

論文の内容の要旨

論文題目 原子炉圧力容器内面ステンレス鋼肉盛溶接金属の
耐粒界型応力腐食割れ性に関する研究

氏 名 浜 田 幾 久

本研究は、沸騰水型原子力発電プラント（BWR）機器のなかでも、特に高い信頼性を要求される低合金鋼製原子炉圧力容器（RPV）を対象とし、その内面（主蒸気配管等接続用ノズルを含む）を腐食から保護するためのステンレス鋼肉盛溶接金属の高温純水中における粒界型応力腐食割れ（IGSCC）感受性の評価と、材料的な面からの IGSCC 感受性抑制技術の確立を目指したものである。

RPV 内面ステンレス鋼肉盛溶接金属の耐食性を考える上でもっとも重要なことは、これらが RPV の製作過程において、厚肉溶接部の溶接残留応力除去のために施される 600℃近辺での熱処理（PWHT）を受けるという点である。このため 304 鋼に代表されるオーステナイト系ステンレス鋼配管溶接部等で経験されてきた、クロム炭化物（ Cr_{23}C_6 ）の析出に伴う結晶粒界の耐食性低下（鋭敏化）の影響が強く現われる可能性がある。

しかしステンレス鋼溶接金属は、溶接時の高温割れ（凝固割れ）を防止するため、通常溶接のままの状態ではフェライト相が 10～20%析出するような組成に調整されているので、オーステナイト単相のステンレス鋼の鋭敏化とは区別して取り扱う必要がある。他方フェライト相を含むことから、鋭敏化防止とともに PWHT による材質的な脆化の防止も RPV の健全性確保の点で重要な課題となる。

さらに材料選定・開発においては、上記のような RPV 製作時の熱影響だけでなく、実際の運転温度（～288℃）で数十年という長い期間使用された場合に起こりうると思われる低温鋭敏化現象も考慮する必要がある（この現象を模擬するものとして、通常 500℃/24h の低温熱時効処理が付加的に施される）。

本研究はこうした観点から、実際に即した条件の下におけるステンレス鋼肉盛溶接金属の鋭敏化現象を詳しく調べ、耐 IGSCC 性とともに、熱処理による脆化防止の点から好適な材料条件を見出すことを大きな目的とした。さらに実験的な評価・検討だけでなく、ステンレス鋼肉盛溶接金属の鋭敏化とその回復現象の微視的機構の解明の一助とするため、鋭敏化の主原因であるクロム炭化物の析出・成長に伴うクロム及び炭素原子の移動に注目した新規な解析モデルを構築し、実験結果を合理的に説明できるシミュレーション手法を開発した。

1. 主蒸気配管等接続ノズル溶接部用ステンレス鋼肉盛溶接金属の選定と開発

RPV には蒸気発生用の給水配管や発生した蒸気を取り出すための主蒸気配管等が接続される。これらの内径の大きな配管は、RPV 側ノズル（低合金鋼製）に原子力用 316 鋼製短管（ノズルセーフエンド）を取付けてから溶接で接合されるが、RPV 側ノズルとノズルセーフエンドとの接合部が低合金鋼とオーステナイト系ステンレス鋼の異種金属溶接継手となり（ノズル内面の肉盛溶接含む）、しかもこの部位は部分的に PWHT の影響を受けるため、鋭敏化と脆化の観点から信頼性の高いステンレス鋼溶接材料を選定または開発する必要があった。

候補となった材料は主として 308 及び 316 鋼溶接金属であったが、結果的に炭素量とフェライト量を所定の範囲に制限することにより、高温純水中での耐 IGSCC 性及び脆化の点で極めて特性のすぐれた 316 鋼溶接金属が得られることを明らかにした。316 鋼溶接金属では、PWHT 時にフェライト相内部に多量のモリブデン炭化物（MoC）が析出するという特徴があり、このことが本材の粒界腐食（IGC）抵抗向上に寄与している。フェライト相中の MoC の析出についてはまだ他に研究例が見当たらない。

研究を進めるにあたり、溶接金属特有の材質的不均質性の影響を考慮し、高温純水中での IGSCC 特性を簡便かつ確実に評価するための代替試験法として、定量的粒界腐食試験法を確立した。こうした評価法により、308 鋼溶接金属においてこれまで知られていなかった現象として、PWHT で一旦鋭敏化が回復した場合であっても、500℃/24h の低温熱時効処理を施すと、IGC 感受性が再び増大するケースのあることが判明した。

2. RPV 内面用 308 鋼二層肉盛溶接金属の鋭敏化特性評価

RPV 内面への耐食材料の肉盛溶接法としては、50～75mm 巾の带状電極を用いたサブマージアーク溶接法が代表的である。この溶接法では RPV 母材（低合金鋼）からの希釈が比較的大きいので、耐食性の確保の観点からは二層肉盛溶接が行われる。ここではこの二層肉盛溶接により得られた 308 鋼溶接金属について、PWHT 後の鋭敏化特性を詳しく評価した。このときフェライト相の分布状態を定量化できる金属組織パラメータ（フェライト相－オーステナイト相界面の数 $N_L^{\alpha-\gamma}$ または面積 $S_V^{\alpha-\gamma}$ ）に注目し、各試験材の挙動を金属組織パラメータとの関連で検討した。

