

静岡大学 博士論文

構造用鋼平滑表面における応力腐食割れの  
モンテカルロ・シミュレーションと  
沸騰水型原子炉環境下での寿命評価

2011年3月

創造科学技術大学院 自然科学系教育部

環境・エネルギーシステム専攻

鈴木 洋光

# 目次

<b>第1章 序論</b>	<b>-1-</b>
1.1 応力腐食割れに関する研究の現状	-1-
1.2 構造材料における SCC 挙動	-7-
1.2.1 SCC き裂発生過程	-7-
1.2.2 SCC き裂進展特性	-8-
1.2.3 SCC 深さ方向への進展とアスペクト比	-9-
1.3 本論文の目的と内容	-12-
<b>第2章 SCC 過程のモデル化</b>	<b>-15-</b>
2.1 緒言	-15-
2.2 SCC 過程のモデル化	-15-
2.3 結言	-23-
<b>第3章 一様応力場のシミュレーション</b>	<b>-25-</b>
3.1 緒言	-25-
3.2 SUS304 におけるシミュレーション	-25-
3.2.1 CBB 試験	-25-
3.2.2 シミュレーション方法	-28-
3.2.3 シミュレーション結果と考察	-31-
3.3 各パラメータの影響	-37-
3.3.1 表面き裂の影響	-37-
3.3.2 合体領域	-41-
3.3.3 き裂発生速度	-47-
3.4 結言	-52-
<b>第4章 応力分布下のシミュレーション</b>	<b>-53-</b>
4.1 緒言	-53-
4.2 応力分布の考慮の導入	-54-
4.3 応力分布下の SCC シミュレーション	-57-
4.4 シミュレーション結果および考察	-59-
4.4.1 $\sigma_x$ がx軸方向に分布している場合	-59-
4.4.2 $\sigma_y$ がy軸方向に分布している場合	-64-
4.5 結言	-68-

<b>第5章 階層化による計算効率の改善</b>	<b>-69-</b>
5.1 緒言	-69-
5.2 階層化の方法	-70-
5.3 基礎シミュレーション	-71-
5.4 入力パラメータ	-72-
5.4.1 き裂発生位置	-72-
5.4.2 き裂発生時間	-72-
5.4.3 き裂発生長さ	-73-
5.4.4 アスペクト比	-74-
5.5 階層化シミュレーション	-76-
5.6 シミュレーション結果および考察	-77-
5.7 結言	-82-
<b>第6章 実構造物の事例との比較</b>	<b>-83-</b>
6.1 緒言	-83-
6.2 シミュレーション方法	-85-
6.2.1 基礎シミュレーション	-85-
6.2.2 入力パラメータ	-87-
6.2.3 階層化シミュレーション	-88-
6.3 シミュレーション結果および考察	-88-
6.4 結言	-94-
<b>第7章 シミュレーションの高精度化に向けた応力腐食割れ試験</b>	<b>-95-</b>
7.1 緒言	-95-
7.2 供試材料	-97-
7.3 試験装置	-97-
7.4 試験方法	-98-
7.5 試験結果および結果	-100-
7.6 結言	-109-
<b>第8章 結論</b>	<b>-111-</b>
<b>参考文献</b>	<b>-113-</b>
<b>謝辞</b>	<b>-118-</b>

# 第 1 章

## 序論

## 1.1 応力腐食割れ研究の現状

原子力発電は、50年以上前から世界で使用されている発電方法であり、電力の安定供給と地球温暖化対策や石油、石炭などの枯渇性資源に依存しないエネルギーとして重要な役割を担っている。日本国内においても、1985年以降、全発電電気量のうち4分の1以上を占めている<sup>1)</sup>。現在、国内の運転中の原子炉は、沸騰水型原子炉(Boiling Water Reactor, BWR)が30基、加圧水型原子炉(Pressurized Water Reactor, PWR)が23基の計53基、建設中および着工準備中の原子炉はBWRが11基、PWRが4基の計15基となっており、今後も原子力発電による発電電気量は増加していくことが予測されている。しかし、現在、運転年数が20年を超える原子炉はBWRとPWRを合わせて38基となっており、今後、運転開始後20年を迎える原子力発電所はさらに増加し、今後運転開始時期の早いものから高経年化が進展する状況にあると言われている。高経年化にともなうプラント炉内構造物等の経年劣化事象の1つとして、応力腐食割れ(Stress Corrosion Cracking, SCC)がある。SCCは、BWRにおいては、1965年にDresden-1の6”バイパス配管(SUS304鋼)に発生して以来、多くの原子炉において割れが確認されており、近年においても国内外において圧力容器、配管からの水漏れ等、SCCによる損傷事例が顕在化している<sup>2)~4)</sup>。また、日本国内の原子力施設におけるSCCによるトラブルの報告件数は、1999~2008年度において、全トラブルの報告件数204件中の40件と約2割を占めている<sup>5)</sup>。発電プラントなどの構造物の損傷、破壊は人命に関わり、さらに、多大な経済損失を招くことから、これらの構造物の健全性、信頼性の確保は重要な課題である。

高経年化した構造物に対し、より高度な安全管理を行っていくためには、構造物の補修時期、方法の選定および機器の健全性維持を図っていく必要があり、諸経年劣化の中で、特にSCCは考慮しておくべき重要課題である。

SCCは材料、環境および応力の組み合わせにより生じる極めて複雑な破壊現象である。材料の要因としては、成分元素や熱鋭敏化、加工硬化などがあり、原子力構造物として、低炭素鋼やステンレス鋼、Ni基合金などに対して、熱処理の影響や加工度、表面粗さなどのSCCに対する影響が調べられている<sup>6)~10)</sup>。環境の要因としては、温度や溶存酸素、電導度などがあり、温度や溶存酸素量、塩素等の影響について研究されている<sup>11)12)</sup>。また、SCC挙動の試験を行う場合には、き裂を発生しやすい加速環境とするために、溶存酸素量を高くすることやMgCl<sub>2</sub>やテトラチオン酸溶液の使用、グラファイトファイバーウールなどによるすきまの形成などが行われている。応力の要因としては、運転中の作用応力のほかに、溶接熱サイクルによる残留応力があり、原子力発電所における圧力容器やシュラウド、配管におけるひび割れはこの残留応力によるものである。応力については、SCCの発生の下限界値や応力レベルによる破断寿命の評価が行われている<sup>13)~15)</sup>。SCCによるき裂長さは数10mmから数100mmに及ぶ場合がある。このような大きき裂は、腐食ピットの発生・成長、ピットからの微小き裂の発生(~100 $\mu$ m)、微小き裂の合体・進展(100 $\mu$ m~500 $\mu$ m)、巨視的き裂の進展と合体(数mm~数十mm)といったミクロからマクロにわたる過程により形成され、SCC挙動は階層構造を示すことがわかる<sup>4)15)16)</sup>。このSCC挙動の各階層における現象を明らかにし、各階層の統合化を行い、SCC挙動の全過程を考慮できるならば、実構造物中のSCC挙動をより精度よく予測できるものと推察される。

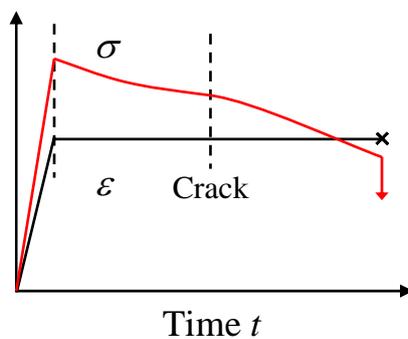
SCCについては，加速環境下で平滑表面に生じるSCCによる微小き裂の発生と合体に関して，定ひずみ曲げ試験，定荷重試験，低ひずみ速度引張試験(Slow Strain Rate Test, SSRT)等が行われ<sup>4)15)~18)</sup>，SCCの発生の有無，き裂数，き裂深さなどの計測が行われている．Fig.1-1にそれぞれの試験方法における試験時間中の応力とひずみの変化を示す．定ひずみ試験では，主にき裂の発生時間もしくは各時間における発生数やき裂深さ方向の進展挙動の評価が行われている．試験方法としては，Uベンド試験(Fig.1-2(a))やCBB(Crevice Bent Beam)試験(Fig.1-2(b))，3点曲げ試験などがあり，実環境における試験が容易であり，同時に複数の試験片を用いて試験を行うことができる．定荷重試験では，応力を一定にするため，き裂発生の下限界応力値や応力による影響を評価することが出来る．また，き裂が発生することにより，き裂発生部分での応力は上昇し，ある大きさに達した時点で破断に至るため，破断寿命の評価に用いられる．SSRTは，応力が上昇し続けるため，SCCが生じやすく，短時間での環境や材料によるSCC感受性の評価やき裂伝ば挙動の検討が行われている．しかし、いずれの場合も試験片寸法が小さいため，実プラントで認められるような長期間に渡って数十mmオーダーのき裂に成長する試験は実施できず，実機損傷との対応性が十分とはいえない．また，SCCによるき裂進展特性( $da/dt-K_I$ 関係および $K_{Isc}$ )に関しては，破壊力学的手法に基づいてWOL(Wedge Opening Loaded)試験やCT(Compact Tension)試験として予き裂試験片を用いたき裂進展試験が行われ<sup>19)</sup>，その結果に基づき，プラントの定期検査により発見されるき裂に対する進展の評価法として，日本機械学会の発電用原子力設備規格維持規格に規定されている．しかし，SCCの「発生」と「進展」については，数十~数百 $\mu\text{m}$ オー

ダーの微小き裂の取り扱いが明確になっていない。

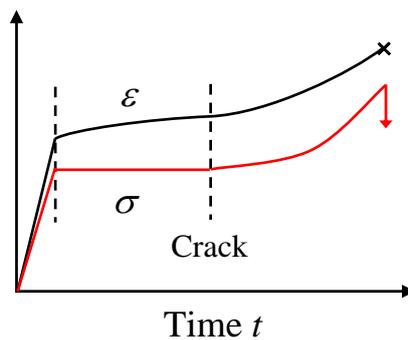
各階層の挙動の統合化の方法としては、モンテカルロ法によるシミュレーションが挙げられる。平滑表面のSCC挙動と同様に、微小き裂の発生、合体、進展による破壊の進行は、腐食疲労、クリープ疲労、高温環境下での破壊現象に見られ、破壊現象の解明・評価のためにモンテカルロ法に基づくシミュレーションが行われている<sup>21)~26)</sup>。しかし、その多くはFig.1-3(a)に示すような貫通き裂を仮定している。しかし、実際には、き裂の形状はFig.1-3(b)に示すような表面き裂であり、き裂の合体や進展によりその形状は変化するため、貫通き裂では平滑表面の破壊現象を予測するには至っていない。表面き裂を想定したシミュレーションも報告されているが<sup>22)25)</sup>、表面き裂の形状を半円表面き裂と仮定しており、き裂の進展・合体による表面き裂の形状変化まで考慮した例は見当たらない。また、き裂の発生方法については、負荷サイクルや時間間隔ごとに、実験データに基づいたき裂発生数を与えるものや、結晶粒を作成し、それぞれの結晶粒界に破壊抵抗値を与え、繰り返しごとに破壊駆動力をかけることで、破壊抵抗値の小さなものからき裂としていくものがある。しかし、この場合、任意の時間ごとに計算を行うことになり、時系列での解析を行うことができない。また、結晶粒を作成するため、微小き裂の解析を行うことができるが、実機に見られるような大きき裂に至るシミュレーションまで行うのは難しいと考えられる。大きき裂については、検査により発見可能となるような大きき裂に対して、そのき裂のみの進展による実構造物に対する解析が行われている。しかし、これではき裂が発見された構造物の余寿命予測は可能であるが、き裂発見以前や設計段階での評価を行うことはできない。

したがって、微小き裂の発生から大きき裂に成長する

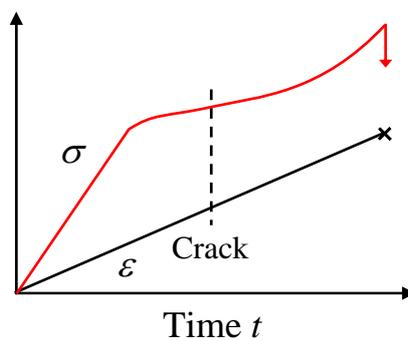
までの過程を明らかにし, 実験室データに基づいて実プラントの SCC 挙動を予測する手法の開発が望まれている.



(a) Constant strain test.

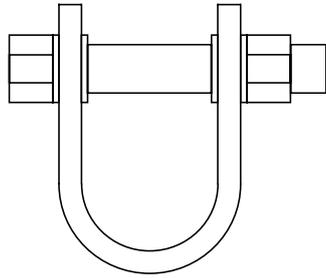


(b) Constant loading test.

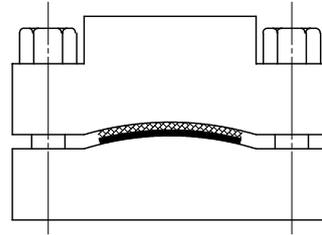


(c) SSRT.

Fig. 1-1 Test condition.

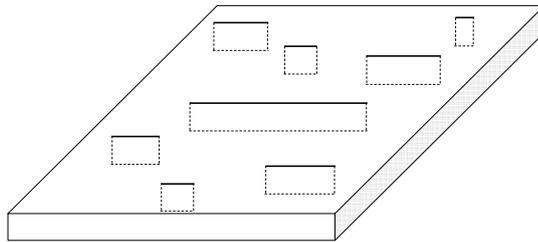


(a) U-Bend test.

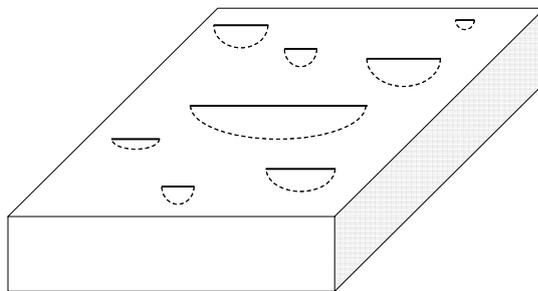


(b) CBB test.

Fig. 1-2 Constant strain test.



(a) Through thickness crack.



(b) Surface crack.

Fig. 1-3 Shape of crack in simulation.

## 1.2 構造材料における SCC 挙動

### 1.2.1 SCC き裂発生過程

明石<sup>4)15)16)</sup>らによる溶存酸素を含んだ高温高純度水中の鋭敏化処理したオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 と炭素鋼溶接金属の実プラントおよび実験室での SCC データの調査結果に基づくと、SCC 挙動は以下のように記述できる。SCC 環境では、平滑材表面に非進展性の微小き裂が発生し、近接した他の微小き裂と合体することにより、ある臨界長さのき裂となると、定常的な進展を開始する。き裂発生時間を試験開始から定常き裂進展開始までの時間と定義すると、き裂発生は以下の 6 段階により記述できる。

- (I) 潜伏期間(誘導過程)
- (II) 食孔発生過程
- (III) 食孔成長過程
- (IV) 食孔からの微小き裂発生過程
- (V) 微小き裂進展過程
- (VI) 微小き裂合体過程

である(Fig.1-4 に概略図を示す)。このうち、(III)と(V)の過程は比較的短時間に完結し、全発生寿命に占める時間割合は極めて小さいと見なし得るので、上記のき裂発生過程は、(II)と(IV)の確率過程と、(VI)の確定的過程の直列的な組み合わせによりモデル化できる。食孔の発生については生起する場合の数が非常に多く、しかも発生箇所に対して個々の位置での食孔発生確率は極めて低いので、(II)と(IV)の確率過程は Poisson 過程に近似できる。したがって、時間  $t$  におけるき裂発生の累積確率  $F_i(t)$  は次式のように指

数分布により表される。

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

ここで、 $H_i(t)$ は累積故障率、 $a_i$ は分布の下限值あるいは潜伏期間を表す位置パラメータで、 $\theta_i$ は標準偏差を表す尺度パラメータである。 $a_i$ と $\theta_i$ は一般には作用応力と環境の関数として与えられる。実験結果によると、 $a_i$ および $\theta_i$ の比は一定の関係にあり、

$$\frac{a_i}{\theta} = \text{const.} \quad (2)$$

また、負荷応力の減少とともに $a_i$ が増加する傾向が認められ、両者の関係は次式の形式で表現される。

$$a_i = a_0 \left( \frac{\alpha\sigma}{\sigma_{ys}} \right)^{-m} \quad (3)$$

ここで、 $\sigma$ 、 $\sigma_{ys}$ 、 $m$ はそれぞれ負荷応力、降伏応力、応力指数である。

このようにして発生したき裂は定常進展の臨界長さに達するまで合体し、大きなき裂へと成長する。

### 1.2.2 SCCのき裂進展特性<sup>27)</sup>

SCCには、金属が腐食液中に溶出するアノード反応により割れが進行する活性路腐食(Active Path Corrosion, APC)型SCCと、カソード反応などにより割れが進行する水素脆化割れ(Hydrogen Embrittlement Cracking, HEC)型SCCがある。

Fig.1-5はSCCのき裂進展特性を模式的に示したものである。 $da/dt$ - $K_I$ 関係は、応力拡大係数 $K_I$ の低下とともに進展速度 $da/dt$ も低下し、き裂進展の下限界値 $K_{Isc}$ に至る第I領域、 $K_I$ の増加に対して $da/dt$ が一定となる第II領域、お

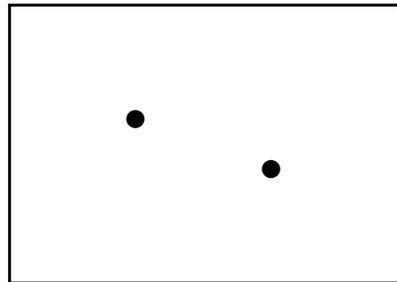
よび  $K_I$  の増加とともに  $da/dt$  も増加し最終破壊に至る第 III 領域の 3 つの領域に分けられる。SCC のき裂進展特性に第 II 領域が現れる理由として、き裂進展を律速するき裂先端での化学反応の速度が、 $K_I$  が上昇してもある値以上になり得ないため、化学反応速度がき裂進展速度に追いつけなくなることで、また、き裂の枝分かれや鈍化現象が生じ、き裂先端の実質的な  $K_I$  が上昇しないことが考えられる。

### 1.2.3 深さ方向への進展とアスペクト比

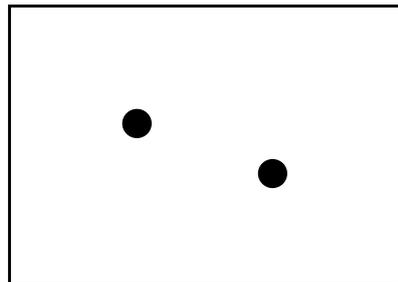
明石<sup>28)</sup>によると高温高純度水環境における鋭敏化 SUS304 の単一(合体前)き裂の表面長さは概ね  $100\mu\text{m}$  程度、深さは概ね  $50\mu\text{m}$  程度であって、これらは本質的に非進展性である。鋭敏化 SUS304 鋼の CBB 試験あるいは定荷重試験で観察された SCC き裂のアスペクト比を見ると、深さ  $50\mu\text{m}$  以下の非進展性微小き裂の場合はアスペクト比がほぼ 1 の半円状き裂であるのに対して、それ以上の深さの進展性き裂では、き裂合体によりアスペクト比が  $1/3$  程度に減少し、安定している。さらに、き裂深さが  $1\text{mm}$  程度までのき裂のアスペクト比はほぼ  $1/3$  であるが、き裂がさらに進展すると、近接する他のマクロき裂と合体を繰り返し、アスペクト比はさらに低下する。



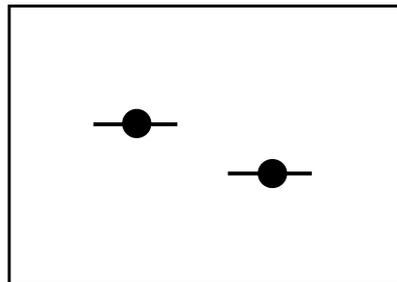
(a) An incubation period



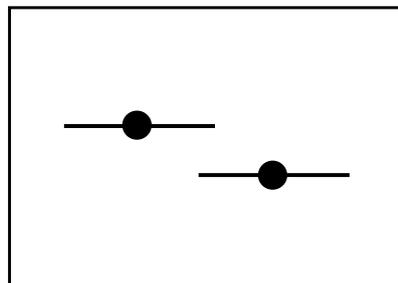
(b) An initiation period for corrosion pits



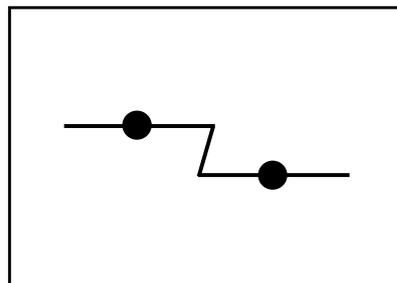
(c) A growth period for corrosion pits



(d) An initiation period for micro cracks



(e) A growth (and dormant) period for micro cracks



(e) A coalescence period for micro cracks

Fig. 1-4 Crack initiation process.

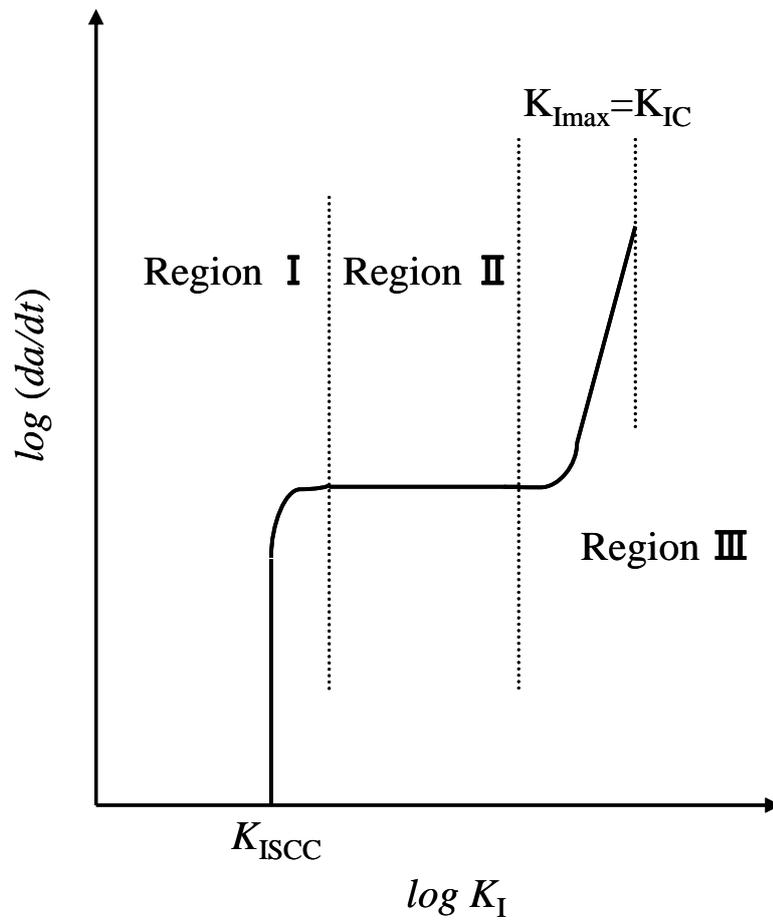


Fig. 1-5 SCC crack growth rate pattern  $da/dt-K_I$ .

### 1.3 本論文の目的と内容

SCC き裂発生過程は本質的に確率過程であるから，その挙動の定量的評価には確率論的アプローチの導入が必須である．そこで，本研究では，平滑表面における SCC 発生から合体・進展により大きき裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションを開発した．このモデルは SCC 過程の腐食ピットの発生から微小き裂発生は，確率過程とし，発生時間，き裂長さ，発生位置はそれぞれの確率分布である指数分布，正規分布，一様分布に基づいてランダムに起こり，き裂の合体と進展は破壊力学に基づいて確定的に起こるものとした．このモデルを使用することにより，き裂発生時間に基づく，時間ごとの解析を行うことができ，実際の時間の進行に近いシミュレーションを行うことができる．また，ある時点でのき裂の発生状況を基に微小き裂の発生挙動を推定し，余寿命評価を行うことができる．さらに実際の構造物に対する SCC 寿命評価を行うために，シミュレーションの評価および拡張を行い，さらに高効率化のためのシミュレーションモデルの作成，高精度化に向けた試験方法の確立を目的とする．

第 2 章では，き裂の発生過程は Poisson 確率過程に従い，発生した微小き裂がそのまま進展するのではなく，近傍に生起した微小き裂同士が合体してある程度の大きさになった後，定常き裂進展するというモデルに基づいて開発したモンテカルロ法によるシミュレーションのモデルについて説明する．

このモデルをプラントの SCC の寿命評価に適用するためには，モデルに BWR 条件固有のき裂発生，進展に関するデータをパラメータとして入力する必要がある．そこで，

第 3 章では，前段階として，BWR 炉水環境を模擬した高温高純度水環境における定ひずみ曲げ (CBB) 試験の結果を基礎データとしてパラメータを設定し，モンテカルロ・シミュレーション解析を行った．そして，シミュレーションの計算結果と実験結果との比較検討により，モデルの妥当性を検証するとともに，各設定値の最適化を図っている．また，合体条件およびき裂発生速度を変化させてシミュレーションを行い，合体領域およびき裂発生速度が解析結果に及ぼす影響を検討した．

第 4 章では，溶接熱影響部における SCC 挙動の解析を行うために，応力分布を考慮できるようにシミュレーションの拡張を行い，その結果について検討をした．

第 5 章では，広い解析領域で，実機で見られるような大きき裂を解析するために，計算効率の向上にむけて階層化シミュレーションを開発し，その計算結果について検討を行った．

第 6 章では，実機で発生した SCC による事例として，敦賀発電所 1 号機において，シュラウドサポート溶接部に発見されたき裂を想定し，シミュレーションを行い，その結果について検討をした．

第 7 章では，シミュレーションの高精度化に向けて，シミュレーションのインプットデータを得るための SCC 発生試験として実験室加速環境下における定荷重引張試験を行い，その結果を考察した．



## 第 2 章

# SCC 過程のモデル化

## 2.1 緒言

SCC環境下ではFig.2-1に示すように(I)潜伏過程，(II)腐食ピットの形成過程，(III)腐食ピットからの結晶粒オーダーの微小き裂の形成過程，(IV)微小き裂の合体過程を経て，定常進展性き裂が形成され，その後，き裂進展と合体により大きき裂へと成長する<sup>4)15)16)</sup>．このように，平滑表面におけるSCCは，き裂発生に対する確率過程とき裂の合体・進展に対する確定過程の組み合わせにより生じる．そのため，SCC挙動の各階層における現象を明らかにし，各階層の統合化を行い，SCC挙動の全過程を考慮できるならば，実構造物中のSCC挙動をより精度よく予測できるものと推察される．本研究では，特に表面き裂の効果を考慮して，微小表面き裂の発生から合体・進展により大きき裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションを開発した．

## 2.2 SCC過程のモデル化

SCC過程をモデル化するために，き裂発生は，発生時間，二次元空間の位置およびき裂長さに関しては確率過程に基づいてランダムに生じ，き裂の合体と成長は破壊力学の概念に基づいて確定的に起こるものと仮定した．さらに，深さ方向の挙動を考慮した表面き裂の三次元モデルとした．本研究では一様単軸引張り応力下の平滑表面におけるSCC過程をモンテカルロ法によりモデル化した．

Fig.2-2に表面き裂シミュレーションのフローチャートを示し，詳細を以下に記す．

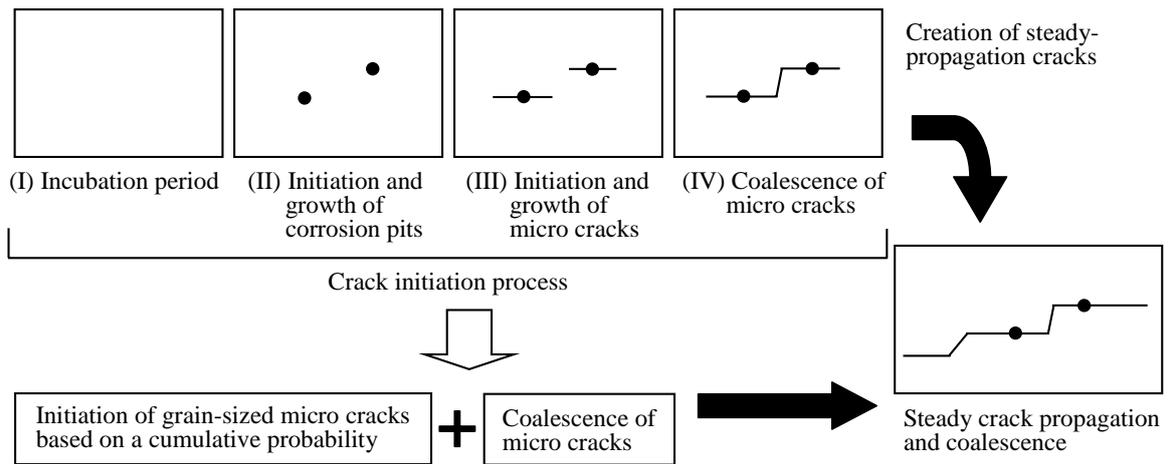


Fig. 2-1 A model of SCC behavior.

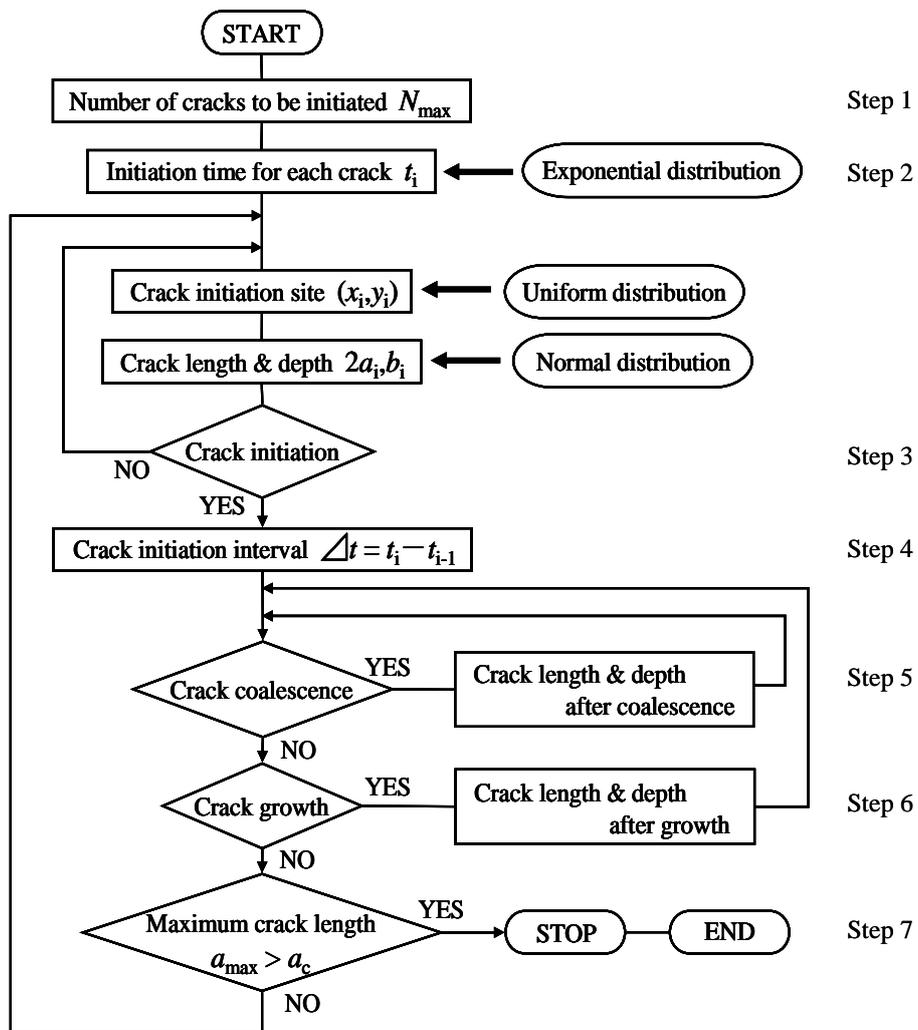


Fig. 2-2 Flow chart of SCC simulation.

Step 1: 発生するき裂は Fig2-3 に示すような表面長さ  $2a$ 、深さ  $b$ 、アスペクト比  $\alpha(=b/a)$  の半楕円状表面き裂とした。き裂は粒界き裂であるとして、結晶寸法の粒界き裂が引張応力方向にほぼ垂直に発生すると考えられる。従って、Fig.2-4 に示すように 1 結晶領域(升目)に 1 個のき裂が発生可能となるので、発生可能き裂数は次式により与えられる。

$$N_{\max} = \frac{\text{Simulated area}}{\text{Average grain area}} \quad (4)$$

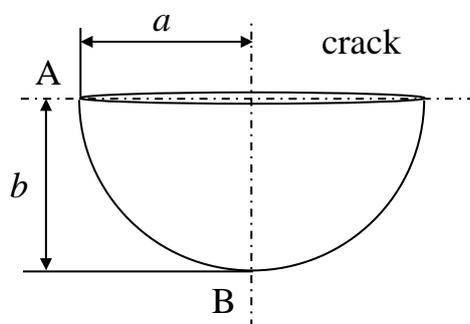


Fig. 2-3 Shape of surface crack.

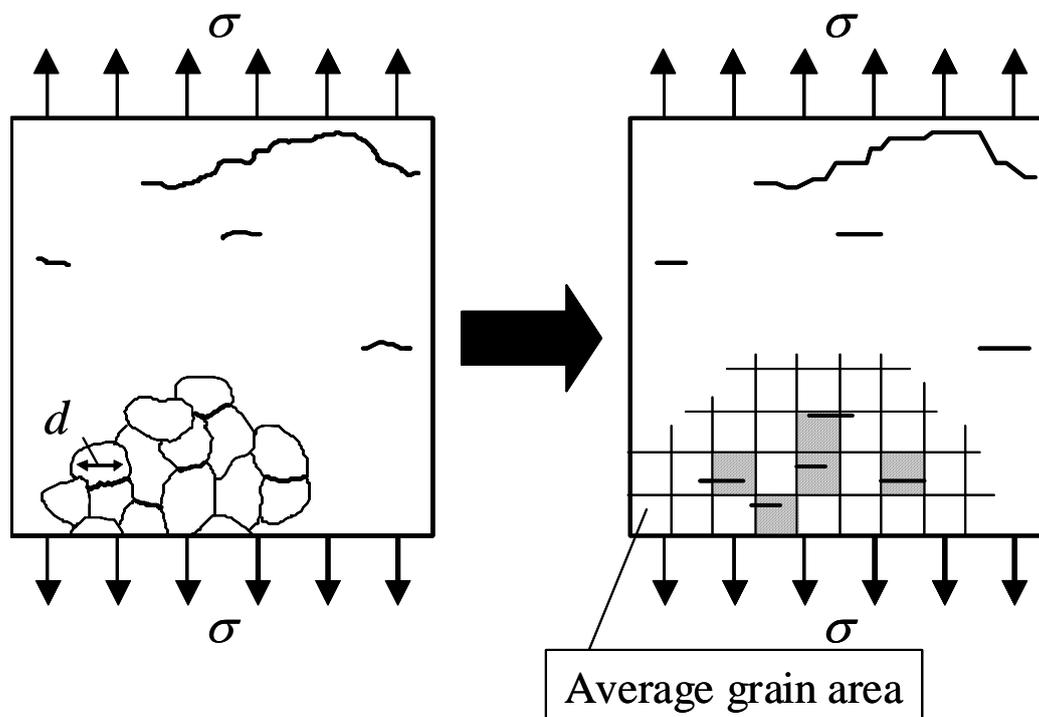


Fig. 2-4 Modeling of SCC cracks.

Step 2 :  $N_{\max}$  個のき裂に対する発生時間はき裂発生 of 累積確率分布  $F_i(t)$  に基づく乱数により割り当てられ,  $N_{\max}$  個のき裂発生時間が決定される.

