

高温水中304ステンレス鋼の応力腐食割れにおける 「発生支配型成長」の観察と予測

Observation and Prediction of "Initiation Dominant Growth" due to Stress Corrosion Cracking in Type 304 Stainless Steel in High Temperature Water

釜谷 昌幸 (Masayuki kamaya)*¹ 春名 匠 (Takumi Haruna)*²

要約 鋭敏化304ステンレス鋼を用いて、高温水中での定荷重下における応力腐食割れによるき裂発生挙動をその場観察した。試験では最小0.1mmのき裂発生が観察でき、負荷応力が増加するにしたがって破断時間が短くなること、破断の2～3時間前に最初のき裂が発生した後、急激にき裂数が増加するなどの挙動が明らかになった。また、一つの主き裂が成長するのではなく、き裂が多数発生し、それらが合体することで試験片が破断する「発生支配型成長」が観察された。一方、観察された「発生支配型成長」を模擬・予測するため、き裂周囲の応力分布を考慮した損傷力学に基づくモンテカルロシミュレーションを開発した。そして、試験で観察されたき裂分布状況、き裂発生数の変化が再現できることを確認した。その結果、本研究で対象としたSCCの予測には、き裂発生を考慮することが重要であるとの結論を得た。

キーワード ステンレス鋼、応力腐食割れ、き裂発生、その場観察、モンテカルロシミュレーション、損傷力学

Abstract To investigate the initiation behavior of stress corrosion cracking (SCC) for sensitized Type 304 stainless steel in high temperature water, a constant load SCC test method combined with in-situ crack observation technique was employed. The in-situ crack observation system allowed us to detect small cracks of at least 0.1mm. The test results showed that a fracture time decreased with an increase in an applied stress. The first cracks were observed at most three hours before the specimen was fractured under all the stress conditions, followed by initiations of many cracks in a short time to fracture. The observed crack growth was "initiation dominant growth," which is caused by coalescence of multiple cracks rather than by growth of primary crack. The simulation model for a prediction of "initiation dominant growth" was newly developed using a Monte Carlo method, which was based on damage mechanics and stress analysis around the existing cracks. The simulation could represent the empirical results of changes in the crack distribution and the cumulative number of cracks during the SCC tests. It was concluded, therefore, that the crack initiation process should be considered in simulating the life prediction of the material in this SCC system.

Keywords stainless steel, stress corrosion cracking, crack initiation, in-situ observation, Monte Carlo simulation, damage mechanics.

1. 緒言

応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking, SCC) による原子力発電プラント機器の経年劣化を予測するには、き裂の発生および成長挙動を把握する必要がある。一般に、き裂成長は、破壊力学試験片 (CT試験片) を用いて経験的に求まる破壊力学パラメータとき裂成長速度との相関関係から予測できる⁽¹⁾⁽²⁾。実機プラントにおいても、定期検査等で発見されたき裂の成長を、応力拡大係数に基づき予測する手順

が維持規格として規定されている⁽³⁾⁽⁴⁾。これに対して、き裂の発生挙動を把握することは容易でない。き裂発生を試験的に評価する手法として定荷重試験、Uベント試験、CBB試験⁽⁵⁾、定ひずみ速度試験などがあるが、高温水中SCCについては、き裂挙動の観察が困難であるため、その発生挙動についての理解と試験データが十分とは言えない。プラントの供用開始からのき裂発生・成長を予測するには、き裂発生を定量的に把握する必要がある。

また、実際のプラントにおいては、き裂の発生と

* 1 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

* 2 大阪大学大学院工学研究科 現在 関西大学工学部

成長が互いに影響を及ぼし合うことも考えられる。例えば、高温水中のSCCのようにき裂が密集して発生する場合⁽⁶⁾⁽⁷⁾、き裂同士の力学的な相互作用が成長速度に影響を及ぼし⁽⁸⁻¹²⁾、時には合体して見かけ上進展速度が加速する⁽¹¹⁾。また、き裂発生は応力の強さに影響を受けるが、き裂先端では応力が集中し、そこに新たなき裂の発生が促進される。この場合のき裂発生は、成長との区別が困難で、健全性評価上は成長として取り扱うことになる。以上のようなき裂発生やき裂同士の干渉の影響は、CT試験片を用いて評価されるき裂成長には考慮されない。しかし、新たなき裂の発生やき裂同士の干渉を考慮したき裂成長予測は、クリープ⁽¹³⁾、クリープ疲労⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾、そしてSCC⁽¹⁶⁻¹⁸⁾などで取り組みがあるものの、実機に適用するにはき裂発生挙動の理解と併せて十分とはいえない。

