

ステンレス鋼の微小き裂発生・進展の実験とそれに基づくモデルの構築

Development of Short Crack Nucleation and Growth Model for Stainless Steel based on Experimental Data

千葉 吾郎 (Goro Chiba)* 釜谷 昌幸 (Masayuki Kamaya)*
中島 宣雄 (Nobuo Nakajima)* 戸塚 信夫 (Nobuo Totsuka)*

要約 応力腐食割れや腐食疲労に代表される環境助長割れは、発電用軽水炉の経年劣化事象のうち最も重要な課題の一つである。環境助長割れは、微小き裂が発生し、それらが成長・合体して最終的に線形弾性破壊力学で扱うことのできる大きさのき裂となる。破断までの全体の寿命から見ると、微小き裂の発生・成長期間が寿命の大部分を占めているにもかかわらず、その部分について実験手法、解析手法とも確立されたものがない。

本研究では、PWR一次系高温水環境におけるオーステナイト系ステンレス鋼 (SUS304) の環境助長割れについて、特に微小き裂の段階に着目し、き裂の発生・進展状況を実験により観察し、時間毎のき裂発生数と微小き裂進展速度を得た。また、得られた実験データに基づき、微小き裂の発生から成長に至るまでのモンテカルロシミュレーションによるモデルの構築と計算を行い、実験を再現することができた。

キーワード 応力腐食割れ, PWR, ステンレス鋼, モンテカルロモデル

Abstract Environmentally assisted cracking(EAC), which is represented by stress corrosion cracking or corrosion fatigue, is one of the most important subjects in the study of material degradation of light water reactors. A significant proportion of the lifetime of a component subject to EAC may be spent in crack initiation and subsequent growth and/or coalescence to produce cracks which can be evaluated by conventional linear elastic fracture mechanics approaches.

In this study, the state of nucleation and growth of a short crack was investigated experimentally in the EAC of austenitic stainless steel(SUS304) at high-temperature primary water in PWR, and the number of cracks as a function of time and short crack growth rates was obtained. Based on the experimental data, a Monte Carlo model for crack nucleation, short crack interaction, coalescence and crack growth was formulated.

Keywords stress corrosion cracking, PWR, stainless steel, Monte Carlo model

1. はじめに

今後の発電用軽水炉の高経年化に当たり、系統を構成する機器の応力腐食割れ (SCC) や腐食疲労 (CF) のような環境条件に起因する割れ (環境助長割れ: EAC) の機構解明や、寿命予測に係る材料データの取得が重要性を増してきている。EACは、図1に示すように潜伏期間の後微小き裂が発生し、それらの成長や合体により臨界き裂長さに達したき裂が急速に進展すると考えられている⁽¹⁾。既存のEAC

の成長予測モデルは、ほとんどが工学的に大きなき裂 (臨界き裂長さ以上) の成長を線形弾性破壊力学 (LEFM) の手法により予測するものである⁽²⁾⁽³⁾。しかしながら、き裂発生、成長、合体といった微小き裂 (下限界応力拡大係数 K_{scc} 以下) の段階がEAC寿命の大半を占めているにもかかわらず、その部分についての実験手法、解析方法とも確立されたものはない。

従って、本研究においては、EACの微小き裂の段階に着目してき裂発生・進展状況を実験により観察

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

し、実験結果を踏まえたモデルを構築することを目的とする。

基礎データの取得に当たっては、材料をPWRの一次系を構成する機器で多く使われている304ステンレス鋼とし、EACが発生しやすいように鋭敏化処理を行い、電位の高い条件で実験を実施した。

