

圧力バウンダリ構成部で使用される ステンレス溶接金属の熱時効脆化評価のための基盤技術開発

(受託者) 国立大学法人 東北大学

(研究代表者) 渡邊 豊 大学院工学研究科

(再委託先) 学校法人北海道科学大学、国立研究開発法人物質・材料研究機構

(研究期間) 平成 27 年度～29 年度

1. 研究の背景とねらい

軽水炉の燃料支持金具や炉心スプレイスパージャに使用されているステンレス鋳鋼は、フェライト相とオーステナイト相の二相から構成される二相ステンレス鋼である。フェライト相を含むステンレス鋼の使用上の留意点として、300℃程度以上の温度での長時間の使用により、フェライト相内でスピノーダル分解や G 相 (Ni, Si, Mo 主体の金属間化合物) の析出が生じ、これに伴い脆化が生じることが挙げられる。このため、プラント高経年化に伴う健全性評価基準において、ステンレス鋳鋼使用部位について注意すべき事項として熱時効脆化が規定されている。さらに、炉内環境において中性子照射を受けることにより形成する照射欠陥がスピノーダル分解に至る過程を加速し、より熱時効脆化が生じやすくなる可能性が指摘されている。一方、原子炉容器のステンレスクラッド材や、原子炉再循環系配管の溶接部で使用されている溶接金属も、フェライト相とオーステナイト相の二相から構成される二相ステンレス鋼である。しかしながら、これまでの使用経験上問題が生じていないことから、熱時効脆化の評価部位としては明確な要求がない。二相ステンレスの脆化機構がフェライト相におけるスピノーダル分解や G 相の析出であることを考えると、機構論的には熱時効脆化の可能性が考えられ、プラント運転期間延長後の長期間使用に備えて熱時効脆化の評価手法を確立しておくことが望ましい。

以上の背景から、ステンレス溶接金属の長期間使用後の熱時効脆化評価を行うための基盤技術として、ステンレス鋳鋼とステンレス溶接金属における熱時効脆化機構の違いの有無を見極め、これまでのステンレス鋳鋼に対する知見の活用可否や、評価に際しての新たな開発課題の有無を明確にしておく必要がある。本研究では、ステンレス溶接金属の熱時効脆化要因と予想されるスピノーダル分解等のミクロ組織調査に基づいて熱時効脆化挙動を明らかにするとともに、その予測手法を計算材料科学によるシミュレーションにより開発する。また、中性子照射を受けたステンレス溶接金属のミクロ組織調査を行い、照射環境の熱時効脆化に及ぼす影響を検討する。

2. これまでの研究成果

2. 1 ステンレス溶接金属の熱時効試験

熱時効試験の対象として、原子炉圧力容器クラッド鋼ならびにシュラウド溶接部を模擬した 2 種類のステンレス鋼溶接試験体を選定した。それらのミクロ組織特徴を抽出し、熱時効試験に反映させるため、組織的特徴に基づいて溶接金属組織を適切に分類するための知見を得た。溶接組織観察例を図 1 に示す。シュラウド材試料の組織はクラッド材試料と比較してより微細なフェライト相が分布していた。また、いずれも FA モード凝固組織が大半であったが、シュラウド材試料のパス境界近傍組織は局所的に AF モード凝固した組織が認められた。

熱時効処理温度条件の策定に関しては、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属の δ -フェライトにおけるスピノーダル分解に関する熱時効データは限られているため、二相ステンレス鋳鋼

CF-8、CF-8M の熱時効データ（図 2）を参考に時効条件を決定することとした。これに基づけば、スピノーダル分解のノーズは 400℃近傍にあり、炉水温度域への等価時間換算が可能な温度加速の上限は約 335℃であることがわかる。これよりスピノーダル分解が発生する温度域でかつ等価時間換算が可能な温度範囲の中で時効温度を 275℃、310℃、335℃とした。BWR 炉水温度より低い 275℃を選定した理由は、比較対象である照射材試料の照射時温度（約 275℃）と同一にするためである。

