

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

研究代表者 永井 康介 国立大学法人東北大学金属材料研究所
参画機関 国立大学法人東北大学、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、機械的性質に関する試験、軽水炉水環境条件の応力腐食割れ試験等を再委託先と協力して行い、クラッド近傍に生じる残留応力等に関する最新の知見も考慮して、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

压力容器を正確に模擬するため、まず実機規模である200mm厚さの低合金鋼を作製し、その上に肉盛り溶接と溶接後熱処理（PWHT）を行い試料（200mm×500mm×500mm）を作製した。実機の製造年代によって異なる不純物含有量や溶接方法、さらに主な劣化対象である δ フェライト量の違いの効果を調べるために、2種類の低合金鋼（高不純物、低不純物）、2種類の溶接方法（サブマージアーク溶接（SAW）法、エレクトロスラグ溶接（ESW）法）、3種類のフェライト量（5~12%）のクラッド試料を作製した。図1に試料の一例を示す。なお、溶接時には、応力腐食割れ感受性に関連して重要な溶接残留応力評価を行うため、肉盛溶接試験体の溶接時の温度履歴測定を詳細に行なった。本研究では、中性子照射と熱時効による劣化を想定している。熱時効に関しては、実機相当の300℃から加速時効である400℃までの温度で最大10,000時間の時効処理を行った。このようにして得られたクラッド材から、ナノ組織解析、機械

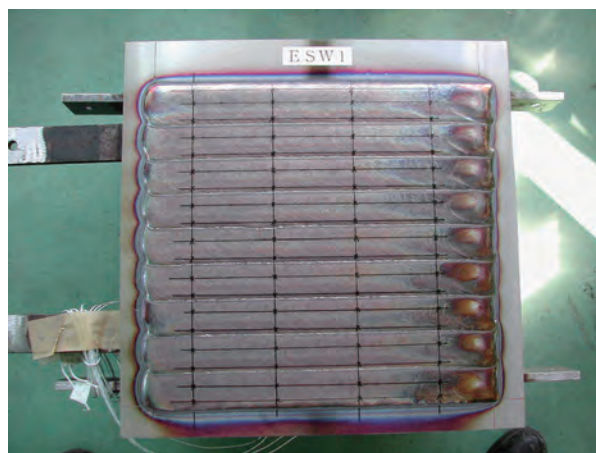


図1：肉盛溶接受領材の外観写真

的特性試験、応力腐食割れ感受性試験用の試料を切り出した。一方、中性子照射材は3年の研究期間であることを考慮し、既存のクラッド材を活用した。

ナノ組織解析の高度化を行うため、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、クラッドの特定の微小対象部位の試料を自由自在に採取し、3D-AP 試料を作製する方法を確立した。図2に細い網目状の δ フェライト部の試料作製方法の例を示す。この方法により、微細な粒界や相界面、その他の多くの原子力関連材料の高度な試料作製が可能になり、現在、多くの共同利用研究に活用されている。

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と 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3に熱時効前後における ESW-M 材 (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 の元素分布を示す。図4に δ フェライト相における Cr スピノーダル分解の指標である V 値、Ni-Mn-Si クラスター数密度、ナノインデントによる超微小硬さの 400°C での熱時効時間依存性を示す (熱時効温度や時間は(2)で検討・最適化した)。Cr スピノーダル分解が時効初期の 100h で急速に上昇した後に緩やかに上昇するのに対して、Ni-Mn-Si クラスター

