SSRT および定荷重下の高圧高温水中応力腐食割れにおける き裂先端ひずみ速度の定量的評価に関する研究*

森 谷 信 一^{*1}, 庄 子 哲 雄^{*2}

Quantitative Evaluation of Crack Tip Strain Rate Induced by Stress Corrosion Crack Advance in High-Temperature and High-Pressure Water

Shin-ichi MORIYA and Tetsuo SHOJI

It is an important issue to predict Stress corrosion crack growth behavior in the pressure boundary components of nuclear power plants during operation. The establishment of a prediction method of SCC crack initiation and growth in LWR environment is one of the essential steps for structural integrity assessment. In this paper, growth behavior of stress corrosion cracking in a reactor pressure vessel made of SA 533 B steel in a simulated LWR environment under monotonic rising load (of slow strain rate test) and constant loading was simulated by the combination of FEM stress-strain analysis on a growing crack and dissolution model. From the simulation results, the quantitative relationship between crack tip strain rate and crack propagation rate was discussed. Crack growth rate can be evaluated in terms both of crack tip strain rate and of crack tip solution chemistry such as sulfur concentration and I_{ss} .

Key Words: Stress Corrosion Cracking, Crack Propagation, Numerical Analysis, Finite Element Method, Crack Tip Strain Rate, Film Rupture Strain

1. 緒 言

軽水炉の健全性確保及び予知保全の高度化を行う上で、圧力壁部材に生ずる応力腐食割れ等の欠陥の発生、成長挙動の定量的な予測は重要な課題である。現在環境割れ挙動の定量的な評価線図としては、ASMEのボイラー及び圧力容器設計コードSec. XI Appendix Gがあるが、これは腐食疲労を対象としており、さらに環境条件及び力学条件の効果についても新たなデータを加え、機構的な解釈を含めて現在より高精度な評価線図を目指して見直しが行われている。プラントの余寿命評価を行う上では、プラントの負荷履歴を考慮した予測、評価手法が必要となる。すなわち、プラント起動時の負荷単調増加モード、定常運転下における一定負荷モード等を考慮したより現実的な評価手法が求められている。前述したように現在の評価線図は疲労負荷を対象としているために、き裂進展速度の評価は応力拡大係数振幅を基に行っており、単調増加負荷や

一定負荷下における評価には不十分であり鋭意検討が進められている。その中で、き裂進展のメカニズムに立脚し、き裂先端ひずみ速度に着目した評価線図が提案され⁽¹⁾、き裂先端ひずみ速度を解析的に求めようとする試みもなされている⁽²⁾⁻⁽⁵⁾。しかしながら、実機プラントにこれらき裂先端ひずみ速度の解析手法を適用することは非常に困難である。そこで本論では、き裂先端ひずみ速度を評価するための有限要素法を用いた応力腐食割れのシミュレーション法を開発して、沸騰水型軽水炉(BWR)環境中における応力腐食割れ挙動の定量的な評価手法について検討を行った。

2. 応力腐食割れモデル

本論では、溶解モデル⁽⁶⁾⁻⁽¹²⁾に基づいて、き裂進展をシミュレーションする。高温高圧水中においては、金属表面は保護性のある酸化物皮膜により覆われている。もし構造物中にき裂が存在すると、負荷によるひずみ集中によりき裂先端部の酸化物皮膜が破壊され、その結果、き裂先端部が腐食性の強い高温高圧水環境

* 原稿受付 平成6年2月2日。

^{*1} 学生員、東北大学大学院 (〒980 仙台市青葉区荒巻字青葉)。

^{*2} 正員、東北大学工学部。

にさらされて溶解が起こり、き裂が進展する。このときの溶解量がわかればき裂進展量を求めることができる。この溶解量は、材料と環境の組み合わせにより異なり、模擬環境下でポテンシャルパルス法等により電流密度減衰曲線として測定することができる⁽⁸⁾。図1に電流密度減衰曲線の模式図を示す。皮膜破壊直後には、高い電流密度を維持するが、やがて皮膜が再形成されるために時間と共に電流密度が減少していく。このサイクルが繰り返されてき裂が進展していく。この1サイクル当たりの電荷量を Q_f とすると、き裂伝播速度はファラデーの法則により、次式のように表わすことができる。

$$\frac{da}{dt} = \frac{M}{\rho F z} \times \frac{Q_f}{\varepsilon_f} \times \frac{d\varepsilon_{cl}}{dt} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$Q_f = \int_0^{t_f} i(t) dt \quad \dots\dots\dots (2)$$

M ：原子量
 z ：酸化反応過程での原子価の変化
 ρ ：密度
 F ：ファラデー定数
 Q_f ：皮膜破壊周期に蓄えられる電荷量

図1 電流密度減衰曲線及び電荷量と
き裂進展量の関係の模式図

ε_f ：皮膜破壊ひずみ
 $d\varepsilon_{cl}/dt$ ：き裂先端のひずみ速度
 t_f ：皮膜破壊周期
 $i(t)$ ：ポテンシャルパルス法により得られた電流密度（電流密度減衰曲線）

(1)及び(2)式と電流密度減衰曲線から、き裂先端のひずみ速度とき裂伝播速度の関係の応力腐食割れ評価線図を得ることができる。

3. シミュレーション法

本シミュレーションでは、有限要素法を用いたき裂先端部の弾塑性解析により、き裂先端のひずみ速度を評価し、溶解モデルに基づき(1)式を用いてき裂伝播量を求める⁽¹³⁾⁻⁽¹⁵⁾。き裂の伝播挙動は、有限要素分割したき裂先端の節点解放により模擬する。計算のフローチャートを図2に示す。計算の流れは、き裂初生判定ループとき裂進展量解析ループの大きく2つに分けることができる。き裂先端部の弾塑性解析を行いながら、変位あるいは荷重増分を加えていき、き裂初生条件を満足後、き裂先端の節点開放を開始する。その後、所定の変位あるいは時間に達するまで変位増分あるいは時間増分を加えていき、き裂伝播解析を繰り返していく。

本シミュレーション法では、き裂先端のひずみを有限要素法にて求めるが、ひずみ量を求める際の問題として、要素の大きさの影響を受けることが挙げられる。すなわち、有限要素分割した要素が大きい方がひずみ値が小さくなり、要素が小さい方がひずみ値が大きくなる傾向にあり、従って要素の大きさを変えると、得られるき裂伝播速度が異なることになる。ここで、(1)式を次のように書き換える。

$$\frac{da}{dt} = \frac{M}{\rho F z} \times Q_f \times \frac{d\varepsilon_{cl}/dt}{\varepsilon_f} \quad \dots\dots\dots (1)'$$

(1)'式において、右辺のき裂先端ひずみ速度を皮膜破壊ひずみで除した項は、皮膜破壊頻度すなわち単位時間あたりの皮膜破壊回数と解釈することができる。ここで、大きさの異なる有限要素分割で解析を行なうと、得られるき裂先端ひずみ速度は異なるが、この皮膜破壊頻度が同じになるような ε_f を選ぶことができれば、得られるき裂伝播速度は同じになると考えられる。すなわち、要素の大きさに応じた皮膜破壊ひずみを得られれば、き裂先端ひずみの評価時の、要素の大きさ

図2 計算の流れ図

の影響を小さくすることができると考えられる。本論では、皮膜破壊頻度に着目した応力腐食割れ挙動評価線図を作成し、シミュレーション結果とこの評価線図及び実験結果と比較して、本シミュレーション法の妥当性について検討を行った。

4. 解析条件

本論で対象とする材料は、圧力容器用低合金鋼SA533B高硫黄材である。その化学成分及び機械的性質を表1に、また、本論で行った低ひずみ速度試験(SSRT)の環境条件を表2に示す。図3にFordら⁽⁸⁾により測定された電流密度減衰曲線を示す。測定上ある程度伝導度が必要なため純水にNaMoO₄を添加している。図より解

表1 SA533Bの材料特性

(a) 化学成分

Material	C	Si	Mn	P	Ni	S	Cr	Mo	Cu
wt%	0.21	0.29	1.45	0.007	0.014	0.65	0.03	0.5	0.03

(b) 機械的性質

Yield stress (MPa)	Tensile strength (MPa)	Elongation (%)	Reduction of area (%)
422	608	18.3	57.2

表2 環境条件

Pressure	8.33MPa
Temperature	288℃
pH (at R.T.)	5.9
Conductivity	(inlet) <0.2μS/cm (outlet) <4μS/cm
D.O.	(inlet) >20ppm (outlet) >2ppm
Flow rate	0.2 volume exchange/hr

図3 SA533Bの電流密度減衰曲線測定結果

るように、皮膜破壊直後には高い電流密度を示すが、時間とともに酸化皮膜が再生するために電流密度は減少していく。また、SO₄²⁻イオンの影響を調べるために、環境中のSO₄²⁻イオン濃度を変えて測定を行っている。SO₄²⁻濃度が高いほど電流密度が大きくなっており、溶解が進行しやすいことを示している。一方、図より分かるように皮膜再生時の曲線の傾きnは、濃度によらずほぼ一定となっている。シミュレーションでは、SO₄²⁻イオン濃度が500ppm及び4800ppmのものと、4800ppmのカーブの電流密度を10倍したものの3種を用いた。また、測定は1000secまでしか行っていない

が、定荷重試験の解析を行うにはさらに長時間のデータが必要となる。高温高圧水中においては、皮膜破壊がない場合でも、皮膜がある速度で溶解している場合があると考えられ、ここではその皮膜の溶解電流密度を I_{ss} と定義する。図3より、 10^3sec 時に 10^{-3}A/cm^2 のオーダーであることから $I_{ss}=10^{-3}\text{A/cm}^2$ と仮定し、さらに I_{ss} の影響について検討するために 10^{-4}A/cm^2 についても計算を行った。

解析の対象は、1T-CT試験片を用いた低ひずみ速度試験(SSRT)と定荷重試験とした。図4に試験片の有限要素分割の様子を示す。使用している要素は、8節点アイソパラメトリック要素である。また、表3にSSRT及び定荷重試験のシミュレーション条件をまとめて示す。

(a) Whole

(b) Part

図4 有限要素分割

表3 シミュレーション条件

SO_4^{2-} concentration of current transient curve	500ppm 4800ppm
I_{ss}	0.001A/cm^2 0.0001A/cm^2
Extension rate (SSRT)	$8.33 \times 10^{-3}\text{mm/sec}$ $8.33 \times 10^{-6}\text{mm/sec}$
Constant load	20kN 35kN 50kN

5. 解析結果

5・1 応力腐食割れ評価線図 図5に、引張り速度 $2.78 \times 10^{-6}\text{mm/sec}$, SO_4^{2-} イオン濃度4800ppm, 皮膜溶解速度 $I_{ss}=0.0001\text{A/cm}^2$, 皮膜破壊ひずみ0.00001とした時のシミュレーション結果の例を示す。それぞれ、(a)荷重-変位曲線、(b)時間-き裂長さ、(c)き裂長さ-き裂先端ひずみの関係を表している。き裂先端のひずみ量は、き裂先端部要素の4点のガウスポイントの平均のひずみ量として求めている。

(a) Displacement-Load

(b) Time-Crack length

(c) Crack length-Crack tip strain

図5 シミュレーション結果例

き裂長さ-き裂先端ひずみのグラフに多数のピークが見られるが、このピークはそれぞれ1つの要素に対応しており、き裂が進展して次の要素に進む度に一旦減少してから再び増加するというサイクルを繰り返していく。このとき、き裂が進展するにつれて、そのピーク値は緩やかに増加する傾向にある。ここで、き裂先端のひずみ速度は、各要素に対応した各ピークの傾きから求め、き裂先端のひずみ速度にはこの値を用いることとする。

次に本解析により得られた、応力拡大係数Kとき裂伝播速度の関係及び、応力拡大係数Kとき裂先端ひずみ速度の関係を図6に示す。図中SSRT及びCLと表記してあるのは、それぞれ低ひずみ速度及び定荷重下における解析結果である。図よりわかるように、この応力拡大係数範囲においてき裂伝播速度及びき裂先端ひず

