

原子炉压力容器オーバーレイクラッドの劣化機構に関する研究

(受託者) 国立大学法人東北大学

(研究代表者) 永井康介 金属材料研究所

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、JFE テクノリサーチ株式会社

(研究開発期間) 平成22年度～24年度

1. 研究開発の背景とねらい

軽水炉压力容器の低合金鋼内面には、耐食性と冷却材の水質管理のために、ステンレス肉盛溶接（オーバーレイクラッド、以下クラッドと呼ぶ。10%程度の δ フェライト相を含む二相ステンレス鋼）が施されている。中性子照射や熱時効等によってクラッドの応力腐食割れ感受性が高まることにより本来クラッドが担保すべき耐食性が損なわれた場合、压力容器低合金鋼が腐食性の冷却材にさらされ、健全性を損なうことが想定される。従って、高い安全性を要求される压力容器にとって、クラッドの劣化機構を解明することは必要不可欠である。

本研究では、放射化した試料の加工から最先端のナノ組織解析まで一貫して行うことのできる世界で唯一の学術施設である東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター（大洗センター）の強みを生かし、クラッドの中性子照射や熱時効によって生じるナノスケールの組織変化が応力腐食割れ感受性に与える影響を、レーザー3次元アトムプローブ（3D-AP）等の最新のナノ組織解析技術を駆使して機構論的に明らかにし、耐食健全性に対する材料科学的知見を供することを目的とする。最新のナノ組織観察に加えて、応力腐食割れを助長する δ フェライト相の硬さや破壊形態の変化の評価、軽水炉水環境条件の応力腐食割れ試験による破面形態や酸化皮膜性状の変化の評価等を再委託先と協力して行い、劣化材の応力腐食割れ感受性の変化とナノ組織変化の対応を明らかにするとともに、クラッド/低合金鋼界面に生じる残留応力等に関する最新の知見も考慮し、長期に使用された際の压力容器の健全性に対する工学的影響の検討を行うことがねらいである。

2. 研究開発成果

本研究の23年度までの主な成果は、以下の4点にまとめられる。(1) 3D-APと超微小硬さ試験を組み合わせることで、クラッド材の熱時効による劣化の主因である δ フェライト相の硬化の原因が、Crの濃度揺らぎ（スピノーダル分解）であることを明らかにした。(2) 中性子照射によって、熱時効では起きないナノ組織変化が起きることを明らかにした。(3) ナノ組織解析に用いた同じ材料を用いて応力腐食試験や機械的特性試験などを行い、ナノ組織変化と対応させるデータを取得した。(4) 上記の結果から実機適応性を検討するため、有限要素法による残留応力解析を行い、相変態を考慮した高精度の解析によってクラッド部に引張り応力が加わることを明らかにした。

(1) 熱時効による δ フェライト相のナノ組織変化と機械的特性変化

熱時効による δ フェライト相のナノ組織変化を定量的に評価するため、3D-APによるナノ組織分析を行った結果、Crのスピノーダル分解をNi-Si-Mnを主体とするクラスターの形成が明らかになった。一例として、図1に熱時効前後におけるESW-M材（エレクトロスラグ法により溶接したクラッド材で、Mはクラッド材に含まれる δ フェライト相の体積率がMediumであることを意味する）の δ フェライト相のCr, Ni, Mn, Siの元素分布の一例を示す。図1(a)に示す未時効材

でも、既に Cr のスピノーダル分解が生じ、わずかであるが Ni-Si-Mn クラスターの形成もみられた。一方で、図 1(b)に示す 400°C、2000 時間時効した試料では、未時効材に比べ Cr の濃淡がより鮮明になり、Cr のスピノーダル分解が進展していることがわかった。さらに Ni-Si-Mn クラスターの形成が非常に多くみられた。

