

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月3日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560830

研究課題名（和文）サイクロトロンを用いた照射誘起応力腐食割れの実験的研究

研究課題名（英文）Experimental study of Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking
by using Cyclotron Accelerator

研究代表者

村瀬 義治（MURASE YOSHIHARU）

独立行政法人物質・材料研究機構・材料信頼性評価ユニット・主任研究員

研究者番号：10354193

研究成果の概要（和文）：原子力構造材料に高エネルギー粒子照射下で変動荷重疲労試験を実施すると、点欠陥クラスターと転位運動との相互作用に基づく照射下効果によって疲労寿命が伸長することが知られているが、本研究により、ヘリウムと水素が同時に十分存在する状況では疲労挙動の照射下効果が抑制されることがわかった。この結果はヘリウムが蓄積した高経年化軽水炉構造材料では照射誘起応力腐食割れ（IASCC）に水素が影響することを示唆している。

研究成果の概要（英文）：The extension of fatigue lifetime under high-energy particle irradiation is considered as the in-situ irradiation effect based on the interaction between the radiation induced defect clusters and moving dislocations. The present experimental study was successful to demonstrate the reduction of the in-situ irradiation effect when hydrogen and helium are sufficiently included in the material. This indicates hydrogen would influence the irradiation assisted stress corrosion cracking (IASCC) for aging light-water-plant materials accumulating substantial amount of helium.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	200,000	60,000	260,000
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：原子力材料、照射下疲労、軽イオン照射、水素脆化、ヘリウム予注入

1. 研究開始当初の背景

(1) 照射誘起応力腐食割れ（以下、IASCC）は粒界型の応力腐食割れの一つであり、高経年化軽水炉構造材料において最も発生が懸念される現象の一つである。IASCCは、ある一定量以上の照射量に達すると発生することから、照射硬化による延性低下とともに、照射誘起偏析に伴う粒界近傍のCr量低下による耐食性の低下が最も重要な要因であると考えられている。

(2) しかしながら、原子はじき出し照射損傷、応力および水素やヘリウムなどの核変換ガスが同時に作用する複合的照射環境における材料微細組織変化ならびにクラック発生・伝播機構がIASCCに与える影響について、試験技術上の問題が非常に大きいことから未だ十分な知見が得られていない。なお、運用60年を経過した高経年化沸騰水型軽水炉構造材料には最大で100appm程度のヘリウムが蓄積されると見込まれる。

(3) NIMSサイクロトロン施設は、プロトン照射下による「その場」材料試験が可能な世界でも有数の施設であり、これまで原子はじき出し損傷および水素を同時に導入することが可能な材料照射環境を整備してきた。

2. 研究の目的

(1) 軽水炉の主要な構造材料である316ステンレス鋼についてNIMSサイクロトロン加速器施設においてヘリウム予注入後に原子はじき出し損傷および水素を同時に材料中に導入するプロトン照射環境下で疲労試験を実施し、複合的照射環境下における微細組織変化が疲労クラック発生及び伝播に与える影響を調査する。

(2) 上記(1)の実験から得られる知見により軽水炉構造材料におけるIASCC機構の理解向上に資する。

3. 研究の方法

(1) 試料の作製

本研究の供試材は市販の316ステンレス鋼であり、化学組成を表1に示す。強圧延した0.12mm厚の板材を950℃、30minで焼鈍後、0.10mm厚まで冷間圧延を実施し、図1(a)に示す試料形状に打ち抜いた。その後、表面のメカニカル研磨を実施し、板厚0.084mmの引張試験試料を作製した。このように作製された試料の平均結晶粒径は8μmであり、300℃における降伏応力は629MPa、引張強さは765MPaであった。さらに、疲労試験用試料は、試料ゲージ部に放電加工により図1(b)に示すサイドノッチを入れて作製した。

