

J A E R I - M
92-165

高速炉照射したステンレス鋼の照射腐食割れ挙動（1）

1992年11月

塚田 隆・芝 清之・中島 甫・薄井 洋
近江 正男・後藤 一郎・加藤 佳明・中川 哲也
川又 一夫・田山 義伸・園部 清美・伊藤 忠春
三田 尚亮・柴原 格^{*}・佐藤 義則^{*}・長谷川正泰^{*}

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1992

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

高速炉照射したステンレス鋼の照射腐食割れ挙動(1)

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

塚田 隆・芝 清之・中島 藩・薄井 洸⁺
近江 正男⁺・後藤 一郎⁺・加藤 佳明⁺・中川 哲也⁺
川又 一夫⁺・田山 義伸⁺・園部 清美⁺⁺・伊藤 忠春⁺⁺
三田 尚亮⁺⁺・柴原 格^{*}・佐藤 義則^{*}・長谷川正泰^{*}

(1992年10月7日受理)

平成3年度に原研及び動燃による共同研究として開始した「中性子照射材料の破壊特性評価試験」のうち、照射済みラッパー管を供試材とする水環境下の応力腐食割れ性評価試験に関しては、平成4年8月までに原研・大洗研ホットラボにおいて水中応力腐食割れ試験を、また同・東海研ホットラボにおいて電気化学的腐食試験を実施した。本報は、これらのうち応力腐食割れ試験に関する報告を行うものである。

原研では、平成元年度より炉心構造材料の照射誘起応力腐食割れ（以下、照射腐食割れ）の研究を行っている。照射腐食割れは、純度の管理された高温水中では熱鋭敏化された場合を除き応力腐食割れ感受性を示さないオーステナイト系ステンレス鋼等の材料が、原子炉中性子照射またはイオン照射により熱鋭敏化過程を経ることなく応力腐食割れ感受性を持つようになる現象である。照射腐食割れは、現在のところ主に軽水炉の炉心構造材料の耐久性・信頼性評価に関連する研究課題として重視されているが、水冷却型核融合炉や高転換軽水炉等の将来炉の炉心構造物にも共通する材料劣化現象である。一方、動燃事業団では、高速炉燃料集合体の照射後水中裸貯蔵に関連して、水環境下での照射後ステンレス鋼材料の応力腐食割れ感受性を評価することが課題となっている。

このような背景のもとに開始した当共同研究では、高速実験炉「常陽」で使用された燃料集合体から採取したラッパー管材料（照射量 $8 \times 10^{22} n/cm^2$ ($E > 0.1 MeV$)、照射温度約425°C）を試料とし、溶存酸素 32ppmの純水中で60°C、200°C、300°Cにおいて低歪速度引張試験を実施した。その結果、60°Cでは完全な延性破断となることを確認したが、300°Cの水中では破断面の一部に粒界破面が観察された。これらの結果から高速炉照射したステンレス鋼は、常温においては応力腐食割れ感受性を示さないが高温水中においては割れ感受性を持つようになると考えられる。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 大洗研究所材料試験炉部

++ ホット試験室

* 動力炉・核燃料開発事業団

Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking of Stainless Steel
Irradiated in FBR (1)

Takashi TSUKADA, Kiyoyuki SHIBA, Hajime NAKAJIMA
Takeshi USUI⁺, Masao OHMI⁺, Ichiro GOTO⁺, Yoshiaki KATO⁺
Tetsuya NAKAGAWA⁺, Kazuo KAWAMATA⁺, Yoshinobu TAYAMA⁺
Kiyomi SONOBE⁺⁺, Tadaharu ITO⁺⁺, Naoki MITA⁺⁺
Itaru SHIBAHARA^{*}, Yoshinori SATO^{*} and Masayoshi HASEGAWA^{*}

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 7, 1992)

Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) and Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC) initiated a cooperative research on the evaluation of fracture behaviors of neutron irradiated material in 1991. The research program includes a study of stress corrosion cracking (SCC) of the wrapper tube material of fuel assembly irradiated in the experimental fast reactor "JOYO". By August 1992 SCC tests by the slow strain rate technique (SSRT) were carried out on the irradiated material.

In this cooperative program the wrapper tube material of type 316 stainless steel irradiated in "JOYO" up to a neutron fluence of 8×10^{22} n/cm² ($E > 0.1$ MeV) at about 425°C was tested by SSRT at 60°C, 200°C and 300°C in the water environment at the hot laboratory of JAERI. The tests showed that the irradiated wrapper tube material fractured by fully ductile mode at 60°C in high purity water with dissolved oxygen of 32 ppm

+ Department of JMTR Project, Oarai Research Establishment

++ Department of Hot Laboratories

* Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC)

but it was fractured by intergranular cracking at 300°C in the same environment. It is concluded that the stainless steel irradiated in FBR has no susceptibility to SCC at 60°C but susceptibility appears at the higher temperatures in the water.

Keywords: IASCC, Stainless Steel, FBR, Wrapper Tube, Neutron Irradiation, SSRT Test, High Purity Water, Intergranular Cracking, SCC Susceptibility

目 次

1. 緒 言	1
2. 供試材料	2
3. 試験方法	3
3.1 低歪速度引張試験法の概要	3
3.2 試験片	3
3.3 試験装置	4
3.4 試験条件	4
3.5 試料観察	4
4. 結 果	5
4.1 水中300°C試験	5
4.2 水中60°C試験	6
4.3 水中200°C試験	6
4.4 大気中300°C試験	6
5. 考 察	7
5.1 応力腐食割れ感受性	7
5.2 打ち抜き加工の影響	7
5.3 今後の課題	8
6. 結 言	8
謝 辞	9
参考文献	10

Contents

1. Introduction	1
2. Test Material	2
3. Experimental	3
3.1 Outline of Slow Strain Rate Technique	3
3.2 Specimen	3
3.3 Test Facility	4
3.4 Test Condition	4
3.5 Microscopy	4
4. Results	5
4.1 Test in Water at 300°C	5
4.2 Test in Water at 60°C	6
4.3 Test in Water at 200°C	6
4.4 Test in Air at 300°C	6
5. Discussions	7
5.1 SCC Susceptibility	7
5.2 Effect of Stamp Out Process	7
5.3 Future Works	8
6. Summary	8
Acknowledgments	9
References	10

1. 緒 言

日本原子力研究所（以下、原研）及び動力炉核燃料開発事業団（以下、動燃）による共同研究「中性子照射材の破壊特性評価試験」（平成3年度～平成5年度）では、高速実験炉「常陽」で照射した炉心燃料集合体のラッパー管から採取した材料を用いて、破壊靱性特性及び水環境下の応力腐食割れ特性を評価することが計画された。水環境下の応力腐食割れ性評価試験に関しては、動燃から原研へ移送した試験材料について原研・大洗研ホットラボにおいて応力腐食割れ試験を、また同・東海研ホットラボにおいて電気化学的腐食試験を実施した。本報告書は、平成4年8月までに実施した応力腐食割れ性評価に関する試験の報告を行うものである。ここで、応力腐食割れとは「材料が引張応力下で特定の化学環境にさらされたときに脆的に破壊する現象」をいう。

原研では、平成元年度より照射誘起応力腐食割れ（以下、照射腐食割れという）の研究を行っている。照射腐食割れは、軽水炉一次冷却水のような純度の管理された高温水中では熱銳敏化された場合を除き応力腐食割れ感受性を示さないオーステナイト系ステンレス鋼等の材料が、原子炉中性子照射またはイオン照射により熱銳敏化過程を経ることなく応力腐食割れ感受性を持つようになる現象である[1,2]。この現象については、いまだ支配因子及び発生機構は明かではなく各国で研究が進められている。

照射腐食割れは、主に軽水炉の炉心構造材料の耐久性・信頼性評価に関連する研究課題として重視されているが[3,4]、水冷却型核融合炉や高転換軽水炉等の将来炉の炉心構造物にも共通する材料劣化現象である[5,6]。一方、動燃においては、高速炉燃料集合体の照射後水中裸貯蔵に関連して、水環境下での照射後ステンレス鋼材料の応力腐食割れ感受性を評価することが研究課題となっている。

高速炉照射材の試験を行うことは、この現象の支配因子及びメカニズムの研究において以下の観点から意義を有するものである。照射腐食割れについては今まで主に軽水炉との関連において試験及び検討が行われて来た。しかし、それらには相反する結論が多く、関わる因子の多様さと現象の複雑さを示している。従って、照射腐食割れ研究では実際の原子炉照射環境下またはそれを近似した試験条件下において生じる現象を調べると共に、個々の因子の影響を分離したより基礎的な試験を行い、それらの結果を考え合わせて検討を行う必要がある。影響因子のひとつには中性子スペクトルがあると考えられる。軽水炉においてステンレス鋼試料を照射する場合には、高速中性子によるはじき出し損傷と共に、Niと熱中性子との2段の核変換反応によりに多量にHeが生成する。しかし、高速炉照射では熱中性子束密度が小さいためHe生成量は少ない。このため、軽水炉照射では高速中性子（原子のはじき出し損傷）と熱中性子（Heの生成）の効果が重畠しているが、高速炉照射ではこれらの効果を分離して評価できる可能性がある。

以上の背景のもとに開始した共同研究では、「常陽」で使用された燃料集合体から採取したラッパー管材料（照射量約40dpa、照射温度約400°C）を供試材料とし、溶存酸素飽和（32p pm）の純水中で60°C、200°C、300°Cにおいて応力腐食割れ試験のひとつである低歪速度引張（Slow Strain Rate Tensile, 以下SSRT）試験を実施し応力腐食割れ感受性を評価した。

本試験の実施に関与した者の氏名及び担当作業は下記の通りである。

日本原子力研究所：

材料応用工学研究室	塙田 隆	(試験計画立案、実施及び解析評価)
	芝 清之	(試験計画立案、実施及び解析評価)
	中島 甫	(試験計画立案及び研究統括)
大洗研究所ホットラボ課	薄井 洋	(計画調整)
	近江 正男	(照射腐食割れ試験調整)
	後藤 一郎	(照射腐食割れ試験実施)
	加藤 佳明	()
	中川 哲也	(試料観察調整)
	川又 一夫	(光学顕微鏡観察)
	田山 義伸	(走査電子顕微鏡観察)
東海研究所ホットラボ課	園部 清美	(計画調整)
	伊藤 忠春	(試験片加工調整)
	三田 尚亮	(照射腐食割れ試験片作成)

動力炉核燃料開発事業団：

照射材料試験室	柴原 格	(共同研究計画調整)
	佐藤 義則	(試料準備及び情報整理)
	長谷川 正泰	(試料準備及び移送)

2. 供試材料

本評価試験に供した材料は、「常陽」Mark-II炉心において17サイクル(421 Full-Power-Days)使用されたドライバ燃料集合体(PFD304)ラッパー管の炉心位置部から切り出し採取されたものである。当ラッパー管は、316型オーステナイト系ステンレス鋼でありその化学組成をTable 1に示す。組成的な特徴としては、通常の316型ステンレス鋼と比較してTi,Nb及びTaが添加されており、耐スエーリング性、クリープ強度等の改善が図られている。素材ステンレス鋼は製造後1090°Cで25分の溶体化熱処理が施され、さらに20%の冷間加工が加えられて板厚1.9mmの六角管とされている。Table 2には、供試材料のID記号、切り出し位置、照射量、照射温度等を示す。動燃においてラッパー管の各位置から150×40×1.9mmの板状素材が切り出された。それらの照射済み試料は平成3年12月に原研・大洗研ホットラボへ移送された。試料の内、照射腐食割れ試験片を製作するためのものは、平成4年2月に大洗研ホットラボから東海研ホットラボへ移送され、作製した照射腐食割れ試験片は平成4年4月に大洗研ホットラボへ再移送した。また、照射材との比較に用いるため照射材と同一製造ロットの非照射材についても動燃から提供を受け切断・試験片作製を行った。

本試験の実施に関与した者の氏名及び担当作業は下記の通りである。

日本原子力研究所：

材料応用工学研究室	塚田 隆	(試験計画立案、実施及び解析評価)
	芝 清之	(試験計画立案、実施及び解析評価)
	中島 甫	(試験計画立案及び研究統括)
大洗研究所ホットラボ課	薄井 洋	(計画調整)
	近江 正男	(照射腐食割れ試験調整)
	後藤 一郎	(照射腐食割れ試験実施)
	加藤 佳明	()
	中川 哲也	(試料観察調整)
	川又 一夫	(光学顕微鏡観察)
	田山 義伸	(走査電子顕微鏡観察)
東海研究所ホットラボ課	園部 清美	(計画調整)
	伊藤 忠春	(試験片加工調整)
	三田 尚亮	(照射腐食割れ試験片作成)

動力炉核燃料開発事業団：

照射材料試験室	柴原 格	(共同研究計画調整)
	佐藤 義則	(試料準備及び情報整理)
	長谷川 正泰	(試料準備及び移送)

2. 供試材料

本評価試験に供した材料は、「常陽」Mark-II炉心において17サイクル(421 Full-Power-Days)使用されたドライバ燃料集合体(PFD304)ラッパー管の炉心位置部から切り出し採取されたものである。当ラッパー管は、316型オーステナイト系ステンレス鋼でありその化学組成をTable 1に示す。組成的な特徴としては、通常の316型ステンレス鋼と比較してTi,Nb及びTaが添加されており、耐スエーリング性、クリープ強度等の改善が図られている。素材ステンレス鋼は製造後1090°Cで25分の溶体化熱処理が施され、さらに20%の冷間加工が加えられて板厚1.9mmの六角管とされている。Table 2には、供試材料のID記号、切り出し位置、照射量、照射温度等を示す。動燃においてラッパー管の各位置から150×40×1.9mmの板状素材が切り出された。それらの照射済み試料は平成3年12月に原研・大洗研ホットラボへ移送された。試料の内、照射腐食割れ試験片を製作するためのものは、平成4年2月に大洗研ホットラボから東海研ホットラボへ移送され、作製した照射腐食割れ試験片は平成4年4月に大洗研ホットラボへ再移送した。また、照射材との比較に用いるため照射材と同一製造ロットの非照射材についても動燃から提供を受け切断・試験片作製を行った。

3. 試験方法

3.1 低歪速度引張試験法の概要

照射済みラッパー管材の水中応力腐食割れ性を評価するため、原研・大洗研ホットラボに平成元年度に設置した照射腐食割れ試験装置を用いて、低歪速度引張（SSRT）試験を実施した。SSRT試験は、応力腐食割れ感受性を迅速に評価するために開発された試験法であり、腐食環境において材料試験片を $10^{-7}\text{ s}^{-1} \sim 10^{-5}\text{ s}^{-1}$ 程度の遅くかつ一定の歪速度で引張り破断させるものである[7]。原理としては、引張変形により材料内にすべりを発生させ表面皮膜を強制的に破壊し、すべりステップとして環境中に露出する合金新生面の溶解すなわち局部腐食を生じさせ割れの発生起点とする。この方法では、割れ先端のすべりステップの生成速度をある程度規制できると考えられ、応力腐食割れのメカニズムに適合する合理的な試験方法とされている[8]。この試験法の適用について注意すべき点は、表面皮膜の強制的破壊を起こさせるため応力腐食割れの発生過程または潜伏期間を無視しており、実条件に比べて力学的に苛酷な条件の試験となることである[9]。しかし、応力腐食割れ性を迅速かつ定量的に評価できるため原子炉構造材料の応力腐食割れ試験へも広く適用されている。割れ感受性の評価は、試験により得られる応力-歪曲線や破断面の状態を応力腐食割れを発生しない非腐食環境において得られるそれらと比較することにより行う。感受性の指標としては一般に、両環境での破断伸び、最大応力値、断面収縮率等の比や応力腐食割れ破面率等が用いられるが、試料が照射材の場合には伸びの著しい減少や強度の上昇等が生じていることに留意する必要がある[10]。

3.2 試験片

SSRT試験に用いる引張試験片は、照射済みラッパー管板材（ $150 \times 40 \times 1.9\text{ mm}$ ）2枚から東海研ホットラボにおいて打ち抜き加工により8本製作した。その形状をFig. 1に示す。この試験片の素材IDはTable 1に示したE2WH3であり、炉心において温度 $425^\circ\text{C} \pm 15^\circ\text{C}$ で、 $8 \times 10^{22}\text{ n/cm}^2(\text{E}>0.1\text{ MeV})$ の中性子量まで照射された。これは、はじき出し損傷量に換算すると約40dpaである。温度幅は炉内での温度勾配によるものであり、1本の試験片の上でも最大約 15°C 程度の勾配がある。試験片はこの他に、照射材と同一製造ロットの非照射材からも4枚打ち抜き製作した。

打ち抜きによる試験片製作の欠点は、試験片周辺部に加工による歪が入ることを避けられないことである。また、打ち抜きダイスの状態によってはバリや小さな切り欠き等の欠陥ができることがある。しかし、現在のところホットセル内で他の加工方法で試験片を作製できないためこの方法を採用した。製作した試験片の外観検査では一部に上記のような欠陥の見られるものがあったが、ホットセル内での整形が困難であるため打ち抜きのまま試験に供した。また、試験片の表面の一部に照射中または加工中についたとみられる変色または浅い傷などが見られた。ただし、試験前にはアセトン中で超音波洗浄を行い、表面に付着した油脂等の汚れを除去した。

3.3 試験装置

原研・大洗研ホットラボの鉛ホットセル内に設置した照射腐食割れ試験装置では最高300°C、10MPaの高温高圧水中においてSSRT試験を行うことができる。装置の詳細については別に報告したが[11, 12]、本装置はホットセル内に設置したSSRT試験装置本体及び本体オートクレーブへ純度を管理した水を供給するループ形式の高温高圧水精製循環装置より構成されている。Fig. 2に装置のフロー図を、Table 3には装置の主要な試験性能を示した。高温高圧水中においてSSRT試験を実施するには多くの解決すべき課題があるが[13, 14]、照射材の試験を行うにはさらに遠隔操作及び安全管理上の課題が加わる[15]。本装置は、小型化、遠隔操作性、保守性、耐放射線性等に留意して製作した。既に原子炉照射材の試験を実施し、無人にて長時間安定した試験条件で運転でき、精度の高い試験データを得られることを確認している[10, 12]。

本評価試験のため、試験片を装着してプルロッドに結合するための治具を新たに製作した。その試験片治具はFig. 3に示すように、試験片にアダプター（SUS316製）を取り付けた後に酸化皮膜処理を施したジルカロイリングを2重にはめ込み、試験片と治具本体及び試験機との電気的絶縁をとった。Fig. 4は、試験片を取り付けオートクレーブ上蓋を開けた状態のホットセル内試験装置本体の写真である。試験片への荷重及びその変位は、オートクレーブ外部に取り付けたロードセル及び伸びセンサーにより測定している。このため、測定荷重には試験片への荷重に加え圧力シール部に生じる摩擦力が含まれ、また変位には試験片の伸びに加え治具の変形等による伸びが含まれている。これらの補正法については後述する。

3.4 試験条件

照射材については、平成4年8月までに試験片4本の試験を行った。それらの内の3本の試験片については、室温で大気圧にて純酸素ガスを吹き込み溶存酸素飽和（32ppm）とした圧力9.3MPaの水中で温度60°C、200°C、300°Cにおいて歪速度 $1.7 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ のSSRT試験を行った。他の1本の試験片は、大気中において300°Cで水中と同じ歪速度のSSRT試験を行い、水環境の効果が無い場合の破断挙動について調べた。各試験条件及び試験中の水質をTable 4に示す。

3.5 試料観察

SSRT試験では、前述のように一般には応力腐食割れ感受性を破断伸びや最大応力値を比較することにより評価する。しかし、照射脆化または照射硬化し伸びが低下した照射材の場合には、これらの指標により応力腐食割れ感受性を判定することが困難となる[10]。そのため、試験後の試験片破断面を直接観察し応力腐食割れ発生の有無や割れの形態について調べることが重要である。本試験では、試験前後にホットセルに備えられた低倍率（最大5倍）の光学顕微鏡（以下、光顕とする）ペリスコープにより試験片表面のマクロ観察を行い、さらに試験後に高倍率（最大40倍）のペリスコープによる破断面近傍の側表面の光顕観察及び破断面の走査電子顕微鏡（以下、SEMとする）観察を行った。ただし、高倍率光顕観察及びSEM観察は水中60°C、300°Cで試験した試験片についてのみ平成4年8月までに終了している。

4. 結 果

照射腐食割れ試験を実施した順序に従って以下にその結果を示す。

4.1 水中300°C試験

Fig. 5は、水中において温度300°Cで行った試験の試験時間に対する変位、荷重、温度、圧力の変化を示す。変位は一定速度に保持されていることが分かる。試験温度は±1°Cの精度で保持されている。圧力には±約0.1MPaの変動がみられるが、これはセル内の気温の変動による。試験片の破断時には最終の残存荷重を計測したが、これは圧力シール部の摩擦力であるため全荷重データからこの残存荷重分を差し引いた。その大きさは0.3~0.4kNである。荷重の変化には、試験開始後しばらく増加の遅い部分がありその後直線的に増加する。この増加の遅い部分はいずれの試験においてもみられ、試験片に装着されている絶縁リング等が完全に試験片に密着するまでの変位分及び試験機自体の剛性による変位分が含まれていると考えられる。このため、変位に関しては直線的に増加する弾性変形部を荷重零まで内挿して原点とした。このような補正を行い、さらに荷重-変位を工学的応力-歪関係に換算した結果をFig. 6に示す。Fig. 6の応力-歪曲線から、降伏応力（0.2%耐力で表す）763MPaに到達後の均一伸びはほとんどなく最大応力787MPaに到達後ただちに局所的な割れが発生したものとみられる。破断伸びは5%であった。

