溶体化 316 系ステンレス鋼の IGSCC に対する統計解析

石山 宜寿^{1,*} 黛 正己¹ 大中健太郎² 谷 純一³

¹東京工業大学大学院

²東京工業大学

³電力中央研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 70, No. 2 (2006), pp. 150-153

© 2006 The Japan Institute of Metals

Probabilistic Analysis of IGSCC in High Temperature Water for Solution Annealed Type 316L and Type 316 Stainless Steels

Nobuhisa Ishiyama^{1,*}, Masami Mayuzumi¹, Kentarou Oonaka² and Jun-ichi Tani³

¹Graduate School, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8552

²Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8552

³Central Research Institute of Electric Power Industry, Yokosuka 240-0196

Recently, stress corrosion cracking (SCC) was observed in lots of Japanese BWR plant components made of L grade stainless steel (SS) with very low carbon content. SCC essentially has a probabilistic nature, thus the probabilistic analysis is necessary to better understand SCC behavior and establish countermeasures. However, no experimental study was made for these SCC observed on non-sensitized SS from such a probabilistic aspect.

SCC test was conducted by the creviced bent beam (CBB) method in high temperature water containing 8 ppm dissolved oxygen. The test specimen was used in as-received and 10% cold rolled conditions. To examine the probabilistic aspect of SCC, 10 specimens were used for each test condition. The test duration were set to 500 h and 1000 h. After the test, the specimen surface and the fracture surface were observed by scanning electron microscopy to count the number of cracks and measure the crack length and depth.

From the results, it was found that the distribution of SCC crack lengths conformed to the log-normal distribution for type 316L and type 316SS irrespective of the pre-treatment and material conditions. On the other hand, the distribution of SCC crack depths conformed to both the normal and log-normal distribution.

(Received October 26, 2005; Accepted January 12, 2006)

Keywords: stress corrosion cracking, probabilistic analysis, log-normal distribution, boiling water reactor, work hardening

1. 緒 言

1960年代半ば、沸騰水型原子力発電所(Boiling Water Reactor: BWR)の SUS304 製再循環系配管において応力腐食割れ(Stress Corrosion Cracking: SCC)が確認された^{1,2)}。当時の SCC は、クロム欠乏に起因する溶接熱鋭敏化³⁾が生じ、さらに溶接残留応力が作用している溶接熱影響部に発生したため、この2つの因子が SCC 発生の原因であると結論された。よって鋭敏化と SCC 感受性の関係⁴⁾や残留応力を低減する方法など様々な対策が研究されてきた。その中で炭素含有量を低減することにより鋭敏化を抑制する低炭素ステンレス鋼 SUS316L が開発された。同時に SCC は確率的要素を含んでいるため、確率論的アプローチを導入した研究も行われてきた⁵⁾。このような研究成果からこの種の SCC は問題とならなくなった。

しかし、2001年以降 BWR において SUS316L 製炉心シ

ェラウドおよび SUS316LC 製再循環系配管において SCC が発生した^{6,7)}。この SCC の特徴は、機械加工による表面硬化層において粒内型応力腐食割れ(Transgranular SCC: TGSCC)が発生し、その後粒界型応力腐食割れ(Intergranular SCC: IGSCC)が進展していること^{6,7)}、および鋭敏化が生じていないにもかかわらず IGSCC が発生している点である^{6,7)}。この SCC の発生に関する研究例^{8,9)}は稀であり、溶体化ステンレス鋼に発生した SCC に対する統計解析はまだ行われていない。そこで、本論文では大きな繰り返し数の CBB(Creviced Bent Beam)試験を行い、発生した SCC のき裂長さおよびき裂深さを統計解析し、その基本分布を推定した結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材には Table 1 に示す SUS316L-A, SUS316L-B, SUS316-C, SUS316-D の4種類のステンレス鋼を用いた。き裂長さおよびき裂深さを統計解析するために、後述する数

* 東京工業大学大学院生(Graduate Student, Tokyo Institute of Technology)

Table 1 Chemical composition of test material (mass%).

