

論文の内容の要旨

論文題目 : Evaluation of initial degradation in stress corrosion cracking
by using magnetic methods
(磁気的手法を用いた応力腐食割れの初期劣化評価)

氏名 : 高屋 茂

背景と目的

日本の商業用原子力発電は 1970 年代に開始し、現在、全国各地で 52 基の原子炉が運転されている。内 3 基が運転開始から 30 年以上経過しており、20 年以上経過しているものも 21 基存在している。運転許可年数が 40 年から最大 60 年に延長された米国に倣い、日本においても原子炉の長期運用が検討されており、高経年劣化対策が重要な課題となっている。

また、破壊力学的見地からき裂の存在を容認する新しい維持基準の導入が検討されており、同時に定期検査計画の見直しも行われている。このような状況下では、合理的な検査計画の作成のために、材料劣化評価手法のさらなる高度化が必要とされる。

炉内構造物に関しては、高経年劣化事象として、疲労、熱鋭敏化による応力腐食割れ(SCC)、照射誘起応力腐食割れなどが挙げられるが、この内 SCC が、最近連続して報告され大きな問題となっている。ただし熱鋭敏化とは、溶接時の熱処理によって耐腐食性の担い手であるクロムが結晶粒界に炭化物となって析出し、粒界近傍で欠乏した結果、材料が SCC 感受性を示すようになることである。

SCC き裂の発生・進展をより確実に予測あるいは防止するためには、鋭敏化を簡便に高精度で推定する手法の開発と、初期 SCC き裂の検出手法の開発が重要となる。ここで、鋭敏化評価および初期 SCC き裂検出のパラメータとして磁気特性に着目する。なぜなら磁気特性は劣化現象に敏感な物理量のひとつであり、さらに非破壊評価手法に適しているからである。本論文では、代表的な炉内構造物材料であるインコネル 600 と SUS304 ステンレス鋼に関して、磁気力顕微鏡(MFM)を用いた鋭敏化評価手法を提案し、その有効性を検討する。また初期 SCC き裂検出に関連して、磁束密度測定および MFM 観察を行い、SCC と磁気特性の相関関係を明らかにする。さらに、劣化領域を推定するために、磁束密度測定結果から磁化分布を逆解析する手法の開発を行う。

磁気力顕微鏡を用いた鋭敏化評価

溶体化処理後、620℃で 0,6,9,18 および 43 時間の熱処理を施したインコネル 600 および SUS304 鋼の MFM 観察を室温、大気中で行った。試料表面と探針間の距離は約 100 nm であり、使用した MFM は、磁気力をピエゾ素子とカンチレバーの位相差により検出する。また試験片は鏡面研磨後、観察する直前に観察面に垂直方向に永久磁石(～0.4T)で着磁された。

(インコネル 600)

鋭敏化材に関して、図1に示すような結晶粒界に沿った磁化を確認することが出来た。一方、溶体化材については、特に磁化は確認されなかった。インコネル 600 はキュリー温度が室温以下であるが、クロム量が減少するにしたがって急激にキュリー温度が上昇し、約 10wt%を下回ると室温でも強磁性を示すようになる。また、強磁性金属を含む合金の原子飽和磁気モーメントを示すスレーター-ポーリング曲線から、Ni-Cr 合金ではクロム量が減少すると原子飽和磁化モーメントが急激に上昇することがわかる。このことから MFM によって得られた磁化はクロム欠乏領域に対応していると考えられる。

熱処理時間の異なる試験片の MFM 観察結果を比較したところ、磁化分布はエッチ試験により推定されたクロム欠乏領域同様、熱処理時間とともにより連続的になることが確認された。次に、結晶粒界を横切る位相差の平均プロファイルから、位相差の結晶粒界上における平均値、および半値幅を求めた。半値幅は熱処理時間が長くなるにつれて単調に増加しているのに対して、結晶粒界上における位相差の平均値は約 25 時間まで増加した後、減少することがわかった。クロム量は、結晶粒界近傍において初期の段階では熱処理時間とともに減少するが、熱処理時間が約 25 時間を越えた付近から再拡散により増加すること知られている。このことから、MFM によりクロム欠乏を推定可能であることがわかる。

