中性子照射したオーステナイトステンレス鋼の 高温高压水中での粒界割れ感受性*

仲田 清智** 吉田 寿美** 正岡 功**
斎藤 隆*** A.J.Jacobs**** G.P.Wozadlo****

Susceptibility to Intergranular Cracking in Pressurized High Temperature Water
in Neutron-Irradiated Austenitic Stainless Steels

Kiyotomo Nakata**, Toshimi Yoshida**, Isao Masaoka**,
Takashi Saito***, A.J.Jacobs**** and G.P.Wozadlo****

Keywords: *intergranular cracking, neutron irradiation, austenitic stainless steel,
slow strain rate tensile test, high temperature water*

オーステナイトステンレス鋼の溶接熱影響部などでは、高温水中で粒界型応力腐食割れの発生することは良く知られている。これは、結晶粒界に沿ったCr炭化物析出によるCr欠乏層と関係しており、Cr欠乏層の形成を抑制すれば応力腐食割れは発生しない。近年、オーステナイト鋼の応力腐食割れ感受性が中性子照射を受けることによって変化することがいくつか指摘されている⁽¹⁾⁽²⁾。本研究では、低歪速度型引張試験(SSRT試験)法を用いて、オーステナイト鋼の高温水中での応力腐食割れ感受性に及ぼす中性子照射の影響について検討した。

供試材は、SUS316L鋼とこれに約0.1 wt%の窒素を添加した316NGと呼ぶもの、およびSUS304Lと304鋼である。それらの組成をTable 1に示す。供試材の溶体化は1323 Kで1.8 ks(30分間)おこない、水中に急冷した。また、316NGについては、溶体化後冷間圧延によって20%の冷間加工をしたものも準備した。これらを平行部24×2.4×2.4 mm³の引張試験片⁽³⁾に加工した後中性子照射した。

中性子照射は、米国アイダホ工芸研究所の材料試験炉ATRで温度560 K±₃₀⁴⁰のHeガス雰囲気中で照射速度5.25×10¹⁸ n/m² s(>1 MeV), 4.64×10¹⁸ n/m² s(thermal)にお

いて最大照射量2.5×10²⁵ n/m² (>1 MeV)まで行った。照射後のSSRT試験は、GE社Vallecitos Nuclear Centerにおいて実施した。試験条件は、561 K, 8.6 MPaの高温高压純水(電導度≒10 μS/m)中で、歪速度1.4-2.8×10⁻⁷/sであった。高温水中の溶存酸素量(DO)は0.2と32 ppmに変化させた。試験後、走査型電子顕微鏡で試片の破面を観察した。また、SSRT試験による試片の全のびはクロスヘッド変位から決定した。なお、未照射材のSSRT試験は、日立製作所日立研究所の試験機により、温度561 K,

Fig.1 Fracture surface of 316NG specimens unirradiated and irradiated to 2.5×10²⁵ n/m² (>1 MeV) after the SSRT test in water with 32 ppm DO at 561 K. Top; solution annealed specimens (SHT), bottom; 20% cold worked ones (CW).

Table 1 Chemical compositions of materials used in this study (wt%).

Materials	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	N
316L	0.024	0.50	1.45	0.028	0.006	13.60	16.30	2.66	0.025
316NG	0.014	0.45	1.63	0.024	0.004	13.10	17.00	2.46	0.097
304L	0.020	0.47	1.54	0.024	0.005	11.55	18.20	—	0.024
304	0.067	0.52	1.67	0.021	0.003	9.60	18.70	—	0.019

** (株)日立製作所日立研究所(Hitachi Research Laboratory, Hitachi Ltd., Hitachi)

*** (株)日立製作所日立工場(Hitachi Works, Hitachi Ltd., Hitachi)

**** ジェネラル エレクトリック社(General Electric Company, California, U.S.A.)

* 1987年10月日本金属学会熊本大会に発表

Table 2 SSRT test results.

Specimens	Fluence (n/m ²)	Strain Rate (10 ⁻⁷ /s)	DO (ppm)	Maximum stress (MPa)	Total elong. (%)	Fraction of IGSCC (%)
316L (SHT)	0	3.3	8	494	51.4	0
	8×10 ²⁴	1.4	32	469	36.8	0
	2.5×10 ²⁵	2.8	32	474	12.0	35
	2.5×10 ²⁵	2.8	0.2	534	24.1	0
316NG (SHT)	0	0.7	8	485	46.0	0
	8×10 ²⁴	2.8	32	458	37.9	2
	2.5×10 ²⁵	2.8	32	500	8.8	50
	2.5×10 ²⁵	2.8	0.2	554	19.8	7(13% TGSCC)
316NG (CW)	0	3.3	8	666	15.0	0
	2.5×10 ²⁵	2.8	32	772	9.5	35
	2.5×10 ²⁵	2.8	0.2	793	9.5	7(17% TGSCC)
304L (SHT)	0	3.3	8	432	4 ^c Q	0
	8×10 ²⁴	2.8	32	447	25.8	8
304 (SHT)	0	3.3	8	469	39.2	0(20% TGSCC)
	8×10 ²⁴	2.8	32	519	27.2	0
	2.5×10 ²⁵	2.8	32	545	8.3	35(30% TGSCC)*

* Specimen failed through one side of each end tab.

