# 超微小引張試験による 中性子照射ステンレス鋼の粒界破壊特性の評価 -バッフルフォーマボルト材と フラックスシンブルチューブ材の比較-

Characterization of Grain Boundary Fracture in Neutron-irradiated Stainless Steel by Micro-Tensile Testing

- Comparison between Baffle Former Bolt and Flux Thimble Tube -

 三浦 照光 (Terumitsu Miura) \*1 藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii) \*1 福谷 耕司 (Koji Fukuya) \*1

要約 PWR炉内構造物の照射誘起応力腐食割れ(IASCC)の発生しきい応力の決定にはバッフルフォーマボルト(BFB)材とフラックスシンブルチューブ(FTT)材の定荷重SCC試験のデータが用いられる.照射量20dpaまでの発生しきい応力にはFTT材の方が低い傾向があり、この原因を材料挙動の面から検討するため、粒界部の引張破壊挙動を超微小引張試験により調べた. 18.8dpaと17.3dpaまで中性子照射されたBFB材とFTT材から大傾角粒界を含む超微小引張試験片を集束イオンビーム加工により作製し、室温で引張試験した.BFB材は粒内で延性破壊したが、FTT材は粒界破壊した.この破壊挙動の違いは粒界の結合強度がFTT材の方が低いことを示し、BFB材に比べてFTT材の発生しきい応力が低い一因と考えられる.

キーワード 照射誘起応力腐食割れ,中性子照射,ステンレス鋼,粒界破壊,超微小引張試験

Abstract Constant load tests data of neutron-irradiated stainless steel specimens obtained from baffle former bolts (BFBs) and flux thimble tubes (FTTs) are used to determine irradiation assisted stress corrosion cracking (IASCC) initiation threshold stress for pressurized water reactor (PWR) core internals. Since the threshold stress of FTTs is known to be lower than that of the BFBs, tensile fracture behavior of the grain boundary (GB) in neutron-irradiated BFB and FTT specimens was investigated by the micro-tensile testing method to determine the reasons for the different threshold stress in the BFBs and FTTs from the viewpoint of material behavior. Micro-tensile specimens containing a high-angle GB were machined by the focused ion beam(FIB)technique for the BFB irradiated to a dose of 18.8dpa and the FTT irradiated to 17.3dpa, and then tensioned at room temperature in the FIB system. Partial intergranular fracture was confirmed for the FTT specimen, while the BFB specimen elongated near the GB and then fractured in the ductile manner. The difference in tensile fracture behavior of these specimens indicated that the GB cohesive strength of the FTT was degraded to a lower level than that of the BFB, and it might be one of the factors causing the lower IASCC initiation threshold stress of the FTTs.

Keywords Irradiation assisted stress corrosion cracking, Neutron irradiation, Stainless steel, Grain boundary fracture, Micro-tensile testing

# 1. はじめに

照射誘起応力腐食割れ(irradiation assisted stress corrosion cracking, IASCC) は、中性子照射を受

けたステンレス鋼が高温高圧水中で生じる粒界型 の応力腐食割れである. IASCCは沸騰水型軽水 炉 (boiling water reactor, BWR) と加圧水型軽水 炉 (pressurized water reactor, PWR) の両方で

<sup>\*1 (</sup>株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

発生が確認されており、軽水炉の主要な高経年化 課題の一つに位置付けられている.PWRについて はIASCCの国内事例は報告されていないが、海外 ではフランスのBugey原子力発電所等で冷間加工 ステンレス鋼製のバッフルフォーマボルト(baffle former bolt, BFB)にIASCCによる破損が報告さ れており、最近では2016年春に実施された点検 で米国のDC Cook 2号機やIndian Point 2号機、 Salem 1号機で多数のBFBの破損が報告されてい る.BFBは炉内に600~1000本程度用いられており、 一部が損傷しても安全上の問題にならないことが国 際的に認識されているものの、日本においても適切 な時期に点検を実施し、取替え等の管理をしていく ことが重要となる.

