

中性子照射したオーステナイト系ステンレス鋼の 応力腐食割れに及ぼす微細組織変化の影響に関する研究

学位論文内容の要旨

近年エネルギー需要の増大に対処するため、また、新プラントの建設には時間も費用もかかることや、運転期間の比較的長いプラントが増えてきていることが考慮され、原子力プラントの長期運転化計画が立案されている。その長期運転を検討する上で、解決すべき課題の一つに原子炉炉内構成材料であるオーステナイト系ステンレス鋼の中性子照射が関与した経年変化事象がある。この経年変化の要因として、照射誘起型応力腐食割れ(Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking 以下 IASCC と略す)があり、その原因究明のための研究とその対策が鋭意進められている。本研究は、この IASCC 発生因子の主因とされている材料因子、特に、照射によって導入される欠陥に起因する微細組織変化の影響を解明することを目的に、溶体化処理および冷間加工オーステナイト系ステンレス鋼を実際の原子炉で中性子照射した材料を供試材として、応力腐食割れ試験、粒界分析および引張試験を実施した。その結果、IASCC 感受性に及ぼす粒界偏析や照射硬化等の影響について種々の新知見が得られた。さらに、その知見を基に耐 IASCC 材の開発基盤を構築した。本論文の内容を以下に要約する。

まず、中性子照射材の応力腐食割れ試験に適する試験法として、低ひずみ速度試験(Slow Strain Rate Testing 以下 SSRT と略す)を選定し、商用 BWR 使用済材および JMTR 照射材について SSRT 試験を実施した。溶体化処理材では IASCC 感受性は中性子照射量 $5 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ で発現し、照射量が 10^{25} n/m^2 を超えると急激に増大し、一方、冷間加工材の IASCC 感受性は溶体化処理材に比較して小さく、冷間加工を予め施すことにより IASCC が抑制されることを明らかにした。

次に、照射による微細組織変化として、照射誘起粒界偏析と IASCC の関係を調べるため、上記の SSRT 試験に供した試料の粒界近傍での組成分析を実施した。結晶粒界での Cr の欠乏が 50℃の低温照射でも起きていることを見出した。また、粒界偏析元素の IASCC 感受性に及ぼす効果を検討した結果、照射による Cr の粒界欠乏は IASCC 発生因子の一つであることを示し、同時に、添加元素である Mo が耐

IASCC に有効に作用していることを明らかにした。しかし、照射による粒界に偏析した Si、P と IASCC 感受性との間には相関性が認められ、IASCC 発生に対して Si、P の粒界偏析はほとんど寄与しないことを確認した。

さらに、照射による微細組織変化である照射欠陥集合体の形成蓄積に起因する照射硬化と IASCC との関連を調べるため、SSRT 試験に供した試料について引張試験を実施した。その結果、照射による引張り強度の増加および延性低下は IASCC 発生と密接に相関し、特に照射材に特有な転位チャネリングによる変形挙動が IASCC 発生に大きく影響することを明らかにした。

また、材料の成分元素の種類や濃度の粒界偏析、照射硬化および IASCC に及ぼす影響を検討するため、JMTR で照射した各種組成のステンレス鋼について SSRT 試験を行った。工業レベルの純度材 (SUS304 鋼、SUS316 鋼、SUS321 鋼、SUS347 鋼) に関する系統実験から、結晶粒界における Cr 欠乏は溶質元素である Cr より原子寸法の大きい元素を添加することにより、Cr の粒界欠乏は抑制され、IASCC 感受性が低減されることを中性子照射材ではじめて明らかにすると同時に、IASCC 感受性はオーステナイト相の安定性によっても影響される可能性があることを示した。

上述の IASCC 発生に及ぼす微細組織変化を中心とした材料因子に加えて、材料の使用環境の主要な因子として、冷却水中の溶存酸素の影響を調べることは、微細組織変化の影響を評価する上で重要であることから、商用 BWR で使用した照射材を用い、溶存酸素濃度を変化させた SCC 試験を高温高压水中の実施し、IASCC 感受性に及ぼす溶存酸素の影響を調べた結果、高溶存酸素領域における IASCC 発生は照射で形成される粒界 Cr 欠乏層の活性溶解モデルに基づき説明可能であるが、一方、極低溶存酸素領域における粒界割れの発生は γ 線による過酸化水素の発生を考慮しても活性溶解モデルでは説明できないことを示した。

