

# PWR1 次系模擬水中における TT690 合金冷間加工材の SCC 発生評価(第 4 報) -微小亀裂の成長挙動-

## SCC Initiation in Cold Worked Alloy 690 TT under Simulated PWR Primary Water (4<sup>th</sup> Report) - Growth Behavior of Microcracks -

寺地 巧(Takumi Terachi)\*<sup>1</sup>, 大厩 徹(Toru Oumaya)\*<sup>2</sup> 山田 卓陽(Takuyo Yamada)\*<sup>1</sup>

山岡 祐樹(Yuki Yamaoka)\*<sup>1</sup> 有岡 孝司(Koji Arioka)\*<sup>1</sup>

**要約** TT690 合金冷間加工材の PWR1 次系における SCC 発生挙動について、ブラントノッチ CT 試験片により検討した。450°C で予めキャビティ生成処理を施し、PWR1 次系模擬環境下で 26,007 時間にわたり促進 SCC 発生試験を行った結果、明瞭な SCC は生じなかったが、SCC 発生の前駆段階と考えられる微小開口が認められた。微小開口について定期的に観察したところ、試験片表面の長さ方向に伝播した後、開口幅が 2 μm 程度まで成長したが、概ね 1 粒界程度で微小開口は停留する傾向を示した。停留した要因には、結晶粒界毎に局所応力や割れ難さが異なり、亀裂が伝播する条件が満たされる粒界が少ないことが影響したと推察される。そのため、TT690 合金の様に耐 SCC 性に優れる多結晶体の材料では、強制的に微小開口を生じさせた場合でも、その進展が停留する可能性があることが明らかとなった。

**キーワード** TT690 合金, 応力腐食割れ, 冷間加工, キャビティ生成処理, SCC 発生試験

**Abstract** SCC initiation behavior of cold-worked Alloy 690 TT in PWR primary water was investigated using a blunt-notch CT specimen. A cavity formation treatment was performed at 450°C, and an induced SCC initiation test was performed for 26,007 hours under a simulated PWR primary water environment. No clear SCC was observed, but micro-openings, which are considered to be a precursor to SCC initiation, were observed. Periodic observations of the micro-openings showed that they propagated along the length of the specimen surface and grew to a width of about 2 μm, but tended to be arrested at about one-grain boundary. The cause of the arrest is thought to be that the local stress and crack resistance differ for each grain boundary, and there are few grain boundaries where the conditions for crack propagation are satisfied. Therefore, it was concluded that in materials with excellent SCC resistance such as Alloy 690 TT, the growth of micro-openings may be arrested.

**Keywords** Alloy 690TT, stress corrosion cracking, cold work, cavity formation, SCC initiation test

## 1. 緒言

TT690 合金およびその溶接金属は耐応力腐食割れ (stress corrosion cracking, SCC) 性に優れる材料として加圧水型軽水炉 (pressurized water reactor, PWR) の 1 次系圧力バウンダリーで用いられている。現在までのところ、実機において SCC 発生の報告例はなく、実験室における環境でも実機条件で亀裂が発生することを示す知見は見当たらない。しかしながら、強い冷間加工を加えた場合に SCC 進展の感受性を示すことが確認されているため、重要機器の安全研究として、SCC 発生、進展に対する取り組みが行われてきた<sup>(1-5)</sup>。

TT690 合金冷間加工材についての SCC 進展研究については、過去に実機で SCC を生じさせた 600 合金との比較

という形で整理が進められている。EPRI (Electric power research institute) は NRC (nuclear regulatory commission) のサポートを受け亀裂進展線図を作成し、MRP-386 として評価結果を公開している。その報告書の中では、保守的に評価した場合、600 合金と比べて TT690 合金は 38 倍の改善効果が見込まれることが述べられている<sup>(6,7)</sup>。TT690 合金の SCC 進展速度が遅い要因については、一般に材料中のクロム濃度や炭化物の違いが影響していると考えられている<sup>(8)</sup>。

TT690 合金に関する SCC 進展に関する取り組みは、仮に亀裂が発生した場合でも、安全性を評価できるように検討が行われているもので、米国では xLPR (Extremely Low Probability of Rupture) プロジェクトでの活用が想定されている<sup>(9)</sup>。この xLPR は確率論的評価手法を用い、極度に可

\* 1 (株) 原子力安全システム研究所 技術システム研究所

\* 2 元 (株) 原子力安全システム研究所 技術システム研究所 現 関西電力 (株)

能性が低い劣化事象についても配管等の破断に関するリスクを検討するものである<sup>(10)</sup>。そのため、TT690 合金のように極めて耐 SCC 性に優れる材料も評価対象に含まれるが、安全リスクを精緻に理解するためには、亀裂進展のみならず、発生に対しても理解を深めることが重要といえる。

現在、SCC 発生試験については知見が限定的であるものの、TT690 合金は SCC が発生し難い材料であることが広く知られている<sup>(11-13)</sup>。例えば、Maeguchi ら<sup>(14)</sup>は TT690 合金の定荷重引張試験での検討で、11 万時間経過時点でも SCC による破断が生じていないことを報告しており、促進条件を加味しない条件では SCC 発生は生じ難いと考えられる。一方、機構論的な取り組みとしては、Arioka ら<sup>(15,16)</sup>が高温ガス中での亀裂発生試験に取り組み、粒界キャビティの生成が亀裂発生に影響する可能性を指摘している。試験には TT690 合金 20%冷間加工材が用いられ、ブラントノッチ試験片を 400°C 以上の高温ガス中でクリープ試験を行うことで、粒界で割れが生じる事を報告している。この粒界割れは、長時間高温にさらすことでキャビティ生成により粒界結合力が低下することを示唆する事象である。また、Zhai ら<sup>(13)</sup>が行った 31%CW(冷間加工)材の 360°C 環境下における試験では、15  $\mu\text{m}$  を超える微小なキャビティ生成を伴った粒界割れが生じる事が確認されている。

