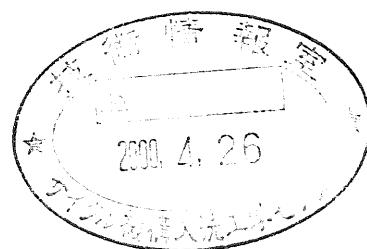


高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子
— 数値計算による成長シミュレーション —
(研究報告)

2000年3月



核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

高温下におけるキャビティ生成・成長の加速・抑制因子

—数値計算による成長シミュレーション—

(研究報告)

向井将一*, 上野文義*

要旨

キャビティの生成・成長挙動に関する研究は、クリープ試験により得られた破断後の試験片の破面観察、あるいは中断試験で得られた試料を観察することにより行われることが多いが、結晶粒界に発生した1ミクロン程度のキャビティの成長挙動を連続観察により経時的に把握することは容易ではない。数値計算によるシミュレーションは観察が困難な材料内部の局所的な挙動を連続的に追跡できるため、キャビティの成長挙動を検討する上で有効な手段となることが考えられる。

本研究では、結晶粒界に発生したキャビティの成長挙動について拡散方程式を用いた数値シミュレーションを試み、表面拡散/粒界拡散、応力等の因子がキャビティの成長におよぼす影響について以下の知見を得た。

- (1)粒界拡散が表面拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティはき裂形状に遷移する。一方、表面拡散が粒界拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティは初期形状を保ちながら成長する。
- (2)粒界拡散が表面拡散に比べ十分大きい場合には、粒界に作用する垂直応力に誘起された粒界拡散によりキャビティ先端部付近の成長速度が著しく加速される。
- (3)表面拡散が粒界拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティ表面での化学ポテンシャルの分布はほぼ均一であるが、粒界拡散が表面拡散に比べ大きくなるにつれて、キャビティ先端部での化学ポテンシャルの勾配が大きくなる。

* 大洗工学センター ナトリウム安全工学試験部 機器構造安全工学グループ

The acceleration factor and inhibitor of the generation and growth of the cavity at high temperature

— Computer simulation on growth of cavity —

Shoich MUKAI*, Fumiyoishi UENO*

Abstracts

It is difficult to get hold the behave of growth of cavity which nucleates in grain boudary in experimental observation. It is considerd that numerical simulation is effective for the grasp of behave of cavity growth, because it is able to grasp the microscopic behavior of internal material whici is hardly observation.

We examine the factor that the diffusive ratio and the stress etc., affected growth of cavity on grain boundary with numerical simulation using diffusive equation. As the result, a following knowledge was obtained.

- (1)With dominant of grain boundary diffusion, the shape of cavity transitions from quasi-equilibrium to crack-like. In other hand, with dominant of surface diffusion, cavity grows up with initial shape.
- (2)With dominate of grain boundary diffusion, it accelerates the growth rate of the cavity near the tip by grain boundary diffusion induced stressing perpendicular to gain boundary
- (3)With dominant of surface diffusion, the distribution of chemical potential is uniformity on cavity surface. In other hand, with dominant of grain boundary diffusion compare to that of surface diffusion, the gradient of chemical potential is increased at the tip of cavity.

* Structural Safety Section, Safety Engineering Division, Oharai Engineering Center

目次

1.緒言	1
2.支配方程式とモデル化	2
2.1 キャビティ表面での拡散	2
2.2 結晶粒界上での拡散	2
2.3 境界条件	2
2.4 モデル化	3
3.結果および考察	4
4.結言	5
5.参考文献	6

図表一覧

Table 1 Conditions for analysis.

- Fig.1 Boundary conditions.
- Fig.2 Discrimination of model for analysis.
- Fig.3 Change in morphology of cavity and distribution of chemical potential at cavity surface with no-dimensional time.
- Fig.4 Relationship between no-dimensional growth rate of cavity and no-dimensional time.