本研究では、定荷重を負荷した高温水中304ステンレス鋼の表面に発生するき裂数の変化や発生位置などを調べる。通常、高温水中での試験片表面の観察は困難であるが、本研究ではサファイア製の観察窓などから構成されるその場観察システム⁽¹⁹⁾を用いることで、観察を可能にした。そして、観察された発生・成長挙動から「発生支配型成長」モデルを提案し、モンテカルロシミュレーションにより、モデルの検証ならびに成長予測を試みる。そして、「発生支配型成長」を予測するための方法について考察する。

2. SCC試験

2.1 試験装置

試験には、その場観察システムを備えたSCC試験装置を用いた⁽¹⁹⁾。循環式オートクレーブは316ステンレス製で、最高使用圧力100kg/cm²、最高使用温度300°Cである。試験中の試験片表面を観察できるように、観察窓および照明窓が取り付けられ、それぞれに直径20mm、長さ160mmのサファイア製のロッドが埋め込まれている。試験片表面とロッド先端の距離は10mmで、熱対流によるゆらぎによる影響を抑え、試験片表面を鮮明に観察することができる。観察した様子はCCDカメラを用いて記録した。このカメラの視野は5mm×4mmであるが、CCDカメラのレンズを可動ステージに取り付けることで、試験片の幅4mm、長さ10mmの平行部分全体を観察した。ステージは、VTRによる観察映像の録画時間に同期して移動

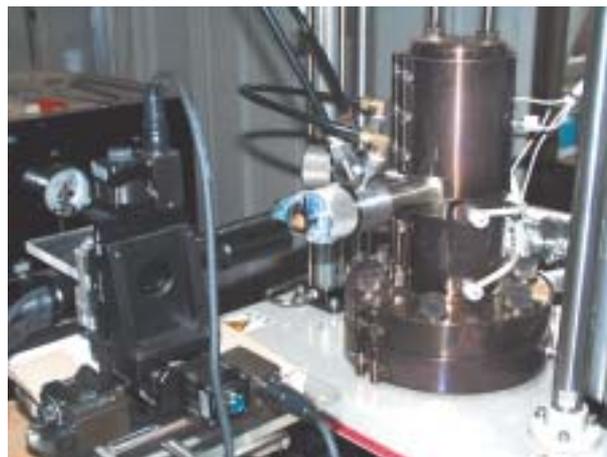


図1 その場観察窓付き応用腐食割れ試験装置

させた。図1にオートクレーブ内の試験片の表面観察をしているCCDカメラシステムの外観写真を示す。

2.2 試験方法

供試材として304ステンレス鋼 (C:0.06, Si:0.58, Mn:0.82, P:0.029, S:0.002, Ni:8.75, Cr:18.29, Mo:0.14, Cu:0.14mass%, Fe:bal.)を用いた。これを、平行部20mm、断面部4mm×2mmを有する平板型試験片に加工した。試験片は1050°Cで30分の溶体化熱処理を行った後、750°Cで100分と、500°Cで24時間の鋭敏化熱処理を実施した。EPR法による試験片の鋭敏化度⁽²⁰⁾は約35%であった。試験直前に試験片表面を湿式エメリー紙 (~#600) で研磨した。試験には脱イオン化処理した蒸留水に10⁻⁴kmol/m³のNa₂SO₄を添加した水溶液を用いた。この試験溶液の電導度は30μS/cm (室温)であった。試験中は溶存酸素10ppb以下、圧力90kg/cm²、温度200°Cに制御し、試験片に0.2%耐力 (S_y=130MPa) の2倍、2.5倍、2.75倍、3.0倍の一定荷重を負荷した。オートクレーブ内の温度が定常値に到達したことを確認した後、試験片の電位を6mV_{SHE,T}に保持しながら試験を開始し、試験中の試験片表面を観察窓からCCDカメラにより1時間毎に観察し、VTRに記録した。

