

316系オーステナイト鋼のクリープ疲労特性に及ぼす 金属組織の影響

藤田 展弘*・中澤 崇徳*・小松 肇*²・加口 仁*³・金子 英明*⁴・植田 浩義*⁵

Effect of Microstructure on Creep Fatigue Properties for Type 316 Austenitic Stainless Steels

Nobuhiro FUJITA, Takanori NAKAZAWA, Hazime KOMATSU, Hitoshi KAGUCHI, Hideaki KANEKO and Hiroyoshi UEDA

Synopsis : For the structural materials of Fast Breeder Reactor, the modified type 316 ; 316MN has been developed. In this steel, improvement of creep fatigue endurance was achieved by reducing carbon and adding nitrogen. In this study, with conventional SUS316 (0.05%C-0.03%N) and 316MN (0.01%C-0.07%N) produced by commercial product line, changes of creep fatigue properties at high temperature after aging, stress-aging and fatigue were investigated in consideration of microstructure change. Moreover, quantitative evaluation of damage by microstructure change during creep fatigue was tried with remaining ductility for SSRT (Slow Strain Rate Tensile Test). In result, it was certified that 316MN had excellent stability of microstructure at high temperature against aging, stress-aging and fatigue. Therefore, the creep fatigue properties of 316MN were little damaged by aging and stress-aging. Furthermore, after fatigue, the remaining ductility of 316MN was able to hold approximately three times as much as that of conventional SUS 316.

Key words : austenitic stainless steel ; creep fatigue ; nitrogen ; carbon ; fast breeder reactor.

1. 緒言

高速増殖炉の構造材料には、耐クリープ疲労性が要求される¹⁾。著者らは、耐クリープ疲労性に優れた316MN鋼(MN ; Medium Nitrogen)を開発してきた^{2~5)}。316MN鋼はC量を低下させてNを適量添加した改良型316鋼で、クリープ疲労中の粒界炭化物析出を抑制してNの固溶強化で寿命延長を図ったものである。

一般に、この種の高温構造用材料は数十年の長期にわたり、起動停止を伴う条件下で使用される。したがって、固溶化状態からの耐クリープ疲労性に加えて、高温長時間使用中の耐クリープ疲労性の変化の程度を把握することが、構造材の寿命推定等の観点から重要となる。

そこで、本研究では、従来型SUS316鋼と316MN鋼のクリープ疲労特性に及ぼす高温長時間使用の影響を金属組織変化と関連づけて調査した。両鋼に時効および応力時効をほどこし、その後のクリープ疲労特性と金属組織変化との関連性を検討した。さらに、高温低サイクル疲労およびクリープ疲労試験を中断した試料の低速度引張試験(Slow Strain Rate Tensile Test ; 以降SSRTとする)を行うこと

で、疲労サイクルにともなうSSRT破断延性量の変化を金属組織変化と関連づけて調査し、金属組織変化に起因したクリープ疲労損傷の定量的評価を試みた。

2. 試験方法

供試鋼の化学成分をTable 1に示す。供試鋼は、板厚47mmの従来型SUS316鋼(0.05mass%C-0.03mass%N, 以降SUS316鋼とする)および板厚25mmの改良型316鋼(0.01mass%C-0.07mass%Nとした316鋼で以降316MN鋼とする)の厚板材で、いずれも60t電気炉で溶製、厚板圧延を経て1050℃にて固溶化熱処理をほどこしたものである。

Fig. 1に試験のフローチャートを示す。クリープ疲労特性に及ぼす高温長時間使用の影響と組織変化との関連を調査するため、時効および応力時効の前処理をほどこし、クリープ疲労特性および組織変化を調査した。前処理は、600℃×1000h, 650℃×1000hの単純時効および600℃の10⁵hクリープ破断応力下(SUS316鋼 ; 201MPa, 316MN鋼 ; 235MPa)で1000hまでの応力時効とした。固溶化熱処理材(以降固溶化材とする)、時効材および応力時効材について、低サイク

平成7年12月18日受付 平成8年3月4日受理 (Received on Dec. 18, 1995 ; Accepted on Mar. 4, 1996)

- * 新日本製鐵(株)鉄鋼研究所 (Steel Research Laboratories, Nippon Steel Corp., 20-1 Shintomi Futtsu 293)
- * 2 (株)日鉄テクノリサーチ (Nippon Steel Techno Research Corp.)
- * 3 三菱重工業(株)神戸造船所 (Kobe Shipyard & Machinery Works, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.)
- * 4 三菱重工業(株)高砂研究所 (Takasago Research & Development Center, Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.)
- * 5 東京電力(株)原子力研究所 (Nuclear Power Research & Development Center, Tokyo Electric Power Co., Ltd.)

