防蝕工程 第十七卷第四期 第363~372頁 民國92年12月 Journal of Chinese Corrosion Engineering, Vol.17 No.4, PP. 363~372 (2003)

SS316L 不銹鋼在高溫高壓水媒中之低週疲勞行為

葉基榮*、黃俊源、宋游楠崑、郭榮卿

Low-Cycle Fatigue Behavior of Type 316L Stainless Steel in a High Temperature and High Pressure Water Environment

J. J. Yeh*, J. Y. Huang, N. K. Sungyu, and R. C. Kuo

摘要

SS316L 不銹鋼為進步型沸水式反應器(ABWR)爐內組件與壓力邊界的重要材料。本研究探討應變振幅 (Strain Amplitude) 及疲勞頻率兩者對 SS316L 不銹鋼於 300℃、10 MPa 循環流動水 媒中低週疲勞行為之影響。測試結果顯示,隨著應變振幅之下降,低週疲勞壽命明顯增長;應 變振幅降至 0.12% 時,試片能通過 5×10⁶ 週次之測試而不斷。鋼材於測試初期階段呈現顯著之 週期硬化 (Cyclic Hardening) 現象,最大應力值急速上升。低週疲勞測試頻率效應測試結果顯 示,頻率越低鋼材疲勞壽命越短。另進行室溫及 300℃ 空氣中之低週疲勞測試,比較鋼材於水 媒中與空氣中疲勞行為之差異;因腐蝕與疲勞協同作用所致,鋼材在水媒中之壽命最短,300℃ 空氣中者次之,室溫空氣中者最長。掃描電子顯微鏡 (SEM) 觀察發現,水媒中測試鋼材樣品之 破斷面上散布著大量的顆粒狀腐蝕生成物,而空氣中測試者則無。能量分布能譜儀 (EDS) 分析 結果顯示,此等腐蝕產物主要成分為 Fe, Cr, Ni 元素,另含多量的氧,不同於富含 S, Mn 兩元素 的二次相顆粒。

關鍵詞:SS316L 不銹鋼;低週疲勞;高溫高壓水;應變振幅;頻率。

ABSTRACT

SS316L stainless steel is one of the important structural materials for the in-core components and pressure boundaries of the advanced boiling water reactors (ABWR). This work was mainly focused on the effects of strain amplitude and fatigue frequency on the low-cycle fatigue (LCF) behavior of SS316L stainless steel in a high temperature, high pressure water environment. The test results show the fatigue life is significantly increased with decreasing the strain amplitude. The specimens remain intact after being fatigue-tested up to 5×10^5 cycles, when the applied strain amplitude is no greater than 0.12%. During the early stage of the low-cycle fatigue test, the cyclic hardening phenomenon was observed. The results from the tests of frequency effect show the lower the fatigue frequency was applied, the shorter the specimen fatigue life was observed. The

核能研究所核燃料及材料組

Nuclear Fuels and Materials Division, Institute of Nuclear Energy Research

^{*}連絡作者(TEL:03-471-1400 ext.6627)

steel specimens have the longest fatigue life when tested in air at room temperature, but, in contrast, they were observed to have the shortest one when tested in the high temperature, high pressure water environment. From the above observations, it can be inferred that the fatigue-corrosion interaction plays a significant role in determining the fatigue life of SS316L stainless steel. SEM fractographic examinations reveal that a large quantity of granular corrosion products were desposited on the fracture surface of the specimen tested in an aqueous environment, but that none was observed with the specimen tested in air. The EDS analysis shows the corrosion products are mainly composed of Fe, Cr, Ni and oxygen. They appear different from the second-phase particles which are rich with S, Mn elements

Keywords: SS316L stainless steel; low-cycle fatigue; strain amplitude; frequency; high temperature and high pressure water.