BFBの管理については、原子力安全推進協会の 炉内構造物等点検評価ガイドライン検討会が発行し たPWR 炉内構造物点検評価ガイドライン<sup>(1)</sup> に基づ いて行われる.BFBの損傷はボルト首下部に生じ るため、その発生予測はボルト首下部にかかる応力 とIASCC発生に要するしきい応力(発生しきい線 で表す)を比較して行う.発生しきい線は中性子 照射材を高温高圧水中で定荷重SCC試験したデー タに基づき策定されており、PWR炉内構造物点検 評価ガイドライン<sup>(1)</sup>にはBFB材のデータに基づ く線と炉内計装用シンブルチューブ (flux thimble tube, FTT) を試験材としたデータに基づく線の2 本の暫定しきい線が示されている。20dpa程度まで は照射量の増加に伴って発生しきい応力が低下す る傾向は類似するものの. FTT材のしきい線の方 がIASCC発生しきい応力が低い傾向が認められる. BFB材とFTT材のしきい線の違いを考慮して発生 予測を行うためには、IASCCの発生挙動が異なる 原因を把握することが重要である.

BFB材とFTT材は同じ冷間加工316ステンレス 鋼ではあるが,製作工程における加工と熱処理の条 件が異なり,BFB材では最終冷間加工度が約20% であり,平均粒径が約75µmであるが,FTT材で は最終冷間加工度が約15%であり,平均粒径は約 10µmである.また,燃料からの距離により照射温 度と中性子束にも違いがある.Takakuraら<sup>(2)</sup>によ ると,照射後の材料特性については硬さとミクロ組 織,粒界偏析に両材料で大きな違いは認められてい ない.また,変形挙動については320℃で1%まで 引張試験した際に,BFB材の表面では観察視野の ほとんどにすべり線が観察されたが,FTT材では 観察視野の11%の面積に相当する一部の結晶粒に しかすべり線が観察されなかったことが報告されて いる<sup>(2)</sup>.また,FTT材では製造時の表面加工層が 試験片に残存している場合にはIASCCの発生を促 進する影響があることが報告されている<sup>(2)</sup>.

INSSではこれまでの研究からIASCCの発生機構 として,照射材特有の転位チャンネル変形により粒 界局所に応力集中やひずみの蓄積が生じることと, 照射と腐食による粒界のミクロ組織と組成の変化に 伴って粒界の結合強度が低下し,粒界割れを起こし 易くなることに注目している.BFB材とFTT材で のIASCCの発生挙動の違いも,これらの機構で説 明できる可能性が考えられる.そこで本研究では, 照射による粒界の結合強度の低下についてBFB材 とFTT材で違いの有無を検討するため,照射量が 約20dpaのBFB材とFTT材について粒界部の引張 破壊挙動を超微小引張試験で調べた.

### 2. 試験方法

#### 2.1 供試材

供試材には実機PWRで使用され、ほぼ同じ照 射量まで中性子照射されたBFB材とFTT材を用 いた.BFB材については、原子力安全基盤機構の 「照射誘起応力腐食割れ(IASCC)評価技術研究<sup>(3)</sup>」 で用いられた試験材の残材を入手して用いた. FTT材については、国内PWRで13年間使用され たFTTを用いた.表1に化学組成を示す.3×1× 1mmの試料を供試材から採取した.採取した部位 の照射条件は、BFB材については照射量18.8dpa, 照射温度302℃,損傷速度3.8×10<sup>-8</sup>dpa/sであり、 FTT材については照射量17.3dpa,照射温度323℃, 損傷速度4.3×10<sup>-8</sup>dpa/sであった.なお、同BFB材 とFTT材の機械的性質やミクロ組織、粒界偏析等