Table 1. Chemical composition of steels (mass%)

Steels	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	N
316MN	0.011	0.47	0.83	0.026	0.005	11.0	16.5	2.07	0.068
SU316	0.054	0.47	0.85	0.029	0.002	11.9	17.0	2.16	0.028

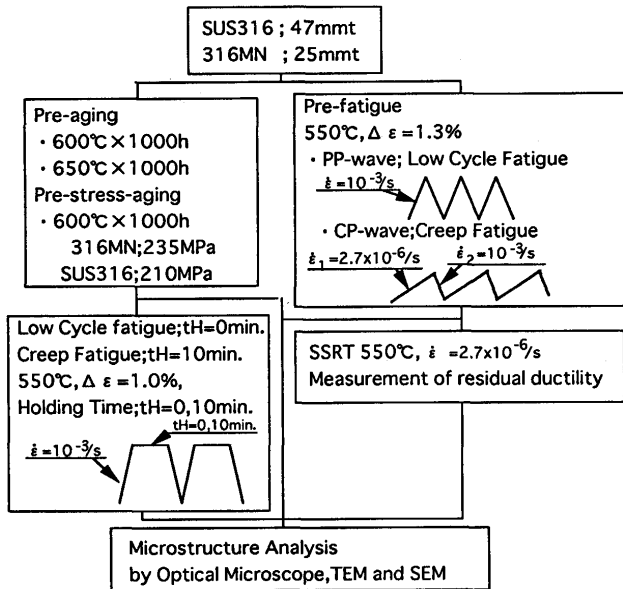


Fig. 1. Experimental Procedure.

ル疲労およびクリープ疲労試験を平行部径；8mmφ，標点間距離；16mmの試験片を用いて550°Cで行った。低サイクル疲労は，三角波形の歪制御で引張・圧縮とし，歪範囲；1.0%，歪速度； 10^{-3} S^{-1} で行った。クリープ疲労試験は，台形波形の歪制御で引張・圧縮とし，歪範囲；1.0%，歪速度； 10^{-3} S^{-1} ，引張時の保定時間を10min.で行った。各前処理後および各前処理材のクリープ疲労破断後の組織観察には光学顕微鏡および透過型電子顕微鏡を，破面観察および粒界破面率測定には走査型電子顕微鏡をそれぞれ用いた。析出物の同定は，抽出レプリカ試料を用い，電子線回折およびEDS(Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)により行った。なお，試料フレームにはCuメッシュを用いた。

また，低サイクル疲労およびクリープ疲労試験を各段階で中断して各疲労中断材を作成し，これらのSSRTの破断延性を比較した。各疲労は，歪制御の引張・圧縮とし，歪範囲；1.3%，550°Cで行い，試験片には平行部径；8mmφ，標点間距離；16mmのものを用いた。また，破断寿命：Nfの1/4，1/2，3/4で疲労試験を中断して疲労中断材を作成した。疲労波形は，三角波の低サイクル疲労(PP波；Plastic-Plastic，歪速度； 10^{-3} S^{-1})および引張側にクリープ成分を含んだ鋸歯状波(CP波；Creep-Plastic，引張り側の歪速度； $2.7 \times 10^{-6} \text{ S}^{-1}$ ，圧縮側の歪速度； 10^{-3} S^{-1})のクリープ疲労とした。SSRTは，疲労中断試験片を直接用い，引張速

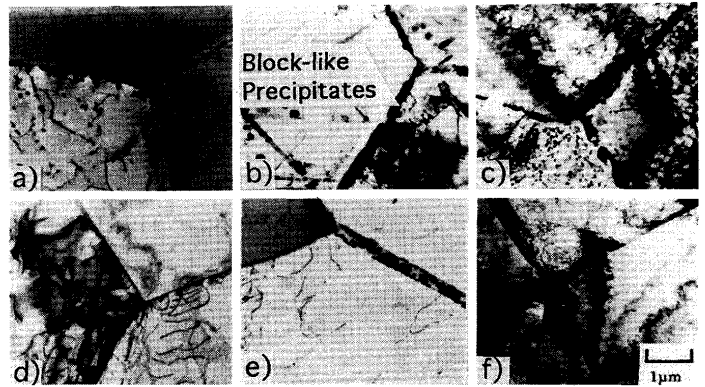


Fig. 2. Transmission electron microstructure of SUS316 and 316MN after pre-aging and pre-stress-aging.

