クラッド付圧力容器鋼の磁気ヒステリシス特性とビッカース硬さの相関

相原 雄太^{1,*} 鎌田 康寛¹ 村上 武¹ 小林 悟¹ 渡辺 英雄²

¹岩手大学理工学部

²九州大学応用力学研究所

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 81, No. 10 (2017), pp. 475–479

© 2017 The Japan Institute of Metals and Materials

Correlation between Magnetic Hysteresis Properties and Vickers Hardness in Cladded Reactor Pressure Vessel Steel

Yuta Aihara^{1,*}, Yasuhiro Kamada¹, Takeshi Murakami¹, Satoru Kobayashi¹ and Hideo Watanabe²

¹Faculty of Science and Engineering, Iwate University, Morioka 020–8551

²Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga 816–8580

We investigated the microstructure, magnetic hysteresis properties, and micro-Vickers hardness of nuclear reactor pressure vessel (RPV) steel clad with austenitic stainless steel. Characterization of the crystalline structure by electron backscatter diffraction revealed the existence of a delta ferrite phase in the austenitic cladding, and the formation of coarse and fine grain microstructures in the heat affected zone (HAZ) of the RPV steel. The block specimen was cut into small pieces and magnetic hysteresis loops were measured with a vibrating sample magnetometer. Although the saturation magnetization of the RPV steel was constant, the coercivity in the HAZ region decreased gradually as a function of distance from the weld fusion boundary. A linear correlation was confirmed between the coercivity and hardness. This study demonstrates the feasibility of a magnetic evaluation of hardness and microstructures in RPV steel. [doi:10.2320/jinstmet.JAW201702]

(Received May 12, 2017; Accepted June 29, 2017; Published August 4, 2017)

Keywords: reactor pressure vessel (RPV) steel, heat-affected zone (HAZ), stainless-clad, coercivity, Vickers hardness

1. 緒 言

原子力発電プラントを安全に運用するため、機器構造物のき裂評価で超音波探傷法や渦電流探傷法による非破壊検査が行われている。一方、圧力容器の中性子照射脆化に対しては、炉内に装荷した監視試験片を用いたシャルピー衝撃試験(破壊試験)が実施されている。その非破壊検査法は確立されていないが、照射前後の圧力容器鋼(RPV鋼)の延性脆性遷移温度と、磁気特性¹⁾やゼーバック係数²⁾などの物理特性との間に相関があることが報告されており、それらの活用の可能性が検討されている。これまでの関連研究の多くは、監視試験片などの小型試験片を測定対象にしているが、原理的には圧力容器を直接評価できる利点がある。しかし、その実現には多くの課題がある。軽水炉圧力容器の場合、耐食性の向上のために低合金鋼にオーステナイト系ステンレス鋼が内貼り溶接されており、材質が均一でない。磁気特性に着目した非破壊脆化評価を想定すると、圧力容器の内側から大型の磁気プローブをあて計測する方法が考えられるが^{1,3)}、その場合、内貼ステンレス鋼、低合金鋼の溶接熱影響部(Heat Affected Zone: HAZ)、母材の磁気特性が重なった信号が得られる。磁気バルクハウ

ゼンノイズ特性での報告にあるように⁴⁾、HAZ部と母材とでは一般に磁気特性が異なると考えられる。従って、圧力容器の直接評価を考える上で、磁気ヒステリシス特性と複雑な溶接微細組織との関係を予め把握しておくことが重要となるが、クラッド付RPV鋼について詳しく調べた報告例は無い。本研究では実機モックアップ材の、微細組織と磁気ヒステリシス特性の関係を明らかにするとともに、硬化型脆化における劣化の一つの指標となる硬さと磁気特性の相関を調べ、非破壊評価の可能性について検討する。