これらの知見を総括すると、TT690 合金は耐 SCC 性に優れることは明確であるものの、将来にわたり SCC が生じないかどうかを判断するには、機構論的な理解と促進試験による知見拡充が必要と考えられる。当研究所においては、TT690 合金の SCC 進展・発生研究に対して取り組みを進め、冷間加工や環境条件の影響および SCC 発生の可能性に対して評価を実施してきた<sup>(17-19)</sup>。特に近年は SCC 発生に対する評価に注力し、変形を許容する応力条件の適用やキャビティ生成処理を事前に施すことで、微小な亀裂状の開口の生成が促進されることを確認してきた。この微小開口は SCC 発生期における状況を示すと推察されるが、目視では視認できない 0.1mm 以下のサイズに留まっており、長時間経た後に SCC に至る可能性は明確となっていない。

本報告では、これまでの評価で認められた微小開口が、その後の長期評価によって、成長する可能性について検討した結果について述べる。具体的には、キャビティ生成処理により SCC 発生を促進した試験片について、PWR 1 次系模擬環境で長時間の SCC 発生試験を継続し、微小開口が変化する状況を観察した。また、併せて亀裂の発生から伝播への移行挙動を考察するために、過去に実施した SCC 進展試験片に生じた微細な亀裂について再評価した。これ

により、SCC 発生段階の現象と考えられる微小開口の形成から、亀裂の伝播に至る挙動について考察した。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試材及び試験片

供試材には、表 1 に示す化学組成で、溶体化処理の後、700°C で 15 時間の TT 処理 (thermal treatment, 特殊熱処理) を施した TT690 合金を 20%冷間加工して用いた。表 2 に供試材の機械特性を示す。図 1 に亀裂発生試験に用いたブラントノッチ型 CT (blunt notched compact tension, BNCT) 試験片形状を示す。試験片は SCC 進展試験に広く用いられている 0.5TCT (compact tension) 試験片と同様の形状だが、ノッチ先端を  $R=0.5\text{mm}$  とし予亀裂は導入していない。試験片の冷間加工方位は速い進展速度が報告されている T-L 方位とした<sup>(20,21)</sup>。SCC が発生するノッチ底部はダイヤモンドペーパースト 1  $\mu\text{m}$  仕上げとした。この条件下では、通常の方法表面に残存する表面化工層が除去され、微小開口の観察が容易になる。

表1 供試材の化学組成 (wt. %)

C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Fe
0.019	0.30	0.32	0.009	0.0006	0.04	59.25	30.18	9.42

表2 供試材の機械特性

冷間加工度 (%)	温度 (°C)	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)
20	室温	716	790
	320	620	660
	360	546	613
	450	551	608

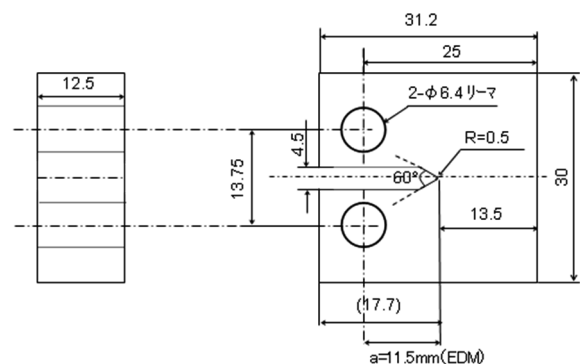


図1 BNCT 試験片の形状

## 2.2 促進SCC発生試験

促進 SCC 発生試験の条件を表 3 に示す。試験は、予め SCC 発生を促進する手法として、450℃の大気中で応力を付与し、粒界キャビティの生成を促した。この粒界キャビティ生成処理に対しては、過去の検討を参考とし、クリープのみで亀裂が発生しない条件として 220 時間実施した。

その後、PWR1 次系模擬水として溶存水素を添加したほう酸、水酸化リチウム水 (500 ppm B + 2 ppm Li + DH 30cc-STP/kg・H<sub>2</sub>O) 環境下で長期の SCC 発生試験を実施した。SCC 発生試験中、定期的に腐食試験装置より試験片を取り出し、亀裂の発生状況について走査型電子顕微鏡 (scanning electron microscope, SEM) にて観察を実施した。これら検討条件に関する詳細は、既報に記したとおりである<sup>(19)</sup>。応力条件については、本来、亀裂が導入されていない試験片に応力拡大係数 (K 値) の概念は適用できないが、CT 試験片の応力状態として理解しやすい概念であることから、本研究では便宜上、亀裂が存在する場合に 40MPa√m 相当の K 値となる条件で試験した。これらの負荷荷重は大気中と PWR 1 次系模擬水中で同一である。付与されている応力の計算値は、2.4 章の項目で述べる。

表 3 促進亀裂発生試験の条件

試験片ID	大気中		PWR1次系模擬水中	
	温度(℃)	試験時間(h)	温度(℃)	積算試験時間(h)
H2016GKT 69C20BN03TL	450	220	360	26,007

## 2.3 SCC進展試験片の破面における評価

過去に実施した SCC 進展試験では、殆ど亀裂が進展しなかった試験片があり、破面の状態は亀裂発生に対しても示唆を与えるものと考えられた。そこで、SCC 進展試験片のうち、破面解放時に微細な亀裂のみが観察された試験片について再評価を実施した。検討に供した試験片の試験条件は表 4 に記載のとおりである。SCC 進展試験は、促進 SCC 発生試験と同様の TT690 合金 20%CW 材を用いた。試験片形状には 0.5TCT 試験片を用い、予め 2.5 mm 程度の疲労予亀裂を導入した後、320℃の PWR1 次系模擬環境下にて 24,129 時間かけて実施した。その他、SCC 進展試験手法の詳細は既報に記載のとおりである<sup>(22)</sup>。

表 4 観察に供した SCC 進展試験片の試験条件

試験片ID	材料条件	試験環境	荷重(kN)	試験時間(h)
GKT69C 20B	Alloy690+20 %CW(T-L)材	320℃, PWR1次系模 擬水	6.91kN K=30MPa√m	24,129

## 2.4 促進SCC発生試験片の応力状態

SCC 発生試験時の応力状態を有限要素法 (finite element method, FEM) による弾塑性解析により評価した。計算には供試材と同じ材料で実測した真応力-真歪曲線を用い、当方性材料として汎用有限要素解析コード ABAQUS<sup>(23)</sup>により計算した。具体的には、図 1 に示した BNCT 試験片形状に、9.2 kN の荷重を加えた条件 (見かけの K 値 40MPa√m