一、前言

除了腐蝕、照射脆化等因素之外,疲勞亦為輕 水式核反應器壓力槽及其內部組件材料的主要頹化 機制之一 [1,2,3,4]。這些結構/組件長期使用於溫度、壓 力高低反覆作用環境下,導致其材料性質衰退,組 件壽命降低 [5.6,7]。早期的反應器壓力槽內部組件及 飼水管路與再循環管路等壓力側 (Reactor Pressure Boundary) 大都使用 SS304 不銹鋼。經過多年運 轉,陸續發生沿晶應力腐蝕龜裂 (IGSCC) 及輻射促 進應力腐蝕龜裂 (IASCC) 等問題。為增進核電廠之 安全,該材料已逐漸被316L 不銹鋼所取代。此 外,新一代的進步型沸水式核電廠 (ABWR) 更大量 採用 SS316L 不銹鋼作為壓力槽內部組件的結構材 料。 SS316 L不銹鋼於壓力容器內受高溫高壓冷卻 水流沖振動導致疲勞劣化及其相關環境效應促進機 械特性老化或劣化等現象,皆亟待進一步的探討, 以了解水媒等環境因素對疲勞劣化機構、裂縫生成 與生長之效應,並探討腐蝕與疲勞交互作用對 SS316L不銹鋼材之破壞情形。

二、 實驗方法

2.1 實驗材料與測試環境

SS316L 不銹鋼 原材料經 Spark Emission Spectrometry 分析後,證實其組成成分與中鋼材料 手冊所列者大致相同,如表1所示。其光學金相顯微 組織,如圖 1,係經研磨、抛光及 10% 草酸溶液中 電解蝕刻而得。鋼材三方向面顯微組織之方向差異 性不顯著,符合原材料為再結晶組織之特質。水媒 測試環境為 300°C、10 MPa 之高溫高壓流動水,流 量 10Ihr,水中未添加化學物質,電導度 (Conductivity)維持在 0.15 μ S/cm 左右,未通氫氣, 溶氧值幾近飽和。水中飽和溶氧值為溫度之函數, 如 26°C 時為 7.99 ppm,35°C 時則為 7.04 ppm^[8]。

2.2 拉伸測試

拉伸試驗為取得 316L 不銹鋼室溫及 300℃ 之 基本機械性質。本實驗使用 10 噸之 MTS 810 油壓 試驗機測試,採位移控制進行,應變速率 (Strain Rate)約為 4×10³/s;室溫拉伸延伸率以50%行程之 應變規式延伸計 (Strain-gage Type Extensometer)量 測,其標距長為 25mm。300℃ 拉伸延伸率則以電容 式延伸計量測之,其標距長亦為 25mm,行程為 22%。

2.3 低週疲勞測試

根據 ASTM E606^[9] 規範設計 316L 不銹鋼低週 疲勞圓棒試片,其尺寸如圖 2。試片加工成型後, 依次以 #240 至 #2000 水砂紙研磨標距部位,再以 1 μm、0.3 μm Al₂O₃ 粉末抛光,直至於 50 倍光學顯 微鏡下無橫向刮痕為止。標距長 16mm,其兩側之 凸緣係專為安裝量測試片變形量之 LVDT 延伸計而 設計。因兩凸緣相隔 40mm 遠大於標距長,故另以 實驗校正其值,測得之校正曲線如圖3所示,縱軸 Strain Gage (%) 代表試片標距長之實際應變值。

藉 10 噸之 Instron 8862 電動式動態拉伸試驗機 與 Toshin 水媒系統測試 SS316L 不銹鋼於 300℃、 10 MPa 水媒中低週疲勞特性。以三角波形進行應變 控制 (Strain Control),應變由 LVDT 延伸計量測 之。應變速率 (Strain Rate) 以4×10³/s 為主,應變 均值 (Mean) 為 0%,應變振幅分別為 0.12%、 0.28%、0.569% 及0.854% 等4種。當疲勞試驗進行 至 5×10⁵ 週次試片仍未斷裂,即視為不會斷,停止 測試。於 300℃ 空氣中之低週疲勞測試係於 10 噸之 MTS 810 油壓試驗機中進行,以 10mm 標距長之電 容式延伸計量測樣品應變,其最大行程為 0.5mm。

2.4 破斷面觀察與成分分析

使用掃瞄式電子顯微鏡 (SEM) 觀察破斷面型 態。利用能量分布能譜儀 (EDS) 進行斷面上腐蝕生 成物、夾雜物 (Inclusion) 及基地之成分比較分析。

