

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360286

研究課題名(和文) 3次元ミクロ組織・応力状態解析による応力腐食割れき裂進展条件の検討

研究課題名(英文) SCC crack propagation conditions studied using three-dimensional microstructural characterization and stress measurements

研究代表者

友田 陽 (TOMOTA, YO)

茨城大学・理工学研究科・名誉教授

研究者番号：90007782

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：Ni合金・低合金鋼溶接部材のCBB試験後の試料を用いて逐次研磨法による3D組織観察と階層的応力測定(EBSD-Wilkinson法、X線および中性子回折)を行った。原子炉で観察された溶接界面近傍でSCCき裂進展が抑制される要因として、型粒界に沿ったき裂の分岐、低合金鋼側の圧縮残留応力、および界面直下の低合金鋼の酸化が考えられた。SUS304鋼におけるSCCき裂進展挙動が応力拡大係数、腐食環境およびフェライトに影響される様子を3D観察によって明らかにした。過酸化水素水濃度が高い場合は腐食支配型となりき裂は粒界性格に依存して分岐するが、低い場合は応力支配型となる。

研究成果の概要(英文)：Stress Corrosion Cracking (SCC) was studied using 3D characterization methods for a weld component made of Inconel and low alloy steel (LAS) and an austenitic stainless steel. Macro- to micro-scope residual stress measurements and creviced bent beam SCC tests were performed for Inconel/LAS samples. The possible reasons for the suppression of SCC crack propagation near the weld interface found at a nuclear power plant were estimated to include the crack branching at the grain boundary (GB) parallel to the interface, i.e., Type II GB, compressive residual stresses in the LAS region and crack tip oxidation in the LAS at the interface. SCC crack propagation behavior in CT specimens of sensitized SUS304 steel was observed three-dimensionally using a serial sectioning technique. Crack branching and stress/plastic strain distribution were influenced by stress intensity factor, corrosion environment and microstructure particularly character of grain boundary and delta ferrite grains.

研究分野：材料強度学

キーワード：応力腐食割れ 破壊 ミクロ組織 量子ビーム 応力 インコネル 低合金鋼 中性子回折

1 . 研究開始当初の背景

(1) 1960年代後半に日本原子力研究所の動力試験炉 JPDR (BWR, 1万2,000kW) のステンレス鋼配管で応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking: SCC) が発見された。1974年には、米国のドレスデン原子力発電所2号機 (BWR, 出力80万9,000kW) の原子炉再循環系のパイパス配管で、商業炉として初めてステンレス鋼の SCC が発見された。そのため、我が国の商業用 BWR 原子力発電所でも、この年から定期検査を延ばして点検や予防保全工事を始めたが、その後、実際にステンレス鋼配管等の SCC トラブルが報告されるようになった。原因を検討した結果、ステンレス鋼の熱鋭敏化による耐食性の低下、溶接による残留応力、冷却水中の溶存酸素の存在などの要因が相乗的に作用していたことが判明した。軽水炉の高温高圧水中でオーステナイト系ステンレス鋼を長時間保持すると結晶粒界に $M_{23}C_6$ 炭化物が析出し、粒界に沿って Cr 濃度の低い領域が生成することが主たる SCC 発生の原因であった。耐食性は Cr 濃度に強く依存するため、Cr 濃度が低下した粒界が優先的に腐食され、き裂発生をもたらす、応力 (溶接残留応力等) 下で、き裂が成長することが明らかにされた。そこで、炭化物の析出を抑制するためにステンレス鋼の炭素含有量を減らし、それによる強度の低下を窒素添加によって補った原子炉用新鋼種が開発された。さらに、残留応力を低減させる溶接方法の開発、冷却水中の溶存酸素濃度の低減化などの対策が実施された結果、最近ではステンレス鋼配管の SCC トラブル発生は著しく減っている。