み速度は、応力拡大係数に一意的に支配されておらず、従って応力拡大係数は環境助長割れ伝播速度の評価パラメータとしては、必ずしも十分であるとは言い難いと考えられる。

図7に、(1)'式により得られた皮膜破壊頻度とき裂進展速度の関係及び、シミュレーションにより得られた結果を示す。図中線で示したのが(1)'式より得られた結果であり、プロットしてあるのがシミュレーション結果である。シミュレーション結果は、(1)'式により得られる線図とほぼ一致しており、本シミュレーション法の妥当性を示している。

図よりわかるように、き裂進展速度はき裂内の環境、すなわち SO_4^{2-} イオン濃度及び皮膜溶解速度 I_{ss} により整理することができ、ある皮膜破壊頻度を境にして、 SO_4^{2-} イオン濃度と I_{ss} のどちらが支配的になるか分か

(a) Dependence of crack growth rate on K

(b) Dependence of crack tip strain rate on K

図6 シミュレーションによるき裂進展速度及びき裂先端ひずみ速度の応力拡大係数依存性

図7 き裂先端ひずみ速度とき裂進展速度の関係

れる。皮膜破壊頻度が大きい場合には、負荷による皮膜破壊と金属母地の溶解がき裂進展の主要因となるために SO_4^{2-} イオン濃度が支配的となる。一方、皮膜破壊頻度が小さい領域では、負荷による皮膜破壊よりも皮膜の定常的溶解がき裂進展の主要因となるために I_{ss} が支配的となる。

ここで、シミュレーションでは要素の大きさ、あるいは皮膜破壊ひずみを変えて解析を行った場合の解析結果を検討するために、皮膜破壊ひずみを一定にして要素の大きさを変えた場合と、要素の大きさを一定として皮膜破壊ひずみの大きさを変えた場合の解析を行った。

図中4800ppmの電流密度減衰曲線を10倍した場合のシミュレーション結果は、皮膜破壊ひずみをFordら⁽⁸⁾により測定されている値0.003を用いて、要素の大きさを0.125から0.6mmまで変えて解析を行ったものである。要素の大きさにかかわらず、(1)'式より得られた直線の傾きとよく一致している。また、4800ppm及び500ppmの電流密度減衰曲線を使ったものは、要素の大きさを一定として皮膜破壊ひずみを 10^{-6} から 10^{-3} まで変えて解析を行ったものである。やはり、(1)'式より得られた直線の傾きとよく一致をみせている。この事は、き裂先端のひずみ速度を皮膜破壊ひずみで規格化することにより、要素の大きさあるいは皮膜破壊ひずみが異なる解析を行っても、この皮膜破壊頻度を使うことにより傾きが一定の直線となることを示している。

ここで、図7の評価線図の傾きについて考察してみる。前述したように、ある皮膜破壊頻度 $(d\epsilon_{cl}/dt)/\epsilon_f$ を境として SO_4^{2-} イオン濃度と I_{ss} のどちらが支配的になるかに分かれる。まず、 SO_4^{2-} イオン濃度が支配的となる高皮膜破壊頻度領域を考える。Fordらにより、(1)式と電流密度減衰曲線の傾きの関係が次のように求められている。図3より電流密度減衰曲線は、次式により近似できる。

$$i(t) = i_0 \quad (t \leq t_0) \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$i(t) = i_0 \left(\frac{t}{t_0} \right)^{-n} \quad (t > t_0) \quad \dots\dots\dots (4)$$

t_0 は、酸化皮膜が再形成し始める時間であり、 n は電流密度減衰曲線の傾きである。もし、 t_0 が t_f よりもかなり小さければ、(4)式を(2)式に代入すると、皮膜破壊周期 t_f に蓄えられる電荷量 Q_f は、次式で表わすことができる。

$$Q_f = i_0 t_0^n \frac{t_f^{1-n}}{1-n} \quad \dots\dots\dots (5)$$

この式を式(1)に代入すると、次式に示されるようにき裂伝播速度は電流密度減衰曲線の傾き n を用いて表わすことができる。

$$\frac{da}{dt} = \frac{M}{\rho f z} \times \frac{i_0 t_0^n}{1-n} \times \left(\frac{d\epsilon_{cl}/dt}{\epsilon_f} \right)^n \quad \dots\dots\dots (6)$$