1. 緒言

高速炉や火力発電プラントの使用条件のようなクリープの影響が顕著となる高温・低応力条件下では、耐熱材料は次の段階を経て破壊に至る。

- (1) 多数のクリープキャビティが結晶粒界上に発生し、それらが合体しながら成長する段階
- (2) 結晶粒界長さ程度の微小き裂が多数発生し、それらが合体しながら伝ばする段階
- (3) 優先的に伝ばし、合体した微小き裂が巨視き裂を形成し、それが破壊力学則に従いながら伝ばする段階

しかし、巨視き裂が発生するのは寿命末期であり、このような条件下での損傷機構は材料内部の粒界キャビティの成長により説明できることが示されている[1]。このうち(1)の段階における構造材の微視的損傷機構を明らかにすることは、クリープ損傷評価技術の確立をはかるうえで重要である。

キャビティの生成・成長挙動に関する研究は、主にクリープ試験を行い、破断後の試験片の破面観察、あるいは中断試験で得られた組織観察により行われている。試験時間の初期段階で多数のキャビティが発生し、試験時間が経過するにつれてキャビティの大きさやその数が増大すること[2]や応力が高い試験条件ではキャビティがき裂形状をなし、応力が低くなるほど円盤形状をなしていること、そしてキャビティが粒界3重点に多数発生していること[3]が報告されている。しかしながら、結晶粒界上に発生した1ミクロン程度のキャビティの成長挙動を連続観察により実験的に把握することは容易ではない。数値解析は観察が困難な材料内部の局所的な挙動を連続的に追跡できることから、計算機によるシミュレーションはキャビティの成長挙動を検討する上で有効な手段であると考えられる。

本研究では、結晶粒界上に発生したキャビティの成長挙動について拡散方程式を用いた数値シミュレーションを行い、表面拡散/粒界拡散、応力等の因子がキャビティの成長におよぼす影響について検討を試みた。

2 支配方程式とモデル化[4]～[7]

2.1 キャビティ表面での拡散

キャビティ表面の化学ポテンシャル μ_s は表面形状に依存し、表面の曲率 κ の関数として

$$\mu_s = \mu_0 - \Omega \gamma_s \kappa \quad (1)$$

と表される。ただし、 μ_0 は平面のポテンシャル、 γ_s は表面エネルギーである。このときの固体表面の拡散による原子のフラックス J_s は、次式のように表面に沿った化学ポテンシャル μ_s の勾配に支配される。

$$J_s = \frac{D_s \delta_s}{\Omega kT} \left(\frac{\partial \mu_s}{\partial s} \right) = \frac{D_s \delta_s \gamma_s}{kT} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial s} \right) \quad (2)$$

ここで、 D_s は表面拡散係数、 δ_s は表面拡散層の厚さ、 Ω は原子容積、 k はボルツマン定数、 T は絶対温度、 s は表面に沿う距離である。

また、キャビティ表面における接線に対する法線方向の相対変形速度は

$$v = \frac{\partial J_s}{\partial s} = \frac{D_s \delta_s \gamma_s \Omega}{kT} \left(\frac{\partial^2 \kappa}{\partial s^2} \right) \quad (3)$$

で与えられる。

2.2 結晶粒界での拡散

粒界における化学ポテンシャル μ は垂直応力 σ_n に依存し、次式のように表される。ただし、粒界上に作用する応力は σ_n のみで、他の応力成分は 0 とする。

$$\mu_b = \mu_0 - \Omega \sigma_n \quad (4)$$

ここで、 μ_0 は無負荷時の化学ポテンシャルである。このときの粒界に沿う原子の拡散は、以下の関係で表される

$$J_b = \frac{D_b \delta_b}{\Omega kT} \left(\frac{\partial \mu_b}{\partial x} \right) = \frac{D_b \delta_b}{kT} \left(\frac{\partial \sigma_n}{\partial x} \right) \quad (5)$$

