

PWR 1 次系機器構造用材料の耐 PWSCC 評価

Assessment of PWSCC Resistance for Primary PWR Components

榊原洋平	技術開発本部基盤技術研究所材料研究部 博士 (工学)
中山元	技術開発本部基盤技術研究所材料研究部 主幹 博士 (工学)
南日卓	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 機器設計部
佐藤輝嘉	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 機器設計部 主査
平野隆	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 生産技術部 部長

加圧水型原子炉 (Pressurized Water Reactor : PWR) 1 次系機器ではこれまで応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking : SCC) による損傷を経験している。現在は高い耐 SCC 性を有する素材が用いられており、SCC のリスクは大幅に低減されたが、完全に SCC の発生・進展挙動は理解されていない。PWR 1 次系機器の製造方法を検討するうえで、製造方法の差が耐 SCC 性に影響を及ぼすことが知られており、その影響を把握するために、耐 SCC 性を評価できることは重要である。その評価手法としては SCC 発生試験と SCC 進展試験があり、これらを用いて PWR 1 次系機器に用いるニッケル基合金ならびにその溶接金属部の評価を行っている。本稿ではそれぞれの試験によって得られた知見と、各試験から得たパラメータを用いた SCC 発生のモンテカルロシミュレーションについて紹介する。

It is well known that stress corrosion cracking (SCC) used to occur in the components for the primary loop in a pressurized water reactor (PWR) . As materials with high resistance to SCC are now used for these components, the risk of SCC has dramatically decreased. However, SCC initiation and its propagation behavior remain unknown. In light of the need for SCC initiation testing and propagation testing to be carried out to evaluate primary water stress corrosion cracking (PWSCC) , we have evaluated the PWSCC susceptibility of nickel-base alloys and their weld metals for PWR components. This paper introduces new insights obtained through the results of the tests and the Monte Carlo simulation of SCC initiation that was conducted using parameters from the test results.

