平成28年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子カシステム研究開発事業

事故時高温条件での燃料健全性確保のための ODS フェライト鋼燃料被覆管の研究開発

成果報告書

平成29年3月 国立大学法人 北海道大学

本報告書は、文部科学省の原子カシステム 研究開発事業による委託業務として、国立大 学法人 北海道大学が実施した平成25-2 8年度「事故時高温条件での燃料健全性確保 のための ODS フェライト鋼燃料被覆管の研究 開発」の成果を取りまとめたものです。

_		
	<u>יי</u>	7
	1	Ľ
	_	_

概略・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ xv
1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1-1
2. 業務計画
2.1 全体計画 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••
3. 業務の実施内容及び成果
3.1 既存 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価 ・・・・・・・・・・・・・3.1-1
3.1.1 高温強度データ取得(再委託先:原子力機構) ・・・・・・・・・・・ 3.1-1
3.1.2 高温加熱による微細組織変化の評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-25
3.1.3 破損限界評価(冉委託先:原子力機構)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-31
3.2.1 取週队分設計 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-1 (1) フリミナナけの化営式八の検討
 (1) アルミノ主体の化学成分の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
0.2.0 () 0.2.0 () (1) 原料粉末・素管製造・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
(2) 製管試験(再委託先:原子力機構)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3. 2-71
3.3 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価・・・・・・・・・・・3.3-1
3.3.1 高温強度データ取得(再委託先:原子力機構)・・・・・・・・・・・・3.3-1
3.3.2 高温加熱による微細組織変化の評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-35
3. 3. 3 破損限界評価 (再委託先:原子力機構) ・・・・・・・・・・・・・・・・3. 3-44
3.4 軽水炉燃料被覆管への適用技術開発・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-1
3.4.1 1200℃までの水蒸気酸化試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-1
3.4.2 1200℃超での水蒸気酸化試験(再委託先:日本核燃料開発)・・・・・・・3.4-26
3.4.3 水蒸気酸化基礎プロセス・機構の解明(再委託先:東京工業大学)・・・・・3.4-32
3.4.4 UO2 との高温反応挙動評価(再委託先:日本核燃料開発)・・・・・・・・ 3.4-49
3.4.5 総合評価(再委託先:日本核燃料開発)・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-55
3.5 研究推進 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.5-1
4. 結言 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4-1
付録:今年度の外部発表リスト・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 付-1

表一覧

表 3.1.1-1	供試材の仕様(既存 ODS 鋼被覆管) ・・・・・・・・・・・・・・・3.1-7
表 3.1.1-2	超高温単軸クリープ試験装置の主要仕様 ・・・・・・・・・・・・・3.1-8
表 3.1.1-3	超高温内圧クリープ試験装置の主要仕様 ・・・・・・・・・・・・3.1-8
表 3.1.1-4	既存 ODS 鋼の平板試験片、リング試験片によるクリープ試験結果 ・・・3.1-9
表 3.1.1-5	既存 ODS 鋼の内圧クリープ試験結果 ・・・・・・・・・・・・・・3.1-10
表 3.1.1-6	高性能型急速加熱バースト試験機の主要仕様 ・・・・・・・・・・3.1-11
表 3.1.1-7	9Cr-ODS 被覆管(lot MP23)の急速加熱バースト試験結果(破裂温度) ・3.1-11
表 3.1.1-8	12Cr-ODS 被覆管(lot F14)の急速加熱バースト試験結果(破裂温度) · 3.1-11
表 3.1.2-1	高温保持条件 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-28
表 3.1.2-2	11Cr-ODS 鋼, PNC-FMS の化学組成 11Cr-ODS 鋼・・・・・・・・・・・3. 1-29
表 3.1.3-1	ODS 鋼の各種高温強度試験時における変形メカニズム ・・・・・・ 3.1-36
表 3.1.3-2	燃料ピンの仕様と定常照射条件 ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-37
表 3.2.1(1)-1	実験室で製造した試料の化学成分・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-4
表 3. 2. 1 (2)-1	状態図計算に用いたデータベース・・・・・・・・・・・・・・3.2-25
表 3. 2. 2-1	α口 による脆化挙動評価に供した材料の組成・・・・・・・・・・3.2-47
表 3. 2. 2-2	被覆管模擬処理の熱処理条件及び冷間圧延処理条件・・・・・・・・ 3.2-47
表 3. 2. 3 (1) -1	A を含まない原料粉末の成分分析結果(表 3.2.1(1)-1 の No.1、No.2 用)
	••••3.2-67
表 3.2.3(1)-2	2 AI を含む原料粉末の成分分析結果(表 3.2.1(1)−1 の No.3~No.20 用)
	•••3.2-67
表 3.2.3(1)-3	3 第1期試作材の成分分析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-68
表 3.2.3(1)-4	↓ 第2期試作材の成分分析結果・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-68
表 3. 2. 3 (2) -1	試験に供した FeCr-ODS 鋼素管および FeCrAl-ODS 鋼素管の化学成分
	とビッカース硬さ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-74
表 3. 2. 3 (2) -2	2 冷間圧延条件・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-75
表 3.2.3(2)-3	3 熱処理条件選定試験結果に基づき各工程で採用した熱処理条件・・・3.2-76
表 3.2.3(2)-4	↓ FeCr-ODS 鋼および FeCrAl-ODS 鋼の製管試験結果・・・・・・・・ 3. 2-77
表 3.2.3(2)-5	5 4回目圧延後の熱処理まま材の寸法測定結果(曲げ取り実施せず)・・3.2-78
表 3.2.3(2)-6	う 曲げ取り実施後の被覆管寸法(管端・反 No 側) ・・・・・・・・・3.2-79
表 3.2.3(2)-	7 曲げ取り実施後の被覆管寸法(管端・No 側) ・・・・・・・・・・3.2-80
表 3.3.1-1	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼のリングクリープ試験結果・3.3-7
表 3.3.1-2	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼の内圧クリープ試験結果・・3.3-8
表 3.3.1-3	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼棒材の引張試験結果(1/2) ・3.3-9
表 3.3.1-4	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼棒材の引張試験結果 (2/2) 3.3-10
表 3.3.1-5	本事業で製作した FeCr および FeCrAI-ODS 鋼被覆管の
	高温リング引張試験結果一覧(1/3)・・・・・・・・・・・・・・・3.3-11
表 3.3.1-6	本事業で製作した FeCr および FeCrAI-ODS 鋼被覆管の

	高温リング引張試験結果一覧(2/3) ・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-12
表 3.3.1-7	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼被覆管の
	高温リング引張試験結果一覧(3/3) ・・・・・・・・・・・・・・ 3.3-13
表 3.3.1-8	1000℃の超高温引張試験結果一覧・・・・・・・・・・・・・・・3.3-14
表 3.3.1-9	超高温引張試験結果一覧 [1/4] ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-15
表 3.3.1-10	超高温引張試験結果一覧 [2/4] ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-16
表 3.3.1-11	超高温引張試験結果一覧 [3/4] ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-17
表 3.3.1-12	超高温引張試験結果一覧 [4/4] ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-18
表 3.3.1-13	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 被覆管の急速加熱
	バースト試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-19
表 3.3.1-14	450℃熱時効前後の硬さ結果一覧・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-20
表 3.3.1-15	450℃熱時効前後の室温引張特性結果一覧・・・・・・・・・・・・3.3-21
表 3. 3. 2-1	各酸化物粒子構成元素に対する D , C_0 ・・・・・・・・・・・・・・・3.3-41
表 3. 3. 2-2	各酸化物の1350℃における形成エネルギー・・・・・・・・・・・3.3-41
表 3. 4. 1-1	水蒸気酸化試験を行った試験片の化学成分・・・・・・・・・・・ 3.4-7
表 3. 4. 2-1	試験片の化学組成の一覧(1200℃超での水蒸気酸化試験)・・・・・・3.4-28
表 3. 4. 2-2	1200℃超での水蒸気酸化試験で測定された Kp の一覧・・・・・・・ 3.4-28
表 3.4.4-1	試験片の化学組成の一覧(UO2 との高温反応挙動評価)・・・・・・・3.4-51
表 3. 4. 4-2	反応層厚さの計測結果と反応速度定数の評価結果(U02 との高温反応挙動評価)
	• • • 3. 4–51
表 3. 4. 5-1	試験片の化学組成の一覧(LOCA 模擬試験)・・・・・・・・・・・3.4-60

12 01 11 0 1		0 00
表 3.4.5-2	LOCA 模擬試験(水蒸気暴露)の試験条件一覧・・・・・・・・・	• • 3. 4–60
表 3.4.5-3	LMP から計算した超高温用 ODS フェライト鋼の破損時間・・・・・	• 3.4-60

図一覧

図 3.1.1-1 9Cr-ODS 鋼被覆管のリング引張試験片概略図・・・・・・・・・・・3.1-1	12
図 3.1.1-2 急速加熱バースト試験片の外観・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-1	12
図 3.1.1−3 超高温単軸クリープ試験装置の機器構成・・・・・・・・・・・・3.1−1	13
図 3.1.1-4 平板及びリングクリープ試験片の形状・・・・・・・・・・・・3.1-□	14
図 3.1.1−5 超高温内圧クリープ試験装置の機器構成・・・・・・・・・・・・3.1−1	15
図 3.1.1-6 内圧クリープ試験片の形状・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1-1	15
図 3.1.1-7 単軸クリープ試験装置の機能検証結果・・・・・・・・・・・・・3.1-1	16
図 3.1.1-8 内圧クリープ試験装置の機能検証結果・・・・・・・・・・・・3.1-1	16
図 3.1.1-9 クリープ試験片の高温酸化の観察結果・・・・・・・・・・・・・3.1-1	17
図 3.1.1-10 既存 9Cr-ODS 鋼及び 12Cr-ODS 鋼のクリープ破断強さ・・・・・・・3.1-↑	18
図 3.1.1-11 既存 ODS 鋼被覆管の引張特性	
(a)0. 2%耐力, (b)引張強さ, (c)一様伸び, (d)全伸び・・・・・3. 1−1	19
図 3.1.1-12 9Cr-ODS 鋼被覆管の引張試験後の破面観察	
(a-c) 1200°C, (d-f) 1300°C · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	20
図 3.1.1-13 12Cr-ODS 鋼被覆管の引張試験後の破面観察	
(a-b) 1200°C, (c-d) 1300°C · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	21
図 3.1.1-14 急速加熱バースト試験装置外観及び試験機概要・・・・・・・・・ 3.1-2	21
図 3.1.1-15 急速加熱バースト試験装置整備箇所・・・・・・・・・・・・・ 3.1-2	22
図 3.1.1-16 9Cr-ODS 被覆管(lot MP23)の急速加熱バースト試験結果・・・・・ 3.1-2	23
図 3.1.1-17 12Cr-ODS 被覆管(lot F14)の急速加熱バースト試験結果・・・・・ 3.1-2	23
図 3.1.1-18 9Cr-ODS 及び 12Cr-ODS 被覆管の急速加熱バースト試験後破裂面観察・・3.1-2	24
図 3.1.2−1 高温保持前後の酸化物粒子概観・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.1−2	28
図 3.1.2-2 $r^5 - r_0^5 \sim t$ のグラフ(左)と $\ln \alpha \sim 1/T$ のグラフ(右)・・・・・・ 3.1-2	28
図 3. 1. 2-3 導出した活性化エネルギーQから再構築した酸化物粒子成長曲線(点は実験値)	
• • • 3. 1-2	28
図 3.1.2-4 PNC-FMS の In-situ TEM 内昇温試験時の微細組織変化・・・・・・・・3.1-2	29
図 3.1.2-5 11Cr-ODS 鋼の In-situ TEM 内昇温試験時の微細組織変化・・・・・・ 3.1-3	30
図 3.1.2-6 想定される事故事象と本研究における高温保持試験の温度履歴の比較・・3.1-<	30
図 3.1.3-1 J.L.Straalsund らにより提案された破損寿命予測式の策定方法の概要・3.1-3	38
図 3.1.3-2 9Cr-ODS 鋼被覆管の破損寿命予測式の策定	

(a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用), (b) 0.2%耐力以上(引張評価用) ・3.1-39

iv

図 3.1.3-3 12Cr-ODS 鋼被覆管の破損寿命予測式の策定

	(a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用), (b) 0.2%耐力以上(引張評価用) ·3.1-40
図 3.1.3-4	LOF 時の破損温度予測値と実測値の比較
	(a) 9Cr-0DS 鋼被覆管, (b)12Cr-0DS 鋼被覆管・・・・・・・・・・3. 1-41
図 3.1.3-5	CEDAR コードのモデル概念図・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.1-42
図 3.1.3-6	定常運転時の被覆管肉厚中心部の温度、周応力履歴(原型炉)・・・・ 3.1-43
図 3.1.3-7	定常運転時の被覆管肉厚中心部の温度、周応力履歴(実証炉)・・・・ 3.1-43
図 3.1.3-8	破損寿命式の比較(定常照射条件に対応)・・・・・・・・・・3.1-44
図 3.1.3-9	ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心温度履歴(原型炉)・・・・・・・3.1-45
図 3.1.3-10	ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心周応力履歴(原型炉)・・・・・・3.1-45
図 3.1.3-11	ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心温度履歴(実証炉)・・・・・・・3.1-46
図 3.1.3-12	ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心周応力履歴(実証炉)・・・・・・・3.1-46
図 3. 1. 3-13	破損寿命式の比較(高温度条件 (ULOF) に対応)・・・・・・・・ 3.1-47
図 3. 1. 3-14	破損寿命式の比較(高応力条件 (UTOP) に対応)・・・・・・・・ 3.1-47
図 3.1.3-15	ULOF における被覆管の CDF 履歴(原型炉)・・・・・・・・・・ 3.1-48
図 3.1.3-16	UTOP における被覆管の CDF 履歴(原型炉)・・・・・・・・・・ 3.1-48
図 3.1.3-17	ULOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)・・・・・・・・・・ 3.1-49
図 3.1.3-18	UTOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)・・・・・・・・・・ 3.1-49
図 3.2.1(1)-	1 押出棒から採取した板材の冷間圧延試験結果・・・・・・・・・3.2-5
図 3.2.1(1)-	2 冷間圧延前後の硬さ測定結果・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-5
図 3.2.1(1)-3	3 XRD による Fe3AI、FeAI 同定結果・・・・・・・・・・・・・ 3.2-6
図 3.2.1(1)-4	4 SP7 と SP13 に存在する介在物の SEM 写真・・・・・・・・・・・3.2-7
図 3.2.1(1)-5	5 SP13 に存在する介在物の EPMA 面分析結果(Al2O3、TiC)・・・・ 3.2-7
図 3.2.1(1)-6	6 SP13 に存在する介在物の EPMA 線分析結果 (Al2O3、TiC) ・・・・ 3.2-8
図 3.2.1(1)-7	7 SP7 と SP13 に認められる介在物のサイズと面積率・・・・・・・3.2-8
図 3.2.1(1)-	8 製管試験で異常割れを呈した SP13 破面の SEM 像・・・・・・ 3.2-9
図 3. 2. 1 (1) - 9) SP13 のフレッシュな破面の元素分析結果・・・・・・・・・ 3.2-9
図 3.2.1(1)-1	0 Fe3AI 規則相生成領域を調べるために作製した試料の Cr, AI 濃度
	• • • 3.2–10
図 3. 2. 1 (1)-1	1 作製した試料の SEM 組織・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-10
図 3.2.1(1)-1	2 溶体化処理を施した試料の XRD 測定結果・・・・・・・・・・3.2-11
図 3.2.1(1)-1	3 溶体化試料の TEM 像と電子線回折、及び TEM 暗視野像・・・・・3.2-12

図 3.2.1(1)-15	各試料の 475℃で 1000 時間時効に伴う硬さ変化・・・・・・・3.2-14
図 3.2.1(1)-16	各試料の 475℃で 1000 時間時効に伴う硬さ変化・・・・・・・ 3.2-14
図 3.2.1(1)-17	475℃で 1000 時間時効に伴う硬さ増加の Fe-Cr-Al 3 元上でのプロット
	••••••3.2–15
図 3. 2. 1 (1)-18	475℃で 200 時間、1000 時間時効後の XRD と TEM 明視野像、暗視野像
	12Cr9Al, 12Cr10Al) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.1(1)-19	475℃で 25 時間、1000 時間時効後の XRD 測定結果(14Cr9AI,14Cr10AI)
	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.1(1)-20	475℃で 100 時間、1000 時間時効後の XRD 測定結果
	(14Cr11Al, 14Cr13Al) • • • • • • • • • • • • • • • • • • 3.2-17
図 3. 2. 1 (1) - 21	475℃で 1000 時間時効後の TEM 明視野像と暗視野像(17Cr13AI)・3.2-17
図 3.2.1(1)-22	475℃で 25 時間、50 時間、100 時間の時効後の XRD 測定結果
	(12Cr16AI, 14Cr16AI) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.1(1)-23	475℃で 50 時間、100 時間の時効後の XRD 測定結果
	(20Cr16AI, 22Cr16AI) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.1(1)-24	22Cr16A の 475℃で 1000 h 時効後の TEM 解析結果、Cr2A の生成
	••• 3.2–19
図 3.2.1(1)-25	溶体化材と 475℃時効材で Fe₃AI が生成する AI 臨界濃度のまとめ
	• • • 3. 2–19
図 3. 2. 1 (1) - 26	溶体化材と 475℃×200 h 時効材の 0.2%耐力、引張強さ、破断伸びの比較
	• • • 3. 2–20
図 3. 2. 1 (2)-1	Fe-Cr 系状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-26
図 3. 2. 1 (2) - 2	Fe-AI 系状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-27
図 3. 2. 1 (2) -3	Cr-AI 系状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-28
図 3. 2. 1 (2) -4	12Cr, 15Cr, 18Cr-xAI 系状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・・3. 2-29
図 3. 2. 1 (2) -5	400℃での Fe-xAI-yCr 状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-30
図 3. 2. 1 (2)-6	450℃での Fe-xAI-yCr 状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・3. 2-31
図 3. 2. 1 (2) -7	500℃での Fe-xAI-yCr 状態図・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-32
図 3. 2. 1 (2) -8	計算で用いた相互作用パラメータ(450 °C) ・・・・・・・・・・3.2-33
図 3. 2. 1 (2) -9	Fe-Cr-Al 合金の Gibbs 自由エネルギー計算結果・・・・・・・ 3.2-34
図 3. 2. 1 (2)-10	Fe-xCr-yAI 合金のギブス自由エネルギー曲線計算結果・・・・・3.2-35
図 3. 2. 1 (2)-11	12Cr,15Cr,18Cr-xAI 合金の融点の計算結果・・・・・・・・・・3.2-36

図3.2.2-1 棒材からの試験片切り出し方法・・・・・・・・・・・ 3.2-48

図3.2.2-2 (株)リガク製の回転対陰極型X線回折装置(TTR-III:Co回転ターゲット) ・・・・・3.2-48

図3.2.2-3 試験片ごとのビッカース硬さ試験結果・・・・・・・・・・・・ 3.2-49

図3.2.2-4 475℃熱時効によるビッカース硬さの変化・・・・・・・・・・・3.2-49

図3.2.2-5 Al添加量ごとのビッカース硬さ増加量(ΔHV)の熱時効(475℃)時間依存性 ・・・・3.2-50

図3.2.2-6 Cr添加量ごとのビッカース硬さ増加量(*△Hv*)の熱時効(475℃)時間依存性 ・・・・3.2-50

図3.2.2-7 Cr添加量ごとの降伏応力の熱時効(475℃)時間依存性・・・・・・・・3.2-51

図3.2.2-8 Cr添加量ごとの最大引張応力の熱時効(475℃)時間依存性・・・・・・3.2-51

図3.2.2-9 熱時効(475℃)前後の均一伸び(時効時間依存性)・・・・・・・・・3.2-52

図3.2.2-10 熱時効(475℃)前後の全伸び(時効時間依存性) ・・・・・・・・・・・・・3.2-52

図3.2.2-11 12Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量(Δσ_y)に対する伸びの変化量(-Δε)の関係 ・・・・3.2-53

図3.2.2-12 15Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量(Δσ_y)に対する伸びの変化量(-Δε)の関係 ・・・・3.2-53

図3.2.2-13 18Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量(Δσ_y)に対する伸びの変化量(-Δε)の関係 ・・・・3.2-53

図3.2.2-14 Cr添加量ごとの熱時効前のシャルピー衝撃特性に及ぼすAl濃度の影響 ・・・・3.2-54

(〇は再結晶材-0DS17) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-58

図3.2.2-24 300°C、3dpa、照射後の15Cr-7Al-ODS鋼の微細組織・・・・・・・・・3.2-59

図3.2.2-25 300°C、10dpa、照射後の15Cr-7Al-ODS鋼の微細組織・・・・・・・ 3.2-59

図3.2.2-32	475℃、10,000時間、	熱時効後の $lpha'$ 析	出の状況・・・・		•••3.2–63
図3.2.2-33	Fe-Cr-Al 三元系濃度	ダイヤグラム:	(左図)時効硬化	(HV=20以上	の硬化)を
_					

示した成分を赤字で示す。(右図)TEMにてα′析出観察が認められた成分・3.2-63

図 3.2.3(1)-1	超高温用 ODS フェライト鋼の成分設定;アルミナ生成領域、
	lpha'相脆化領域、規則相脆化領域も合わせて示す。・・・・・・ 3.2-69
⊠ 3.2.3(1)-2	第1期試作材のメカニカルアロイング粉末の粒度分布測定結果・・・ 3.2-70
⊠ 3.2.3(1)-3	第2期試作材のメカニカルアロイング粉末の粒度分布測定結果・・・ 3.2-70
図 3.2.3(2)-1	SP7(15Cr-7Al)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ・・・・ 3.2-81
⊠ 3. 2. 3 (2) −2	SP18(14Cr-7.5AI)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ・・・3.2-81
図 3.2.3(2)-3	SP19(10Cr-7Al)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ・・・・3.2-82
図 3.2.3(2)-4	1 回目冷間圧延時に粉砕破損した SP13(15Cr-9Al)素管・・・・・・3. 2-82
図 3.2.3(2)-5	1回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-6	2回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-7	3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-8	1回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP15, SP18, SP19) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-9	2回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP15, SP18, SP19) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-10	3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ
	(SP15, SP18, SP19) • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
図 3.2.3(2)-11	3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における代表的な金相組織
	• • • 3. 2–87

図 3.2.3(2)-12 4回目圧延まま材の最終熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ

	(全鋼種)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.2-88
図 3. 2. 3 (2) -1	3 4回目圧延まま材の最終熱処理条件(再結晶仕上げ)選定試験における
	代表的な金相組織・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-89
図 3. 2. 3 (2) -1	4 FeCr および FeCrAl-ODS 鋼の圧延ままおよび熱処理後のビッカース硬さ
	• • • 3. 2–90
図 3.2.3(2)-	15 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP1/管 No.11)・・・・・・ 3.2-91
図 3.2.3(2)-	16 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP4/管 No.41)・・・・・・ 3.2-92
図 3.2.3(2)-	17 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP7/管 No.71)・・・・・・ 3.2-93
図 3.2.3(2)-	18 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP8/管 No.81)・・・・・・ 3.2-94
図 3.2.3(2)-	19 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP9/管 No.91)・・・・・・ 3.2-95
図 3.2.3(2)-2	20 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP10/管 No.102)・・・・・・ 3.2-96
図 3.2.3(2)-2	21 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP15/管 No.151)・・・・・・ 3.2-97
図 3.2.3(2)-2	22 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP18/管 No.181)・・・・・・ 3.2-98
図 3.2.3(2)-2	23 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP19/管 No.191)・・・・・・ 3.2-99
図 3.2.3(2)-2	24 曲げ取り未実施の被覆管の外観写真(写真奥が SP1、手前が SP19) 3.2-100
図 3. 2. 3 (2) -2	25 曲げ取り実施仕上げ被覆管の外観写真(写真奥が SP1、手前が SP19) 3.2-100
図 3.2.3(2)-2	26 素管硬さと加工性の関係・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.2-101
図 3.2.3(2)-2	27 鋼中の AI 濃度と加工性の関係・・・・・・・・・・・・・・・・3. 2-101
図 3.2.3(2)-2	28 SEM像から解析した介在物サイズの分布・・・・・・・・・・ 3.2-102
図 3.3.1-1	700℃における Zr 無添加材のクリープ破断強さ・・・・・・・・ 3.3-22
図 3.3.1-2	1000℃における Zr 無添加材のクリープ破断強さ・・・・・・・・・3.3-22
図 3.3.1-3	700℃における Zr 添加材のクリープ破断強さ・・・・・・・・・ 3.3-23
図 3. 3. 1-4	1000℃における Zr 添加材のクリープ破断強さ・・・・・・・・・・3.3-23
図 3.3.1-5	700℃における代表的な 0DS 鋼のクリープ破断強さ・・・・・・・・3.3-24
図 3.3.1-6	1000℃における代表的な 0DS 鋼のクリープ破断強さ・・・・・・ 3.3-24
図 3.3.1-7	ODS 鋼リングクリープ試験片の断面組織観察結果・・・・・・・・ 3.3-25
図 3.3.1-8	ODS 鋼リングクリープ試験片の主破断面の SEM 観察結果・・・・・ 3.3-25
図 3.3.1-9	クリープ試験後の Zr 添加材の TEM 観察結果・・・・・・・・・・・3.3-26
図 3.3.1-10	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼棒材と被覆管
	の 300℃と 700℃の引張強度の比較・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-27
図 3.3.1-11	本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼被覆管の 700°Cにおける
	引張特性の比較・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-28
図 3.3.1-12	1000℃での超高温リング引張特性比較(a)引張強度, (b)引張延性・・3.3-29

ix

図 3.3.1-13 SP7, 9, 10, 19 のリング引張特性

(a) 0. 2%耐力, (b) 引張強度, (c) 一様伸び, (d) 全伸び・・・・・・3. 3-30
 図 3. 3. 1-14 本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼被覆管の急速加熱バースト試験

結果(5℃/s)、(a)全応力レベルの結果、(b)100MPa のデータのみ・ 3.3-31

図 3.3.1-15 SP7, SP9, SP10, SP19の急速加熱バースト試験結・・・・・・・・ 3.3-32

- 図 3.3.1-16 SP7 及び SP10 の急速加熱バースト試験後破断面観察結果・・・・・・3.3-33
- 図 3.3.1-17 熱時効前後の硬さと引張特性の変化比較

(a) 0. 2% 耐力, (b) 引張強度, (c) 一様伸び, (d) 全伸び・・・・・・ 3. 3-34

🗵 3.3.2-1	高温保持前後の酸化物粒子概観(9Cr-ODS 鋼も参照として掲載)・・・・・3.3-39
図 3.3.2-2	高温保持前後の酸化物粒子サイズ・数密度・・・・・・・・・・・3.3-39
図 3.3.2-3	1350℃, 27h 保持後の酸化物粒子格子像解析(P∶酸化物粒子、M∶母相)・3.3-40
図 3.3.2-4	酸化物粒子サイズと界面エネルギーの関係・・・・・・・・・・・3.3-41
図 3.3.2-5	SP13 押出→80%圧延材の昇温試験における微細組織変化・・・・・・・3.3-42
図 3.3.2-6	SP7, 10 の昇温試験における微細組織変化(8°C/min)・・・・・・・ 3.3-42
図 3.3.2-7	高温保持後のビッカース硬さ・・・・・・・・・・・・・・・・・3.3-43
図 3.3.2-8	高温保持後の被覆管材の結晶粒径(保持温度 3h で統一)・・・・・・ 3.3-43

図 3.3.3-1 FeCrAl-ODS 鋼被覆管の破損寿命予測式の策定

	(a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用),(b) 0.2%耐力以上(引張評価用)・・3.3-45
図 3.3.3-2	破損寿命式の比較(定常照射条件に対応)・・・・・・・・・・・3.3-46
図 3.3.3-3	破損寿命式の比較(高温度条件 (ULOF) に対応)・・・・・・・・・3.3-46
図 3.3.3-4	破損寿命式の比較(高応力条件(UTOP)に対応)・・・・・・・・・3.3-47
図 3.3.3-5	ULOF における被覆管の CDF 履歴(原型炉)・・・・・・・・・・ 3.3-47
図 3.3.3-6	UTOP における被覆管の CDF 履歴(原型炉)・・・・・・・・・・ 3.3-48
図 3.3.3-7	ULOF における被覆管の CDF 履歴(実証炉)・・・・・・・・・・ 3.3-48
図 3.3.3-8	UTOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)・・・・・・・・・・・3.3-49

図 3.4.1-1	水蒸気酸化試験装置の模式図・・・・・・・・・・・・・・・・・3.4-8
図 3.4.1-2	水蒸気酸化試験結果(1200°C)・・・・・・・・・・・・・・・・3.4-8
図 3.4.1-3	大気中酸化試験結果(1200°C)・・・・・・・・・・・・・・・・・3.4-9
図 3.4.1-4	酸化速度定数の見積り(水蒸気酸化試験、1200℃)・・・・・・・ 3.4-10
図 3.4.1-5	酸化重量増加の Cr 濃度依存性(水蒸気、1200℃、100 時間)・・・・・ 3.4-1

図 3.4.1-6	酸化重量増加の Cr 濃度依存性 (大気中、1200℃、100 時間) ・・・・・ 3.4-11
図 3.4.1-7	試験後の 18Cr-15AI 材の EPMA 元素分析結果(1200℃、100 時間)・・・ 3.4-12
図 3.4.1-8	TEM による結晶粒観察結果(大気中、1200℃、46 時間)・・・・・・ 3.4-12
図 3.4.1-9	図3.4.1-13 で得られた縦軸の切片の値(kp intercept)と Cr 濃度の関係
	• • • 3. 4–13
図 3.4.1-10	図 3. 4. 1-13 で得られた酸化速度定数(kp)と Cr 濃度の関係・・・・・ 3. 4-13
図 3.4.1-11	Zr 添加材の 1200℃水蒸気酸化重量の放物線プロット(16 時間以前と以降)、
	及びそれらの酸化速度定数・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-14
図 3.4.1-12	1200℃×100 時間での水蒸気酸化試験後の EPMA による元素分布測定結果
	(SP8:0.35Zr, 過剰酸素濃度 0.07 wt%)・・・・・・・・・・ 3.4-15
図 3.4.1-13	Zr 添加材の 1200℃水蒸気酸化重量と過剰酸素/Zr モル比の関係・・・・3.4-16
図 3.4.1-14	Zr 添加材の 1200℃×100 時間での水蒸気酸化重量増加と Zr 濃度の関係 3.4-16
図 3.4.1-15	1100℃での水蒸気酸化重量の放物線プロット(SP7, SP8, SP10)・・・3.4-17
図 3.4.1-16	1000℃での水蒸気酸化重量の放物線プロット(SP7, SP8, SP10)・・・ 3.4-17
図 3.4.1-17	水蒸気酸化速度のアレーニウスプロット(SP7, SP8, SP10)・・・・・ 3.4-18
図 3.4.1-18	0Zr における 1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析・・・・・・・・・・3.4-19
図 3.4.1-18	0.4Zr-0.09Ex.0における1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析・・・・ 3.4-19
図 3.4.1-20	0.4Zr-0.22Ex.0における1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析・・・・ 3.4-20
図 3.4.1-21	0Zr における 1400℃, 25h 水蒸気酸化後の元素分析・・・・・・・ 3.4-21
図 3.4.1-22	0.4Zr-0.23Ex.0 における 1400℃, 25h 水蒸気酸化後の元素分析・・・・3.4-21
図 3.4.1-23	0.4Zr 試料における過剰酸素量と Kp の関係・・・・・・・・・・・3.4-22
図 3.4.1-24	高過剰酸素添加材における Zr 量と Kp の関係・・・・・・・・・・3.4-22
図 3.4.1-25	エリンガム図・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-23
図 3.4.1-26	0.4Zr 試料における 1400℃での過剰酸素量と P02の関係・・・・・・ 3.4-24
図 3.4.1-27	1400℃での Zr 量と P0₂の関係・・・・・・・・・・・・・・・・・3.4-24
図 3.4.1-28	1400℃における各試料の形成物・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-25
図 3.4.2-1	試験前の試験片設置状態(1200℃超での水蒸気酸化試験)・・・・・ 3.4-29
図 3.4.2-2	雰囲気調整電気炉の概略・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-29
図 3.4.2-3	水蒸気酸化試験後の外観観察結果の例・・・・・・・・・・・・・ 3.4-30
図 3.4.2-4	水蒸気酸化試験の重量変化の例(1350℃)・・・・・・・・・・・ 3.4-30
図 3.4.2-5	水蒸気酸化試験で測定された K _p の温度依存性・・・・・・・・・・ 3.4-31
図 3.4.2-6	FeCrAl-ODS 鋼の K _p とジルカロイ材との比較・・・・・・・・・・・・ 3.4-31

xi

- 図 3.4.3-1 異なる Cr または AI を含む Fe-Cr-AI 合金の昇温中の酸化の動力学・・ 3.4-38
- 図 3.4.3-2 650°Cまで昇温後の Fe-Cr-AI 合金の断面組織(a) Fe-3AI, (b) Fe-4Cr-3AI,

(d) Fe-24Cr-3AI, (d) Fe-4Cr-5AI, および(e) Fe-24Cr-5AI・・・・・ 3.4-38 図 3.4.3-3 650℃で(a) (b) (c) 30min および(d) (e) (f) 60min 酸化後の断面組織

(a) (d) Fe-3AI, (b) (d) Fe-4Cr-3AI および(c) (f) Fe-24Cr-3AI ・・・・ 3.4-39 図 3.4.3-4 Fe-Cr-AI 合金の昇温中および 1000℃.

a) Fe-4Cr-3AI, (b) Fe-24Cr-3AI, (c) Fe-4Cr-5AI, および(d) Fe-24Cr-5AI ・・・3.4-39

図 3.4.3-5 Fe-Cr-Al 合金上に形成した α アルミナスケールの (a) (c) 面間隔

および(b)(d)半値幅の時間変化 (a)(b)Fe-Cr-3Al (d)(d)Fe-Cr-5Al ・・3.4-40 図 3.4.3-6 650℃まで昇温後の Fe-Cr-Al 合金の断面組織

図 3.4.3-8 1000℃まで昇温後の Fe-Cr-AI 合金の断面組織

(a) Fe-4Cr-5Al (b) Fe-24Cr-3Al (c) は(a)の拡大組織・・・・・・ 3.4-41

図 3.4.3-9 Fe-xCr-3AI 合金中に形成する内部酸化の体積割合の Cr 濃度依存性・・ 3.4-42

図 3. 4. 3-10 本研究で提案するアルミナスケール形成のための AI および Cr の役割のモデル ・・・3. 4-42

図 3. 4. 3-11 異なる Cr または AI を含む Fe-Cr-AI 合金の 1000℃、400h までの酸化の動力学 ・・・3. 4-43

- 図 3. 4. 3-12 大気中で 1000°C、400h 酸化した試料上に形成したアルミナ皮膜の断面組織 (a) Fe-4Cr-3AI, (b) Fe-24Cr-3AI, (c) Fe-4Cr-5AI, および (d) Fe-24Cr-5AI ・ 3. 4-43
- 図 3.4.3-13 各合金上に 400 時間酸化後に形成したアルミナ皮膜の粒径と 外層/内層界面(Original Interface)からの距離の関係・・・・・・3.4-44
- 図 3.4.3-14 900℃昇温直後に(a)Fe-4Cr-3Al および(b)Fe-24Cr-3Al 合金中に形成した内部酸化物の組織・・・・・・・・・・・・・・・・・3.4-44
- 図 3.4.3-15 SP7, SP8 および SP10 の SPring-8 における昇温中および 1100°Cにおける In-situ 高温 X 線回折パターン (a) SP7, (b) SP8, および(c) SP10・・3.4-45
- 図 3.4.3-16 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における 1200℃、大気中で等温酸化中の In-situ 高温 X 線回折パターン (a) SP7, (b) SP8, および (c) SP10・・3.4-45

図 3.4.3-17 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における大気中、1200°C,

5 時間等温酸化後の断面組織 (a) SP7, (b) SP8, および(c) SP10・・3.4-46 図 3.4.3-18 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における 1200℃、水蒸気中で等温酸化中

の In-situ 高温 X 線回折パターン(a) SP7, (b) SP8, および(c) SP10・3.4-47 図 3.4.3-19 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における水蒸気中、1200℃,

5時間等温酸化後の断面組織 (a) SP7, (b) SP8, および(c) SP10・・・3.4-48

図 3.4.4-1	UO2との高温反応挙動評価試験の試験体系の概略・・・・・・・・・・3.4-51
図 3.4.4-2	試験後試験体の外観観察結果(UO₂との高温反応挙動評価試験)・・・・ 3.4-52
図 3.4.4-3	UO2と超高温用 ODS フェライト鋼との接触面の横断面分析結果 ・・・・ 3.4-53
図 3.4.4-4	K _p の温度依存性の比較(UO ₂ との高温反応挙動評価試験)・・・・・・ 3.4-54
図 3.4.5-1	高温水蒸気への暴露と急冷までを実施した試験体系の概略図・・・・・ 3.4-61
図 3.4.5-2	LOCA 模擬試験における電気炉温度履歴の例・・・・・・・・・・ 3.4-62
図 3.4.5-3	1200℃高温水蒸気暴露による重量増加・・・・・・・・・・・・・ 3.4-62

図 3.4.5-	4 リング圧縮試験後の試験片の外観観察例・・・・・・・・・・・・ 3.4-63
図 3.4.5-	5 リング圧縮試験における押し込み変位と荷重の変化・・・・・・・ 3.4-63
図 3.4.5-	6 報告されている炉外腐食試験結果・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-64
図 3.4.5-	7 全炉心計算結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-65
図 3.4.5-	3 LMP から計算される t _R の温度、応力依存性・・・・・・・・・・・ 3.4-65
図 3.4.5-	9 肉厚健全部の損耗速度評価結果・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3.4-66

略語一覧

ATF DBTT	:	Accident Trelant Fuel(事故耐性燃料) Ductile-brittle transition temperature(研性睑性遷移温度)
FP	:	Fission product(核分裂生成物)
HWC	:	Hydrogen water chemistry(水素注入水質)
LMP	:	Larson-Miller Parameter(ラーソン・ミラー・パラメータ)
LOF	:	Loss of Flow(流路減少事象)
LOCA	:	Loss-of-coolant accident (冷却水喪失事故)
MA	:	Mechanical Alloying (機 械 的 合 金 化)
NWC	:	Normal water chemistry(通常炉内水質)
ODS	:	Oxide dispersion Strengthened (酸化物分散強化)
ULOF	:	Unproected Loss of Flow(スクラム失敗時の流路減少型事象)
UTOP	:	Unprotected Transient Over Power type(スクラム失敗時の過出力事象)
UTS	:	Ultimate Tensile Strength (引張強さ)
YS	:	Yield Stress(降伏応力)
TOP	:	Transient Over Power(過出力事象)

概略

1. 研究の背景と本研究の目的

ナトリウム冷却高速炉では、許容設計温度である 830℃以下の設計基準事象の範囲内で PNC316 製燃料被覆管の健全性が確保されている。しかし設計基準を超える事故事象では、燃料 破損を前提にシビアアクシデント評価が行われており、シビアアクシデントに至る過酷な事象進 展を回避するためには、冷却可能形状の維持に効果的な被覆管の破損防止が重要となる。そのた め、本事業では PNC316 に比べて優れた高温強度を有する既存の酸化物分散強化型(ODS)フェライ ト鋼を燃料被覆管に適用し、1000℃以上で適用可能な高温強度評価式を策定して、シビアアクシ デント時の燃料破損に対する裕度を評価する。

一方、福島第一原子力発電所のシビアアクシデント時の炉心溶融や水素爆発は、ジルカロイ と高温水蒸気との酸化発熱反応に起因して起こったことが分かっている。そのため水蒸気に対す る耐酸化性が格段に優れたアルミナ保護被膜を有する超高温用 ODS フェライト鋼 (FeCrA1-ODS 鋼)を開発し、その高温水蒸気に対する耐酸化性、高温強度特性、耐熱時効脆化、UO₂との高温 反応を調べ、軽水炉への適用性を評価する。酸化物分散強化による強度向上は、事故時破損限界 の向上のみならず、Zr ベースから Fe ベースへの変更に伴う中性子吸収断面積の増加分を補償可 能な被覆管薄肉化を達成する上で不可欠である。

本事業はH25年10月に開始しH29年3月に終了したもので、本報告書は期間全体を通して得られた研究成果をまとめたものである。

実施内容と成果

2.1 既存 9/12CrODS 鋼被覆管の高速炉事故時破損限界評価

高速炉用に開発された既存の 9/12CrODS 鋼被覆管を対象に、新たに 1300℃までのリング引張 試験データ、1000℃でのクリープ破断データ、及び加熱速度が 0.5℃/s までの急速加熱バースト 試験データを取得して、事故時を想定した高温強度データベースを整備した。また、高温 Insitu 電子顕微鏡観察から、短時間高温加熱時に 9CrODS 鋼の α/γ 変態や 12CrODS 鋼の再結晶は 酸化物粒子のピン止め効果で著しく抑制されることを示した。

