

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

(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。

本事業では、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

本事業の初年度である22年度には、まず準備として、1) ナノ組織解析手法の高度化、2) クラッド試験体の作製を行い、これらを基に、3) 3D-APによるクラッド材のナノ組織解析（作製した受領材、および既存の中性子照射材）を行った。また、4) 23年度に行う応力腐食割れ感受性評価のための最適な試験法の探索や、5) 健全性評価に必要な有限要素法による溶接残留応力解析手法の高精度化等も行った。

1) ナノ組織解析手法の高度化

東北大学の既存の装置である集束イオンビーム（FIB）にFIB マニピュレータを取り付け、特定の微小対象部位の試料を自由自在に採取し、3D-AP 試料を作製する手法を確立した（図1参照）。この方法の有効性を示すために、既存の熱時効材等を用いて、耐食性や硬化に大きな影響を与えると考えられる δ フェライト相におけるCrのスピノーダル分解や、界面近傍の溶質濃度分布の評価を実際に行い、これらが高精度で可能であることを実証した。その例を図2に示す。Crのスピノーダル分解に加えて、Ni, Mn, Siを主成分とするG相と呼ばれる析出物も明瞭に観察されている（参考文献を参照）。

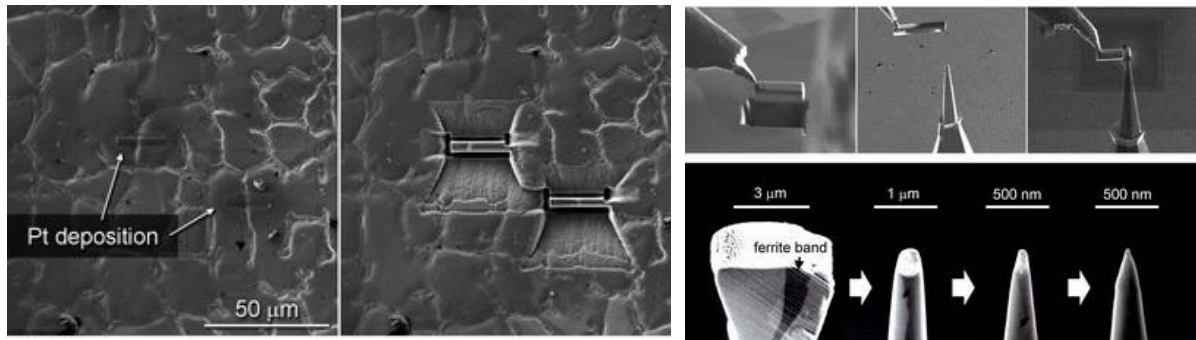


図1. マニピュレータによる微小部位試料採取。(a) 細い網目状の組織が δ フェライト。マニピュレータでピックアップできるようにFIBで周囲を掘削する。(b) マニピュレータ針をコントロールユニットで制御してピックアップした後、3D-AP測定用クーポン台の上にデポジションする。(c) 針先端部に δ フェライトを含むようにFIB加工を行い、3D-AP用試料とする。

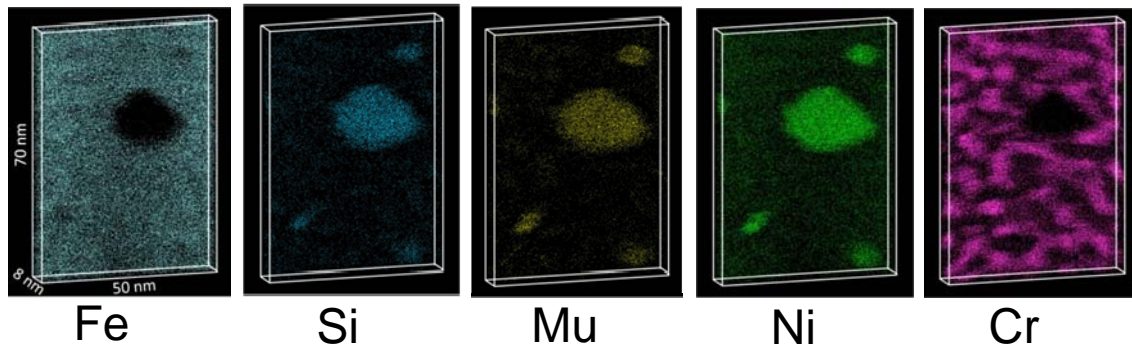


図2. 既存の熱時効材の δ フェライト部のアトムプローブ観察結果。Crのスピノーダル分解に加えて、Si, Mn, Niを主成分とするG相と呼ばれる析出物も明瞭に観察されている。

