853. 高温ガス炉用微粒等方性黒鉛の疲労強度に 及ぼす空気酸化の影響

石山 新太郎*, 衛 藤 基 邦*, 奥 達 雄*

(1986年 5月29日 受 理)

(1986年 10月 4日 再受理)

Effect of Oxidation in Air on Fatigue Strength of Fine-Grained Isotropic Graphite for HTGR

By Shintaro ISHIYAMA, Motokuni ETO and Tatsuo OKU

Effect of oxidation on the tension-tension fatigue strength was examined for a fine-grained isotropic nuclear graphite Grade IG-110. Specimens were oxidized in air at 500°C to a burnoff level of 3.5 and 7.0%. Fatigue tests were carried out at room temperature at a frequency between 0.5 and 10 Hz. The conclusions are:

- (1) On the basis of all the data points both for the oxidized specimens and the unoxidized, the following relationship was obtained between applied stress σ_a and number of cycles to fracture N_f :

$$\log \left[\left(\frac{\sigma_a}{\bar{\sigma}_{10}} \right) \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^{6.24} \right] = -0.00831 - 0.00988 \log N_f,$$

where $\bar{\sigma}_{10}$, ρ_0 and ρ are the mean of the tensile strength of unoxidized specimens, bulk densities before and after oxidation, respectively.

- (2) Combination of the fatigue strength curve for the unoxidized and the data on the tensile strength loss due to oxidation made it possible to estimate the fatigue strength of the oxidized with 99% survival probability 95% confidence, which was found to be close to the value calculated from the results of the fatigue test on the oxidized specimens.

KEYWORDS: air, fatigue, HTGR type reactors, mechanical test, nuclear graphite, oxidation, tensile properties, Young's modulus

I. ま え が き

高温ガス炉の炉心部を構成する黒鉛構造物は地震や冷却材Heの圧力変動,あるいは炉の運転および停止に伴う熱応力の変化等によって繰返し応力を受ける⁽¹⁾。このため,黒鉛の疲労挙動の解明と設計疲労曲線の設定は黒鉛構造物の設計上,重要な課題の1つである。このような観点から著者らは,設計疲労曲線を求めるとともに,それに及ぼす温度,照射,試験片寸法等の影響について調べてきた⁽²⁾⁽³⁾。本報では,冷却材He中の不純物ガスによる酸化に伴う疲労強度の低下を評価することを目的として,高温ガス試験炉炉心部の燃料体用候補材料IG-110黒鉛の疲労強度に及ぼす空気酸化

の影響について調べた結果を報告する。黒鉛の疲労強度に及ぼす酸化の影響についてのデータはこれまでほとんど取得された例がないものである。

II. 実験方法

1. 供試材料および試験片

供試材料は高純度の微粒等方性黒鉛IG-110とした。この黒鉛の機械的性質の主要なものは,ヤング率10.3 GPa,引張り強度25.5 MPa,圧縮強度75.4 MPa,曲げ強度43.2 MPaであり,かさ密度は約1.77 g/cm³である。疲労試験用試験片の形状をFig. 1に示す。試験片

* 日本原子力研究所 高温工学部 (Dept. of High-Temp. Eng., Japan At. Energy Res. Inst.)

Fig. 1 Dimensions of fatigue specimens used in present experiment

の採取は素材ブロックの長手方向が試験片の長手方向に平行になるように、また採取位置については、素材内の特定箇所に偏らないようにした。

2. 試験方法

疲労試験は荷重容量 1 t の電気油圧式疲労試験機を用い、引張り-引張り型の完全片振りで行なった。荷重波形は三角波で、繰返し速度は 0.5 Hz (高荷重応力水準) ~ 10 Hz (低荷重応力水準) とした。この範囲で繰返し速度の影響のないことは、これまでの試験結果により確認した。繰返し数 10^6 回までで破断しない試験片については、30 ~ 50 Hz で試験を継続した。

