

学術論文

表層加工された低炭素ステンレス鋼溶接部における粒界すべり挙動 に及ぼす残留応力および加工硬化の影響

Effect of Residual Stress and Hardening on Grain Boundary Sliding in Welds
of Low-carbon Stainless Steels with Surface Machining

大阪大学	森 裕章	Hiroaki MORI	Member
日本原子力研究開発機構	勝山 仁哉	Jinya KATSUYAMA	Nonmember
大阪大学	望月 正人	Masahito MOCHIZUKI	Member
大阪大学	西本 和俊	Kazutoshi NISHIMOTO	Nonmember

To clarify the effects of residual stress and hardening on intergranular stress corrosion cracking (IGSCC) behavior in welds of low-carbon austenitic stainless steels with surface machining, residual stress and hardness were evaluated by 3-dimensional thermo elastic-plastic analysis and grain boundary sliding behavior was examined using a constant strain rate tensile test. It was revealed that grain boundary sliding occurred in the material at 561K by the tensile test with the numerically simulated tensile residual stress due to multi-pass welding and surface machining. In addition, it was clarified that the grain boundary energy is raised by the grain boundary sliding. On the basis of these results, it was concluded that the cause of IGSCC in the welds of low-carbon austenitic stainless steel with surface hardening is the increase in grain boundary energy due to grain boundary sliding induced by residual stress of multi pass welding and surface hardening.

Keywords: Intergranular stress corrosion cracking (IGSCC), Low-carbon austenitic stainless steel, Welds, Surface machining, Residual stress, Work hardening, Grain boundary sliding.

1. 緒言

低炭素ステンレス鋼 SUS316L 製の炉心シュラウドや再循環系配管において応力腐食割れ (SCC) に起因したき裂の発生が問題となっており^[1]、その発生機構の解明が急務となっている。この SCC の特徴として、鋭敏化に起因した耐食性の劣化を避けるために炭素含有量を大幅に低減したステンレス鋼が構造材として使用されているにもかかわらず生じていること、割れ発生部位は溶接部近傍であり、表層に溶接後の機械加工による強加工層が存在し、非常に高い残留応力と加工硬化が生じている領域であること等が挙げられる^[2]。また、同 SCC は、表層の強加工層からは粒内 SCC が

発生し、それに続いて粒界 SCC (IGSCC) へと伝播しているという特徴も有している^[3]。この IGSCC の発生機構に関しては、これまでも諸説が唱えられており、その一つに粒界すべりが生じることによって粒界に新生面が形成され、その部分から活性溶解が生じることに起因するとの説がある^[3]。そこで、本研究では同鋼の溶接部および機械加工層における SCC に及ぼす残留応力と加工硬化の影響の解明を目的とし、実構造物の代表例として配管突合せ継手を対象に、熱弾塑性解析による残留応力と硬化度の評価を行うとともに、材料内におけるマイクロ変形挙動の中でも粒界すべり現象に着目した材料学的解析を実施し、力学と材料学の両面から統合的検討を実施した。硬さと塑性ひずみの関係について実験と理論の両面から解明するとともに、実機の配管内表面の切削加工を模擬した試験体の硬さ分布を熱弾塑性解析により評価し、これらの結果を基に同鋼溶接部の表面強加工層近傍における残留応力分布について検討を行った。さらに、その結果に基づき、

◆連絡先：森 裕章

大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産
科学専攻
吹田市山田丘 2 - 1
E-mail: mori@mapse.eng.osaka-u.ac.jp

Table 1 Chemical compositions of material used (mass%).

Element	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	N	Co	Mo	Fe
SUS316L	0.014	0.47	1.39	0.014	0.001	11.31	17.58	0.102	0.14	2.09	Bal.

IGSCC に対する表面強加工層の影響として、粒界すべり挙動に直目し、それに及ぼす残留応力と加工硬化の影響について検討するとともに、IGSCC に及ぼす粒界すべりの影響について粒界エネルギーの観点から考察を試みた。

2. 供試材料および実験方法

本研究で使用した低炭素ステンレス鋼 SUS316L の化学組成を Table 1 に示す。加工硬化を再現する方法として圧下率を 20~60% に変量させた冷間圧延を採用した。粒界すべり挙動を把握するために、圧延材と未処理材 (受入材) を原子炉の運転温度である 561K で、ひずみ速度 $1.25 \times 10^{-4}/s$ にて定ひずみ速度引張試験を行った。板厚 1mm、全長 45mm、幅 8.5mm、平行部の長さおよび幅がそれぞれ 20mm、3mm の引張試験片表面に引張方向と垂直にエメリー紙 #1500 で研磨痕を付けておき、引張試験後に試験片表面を観察して粒界上における研磨痕のずれ量を測定し、粒界すべり量とした。