一方、皮膜破壊周期 t_f が t_0 よりも小さければ、き裂先端部の皮膜が再生されずに連続的に溶解していると考えられ、き裂伝播速度は(1)、(2)及び(3)式より次に示す上限値をとることになる。

$$\frac{da}{dt_{\max}} = \frac{M}{\rho f z} i_0 \quad \dots\dots\dots (7)$$

従って、本シミュレーションにおいて ϵ_f あるいは要素の大きさを変えて解析を行っても、 $(d\epsilon_{cl}/dt)/\epsilon_f - da/dt$ 線図の傾きは $t_f > t_0$ の場合には、(6)式より電流密度減衰曲線の傾き n に等しくなり、 $t_f < t_0$ の場合には(7)式により傾きが0となることがわかる。次に I_{ss} が支配的となる低皮膜破壊頻度領域について考える。この領域においては、き裂伝播が皮膜の定常的な溶解により進むために、き裂伝播速度は皮膜破壊頻度によらずほぼ一定となり、その傾きはほとんど0となる。このような低皮膜破壊頻度領域は、定荷重負荷モードあるいは極くゆっくりとした単調増加負荷モードの場合に起こり得ると考えられる。この場合、き裂先端のひずみ増加は、外部からの負荷により与えられるというよりも、化学的な溶解によるき裂成長により引き起こされると言える。シミュレーションより、このような負荷条件下においては、皮膜溶解によるごくゆっくりとしたき裂成長が最初続き、やがてそれに伴ったき裂先端ひずみの増加量が、皮膜破壊ひずみに達すると皮膜破壊が起こり、き裂先端部での爆発的な溶解により一時的に急激な進展が起こる。その後、皮膜が再形成されると再び皮膜の溶解による極くゆっくりとしたき裂進展が続き、やがて皮膜破壊が再び起こる。このサイクルのくり返しによりき裂が進展していくと考えられる。このようなき裂進展挙動を実験により再現するには、多大な時間を必要とするため非常に困難であり、そのためこのような負荷条件下における応力腐食割れ挙動を定量的に評価する場合、本報による手法が非常に有用であると言える。ここで、もしも I_{ss} が観察

されないような環境下であれば、このような負荷モード下では、き裂先端ひずみの増加がないために応力腐食割れによるき裂進展は起こらないと考えられる。ここで、本論の解析では定荷重下におけるクリープを考慮していないが、クリープが起こり得る環境下であれば、 I_{SS} によるき裂進展だけでなくクリープにより生ずる皮膜破壊頻度を考慮に入れる必要がある。

5・2 皮膜破壊ひずみの検討 次に、要素の大きさに合った皮膜破壊ひずみを得る方法について検討を行う。図8に引張り速度 8.33×10^{-6} mm/secにおいて、要素の大きさを一定にし、き裂先端部の SO_4^{2-} イオン濃度を4800ppmと仮定した上で、皮膜破壊ひずみを $10^{-7} \sim 10^{-3}$ に種々変えて解析を行い、皮膜破壊ひずみとき裂伝播速度の関係を表わした図を示す。皮膜破壊ひずみが 10^{-5} よりも小さい領域では、皮膜破壊頻度が非常に大きくなりき裂先端部の溶解が連続的に進むために、き裂伝播速度が(6)式で示される上限値となる。また、それよりも大きい皮膜破壊ひずみの場合には、皮膜破壊ひずみとき裂伝播速度の関係は直線で近似することができる。