(SUS304 鋼)

インコネル 600 同様に、鋭敏化材に関して結晶粒界近傍における磁化を明瞭に確認することが出来た。ただし、SUS304 鋼では磁区構造を見ることが出来る (図 2)。また、溶体化材については磁化分布を確認できなかった。このことから、SUS304 鋼についても観察された磁化が熱処理に寄るものであることがわかる。

熱処理時間の異なる試験片の MFM 観察結果を比較したところ、熱処理時間が長くなるにしたがって磁化が連続的になっていることがわかる。結晶粒界近傍における位相差の振幅を求めたところ、約 25 時間あたりまで増加した後、飽和あるいはわずかに減少していることがわかった。SUS304 鋼に関し、結晶粒界近傍においてクロム欠乏量が数十時間まで増加し、その後クロムの再拡散により徐々に減少することが報告されており、位相差の振幅の時間変化はこのクロム欠乏量の時間変化と一致している。このことより、位相差の振幅からクロム欠乏量を推定可能であることが示された。

さらに、EBSP 法により相分布観察を行った。溶体化材に関しては全領域でオーステナイト相であることが示されたが、鋭敏化材の場合、一部結晶粒界近傍においてマルテンサイト相が確認された。またその形態は MFM 像中の磁化分布とよく似ており、最大幅の平均値もほぼ等しい。このことから、鋭敏化による磁化はマルテンサイト変態によるものであることがわかった。

SCC き裂の発生と進展に関して、各結晶粒界におけるクロム量と、クロム量が閾値を下回った結晶粒界の分布が重要であることが知られているが、MFM を用いれば、その両者を簡便に評価可能であることがわかる。

SCC と磁気特性の相関関係

(インコネル 600)

フラックスゲートセンサを用いて、加速試験により SCC き裂が導入されたインコネル 600 管の磁束密度分布測定を行った。ただし測定前に永久磁石 (~0.4T) を用い、測定面に垂直方向に着磁を

行った。インコネル 600 は常磁性材料であるが、SCC き裂導入に際して鋭敏化処理されており、残留磁束密度を測定することが出来た。さらに SCC き裂近傍で磁束密度が変化することも確認された。

次に、SCC き裂近傍の MFM 観察を行った。SCC き裂から 200 μm 程離れた領域においては、MFM による鋭敏化評価の検討を行った際、観測されたような結晶粒界での磁化分布が確認できた。しかし、その磁化は SCC き裂に近づくにつれ小さくなり、き裂から 50 μm 程の領域では確認するのが困難になった。このことから、磁束密度分布の変化が SCC き裂近傍における磁化量の減少であることが明らかになった。光学顕微鏡観察によりき裂周辺において多くのすべり線が示され、塑性変形が局所的に起こっていることがわかる。強磁性材料に関して、塑性変形により磁区が細分化し、残留磁化が減少することが知られており、SCC き裂近傍での磁化の減少についても同様のことが考えられる。

(SUS304 鋼)

SCC 加速試験 (0.5%ポリチオン酸溶液中での 3 点曲げ試験) を行い、フラックスゲートセンサを用いて磁束密度変化のその場測定を行った。鋭敏化条件は 620 $^{\circ}\text{C}$ で 18 時間、梁理論より推定された最大曲げ応力は約 100MPa である。なお試験片は測定前に永久磁石($\sim 0.4\text{T}$)を用い、測定面に垂直方向に着磁が行われている。試験開始直後より磁束密度変化が始まり、4 時間の試験時間中変化し続けることが示された(図 3)。試験終了時における 3 試験片の平均磁束密度変化は 0.011Gauss であった。SCC き裂近傍の MFM 観察を行ったところ、き裂縁において応力誘起マルテンサイト変態によるレンズ状の磁化が確認された。このことから、SUS304 鋼の SCC き裂導入による磁束密度変化は、マルテンサイト変態によるものであることが示された。

