

JAERI - M
84 - 166

高温ガス炉中間熱交換器用超耐熱合金の
ヘリウム中における高温低サイクル疲労

1984年9月

辻 宏和・近藤 達男

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。

入手の問い合わせは、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、お申しこしてください。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, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 財団法人原子力資料サービス

高温ガス炉中間熱交換器用超耐熱合金のヘリウム中における
高温低サイクル疲労

日本原子力研究所 東海研究所 燃料工学部

辻 宏和 ・ 近藤 達男

(1984年8月22日受理)

工業技術院直接製鉄技術開発計画(昭和48年～昭和55年)によって選定された高温ガス炉中間熱交換器伝熱管用Ni-Cr-W系超耐熱合金について、多目的高温ガス炉冷却材近似ヘリウム中における900℃での高温低サイクル疲労試験を行った。選定された2合金、KSN(Ni-16Cr-26W)およびSSS113MA(Ni-23Cr-18W)について得られた知見は次の通りである。

- (1) SSS113MA合金の方がKSN合金よりも不純ヘリウム中での高温低サイクル疲労特性はすぐれており、疲労寿命で50%程度長かった。
- (2) 冷却材近似ヘリウム中での高温低サイクル疲労寿命は、本研究の試験条件下では両合金ともに、超高真空中における場合に比べて、10～20%程度にまで減少した。
- (3) 破壊モードは、いずれの合金においても、ほぼ100%粒界破壊であった。
- (4) KSN合金およびSSS113MA合金はともに、本試験を行った温度領域では、既存の他の耐熱合金と比較して、高温低サイクル疲労特性が明らかに低く、構造部材として改良の余地があるものと判断される。

Low-Cycle Fatigue of Developmental Ni-Cr-W Alloys in Simulated VHTR Environment

Hirokazu TSUJI and Tatsuo KONDO

Department of Fuels and Materials Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 22, 1984)

Strain-controlled low-cycle fatigue tests were conducted on new developmental alloys at 900°C in the simulated VHTR helium environment. Among several candidates two materials i.e. KSN (Ni-16Cr-26W) and SSS113MA (Ni-23Cr-18W) tested were selected as the heat performing alloys for application to the intermediate heat exchanger tubes by Ministry of International Trade and Industry - Agency of Industrial Science and Technology - Nuclear Steelmaking program (1973 ~ 1980). The program is known as the ERANS program, i.e. Engineering Research Association of Nuclear Steelmaking. Based on the obtained results the following conclusions are drawn;

- 1) Low-cycle fatigue life of SSS113MA was about 50% longer than that of KSN in impure helium.
- 2) The ratios of N_f in impure helium to N_f in $1\sim 3 \times 10^{-6}$ Pa vacuum were 0.1 ~ 0.2 for both materials.
- 3) The fracture mode was almost purely intergranular in both materials.
- 4) The levels of low-cycle fatigue strength shown by KSN and SSS113MA were substantially lower than those of the data band for the existing heat-resistant alloys in the similar temperature range.

Keywords : High Temperature Fatigue Test, KSN Alloy, SSS113MA Alloy, Ni-Cr-W Alloy, VHTR, Helium Coolant, Intergranular Oxidation, Carburization, Intermediate Heat Exchanger

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	1
3. 実験結果と考察	2
3.1 多目的高温ガス炉冷却材近似ヘリウム中における高温低サイクル 疲労特性	2
3.2 超高真空中での高温低サイクル疲労試験結果	3
3.3 高温低サイクル疲労試験後の試験片観察および炭素分析	3
3.4 他の耐熱合金の疲労データとの比較	5
4. 結 言	6
謝 辞	6
付 録	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental methods	1
3. Results and discussion	2
3.1 Low-cycle fatigue behavior in simulated VHTR helium environment	2
3.2 Low-cycle fatigue results in ultra high vacuum	3
3.3 Observations of fractographic and metallographic features and carbon pick up of the fatigued specimens	3
3.4 Comparison of the low-cycle fatigue data of several heat- resistant alloys	5
4. Conclusions	6
Acknowledgements	6
Appendix	7
References	8

1. 緒 言

通商産業省工業技術院の「高温還元ガス利用による直接製鉄技術」に関する第1期の研究開発の中で、中間熱交換器伝熱管用の耐熱合金の開発が行われ、最終的にNi-Cr-W系合金のKSN合金とSSS113MA合金が選ばれた⁽¹⁾⁽²⁾。これらの合金は、1000℃における付加応力9.8MPa (1kgf/mm²)でのクリープ破断寿命が 5×10^4 時間という開発目標を上回る優れたクリープ特性を有している⁽¹⁾⁽²⁾ことが知られている。しかし、これらの合金の高温疲労特性に関しては、高温における材料損傷のうちの重要な部分を占めているにもかかわらず、開発計画が継続しなかったこともあり、十分な検討を加えられるにいたらなかった。

本報告は、多目的高温ガス炉冷却材近似ヘリウム中におけるKSN合金およびSSS113MA合金の高温疲労特性を調べることを目的として、900℃で行った高温低サイクル疲労試験の結果をまとめたものである。

2. 実 験 方 法

供試材料は、Ni-Cr-W系合金のKSN合金およびSSS113MA合金で、その化学組成と高温域における機械的性質をそれぞれTable 1とTable 2に示す。両合金を比較すると、相対的にKSN合金はW含有量が多く、SSS113MA合金はCr含有量が多い。また、高温ガス炉一次系冷却材近似ヘリウムによる腐食において、特に局部腐食に関係のある微量成分としてAlとTiに注目すると、SSS113MA合金はいずれの成分をも含んでいる。KSN合金については、製造者からの分析値には示されていないが、SSS113MA合金と同様に両元素を含んでいることが報告されている⁽³⁾。高温域における機械的性質では、KSN合金の方がSSS113MA合金よりも静的強度は強いが、延性では逆の関係となっている。両合金の組織写真をPhoto. 1に示す。いずれの合金もASTM NO. 0~1程度であり、通常の構造材料としては、粗大粒組織である。

用いた試験片の形状は、Fig. 1に示すような、平行部20mm、標点間距離15mmで、直径10mmの平滑丸棒型である。試験に先立って、標点部を2.5μmまでのダイヤモンドペーストで研磨し、さらに高純度アセトン中で超音波洗浄を施した。

試験装置は、高周波誘導加熱装置(15kW, 100kHz)およびヘリウムガスループ直結の雰囲気槽を有する、容量5トンの電気油圧サーボ型疲労試験機である。そのブロック線図をFig. 2に示す。なお、本試験装置の詳細については、既に別に報告した⁽⁴⁾。

試験条件は900℃一定、ひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 0.1\%$ /secの完全両振りの軸ひずみ制御疲労試験とした。試験雰囲気は、多目的高温ガス炉冷却材近似ヘリウム中および $1 \sim 3 \times 10^{-6}$ Paの超高真空中である。ヘリウム中の不純物組成は、同型原子炉の経験をもとにして、Table 3に示すよ

4. 結 言

高温ガス炉中間熱交換器伝熱管用に開発されたNi-Cr-W系合金のKSN合金およびSSS113MA合金を供試材として、多目的高温ガス炉冷却材近似ヘリウム中における900°Cでの高温低サイクル疲労試験を行った結果、次のような知見を得た。

- (1) SSS113MA合金の方がKSN合金よりも不純ヘリウム中高温低サイクル疲労特性はすぐれており、疲労寿命で50%程度長かった。
- (2) 冷却材近似ヘリウム中での高温低サイクル疲労寿命は、本研究の試験条件下では両合金ともに、超高真空中における場合に比べて、10~20%程度にまで減少した。
- (3) 破壊モードは、いずれの合金においても、ほぼ100%粒界破壊であった。
- (4) KSN合金およびSSS113MA合金はともに、本試験を行った温度領域では、既存の他の耐熱合金と比較して、高温低サイクル疲労特性が明らかに低く、構造部材として改良の余地があるものと判断される。

(19)(20)

なお、SSS113MA合金については、熱処理条件の面から疲労特性改善の試みがなされており、今後、その点に関して検討していく予定である。

謝 辞

試験用素材を提供された原子力製鉄技術研究組合(ERANS)、ならびに、KSN合金、SSS113MA合金を製作された(株)神戸製鋼所、日立金属(株)に感謝の意を表します。

また、本研究の遂行にあたり走査型電子顕微鏡観察等で御協力を頂いた材料工学研究室、菊地正彦氏、塚田隆氏に感謝の意を表します。

付 録

本研究での高温低サイクル疲労試験において、試験開始直後の応力-ひずみ線図には不安定な鋸歯状曲線（動的ひずみ時効をおこす条件下で観察される、いわゆるセレーション現象⁽²¹⁾と同様の現象）が例外なく観察された。KSN合金における方がSSS113MA合金におけるよりも顕著であり、特にN=1において顕著であった。このような場合の応力-ひずみ線図の取扱いについては、必ずしも統一的方法があるわけではないが、近年、日本鉄鋼協会高温強度研究委員会が推奨した方法⁽²¹⁾が妥当と考えられるので、本報告書におけるFig. 4の応力-ひずみ線図は、この方法によって得たものである。

一般に、応力-ひずみ線図にセレーションが現れる場合には、Fig. 12~Fig. 14に示すような三種類の型が考えられる。このうちFig. 12の型は、侵入型不純物を含有する体心立方金属において観察されると⁽²²⁾⁽²³⁾いわれ、これはさらに、図中に示したような三種類の型に細分される。A型は振幅が比較的小さく、加工硬化が大きい。B型は比較的高温領域でおこるもので、振幅が大きく加工硬化は小さい。C型は比較的高温でひずみの小さい領域（変形初期）におこり、振幅は比較的大きい。実際の応力-ひずみ線図では、これらの混合型も観察される。

Fig. 13の型は、置換型原子が原因する場合に観察される⁽²¹⁾といわれる。さらに、Fig. 14に示したような不規則な形状のセレーションが観察される場合もある⁽²¹⁾。

以上に示したようなセレーションが観察される場合の応力-ひずみ線図の取扱い法として、日本鉄鋼協会高温強度研究委員会では、Fig. 15に示すような方法を推奨した⁽²¹⁾。すなわち、Fig. 12のA, B, C型のものではFig. 15(a)に示すようにセレーションの上端を連ねた線で求める。Fig. 13またはそれとFig. 12が混合したような場合は、Fig. 15(b)(c)に示したように、突出部を除いたセレーションの上限とする。Fig. 14のように不規則な曲線の場合には当事者相互間で判断のための協定を結ぶこととなっている。

なお、本研究のKSN合金、SSS113MA合金で観察された現象は、Fig. 12の型であり、Fig. 4の応力-ひずみ線図の取扱いは、Fig. 15(a)の方法によった。また、これらの合金の疲労試験開始直後の応力-ひずみ線図に不安定な鋸歯状曲線が現われる現象は、本研究での900℃の他に、1000℃でも観察されることが報告されている⁽²⁴⁾。