表1 試験試料の化学組成

鋼種	Cr	Ni	Mn	Mo	Si	C	Fe
SUS316	16.8	10.3	1.2	2.2	0.7	0.06	balance

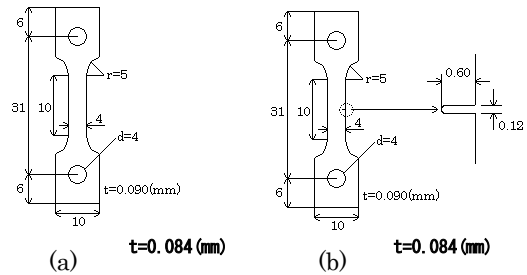


図1 (a)引張試験および(b)疲労試験試料

(2) ヘリウム予注入

引張試験および疲労試験を実施する前に、一部の試料についてサイクロトロン加速器からの20MeVのα線照射により300℃にてヘリウム予注入を実施した。図2にヘリウム予注入の概要図を示す。ヘリウム予注入には、ヘリウムを試料厚さに均一に導入するために、12.5~187.5μm厚のアルミ板で構成されたディグレーダーが用いられた。図3にヘリウム予注入時のダメージプロファイルとヘリウム導入レートの深さ分布を示す。ヘリウム注入温度は300℃、予注入量は100appmであり、予注入に伴う平均はじき出し損傷量は0.025dpaであった。

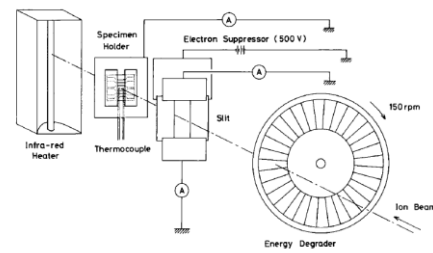


図2 ヘリウム予注入概要図

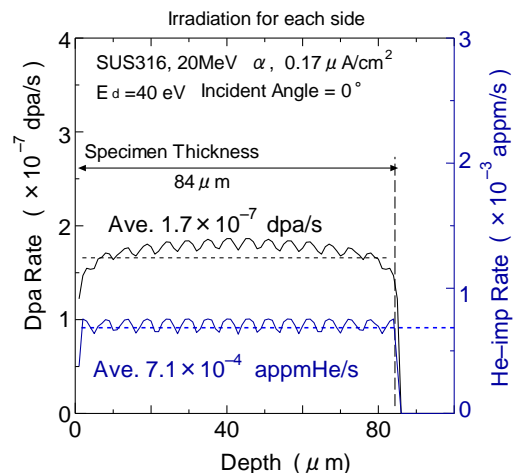


図3 ヘリウム予注入におけるダメージプロファイルと注入レートの深さ分布

(3) 疲労試験条件

疲労負荷として引張—引張の荷重制御三角波モードを採用し、疲労負荷の上応力はノッチ部にかかる応力が降伏応力の76%になるよう、381.6MPaに設定された。また、下応力は上応力の44%になるよう、167.9MPaに設定され、応力変動レートは50MPa/sに設定した。

(4) プロトン照射

図4に17MeVプロトン(P17MeV)照射の概要図を示す。照射温度は試料に溶接された熱電対によってモニターされ、試料に吹き付けられるヘリウムガスの加熱ヒーター出力を調整することにより、 $300 \pm 5^\circ\text{C}$ に調節された。プロトン照射においても試料厚さに均一に水素を導入するために、1240~1580 μm 厚のアルミ板で構成されたディグレーダーが用いられた。図5にプロトン照射時のビーム強度0.4 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ の時のダメージプロファイルおよび水素導入レートの深さ分布を示す。プロトン照射はビーム強度が0.4、2.0、4.0 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ の3条件で行われ、それぞれ条件A、B、Cとした。表2に各条件のはじき出し損傷速度と水素導入レートをそれぞれ示す。

