

微視破壊モデルによる黒鉛材料の引張強度 に及ぼす酸化損傷評価

日本原子力研究所 ○石原正博 塙 悟史

1 緒 言

黒鉛材料は、その優れた耐熱性により、原子力分野では高温ガス炉内の構造用材料として実用化されている。しかし、高温で空気や水蒸気と酸化反応を引き起こし、二酸化炭素等のガスとして気化することから黒鉛内部に気孔を生じ、強度の著しい酸化損傷をもたらすことから、酸化による損傷状態の的確な把握が課題となっている。そこで、著者らが黒鉛材料の強度予測モデルとして検討してきた結晶粒や気孔サイズの分布を考慮できる微視破壊モデル^{1),2)}を応用して、引張強度に及ぼす酸化損傷についての検討を行った。本報告では、微視破壊モデルを用いた酸化損傷評価法を提案するとともに、二種類の原子炉用黒鉛材料について酸化損傷の実測データとの比較を行った。

2 微視破壊モデル¹⁾

微視破壊モデルでは、黒鉛材料中に分散する気孔を破壊の起点(き裂)と仮定し、引張応力 σ を受ける場合の試験片全体の破壊が生じる確率 P_{fail} は、

$$P_{fail} = 1 - \left[1 - \int_0^{\infty} f(c) P_n(\sigma, c) dc \right]^{2NV} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 N は単位体積あたりの気孔数密度、 V は試験片体積、 $f(c)$ は気孔サイズの分布、 $P(\sigma, c)$ は長さ $2c$ のき裂が無制限遠方で応力 σ の引張応力を受ける場合の破壊確率である。上式中、 $P(\sigma, c)$ は次式により与えられる。

$$\ln \{P_f(\sigma, c)\} = \frac{b}{a} \int_0^{\infty} \ln \left[\frac{4}{\pi} \cos^{-1} \left(\frac{K_{IC}}{K_I} \right)^{1/3} \right] di \quad (2)$$

ここで、 K_{IC} は結晶粒の破壊靱性値、 a 及び b はそれぞれ立方体と仮定した結晶粒径1辺の長さ、試験片の幅である。なお破壊モデルによる強度予測には、Table 1に示す微細構造のパラメータを用いており、材料の結晶粒径とともに材料中に存在する気孔サイズやその分布等の微細構造を考慮することができる。さらに破壊モデルでは、密度を考慮することで気孔によるき裂進展効果を導入して強度予測を行うことが可能である。

Table 1 Input parameters for fracture model³⁾.

Parameter	Graphite	
	IG-110	PGX
Mean grain size (μm)	50	762
Bulk density (g/cm^3)	1.78	1.74
Mean pore size (μm)	18.4	238
Standard deviation parameter of pore size	1.90	1.73
Number of pores per volume ($10^8/\text{m}^3$)	26.2	0.187
Grain fracture toughness ($\text{MN/m}^{3/2}$)	0.225	0.225

3 酸化損傷の評価法

黒鉛材料は酸化により二酸化炭素のガスとなるため、酸化率の増加に従い重量減少を生じ、これにより黒鉛材料中に存在する気孔が成長することが実験的にも確認されている⁴⁾。そこで、酸化による気孔の成長を(1)式中 $f(c)$ で考慮する。また、黒鉛材料は酸化により破壊靱性値 K_{IC} が低下することから、酸化による K_{IC} の低下を(2)式で考慮する。

3.1 酸化による気孔の成長

酸化率 B は、重量の減少比として次式で定義される。

$$B = \frac{W_0 - W}{W_0} \times 100 \quad (\%) \quad (3)$$

なお、 W_0 は酸化前の重量、 W は酸化後の重量である。ここで、酸化により生じる気孔周囲の肉盛り厚さは、気孔の大小に関わらず一定であると仮定する。また、20%程度まで酸化させた黒鉛について画像処理により調べられた気孔サイズの分布パラメータは約10%までほぼ一定であったことから⁴⁾、Table 1の気孔サイズの分布パラメータを一定とする。すなわち、ここでは平均気孔サイズの酸化による変化を黒鉛の理論密度 γ_{th} と酸化された黒鉛の密度 γ から定まる気孔の体積割合から評価する。評価した酸化率と気孔径及び密度の関係をTable 2に示す。なお、IG-110黒鉛の酸化率と気孔径変化は実測値⁴⁾とほぼ同じであることから、酸化による気孔径変化の仮定は妥当であると考えられる。

Table 2 Pore size and density change due to oxidation.