2.3 試験結果

2.3.1 き裂発生・成長挙動

図2に試験片表面でのき裂発生状況のスケッチを示す。いずれの応力においても類似したき裂発生傾

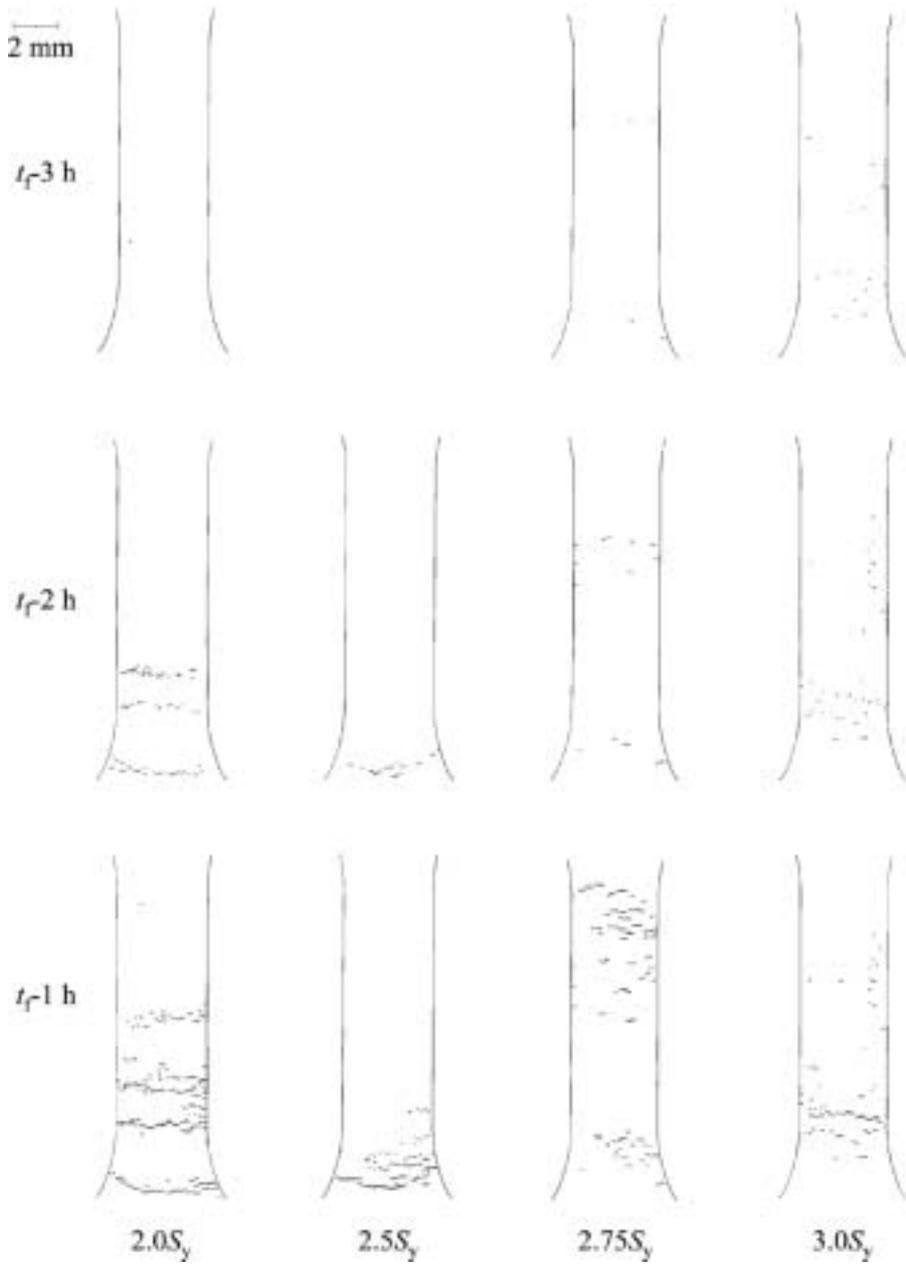


図2 試験片表面のき裂分布状況 (t_f は破断時間)

向が見られた。すなわち、最初のき裂は試験片破断の2～3時間前に観察され、その後き裂数が急増して破断に至る。き裂は応力方向に垂直に分布する傾向が強く、試験片破断には主き裂の成長ではなく、発生したき裂の合体が大きく寄与していると推定された。図3に試験時間とき裂数の関係を示す。試験時間は破断時間 t_f ($2.0S_y$, $2.5S_y$, $2.75S_y$, $3.0S_y$ の条件に対してそれぞれ139, 77, 53, 17h) で無次元化されている。応力が大きくなるとき裂発生時間および破断時間は短くなるが、破断時間で無次元化した試験時間に対するき裂発生数の変化に応力の影響は少

