

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の メカニズムに関する研究-高温高压水 In-situ 環境下実験-

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

米澤 利夫¹⁾

Toshio YONEZAWA

渡邊 真史¹⁾

Masashi WATANABE

菖蒲 敬久²⁾

Shobu TAKAHISA

¹⁾東北大学 ²⁾原子力機構

(要約 2～3 行)

軽水炉用一次冷却水環境下における「鋭敏化によらない応力腐食割れ」の機構解明のためには、複数層からなるとされる表面酸化皮膜の状態等を実験的に解明することが強く望まれる。本課題では、2009年春までに新たに開発したオートクレーブと BL22XU の設備を使って In-situ テスト計測を行い、予備的な結果を得ることに成功した。

キーワード :

鋭敏化、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

オーステナイト系ステンレス鋼及び Ni 基合金は、その名の通り、通常の大気中環境では腐食を生じにくいことで知られているが、原子力発電に用いられる軽水炉の一次冷却水環境下では高温高压水中での応力腐食割れが生じる事がある。その機構としては、これまで「鋭敏化」、すなわち、粒界での Cr 炭化物の生成とその周辺領域での Cr 欠乏層生成に伴う粒界腐食がよく調べられ、材料の改良が進められてきた。しかしながら、近年、軽水炉においてこの鋭敏化によらない応力腐食割れが発見され、それ以来、そのメカニズムについて強い関心が寄せられている。我々は、これまでに研究グループ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してきた。

実験面での研究の更なる進展のためには、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。このためには、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 実験の方が、計測は用意である。しかし、そのような Ex-situ 実験単独では、軽水炉一次冷却水環境下とは大きく異なる状態での事後的な解析となってしまう、腐食割れが起きる環境下で実際にどのような事が起きているかを直接知ることはできない。そのため、どうしても高温高压水中の応力負荷環境下での In-situ 実験を行い、Ex-situ 実験と対照することは不可欠となる。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 BL22XU 専用オートクレーブの開発し、本研究課題では、実験ノウハウの蓄積や装置の改良を行いつつ、テスト計測を行ってきた。本稿では、その結果について報告する。

2. 方法

実験には、BL22XU の水平振り 4 軸回折計を用い、4 軸のうち、 χ クレイドルと ϕ 軸を撤去した後、 ω 軸ステージ上に x y 並進ステージを増設した上で、専用オートクレーブを搭載し

て使用した。入射 X 線のエネルギーは 20keV とし、これをミラーで集光したあと、ビームサイズを発散スリットで $50 \times 1000 \mu\text{m}^2$ 程度に制限して使用している。ビームサイズはノッチ付き試験片のノッチ底部に設けられた平面部のサイズ、および、入射角に応じて適宜調整した。専用オートクレーブ内部には、0.3kN 程度の引張り応力が負荷されたノッチ付きの試験片が納められ、沸騰水型原子炉の一次冷却水が循環するようになっている。入射 X 線は専用オートクレーブの上流側に設けられた人工ダイヤモンド製の窓を通じて、試験片により回折された後、下流側人工ダイヤモンド製窓から出射し、 2θ アーム状の 2 段組の受光スリットの後設けられたディテクタで計測される。 ω 軸を調整することにより、試験片表面への X 線入射角を変えることができ、これにより X 線の試験片への侵入深さを変化させている。本研究課題では、オートクレーブ内部の循環高温高圧水は沸騰水型原子炉の一次冷却水を模擬したものになるように、水質と温度を管理した。

3. 研究成果

本課題以前に、オートクレーブ内部の水の循環・対流の影響で試験片の位置が $100 \mu\text{m}$ 程度周期的に振動することが見いだされ、対策を施し、数ミクロン程度以下にまで振動を減少させることに成功した。これを踏まえて、本課題ではビームサイズをより細い $50 \times 1000 \mu\text{m}^2$ 程度にまで絞って、計測を試みた。不必要な水による散乱ノイズを避けるためには、ビームサイズは試験片の測定部のサイズにより近い方が望ましく、浅い入射角の時にはよりビームを細くする必要があるためである。その結果、毎回ではないが時により、強度が時間に依存して振動する現象を再び確認した。その振動幅の一部は、光学系のゆらぎをフィードバックにより抑制する MOSTAB プログラムにより効果的に取り除くことができることが判明したが、なお、 $5 \mu\text{m}$ 程度の位置の揺れに換算される周期的強度変動が観測された。これらの強度振動は、回折 X 線のスキャン速度によっては、回折ピークと誤認する可能性があるので取り除く必要がある。前回改善したところに加え、さらに引張り応力負荷軸の周囲だけ水の対流を抑制するための対策を施すこととした。

本課題における、数百時間、一次冷却水模擬環境下に浸漬した試験片に対する予備的な In-situ 計測によって、結晶系の全く異なる 2 種類の表面酸化物の存在を確認することができ、これらの間にハッキリとした積層構造は認められないことや、大気中と In-situ では 2 種類の酸化物の間での強度比に変動が起きる場合があることなどが観測された。しかしながら、本課題期間中にはオートクレーブ内部の予備酸化運転や一部の改良や、測定条件の最適化なども併せて行われたためか、結果には試験片依存性が認められ、系統性や再現性の確認が必要な状況である。

4. 結論・考察

大気中と In-situ では 2 種類の酸化物の間での強度比に変動は、大気中と軽水炉一次冷却水中では一部の酸化物の安定性に違いがあることを示唆しており、軽水炉一次冷却水中での実際の酸化物の様態を考察上で非常に興味深い。しかしながら、水中での観測は、水による X 線散乱にともなう大きなノイズの影響があることや、今回の装置に改良を加えながらの予備的な測定では必ずしも毎回結果が再現しないこと等を鑑みるに、高温高圧水中での酸化環境をより厳密にコントロールした実験条件での計測などを、今後の本測定で継続していく必要があると思われる。