

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月4日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05564

研究課題名(和文) 金属組織学に基づく高信頼性ステンレス鋼溶接部の創成と寿命予測式の精緻化

研究課題名(英文) Development of highly reliable stainless steel welds and high accuracy life-prediction model based on metallography

研究代表者

阿部 博志 (Abe, Hiroshi)

東北大学・工学研究科・講師

研究者番号：30540695

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,100,000円

研究成果の概要(和文)：オーステナイト系ステンレス鋼を対象として、応力腐食割れ耐性に優れた組織を作製すると共に、溶接部の熱時効脆化に及ぼす組織異方性の影響を検討した。高周波誘導加熱により融点近傍まで昇温した後に急冷することで、粒界のみが優先的に溶融・凝固して島状相が分布した316Lステンレス鋼を作製した。加えて、当該試料が高温水中SCC進展抵抗性を有することを明らかにした。熱時効に伴う吸収エネルギーの低下率は概ねフェライト率で整理が可能で、溶接金属と二相ステンレス鋳鋼の間に大きな違いが無いことを明らかにした。すなわち、溶接金属の熱時効脆化について、2相ステンレス鋳鋼の知見が活用可能であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

軽水炉のより一層の信頼性向上には、経年劣化事象とその対応技術に関する継続的な研究開発が不可欠である。特にステンレス鋼溶接部においては、従来多くの劣化事象が顕在化していることから、健全性担保の観点から最も重要な対象の一つである。本研究ではステンレス鋼溶接部の主要な劣化モードである応力腐食割れに対して、有効な解決策となり得る金属組織が作製可能であることを示した。加えて、これまで全く検討されてこなかった溶接部の熱時効脆化に及ぼす組織異方性の影響について、少なくとも衝撃値に関しては影響が大きいことを示した。したがって本研究成果は、軽水炉におけるステンレス鋼溶接部の信頼性向上に資すると判断できる。

研究成果の概要(英文)：The microstructural modification method has been developed to improve SCC resistance of austenitic stainless steels. The effect of microstructural anisotropy on a thermal embrittlement of welds has been investigated. Type 316L stainless steel in which the island-shaped delta-ferrite distribute on grain boundaries due to preferential melting and solidification by heating up to near the melting point using induction heating and then water quenched has been developed. The modified 316L stainless steel showed good SCC propagation resistance. The Charpy absorbed energy decrease ratio with thermal aging depends only on the ferrite content, whether weld metals or cast duplex stainless steels. It has been suggested that the previous knowledge about thermal aging behavior of duplex stainless steels can be applicable for that of stainless steel welds.

研究分野：保全学、腐食防食学

キーワード：オーステナイト系ステンレス鋼 溶接金属 -フェライト 応力腐食割れ 熱時効脆化 スピノーダル分解

1. 研究開始当初の背景

近年、沸騰水型軽水炉（BWR）の再循環系配管溶接部において、応力腐食割れ（SCC）き裂が溶接金属内にまで進展する事例が顕在化している。き裂は溶融境界近傍で停留すると指摘されているが、その理由がこれまで一切不明であったため、実態に応じたき裂進展評価・管理が困難であった。申請者らは、溶融境界近傍の粒界に分布する島状 δ フェライト相が、き裂停留をもたらす微視組織要因であることを明らかにし、SCC き裂停留モデルを提案している（図1[1]）。この知見に基づけば、特定の熱処理によってステンレス鋼の粒界に体積分率1%程度の δ 相が広く分布する2相組織を創成することで、仮にSCCが発生してもき裂が準巨視的サイズ以下で停留するステンレス鋼の開発に繋がると着想した。

また注視すべき経年劣化事象の1つとして、2相ステンレス鋼の熱時効がある。2相ステンレス鋼の熱時効脆化は、豊富なデータとH3Tモデルに基づいて適切に評価・管理されている。しかしステンレス鋼溶接部については、時効脆化挙動の把握が必ずしも充分ではない。申請者らは、オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属が数～十数%の δ 相を含む2相組織であることに着目し、316L鋼溶接金属の δ 相がBWR炉水温度域においてもスピノーダル分解により硬化し、溶接部の靱性低下につながる可能性があることを指摘している[2]。加圧水型軽水炉（PWR）配管溶接部は、成分調節によりフェライト率が数%程度のため、時効による靱性低下が顕在化してもその程度は小さい。一方BWR配管溶接部では、フェライト率が10%を超えてネットワーク状に分布する場合があるため、溶接部の脆化特性に即した時効脆化管理方法を検討しておく必要がある。加えて、溶接金属の靱性は異方性を持つため、H3Tモデル（脆化予測式）を溶接金属に適用するためには異方性パラメータの導入が不可欠と着想した。

