

微視的不均質を考慮した確率論的応力腐食割れ寿命予測法の提案

研究代表者 静岡大学工学部機械工学科 准教授 藤井 朋之

1. 緒言

ステンレス鋼は耐食性に優れた構造用材料として、化学プラントや発電プラントで使用されている。しかしながら、高耐食性のステンレス鋼製の部材に生じる損傷のうち、約7割は腐食が原因である。特に、引張応力作用下で生じるき裂状の局部腐食である応力腐食割れ (Stress Corrosion Cracking: SCC) は、非破壊検査による検出が困難であることや残留応力の影響を受けるため溶接補修が困難であることから機械構造物の安全性を脅かすため、喫緊の課題となっている¹⁾。SCCによるき裂の発生や進展の機構に関する研究が進められているが、全てが必ずしも明らかになっていないことから、SCCを完全に防止することができていない。よって、設備機器の安全性確保のため、SCC寿命の高精度予測法の開発が求められている。

SCCでは、図1に示すように(I) き裂のない潜伏期間、(II) 結晶粒程度の大きさの微小き裂の発生、(III) 微小き裂の進展と合体、(IV) 大きき裂の形成の複雑なき裂過程を経る。現在、非破壊検査で検出できる寸法のき裂に対して、き裂進展特性を用いた評価が行われている²⁾。SCC挙動には、微視組織が大きな影響を与えることが知られているが、本手法では考慮されていない³⁾。研究代表者らは、このようなSCCき裂挙動に及ぼす微視組織の影響を考慮したSCC寿命の評価のために、SCCの特異なき裂挙動を再現できるMonte Carloシミュレーションを開発してきた⁴⁾。本シミュレーションでは、き裂挙動のばらつきを乱数により再現しているものの、複数のき裂の挙動を全て考慮する大規模計算が必要なことや乱数を変化させて複数の大規模計算を行う必要があることから計算コストが非常に高い手法であり、寿命評価法としてはデメリットが多い。

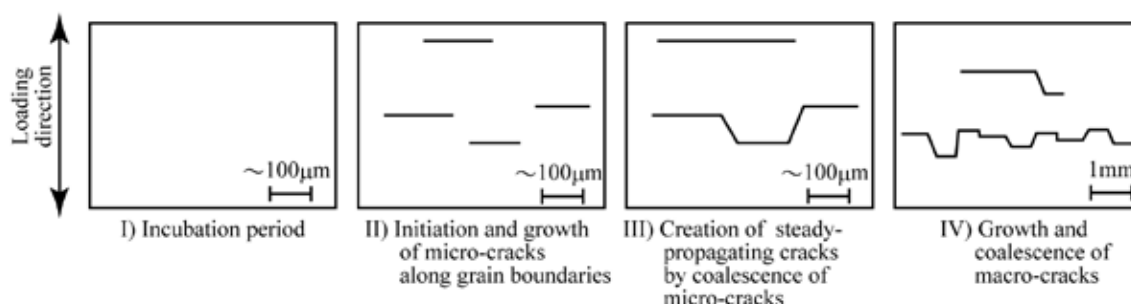


図1 SCCき裂挙動の模式図

このようなき裂挙動のばらつきを考慮した寿命評価は、疲労 (材料に繰り返し負荷が作用することで破壊に至る現象) 分野で先行している。疲労き裂の発生や進展に関する作用応力の不規則性や材料の不均質性によるき裂挙動への影響を確率論的に取り扱う研究が行われている。例えば、中井らは、疲労寿命をき裂発生および進展にわけ、さらにそれぞれの寿命を確率論的に評価する

手法を提案している⁵⁾。また、兼清は疲労き裂の不規則き裂成長に対して確率モデルによる手法を提案している⁶⁾。

本研究では、微視組織の不均質性を考慮した SCC における寿命評価法の構築を行った。まず、疲労寿命の評価のために構築された寿命予測法⁵⁾を SCC の特異なき裂挙動に対応できるように拡張した。また、SCC の微視組織とき裂挙動の関係を明らかにするために、き裂挙動のその場観察実験を行った。