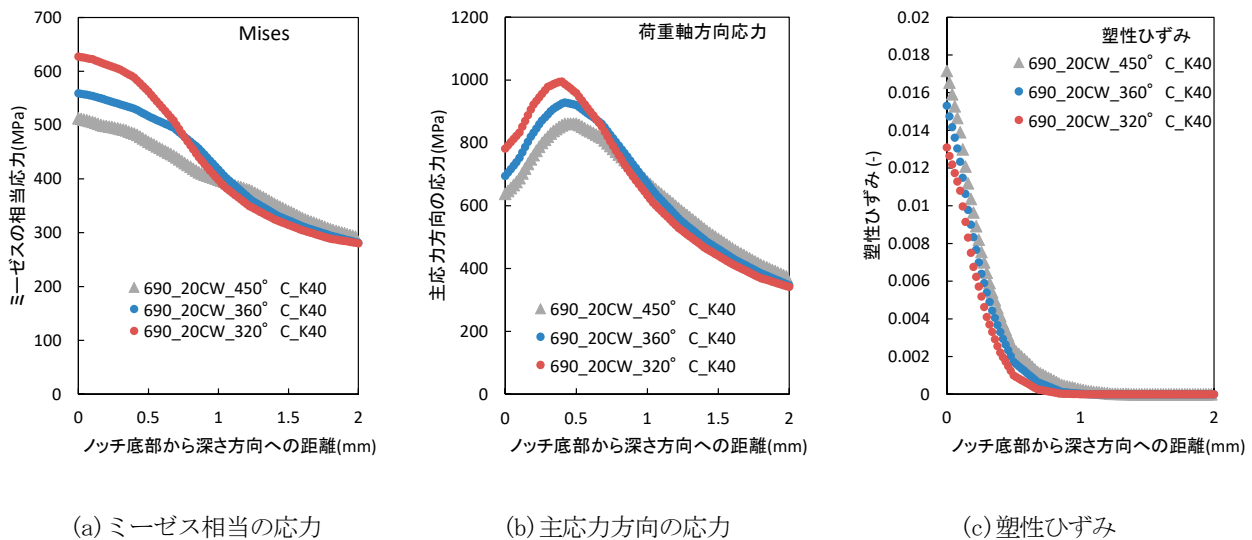


図 2 TT690 合金(20%CW), BNCT 試験片の FEM による応力解析結果

相当)として計算を行った。評価はキャビティ生成条件である 450°Cと PWR 環境中での亀裂発生条件として採用した 360°Cおよび一般的な温度条件として 320°Cで実施した。

図2は試験片板厚方向中央部のノッチ底部から深さ(亀裂が進展する方向)への応力および塑性ひずみの分布についての計算結果である。図2(a)に示したミーゼスの相当応力は、いずれの温度域でもノッチ底部で最大応力を示し、内部ほど低下することが分かる。320°C, 360°C, 450°Cの比較では低温条件ほど高い応力となっているが、これはそれぞれの温度条件における応力歪関係の違いにより差が生じたものである。ミーゼスの相当応力の最大値は概ね耐力に対応する値となっている。

図2(b)に示した荷重軸方向の応力は、亀裂が開く方向の応力であり、何れも材料内部の0.5mm程度の領域に最大部がある。これらの荷重が高い領域では比較的早い段階でキャビティが生じる事が確認されている<sup>(19)</sup>。試験片表面のノッチ底部では、ピーク位置と比べると応力が低下しているものの、耐力よりも高い荷重軸方向の応力が生じていることが分かる。

材料の塑性ひずみ状態としてはノッチ底部で0.013-0.017程度と評価された。いずれの環境でも僅かに塑性が生じた状態で、過度な応力が付与されている試験と解釈される。

### 3. 結果

#### 3.1 ノッチ底部の観察

450°C×220時間の大気中キャビティ生成処理後に360°C×26,007時間のSCC発生試験を実施した後のノッチ底部の表面状態を図3に示す。本試験片については、18,037時間までの試験状況を既報でも紹介しているが、これまでも目で視認できるような亀裂は確認されていなかった<sup>(19)</sup>。26,007時間経過時点でも、その状況に変化はなく、明瞭な亀裂形成には至っていない。しかしながら、既報でも述べた通りSEMによる拡大観察では、図3の開口1や開口2のように、微小開口が認められている<sup>(19)</sup>。開口1と開口2は代表例として述べたもので、他にも類似の開口が観察されている。いずれも腐食生成物が周囲に形成され、SEMで250倍程度の観察を実施した時に把握できたもので、破壊に寄与するような明瞭な亀裂には成長していない。

#### 3.2 微小開口の経時変化

図4に、定期的に試験を停止しSEMにより確認した開口1の経時変化を示す。開口が認められる領域の長さは、

2,269時間経過した時点で74 $\mu\text{m}$ として評価された。その後、2,269時間の10倍以上に及ぶ26,007時間まで試験を継続しているが、開口長さは82 $\mu\text{m}$ に留まり、大きな進展は確認されていない。

一方、表面の腐食生成物の状況には経時的な変化が認められた。2,269時間から10,859時間の間は、開口部近傍に多くの腐食生成物の形成が集中しており、開口部の位置が比較的分かりやすい状況となっている。しかし、その後15,886時間以降は、周囲にも等しく腐食生成物が成長し、26,007時間経過後は開口の位置が判断し難い状況となった。

開口の状況変化をより拡大して確認したSEM像を図5に示す。図5は図4の中央部を拡大したもので、2,269時間の段階では、周囲の腐食生成物も少なく、比較的明瞭に開口領域を観察することができる。SEM像から評価された開口幅は、2,269時間の段階で0.7 $\mu\text{m}$ であった。その後、時間の経過とともに周囲の腐食生成物成長を伴って開口幅が増加し15,886時間の段階では開口幅が2 $\mu\text{m}$ に至った。

しかし、15,886時間経過後、26,007時間までの様相については大きな変化は認められなかった。15,886時間後の約1万時間では、開口幅が2 $\mu\text{m}$ から2.3 $\mu\text{m}$ への変化しか生じさせず、腐食生成物の成長も顕著ではなかった。