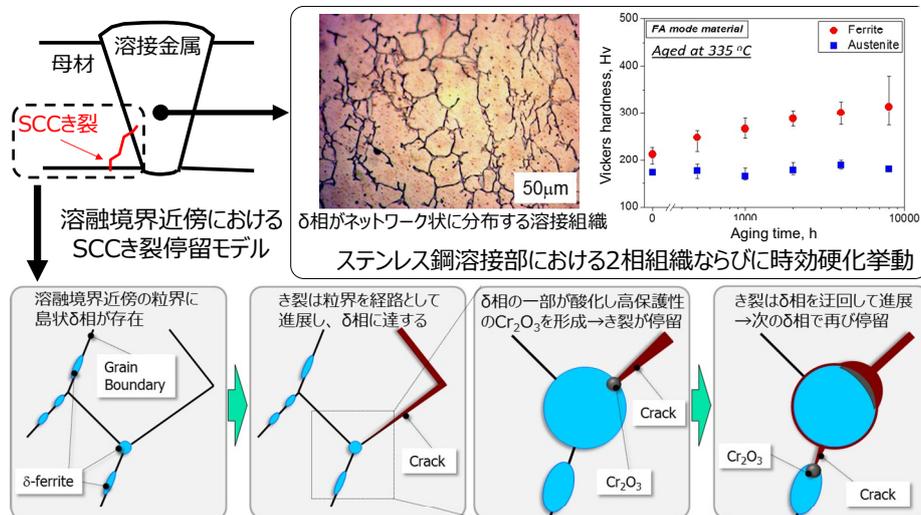


図1 溶接部 δ フェライト相に着目した SCC き裂停留モデルならびに低温時効硬化特性

2. 研究の目的

BWR のオーステナイト系ステンレス鋼溶接部を対象として、金属組織学的見地から SCC 耐性に優れたステンレス鋼ならびに精緻な熱時効脆化予測式を開発する。具体的には以下を達成することで、軽水炉におけるステンレス鋼溶接部の飛躍的な信頼性向上に資する。

- (1) 粒界島状 δ 相分布組織を有する SCC 耐性に優れたステンレス鋼の創成
- (2) δ 相分布形態ならびに異方性をパラメータとした低温時効脆化予測式の開発

3. 研究の方法

(1) 粒界島状 δ 相分布組織を有する SCC 耐性に優れたステンレス鋼の創成

- ① SUS316L 試料を、高周波誘導加熱により融点近傍まで昇温した後に急冷する（溶融境界近傍と同様の溶接模擬熱履歴を与える）ことで、粒界のみが優先的に溶融・凝固して島状 δ 相が分布した組織を作製する。
- ② 上記で作製した試料を用いて、BWR 炉水模擬環境下における SCC 試験を実施し、最もき裂停留効果に優れた組織を特定する。SCC 試験としては、すきま付き定ひずみ曲げ（CBB）試験を用いる。試験後の試験片に対して断面方向から観察することで、き裂先端位置とき裂経路長さをそれぞれ δ - γ 界面と γ - γ 界面に分類して統計処理し、き裂進展速度の相対値を算出することで、き裂停留効果を半定量的に評価する。

(2) δ 相分布形態ならびに異方性をパラメータとした低温時効脆化予測式の開発

- ① 316L 鋼溶接試験体を作製する。再循環系配管を模擬するため、母材は 316NG、溶接金属は 316L 相当とし、TIG 溶接で作製する。作製した溶接試験体について、溶接組織のキャラクタリゼーションを実施し、 δ フェライト相の分布形態を明らかにする。加えて、比較材として 2 相ステンレス鋼試験体を準備し、同様の金属組織調査を実施する。
- ② 上記で作製した溶接試験体ならびに 2 相ステンレス鋼試験体について、475°C 等温熱時

効処理を実施し、熱時効後の試験片を対象に δ 相の硬さを測定する。十分に脆化したと考えられる試験体から試験片を採取し、シャルピー衝撃試験を行い、破面観察結果と合わせて考察することで、熱時効脆化に及ぼす組織異方性の影響を明らかにする。2相ステンレス鋼の知見の溶接金属への適用が困難であると判断された場合、脆化予測式への組織異方性の反映方法を検討する。

