IASCC (irradiation assisted stress corrosion cracking), constant load test, dissolved hydrogen

1. はじめに

照射誘起応力腐食割れ (irradiation assisted stress corrosion cracking : IASCC) は、高温水中で中性子照射されたステンレス鋼に発生する粒界割れである。この現象は軽水型発電用原子炉の炉内構造物の高経年化に対する重要な技術的問題として認識されている。加圧水型原子炉 (pressurized water reactor : PWR) では IASCC 損傷事例としてバッフルフォーマボルトの損傷が知られており、IASCC 発生条件、発生機構や発生寿命について研究が行われている⁽¹⁾⁽²⁾。バッフルフォーマボルトは 60 年想定寿命で約 60dpa の高い中性子照射を受けると想定されており、高い信頼性をもって実機の保全対策を確立するためには高照射領域での IASCC 挙動を十分把握することが重要である⁽³⁾。

筆者らは PWR 実機で照射された炉内計装用シングルチューブを試験材に用いた研究を進めており、これまでに溶存水素濃度 2.8ppm (30ccH₂/kg・H₂O)

の標準的な PWR 1 次冷却材模擬水中での単軸定荷重引張試験 (uniaxial constant load test : UCL 試験) を行い 30-70dpa の照射領域の IASCC 発生応力が 500MPa 程度であることを確認している⁽⁴⁾。PWR 1 次冷却材水中の溶存水素濃度については、被曝低減、構造材料や燃料への影響を踏まえた最適化が検討されているので⁽⁵⁾、構造材料の重要な劣化事象である IASCC 発生についても溶存水素の影響を検討しておく必要がある。本報告では、38dpa 照射材について溶存水素濃度 0.5 ~ 4ppm の範囲で調べた結果を、すでに報告した標準的な溶存水素濃度 2.8ppm の結果と合わせて検討した。

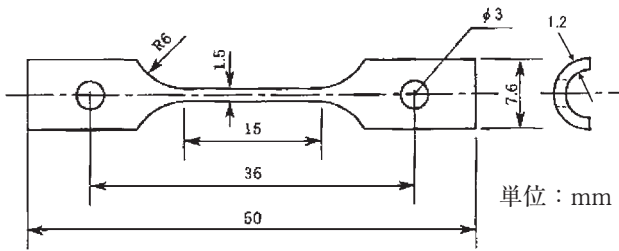
2. 実験方法

2.1 試験材と照射条件

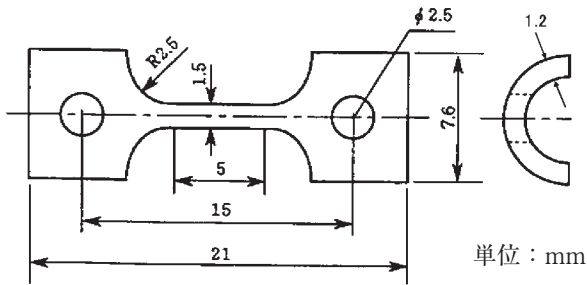
試験材は、PWR で炉内計装用シングルチューブとして使用された冷間加工ステンレス鋼 (SUS316)

*1 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

*2 日本核燃料開発株式会社



(a) 標準試験片 (溶存水素濃度 2.8ppm)



(b) 短尺試験片 (溶存水素濃度 0.5, 4ppm)

図1 試験片の形状

である。化学成分は重量%で 0.04C, 0.62Si, 1.63Mn, 0.022P, 0.006S, 12.61Ni, 16.94Cr, 2.22Mo である。このチューブは 1038-1177℃で溶体化処理され、最終冷間引き抜きにより肉厚を 15% 薄くする加工を施している。内径と外径はそれぞれ 5.1mm と 7.6mm である。照射中、チューブの外表面は 1 次冷却材、内表面は二酸化炭素ガスに曝されている。試験片の照射量は、中性子スペクトルと ASTM E693-84⁽⁶⁾ の鉄の dpa 断面積を用いて 38dpa と算出され、損傷速度は 7.8×10^{-8} dpa/s であった。照射中の材料