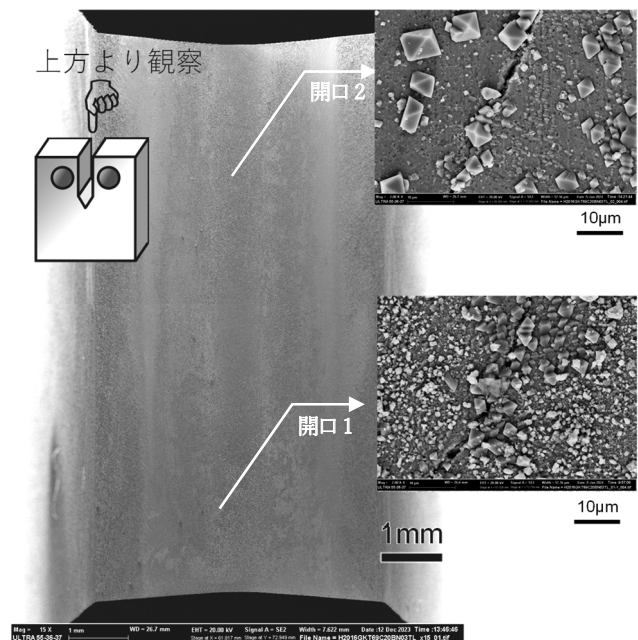


図3 BNCT 試験片ノッチ底部の低倍におけるSEM観察像と微小開口の代表例(450°C×220h大気中+360°C×26,007h PWR環境中)



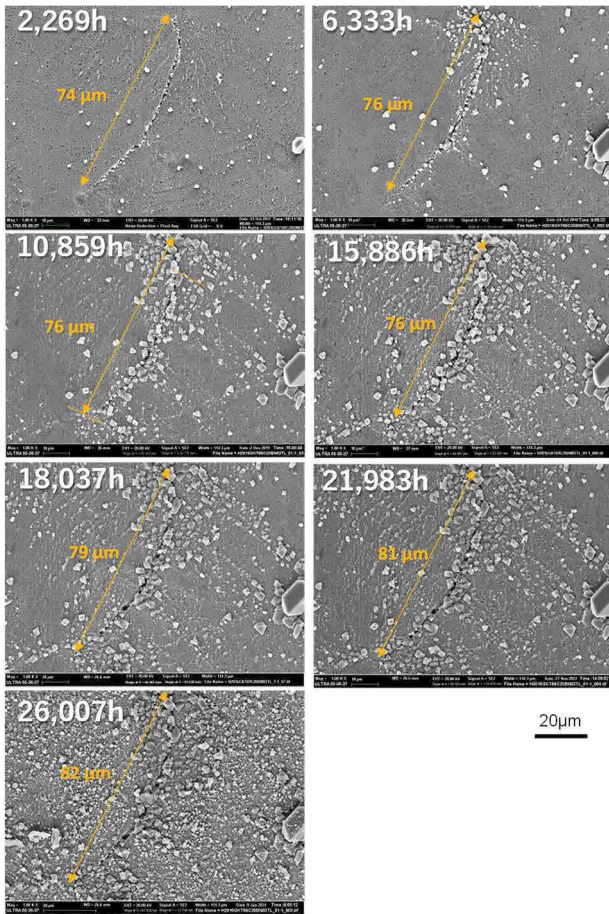


図4 微小開口(図3 開口1)の経時変化に関するSEM像(450°C×220 h 大気中+360°C×~26,007h PWR環境中)

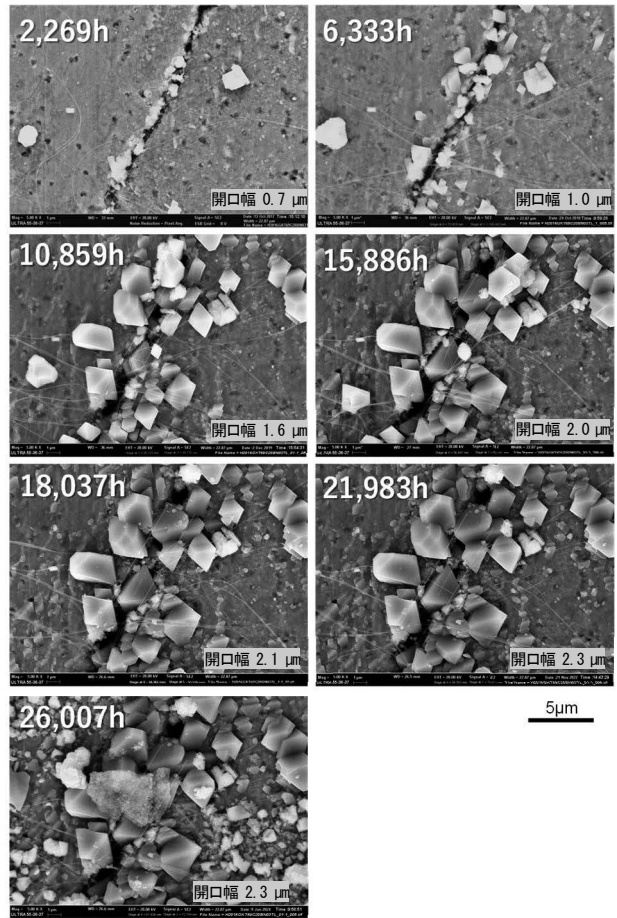


図5 微小開口(図4の拡大)の経時変化に関するSEM像, 図4の拡大観察結果(450°C×220 h 大気中+360°C×~26,007 h PWR環境中)

### 3.3 SCC進展試験片の微小亀裂の状況

亀裂が停留する挙動は、しばしば SCC 進展試験でも観察される現象である。そこで、SCC 発生挙動への理解を深めるため、過去に実施した SCC 進展試験から、微小な亀裂のみが観察されていた試験片について観察した。図6に、20%CWを付与した TT690 合金の 0.5TCT 試験片を 320°C の PWR1 次系模擬環境下に約 2.4 万時間浸漬して SCC 進展試験を実施した後、疲労破壊にて破面解放した試験片の破面を示す。