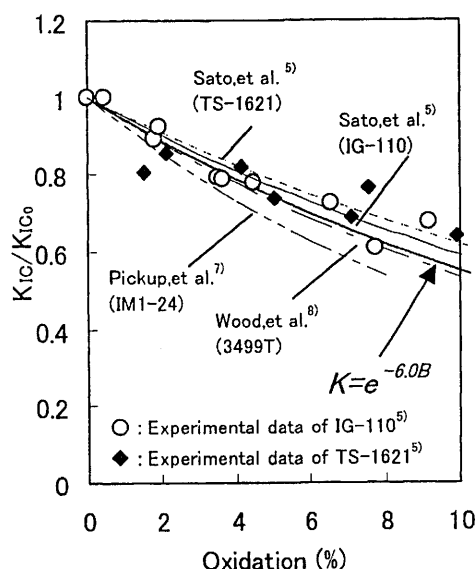
	Oxidation(B) (%)	Pore size (μm)	Inc. ratio	Density(γ) (Mg/m^3)
IG-110	0	0.0000184	1.00	1.78
	5	0.0000190	1.06	1.69
	10	0.0000200	1.11	1.60
	15	0.0000210	1.16	1.51
	20	0.0000220	1.20	1.42
PGX	0	0.000238	1.00	1.74
	2	0.000243	1.02	1.71
	4	0.000248	1.04	1.67
	6	0.000253	1.06	1.64
	8	0.000258	1.08	1.60
	10	0.000262	1.10	1.57

3.2 酸化による K_{IC} の低下

酸化率と K_{IC} の関係は一般的に指数関数で示され、佐藤ら⁵⁾、Pickupら⁶⁾及びWood⁷⁾らにより報告されている微細構造の異なる各種黒鉛の酸化による K_{IC} の変化を、それぞれの酸化率0%の K_{IC} で規格化するとFig.1となる。図より K_{IC} の酸化による変化は材料によらずほぼ同程度で表せる。そこで、これらのデータから K_{IC} の酸化による変化として次式を仮定した。

$$K_{IC} = e^{-6.0B} \quad (4)$$

ここではTable 1に示す結晶粒の破壊靱性値の酸化による

Fig.1 Changes of K_{IC} due to Oxidation.

変化に(4)式を仮定した。

4 結果及び考察

微粒のIG-110黒鉛の酸化損傷による強度の予測結果と実験データの関係を図2に示す。図中、○は実験データ⁶⁾、◆は酸化による気孔の成長のみを考慮した場合の平均予測強度、●は気孔の成長とともに K_{IC} の低下を考慮した場合の平均予測強度である。酸化損傷として気孔の成長のみを考慮した場合には、酸化率20%でも予測される強度低下率は90%程度であり、実験データとの差が大きい。すなわち、気孔サイズの増大による強度低下の効果は小さいと考えられる。一方、気孔の成長に伴う K_{IC} の低下を考慮すると、実験で得られた強度に対して予測値は実験値と近いものとなった。これは、酸化による破壊靱性値の変化の効果が大きいことを示すものである。なお、両効果を考慮しても酸化の進行に伴い予測値が大きくなる傾向は、酸化により気孔が合体し巨大化する効果を考慮していないためと考えられる。

