801. 高温ガス炉用黒鉛材料の切欠き感度

川 上 春 雄*

(1984年 6月18日 受理)

(1984年 8月13日 再受理)

Notch Sensitivity of Graphite Materials for VHTR

By Haruo KAWAKAMI

Notch effects on strength were investigated for IG-11 and PGX graphite, which were promising materials for core structures of an experimental VHTR in Japan. Notch sensitivity in tensile strength tests decreased as notch radius decreased. Notch sensitivity of IG-11 was higher than that of PGX. Compressive fracture of PGX was in a shear mode, while that of IG-11 was in a mixed mode of shear and transverse splitting. Compressive strength of IG-11 specimens with transverse slits was smaller than that of smooth specimens, which suggested that a shear mode fracture preceded an ultimate transverse splitting. Results of water quenching tests showed that thermal shock fracture resistance of IG-11 could be smaller than that of PGX when a notch with small radius existed.

KEYWORDS: VHTR reactors, graphite, tensile strength, compressive strength, thermal stresses, water quenching, thermal shock fracture resistance, notches, impact tests

I. 緒 言

現在日本原子力研究所で計画されている高温ガス実験炉の炉内構造はほとんど黒鉛ブロックで構成されている。黒鉛はガス冷却型原子炉の減速材、構造材として古くから実績のある材料であり、その強度特性についても多くの報告がなされている⁽¹⁾⁽²⁾。しかし黒鉛の破壊のメカニズムは金属材料に比して特異な点が多く、そのすべてが明確にされているわけではない。

材料に切欠きがある場合の応力集中特性を表わす切欠き感度は、黒鉛構造物の形状を決定する際に重要な特性の1つであるが、これについてはBrocklehurstがギルソナイト系黒鉛のIM 1-24について報告しているだけで⁽³⁾、その他の報告例は少ないようである。特に高温ガス実験炉の有力候補銘柄であるIG-11とPGXについては未だ報告例がない。

著者は、上記の2つの銘柄について、均一引張り応力における切欠き感度のほか、圧縮応力状態や熱衝撃負荷時における切欠きの効果を検討した。本報はそれ

らの結果を報告するものである。

II. 実験方法

1. 実験材料

実験に用いた黒鉛銘柄は、国産の微粒等方性黒鉛のIG-11、米国産の微粒等方性黒鉛 Stackpole 2020 (SP 2020)および米国産のモールド成形異方性黒鉛PGXの3種類である。ただし、主な実験はIG-11とPGXについて行い、SP 2020は後述する水中急冷試験でのみ使用した。

2. 実験方法

実験項目をTable 1に、それぞれの試験片形状をFig. 1に示す。

引張り試験と圧縮試験は、それぞれFig. 1(a), (b)に示すような切欠きを試験片に設けて、切欠きのない平滑試験片と比較して切欠き効果を検討した。特に圧縮試験においては、切欠き圧縮方向に対して平行と垂直の

* (株)富士電機総合研究所(Fuji Elec. Corporate Res. & Develop., Ltd.)

Table 1 Scope of experiments

	Notch radius	Material
Tension	no notch	IG-11
	5 mm	PGX
	2 "	
	0.5 "	
Compression (transverse slit)	no notch	IG-11
	2 mm	PGX
	1 "	
	0.5 "	
Compression (parallel slit)	no notch	IG-11
	2 mm	
	1 "	
	0.5 "	
Water quench	0.5 mm	IG-11, PGX Stack pole 2020

Fig. 1 Shape of specimens

2種類とした。試験は室温で行い、歪み速度は引張り試験で3.1%/min, 圧縮試験で6.7%/minであった。試験片数は各条件について5個ずつとした。また、異方性のあるPGX黒鉛については、主として負荷方向とモールド成形方向が同じになるように試験を行なった。

水中急冷試験は、試料をチッ素ガス中で加熱して所定の温度で安定させた後、水中へ投入して急冷することにより試験片に熱応力を発生させ、これによる試験片の割れ発生の有無を調べたものである。水温は約10℃であった。試料形状はFig. 1(c)に示すように60 mmφ×100 mmの円柱状であり、温度測定用熱電対(1.6 mmφのシース型)を挿入するための1.7 mmφの小孔を2つ設けたものである。切欠きとして先端曲率半径0.5 mmのスリットを軸方向に入れたものと入れないものの両方について試験を行なった。