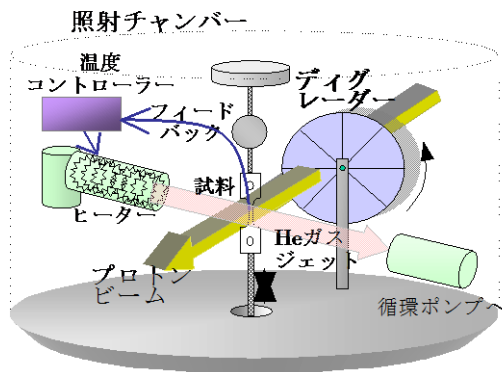


図4 プロトン照射概要図

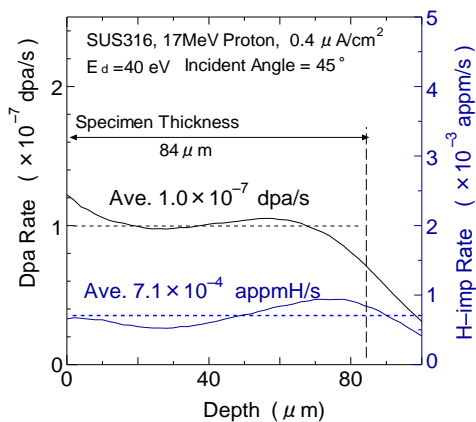


図5 プロトン照射におけるダメージプロファイルと水素導入レートの深さ分布

表2 プロトン照射条件

照射条件	はじき出し損傷速度	水素導入レート
A	1.0×10^{-7} dpa/s	7.1×10^{-4} appm/s
B	5.0×10^{-7} dpa/s	3.6×10^{-4} appm/s
C	1.0×10^{-6} dpa/s	7.1×10^{-3} appm/s

(5) SEM 破面解析

疲労試験後、すべての破断試料について走査型電子顕微鏡 (JEOL-JSM5310、以下、SEM) による破面観察を実施した。図6に典型的な疲労破面と破面上に観察されるストライエーションの写真を示す。ストライエーションは、その本数が疲労サイクル数に対応することから、疲労クラック伝播過程に要する疲労サイクル数の推定が可能である。図7にストライエーション本数算定のための説明図を示す。プロットA—B間のストライエーション本数は式1により求められる。本実験では、各試料でノッチ先端から60 μm の位置から急速破断点までの領域で10個程度のプロットを行い、各プロット間の合計を疲労クラック伝播サイクル数(N_c)、疲労破断サイクル数(N_f)から N_c を差し引いた値を疲労クラック発生サイクル数(N_i)とそれぞれ定義した。

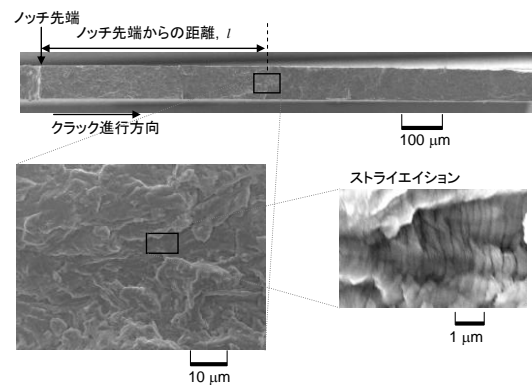


図6 典型的な疲労破面とストライエーション

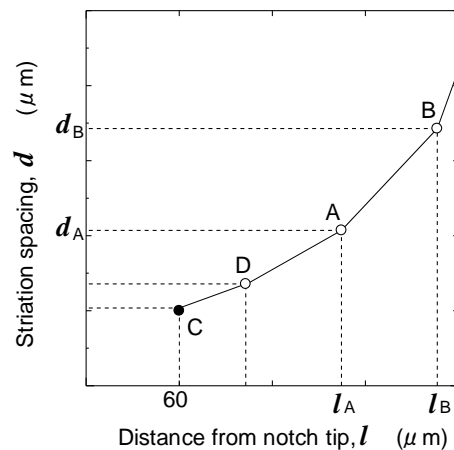


図7 ストライエーション本数算定説明図

$$N_{A \rightarrow B} = \left[\frac{\ln d_B - \ln d_A}{(d_B - d_A)/(l_B - l_A)} \right] \quad \text{式 1}$$

