

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 1 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22760070

研究課題名（和文） 潜在的経年劣化事象を考慮した低炭素ステンレス鋼溶接部における SCC 停留モデル確立

研究課題名（和文） Establishment of SCC retardation model considered with potential aging degradation in low-carbon stainless steel welds

研究代表者

阿部 博志（ABE HIROSHI）

東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：30540695

研究成果の概要（和文）：低炭素オーステナイト系ステンレス鋼溶接部を対象として、310～400℃において熱時効処理を実施し、 δ -フェライト相の時効硬化速度を評価した。その結果に基づき、沸騰水型軽水炉の炉水温度域における硬化速度を予測した。また、時効材ならびに未時効材について高温水中応力腐食割れ試験を実施し、時効硬化した δ 相の耐食性を評価すると共に、 δ 相のき裂進展速度を半定量的に求めた。

研究成果の概要（英文）：Hardening rate of δ -ferrite in low-carbon austenitic stainless steel welds has been evaluated by thermal treatment at 310-410 °C. The hardening rate of that in boiling water reactor coolant temperature has been predicted based on the above results. Effect of aging on corrosion characteristics and stress corrosion cracking (SCC) behavior of welds have been evaluated by SCC experiments in high-temperature water. Crack growth rate in δ -ferrite has also been evaluated semi-quantitatively.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

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：ステンレス鋼、溶接部、凝固モード、応力腐食割れ、熱時効、スピノーダル分解、 δ -フェライト

1. 研究開始当初の背景

原子力発電プラントの寿命を支配する事象の一つとして応力腐食割れ（以下、SCC）が挙げられる。近年沸騰水型軽水炉（以下、BWR）の低炭素ステンレス鋼製再循環系配管の溶接部において SCC が顕在化しており、き裂が溶接金属内に進展するなど、従来の鋭敏化ステンレス鋼における事例とはその特徴が大きく異なっている。

また、稼働年数の異なる複数のプラントにおいて、き裂先端の多くが溶融境界近傍に留まっていることから、溶融境界近傍におけるき裂停留（あるいは進展遅延）が指摘されている。しかし、その理由はこれまで明らかにされていなかった。研究代表者らは、溶融境界近傍の粒界上に不連続に分布する島状の δ -フェライト相（以下、 δ 相）が、き裂停留をもたらす微視組織要因であることを実験的に明らかにし、き裂停留メカニズムを提

案している。これに基づけば、島状 δ 相の分布密度がき裂停留効果に大きく寄与することが予想される。より実際に即した SCC 進展速度予測手法を確立するには、 δ 相の分布密度を変数として、き裂停留効果を定量的に明らかにする必要がある。

一方で、 δ 相は時効劣化感受性を示すことが一般的に認識されており、高経年化技術評価審査マニュアル((独)原子力安全基盤機構)において、高経年化対策上着目すべき経年劣化事象の1つに「2相ステンレス鋼の時効」が定められている。研究代表者らは、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相組織になっていることに着目し、316L 鋼溶接金属の δ 相が、BWR 炉水温度域においても長時間の時効によってはナノメートル・スケールの相分離(スピノーダル分解)を起し、溶接部の靱性低下につながる可能性を具体的に指摘している。

今後さらに軽水炉プラントの高経年化が進めば、オーステナイト系ステンレス鋼溶接部においても靱性低下が問題になると予想されるため、この潜在的な経年劣化事象が実機で問題となり得る時期を正確に見積もっておくことが重要である。

加えて、低温時効を受けた δ 相がスピノーダル分解を起し高Crの α' 相と低Crの α 相に分離すれば、高温水中での耐食性が低下する可能性が考えられる。前述したき裂停留機構の本質は δ 相の優れた耐食性であるため、SCC き裂を有する溶接部の健全性を長期にわたり担保するためには、低温時効が δ 相の高温水中における耐食性に及ぼす影響についても明らかにする必要がある。

2. 研究の目的

BWR の低炭素ステンレス鋼溶接部における SCC を対象として、溶融境界近傍特有の微視組織ならびに低温時効が高温水中 SCC 進展挙動に与える影響を明らかにし、実機健全性評価の基礎となる SCC 停留モデルを確立する。潜在的な経年劣化事象への予見的対応ならびに SCC 進展速度予測の高精度化に必要な知見を得ることで、高経年化が進む原子力発電プラントの長期健全性担保に資する。