破面の SEM 像は、疲労予亀裂先端から粒界破面が形成された領域を観察したものである。粒界は 11 視野で観察され、明確な判断は困難だが、概ね 1 粒界程度であった。これらの観察は、疲労予亀裂を導入し応力集中部を形成させた試験片であっても、比較的割れが生じやすい条件が成立した粒界のみで先行して亀裂が発現することを示している。また、いずれの粒界破面も 1 粒界程度であることか

ら、割れが生じやすい粒界が 1 粒界の伝播後に停留したものと推察される。

## 4. 考察

### 4.1 微小開口の経時変化

促進 SCC 発生試験では微小開口が生じることが分かったが、長期の観察によれば亀裂が停留する可能性があることが確認された。観察された 0.1 mm に満たない微小な開口は、実構造物の健全性に対して影響を及ぼすとは考え難いため、停留挙動は実機健全性に対して重要な意味を持つ可能性がある。

図7に微小開口の幅の経時変化を示す。これらは、2,269 時間試験時点で認められた開口1と開口2の2か所について、その開口幅変化を長期にわたり観察した結果である。開口1は徐々に開口幅の変化が遅くなり、2 μm を超えた



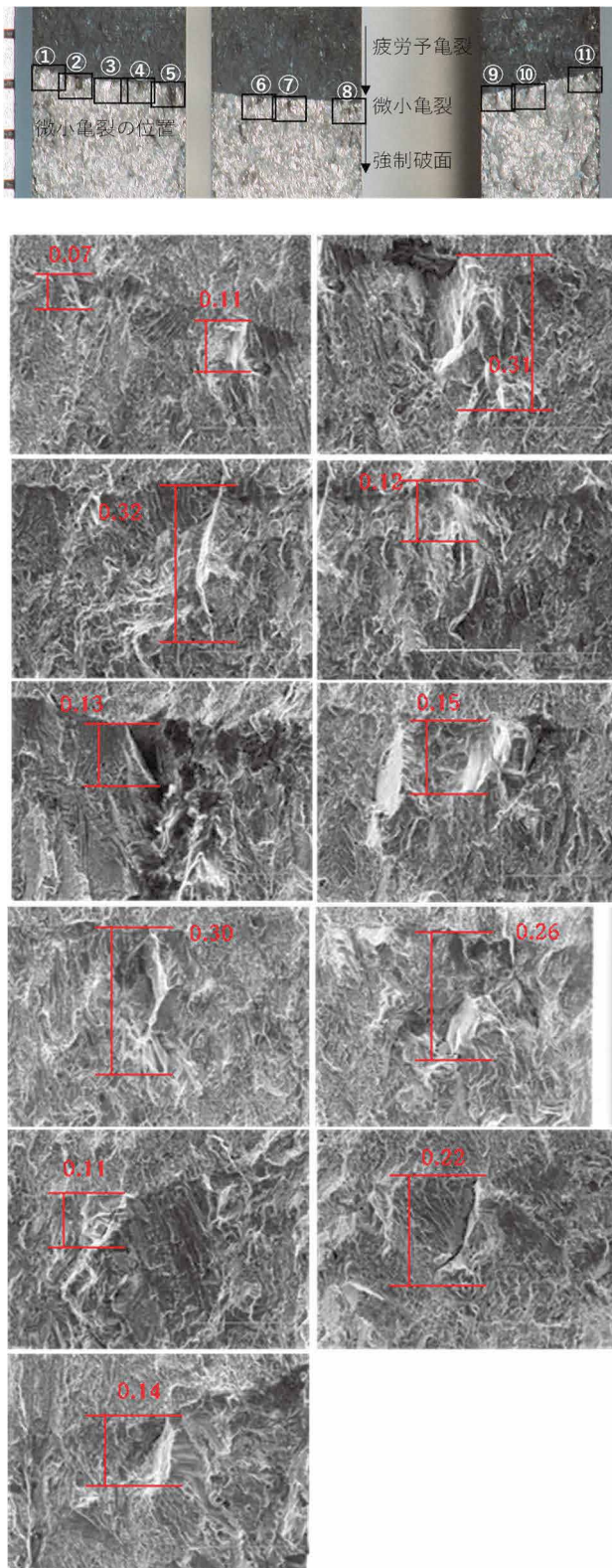


図6 亀裂進展試験片に認められた1粒界程度の粒界破面 (TT690 合金 20%CW 材, 320°C, PWR1 次系模擬環境下,  $K=30\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ , 24,129h)

あたりで停留した。開口2については、より明瞭な停留の傾向を示し、10,859 時間までの期間は、 $1.5 \times 10^4 \mu\text{m/h}$  であったが、その後  $2.0 \times 10^5 \mu\text{m/h}$  にまで減少し、開口1と同様に  $2 \mu\text{m}$  程度の開口幅に到達した後に停留している。

$2 \mu\text{m}$  の開口に相当する亀裂深さについては、過去の断面観察の結果から推察できる可能性がある。前報では類似の亀裂を形成させた後に断面観察を行い、 $0.5 \mu\text{m}$  の開口の時に、深さ方向の伝播長さが  $16.3 \mu\text{m}$  であることを確認している<sup>(18)</sup>。この値は一例に過ぎないが、亀裂の深さと開口幅の比率が同程度であると仮定した場合、 $2 \mu\text{m}$  の開口幅は約  $65 \mu\text{m}$  の深さに相当する。この深さは、開口長さである  $82 \mu\text{m}$  に近い値であり、概ね 1 粒界に相当する長さである。そのため、 $2 \mu\text{m}$  程度の開口が生じた状況は、1 粒界程度の伝播後に相当すると考えられ、1 粒界程度の伝播後に停留が生じたと推察される。

微小開口の表面長さ方向の変化を図8に示す。比較的早い段階で表面の開口は生じており、PWR1 次系環境への浸漬後初めて観察した 2,269 時間の段階で約  $80 \mu\text{m}$  の開口長さが計測された。この開口長さは、26,007 時間経過しても殆ど変化していないため、比較的速く 1 粒界程度表面方向で伝播した後に停留したものと判断される。これらの 1 粒界伝播後に停留する挙動は、表面の長さ方向と、深さ方向で共通した特徴であると考えられる。

