

原子力発電プラントにおける ステンレス鋼溶接部の応力腐食割れ

阿部 博志*

1. はじめに

脱炭素社会の実現やエネルギー安全保障の確立に向けて、日本ではGX(グリーントランスフォーメーション)脱炭素電源法が2023年に成立し、今後のエネルギー政策の方向性が示されている。原子力発電に関しては、「安全性を最優先に最大限活用する」方針の下、既設原子炉については再稼働の加速と実質的な運転期間の延長、また次世代原子炉の開発・建設を進めること等が盛り込まれている。原子力発電プラントを長期に亘って安定して稼働するためには、プラント構成材料の健全性担保、すなわち劣化メカニズムの解明に基づいた具体的な対策が必須である。軽水炉における注視すべき経年劣化事象としては、金属材料については疲労、熱時効、配管減肉、中性子照射脆化等があり、それに加えてSCC(Stress Corrosion Cracking, 応力腐食割れ)が挙げられる。

国内外の原子力発電プラントにおけるオーステナイト系ステンレス鋼のSCC事例を振り返れば、1970年代にBWR(Boiling Water Reactor, 沸騰水型軽水炉)のType304鋼製PLR(Primary Loop Recirculation, 再循環系)配管溶接HAZ(Heat Affected Zone, 熱影響部)部において、溶接熱影響による鋭敏化(Cr欠乏層の形成)を原因とするSCCを経験し、多くのプラントが点検・補修のため長期停止を余儀なくされた⁽¹⁾。その後、鋭敏化感受性がない低炭素ステンレス鋼(Type316L, Type316NG等)が開発され、恒久対策として実機に採用された。しかしながら1990年代から、低炭素ステンレス鋼製構造物にも鋭敏化に起因しないSCCが顕在化した⁽²⁾⁽³⁾。当該部位を調査した結果、製造時の機械加工やグラインダ研削による表面硬化層や、溶接部においては繰り

返し熱ひずみによる硬化ならびに残留応力がSCC発生に寄与していると考えられている。一方でPWR(Pressurized Water Reactor, 加圧水型軽水炉)においては、Ni基合金においてSCCを経験してきているが、ステンレス鋼はSCC感受性を示さないと考えられてきた。しかしながら、近年ではステンレス鋼溶接部においてもSCC事例が報告されてきている。国内外の事例調査と実験室での研究結果から、PWR一次冷却水環境で報告されたステンレス鋼SCC事例に共通して、表面もしくはHAZ部における高硬度ならびに表面機械加工もしくは溶接に起因した高残留ひずみが指摘されている⁽⁴⁾。

SCCき裂が検査にて発見された部位に対しては、2003年10月の原子炉等規制法の改正により「(一社)日本機械学会発電用原子力設備規格維持規格(2002年改定)JSME SNA1-2002(以下、維持規格)」を使用した健全性評価が可能になった⁽⁵⁾。具体的には、供用期間中検査基準に基づき実施する非破壊検査でき裂が発見されると、詳細な調査を行い、き裂がSCCであると判明すれば、維持規格に基づく構造健全性評価を実施する⁽⁶⁾。この評価の主な拠り所となるのがSCCき裂進展速度線図である。これは横軸にき裂先端付近の応力分布の強さを示す物理量である応力拡大係数、縦軸にき裂進展試験により取得したき裂進展速度をとったものであり、鋭敏化SUS304と低炭素ステンレス鋼の評価線図は実測データを包絡すべく作成されている。実機における硬化を模擬したステンレス鋼冷間加工材を用いた高温水中き裂進展試験結果から、冷間加工によってき裂進展速度が増大する事が報告されている⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。さらなるデータの拡充とそれらの信頼性が求められていると共に、例えば現時点で整備されていない、PWR1次冷却水環境中におけるステンレス鋼SCCに対するき裂進展速度線図の策定を目指す動きがある。

* 東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻; 准教授(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-01-2) Stress Corrosion Cracking of Stainless Steel Weldments in Nuclear Power Plants; Hiroshi Abe(Department of Quantum Science and Energy Engineering Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai.)
Keywords: SCC(stress corrosion cracking), austenitic stainless steels, welds, delta-ferrite, thermal aging
2024年8月19日受理[doi:10.2320/materia.63.788]