炉内で黒鉛に発生する応力はほとんど2次応力であり、特に熱応力が最も大きいと予想される。しかし炉内の熱応力は定常温度分布に起因するものであり、上記のような急冷試験で発生する熱応力とは試験片内の応力分布等は異なっている。それにもかかわらず上記試験を行なったのは、材料の熱応力抵抗を示す熱衝撃破壊抵抗係数が定常温度分布の場合と急冷の場合で同じであり、熱膨脹率、ヤング率等の諸物性値の温度変化も含んだ材質の相対比較試験として有効であると考えたためである。

Ⅲ. 実験結果

1. 引張り試験

Table 2 に引張り試験における破断強度を示す。切欠きのある試験片の破断強度は切欠きのない場合に比べて低くなっており、これは応力集中によるものと考えられる。

Table 2 Results of tensile tests
(Unit: kg/cm²)

Materials	Notch radius			
	No notch	5 mm	2 mm	0.5 mm
IG-11	254±25	187±26	134±9	97±10
PGX(//)	75.8±0.8	47.0±5.2	50.4±12.2	43.3±4.8
PGX(⊥)	71.2±8.8	—	—	—

Fig. 2 は、Peterson による連続弾性体の半円形環状切欠きについての応力集中係数(実線)と⁽⁴⁾ **Table 2** の結果から算出した応力集中係数(破線)を比較したものである。一般に応力集中係数は、切欠き先端の曲率

Full line curve is derived from Peterson's results⁽⁴⁾.

Fig. 2 Stress concentration factor of graphite materials observed in tensile tests

半径が小さいほど増加する傾向にあるが、本実験で得られた黒鉛では、連続弾性体に比してその程度は小さく、特に PGX のそれはほとんど変化していなかった。

応力集中特性は試験片のいくつかの形状パラメータ(切欠き長さ、切欠き先端曲率半径、試験片リガメント等)に依存するが、Tucker は黒鉛の平板二重切欠き試験片について解析を行い、次式で定義する切欠き感度係数が、主として切欠き先端曲率半径に依存することを示した⁽⁹⁾。

切欠き感度係数

$$= \frac{(\text{応力集中係数測定値})}{(\text{欠陥のない弾性体の応力集中係数計算値})} \quad (1)$$

ただし、

$$\text{応力集中係数測定値} = \frac{(\text{平滑試験片の強度})}{(\text{切欠き試験片の強度})}$$

Fig. 3 は、(1)式で定義された切欠き感度係数を Fig. 2 の結果より算出し、これと切欠き先端曲率半径との関係を示したものである。切欠き感度係数は、切欠き先端曲率半径が小さくなると低下する傾向がある。また、IG-11 の切欠き感度は PGX に比して高いことがわかる。

PGX の切欠き先端曲率半径 5mm の切欠き感度係数が 1.0 より大きくなっている理由としては、①応力集中係数を算出する際、平滑試験片の強度として直径 16mm の試験片のものをを用いたが、切欠き先端曲率半径が大きくなった極限は直径 12mm であり、両者の強度が体積効果により異なるとか、②試験片数が各条件 5 本と比較的少なかったためのデータのバラツキとかが考えられる。

Hatched zone is an estimated zone for PGX assuming that notch sensitivity is 1.0 when notch radius is 5.0mm.

Fig. 3 Relation of notch sensitivity with notch radius for IG-11 and PGX

このうち①は、試験片の寸法が黒鉛粒径に比して十分大きくない場合には、引張り強度は試験片寸法の減少とともに低下することが知られており⁽⁹⁾、PGX の場合も直径 12mm の試験片の引張り強度が直径 16mm の場合に比して小さい可能性が考えられるということである。これを検討するため製造ロットの異なる PGX について直径 12 と 16mm の試験片について各 10 本の試験を行い、それぞれ 76.2 ± 5.8 , 80.9 ± 4.4 kg/cm² を得た。直径 12mm の方がわずかに小さな値を示しているものの有意の差は認められず、これにより先端曲率半径 5mm の切欠き感度係数が 1.0 より大きいのはデータのバラツキによると考えられる。