表1 供試材の化学組成(wt%)

|             | С    | Si   | Mn   | Р     | S     | Ni    | Cr    | Мо   | Fe      |
|-------------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|------|---------|
| $BFB^{(2)}$ | 0.05 | 0.55 | 1.55 | 0.021 | 0.025 | 12.45 | 17.71 | 2.26 | balance |
| FTT         | 0.04 | 0.62 | 1.63 | 0.022 | 0.006 | 12.61 | 16.94 | 2.22 | balance |



図1 BFB材とFTT材のEBSDマップ 図中の黒線は大傾角粒界を,赤線は双晶境界,黄線は対応粒界を示す. 超微小引張試験を実施した大傾角粒界を黒丸で示す.

はTakakuraら<sup>(2)</sup> やFukuyaら<sup>(4),(5)</sup> により報告されている.

試料表面を機械研磨により鏡面研磨まで仕上げ た後,電子後方散乱回折(electron backscatter diffraction, EBSD)測定を実施して試料表面の結晶 粒界の位置と性格を調べ,試験対象とする大傾角粒 界を選定した.EBSD測定により取得した粒界マッ プを図1に示す.図中の3色の線は結晶粒界の位置 を表しており,粒界性格ごとに色分けした.図中 に黒丸で示した大傾角粒界1個を含む20×10×5µm のマイクロ試料を集束イオンビーム(focused ion beam, FIB)加工により切り出し,粒界を対象とし た超微小引張試験を実施するために国立研究開発法 人日本原子力研究開発機構原子炉廃止措置研究セン ター内の高経年化分析室に輸送した.なお,FIB加 工は日本核燃料開発株式会社のホットラボで実施 した.

#### 2.2 超微小引張試験

高経年化分析室に設置された集束イオン/電子 ビーム加工観察装置(FIB-SEM)日立ハイテクノ ロジーズ社製NB5000を用いて,輸送したマイクロ 試料より図2に示す形状の超微小引張試験片を作製 した.マイクロ試料より切り出した切片の走査イオ ン顕微鏡(scanning ion microscope, SIM)像と超 微小引張試験片の作製位置を図3に示す.試験片の 寸法は8×4×2µmであり,粒界面を試験片中央に引 張応力軸に対して垂直に配した.また,結晶粒界に 応力を集中させるとともに周辺に塑性拘束を生じさ せて粒内で延性破壊が生じることを抑制する目的 で,試験片側面より粒界に沿って幅100nmのスリッ トをFIB加工により導入して粒界面の大きさを0.3



図2 超微小引張試験片の寸法図

×2µmとした.以下,スリットに挟まれた領域を試 験部とする.なお,試験片の一部はFIB装置のタ ングステン蒸着により作製しているが,試験部とそ の周辺には蒸着部は含まれない.試験片はBFB材, FTT材共に1本ずつ作製した.

FIB-SEM装置内で引張試験を実施した.装置内 は室温の真空環境である.引張試験の概略図と試験 前のSIM像を図4に示す.試験片の左端はマイク ロ梁の中央位置に,右端はFIB-SEM装置内で3軸 方向に移動可能なマイクロプローブにタングステン 蒸着により固定されている.マイクロ梁はシリコン 単結晶よりFIB加工で作製した梁部の寸法が225×7 ×7μmの両端固定梁である.バネ定数は超微小硬さ 試験機エリオニクス社製ENT-2100を用いてマイク ロ梁の中央部に2mNまでの荷重を負荷して得た荷 重-変位曲線から600N/mと決定した<sup>(6)</sup>.マイクロ







