

600合金溶接金属のPWSCC発生域におけるき裂進展速度

Crack Growth Rate in Initiation Stage on Primary Water Stress Corrosion Cracking of Alloy 600 Weld Metals

西川 嘉人 (Yoshito Nishikawa)*¹

戸塚 信夫 (Nobuo Totsuka)*²

要約 PWR 1次冷却水中における600合金溶接金属の応力腐食割れ (PWSCC) 発生域の挙動を明らかにするため、溶接継手およびチタン (Ti) やニオブ (Nb) を600合金に添加した材料による試験片を用い、温度360°Cで定荷重試験を実施した。その結果、溶接金属は600合金の3~5倍のき裂進展速度となり、また Ti や Nb が添加された材料は同じ応力ではき裂進展速度は小さくなるが、引張強さで規格化した応力で整理すると600合金と同程度の値となることが明らかになった。

キーワード 600合金, 溶接金属, 応力腐食割れ, 定荷重試験, PWSCC

Abstract Crack growth rates in initiation stage on primary water stress corrosion cracking (PWSCC) were studied at temperature 360°C using constant load test to clarify the PWSCC behavior of alloy 600 weld metals and Ti and/or Nb containing MA600. As the results, it is revealed that crack growth rate of alloy 600 weld metals are 3 to 5 times faster than that of MA600, and those of Ti and/or Nb containing material is nearly MA600 at the same normalized stress using each 0.2% proof stress, though they show slower rate at the same stress.

Keywords Alloy 600, weld metal, stress corrosion cracking, constant load test, PWSCC

1. はじめに

一般に応力腐食割れ (stress corrosion cracking, SCC) き裂進展は、図1に示すように潜伏期間と微小なき裂がゆっくり成長する発生域と破壊力学的に取り扱える比較的大きなき裂から成長する伝播域に分かれていると考えられている。⁽¹⁾ 600合金溶接部の1次冷却水中の応力腐食割れ (primary water stress corrosion cracking, PWSCC) 研究においては、米国電力研究所 (Electric Power Research

Institute, EPRI)⁽²⁾ やわが国の旧発電設備技術検査協会 (現原子力安全基盤機構)⁽³⁾ 等でき裂進展挙動を明らかにする研究が進められているが、いずれもき裂が発生し、ある程度の大きさに成長した後のき裂進展速度が大きい伝播域 (図1の②) のき裂進展を評価したもので、PWSCCによる寿命の大部分を占めると考えられる発生域 (図1の①) のき裂を評価したものはない。

そこで本研究では、PWSCC発生域のき裂進展挙動に着目し、発生域における微小なき裂の進展評価を行った。

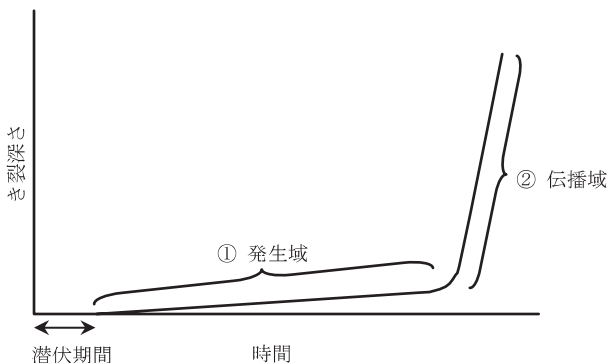


図1 SCCき裂進展模式図

2. 実験方法

2.1 微小なき裂進展評価の考え方

SCCの進行は、前述したように図1に示す潜伏期間の後、孔食や粒界腐食部を起点に微小なき裂が発生し、それらの成長や合体により割れが成長するSCC発生域を経て、臨界き裂長さに達するとSCCき

*1 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所 現在関西電力(株)