- a) SUS316 600°C×1000h aging
 b) SUS316 650°C×1000h aging
 c) SUS316 600°C×1000h stress-aging
 d) 316MN 600°C×1000h aging
 e) 316MN 650°C×1000h aging
 f) 316MN 650°C×1000h stress-aging

度をCP波形の引張側の歪速度と同一($2.7 \times 10^{-6} \text{ S}^{-1}$)とし，550°Cで行った。

3. 試験結果および考察

3・1 時効および応力時効による金属組織変化

Fig. 2に各前処理材の薄膜の透過電顕組織を示す。SUS316鋼の各前処理材では，塊状析出物が粒界を覆うように析出し，粒内には粒状析出物が認められる。これら析出物のサイズおよび析出量は，時効温度が高くなると増加し，応力負荷によっても増加する。316MN鋼では，時効温度の高い650°Cで一部の粒界に粒状の析出物が認められる。これらの析出物の同定を，電子線回折およびEDSにより行った。Fig. 3にSUS316鋼の600°C×1000h時効材についての解析結果を示す。粒界を覆う塊状析出物は，大半が $M_{23}C_6$ 型の炭化物で，一部にG相(Ni, Cr, Si, Feからなる金属間化合物)も認められる。また，粒内の粒状析出物は $M_{23}C_6$ 型の炭化物であることも確認している。Fig. 4に316MN鋼の600°C×1000hおよび650°C×1000h時効材についての解析結果を示す。600°C×1000h時効材では，微細な粒子から構成されるフィルム状のLaves相； $(Fe, Cr)_2Mo$ が粒界に析出している。また，その構成粒子が微細なため，ディフラクションパターンはリング状になっている。時効温度が650°Cと高くなるとLaves相粒子が大きくなり，極一部にG相をともなう $M_{23}C_6$ 型の炭化物も認められるようになる。また，いずれの前処理材においても窒化物は認められず，Nはすべて固溶状態にある。

3・2 クリープ疲労特性に及ぼす前処理の影響

Fig. 5に各前処理材のクリープ疲労試験結果を示す。なお，SUS316鋼および316MN鋼の固溶化材の低サイクル疲労寿命

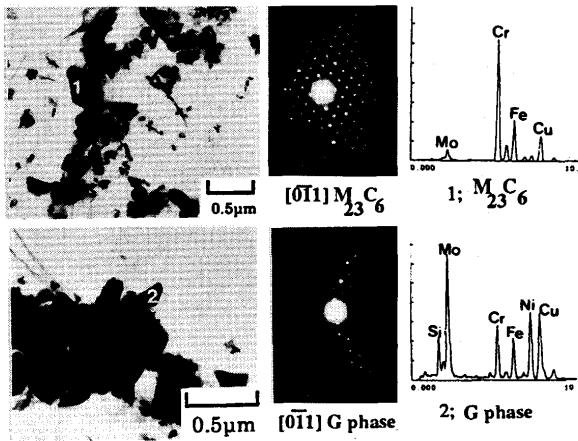


Fig. 3. Analysis of precipitations for 600°C×1000h aging specimen of SUS316.

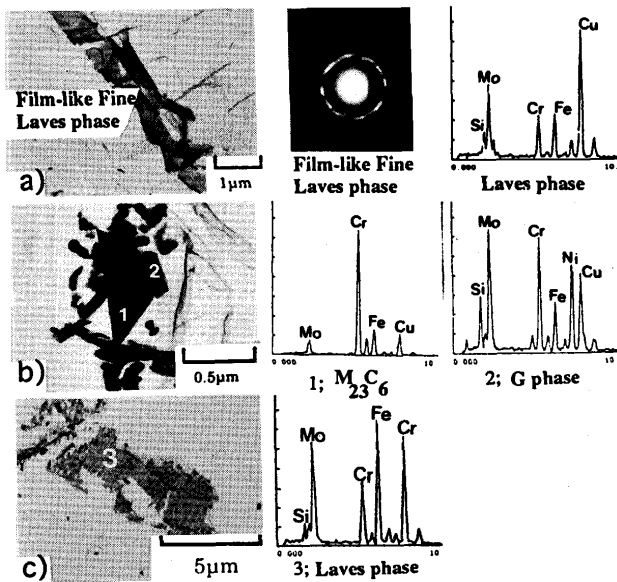


Fig. 4. Analysis of precipitations for 600°C×1000h-aging ; a) and 650°C×1000h-aging ; b), c) specimens of 316 MN.