4. 研究成果

(1) 粒界島状 δ 相分布組織を有する SCC 耐性に優れたステンレス鋼の創成

① 高周波誘導加熱による粒界島状 δ 相分布組織の作製

市販の SUS316L ステンレス鋼から 10 角、長さ 60mm の角柱状試験片を作製した。高周波誘導加熱熱処理は、熱間加工再現試験装置を用いて行った。ピーク温度：1325～1350°C の範囲、ピーク温度保持時間：2～10s の範囲で設定した。熱処理中の試験片温度は熱電対により測定し、測定値と設定値はよく一致していた。

熱処理後試験片の金属組織観察結果を図 2 に示す。粒界上に島状の析出物が不連続に存在していることがわかる。EBSD (Electron Back Scattered Diffraction Pattern) 分析による IPF (Inverse pole figure) map および Phase map から、熱処理によって粒径大きくなっていること、粒界上に δ -フェライト相が分布していることが確かめられた。以上から、316L ステンレス鋼を対象として、溶融境界極近傍の熱履歴を模擬した熱処理を実施し、粒界に島状 δ 相が分布した組織が作製できたと判断した。

② 粒界島状 δ 相の SCC き裂停留効果の検証

上記で作製した溶接熱模擬処理材と溶体化材を対象として、高温水中 SCC 試験を実施した。SCC 試験は、すき間付き定ひずみ曲げ (CBB) 試験を採用した。試験条件は、温度/圧力: 288°C/10MPa、水質: 100ppb $\text{Na}_2\text{SO}_4^{2-}$ 添加水、溶存酸素濃度: 8ppm 程度 (クリーンガス吹き込み)、試験時間: 750h、とした。試験後、試験片長手方向に切断してき裂の様相を観察した。

断面観察から、熱処理条件によって δ 相分布密度ならびにき裂発生数が大きく異なっていたものの、熱処理材でのみき裂が認められたことから、熱処理によって SCC 感受性が増大した可能性が示唆された。しかしながら、本試験に先立って実施された同試験条件下における予備試験においては、溶体化熱処理材においても明確に SCC 感受性が認められたことから、当該熱処理が SCC 感受性そのものに及ぼす影響については、引き続き検討が必要とされた。次に、熱処理材 (1325°C-10s) の試験片断面 SEM 観察写真を図 3 に示す。図 3 に示すように、観察されたき裂の多くはその先端が粒界上 δ フェライト相に位置していた。き裂先端位置とき裂経路長さをそれぞれ δ - γ 界面と γ - γ 界面に分類して統計処理し、き裂進展速度の相対値を算出することで、き裂停留効果を半定量的に評価した結果を図 4 に示す。これから、き裂進展経路に占める δ 相の割合が極めて小さいにもかかわらず、60%以上のき裂の先端が δ 相に位置していた。すなわち、 δ/γ 界面でのき裂進展速度は γ/γ 界面の 0.0019 倍と算出されたことから、島状 δ 相が SCC き裂停留効果を有すると判断された。

(2) δ 相分布形態ならびに異方性をパラメータとした低温時効脆化予測式の開発

① SUS316L 溶接金属組織のキャラクタリゼーション

供試材は SUS316L 溶接金属、比較材として ASTM CF8 に相当する組成の 2 相ステンレス鋼を用いた。フェライト量はそれぞれ 9.5 %程度と同程度であった。

各供試材の微視組織を図 5 に示す。SUS316L は FA (初晶 δ) モード凝固組織であるバミキュラー δ が大部分を占めていた。バミキュラー δ は δ/γ 相界面の整合性が悪く[3]、かつ δ 相の優先成長方向とへき開面が一致する[4]ため、き裂の進展経路になりやすいと考えられる。このバミキュラー δ が溶接金属厚さ方向に直線的かつ連続的に分布していることから、溶接金属厚さ方向にき裂が進展するようにシャルピー衝撃試験片を採取することとした。