2.3 境界条件

結晶粒界とキャビティ先端の会合点では、熱力学的な局所的エネルギーバランスに

より

$$2\gamma_s \cos\psi = \gamma_b \quad (6)$$

を満たす平衡角 ψ を形成する。なお、 γ_s および γ_b は、それぞれ表面エネルギー、粒界自由エネルギーである。また、キャビティ先端における化学ポテンシャルと原子フラックスの連続性より、それぞれ次の関係が得られる。

$$\begin{aligned} (\mu_s)_{tip} &= (\mu_b)_{tip} \quad \text{より} \\ (\sigma_n)_{tip} &= \gamma_s \kappa_{tip} \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} (J_b)_{tip} &= 2(J_s)_{tip} \quad \text{より} \\ \left(\frac{\partial \sigma_n}{\partial x} \right)_{tip} &= 2 \frac{D_s \delta_s \gamma_s}{D_b \delta_b} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial s} \right)_{tip} \end{aligned} \quad (8)$$

また、(7)(8)を解くと、粒界拡散による粒界溝からの原子の流出は次のキャビティ先端での曲率に関する方程式を得ることができる。

$$\kappa_{tip} = \frac{\sigma_n}{1-a/W} \left[1 - \frac{2}{3} \frac{W(1-a/W)^2}{F\sigma_n} \left(\frac{\partial \kappa}{\partial s} \right)_{tip} \right] , \quad F = \frac{D_b \delta_b}{D_s \delta_s} \quad (9)$$

ここで、F は粒界拡散と表面拡散の比である。

2.4 モデル化

計算は、以下のように各値を無次元化して行った。

$$\begin{aligned} \bar{\kappa} &= \kappa A_0 , \quad \bar{a} = \frac{a}{A_0} , \quad \bar{s} = \frac{s}{A_0} , \\ \bar{\sigma} &= \frac{\sigma A_0}{\gamma} , \quad \bar{v} = v \frac{kTA_0^3}{\Omega D_s \delta_s \gamma_s} , \quad \bar{t} = t \frac{\Omega D_s \delta_s \gamma_s}{kTA_0^4} \end{aligned} \quad (10)$$

ここで、 A_0 は $\bar{t}=0$ におけるキャビティ半径である。

解析は Fig.1 に示すように、垂直応力が負荷された結晶粒界にキャビティが等間隔に配列した場合について取り上げる。解析は Fig.2 に示す要素分割を行った。なお、モデル形状の対称性から、全体の 1/4 について行った。初期形状は擬平衡形状とし、

キャビティ表面を $N+1$ 個の等間隔の点で離散化する。まず、点 i での曲率半径は $\bar{\kappa}_i$ を点 $i-1, i, i+1$ の三点を通る円の半径の逆数として求める。なお、キャビティ先端における曲率 $\bar{\kappa}_N$ は(10)式を無次元化を行い、数値微分して求める。つぎに(2)より点 i での無次元化した表面に対する法線方向の変位速度を \bar{v}_i は(12)より求まる。

$$\bar{v}_i = \frac{2}{\bar{s}_{i+1} + \bar{s}_i} \left(\frac{(\bar{\kappa}_{i+1} - \bar{\kappa}_i)}{(\bar{s}_{i+1} - \bar{s}_i)} - \frac{(\bar{\kappa}_i - \bar{\kappa}_{i-1})}{(\bar{s}_i - \bar{s}_{i-1})} \right) \quad (11)$$

また、点 i での座標を (x_i, y_i) とすると微小時間 Δt 経過後の座標は

$$\begin{aligned} \bar{x}_i(\bar{t} + \Delta \bar{t}) &= \bar{x}_i(\bar{t}) + \bar{v}_i \Delta \bar{t} \sin \theta \\ \bar{y}_i(\bar{t} + \Delta \bar{t}) &= \bar{y}_i(\bar{t}) + \bar{v}_i \Delta \bar{t} \cos \theta \end{aligned} \quad (12)$$

となる。ここで、 θ は各点におけるキャビティ表面に対する法線方向の角度であり、

$$\theta = \tan^{-1} \left(-\frac{\bar{y}_{i+1} - \bar{y}_{i-1}}{\bar{x}_{i+1} - \bar{x}_{i-1}} \right) \quad (13)$$

より求まる。また、(5)の条件を満たすために (x_N, y_N) は、

$$(\bar{x}_N, \bar{y}_N) = (\bar{x}_{N-1} + \bar{y}_{N-1} / \tan \psi, 0) \quad (14)$$