参 考 文 献

- (1) 田中良平, 松尾 孝; 鉄と鋼, 68, 2 (1982), 226
- (2) 通商産業省工業技術院, 科学技術庁金属材料技術研究所; 高温還元ガス利用による直接製鉄技術の研究開発「超耐熱合金の研究開発」—— 最終報告書 —— (1981)
- (3) 新藤雅美, 鈴木富男, 近藤達男; 日本原子力研究所レポート JAERI-M 83-108 (1983)
- (4) 辻 宏和, 近藤達男; 日本原子力研究所レポート JAERI-M 82-082 (1982)
- (5) 日本材料学会高温強度部門委員会報告「熱疲労共通試験結果報告」; 材料, 24, 258 (1975), 254
- (6) J I S Z 2241 (1980)
- (7) 平 修二編 「熱応力と熱疲労」(日刊工業新聞社) (1974), 87
- (8) S. S. Manson; NACA TN 2933 (1953)
- (9) L. F. Coffin Jr.; Proceeding of the 4th Sagamore Conference (1957), 219
- (10) ASME Boiler and Pressure Vessel Code, Section III, "Rules for Construction of Nuclear Power Plant Components" (1977)
- (11) 辻 宏和, 近藤達男; 日本原子力研究所レポート JAERI-M 84-014 (1984)
- (12) 木内 清, 近藤達男; 防食技術, 31 (1982), 125
- (13) P. G. Forrest and K. B. Armstrong; Journal of the Institute of Metals, 94 (1966), 204
- (14) S. S. Manson; Experimental Mechanics, 5 (1965), 193
- (15) 藤岡順三, 村瀬宏一, 松田昭三, 喜多 清; 学振123委員会研究報告, 19 (1978), 165
- (16) 服部 博, 北川正樹, 大友 暁; 鉄と鋼, 68, 16 (1982), 2521
- (17) J. P. Strizak, C. R. Brinkman, M. K. Booker and P. L. Rittenhouse; ORNL TM 8130 (1982)
- (18) H.-P. Meurer, H. Breitling and E. D. Grosser; Proceeding of IAEA specialists meeting (1981), U1~U12
- (19) 渡辺力蔵; 鉄と鋼, 68, 5 (1982), S 570
- (20) R. Watanabe; Nuclear Technology, 66 (1984), 69
- (21) 田村今男; 鉄と鋼, 68, 7 (1982), 732
- (22) H. Yoshinaga and S. Morozumi; Philosophical Magazine, 23, 186 (1971), 1351
- (23) 吉永日出男; 日本金属学会会報, 10, 8 (1971), 519
- (24) 金属材料技術研究所; 超耐熱合金打合せ資料(未公開資料) (1981)

Table 1 Chemical composition of specimen materials (wt%).

	C	Mn	Si	P	S	Cr	Co	W	Fe	Ni	Al	Ti	Nb	Zr
KSN	0.029	0.008	0.028	0.003	0.002	15.02		25.31		Bal.			0.41	0.053
SSS113MA	0.05	0.01	0.05	0.002	0.002	23.60	0.02	18.40	0.09	Bal.	0.003	0.54	Nil.	0.030

Table 2 Mechanical properties of specimen materials at elevated temperatures.

KSN

Temperature °C	$\sigma_{0.2}$ MPa	σ_B MPa	Elongation %	Reduction of area %
700	244	491	35.3	47.8
800	224	425	24.2	20.5
900	194	391	40.8	39.5
1000	155	197	56.0	58.1

SSS113MA

Temperature °C	$\sigma_{0.2}$ MPa	σ_B MPa	Elongation %	Reduction of area %
700	179	487	52.3	47.3
800	195	447	41.2	33.3
900	189	287	56.3	53.5
1000	98	176	57.7	64.0

Table 3 Impurity levels in the test environment (μatm).

H_2	H_2O	CO	CO_2	CH_4
200 - 210	0.8 - 1.2	100 - 110	2 - 3	5 - 6

Table 4 Test results of low-cycle fatigue.

Material	Specimen number	Environment	Total strain range $\Delta\epsilon$, %	Plastic strain range $\Delta\epsilon_p$, %	Number of cycles to failure, N_f	Position of fracture *
KSN	1	JAERI-B He	0.80	0.536	262	B
	2	JAERI-B He	1.20	0.892	193	A
	3	JAERI-B He	0.40	0.130	1520	B
	4	JAERI-B He	0.80	0.566	272	A
	5	JAERI-B He	0.28	0.039	3211	A
	6	Vacuum	0.40	0.192	11328	A
SSS113MA	1	JAERI-B He	0.80	0.531	473	B
	2	JAERI-B He	1.20	0.928	218	B
	3	JAERI-B He	0.40	0.172	1425	A
	4	JAERI-B He	0.80	0.526	559	A
	5	JAERI-B He	0.28	0.054	10340	A
	6	Vacuum	0.40	0.192	13037	A

* JIS Z 2241

Table 5 Values of constants and exponents describing the best fit fatigue curves.

	$\Delta\epsilon_t = AN_f^{-a} + BN_f^{-b}$			
	A	a	B	b
KSN	0.00325	0.0339	1.840	0.991
SSS113MA	0.00375	0.0572	0.553	0.759

Table 6 Allowable stress amplitude (MPa).

	Strain cycles		
	10^4	5×10^4	10^5
KSN	104	93	90
SSS113MA	105	84	78

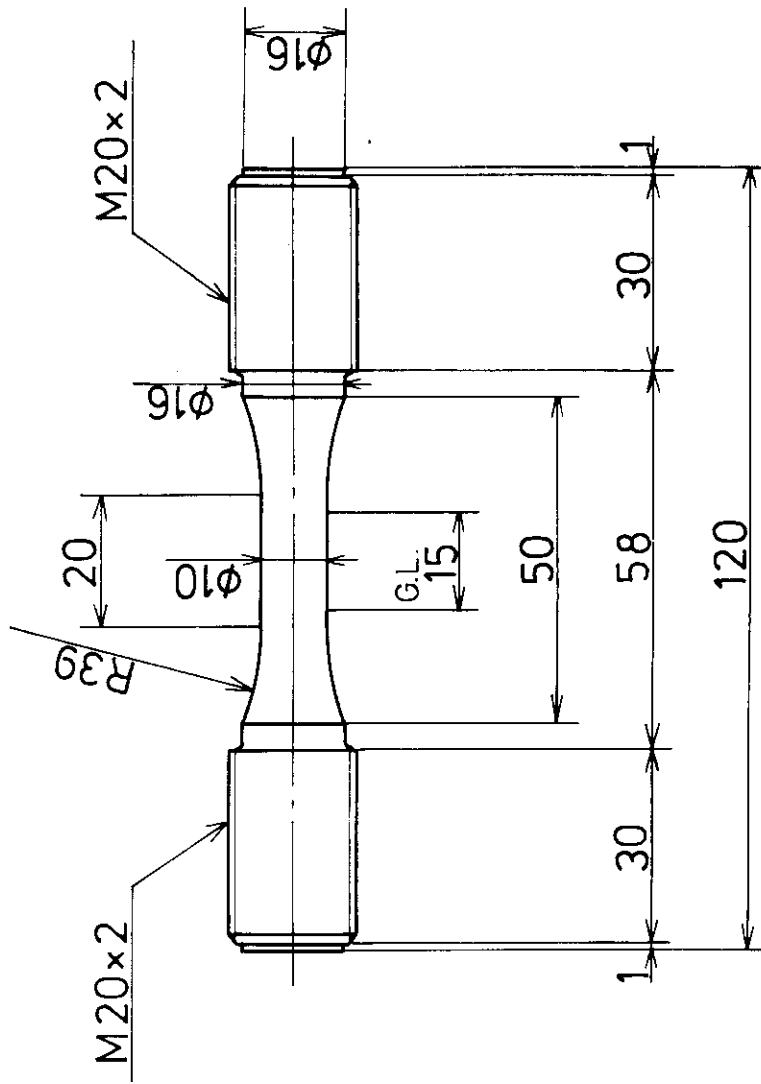


Fig.1 Geometry of specimen (unit:mm).

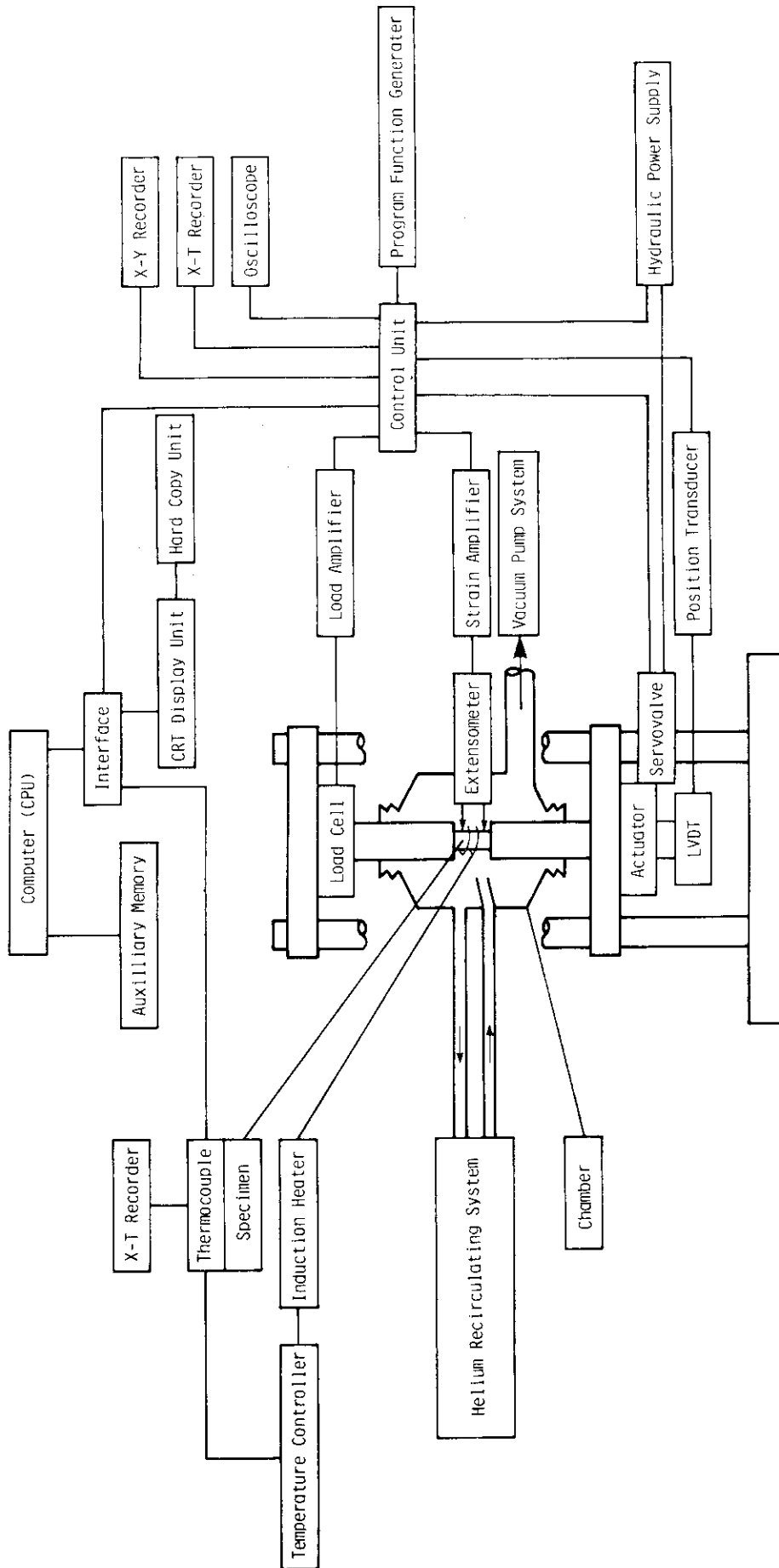


Fig.2 Block diagram of the fatigue test apparatus.