(2) しかし、近年炉心シュラウド等に生じている SCC はこの炭素を低減したステンレス鋼で発生している。低炭素ステンレス鋼の SCC 発生が、機器の製造時に材料表面に施された切削や仕上げ加工による表面硬化との関係にあることは分かっているが、熱鋭敏化とは異なる原因で内部へ進展している可能性が高く、詳細なメカニズムの解明は不明である。また、耐 SCC 性に優れると思われていたニッケル合金 (インコネル) においても SCC の発生が確認されるようになった。SCC は、応力、腐食環境およびミクロ組織の3つの影響因子が重なることで生じる複雑な現象であり、原子力重要機器に使われるオーステナイト系ステンレス鋼やニッケル基合金において予想しがたい条件下で発生するので、早急に解決すべき重要な課題である。

(3) 最近の事例としては、1999年に敦賀2号機の検査においてシュラウドサポート材のインコネル溶接部に SCC き裂が228個検出された。表面から逐次研削してき裂の進展状況を詳細に調べた結果、すべてのき裂において圧力容器の低合金鋼へ溶接部境界を抜けて進展するという例は見つからなかった。重大事故につながる可能性のある観察事実なの

で、腐食防食協会を中心に溶接部における SCC 挙動が最新の解析・分析技術を導入して続けられているが、き裂先端のミクロ組織と応力状態を表面から内部まで3次元的に評価することは不十分であったと言わざるを得ない状況である。

(4) 一方、SCC は、腐食性の環境におかれた金属材料に引張応力が作用して生ずる破壊現象であり、材料表面の酸化皮膜の保護性が局所的に失われることにより発生し、その形態から粒界型 SCC (IGSCC) と粒内型 SCC (TGSCC) に分けられる。軽水炉の重要部材として使われているオーステナイト系ステンレス鋼は製造年代によって化学組成や製造方法が異なり、SCC き裂挙動に及ぼす照射効果など、長時間使用における安全性には未知の部分があり、従来の研究手法に加えて3次元空間的に応力分布やミクロ組織変化を調べることが重要になっている。

2 . 研究の目的

本研究では、前述の状況を踏まえて、電子線、X線および中性子線回折を用いて SCC き裂先端のミクロ組織、塑性変形および応力分布をマルチスケールで3次元(3D)評価する手法を確立し、き裂進展メカニズムを究明することを目的とする。

従来の研究では、ミクロ組織や応力状態の3D観察・測定がほとんどなされていなかった。本研究の具体的な研究目的は、2種類の試料(事例)を取り上げて、き裂進展経路とミクロ組織の3D観察を行い、SCCき裂先端の塑性変形域および弾性ひずみ分布をEBSD/Wilkinson法、X線および中性子線回折を用いて、スケールブリッジングに明らかにすることである。

3 . 研究の方法

実験に用いる試料として以下の2種類の試料を作製した。

Ni合金(インコネル)・低合金鋼溶接部模擬試料：CBB試験片を採取して561 Kの高温水中でSCC試験を実施。そのほか、残留応力測定および組織観察試料を作製。

鋭敏化処理を施したSUS304鋼：CT試験片を作製し、放射下の影響を模擬するために H_2O_2 の添加量と応力拡大係数を変化させた条件でSCC試験を実施。

SCC試験としてでは主としてCBB試験、ではCT試験を種々な試験環境下で実施した。試験前後の試料を用いて行った観察・解析方法は以下のものである。

*** 逐次研削法による3D組織観察とEBSD測定**により、ミクロ組織とき裂進展経路の3D像

を構築し、粒界性格や相の識別を行い、き裂の優先進展経路を明らかにする。進展経路の選択は、き裂先端の応力場および塑性域の影響を受けるので、KAM値とWilkinson法による弾性ひずみ分布を求める。逐次研磨3D観察はこれまで手動で行っていたが、本研究費で自動測定装置GENUS-3Dを導入し自動化を試みる。これにより、測定・データ解析の大幅な効率化が期待される。

***中性子およびX線回折法を用いて残留応力分布を測定する。**異材溶接試料について、中性子回折により溶接境界部に関して試料内部の3次元応力分布を測定する。試料表面における残留応力分布はX線応力測定によって調べる。さらに結晶粒内の応力分布についてWilkinson法を用いて検討する。