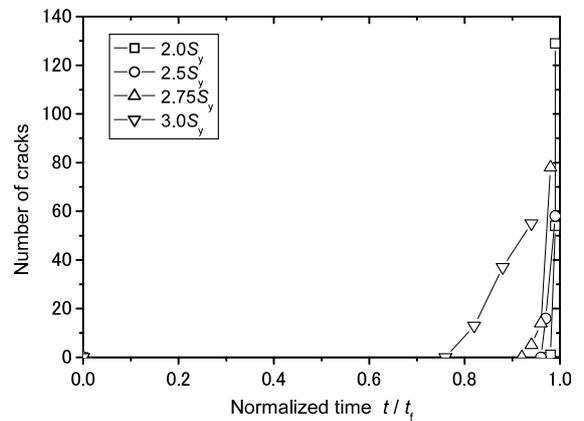


図3 試験時間とき裂数の関係

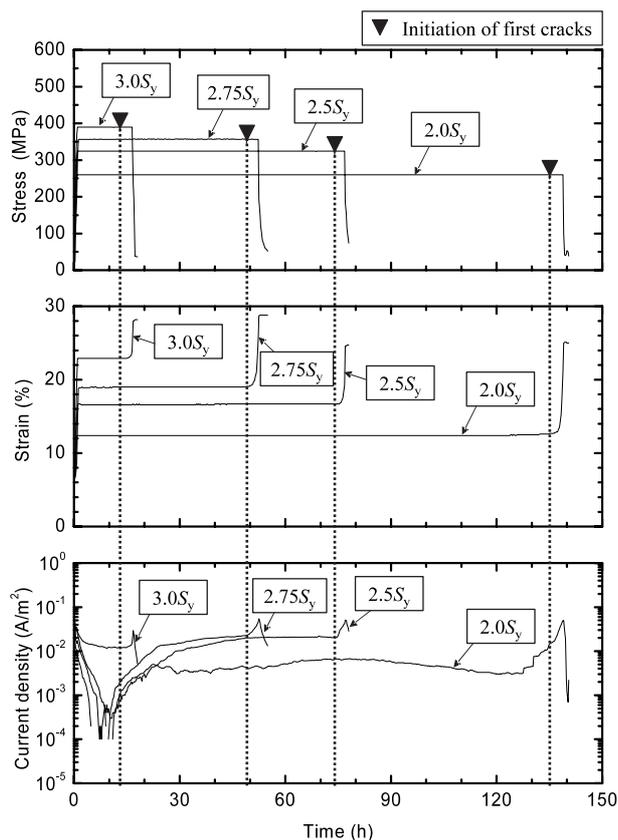


図4 試験中の公称応力，公称ひずみ，および電流密度の変化

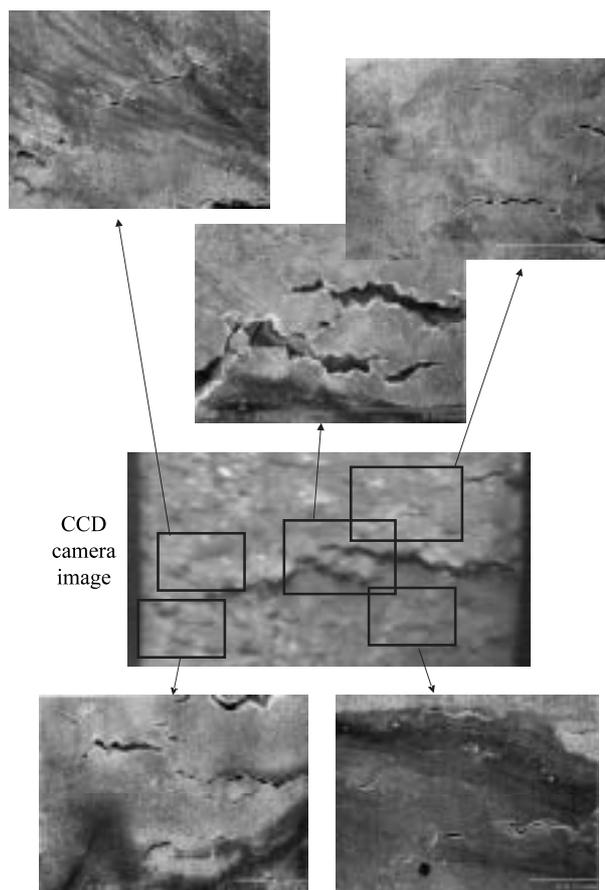
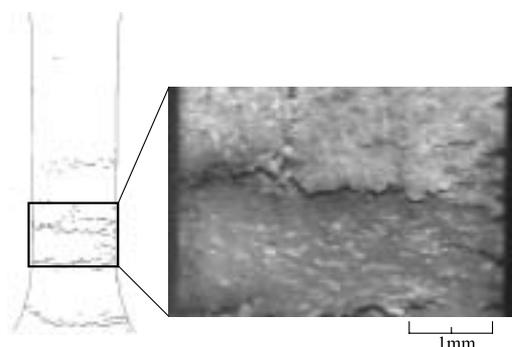
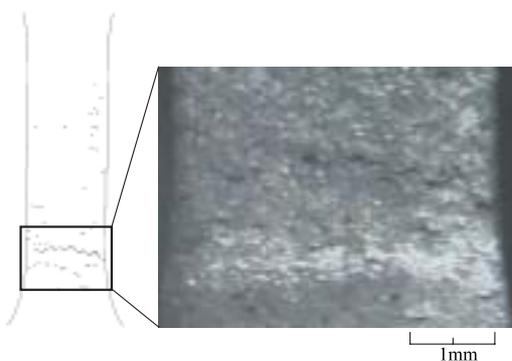


図6 走査型電子顕微鏡による試験片表面の様子（応力： $2.0S_y$ 破断後の様子）



(a) $2.0S_y$ 138h ($t_f = 139h$)



(b) $3.0S_y$ 16h ($t_f = 17h$)