これらの結果を踏まえて、任意の応力・温度変動条件で破損寿命を予測可能な燃料破損寿命 評価式を策定し、高速炉の代表的事故事象である冷却材喪失(LOF)型と過出力(TOP)型の事故が発 生した場合の被覆管累積損傷和(CDF)を評価した。その結果、これらの事故時に自己作動型炉停 止機構(SASS)が作動するまでの期間において、既存 9/12CrODS 鋼被覆管の CDF は 1.0 を大幅に下 回り、十分な事故時破損耐性が確保できることを明らかにした。この研究成果は、高速炉の設計 基準を超える事故事象において、燃料破損を防止してシビアアクシデントに至らない事象範囲の 拡張を可能にしたもので、高速炉の飛躍的な安全上向上を可能にした。

2.2 事故耐性燃料被覆管としての超高温用 ODS フェライト鋼(FeCrAI-ODS 鋼)の開発と軽水炉への適用性評価

超高温用 ODS フェライト鋼の合金設計については、耐水蒸気酸化のためのアルミナ生成促進、 時効脆化を回避するためのα'相と Fe₃A1 規則相の生成抑制の観点から、Cr 濃度と A1 濃度の最 適化を行った。アルミナ生成のために添加した A1 は低 Cr (12wt%)ではα'相生成を促進する が、高 Cr (18wt%) では逆に α '相生成を抑制することを明確に示した。また、Fe₃A1 規則相は A1 濃度が 10wt%以上で生成することを確認した。 α '相が生成する 475℃×10,000 時間の時効で も延性は確保されること、イオン照射 (300℃、475℃/15 dpa) による α '生成促進は無いこと を確認した。これらの結果に基づき、Cr 濃度と A1 濃度、及び Zr 濃度と過剰酸素濃度をパラメ ータに、再結晶組織を有する 9 鋼種の被覆管を製造して、それらの 1300℃までのリング引張試 験データ、700℃と 1000℃でのクリープ破断データ、急速加熱バースト試験データを取得した。 特筆すべきは Zr を添加することにより、超高温用 0DS フェライト鋼被覆管は高速炉用に開発し た 9/12CrODS 鋼被覆管をも凌駕する画期的なクリープ破断強度 (1000℃) を達成したことである。 これは酸化物粒子が Y-A1 系から Zr 添加により Y-Zr 系 (Y₄Zr₃O₁₂) に変わり、数密度が増加した ことに因る。

1000℃~1450℃の温度範囲で Zr 濃度と過剰酸素濃度をパラメータに水蒸気酸化試験を行い、 高温強度向上のために添加した Zr は水蒸気酸化を促進したが、過剰酸素濃度を制御することに よりこの課題を克服した。1400℃以上の高温では、むしろ Zr 添加はアルミナスケールの剥離防 止に不可欠であることを見出した。この発見により、優れた事故時高温強度と耐水蒸気酸化を両 立した事故耐性燃料被覆管を世界で初めて実現した(特許申請し成立見込み)。また、放射光お よび実験室系の高温 in-situ X 線回折実験を駆使して、基本となる Cr 濃度-A1 濃度がアルミナ スケールの核生成・成長に及ぼす影響を解明した。これらの結果に基づき、安定アルミナ被膜形 成、 α '相生成抑制、及び高温強度向上を達成可能な最適成分として Fe-12Cr-6A1-0.4Zr-0.24Ex.0 (wt%)を提案した。開発した Zr 添加超高温用 ODS 鋼被覆管はジルカロイ材と比較して 水蒸気酸化速度が 3 桁程度小さく、優れた水蒸気酸化抵抗性示した。また、試験を行った 1450℃までの温度範囲で U0²との反応はほとんど見られず、LOCA 模擬試験においても機械的特性 の劣化は無いことを確認した。

上記の化学成分を有する Zr 添加超高温用 ODS 鋼被覆管のクリープ破断データに基づき策定し た燃料破損寿命評価式を用いて、設計基準事故(DBA)である LOCA 時に燃料破損(核分裂生成ガ スの燃料ピンからの放出)が起こる温度を解析した。中性子吸収断面積の増加分を補償するため 被覆管肉厚を約半分にしても、Zr 添加超高温用 ODS 鋼被覆管の優れた高温強度と水蒸気酸化耐 性により、現行ジルカロイと比較して 200 ℃程度の燃料破損温度の上昇が期待され、事故時燃 料破損のリスク低減を見込めることが確認された。

3. 今後の展望

本事業において、既存の 9/12CrODS 鋼被覆管を対象に高速炉シビアアクシデント時の燃料破 損に対する裕度を評価した。また、軽水炉の事故耐性燃料被覆管としての超高温用 ODS フェライ ト鋼被覆管を開発して、高温強度、水蒸気酸化耐性などの各要素技術を評価した。特に超高温用 ODS フェライト鋼被覆管については、経産省の受託事業として端栓との接合技術開発や検査技術 開発、燃料設計を実施しており、今後行う照射試験による性能実証を通して実用化技術に繋げて いく計画である。 1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故の教訓を踏まえ、高速炉と軽水炉の燃料被覆管を対象にシビア アクシデント時のリスク低減化のための研究開発を行った。

本報告書は4項で構成されており、最初の第1項は高速炉を対象にしたものである。事故時 高温強度に優れる既存 ODS 鋼被覆管を適用した場合に、高速炉の流路減少型(LOF)と過出力型 (TOP)で代表されるシビアアクシデントにおいて、制御棒挿入によるスクラムまでの期間中で の燃料破損発生リスクを評価する。そのため、既存 ODS 鋼被覆管の 1000℃を超える高温での一 連の強度試験データを新たに取得し、これから Larson-Miller パラメータと相当応力から成る寿 命評価式を策定して、LOF 及び TOP 事象下での温度・応力履歴に沿って累積損傷和(Cumulative damage fraction)を計算して破損発生の有無を評価した。

福島第一原発のシビアアクシデントで経験した炉心溶融は、主としてジルカロイと高温水蒸 気との酸化反応で発生した莫大な反応熱に因ることから、水蒸気酸化抵抗性に優れたアルミナ保 護被膜を有する超高温 ODS フェライト鋼被覆管を開発する。この材料は A1 添加高 Cr フェライト 鋼であることから、α'相や Fe₃A1 規則相の生成による脆化を抑制した合金設計が必要となる。 また高温強度の観点からは、酸化物粒子の微細化が不可欠である。このような合金設計と被覆管 製造について第 2 項で述べる。第 3 項では製造した超高温 ODS フェライト鋼被覆管の 1000℃を 超える高温での強度特性を評価した結果を述べる。ここでは Zr 添加による酸化物粒子の微細化 により、1000℃では既存 9/12CrODS 鋼被覆管の強度を凌駕する画期的なクリープ判断強度を達成 した。第 4 項では、開発した超高温用 ODS フェライト鋼被覆管を軽水炉に適用した場合の水蒸気 酸化耐性や U0₂ との高温反応、LOCA 時健全性、並びにを軽水炉に適用した場合の事故時安全性向 上を評価した結果を述べる。特に過剰酸素濃度制御による Zr 添加超高温用 ODS フェライト鋼被 覆管の高温強度と水蒸気酸化耐性の両立がポイントになる。

本事業はH25年10月に開始しH29年3月に終了したもので、本報告書は期間全体を通して得られた研究成果をまとめたものである。

2. 業務計画

2.1 全体計画

既存 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界を評価することにより、もんじゅ、高速実証 炉の事故時安全性向上を図る。また、超高温用 ODS フェライト鋼被覆管を開発し、高温水蒸気 に対する耐酸化性、UO₂との高温反応性、時効脆化特性等を調べ、軽水炉燃料被覆管への適用性 を評価する。本研究では以下の項目について実施する。

- (1) 既存 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価
 - (1-1)既存 ODS フェライト鋼被覆管を対象に 1000℃近傍までの温度範囲で引張試験、クリ ープ破断試験、急速加熱バースト試験を行い、高温強度データを取得する。
 - (1-2)事故時に経験する短時間高温保持によって引き起こされる組織回復、酸化物粒子の 粗大化挙動を評価する。また、α相からγ相への変態に伴う組織変化を高温 In-situ 電子顕微鏡観察により評価し、高温強度との関係を明らかにする。
 - (1-3)クリープ寿命分数和=1.0 で破損するという life-fraction-rule を用いて、任意の 応力、温度上昇速度での破損温度と破損時間を統一的に予測可能な高温強度評価式 を作成する。これに基づき、もんじゅ及び高速実証炉の除熱系喪失時の被覆管温度 上昇に対応した燃料破損限界を解析し、燃料破損に対する裕度、シビアアクシデン トの事象緩和程度を評価する。

(2) 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の開発・製造

- (2-1) 基本成分は 12-18wt%Cr、0-9wt%A1 とし、アルミナ(A1₂0₃) 主体 とクロミア(Cr₂0₃) 主 体の超高温用 ODS フェライト鋼被覆管を設計する。また下記(3)、(4)の結果を踏ま えて、最適成分を絞り込む。
- (2-2)300℃~700℃の熱時効材の電顕観察と引張試験により、α'相生成、脆化程度と Cr 濃度の関係を評価する。また、イオンによるシミュレーション照射試験により、照 射によるα'相生成の促進効果を評価する。
- (2-3)Cr 濃度と A1 濃度をパラメータにアトライターでメカニカルアロイング粉末を作製し 熱間押出しによる固化と冷間圧延による製管プロセスで超高温 ODS フェライト鋼被 覆管を製造する。

(3) 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価

- (3-1)(2-3)で製造した超高温用 ODS フェライト鋼被覆管を対象に~1300℃の温度範囲で引 張試験、クリープ破断試験、急速加熱バースト試験を行い、高温強度データを取得 する。
- (3-2)事故時に経験する短時間高温保持に伴う再結晶組織の回復、酸化物粒子の形態変化 と粗大化を調査し、事故時高温での強度低下との関連を明らかにする。
- (3-3)life-fraction-rule を用いて、超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の事故条件下での 破損限界を解析し、燃料破損に対する裕度、シビアアクシデントの事象緩和程度を 評価する。
- (4) 軽水炉燃料被覆管への適用技術開発
 - (4-1)(2-3)で製造した超高温用 ODS フェライト鋼を用いて、1200℃までの温度範囲で水蒸 気酸化試験を行い、反応速度を評価する。
 - (4-2) (2-3) で製造した超高温用 ODS フェライト鋼を用いて、1200℃を超える超高温での水 蒸気酸化試験を行い、反応速度を評価する。
 - (4-3)高温水蒸気酸化で生成する酸化物の種類とその生成プロセスを In-situ XRD により調 べ、安定保護被膜であるアルミナが生成する Cr と A1 の臨界濃度や添加 Zr、過剰酸 素の影響を明らかにする。
 - (4-4)超高温用 ODS フェライト鋼を用いて、UO₂ との高温反応試験を行い、反応生成物の種類、共晶反応による融点降下の有無とその程度を評価する。
 - (4-5)LOCA 時を模擬した水蒸気酸化試験後のリング圧縮試験を含めて、上記結果に基づき、 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の軽水炉への適用性を総合的に評価する。

	H25 年度	H26 年度	H27 年度	H28 年度
 (1) <u>既存 0DS フェライト鋼被覆管の</u> <u>事故時破損限界評価</u> (1-1) 高温強度データ取得 				
(1-2)高温加熱による微細組織変化の評価	実験装置整備	高温強度試験 微細組織	載解析	
(1-3)破損限界評価		◀ 破損限界評	評価、事故時健≦	≧性評価
(2) <u>超高温用 0DS フェライト鋼被覆管</u> <u>の開発・製造</u> (2-1) 最適成分設計				
(2-2) α'による脆化挙動評価	■ 成分設計	α' による	章	分設計
(2-3)被覆管製造	原料粉末製造	製管 · 被覆管:	製造	
 (3) 超高温用 0DS フェライト鋼被覆管の 事故時破損限界評価 (3-1) 高温強度データ取得 			◀─────高温強	度試験
(3-2)高温加熱による微細組織変化の評価			◀ 微細組	織解析
(3−3)破損限界評価				→破損限界評価、
 (4)軽水炉燃料被覆管への適用技術開発 (4-1)1200℃までの水蒸気酸化試験 		-	水茨气酸	事故時健全性評価 化試験
(4-2)1200℃超での水蒸気酸化試験			·⊼蒸X器	、酸化試験
(4-3)水蒸気酸化基礎プロセス・機構の解明	実験装置整備	 基礎フ	ロセス解明試験	
(4-4) U0₂との高温反応挙動評価			■ U0₂ との)	▼応試験
(4-5)総合評価(NFD)	▲	 隆水炉への適用打		

表 2.1-1 本研究の年次計画

3. 業務の実施内容及び成果

- 3.1 既存 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価
 - 3.1.1 高温強度データ取得(再委託先:原子力機構)(H25~H28)
 - (1) 目的

既存 ODS フェライト鋼被覆管を対象に 1000℃近傍までの超高温で引張試験、クリープ破 断試験、急速加熱バースト試験を行い、高温強度データを取得する。

(2) 方法

① 超高温クリープ試験

クリープ試験に先立ち、1000℃級の ODS フェライト鋼被覆管のクリープデータ取得に向 けた超高温単軸クリープ試験装置及び超高温内圧クリープ試験装置の整備を実施した。

上記のクリープ試験装置を用いて、原子力機構が開発した既存の 9Cr-ODS 鋼被覆管及び 12Cr-ODS 鋼被覆管について、1000℃の温度条件でのリングクリープ試験及び内圧クリープ 試験を実施した。両鋼の化学成分及び熱処理条件を表 3.1.1-1 に示す。供試材は、9Cr-ODS 鋼が 2 ロット、12Cr-ODS 鋼が 1 ロットである。整備した装置の仕様および装置に対応 したクリープ試験片形状については、3.1.1(3)①に示す。

2 超高温引張試験

原子力機構が製作した既存の 9Cr-ODS 鋼被覆管(lot MP23)および 12Cr-ODS 鋼被覆管 (lot F14)の超高温リング引張試験データを取得した。リング引張試験片は、放電加工に より供試材から作製した。リング引張試験形状を図 3.1.1-1 に示す。なお、ゲージ部側面 については、放電加工の影響を除去するため、#800の研磨紙仕上げとした。

超高温リング引張試験は、MTS808 型引張試験機(ロードセル容量 2500N)を用いて、真空炉 (約 2×10⁻² Pa)で実施した。試験温度は、1250 及び 1300℃とし、試験片が試験温度に到達 後 3 分間保持した後、試験を開始した。なお、真空中での試験片と治具の間の摩擦を軽減 するため、治具に窒化ホウ素潤滑材を使用した。クロスヘッド移動速度は、0.1 mm/min 一 定とし、変位量はクロスヘッド移動量から評価した。本試験では、0.2%オフセット耐力を 0.2%耐力と定義し、一様伸び及び全伸びについては、荷重-変位曲線から算出した。

③ 急速加熱バースト試験機整備

既存 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価に資するため、高速炉の事故事象の 一つである流量喪失事象(LOF(Loss of Flow)事象)を模擬した急速加熱バースト試験を 実施した。

9Cr-ODS 鋼被覆管(鋼種: lot MP23)を対象とした試験周応力 50、100、150、200MPa、 高昇温速度(1℃/s、5℃/s、10℃/s)での試験は、原子力機構が所有する急速加熱バース ト試験機を用いた。H27 年度に高精度での昇温速度制御を目的として新しく急速加熱バー スト試験装置を整備し、整備した高性能試験装置を用いた同試料に対する試験周応力 50、 100、150、200MPa、低昇温速度(0.1℃/s レベル)での試験を実施した。また、12Cr-ODS 鋼 被覆管(鋼種:lot F14)に対して、試験周応力 50、100、150、200MPa、 目標昇温速度 0.1℃/s の試験条件での試験を実施した。

被覆管から長さ 75mm を切り出し、上部及び下部端栓部に直接通電加熱用の電極を取り 付けることで急速加熱バースト試験片とした(図 3.1.1-2)。この試験片を急速加熱バース ト試験機に固定し、所定の試験応力となるように Ar ガスを負荷させた後、所定の昇温速 度を一定に保ち、試験片が破裂するまで加熱して、試験片の破裂温度を計測した。

(3) 結果及び考察

① 超高温クリープ試験

超高温単軸クリープ試験装置の主要仕様を表 3.1.1-2 に、機器構成を図 3.1.1-3 にそれ ぞれ示す。本試験装置は、原子力機構が所有するクリープ試験装置(1 台)をベースに、 1000℃で試験が行えるよう、加熱システム等の機能を付加したものである。クリープ試験 部の炉心管内は、試験片の高温酸化を極力防止する観点から、アルゴンガス雰囲気とした。 本試験装置は、最大負荷容量 100kgf の直接負荷型であり、負荷精度は、設定値に対して ±0.5%である。本試験装置に設置可能な試験片の形状を図-3.1.1-4 に示す。装置設計では、 ミニチュアサイズの平板試験片(平行部;長さ 12mm、幅 2mm、厚さ 1mm)とリング試験片 (平行部;長さ 2mm、幅 1.5mm、厚さ 0.4・0.5mm)の2 種類を対象に、試験を実施できる ようにした。

超高温内圧クリープ試験装置の主要仕様及び機器構成を、表 3.1.1-3 及び図 3.1.1-5 に それぞれ示す。本試験装置(1 台)は、本研究開発事業用に新たに整備したものであり、 最高試験温度及び試験雰囲気は上述の超高温単軸クリープ試験装置と同じである。試験片

(図 3.1.1-6 参照)の破断は、試験片内部に充填したヘリウムガスが炉心管内に漏出した際のヘリウムガス濃度上昇を、炉心管内と連通が図られたヘリウムリークデテクタにより 検知することができる。

これら整備した2種の超高温クリープ試験装置の機能を検証するため、既存の 0DS 鋼を 用いて 1000℃までのクリープ試験を実施した。以下に、それぞれの試験装置における機能 確認結果について述べる。

超高温単軸クリープ試験装置の機能検証では、既存の 9Cr-ODS 鋼(lot M19L)から製作 した平板試験片及びリング試験片を対象に、700℃、750℃及び 1000℃で単軸クリープ試験 を実施した。ラーソン・ミラー・パラメータ(LMP)値と応力との関係で整理した結果を 図 3.1.1-7 に示す。本試験で取得したクリープ強度データは、図中の lot M19L(被覆管、 棒材)の既存データに基づく平均傾向線に概ね一致しており、試験技術上の問題はないこ とを確認できた。なお、リング試験片のクリープ強度は、平板試験片に比べて若干低めの 値を示しているが、これは ODS 鋼被覆管の強度に異方性があるためと考えられる。

平成 27 年度から実施するクリープ試験では、被覆管が受ける主たる荷重は周応力であること、ならびに ODS 鋼の強度は管長手方向よりも管周方向が低下する傾向にあることから、リング試験片を対象に強度データを取得していくこととした。

もう一方の超高温内圧クリープ試験装置の機能検証では、既存の 0DS 鋼(12Cr-0DS 鋼 lot F14)から製作した内圧クリープ試験片を対象に、単軸クリープ試験と同じ 700℃、 750℃及び 1000℃の温度条件で試験を実施した。破断時間と相当応力で整理した結果を図 3.1.1-8 に示す。図中には、ODS 鋼のクリープ破断式^(3.1.1-1)から求めた平均傾向線を示し ているが、700、750℃の試験結果は、この平均傾向線に対して高応力側で若干低い傾向が 認められた。この要因として、被覆管と端栓との溶接部分からの破断が考えられる。 1000℃における 12Cr-ODS 鋼のクリープ強度は、平均傾向線よりも大きく長寿命となる結 果が得られた。また、図 3.1.1-9 に示すように、試験雰囲気をアルゴンガスとしたことで、 被覆管表面に形成された高温酸化 (Cr₂0₃)層の厚さは数µm 程度であり、クリープ強度評 価上の問題がない程度であることを確認できた。これらの結果を踏まえると、取得データ は、同ロット被覆管の 1000℃クリープ強度を示しているものと結論づけられる。なお、強 度データが、比較対象とした平均傾向線より長寿命となる結果を示した要因としては、適 用温度範囲が 750℃以下のクリープ破断式を 1000℃まで単純外挿していること等が考えら れる。

既存 9Cr-ODS 鋼、12Cr-ODS 鋼のリングクリープ試験及び内圧クリープ試験の結果を表 3.1.1-4、表 3.1.1-5 に示す。また、1000℃における既存 ODS 鋼のクリープ破断強さを図 3.1.1-10 に示す。リングクリープ試験片のクリープ強度は、同じロットの内圧クリープ試 験片とほぼ同じであり、本研究開発事業で導入したリングクリープ試験技術に問題はない ことを確認した。9Cr-ODS 鋼と 12Cr-ODS 鋼のクリープ強度を比較した場合、1000℃の温度 条件下では両者に有意な強度差はみられなかった。また、図中には既存 ODS 鋼に関するク リープ破断式 ^(3.1.1-1) により、式の適用温度 (650℃~750℃)を超える温度まで外挿して求 めた平均傾向線 (α_R =1)を示した。破断データは 12Cr 系よりも 9Cr 系の平均傾向線と概 ね一致している。また、図中には、比較用として取得した高速炉「もんじゅ」の燃料被覆 管であるオーステナイト系ステンレス鋼 (PNC316)の破断データを示した。9Cr 及び 12Cr-ODS 鋼は、PNC316 よりも優れた強度特性を有していた。

② 超高温引張試験

9Cr-ODS 鋼および 12Cr-ODS 鋼の超高温リング引張試験の試験温度と引張特性の関係を図 3.1.1-11 に示す。図中には、高速炉用炉心材料である PNC316 ラッパ管材と PNC-FMS ラッ パ管材^(3.1.1-2)の結果も併せて示した。

図 3.1.1-11 に示されるように、900℃まではオーステナイト鋼である PNC316 ラッパ管 材が最も高い強度を示すが、900℃から 1200℃までは 9Cr-ODS 鋼が高温強度を維持してい た。それ以上の温度では、9Cr-ODS 鋼は急激な強度低下を示し 1300℃ではほぼ強度がゼロ になるが、12Cr-ODS 鋼では高温強度を維持していた。なお、溶解鋳造材である PNC316 お よび PNC-FMS とも 1100℃以上では、冷間加工、析出強化等の高温強度機構および組成の影 響は全く関係なく、同じ挙動を示すことも明らかになった。

9Cr-ODS 鋼および 12Cr-ODS 鋼の挙動を評価するため、SEM による破面及び破断部近傍の 組織観察を行った。その結果をそれぞれ図 3.1.1-12、13 に示す。9Cr-ODS 鋼の場合は、 1200℃までは表面が酸化しているため分かりにくいがディンプル組織を有する延性破面で あるのに対し、1250℃以上では粒成長と粒界 3 重点や粒界上への引張ボイドが多数確認さ れた。粗大な引張ボイドからは Y, Ti のピークが確認されたことから、酸化物の粗大・凝 集が示唆された。また、1250℃以上では、強度低下に合わせて急激な延性低下(図 3.1.1-11c-d)と粒界への cavity(図 3.1.12e)が生じている。粒界に cavity が形成する機構とし て、一般的に次の2 つが挙げられる。(1) 粒界すべりに基づく粒界破壊機構: 粒界にせん 断応力が働く場合、粒界すべりによって、粒界の3 重点や粒界の不連続・不規則部(分散 粒子・粒界介在物、ledge 等)に応力集中が生じそれらの部分に cavity が形成される, (2) 空孔凝集による粒界破壊機構:粒界にせん断応力は働かず、垂直応力(引張応力)が働く場 合粒界すべりではなく、空孔の凝集により粒界に cavity が形成される。1250℃以上で粒 界に生じたボイドから酸化物のピークが観察されたことから、(1)の機構から cavity が形 成し、粒界すべりの進行とともに空洞が成長・合体し最終破断が生じた、すなわち、 1200℃より高い温度では破壊メカニズムが粒内変形から粒界すべりに変化することが示唆 された。これらのことから、9Cr-ODS 鋼の場合は相変態温度を有することから、1000℃以 上の試験温度では、AC。変態温度が 960℃であるため、母相の結晶構造が体心立方格子であ るフェライトから面心立方格子であるオーステナイトに変化することにより、オーステナ イト母相の強度が高いことに起因して高温強度を維持しているが、1200℃超では変形メカ ニズムが粒界すべりに変化するため強度低下が生じると推察される。一方、12Cr-ODS 鋼で は、引張ボイドからは Y, Ti のピークは確認されなかったが、1000℃以上では顕著な引張 延性の低下と粒界剥離、粒界や粒界3重点で空洞が確認されている。このことから、 12Cr-ODS 鋼の場合、1000℃以上で破壊メカニズムが粒内変形から粒界すべりに変化するこ とが推察された。

急速加熱バースト試験

はじめに、H27 年度に新しく整備した急速加熱バースト試験装置の主要な仕様及び装置外 観図を表 3.1.1-6 と図 3.1.1-14 にそれぞれ示す。本装置の制御部の整備は、原子力機構が 所有する急速加熱バースト試験装置をベースに、低昇温速度(0.1°C/s) での加熱バースト 試験及び高速炉の事故事象の一つである流量喪失事故(LOF(Loss of Flow)事象)以外の 様々な熱過渡事象の模擬試験が可能となるように試験の途中に加熱速度を変更可能とするな ど、制御系を更新し、昇温速度が 0.1°C/s~10°C/s に制御可能な制御系機能を整備した。ま た、図 3.1.1-15 に示すとおり、これまで PLC(Programmable logic controller)でのデータ 記録であったが、試験中の温度変化等が画面上で確認できるように記録系の整備も合わせて 行った。なお、今回整備した急速加熱バースト試験機において、低昇温速度(0.1°C/s) で の試験実施が可能であることに加え、従来と同様の昇温速度での試験が問題なく実施可能で あることを確認している。

本事業で取得した 9Cr-ODS 被覆管の全試験条件での急速加熱バースト試験結果を表 3.1.1-7 と図 3.1.1-16 に示す。これらの結果から、試験周応力が高いほど、破裂温度が低 下する傾向が認められた。これは、高い周応力ではクリープ累積損傷による粒内変形の進展 が顕著になる前に破断に至ったものと考えられる。また、昇温速度が高いほど破裂温度が上 昇する傾向が認められたが、この要因としては、低昇温速度ではクリープ累積損傷の影響が 大きく変形の進行が顕著になり、高昇温速度と比較して破断が時間的に早い段階で起こった ものと推察される。 次に、12Cr-ODS 被覆管の急速加熱バースト試験結果を表 3.1.1-8 と図 3.1.1-17 に示す。 9Cr-ODS 被覆管と同様、試験周応力が高いほど、破裂温度が低下した。また、9Cr-ODS 被覆 管よりも 12Cr-ODS 被覆管の急速加熱バースト特性は低い傾向を示した。

両鋼種の破裂のメカニズムを評価するために実施した急速加熱バースト試験終了後の破断試 料の SEM 観察結果を図 3.1.1-18 に示す。ここで、試験周応力 100 MPa で昇温速度 0.1℃/s の条件で試験を実施したサンプルを選定し、9Cr-ODS 及び 12Cr-ODS の破裂温度はそれぞれ 1038℃及び 925℃であった。図 3.1.1-18 から、9Cr-ODS は微細なディンプル形状と思われ る痕跡(延性的な破裂)が確認され、12Cr-ODS は一般的な高温割れで認められるへき開状 の破裂形態であった。また、両鋼種ともに、破裂部付近に大きなボイド組織が見られ、9Cr-ODS は結晶粒が非常に小さいため確認が難しいが、12Cr-ODS は粒界上に沿ってボイドが形成 し、粒界すべりの変形機構により破裂したことを示す結果が得られた。また、上記 3.1.1(3)②で示されているように、9Cr-ODS の破裂温度は AC₃変態温度 960℃を超えている ことから、母相強度に優れるオーステナイト組織への相変態が起こることで 12Cr-ODS より も破裂耐性が向上したものと考えられる。

- (4) まとめ
- ① 超高温クリープ試験
- クリープ試験に先立ち、2種類の超高温クリープ試験装置を整備し、これら試験装置の 機能確認を実施した。また、リングクリープ試験片のクリープ強度は、同じロットの内圧クリープ試験片とほぼ同じであり、本研究開発事業で導入したリン グクリープ試験技術に問題はないことを確認した。
- 既存9Cr-0DS鋼被覆管及び12Cr-0DS鋼被覆管について、リングクリープ試験、
 内圧クリープ試験を実施し、既存0DS鋼の破損限界評価に資する試験データを
 取得した。
- 1000℃の温度条件下では、9Cr-0DS鋼と12Cr-0DS鋼のクリープ強度に有意差はみられなかった。
- 2 超高温引張試験
- ・既存ODSフェライト鋼である9Cr-ODS鋼および12Cr-ODS鋼被覆管について、 1300℃までの超高温周方向引張特性評価(リング引張試験)を実施し、既存 0DS鋼の破損限界評価に資する試験データを取得した。
- ・1200℃まで優れた高温強度を維持していた 9Cr-ODS 鋼もそれ以上の温度では急激に強度 低下が生じ、1300℃ではほぼ強度がゼロになることが分かった。9Cr-ODS 鋼の場合は相 変態温度を有することから、1000℃以上の試験温度では、AC₃ 変態温度が 960℃である ため、母相の結晶構造が体心立方格子であるフェライトから面心立方格子であるオース テナイトに変化することにより、オーステナイト母相の強度が高いことに起因して高温 強度を維持しているが、1200℃超では変形メカニズムが粒界すべりに変化するため強度 低下が生じると推察される。
- ・12Cr-ODS 鋼(再結晶仕上げ)の場合は、1200℃以上でも急激な強度低下は生じず、

1200℃超で 9Cr-0DS 鋼よりも優れた高温強度を有することが分かった。1000℃以上で急激な延性低下が生じることと破面観察結果から、破壊メカニズムが粒内変形から粒界すべりに変化することが示唆された。

③ 急速加熱バースト試験整備

- ・ 既存 ODS フェライト鋼被覆管である 9Cr-ODS 被覆管及び 12Cr-ODS 被覆管に対して、急速加熱バースト試験を実施した。
- ・ 9Cr-0DS 被覆管については、試験周応力 50-200MPa 及び昇温速度 0.1℃/s~10℃/s の条 件において、試験周応力が高いほど、破裂温度が低下する傾向が認められた。また、昇 温速度が高いほど破裂温度が上昇する傾向を示した。
- ・ 12Cr-ODS 被覆管については、試験周応力 50-200 MPa 及び昇温速度 0.1℃/s の条件において、9Cr-ODS 被覆管と同様、試験周応力が高いほど、破裂温度が低下した。また、9Cr-ODS 被覆管は、12Cr-ODS 被覆管と比べて急速加熱バースト特性が高い傾向を示し、これは母相強度が強いオーステナイト組織への変態に起因しているものと考えられる。

参考文献

- (3.1.1-1) T. Kaito, S. Mizuta, T. Uwaba, S. Ohtsuka and S. Ukai, "The Tentative Materials Strength Standard of ODS Ferritic Steel Claddings", JNC 研究報告書, JNC TN9400 2005-015 (in Japanese).
- (3.1.1-2) Y. Yano, T. Tanno, Y. Sekio, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Uwaba and T. Kaito, "Tensile properties and hardness of two types of 11Cr-ferritic/martensitic steel after aging up to 45,000 h", Nuclear Materials and Energy 9(2016)324-330

表 3.1.1-1 供試材の仕様(既存 0DS 鋼被覆管)

Materials	Lot	Manufactured process	С	Si	Mn	Р	S	Ni	Cr	W	Ti
9Cr-ODS	MP23	Full pre-alloy	0.13	0.080	0.05	<0.002	0.001	<0.2	9.16	1.94	0.21
9Cr-ODS	M19L	Partial pre-alloy	0.14	0.06	0.09	<0.005	0.005	0.03	9.16	2.01	0.22
12Cr-ODS	F14	Partial pre-alloy	0.044	0.052	0.09	0.005	0.004	0.08	11.39	1.87	0.26
			Υ	0	Ν	Ar	$Y_2O_3{}^{a)}$	Ex.O ^{b)}			
		I	0.28	0.151	0.010	0.0040	0.356	0.075			
		1	0.28	0.16	0.01	0.005	0.356	0.084			
			0.18	0.100	0.010	0.0045	0.229	0.050			
		I									

Heat treatment

9Cr-ODS; normallized at 1050 $^\circ \rm C$ for 1 h and then tempered at 800 $^\circ \rm C$ for 1 h

12Cr-ODS; recrystallized at 1150 $^\circ C$ for 1 h

a) Estimated from yttrium concentration with assumption that yttrium exists with Y2O3

b) Estimated by subtracting the oxygen coupled with Y₂O₃ from the total amount of oxygen in steel

表 3.1.1-2 超高温単軸クリープ試験装置の主要仕様

型式	直接負荷型
最大負荷荷重	100kgf
荷重精度	設定値に対して±0.5%以内
負荷治具材質	プランゼー社TZM
最高試験温度	1,000°C
精度	設定値に対し±5℃以内
熱電対	R型
炉心管内雰囲気	アルゴンガス
炉心管材質	カンタル社APM

表 3.1.1-3 超高温内圧クリープ試験装置の主要仕様

型式	内圧封入型
試験片保持治具	Мо
最高試験温度	1,000°C
精度	設定値に対し±5℃以内
熱電対	R型
炉心管内雰囲気	アルゴンガス
炉心管材質	カンタル社APM

םאלאס.	試験片	試験	試験片	試験 温度	応力	破断 時間	定常クリープ 速度	破断 位置
	₩121入	芬田丸	留方	(°C)	(MPa)	(h)	(%/h) ‰1	₩2
			M19L-F01	700	180	49.8	3.42E-02	В
			M19L-F02	700	160	133.9	1.04E-02	В
M19L MP23			M19L-F03	750	150	19.6	8.55E-02	В
			M19L-F04	750	130	113.8	8.71E-03	В
			M19L-F05	1000	50	114.3	6.87E-03	В
			M19L-F06	1000	45	192.9	1.66E-03	В
			M19L-R01	700	155	27.9	2.07E-02	А
		アルゴン	M19L-R02	700	130	243.0	2.02E-03	А
		ガス中	M19L-R03	750	140	7.3	8.14E-02	А
			M19L-R04	750	100	713.0	1.38E-03	А
	リング		M19L-R07	1000	35	71.3	9.20E-03	А
			M19L-R08	1000	30	268.8	6.23E-03	А
			MP23-A16	1000	40	104.0	2.08E-02	А
			MP23-A17	1000	35	573.0	5.34E-03	А
E14			F14-51	1000	40	18.7	6.88E-02	А
1 14			F14-52	1000	35	392.6	8.63E-03	A

表 3.1.1-4 既存 ODS 鋼の平板試験片、リング試験片によるクリープ試験結果

※1 定常クリープ速度はプルロッドの移動量から求めた(参考値)。

※2 破断位置の定義



םאלאסי	試験片 形状	試験 雰囲気	試験片番号	試験 温度	応力	破断 時間	ふくれ率	破断 位置	破損形態
				(°C)	(MPa)	(h)	(%)	<u></u> %1	
	内圧 (Bタイフ [°])		M12	1000	46.5	78.2	2.10	径方向 B 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
MD23			M1	1000	34.4	>668.6	—	未破断	_
шу FNo. (МР23 (М19L (ГП4	内圧 (Aタイプ)		M2	1000	49.7	136.8	0.89	径方向 B 長さ方向 ②・③の間	Fissure
			М3	1000	54.5	53.8	0.95	径方向 A 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
			M19-16	1000	38.2	42.4	0.85	径方向 B 長さ方向 ②・③の間	Fissure
M19L	内圧 (Bタイフ [°])		M19-17	1000	44.7	88.0	0.77	径方向 B 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
			M19-18	1000	49.3	65.0	0.94	径方向 A 長さ方向 ①・②の間	Fissure
		アルゴン	F-F	700	160.0	90.0	—	端栓溶接部	_
		ガス中	F-A	700	145.0	1034.5	0.16	径方向 D' 長さ方向 溶接部・①の間	Fissure
F14	内圧		F-E	750	130.0	3.0	—	端栓溶接部	_
1.14	(Aタイプ)		F-D	750	120.0	100.3	0.17	径方向 A' 長さ方向 溶接部・①の間	Fissure
			F-C	1000	48.0	3.2	0.15	径方向 C 長さ方向 溶接部・①の間	Fissure
			F-B	1000	42.0	59.2	0.42	径方向 C' 長さ方向 溶接部・①の間	Fissure
			P5	1000	30.5	1.5	20.37	径方向 B' 長さ方向 ③・④の間	Fissure
PNC316	内圧 (Bタイプ)		P4	1000	21.4	19.2	17.29	径方向 D' 長さ方向 ③・④の間	Fissure
MP23 M19L F14 PNC316			P3	1000	10.8	175.7	_	端栓溶接部	Fissure

表 3.1.1-5 既存 ODS 鋼の内圧クリープ試験結果

※1 破断位置の定義



	主な仕様	備考
加熱方式	直接通電加熱	真空チャンバ内での加熱
試験温度	最大:1,500 ℃	
試験圧力	最大:	
昇温速度	0.1~10 ℃/s (今回更新項目)	既存設備:1.0~5.0℃/s
記録間隔	0.1 sec	
計測項目	レーザ外径、チャンバ内	
	真空度、試験圧力など	

表 3.1.1-6 高性能型急速加熱バースト試験機の主要仕様

表 3.1.1-7 9Cr-ODS 被覆管(lot MP23)の急速加熱バースト試験結果 (破裂温度)

		昇温速度(℃/s)			
		10	5	1	0.1
試験周応力 (MPa)	50	1265 °C	1212 °C	1191 °C	1105 °C
	100	1160 °C	1106 °C	1132 °C	1038 °C
	150	1092 °C	993 °C	1006 °C	921 °C
	200	916 °C	917 °C	891 °C	819 °C

表 3.1.1-8 12Cr-ODS 被覆管(lot F14)の急速加熱バースト試験結果 (破裂温度)

		昇温速度0.1(℃/s)		
	50	1105 °C		
試験周応力	100	1038 °C		
(MPa)	150	921 °C		
	200	819 °C		



図 3.1.1-1 9Cr-ODS 鋼被覆管のリング引張試験片概略図



図 3.1.1-2 急速加熱バースト試験片の外観



図 3.1.1-3 超高温単軸クリープ試験装置の機器構成





リング試験片

平板試験片

3.1-14



図 3.1.1-5 超高温内圧クリープ試験装置の機器構成




図 3.1.1-7 単軸クリープ試験装置の機能検証結果



図 3.1.1-8 内圧クリープ試験装置の機能検証結果



試験片表面のSEM観察結果



試験片断面のEDS分析結果

図 3.1.1-9 クリープ試験片の高温酸化の観察結果



図 3.1.1-10 既存 9Cr-ODS 鋼及び 12Cr-ODS 鋼のクリープ破断強さ



3.1-19





図 3.1.1-13 12Cr-ODS 鋼被覆管の引張試験後の破面観察 (a-b) 1200℃, (c-d) 1300℃

既存の急速加熱バースト試験機(高圧ガス製造施設含む)





急速加熱バースト試験の概要

制御系及び記録計の更新(H27 年度実施分)

図 3.1.1-14 急速加熱バースト試験装置外観及び試験機概要



温調系(目標温度到達時間)で の昇温速度の制御



PLC での試験片温度及びレーザ 外径等の記録



- ・温度制御の高性能化
 - (目標温度の試験中の変更や詳細化)
- ・温度制御等の操作性の改良



制御系及び記録計の画面





図 3.1.1-16 9Cr-ODS 被覆管(lot MP23)の急速加熱バースト試験結果



図 3.1.1-17 12Cr-ODS 被覆管(lot F14)の急速加熱バースト試験結果





3.1.2 高温加熱による微細組織変化の評価 (H25~H27)

(1) 目的

事故時に経験する短時間高温保持によって引き起こされる組織回復・酸化物粒子の粗 大化挙動を評価すること、また、α相からγ相への変態に伴う組織変化を高温 In-situ 電子顕微鏡観察により評価し、高温強度との関係を明らかにすることを目的とする。