2) クラッド試験体の作製

クラッド試験体作製に際して、エレクトロスラグ溶接(ESW)およびサブマージアーク溶接(SAW)に対してそれぞれの実機への適用時代に応じた原子炉圧力容器鋼板(Cu, P等の不純物量が多いSAW用、不純物量が少ないESW用)を母材として準備した。次に目標とした性能を有する試験体を製作するための電流、電圧などの溶接条件を、試作溶接材料を用いて検討し、最終的に目標通りの δ フェライト量を持ったクラッド試験体受領材3体を製作した(図3参照)。さらに、溶接の際には温度履歴測定等を行ない、残留応力評価に供し得るデータを取得した。



図3. クラッド試験体の外観写真の例(ESW)

3) 3D-APによるクラッド材のナノ組織解析

1) で確立した手法を用いて、クラッド受領材（熱時効や照射などの劣化処理を行う前の試料）に対して 3D-AP 観察等の最新のナノ組織分析を行った。ESW、SAW それぞれについて Cr スピノーダル分解を定量的に評価するとともに、SAW 中の界面には多量の炭化物が形成していることを明らかにし、23 年度以降の熱時効材と比較するための詳細な受領材の微細組織データを取得した。図 4、図 5 にそれら結果の一部を示す。

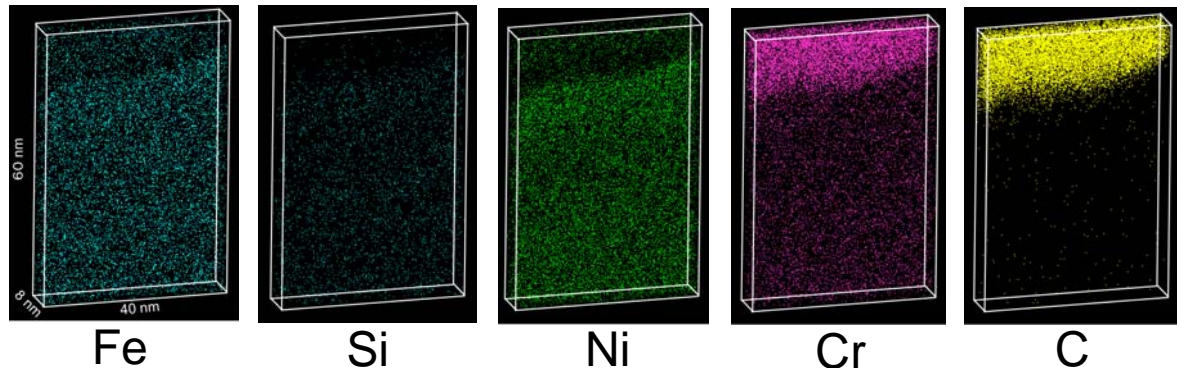


図 4. SAW 受領材のオーステナイト-炭化物界面近傍の原子プローブ観察結果。炭化物には Cr が濃化しており、解析の結果 $M_{23}C_6$ と同定された。

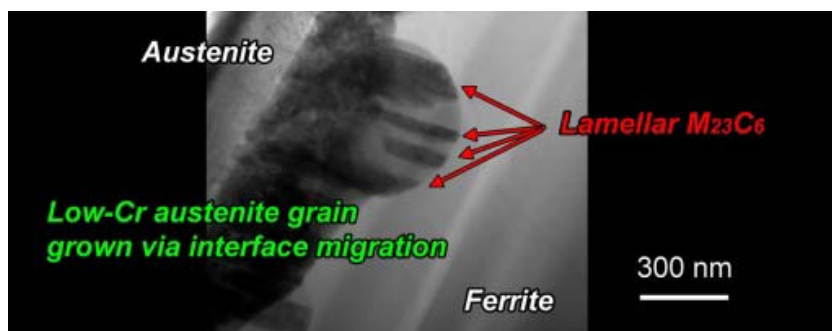


図 5. SAW 受領材のオーステナイト-フェライト界面で形成した $M_{23}C_6$ の TEM 明視野像。

さらに、既存の照射材の 3D-AP および TEM 観察を行い、照射前より Cr スピノーダル分解が進展していることに加えて、明瞭な Si, Mn, Ni 濃度変調が確認された。解析の結果、Si, Mn は Cr 濃淡と同相関であったが Ni は逆相関となっており、熱時効材で見られた G 相の形成初期段階ではないことが分かった。このことは、中性子照射によるナノ組織変化は熱時効による変化とは異なることを示しており、それに伴って劣化機構も異なる可能性を示唆している（図 6 参照）。