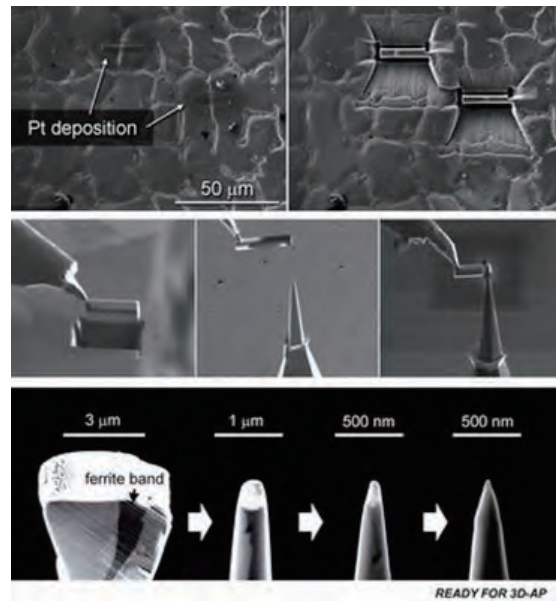


図2 : FIB マニピュレータを用いた 3D-AP 試料

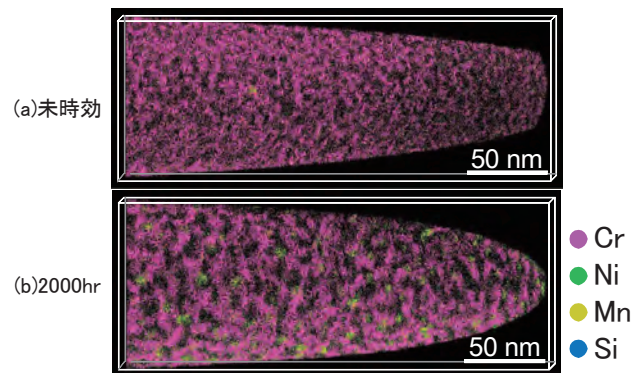


図3 : ESW-M 材の 400°C × 2000hr 時効前後における δ フェライト相の元素マップ

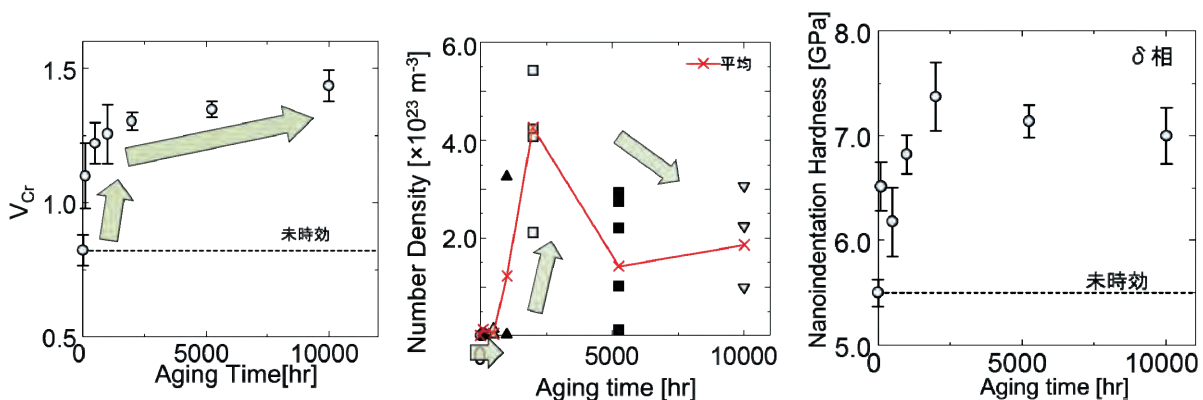


図4 : Cr スピノーダル分解の V 値、Ni-Mn-Si クラスター数密度、超微小硬さの熱時効時間依存性

は時効初期ではほとんど形成されず、1000h 程度から数密度が上昇し 2000h 程度で数密度が急激に増加するが、5000h 以上では数密度が減少した。一方、超微小硬さは、時効初期で大きく進みその後飽和した。この振る舞いは、Cr スピノーダル分解に非常に似ており、超微小硬さと V 値の線形関係も確認された。また、 γ オーステナイト相には何も変化は見られなかった。さらにシャルピー衝撃試験などのマクロな機械的特性試験の結果も、 δ フェライト相の超微小硬さに対応する変化を示した。以上より、クラッド材の熱時効による硬化の主因は、Ni-Mn-Si クラスターではなく Cr のスピノーダル分解であることを直接明らかにした。溶接法の違いや δ フェライト量の影響についても明らかにした。

次に、中性子照射材に対して、熱時効による組織変化との違い（照射による効果）を同様の方法で調べた。図 5 に元素マップの一例を示す。その結果、熱時効では起こらない Ni や Si の濃度揺らぎが生ずることを明らかにした。図 6 に中性子照射材と履歴熱時効材（非照射だが熱履歴は中性子照射材と同じ材料）の V 値と超微小硬さの関係を示す。直線は Cr スピノーダル分解による硬化直線である。履歴熱時効材は直線上に載るのに対して、中性子照射材はそれよりも硬化が進むことが分かった。すなわち、照射欠陥や上記の Ni, Si の濃度揺らぎ等、Cr スピノーダル分解とは別の由来の硬化要因があり、その程度を明らかにすることができた。

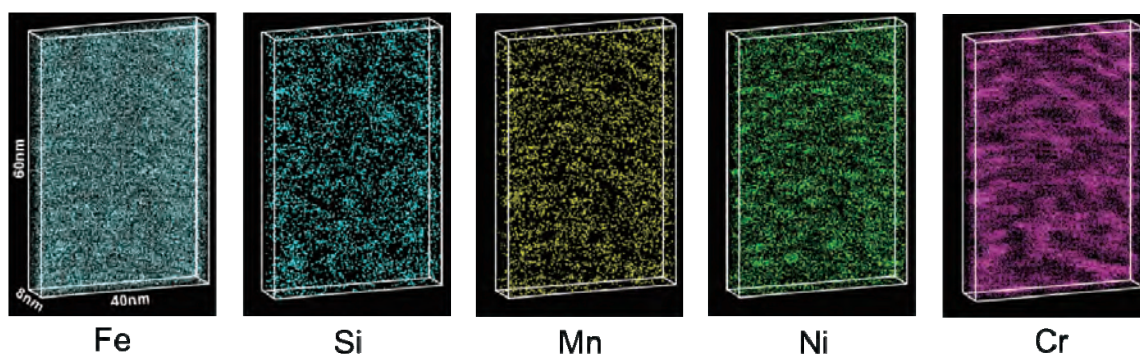


図 5 : 照射材 ($7.2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$, 290°C) における δ フェライト相の元素マップ

