

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560063

研究課題名（和文） 高温水中応力腐食割れの弾塑性異方性効果に対する力学・電気化学相互作用機構

研究課題名（英文） Mechanical-Electrochemical Interaction Mechanism for the Effect of Elastic-Plastic Anisotropy on Stress Corrosion Cracking in High Temperature Water

研究代表者

呂 戦鵬 (LU ZHANPENG)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30419999

研究成果の概要（和文）：沸騰水型軽水炉（BWR）および加圧水型軽水炉（PWR）模擬環境における、オーステナイト合金の応力腐食割れ（SCC）に及ぼす微視的構造と機械的異方性の影響、および環境因子の影響を、実験と理論的手法によって体系的に調査した。模擬 PWR 一次冷却水環境中にて、準三次元圧延した 316L 鋼よりも、一次元圧延した 316L 鋼により有意な高いき裂進展速度が観察された。288 °C 純水中の酸素富化条件および脱気条件における、温間圧延を施した 304NG 鋼の SCC き裂進展速度は、T-L 方向のき裂進展速度は L-T 方向のそれよりも大きい。冷間加工したステンレス鋼は、腐食電位を低下させても大きな SCC の軽減効果を呈さなかった。316NG 鋼溶接熱影響部における微視的構造の変化と結晶方位差を評価し、その相関性を実証する目的で SCC 試験を実施した。

研究成果の概要（英文）：Stress corrosion cracking (SCC) of austenitic alloys in simulated boiling water reactor (BWR) environments and pressurized water reactor (PWR) environments are measured. The effects of mechanical anisotropy and environmental parameters were investigated by experimental and theoretical methods. In a simulated PWR primary water, a significantly higher growth rate was observed in a 1-D rolled 316L stainless steel (SS) than those in a 3-D rolled 316L SS. SCC growth rates of 304NG SS after 1-D rolling are higher in the T-L orientation than those in the L-T orientation in both oxygenated and hydrogenated water at 288 °C. The mild inhibiting effect of decreasing electrode potential on crack growth of cold-rolled SSs is analyzed. Microstructure and local misorientation in 316NG SS weld heat-affected zones were measured and correlated to SCC in high temperature water.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：環境強度、応力腐食割れ、弾塑性異方性、高温水、電気化学、構造材料、軽水炉

## 1. 研究開始当初の背景

高温水環境におけるオーステナイト系合金の応力腐食割れ (SCC) に及ぼす材料異方性の影響の定量化は、プラントにおける割れ、ないしプラントと実験室のデータのばらつきに関する原因、および複雑な応力ひずみ分布を有するプラント機器の実状を反映した適切な実験室試験の計画における主要因子決定のベースとなる。熱影響部 (HAZ) での低炭素系ステンレス鋼 (SS) の割れ、および沸騰水型軽水炉 (BWR) における再循環系配管の溶金の割れに関する破壊モードおよび候補となりうる因子を、国内の BWR プラントにおける割れの最近の調査に基づいて論じた。表面の仕上げ状態に起因するひずみ硬化と溶接による収縮が、熱影響部における SCC の発生と進展に関する重要な因子であることを確認した。ひずみ硬化による降伏応力または硬度の上昇は、酸素富化したかまたは水素添加した高温水中におけるオーステナイト系合金の SCC 進展速度を著しく増加させる。溶接中のひずみ硬化に起因した HAZ 部の材料または機械的特性の異方性は、硬さ評価により明らかになる。材料または機械的特性の異方性とき裂進展挙動の基礎的な相関もまた、依然として明らかにはなっていない。本研究は、機械的特性の異方性が既知であるオーステナイト系合金のき裂進展速度の定量的評価、および機械的および電気化学的な相互作用の理論的な解析を用いて、高温水環境におけるオーステナイト系合金の応力腐食割れ (SCC) に及ぼす弾塑性異方性の影響のメカニズム解明を目的とする。

## 2. 研究の目的

高温水環境中のオーステナイト系合金の応力腐食割れ (SCC) に及ぼす異方性弾塑性の影響について、その機械的異方性、およびき裂進展速度の実測と、き裂先端のひずみ速度に基づくモデルによる理論的なき裂進展速度のモデル化により体系的に調査する。(1) 素材の結晶方位で整理した加工硬化させたステンレス鋼のき裂進展速度の定量化、(2) き裂進展に及ぼす重要な異方性パラメータの同定、(3) き裂先端の応力ひずみ場に及ぼす異方性弾塑性の効果の定量、(4) 固相中の物質移動のような界面反応に及ぼす有力な異方性パラメータの効果の調査、(5) 力学/電気化学の相互作用モデルに基づいたき裂進展に及ぼす異方性弾塑性パラメータの効果のモデル化という課題に取り組む。

