790. ジルカロイ-2 の応力腐食割れ 進展に関する破壊力学的検討

西村 誠二*, 島田 祥雄*,
永井 将之*, 天野 景隆*, 矢川 元基**

(1983年 9月20日 受理)

(1984年 5月30日 再受理)

Fracture Mechanics Analysis on Stress Corrosion Crack Growth in Zircaloy-2

By Seiji NISHIMURA, Sachio SHIMADA,
Masayuki NAGAI, Kagetaka AMANO and Genki YAGAWA

To predict the response of Zircaloy-2 cladding tube in an iodine environment, a model of the stress corrosion cracking (SCC) process has been developed based on fracture mechanics. At first, SCC tests of Zircaloy-2 plate were performed at 250~390°C in iodine vapor to measure the crack growth rate da/dt and the threshold stress intensity factor for SCC growth K_{ISCC} . Tests were carried out using a WOL (Wedge Opening Loading) fracture mechanics specimen. The da/dt was shown to be $da/dt = CK^n$, where K is the stress intensity factor and C and n are experimental constants. C , n and K_{ISCC} could be expressed as a function of temperature. Secondary, internal gas pressurization SCC tests for Zircaloy-2 cladding tubes were performed at 400°C to measure time to failure at various hoop stresses.

The stress intensity factor of semi-elliptical cracks, which were produced in the cladding tubes, was calculated by a three-dimensional FEM (Finite Element Method) to analyze the crack growth rate as a function of K . Comparison of experimental results with those calculated using the developed SCC fracture process model showed good agreement.

KEYWORDS: Zircaloy-2, cladding tube, stress corrosion crack, iodine, fracture mechanics, stress intensity factor, finite element method, temperature dependence, crack propagation

I. 緒 言

ジルカロイ被覆管のヨウ素による応力腐食割れ(以下, SCC)は軽水炉燃料棒の出力急昇時における破損原因と関連していると考えられており⁽¹⁾⁽²⁾, 燃料棒被覆管に関する重要な研究課題の1つである。

通常ジルカロイ被覆管のヨウ素によるSCC破損は短時間では起こらず, まず亀裂が発生し, 時間とともに安定的に進展して破断に至る過程をとる。したがって, ジルカロイのSCC進展特性を調べることは, 例えば被覆管と燃料ペレットとの相互作用により生じたSCCの進展挙動, すなわち被覆管の破損寿命を予測す

る上で重要である。

SCC進展挙動を解析するには破壊力学的手法を用いる必要がある。破壊力学パラメータとして応力拡大係数 K を用い, ジルカロイのSCC進展特性を調べた結果がすでにいくつか報告されている^{(3)~(6)}。Woodら⁽³⁾は, ジルカロイ-2 冷間圧延材から採取した DCB(Double Cantilever Beam) 試験片を用いて温度 300°C, ヨウ素濃度 1 atm で試験を行なっている。そしてこの結果を

* 日本核燃料開発(株)(Nippon Nucl. Fuel Development Co., Ltd.)

** 東京大学工学部原子力工学科(Dept. of Nucl. Eng., Univ. of Tokyo)

もとに, Kreynsら⁽⁶⁾はSCC 進展速度が K の4乗に比例することを示している。一方, Videmら⁽⁵⁾⁽⁶⁾は疲労亀裂付きジルカロイ-2被覆管を用い, 温度340°C, ヨウ素濃度1 mg/cm³で試験を行い, SCC 進展速度が K の9乗に比例するとしている。また Norringら⁽⁷⁾は, 疲労亀裂付きジルカロイ-2被覆管を用いて温度300°C, ヨウ素濃度0.6 mg/cm³で試験を行い, K の大きさによってSCC 進展速度の K 依存性が異なることを示している。

上述のように, 従来の研究は材質, 試験方法のほかに試験温度およびヨウ素濃度が異なり, しかもSCC進展特性に影響を及ぼすと考えられる試験温度, およびヨウ素濃度の影響についてはあまり調べられていない。ただ, ヨウ素濃度が0.1mg/cm²以上ではジルカロイのSCC感受性が飽和することが知られており⁽⁸⁾, SCC進展特性もこのヨウ素濃度以上の範囲ではほとんど変わらないであろう。したがって, ジルカロイのSCC進展特性に及ぼす温度の影響を調べておくことは, 燃料被覆管の破損を予測するためにも重要と考えられる。