図5 CCDカメラによる試験片表面の観察イメージ

ない。

試験中の公称応力，公称ひずみ，および電流密度の変化を図4に示す．最初のき裂発生後に見られるひずみの上昇は，き裂の発生および成長による試験片のコンプライアンスの変化に相当していると考えられる．電流密度は，試験開始後最小ピークを示した後，定常状態になり，そして最初のき裂発生後に急上昇している．

図5にCCDカメラによる観察イメージの例（応力： $2.0S_y$ ， $3.0S_y$ ）を示す．き裂は黒い線として認識できる．高い負荷応力のため表面が平坦でなくなり，図に示したような単独のイメージのみでは微小なき裂を判別することは困難である．本研究では，前後のイメージの変化を注意深く観察することで，約0.1mmの表面き裂の発生を認識することができた．

応力 $2.0S_y$ の試験後の試験片表面の走査型電子顕微鏡（Scanning Electron Microscopy, SEM）による観察結果を，CCDカメライメージと共に図6に示す．SEMによる観察では，0.03mm以下の表面き裂が観察できた．また，CCDイメージで1つに見えたき裂が幾つ

かの短いき裂から構成されている場合も認められたが、SEMで確認されたき裂数は、CCDで確認されたき裂数と大きく異ならない。いずれもき裂は粒界に沿って発生・成長していた。

2.3.2 き裂発生時間

本研究でき裂発生時間 t_i はCCDカメラで最初にき裂が確認された時間と定義する。そして、き裂発生時の最小サイズは0.1mmである。き裂発生および破断時間の応力依存性を図7に示す。時間 t_f と t_i の差は、試験結果のばらつきと比較して無視できる程度に小さい。このことから、き裂発生時間を t_f とし、その時のき裂サイズを0.1mmと仮定して、進展速度データを用いたき裂発生・成長予測を実施することで、プラントの健全性を保守的に評価することが可能である。

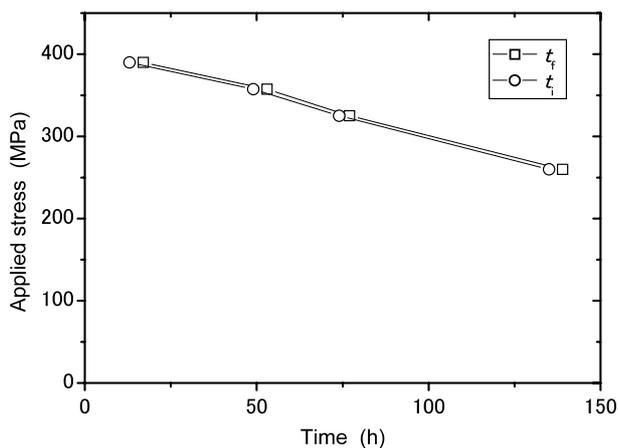


図7 き裂発生時間 t_i と試験片破断時間 t_f

3. 考察

3.1 き裂発生・成長挙動

本研究の条件下では、き裂の発生に潜伏期間が確認された。また、最初のき裂が表面上に分散してほぼ同時に発生したこと、その後のき裂数が急増したことから、き裂の発生した粒界では、き裂発生に対して同程度の抵抗力を有していたと考えられる。一方、き裂成長については、最初のき裂発生から2～3時間で試験片の破断に至っていることから、き裂はかなり速い速度で成長したことになる。しかし、実際には複数発生したき裂の合体が見かけ上の成長速度に大きく寄与している。したがって、本研究で

観察されたき裂はCT試験片などを用いて評価される「主き裂進展支配型成長」ではなく「合体支配型成長」と考えることができる。もし、実機で後者の成長が対象となる場合、成長予測にはCT試験片で得られる成長速度よりも、き裂発生に関する因子（位置と時間）が重要となる。

き裂が試験片表面に発生した場合、き裂先端周囲の応力が増加するため、き裂先端周囲でき裂の発生が促進されることが考えられる。その場合、き裂の合体はき裂先端での応力をさらに増加させることで、き裂先端周囲でのき裂発生をさらに促進する。この現象によって試験片が最初のき裂発生後2～3時間で破断したと考えられる。試験応力が高い $3.0S_y$ の場合においてもき裂発生には潜伏期間が存在したことから、大きな応力は直ちにき裂発生をもたらすのではなく、き裂発生の潜伏期間を短くすると解釈できる。

3.2 き裂発生モデル

3.2.1 シミュレーション方法

大きな応力がき裂発生の潜伏期間を短くするという現象をモデル化するために、損傷力学⁽²¹⁾に基づくき裂発生モデルを仮定する。それぞれの粒界がき裂発生に対する抵抗 R を有するとともに、それぞれの粒界が駆動力 F を受けて、経時的に損傷 D を蓄積すると考える。損傷 D が抵抗 R より大きくなれば、その粒界にはき裂が発生する。