Step 3 : き裂に割り当てられたき裂発生時間の短いものから順に生じ, き裂発生 of 位置(き裂中心の  $x, y$  座標)は解析領域内の一様乱数により, き裂長さは正規乱数により決定される. き裂発生位置が既にき裂発生している結晶領域(晶目)となった場合には, 発生時間, 発生長さに対する乱数はそのままとし, 発生位置に対して新しい乱数で試みられる. また, Fig2-5(a)に示すように, 既に存在するき裂の上下は応力解放によりき裂の発生しにくい場所となるので, き裂は発生できないものとし, 次のき裂発生が発生時間, 位置, 長さに対する新しい乱数に基づいて試みられる. き裂発生できない場合の説明図を Fig.2-6 に示す.

Step 4 : き裂発生が可能となった場合, 直前のき裂発生からの時間  $\Delta t$  が計算され,  $\Delta t$  における既存き裂の合体, 進展が各半楕円表面き裂の表面部, 最深部の応力拡大係数  $K_{IA}, K_{IB}$  に基づいて計算される.  $K_{IA}, K_{IB}$  は, Fig.2-7 に示される修正係数を用いて次式により評価した<sup>29)</sup>.

$$K_{IA} = F_A \sigma \sqrt{\pi a} \quad (5)$$

$$K_{IB} = F_B \sigma \sqrt{\pi b} \quad (6)$$

ここで,  $\sigma$  は作用応力,  $a, b$  はそれぞれき裂半長, き裂深さであり,  $F_A, F_B$  は, アスペクト比の影響を応力拡大係数に組み込むための修正係数である.

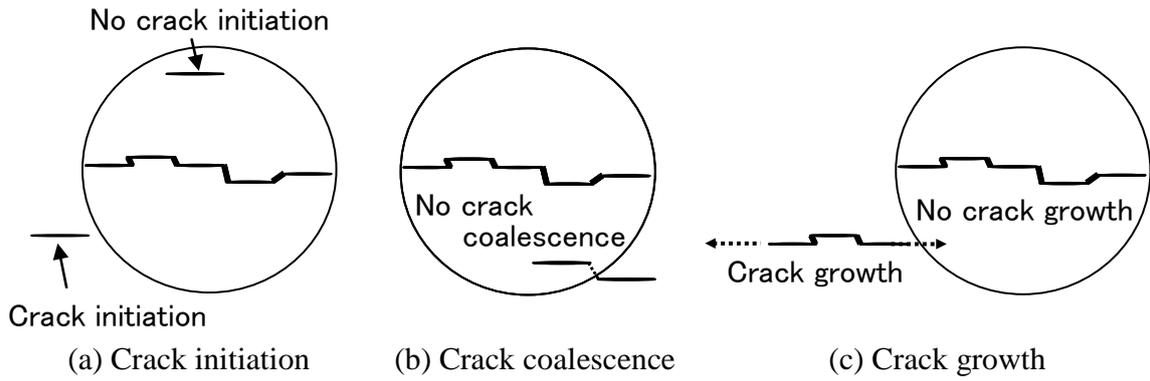


Fig. 2-5 Circular region around a pre-existing crack.

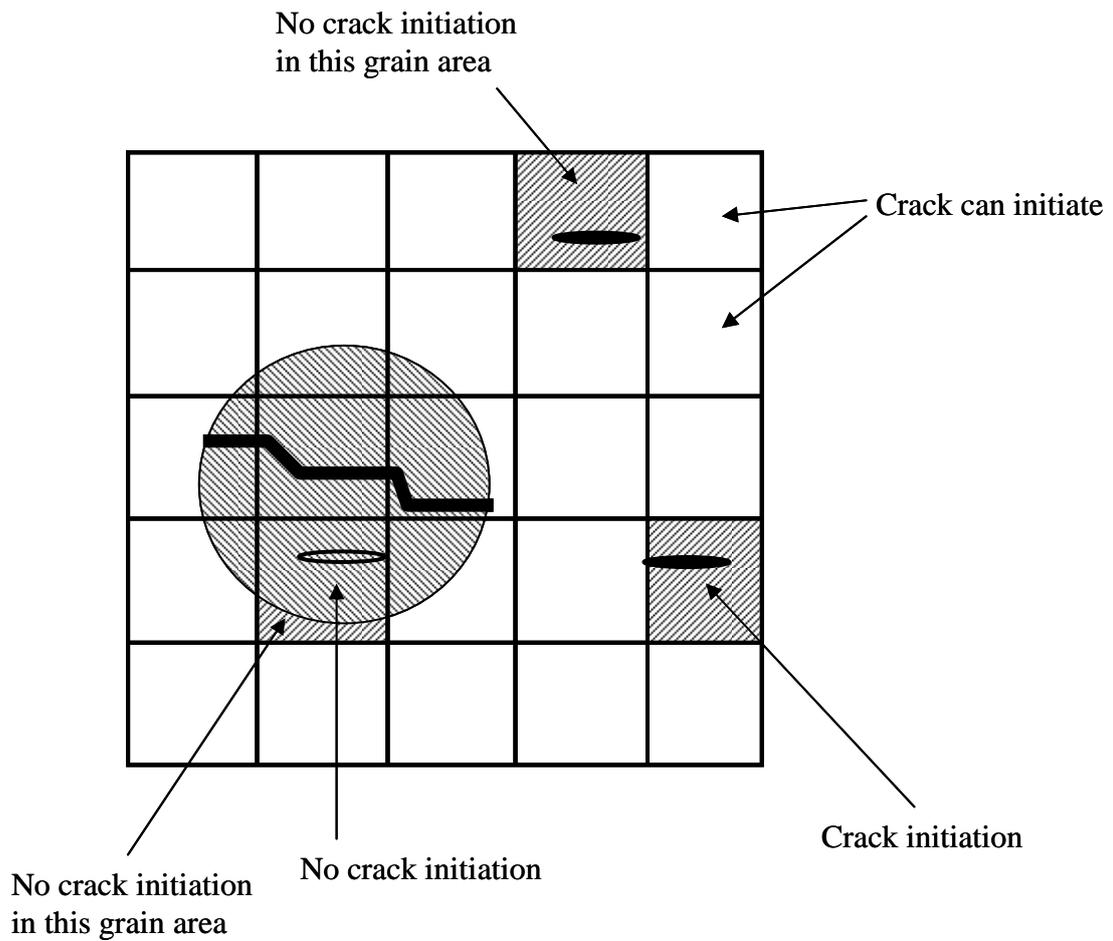


Fig. 2-6 Crack initiation rule.

Step 5: 合体に関しては, Fig.2-8 に示すようなき裂先端の応力拡大係数によって記述される活性化領域を考慮し, 1 つのき裂の右側(左側)先端と他のき裂の左側(右側)先端が近づき, き裂先端の円形領域に入った場合に合体が起こるものとした<sup>30)</sup>. 2 つのき裂の合体領域は Fig.2-9 に示される. 2 つのき裂の合体領域の臨界半径は次式で表される.

$$r_c = \frac{k}{\pi} \left( \frac{K_{IA}}{\sigma_{ys}} \right)_{\text{crack1}}^2 + \frac{k}{\pi} \left( \frac{K_{IA}}{\sigma_{ys}} \right)_{\text{crack2}}^2 \quad (7)$$

ここで,  $\sigma_{ys}$  は材料の降伏応力,  $k$  は材料, 環境に依存する係数である. いくつかのき裂同士が合体条件を満たす場合には, Fig.2-10 に示すようにその時間において条件を満たす全ての組について先端間距離  $d$  を計算し, これを該当するき裂同士でつくる合体領域半径  $r_c$  で除した  $d/r_c$  が最も小さいき裂の組を合体させる. これにより, 先端間距離が短くて大きなき裂同士であるほど合体しやすくなり, 1 個のき裂とのみ合体するということになる. 表面き裂の合体に関しては, Fig.2-11 に示すように, 合体後の表面き裂の表面寸法は合体前の 2 個のき裂を含んだ長さ, 深さ寸法は 2 個のき裂のうち, より深い方の深さ寸法とする. したがって, 表面き裂の合体によりアスペクト比  $b/a$  の小さい表面き裂になる. これにより, 合体によってき裂長さ  $a$  は大きくなるが, アスペクト比が低下し,  $F_A$  が低下するため, 両者の増減の度合いにより  $K_{IA}$  も増減する. したがって,  $K_{IA}$  はあまり大きくなり, 合体領域  $r_c$  も大きくなり. 逆に, アスペクト比が低下すると  $F_B$  は増加し, き裂深さ  $b$  は合体しても変わらないため,  $K_{IB}$  は合体のたびに大きくなる.

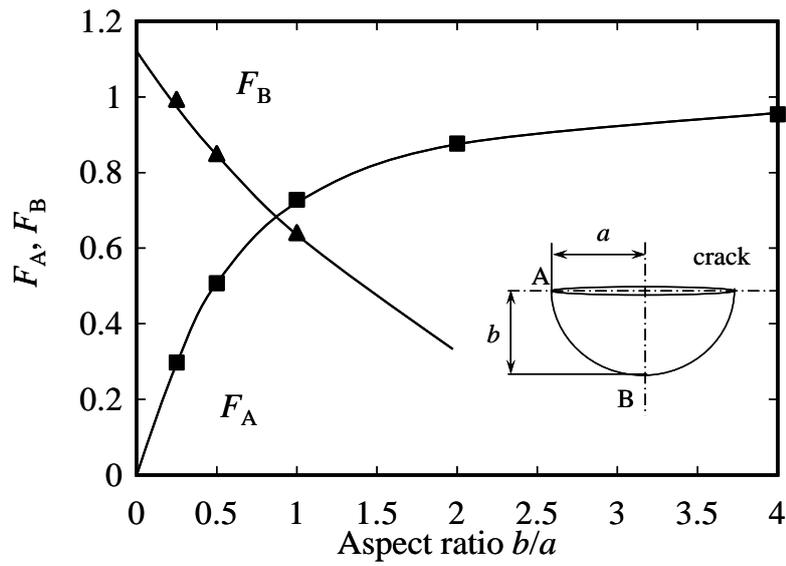


Fig. 2-7  $F_A, F_B$  versus aspect ratio  $b/a$ .

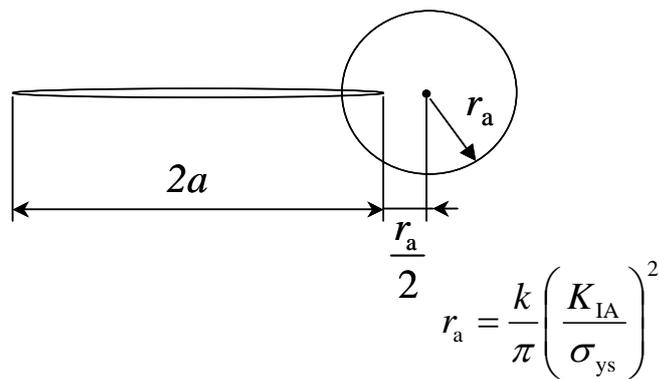


Fig. 2-8 Active region of crack.

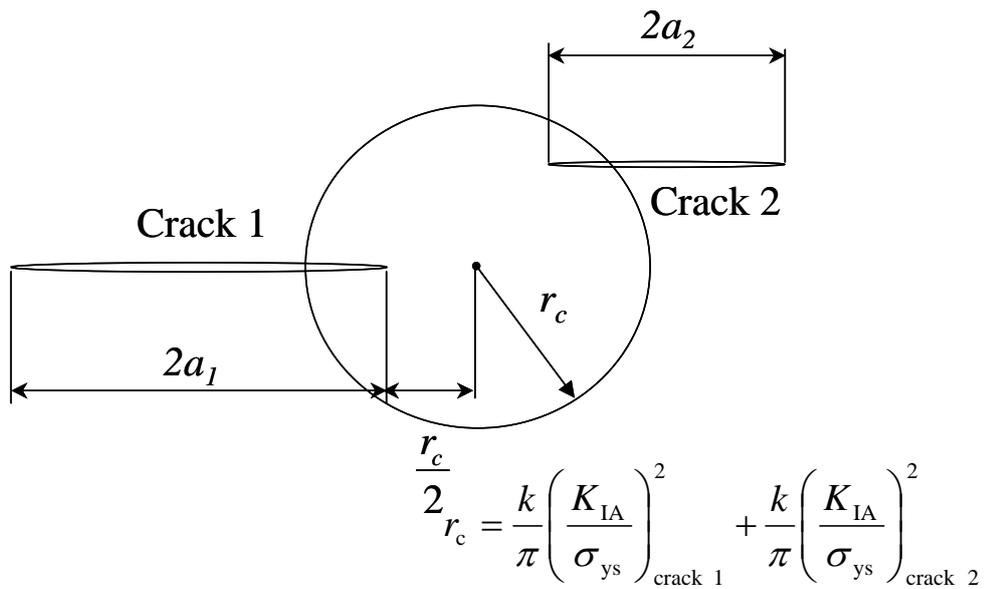
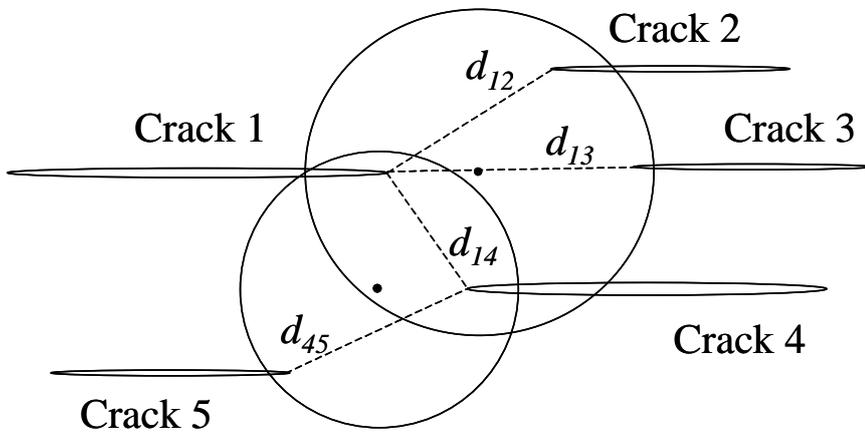


Fig. 2-9 Coalescence region between two cracks.



Coalescence :  $d/r_c = \min$

Fig. 2-10 Coalescence between some cracks.

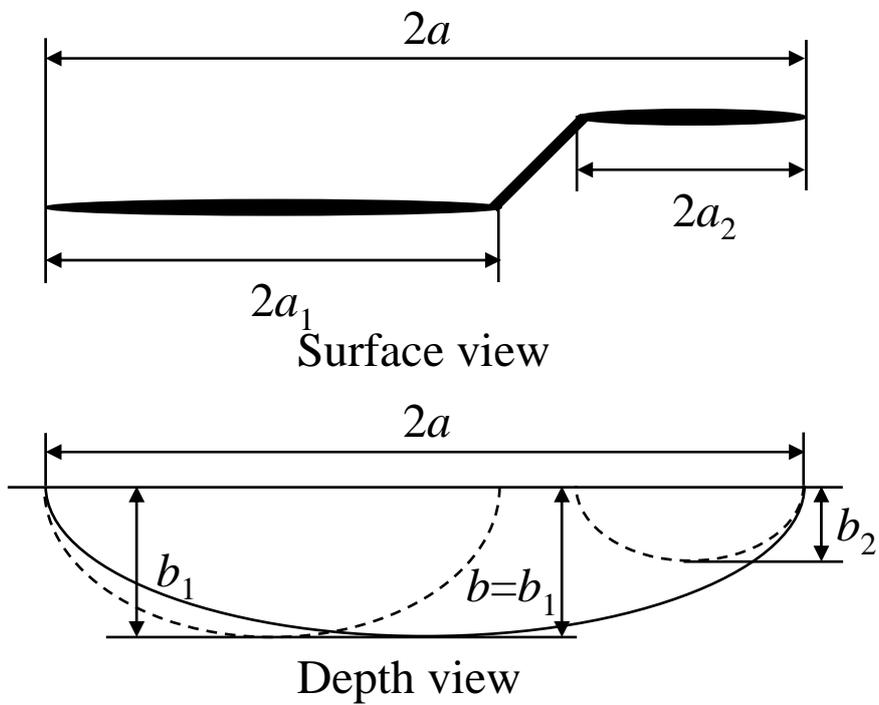


Fig. 2-11 Coalescence of two surface cracks.

Step 6 : 合体により進展性き裂長さに達したき裂は，き裂進展特性 ( $da/dt-K_I$ 関係) に基づいて定常進展を開始する．表面き裂の表面方向でのき裂進展量は表面部での応力拡大係数  $K_{IA}$ ，深さ方向でのき裂進展量は最深部での応力拡大係数  $K_{IB}$  を用いて計算される．

き裂発生間隔期間内のき裂進展と合体は Step 5 と Step 6 を繰り返すことにより計算される．また，き裂の合体と進展は既に存在するき裂による応力解放の影響を受けるので，Fig.2-5(b)，(c)に示すように，その領域のき裂とは合体せず，その領域の中への進展しないものとした．ただし，深い大きな表面き裂は内部では進展可能であり，小さな表面き裂による応力解放域の影響を制限するため，ここでは，既存き裂よりも2倍以上深いき裂は既存き裂による応力解放域の中に進展できるものとした．

Step 7 : Step 3 から Step 6 の過程が新しいき裂に対して繰り返される．シミュレーションは最大き裂長さが設定した最終破壊の臨界長さに達するか，発生可能なき裂が全て発生したときに時間経過に対するき裂の分布，各き裂の表面寸法，深さ寸法を出力して終了する．

本シミュレーションを新たな乱数に対して繰り返すことにより，設定された SCC 条件下での SCC 挙動の統計的特性を予測できることになる．

## 2.3 結言

本章では，表面き裂の効果を考慮して，SCC における微小表面き裂の発生から合体・進展により大きき裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションを開発した．このモデルを用い，表面き裂の効果を考慮することによっ

て，より現実に近い解析が可能であると考えられる．

# 第 3 章

## 一様応力場の シミュレーション



## 3.1 緒言

前章において，平滑表面における SCC 挙動を再現するために，特に表面き裂の効果を考慮して，微小表面き裂の発生から合体・進展により大き裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションを開発した．このモデルをプラントの SCC の寿命評価に適用するためには，モデルに BWR 条件固有のき裂発生，進展に関するデータをパラメータとして入力する必要がある．本研究では，その前段階として，高温高純度水環境下におけるオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 の定ひずみ曲げ (Crevice Bent Beam, CBB) 試験結果を基礎データとしてシミュレーションを行い，解析結果と実験結果の比較を行うとともに，シミュレーションにおける合体条件，き裂発生条件の影響について検討した．

## 3.2 SUS304 におけるシミュレーション

### 3.2.1 CBB 試験

BWR 一次冷却水環境の SCC に対する実験室加速試験として，高温高純度水環境における CBB 試験を行った．

試験に使用したオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 の化学組成および CBB 試験の条件を Table 3-1 および，Table 3-2 に示す．この試験では，鋭敏化処理として  $700^{\circ}\text{C}/2\text{hr}+500^{\circ}\text{C}/24\text{hr}$  の熱処理を施した SUS304 に対して  $288^{\circ}\text{C}$ ，溶存酸素濃度 8ppm の高温高純度水環境において，Fig.3-1 に示すような試験治具に  $10(\text{W})\times 50(\text{L})\times 2(\text{T})(\text{mm})$  の寸法の短冊形試験片を取り付けて，約 1% の変形 (曲げ応力) を

与えて行った。また，試験片外表面と試験治具との間に導入されたグラファイトファイバーウールにより人工すきまが付与された。24時間，48時間，96時間経過した試験片について微小き裂を計測した。Fig.3-2に96時間経過した試験片の表面写真を示す。試験片表面に合体や進展により成長したき裂が複数存在することがわかる。Fig.3-3に96時間経過した試験片におけるき裂の分布図を示す。CBB試験の結果，多くのき裂が存在することがわかる。しかし，試験片の長手方向の両端においてき裂が発生しにくくなっている部分がある。そのため，き裂の計測は試験片の両端5mmを除く10mm×40mmの領域に対して行った。き裂の計測の結果，24時間経過後で1254個，48時間経過後で2975個，96時間経過後で5572個のき裂が観察された。

Table 3-1 Chemical composition of test material.

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe
0.05	0.64	1.03	0.033	0.011	9.15	18.45	Bal.

Table 3-2 Condition of CBB test.

<b>Material</b>	Type 304 SS (C>0.05%)
<b>Heat Treatment</b>	700°C/2hr + 500°C/24hr
<b>Test condition</b>	288°C, DO= 8ppm, Graphite wool crevice
<b>Testing Time</b>	24hr, 48hr, 96hr
<b>Strain</b>	1%

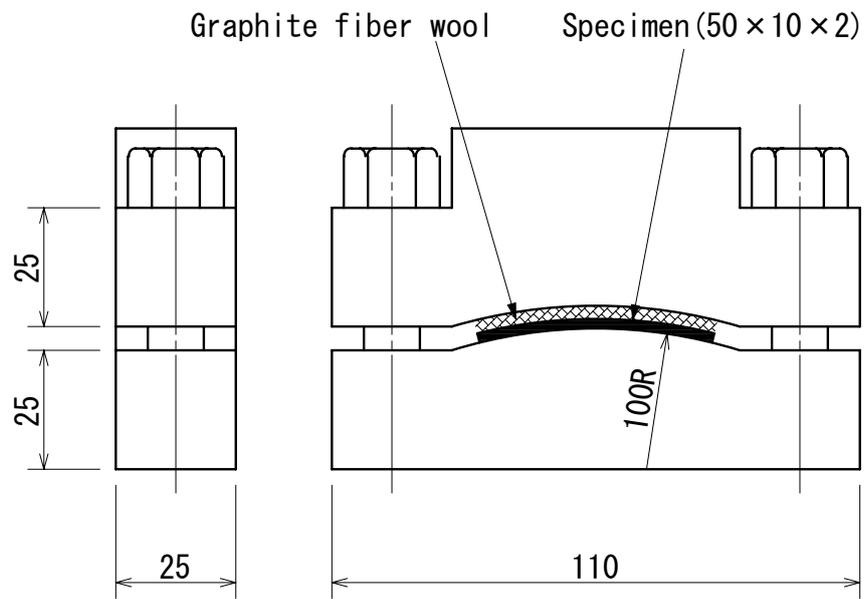


Fig. 3-1 The CBB test fixture.

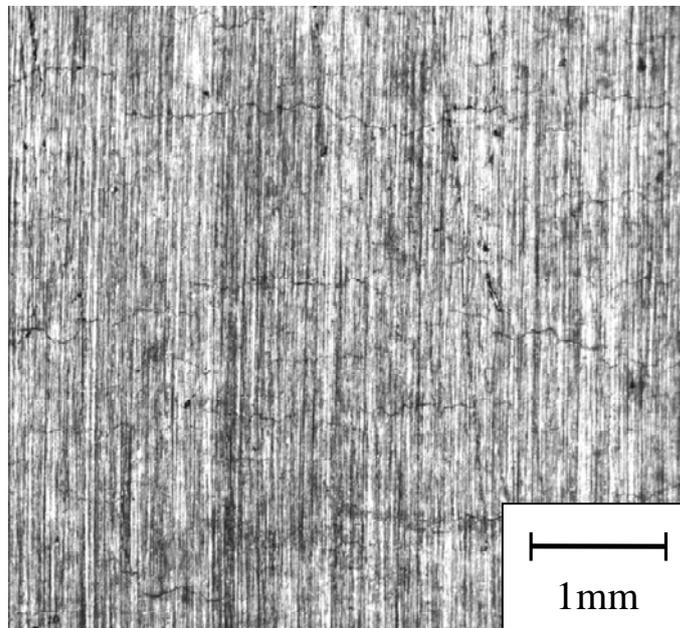


Fig. 3-2 Microscope photograph of the specimen surface after 96hr CBB test.

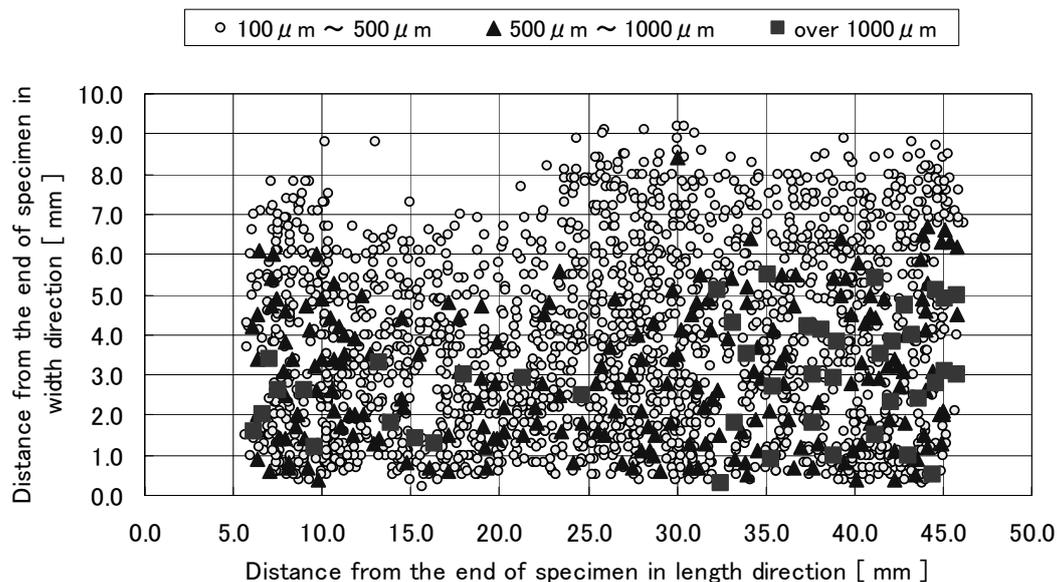


Fig. 3-3 Distribution of surface cracks in space after 96hr CBB test (crack length over  $100\ \mu\text{m}$ ).

### 3.2.2 シミュレーション方法

数値シミュレーションは一様単軸引張応力場における  $20\text{mm} \times 20\text{mm}$  の正方形領域として行い, CBB 試験結果と比較検討を行った.

CBB 試験を想定して, シミュレーションは SUS304 に 1% の曲げ変形(曲げ応力)が負荷されるものとし, CBB 試験に用いた SUS304 の  $288^\circ\text{C}$  での応力-ひずみ関係より, 降伏応力を  $\sigma_{ys}=162\text{MPa}$ , 作用応力を  $\sigma=200\text{MPa}$  とした. CBB 試験は定ひずみ試験なので, 実際はき裂の生成によって作用応力が解放され, 荷重は低下するものと思われる. しかし, き裂数増加と荷重低下をモデルに組み込むことは複雑であるため, 本シミュレーションでは定荷重条件におけるき裂の表面挙動と深さ挙動を検討した.

CBB 試験において解析対象は  $10\text{mm} \times 40\text{mm}$  であり, 同材料において平均結晶粒径は  $0.08\text{mm}$  であったので式(4)

より，CBB試験片において解析対象領域に発生可能なき裂数を62500個とした．微小き裂発生の累積確率分布として指数分布(1)式を以下のように決定した．

CBB試験の結果より，20mm×20mm当りのき裂数に換算すると，24時間で1254個，48時間で2972個，96時間で5572個となるので累積確率はこれを発生可能なき裂数62500個で除することにより，0.0201，0.0476，0.0892となる．経過時間が長くなるほど合体したき裂が含まれるので，より短い経過時間での結果を重視して，(1)式において， $a_i=0.0258\text{Ms}$ ， $\theta_i=2.97\text{Ms}$ とした．

発生可能数62500個のき裂に対してき裂発生時間を指数分布に基づく乱数により割り当て，時間の短いものから発生させた．き裂発生位置(x, y)は区間0~20mmの一様乱数により，き裂長さ2aは，粒径と同程度の大きさとして，供試材料の粒径分布を近似した正規分布より平均き裂長さ0.08mm，標準偏差0.03mmの正規乱数により，決定した．また，アスペクト比 $b/a=1$ とした．

き裂合体に関しては，式(7)に示される合体領域の臨界半径の式において， $k=0.5$ とした．き裂進展に関しては，微小き裂が合体により表面長さが0.3mm以上になったとき定常進展を開始するものとし，表面，深さともに応力拡大係数の下限値 $K_{ISCC}=2\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ とした．き裂進展速度は齊藤<sup>19)</sup>らによる288℃におけるType304ステンレス鋼の研究で得られた式を用い， $K_{ISCC}$ を考慮して式(8)としてシミュレーションを行った．

$$\begin{aligned} \frac{da}{dt} &= 1.1 \times 10^{-7} \left( \frac{\dot{\epsilon}_{ct}}{4.4 \times 10^{-4}} \right) \\ &= 1.1 \times 10^{-7} \left[ 2.5 \times 10^{10} \exp \left( - \frac{3 \times 10^{-19} - 1.5 \times 10^{-20} (K - K_{ISCC})^{1/3}}{7.74 \times 10^{-21}} \right) \right]^{0.443} \end{aligned} \quad (8)$$

ここで、 $da/dt$ の単位はm/sであり、 $\dot{\epsilon}$ はき裂先端ひずみ速度、 $K$ はき裂先端の応力拡大係数である。(8)式によるシミュレーションのき裂進展特性( $da/dt$ - $K_I$ 関係)をFig.3-4に示す。

以上の条件下でモンテカルロ・シミュレーションを15回行った。シミュレーションは、時間 $t$ が24時間、48時間、96時間になった時点でデータを取り、最大き裂長さが10mmに達したときシミュレーションを終了した。また、解析領域からき裂先端がはみ出した場合についてはそれより先の進展や合体は考慮されないため、その影響が出ないようにするためにき裂長さ5mmに対するSCC寿命について議論した。

本シミュレーションでは、厚さ2mmの平板の曲げ負荷であるCBB試験結果より微小き裂発生条件を決定し、一様引張応力下でのSCC挙動を解析している。したがって、厳密には微小き裂発生後のき裂進展・合体挙動に関して、シミュレーション結果とCBB試験結果を比較することは無理があるが、可能な範囲で比較を行った。シミュレーションの妥当性の検討は、一様引張応力下での実験結果との比較が必要である。

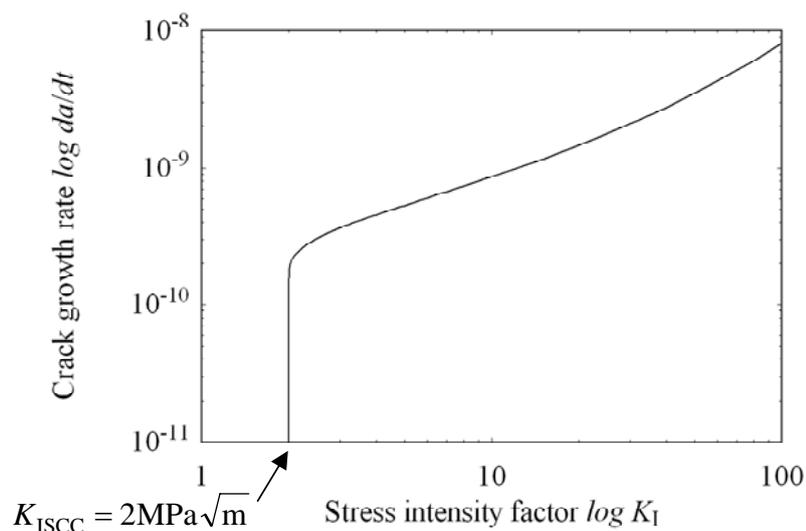


Fig. 3-4 Crack growth rate of simulation.

### 3.2.3 シミュレーション結果と考察

Fig.3-5 に各時間における表面でのき裂分布を示す．  
20mm×20mm 領域から最大き裂を含む 10mm×10mm の領域を示したものである． Fig.3-5(d)は最大き裂長さが最終破壊の臨界長さの 5mm に達したときのき裂分布である．  
24 時間および 48 時間経過した時点では，き裂の合体はほとんどなく，微小き裂が一様に分布している． 96 時間経過すると，領域内のほとんどのき裂が発生し，き裂同士の合体および進展により成長したき裂が多くなっているのがわかる． 230 時間経過の時点になると，成長したき裂の数がさらに増え，最大き裂長さが最終破壊長さの 5mm に達し，大きなき裂が全体に多数分布している様子がわかる．

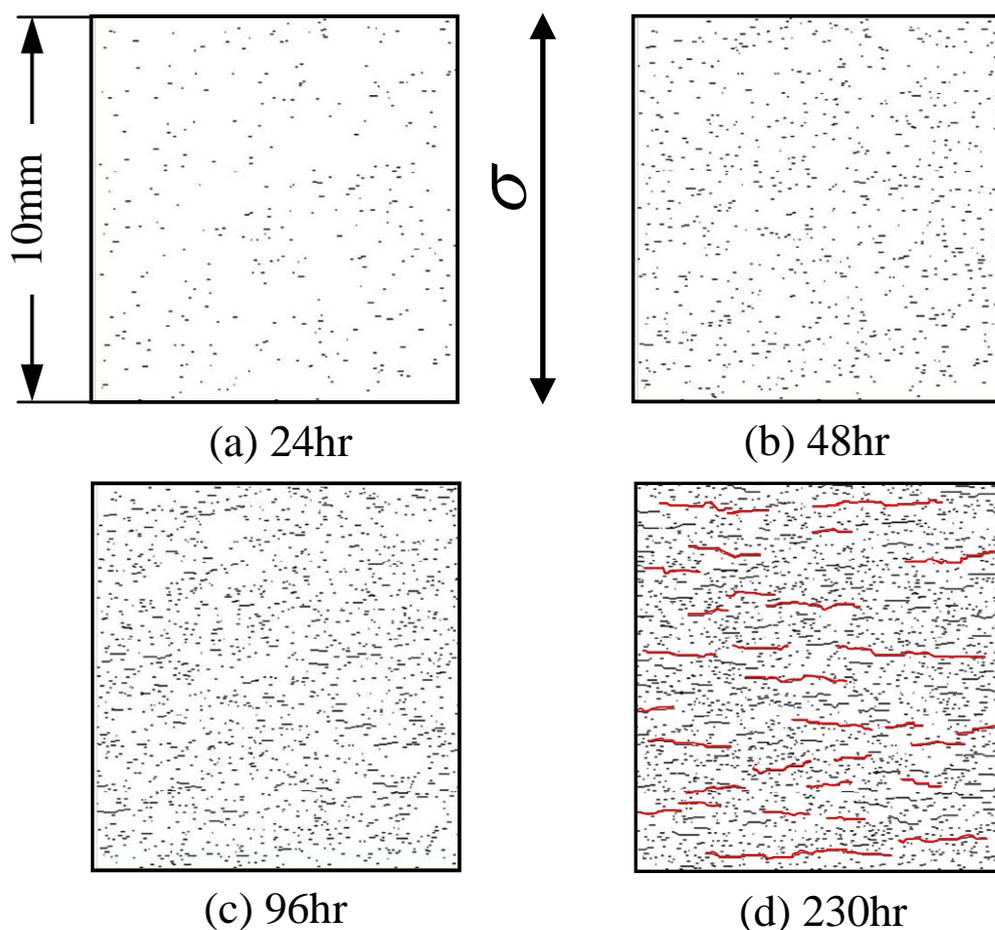


Fig. 3-5 The variation of crack distribution with time.