試験片の酸化は、マッフル炉を用いて空气中 500°C で行なった。この酸化条件で IG-110 黒鉛の酸化は均一に進むこと、すなわち化学反応律速領域にあることを確認した。酸化量は重量減少量で $3.5 \pm 0.05\%$ 、 $7.0 \pm 0.05\%$ の 2 段階とした。また、酸化に伴う弾性率の変化を調べる目的で、5 MHz の超音波の伝播速度を酸化前後、試験片長手方向について測定した。測定に

はクラウトクレマー社製 USL-32 を用いた。

3. 負荷荷重水準の決定

疲労試験における荷重水準は、平均引張り強度の 85 ~ 100% とした。酸化試験片の平均引張り強度は黒鉛の酸化後強度に対する実験式

$$\frac{\sigma_i}{\bar{\sigma}_{i0}} = \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^n \quad (1)$$

ここで、 $\bar{\sigma}_{i0}$: 非酸化試験片の平均引張り強度

σ_i : 酸化試験片の引張り強度

ρ_0 : 非酸化試験片のかさ密度

ρ : 酸化試験片のかさ密度

を用いて計算した。IG-110 黒鉛の引張り強度の場合 n の値は 6.24 とされており⁽⁴⁾、この値は水蒸気酸化の場合等、他の酸化条件に対してもほぼ同じであることが確認されているため⁽⁵⁾⁽⁶⁾、ここでは $n=6.24$ とし酸化試験片の強度を求めた。

Ⅲ. 結果と考察

1. 負荷応力と疲労強度との関係

Fig. 2 に負荷応力と疲労寿命の関係を、非酸化、3.5% 酸化、7.0% 酸化の場合について示す。ここで、縦軸は負荷応力を非酸化材の平均引張り強度で規格化した値を表わす。図中の実線は Price の方法⁽⁷⁾に従い負荷応力 σ_a と疲労寿命 N_f の間に次式を仮定して得た最適曲線である。

$$\log \frac{\sigma_a}{\bar{\sigma}_{i0}} = A + B \log N_f + \epsilon \quad (2)$$

Fig. 2 Plots of applied stress vs. cycles to fracture for unoxidized specimens or those oxidized to density change levels of 0.965 and 0.930. Applied stress was normalized to the mean tensile strength of unoxidized specimens.

ここで, A, B : 定数
 ε : 平均値 0, 標準偏差 $\sigma(\varepsilon)$ の
 正規確率変数

Table 1 に (2) 式において $\varepsilon=0$ の場合, すなわち

非破壊確率 50% の場合の A, B の値および $\sigma(\varepsilon)$ を示す。この際, Price⁷⁾ と同様, 初回の荷重負荷時に破断した試験片では $N_f=0.25$ とし, $N_f \geq 10^5$ および破断しなかった場合には計算から除外した。

Table 1 Values of A and B in equation, $\log(\sigma_a/\bar{\sigma}_{i0})=A+B \log N_f+\varepsilon$ for unoxidized and oxidized specimens

Density change (ρ/ρ_0)	A	B	$\sigma(\varepsilon)$ standard deviation	n number of specimens
1.000	-0.0136	-0.00877	0.0213	38
0.965	-0.110	0.00993	0.0174	38
0.930	-0.197	-0.0110	0.0185	36

Fig. 2 の結果から酸化量が増すと疲労強度が低下することが明らかである。Table 1 から, この疲労強度の低下は主として定数 A の変化に起因すると考えられる。すなわち, A の変化と比較して B は酸化量の増加に対し大きな変化を示さない。Fig. 3 は, $\alpha=10^4$ とし, $\varepsilon=0$, すなわち非破壊確率 50% として (2) 式を (3) 式のように書き換え, 最適曲線に対する α の変化

と酸化に伴う密度変化の関係を示す。

$$\frac{\sigma_a}{\bar{\sigma}_{i0}} = \alpha N_f^B = 10^4 N_f^B \quad (3)$$

この図には引張り強度の密度変化依存性を表わす (1) 式の関係をも示した。Fig. 3 から α は酸化に伴う密度変化に対し, 引張り強度と同様の変化をすることがわかる。