2. 実 験 方 法

本研究では実機の超音波探傷試験時の装置のキャリブレーション用に作製したRPVモックアップ材を利用した。モックアップ材は母材の低合金鋼(A533B class 1)にオーステナイト系ステンレス鋼(309L)が肉盛溶接されており、溶接後に応力除去熱処理がされている。Fig. 1にそのブロックの写真と模式図を示す。ステンレス鋼クラッドと低合金鋼部の厚さはそれぞれ4 mmと16 mmで、ブロックの総厚さは20 mmである。低合金鋼部のクラッド側に見られる変色領域は溶接HAZ部と考えられる。本研究では、Fig. 1(c)の領域A(変色部幅: 8 mm)と領域B(変色部幅: 4.5 mm、2つの溶接パスの端が重なった領域)の2ヶ所について検討した。

* 岩手大学大学院生(Graduate Student, Iwate University)

Fig. 1 (a) (b) Photographs of cladded RPV block and wire-saw cut specimens, and (c) a schematic illustration.

組織観察は領域 A についてのみ実施し、ワイヤ放電加工機で領域 A より切り出した薄板を観察試料とした。磁化および硬さ測定では、放電加工機で領域 A および B の 2 ヶ所から 1 mm 厚の板を新しく切り出し、さらにダイヤモンドワイヤソーで 13 本の小片 (サイズ: $l: 4.0 \times w: 1.25 \times t: 1.0 \text{ mm}^3$) に切断し試料とした (Fig. 1(b))。薄板および小片試料のいずれも、エメリー紙研磨と電解研磨を行った。以下では、各試料の位置をクラッド表面からの距離で表す。

組織観察では、走査型電子顕微鏡 (SEM, JEOL 社製 JSM7001F, 熱陰極電解放出型), それに装着した電子線後方散乱回折装置 (EBSD, Oxford Instruments 社製 HKL Channel5), 分析用の走査型透過電子顕微鏡 (STEM, JEOL 社製 JEM-ARM200F, EDS 付) を用いた。EBSD 測定では検出カメラに NordlysNano を用い、加速電圧 15 kV, ステップ $0.5 \mu\text{m}$ の条件で結晶方位解析を行った。STEM 観察用の試料は集束イオンビーム加工により切り出した。

磁化測定では、振動試料型磁力計 (VSM, 東英工業製 VSM-5) を用いた。試料を石英ホルダーに装着し、磁場範囲を $\pm 0.79 \text{ MA/m}$ ($\pm 10 \text{ kOe}$) とし、溶接方向に垂直に磁場を印加し、室温でヒステリシス曲線を測定した。硬さ測定では、マイクロピッカース硬さ試験機 (島津製作所製 HMV) を用いた。荷重は 2.94 N で保持時間を 15 s とし、各試料の中央部の 3 か所でピッカース硬さを測定した。

3. 結果と考察

3.1 組織観察

最初に領域 A のクラッドの組織観察結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a) は表面付近の SEM 像で、Fig. 2(b), (c) は (a) の破線部分を EBSD 観察して得た結晶方位マップと相マップである。相マップ中の灰色部が fcc, 白色部が bcc の結晶構造を有する領域で、それぞれ γ オーステナイト相と δ フェライト相と考えられる。 γ 相は結晶粒が表面から垂直方向に伸びた粗大な凝固組織となっており、その中に微細なバミキュラー型の δ 相⁵⁾が見られる。7 か所の相マップを解析したところ、 δ 相の

Fig. 2 (a) Scanning electron microscope image, (b) orientation map, and (c) phase map of the cladding near the surface.

Fig. 3 Orientation map (left) and high-angle boundaries map (right) at locations (a) 5.1 mm, (b) 10.0 mm, and (c) 19.6 mm.

面積率の平均値は 5.0% であった。

次に領域 A の RPV 鋼の組織観察の結果を Fig. 3 に示す。Fig. 3(a) はクラッド表面から 5.1 mm, (b) は 10.0 mm, (c) 19.6 mm の位置の母材組織の結晶方位マップ (左) と方位差 15° 以上の結晶粒界マップ (右) である。肉盛溶接した低合金鋼部は各位置で結晶組織が異なる。Fig. 3(a) では粗大なブロック状の組織が見られるのに対し、(b) と (c) では結晶粒の形状が等方的で、母材の (c) に比べて (b) の方が粒径が小さくなっている。これらの組織の違いは次のように考えられる。溶接時の熱で変態温度以上に加熱された領域では、母材のベイナイト組織が一度 γ 相に変態する。そのとき溶接境界付近では最高加熱温度が高いため、 γ 粒の粗大化が進む。その後の急

Fig. 4 Distribution of local misorientation in the area shown in Fig. 3.