Material	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Fe
316L-A	0.017	0.70	0.79	0.03	0.001	12.07	17.09	2.07	Bal
316L-B	0.017	0.48	0.86	0.031	0.001	12.18	17.49	2.12	Bal
316-C	0.061	0.64	1.01	0.033	0.001	10.48	16.86	2.08	Bal
316-D	0.049	0.60	1.00	0.03	0.001	10.33	16.85	2.12	Bal

Table 2 Pre-treatment condition of specimen.

Test time (h)	Material	Cold rolling ratio	Surface treatment
500	SUS316L-A	10%	Polished (#100)
	SUS316-C	10%	Polished (#100)
	SUS316L-A	10%	Ground
		10%	Polished (#100)
1000	SUS316L-B	10%	Polished (#600)
	SUS316-C	10%	Ground
		10%	Polished (#100)
	SUS316-D	As-received	Ground
		10%	Polished (#600)

種類の前処理を各試験片に施した。

2.2 高温高圧水中での SCC 実験

SCC 試験環境は温度 288℃、圧力 10 MPa、溶存酸素濃度 8 ppm、電気伝導度 0.1 $\mu\text{S}/\text{cm}$ の高温高圧水中であり、沸騰水型軽水炉の冷却水を模擬した環境となっている。

まず供試材に Table 2 に示す圧延、表面処理を施した。1 つの条件は受け入れのままグライNDER加工のみを施し、それ以外の条件では圧延率が 10% となるようにそれぞれ冷間圧延を行った。その後、供試材 $W50\text{ mm} \times L10\text{ mm} \times T2\text{ mm}$ の大きさに切り出し、試験表面にグライNDER加工 (#60)、#100 研磨あるいは #600 研磨のいずれかの処理を施した。試験面は $50\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ であり加工痕平行方向と試験片の長手方向が一致している。SUS316L-A、SUS316-C に対しては各条件 10 本ずつ試験片を用意し試験に供した。

実験は定ひずみ試験の 1 つである CBB (Crevice Bend Beam) 試験法を用いて行った。これは、曲げ治具を用いて試験片に一定のひずみおよび隙間を与えた状態で試験環境中に保持するという方法である。隙間付与のため試験片の上にはテフロンシートとグラファイトファイバーワールを置いた。なお試験期間は 500 時間あるいは 1000 時間である。

試験終了後はき裂を開口させるためにさらに曲げ、SEM によって試験面を観察し、割れの有無の確認、およびき裂長さ、き裂深さの測定を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 高温高圧水中における SCC 実験結果

Table 3 に SUS316-C の 500 時間の実験結果を示す。SUS316L-A については 500 時間では SCC は発生しなかった。この表から 10 本の試験片中 4 本の試験片に SCC が発生したことがわかる。このことから同条件の試験片において

Table 3 SCC test result on SUS316-C stainless steel in high temperature water (Test duration : 500 h).

Number of specimen	Number of SCC	Average crack length (μm)	Maximum crack length (μm)
1	0		
2	0		
3	0		
4	41	94	289
5	3	235	309
6	22	115	399
7	1	435	435
8	0		
9	0		
10	0		

Table 4 SCC test result on SUS316L and SUS316 stainless steel in high temperature water (Test duration : 1000 h).

Material	Cold rolling ratio	Surface treatment	Number of crack	Average length (μm)	Maximum length (μm)
SUS316L-A	10%	Ground	215	269	752
	10%	Polished (#100)	16	406	527
SUS316L-B	10%	Polished (#600)	163	163	408
	10%	Ground	92	312	844
SUS316-C	10%	Polished (#100)	162	375	901
	As-received	Ground	2082	238	880
SUS316-D	10%	Polished (#600)	91	228	971

Fig. 1 (a) Surface and (b) fracture surface of 10% cold rolled and ground SUS316-C after SCC test in high temperature water.