バラツキの要因としては、5mm 切欠き試験片の強度と平滑試験片の強度が考えられる。仮に 5mm 切欠き試験片の切欠き感度係数を 1.0 とした場合、0.5, 2.0mm 切欠き試験片の切欠き感度係数としては、直径 16mm の平滑試験片のデータを用いて算出する方法と、5mm 切欠き試験のデータから直径 12mm の平滑試験片を推算して用いる方法とが考えられる。Fig. 3 では前者を実線、後者を破線で示した。実際のデータは両方の線の間の斜線部にあると思われるが、体積効果も若干あることを考えると、どちらかといえば破線に近いと考えられる。以上から以下の考察では便宜上、破線のデータを用いた。

2. 圧縮試験

Fig. 4 に試験片の破断強度、Fig. 5 に破断した試料の外観を示す。圧縮方向に垂直なスリット(横スリット)を入れた試験片の破断強度は、スリットの入った

Fig. 4 Relation of compressive strength with notch radius

Materials	Slit direction	Notch radius (mm)			
		no notch	0.5	1.0	2.0
IG-11	Transverse
	Parallel
PGX	Transverse

Fig. 5 Outview of compressive specimens

部分の最小断面積をもとに算出した。

PGXの場合、横スリットを入れても破断強度はほとんど変わらなかった。破断モードはすべて、破面が圧縮方向に対し $30\sim 40^\circ$ の角度を持つ剪断モードであったが、切欠きのない試験片と切欠き先端曲率半径0.5mmの試験片とでは破面が試験片端から生じた1つの面であるのに対し、切欠き先端曲率半径が1, 2mmの試験片ではスリットの両側面から2つの破面の形成が認められた。Photo. 1(a), (b)には破断試料の破面を示す。圧縮破壊した試料はすべてPhoto. 1(b)に示

ような剪断すべり形態を示しており、Photo. 1(a)に示す引張り破壊で見られる粒界破面は認められなかった。

IG-11の場合、平滑試験片に比して横スリットを入れた試験片の破断強度は低下しており、特に先端曲率半径の大きい試験片ほど強度の低下が大きかったが、縦スリットを入れた試験片の破断強度は平滑試験片とほとんど変わらなかった。

IG-11の破面は、試験片の長さ30mmのうち2~10mmを占める剪断破壊破面と残りの部分を占める圧縮

(a) Tensile specimen
(b) Compressive specimen (shear)

Photo. 1 Fractograph of PGX specimens

負荷方向にはほぼ平行な破面(縦割れ破面)との混合形態であった。

Photo. 2 (a)~(c)にはそれらの破面形態を示す。圧縮破壊で生じた縦割れ破面は引張り破壊破面と類似した形態を示しており、これが圧縮負荷方向に垂直な引張り応力により生じたことを示唆している。実際、先端曲率半径0.5, 1.0mmの横スリットを入れた試験片では、スリット先端から圧縮負荷方向に割れが発生しているケースが多く認められた。しかし、これらのスリット先端からの割れは多くの場合試料の内部で停止しており、試料の最終的破断はスリット側部から生じた剪断破面とそれに連なる縦割れ破面に関与している場合がほとんどであった。

3. 水中急冷試験

水中急冷時の代表的な冷却曲線をFig. 6に、また2つの温度計測点の最大温度差と昇温温度との関係をFig. 7に示す。最大温度差は銘柄によってあまり差が認められなかった。

水中急冷により試験片には割れを生じたものがあ

(a) Tensile specimen
(b) Compressive specimen (shear)
(c) Compressive specimen
(transverse splitting)

Photo. 2 Fractograph of IG-11 specimens

た。Fig. 8に各昇温温度における割れ発生の有無を、Fig. 9には代表的な割れ発生位置を示した。スリットのある試験片ではスリットから、スリットのない試験片では温度計測用の小孔から割れが生じている場合が多かった。

割れ発生のための限界昇温温度は、スリットがある

Temperature difference ΔT is shown in a dotted line. An arrow mark indicates an instance of an injection of a heated specimen into water.