Kreynsら⁽⁶⁾および Shannら⁽⁹⁾は, K とSCC 進展速度の関係を用いて被覆管のSCC破損モデルを提案し, パラメータを適切に選べば実験結果と比較的よく一致することを示している。しかしこれらのモデルでは, 被覆管にある特定形状の亀裂が生じたものと仮定した場合の K の値が用いられており, 実際に被覆管に生じた亀裂の K の値とは異なると思われる。したがって, このようなモデルは被覆管のSCC破損特性を正しく表わしていないことが推測される。

上記の状況に鑑み, 本研究ではジルカロイ-2のSCC進展特性を明らかにするため, WOL (Wedge Opening Loading)試験片を用い, 高温ヨウ素蒸気中で温度を250~390°Cに変えてSCC試験を行なった。さらに, 内圧加圧法によるジルカロイ-2被覆管のSCC試験を行い, 3次元有限要素法(以下, FEM)によって実際に被覆管に生じたSCCの K の解析を行なった。そして, この結果をもとに被覆管の亀裂進展速度を K の関数として表わし, 被覆管のSCC破損解析を試みた。

II. 実 験

1. 供 試 材

本研究ではジルカロイ-2圧延材とジルカロイ-2被覆管を試験に用いた。圧延材は鍛造後1,060°Cで4h加熱後水冷して溶体化処理し, 750°Cで熱間圧延を行い, 680°Cで4h焼鈍を行なった板材である。被覆管は400°Cで4h熱処理を行なった応力除去焼鈍(SR)材である。ジルカロイ-2圧延材とジルカロイ-2被覆

管の化学成分および室温における機械的性質をそれぞれTable 1, 2に示す。化学成分は圧延材と被覆管ではほぼ同じであるが, 機械的強度は熱処理温度に依存するため, 被覆管の方が圧延材よりも高くなっている。圧延材からはWOL試験片を, 被覆管からは内圧加圧用試験片を切り出し, それぞれSCC試験に供した。圧延材と被覆管の極点図をFig. 1 (a), (b)に示す。圧延材

Table 1 Chemical composition of Zircaloy-2

Specimen	O	Sn	Fe	Cr	Ni	N	H
	(ppm)	(%)				(ppm)	
Plate	1,355	1.48	0.17	0.09	0.05	25	8.5
Cladding tube	1,230	1.51	0.15	0.10	0.05	39	5.0

Table 2 Mechanical properties of Zircaloy-2 at room temperature

Specimen	Yield stress (MPa)	Ultimate tensile stress (MPa)	Elongation (%)
Plate	435	586	23.9
Cladding tube	821	849	12.5

(a) Plate

(b) Cladding tube

Fig. 1(a), (b) Basal pole figures of Zircaloy-2

では最密六方晶の〈c〉軸方向が板の表面に垂直な方向に対して約25°, 被覆管では半径方向に対して25~30°傾いており, 両材料ともほぼ同じ集合組織を有している。

2. ジルカロイ-2 圧延材の SCC 試験

試験にはFig. 2に示すWOL試験片を採用した。試験片の厚さは10mm, 荷重点からの初期亀裂長さ a_0 は19.6mmである。試験片は同図に示すように圧延方向に亀裂が進展するように採取した。

$a_0 = 19.6$ mm, $C_1 = 16.5$ mm, $W = 64.8$ mm

Fig. 2 Orientation and dimensions of WOL specimen

試験は ASTM-E24 委員会の方法に準じて行なった⁹⁾。すなわち, ボルトを用いて試験片に荷重を負荷し, 試験片の切欠端面(Fig. 2の左端)に取り付けたクリップ・ゲージを用いて変位を測定して, この変位の値から後述の計算式を用いて荷重荷重を算出した。ボルトはハロゲンに対して不活性な Mo を含んだ工具鋼を用いた。試験片をヨウ素とともにパイレックス容器

に封入し, 真空中に引いたあと Ar ガスを満たしてバルブを締め, 所定の温度にあらかじめ保ってある高温炉に入れた。試験装置の概要をFig. 3に示す。

試験は250, 300, 350, 390°Cの4温度で行なった。ヨウ素濃度は 1.5 mg/cm^2 (12 mg/cm^2)*とした。なお, ヨウ素濃度が約 0.1 mg/cm^2 以上では SCC 感受性はほぼ一定となることが知られている¹⁰⁾。

試験の途中でパイレックス容器から試験片を取り出して試験片表面から腐食生成物を取り除いた後, 万能投影機で試験片両表面の亀裂長さを測定した。パイレックス容器を洗浄乾燥し, 再び試験片を所定のヨウ素とともに封入して, 上記の手順に従い試験を続行した。