温度は約 300℃であった。

2.2 UCL 試験

上記試験材を引張試験片に加工し、温度 320℃の PWR 1 次冷却材模擬水中で試験を実施した。PWR 1 次冷却材模擬水の水質は、B 500ppm, Li 2ppm, 溶存酸素濃度 1ppb 以下であり、溶存水素濃度は 0.5ppm ($5\text{ccH}_2/\text{kg}\cdot\text{H}_2\text{O}$), 2.8ppm ($30\text{ccH}_2/\text{kg}\cdot\text{H}_2\text{O}$), 4ppm ($45\text{ccH}_2/\text{kg}\cdot\text{H}_2\text{O}$) である。試験片の形状を図 1 に示す。全長 50mm の試験片を標準試験片、全長 21mm の試験片を短尺試験片と称する。これまでの溶存水素濃度 2.8ppm の試験では標準試験片で実施していたが、照射材を有効に活用する観点で溶存水素濃度 0.5ppm と 4ppm では短尺試験片を使用した。試験時間は 1000 時間を目標とした。1000 時間で破断しなかった試験片については、試験後表面観察を行い、き裂等の傷がないことを確認し、同じ水質条件でより高い応力の試験に供した。負荷応力は 376MPa ~ 752MPa であり、引張試験で得られた耐力の平均値 940MPa を用いると照射ステンレス鋼の耐力 (σ_y) に対する割合は 0.4 ~ 0.8 である。破断後の破面を走査型電子顕微鏡 (scanning electron microscope : SEM) により観察した。

3. 実験結果

試験結果を表 1 に示す。溶存水素濃度が 0.5ppm

表1 PWR 一次系模擬水中 (320℃) での定荷重試験結果

溶存水素濃度 (ppm)	負荷応力 (MPa)*1	破断有無	破断時間 (時間)*2	粒界破面率 (%)	備考
0.5	564(0.6)	未破断	(1050)	-	溶存水素 0.5ppm, 負荷応力 564MPa の試験片を再使用
	564(0.6)	未破断	(1050)	-	
	658(0.7)	未破断	(1030)	-	
	658(0.7)	未破断	(1030)	-	
	752(0.8)	破断	368	39	
	752(0.8)	破断	200	40	
2.8	470(0.5)	未破断	(1074)	-	溶存水素 2.8ppm, 負荷応力 470MPa の試験片を再使用
	564(0.6)	未破断	1708	-	
	564(0.6)	破断	26	49	
4.0	376(0.4)	未破断	(1031)	-	
	470(0.5)	破断	46	65	

* 1 ()内は耐力比 * 2 ()内は試験時間

の環境では、それぞれ 564MPa ($0.6\sigma_y$) および 658MPa ($0.7\sigma_y$) の応力を 1000 時間以上負荷したが、いずれの試験片も破断しなかった。破断しなかった 564MPa 負荷応力の試験片を再使用し 752MPa ($0.8\sigma_y$) の応力を負荷すると、それぞれ 200 時間と 368 時間で破断した。溶存水素濃度が 2.8ppm の環境では 470MPa ($0.5\sigma_y$) の応力を 1000 時間以

上負荷したが破断しなかった。564MPa ($0.6\sigma_y$) の応力を負荷すると、2 試験片のうち、1 方は 26 時間で破断したが、他方の試験片は 1708 時間でも破断しなかった。溶存水素が 4ppm の環境では 376MPa ($0.4\sigma_y$) の応力で 1000 時間以上負荷したが破断せず、470MPa ($0.5\sigma_y$) の応力では 46 時間で破断した。

破断した場合の荷重と変位の推移の例を図 2 に示す。破断した試験片の破断時間は 26 時間から 368 時間でばらつきがあったが、いずれの場合も図 2 に示すように変位は試験開始から破断直前までほぼ一定で推移し、破断直前に増加し破断した。