試験片のマクロ写真をFig. 7及びFig. 8に示す。試験前の試験片表面にはFig. 7のように傷または変色のある部分が見られた。Fig. 8は破断後の試験片であり、破断は平行部の末端で生じている。破断試験片の拡大写真をFig. 9に示す。Fig. 10及びFig. 11は破断部の拡大写真である。また、その裏面をFig. 12及びFig. 13に示す。破断部の形状が複雑であるため、その外観図をFig. 14に示した。この図中に示すように、Fig. 15は破断部を厚さ方向の側面からみた写真であり、Fig. 16及びFig. 17は両側面の写真である。このように複雑な形状は、割れの起点が複数ありしかも試験前から存在した小さな切り欠きが起点となった可能性を示している。これは、Fig. 15のように側面にいくつもの切り欠き状の割れがみられることからもいえることである。この場合、割れが単に照射による脆化によって発生した可能性もありうるが、以下に述べるSEM観察の結果から環境割れであることが示唆される。

Fig. 18からFig. 22には、長さの短い方の破断試験片の破断面のSEM写真を示す。Fig. 18は全体像であるが、破断部の両側面付近に粒界割れが見られる。図中のA,B,C及びDの範囲を拡大したものがFig. 19からFig. 22であり、A及びD部に粒界破面が観察された。また、A部側の側面部には割れが入っている。Fig. 19 (A部) は粒界破面であり、2次き裂及び粒界ファセット上に腐食生成物が見られることから化学的環境効果により生じた割れと考えられる。Fig. 20 (B部) は、粒界割れから粒内割れさらに延性破面への遷移領域である。Fig. 21 (C部) には伸長形ディンプルが見られ、せん断応力による延性破断面であると考えられる。さらにFig. 22 (D部) は、粒界破面の見られる部分である。破断面の形状及びSEM観察の結果から、環境効果により生じた割れすなわち応力腐食割れが試験片側面の異なる位置に発生し、それらを結ぶ面上で延性破断したと考えられる。

4.2 水中60°C試験

荷重、温度、圧力の時間変化をFig. 23に、初期の変位及び摩擦力を補正した応力-歪線図をFig. 24に示す。最大応力942MPaに達するまで均一伸び6.0%を示し、その後破断伸び15.2%に達した。これは、冷間加工したステンレス鋼の常温引張試験による結果として報告されている伸びとほぼ同程度である。

Fig. 25及びFig. 26に試験前後の試験片マクロ写真を示す。破断は試験片のほぼ中央で生じている。Fig. 27は破断試験片の拡大写真である。Fig. 28には一方の破断片の破断部の側面写真を、Fig. 29にはFig. 28(b)の拡大写真を示す。破断部付近に絞りがみられ、試験片が延性を保持していたことを示している。

Fig. 30からFig. 34には、試験片破断面のSEM写真を示す。Fig. 30は全体像であり、破断面はほぼ均一な割れ形態であることが分かる。図中のA,B,C及びDの範囲を拡大したものがFig. 31からFig. 34である。いずれのSEM写真も延性破断が生じたことを示しており、脆性的破壊の生じた部分はみられない。ただし、ディンプルの形状が通常の非照射材の延性破断の場合に比べると不揃いであり、またFig. 33の拡大写真のように層状とみえる組織があり、照射損傷の影響が考えられる。応力-歪線図及び破面観察の結果として、水中60°Cの試験条件では環境劣化効果は現れていないといえる。

4.3 水中200°C試験

荷重、温度、圧力の時間変化をFig. 35、初期の変位及び摩擦力を補正した応力-歪線図をFig. 36に示す。最大応力94.2MPaに達するまで均一伸び3.3%を示し、その後破断伸び9.1%に達した。破断伸びは水中300°C試験の場合の約2倍である。Fig. 36のように破断に到る前に応力の急な低下が繰り返され、小さな割れの進展を示唆している。しかし、本試験片は破面SEM観察が未了であるため破断形態の確認はできていない。Fig. 37及びFig. 38に試験前後の試験片のマクロ写真を示す。Fig. 39は破断試験片の拡大写真である。破断は試験片平行部のやや上側で生じている。

4.4 大気中300°C試験

荷重、温度、圧力の時間変化をFig. 40、初期の変位及び摩擦力を補正した応力-歪線図をFig. 41に示す。最大応力82.8MPaに達するまで均一伸び4.2%を示し、その後破断伸び9.6%に達した。破断伸びは水中200°C試験の場合とほぼ同じである。Fig. 41のように最大応力の約90%まで応力が低下した時点から急速に破断に到っている。しかし、本試験片は破面SEM観察が未了であるため破断形態の確認はできていない。Fig. 42及びFig. 43に試験前後の試験片のマクロ写真を示す。Fig. 44は破断試験片の拡大写真である。破断は試験片平行部のやや上側で生じている。

5. 考 察

5.1 応力腐食割れ感受性

応力-歪線図から求めた0.2%耐力、引張強さ、均一伸び及び破断伸びをTable 5に示す。また、4本の試験片についての応力-歪線図をまとめてFig. 45に示す。水中200°C試験及び大気中300°C試験後の破面観察は未了であるが、溶存酸素飽和の水中で60°Cの温度では化学的環境効果による割れ感受性の無いことが分かった。水中300°C試験の結果からは、大気中300°C試験の場合に比べ約半分の破断伸びであること及び破断面に粒界破面及び腐食生成物が観察されたことから、高温高圧水による環境効果が生じたことが明かであり応力腐食割れ感受性を持つといえる。

SSRT試験は実環境で静的歪が材料に加わっている状態に比べると、強制的に動的歪を与え表面皮膜の破壊を起こさせるため苛酷な試験である。このため、試験結果を実使用環境の材料の応力腐食割れ感受性と関係づけることには注意を要する。実際の構造部材との関連では、定性的評価の場合にはまず割れ感受性が保守的方向に評価されていることが必要である。SSRT試験は他の応力腐食割れ試験法に比べると高感度に応力腐食割れ感受性を検知できるとされているため、この条件に適した方法であるといえる。しかし、歪速度により応力腐食割れ感受性が変化するため[16]、定量的評価を行うには特に歪速度の影響を調べることが必要である。また、溶存酸素と応力腐食割れ発生の関係も考慮するべき事項である。本評価試験では溶存酸素飽和(32ppm)としたが、実環境との関係ではより低い溶存酸素濃度での試験を実施し割れ挙動との相関に関する知見を得る必要がある。ただし、軽水炉照射したステンレス鋼の場合、288°Cにおいては溶存酸素濃度32ppmと8ppmでSSRT試験を行った結果では有意な差は見られていない[17]。今後は、全試験片のSEM破面観察を行い、水中200°Cでの挙動及び大気中300°Cの化学環境効果の無い場合の破断挙動についての知見を得て、環境効果がどのように割れの発生に寄与しているかを調べる予定である。

5.2 打ち抜き加工の影響

本試験における問題点は、試験片の打ち抜き加工による歪の残留及び表面切り欠き等の欠陥の存在である。これらは応力腐食割れ感受性を増大させる可能性がある。しかし、ラッパー管では製造時に既に20%の冷間加工が加えられているため打ち抜きにより導入された歪または変形の影響は小さいと考えられ、実際にFig. 30の断面SEM写真に打ち抜きによる変形の痕は見られない。一方、切り欠きやバリ等の欠陥が主に試験片の側面部にみられ、水中300°C試験では欠陥から割れが生じたとみられる。このことを考慮すると、本試験では応力腐食割れ感受性の定量的評価は難しく定性的評価に留まるが、感受性を過小評価する可能性は無いため当初の目的は達せられる。さらに定量的評価を行うためには、より平滑な表面となる試験片の製作技術が必要であり、原研・大洗研ホットラボではホットセル内へ放電加工機を設置する計画を進めている。

5.3 今後の課題

本試験の結果は、高速炉照射材で初めて高温水中応力腐食割れ感受性を評価したものであるが、中性子スペクトル効果との関連について考察することは、現時点では試験データが少なくかつ定量性にやや問題があると考えられるため困難である。しかし、少なくともいえることはHeの生成量が軽水炉に比べ少ない高速炉照射においても、やはり300°C付近の水中においては環境脆化が生じることである。ただし、本試験材料が約40dpaという軽水炉構造材料からみると重照射であり損傷量が大きいこと及び425°C付近の照射温度であることを考慮すると、これまで軽水炉照射材料について報告された結果に比べ照射腐食割れ感受性は小さいようである。この点についてはより中性子照射量の低い材料、照射温度の低い材料を試料とした試験を行い、軽水炉関連研究において得られているデータとの定量的な比較を行う必要がある。また、割れ発生のメカニズム及び原因を調べるためにには照射材の微細組織観察及び元素分布の分析が必要である。

6. 結 言

平成3年度に原研及び動燃による共同研究として開始した「中性子照射材料の破壊特性評価試験」のうち、照射済みラッパー管材料を供試材とする水環境下の応力腐食割れ性評価試験に関しては、平成4年8月までに原研・大洗研ホットラボにおいて照射腐食割れ試験を実施し次の結果を得た。

高速実験炉「常陽」で使用されたドライバ燃料集合体から採取したラッパー管材料（照射量 $8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、照射温度約425°C）を試料とし、溶存酸素飽和（32ppm）の純水中、60°C、200°C、300°Cにおいて低歪速度引張（SSRT）試験を実施し応力腐食割れ感受性を評価した。その結果、(a) 60°Cでは完全な延性破断となることを確認したが、(b) 300°Cの水中では破断面の一部に粒界破面が観察された。これらの結果から高速炉照射したステンレス鋼は、常温の水中においては応力腐食割れ感受性を示さないが、高温水中においては割れ感受性を持つようになると考えられる。今回の試験では、試験片を打ち抜き加工により製作したためその表面に切り欠き状の欠陥等が生じた。従って、応力腐食割れ感受性を定量的に評価することには困難があるが、定性的評価においては問題ないと考えられる。

原子炉照射により高温水中で応力腐食割れが発生する原因を知るため、また本試験の結果を軽水炉・加速器等で照射された材料の試験結果と比較検討するためにはさらに試験データの蓄積が必要である。特に、この挙動の現れる原因是照射損傷と照射誘起偏析にあると考えられるが、実際に照射により材料中でどのような変化が生じたことによるものかを明らかにするには、透過型電子顕微鏡等による詳細な微視的組織観察及び元素分析が必要である。既存の試験データとの比較のためには、より照射量・照射温度の低い高速炉照射材についての試験の実施が望まれる。

5.3 今後の課題

本試験の結果は、高速炉照射材で初めて高温水中応力腐食割れ感受性を評価したものであるが、中性子スペクトル効果との関連について考察することは、現時点では試験データが少なくかつ定量性にやや問題があると考えられるため困難である。しかし、少なくともいえることはHeの生成量が軽水炉に比べ少ない高速炉照射においても、やはり300°C付近の水中においては環境脆化が生じることである。ただし、本試験材料が約40dpaという軽水炉構造材料からみると重照射であり損傷量が大きいこと及び425°C付近の照射温度であることを考慮すると、これまで軽水炉照射材料について報告された結果に比べ照射腐食割れ感受性は小さいようである。この点についてはより中性子照射量の低い材料、照射温度の低い材料を試料とした試験を行い、軽水炉関連研究において得られているデータとの定量的な比較を行う必要がある。また、割れ発生のメカニズム及び原因を調べるためにには照射材の微細組織観察及び元素分布の分析が必要である。

6. 結 言

平成3年度に原研及び動燃による共同研究として開始した「中性子照射材料の破壊特性評価試験」のうち、照射済みラッパー管材料を供試材とする水環境下の応力腐食割れ性評価試験に関しては、平成4年8月までに原研・大洗研ホットラボにおいて照射腐食割れ試験を実施し次の結果を得た。

高速実験炉「常陽」で使用されたドライバ燃料集合体から採取したラッパー管材料（照射量 $8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、照射温度約425°C）を試料とし、溶存酸素飽和（32ppm）の純水中、60°C、200°C、300°Cにおいて低歪速度引張（SSRT）試験を実施し応力腐食割れ感受性を評価した。その結果、(a) 60°Cでは完全な延性破断となることを確認したが、(b) 300°Cの水中では破断面の一部に粒界破面が観察された。これらの結果から高速炉照射したステンレス鋼は、常温の水中においては応力腐食割れ感受性を示さないが、高温水中においては割れ感受性を持つようになると考えられる。今回の試験では、試験片を打ち抜き加工により製作したためその表面に切り欠き状の欠陥等が生じた。従って、応力腐食割れ感受性を定量的に評価することには困難があるが、定性的評価においては問題ないと考えられる。

原子炉照射により高温水中で応力腐食割れが発生する原因を知るため、また本試験の結果を軽水炉・加速器等で照射された材料の試験結果と比較検討するためにはさらに試験データの蓄積が必要である。特に、この挙動の現れる原因是照射損傷と照射誘起偏析にあると考えられるが、実際に照射により材料中でどのような変化が生じたことによるものかを明らかにするには、透過型電子顕微鏡等による詳細な微視的組織観察及び元素分析が必要である。既存の試験データとの比較のためには、より照射量・照射温度の低い高速炉照射材についての試験の実施が望まれる。

謝　　辞

本試験研究は、原研／動燃共同研究「中性子照射材の破壊特性評価試験」の総括責任者である原研燃料・材料工学部 近藤達男部長並びに動燃燃料材料開発部 桂川正巳部長、さらに共同研究実施計画の策定と調整を行われた原研照射解析研究室 菱沼章道室長、同室 実川資朗氏並びに動燃照射材料試験室 小野瀬庄二氏の各位のご助言と多大のご協力により実現できたものであることを記し、ここに感謝の意を表します。試験の実施にご理解をいただき便宜をお図りいただいた原研東海研ホットラボ課 菊池輝男課長並びに大洗研ホットラボ課 小山田六郎課長、同課 佐藤 均氏に深く感謝いたします。

また、照射腐食割れ試験装置の開発にご尽力いただいた原研東海研ホットラボ課 木崎実氏、照射試料の移送にご協力いただいたアイソトープ部製造課 伊藤康博氏、有益な御討論をいただいた材料応用工学研究室 渡辺勝利氏並びに非照射材試験にご協力いただいた原研材料設計研究室 朝岡秀人氏の各位に謝意を表します。さらに、「常陽」ラッパー管照射材の試験の実施をご提案いただき共同研究の実現に多大のお力添えをいただいた苦米地 顯氏へ篤く感謝いたします。

参考文献

- [1] P.L.Andresen, F.P.Ford, S.M.Murphy and J.M.Perks: Proc. 4th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, NACE, 1990, p.1-83.
- [2] A.J.Jacobs and G.P.Wozadlo: Proc. Int. Conf. Nuclear Power Plant Aging, Availability Factor and Reliability Analysis, ASM, 1985, p.173.
- [3] 薄田寛：“軽水炉構造材料”，アピーチ，1989, p.102.
- [4] B.M.Gordon and G.M.Gordon: Nucl. Eng. Des., 98(1987)109.
- [5] C.C.Baker: Fusion Technology, 15,2 (1989)849.
- [6] IAEA, "Research and Development Needs for ITER Engineering Design", ITER/DS/No.20, IAEA, 1991.
- [7] 例え、小若正倫：“金属の腐食損傷と防食技術”，アグネ，1983, p.35.
- [8] 高野道典：日本金属学会会報, 18(1979)566.
- [9] 山中和夫：“腐食と破壊”，日本機械学会, 1985, p.188.
- [10] T.Tsukada, K.Shiba, G.E.C.Bell and H.Nakajima: NACE Corrosion/92, 1992, Paper No.104.
- [11] T.Tsukada, K.Shiba, M.Ohmi, M.Kizaki, H.Matsushima and H.Nakajima, Proc. 3rd Asian Symp. Research Reactor, JAERI, 1991, p.621.
- [12] 塚田隆、芝清之、G.E.C.Bell、中島甫、木崎実、近江正男、須藤健次、後藤一郎：日本原子力研究所研究報告書, JAERI-M 92-081, 1992.
- [13] 中島甫：第29回“材料強度と破壊”国内総合シンポジウム論文集, 1984, p.58.
- [14] 中島甫：“腐食と破壊”，日本機械学会, 1985, p.216.
- [15] 塚田隆：「微小試験片材料評価技術」研究専門委員会報告書”微小試験片材料評価技術の進歩”，日本原子力学会, 1992, p.357.
- [16] 塚田隆、横山憲夫、中島甫：“1990年情報学”シンポジウム論文集, 1990, p.255.
- [17] M.Kodama, S.Nishimura, J.Morisawa, S.Shima, S.SUzuki and M.Yamamoto: presented at 5th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, ANS, 1991.

Table 1 Chemical composition of the wrapper tube material. (mass%)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Co	B
0.053	0.72	1.97	0.020	0.004	13.46	16.35	2.49	0.01	0.0022
N	Cu	Ti	V	Nb+Ta	As	Al	O	Zr	
0.008	0.02	0.068	0.01	0.066	0.004	0.013	0.0008	0.01	

Table 2 Irradiation condition in the experimental FBR "JOYO".
Material of E2WH3 was used for the present SSRT tests.

Sample ID	Height from tube bottom (mm)	Neutron fluence (n/cm ² , E>0.1MeV)	Irradiation temperature (°C)	Irradiation time (EFPD)	PIE items at present
E2WH5	1865-1715	5.5±1.4X10 ²²	465±15	421.17	-
E2WH3	1671-1522	8.1±0.2X10 ²²	425±15	421.17	SSRT test
E2WH2	1522-1374	6.9±1.2X10 ²²	395±15	421.17	Corrosion test

Table 3 Main specification of the SSRT test facility for irradiated specimens installed at hot laboratory of the Oarai establishment of JAERI.

Load capacity Cross head speed Test temperature Test pressure	30 kN 1x10 - 1 mm / min Max. 300 C Max. 10 MPa	Flow rate (fixed) Dissolved oxygen Monitoring capacity Autoclave volume	5 liter / h 0.01 - 32 ppm DO,CON,ECP,pH 1.7 liter
------------------------------------------------------------------------	---------------------------------------------------------	----------------------------------------------------------------------------------	------------------------------------------------------------

(Note) DO: Dissolved oxygen, CON: Conductivity, ECP: Electrochemical potential

Table 4 Condition of SSRT tests carried out in water and air environments.

Specimen ID	Test environment	Temperature (°C)	Pressure (MPa)	Strain rate (s ⁻¹)	Conductivity inlet / outlet (uS/cm)	Dissolved oxygen (ppm)
B-1	Water	300	9.3	1.7X10 ⁻⁷	0.13 / 0.91	32
B-2	Water	60	9.3	1.7X10 ⁻⁷	0.14 / 0.35	32
B-3	Water	200	9.3	1.7X10 ⁻⁷	0.16 / 0.46	32
B-4	Air	300	0.1	1.7X10 ⁻⁷	-	-

Table 5 Summarized result of SSRT tests on the irradiated wrapper tube material.