前述のようにSCCは引張応力、ミクロ組織および腐食環境の3条件によって生じる現象であり、上記結果を用いてき裂進展機構の総合的な考察を行う。

4. 研究成果

(1) Ni合金/低合金鋼溶接材のSCCき裂の進展

この課題に関する研究成果の詳細は2件の修士論文と3件の学部卒業論文にまとめられ、適時、講演発表(国内講演会および国際会議(基調講演))を行った。主たる研究成果は次の学術誌論文にまとめて公表している。

「Metall. Mater. Trans., 45A (2014), 6103 - 6117に掲載」。

実機(沸騰水型軽水炉)で観察・報告されたインコネル/低合金鋼溶接界面におけるSCCき裂進展抑制メカニズムに関して、模擬試料を作製して検討した結果、以下の点が明らかになった。

*本実験で採用した加速SCC試験(CBB試験)の条件では、一般に用いられる試験片では980時間保持後にもインコネル部にSCCき裂の発生がまったく認められなかった。そこで新たにノッチ付CBB試験片を考案・作製して実験したところ、500時間でノッチ底のインコネル部からSCCき裂が生じ、大角結晶粒界に沿ってき裂が伝播した。溶接部境界で低合金鋼領域に酸化物が生じ、さらにSCCき裂は低合金鋼領域へ進展した。溶接境界で停留する傾向は観られたが停止しなかったことは実機の観察結果と異なる点である。異なった結果の理由として、応力拡大係数と液性のSCC加速条件が厳しかったことが考察された。

*溶接部境界近傍のインコネル領域では、境界に平行な結晶粒界(型粒界)が特徴的組織であり、SCCき裂が型粒界に沿って進展するとき裂の幾何学的形状から先端の応力拡大係数が低下する。SCCき裂進展の様子を図1に示す。この挙動を逐次研磨法による3次元組織観察と有限要素法解析によって示し、実機における溶接部境界におけるき裂停滞機構の一つとして考察した。なお、異材溶

接において境界に平行な型粒界(垂直に近い型粒界と区別)が存在するという観察事例はすでに他の研究者によって報告されていたが、その形成機構には不明な点があった。

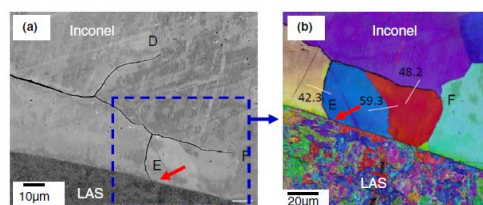


図1 インコネルから低合金鋼に向けて型粒界を伝播するSCCき裂の様子:(a) SEMイメージ。(b) IPFマップ。

*本研究では、上記の型粒界に関して3次元組織観察とEBSD解析を組み合わせ、その形成機構を明確に示した。溶接溶融金属が凝固するとき、最初は低合金鋼(高温ではインコネルと同じFCC相に逆変態している)の結晶粒からエピタキシャル成長して凝固が進む。このとき、凝固優先方位である<100>方位の結晶粒が優先的に成長し、成長の遅い他の<hkl>結晶粒の前方を覆うために、粒界に平行な<hkl>結晶粒の型粒界が形成される。

*溶接後の冷却中に溶接部近傍でオーステナイト(FCC)相に逆変態した低合金鋼の組織はマルテンサイトに変態する(最初の母相組織はベイナイト)。したがって、単層溶接(one-bead)材では境界部をはさんでインコネル粒と低合金マルテンサイトの間にはKSの結晶方位関係が存在する(EBSD解析にて確認)。一方、実機条件に近い多層溶接(Multi-beam)材では、最初の溶接後に境界部の低合金鋼は再加熱温度によっては再びFCC相に逆変態し、冷却でマルテンサイトに戻る。このとき、新たなFCC粒がコロニー境界や炭化物から析出すると冷却後にはインコネル側とのKS関係が失われる。それまで存在したインコネル粒界と旧オーステナイト粒界の連続性は消失する。この粒界の不連続性はSCCき裂が溶接境界で停止する要因のひとつになる可能性がある。このような組織形成機構を模擬試料と加熱炉を用いて溶接時の到達温度を変えて明らかにした。