冷により粗大なブロック・パケット構造を有する組織が形成したと考えられる。一方、溶接境界から離れると最高加熱温度が下がるため γ 粒の粗大化は起こらず、冷却速度も下がり微細なベイナイト組織が生じる。さらに離れた領域では γ 相への変態温度以下になり、溶接前の母材のベイナイト組織がそのまま残る。以下ではこれらを粗大および微細 HAZ 部、母材と呼ぶことにする。

Fig. 4 に Fig. 3 に示した各領域での局所方位差分布をまとめた。粗大および微細 HAZ 部、母材の各領域での平均局所方位差を算出したところ、それぞれ1.15度、1.18度、0.97度となり、HAZ 部で大きくなった。局所方位差が生じる原因の一つに GN 転位の存在が考えられ、総転位密度が高いと方位差が大きくなる⁶⁾。HAZ 部と母材の方位差の違いは、溶接後の冷却過程で HAZ 部に変態転位が生じ、応力除去熱処理後もそれらの転位の多くが残存していることを示唆している。

次に高倍率で組織観察した結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5(a)(b)はそれぞれ位置 6.0 mm(粗大 HAZ 部)と 12.5 mm(HAZ 部に近い領域の母材)における STEM 明視野像であり、(c)(d)は対応する領域の C, Mn, Cr の EDS マップである。いずれの領域にも Mn および Cr を多く含む炭化物が存在しているが、母材に比べて HAZ 部の炭化物は微細で数密度が高くなっている。

3.2 磁気ヒステリシス特性

領域 A から切り出した小片試料の代表的な磁気ヒステリシス曲線を Fig. 6 に示す。(a)は位置が 1.0 mm(クラッド部)、(b)は 5.5 mm(粗大 HAZ 部)、(c)は 19.0 mm(母材)の試料である。クラッド部のヒステリシス曲線は他と異なり磁化が小さいのに対し、HAZ 部と母材の曲線の形状および大きさはほ

Fig. 5 (a)(b) Bright-field scanning transmission electron microscope images at locations 6.0 mm and 12.5 mm, and (c)(d) their elemental maps of C-K, Mn-K, Cr-K.

Fig. 6 Magnetic hysteresis curves of the region A specimens at (a) cladding, (b) HAZ, and (c) base metal.

ぼ同じであった。さらに詳細を比較するため、Fig. 6 の挿入図に零磁場付近の拡大図を示した。ループ幅はクラッド部が最も広く、HAZ 部と母材とでは前者の方がやや広がっている。

磁気ヒステリシス曲線から求めた飽和磁化および保磁力の表面からの距離依存性を Fig. 7 にまとめた。飽和磁化はクラッド部で小さく、低合金鋼部(HAZ 部および母材)で大きい。なお、位置 4 mm の溶接境界部の試料はクラッドと低合金鋼を両方含んでおり、中間値を示している。低合金鋼部の飽和磁化の大きさは距離に依存せず、それらの平均値は 2.68×10^{-4}

Fig. 7 Saturation magnetization and coercivity of the region A specimens as a function of distance from the surface.

Wb・m/kg で、純鉄の値の 2.74×10^{-4} Wb・m/kg (218 emu/g) と同程度であった。クラッドの磁化は、 γ 相が非磁性のため δ 相の磁化を反映していると考えられる。今回の δ 相の化学組成や各種物性値が不明なため密度が γ 相と同じとして、EBSD 観察より求めた面積率 5% を使って δ 相の飽和磁化を求めたところ、 2.51×10^{-4} Wb・m/kg と見積もられた。