具体的には、以下の3点を達成することを最終的な目的とする。

- (1) δ 相の低温時効劣化速度と活性化エネルギー
- (2) δ 相分布密度ならびに低温時効の有無を変数とした SCC き裂進展速度
- (3) (1)および(2)の知見を反映した溶融境界近傍における SCC 停留モデル

3. 研究の方法

2 種類のオーステナイト系低炭素ステンレ

ス鋼溶接部 (SUS316L、SUS316NG) を対象として、以下の方法で本研究を実施する。

(1) δ 相の低温時効劣化速度と活性化エネルギー評価

SUS316L 溶接金属について、310°C、335°C ならびに 400°C の3つの温度条件下において等温時効処理を行う。時効に伴う δ 相の硬さの変化を微小硬さ試験機によって評価し、時効劣化速度に読み替える。両者の硬化速度の温度依存性から活性化エネルギーを求め、BWR 炉水温度域における低温時効劣化速度を算出する。

(2) δ 相分布密度ならびに低温時効の有無を変数とした SCC き裂進展速度評価

δ 相分布密度ならびに時効の有無を変数として、SUS316NG 供試材を用いて隙間付き定ひずみ曲げ (Crevice Bent Beam: CBB) 試験により、溶融境界近傍の SCC 進展・停留挙動を評価する。CBB 試験は平板試験片に1%曲げひずみを付与し、高温水中に保持し SCC 感受性を評価する試験法である。本研究では、溶融境界まで達したき裂を対象として、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することで、き裂進展速度の相対値、すなわち δ 相のき裂停留効果が半定量的に求まると着想した (図1)。一方で信頼性の高い SCC 停留モデル構築の為には、低温時効による δ 相 (あるいは δ 相/ γ 相界面) の耐食性低下を定量的に評価することが重要である。よって、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いたき裂先端部の観察・分析 (図2) により、 δ 相周りのナノメートル・スケールの酸化深さを実測することで、低温時効によるわずかな耐食性低下についても、SCC 停留モデルに反映させる。

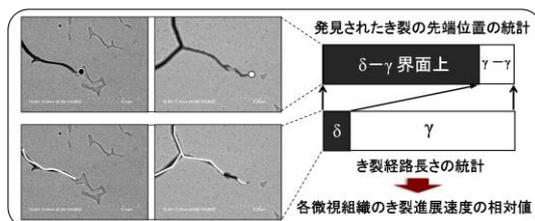


図1 き裂進展速度の半定量的評価手法

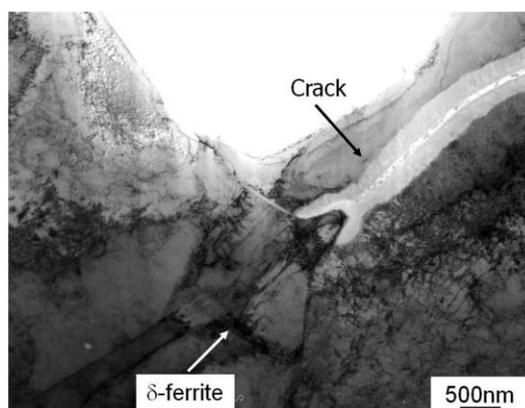


図2 き裂先端 δ 相の TEM 観察例

(3) 溶融境界近傍における SCC 停留モデルの構築

(1)および(2)から得られた知見から、SCC 停留モデルを構築する。具体的には、 δ 相分布密度の支配因子となる母材の Cr/Ni 当量比がき裂停留効果に及ぼす影響を示す。また、低温時効により δ 相の耐食性低下が認められた場合は、その影響もモデルに反映させる。

4. 研究成果

(1) δ 相の低温時効劣化速度と活性化エネルギー評価

溶接試料の δ 相の時効に伴う硬度変化を図 3 に示す。 γ 相の硬さはいずれの時効条件においても Hv170 \pm 20 程度の一定値を示したため、図への記載を省略した。310 $^{\circ}$ C 時効試料の δ 相は 6,000h 時効で明確に硬化を始め、11,000h 近傍で硬さ最大値に達して、その後 18,000h まで保持してもさらなる硬度上昇は認められなかった。335 $^{\circ}$ C 時効試料の δ 相硬さは 13,200h までの時効により約 Hv320~330 に達し、飽和していると見ることができる。400 $^{\circ}$ C 時効試料は 1,000h まで硬化し、2,000h 時効において軟化が認められた。各温度時効試料にて確認された δ 相の最大硬さは 310 $^{\circ}$ C および 335 $^{\circ}$ C で約 Hv320~330、400 $^{\circ}$ C で約 Hv420 であった。