粒界エネルギー (γ_{gb}) は、表面エネルギー (γ_s) と粒界に形成された溝の二面角 (θ) より次式で求められることが知られている^[4]。

$$\gamma_{gb} = 2\gamma_s \cos(\theta/2) \quad (1)$$

そこで、本研究では 10% 蔘酸水溶液を用いた定電位電解の後、粒界に形成された腐食溝の二面角 (θ) を測定し、前述の式を用いて粒界エネルギーを算出した。表面エネルギーについては、Murr^[4]により報告されている SUS304 を対象とした実験式を用いて計算した 561K における表面エネルギー 3.55 (J/m²) を採用した。

3. 実験結果および考察

3.1 表層加工された溶接部における残留応力の推定

種々の塑性ひずみを与えた引張試験片の硬さを測定した結果を Fig.1 に示す。この結果と塑性ひずみの熱弾塑性解析結果より、塑性歪と硬さの関係は式(2)のように求められた。

$$HV = 399.8 - 230.6 / \left(1 + \exp \left\{ \log(\epsilon_p) + 0.46 \right\} / 0.21 \right) \quad (2)$$

ここで、HV は硬さ、 ϵ_p は塑性ひずみを表す。

SUS316L 製配管に表面強加工を施した際の硬さ分布の測定結果を Fig.2 に示す。表面より約 20 μm の範囲内では HV300 程度まで硬さが増加している。切削加工を模擬した熱弾塑性解析^[5,6]と(2)式より実際の硬さ分布を再現した結果と同解析で求められる溶接ならびに表面強加工による残留応力分布を Fig.2 に併せて示す。この図より、表面近傍 20 μm の範囲内では約 500MPa 以上の引張残留応力が生じるものと推測される。

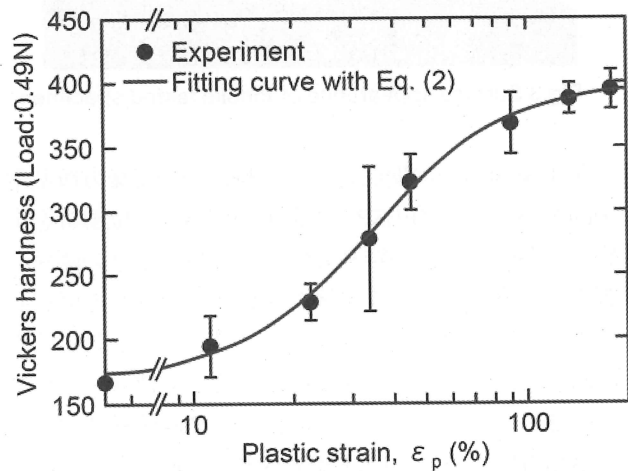


Fig.1 Relationship between plastic strain and hardness.

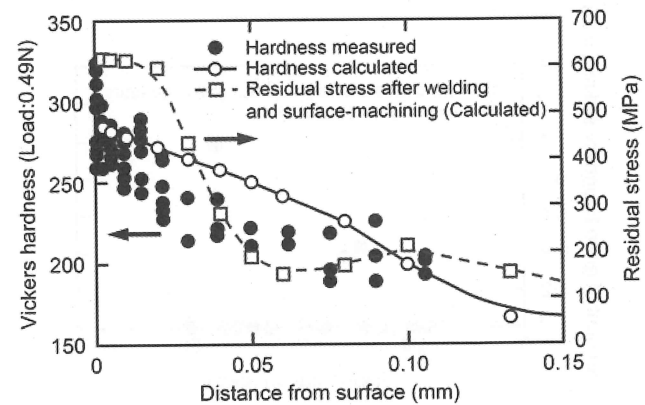


Fig.2 Relationship between distance from surface and residual stress and hardness.