保磁力はクラッド部で最も大きく、低合金鋼部では 1 kA/m 以下の小さい値であった (Fig. 7)。クラッド部は、非磁性の γ 相中に強磁性の δ 相が細かく分散しており、試料全体が強磁性体の低合金鋼部と異なる。クラッド部の磁化挙動は孤立した δ 相内の磁壁の運動と関係する。孤立した強磁性体では相界面で磁壁が強くピン止めされ保磁力が大きくなる⁷⁾。本研究のクラッド部では δ/γ の相界面で磁壁が強くピン止めされた結果、HAZ 部や母材に比べて、保磁力が大きくなったと考えられる。

低合金鋼部の保磁力に注目すると、溶接境界付近で保磁力が大きく、境界から離れるに従い減少して一定になる傾向が見られる。この挙動について次節で詳しく検討する。

3.3 保磁力とビッカース硬さの相関

Fig. 8(a) (b) に、領域 A と領域 B の低合金鋼部における保磁力の表面からの距離依存性を示すとともに、ビッカース硬さの測定結果を重ねてまとめた。Fig. 8(a) の保磁力は Fig. 7 を拡大した図となっている。×印の硬さは各小片試料の中央部 3 か所の測定値を示しており、□印はそれらの平均値である。クラッド厚さが 4 mm であることから、Fig. 8 の 4 mm の位置が溶接境界になる。ここでは目安として、母材の硬さの平均値である Hv 201 のレベルを一点鎖線で示した。

保磁力は、領域 A と B のいずれの場合も、溶接境界付近で最も大きく、そこから離れて母材に近づくにつれて減少し一定になっている。一方、ビッカース硬さも保磁力と同様な傾向を示しており、溶接境界付近で最も大きく、そこから離れるに従い減少し一定になっている。保磁力と硬さの減少は、領域 B の方が溶接境界に近い領域で生じている。これは領域 B の HAZ 部の厚さが、領域 A のそれよりも薄いことと一致している (Fig. 1)。保磁力とビッカース硬さが母材に比べて HAZ 部で大きい原因は次のように説明できる。保磁力は磁場印加時の磁壁の移動の困難さ、硬さは応力負荷時の転位の移動の困難さと関係する。析出物の大きさが磁壁幅 (鉄の場合、

Fig. 8 Coercivity and Vickers hardness as a function of distance from the surface. (a) region A, and (b) region B.

Fig. 9 Relationship between coercivity and Vickers hardness of the RPV steel.

およそ 40 nm⁸⁾) と同程度のとき磁壁のピン止め作用が最も強く、保磁力が最大になると言われている⁹⁾。また転位の応力場と磁壁の相互作用を通して転位密度の 0.5 乗に比例して保磁力が増加すると言われている¹⁰⁾。HAZ 部では、微細で高密度の炭化物と変態転位が存在しており、それらが磁壁と転位に対する効果的なピンニングサイトとして働いた結果、保磁力と硬さが大きくなったと考えられる。

Fig. 8 の実験結果をもとに、RPV 鋼の保磁力とビッカース硬さの関係を Fig. 9 にまとめた。両者の間に良い相関が見られる。このことは、クラッド付き RPV 鋼の硬さを磁気計測で推定でき、さらには HAZ 部の厚さを非破壊評価できる可能性を示している。

本研究では、実機モックアップ材のクラッド部、低合金鋼部 (HAZ 部と母材) の各場所から切り出した小片試料を使い、各微細組織と磁気ヒステリシス特性および硬さの対応関係を

明らかにした。その結果、クラッド付压力容器の低合金鋼部で保磁力と硬さに良い相関があることを確認した。この性質を使い、压力容器の照射脆化を磁気計測により内面から非破壊評価するためには、今後、次の2つの課題を検討する必要がある。1つ目は、RPV 鋼の磁気特性に与える照射効果の解明である。これまで研究が比較的進んでいる母材¹¹⁻¹³⁾だけでなく、複雑な微細組織を有する HAZ 部の磁気特性の照射影響についても詳細に調べる必要がある。RPV 鋼で形成する照射欠陥(転位ループや欠陥クラスター)のサイズは磁壁幅より小さいと考えられるが、そのような微細で高密度の照射欠陥が HAZ 部の炭化物や変態転位と共存するときの磁気特性の挙動に興味をもたれる。2つ目は、クラッド部の形状・組織の不均一性が磁気特性の計測結果に与える影響を明らかにする必要がある。压力容器内面から磁気計測を行う場合、磁気プローブ直下にクラッドが存在するため、その影響を強く受けると考えられる。压力容器内部の各場所でのクラッドの表面状態や厚さの違いや、強磁性 δ 相の分布の非一様性が計測結果にどのような影響を与えるかを確認するとともにその対策の検討が必要である。