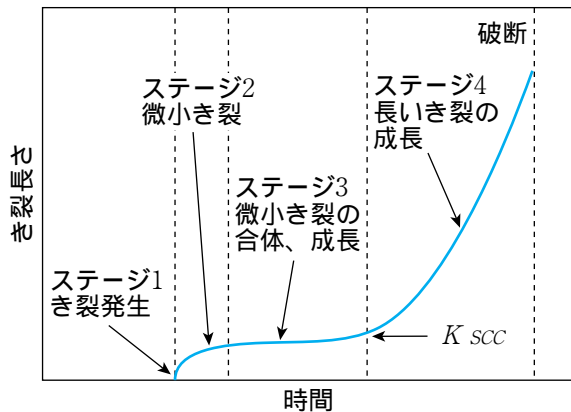


図1：環境助長割れ進展の概念

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材は原子力仕様相当の304ステンレス鋼とした。化学組成を表1に示す。各供試材は、真空溶製、鍛伸、熱延し、1050 30分の溶体化処理後、650 24時間鋭敏化処理を行った。その後、圧延方向に平行に切り出し、試験片に加工した。

表1：供試材の化学組成 (wt%)

C	Si	Mn	Cr	Ni	Mo	S	P
0.054	0.52	1.48	18.44	9.74	0.01	0.001	0.024

2.2 試験装置の系統

PWR一次冷却材を模擬した水質(表2)の250の高温水中で、荷重 max. 300MPa, 荷重変動比 R (min./max.) = 0.9~0.1, 周波数0.00167Hz, 電位を +50~+150mV SHEとして試験を実施した。

装置は、東京衡機製造所製の循環式腐食疲労試験装置を用いた。試験装置の系統を図2に示す。

試験電位の設定には、東方技研製ポテンショスタットPS-14を使用し、参照電極はAg/AgClの内部参

照電極を用いた。

表2：試験水の条件

項目	目標値
ホウ素(B)	500ppm
リチウム(Li)	2.0ppm
pH(25)	7.0(±0.1)
塩化物イオン(Cl ⁻)	無添加, 40ppb添加
硫酸イオン(SO ₄ ²⁻)	無添加, 40ppb添加
溶存酸素	< 2ppb
溶存水素	30cc / kg・H ₂ O

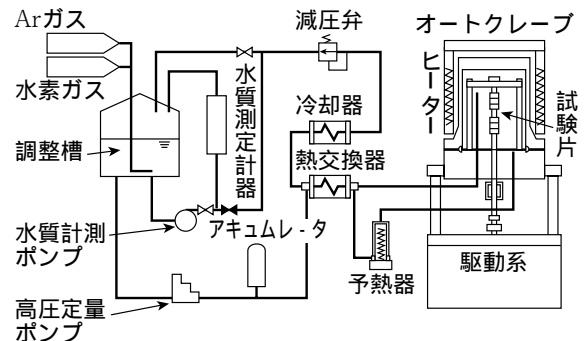


図2：試験装置の系統図

2.3 微小き裂発生実験

微小き裂の発生と進展を評価するための実験手法として、図3に示す2枚の平滑試験片を直列に配置する4点曲げ試験を適用した。

試験片は、25×75mmの平板とし、厚さを7~8.6mmで調整することにより2枚の試験片間で応力を変えた。また、4点曲げの荷重点のピッチを

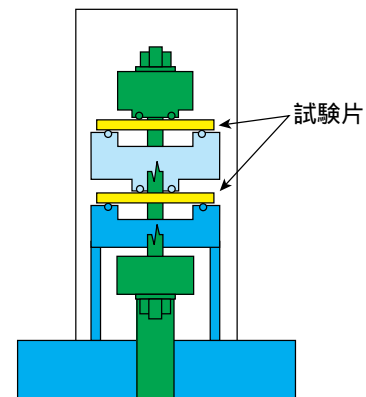


図3：微小き裂発生試験

20mmとし、25×20mmの均等荷重領域の引張り荷重を受ける面を実験後に観察した。

本実験では、き裂の発生および進展を促進するために、 Cl^- 、 SO_4^{2-} をそれぞれ $40 \pm 10\text{ppb}$ 添加した。

実験時間は200時間、500時間、1000時間とし、実験後の試験片から、微小き裂の発生から長いき裂に進展するまでの状況を観察するとともに、単位面積当たりのき裂発生密度と、き裂の長さ分布、アスペクト比(き裂深さ/(表面長さ/2))の分布を取得した。試験片は、取出し時の温度履歴等のき裂の進展への影響を考慮して、実験毎に個別の試験片を使用した。