(2)結果と評価

①酸化物粒子粗大化挙動の評価

既存 ODS フェライト鋼 (Fe-9Cr-0.13C-2W-0.2Ti-0.35Y₂0₃) 被覆管材及び押出材につい て、真空炉内で最高 1350℃, 27h までの高温保持を行った。高温保持条件を表 3.1.2-1 に示す。保持前後の試料について、EM 薄膜試料作製電解研磨装置(H25 導入)・収束イオ ンビーム薄膜作製装置・低エネルギーイオンミリング装置(H25 導入)を用いて TEM 試料を 作製し、200kV 透過電子顕微鏡 (JEOL JEM-2010)を用いて酸化物粒子のサイズ・数密度を 観察・測定した。図 3.1.2-1 に高温保持前後の酸化物粒子概観を示す。1350℃, 27h の高 温保持後も、9Cr-0DS 鋼の酸化物粒子平均サイズは 20nm 以下であった。高温保持温度・ 時間と酸化物粒子の平均サイズの関係を用いて、オストワルド式に基づき、酸化物粒子 の成長予測式を以下の通り構築した。保持前後の酸化物粒子半径をそれぞれ r_0 , rとす ると、温度T、時間tに対する酸化物粒子のオストワルド成長式は

$$r^{n} - r_{0}^{n} = k \cdot \exp(-Q/RT) \cdot t$$
 (3. 1. 2-1)

ここでkは定数、-Qは酸化物粒子構成元素のうち最も遅い元素(Y)の拡散の活性化エネルギー、Rは気体定数である。nは拡散機構を示す値で、フィッティングの結果、9Cr-ODS 中の酸化物粒子構成元素の拡散機構は転位等の短回路拡散(n=5)であることが分かった。(3.1.2-1)式において $\alpha = k \cdot \exp(-Q/RT)$ と置き換えて、両辺の対数をとると

 $\ln \alpha = -Q/RT + \ln k = -Q/R \cdot 1/T + \ln k$ (3. 1. 2-2)

(3.1.2-1)式における $r^5 - r_0^5 \sim t$ を図 3.1.2-2(左図)にグラフとして示す。グラフの傾き は α であり、(3.1.2-2)式に代入すると、(3.1.2-2)式の $\ln \alpha \sim 1/T$ を図 3.1.2-2(右図) のように描くことができ、この勾配から、拡散の活性化エネルギーQが 891kJ/mol と見 積もられた。この値は文献から得られる Fe 中の Y の拡散の活性化エネルギー (200kJ/mol^(3.1.2-1))よりも遥かに大きい。Q値が大きくなる理由としては、Y 酸化物が高 温でも安定であるため(例:1350℃での Y₂0₃ 解離に必要な標準生成自由エネルギーは $\Delta G^0 = -960$ kJ/mol^(3.1.2-2))、酸化物粒子からの Y の放出が起こりにくいことや、マトリ ックスの y と δ の存在比が変化すること(高温では y - Fe から δ - Fe への相変態によって Y の体拡散が速くなること)などが挙げられる。以上のことから本研究で算出したQは純粋な転位拡散の活性化エネルギーではなく、他の現象も含めて総合した見かけの活性化 エネルギーであると言える。本研究の目的は酸化物粒子の成長予測式を構築することで あるため、導出したQから式を再構築し、実験値との比較を行った。結果を図 3.1.2-3 に示す。Q=891kJ/mol を用いて、概ね実験値に沿う予測曲線を得ることができた。

②In-situ 電子顕微鏡観察によるα-γ変態時微細組織変化の評価

9Cr-ODS 鋼の TEM 内 In-situ 高温加熱試験は、600℃における薄膜試料の酸化により それ以上の温度での観察が困難であったため、本研究では Cr 量を増やして耐酸化性を確 保した既存の 11Cr-ODS 鋼押出棒(最終熱処理: 1050°C, 1h→空冷, 800°C, 1h→空冷)を 用いて実験を行った。11Cr-ODS 鋼とほぼ同組成の非 ODS 鋼である PNC-FMS(最終熱処 理:1100°C, 10min→空冷, 780°C, 1h→空冷)を参照材として用い、11Cr-ODS 鋼の場合と 比較した。供試材の化学成分を表 3.1.2-2 に示す。9Cr-ODS 鋼の Ac1, Ac3 点は文献か らそれぞれ 860℃, 930℃^(3.1.2-3)であり、11Cr-ODS 鋼もほぼ同様であると考えられる。 PNC-FMS の計算状態図は H26 年度の成果報告書に記しており、状態図上の Ac1, Ac3 点 はそれぞれ約 830℃, 890℃である⁽⁴⁾。PNC-FMS、11Cr-ODS 鋼の棒材断面を鏡面研磨し、 収束イオンビームを用いて TEM 観察用薄膜を作製した。仕上げ研磨には H25 年度に導入 した低エネルギーイオンミリング装置を、加熱試験には、H26 年度に導入した TEM 用一 軸加熱ホルダを用いた。作製した薄膜を TEM 鏡筒内で 1100℃まで 100℃毎に 1 分かけて 昇温し、各温度に昇温後は試料のドリフトが収まるまで(約 3~5 分)保持した。

PNC-FMS の 900℃および 950℃昇温時の経時変化を図 3.1.2-4 に示す。黄線で囲んだ結 晶粒において、約 2 分かけて左側の粒界から転位を排出しながら新しい結晶粒が成長し ていく様子が見られた。また 2 分 42 秒頃からは、別の結晶粒が、転位の生成と回復、 コントラストの変化を繰り返しながら成長していく様子が見られた(黄矢印)。900℃は PNC-FMS の Ac3 点よりも高いため、これらの様子は $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態による γ 粒の発生であると 考えられる。950℃では、900℃昇温時に生じた γ 粒が互いに食い合いながら成長してい ることが分かる。PNC-FMS の γ 粒は、950℃保持後約 2 分で、最終的に数 μ m の大きさま で成長した。

図 3.1.2-5 に 11Cr-ODS 鋼の昇温時経時変化を示す。11Cr-ODS 鋼では、900℃に昇温 しても、非常に局所的な転位の回復が僅かに観察されるのみで、昇温後約 4 分経過して も殆ど変化が見られない(図 3.1.2-5 上段)。しかし 1000℃まで昇温すると、局所的に転 位の発生と回復の連続が見られ(図 3.1.2-5 中段,黄矢印で示した部分)、1100℃まで昇 温すると、一部の結晶粒界が移動し結合する様子が観察された(図 3.1.2-5 下段,黄矢印 で示した部分)。11Cr-ODS の Ac3 点を 930℃とすると、1000℃で観察された局所的な転位 発生・回復、コントラストの変化は $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態によって起きているものと考えられる。 しかし、材料中に緻密に分散した酸化物粒子が α 粒界を強固にピン止めするため、 $\alpha \rightarrow$ γ 変態は α 結晶粒内で生じ、 α 粒界が変態後も旧 α 粒界として堅持されたと考えられる。 本事業で想定している高速炉における事故事象の一例として、もんじゅの 1 次系 1 ルー プ機能喪失時の ULOF 事象、JAEA が計算した高速実証炉の 30%出力 LOF 事象の温度履歴を、 本高温保持試験の履歴と比較して図 3.1.2-6 に示す。PNC-FMS,11Cr-ODS の温度履歴から 下に向かって伸びるそれぞれの矢印は、その時点において $\alpha \rightarrow \gamma$ 変態に伴う α 粒界の消滅と γ 粒の粗大化が起き始めたことを示す。PNC-FMS が 900℃昇温直後から著しい組織変 化を起こすのに対し、11Cr-ODS は 1100℃昇温まで旧 α 粒界の消滅は起らず、想定される 事故事象の範囲内で組織は極めて安定であるといえる。

参考文献

- (3.1.2-1) D. Murali, B. Panigrahi, M. Valsakumar and C. Sundar, "Diffusion of Y and Ti/Zr in bcc iron: A first principles study," J. Nucl. Mater., vol. 419, pp. 208-212, 2011.
- (3.1.2-2) Y. Awakura and S. Banya, "Physical Chemistry of Metals," The Japan Institute of Metals, 1996.
- (3.1.2-3) M. Yamamoto, S. Ukai, S. Hayashi, T. Kaito and S. Ohtsuka, "Reverse phase transformation from α to γ in 9Cr-ODS ferritic steels," Journal of Nuclear Materials, vol. 417, p. 237-240, 2011.
- (3.1.2-4) 国立大学法人 北海道大学, "事故時高温条件での燃料健全性確保のためのO DSフェライト鋼燃料被覆管の研究開発 成果報告書," 平成27年3月.

Temperature [°C]	Annealing time [h]			
1200	27	81	200	
1270	3	27	81	
1350	3	9	27	

表 3.1.2-1 高温保持条件



図 3.1.2-1 高温保持前後の酸化物粒子概観



図 3. 1. 2-2 $r^5 - r_0^5 \sim t$ のグラフ(左)と $\ln \alpha \sim 1/T$ のグラフ(右)



図 3.1.2-3 導出した活性化エネルギー Qから再構築した酸化物粒子成長曲線(点は実験値)

表 3.1.2-2 11Cr-ODS 鋼, PNC-FMS の化学組成

11Cr-ODS 鋼															
С	Si	Mn	Р	S	Ni	Cr	w	Ti		AI	Υ	0	I	N Ar	
0.13	0.04	0.04	0.00	5 0.002	0.40	10.90	1.3	0.2	28	0.019	0.27	0.1	4 0.0	04 0.00)5
PNC-FMS								_							
	С	Si	Mn	Ρ	S	Ni	Cr		Μ	lo W	N		Nb	V	_
	0.12	0.06	0.6	<0.001	<0.001	0.41	11.06		0.	.5 2.0	0.0	53	0.054	0.20	

900°C



950°C



図 3.1.2-4 PNC-FMS の In-situ TEM 内昇温試験時の微細組織変化



図 3.1.2-5 11Cr-ODS 鋼の In-situ TEM 内昇温試験時の微細組織変化



図 3.1.2-6 想定される事故事象と本研究における高温保持試験の温度履歴の比較

3.1.3 破損限界評価(再委託先:原子力機構)(H25~H28)

(1) 目的

3.1.1 で拡充した高温強度データに基づき、既存 ODS フェライト鋼被覆管の高温強 度式を策定する。策定式を用いて、既存 ODS フェライト鋼被覆管を適用した場合の高 速炉の代表的事故事象における燃料破損に対する裕度を評価する。

(2) 方法

任意の応力・温度上昇速度における被覆管破損寿命をライフ・フラクション・ルー ル(Life fraction rule; 寿命分数和)に基づいて予測するための高温強度式の策定方 法を既存の技術知見に基づき整理する。3.1.1 で拡充した既存 ODS 鋼被覆管の強度デ ータ(超高温クリープ試験データ、超高温リング引張試験データ及び急速加熱バース ト試験データ)及び既存 ODS 鋼被覆管の公開強度データ (リング引張データ、内圧ク リープ試験データ及び急速加熱バースト試験データ)^(3.1.3-1~3.1.3-3)を用いて、既存 9Cr, 12Cr-ODS 鋼被覆管破損寿命予測のための高温強度式を策定する。策定式を用いて、 高速炉の事故事象における被覆管破損限界を評価する。

(3) 結果及び考察

被覆管破損寿命予測式の策定

J.L. Straalsund らは、冷間加工 SUS316 鋼被覆管を対象として、任意の応力・温 度上昇速度での被覆管破損寿命を予測する式の策定方法を提案した(3.1.3-4)。本手法に 基づき、クリープ変形や短時間引張変形等、変形メカニズムの異なる各種強度試験 データ(内圧バースト、急速加熱バースト、内圧クリープ、引張)を一つの破損寿 命予測曲線(応力-LMP 曲線)で表現している。この手法では、温度と時間を一つの 指標として示すラーソン・ミラー・パラメータ(LMP; Larson-Miller Parameter)と ライフ・フラクション・ルールを組み合わせることで、任意の応力・温度上昇速度 での材料の破損を予測しようとするものである(図 3.1.3-1)。 ライフ・フラクショ ン法とは、材料の被る温度・応力条件履歴において、各温度・応力条件に晒される 時間に対するその条件下でのクリープ破損寿命との比を累積し、累積損傷和が1に なったときに材料の破損が生じるとする考え方である^(3.1.3-4)。J.L. Straalsund らに より提案された方法では、短時間引張試験データとクリープ試験データを LMP を変 数とする一つの式で表現するために、弾性率による試験負荷応力の補正を行ってい る。既存 ODS 鋼被覆管に対して、基本的に J.L. Straalsund らによる方法(図 3.1.3-1)に基づくが、弾性率による補正を省略する LMP-ライフ・フラクション法に よる整理・検討を実施した。しかしながら、表 3.1.3-1 に示すように、応力レベル により変形モードが異なることから、各クラスの強度式を策定することも検討し、 その妥当性を検証した。なお、耐熱鋼のクリープ破断寿命予測としては、0.2%耐力

の 1/2 を境界条件として応力レベルクラス分けする「領域区分法」が提唱されている^(3.1.3-5)。

9Cr-ODS 鋼の場合は、変態点(AC₃:960℃)を境界温度として母相がフェライトから オーステナイト鋼に変化することから、母相が同一である温度域(~850℃)である内 圧クリープ破断強度から材料定数 C=21.50 を求め、LMP-ライフ・フラクション法に よる整理を実施した結果を図 3.1.3-2(a)に示す。図より、一つの破損寿命予測式に 収束しなかったことから、変形・損傷メカニズムが明確なクリープ試験データと引 張試験データを個別に定式化する必要があることが分かった。このことから、0.2% 耐力以上とそれ以下に応力レベルを分けてそれぞれ定式化を実施した。0.2%耐力以 上の結果を図 3.1.3-2(b)に示す。ただし、この場合、1200℃超の場合は、急激に強 度低下が生じることがわかっていることから、応力はゼロとし破断すると評価する ことが妥当であると思われる。

12Cr-ODS 鋼の場合は、9Cr-ODS 鋼と異なり、相変態を有さないことから 1000℃ま での内圧クリープ破断強度から材料定数 C=28.71 を求め、MP-ライフ・フラクション 法による整理を実施した。その結果を図 3.1.3-3(a)に示す。12Cr-ODS 鋼の場合も、 9Cr-ODS 鋼と同様に、一つの破損寿命予測式に収束しなかったことから、変形・損傷 メカニズムが明確なクリープ試験データと引張試験データを個別に定式化する必要 があることが分かった。このことから、0.2%耐力以上とそれ以下に分けてそれぞれ 定式化を実施し、0.2%耐力以上の結果を図 3.1.3-3(b)に示した。

9Cr-ODS 鋼と 12Cr-ODS 鋼で策定した破損寿命予測式の妥当性を確認するため、急 速加熱バースト試験条件と破損寿命予測式から評価した破損温度予測値とその実測 値の比較した結果を図 3.1.3-4 に示す。9Cr-ODS 鋼では、策定式から様々な昇温速度 に対する破損限界を精度よく予測出来ることが分かった。一方、12Cr-ODS 鋼では 1℃/s 以下の昇温速度までは精度よく予測出来るが、5℃/s 以上の昇温速度では破損 予測温度より実測値が高い傾向にあった。これは、各温度における 9Cr-ODS 鋼の降 伏応力が負荷応力に対して十分に高いため損傷メカニズムがクリープ損傷主体にな るのに対して、12Cr-ODS 鋼の降伏応力が破損温度近傍で負荷応力より低いことに起 因し、短時間塑性変形による損傷の寄与が大きくなるため生じたと考えられる。こ の急速加熱バースト試験結果を用いた検証結果から、策定した破損寿命予測式は妥 当であることが分かった。

高速炉の事故事象に対する破損限界評価

事故時の ODS フェライト鋼被覆管破損限界評価のため、高速炉での事故を次のように想定した。

- ・ 定常運転照射末期の直後に事故が発生。
- ・ 事故に至る事象は流路減少型(LOF: Loss of Flow type)と過出力型(TOP:

<u>Transient Over Power type</u>)で代表し、これらの事象発生後、スクラム(制御 棒挿入による緊急停止) に失敗したため事故(ULOF、UTOP)に発展。 (U:Unprotected)

定常照射から事故までの被覆管の温度上昇と応力増加を燃料ピン挙動計算コード "CEDAR"で解析し、被覆管破損限界を評価した。

尚、高速炉の事故としては、ULOF や UTOP の他にも除熱喪失型(ULOHAS)、除熱源 喪失型(PLOHS, LORL)が考えられるが、これらの事故では ULOF や UTOP に比べて被覆 管温度上昇が緩やかで(700~800°C)、応力変化も小さいことから、本破損限界評 価で想定する事故は ULOF と UTOP で代表した。

CEDAR コードは高速炉用の燃料ピン1本の照射中の挙動を解析する計算コードであ る(CEDAR: <u>Code for Thermal and Deformation Analysis of Reactor Fuel Pin</u>) ^(3.1.3-6)。 図 3.1.3-5 にモデル概念図を示す。CEDAR は有限要素法で燃料ピンをモデ ル化しており、燃料ペレットと被覆管の間の熱伝達を考慮し、被覆管と燃料ペレッ トの伝熱解析を行う。また、燃料ペレットでの FP ガス生成・放出挙動や被覆管と燃 料ペレットの機械的相互作用(PCMI: <u>Pellet-Cladding Mechanical Interaction</u>)の 解析も可能である。LOF や TOP では被覆管と燃料ペレットの温度上昇率が大きいため、 非定常温度計算を実行した。

被覆管破損限界評価は高速実証炉(JSFR: Japan Sodium Fast Reactor)、原型炉「もんじゅ」の燃料ピンについて行った。燃料ピンの仕様と定常照射条件を表 3.1.3-2 に示す。被覆管は既存 ODS フェライト鋼(9Cr-ODS、12Cr-ODS)とともにレフ ァレンス材として PNC316 鋼 (16Cr-14Ni-0.05C-2.5Mo-0.7Si-0.025P-0.004B-0.1Ti-0.1Nb-20%CW)とした^(3.1.3-7)。

実証炉、原型炉とも LOF の条件は冷却材 Na の流量が 6.5 秒で半分に減少し、ほぼ 流量がゼロとなるまで解析した。TOP では 1 秒当たり定常運転時の線出力が 1%の割 合で増加し、170%出力になるまで解析した。

被覆管の破損限界は、高温クリープ破断試験データに基づき累積損傷(CDF: <u>Cumulative Damage Fraction</u>)により、以下の式で評価した。

$$CDF = \int_0^t \frac{dt}{T_R}$$
 (3. 1. 3-1)

ここで、t は経過時間、T_Rは破断時間である。T_Rは高温クリープ破断試験から策定 した破損寿命式を用いて、各時刻での被覆管温度、被覆管の周応力から求めること ができる。微小時間 dt と破断時間 T_Rの比 dt/T_Rを使用期間中で時間積分すると CDF が求まる。CDF=1.0 が破損の目安であり、CDF の値が小さいほど破損までの余裕が大 きいことになる。

原型炉、実証炉について定常照射時の燃料ピンの燃料カラム上端部(発熱上端部)における被覆管の温度と周応力の履歴を図3.1.3-6、図3.1.3-7 にそれぞれ示す。 周応力が時間の進展とともに増加するのは FP ガス放出によるピン内圧上昇が原因である。

定常照射に対応した温度、応力条件における被覆管の破損寿命評価式を 9Cr-0DS 鋼、12Cr-0DS 鋼、PNC316 鋼とで比較して図 3.1.3-8 に示す。図は 700℃における周 応力と破断時間との関係を示したものであり、強度の大小関係は応力が低い領域で は PNC316<12Cr-0DS 鋼<9Cr-0DS 鋼となっている。

定常照射末期の CDF は発熱上端部で最も大きくなり、その値は以下の通りとなった。

・原型炉

9Cr-ODS 鋼: 1.22E-10、12CrODS 鋼: 5.74E-15、PNC316: 1.80E-4

・実証炉

9Cr-ODS 鋼: 3. 61E-6、 12CrODS 鋼: 1. 31E-6、 PNC316: 2. 51E-2

破損寿命の強度に対応して、定常照射末期での ODS 鋼の CDF は極めて低い値となった。ULOF、UTOP における被覆管温度と周応力の履歴を図 3.1.3-9~図 3.1.3-12 にそれぞれ示す。LOF 型事象では、被覆管の温度上昇は TOP 型よりも大きくなるが、応力はピン内ガス圧が支配するため応力増加はほとんどない。一方、TOP 型では被覆管温度上昇は LOF に比較して緩やかであるが、応力増加が非常に大きくなる。これはTOP では出力増加に伴いペレットの熱膨張が大きくなり、PCMI が厳しくなるためである。

ULOF、UTOP に対応する高温度条件、高応力条件での被覆管の破損寿命評価式を図
3.1.3-13、図 3.1.3-14 にそれぞれ示す。高温度の条件では、9Cr-ODS 鋼の強度が高くなるが、高応力条件では 9Cr-ODS 鋼の強度が低くなり、PNC316 の強度が高くなるという逆転が生じるようになる。ULOF、UTOP における CDF の履歴を図 3.1.3-15~図
3.1.3-18 に示す。

ULOF のように温度は高いが応力増加が小さい場合は、原型炉、実証炉の燃料ピン とも図 3.1.3-8 の破損寿命強度に対応して 9Cr-ODS 鋼の CDF が低くなる。一方、 UTOP のように応力増加が大きくなる場合には、図 3.1.3-8 の破損寿命強度に対応し て 9Cr-ODS 鋼の CDF が高くなってしまう。実証炉の場合、JSFR では、スクラムに失 敗して事故に至っても自己作動型炉停止機構(SASS: <u>Self Actuated Shutdown</u> System)が安全装置として備わっており、冷却材温度の上昇を感知して炉停止機構 が作動する設計となっている。SASS は、ULOF では事象発生後 10~12 秒、UTOP では 事象発生後 80 秒以内にそれぞれ作動するようになっている。図 3.1.3-17、図 3.1.3-18 より、SASS 作動時の ODS 鋼の CDF は破損目安の 1.0 を十分下回ることが分 かる。 (4) まとめ

- ・既存 ODS 鋼である 9Cr-ODS 鋼被覆管および 12Cr-ODS 鋼被覆管について、温度と時間 を統一的に示す指標である Larson-Miller パラメータと Life fraction rule を用い て、任意の応力・温度変動条件での破損寿命を予測するための高温強度式を策定し、 その妥当性を評価した。
- ・策定式を用いて、高速炉の代表的事故事象を想定した既存 ODS 鋼の破損限界評価を 実施し、代表的事故事象において、既存 ODS 鋼の CDF は破損目安の 1.0 を十分下回 わることが明らかになった。

参考文献

- (3.1.3-1) T. Kaito, S. Ohtsuka, M. Inoue, T. Asayama, T. Uwaba, S. Mizuta, S. Ukai, T. Furukawa, C. Ito, E. Kagota, R. Kitamura, T. Aoyama and T. Inoue, "In-pile creep rupture properties of ODS steel claddings", Journal of Nuclear materials 386-388(2009)294-298.
- (3.1.3-2) Y. Yano, S. Ohtsuka, S. Yamashita, R. Ogawa, M. Sekine, T. Endo, I. Yamagata, Y. Sekio, T. Tanno, T. Uwaba, T. Kaito, N. Akasaka and T. Yoshitake, "Evaluation of irradiation behavior on oxide dispersion strengthened (ODS) steel claddings irradiated in Joyo/CMIR-6", JAEA-Research 2013-030 (in Japanese).
- (3.1.3-3) Y. Yano, R. Ogawa, S. Yamashita, S. Ohtsuka, T. Kaito, M. Inoue, T. Yoshitake and K. Tanaka, "Effects of neutron irradiation on tensile properties of oxide dispersion strengthened (ODS) steel claddings", Journal of Nuclear materials 419(2011)305-309.
- (3.1.3-4) J.L. Straalsund, R.L. Fish and G.D. Johnson, "Correlation of transient-test data with conventional mechanical properties data", Nuclear Technology 25(1974)531-540.
- (3.1.3-5) 木村一弘, "耐熱鋼のクリープ破断寿命予測",日本金属学会誌 73(2009)323-333
- (3.1.3-6) T. Uwaba et al., "Development of a mixed oxide fuel pin performance analysis code "CEDAR": Models and analyses of fuel pin irradiation behavior", Nuclear Engineering and Design 280 (2014) 27-36.
- (3.1.3-7) Tateishi, "Development of long life FBR fuels with particular emphasis on cladding material improvement and fuel fabrication," J.Nucl. Sci. Technol., 26(1989)132-136

\triangleleft
"N
1
11
R
\propto
12
147
12KI
NO
け
46
Ń
Ť
监
影
摳
度
连
囸目
1 <u>11</u>
看
谷
6
阋
ğ
\cup
- L
-
3
表

	急加/ベ*	0	0	0
試験	ケーープ		Ο	0
	引張	0		
	後形モート	ノ非熱的な塑性変形が生じる領域.	・熱活性化プロセスに基づくクリープ変 形が生じる領域。酸化物粒子分散によ るしきい応力を超えるため、主な変形 メカニズムとしては転位クリープが想 定される。	、しきい応力を下回る応力レベルにあり、 主な変形メカニズムとして粒界すべり や拡散クリープが想定される。
- 3 - + t	応力レベル 負荷応力(ơ) ≧降伏応力(YS)		YS>σ ≧しきい応力(ơ _{th})	$\sigma < \sigma_{\rm th}$

* 急加バ:急速加熱バースト

	原型炉「もんじゅ」	実証炉(JSFR)
被覆管外径	6.5mm	10.4mm
被覆管肉厚	0.47mm	0.71mm
燃料ペレット	U−Pu混合酸化物 (中実形状)	U−Pu混合酸化物 (MOX中空形状)
照射日数	741EFPD	3151EFPD
*線出力	360W/cm	400W/cm
*燃焼度	130GWd/t	250GWd/t
*被覆管損傷量	115dpa	250dpa
*被覆管肉厚中心温度	630°C	608°C
*ピーク値		

表 3.1.3-2 燃料ピンの仕様と定常照射条件



図 3.1.3-1 J.L. Straalsund らにより提案された破損寿命予測式の策定方法の概要



図 3.1.3-2 9Cr-ODS 鋼被覆管の破損寿命予測式の策定 (a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用),(b) 0.2%耐力以上(引張評価用)



(a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用), (b) 0.2%耐力以上(引張評価用)









図 3.1.3-5 CEDAR コードのモデル概念図



図 3.1.3-6 定常運転時の被覆管肉厚中心部の温度、周応力履歴(原型炉)



図 3.1.3-7 定常運転時の被覆管肉厚中心部の温度、周応力履歴(実証炉)



図 3.1.3-8 破損寿命式の比較(定常照射条件に対応)



図 3.1.3-9 ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心温度履歴(原型炉)



図 3.1.3-10 ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心周応力履歴(原型炉)



図 3.1.3-12 ULOF、UTOP 時の被覆管肉厚中心周応力履歴(実証炉)



図 3.1.3-13 破損寿命式の比較(高温度条件(ULOF)に対応)



図 3.1.3-14 破損寿命式の比較(高応力条件(UTOP)に対応)



図 3.1.3-15 ULOF における被覆管の CDF 履歴(原型炉)



図 3.1.3-16 UTOP における被覆管の CDF 履歴(原型炉)



図 3.1.3-17 ULOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)



図 3.1.3-18 UTOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)

3.2 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の開発・製造

3.2.1 最適成分設計(H25, H27, H28)

(1)アルミナ主体の化学成分の検討

① 目的

被覆管への製管試験の結果を踏まえて、Fe-A1規則相が生成する組成範囲を明らかにし、 高温強度・延性・耐酸化性のみならず、加工性にも優れたアルミナ主体の超高温用ODSフェ ライト鋼の最適成分を検討する。

②実験方法

被覆管への製管試験において、SP13(14Cr-8.4A1)が異常な粉砕割れを示した。その 原因を明らかにするため、SP13の他、SP7、SP11、SP14の押出棒から板材を採取し、実験 室において冷間圧延試験を行い、圧延に伴い異常割れが起こるかどうかを確認した。また、 異常割れの原因究明の一環で、材料内部や破面に存在する介在物の調査を行った。さらに、 Fe₃A1 規則相の生成する限界 A1 濃度を調査するとともに、Fe₃A1 規則相が生成した場合の 延性低下の程度を調べた。

③結果と考察

1) 冷間圧延試験

異常割れを呈した SP13 の他、SP7、SP11、SP14 の押出棒から幅 12mm×高 8mm×長 20mm の直方体の板材を切り出し、実験室で小型圧延機を用いた室温での冷間圧延試験 を行った。全ての試料で圧延率が約 30~50%でクラックが入ったが、高さを 8mm から 3mm に低減し均一な変形を起こさせると、80%までの圧延を問題なく行うことができた。 図 3.2.1(1)-1 に達成した圧延率を A1 濃度に対してプロットした結果を示す。A1 濃度 が 6 wt%から 8.5 wt%までの範囲で達成した冷間圧延率に大差は無く (80~90%)、製 管試験で異常割れを呈した SP13 が割れやすいということは無かった。図 3.2.1(1)-2 に冷間圧延前後のビッカース硬さを示す。冷間圧延後の硬さには、Cr 濃度、A1 濃度依 存性は認められない。これらの試料の XRD 測定結果を図 3.2.1(1)-3 に示す。全ての試 料において、Fe₃A1 や FeA1 に該当する回折ピークは認められず、試験を行った範囲に おいて、Fe₃A1 規則相の生成とこれによる脆化の兆候は認められなかった。

2) 介在物の分析

SP13 の製管試験で認められた異常割れの原因が Fe₃A1 規則相の生成ではないと考え られるため、次に材料内部の介在物を調査した。SP7と SP13 で球状の介在物が多数観 察された(図 3.2.1(1)-4)。その EPMA による面分析結果(図 3.2.1(1)-5)と線分析 結果(図 3.2.1(1)-6)から、1 μ m 程度の介在物(A1₂0₃)と 0.3 μ m 程度の介在物 (TiC)が存在する。SP7と SP13 について、介在物のサイズとそれらの面積率を整理し た結果を図 3.2.1(1)-7に示す。A1 濃度が 6.5 wt% (SP7)から 8.5 wt% (SP13)に増加 すると、A1₂0₃介在物のサイズが 0.5 μ m から 3 μ m にまで増加し、それらの面積率も増 加している。次に異常割れを呈した SP13 の破面を SEM で観察し(図 3.2.1(1)-8)、破 面の EDS による元素分析を行ったが、A1₂0₃の存在は認められなかった。そこで実験室 において新たに SP13 を無理に破壊させ、そのフレッシュな破面の元素分析を行ったと ころ、測定を行った全ての位置で、Ca と炭素が高濃度で検知された(図 3.2.1(1)-9)。 原料のアトマイズ粉末には、Ca は 0.001wt%以下しか含まれておらず、分析された Ca のソースは明らかではない。

以上から、SP13 の製管時の異常割れの原因は、Fe₃A1 規則相の生成ではなく、アル ミナ介在物(Ca 炭化物)が可能性として考えられる。本研究で行った冷間圧延試験で は、SP13 は十分な延性を示したが、SP13 受入材のシャルピー衝撃試験では DBTT が室 温近くまで上昇し、上部棚エネルギーも低下していることが示されており(京都大 学)、アルミナ介在物による靱性低下がピルガー圧延時の衝撃で異常破壊を引き起こ した可能性も考えられる。

3) Fe₃A1 規則相生成の限界 A1 濃度

Fe₃A1 規則相が生成する限界 A1 濃度を調べるため、表 3.2.1(1)-1 に示すように、A1 濃度が 8.4 wt%~16.4 wt%、Cr 濃度が 11.9 wt%~22.4 wt%の範囲で FeCrA1-ODS 鋼を実 験室にて作製した。これらの試料は遊星ボールミルで合金化した粉末を真空ホットプ レス法とスパークプラズマ焼結法で固化成形した後、1150℃で熱間圧延を施した。ま た最終、1150℃で 30 分の溶体化処理を施した。作製した試料の化学成分は化学分析と EPMA の両方で測定した。化学分析法求めた A1 濃度と Cr 濃度は表 3.2.1(1)-1 中で下線 で示してある。これらの組成を Fe-Cr-A1 の 3 元図上に赤丸で示した (図 3.2.1(1)-10) 。図 3.2.1(1)-11 には作製した試料の SEM による組織観察結果を示す。均一な結 晶粒組織であるが、黒点で示される Cr 炭化物や Ti 炭化物が認められる。

溶体化材の XRD 測定結果を図 3.2.1(1)-12 に示す。図 3.2.1(1)-3 に記したように、 Fe₃A1 (D0₃ 構造)の格子定数は a=0.57998 nm であり^{(3.2.1(1)-1)}、Cu K α 線(波長: 0.15418 nm)を用いた場合の回折角は(111)回折の場合 2 θ =26.6°、(200)回折で 2 θ =30.8°である。しかし Fe₃A1 (200)ピークは B2 構造である FeA1(100)ピーク 2 θ =30.8°と重なるため、Fe₃A1 の存在は 2 θ =26.6°のみで確認する必要がある。これら のピーク出現から判断すると、9A1、10A1、11A1 では Fe₃A1 は生成していないが、13A1、 16A1 ではピークが存在することから、A1 濃度が 13 wt%以上で Fe₃A1 が生成することが 分かる。これは図 3.2.1(1)-13 に示した TEM の電子線回折や暗視野像からも明確であ る。TEM 暗視野像から、Fe₃A1 のサイズは数 nm で極めて微細であることが分かる。図 3.2.1(1)-14 に示した Fe-Cr-A1 状態図より、溶体化温度である 1150℃では α フェライ ト単相であることから、13A1、16A1 では Fe₃A1 が空冷中に生成したものである。

475℃時効後の硬さ変化を図 3.2.1(1)-15 と図 3.2.1(1)-16 に示す。図 3.2.1(1)-15 より、時効に伴う硬き増加は 9A1 では Δ Hv=10 程度であるが、10A1 では Δ Hv は 20~30 程度まで増加する。11A1、13A1 では Δ Hv=30 である。図 3.2.1(1)-16 に示す 16A1 の場 合には、12Cr、14Cr では時効に伴い Δ Hv は 10 程度増加するが、20Cr、22Cr では逆に 硬さは低下した。これらの硬さ変化を Fe-Cr-A1 の 3 元系図上にプロットした(図 3.2.1(1)-17)。ここで、小林らにより測定された α '生成による硬さ増加を青色マー クで示し^{(3.2.1(1)-2)}、今回測定した Fe₃A1 による硬さ増加を赤色マークで示した。

12Cr9A1 と 12Cr10A1 の 1000 時間までの時効後の XRD と TEM 暗視野像から(図 3.2.1(1)-18)、10A1 では XRD では 26.6°の(111)ピークは明瞭ではないが、TEM 暗視 野像から僅かに Fe₃A1 が生成していることが分かる。図 3.2.1(1)-19 に示す 14Cr9A1 と
14Cr10A1 の 1000 時間までの時効後の XRD からも 10A1 ではほんの僅かに Fe₃A1 (111) ピ ークが存在していると思われる。図 3.2.1(1)-20 に示す 14Cr11A1、14Cr13A1 では Fe₃A1 (111) ピークは明瞭になる。図 3.2.1(1)-21 に示す TEM 暗視野像から、Fe₃A1 のサ イズは 10 nm 以下である。16A1 においては、図 3.2.1(1)-22 に示す 12Cr、14Cr では明 瞭な Fe₃A1 (111) が認められるが、図 3.2.1(1)-23 に示す 20Cr、22Cr では Fe₃A1 (111) は 存在せず、B2 構造の FeA1 のみが存在する。図 3.2.1(1)-14 に示した Fe-A1 の 2 元系で は、Fe16A1 の組成では室温で Fe₃A1 を形成するが、BCC 安定化元素である Cr を多量に 含有すると B2 構造の FeA1 が安定化し、Fe₃A1 の生成範囲が狭まった可能性が考えられ る。FeA1 は Fe と A1 が 1:1 の B2 構造であるのに対し、 Fe16A1 は多量の A1 空孔を含 むことが報告されている^{(3.2.1(1)-3)}。図 3.2.1(1)-16 に示した硬さ測定結果において、 20Cr 及び 22Cr を含む 16A1 では焼入れ空孔を多量に含むことが溶体化材で硬さが高く、 時効に伴い空孔が消滅したことが時効軟化の原因と考えることができる。また、 22Cr16A1 の 475℃で 1000 時間の時効後の TEM 解析から、Cr₂A1 の生成が認められてお り(図 3.2.1(1)-24)、図 3.2.1(1)-16 に示した同試料の時効に伴う硬さ増加は Cr₂A1 生成に起因している可能性がある。

これらの結果を図 3.2.1(1)-25 にまとめて示す。溶体化材では 13A1 以上で Fe₃A1 を 含有するが、475℃時効に伴い臨界 A1 濃度は低下し 10A1 でも僅かに Fe₃A1 を生成する ようになる。A1 濃度が 16A1 では、Cr を 20Cr 含むと B2 構造の FeA1 が安定し時効でも Fe₃A1 が生成しないことが明らかになった。

このような Fe₃A1 生成に伴う機械的特性の変化を評価するため、各試料の時効前後の 0.2%耐力、引張強さ、破断伸びを測定した結果を図 3.2.1(1)-26 に示す。Fe₃A1 生成 により 0.2%耐力が増加し破断伸びが低下するが、この程度の Fe₃A1 生成では破断伸び の低下はせいぜい 2~4%程度で顕著な脆化を引き起こすものではないことが明らかになった。

参考文献

- (3.2.1(1)-1) S. Zuqing, Y. Wangyue, S. Lizhen, H. Yuanding, Z. Baisheng, Y. Jilian, Materials Science and Engineering A258 (1998)69-74.
- (3.2.1(1)-2) S. Kobayashi and T. Takasugi, Scripta Materialia 63 (2010) 1104–1107.
- (3.2.1(1)-3) M.A. Morris, O. George, D.G. Morris, Materials Science and Engineering A258 (1998) 99-107

Nominal Alloy Compositions (wt.%)						
Alloy No	Cr	Al	Ti	Y ₂ O ₃	Fe	
12Cr9Al	12.24	8.61	0.5	0.5	balance	
14Cr9Al	14.57	8.44	0.5	0.5	balance	
12Cr10Al	<u>11.92</u>	<u>10.02</u>	0.5	0.5	balance	
14Cr10Al	<u>14.70</u>	<u>10.26</u>	0.5	0.5	balance	
14Cr11Al	<u>14.00</u>	<u>10.95</u>	0.5	0.5	balance	
17Cr11Al	<u>16.94</u>	<u>11.06</u>	0.5	0.5	balance	
14Cr13Al	<u>14.06</u>	<u>13.29</u>	0.5	0.5	balance	
17Cr13Al	<u>17.11</u>	<u>13.46</u>	0.5	0.5	balance	
12Cr16Al	12.83	15.85	0.5	0.5	balance	
14Cr16Al	15.33	16.07	0.5	0.5	balance	
20Cr16Al	19.13	16.18	0.5	0.5	balance	
22Cr16Al	22.35	16.35	0.5	0.5	balance	

表 3.2.1(1)-1 実験室で製造した試料の化学成分



図 3.2.1(1)-1 押出棒から採取した板材の冷間圧延試験結果



図 3.2.1(1)-2 冷間圧延前後の硬さ測定結果





a = 0.57998 nm

図 3.2.1(1)-3 XRD による Fe₃A1、FeA1 同定結果



Microstructural comparison between SP7 & SP13 (SEM observation)

図 3.2.1(1)-4 SP7 と SP13 に存在する介在物の SEM 写真



図 3.2.1(1)-5 SP13 に存在する介在物の EPMA 面分析結果 (Al₂0₃、TiC)



図 3.2.1(1)-6 SP13 に存在する介在物の EPMA 線分析結果 (A1₂0₃、TiC)



図 3.2.1(1)-7 SP7 と SP13 に認められる介在物のサイズと面積率



図 3.2.1(1)-8 製管試験で異常割れを呈した SP13 破面の SEM 像



図 3.2.1(1)-9 SP13 のフレッシュな破面の元素分析結果



図 3.2.1(1)-10 Fe₃Al 規則相生成領域を調べるために作製した試料の Cr, Al 濃度



図 3.2.1(1)-11 作製した試料の SEM 組織



図 3.2.1(1)-12 溶体化処理を施した試料の XRD 測定結果



図 3.2.1(1)-13 溶体化試料の TEM 像と電子線回折、及び TEM 暗視野像



図 3.2.1(1)-14 Fe-Cr-Al 状態図





図 3.2.1(1)-16 各試料の 475℃で 1000 時間時効に伴う硬さ変化



図 3.2.1(1)-17 475℃で 1000 時間時効に伴う硬さ増加の Fe-Cr-A1 3 元上でのプロット



図 3.2.1(1)-18 475℃で 200 時間、1000 時間時効後の XRD と TEM 明視野像、暗視野像(12Cr9A1, 12Cr10A1)



図 3.2.1(1)-19 475℃で 25 時間、1000 時間時効後の XRD 測定結果(14Cr9A1, 14Cr10A1)





TEM observations on Alloy 1713 after ageing at 475°C for 1000 h



図 3.2.1(1)-21 475℃で 1000 時間時効後の TEM 明視野像と暗視野像(17Cr13A1)