以上述べてきたとおり、原子力発電プラントにおける低炭素ステンレス鋼の SCC には、力学因子の観点からは溶接残留応力、材料因子の観点からは顕著な硬化やひずみが支配的な役割を果たしていると考えられ、現在も引き続き研究が進められているが、SCC メカニズム解明には至っていない。健全性評価上問題にならないと判断された微小な SCC き裂については、その存在を許容して稼働することが可能であるものの、実際には一旦 SCC が顕在化するとその後の評価や原因調査が不可欠であり、プラントの設備利用率に直結する問題となっている。

BWR 環境における非鋭敏化ステンレス鋼の SCC に及ぼす冷間加工の影響については、本会報の特集記事⁽¹⁰⁾で解説されている。本稿では、BWR 環境におけるオーステナイト系ステンレス鋼溶接部における SCC に対象を絞り、著者らの研究^{(11)–(13)}を中心に溶融境界近傍組織の特徴と SCC 進展への影響、ならびに溶接金属の熱時効硬化に及ぼす凝固モードの影響、さらには SCC 進展への影響について述べる。

2. 低炭素ステンレス鋼溶融境界近傍の SCC き裂進展挙動

PLR 配管溶接部の SCC を念頭に置いて、鋭敏化ステンレス鋼/低炭素ステンレス鋼溶接部の SCC 進展イメージを図 1 に示す。鋭敏化ステンレス鋼ではき裂は HAZ に沿って進展する傾向があるのに対し、低炭素ステンレス鋼ではき裂は溶融境界から数 mm 離れた位置から発生し、溶接金属に向かって進展している。有限要素解析で求めた 600 A 配管溶接継手近傍の溶接残留応力分布⁽²⁾を考慮すれば、き裂は最大主応力にはほぼ垂直に進展している。よって、低炭素ステンレス鋼溶接部のように HAZ に Cr 欠乏層が形成されない場合は、残留応力に従い溶接金属に向けて進展するものと考えられる。また、発見されたき裂の大部分はその先端が溶融境界近傍に位置していた。PLR 配管溶接部において発見されたき裂の先端位置について、溶融境界を基準として整理すると、き裂先端の多くは溶融境界から ±500 μm の範囲に位置していたこと⁽¹⁴⁾から、溶融境界近傍におけるき裂の停留あ

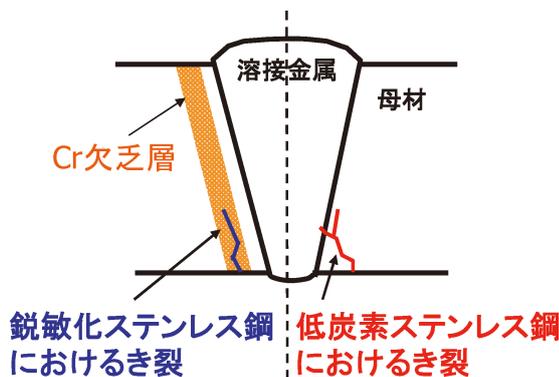


図 1 鋭敏化ステンレス鋼/低炭素ステンレス鋼溶接部の SCC 進展イメージ。(オンラインカラー)

るいは進展遅延が考えられる。しかし、これは比較的マクロな観察事実に基づくものであり、一部では δ フェライト相 (以下、 δ 相) の母材への希釈が影響している可能性がある、との指摘もある⁽¹⁵⁾。また、き裂が溶融境界を越えて溶接金属にき裂が進展しにくいことは実験室でも再現されている⁽¹⁶⁾が、き裂進展と溶融境界近傍の微視組織との関わりについては明らかにされていなかった。

オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属は数～十数%程の δ 相を含んだ二相組織になっており、一般的には SCC 感受性が低いと言われている⁽¹⁷⁾が、実機シュラウド及び PLR 配管で溶着金属中へとき裂が進展した溶接部では、母材との希釈の影響により、溶融境界近傍のフェライト分率が 5% 以下に低減していることが報告されている⁽³⁾。ここで、溶融境界近傍の微視組織について考察する。一般的な溶接部において、溶融境界を挟んだ溶着金属側には、母材は溶融するが溶加材による溶着金属成分とは混じり合わず、母材の成分のまま凝固する、いわゆる unmixed zone が存在し、一方で母材側には、結晶粒が粗大化し粒界で局部溶融した partially melted zone が存在するため、溶融境界はかならずしも明瞭ではない場合が多い⁽¹⁸⁾。その模式図を図 2 に示す。特に異種材溶接部では、ごく限られた範囲で急激に組成が遷移することになるので、主に機械的特性の観点から注意が必要になる^{(19)–(22)}。