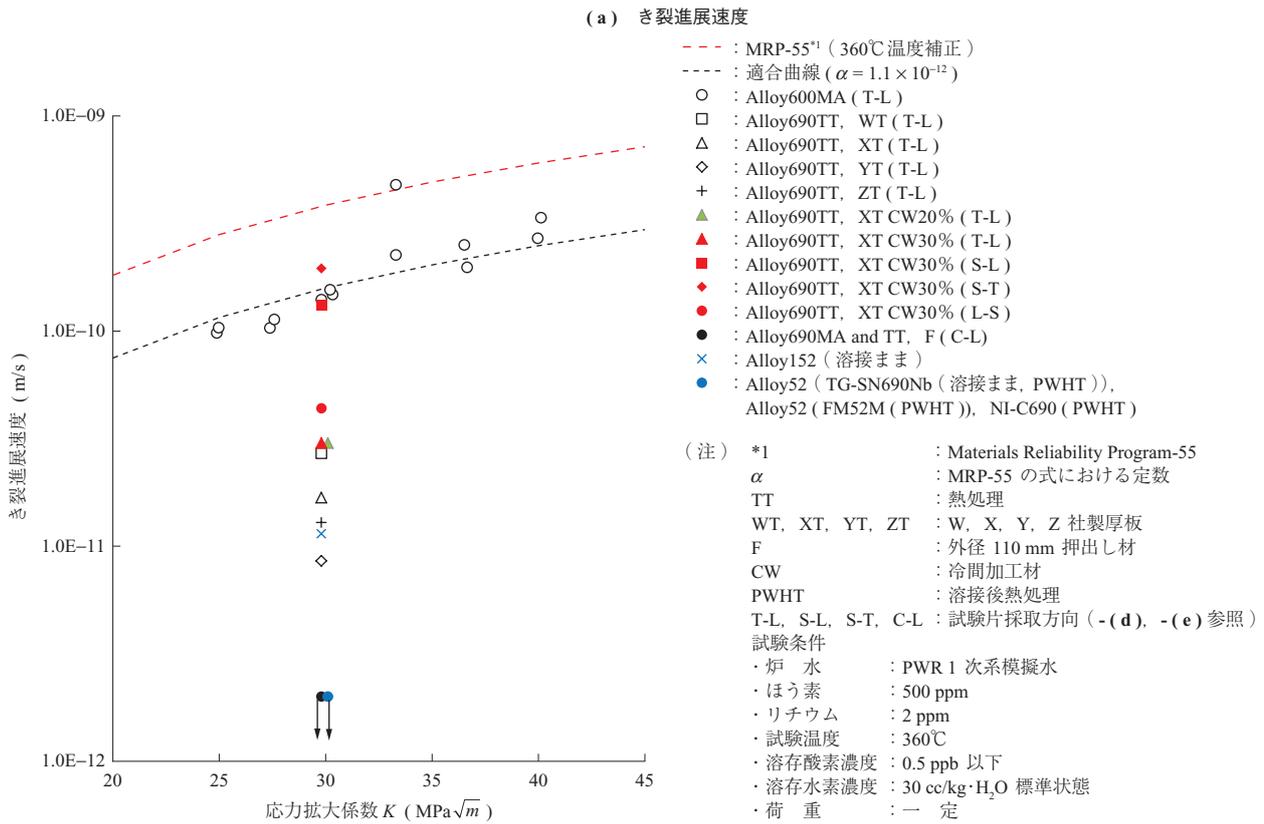
1. 緒 言

加圧水型原子炉 (Pressurized Water Reactor : PWR) 1 次系機器には低合金鋼、ステンレス鋼、ニッケル基合金などの構造材料が用いられる。PWR 1 次系機器の製造においては、溶接技術、加工技術、検査手法が確立していることが重要であるが^{(1) (2)}、これら製造方法の差が運転開始後の長期健全性に影響を及ぼす可能性がある。長期健全性を考えるうえで重要な現象として応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking : SCC) が挙げられるが、いまだ製造方法の違いによる SCC への影響に関しては不明な点が多く、製造者として製造方法の変更に伴う SCC のリスクを評価できることが重要になる。PWR 1 次系水質での SCC は PWSCC (Primary Water Stress Corrosion Cracking) と呼ばれ、その評価手法としては SCC 発生試験^{(3) (4)}と SCC 進展試験⁽⁵⁾に大別できる。これらの手法を用いて、筆者らは、特にニッケル基合金ならびにその溶接金属についてその耐 PWSCC 性の評価を行ってきた^{(6)~(11)}。本稿

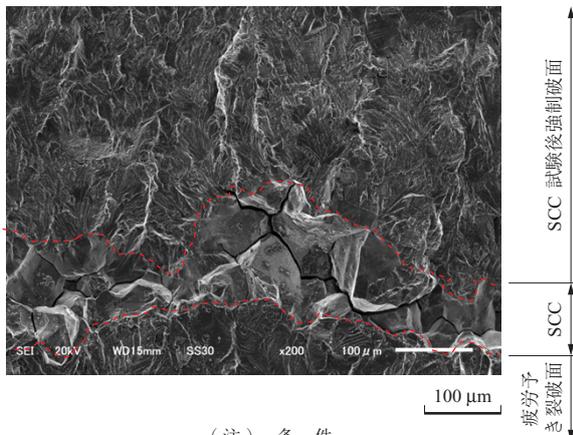
では、その評価結果および得られた知見について述べる。

2. PWR 1 次系模擬水中でのニッケル基合金および溶接金属のき裂進展速度の評価

PWR 1 次系模擬水中で CT (Compact Tension) 試験片を用いてニッケル基合金および溶接金属のき裂進展特性を調査した。PWR 1 次系の炉水温度は 290 ~ 320℃であるが、PWSCC 感受性は温度によって加速されることが知られているため⁽¹²⁾、360℃で試験できるように装置を設計して運用している。第 1 図にニッケル基合金および溶接金属のき裂進展速度と破面を示す。第 1 図 - (a) は 360℃での Alloy600MA (ミルアニール)、Alloy690TT (析出熱処理)、Alloy52、Alloy152 のき裂進展データである⁽⁹⁾。Alloy600MA は初期の PWR に用いられた材料で実機でも SCC を生じることが知られている比較材である。現在のプラントでは 30 wt% の Cr (クロム) を含む Alloy690 とその溶接金属 Alloy52、152 が用いられている。第 1 図 - (a) に示す Alloy600MA のプロットは応力拡大係数 K の増加に応じてそのき裂進展速度が上昇しており、その

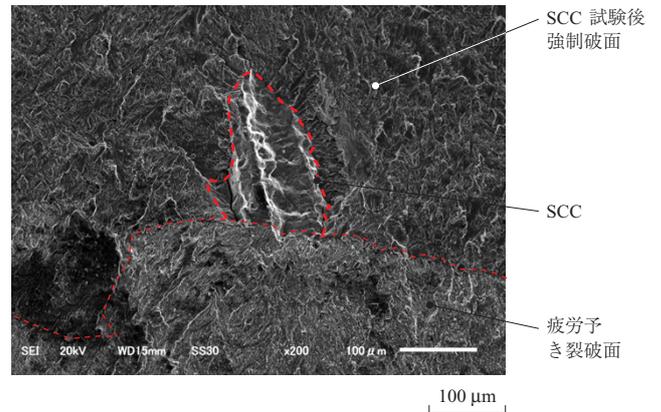


(b) Alloy690TT 破面

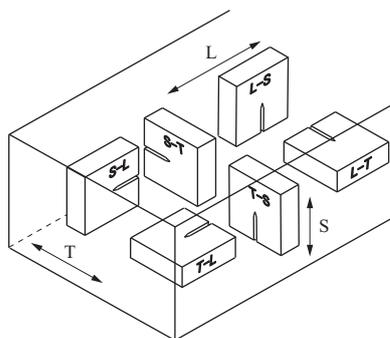


(注) 条件
 ・ 厚板 : X 社製
 ・ 冷間加工 : 0%
 ・ 試験片採取方向 : T-L

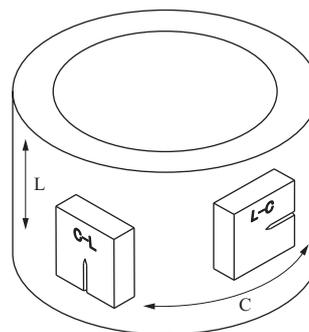
(c) Alloy152 (溶接まま) 破面



(d) 板材からの採取方向



(e) 中空円筒からの採取方向



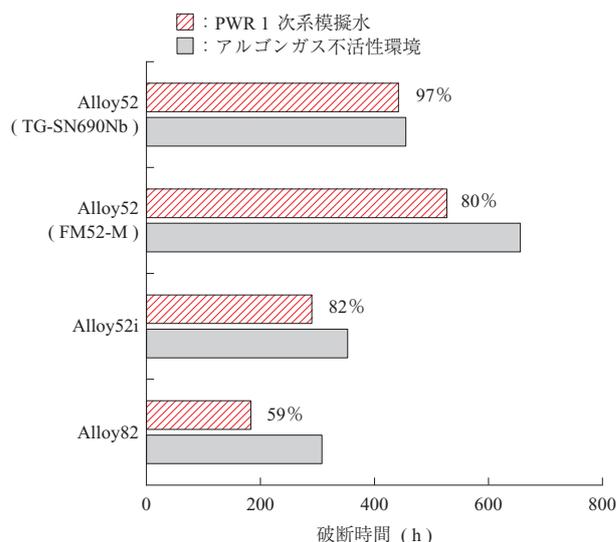
第 1 図 ニッケル基合金および溶接金属のき裂進展速度と破面
 Fig. 1 Crack propagation rate and fracture state for nickel-base alloys and their weld metals