4. 研究成果

(1) 引張特性変化

プロトン照射ならびにヘリウム予注入による試料の引張特性変化を調べるため、図1(a)に示す引張試験用試料に、P17MeVにて0.042, 0.127, 0.250dpa、 α 20MeVにて0.025dpaそれぞれ300°Cで照射後300°Cにて引張試験を実施した。表3に各試料の降伏応力、引張強さ、破断伸びを示す。すべての照射試料について非照射に比べて引張強さ、降伏応力が上昇し、破断伸びが低下することから、照射硬化が確認された。プロトン照射試料では照射量の増大に伴い、照射硬化が大きくなることから、材料中の照射誘起点欠陥クラスター（以下、RID クラスター）の密度が大きくなることが示唆された。一方、ヘリウム予注入材では、はじき出し損傷量がプロトン照射に比べて小さいにもかかわらず、非常に大きな照射硬化を生じていることがわかる。この原因として、予注入したヘリウムが材料中の原子空孔と結合して転位運動を妨げる He-Vn クラスターが多量に形成されたためと考えられる。

表3 プロトン照射およびヘリウム予注入による引張特性変化

照射粒子	照射量 (dpa)	引張強さ (MPa)	降伏応力 (MPa)	破断伸び (%)
非照射	0	765	629	1.8
P17MeV	0.042	863	705	0.5
P17MeV	0.127	913	882	0.3
P17MeV	0.250	973	940	0.3
α 20MeV	0.025	933	910	0.2

(2) 照射下疲労挙動

①ヘリウム未注入材

図8にヘリウム未注入材について照射下疲労試験の結果を示す。疲労寿命サイクル数(Nf)は非照射に比べて照射下で、かつビーム強度が大きいほど伸長することがわかった。次に、疲労破断試料のSEM破面観察を行ったところ、延性疲労破断の特徴を示すプラトーやディンプル、ストライエーションなどが確認されたが、照射下や非照射、ビーム強度の違いによる破面形態の差は見られなかった。図9に各試料についてストライエーション測定を行った結果を示す。ストライエーション間隔はクラック伝播速度に対応することから、非照射に比べて照射下で、かつビーム強度が大きいほどクラック伝播距離の増大に伴う伝播速度の増加が抑制されたことがわかる。図10に図9の各試料のプロットから、疲労クラ

ック伝播サイクル数(Nc)および疲労クラック発生サイクル数(Ni)を算出した結果を示す。非照射に比べて照射下で、かつビーム強度が大きいほどNcおよびNiが増加したことがわかる。

以上のような、照射下において疲労クラックの発生および伝播過程が遅延する「照射下効果」は、そのメカニズムとして、RID クラスターと転位との相互作用が提案されている。すなわち、疲労破壊過程において転位構造変化を伴うが、RID クラスターは転位運動の障害物として働くため、クラック発生および伝播に必要な転位構造の形成が遅れると考えられる。また、ビーム強度が大きくなると単位時間あたりに導入されるRID クラスターの密度が増加するため、照射下効果が強まったと考えられる。

このように、ヘリウム未注入材では、照射下疲労挙動はRID クラスターと転位との相互作用によって説明可能であり、はじき出し損傷とともに導入される水素の影響は確認できなかった。その原因として、水素は300°Cにおいては拡散速度が非常に大きいため、照射中の平衡水素濃度が小さかったためと推察される。