亀裂長さ a のときの応力拡大係数 K は次式を用いて求めた⁹⁾。

$$K = \frac{P\sqrt{a}}{BW} f(a/W) \quad (1)$$

ここで,

$$P = \left[\left(\frac{a_0}{a} \right) \left(\frac{a+C_1}{a_0+C_1} \right) \right] \frac{EBV_0}{g(a/W)}$$

B : 試験片の厚さ

W : Fig. 2の右端から荷重点までの距離

C_1 : Fig. 2の左端から荷重点までの距離

a_0 : 初期亀裂長さ

V_0 : Fig. 2の左端における初期開口変位

E : ヤング率

P : 亀裂長さ a のときの荷重

$$f(a/W) = 30.96 - 195.8(a/W) + 730.6(a/W)^2 - 1186.3(a/W)^3 + 754.6(a/W)^4$$

$$g(a/W) = \exp[4.495 - 16.130(a/W) + 63.838(a/W)^2 - 89.125(a/W)^3 + 46.815(a/W)^4]$$

温度 T (K)におけるヤング率 E (GPa)の値は次式を用いて求めた¹⁰⁾。

$$E = 97.08 - 0.058(T - 273) \quad (2)$$

3. ジルカロイ-2 被覆管の SCC 試験

ジルカロイ-2 被覆管のヨウ素による SCC 試験には, Ar による内圧加圧方式を用いた。被覆管は, 内径 10.80 mm, 肉厚 0.86 mm であり, すべて同一ロットから製造された管である。長尺管から長さ60 mmの試

Fig. 3 Schematic of SCC test apparatus for WOL specimen

* ジルカロイはパイレックス容器(パイレックスとステンレス鋼)よりも相当反応性強いいため, ここではヨウ素封入量を試験片表面積のみで除した値を示した。

験片を切り出し、Fig. 4に示したように中央部の外表面を長さ10mmにわたって削った部分減肉管も試験片として使用した。試験片の肉厚 T をパラメータとし、元の厚み0.86mmに加えて、0.80, 0.70, 0.50, 0.30 mmの計5種類を選んだ。

L and D_1 are 10 and 10.8 mm, respectively, and D_0 is a parameter (see text).

Fig. 4 Schematic of cladding tube specimen

ヨウ素濃度が 0.55 mg/cm^2 となるようにヨウ素を被覆管内に入れて、スウェーロックで管両端をシールした後(Fig. 4), Fig. 5に示すように加圧系に取り付けた。続いて試験片内の空気をArで置換し、所定の試験温度 400°C に昇温した後、高圧Arにより内圧を負荷した。

本試験では、Ar加圧により被覆管内表面に生じる円

Fig. 5 Schematic of internal gas pressurization SCC test apparatus

周方向最大応力 σ_H が、それぞれ 294, 267, 241 MPa になるような V1, V2, V3 の3つのシリーズのSCC試験を行なった。各シリーズのSCC試験に用いた減肉管の種類およびそれに対応する負荷圧力をTable 3にまとめて示す。

Table 3 Applied internal pressures corresponding to wall thicknesses and test series

Wall thickness (mm)	Series (Max. hoop stress, MPa)		
	V1 (294)	V2 (267)	V3 (241)
0.86	43	39	35
0.80	40	—	—
0.70	36	32	29
0.50	26	24	21
0.30	16	14	13

肉厚 T に応じて内圧を変えたときの半径方向の応力分布を、V1シリーズを例にとってFig. 6に示す。この図から、同一試験シリーズの被覆管においては、肉厚 T が異なっても応力分布はほとんど同じであり、特に内表面近傍においては全く一致しているとみなせることがわかる。被覆管に負荷した内圧は試験片が破損するまで一定に保持し、応力と破損時間の関係を求めた。本試験では、SCCが被覆管肉厚を貫通してArが漏洩し、内圧が下がり始めた時点で被覆管は破損したものと定義した。また試験後の試験片の中からいくつかを選び、破面の走査型電子顕微鏡(Scanning Electron

IR: Inner radius

Fig. 6 Distribution of hoop stress for V1 series specimens

Microscope, SEM) 観察により破面の特徴や形状を, また金相観察により未貫通亀裂深さの分布を調べた。

Ⅲ. 実験結果および考察

1. ジルカロイ-2 圧延材の SCC 試験

WOL 試験片による試験は, 亀裂が進展するに従って K が減少する, いわゆる応力拡大係数減少型の SCC 試験である。したがって, 一たん発生した SCC は徐々に進展速度が遅くなり, 最終的には進展しなくなる。例として, Fig. 7 に 390°C における亀裂長さ a と試験時間 (h) との関係を示す。この場合の初期応力拡大係数 K_i は $18 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ である。SCC は約 70 h の潜伏期間の後に発生し, 進展を開始した。上述したように亀裂の進展初期には進展速度は速いが, 亀裂長さが長くなるに従い遅くなり, 試験開始後約 300 h で SCC はほとんど進展しなくなった。

Initial crack length a_0 is 19.6 mm and initial stress intensity factor K_i is $18 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$.

