

JAERI-M
82-036

クリープ破断強さに及ぼす
環境効果の解析的評価

1982年4月

田村 学^{*}・小川 豊・倉田有司・近藤達男

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)高野高速印刷

クリープ破断強さに及ぼす環境効果の解析的評価

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

田村 学^{*}・小川 豊・倉田 有司・近藤 達男

(1982年3月25日受理)

材料のクリープ特性を腐食性の環境下で評価する際に、その環境との反応によって形成される変質部も構造材料の強度の一部をなうこと仮定して、クリープ破断強さに及ぼす環境の影響を半定量的に検討した。

評価式の導入において、クリープ強さの複合則と線型損傷則が成立する場合を考えた。基本的な状況設定として変質部と健全部に並列に負荷するモデルと直列に負荷するモデルに対して評価式を求めた。

インコロイ800合金でクリープ中に大気中の窒素を吸収して強化する現象は並列負荷モデルの式によって説明できた。直列負荷モデルの評価式は、異材溶接継手の強度および試験片の寸法効果を評価するのに適するものと考えられた。

一つの応用として高温ガス炉用不純ヘリウム中の酸化とともに形成される脱Cr層によるハステロイXR合金の長時間クリープ破断強さの低下を推定し、いくつかの実験結果と比較した。

* 外来研究員；日本钢管株式会社

Analytical Evaluation of the Environment Effect on Creep Rupture Strength

Manabu TAMURA*, Yutaka OGAWA, Yuji KURATA and Tatsuo KONDO
Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received March 25, 1982)

An analytical approach was made in evaluating semi-quantitatively the effect of environment on rupture strength of materials. In the analysis the zone formed in the material by reaction with the environment was assumed to bear the applied load as one of the strength members. In calculations a law of mixtures of creep strength and the linear damage rule were applied. In the modeling of the load bearing by the composite structure of the environment-affected and intact zones, both parallel and series models were considered to formulate the equations.

The equation for the parallel-loaded model was properly adopted in explaining semi-quantitatively the case of Incoloy alloy 800 crept in air, which was strengthened with the layer formed by nitrization. The equation for the serially loaded model was more successfully adopted to the evaluation of the rupture strength of dissimilar weld joints. The latter was also considered to be potentially adoptable to the problems of the effect of specimen size and shape on rupture strength, which had been often taken into account in evaluating the environment effect.

For application of the developed method, examination was made to the possible decrease in rupture strength of Hastelloy alloy XR in long term tests by the formation of Cr depleted zone due to oxidation in HTGR impure helium, and the results were compared with the values obtained by experiments.

Key words: Environment Effect, Creep Strength, Evaluation, Law of Mixtures
Linear Damage Rule, Dissimilar Weld Joint, Size Effect,
Alloy 800, Hastelloy XR, Impure Helium, Nitrization

* On leave from Nippon Kokan K.K.

目 次

1. 緒 言	1
2. 複合則による解析	1
2.1 並列モデル	1
2.2 直列モデル	2
2.3 計算例	3
2.4 時間依存のクリープ強さの複合則	3
3. 解析に対する実験的検討	4
3.1 供試材	4
3.2 インコロイ 800 合金の窒化による強化	4
3.3 クリープ強さに及ぼす試料寸法の効果	5
4. ハステロイ X R 合金の不純ヘリウム中のクリープ強さ	6
4.1 はじめに	6
4.2 実験方法	6
4.3 実験結果と考察	7
4.4 構造物の強度の控目な推定	8
5. まとめ	9
参 考 文 献	10

CONTENTS

1.	INTRODUCTION	1
2.	ANALYSIS BASED ON LAW OF MIXTURES	1
2.1	Parallel model	1
2.2	Series model	2
2.3	Examples of calculation	3
2.4	Time dependent law of mixtures of creep strength	3
3.	EXPERIMENTAL VERIFICATION FOR ANALYSIS	4
3.1	Material	4
3.2	Strengthening by nitridation of Incoloy 800	4
3.3	Effect of specimen size and shape on creep strength	5
4.	CREEP STRENGTH OF HASTELLOY XR IN IMPURE HELIUM	6
4.1	Introduction	6
4.2	Experimental methods	6
4.3	Experimental results and discussion	7
4.4	Conservative evaluation of creep strength of structural components	8
5.	SUMMARY	9
	REFERENCES	10

1. 緒 言

高温の腐食環境における構造材の開発のためには長時間のクリープ強さに及ぼす環境効果を推定する数式が必要となる。砂本¹⁾、庄子²⁾および Grünling³⁾らは腐食によって減肉が起こるとの前提で重油燃焼ガス中におけるクリープ強さを表わす式を導いた。柚原⁴⁾は液体 Na中において全断面積にわたって均一に脱炭が起こると仮定して 2.25 Cr-1 Mo鋼 のクリープ強さの推算式を導いた。高温ガス炉 (HTGR)近似のヘリウムガス環境では腐食減肉はあまり顕著ではないが、酸化膜直下に脱炭、脱Cr または無析出帯などの変質層が形成されている⁵⁾。この変質層はかなりの深さまで成長するので、部材の強度を考える上で無視できなくなると考えられる。本報告では変質部を強度部材の一部と考え、かつ材料を評価するという立場に立って、短時間のクリープ破断データおよび比較的豊富に得られている腐食データを基にして、環境下のクリープ強さの評価式を与えることを試みる。

なお、本テーマの解析に関する部分については、既に、詳しく報告した^{6), 7)}ので本報告では、要点だけを述べるにとどめるが、その後得られた実験結果を基にして、環境効果の評価式の検討を行なう。

2. 複合則による解析

2.1 並列モデル

腐食が進行中の材料を変質部と健全部の複合体とみなせば、繊維強化材⁸⁾および溶接継手⁹⁾において検証されているクリープの複合則を使って、腐食を受けた構造体の強度を評価できる。Fig. 1 に示すように健全部と変質部に並列に応力が負荷される場合に、定常変形時にそれぞれにかかる応力を σ_1 , σ_2 , α を変質部の体積率とすると(1)式が成立つ。破断時間 t と応力の間には常に Norton 型の(2)式が成立つものとする。以下、添字の 1 および 2 は常にそれぞれ健全部と変質部を意味するものとする。

$$\sigma = \sigma_1 (1 - \alpha) + \sigma_2 (\alpha) \quad (1)$$

$$t_i = A_i \sigma^{-n} \quad (i = 1, 2) \quad (2)$$

また、Fig. 1 に示すようにそれぞれの応力 σ_1 , σ_2 における固有の破断時間を t'_1 , t'_2 とし、さらに応力 σ における試料全体の合成破断時間を \hat{t} とした時(3)式が成立つものとする。

$$\hat{t} = t'_2 = t'_1 \quad (3)$$

すなわち、健全部と変質部がほぼ同時に破断すると考えると(1)～(3)式から(4)式が得られる。

$$\frac{\hat{t}}{t_1} = [1 + \alpha \left\{ \left(\frac{t_2}{t_1} \right)^{1/n} - 1 \right\}]^n \quad (4)$$

1. 緒 言

高温の腐食環境における構造材の開発のためには長時間のクリープ強さに及ぼす環境効果を推定する数式が必要となる。砂本¹⁾、庄子²⁾および Grünling³⁾らは腐食によって減肉が起こるとの前提で重油燃焼ガス中におけるクリープ強さを表わす式を導いた。柚原⁴⁾は液体 Na中において全断面積にわたって均一に脱炭が起こると仮定して 2.25 Cr-1 Mo鋼 のクリープ強さの推算式を導いた。高温ガス炉 (HTGR)近似のヘリウムガス環境では腐食減肉はあまり顕著ではないが、酸化膜直下に脱浸炭、脱Cr または無析出帶などの変質層が形成されている⁵⁾。この変質層はかなりの深さまで成長するので、部材の強度を考える上で無視できなくなると考えられる。本報告では変質部を強度部材の一部と考え、かつ材料を評価するという立場に立って、短時間のクリープ破断データおよび比較的豊富に得られている腐食データを基にして、環境下のクリープ強さの評価式を与えることを試みる。