K 値依存性はアメリカ電力研究所 (Electric Power Research Institute : EPRI) で作成された MRP-55 の曲線のそれと良く一致している⁽¹³⁾。Alloy690TT は 3 インチの厚板と外径 110 mm の押出し材から試験片を採取している。前者は有意なき裂進展速度を示し、第 1 図 - (b) に示すような粒界割れが観察されたのに対し、後者は有意なき裂進展が認められなかった。このき裂進展特性の差は製造方法による違いと考えられる。押出し材では、加工による十分なひずみが素材に与えられ、その後の再結晶の進行によって偏析の少ない粒界が形成されると考えられる。すなわち、凝固時に形成される粗大な析出物を消失させ、加工後の TT 熱処理 (Thermal Treated, 715°C で炭化物を析出させる熱処理) によって微細な整合析出物が得られ、低いき裂進展速度を示すと考えられる。米澤らは製造履歴の違いによって凝固組織に近い組織を有する材料ほどき裂進展速度が速いことを報告しており⁽¹⁴⁾、本結果と定性的に一致する。

また、溶接金属についても Alloy152 で一部、デンドライト組織に沿った割れが観察されたが (第 1 図 - (c))、TG-SN690Nb⁽¹⁾ や FM52M, NI-C690 は有意なき裂進展を示さなかった。TG-SN690Nb は溶接時に発生し得る延性低下割れ (Ductility Dip Cracking : DDC) 感受性も低く抑えられており⁽¹⁾、溶接性、耐 PWSCC 性に優れた溶接金属である。

3. PWR 1 次系模擬水中でのニッケル基合金および溶接金属の SCC 発生感受性の評価

PWR 1 次系模擬水中の SCC 発生試験としては、低ひずみ速度引張 (Slow Strain Rate Tensile : SSRT) 試験、逆 U 曲げ (Reverse U-bend : RUB) 試験、単軸定荷重 (Uniaxial Constant Load : UCL) 試験がある。第 2 図にハンプ SSRT 試験によるニッケル基溶接金属の試験結果を示す。SSRT 試験において図に示すように、Ar (アルゴン) ガス不活性環境中と PWR 1 次系模擬水中との破断時間を比較する⁽¹⁰⁾。なお、ここではジグを用いて試験片平行部に“ハンプ (凸部)”を付与した“く”の字型の試験片を用いて試験を実施している⁽¹⁰⁾。図中には各合金の Ar ガス不活性環境中と PWR 1 次系模擬水中での破断時間とその比率を示す。実機でも SCC 発生が報告されている Alloy82 (21wt% Cr) と比較して Alloy52i (27wt% Cr)、Alloy52 (30wt% Cr) は環境の影響が低いことを示す。しかし、このような SSRT 試験では、一定のひずみ速度で破断させるため、定性的な材料比較はできてその結果を