このモデルに基づいたき裂発生挙動をモンテカルロ法により模擬した。ここでは図8に示すように、

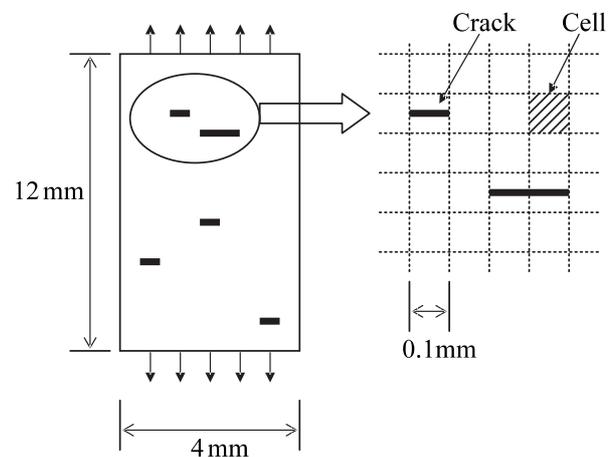


図8 シミュレーションで想定した試験片モデル

粒界をイメージした0.1mm四方のセルに分割した幅4mm、長さ12mmの模擬試験片平行部領域を対象とする。したがって、セルは全部で4800個存在し、それぞれの中央部でき裂が発生する。そして、それぞれのセル（粒界）に、定数 R_0 と時間依存変数 C_0 の関数としてき裂発生抵抗 R を与える。 i 番目のセルの抵抗 $R^{(i)}$ は次式で与えられる。

$$R^{(i)} = R_0^{(i)} + C_0^{(i)}(t) \quad (1)$$

R_0 として平均 P 、標準偏差 $0.1p$ (p は規準化変数)の乱数値を与えた。 C_0 は、例えば粒界腐食や不動態皮膜のように、時間に依存する影響因子を反映するパラメータであるが、本研究では相対的に小さいと考えゼロとした。

一方、損傷駆動力 F はある時間 t において粒界へ作用する応力 $S(t)$ を用いて次式で決定した。

$$F(t) = F_0 \left(\frac{S(t)}{S_0} \right)^m \quad (2)$$

ここで F_0 は定数、 S_0 は端面に負荷した一様応力である。 $S(t)$ は時間 t におけるき裂分布に応じて体積力法⁽²²⁾によって求めた。したがって、応力には既に存在するき裂先端の応力集中や、き裂同士の力学的な相互作用の影響が考慮される。また、 m はき裂発生速度の応力依存性を表すパラメータである。

これらの変数を用いて、それぞれのセルに蓄積された損傷 D は次式で表すことができる。

$$D^{(i)}(t) = \int F^{(i)}(t) dt \quad (3)$$

次式を満足したセル（粒界）の中心に長さ0.1mmのき裂を応力軸に垂直方向に発生させた。

$$D^{(i)}(t) > R^{(i)} \quad (4)$$

き裂の発生したセル（粒界）の割合が全体の5%になった時点破断時間 t_f とした。発生したき裂の成長は仮定していない。したがって、き裂の成長は隣接したセルでのき裂発生による見かけ上の成長、すなわち「発生支配型成長」のみである。シミュレーションの流れ図を図9に示す。