## 4.2 微小開口の成長挙動

本研究では、促進条件で SCC 発生を試み、微小開口を生じさせたが、その微小開口も 1 粒界程度で停留する傾向が認められた。観察結果から、微小開口がどのような成長

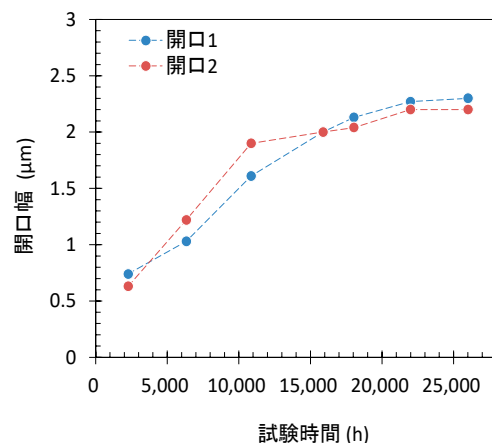


図7 促進SCC発生試験に認められた微小開口の幅の変化 (450°C × 220 h 大気中 + 360°C × 26,007 h PWR 環境中)

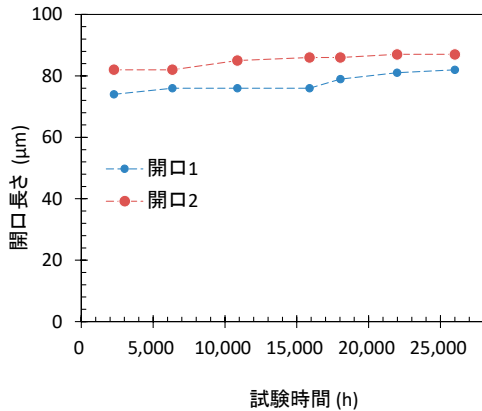


図 8 促進亀裂発生試験に認められた微小開口部位の開口長さの変化(450°C×220h 大気中+360°C×26,007h PWR 環境中)

過程で形成したかを模式的に示すと、図9のような変化が想定される。

微小な開口は、表面の長さ方向で伝播した後、深さ方向への伝播を開始している。これは開口長さが比較的早い段階で1粒界に到達していることと、その後、開口幅が停留するまでの間に腐食生成物が開口近傍に多く生じていることからわかる。深さ方向についても、開口幅が2 μm程度で変化が緩慢となった事から、1粒界程度で伝播が停留したと考えられる。

次に、1粒界程度で伝播が停止した理由について考察する。TT690合金は面心立方格子(FCC)で構成されているため、111面で選択的にすべりを生じさせるが、すべり易い方位と、すべり難い方位が存在する。そのため、各結晶粒ではすべりの状況に違いが生じ、結晶粒ごとに歪や応力

に大きな差が生まれる。開口が生じるには作用する応力が粒界結合力を超える必要があるが、もともとTT690合金は割れにくい材料であるため、その条件が成立する粒界は非常に少ないと考えられる。言い換えると、特定の条件が揃った粒界でのみ開口が生じることができると、そのような特定の条件が揃った粒界が連続して形成していなければ、開口は停留することとなり、状況によっては応力緩和が進行した後に停止する可能性もある。

結晶粒毎に応力の違いが生じる事については、結晶塑性有限要素解析などを用いた解析でも検証されている<sup>(24)</sup>。また、EBSDを用いた歪の解析などでも、結晶粒界毎に歪の分布が異なることなどが明らかとなっている<sup>(25)</sup>。これらの状況から、比較的割れやすい条件が揃った粒界で開口が生じ、その後次の粒界で停留することは、耐SCC性に優れたTT690合金におけるSCCの初期段階で生じ得るものと考えられる。

結晶粒界のような微視組織が亀裂の発生、進展に影響する概念は、疲労破壊でも報告されておりMSC(Microstructurally Small Crack)として知られている<sup>(26,27)</sup>。MSCは結晶粒と同程度かそれ以下のサイズを持つ亀裂であり、材料の局所的な微視構造に強く依存することが分かっている。亀裂先端場の微小領域における応力や歪の条件が、粒界性格などの微視組織の影響を受けることで、亀裂成長が一時的に遅延することなどが要因と考えられる。ただし、MSCは疲労破壊において繰り返し応力が付与される条件での現象であるため、腐食や粒界結合力が重要な役割をもつ本環境の現象と同種の機構として扱えるかについては検討を要するものと思われる。

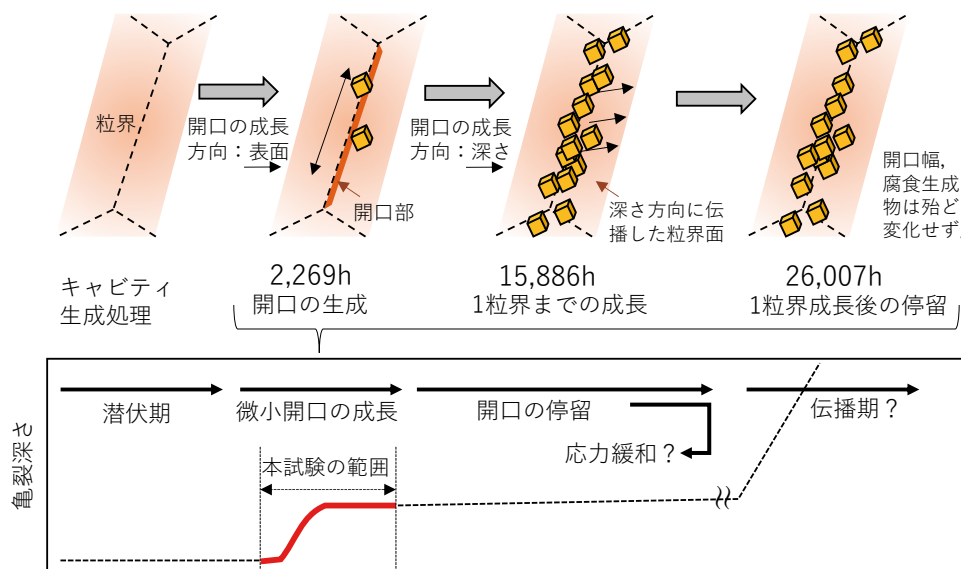


図9 TT690合金の微小開口の成長挙動に関する模式図とSCC発生概念の関係

### 4.3 SCC発生に要する期間

本研究では微小開口の成長挙動を 26,007 時間 (約 3 年) にわたり精緻に評価したが、図 9 に模式的に示した通り、開口が SCC としての伝播期に至るまでには、潜伏期や停留期についても考慮する必要がある。