2. 応力腐食割れ寿命予測の定式化

2.1 き裂挙動のモデル化

SCC は、図 1 に示すようなき裂挙動を経るが、き裂挙動としては発生・合体・進展の三種類がある。き裂の合体を複数き裂の合体による進展と見なすことで、き裂発生と進展に分けることができる。よって、SCC の全寿命はき裂発生寿命とき裂進展寿命に分けて評価が可能である。このようなき裂挙動を分けて寿命評価する試みは、疲労寿命の評価でも行なわれている⁷⁾。本研究では、SCC の全寿命をき裂の発生寿命と進展寿命の和として評価する。

2.1.1 き裂発生

明石らは、ステンレス鋼の平滑表面に生じる SCC 挙動の詳細な観察を行っており、顕微鏡下で検出可能な結晶粒程度の微小き裂の発生間隔は指数分布となり Poisson 過程に近似できることを示している⁸⁾。したがって、時間 t における微小き裂発生の累積分布確率 $F_i(t)$ は以下の指数分布で表される。

$$F_i(t) = 1 - \exp\left(-\frac{t - a_i}{\theta_i}\right) = 1 - \exp\{-H_i(t)\} \quad (1)$$

ここで、 a_i は潜伏期間を表す位置パラメータ、 θ_i は標準偏差を表す尺度パラメータ、 $H_i(t)$ は累積故障率である。さらに、時間 t における確率密度関数 $f_i(t)$ は式 1 を微分することで得られる。

$$f_i(t) = \frac{1}{\theta_i} \exp\left(-\frac{t - a_i}{\theta_i}\right) \quad (2)$$

藤井らは、ステンレス鋼の平滑表面に生じる SCC き裂の結晶学的評価を行っている⁹⁾が、表面き裂は粒界の全長（粒界三重点の間）にわたり突然発生することを明らかにしている。粒界の長さは結晶粒径と同程度であることから、発生するき裂の表面における長さは結晶粒径の分布に従うと近似できる。以上まとめると、SCC き裂は、時間 t において長さが結晶粒径分布の確率密度 $f_i(t)$ で発生するとモデル化することができる。

2.1.2 き裂進展

疲労き裂の進展で提案されているモデル⁵⁾を SCC き裂進展に応用する。SCC き裂の進展速度は、破壊力学を用いて次式で表される。

$$\frac{dc}{dt} = \varepsilon(K)^m, K = \sigma\sqrt{\pi c} F \quad (3)$$

ここで、 c はき裂の代表寸法であり、表面方向への進展に着目した際にはき裂長さの半長 a 、深さ方向への進展に着目した際にはき裂深さ b である。また、 K は応力拡大係数、 ε と m は材料定数、 σ は作用応力、 F は形状に関する修正係数である。表面き裂が半楕円であるとする、き裂の表面および最深部における応力拡大係数 K_A と K_B はそれぞれ次式で与えられる。

$$K_A = F_A \left(\frac{b}{a}\right) \sigma\sqrt{\pi a}, \quad K_B = F_B \left(\frac{b}{a}\right) \sigma\sqrt{\pi b} \quad (4)$$

ここで、 K_A と K_B は図 2 に示すアスペクト比の関数である¹⁰⁾。本研究では、計算の単純化のため、アスペクト比が一定のまま、き裂が進展することを仮定する。

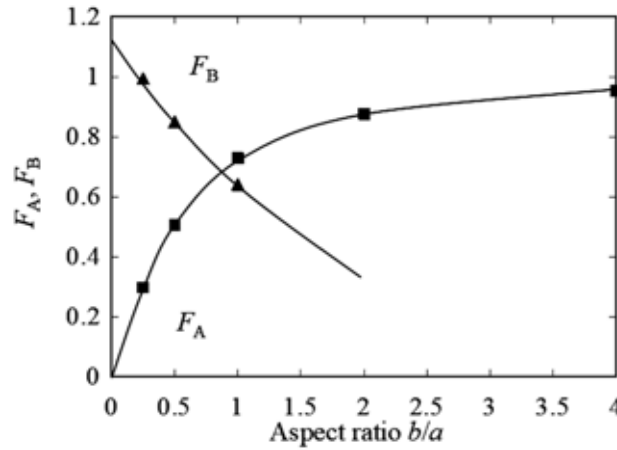


図 2 表面き裂における応力拡大係数の修正係数

また、式 3 は各種変数を無次元化して、以下のように表現する。

$$\frac{dx}{d\tau} = \varepsilon' \left(\frac{K}{K_0}\right)^m = \varepsilon' (Z\sqrt{x})^m \quad (5)$$