3.2.2 シミュレーション結果

図10に $m = 4$ および $m = 8$ とした場合のき裂および応力分布状態を示す。図には $0.9t_f$ と $1.0t_f$ の様子を

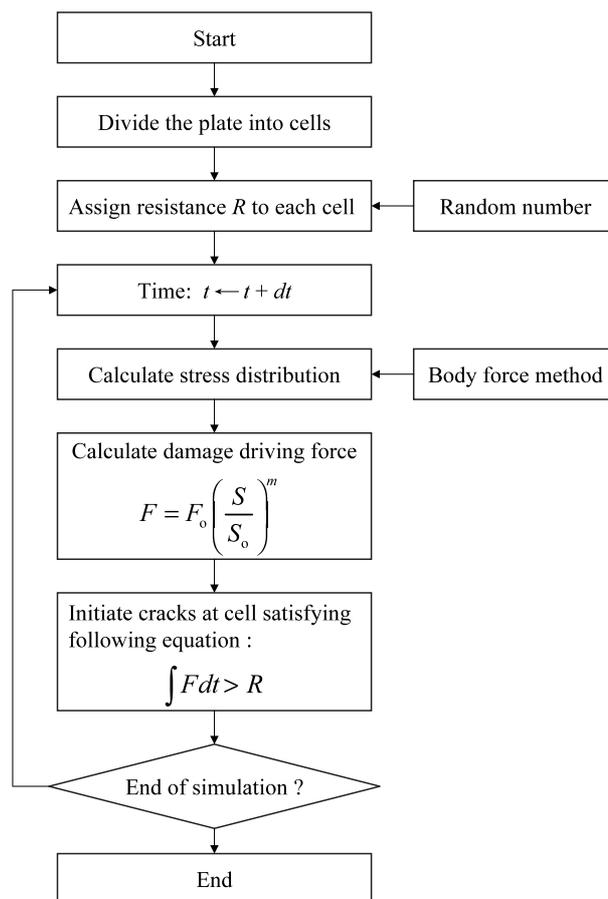


図9 シミュレーションの手順

示した。ここで、破断時間 t_f はそれぞれ $0.83p/F_0$ および $0.85p/F_0$ であった。 $m = 8$ の場合には、応力方向にき裂がクラスターを形成するなどの傾向が試験結果とよく一致している。既に述べたように、本シミュレーションではき裂成長は考慮していないので、図で見られるようなき裂の成長は発生と合体によってもたらされている。一方、 $m = 4$ の場合には、き裂発生に対する応力依存性が小さいため、き裂周囲での応力集中が新たなき裂発生に及ぼす影響が少なく、分布がランダムになる傾向にある。

応力分布では、き裂先端における応力集中する領域と、き裂の上下で見られる応力が緩和して小さくなる領域が存在する。そして、き裂が成長するにしたがって、これらの応力集中、緩和域が共に増加する。また、き裂先端同士が接近したところでも、応力が集中する様子が見られる。応力集中は新たなき裂発生を促進することになる。しかし、 $m = 8$ の $1.0t_f$ の場合に見られるように、一旦大きなクラスターが出現すると、その周囲の応力は広い範囲で小さくなり、新たなき裂発生は抑制することになる。これ

により、SCC試験やシミュレーションで見られたようなバンド状のクラスターが出現することになると考えられる。

き裂数の変化を図11に示す。隣接したセルに発生したき裂は合体した一つのき裂としてカウントした。いずれの場合も、試験と同様に0.8 t_f 付近で最初のき裂が発生し、以後き裂数が急増、破断に至っている。

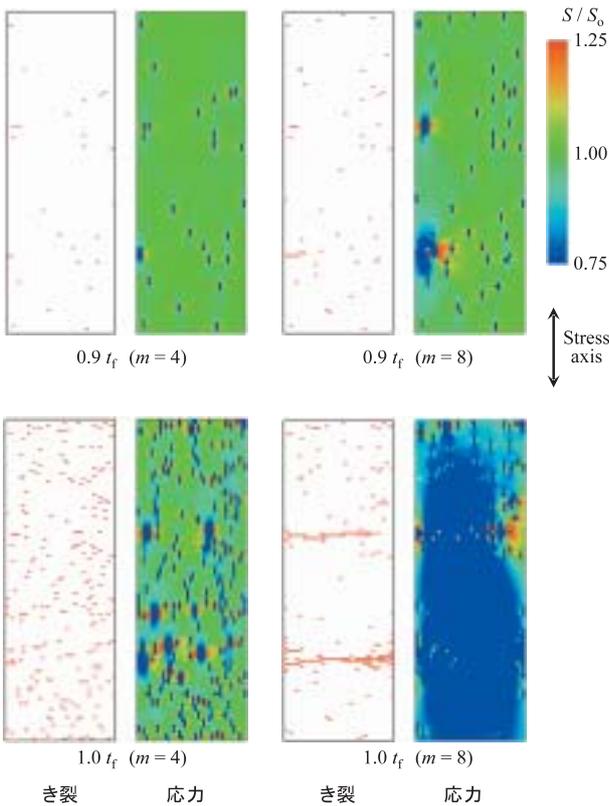


図10 シミュレーションで得られた裂と応力分布

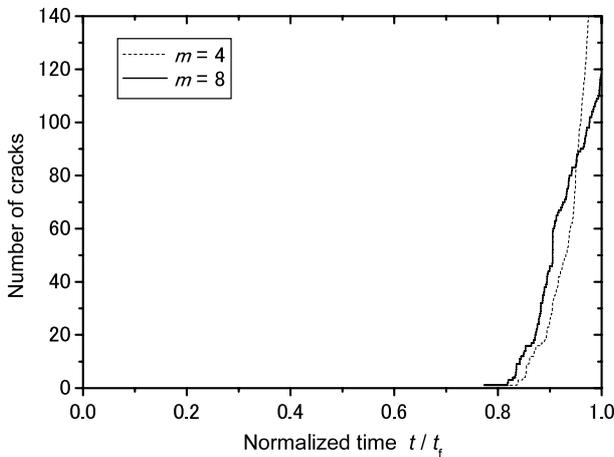


図11 試験時間とき裂数の関係 (シミュレーション結果)

4. 結言

本研究では、高温水中における304ステンレス鋼のき裂発生・成長挙動をその場観察し、き裂数が試験片破断の数時間前から急増し、合体して成長する結果を得た。この成長挙動を、破壊力学試験片などで模擬される「主き裂進展型成長」に対して、「発生支配型成長」と位置づけた。そして、「発生支配型成長」を模擬するモンテカルロシミュレーションを開発し、モデルの検証ならびに成長予測を試みた。その結果、「発生支配型成長」は、き裂発生に対する既存き裂の応力の影響を考慮したき裂発生モデルに基づいて模擬ならびに予測が可能であることが示唆された。