なお、本テーマの解析に関する部分については、既に、詳しく報告した^{6), 7)}ので本報告では、要点だけを述べるにとどめるが、その後得られた実験結果を基にして、環境効果の評価式の検討を行なう。

2. 複合則による解析

2.1 並列モデル

腐食が進行中の材料を変質部と健全部の複合体とみなせば、繊維強化材⁸⁾および溶接継手⁹⁾において検証されているクリープの複合則を使って、腐食を受けた構造体の強度を評価できる。Fig. 1 に示すように健全部と変質部に並列に応力が負荷される場合に、定常変形時にそれぞれにかかる応力を σ_1 , σ_2 , α を変質部の体積率とすると(1)式が成立つ。破断時間 t と応力の間には常に Norton 型の(2)式が成立つものとする。以下、添字の 1 および 2 は常にそれぞれ健全部と変質部を意味するものとする。

$$\sigma = \sigma_1 (1 - \alpha) + \sigma_2 (\alpha) \quad (1)$$

$$t_i = A_i \sigma^{-n} \quad (i = 1, 2) \quad (2)$$

また、Fig. 1 に示すようにそれぞれの応力 σ_1 , σ_2 における固有の破断時間を t'_1 , t'_2 とし、さらに応力 σ における試料全体の合成破断時間を \hat{t} とした時(3)式が成立つものとする。

$$\hat{t} = t'_2 = t'_1 \quad (3)$$

すなわち、健全部と変質部がほぼ同時に破断すると考えると(1)~(3)式から(4)式が得られる。

$$\frac{\hat{t}}{t_1} = [1 + \alpha \left\{ \left(\frac{t_2}{t_1} \right)^{1/n} - 1 \right\}]^n \quad (4)$$

ここで t_1, t_2 はそれぞれ応力 σ における固有の破断時間である。(4)式において $t_2 = 0$ とすれば(5)式を得る。これは変質部を強度部材と考えない場合の強度評価を与える。

$$\hat{t}/t_1 = (1-\alpha)^n \quad (5)$$

一方、(4)式の右辺は n の増加とともに減少し、 $n \rightarrow \infty$ では(6)式に示す簡単な関係となる。

$$\hat{t}/t_1 = (t_2/t_1)^\alpha \quad (6)$$

2.2 直列モデル

腐食にともなって鋭い侵食または割れを伴なうような場合は別にすると、腐食は大方表面から肉厚中心に均一に進行するので、内圧を受ける伝熱管の場合には前節の並列モデルが適用される。しかし、たとえば、ボイラの伝熱管のように、内圧をうける構造物が火炎によって腐食減を受ける場合は、火炎側とその反対側の部分では、肉厚に差が生じる。このような場合には、腐食した部分と健全部に応力が直列に負荷していると考えるのが良い。

直列モデルの場合には試料全体の破断時間はどちらか弱い方の値と同じになる。しかし、弱い部分が少ない時は両側からの拘束によってみかけ上破断時間は増大する。塑性拘束を加味した材料評価のための簡単な式がみあたらなかったので以下の取扱いをした。Fig. 2 に示すように直径 d の丸棒の中央に長さ αL の弱い部分があると考える。弱い部分は充分な延性をもっており、負荷直後に変形し、半径 r の曲面を描きながら最小直径部が $d' = (1 - \delta) d$ となり準安定の状態になると考える。

$\frac{\delta d}{\alpha L} \ll 1$ であればくびれ部の半径 r は(7)式のように近似される。

$$r = (\alpha L)^2 / 4 \delta d \quad (7)$$

くびれが生じた後の最小断面部の相当応力 σ_t は Davidenkov の近似を使って(8)式によって与えられる¹⁰⁾。

$$\sigma_t = \sigma / [((1 - \delta)^2 \cdot [1 + \delta (1 - \delta) / \{ 2 (\alpha L / d)^2 \}])] \quad (8)$$

なお、 σ は丸棒に働く公称応力である。(8)式において $\alpha \rightarrow 0$ とすると $\sigma_t \rightarrow 0$ となり、複合材は弱い部分から破断しないことになり、不合理なので $\alpha = 0$ においてもなお小さなくびれがあると仮想して(8)式の分母の中カッコの中を次のように改める。

$$2 (\alpha L / d)^2 \rightarrow 2 (\alpha L / d)^2 + \epsilon \quad (8')$$

ここで $(1 - \delta) \sim 1$ 、 $\alpha = 0$ において $\hat{t} = t_1$ とすると、(2)式から $\hat{t}/t_2 = (\sigma_t / \sigma)^{-n}$ なる関係が得られるので(8)および(8)' 式から(9)式が導かれる。

$$\frac{\hat{t}}{t_1} = \frac{t_2}{t_1} \left[1 + \frac{\delta}{2 (\alpha L / d)^2 + \delta / \{ (t_1 / t_2)^{1/n} - 1 \}} \right]^n \quad (9)$$

この式は δ という材料定数を含んでいるが、拘束の程度を表わす $\alpha L / d$ という項を含んでいる。

Table 1 に、佐藤⁹⁾ らが求めたハステロイ X 合金と S U S 316 鋼の異材継手のクリープ破断データをもとにして、(9)式の解析を行ない、くびれ定数 δ を求めた結果を示す。どの条件でも、約 $\delta \sim 0.09$ となり、試験片形状によって定数 δ が系統的に変化する傾向は認められなかった。 $\delta \sim 0.09$ というのは、負荷直後に直径が約 9% 減少することを意味しており、これも、さほど物理的な違和感を与えない。したがって Fig. 2 に示した仮定も充分、容認しうるものと考えられる。

2.3 計算例⁶⁾

$t_2/t_1 = 0.01$ の場合について合成破断時間比 \hat{t}/t_1 と変質部の体積率 α の関係を(4), (9)式から計算し、結果を Fig. 3 に示す。並列モデルでは n の増加とともに図示したように片対数で直線の簡単な関係になることがわかる。当然のことながらこの関係は変質部を強度部材と考えない(5)式の値よりも大きな値を与える。直列モデルでは定数 δ が大きい方が塑性拘束の効果は大きくなるが、同じ変質部体積率の並列モデルの値に比べて直列モデルでは強度低下が著しいことがわかる。

2.4 時間依存のクリープ強さの複合則

前節までは、変質部の大きさは、クリープ試験中に変化しないものと考えた。しかし、環境効果を評価する場合に重要なのは、試験中に変質部の大きさが大きくなる場合である。

変質部の体積率 α の時間依存性は(10)式のように表わせるものとする。

$$\alpha = \alpha_0 t^\ell \quad (10)$$

ここで、 $\ell \approx 1/2$ 、 α_0 は拡散定数、試験片形状などに依存する定数である。環境下のクリープにおいては(4)(9)(10)式を組合せて得られる破断時間 $\hat{t}(t)$ に対して各瞬間に $d\hat{t}/dt$ だけのクリープ損傷が蓄積され t^* 時間後にその和が 1 になり破断するものと考える。(線型損傷則)

$$\int_0^{t^*} 1/\hat{t}(t) dt = 1 \quad (11)$$

この式は破断時間の応力指数 n が整数の時など特殊な場合以外には簡単な式で表示できない。

並列モデルでは(4), (10), (11)式より $\ell = 1/2$ の時 $r = (t_2/t_1)^{1/n} - 1$ として

$$\frac{t^*}{t_1} = \frac{1.125 (n-1) (n-2) (r \alpha^*)^2}{1 - \frac{1+1.5(n-1)r \alpha^*}{(1+1.5r \alpha^*)^{n-1}}} \quad (12)$$