にほとんど差はなく、その値はそれぞれ1800および1900サイクルであった。固溶化材のクリープ疲労寿命が短いSUS316鋼は、時効および応力時効により寿命は回復する。一方、316MN鋼は、固溶化状態からSUS316鋼に比べクリープ疲労寿命が長く、時効および応力時効後も寿命変化はほとんどない。

次に、クリープ疲労寿命に及ぼす前処理の影響について考察する。SUS316鋼において、最も寿命回復の著しい650°C×1000h時効材のクリープ疲労破断組織を固溶化材の場合と比較調査した。Fig. 6に、両鋼の各クリープ疲労破断材の顕微鏡組織を示す。SUS316鋼では、固溶化材の破面は粒界破壊が主であるが、650°C時効材では粒内破壊の部分が多くなり、破壊形態が時効により粒界破壊から粒内破壊へと変化して

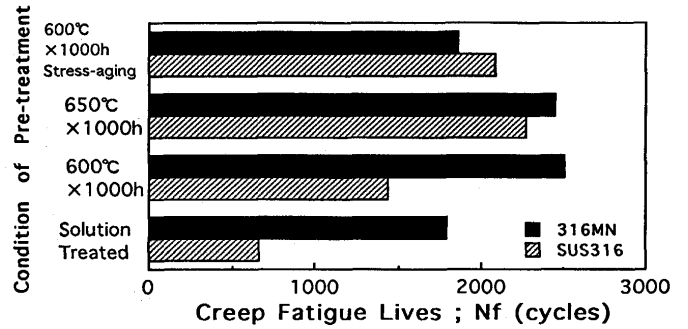


Fig. 5. Creep fatigue property of the specimens at 550°C.

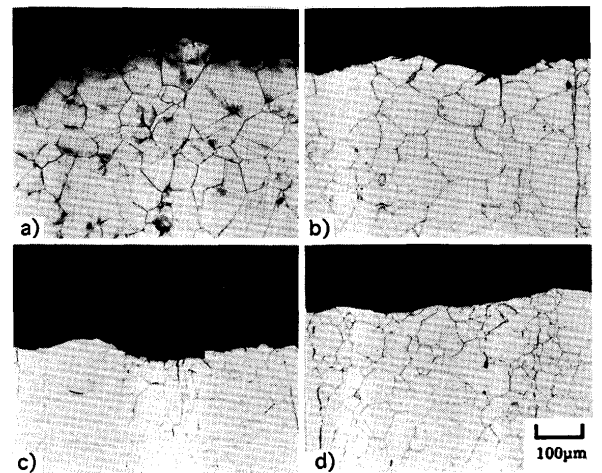


Fig. 6. Optical microstructure of creep fatigue ruptured specimens.

- a) SUS316 Solution treated
- b) SUS316 650°C×1000h
- c) 316MN Solution treated
- d) 316MN 650°C×1000h

いる。一方、316MN鋼では、固溶化材および650°C時効材ともに粒内破壊で、時効による破壊形態の変化は認められない。両鋼の各クリープ疲労破断材の薄膜の透過電顕組織をFig. 7に示す。SUS316鋼においては、固溶化材のクリープ疲労破断材では、粒界は炭化物で覆われている。650°C時効材のクリープ疲労破断材では、粒界炭化物は凝集粗大化し、粒界近傍ではサブグレイン化が進行している。さらに、析出物のないfreeな粒界で粒界移動が生じている。一方、316MN鋼では、固溶化材、650°C時効材共に同様の組織を呈し、時効による組織変化はほとんどない。

Fig. 8に各クリープ疲労破断材の粒界破面率と各試料の低サイクル疲労寿命に対するクリープ疲労寿命の寿命比との関係を従来の結果⁵⁾と併せて示す。寿命比が1以下の領域(クリープ疲労寿命が低サイクル疲労寿命に対して短くなる領域)で、粒界破面率が大きいことがわかる。この結果から、両鋼のクリープ疲労寿命に及ぼす前処理の影響について、次のように説明できる。SUS316鋼では、固溶化材はクリー