Fig. 3 Plots of 10^4 -value in Eq. (3) vs. density change caused by oxidation

これらの事実から, 酸化試験片の疲労強度を (1) 式を用いて整理することを試みる。すなわち, (2) 式中の $\bar{\sigma}_{i0}$ を各酸化試験片の平均引張り強度 $\bar{\sigma}_i$ で置き換える。ここで, $\bar{\sigma}_i$ は (1) 式で $n=6.24$ において計算した。その結果, 次式を得る。

$$\log\left(\frac{\sigma_a}{\bar{\sigma}_i}\right) = A' + B' \log N_f + \varepsilon' \quad (4)$$

ここで, A', B' : 定数
 ε' : ε と同様, 平均値 0, 標準
 偏差 $\sigma'(\varepsilon')$ の正規確率変数

Fig. 4 は今回取得したデータを, $\sigma_a/\bar{\sigma}_i$ すなわち $(\sigma_a/\bar{\sigma}_{i0})(\rho_0/\rho)^{6.24}$ と N_f との関係として整理したものである。(4) 式に従って計算すると, $A'=-0.00831$, $B'=-0.00988$, $\sigma'(\varepsilon')=0.0185$ となり, Table 1 に示した非酸化材の $A=-0.0136$, $B=-0.00877$ と A', B' はおおよその近い値となる。このことは, 酸化後の疲労強度が酸化に伴う引張り強度の低下に関するデータと (1) および (4) 式とから非酸化の場合と同様に取り扱うことができ, また酸化量が既知であれば非酸化の場合のデータおよび (1) 式から推定できる可能性がある。

Fig. 4 Plots of applied stress normalized to estimated tensile strength of each set of oxidized specimens vs. cycles to fracture

ことを示している。すなわち、非酸化材に対する疲労曲線として(2)式を用い、さらに(1)式を用いると平均疲労曲線(非破壊確率50%, $\epsilon=0$)で例えば $N_f=10^5$ となる負荷応力 σ_a は次式のようにになる。

$$\frac{\sigma_a}{\sigma_{10}} = 0.876 \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{6.24} \quad (5)$$

2. 酸化材の下限疲労曲線の推定

Fig. 2 および(2)式において $N_f=10^5$ における非破壊確率 99%, 信頼限界 95% (99%/95%) の $\sigma_a / \bar{\sigma}_{10}^*$ を計算すると Table 2 の Exp. (実験値) の値となる。こ

で、(99%/95%)の信頼下限曲線は、Price⁽⁷⁾と同様、既知の分散をもつ正規分布の平均に対する信頼区間の決定法に従って求めた。すなわち、

$$x = \bar{x} - 2.576\sigma - 1.960 \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad (6)$$

ここで、 $\bar{x}$: 平均値、 σ : 標準偏差
 n : 試験片の数

なお、Table 2 には Fig. 2 の実線上の値、すなわち平均疲労曲線(非破壊確率50%)から求めた値をも非酸化材、酸化材に対して示してある。

Table 2 (99%/95%) fatigue strength at 10^5 cycles calculated using Price's method

Density change (ρ / ρ_0)	Fatigue strength at 10^5 cycles			
	50% probability	99% probability/95% confidence		
		Exp.	Calc.†	Calc.††
1.000	0.876	0.760	0.760	0.760
0.965	0.692	0.616	0.608	0.596
0.930	0.560	0.495	0.483	0.465

† Based on the equation for the unoxidized.

†† Based on the equation for the Young's modulus data.