なる関係より求めた。計算は Table1 に示す条件で行った。

3 結果および考察

Fig.3 は Table1 の条件におけるシミュレーションより得られたキャビティの形状およびキャビティ表面における(1)で表される化学ポテンシャルの時間に伴う変化を示す。なお、(1)における μ_0 は 0 として扱った。

同図より $F=0.001$ の場合には粒界に負荷される垂直応力によらず、ほとんど初期形状を保ちながら成長する様子がわかる。 F が大きくなる、すなわち粒界拡散が表面拡散に比べ大きくなるにつれて、キャビティ形状は粒界の垂直な向きに比べ、粒界方向

への成長が顕著となり、き裂に近い形状に変化する様子がわかる。一方、化学ポテンシャルは $F=0.001$ の場合にはキャビティの表面での場所によらず一定であり、キャビティの成長と共に化学ポテンシャルは 0 に近づく様子がわかる。これに対して、 F が大きくなると、キャビティの成長に伴い、キャビティ先端部の化学ポテンシャルは粒界に負荷された垂直応力の影響により急激に変化する。特に $F=10000$ の場合顕著である。すなわち、 F が大きくなり、粒界垂直応力が大きくなるにつれて、キャビティ先端に大量の原子空孔が流れ込む様子が分かる。

これより、キャビティ径が小さい間はキャビティ表面での化学ポテンシャルの分布が均一であることから、先端に供給された原子空孔は表面拡散によりキャビティ表面に均一に運ばれるため、初期形状を保ちながら均一に成長すると考えられる。そして、成長が進むと、表面拡散に比べ粒界拡散が大きい場合には、粒界に作用する垂直応力によりキャビティ先端での化学ポテンシャルは他の部分と大きく異なるため、大量の原子空孔が流れ込む。このため、キャビティ先端付近では、粒界方向への成長が他の部分に比べ著しく加速され、形状がき裂形状に遷移することが考えられる。逆に、表面拡散が粒界拡散に比べ十分小さい場合には、応力によらず化学ポテンシャルの分布が均一なため、キャビティ先端に供給された原子空孔は表面拡散により均一にキャビティ表面に運ばれるために初期形状を保ちながら成長する。すなわち、表面拡散が粒界拡散に比べ十分小さい場合には、粒界に作用する垂直応力による形状変化はほとんど生じなくなる。

Fig.4 は無次元された時間と成長速度との関係である。 $F=1$ や 10000 の場合には負荷応力の影響が見られ、粒界に負荷される垂直応力が大きいほど成長が早まることがわかる。しかし、 $F=0.001$ の場合には応力によらず、時間の変化に伴う成長挙動の違いがほとんど見られず、 F の違いにより、粒界に負荷される応力により、キャビティの成長への加速の度合が異なることが分かる。

4. 結言

結晶粒界上に発生したキャビティの成長挙動について拡散方程式を用いた数値シミュレーションを行い、表面拡散/粒界拡散、応力等の因子がキャビティの成長におよぼす影響について検討を試み、以下の知見を得た。

(1) 粒界拡散が表面拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティはき裂形状に遷移す

る。一方、表面拡散が粒界拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティは初期形状を保ったまま成長する。

- (2) 粒界拡散が表面拡散に比べ十分大きい場合には、キャビティの成長速度は、粒界に作用する垂直応力に誘起された粒界拡散により著しく加速される。
- (3) 表面拡散が粒界拡散に比べ十分大きい場合には、粒界に作用する垂直応力によらずキャビティの形状に遷移は起こらない。

5. 参考文献

- [1]桜井ほか, 日本金属学会誌, 48-8, 771(1984)
- [2]Cane, B.J., Greenwood, G.W., Metal. Sci., 9, 55(1975)
- [3]Chen, I-W., Argon, A.S., ActaMet., 29, 1759(1981)
- [4]Herring, C., J. Appl. Pays. 21, 437(1950)
- [5]Ashby, M.F., Acta Met., 20, 887(1972)
- [6]Chuang, T., Kagawa., K.I., Rice, I.R. and Sills, L.B., Acta Met., 27, 265(1979)
- [7]Martinez. L. and Nix, W.D., Met. Trans., A13, 427(1982)

Table 1 Conditions for analysis.

Analysis No.	Diffusion ratio F	Stress σ
1	0.001	1.02
2	0.001	5
3	0.001	10
4	1	1.02
5	1	5
6	1	10
7	10000	1.02
8	10000	5
9	10000	10

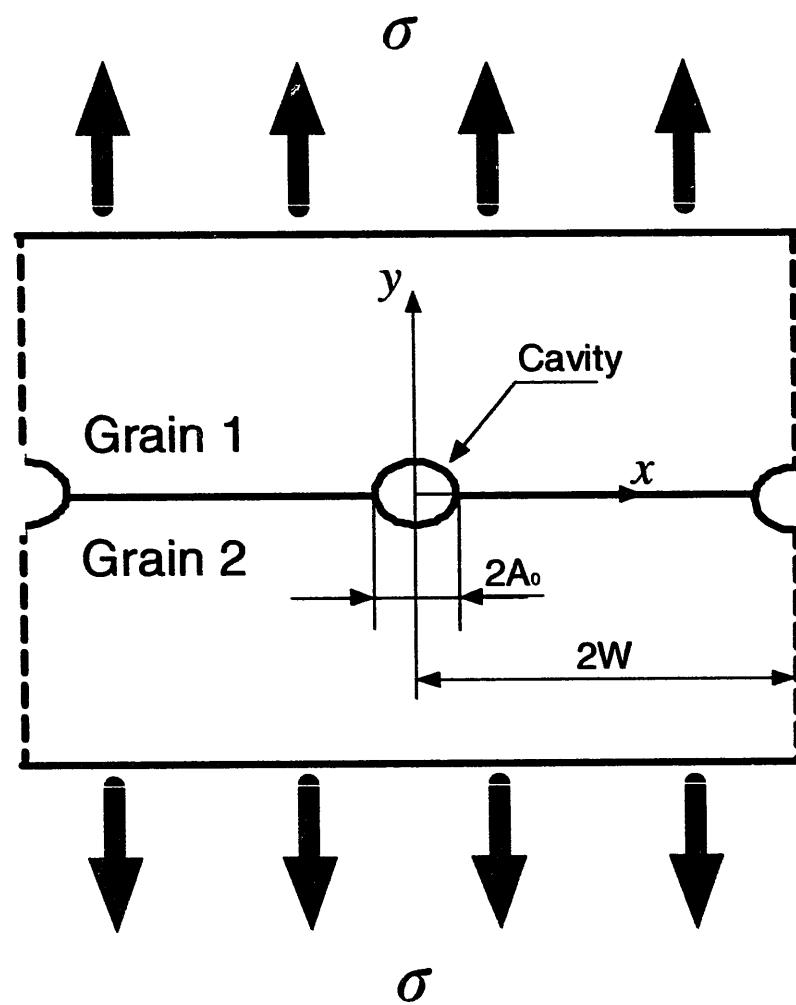


Fig.1 Boundary conditions.