オーステナイト系ステンレス鋼溶接部では母材と溶加材が同種材であることから、溶融境界近傍での合金元素の大きな偏りはないと考えられるが、フェライト量や形態などの組織的な特徴が異なる可能性があり、場合によっては SCC 感受性が局所的に増大することが報告されている⁽²³⁾。よって、溶融境界近傍におけるき裂の停留あるいは進展遅延のメカニズムを解明するためには、unmixed zone あるいは partially melted zone における組織的な特徴を明らかにし、それがき裂進展に与える影響を検討する必要がある。

著者らの研究⁽¹¹⁾では、SUS316NG 製 400A 配管溶接部を供試材として、溶融境界近傍における高温水中 SCC 進展挙動を調査し、き裂の先端位置と経路長さを微視組織毎に統計処理することによってき裂進展遅延効果を評価し、 δ 相のき裂進展遅延への寄与を明らかにした。DeLong 組織図⁽²⁴⁾を用いて、SUS316L 溶化材と SUS316NG 母材の Cr 当量/Ni 当量比を算出したものが図 3 である。溶化材の Cr 当量/Ni 当量比は FA モード凝固領域に位置しており、母材のそれは FA および AF モード凝固領域のほぼ境界線上に位置してい

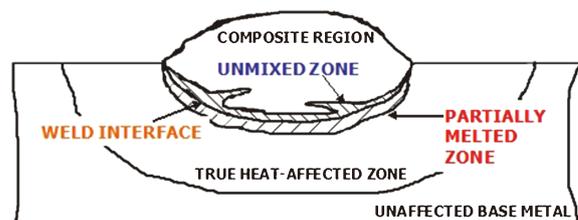


図 2 溶融境界近傍に形成される不均一領域。(オンラインカラー)

ることがわかる。溶融境界近傍の組織写真を図4に示す。ごく一部において partially melted zone の粒界上に島状 δ 相が晶出, unmixed zone は FA モード凝固であったと判断された(図4(a))が, 大部分では partially melted zone における δ 相晶出は認められず, unmixed zone は AF モード凝固であった(図4(b))。次に, 高温水中 SCC 進展挙動を, CBB (Crevice Bent Beam, すきま付き定ひずみ曲げ)試験により評価した。供試材から採取した板状試験片の表面を湿式エメリー紙で#600研磨仕上げとし, 1%曲げひずみを負荷シラフタイトールで隙間を付け, 高温高圧水(温度: 288°C, 圧力: 9 MPa, 溶存酸素濃度: 8 ppm, 入口電気伝導度: 約1.7 μ S/cm (Na₂SO₄ 調整))中に1000 h 浸漬した。試験後の試験片観察例を図5に示す。溶接金属に向かって進展したき裂の大部分はその先端が溶融境界直上に位置しているが, 一部は溶接金属内にまで進展している。溶接金属内を進展するき裂の経路と微視組織の関係に着目すると, き裂は島状 δ 相に達してからそれを迂回した後, 最寄りの δ 相に達する, という過程を繰り返しながら蛇行して進展している。これは, き裂の進展経路上, この場合はセル境界に島状 δ 相が分布していることによると考えられる。別途実施した同

様の SCC 試験結果に基づいて, 溶融境界を基準としたき裂先端位置のヒストグラムを図6に示す。その中でき裂先端が母材の γ/γ 界面(粒界)上にあるもの, 溶接金属の δ/γ 界面上にあるもの, 溶接金属の γ/γ 界面上にあるもの, の3種類に分類した。これから, 溶融境界を越えて100 μ m 以上進