Specimen ID	Test environment/temp. (°C)	0.2% Proof stress (MPa)	Ultimate stress (MPa)	Uniform elongation (%)	Total elongation (%)	Fracture mode
B-1	Water/300	763	787	0.4	5.0	Intergranular + Ductile
B-2	Water/60	810	942	6.0	15.2	Ductile
B-3	Water/200	833	942	3.3	9.1	NE *
B-4	Air/300	710	828	4.2	9.6	NE

(*): NE: Not examined yet

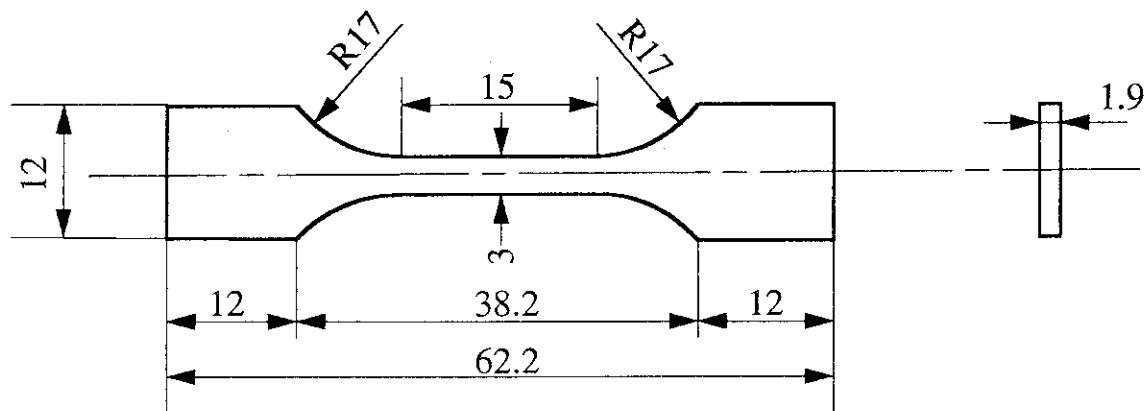


Fig. 1 Configuration of specimen for SSRT test. (unit: mm)

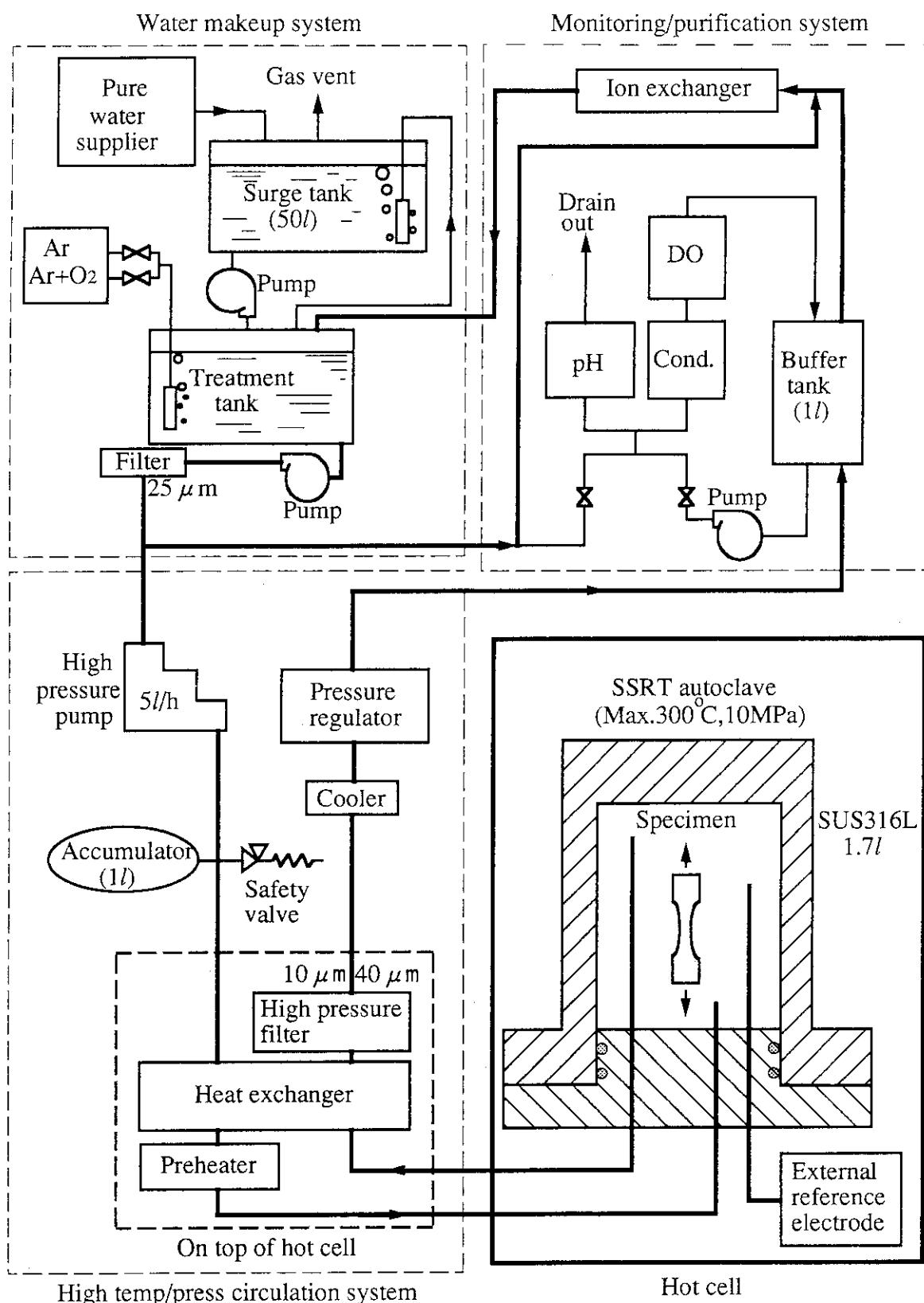


Fig. 2 Schematic flow diagram of SSRT test facility.

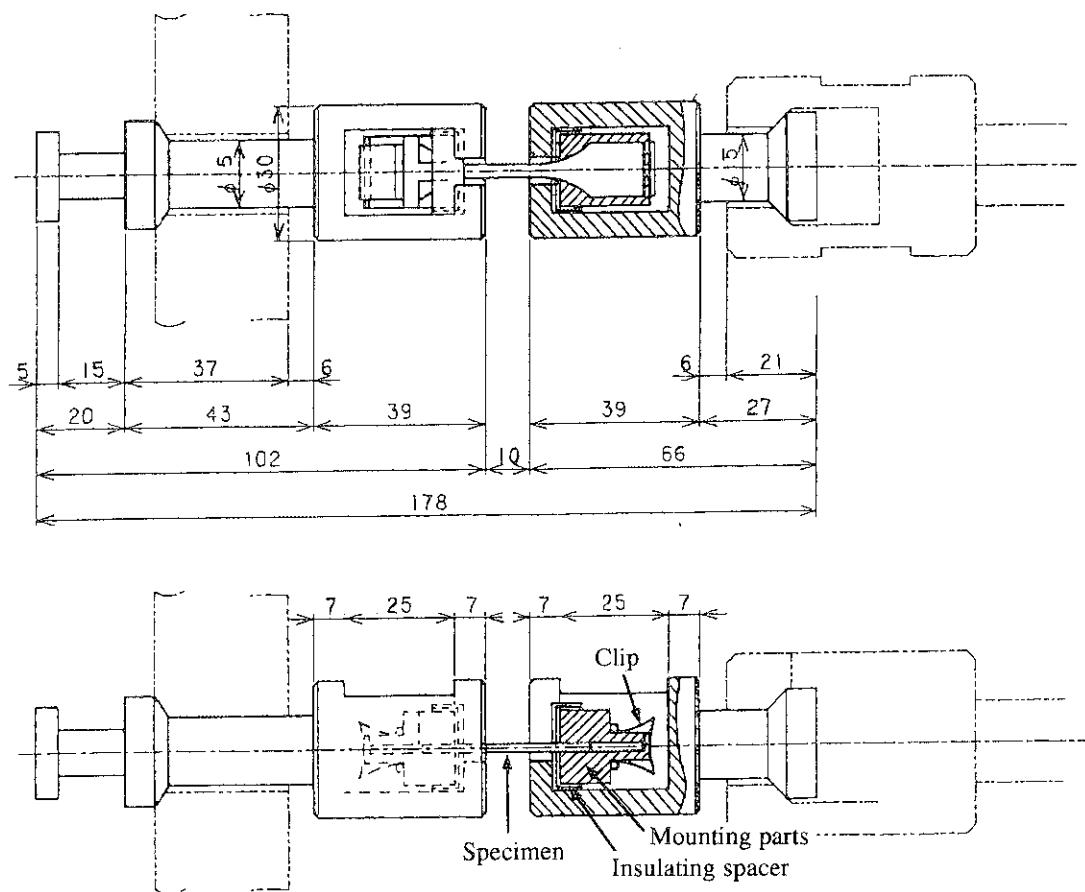


Fig. 3 Specimen gripping system. (unit: mm)

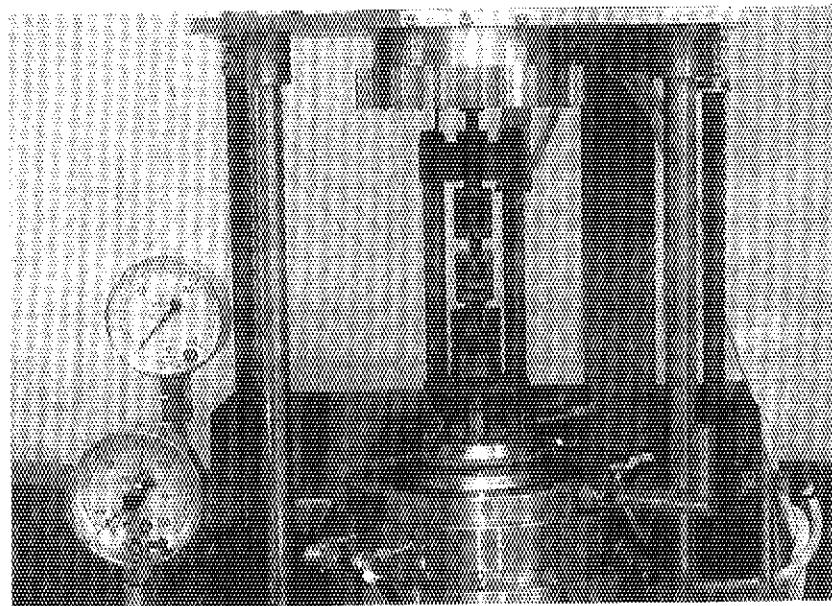


Fig. 4 View of the autoclave of SSRT test machine in hot cell.

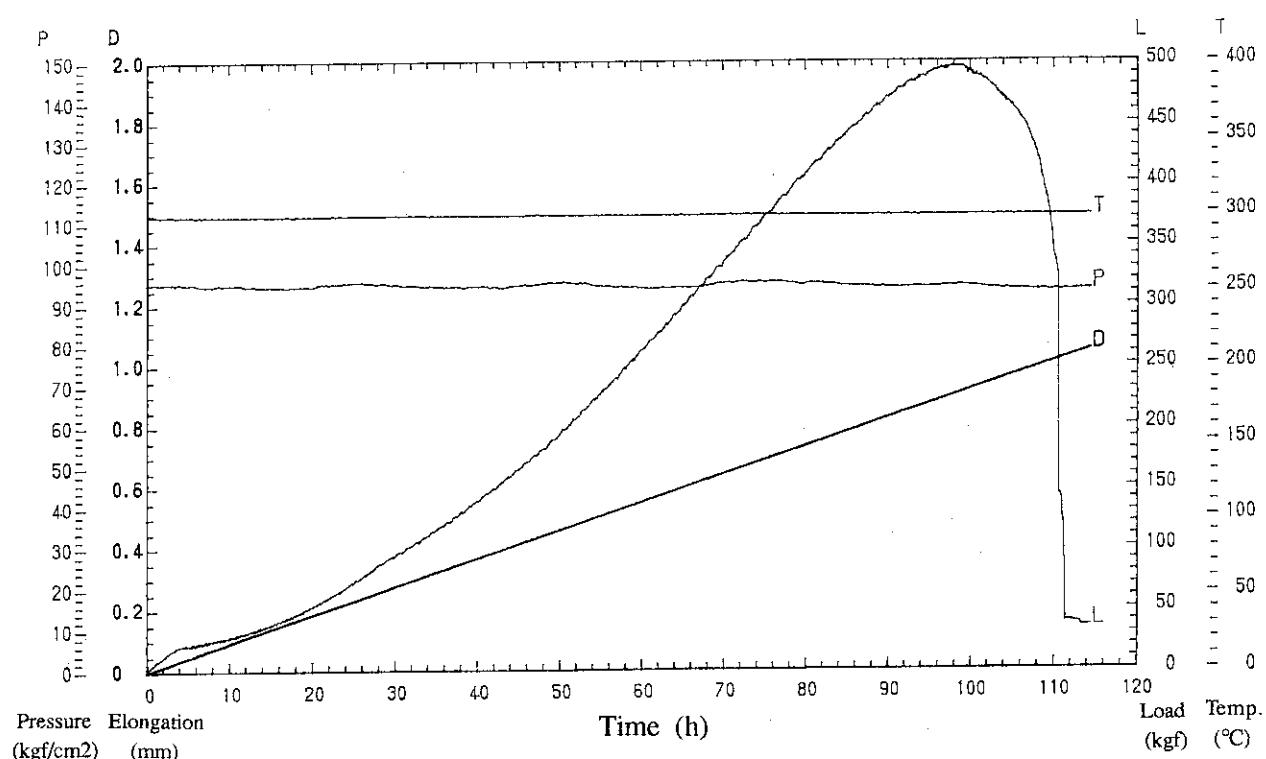


Fig. 5 Elongation (D), load (L), temperature (T) and pressure (P) recorded during SSRT test of specimen B-1 carried out at 300 °C in the oxygenated water.

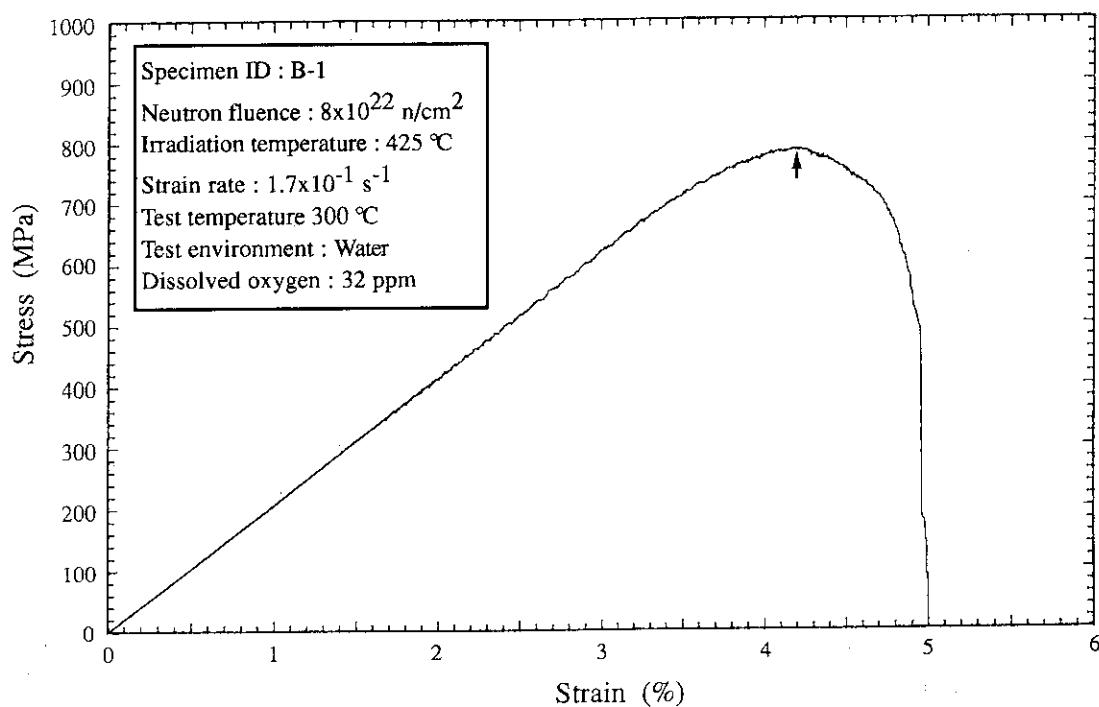


Fig. 6 Stress-strain curve as a result of SSRT test on the specimen B-1 at 300 °C in water. Arrow indicates a strain at the ultimate stress.

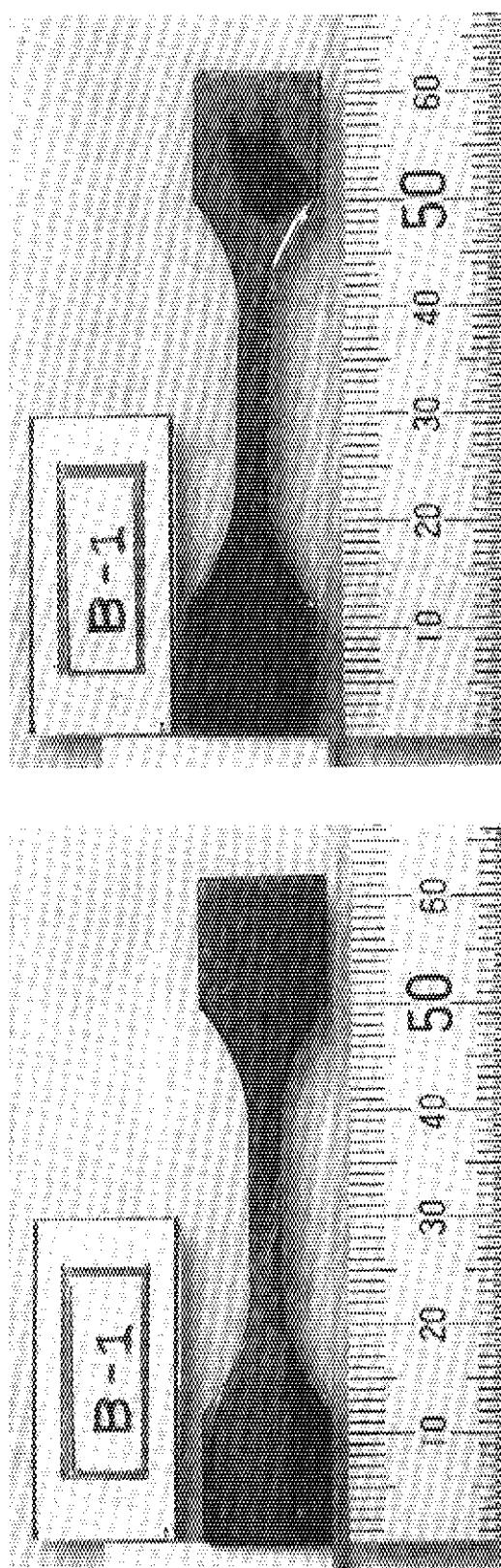


Fig. 7 Macro-photographs of the specimen before SSRT test at 300 °C in water.
Both sides of the specimen are shown.

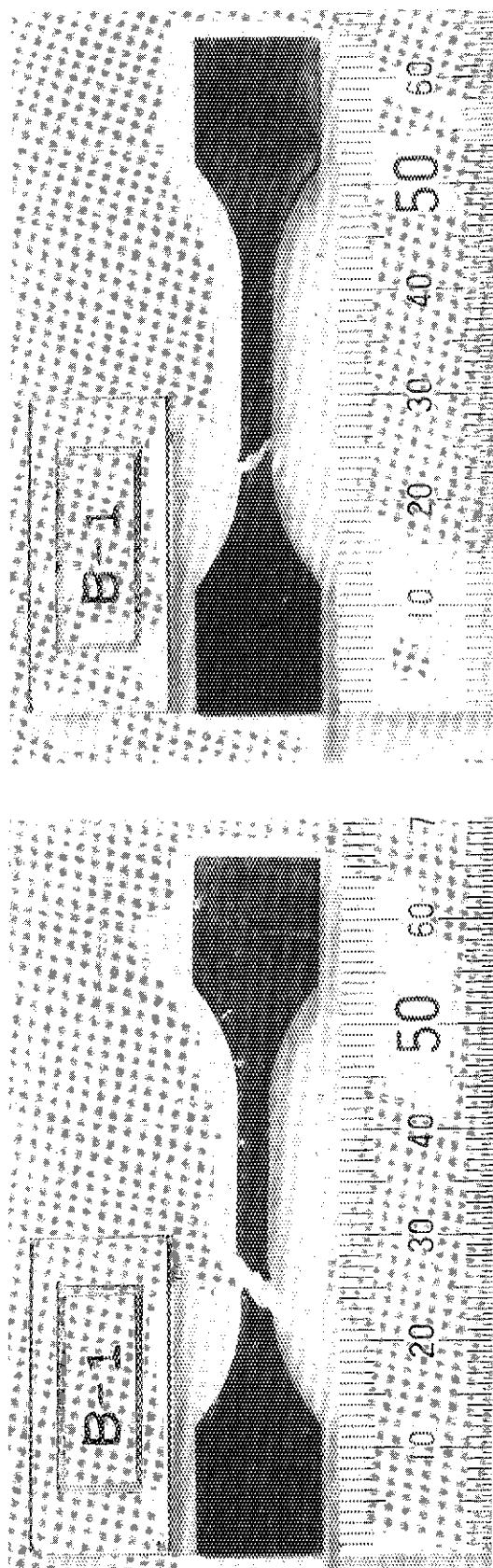


Fig. 8 Macro-photographs of the specimen after SSRT test at 300 °C in water.