硬化速度をアレニウスプロットにより活性化エネルギーを算出することで 288 $^{\circ}$ C への硬化速度の外挿を行った。また、最大硬さの温度依存性に関する考察を行った。硬化速度比較のため、図 3 の硬化挙動を簡略化した。具体的には、溶接金属中の δ 相は時効温度に依存する一定の速度で硬化し、最大硬さに達した後はそれ以上硬化しないと仮定した。その結果に基づけば、310 $^{\circ}$ C 時効硬化曲線は、4,000h 近傍を境目として、潜伏期と硬化期に明確に分かれると見ることができる。硬化を引き起こす組織変化の内容が試験温度条件の範囲内で共通であると仮定し、潜伏期を除いた硬化速度の比較を行った。最小二乗法を用いて硬化速度を算出した。硬化速度を速度定数として図 4 のアレニウスプロットを作成した。硬化の見かけの活性化エネルギーは 400-335 $^{\circ}$ C で 69.6kJ/mol、335-310 $^{\circ}$ C で 84.8kJ/mol と温度依存性が小さく、400-310 $^{\circ}$ C で同一の活性化エネルギーを持つと仮定した。最小二乗近似を用いて 3 点を平均し活性化エネルギーを約 80.9kJ/mol と算出し、この値を用いて 288 $^{\circ}$ C への硬化速度の外挿を行った。その結果、288 $^{\circ}$ C における硬化速度を 0.0120HV/h (105HV/y) と予測した (表 1)。また、図 3 より、310 $^{\circ}$ C 時効での飽和硬さは HV320~330 程度であるのに対し、400 $^{\circ}$ C 時効による最大硬さは約 HV420 と大きな相違がみられ、最大硬さの時効温度依存性を示唆する結果である。従来、 casting 2 相ス

テンレス鋼における時効脆化の活性化エネルギーは、400-300 $^{\circ}$ C において低い温度ほど大きい値をとる (325-300 $^{\circ}$ C で約 250kJ/mol) 傾向が報告されている。活性化エネルギーの値およびその温度依存性が本研究で求めた活性化エネルギーと大きく異なっており、正しい解釈を行うべく今後検討を進める。また、低温時効に伴う溶接部の靱性低下の評価がプラント健全性担保の観点から今後の課題と考えられた。

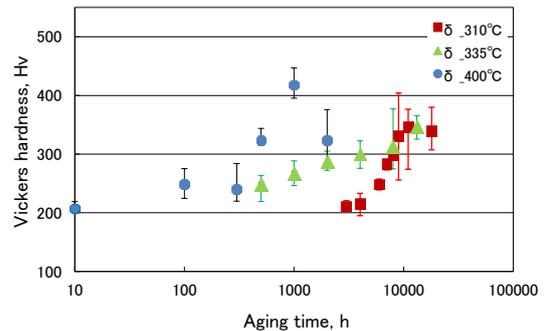


図 3 硬度測定による時効硬化挙動の評価

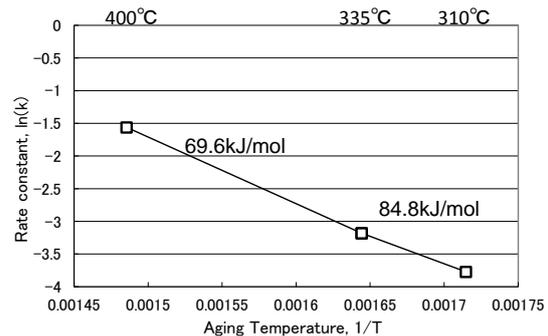


図 4 活性化エネルギー算出結果

表 1 各温度における時効硬化速度

温度	硬化速度(HV/h)
288 $^{\circ}$ C	0.0120 (105HV/y)
310 $^{\circ}$ C	0.02988
335 $^{\circ}$ C	0.04148
400 $^{\circ}$ C	0.2298

(2) δ 相分布密度ならびに低温時効の有無を変数とした SCC き裂進展速度評価

試験後の試験片を断面方向から観察すると、き裂は全て母材から発生し、溶接金属からのき裂の発生は認められなかった。これまでと同様に、溶接金属内ではき裂の経路上に多数の島状 δ 相が確認された。