破断面の SEM 像の例を図 3 に示す。倍率 50 倍の破断面は粒界破面と最終破断時に発生した延性破面を示した。粒界破面は、試験片破面の凸側である。

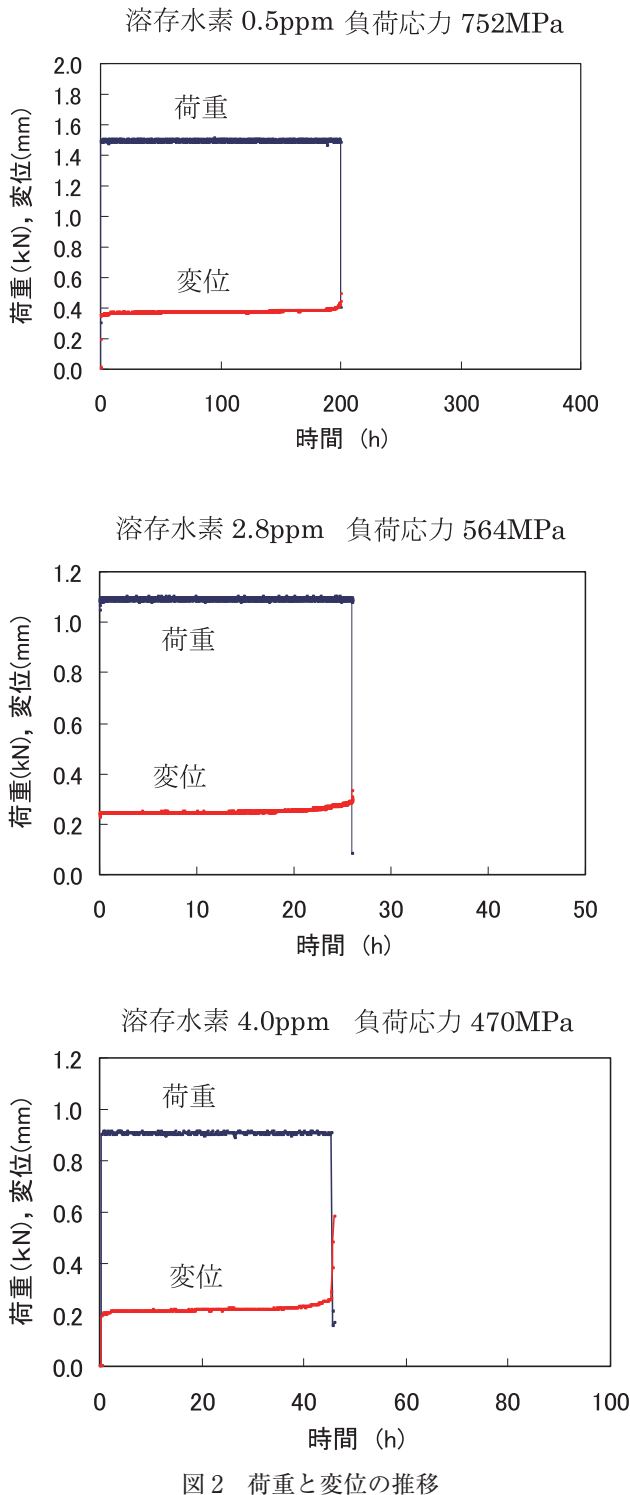


図 2 荷重と変位の推移

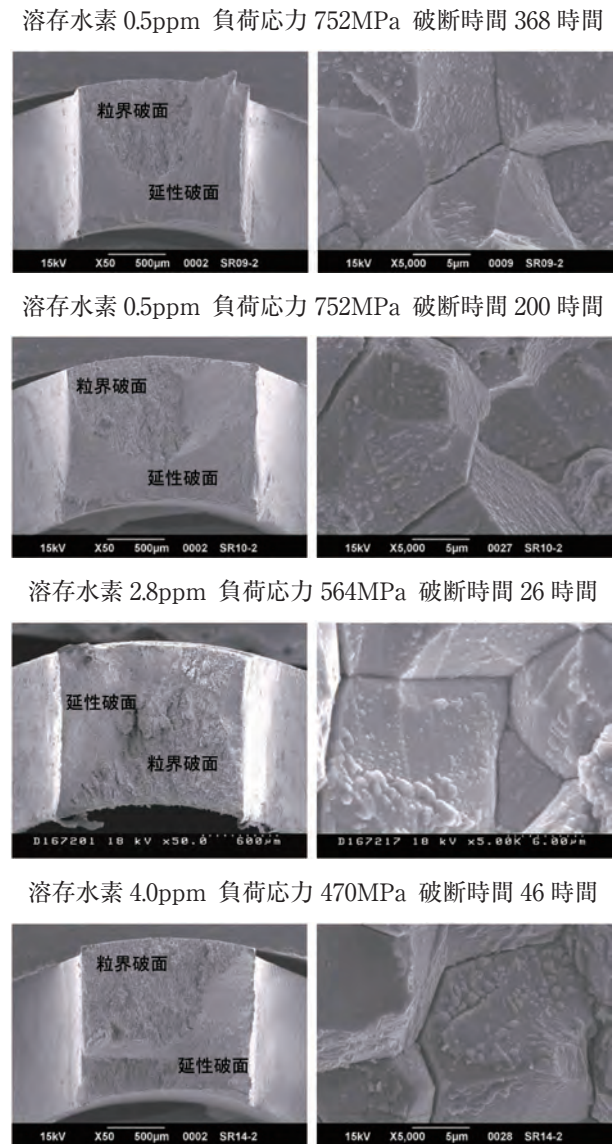


図 3 破断面の SEM 像

内計装用シンプルチューブの外面側に多く観察される傾向があった。粒界破面率は表1に示すように39%から65%の範囲であった。5000倍の高倍率のSEM像を見ると、典型的な粒界破面であり、表面には腐食生成物が付着していた。

4. 考察

(1) 破断閾応力の溶存水素濃度依存性

図4に溶存水素濃度を横軸とした場合のIASCCによる破断マップを示した。赤で塗りつぶした丸印が破断、白抜きの赤丸印が未破断を表す。この間に破断閾応力があると考えられ、その溶存水素濃度依存性を点線で示した。