図8 皮膜破壊ひずみとき裂進展速度の関係

図9 各引張り速度におけるき裂進展速度の実験結果とシミュレーション結果の比較

一方、本解析と同じ条件の実験において、き裂伝播速度は 7×10^{-5} mm/secを示しており、図より同じき裂伝播速度が得られる皮膜破壊ひずみを求めると、約 10^{-5} 程度である。この値が、本解析で用いている要素の大きさに応じた皮膜破壊ひずみであると考えられる。そこで、この皮膜破壊ひずみを用い、引張り速度を変えてSSRTのシミュレーションを行って得られた結果と実験結果の比較を図9に示す。横軸に引張り速度、縦軸にき裂伝播速度を示す。その結果、シミュレーション結果と実験結果は良い一致を示しており、得られた皮膜破壊ひずみの妥当性を示していると考えられる。図10に要素の大きさの影響をキャンセルするための本解析の手順をフローチャートに整理して示す。

なお、本解析ではき裂先端部の SO_4^{2-} イオン濃度を4800ppmと仮定して行っているが、 SO_4^{2-} イオン濃度は、試験条件あるいは試験時間等により変化すると考えられ、それに対応する電流密度減衰曲線を用いる必要がある。すなわち解析の精度向上を行う上でき裂先端部の化学組成の解析が必要であり、今後の課題である。

6. 結 言

実プラントの運転サイクルを考慮できる応力腐食割れ評価線図として、き裂先端ひずみ速度による評価が提案されているが、構造物におけるき裂先端のひずみ速度の評価法が問題であった。そこで、本論では応力腐食割れ挙動の定量的予測のために、有限要素法によるき裂先端部の弾塑性解析を行い、そのひずみ量から溶解モデルに基づいてき裂伝播量を求めるコンピュー

図10 シミュレーションで用いる要素の大きさに応じた皮膜破壊ひずみの評価手順

タ・シミュレーション法の開発を行った。有限要素法によるひずみ量の評価の上で、要素の大きさの影響が問題となるが、き裂先端ひずみ速度をその要素の大きさに応じた皮膜破壊ひずみで除した、皮膜破壊頻度に着目することによりその影響は小さくできることがわかった。また、要素の大きさに応じた皮膜破壊ひずみは、一度実験により得られたき裂伝播速度と皮膜破壊ひずみを変えて行ったシミュレーション結果を比較することにより得られ、その値を使用することにより他の条件のシミュレーションができる。実際に、引張り速度を変えて行った実験とシミュレーション結果は良い一致を示しており、本解析手法の妥当性を示している。

また、定荷重試験あるいは極く小さい引張り速度のSSRT試験のような長時間を要する試験の場合、本解析手法を用いることにより応力腐食割れ挙動の定量的な予測を迅速に行うことができる。

文 献

- (1) F. P. Ford et al., Corrosion Science, vol. 25, p.673 (1985)
- (2) P. M. Scott et al., Corrosion, vol. 40, p.350 (1984)
- (3) D. P. G. Lidbury, UKAEA, ND-R-916(R) (1983)
- (4) G. Gabetta et al., Proc. 2nd IAEA Specialists' Meeting on Subcritical Crack Growth, Sendai, vol. 2, p. 131 (1985)
- (5) T. Shoji et al., 文献(4)と同じ, vol. 2, p. 357
- (6) F. P. Ford, Proc. 1st IAEA Specialists' Meeting on Subcritical Crack Growth, Freiburg, vol. 2, p. 249 (1981)
- (7) F. P. Ford, Final report of EPRI contract RP 1332-1, Report # NP 2589 (1982)
- (8) F. P. Ford et al., 文献(4)と同じ, vol.2, p. 231
- (9) R. N. Parkins, Environmental - Induced Cracking of Metals, NACE, Houston, p. 1 (1990)
- (10) R. C. Newman et al., British Corros. J., 25, p. 250 (1990)
- (11) F. P. Ford et al., Parkins Symposium on Fundamental Aspects of Stress Corrosion Cracking, Ohio, p. 43 (1991)
- (12) R. C. Newman et al., Corrosion - Deformation Interactions CDI '92, Fontainebleau, France, p. 3 (1992)
- (13) T. Shoji et al., ASTM STP 1154, p. 44 (1992)
- (14) T. Shoji et al., 文献(12)と同じ, p. 859
- (15) S. Moriya et al., 6th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, San Diego (1993)