2.4 微小き裂進展実験

試験片は、8×8mmの断面を持つ引張試験片とし

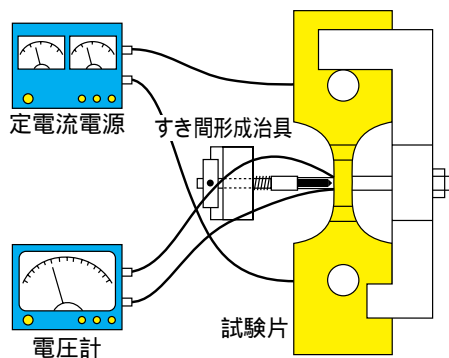


図4：微小き裂進展試験

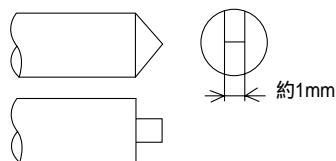


図5：すき間形成治具先端部の拡大図

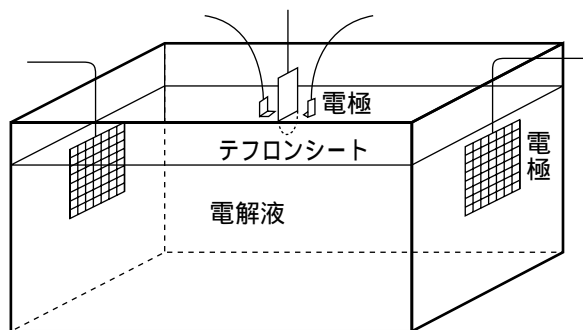


図6：直流電位差法(DCPD)較正の概念図

た。微小き裂進展状況の観察に直流電位差法(DCPD)を適用するために、試験片表面のDCPD電極間にセラミック(ジルコニア)のすき間形成治具を設置し、き裂を局所化した。その状況を図4に示す。

すき間形成治具の先端部は、約1mm長さの線で試験片表面と接触するように加工し、試験片の荷重負荷方向に直交させて設置した。図5に治具の先端部の拡大図を示す。

DCPDの電圧出力のき裂長さに対する較正曲線は、図6に示すテフロンシートでき裂を模擬した40倍スケールの水槽(電解槽)実験で作成した。

3. 実験結果と考察

3.1 微小き裂発生実験

図7に $\text{max.} = 300\text{MPa}$ 、 $R = 0.9$ の試験片のき裂発生状況を示す。

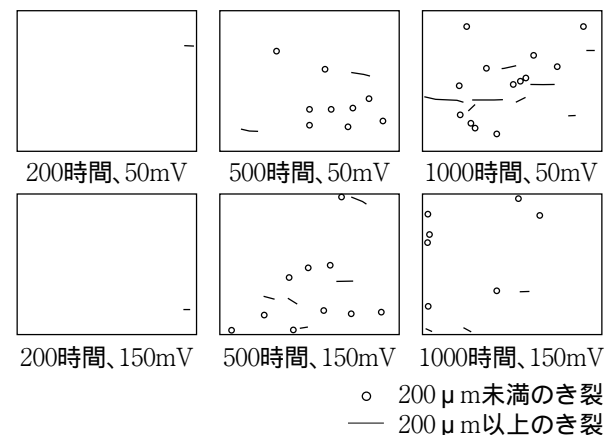


図7：微小き裂発生試験の結果

時間とともにき裂発生数が増加していることがわかる。また、電位は、+50mVと+150mVとで有意な差は認められず、両者を同一視して結果を取り扱うこととした。

き裂の長さの度数分布を図8に示す。200 μm から1mmまでの長さ範囲のき裂個数は、その上下の範囲のき裂の数より相対的に少なくなっている。これは、き裂は多数発生するが、すべてのき裂が一樣に成長するのではなく、限られたき裂が成長していることによるものと考えられる。