Fig.3-6 はき裂数と時間の関係を示したものである。図中には指数分布に基づいた式(1)の計算結果も示す。また、図中のプロットは CBB 試験結果である。図中の 1 本の曲線は 1 回のシミュレーションに対応する。これを見ると、48 時間まではほぼ指数分布による関係に沿っていることから、この時間帯において合体などは少ないということがうかがえる。48 時間を過ぎると少しずつ指数分布による関係との差が大きくなっている。これは、き裂同士の合体の増加や合体・進展により大きなき裂が現れ、応力解放のため、き裂発生不可能な領域に割り当てられ、発生できなかったき裂が増えてきたことを示す。そして、96 時間を過ぎると、き裂数は急に横ばいとなっている。これは、き裂が全体的に分布しているため、合体や進展するき裂が増加し、大きなき裂が全体的に多くなるため、ほとんどの領域が応力解放により発生不可能な状況になっていることが考えられる。また、96 時間経過までを CBB 試験結果と比較すると、シミュレーション結果はほとんどの場合でき裂数に関してよい一致を示しているといつてよい。

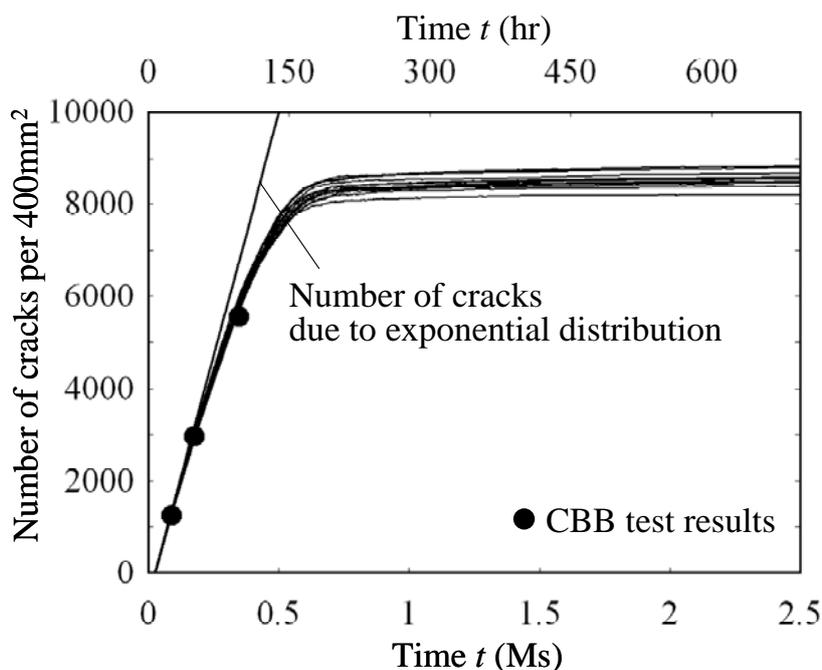


Fig. 3-6 Number of cracks as a function of time.

Fig.3-7 は最大き裂長さとの時間の関係を示したものである。き裂長さは、進展と合体により徐々に大きくなっていることがわかる。最大き裂長さの各シミュレーション間のばらつきは、経過時間 0.75Ms 程度までは少ないが、0.75Ms 以降では大きくなる。これは Fig.3-5(d)に示すように、約 0.75Ms 経過すると大きなき裂も含めて約 8000 個のき裂が存在し、き裂の発生、進展、合体が生じにくい領域が増加し、破壊の進行がき裂の分布状況に依存するようになるためである。

Fig.3-8 は最大き裂深さと時間の関係を示したものである。深さ方向には、合体やき裂進展を妨げる要素を設定していないため、き裂最深部の応力拡大係数とき裂進展特性から評価され、ほとんど同じように増加量を増しながら大きくなっていくので、結果のばらつきは少ない。

Fig.3-9 はき裂のアスペクト比との時間の関係を示したものである。アスペクト比は最大き裂長さをもつき裂のものである。微小き裂は発生時にアスペクト比 1 の半円状表

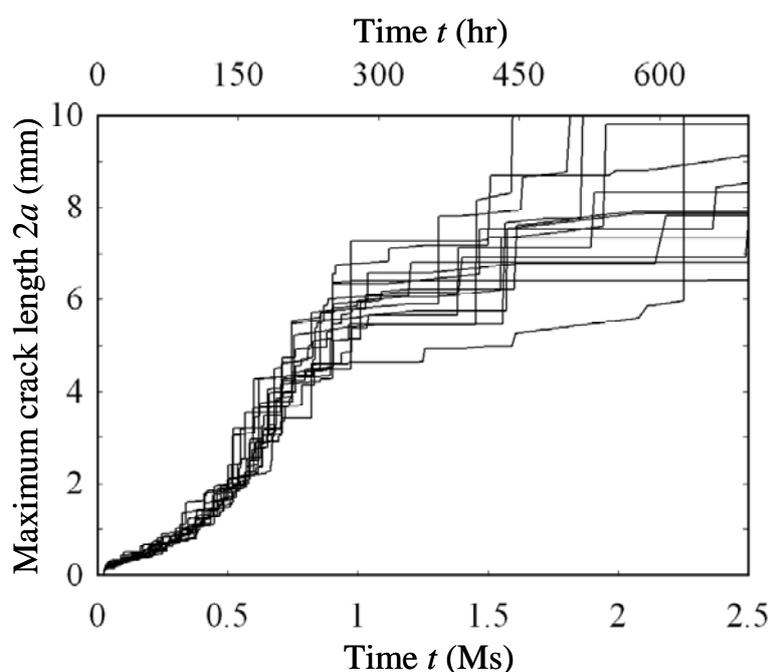


Fig. 3-7 Maximum crack length as a function of time.

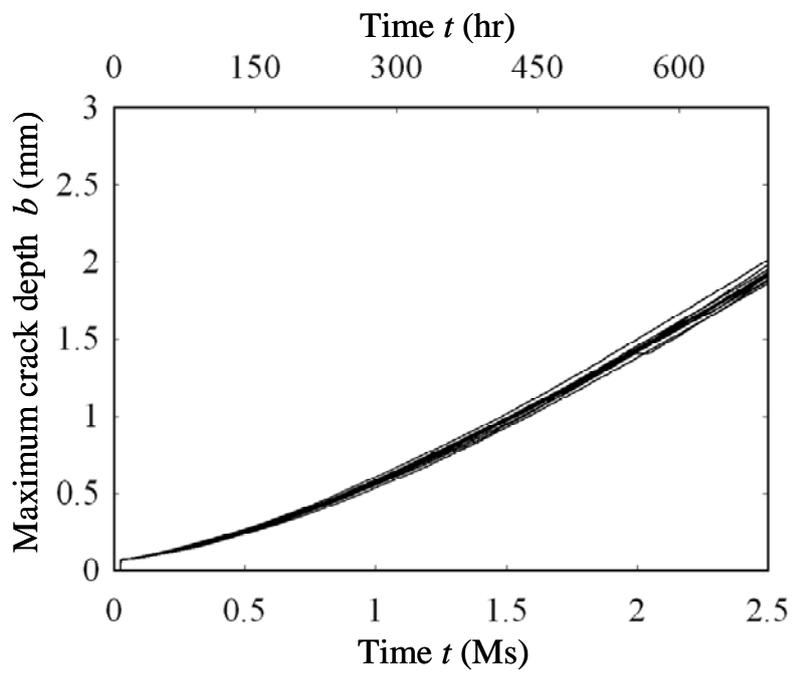


Fig. 3-8 Maximum crack depth as a function of time.

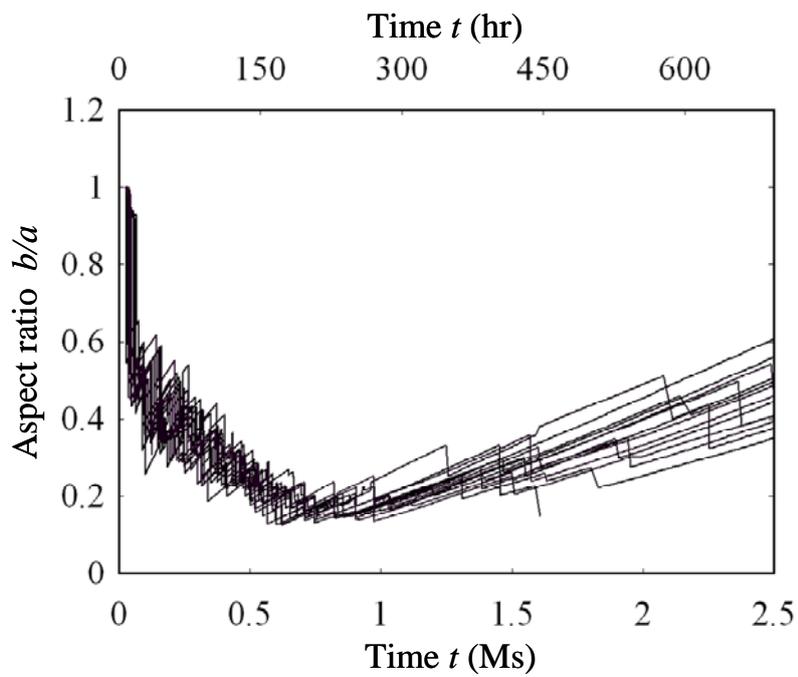


Fig. 3-9 Aspect ratio as a function of time.

面き裂となっている。微小き裂同士の合体が生じると、き裂長さは増大するが、深さは合体前と変わらないため、アスペクト比は大きく低下する。その後、深さ方向に進展をするためアスペクト比は増加を始める。また、表面長さも同時に進展するときアスペクト比はゆるやかに増加する。深さ方向の進展は一度進展を開始すると、シミュレーション終了まで進展を続けるが、き裂表面方向は両端で進展する場合や片端のみが進展する場合、進展できない場合があるため、アスペクト比の増加量に差が生まれる。そして、合体によりアスペクト比は再び低下する。以上のようにして、アスペクト比は合体による低下と進展による増加を繰り返しながら、0.2程度になるように徐々に低下している。これは実際に見られる SCC き裂の特徴をよく表している。経過時間 0.75Ms 以降は、前述したように表面方向の破壊の進行が停留する一方、深さ方向には進展を続けるので、アスペクト比が大きくなる傾向にある。

Fig.3-10 は各試験時間において存在するき裂長さと個数の関係である。15 回のモンテカルロ・シミュレーション平均値をとって棒グラフで示した。同時に、CBB 試験結果もプロットで示した。シミュレーション結果を CBB 試験結果と比較すると、200 $\mu$ m 以下のき裂数に関して、差が生まれている。シミュレーションにおいてこの大きさに分類されるのは、ほとんどが発生段階の微小き裂である。300 $\mu$ m 以上のき裂の個数は、シミュレーションと CBB 試験結果でよい一致を見せている。このことから、合体・進展によるき裂成長過程においてシミュレーションモデルは CBB 試験によく一致しているものと考えられる。しかし、CBB 試験では 24 時間でも 1mm 以上のき裂が発生しており、また、発生段階における微小き裂の結果がシミュレーションと差が生まれている。これは、本シミュレーショ

ンでは定荷重を想定しているのに対し，実際の CBB 試験ではき裂発生による応力場の変化やき裂の増加に伴う応力解放などが生じている．そのため，本シミュレーションを実プラントに応用して寿命予測に役立てるには，き裂数と作用応力の関係も考慮しさらに発展させる必要がある．

Fig.3-11 は臨界き裂長さ 5mm に達したときを SCC 寿命と仮定し，15 回のシミュレーションにおいて得られる SCC 寿命に基づいて，SCC 寿命の累積確率を指数分布確率紙にプロットしたものである．これらのプロットが直線関係を示すことから SUS304 における表面き裂のシミュレーションの臨界長さに達するまでの SCC 寿命も式(9)で表される指数分布によって説明できることがわかる．

$$F_f(t) = 1 - \exp\left\{-\frac{(t - a_f)}{\theta_f}\right\} = 1 - \exp\{-H_f(t)\} \quad (9)$$

このことは，小直径試験片の定荷重試験で得られる SCC 破断寿命が指数分布で表されるという実験結果を再現している<sup>4)5)</sup>．

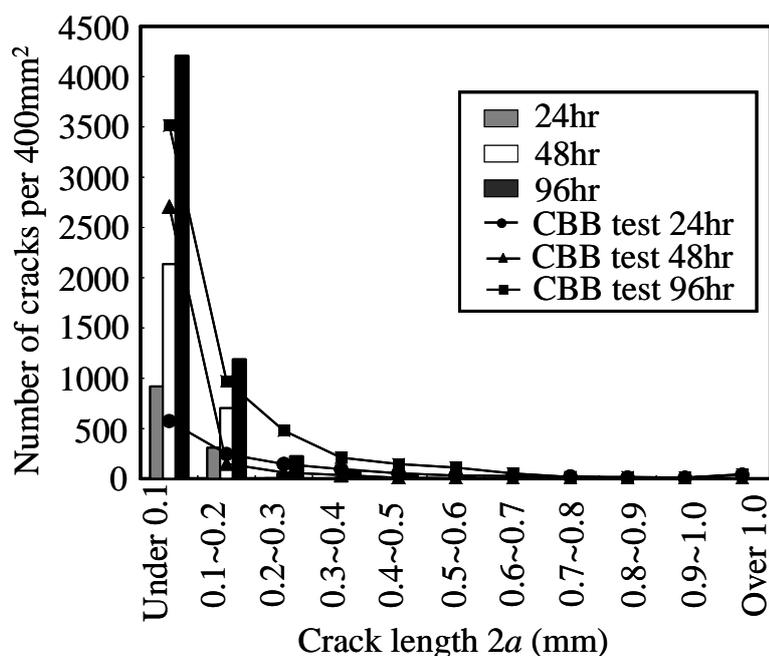


Fig. 3-10 Histogram of crack length.

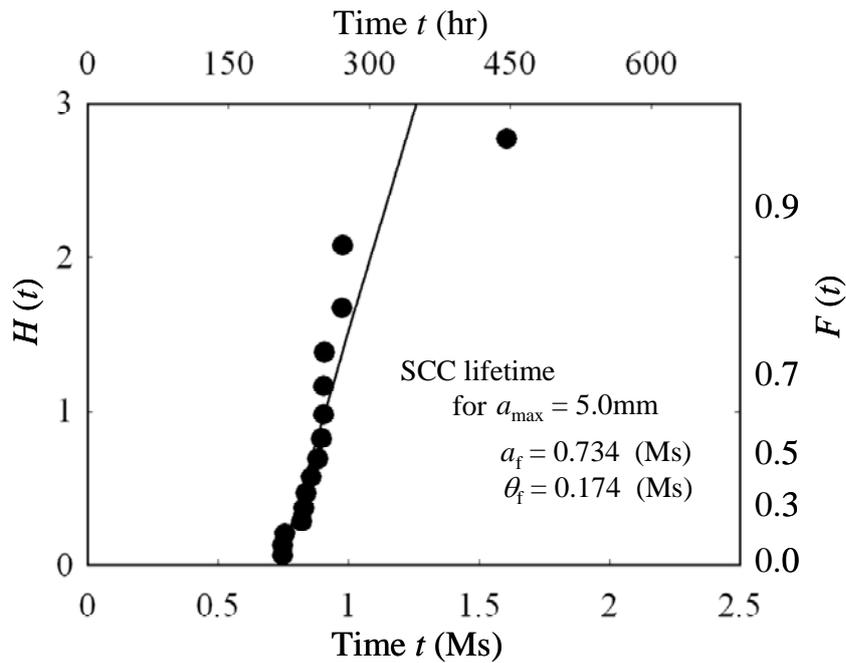


Fig. 3-11 Exponential distribution plots for SCC lifetime.

### 3.3 各パラメータの影響

#### 3.3.1 表面き裂の効果

本シミュレーションの大きな特徴は表面き裂の効果，すなわちき裂の進展，合体にアスペクト比の変化を考慮していることである．表面き裂の効果を導入することは実際の現象を表現するために重要なものとなっている．この節では，表面き裂の効果을明らかにするために，前章で行ったシミュレーションを貫通き裂とした場合についてシミュレーションを行い，結果を比較した．貫通き裂の取り扱いとしては，深さを考慮せず，応力拡大係数は表面長さ方向先端において次式で評価した．

$$K_{I1} = F_{I1} \sigma_0 \sqrt{\pi a} \quad (10)$$

修正係数はアスペクト比  $\alpha=1$  の表面き裂の表面部に対す

る値に等しくし， $F_I=0.707$  とした．他の条件は前節と同じである．

Fig.3-12 に貫通き裂とした場合の最大き裂長さが 5mm を超えた時点での表面のき裂分布を示す．き裂は表面き裂とした場合よりも短時間に大きなき裂となっている．これは，き裂が合体することにより，応力拡大係数は大きくなり，合体領域が広がるために連鎖的に合体しやすくなるためである．表面き裂とした場合では，合体後はアスペクト比の低下により，表面長さ方向における応力拡大係数は低下するため，合体領域は狭くなり連鎖合体を起こしにくい．この点が貫通き裂と表面き裂の違いであり，実際の現象を表現するのに後者が適している．

Fig.3-13 はき裂数と時間の関係を示したものである．貫通き裂とした場合には，連鎖合体が生じて破壊に至るため，表面き裂とした場合と初期段階では同じように指数分布による計算結果に沿って変化をしていくが，0.2Ms 経過後から急激な破壊により途切れてしまう．また，連鎖的に合体が起こるため，き裂数は大きく減少する．

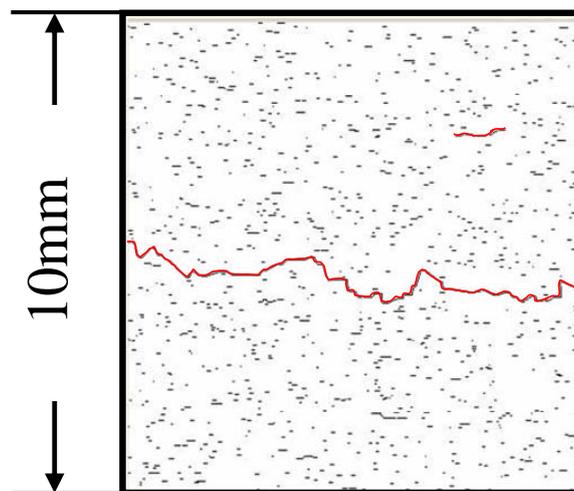


Fig. 3-12 An example of crack distribution (63hr).

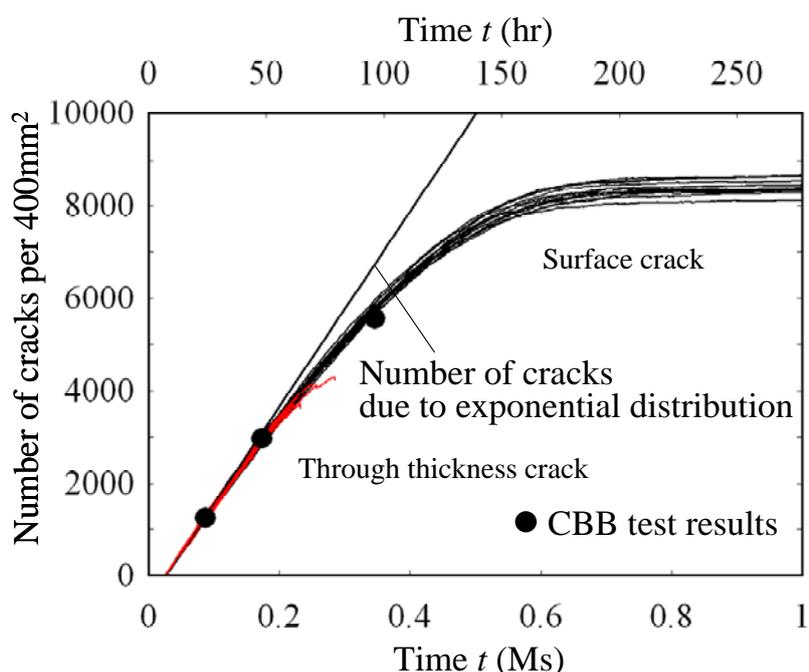


Fig. 3-13 Number of cracks as a function of time.

Fig.3-14 は最大き裂長さと時間の関係を示したものである。貫通き裂とした場合には、最大き裂が 0.5～1mm 程度に成長すると、その後は連鎖合体によりき裂長さが 4～10mm 以上まで一気に成長することがわかる。つまり、周囲にある程度き裂が発生し、合体の条件が整ったとき一気に破壊に至ると考えられる。

Fig.3-15 は SCC 寿命を最大き裂長さ 5mm とした場合の SCC 寿命の累積確率を指数分布確率紙にプロットしたものである。これを見ると、貫通き裂とした場合には表面き裂とした場合に比べて大きく短寿命側に移り、破壊はき裂発生状態に大きく影響されるためばらつきが少ないものと思われる。

以上の結果より、貫通き裂とした場合、応力拡大係数はき裂長さとともに増加し、き裂の進展と合体が促進される。一方、表面き裂として扱った場合は、き裂の合体によりアスペクト比が低下するため、表面部の応力拡大係数は必ず

しも増加せず,き裂の合体,進展が抑制されることになる.すなわち,表面き裂としての取り扱い,平滑表面での SCC 挙動の現実的なシミュレーションを行う上で極めて重要であることがわかる.

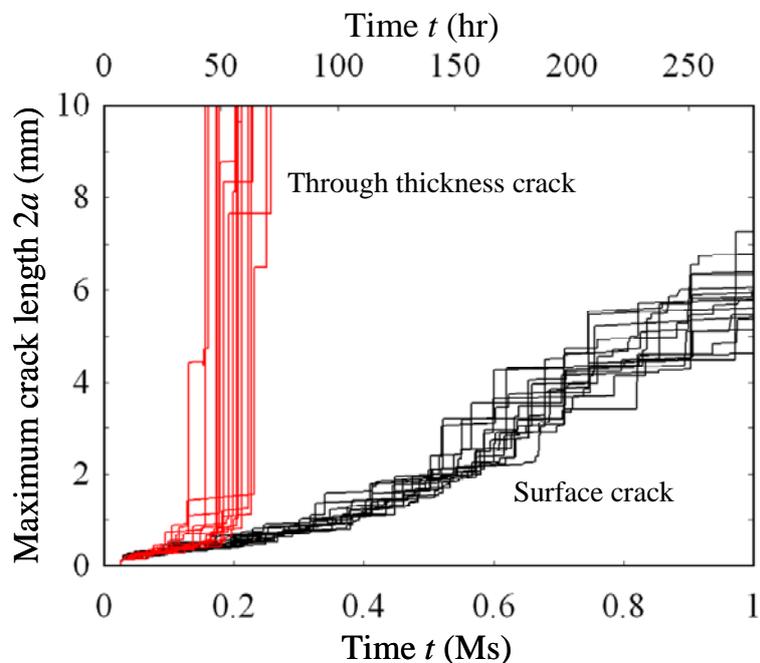


Fig. 3-14 Maximum crack length as a function of time.

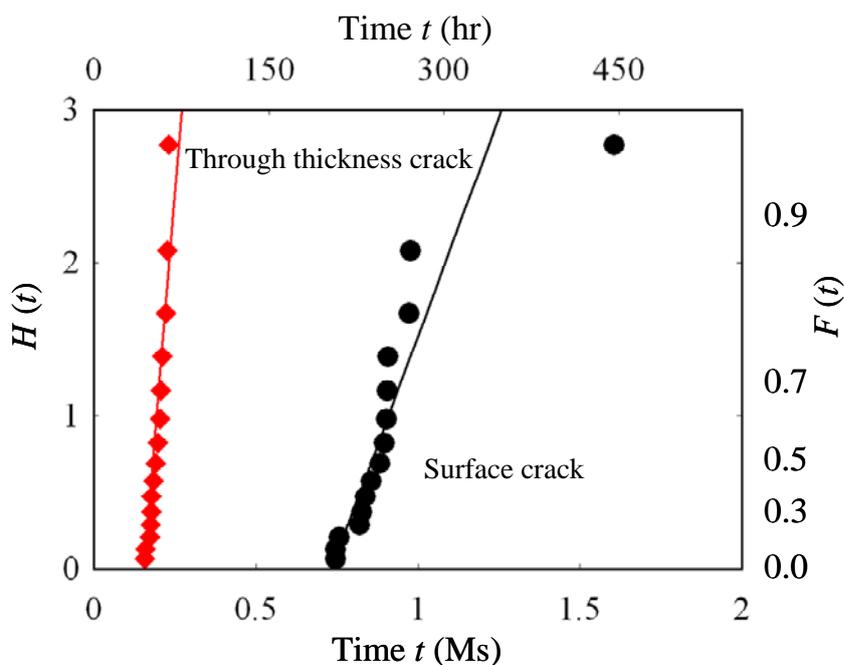


Fig. 3-15 Exponential distribution plots for SCC lifetime.

### 3.3.2 合体領域

SCC挙動を考える上でき裂成長は合体により大きく影響されるため、合体挙動を明らかにすることは重要である。合体領域の臨界半径 $r_c$ は式(7)で表されるが、この式の中で降伏応力 $\sigma_{ys}$ および応力拡大係数 $K_{IA}$ はそれぞれ材料と負荷応力により決定する。つまり、環境などの影響による合体のしやすさはこのシミュレーションモデルにおいては $k$ に依存している。この値については、詳細な検討が必要であるが、現時点ではシミュレーション結果が実験結果をよく再現できるように決定するということになる。前章において、CBB試験との比較では $k=0.5$ として解析を行ったが、この節では合体領域の変化によるシミュレーション結果への影響を見るため $k$ の値を合体領域が半分となり合体しにくくした $k=0.25$ 、合体領域が2倍となり合体をしやすくした $k=1.0$ および $k=0.5$ の3種類に対してシミュレーションを行い、結果を比較した。また、それ以外の条件に関しては前節と同じである。

Fig.3-16 にそれぞれの各時間における表面のき裂分布を示す。Fig.3-16(d)は最大き裂長さが5mmに達したときのそれぞれのき裂分布である。24時間、48時間経過時点ではそれぞれ同じように微小き裂が一様に分布している。しかし、96時間経過時点では、合体領域が大きくなるほど、き裂同士の合体や進展により成長したき裂が目立つようになる。そして、臨界き裂長さの5mmを超えるき裂長さに達する時間は $k=0.25$ の場合は504時間、 $k=0.5$ の場合は230時間、 $k=1.0$ の場合は143時間と大きな差が出ている。それぞれの破壊時点におけるき裂分布図を比較すると、破壊時間に伴いき裂数にも差が生じ、合体領域が小さいほど多くのき裂が発生している様子がわかる。

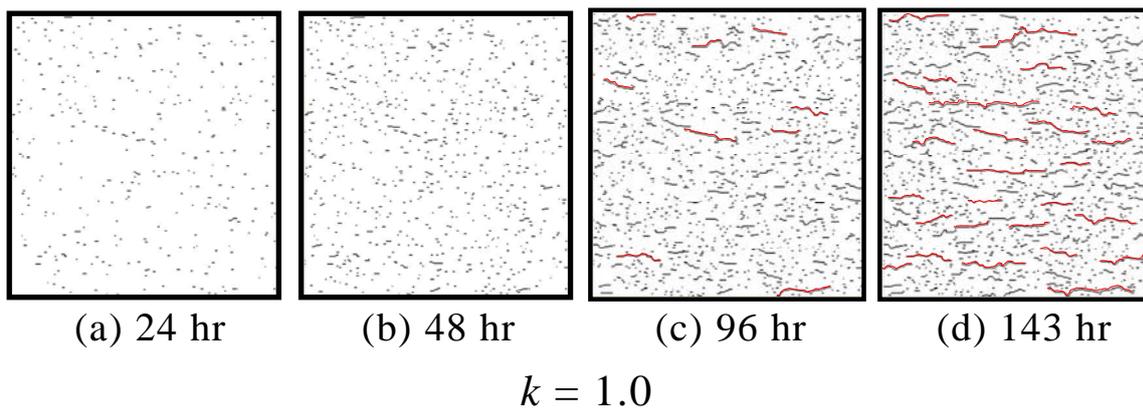
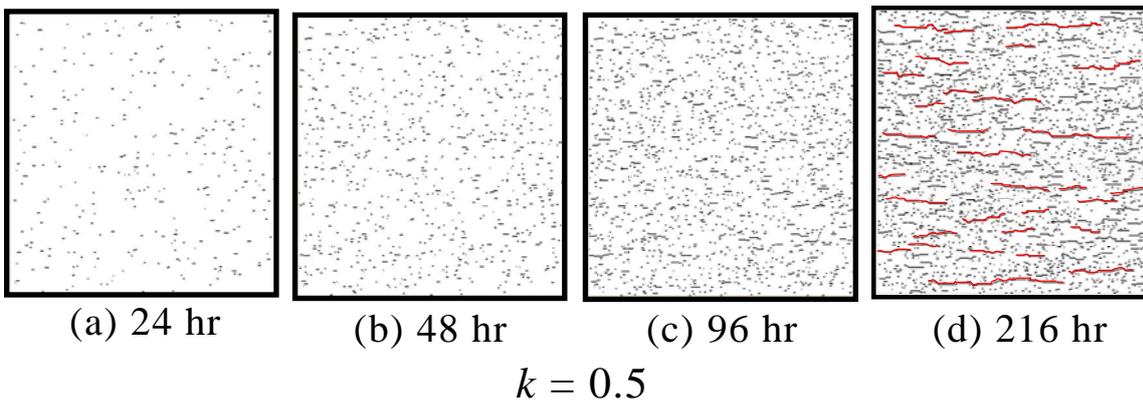
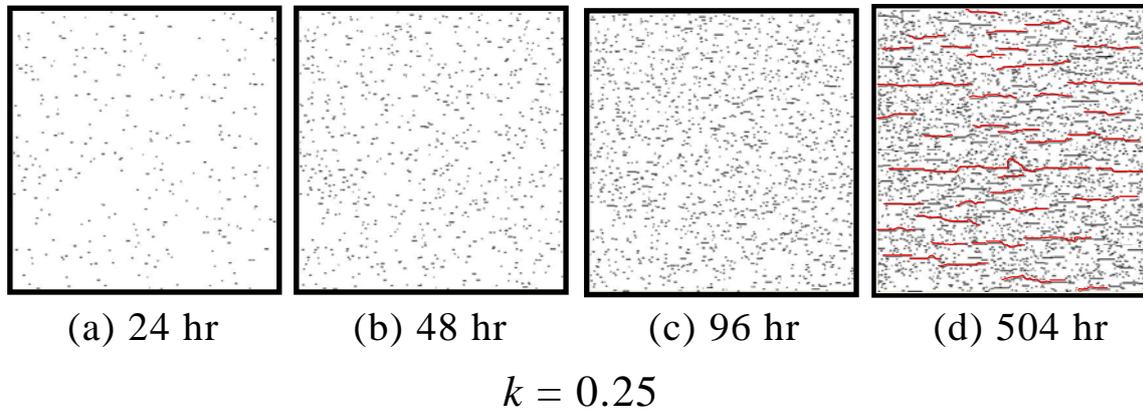


Fig. 3-16 The variation of crack distribution with time.

Fig.3-17 はき裂数と時間の関係を示したものである。いずれにおいても初期段階においては、指数分布に沿っているが、き裂数が  $k=0.25$  は 12000 個、 $k=0.5$  は 8000 個、 $k=1.0$  は 4500 個程度で横ばいとなっていることがわかる。合体領域が大きいほど、き裂の合体や進展によるき裂の表面長さの成長が早いため、大きなき裂が早い段階で生じやすく、より早く全体に大きき裂が分布して応力解放によりき裂が発生不可能となる領域が広がることにより飽和状態となるき裂数が少なくなる。

Fig.3-18 は最大き裂長さと時間の関係を示したものである。いずれもき裂成長は合体が支配的であることがわかる。き裂長さが 5~7mm 程度になるまでのき裂成長の速さは、合体領域が大きいほど傾きが大きく成長が早くなっている。また、その後の破壊に達する時間は合体領域が小さいほど、そのばらつきが大きくなることがわかる。これは、 $k=0.25$  の場合、き裂長さが 5mm 程度に成長するのに多くの時間を要するために発生き裂数が多くなり、応力解放領

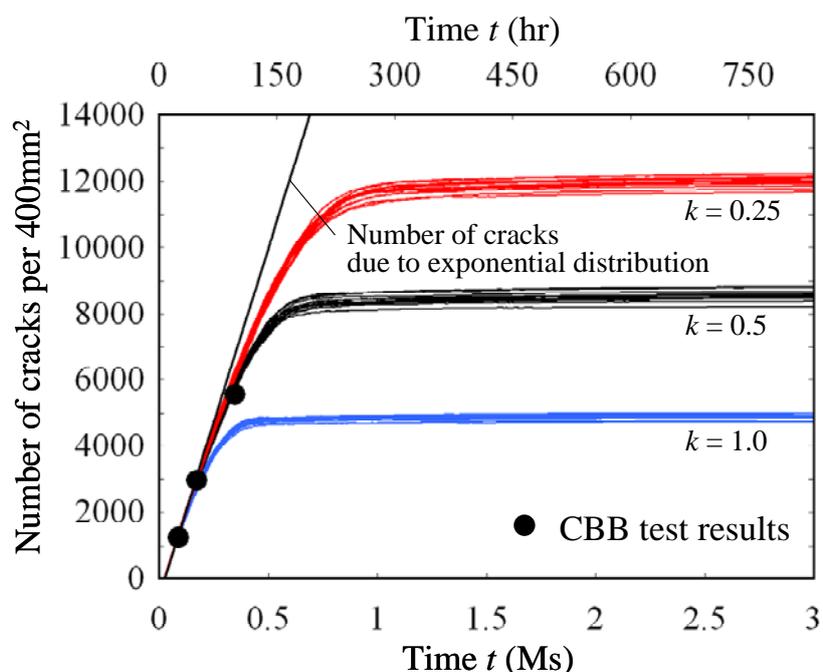


Fig. 3-17 Number of cracks as a function of time.

域の影響でさらに成長がしにくくなるためであると考えられる。

Fig.3-19 は最大き裂深さと時間の関係を示したものである。深さ方向への進展は、いずれもばらつきが少ない。また、表面方向に比べると小さいが、合体領域による影響が確認でき、合体領域が大きいほどき裂成長の速さが大きいことがわかる。これは合体領域が大きい場合には、合体が起きやすくなり、合体後にはアスペクト比が低下するため、深さ方向の応力拡大係数が増加するためであると考えられる。

Fig.3-20 は最大き裂長さを持つき裂のアスペクト比と時間の関係である。アスペクト比は、Fig.3-18において最大き裂長さが 5mm に達する時点付近において、いずれの場合も最小となり、 $k=0.25$  のとき 0.3,  $k=0.5$  のとき 0.15,  $k=1.0$  のとき 0.1 となっている。アスペクト比の低下は、合体が起きたときに生じるため、合体領域が大きいほど合体が多くなるために、アスペクト比が小さくなると考えられる。

Fig.3-21 は SCC 寿命を最大き裂長さ 5mm とした場合の SCC 寿命の累積確率を指数分布確率紙にプロットしたものである。これを見ると、合体領域が大きいほど短寿命側に、合体領域が小さいほど長寿命側に移り、ばらつきが大きくなることが確認できる。

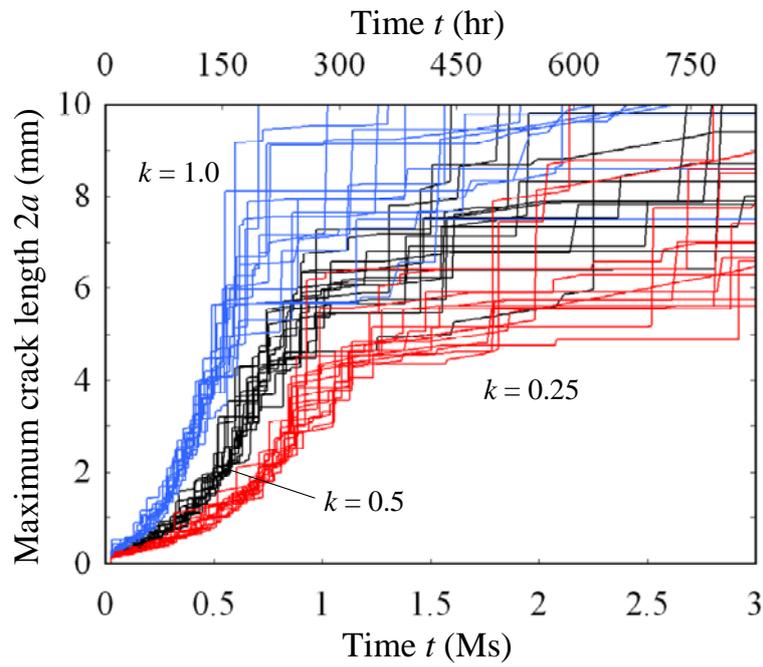


Fig. 3-18 Maximum crack length as a function of time.