溶存水素濃度が増加するに従い、破断閾応力は低下しており、溶存水素濃度0.5ppmから4ppmの範囲では、溶存水素濃度増加はIASCC発生の加速因子であることを示している。35dpa照射材の低歪速度引張試験(SSRT)で溶存水素濃度の増加に伴い粒界破面率が増加し、IASCC感受性が増加する結果⁽⁷⁾が報告されており、本研究結果と整合している。

図4には、温度320℃のPWR 1次冷却材模擬水中で実施した35dpa照射材のSSRT(歪速度 $6.7 \times 10^{-8}/s$)での最大応力も記載したが、短尺試験片での最大応力の溶存水素濃度依存性は溶存水素濃度が0.5~2.8ppmの範囲で定荷重試験により得られたIASCC発生応力の推移(点線)と比較的良好一致を示している。標準試験片は溶存水素濃度が0~2.8ppmの範囲で最大応力の減少傾向は同程度であるが、応力値は大きく、4ppmではUCL試験結果と同じ応力レベルである。試験片寸法がIASCCへ

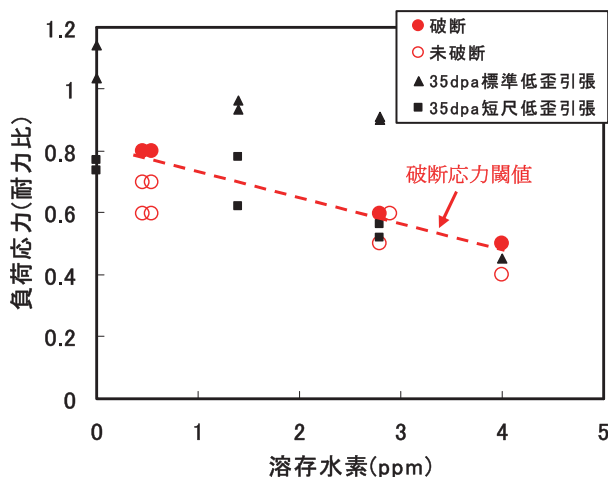


図4 破断マップ (溶存水素濃度依存性)