次に、試験片を切断してき裂深さを測定し、き裂

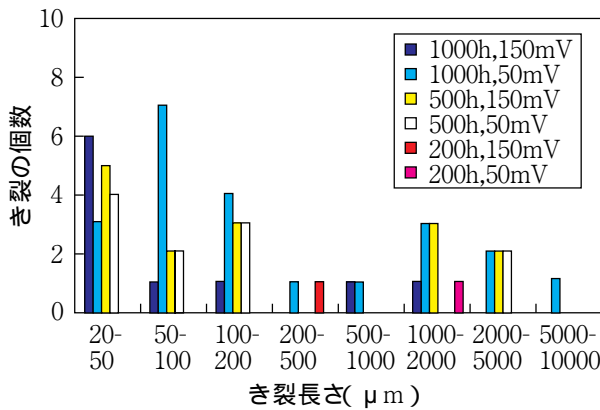


図8：き裂の長さ分布

のAspect比を求めた。表面き裂長さに対するAspect比を図9に示す。Aspect比とき裂長さとの間に明確な相関は認められない。また、データのばらつきは大きい。平均のAspect比は0.85となっている。

3.2 微小き裂進展実験

図10に実験後の試験片表面の拡大写真を示す。すき間形成治具の設置により、き裂をDCPD電極間のすき間領域に局所化することができた。

また、試験片をき裂深さ方向に研磨し、き裂の断面形状を観察した結果を図11に示す。最終のき裂深さにかかわらず、多くの試験片で表面のき裂長さはすき間領域内（幅約1mm）に制限されていた。このことから、まず試験片表面のすき間領域内の多くの点で浅いき裂が発生し、表面長さを変えずに深さ方向に進展し、き裂進展とともにAspect比が増