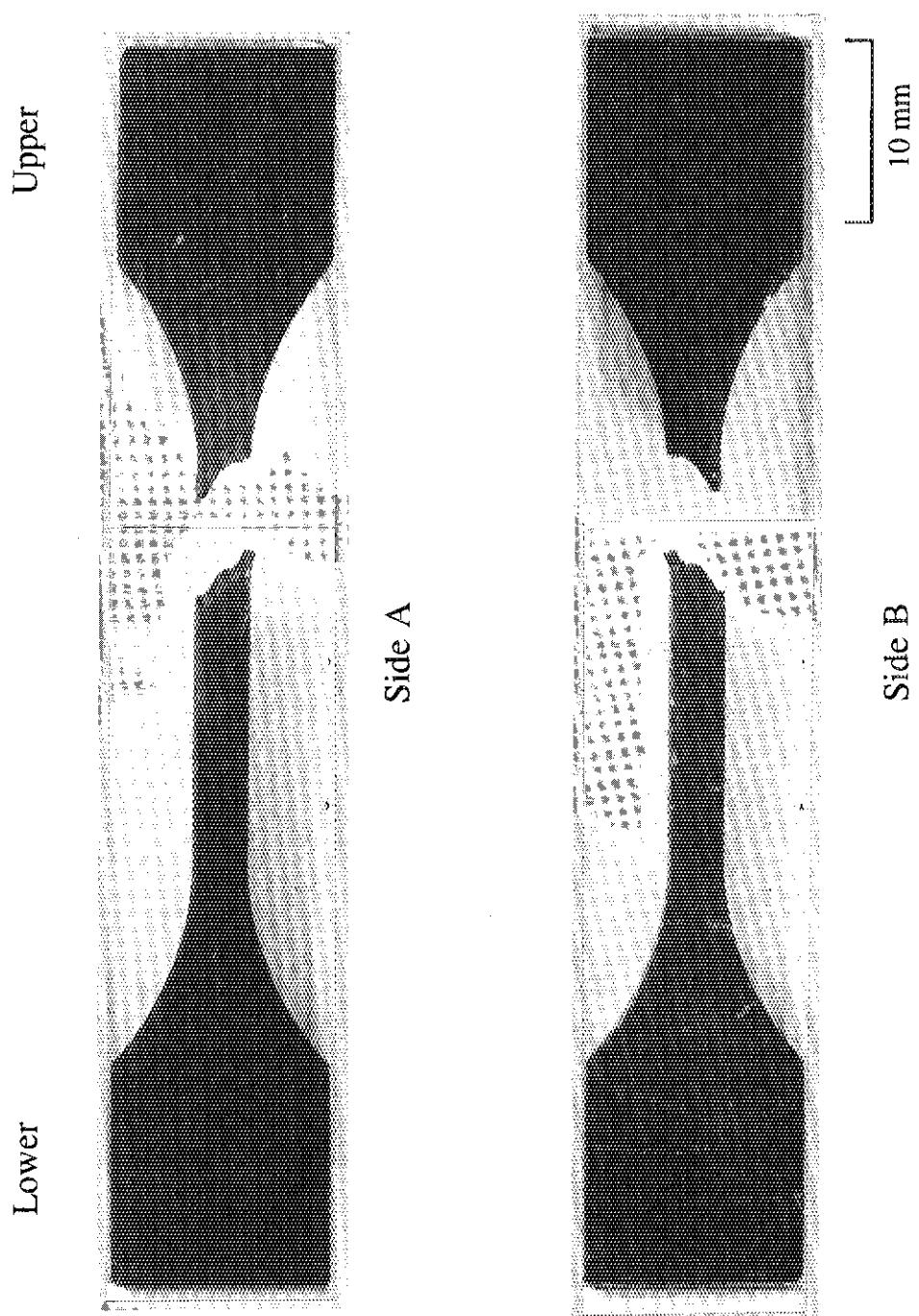


Fig. 9 The specimen B-1 fractured by SSRT test at 300 °C in water.
Both sides of the specimen are shown.

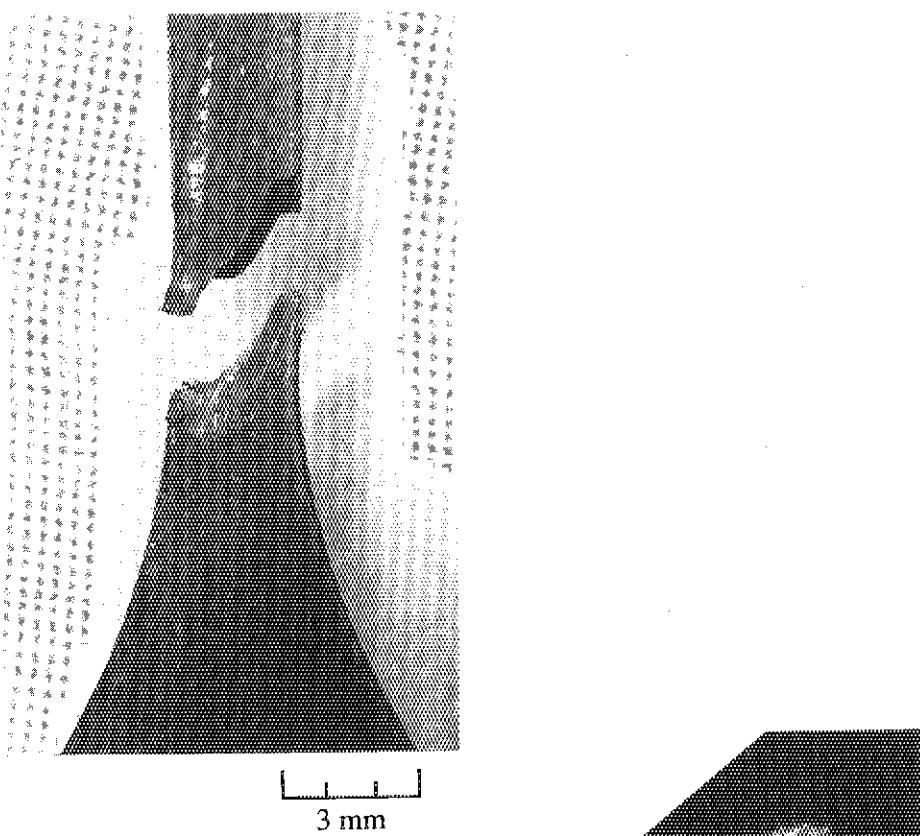


Fig. 10 Fractured part of the specimen B-1. (side A)

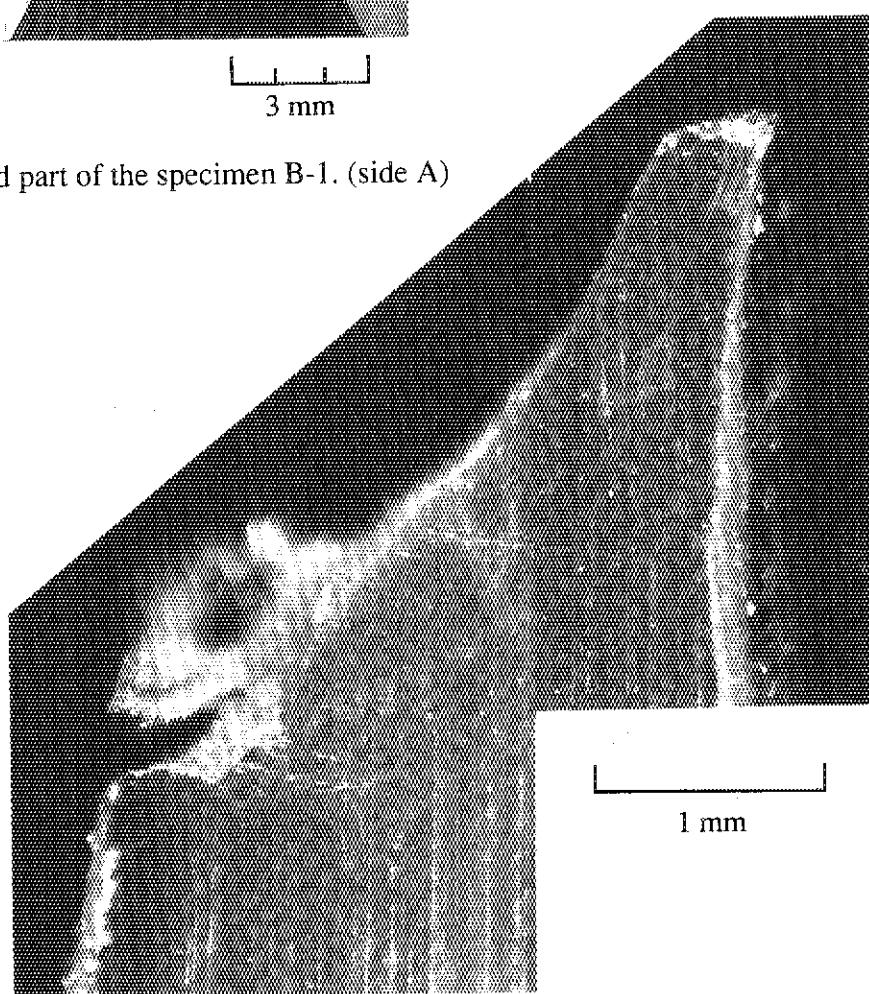


Fig. 11 Magnified photograph of the fractured part. (side A)

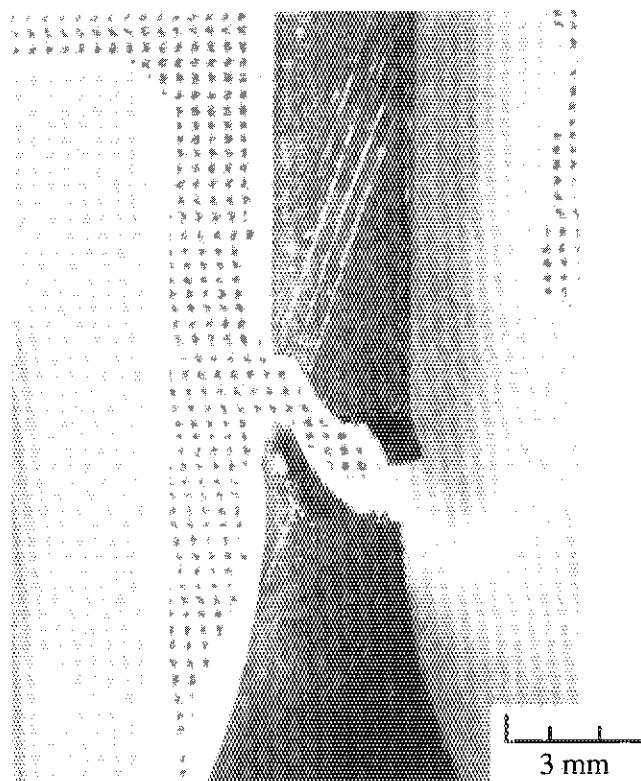


Fig. 12 Fractured part of the specimen B-1. (side B)

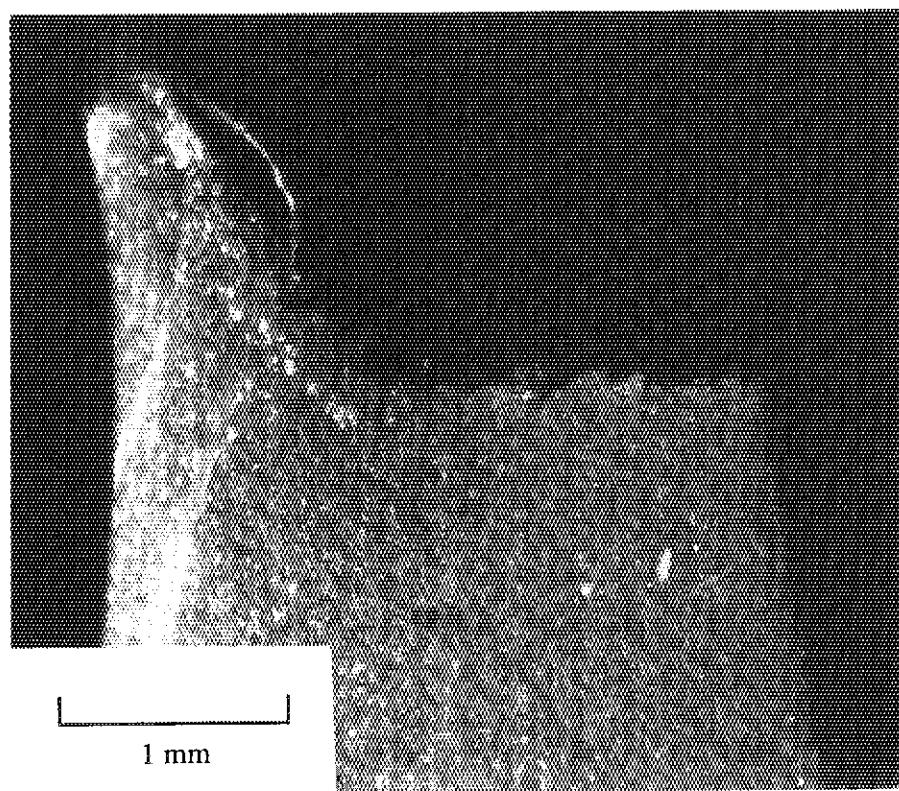


Fig. 13 Magnified photograph of the fractured part. (side B)

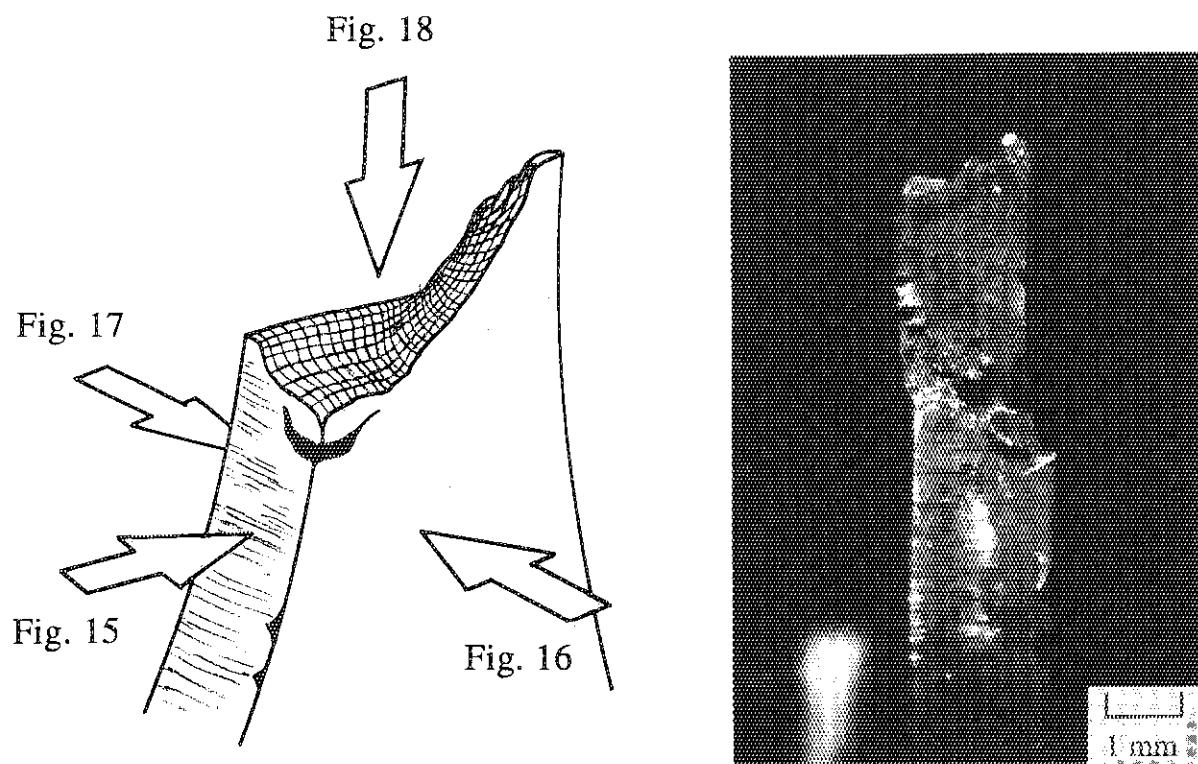


Fig. 14 Schematic drawing of the fractured part of the specimen B-1 and corresponding figures.

Fig. 15 Side view of the fractured part.

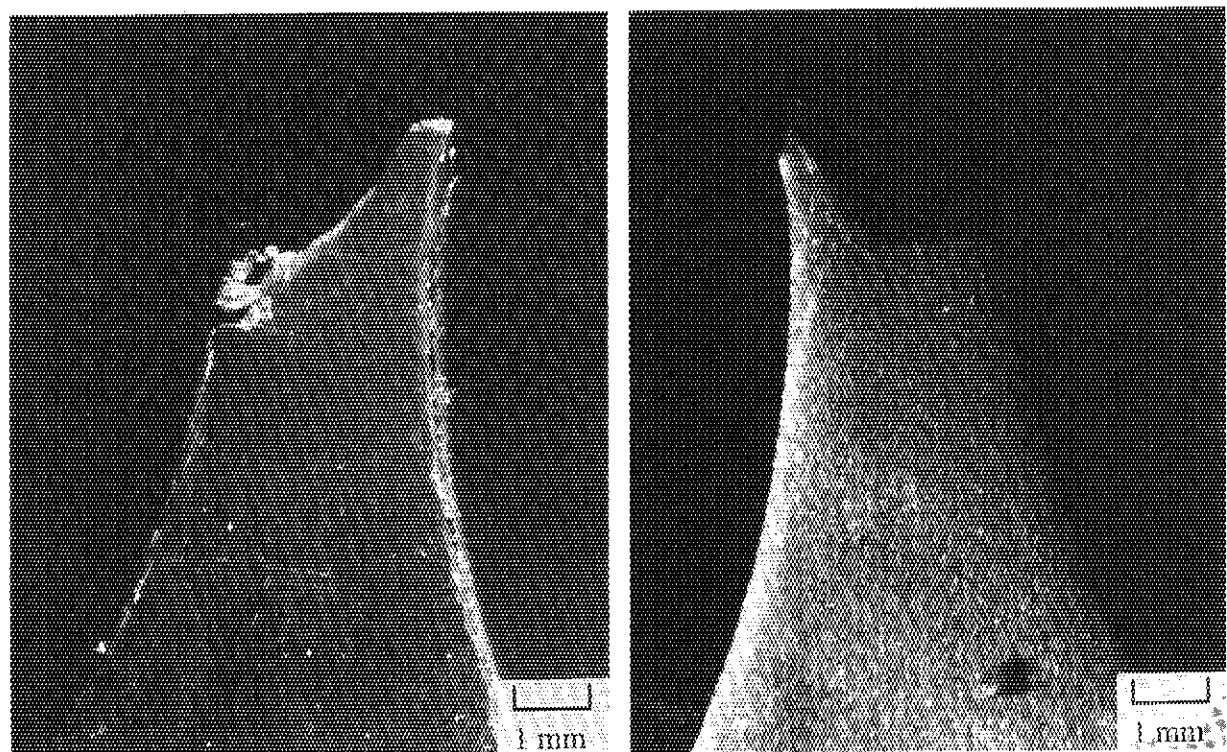


Fig. 16 View of the fractured part. (side A)

Fig. 17 View of the fractured part. (side B)

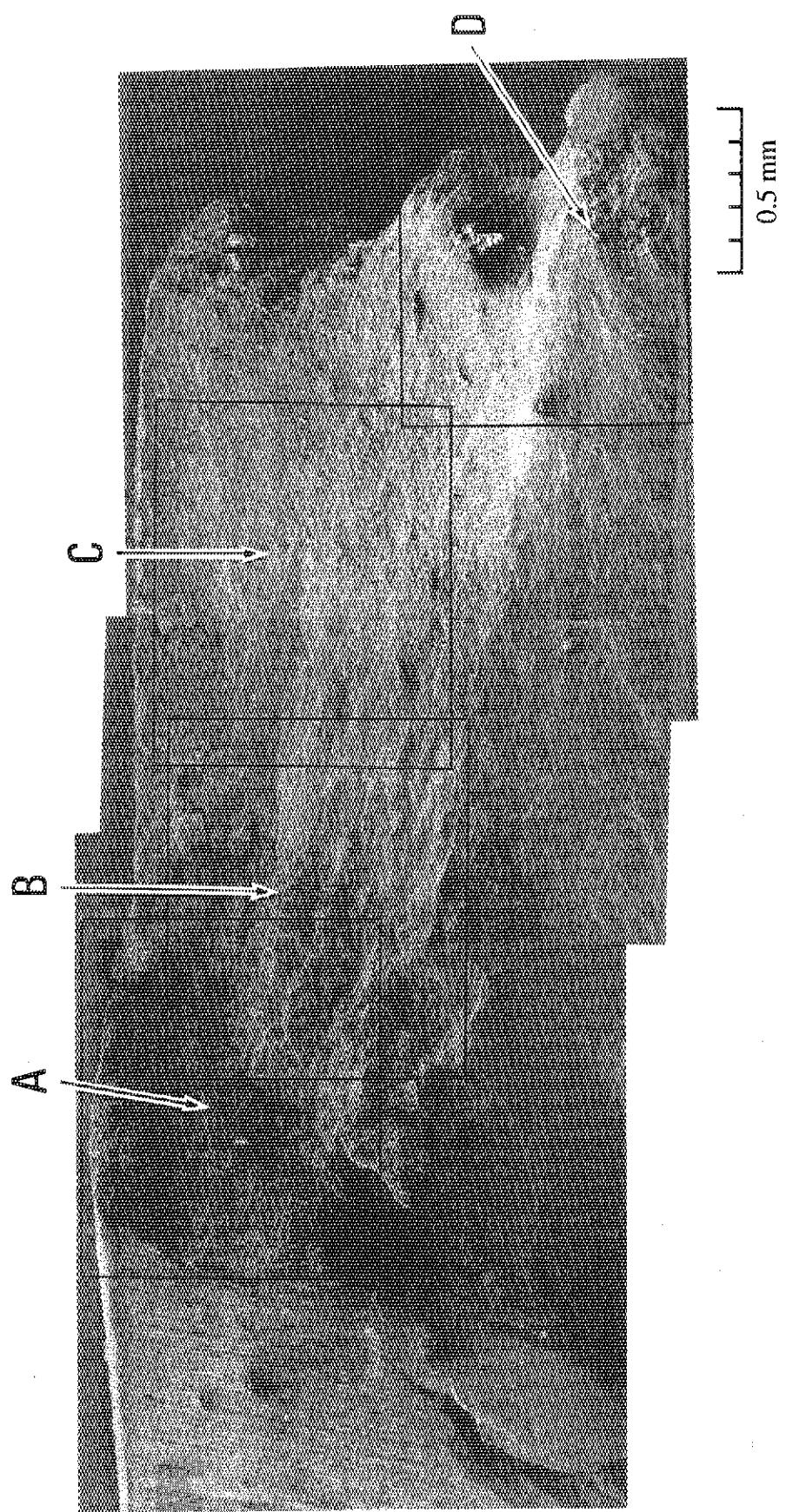


Fig. 18 SEM photograph of the fractured surface of the specimen B-I. Specimen was tested at 300 °C in oxygenated water. Four parts (A-B) are magnified in the following figures.