も SCC の有無に差があり、確率的要素を含んでいることが確認できる。また、SCC が発生している試験片においても測定された SCC の個数に大きな差があることが確認できる。

Table 4 に 1000 時間の SCC 実験結果を示す。発生したき裂の数、平均き裂長さ、最大き裂長さのデータを各条件でまとめたものである。また、Fig. 1 は 10% 圧延後グライNDER加工を施した試験片に発生した SCC の表面および破面の SEM 写真である。これらの写真からき裂長さとき裂深さを計測し、統計解析に使用した。

3.2 き裂長さの分布

Fig. 2 に 10% 圧延後グライNDER加工を施した SUS316L-A 試験片の 1 枚のデータをヒストグラムにしたも

Fig. 2 Histogram for SCC length obtained from a 10% cold rolled and ground SUS316L-A specimens.

のを示す。このヒストグラムの形状から、き裂長さの分布が対数正規分布であることが推測できる。Fig. 3 に実際に対数正規確率紙にこのデータをプロットした結果を示す。長さが 90~100 μm 以上のき裂のプロットは良い直線性を示し、対数正規分布に適合していることが確認できる。Fig. 3 の直線はデータの平均値と標準偏差を用いて推測し当てはめたものである。この直線から確率密度関数を求め表示すると Fig. 2 の曲線になり、ヒストグラムとよく一致していることがわかる。

Fig. 4 は 10% 圧延後グラインダー加工を施した SUS316L-A 試験片のデータと 10% 圧延後 #600 研磨を施した SUS316L-B 試験片のデータをそれぞれまとめて対数正規確率紙にプロットした結果である。どちらのデータも長さが 90~100 μm 以上のプロットについては確率紙上でほぼ直線状となり、対数正規分布に適合していることがわかる。

Fig. 5 は 10% 圧延後グラインダー加工を施した SUS316-C のデータを試験片ごとに対数正規確率紙にプロットしたものである。どの試験片のプロットも確率紙上でほぼ直線状になり、それぞれの試験片のき裂長さの分布は対数正規分布に適合することがわかる。

これらのことから、き裂長さの基本分布は材料や表面加工により変化せず、常に対数正規分布になることが明らかとなった。

Fig. 3 Log-normal probability plotting of SCC length obtained from a 10% cold rolled and ground SUS316L-A specimen.

Fig. 4 Log-normal probability plotting of SCC length obtained from 10% cold rolled and ground SUS316L-A, and 10% cold rolled and #600 polished SUS316L-B specimens.

Fig. 5 Log-normal probability plotting of SCC length obtained from 10% cold rolled and ground SUS316-C specimens.

3.3 き裂深さの分布

Fig. 6 に 10% 圧延後 #600 研磨を施した SUS316-C 試験片に発生した SCC のき裂深さに対するヒストグラムを示す。図中の実線と点線は後述する各確率紙に当てはめた直線から求めた確率密度関数である。実線は正規分布、点線は対数正規分布である。き裂深さに関しては従来の鋭敏化ステンレス鋼における統計解析の報告⁵⁾から正規分布に適合するとされているため、まず正規確率紙にこのデータをプロットした。Fig. 7 がその結果である。プロットは直線的に並び正規分布に適合していると考えられる。一方、ヒストグラムの形状からデータが対数正規分布に適合する可能性も考えられ、Fig. 8 に示すように対数正規確率紙にデータをプロットした。この場合もデータは良い直線性を示していることがわかる。同様の結果がグラインダー加工のみを施した SUS316-C についても得られている。これらのデータからではどちらの分布に適合するか判断できないため、 χ^2 乗検定による評価を行った¹⁰⁾。計算に使用する正規分布のパラメータ μ , σ および対数正規分布のパラメータ $\ln \delta$, ξ は以下の式 (1) ~ (4) を用いて求めた。

$$\mu = \sum_{i=1}^N x_i / N \quad (1)$$

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^N x_i^2 / N - \mu^2} \quad (2)$$

$$\ln \delta = \sum_{i=1}^N \ln x_i / N \quad (3)$$

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^N (\ln x_i)^2 / N - (\ln \delta)^2} \quad (4)$$

なお N はデータ数である。

まず Fig. 6 で使用したデータを 4 つのクラスに分け、それぞれの度数と $\mu = 187.23$, $\sigma = 67.65$ の正規分布から求めた期待度数と χ^2 の値を Table 5 に示す。同様に $\ln \delta = 5.164$, $\xi = 0.382$ の対数正規分布から求めた値を Table 6 に示す。正規分布での χ^2 は 2.28, 対数正規分布での χ^2 は 0.86 となり、自由度 1 の χ^2 分布表から有意水準 20% で対数正規分布に適合するという結果になった。

Fig. 6 Histogram for SCC depth obtained from 10% cold rolled and #600 polished SUS316-C specimens.