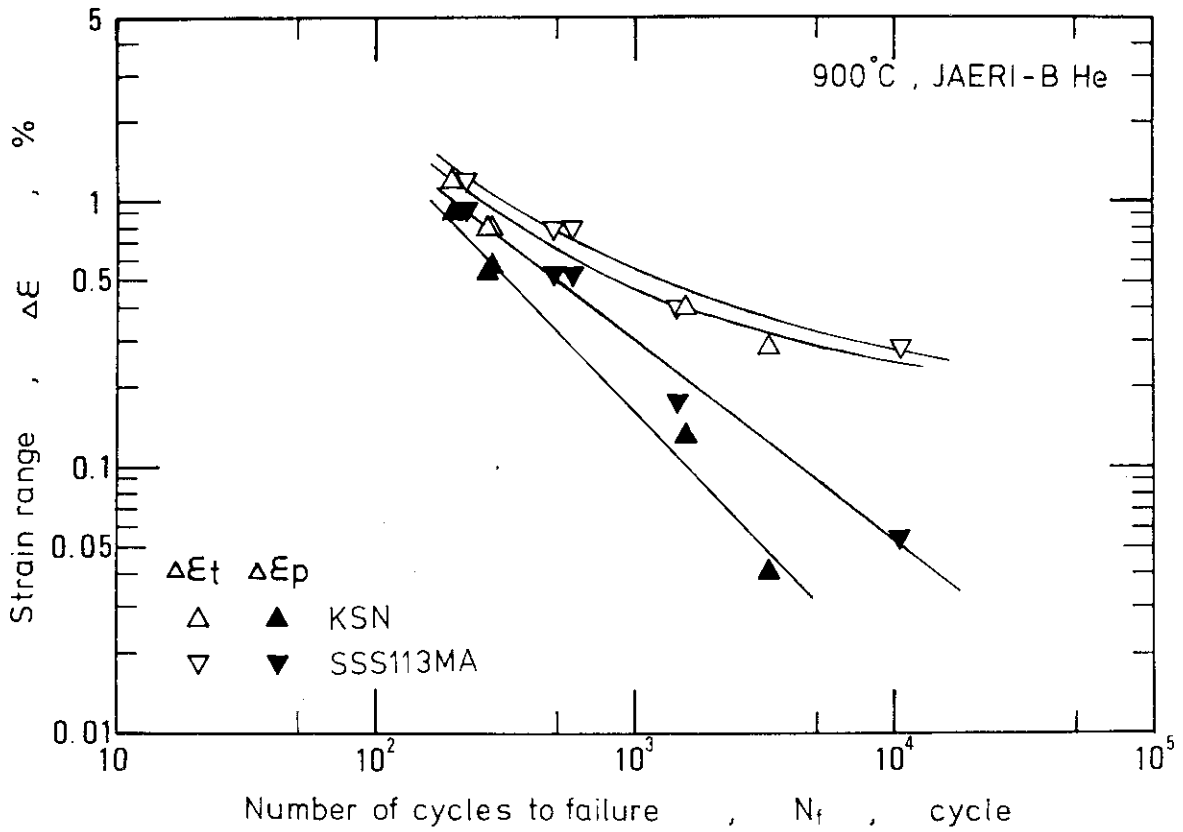


Fig.3 Summary results of low-cycle fatigue tests in JAERI-type B helium.

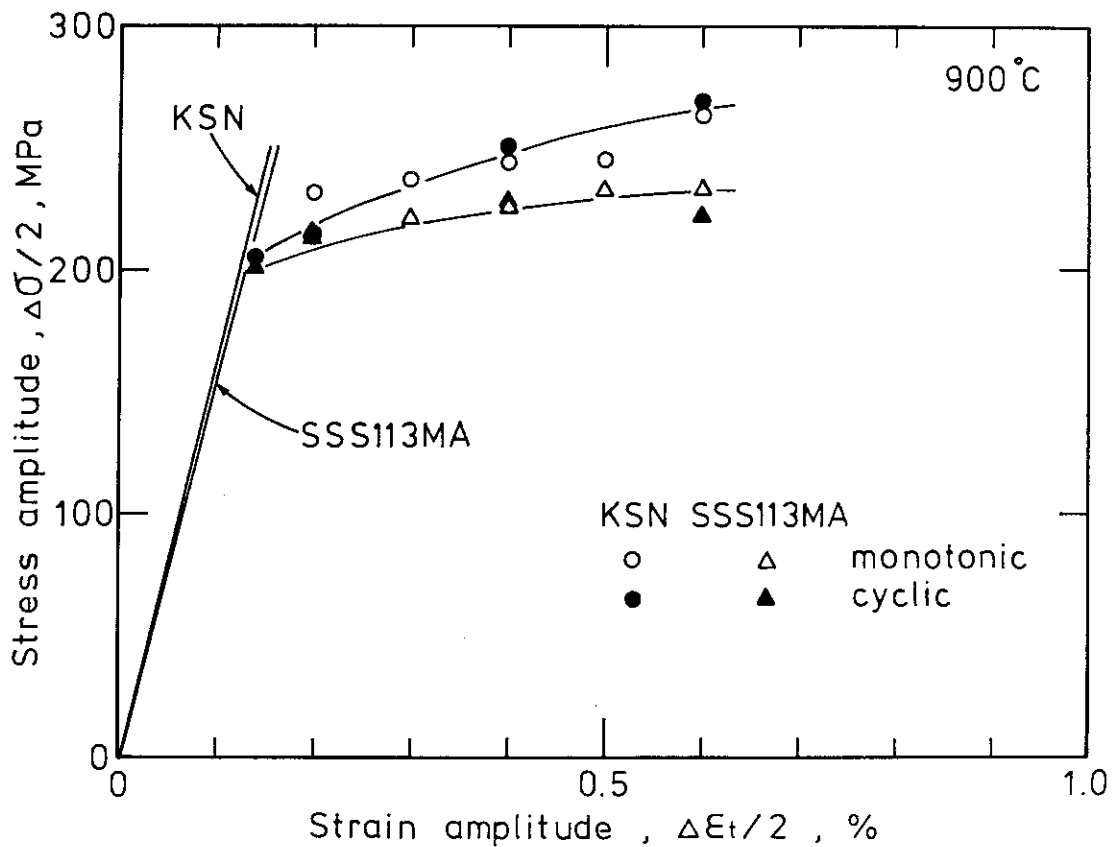


Fig.4 Cyclic and monotonic stress-strain curves.

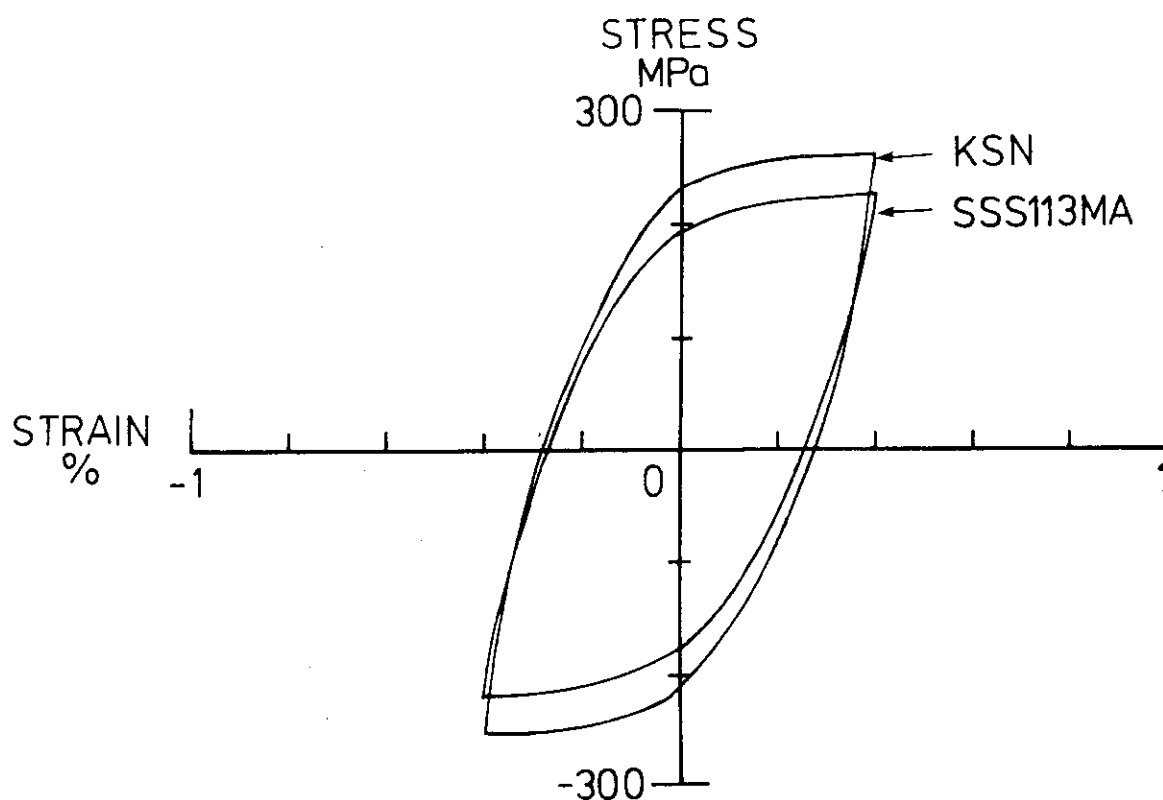


Fig.5 Recorded hysteresis loops during fatigue tests.

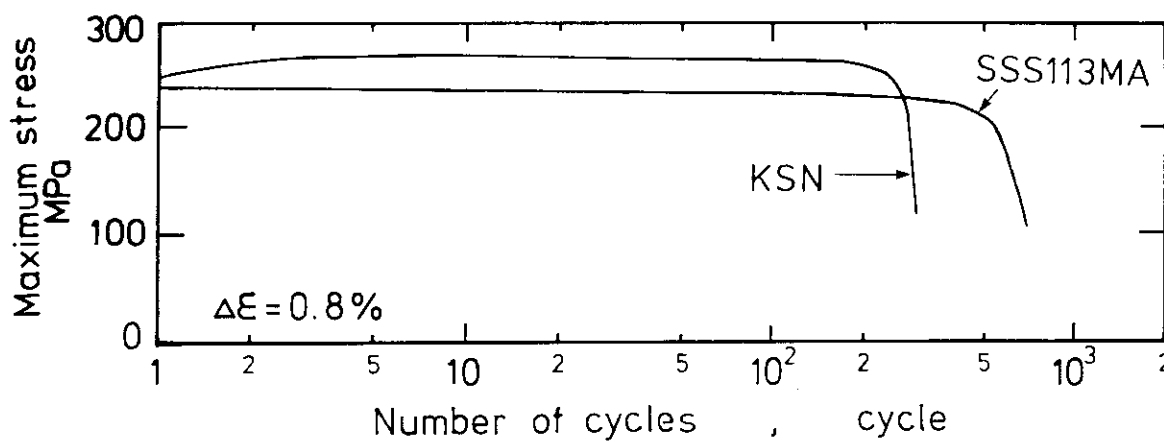


Fig.6 Stress response during strain-controlled low-cycle fatigue tests.