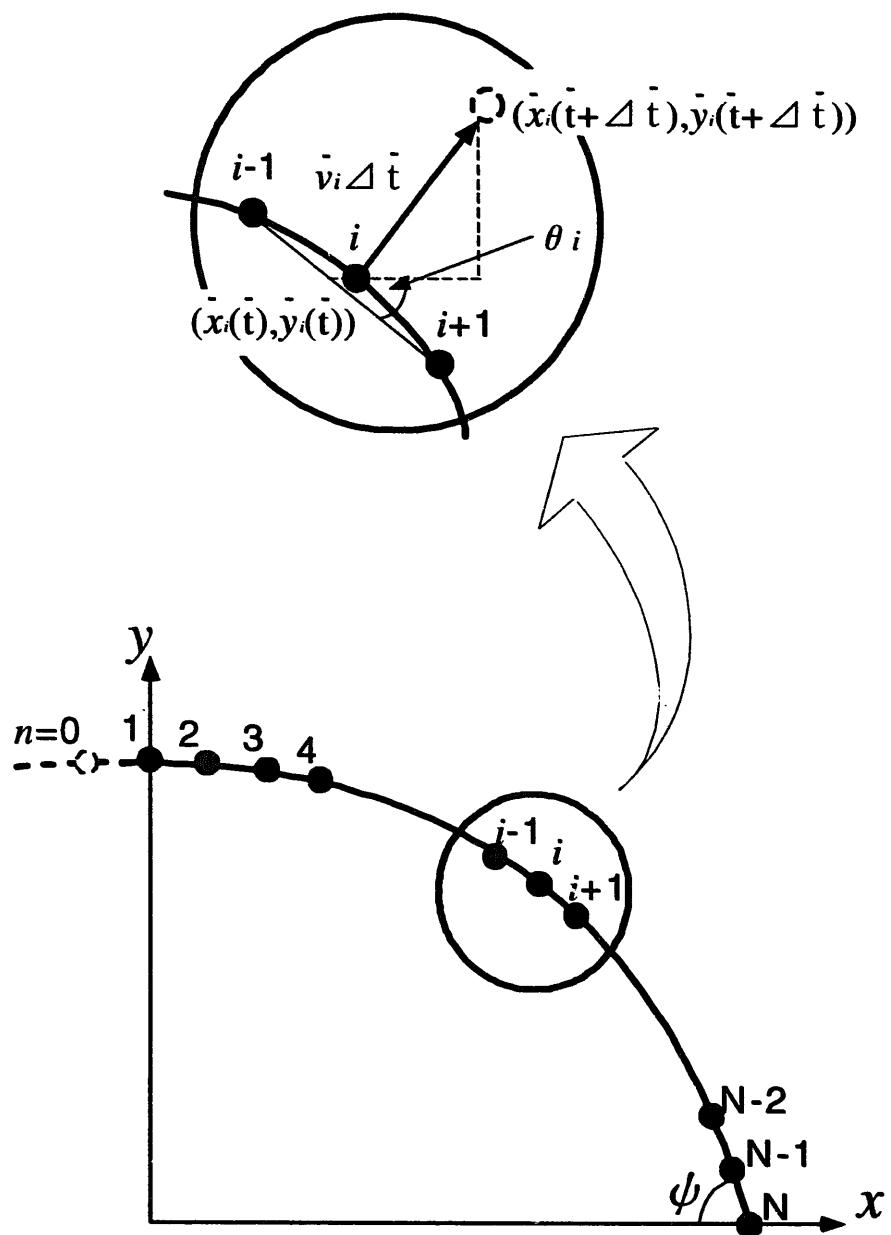


Fig.2 Discrimination of model for analysis.