ここで α^* は(13)式によって与えられる。環境下のクリープ試験においては、試験開始時は $\alpha = 0$ であるが、破断時には $\alpha = \alpha_0 t^{*\ell}$ となるので試験期間中の平均的な変質部体積率を以下のように定義した⁶⁾。

$$\alpha^* = \alpha_0 t^{*\ell} / (1 + \ell) \quad (13)$$

直列モデルでは(9)～(11)式から $\ell = 1/2$, $n = 5$ として

$$\frac{t^*}{t_1} = \frac{\frac{t_2}{t_1} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\beta} \right)}{\left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\beta} \right) - 5 \ell_n \left(\frac{r}{\beta} \right) - 10(r - \beta) - 5(r^2 - \beta^2) - \frac{5}{3}(r^3 - \beta^3) - \frac{1}{4}(r^4 - \beta^4)}$$

(14)

ここで $\beta = \delta / \{ \delta / r - 4.5 (\alpha^* L / d)^2 \}$ である。

腐食が試験中に進行する場合の破断時間比 t^*/t_1 と平均変質部体積率 α^* の関係を Fig. 3 と同じ条件に対して計算し、その結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 の並列モデルの線図において α^* が 1 よりも少し小さい範囲では n の増加とともに破断時間比 t^*/t_1 は減少し Fig. 3 と同じように $t^*/t_1 - \alpha^*$ の関係は片対数で直線に近づくことがわかる。

3. 解析に対する実験的検討

3.1 供試材

Table 2 に実験に用いたインコロイ 800 とハステロイ X R 合金の化学組成を示す。それぞれ溶体化処理した材料を入手して以下の実験を行なった。

3.2 インコロイ 800 合金の窒化による強化⁶⁾

(1) 予備窒化材の試験

インコロイ 800 合金は、窒化させやすいことおよび大気中のクリープ試験で容易に窒素を吸収することの理由のために選定した。直径 5 mm 平行部 30 mm のクリープ試験片を削出し、あらかじめ乾燥した 1200°C の Ar 中で固溶化処理したあと、さらに乾燥した N₂ 気流中で 2.5 ~ 20 h の窒化処理を施した。この試料を大気中 700 ~ 800°C で、試験中にさらに大気中から N₂ を吸収しないと考えられる比較的短時間のクリープ破断試験を行なった。

結果を Fig. 5 に示す。並列モデルの計算式および Fig. 3 から予想されるように, $\hat{t}/t_1 - \alpha$ の関係は片対数でほぼ直線の関係を満足している。

(2) 大気中のインコロイ 800 合金のクリープ試験

インコロイ 800 合金は高温では、クリープ変形中に大気中の窒素を吸収しやすいという特徴を利用して、2.4 節で説明した時間依存のクリープ複合則の解析方法の検討を行なう。

Table 2 に示したインコロイ 800 合金から、試験片断面形状を Table 3 に示したように変化させた試料を削り出し、大気中 800 および 1000°C でクリープ破断試験を行なった。

Photo. 1 に 1000°C で破断した試料の断面光学顕微鏡組織を示す。試験片肩部（右側の写真）

直列モデルでは(9)～(11)式から $\ell = 1/2$, $n = 5$ として

$$\frac{t^*}{t_1} = \frac{\frac{t_2}{t_1} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\beta} \right)}{\left(\frac{1}{r} - \frac{1}{\beta} \right) - 5 \ell_n \left(\frac{r}{\beta} \right) - 10(r - \beta) - 5(r^2 - \beta^2) - \frac{5}{3}(r^3 - \beta^3) - \frac{1}{4}(r^4 - \beta^4)}$$

(14)

ここで $\beta = \delta / \{ \delta / r - 4.5 (\alpha^* L / d)^2 \}$ である。

腐食が試験中に進行する場合の破断時間比 t^*/t_1 と平均変質部体積率 α^* の関係を Fig. 3 と同じ条件に対して計算し、その結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 の並列モデルの線図において α^* が 1 よりも少し小さい範囲では n の増加とともに破断時間比 t^*/t_1 は減少し Fig. 3 と同じように $t^*/t_1 - \alpha^*$ の関係は片対数で直線に近づくことが解かる。

3. 解析に対する実験的検討

3.1 供試材

Table 2 に実験に用いたインコロイ 800 とハステロイ X R 合金の化学組成を示す。それぞれ溶体化処理した材料を入手して以下の実験を行なった。

3.2 インコロイ 800 合金の窒化による強化⁶⁾

(1) 予備窒化材の試験

インコロイ 800 合金は、窒化させやすいことおよび大気中のクリープ試験で容易に窒素を吸収することの理由のために選定した。直径 5 mm 平行部 30 mm のクリープ試験片を削出し、あらかじめ乾燥した 1200 °C の Ar 中で固溶化処理したあと、さらに乾燥した N₂ 気流中で 2.5 ~ 20 h の窒化処理を施した。この試料を大気中 700 ~ 800 °C で、試験中にさらに大気中から N₂ を吸収しないと考えられる比較的短時間のクリープ破断試験を行なった。

結果を Fig. 5 に示す。並列モデルの計算式および Fig. 3 から予想されるように、 $\hat{t}/t_1 - \alpha$ の関係は片対数でほぼ直線の関係を満足している。

(2) 大気中のインコロイ 800 合金のクリープ試験

インコロイ 800 合金は高温では、クリープ変形中に大気中の窒素を吸収しやすいという特徴を利用して、2.4 節で説明した時間依存のクリープ複合則の解析方法の検討を行なう。

Table 2 に示したインコロイ 800 合金から、試験片断面形状を Table 3 に示したように変化させた試料を削り出し、大気中 800 および 1000 °C でクリープ破断試験を行なった。

Photo. 1 に 1000 °C で破断した試料の断面光学顕微鏡組織を示す。試験片肩部（右側の写真）

では、表面から約 100μ の深さまでしか変質層は形成されていない。一方、平行部は、断面全体に割れが観察されており、いたるところで左側写真のように、大気中の窒素を吸収して、粗大なAlNおよび針状のTiNが析出することがわかる。

Fig. 6はこのような試験中に窒素を吸収して強化する現象を(12)(13)式に従って解析した結果である⁶⁾。

この図からインコロイ800合金は、大気中では、窒素を吸収して、高温長時間では、本来の合金の強さよりもかなり強い結果が得られていることが観察できる。

環境下の破断時間比 t^*/t_1 は平均変質部体積率 α^* と片対数でほぼ直線の関係を満足しているので、本論で示した複合則に基くクリープ強さの評価法の妥当性を理解することができる。Fig. 6の平均変質部体積率 α^* は(13)式において $\alpha_0 = 4\sqrt{D/d}$, $\ell = 1/2$ として算出した。ここでDはインコロイ800合金中の窒素の拡散定数⁶⁾であり、dは試験片の直径または断面が矩形の場合には短辺の大きさとした。