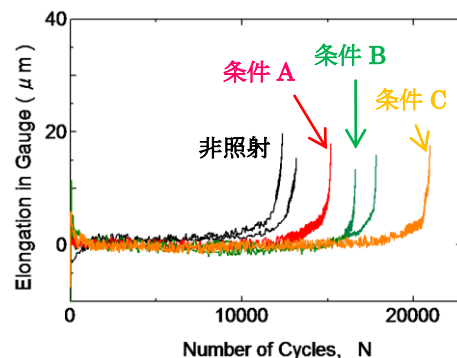


図8 ヘリウム未注入材の照射下疲労試験

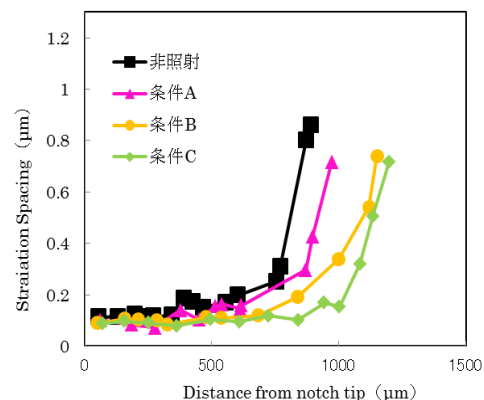


図9 ヘリウム未注入材のストライエーション測定

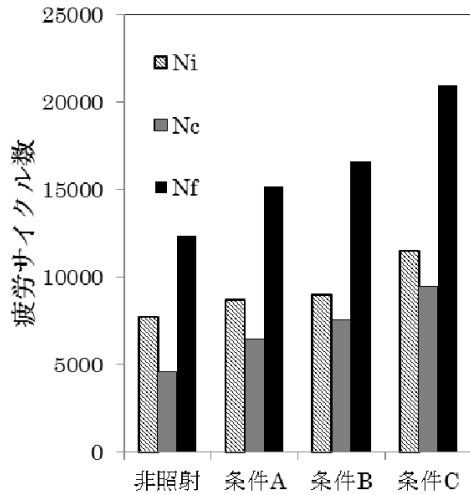


図10 ヘリウム未注入材のクラック発生および伝播サイクル数

②ヘリウム注入材

図11にヘリウム注入材について照射下疲労試験の結果を示す。疲労寿命サイクル数(Nf)は非照射に比べて照射下で減少した。また、ビーム強度の違いに対して、条件AとCでは同程度で条件Bでは条件A,Cと比べてわずかに減少したが、有意な差は認められなかった。次に、疲労破断試料のSEM破面観察を行ったところ、すべての試料で延性疲労破断の特徴を示す破面形態が確認されたが、照射下や非照射、ビーム強度の違いによる差は確認されなかった。但し、ヘリウム未注入材と比べて、ストライエーションがやや不明瞭であった。これは、ヘリウム注入材では照射硬化によって延性が低下したことが原因と考えられる。図12に各試料についてストライエーション測定を行った結果を示す。非照射ではクラック長さ800 μm 程度までクラック伝播速度の上昇がみられないのに対して、照射下では条件A,B,Cのいずれも500 μm 付近からクラック伝播速度が上昇していることがわかった。図13に各試料についてNcおよびNiを算出した結果を示す。非照射に比べて照射下では、条件A,B,CのいずれもNcおよびNiが減少したことがわかる。但し、条件A,B,C内での比較では、NcとNiともに大きな違いは見られなかった。

以上の結果において、非照射に比べて照射下でNf,NcおよびNiが減少することから、RIDクラスターと転位との相互作用に基づく照射下効果が抑制され、別のメカニズムが働いていると考えられる。一方、ヘリウム予注入によって材料中に形成されるHe-Vnクラスターは水素に対して非常に強いトラップサイトとして働くため、水素拡散係数が低下し、照射中の平衡水素濃度が著しく上昇すると

考えられる。材料中の水素は塑性変形で支配される延性破壊を助長することが知られている。その代表的なメカニズムは、水素が転位の生成や易動を増加させ、クラック先端の塑性変形を局所化して延性破壊の進行を助長する考え方である、水素助長局所塑性変形理論と、水素が塑性変形領域において原子空孔の凝集を誘起して微小ボイドを形成し、クラック先端のすべり面分離を促進して延性破壊を助長する考え方である、水素助長塑性誘起空孔理論が挙げられる。従って、照射下でNf,NcおよびNiが減少した原因として、RIDクラスターと転位との相互作用に基づく照射下効果を上回って材料中の水素が塑性変形を助長し、疲労破壊過程を促進させたためと推察される。このように、ヘリウム予注入材では水素の移動度が大きい300 $^{\circ}\text{C}$ においても材料中の水素濃度は十分高い状態で保持され、照射下疲労挙動に影響を及ぼしたと考えられる。なお、条件A,B,Cで、NcとNiともに大きな違いは見られなかった原因としては、はじき出し損傷レートの上昇に伴う照射下効果の増加と、水素導入レートの上昇に伴う水素影響の増加が互いに相殺してビーム強度依存性が現れなかったと推察される。