*2 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

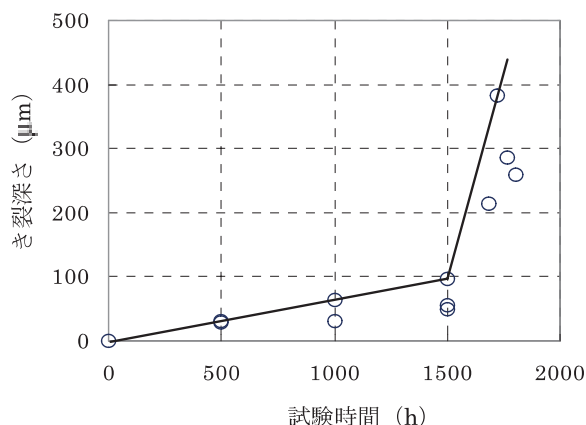


図2 最大割れ深さと試験時間の関係⁽⁴⁾

〔試験条件：応力 529MPa, 温度 360℃, 材料 MA600〕
環境 500ppmB+2ppmLi+4ppmH₂〕

裂伝播域に移行してき裂が急速に進展する3つの段階を経るものと考えられている。⁽¹⁾

一方、MA600を2.3節に示す定荷重試験法によりPWR 1次冷却水を模擬した環境中で試験し、試験時間と試験片断面に観察された最大き裂深さの関係は図2のようになった。⁽⁴⁾ このことからPWSCCでは潜伏期間はないか、あっても無視できる程度であること、発生域ではほぼ一定速度でき裂が進展すること、板厚の5～10%程度で発生域から伝播域に移行することが言える。また破断までの時間(寿命)は発生域に支配されており、微小き裂の進展速度を求めることで概略の寿命が推定できる。

なお、定荷重試験はき裂が促進される360℃の高温で実施しているが、SCCの進展速度は絶対温度の逆数の指数に比例するアレニウスの法則に従うことが実験的に確認されている⁽⁵⁾ことから、過去に実施した温度の影響に関する研究^(6,7)等で得られた活性化エネルギーより使用温度に相当するき裂進展速度を推定することができる。

2.2 供試材

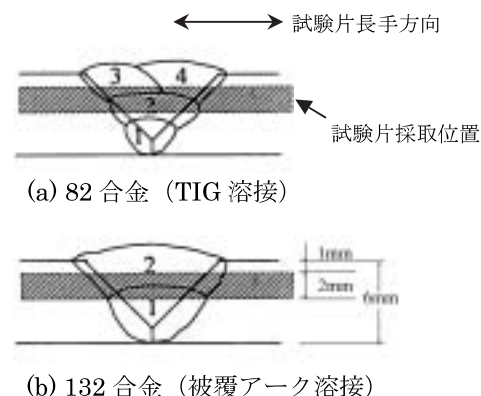


図3 溶接施行状況および試験片採取位置

実験に使用した供試材は、MA600合金に82, 132合金で溶接したものおよび溶接金属の組成を模擬した600合金を用いた。これらの材料は既報⁽⁶⁾および前報⁽⁷⁾で報告したものと同じで、次のように作成した。

(1) 溶接試験片

図3に示すMA600合金の厚さ6mmの板材にV型開先により試験片長手方向に垂直な方向に溶接し、その中間部から切り出したものである。82合金は4層のティグ(tungsten inert gas, TIG)溶接で、132合金は2層の被覆アーク溶接で溶接した。使用した溶接金属および母材の化学成分および溶接試験片の室温における機械的性質と溶接条件をそれぞれ表1と表2に示す。

(2) Ti, Nb添加600合金試験片

溶接金属の組成を模擬するため、600合金の合金成分にTiおよびNbを微量添加し含有量を変化させた9種類の供試材を、MA600合金と同様の製造方法により作製した。

使用した材料の化学成分および室温における機械的性質をそれぞれ表3と表4に示す。

なお供試材については、Ti, Nbを3.0%添加したものをそれぞれTi3.0, Nb3.0と、Tiを0.5%とNbを3.0%添加したものをTi+Nb3.0のように付号した。

表1 溶接試験片の化学成分

材料	(wt%)									
	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe	Cu	Nb
82合金	0.017	0.26	2.54	0.006	0.001	72.9	17.95	3.72	0.01	1.93
132合金	0.030	0.30	2.10	0.009	0.002	71.5	15.40	8.50	0.01	1.88
母材(MA600)*	0.030	0.27	0.29	0.010	0.001	72.9	16.20	-	0.05	-