3.2 粒界すべり挙動に及ぼす加工ひずみと応力の影響

種々の圧下率で圧延した材料と受入材に対して、温度を 561K とし、前述の残留応力に相当する 500MPa 以上の応力まで定ひずみ速度引張試験を行った結果、いずれの材料においても各々ある付加ひずみ量以上にまで引っ張ると、Fig.3 に示すように粒界上において研磨痕のずれが観察され、粒界すべりが発生している様子が確認された。

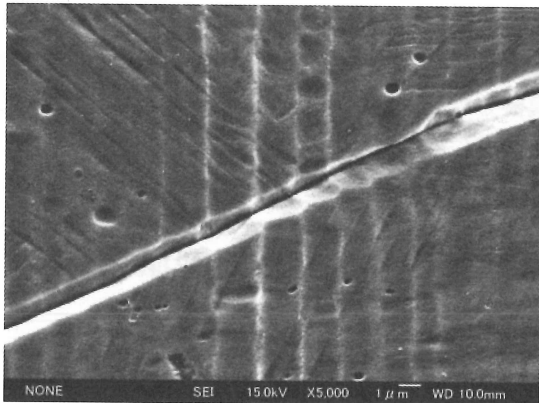


Fig.3 Surface appearance of tensile tested specimen.

圧下率 30%で冷間圧延した材料について後方散乱電子回折パターン (EBSP) 法を用いて結晶方位解析を実施し、各結晶粒間の結晶方位差と粒界すべりの関係を調査した結果を、対応粒界かランダム粒界かを区別して整理したものを Fig.4 に示す。この図より、対応粒界においてはランダム粒界に比べて著しく粒界すべり量が小さいことがわかる。また、ランダム粒界においては結晶方位差が大きいほど粒界すべり量が大きいものが認められ、粒界すべりが生じ易くなっていると考えられる。

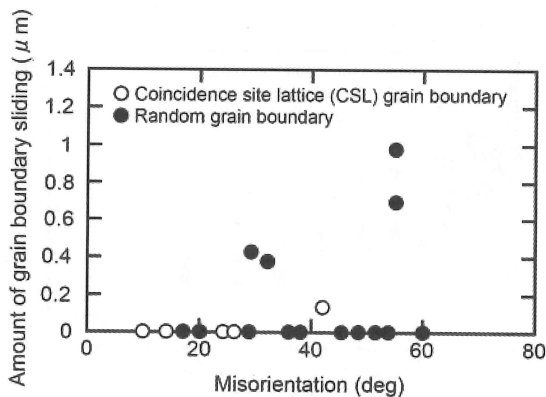


Fig.4 Relationship between misorientation at grain boundaries and amount of grain boundary sliding.

粒界すべり量の測定結果を引張方向と粒界のなす角で整理した結果を Fig.5 に示す。若干のばらつきはあるものの、粒界すべり量はほぼ 45° をピークに正規分布しているといえる。したがって、表層からの観察結果であり、板厚方向に対して粒界がどのように存在するかは不明であるものの、統計的に処理した結果より、粒界に作用する剪断応力が最大となる場合にすべり量が最大になるといえる。

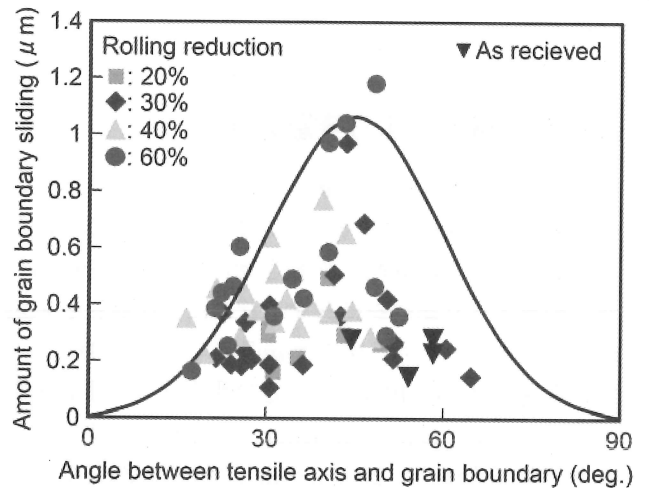


Fig.5 Relationship between angles between tensile direction and grain boundary and amount of grain boundary sliding.