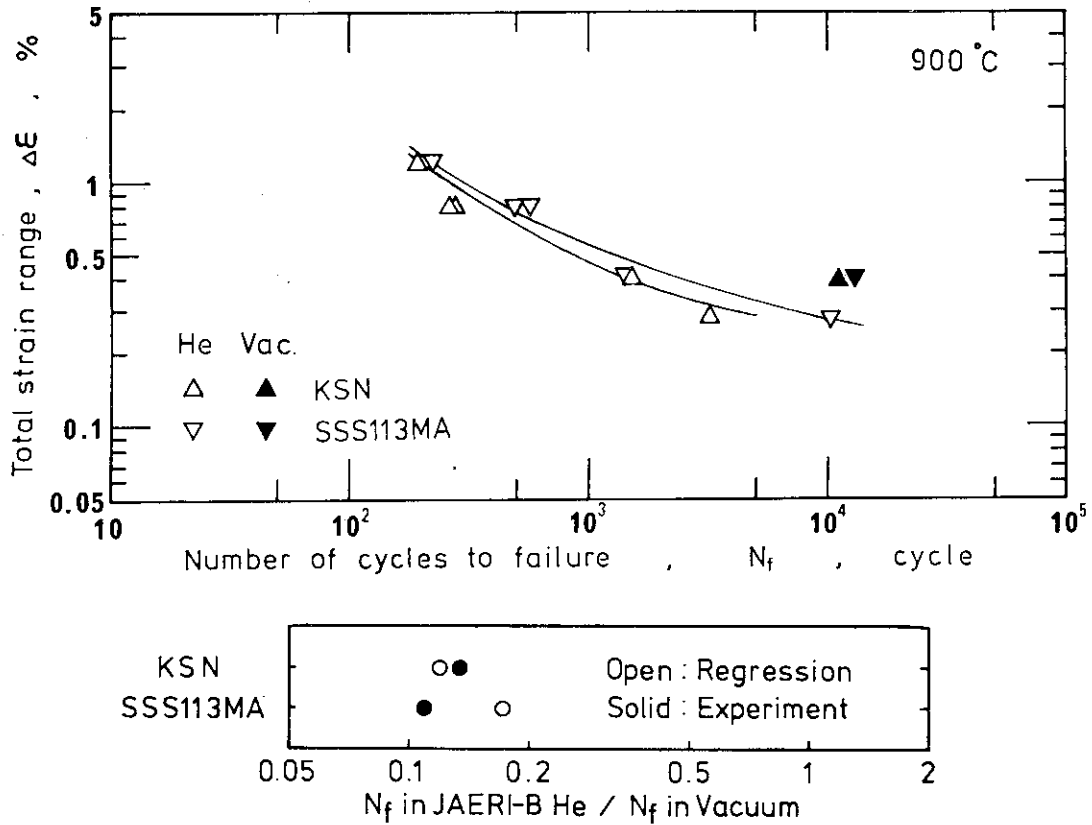


Fig.7 Summary results of low-cycle fatigue tests in JAERI-type B helium and $1\sim 3 \times 10^{-6}$ Pa vacuum.

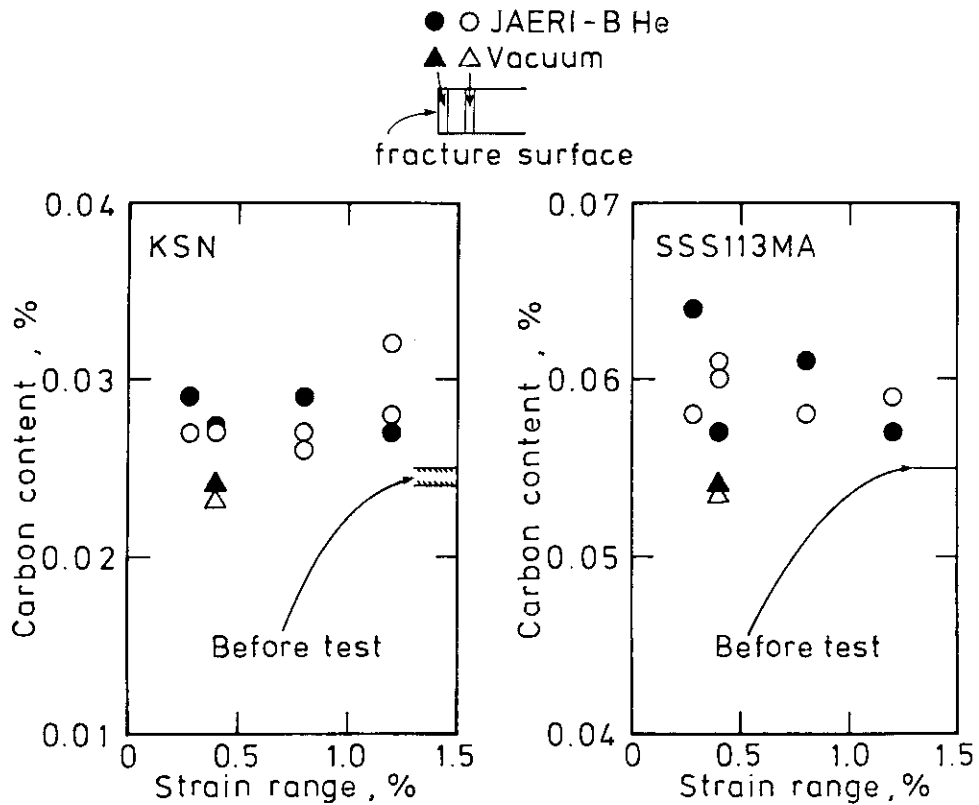


Fig.8 Changes in bulk carbon content of the fatigued specimens.

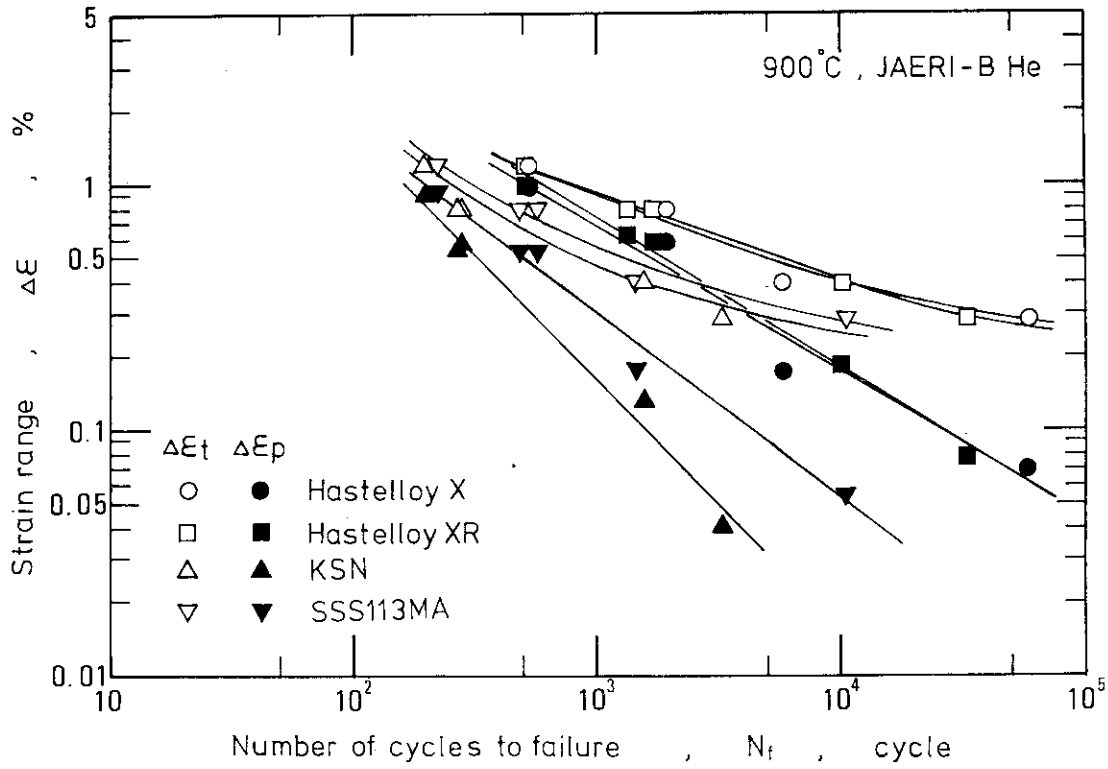


Fig.9 Relation between strain range versus the number of cycles to failure obtained in the tests performed in JAERI-type B helium.

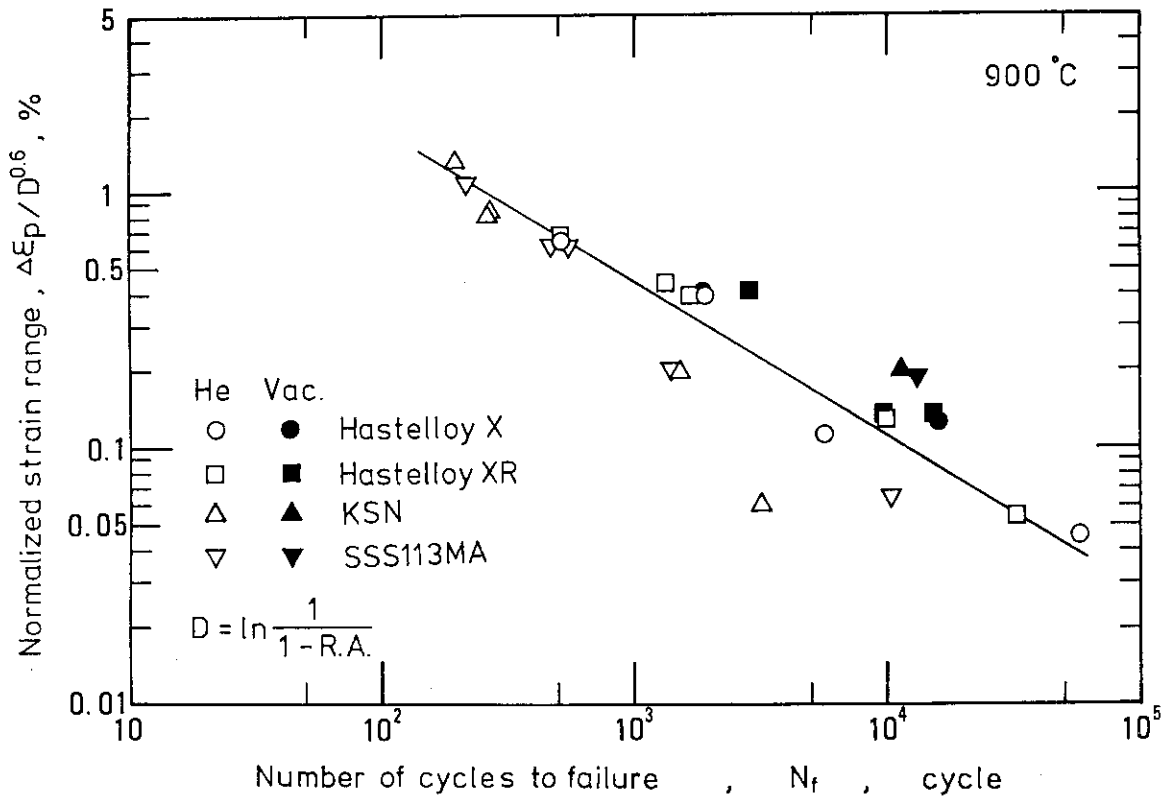


Fig.10 Relation between the normalized strain range versus the number of cycles to failure.