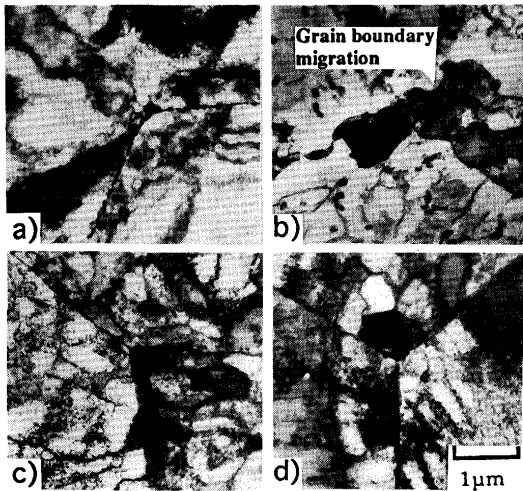


Fig. 7. Transmission electron microstructure of creep fatigue ruptured specimens.

- a) SUS316 Solution treated
 b) SUS316 650°C×1000h
 c) 316MN Solution treated
 d) 316MN 650°C×1000h

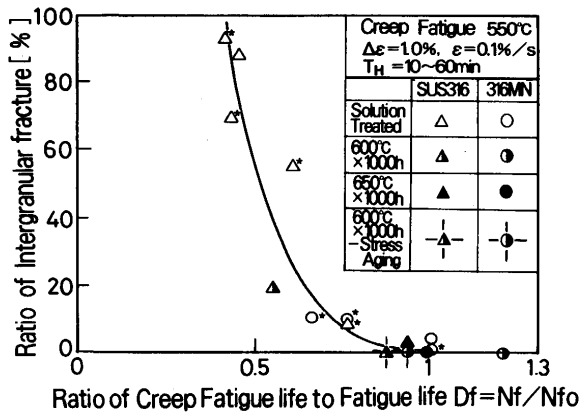


Fig. 8. Relationship between ratio of creep fatigue life to fatigue life; N_f/N_{f0} and ratio of intergranular fracture(*: prior research⁵⁾).

ブ疲労中に炭化物が粒界全体を覆うように析出することで粒界が脆化し、粒界割れが発生・伝播しやすい状態になり、短寿命となる。これに対し、時効材や応力時効材は、クリープ疲労試験前から粒界および粒内に炭化物が析出した状態にある。650°C時効材では炭化物のサイズも大きく、既に過時効状態にあると言える。また、炭化物の析出により固溶C量が低下するため粒内は軟化した状態にある。その後、クリープ疲労中に炭化物はさらに凝集粗大化して析出物の無い粒界が生じることに加えて、粒界近傍の回復が進行するため、粒界移動が可能になり、粒界脆化が解消したと推測できる。この粒界脆化の解消により、粒界割れの発生・伝播が抑制され、寿命回復したと考えられる。

一方、316MN鋼の主な析出相はLaves相である。Thierらは17Cr-3.5Ni-4.8Mo鋼において、Laves相の析出が炭化物

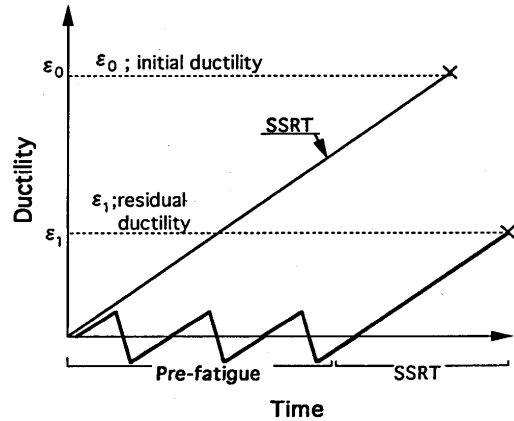


Fig. 9. Concept of the residual ductility.