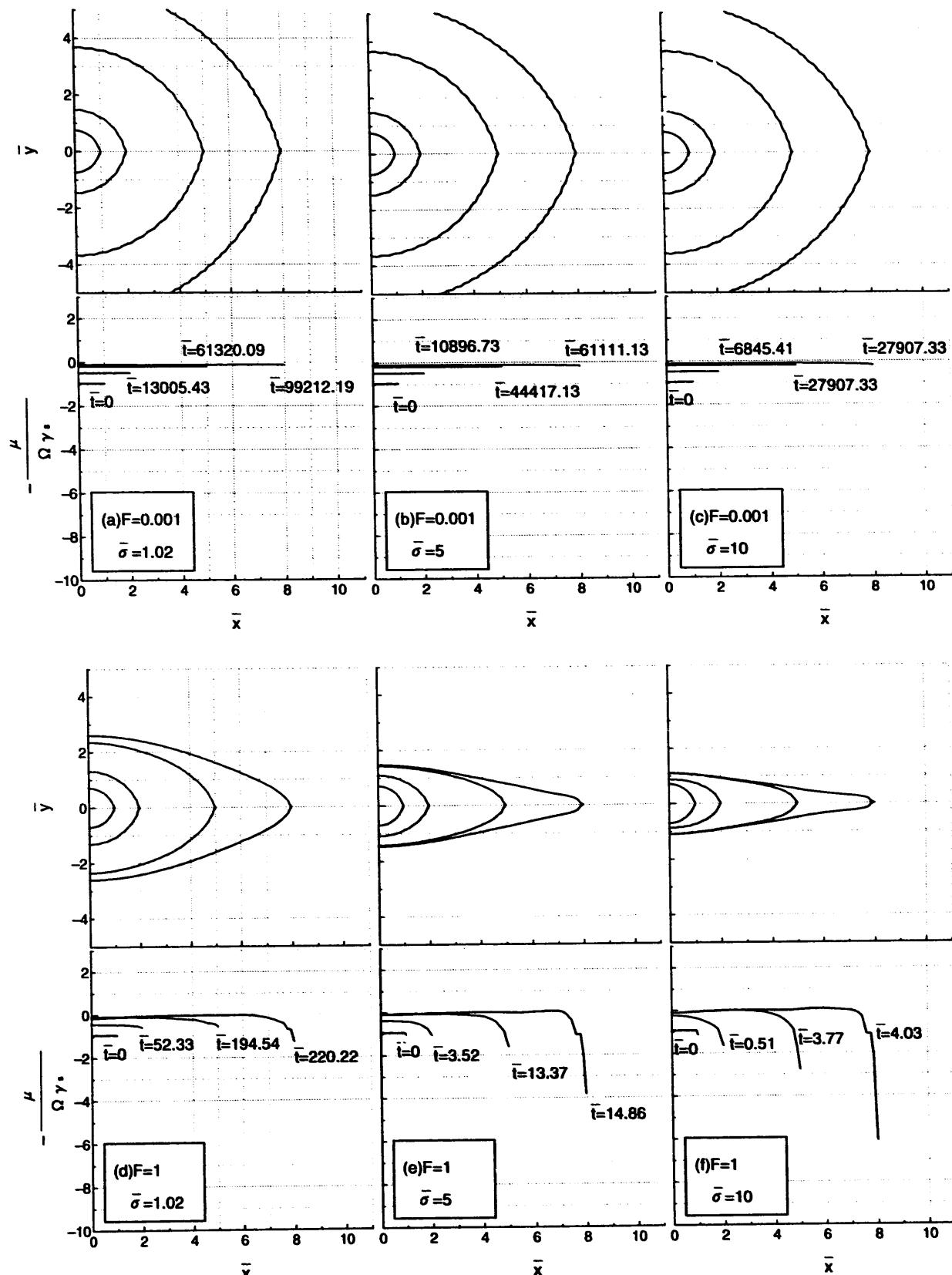


Fig.3 Change in morphology of cavity and distribution of chemical potential at cavity surface with no-dimensional time.