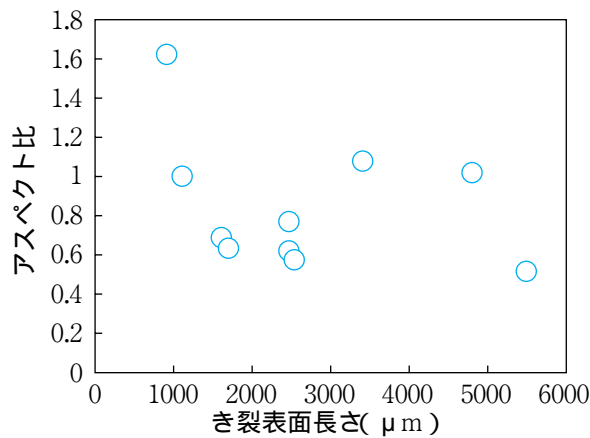


図9：き裂のAspect比

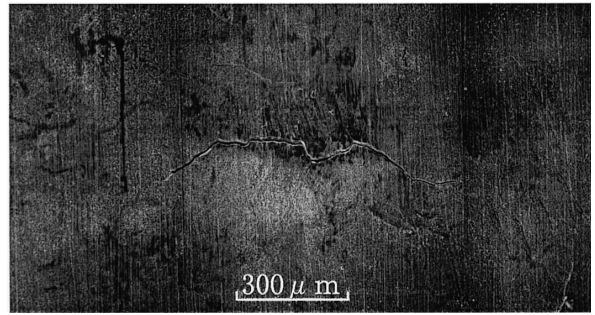


図10：試験片表面の拡大写真

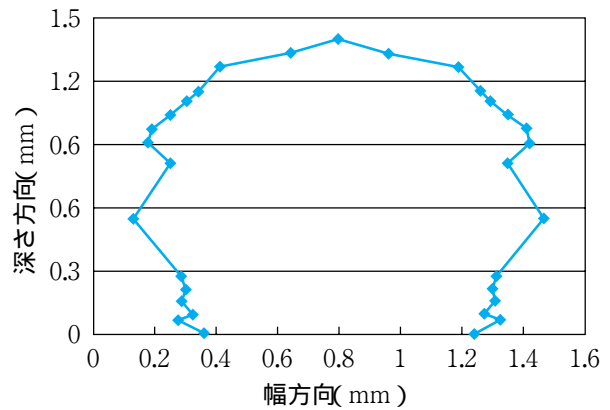


図11：き裂断面形状

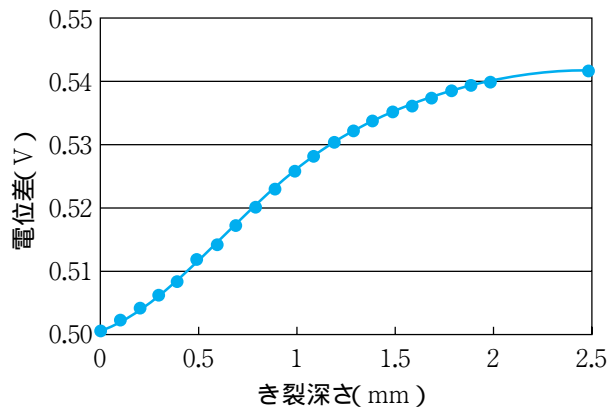


図12：DCPD校正曲線

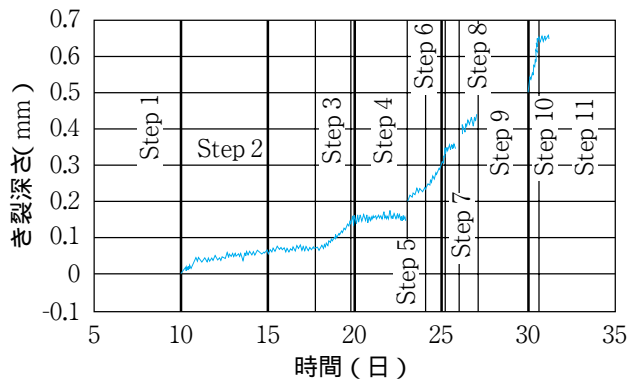


図13：き裂進展の測定結果の例

大しているものと考えられる。

このような割れ形状を考慮して作成したDCPD校正曲線を図12に示す。

図13にき裂進展の測定例を示す。

図において、DCPD出力値のばらつきは、 $10\mu\text{m}$ 程度に収まっている。

試験片に荷重を付加 (Step2) 後、き裂は進展を続け、不純物添加 (5~10ppbの硫化物、塩化物: Step3)、電位低下 (Step4,5,8,11)、 R 変更 (0.9 0.4: Step5,8) 等の実験条件の変更とともにき裂進展速度は変化している。

次に、微小き裂から長いき裂となるまでのき裂進展の J 値による評価を行った。

半だ円形のき裂を含んだ8mm角引張試験片の有限要素モデルを構築し、適用荷重に対するき裂の表面および最も深い点における J 値の計算を行い、試験片における J 値とき裂長さとの関係を求めた。ここで、実験での観察結果に基づき、クレビス幅と同等の表面長さを有するき裂が発生し、その後は表面長さを変えずに深さ方向に成長すると仮定した。

上述のように導かれた J 値に対するき裂進展速度 (da/dt) の測定値を図14にプロットする。

これらのデータを長いき裂の進展速度と比較するために、BWR冷却材における鋭敏化ステンレスのShackら⁽⁴⁾の計算曲線を図中に示す。 J 値は、長いき裂進展データの次の関係を使って計算した。

$$J = \frac{K^2(1 - \nu^2)}{E}$$

データはかなりばらつきが大きいですが、 J 値が小さい時はき裂進展速度が大きく、その後き裂進展速度の小さい状態が続き、 J 値が大きくなるに従って再び進展速度が速くなる傾向が観察された。

このデータのばらつきは、き裂の進展がすき間形成治具の影響を受けているものと考えられたため、荷重負荷方向に垂直な断面で試験片に点で接触するように治具を90度回転して設置し、初期き裂を微小化することの可能性を検討した。DCPD校正曲線は、き裂がアスペクト比一定 (= 1) で進展するものと仮定し、従来の半楕円形のものを面積比で補正したものを使用した。