磁化分布逆解析手法の開発

ニューラルネットワークに基づき、磁束密度分布から磁化分布を逆解析するための手法を開発した。これにより、劣化領域の特定が可能になる。ここでは、疲労により導入された磁化(加工誘起マルテンサイト変態)を対象にしているが、上で示されたような鋭敏化や SCC き裂導入による磁化にも簡単に適用可能であると思われる。開発された手法を用いて、疲労き裂試験片内部の磁化分布逆解析を行ったところ、き裂端部の応力集中部において磁化が大きくなっていることが示された。

さらに、マルテンサイト変態率と初透磁率の間に相関があることから、より定量的な劣化診断を行うため、磁束密度分布から透磁率分布を逆解析する手法を開発した。シミュレーションデータに関して真の分布と逆解析結果の比較が行われ、手法の妥当性が示された。

結論

SCC の初期劣化に関連して、MFM を用い広範囲における各結晶粒界のクロム量を推定可能であること、また加速試験に関してはあるが、SCC と磁気特性の相関関係が示され、初期 SCC き裂の検出が可能であることが明らかになった。さらに開発された磁化分布逆解析手法を用いて、磁束密度分布から劣化領域を特定することが可能であることが示された。

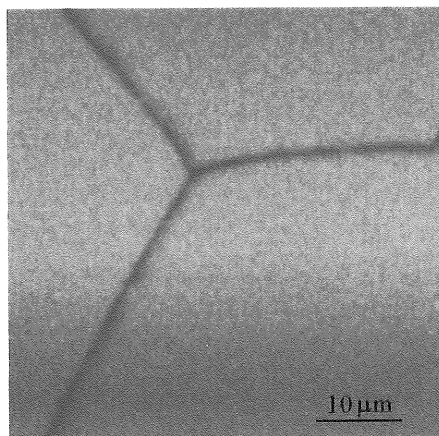


図1 鋭敏化インコネル 600 (620°C/43 時間) の MFM 画像

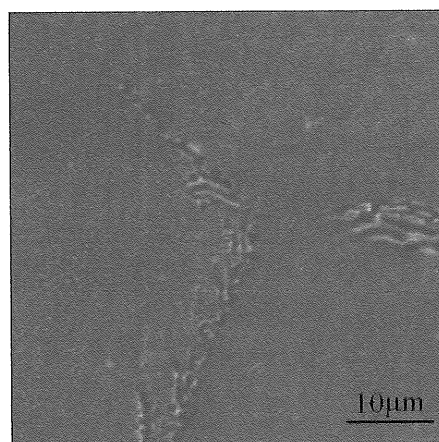


図2 鋭敏化 SUS304 鋼 (620°C/43 時間) の MFM 画像

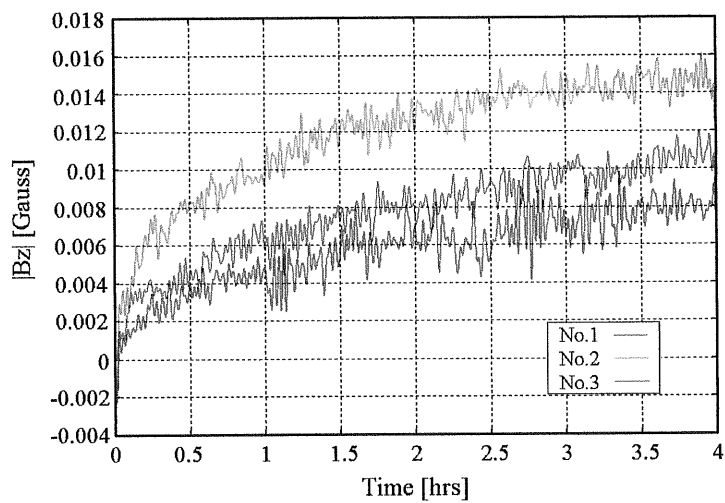


図3 SCC 加速試験中その場磁束密度測定結果 (図中番号は試験片番号を示す).