Fig. 6 Temperature transient curves in water quenching test of IG-11

場合は IG-11, SP 2020とも約 600°C, スリットがない場合は IG-11 で 900~1,000°C, SP 2020 で 850~900°C であったが, PGX ではスリットの有無にかかわらず 1,030°C からの急冷でも割れの発生は認められなかった。

Fig. 7 Relation of maximum temperature difference between two measuring points, $r=0$ and 25 mm, with heating temperature

Fig. 8 Results of water quenching tests

Fig. 9 Schematic of specimens cracked in water quenching tests

IV. 考 察

1. 切欠き感度の比較

Fig. 3 に示したように、単軸引張り応力状態における切欠き感度は切欠き先端曲率半径が小さくなるにつれて低下した。これは黒鉛が多孔質材料であり、その気孔寸法より小さな切欠きに対しては感受性が小さくなるためと考えられる。IG-11 と PGX の黒鉛粒径はそれぞれ約 0.02, 0.7 mm であり、気孔寸法もこれに対応している。IG-11 の切欠き感度係数が PGX よりも低曲率半径側まで大きいのはこのためと思われる。

2. 圧縮破壊モード

圧縮応力負荷時の破壊モードは IG-11 と PGX で異なっていた。IG-11 で認められた縦割れ破壊は Greenstreet らが AGOT 黒鉛について⁽⁷⁾、PGX で認められた剪断破壊は Taylor らが等方性原子炉用黒鉛について⁽⁸⁾それぞれ報告している。

縦割れ破壊の機構について Greenstreet らは圧縮時に発生する負荷方向に垂直な歪が引張り破断歪に達することを挙げている。これによれば、切欠きが存在して引張り方向に応力集中が生ずる条件では、圧縮破断強度が低下することが期待される。しかし、今回の試験において、横スリットを入れた試験片の破断強度は平滑試験片に比して低下したが、縦スリットを入れた試験片の破断強度は平滑試験片と有意の差は認められなかった。また、横スリットを入れた試験片の中でも、引張り方向の応力集中が大きいと考えられる先端曲率半径の小さな試験片での破断強度の低下は小さく、むしろ先端曲率半径の大きな試験片の破断強度の低下が大きかった。

先端曲率半径の大きな横スリットの効果は、PGX においても剪断破断面の位置の相違として認められる

(破断強度についても低下傾向が認められるがごくわずかで有意の差とは確認できない)。前述のように、先端曲率半径の大きな横スリット試験片ではスリット側面から剪断破壊が生じている。これらのことから IG-11 の横スリットによる破断強度の低下は、負荷方向に垂直な引張り応力の集中によるものではなく、スリット側面での圧縮応力の集中による剪断破壊に起因すると考えられる。

スリット先端からの縦割れは切欠き先端曲率半径の小さい試験片で認められたが、これらは破断強度を低下させるに至っていない。このことは、IG-11 の圧縮破壊はまず剪断破壊による割れが先行し、縦割れ破壊はその割れ先端から発生していることを示唆している。今回の試験片形状では、荷重面における試験機との摩擦力が、縦割れ破壊の場合の横方向の変位を抑制する方向に働くと考えられ、上記の破断モードを示した一つの要因となっていると思われる。

3. 熱衝撃破壊抵抗の比較

無限長さの円筒の外周を急冷する時に円周に発生する最大応力は次式により表わされる⁽⁹⁾。

$$\sigma_{\max I} = \frac{\alpha E \Delta T}{(1-\nu)} \cdot \frac{1}{\{2.0 + 4.3/\beta - 0.5 \exp(-16/\beta)\}} \quad (2)$$

ここで、 $\sigma_{\max I}$: 無限円筒での最大発生応力

E : ヤング率, ΔT : 急冷温度差

ν : ポアソン比, α : 熱膨脹率

β : ビオ数 ($=ah/k$)

a : 試料半径, h : 熱伝達率

k : 黒鉛熱伝導率

Table 3 には、各黒鉛銘柄の熱膨脹率 α 、ヤング率 E および引張り強度 σ_u を示す。ビオ数 β 、ポアソン比 ν が黒鉛銘柄にあまり依存しないとした時、熱衝撃破壊抵抗係数 $R(=\sigma_u(1-\nu)/E\alpha)$ は Table 3 に示すようになる。これによれば、熱衝撃破壊抵抗係数が最も高いのは SP 2020 であり、次いで IG-11, PGX の順となる。しかし、これは今回の実験で得られた結果とは一致しない。これは以上の考案が試験片が有しているスリットや小孔等の効果を考慮していないためと思われる。これらを考慮した場合の発生応力 $\sigma_{\max}$ は次式で表わされる。