確認されたき裂全てについての、溶融境界を基準としたき裂先端位置のヒストグラムを図5に示す。その中でき裂先端が母材の γ/γ 界面(粒界)上にあるもの、溶接金属の δ/γ 界面上にあるもの、溶接金属の γ/γ 界面上にあるもの、の3種類に分類した。き裂先端の多くは溶融境界から50~200 μm 離れた母材に位置していた。これは、試験片板厚、試験片表面から溶融境界までの距離の分布および試験時間の結果として、試験終了時に母材内のこの位置にあったき裂が多かったものである。注目すべきは、溶融境界を越えて100 μm 以上進展しているき裂が極端に少なくなっていることである。すなわち、溶融境界から100 μm までの範囲の溶接金属においてき裂が停留あるいは進展遅延している事を示している。

溶接金属内に進展したき裂の大部分は先端が δ/γ 界面に位置していた。一方、き裂進展経路においては、 δ 相の形態が島状であったことから、き裂経路長さに占める δ/γ 界面長さは γ/γ 界面長さに比べ十分に小さかった。先端が溶融境界上、あるいは溶接金属内に位置していたき裂計60本について、き裂先端位置とき裂経路を δ/γ 界面と γ/γ 界面に分けて、その統計をまとめた。全き裂先端のおよそ78.3%が δ/γ 界面に位置しており、全き裂経路長さのおよそ86.6%が γ/γ 界面であった。これらの比をとり、き裂進展速度の相対値とすると、 δ/γ 界面では γ/γ 界面に比べき裂進展速度が0.043倍との結果を得た。今回行った高温水中CBB試験では、BWR実機炉水環境に比べて、特に水質の観点からSCC発生・進展を加速させる条件を採用したため、得られた遅延効果の値そのものについては参考程度と考えるべきであろうが、少なくとも δ 相が溶融境界近傍においてき裂進展遅延をもたらす微視組織要因であることが明らかになった。

335 $^{\circ}\text{C}$ で13200時間時効処理を施した材料においても、HAZから発生したき裂は溶接金属に向け進展し、その先端の大部分は δ 相に達したところに位置していた。その例を図6に示す。き裂が δ 相を迂回しながら進展していることがわかる。この特徴は未時効材で確認されたものと同じであったため、本研究で実施した試験条件範囲内においては、低温時効に伴い硬化した δ 相の高温水中における耐食性の顕著な低下は認められず、 δ 相はき裂停留(あるいは進展遅延)に寄与する材料側因子であることが示唆された。

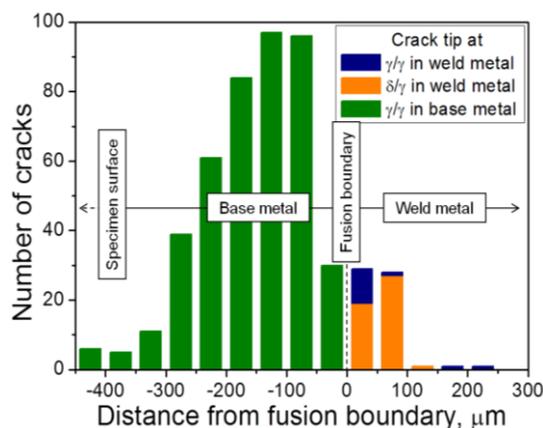


図5 き裂先端位置のヒストグラム

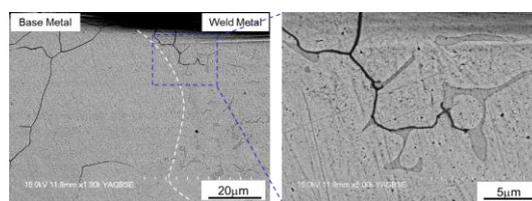


図6 335 $^{\circ}\text{C}$ ・13200h時効材における用湯境界近傍SCC進展挙動

(3) 溶融境界近傍におけるSCC停留モデルの構築

上述したとおり、335 $^{\circ}\text{C}$ で13200時間時効処理を施した材料においても、HAZから発生したき裂は溶接金属に向け進展し、その先端の大部分は δ 相に位置していた。

このことから、BWR炉水温度域においても δ 相はスピノーダル分解を起こすが、現実的なプラントの使用期間内においては、それが高温水中SCCを加速させる可能性は極めて低いと考えられた。よって高経年化プラントの健全性評価の観点からは、溶融境界近傍におけるき裂進展遅延を期待することができ、さらに溶接金属内においても従来のSCC評価線図を用いてき裂進展が予測可能であると考えられる。