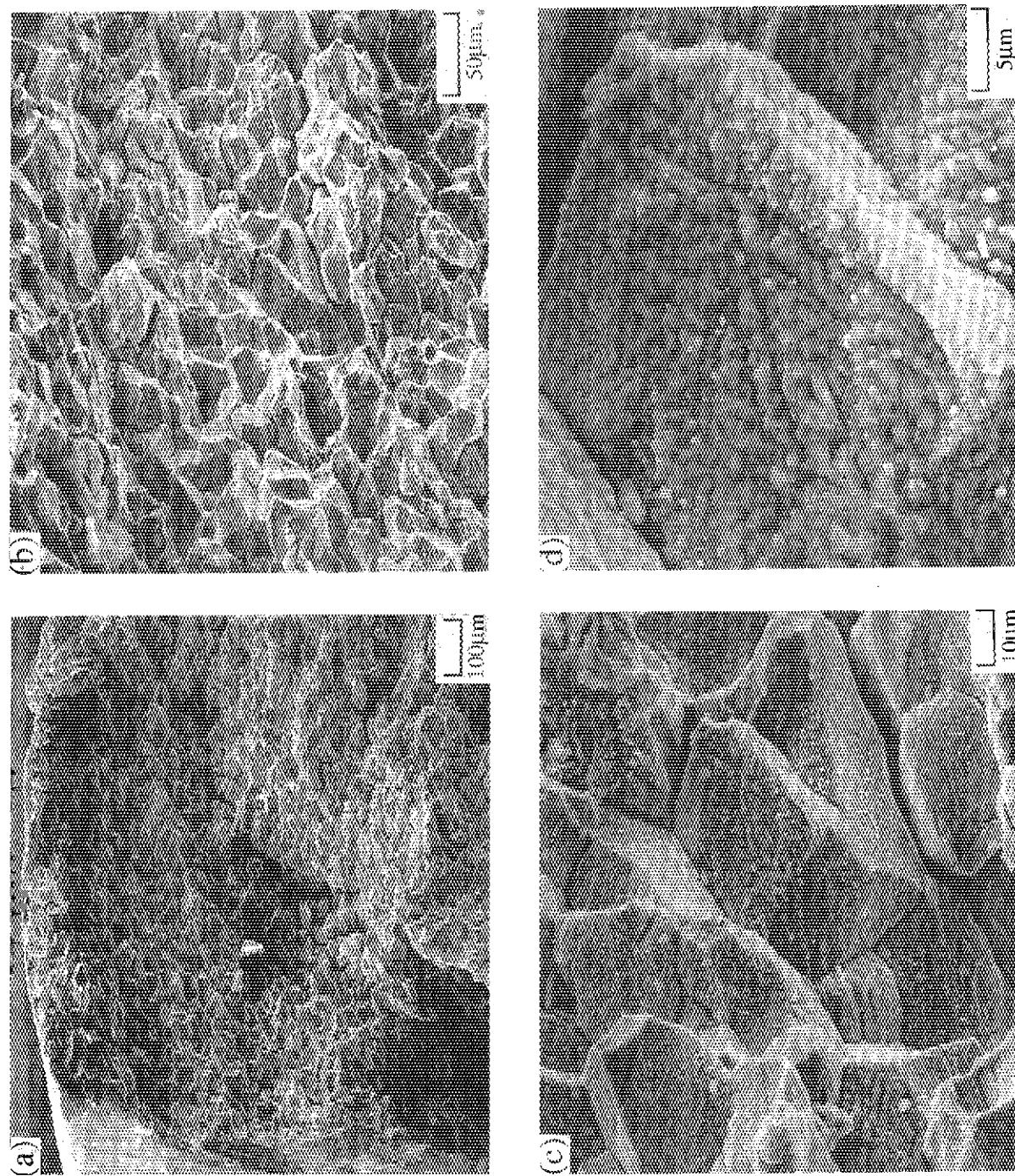


Fig. 19 Magnifications of part A on the specimen B-1. Intergranular fracture is observed.

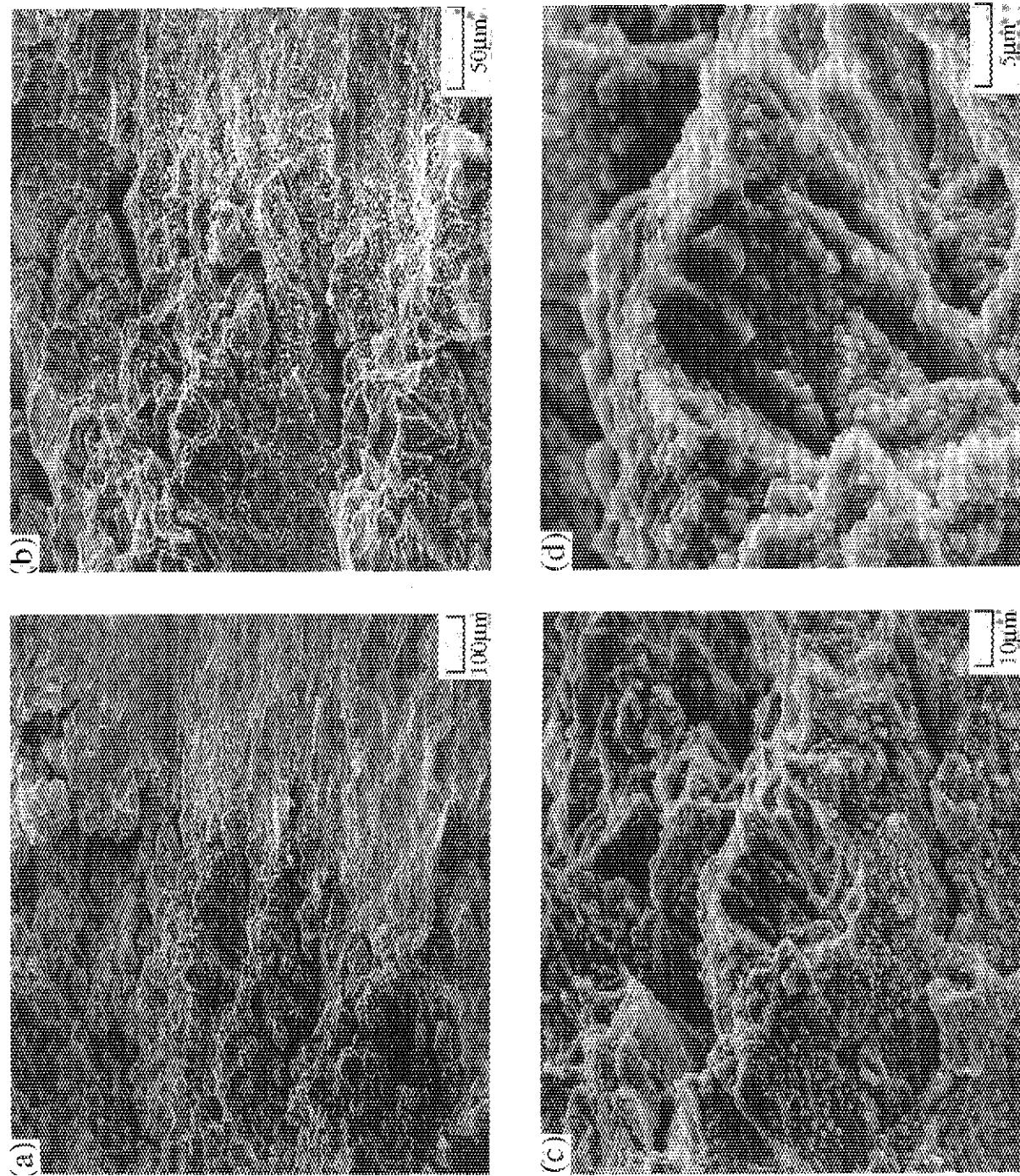


Fig. 20 Magnifications of part B on the specimen B-1.

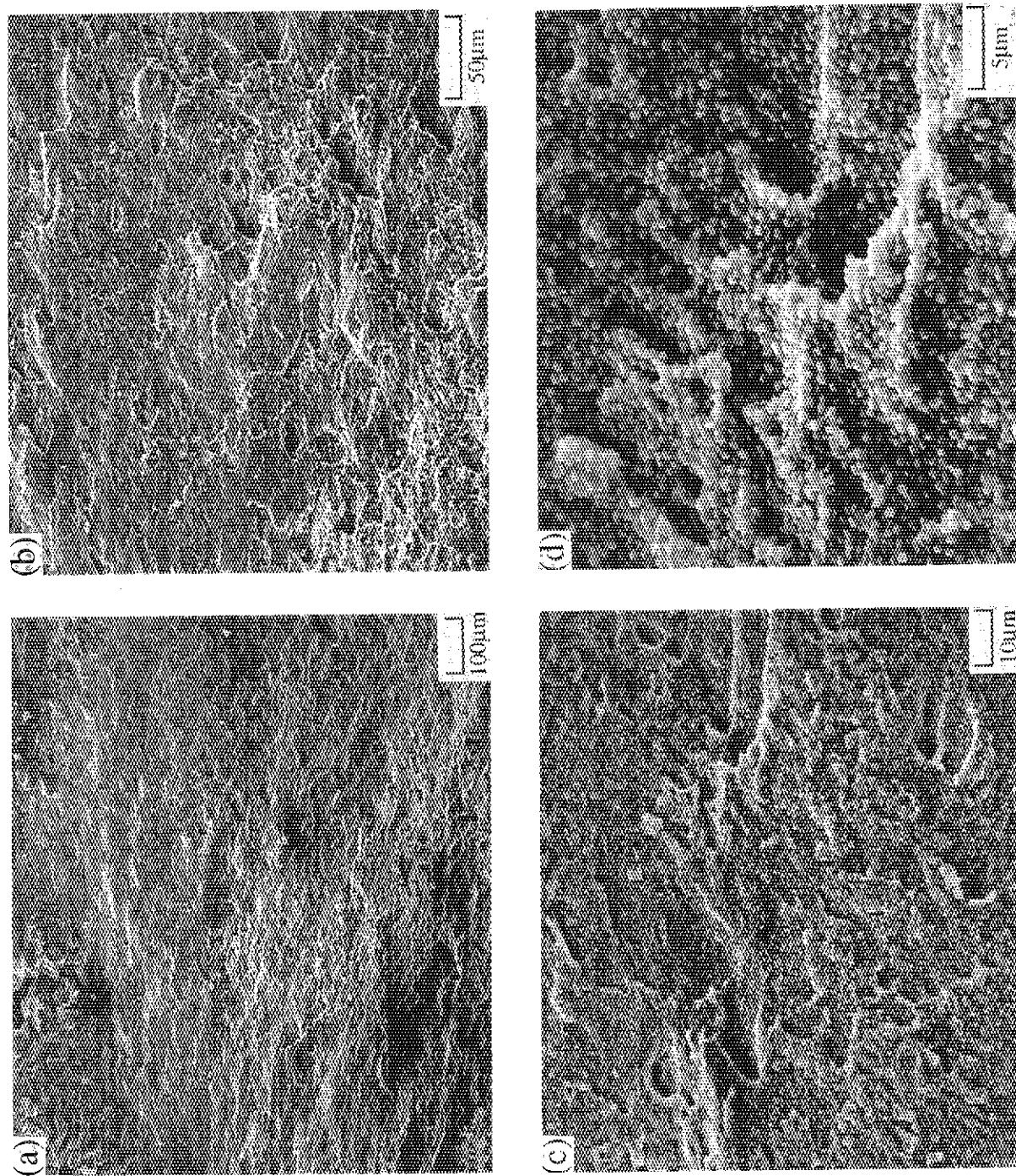


Fig. 21 Magnifications of part C on the specimen B-1.

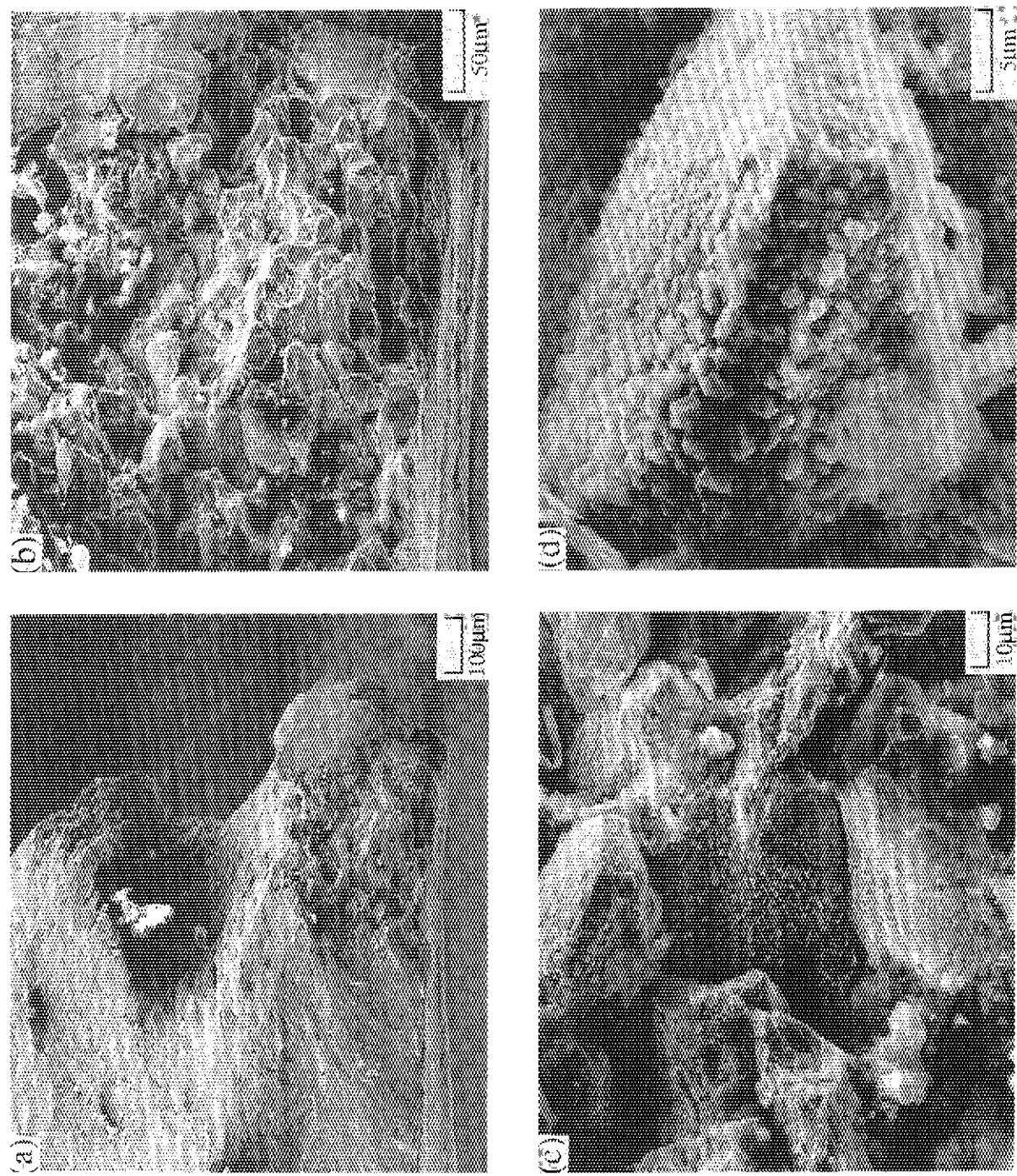


Fig. 22 Magnifications of part D on the specimen B-1.

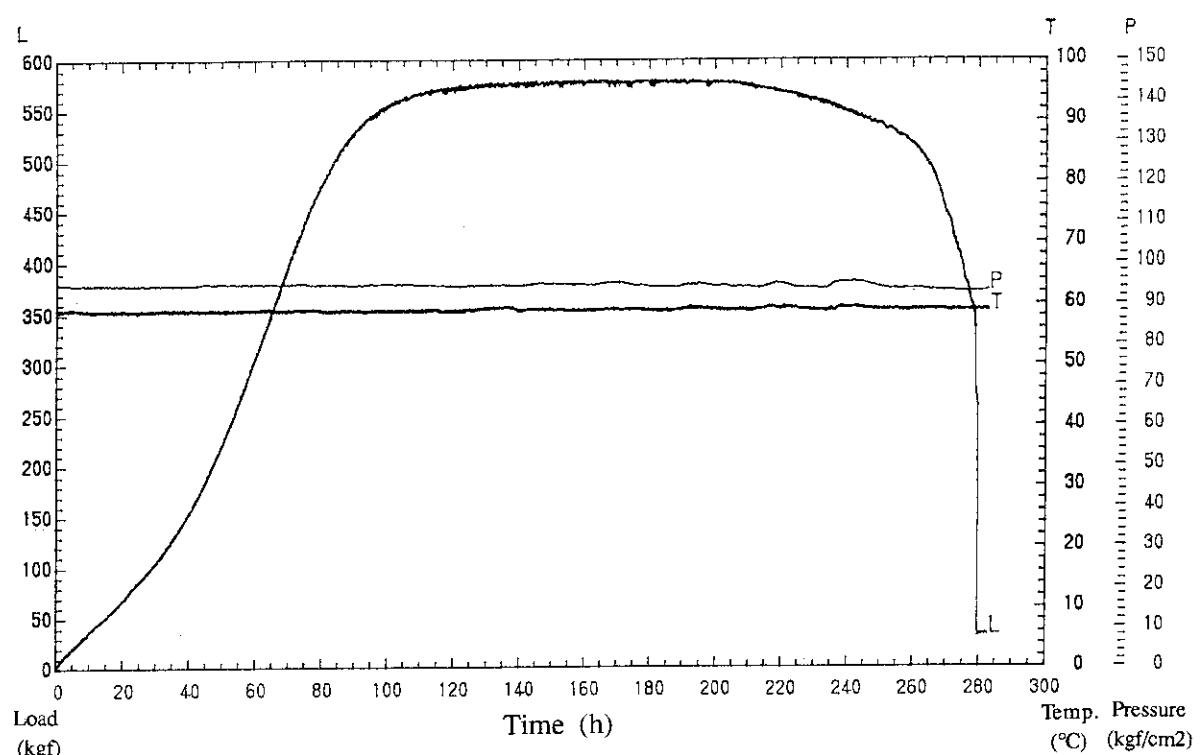


Fig. 23 Load(L), temperature(T) and pressure(P) recorded during SSRT test of the specimen B-2 carried out at 60 °C in the oxygenated water.

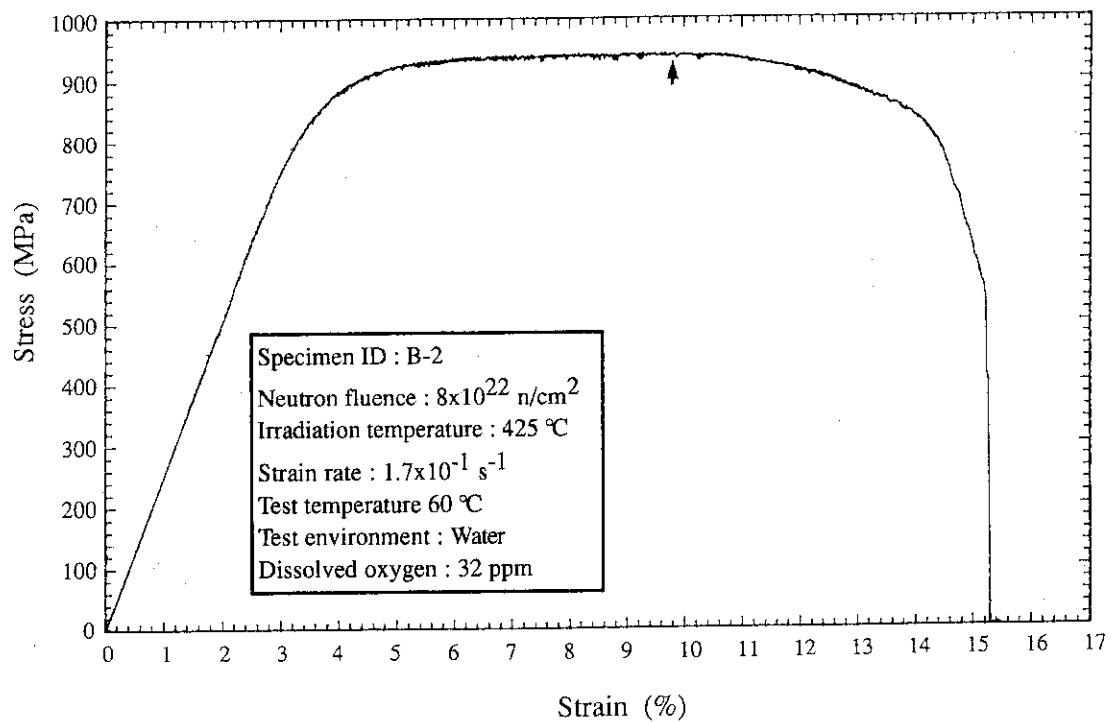


Fig. 24 Stress-strain curve as a result of SSRT test on the specimen B-2 at 60 °C in water. The arrow indicates a strain at the ultimate stress.

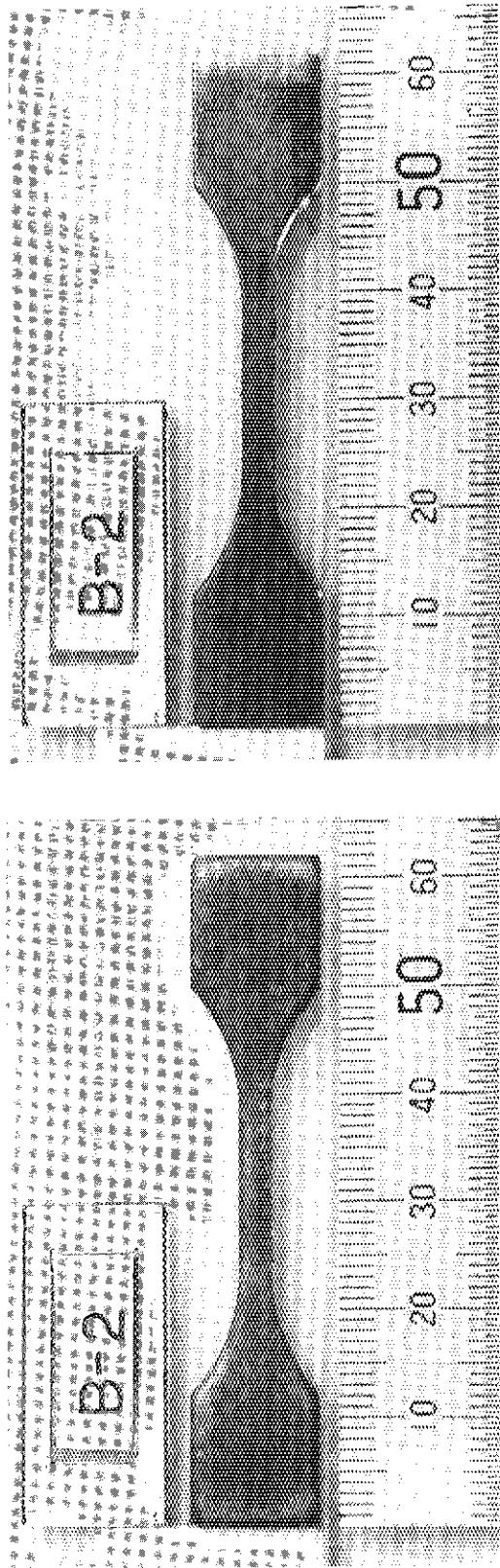


Fig. 25 Macro-photographs of the specimen before SSRT test at 60 °C in water.
Both sides of the specimen are shown.

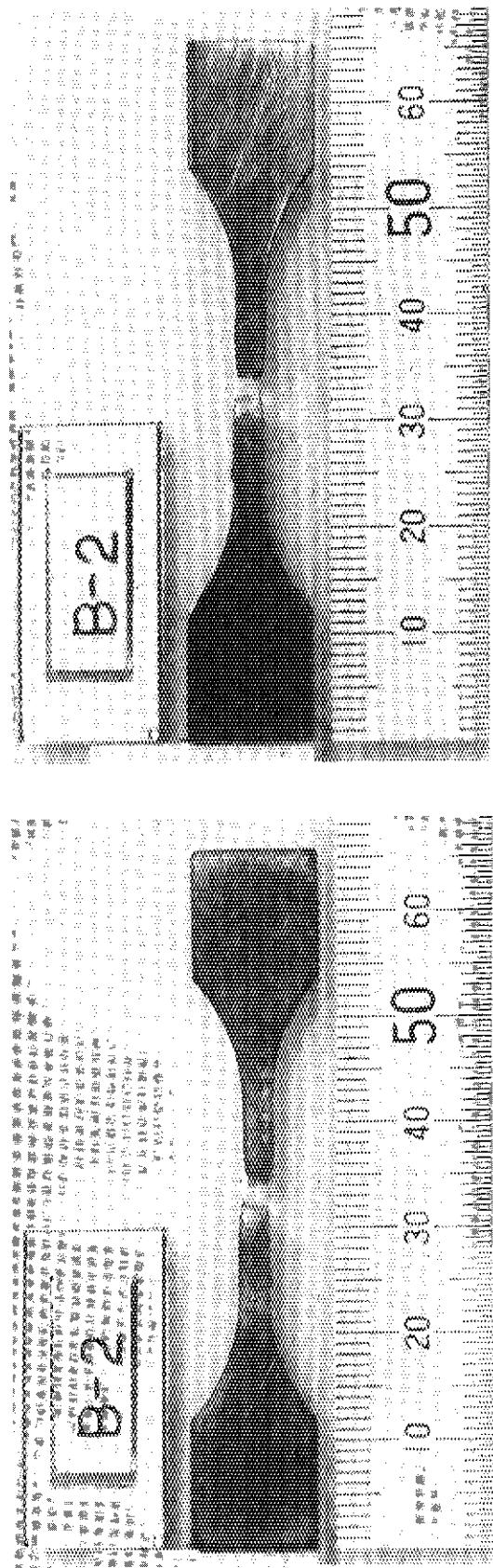


Fig. 26 Macro-photographs of the specimen after SSRT test at 60 °C in water.

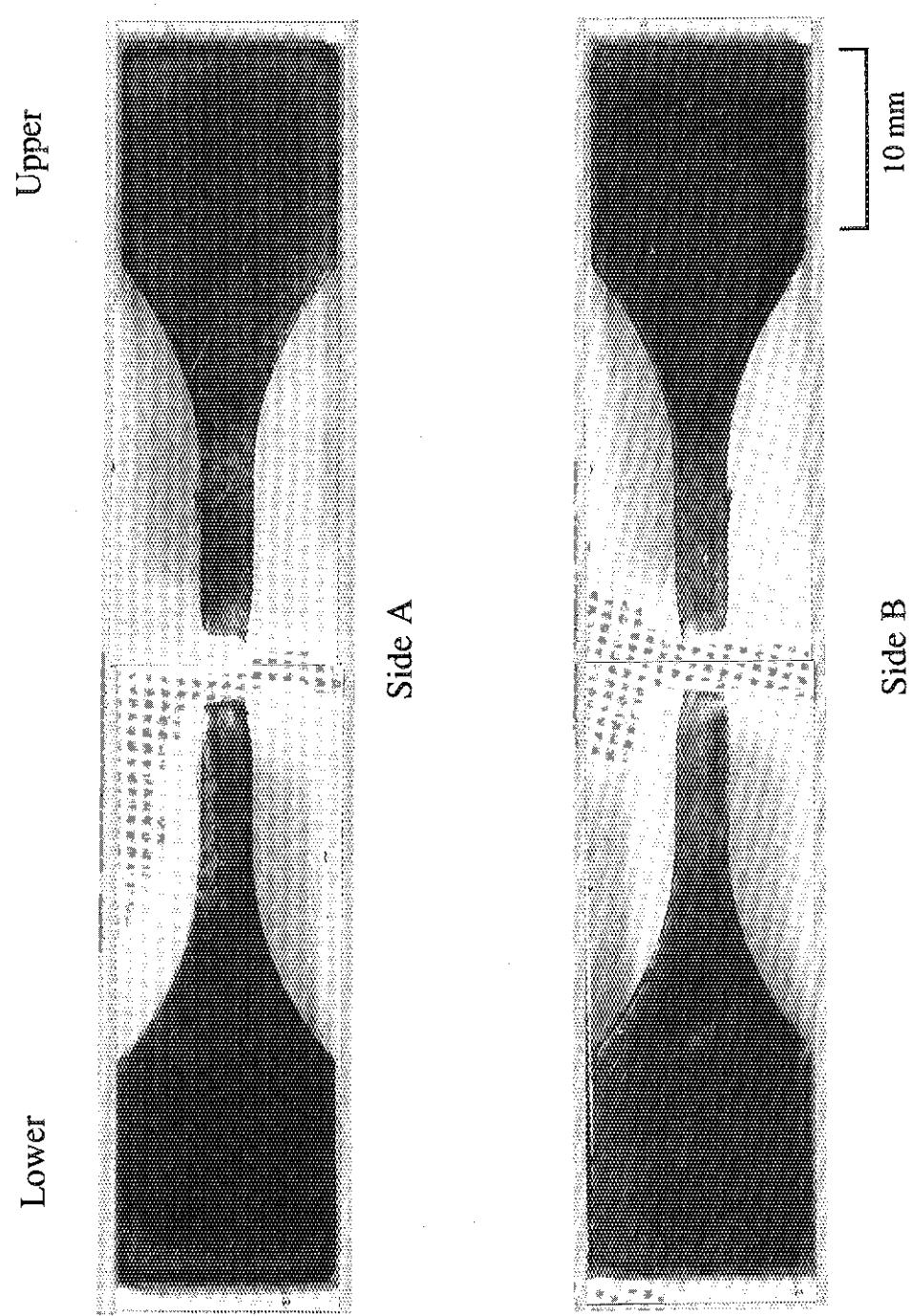


Fig. 27 Specimen B-2 fractured by SSRT test at 60 °C in water.
Both sides of the specimen are shown.

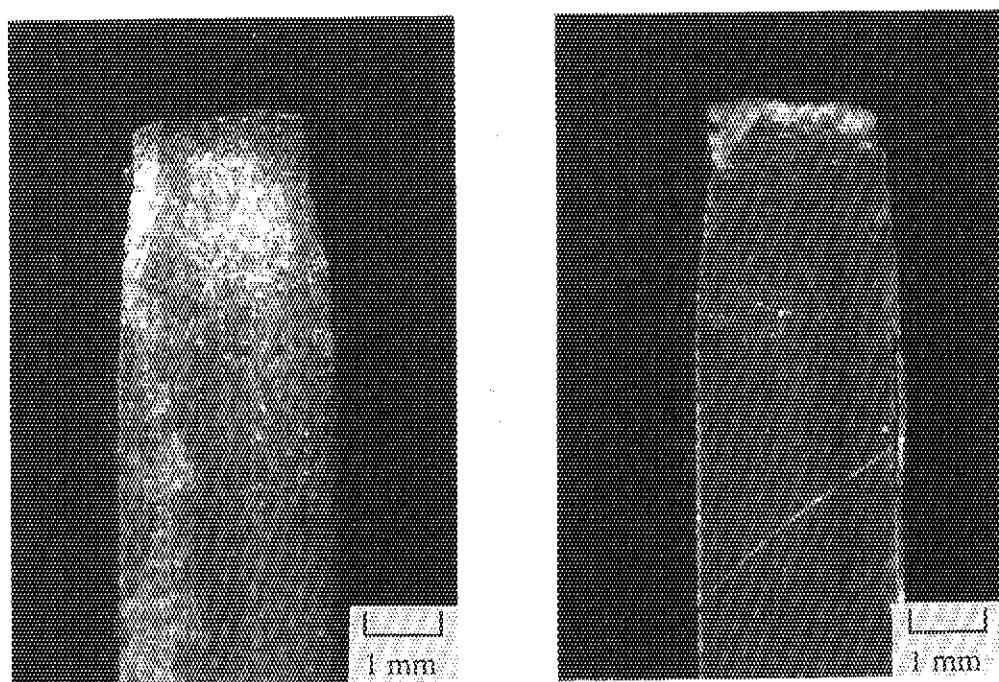


Fig. 28 Fractured part of the specimen B-2.

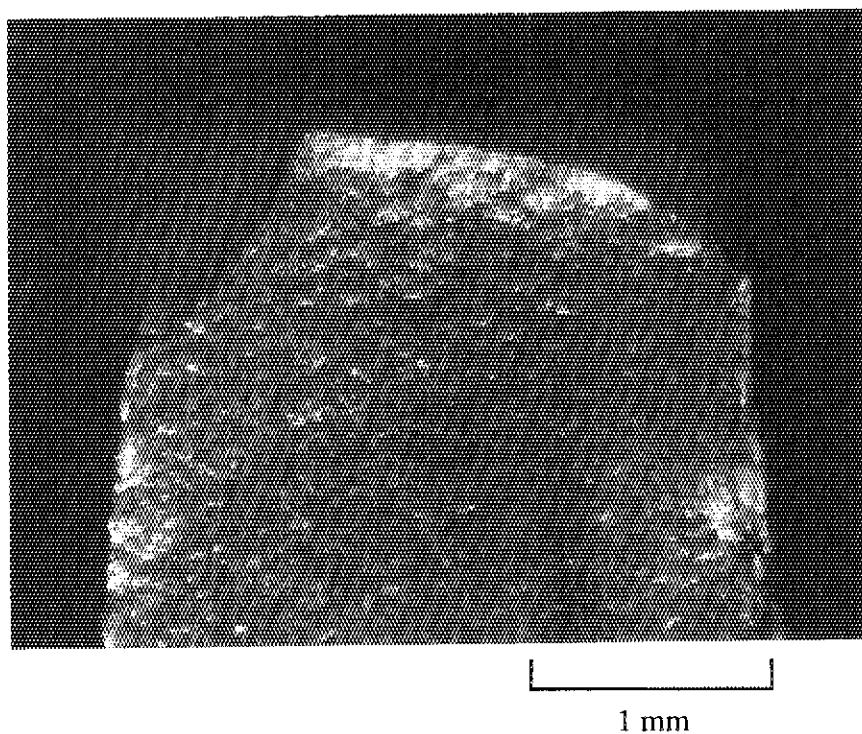


Fig. 29 Magnified photograph of the fractured part.

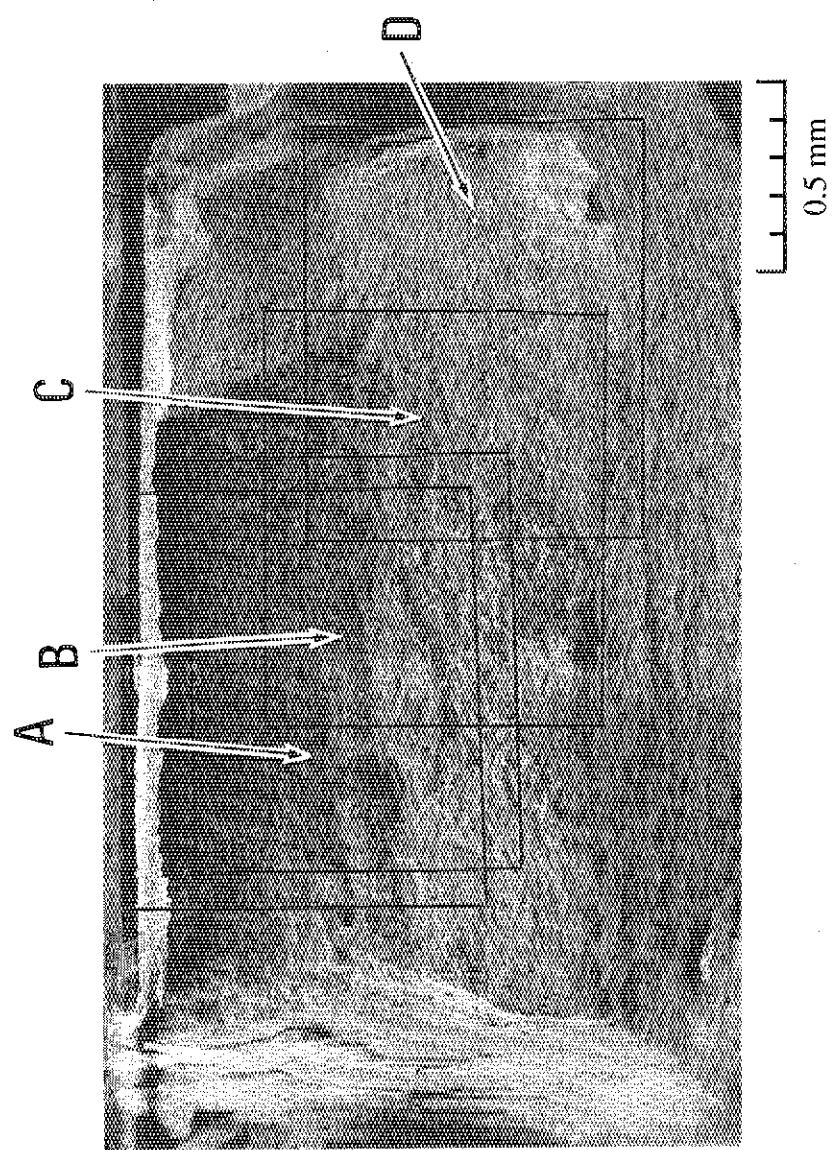


Fig. 30 SEM photograph of the fractured surface of the specimen B-2. Specimen was tested at 60 °C in oxygenated water. Four parts (A-B) are magnified in the following figures.

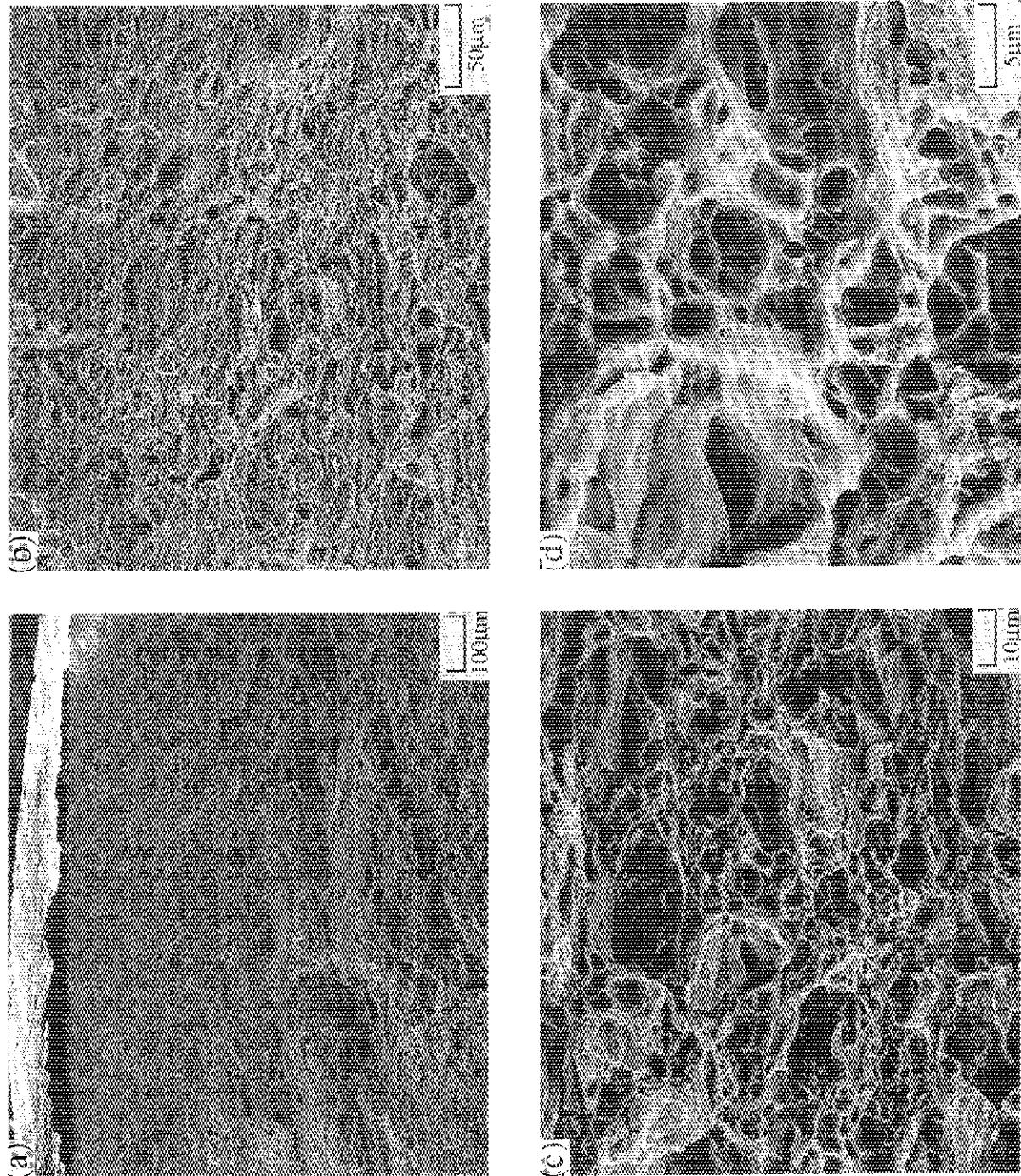


Fig. 31 Magnifications of part A on the specimen B-2. Intergranular fracture is observed.