② SUS316L 溶接金属の衝撃特性に及ぼす熱時効ならびに組織異方性の組織影響評価

供試材を 475 °C で温度一定の条件で時効した。熱時効脆化の主な原因は δ 相が相分離し硬化することであるとされている[5]ため、 δ 相の硬さを脆化の程度を測る尺度とした。山田ら[6]は種々の CF8M における δ 相初期硬さと熱時効による最大到達硬さをまとめており、 δ 相硬さが荷重 25 g での測定で 600 HV*(25 g)を超えると材料の吸収エネルギーは概ね飽和すると報告している[7]。この知見を参考に随時 δ 相硬さを測定し、SUS316L は 1000 h では 600 HV*(25 g)に僅かに達しなかったので 5000 h まで時効し、約 700 HV*(25 g)に達したため 5000 h で時効を完了した。CF8 は 1000 h で 600 HV*(25 g)に達していたが、十分に脆化した状態を再現するため 3000 h まで時効を継続し、3000 h の時点で 1000 h と変わらず約 600 HV*(25 g)であったため十分に脆化していると判断し 3000 h で時効を完了した。

供試材の未時効時および時効後の吸収エネルギーと試験温度の関係を図 6 に示す。供試材の吸収エネルギーは時効により顕著に低下し、室温では SUS316L、CF8 共に 50 %程度低下した。SUS316L は採取位置により試験片を区別したが、有意な差はみられなかった。ここで過去の知見[7,8, 9-17]の溶接金属および 2 相ステンレス鋼の未時効時および十分に脆化した後の室温における吸収エネルギーと本研究結果のそれを図 7 において比較する。図 7 (a) の曲線は H3T モデルを用いて算出した 2 相ステンレス鋼の吸収エネルギーの底値予測曲線であり、図 7 (b) は吸収エネルギーの低下率を表す。図 7 (a) から溶接金属および 2 相ステンレス鋼の吸収エネルギー底値はフェライト量の増加に伴い低下することがわかる。また、

溶接金属は2相ステンレス鋼と比較して吸収エネルギーの初期値が大きくばらついているが、一方で図7(b)からわかるように吸収エネルギーの低下率はフェライト量に依存し、溶接金属と2相ステンレス鋼でその傾向に大きな差はない。そのため、吸収エネルギーの初期値が低い溶接金属は、吸収エネルギー底値が低い傾向を示している。溶接金属の吸収エネルギー初期値がばらつく原因はさらなる調査が必要だが、吸収エネルギーの低下率については2相ステンレス鋼の知見を溶接金属に活用できる可能性が示唆された。

図8、図9にSUS316LおよびCF8の室温におけるシャルピー衝撃試験後の破面を示す。図8に示すようにSUS316Lの破面は未時効時はディンプルに特徴付けられる延性破面を示すが、時効後の破面ではディンプルは観察されず、比較的平坦な破面上に δ 相が観察された。これは熱時効により δ 相が硬化したことで δ 相がへき開破壊しやすくなり、直線のかつ連続的に分布している δ 相をき裂が優先的に進展したためと考えられる。図9に示すようにCF8の破面においてもディンプルが観察されたが、SUS316Lのものと比較するとディンプル径が大きなものが多い。時効後の破面では大きなディンプルの中心に δ 相が観察され、 δ 相がディンプルの発生源になっていると考えられる。熱時効された2相ステンレス鋼はこのような破面を呈することが知られており[18]、本試験結果も従来知見と傾向が一致した。

(3) 得られた成果のまとめと今後の展望

- ① 粒界のみが優先的に溶融・凝固して島状 δ 相が分布した316Lステンレス鋼が作製可能であること、また当該試料が高温水中SCC進展抵抗性を有することを明らかにした。一方で熱処理によるSCC感受性増大の可能性の検討、島状 δ 相の耐食性が熱時効に伴い低下する可能性の検討など、今後の課題が示された。
- ② 熱時効に伴う吸収エネルギーの低下率は概ねフェライト率で整理が可能で、溶接金属と二相ステンレス鋼の間に大きな違いが無いことを実験により示した。今後は、破壊靱性試験によるさらなる検証が望まれる。