Fig. 7 Crack length a as a function of time for WOL specimens at 390°C

各試験温度における SCC 進展速度 da/dt と K の関係を両対数グラフにプロットしたのが Fig. 8 である。図から明らかなように, SCC 進展の下限界応力拡大係数 K_{1800} は温度によって大きく変化し, 温度が高くなるに従い減少する。また, いずれの温度においても K が K_{1800} よりも大きい範囲では, K の増加に伴って da/dt は単調に増加する傾向がみられる。

Fig. 9 は K_{1800} の温度依存性を表わしたもので, 試験温度の逆数 $1/T (\text{K}^{-1})$ と $K_{1800} (\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$ の対数をとって示したものである。同図中には Cubicciotti ら⁽¹¹⁾ が本試験と同じジルカロイ-2 圧延材について WOL 試験片を用いて求めた結果 (●印) も同時にプロットしており, 本試験結果とよく一致している。 $\log K_{1800}$ は $1/T$ に比例し, したがって K_{1800} は (3) 式によって表わすことができる。

$$K_{1800} = K_0 \exp(Q_1/T) \quad (3)$$

ここに, K_0 , Q_1 は実験定数であり, 本試験の場合 $K_0 = 0.280$, $Q_1 = 2,300$ であった。Zr のヨウ素による SCC において, 同じ K の値で比較した場合, 亀裂進展速度が温度によって変わることは示されているが⁽⁶⁾, K_{1800} の温度依存性についてはまだ実験データが少なく, 明らかになっていない。本試験によってこの点を定量的に示すことができた。

Zr 合金の SCC の場合, 亀裂進展速度 da/dt と K の関係は次式によって表わされることが多くの研究者によって示されている⁽⁴⁾⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽¹²⁾。

$$\frac{da}{dt} = CK^n \quad (4)$$

Fig. 8 Relation between stress corrosion crack growth rate da/dt and stress intensity factor K for Zircaloy-2 plate at various temperatures

Fig. 9 Temperature dependence of K_{1800} for Zircaloy-2 plate (●: Ref. (11))

ただし、 C , n は実験定数である。Fig. 8 から、本試験の場合も K が K_{1800} よりも大きい範囲では da/dt と K との関係はほぼ (4) 式によって表わされることがわかる。各試験片ごとの定数 n と C の値を最小自乗法により求め、横軸に温度の逆数 $1/T$ (K^{-1}) をとってプロットしたのが Fig. 10(a), (b) である。 $\log n$ および $\log C$ と $1/T$ の間には直線関係が成立ち、 n および C は次式によって表わされる。

$$n = n_0 \exp(Q_2/T) \quad (5)$$

$$C = C_0 \exp(Q_3/T) \quad (6)$$

ただし、 n_0 , Q_2 , C_0 , Q_3 は実験定数で、本試験の場合 $n_0 = 2,290$, $Q_2 = -3,290$, $C_0 = 3.60 \times 10^{-20}$, $Q_3 = 62,000$ であった。

(a) Constant n (b) Constant C

Fig. 10(a), (b) Temperature dependency of experimental constant n and C for Zircaloy-2 plate

2. ジルカロイ-2 被覆管の SCC 試験

V1, V2, V3 の各 SCC 試験シリーズで得られた負荷応力と破損時間との関係を Fig. 11(a)~(c) に示す。

(a) V1 series

(b) V2 series

(c) V3 series

The maximum hoop stresses of V1, V2 and V3 series are 294, 267 and 241 MPa, respectively.