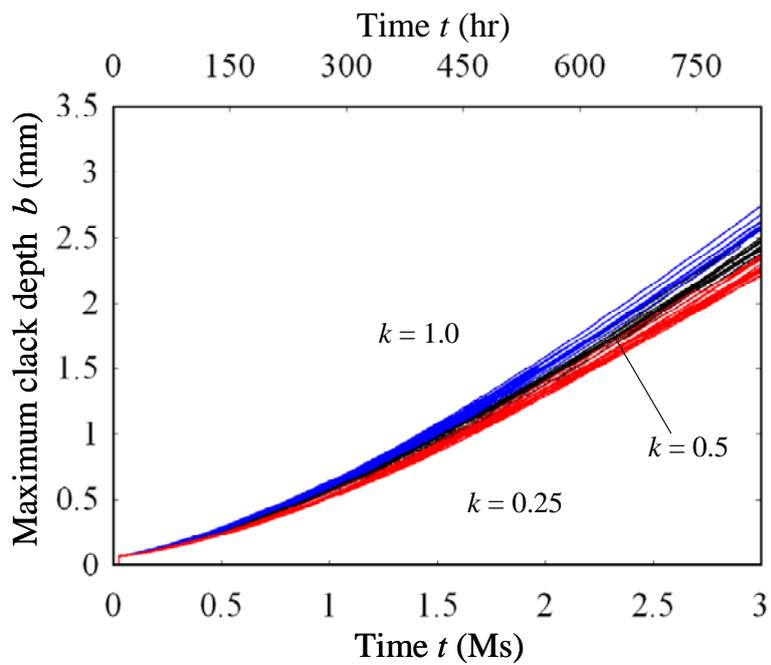


Fig. 3-19 Maximum crack depth as a function of time.

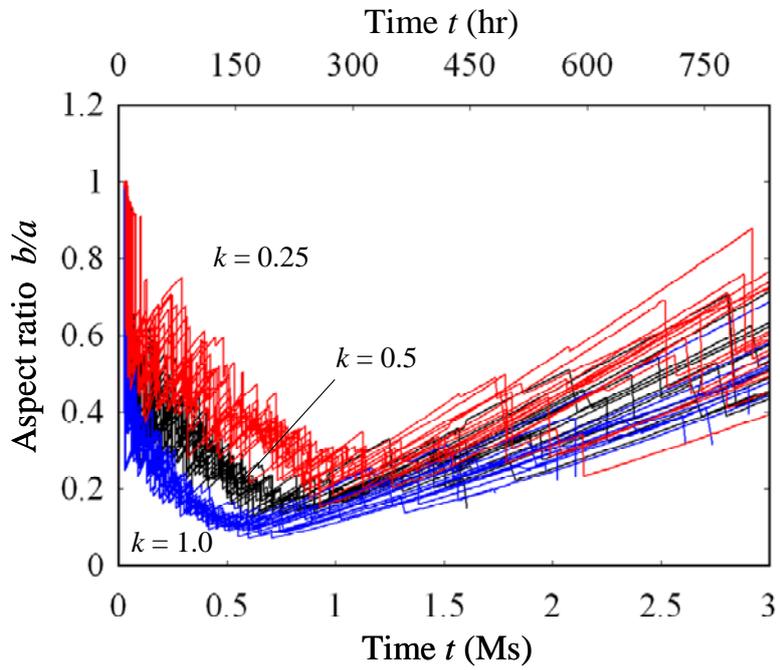


Fig. 3-20 Aspect ratio as a function of time.

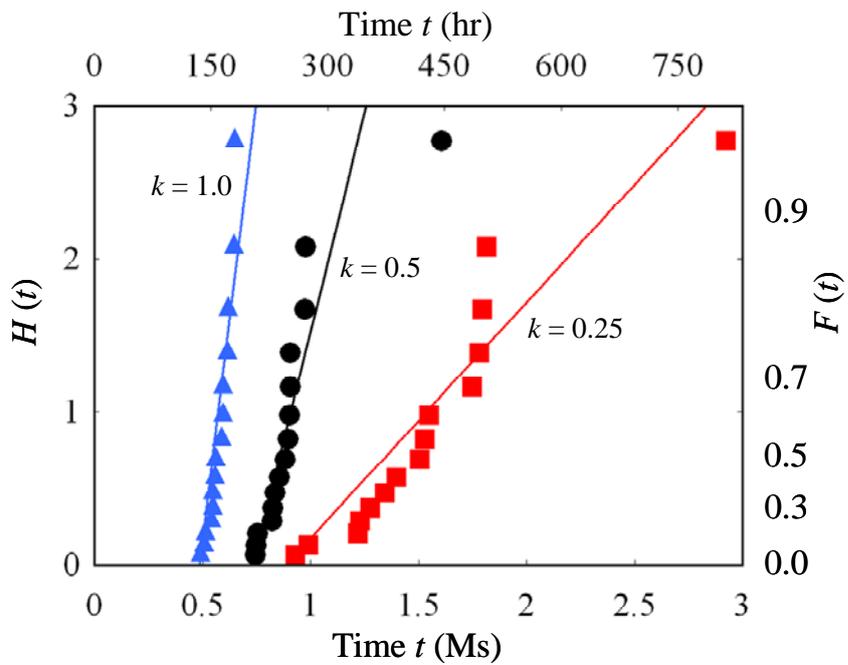


Fig. 3-21 Exponential distribution plots for SCC lifetime.

### 3.3.3 き裂発生速度

今回のCBB試験では、鋭敏化度が高く、き裂発生速度が大きくなっていた。そのため、シミュレーションにおいてSCC挙動はき裂の発生と合体に支配される結果になった。そこで、鋭敏化度が低い場合、つまりき裂発生速度が低くなった場合を仮定してシミュレーションを行いSCC挙動がどのように変化するかを見た。き裂発生速度は式(1)においてパラメータ $a_i$ と $\theta_i$ に依存する。前章では、CBB試験に基づき、 $a_i=0.0258Ms$ 、 $\theta_i=2.97Ms$ としたが、ここではき裂発生速度を小さくするため、 $a_i=0.3Ms$ 、 $\theta_i=34.54Ms$ とした。他の条件は前節と同じである。

Fig.3-22 に各時間における表面のき裂分布を示す。Fig.3-22(d)は最大き裂長さが最終破壊の臨界長さの5mmに達したときのき裂分布である。全時間においてき裂数はFig.3-5 に比べて少なくなっている。そして、最終破壊長さの5mmを超えるき裂長さに達する時間は459時間であり、このとき大きなき裂が複数分布しているが、これまでの結果と比べてき裂数がかなり少ない様子が見られる。

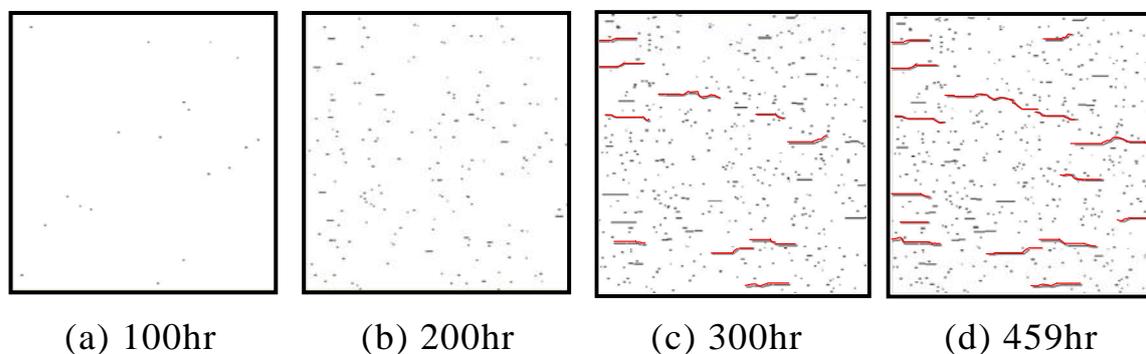


Fig. 3-22 The variation of crack distribution with time.

Fig.3-23 はき裂数と時間の関係を示したものである。図中には、それぞれの指数分布に基づく発生数を示してあるが、これによりき裂発生速度に大きな差があることがわかる。き裂発生速度が小さい場合、飽和状態になるき裂数が減少していることがわかる。これは、き裂発生速度が小さいため、破壊の進行に対してき裂進展が大きく寄与し、初期に形成された進展性き裂の進展によりき裂発生不可能領域が拡大していくためである。

Fig.3-24 は最大き裂長さとの時間の関係を示したものである。き裂発生速度の大きい場合のき裂成長は合体が支配的であったのに対し、小さい場合は進展の影響が大きいことがわかる。き裂の発生数が少ないため、進展性のき裂が合体しにくく、さらに進展の障害となる応力解放領域を形成する大きなき裂が近くに存在する確率が低いからこのような結果になったと考えられる。

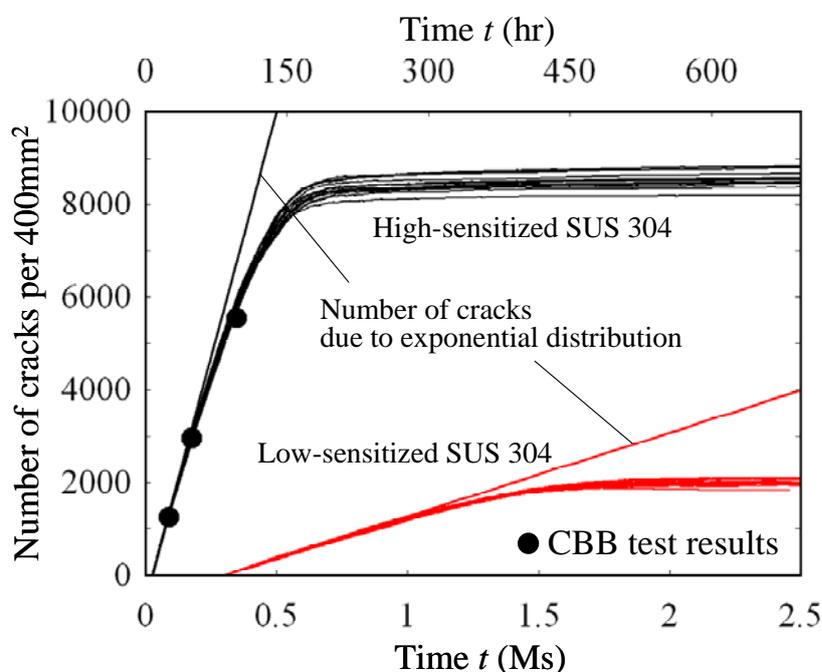


Fig. 3-23 Number of cracks as a function of time.

Fig.3-25 は最大き裂深さと時間の関係を示したものである。いずれも一様に進展をしている。また、深さ方向については、き裂発生速度が大きいほうが常に深いき裂となっていることがわかる。

Fig.3-26 は最大き裂長さを持つき裂のアスペクト比と時間の関係を示したものである。アスペクト比が最小となるのは、Fig.3-24 と比較すると最大き裂長さが 5mm 程度になった時であり、そのときの値はき裂発生速度が大きい場合は 0.15 であり、き裂発生速度が小さい場合では 0.3 程度でき裂発生速度が小さい程、大きくなっている。これは、き裂進展がき裂発生や合体より支配的となった場合には大きなき裂の数が減少し、アスペクト比がより大きくなるという実験結果<sup>31)</sup>と一致している。

Fig.3-27 は SCC 寿命を最大き裂長さ 5mm とした場合の SCC 寿命の累積確率を指数分布確率紙にプロットしたのである。これを見ると、き裂発生速度が小さいものが長寿命側になることが確認できる。また、き裂進展が大きく影響するため、ばらつきが少ないことがわかる。

以上の結果のように、き裂が発生しにくい条件では、SCC 寿命は進展性き裂の形成およびき裂進展速度に強く依存する傾向となる。

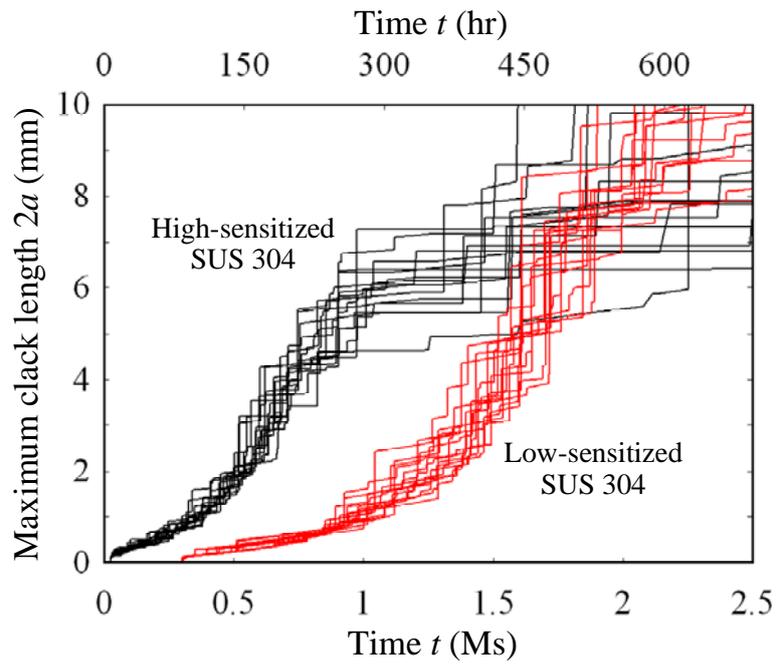


Fig. 3-24 Maximum crack length as a function of time.

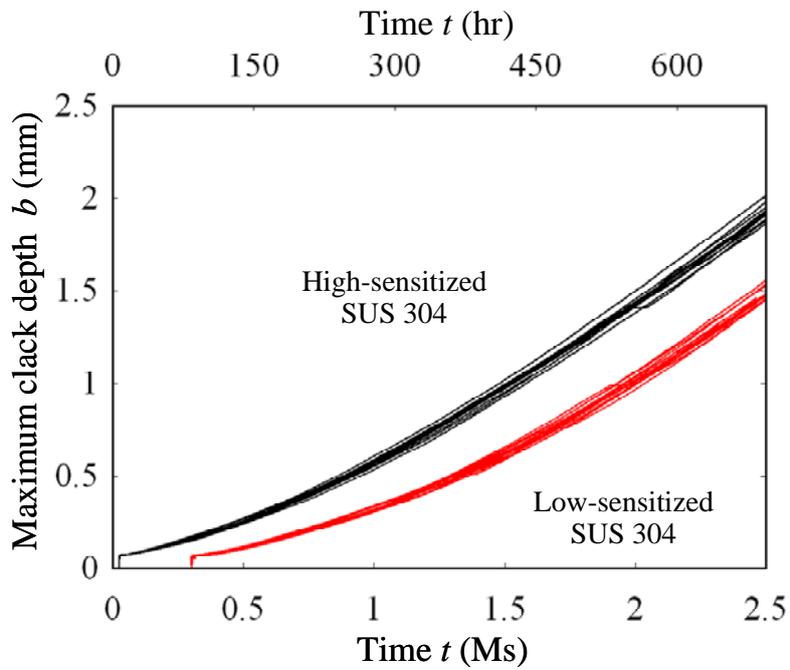


Fig. 3-25 Maximum crack depth as a function of time.

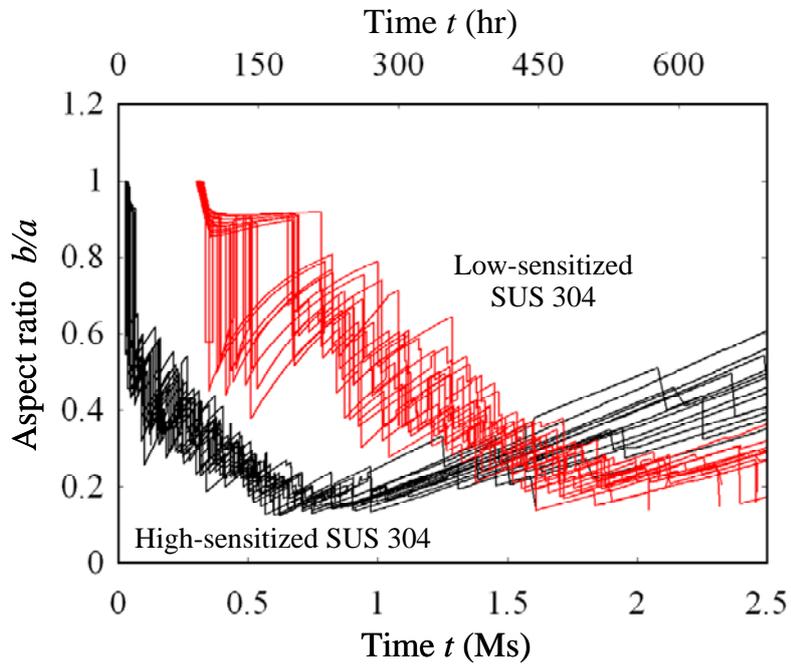


Fig. 3-26 Aspect ratio as a function of time.

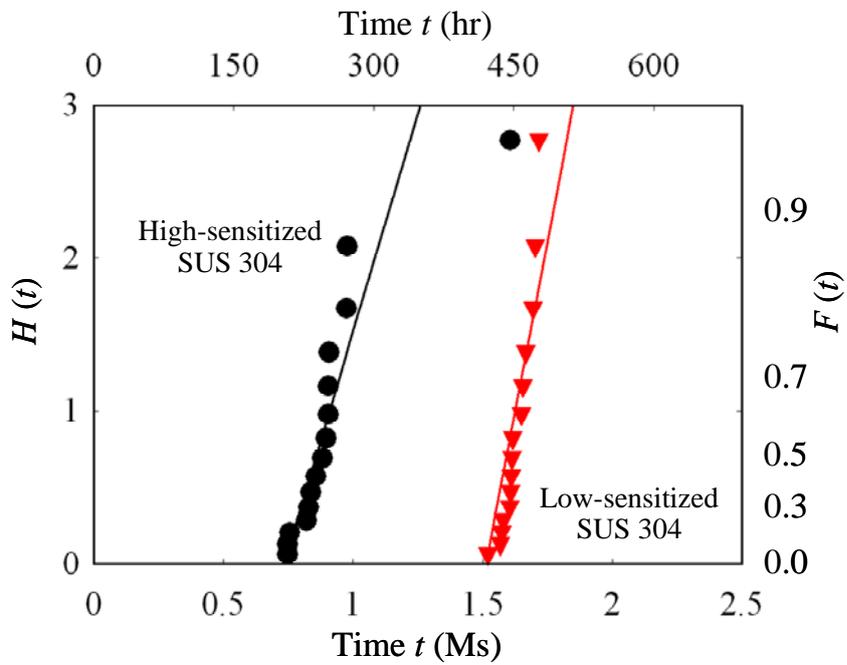


Fig. 3-27 Exponential distribution plots for SCC lifetime.

### 3.4 結言

本章では，開発した SCC における微小表面き裂の発生から合体・進展により大きき裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションにより高温高純度水環境におけるオーステナイト系ステンレス鋼 SUS304 の CBB 試験の結果を基礎データとしてシミュレーションを行った結果，シミュレーション結果は，実験結果をよく再現していることを示した．また，貫通き裂を仮定したシミュレーションと比較することにより，平滑表面の SCC 挙動の現実的なシミュレーションを行うためには，表面き裂の効果を考慮することが重要であることを明らかにした．さらに，シミュレーションにおいて合体条件の変化は寿命分布に影響を与え，合体領域が小さいほど長寿命側に移り，き裂発生速度はき裂成長に影響を与え，き裂発生速度が小さいほど進展の影響が大きくなることを明らかにした．

# 第 4 章

## 応力分布下の シミュレーション

## 4.1 緒言

実構造物中では，溶接熱サイクルによる SCC 鋭敏化と溶接残留応力により溶接部近傍に多数の SCC 表面き裂が報告されている．例えば，Fig.4-1 に示す溶接線表面近傍の溶接残留応力による SCC を考えると，Fig.4-1(a) では溶接線方向の残留応力により溶接線に垂直な多数のき裂が，Fig.4-1(b) では溶接線垂直方向の残留応力により熱影響部（Heat Affected Zone, HAZ）に沿ったき裂が予想され，類似の事例が報告されている<sup>32)~35)</sup>．このような SCC 挙動を予測するためには応力分布を考慮することが重要となる．そこで，本研究では，前章で開発した一様応力場での SCC 挙動のモンテカルロ・シミュレーションを応力分布が考慮できるように拡張した．そして，そのシミュレーション結果について考察を行った．

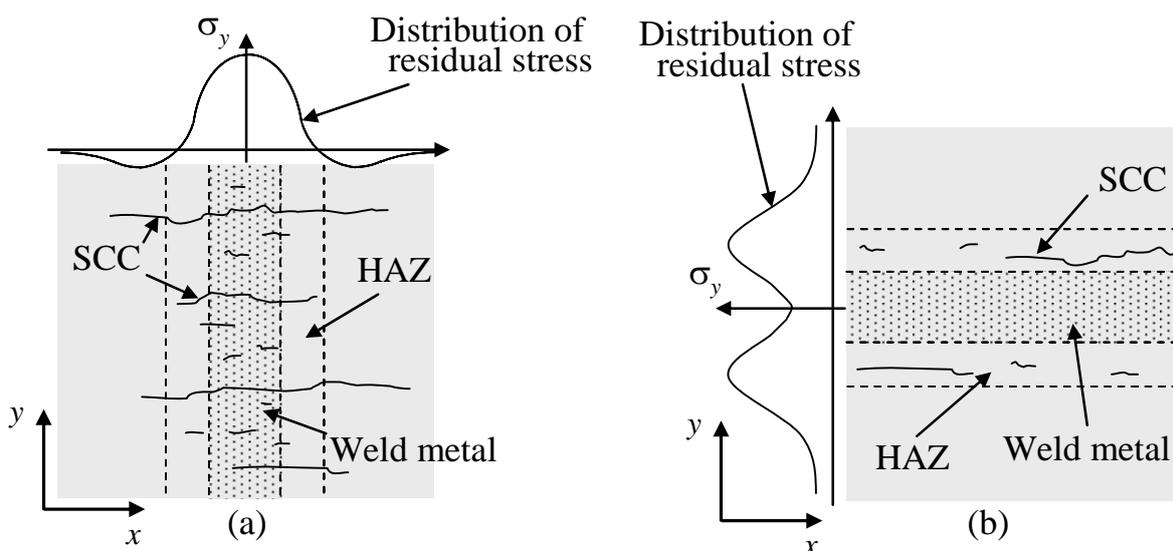


Fig. 4-1 SCC on residual stress field.

## 4.2 応力分布の考慮の導入

前章までは、シミュレーションモデルを一様単軸引張応力場の粒界き裂と想定してモデル化した。本章では、これを発展させ、応力分布を考慮したシミュレーションに拡張した。

前章までのシミュレーションとの違いは、シミュレーションの最初に応力分布を考慮するための処理があることであり、表面き裂の合体・進展挙動の大部分は前章のモデルの条件を踏襲した。応力分布の考慮については、Fig.4-2(a)に示されるような応力分布を有する領域に対して、Fig.4-2(b)のようにシミュレーション領域をy軸方向に複数に分割し、各領域に異なる作用応力を段階的に与えることで応力分布を近似した。さらに、各々の領域に作用応力に応じた異なる指数分布に基づく発生時間を与えることで、き裂発生速度に差をつくり、近似的に応力分布を持つシミュレーションモデルとした。発生可能なき裂数については、 $i$ 番目領域(面積 $A_i$ )においては(11)式により与えられ、全領域では(12)式となる。

$$N_{maxi} = \frac{A_i}{\text{Average grain area}} \quad (11)$$

$$N_{max} = N_{max1} + N_{max2} + \dots + N_{maxn} \quad (12)$$

き裂発生は、全領域のうちでき裂発生時間の短いものから発生させ、き裂長さはひとつの正規乱数より、き裂発生の位置(き裂中心の $x$ ,  $y$ 座標)はFig.4-3に示すように解析領域を等分割した1領域分の一様乱数を発生させ、き裂発生時間を与えた領域にその一様乱数を適用することにより決定した。また、応力拡大係数はき裂の左右先端およびき裂中心において、計算を簡単にするために近似的にき裂

の左右先端およびき裂中心が存在する領域の作用応力をそれぞれに適用して計算される。き裂の合体，進展は，Fig.4-4 で示されるき裂の左先端での応力拡大係数  $(K_{IA})_{left}$ ，き裂の右先端での応力拡大係数  $(K_{IA})_{right}$  および，き裂中心における最深部での応力拡大係数  $K_{IB}$  に基づいて計算される。つまり，進展や合体により，左右先端やき裂中心が他の領域に移るとき，作用応力も変化するため，応力拡大係数と合体領域も変化することになる。これにより，応力の高い領域から低い領域に進展や合体によりき裂先端やき裂中心が移るとき，そのき裂は進展や合体がしにくくなる。

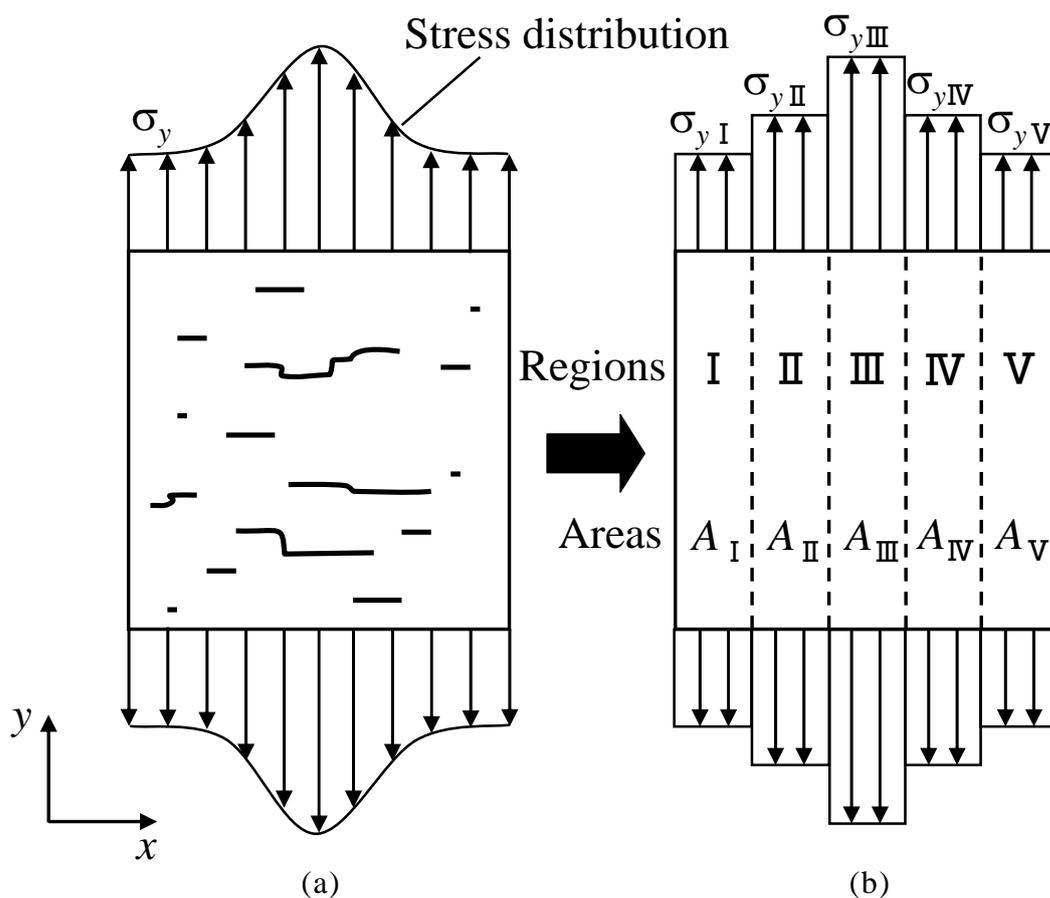


Fig. 4-2 Simulation area under non-uniform stress condition.

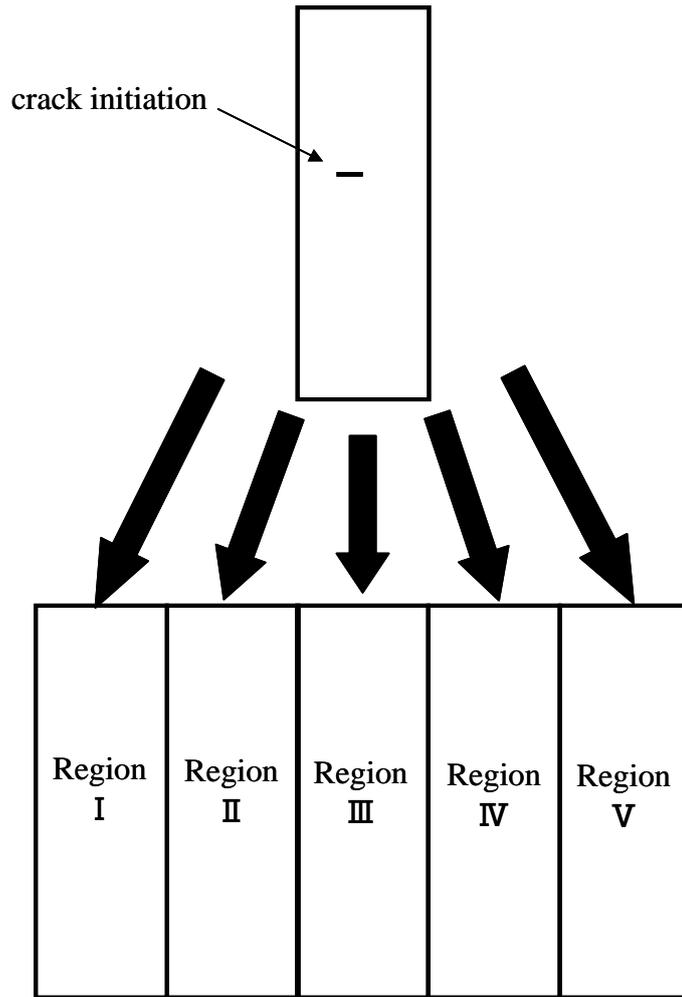


Fig. 4-3 Crack initiation site.

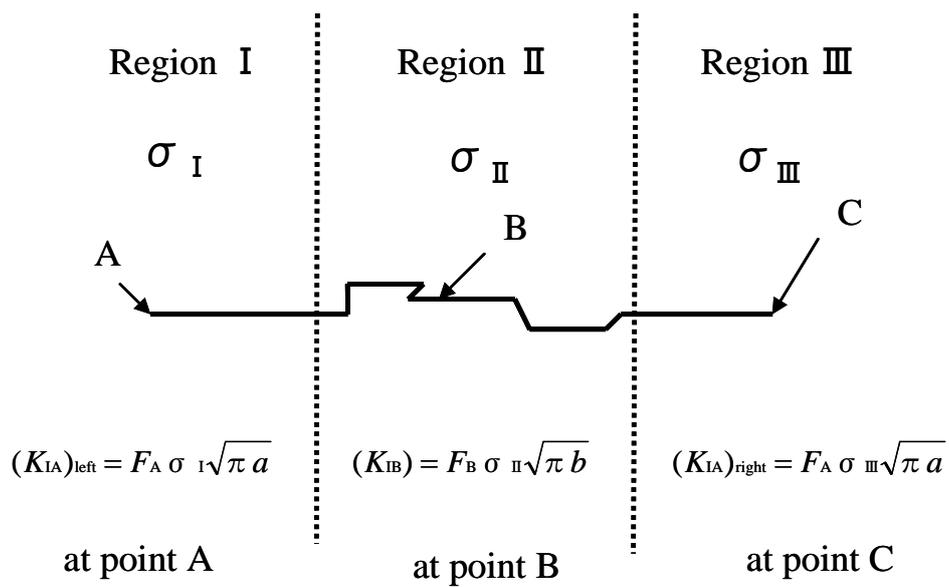


Fig. 4-4 Calculation of stress intensity factor.

### 4.3 応力分布下の SCC シミュレーション

シミュレーションは鋭敏化処理した SUS304 の高温高純度水環境 (288℃, 溶存酸素量 8ppm) を想定し, Fig.4-2 のような y 軸方向の引張応力  $\sigma_y$  が x 軸方向に分布する 20mm × 10mm の長方形領域と Fig.4-5 のような y 軸方向に分布する 10mm × 20mm の長方形領域に対して行った. これらは Fig.4-1 に示すような溶接線近傍の残留応力を模擬したものである. 平均粒径を 0.08mm として, この領域を 20mm × 2mm および 2mm × 20mm の長方形領域に 5 分割すると, 各領域の発生可能なき裂数は 6250 個となり, 全領域にわたる発生可能なき裂総数は 31250 個とした. 降伏応力は, SUS304 の 288℃ での応力-ひずみ関係より  $\sigma_{ys}=162\text{MPa}$  とし, 作用応力はいずれの領域に対しても y 軸方向に引張応力が作用するものと仮定し, 中央領域が最も高く, 外側の領域ほど低くなるように設定し, 中央部の領域 III で 200MPa, 領域 II, IV で 160MPa, 外側の領域 I, V で 120MPa とした. 微小き裂の累積確率分布は (1) 式の指数分布を仮

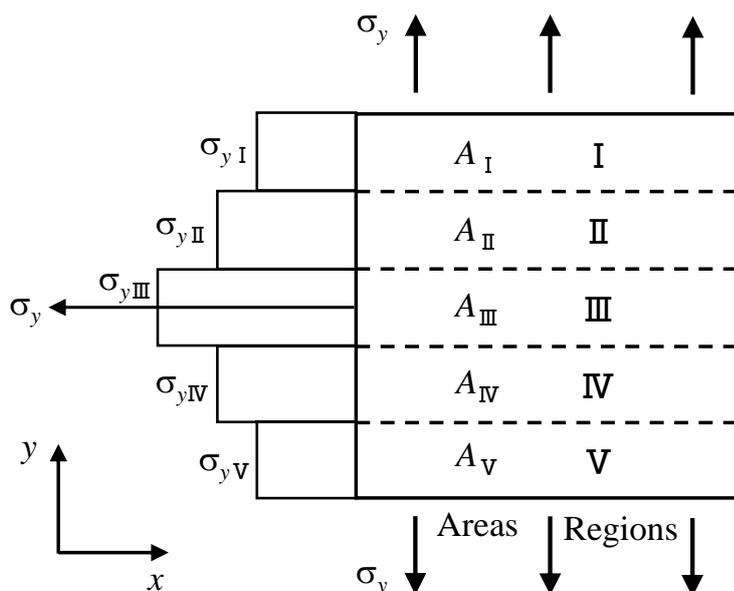


Fig. 4-5 Simulation area under non-uniform stress condition.

定し， Fig.4-6 に示すように， 中央領域が最もき裂発生速度が大きく， 外側領域ほど小さくなるように設定し， 領域 IIIで  $a_i=0.0258\text{Ms}$ ，  $\theta_i=2.97\text{Ms}$ ， 領域 II， IVで  $a_i=0.0652\text{Ms}$ ，  $\theta_i=7.50\text{Ms}$ ， 領域 I， Vで  $a_i=0.3\text{Ms}$ ，  $\theta_i=34.54\text{Ms}$ とした． 各領域に対する発生可能数 6250 個のき裂に対する発生時間をそれぞれの指数分布に基づく乱数で割り当て， 全領域の中で発生時間の短いものから発生させた． き裂発生位置  $(x, y)$ は， 各座標に対して区間  $0\sim 2\text{mm}$ ， 区間  $0\sim 20\text{mm}$ の一様乱数により， き裂長さ  $2a$ は， 粒径と同程度の大きさとして， 平均長さ  $0.08\text{mm}$ ， 標準偏差  $0.03\text{mm}$ の正規乱数により決定し， アスペクト比は  $b/a=1$ とした． 進展性き裂長さに対しては，  $K_{ISCC}=2\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ として， き裂進展速度は(8)式に従うものとした． シミュレーションは  $2\text{Ms}$ (555 時間)経過時点で終了するものとし， 以上の条件で 15 回のシミュレーションを行った．

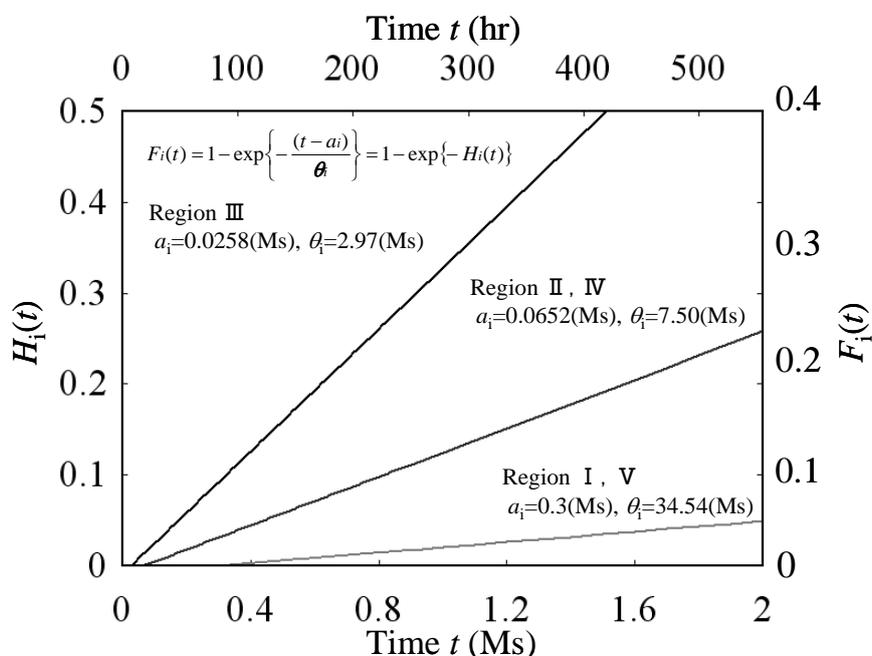


Fig. 4-6 Exponential distribution of each region.