Fig. 7 Normal probability plotting of SCC depth obtained from 10% cold rolled and #600 polished SUS316-C specimens.

Fig. 8 Log-normal probability plotting of SCC depth obtained from 10% cold rolled and #600 polished SUS316-C specimens.

Table 5 Frequency distribution of SCC depth obtained from 10% cold rolled and #600 polished SUS316-C specimen (Normal distribution).

Crack depth	Ni	pi	N·pi	(Ni-N·pi) ² /Npi
<134	5	0.218	4.36	0.093
<165	5	0.153	3.06	1.24
<236	5	0.384	7.69	0.941
236<	5	0.241	4.82	0.0064
N=20				2.28

Table 6 Frequency distribution of SCC depth obtained from 10% cold rolled and #600 polished SUS316-C specimen (Log-normal distribution).

Crack depth	Ni	pi	N·pi	(Ni-N·pi) ² /Npi
<134	5	0.249	4.98	0.00011
<165	5	0.193	3.85	0.342
<236	5	0.337	6.73	0.446
236<	5	0.222	4.44	0.071
N=20				0.86

- (1) き裂長さの分布は対数正規分布に適合する。
- (2) 材料や表面加工によってき裂長さの分布は変化しない。
- (3) き裂深さの分布も χ^2 乗検定の結果、有意水準 20% で対数正規分布に適合する。

最後に本研究の実施にあたり、電力テクノシテムズ㈱の高橋和夫氏に多大な協力をいただきました。心より感謝を申し上げます。

文 献

- 1) M. Kowaka: *Kinzoku-no-Fusyokusonsyou-to-Bousyokugijyutsu*, (Agune-shouhu Sha, 2000) pp. 307-404.
- 2) H. Susukida: *Sonsyouboushigijyutsu wo Tyuushintoshita Keisuirokouzouzairyou*, (Ai-pi-si, 1988) pp. 95-101.
- 3) Japan Stainless Steel Association, *Handbook of Stainless Steels*, (Nikkann-kogyo Sinbun Sha, 2003) pp. 276-283.
- 4) M. Akashi and K. Hattori: *Bousyoku-Gijyutsu* **29**(1980) 163-169.
- 5) M. Akashi and T. Kawamoto: *Bousyoku-Gijyutsu* **32**(1983) 9-15.
- 6) S. Suzuki, K. Takamori, K. Kumagai, S. Ooki, T. Fukuda, H. Yamashita and T. Futami: *Atsuryoku-Gijyutsu* **42**(2004) 188-198.
- 7) Genshiryoku Anzen Hoanin, *Genshiryoku hatsudensetsubi-no-kenzenseihyoukatou ni kansuru syouiinkai(1st) haifushiryou*, 2002.
- 8) T. Kato, R. Ishibashi and T. Horiuchi: *Proceedings of JSCE Materials and Environments*, (Japan Society of Corrosion Engineering, 2005) pp. 55-58.
- 9) J. Kuniya, S. Kasahara, H. Anzai and H. Hujimori: *Proceedings of JSCE Materials and Environments*, (Japan Society of Corrosion Engineering, 2005) pp. 59-62.
- 10) *Japan Society of Corrosion Engineering, Life prediction of material component*, (Maruzen, 1984) pp. 172-174.

4. 結 言

種々の加工を施した 316 系ステンレス鋼に対し、高温高圧水中で CBB 試験を行い、発生した SCC のき裂長さおよびき裂深さを統計解析し、その基本分布を推定し、以下の結論を得た。