三、結果與討論

3.1 一般拉伸測試

圖 4 顯示 SS316L 不銹鋼試片受單軸向拉伸測 試,且拉伸應變速率控制為 4×10³/s 所獲得之室溫 及 300℃ 拉伸應力-應變曲線。由此圖可知其具有良 好 的 拉 伸 性 質,延 性 佳。室 溫 之 總 伸 長 率 達 65.3%,降伏強度 (Yield Strength, YS) 為 245 MPa (25 kg/mm²),最大抗拉強度 (Ultimate Tensile Strength, UTS) 為 526 MPa (53.7kg/mm²)。300℃ 之 機械性質較室溫者頹化甚多,最大抗拉強度降為405 MPa,降伏強度為 150 MPa,約下降 40% 之多,均 匀伸長率下降36%,延性變較差。

3.2 低週疲勞測試

表 2 總結 SS316L 不銹鋼在 300℃、10 MPa 水 媒中及室溫與 300℃ 空氣中等三種不同測試環境 下,不同應變振幅與應變速率(或疲勞測試頻率)等 操作條件測得之低週疲勞壽命週期數。從表中可見 低週疲勞壽命週期數深受各參數之影響。為清楚起 見,依應變振幅效應與疲勞測試頻率(或應變速率) 效應分別探討如下:

3.2.1 應變振幅效應

圖 5 為 SS316L 不銹鋼低週疲勞應變振幅與壽 命週期數兩者之關係圖。由圖可見,不論在高溫高 壓水中或空氣中之低週疲勞壽命長短完全視應變振 幅大小而定;應變振幅大者壽命短,應變振幅遞減 時壽命明顯增長。當應變振幅降至 0.12% 時, 試片 能通過 5×10° 週次之測試而不斷;即 SS316L 不銹 鋼材在此低應變振幅之情況下,不論在水媒中或空 氣中發生低週疲勞破斷之可能性較小。從圖中亦明 顯可見,300℃、10 MPa 水媒中之低週疲勞壽命最 短,300℃空氣中者次之,室溫空氣中測試者壽命 最長。顯然,腐蝕與疲勞協同作用導致材料壽命明 顯降低。進一步比較 300℃、10 MPa 水媒中與300 ℃ 空氣中兩曲線得知,應變振幅太大或太小時腐蝕 效應較輕微;而於某一中間應變振幅作用下,腐蝕 協同疲勞作用最顯著,推估與試片表面氧化膜之破 裂與再生有關。於低週疲勞測試初期階段,發現顯 著的週期硬化 (Cyclic Hardening) 現象。由 SS316L 不銹鋼在室溫及300℃空氣中低週疲勞週期數與對 應之應力範圍關係圖中,如圖6所示,清晰可見大 約50週期以前有明顯之週期硬化現象,在此階段每 經過一週期的低週疲勞測試後材料強度即增加一 些,直至達某一臨界最大值為止。週期硬化不僅出 現在室溫及300℃ 空氣中之測試,亦明顯地發生於 300℃、10 MPa 水媒中測試之鋼材樣品。此應變強 化現象與材料本身之極限抗拉強度(UTS) 與降伏強

度(YS) 兩者比值的大小有密切關係。 Manson¹⁰ 曾 提出材料之極限抗拉強度和降伏強度兩者之比值 (UTS/YS) <1.2 者,材料受週期負荷會產生週期軟化 (Cyclic Softening) 現象; 反之, (UTS/YS) >1.4 者, 出現材料週期硬化 (Cyclic Hardening) 情形。但介於 兩者間之材料較難推測其軟化或硬化情形。本研究 測試對象 SS316L 不銹鋼材之室溫 UTS/YS 比值為 2.15 倍,300℃ 時比值更高達 2.7,故不論室溫或 300℃之疲勞測試皆呈現硬化現象。此種週期硬化 與軟化現象亦直接反映在週期應力-應變遲滯環上。 圖 7 與圖 8 分別代表 316L 不銹鋼室溫及 300℃ 空 氣中之週期應力-應變遲滯環,圖6為對應測試應力 範圍與疲勞週期數之結果。由圖7與圖8得知,第 10 週期之最大張應力與最大壓應力皆較第一週期者 高,為明顯之週期硬化現象。圖 8 所示遲滯環部分 呈現鋸齒狀特徵,而圖7則為平滑曲線。鋸齒狀線段 呈現應變增加,但應力反而降低之反常現象。 SS316L 不銹鋼於 300℃空氣中之低週疲勞鋸齒狀應 力-應變遲滯環推測為測試過程中動態應變時效 (Dynamic Strain Aging) 現象所造成,可能導因於鋼 材中溶質原子與差排互相拉扯與掙脫的結果, 值得 深究。