Fig. 11(a)~(c) Results of SCC tests

各シリーズとも、肉厚にあまり関係なく破損時間のバラツキは大きい。また、試験片は大部分がピンホールにより破損した。破損後の試験片の貫通亀裂および未貫通亀裂のSEM観察により、亀裂の進展に伴う亀裂形状の変化を調べた。その結果、亀裂の形状はほぼ半楕円形で近似できることがわかったため、亀裂の内表面における軸方向の長さ $2c$ と亀裂深さ a とを測定し、亀裂の進展に伴い楕円の長軸と短軸の比 a/c がどのように変化していくかを求め、Fig.12に示す。この図から、亀裂が発生した時点では a/c は約0.6であるが、亀裂が深くなるにつれて次第に軸方向に細長くなって a/c は小さくなり、 a が0.25 mm以上では a/c はほぼ一定の値(約0.3)になることがわかる。

Fig. 12 Change in a/c ratio as a function of crack depth

次に、V1, V2, V3の各SCC試験シリーズの中から、肉厚 T が0.86 mmについて比較的破損時間の短いものと長いものとを2本ずつ選び、金相観察により破損部横断面の未貫通亀裂深さの分布を測定した。その結果をFig. 13に示す。V1, V2, V3の各シリーズの試験片の内表面における応力 σ_H はそれぞれ294, 267, 241 MPaである。また、亀裂深さを測定した試験片の破損時間はV1シリーズが3.4と7.0 h, V2シリーズが8.2と18.2 h, V3シリーズが24.5と60.5 hである。同図より、 σ_H の減少に応じて深さが60 μm 以下の亀裂の総数も133, 64, 58個と減少する傾向を見せているが、Fig. 13に示したように未貫通亀裂の分布の形はいずれもよく似ており、深さが40~50 μm を超すと亀裂の数は急激に減る傾向を示している。なお、肉厚 T が0.86 mm以外に減肉した試験片についても亀裂深

さを測定した。その結果、亀裂の数は減少していたが、 T が0.86 mmの場合と同様、負荷応力および破損時間の差による未貫通亀裂深さの分布の違いはあまり認められなかった。

Fig. 13 Distribution of incipient crack depth

Fig. 11に示したように、破損時間のバラツキはかなり大きい。この原因としてミクロ的な金属組織のバラツキが、SCC亀裂進展速度に影響を及ぼしたことが考えられる。一方、後述するようにSCC破損過程は亀裂の発生と進展に分けられる。亀裂発生初期にはFig. 13から判断して金属組織のバラツキが亀裂深さの差として現れたものと考えられる。しかし、一たん亀裂が発生すると亀裂進展速度は K の値、すなわち亀裂深さに支配され、金属組織はあまり影響しない。いいかえると、ミクロ的な金属組織はSCC亀裂の発生には影響するが進展にはあまり影響しないものと考えられる。なお、SEMによる破面観察では、破面はすべて冷間加工材や応力除去焼鈍材のSCC破面と同様な粒内割れ⁽¹³⁾から始まっており、初期欠陥等の異常は観察されなかった。

Ⅳ. 被覆管における SCC 亀裂進展の解析

1. 実験データの整理

被覆管のSCC試験で得られた破損時間はFig. 11に示したようにバラツキが大きいため、各肉厚における破損時間の平均値を求め、Fig.14(a)~(c)に示すようにデータを整理し直した。さらに最小自乗法により、破損

(a) V1 series

(b) V2 series

(c) V3 series

Curves are derived by the least square fitting method.

Fig.14(a)~(c) Averaged relation between wall thickness and time to failure

時間 t と肉厚 T を、 $t = a_0 + a_1 T + a_2 T^2$ にフィッティングしてFig. 14中に実線で示した。一方、亀裂が被覆管内表面に発生して外表面に達する過程を、Fig.15(a)~(c)に模式的に示すように発生領域と進展領域に分けて考えると、一般に亀裂進展領域の進展速度は発生領域のそれに比べてかなり速いといわれている²⁾。したがって、発生領域のいくつかの亀裂のうち1つが進展領域まで伸びれば、その亀裂は比較的短時間に外表面に達し、残りの亀裂の大部分は発生領域にとどまっていると考えてよいであろう。すなわち、Fig. 11に示した破損時間の短いデータは微小亀裂のうちたまたま深い亀裂があり、短時間で亀裂進展領域に達して破損したもので、破損時間の長いデータはその反対に微小亀裂は発生したもの、特に深い亀裂はなかったものと考えられる。また、Fig. 13に示した金相観察の結果からみて、亀裂の発生領域と進展領域の境界 a_i の深さは本実験の場合、負荷した内圧の違いによらず $40 \sim 50 \mu\text{m}$ 程度と考えるのが妥当と思われる。そこで以下の解析では、各SCC試験シリーズとも共通に $a_i = 43 \mu\text{m}$ 、すなわち本研究で用いたジルカロイ-2被覆管肉厚 0.86 mm の5%として、議論を進めることにした。また、