粒界すべり挙動に及ぼす加工硬化の影響を定量的に把握するために、受入材と各圧下率で冷間加工された材料に対して定ひずみ速度引張試験を行った後の粒界すべり量の測定結果を付加ひずみ量との関係で整理して Fig.6 に示す。この図より、受入材では付加ひずみが約 0.08 以上において粒界すべりが生じているのに対して、圧下率が 20%の材料では約 0.025 以上の付加ひず

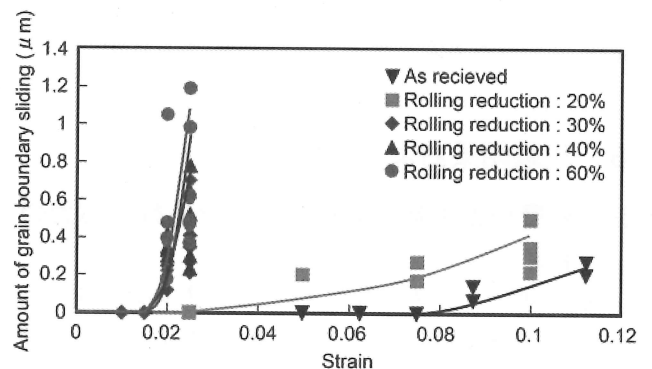


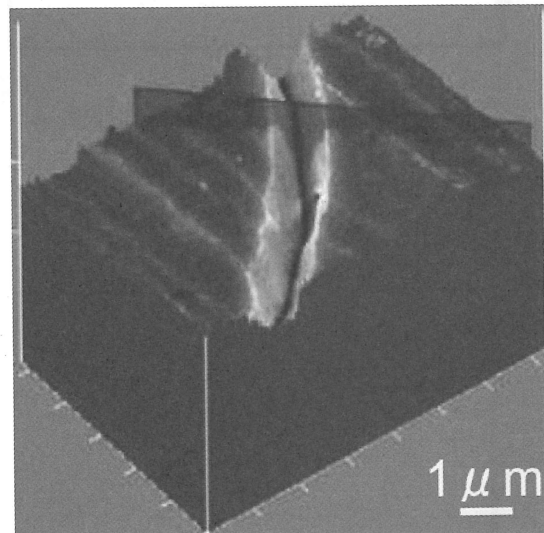
Fig.6 Relationship between strain and amount of grain boundary sliding.

み条件で、圧下率が 30%以上のものに至っては約 0.015 以上の付加ひずみでそれぞれ粒界すべりが生じていることがわかる。また、受入材では付加ひずみ量を 0.1 とした場合であっても、粒界すべり量は $0.2\ \mu\text{m}$ 程度であるのに対して、圧下率が 30%を超える圧延材では付加ひずみが 0.02 の条件でほぼそれと同等の粒界すべり量となり、さらに付加ひずみを 0.005 増加させることにより、 $0.4\sim 1\ \mu\text{m}$ に至る粒界すべりが生じることがわかる。すなわち、圧延材では受入材に比べて粒界すべりがより低い付加ひずみ条件から発生するとともに、付加ひずみの増加による粒界すべり量の増加も著しく大きいことがわかる。また、この傾向は圧下率の増加、すなわち加工硬化が大きくなるとともにより顕著となることがわかる。以上の結果より、圧延材では粒内の変形抵抗が上昇し、外部よりひずみが付加された際の粒内における変形が抑制され、粒界に作用する応力が相対的に増大した結果、粒界すべりが助長されたものと推察される。このことから、低炭素ステンレス鋼 SUS316L 製の炉心シュラウドや再循環系配管においても、溶接とその後の表層の機械加工による残留応力と加工硬化の増大により、長期供用下において粒界すべりが生じることが考えられる。