335℃時効（～4000 時間）材の硬化挙動を図 3 に示す。オーステナイト相は時効による有意な硬さの変化は認められなかったのに対し、フェライト相は 500 時間の時効でも明確に硬化していた。材料間のフェライト相の硬化挙動の違いに着目すると、クラッド材試料のフェライト相は単調増加傾向を示したのに対して、シュラウド材試料は硬化が頭打ち、あるいは軟化傾向を示した。

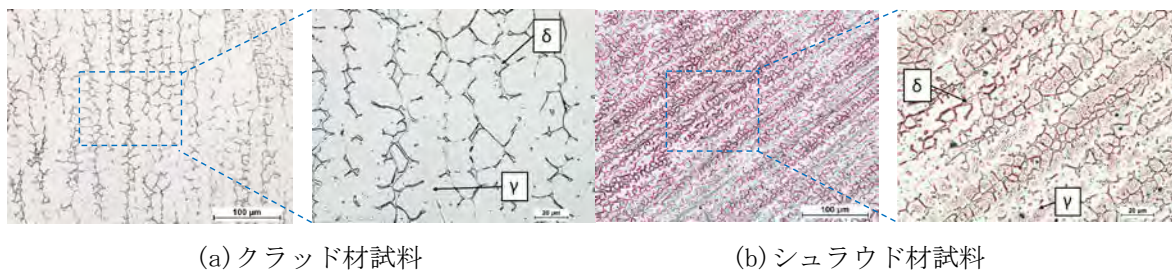


図 1 クラッド材試料・シュラウド材試料の代表的な溶接組織（FA モード凝固）

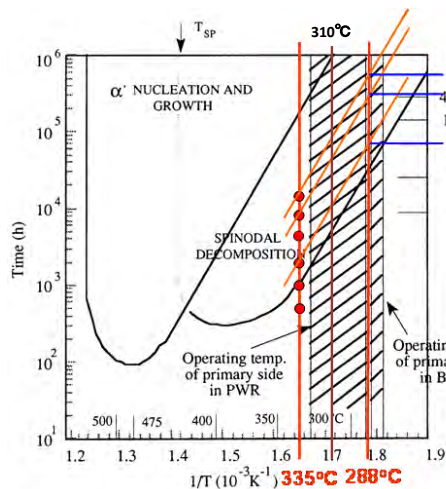


図 2 二相ステンレス鋼

CF-8、CF-8M の熱時効データ

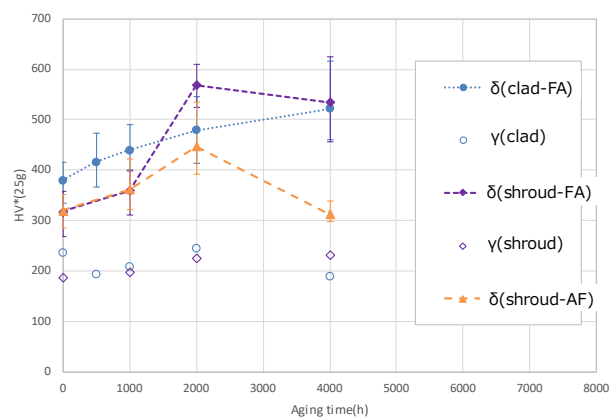


図 3 溶接試料の硬化挙動（335℃、～4000 時間）

2. 2 照射済み溶接金属のマイクロ組織調査

ホットセル施設に保管されている照射済みステンレス溶接金属に対して、照射条件や化学組成を調査した上で、試験に供する試料を選定した。本事業で用いる溶接試料を表 1 に示す。照射材については、照射時間が同等で照射量が異なる SUS316L 溶接金属 2 種、高照射量の SUS316L 溶接金属と照射量が同等の SUS308L 溶接金属 1 種の合計 3 種を選定した。非照射材については、SUS316L 溶接金属の時効／未時効材と SUS308L 溶接金属の未時効材を選定した。これらのフェライト相のマイクロ組織を、透過型電子顕微鏡 (TEM) ならびに 3 次元アトムプローブ (3DAP) を用いて調査するこ