初期き裂を微小化した実験の結果を図15に示す。手法の変更によりデータのばらつきが減少し、進

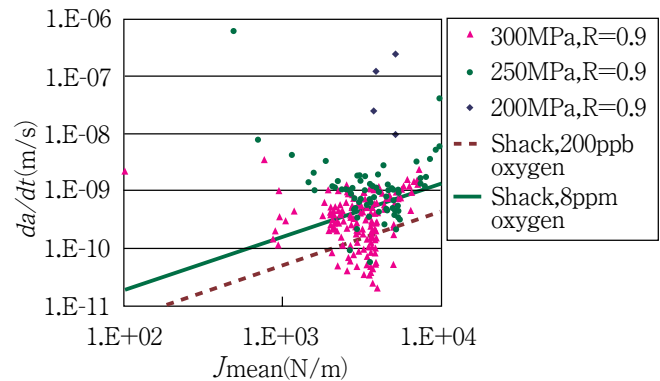


図14: J 値に対するき裂進展速度

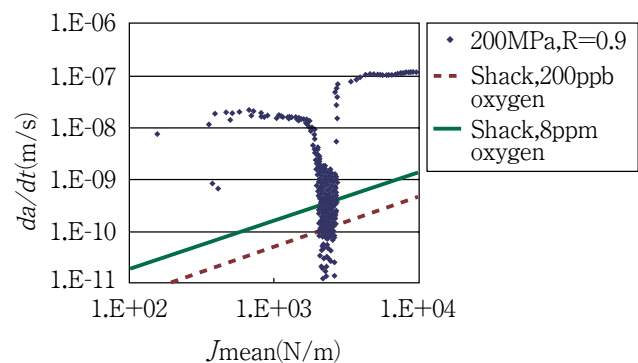


図15: 初期き裂を微小化した時のき裂進展速度

展速度の変化の傾向が明確に観察できるようになった。図14, 15共に200MPaのデータのき裂進展速度がかなり速くなっているのは、試験系統への微量の不純物の混入によるものと考えられる。

4. き裂発生・成長のモデル化

大気中の金属疲労では、微小き裂は結晶粒界(以後粒界という)や介在物にき裂が当たったとき、あるいは屈曲を示したとき成長速度が低下したり、成長そのものが止まってしまう事象が観察されている⁽⁵⁾。EACのような水環境中の割れでも相対的に微小き裂の成長が止まりやすい実験結果も報告されており⁽⁶⁾、大気中の金属疲労と同様の影響因子が作用していると推測される。特に本研究での実験条件ではいずれも結晶粒界に沿った割れが観察され、結晶粒界の影響は大きいと推測される。

微小き裂の寿命予測の為にこの不連続な成長挙動を予測する必要がある。本研究では結晶粒界に沿って進展するき裂の力学的な影響を考慮した、モンテカルロシミュレーションによる予測手法を開発した。

