

課題番号 :2015A-E19

利用課題名（日本語） :Ni 基合金および溶接用材料などの表面酸化皮膜に軽水炉一次冷却水中の溶存水素等の水化学環境の変動が与える影響についての高温高压水中 In-situ 実験

Program Title (English) :In-situ XRD experiments on the effects of transient dissolved hydrogen concentration on the surface oxide on Ni based weld alloy in the simulated primary water of light water reactor.

利用者名(日本語) :渡邊 真史¹⁾,米澤 利夫¹⁾,庄子 哲雄¹⁾, 菖蒲 敬久²⁾, 城 鮎美²⁾

Username (English) :Toshio YONEZAWA¹⁾, Masashi WATANABE¹⁾, Tetsuo SHOJI¹⁾, TAKAHISA Shobu²⁾, AYUMI Shiro²⁾

所属名(日本語) :1)東北大学, 2) 日本原子力研究開発機構

Affiliation (English) :1) Tohoku University, 2) JAEA

キーワード：非鋭敏化、軽水炉一次冷却水、応力腐食割れ、軽水炉用構造材料、Ni 基合金、In-situ 実験、X 線回折、溶存水素、溶存酸素

1. 概要 (Summary)

現在、我が国では軽水炉プラントの再稼働が始まりつつあり、これまでも増してプラント寿命末期までの安全性・信頼性確保に疑念が生じる事がないようにしていく必要があると考えられている。そのためには各種運転環境下における経年変化過程を学術的な知見に基づいて科学的に解明していくことが不可欠となる。特に、軽水炉一次冷却水環境下での「鋭敏化 (Cr 欠乏領域の形成) に起因しない応力腐食割れ」のメカニズム解明は最重課題の一つとして考えられている。このため当研究グループでは、割れ発生に先立つ表面酸化皮膜の形成が水化学環境に応じてどのように変化するかに関して実験を重ねてきた。本課題ではその一環として、加圧水型軽水炉一次系模擬環境中で溶存水素濃度、溶存酸素濃度を過渡的に変化させた場合に数十時間程度の時間スケールで Ni 基の溶接用合金である 52 合金上の酸化皮膜の性状に生じるかについて高温高压水中 X 線回折で調べた。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

本課題のために CT タイプの薄型の試験片 (厚さ 3mm) を Ni 基溶接用 52 合金を用いて作成した。あらかじめ本試験片を加圧水型軽水炉一次冷却水環境を模擬できる放射光実験用専用オートクレーブ (人工ダイヤモンド製の窓付) に 約一ヶ月程度浸漬し、測定に際しては回折計上にオートクレーブを移動し高温高压水中に浸漬したまま X 線回折測定を行っている。この CT 試験片のノッチ底部には 3 x 3mm² の平面部分が作られており、この部分に X 線侵入長を変化させながら照射することにより X 線回折実験を行った。入射 X 線は発散スリットによって上下方向幅約 500 μm に制限した 20 keV のビームを用いた。ビームの左右方向の幅は、50~300 μm の範囲で試験片への入射角に応じて調整して使用している。測定は、まず溶存水素濃度を DH: 30 cc/kg(H₂O) とした状態で測定を行い、次に、溶存水素濃度を下げつつ酸素濃度を 7-9 ppm 程度に上昇させ、その後の X 線回折ピークの時間変化を調べた。測定対象の回折線はスピネル系酸化物の 113 反射と NiO の 111 ピークの互いに隣り合う反射とした。NiO

の 111 ピークにはスピネル系酸化物の 222 ピークが重畳しているが、スピネル系酸化物の 222 ピークは 113 ピークの 1/5 程度しかない。スピネルと同等量以上の NiO がもしも成長すれば、NiO の 111 ピークはスピネル系酸化物の 113 ピークと同等以上の強度まで増大するはずである。実際、以前の課題で測定した Ni 基合金の 600 合金ではほぼ同様の実験では NiO が急速に成長することが観測されている。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

まず溶存水素濃度 30 cc/kg(H₂O) の状態で計測を行った結果、222 ピーク位置の強度は 113 ピークの 1/5 以下の強度であり、この位置に強い NiO 1 1 1 反射が重畳しているとは考えられない。これまでの他の Ni 基合金同様、溶存水素濃度 30 cc/kg(H₂O) の条件下では NiO は存在しないのではないかと推察される。スピネル系酸化物 113 ピークは若干のノイズの影響はあるものの全体としては非対称であり、これは Ni, Fe, Cr の含有比が異なる複数のスピネル系酸化物によって酸化皮膜が構成されていることを示唆している。次に、溶存水素濃度を下げ、溶存酸素濃度を 7-9 ppm に上昇させた状態にして 8 時間程度続けて観測した。約 8 時間後の観測でも NiO の 111 ピークの回折位置での強度増大は認められなかった。これは Ni 基合金では、溶存酸素濃度を上昇させた場合に Cr 含有量が NiO の生成に強く影響するという推測を裏付ける結果となっている。なお、溶存酸素濃度が高い状態での時間変化でスピネル系酸化物の 113 ピークのピークプロファイルに変化が生じているようにも見える。今後、この点に注目して再現性を確認すると共に詳細を明らかにしていく必要がある。

4. その他・特記事項 (Others)

なし。