図 3.2.1(1)-22 475℃で 25 時間、50 時間、100 時間の時効後の XRD 測定結果(12Cr16A1, 14Cr16A1)



図 3.2.1(1)-23 475℃で 50 時間、100 時間の時効後の XRD 測定結果(20Cr16A1, 22Cr16A1)





図 3.2.1(1)-24 22Cr16A1 の 475℃で 1000 h 時効後の TEM 解析結果、Cr2A1 の生成



図 3.2.1(1)-25 溶体化材と 475℃時効材で Fe₃A1 が生成する A1 臨界濃度のまとめ





図 3.2.1(1)-26 溶体化材と 475℃×200 h 時効材の 0.2%耐力、引張強さ、破断伸びの比較

(2) クロミア主体の化学成分の検討(再委託先:原子力機構)

① 目的

高温強度、耐水蒸気酸化性、耐熱時効脆化を考慮して、従来の高速炉被覆管で 利用されているクロミア(Cr₂O₃)主体の化学成分を検討する。

2 方法

熱力学計算コード FactSage^{(3.2.1(2)-1)}及び Thermo-calc^{(3.2.1(2)-2)}を用いた状態図計算を実施 するとともに、文献調査に基づき、化学組成が二相分離および機械的特性に及ぼす影響を 調査する。

3 結果および考察

Na 冷却型高速炉の被覆管材料は、炉内において核分裂生成ガスによる内圧を受けつつ、 通常時でも最高 700℃近傍、異常過渡や事故時には更に高温の環境に晒される。このため、 高温環境下で優れたクリープ破損抵抗を有することが要求される。一方、炉内での使用中 に核分裂生成物による内面腐食、冷却材 Na による外面腐食に晒され、使用済燃料の再処理 工程では硝酸溶液に浸漬されるため、耐食性も必要である。このような観点から、日本原 子力研究開発機構では、Na 冷却型高速炉用の高温強度と耐食性に優れたフェライト系 ODS 鋼被覆管として 12Cr-ODS 鋼被覆管 (Fe-12wt%Cr-2W-0.26Ti-0.23Y₂O₃)^{(3.1.1(2)-1, 3.2.1(2)-3)}の開 発を進めてきた。この Na 冷却高速炉用 12Cr-ODS 鋼被覆管の材料設計の要点は以下の通り である^{(3.2.1(2)-3)}。

(i) Cr および W 濃度:

Cr 濃度の増量は耐食性の向上に有効であるが、過度な Cr 添加は約 500℃以下での熱時効もしくは中性子照射により、2 相分離(スピノーダル分解)による脆化をもたらす可能性があり、両者がバランスする濃度として 12wt%Cr を選択している。W 添加は固溶強化による強度向上をもたらす一方、過度な添加は脆性金属間化合物であるラーベス(Fe, Cr)₂W 相の析出を促進するため、両者のバランスを考慮して 2wt%を選択している。

(ii) 母相組織:

高温でも相変態しないフェライト組織を選択している。また、高温応力負荷環 境での粒界すべりや粒界拡散クリープの発生を低減し、被覆管周方向の高温クリ ープ強度を向上させるため、再結晶仕上げとしている。

(iii) ナノ組織:

 Y_2O_3 と Ti を複合添加することで、母相中に熱的に安定なナノスケールの $Y_2Ti_2O_7$ 粒子を分散し、高温長時間環境での組織安定性と強度を高めている。 Y_2O_3 と Ti の増量は分散強化による高温強度の向上に有効であるが、過度な添加は製 管性に悪影響を及ぼすだけでなく、最終熱処理時の再結晶を阻害するため、強度 と加工性がバランス添加量を選択している。

上述の材料設計は、主に 700℃近傍での高温クリープ強度および引張強度の向上を目的

としたものであるが、固溶強化が 1000℃近傍の超高温環境では期待できないことを除けば、 1000℃近傍の超高温環境での強度向上に向けた材料設計とも共通するものである。よって、 Na 冷却高速炉用に開発したフェライト系 12Cr-ODS 鋼被覆管は、本公募研究で研究開発を 進める高速炉燃料用の被覆管材料として最も有望な材料と位置付けられる。一方、高速炉 の燃料被覆管の健全性には、高温強度だけでなく、燃料との共存性などの耐食性も重要な 因子であるため、12Cr-ODS 鋼並みの高温強度を維持しつつ、更に耐食性を改善することが できれば、事故時高温環境下での高速炉燃料安全性の向上が期待できる。

フェライト系 ODS 鋼被覆管の更なる高温耐食性向上の可能性を探るため、耐食性の改善 に有効な Cr と A1 の添加量増量が、機械的に及ぼす影響について既存の熱力学データベー スを用いた計算評価を行った。具体的には、耐食性の改善に有効な Cr および A1 をパラメ ータとした Fe-Cr-Al 系状態図計算を実施し、Cr および Al の添加量が微細組織等に及ぼす 影響を評価した。Cr と Al を増量することで耐食性は改善するが、Cr と Al の増量は高温 環境下での 2 相分離(α'相の生成)を促進し、延性および靭性の低下をもたらすことが懸 念されるため、特に2相分離の観点での Fe-Cr-Al 系状態図計算を実施した。まず、状態 図計算に用いるデータベースの選定を行った。表 3.2.1(2)-1^{(3.2.1(2)-1,2.4)}に選定したデータ ベースの一覧を示す。ここで、データベースとして SSOL4^{(3.2.1(2)-2)} (Thermo-calc 用)と SGTE^{(3.2.1(2)-1)} (SGTE 用)を示しているが、ともに 2 元系を主体としたデータベースである。 両データベースを用いて Fe-Cr-Al 系についての計算結果は同等となることが確認できて いる。図 3.2.1(2)-1 に実験的に求められた2元系状態図集^{(3.2.1(2)-5)}に掲載されている Fe-Cr 系状態図と SSOL4^{(3.2.1(2)-2)}データベースを用いて計算した Fe-Cr 系状態図を示す。この 計算状態図は、実験状態図をよく再現できていることから、SS0L4^{(3.2.1(2)-2)}データベースに 収納されている Fe-Cr 系データベースを Fe-Cr-Al 系の状態図計算に用いることとした。 図 3.2.1(2)-2 に Fe-Al 系の場合の実験状態図と計算状態図を示す。計算状態図で用いた SSL04^{(3.2.1(2)-2)}には, BCC(α)相の規則・不規則変態(α2(FeA1、Fe3A1))データが収納され ておらず、A1 が 10wt% (20at%) 近傍における相図が実験状態図と異なる結果となってい る。しかし、実験状態図を再現する最新の Fe-Al 系熱力学データ^{(3.2.1(2)-6)}を確認したとこ ろ、BCC 相については SSOL4 中のデータと一致した。今回の2相分離計算の観点では BCC 相の自由エネルギーデータが重要であることから、今回の解析では SSOL4 をそのまま用い ることとした。但し、後述する Fe-Cr-Al 系状態図計算結果において、Al 濃度が 10wt%以 上の領域の結果については実際に生じる規則・不規則変態が考慮されていないことに留意 が必要である。図 3.2.1(2)-3 に Cr-Al 系の実験状態図と計算状態図を示す。この場合、 SSOL4 中のデータベースを用いて計算した計算状態図は実験状態図と大きく異なったため、 Y.Liang らが評価したデータベース^{(3.2.1(2)-4)}を用いた状態図計算を実施したところ、図 3.2.1(2)-3 に示す通り、計算状態図は実験状態図と良く一致したことから、Fe-Al 系につ いては、Y. Liang らが評価したデータベース^{(3.2.1(2)-4)}を用いることとした。

図 3.2.1(2)-4 に 12Cr, 15Cr, 18Cr-xA1 系の計算状態図を示す。この計算結果は、5wt%程 度までの A1 の添加は2相分離を促進するが、それ以上の添加により、2相分離の促進効 果は減少することを示している。図 3.2.1(2)-5~7 に 400℃~500℃の Fe-xA1-yCr 系計算 状態図を示す。図 3.2.1-4 と同様にある一定レベルまでの A1 添加は2相分離を促進する

ものの、さらに高濃度の A1 を添加することで2相分離の促進効果は減少することを示す 結果となった。小林らは、Fe-Cr-Al モデル合金の2相分離に関する実験的研究を行い、上 記の計算結果と同様な傾向の実験データを得ている(3.2.1(2)-7)。但し、小林らによる実験で は、A1 添加による2相分離の促進から抑制への遷移濃度は、計算結果より低 A1 濃度側で ある。例えば Fe-15wt%Cr-xAl 合金の場合には、Al 濃度が 1~2wt%程度までは2相分離を 促進するが、それ以上の濃度では促進効果が徐々に減少し、4wt%を超えると A1 無添加の 場合に比べて逆に2相分離を抑制する結果となっている^{(3.2.1(2)-7)}。以上の調査結果は、実 験結果と計算結果で遷移 A1 濃度は大きく異なるももの、A1 をある一定レベル以上添加す ることで、高 Cr-高 A1 化による2相分離の促進効果を低減できることを示している。実験 結果と計算結果で遷移 Al 濃度が大きく異なる要因を考察する。図 3.2.1(2)-8 に本状態図 計算で用いた 450℃での相互作用パラメータを示す。この相互作用パラメータは、図 3.2.1(2)-1~図 3.2.1(2)-3 の2元系状態図を再現するように最適化されたパラメータで ある。この図より BCC-Fe 中に Cr を固溶させるとエンタルピーが増加し(両元素が斥力の 相互作用をするため)、2 相分離が生じることがわかる。一方、Fe-Cr および Fe-A1 間の 結合はエンタルピーを低下させる。図 3.2.1(2)-9 と図 3.2.1(2)-10 に Fe-Cr-Al 合金のギ ブス自由エネルギー計算結果を示す。本計算で用いた相互作用パラメータは 2 元系状態図 を再現するために最適化されたものであり、Fe, Cr, Al3元素間の相互作用は考慮されてい ない(図 3.2.1(2)-8 中の L_{Fe.G.Al}を無視した近似計算となっている)。これらの図から、Al 濃度の増量は、Cr 増量によるギブス自由エネルギーの山を低減し、Cr 濃度が十分高い領 域では2相分離を低減する効果を有することが読み取れる。一方、図 3.2.1(2)-10 中で、 本計算で注目する Cr 濃度範囲(10~20wt%)に注目すると、共通接平面(点線)とギブス自由 エネルギー(実線)の差は極めて小さく、熱力学データの若干の誤差が計算結果に有意な状 態図計算結果の精度低下をもたらす可能性が考えられる。上述の通り、Fe-Cr-A1の3元系 で最適化された相互作用パラメータが報告されていないことから、今回の計算では 2 元系 の相互作用パラメータを用いたことが小林らによる実験結果と状態図計算結果が一致しな かった理由と考えられる。一方、A1 添加により2 相分離が促進から抑制に遷移する傾向は、 Fe および Cr との相互作用パラメータが負の A1 (図 3.2.1(2)-8)を Fe-Cr 合金に添加した状 態図計算で再現できていることから、この傾向は、Fe-Cr-A1 間の親和性のバランスと Fe-Cr-A1 合金のギブス自由エネルギー曲面の形状との関係で説明可能と考えられる。

図 3.2.1(2)-11 に 12/15/18Cr-xAl 合金の融点の計算結果を示す。5wt%までの Al 添加により融点は上昇するが、それを超える Al 添加により融点は大きく低下する。一般に、融 点の低下とともに母相の基底クリープ強度は低下することが想定され、過度な Al 添加は クリープ破損抵抗の低下をもたらす可能性があることに注意が必要である。

④ まとめ

- ・今回実施した状態図計算および文献調査より、A1 をある一定レベル以上添加することで、 高 Cr-高 A1 化による2 相分離の促進効果を低減し、A1 無添加材に比べて2 相分離を抑制 できる可能性もあることがわかった。
- ・高速炉被覆管用の ODS 鋼被覆管の化学組成としては、A1 を添加しない 12Cr-ODS 鋼の組成

が最有力であるが、高 Cr-高 A1 化により高温強度および耐熱時効脆性を維持しつつ、更 に高温耐食性を改善できる可能性がある。

参考文献

- (3.2.1-1) C.W.Bale, E.Bélisle, P.Chartrand et al, "FactSage thermochemical software and databases, 2010-2016", CALPHAD 54 (2016) 35-53.
- (3.2.1-2) B. Sundman: Thermo-calc User's Guide (Division of Computational Thermodynamics, Dept. of Materials Science and Engineering, Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden, 1993).
- (3. 2. 1-3) S. Ukai, T. Okuda, M. Fujiwara, T. Kobayashi, S. Mizuta, H. Nakashima,
 "Characterization of High Temperature Creep Properties in Recrystallized 12Cr-ODS Ferritic Steel Claddings", J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 39 (No. 8) (2002) 872-879.
- (3.2.1-4) Y. Liang, C. Guo, C. Li, Z. Du, "Thermodynamic modeling of the Al-Cr system", J. Alloys Comp. 460 (2008) 314-319.
- (3.2.1-5) B. Massalski; Binary Alloys Phase Diagram (ASM, Materials Park, 1986).
- (3.2.1-6) B. Sundman, I. Ohnuma, N. Dupin, U. R. Kattner, S. G. Fries, "An assessment of the entire Al-Fe system including D03 ordering", Acta Mater. 57 (2009) 2896-2908.
- (3.2.1-7) S. Kobayashi, T. Takasugi, "Mapping of 475℃ embrittlement in ferritic Fe-Cr-Al alloys", Scripta Mater. 63 (2010) 1104-1107.

/	Fe	Cr	A1			
Fe		SGTE [Ref. 3. 2. 1-1], SSOL4 [Ref. 3. 2. 1-2]	SGTE [Ref. 3. 2. 1- 1], SSOL4 [Ref. 3. 2. 1- 2]			
Cr			Y.Liang et al [Ref.3.2.1-4]			
A1						

表 3.2.1(2)-1 状態図計算に用いたデータベース



図 3.2.1(2)-1 Fe-Cr 系状態図



図 3.2.1(2)-2 Fe-A1 系状態図



B. Massalski, : Binary Alloy Phase Diagram (ASM, Materials Park, 1986).

Thermo-calc ver.Q Data: Y.Liang et al, J. Alloys and comp. 460 (2008) 314

図 3.2.1(2)-3 Cr-A1 系状態図



図 3.2.1(2)-4 12Cr, 15Cr, 18Cr-xAl 系状態図



図 3.2.1(2)-5 400°Cでの Fe-xAl-yCr 状態図



図 3.2.1(2)-6 450°Cでの Fe-xAl-yCr 状態図



図 3.2.1(2)-7 500°Cでの Fe-xAl-yCr 状態図



図 3.2.1(2)-8 計算で用いた相互作用パラメータ(450 ℃)



図 3.2.1(2)-9 Fe-Cr-Al 合金の Gibbs 自由エネルギー計算結果



図 3.2.1(2)-10 Fe-xCr-yAl 合金のギブス自由エネルギー曲線計算結果



3.2.2 α'による脆化挙動評価(再委託先:京都大学)(H25~H28)

(1) 目的

 300° ~700 $^{\circ}$ の熱時効材の TEM 観察と強度試験により、 α' 相生成、脆化程度と Cr 濃度および A1 濃度の関係を評価する。また、イオンを用いたシミュレーション照射試験により、照射による α' 相生成の促進効果を評価する。

(2) 熱時効脆化

実験方法

1)供試材

開発した超高温用ODSフェライト鋼について、α'による脆化挙動評価に供した材料を 表3.2.2-1に示す。A1を含まない12Cr-ODS鋼、15Cr-ODS鋼に加えて、5、7、9 wt.%A1を添 加した12Cr-ODS鋼、15Cr-ODS鋼、18Cr-ODS鋼をそれぞれ用いている。また、15Cr-7A1-OD S鋼に、Zrを0.4 wt.%添加した鋼材も対象とした。Zrを0.4 wt.%添加した3鋼材はそれぞ れ余剰酸素濃度が異なっている。これらの第1期および第2期試作材に対し、それぞれ、 10,000時間および5,000時間時効の影響を調査した。

素材は、コベルコ科研にてメカニカルアロイ(MA)法で製造した。混合粉末をカプセルに封入し、脱ガス処理の後に、1150 ℃にて熱間押し出しを行い、直径が約 23 mmの棒材を得た。最終熱処理条件は、1150 ℃、1 時間の焼鈍の後、空冷した。以後、この状態の材料を受け入れ材と呼び、熱時効処理材を熱時効材と呼ぶ。

さらに、被覆管成形後の組織を考慮すると、受け入れ材とは異なり、一部再結晶化を 伴うために、結晶粒径は粗大化している。そのため、機械的性質も異なり、熱時効脆化 挙動にも影響を与えると推測されるため、被覆管製造プロセスを模擬した熱処理および 冷間圧延を繰り返した被覆管模擬材についても、熱時効の影響を調べた。この処理を施 した材料を以後、被覆管模擬処理材という。

2) 試験片の作製

受け入れ棒材から、図3.2.2-1に示すように、硬さ試験片(a)、引張試験片(b)およびV -ノッチ付15mm角ミニサイズシャルピー衝撃試験片(CVM-1.5)(c)を放電加工により切り 出した。硬さ試験片のサイズは、10 x 20 x 1 mm³ とした。引張試験片は、 いわゆるSSJ -2と呼ばれるミニサイズ試験片であり、ゲージ部は、平行部の長さが 5 mm、幅が 1.2 m m、厚さが 0.25 mmである。CVN-1.5 衝撃試験片の形状は、1.5 x 1.5 x 20 mm³であり、 中央部にV-notch (ノッチ深さが0.3mm、ノッチ底半径が0.08mm、開き角が30度)を入れ た。

被覆管模擬処理を施した材料は、SP2、SP4、SP7、SP11である。模擬処理の熱処理条件及び冷間圧延処理条件を表3.2.2-2に示す。冷間圧延の圧延率は50%とし、各温度での焼鈍は昇温速度200℃/h、1時間保持、炉冷とした。硬さ測定用の各試験片の最終表面仕上げは、SiC研磨紙にて#2000とした。引張試験片および衝撃試験片の表面処理はSiC研磨紙にて#800とした。

3) 熱時効処理

最終処理を施した各試験片を石英管に真空封入(真空度:3 x 10⁻⁴Pa)した

後、マッフル炉を用いて475℃で10,000 時間までの熱時効処理を行った。また、 300℃と700℃の時効については、5,000時間までの調査を行った。被覆管模擬 処理材については、熱時効温度を475℃とし、時効時間としては押し出しまま 材の時効硬化が飽和の傾向を示した2,000時間までとした。

4) X線回折

Fe-A1二元系状態図からは、Fe-A1二元系ではA1量が9wt%以下であれば、A1はBCC鉄中 に固溶すると言えるが、A1量が10wt%を超えると、約550℃以下においてFe₃A1が析出する と推測できる。受け入れ材の最終熱処理では空冷されていることから、局所的にA1濃度 の高い場所が存在すれば、Fe-A1系の金属間化合物が析出することも十分考えられる。

そこで、(株)リガク製の回転対陰極型X線回折装置(TTR-III:Co回転ターゲット)を 用いて、A1無添加の12Cr-ODS鋼(#1)および9%A1添加した12Cr-9A1-ODS鋼(#12)の受け 入れ材に対してX線回折を行った。加速電圧 40 kV、電流 250 mAで測定した結果を図3.2. 2-2に示す。A1無添加ODS鋼(#1)においては、Fe-Cr固溶体の鉄格子のピークのみが観察 されているのに対し、12Cr-9A1-ODS鋼(#12)では、非常に小さなピークではあるが、Fe -A1化合物に起因するピークが観察されている。以上の結果から、9%A1添加した12Cr-9A1 -ODS鋼(#12)では、受け入れ材の状態においても極めて少量のFe₃A1が存在している可能 性がある。

次に、1150 ℃、1 時間でのA1の拡散距離を見積もった。NIMSのデータベースからFe-A1合金中の拡散係数を調べた結果、Fe-A1二元系合金では、A1の拡散係数は1150℃付近で、 $1x10^{-11}m^2$ /secであり、 $x = \sqrt{2}Dt$ (D:拡散係数、t:時間(sec))から得られるA1のおよ その拡散距離は、60 μ mとなる。一方、MA956中のA1の拡散係数は、二元系に比べ、約4 ケタ小さく、拡散距離は約 0.6 μ mと小さくなる。本研究で用いているODS鋼では、A1の 拡散係数はMA956に近いと推測される。A1系の酸化物粒子間隔などを測定することで、こ の数値の持つ意味が明らかになる。ここでは、本研究で作製した高A1-ODS鋼においては、 体拡散のみを考慮した場合、A1の拡散距離は1150℃付近で 1 μ m以下程度であることを 認識しておく必要がある。

③実験結果

1) ビッカース硬さ試験

a) 熱時効前 (受け入れ材)

熱時効硬化はマイクロビッカース硬さ試験により調査した。負荷荷重 2 kgf、15 sec保持にて、室温で行った。図3.2.2-3に各試験片に対してのビッカース硬さ試験 結果を示す。受け入れ材(As receive)の状態に着目すると、A1を添加したODS鋼は、 A1を添加していないODS鋼に比べて硬さが低下した。従来の研究によれば、これはA1 の添加に伴い、形成される酸化物粒子の種類が変化したためと推測される。A1の添 加量を5,7,9 wt%と増加させると、硬さが増大することがわかる。Fe-A1系状態図 によれば、本研究で用いたODS鋼のA1添加量においては、理想的には全ての材料にお いてA1は固溶していると推測されるため、A1添加量の増大に伴う強化は、ここでは 一応、A1による固溶強化によるとしておくが、XRDの結果は少量のFe₃A1(あるいはF
e₂CrA1)析出物による析出硬化の可能性も否定できない。一方、同じA1添加量の鋼材におけるCr濃度の影響に着目すると、Cr量の増大は受け入れ材の硬度にA1のような顕著な影響を与えていない。次に、Zr添加の影響に着目すると、Zr添加により、硬さが増大することが判る。この現象は、先に実施されている本事業「スーパーODS 鋼」開発において解明されている現象で、Zr添加による酸化物粒子の分布形態変化で説明されている。スーパーODS鋼のA1添加量は 5 wt%であるが、7 wt%の高A1合金においてもZr添加効果が発現する。さらに、7 wt%A1-ODS鋼においても、Zr添加効果が余剰酸素量の影響を受けることも確認できた。

b) 熱時効硬化挙動

熱時効処理材の硬さ試験の際には、受け入れ材との表面状態を同じにするため、 試験前にSiC研磨紙#2000にて研磨を施してから硬度測定を実施した。

すべてのODS鋼において、熱時効時間が増加するにつれてビッカース硬さが増加 する傾向が観察された。図3.2.2-4から、高A1側で時効後の硬さが高くなる傾向がわ かるが、硬化量(*ΔHv*)に顕著な差はみられない。

熱時効硬化量におよぼす合金元素の影響に着目するため、図3.2.2-5にA1添加量 ごとにビッカース硬さの増加分(*AHv*)の10,000時間までの熱時効時間依存性をまと めて示す。A1無添加材と5A1添加材では、*AHv*はCr量が増加するにつれて増加する傾 向を示した。A1無添加18Cr-ODS鋼は存在しないが、12Cr-ODS鋼および15Cr-ODS鋼の 熱時効硬化挙動はよく類似しており、A1添加量が5wt%未満ではCrによる熱時効硬化 挙動はA1の影響を受けにくいことが判る。熱時効硬化は、2,000時間までに飽和に達 することが判明した。

図3.2.2-6に、Cr添加量ごとにビッカース硬さの増加分(ΔHv)の熱時効時間依存 性をまとめて示す。12Cr-ODS鋼、15Cr-ODS鋼では、A1添加量が増加するにつれて熱 時効後のΔHvが増加する傾向が見られたが、18Cr-ODS鋼ではA1添加量が増加するにつ れて熱時効によるΔHvが顕著に低下することがわかる。すなわち、熱時効硬化に及ぼ すA1添加量の影響は、Cr添加量に依存し、Cr添加量が15wt%未満ではA1添加量の増大 は熱時効硬化量を増大させるが、Cr量が18wt%の場合は、A1添加量の増大は逆に熱時 効硬化量を減少させることが明らかとなった。高分解能電子顕微鏡による熱時効後 の組織については後で述べる。

また、低Cr高Al材における熱時効開始直後の硬化は、Al添加によるα'析出の促進 あるいはFe₃Alの析出硬化に起因することが可能性として考えられる。本事業では高 分解能電子顕微鏡により、Cr-rich相やFe₃Alの直接観察を試みたが、確認すること ができなかった。今後、アトムプローブなどを用いた詳細な微細組織観察が望まれ る。

2) 引張試験

受け入れ材と熱時効材の試験片に対して、微小引張試験片を用いて引張特性を調べた。ひずみ速度は、6.67x10⁻⁴/secである。すべての試験片に対して熱時効前後の降伏応 力および最大引張応力(UTS)をまとめて、それぞれ図3.2.2-7および図3.2.2-8に示す。 熱時効の影響は、降伏応力の方がUTSよりも受けやすい傾向にある。全体的に、降伏 応力及び最大引張応力は700時間の時効後に最大を示し、2000時間時効後に一旦低下す る傾向を示し、その後10,000時効後までに強度がやや増加する傾向にある。これらの挙 動は硬さ変化には反映されておらず、硬さ試験では加工硬化現象が十分に反映されてい ない可能性がある。A1の影響に着目すると、A1添加により、強度は一旦低下するが、5% A1から9%A1と添加量が増大すると強度は増大する。硬化の理由としては前述したように、 α′析出促進効果もあるが、Fe₃A1の析出による硬化も可能性としてあげられる。

図3.2.2-9に熱時効前後の均一伸びを、図3.2.2-10に熱時効前後の全伸びを示す。特 筆すべき点は、すべての試料について、均一伸び、全伸びともに10,000時間までの熱時 効後の均一伸びが7%以上である点である。試料の多くが、2000時間時効後に最小の伸び を示す傾向にある。

図3.2.2-11、-12、-13は、Cr濃度がそれぞれ、12%、15%、18%の0DS鋼の熱時効によ る降伏応力およびUTSの硬化量に対する伸びの低下(-*A*ε)をそれぞれ示す。0DS合金では 無いFe-15Cr合金ならびに市販の16Crフェライト鋼(SUS430鋼)の結果と共に示す。Fe-15Cr合金やSUS430鋼では、時効硬化に伴い全伸びの減少が顕著に大きくなるが、0DS鋼 の場合は全伸びの減少量は極めて小さく、0DS鋼では熱時効によって強度は増大するも のの、伸びの低下量は一般材料に比較すると極めて小さいことが判明した。

一方、熱時効脆化は押し出し材からの試験片採取方向に依存することをJAEAのリン グ引張試験から明らかになっており、リング引張試験結果は、4750℃、5000時間時効に より、伸びが1%ないし2%に減少している。この点は、変形機構の詳細を調査する必要が あろう。いずれにしても、リング引張試験においても熱時効後の伸びが1%以上であるこ とを確認することができた。

3)シャルピー衝撃試験

受け入れ材の1.5mm角の微小シャルピー衝撃試験片に対してシャルピー衝撃試験を実施した。試験片をあらかじめ測定温度に設定した冷媒中に浸したまま高速衝撃負荷を与え、負荷荷重及び変位を同時測定し、得られた荷重-変位曲線の面積を衝撃エネルギーとして測定する装置である。測定温度は、液体窒素温度以上室温までは冷媒をイソペンタンあるいはエタノールとし、液体窒素を使用して制御可能である。室温以上の高温では、オイルとヒータを用いて温度制御が可能である。なお、衝撃負荷速度は、1 m/secである。

図3.2.2-14に、熱時効前の各試験片のシャルピー衝撃特性をCr添加量ごと にまとめて示す。全てのA1添加材でA1添加量が増加するにつれてDBTTが上昇 する結果が得られた。12Cr-ODS鋼および15Cr-ODS鋼では、5A1、7A1添加材で はA1無添加材よりもDBTTは低下したが、9A1添加材ではA1無添加材とほぼ同程 度のDBTTとなり、上部棚エネルギーは低下する傾向が認められた。

Cr添加量ごとに分類した材料のシャルピー衝撃特性に及ぼす475℃、5000 時間熱時効の影響を図3.2.2-15に示す。赤のプロットは、5000時間時効後の データであり、12Cr-ODS鋼および15Cr-ODS鋼では、概してDBTTが室温以下で あるが、A1量が9%になるとDBTTは室温以上に上昇する。この傾向は、図3.2.2 -16のまとめの図からも明らかで、試験片厚さが1.5mmの衝撃試験片を用いた 場合、受け入れ材のDBTTが室温以下になる材料は、Cr濃度が12%及び15%で、A 1濃度は5%及び7%の場合である。

4)時効温度依存性(300℃および700℃)

図 3.2.2-17 に、ビッカース硬さに及ぼす 300℃熱時効の影響を示す。135 時間の時 効により硬化が認められるが、その後は 700 時間まで一定値を示した。この硬化は、 HV=20 程度の硬さ増加であり、材料成分に依存しない。炭素原子は 300℃においても比 較的拡散しやすいため、MA 処理中に材料に取り込まれる不純物炭素が鉄炭化物(セメ ンタイトや ε-炭化物)として析出するためと推測できる。

図 3.2.2-18 にビッカース硬さに及ぼす 700℃熱時効の影響を示す。状態図からは、 700℃においては Cr 量が 25%を超えるといわゆる σ 相が析出するが、本研究で試作した 材料においては、Cr 量は最大で 18%程度であり、700℃ではすべて固溶体となる。700 時間までの時効により、HV=10 程度の硬さの増大がみられ、これも材料成分にほとんど 依存しないことが判る。

5) 被覆管模擬処理材における熱時効の影響評価

熱時効による硬化は、熱時効脆化(伸びの低下)を伴うが、上述したように受け入 れ材(押し出しまま材)0DS鋼の伸びの低下量は、同濃度のCrを含む一般の鉄鋼材料に 比べ、顕著に小さいことが判明した。その理由としては、0DS鋼では結晶粒径が極めて 小さいことやナノサイズの酸化物粒子が存在していることが挙げられる。一方、被覆管 成形には再結晶処理を伴う事から、被覆管模擬処理材においは組織(結晶粒)の粗大化 が生じており、時効脆化の挙動も異なる可能性がある。そのため、被覆管模擬処理材に 対する熱時効の影響を調査した。評価対象とした材料は、15Cr鋼が3種類、18Cr鋼が1種 類(SP2、SP4、SP7、SP11)である。15Cr鋼は、A1濃度がそれぞれ、0、5及び7wt%であ る。

2,000時間の熱時効により、いずれのODS鋼も硬化を示しており、硬化量は18Cr-ODS において最大を示している。受け入れ材と比較すると、硬化量はほぼ同程度であり、被 覆管模擬処理により熱時効硬化量は影響を受けないと言える。

次に、引張特性に対する熱時効の影響を図3.2.2-19に示す。なお、ミニサイズ引張 試験片の引張軸方向は、熱間押し出し方向に等しい。2,000時間の時効時間にも拘らず、 熱時効硬化量は大きいもので200MPaに達している。A1無添加材の硬化量が最も小さく、 15Cr-ODS鋼の被覆管模擬処理材では、A1添加量の増大に伴い時効硬化量は増大する傾向 を示している。これは、受け入れ材の12Cr-ODS鋼において観察された挙動に等しい。伸 びの低下に着目すると、15Cr-ODS鋼の被覆管模擬処理材においても、引張り伸びの低下 量は受け入れ材同様に小さい。18Cr-ODS鋼においては、伸びの低下量は受け入れ材に比 べてやや大きくなっている。時効硬化量と伸びの低下量の関係を図3.2.2-20に示す。上 述の挙動は、図3.2.2-12および-13に示された挙動と同じである。

6)第2期材料における熱時効の影響調査

図3.2.2-21に第2期試作材のビッカース硬さに及ぼす475℃熱時効の影響を示す。SP2 0を除いて、いずれの材料においても135時間の時効により最大の時効硬化が観察されて いる。SP20は10%Cr-5%A1-0DS鋼であり、他の材料はいずれも7%A1を含んでいる。まず、 Cr量依存性に着目すると、A1量が5%の時、10%Cr鋼の熱時効硬化量は他に比べ顕著に小 さく、これはFe-Cr二元系合金において観察されている傾向と同じである。特徴的なの はA1量が7%の時であり、Cr量が10%のSP19においてもCr量が15%の鋼材SP16と同等の時 効硬化が観察されている点である。この傾向は、第一期材においても観察されており、 再現性が確認されたと言えよう。同じ15Cr-0DS鋼でも、Zr添加量が多いと時効硬化量も 大きくなる傾向にある。475℃、5000時間の時効では、15Cr-0.2Zr-0DS鋼は約HV=30の時 効硬化を示したが、15Cr-0.6Zr-0DS鋼は、HV=50程度の時効硬化量を示した。

(3) イオン照射下における α' 形成挙動

実験方法

照射による α'相生成の促進効果を検討することを目的にイオン加速器を用いた照射 実験を実施した。照射に使用したイオン加速器は京都大学エネルギー理工学研究所に設 置されているイオン加速器 (DuET) であり、イオン照射は 6.4 MeV まで加速した Fe³⁺を 用い、照射温度 300℃で試料表面からの損傷量が 3 dpa になるまで実施した。軽水炉の 燃料被覆管が被るはじき出し損傷量は、10 年間で約 3 dpa 程度である。なお、損傷量 の計算は SRIM コードを用い、ノミナル損傷量は深さ 600nm における値とした。試料ホ ルダーの保持ロッドには熱電対が設置されている。またターゲットステーションポート にシリコン窓を取り付け、サーマルビジョンによる試料表面温度の測定を併用した。照 射温度はサーモグラフィを用いて試験片表面の温度を測定し、赤外線ヒータを用いて温 度のコントロールを行った。本照射実験に供した ODS 鋼は、SP7、SP10、SP17 である。

2 実験結果

1) 照射硬化評価 (ナノインデンター試験)

照射前後の機械特性を調べるため、ナノインデンテーション試験を実施した。測定 は連続剛性測定法(CSM法)を用いて行った。一般的に、硬さ試験では押し込み深さが 浅くなるにつれて測定される硬さが増加する、インデンテーションサイズ効果(ISE) が観察される。NixとGaoらはISEを幾何学的に必要な転位(GND転位)によって説明し、 以下の関係式を提唱している。

$$H^{2} = H_{0}^{2} + \frac{h^{**}}{h}$$
$$h^{**} = \frac{81}{2}b\alpha^{2}\mu^{2}\tan^{2}\theta$$

ここで、Hは測定された硬さ、H₀は押しこみ深さが無限大の時の硬さ(以降、バルク 相当硬さと呼称する)、h は押し込み深さである。押しこみ深さに対して得られた硬 さを上式に従ってプロットすれば、データ点を外挿した y 切片の値がバルク相当硬さ の2乗で表され、ISEの影響を除いた硬さであるバルク相当硬さを算出することが可能 である。本研究ではこの手法により照射前後の硬さを評価した。

図 3.2.2-22 および図 3.2.2-23 に、それぞれ、300℃および 475℃にて、一部 15dpa まで照射した場合のナノインデンテーション硬さを示す。300℃では照射硬化量は飽 和する傾向を示している。475℃においても硬化しているが、300℃に比べ照射硬化量 は小さいことが判る。なお、再結晶材においては押し出しまま材に比べ、照射硬化量 は大きくなっている。これについては図 3.2.2-28 で再度触れる。

2) 微細組織観察

照射硬化に及ぼす組織の影響を検討するため、照射前後の試験片に対して透過型電 子顕微鏡(TEM)による微細組織観察を行った。TEM観察試験片は集束イオンビーム装置 (FIB)を用いて作製した。

図3.2.2-24および図3.2.2-25は、300℃にて、それぞれ、3dpaおよび10dpa照射した 場合の15Cr-7A1-ODS鋼の微細組織観察結果を示している。TEM写真から、転位ループ の数密度及び平均サイズを求め、オロワン型の硬化式に基づいて、求めた結果を実験 値と比較して示すと、図3.2.2-26のようになった。0DS鋼における300℃での主な照射 硬化因子は転位ループであると結論される。

図3.2.2-27は、300℃および475℃にて10 dpa 照射した15Cr-7A1-0DS鋼の微細組織 を示している。α'析出の形跡は認められなかった。そこで、損傷量を増加して15dpa 照射の影響を調べた。また、再結晶化が照射硬化に及ぼす影響を明らかにするため、 再結晶処理の有無により、照射硬化量や損傷組織に変化が生じるかについて調査した。 評価対象とした材料はSP7、SP10、SP17の3種類である。再結晶処理は、1,200℃にお いて1時間行った。照射温度は、300℃および475℃である。3種類の0DS鋼の再結晶処 理前後における照射硬化挙動を図3.2.2-28に示す。再結晶処理の有無や材料にかかわ らず、300℃照射材において、475℃照射材に比べより顕著な硬化が認められた。30 0℃照射材の硬化量は15dpaで飽和の傾向にある。再結晶化の影響に着目すると、再結 晶材においてやや照射硬化量が増える傾向を示しているが、SP17材においてはそのよ うな傾向は認められなかった。

475℃照射後のTEM組織を図3.2.2-29(475℃、押し出しまま材)、-30(47 5℃、再結晶材)に示す。SRIMから推測される領域においては、いずれの場 合も α '析出やボイド等の空孔集合体は観察されなかった。本事業では、TEM による観察から15Cr-ODS鋼の α '析出の有無の判定を試みており、TEMでは観 察できない様な微細なCr-rich相を除けば、再結晶化材においても475℃にお いて15dpaまでのイオン照射により α '析出やスピノーダル分解は生じていな いと結論できる。

(4)考察(α'形成の影響)

① α' 相形成挙動

TEM観察によれば、475℃、5000時間、熱時効後のSP5(18Cr-5A1)には、直径が10ないし20nmのCr-rich相が形成されている。 α '析出挙動に及ぼすA1添加の影響を調べるため、Cr量を18%と一定にし、A1量を変化させて475℃で5000時間の時効をした場合のTEM観察結果を図3.2.2-31に示す。A1濃度が、5%から9%に増加するに伴い、Cr-rich相が見られなくなることが明らかであり、既に報告^(3.2.2.-1~3.2.2-6)されている様に、A1は α '析出を抑制することが判った。一方、本事業では、12Cr-0DS鋼においてはA1濃度の増大が時効硬化の

発現を促進しており、これがα'析出の促進なのか、あるいはA1添加による他の脆化促進 なのかについては不明である。これまでに報告されている研究では、A1固溶量が少ない (添加量2wt%以下)場合は、α'析出を促進するとも言われている。実験研究の他に計算 機模擬実験^(3.2.2.-7)も実施されており、そこではA1はその濃度にかかわらず、二相界面の エネルギーを増大させるため、α'析出を抑制するとされている。

図3.2.2-32は、第一期材料の475℃、10,000時間、熱時効後のα′析出の状況を示して いる。「yes」と記載されている材料はα′析出が確認されている。「no」の記載は、TEM では観察されなかったあるいはできなかったことを意味しており、他の手段、例えばア トムプローブ等で確認する必要がある。

イオン照射の影響に関しては、TEM観察によれば、15Crを含んだ0DS鋼では、475℃、1 5dpaまではα′析出やスピノーダル分解は生じていないことが判明した。

② Cr濃度およびAI濃度の検討

熱時効硬化(脆化)の観点から、現時点におけるCrおよびA1の適正成分量について検 討する。Crについては、耐食性を高めるため、緻密な酸化被膜の生成にCr量を高めるこ とが必要であることは良く知られている。特に、商標では10.5wt%を超えるとステンレス (不銹鋼)と呼ばれるが、Fe-Cr二元系合金では、Crが13wt%を超えると耐食性能が格段 に向上することが知られている。本研究では、フェライト系鋼として12Cr-ODS鋼、15Cr-ODS鋼、18Cr-ODS鋼を選定し、A1量を無添加、5wt%、7wt%、9wt%と変化させて、熱時効硬 化・脆化挙動を調査した。

従前より、α'析出がA1により抑制されることが指摘されていたが、その詳細な機構に ついては明らかではない。一方、本研究で用いた鋼材においては、Fe-A1系金属間化合物 としては、先に示したように、Fe₃A1の生成の可能性が高い。本研究では、18Cr-ODS鋼の 熱時効硬化がA1添加により、抑制されることが明らかになったが、さらに重要な点は、1 2Cr-ODS鋼においては、Fe₃A1による硬化も否定できず、A1添加はα'析出を促進する可能 性が示された点である。すなわち、Cr量が12wt%と18wt%とでは、A1熱時効硬化の発現に 対する添加効果が逆転しており、ODSフェライト鋼の熱時効脆化を抑えるためにCr量を12 wt%に落としても、A1を7wt%添加すると、12Cr-ODS鋼においても15Cr-ODS鋼とほぼ同様の 時効硬化が発現する。すなわち、Fe-Cr-A1系鉄鋼材料における時効硬化とα'析出の相関 については、図3.2.2-33に示すように明確な関係は得られていない。これは、ODS鋼に特 有の現象である可能性も含め、さらに検討する必要があろう。また、Fe-Cr-A1系の鉄鋼 材料においては、時効硬化が二つの機構による可能性も示唆されている。

本研究では、15Cr-ODS鋼に対し、照射の影響を加速器によるイオン照射法により調べ、 300℃および475℃における硬化はイオン照射で形成された転位ループによるものであり、 α′析出やスピノーダル分解によるものではないと結論した。TEM観察では検出が困難な微 細なα′析出の存在は否定できない。アトムプローブを用いた組成分析が必要である。

いずれにせよ、本研究からは、熱時効脆化とイオン加速器による照射損傷の観点から は、Cr量としては、12 wt%Crないし15 wt%Crが好ましいと考えられる。A1量については、 9 wt%A1は靭性を損ない、製管プロセスに支障をきたす恐れがあるため、7 wt%A1程度あ るいはそれ以下が好ましいと考えられる。12Cr-7A1-ODS鋼と15Cr-7A1-ODS鋼を比較した 場合、熱時効硬化量や引張伸びの低下および延性脆性遷移挙動(DBTTおよびUSE)に大き な違いは認められなかった。高温水中の腐食や高温酸化に対する耐性を考えた場合、15C r鋼が優れていることは確認されている。本研究成果は、今後、FeCrA1-ODS鋼の最適成分 の決定に影響を与えるであろう。

一方、製管プロセスにおける加工速度や加工温度の制御に関する知見も得られている。 すなわち、室温引張試験では、高A1合金において顕著な脆化挙動は認められていないが、 衝撃試験においては上部棚エネルギーの低下が観察されている。これは変形速度が破壊 様式に与える影響であり、BCC金属の変形応力が変形温度に強く依存することと密接に関 係している。製管プロセスに関する基礎的知見となるであろう。

さらに重要と考えられる点は、実際上の運用における時効脆化評価の指標を何に置く かである。ODS鋼においては、引張試験では伸びの低下はほとんど生じず、例えば、均一 伸び1%の確保は、長時間保証できる見通しである。また、本研究では1.5mm角の微小な 衝撃試験片を用いて衝撃特性を実施し、12Cr-7A1-ODS鋼および15Cr-7A1-ODS鋼のDBTTが 室温以下であることを確認したが、被覆管仕様として、いわゆる破壊靱性評価が必要に なるのか、あるいは12Cr-7A1-ODS鋼および15Cr-7A1-ODS鋼では熱時効脆化は問題になら ないと判定できるのか、これらについて、今後の安全基準・規程をふくめ、検討する必 要がある。

(5) まとめ

FeCrAl-ODSフェライト鋼について475℃で10,000時間までの熱時効を行い、α'相生成 による熱時効脆化の程度を硬さ測定、引張試験、シャルピー試験(受け入れ材)により 評価した。また、イオン加速器を用いたシミュレーション照射試験を行い、照射による α'相生成の促進効果を検討した。さらに、熱時効硬化およびイオン照射影響に及ぼす再 結晶化の影響を調べた。得られた主な結果を以下に示す。

- 1. A1添加が熱時効硬化に及ぼす影響はA1添加量に依存する。Cr濃度が12%の時、A1添加 量の増大は時効硬化・脆化を促進する。一方、Cr濃度が18%の時は、逆に時効硬化・ 脆化を抑制する。その結果、12Cr-7A1-0DS鋼および15Cr-7A1-0DS鋼の熱時効脆化感 受性が等しくなることが判明した。
- 従来の研究によれば、A1添加による熱時効硬化の促進および抑制は、それぞれA1添 加がα′析出を促進および抑制するためとされている。一方、本事業においては、時 効硬化の促進は、Fe₃A1金属間化合物の形成による可能性を指摘した。今後、さらに 詳細な研究が必要である。
- 引張軸が熱間押し出し方向に等しい時、ODS鋼の熱時効硬化に伴う引張伸びの減少は 通常のフェライト鋼(SUS430:16Cr鋼)に比べ極めて小さく、-Δε/Δσγ値は約1/ 3に減少している。その結果、18Cr-ODS鋼においても、475℃、10,000時間の時効後 でも均一伸びは7%以上を示す。なお、リング引張試験(JAEA実施)においては、47 5℃、5000時間時効材の引張伸びは、1%ないし2%を示した。
- 4.1.5mm角CVN衝撃試験からは、5000時間熱時効材でDBTTが室温以下の材料は、

12Cr-(0,5,7)A1-ODS鋼および15Cr-(5,7)A1-ODS鋼である。

- 5. イオン照射 (300℃、475℃/15 dpa) による照射硬化は微細な転位ループの形成に よるものであり、イオン照射による α'析出やスピノーダル分解の促進は認められな い。
- 6. 再結晶化は、照射硬化量を増大させる傾向にあるが、熱時効硬化および照射影響の 程度に顕著な影響を与えない。

参考文献

- (3.2.2.-1) S. Nana, M. Cortie, Metall. Mater. Trans. A 27 (1996) 2436.
- (3.2.2.-2) W. Spear, D. Polonis, Metall. Mater. Trans. A 25 (1994) 1135.
- (3.2.2.-3) R.G. Lagneborg, Ferritic, martensitic and ferrite-reduced tendency to 475 C embrittle ment, Patent, 1970. US 3499802.
- (3.2.2.-4) C. Capdevila, M.K. Miller, K.F. Russell, J. Chao, J.L. Gonzalez-Carrasco, Mater. Sci. Eng. A, 490 (2008) 277.
- (3.2.2.-5) C. Capdevila, M. Miller, J. Chao, Acta Mater. 60 (2012) 4673.
- (3.2.2.-6) S. Kobayashi, T. Takasugi, Scripta Mater. 63 (2010) 1104.
- (3.2.2.-7) Wei Li, Song Lu, Qing-Miao Hu, Huahai Mao, Börje Johansson, Levent e Vitos, Computational Materials Science 74 (2013) 101–106.