3.2.2 疲勞測試頻率效應

本研究特別針對 300℃、10 MPa 水媒中應變振 幅 = 0.854% 之低週疲勞測試,改變其應變速率自 4 ×10³/s 降至 4×10⁴/s 及 4×10⁵/s,即疲勞測試頻率 分別為 0.1Hz、0.01Hz 及 0.001Hz。測試頻率對疲勞 破斷壽命週期數之影響情形,如圖 9 所示。頻率越 低者疲勞壽命越短,反之壽命較長。頻率越低者即 應變速率慢者,其完成一週次之疲勞測試耗時較 久,故與水媒環境接觸時間較久,腐蝕疲勞協同作 用的效應使得疲勞壽命週期數大為減少。另依據測 試結果觀察到與上述現象完全相反的頻率效應;當 頻率低時,測試初期週期硬化階段達到較高的最大 應力值,而頻率高者其硬化後之最大應力值反相對 較低,如圖 10 所示。經仔細觀察比較遲滯環後,發 現 0.001 Hz 之應力應變遲滯環(圖 11) 呈鋸齒狀與圖 8 者相似。由此推論在 0.001 Hz 之低週疲勞測試過 程中持續產生動態應變時效現象。而 0.01 Hz 及 0.1 Hz 之測試則未見上述鋸齒狀遲滯環,應無動態應變 時效效應。

3.3 破斷面觀察與成分分析

利用掃描式電子顯微鏡 (SEM) 觀察比較300 ℃、10 MPa 水媒中,300℃ 空氣中及室溫空氣中等 不同測試環境下,其低週疲勞測試樣品破斷面不論 何種環境下,整個破斷面上幾全為疲勞受損區,而 僅有局部小區域之延性拉斷區。疲勞受損區分布著 大小不一的疲勞紋 (Striation),疲勞裂縫起始 (Initiation) 點附近之疲勞紋較細且間距小。然隨著 疲勞裂縫之成長,疲勞紋間距逐漸擴大,直至裂縫 穩定成長階段,疲勞紋間距趨近一固定值。此穩定 成長之疲勞紋間距大小與應變振幅之大小有密切關 係,應變振幅大者疲勞紋間距對應較寬;反之,間 距較小。由圖 12(a) 可見應變振幅最小者,其穩定 成長階段之疲勞紋間距最小(約2µm),而應變振幅 最大者呈現最大之疲勞紋間距(約6.6 µm)如圖 12(c) 所示,另圖 12(b) 之疲勞紋間距(約4.5 µm)則 介於上述兩者之間。故依據疲勞紋間距約略可推估 材料所遭受之應變振幅大小。測試頻率 0.001Hz 樣 品之疲勞起始區附近皆被厚氧化層遮蔽,其疲勞紋 較不易觀察。

破斷面觀察結果顯示,水媒中測試者有大量的 顆粒狀腐蝕生成物散布其上;相反地,300℃ 或室 溫空氣中測試者則無。利用能量分布能譜儀(EDS) 分析腐蝕生成物結果顯示,其成分主要為 Fe, Cr, Ni 元素,另含多量的氧,此等腐蝕產物疑似氧化物, 如圖 13 與圖 14 所示。此種腐蝕生成物為顆粒狀, 但其成分與顆粒狀的二次相夾雜物(Inclusion)有很 大的差別,後者係富含 S, Mn 的化合物,如圖 15 所 示。另比較分析室溫空氣中疲勞破斷樣品基材上未 見氧存在,300℃ 空氣中拉斷者有少量氧,而水中 平坦之腐蝕疲勞區則含有大量的氧存在,如圖 16 所 示。