3.3 クリープ強さに及ぼす試料寸法の効果

腐食変質部と健全部にFig. 2に示したように直列に負荷されるモデルを実験的に確認するには、異材継手の実験が適当である。

Table 1に示したように佐藤らのHastelloy X合金とSUS 316鋼の異材継手のクリープ試験の結果は、Fig. 2に示したモデルを基にして導いた(9)式によって矛盾なく説明できることがわかった。

Fig. 2に示したモデルは、直径が同じで異なる材料に直列に荷重がかかる想定をしている。しかし、この図は、見方を変えれば、同一の材料で、一部直径の小さい部分がある棒のクリープ試験をするモデルと等価であると考えてもよいであろう。

そこで、ここでは、丸棒の一部に環状の溝をつけたクリープ試験（ノッチクリープ試験）を行ない、変質部に対する直列負荷モデルを想定した、(9)式の計算式の検証を行なう。

Fig. 7に、ハステロイXR合金の大気中、800および900°Cにおけるノッチクリープ試験の結果を示す。試験片形状は同図中に示したが、ノッチ底の直径6mmで、大径部の直径を8mmとし、ノッチ部の長さは、30mm～1mmの間に変化させた。Fig. 7の中には、(9)式に基くノッチ強化の計算結果を併せて示す。計算に用いた仮定は次のようなものである。 t_2 は、変質部を想定した直径6mmのノッチ部の材料固有の破断時間、すなわち、ハステロイXR合金の標準試験片による破断時間を意味する。一方、 t_1 は健全部を想定した直径8mmの部分のみかけの破断時間を意味する。すなわち、 t_1 には、この部分があたかも直径6mmの部材として作用した場合の仮想の値を与える。 t_1 は、6mmと8mmの直径の違いを考慮して次のように求められる。

$$t_1 = t_2 \left(\frac{8}{6} \right)^{2n}$$

$$= 1.77 t_2 \quad (15)$$

ここで、 n は、破断時間の応力指数で $n = 5$ とした。

(9)式において、ノッチクリープ強さを評価する場合、 $\alpha = 1$ となる。また、くびれ率 δ は、2, 3の予試算を行なった結果、 $\sigma = 0.04$ が適当と判断した。以上の仮定のもとに、ノッチクリープ強さの予測を計算し、Fig. 7 の中に示した。

Fig. 7 から、標点長さ／直徑～0.3以上の範囲では、計算結果とノッチクリープの実験データはよく一致することがわかる。標点長さ／直徑～0.16の鋭いノッチに対しては、計算結果は実験データよりも過大な予測を与えることがわかる。この原因は、(9)式を導く時に、真応力～相当応力と考え、さらに(7)式において近似解を用いたことにあると考えている。すなわち、Fig. 7 に示した実験結果から、変質部に対して健全部と直列に負荷される場合の構造物全体の強さを与える(9)式は、変質部の荷重軸方向の長さと変質部の直徑（または若干の補正を加えれば肉厚と言換えてよい）の比が約0.3以上の広い条件範囲で妥当な推定を与えるものと考えられる。

4. ハステロイ X R 合金の不純ヘリウム中のクリープ強さ

4.1 はじめに

前章までに腐食性雰囲気ガスと母材との反応により生成される変質部も、強度メンバになりうると考えて、複合則と線型損傷則を基にした環境下の強度の推定式を導いた。さらに、実験的に式の妥当性をいくつかの実験データをもとに検証してきた。高温ガス炉の構造材料開発の中では、以下に示すような不純ヘリウム中のクリープ挙動の予測が設計上最も大きな問題とされてきたが、これには耐熱材料の多くがヘリウム中で局部浸食、内部酸化脱浸炭などの表面反応による劣化を伴なうからである。

原研の高温ガス炉開発計画においては、こうした問題に対処する目的で、当初の候補に選定されたハステロイ X 合金の Mn, Si, Co および Al 量を調整することによって HTR 一次冷却系を近似させた不純ヘリウム中の耐食性を改善した X R 合金を改めて実験炉のための第一世代の構造用の候補合金に選定した¹¹⁾。

ハステロイ X R 合金は、このように、耐食性のよい材料であるが、不純ヘリウム環境中では、なおわずかな酸化による脱クロム層の生成と、浸炭が観察される¹²⁾。

一方、原子炉の構造物は、10万時間以上の耐用年数を想定して設計されているので、安全を確保するという観点からは、腐食のような表面反応でも積分値は無視できなくなると考える必要がある。とくにその中でも強度を低下させる要因があれば、これを摘出し、これに基く長時間後の強度低下を算定し、これに対処しなければならない。

そこで、ハステロイ X R 合金の腐食のうち、浸炭現象を無視して、脱クロム層の生成に基くクリープ強さの低下度合を、計算によって導き、かつ実験的にも検討を加えることとする。

4.2 実験方法

ハステロイ X R 合金の管材から、直徑 3 および 6 mm, 標点距離 30 mm のクリープ試験片を削り出し、900°C の原研 B 型ヘリウムガス ($H_2 : 200$, $H_2O : 1$, $CO : 100$, $CO_2 : 2.5$,

ここで、 n は、破断時間の応力指数で $n = 5$ とした。

(9)式において、ノッチクリープ強さを評価する場合、 $\alpha = 1$ となる。また、くびれ率 ϑ は、2, 3の試算を行なった結果、 $\sigma = 0.04$ が適当と判断した。以上の仮定のもとに、ノッチクリープ強さの予測を計算し、Fig. 7 の中に示した。

Fig. 7 から、標点長さ／直徑～0.3以上の範囲では、計算結果とノッチクリープの実験データはよく一致することがわかる。標点長さ／直徑～0.16の鋭いノッチに対しては、計算結果は実験データよりも過大な予測を与えることがわかる。この原因は、(9)式を導く時に、真応力～相当応力と考え、さらに(7)式において近似解を用いたことにあると考えている。すなわち、Fig. 7 に示した実験結果から、変質部に対して健全部と直列に負荷される場合の構造物全体の強さを与える(9)式は、変質部の荷重軸方向の長さと変質部の直徑（または若干の補正を加えれば肉厚と言換てもよい）の比が約0.3以上の広い条件範囲で妥当な推定を与えるものと考えられる。

4. ハステロイ X R 合金の不純ヘリウム中のクリープ強さ

4.1 はじめに

前章までに腐食性雰囲気ガスと母材との反応により生成される変質部も、強度メンバになりうると考えて、複合則と線型損傷則を基にした環境下の強度の推定式を導いた。さらに、実験的に式の妥当性をいくつかの実験データをもとに検証してきた。高温ガス炉の構造材料開発の中では、以下に示すような不純ヘリウム中のクリープ挙動の予測が設計上最も大きな問題とされてきたが、これには耐熱材料の多くがヘリウム中で局部浸食、内部酸化脱浸炭などの表面反応による劣化を伴なうからである。

原研の高温ガス炉開発計画においては、こうした問題に対処する目的で、当初の候補に選定されたハステロイ X 合金の Mn, Si, Co および Al 量を調整することによって HTR 一次冷却系を近似させた不純ヘリウム中の耐食性を改善した X R 合金を改めて実験炉のための第一世代の構造用の候補合金に選定した¹¹⁾。

ハステロイ X R 合金は、このように、耐食性のよい材料であるが、不純ヘリウム環境中では、なおわずかな酸化による脱クロム層の生成と、浸炭が観察される¹²⁾。

一方、原子炉の構造物は、10万時間以上の耐用年数を想定して設計されているので、安全を確保するという観点からは、腐食のような表面反応でも積分値は無視できなくなると考える必要があろう。とくにその中でも強度を低下させる要因があれば、これを摘出し、これに基く長時間後の強度低下を算定し、これに対処しなければならない。

