

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05143

研究課題名(和文) 長時間熱時効材を用いた低炭素ステンレス鋼のSCC機構解明研究

研究課題名(英文) Investigation on the mechanism of SCC using long-term aged L-grade austenitic stainless steels

研究代表者

近藤 啓悦 (Kondo, Keietsu)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：50391321

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：軽水炉炉内構造材料である低炭素オーステナイト系ステンレス鋼(SUS316L鋼)に対する長時間熱時効処理が、粒界型応力腐食割れ発生感受性を増大する予備実験結果が得られた。そこで、この材料の詳細微細組織解析を実施することにより応力腐食割れ発生機構解明を目指した。その結果、長時間熱時効によって転位組織変化が引き起こされること、またその変化は応力負荷時の塑性変形挙動に影響を及ぼし、結晶粒界近傍への局所ひずみ増大の原因となることが示唆された。さらに、長時間熱時効材は応力腐食割れ試験において粒界内部腐食が顕著に増加していたことから、粒界局所ひずみ集中が粒界耐食性低下の一因となっている可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

軽水炉炉内構造材料である低炭素オーステナイト系ステンレス鋼の経年劣化・損傷機構について、長時間熱時効による材料変化が応力腐食割れ発生感受性を増加させる可能性を示唆した。

研究成果の概要(英文)：L-grade austenitic stainless steels (SSs) are widely used for core components in nuclear power plants. It has been confirmed in the preliminary experiment that the long-term thermal aging (LTA) treatment enhanced the stress corrosion cracking (SCC) initiation susceptibility of cold-worked (CW) 316L SS. The metallurgical examinations on this material were conducted to identify the SCC accelerating factors. The results of microstructural examination revealed that the LTA treatment induced the change in the dislocation microstructure, and brought the heterogeneous deformation under the stress applied condition. Furthermore, the enhancement of grain boundary internal oxidation in SCC testing was also confirmed on 316L SS with the LTA treatment. It was considered that the microstructural change by the LTA treatment cause the localization of strain and the deterioration of corrosion resistance around grain boundaries under synergistic effect of tensile stress and corrosive environment.

研究分野：原子力材料工学

キーワード：応力腐食割れ 低炭素オーステナイト系ステンレス鋼 炉内構造材

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

発電用軽水炉プラントの炉内構造物として多く用いられている低炭素オーステナイト系ステンレス鋼は、プラント運転開始から数年経過すると製造工程において不可避に導入された硬化部位において応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking, SCC) と呼ばれる損傷事象を発生することが材料課題となっている。材料損傷の発生予測技術及び防止策を確立し、また、現在運転を停止している国内の軽水炉の再起動後の安全性に対して学術的根拠を与えるためにも、この SCC 発生機構解明は重要な研究課題となっている。本研究では、鋼材に対する炉内運転温度での長時間熱時効影響に着眼し、従来研究とは異なる視点から SCC 発生機構解明を目指す。

### 2. 研究の目的

研究代表者が実施した予備研究において、沸騰水型軽水炉の炉内冷却水模擬環境条件ですきま付き定ひずみ曲げ試験 (Crevice bent beam, CBB 試験) と呼ばれる SCC 発生感受性評価試験を実施した結果、SUS316L 型ステンレス鋼に対する長時間熱時効処理が粒界型 SCC 発生感受性を増大することを示唆する結果が得られていた。一方で、SUS304L 型ステンレス鋼に対してはそのような SCC 発生促進効果は認められなかった。このような長時間熱時効処理に対する SCC 感受性応答が異なる鋼材を詳細解析・比較することにより、SCC 発生を促進する材料因子を抽出することが可能であるという考えに至った。そこで本研究では、長時間熱時効による種々の鋼材の微細組織発達、機械特性及び腐食特性変化を解析し、得られた知見を基に SCC 発生メカニズムを機構論に基づいて論ずることを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では、低炭素オーステナイト系ステンレス鋼として SUS304L 及び SUS316L を対象とした。圧下率 20% で冷間圧延による硬化処理を行った後に、電気炉にて軽水炉炉心温度 288 で 14,000 時間の長時間熱時効処理を実施した。時効処理による微細組織変化は TEM による評価を実施した。SCC 発生感受性評価試験を実施するため、2 鋼種の圧延材及び長時間熱時効材から CBB 試験のための板状試験片 (50mm × 10mm × 2mm) を、圧延方向と長手方向が垂直となるように採取した。試験片表面は、研磨によって導入されるひずみを除去するため、電解研磨による最終仕上げを実施した。CBB 試験は、材料に塑性ひずみ (約 1%) を付与した状態で高温高圧水腐食環境に曝す試験 (温度 288、溶存酸素 8ppm、1,000 時間浸漬) であるが、この試験によって SCC 発生感受性評価だけでなく、試験前後の試験片表面微細組織を SEM 観察及び付属の EBSD 分析装置を用いて実施することで、材料の変形微細組織及び腐食特性の評価も並行して実施した。