与える影響として表面積の増大がIASCC発生確率を増加させることが考えられるが、試験結果は標準試験片の最大応力が短尺試験片より大きく、逆の結果となっている。UCL試験から得られるIASCC発生応力がSSRTで得られる最大応力と同程度であるなら、IASCC発生応力をUCL試験ではなくSSRTで評価可能となるが、現時点ではデータ数が限られることや試験片寸法による違いもあるので、さらなるデータ蓄積・検討が必要である。

(2) 破断時間への溶存水素濃度の影響

溶存水素濃度が0.5ppmの場合の破断時間は200時間と368時間で、溶存水素濃度が2.8ppmと4ppmではそれぞれ26時間と46時間であった。試験の負荷応力が溶存水素濃度により異なるので、溶存水素濃度と破断時間との関係は単純ではないが、30dpa以上の照射材の溶存水素2.8ppm中で負荷応力が470MPaから752MPaの範囲での破断時間は約100時間以内であり⁽⁴⁾。溶存水素濃度0.5ppmでの破断時間が200時間以上であったことは、溶存水素濃度低下により破断時間が増加すると解釈でき、溶存水素濃度低下でIASCC感受性が低下することを示唆している。

(3) 粒界破面率への溶存水素濃度の影響

負荷応力が752MPaで破断した溶存水素濃度0.5ppmの試験片の粒界破面率は、それぞれ39%と40%であったが、負荷応力が564MPaと470MPaで破断した試験片の粒界破面率はそれぞれ49%と65%であった。図5に示すように負荷応力が大きいと粒界破面率が低い傾向がみられた。定荷重試験

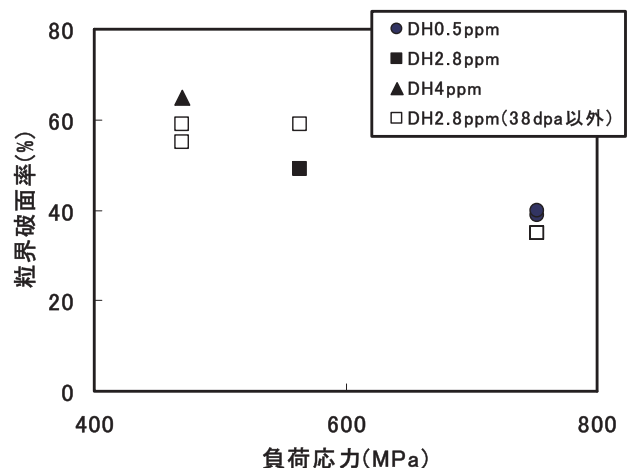


図5 負荷応力と粒界破面率との関係

では IASCC の進展に伴い粒界破面が形成され、負荷を受ける試験片断面積が減少することで真応力が増加し、材料の限界に達すると延性破壊により試験片が破断する。30dpa 以上の照射材は材料強度が飽和しており、破断時の真応力も一定と考えられるので負荷応力が大きいと粒界破面率が低くなることが報告されている⁽⁴⁾。図 2, 3 に示す通り、荷重、変位の推移や破面形態は溶存水素濃度による違いは見られないので、本研究結果も同様の傾向を示したと考えられる。

(4) 文献データによる IASCC 破断マップとの比較

IASCC 発生応力は照射量を指標として評価する方法が提案されており、30dpa 以上照射されたステンレス鋼の IASCC 発生応力は耐力の 1/2 程度であることが報告されている⁽⁸⁾。図 6 に照射量と負荷応力で整理した破断マップを文献データとともに示す。溶存水素濃度 0.5ppm では 38dpa 照射材の IASCC 発生応力は 752MPa 程度で耐力の 80% 程度と推定されるので、実機の溶存水素濃度を現行の 2.8ppm から 0.5ppm に低下させれば IASCC 発生抑制が期待できる。本研究では照射量が 38dpa の材料で溶存水素濃度の影響を確認したので、照射量依存に関する厳密な議論はできないが、図 6 の IASCC 発生応力の照射量依存性から推察すると、定量的な効果は照射量により異なる可能性があるが、幅広い照射量領域で溶存水素濃度低下による IASCC 発生抑制効果を期待できると思われる。