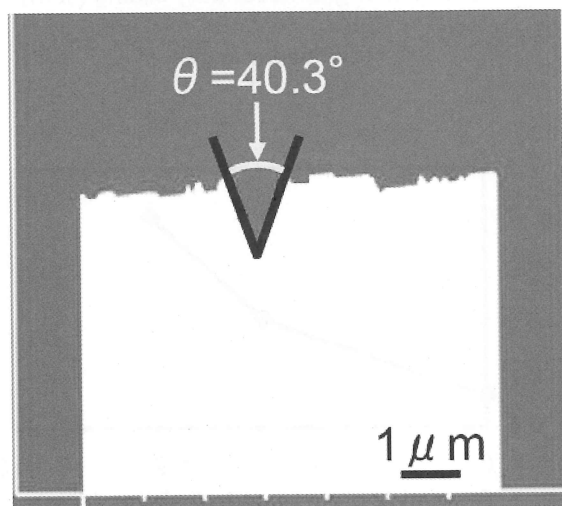
3.3 粒界エネルギーに及ぼす粒界すべりの影響

IGSCC に及ぼす粒界すべりの影響を明らかにするために、粒界すべりが生じた場合の粒界における変化について、粒界エネルギーの観点から考察することを試みた。圧下率 30%の圧延材の引張試験を施す前の試料と付加ひずみ条件を 0.02 および 0.025 とし引張試験を行った試料に対して定電位電解を行った後、粒界近傍を FE-SEM により観察し、角度を変えて撮影した画像から三次元立体画像を構築した。さらに、その立体画像から粒界に垂直な断面での切断面の画像から粒界に形成された溝の二面角を測定した。引張試験前の試料の観察結果を Fig.7 に示す。粒界に腐食溝が形成されている様子がみられ、粒界に対して垂直な断面の画像より、粒界すべりが生じていない試料では二面角が約 40° となっていることがわかる。腐食溝の深さと二面角を測定し、その結果と表面エネルギーより粒界エネルギーを算定した。Fig.8 に示すように粒界すべり量の増加とともに溝深さは増加し、二面角は減少し、粒界エネルギーは増大することがわかる。以上の結果より、粒界すべりに起因した粒界エネルギーの上昇が粒界に

おける選択的な腐食を助長しているものと推察される。このことから、実機炉心シュラウドや循環系配管においても、溶接および表層強加工による残留応力の増大と加工硬化による粒界すべりの発生とそれに起因した粒界エネルギーの上昇によって腐食環境下での粒界からの活性溶解が助長され、IGSCC の発生に影響を及ぼしていることが考えられる。

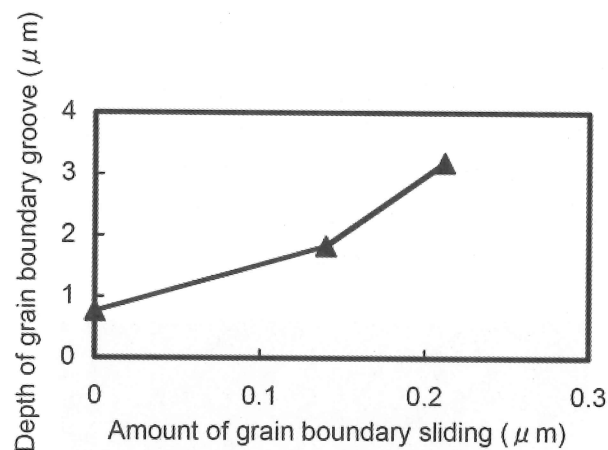


(a) 3-D image at grain boundary

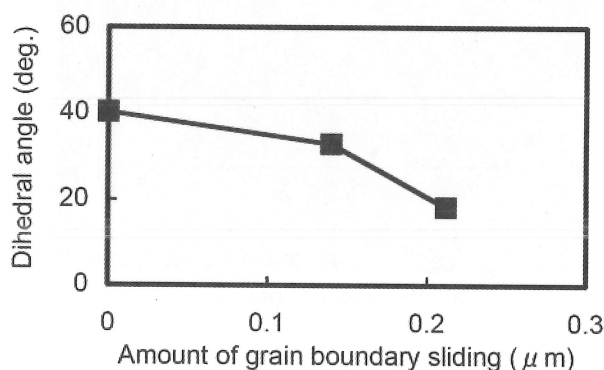


(b) Cross sectional view of groove at grain boundary

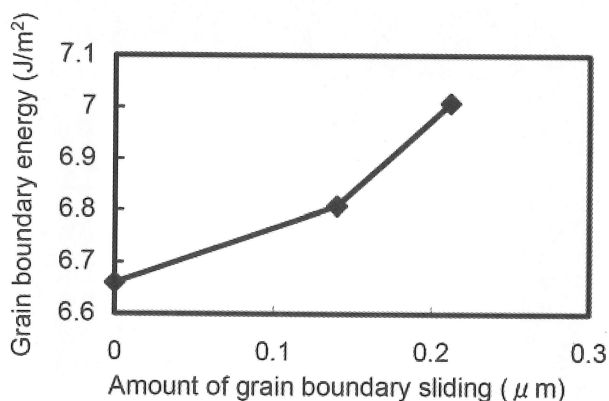
Fig.7 3-D reconstructed image from SE images of surface of SUS316L etched and cross sectional view of groove formed at grain boundary.