に比べ遅いことを示している⁶⁾。各前処理材の組織観察結果からも、この温度域では、Laves相は炭化物に比べ析出開始時間および粗大化速度が遅いと推定できる。また、316MN鋼の650°C時効材では、微細なLaves相が比較的高い粒界被覆率で析出している (Fig. 4) にもかかわらず、寿命低下が認められない。このことは、粒界析出物がLaves相である場合、粒界脆化に及ぼす析出物と母相(γ)界面のぬれ性の影響が炭化物に比べて小さいことを示唆していると考えられる。以上から、この温度域でのLaves相の粒界脆化への寄与は極めて小さいと推定できる。さらに、いずれの試料においても窒化物が認められないことから、Nの固溶強化作用が高温長時間にわたり保持されている。このように、316MN鋼では高温長時間時効中に耐クリープ疲労性に影響を与えるような金属組織変化がほとんどないため、クリープ疲労寿命に及ぼす時効および応力時効の影響は極めて小さいと言える。

3・3 クリープ疲労中の残留延性量の変化

これまでの著者らの研究から、クリープ疲労寿命とSSRTの破断延性とは粒界破面率を介して相関があることが示されている⁷⁾。したがって、クリープ疲労中断材のSSRT破断延性量を評価することは、クリープ疲労中の金属組織変化に起因した損傷を定量化する上で重要であると考えられる。そこで、SUS316鋼および316MN鋼の低サイクル疲労およびクリープ疲労中断材を作成し、両鋼の疲労サイクルにともなう延性量変化を比較した。Fig. 9に概念図を示す。固溶化材のSSRTにおける破断延性： ϵ_{f0} が⁸⁾、材料の持つ延性量である。これが疲労により消費され、疲労中断材の延性量： ϵ_{f1} だけ残留したと考え、これを残留延性量とする⁷⁾。ここでは、SSRTの破断絞り値を残留延性量とした。疲労は550°Cにて行い、低サイクル疲労のPP波形(PP; Plastic-Plastic)および引張側の歪速度が遅い鋸歯状波のクリープ疲労のCP波形(CP; Creep-Plastic)とした。

固溶化材および各疲労中断材について、550°CのSSRTにおける0.2%耐力および引張強度と疲労中断回数との関係を

Fig.10に示す。ここで、SSRTの引張速度はCP波の引張側の歪速度と同一である。中断回数が寿命の1/4~1/2で0.2%耐力および引張強度は最高となり、加工硬化量が増加することがわかる。また、中断回数が寿命の3/4になると、表面クラックが明らかに認められ、これにより0.2%耐力および引張強度も減少する。Fig.11に疲労中断回数にともなう疲労後のSSRTの破断絞り値の変化、すなわち疲労回数にともなう残留延性量の変化を示す。PP波では、両鋼とも残留延性量は固溶化材の約8割程度に減少する。これに対し、CP波では、316MN鋼での延性低下量はPP波の場合と同程度であるが、SUS316鋼ではPP波の場合に比べ残留延性量は大きく低下する。SUS316鋼の固溶化材および疲労試験中断回数が寿命の1/2の中断材についてSSRT破断後の光顕組織をFig.12に示す。固溶化材では結晶粒が引張方向に展伸し、内部にも粒界クラックが多数認められる。また、破面は粒界と粒内が混在している。PP波疲労中断材では、粒の展伸はなく、破面は粒界主体で、内部の粒界クラックは固溶化材に比べ

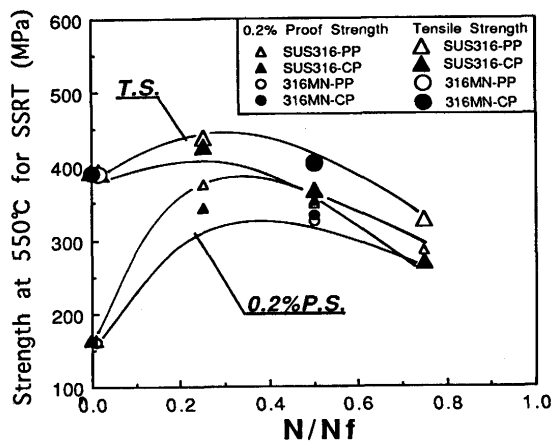


Fig. 10. Changes of 0.2% proof strength and tensile strength with fraction of N/Nf for SSRT at 550°C.

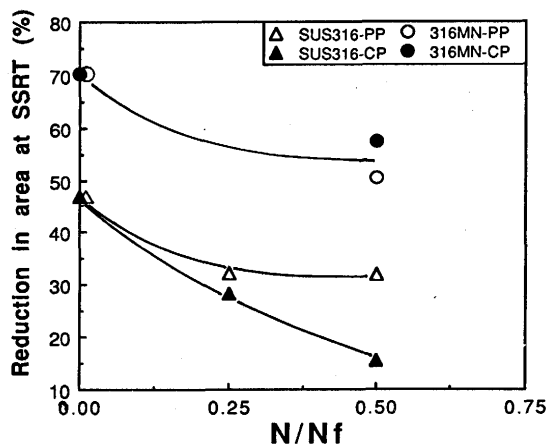


Fig. 11. Relationship between reduction in area of SSRT at 550°C and fraction of N/Nf.