a_i : Boundary between initiation and propagation region

Fig.15(a)~(c) Schematic model for SCC crack initiation and propagation

Fig. 14(a)~(c)において、 a_i に相当する時間をそれぞれ各シリーズにおける亀裂進展開始時間 t_i とした。肉厚0.86mmの試験片の平均破損時間を t_f とすると、亀裂の進展時間 t_p は(7)式で与えられる。

$$t_p = t_f - t_i \quad (7)$$

2. 応力拡大係数の解析

亀裂進展速度の定式化に必要な応力拡大係数 K を、3次元FEMコード⁽¹⁴⁾により求めた。解析の対象とした被覆管の肉厚 T は0.86mm、亀裂の形状は、Fig. 12に示した亀裂深さ a と a/c との関係を用いた。被覆管肉厚 $T=0.86$ mmに対する a の比 a/T が、0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8のときの亀裂先端に沿った K の解析結果をFig. 16に示す。この図において、 K の値は亀裂深さ $a=1$ mmの半円形の亀裂(Penny Shaped Crack)に対する解

$$K_A = \frac{0.6202}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{P_i \bar{r}}{T} \sqrt{1} \quad (8)$$

ここで、 K_A : 応力拡大係数 ($\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$)

P_i : 内圧 (MPa)

$\bar{r}$: 平均半径 (mm)

T : 肉厚 (mm)

で無次元化してある。亀裂深さが浅い間は、 K の値は被覆管内表面($\theta=0^\circ$)でやや大きい、亀裂が深くなるにつれて亀裂最深部($\theta=90^\circ$)での値が次第に大きくなっていく傾向を示している。

亀裂進展速度の解析には、亀裂最深部での K が重要

The ordinate is normalized to the solution of a penny shaped crack.

Fig. 16 Stress intensity factor K analyzed with three-dimensional FEM code

であるため、亀裂深さ a の肉厚 T ($T=0.86$ mm)に対する比 a/T が増加していくに従い、亀裂先端部での K がどのように増加していくかをFig. 17に示す。この図においても応力拡大係数 K は、 K_A で無次元化してある。亀裂最深部の K は、亀裂が深くなるにつれてほぼ直線的に増加している。Fig. 17の解析点を最小自乗法によりフィッティングし、 K/K_A の値を a/T ($=w$)の関数

$$\frac{K}{K_A} = f(w) \quad (9)$$

で表わして、亀裂進展速度および亀裂進展時間の計算に供した。

Fig. 17 Increase of K , at deepest point of crack, with growth of SCC cracking

3. 亀裂進展速度式の導出

Fig. 14に示したSCC試験結果およびFig. 17に示した K の解析結果を用いて、亀裂進展速度の定式化を行なった。本試験では、ほぼ同じ化学成分を有する被覆管と圧延材を用いており、化学的要因に基づく亀裂進展特性の差異はないであろう。ただ被覆管と圧延材とは製法、集合組織に対する負荷応力方向の違いあるいは機械的強度が異なるため、同じ K の値で比較した場合、亀裂進展速度に差が生じるものと思われるが、亀裂進展速度式そのものの形式は変わらないものと考えられる。そこで、第Ⅲ章で述べたように、ジルカロイのヨウ素によるSCC進展速度は(4)式で表示できるため、同式を用いて解析を行い、実験定数 C と n の値を求めることにした。肉厚 $T=0.86$ mmの被覆管に一定の内圧 P_i を加えたとき、(8)、(9)式より K は a (または w)のみの関数であるため、(7)、(4)式より

$$\frac{1}{C} \int_{a_i}^T \frac{da}{K^n} = \int_{t_i}^{t_f} dt = t_f - t_i = t_p \quad (10)$$

と表わせる。一方、 K は(8),(9)式からわかるように内圧に比例するため、

$$K = K' P_i \quad (11)$$

と分離することができる。 K' は $\bar{\sigma}$, T , a の関数であり、 P_i には依存しない。したがって、V1, V2, V3シリーズの肉厚 $T = 0.86 \text{ mm}$ の被覆管に加えた内圧をそれぞれ P_1, P_2, P_3 (Table 3), 亀裂進展時間をそれぞれ $t_{p,1}, t_{p,2}, t_{p,3}$ とおくと、(10), (11)式から

$$t_{p,1} = \frac{1}{C} \int_{a_i}^T \frac{da}{(K' P_1)^n} = \frac{1}{C} \cdot \frac{1}{P_1^n} \int_{a_i}^T \frac{da}{K'^n} \quad (12)$$