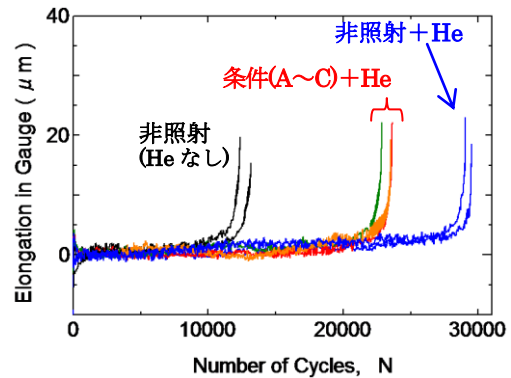


図11 ヘリウム注入材の照射下疲労試験

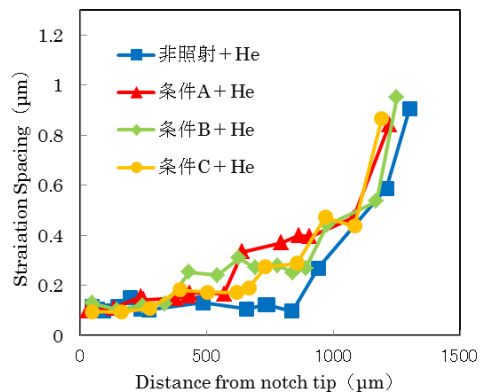


図12 ヘリウム注入材のストライエーション測定

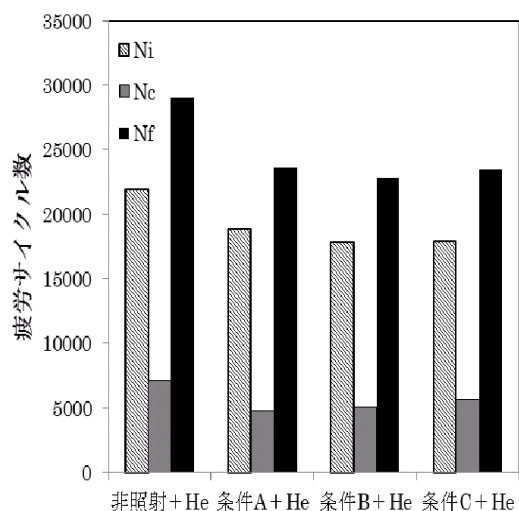


図 13 ヘリウム注入材のクラック発生および伝播サイクル数

(3) まとめ

本研究では、材料中にはじき出し損傷と水素を同時に導入できる複合的照射環境下で 300℃にて疲労試験を実施した。ヘリウム未注入材では、非照射に比べて照射下で疲労寿命が伸長し、照射誘起点欠陥クラスターと転位運動との相互作用に基づく照射下効果が確認された。一方、100appm のヘリウム予注入材では非照射に比べて照射下で疲労寿命が短縮し、照射下効果が抑制されることがわかった。その原因として、ヘリウム予注入材では、材料中に形成された He-Vn クラスタが水素に対して非常に強いトラップサイトとして働くため材料中の水素濃度が上昇し、水素が塑性変形を助長するなどして疲労破壊過程を促進したと考えられる。

本研究の成果から、ヘリウムが蓄積した高経年化軽水炉構造材料では照射誘起応力腐食割れ (IASCC) に水素が影響することが示唆される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

(1) 村瀬義治、山本徳和、永川城正、”Effects of implanted hydrogen on fatigue behavior of F82H under irradiation”, Journal of Nuclear Materials、査読有、417 巻、2011 年、120~123 頁、DOI:10.1016/j.jnucmat.2010.12.049

[学会発表] (計 1 件)

(1) 村瀬義治、ヘリウム予注入した 316 鋼の 17MeV プロトン照射下疲労挙動、日本原子力学会 (一般講演)、2011 年 9 月 19 日、北九州国際会議場 (北九州市)

[その他]

ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村瀬 義治 (MURASE YOSHIHARU)

独立行政法人物質・材料研究機構・材料信頼性評価ユニット・主任研究員

研究者番号：10354193

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし