

# 討32 高温ガス炉用Ni基耐熱合金のクリープ・疲労特性に及ぼす雰囲気の影響

石川島播磨重工・技術研究所 ○服部 博 北川正樹  
大友 暁

## I. 緒言

高温ガス炉 (HTGR) の運転予想温度は 900 ~ 1000 °C と極めて高温域であり、関連機器の高温部材用 Ni 基耐熱合金の高温強度は冷却ヘリウムガス中に含まれる不純物の影響を受けて、高温酸化、内部酸化、脱浸炭、脱クロム等の影響による変化が予想される。一方、耐熱合金のクリープ温度域における低サイクル疲労特性は、クリープ変形の影響ばかりでなく雰囲気の影響を受けることは周知のことであり、Creep-Fatigue/Environment interaction として重要な研究課題となっている。

著者らは、HTGR 用 Ni 基耐熱合金を対象に各種雰囲気中のクリープ・疲労重畳下での疲労特性に関する一連の研究<sup>1)~9)</sup>を実施しているが、本報告ではクリープ・疲労特性に及ぼす雰囲気の影響について検討を加えたので報告する。

## II. 実験方法

**供試材：** Ni 基耐熱合金インコネル 617 と Hastelloy XR を用い、前者は工業技術院・大型プロジェクト「高温還元ガス利用による直接製鉄技術の研究開発」の高温熱交換器テストループで採用され、後者は既存合金 Hastelloy X を HTGR 用に改良した合金で日本原子力研究所で開発中の多目的高温ガス炉の高温部候補材である。本試験で用いた材料の化学成分、結晶粒度および熱間加工後の固溶化熱処理条件を Table I に示す。

**試験片，試験装置：** インコネル 617 (ヒート A) は最小断面部の直径 10 mm，理論応力集中係数  $K_t = 1.04$  の砂時計型試験片，インコネル 617 (ヒート B) と Hastelloy XR では平行部直径 10 mm，長さ 30 mm (G.L. = 25 mm) の中実丸棒試験片を用いた。

試験装置は雰囲気チェンバーをもつ高周波誘導加熱方式の電気油圧サーボ型疲労試験機<sup>2)</sup>を使用した。

**実験条件：** 試験温度は対象機器の最高ガス温度とし、インコネル 617 では 1000 °C，Hastelloy XR では 950 °C である。

雰囲気は純度 99.99 % の市販ヘリウム，原研 B 型ガス模擬 (200 ppm H<sub>2</sub>，100 ppm CO，8 ppm CH<sub>4</sub> 添加)ヘリウム，真空 (真空度約  $2 \times 10^{-2}$  Pa) および大気である。一部，1000 ppm CH<sub>4</sub> 添加ヘリウムも用いた。ヘリウム雰囲気は非循環方式 (圧力：1 atm 強，流量：約 500 ml/min) により供給し，加熱

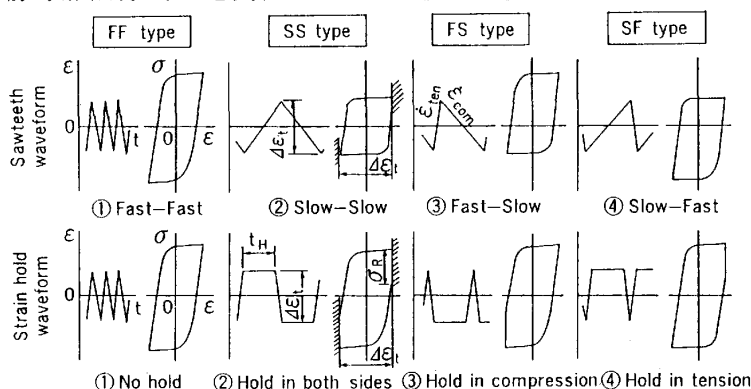


Fig.1 Schematic of controlled strain waveforms and their loops on LCF test at HTGR temperatures.

Table I Chemical compositions, ASTM grain sizes and heat treatments of Inconel 617 and Hastelloy XR tested.

Alloy		Chemical composition (wt %)													Form	ASTM Grain size	
		C	Si	Mn	S	P	Cr	Co	Mo	W	Fe	B	Al	Ti			Ni
Inconel 617	A	0.08	0.13	0.04	0.005	-	21.56	12.20	9.96	-	1.46	-	1.01	0.55	Bal.	Hot rolled Plate 20t	3.0
	B	0.09	0.14	0.02	0.002	-	21.90	12.37	8.96	-	0.44	-	1.28	0.47	Bal.	Hot rolled Bar $\phi$ 25.4	3.5
Hastelloy XR		0.07	0.25	0.99	0.006	0.003	21.45	0.012	8.96	0.47	18.36	0.001	0.01	0.02	Bal.	Hot rolled Bar $\phi$ 20	3.0

[ Solution heat treatment ] Inconel 617 ----- 1177°C / 1 h, A.C. Hastelloy XR ----- 1190°C / 1 h, W.Q.

部近傍へ円筒状に流出させて試験片表面に常に新しいガスが接触するように工夫してある。

クリープ・疲労を含む低サイクル疲労試験は全て軸ひずみ制御で行い、砂時計型試験片では径ひずみをストレインコンピュータを介して軸ひずみに換算して制御した。

負荷ひずみ波形は Fig. 1 に示す対称三角形、鋸歯状波および台形波で、基準のひずみ速度は  $\dot{\epsilon} = 0.1\%/sec$  である。本報告における破断繰返し数  $N_f$  は  $N_{25}$  で定義する。

III. 実験結果および考察

3.1 クリープ強度および高温低サイクル疲労強度

に及ぼす雰囲気の影響

Fig. 2 に低サイクル疲労試験に用いたのと同じ材の各種雰囲気中でのクリープ破断強度を示す。インコネル 617 では 99.99%ヘリウム中での寿命が短寿命で大気と真空中には顕著な差がない。このヘリウム中での強度低下は脱炭によることが報告されている<sup>10)</sup> ハステロイ X R では短時間側の寿命には雰囲気の影響が認められず、長時間側で B 型ヘリウム中での寿命がやや長い。これは浸炭の影響と思われる。

Fig. 3 に両合金の各種雰囲気中での高温低サイクル疲労強度を示す。各雰囲気中での寿命は以下の順に低下する。インコネル 617

真空 > 99.99%He  $\approx$  1000ppmCH<sub>4</sub> 添加He > B型He  $\approx$  大気

真空 > 99.99%He  $\approx$  B型He  $\approx$  大気

インコネル 617 のヒート A とヒート B では大気中での寿命はほぼ一致するが他雰囲気中での寿命は異なる。この原因として、実験誤差とは別に結晶粒径、試験片形状の違いが考えられるが、結晶粒度 3.0 と 3.5 では大きな寿命差は期待できない。<sup>7)</sup> 後者は、既報<sup>6)</sup> で指摘したように砂時計型試験片では一般に丸棒型試験片より長寿命で、更に比較的広範囲にき裂が発生する場合には雰囲気効果が増大する傾向が認められる。

両合金とも本条件下での破面形態はき裂発生点(表面)は粒界割れが支配的であり、進展部で一部は粒内割れに遷移しているが雰囲気による差は認められない。

両合金の高温低サイクル疲労寿命に及ぼす雰囲気効果は必ずしも統一的でない。代表的な試験片について疲労試験後に縦断面の光学顕微鏡観察および表面近傍の EPMA 分析を行い、き裂発生状況および表面変質層について調査した。

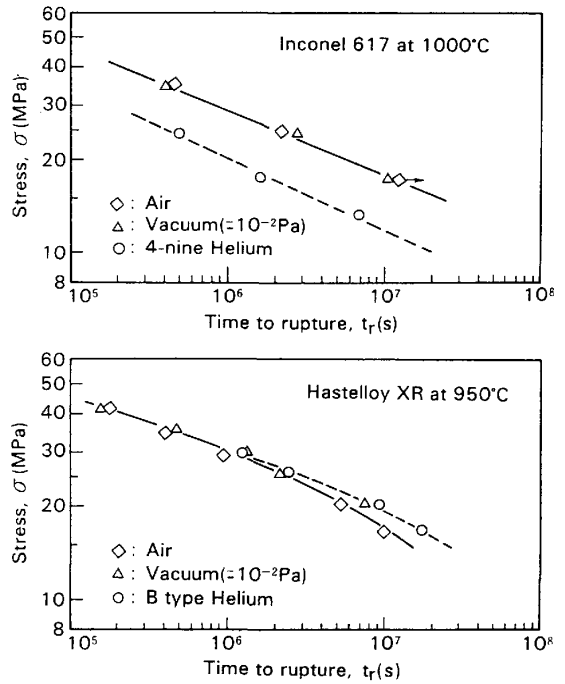


Fig.2 Creep rupture strengths of Inconel 617 and Hastelloy XR at HTGR temperatures in various environments.

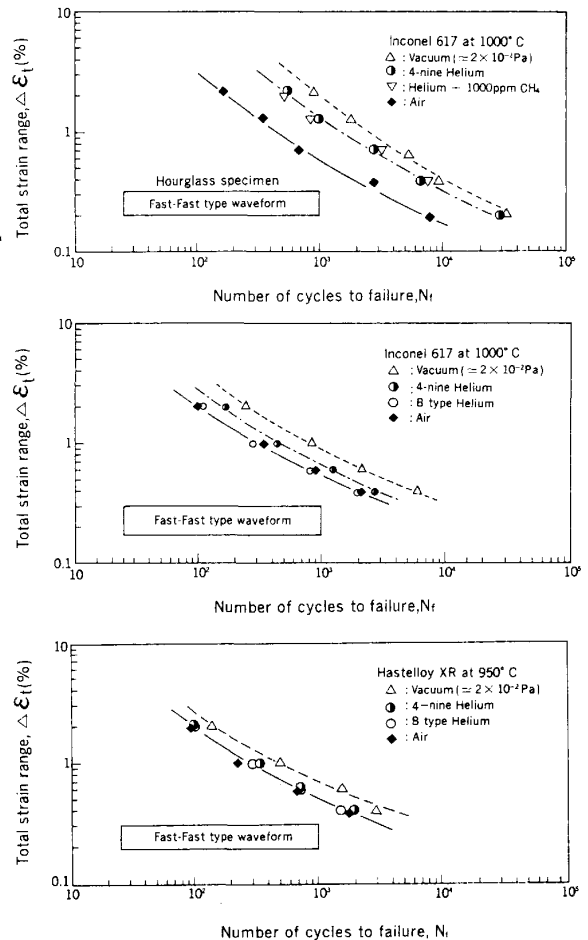


Fig.3 Low-cycle fatigue lives of Inconel 617 and Hastelloy XR at HTGR temperatures in various environments.

●インコネル617合金

各雰囲気でのき裂発生状況には次の特徴が観察される<sup>2)</sup> 大気, B型ヘリウム中でのき裂発生頻度は極めて少ない。99.99%ヘリウム, 1000ppmCH<sub>4</sub>添加ヘリウムおよび真空中での表面き裂発生頻度は極めて高い。

EPMA分析と表面皮膜のSEM観察結果をまとめると以下の知見が得られた。真空と99.99%ヘリウムに脱炭が認められ, CH<sub>4</sub>添加により脱炭は防止できた。真空, 99.99%ヘリウムおよびCH<sub>4</sub>添加ヘリウムでは表面粒界でAlの内部酸化が観察される。全雰囲気とも金属表面層に脱Cr層が観察される。表面皮膜(主にCr酸化物)の形態<sup>8)</sup>は大気では厚い緻密な酸化皮膜と多孔質な内部層が存在し, ヘリウム, 真空の順に皮膜は薄く, 多孔質な内部層で一部ははく離する傾向がある。表面き裂発生頻度はAlの内部酸化と関連している。

●ハステロイXR合金

インコネル617と異なり各雰囲気でのき裂発生頻度は少なく, 顕著な差はない。真空と99.99%ヘリウムに脱炭層が観察される。脱Cr層は全雰囲気に観察され, 表面皮膜の主成分はCr, Mn酸化物である。皮膜の形態はインコネル617と同様である。

3.2 ひずみ繰返しに伴う応力変化に及ぼす

雰囲気の影響

Fig. 4に両合金の1サイクル目と1/2N<sub>f</sub>近傍での繰返し応力-ひずみ関係を示す。両合金とも繰返し軟化挙動を示し, 大気に比較し他雰囲気での軟化の程度が大きい。Fig. 5にハステロイXRの各雰囲気におけるひずみ繰返しに伴う応力変化の一例を示す。応力振幅は1サイクル目の応力振幅で無次元化してある。真空中では他雰囲気と異なり顕著な低下傾向が認められるので, 疲労試験を途中で中断した試験片を用い, 表面直下(約1μm)のTEM観察を行った。Photo. 1に示すように大気と真空中での転位密度に差が認められる。

ひずみ繰返しに伴う変形に必要な応力が主に粒内強度, 特に転位構造の変化に依存することを考えると, 表面酸化皮膜による転位の脱出阻止効果<sup>11)</sup>による耐変形強度の上昇も一因と考えられる。全雰囲気について統一的な説明は今後検討する必要がある。

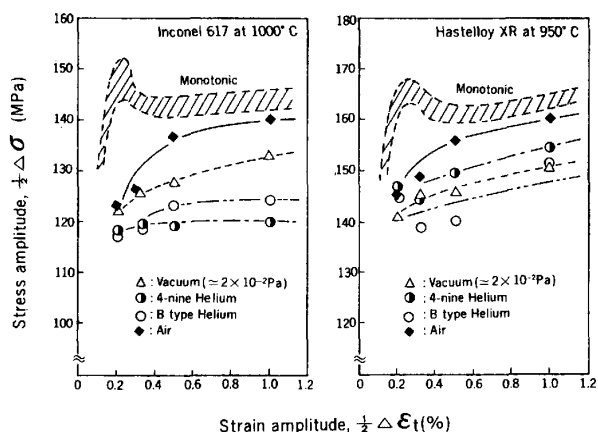


Fig.4 Monotonic and cyclic stress-strain relations of Inconel 617 and Hastelloy XR at HTGR temperatures in various environments.

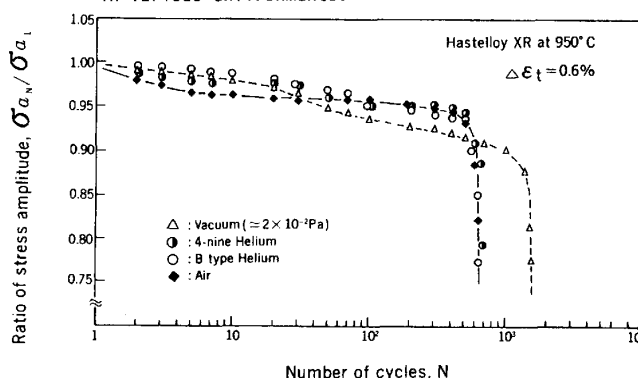


Fig.5 Changes in stress amplitude with increasing strain cycling for Hastelloy XR at 950°C in various environments.

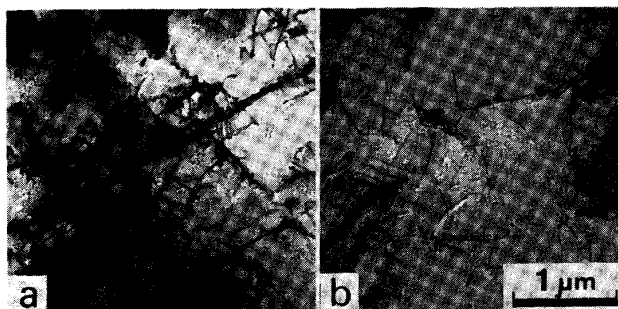


Photo.1 TEM's of Hastelloy XR specimens fatigued for 100 cycles under  $\Delta\epsilon_t=1\%$  in a)air, and b)vacuum ( $\approx 2 \times 10^{-2}$  Pa) at 950°C.

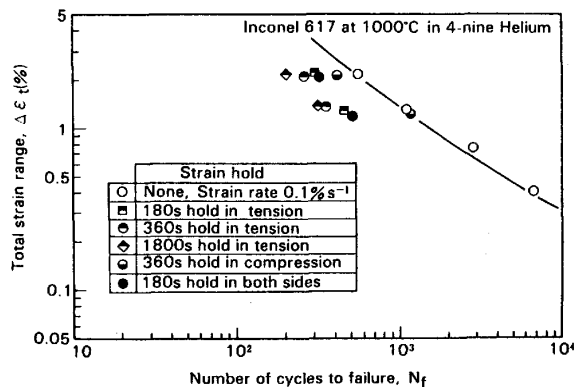


Fig.6 Effect of waveform on LCF lives of Inconel 617 at 1000°C in 99.99% helium.

3.3 クリープ・疲労特性に及ぼすひずみ波形と  
雰囲気の影響

Fig. 6 と Fig. 7 に両合金に鋸歯状波および台形波を用いたクリープ・疲労試験結果の一部を示す。

両合金ともひずみ保持を伴う台形波の寿命は各雰囲気とも保持時間をほぼ等しくすると、圧縮側保持 > 両側保持 > 引張側保持の順に低下する。保持時間が長くなっても大幅な寿命低下は認められない。

Fig. 8 は Hastelloy XR について、Fig. 1 に示した各ひずみ型式に分けて各雰囲気データのデータを整理したものである。鋸歯状波と台形波で差は存在するが、各雰囲気とも FF 型 > FS 型 > SS 型 > SF 型の順に寿命低下が認められる。引張側にクリープ損傷を受ける波形での寿命低下が著しく、両側の場合は回復する傾向がある<sup>9)</sup>

雰囲気効果が対称波形である FF, SS 型に顕著に存在し、非対称波である FS, SF 型では小さい。

3.4 HTGR クリープ・疲労重畳下でのき裂発生機構

雰囲気効果は表面の酸化皮膜の性質に主に反映し、高温酸化による表面での粒界すべりの不可逆的な蓄積や、皮膜の割れによるき裂発生の促進が考えられる。一方、ヘリウムの影響は含有不純物による Al の内部酸化、脱炭等に起因して、き裂発生頻度の増加に伴うひずみ集中の緩和や延性向上によるき裂の内部への進展の遅延が推測できる<sup>1) 3) 4) 8)</sup>

以上の実験事実に基づく機構として、対称波ではき裂発生寿命を支配する不可逆的な粒界すべりの蓄積が雰囲気（特に高温酸化）の影響の強い表面に限定されるのに対し、非対称波では雰囲気の影響が存在する表面を含み、変形の非対称性に起因する粒界ひずみの蓄積量と方向に強く依存するためと思われる。Fig. 9 に模式図を示す。

HTGR 温度域でのクリープ・疲労の寿命評価については別報<sup>5) 9)</sup> に詳細を示す。

IV. 結言 (略)

- 参考文献 1) 服部ら：材料学会第 15 回高温強度シンポジウム (1977) p.103  
 2) 服部ら：同第 18 回 (1980) p.83 3) 服部ら：同第 20 回 (1982) p.108  
 4) 服部ら：同第 21 回 (1983) p.77 5) 服部ら：同第 22 回 (1984) p.117  
 6) 服部ら：材料学会第 32 期総会講演会 (1983) p.323  
 7) 服部ら：鉄と鋼, 68 (1982) p.121 8) 服部ら：材料, 32 (1983) p.667  
 9) 服部ら：材料投稿中 10) 雑賀ら：学振 123 委, 16 (1975) p.311  
 11) P.Shahinian: Trans. ASM, 45 (1957) p.862