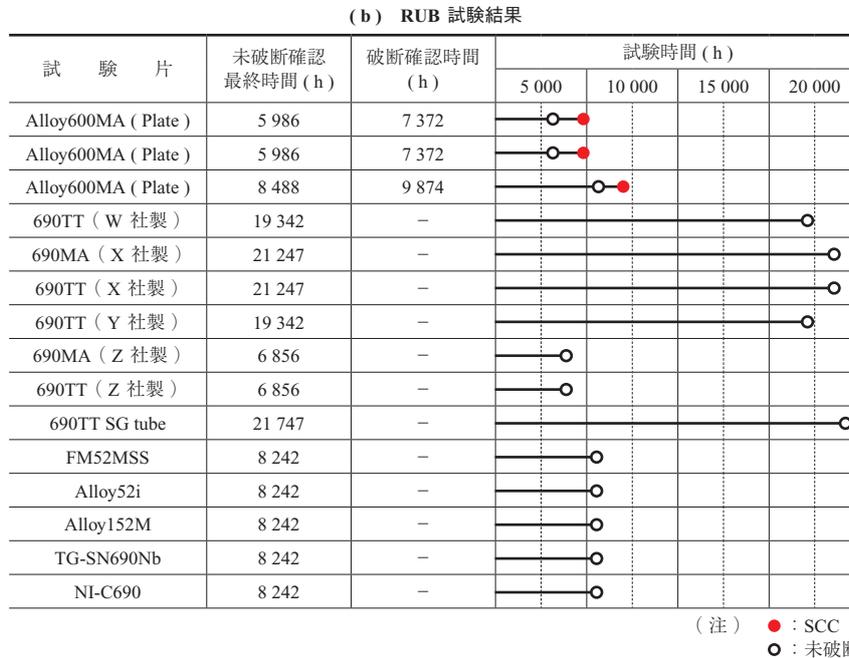
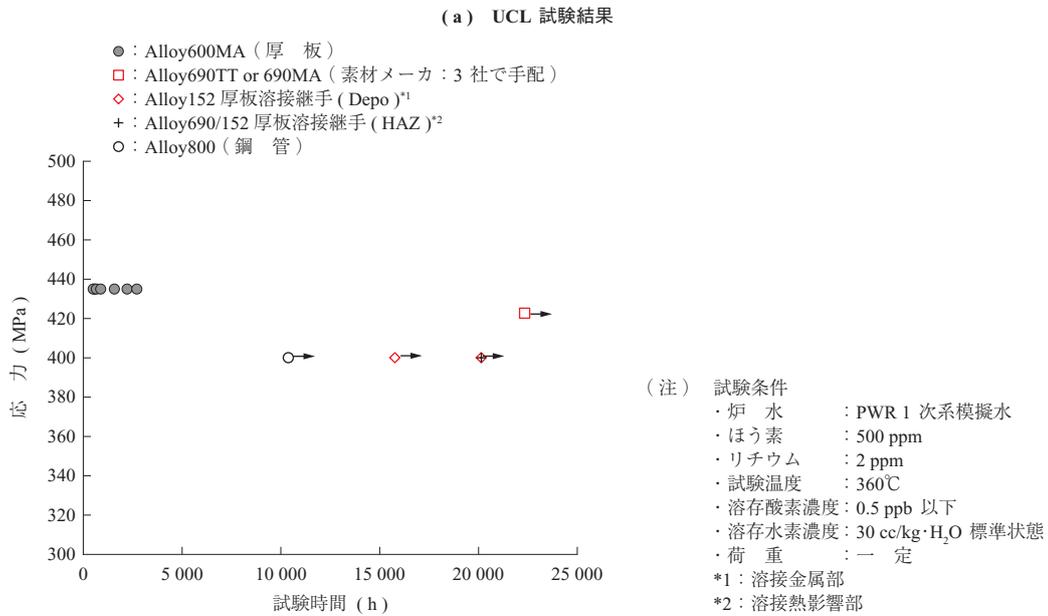
(注) 条件
 ・試験方法：ハンプ付低変位速度引張試験
 ・試験温度：360°C
 ・変位速度：0.1 mm/min

第 2 図 ハンプ SSRT 試験によるニッケル基溶接金属の試験結果
 Fig. 2 Hump-SSRT test results for nickel-base weld metals

用いて定量的に長期健全性を示すことは難しい。

第 3 図にニッケル基合金ならびに溶接金属の RUB, UCL 試験結果を示す。Alloy600MA はき裂検出もしくは破断検知されるが、Alloy690TT は長時間の試験にも関わらず SCC が発生していない。前口は、より長期の UCL 試験を実施しているが、Alloy690, 52, 152 では 10 万時間以上でも SCC が発生しないことを報告している⁽¹⁵⁾。

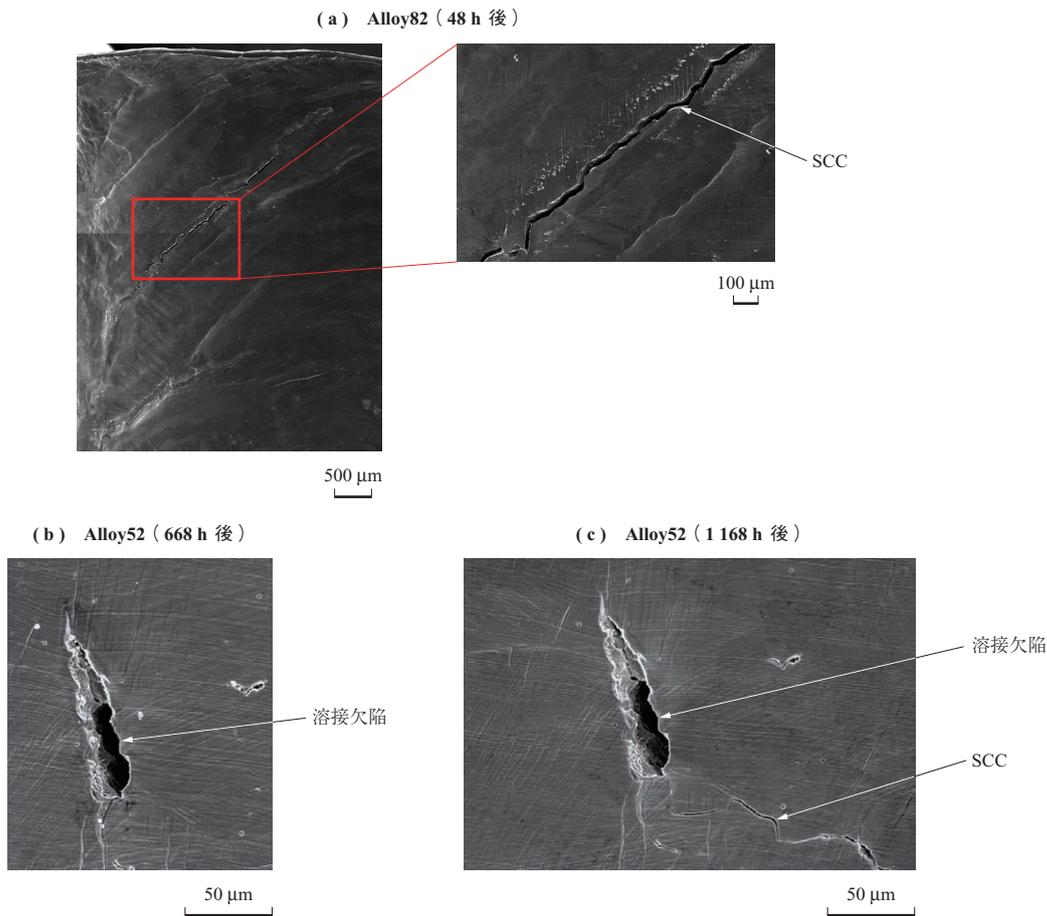
製造方法の差が耐 PWSCC 性に影響を与えると考えると、より短期での評価が必要になるが、前述のとおり Alloy690, 52, 152 は高い耐 PWSCC 性を有するため、SCC の発生を促す必要がある。SCC の加速には付与応力の増加、SCC 試験前の冷間加工の増加、加速環境での試験が有効である。しかし、付与応力はすでに十分高く、SCC 前の冷間加工についても 15% 程度までが妥当であるため⁽¹⁶⁾、筆者らは加速環境である 400°C の過熱蒸気中の試験を実施している。Alloy600MA のき裂進展試験では 360°C のき裂進展速度に比べて 400°C のき裂進展速度は約 10 倍速い⁽⁸⁾。過熱蒸気環境での試験は当初、Economy, Jacko らによって開発されたが⁽¹⁷⁾、ハロゲン系陰イオンを添加した環境での試験となっていた。Hänninen らも陰イオン添加していたが⁽¹⁸⁾、最近では、筆者ら同様、無添加の水蒸気を用いた過熱蒸気試験を行っている。近年、過熱蒸気試験は G. Bertali⁽¹⁹⁾、S. Persaud⁽²⁰⁾、渡邊⁽²¹⁾ らによっても実施され、PWR 1 次系環境の加速環境として注目されている。PWR 1 次系環境は水素が添加された還



第3図 PWR 1次系模擬水中でのニッケル基合金および溶接金属の SCC 発生試験結果
 Fig. 3 SCC initiation test results for nickel-base alloys and their weld metals in simulated primary water

元性雰囲気であるため、過熱蒸気試験においても水蒸気圧に対して 0.01 ~ 0.1 倍の水素分圧が与えられる。PWSCC では Ni/NiO の平衡電位で最もき裂進展速度が速くなると報告されているが、筆者らが過熱蒸気中 RUB 試験を実施したところ、Ni/NiO の平衡電位 ($P(H_2) = 28 \text{ kPa}$) より Ni 安定域 ($P(H_2) = 200 \text{ kPa}$) の方が早期に割れが発生するため、Ni 安定域で試験を実施している。第4図に過熱蒸気 RUB 試験後の試験片表面観察結果を示す。第4図-(a)は Alloy82 の 48 h 後の RUB 試験片表面に発生した SCC の SEM (Scanning Electron Microscope) 像である。粒界に沿った割れが確認できる。第4図-(b)は

Alloy52 の試験時間 668 h 後、-(c)は 1 168 h 後の RUB 表面観察結果である。本材料はあえて DDC を含むように施工した Alloy52 で、668 h 後に観察された開口した割れは DDC であるが、1 168 h 後には 668 h 後に認められなかった鋭利な割れが観察されており、この間に SCC が発生したと考えられる。SCC 試験前に確認された DDC は 11 個存在したが、いずれも SCC が発生していないこと、また、同様に欠陥を含む Alloy82 でも欠陥以外から SCC が発生すること⁽²²⁾、また、第4図-(a)に示す SCC の開口が DDC 近辺よりも離れた位置で大きいことから、-(c)のサンプルでは DDC から SCC が発生したのでは



第 4 図 過熱蒸気 RUB 試験後の試験片表面観察結果
 Fig. 4 Surface observations after RUB test conducted in hydrogenated steam

ないと推察される。このように、過熱蒸気試験によって、SCC 発生を促すことができた。高温水中では長時間において SCC が発生しないと報告されている Alloy52 であっても過熱蒸気中で SCC が発生することが確認できた。

4. モンテカル口法による SCC シミュレーション

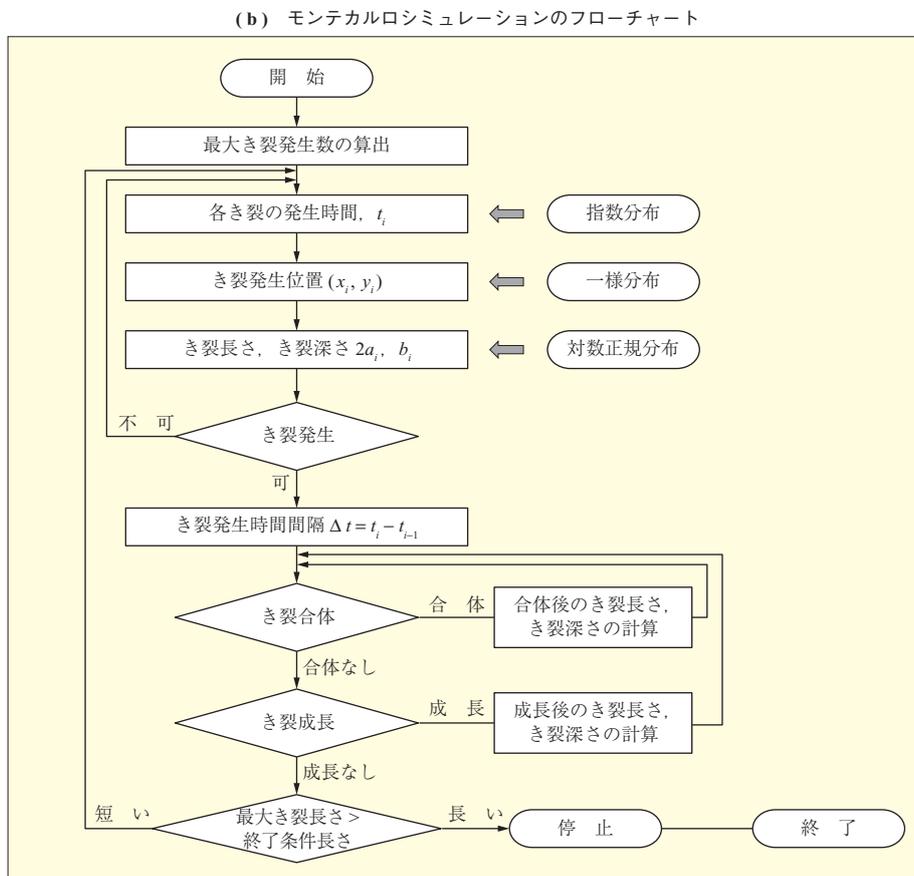
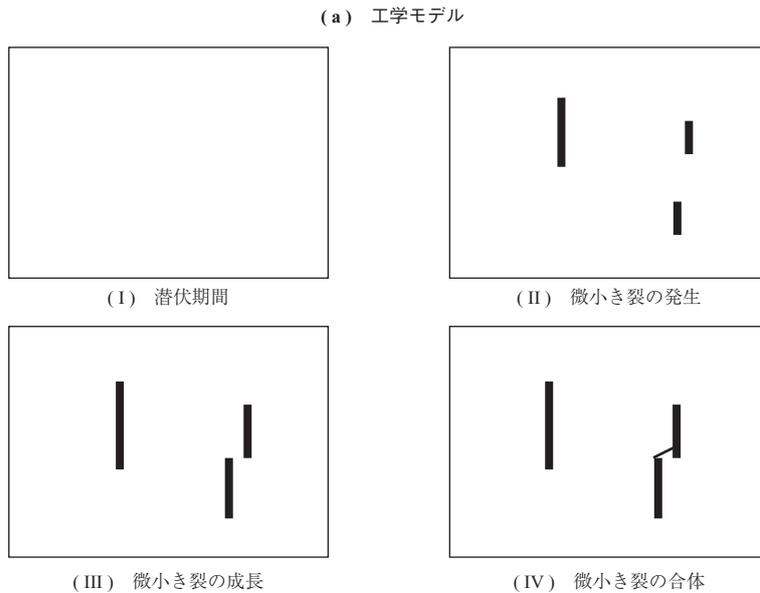
筆者らはこれまでに、沸騰水型軽水炉 (Boiling Water Reactor : BWR) での高温高圧純水中でのステンレス鋼の SCC シミュレーションを開発している。このシミュレーションで得られた知見としては、「研究室規模の SCC 発生試験において高鋭敏化材と低鋭敏化材で 10 倍の寿命比が得られたとしても、実機で問題になる深さ 2 mm 以上の工学的き裂になるまでの期間、すなわち工学的き裂の発生寿命は両者で 2 ~ 3 倍程度しか変わらない」ということである⁽²³⁾。実機の供用期間中の検査は超音波探傷によって行われ、その検出限界は深さ 2 mm 程度であるため、工学的き裂の発生を考えることは重要である。第 5 図には鋭敏化 304 ステンレス鋼の BWR 中での SCC 発生試験結果を基に作成した、工学モデルおよびモンテカル

ロシミュレーションのフローチャートを示す。本シミュレーションでは微小き裂の発生を時間的には指数分布的に、空間的には不規則に与え、合体と進展を繰り返しながら工学的き裂に成長することが特徴である。第 5 図 - (a) のモデルに示すように、き裂先端同士の距離が (1) 式に示される臨界半径 r_c 以下になった場合に合体できると設定としてシミュレーションを行っている。

$$r_c = \frac{k}{\pi} \left(\frac{K_{I1}}{\sigma_y} \right)_{crack1}^2 + \frac{k}{\pi} \left(\frac{K_{I2}}{\sigma_y} \right)_{crack2}^2 \dots \dots \dots (1)$$

ここで σ_y は付与応力、 K_{I1} はき裂に作用する応力拡大係数である。また、 k は合体のしやすさを表す係数であり、大きければ r_c が大きくなるため、き裂先端同士の距離が離れていても合体が可能で、小さければ r_c が小さくなるため、き裂の先端はより近づかなければならず合体しにくい。

現在、PWSCC においても、アメリカを中心に発生における寿命改善度 (Factor Of Improvement : FOI) を求める試験が盛んに行われているが、ここで得られる FOI は工学的き裂の寿命改善度とは必ずしも一致しないと予想され



第 5 図 SCC 発生試験結果を基に作成した工学モデルおよびモンテカルロシミュレーションのフローチャート
 Fig. 5 Schematic illustration of the engineering model for SCC initiation and flow chart for the Monte Carlo simulation

る。特に近年は UCL 試験において、PDM (Potential Drop Method) を用いて、微小き裂の発生を検知するため、この試験で得られる FOI はあくまで微小き裂発生の FOI であって、工学的き裂の寿命の FOI とは異なる可能性がある。以上のような背景から、PWSCC においても工学モデルおよびシミュレーションの適用が可能か検討した。