(a) Depth of groove.



(b) Dihedral angle.



(c) Grain boundary energy.

Fig.8 Relationship between amount of grain boundary sliding and depth of groove at grain boundary, dihedral angle of groove and grain boundary energy.

4. 結言

BWR の炉心シュラウドおよび再循環系配管の構造材料として使用されている低炭素ステンレス鋼 SUS316L の溶接部近傍の表層強加工部において問題となっている SCC の発生について、本研究ではとくにその中でも IGSCC に着目し、その発生機構を解明すべく、同部位における溶接と機械加工による残留応力と加工硬化を見積もるとともに、その結果を用いて粒界すべり挙動に及ぼす残留応力と加工硬化の影響について検討した。さらに、IGSCC に及ぼす粒界すべりの影響について粒界エネルギーの観点から考察を試みた。以下に、本研究で得られた結果を要約する。

- 1) 実験と熱弾塑性解析による数値計算を組み合わせ新たに開発した評価手法を用いて、溶接および表面強加工による残留応力に関する詳細な解析を実施した結果、溶接後に切削加工を施すことにより加工硬化層において引張残留応力が生じることが明らかになり、またその大きさは 500 MPa 以上になることが推測された。
- 2) 低炭素 SUS316 溶体化材と圧延材に対して 561K で、ひずみ速度 $1.25 \times 10^{-4}/s$ にて定ひずみ速度引張試験を行った結果、圧下率 30% 以上では溶体化材よりも小さい付加ひずみで粒界すべりが生じた。この結果から、冷間圧延によって粒内の変形抵抗が上昇し、外部よりひずみが付加された際の粒内における変形が抑制され、相対的な粒界への付加応力が増大した結果、粒界すべりが著しく助長されるものと推察された。
- 3) 粒界すべりが生じた試料と生じていない試料に対して定電位腐食を行った後、粒界溝の二面角を測定して粒界エネルギーを算定した結果、粒界すべりを生じた粒界では粒界エネルギーが増大していることが明らかとなった。この結果より、粒界すべりが生じたことにより同粒界における粒界エネルギーが増大し、腐食時に選択的に粒界腐食が生じたものと考えられ、この現象が粒界応力腐食割れに対して関与していることが推察された。

謝辞

本研究はBWR電力7社委託による(社)腐食防食協会の「高温純水における低炭素ステンレス鋼のSCCメカニズム研究」の一環として実施されたものである。また、粒界近傍の三次元立体画像の構築に対し、大阪大学接合科学研究所の黒田敏雄教授と北川良彦助教にご指導、ご協力賜った。ここに謝意を表する。

参考文献

- [1] Y. Okamura, A. Sakashita, T. Fukuda, H. Yamashita and T. Futami, “The latest issues of Core Shroud and Recirculation Piping in Japanese BWRs”, Trans. of SMiRT 17, 2003.
- [2] S. Suzuki, K. Takamori, K. Kumagai, S. Ooki, T. Fukuda, H. Yamashita and T. Futami, “Evaluation of SCC Morphology on L-grade Stainless Steels in BWRs”, J. High Press. Inst. Jpn., Vol.42, No.4, 2004, pp.188-198.
- [3] 有岡孝司、山田卓陽、“PWR 一次系環境での SUS316 の IGSCC に及ぼす粒界すべりおよび粒界組成の影響”、材料と環境、2003C、2003、pp.307-310.
- [4] L. E. Murr, “Interfacial phenomena in metals and alloys”, Addison-Wesley Publishing Company, 1975.
- [5] 森裕章、勝山仁哉、望月正人、西本和俊、豊田政男、“表面強加工を受けた低炭素ステンレス鋼溶接部における残留応力と加工硬化の解析と粒界応力腐食割れ発生機構に関する研究”、材料と環境、56-12、2007、pp.568-575.
- [6] J. Katsuyama, M. Mochizuki and M. Toyoda, “Residual Stress and Hardness Distributions by Surface-Machining near The Circumferential Welding Zone”, PVP2006-ICPVT11-93490, Proceedings of PVP2006, 2006 ASME Pressure Vessels & Piping Division Conference, June 23-27, 2006 (Hyatt Regency Vancouver, Vancouver, BC, Canada).

(平成 19 年 2 月 7 日)