これまでに得られた知見を総合して、母材のCr当量/Ni当量比から予想される溶融境界近傍における δ 相形態・分布ならびにき裂進展速度についてまとめたものを図7に示す。溶融境界近傍(partially melt zone + unmixed zone)の組織は母材の化学組成に依存し、Cr当量/Ni当量比が増大するに従いフェライト密度が上昇する傾向にある。partially melt zoneでは、フェライト密度が上昇してもネットワーク状の δ 相が形成される傾向は小さく、特に粒界三重点を優先的な

サイトとして島状に分布するため、Cr 当量 / Ni 当量比の増大と共にき裂進展速度は単調に低下するものと予想される。一方 unmixed zone では、同様にフェライト密度の上昇とともにき裂進展速度が低下傾向を示すものの、 δ 相がネットワークを形成すると、再び進展速度が上昇すると考えられた。しかし、Cr 当量 / Ni 当量比が増大するに従い unmixed zone で δ 相が晶出し易くなり、さらに増大した結果 δ 相がネットワークを形成したとしても、溶着金属内のそれと比較すると断続的であり、進展遅延効果は依然として期待できると判断された。

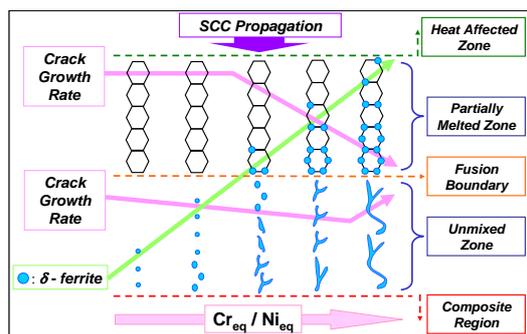


図7 溶融境界近傍における SCC 進展遅延モデル

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2件)

- ① H. Abe, Y. Watanabe, Role of δ -ferrite in stress corrosion cracking retardation near fusion boundary of 316NG welds, *Journal of Nuclear Materials*, 424, pp.57-61, 2012 (査読あり) 掲載論文の DOI : 10.1016/j.jnucmat.2012.02.006
- ② H. Abe, Y. Watanabe, T. Miyazaki, Effects of solidification mode and low-temperature aging on SCC behavior of type 316L SS welds in high-temperature water, *Proceedings of 19th International Conference on Nuclear Engineering*, CD-ROM, 2011 (査読あり)

[学会発表] (計6件)

- ① 阿部 博志、渡辺 豊、寺尾 俊彦、316系低炭素ステンレス鋼溶接金属の BWR 炉水温度域における熱時効脆化の評価、日本保全学会第9回学術講演会、2012年7月26日、東京
- ② 寺尾 俊彦、阿部 博志、渡辺 豊、オーステナイト系低炭素ステンレス鋼溶接金属

の BWR 温度域における熱時効脆化の評価、日本機械学会 第17回動力・エネルギー技術シンポジウム、2012年6月21日、福岡市

- ③ 寺尾 俊彦、阿部 博志、渡辺 豊、316系低炭素ステンレス鋼溶接金属の低温時効硬化現象に関する研究、原子力学会東北支部 第35回研究発表会、2011年12月9日、仙台市
- ④ 寺尾 俊彦、阿部 博志、渡辺 豊、宮崎 孝道、316系低炭素ステンレス鋼溶接金属の低温時効硬化現象に関する研究、第7回量子エネルギー工学フォーラム、2011年8月23日、青森県六ヶ所村
- ⑤ 寺尾 俊彦、渡辺 豊、阿部 博志、SUS316L 溶接金属中 δ -フェライトの 310°Cおよび 335°Cにおけるスピノーダル分解速度の評価、日本機械学会 東北学生会 第41回学生員卒業研究発表講演会、2011年3月3日、盛岡市
- ⑥ Y. Watanabe, H. Abe, Potential Importance of Microstructural Aspects for Better Understanding of SCC Behaviors in Stainless Steels, *International Seminar on Maintenance Science and Technology for Nuclear Power Plant*, November 3, 2010, Sendai, Japan

6. 研究組織

(1) 研究代表者

阿部 博志 (ABE HIROSHI)
東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号 : 30540695

(2) 研究分担者

()

研究者番号 :

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :