圧力容器用 2・1/4Cr-1Mo 鋼の水素ぜい化割れき裂進展特性評価†

井 上 隆 夫* 横 幕 俊 典**
酒 井 忠 迪*** 能 勢 士 郎****

Hydrogen-Assisted Crack Propagation Behavior of 2・1/4Cr-1Mo Steel for Petroleum Reactor

by

Takao INOUE*, Toshinori YOKOMAKU**, Tadamichi SAKAI***
and Shiro NOSE****

The hydrogen-assisted crack propagation behavior of 2・1/4Cr-1Mo steel for a petroleum reactor was examined using a rising CMOD test which used a direct current potential difference (dcPD) method to measure crack extension. The initial hydrogen content in the specimens was about 5ppm when treated with thermal hydrogen charging. The equation to calibrate dcPD, defined in ASTM E647 for fatigue crack growth, gave a shorter crack extension than the actual hydrogen-assisted crack measured on fracture surfaces. A calibration curve for hydrogen cracking was derived from the relation between the actual crack extension and dcPD. The stress intensity factor at the hydrogen-assisted crack initiation, K_{IH} , was 23 to 28 MPa $\sqrt{m}$ and depended on the loading rate, dK/dt . Crack extension near the side surfaces was less than inside and the crack front was curved. The apparent stress intensity factor at the hydrogen-assisted crack arrest, K_{TH} , calculated using ASTM E813 was 52 to 67 MPa $\sqrt{m}$. The K_{TH} on deepest crack front was estimated using FEM, and found to be smaller than the apparent K_{TH} .

Key words: Hydrogen-assisted crack, Stress intensity factor, Crack initiation, Crack arrest, Crack propagation

1 緒 言

石油精製プラントの脱硫リアクター等に使用される耐熱鋼では、高温強度、クリープ特性やじん性などの特性とともに、耐水素ぜい化割れ特性が求められ、き裂進展開始時およびき裂進展停止時の応力拡大係数 (K_{IH} および K_{TH}) が評価されてきた。^{1)~4)}しかし、き裂進展速度に関する研究は少なく、^{3), 4)}複数試験片の平均き裂進展速度で検討されてきた。

本研究では、代表的なリアクター用耐熱鋼 (2・1/4Cr-1Mo 鋼) を対象に、直流ポテンシャル法でき裂深さのモニタリングを行うことにより、リアクター再稼働時等の負荷増加時の水素ぜい化割れ特性評価に重要な、荷重増加時のき裂進展特性 ($K\text{-}da/dt$) を評価した。また、実機相当の高水素濃度 (約 5ppm) 試験で観察されるトンネリングき裂について、板厚内部の各部でき裂進展特性を有限要素法を用いて検討した。

2 実 験 方 法

試験に供した材料の化学組成を Table I に、強度特性を Table II に示す。試験片形状は、ASTM E813-89 に準拠して作製したサイドグループ付き 1T-CT 試験片とした。

水素ぜい化割れ特性評価試験は、ロードラインき裂開口量 (CMOD) 制御のライジングロード法で行い、直流

ポテンシャル法 (dcPD 法) でき裂深さのモニタリングを行った。Table III に試験条件を、Fig. 1 に負荷パターンを示す。

Table I. Chemical composition (wt. %) $\bar{X}$ and J-factor (ppm).

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo
0.15	0.11	0.56	0.005	0.002	0.17	2.48	1.10
Cu	Sn	As	Sb	$\bar{X}$	J-factor		
0.15	0.001	<0.002	<0.0005	<5.9	<40		

Notes: $\bar{X} = (Mn + Si) \times (P + Sn) \times 10000$
J-factor = $(10P + 5Sb + 4Sn + As) / 100$

Table II. Tensile properties.

YS (MPa)	TS (MPa)	Flow stress $\sigma_y = (YS+TS)/2$	Elong. (%)	RA. (%)
447	582	515	31.9	83.9

Table III. Test conditions.

TP No.	Loading	Holding	
	d(CMOD)/dt (mm/s)	CMOD (mm)	Time (h)
No. 1	0.5×10^{-3}	0.285	1
No. 2	0.5×10^{-4}		4
No. 3			72
No. 4			100

† 原稿受理 平成 9 年 11 月 18 日 Received Nov. 18, 1997

* 正 会 員 (株)神戸製鋼所機械研究所 〒651-2271 神戸市西区高塚台, Kobe Steel Ltd., Nishi-ku, Kobe, 651-2271

** 正 会 員 (株)コベルコ科研 CAE 研究部 〒651-2271 神戸市西区高塚台, Kobelco Res. Inst., Inc., Nishi-ku, Kobe, 651-2271

*** 神鋼検査サービス(株) 〒676-0008 高砂市荒井町, Shinko Inspection Service Co. Ltd., Arai-cho, Takasago, 676-0008

**** (株)神戸製鋼所エネルギー化学本部 〒676-0008 高砂市荒井町, Equipment Eng. Dept., Kobe Steel Ltd., Arai-cho, Takasago, 676-0008

Fig. 1. Loading pattern.

なお、水素ぜい化割れ試験用の試験片には、試験中の水素放散を低減して試験片に水素を長時間保持するため、水素チャージ前に試験片表面に酸化被膜を形成した。水素チャージには、実機相当の高水素濃度とするため、オートクレーブによるサーマルチャージ法を用いた。水素チャージ条件は加熱温度 470℃、圧力 190 気圧、保持時間 48h とし、処理した後に速やかにオートクレーブから取り出し、試験開始までの水素放散を防止するため、試験まで液体窒素中で保管した。

3 実験結果

3・1 水素ぜい化割れ試験

水素チャージした試験片を用いて水素ぜい化割れ試験を行った。試験後は、残留水素量を分析するため、冷却しながら試験片の端部を切り取り、残部を加熱着色後に冷却して強制破断し、破面観察に供した。破面のマクロ写真とミクロ写真の例を Fig. 2 に、水素濃度および破面観察により求めたき裂深さを Table IV に示す。

Fig. 2. Fracture surface and SEM fractography.

き裂深さの計測は ASTM E813-89 に従い、9 点平均とした。き裂進展は、試験片内部で先行して側面面で遅れており、トンネリングを生じていた。No.2 でトンネリングプロファイルが凹凸になっており、板厚の位置により先行の程度が異なる。これは、板圧方向の材質的な差異を反映していると考えられる。

3・2 き裂深さ換算式の検討

Table IV. Hydrogen content and crack extension.

TP No.	H ₂ content		Pre-crack length (mm)	Crack extension (mm)
	Initial (ppm)	Final (ppm)		
No. 1	4.95	4.9	23.98	7.88
No. 2		4.47	23.84	3.37
No. 3		2.37	24.11	7.15
No. 4		1.87	23.99	10.06

き裂深さモニタリングに用いた dcPD 法の較正式として一般に使用される ASTM E647-91 はサイドグループのない CT 試験片を対象としている。このため、疲労き裂進展試験を行って、本試験に供したサイドグループ付き形状での疲労き裂用較正式を導いた。

疲労試験で得られたポテンシャルとき裂深さの関係を Fig. 3 に示す。なお、V₂₄ はき裂深さ 24mm でのポテンシャルである。Fig. 3 から本試験に用いた試験片の疲労き裂は、ASTM E647-91 に規定されているサイドグループなし 1T-CT 試験片とほぼ同様の特性を示し、次式で表されることがわかった。

Fig. 3. Calibration curve for fatigue crack length vs. potential change.

$$\begin{aligned} \frac{a}{W} = & 0.041 \times \left(\frac{V}{V_{24}} \right)^3 - 0.3422 \times \left(\frac{V}{V_{24}} \right)^2 \\ & + 1.1539 \times \left(\frac{V}{V_{24}} \right) - 0.3754 \end{aligned} \quad (1)$$

疲労き裂進展試験で得られた較正式 (式 (1)) を用いて CMOD 保持後のポテンシャルから計算した推定き裂深さと、破面観察による平均き裂深さの関係を Fig. 4 に示す。この図から、疲労き裂について求めた較正式で水素ぜい化割れのき裂深さを推定すると、き裂深さを過小評価することが明らかとなり、水素ぜい化割れのモニタリングには、他の較正式が必要ことが判った。そこで、No.2~4 の試験結果を用い、CMOD 保持後のポテンシャル変化と破面観察のき裂深さから Fig. 5 に示す較正式 (式 (2)) を求めた。

Fig. 4. Estimated crack length for hydrogen-assisted crack by Eq. (1).

Fig. 5. Calibration curve for hydrogen-assisted crack length vs. potential change ($dK/dt = 0.0135 \text{ MPa} \sqrt{\text{m/s}}$).

$$\Delta a/W = 4.111 \times \left(\frac{V}{V_{24}} - 1 \right)^2 + 0.7594 \times \left(\frac{V}{V_{24}} - 1 \right) \quad (2)$$

き裂開口速度が No.2~4 と異なる No.1 は, Fig. 2 から明らかなようにき裂形状が No.2~4 と異なっている。このために, ポテンシャル変化量とき裂進展量の関係も No.2~4 と No.1 とでは異なっており, 式 (2) を用いたき裂進展特性評価は No.1 には行わないこととした。なお, このことは水素ぜい化割れ試験には負荷速度毎に較正式が必要なことを示唆している。

3.3 平均的き裂進展特性

式 (2) で計算したき裂長さと CMOD の関係から, き裂進展に伴う屈曲点直前と直後の直線部をそれぞれ最小二乗法を用いて直線近似し, この 2 直線の交点で水素ぜい化割れが生じる応力拡大係数 (K_{IH}) を定義した。例として No.4 の結果を Fig. 6 に示す。同様にして求めた各

試験片の K_{IH} および保持終了時の荷重とき裂深さから計算したき裂進展停止時の応力拡大係数 (K_{TH}) の一覧を Table V に示す。No.2, 3, 4 とともに, 保持終了時にはき裂がほぼ停止していたため, この時の K 値を K_{TH} とした。また, き裂進展速度と応力拡大係数の関係を Fig. 7 に, き裂開口速度から計算した応力拡大係数増加速度 (dK/dt) と K_{IH} の関係を Fig. 8 に示す。なお応力拡大係数は平均き裂深さから ASTM E813-89 の計算式を用いて計算したが, 板厚方向 9 点におけるき裂深さのバラツキが大きく, 規格を満足していない。そのため見かけの値 (Apparent K) である。Table V から負荷速度が一定であれば K_{IH} はほぼ一定の値となることが, Fig. 7 から K_{TH} は CMOD 保持開始時の応力拡大係数に依存する傾向があることがわかる。また, Fig. 8 から明らかなように負荷速度の速い No.1 の K_{IH} は負荷速度の遅い No.2~4 の K_{IH} より高い。このことから, K_{IH} は応力拡大係数増加速度 (dK/dt) に依存し, dK/dt の低下に伴って K_{IH} は低下することがわかる。

4 トンネリングき裂先端の進展特性

4.1 3次元き裂に対する応力拡大係数の FEM 解析

先に述べたように, 本試験での水素ぜい化割れき裂は, 試験片内部でき裂が先行するトンネリングをおこしていた。これまでの計算では ASTM に規定された均一深さき裂の計算式を用いて, 9 点平均き裂深さから応力拡大係数を計算している。このため, 本試験のようなトンネリングき裂での実際の応力拡大係数は, これまでに計算した平均的な応力拡大係数 (Apparent K) と異なること

Fig. 6. Crack extension and Load vs. CMOD for No.4.

Table V. Stress intensity factor at crack initiation and arrest, K_{IH} and apparent K_{TH} .

TP No.	K_{IH} ($\text{MPa} \sqrt{\text{m}}$)	Apparent K_{TH} ($\text{MPa} \sqrt{\text{m}}$)
No. 1	27.9	—
No. 2	24.9	67.3
No. 3	23.3	59.0
No. 4	23.1	52.2

 Fig. 7. Crack growth property, apparent K vs. da/dt .

 Fig. 8. Relationship between dK/dt and K_{IH} .

が予想される。そこで、同じ負荷速度で試験した No.2～4 試験片の破面観察から得られた最終き裂先端形状でトンネリングき裂の進展履歴をモデル化し、平均き裂深さの異なる3つのき裂形状についてFEMによりき裂先端の応力拡大係数を求めた。解析に使用したメッシュ例をFig. 9に、き裂先端のモデル化をFig. 10に示す。

平均き裂深さの異なる3つのモデルについて、それぞれ試験片中央 (Center)、試験片中央から 1/4 板厚位置 (1/4T、き裂最深部)、サイドグループ底近傍 (Side、き裂最浅部) の3位置で、モード I の応力拡大係数を節点変位法で求めた。それぞれの位置での、モデルき裂深さ (a_{FEM}) と平均き裂深さ (a_m) の関係を Fig. 11 に、ASTM E813 と同様に式 (3) で定義した各位置での係数 ($F_{FEM}(a_m/W)$) と平均き裂深さの関係を Fig. 12 に示す。

$$K_{FEM} = \left[P / (B \cdot B_N \cdot W)^{1/2} \right] \cdot F_{FEM}(a_m/W) \quad (3)$$

ここで、 P : 荷重、 B : 試験片幅、 B_N : ネット試験片幅、 a_m : 平均き裂深さ、 W : $2 \times B$ である。

Fig. 12 の FEM で計算した各位置での係数と平均き裂深さの関係から、き裂最深部の係数 (1/4T- $F_{FEM}(a_m/W)$)

Fig. 9. 1/4 Model for finite element analysis.

Fig. 10. Models of crack front for finite element analysis.

は、き裂が内部でのみ進展して側面部近傍では進展しない間 ($a_m/W < 0.54$) に一旦減少し、その後の側面部近傍でのき裂進展に伴って ($a_m/W > 0.54$) 若干増加している。一方、側面部近傍ではき裂が進展しない間 ($a_m/W < 0.54$) にも、平均き裂深さの増加に伴って、側面部の係数 (Side- $F_{FEM}(a_m/W)$) が増加している。このため、き裂最深部 (1/4T) および側面部近傍 (Side) の係数と平均き裂深さの関係は、平均き裂深さから ASTM E813-89 の計算式で求めた係数 (Apparent- $F(a_m/W)$) の平均き裂深さの関係と異なり、平均き裂深さが増加しても、き裂最深部 (1/4T) では応力拡大係数があまり増加せず、側面部近傍で応力拡大係数が増加することが判る。

4・2 トンネリングき裂先端での応力拡大係数に基づくき裂進展特性

FEM で得られた形状係数で計算したトンネリングき裂先端の応力拡大係数の例として、No.4 の平均き裂深さ、ポテンシャル変化量および荷重の関係から求めたき裂深さと応力拡大係数の関係を Fig. 13 に示す。Fig. 13 から、試験片中央部でのき裂深さと応力拡大係数の関係 (Center) は、平均き裂深さと応力拡大係数のそれ (Apparent) とほぼ等しいが、き裂最深部 (1/4T) およびサイドグループ底近傍 (Side) でのき裂深さと応力拡大

係数の関係は、平均き裂深さから求めた関係と異なることが判る。

Fig. 11. Mean crack length vs. model crack length.

Fig. 12. Boundary correction factors for K.

特に、最もき裂の先行している 1/4T 位置で応力拡大係数は最も小さくなっている。き裂進展に及ぼす力学状態の影響のみを考えれば、応力拡大係数が最大の位置で最もき裂が先行することが予想され、この結果と矛盾する。しかし、水素ぜい化割れは力学状態だけでなくき裂先端近傍の水素濃度にも影響を受ける^{2), 3)}ことから、水素が放散されにくく水素濃度が比較的高く保たれやすい試験片内部（濃度の高い位置）では、水素性き裂進展抵抗が低く、応力拡大係数が低くとも先行してき裂が進展したと考えられる。

中央部では 1/4T 位置よりも応力拡大係数は高くなり、一方でき裂進展は少し遅れている。これは、初期水素濃度分布や何らかの微視組織的要因で 1/4T 位置よりもき裂進展が遅れ、その結果その位置での水素濃度が低下してき裂進展が遅れると考えられる。初期水素濃度の

Fig. 13. Crack length vs. FEM derived K of No. 4.

分布や材質分布との関連については今後の課題としたい。

側面部では応力拡大係数が最も高くなるにもかかわらず、き裂進展は最も遅れている。また、荷重増加時の応力拡大係数の増加も顕著である。これは、試験片側面から水素が放散されるために側面部近傍の水素濃度が中央部よりも低くなり、側面部では水素性き裂進展を生じにくいことによると考えられる。

なお、破面観察においても、き裂進展量の大きい試験片内部の破面は水素ぜい化割れ特有の花弁状ぜい性破面と粒界の混合破面を呈しているが、き裂進展量が小さい両側面近傍では水素性ぜい化破面と異なり延性的な破面形態を呈している。この観察結果からも、応力拡大係数とき裂進展量との関係に、試験片内部の水素濃度分布が影響していることが確認できる。