その結果、大部分の IGC データは先行研究で明らかにされていた鋭敏化／非鋭敏化の限界線で説明できるものの、一部に予測から外れるものが見出された。そこでこの原因が带状電極による肉盛溶接金属に特有の金属組織のバラツキ（フェライト相の分布状態）と関係があることを突き止め、フェライト相の分布状態の局部的特徴を反映できる新たなパラメータ（局部 $N_L^{\alpha-\gamma}$ ）を導入した。これにより 308 鋼溶接金属の鋭敏化特性は、金属組織の特徴と明確に関連づけられるようになった。

3. RPV 内面用高耐食性一層肉盛溶接金属（308NbL）の開発

BWR プラントの数が増えるにつれて、RPV 製作工法の合理化が進み、内面肉盛溶接に対しても、150mm 巾の带状電極による新規な一層肉盛用溶接金属の開発の必要となった。しかし一層肉盛溶接法では溶接時に RPV 母材（低合金鋼）からの希釈が多くなり、溶接金属中の炭素濃度が高くなるため、JIS においては一層盛用の高耐食性肉盛溶接金属として規格化されたものはなかった。そこで本論文ではニオブによる炭素の安定化効果に着目し、溶接性に優れた 308 鋼を出発材料として、高耐食性の多層肉盛溶接金属以上の耐食性を有し、PWHT 後に脆化しない新規な一層肉盛溶接金属（308NbL と呼称）を開発した。

開発した 308NbL 溶接金属の限定条件は① $Nb/C \geq 13$ 、② $Nb \leq 0.65$ 、③ $C \leq 0.05$ （ここで Nb 、 C はそれぞれニオブ及び炭素の mass%）、④ $8FN \leq$ フェライト量 $\leq 20FN$ （FN はフェライトナンバー）であり、その優れた耐 IGC 性は主として、ニオブ炭化物（NbC）が $\alpha - \gamma$ 相界面に優先的に析出するためであることを電子顕微鏡による金属組織調査及び分析により明らかにした。

308NbL 溶接金属は本研究の範囲では、高温純水中における IGSCC 感受性を示さなかったが、同時に SCC 試験を行った従来材 308 鋼溶接金属の結果に基づき、SCC 発生寿命裕度を解析した結果、その SCC 発生寿命裕度は 308 鋼溶接金属の 36 倍以上であることを確認した。原子力用オーステナイト系ステンレス鋼配管突合溶接部に

関しては、高温純水中での IGSCC 対策技術として、従来材（304 鋼配管突合溶接部の溶接熱影響部が対象）の 20 倍程度の寿命裕度が必要とされていることを考えると、この 36 倍という数値は十分満足される裕度と言える。

4. ステンレス鋼溶接金属の鋭敏化・回復現象のシミュレーション手法の開発

二相ステンレス鋼溶接金属特有の鋭敏化・回復現象には不明な点が残っている。そこでその機構解明の一助とするため、従来の手法とは視点をかえて、クロム炭化物析出に伴うクロムと炭素の原子数収支、クロム炭化物の溶解度曲線、金属組織パラメータ等を考慮した解析モデルを考えた。これにより単相並びに二相鋼の各々に対して適用でき、クロム枯渇（鋭敏化）からその回復（安定化）までを一貫して解析できる新しいシミュレーション手法を開発した。

この解析モデルを実際の二相鋼溶接金属の鋭敏化・回復現象の説明に展開するにあたり、二相ステンレス鋼溶接金属に特有の事情として、材料中に過飽和に存在している自由炭素が所定の割合（分配率）でフェライト相とオーステナイト相に存在するという考え方を導入した。計算上はその分配率を 1：99 に設定したときに、シミュレーション結果と実験結果がほぼ一致する。

このシミュレーション手法を用いて 600℃近辺での長時間熱処理による鋭敏化の回復における金属組織パラメータの影響を解析した結果、解析による鋭敏化・回復の境界線は、実験的に求められた回復曲線と一致し、さらに本研究に直接関わる実験結果だけでなく、他の研究者による鋭敏化・回復挙動についてのデータも合理的に説明できた。同時に本結果によると、RPV に対して施される PWHT の範囲（通常数時間～数十時間）で、308 鋼肉盛溶接金属を安定化するには、金属組織パラメータ $N_L^{\alpha-\gamma}$ 値を、実際の溶接作業では実現が難しい 3,000 近くに高くする必要があることも分かった。

一方 Nb 添加 308 鋼溶接金属（308NbL）において、 Nb/C が 13 以上で耐食性が優れている理由は、溶接時の高温熱履歴の過程で、炭素が NbC として固定され、母地中の平均炭素濃度が 3ppm 以下になるため、と考えることで全体の現象が合理的に説明できることを確認した。

308 鋼溶接金属の特有の現象である、PWHT による安定化（鋭敏化後の回復）後の低温鋭敏化現象についても解析し、安定化状態に至っていても PWHT 後の 500℃の熱処理で再びオーステナイト相側に 13mass%Cr 以下のクロム枯渇域が生じるというシミュレーション結果を得た。関連の実験事実はこのシミュレーション結果と合致する。