ここで、 K_0 は参照応力拡大係数、 Z は無次元化作用応力、 τ は無次元化時間、 x は時間 τ 後の無次元化き裂長さ、 ε' は次式である。

$$\varepsilon' = \frac{1}{c_0} \cdot 10^6 \cdot \varepsilon \cdot (\sigma_0 F)^m (\pi c_0)^{\frac{m}{2}} \quad (6)$$

ここで、 σ_0 および c_0 はそれぞれ参照応力および参照き裂寸法である。

き裂の進展過程は外力の不規則性や材料強度の不均質性の影響を受けるため、次式で表現できる。

$$\frac{dx}{d\tau} = \varepsilon' \cdot C_\tau \cdot (x)^{\lambda+1} \cdot (Z_\tau)^{2(\lambda+1)}, \lambda = m/2 - 1 \quad (7)$$

ここで、 C_τ は時間 τ における材料の不均質性を表す不規則進展抵抗、 Z_τ は外力の不規則性を表す。式7で表されるき裂進展過程を確率過程 x と見なしマルコフ性を仮定する。初期き裂長さ x_i のき裂が τ 秒後にき裂長さ x 以下である確率密度関数を $w(x, \tau|x_i)$ とすると、次のFokker-Planck方程式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial w(x, \tau|x_i)}{\partial \tau} = & -A(\tau) \frac{\partial}{\partial x} \{x^{\lambda+1} \cdot w(x, \tau|x_i)\} \\ & - \frac{1}{2} B(\tau) \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{dg(x)}{dx} x^{2\lambda+1} \cdot w(x, \tau|x_i) \right\} \\ & + \frac{1}{2} B(\tau) \frac{\partial^2}{\partial x^2} \{x^{2(\lambda+1)} \cdot w(x, \tau|x_i)\} \end{aligned} \quad (8)$$

ここで、 $A(\tau)$ 、 $B(\tau)$ 、 $g(x)$ はそれぞれ次式である。

$$A(\tau) = \varepsilon \cdot E \left[C_\tau \cdot Z_\tau^{2(\lambda+1)} \right] \quad (9)$$

$$B(\tau) = 2\varepsilon^2 \int_{-\infty}^0 \left\{ E \left[C_\tau \cdot Z_\tau^{2(\lambda+1)} C_{\tau+\tau'} \cdot Z_{\tau+\tau'}^{2(\lambda+1)} \right] - E \left[C_\tau \cdot Z_\tau^{2(\lambda+1)} \right] \cdot E \left[C_{\tau+\tau'} \cdot Z_{\tau+\tau'}^{2(\lambda+1)} \right] \right\} d\tau' \quad (10)$$

$$g(x) = x^{\lambda+1} \quad (11)$$

本研究では材料の不均質性のみに着目するため、外力の不規則性 Z_τ は一定値 Z_0 とする。式8を解くと、次式が得られる。

$$\begin{aligned} w(x, \tau|x_i) = & \frac{1}{x^{\lambda+1} \sqrt{\frac{2\pi\alpha}{2\lambda+1} \left\{ x_i^{-(2\lambda+1)} - \text{MAX}(x_i^{-\lambda} - \lambda\gamma, 0) \right\}^{(2\lambda+1/\lambda)}}} \\ & \times \exp \left[- \frac{(x_i^{-\lambda} - x^{-\lambda} - \lambda\gamma)^2}{\frac{2\lambda^2\alpha}{2\lambda+1} \left\{ x_i^{-(2\lambda+1)} - \text{MAX}(x_i^{-\lambda} - \lambda\gamma, 0) \right\}^{(2\lambda+1/\lambda)}} \right] \end{aligned} \quad (12)$$

ここで、

$$\alpha = \xi \frac{E[C_\tau^2] - (E[C_\tau])^2}{E[C_\tau]}, \gamma = \varepsilon' \cdot Z_0^{2(\lambda+1)} \tau \quad (13)$$

である。 ξ は材料の不均質性を表すパラメータである。

前述の通り、き裂進展にはき裂合体による進展が含まれるが、き裂合体は複数のき裂の相互作用により生じることから、上記の定常進展を仮定したき裂挙動とはその取扱いが大きく異なると考えられる。現時点では、き裂合体による進展を取り組むことが困難であったため、き裂合体による進展は考慮しない。

2.1.3 SCCの全寿命

全寿命は、き裂がある限界き裂長さに成長するまでの時間と考えることができる。つまり、全寿命は、き裂が発生するまでの時間(き裂発生寿命)と発生したき裂が限界き裂長さになるまで

の時間（き裂進展寿命）の和として表現できる。つまり、SCC 全寿命 τ_f は、次式で与えられる。

$$\tau_f = \tau_i + \tau_p \quad (14)$$

節 2.1.1 および節 2.1.2 で示したように、き裂発生寿命とき裂進展寿命はそれぞれの確率密度関数で表現されることから、全寿命も確率密度関数で表現される。き裂発生寿命 $f_i(\tau)$ とき裂進展寿命 $f_p(\tau)$ とすると、全寿命 $f_f(\tau)$ は、次式の畳み込み積分で表現できる。

$$f_f(\tau) = f_i(\tau) * f_p(\tau) \quad (15)$$

2.2 解析条件

本研究では、鋭敏化ステンレス鋼 SUS304 を用いた高温水中での定荷重試験 SCC 挙動¹¹⁾を対象に、前述の SCC 寿命評価法を適用する。

供試材は、熱鋭敏化したオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 である。表面観察の結果、結晶粒径は、平均 0.08 mm、分散 0.009 mm² とする対数正規分布で近似された。節 2.1.2 で示したように、本モデル化ではき裂のアスペクト比（深さ/長さ）は、発生から進展に至るまで一定として取り扱っている。そこで、深さ方向および進展方向に同一の進展速度となるように発生する微小き裂のアスペクト比は 0.925 で一定とした。なお、発生して合体していない微小き裂はおおよそ半円き裂（アスペクト比が 1）であることが示されており、本仮定と大きな矛盾はない。また、式 1 で示されるき裂発生条件は、 $a_i=0.0258$ Ms、 $\theta_i=2.92$ Ms であることを報告している。また、き裂進展特性については報告が無いため、図 3 に示す Saito らの提案している SCC き裂進展特性を用いる¹²⁾。なお、本モデル化ではき裂進展特性は式 3 で表しているため、図 3 に示すように、き裂進展特性を近似して用いた。式 13 で示した材料の不均質性を表すパラメータは現時点では未知なため、予備計算の結果、 $\alpha=0.022$ とした。

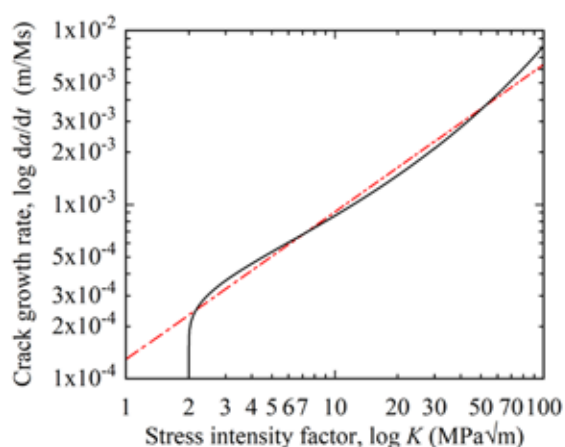


図3 高温水中の SCC き裂進展特性

(黒線 : Saito らの提案式 12), 赤一点鎖線 : 本解析で使用した近似線)