4.1 結晶粒界を進むき裂のモデル化

微小き裂発生実験で観察された平面上のき裂の発生状況を計算機シミュレーションで再現する。

4.2 き裂進展シミュレーションの手順

(1) 計算機による疑似結晶粒界の作成

き裂を進展させる結晶粒界は以下のアルゴリズムで作成した⁽⁷⁾。

結晶の核をランダムに配置し、それぞれに核生成時間 P を与える。

各々の核は核生成後、つまり時間 P の後、結晶粒が速度 G で等方成長する。

粒成長の途中で他の粒に出会うと、その方向の成長は停止し、粒界を形成する。

この粒界の長さや傾き分布が実験結果と同等になるように P 、 G のパラメータを調整する。

(2) き裂の発生

き裂の発生モデルは微小き裂発生実験で求めた時間とき裂発生個数の一次近似関係(図16)を考慮し

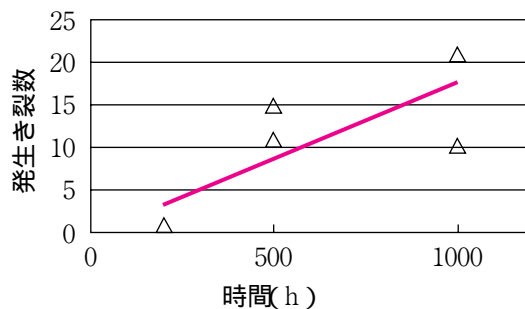


図16：き裂発生数と時間の関係

て、以下のプロセスによりき裂を発生させる。

それぞれの粒界に初期き裂発生抵抗 R を一様乱数で与える。

単位時間毎にそれぞれの粒界にひずみ $F(\theta)$ を蓄積させる。

ここで θ は粒界の荷重方向に対する角度で

$$F(\theta) = F_x \times \cos^2 \theta$$

ここで、 F_x は定数。

累積ひずみがき裂発生抵抗 R 値を越えた粒界にき裂が発生する。

(3) き裂の成長

実験でも示したようにき裂成長速度は応力の関数として表現できる。しかし、図17に示すようにき裂が粒界3重点で屈曲する時その角度によって、き裂先端の応力状態を示す応力拡大係数 K の値が変化する。この影響でき裂の成長速度が遅くなったり、粒界の屈曲角度が90度に近い状態であったならば成長が止まると考えられる。

粒界に沿って屈曲しながら進展するき裂の K 値を解析的に計算し、この K 値よりき裂進展速度を求めると。き裂進展速度は、図14の溶存酸素8ppmの文献値⁽⁴⁾を補正したものをを用いた。この補正は、微小き裂発生実験において、き裂発生、成長を促進する為、通常のPWR一次系模擬環境に水質管理基準内ではあるが、40ppb(±10ppb)の塩化物、硫化物を添加した影響や、き裂屈曲による K 値の減少を考慮したものである。

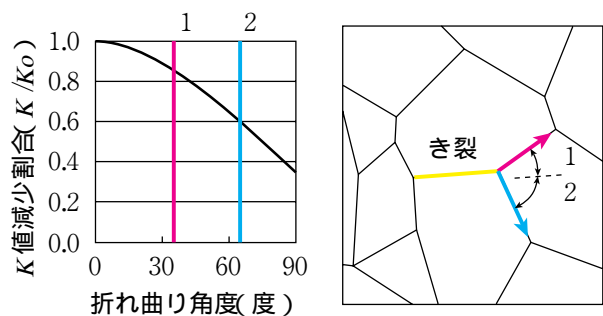


図17：き裂屈曲による力学的影響

4.3 シミュレーション結果

500時間の微小き裂発生実験をシミュレーションした結果を図18に示す。

図7の微小き裂発生実験結果と同様に不均一な長さ分布のき裂成長が再現できている。また、き裂は作用応力方向に垂直に進展する様子も実験結果と一致する。

5. まとめ

本研究は、EACの微小き裂の段階に着目して、実験方法、解析方法等の基礎的開発と基礎データを採取することを目的とした。PWR一次冷却材を模擬した高温水中において、304ステンレス鋼の割れが発生しやすい条件における実験データを取得し、モデル化を行った。

その結果、次の結果が得られた。

(1) 微小き裂発生実験

平板4点曲げ試験を適用し、微小き裂の発生から長いき裂に進展するまでの状況を観察し、き裂の長さ分布等のデータを得ることができ、統計モデルへの入力条件とした。

(2) 微小き裂成長実験

すき間形成治具によりき裂をDCPD電極間に局所化し、微小き裂から長いき裂となるまでのき

裂進展速度データを取得した。

き裂成長速度は最初高く時間とともに減少し、 J 値の増加に伴って再び進展速度が速くなる傾向があることが認められた。

初期き裂をさらに微小化した結果、データのばらつきが少なくなり、実験精度を向上させる可能性が示された。

(3) き裂発生・成長のモデル化

微小き裂が結晶粒界の影響を受けながら成長すると仮定し、結晶粒界3重点での力学的な関係によるき裂進展速度の低下を想定した。それにより、微小き裂発生実験で観察されたような複数のき裂の不均一な成長を再現することができた。