少ない。CP波疲労中断材でも、粒の展伸はなく、破面は粒界主体であるが、固溶化材およびPP波疲労中断材に比べて粒界破面率は高い。Fig.13にSUS316鋼の固溶化材およびCP波疲労中断材のSSRT破断後の透過電顕組織を示す。固溶化材およびCP波疲労中断材共に、粒界に炭化物が析出している。このことから、SUS316鋼の場合、SSRT中にM₂₃C₆型の炭化物が粒界に析出し粒界脆化を生じることがわかる。また、疲労中断材では、加工硬化により粒内は硬化するため、SSRTでの粒の展伸はほとんどない。さらに、CP波疲労の場合、粒界炭化物は疲労中にも析出し、炭化物による粒界被覆率は高くなって粒界脆化を助長する。このため、より粒界破面率の高い状態で破断に至るものと推測できる。すなわち、SUS316鋼において、PP波疲労で残留延性量が低下した理由は、加工硬化にともなう粒内変形抵抗の増加に主に起因し、CP波での大幅な残留延性量の低下は、加工硬化に加えて炭化物の粒界被覆率の増加にともなう粒界脆化の助長に起因すると考えられる。

Fig.14に316MN鋼の固溶化材および疲労試験中断回数が寿命の1/2の中断材についてSSRT破断後の光顕組織を示す。

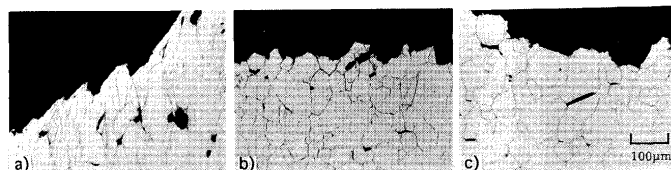


Fig. 12. Optical microstructure of SSRT ruptured specimens as solution treated and interrupted pre-fatigue for SUS316. a) Solution treated b) PP-1/2Nf interrupted c) CP-1/2Nf interrupted

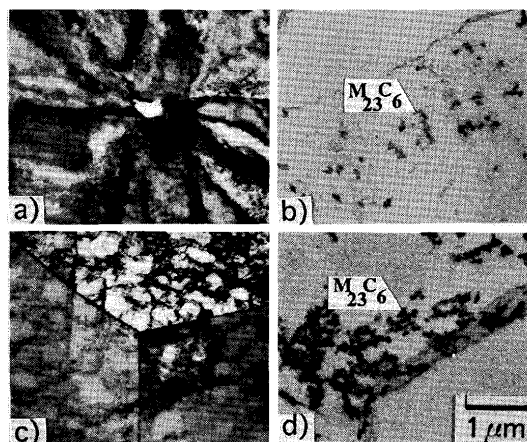


Fig. 13. Transmission electron microstructure of SSRT ruptured specimens as solution treated and interrupted pre-fatigue for SUS316. a) Solution treated(foil) b) Solution treated(replica) c) CP-1/2Nf interrupted(foil) d) CP-1/2Nf interrupted(replica)

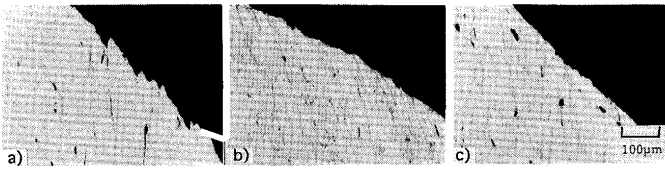


Fig. 14. Optical microstructure of SSRT ruptured specimens as solution treated and interrupted pre-fatigue for 316MN.

- a) Solution treated
b) PP-1/2Nf interrupted
c) CP-1/2Nf interrupted

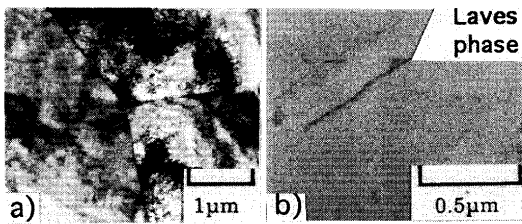


Fig. 15. Transmission electron microstructure of SSRT ruptured specimens as solution treated and interrupted pre-fatigue for 316MN.