図 2 に Cr のスピノーダル

分解の進展程度を定量的に評価するため実測の Cr の濃度分布と 2 項分布との差であらわした V 値と時効時間依存性(a)、Ni-Si-Mn クラスターの数密度の時効時間依存性(b)を示す。Cr のスピノーダル分解は時効初期に急速に進展するのに対して、Ni-Si-Mn を主体とするクラスターはより長時間側で数密度の上昇がみられた。これらナノ組織変化をナノインデンテーション法による超微小硬さ試験結果(図 2(c))と比較した結果、熱時効による硬化挙動は、Cr スピノーダル分解の進行と強い相関があること示唆された。

そこで、この V 値と硬さとの相関を図 3 に示す。V 値と硬さはほぼ直線関係になること

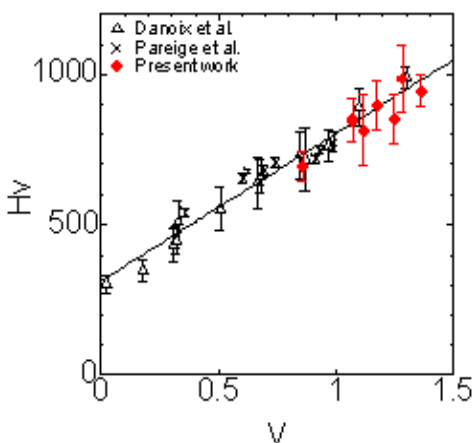


図 3. ESW-M 材の 400°C 時効における V 値 (Cr のスピノーダル分解の進行程度を示す) と δ フェライト相のビッカース硬さとの関係

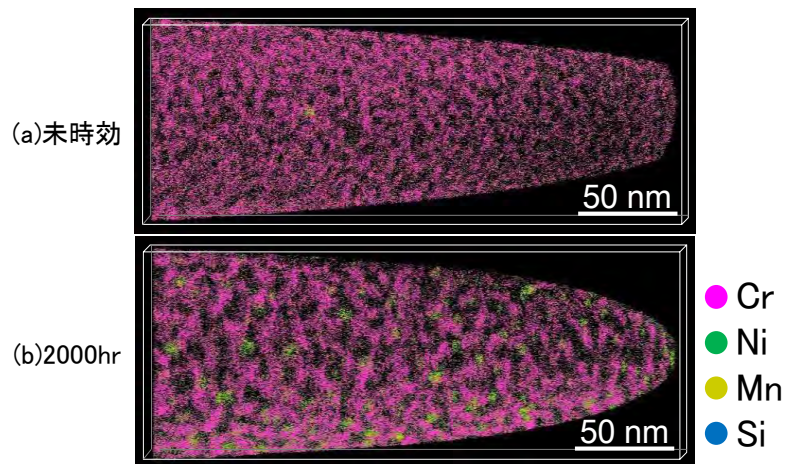


図 1. ESW-M 材の 400°C × 2000hr 時効前後における δ フェライト相の元素マップ

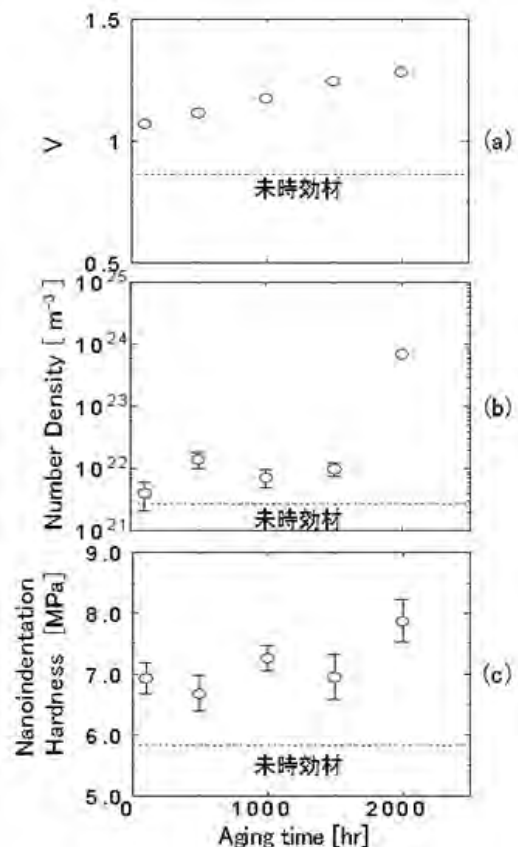


図 2. 時効時間と (a) V 値, (b) Ni-Si-Mn クラスター数密度, (c) δ フェライト相における超微小硬さの関係

がわかった。また、長時間側ではNi-Si-Mn クラスターの数密度が非常に高いにも関わらず、硬さが著しく変化しているわけではなかった。したがって硬化は、主にCrのスピノーダル分解によるものであり、Ni-Si-Mn クラスターはほとんど寄与しないことがわかった。

(2) 中性子照射によるナノ組織変化

中性子照射材 ($7.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$, 290°C) について δ フェライト相の 3D-AP 観察の例を図 4 に示す。その結果、Cr のスピノーダル分解が僅かではあるが進展していることがわかった。