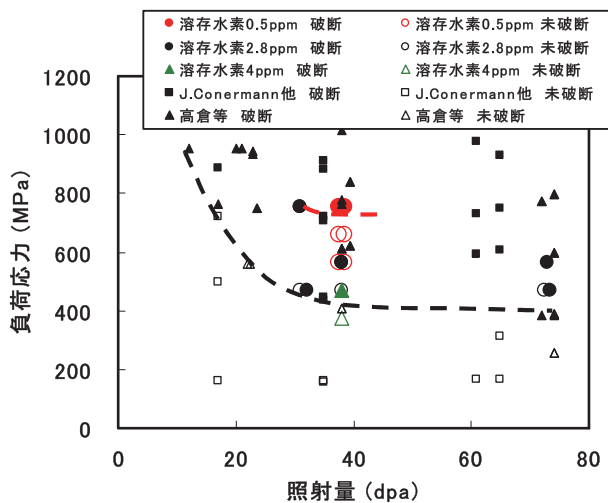


図 6 破断マップ (照射量依存性)

(5) 溶存水素の IASCC 発生メカニズムへの影響

溶存水素濃度の PWSCC への影響について、寺

地は未照射ステンレス鋼では溶存水素濃度増加に伴い酸化皮膜厚さがわずかではあるが増加することを報告し、腐食増加要因を Fe 拡散速度の増加と考察している⁽⁹⁾。PWR 1 次冷却材環境下での IASCC 発生メカニズムについては、粒界偏析による粒界強度の低下や照射硬化による変形の局所化が要因として議論されている⁽⁴⁾。溶存水素濃度が粒界強度に与える影響としては、上記腐食反応増加に伴う酸化の進行が考えられる。また、腐食の増加による発生水素原子の粒界侵入量の増加による粒界強度低下も考えられる。変形の局所化については材料への侵入水素による転位の弾性応力場の緩和で転位ループと転位の相互作用が容易となり転位チャンネルの形成が低い応力で発生する可能性が考えられる。溶存水素濃度の影響のメカニズムについては酸化、水素と変形局所化の関係についてさらに詳細な研究が必要である。

5. 結論

PWR で 38dpa 照射された冷間加工 SUS316 ステンレス鋼を用いて PWR 1 次冷却材模擬水中で単軸定荷重引張試験を実施し、溶存水素の IASCC 発生応力への影響を調べた結果、溶存水素濃度の増加に伴い IASCC 発生応力が低下し、破断時間は短くなる傾向であった。溶存水素濃度 0.5ppm ~ 4ppm の範囲では溶存水素は IASCC 発生加速要因となることが示唆された。

文献

- (1) P. Scott, J. Nucl. Mater., 211, P.101 (1994).
- (2) G.S. Was and P.L. Andresen, Corrosion, 63, P.19 (2007).
- (3) 亀山雅司, 千種直樹, 長谷川宏司他, 溶接学会論文集, 23, P.82 (2005).
- (4) H. Nishioka, K. Fukuya, K. Fujii, T. Torimaru, J.Nucl.Sci.Technol., 45, P.1072 (2008).
- (5) D. Akutagawa, N. Nagata, K. Dozaki, H. Takiguchi, K. Norring, A. Jenssen, A. Molander, Proceedings of the 14th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, ANS, p. 306 (2009).
- (6) Standard Practice for Characterizing

Neutron Exposures in Ferritic Steels in Terms of Displacements Per Atoms (DPA), ASTM E693-84, ASTM, (1984).

- (7) K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, T. Torimaru, J.Nucl.Sci.Technol., 45, P.452 (2008).
- (8) K. Takakura, K. Kiyomoto, K. Fujimoto, K. Sakima, N. Kubo, Proceedings of the 14th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, ANS, p. 1207 (2009).
- (9) T. Terachi, T. Yamada, T. Miyamoto, K. Arioka, J.Nucl.Sci.Technol., 45, P.975 (2008).