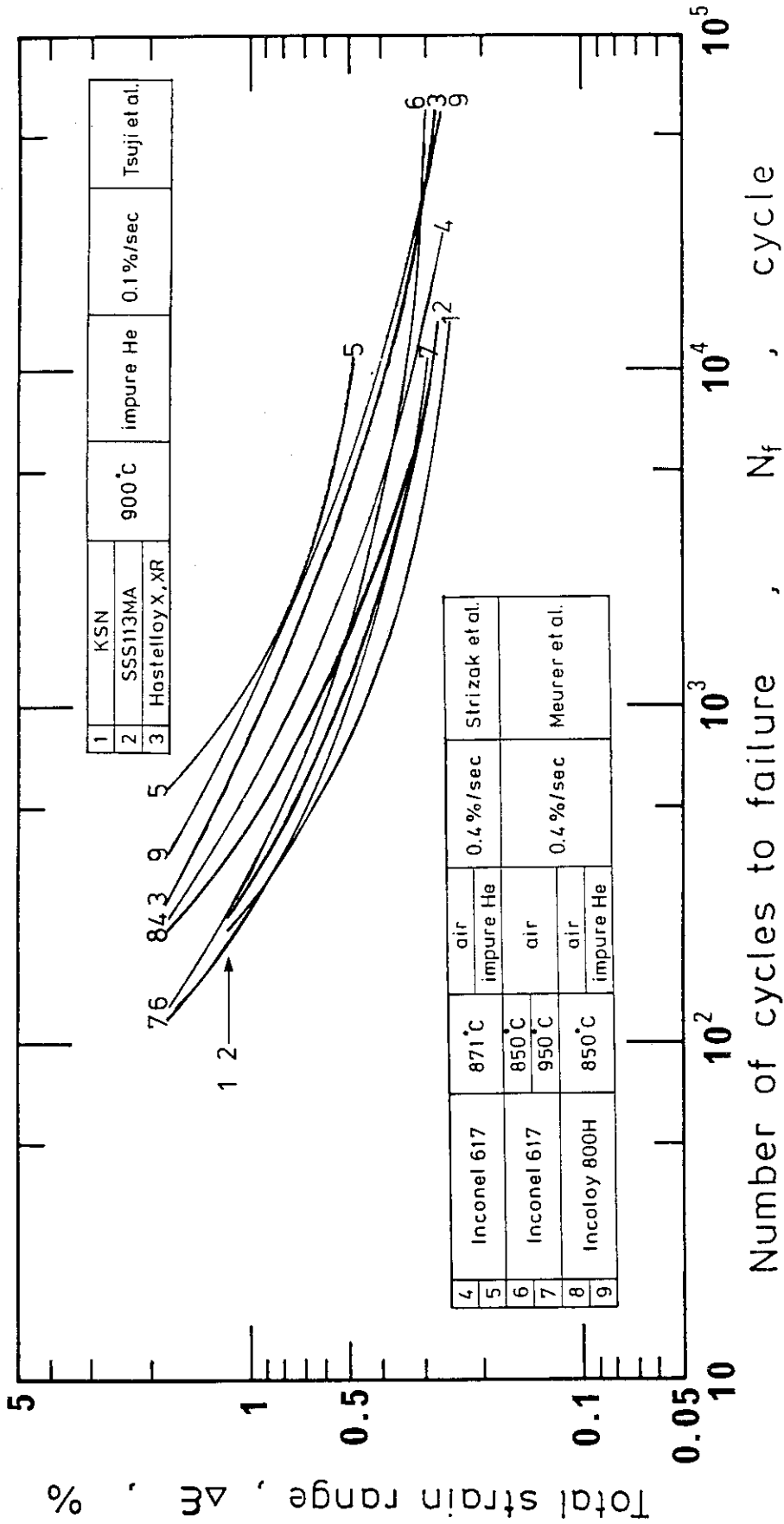


Fig.11 Comparison of the low-cycle fatigue data of several heat-resistant alloys.

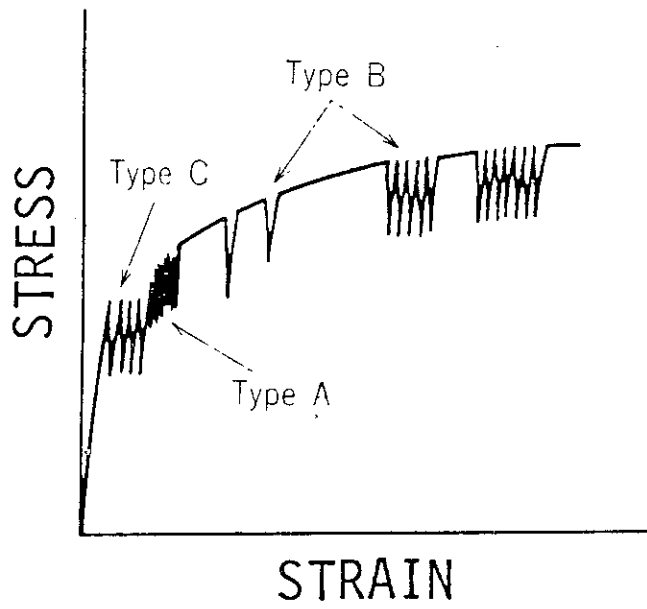


Fig.12 Schematic stress-strain curve with typical serrations.

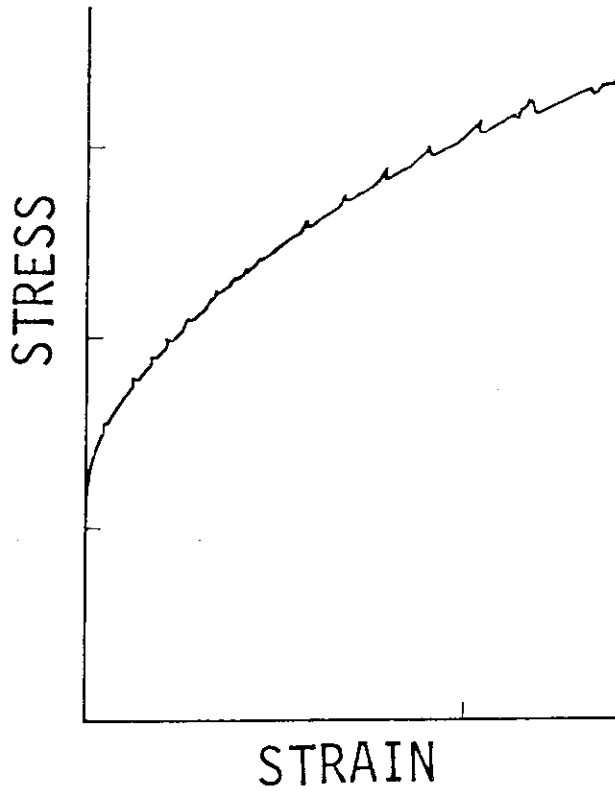


Fig.13 Schematic stress-strain curve with pop-out type serrations.

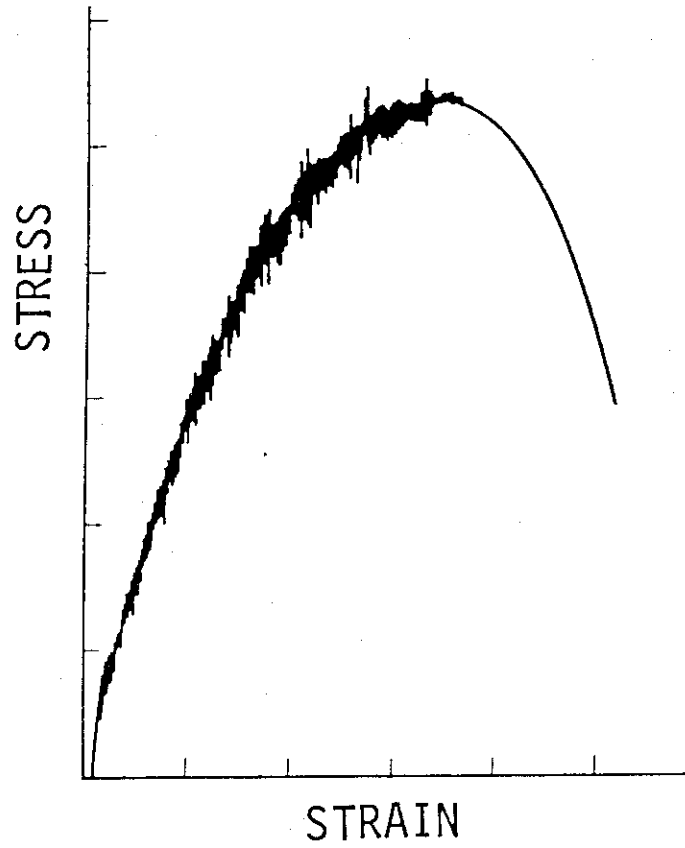


Fig.14 Schematic stress-strain curve with irregular type serrations.

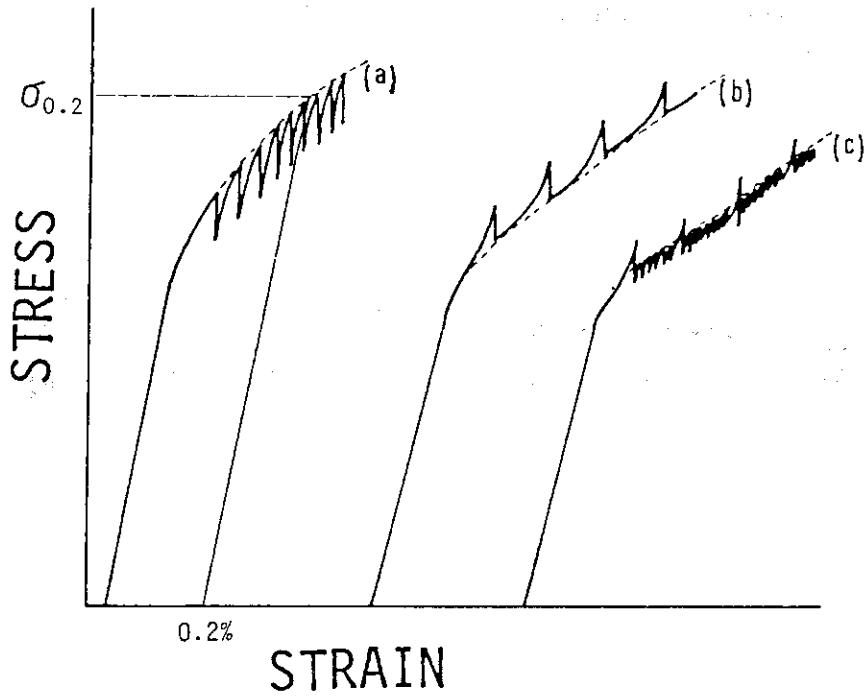


Fig.15 A method of determining $\sigma_{0.2}$ in stress-strain curves with serrations.

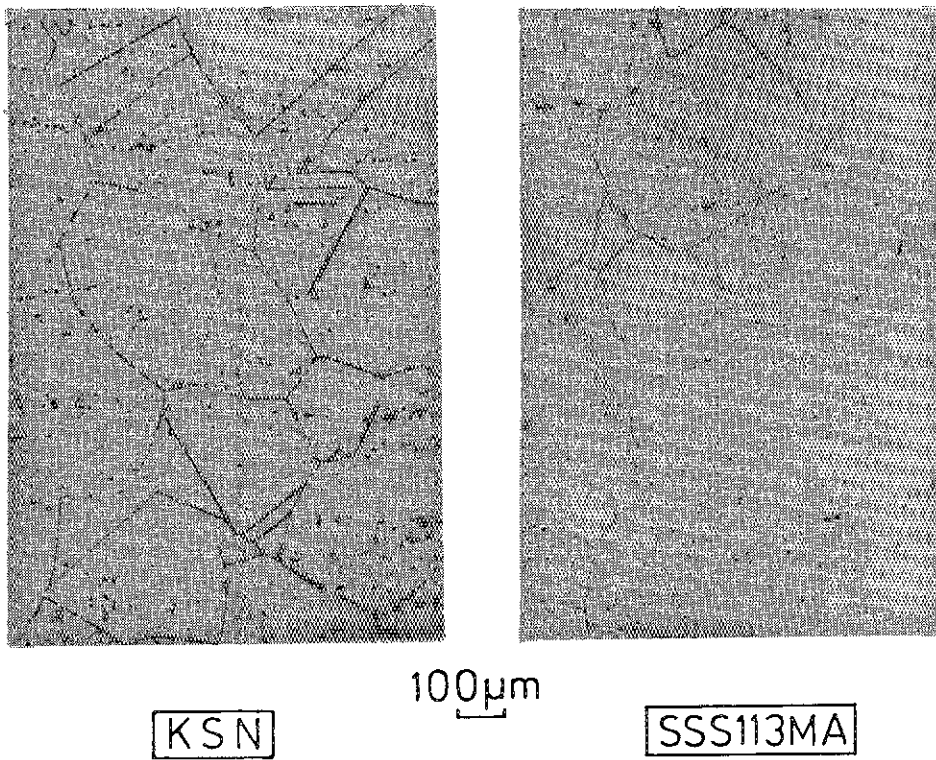


Photo 1 Optical microstructures of KSN and SSS113MA.