*SCC発生条件のひとつである溶接(および熱)残留応力に関して、電子線、X線および中性子回折を用いて検討した。その結果、試料表面(平面応力)および内部(平面ひずみ)においてそれぞれX線と中性子線応力測定により室温ではインコネル側に溶接界面に平行な方向(き裂進展方向に垂直)に引張、低合金鋼領域に圧縮の残留応力が測定され、応力分布を明らかにした。インコネルと低合金鋼の熱膨張係数の差からSCC試験である561Kに加熱すると残

留応力が若干低下するが、低合金鋼領域に存在する圧縮残留応力は SCC き裂の進展を抑制すると考えられる。

* 上記の残留応力測定は mm 単位の測定サイズでの結果であり、き裂進展が結晶粒界の性格に左右されることを考えると μm から nm サイズの結晶粒内の応力分布を求める必要がある。試料内部の測定手法は存在しないが、表面もしくは切断内部断面の平面応力場に関しては EBSD/Wilkinson 法を使うと推定できる。測定結果によると、前述の $\langle 100 \rangle$ 粒では粒内の残留応力分布が小さく、この方位から離れた方位の結晶粒内で大きな応力（弾性ひずみ）分布が測定された。内部切断面では試料表面より応力勾配が大きくなった。今後は、試料を破壊せずに内部の結晶粒を対象として応力分布を求め、き裂進展条件を検討することが望まれるが、実験手法は存在しないので結晶塑性有限要素法による溶接シミュレーションの発展に期待することになる。

* 溶接部近傍で SCC き裂進展が停滞する要因として低合金鋼部における酸化物の生成がある。酸化物生成は体積膨張を伴うので圧縮残留応力を減少させる反面、き裂先端の鈍化をもたらす。

以上の実験結果より、き裂停滞要因として、ミクロ組織（ α 型粒界と結晶粒界の連続性）、残留応力分布、および酸化物生成があげられ、さらに定量的なき裂進展条件を求めるには計算工学的手法を併用する必要がある。

(2) SUS304 鋼の SCC き裂の進展

この課題の研究内容は修士論文 1 件、卒業論文 1 件にまとめられ、腐食防食学会講演大会等で発表し、現在、投稿論文を作成中である。

溶体化処理したオーステナイトステンレス鋼（SUS304）に鋭敏化処理を施した後、Compact Tension (CT) 試験片を作製した。原子炉定常運転時の高温 (561 K) 高水圧中で、液性（過酸化水素濃度および酸素濃度）と応力荷重、すなわち応力拡大係数を変化させて SCC き裂進展試験を実施した。最初は過酸化水素が隙間内部まで拡散浸透せず、表面層のみでき裂進展が生じたので、その後は大気中で疲労予き裂を導入した後にシェブロンノッチ部を除去して、き裂進展試験を実施した。SCC き裂がある程度進展した状態で試験を中断し、試験片を 2 つに縦割りにした。片方はき裂の進展挙動やミクロ組織とき裂進展経路の関係、き裂先端の応力・ひずみ分布測定等に用いた。もう片方は引張破断させて破面の観察を行った。得られた主な結果を以下にまとめる。

* き裂の進展経路は、応力拡大係数と腐食環境に依存して 2 つに大別される：A 型の SCC き裂はほとんど分岐せずに直進的に進むが、B 型の SCC き裂は頻度多く分岐を繰り返しながら、結晶粒界を伝って進展する。

* き裂進展経路は通常の観察では、途中で

未破壊部が観察されることがあるが 3D 観察によってお互いに繋がっていることが分かる等、シリアルセクションによる 3D イメージを構築する効果大きい。

* 少量の フェライトが観察され、SCC き裂は フェライト粒に到達すると、停止またはオーステナイト/フェライト界面を伝って進展した。シリアルセクション法により構築した 3 次元イメージを図 2 に示す。

* き裂のほとんどが粒界割れであり、一部で粒内割れが観られた。割れた粒界のほとんどが大角粒界であった。

* SEM/EBSD と Wilkinson 法を用いて、き裂先端の弾塑性変形状況を検討した。その結果、上記 A 型のき裂進展は応力支配型で、先端の塑性域（KAM 値分布で判断）と残留応力が大きく、B 型は腐食支配型でき裂先端の塑性変形域が小さいことが示された。