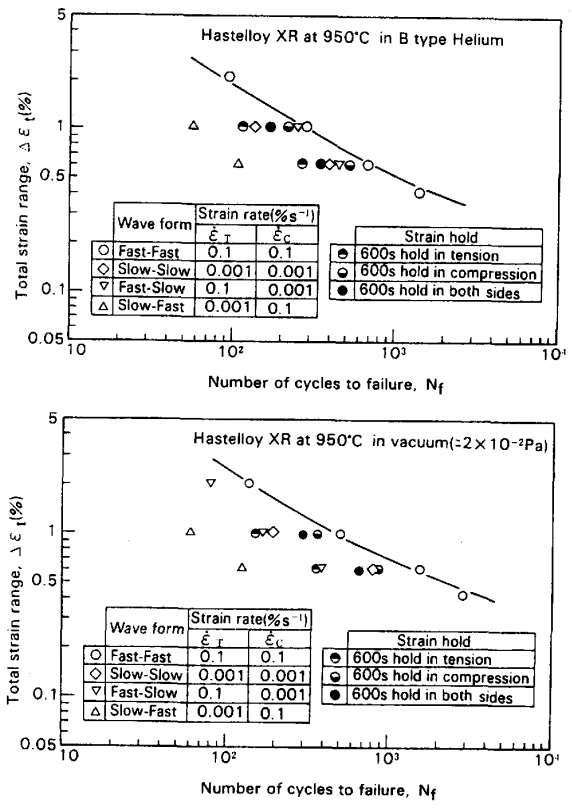


Fig.7 Effect of waveform on LCF lives of Hastelloy XR at 950°C in B type helium and vacuum.

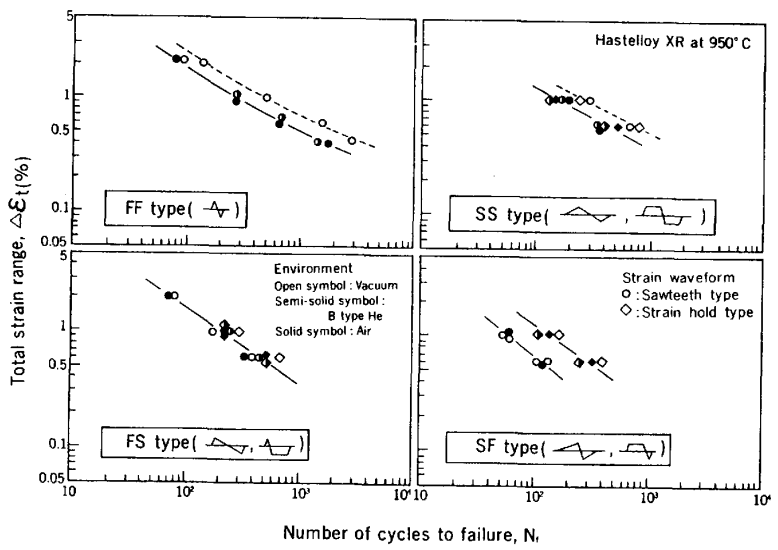


Fig.8 Effect of environment on LCF lives of Hastelloy XR under strain hold and sawteeth waveforms at 950°C.

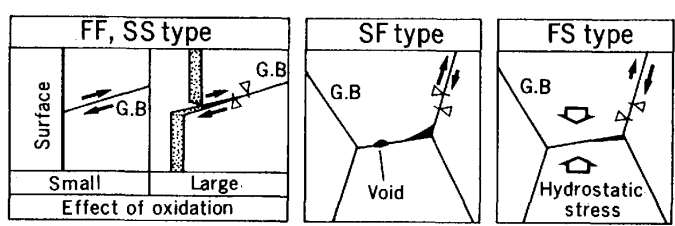


Fig.9 Schematic for the effects of environment and waveform on LCF crack initiation at HTGR temperatures.