

氏名	あべひろし		
授与学位	阿部博志		
学位授与年月日	博士(工学)		
学位授与の根拠法規	平成20年3月25日		
研究科, 専攻の名称	学位規則第4条第1項		
学位論文題目	東北大学大学院工学研究科(博士課程)技術社会システム 専攻		
指導教員	オーステナイト系低炭素ステンレス鋼溶接部の低温時効と 応力腐食割れ特性に関する材料組織学的研究		
論文審査委員	東北大学准教授 渡邊 豊	東北大学教授 若林 利男	東北大学教授 横堀 壽光
	東北大学教授 粉川 博之	東北大学准教授 渡邊 豊	

## 論文内容要旨

高経年化が進みつつある中で、原子力発電プラントの健全性の維持・管理は一層重要性を増している。過度な保守性に頼ることなく、科学的合理性に裏付けられ、かつ十分な安全性を担保する健全性評価手法が強く望まれている。その中でも重要な事項の一つが、溶接部に発生する経年的損傷の解明と評価である。

本論文では、沸騰水型軽水炉(BWR)冷却水環境における316系低炭素ステンレス鋼溶接部を対象とし、材料組織学的な視点から、① PLR配管溶融境界近傍における応力腐食割れ(SCC)き裂進展遅延メカニズム、② 溶接金属中 $\delta$ -フェライトの低温時効感受性、③ 溶接部の高温水中SCCに及ぼす低温時効の影響、の3点を明らかにし、それらの知見に基づいて、溶融境界近傍におけるSCCき裂進展遅延モデルを提案し、さらに進展遅延効果の高い溶接組織実現の指針を示した。

第1章では、本論文の背景と目的について述べた。

第2章では、オーステナイト系ステンレス鋼の凝固モード、およびそれに連動した溶接組織に関する知見について述べ、あらかじめ成分を調整した溶接フィラーを用いて2種類のSUS316L溶接試料を作製し、それらの溶接組織および化学組成・成分分布について詳細なキャラクタリゼーションを行った。SUS316NG製400A配管溶接部についても、溶融境界近傍～溶接金属にかけての組織的特徴を調査した。そして、凝固モードが $\delta$ -フェライトの形態、量、および化学組成に与える影響、また母材の化学組成が溶融境界近傍組織に与える影響、それとき裂進展との関わりについて考察した。得られた知見を以下に列記する。

1. 凝固モードがFAモードおよびAFモードになるよう、あらかじめ成分を調整した溶接フィラーを用い、2種類のSUS316L溶接試料を作製した。得られた溶接試料の組織観察から、ほぼ狙い通りの試料となっていたことが確認された。それぞれをFA材、AF材と呼ぶことにした。

FA 材においてはバミキュラー、レーシー、アシキュラーと呼ばれる 3 種類のフェライトが、AF 材においては島状フェライトが確認された。凝固過程の違いから、FA 材のフェライトはデンドライト中央に、AF 材のそれはセル境界に存在し、それぞれのフェライト量は FA 材が 12.7%、AF 材が 2.5%であった。

実機モックアップ材である SUS316NG 製 400A 配管溶接部において、溶接組織の観察から大部分は FA モードで凝固したこと、内径側および溶融境界近傍の溶接金属においてフェライト量の低下が確認された。これらの特徴は、BWR 実機 PLR 配管溶接部において SCC き裂が溶接金属にまで進展した部位のサンプル調査結果とも傾向が一致していた。

SUS316L 溶接試料の partially melted zone の粒界において、また SUS316NG 溶接試料の unmixed zone の  $\gamma$ - $\gamma$  界面において島状  $\delta$ -フェライトが分布していた。一方、き裂は母材においては IGSCC で、溶接金属においては IDSCC で進展することから、どちらの溶接試料においても溶融境界近傍においてき裂進展経路上に島状  $\delta$ -フェライトが存在することが明らかになった。

溶融境界近傍の組織が溶接フィラーの成分にかかわらず母材の成分のみに依存するため、母材の成分が高 Cr 当量/Ni 当量比の場合は partially melted zone で粒界に  $\delta$ -フェライトが晶出、unmixed zone では FA モードで凝固するが、Cr 当量/Ni 当量比の低下にともない、partially melted zone において  $\delta$ -フェライトが晶出する範囲が次第に狭まり、終には溶融境界から母相側で  $\delta$ -フェライトが全く晶出しなくなる。さらに Cr 当量/Ni 当量比が低下すると、unmixed zone で凝固モードが A あるいは AF モードに遷移する。よって化学組成の規格範囲内において母材の Cr 当量/Ni 当量比を調整することにより、溶融境界近傍の組織が操作可能である。

第 3 章では、SUS316L 溶接試料について、高温水中 SCC 発生・進展試験を行い、母材から発生して融境界近傍を進展する SCC き裂を評価対象として、き裂進展挙動に及ぼす微視組織の影響を明らかにした。特に、き裂先端およびその周辺において形成される酸化物および溶融境界近傍の組織的特徴に目し、溶融境界近傍における SCC き裂進展遅延メカニズムを解明した。さらに、オーステナイト系炭素ステンレス鋼の高温水中 SCC 進展メカニズムについても考察した。得られた知見を以下に列記する。