表 3.2.2-1 α'による脆化挙動評価に供した材料の組成

鋼種	概要	化学成分(wt%、MA 粉末分析值)	備考
SP1	12Cr	0.026C-11.63Cr-1.88W-0.24Ti-0.02AI-0.19Y-0.130- 0.004N-0.006Ar	
SP2	15Cr	0. 028C−14. 24Cr−1. 85W−0. 23Ti−<0. 01A1−0. 18Y−0. 120− 0. 005N−0. 006Ar	
SP3	12Cr-5Al	0. 029C-12. 02Cr-0. 54Ti-4. 91AI-0. 39Y-0. 230- 0. 005N	
SP4	15Cr-5Al	0. 032C-14. 39Cr-0. 32Ti-4. 65AI-0. 39Y-0. 220- 0. 005N-0. 006Ar	
SP5	18Cr-5A1	0. 034C-16. 72Cr-0. 48Ti-4. 46AI-0. 37Y-0. 220- 0. 004N-0. 006Ar	
SP6	12Cr-7Al	0. 028C-12. 02Cr-0. 53Ti-6. 7AI-0. 38Y-0. 220- 0. 004N-0. 006Ar	
SP7	15Cr-7Al	0. 032C-14. 13Cr-0. 51Ti-6. 42AI-0. 38Y-0. 220- 0. 005N-0. 006Ar	
SP8	15Cr-7AI-0. 4Zr- 0. 07Ex. 0	0. 032C-14. 61Cr-0. 5Ti-6. 43Al-0. 37Y-0. 36Zr-0. 180- 0. 004N-0. 006Ar	第1期試作材
SP9	15Cr-7AI-0. 4Zr- 0. 14Ex. 0	0. 031C-14. 56Cr-0. 5Ti-6. 35AI-0. 37Y-0. 37Zr-0. 260- 0. 003N-0. 005Ar	
SP10	15Cr-7AI-0. 4Zr- 0. 21Ex. 0	0. 03C-14. 48Cr-0. 5Ti-6. 34AI-0. 37Y-0. 37Zr-0. 330- 0. 004N-0. 005Ar	
SP11	18Cr-7A1	0. 032C-16. 83Cr-0. 49Ti-6. 31AI-0. 38Y-0. 220- 0. 004N-0. 006Ar	
SP12	12Cr-9Al	0. 029C-11. 93Cr-0. 53Ti-8. 65AI-0. 38Y-0. 220- 0. 003N-0. 006Ar	
SP13	15Cr-9Al	0. 03C-14. 25Cr-0. 51Ti-8. 4AI-0. 38Y-0. 220- 0. 003N-0. 006Ar	
SP14	18Cr-9Al	0. 032C-16. 63Cr-0. 49Ti-8. 09AI-0. 37Y-0. 220- 0. 003N-0. 006Ar	
SP15	15Cr-7AI-0. 2Zr- 0. 21Ex. 0	0. 030C-15. 07Cr-0. 51Ti-6. 99AI-0. 40Y-0. 19Zr-0. 240- 0. 004N-0. 006Ar	
SP16	15Cr-7AI-0.6Zr- 0.37Ex.0	0. 025C-15. 15Cr-0. 50Ti-7. 01Al-0. 39Y-0. 58Zr-0. 500- 0. 005N-0. 005Ar	
SP17	15Cr-7AI-0. 4Zr- 0. 28Ex. 0	0. 028C-15. 11Cr-0. 50Ti-7. 00Al-0. 36Y-0. 37Zr-0. 400- 0. 006N-0. 005Ar	签 0 #= =* //- ++
SP18	14Cr-7.5Al- 0.5Ti-0.12Ex.0	0. 030C−14. 10Cr−0. 52Ti−7. 49AI−0. 39Y−<0. 01Zr−0. 210− 0. 005N−0. 005Ar	用
SP19	10Cr-7AI-0.5Ti- 0.12Ex.0	0. 025C−10. 21Cr−0. 46Ti−7. 05AI−0. 40Y−<0. 01Zr−0. 220− 0. 004N−0. 006Ar	
SP20	10Cr-5AI-0. 5Ti- 0. 12Ex. 0	0. 027C−10. 11Cr−0. 46Ti−5. 05AI−0. 39Y−<0. 01Zr−0. 220− 0. 005N−0. 006Ar	

表3.2.2-2 被覆管模擬処理の熱処理条件及び冷間圧延処理条件

受入材	CR1	HT1	CR2	HT2	CR3	HT3	CR4	HT4
4 mm	2mm	950°C	1mm	850°C	0.6mm	1150°C	0.3mm	1150°C





図3.2.2-1 棒材からの試験片切り出し方法



図3.2.2-2 (株)リガク製の回転対陰極型X線回折装置(TTR-III:Co回転ターゲット)



図3.2.2-3 試験片ごとのビッカース硬さ試験結果



図3.2.2-4 475℃熱時効によるビッカース硬さの変化



図3.2.2-5 AI添加量ごとのビッカース硬さ増加量(ΔHv)の熱時効(475°C)時間依存性



図3.2.2-6 Cr添加量ごとのビッカース硬さ増加量(ΔHv)の熱時効(475°C)時間依存性



図3.2.2-7 Cr添加量ごとの降伏応力の熱時効(475°C)時間依存性



図3.2.2-8 Cr添加量ごとの最大引張応力の熱時効(475°C)時間依存性



図3.2.2-9 熱時効(475℃)前後の均一伸び(時効時間依存性)



図3.2.2-10 熱時効(475℃)前後の全伸び(時効時間依存性)



図3.2.2-11 12Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量 ($\Delta \sigma_{\mu}$)に対する伸びの変化量 ($-\Delta \varepsilon$)の関係



図3.2.2-12 15Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量($\Delta \sigma_{\mu}$)に対する伸びの変化量($-\Delta \varepsilon$)の関係



図3.2.2-13 18Cr-ODS鋼の降伏応力の変化量(Δσ_y)に対する伸びの変化量(-Δε)の関係



図3.2.2-14 Cr添加量ごとの熱時効前のシャルピー衝撃特性に及ぼすAI濃度の影響



図3.2.2-15 Cr添加量ごとのシャルピー衝撃特性に及ぼす475℃、5000時間熱時効の影響



図3.2.2-16 DBTTに及ぼす475℃、5000時間熱時効の影響のまとめ図



図3.2.2-17 ビッカース硬さに及ぼす300℃熱時効の影響



図3.2.2-18 ビッカース硬さに及ぼす700℃熱時効の影響



図 3.2.2-19 引張特性に及ぼす熱時効の影響



図 3.2.2-20 時効硬化量と伸びの低下量の関係



図3.2.2-21 第2期試作材のビッカース硬さに及ぼす475℃熱時効の影響



図3.2.2-22 300℃、10dpaまで照射前後のナノインデンテーション硬さ(Oは再結晶材-0DS17)



図3.2.2-23 475℃、10dpaまで照射前後のナノインデンテーション硬さ(Oは再結晶材-0DS17)



図3.2.2-24 300°C、3dpa、照射後の15Cr-7Al-ODS鋼の微細組織



図3.2.2-25 300°C、10dpa、照射後の15Cr-7Al-0DS鋼の微細組織



図3.2.2-26 300°C照射による照射硬化量の照射量依存性(15Cr-7Al-0DS鋼)



図3.2.2-27 10 dpa 照射後の15Cr-7Al-0DS鋼の微細組織



図3.2.2-28 3種類のODS鋼の再結晶処理前後における照射硬化挙動



図3.2.2-29 イオン照射(475℃、15dpa)後の押し出しまま材の損傷組織



図3.2.2-30 イオン照射(475℃、15dpa)後の再結晶材の損傷組織(モアレ模様)



図3.2.2-31 18Cr-0DS鋼の475°C、5000時間、熱時効後の微細組織に及ぼすAI濃度の影響

12Cr-(0,	5,	7,	9AI)
15Cr-(0,	5,	7,	9AI)
18Cr-(5,	7,	9Æ	N)

No	A	Cr	W	Ti	Zr	Y ₂ O ₃	Ex.0	α'
1	0	12	2	0.26	0	0.23	0.1	no
2	0	15	2	0.26	0	0.23	0.1	yes
3	5	12	0	0.5	0	0.5	0.1	no
4	5	15	0	0.5	0	0.5	0.1	yes
5	5	18	0	0.5	0	0.5	0.1	yes
6	7	12	0	0.5	0	0.5	0.1	no
7	7	15	0	0.5	0	0.5	0.1	yes
8	7	15	0	0.5	0.4	0.5	0.07	yes
9	7	15	0	0.5	0.4	0.5	0.14	yes
10	7	15	0	0.5	0.4	0.5	0.21	yes
11	7	18	0	0.5	0	0.5	0.1	yes
12	9	12	0	0.5	0	0.5	0.1	no
13	9	15	0	0.5	0	0.5	0.1	no?
14	9	18	0	0.5	0	0.5	0.1	fine

Cr-L Map (3 windows)

18Cr-5Al (10,000h)



18Cr-9AI (10,000h)



図3.2.2-32 475°C、10,000時間、熱時効後のα′析出の状況



図3.2.2-33 Fe-Cr-Al 三元系濃度ダイヤグラム: (左図)時効硬化 (HV=20以上の硬 化)を示した成分を赤字で示す。(右図) TEMにて α'析出観察が認められた成分

3.2.3 被覆管製造(H25~H27)

(1) 原料粉末·素管製造

①目的

超高温用ODSフェライト鋼の成分設計を行い、これを踏まえてArガスアトマ イズ法により高清浄度の合金粉末を製造する。製造した合金粉末を用いて、Cr 濃度、Al濃度、Zr濃度、酸素量をパラメータに、メカニカルアロイングと熱間押出しに より20鋼種の押出棒を製造する。また、その内10鋼種については、被覆管への製管試験 に供するため機械加工で素管にする。

②成分設計

高 Cr フェライト鋼の熱時効脆化は一般に 280℃~540℃で現れる現象であるため、超 高温用 ODS フェライト鋼を軽水炉及び高速炉に適用する際には通常運転時に問題となる 事象である。一方、水蒸気酸化が問題となるのは軽水炉のシビアアクシデント時に被覆 管温度が短時間ではあるが 1200℃超の高温に晒される場合である。従って超高温用 ODS フェライト鋼の開発においては、1200℃超での水蒸気酸化を抑制し、かつ通常運転時に 熱時効脆化が起こらない成分系にする必要がある。

1200℃超での水蒸気酸化を抑えるには、600℃~1200℃超の広い温度範囲で耐酸化に 有効なアルミナを被覆管表面に被膜として形成させる必要がある。Fe-Cr-Al 合金でアル ミナが生成する成分範囲はオキサイドマップとして知られており、それを図 3.2.3(1)-1 に示す。この図は 1100℃の場合であるが、さらに温度が上昇するとアルミナを形成する ために必要な Al 臨界濃度は増加する。1200℃超での水蒸気酸化を抑制するためには、少 なくともオキサイドマップに示されたアルミナ生成領域に入るように Cr 濃度と Al 濃度 を設定する必要がある。

熱時効脆化に関しては、Fe-Cr 合金では Cr 濃度が 12 wt%以上で脆化することが一般 に知られている。小林ら^{(3.2.3(1)-1)}は Fe-Cr-Al 合金において 475℃で 1000 時間の時効によ る硬さ増加量を調べ、その結果を Fe-Cr-Al 状態図上にプロットし、熱時効脆化が起こる 限界 Cr 濃度は Al の添加により高濃度側にシフトすることを報告している。これを図 3.2.3(1)-1 中に青線で示す。このような Al 添加による脆化を引き起こす限界 Cr 濃度の 増加は、脆化原因であるクロムリッチな α '相生成の抑制にある。しかし 10 wt%まで Al 濃度が増加すると規則相 (Fe₃Al)の生成に原因して脆化することに注意する必要がある。

図 3.2.3(1)-1 に示した Fe-Cr-Al 状態図で黄色の成分範囲は、耐水蒸気酸化抑制のためのアルミナ被膜生成領域で、かつα'相生成と規則相生成を抑制して脆化を回避可能 と考えられる領域であり、Fe-Cr-Al の化学成分をこの領域に限定すれば両者をともに満 足できる可能性がある。

以上の検討結果を踏まえ、超高温用 ODS フェライト鋼候補材の A1 濃度と Cr 濃度については、アルミナ生成境界線、α'相生成による脆化領域境界線、および規則相生成による脆化領域境界線を跨るように、A1 濃度:5、7、9 wt%、Cr 濃度:10、12、15、18 wt%に設定した。第1期試作では、図 3.2.3(1)-1 において、A1 濃度と Cr 濃度が③、④、 ⑤、⑥、⑦、⑪、⑫、⑬、⑭の組成に設定した。試作材の冷間圧延試験で、A1 濃度が⑬ で異常割れが生じたことから、第2期試作では A1 濃度を低下させた®を製造するととも に、Cr 濃度を 10 wt%まで低減した!!!>(2)のを作製した。なお、①と②は高速炉燃料被覆管 用のクロミア主体の ODS フェライト鋼である。

次に A1 添加した超高温用 0DS フェライト鋼の高温強度を維持・向上させるための合 金設計を検討した。以前の原子力システム研究開発事業において、A1 添加 0DS フェライ ト鋼に Zr を添加すると高温強度が大幅に向上することが分かっている。しかし、過剰の Zr 添加は水蒸気酸化を引き起こすため、水蒸気酸化を抑制して、且つ高温強度を向上さ せるための Zr 添加材の化学成分を検討した。第 1 期試作では、図 3.2.3(1)-1 において、 Cr 濃度と A1 濃度はセンターに位置する 7 wt%A1-15 wt%Cr に固定し、Zr 添加量は Zr/Y₂0₃モル比が 2.0 になるように設定した。その上で金属 Zr の活量が高、中、低になる よう、過剰酸素量を極低⑧、中⑨、極高⑩とした。これら試作材の耐水蒸気酸化特性と 高温強度、耐熱時効脆化を先行的に調べ、その結果を踏まえて第 2 期試作では Zr/Y₂0₃モ ル比を 2.0 から低⑮、高⑯、及び Zr/Y₂0₃モル比を 2.0 として過剰酸素量を⑩より多くし た⑰を設定した。

③原料粉末製造

表 3.2.3(1)-1 に No.1 と No.2 の押出棒作製のためにガスアトマイズ法により製造した 原料粉末(ロット番号 F8024)の成分分析結果を示す。この化学成分は押出棒 No.1 に合わ せた 12Cr-2W-0.3Ti であり、No.2 の製造では 15Cr になるようにメカニカルアロイング段 階で Cr 粉末を追加する。製造したガスアトマイズ粉末の内、粒子直径が 150μm 以下(-150)の粉末のみ使用する。A1 を含む原料粉末の成分分析結果を表 3.2.3(1)-2 に示す。A1 については、メカニカルアロイング段階での単独添加は製品中の A1 濃度のバラツキを引 き起こすため、A1 を予め合金化した 12Cr-5A1-0.5Ti (ロット番号 Y2908)と 12Cr-9A1-0.5Ti (Y2907)の2 種類の原料粉末を製造した。7A1 の場合はこれらを等量配合すること により製造可能である。15Cr、18Cr の押出棒では Cr 粉末を、また Zr 添加押出棒では Zr 粉末をメカニカルアロイング段階で追加する。過剰酸素(Ex.0)は添加する酸化鉄粉末の 量で制御することが可能である。製造した原料粉末の化学成分は、目標成分範囲にあり、 押出棒作製に使用する 150μmサイズ以下の原料粉末の重量を確保することができた。

④ 押出棒、素管の製造

①~⑳の押出棒を製造するため、下記の3種類のArガスアトマイズ合金粉末を配合して メカニカルアロイング(MA)を行った。

- ・高速炉標準12Cr-ODSフェライト鋼用プレアロイ粉末
- ・12Cr-9A1-0.5Tiプレアロイ粉末
- ・12Cr-5A1-0.5Tiプレアロイ粉末
- ・Cr濃度調整のため金属Cr粉末、Zr粉末、過剰酸素量を調整するため酸化鉄粉末、及び酸化イットリウム粉末
- MAは新型10D乾式アトライターを用いて、第1期試作で14鋼種(14バッチ)、第2期試作

で6鋼種(6バッチ)を製造した。MAの条件は以下の通りである。

- ・MA雰囲気 : Ar (純度 99.9999wt%)
- ・回転速度 : 220rpm
- ・処理時間 : 48h
- ・原料粉末処理量 : 10kg/バッチ
- ・粉末/ボール重量比 : 1/15
- ・ボール : SUJ2鋼製φ3/8インチ

レーザー回折/散乱法によるMA粉末の粒度分布測定結果を第1期と第2期試作材について それぞれ図3.2.3(1)-2と図3.2.3(1)-3に示す。A1無添加の①(SP1)、②(SP2)に比べて、A1 添加合金の粉末粒径は小さくなる。A1添加量が増すほど、MA合金粉末粒径は小さくなる傾 向がみられる。A1およびZr添加のMA合金粉末粒径が最も小さくなり、酸素量が増すほど、 粉末粒径は小さくなる傾向にある。Cr量の影響は小さい。MA処理1バッチごとに粉末分級 し、押出棒の製造には212μm以下の粉末を使用した。また総回収量は原料粉末投入量10kg より多くなった。これは主に粉砕ボールの摩耗によるものと推定される。

MA処理粉末を熱間押出用カプセルに充填し真空度が10⁻³Torr以下になるまで脱気し、 400℃で3h以上保持した後、密封した。粉末の充填率は62~63%であった。熱間押出は加熱 条件1160℃×2h以上、ダイス径25mm、コンテナ径76mm、押出比9.2の押出条件で実施した。 最大押出圧力は13.3~14.8MPa、押出時間は3.5~4.9secの範囲であった。その後、熱間鍛 造(加熱温度:1100℃)により、押出棒の曲り矯正を行った。熱間押出ではφ25mmのダイ スを使用するが、空冷での棒材収縮とショットブラストによるスケール除去の影響で押出 棒の外径は24mm前後であった。また、0DS鋼有効部の長さは約580mmであった。その後、真 空炉を用いて1150℃で1hの熱処理(Arガス冷却)を行った。押出棒から採取した試料の化 学成分分析を行った結果を第1期材について表3.2.3(1)-3に、第2期材を表3.2.3(1)-4に示 す。全般にCr濃度とA1濃度が目標組成より低めになっているのは、SUJ2ボールの摩耗によ る成分の希釈が原因である。そのため、第2期試作材ではその程度を予め見込んで配合す ることで、ほぼ目標組成が達成された。

第 1 期試作では SP1、SP4、SP7、SP8、SP9、SP10、SP13 の 7 鋼種、第 2 期試作では SP15、SP18、SP19 の 3 鋼種、合計 10 鋼種について、被覆管に加工するため押出棒から各 2 本の素管に製造した。素管の寸法は外径 18.00(±0.10)×内径 12.00(±0.10)×長さ 160(+20/-0) (mm)である。

⑤ まとめ

水蒸気酸化と熱時効脆化をともに抑制し、かつ高温強度に優れた超高温用0DSフェライ ト鋼を開発するため、Cr濃度、Al濃度,Zr濃度、過剰酸素量をパラメータにして、20鋼種 の押出棒を製造した。また、その内10鋼種については被覆管に圧延加工するため、素管へ の機械加工を行った。

参考文献

(3. 2. 3(1)−1) S. Kobayashia and T. Takasugi, "Mapping of 475°C embrittlement in ferritic Fe–Cr–Al

alloys", Scripta Materialia 63 (2010) 1104-1107.

竹旦	区分	化学成分(wt%)											
何万	「ち (粒径範囲)		Cr	W	Τi	AI	0	Ν	支給				
	規格範囲	<0. 03	11.6~12.4	1.8 ~ 2.2	0.22~0.30	<0. 02	<0. 03	<0. 01	里重				
	目標値	ALAP	12.0	2. 0	0. 26	ALAP	ALAP	ALAP	kg				
ロット番号	(+500/-150)	<0. 01	11. 99	1.93	0. 25	<0. 01	0. 003	0. 001	21				
Fo024 Fe-12Cr-2W-0. 3Ti	(-150)	<0. 01	11. 98	1.94	0. 24	<0. 01	0. 004	0. 001	35. 9				

表 3.2.3(1)-1 A1 を含まない原料粉末の成分分析結果(表 3.2.1(1)-1の No.1、No.2用)

表 3.2.3(1)-2 A1 を含む原料粉末の成分分析結果(表 3.2.1(1)-1の No.3~No.20 用)

ケホロ	区分			化	学成分(wt%)				
付方	(粒径範囲)	С	Cr	W	Тi	AI	0	N	納品	
	規格範囲	<0. 03	11.6~12.4	≦0.02	0.46~0.54	4.50 ~ 5.5	<0. 03	<0. 01	「重重」	
	目標値	ALAP	12.0	ALAP	0. 50	5. 0	ALAP	ALAP	kg	
ロット番号 V2000	(+500/-150)	0. 01	12. 14	0. 01	0. 53	4. 93	0. 006	0. 003	56.4	
Fe-12Cr-5AI-0. 5Ti	(-150)	0. 01	12. 11	0. 01	0. 55	4. 91	0. 009	0. 003	144	
竹旦	区分			化	学成分(wt%)				
符号	区分 (粒径範囲)	С	Cr	化 W	学成分(wt% T i	5) A I	0	Ν	納品	
符号	区分 (粒径範囲) 規格範囲	C <0. 03	C r 11.6~12.4	1Ł ₩ ≦0.02	学成分(wt % T i 0.46~0.54	A I 8.5~9.5	O <0. 03	N <0. 01	納品 重量	
符号	区分 (粒径範囲) 規格範囲 目標値	C <0. 03 ALAP	C r 11. 6~12. 4 12. 0	1L ₩ ≦0.02 ALAP	学成分(wt% T i 0.46~0.54 0.50	6) A I 8.5~9.5 9.0	0 <0. 03 ALAP	N <0. 01 ALAP	納品 重量 kg	
符号 ロット番号	区分 (粒径範囲) 規格範囲 目標値 (+500/-150)	C <0. 03 ALAP 0. 01	C r 11. 6~12. 4 12. 0 12. 09	1L ₩ ≦0.02 ALAP 0.02	学成分(wt% T i 0.46~0.54 0.50 0.54	5) A I 8.5~9.5 9.0 8.91	O <0. 03 ALAP 0. 004	N <0. 01 ALAP 0. 004	納品 重量 kg 46.3	

	# B					化学成分	· (wt%)						計算値	
· 付方		C	Cr	W	Ti	AI	Y	Zr	0	N	Ar	Y ₂ 0 ₃	Zr0 ₂	Ex. 0
SP1	12Cr	0. 027	11. 78	1.9	0. 23	<0.01	0.19	<0. 01	0. 13	0.006	0. 006	0. 241	-	0. 079
SP2	15Cr	0. 028	14. 12	1.83	0. 22	<0.01	0. 18	<0.01	0.12	0.007	0.006	0. 229	-	0.071
SP3	12Cr-5Al	0. 029	11. 72	<0.01	0. 52	4. 71	0.37	<0.01	0. 23	0.006	0. 006	0. 470	-	0. 130
SP4	15Cr-5Al	0. 031	14.16	<0. 01	0. 50	4. 57	0. 37	<0.01	0. 22	0. 005	0. 006	0. 470	-	0. 120
SP5R	18Cr-5Al	0. 034	16. 78	<0. 01	0.49	4.46	0.36	<0. 01	0. 22	0.004	0. 006	0. 457	-	0. 123
SP6	12Cr-7A1	0. 028	11.86	<0. 01	0. 53	6.66	0. 38	<0. 01	0. 22	0. 005	0. 006	0. 483	-	0. 117
SP7	15Cr-7Al	0. 031	14. 18	<0. 01	0. 51	6.44	0. 37	<0. 01	0. 22	0.006	0. 006	0. 470	-	0. 120
SP11	18Cr-7A1	0. 033	16. 73	<0. 01	0.49	6. 28	0. 37	<0. 01	0. 22	0. 005	0. 005	0. 470	-	0. 120
SP12	12Cr-9Al	0. 028	11.8	<0. 01	0. 53	8.6	0. 37	<0.01	0. 22	0. 003	0. 005	0. 470	-	0. 120
SP13	15Cr-9Al	0. 03	14. 25	<0. 01	0. 51	8.4	0. 37	<0. 01	0. 23	0.004	0. 005	0. 470	-	0. 130
SP14	18Cr-9Al	0. 035	16.84	<0. 01	0. 50	8.16	0. 37	<0.01	0. 22	0.003	0. 005	0. 470	-	0. 120
SP8	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 07Ex. 0	0. 033	14.66	<0. 01	0. 50	6.39	0. 37	0. 35	0.19	0.004	0. 005	0. 470	0. 47	0. 090
SP9	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 14Ex. 0	0. 030	14. 70	<0. 01	0. 50	6. 38	0.36	0.36	0. 25	0.005	0. 005	0. 457	0. 49	0. 153
SP10	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 21Ex. 0	0. 029	14. 76	<0.01	0.50	6.40	0.37	0.37	0.32	0.004	0.005	0.470	0.50	0. 220

表 3.2.3(1)-3 第1期試作材の成分分析結果

表 3.2.3(1)-4 第2期試作材の成分分析結果

							化学成分	(wt%)						計算値	
	符号		C	Cr	W	Ti	AI	Y	Zr	0	N	Ar	Y ₂ 0 ₃	Zr0 ₂	Ex. 0
	SP15	15Cr-7AI-0. 2Zr-0. 12Ex. 0	0. 030	15.07	-	0. 51	6. 99	0.40	0. 19	0. 24	0.004	0.006	0.51	0. 25	0. 132
	SP16	15Cr-7AI-0.6Zr-0.37Ex.0	0. 025	15.15	-	0.50	7. 01	0. 39	0. 58	0. 50	0.005	0.005	0. 49	0. 78	0.396
空っ世	SP17	15Cr-7AI-0.4Zr-0.28Ex.0	0. 028	15.11	-	0.50	7.00	0.36	0. 37	0.40	0.006	0.005	0.46	0. 49	0. 303
弗2州	SP18	14Cr-7.5AI-0.5Ti-0.12Ex.0	0. 030	14. 10	-	0. 52	7.49	0.39	<0.01	0. 21	0.005	0.005	0.50	-	0. 105
	SP19	10Cr-7.0AI-0.5Ti-0.12Ex.0	0. 025	10. 21	I	0.46	7. 05	0.40	<0.01	0. 22	0.004	0.006	0.51	I	0. 112
	SP20	10Cr-5AI-0.5Ti-0.12Ex.0	0. 027	10.11	-	0.46	5. 05	0. 39	<0.01	0. 22	0.005	0.006	0.50	I	0. 115
	SP1A	120r	0. 025	11.74	-	0. 23	<0.01	0.19	<0.01	0.13	0.006	0.006	0. 24	_	0. 08
第1期	SP7A	15Cr-7A1	0. 030	14. 30	-	0. 52	6. 73	0. 38	<0.01	0. 22	0.006	0.006	0. 48	-	0.12
追加押出	SP10A	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 21Ex. 0	0. 028	14. 77	-	0. 51	6. 34	0. 37	0. 37	0. 33	0.005	0.005	0. 47	0.50	0. 23
	SP13A	15Cr-9A1	0. 029	14. 30	-	0. 52	8. 32	0. 38	<0.01	0. 22	0.004	0.006	0. 48	_	0.12



Cr 濃度(wt%)

図 3.2.3(1)-1 超高温用 ODS フェライト鋼の成分設定;アルミナ生成領域、α'相脆化領域、規則 相脆化領域も合わせて示す。



図 3.2.3(1)-2 第1期試作材のメカニカルアロイング粉末の粒度分布測定結果



図 3.2.3(1)-3 第2期試作材のメカニカルアロイング粉末の粒度分布測定結果

(2) 製管試験(再委託先:原子力機構)

① 目的

FeCr および FeCrA1-ODS フェライト鋼試作材 10 鋼種について、4 回冷間圧延および再結 晶化熱処理を実施し、被覆管を得る。また、それらの加工性を評価する。

2 方法

FeCr および FeCrAl-ODS フェライト鋼試作材について、ピルガーミル圧延機を用いた被 覆管製造試験を実施した。試験に供した素管の化学成分とビッカース硬さを表 3.2.3(2)-1 に示す。SP7(目標組成:15Cr-7A1)を基軸鋼種として、Cr 濃度、A1 濃度、Zr 濃度および過 剰酸素濃度を系統的に変化させた鋼種の製管試験を実施した。素管の寸法は、外径 18.0mm、 内径 12. 0mm、肉厚 3. 0mm および長さ 160mm であり、各鋼種について素管 2 本の製管試験を 実施した。本製管試験では、原子力機構が国内メーカーと共同でナトリウム冷却高速炉用 に開発した ODS 鋼被覆管の冷間圧延・再結晶組織制御技術^{(3.2.1(2)-3, 3.2.3(2)-1~3)}を用いた。相 変態が生じないフェライト母相を有する ODS 鋼被覆管の場合、被覆管形状で優れた周方向 の高温強度および延性を得るためには、最終熱処理時の再結晶組織制御(異方性を軽減)が 必要である。このためには、中間熱処理(1 回目から3回目圧延後)において、再結晶しな い範囲で圧延管が次工程で冷間圧延できるレベルまで軟化させる必要がある (3.2.1(2)-3, ^{3.2.3(2)-1~3)}。表 3.2.3(2)-2 と表 3.2.3(2)-3 に、今回の製管試験で採用した各工程での圧延 率と熱処理条件の一覧を示す。1回目~3回目の冷間圧延後に圧延材の端部から試験片を 採取して熱処理試験を実施することで、次の冷間圧延が可能な硬さまで軟化でき、且つ再 結晶が生じない熱処理条件を選定した(保持時間:30 分)。4 回目(最終)の冷間圧延後に は、4 回目圧延まま材の端部試験片を用いた熱処理試験結果から、再結晶組織とするため の最終熱処理条件を選定した(保持時間:60分)。これらの熱処理条件選定試験は大気雰囲 気で実施し、冷却は空冷で行った。一方、選定した条件での製品の本番熱処理は真空中 (10⁻⁵torr)で実施し、冷却はアルゴンガス吹付けにより実施した。最終熱処理後、各鋼 種について1~2 本の被覆管に曲げ取り処理を施した(表 3.2.3(2)-4)。曲げ取りは 3 ロー ル矯正機で実施した。

3 結果および考察

製管試験結果の概要を表 3.2.3(2)-4 に示す。A1 濃度が 8.4wt%と高い SP13 を除く鋼種 全てについて、最終的に 4 回目圧延まで完了し、最終熱処理で再結晶組織仕上げとした被 覆管形状に加工することができた。一部の管で1回目圧延時に管端割れが生じたものの、 これらの素管については管端割れ部を切り落とすことで圧延を継続し、最終的に被覆管形 状に加工することができた。管端割れ部の外観の例を図 3.2.3(2)-1~図 3.2.3(2)-3 に示 す。一方、SP13 については、1回目冷間圧延時に粉砕破損が生じ(図 3.2.3-4)、被覆管と することはできなかった。表 3.2.3(2)-5~7 は、被覆管の寸法測定結果であり、いずれの 被覆管も目標通りの寸法となっていることがわかる。

上述の圧延試験における熱処理条件選定の根拠となった試験データを以下に示す。1回 目から3回目までの中間熱処理条件を選定するため、各圧延まま材の端部から試験片を採 取し、熱処理条件選定試験を実施した。図 3.2.3(2)-5~10 に 1 回目圧延後から 3 回目圧 延後の中間熱処理条件選定試験におけるビッカース硬さ測定結果を示す。図 3.2.3(2)-11 は3回圧延後の熱処理試験における代表的な金相組織である。これらの結果に基づき、再 結晶しない範囲で圧延管が次工程で冷間圧延できるレベルまで軟化させるための中間熱処 理条件を選定した(表 3.2.3(2)-3)。次に、4 回目圧延後の最終熱処理で再結晶組織とする ための熱処理条件選定試験を実施した。本選定試験は、これまでのナトリウム冷却高速炉 用 12Cr-ODS 鋼被覆管開発の経験を踏まえ 1050°C および 1150°C にて実施した。図 3.2.3(2)-12 および図 3.2.3(2)-13 に、本選定試験におけるビッカース硬さ測定結果およ び代表的な金相組織を示す。SP1(目標組成:12Cr-2W)以外の鋼種では 1050°C にて再結晶 し、SP1 では 1150°C にて再結晶することがわかった。また、SP1 以外の鋼種について、 1050°C 熱処理と 1150°C 熱処理とでは結晶粒径などの金相組織に大きな違いはなかった。 したがって、最終再結晶熱処理温度として、全鋼種が再結晶する 1150°C を選定した。な お、図 3.2.3(2)-13 中の SP1 の 1150℃×60min 熱処理材の肉厚が減少しているが、大気雰 囲気で熱処理条件選定試験を実施したためである。3.2.3(2)に記載の通り、製品の熱処理 は真空中で実施し、アルゴンガス吹付けによる冷却を採用している。図 3.2.3(2)-14 に、 各圧延・熱処理工程におけるビッカース硬さの推移を示す。全体として、圧延を繰り返す たびに硬さか高くなる傾向があること、および FeCrA1-ODS 鋼(SP4~SP19)は、FeCr-ODS 鋼 (SP1)に比べて、圧延後および熱処理後ともに硬さが低く加工性に優れる傾向が認められ る。最終再結晶熱処理(1150℃×60min)を施した被覆管の縦断面金相組織観察結果を図 3.2.3(2)-15~図 3.2.3(2)-23 に示す。SP1 以外の圧延管は肉厚方向全体に再結晶組織とな っていることがわかる。一方、SP1 は圧延管の外面側および内面側に若干の未再結晶が残 存していた。

また、曲げ取りが未実施の被覆管と曲げ取りを実施した被覆管の外観写真を図 3.2.3(2)-24 と図 3.2.3(2)-25 に示す。A1 を含有しない SP1 に着色は認められないが、A1 を含有する SP4~SP19 には着色(黒光り)が認められる。中間熱処理および最終熱処理は真 空中(10⁻⁵torr)で実施したことから、A1 含有材(SP4~SP19)では低酸素分圧下で表面に酸 化アルミ被膜が形成したものと考えられる。

FeCr および FeCrAl-ODS 鋼の加工性について考察した。図 3.2.3(2)-26 および図 3.2.3(2)-27 は、それぞれ素管硬さと加工性の関係および鋼中の A1 濃度と加工性の関係を 示した図である。ここで加工性とは、被覆管へ圧延する際の加工のしやすさを、一回圧延 の際に生じた割れの長さを基準として点数化した指標である。割れなしを 0 点、割れ長さ ~20mm を 1 点、割れ長さ~100mm を 3 点、全長粉砕を 5 点とした。図中の丸数字が鋼種の 識別番号である SP**に対応する。図 3.2.3(2)-26 より、素管硬さと加工性に相関がみられ、素管硬さが硬いほど割れが生じやすいことが分かる。これは、従来より得られている ODS 鋼被覆管の加工性に関する知見と同様である。また、図 3.2.3(2)-27 より、A1 濃度が高い 鋼種では、大きな割れが生じる傾向がみられた。図 3.2.3(2)-28 に走査型電子顕微鏡 (SEM) 像から介在物サイズを解析した結果を示す。解析は 20 視野の SEM 像、面積にして

(SEM) 家から方柱初977 スを解析した福来を示す。解析な 20 税当の SEM 家、面積にして 計 500×500 μ m²を対象とした。圧延に問題の無かった SP4 に比べ、全長粉砕割れした SP13 では、直径 3 μ m 前後の介在物の頻度が多いことが分かる。介在物はアルミナと考えられ、 割れの起点になった可能性がある。また、SP4(目標組成:14Cr-5A1)と SP13(目標組成:14Cr-9A1)での介在物頻度の差は、鋼中の A1 濃度の差に起因すると思われる。

④ まとめ

- ・ FeCr および FeCrAl-ODS フェライト鋼試作棒材 10 鋼種の製管試験を実施した。
- ・ A1 濃度が高い SP13 を除く鋼種全てについて、最終的に 4 回目圧延まで完了し、最終熱 処理で再結晶組織を有する被覆管形状に加工することができた。一方、SP13 について は、1 回目冷間圧延時に粉砕破損が生じ、被覆管とすることはできなかった。
- 本製管試験で明らかとなった各鋼種の加工性と素管の硬さ・化学組成との関係を整理した結果、素管の硬さだけでなく、A1 濃度が製管性に影響を及ぼす因子であることがわかった。
- 7.5wt%以下の A1 を含有する FeCrAl-ODS 鋼は、A1 を含有しない FeCr-ODS 鋼に比べて、 圧延後および熱処理後ともに硬さが低く加工性に優れる傾向が認められるが、過度な A1 添加は加工性を低下させることがわかった。過度な A1 添加は酸化 A1 介在物形成の 要因となり、製管性の低下をもたらす可能性がある。

参考文献

- (3.2.3(2)-1) 日本国第 3073981 号「鉄基分散強化型合金管の製造方法
- (3.2.3(2)-2) 日本国第 3462182 号「クロムを含む酸化物分散強化型フェライト系鉄合金管の 製造方法」
- (3.2.3(2)-3) T. Narita, S. Ukai, B. Leng, S. Ohtsuka, T. Kaito, "Characterization of recrystallization of 12Cr and 15Cr ODS ferritic steels", J.Nucl.Sci.Technol., Vol.50, No.3 (2013) pp.314-320.

	日搏成公	素管の硬さ		化学成分 (wt%) 計算值* (wt%)												
	日保风力	(Hv)	С	Cr	W	Ti	Al	Y	Zr	0	N	Ar	Y_2O_3	Ex.O		
SP1	12Cr-2W	366	0.027	11.78	1.9	0.23	< 0.01	0.19	< 0.01	0.13	0.006	0.006	0.24	0.08		
SP4	15Cr-5Al	310	0.031	14.16	< 0.01	0.50	4.57	0.37	< 0.01	0.22	0.005	0.006	0.47	0.12		
SP7	15Cr-7Al (基軸鋼種)	333	0.031	14.18	<0.01	0.51	6.44	0.37	< 0.01	0.22	0.006	0.006	0.47	0.12		
SP8	15Cr-7Al-0.4Zr- 0.07Ex.O	343	0.033	14.66	< 0.01	0.50	6.39	0.37	0.35	0.19	0.004	0.005	0.47	0.09	$Y_2O_3 \cdot 2ZrO_{1.5}$	
SP9	15Cr-7Al-0.4Zr- 0.14Ex.O	358	0.030	14.70	< 0.01	0.50	6.38	0.36	0.36	0.25	0.005	0.005	0.46	0.15	$Y_2O_3 \cdot 2ZrO_{2.4}$	
SP10	15Cr-7Al-0.4Zr- 0.21Ex.O	357	0.029	14.76	< 0.01	0.50	6.40	0.37	0.37	0.32	0.004	0.005	0.47	0.22	$Y_2O_3 \cdot 2ZrO_{3.4}$	
SP13	15Cr 9Al	353	0.030	14.25	<0.01	0.51	8.40	0.37	<0.01	0.23	0.004	0.005	0.47	0.13	← 1回目圧延中 に破壊	
SP15	15Cr-7Al-0.2Zr- 0.12Ex.O	341	0.030	15.07	N.A.	0.51	6.99	0.40	0.19	0.24	0.004	0.006	0.51	0.13	$Y_2O_3 \cdot ZrO_4$	
SP18	14Cr-7.5Al	338	0.030	14.10	N.A.	0.52	7.49	0.39	<0.01	0.21	0.005	0.005	0.50	0.10		
SP19	10Cr-7Al	313	0.025	10.21	N.A.	0.46	7.05	0.40	< 0.01	0.22	0.004	0.006	0.51	0.11		

表 3.2.3(2)-1 試験に供した FeCr-ODS 鋼素管および FeCrA1-ODS 鋼素管の化学成分とビッカース硬

* [Y₂O₃]: Y濃度分析値から算出.

 $[Ex.O] = [Total O] - [O in Y_2O_3]$
表 3.2.3(2)-2 冷間圧延条件

工程	外径 (mm)	内径 (mm)	肉厚 (mm)	圧延率^{*1}(%)	Q值 ^{*2}
素管	18.0	12.0	3.0	-	-
1回冷間圧延後	14.6	10.9	1.85	47.6	2.97
2回冷間圧延後	12.3	9.8	1.25	41.4	2.74
3回冷間圧延後	10.2	8.6	0.8	45.6	2.76
4回冷間圧延後	8.5	7.5	0.5	46.8	2.91

^{*1} 圧延率 = {(S₀ - S) / S₀}×100

S₀, S: 圧延前および圧延後の管の断面積

^{*2} Q値 = {ln(WT/WT₀)} / [ln{(OD - WT)/(OD₀ - WT₀)}] WT₀, WT : 圧延前及び圧延後の管の肉厚 OD₀, OD : 圧延前および圧延後の管の外径

					熱処理消	且度条件		
	目標成分	素管No.	被覆管No.	1回目圧延後	2回目圧延後	3回目圧延後	4回目圧延後 (最終)	
		No.11	No.11					
SP1	12Cr-2W	NL 12	No.12A	1075°C×30min	1025°C×30min	1025°C×30min	1150°C×60min	
		N0.12	No.12B					
		No.41	No.41					
SP4	15Cr-5Al	No. 42	No.42A	950°C×30min	850°C×30min	775°C×30min	1150°C×60min	
		N0.42	No.42B					
		No.71	No.71					
SP7	15Cr-7Al (基軸鋼種)	No. 72	No.72A	Ŷ	\uparrow	Ŷ	↑	
		10.72	No.72B					
		No.81	No.81					
SP8	15Cr-7Al-0.4Zr-0.07Ex.O	No 82	No.82A	Ŷ	\uparrow	Ŷ	↑	
		110.82	No.82B					
		No.91	No.91					
SP9	15Cr-7Al-0.4Zr-0.14Ex.O	No 02	No.92A		\uparrow	Ŷ	↑	
		110.92	No.92B					
SP10	15Cr 7A1 0 47r 0 21Fr 0	No.101	No.101	↑	↑.	<u>↑</u>	↑	
5110	13CI-/AI-0.4ZI-0.21EX.0	No.102	No.102	I			1	
SD12	150+ 0.41	No.131	-					
5115	13CI-9AI	No.132	-	-	-	-	-	
		No.151	No.151					
SP15	15Cr-7Al-0.2Zr-0.12Ex.O	No 152	No.151-1	850°C×30min	750°C×30min	750℃×30min	1150°C×60min	
		10.152	No.151-2					
SD19	140- 7 5 41	No.181	No.181	↑	↑.	<u>↑</u>	<u>↑</u>	
5110	14CI-/.JAI	No.182	No.182	I		1	1	
		No.191	No.191					
SP19	10Cr-7Al	No 102	No.192-1	↑	\uparrow	<u>↑</u>	\uparrow	
		110.192	No.192-2					

表 3.2.3(2)-3 熱処理条件選定試験結果に基づき各工程で採用した熱処理条件

	目標成分	素管No.	被覆管No. [※]	長さ(mm)	曲げとり	製管試験結果 (概要)	
		No.11	No.11	1104	実施		
SP1	12Cr-2W	No 12	No.12A	884	実施	1回日上処時に端部割れ 発生	
		N0.12	No.12B	880	なし	元上	
		No.41	No.41	1498	実施		
SP4	15Cr-5Al	N- 42	No.42A	1016	実施	圧延時の割れ発生無し	
		IN0.42	No.42B	1010	なし		
		No.71	No.71	1467	実施		
SP7	15Cr-7Al(基軸鋼種)	N- 72	No.72A	913	なし	1回日上処時に端部割れ 盗生	
		NO./2	No.72B	928	実施	九上	
		No.81	No.81	1315	実施		
SP8	15Cr-7Al-0.4Zr-0.07Ex.O	N- 92	No.82A	990	なし	1回日上処時に端部割れ 発生	
		IN0.82	No.82B	1000	実施	九上	
		No.91	No.91	1463	実施		
SP9	15Cr-7Al-0.4Zr-0.14Ex.O	N- 02	No.92A	998	実施	圧延時の割れ発生無し	
		N0.92	No.92B	997	なし		
SD10	15Cr 7A1 0 47r 0 21Er 0	No.101	No.101	862	なし	1回目圧延時に端部割れ	
SP10	13CI-7AI-0:4ZI-0.21EX.O	No.102	No.102	1175	実施	発生	
SD12	150-041	No.131	-	-	-	1回日 圧延時に炒効割れ	
SP15	13CI-9AI	No.132	-	-	-	1回自注処時に初件割れ	
		No.151	No.151	1455	実施		
SP15	15Cr-7Al-0.2Zr-0.12Ex.O	No 152	No.151-1	894	実施	圧延時の割れ発生無し	
		N0.152	No.151-2	893	なし		
CD19	140-7541	No.181	No.181	883	なし	1回目圧延時に端部割れ	
SP18	14Cr-7.5Al	No.182	No.182	1418	実施	発生	
		No.191	No.191	1303	実施		
SP19	10Cr-7Al	No 102	No.192-1	897	実施	 1回目上延時に端部割れ 発生 	
		INO.192	No.192-2	890	なし		

表 3.2.3(2)-4 FeCr-ODS 鋼および FeCrA1-ODS 鋼の製管試験結果

※圧延試験に使用した素管は各鋼種2本であるが、本試験で用いた熱処理炉の寸法上の制約により、3回目圧延後に一部圧延管を2本に切断したため、 最終的な被覆管の本数が、各鋼種2~3本となっている。

表 3.2.3(2)-5 4回目圧延後の熱処理まま材の寸法測定結果(曲げ取り実施せず)

【外径】	
------	--

成分系	識另	刂管No	管N	o側	反管	No側	最大値	最小値	平均值	(a)-(b)	長さ
	途中	最終品	A-C	B-D	A-C	B-D	(a)	(b)			
SP1	12B	12	8.501	8.500	8.494	8.489	8.501	8.489	8.496	0.012	882
SP4	42B	42	8.472	8.467	8.466	8.469	8.472	8.466	8.469	0.006	1008
SP7	72A	72	8.477	8.513	8.509	8.469	8.513	8.469	8.492	0.044	914
SP8	82A	82	8.475	8.532	8.477	8.501	8.532	8.475	8.496	0.057	990
SP9	92B	92	8.518	8.510	8.507	8.514	8.518	8.507	8.512	0.011	998
SP10	101	101	8.484	8.482	8.472	8.471	8.484	8.471	8.477	0.013	861
SP15	152-2	152	8.480	8.468	8.478	8.477	8.480	8.468	8.476	0.012	890
SP18	181	181	8.479	8.486	8.470	8.467	8.486	8.467	8.476	0.019	834
SP19	192-2	192	8.471	8.492	8.469	8.493	8.493	8.469	8.481	0.024	889



【肉厚】

種別	識別會	 SNo		管N	lo側			反管	No側		最大値	最小値	平均值	(a)-(b)
	途中	最終品	А	В	С	D	А	В	с	D	(a)	(b)		
SP1	12B	12	0.498	0.500	0.502	0.499	0.496	0.495	0.496	0.494	0.502	0.494	0.498	0.008
SP4	42B	42	0.486	0.488	0.485	0.487	0.491	0.487	0.486	0.488	0.491	0.485	0.487	0.006
SP7	72A	72	0.497	0.495	0.486	0.486	0.492	0.488	0.483	0.480	0.497	0.480	0.488	0.017
SP8	82A	82	0.498	0.496	0.498	0.493	0.494	0.485	0.488	0.491	0.498	0.485	0.493	0.013
SP9	92B	92	0.499	0.499	0.493	0.491	0.496	0.495	0.494	0.494	0.499	0.491	0.495	0.008
SP10	101	101	0.494	0.498	0.499	0.494	0.496	0.494	0.491	0.497	0.499	0.491	0.495	0.008
SP15	152-2	152	0.497	0.493	0.500	0.494	0.499	0.496	0.493	0.496	0.500	0.493	0.496	0.007
SP18	181	181	0.501	0.501	0.496	0.490	0.491	0.493	0.495	0.493	0.501	0.490	0.495	0.011
SP19	192-2	192	0.498	0.497	0.496	0.497	0.496	0.493	0.495	0.495	0.498	0.493	0.496	0.005

	矯正後(反No. 側)													
管No.				外径	[mm]						肉厚	[mm]		
	0°	45°	90°	135°	Ave.	R	矯正前との差	0°	0° 90° 180°		270°	Ave.	R	矯正前との差
11	8.518	8.518	8.519	8.514	8.517	0.005	-	0.523	0.521	0.520	0.521	0.521	0.003	-
12A	8.513	8.506	8.487	8.497	8.501	0.026	0.011	0.509	0.510	0.509	0.509	0.509	0.001	0.006
41	8.468	8.467	8.468	8.468	8.468	0.001	0.002	0.484	0.485	0.486	0.484	0.485	0.002	0.001
42A	8.472	8.475	8.476	8.474	8.474	0.004	-	0.489	0.491	0.490	0.488	0.490	0.003	-
71	8.482	8.481	8.480	8.481	8.481	0.002	0.000	0.499	0.500	0.499	0.498	0.499	0.002	0.003
72B	8.478	8.485	8.482	8.482	8.482	0.007	-	0.499	0.496	0.498	0.499	0.498	0.003	-
81	8.479	8.480	8.481	8.479	8.480	0.002	0.000	0.500	0.501	0.501	0.498	0.500	0.003	0.004
82B	8.483	8.481	8.482	8.482	8.482	0.002	-	0.504	0.497	0.495	0.498	0.499	0.009	-
91	8.484	8.486	8.485	8.484	8.485	0.002	0.002	0.500	0.503	0.507	0.508	0.505	0.008	0.002
92A	8.479	8.485	8.493	8.484	8.485	0.014	-	0.497	0.501	0.508	0.506	0.503	0.011	-
102	8.482	8.483	8.489	8.485	8.485	0.007	0.001	0.505	0.503	0.501	0.505	0.504	0.004	0.002
151	8.489	8.488	8.491	8.487	8.489	0.004	0.004	0.510	0.508	0.510	0.507	0.509	0.003	0.003
152-1	8.484	8.486	8.486	8.490	8.487	0.006	-	0.504	0.506	0.507	0.509	0.507	0.005	-
182	8.489	8.486	8.488	8.487	8.488	0.003	0.002	0.512	0.510	0.504	0.508	0.509	0.008	0.001
191	8.470	8.471	8.470	8.469	8.470	0.002	0.002	0.492	0.490	0.491	0.497	0.493	0.007	0.000
192-1	8.483	8.482	8.488	8.483	8.484	0.006	-	0.506	0.505	0.504	0.501	0.504	0.005	-
最大			_		8.517	0.026	0.011			_		0.521	0.011	0.006
平均					8.485	0.006	0.003	0.502 0.0				0.005	0.002	
最小					8.468	0.001	0.000					0.485	0.001	0.000

表 3.2.3(2)-6 曲げ取り実施後の被覆管寸法(管端・反 No 側)

					5	喬正後	(No. 側)					
管No.			外	·径			肉厚						曲り[mm]
	0°	45°	90°	135°	Ave.	R	0°	90°	180°	270°	Ave.	R	Max
11	8.505	8.505	8.505	8.504	8.505	0.001	0.514	0.513	0.511	0.510	0.512	0.004	0.05
12A	8.502	8.520	8.526	8.506	8.514	0.024	0.510	0.510	0.509	0.510	0.510	0.001	0.20
41	8.476	8.473	8.476	8.476	8.475	0.003	0.493	0.490	0.494	0.491	0.492	0.004	0.20
42A	8.480	8.479	8.479	8.480	8.480	0.001	0.496	0.495	0.494	0.492	0.494	0.004	0.15
71	8.481	8.480	8.483	8.482	8.482	0.003	0.500	0.502	0.500	0.499	0.500	0.003	0.15
72B	8.485	8.484	8.481	8.482	8.483	0.004	0.498	0.497	0.499	0.500	0.499	0.003	0.20
81	8.481	8.483	8.485	8.481	8.483	0.004	0.500	0.499	0.501	0.497	0.499	0.004	0.10
82B	8.483	8.482	8.481	8.483	8.482	0.002	0.496	0.497	0.498	0.496	0.497	0.002	0.20
91	8.488	8.487	8.488	8.486	8.487	0.002	0.501	0.504	0.506	0.504	0.504	0.005	0.10
92A	8.487	8.485	8.486	8.487	8.486	0.002	0.501	0.505	0.508	0.498	0.503	0.010	0.15
102	8.488	8.487	8.488	8.488	8.488	0.001	0.503	0.505	0.505	0.506	0.505	0.003	0.20
151	8.491	8.488	8.484	8.486	8.487	0.007	0.510	0.508	0.506	0.505	0.507	0.005	0.10
152-1	8.492	8.490	8.487	8.486	8.489	0.006	0.510	0.503	0.503	0.515	0.508	0.012	0.20
182	8.488	8.486	8.487	8.487	8.487	0.002	0.512	0.508	0.504	0.506	0.508	0.008	0.15
191	8.485	8.484	8.485	8.486	8.485	0.002	0.504	0.508	0.511	0.503	0.507	0.008	0.20
192-1	8.486	8.488	8.487	8.487	8.487	0.002	0.508	0.506	0.505	0.507	0.507	0.003	0.20
最大	8.514 0.0										0.512	0.012	
平均					8.487	0.004	0.503 0.00					0.005	
最小					8.475	0.001					0.492	0.001	

表 3.2.3(2)-7 曲げ取り実施後の被覆管寸法(管端・No 側)



図 3.2.3(2)-1 SP7(15Cr-7A1)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ





図 3.2.3(2)-2 SP18(14Cr-7.5A1)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ



図 3.2.3(2)-3 SP19(10Cr-7A1)素管の1回目冷間圧延時に発生した管端割れ



図 3.2.3(2)-4 1回目冷間圧延時に粉砕破損した SP13(15Cr-9A1)素管



図 3.2.3(2)-5 1回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ (SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) ※各温度での保持時間は 30min



図 3.2.3(2)-6 2回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ (SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) ※各温度での保持時間は 30min



図 3.2.3(2)-7 3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ (SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10) ※各温度での保持時間は 30min

硬さ(Hv1kg)



図 3.2.3(2)-8 1回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬

さ

(SP15, SP18, SP19) ※各温度での保持時間は 30min



図 3.2.3(2)-9 2回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ



図 3.2.3(2)-10 3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における熱処理後硬

さ

(SP15, SP18, SP19) ※各温度での保持時間は 30min



図 3.2.3(2)-11 3回目圧延まま材の軟化熱処理条件選定試験における代表的な金相組織



図 3.2.3(2)-12 4回目圧延まま材の最終熱処理条件選定試験における熱処理後硬さ(全鋼 種) ※各温度での保持時間は 60min



図 3.2.3(2)-13 4回目圧延まま材の最終熱処理条件(再結晶仕上げ)選定試験における代表的な金相組織



図 3.2.3(2)-14 FeCr および FeCrAl-ODS 鋼の圧延ままおよび熱処理後のビッカース硬さ



外面側



全景



25 µ m

図 3.2.3(2)-15 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP1/管 No.11)



図 3.2.3(2)-16 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP4/管 No.41)



図 3.2.3(2)-17 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP7/管 No.71)



25 µ m

図 3.2.3(2)-18 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP8/管 No.81)



図 3.2.3(2)-19 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP9/管 No.91)



図 3.2.3(2)-20 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP10/管 No.102)



図 3.2.3(2)-21 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP15/管 No.151)



図 3.2.3(2)-22 最終再結晶熱処理後の金相組織(SP18/管 No.181)



図 3.2.3(2)-23 最終再結晶熱処理後の金相組織 (SP19/管 No. 191)



図 3.2.3-24 曲げ取り未実施の被覆管の外観写真(写真奥が SP1、手前が SP19)



図 3.2.3(2)-25 曲げ取り実施仕上げ被覆管の外観写真(写真奥が SP1、手前が SP19)



図 3.2.3(2)-26 素管硬さと加工性の関係



図 3.2.3(2)-27 鋼中の A1 濃度と加工性の関係



図 3.2.3(2)-28 SEM 像から解析した介在物サイズの分布

3.3 超高温用 ODS フェライト鋼被覆管の事故時破損限界評価

3.3.1 高温強度データ取得(再委託先:原子力機構)(H25~H28)

(1) 目的

本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS フェライト鋼被覆管を対象に~1000℃までの温度範囲 で引張試験、クリープ破断試験、急速加熱バースト試験を行い、高温強度データを取得する。

(2)方法

① 超高温クリープ試験

本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管について、内圧クリープ試験、リングクリ ープ試験を実施した。供試材の仕様は、表 3.2.3-1 に示す通りである。被覆管形状(外径 8.5mm、 内径 7.5mm)に加工した全てのロットについて、700℃及び 1000℃の温度条件でクリープ試験デー タを取得した。なお、クリープ試験片形状及びクリープ試験装置は、3.1.1 で示した既存 ODS 鋼 のデータ取得に用いた装置と同じである。

2 高温引張試験

本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼棒材および被覆管について、微小引張試験片(以下、 SS-3 試験片)とリング引張試験片をそれぞれ用いて、室温,300,700℃での高温引張試験を実施 した。引張試験は、原子力機構が所有する引張試験機(ロードセル容量 20kN)を用いて、大気雰 囲気下においてにて実施した。両試験片の引張速度は、5%/min(=歪速度 8.3×10⁻⁴ s⁻¹)と同じに し、試験片が試験温度に到達後 10 分間保持した後に試験を開始した。

③ 超高温引張試験

超高温リング引張試験は、MTS808型引張試験機(ロードセル容量 2500N)を用いて、真空炉(約 2 ×10⁻² Pa)で実施した。試験温度は、1000℃~1300℃とし、試験片が試験温度に到達後 10 分間保持した後、試験を開始した。試験は、作製した全ての鋼種は 1000℃で試験を行い、SP7, 9, 10, 19 のみ 1300℃までの超高温試験を実施した。なお、真空中での試験片と治具の間の摩擦を軽減するため、治具に窒化ホウ素潤滑材を使用した。クロスヘッド移動速度は、0.1 mm/min 一定とし、変位量はクロスヘッド移動量から評価した。本試験では、0.2%オフセット耐力を 0.2%耐力と定義し、一様伸び及び全伸びについては、荷重-変位曲線から算出した。

④ 急速加熱バースト試験

本事業で製造した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼被覆管 (SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10, SP15, SP18, SP19) について、試験周応力 50、100、150MPa、目標昇温速度 5℃/s の試験条件での急速加熱バースト試験を原子力機構が所有する急速加熱バースト試験機を用いて実施した。また、上記被覆管のうち高温引張特性に優れる SP7, SP9, SP10, SP19 に対して、本事業にて整備した高性能急速加熱バースト試験機を用いて、試験周応力 50、100、150MPa、目標昇温速度 0.1℃/s の試験条件での試験を行った。これらの試験は、被覆管から長さ 75mm を切り出し、上部及び下部端栓部に直接通電加熱用の電極を取り付け、上部及び下部電極を取付けた試験片を急速加熱バースト

試験機に固定し、所定の試験応力となるように Ar ガスを負荷させた後、所定の昇温速度を一定に 保ち、試験片が破裂するまで加熱して、試験片の破裂温度を計測した。

⑤ 450℃熱時効試験

作製した全ての被覆管に対して、475℃脆性挙動を評価することを目的に、リング引張試験片を 真空中で 450℃×5000 時間までの熱時効試験を実施した。熱時効後に、室温でクロスヘッド移動 速度 0.1 mm/min 一定の引張試験を実施した。また、試験後の肩部について熱時効前後の硬さ測定 を実施した。

(3) 結果及び考察

① 超高温クリープ試験

FeCrおよびFeCrA1-0DS鋼のリング、内圧クリープ試験結果を表3.3.1-1,2に示す。Zr を添加していないLot SP4、SP7、SP18、SP19(以下、「Zr無添加材」)のクリープ破 断強さを図3.3.1-1、図3.3.1-2に示す。700℃、1000℃ともCr濃度の最も低いLot SP19 は、他のロットよりもクリープ強度がやや高い傾向が認められた。

次に、Zrを添加したLot SP8、SP9、SP10、SP15(以下、「Zr添加材」)のクリープ 破断強さを図3.3.1-3、図3.3.1-4に示す。700℃の温度条件下では、過剰酸素(Ex.0) 濃度の最も高いLot SP10は、他のロットよりも強度特性に優れていた。この傾向は、1 000℃の温度条件下でも同じである。また、1000℃における内圧クリープ試験片の破断 データは、同じロットのリングクリープ試験片よりも短時間側で破断した。3.1.1の既 存0DS鋼のクリープ試験では、両試験片の強度に有意差がみられなかったことから、同 じ試験片形状、試験装置等で実施した本試験の手法に問題は無いと考えられる。超高 温0DS鋼被覆管の均一性等の影響が考えられるが詳細は明らかではない。

既存ODS鋼を含め、代表的なODS鋼のクリープ破断強さを比較して、図3.3.1-5、図3. 3.1-6に示す。図中の破断データはいずれもリング試験片から得られたものである。また、図3.3.1-5には適用温度が650℃~750℃の既存ODS鋼クリープ破断式^(3.1.1-1)から求めた平均傾向線(α_R =1)を示した。700℃の温度条件下では、12Cr-ODS鋼(Lot SP-1、平均傾向線)のクリープ強度が最も高かった。また、FeCrA1-ODS鋼の強度を比較した場合、Zr添加がされており、かつ過剰酸素濃度の高いLot SP10が最も強度特性に優れていた。一方、1000℃ではLot SP10のクリープ強度が最も高かった。Zr添加材のLot SP10のクリープ強度が最も高かった。Zr添加材のLot SP10のついては、低応力・長時間側で9Cr-ODS鋼と12Cr-ODS 鋼の強度を上回る傾向が確認された。

光学顕微鏡を用いて、クリープ試験後の断面ミクロ組織を観察した。観察結果の代 表例を図3.3.1-7に示す。その結果、Zr無添加のLot SP7及びSP19試料の破断部近傍に は、粗大なボイドが数多く観察された。これに対し、Zrが添加されたLot SP9及びSP10 試料では、粗大なボイドはほとんど観察されなかった。また、既存0DS鋼のLot MP23及 びF14試料では、破断部近傍にボイドは発生しているものの、その発生数はLot SP7、S P19よりも少なかった。 走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて、各ロットから抽出した試料を対象に破面観察を 実施した(図3.3.1-8参照)。この結果、Zr無添加のLot SP7及びSP19試料の破面(図 中(a)(b))は、延性破壊(≒粒内破壊)の特徴であるディンプルが観察されたのに対 し、Zr添加材であるLot SP9及びSP10試料(図中(c))、ならびに既存0DS鋼のLot MP23 試料(図中(d))及びF14試料の破面には、明瞭なディンプルは観察されなかった。

クリープ強度に優れるLot SP10について、透過型電子顕微鏡(TEM)による観察(抽 出レプリカ法)を実施した。この観察結果の一例を図3.3.1-9に示す。TEM観察の結果、 クリープ試験後のLot 10には、数nm~数十nm程度の微細なイットリア(複合)酸化物 と数百nm~数µm程度のアルミナやジルコニウムカーバイド等を確認した。なお、同一 ロットの受入れ材(クリープ試験に供する前の試料)についてもほぼ同じ析出物が観 察されている。Lot SP10やSP9が高温強度に優れる一因として、Zr添加によるイットリ ア(複合)酸化物の微細分散が寄与しているものと推察される。

2 高温引張試験

押出棒材と被覆管の引張試験結果をそれぞれ表 3.3.1-3~7 に示す。また、棒材と被覆管の引張 強度の比較を図 3.3.1-10 に示す。300℃の比較では、全て押出棒材に比較し、再結晶組織を有す る被覆管の強度が下がる傾向がみられた。この傾向は、再結晶組織を有する被覆管では結晶粒が 粗大化するためと考えられる。しかしながら、700℃ではこの傾向が逆転しており、現状ではその 理由を特定するには至らなかった。図 3.3.1-11 に 700℃における被覆管の比較を示す。この結果 より、10Cr-7A1(lot SP19), 15Cr-7A1-0.4Zr(lot SP9, 10), 15Cr-7A1(lot SP7)が高温強度特性 に優れることが分かった。そのため、この4 鋼種を FeCrA1-0DS 鋼の有望鋼種と選定し、超高温リ ング引張試験で、RT~1300℃までの様々な温度で、系統的な温度でデータを取得することにした。

③ 超高温引張試験

1000℃の引張試験結果一覧を表 3.3.1-8 に示し、その結果を図 3.3.1-12 に示す。また、高温強 度に優れる SP19, SP7, SP9, SP10 について 1300℃までの試験温度と引張特性の比較を図 3.3.1-13(a)~(d)に示し、結果一覧を表 3.3.1-9~12 に示す。図 3.3.1-13 中には、軽水炉で使用されて いる Zircaloy-2 の引張特性^(3.3.1-1~3)も併せて示した。1000℃の引張特性の比較より、Zr 添加によ り強度・延性共に向上することが分かった。また、FeCrAl-ODS 鋼被覆管は、Zircaloy-2 との比較 より、延性には劣るが、全ての温度域で強度に優れることが分かる。一般的に、強度と延性は、 トレードオフの関係にあることが知られており、強度が上がると延性が低下する傾向が認められ るが、Zr 添加材では強度と延性の両者が向上することが分かった。一方、Cr には若干ではあるが 鉄に対して固溶強化作用があること^(3.3.1-4)が知られているが、SP7(15Cr)と SP19(10Cr)の比較によ り、固溶強化は無視できるレベルであることが分かり、Cr は固溶強化よりむしろ、酸化や腐食に 対する効果の方が大きいと思われる。また、FeCrAl-ODS 鋼被覆管は既存 ODS 鋼被覆管である 12Cr-ODS 鋼被覆管と同様に 1000℃で延性低下が認められること、破面観察で粒界に cavity が多 数観察されることから、1000℃以上で破壊メカニズムが粒内変形から粒界すべりに変化すること が示唆された。

④ 急速加熱バースト試験

FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管 (SP1, SP4, SP7, SP8, SP9, SP10, SP15, SP18, SP19) の急 速加熱バースト試験結果 (昇温速度 5℃/s) を表 3.3.1-13 に示す。また、破裂温度と試験周応力 で整理した昇温速度 5℃/s の場合の試験結果を、9Cr-ODS 鋼 (1ot MP23) 及び 12Cr-ODS 鋼の結果 とともに図 3.3.1-14(a)に示す。従来得られている急速加熱バースト特性と同様に、試験周応力 が高いほど、破裂温度が低下する傾向を示した。また、9Cr-DOS 鋼及び 12Cr-ODS 鋼と比較すると、 概ね FeCrA1-ODS 鋼被覆管の破裂温度は低い傾向を示した。次に、試験周応力 100MPa のデータを 拡大したものを図 3.3.1-14(b)に示す。この結果から、A1 添加により急速加熱バースト特性が低 下するが、Zr、Ti、Ex.0 の添加により急速加熱バースト特性の改善が認められた。特に、SP9, SP10, SP15, SP19 などの鋼種で、9Cr-ODS の急速加熱バースト特性が良好であることが示された。

高温引張特性に優れる SP7, SP9, SP10, SP19 の急速加熱バースト試験結果(昇温速度 0.1℃/s)を、先の昇温速度 5℃/s の試験結果と 9Cr-ODS 鋼(lot MP23)の昇温速度 0.1℃/s 及び 5℃/s での結果と併せて示す(図 3.3.1-15 参照)。その結果、急速加熱バースト特性は SP9, SP10>SP19>SP7 の順で優れる傾向を示し、これは、700℃でのリング引張強度特性の傾向(SP9>SP10>SP19>SP7)とほぼ同様の傾向を示した。したがって、今回実施した鋼種において、急速加熱バースト特性が良好な鋼種は SP9, 10 であった。

次に、鋼種間の急速加熱バースト特性の違いを評価するために実施した急速加熱バースト試験 終了後の破断試料の SEM 観察結果を図 3.3.1-16 に示す。ここで、SP7, SP9, SP10, SP19 の 4 鋼 種のなかで急速加熱バースト特性に優れ Zr 及び Ex.0 を含む SP10 と、その特性に劣り Zr 等を含 まない SP7 を観察対象として選定した。SP7 及び SP10 の破裂温度はそれぞれ 855℃及び 940℃で あった。図 3.3.1-16 から、双方ともに一般的な高温割れで認められるへき開状の破裂であり、脆 性的な破裂形態を示した。また、両鋼種ともに粒界すべりの変形機構により破裂したことを示す 粒界上に沿ったボイド形成が確認されたが、SP10 の方がボイドの発生量が低く、き裂進展の程度 が小さかった。これは、Zr 及び Ex.0 の添加により、熱平衡空格子の見かけ上の拡散性低下(Zr 原子と空格子の結合)に伴う転位の上昇運動の抑制や微細析出物形成に伴う転位のトラッピング 等の影響により、SP10 の方が破裂までの耐性が向上したものと考えられる。

⑤ 450℃熱時効試験

450℃熱時効前後の硬さおよび引張特性の一覧を表 3.3.1-14,15 にそれぞれ示す。また、硬さと 引張特性の関係を図 3.3.1-17 に示す。熱時効前後で明確な硬化と延性低下が認められた。硬化の 割合は、Zr 添加材の方が高い傾向であった。引張試験後の破面観察結果から、破面は劈開破壊を 示し、熱時効脆化が確認された。ただし、引張延性は全伸びで 1%以上は確保していた。

(4) まとめ

① 超高温クリープ試験

・FeCrおよびFeCrAl-ODS鋼被覆管(9ロット)について、リングクリープ試験及び内圧 クリープ試験を実施し、FeCrおよびFeCrAl-ODS鋼被覆管の破損限界評価に資する試 験データを取得した。

- ・700℃、1000℃におけるクリープ強度は、Zr無添加材よりもZr添加材の方が高くなる 傾向が確認された。
- ・Zr添加材と既存ODS鋼(12Cr-ODS鋼、9Cr-ODS鋼)のクリープ強度を比較した場合、
 1000℃の温度条件下ではZr添加材の方が優れた特性を有していた。
- 2 高温引張試験
 - FeCrおよびFeCrAl-ODS鋼被覆管(9ロット)について、300℃および700℃の 引張特性評価を行い、有望鋼種の絞り込みを行った。高温強度特性に優れる10Cr-7A1(lot SP19), 15Cr-7A1-0.4Zr(lot SP9, 10), 15Cr-7A1(lot SP7)をFeCrAl-ODS鋼 の有望鋼種として選定した。

③ 超高温引張試験

- ・上記の選定鋼種について、1300℃までのリング引張試験を実施することで、 FeCrA1-0DS鋼被覆管の破損限界評価に資する試験データを取得した。
- ・ FeCrAl-ODS 鋼被覆管に Zr を添加することで、引張強度と延性が向上することが明らかになった。
- ・ FeCrA1-ODS 鋼(再結晶仕上げ)についても既存 12Cr-ODS 鋼被覆管(再結晶仕上げ)と同様に 1000℃以上で破壊メカニズムが粒内変形から粒界すべりに変化することを示唆する結果を得た。

④ 急速加熱バースト試験

- FeCrおよびFeCrA1-0DS鋼被覆管(9ロット)について、昇温速度約5℃/sで急速加熱 バースト試験を実施し、強度に及ぼす化学組成の影響を評価した結果、Zr、Ti、 Ex.0の添加により急速加熱バースト特性が向上することが明らかになった。
 - ・高温引張試験結果から選定した有望鋼種(SP7, SP9, SP10, SP19)について、昇温速度約0.1℃/sの急速加熱バースト試験データを実施し、FeCrA1-0DS鋼被覆管の破損限 界評価に資する試験データを取得した。

⑤ 450℃熱時効試験

- ・ FeCrA1-ODS 鋼の高速炉被覆管への適用性評価において、重要な項目と考えられる長時間熱時 効後の引張特性評価を実施した。
- ・ FeCrA1-ODS 鋼では、全鋼種で硬化と延性低下が認められた。この硬化傾向は FeCrA1-ODS 鋼の方が大きい傾向にあった。ただし、引張延性は全伸びで 1%以上は確保していた。

参考文献

- 3.3.1-1) A.M. Garde, H.M. Chung, T.F. Kassner, ANL-77-30, ANL report (1977)
- 3.3.1-2) T. Onchi, H. Kayano, Y. Higashiuchi, J. Nucl. Mater. 88(1980)226-235

- 3.3.1-3) E.D. Hindle, D. Worswick, ASTM STP824, D.G. Franklin, R.B. Adamson (Eds.), 1984, pp. 133-156
- 3.3.1-4) W.C. Leslie, *Met. Trans.* 3(1972)5-26

表 3.3.1-1 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼のリングクリープ試験結果

םאראס.	ットNo. 試験片 試験 デザナ 雰囲気		試験片	試験 温度	応力	破断 時間	定常クリープ 速度	破断 位置																
	₩121	芬囲丸	留方	(°C)	(MPa)	(h)	(%/h) ※1	₩2																
			SP1-7	700	240	3.2	9.74E-01	A																
SP1			SP1-10	700	200	27.8	2.75E-02	A																
			SP1-8	700	160	>619.0	1.50E-03	未破断																
			SP1-9	1000	40	1.0	9.84E-01	A																
			SP4-7	700	150	2.2	1.14E+00	A																
SP4			SP4-9	700	00	137 /	1.44E-02	A																
			SP4-10	1000	40	0.3	3.87E+00	Δ																
				SP7-7	700	130	22.9	4 31E-02																
			SP7-9	700	110	53.0	2 76E-02	Δ																
			SP7-10	700	95	111.0	9.66E-03	A																
			SP7-716	700	90	144.0	8.50E-03	A																
			SP7-714	700	80	257.0	4.37E-03	A																
SP7			SP7-8	1000	35	0.6	3.80E+00	A																
			SP7-713	1000	30	1.1	1.80E+00	A																
			SP7-715	1000	20	24.5	1.75E-01	A																
			SP7-718	1000	18	120.8	4.55E-02	A																
			SP7-717	1000	15	293.6	1.30E-02	A																
			SP8-7	700	160	8.3	3.35E-01	A																
SP8			SP8-9	700	120	38.5	4.11E-02	A																
01 0			SP8-10	700	90	185.0	3.57E-03	A																
			SP8-8	1000	40	1.5	2.52E+00	A																
			SP9-7	700	180	2.7	7.16E-01	A																
			SP9-916	700	130	34.5	3.25E-02	A																
			SP9-9	700	120	151.4	6.36E-03	A																
			SP9-913	700	110	133.0	5.78E-03	A																
			SP9-915	700	100	203.9	2.78E-03	A																
SP9			SP9-918	700	90	275.4	3.34E-03	A																
			SP9-930	1000	80	13/8.8	5.01E-04	A																
		アルゴン		SP9-031	1000	30	300.8	8.42E-01	Δ															
	படத்		SP9-914	1000	38	120.5	1.65E-02																	
	,,,,,	ガス中	SP9-917	1000	37	266.7	8 11E-03	A																
																			SP9-8	1000	35	>596.2	5.00E-03	未破断
			SP10-7	700	140	52.1	1.11E-02	A																
			SP10-1012	700	130	82.8	6.80E-03	A																
			SP10-9	700	120	172.0	3.69E-03	A																
			SP10-1010	700	110	256.5	2.52E-03	A																
			SP10-1013	700	100	477.0	9.08E-04	A																
SP10			SP10-1015	700	90	2921.6	4.68E-04	A																
			SP10-1016	1000	60	1.4	1.10E+00	A																
			SP10-1014	1000	50	63.9	3.29E-02	A																
			SP10-1011	1000	45	48.7	3.40E-02	A																
			SP10-10	1000	40	374.9	6.42E-03	A																
			SP10-8	1000	35	>614.0	4.94E-03	未破断																
0045			SP15-7	700	140	39.7	2.84E-02	A																
5415			SP 15-9	1000	120	1/8.1	0.14E-U3	A																
			0F 10-0 QD10 7	700	3/	ö.3	2.01E-01	A A																
			SP18.0	700	120	1.1	4.44E-UI	AA																
SP18			SP18-10	700	90	234 4	5.03E-02	Δ																
			SP18-8	1000	45	0.4	1.01E+01	Δ																
			SP19-1916	700	130	45.9	2.93F-02	A																
			SP19-7	700	120	62.5	1.89E-02	A																
			SP19-8	700	110	156.0	6.72E-03	A																
			SP19-1913	700	100	80.3	7.37E-03	A																
			SP19-1915	700	90	247.2	4.36E-03	A																
SP19			SP19-9	1000	35	1.7	1.32E+00	A																
			SP19-10	1000	30	2.7	7.19E-01	A																
			SP19-1930	1000	22	9.8	2.11E-01	A																
			SP19-1914	1000	20	17.8	8.79E-02	A																
			SP19-1918	1000	18	156.0	1.81E-02	A																
1			SP19-1917	1000	15	>600.0	3.21E-03	未破断																

※1 定常クリープ速度はプルロッドの移動量から求めた(参考値)。 ※2 破断位置の定義



表 3. 3. 1-2 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼の内圧クリーブ試験

םארNo.	試験片	試験	試験片	試験 温度	応力	破断 時間	ふくれ率	破断 位置	破損形態
	形状	雰囲気	番号	(°C)	(MPa)	(h)	(%)	<u></u> %1	
SP1			SP1-1	700	110.0	813.7	_	端栓溶接部	_
SP4			SP4-1	700	110.0	59.2	0.26	径方向 B' 長さ方向 ③・④の間	Fissure
			SP7-1	700	110.0	42.1	_	端栓溶接部	-
SP7			SP7-6	700	95.0	164.0	0.93	径方向 C 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP7-7	700	80.0	425.0	0.89	径方向 B 長さ方向 ①・②の間	Fissure
SP8			SP8-1	700	110.0	89.2	1.07	径方向 A 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP9-5	700	130.0	89.0	0.56	径方向 C 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP9-1	700	110.0	484.1	0.37	径方向 C' 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
SPO			SP9-6	700	95.0	>3660	_	未破断	_
313			SP9-4	1000	46.8	1.5	_	端栓溶接部	_
			SP9-3	1000	43.5	2.7	0.79	径方向 A 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
			SP9-7	1000	39.3	10.0	0.78	径方向 D 長さ方向 ③・④の間	Fissure
	内圧 (Aタイプ)	アルゴン ガス中	SP10-6	700	130.0	267.9	0.37	径方向 A 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP10-1	700	110.0	484.3	_	端栓溶接部	_
			SP10-7	700	95.0	>1848.7	_	未破断	_
SP10			SP10-3	1000	53.5	1.0	0.80	径方向 A' 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP10-5	1000	48.5	9.4	_	端栓溶接部	_
			SP10-4	1000	43.5	43.9	0.95	径方向 A' 長さ方向 ②・③の間	Fissure
			SP10-8	1000	37.6	138.5	1.04	径方向 D 長さ方向 ⑥・⑦の間	Fissure
SP15			SP15-1	700	110.0	455.2	0.67	径方向 A 長さ方向 ①・②の間	Fissure
SP18			SP18-1	700	110.0	96.2	1.23	径方向 B 長さ方向 ③・④の間	Fissure
			SP19-1	700	110.0	142.4	0.86	径方向 C' 長さ方向 ②・③の間	Fissure
SP10			SP19-5	700	100.0	239.7	0.54	径方向 A 長さ方向 ⑤・⑥の間	Fissure
51 19			SP19-6	700	90.0	350.5	0.38	径方向 A 長さ方向 ①・②の間	Fissure
			SP19-7	1000	27.6	1.1	1.02	径方向 C 長さ方向 ③・④の間	Fissure

※1 破断位置の定義


御任	試験片 朝印	引張速度	試験温度	単性限界応力	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	破断伸び	7世座(古里
述 问 个里	刻印	[mm/min]	[°C]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]	1010月11日。
CD1	1-1	0.381	300	783.2	902.7	973.6	8.04	17.89	下
511	1-2	0.381	300	744.8	876.8	949.6	8.24	17.43	上
CD2	2-1	0.381	300	760.9	885.9	971.9	8.44	17.08	上
SP2	2-2	0.381	300	759.1	876.3	960.7	8.51	17.51	上
SD2	3-1	0.381	300	573.0	695.5	859.4	10.50	17.32	下
515	3-2	0.381	300	594.5	699.1	859.5	10.38	17.28	上
SD4	4-1	0.381	300	619.2	711.7	871.4	8.58	17.88	上
514	4-2	0.381	300	572.3	703.9	865.5	8.36	17.80	上
SD5	5-1	0.381	300	615.4	725.4	884.8	11.10	18.01	下
515	5-2	0.381	300	601.5	716.1	876.7	10.46	17.84	下
SD4	6-1	0.381	300	617.2	769.0	935.9	10.56	16.68	下
5P0	6-2	0.381	300	646.3	766.1	929.4	10.48	16.70	下
SD7	7-1	0.381	300	659.7	788.2	946.9	10.73	17.66	下
5P /	7-2	0.381	300	659.0	792.4	957.1	10.96	17.44	下
CDQ	8-1	0.381	300	699.5	813.2	978.1	9.35	16.28	上
51.9	8-2	0.381	300	675.7	807.6	970.5	9.70	16.64	上
SDO	9-1	0.381	300	690.4	841.5	1005.5	9.36	16.43	上
517	9-2	0.381	300	712.6	849.2	1011.4	9.16	16.49	上
SP10	10-1	0.381	300	713.1	845.9	1014.9	9.25	16.04	上
SP 10	10-2	0.381	300	682.9	845.4	1017.8	9.55	15.93	上
SD11	11-1	0.381	300	707.6	811.2	969.4	9.42	16.13	上
5111	11-2	0.381	300	700.2	803.5	959.8	9.48	16.21	上
SD12	12-1	0.381	300	676.7	851.7	1041.2	9.84	16.00	上
SP 12	12-2	0.381	300	697.9	849.5	1034.1	9.92	16.29	上
SD12	13-1	0.381	300	743.6	866.6	1054.9	10.16	16.89	上
SP 15	13-2	0.381	300	717.2	862.8	1050.5	9.85	16.18	上
SD14	14-1	0.381	300	721.6	879.1	1066.0	10.44	16.85	上
5114	14-2	0.381	300	734.9	872.8	1058.3	9.99	16.86	上
SD15	15-1	0.381	300	685.8	840.7	1013.4	9.51	16.06	上
5115	15-2	0.381	300	701.8	835.1	1012.2	9.78	16.98	上
SD16	16-1	0.381	300	759.9	895.5	1089.9	9.10	15.16	上
SP 10	16-2	0.381	300	719.6	888.0	1090.1	10.10	15.84	上
SD17	17-1	0.381	300	725.0	872.4	1065.5	9.07	15.57	上
SP 17	17-2	0.381	300	757.4	879.4	1066.0	9.52	15.95	上
CD10	18-1	0.381	300	660.4	802.0	987.8	10.08	16.40	上
5118	18-2	0.381	300	693.6	815.4	990.5	9.82	16.30	上
CD10	19-1	0.381	300	657.1	765.5	934.3	10.43	16.86	上
5119	19-2	0.381	300	607.8	758.1	930.7	10.50	16.76	下
SD20	20-1	0.381	300	582.2	699.1	856.6	8.17	17.09	上
SP20	20-2	0.381	300	614.8	702.2	860.2	10.36	17.27	下

表 3. 3. 1-3 本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼棒材の引張試験結果(1/2)

鋼種	試験片	引張速度	試験温度	単性限界応ナ	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	破断伸び	
鎆種	刻印	[mm/min]	[°C]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]	
CD 1	1-1	0.381	700	260.2	350.0	366.0	6.39	35.20	中央部
SPT	1-2	0.381	700	288.9	351.0	366.5	6.59	35.27	中央部
CD2	2-1	0.381	700	237.2	319.6	339.2	7.36	34.27	上部
SP2	2-2	0.381	700	261.0	326.6	348.6	7.55	34.81	中央部
CD2	3-1	0.381	700	136.3	197.4	218.5	1.84	83.98	中央部
585	3-2	0.381	700	136.7	209.0	222.6	1.25	85.12	中央部
SD4	4-1	0.381	700	168.1	213.4	225.4	1.19	78.43	上部
5P4	4-2	0.381	700	159.7	205.2	223.2	1.82	78.47	中央部
SD 5	5-1	0.381	700	166.7	220.6	232.5	1.04	69.64	上部
585	5-2	0.381	700	180.3	220.3	231.1	1.39	73.40	上部
SD(6-1	0.381	700	167.6	211.0	226.1	1.55	72.42	上部
SPO	6-2	0.381	700	144.6	216.9	229.2	1.16	73.63	上部
SD7	7-1	0.381	700	176.8	221.0	231.3	1.16	76.93	上部
SP /	7-2	0.381	700	170.6	215.1	231.2	1.60	77.51	上部
CDO	8-1	0.381	700	168.0	229.8	239.6	1.05	96.72	中央部
51.9	8-2	0.381	700	188.6	234.2	245.2	1.19	94.52	上部
SDO	9-1	0.381	700	186.2	227.4	242.4	1.46	101.80	上部
519	9-2	0.381	700	170.5	235.4	246.9	0.95	81.52	上部
SP10	10-1	0.381	700	185.6	243.4	256.3	1.17	67.66	上部
5110	10-2	0.381	700	177.3	241.3	256.4	1.39	82.64	上部
SD11	11-1	0.381	700	147.9	218.1	232.9	1.22	87.14	上部
5P11	11-2	0.381	700	173.8	217.0	229.6	1.47	85.10	上部
SD12	12-1	0.381	700	144.0	203.4	222.5	1.75	86.70	中央部
SP 12	12-2	0.381	700	140.6	208.0	221.4	1.21	77.70	上部
SD12	13-1	0.381	700	147.8	211.5	226.0	1.23	81.02	上部
5115	13-2	0.381	700	168.2	212.8	224.1	1.47	72.55	上部
SD14	14-1	0.381	700	151.0	215.8	234.6	2.51	78.61	上部
5114	14-2	0.381	700	142.6	216.0	231.3	1.29	68.50	上部
SD15	15-1	0.381	700	145.0	230.4	245.7	1.20	80.06	上
51 15	15-2	0.381	700	185.8	234.8	246.1	1.27	83.22	上
SP16	16-1	0.381	700	167.9	246.4	263.5	1.39	79.26	中心
51 10	16-2	0.381	700	170.8	256.8	269.0	0.96	63.28	上
SP17	17-1	0.381	700	190.3	243.0	255.3	1.10	75.63	上
5117	17-2	0.381	700	164.4	242.3	258.8	1.37	63.49	上
SD18	18-1	0.381	700	124.8	206.2	220.9	1.59	99.05	中心
51 16	18-2	0.381	700	144.0	203.6	218.8	1.70	82.66	上
SP10	19-1	0.381	700	137.7	203.9	223.1	2.25	85.07	上
51 19	19-2	0.381	700	122.0	201.6	219.6	1.65	76.87	上
SP20	20-1	0.381	700	150.9	211.4	224.4	1.34	92.38	上
SP20	20-2	0.381	700	150.4	208.0	223.2	1.78	75.97	上

表 3.3.1-4 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼棒材の引張試験結果(2/2)

细插(lat)	刻印No	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	弾性限界応力	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
୬₱1里(10t)	×1 H1100	[°C]	[mm]	[mm/min]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
CD 1	1-3	25	2.00	0.1	684.4	854.1	995.3	5.02	14.31
SF1	1-4	25	2.00	0.1	661.7	840.4	986.9	5.46	17.55
CD4	4-3	25	2.00	0.1	573.3	709.1	866.0	5.64	15.16
514	4-4	25	2.00	0.1	513.0	639.9	783.3	4.95	9.88
SD7	7-3	25	2.00	0.1	626.7	781.1	927.4	6.55	14.06
Sr/	7-4	25	2.00	0.1	614.9	766.8	933.3	6.51	13.92
CDO	8-3	25	2.00	0.1	610.2	737.9	903.6	8.73	25.22
51.9	8-4	25	2.00	0.1	597.7	729.9	908.3	9.39	24.85
SDO	9-3	25	2.00	0.1	617.3	791.4	964.6	8.19	11.24
519	9-4	25	2.00	0.1	618.2	783.3	976.3	7.68	15.82
SP10	10-3	25	2.00	0.1	643.4	802.9	985.5	8.63	9.17
31 10	10-4	25	2.00	0.1	629.4	794.2	985.8	7.87	14.88
SD15	15-3	25	2.00	0.1	625.3	762.3	931.6	8.94	21.92
3115	15-4	25	2.00	0.1	600.3	742.4	926.9	8.93	28.34
CD 19	18-3	25	2.00	0.1	670.4	817.5	985.4	7.82	18.42
5110	18-4	25	2.00	0.1	663.6	804.5	984.7	7.91	18.37
SD10	19-3	25	2.00	0.1	642.0	802.6	945.2	6.38	14.36
5r 19	19-4	25	2.00	0.1	633.8	787.9	949.9	6.43	14.22

表 3.3.1-5 本事業で製作した FeCr および FeCrAl-ODS 鋼被覆管の高温リング引張試験結果一覧(1/3)

鋼種(lot) 刻印No.	如何和	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	弾性限界応力	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
꽤/里(101)	≫] H₁ NO.	[°C]	[mm]	[mm/min]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
CD1	1-5	300	2.00	0.1	579.1	705.7	824.6	3.83	12.80
SP1	1-6	300	2.00	0.1	574.2	691.7	825.7	3.84	10.44
CD 4	4-5	300	2.00	0.1	457.2	574.6	747.9	5.04	11.55
5P4	4-6	300	2.00	0.1	423.5	528.6	721.5	5.00	12.61
CD7	7-5	300	2.00	0.1	546.3	660.7	846.9	6.08	7.93
SP /	7-6	300	2.00	0.1	548.5	667.9	839.3	5.80	12.51
CDO	8-5	300	2.00	0.1	491.2	632.1	818.1	7.92	23.87
51.9	8-6	300	2.00	0.1	469.4	619.9	824.4	8.01	16.69
CD0	9-5	300	2.00	0.1	538.2	675.2	879.1	7.22	13.84
519	9-6	300	2.00	0.1	536.3	647.4	879.0	7.72	14.95
SB10	10-5	300	2.00	0.1	537.1	686.5	895.9	7.99	12.44
SP10	10-6	300	2.00	0.1	539.5	660.2	882.4	7.08	9.35
CD 15	15-5	300	2.00	0.1	524.5	656.4	854.2	8.19	16.31
5P15	15-6	300	2.00	0.1	506.3	637.6	861.1	8.52	19.62
CD 19	18-5	300	2.00	0.1	566.6	696.2	905.5	6.97	15.01
5P18	18-6	300	2.00	0.1	560.7	699.3	899.4	6.85	11.67
SB10	19-5	300	2.00	0.1	570.4	699.8	857.4	5.98	11.05
5119	19-6	300	2.00	0.1	568.7	694.0	844.7	5.23	10.93

表 3.3.1-6 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管の高温リング引張試験結果一覧(2/3)

细菇(1-4)	如何和	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	弾性限界応力	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
迦叭↑里(lOt)	烈H1 N0 .	[°C]	[mm]	[mm/min]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
SD 1	1-1	700	2.00	0.1	186.6	236.9	285.4	6.83	20.75
SP1	1-2	700	2.00	0.1	185.7	234.6	285.7	5.93	22.69
SD4	4-1	700	2.00	0.1	155.6	208.8	239.8	2.19	18.07
514	4-2	700	2.00	0.1	169.2	210.9	238.6	2.22	18.62
SD7	7-1	700	2.00	0.1	172.3	213.6	240.7	2.93	16.06
SF /	7-2	700	2.00	0.1	168.1	208.7	236.7	2.67	16.38
CD 0	8-1	700	2.00	0.1	160.6	206.4	232.8	3.56	26.66
51.9	8-2	700	2.00	0.1	169.1	213.2	235.1	3.19	29.98
SDO	9-1	700	2.00	0.1	172.7	220.7	267.7	2.90	17.13
519	9-2	700	2.00	0.1	175.2	230.4	263.5	3.25	22.24
SP10	10-1	700	2.00	0.1	180.3	218.3	261.2	2.79	22.17
51 10	10-2	700	2.00	0.1	183.0	232.6	262.3	3.38	20.24
SD15	15-1	700	2.00	0.1	174.8	217.4	239.0	3.15	29.27
51 15	15-2	700	2.00	0.1	172.8	220.7	243.3	2.60	29.10
CD 19	18-1	700	2.00	0.1	157.8	215.5	244.2	2.84	22.39
51 16	18-2	700	2.00	0.1	155.9	213.7	242.8	3.32	21.79
SB10	19-1	700	2.00	0.1	183.7	232.9	254.4	2.36	16.40
51 19	19-2	700	2.00	0.1	181.6	226.7	258.9	2.52	13.93

表 3.3.1-7 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管の高温リング引張試験結果一覧(3/3)

綱種	試驗片	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
鋼種	ID	[°C]	[mm]	[mm/min]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
	1_09	1000	2.0	0.1	126.8	136.9	1.44	4.45
SP1	1_10	1000	2.0	0.1	123.2	135.2	1.52	4.50
	1_11	1000	2.0	0.1	116.5	126.9	0.93	3.88
	4_09	1000	2.0	0.1	109.0	109.3	0.24	1.19
SP4	4_10	1000	2.0	0.1	96.0	96.6	0.28	2.24
-	4_11	1000	2.0	0.1	116.5	116.6	0.23	2.24
	7-11	1000	2.0	0.1	91.9	92.2	0.30	1.98
-	7-12	1000	2.0	0.1	101.6	106.9	0.62	4.61
SP7	7-09	1000	2.0	0.1	99.3	103.1	0.43	2.02
-	7-10	1000	2.0	0.1	109.1	111.6	0.42	2.41
-	7-13	1000	2.0	0.1	_	96.5	0.11	1.28
	8_09	1000	2.0	0.1	104.6	113.9	1.44	5.89
SP8	8_10	1000	2.0	0.1	107.7	116.0	1.28	4.08
_	8_11	1000	2.0	0.1	98.2	112.3	1.73	5.37
	9-11	1000	2.0	0.1	_	105.2	0.09	1.43
SDO	9-09	1000	2.0	0.1	117.7	132.4	1.03	3.34
519	9-12	1000	2.0	0.1	124.7	126.5	0.41	2.54
	9-13	1000	2.0	0.1	122.5	123.4	0.47	2.96
	10-11	1000	2.0	0.1	123.9	131.5	1.08	3.52
SP10	10-12	1000	2.0	0.1	122.1	123.3	0.37	2.20
	10-13	1000	2.0	0.1	112.0	115.8	0.51	2.72
	15_09	1000	2.0	0.1	109.5	125.1	1.60	4.50
SP15	15_10	1000	2.0	0.1	113.1	123.9	1.44	3.93
	15_11	1000	2.0	0.1	100.8	125.7	2.15	5.43
	18_09	1000	2.0	0.1	105.5	111.2	0.90	3.04
SP18	18_10	1000	2.0	0.1	98.4	108.4	1.04	2.77
	18_11	1000	2.0	0.1	97.8	108.2	1.06	3.13
	19_11	1000	2.0	0.1	111.7	114.3	0.40	2.10
SP10	19_09	1000	2.0	0.1	_	104.7	0.20	1.18
5117	19_12	1000	2.0	0.1	108.5	108.9	0.27	1.03
	19_13	1000	2.0	0.1	117.2	117.5	0.26	1.18

表 3.3.1-8 1000℃の超高温引張試験結果一覧

鋼種(lot)	大山 GD NT	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	歪速度	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
ച്¶↑里(lOt)	》[H1 NO .	[°C]	[mm]	[mm/min]	s-1	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
SP7	7-3	25	2.00	0.1	8.33E-04	781.1	927.4	6.55	14.06
SP7	7-4	25	2.00	0.1	8.33E-04	766.8	933.3	6.51	13.92
SP7	7-5	300	2.00	0.1	8.33E-04	660.7	846.9	6.08	7.93
SP7	7-6	300	2.00	0.1	8.33E-04	667.9	839.3	5.80	10.01
SP7	718	400	2.00	0.1	8.33E-04	662.9	784.6	4.42	11.24
SP7	719	400	2.00	0.1	8.33E-04	663.6	778.1	4.61	11.90
SP7	720	500	2.00	0.1	8.33E-04	533.2	603.2	3.38	25.41
SP7	721	500	2.00	0.1	8.33E-04	527.6	605.9	3.12	28.96
SP7	722	600	2.00	0.1	8.33E-04	318.8	374.2	2.71	31.54
SP7	723	600	2.00	0.1	8.33E-04	320.5	369.5	2.85	22.60
SP7	7-1	700	2.00	0.1	8.33E-04	213.6	240.7	2.93	15.29
SP7	7-2	700	2.00	0.1	8.33E-04	208.7	236.7	2.67	11.38
SP7	724	800	2.00	0.1	8.33E-04	161.1	185.0	1.74	10.09
SP7	725	800	2.00	0.1	8.33E-04	165.3	187.8	2.27	10.74
SP7	726	900	2.00	0.1	8.33E-04	120.2	126.3	0.71	6.50
SP7	727	900	2.00	0.1	8.33E-04	123.2	137.9	1.12	3.16
SP7	7-11	1000	2.00	0.1	8.33E-04	91.9	92.2	0.30	1.98
SP7	7-12	1000	2.00	0.1	8.33E-04	101.6	106.9	0.62	4.61
SP7	7-9	1000	2.00	0.1	8.33E-04	99.3	103.1	0.43	2.02
SP7	7-10	1000	2.00	0.1	8.33E-04	109.1	111.6	0.42	2.41
SP7	7-13	1000	2.00	0.1	8.33E-04		96.5	0.11	1.28
SP7	SP7_711	1100	2.00	0.1	8.33E-04	57.3	58.6	0.42	1.42
SP7	SP7_712	1100	2.00	0.1	8.33E-04	55.4	60.2	0.57	1.57
SP7	SP7_734	1100	2.00	0.1	8.33E-04	56.3	57.3	0.36	1.19
SP7	SP7_735	1200	2.00	0.1	8.33E-04	29.7	30.1	0.33	0.75
SP7	SP7_736	1200	2.00	0.1	8.33E-04	34.5	37.5	0.52	1.12
SP7	SP7_737	1200	2.00	0.1	8.33E-04	29.9	32.4	0.53	1.93
SP7	SP7_738	1300	2.00	0.1	8.33E-04	13.6	13.8	0.22	0.48
SP7	SP7_739	1300	2.00	0.1	8.33E-04	12.1	12.8	0.54	1.59
SP7	SP7_740	1300	2.00	0.1	8.33E-04	13.0	14.5	0.65	1.21

表 3.3.1-9 超高温引張試験結果一覧 [1/4]

鋼種(lot)	如印Na	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	歪速度	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
迦 作里 (lOL)	烈日1100.	[°C]	[mm]	[mm/min]	s-1	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
SP9	9-3	25	2.00	0.1	8.33E-04	791.4	964.6	8.19	11.24
SP9	9-4	25	2.00	0.1	8.33E-04	783.3	976.3	7.68	15.82
SP9	9-5	300	2.00	0.1	8.33E-04	675.2	879.1	7.22	12.82
SP9	9-6	300	2.00	0.1	8.33E-04	647.4	879.0	7.72	11.76
SP9	918	400	2.00	0.1	8.33E-04	655.7	778.6	5.32	8.93
SP9	919	400	2.00	0.1	8.33E-04	624.8	797.0	5.52	10.35
SDO	920	500	2.00	0.1	8.33E-04	490.2	590.0	4.71	23.17
519	921	500	2.00	0.1	8.33E-04	522.2	602.2	4.50	28.56
SP9	922	600	2.00	0.1	8.33E-04	312.5	366.4	3.54	36.66
SP9	923	600	2.00	0.1	8.33E-04	313.8	369.5	3.41	34.75
SP9	9-1	700	2.00	0.1	8.33E-04	220.7	267.7	2.93	12.71
SP9	9-2	700	2.00	0.1	8.33E-04	230.4	263.5	3.25	13.01
SP9	924	800	2.00	0.1	8.33E-04	173.9	198.7	2.36	11.04
SP9	925	800	2.00	0.1	8.33E-04	175.6	196.7	2.34	11.17
SP9	926	900	2.00	0.1	8.33E-04	127.0	153.6	1.39	7.28
SP9	927	900	2.00	0.1	8.33E-04	139.2	155.2	1.32	7.46
SP9	9-11	1000	2.00	0.1	8.33E-04		105.220	0.09	1.43
SP9	9-9	1000	2.00	0.1	8.33E-04	117.690	132.441	1.03	3.34
SP9	9-12	1000	2.00	0.1	8.33E-04	124.659	126.489	0.41	2.54
SP9	9-13	1000	2.00	0.1	8.33E-04	122.468	123.389	0.47	2.96
SP9	SP9_910	1100	2.00	0.1	8.33E-04	85.1	93.0	0.74	2.38
SP9	SP9_911	1100	2.00	0.1	8.33E-04	85.4	93.1	0.74	1.78
SP9	SP9_933	1100	2.00	0.1	8.33E-04	81.6	88.6	0.67	2.75
SP9	SP9_934	1200	2.00	0.1	8.33E-04	44.9	50.8	0.95	2.62
SP9	SP9_935	1200	2.00	0.1	8.33E-04	42.5	53.5	1.28	2.78
SP9	SP9_936	1200	2.00	0.1	8.33E-04	41.5	46.9	0.63	1.86
SP9	SP9_937	1300	2.00	0.1	8.33E-04	18.3	27.0	1.42	3.86
SP9	SP9_938	1300	2.00	0.1	8.33E-04	20.1	27.5	1.41	4.29
SP9	SP9_939	1300	2.00	0.1	8.33E-04	18.9	26.8	1.75	4.99

表 3.3.1-10 超高温引張試験結果一覧 [2/4]

御廷のい	大山丘口入工	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	歪速度	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
쾟性(lot)	≫lHiNo.	[°C]	[mm]	[mm/min]	s-1	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
SP10	10-3	25	2.00	0.1	8.33E-04	802.9	985.5	8.63	9.17
SP10	10-4	25	2.00	0.1	8.33E-04	794.2	985.8	7.87	14.88
SP10	10-5	300	2.00	0.1	8.33E-04	686.5	895.9	7.99	12.44
SP10	10-6	300	2.00	0.1	8.33E-04	660.2	882.4	7.08	9.35
SP10	1018	400	2.00	0.1	8.33E-04	651.9	803.3	6.32	16.24
SP10	1019	400	2.00	0.1	8.33E-04	665.4	808.2	6.27	11.31
SP10	1020	500	2.00	0.1	8.33E-04	514.7	608.9	4.20	25.65
SP10	1021	500	2.00	0.1	8.33E-04	524.3	611.2	4.56	28.86
SP10	1022	600	2.00	0.1	8.33E-04	328.7	376.4	3.37	35.06
SP10	1023	600	2.00	0.1	8.33E-04	311.0	374.6	3.62	37.53
SP10	10-1	700	2.00	0.1	8.33E-04	218.3	261.2	2.79	16.41
SP10	10-2	700	2.00	0.1	8.33E-04	232.6	262.3	3.38	16.64
SP10	1024	800	2.00	0.1	8.33E-04	178.2	199.1	2.04	10.28
SP10	1025	800	2.00	0.1	8.33E-04	169.0	196.5	2.35	10.75
SP10	1026	900	2.00	0.1	8.33E-04	139.5	158.1	1.45	8.54
SP10	1027	900	2.00	0.1	8.33E-04	132.6	150.8	1.01	4.82
SP10	10-11	1000	2.00	0.1	8.33E-04	123.900	131.499	1.08	3.52
SP10	10-12	1000	2.00	0.1	8.33E-04	122.064	123.330	0.37	2.20
SP10	10-13	1000	2.00	0.1	8.33E-04	111.950	115.750	0.51	2.72
SP10	SP10_1030	1100	2.00	0.1	8.33E-04	82.5	95.6	1.36	3.68
SP10	SP10_1031	1100	2.00	0.1	8.33E-04	80.9	93.3	1.13	3.44
SP10	SP10_1032	1100	2.00	0.1	8.33E-04	84.4	95.7	1.13	2.70
SP10	SP10_1033	1200	2.00	0.1	8.33E-04	50.3	56.7	1.01	3.49
SP10	SP10_1034	1200	2.00	0.1	8.33E-04	48.6	59.0	1.83	4.65
SP10	SP10_1039	1200	2.00	0.1	8.33E-04	43.5	60.7	2.35	5.63
SP10	SP10_1037	1300	2.00	0.1	8.33E-04	16.4	26.2	1.61	5.72
SP10	SP10_1040	1300	2.00	0.1	8.33E-04	19.4	25.3	1.29	3.54
SP10	SP10_1041	1300	2.00	0.1	8.33E-04	12.6	25.4	1.90	4.57

表 3.3.1-11 超高温引張試験結果一覧 [3/4]

鋼種(lot)	友II FEI NI-	試験温度	ゲージ長さ	引張速度	歪速度	0.2%耐力	引張強さ	一様伸び	全伸び
到 作里 (IOL)	》[14]110.	[°C]	[mm]	[mm/min]	s-1	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
SP19	19-3	25	2.00	0.1	8.33E-04	802.6	945.2	6.38	14.36
SP19	19-4	25	2.00	0.1	8.33E-04	787.9	949.9	6.43	14.22
SP19	19-5	300	2.00	0.1	8.33E-04	699.8	857.4	5.98	11.05
SP19	19-6	300	2.00	0.1	8.33E-04	694.0	844.7	5.23	10.93
SP19	1918	400	2.00	0.1	8.33E-04	713.0	808.1	3.53	9.54
SP19	1919	400	2.00	0.1	8.33E-04	659.1	806.5	3.58	13.13
SP19	1920	500	2.00	0.1	8.33E-04	508.1	610.7	3.14	27.27
SP19	1921	500	2.00	0.1	8.33E-04	531.4	616.8	3.15	28.10
SP19	1922	600	2.00	0.1	8.33E-04	348.2	390.2	2.70	26.87
SP19	1923	600	2.00	0.1	8.33E-04	334.5	390.8	2.96	28.50
SP19	19-1	700	2.00	0.1	8.33E-04	232.9	254.4	2.36	12.74
SP19	19-2	700	2.00	0.1	8.33E-04	226.7	258.9	2.52	11.89
SP19	1924	800	2.00	0.1	8.33E-04	188.7	207.1	1.61	5.65
SP19	1925	800	2.00	0.1	8.33E-04	187.7	204.9	1.52	5.94
SP19	1926	900	2.00	0.1	8.33E-04	150.3	151.2	0.31	2.23
SP19	1927	900	2.00	0.1	8.33E-04	134.9	147.9	0.86	3.48
SP19	19-11	1000	2.00	0.1	8.33E-04	111.700	114.284	0.40	2.10
SP19	19-09	1000	2.00	0.1	8.33E-04		104.679	0.20	1.18
SP19	19-12	1000	2.00	0.1	8.33E-04	108.451	108.893	0.27	1.03
SP19	19-13	1000	2.00	0.1	8.33E-04	117.230	117.542	0.26	1.18
SP19	SP19_1910	1100	2.00	0.1	8.33E-04		72.2	0.14	0.52
SP19	SP19_1911	1100	2.00	0.1	8.33E-04		72.8	0.18	0.59
SP19	SP19_1933	1100	2.00	0.1	8.33E-04	57.3	57.3	0.22	0.37
SP19	SP19_1934	1200	2.00	0.1	8.33E-04		32.3	0.17	0.32
SP19	SP19_1935	1200	2.00	0.1	8.33E-04	37.9	40.4	0.43	0.98
SP19	SP19_1936	1200	2.00	0.1	8.33E-04	33.6	33.9	0.27	0.46
SP19	SP19_1937	1300	2.00	0.1	8.33E-04	14.7	19.0	0.77	1.64
SP19	SP19_1938	1300	2.00	0.1	8.33E-04	16.2	21.3	1.05	2.75
SP19	SP19_1939	1300	2.00	0.1	8.33E-04	13.3	19.9	0.84	1.60

表 3.3.1-12 超高温引張試験結果一覧 [4/4]

鋼種	試験周応力	昇温速度	破裂温度
	[MPa]	[°C/s]	[°C]
	50		1246
SP1	100		1099
	150		976
	50		1148
SP4	100		1013
	150		870
	50		1204
SP8	100		1048
	150		929
	50		1234
SP15	100		1089
	150		967
	50		1200
SP18	100	5	1041
	150		928
	50		1183
SP7	100		1031
	150		895
	50		1217
SP9	100		1079
	150		956
	50		1203
SP10	100		1074
	150		989
	50		1224
SP19	100		1073
	150		947
	50		974
SP7	100		855
	150		793
	50		1067
SP9	100	0.1	920
	150	0.1	827
SP10	100		940
	50		1013
SP19	100		858
	150		814

表 3. 3. 1-13 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 被覆管の 急速加熱バースト試験結果

Material	Condition	Average of Vickers hardness	Max	Min	$\Delta \mathrm{Hv}$	Hardness ratio
		[Hv 0.5]	[Hv 0.5]	[Hv 0.5]	[Hv 0.5]	[%]
10Cr 2W/SD1	As-received	322.0	10.7	6.9	14.6	4.5
1201-2 W/SF1	Aged at 450 C for 5000 h	307.5	26.0	11.4	-14.0	-4.5
15C= 5 A 1/SD4	As-received	284.3	6.5	10.1	82.7	20.4
15CI-5AV 5F4	Aged at 450 C for 5000 h	368.0	9.1	8.4	65.7	29.4
15C= 7A 1/SD7	As-received	310.1	9.6	15.2	(2.5	20.2
15CI-/AVSF/	Aged at 450 C for 5000 h	372.6	8.6	10.3	02.5	20.2
150-741047-0070/808	As-received	317.9	9.3	8.1	106.0	22.6
15Cr-7A1-0.4Zr0.07O/SP8	Aged at 450 C for 5000 h	424.8	13.4	12.4	100.9	55.0
150-741047-0140/800	As-received	329.8	9.0	9.5	81.0	24.6
15CI-/AI-0.4210.140/SF9	Aged at 450 C for 5000 h	410.9	23.3	16.0	81.0	24.0
15C+ 7A10 47+0 210/SD10	As-received	332.6	9.7	14.8	70.2	22.6
13CI-7A1-0.4210.21073F10	Aged at 450 C for 5000 h	411.8	15.4	12.0	19.2	23.8
15C- 7A 0.07-/0015	As-received	322.7	10.1	7.3	72.2	22.4
15CF-/AI-0.22E/SP15	Aged at 450 C for 5000 h	394.9	6.4	12.9	12.2	22.4
15C= 7.5 A (SD19	As-received	317.3	8.1	6.3	57.0	18.0
15CI-7.5A/5F16	Aged at 450 C for 5000 h	374.5	14.9	21.4	51.2	18.0
10Cr 7AUSD10	As-received	305.1	7.2	13.4	40.7	13.3
10CT-/AI/SP19	Aged at 450 C for 5000 h	345.8	10.1	11.3	40.7	

表 3.3.1-14 450℃熱時効前後の硬さ結果一覧

(備考)

∠HV=(熱時効後の硬さ平均)-(製造まま材の硬さ平均)
Hardness ratio = ∠Hv÷(製造まま材の硬さ平均)

Material	ID No.	Test temp.	0.2% proof stress	Ultimate tensile strength	Uniform elongation	Total elongation
		[degree C]	[MPa]	[MPa]	[%]	[%]
12Cr-2W/SP1	014(As)	23	830.6	970.8	5.54	18.47
	001(Aged)	23	859.4	1006.1	5.56	16.29
	002(Aged)	23	866.8	1007.5	4.84	15.12
15Cr-5Al/SP4	414(as)	23	713.8	834.9	4.92	9.48
	401(Aged)	23	979.1	1101.2	2.48	5.94
	402(Aged)	23	969.1	1053.3	2.72	4.88
15Cr-7AI/SP7	744(As)	23	677.8	821.7	7.42	13.56
	701(Aged)	23	1031.5	1140.0	3.28	7.21
	702(Aged)	23	1023.6	1148.7	3.34	6.90
15Cr-7Al-0.4Zr0.07O/SP8	814(As)	23	758.8	909.8	7.79	23.38
	801(Aged)	23	1031.5	1140.0	3.28	7.21
	802(Aged)	23	1023.6	1148.7	3.34	6.90
15Cr-7A1-0.4Zr0.14O/SP9	943(As)	23	787.1	953.3	8.54	22.66
	901(Aged)	23	1130.2	1246.8	2.88	2.88
	902(Aged)	23	1102.3	1201.5	1.28	1.28
15Cr-7A1-0.4Zr0.21O/SP10	1043(As)	23	794.8	977.9	8.66	16.17
	1001(Aged)	23	1096.1	1215.0	3.74	3.97
	1002(Aged)	23	1098.5	1204.2	2.89	3.75
15Cr-7Al-0.2Zr/SP15	1514(As)	23	753.2	920.6	8.88	23.96
	1501(Aged)	23	1000.1	1126.6	5.72	7.35
	1502(Aged)	23	982.3	1113.2	3.84	3.84
15Cr-7.5A/SP18	1814(As)	23	825.5	978.3	7.00	19.73
	1801(Aged)	23	1015.2	1129.3	4.61	11.72
	1802(Aged)	23	934.7	1070.1	2.76	5.78
10Cr-7A1/SP19	1943(As)	23	857.6	967.6	4.05	15.48
	1901(Aged)	23	997.8	1106.0	2.67	7.03
	1902(Aged)	23	1030.6	1168.8	4.89	10.44

表 3. 3. 1-15 450℃熱時効前後の室温引張特性結果一覧



[※]内圧クリープ試験片は相当応力

図 3.3.1-1 700℃における Zr 無添加材のクリープ破断強さ



図 3.3.1-2 1000℃における Zr 無添加材のクリープ破断強さ



```
※内圧クリープ語酸片は相当応力
```





※内圧クリープ語酸片は相当応力

図 3.3.1-4 1000℃における Zr 添加材のクリープ破断強さ



図 3.3.1-5 700℃における代表的な 0DS 鋼のクリープ破断強さ



図 3.3.1-6 1000℃における代表的な ODS 鋼のクリープ破断強さ

3.3-24



573.0h)

図 3.3.1-7 0DS 鋼リングクリープ試験片の断面組織観察結果



図 3.3.1-8 ODS 鋼リングクリープ試験片の主破断面の SEM 観察結果



ロット:SP10(15Cr-7Al-0.4Zr-0.21Ex.O) クリープ試験条件:1000℃、35MPa、614h

図 3.3.1-9 クリープ試験後の Zr 添加材の TEM 観察結果

ZrC

mil 6.0



図 3.3.1-10 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼棒材と被覆管の 300℃と 700℃の引張強度の比較



図 3.3.1-11 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管の 700℃における引張特性の比較



図 3.3.1-12 1000℃での超高温リング引張特性比較 (a)引張強度,(b)引張延性



図 3.3.1-13 SP7, 9, 10, 19のリング引張特性 (a) 0.2%耐力, (b) 引張強度, (c) 一様伸び, (d) 全伸び 3.3-30



図 3.3.1-14 本事業で製作した FeCr および FeCrA1-ODS 鋼被覆管の急速加熱バースト試験結果(5℃/s)、(a)全応力レベルの結果、(b) 100M Pa のデータのみ



図 3.3.1-15 SP7, SP9, SP10, SP19 の急速加熱バースト試験結果



図 3.3.1-16 SP7 及び SP10 の急速加熱バースト試験後破断面観察結果



図 3.3.1-17 熱時効前後の硬さと引張特性の変化比較 (a) 0.2%耐力,(b) 引張強度,(c) 一様伸び,(d) 全伸

3.3.2 高温加熱による微細組織変化の評価

事故時短時間高温保持によって引き起こされる再結晶挙動を高温 In-situ 電子顕微鏡 観察により評価するとともに、酸化物粒子の形態変化と粗大化を調査し、高温での強度 低下との関連を明らかにすることを目的とした。

(1) Ex-situ 高温保持試験による酸化物粒子粗大化挙動の評価(H26~27)