6. 今後の課題

(1) 微小き裂発生実験は、4点曲げ試験手法では試験条件を厳しくしないとデータの取得が困難であり、今後引張試験片の適用についての検討を行う必要がある。

(2) すき間形成治具を適用した微小き裂進展実験は、き裂発生の加速されることと、き裂進展の試験中観測が可能なことから、有益な手法であるが、今後種々のき裂形状に対するDCPD校正曲線の作成と検証が必要である。

また、本手法を適用して種々の条件の実験でデ

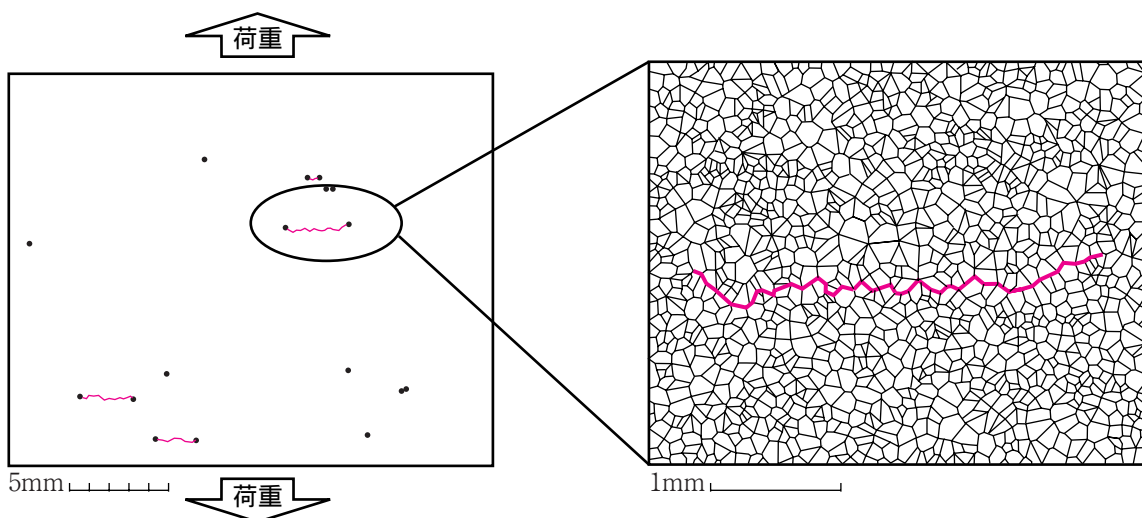


図18：計算結果例

ータを取得し，微小き裂進展挙動の観察を行ってゆくとともに，不純物等がき裂進展速度に及ぼす影響を評価する必要がある．

- (3) モデルについては，更に多くの実験データの取得と計算の過程，結果の検討により精度を向上してゆく必要がある．
- (4) 本研究で開発した手法およびモデルの，他の材料，環境への適用性について検討する必要がある．

文献

- (1) M. Akashi and G. Nakayama: International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures, Sapporo, 99-106, 1995
- (2) P. L. Andresen and F. P. Ford: International Journal of Pressure Vessles and Piping 59, 61-70, 1994
- (3) D. D. Macdonald, M. Urquidi-Macdonald and P-C

Lu: International Conference on Chemistry in Water Reactors, Nice, 279-290, 1994

- (4) W. J. Shack and T. F. Kassner: NUREG/CR-6176, 1994
- (5) 田中敬介：日本機械学会論文集A, 54 [497], 1, 1988
- (6) Y. Z. Wang, K. Ebtehaj, D. Hardie and R. N. Parkins: Corrosion Science, 37 [11], 1651-1675, 1995
- (7) 多田直哉，北村隆行，大谷隆一：日本機械学会論文集A, 56 [524], 702, 1990