$$\sigma_{\max} = \sigma_{\max I} \cdot K \cdot S \cdot C \quad (3)$$

ここで、 K : 応力集中係数

S : 切欠き感度係数

C : 切欠き位置補正係数

したがって、

Table 3 Physical properties of graphite materials

	PGX	IG-11	Stackpole 2020
Coeff. thermal expansion α (RT~1,000°C) ($10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	3.7	4.7	3.8
Young's modulus E (10^5 kg/cm^2)	0.64	1.09	0.92
Ultimate tensile strength σ_u (kg/cm^2)	71	254	280
T.S.F.R. parameter $R^\dagger$ ($^{\circ}\text{C}$)	255	421	681
[for 0.5 mm ^B notch]			
Notch sensitivity S	0.40	0.73	—
T.S.F.R. parameter with notch $R_n^{\dagger\dagger}$ ($^{\circ}\text{C}$)	637	577	—

[†] Thermal shock fracture resistance parameter, $R = \sigma_u(1-\nu)/E \cdot \alpha$. The value of poisson ratio ν is assumed to be 0.15.

^{††} $R_n = R/S$

$$\Delta T = \frac{\sigma_{\max}(1-\nu)F(\beta)}{\alpha E \cdot K \cdot C \cdot S} \quad (4)$$

$$F(\beta) = 2.0 + 4.3/\beta - 0.5 \exp(-16/\beta) \quad (5)$$

残念ながら本実験の試験片形状についての K と C を正確に求めることはできなかったが、 S については切欠き先端曲率半径によりほぼ決定されることから、IG-11とPGXについてはFig. 3により推定が可能である。そこで切欠きがある場合の熱衝撃破壊抵抗係数 R_n を $R_n = R/S$ として、先端曲率半径0.5mmの切欠きについて試算した。この時PGXについてはFig. 3の破線の曲線を用いた。結果はTable 3に示したが、PGXの R_n はIG-11よりも大きくなり、切欠き部の応力集中を考慮した時の熱衝撃破壊抵抗はIG-11よりもPGXの方が高くなることを示している。

Table 3の数値は物性値の温度依存性や切欠き感度係数のとり方など、さらに検討すべき点が多いが、実験結果を定性的に説明するものである。IG-11とPGXの R の比率は約1.65である。IG-11とPGXの S の比率が $1/1.65 \approx 0.61$ よりも小さくなり、PGXの R_n がIG-11のそれよりも大きくなるのは、Fig. 3より切欠き先端曲率半径が約1.0mm以下の切欠きがある場合と推定される。

V. 結 論

高温ガス実験炉の有力候補黒鉛銘柄であるIG-11とPGXについて切欠き感度を調べ、以下の結論を得た。

(1) 単軸引張り応力状態における切欠き感度は切

欠き先端の曲率半径が小さくなるにつれて低下した。

(2) IG-11はPGXに比して高い切欠き感度を示した。

(3) 単軸圧縮応力によるPGXの破壊は応力方向に30~40°傾斜した面内での剪断破壊であった。一方、IG-11では剪断破壊と、応力方向に平行な縦割れ破壊との混合形態を示した。

(4) IG-11の圧縮破壊は剪断破壊が先行し、これに起因して縦割れ破壊が起きると推定される。

(5) IG-11の熱衝撃破壊抵抗はPGXよりも本来高いと考えられるが、先端曲率半径の小さな切欠きを有する場合、切欠き感度を考慮した熱衝撃破壊抵抗はPGXよりも低くなる場合がある。

— 参 考 文 献 —

- (1) NIGHTINGALE, R.E.: "Nuclear Graphite", (1962), Academic Press.
- (2) PRICE, R.J.: GA-A 13524, (1975).
- (3) BROCKLEHURST, J.E.: TRG Rep., 2731(s), (1976).
- (4) PETERSON, R.E.: "Stress Concentration Factors", (1974), John Wiley & Sons.
- (5) TUCKER, M.O.: IAEA Technical Committee Mtg. on Mechanical Behaviour of Graphite for High Temperature Reactors, Gif sur Yvette, France, (1979).
- (6) LANZA, F., BURG, H.: 11th Biennial Conf. Carbon, 223 (1973).
- (7) GREENSTREET, W.L., SMITH, J.E., YAHR, G.T.: Carbon, 7, 15 (1969).
- (8) TAYLOR, R., et al.: ibid., 5, 519 (1967).
- (9) 中山 淳, 阿部 弘: 材料, 32, 683 (1983).