* 母材には他にTiが0.20%含まれる。

表2 溶接試験片の機械的性質および溶接パス数・入熱量

材料	0.2%耐力	引張強さ	溶接パス数	入熱量
82 合金	306 MPa	625 MPa	4	10.1 kJ/cm
	266 MPa	589 MPa	4	14.9 kJ/cm
132 合金	229 MPa	563 MPa	2	10.1 kJ/cm
	200 MPa	534 MPa	2	14.9 kJ/cm

表3 Ti, Nb添加600合金試験片の化学成分 (wt%)

元素 供試材	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe	Cu	B	Ti	Nb
MA600	0.030	0.35	0.36	0.009	0.001	74.85	16.16	8.64	0.01	—	—	—
Ti 0.5	0.028	0.27	0.35	0.014	0.001	74.50	16.10	8.23	<0.01	0.0001	0.51	<0.01
Ti 1.5	0.028	0.26	0.35	0.015	0.001	74.40	16.11	7.25	<0.01	0.0001	1.59	<0.01
Ti 3.0	0.029	0.26	0.33	0.015	0.001	74.70	16.04	5.59	<0.01	0.0003	3.03	<0.01
Nb 1.0	0.029	0.31	0.34	0.010	0.001	74.70	16.01	7.63	<0.01	0.0001	<0.01	0.97
Nb 2.0	0.025	0.33	0.34	0.005	0.002	74.80	16.00	6.55	<0.01	0.0001	<0.01	1.95
Nb 3.0	0.025	0.32	0.34	0.013	0.003	74.80	16.04	5.65	<0.01	0.0001	<0.01	2.81
Ti+Nb1.0	0.029	0.31	0.35	0.009	0.001	74.50	16.14	7.16	<0.01	0.0002	0.50	1.00
Ti+Nb2.0	0.028	0.35	0.35	0.009	0.002	74.70	16.03	6.05	<0.01	0.0001	0.49	1.99
Ti+Nb3.0	0.027	0.34	0.35	0.005	0.003	74.50	16.20	5.14	<0.01	0.0001	0.50	2.93

表4 Ti, Nb添加600合金試験片の室温における機械的性質

機械的性質 供試材	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	伸び (%)	絞り (%)
MA600	243	629	47.3	—
Ti 0.5	270	669	43.9	29.7
Ti 1.5	295	720	43.0	31.9
Ti 3.0	378	837	45.3	29.6
Nb 1.0	332	717	40.0	28.2
Nb 2.0	372	762	41.1	29.1
Nb 3.0	377	799	39.7	28.0
Ti+Nb1.0	366	789	42.3	27.1
Ti+Nb2.0	371	790	42.7	28.2
Ti+Nb3.0	386	827	45.2	28.3

2.3 SCC試験

SCC試験は、図4に示す平板の定荷重試験片を用い、図5に示す系統構成の定荷重試験装置にてPWR 1次系模擬水 (500ppmB + 2ppmLi + 2.75ppmH₂) 中、温度360°Cで一定荷重を負荷する方法で実施した。

破断前の一定時間経過後に試験片を取り出して、試験片平行部を樹脂に埋め、試験片端面から1mm研磨した後、図6に示すように平行部全長に渡って表面から内部方向に進展している粒界割れ深さを光学顕微鏡で観察し、更に0.5mmずつ研磨した後同じ方法

で割れ深さを3断面観察した。得られた最大割れ深さから次式でき裂進展速度を求め、負荷した応力との関係を整理した。

$$\text{き裂進展速度} = \frac{\text{観察された最大き裂深さ}}{\text{試験時間}}$$

なお溶接試験片においては、試験片平行部に溶接金属だけでなく母材や熱影響部が存在するため、割れ位置と割れ深さを測定した後断面を10%シュウ酸で電解エッチングし、それぞれの割れがどの部分で発生したのかを確認した。