そこで、ハステロイ X R 合金の腐食のうち、浸炭現象を無視して、脱クロム層の生成に基くクリープ強さの低下度合を、計算によって導き、かつ実験的にも検討を加えることとする。

4.2 実験方法

ハステロイ X R 合金の管材から、直徑 3 および 6 mm, 標点距離 30 mm のクリープ試験片を削り出し、900°C の原研 B 型ヘリウムガス (H₂ : 200, H₂O : 1, CO : 100, CO₂ : 2.5,

$\text{CH}_4 : 5$ および $\text{O}_2 < 10^{-11} \mu\text{atm}$) 中で、負荷応力 $7 \sim 2.5 \text{ kg/mm}^2$ の条件でクリープ試験を行なった。試験手順、試験機、試験ガスの純度管理方法については既報の文献^{13, 14}に詳しく述べたので、ここでは省略する。

4.3 実験結果と考察

Table 4 に試験片形状を変化させたハステロイ X R 合金のクリープ特性を示す*。直径 6 mm と 3 mm のクリープ特性を比較した場合、クリープ速度は両者の間にあまり明瞭な差違は認められないが、直径 3 mm の場合の方が、伸びが若干低く、破断時間もいくらか短い傾向が認められる。

Fig. 8 は、直径 3 mm の試験片の破断時間と直径 6 mm の破断時間の比を破断時間に対してプロットした結果である。若干データはばらついているが、長時間になるほど細径の場合の破断時間は短くなる傾向にあることがわかる。同図中には、(12) 式を基にして計算した理論値を示した。計算に用いた仮定は次のようなものである。

まず、クリープ変形中に酸化とともに試験片平行部の周囲から均一な速度で脱クロム層が形成されると考える。この速度は、クリープ変形の影響を顕著には受けない¹⁵⁾と考えて良いので、新藤ら¹³⁾が求めた 900°C の原研 B 型ヘリウム中の無応力下の腐食データを用いた。すなわち、本合金の 900°C 、B 型ヘリウム中における脱クロム層の成長速度定数 β_0 は

$$\beta_0 = 2 \times 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{h}$$

であり、(13)式においては、試験片直径 d に比べて脱クロム深さ P が充分に小さいと考えて、 $\alpha_0 = 2P/d$ とした。脱クロムした部分は、完全に Cr が消失したと考え、控目な値として、類似合金の実験結果¹⁶⁾に基いてこの変質部の破断時間 t_2 を健全部の $1/10$ とした。

本合金の脱クロム層の生成による破断時間の低下は、約 8.5% (強度比に換算するとおよそ 9.5%) であり、あまり大きな変化を示さない。これは、主に、本合金の耐酸化性が優れていることに起因していると考えられ、通常のハステロイ X 合金の場合には、脱クロム層はもっと深く生成し、従って長時間後の環境の影響によるクリープ強さの低下はもっと大きくなると予想される。

実験の結果は、計算結果から予想されるよりも若干大きな環境からの劣化があることを示している。この差については次のように考えることができる。計算結果は、複合則を基礎にしている。この解析においては、クラックの伝播という概念を含まない。具体的に言うなら、たとえば、表面の加工歪などに起因して、表面クラックが発生し、正味応力が増加する場合、寸法の異なる試料に同じ深さのクラックが発生すると考えると、細径の試料の方が破断時間は短くなりやすいと考えられる。さらに、クラックの伝播期間の大小が破断時間に影響を与えている場合、寸法の異なる試料に同じ深さまでクラックが進展した時点で比較すると、正味応力は、細径の方が高くかつ、Fig. 2 に示したような塑性拘束による強化も細径の試料には望めないので、細径の試料の方が、クラックは伝播しやすく、結果として細径の試料の方が破断時間は短くなりやすいと考えられる。

いずれにしても、以上の議論から、試料寸法を変えた時に観察される破断時間の変化は、脱クロム

脚注*) 文献 6)の参考文献 No. 1, 3 および文献 7)の参考文献 No. 1, 5 に引用したデータには、実験条件の誤りがあった。

Table 4 に示したデータは、このデータを修正し、一部実験をやり直した結果である。

層の生成だけからでは説明できない部分も少し残されていることも事実であり、かつ実際の構造物においては、薄肉部もあるので、試料寸法を変化させた実験を今後とも続け、充分に長時間の特性を把握するに足る根拠を得る必要がある。

4.4 構造物の強度の控目な推定

前節までに、ハスティロイ XR 合金を原研B型ヘリウム中でクリープ試験した場合の強度低下をクロム欠乏層の生成に起因した並列負荷モデルで大旨説明できることを示した。ここでは、この事実をふまえて、構造物の長時間の強度劣化がどの程度のものかを、安全を確保するという考えに立って試算する。

Table 5 にはハスティロイ XR 合金の原研B型ヘリウムガス中における破断時間と不活性ガス中の値の比を種々の条件のもとに計算した結果を示す。計算に用いた仮定は次のとおりである。まず、伝熱管の内外面に、同じ原研B型ヘリウムガスが流れるものとする。クロムの欠乏層の生長速度は、新藤ら¹³⁾が 900 および 1000°C で求めた速度定数をもとにして、800°C の値を Table 5 に示した如く仮定した。脱クロム部の破断時間は健全部の 1/10 とした。破断時間の応力指数は、800 ~ 1000°C の平均として $n = 5$ とした。また、本合金の場合、変質部の生成にともなう強度低下はあまり大きくなないので、変質部の面積率は（変質部深さ） × 2 / （肉厚）と定義した。

本合金の場合、耐食性が優れているので計算した範囲で最も劣化の著しい 1000°C 10⁵ h 肉厚 2 mm の場合でも、強度の劣化に換算すると

$$\frac{\text{不純 He 中の強度}}{\text{He 中の強度}} \approx \left(\frac{t^*}{t_1} \right)^{1/5}$$

$$= 88\%$$

程度である。これと同じ考え方で、他の場合にも強度比を計算し、上記の強度比が 95% 以上であれば、環境による強度低下を無視できると考えると、

$$\frac{t^*}{t_1} \approx (0.95)^5$$

$$= 0.77$$

となるので、Table 5 に示した条件のもとで 10 万時間使用されたら、次のような肉厚よりも厚い部材については、環境劣化を無視してもよいと考えられる。

800°C	2 mm
900°C	4 mm
1000°C	9 mm

以上の結論は、不純ヘリウム中で材料に形成される変質層は脱クロム層だけと考えて導いたものである。しかし、実際には、この他に、加速クリープの開始にともなって著しい浸炭が起こり、その結果として、破断強さも低下する可能性も予想されている¹⁵⁾。したがって、構造物の強度の控目な推定

をする場合には、浸炭による材料劣化を念頭において、上記の目安を活用する必要があろう。

5. ま と め

荷重を受けた材料が、それをとりまく化学環境の反応によって形成する変質部が強度部材としての役割を果しつつ成長するものと考えて、クリープ強さの環境効果を推定する式を、複合則を基にして導いた。

インコロイ800合金がクリープ中に大気中の窒素を吸収して強化する現象は並列負荷モデルの式によって説明することができた。

健全部と変質部に直列に負荷するモデルに基いた計算式によってクリープ強さに及ぼす試験片の寸法効果（試験片直径／標点長さ比）を説明することができた。

このクリープ強さの環境効果の算式を使って、高温ガス炉用不純ヘリウム中でハステロイXR合金の表面付近に形成される脱クロム層の生成に基く強度低下を推定し、実験と比較した。