このように詳細に明らかになった劣化によるナノ組織変化と耐食性の関係を明らかにするため、応力腐食割れの発生及び進展の駆動力となる溶接残留応力について、相変態を考慮した新しい有限要素法解析により評価を行った。その結果、図 7 に示すように、PWHT 後に相変態に起因して、応力腐食割れの要因となる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 $28 \sim 33 \text{MPa} \cdot \text{m}^{0.5}$ 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 $5 \times 10^{-11} \text{m/s}$ (年間約 $2.6 \times 10^{-2} \text{mm}$) のき裂進展速度となる K 値に相当する。この結果と、熱

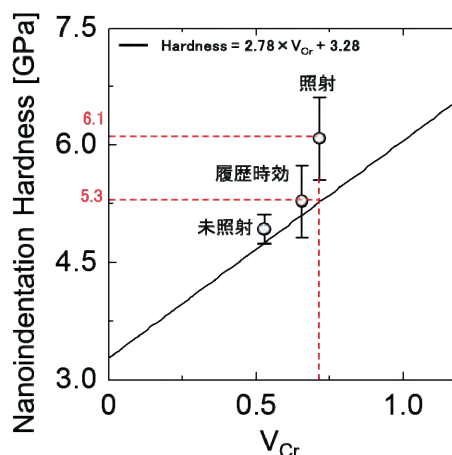


図 6 : V 値と超微小硬さの関係。

時効材スピノーダル分解の進展度合い、照射による促進効果、応力腐食割れ試験（CBB 試験）結果等を併せて、60年程度の使用ではクラッドは十分に健全であることが結論された。

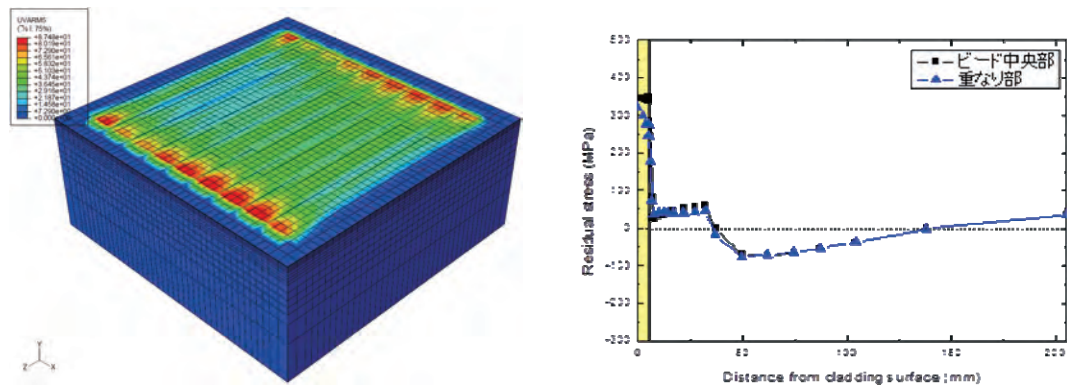


図7：伝熱解析による母材鋼板のマルテンサイト相分率分布とPWHT後の残留応力分布

3. 今後の展望

本研究で作製したクラッド材は、将来 JMTR 照射を行い、中性子照射効果のより詳細な研究につながると期待される。また、本研究で確立したナノ組織解析手法、特に FIB を用いた微細試料作製法による 3D-AP は、本研究が直接の対象とするクラッド材以外にも、原子炉圧力容器本体（低合金鋼）、燃料被覆管（ジルカロイ、Zr-Nb 合金）、燃料支持板（304 ステンレス鋼）、シュラウドステンレス鋼など、多くの材料に適用でき、これまで他の手法では解明できなかった、粒界、相界面、き裂先端分析など、原子力の材料基盤技術の向上に大きく寄与することが期待される。

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, 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 (2012).
4. T. Takeuchi, Y. Kakubo, Y. Matsukawa, Y. Nozawa, Y. Nagai, Y. Nishiyama, J. Katsuyama, K. Onizawa and M. Suzuki: *J. Nucl. Mater.* in press, Effect of neutron irradiation on the microstructure of the stainless steel weld-overlay cladding of nuclear reactor pressure vessels, *Journal of Nuclear Materials*, **443** (2013), 266-273.

他、クラッド研究論文4報、本研究の手法を活用した原子力材料研究論文7報