き裂は母材で発生し、粒界を経路として溶接金属に向かって進展する。一方、partially melted zone においてき裂の進展経路上（粒界）に島状の  $\delta$ -フェライトが存在する。き裂が  $\delta$ -フェライトに達した際に、 $\delta$ -フェライトの一部が酸化されてき裂先端で  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  が形成される。これが酸素の拡散障壁として働き、き裂前方での固相酸化反応が抑制され、結果としてき裂が停留する。その後、き裂は  $\delta$ -フェライトを迂回してから再び粒界を進展するが、次の島状  $\delta$ -フェライトに遭遇する。これを繰り返すことにより、結果として溶融境界近傍において SCC き裂の進展遅延が起こる。

き裂先端に形成された  $(\text{Fe}_x\text{Cr}_{1-x})_3\text{O}_4$  と  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  は、それぞれが近接するオーステナイト相および  $\delta$ -フェライトと配向関係にあったため、き裂に先行して固相酸化反応が起きていることが明らかになった。この結果は、オーステナイト系低炭素ステンレス鋼における高温水中 SCC 進展の本質が、

固相酸化反応によるものであることを強く示唆するものである。

第4章では、SUS316L 溶接試料について、スピノーダル分解温度域において等温時効処理を行い、凝固モードを変数として、フェライト相における変調構造形成の有無、ならびにフェライト相の硬さの変化を評価することで、 $\delta$ -フェライトの低温時効感受性を明らかにし、低温時効によるオーステナイト系ステンレス鋼溶接金属における靱性低下の可能性を調査した。得られた知見を以下に列記する。

1. FA 材および AF 材のフェライト相は 335°C 時効により明確に硬化し、TEM 観察からは時効材のフェライト相においてスピノーダル分解特有のまだら模様が確認された。よって SUS316L 溶接部のフェライト相は、335°C においてスピノーダル分解感受性を持ち、BWR 炉水温度域程度の時効によっ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ものと考えられた。
2. 二相ステンレス鋼における熱時効脆化の知見と、本章で得られた結果を比較・考察すると、BWR 冷却水環境において、オーステナイト系ステンレス鋼溶接部がフェライト量によっては長時間の時効により靱性低下を起こす可能性が強く示唆された。

第5章では、335°C 時効処理を施した SUS316L 溶接試料を対象として、高温水中き裂進展試験および高温水中 CBB 試験を行い、高温水中 SCC き裂進展速度、SCC 感受性ならびにき裂進展経路に及ぼす低温時効の影響を明らかにした。また、第3章で提案した裂進展遅延モデルについて、低温時効を受けた材料における成立性についても考察した。得られた知見を以下に列記する。

1. 高温水中き裂進展試験より、時効が進むにつれ、進展速度の最大値が FA 材においてはわずかに増大傾向を、AF 材においては低下傾向を示したが、いずれも顕著ではなかった。したがって、今回の試験範囲内においては、低温時効が 316L 鋼溶接金属の高温水中 SCC き裂進展速度を加速させる可能性は低いと判断された。
2. 高温水中 CBB 試験より、335°C・13200 時間時効材においても、溶融境界近傍を進展するき裂の大部分において、その先端が  $\delta$ -フェライトに達したところに位置していたため、第3章で明らかにしたき裂進展遅延メカニズムは、低温時効を受けた材料においても成立することが明らかになった。
3. き裂発生の観点からは、AF 材のほうが FA 材に比べ SCC 感受性が高く、AF 材ではき裂発生に要する応力レベルが FA 材に比べ低いことが明らかになった。一方、き裂進展の観点からは、FA 材ではき裂は  $\delta/\gamma$  界面を進展しており、一方 AF 材では主に  $\gamma/\gamma$  界面を進展し、島状  $\delta$ -フェライトによるき裂の停留が確認された。これらの傾向は 335°C・13200 時間時効材においても同様であった。低温時効により SCC 感受性が増大する可能性は極めて低いと考えられた。

第6章では、実機モックアップ材である 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について微視組織毎に統計処理することで、き裂進展遅延効果の評価を行うと共に、 $\delta$ -フェライトのき裂進展遅延への寄与を明らかにした。また、unmixed zone における  $\delta$ -フェライトの形態、分布および密度がき裂進展遅延に

与える影響についても考察し、第3章において明らかにしたメカニズムと併せて、溶融境界近傍におけるき裂進展遅延モデルを提案した。それらの知見に基づいて、き裂進展遅延効果の高い溶接組織実現のための指針を示した。得られた知見を以下に列記する。