同様に(4)式を用いて非酸化材、酸化材の全データに対して求めた A', B', ϵ' の値から(99%/95%)疲労強度信頼下限曲線を求めることができ、それはFig. 4の破線 $\epsilon' = -0.0524$ のようになる。これから $N_f=10^5$ のとき $\sigma_a / \bar{\sigma}_{10} = 0.776$ となり、Table 2 の非酸化材の場合の値よりやや高めの値となる。

Fig. 5の破線は、各酸化材に対し(2)式の A, B, ϵ として非酸化材の値を用い、(1)式に基づいて計算した

$N_f=10^5$ に対応する(99%/95%)疲労強度と酸化に伴う密度変化との関係を示す推定曲線である。Table 2のCalc.†はこの推定値を示す。Fig. 5の推定曲線は実測値を示すデータ点の近傍にあり、このことは非酸化

* 以下、(99%/95%)疲労強度と表わす。この曲線はASME code Div. II, Subsection CEにおいて炉心支持構造物に対する設計疲労曲線として推奨されているものである。

材のデータに基づいて、疲労強度の推定が可能であることを示唆している。

3. ヤング率変化と疲労強度

酸化前後の超音波伝播速度をおのの v_0, v として、次式によりヤング率の変化を算出した。

$$\frac{E}{E_0} = \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right) \left(\frac{v}{v_0} \right)^2 \quad (7)$$

ここで、 E_0, E : 酸化前後のヤング率

Fig. 5 にヤング率変化と密度変化との関係を示す。引張り強度の場合と同様に $E/E_0 = (\rho/\rho_0)^m$ なる形の最適曲線を求めると、図中に示す通り $m=5.02$ となった。この値は同種の黒鉛について別に得た結果と良い一致を示す⁽⁶⁾。

非酸化材の $N_f=10^5$ サイクルにおける (99%/95%) 疲労強度が Table 2 に示す通り 0.760 であることを考慮して、 $[(\rho/\rho_0)^{5.02} - 0.240]$ なる値を密度変化に対して

Fig. 5 Fatigue strength at 10^5 cycles with 99% survival probability and 95% confidence limit, and change in Young's modulus as functions of density change due to oxidation

表わしたのが Fig. 5 の 1 点鎖線である。この曲線は、ヤング率の (ρ/ρ_0) 依存性が疲労強度の場合とはほぼ同様であることに対応して、疲労強度の実測値に基づいて計算した値の近傍を通る。このことは、酸化に伴うヤング率変化を測定することによって、疲労強度の低下を非破壊的に予測できることを示唆している。Table 2 の最右欄には、上式に基づく各酸化材に対する具体的数値を示した。

Ⅳ. 結 論

微粒等方性黒鉛 IG-110 の引張り-引張り型疲労強度に及ぼす 500°C における空気酸化の影響を室温において調べた結果、次の結論を得た。

- (1) 疲労強度の低下は静的引張り強度の低下と同傾向にあり、非酸化材、酸化材についての全データ点は次式によって表わすことができる。

$$\log \left[\left(\frac{\sigma_a}{\sigma_{t0}} \right) \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^{6.24} \right] = -0.00831 - 0.00988 \log N_f$$

ここで、 σ_a : 負荷応力

σ_{t0} : 非酸化材の平均引張り強度

ρ_0 : 酸化前のかき密度

ρ : 酸化後のかき密度

N_f : 疲労寿命

- (2) 非酸化材の疲労曲線と引張り強度の酸化量依存性のデータから推定した非破壊確率 99%/信頼限界 95% の疲労強度は実測値とはほぼ等しい。
- (3) 酸化に伴うヤング率の変化と非酸化材の疲労曲線から推定した疲労強度は実測値に近い値となる。

— 参 考 文 献 —

- (1) 衛藤基邦, 他: JAERI-M 84-148, (1984).
- (2) OKU, T., et al.: IAEA Specialists Mtg. on Mechanical Behavior of Graphite for HTGR, (1979).
- (3) OKU, T., et al.: 3rd US-Japan Seminar on HTGR Safety Technology, BNL, New York, (1982).
- (4) YODA, S., et al.: Int. Carbon Conf., Bordeaux, Extended Abstracts, p.444 (1984).
- (5) ETO, M., GROWCOCK, F.B.: Carbon, 21, 135 (1983).
- (6) 衛藤基邦, 他: 投稿準備中.
- (7) PRICE, R.J.: Carbon, 16, 367 (1978).