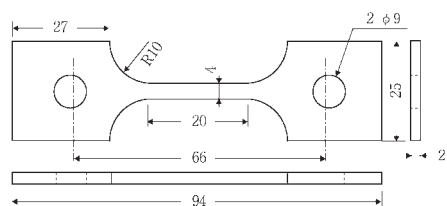


図4 定荷重試験片

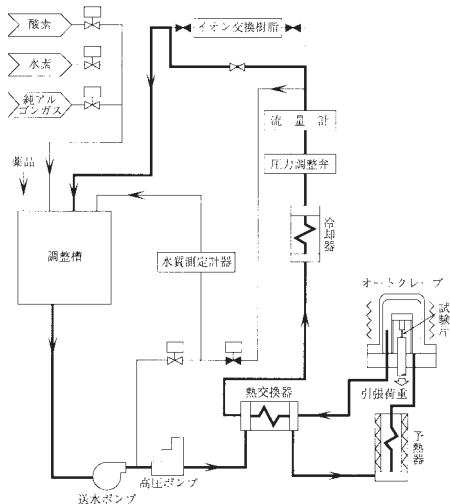


図5 定荷重試験装置

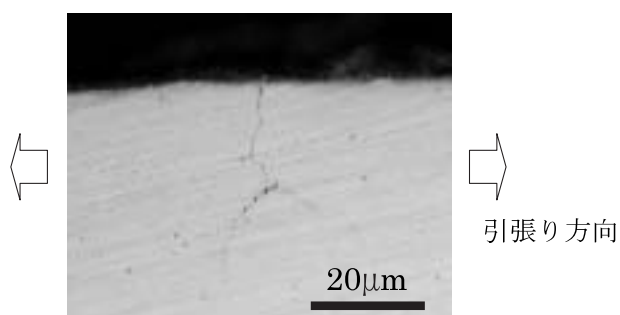
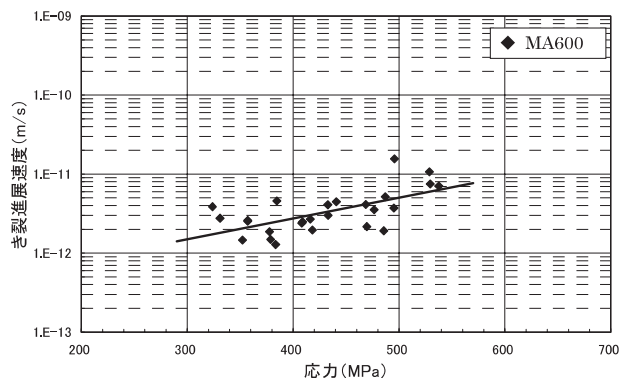
図6 試験片断面の光学顕微鏡写真
(材料: Ti0.5, 応力: 614MPa)