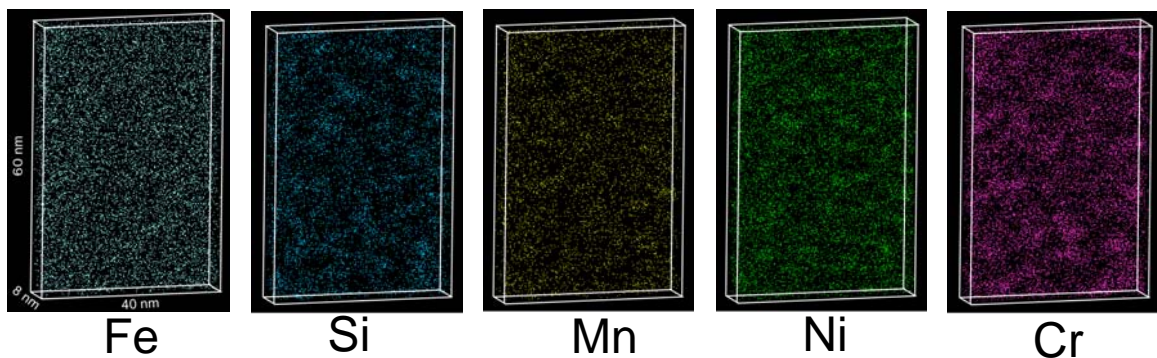


図 6. 既存の照射材の δ フェライト部の原子プローブ観察結果。熱時効材とは異なり、Cr スピノーダル分解による濃度変調に似通った周期をもつ Si, Mn, Ni の濃度変調が生じている。

4) 応力腐食割れ感受性評価のための最適な試験法の探索

高温水中応力腐食割れ試験機によりクラッド材の応力腐食割れ(SCC)感受性評価を行うための最適な試験法を探索した。SAW, ESW で作製された既存のクラッド材から試験片を採取して隙間付き定ひずみ曲げ(CBB)試験を実施し、CBB 試験法が最適と判断した。この試験法探索で行った CBB 試験では、試験片の断面観察から、ESW よりも SAW の方が SCC 感受性が高いことが分かった。SCC 破面を SEM 観察した結果、典型的な粒界破面が認められ、SCC 破面および強制破断面を EDX 分析した結果、SCC 破面は Cr, Fe を主体とした酸化皮膜で覆われていることが分かった。また Cr と Fe の強度比を比較すると、SCC 破面では Cr が濃化していることが分かった。

5) 健全性評価に必要な有限要素法による溶接残留応力解析の高精度化

1) から 4) の成果を統合し、クラッドに関連する圧力容器健全性を工学的に検討することを目的として、文献調査等を通じて、健全性評価に必要な溶接残留応力解析の高精度化に必要な因子を抽出し、解析モデルや相変態を考慮した解析手法の改良等を行った。2) で取得したクラッド試験体作製溶接条件および温度履歴を参考に、伝熱解析の最適化を行うとともに、弾塑性熱応力の試験解析を実施した。伝熱解析により算出される相分率は CCT 図による予測と一致したこと等から、改良した解析手法が妥当であることが確認された。

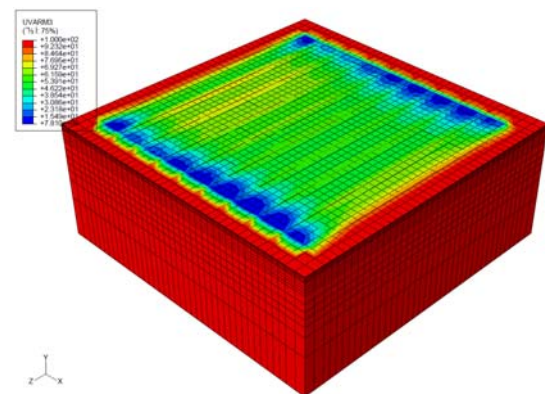


図7. 伝熱解析による上部ベイナイトの相分率分布。

3. 今後の展望

23年度は、引き続き受領材および照射材に対して 3D-AP や TEM 等のナノ組織解析を行い、クラッド劣化事象に関するデータの拡充を行う。特に、22年度に熱時効処理を開始した劣化材に対しては、ナノ組織解析とミニシャルピー、微小引張、硬さの各種機械試験の結果の比較を行い、熱時効による組織変化が機械的性質に与える影響を明らかにする予定である。また、SCC 感受性試験については、22年度に選定および最適化した CBB 法により 23年度から受領材の試験を行い、腐食感受性と組織変化との関連性を解明するためのデータを取得する予定である。

本研究によって、ナノ組織と機械的性質や SCC 感受性との関係を整理することによりクラッド経年劣化機構の解明に資する知見を得るとともに、有限要素法のさらなる高度化等によって、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が明らかになると考えられる。

4. 参考文献

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, Vol 415, Issue 2, 2011, p.198-204.