2.3 解析結果と考察

限界き裂長さを $a = 1 \text{ mm}$ としたときのき裂発生寿命・進展寿命・全寿命の関係を図4に示す。き裂発生寿命は式2に基づき青色，進展寿命は式12に基づき赤色，全寿命は式15に基づき黒線で描かれている。図5に限界き裂長さを種々に変化させた時の全寿命を示す。限界き裂長さの増加に伴い，寿命の平均および分散は共に増加していることが分かる。

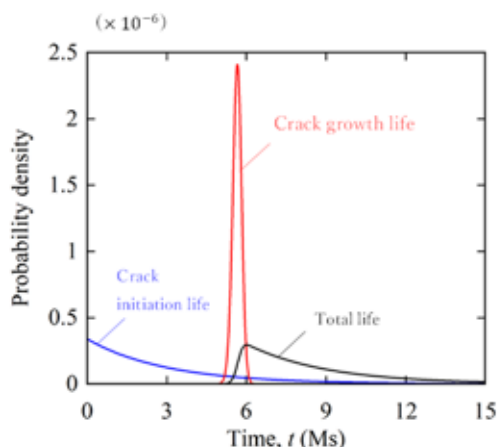


図4 き裂発生，進展，全寿命の関係

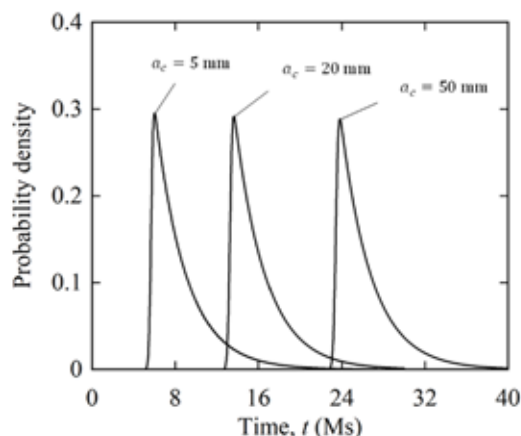


図5 全寿命に及ぼす限界き裂長さの影響

本モデルの妥当性を検討するためには，SCC挙動と微視組織の関係を明らかにする必要がある。そこで，次に定荷重試験によるき裂挙動の実験的検討を行った。

3. 定荷重試験によるき裂挙動の検討

3.1 材料および試験片

供試材にはオーステナイト系ステンレス鋼SUS304を用いた。鋭敏化のために，納入材はアルゴン中， 1000°C で1時間保持した。材料の電気化学的再活性化率は24.6%である。

図6に試験片の形状を示す。試験片表面をエメリー紙，ダイヤモンドサスペンションおよびコロイダルシリカを用いて鏡面仕上げを行った。鏡面仕上げの後に，試験片中央部の観察面を走査型電子顕微鏡 (SEM) に取り付けられた電子線後方散乱回折 (EBSD) 装置により，結晶方位測定を行った。その後，その場観察のために試験片中央部の観察面以外をプラスチックコーティングした状態で，SCC試験に供した。

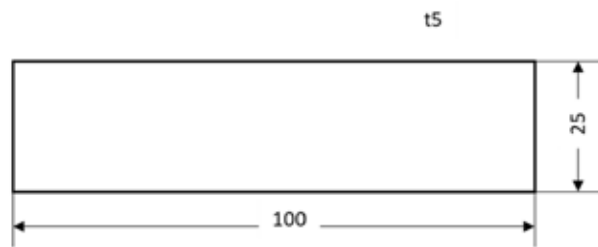


図6 曲げ試験片の形状

3.2 自作試験機

本研究では、その場観察可能な低荷重試験が可能な試験機を自作した。図7に試験機を示す。システム開発ソフトウェアであるLabViewを用いた制御によりサーボモータを回転させ、ジャッキを変位させることで試験片に曲げ荷重を加えることができる。荷重はロードセル、ひずみは試験片に張り付けたひずみゲージを用いて測定可能であり、試験中はフィードバック制御により荷重もしくはひずみを一定に保つことができる。試験片引張面には透明なガラス窓がついたプールを取り付けることが可能であり、観察面を腐食液に曝露したまま、観察面表面のその場観察が可能である。