上記 2 つの課題を通じて、SCC き裂の発生・伝播挙動を支配する要因の影響を定量的に評価するには 3D 観察・測定が有用であることが検証された。

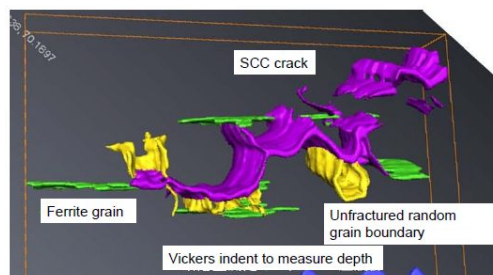


図 2 逐次研磨法によって作成した SCC き裂（紫）、フェライト粒（緑）および破壊しなかった大角粒界（黄色）の 3 次元イメージ。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 1 件）

Y. Tomota, S. Daikuhara, S. Nagayama, M. Sugawara, N. Ozawa, Y. Adachi, S. Harjo and S. Hattori: Stress Corrosion Cracking Behavior at Inconel and Low Alloy Steel Weld Interfaces, Metall. Mater. Trans., 45A (2014), 6103 - 6117.

査読あり。

〔学会発表〕（計 7 件）

友田 陽（基調講演）、「インコネルと低合金鋼接合界面における応力腐食割れ挙動」、平成 26 年度第一回残留ひずみ・応力解析応力研究会、中性子産業利用推進協議会・茨城県中性子利用促進研究会、2014.10.28、研究社英語センター（東京、新宿区）

S. Daikuhara, S. Nagayama, S. Harjo and Y. Tomota (Invited talk) 「3D scale-bridging stress evaluation of dissimilar alloys welded thick plate」, MECA SENS 2013, 2013.9.23. シドニー (オーストラリア)

友田 陽 「量子ビームナノ解析を用いた鉄鋼の組織と特性の研究」, 構造材料懇談会, 日本熱処理技術協会九州支部 (招待講演), 2012.11.2, 鹿児島大学 (鹿児島県, 鹿児島市)

S. Daikuhara, N. Sato, M. Ojima, S. Harjo, Y. Adachi and Y. Tomota: 3D stress and microstructure evaluation in Inconel/low alloy steel welded component using a serial sectioning method with photon, neutron and X-ray diffraction, RATEC 2012 (Recent advance in analytical techniques for steelmaking industry) RATEC 2012 (Recent advance in analytical techniques for steelmaking industry), 2012.12.8, 日本科学未来館 (東京, 江東区)

S. Daikuhara, S. Nagayama, Y. Adachi and Y. Tomota: Microstructure, residual stress, and SCC fracture in an Inconel/low-alloyed steel welded part, 2nd ISAME-2012 (Tomota: 招待講演), 2012年11月6日, ロジワールホテル豊橋 (愛知県, 豊橋市)

大工原森, 岩田裕介, 長山 瞬, 小島真由美, 足立吉隆, 友田 陽: インコネル/低合金鋼溶接部における残留応力分布の測定, CAMP ISIJ, 26(2012),1052 (日本鉄鋼協会) 2012年9月17日, 愛媛大学 (愛媛県, 松山市)

〔図書〕(計2件)

友田 陽: 鉄鋼材料における組織制御技術と特性予測技術の進歩, 第209,210回西山記念技術講座「革新的な鉄鋼材料を生み出す組織制御技術とメタラジの進歩」(2012), pp.3-15, 日本鉄鋼協会, 164頁

友田 陽 (編著): 第5版鉄鋼便覧 (2014) 日本鉄鋼協会, 各巻の序文と第3巻 PP.134-137(著), 全5巻の合計3034頁

6. 研究組織

(1) 研究代表者

友田 陽 (TOMOTA YO)

茨城大学・名誉教授

研究者番号: 90007782

(2) 研究分担者

鈴木 徹也 (SUZUKI TETSUYA)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号: 70261740

(3) 連携研究者

無し