PWSCC データとして Alloy600MA の過熱蒸気中の UCL 試験結果を用いることとした⁽⁷⁾。450 h ごとに試験を中断し、試験片平行部を SEM 観察して微小き裂の長さ、個数を計測した。得られた微小き裂データを解析し、指数分布を得て、シミュレーションに入力した。またき裂進展速度は高温水中および過熱蒸気中での CT 試験結果

を用いた⁽⁸⁾。高温水中のき裂進展速度から MRP-55 のき裂進展速度式の β を決定し、同じ応力拡大係数依存性を有するとして、フィッティングした。また、今回試験に用いた Alloy600MA はまれに異常に成長した結晶粒も含んでいたため、発生するき裂サイズ、すなわち結晶粒径分布として対数正規分布を用いた。シミュレーションでは合体係数 k がフィッティングパラメータとなる。第 6 図に

$k = 0.5, 0.15$ のときの Alloy600MA の過熱蒸気炉中 UCL 試験結果およびシミュレーション結果を示す。 $k = 0.5$ は BWR 環境中での SCC をシミュレーションするときを用いた値である。今回の試験結果は $k = 0.15$ の場合に良く一致し、これは BWR の鋭敏化ステンレス鋼の SCC より合体しにくいことを意味している。このように PWSCC についてもシミュレーションが可能であることを示した。

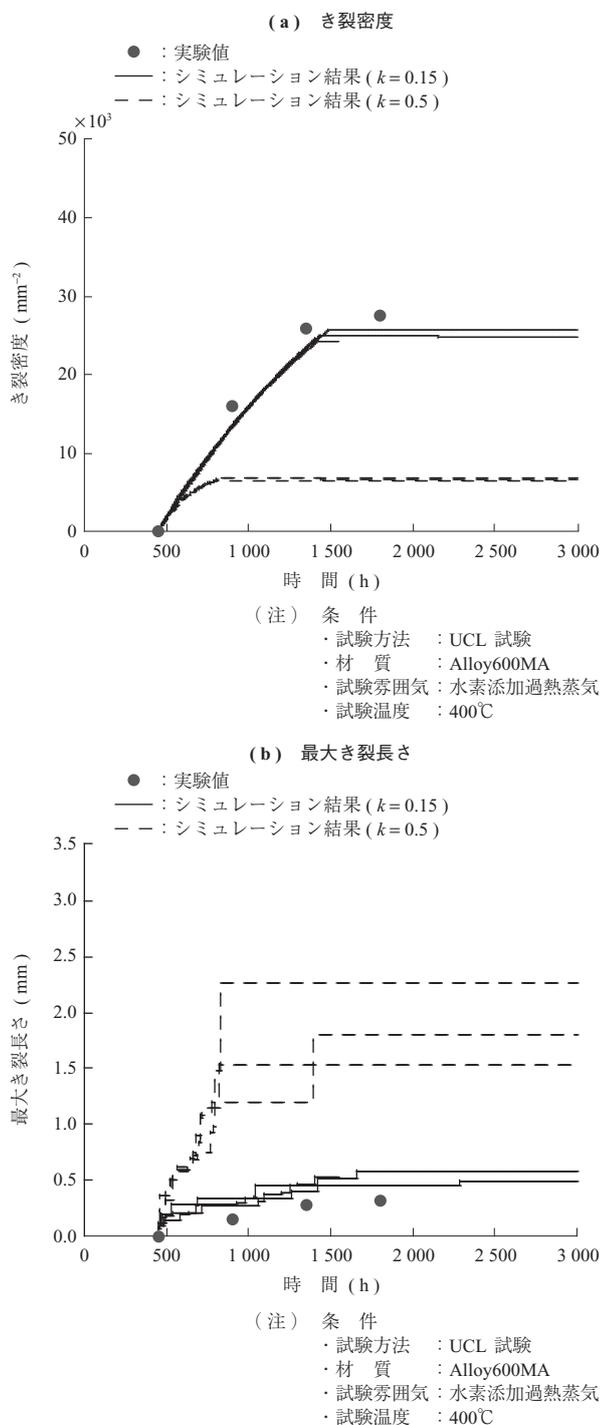
5. 結 言

当社での PWR 1 次系機器材料、特にニッケル基合金およびその溶接金属に対する耐 PWSCC 性の評価の取組みについてまとめて述べた。これまでの SCC 試験を通して以下のことが明らかとなった。

- (1) 3 インチの厚板材である Alloy690TT に比べて、押出し材である Alloy690TT の耐き裂進展抵抗は高い。
- (2) 溶接金属は Alloy690 母材（厚板材）よりき裂進展速度が低く、試験の範囲内では TG-SN690Nb は SCC に対して不感であった。
- (3) 400℃の過熱蒸気中では 360℃に比べてき裂進展速度は 10 倍速くなり、SCC 発生試験においては Alloy52 について SCC の発生が確認された。
- (4) BWR での合体係数 k を用いるとモンテカルロシミュレーション結果と実験結果は大きくかい離したが、それより低い合体係数 $k (= 0.15)$ を用いるとき裂密度、最大き裂長さについて、シミュレーション結果と実験結果は良く一致した。

参 考 文 献

- (1) 松岡孝昭, 山岡弘人, 平野賢治, 平野 隆: PWR 向け Alloy690 異材継手部における溶接技術の開発 IHI 技報 第 52 巻 第 2 号 2012 年 6 月 pp. 66 - 71
- (2) 株式会社 IHI: 電力エネルギーの基盤を担う至高の熱交換器 IHI 技報 第 55 巻 第 2 号 2015 年 6 月 pp. 22 - 25
- (3) 一般財団法人日本規格協会: JIS G0511 金属及び合金の逆 U 曲げ試験片を用いた応力腐食割れ試験方法 2014 年
- (4) 公益社団法人腐食防食学会: 高温高純度水環境における単軸引張定荷重負荷 (UCL) を用いた金属および合金の応力腐食割れ試験法 2015 年