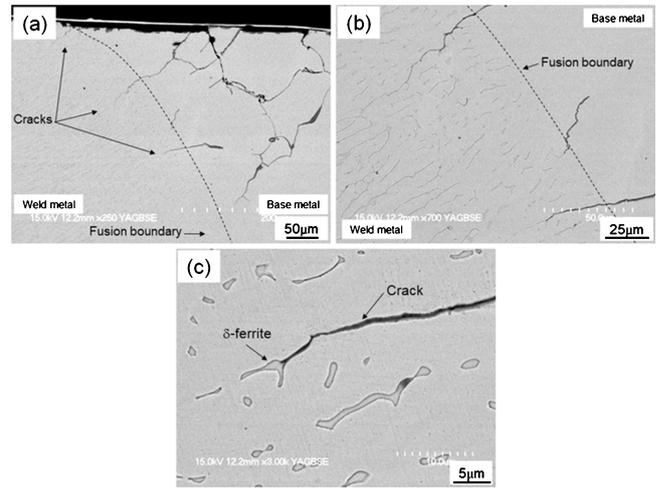


図5 溶融境界近傍における SCC き裂⁽¹¹⁾。

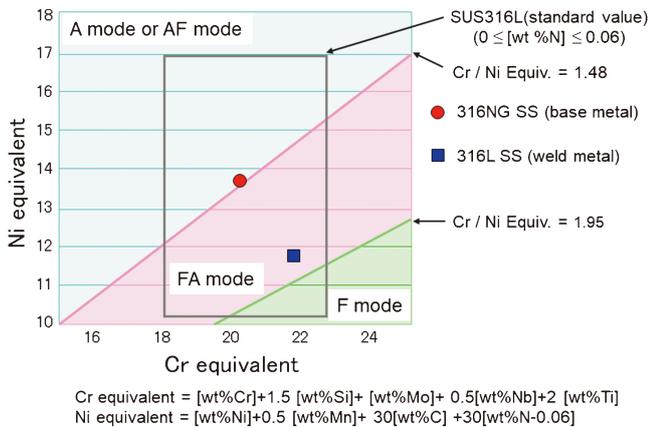


図3 ディロングの組織図を用いた凝固モードの予測⁽¹¹⁾。(オンラインカラー)

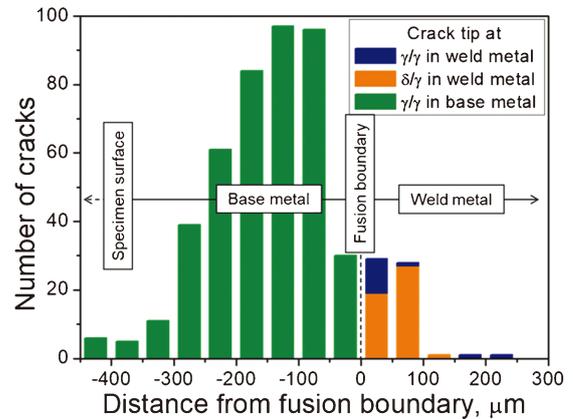


図6 溶融境界を基準としたき裂先端位置のヒストグラム⁽¹¹⁾。(オンラインカラー)

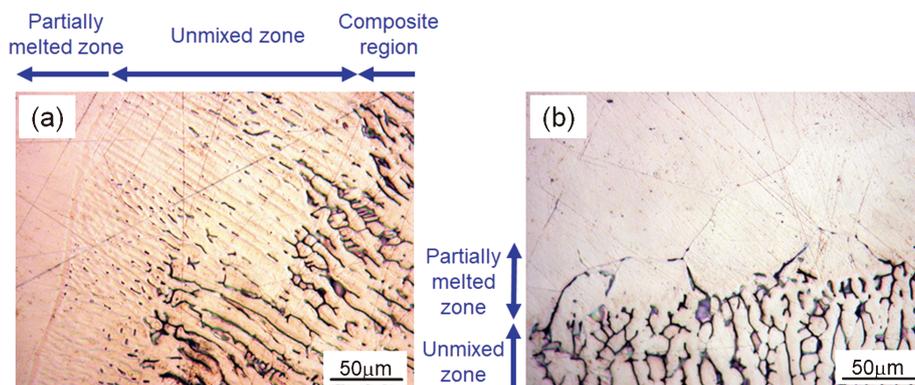


図4 SUS316NG 溶接試料の溶融境界近傍組織⁽¹¹⁾。(オンラインカラー)