図7 MA600の応力とき裂進展速度の関係

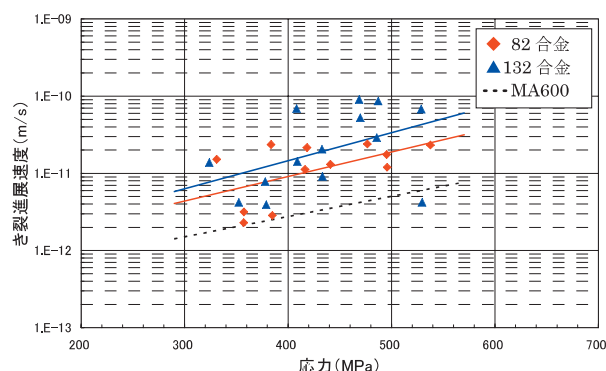


図8 溶接金属の応力とき裂進展速度の関係

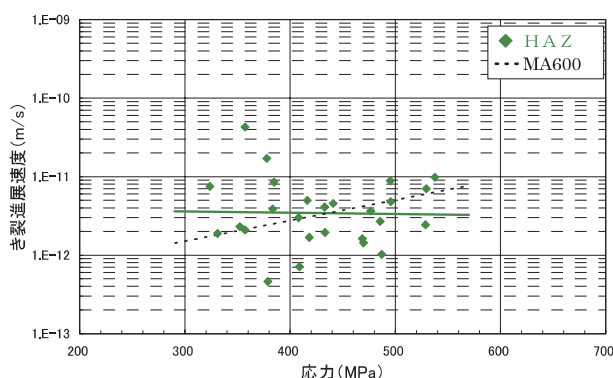


図9 溶接熱影響部の応力とき裂進展速度の関係

3. 実験結果

3.1 溶接試験片のき裂進展速度

溶接試験片のうち MA600 の応力と最大き裂深さの関係を図 7 に示す。図中の線は得られたデータを最小 2 乗法で近似線を求めたものである。MA600 については、応力が 100MPa 大きくなるとき裂進展速度が 2~3 倍大きくなる傾向があることを確認した。

図 8 に溶接試験片のうち溶接金属における応力とき裂進展速度の関係を示す。図 8 ではそれぞれの溶接金属における試験結果とその近似線を実線で、比

較のため図 7 に示した MA600 の近似線を破線で表示している。溶接金属は MA600 の 3~5 倍き裂進展速度が大きいことが確認できる。

また図 9 に溶接熱影響部 (heat affected zone, HAZ) における試験結果と、図 8 と同様にその近似線を実線で MA600 の近似線を破線で示す。溶接熱影響部はエッチングを行い結晶粒径が変化した部分としているが、溶接近傍の 0.1mm 程度の領域であり範囲が狭く溶接熱影響部が選択的に割れる様子も観察されないため、観察された最大き裂深さは小さく、き裂進展速度は低い値となっていると考えられる。

3.2 Ti, Nb 添加600合金試験片のき裂進展速度

TiおよびNbを添加した600合金の定荷重試験の結果を図10～図12に示す。

図10についてみると、Tiが0.5%添加されているものではMA600と同様の傾向を示すのに対し、Tiの添加量が増えるとき裂進展速度が小さくなる傾向がある。

図11と図12はそれぞれNbが添加されている材料とTi, Nbの両方が添加されている材料に関する結果であるが、Ti, Nb添加量による傾向の違いは明確には見られず、Nbを1.0%以上添加すると、き裂進展速度が小さくなる傾向がある。