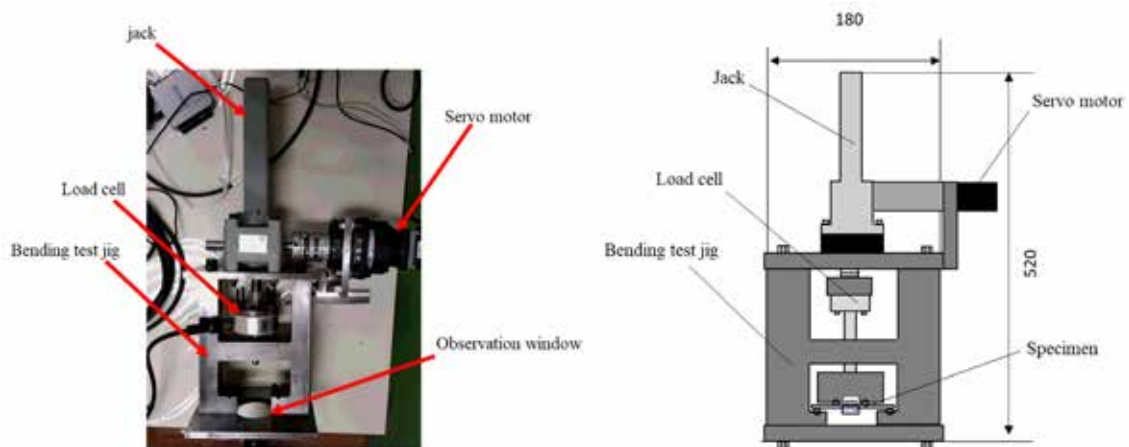


図7 自作した曲げ試験機 (左：実機, 右：模式図)

3.3 試験条件

SCC試験には、ステンレス鋼の腐食加速環境であるpH3に調整したテトラチオン酸水溶液を用いた。

試験片を試験機に取り付けたのちに、無荷重の状態での腐食液に浸漬し、引張面のひずみが1%となるまで負荷し、24時間定荷重に保った。その後、引張面のひずみが3%まで荷重を増加させ、再度24時間定荷重に保った。図8に、試験中のひずみの推移を示す。定荷重中にもひずみの増加がみられるが、SUS304では室温環境においてもクリープ変形が進行することが知られていることから、クリープ変形したものと考えられる。

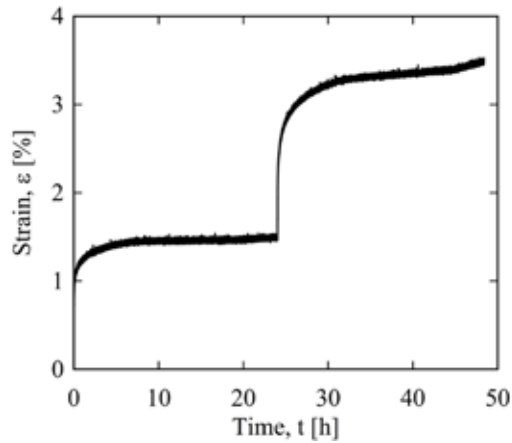


図8 定荷重試験中のひずみの推移

3.4 試験結果と考察

図9に試験中の24時間ごとのその場観察の結果を示す。試験中のビデオマイクロスコープによる観察ではき裂の発生は確認できなかった。図10に観察面の結晶方位マップを示し、図11に試験後の試験片における図10中のAおよびB部の拡大図を示す。観察面内では、AおよびB部に示した2か所のみなき裂が発生した。結晶方位マップから、両き裂共に、ランダム粒界に発生したことが分かる。本実験では、複数のき裂の発生・進展が確認できず、前章で定式化した寿命評価手法に必要な材料の不均質性とき裂挙動の関係を評価することができなかった。