### 4. 研究成果

#### (1) CBB 試験結果

圧延材並びに長時間熱時効材の CBB 試験を実施し発生したき裂数をまとめた結果を図 1 に示す。き裂はすべて粒界を起点に発生したことが確認されたが、圧延材と長時間熱時効材のき裂数を比較すると、SUS316L では長時間熱時効によって大きく発生き裂が増加するが、SUS304L ではき裂発生数に及ぼす長時間熱時効影響は小さいことが確認された。

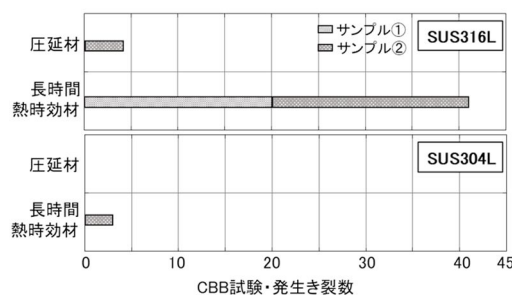


図 1. CBB 試験における発生き裂数。

#### (2) 長時間熱時効による微細組織変化

長時間熱時効によって粒界型 SCC 発生感受性が増大する結果が得られた SUS316L 鋼に対して、TEM による材料組織観察を実施した結果、図 2 に示すように、圧延材は高密度タンブル組織を呈している一方で、長時間熱時効材では転位セル構造が形成されていることが確認され、長時間熱時効による組織変化が起こっていることが明らかとなった。SCC 発生感受性が高いことが確認された長時間熱時効材の結晶粒界には、析出物形成や溶質元素偏析は確認されなかった。圧延材、長時間熱時効材ともに SCC 発生感受性が低い SUS304L では、熱時効前後とも転位タンブル組織を呈しており、組織変化は起こっていないと考えられた。以上のことから、SUS316L 鋼は長時間熱時効処理による微細組織

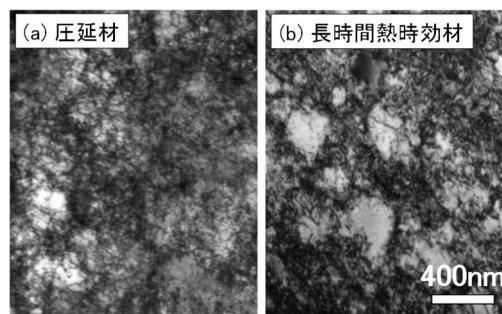


図 2. SUS316L の微細組織観察結果、(a) 圧延材、(b) 長時間熱時効材。

変化を起こしやすく、この微細組織の変化が応力負荷や腐食環境下での塑性変形挙動及び腐食挙動に影響を及ぼし SCC 発生感受性上昇に繋がったと推測された。

### (3) 長時間熱時効材の塑性変形挙動

長時間熱時効処理の有無で SCC 発生感受性に大きく差が確認された SUS316L 鋼を対象として、CBB 試験前後の SEM 二次電子像及び反射電子像観察による表面組織解析を実施し、曲げ応力負荷時の塑性変形組織を評価した。本研究では、曲げ変形時に試料表面に生じる表面段差に着目し、この段差が転位すべり若しくは双晶変形の結果生じたものかについて解析を実施した。その結果、初期組織が転位タンブル組織で SCC 発生感受性の低かった圧延材の塑性変形組織と比較して、転位セル構造を有し SCC 発生感受性が高かった長時間熱時効材は変形双晶の発生頻度が高いという解析結果が得られた。長時間熱時効処理中に発達した転位セル構造は、材料に応力が負荷された時にセル内に存在する転位にバック・ストレスを生じさせることが知られている[1]。そのため、この転位構造を持つ長時間熱時効材では可動転位密度が低く、すべり変形が抑制されて別の変形機構である双晶変形が補足的に起こり易い状態にあったものと推測される。材料全体に渡って均一な塑性変形をもたらす細やかな転位すべりが抑制された長時間熱時効材では、結晶粒内の塑性変形が不均一あるいは局所的に生じやすくなり、その結果結晶粒界に弾塑性ひずみが集中するようになり、粒界型 SCC 発生感受性上昇に繋がったものと考察された。

### (4) 長時間熱時効材の腐食特性

割れ発生メカニズムに対する考察をさらに深めるため、高温高圧水中 CBB 試験における応力負荷下での材料腐食挙動を、SUS316L 鋼の圧延材及び長時間熱時効材で比較した。CBB 試験後の試験片表面を SEM によって観察した結果、圧延材、長時間熱時効材ともに試験片表面に不動態酸化被膜が形成されていたが、多くの粒界型 SCC き裂を発生した長時間熱時効材では、図 3(a)に示すように、き裂形成まで至らなかった結晶粒界に沿う腐食痕が多数観察された。一方、SCC 発生感受性が低かった圧延材ではこのような粒界腐食痕はほとんど観察されなかった。また、長時間熱時効材の腐食粒界は、応力負荷方向に対して垂直方向に配置する粒界に観察される傾向があり、粒界面に負荷される垂直応力が粒界腐食発生に寄与している可能性が考えられた。このような粒界腐食の深さ方向への挙動を評価するために FIB 装置を用いて深さ約 10 $\mu\text{m}$  程度までの試験片を採取し、TEM による腐食生成物の分析を実施した。その結果図 3(b)に示すように、長時間熱時効材の粒界に沿って表面から深さ約 0.5 $\mu\text{m}$  付近までに Cr リッチ酸化物の形成が確認された。このような脆性酸化物の形成は結晶粒界の結合力を低下させ、応力負荷時に容易に粒界面剥離、即ち粒界き裂を発生しやすい状況が形成されていたものと考察できる。この結晶粒界において溶質元素の偏析などは観察されていないことから、前項(3)における組織観察結果から推定したような、長時間熱時効材の結晶粒界近傍に集中した弾塑性ひずみを駆動力とした酸化物形成促進機構の存在が推定されるが、このようなメカノケミカル理論に基づく内部腐食発生機構の存在については今後も検討が必要であると考えられる。

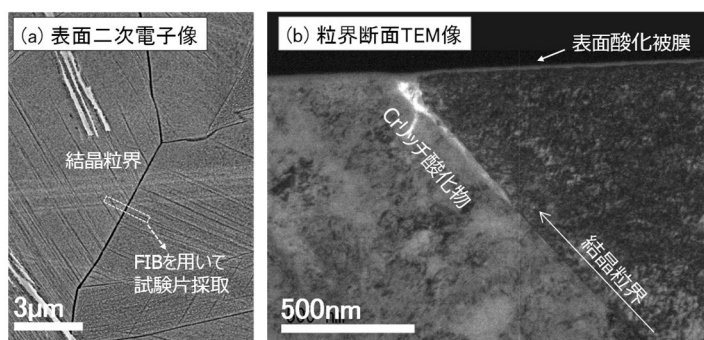


図 3. CBB 試験後の試験片表面、(a) SEM 二次電子像、(b)断面 TEM 像。

### (5) まとめ

SUS316L 鋼において確認された、長時間熱時効処理による SCC 発生感受性促進機構を考察した。本研究手法の範囲内で推定される機構として、長時間熱時効による転位組織変化が応力負荷時の塑性変形挙動の局所化に繋がり、粒界内部腐食を促進したことが考えられた。今後、粒界ひずみ集中と腐食促進の因果関係や、本研究で得られた知見によって炉内実機環境で発見されてきた SCC 機構を説明することの妥当性についても検討していく。

### <引用文献>

[1] H. MUGHRABI, Dislocation wall and cell structures and long-range internal stresses in deformed metal crystals, Acta Metallurgica, 31, 1983, 1367-1379

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Keietsu KONDO, So AOKI, Yuki Fujimura, Yoshiyuki KAJI
2. 発表標題 Effect of Cold-work and Long-term Aging on SCC Initiation Susceptibility of Austenitic Stainless Steel
3. 学会等名 2021 Annual Meeting of International Cooperative Group on Environmentally-Assisted Cracking of Water Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------