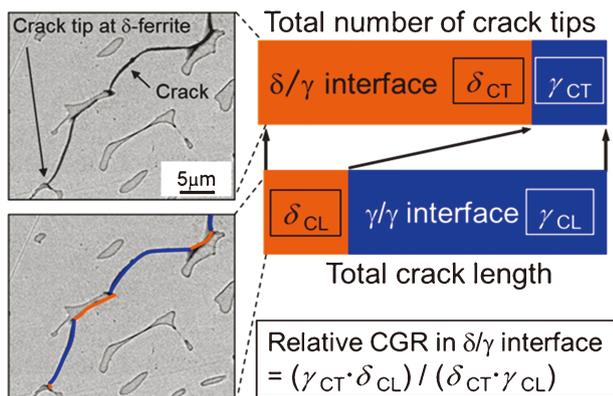


図7 き裂経路長さとき裂先端位置による δ/γ 界面と γ/γ 界面における相対的なき裂進展速度の導出⁽¹¹⁾。(オンラインカラー)

展しているき裂が極端に少なくなっていることがわかる。すなわち、溶融境界から100 μm までの範囲の溶接金属においてき裂が停留あるいは進展遅延している事を示唆している。次に、先端が溶融境界上、あるいは溶接金属内に位置しているき裂計60本について、き裂先端位置とき裂経路を δ/γ 界面と γ/γ 界面に分けて、その統計をとることで、 δ/γ 界面ならびに γ/γ 界面におけるき裂進展速度を相対的に比較できると着想した(図7)。その結果、 δ/γ 界面では γ/γ 界面に比べき裂進展速度が0.043倍との結果を得た。今回行ったCBB試験環境とBWR実機炉水環境が異なることから、得られた遅延効果は実機と必ずしも同一ではないものの、少なくとも δ 相が溶融境界近傍においてき裂進展遅延をもたらす微視組織要因であることが明らかになった。これ以降、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属⁽²⁵⁾⁻⁽²⁸⁾や2相ステンレス鋳鋼⁽²⁹⁾の高温水中SCC試験において、同様に δ 相がSCCき裂進展遅延/停留に寄与することが報告されてきている。

3. ステンレス鋼溶接金属の熱時効挙動ならびにSCCへの影響

国内BWRシュラウド溶接金属内を進展するSCCき裂の調査結果に基づけば、き裂はフェライト/オーステナイト相界面を進展しており、また界面近傍(界面より数nm)にCr欠乏層は認められなかったこと、そして溶接金属内部の硬さはHv250~280と高めの値であった、ことが報告されている。このことから、低温時効により溶接金属が硬化した可能性がある。原子力プラントにおける熱時効脆化については、二相ステンレス鋳鋼で多く経験されている。この原因は、フェライト相がスピノーダル分解⁽³⁰⁾によるCrリッチ相とFeリッチ相への分離やG相(Ni, Si, Mn主体の金属間化合物)析出とされている。オーステナイト系ステンレス鋼溶接部は、溶接プロセスの際に発生する高温割れを防ぐために、5~10%程度の δ 相を含有する。 δ 相は、BWRの冷却水程度の温度域においても、長時間の時効によってはスピノーダル分解を起こす可能性があり、これに伴って硬度が増し、靱性

あるいは耐食性の低下につながる事も考えられるが、オーステナイト系ステンレス鋼溶接部を対象とした低温時効感受性については知見が不足していた。上述したとおり、 δ 相はSCCき裂進展遅延をもたらす微視組織要因であるが、 δ 相のスピノーダル分解がこれに影響する可能性がある。ここでは、溶接金属の熱時効硬化に及ぼす凝固モードの影響⁽¹²⁾、ならびにそれが高温水中SCC進展挙動に及ぼす影響⁽¹³⁾について検討した結果について述べる。

ステンレス鋼には4種類の凝固モードがあり、主に溶接金属の化学組成によって決まる。一般にオーステナイト系ステンレス鋼溶接部は5~10%程度の δ 相を含んでおり、実機においては大部分がFAモードで凝固している。一方で凝固速度が高くなると、凝固モードが局所的にFAからAFに遷移することがあり、また凝固モードによってフェライト分率・形状、成分分布が異なる。SUS316L板材を2種類の316L系溶接フィラーを用いて突き合わせTIG溶接することでそれぞれ凝固モードがFAモード、AFモードの供試材を作製した。作製した供試材の組織観察結果を図8に示す。フェライト分率はFAモード材が12.7%、AFモード材が2.5%であった。

オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属の δ -フェライトを対象としたスピノーダル分解については、詳しい熱時効データが無いため、2相ステンレス鋳鋼CF-8、CF-8Mの時効データ⁽³¹⁾を参考にして時効条件を決定することにした。これに基づけば、スピノーダル分解のノーズは400°C近傍にあるが、炉水温度領域への等価時間換算が可能な温度加速の上限は約335°Cであった。例えば、スピノーダル分解が始まるまで288°C時効ではおよそ5年かかるものと推察されるが、335°C時効ではおよそ1000時間に短縮されると考えることができる。これより熱時効温度を335°Cとした。時効時間は最大8000時間に設定した。

FA材、AF材それぞれの未時効材および335°C・8000時間時効材のフェライト相のTEM明視野像を図9に示す。FA材、AF材どちらにおいても時効材にのみ特徴的なまだら模様が観察される。これは、フェライト相内の成分揺らぎに起因した分散コントラストによるものと考えられる。スピノーダル分解または核生成-成長によりフェライト相がCrリッチな α' 相とFeリッチな α 相に分離した場合、図9に示したようなまだら模様が観察されることが報告されてお

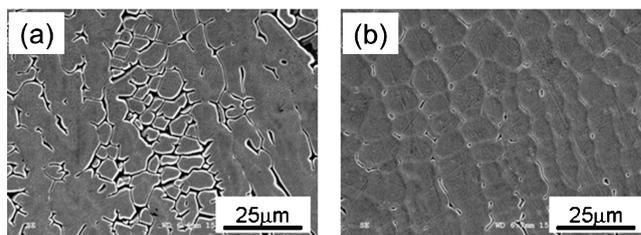


図8 凝固モードの異なる供試材の組織観察結果：(a) FAモード凝固、(b) AFモード凝固⁽¹²⁾。

り⁽³²⁾⁽³³⁾, FA材, AF材どちらにおいても335°C・8000時間の時効により δ 相がスピノーダル分解した可能性が極めて高いと考えられた. 溶接試料における335°C時効による各相のビッカース硬さの変化を図10に示す. どちらの試料におい

てもオーステナイト相は時効の有無にかかわらず硬さがほぼ一定であったのに対し, フェライト相は時効と共に明確に硬化した. 前述したTEM観察結果と併せて考えると, フェライト相における硬化はスピノーダル分解によるものと考えられた.

FA材とAF材の間でフェライト相の硬化挙動に明確な違いが見られた. 2000時間までの時効においては, AF材のフェライトの硬化速度はFA材のそれに比べ高かった. また, FA材においては8000時間まで一様に硬化したのに対し, AF材においては2000時間, ビッカース硬さにして350 Hvを超えたあたりから次第に軟化した. 二相ステンレス鋼を400°C近傍で長時間時効した場合, フェライト相中で分離したCrリッチ相とFeリッチ相それぞれの領域が次第に拡大していくことが報告されている⁽³⁴⁾⁽³⁵⁾. その場合フェライト相全体の硬さは低下すると予想されるので, 2000時間以降にAF材のフェライト相において確認された軟化は, 時効によりナノメートル・スケールで細かく分離したCrリッチ相とFeリッチ相が, さらに長時間時効することで次第に粗大化していくことにより引き起こされたものであり, 硬さが低下しても時効による組織変化は継続して進行していたものと考えられた.

次に, これらの時効材を用いて高温水中CBB試験によりSCC発生・進展状況について調査した結果⁽¹³⁾について述べる. CBB試験に供した材料は, FA材・AF材の未時効材ならびに335°C・13,200時間時効材の計4種である. ここでは, AF材の溶接金属から発生・進展したき裂の様相を図11に示す. 熱時効の有無によらず, き裂は δ 相を迂回して進展し, 多くは先端が δ 相に達したところに位置していた. したがって今回の熱時効条件の範囲においては, き裂進展経路上に存在する島状 δ 相がSCCき裂進展遅延に支配的な役割を果たすことが示唆された. 一方で, オーステナイト系ステンレス鋼に450°Cで熱時効熱処理を施すと, δ 相の優先酸化が生じて高温水中での伸びが低下するとの報告⁽³⁶⁾や, 熱