潜伏期は粒界結合力が低下する期間と想定されるため、本研究では 450°C×220 時間の高温大気中試験によるキャビティ生成により模擬した。キャビティ生成は金属材料の粒界拡散が関与した現象であるため、一般にアレニウス型の温度依存性を示すと考えられる。SCC 発生に対応する活性化エネルギーについて明瞭な値は示されていないが、過去の高温ガス中クリーブ試験による亀裂進展試験の知見では、240kJ/mol の活性化エネルギーが報告されている<sup>(28)</sup>。仮に、この活性化エネルギーを用い 450°C から 320°C に温度補正すると、220 時間のキャビティ処理は、158 年程度という長期に換算され容易に亀裂が生じるものではないことが分かる。しかし、この計算はクリーブ試験の活性化エネルギーを適用したもので、水中で想定される腐食の影響が加味されておらず、低温まで外挿していることや、亀裂進展条件であることなどの課題を有するため、引き続き基礎知見の拡充が必要である。

次に、図 9 に示した停留期間を超えて伝播期に移行するまでの期間について考える。発生から伝播に移行するには、亀裂が連続的に伝播するのに十分な駆動力が必要となる。具体的には、複数の結晶粒界で割れが生じ、合体と成長を継続する条件となるか、単一粒界の亀裂が十分に成長し十分な応力拡大係数を示す条件となる必要がある。前者の複数の結晶粒界で割れが生じるケースについては、600 合金についての検討例がある。Bolivar ら<sup>(29)</sup>はデジタル画像相関法を用い SCC における複数亀裂の相互作用を観察し、表面方向での亀裂伝播後に、亀裂間の合体と成長が生じる事を報告している。しかし、600 合金は粒界酸化が容易に生じる材料であるため、TT690 合金では同種の現象は生じ難い可能性がある<sup>(30,31)</sup>。

現時点で、停留後の伝播についての十分な知見がないため、その期間を推測することは困難である。しかし、あらかじめ応力集中部を生じさせた SCC 進展試験で、24,129 時間荷重を付与した条件でも 1 粒界程度で停留するものが多く観察されているため、2 粒界目への伝播が容易ではないことが想定される。また、実験室の条件では外力により応力を付与するため亀裂の成長とともに応力が増加する条件になり得るが、実機では一定の歪条件が維持されるため、高温条件では転位の運動により応力が緩和する可能性もある。

これらの状況を踏まえると、TT690 合金が SCC を生じさせる可能性については、引き続き機構論に基づいた検討を深化させる必要もあるが、微小開口が停留する挙動についても考慮したうえで、定量評価に取り組むことが必要と考えられる。

### 5. まとめ

TT690 合金の SCC 発生挙動について知見を拡充させるため、ブラントノッチ CT 試験片を用いて、促進 SCC 発生試験を実施した。予め大気中で粒界を弱化させるキャビティ生成処理(450°C×220 時間)を施し、その後 PWR1 次系模擬環境下で荷重を加え微小開口を強制的に生じさせた。その後、定期的に試験片を取り出し微細な開口の変化について評価した結果、SCC 発生の初期段階の現象に対して以下のことが明らかとなった。

- TT690 合金は耐 SCC 性に優れるが、冷間加工材に対して促進条件を用いることで、微小開口を生じさせることができる。
- ブラントノッチ試験片底部に生じた微小開口は、2,269 時間後に観察された後、26,007 時間の現時点まで、長さが殆ど変化しなかった。その状況から、表面方向での伝播は 1 粒界分成長した後に、停留したと考えられる。
- 開口幅については、約 2 μm 程度で停留することが分かった。この開口幅は 1 粒界程度の亀裂深さに相当するため、深さに対しても 1 粒界で停留すると推測される。
- 開口の成長が停留する要因は、SCC 感受性が低い材料であるため、条件の整った粒界でのみが開口したことが影響したと推察される。また、この開口が生じる条件に対しては、結晶粒毎に局所応力や割れ難さが異なることも影響していると考えられる。
- TT690 合金の様に耐 SCC 性に優れる材料では、微細な亀裂が生じても停留する可能性があるため、SCC 発生挙動を定量的に評価するには、この停留期間も評価する必要があると考えられる。