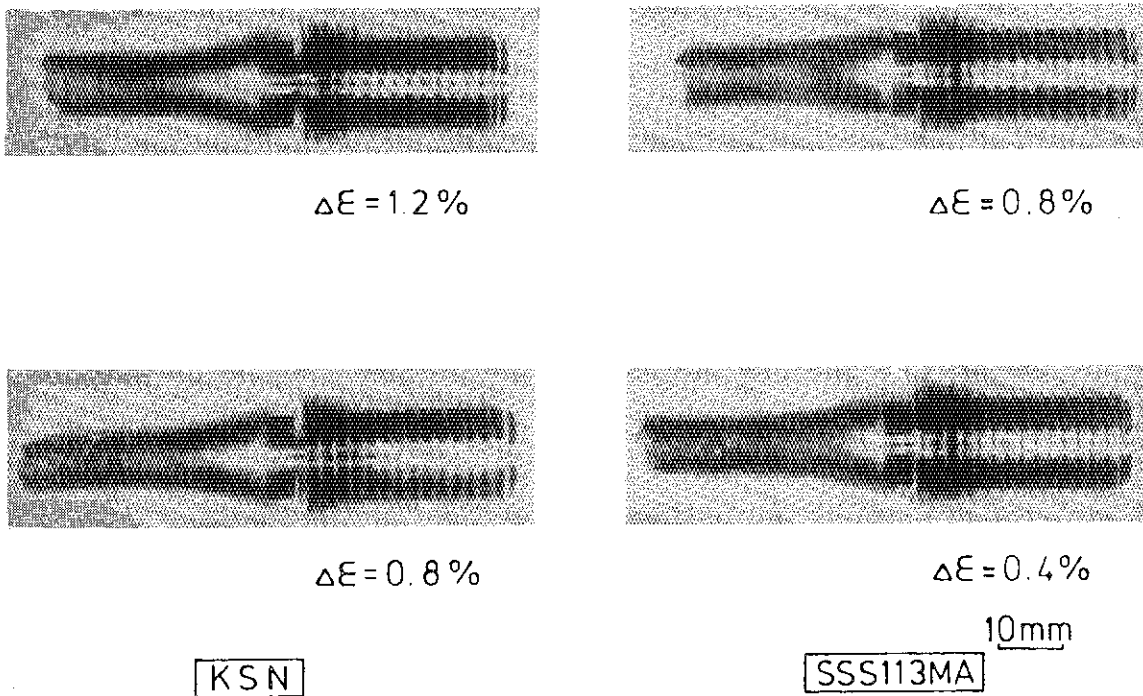
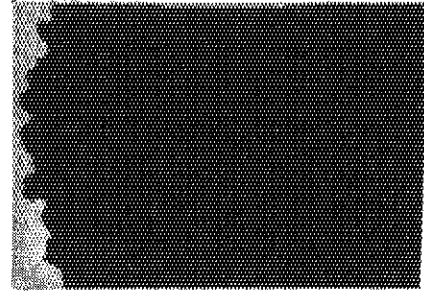
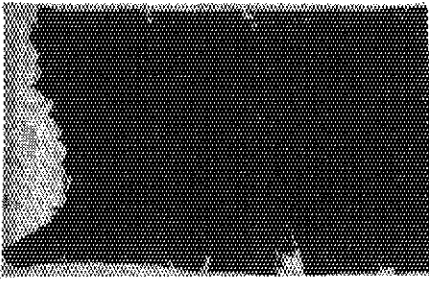
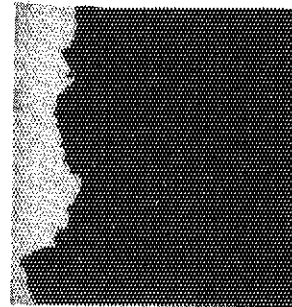
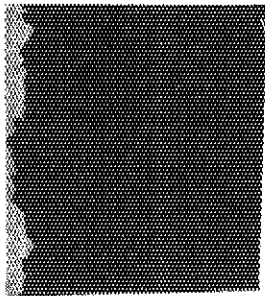


Photo.2 Typical appearance of the fatigued specimens in JAERI-type B helium.



900°C , JAERI - B He , $\Delta E = 0.8\%$



900°C , Vacuum , $\Delta E = 0.4\%$

5 mm

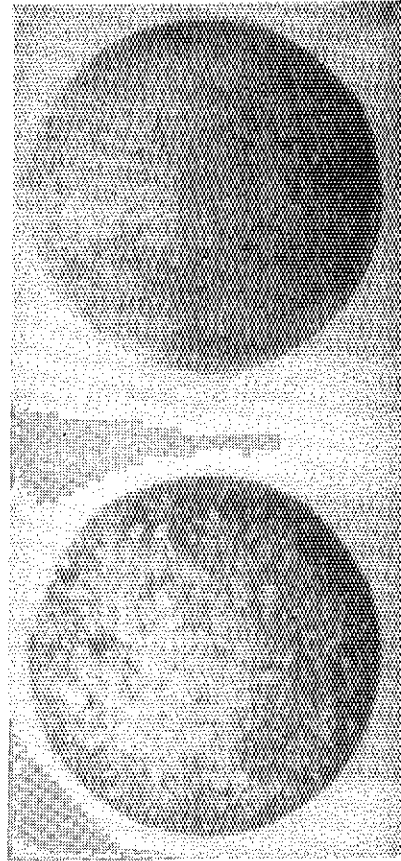
KSN

SSS113MA

Photo.3 Cross-sectional views of the near-fracture regions after low-cycle fatigue tests.



$\Delta\varepsilon = 1.2\%$ $\Delta\varepsilon = 0.4\%$

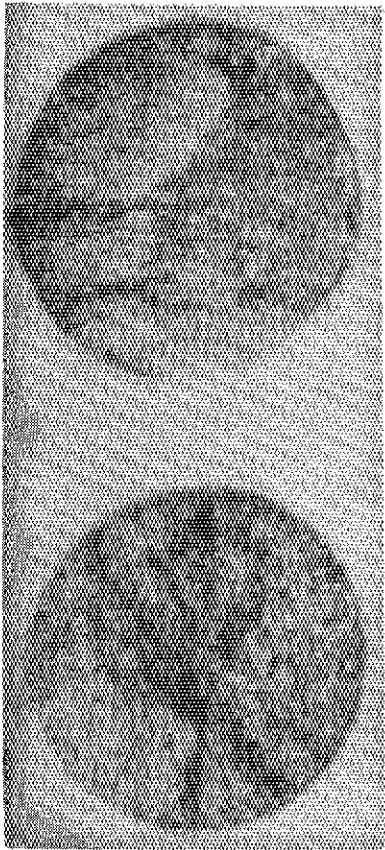


$\Delta\varepsilon = 0.8\%$ $\Delta\varepsilon = 0.28\%$

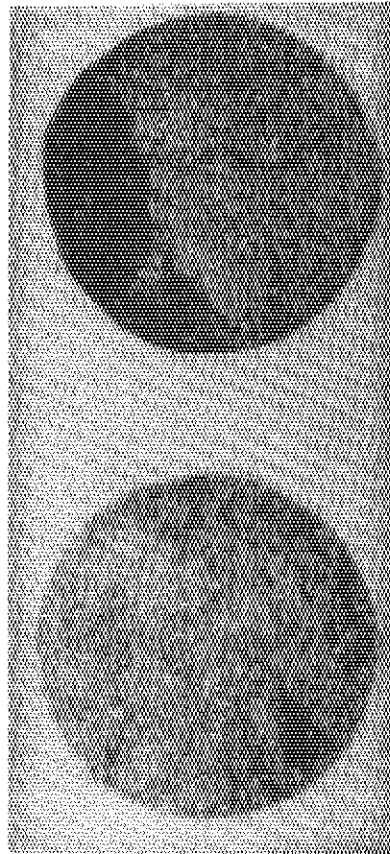
5 mm

KSN, 900°C, JAERI-B He

Photo.4 Fractographical features after fatigue tests in JAERI-type B helium (KSN).



$\Delta\varepsilon = 1.2\%$ $\Delta\varepsilon = 0.4\%$



$\Delta\varepsilon = 0.8\%$ $\Delta\varepsilon = 0.28\%$

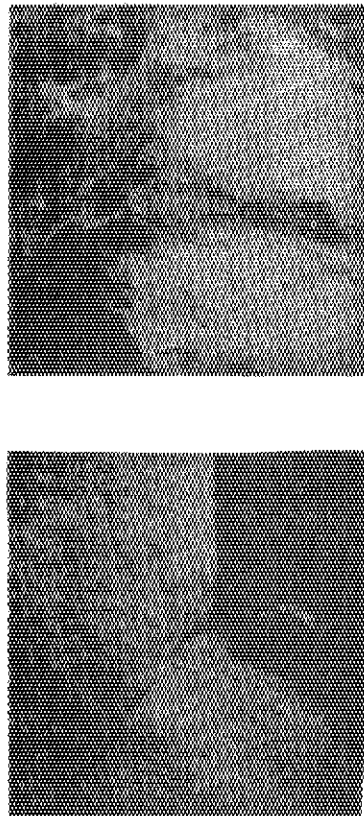
5 mm

SSS113MA, 900°C, JAERI-B He

Photo.5 Fractographical features after fatigue tests in JAERI-type B helium (SSS113MA).



100 μm



50 μm

[KSN]

[SSS113MA]

900 °C , ΔE=0.4% , Vacuum

Photo.6 Scanning electron micrographs of typical fracture surfaces of the specimens tested in vacuum.



100 μm
ΔE = 1.2 %



100 μm
ΔE = 0.8 %



100 μm
ΔE = 0.4 %

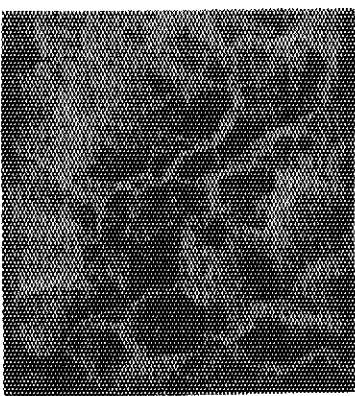


200 μm
ΔE = 0.28 %

900 °C , JAERI-B He

[KSN]

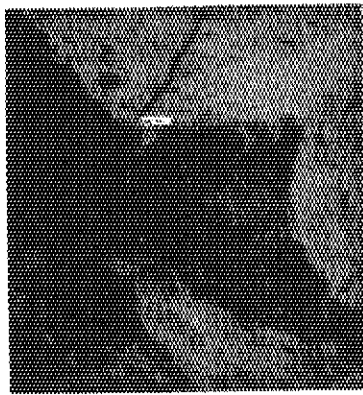
Photo.7 Scanning electron micrographs of typical fracture surfaces (KSN,JAERI-type B helium).



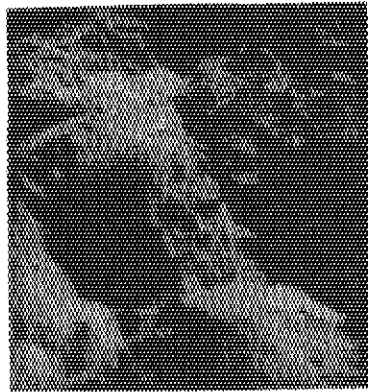
500 μm
 $\Delta\epsilon = 0.8\%$



200 μm
 $\Delta\epsilon = 0.28\%$



100 μm
 $\Delta\epsilon = 1.2\%$



100 μm
 $\Delta\epsilon = 0.4\%$

900 °C, JAERI-B He

SSS113MA

Photo.8 Scanning electron micrographs of typical fracture surfaces (SSS113MA, JAERI-type B helium).

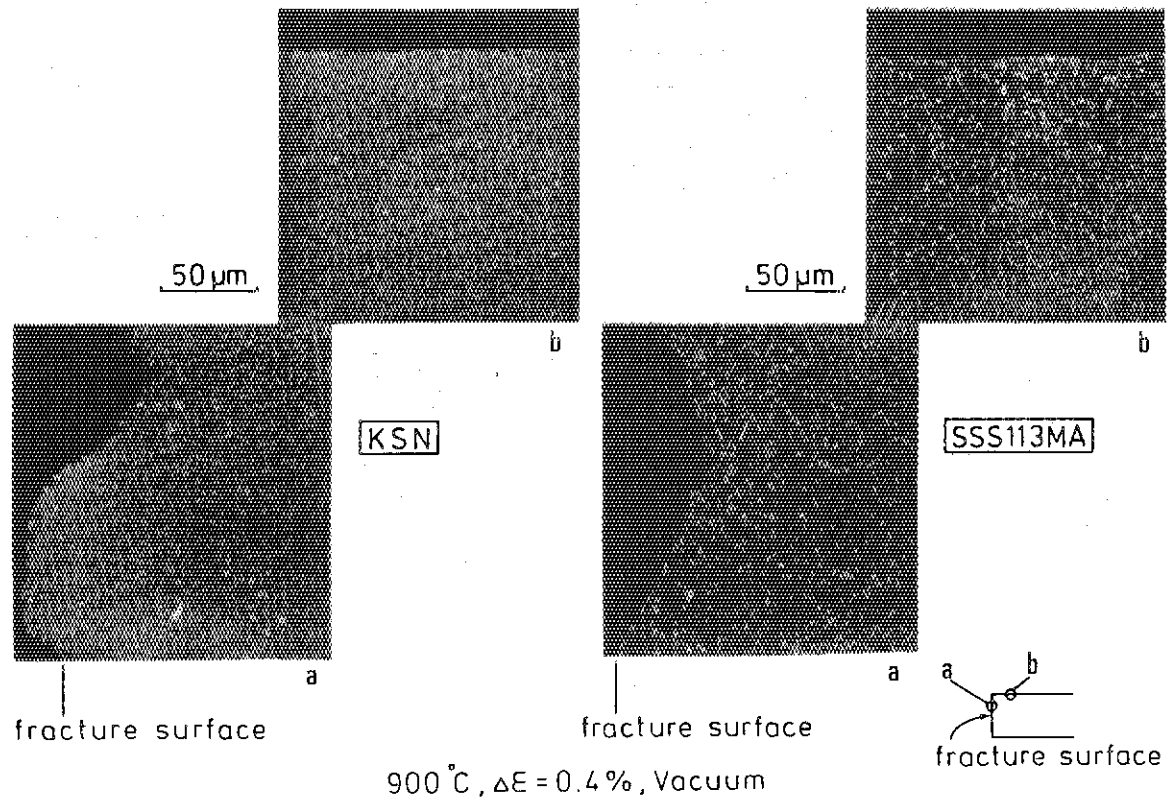


Photo.9 Compositional images of near-fracture regions after low-cycle fatigue tests in vacuum.

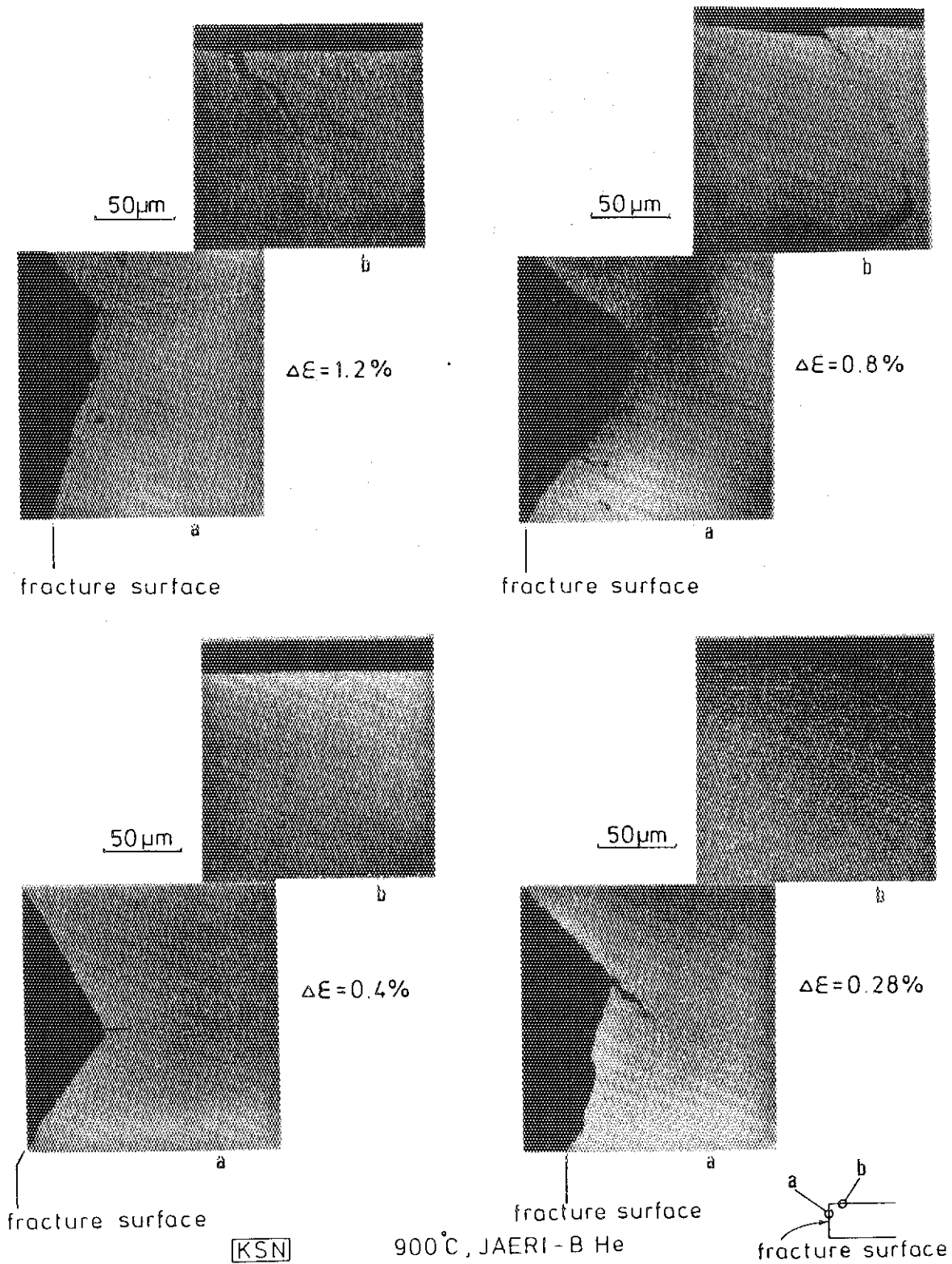


Photo.10 Compositional images of near-fracture regions after low-cycle fatigue tests in JAERI-type B helium (KSN).

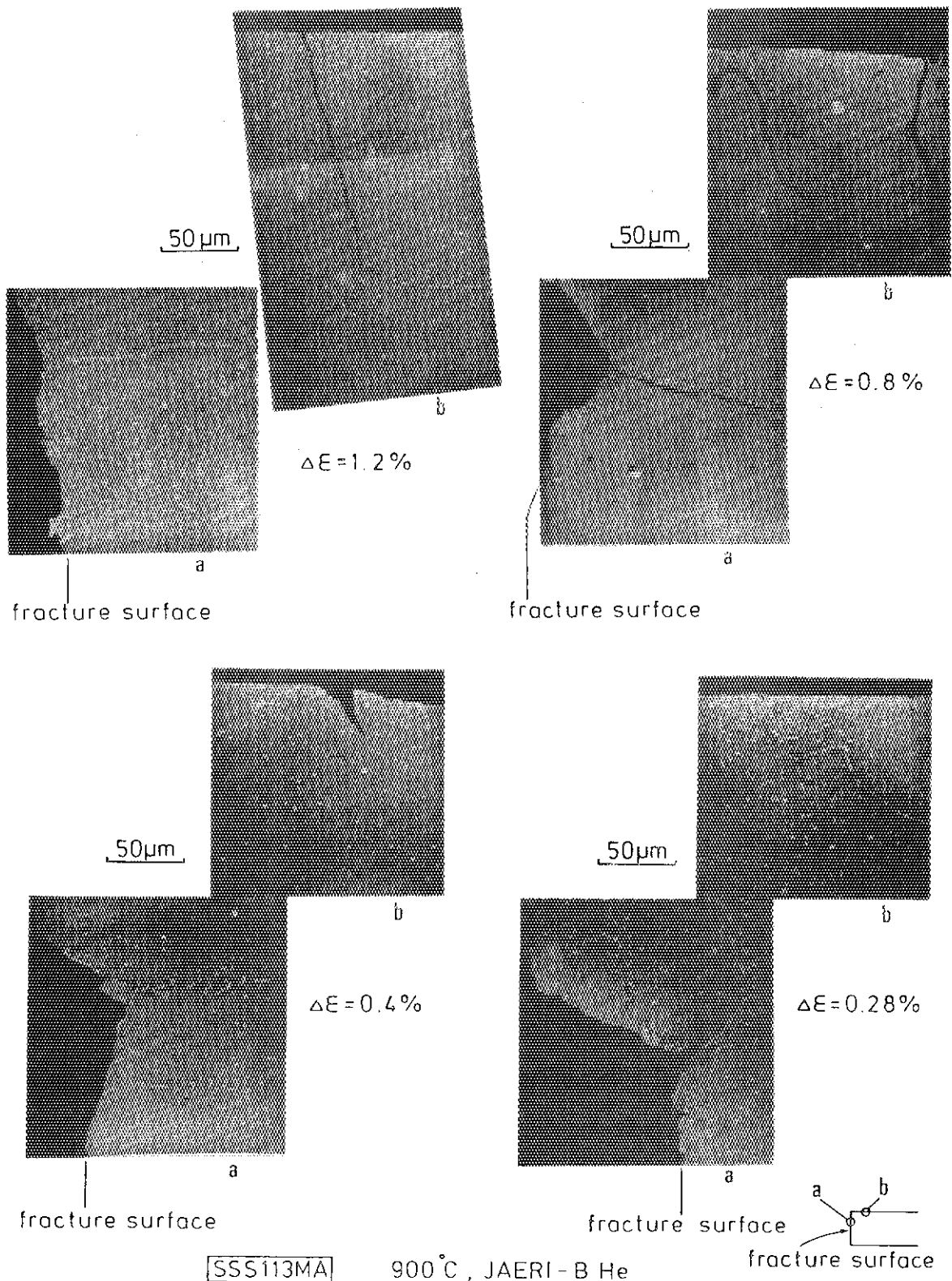


Photo.11 Compositional images of near-fracture regions after low-cycle fatigue tests in JAERI-type B helium (SSS113MA).