## 4.4 シミュレーション結果および考察

### 4.4.1 $\sigma_y$ が $x$ 軸方向に分布している場合

Fig.4-7 にシミュレーションによって得られたき裂分布図を示す. 100時間経過時点では, 微小き裂が応力分布に応じて発生しており, 特に高い応力となっている中央部ではき裂密度が高くなっている. 300時間経過後では, き裂が発生するとともに, 中央部にき裂の合体と進展により大きく成長したき裂が観察されるようになる. 500時間経過後では中央部に大きなき裂が多数並んでいる様子が観察されるが, 300時間経過後と比較すると, 中央領域では新たなき裂の発生はあまり見られず, 隣接する領域へ合体や進展によりき裂が成長していることがわかる.

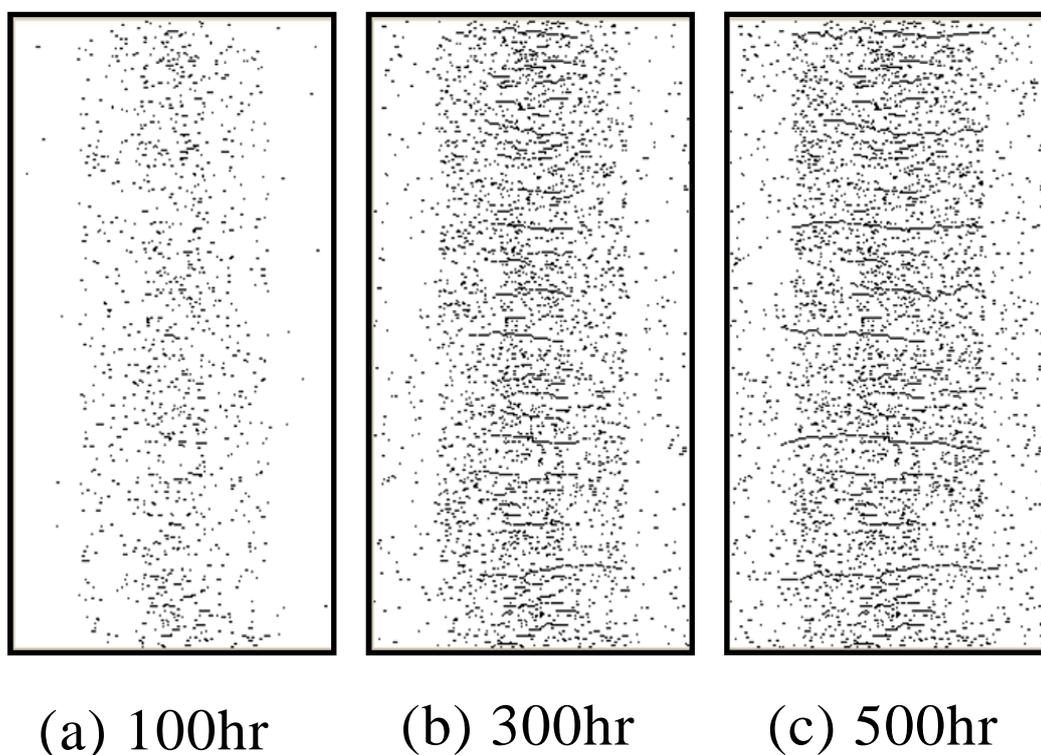


Fig. 4-7 The variation of crack distribution with time under the stress distribution of Fig. 4-2.

Fig.4-8 は 15 回のシミュレーションに対してき裂数と時間の関係を示したものである。図中には、各領域の指数分布から計算される全体の発生き裂数も示してある。き裂数は時間の経過とともに合体や大きなき裂によるき裂発生不可能領域の形成により、指数分布による計算結果からずれる傾向にある。

Fig.4-9 は各領域におけるき裂の発生き数と時間の関係を示したものである。図中には各領域の指数分布に基づく計算結果も示してある。最も応力が高く、き裂発生速度の大きい領域 III のき裂発生き数は初期段階では指数分布によるき裂数とほぼ等しくなっているが、時間の経過とともに合体や進展などにより大きなき裂が形成され、き裂発生不可能領域が広がり、飽和状態となっている。一方で、領域 I, V ではき裂数が少なく、大きなき裂がほとんどないためにき裂発生不可能領域が形成されず、発生き裂はほぼ指数分布に基づくものに従う結果になっている。領域 II, IV については 200~300 時間経過後より指数分布に基づくき裂数からずれ始めているが、これはき裂数の増加とともに中央領域から成長してきた大きなき裂による影響が大きいと考えられる。

Fig.4-10 は最大き裂長さと時間の関係を示したものである。最大き裂長さ 2mm と 6mm 付近において、き裂の成長に関して変化があることがわかる。これは、1つの領域の x 方向の長さが 2mm であるために、最大き裂長さ 2mm 以下では、応力の最も高い領域 III における発生と合体が支配的となる。次に 2mm~6mm では、中央の領域 III で形成された大きなき裂が隣接する領域 II, IV に入り、発生するき裂が領域 III より少なく、進展を阻害する大きなき裂が存在しないために進展がしやすい状態となり、き裂の成長に進展の影響が大きくなる。さらに 6mm を超えた時

点からは、ほぼ進展による成長となっている。これは、き裂が発生しにくい外側の領域 I, V に大きなき裂先端が入り、合体するき裂や進展を阻害するき裂がさらに減少するためである。これより低い応力域では進展がき裂の成長に対し支配的になり、応力がさらに低くなるとき裂の進展が止まる可能性が考えられる。

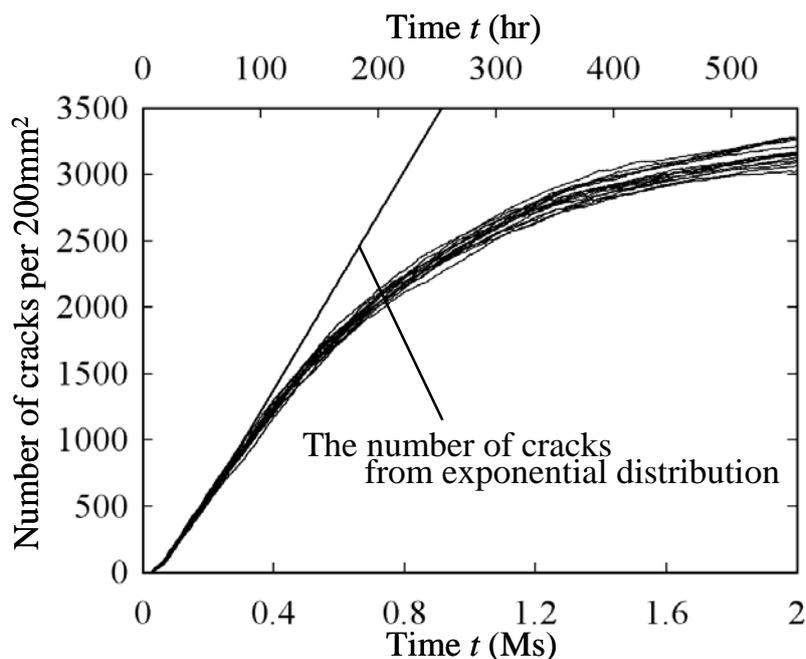


Fig. 4-8 Number of cracks as a function of time.

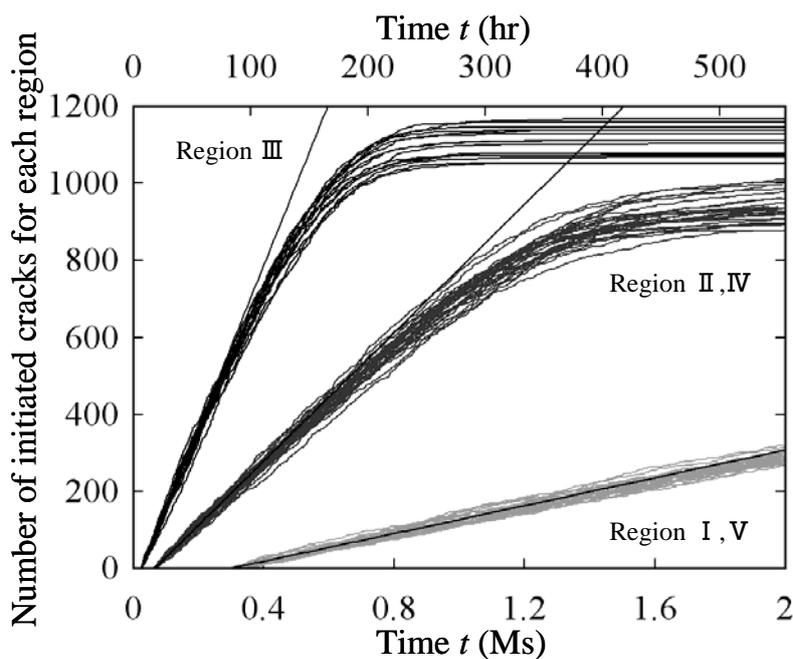


Fig. 4-9 Number of cracks for each region as a function of time.

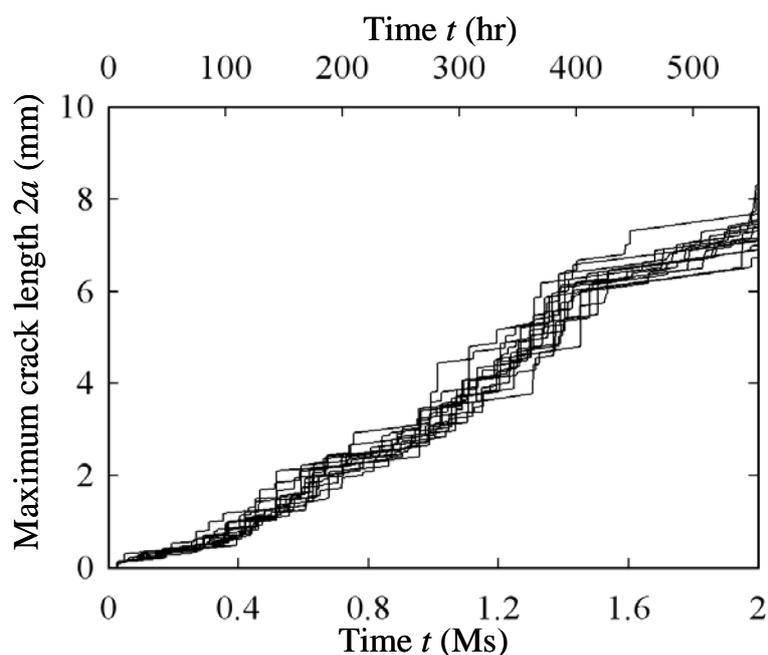


Fig. 4-10 Maximum crack length as a function of time.

Fig4-11 は最大き裂深さを時間に対して示したものである。このシミュレーションでは、深さ方向に対しては進展を阻害するものや合体がなく、深さ方向の進展に関する応力拡大係数  $K_{IB}$  はき裂中心における応力を用いて計算するために、ほぼ領域 III の最も高い応力にあり変化がないため、あまりばらつきも出ずに進展による深さ方向への成長をしている。

Fig.4-12 は最大き裂長さを持つき裂のアスペクト比と時間の関係を示したものである。微小き裂は発生時にアスペクト比  $\alpha=1$  の半円状表面き裂となっているが、合体することによりアスペクト比は大きく低下する。その後、深さ方向に進展をするため、アスペクト比は増加をする。これを繰り返して、アスペクト比は時間の経過とともに、き裂が大きくなるにしたがって 0.2~0.4 に低下する。これは実際に見られる SCC き裂の特徴をよく表している。

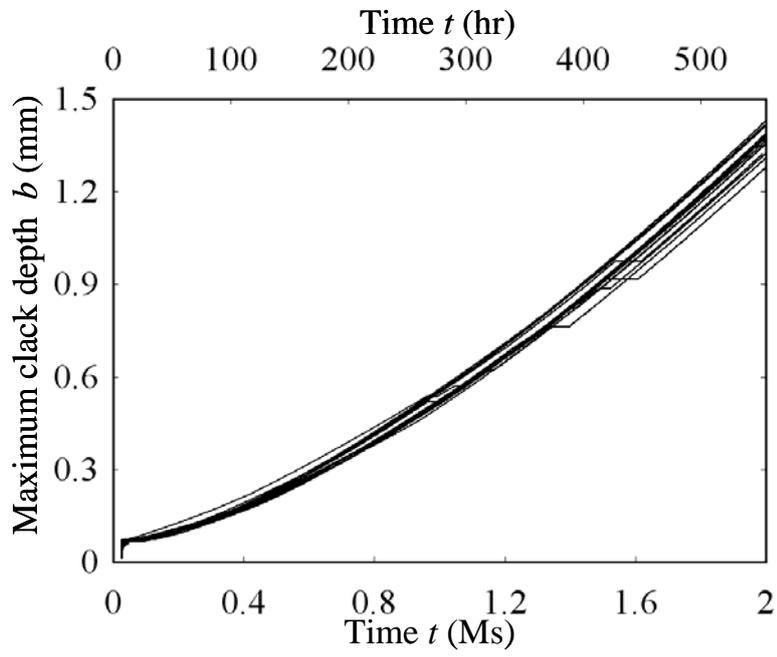


Fig. 4-11 Maximum crack depth as a function of time.

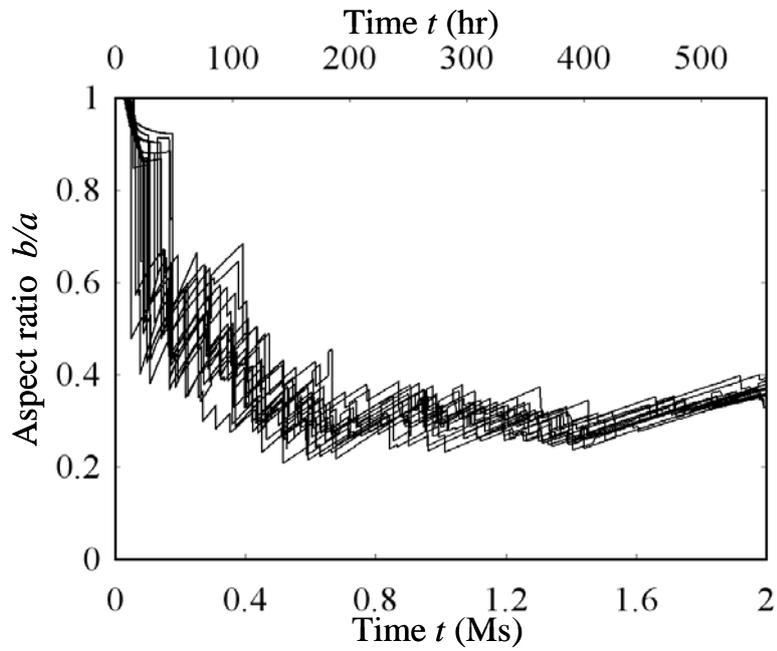


Fig. 4-12 Aspect ratio of the longest crack as a function of time.

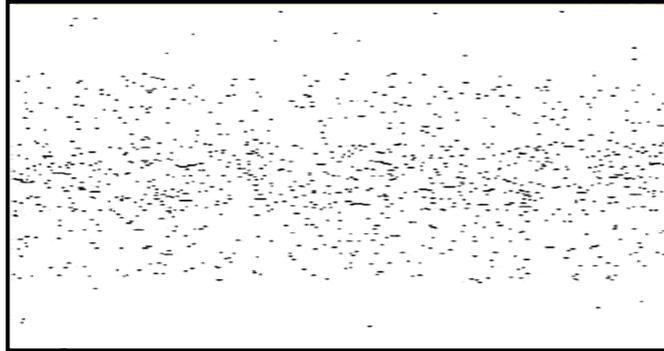
#### 4.4.2 $\sigma_y$ がy軸方向に分布している場合

続いて、Fig.4-5 に示すように  $\sigma_y$ がy軸方向に分布している場合のシミュレーション結果を示し考察する。Fig.4-13 のき裂分布の時間に対する変化においては、100 時間経過時点では、微小き裂が応力分布に応じて発生しており、特に高い応力となっている中央部ではき裂密度が高くなっている。300 時間経過後では、さらにき裂が発生するとともに、中央部にき裂の合体と進展により大きく成長したき裂が観察されるようになる。500 時間経過後では、中央の高応力領域に沿って大きなき裂が多数存在する様子が観察される。

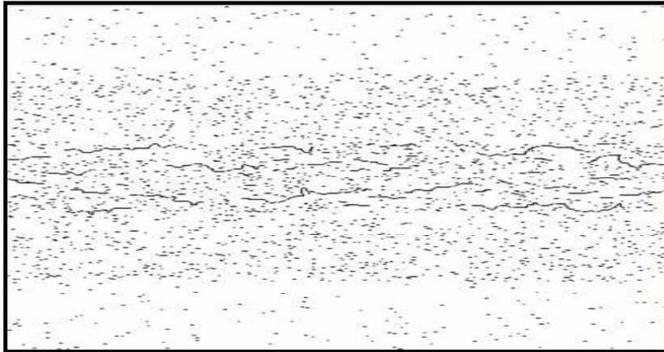
Fig.4-14 の各領域におけるき裂の発生数に関して、Fig.4-9 と比較すると、領域 III および領域 I, V については同じような傾向を示しているが、領域 II, IV ではばらつきが大きくなっている。これは x 軸方向に応力分布を有する場合には、高応力領域からき裂の進展による影響を受けていたのに対し、y 軸方向に応力分布を有する場合には、領域境界近傍における大きなき裂による応力解放域の影響を受けるためである。

Fig.4-15 に示す最大き裂長さの時間に対する変化は、Fig.4-10 とは異なり、大きなき裂は高応力領域に沿って成長するために合体が起こりやすく、発生と合体が支配的となっている。また、Fig.4-10 では、シミュレーションによるばらつきが小さいのに対して、Fig.4-15 では、大きなき裂が密集して形成されることにより応力解放域が形成され、き裂の合体および進展が生じにくくなるために最大き裂長さが停留する場合もあり、ばらつきも大きい。

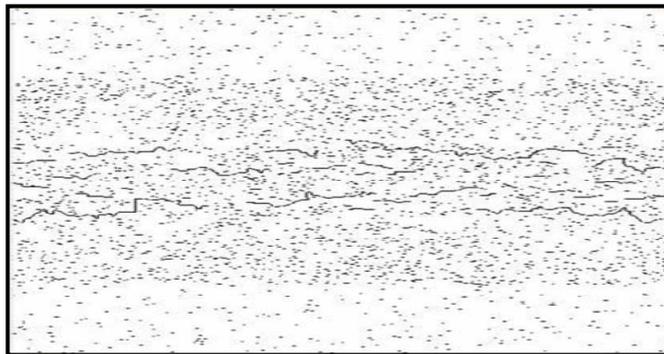
Fig.4-16 の最大き裂深さに関しては、Fig.4-11 と同様に深さ方向へは進展により成長し、ばらつきも小さい。



(a) 100hr



(b) 300hr



(c) 500hr

Fig. 4-13 The variation of crack distribution with time under the stress distribution of Fig. 4-5.

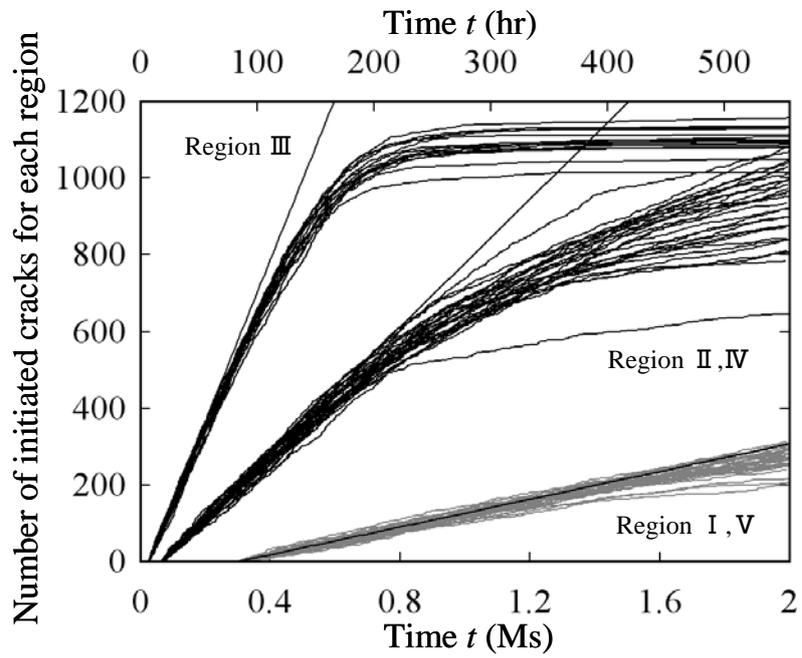


Fig. 4.14 Number of cracks for each region as a function of time.

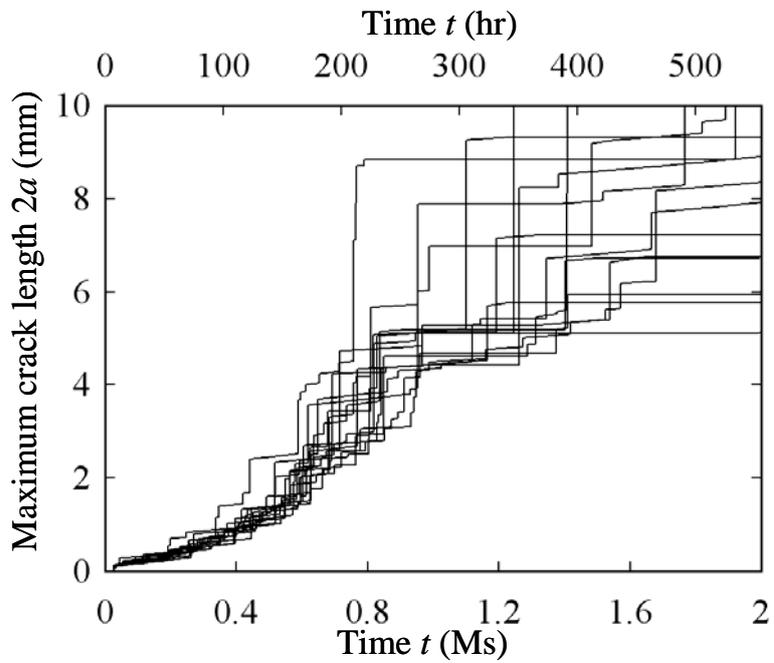


Fig. 4-15 Maximum crack length as a function of time.

Fig.4-17 に示す最大き裂長さを持つき裂のアスペクト比は合体により 0.2~0.4 程度に低下するが, き裂の表面方向への成長が停留すると, 深さ方向には進展を続けるのでアスペクト比は大きくなる傾向にある. Fig.4-12 と比較するとばらつきがやや大きくなっている.

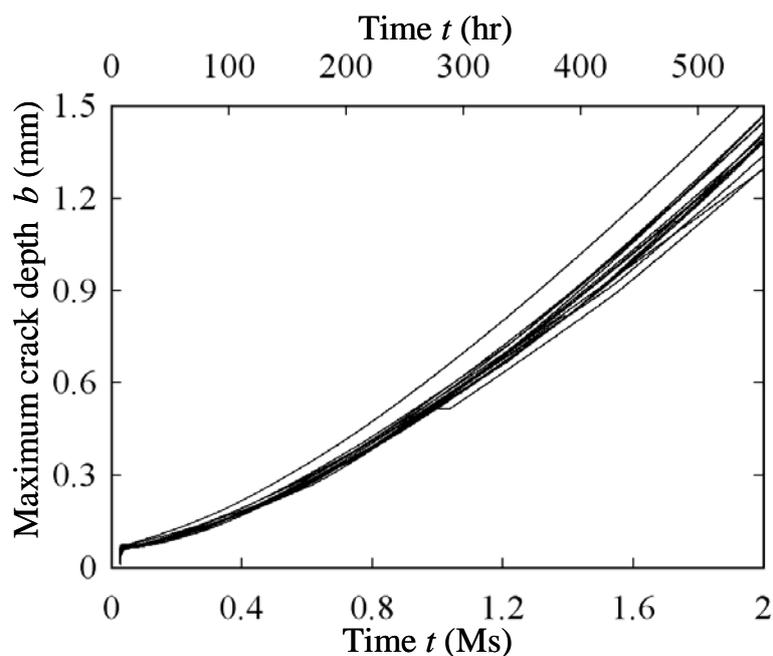


Fig. 4-16 Maximum crack depth as a function of time.

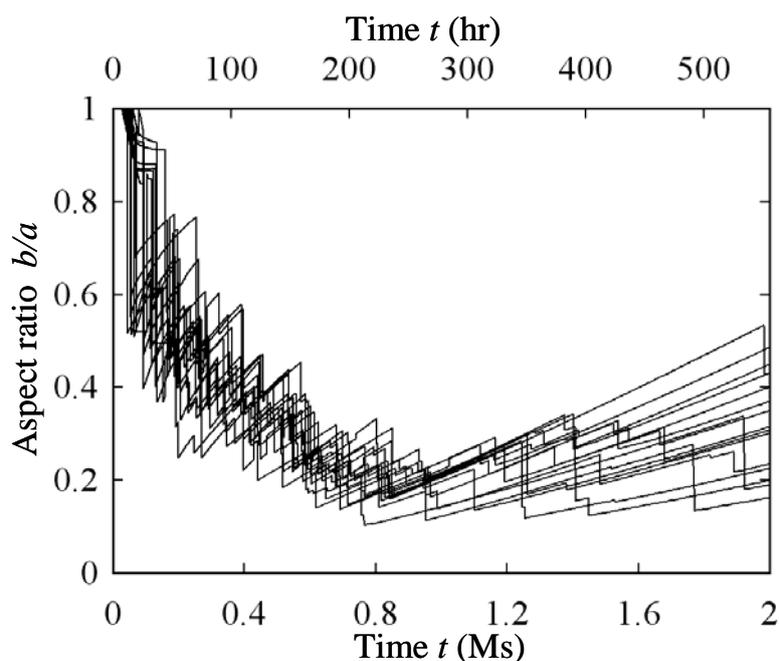


Fig. 4-17 Aspect ratio of the longest crack as a function of time.

以上の $\sigma_y$ が $y$ 軸方向に分布している場合は、き裂進展方向（ $x$ 軸方向）への応力分布は一様であるため、シミュレーション結果の最大き裂長さ（Fig.4-15）、最大き裂深さ（Fig.4-16）、最大き裂のアスペクト比（Fig.4-17）に及ぼす $y$ 軸方向応力分布の影響は小さく、前章の一様応力場のシミュレーション結果とほぼ同様な結果となっている。

## 4.5 結言

本章では、応力分布下のSCC挙動を予測するために、前章で開発した一様応力場でのSCC挙動のモンテカルロ・シミュレーションをさらに応力分布が考慮できるように拡張した。SUS 304における溶接部近傍の残留応力を模擬した2種類の応力分布下でSCC挙動のシミュレーションを行った結果、溶接線に垂直に形成された多数のき裂やHAZに沿って形成された多数のき裂の状況を示すことができた。このようなき裂の事例として、原子炉内のシュラウドサポート溶接部<sup>32)</sup>、シュラウドリング溶接部<sup>33)</sup>、その他<sup>34)</sup><sup>35)</sup>に報告されている。実際には、溶接金属、母材、HAZなど材料のSCC感受性の違いの影響もあり直接の比較はできないが、本シミュレーションにおいて事例に類似したき裂の様子が得られたことは、本シミュレーションの可能性を示唆するものである。

# 第 5 章

## 階層化による 計算効率の改善

## 5.1 緒言

前章までは，発生するき裂長さを結晶粒径程度としたシミュレーションを用いて 20mm×20mm の正方形領域における最大き裂長さが数 mm 程度に至るまでのき裂の解析を行った．もし，このシミュレーションを用いて実機に見られるような数 10mm から数 100mm オーダーのき裂を再現するために解析領域を広げる場合，発生き裂数はその分増加し，さらにき裂間相互作用の計算量も増加することにより，計算時間が領域の大きさのべき乗に比例して大幅に増加する．よって，実機に見られるような大きなき裂に至るまでのシミュレーションを行うためには計算効率を改善し，より短時間で解析を行うための手法の開発が必要となる．

そこで本研究では，結晶粒径程度のき裂を発生させるシミュレーション（基礎シミュレーション，**Real size simulation**）により 0.1mm 程度の SCC 微小き裂の発生から合体・進展により複数の 1mm 以上の定常進展性き裂を形成させる解析を行い，その結果を基礎データに階層化として，解析領域を拡大して，発生するき裂長さを 1mm 以上として定常進展性き裂を扱うシミュレーション（階層化シミュレーション，**Hierarchical simulation**）を用いて，数 10mm 程度のき裂長さに成長するまでの解析を行った．そして，基礎シミュレーションと階層化シミュレーションの解析結果を比較によりシミュレーションの妥当性を検討し，解析時間の比較を行った．

本章で使用した計算機は以下のスーパーコンピュータである．

**SGI Altix4700**

**CPU: Itanium2 Madison (1.66GHz), 72 CPU**

**Main memory: 144GB**

OS: Linux SUSE Enterprise Server 9 kernel ver.2.6

Compiler: Intel FORTRAN 10.1

このスーパーコンピュータを使用し，1回の解析は1CPUにより行った．解析時間は，この条件による1回の解析にかかった時間である．

## 5.2 階層化の方法

階層化は Fig. 5-1 に示すように，前章までの微小き裂発生によるシミュレーションにより 1mm 以上の定常進展性き裂の形成を計算し，その結果を基に解析領域を拡大して 1mm 以上のき裂のみを扱い，大きき裂によるシミュレーションを微小き裂の発生過程を 1mm 以上のき裂の発生に置き換えることにより行った．一方，合体・進展過程については同様とした．つまり，階層化シミュレーションと基礎シミュレーションとの異なる点は，き裂発生過程での発生き裂パラメータの種類

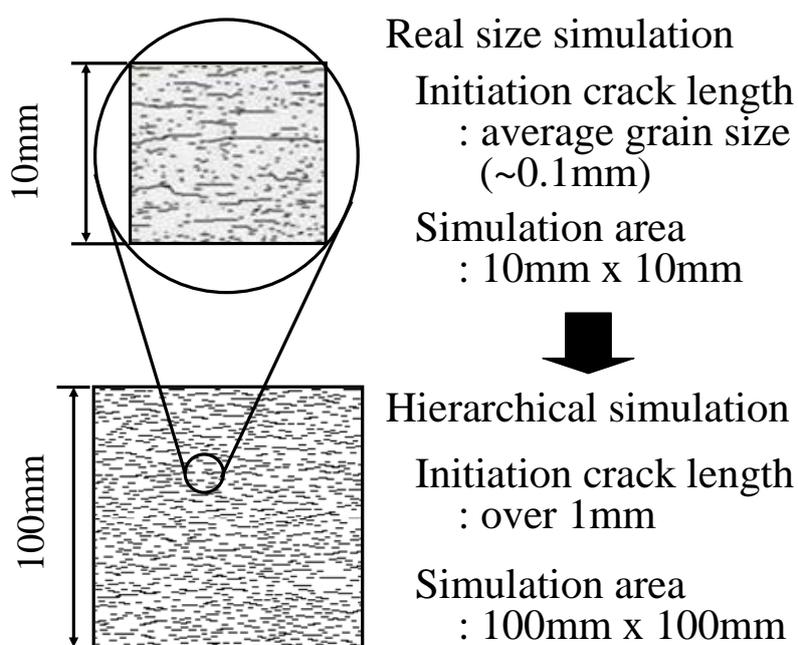


Fig. 5-1 Hierarchical modeling.

と与え方であり，それ以外は同様となる．よって，階層化に必要となるインプットデータは，長さ 1mm 以上のき裂の発生位置，発生時間，発生時の長さおよびアスペクト比の 4 つとなる．

### 5.3 基礎シミュレーション

1mm 以上のき裂発生に関するインプットデータを得るために，微小き裂発生による基礎シミュレーションは鋭敏化処理をした SUS304 の高温高純度水環境下（288℃）における SCC を想定し，10mm×10mm の正方形領域において行った．平均結晶粒径を 0.08mm とし，発生可能なき裂総数を 15625 個とした．また，SUS304 の 288℃ での応力-ひずみ関係より降伏応力を  $\sigma_{ys}=162\text{MPa}$ ，1% のひずみの相当する作用応力を  $\sigma=200\text{MPa}$  とした．微小き裂発生の累積確率分布は(1)式の指数分布を仮定し，CBB 試験によるき裂発生条件に基づいて  $a_i=0.0258$ ， $\theta_i=2.97$  とした．発生可能数 15625 個のき裂に対する発生時間を指数分布に基づく乱数で割り当て，時間の短いものから発生させた．き裂発生位置  $(x, y)$  は区間 0～10mm の一様乱数により，き裂長さ  $2a$  は平均長さ 0.08mm，標準偏差 0.03mm の正規乱数により決定し，アスペクト比  $b/a=1$  とした．進展性き裂長さに対しては， $K_{ISCC}=2\text{MPa}\sqrt{m}$  とし，この値を超えたとき進展し始めるものとした．また，き裂進展速度は，(8)式に従うものとした．以上の条件においてシミュレーションを行い，1mm 以上のき裂が形成された時点をもとに 1mm 以上のき裂発生とみなし，き裂発生時間，位置，長さ，アスペクト比を記録した．シミュレーションは，十分な統計データを得るために 50 回実施した．

## 5.4 入力パラメータ

### 5.4.1 き裂発生位置

Fig.5-2 に基礎シミュレーションから得られたき裂の分布図と 1mm 以上となった時点のき裂の中心座標をプロットしたものを示す. 基礎シミュレーションにおける長さが 1mm 以上となった時点でのき裂の中心位置はシミュレーション領域でほぼ一様に分布しており, また, 一様性の検定結果より長さ 1mm 以上のき裂の発生位置を一様分布と仮定した.

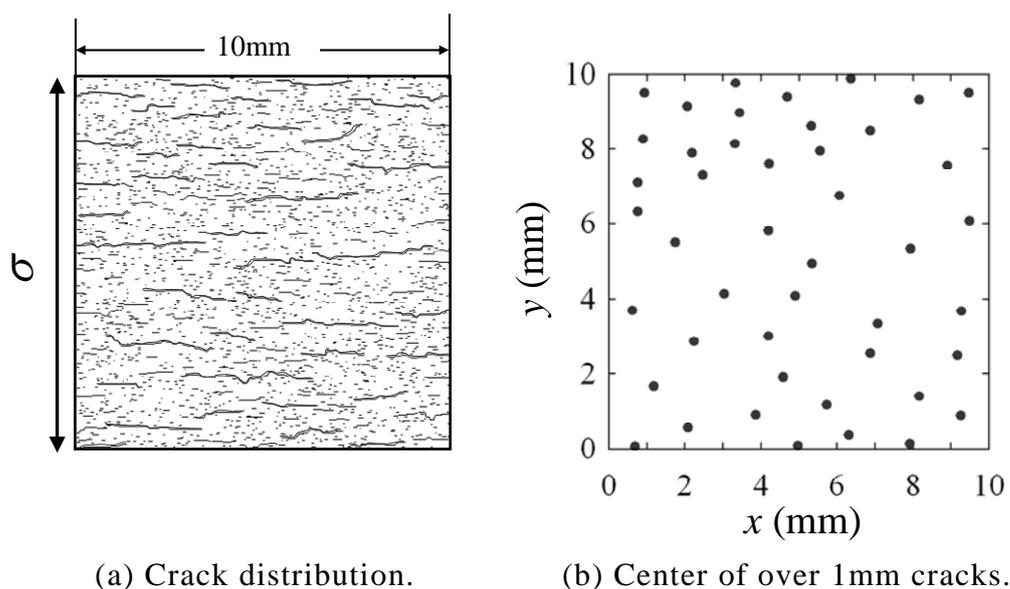


Fig. 5-2 Crack distribution of real size simulation.

### 5.4.2 き裂発生時間

長さ 1mm 以上のき裂の発生も, 微小き裂と同様に Poisson 確率過程により近似できるものと仮定し, 基礎シミュレーションにおける 1mm 以上のき裂数と時間の関係 (Fig. 5-8 参照) より, 特に初期段階の部分を考慮して累積確率  $F_i(t)$  を求め, 式(1)において下限値  $a_i=0.45$ , および標準偏差  $\theta_i=0.45$  の指数分布と仮定した.

### 5.4.3 き裂発生長さ

Fig.5-3 に，一定の時間帯ごとに新たに発生した長さ 1mm 以上のき裂の長さの分布を示す．基礎シミュレーションにおいて，時間経過とともに 1mm 未満でも成長により大きなき裂が増えると考えられ，進展によって 1mm を超えるき裂の割合や合体する 2 つのき裂長さが時間の影響を受ける可能性があるため，き裂発生長さは発生時間についても検討した．この結果より，発生時間の違いによる発生き裂長さの分布の差はほとんどなく，き裂発生時のき裂長さは時間によらないことがわかった．よって，き裂長さを次式および図中で示すような時間によらない自由度 1 の  $\chi^2$  分布と仮定した．

$$P(A) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} A^{-\frac{1}{2}} e^{-\frac{A}{2}} \quad (13)$$

$$A = 10 \times (2a - 1) \quad (14)$$

ここで， $a$  はき裂半長である．

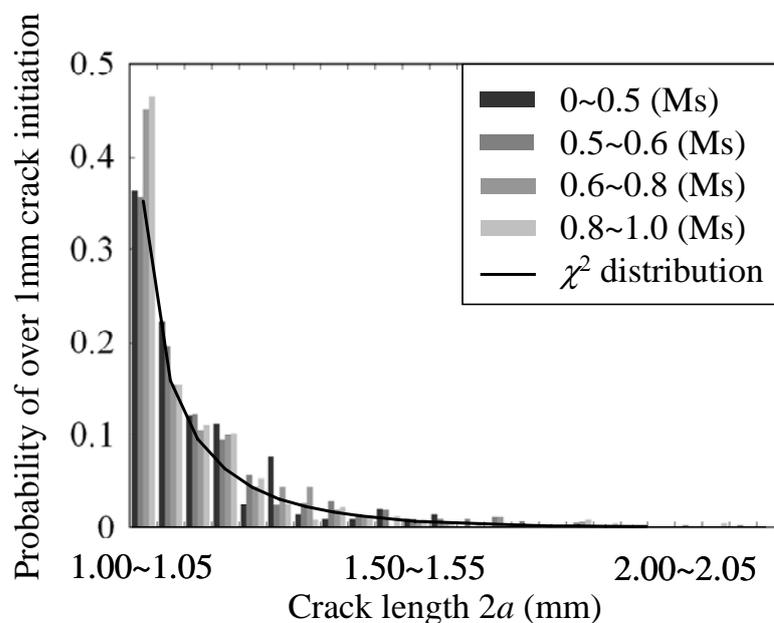


Fig. 5-3 Histogram of crack length.

#### 5.4.4 アスペクト比

Fig.5-4 に一定の時間帯ごとに新たに発生した長さ 1mm以上のき裂の長さとおアスペクト比の関係を示す。Fig.5-4 の結果に基づいて、各時間間隔、各き裂長さ区間（1.0~1.1mm, 1.1~1.3mm, . . .）でのアスペクト比の平均と標準偏差を求め、整理したのが Fig.5-5 と Fig.5-6 である。1mm以上となった時点でのアスペクト比は発生時間による影響が明らかに見られ、時間が遅ければ遅いほど、アスペクト比が増加している様子がわかる。また、き裂長さに関しても長くなるほどアスペクト比は減少し、ばらつきも小さくなる。よって、アスペクト比はき裂長さおよび発生時間に依存して平均および標準偏差が変化する正規分布となると仮定し、以下のように時間とき裂長さを変数に持つ平均  $ASP_{ave}$  と標準偏差  $ASP_{sd}$  を与えた。

$$ASP_{ave} = (0.341t + 0.211) \times (2a)^{-0.987} \quad (15)$$

$$ASP_{sd} = (-0.133t + 0.0268) \times 2a + (0.287t - 0.058) \quad (16)$$

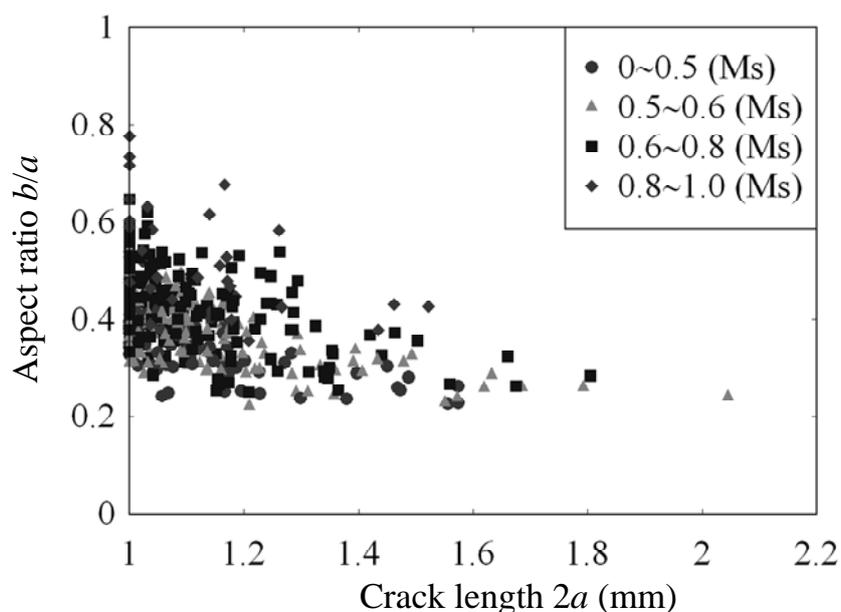


Fig. 5-4 Aspect ratio when crack length reached 1mm.

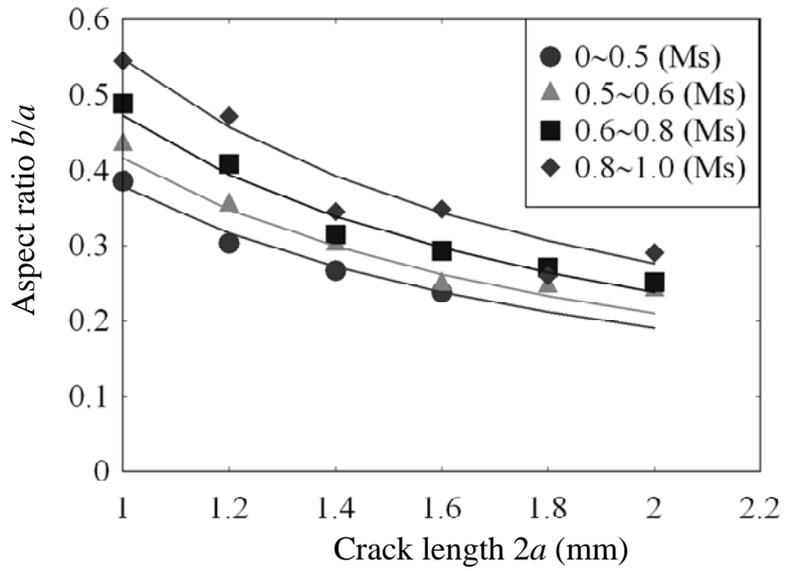


Fig. 5-5 Average of aspect ratio at each time.

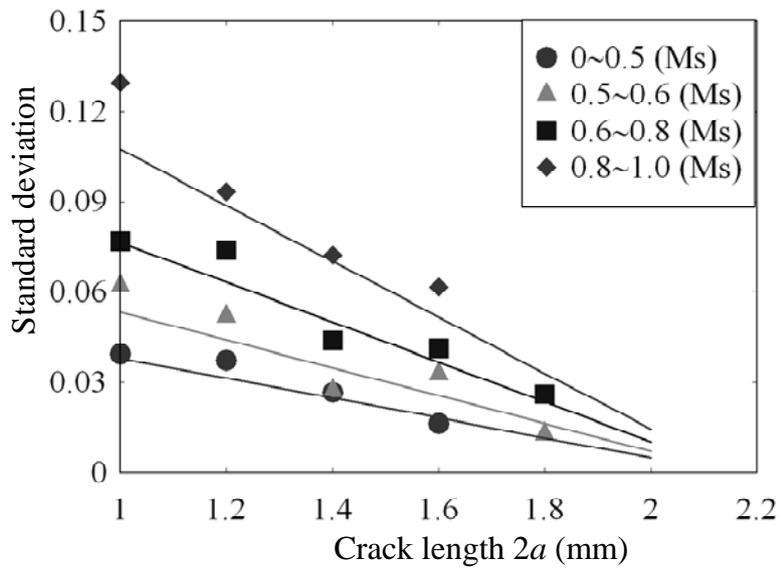


Fig. 5-6 Standard deviation of aspect ratio at each time.

## 5.5 階層化シミュレーション

微小き裂発生による基礎シミュレーション結果に基づき，1mm以上のき裂発生による階層化シミュレーションを100mm×100mmの正方形領域において行った．平均き裂長さは，基礎シミュレーションにおいて1mm以上となった時点での平均き裂長さ1.1mmとし，発生可能なき裂総数を8100個とした．発生時間は，(1)式において下限値 $a_i=0.45$ ，および標準偏差 $\theta_i=0.45$ として，指数分布に基づく乱数により与えた．また，き裂発生位置 $(x, y)$ は区間0～100mmの一様乱数により与え，き裂長さおよびアスペクト比については前節で示したそれぞれの確率分布に基づく乱数によって与えた．それ以外の合体や進展等の条件に関しては微小き裂発生による基礎シミュレーションと同様である．また，実際には，1mm以上のき裂が1mm以下の微小き裂と合体することにより成長することも考えられる．しかし，本シミュレーションでは，大きなき裂の形成には，大きなき裂同士の合体や進展が支配的になるものと考え，1mm以上のき裂と微小き裂との合体は特に考慮していない．シミュレーションの妥当性の検討には，実験結果との比較が必要だが，本研究の微小き裂発生条件のインプットデータとして使用したのは，試験片寸法10mm×50mm×2mmの短冊状試験片で行われたCBB試験であるため，比較することはできない．よって，ここでは階層化シミュレーション結果は，基礎シミュレーション結果とオーバーラップする階層化シミュレーションの初期部において比較検討を行った．

## 5.6 シミュレーション結果および考察

Fig. 5-7 に基礎シミュレーションと階層化シミュレーションから得られた 1Ms でのき裂の分布図を示す．比較のために階層化シミュレーションの結果は全領域から中央部の  $10\text{mm} \times 10\text{mm}$  の領域を取り出したものを示す．基礎シミュレーションの結果では，合体や進展により  $1\text{mm}$  以上に成長したき裂が全領域にわたって多数分布している．また，階層化シミュレーションの結果では， $1\text{mm}$  以上のき裂が発生し，基礎シミュレーション結果と同様に分布し，合体などによりさらに大きなき裂に成長している様子がわかる．

Fig. 5-8 は階層化シミュレーションによるき裂数と基礎シミュレーションにおける長さ  $1\text{mm}$  以上のき裂数の比較図である．図中には，階層化シミュレーションで用いた指数分布に基づく計算結果も示してある．両者にはよい一致が見られる．き裂数は，初期段階では指数分布によるき裂数とほぼ等しくなっているが，時間の経過とともに合体や進展などにより大きなき裂が形成され，き裂発生不可能領域が広がり，飽和状態となっている．

Fig. 5-9 は最大き裂長さの比較図である．基礎シミュレーションは，最大き裂長さが  $3\sim 5\text{mm}$  程度に達すると，最大き裂長さは停滞してしまう．これは解析領域境界に達するき裂が形成され，領域外でのき裂進展，合体が考慮されないためであると考えられる．そのため解析領域を大きくすることでき裂成長の停滞を遅らせ，より大きなき裂の解析を行うことは可能であるが，解析領域の拡大とともに発生するき裂数の増加により解析に膨大な時間がかかるようになる．一方で，階層化シミュレーションは解析領域が大きいために領域の影響によるき裂成長の停滞を遅らせることができ，また  $1\text{mm}$  以上の

き裂のみを扱うことにより，取り扱うき裂数が減り，短時間で大きな領域の解析を行うことが可能になっている．階層化シミュレーションのごく初期（0.5Ms 付近）で最大き裂長さが大きく変化しているが，これはき裂数がまだ少ないために応力解放域があまり形成されず，き裂が合体しやすい状態にあるためである．そのために結果が重なる 0.5～0.8Ms ではき裂成長速度は同程度だが，ごく初期でやや大きくなっている分基礎シミュレーション結果の上方と一致する傾向にある．

Fig. 5-10 は最大き裂深さの比較図である．深さ方向に対しては，進展を妨げるものがないために一様に進展している．また，階層化シミュレーションと基礎シミュレーションの結果は，ほぼ一致し，階層化シミュレーションではその後も一様に進展している．

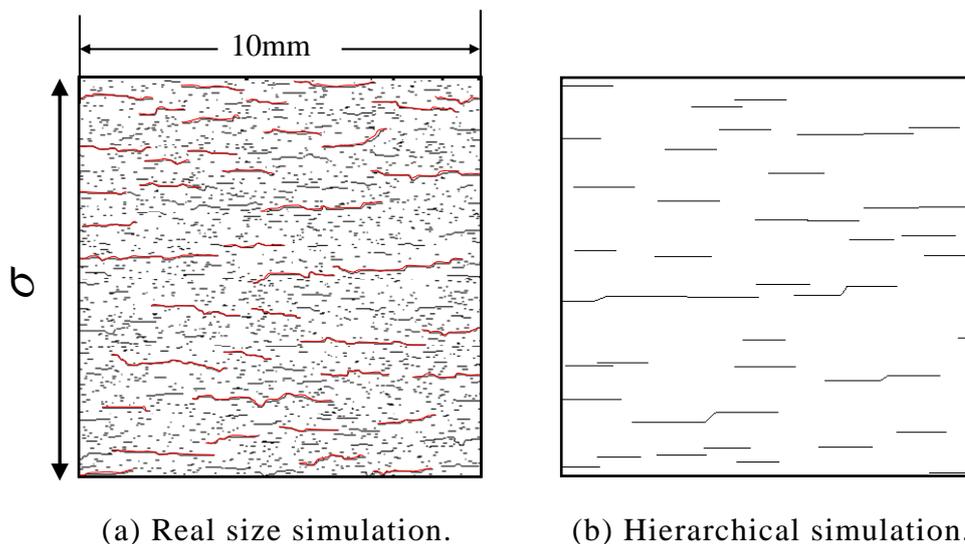


Fig. 5-7 Crack distribution from real size and hierarchical simulations at 1.0Ms.

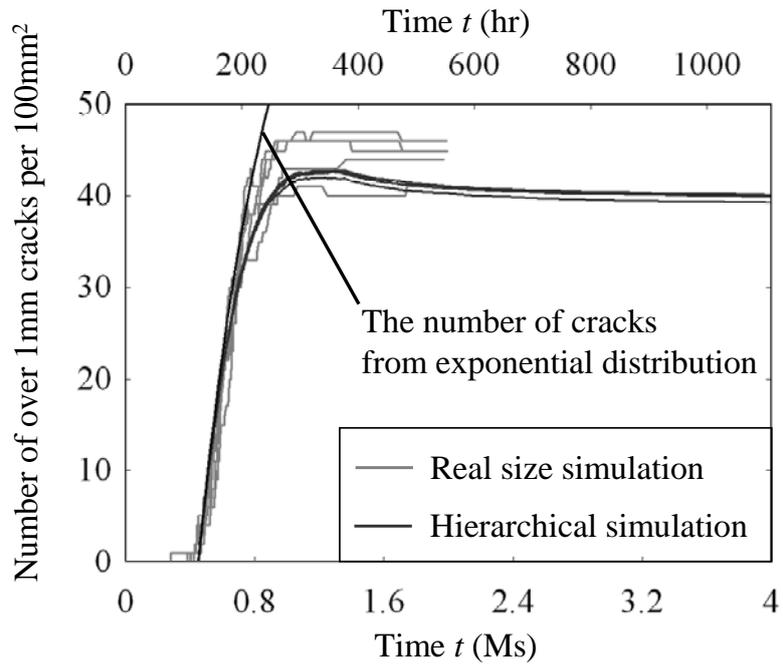


Fig. 5-8 Number of over 1mm cracks as a function of time.

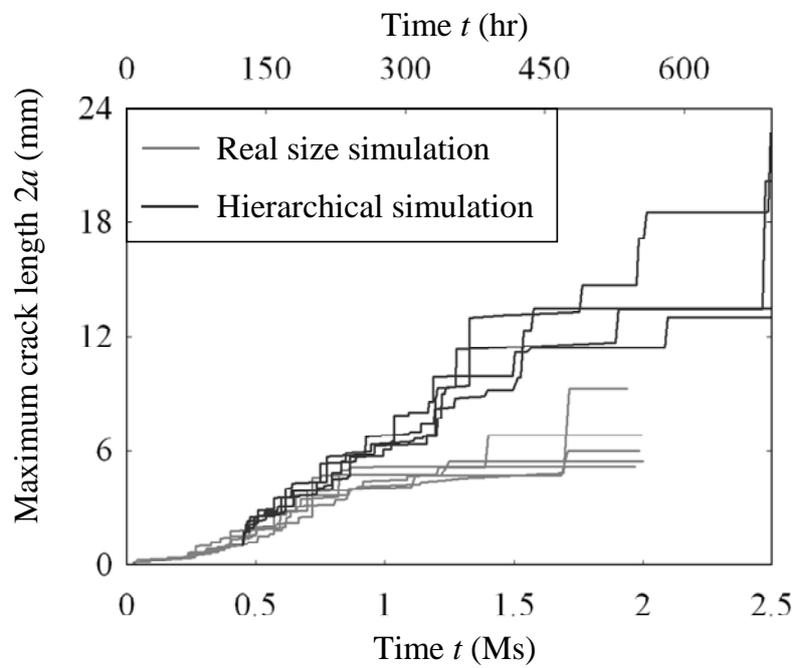


Fig. 5-9 Maximum crack length as a function of time.

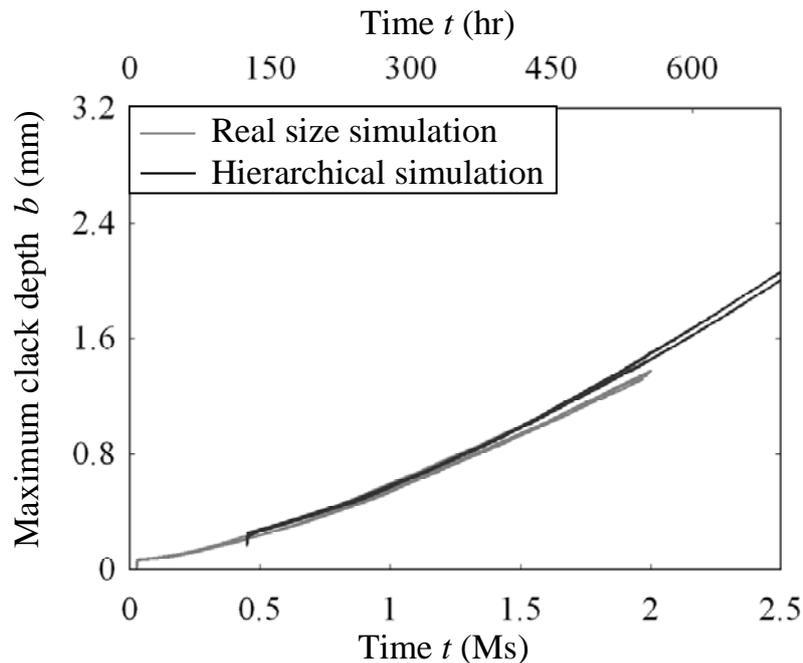


Fig. 5-10 Maximum crack depth as a function of time.

Fig. 5-11 は最大き裂長さを有するき裂のアスペクト比の比較図である。アスペクト比は，合体により低下，進展することにより増加することにより，時間の経過とともにいずれの結果も 0.2~0.3 程度になる。基礎シミュレーションでは，1Ms 以降はき裂長さが停滞した後も深さ方向に対しては進展を続けるためにアスペクト比は増加している。一方，階層化シミュレーションでは，大きなき裂の形成が可能であるため，アスペクト比の増加も抑えられている。これらの結果より，階層化シミュレーションは基礎シミュレーション結果をよく再現していることがわかる。

Fig. 5-12 は，解析領域の大きさに対して，最大き裂長さが解析領域の一辺の 1/4 の長さに達するまでの解析時間をプロットしたものである。直線は基礎シミュレーションから予測される解析時間を示している。これにより，基礎シミュレーションにおいて 100mm×100mm の領域で解析を行った場合，最大き裂長さが 25mm に達するまで要する解析時間は約 7000

時間と予測される。一方で，階層化をすることによって解析時間は 22 時間となる。階層化シミュレーションを行うためには，基礎シミュレーションにより入力データを求めることが必要となるが，それを考慮しても大幅に短縮することが可能であることがわかる。

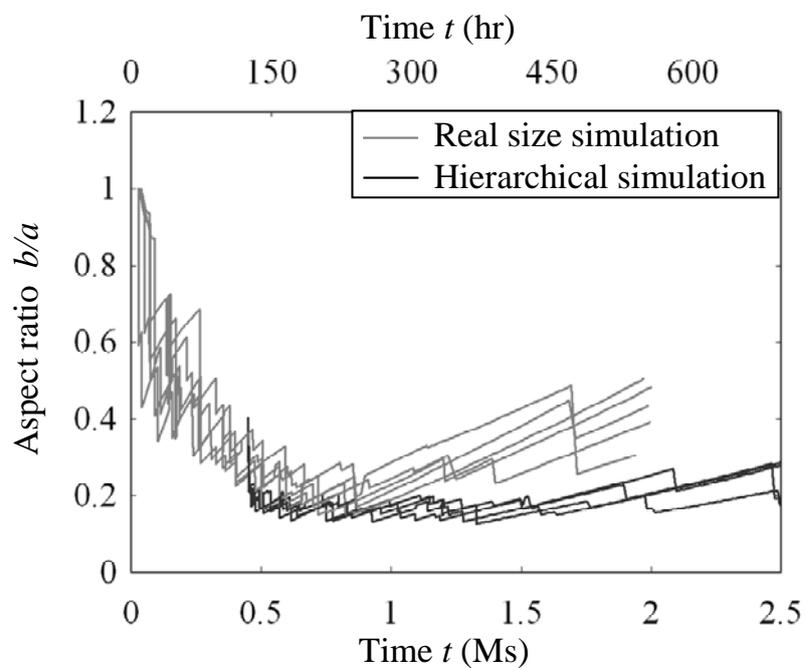


Fig. 5-11 Aspect ratio of the longest crack as a function of time.

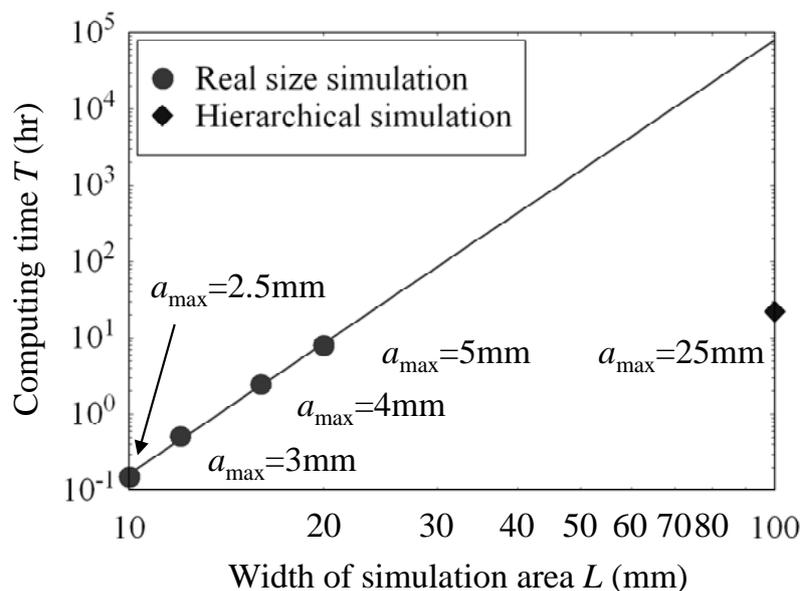


Fig. 5-12 Comparison of Computing time.

## 5.7 結言

本章では、基礎シミュレーションを基に長さ 1mm 以上のき裂のみを扱い、シミュレーション領域を拡大した階層化シミュレーションを開発した。基礎シミュレーションと階層化シミュレーションの比較を行った結果、階層化シミュレーションがより大きなき裂に至るまでの解析に有効であることを示した。数 10mm の大きなき裂に至るまでの解析において階層化を行うことにより、計算時間を大幅に削減することが可能であることを示した。本シミュレーションにより、実機のような広範囲な領域を対象として、大きなき裂の解析を行うことができると思われる。

# 第 6 章

## 実構造物の 事例との比較

## 6.1 緒言

前章までは、実験室加速試験環境の CBB 試験を模擬してシミュレーションを行ってきた。しかし、実際の原子炉構造物では、稼動から数十年という長いスパンを経た後に大きなき裂が発見されている。そこで、実際に原子力プラント内構造物で発見された応力腐食割れによる事例を基にシミュレーションを行い、実環境下においても再現が可能であるか検討を行った。

本章では、これまでに原子炉内で発生した SCC の事例の中で、日本原子力発電株式会社の敦賀発電所 1 号機(沸騰水型軽水炉、定格出力 35 万 7 千 kW、以下敦賀 1 号)における事例を対象としてシミュレーションを行った。敦賀 1 号は営業運転を 1970 年 3 月に開始し、約 30 年経過した 1999 年 12 月に行われたシュラウド取替え工事に際して、シュラウドサポートと圧力容器取り付け部の周溶接部で全周にわたり発生した多数の SCC が発見された<sup>36)</sup>。Fig.6-1 に、目視点検により確認された SCC の概略図を示す。シュラウドサポートの溶接には、被覆アーク溶接用インコネル溶接棒(Alloy182 同等材)が使用され、溶接後応力除去熱処理は施されず、溶接のままであった。目視および浸透探傷試験の結果、全周約 13m にわたり、ほとんどが溶接方向に垂直な方向に 228 個のき裂が発見された。き裂は最大長さ約 60mm、最大深さ約 44mm であった。この事例についてシミュレーションを行い、解析結果を検討した。

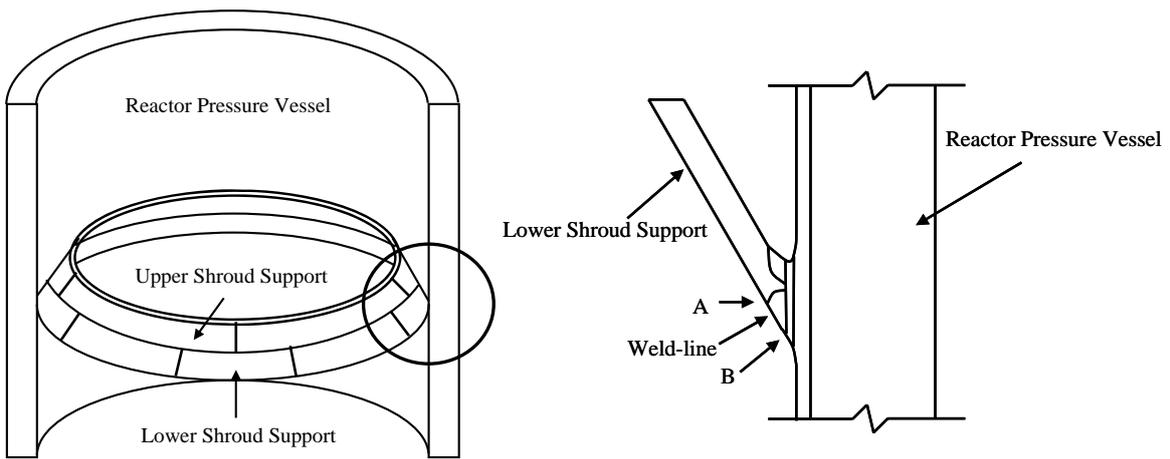
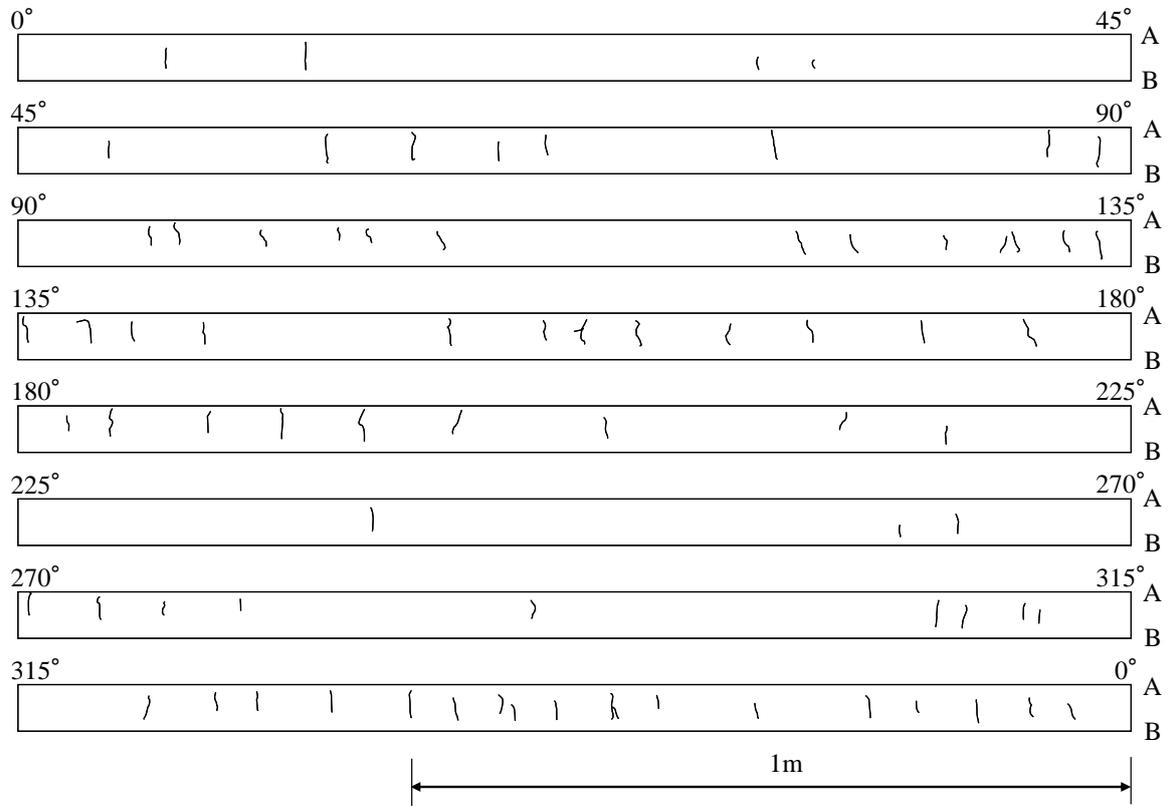


Fig. 6-1 Structure of the shroud support and locations of cracks.

## 6.2 シミュレーション方法

### 6.2.1 基礎シミュレーション

数値シミュレーションは，溶接線における残留応力分布が不明であるため，一様単軸引張応力場として計算を行った．

敦賀 1 号のシュラウド溶接線を想定し，溶接線に垂直方向に残留応力による一定の引張応力が作用するものとした．溶接に使用された Alloy182 の化学組成を Table6-1 に示す．降伏応力は  $\sigma_{ys}=350\text{MPa}$ ，溶接線上には降伏応力以上の残留応力が報告されているため<sup>37)</sup>，作用応力は， $\sigma=450\text{MPa}$ とした．平均結晶粒径は，破面の様相より  $0.08\text{mm}$ と仮定した．微小き裂発生の累積確率分布として指数分布(1)式において，き裂発生の下限界値  $a_i$ は，実験との比較による実機における SCC挙動の予測手法により求められている，き裂の発生開始として予測された実稼動時間 8 年(運転開始後 12 年)とし<sup>38)-40)</sup>， $a_i=252.46\text{Ms}$ とした． $\theta_i$ は， $a_i$ の値を固定して  $\theta_i$ の値を変化させて基礎シミュレーションと階層化シミュレーションを繰り返し行うことにより，今回の事例に近い状態を示す  $\theta_i=20000\text{Ms}$ とした．き裂進展に関しては，Fig.6-2 に示すように  $K_{ISCC}=5\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ として Alloy 182 に対する日本機械学会による維持規格<sup>41)</sup>に従うものとした．解析領域は，第 5 章における基礎シミュレーションとして， $20\text{mm}\times 20\text{mm}$ とした．基礎シミュレーションは 100 回行った．

Table 6-1 Chemical composition of the welds.