とで、熱時効脆化に及ぼす照射の影響ならびにその鋼種による違いの有無を調査する。平成 28 年度内に、照射材の TEM および 3DAP 観察を完了するスケジュールで進捗している。

表 1 ミクロ組織調査を実施する供試材一覧

No.	照射炉	溶接金属	溶接方法	照射／時効温度	照射時間	照射量 ($\text{n/m}^2, >1\text{MeV}$)
1	ハルデン炉	316L	SMAW	約275℃	約8000h	約 5×10^{24}
2	ハルデン炉	316L	SMAW	約275℃	約8000h	約 2×10^{22}
3	ハルデン炉	308L	SMAW	約275℃	約8000h	約 5×10^{24}
4	-	316L	TIG	-	-	-
5	-	316L	TIG	約275℃	8000h	-
6	-	308L	SMAW	-	-	-

2. 3 ステンレス溶接金属の熱時効予測モデルの開発

(1) G 相析出予測モデルの開発

ステンレス溶接金属及びステンレス鋳鋼を対象として想定し、組成ならびに温度を変数として、熱力学的な平衡状態を統合型熱力学計算システム (Thermo-Calc) により評価した。また、溶接試験体の組織を光学顕微鏡で観察した上で文献調査を行い、文献中の材料組織との比較により G 相の析出及び成長予測モデルに反映すべき熱力学パラメータを抽出した。さらに、析出成長予測ソフトウェア (TC-PRISMA) により、古典的核生成理論に基づき G 相の析出及び成長挙動予測に対する基礎検討を開始した。

図 4 に、ステンレス溶接金属の代表組成に対する 300～1500℃における平衡相を、熱力学データベース Fe-Data を用いて計算した結果を示す。G 相が安定相となる温度は 506℃以下、スピノーダル分解開始温度 (Cr rich の bcc 相が安定相となる温度) は 483℃と計算されている。ステンレス鋳鋼の代表組成に対しても同様に評価した結果、ステンレス溶接金属では、ステンレス鋳鋼と

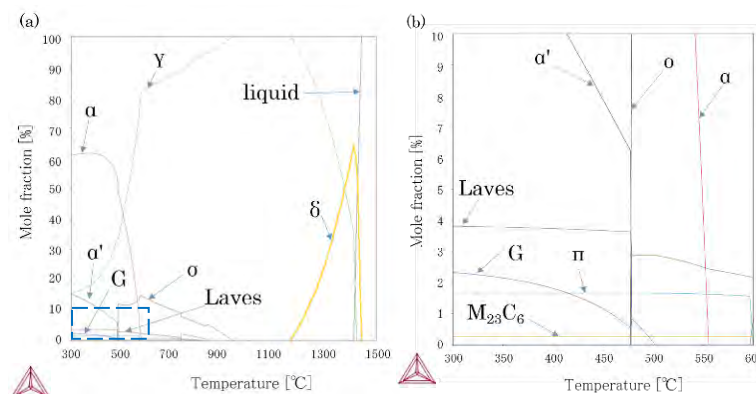


図 4 ステンレス溶接金属の代表組成に対する 300～1500℃における平衡相計算結果。
(b)は(a)の青破線枠部分の拡大図

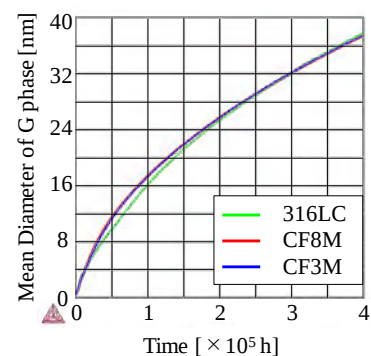


図 5 ステンレス溶接金属／鋳鋼の代表組成に対する 400℃における 40 万時間 (約 45.7 年) までの G 相の平均粒子径計算結果。

比較して供用温度における G 相の平衡析出量は小さく、析出開始温度も低温側にシフトすることが予測された。ステンレス溶接金属における G 相の析出及び成長予測モデルに反映すべき熱力学パラメータとしては、特に Si, Mo, Mn, Ni の濃度と拡散定数を抽出した。