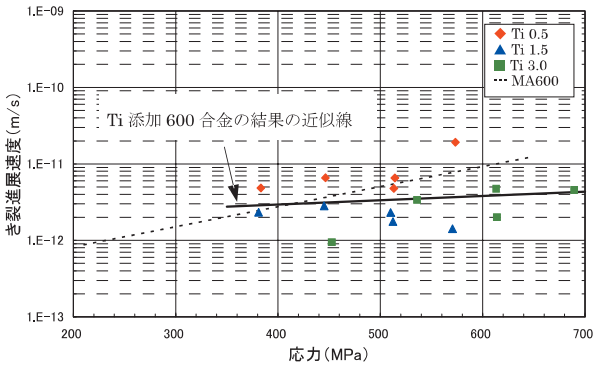


図10 Ti添加600合金の定荷重試験結果

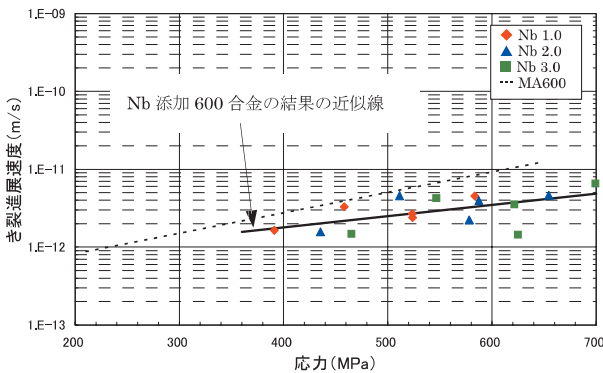


図11 Nb添加600合金の定荷重試験結果

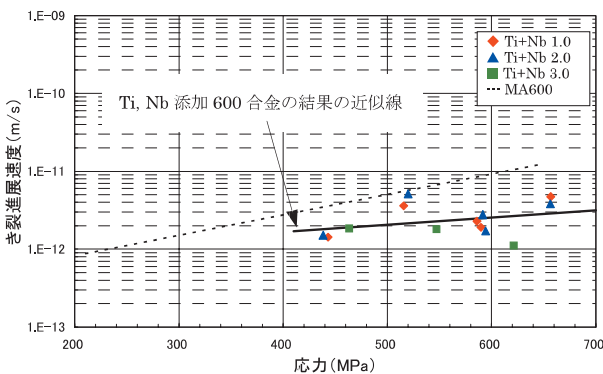


図12 Ti, Nb添加600合金の定荷重試験結果

4. 考察

4.1 発生域でのき裂深さ分布および観察方法に関する検討

高温純水中の鋭敏化304鋼のIGSCC深さは正規分布に従う[®]と言われているが、本研究で定荷重試験を行った2個の試験片4断面(各2断面)を観察したところ、図13のようなき裂深さの分布が得られた。この結果からはPWSCC発生域のき裂深さ分布は、腐食現象の基本分布[®]と言われているもののうち指数分布または対数正規分布に従うと考えられるが、深さ1mm程度以下の割れは表面の凹凸と判別が難しいためき裂数を正確に測定することは難しく、試験時間の異なる他の試験片でも同様の傾向が見られることや、き裂深さの対数に物理的意味が見出せないことから、発生したき裂は一定の確率で進展が止まるとする指

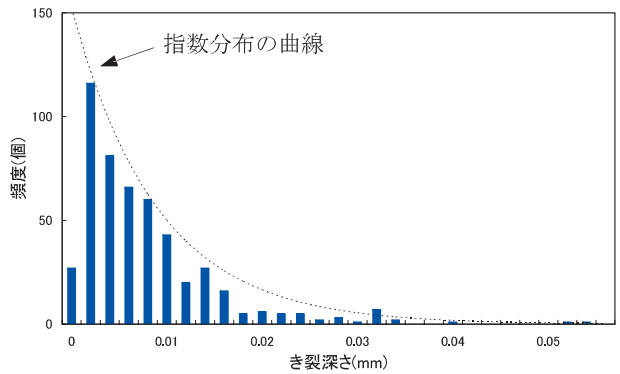


図13 き裂出現頻度 (材料: Ti0.5, 応力: 514MPa, 試験時間: 2347h)

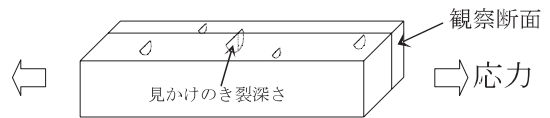


図14 断面観察イメージ

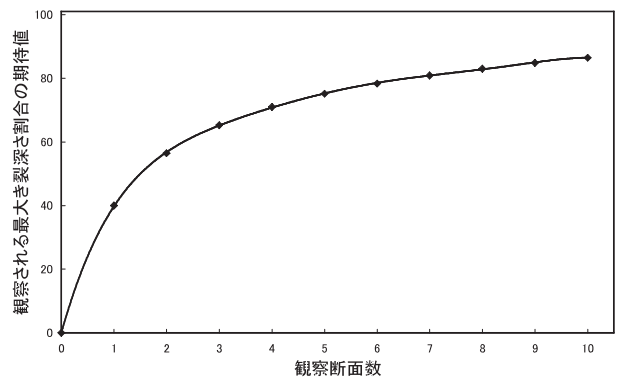


図15 観察断面数と見かけの最大き裂深さの期待値

数分布（破線の曲線）に従うものと考えるのが適当である。

次に発生域でのき裂深さを測定する方法について考察した。試験片上の任意の表面に図14に示すような100個の半円形き裂があり、き裂深さが指数分布に従うと仮定し、実際の最大き裂深さに対する断面で観察される見かけの最大き裂深さの期待値が観察断面数によりどのようになるかを、乱数を使った繰り返し数値シミュレーションにより求めた。