一方、粗粒のPGX黒鉛の酸化損傷の評価結果と実験データの比較結果を図3に示す。図中○は実験データ、◆は酸化による気孔の成長のみを考慮した場合の平均予測強度、●は気孔の成長とともに K_{IC} の低下を考慮した場合の平均予測強度を示している。PGX黒鉛の予測値と実験データとの差は、IG-110黒鉛に比べると大きく、PGX黒鉛の気孔サイズが未酸化状態でも一桁以上大きいことから酸化による気孔の合体効果が大きく出ているためと考えられる。

5 まとめ

引張強度に及ぼす酸化損傷の評価を目的に、微視破壊モデルを用いた酸化損傷評価法を提案するとともに酸化損傷の実験データとの比較を行った。その結果、以下の点が明らかとなった。

- 1) 酸化による気孔サイズの増大に伴う強度低下の効果は小さいこと、
- 2) 酸化による破壊靱性値の変化に伴う強度低下の効果は大きいこと、
- 3) 微視破壊モデルを用いた酸化損傷評価法は、酸化による気孔の成長及び破壊靱性値の変化を考慮することで実

測値を良く予測できること。

参考文献

- 1) 石原正博, 高橋常夫, 材料, 51, 425 (2002).
- 2) S.Hanawa, M.Ishihara and T.Shibata, Proc.17th Int. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology, Paper No.G128, Prague (2003).
- 3) K.Nakanishi, T.Arai, and T.Burchell, Proc. Int. Sympo. on Carbon, Tokyo, p.332 (1998)
- 4) 石原正博, 高橋常夫, 日本機械学会平成14年度材料力学部門講演会論文集, 463(2002).
- 5) S.Sato, K.Hirakawa, A.Kurumada, S.Kimura and E.Yasuda, Nuclear Engineering and Design, 118, 227 (1990)
- 6) 石原 他, JAERI-M 91-154 (1991)
- 7) I.M.Pickup, et al. 6th London Carbon Conference, Society of Chemical Industry, London, 320(1982)
- 8) J.L. Wood et al, Carbon, 18, 179 (1980)

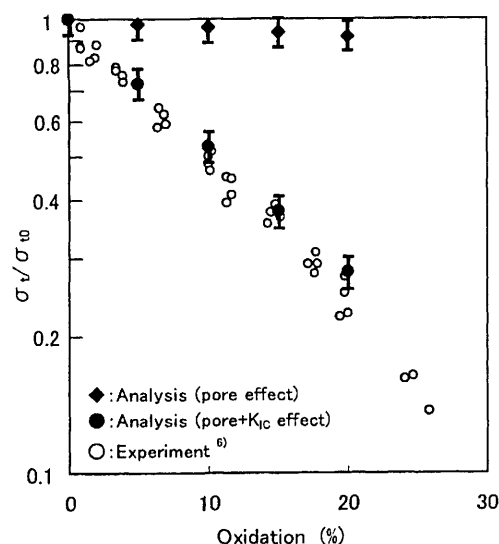


Fig.2 Comparison between predicted and experimental result for IG-110 graphite.

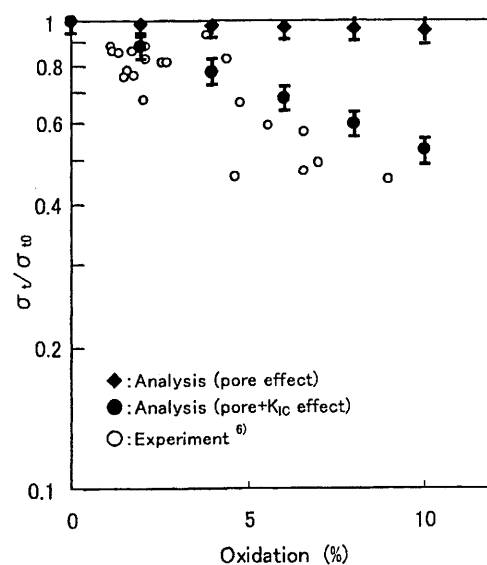


Fig.3 Comparison between predicted and experimental result for PGX graphite.