また、Ni、Si、Mn の濃度揺らぎ、特に Si は Cr と相関して濃度が大きく揺らいでいることがわかった。これは熱時効で起きる変化と異なる変化である。一方、熱時効材で見られた Ni-Si-Mn クラスターは確認されなかった。また、熱時効では何も変化がなかった γ オーステナイト相では、 Ni_3Si の前駆体と考えられる Ni-Si クラスターの形成が確認された。

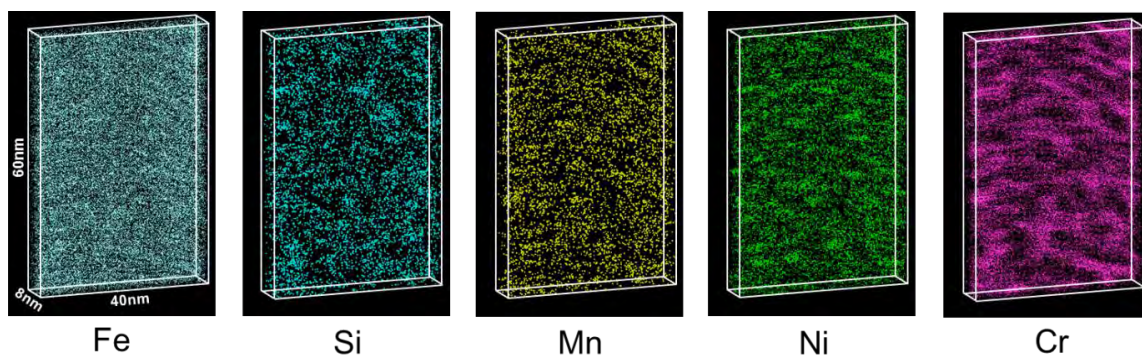


図 4. 照射材 ($7.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$, 290°C) における δ フェライト相の元素マップ

このように、中性子照射 ($7.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$) によるクラッドのナノ組織変化は、長時間の熱時効に比べると小さいものの、異なる変化を示すことが明らかになった。

(3) 腐食試験結果

ESW-M および SAW-M (サブマージアーク溶接法により溶接し、 δ フェライト相の体積率が Medium のもの) 材について、未時効材と $400^\circ\text{C} \times 1000 \text{hr}$ 時効材に対して CBB 試験後にき裂深さを計測した結果、熱時効による腐食感受性への影響が見受けられた。現在、より長時間時効後の材料等について CBB 腐食試験のデータを取得し、系統的な差異の有無等を確認中である。

(4) 有限要素法解析による残留応力解析

クラッド試験体と同一形状の解析モデルを作成し、溶接による熱源形状をよく再現できる幅広二重楕円モデルに基づく移動熱源モデルを用いて、クラッド近傍の残留応力分布を詳細に評価した。解析においては、溶接中に熱影響部 (HAZ) で生じる相変態を連続冷却変態図に基づいて再現し、精度向上を図った。図 5 に溶接後熱処理 (PWHT) を施した後の板厚内溶接方向残留応力分布を示す。PWHT はクラッド中の残留応力を低減する効果はなく、SCC 発生及び進展の駆動力となり得る高い引張残留応力が発生すること