C	Si	Mn	S	Ni	Cr	Fe	Cu
0.05	0.58	6.98	0.011	68.27	15.03	7.00	0.02

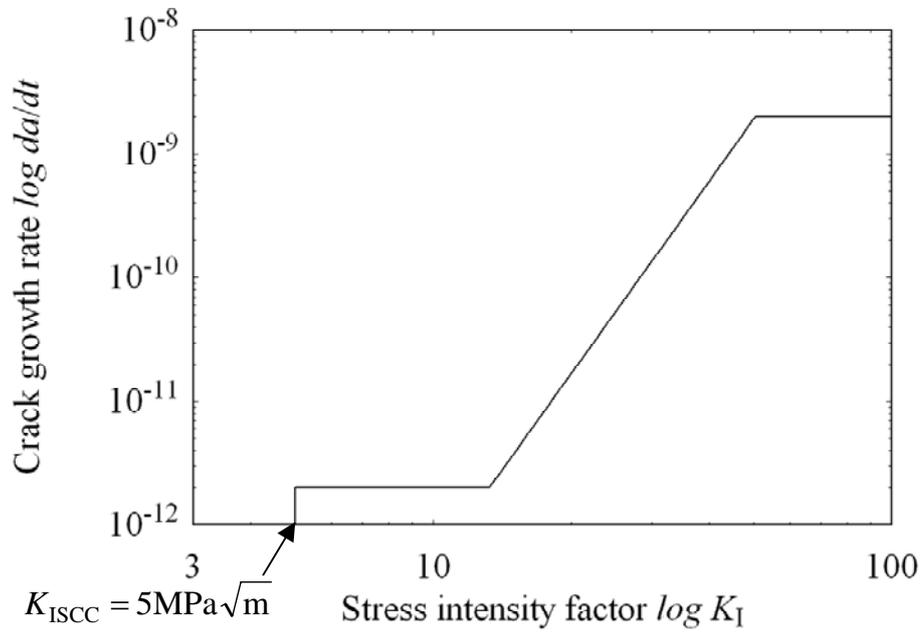


Fig. 6-2 Crack growth rate of simulation

## 6.2.2 入力パラメータ

本章での基礎シミュレーション結果について、第5章で得られた基礎シミュレーション結果を参照して、階層化シミュレーションに用いる1mm以上のき裂発生に関するパラメータを求めた。

き裂発生位置については、第5章の結果より一様分布とした。き裂発生速度については、今回のシミュレーションではき裂発生速度が小さいため、1mm以上のき裂が1回のシミュレーションで数個しか形成されなかったため、100回のシミュレーションにより得られた1mm以上のき裂の発生数に基づき決定した。1mm以上のき裂発生の累積確率分布として指数分布(1)式において、 $a_i=430Ms$ 、 $\theta_i=50000Ms$ とした。1mm以上のき裂の平均発生長さは第5章と同程度であり、平均き裂長さを1.1mmとして(13)(14)式で示される $\chi^2$ 分布とした。アスペクト比については、時間による依存性が見られなかったため、き裂長さに依存して平均および標準偏差が変化する正規分布となると仮定し、以下のよういき裂長さを変数に持つ平均 $ASP_{ave}$ と標準偏差 $ASP_{sd}$ を与えた。

$$ASP_{ave} = 0.7 \times (2a)^{-0.8} \quad (17)$$

$$ASP_{sd} = 0.16 \times (2a)^{-12} \quad (18)$$

### 6.2.3 階層化シミュレーション

前節の結果を基に階層化シミュレーションは、80mm(溶接線幅)×1000mmの解析領域で行った。平均き裂長さは、基礎シミュレーションにおいて1mm以上となった時点での平均き裂長さ1.1mmとし、発生可能なき裂総数を80000個とした。発生時間は、(1)式において下限値 $a_i=430$ 、および標準偏差 $\theta_i=50000$ として、指数分布に基づく乱数により与えた。また、き裂発生位置( $x, y$ )は、 $x$ 方向は区間0~80mm、 $y$ 方向は区間0~1000mmの一樣乱数により与え、き裂長さおよびアスペクト比については前節で示したそれぞれの確率分布に基づく乱数によって与えた。それ以外の合体や進展等の条件に関しては微小き裂発生による基礎シミュレーションと同様である。シミュレーションは、き裂が確認された29年(実稼動時間20年, 631.15Ms)経過した時点で終了した。シミュレーションは15回行った。

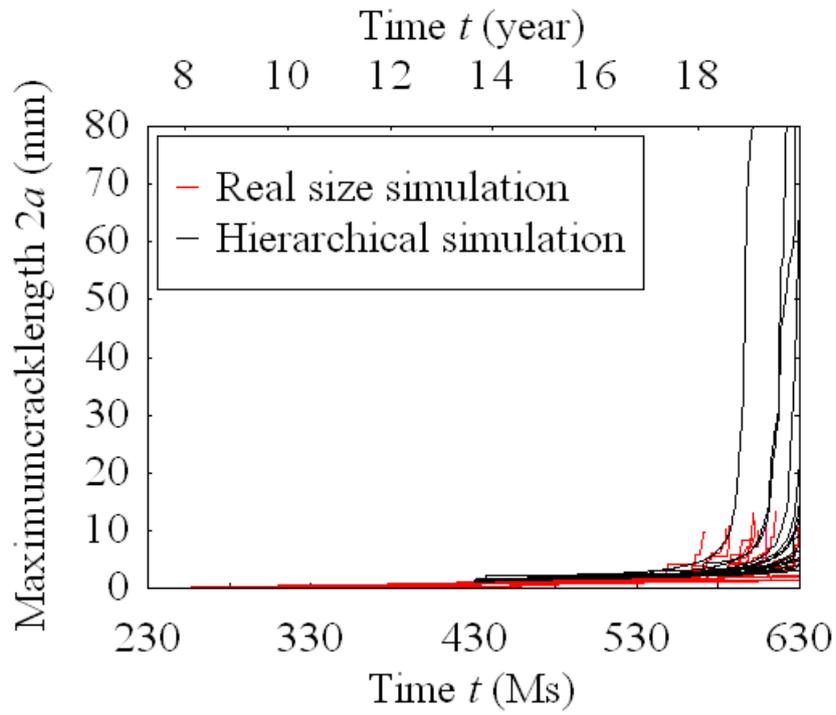
### 6.3 シミュレーション結果および考察

Fig.6-3 にシミュレーションで得られたき裂の分布図を示す。これをみると、全体的にき裂が発生しており、その中にいくつかの大きなき裂が存在していることがわかる。一樣に分布しているき裂については、ほとんどがき裂長さ1mmから2mmとなっている。目視検査の結果であるFig.6-1での最小き裂長さは10mm程度であるため、このようなき裂は目視検査などでの検出は難しいと考えられる。よって、シミュレーションで得られた2.5mm以上のき裂について比較を行うと、1mあたりのき裂数は、平均で18個程度であり、実際に観察された約17個に近い値となっている。

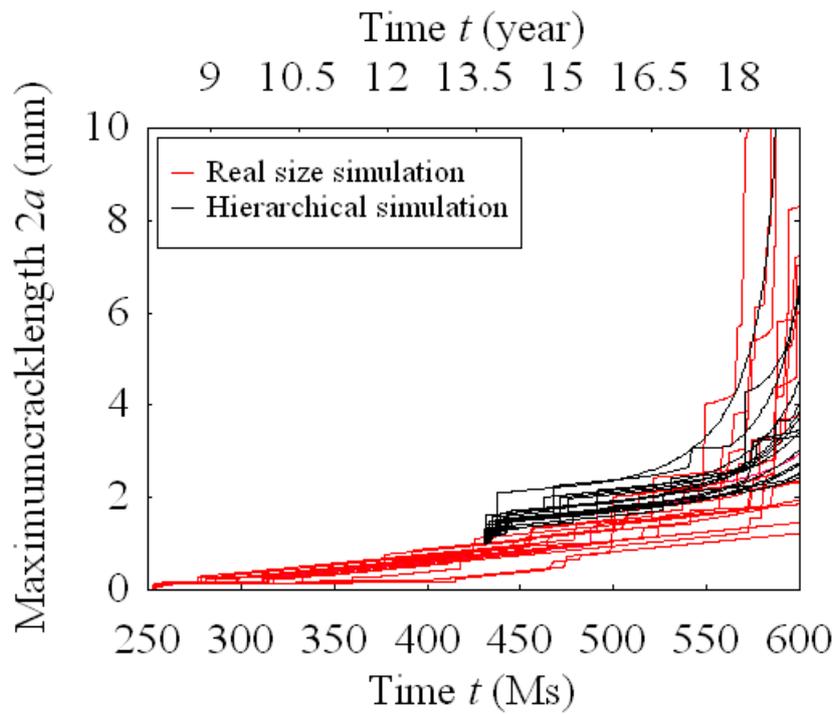


Fig. 6-3 Examples of crack distribution on weld line.

Fig.6-4 に最大き裂長さと時間の関係を示す。Fig.6-4(a)は全体図、Fig.6-4(b)は初期段階を拡大したものである。き裂は、最終的には主に進展によって成長している様子がわかる。き裂長さが 5mm 程度になるとき裂成長速度が大きくなり、解析領域全幅にわたる大きき裂に成長している。そして、大きく成長をはじめるときの時間は、階層化シミュレーションの初期段階における合体によるき裂の成長に起因することがわかる。また、基礎シミュレーションと比較すると、階層化シミュレーションのき裂発生が始まる部分では、基礎シミュレーションの最もき裂成長の早いものと一致し、その後、合体により基礎シミュレーションより大きい値をとっている。しかし、基礎シミュレーションは合体が支配的に成長していくのに対して、階層化シミュレーションは進展が支配的に成長していくが、大きく成長を開始する時期はほぼ同時となっている。このことから、今回の場合、大きき裂の微小き裂との合体による成長については大きき裂の進展による成長として考慮することができていると考えられる。また、今回は応力分布を考慮せずに、一様応力場としてシミュレーションを行ったため、大きなき裂が領域に渡って成長したのが見られるが、実際には残留応力による応力分布が存在していると考えられ、溶接線端部に向かって引張応力が減少するのであれば、第 4 章で指摘したようにき裂の成長が止まることが予想される。そのため、き裂長さについては、応力分布を考慮することで、実際に測定された最大き裂長さ 60mm 程度に収束することが考えられる。もし、残留応力などの分布が正確に知ることが出来るならば、より実際の結果を模擬したシミュレーションが可能であると考えられる。



(a) Overview.



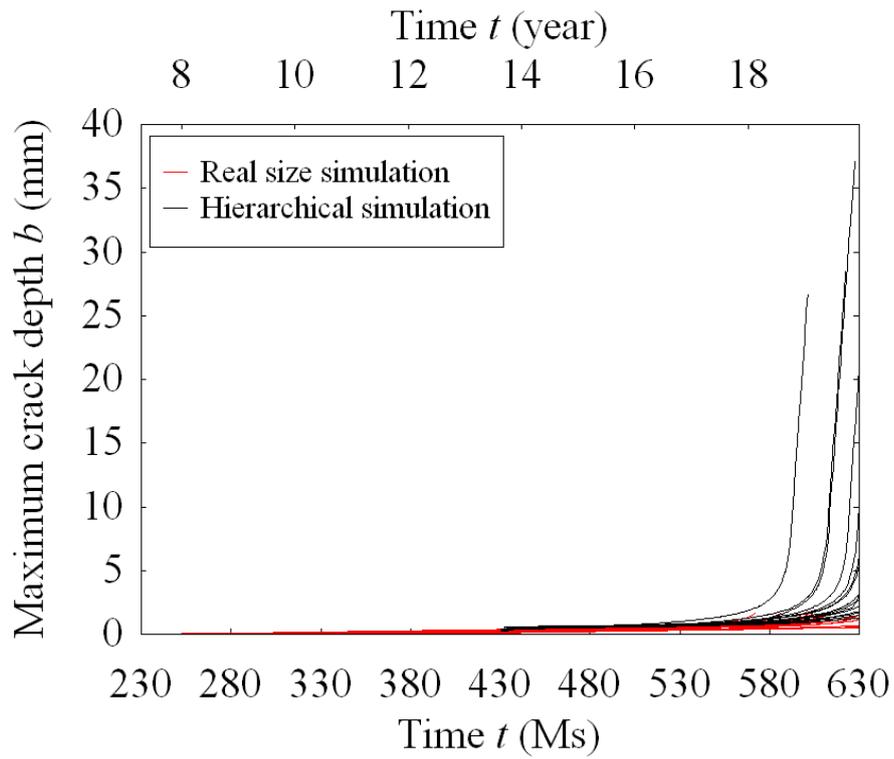
(a) Early stage.

Fig. 6-4 Maximum crack length as a function of time.

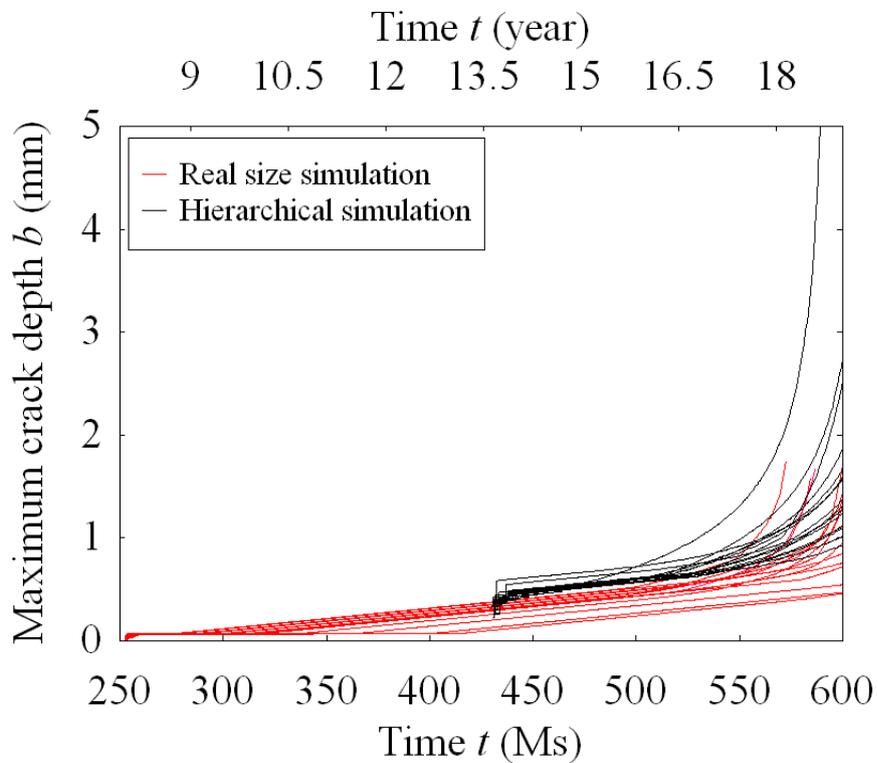
Fig.6-5 に最大き裂長さと時間の関係を示す。Fig.6-5(a)は全体図，Fig.6-5(b)は初期段階を拡大したものである。図中において途中で終了しているものがあるが，これは表面方向のき裂長さが 80mm に達した時点までの結果となっている。深さ方向の成長は，合体やき裂進展を妨げる要素がないため，進展性のき裂形成時期や表面方向の合体によるアスペクト比の変化によりばらつきがあるが，一様に進展している様子がわかる。また，最大のき裂深さは約 37mm であり，実機で見られた最大のき裂長さ 44mm に近い値となっている。

Fig.6-6 に最大き裂長さを持つき裂のアスペクト比と時間の関係を示す。基礎シミュレーションでは最終的には合体の影響が大きくアスペクト比が 0.4 程度になっているが，階層化シミュレーションでは，初期段階では合体が支配的となっているが，その後は進展が支配的となっている様子がわかる。

これらの結果より，最終的には大きき裂の進展の影響が大きくなっているが，その成長の時期については，初期の合体によるき裂の成長の影響が大きいことがわかる。つまり，寿命評価を行う上で，き裂の発生や合体の影響を考慮することは重要である。そのため，微小き裂発生による基礎シミュレーションを基に，1mm 以上のき裂による階層化シミュレーションを行う，本研究における手法は，実機に対する寿命評価に有効であると考えられる。



(a) Overview.



(a) Early stage.

Fig. 6-5 Maximum crack depth as a function of time.

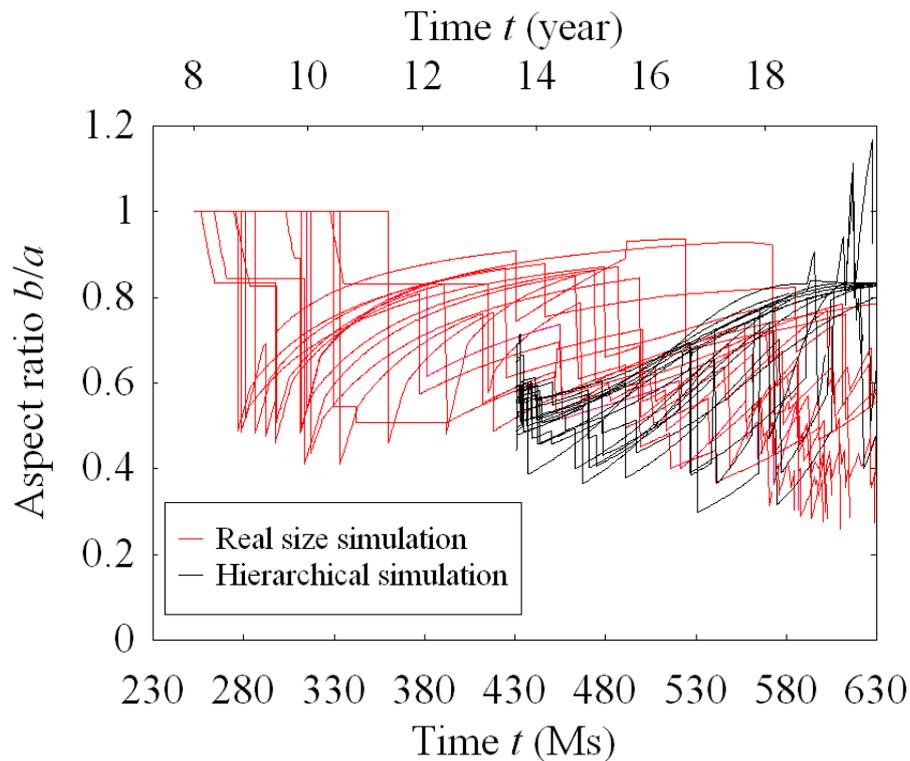


Fig. 6-6 Aspect ratio as a function of time.

## 6.4 結言

本章では，敦賀 1 号のシュラウドサポートと原子炉压力容器の溶接線に発生したき裂を模擬したシミュレーションを行った。シミュレーションを行った結果，溶接線上に分布する大きき裂の状況を示すことができた。今回のシミュレーションでは，応力分布などの考慮を行っていないが，本シミュレーションにより事例に類似する結果を示したことは本シミュレーションの可能性を示唆するものである。本シミュレーションでは，このようにある時点でのき裂の発生状況を知ることにより，き裂発生時期などの推定を行い，現時点での様相を再現し，さらに解析を進めることで今後の余寿命予測を行うことができる。応力分布等の適切な条件を用いるならば，実際の構造物に対する寿命評価に有効であると考えられる。

# 第7章

## シミュレーションの 高精度化に向けた 応力腐食割れ試験

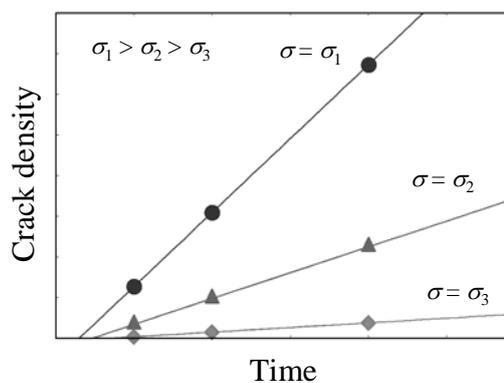
## 7.1 緒言

前章までは、SCCにおける微小き裂の発生から合体・進展により大き裂に至るまでのモンテカルロ・シミュレーションを開発した。このモデルは、き裂の発生速度や発生き裂長さ、進展速度などのパラメータを入力することにより、SCCのシミュレーションを行うことができる。よって、精度の高いシミュレーションを行うためには、実験によりシミュレーションで使用するき裂発生などのインプットパラメータを決定する必要がある。

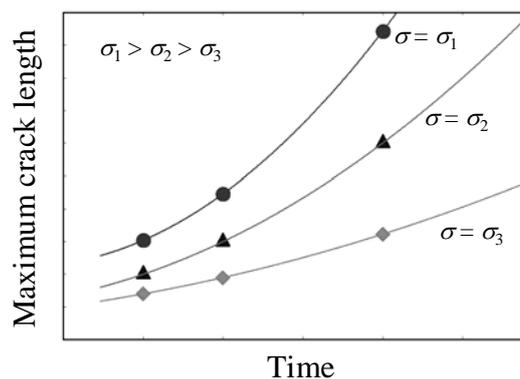
SCCの発生試験方法については、試験条件によって、低ひずみ速度引張試験(SSRT)、定ひずみ曲げ試験、定荷重試験が挙げられる<sup>42)</sup>。SSRTは、迅速試験としてSCC研究に広く用いられ、特に応力腐食割れ感受性を評価する研究に広く使用されている<sup>43)~47)</sup>。しかし、ひずみ速度の影響が大きく、また、本来の割れ発生過程が失われる欠点がある<sup>48)</sup>。定ひずみ曲げ試験には、Uバンド試験<sup>49)</sup>や4点曲げ試験<sup>17)50)</sup>、CBB試験<sup>47)</sup>があり、多数の試験片を同時に試験でき、実環境でのテストが容易であるが、空气中で変形するために再不働態化がおこること、試験中に応力緩和がおこり割れが発生しない場合があるなどの欠点がある。それに対し、定荷重試験はSCC感受性を破断時間として表すことができ、特定の応力で試験を行うことができる。

本章では、SCCの実験室加速試験として、高温高純度水環境における定荷重引張試験を行い、シミュレーションのインプットデータとして使用する微小き裂の発生・合体挙動の検討を行った。試験結果より、き裂密度、最大き裂長さを計測し、負荷応力などの試験条件との関係を考察した。予想されるき裂密度、最大き裂長さと時間の関係を Fig. 7-1 に示す。Fig. 7-1(a)に示すように負荷応力が高いほど、き裂が発生しやすく、き裂発生速度が大きくなり、また、Fig. 7-1(b)に示されるように応力が高いほど、発生するき裂も多くなり合体が起きやすく、進展もしやすいためにき裂の成長速度も速くなることが予測される。試験を行い、

このようなデータを得ることで、き裂密度のデータからそれぞれの応力におけるき裂の発生速度、最大き裂長さのデータからき裂の成長に関する合体や進展などの条件などを求めることができる。このデータを用いることにより、開発したモンテカルロ・シミュレーションの精度を高められることが期待される。



(a) Crack density as a function of time.



(b) Maximum crack length as a function of time.

Fig.7-1 Predicted results.

## 7.2 供試材料

供試材料は，オーステナイト系ステンレス鋼SUS304を用いた．Table 7-1に化学組成を示す．供試材料の熱処理は，1100℃/45minの溶体化処理と700℃/2hr+500℃/24hrの鋭敏化処理を行った．288℃大気中で行った引張試験の結果，0.2%耐力は $\sigma_{0.2}=140\text{MPa}$ であった．

Table 7-1 Chemical composition of test material.

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Fe
0.06	0.47	0.82	0.03	0.003	8.05	18.16	Bal.

## 7.3 試験装置

試験装置は，株式会社神戸工業試験場製のバネ式定荷重引張試験機を使用した．Fig. 7-2に試験装置の構成図を示す．試験装置は主に循環ループと試験ループに分けられる．循環ループでは，補給水タンクにおいて $\text{N}_2+\text{O}_2$ ガス(酸素濃度10%)を用いて $\text{N}_2(90\%)$ ， $\text{O}_2(10\%)$ の環境としてタンク内圧力を変えることにより，溶存酸素濃度を8ppmに調整している．また，樹脂塔(イオン交換膜)および2種類のフィルター(10 $\mu\text{m}$ ，1 $\mu\text{m}$ )により試験水中のゴミとイオンを除去し高純度水環境を作っている．試験ループでは，定量ポンプにより，試験容器に流速5cc/minで水を送り，試験容器内の圧力を8MPaに加圧している．試験容器では，巻かれたヒータにより水を加熱して288℃の高温にしている．また，負荷装置はバネ式となっており，リニアジャッキにより変位を与えて負荷を行う．この機構により，最大

14.7kNまで負荷することができる。試験容器は2機設置されており、同時に2本の試験を行うことができる。この装置を用いることでBWR一次冷却水を模擬した加速試験環境において定荷重引張試験を行うことができる。

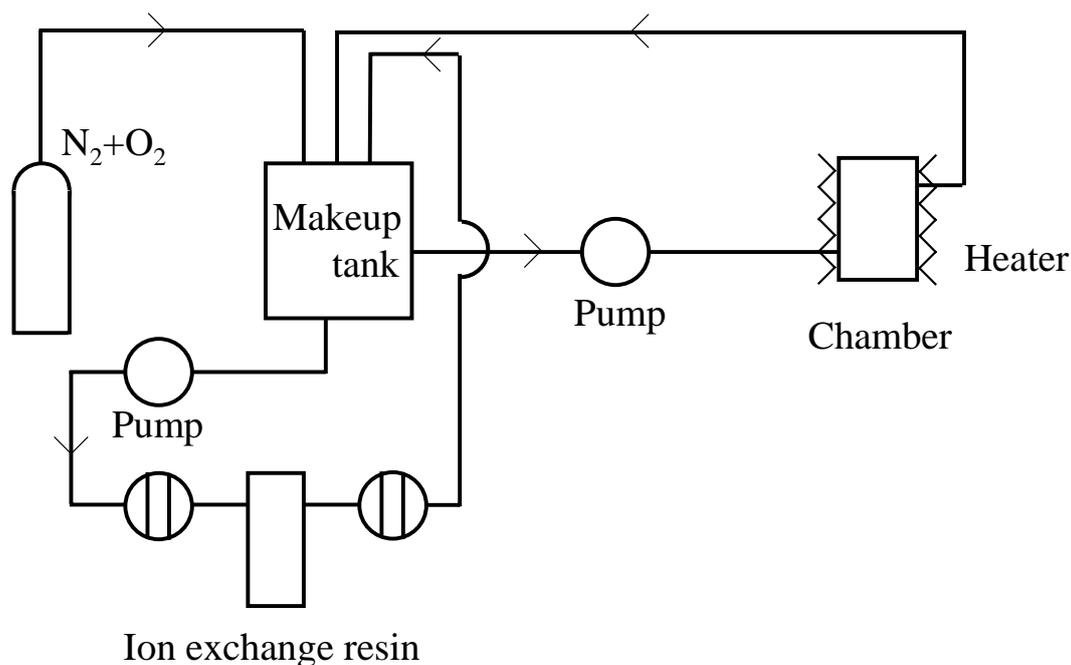
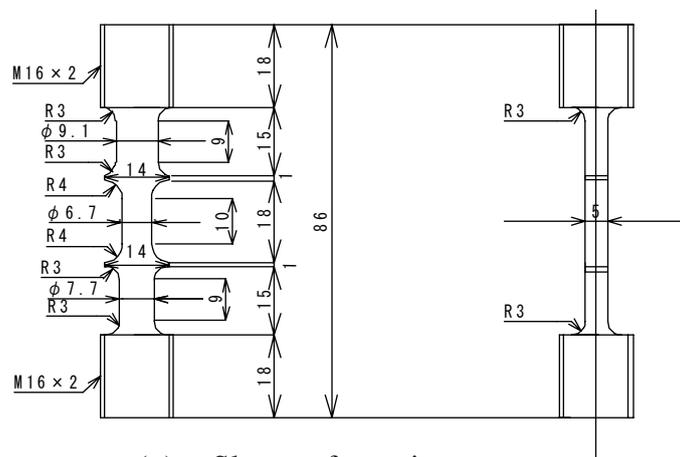


Fig.7-2 Constitution of test machine.

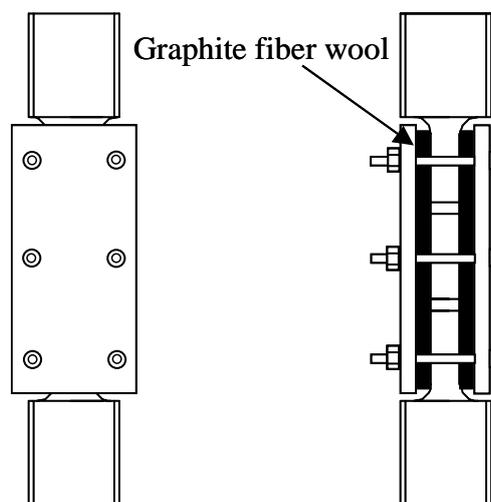
## 7.4 試験方法

鋭敏化処理を施した SUS304 に対して、BWR 一次冷却水を模擬した SCC に対する実験室加速環境試験として高温高純度水環境(288℃, 導電率 $\sim 0.1\mu\text{S}/\text{cm}$ )で定荷重引張試験を行った。溶存酸素量は BWR 環境では 0.2ppm であるが、SCC の加速試験とするために 8ppm とした。試験片形状を Fig. 7-3(a)に示す。試験片は、異なる3種類の断面積を持つ形状となっており、一度の試験で3種類の応力条件による試験を行うことができる。また、Fig.7-3(b)に示すように、き裂を安定的に発生させるために、試験片平面部

にすきま形成治具を使用して，グラファイトファイバーウールにより人工すきまを付与した．試験片は，#120，#240，#400，#800 のエメリー紙により順に表面を研磨し，試験に供した．試験は，288℃において48時間の予浸漬を行った後に，負荷を行った．負荷応力は，それぞれの部分で応力の高い順に250MPa，210MPa，175MPaとした．試験時間は負荷後，24時間，48時間，96時間，120時間として，試験片を試験機から取り出し，10%しゅう酸エッチングを行った後に，光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡により，平面部に発生したSCCによるき裂数およびき裂長さを計測した．試験片本数は各時間に対して2本ずつとした．



(a) Shape of specimen.



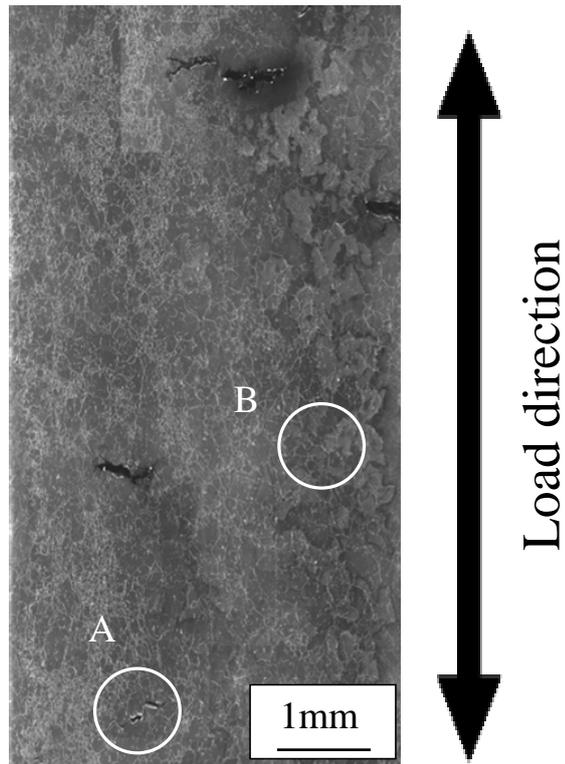
(b) Specimen with crevice.

Fig.7-3 Specimen.

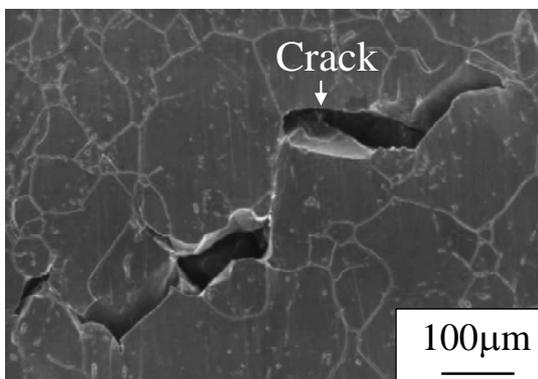
## 7.5 試験結果および考察

Fig.7-4 に試験によって得られた試験片表面における SCC の様相を示す。これは、作用応力 250MPa、試験時間 96 時間の試験片表面の SEM 写真である。10%しゅう酸エッチングを行うことにより、酸化膜が除去され、さらに粒界が明確に現れている。Fig.7-4(a)の概観図では、大きなき裂がいくつか発生している様子がわかる。Fig.7-4(b)の拡大図により、き裂は粒界に沿って発生し、近接してき裂が発生することにより、粒界上で合体している様子が観察できる。また、Fig.7-4(a)では、き裂が発生していないように見える B 部において、Fig.7-4(c)の拡大図に示すように微小なき裂が負荷方向に垂直な粒界において発生している。このように、この試験では試験領域全体に微小な粒界 SCC が発生している。

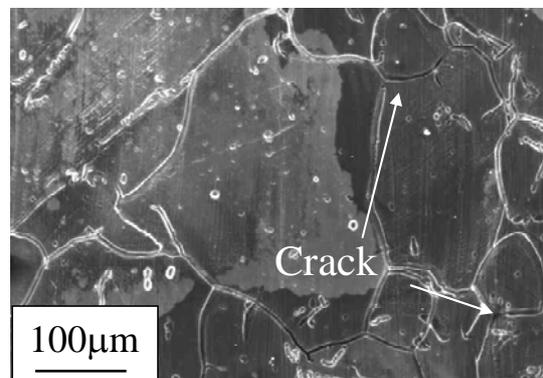
Fig.7-5～7 に各応力における試験片の SEM 写真を示す。最大応力部である Fig.7-5 では、1mm 程度もしくはそれ以上のき裂が複数発生している様子がわかる。また、Fig.7-6, 7-7 の 210MPa, 175MPa においては 24 時間では、大きなき裂はあまり見られないが、時間の経過とともに大きなき裂が観察できるようになる。このことから、96 時間において大きなき裂が少なくなっているが、全体的には、応力が高く、試験時間が長いほど大きなき裂が多くなることがわかる。



(a) Overview.



(b) Detail of A.



(c) Detail of B.

Fig. 7-4 SEM images of specimen surface (250MPa, 96hr).

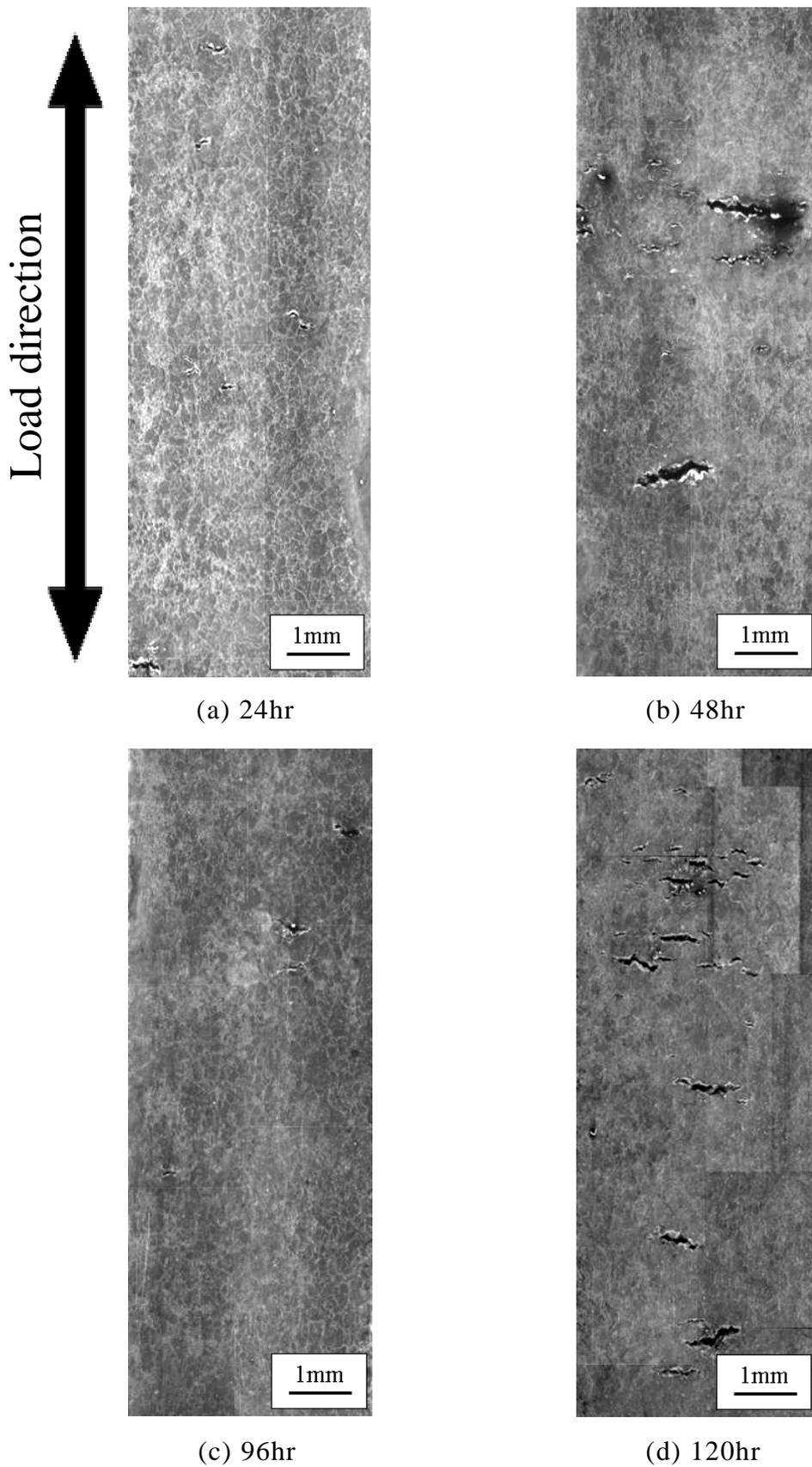
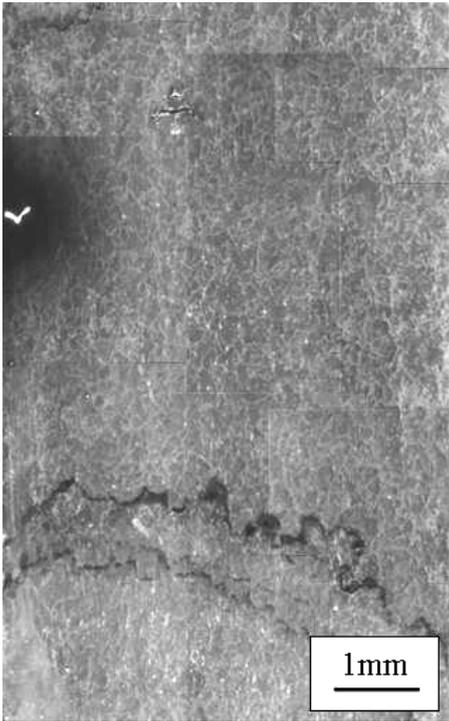


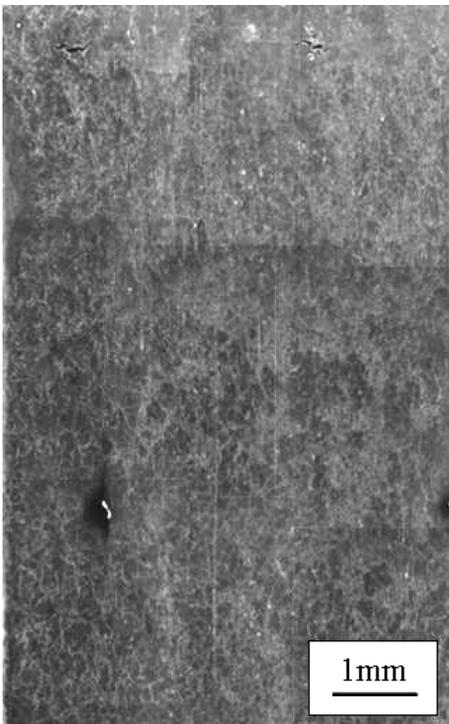
Fig. 7-5 SEM images of specimen surface (250MPa).