同様に、No.2 および No.3 のポテンシャル変化と荷重の履歴から 1/4T 位置でのき裂深さと応力拡大係数の関係を求めた。平均き裂深さから ASTM の式を用いて計算した関係を Fig. 14 に、FEM の結果を用いて計算した 1/4T 位置での関係を Fig. 15 に示す。

これらを比較すると、Fig. 14 の平均き裂深さから応力拡大係数を求めた関係では、荷重増加時にき裂進展に伴って応力拡大係数が増加するのに対し、Fig. 15 の FEM の結果から求めた 1/4T 位置での関係では、き裂進展開始から停止までの応力拡大係数の増加が少ない。また、き裂がほぼ停止する CMOD 保持後数時間までは、Table IV の No.2 の測定結果から明らかなように、試験片内部の水素濃度変化は少なく初期水素濃度を保っている。これらの結果から、試験片内部の最もき裂が先行して進展する位置のき裂先端では、他の部位と比べて相対的に水素濃度が高く保たれやすいため、ほぼ一定の応力拡大係数でき裂が進展したと考えられる。つまり、平均き裂深さから求めた応力拡大係数とき裂深さの関係は、延性的な破面を呈する側面部のき裂進展も含めた試験片全体の関係を表しているのに対して、FEM 結果から求めた 1/4T 位置（最もき裂が先行する位置）でのき裂深

 Fig. 14. Crack extension vs. Apparent K .

 Fig. 15. Crack extension vs. FEM derived K at 1/4T.

さと応力拡大係数の関係は、明確な水素ぜい化破面を呈している位置での関係を表している。実際のリアクターでは、板厚が大きいため水素が放散されにくい。従って、平均き裂深さから求めたき裂進展特性よりも、き裂が先行する位置でのき裂進展特性を評価することが望ましい。

5 結 言

本報では、水素ぜい化割れ特性評価に重要な、荷重増

加時のき裂進展特性を評価した。また、トンネリングき裂先端の応力状態について、有限要素法による検討を行った。検討結果を以下にまとめる。

(1) 水素ぜい化割れのき裂深さモニタリングに dcPD 法を適用した。ASTM E647-91 等の疲労き裂用較正式は、水素ぜい化割れのき裂深さを過小評価する場合があることを明らかにし、試験結果から水素ぜい化割れ用較正式を導いた。

(2) 2・1/4Cr-1Mo 鋼の K_{IH} は荷重速度に依存し水素濃度 4.95 ppm、荷重速度 0.135 MPa√m/s で約 24 MPa√m である。

(3) 荷重増加時のき裂進展は応力拡大係数の増加に伴って加速し、平均き裂深さで計算したき裂進展速度は、 $K=23\sim70$ MPa√m で、 $3\times10^{-4}\sim5\times10^{-3}$ mm/s である。

(4) 平均き裂深さから計算されるき裂進展特性は、き裂進展が遅れかつ延性的な破面を呈する側面部を含んだ、試験片全体の特性である。

(5) き裂が先行して進展する位置では典型的な水素ぜい化破面を呈し、平均き裂深さから求めた応力拡大係数よりも低い値でき裂が進展する。これは、き裂進展が力学状態だけでなく水素濃度に影響を受けるため、水素が放散されにくい位置（濃度の高い位置）では応力拡大係数が低くともき裂が先行して進展するためと考えられる。

(6) 最もき裂進展が先行する位置では、ほぼ一定の応力拡大係数でき裂が進展している。これは、き裂進展が先行する位置では水素放散が少ないために高い水素濃度が保たれやすく、き裂が進展しても水素性き裂進展抵抗の増加が少ないためと考えられる。

(7) 実際のリアクターでは、板厚が大きいため水素が放散されにくい。このため、トンネリングを生じた場合はき裂が最も先行する位置でのき裂進展特性を評価することが望ましい。

参 考 文 献

- 1) JPVRC 材料部会水素脆化専門委員会, “2・1/4Cr-1Mo 鋼の水素脆化割れ下限界応力拡大係数 K_{IH} の測定とその評価” (1989).
- 2) 駒村貴幸, 庄子哲雄, 日本機械学会論文集, A-61, 283 (1995).
- 3) N. Ohotsuka and H. Yamamoto, ASTM STP1085, 69 (1990).
- 4) CHEN L-C, SHEWMON P, Mater. Trans. A, 26, 9 (1995).