その結果を図15に示す。この図からみて3断面を観察すれば実際の最大き裂深さの3分の2程度の値が観察されることがわかる。4断面以上を観察しても試験片に存在する最大き裂を観察するのは難しいので、3断面を観察し実験により観察された値を実際の3分の2程度であると考えておくのが妥当であると考えられる。そこで本研究では、3断面を観察した結果からき裂進展速度を求めている。

4.2 溶接試験片のき裂進展評価

図8に示したように溶接金属はMA600の3~5倍き裂進展が速い。本研究では360℃にて定荷重試験を実施しているが、PWR原子炉上蓋管台部の温度を320℃程度とすると、以前の研究⁽⁶⁾で得た見かけの活性化エネルギーである82合金で188kJ/mol、132合金で179kJ/molから320℃におけるき裂進展速度を換算すると図16のようになり、溶接金属とMA600の差は360℃のときよりも小さくなる。すなわち、原子炉の運転温度では同条件での溶接金属のPWSCCき裂進展速度は、MA600のそれに比べわずかに速くなる程度であると考えられる。

4.3 Ti, Nb 添加600合金のき裂進展評価

図10~図12に示したようにTi, Nbを添加するとMA600よりき裂進展速度が小さくなるが、表4にあるようにTiやNbを添加すると0.2%耐力および引張強さが100~200MPa大きくなるので、0.2%耐力で規格化した応力とき裂進展速度の関係を図17~図19に整理した。

0.2%耐力で規格化するといずれもMA600と同様の結果が得られた。き裂進展試験の結果から、0.2%耐力や引張強さが大きい材料ではPWSCC感受性が高くなると言われている⁽⁹⁾が、本研究ではTi, Nbを添加することによって強度が高くなったため同一応力で