四、結論

- 低週疲勞測試結果顯示,應變振幅大者疲勞壽 命短;反之則壽命較長。不論在 300℃, 10 MPa 水媒中或 300℃ 空氣中測試之低週疲勞限皆為 0.12% 應變振幅。
- 低週疲勞環境效應測試結果顯示,室溫空氣中 測試者壽命最長,300℃空氣中者次之,而300 ℃,10 MPa 水媒中之低週疲勞壽命最短。腐蝕 與疲勞協同作用明顯降低材料壽命。
- 不論在水中或空氣中低週疲勞測試初期階段, 皆發現顯著的週期硬化現象。
- 低週疲勞測試頻率效應測試結果呈現頻率越低 者疲勞壽命越短,但其測試初期週期硬化階段 達到的最大應力值反而越大。
- 300℃ 空氣中及 0.001Hz 水媒中測試之遲滯環呈 鋸齒狀,與其他測試之平滑 曲線有顯著之不 同,推測前兩者之疲勞測試過程中持續產生動 態應變時效現象。
- 掃描式電子顯微鏡觀察破斷面發現,穩定成長 階段之疲勞紋間距大小隨應變振幅之增大而變 寬。
- 水媒中測試樣品之斷面上散布顆粒狀腐蝕生成物,而空氣中測試者則無。EDS分析結果顯示,其成分主要為Fe,Cr,Ni元素,另含多量的氧,其與富含S,Mn的二次相顆粒有別。

五、參考文獻

- D. J. Wulpi, Understanding How Components Fail, ASM, 1985.
- 2. EPRI NP-5590, Microstructural Examination of Fatigue Accumulation in Critical LWR

Components, Jan. 1988.

- V. N. Shah and P. E. MacDonald, Residual Life Assessment of Major Light Water Reactor Components-Overview, NUREG/CR-4731, EGG-242469, Vol. 1, June 1987.
- V. N. Shah, et al., Aging and Life Extension of Major Light Water Reactor Components, Chapter 2 and 16, Elsevier Science Publisher, 1993.
- K. H. Luk, Boiling-Water Reactor Internals Aging Degradation Study, ORNL NUREG/CR-5754, 1993.
- K. H. Luk, Pressurized-Water Reactor Internals Aging Degradation Study, ORNL NUREG/CR-6048, 1993.
- K. Iida, "A Review of Fatigue Failures in LWR Plants in Japan," Nuclear Engineering and Design, Vol. 138 (1992) 297-312.
- 8. Instruction manual for dissolved oxygen meter model DO-32A, DKK-TOA Corporation, p.7.
- "Standard Recommended Practice for Constant-Amplitude Low-Cycle Fatigue Testing" ASTM E606-80 (1997) 629-641.
- S. S. Manson and M. Hischberg, in Fatigue-an Interdisciplinary Approach, ed. J. J. Burke, N. L. Reed, and V. Weiss, Syracuse University Press 1964, P.133.

表1. SS316L 不銹鋼成分分析結果(wt %)

Table 1. Chemical compositions of the SS 316L stainless steel used

成分来源	С	Si	Mn	Р	S	Ni	Cr	Мо	Fe
材料 手册*	≤0.03	≤1.00	≤2.00	≤0.045	≤0.03	10.00 ~14.00	16.00 ~18.00	2.00 ~3.00	Bal.
INER**	0.02	0.30	1.46	0.03	< 0.02	12.30	17.10	2.28	Bal.

*:中國鋼鐵材料手冊

** : Spark Emission Spectrometry

表2. SS316L 不銹鋼低週疲勞壽命週期數 (N_i) 測 試結果

Table 2. The tested results of cycles to failure (N_p) for SS316L steel subjected to low-cycle fatigue tests

應變 測試環境	應變振幅 速率	0.12%	0.28%	0.569%	0.854%
300°C 10	4×10 ⁻³ /s	≥5×10 ⁵	13500, 13360	3500	2670, 2780 (0.1 Hz)
Mpa	4×10-4/s				700 (0.01 Hz)
水垛中	4×10 ⁻⁵ /s				402 (0.001 Hz)
300℃ 空氣中	4×10 ⁻³ /s	≥5×10 ⁵	35006	6107	
室温 空氣中	4×10 ⁻³ /s			7260(MTS) 8708(Instron)	