第 6 図 Alloy600MA の過熱蒸気中 UCL 試験結果ならびにシミュレーション結果

Fig. 6 Experimental and simulation results for the UCL test conducted in hydrogenated steam environment for Alloy600MA

- (5) 公益社団法人腐食防食学会：高温水中における応力腐食き裂進展試験方法 2015年
- (6) Y. Sakakibara, I. Shinozaki, G. Nakayama, T. Naniichi, T. Fujii, Y. Shimamura and K. Tohgo : Monte Carlo Simulation Based on SCC Test Results in Hydrogenated Steam Environment for Alloy 600 Proc. 18th International Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – (2017. 8) pp. 335 – 345
- (7) 榊原洋平, 篠崎一平, 中山元 : Alloy600 の水素添加蒸気中での定荷重応力腐食割れ試験結果に及ぼす表面仕上げの影響 材料と環境 第66巻第4号 2017年4月 pp. 136 – 141
- (8) Y. Sakakibara, I. Shinozaki, G. Nakayama, T. Sato and T. Hirano : Acoustic Emission Monitoring of SCC Behavior in Superheated Hydrogenated Environment for Ni-Base Alloys Proc. 17th International Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Plants – Water Reactors – (2015. 8)
- (9) Y. Sakakibara, G. Nakayama and T. Hirano : Effect of Microstructure on Crack Growth Rate of Alloy 690 in Primary Water Proc. of Fontevraud 8 (2014. 9)
- (10) Y. Sakakibara, G. Nakayama and T. Hirano : Evaluation of the Susceptibility to PWSCC of Nickel-Base Weld Metals with the Slow Strain Rate Tensile Tests on Hump-Type Specimens Proc. of 16th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – (2013. 8)
- (11) Y. Sakakibara, G. Nakayama and T. Hirano : Effects of Material Factors and Test Methods on PWSCC Initiation Susceptibility of Ni-based Alloys Proc. Fontevraud 7 (2010. 9)
- (12) P. M. Scott : Stress Corrosion Cracking in Pressurized Water Reactors-Interpretation, Modeling and Remedies Corrosion Vol. 56 No. 8 (2000. 8) pp. 771 – 782
- (13) PWR Materials Reliability Program Alloy 600 Issues Task Group : Materials Reliability Program (MRP) Crack Growth Rates for Evaluating Primary Water Stress Corrosion Cracking (PWSCC) of Thick-Wall Alloy 600 Material (Non-proprietary version) (2002. 7) (オンライン入手先) < <https://www.nrc.gov/docs/ML0230/ML023010510.pdf> > (参照 2002-7-18)
- (14) T. Yonezawa : The Effects of Metallurgical Factors on PWSCC Crack Growth Rate in Simulated PWR Primary Water for TT Alloy 690 Proc. of 16th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – (2013. 8)
- (15) T. Maeguchi : Effect of Cold Work and Grain Boundary Carbides on PWSCC Susceptibility of Alloy 690 Proc. 18th International Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – (2017. 8)
- (16) P. Andresen and A. Ahluwalia : SCC of Alloy 690, Alloy 152/52/52i Weld Metals and Dilution Zones Proc. of International Light Water Reactor Materials Reliability Conference (2016. 8)
- (17) G. Economy, R. J. Jacko and F. W. Pement : IGSCC Behavior of Alloy 600 Steam Generator Tubing in Water or Steam Tests above 360 C Corrosion Vol. 43 No. 12 (1987. 12) pp. 727 – 734
- (18) H. Hänninen, A. Toivonen, A. Brederholm, T. Saukkonen, W. Karlsen, U. Ehrnsten and P. Aaltonen : Effect of Hot Cracks on Eac Crack Initiation and Growth in Nickel-Base Alloy Weld Metals Proc. 15th International Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors – (2011. 8)
- (19) G. Bertali, F. Scenini and M. G. Burke : The Intergranular oxidation susceptibility of thermal-treated Alloy 600 Corrosion Science Vol. 114 (2017. 1) pp. 112 – 122
- (20) S. Y. Persaud and R. C. Newman : A Review of Oxidation Phenomena in Ni Alloys Exposed to Hydrogenated Steam below 500°C Corrosion Vol. 72 No. 7 (2016. 7) pp. 881 – 896
- (21) F. Hamdani, H. Abe, B. Ter-Ovanessian, B. Normand and Y. Watanabe : Effect of Chromium Content on the Oxidation Behavior of Ni-Cr Model Alloys in Superheated Steam Metallurgical and Materials Transactions A Vol. 46 No. 5 (2015. 3)

pp. 2 285 - 2 293

(22) 榑原洋平, 篠崎一平, 中山 元, 阿部大輔, 松岡孝昭 : 過熱蒸気中 RUB 試験による Ni 基合金溶接金属の耐 SCC 性評価 材料と環境 2017 予稿集 D-107 2017 年 5 月 pp. 359 - 362

(23) K. Tohgo, H. Suzuki, Y. Shimamura, G. Nakayama and T. Hirano : Monte Carlo simulation of stress corrosion cracking on a smooth surface of sensitized stainless steel type 304 Corrosion Science Vol. 51 No. 9 (2009.9) pp. 2 208 - 2 217