これらの計算式は、異種溶接継手構造部または不均一な温度分布をもつ構造物の強度解析にも使用しうるものと考えられる。

をする場合には、浸炭による材料劣化を念頭において、上記の目安を活用する必要があろう。

5. ま と め

荷重を受けた材料が、それをとりまく化学環境の反応によって形成する変質部が強度部材としての役割を果しつつ成長するものと考えて、クリープ強さの環境効果を推定する式を、複合則を基にして導いた。

インコロイ800合金がクリープ中に大気中の窒素を吸収して強化する現象は並列負荷モデルの式によって説明することができた。

健全部と変質部に直列に負荷するモデルに基いた計算式によってクリープ強さに及ぼす試験片の寸法効果（試験片直径／標点長さ比）を説明することができた。

このクリープ強さの環境効果の算式を使って、高温ガス炉用不純ヘリウム中でハステロイXR合金の表面付近に形成される脱クロム層の生成に基く強度低下を推定し、実験と比較した。

これらの計算式は、異種溶接継手構造部または不均一な温度分布をもつ構造物の強度解析にも使用しうるものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) 砂本, 西田: 材料, 20 (1971), 381.
- 2) 庄子, 斎藤, 高橋, 鈴木: 第27回腐食防食討論会予稿集 No.3 (1980), 7.
- 3) H. W. Grünling, O. Ilschner, S. Leistikow, A. Rahmel and M. Schmidt : Proceedings of the Petters Int. Conf., "Behaviour of High Temperature Alloys in Aggressive Environments", (1980), p869, The Metal Society, London.
- 4) 柚原: 第15回高温強度シンポジウム, No.6 (1977), 26.
- 5) 田辺, 平野, 吉田: 日本国金属学会報, 19 (1980), 883.
- 6) 田村, 近藤: 耐熱金属材料委員会研究報告, 22 (1981), 231.
- 7) 田村, 近藤: 第19回高温強度シンポジウム予稿集, (1981), 2月.
- 8) D. L. McDanel, R. A. Signorelli and J. W. Weeton : AST M STP 427, p. 124.
- 9) 佐藤, 豊田, 須清, 松井, 森, 清水, 佐藤: 第17回高温強度シンポジウム No.4 (1979), 11.
- 10) 益田, 室田: 工業塑性力学, 養賢堂 (1965), P. 143.
- 11) 日本原子力研究所編: "多目的高温ガス炉研究開発の現状", (1976~1980).
- 12) 田村, 近藤: JAERI-M 9948, (1981).
- 13) 新藤, 近藤: JAERI-M 8770, (1980).
- 14) 小川, 近藤: JAERI-M 8801, (1980).
- 15) 田村, 小川, 倉田, 近藤: JAERI-M 82-032 (1982).
- 16) 美野: 耐熱金属材料委員会研究報告, 22 (1981), P. 75.

Table 1 Calculation of δ based on the experimental data. (Sato et al 1979)

No.	$\alpha L/d$	d (mm)	L (mm)	t (h)	t/t_2	δ (n=5.4)	δ (n=5)
1	0.2	15	80	132	9.43	0.084	0.092
2	0.3	10	60	56	4.00	0.070	0.080
3	0.4	7.5	60	41	2.90	0.089	0.096
4	0.5	6	60	34	2.43	0.108	0.117
5	1.0	3	60	17	1.21	0.074	0.080
(av.)						0.085	0.093

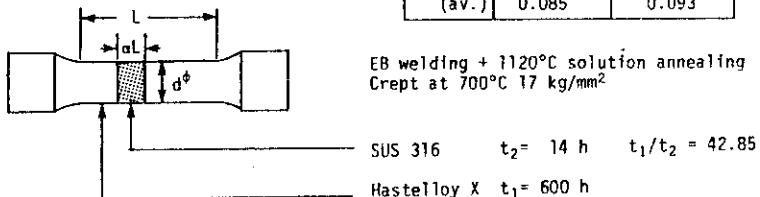


Table 2 Chemical composition of test materials. (wt%)

Alloy	C	Si	Mn	Cr	Mo	W	Fe	Ni	Co	Al	Ti
Incoloy 800*	0.043	0.33	0.79	19.7	-	-	Bal.	30.4	-	0.20	0.30
Hastelloy XR**	0.07	0.27	0.88	21.90	9.13	0.47	18.23	Bal.	0.04	0.03	-

* Hot rolled and solution treated plate. 20mm in thickness. For creep test in air.

** Solution treated bar, XR-51B : 16 mm in diameter for notch creep test in JAERI type B helium and solution treated tube, XR-51T : 58.5mm in outer diameter and 40.5mm in inner diameter for the size effect test on creep strength in JAERI type B helium.

Table 3 Time to rupture in air of Alloy 800 with different dimensions in gauge portion and average volume fraction of environment affected zone

Dimension (mm)	ℓ/\sqrt{S}	800°C 5kg/mm ²			1000°C 1.2 kg/mm ²		
		t*	p(t*)/1.5 (mm)	α^* (%)	t*	p(t*)/1.5 (mm)	α^* (%)
6.0 ϕ	6.8	891	0.29	18.4	1202	1.69	81.1
6.0 ϕ	3.4	1211	0.34	21.4	1096	1.62	78.8
6.0 ϕ	9.4	1473	0.37	23.1	474	1.07	58.5
4.2 ϕ	9.7	1810	0.41	35.2	310	0.86	65.1
3.0 ϕ	13.5	3.44	0.54	59.0	1095	1.62	~100
5.3 x 5.3	7.8	1513	0.38	26.6	1450	1.86	91.1
3.8 x 7.5	7.9	1317	0.35	26.0	975	1.53	88.5
3.1 x 9.2	7.9	963	0.30	24.6	1467	1.87	~100
2.4 x 11.9	8.6	1807	0.41	38.7	470	1.06	90.4

ℓ/\sqrt{S} : Gauge length/ root cross section

t*: Time to rupture

p(t*)/1.5: Average depth of nitridation (calculation)

α : Average volume fraction of EA zone

Table 4 Effect of specimen diameter on creep properties of Hastelloy-XR(51,Tube)
in JAERI type B Helium.

Specimen; 6 ϕ x 30 G.L., 3 ϕ x 30 G.L.

Stress Kg/mm ²	Time to Rupture hr		Rupture Elongation %		Reduction of Area %		Secondary Creep Rate %/hr	
	6 ϕ	3 ϕ	6 ϕ	3 ϕ	6 ϕ	3 ϕ	6 ϕ	3 ϕ
7.0	28.6	24.5	35	28.2	30.6	25.5	4.9×10^{-1}	6.5×10^{-1}
6.0	49.3	47.6	25.8	16.8	22.7	14.2	3.2×10^{-1}	2.0×10^{-1}
5.0	128.2	132.8	17.3	12.7	15.9	10.4	9.0×10^{-2}	6.7×10^{-2}
4.0	383.1	370.1	13.7	11.0	11.0	10.0	2.3×10^{-2}	4.8×10^{-2}
3.4	822.8	760.6	16.0	6.5	19.2	7.6	8.7×10^{-3}	
2.7	2205.9	2030*	8.3		8.2		3.3×10^{-3}	
2.5		2679.5		8.7		5.3		

* Interpolated value from the rupture lifes under the stress of 3.4 and 2.5 kg/mm².

Table 5 The calculated ratio of rupture lifes in JAERI type B helium and in inert gas of Hastelloy XR, t^*/t_1 .

Rupture life in inert gas (h)	Temperature (°C)	Wall thickness (mm)			
		2	4	8	16
10^4	800	0.92	0.96	0.98	0.99
	900	0.85	0.92	0.96	0.98
	1000	0.71	0.83	0.91	0.95
10^5	800	0.78	0.88	0.94	0.97
	900	0.65	0.78	0.88	0.94
	1000	0.54	0.62	0.75	0.86

Follows were assumed in the calculations of eqs. (12) and (13).