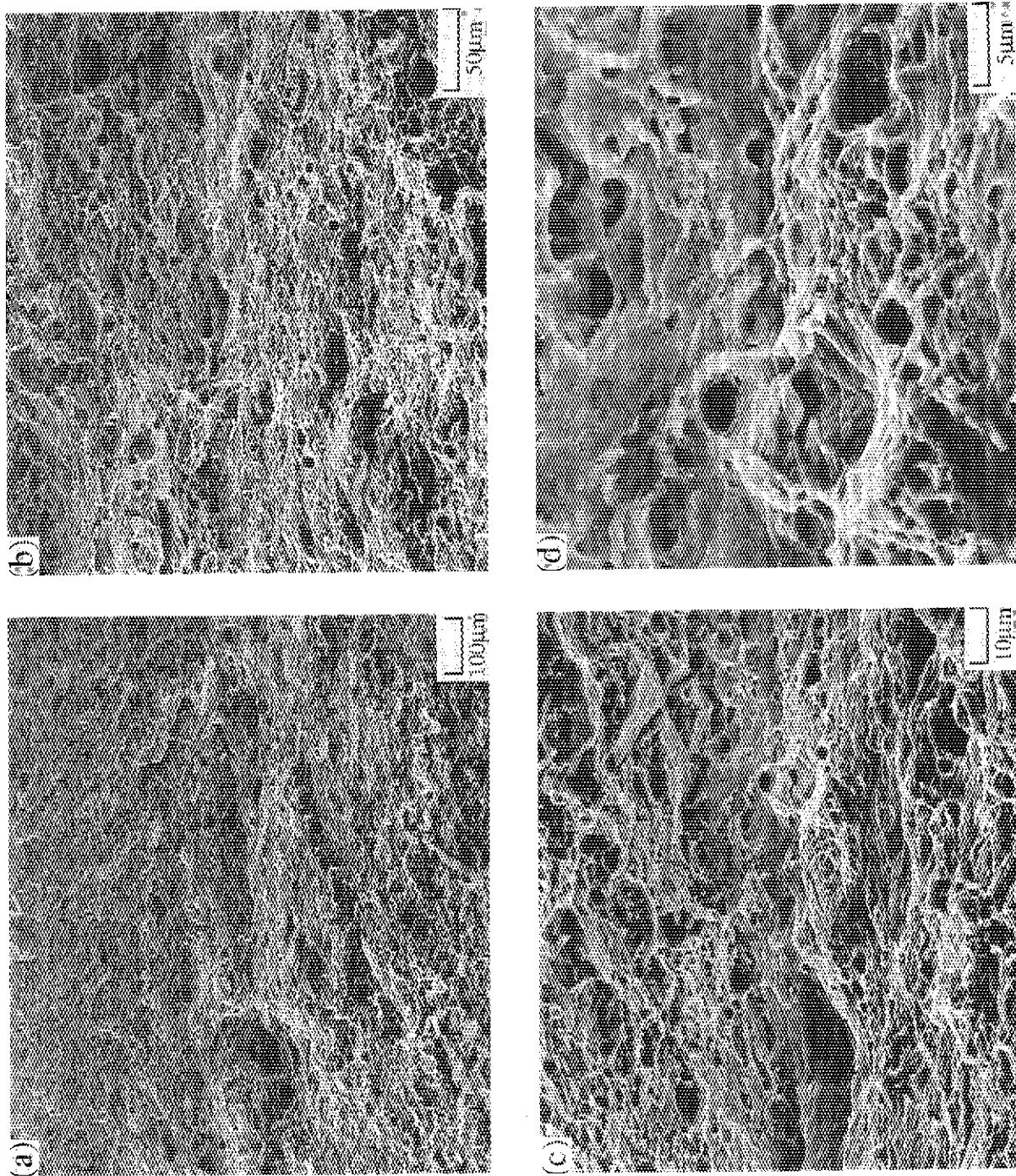


Fig. 32 Magnifications of part B on the specimen B-2.

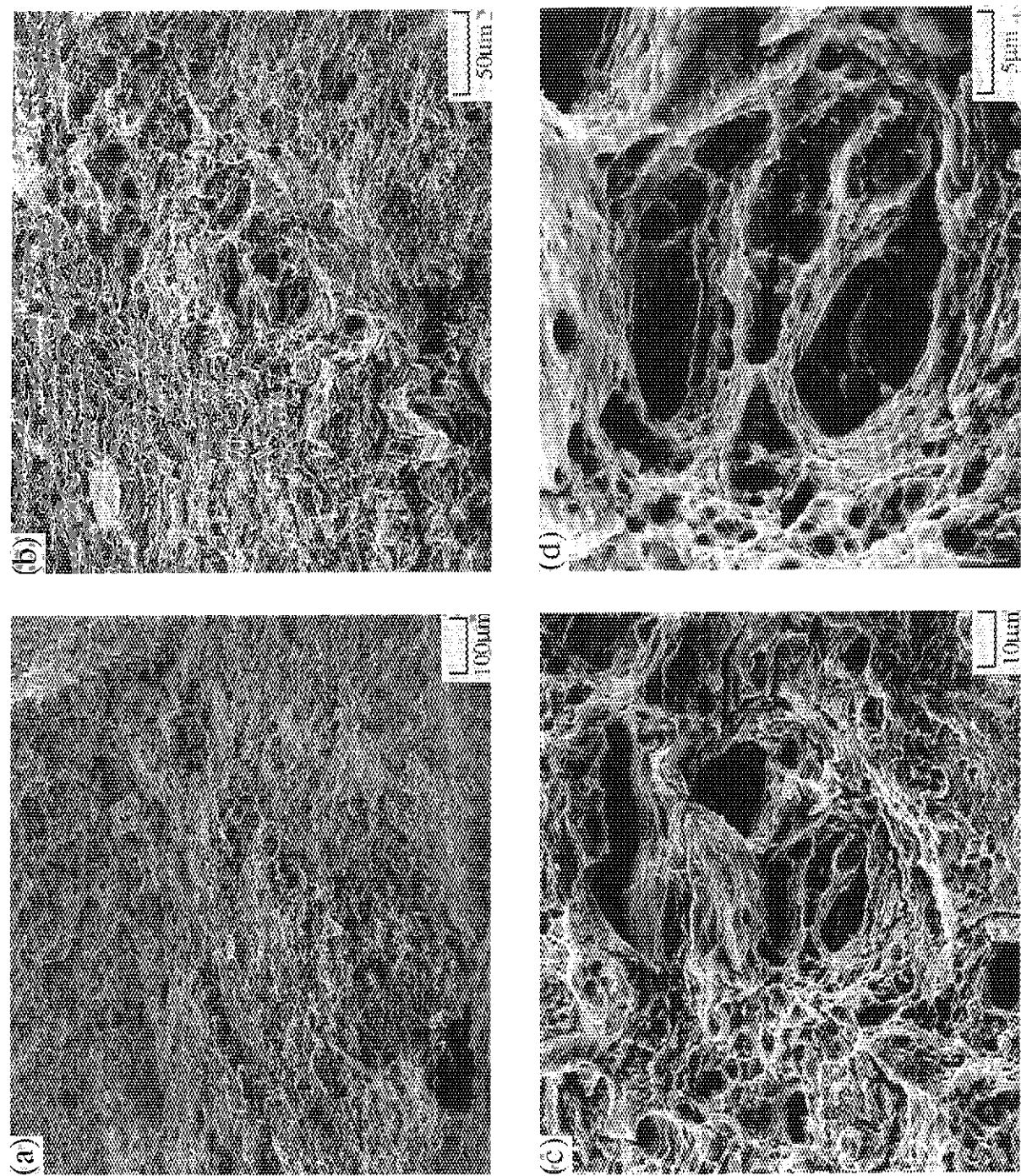


Fig. 33 Magnifications of part C on the specimen B-2.

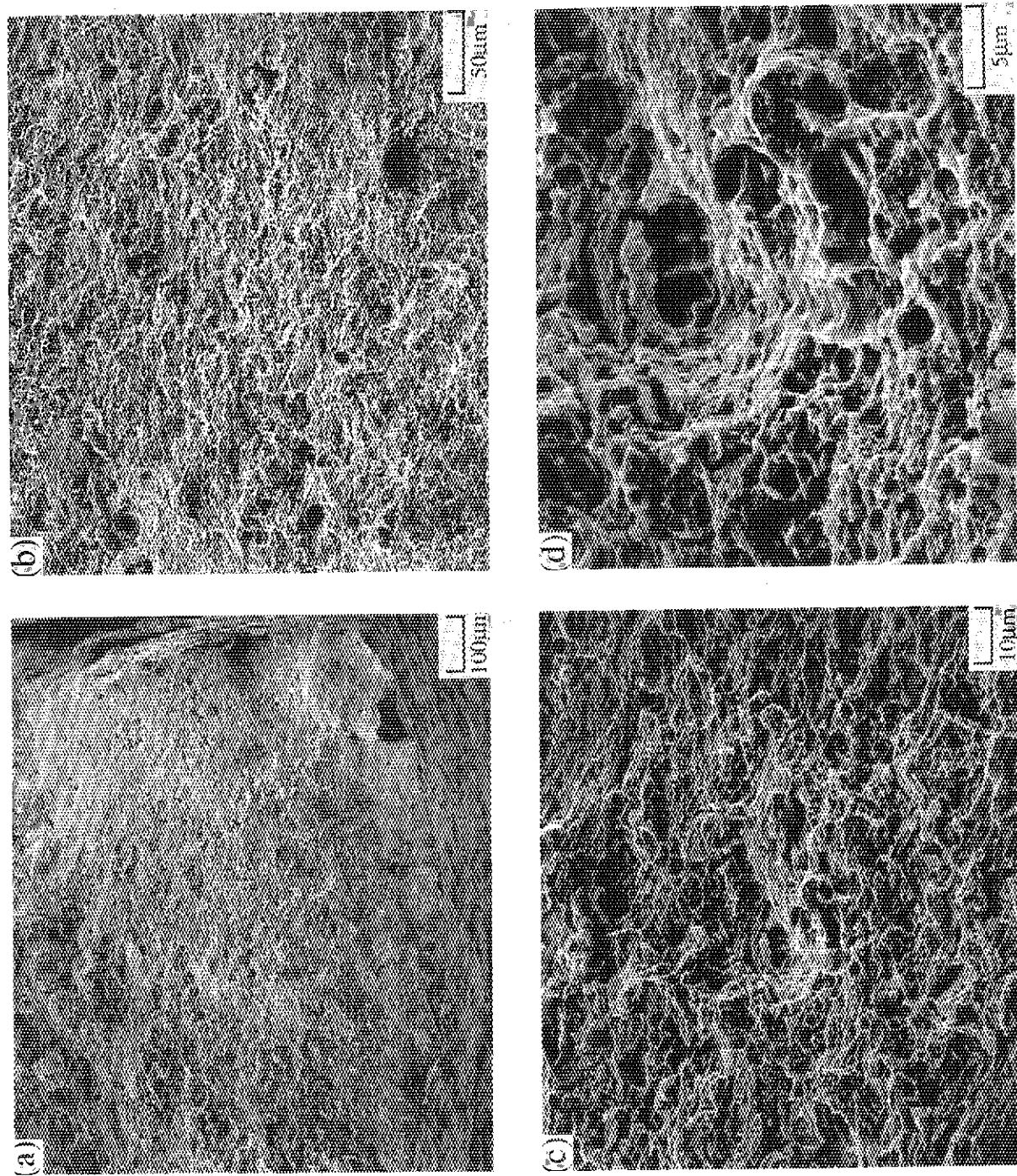


Fig. 34 Magnifications of part D on the specimen B-2.

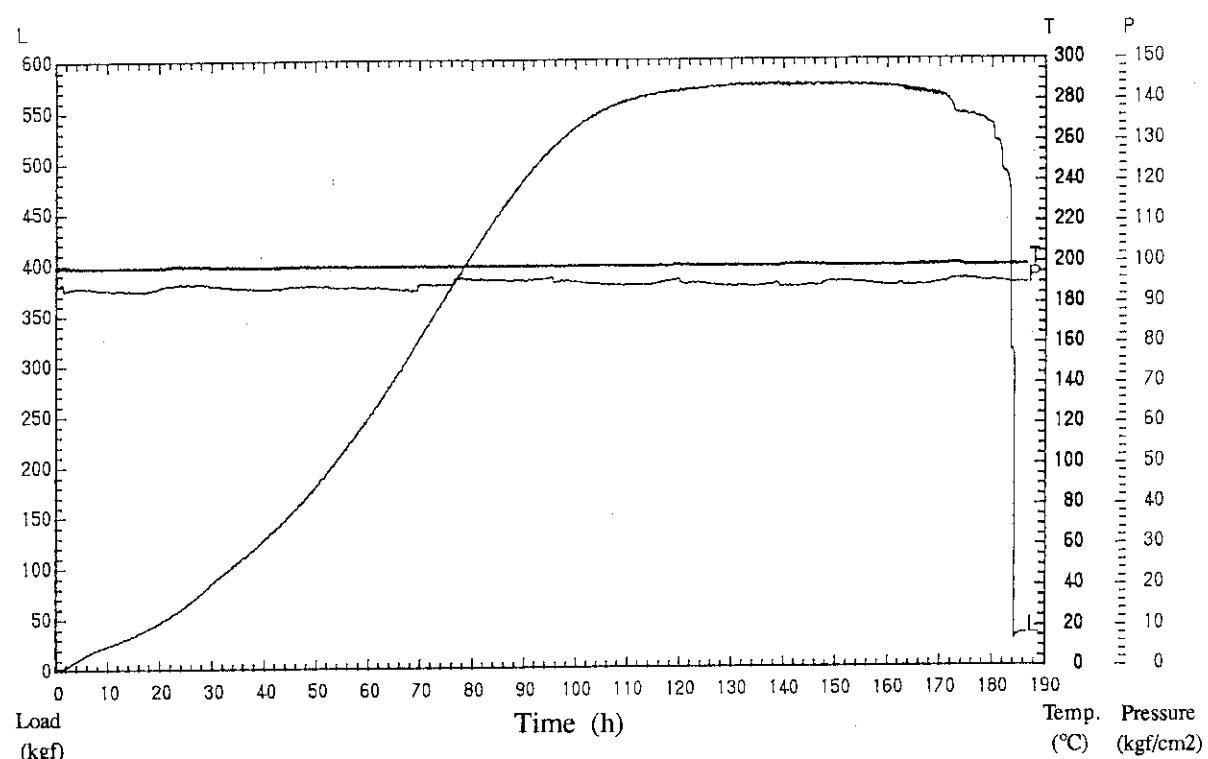


Fig. 35 Load(L), temperature(T) and pressure(P) recorded during SSRT test of the specimen B-3 carried out at 200 °C in the oxygenated water.

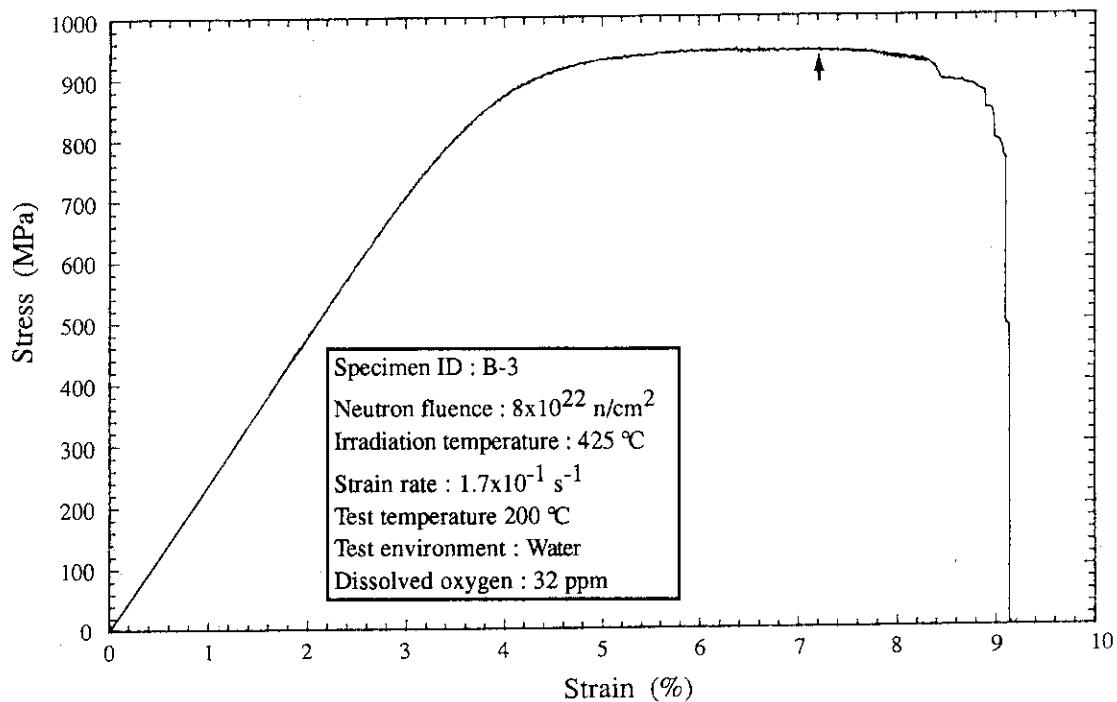


Fig. 36 Stress-strain curve as a result of SSRT test on the specimen B-3 at 200 °C in water. The arrow indicates a strain at the ultimate stress.

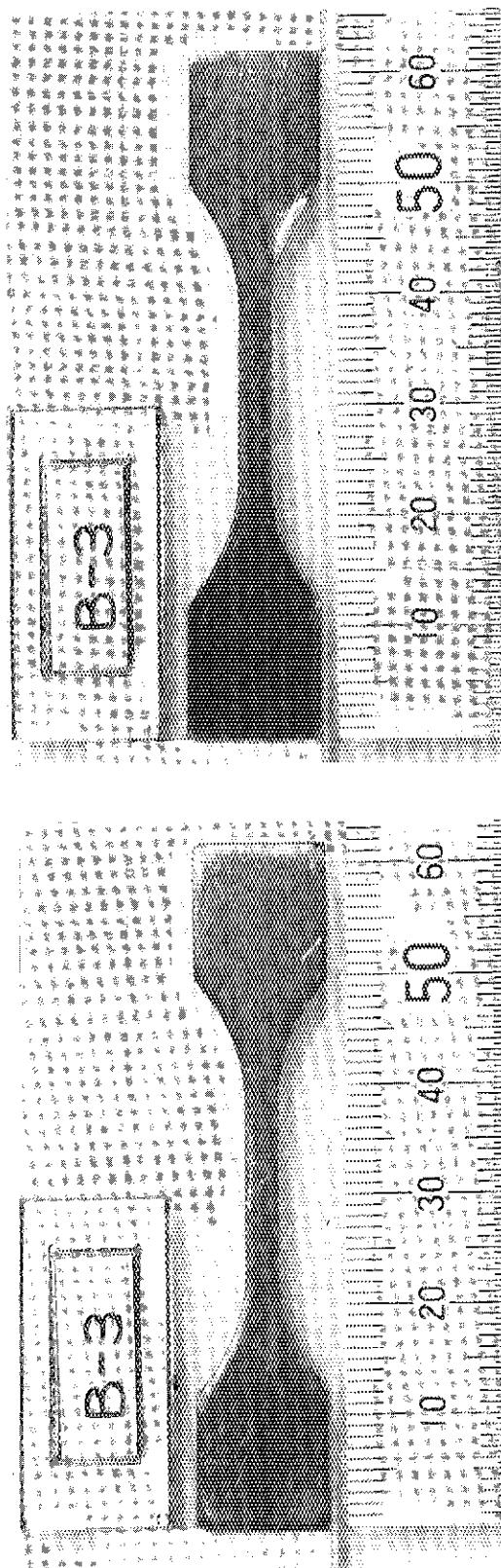


Fig. 37 Macro-photographs of the specimen before SSRT test at 200 °C in water.

Both sides of the specimen are shown.