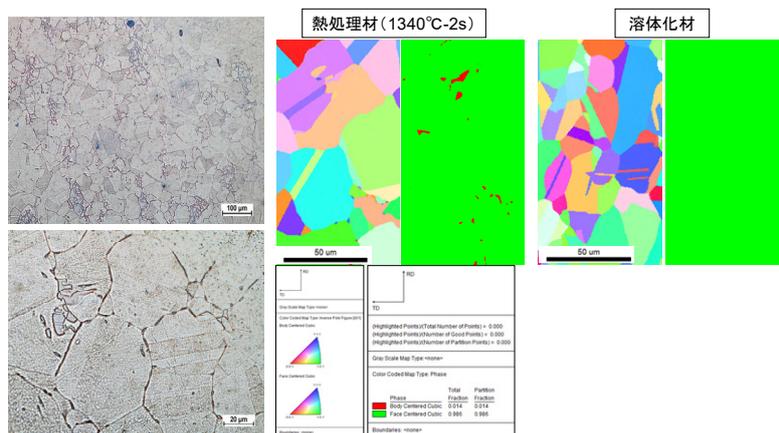


図2 熱処理材 (1340°C-2s) のエッチング後組織写真 (左) と IPF・Phase Map (右)

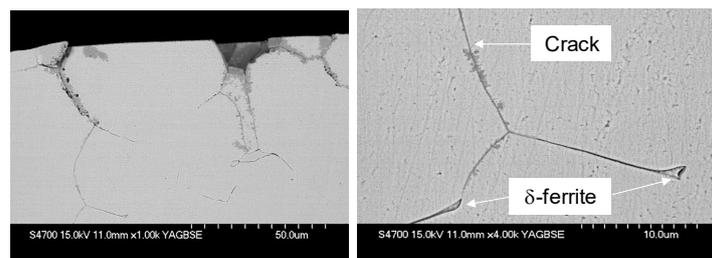


図3 熱処理材 (1325°C-10s) のき裂の様相

ピーク温度-保持時間 (観察面)	き裂進展経路上に δ 相が存在するき裂の数	先端が δ 相に位置しているき裂の数	先端が δ 相に位置しているき裂の割合
1340°C-2s (端面)	66	50	75.8 %
1340°C-2s (中央)	108	70	64.8 %
1325°C-10s (端面)	54	35	63.0 %
1325°C-10s (中央)	36	32	89.9 %

ピーク温度-保持時間 (観察面)	き裂経路長さ (γ/γ 界面)	き裂経路長さ (δ/γ 界面)	δ/γ 界面の γ/γ 界面に対するき裂進展速度の相対値
1325°C-10s (中央)	1244 μm	20.55 μm	0.0019倍