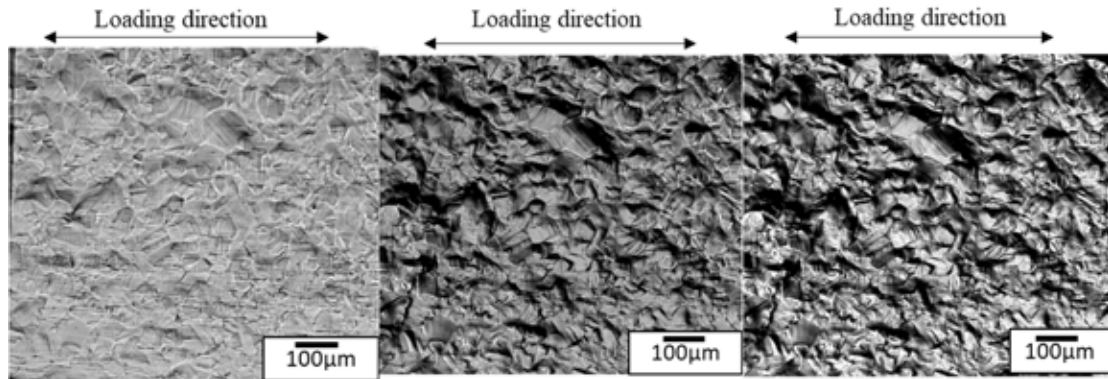


図9 その場観察結果 (左:0時間, 中央:24時間後, 右:48時間後)