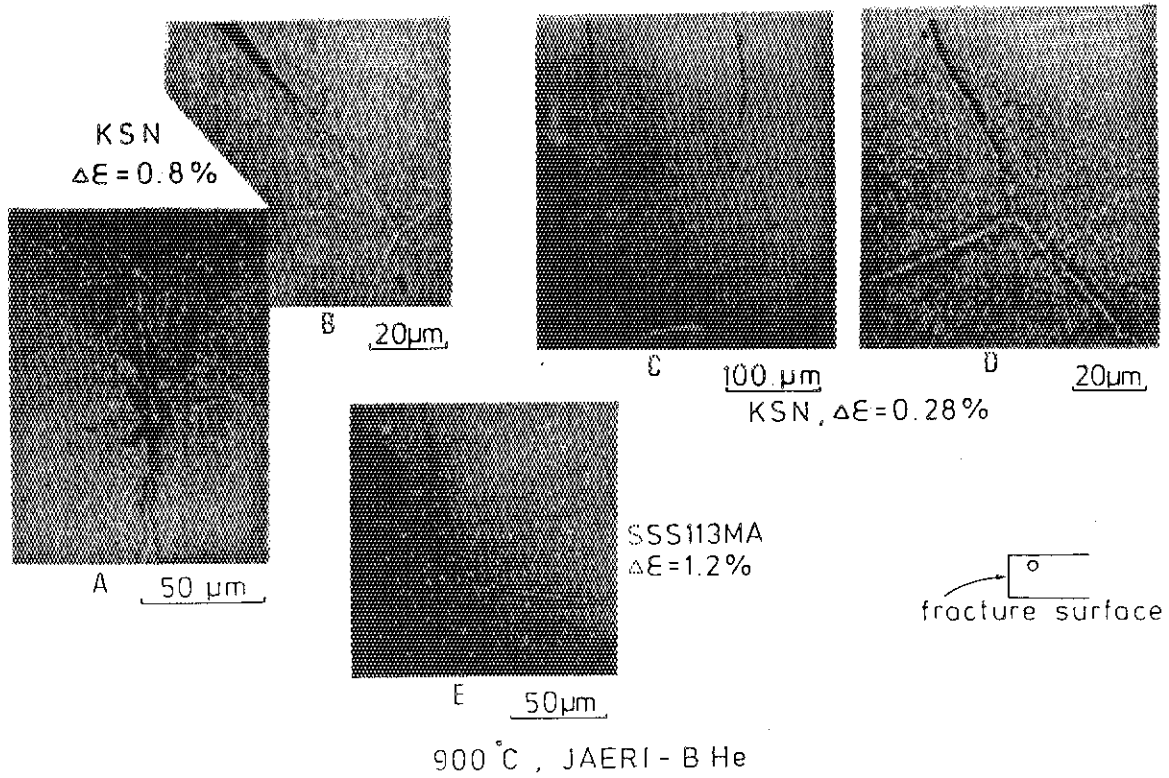


Photo.12 Compositional images of crack tip regions after low-cycle fatigue tests in JAERI-type B helium.

SSS113MA, 900 °C, 3000hr

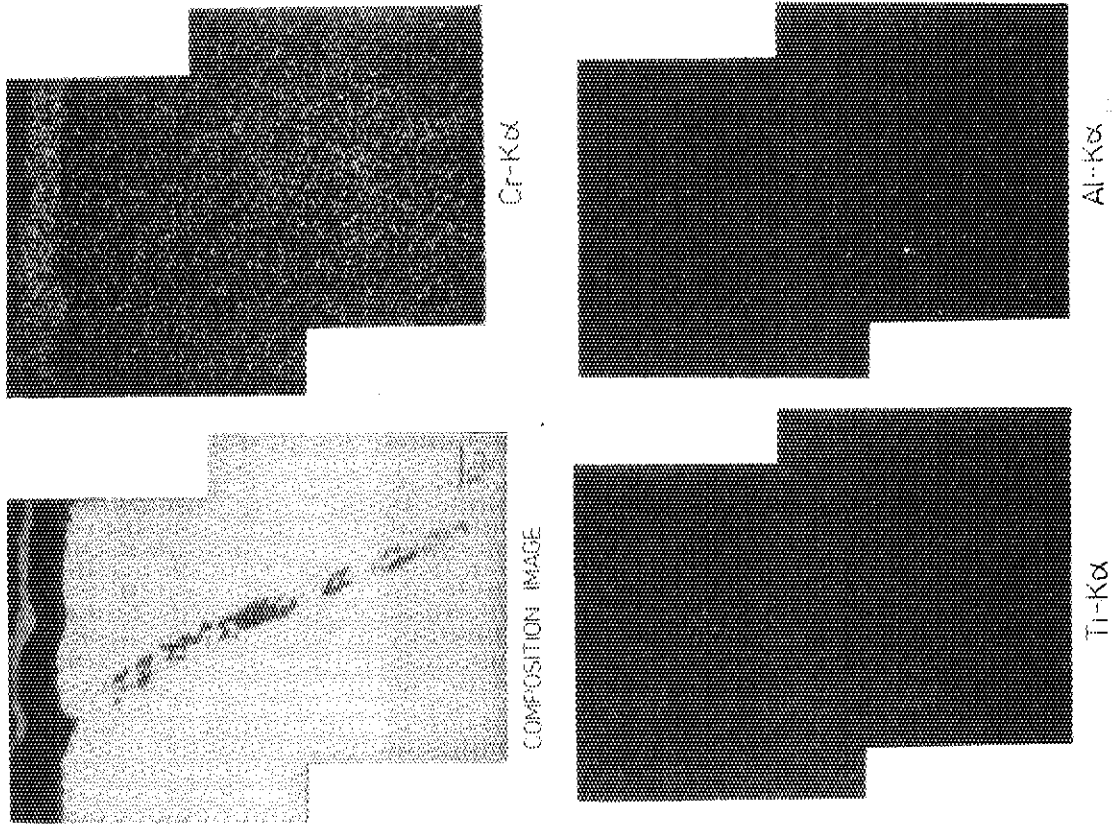


Photo.14 Characteristic X-ray images of the intergranularly oxidized region in SSS113MA alloy exposed to JAERI-type B helium at 900 °C for 3000hr.

KSN, 900°C, 3000hr

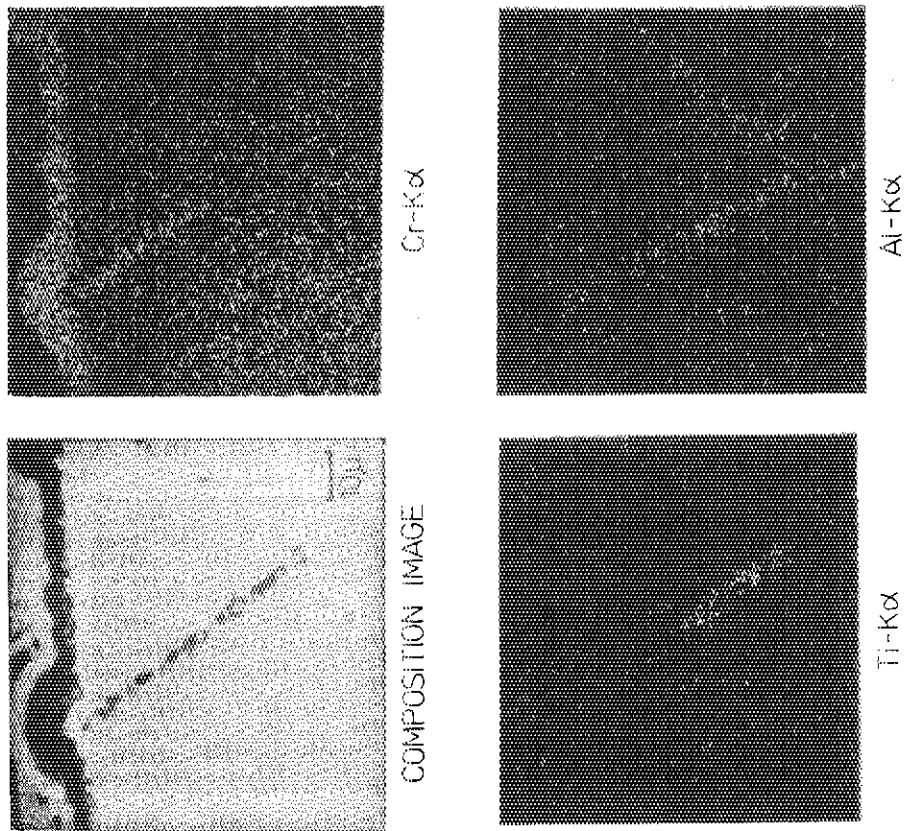


Photo.13 Characteristic X-ray images of the intergranularly oxidized region in KSN alloy exposed to JAERI-type B helium at 900 °C for 3000hr.

1000°C, 3000hr

KSN



SSS113MA

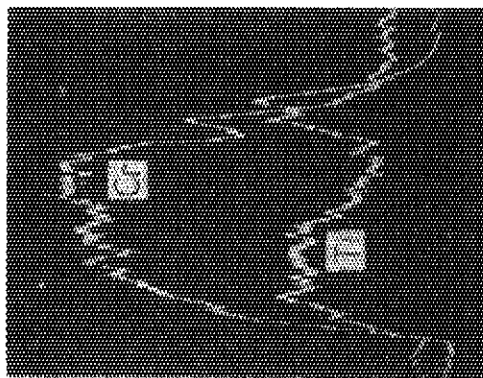
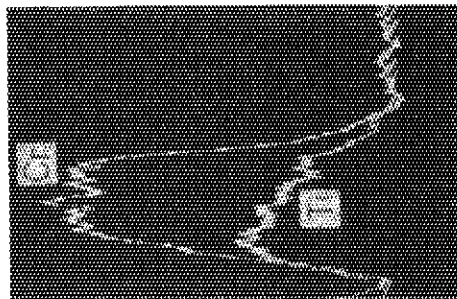
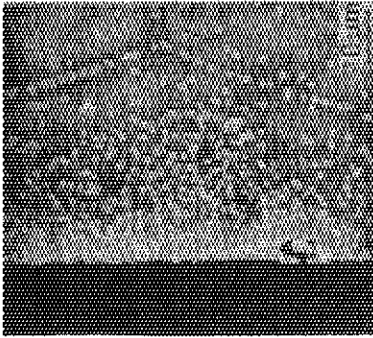


Photo. 15 Concentration profiles of Cr and Ti through cross-section of oxide film formed on KSN and SSS113MA alloys exposed to JAERI-type B helium at 1000 °C for 3000hr.



KSN



SSS113MA

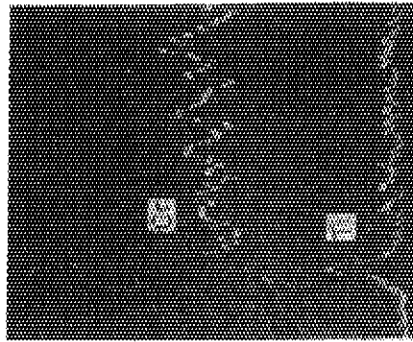
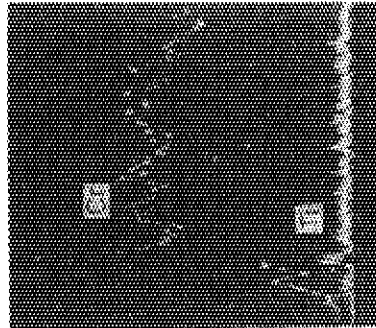


Photo. 16 Concentration profiles of Cr and Ti through cross-section of oxide film formed on KSN and SSS113MA alloys fatigued at 900 °C in JAERI-type B helium.
900 °C, $\Delta E=0.28\%$, JAERI - B He