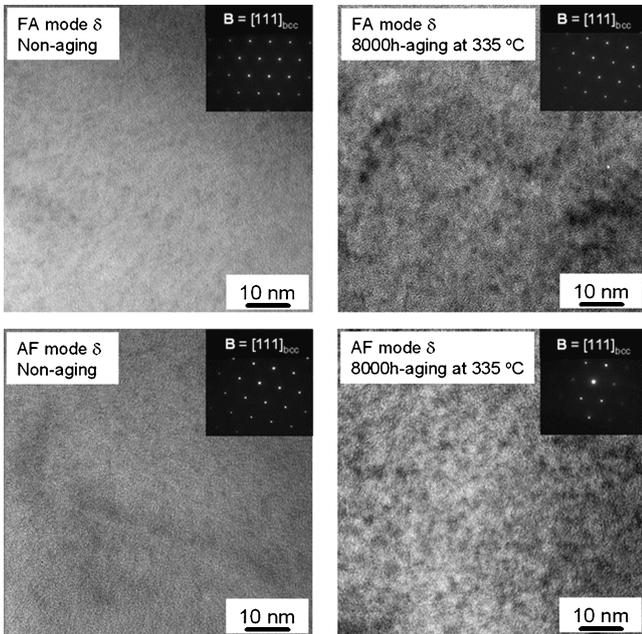


図9 FA材, AF材それぞれの未時効材および335°C・8000時間時効材のフェライト相のTEM明視野像⁽¹²⁾.

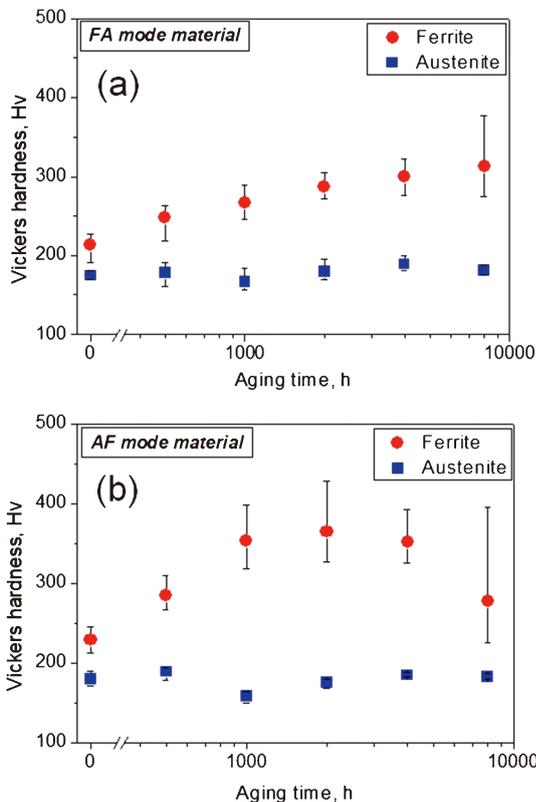


図10 335°C時効に伴う各相のビッカース硬さの変化⁽¹²⁾. (オンラインカラー)

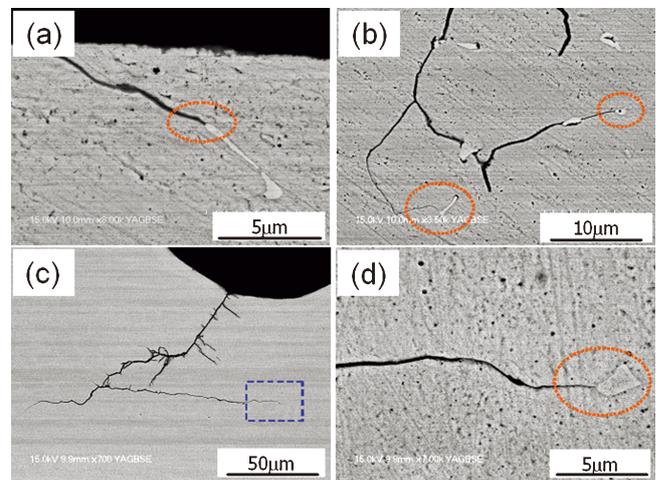


図11 AFモード凝固材の溶接金属から発生・進展したSCCき裂の様相. (オンラインカラー)