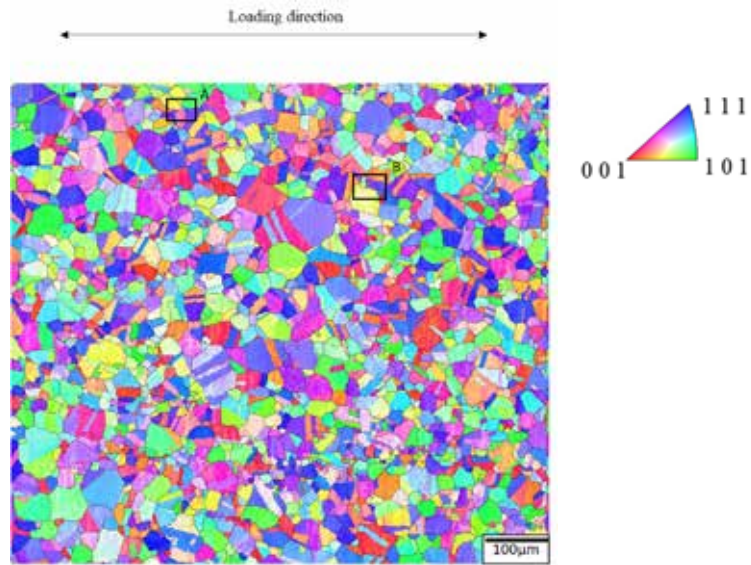


図10 観察面の結晶方位マップ（試験前）

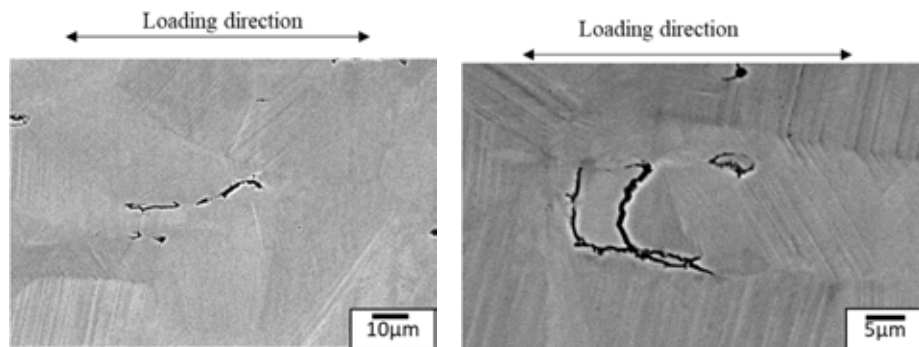


図11 観察面で観察された粒界き裂（左：図10のA部，右：図10のB部）

4. 結言

本研究では、微視組織の不均質性を考慮した SCC における寿命評価法の構築を目的とした。まず、き裂発生について材料の結晶粒径のばらつきを考慮したき裂発生寿命を決定する手法を提案した。次いで、き裂進展（合体を含まず）については、材料の不均質性を導入したき裂進展特性を確率論的微分方程式により表現し、任意時間におけるき裂長さの確率密度を求める手法を提案した。さらに限界き裂長さを決定することでき裂進展寿命を決定できることから、SCC 全寿命をき裂発生寿命とき裂進展寿命の畳み込みにより導出できることを見出した。定式化した SCC 寿命評価の妥当性を評価するために試験機を自作し SCC 試験を行ったが、材料の不均質性とき裂挙動の関係を評価することができなかった。今後、実験を継続し、材料の不均質性とき裂挙動の関係を解明し、本寿命評価法の妥当性の検討を行う予定である。

参考文献

- 1) 野原清彦，ステンレス鋼大全，日刊工業新聞社，2016.

- 2) 日本機械学会, 発電用原子力設備規格 維持規格 (JSME S NA1), 日本機械学会.
- 3) T. Shibata, T. Haruna, In-situ observation of stress corrosion crack during slow strain rate test and estimation of the crack behavior by fracture mechanics and statistics, *Zairyo-to-Kankyo*, 41 (1992), pp. 809-815.
- 4) 小笠原直也, 藤井朋之, 東郷敬一郎, 島村佳伸, 榊原洋平, 中山元, 表面に溶接欠陥の存在する Ni 基合金に生じる応力腐食割れのモンテカルロ・シミュレーション, 第 19 回破壊力学シンポジウム, 福島, 2019, pp. 53-58
- 5) 中井啓晶, 倉敷哲生, 座古勝, 疲労き裂発生・進展に基づく確率論的寿命分布評価に関する研究, 日本機械学会論文集(A 編), 71 (2005), pp. 1494-1499.
- 6) 兼清泰明, 疲労き裂の不規則成長に対する Poisson 型ノイズを用いた確率モデルの新たな提案, *材料*, 63 (2014), pp.92-97.
- 7) 蓮沼将太, 小川武史, 変動荷重条件下における炭素鋼 STS410 の低サイクル疲労寿命予測法, 日本機械学会論文集, 84 (2018), p.18-00151.
- 8) M. Akashi and G. Nakayama, Stress-corrosion crack initiation process model for BWR plant materials, *Proceedings International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures*, T. Shoji and T. Shibata, Eds., JSCE-NACE International (1997), pp. 99-106.
- 9) T. Fujii, K. Tohgo, Y. Mori, Y. Miura, and Y. Shimamura, Crystallographic and mechanical investigation of intergranular stress corrosion crack initiation in austenitic stainless steel, *Materials Science & Engineering A*, 751 (2019), 160-170.
- 10) Y. Murakami and H. Nishitani, Stress intensity factors for interacting two equal semi-elliptical surface cracks in tension, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers Series A*, 47 (1981), 295-303.
- 11) T. Fujii, K. Tohgo, A. Kenmochi, Y. Shimamura, Experimental and numerical investigation of stress corrosion cracking of sensitized type 304 stainless steel under high-temperature and high-purity water, *Corrosion Science*, 97 (2015), 139-149.
- 12) K. Saito and J. Kuniya, Mechanochemical model to predict stress corrosion crack growth of stainless steel in high temperature water, *Corrosion Science*, 43 (2001), 1751-1766.

謝辞

本研究は, 公益財団法人 JFE21 世紀財団 2021 年度・技術研究助成により推進いたしました。心より感謝申し上げます。

業績 (国際会議発表, 下線部が研究代表者)

- [1] Yuki Takeichi, Tomoyuki Fujii, Yoshinobu Shimamura, Methodology for Predicting Stress Corrosion Cracking Life Using Stochastic Differential Equation, The 6th International

Conference on Materials and Reliability (ICMR2022), Yomaguchi, Japan, 2022.

- [2] Yuki Takeichi, Tomoyuki Fujii, Yoshinobu Shimamura, Stochastic Model to Estimate Total Lifetime of Stress Corrosion Cracking from Micro-Crack Initiation to Macro-Crack Growth, 3rd International Conference on Nanomaterials and Advanced Composites (NAC 2022), Hybrid(Tokushima, Online), 2022.