## 3. 研究の方法

### (1) 2008 年度

- ① 低炭素オーステナイト系ステンレス鋼の温間圧延：主に一方向の温間圧延加工硬化を施す。全方位で比較的均一な素材の特性が得られるように圧延手順の最適化が必要である。
- ② 異方性をもつ微視的構造の解析：微視的構造、特に組織構造を、光学顕微鏡、および走査型電子顕微鏡、後方散乱電子線回折像分析 (EBSP) 法、その他の解析手法で観察する。
- ③ 異なる電位におけるき裂進展速度に及ぼす平面異方性の効果：高温水中の高または中間の電位において、温間圧延したステンレス鋼のき裂進展速度を実測する。き裂進展速度の遷移期間と定常状態を把握するために、き裂進展を電位差法でモニタする。異なった応力拡大係数 (K) 条件にてき裂進展速度を実測する。

### (2) 2009 年度

- 応力腐食割れき裂進展試験と理論解析を実施する。今年度に予定する詳細な課題を以下に示す。
- ① 高および中程度の腐食電位下のき裂進展速度に及ぼす異方性の影響 高および中程度の腐食電位下におけるき裂進展速度を測定するとともに、試験機の稼動状況によっては、低腐食電位下でも測定する。
  - ② き裂進展速度に及ぼす面内異方性の影響 方向性配向の微視組織の影響を確認するために、クロス圧延材のき裂進展速度を測定し、一方向圧延材のそれと比較する。
  - ③ き裂進展速度に及ぼす弾塑性異方性の影響の理論解析 実験的な力学的因子、および各種の試験条件下におけるき裂進展速度データを取りまとめ、理論的なき裂進展速度のモデルに取り入れる。

### (3) 2010年度

- ① 微視的構造異方性の相関性の定量化 冷間圧延されたニッケル基合金について、種々の圧延面における微視組織を電子後方散乱回折像法 (EBSD法) で観察し、その微視的構造異方性を評価する。
- ② き裂進展速度試験 冷間圧延されたニッケル基合金について、模擬加圧水型軽水炉環境中における1方向的な (平面的な) および3方向的な立体的な冷間圧延された材料のき裂進展速度を評価する。
- ③ 変形/酸化メカニズムに基づいた応力腐食割れに及ぼす弾塑性異方性の影響に関する理論的解析 実験条件としての力学/微視組織的パラメータと、それに対応した種々の試験条件下におけるき裂進展データを整理するとともに、理論的なき裂進展速度モデルに取り入れる。

#### 4. 研究成果

##### (1) 酸素富化および水素添加した高温純水中における SUS304L 鋼温間圧延材の SCC に及ぼす圧延加工方位の影響

酸素富化および水素添加した 288°C 純水中において、SUS304L 鋼の 1 次元温間圧延材から T-L 方向および L-T 方向に切り出した試験片の応力腐食割れ (SCC) 進展速度を評価した。288°C の脱気および酸素富化した純水環境では、T-L 方向の試験片で得られた SCC 進展速度の方が、L-T 方向の試験片のそれよりも高かった。高温水中その場腐食疲労き裂進展速度は、それぞれの荷重比 R において T-L および L-T の両方向の試験片で同様であった。

##### (2) 高温水中における SUS316NG 鋼冷間圧延材の SCC に及ぼす水化学と荷重条件の影響

288°C の超純水中における、3 次元的に冷間加工した SUS316NG 鋼の応力腐食割れに及ぼす電極電位、応力拡大係数と、荷重履歴の影響を検討した。L-T 方向の試験片では、割れ経路が最終圧延方向 (L 方向) へ外れることが分かった。応力腐食割れ進展は、Σ3 粒界よりもむしろランダム粒界に主として従う。これらの傾向は、結晶粒界形状と優先されるき裂進展経路の間に相関性がある。288°C の純水中において、約 0.2 V<sub>SHE</sub> から約 -0.57 V<sub>SHE</sub> まで電極電位を低下させると、3 次元的に冷間加工した SUS316NG 鋼のき裂進展はわずかに抑制された。これは、同様の環境中における SUS304 鋼鋭敏化材と、低炭素ステンレス鋼溶体化処理材のき裂進展に比してあまり顕著ではなかった。