発見されたき裂の先端位置の統計
 δ - γ 界面上
 γ - γ
 き裂経路長さの統計
 各微視組織のき裂進展速度の相対値

図4 粒界島状 δ 相のき裂停留効果の評価結果

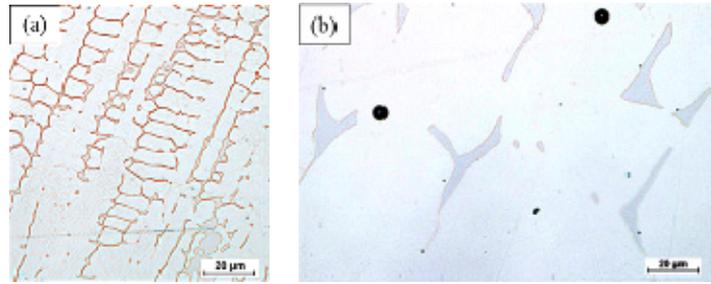


図5 供試材の δ 相分布形態 (a)316L溶接金属、(b)CF8 鋳鋼

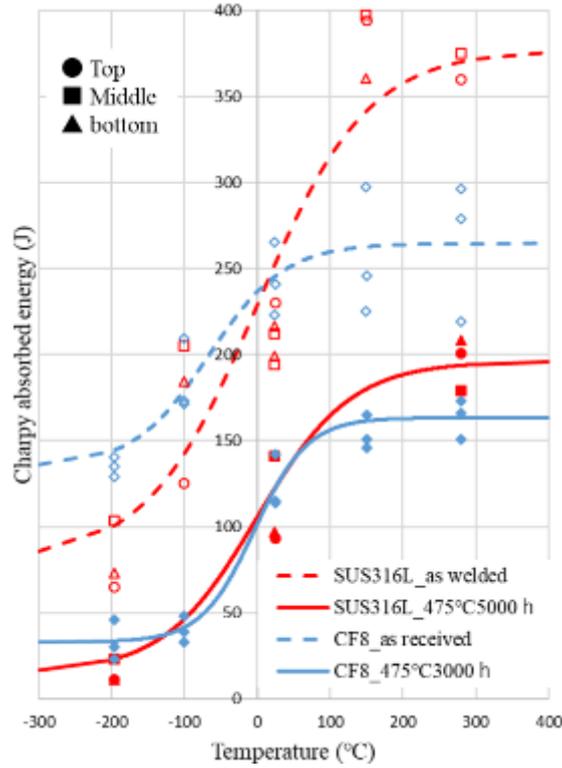


図6 供試材の未時効時および時効後の吸収エネルギーと試験温度の関係

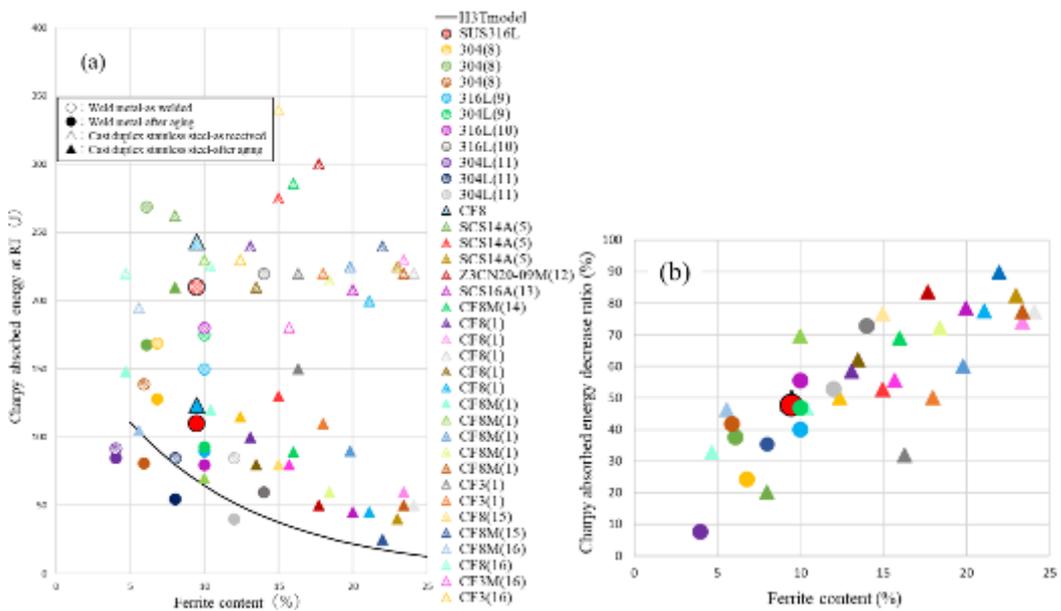


図7 本試験結果と文献値の比較 (a)吸収エネルギー、(b)吸収エネルギーの低下率

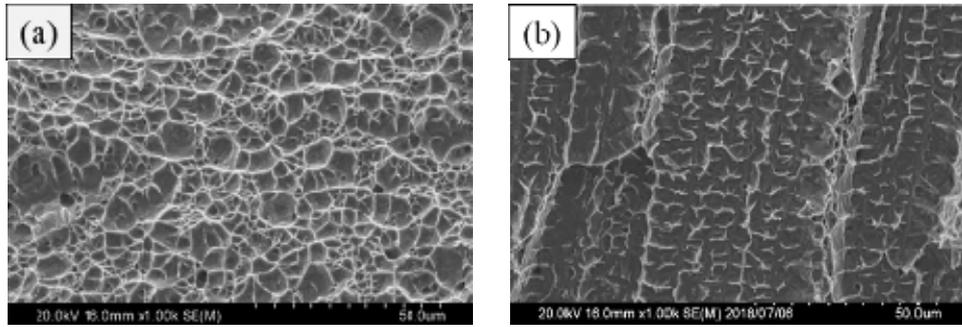


図 8 SUS316L 溶接金属の室温でのシャルピー試験後の破面の様相 (a)未時効材、(b)475°C・5000h 時効材

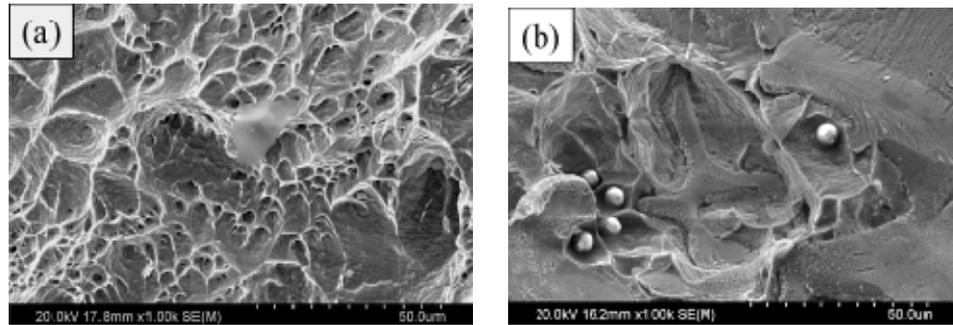


図 9 CF8 ステンレス鋼の室温でのシャルピー試験後の破面の様相 (a)未時効材、(b)475°C・5000h 時効材

[参考文献]