図4 超微小引張試験の概略図と試験前のSIM像

プローブを手動操作により平均20nm/sの移動速度 で図4(a)中の右方向に動かし,試験片が破断する まで引張試験を行った.試験片にかかる荷重はマイ クロ梁の変位とバネ定数から線形弾性論により算出 した.試験中のSIM像を毎秒20コマで録画し,試 験片の形状変化とマイクロ梁の変位を記録した.引 張中にマイクロプローブがしなることで試験片が 引張軸から反れる場合があり,試験中のSIM像を 確認することで試験片の反れを適宜修正して試験 した.Z方向の反れについては,試験片側面を58 度傾斜した方向から走査型電子顕微鏡(scanning electron microscope, SEM)像を観察して試験片の 反れを確認し,適宜修正を行った.なお,SEM観 察についてはSIM像と同時に観察すると双方にノ イズが生じるため、マイクロ梁の変位が500nm増 すごとに試験を一時中断して行った. SIM 像の空間 分解能は29nmであり,マイクロ梁の変位から算出 される荷重の分解能は17µNである.

#### 2.3 破面と断面の観察

試験後,破面をSEM観察して破壊の様子を調べた.また,破壊様式を確認するため,FIB加工により試験片を薄膜化し,断面のミクロ組織を走査透 過型電子顕微鏡(scanning transmission electron microscope,STEM)日立ハイテクノロジーズ社製 HD-2700で観察した.なお,FIB加工により薄膜に 導入されたダメージ層を低減させるため,加速エネ ルギーを2kVまで低下させたFIBのGaイオンビー ムで薄膜部を最終加工した.

#### 3. 試験結果

#### 3.1 超微小引張試験

BFB材とFTT材の引張試験の様子を図5と図6 に示す.なお、試験片のSEM観察はマイクロ梁の 変位が500nm増すごとに行っており、破断直前に おけるSEM像は撮影されていない.試験片は、試 験部がわずかに伸びた後に破断した.図4(b)に示 した伸びの評価位置で求めた試験部の伸びと荷重の 関係を図7に示す.試験片は共に試験部が約8%伸 びた後に破断した.なお、SIM像上で試験部の1 ピクセルの伸びが約8%の伸びに相当する.試験片 の変形速度は試験部の伸びから計算すると1×10<sup>-3</sup>s<sup>-1</sup> に相当した. 破断時の荷重はBFB材では580µN で あったが、FTT材では880µNであり、BFB材より も高い値であった. なお、図5(d)および図6(d) に示した試験後のSIM像ではマイクロプローブ側 の試験片が上方にずれているが、これは引張中にマ イクロプローブのしなりを修正したためであり、引 張中はほぼ一軸上に沿って試験した.

## 3.2 破面と断面の観察

BFB材とFTT材の破面のSEM像を図8と図9 に示す.試験片は共に試験部が大きく絞られており, BFB材では粒内で延性破壊した様相であったが, FTT材については破面の一部に平坦部が認められ,



(d) 試験後

図5 超微小引張試験中のSIM像およびSEM像(BFB材)



(a) 試験前



(b) 試験中 (変位 x=860nm)



(c) 破断直前



2µm

(d) 試験後

超微小引張試験中のSIM像およびSEM像(FTT材) 図6



一部で粒界破壊したことが分かった. FTT材の破 面の平坦部は試験部の幅方向の中央に認められてお

り、スリットによる塑性拘束が最も強くなる部位で あった.

図8および図9中に示した薄膜加工位置におけ る試験片断面の透過型電子顕微鏡(transmission electron microscope, TEM)像を図10と図11に示す. BFB材では破面は引張軸に対して斜めになってお り. すべりによって試験片が破断したと推測された. 粒内で延性破壊したことを確認するため, TEM 像 上に示した位置で電子ビームを細く絞って回折図形 を撮影し、回折図形の変化から粒界の位置を調べた. 図10(c)に示した回折図形は撮影位置1と2の間で 大きく変化しており、1-2間に認められた線状の コントラストが粒界であると確認され、BFB材は 粒内で延性破壊したことが確認された. FTT材で



(d) マイクロプローブ側(拡大図)