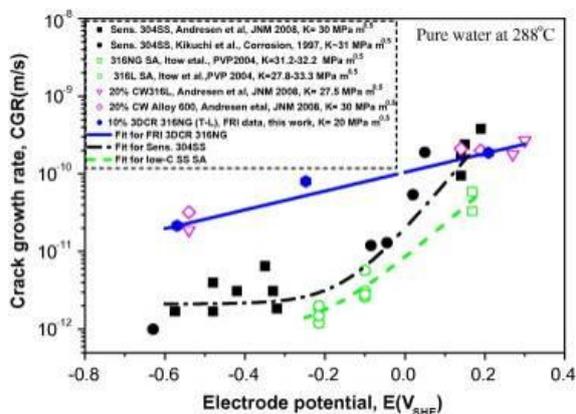


図 1 288°C の高温水中におけるステンレス鋼および 600 合金の SCC 進展速度実測値と電極電位の関係

##### (3) SUS316NG 鋼の溶接熱影響部における微視組織および局所変形の評価と高温水中における SCC

酸素富化した 288°C 純水中において、SUS316NG 鋼溶接部の 3 つの領域、すなわち、溶融線から比較的遠方となる HAZ 部、溶融線に比較的近い HAZ 部、そして溶融線近傍における SCC 進展を検討した。電子線後方散乱回折 (EBSD) の評価結果によると、溶融線から遠ざかるにしたがって KAM 値が低下し、かつ Σ3 粒界の割合は増加したことを示した。SCC は粒界割れのモードであり、また割れ経路は Σ3 粒界よりもむしろランダム粒界をたどることが分かった。溶存酸素濃度の低下とともにき裂進展速度が低下する点は、硬度の高い HAZ 部よりも、むしろ硬度の低い HAZ 部においてより顕著であった。電子線後方散乱回折 (EBSD) の評価結果は、冷間加工または溶接工程により生成されるサブミクロ構造の結果による局所変形が、応力腐食割れの割れと動力学について重要な役割をもつことを示す。結晶粒界特性と局所的なひずみ硬化に関連して、母材よりも HAZ 部の方がより高い SCC 感受性を呈した

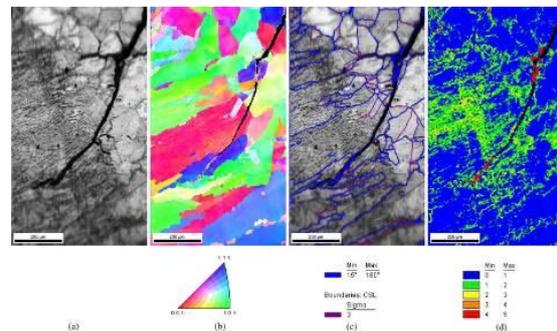


図 2 試験片 HTH2 の表面における SCC き裂先端の領域における電子線後方散乱回折 (EBSD) の (a) SEM 像, (b) IPF マップ, (c) 粒界の種類と, (d) KAM 値による評価結果

##### (4) 種々の溶存水素濃度下の模擬 PWR 一次冷却系水中における一方向に冷間加工した SUS316NG 鋼の SCC

320°C の異なった溶存水素濃度 (DH) の模擬 PWR 一次冷却系水中における、一方向に冷間圧延した SUS316NG 鋼の SCC 進展速度を測定した。DH が 0.16 cm<sup>3</sup> (STP) H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>O のときのき裂進展速度は、DH が 5 cm<sup>3</sup> (STP) H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>O のそれに近かった。DH が 30 cm<sup>3</sup> (STP) H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>O のときのき裂進展速度は、DH が 5 cm<sup>3</sup> (STP) H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>O のときのき裂進展速度の 1/4、または 50 cm<sup>3</sup> (STP) H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>O のときのき裂進展速度の 2 倍であった。電子線後方散乱回折 (EBSD) の評価結果によると、著しく変形した高傾角粒界に沿って典型的な粒界割れ SCC があった。

##### (5) 模擬 PWR 環境中における SUS316L 鋼の SCC に及ぼす荷重モードと水化学の

## 影響

模擬PWR一次冷却系水環境中にて、1次元圧延および準3次元圧延によるSUS316L鋼冷間加工材のSCC進展速度を測定した。30cc STP H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>Oの溶存水素濃度(DH)にて、1次元圧延したSUS316L鋼は広範囲に及ぶ粒界割れSCCを呈したものの、準3次元圧延したSUS316L鋼は局所的なSCCを呈した。ともにほぼ同じ降伏応力ながら、準3次元圧延したSUS316L鋼の方がより顕著な高いき裂進展速度が観察された。き裂進展は、290~320°Cの温度範囲において熱活性化過程により支配される。溶存水素濃度を30cc STP H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>Oから0cc STP H<sub>2</sub>/kg H<sub>2</sub>Oへ低下させると、CGRは著しく増加する(約10倍にまで)。台形波荷重負荷中の除荷/再負荷過程において、保持時間の短縮によってき裂進展を助長する要因が増大した。

## (6) ニッケル基600合金および690合金のPWSCCに及ぼすひずみ硬化の影響

模擬PWR一次冷却系水環境中にて、母材およびその冷間加工材と、MA600合金/溶金182合金、およびTT690合金/溶金52合金のそれぞれ熱影響部(HAZ)における応力腐食割れ(SCC)挙動を評価した。硬度測定および電子線後方散乱回折の評価により熱影響部の硬化した領域を明らかにした。オージェ電子分光法を用いて、粒界割れとなった破面の結晶粒界の化学組成および析出炭化物を分析した。TT690合金の母材および同合金のHAZ部は高い耐SCC性を呈した。MA600合金のHAZ部と、8%および20%クロス圧延(2DCR)したMA600合金には広範囲に及ぶIGSCCが見られたものの、40%クロス圧延したMA600合金の試験片には粒界割れ/粒内割れの混在したSCCが見られた。

## 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7件)

1. F.J. Meng, Z.P. Lu, T. Shoji, J.Q. Wang, E.H. Han, W. Ke. Stress corrosion cracking of uni-directionally cold worked 316NG stainless steel in simulated PWR primary water with various dissolved hydrogen concentrations. Cor. Sci. (2011), 10.1016/j.corsci.2011.04.013, 査読有
2. H. Xue, Z.J. Li, Z.P. Lu, T. Shoji. The effect of single tensile overload on stress corrosion cracking growth of stainless steel in a light water reactor environment. Nuclear Engineering and Design. 241(3), (2011) 731-738. 査読有.

3. Z.P. Lu, T. Shoji, F.J. Meng, He Xue, Y.B. Qiu, Y. Takeda, K. Negishi. Characterization of microstructure and local deformation in 316NG weld heat-affected zone and stress corrosion cracking in high temperature water. Corros. Sci., 53, (2011) 1916-1932. 査読有
4. Z.P. Lu, T. Shoji, F.J. Meng, Y.B. Qiu, T.C. Dan, H. Xue. Effects of water chemistry and loading conditions on crack growth behavior of cold-rolled 316NG stainless steel in high temperature water. Cor. Sci., 53, (2011)247-262. 査読有
5. T.C. Dan, Z.P. Lu, J.Q. Wang, E.H. Han, T. Shoji, W. Ke. Crack growth behavior of stress corrosion cracking of 690 Alloy in high temperature water. Acta Metall. Sinica., 46 (10), (2010) 1267-1274. 査読有
6. T.C. Dan, T. Shoji, Z.P. Lu, K. Sakaguchi J.Q. Wang, E.H. Han, W. Ke. Effects of hydrogen on the anodic behavior of Alloy 690 at 60°C. Corros. Scic., 52, (2010), 1228-1236. 査読有
7. Z.P. Lu, T. Shoji, T.C. Dan, Y.B. Qiu, T.Yonezawa. The effect of roll-processing orientation on stress corrosion cracking of warm-rolled 304L stainless steel in oxygenated and deoxygenated high temperature pure water. Corros. Sci, 52, (2010) 2547-2555. 査読有

[学会発表] (計13件)