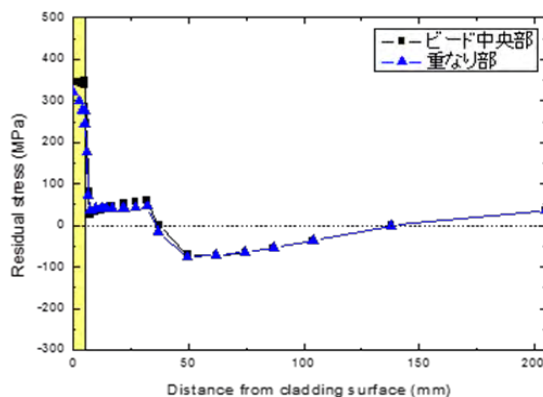


図 5. PWHT 後の残留応力分布

が分かった。また、HAZ 中(図中 40mm 深さまでの範囲)にも、相変態に起因して若干の引張残留応力が生じることが分かった。

得られた残留応力分布を用いて、クラッドに 1~2 mm 深さのき裂が存在すると仮定して応力拡大係数(K 値)を算出したところ 28~33MPam^{0.5}となることが分かった。これは、BWR 通常炉内水質環境における低炭素系ステンレス鋼の場合、約 5×10^{-11} m/s(年間約 2.6×10^{-2} mm)のき裂進展速度となる K 値に相当する。この結果と、24 年度に計画されているクラッド時効材に対する腐食試験結果を組み合わせて、SCC がクラッドを貫通する可能性などについて評価を行い、圧力容器の健全性に関する検討を行う予定である。

3. 今後の展望

最終年度である 24 年度は、照射材や熱時効材の 3D-AP や TEM 等のナノ組織解析、機械的特性試験や腐食試験などのクラッド劣化事象に関するデータの拡充を行うとともに、有限要素法による応力解析などをさらにすすめ、これまでに得られたナノ組織変化と機械的性質や SCC 感受性との関係を明らかにする。そして、実機適用性、すなわちクラッドに関わる圧力容器の健全性に対する機構論に基づいた工学的影響評価への道筋を明らかにできると考えられる。

4. 参考文献

1. T. Takeuchi, J. Kameda, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Nishiyama, K. Onizawa, Study on Microstructural Changes in Thermally-Aged Stainless Steel Weld-Overlay Cladding of Nuclear Reactor Pressure Vessels by Atom Probe Tomography, Journal of Nuclear Materials, **415** (2011), 198-204.
2. T. Takeuchi, J. Kameda, Y. Nagai, T. Toyama, Y. Matsukawa, Y. Nishiyama, K. Onizawa, Microstructural changes of a thermally aged stainless steel submerged arc weld overlay cladding of nuclear reactor pressure vessels, Journal of Nuclear Materials, **425** (2012), 54-59.
3. J. KATSUYAMA, M. UDAGAWA, H. NISHIKAWA, M. NAKAMURA, K. ONIZAWA, Evaluation of Weld Residual Stress near the Cladding and J-weld in Reactor Pressure Vessel Head for the assessment of PWSCC Behavior; E-Journal of Advanced Maintenance Vol. 2, No. 2, pp. 50-64 (2010).
4. J. Katsuyama, T. Tobita, Y. Nishiyama, K. Onizawa, Mechanical and Microstructural Characterization of Heat-Affected Zone Materials of Reactor Pressure Vessel, Journal of Pressure Vessel Technology, Vol. 134, Issue 3, 031402 (7pages) (2012).
5. J. Katsuyama, H. Nishikawa, M. Udagawa, M. Nakamura, K. Onizawa, Assessment of Residual Stress Due to Weld-Overlay Cladding and Structural Integrity of a Reactor Pressure Vessel, Journal of Pressure Vessel Technology (Submitted, 2012/7/24)