以上、オーステナイト系ステンレス鋼の IASCC 発生要因に関する研究から、耐 IASCC 材の開発要件として、照射による Cr 粒界欠乏抑制と照射硬化抑制を可能とする合金組成の選定が重要であることが示唆され、得られた知見を基に、現用材の SUS316L に微量元素を調整添加した各種合金を作製し、商用 BWR 照射した後の引張試験と SCC 試験から耐 IASCC 特性を評価した。その結果、材料中の不純物元素である P 濃度低減は照射硬化軽減に有効であり、また、照射される以前に Cr や Mo が粒界に濃縮している鋼種ほど耐 IASCC 特性が優れていることを実証した。以上、原子炉用ステンレス鋼の耐 IASCC 特性は結晶粒界の不純物および溶質濃度の制御により改善できること示し、原子炉材料の安全かつ長寿命化に貢献することができた。

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	高 橋 平七郎
副 査	教 授	工 藤 昌 行
副 査	教 授	大 貫 惣 明
副 査	助教授	柴 山 環 樹

学 位 論 文 題 名

中性子照射したオーステナイト系ステンレス鋼の 応力腐食割れに及ぼす微細組織変化の影響に関する研究

近年エネルギー需要の増大に対処するため、また、新プラントの建設には時間も費用もかかることや、運転期間の比較的長いプラントが増えてきていることが考慮され、原子力プラントの長期運転化計画が立案されている。その長期運転を検討する上で、解決すべき課題の一つに原子炉内構成材料であるオーステナイト系ステンレス鋼の中性子照射が関与した経年変化事象がある。この経年変化の要因として、照射誘起型応力腐食割れ (IASCC) があり、その原因究明のための研究とその対策が鋭意進められている。

本論文は、この IASCC 発生因子の主因とされている材料因子、特に、照射によって導入される欠陥に起因する微細組織変化の影響を解明することを目的に、実際の原子炉で中性子照射した溶体化処理および冷間加工オーステナイト系ステンレス鋼を供試材として、応力腐食割れ試験、粒界分析および引張試験を実施したものである。

本論文の主な内容は、まず、商用炉 BWR 使用済材および材料試験炉 (JMTR) での中性子照射材について、低ひずみ速度試験 (以降 SSRT) により応力腐食割れ特性を調べた。溶体化処理材では IASCC 感受性は一定の中性子照射量で発現し、照射量の更なる増加により感受性は急激に増大するのに対して、冷間加工材の IASCC 感受性は溶体化処理材に比較して低下することから、冷間加工が IASCC の抑制に有効であることを明らかにした。

次に、照射による微細組織変化として、IASCC に及ぼす照射誘起粒界偏析の影響について、種々の温度での照射後の粒界近傍における組成分析から、50℃の低温照射においても結晶粒界で Cr

濃度が減少する偏析現象が現れることをはじめて見出した。また、IASCC 発生因子の主要因である照射誘起粒界偏析、特に Cr 濃度の枯渇は Mo 添加により抑制されることを認め、Mo 添加が耐 IASCC に有効であることを明らかにした。一方、不純物元素である Si、P の結晶粒界における照射誘起偏析は IASCC 感受性に対しほとんど影響しないことを確認した。さらに、照射硬化の IASCC におよぼす影響を機械的性質との関係から検討した結果、照射硬化が増大するに伴い IASCC 発生確率が増大することを観察し、照射硬化が IASCC 発生に大きく影響することを明らかにした。また、材料試験炉 (JMTR) で中性子照射し組成の異なる各種ステンレス鋼の結晶粒界における Cr 濃度分布を測定し、鋼の基地より原子寸法の大きい元素を含有する鋼ほど粒界における Cr 濃度の枯渇が抑制され、IASCC 感受性が低減されることを示唆した。

上述の IASCC 発生に及ぼす微細組織変化の影響に加えて、材料の使用環境の因子である冷却水中の溶存酸素の影響を商用原子炉 (BWR) に使用した照射材を用い、溶存酸素濃度を変化させ IASCC 感受性に及ぼす溶存酸素の影響を高温高压水中での SCC 試験により調べ、高溶存酸素領域における IASCC 発生は照射で形成される粒界における Cr 濃度減少を考慮した活性溶解モデルにより説明できることを示した。

以上で明らかにされた様に、耐 IASCC 材の開発には照射誘起粒界 Cr 濃度枯渇と照射硬化を抑制する適切な添加元素の選定が重要であることを考慮して、現用材の SUS316L に各種元素を添加した鋼を作製し、BWR で照射した後の機械的性質と SCC 試験により耐 IASCC 特性を評価した。その結果、材料中の不純物元素である P 濃度低減が照射硬化軽減に有効であり、また、照射前に Cr および Mo が粒界に濃化している鋼種ほど照射誘起 Cr 粒界濃度減少が抑制され優れた耐 IASCC 特性を得ることができることを実証した。

これを要するに、著者は、原子炉用ステンレス鋼の耐 IASCC 特性改善に直接影響する結晶粒界での不純物および溶質の誘起偏析制御に関する新知見を得たものであり、原子炉材料の安全と長寿命化に貢献するところ大なりものがある。よって著者は、北海道大学(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。