### 謝辞

本研究を遂行するにあたり、(株)原子力安全システム研究所の高経年化研究グループ村上公治氏、黒崎登氏の多大な協力があつた。この場を借りて謝意を表します。



## 引用文献

- (1) B. Alexandreanu, Y. Yang, Y. Chen and W.J. Shack, "The Stress Corrosion Cracking Behavior of Alloys 690 and 152 Weld in a PWR Environment," Proc. of 14<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Virginia Beach, VA, August 23-27, (2009).
- (2) M.B. Toloczko, S.M. Bruemmer, "Crack Growth Response of Alloy 690 in Simulated PWR Primary Water," Pacific Northwest National Lab (No. PNNL-SA-72539), Richland, WA, (2009).
- (3) S.M Bruemmer, M.J. Olszta and M.B. Toloczko. "Cold Rolling Effects on Grain Boundary Damage and Stress Corrosion Crack Growth in Alloy 690," Proc. Fontevraud 7, 236, (2010).
- (4) K. Arioka, T. Yamada, T. Miyamoto and T. Terachi, "Dependence of stress corrosion cracking of alloy 690 on temperature, cold work, and carbide precipitation—role of diffusion of vacancies at crack tips," Corrosion, 67(3), (2011).
- (5) D.R. Tice, S.L. Medway, N. Platts and J.W. Stairmand, "Crack Growth Testing on Cold Worked Alloy 690 in Primary Water Environment," Proc. of the 15<sup>th</sup> International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems—Water Reactors, Colorado US, (2011).
- (6) Electric Power Research Institute, "Recommended Factors of Improvement for Evaluating Primary Water Stress Corrosion Cracking (PWSCC) Growth Rates of Thick-Wall Alloy 690 Materials and Alloy 52, 152, and Variants Welds (MRP-386)," Palo Alto, CA, 3002010756, (2017).
- (7) W. Bamford, A. Jenks, R. Janowiak and G. Stevens, "Technical Basis for ASME section XI Code Case for Stress Corrosion Crack Growth Rate Evaluations for Alloy 690 and Associated Welds," Proc. of the 19<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, (2019).
- (8) U.S.NRC, "Expanded Materials Degradation Assessment (EMDA), Volume 2: Aging of Core Internals and Piping Systems," NUREG/CR-7153, Vol.2, (2014).
- (9) 米澤利夫. "TT690 合金の長期耐応力腐食割れ性に関する研究." までりあ, pp.654-661, 59.12 (2020).
- (10) D. Rundland and C. Harrington, "xLPR Pilot Study Report," NUREG-2110 and EPRI 1022860 (2012).
- (11) T. Moss, K. Wenjun and Gary S. Was, "Stress corrosion crack initiation in Alloy 690 in high temperature water," Current Opinion in Solid State and Materials Science 22.1, (2018).
- (12) K. Tsutsumi, T. Couvant, Evaluation of the susceptibility to SCC initiation of Alloy 690 in simulated PWR primary water," Proc. of 15<sup>th</sup> Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Colorado Springs, Colorado, USA, (2011).
- (13) Z. Zhai, M. Toloczko, K. Kruska and S. Bruemmer, "Precursor Evolution and Stress Corrosion Cracking Initiation of Cold- Worked Alloy 690 in Simulated Pressurized Water Reactor Primary Water," Corrosion, 73(10), pp.1224-1236, (2017) .
- (14) T. Maeguchi, K. Sakima, K. Sato, K. Fujimoto, Y. Nagoshi, K. Tsutsumi, "PWSCC Susceptibility of Alloy 690, 52 and 152," Proc. on the 18<sup>th</sup> Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Springer, Cham. Portland OL, August, pp. 485-500, (2017).
- (15) K. Arioka, T. Miyamoto, T. Yamada and T. Terachi, "Formation of cavities prior to crack initiation and growth on cold-worked carbon steel in high-temperature water," Corrosion, 66(1), p.015008, (2010).
- (16) K. Arioka, "Role of Cavity Formation on Long-Term Stress Corrosion Cracking Initiation: A Review," Corrosion, 76(2), pp. 142-175, (2020).
- (17) 寺地巧, 山田卓陽, 岡本マキエ, 有岡孝司, "PWR1 次系模擬水中における TT690 合金冷間加工材の SCC 発生評価," INSS JOURNAL, Vol.26, pp. 118-135, (2019).
- (18) 寺地巧, 山田卓陽, 岡本マキエ, 有岡孝司, "PWR1 次系模擬水中における TT690 合金冷間加工材の SCC 発生評価(第2報) - 変形を許容した高応力条件下での亀裂発生挙動 -," INSS JOURNAL, Vol.27, pp. 159-174, (2020).
- (19) 大厩徹, 寺地巧, 山田卓陽, 國谷耕平, 有岡孝司. "PWR1 次系模擬水中における TT690 合金冷間加工材の SCC 発生評価 (第3報) キャビティ生成

- 
- 処理後の亀裂発生挙動,” INSS JOURNAL, Vol.29, pp.149-158. (2022).
- (20) 福村卓也, 戸塚信夫, “実機模擬 690 合金の PWSCC き裂進展速度,” INSS JOURNAL, Vol. 21, pp.154-162. (2014).
- (21) P.L. Andresen, M.M. Morraand, K. Ahluwalia, “Effect of Deformation Temperature, Orientation and Carbides on SCC of Alloy 690,” Proc. of the 16th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors. (2013).
- (22) 寺地巧, 宮本友樹, 福村卓也, 戸塚信夫, 山田卓陽, 有岡孝司, “690 合金の SCC 進展に及ぼす粒界キャビティの影響,” INSS JOURNAL, Vol.22, pp. 129-139, (2015).
- (23) Dessault Systèmes Simulia Corp., Abaqus User’s Manual Version 2017, Providence, RI, (2017).
- (24) 三上欣希, 曾我部恵典, 望月正人, “Ni 基合金の結晶粒界近傍に発生する微視的応力に及ぼす結晶方位差の影響,” 溶接学会全国大会講演概要 2011, p.116, (2011).
- (25) 釜谷昌幸, “電子後方散乱回折 (EBSD) による結晶方位差分布の測定,” INSS JOURNAL, Vol. 18, pp.181-97, (2011).
- (26) W.D. Musinski, D.L. McDowell, “Simulating the effect of grain boundaries on microstructurally small fatigue crack growth from a focused ion beam notch through a three-dimensional array of grains,” Acta Materialia, (2016).
- (27) A. Roth, J. Hickling, “Crack initiation due to environmentally assisted cracking in carbon and low-alloy steels exposed to high-temperature water,” Proc. on the 13<sup>th</sup> Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, (2007).
- (28) 寺地巧, 山田卓陽, 岡本マキエ, 有岡孝司, “TT690 合金の SCC に関する知見と今後の課題,” INSS JOURNAL, Vol. 25, (2018).
- (29) J. Bolivar, T. Nguyen, T. Shi et al., “Multiple Cracks Interactions in Stress Corrosion Cracking: In Situ Observation by Digital Image Correlation and Phase Field Modeling,” Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Portland, United States, (2017).
- (30) 寺地巧, 山田卓陽, 宮本友樹, 有岡孝司, “PWSCC 発生への粒界酸化の役割検討—材料組成及び応力の影響—,” INSS JOURNAL, Vol.18, (2011).
- (31) S. Lozano-Perez, M. Meisnar, J. Dohr and K. Kruska, “Reviewing the internal oxidation mechanism as a plausible explanation for SCC in PWR primary water,” Proc. 16<sup>th</sup> Int. Conf. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems–Water Reactors. Houston, TX: NACE, (2013).