はBFB材よりも試験部が大きく絞られており,破 面直下には変形双晶が観察された.試験部中央に認 められた破面の平坦部が粒界であることを確認する ために回折図形の変化により粒界の位置を調べた結 果,撮影位置3と4の間で回折図形が大きく変化し ており,3-4間に認められるコントラストが粒界 であると確認された.粒界のコントラストは試験部 中央の延長線上にあり,FTT材の破面の平坦部は 粒界破面であることが確認された.また,破面の端 部は絞られており,塑性拘束の強い試験部端部では 粒内が伸びて延性破壊したと推測された.なお,撮 影位置2と3については同一の結晶粒であるものの 回折図形が一致していないが、これはマイクロ梁側 とプローブ側の試験片を別々に薄膜試料にして観察 しているために試料の向きが若干異なっていたこと と、絞られたことによって結晶方位が多少回転した ためと考えられる.

#### 4. 考察

約20dpaの照射量のBFB材とFTT材について、 大傾角粒界の引張破壊挙動を超微小引張試験で調べ た結果、FTT材では破面の一部で粒界破壊が確認

図8 試験片破面のSEM像(BFB材) 白枠は断面観察用の薄膜加工位置を示す.



図9 試験片破面のSEM像(FTT材) 白枠は断面観察用の薄膜加工位置を示す.

されたが、BFB材では粒界破壊は認められなかっ た.これまでに実施した超微小引張試験<sup>(6),(7)</sup>では 粒界部の引張破壊挙動に再現性が確認されており、 本試験における破壊挙動の違いはBFB材に比べて FTT材の方が粒界破壊し易いことを示し、FTT材 の方が照射によって粒界の結合強度がより弱まっ ていたことを示唆する.粒界の結合強度の低下は IASCCの発生を促進すると考えられることから、 発生しきい応力がBFB材に比べてFTT材の方が低 くなる原因の一つと考えらえる.

FTT材については照射量74dpaについても同じ 試験を行っており<sup>(7)</sup>,破面はほぼ全面が粒界破面で あった.照射量17.3dpaのFTT材では試験部の初 期断面積の約6%のみが粒界破面であり,照射量が 増すことで粒界の結合強度がより低下して粒界割 れを起こし易くなったと考えられる.FTT材では ゲージ部長さが5~15mmの試験片で引張試験し た際にも室温や320℃で6.8×10<sup>-8</sup>s<sup>-1</sup>の変形速度で試 験すると破面の一部に粒界破面が確認され<sup>(4),(8)</sup>,照 射量が増すと粒界破面率が増すことが報告されて おり<sup>(4)</sup>,照射による劣化が本試験でも確認された. PWR炉内構造物点検評価ガイドライン<sup>(1)</sup>に記載さ れるFTT材のしきい線によると,IASCC発生し きい応力は照射量74dpaでは約400MPaであるが.



図10 試験部断面のTEM像と回折図形 (BFB材) 白丸は回折図形を撮影した位置を示す.

17.3dpaでは約550MPaであり、粒界破壊のし易さ は発生しきい応力と定性的に対応した.

粒界の結合強度を低下させる要因には、粒界上で のキャビティの形成や不純物の偏析、水素や酸素の 侵入等が考えられ、 また、 粒界の結晶構造上の違い も関係すると考えられる. 今回試験したBFB材と FTT材については共に大傾角粒界であり、粒界の 偏析状況についてもTEMとエネルギー分散型X線 分析装置 (energy dispersive X-ray spectrometer, EDS)により調べられた範囲では大きな違いは認 められていない<sup>(2)</sup>. 粒界キャビティについては. 300℃程度の温度域はキャビティが安定して形成 するにはやや低い温度であり, 照射速度やヘリウ ムの量, 材料組成によって形成される場合<sup>(9),(10)</sup> と されない場合<sup>(5)</sup> がある.これまでにHe注入した SUS316ステンレス鋼について粒界キャビティの形 成状況と粒界部の引張破壊挙動の関係を調べた結果 では、粒界に平均5nm以下の間隔で微細なキャビ ティが高密度に形成すると粒界破壊が促進されるこ とを明らかにしている<sup>(6)</sup>. 今後,本試験に用いた材 料についてTEMで粒界キャビティの形成状況を調 べるとともに,最新の分析技術である3次元アトム プローブを用いて粒界の偏析状況についても詳しく 調べ,破壊挙動が異なった原因を検討する予定で ある.