- [1] H. Abe and Y. Watanabe, *Journal of Nuclear Materials*, Vol. 424, pp.57-61 (2012).
- [2] H. Abe and Y. Watanabe, *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.39A(6), pp.1392-1398 (2008).
- [3] 井上裕滋, 小関敏彦, 新日鉄技法第 385 号, (2006).
- [4] 神谷修, 熊谷一男, 菊地靖志, 溶接学会論文集, Vol. 9, No. 4, (1991), pp. 525-531.
- [5] Chung, H. M., and Leax, T. R., *Materials Science*, Vol. 6, (1990), pp. 249-262.
- [6] 山田卓陽, 根岸和生, 工藤大介, 桑野寿, *INSS Journal*, Vol. 7, (2000), pp. 145-158.
- [7] Yamada, T., Okano, S., Kuwano, H., *Journal of Nuclear Materials* 350, (2006), pp. 47-55.
- [8] Chopra, O. K., NUREG/CR-4513, Rev. 1, ANL-93/22, (1994).
- [9] Gavenda, D. J., Michaud, W. F., Galvin, T. M., Burke, W. F., and Chopra, O. K., NUREG/CR-6428, ANL-95/47, (1996).
- [10] Chandra, K., et al., *Materials Science and Engineering A* 534, (2012), pp. 163-175.
- [11] Lucas, T., et.ql., H., *Metals & Materials Society and ASM International*, Vol. 47A, (2016).
- [12] Alexander, D. J., Alexander, K. B., Miller, M. K., Nanstad, R. K., NUREG/CR-6628, ORNL/TM-13767, (2000).
- [13] Li, S., Wang, Y., Li, S., Zhang, H., Xue, F., Wang, X., *Materials and Design* 50, (2013), pp. 886-892.
- [14] 三浦靖史, 澤部孝史, 新井拓, M&M2015 材料力学カンファレンス
- [15] Kawaguchi, S., et.ql., *Nuclear Engineering and Design* 174, (1997), pp. 273-285.
- [16] Trautwein, A., Gysel, W., *technische mitteilungen aus dem+GF+konzern*, no. 5, (1981).
- [17] Timothy, G. L., Thak, S. B., Keith, J. L., *Journal of Nuclear Materials* 497, (2017), pp. 139-153.
- [18] Slama, G., Petrequin, P., Mager, T., *International seminar on assuring structural integrity of steel reactor pressure boundary components*, (1983).

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 5 件)

- ① 黒山結音, 阿部博志, 渡邊豊, 「熱時効がオーステナイト系ステンレス鋼溶接金属の衝撃特性へ及ぼす影響の評価」、日本機械学会 M&M 材料力学カンファレンス、(2018)。
- ② K.Hirata, H.Abe, Y.Watanabe, ” Low temperature age-hardening behavior of type 309 and 316 stainless steel weld metal”, 5th IMRNPP & AWC 2017 & 3rd AF MAINS (国際学会), (2017).
- ③ 平田一真, 阿部博志, 渡邊豊, 「オーステナイト系ステンレス溶接金属の微視組織と低温時効硬化挙動に及ぼす溶接条件ならびに化学組成の影響」、日本機械学会 M&M 材料力学カンファレンス、(2017).
- ④ 黒山結音, 平田一真, 阿部博志, 渡邊豊, 「オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属におけるフェライト相の熱時効硬化挙動」、日本原子力学会 第 16 回材料部会 夏期セミナー、(2017).
- ⑤ 黒山結音, 平田一真, 阿部博志, 渡邊豊, 「オーステナイト系ステンレス鋼溶接金属の硬さならびに腐食特性に及ぼす熱時効の影響」、第 13 回量子エネルギー工学フォーラム、(2017).

6. 研究組織

- (1) 研究分担者 該当なし
- (2) 研究協力者 該当なし