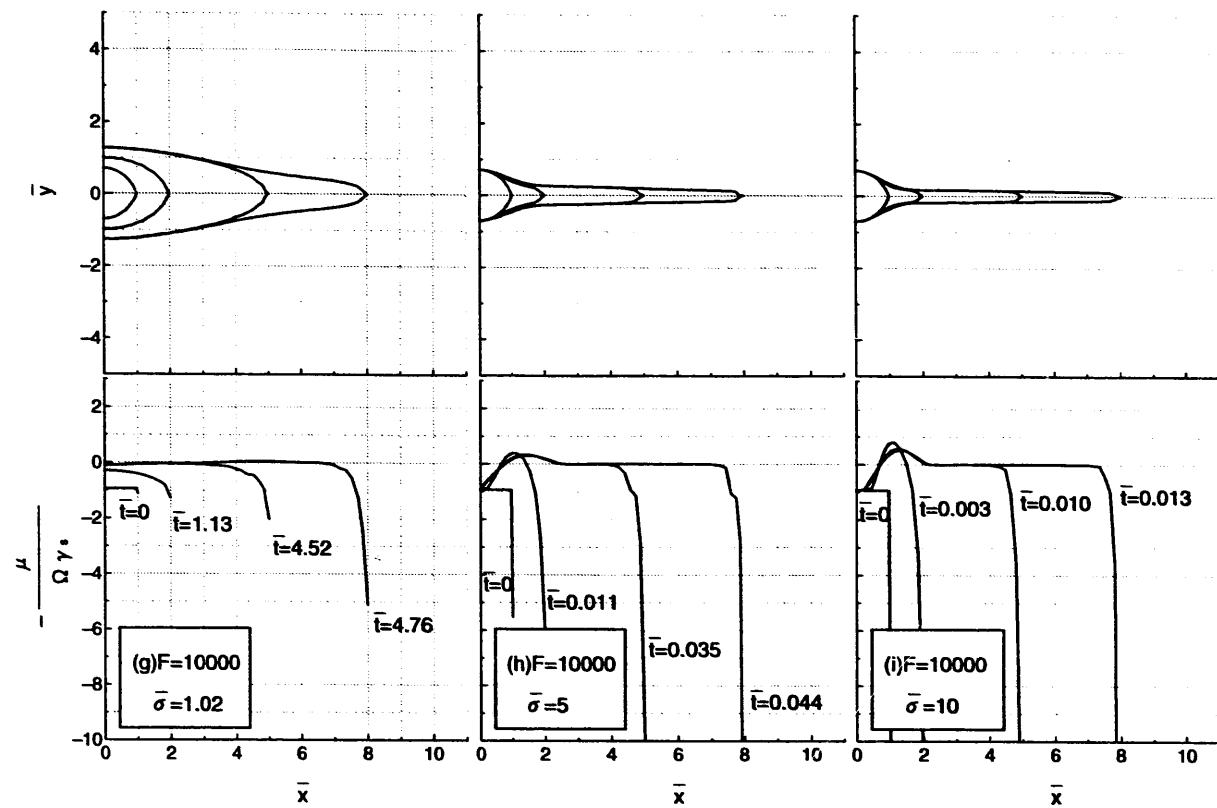


Fig.3 Continue.

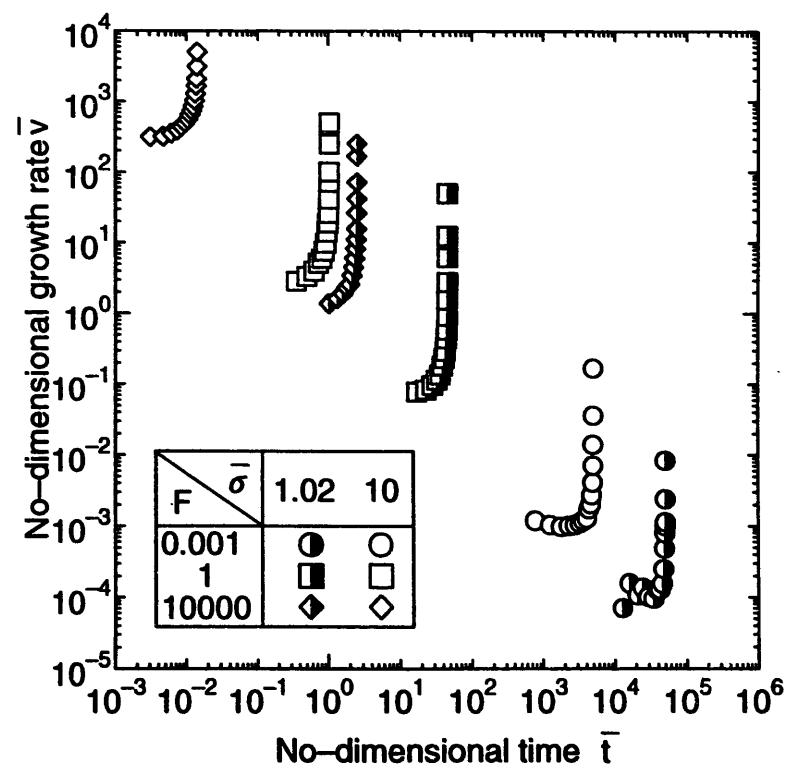


Fig.4 Relationship between no-dimensional growth rate of cavity and no-dimensional time.