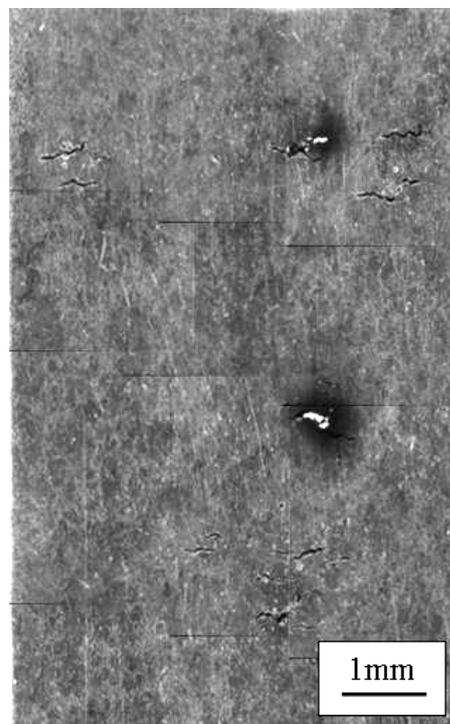
(a) 24hr



(b) 48hr

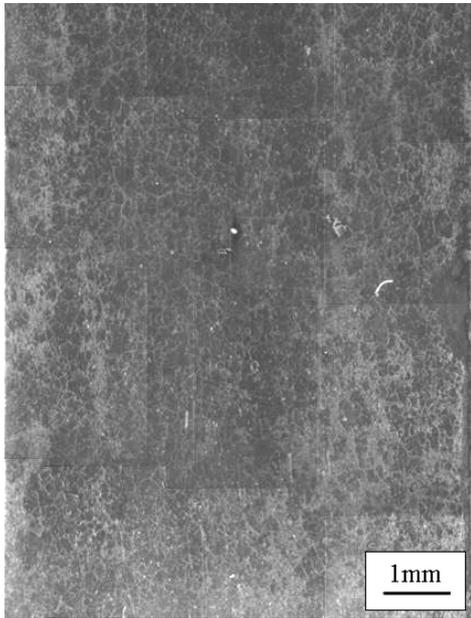


(c) 96hr

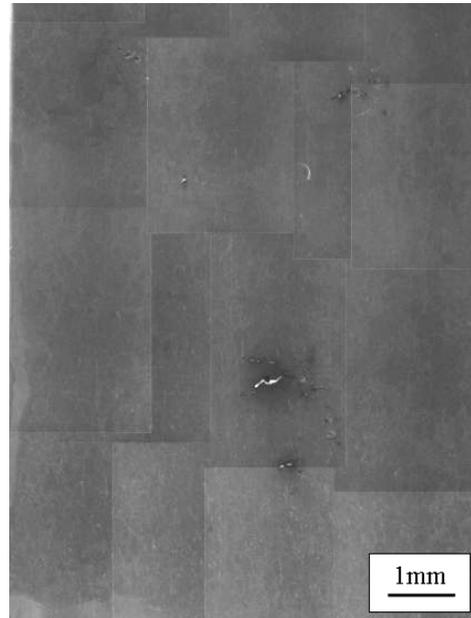


(d) 120hr

Fig. 7-6 SEM images of specimen surface (210MPa).



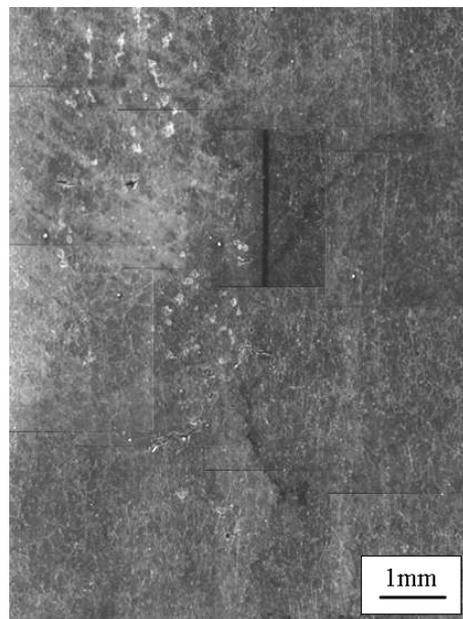
(a) 24hr



(b) 48hr



(c) 96hr



(d) 120hr

Fig. 7-7 SEM images of specimen surface (175MPa).

Fig.7-8 は、各応力部におけるき裂数と時間の関係である。プロットは、試験片 2 本の両面、計 4 面の平均値である。き裂数は、各応力部において試験面積が異なるため、比較のために  $100\text{mm}^2$ あたりのき裂数に換算してある。この結果より、応力が高いほどき裂が発生しやすくなっていることがわかる。また、経過時間が長くなるにつれ、き裂が増加していることがわかる。本研究は、定荷重試験であるため、負荷時においてき裂が発生しているためにき裂発生の下限界値である  $a_i$ を求めるには、十分な考察が必要になるが、応力が高いほど、き裂発生速度が高くなる傾向が見られ、第 1 章における(2)式および(3)式のように応力が高いほどき裂発生の下限界値  $a_i$ が小さくなり、き裂発生速度が大きくなるような関係式を得ることが予想される。

Fig.7-9 は、各応力部における最大き裂長さを示したものである。プロットは、試験片 2 本の両面における平均値、エラーバーは 4 面のうちの最大および最小値を示している。48 時間において、最大き裂長さの平均値は他の時間と比較して大きくなっているが、全体として、最大き裂長さは時間の経過とともに、大きくなる傾向が見られる。また、試験時間が大きくなるほど、ばらつきが大きくなっていることがわかる。最大き裂長さについては、き裂発生位置の状態などに影響されるため、ばらつきが大きくなることが考えられ、 $\sigma=250\text{MPa}$ の 120 時間経過後の結果では、3 倍以上の差が生じている。そのため、成長挙動の評価は、このデータに加え、合体後のき裂の詳細な観察を行い、き裂合体挙動について検討を行うことで精度を向上させることが出来る。

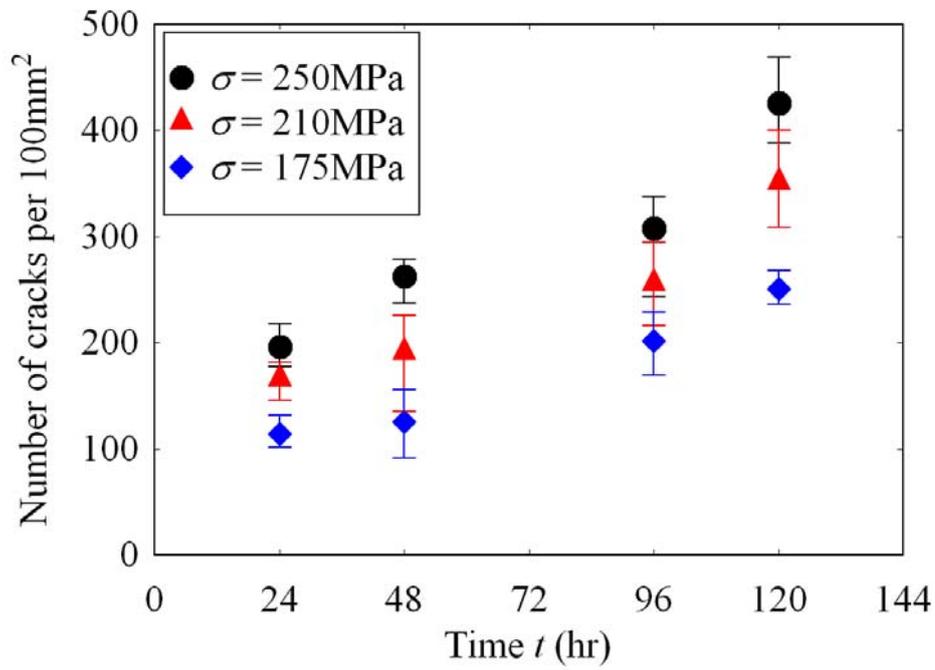


Fig. 7-8 Number of cracks as a function of time.

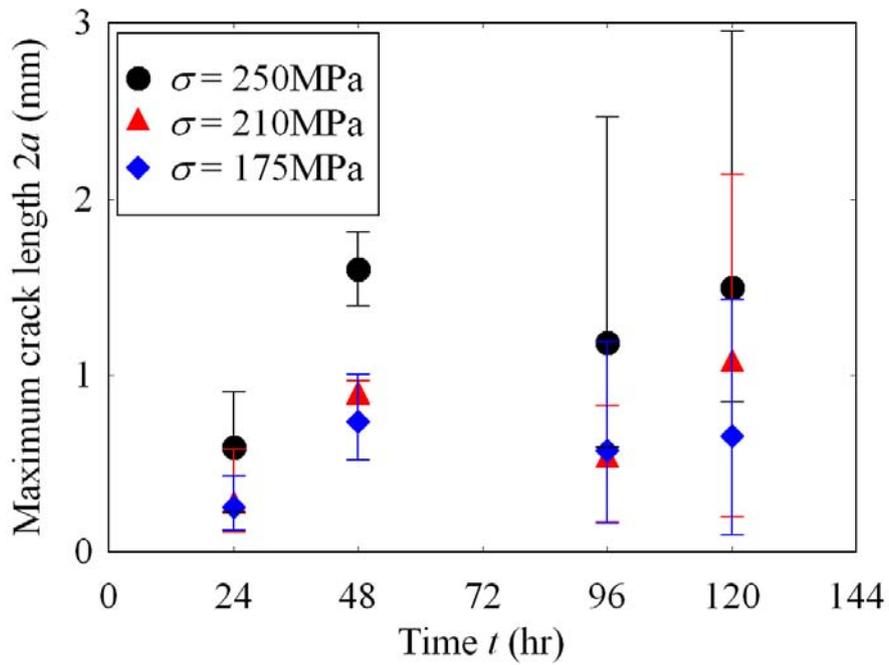


Fig. 7-9 Maximum crack length as a function of time.

Fig.7-10～12 に，各応力における  $100\text{mm}^2$ あたりに換算したき裂長さのヒストグラムを示す．いずれの結果においても微小き裂発生長さである  $0.1\text{mm}$ 未満のき裂が最も多くなっている．そして，応力および時間が大きくなるほど，合体して大きくなったき裂が増加している様子がわかる．また，48時間においては，き裂数としてはFig.7-8と同様に時間の増加とともに増加する傾向が見られるが，合体により大きくなったき裂が他の時間の結果から推測されるものより多く分布していることから，合体の起きやすい組織状態，環境にあったことが考えられる．

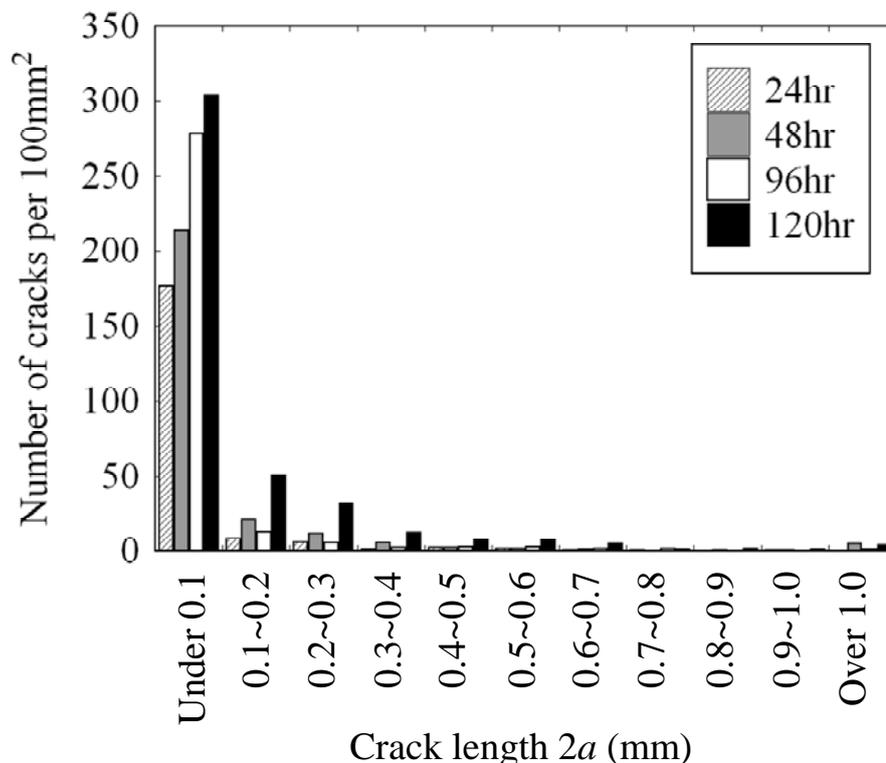


Fig. 7-10 Histogram of crack length (250MPa).

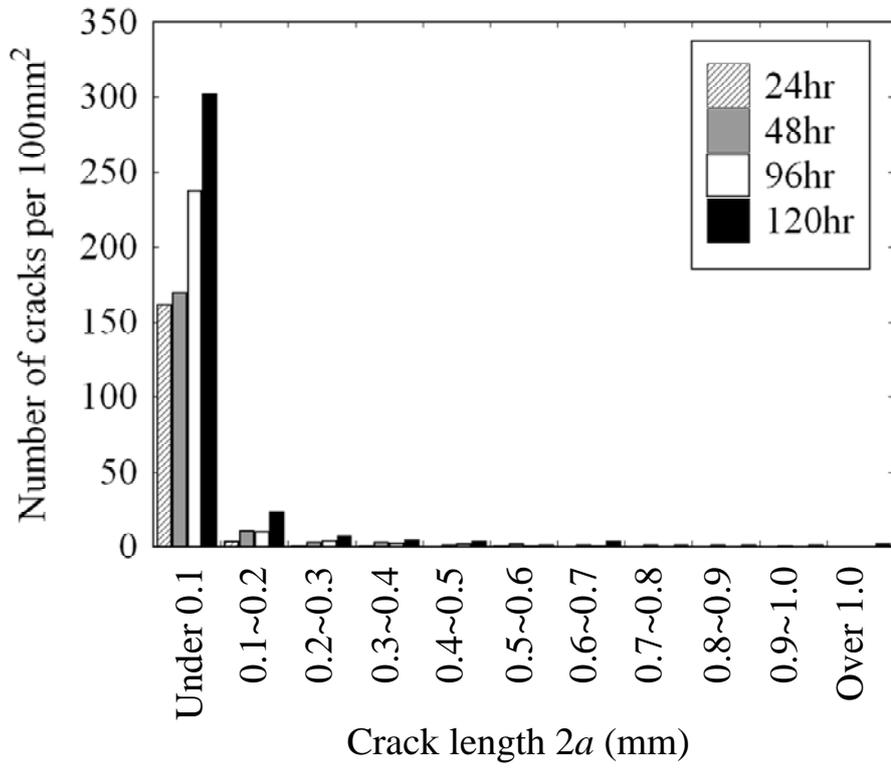


Fig. 7-11 Histogram of crack length (210MPa).

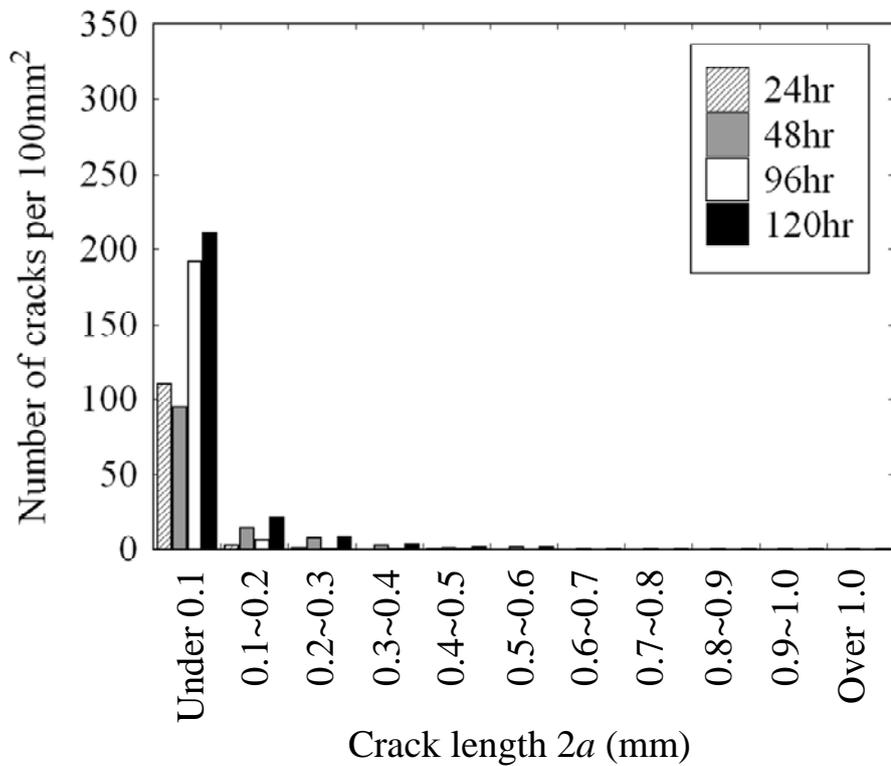


Fig. 7-12 Histogram of crack length (175MPa).

## 7.6 結言

本章では，SCC による微小き裂の発生から合体・進展により大きき裂が形成される過程のモンテカルロ・シミュレーションに用いる微小き裂の発生や成長挙動に関するインプットパラメータを得るための実験室加速環境下での定荷重引張試験機による SCC 試験方法の確立を行った．実験の結果，SCC による粒界き裂の発生を確認し，作用応力が大きくなるほど，き裂が発生しやすく，合体などにより成長しやすいことを示した．また，試験数を増やすことで，試験応力や試験時間とき裂発生数について，関係式を得る可能性を示した．この SCC 試験を時間，応力，鋭敏化度などの条件を変えて実施し，き裂の発生・成長挙動との関連付けを行い，シミュレーションのインプットパラメータに反映させることで，より精度の高いシミュレーションを行えると考えられる．



# 第 8 章

## 結 論

本研究では、SCCによる微小き裂発生から大きなき裂に成長するまでの過程を明らかにし、実験室データに基づいて構造用鋼におけるSCC挙動を予測する手法として、モンテカルロ・シミュレーションを開発した。そして、このシミュレーションの実造物への適用と高精度化にむけて検討を行った。

第2章では、き裂発生はき裂長さ、二次元空間の位置および発生時間に関しては確率過程に基づいてランダムに生じ、き裂の進展、合体は破壊力学の概念に基づいて確定過程として仮定し、特に表面き裂の効果を考慮して、一様単軸引張り応力場の平滑表面におけるSCC過程をモンテカルロ法によりモデル化した。

第3章では、鋭敏化SUS304の実験室加速環境下でのCBB試験結果を基に解析を行い、解析条件を変えることでシミュレーション結果に与える影響を確認した。CBB試験を基礎データとしてシミュレーションを行った結果、シミュレーションはCBB試験の結果をよく再現することが出来た。また、貫通き裂とした場合との比較を行うことで、平滑表面におけるSCC挙動の現実的なシミュレーションをためには、表面き裂の効果の考慮することが重要であることを示した。また、シミュレーションにおける合体領域の変化は、寿命分布に影響を与え、合体領域が大きいほど短寿命側に移り、き裂発生速度はき裂の成長に影響を与え、き裂発生速度が小さい程、進展の影響が大きくなることを示した。

第4章では、応力分布下のSCC挙動を予測するために第2章で開発したモンテカルロ・シミュレーションを応力分布が考慮できるように拡張をした。SUS304における溶接部近傍の残留応力を模擬した2種類の応力分布下でSCC挙動のシミュレーションを行った結果、溶接線に垂直に形成された多数のき裂やHAZに沿って形成された多数のき裂の状況を示すことが出来た。これは、実際に報告されている事例に類似して

おり，本シミュレーションが有効な手法になりうると考えられる．

第5章では，実機で見られるような数十 mm から数百 mm オーダーのき裂を解析するために，解析領域を広げ，第2章および第3章における結晶粒程度の微小き裂発生によるシミュレーションを基礎データとして，1mm以上のき裂を発生させる階層化シミュレーションを開発した．階層化シミュレーションを行うことにより，基礎シミュレーションでは難しい数十 mm オーダーのき裂の解析を行うことができ，計算時間も大幅に短縮できることを示した．

第6章では，敦賀発電所1号機のシュラウドサポート溶接部で見つかった，溶接線に沿った多数のき裂を対象としてSCC挙動のシミュレーションを行った．実際の環境を模擬した基礎シミュレーションを行い，第5章の結果によりデータを補完することで，階層化シミュレーションを行った．シミュレーション結果は，溶接線上に分布する大きき裂の様子に類似した結果を示し，適切なパラメータ設定により，実際の構造物に対する寿命評価に有効であることを示した．

第7章では，開発したシミュレーションの高精度化に向けて，インプットパラメータを決めるための応力腐食割れ試験方法の確立を行った．実験室加速環境下で行われた定荷重引張試験では，応力と時間に依存したき裂の発生数が確認でき，試験時間や負荷応力，鋭敏化度などを変化させることでインプットパラメータに与える各因子の影響を知ることができ，適切なパラメータ設定に寄与できることを示した．

これらの結果により，試験で得られる適切なインプットデータを用いて，き裂発生条件や進展・合体挙動，応力分布等の設定を行うことで，本シミュレーションは実機におけるSCC挙動，寿命予測に有効な手法になり得ることを示した．

## 参考文献

- 1) (独)原子力安全基盤機構「平成 21 年版 原子力施設運転管理年報」
- 2) M. Kowaka, “On the Prevention of Corrosion Cracking in Nuclear Power Plants”, Zairyo, Vol.25, No.278, pp1057-1067 (1976).
- 3) Y. Sakae, H. Susukida, M. Kowaka and H. Fujikawa, “Corrosion Problems and Its Prevention in Nuclear Industries”, Zairyo, Vol.28, No.314, pp.1031-1040 (1979).
- 4) 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, pp.99-106 (1997).
- 5) (独)原子力安全基盤機構ホームページ,  
<http://www2.jnes.go.jp/atom-db/jp/index.html>.
- 6) K. Takizawa, Y. Nakayama, K. Kurokawa and I. Tamura, “Effect of Temperature for Solution Treatment on the Corrosion Resistance of Type SUS 303 and SUS 304 Stainless Steels”, Boshoku Gijutsu, 38, pp.370-377(1989).
- 7) T. Shibata, J. Horikawa and J. Nakata, “Effect of sensitization on the Probability Distribution of Stress Corrosion Cracking Failure Times of Type SUS 304 Stainless Steel”, Boshoku Gijutsu, 35, pp.83-89(1986).
- 8) T. Shibata, A. Asada and J. Nakata, “Effect of Surface Conditions on the Probability Distribution of Stress Corrosion Cracking Failure Times of Type 304 Stainless Steel”, Boshoku Gijutsu, 34, pp.23-29(1985).
- 9) J. Kuniya, I. Masaoka, R. Sasaki, Y. Nakagawa and A. Naruse, “Effects of Surface Finishing on Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steels in High Temperature Water”, Boshoku Gijutsu, 27, pp.393-401(1978).
- 10) M. Matsushima, T. Ishihara and G. Ito, “Effect of Surface Preparation on Stress Corrosion Cracking of Stainless Steels in High Temperature Water”, Boshoku Gijutsu, 26, 367-373(1977).

- 11) N. Ohnaka, S. Shoji, E. Kikuchi, A. Minato and H. Ito, "Effects of Environment Factors on the IGSCC Susceptibility of Sensitized SUS 304 Stainless Steel in High Temperature Water", *Boshoku Gijutsu*, 32, pp.214-220(1983).
- 12) K. Ohashi, T. Honda, E. Kashimura and Y. Furutani, "Effect of Dissolved Oxygen on Corrosion of Ferrrous Materials in High Temperature and High Purity Water", *Boshoku Gijutsu*, 37, pp.198-204(1988).
- 13) M. Takemoto, "Threshold Stresses of Some Stress Corrosion Cracking Systems Ruled by the Total Strain Energy Theory", *Boshoku Gijutsu*, 35, pp.18-26(1986).
- 14) S. Kuwano, "Influence of Applied Stress on Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steel", *Zairyo*, Vol.27, No.297, pp.539-544(1978).
- 15) K. Nakanishi, Y. Tanaka, K. Yoshida and M. Akashi, "Effects of Applied Stress on the Stress-Corrosion Cracking Lifetime of Carbon Steel Weld Metal in High-Purity Water Environment at 250C", *Proceedings International Symposium on Plant Aging and Life Prediction of Corrodible Structures*, T. Shoji and T. Shibata, Eds., JSCE-NACE International, pp.691-698 (1997).
- 16) M. Akashi and G. Nakayama, "A Process Model for the Initiation of Stress-Corrosion Crack Growth in BWR Plant Materials", *ASTM STP 1281*, pp.150-164 (1997).
- 17) M. Kamaya, G. Chiba, N. Nakajima and N. Totsuka, "Multiple Cracks Initiation and Propagation Behavior of Stainless Steel in High Temperature Water Environment", *Zairyo-to-Kankyo*, Vol. 50, pp.57-64 (2001).
- 18) M. Kamaya and T. Haruna, "Influence of Local Stress on Initiation of Stress Corrosion Cracking for 304 Stainless Steel", *Proceedings of Zairyo-to- Kankyo 2007*, pp.149-150 (2007).
- 19) K. Saito and J. Kuniya, "Mechanical Model to Predict Stress Corrosion Crack Growth of Stainless Steel in High Temperature Water", *Corrosion Science*, Vol. 43, pp.1751-1766 (2001).
- 20) JSME Fitness-For-Service Code, JSME SNA1-2004 (2004).
- 21) H. Kitagawa and Y. Nakasone, "A Monte Carlo Analysis Model of Corrosion Fatigue Process Characterized by Initiation, Growth and Coalescence of Distributed Small Cracks", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol. 33, No. 364, pp.14-20 (1984).

- 22) N. Tada, T. Kitamura and R. Ohtani, "Monte Carlo Simulation of Creep-Fatigue Small Cracks Based on a Three-Dimensional Model of Random Fracture Resistance of Grain Boundaries", Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Ser. A, Vol. 56, No. 524, pp.28-34 (1990).
- 23) K. Fujiyama, "Computer Simulation on Fracture of Engineering Materials at High Temperature, III: Total and/or Remaining Life Assessment of Structural Material", Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 45, No. 1, pp.137-142 (1996).
- 24) Y.-Z. Wang, D. Hardie and R.N. Parkins, "The Behaviour of Multiple Stress Corrosion Cracks in a Mn-Cr and Ni-Cr-Mo-V Steel: III Monte Carlo Simulation", Corrosion Science, Vol. 37, No. 11, pp.1705-1720 (1995).
- 25) M. Kamaya and T. Kitamura, "A Simulation on Growth of Multiple Small Cracks under Stress Corrosion", International Journal of Fracture, Vol. 130, pp.787-801 (2004).
- 26) K. Tohgo and N. Ogai, "Monte Carlo Simulation of Stress Corrosion Cracking in Structural Metal Materials", Key Engineering Materials, Vols. 306-308, pp.447-452 (2006).
- 27) 東郷敬一郎, "材料強度解析学 - 基礎から複合材料の強度解析まで -", 内田老鶴圃 (2004).
- 28) M. Akashi and T. Kawamoto, "Intergranular Stress Corrosion Crack Propagation Behavior of Sensitized Stainless Steels in High Temperature Pure Water", Bosyoku Gijutsu, 32, pp.9-15 (1983).
- 29) Y. Murakami and H. Nishitani, "Stress Intensity Factor for Interaction Two Equal Semi-Elliptical Surface Cracks in Tension", Transaction of Japan Society of Mechanical Engineers, Ser. A, Vol.47, No.415, pp.295-303 (1981).
- 30) H. Kitagawa, T. Fujita and K. Miyazawa, "Small Randomly Distributed Cracks in Corrosion Fatigue", ASTM STP 642, pp.98-114 (1978).
- 31) M. Kamaya and T. Haruna, "Influence of Local Stress on Initiation behavior of Stress Corrosion Cracking for sensitized 304 Stainless Steel", Corrosion Science, 49, pp.3303-3324 (2007).
- 32) 日本原子力発電株式会社ホームページ,  
<http://www.japc.co.jp/news/bn/h11/111210.html>.
- 33) 経済産業省ホームページ,

<http://www.meti.go.jp/report/downloadfiles/g41022b01j.pdf>.

- 34) M. Rivera, S. Bolinger and C. Wollenweber, "Carbonate Cracking Risk Assessment for a FCCU Gas Plant", Corrosion 2004, Paper No.04639, NACE International (2004).
- 35) E. Yamamoto, "Damage to Stainless Steel at Chemical Plants and Countermeasures", Symposium on Recent Progress in Welding Technology from the Viewpoint of Stainless Steels, The Iron and Steel Institute of Japan, pp. 1-10 (2002).
- 36) 安齋英哉, 服部成雄, 青木孝行, 住本秀樹, "BWR 環境下で長期間使用されたニッケル基合金の応力腐食割れ", 材料と環境 2005, 横浜, A-312 (2005).
- 37) M. Takemoto, "Stress Corrosion Cracking in Chemical Plant –The Role of Residual Stresses in Practice–", Journal of The High Pressure Gas Safety Institute of Japan, Vol.20, No.8, pp.415-427 (1983).
- 38) K. Yamauchi, S. Hattori, J. Kuniya and T. Asami, "Methodology for Formulating Predictions of Degradation of Plant Components Induced by Synergistic Effect of Various Influencing Factors", Proceedings of International Symposium on Plant Aging and Life Predictions of Corrodible Structures, T. Shoji and T. Shibata, Eds., JSCE-NACE International, pp.69-77 (1995).
- 39) K. Yamauchi, T. Katori, T. Okazaki and Y. Sakaguchi, "Improvement of Intergranular Stress Corrosion Cracking Resistance of Ni-Cr-Fe alloy 600 by Means of Stabilization Parameter Control", Nuclear Engineering and Design 129, North-Holland, pp.321-330 (1991).
- 40) K. Yamauchi, S. Kimura, T. Katori, K. Sigehiro and T. Shindo, "Analysis of Stress Corrosion Cracking Life Based on Reaction Model", Nuclear Engineering and Design 138, North-Holland, pp.239-249 (1992).
- 41) 日本機械学会「発電用原子力設備規格 維持規格 2004 年版」(2004).
- 42) Task Group on Corrosion Testing and Evaluation, "Evaluation and Performance in Corrosion Engineering (1)", Zairyo, Vol.27, No.299, pp.807-812 (1978).
- 43) T. Haruna and T. Shibata, "Effect of Strain Rate on Initiation and Propagation of Stress Corrosion Cracking for Type 304L Stainless Steel", Zairyo-to-Kankyo, 47, 267-274 (1998).
- 44) T. Shibata, A. Asada and S. Fujimoto, "Evaluation of Stress Corrosion Cracking Susceptibility of Type 304 Stainless Steel by Controlled Potential SSRT", Boshoku Gijutsu, 37, 138-143 (1988).

- 45) T. Enjo, T. Kuroda and Y. M. Yeon, "Stress Corrosion Cracking of SUS304 Stainless Steel in High Temperature Water –Effect of Dissolved Oxygen and Strain Rate–", Quarterly Journal of the Japan Welding Society, Vol. 4, No.1, pp.109-115 (1986).
- 46) T. Shoji, K. Yoshida and S. Mori, "Stress Corrosion Cracking of Ni-based Alloy 600 in Pressurized High Temperature Water", Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Ser. A, Vol. 58, No. 550, pp.980-986 (1992).
- 47) G. Nakayama and M. Akashi, "Effect of Hardness and Test Temperature on the Stress-Corrosion Cracking Susceptibility of Carbon Steel in Simulated BWR Environment", Zairyo-to-Kankyo, 47, pp.180-185 (1998).
- 48) H. Uchida, S. Inoue, H. Tokuhira and K. Koterazawa, "Susceptibility to Stress Corrosion Cracking of SUS304 Steel under Different Stress Conditions", Zairyo, Vol. 43, No. 490, pp.874-880 (1994).
- 49) J. F. Chen, S. Souma, S. Matsuda and K. Sugimoto, "Relationship between Nature of Surface Films and Susceptibility to Intergranular Stress Corrosion Cracking on Sensitized SUS 304 Stainless Steel in High-Temperature Aqueous Solutions", Boshyoku Gijutsu, 38, pp.203-210 (1989).
- 50) S. Takeyama and S. Gohda, "Initiation of Stress Corrosion Cracking of SUS 304 Stainless Steel in Low Concentrated MgCl<sub>2</sub> Solution", Zairyo, Vol. 35, No. 391, pp.381-387 (1986).
- 51) T. Yagasaki, Y. Kimura and T. Kunio, "Dependence of Initial Stress Corrosion Cracking behavior of Austenitic Stainless Steel on Stress Level", Zairyo, Vol. 33, No. 373, pp.1292-1297 (1984).
- 52) S. Kuwano, "Influence of Applied Stress on Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steel", Zairyo, Vol. 27, No. 297, pp.539-544 (1978).
- 53) R. Koterazawa and D. Shimo, "Stress Corrosion Cracking of a SUS304 Stainless Steel in MgCl<sub>2</sub> Solution", Zairyo, Vol. 27, No. 303, pp.1158-1164 (1978).
- 54) S. Kuwano and T. Oki, "Analysis of Fracture Surface in Stress Corrosion Cracking of Austenitic Stainless Steel", Zairyo, Vol. 28, No. 311, pp.731-737 (1979).
- 55) 腐食防食協会編, "材料環境学入門", 丸善(1993)

## 謝辞

本研究を行うにあたり懇切なるご指導，ご助言およびご教鞭を賜った静岡大学工学部機械工学科 東郷敬一郎教授に深謝の意を表す。

本論文を完成するにあたり審査をしていただき，有益なご助言とご教授をいただいた静岡大学工学部機械工学科 鈴木康夫教授，三浦憲二郎教授，坂井田喜久教授に感謝の意を表す。

本研究を行うにあたり有益なご指導とご助言をいただき，また審査をしていただいた静岡大学工学部機械工学科 島村佳伸准教授に深謝の意を表す。

本研究を行うにあたり有益なご指導とご助言をいただいた静岡大学工学部機械工学科 藤井朋之助教ならびに平成 21 年に退官された荒木弘安先生に深謝の意を表す。

本研究の遂行および論文作成の機会を与えていただき，情報の提供やご助言をいただいた株式会社 IHI 基盤技術研究所材料研究部 中山元博士，榊原洋平氏，原子力セクター 平野隆氏に深謝の意を表す。

研究会において有益なご助言とご教授をいただいた腐食センター 辻川茂男東京大学名誉教授，早稲田大学基幹理工学部機械科学・航空学科 酒井潤一教授，株式会社 IHI 基盤技術研究所構造研究部 高梨正祐博士，板橋遊氏に感謝の意を表す。

試験片および試験治具についてご助言や製作をしていただいた静岡大学工学部工作技術センターの職員の皆様に感謝の意を表す。

研究の先輩である小粥宣拓氏，共に研究を行った原木良

輔君，坂田晃一君，植田勇輔君，米澤祐太郎君，劍持明弘君，石塚直宏君ならびに日々の研究において何度となく協力を受けた材料解析分野の皆さんに対し謝意を表する．

本研究の一部は株式会社 IHI との共同研究である．

本研究の一部は特別研究員奨励費(22・6520)の助成を受けたものである．