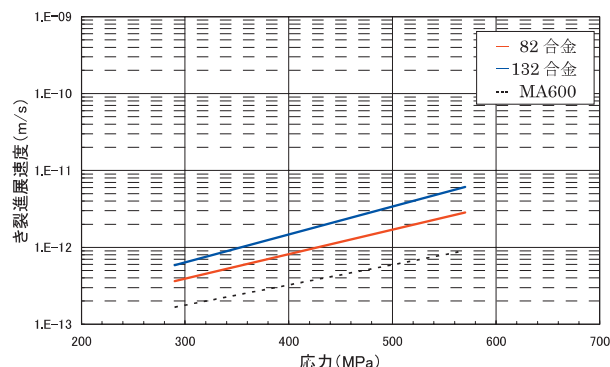


図16 320℃に換算した応力とき裂進展速度の関係

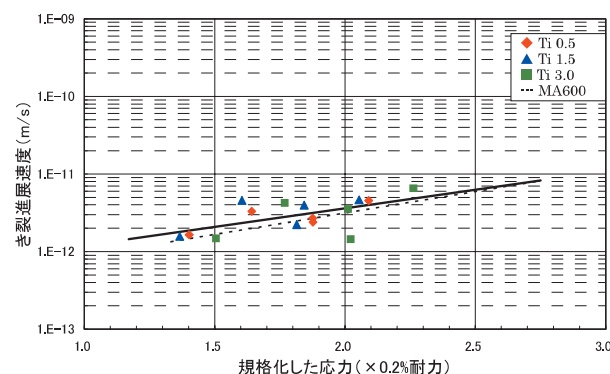


図17 Ti添加600合金の定荷重試験による引張強さに対する規格化した応力とき裂進展速度の関係

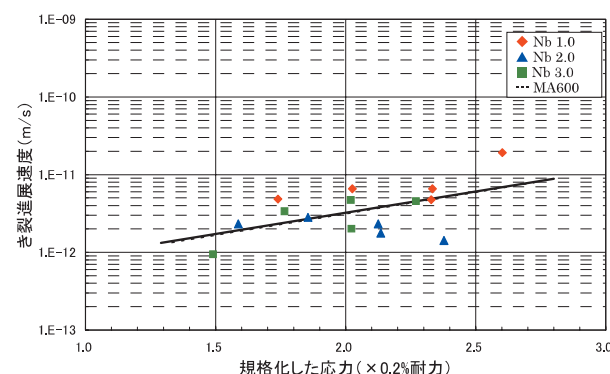


図18 Nb添加600合金の定荷重試験による引張強さに対する規格化した応力とき裂進展速度の関係

比較すると図10~図12に示したようにSCC感受性が低くなっているように見えるが、0.2%耐力で規格化すればSCC感受性は低くなっていないことがわかる。このことから本実験のような発生域のき裂進展挙動は、き裂伝播域の挙動とは異なっている可能性がある。

一方、前報⁽⁷⁾で促進SSRT試験により330℃~350℃の低温側で試験片破面に特異な破面（通常の延性破面に見られるディンプルよりも大きく、材料の板厚方向に押しつぶされて伸びたような不規則なディンプル）が見られたことを示したように、原子炉運転

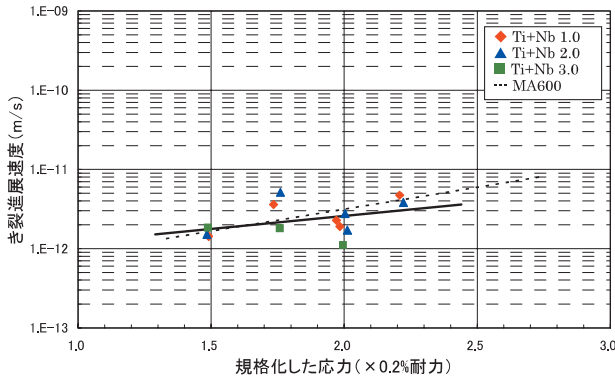


図19 Ti,Nb添加600合金の定荷重試験による引張強さに対する規格化した応力とき裂進展速度の関係

温度でのPWSCCの挙動については特異な破面が影響することも考えられるので、今後特異な破面に関する検討が必要である。

5. 結論

600合金の溶接継手およびTi,Nbを微量添加した材料から供試材を作製し、PWR1次系模擬水中で定荷重試験を行った結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 360℃では82合金、132合金の溶接金属はMA600の3～5倍のき裂進展速度となる。ただこれを活性化エネルギーで320℃に換算すると両者の差は小さくなる。
- (2) 360℃ではTi,Nb添加600合金のき裂進展速度はMA600のものより同じ応力で小さな値を示したが、0.2%耐力で応力を規格化すると同程度の値となる。

文献

- (1) M. Akashi, G. Nakayama, International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures, Sapporo, May 15-18, 1995, p.99, JSCE and NACE (1995).
- (2) Crack Growth of Alloy 182 Weld Metal in PWR Environments, MRP-21, EPRI (2000).
- (3) 平成12年度 高経年化対策関連技術開発 (ニッケル基合金応力腐食割れ (SCC) 進展評価手法の開発) 事業報告書, (財)発電設備技術検査協会 (2001).

- (4) M. Kamaya, N. Totsuka, "Influence of interaction between multiple cracks on stress corrosion crack propagation," Corrosion Science, 44, p.2333 (2002).
- (5) Crack Growth and Microstructural Characterization of Alloy 600 Vessel Head Penetration Materials, TR-109136, EPRI (1997).
- (6) 西川嘉人, 戸塚信夫, 有岡孝司, "600合金系溶接金属のPWSCCに及ぼす温度の影響," INSS Journal, Vol.10, p.136 (2004).
- (7) 西川嘉人, 戸塚信夫, "600合金のPWSCCに及ぼす材料中の微量添加元素(Ti, Nb)の影響," INSS Journal Vol.11, p.137 (2004).
- (8) 装置材料の寿命予測入門, 腐食防食協会編, 丸善株式会社, p.21 (1984).
- (9) M. O. Speidel and R. Magdowski, "Stress Corrosion Crack Growth in Alloy 600 Exposed to PWR and BWR Environments," CORROSION/2000, paper No.222 (2000).