- 1) Tubes were imagined and the outer and inner surfaces were exposed to JAERI type B helium.
- 2) The chromium depletion zones were formed on the surface layers of the tube.
- 3) $t_2/t_1 = 1/10$
- 4) $n = 5$
- 5) $\alpha^* = 2\beta_0 \sqrt{t^*} / 1.5T$, where T is wall thickness.
- 6) β_0 : Parabolic rate constant of the formation of Cr depletion zone

$$\beta_0 = 3.3 \times 10^{-3} \text{ mm}/\sqrt{\text{h}} \quad 1000^\circ\text{C}$$

$$\beta_0 = 1.4 \times 10^{-3} \text{ mm}/\sqrt{\text{h}} \quad 900^\circ\text{C}$$

$$\beta_0 = 0.69 \times 10^{-3} \text{ mm}/\sqrt{\text{h}} \quad 800^\circ\text{C}$$

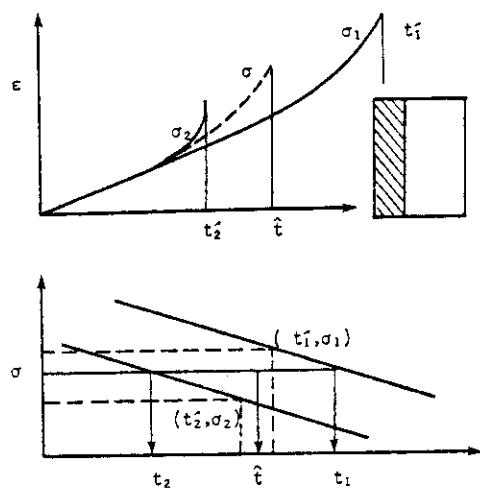


Fig.1 Schematic drawing of the parallel-loaded model

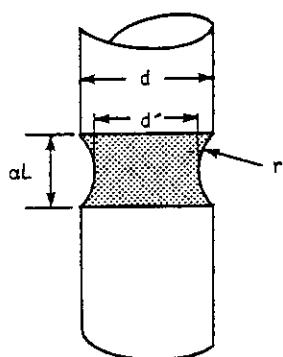


Fig.2 Serially loaded model

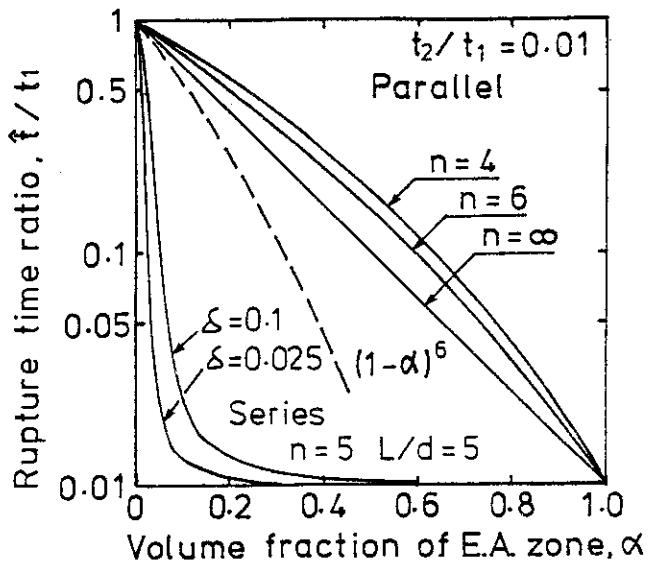


Fig. 3 Relationship between volume fraction of environment affected zone, α , and rupture time ratio, \hat{t}/t_1 , for the series and parallel loaded model. Examples of calculation of Eqs. (4) ~ (6) and (9).

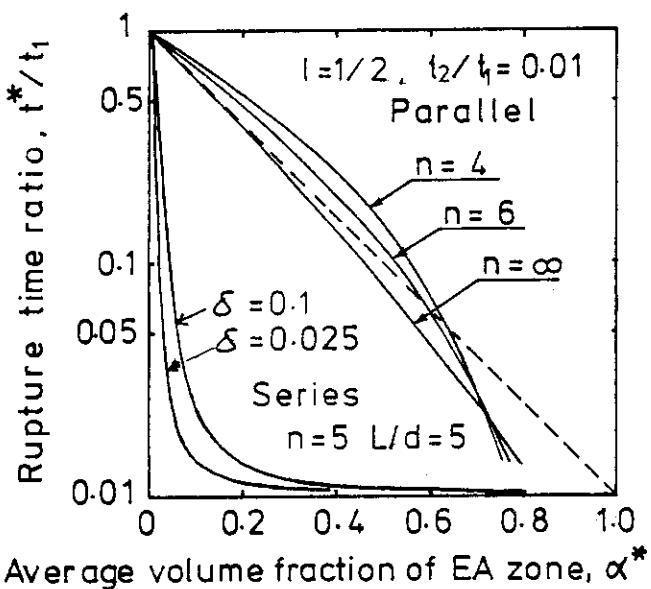


Fig. 4 Relationship between average volume fraction of environment affected zone, α^* , and rupture time ratio, t^*/t_1 , for the series and parallel loaded model. Examples of calculation of Eqs. (12) and (14).

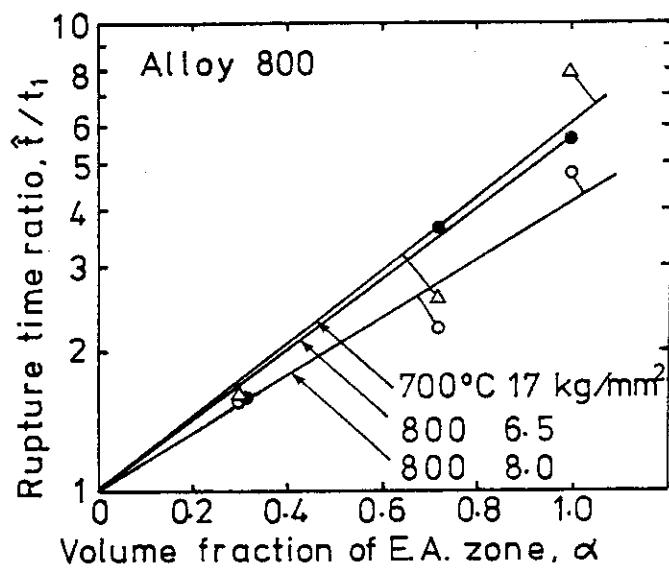


Fig. 5 Strengthening effect of pre-nitridation on rupture strength of Incoloy 800.