圖1. SS316L 不銹鋼光學金相顯微組織Fig. 1. Optical micrograph of SS316L stainless steel



圖2. 水媒中低週疲勞圓棒試片尺寸圖

Fig. 2. Round bar specimen for low-cycle fatigue test in a water environment



圖3. SS316L 不銹鋼低週疲勞圓棒試片之 LVDT 校正曲線

Fig. 3. LVDT calibration curve for SS316L steel round bar specimen for the low-cycle fatigue test



圖4. SS316L 不銹鋼室溫與 300℃ 空氣中拉伸應 力-應變曲線

Fig. 4. Tensile stress-strain curves for SS316L steel tested in air at room temperature and 300°C



圖5. SS316L 不銹鋼在不同測試環境中低週疲勞 應變振幅-壽命週期數關係圖

Fig. 5. The strain amplitude-cycles to failure relationships for SS316L steel tested in the different environments



- 圖6. SS316L 不銹鋼在室溫及 300℃ 空氣中低週 疲勞週期數與對應之應力範圍關係圖 (應變 振幅 = 0.569%)
- Fig. 6. The cycle number and its corresponding stress range for SS316L low-cycle fatigue specimens tested in air at room temperature and 300°C



- 圖7. SS316L 不銹鋼室溫空氣中之週期應力-應變 遲滯環 (應變振幅 = 0.569%)
- Fig. 7. Cyclic stress-strain hysteresis loops for SS316L steel tested in air at room temperature



圖8. SS316L 不銹鋼 300℃ 空氣中之週期應力-應
 變遲滯環(應變振幅=0.569%)

Fig. 8. Cyclic stress-strain hysteresis loops for SS316L steel tested in air at 300°C



圖9. SS316L 不銹鋼在 300℃, 10 MPa 水媒中之 低週疲勞頻率-壽命週期數關係圖

Fig. 9. The low-cycle fatigue frequency-cycles to failure relationship for SS316L steel tested in the 300°C, 10 MPa water environment



圖10. SS316L 不銹鋼在 300℃, 10 MPa 水媒中之 低週疲勞頻率-最大應力關係圖

Fig. 10. The low-cycle fatigue frequency-maximum stress relationship for SS316L steel tested in the 300°C, 10 MPa water environment



- 圖11. SS316L 不銹鋼在 300℃,10 MPa 水媒中之 週期應力-應變遲滯環 (0.001Hz)
- Fig. 11. Cyclic stress-strain hysteresis loops for SS316L steel tested in the 300°C, 10 MPa water environment at a frequency of 0.001Hz



(a)



(b)



(c)

- 圖12. 水媒中不同應變振幅測試條件下穩定成長 階段疲勞紋間距變化情形 (a) 0.28%, (b) 0.569%, (c) 0.854%
- Fig. 12. Variations of striation spacings in the steady-state crack growth stage tested under different strain amplitudes in a water environment. (a) 0.28%, (b) 0.569%, (c) 0.854%





- 圖13. 腐蝕生成物之 EDS 分析(應變振幅= 0.854%)。(a) 破斷面上腐蝕生成物,(b) EDS 分析結果
- Fig. 13. EDS analysis of corrosion products (strain amplitude 0.854%). (a) corrosion products on fracture surface, (b) EDS results



(a)



- 圖14. 腐蝕生成物之 EDS 分析(應變振幅 = 0.28%)。(a) 破斷面上腐蝕生成物, (b) EDS 分析結果
- Fig. 14. EDS analysis of corrosion products (strain amplitude 0.28%). (a) corrosion products on fracture surface, (b) EDS results



(a)



(b)





圖15. 二次相顆粒之EDS分析結果 Fig. 15. EDS results for second-phase particles

- 圖16. 基地之 EDS 分析結果 (a) 室溫空氣中, (b)
 300℃ 空氣中, (c) 300℃, 10 MPa 水媒中
- Fig. 16. EDS results for steel fatigue-tested matrix (a) in air at room temperature, (b) in air at 300°C, (c) in 300°C, 10 MPa water