同様にして、

$$t_{p,2} = \frac{1}{C} \cdot \frac{1}{P_2^n} \int_{a_i}^T \frac{da}{K'^n} \quad (13)$$

$$t_{p,3} = \frac{1}{C} \cdot \frac{1}{P_3^n} \int_{a_i}^T \frac{da}{K'^n} \quad (14)$$

(12)~(14)式において、 C , n および積分値は同じ値を持つため、

$$\frac{t_{p,2}}{t_{p,1}} = \left(\frac{P_1}{P_2} \right)^n \quad (15)$$

$$\frac{t_{p,3}}{t_{p,1}} = \left(\frac{P_1}{P_3} \right)^n \quad (16)$$

が成り立つ。Fig. 14より求めた $t_{p,1}, t_{p,2}, t_{p,3}$ の値およびTable 3に示した P_1, P_2, P_3 の値を上式に代入し、 n の値として(15), (16)式よりそれぞれ11.1, 9.1が得られた。SCC試験のデータのバラツキ(Fig. 11)を考えるならば、(15), (16)式からそれぞれ得られた n の値の一致は満足できるものであろう。そこで両者の平均値をとり、 n の値として10を用いることにした。続いて、 $n=10$ および(8),(9)式を(12)~(14)式に代入して積分を実施し、さらにFig. 14から求めた $t_{p,1}, t_{p,2}, t_{p,3}$ の値を用いて C を計算した。その結果、(12)~(14)式より C の値としてそれぞれ $1.8 \times 10^{-7}, 1.7 \times 10^{-7}, 2.3 \times 10^{-7}$ が得られた。これらの値も比較的良好一致を示しているため、 C の値として、これらの平均値 $C = 1.9 \times 10^{-7}$ を採用した。すなわち、今回の試験条件では、被覆管のSCC進展速度 da/dt (mm/min) は、応力拡大係数 K (MPa $\sqrt{\text{m}}$) を用いて、

$$\frac{da}{dt} = 1.9 \times 10^{-7} K^{10} \quad (17)$$

と表わすことができる。

4. 結果の検討

応力腐食割れ進展速度として(17)式が得られたた

め、(17)式と(9),(11)式から亀裂進展時間 t_p を計算し、試験データと比較してFig. 18に示す。亀裂進展開始時間は応力の関数として考え、Fig. 14から求めた値を最小自乗法によるフィッティングで求めて破線で示してある。破損時間 t_f を示す曲線は、破線で示した t_i に計算から出した t_p を加えて求めたものである。Fig. 18において、データ点と解析から得られた曲線とは十分満足できる精度で一致しており、応力が241~294 MPa,あるいは平均破損時間が約5~30 hにわたる領域でのSCC進展速度が、1つの式(17)式で整理できることが示された。したがって、未照射の応力除去焼鈍材からなるジルカロイ被覆管のヨウ素によるSCC進展速度は、応力拡大係数 K を用いて一般に(4)式で整理できると考えられる。

Open circles denote the initiation time, and solid ones the time to failure.

Fig. 18 Comparison between calculated crack growth and experimental data

一方、亀裂進展速度の解析で用いた亀裂進展開始深さ a_i (Fig. 15) と K の解析結果 (Fig. 17) とから亀裂進展開始速度を求めると、およそ $1 \times 10^{-5} \text{ mm/min}$ 程度の値が得られる。この値は WOL 試験片によって得られた亀裂進展開始速度 (Fig. 8) とほぼ一致しており、 a_i の値が妥当であることを示唆しているといえよう。ただし、WOL 試験片から得られた約 400°C における K_{1800} がおよそ $8 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ であるのに対し、被覆管の解析からは約 $2 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ の低い値が得られた。このような差は、Table 2 に示した両材料の機械的性質の違いのほかに、圧延材と被覆管の製法の違い、あるいは集合組織に対する負荷応力方向の違い⁽¹⁵⁾ などによって現れたものと考えられる。

なお、Fig. 11 からわかるように、被覆管のSCC破損時間にはかなりのバラツキが認められる。本研究はこのようなバラツキのある現象を整理し、平均的な傾向

を工学的に把握することを試みたものであるが、このような現象を詳しく解析するためには確率論的取扱いが必要であろう。著者らの一人はジルカロイ-2被覆管の SCC 発生現象を確率論的にとらえ、SCC 発生時間がワイブル分布に従うことを示している⁽¹⁶⁾。将来は SCC 発生および進展を含めた確率論的評価が必要となる。