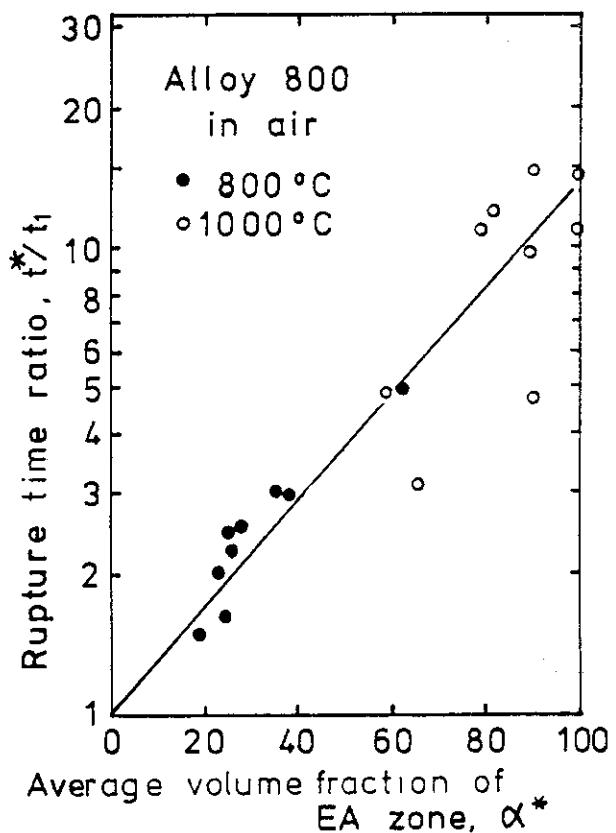


Fig. 6 Strengthening effect of nitridation during creep in air on creep rupture strength of Incoloy 800.

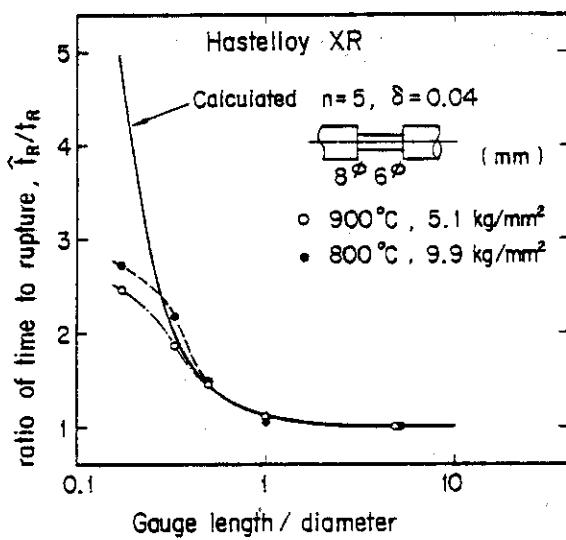


Fig. 7 The effect of specimen size and shape on creep rupture life of Hastelloy XR. Theoretical curves is calculated from Eq. (9).

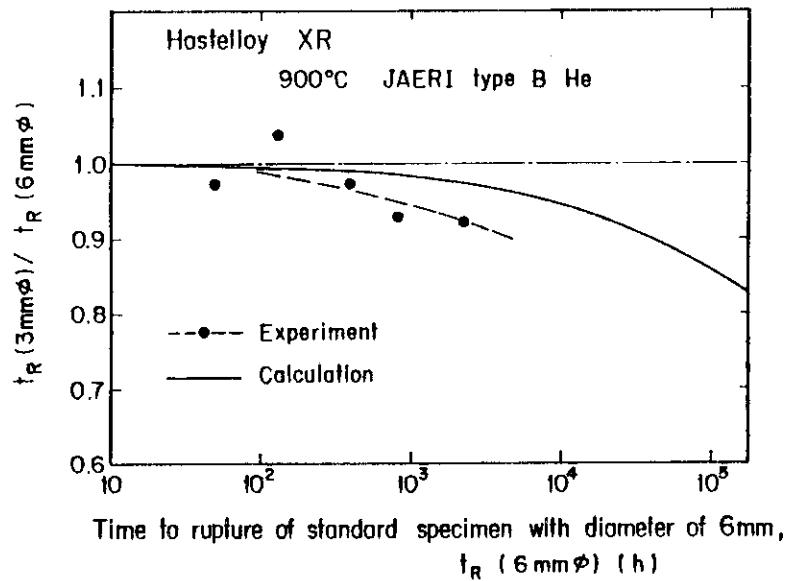


Fig. 8 Theoretical prediction curve of decrease in rupture strength of Hastelloy XR by the formation of Cr depleted zone due to oxidation in HTGR impure helium. Experimental data on ratio of time to rupture of two different type specimens with 3 and 6 mm in diameter were shown.

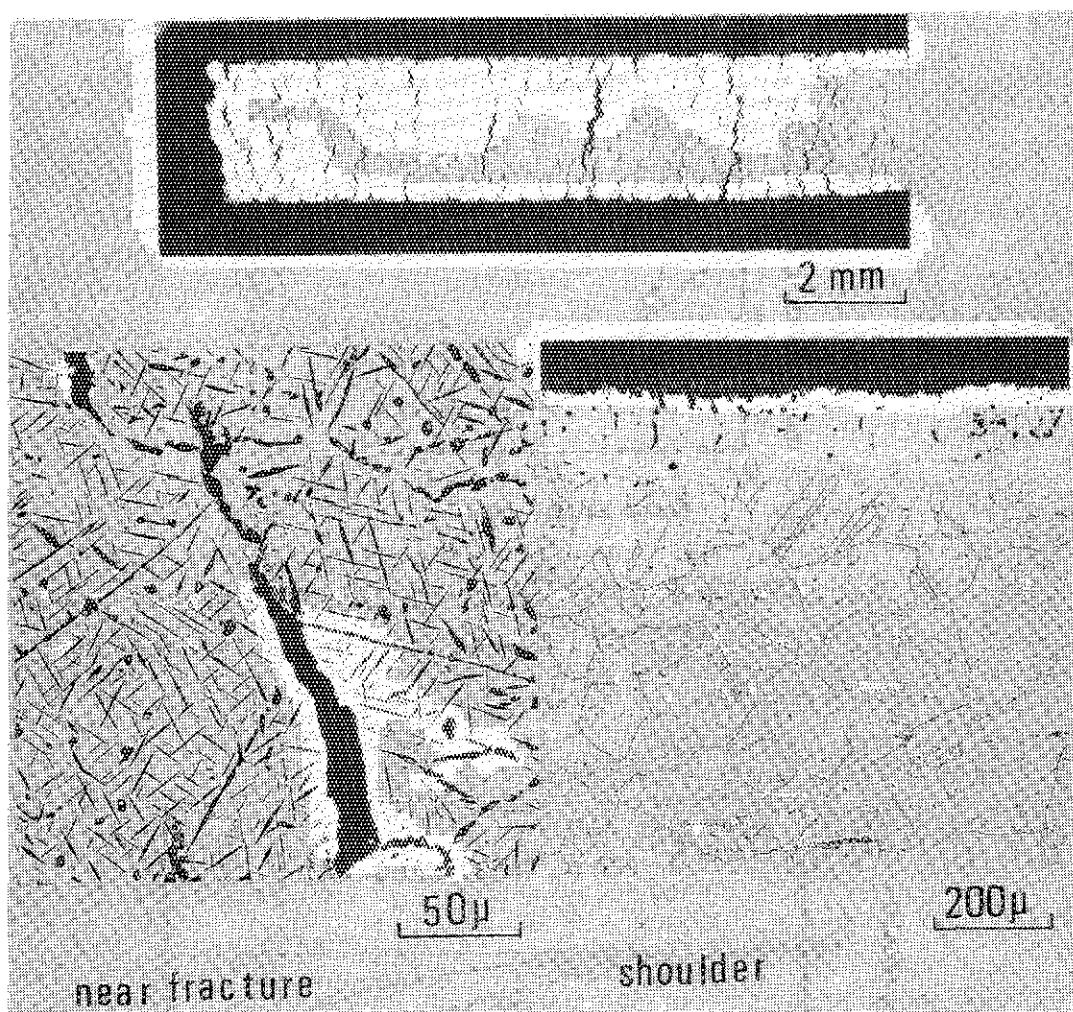


Photo.1 Views of longitudinal section of specimen of
Incoloy 800 which was ruptured at 1000°C in air
under 1.2 kg/mm².