1.  $\delta$ -フェライト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を明らかにした。さらに、今後の課題として、溶融境界近傍の $\delta$ -フェライト分布およびき裂進展挙動を、三次元的な視点から明らかにすることが必要と考えられた。
2. 溶融境界近傍 (partially melted zone + unmixed zone) の組織は母材の化学組成に依存し、原理的にはCr当量/Ni当量比が増大するに従いフェライト密度が上昇し、今回の観察事実もそれと整合していた。partially melted zone では、フェライト密度が上昇してもネットワーク状の $\delta$ -フェライトが形成される傾向は小さく、特に粒界三重点を優先的なサイトとして島状に分布するため、Cr当量/Ni当量比の増大と共にき裂進展速度は単調に低下するものと予想された。一方 unmixed zone では、同様にフェライト密度の上昇とともにき裂進展速度がやや低下傾向を示すものの、 $\delta$ -フェライトがネットワークを形成すると、再び進展速度が上昇すると考えられた。これらの知見を総合し、溶融境界近傍におけるき裂進展遅延モデルを提案した。
3. き裂進展遅延効果の高い溶接組織実現の観点からは、特に partially melted zone の粒界に分布する島状 $\delta$ -フェライトがき裂進展速度を大きく低下させると考えられ、母材のCr当量/Ni当量比をFAモード凝固領域にすることが効果的だと判断された。特にSUS316NGについては、N添加によりCr当量/Ni当量比がAFモード凝固領域側へ遷移することから、Cr当量/Ni当量比を上昇させる方向に他の元素を調整し、FAモード凝固領域にすることが望まれる。

第7章は結論である。

# 論文審査結果の要旨

高経年化が進みつつある中で、原子力発電プラントの健全性の維持・管理は一層重要性を増している。過度な保守性に頼ることなく、科学的合理性に裏付けられ、かつ十分な安全性を担保する健全性評価手法が強く望まれている。その中でも重要な事項の一つが、溶接部に発生する経年的損傷の解明と評価である。

本論文は、沸騰水型軽水炉（BWR）冷却水環境における 316 系低炭素ステンレス鋼溶接部の経年劣化を対象とし、材料組織学的な視点から、① PLR 配管溶融境界近傍における応力腐食割れ（SCC）き裂進展遅延メカニズム、② 溶接金属中  $\delta$ -フェライトの低温時効感受性、③ 溶接部の高温水中 SCC に及ぼす低温時効の影響、の 3 点を明らかにし、それらの知見に基づいて、溶融境界近傍における SCC き裂進展遅延モデルを提案し、さらに進展遅延効果の高い溶接組織実現の指針を示すものであり、全編 7 章よりなる。

第 1 章は序論である。

第 2 章では、316 系低炭素ステンレス鋼の溶接金属組織ならびに溶融境界近傍組織の特徴を詳細に調べている。SCC 進展との関わりにおいて、unmixed zone および partially melted zone の粒界上に晶出する島状  $\delta$ -フェライトの重要性を指摘するとともに、化学組成の規格範囲内において母材の Cr 当量/Ni 当量比を調整することにより、溶融境界近傍の組織が操作可能であることを指摘している。

第 3 章では、これまで不明であった SUS316L 溶融境界近傍における SCC き裂進展遅延メカニズムを解明している。き裂先端に形成された酸化物の結晶構造解析に基づき、高温水中 SCC においてはき裂に先行して固相酸化が起きていることを明らかにしている。これは、オーステナイト系低炭素ステンレス鋼における高温水中 SCC 進展メカニズムを解明する上で重要な知見である。さらに、き裂が  $\delta$ -フェライトに達した際に、き裂先端において  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  が形成されることがき裂進展遅延の本質的原因であることを見出している。

第 4 章では、オーステナイト系ステンレス鋼溶接部の  $\delta$ -フェライトが、BWR 炉水温度域程度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高いことを明らかにしている。さらに、靱性低下の観点から、時効劣化の程度を正確に予測することの重要性を指摘している。

第 5 章では、今回の試験範囲内においては、低温時効が 316L 鋼溶接金属の高温水中 SCC き裂進展を加速させる可能性が低いこと、ならびに低温時効を受けた材料についても溶融境界近傍における SCC き裂進展遅延メカニズムが成り立つことを指摘している。

第 6 章では、 $\delta$ -フェライトのき裂進展遅延への寄与を定量的に評価し、 $\delta$ -フェライト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を明らかにし、溶融境界近傍におけるき裂進展遅延モデルを提案している。さらに、き裂進展遅延効果の高い溶接組織実現の観点から、母材の Cr 当量/Ni 当量比を FA モード凝固領域にすることが効果的であるとの指針を提案している。

第 7 章は結論である。

以上要するに本論文は、BWR 冷却水環境における 316 系低炭素ステンレス鋼溶接部について、低温時効感受性、低温時効が高温水中 SCC に与える影響、ならびに溶融境界近傍における SCC き裂進展遅延メカニズムを解明したものである。本論文で得られた知見は、発電設備健全性維持の一層の高度化に資すると共に、き裂進展遅延効果の高い溶接部を実現するための具体的かつ有益な指針を与えるものであり、材料強度学および材料工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。