軽水炉用オーステナイト系ステンレス鋼の応力腐食割れ発生・進展メカニズムに関する研究 -高温高圧水 In-situ での基礎実験-

Study on the mechanism of initiation and propagation of stress corrosion cracking of austenitic stainless steels for light water reactors. – fundamental in-situ experiments under high temperature and high pressure water environment-

米澤 利夫[1)]　渡邉 真史[1)]　菖蒲敬久[2)]

Toshio YONEZAWA　Masashi WATANABE　Shobu TAKAHISA

[1)]東北大学　[2)]原子力機構

（要約２～３行）
高圧高温水環境下における軽水炉用材料の「鋭敏化によらない応力腐食割れ」の機構解明のために、複数層からなると思われる表面酸化皮膜の同定と酸化皮膜直下の下地金属の残留応力・ひずみ解析を行うことが必要となる。本課題では大型放射光施設 SPring-8 の BL22XU を使って軽水炉冷却水模擬環境下 In-situ 実験を行うための BL22XU 専用オートクレーブその他の技術開発とテスト計測を行い、改良点を探り出した。

キーワード:鋭敏化によらない応力腐食割れ、軽水炉用材料、オーステナイト系ステンレス、In-situ実験、X線回折

１．目的

近年、軽水炉におけるオーステナイト系ステンレス鋼及び Ni 基合金について「鋭敏化（粒界 Cr 欠乏層生成に伴う粒界近傍での腐食に対する鋭敏化）」によらない応力腐食割れが発見されて以来、そのメカニズムの解明が強く望まれている。本研究グループは、これまでに独自の解析技術により応力・動的ひずみ加速酸化機構がき裂進展の本質である可能性を示し、き裂先端応力場と固体酸化反応、拡散場を練成させた理論式を確立するべく、実験／理論両面にわたる研究を推進中である。

このためには、X 線回折および蛍光 X 線測定による表面酸化被膜の構造やその形成過程の観察、酸化皮膜が母相に及ぼす力学的影響などを彰にすることが必要になる。大抵は、あらかじめ酸化を済ませた試験片を大気中で計測するいわゆる Ex-situ 実験が行われることになるが、Ex-situ 実験単独では実験環境は軽水炉実機とは大きく異なる状態での事後的な解析となってしまい、いわゆる「死体解剖」である点は否めない。結局、高温高圧水中の応力負荷環下での In-situ 実験と対照をしてはじめて信頼にたる議論が可能となると考えられる。そこで、我々はこれまで JAEA の BL22XU で軽水炉冷却水模擬環境下 In-situ 実験を実現するべく準備を進めてきた。本課題では、いよいよ In-situ 実験のための BL22XU 専用オートクレーブの稼働を開始し、In-situ 環境下での実験ノウハウの蓄積や装置の改良を行うための、基本的な測定を行うこととした。

２．方法

まず、事前に約 1 年の期間を費やし、技術的検討と設計・建造を行った BL22XU 専用オートクレーブを SPring-8 に搬入し、オフラインで稼働テストを行い、温度、圧力、引っ張り応力、周囲への熱的影響などが想定通りであることを確認した。続いて、オートクレーブを搭載する水平振り 4 軸回折計と現物あわせを行い、アダプター治具のサイズ修正などを行った。

次に、テスト計測のために、これまでの Ex-situ 実験用の試験片と同様に実験室で２週間程度酸化を済ませた試験片を用いて、室温でオートクレーブ中の酸化皮膜からの X 線回折実

験を試み、狭い視野しかないオートクレーブの試験片のセンタリングの方法、ダイヤモンド窓材や高圧水による吸収や散乱によるノイズの影響、X 線集光の効果など必要な計測条件について試行錯誤を行い調査した。オートクレーブが大型のため 4 軸回折計の内、ϕ 軸を含む χ クレードルを取り外し、実質的に 2 軸回折計として用いている。

さらに、BL22XU 専用オートクレーブ内に新しい試験片をセットし、500 時間ほど酸化した後、高温高圧水中引っ張り応力負荷環境（288° C, 8.9 MPa, 0.32kN）での X 線回折テストを行った。

３．研究成果

Fig.1 に、室温での酸化皮膜からの回折プロファイルを示した。集光を行わない条件ときにはオートクレーブ内の水中では、弱いピークが検出不能になり、また、試験片の計測対象となる試験片平坦部の広さと入射 X 線のフットプリントの大きさの関係で入射角 8° のときだけ他の入射角のデータと強度に系統性が見られなかった。(Fig.1(b))　得られたプロファイルを参考に Be レンズアレイを用いて適切に集光すると、S/N 比を向上させることができ、弱いピークも含めて系統的に入射角依存性（深さ依存性）を計測できることがわかった。

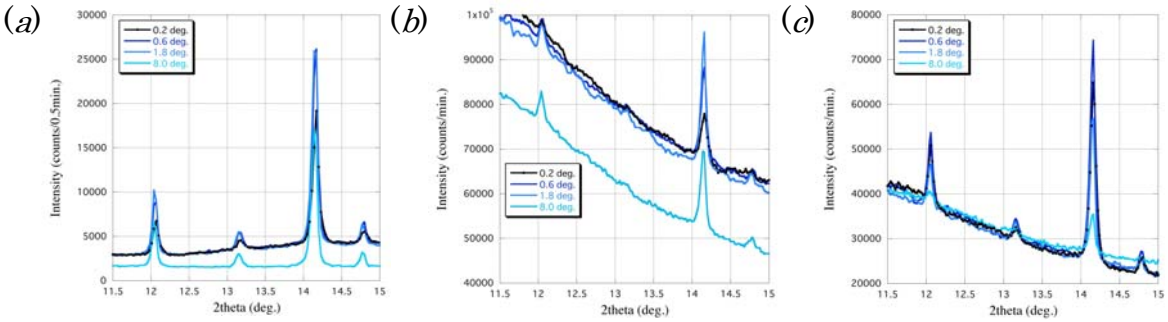

Fig. 1. 室温のオートクレーブ内の試験片表面酸化物からの X 回折プロファイル. (*a*) オートクレーブの蓋を閉じず、上流側ダイヤモンド窓１枚だけを透過した状態でのプロファイル。(*b*) ダイヤモンド窓２枚とオートクレーブ内の水を透過した状態で計測したプロファイル。(*c*) 集光した入射ビームを用いて、ダイヤモンド窓２枚とオートクレーブ内の水を透過した状態で計測したプロファイル。

また、高温高圧水中での実験では、オートクレーブの温度が 270℃以上になると 100μm 程度の幅で試験片が数秒程度の周期で不規則に揺れることがわかった。その後の検討の結果、この不規則な試験片の振動は、引張り応力負荷軸と、オートクレーブの壁の間隔が狭いところでの高温水の対流の影響によるものであることが判明した。これについては既にオートクレーブの修正改良を済ませ、振動が数ミクロン以下まで抑制できることを 2009B 期の実験で確認しており、対策済みである。

４．結論・考察

In-situ 実験に必要な BL22XU 専用オートクレーブを開発し、その運用テストを行った。テスト中、実験ノウハウや不具合などを洗い出し、対策を講じるとことで試験片表面の酸化皮膜に関する X 線回折実験の実行に目処をつけることができた。今後、さらに新たな集光レンズの導入など手法の最適化を行いつつ、オーステナイト系ステンレス鋼を試験片として本格的な計測を重ねていく予定である。