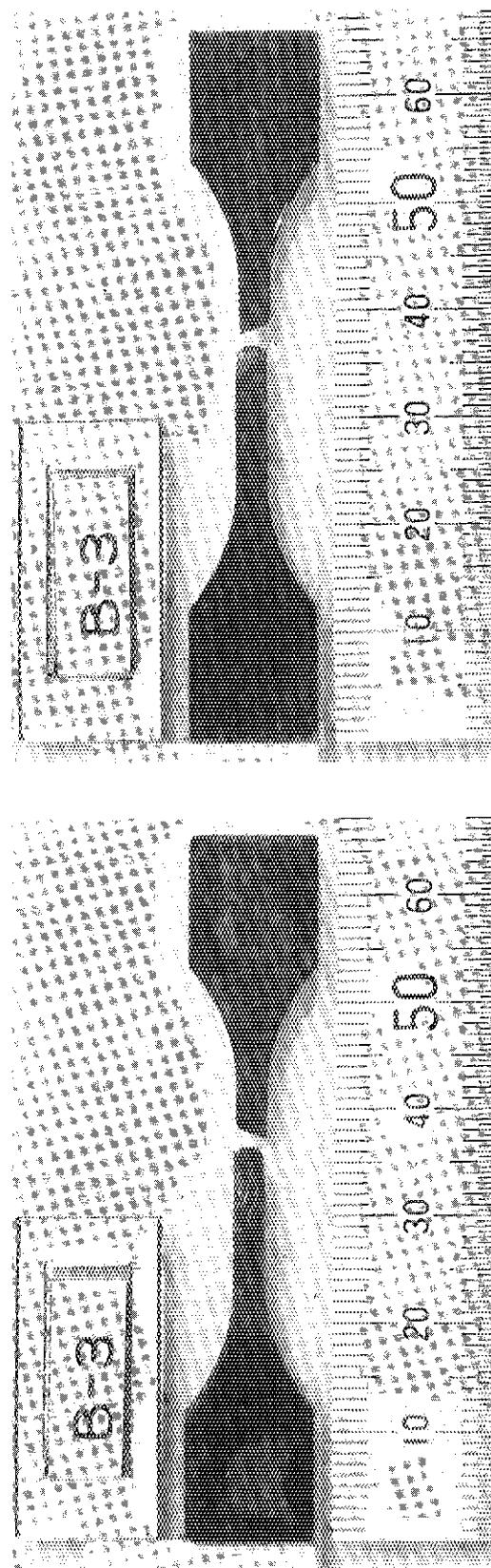
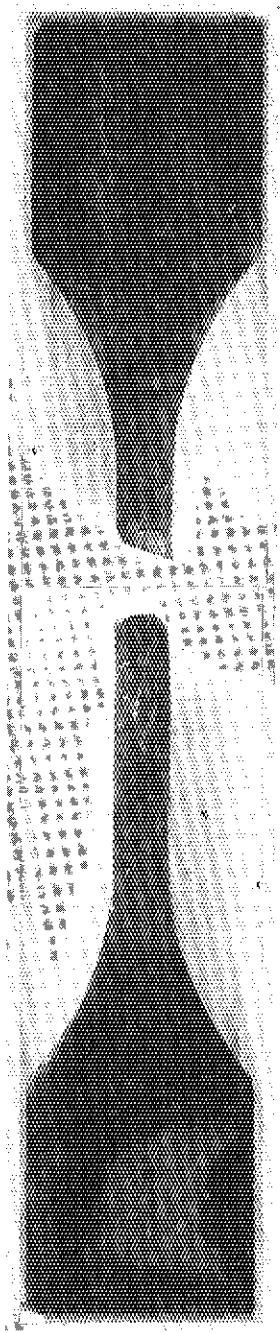


Fig. 38 Macro-photographs of the specimen after SSRT test at 200 °C in water.

Upper

Lower

Side A



10 mm

Side B

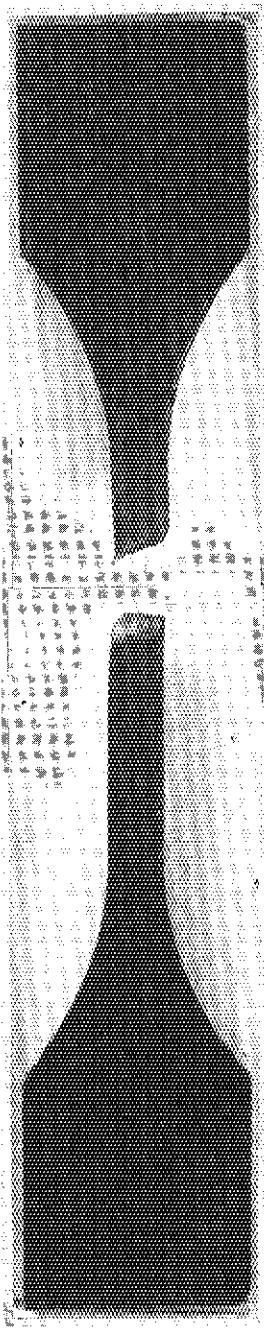


Fig. 39 The specimen B-3 fractured by SSRT test at 200 °C in water.
Both sides of the specimen are shown.

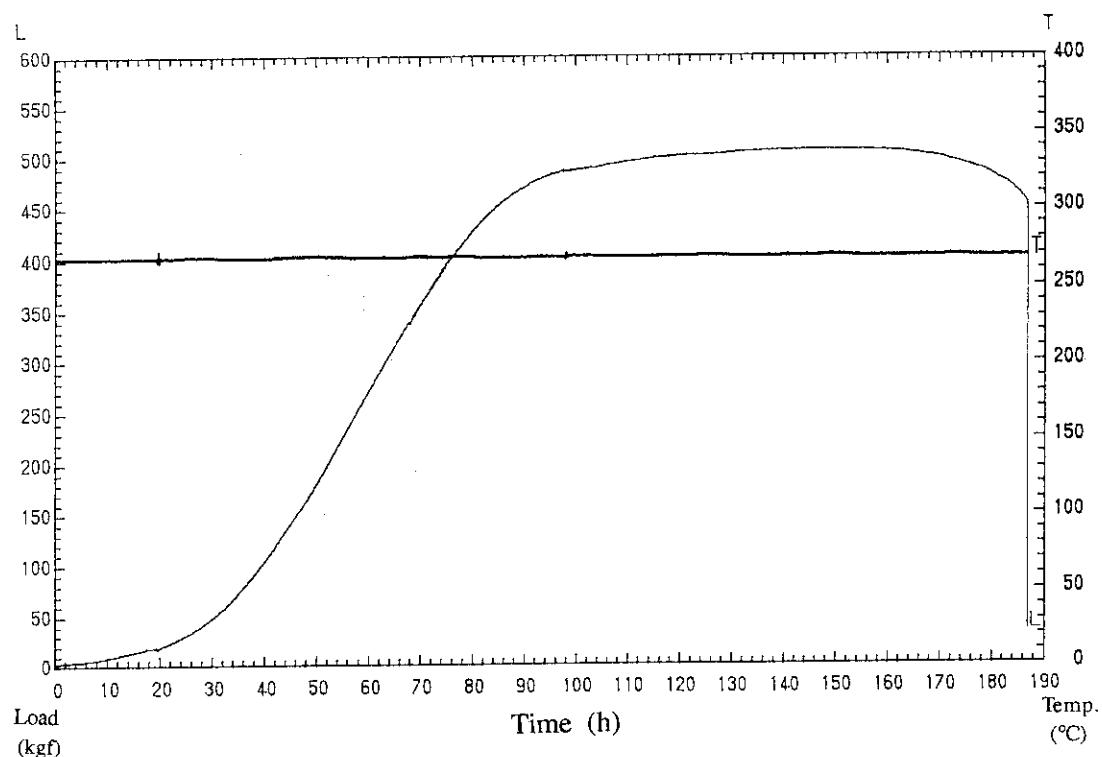


Fig.40 Load (L) and temperature (T) recorded during SSRT test of specimen B-4 carried out at 300 °C in the air.

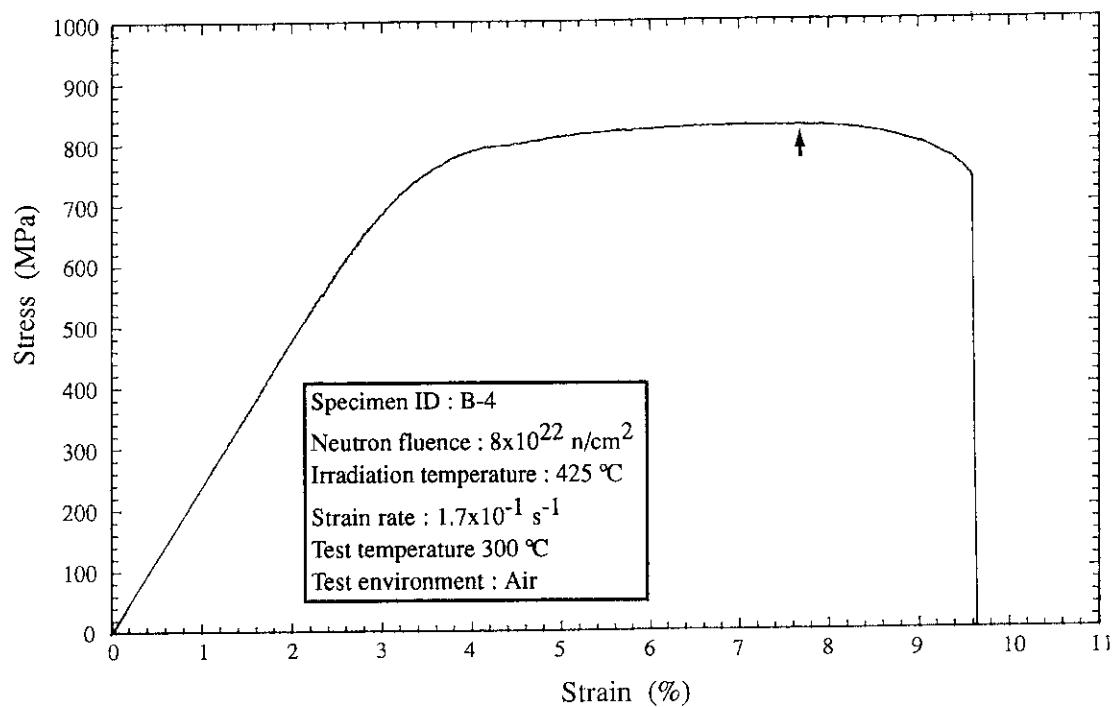


Fig. 41 Stress-strain curve as a result of SSRT test on the specimen B-4 at 300 °C in air. The arrow indicates a strain at the ultimate stress.

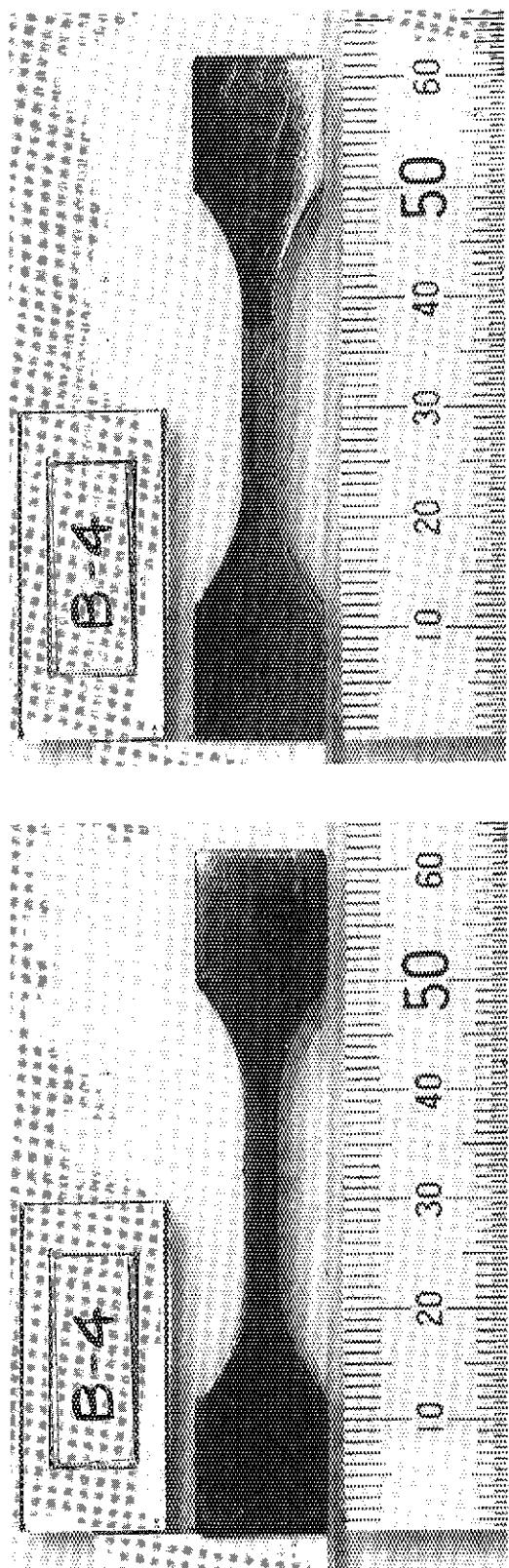


Fig. 42 Macro-photographs of the specimen before the SSRT test at 300 °C in air.
Both sides of the specimen are shown.

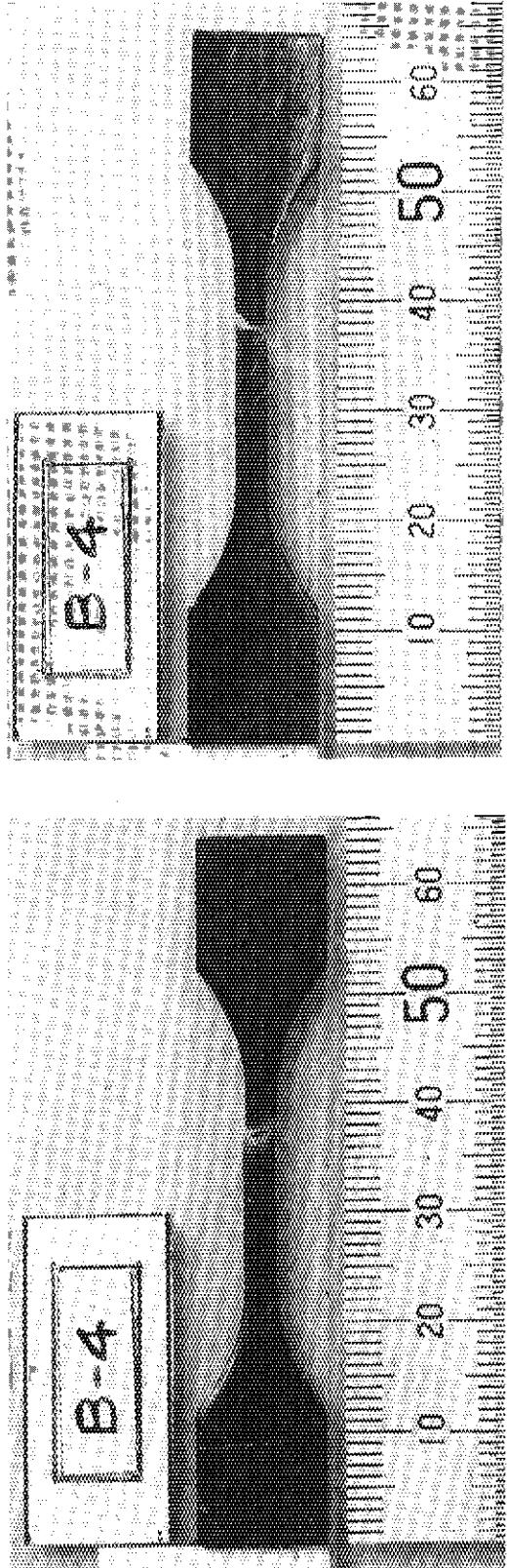


Fig. 43 Macro-photographs of the specimen after the SSRT test at 300 °C in air.

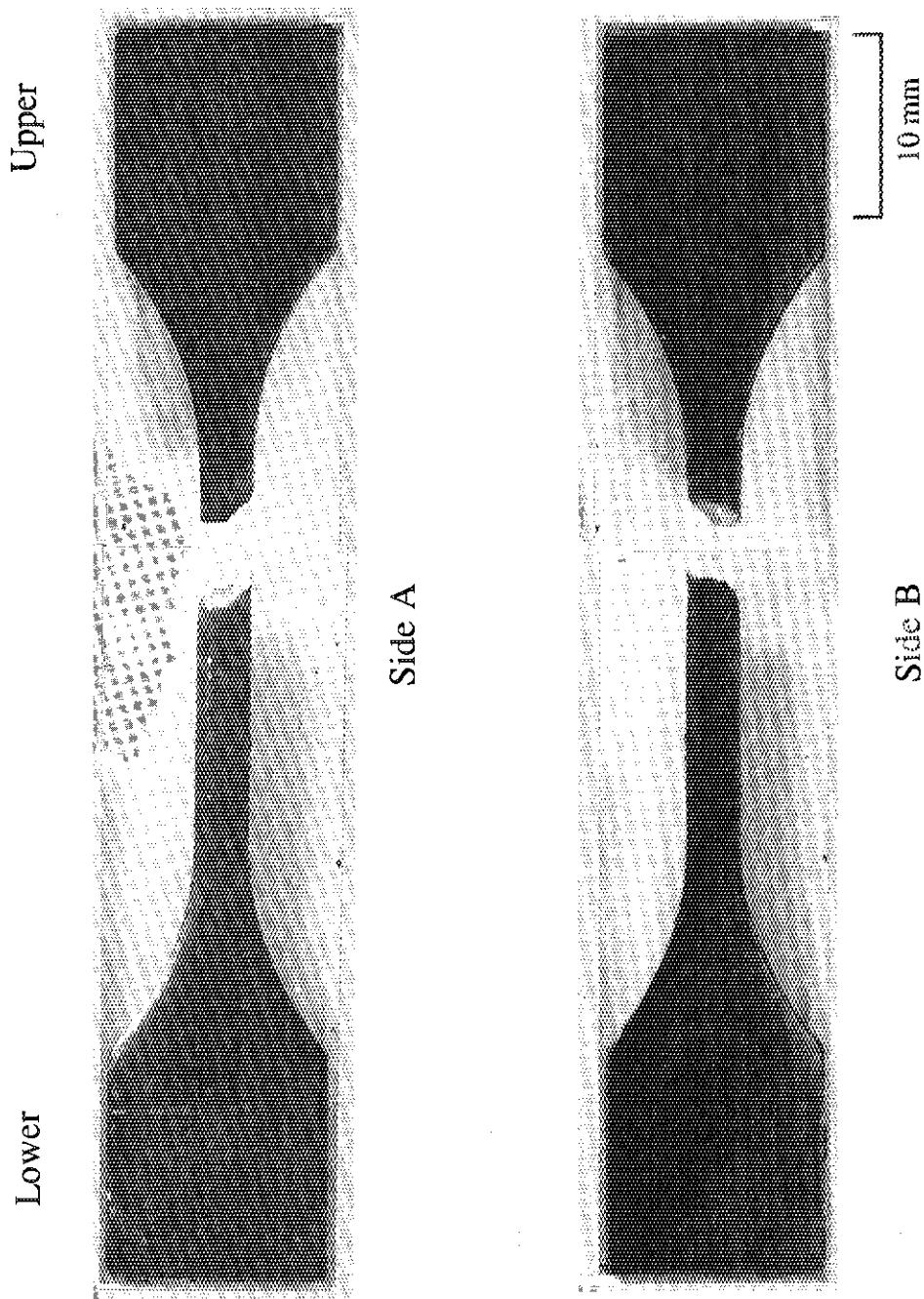


Fig. 44 Specimen B-4 fractured by SSRT test at 300 °C in air.
Both sides of the specimen are shown.

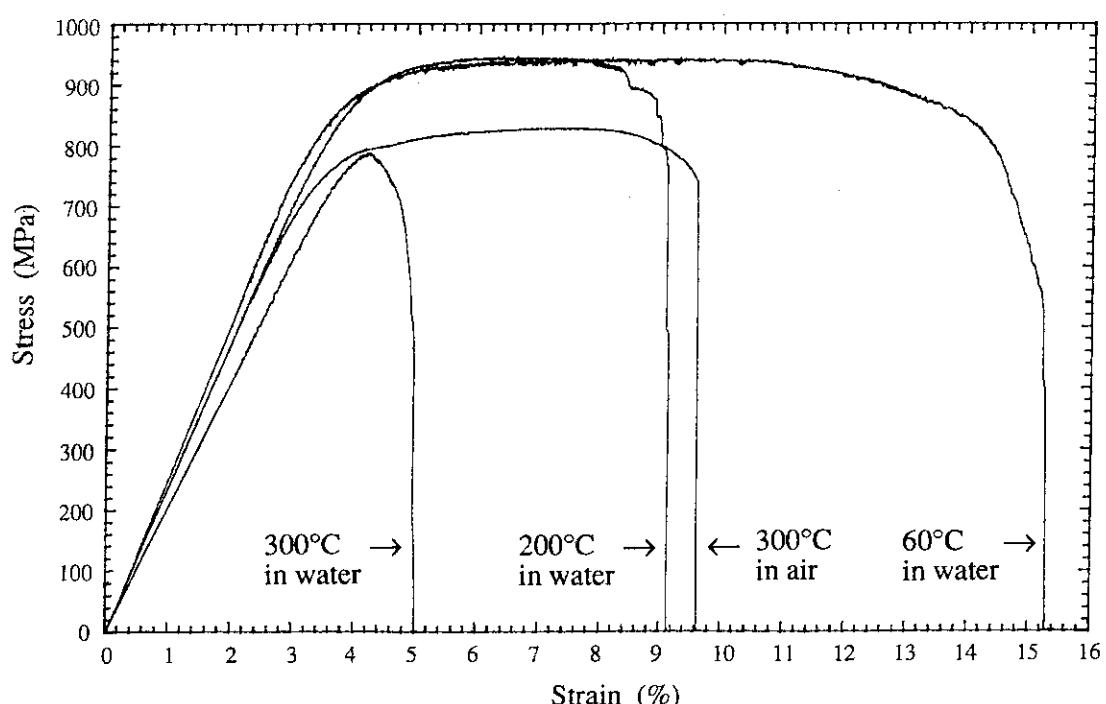


Fig. 45 Stress-strain curves from SSRT tests on the specimens of wrapper tube material irradiated up to $8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) in the experimental FBR "JOYO".