- a) foil
b) replica

いずれも引張方向に展伸した結晶粒と粒内破壊の形態を呈している。また、内部の粒界クラックはほとんど認められず、CP波疲労中断材で極一部に認められる程度である。Fig. 15に316MN鋼のCP波疲労試験中断回数が寿命の1/2の中断材についてSSRT破断後の透過電顕組織を示す。なお、固溶化材のSSRT破断材に析出物はほとんど存在しないことを確認している。CP波疲労中断材では、粒界にフィルム状のLaves相が析出する程度である。また、PP波疲労中断材では、CP波疲労中断材よりも析出量が少ないと予想される。したがって、316MN鋼における延性消費は、疲労波形によらず、加工硬化による消費が主であるため、いずれの疲労中断材においても固溶化材の約8割の残留延性量を確保できたと考えられる。

以上より、低サイクル疲労(PP波)での延性消費は表面や内部クラック等の機械的損傷と加工硬化によるものが主であるが、クリープ疲労(CP波)での延性消費は機械的損傷と加工硬化に加えて金属組織変化に起因していることが明らかとなった。特に粒界析出物が粒界脆化挙動に直接関与することから、粒界析出物の制御がクリープ疲労での延性消費抑制には重要となる。CP波疲労で、中断回数が寿命の1/2に

おける延性消費量を比較すると、SUS316鋼の場合は約30%であるのに対し、316MN鋼では約15%の消費に留まっている。また、316MN鋼はSUS316鋼に比べ約3倍の残留延性量を確保している。以上のように、316MN鋼はSUS316鋼に比べてクリープ疲労による金属組織変化に起因した延性消費量が小さく、残留延性量を多量に保持できることが明らかとなった。

4. 結言

従来型SUS316鋼(0.05mass% C-0.03mass% N)および改良型316鋼(316MN: 0.01mass% C-0.07mass% N)の工業規模製造材について、時効および応力時効後のクリープ疲労特性の変化を金属組織と関連づけて検討した。さらに、クリープ疲労中断材のSSRT破断延性を測定することで、両鋼のクリープ疲労中の金属組織変化に起因した損傷を延性消費の概念を用いて定量的に比較した。その結果、以下の結論を得た。

(1) 従来型SUS316鋼では、時効および応力時効後のクリープ疲労寿命は固溶化材に比べ向上する。これは、粒界および粒内の炭化物が前処理中およびクリープ疲労中に粗大化するため、固溶C量が低下して粒内が軟化することおよびfreeな粒界の出現で粒界移動が可能なることに起因する。

(2) 改良型316鋼(316MN鋼)は、時効および応力時効をほどこしても、固溶化材と同等レベルのクリープ疲労寿命を保持できる。これは、時効および応力時効をほどこしても、主たる析出物であるLaves相が粒界脆化に寄与するような析出形態にならないことに起因する。

(3) クリープ疲労による延性消費量は金属組織変化にもなう材質劣化に大きく影響される。改良型316鋼は、クリープ疲労中の金属組織変化に起因した延性消費量が従来型SUS316鋼に比べて極めて少ないため、残留延性量として約3倍の延性量を保持できることがわかった。

文 献

- 1) 加納茂樹, 森下正樹: 原子力工業, **30** (1984) 2, 36.
- 2) 中澤崇徳, 安保秀雄, 小松 肇, 谷野 満: 鉄と鋼, **75** (1989), 2234.
- 3) 中澤崇徳, 安保秀雄, 谷野 満, 小松 肇: 鉄と鋼, **75** (1989), 825.
- 4) 中澤崇徳, 安保秀雄, 谷野 満, 小松 肇, 田下昌宣, 西田隆: 鉄と鋼, **75** (1989), 1346.
- 5) 中澤崇徳, 谷野 満, 小松 肇, 田下昌宣, 加口 仁, 金子秀明, 松本 純: 材料とプロセス, **2** (1989), 1944.
- 6) H.Thier and A.Baumel: Arch. Eisen., **40** (1969), 333.
- 7) H.Kaguchi, H.Kaneko, T.Nakazawa, N.Fujita and H.Ueda: 11th Inter. Confer. on STRUCTURAL MECH ANICS in REACTOR TECHNOLOGY, (1991).