#### 5. まとめ

照射量18.8dpaのBFB材と17.3dpaのFTT材について,大傾角粒界の引張破壊挙動を室温の超微小引 張試験により調べた.

・BFB材は粒内で延性破壊したが、FTT材は破 面の一部で粒界破壊した.FTT材の方がBFB 材よりも粒界破壊し易く、FTT材の粒界の結 合強度はBFB材より低いことが示唆された.



(c) 回折図形

図11 試験部断面のTEM像と回折図形 (FTT材) 白丸は回折図形を撮影した位置を示す.

- ・FTT材の粒界破面率は、同一の方法で試験した74dpa照射材ではほぼ100%であったのに対して17.3dpa照射材では約6%であった。17dpa以上でも照射量が増すと、より粒界破壊し易くなることが示唆された.
- ・粒界部の引張破壊挙動の違いはIASCC発生し きい応力と定性的に対応しており、粒界の結合 強度が低いことがBFB材に比べてFTT材の発 生しきい応力が低い一因と考えられる.

# 文献

- (1) PWR 炉内構造物点検評価ガイドライン [バッフルフォーマボルト](第2版),一般社団法人原子力安全推進協会 炉内構造物等点検評価ガイドライン検討会,(2014).
- (2) K. Takakura, K. Nakata, K. Fujimoto, K. Sakima, N. Kubo, "IASCC Properties of Cold

Worked 316 Stainless Steel in PWR Primary Water", 14th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Virginia Beach, VA, August 23-27, 2009.

- (3) 独立行政法人原子力安全基盤機構「平成20年 度照射誘起応力腐食割れ(IASCC)評価技術 に関する報告書(09原高報-0012)」, 平成21 年9月(2009).
- (4) K. Fukuya, M. Nakano, K. Fujii, T. Torimaru, "IASCC susceptibility and slow tensile properties of highly-irradiated 316 stainless steels", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.41, P.673, (2004).
- (5) K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, Y. Kitsunai, "Evolution of microstructure and microchemistry in cold-worked 316 stainless steels under PWR irradiation," J. Nucl. Sci.

Technol., Vol.43, P.159 (2006).

- (6) T. Miura, K. Fujii, H. Nishioka, K. Fukuya, "Micro-mechanical investigation for effects of helium on grain boundary fracture of austenitic stainless steel", J. Nucl. Mater., Vol.457, P.279, (2015).
- (7) 三浦照光,藤井克彦,西岡弘雅,福谷耕司,橘 内祐寿,"超微小引張試験による中性子照射 ステンレス鋼の粒界破壊特性の評価", INSS JOURNAL, Vol.19, P.155, (2012).
- (8) K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, M. Kamaya, T. Miura, T. Torimaru, "Fracture behavior of austenitic stainless steels irradiated in PWR," J. Nucl. Mater., Vol.378, P.211, (2008).
- (9) K. Fujimoto, T. Yonezawa, E. Wachi, Y. Yamaguchi, M. Nakano, R.P. Shogan, J.P. Massoud, T.R. Mager, "Effect of the Accelerate Irradiation and Hydrogen/Helium Gas on IASCC Characteristics for Highly Irradiated Austenitic Stainless Steels," Proc. 12th Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Salt Lake City, UT, U.S.A., August 14-18, 299 (2005).
- (10) D.J. Edwards, F.A. Garner, S.M. Bruemmer, Pål Efsing, "Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa," J. Nucl. Mater., Vol.384, P.249 (2009).