Fig.2 Neutron dose dependent fraction of intergranular fracture after the SSRT test in water with 32 and 0.2 ppm DO at 561 K.

圧力 8.6 MPa, DO 8 ppm, 歪速度 $0.7\text{--}3.3 \times 10^{-7}/\text{s}$ で行った。

Fig.1 は、溶体化と 20% 冷間加工した 316 NG について、未照射材と $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2 (>1 \text{ MeV})$ 照射材の SSRT 試験後の試片破面を示す。未照射材では 100% 延性破面であるが、照射材では、溶体化材は全破面の 50%、冷間加工材は 35% に粒界型破面が観察される。この粒界型破面は、よく知られた鋭敏化したオーステナイトステンレス鋼の応力腐食割れ破面と形態的に同一である。全破面に占める粒界型破面の割合、粒界破面率を照射量に対して図示したのが Fig.2 である。DO を 32 ppm で SSRT 試験した場合、試験したすべての試片で照射量とともに粒界破面率が增大し、 $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ 照射材では 35–50% に達する。このことから、これらのオーステナイトステンレス鋼は中性子照射を受けることによって高温水中での応力腐食割れ感受性が高くなることが示唆される。高温水中の DO を 0.2 ppm まで低めたとときの結果も Fig.2 に示すが、DO を低めると 316L については全く粒界型破面は観察されなくなり、溶体化や冷間加工した 316 NG でも粒界破面率は 7% 程度と DO が 32 ppm の時に比べて著しく小さい。このことは、照射材の粒界割れには水による腐食が重要な働きをしていることを示している。

Table 2 は、未照射材と照射材の SSRT 試験条件と、試験後の最大応力、全のびおよび粒界破面率をまとめて示す。最大応力は、照射とともに増大するが、 $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ 照射した試験におけるそれは、同じ照射量の照射材の 561 K 大気中での引張試験で得られた降伏応力⁽⁴⁾と同じかまたはそれより小さい。

オーステナイトステンレス鋼に 0.1% 程度の窒素を添加することは、溶体化材の照射脆化軽減に有効であることをすでに指摘した⁽⁴⁾。しかし SSRT 試験の結果によると、窒素を添加した 316NG は、添加していない 316L と比較して、全のび、粒界破面率ともに 316L よりもやや劣って

いる。これから、窒素の添加は照射下での高温水中割れ感受性の改善にはほとんど効果がないと考えられる。

照射誘起偏析の研究によれば、オーステナイトステンレス鋼では照射中に粒界から Cr や Mo の枯渇と、Ni, P, Si の濃縮が起こることが知られている⁽⁵⁾。しかしながら、本研究の照射範囲では、粒界炭化物の形成は認められず、また、通常の走査型透過電子顕微鏡内 EDS 分析 (JEOL 100 CX/KEVEX Si(Li) X-ray detector) では粒界での Cr はじめ溶質元素の濃度変化は検出されなかった。これは、中性子照射による応力腐食割れ感受性の発生は、鋭敏化材に見られる粒界の Cr 炭化物析出に伴う Cr 欠乏層の形成とは、機構を異にすることを示唆する。

以上から次の点が明らかとなった。すなわち、316 系や 304 系オーステナイトステンレス鋼は溶体化材、20% 冷間加工材ともに約 $8 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ 以上の中性子照射を受けると高温水中で粒界型応力腐食割れ感受性を持つようになり、感受性は照射量とともに増大する。これらの割れは材料の降伏応力またはそれ以下の応力でも発生する場合がある。また、高温水中の溶存酸素量を 0.2 ppm に低減すると粒界型破面は著しく減少する。

文 献

- (1) A.J.Jacobs and G.P.Wozadlo: ASM's Inter. Conf. on Nuclear Power Plant Aging, Availability Factor and Reliability Analysis, San Diego, CA, (1985).
- (2) B. M. Gordon and G. M. Gordon: Nuclear Engineering and Design, 98(1987), 109.
- (3) A. J. Jacobs, G. P. Wozadlo, K. Nakata, T. Yoshida and I. Masaoka: Proc. of Third Inter. Sym. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Ed. by G.J.Theus and J.R.Weeks, AIME, (1987), 673.
- (4) 仲田清智, 吉田寿美, 正岡 功, 斎藤 隆, A.J. Jacobs, G.P.Wozadlo, W.J.S.Yang: 投稿中.
- (5) たとえば, K.Nakata and I.Masaoka: J. Nucl. Mater., 150(1987), 186.

(1988 年 3 月 15 日受理)