4. ま と め

軽水炉压力容器の磁気的な非破壊脆化評価法の基礎研究として、実機モックアップ材のクラッド付 RPV 鋼(厚さ 20 mm)について、各場所での微細組織と磁気ヒステリシス特性およびビッカース硬さを調べた結果、以下の知見が得られた。

(1) ステンレス鋼クラッドは γ 相の粗大凝固組織の内部にバミキュラー型 δ 相が分散した組織になっている。

(2) 低合金鋼部は粗大および微細 HAZ 部と母材のベイナイト組織から構成されている。

(3) クラッド部の磁気ヒステリシス特性は、非磁性 γ 相内に分散した強磁性 δ 相の特性を反映しており、低合金鋼部に比べて大きな保磁力を有する。

(4) 低合金鋼部の磁気ヒステリシス特性は、飽和磁化は一

定であるのに対し、保磁力は HAZ 部で大きく、溶接境界からの距離に従い減少して母材の値になる。

(5) ビッカース硬さは保磁力と同様の位置依存性を示し、HAZ 部で大きく、溶接境界からの距離に従い減少して母材の値になる。

(6) HAZ 部を含む RPV 鋼の保磁力とビッカース硬さの間に良い相関があり、磁気ヒステリシス計測に基づく压力容器の硬さおよび微細組織の非破壊評価の可能性を見出した。

本研究のモックアップ材は、中部電力株式会社原子力安全技術研究所の公募研究(高経年化原子炉压力容器の余寿命高精度評価に関する研究 H27-28)で提供していただきました。感謝いたします。また、本研究の一部は科学研究費補助金(基盤研究 B 26289361)により行われています。

文 献

- 1) G. Dobmann: *NUCLEAR POWER – CONTROL, RELIABILITY AND HUMAN FACTORS*, ed. by P. V. Tsvetkov, (InTech, 2011) pp. 311-338.
- 2) N. Niffenegger and H. J. Leber: *J. Nucl. Mater.* **389**(2009) 62-67.
- 3) K. Ara, N. Ebine and N. Nakajima: *J. Press. Vess. Technol.* **118**(1996) 447-453.
- 4) J. Kim, D. Park, C. Ok, E. Yoon and J. Hong: *J. Magn. Magn. Mater.* **196-197**(1999) 351-353.
- 5) H. Inoue and T. Koseki: *Shinnittetsu giho* **385**(2006) 56-63.
- 6) S. Umezaki, Y. Murata, K. Nomura and K. Kubushiro: *J. Japan Inst. Met. Mater.* **78**(2014) 218-224.
- 7) T. Ueda, Y. Okino, S. Takahashi, J. Echigoya and Y. Kamada: *J. Magn. Soc. Jpn.* **27**(2003) 607-611.
- 8) S. Chikazumi: *Physics of Ferromagnetism*, 2nd ed., (Clarendon Press, Oxford, 1997) pp. 411-417.
- 9) R. C. O'Handley: *Modern Magnetic Materials*, (John Wiley & Sons, Inc., NY, 2000) pp. 313-338.
- 10) C. Chen: *Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials*, (Dover Publications, Inc., NY, 1986) pp. 276-293.
- 11) S. Takahashi, H. Kikuchi, K. Ara, N. Ebine, Y. Kamada, S. Kobayashi and M. Suzuki: *J. Appl. Phys.* **100**(2006) 023902.
- 12) L. Vandenbossche, M. J. Konstantinovic, and L. Dupre: *J. Magn. Magn. Mater.* **320**(2008) e562-e566.
- 13) S. Kobayashi, T. Yamamoto, D. Klingensmith, G. R. Odette, H. Kikuchi and Y. Kamada: *J. Nucl. Mater.* **422**(2012) 158-162.