V. 結 論

- (1) ジルカロイ-2 圧延材を用いた高温ヨウ素中で SCC 試験により、応力拡大係数 K を用いて SCC 進展速度を評価し、以下の結果を得た。

- (a) SCC 進展速度の下限界応力拡大係数 K_{1800} は、温度の上昇とともに小さくなり、 K_{1800} ($\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$) と温度 T (K) との関係は、次式により表わされる。

$$K_{1800} = K_0 \exp(Q_1/T)$$

ただし、 K_0, Q_1 は実験定数であり、本実験の場合、 $K_0 = 0.280, Q_1 = 2,300$ であった。

- (b) SCC 進展速度 da/dt (mm/min) は、次式により表わされる。

$$\frac{da}{dt} = CK^n$$

ここで、 C, n は次式で示すように温度 T (K) の関数である。

$$n = n_0 \exp(Q_2/T)$$

$$C = C_0 \exp(Q_3/T)$$

実験定数である n_0, Q_2, C_0, Q_3 は、本実験の場合それぞれ $n_0 = 2,290, Q_2 = -3,290, C_0 = 3.6 \times 10^{-60}, Q_3 = 62,000$ であった。

- (2) ジルカロイ-2 被覆管を用いた内圧加圧方式による SCC 試験結果と、被覆管に生じた SCC 最深处での応力拡大係数 K の 3 次元 FEM コードによ

る解析結果とを組み合わせる SCC 進展速度を定式化した。FEM コードによる K の解析結果は、亀裂最深部の K が亀裂の進展に伴いほぼ直線的に増加することを示した。圧延材を用いた WOL 試験により SCC 進展速度式が $da/dt = CK^n$ で表わされることが確認されたため、同式を用いて定数 C, n を決め、 K の解析結果と組み合わせる SCC 進展時間を計算し、実験結果と比較した。その結果、本研究により得られた計算式は実験結果をよく表現できることが明らかになった。

本研究に当り、被覆管内の半楕円形亀裂先端の応力拡大係数の解析をして頂いた東京大学大学院生の石原広一郎氏に深く感謝する。

— 参考文献 —

- (1) ROBERTS, J.T.A., JONES, R.L., CUBICCIOTTI, D., MILLER, A.K., WACHOB, H.F., SMITH, E., YAGGEE, F.L.: *ASTM STP* 681, 285 (1979).
- (2) PEEHS, M., STEHLE, H., STEINBERG, E.: *ibid.*, 244.
- (3) WOOD, J.C., SURETTE, B.A., LONDON, I.M., BAIRD, J.: *J. Nucl. Mater.*, 57, 155 (1975).
- (4) KREYNS, P.H., SPAHR, G.L., MCCAULEY, J.E.: *ibid.*, 61, 203 (1976).
- (5) VIDEM, K., LUNDE, L.: 文 献(1), 229.
- (6) VIDEM, K., LUNDE, L.: *J. Nucl. Mater.*, 87, 259 (1979).
- (7) NORRING, K., HAAG, Y., WIKSTROM, C.: *ibid.*, 105, 231 (1982).
- (8) SHANN, S., OLANDER, D.R.: *Nucl. Technol.*, 53, 407 (1981).
- (9) ASTM, E24-04 and G1-06, (1975).
- (10) ROSINGER, H.E., NORTHWOOD, D.O.: *J. Nucl. Mater.*, 79(1), 170 (1979).
- (11) CUBICCIOTTI, D., JONES, R.L.: *EPRI NP-717*, (1978).
- (12) PETTERSSON, K.: *J. Nucl. Mater.*, 107, 117 (1982).
- (13) SHIMADA, S., MATSUURA, T., NAGAI, M.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 20(7), 593 (1983).
- (14) 石原広一郎, 矢川元基: 機械学会講演論文集, No. 830-2, 44 (1983).
- (15) KNORR, D.B., PELLOUX, R.M.: *Metall. Trans. A*, 13A, 73 (1982).
- (16) SHIMADA, S., NAGAI, M.: *Reliability Eng.*, 9, 19 (1983).

文部省学術用語集(第4版)
原子力工学編

A 5 判, 282p. (1978), 本会発行。
定価 1,700円(会員特価 1,530円)・千300円

ご希望の方は学会事務局へ。

「59年秋の分科会」予稿集

第Ⅱ分冊(保物, 燃料・材料, 化学・化工)
売切れ

残部僅少

第Ⅰ分冊(炉物理・炉工学) 338p.

定価 3,500円(千350円)

ご希望の方は学会事務局へ。