1. T. Shoji, Z.P. Lu, H. Xue, Y.B. Qiu, K. Sakaguchi. Quantifying Crack Tip Oxidation Kinetics Parameters and Their Contribution to Stress Corrosion Cracking in High Temperature Water. ASME PVP 2010, PVP2010-25238. ASME PVP 2010, July 22, 2010, Seattle, USA. 査読有.
2. Z.P. Lu, H. Xue, T. Shoji. Crack Branching and Its Effect on Environmentally Assisted Cracking in High Temperature Water Environments. ASME PVP 2010, July 21, 2010, Seattle, USA. PVP2010-25818. 査読有.
3. Z.P. Lu, T. Shoji, K. Sakaguchi, F.J. Meng, Y.B. Qiu, Effects of Electrochemical Parameters on SCC of Stainless Steels in Simulated BWR environments. 日本保全学会第7回学術講演会, 平成22年7月14日, 静岡県御前崎市. 査読なし.
4. Z.P. Lu, T. Shoji, H. Xue, Y. Takeda, K. Negishi. Stress Corrosion Crack Growth of Three-dimensionally Cold-rolled 316NG stainless Steel in Oxygenated, De-oxygenated and Hydrogenated High Temperature Water. 材料と環境2010, 平成22年5月14日, 東京, A308. 査読なし
5. Z.P. Lu, T. Shoji, T.C. Dan, Y.B. Qiu, T. Yonezawa. Stress Corrosion Cracking Of Warm-Rolled 304L SS in Different Orientations

in High Temperature Water. 材料と環境 2010, 平成 22 年 5 月 14 日, 東京, A307. 査読なし。

6. Z.P. Lu, K. Sakaguchi, K. Negishi, Y. Takeda, Yuzuru Ito, T. Shoji. Quantifying the effects of strain-hardening and water chemistry on crack growth rates of 316L SS welds in high temperature water. 14<sup>th</sup> Int. Conf. Environ. Degradation of Materials Nuclear Power Systems-Water Reactors. Aug. 27, 2009, Virginia Beach, VA, USA. ANS. 招待講演、査読有。

7. T. Shoji, Z.P. Lu, S. Yamazaki. The effect of strain-hardening on PWSCC of Nickel-base Alloys 600 and 690. 14<sup>th</sup> Int. Conf. Environ. Degradation of Materials Nuclear Power Systems-Water Reactors. Aug. 26, 2009, Virginia Beach, VA, USA. ANS. 招待講演、査読有。

8. Z.P. Lu, T. Shoji, S. Yamazaki. Effects of loading mode and water chemistry on stress corrosion cracking of 316L stainless steel in simulated PWR environments. 14<sup>th</sup> Int. Conf. Environ. Degradation of Materials Nuclear Power Systems-Water Reactors. Aug. 26, 2009, Virginia Beach, VA, USA. ANS. 査読有。

9. H. Xue, Z.P. Lu, H. Murakami, T. Shoji. Effect of uneven crack front on crack tip mechanics and the implication to stress corrosion crack growth. ASME PVP 2009, No. PVP2009-77625, July 30, 2009, Prague, Czech, 査読有。

10. Z.P. Lu, He Xue, H. Murakami, T. Shoji. Locally delaminating stress corrosion cracking growth of strain-hardened austenitic alloys in hydrogenated high temperature water environments. ASME PVP 2009, No. PVP2009-77622, July 30, 2009, Prague, Czech. 査読有。

11. Z.P. Lu, Koji Negishi, Juan Hou, Y. Takeda, T. Shoji. Stress Corrosion Cracking Growth Behavior of Strain Hardened 316L SS and Weld Transition Zone in High Temperature Water, 材料と環境 2009, 平成 21 年 5 月 22 日, 東京. 査読なし。

12. Z.P. Lu, Seiya Yamazaki, T. Shoji. Quantifying the Effects of Loading Mode and Dissolved Hydrogen Concentration on Crack Growth of Cold Worked Stainless Steels in Simulated PWR Environments, 材料と環境 2009, 平成 21 年 5 月 22 日, 東京. 査読なし。

13. Z.P. Lu, Y. Takeda, Hiroyoshi Murakami, Koji Negishi, T. Shoji. Quantifying the effects of environmental parameters on crack growth rates of non-sensitized stainless steels materials in high temperature water, 材料と環境 2008, JSCE, 平成 20 年 5 月 13 日, 大宮. 査読なし。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

呂 戰鵬 (LU ZHANPENG)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30419999

### (2) 研究分担者

庄子 哲雄 (SHOJI TETSUO)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80091700

竹田 陽一 (TAKEDA YOICHI)

東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：40374970

### (3) 研究連携者

( )

研究者番号：