文献

- (1) P.C.Paris and F. Erdogan, "A Critical Analysis of Crack Propagation Laws", Transaction of the ASME Ser. D85, 528, p.528 (1963).
- (2) 日本材料学会, "金属材料疲労き裂進展抵抗データ集", (1983) 日本材料学会.
- (3) ASME, Boiler and Pressure Vessel Code Section XI 2003 Addenda, New York, 2003.
- (4) 日本機械学会, 発電用原子力設備規格 維持規格 S NA1-2002, Tokyo, 2002.
- (5) M. Akashi, "CBB Test Method for Assessing the Stress Corrosion Cracking Susceptibility of Stainless Steels in High-Temperature, High-Purity Water Environments", in: F. Hine, K. Komai, K. Yamakawa (Eds), Localized Corrosion -Current Japanese Materials Research Vol.4, Soc. Mat. Sci. Jap., Elsevier Applied Science, London and New York, 1988, p.175 (1988).
- (6) M. Kamaya, N. Totsuka, "Influence of Interaction between Multiple Cracks on Stress Corrosion Crack Propagation", Corrosion Science 44, p.2333 (2002).
- (7) Y. Z. Wang, K. Ebtehaj, D. Hardie, R. N. Parkins, "The Behaviour of Multiple Stress Corrosion Cracks in a Mn-Cr and a Ni-Cr-Mo-V Steel: I-Metallography", Corrosion Science 37, p.1651 (1995).
- (8) M. Kamaya, T. Kitamura, "A Simulation on

- Growth of Multiple Cracks under Stress Corrosion", *International Journal of Fracture*, 130, p.787 (2004).
- (9) 釜谷昌幸, "き裂進展に及ぼす複数き裂の相互作用", *日本機械学会論文集A編*, 66-648, p.1491 (2000).
- (10) 釜谷昌幸, "複数き裂の相互作用を考慮したき裂進展評価手法", *日本機械学会論文集A編*, 67-660, p.1356 (2001).
- (11) M. Kamaya, "A Crack Growth Evaluation Method for Interacting Multiple Cracks", *JSME International Journal, Series A*, 46-1, p.15 (2003).
- (12) 釜谷昌幸, 北村隆行, "干渉する段違い表面き裂の応力拡大係数", *日本機械学会論文集A編*, 68-671, p.1112 (2002).
- (13) T. Kitamura, N. Tada, R. Ohtani, "Evaluation of Creep Fatigue Damage Based on Initiation and Growth of Small Cracks", in: R. A. Ainsworth, R. P. Skelton (Eds), *Behavior of Defects at High Temperatures, ESIS 15, Mechanical Engineering Publications, London*, p.47 (1993).
- (14) H. Kitagawa, T. Fujita, K. Miyazawa, "Small Randomly Distributed Cracks in Corrosion Fatigue", in: *Corrosion Fatigue Technology, ASTM STP 642, American Society for Testing and Materials*, p.98 (1978).
- (15) C. M. Suh, J. J. Lee, Y. G. Kang, H. J. Ahn, B. C. Woo, "A Simulation of the Fatigue Crack Process in Type 304 Stainless Steel at 538 ° C", *Fatigue Fract. Engng Mater. Struct.* 15, p.671 (1992).
- (16) M. Kamaya, G. Chiba, N. Totsuka, N. Nakajima, "Multiple Crack Initiation and Propagation Behavior of Stainless Steel in High Temperature Water Environment and Examination by a Simulation", *CORROSION/2001, NACE International, Houston*, paper no.219 (2001).
- (17) 釜谷昌幸, "複数き裂の相互作用を考慮したき裂進展シミュレーションによるき裂発生挙動の寿命へ与える影響の検討", *材料*, 50-3, p.263 (2001).
- (18) Y. Z. Wang, D. Hardie, R. N. Parkins, "The Behaviour of Multiple Stress Corrosion Cracks in a Mn-Cr and a Ni-Cr-Mo-V Steel: III-Monte Carlo Simulation", *Corrosion Science* 37, p.1705 (1995).
- (19) T. Haruna, S. Zhang, T. Shibata, "Analysis of Initiation and Propagation of Stress Corrosion Cracks for Sensitized 304 Stainless Steel in High Temperature Water by Using In-Situ Observation System", *Corrosion*, in print.
- (20) JIS-G0580, *Japan Industrial Standards*, 1986.
- (21) 村上澄男, "損傷力学：材料の損傷と破壊への連続体力学的アプローチ", *材料*, 31, p.1 (1982).
- (22) 西谷弘信, 陳玳珩, 才本明秀, "体積力法による二次元応力解析汎用プログラム", 培風館 (1994).