図 5 に、ステンレス溶接金属及びステンレス鋳鋼の代表組成に対する 400℃における 40 万時間（約 45.7 年）までの G 相の平均粒子径を、熱力学データベース Fe-DATA を用いて計算した結果を示す。本計算は基礎検討の段階であり、G 相の構成元素として Mo が考慮されていない等、モデルの高精度化に対していくつかの課題が残されているが、G 相の析出及び成長挙動を詳細に検討できる可能性が示された。

（２）スピノーダル分解予測モデルの開発

非照射下で過剰空孔が導入されていない Fe-Cr 二元系の状態図計算を基礎研究として行い、さらに過剰空孔の存在を考慮することで、照射の影響を考慮した Fe-Cr-空孔の仮想三元系の熱力学モデルを構築した。さらに熱力学平衡計算を行うことで、当該系のスピノーダル分解の現象の理解に必要な基礎的検討を行った。

熱力学平衡計算には汎用ツールである Thermo-Calc を用いた。平衡計算の結果、空孔量に応じて、 σ 相が不安定になり、その結果 BCC 相が安定になる傾向が見られた（図 6）。さらに過剰空孔がない二元系で、例えば 500℃においては、37～71 at.%Cr 程度のときにスピノーダル分解範囲が示唆されたが、空孔が 1 at.%程度入ると、

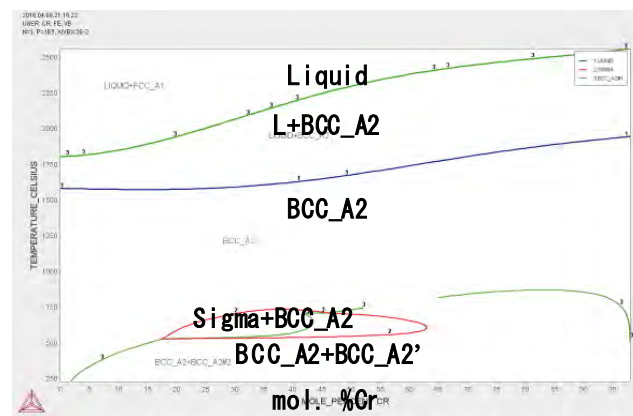


図 6 空孔量を 2 at.%とした場合の仮想三元系計算状態図

17～91 at.%Cr 程度と Cr 量の少ない領域でスピノーダル分解が起こる可能性が見られた。

次に、過剰空孔の存在しない状態での Fe 中の Cr の拡散定数を文献などから抽出した。過剰空孔の影響を加味したデータは存在しないので、熱力学モデルから想定される空孔の影響を鑑み、過剰空孔のないデータから過剰空孔が存在する場合の拡散係数の推算を行うようにモデル化した。

3. 今後の展望

最終年度である平成 29 年度は、現在継続中のステンレス溶接金属の熱時効試験結果に基づいて、フェライト相の熱時効硬化挙動に及ぼす化学成分ならびに溶接条件の影響について検討する。また、中性子照射を受けたステンレス溶接金属のミクロ組織調査を行い、照射環境の熱時効脆化に及ぼす影響を検討する。以上の実験結果から得られた知見、そして照射による原子空孔の影響を加味したスピノーダル分解予測モデルとの連成による、過剰空孔が存在する母相から G 相が析出するモデルの考察、さらに Phase Field 法を用いた計算による空孔量の影響とスピノーダル分解波長の時間依存の検討に基づいて、G 相析出ならびにスピノーダル分解予測モデルの開発に繋げる。