事故時の高温における酸化物粒子粗大化挙動を調査するため、SP7, SP10 の押出棒を 供試材として選定し、真空炉において 1350℃, 27h までの高温保持を行い、保持前後の 試料の TEM 観察から酸化物粒子の平均サイズと数密度を計算した。高温保持条件・TEM 観察試料作製方法は 3.1.2(1)と同様である。図 3.3.2-1 に、高温保持前後の酸化物粒 子概観を、図 3.3.2-2 に、高温保持後の酸化物粒子サイズ・数密度を 9Cr-ODS の場合と 比較して示す。SP7, SP10 ともに、1350℃, 27h の高温保持後の平均サイズは 9Cr-ODS 鋼の場合よりも遥かに大きい。9Cr-ODS 鋼中の酸化物粒子が主に Y-Ti 複合酸化物であ るのに対し、SP7, 10 は粗大な Y-A1 複合酸化物が形成しているためであると考えられ る。

高温保持温度・時間と酸化物粒子の平均サイズの関係を用いて、酸化物粒子の成長予 測式を 3.1.2(1)節と同様の手法によって構築した。SP7,10の拡散機構は転位または粒 界拡散であり、拡散の活性化エネルギーはそれぞれ 520kJ/mol,821kJ/mol となった。 これらの値は 9Cr-ODS 鋼の場合(891kJ/mol)よりも低いものの、文献から得られる Fe 中 の Y の値よりも遥かに大きい。9Cr-ODS 鋼の場合と同様に、Y-A1,Y-Zr 複合酸化物の構 成元素が高温まで酸化物粒子から放出されにくいことに因ると考えられる。図 3.3.2-3 に、1350℃、27h 高温保持後の酸化物粒子の高分解能 TEM 像とその FFT 図を示す。格子 像解析から、SP7 に含まれる酸化物粒子は主に YAP(YA10₃),YAM(Y₄A1₂0₉)であり、SP10 に含まれる酸化物粒子の殆どは Y₄Zr₃0₁₂であった。

図 3.3.2-2 から、SP10 の 1350℃, 27h 保持後の酸化物粒子は、同じ条件で高温保持 した SP7 の酸化物粒子よりも大きくなったことがわかる。SP10 には Zr 添加によって Y-A1 複合酸化物よりも微細な Y-Zr 複合酸化物が多く形成しているはずであり、SP7 より も SP10 の酸化物粒子のほうが高温で著しく成長している結果は、予測に反する。オス トワルド式(3.1.2-1)を書き換えると

$$r^{n} - r_{0}^{n} = a \cdot \left(DC_{0} \gamma (V_{m})^{2} \right) / (RT) \cdot t$$
(3. 3. 2-1)

と表され、ここで*a*は拡散機構によって変化する値、*D*は最も移動が遅い酸化物粒子 構成元素の拡散係数、 C_0 は酸化物粒子構成元素の固溶限、 γ は酸化物粒子-マトリクス 界面エネルギー、 V_m は酸化物粒子の体積率である。(3.3.2-1)式において酸化物粒子に よって決定される値は*D*, C_0 , γ である。しかし、図 3.3.2-4 に示すように、本研究 において解析した 1350℃, 27h 保持後の酸化物粒子から得られた γ (Zener の式より $\gamma = E_0 \theta (A - \ln \theta)$, $E_0 \sim 0.1 Gb$, $\theta = b/h = \delta = (d_P - d_M)/d_P$: *G* は剛性率、*b* は 母相の転位のバーガースベクトル、*d*_P, *d*_M はそれぞれ酸化物粒子,母相の面間隔)⁽¹⁾ と酸化物粒子のサイズには相関が無いことが分かった。一方で、文献⁽²⁻⁶⁾から 1350℃に おける *D*, *C*₀ は 表 3.3.2-1 の通りであり、2r 添加材において最も著しい成長が見ら れる原因にはならない。ここで、1350℃における酸化物形成自由エネルギーを文献⁽⁷⁻¹⁰⁾ から計算した結果を表 3.3.2-2 に示す。表 3.3.2-2 を見ると、1350℃においては Y₄2r₃0₁₂ が想定される酸化物粒子の間で最も不安定であることが分かる。以上から、事 故時の高温においては酸化物自体の安定性(酸化物粒子からの構成元素の放出率)が酸化 物粒子粗大化挙動に影響し、相対的に安定性の低い Y₄2r₃0₁₂を含む SP10 において、酸化 物粒子が最も成長したと考えられる。一方で、1350℃、27h 高温保持後の酸化物粒子の 体積率は SP7 において 2.2%、SP10 において 2.4%であり、酸化物粒子がより大きく成長 した SP10 のほうが大きくなった。A1, Zr を添加した場合の形成し得る酸化物粒子のマ スバランスを考える必要があるが、酸化物粒子が粗大化しても、Zr 添加した SP10 のほ うが酸化物粒子分散間隔は小さくなること、即ち高温強度は SP10 においてより保たれ ることが示唆される。

(2) In-situ TEM 内昇温試験による微細組織安定性の評価(H27~28)

H27 年度は加熱による再結晶挙動を観察し易くするために、SP13 押出棒材を押出方向 に 80%まで冷間圧延した試料から収束イオンビームを用いて TEM 観察用薄膜を切り出し、 TEM 鏡筒内で最高 1200℃までの昇温試験を行った。試料作製の仕上げ加工に低エネルギ ーイオンミリング装置(H25 導入)、In-situ TEM 内昇温試験に TEM 用一軸加熱ホルダ (H26 導入)を用いた。図 3.3.2-5 に結果を示す。800℃以上において、冷間圧延によっ て導入される転位の回復が始まり、1000℃における長時間保持によって僅かな再結晶粒 の生成が見られたが、1200℃まで昇温しても再結晶は殆ど起こらなかった。

H27 年度の結果を踏まえ、H28 年度は、被覆管の事故時高温における組織安定性を評価するため、SP7, 10 被覆管材から TEM 試料を収束イオンビームによって切り出し、 TEM 鏡筒内で 8℃/min の昇温速度(約 0.3℃/sec、急速加熱バースト試験のより過酷側の 条件を想定)で昇温した。試料作製の仕上げ加工に低エネルギーイオンミリング装置 (H25 導入)、In-situ TEM 内昇温試験に TEM 用一軸加熱ホルダ(H26 導入)を用いた。図 3.3.2-6 にそれぞれの試験片の結果を示す。SP7, 10 ともに、950℃以上の温度で若干の 粒内転位の回復が見られたが、薄膜が昇温に耐え切れなくなる温度まで、二次再結晶 (異常粒成長)等の組織変化は観察されなかった。

(3) Ex-situ 高温保持試験による被覆管再結晶挙動の評価(H27~28)

In-situ TEM 内昇温試験では観察が不可能であった 1200℃以上の高温において、二 次再結晶の有無を調査するために、SP7,10 被覆管を対象とし、1400℃,最大5hまで の大気中高温保持試験を行った。保持後の試料はビッカース硬さ試験とEBSD による集 合組織の観察から評価した。図3.3.2-7 に、高温保持前後試料のビッカース硬さを示す。 温度上昇、保持時間の増加とともに硬さは低下する。高温保持開始時に硬さの低下が著 しいが、これは転位の回復に因るものと考えられる。SP7 の硬さ低下の方が、SP10 のも のよりも大きかった。これは 3.3.2(1)節で得られた酸化物粒子の体積率から予測され る結果と整合する。図 3.3.2-8 に、EBSD 解析から得られた高温保持前後試料の結晶粒 径の温度依存性を示す。SP7, SP10、いずれの試料のどの高温保持条件においても、結 晶粒の大きさは概ね一定(誤差の範囲内)であり、二次再結晶(異常粒成長)が起きなかっ たことが分かる。一般に、二次再結晶の駆動力は

 $\Delta G = \Delta G_V + \Delta G_h$

(3. 3. 2 - 2)

と表され、ここで ΔG_V は転位による再結晶の駆動力、 ΔG_b は結晶粒界の消失による駆動力である。本研究の被覆管材は再結晶材であるため、 $\Delta G_V \sim 0$ と見做すことができる。 ΔG_b の成分である粒界エネルギーEは

$$E = E_0 \theta (A - \ln \theta)$$

(3. 3. 2–3)

 θ は粒界のミスオリエンテーション、 E_0 , Aは定数である。4回圧延後の再結晶組織 は、 $\{110\}$ <(111>に配向した典型的な再結晶集合組織であり、 θ が小さくなることが考え られる。また、この組織には対応粒界が多く含まれているため、大きな θ であっても粒 界エネルギーは低くなると考えられる。更に再結晶材の場合は元々の結晶粒径が大きく、 粒界の密度が低いため、これも ΔG_b を小さくする要因となる。以上のことから、被覆 管材は 1400℃の高温保持後でも二次再結晶が起きなかったと考えられる。

参考文献

- N. Oono, Q. Tang and S. Ukai, "Oxide particle refinement in Ni-based ODS alloy," Materials Science & Engineerig A, vol. 649, pp. 250-253, 2016.
- (2) D. Murali, B. Panigrahi, M. Valsakumar and C. Sundar, "Diffusion of Y and Ti/Zr in bcc iron: A first principles study," J. Nucl. Mater., vol. 419, pp. 208-212, 2011.
- (3) W. Zhang, G. Liu and K. Han, "Fe-Y (Iron-Yttrium)," in Binary Alloy Phase Diagrams Vol. 2. Fe-Ru to Zn-Zr, Metals Park, Ohio, American Society for Metals, 1986, pp. 1793-1794.
- (4) U. Kattner, "Al-Fe (Aluminum-Iron)," in Binary Alloy Phase Diagrams Vol.1, Metals Park, Ohio, American Society for Metals, 1986, pp. 147-148.
- (5) J. Murray, "The Fe-Ti (Iron-Titanium) System," Bulletin of Alloy Phase Diagrams, vol. 2, no. 3, pp. 320-322, 1981.
- (6) H. Okamoto, "Fe-Zr (Iron-Zirconium)," J. Phase Equilib. Diff., vol. 27, pp. 543-544, 2006.

- (7) O. Fabrichnaya, G. Savinykh, G. Schreiber and H. Seifert, "Phase Relations in the Zr02-Nd203-Y203 System: Experimental Study and Advanced Thermodynamic Modeling," J. Phase Eq. Diffus., vol. 32, pp. 284-297, 2011.
- (8) L. Li, O. Biest, P. Wang, J. Vleugels, W. Chen and S. Huang, "Estimation of the phase diagram for the ZrO2-Y2O3-CeO2 system," J. Europ. Ceram. Soc., vol. 21, pp. 2903-2910, 2001.
- (9) T. Schaedler, O.Fabrichanaya and C. Levi, "Phase equilibria in the TiO2-YO1.5-ZrO2 system," J. Europ. Ceram. Soc., vol. 28, pp. 2509-2520, 2008.
- (10) O. Fabrichnaya, H. Seifert, T. Ludwig, F. Aldinger and A. Navrotsky, "The assessment of thermodynamic parameters in the A1203-Y203 system and phase relations in the Y-A1-O system," Schand. J. Metall., vol. 30, pp. 175-183, 2001.



図 3.3.2-1 高温保持前後の酸化物粒子概観(90r-0DS 鋼も参照として掲載)



図 3.3.2-2 高温保持前後の酸化物粒子サイズ・数密度



SP10

SP7



図 3.3.2-3 1350℃, 27h 保持後の酸化物粒子格子像解析(P:酸化物粒子、M:母相)



表 3.3.2-1 各酸化物粒子構成元素に対する D, C₀

Element	<i>C</i> _ℓ [wt. %]	<i>D_V</i> [m²⋅s⁻¹]
AI	>20	2.3×10 ⁻¹⁴
Zr	1~2	3.7×10 ⁻¹⁴
Ti	~7	7.6×10 ⁻¹¹
Y	<1	2.4×10 ⁻¹⁵

表 3.3.2-2 各酸化物の 1350℃における形成エネルギー

oxide	<i>Q</i> _ℓ[kJ·mol -1]
YAIO ₃ (YAP)	-2080
Y ₄ Zr ₃ O ₁₂	-1595
Y ₂ Ti ₂ O ₇	-4515
Y ₂ O ₃ (cubic)	-2218



図 3.3.2-5 SP13 押出→80%圧延材の昇温試験における微細組織変化

SP7





図 3.3.2-7 高温保持後のビッカース硬さ



図 3.3.2-8 高温保持後の被覆管材の結晶粒径(保持温度 3h で統一)

3.3.3 破損限界評価(再委託先:原子力機構)(H25~H28)

(1)目的

3.3.1 で拡充した高温強度データに基づき、FeCrA1-ODS フェライト鋼被覆管の高温強度式 を策定する。策定式を用いて、FeCrA1-ODS フェライト鋼被覆管を適用した場合の高速炉の 代表的事故事象における燃料破損に対する裕度を評価する。

(2) 方法

3.3.1 で拡充した FeCrA1-ODS 鋼被覆管の強度データを用いて、ライフ・フラクション・ ルール(Life fraction rule; 寿命分数和)に基づく任意の応力・温度上昇速度での被覆管破 損寿命予測式を策定し、高速炉の事故事象を想定し、被覆管破損限界を評価した。

(3) 結果及び考察

① 被覆管破損寿命予測式の策定

FeCrAl-ODS 鋼は、十分にデータのある既存の 12Cr-ODS 鋼と同じ再結晶フェライト鋼で あり、挙動も非常に似ていることから、3.1.3 で検討・策定した考え方と同様に、変形・ 損傷メカニズムが明確なクリープ試験データと引張試験データを個別に定式化した。即 ち、既存 ODS 鋼被覆管と同様に、FeCrAl-ODS 鋼被覆管についても損傷モード(クリープ 損傷、引張(非熱的塑性変形)による損傷)を考慮した定式化を行った。策定した強度式 を図 3.3.1-1 に示す。今回の定式化は、有望鋼種である Zr 添加材を対象とし、SP9 およ び SP10 のデータを用いた。

高速炉の事故事象に対する破損限界評価

FeCrA1-ODS フェライト鋼の被覆管についても原型炉「もんじゅ」と実証炉の JSFR にお ける事故時(ULOF、UTOP)の破損限界評価を実施した。評価条件は 3.1.3 と全く同様で ある。図 3.3.3-2~図 3.3.3-4 に FeCrA1-ODS 鋼の破損寿命強度を周応力と破断時間との 関係で 9Cr-ODS 鋼、12Cr-ODS 鋼と比較して示す。図より FeCrA1-ODS 鋼は 700℃では強度 が 9Cr-ODS 鋼や 12Cr-ODS 鋼の既存 ODS フェライト鋼には劣るが、950℃では強度が高く、 開発の目的通り極めて高い温度条件で高い破損寿命を有する被覆管材料である。

FeCrA1-ODS 鋼被覆管の定常照射末期の CDF は以下の通であり、PNC316 と同程度の値となった。

- ・原型炉:1.02E-5
- ・実証炉:9Cr-ODS 鋼:1.95E-2

ULOF、UTOP における FeCrA1-ODS 鋼被覆管の CDF の履歴を 9Cr-ODS 鋼、12Cr-ODS 鋼と 比較して図 3.3.3-5~図 3.3.3-8 に示す。FeCrA1-ODS 鋼の場合、原型炉、実証炉とも LOF の経過時間が長くなると CDF が 9Cr-ODS 鋼、12Cr-ODS 鋼を下回るようになるが、これは 破損寿命強度に示されるように、ULOF に代表されるような極めて高い温度環境下でも高 い強度を維持できるという特性を反映した結果となっている。
- (4) まとめ
- ・FeCrA1-ODS 鋼被覆管について、高温強度データから破損寿命予測式を策定した。
- ・策定した破損寿命予測式を用いて、高速炉の事故事象を想定した FeCrA1-ODS 鋼被覆管の 破損限界評価を実施した。その結果、FeCrA1-ODS 鋼の場合、原型炉、実証炉とも LOF の 経過時間が長くなると CDF が 9Cr-ODS 鋼、12Cr-ODS 鋼を下回るようになることが分かっ た。



(a) 0.2%耐力以下(クリープ評価用), (b) 0.2%耐力以上(引張評価用)



図 3.3.3-2 破損寿命式の比較(定常照射条件に対応)



図 3.3.3-3 破損寿命式の比較(高温度条件(ULOF)に対応)



図 3.3.3-4 破損寿命式の比較(高応力条件(UTOP)に対応)



図 3.3.3-5 ULOF における被覆管の CDF 履歴(原型炉)



図 3.3.3-6 UTOP における被覆管の CDF 履歴(原型炉)



図 3.3.3-7 ULOF における被覆管の CDF 履歴(実証炉)



図 3.3.3-8 UTOP における被覆管の CDF 履歴(実証炉)

3.4 軽水炉燃料被覆管への適用技術開発

3.4.1 1200℃までの水蒸気酸化試験

(1)目的

1200℃での水蒸気中酸化試験を行い、水蒸気酸化速度と各構成元素濃度(Cr, Al, Zr, 過 剰酸素)との関係を明らかにする。

(2) 実験方法

第1期製造材である SP1~SP14 を対象に水蒸気酸化試験に先立ち、大気中 1,200℃での酸 化試験を行った。ここでは比較材として MA956 を用いた。大気中酸化試験結果を踏まえて実 施した水蒸気酸化試験は、第1期製造材、及び第2期製造である SP1~SP20 を対象に水蒸気 中 1,200℃で行い、水蒸気酸化に及ぼす Cr 濃度、Al 濃度、Zr 濃度、過剰酸素量の影響を評 価した。また、水蒸気酸化試験は 1100℃、1000℃でも実施し、水蒸気酸化に及ぼす試験温度 の影響を評価した。さらに、これらの結果を踏まえて Zr と過剰酸素の適切な添加量や酸化 メカニズムの詳細を調査するために SP7^{SP10}, SP15^{SP17}を対象に 1200℃, 1300℃, 1400℃ で大気中酸化試験を行った。これらの試料の化学成分を表 3.4.1-1 に示す。

SP1~SP14 を対象に行った大気中 1,200℃での酸化試験片と、SP1~SP20 を対象に行った 水蒸気中 1,200℃での酸化試験片は、押出し棒材から約 14×10×1.5mm に切り出し、全面を 耐水研磨紙によって、80 番、240 番、400 番、800 番、1200 番の順に湿式研磨した。最後に 3 μ mのダイヤモンドペーストで鏡面研磨を施した。特にコーナー部やエッジ部には滑らかな 曲率を設け、それらの部位から酸化が選択的に進行することを防いだ。その後、超音波洗浄 機を用いてアセトン液中で脱脂洗浄を行って酸化試験に供した。SP7⁻SP10, SP15⁻SP17 を対 象に行った 1200℃, 1300℃, 1400℃での大気中酸化試験片は押出棒材から約 10×6×2mm に 切り出し、全面を耐水研磨紙によって、80 番、240 番、400 番、600 番、800 番、1200 番、 1500 番、2000 番の順に湿式研磨した。最後に 3 μ m、1 μ mのダイヤモンドペーストで鏡面研 磨を施した。その後、超音波洗浄機を用いてアセトン液中で脱脂洗浄を行って酸化試験に供 した。

大気中酸化試験は 1200℃, 1300℃, 1400℃に加熱したスーパーファーネス電気炉内に試 験片を挿入し、一定時間後に炉冷して試験片を取り出し重量測定を繰り返すことにより、酸 化挙動の経時変化を評価した。一方、水蒸気酸化試験は装置を一部改造して実施した。図 3.4.1-1 に水蒸気酸化試験装置の模式図を示す。アルミナ製反応管内に試験片をセットした 後、管内を減圧し超高純度アルゴンガスで置換した。その後、昇温速度 10℃/min で電気炉 の温度を 1,200℃まで上昇させた。試験片の温度が 1,200℃一定になった後、50 ppb まで溶 存酸素を低減させた純水を 300℃に加熱し水蒸気にして反応管内に挿入して、酸化試験を開 始した。反応管内の温度は 1,200℃であり、挿入した水蒸気はアルミナボールを装填した反 応容器内で 1,200℃に加熱されるようにした。試験片は温度が 1200℃±5℃になる範囲にセ ットした。一定時間の酸化試験後、水蒸気を止め、反応管内を減圧した状態で試験片を炉冷 した。

重量測定は精密天秤を用いて行い、試験前後の重量の差より重量変化を求め、試験片の 表面積で除したものを単位当たりの酸化量として評価した。酸化被膜の断面観察と元素分析 は、1µmまでバフ研磨を施した後、FE-SEMと FE-EPMA により行った。

(3) 結果と考察

① 酸化速度の Cr 濃度、Al 濃度依存性(1200℃)

試料 SP3~SP20 の水蒸気中及び大気中での 100 時間までの酸化試験結果をそれぞれ図 3.4.1-2 と図 3.4.1-3 に示す。0.35Zr で過剰酸素が 0.09wt%と低い SP8 を除くと、重量増加は バンドの範囲にあり、放物線則に従っていることが分かる。そこで、横軸を時間(秒)のル ートで取り直線回帰することにより、酸化速度定数 kp (g・cm⁻²s^{-0.5})を求めた結果を図 3.4.1-4 に示す。SP8 と SP9 を除くと、kp は 1~2×10⁻⁶ g・cm⁻²s^{-0.5}にあり、これは FeCrA1 合 金で報告されている範囲内である ^(3.4.1-1)。

水蒸気中、大気中での重量増加の Cr 濃度依存性を図 3.4.1-5 と図 3.4.1-6 にそれぞれ示す。 7A1、9A1 では重量増加は Cr 濃度依存性をほとんど示さないが、5A1 では Cr 濃度の増加に伴 い、逆に酸化重量は増加している。その傾向は大気中酸化の方が顕著である。

そこで、5A1 で 12Cr 材と 18Cr 材について酸化スケール断面を観察した。18Cr-5A1 材のス ケール断面の EPMA による元素分析結果を図 3.4.1-7 に示す。高 Cr 材では酸化がノジュール 的に進行し、その部位で Ti が濃化している。しかし、ノジュールでない部位でも高 Cr 材の 酸化スケールは厚く成長しており、Ti の影響だけでないと考えられる。このことは、Ti や Y203を含有しない Fe-12Cr-5A1 材と Fe-18Cr-5A1 材をアーク溶解で作製し、大気中 1200℃で の酸化試験でも、18Cr 含有材では著しく酸化が進行したことから、高 Cr 材での酸化促進は、 Ti や Y203の影響ではないと言える。そこで、アルミナスケールの結晶粒を TEM で観察した結 果を図 3.4.1-8 に示す。12Cr-5A1 材の酸化スケールは、表面部分にわずかに微細粒が存在す るが、スケールのほとんど全てが粗大な等軸晶で構成されており、結晶粒径は 0.82µm であ った。一方 18Cr-5A1 材の酸化スケールは表面から 35%程度が等軸晶で構成されており、スケ ール内方には柱状晶が形成している。このスケールの短辺方向の結晶粒径は 0.57µm であり、 12Cr 材の方が結晶粒径の大きなスケールを形成していた。アルミナの内方成長は酸素の粒界 拡散によって支配されることから、18Cr-5A1 材においては、より粒界の多いアルミナスケー

水蒸気中 1200℃で 100 時間の高温酸化を行った図 3.4.1-4 の結果をより放物線速度定数 kp と切片 Y を用いて重量増加を表す。

∠W=kp√t+Y

速度定数 Kp は形成したスケールの成長速度を表す傾きであるから、その切片 Y は酸化初期に 形成した遷移酸化物の量、すなわち、 α - Al₂0₃の成長が始まる直前のスケール形成量である と見なせる。図 3.4.1-9 は切片 Y と Cr 濃度の関係を Al 濃度の異なるそれぞれについてプロ ットした図である。また、図 3.4.1-10 は kp と Cr 濃度の関係である。これらの図から 100 時 間での酸化増量の大きい 18Cr-5Al 材では初期の酸化量が少なく、kp が最も大きくなっている。 すなわち、18Cr-5Al 材では酸化初期から微細な結晶粒径を有する α - Al₂0₃が形成し、そのた めアルミナの成長速度が大きかったと考えられる。

② 酸化速度に及ぼす Zr 濃度、過剰酸素濃度の影響(1200℃)

Zr 添加なしの SP7 と Zr を 0.35 wt%添加した SP8、SP9、SP10 について、100 時間までの水 蒸気酸化による重量増加を放物線プロットし、16 時間までと 16 時間以降に分けて、直線回帰 することにより、それぞれの酸化速度定数(kp)を求めた結果を図 3.4.1-11 に示す。0.35Zr 添加で過剰酸素が 0.09wt%と低い SP8 では、16 時間以前よりもそれ以降で酸化速度が増大し ている。これに対し過剰酸素が 0.15wt%の SP9、0.22wt%の SP10 の酸化速度は 16 時間以降で 低下し、Zr 添加なしの SP7 の酸化速度に近づいている。SP8 の酸化スケールの EPMA による元 素分布測定結果を図 3.4.1-12 に示す。Zr (Zr02)がスケール内側に高密度に存在しているこ とが分かる。これより、16 時間以前では A1 の外方拡散支配で表面にアルミナが生成したが、 16 時間以降では内部に生成した Zr02を介する酸素の内方拡散支配となり、その結果、Zr02内 の酸素拡散は桁違いに大きいことから、酸化が促進されたものと考えられる。アルミナ中に Zr02が生成することが酸化スケールの成長を加速したと考えられ、過剰酸素を増加して Zr を 酸化物粒子との複合酸化物の形で固定し、アルミナスケール内への Zr 拡散を抑制すれば、酸 化促進を抑制できることがわかっている。図 3.4.1-13 に示すように、水蒸気酸化の場合にお いても、過剰酸素/Zr モル比を 2.0 以上にすれば酸化を抑制できることが示された。

さらに、SP15、SP16、SP17 についても水蒸気酸化試験を行った。これらの 1200℃×100 時間での水蒸気酸化重量増加と Zr 濃度の関係を図 3.4.1-14 に示す。これらの試料の Ex.0/Zr モル比はそれぞれ SP15=3.95、SP16=3.88、SP17=4.66 であり、十分な過剰酸素を添加して Ex.0/Zr モル比を 2.0 以上に設定しているにもかかわらず、酸化増量は Zr 濃度とともに増加 する結果となった。これは Zr のオーバードープ効果と考えられる。

③ 1100℃、1000℃での水蒸気酸化

Zr 無添加の SP7、及び 0.35Zr で過剰酸素が 0.09wt%の SP8 と 0.22wt%の SP10 について、 1100℃での水蒸気酸化試験結果を 16 時間までと 16 時間以降に区別して、酸化重量増加を放 物線プロットし酸化速度定数を求めた結果を図 3.4.1-15 に示す。同様に、1000℃での水蒸気 酸化試験結果を図 3.4.1-16 に示す。1200℃、1100℃、1000℃での酸化速度定数をアレーニウ スプロットした結果を図 3.4.1-17 に示す。これまで述べてきた通り、過剰酸素が低い SP8 の 酸化速度定数は比較的大きいが、過剰酸素を高めた SP10 の酸化速度定数は FeCrA1 ステンレ ス合金である APMT^(3.4.1-1)と同等レベルであり、Zr を含有しない SP7 はそれらよりさらに低い 酸化速度定数を挙ることが明らかになった。

④ 大気中 1400℃までの酸化試験による Zr と過剰酸素の影響評価

図 3.4.1-18-図 3.4.1-20 に大気中において 1400℃で 9h 酸化された試料に対して EPMA を用 いて行った元素分析の結果を示す。いずれの試料においても表面にアルミナスケールが形成 している。SP7 のスケールにクラックや剥離が認められる。また、SP8 は非常に厚いスケール を形成するとともに、その内部に多数の Zr 酸化物を含んでいる。SP10 は 1400℃でも Zr 酸化 物をほとんど含まない平滑なスケールを形成している。図 3.4.1-21, 図 3.4.1-22 に NFD で行 われた 1400℃での水蒸気酸化試験後の試料に対して EPMA を用いて行った元素分析の結果を示 す。大気中酸化試験と同様に、Zr 無添加材には割れやクラックが見られ、Zr 添加で耐酸化性 の改善がみられる。

図 3.4.1-23 に 0.4wt.%Zr 試料における各試験温度での過剰酸素量と Kp の関係を示す。こ れより、いずれの温度でも 0.15wt.%以上の過剰酸素が添加されると酸化が大幅に抑制される ことがわかる。1400℃では、特に過剰酸素量が 0.22wt.%で酸化量が最も小さくなった。図 3.4.1-24 に、過剰酸素を十分に添加した試料における各試験温度での Zr 量と Kp の関係を示 す。1200℃と 1300℃では、過剰酸素の効果によって酸化は抑制されているが、Zr 量の増加と ともに酸化量はわずかに大きくなっている。しかし、1400℃では SP7 が著しく酸化し、Zr 添 加材では酸化を大きく抑制できた。また、Zr の添加量が 0.4wt.%のときに最も優れた耐酸化 性を示した。

以上より、1400℃では Zr を添加しないと 9h でアルミナスケールにクラックや剥離が生じ たのに対し、Zr を添加するとスケールの密着性が改善され、SP10 の組成(0.35wt% Zr、 0.22wt%過剰酸素)が最も耐酸化性に優れることが明らかになった。

⑤ 熱力学計算ソフト(FactSage)による解析

アルミナスケール内に Zr0₂が形成されると、それが酸素の拡散パスとなるため酸素の内方 拡散が促進され、酸化が加速すると考えられる。Zr0₂の形成は合金内部の Zr と Al の拡散フ ラックスによって決まり、これらは合金中に形成する Zr と Al の酸化物の種類とモル量に支 配される。そのため、熱力学平衡計算ソフトウェア(FactSage ver. 7.0、以下 FactSage)を用 いて合金内部に形成される酸化物と Zr や Al の活量を解析し、過剰酸素添加がアルミナスケ ール内の Zr0₂形成に及ぼす影響を検討した。平衡計算に用いた熱力学データベースは SGTE2014(様々な系の合金、以下 SGTE)、SGPS(Y₂0₃, Al₂0₃, Zr0₂, Cr₂0₃, Y₂Zr₂0₇などを 含む純物質データ)、ZYT0(Y₂Ti₂0₇, Y₂Ti0₅, Y₂Zr₂0₇, Y₄Zr₃0₁₂, ZrTi0₄, Zr0₂-FLU (Zr0₂-Y0_{1.5}-Ti0₂系溶体データ))、ALY0(Y₃Al₅0₁₂, Y₄Al₂0₉, YAl0₃)であり、ZYT0, ALY0 は参考 文献 3.4.1-2、3.4.1-3 に記載のギブズエネルギーを用いて自ら作成したデータベースである。 作成した純物質データベースによって描いたエリンガム図を図 3.4.1-25 に示す。以降の計算 は、これらの熱力学データベースを用いて行った。

(1), (3) 式より Al₂O₃と ZrO₂の平衡酸素分圧 P₀₂は(2), (4) 式で表される。

$$4/3A1(s) + 0_2 \rightarrow 2/3A1_20_3(s)$$
 (1)

$$\Delta G = \Delta G_{A1203}^{\circ} + RT \ln(\frac{a_{A1203}^{2/3}}{a_{A13}^{4/3}} \cdot P_{O2}^{A1203}) = 0$$
⁽²⁾

$$\operatorname{Zr} + \mathbf{0}_2 \to \operatorname{Zr}\mathbf{0}_2 \tag{3}$$

$$\bigtriangleup \mathbf{G} = \bigtriangleup \mathbf{G}_{ZrO2}^{\circ} + RT \ln(\frac{a_{ZrO2}}{a_{Zr}} \cdot P_{O2}^{ZrO2}) = 0$$
⁽⁴⁾

で両者は互いにほとんど固溶しないため、それぞれを純物質とみなし活量は1とする。^{*u*_{AI}と}

 a_{2r} は合金中の A1 と Zr の活量である。FactSage の平衡計算によって求めた各試験温度にお けるこれらの活量を(2),(4)式にそれぞれ代入し、A1₂0₃ と Zr0₂の平衡酸素分圧 P₀₂を過剰酸 素量に対してプロットした結果を図 3.4.1-26 に示す。これより、過剰酸素量が少ない場合に は A1₂0₃よりも Zr0₂の平衡酸素分圧の方が小さいが、過剰酸素量が増加すると Zr 活量が小さ くなり Zr0₂を形成するのに必要な酸素分圧が A1₂0₃の平衡酸素分圧よりも高くなることがわか る。そのため、過剰酸素が十分に添加された試料では A1₂0₃が形成されると熱力学的に Zr0₂は 酸化されなくなる。これより過剰酸素の添加で耐酸化性が向上することを熱力学的に説明す ることができる。また、過剰酸素が十分に添加された試料において、平衡酸素分圧を Zr 量に 対してプロットした結果を図 3.4.1-27 に示す。これより Zr を添加しても過剰酸素が十分に 添加されていると Zr0₂の形成を抑制できることが分かる。

図 3.4.1-28 に 1400℃での平衡計算で予測された BCC 母相以外の相の重量比を示す。ここ で FCC は Zr と Ti の炭化相である。また、ZrO₂_FLU は Y₂O₃で部分安定化された ZrO₂固溶体相 である。0.4wt% Zr 添加試料では、この ZrO₂_FLU が主要な Y-Zr 酸化物相であり、これに Zr が消費され母相中の Zr 活量が低下した結果になっている。しかし TEM で実際に観察されてい る Y-Zr 酸化物相は Y₄Zr₃O₁₂であり、FactSage の計算結果とは異なっており、この点は今後の 課題である。同様に Y-A1 酸化物相についても、FactSage で計算されている主要な酸化物は Y₃A1₅O₁₂ (YAG) であるが、TEM では Y₄A1₂O₉ (YAM) や YA1O₃ (YAP) が観察されており、Y-A1 酸化物相についても実際とはズレている。この点についても今後さらに検討する必要がある。

(4) まとめ

製造した超高温用 0DS 鋼の 1200℃水蒸気中での酸化速度定数(kp) は 1~2×10⁻⁶ g・cm⁻ ²s^{-0.5}でありジルカロイより 3 桁程度低く、従来から FeCrA1 合金で報告されている範囲内で 極めて耐酸化性に優れることを確認した。

Cr 濃度と Al 濃度の影響については、7Al や 9Al では Cr 濃度の影響は小さいが、5Al では 12Cr から 18Cr に Cr 濃度が増加すると水蒸気酸化が促進する。これは高 Cr 材では微細な結 晶粒を有するアルミナスケールが生成し、酸素の粒界拡散によってアルミナの内方成長が促 進されたためと考えられる。

Zr 添加材では過剰酸素濃度を適正化することにより水蒸気酸化は抑制される。1200℃、 1300℃では Zr 添加によって耐酸化性がわずかに低下するが、1400℃では Zr 添加によりスケ ールの割れや剥離が大幅に抑制され、耐酸化性が著しく向上することを見出した。FactSage を用いた熱力学平衡計算より、過剰酸素が増加すると母相中の Zr 活量が低下し、アルミナ 中にジルコニアが生成しにくくなることが予測された。

以上より、高温強度向上のために開発した Zr 添加 FeCrA1-ODS 鋼は過剰酸素濃度を適正 化することにより 1400℃での水蒸気酸化耐性も改善されることを示し、事故耐性 FeCrA1-ODS 鋼の実現が可能であることを実証した。

参考文献

- (3.4.1-1) K.A. Terrani, S.J. Zinkle, L.L. Snead, J. Nucl. Mater., 448 (2014) 420-435S.
- (3.4.1-2) Schaedler Tobias, Olga Fabrichnaya and Carlos G. Levi. "Phase equilibria in the TiO 2– YO 1.5–ZrO 2 system", Journal of the European Ceramic Society 28.13 (2008): 2509-2520.
- (3.4.1-3) Olga Fabrichnayal, et al., "The assessment of thermodynamic parameters in the A12O3-Y203 system and phase relations in the Y-AI-O system", Scandinavian Journal of Metallurgy, 30 (2001): 175-183.

符号						化学成分	(wt%)						計算値	
		C	Cr	W	Ti	AI	Y	Zr	0	N	Ar	Y ₂ 0 ₃	Zr0 ₂	Ex. 0
SP1	12Cr	0.027	11.78	1.9	0.23	<0.01	0.19	<0.01	0.13	0.006	0.006	0. 241	-	0.079
SP2	15Cr	0.028	14.12	1.83	0.22	<0. 01	0.18	<0.01	0.12	0.007	0.006	0. 229	-	0.071
SP3	12Cr-5A1	0.029	11.72	<0. 01	0.52	4.71	0.37	<0.01	0.23	0.006	0.006	0.470	-	0.130
SP4	15Cr-5Al	0.031	14.16	<0. 01	0.50	4.57	0.37	<0.01	0.22	0.005	0.006	0.470	-	0.120
SP5R	18Cr-5Al	0.034	16.78	<0.01	0.49	4.46	0.36	<0.01	0.22	0.004	0.006	0.457	-	0.123
SP6	12Cr-7A1	0. 028	11.86	<0.01	0.53	6.66	0.38	<0.01	0.22	0.005	0.006	0. 483	-	0.117
SP7	15Cr-7A1	0.031	14.18	<0.01	0.51	6.44	0.37	<0.01	0.22	0.006	0.006	0.470	-	0.120
SP11	18Cr-7Al	0.033	16.73	<0. 01	0.49	6.28	0.37	<0.01	0.22	0.005	0.005	0. 470	-	0.120
SP12	12Cr-9A1	0.028	11.8	<0.01	0.53	8.6	0.37	<0.01	0.22	0.003	0.005	0.470	-	0.120
SP13	15Cr-9Al	0. 03	14.25	<0. 01	0.51	8.4	0.37	<0.01	0.23	0.004	0.005	0.470	-	0.130
SP14	18Cr-9A1	0.035	16.84	<0.01	0.50	8.16	0.37	<0.01	0.22	0.003	0.005	0. 470	-	0.120
SP8	15Cr-7AI-0.4Zr-0.07Ex.0	0.033	14.66	<0.01	0.50	6.39	0.37	0.35	0.19	0.004	0.005	0. 470	0.47	0.090
SP9	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 14Ex. 0	0.030	14.70	<0.01	0.50	6.38	0.36	0.36	0.25	0.005	0.005	0.457	0.49	0.153
SP10	15Cr-7AI-0. 4Zr-0. 21Ex. 0	0.029	14.76	<0.01	0.50	6.40	0.37	0.37	0.32	0.004	0.005	0.470	0.50	0.220

表 3.4.1-1 水蒸気酸化試験を行った試験片の化学成分

	符号		化学成分(wt%)									計算値			
			С	Cr	W	Ti	AI	Y	Zr	0	N	Ar	Y ₂ O ₃	ZrOz	Ex.O
第2期	SP 15	15Cr - 7A I-0. 2Zr - 0. 12Ex. 0	0.030	15.07	-	0.51	6.99	0.40	0.19	0.24	0.004	0.006	0.51	0.25	0.132
	SP 16	15Cr - 7A I-0.6Zr - 0.37Ex.0	0.025	15.15	-	0.50	7.01	0.39	0.58	0.50	0.005	0.005	0.49	0.78	0.396
	SP17	15Cr - 7A I-0. 4Zr - 0. 28Ex. 0	0.028	15.11	-	0.50	7.00	0.36	0.37	0.40	0.006	0.005	0.46	0.49	0.303
	SP 18	14Cr - 7. 5A I - 0. 5T i - 0. 12Ex. 0	0.030	14.10	-	0.52	7.49	0.39	<0.01	0.21	0.005	0.005	0.50	-	0.105
	SP 19	10Cr - 7. 0A I - 0. 5T i - 0. 12Ex. 0	0.025	10.21	-	0.46	7.05	0.40	<0.01	0.22	0.004	0.006	0.51	-	0.112
	SP20	10Cr - 5A I-0. 5T i - 0. 12Ex. 0	0.027	10.11	-	0.46	5.05	0.39	<0.01	0.22	0.005	0.006	0.50	-	0.115
第1期 追加押出	SP1A	12Cr	0.025	11.74	-	0.23	<0.01	0.19	<0.01	0.13	0.006	0.006	0.24	-	0.08
	SP7A	15Cr - 7A I	0.030	14.30	-	0.52	6.73	0.38	<0.01	0.22	0.006	0.006	0.48	-	0.12
	SP10A	15Cr-7AI-0.4Zr-0.21Ex.0	0.028	14.77	-	0.51	6.34	0.37	0.37	0.33	0.005	0.005	0.47	0.50	0.23
	SP13A	15Cr-9A I	0.029	14.30	-	0.52	8.32	0.38	<0.01	0.22	0.004	0.006	0.48	-	0.12



図 3.4.1-1 水蒸気酸化試験装置の模式図



図 3.4.1-2 水蒸気酸化試験結果(1200℃)



図 3.4.1-3 大気中酸化試験結果(1200℃)



図 3.4.1-4 酸化速度定数の見積り(水蒸気酸化試験、1200℃)



図 3.4.1-5 酸化重量増加の Cr 濃度依存性(水蒸気、1200℃、100 時間)



図 3.4.1-6 酸化重量増加の Cr 濃度依存性(大気中、1200℃、100 時間)



図 3.4.1-7 試験後の 18Cr-15A1 材の EPMA 元素分析結果(1200℃、100 時間)



図 3.4.1-8 TEM による結晶粒観察結果(大気中、1200℃、46 時間)



図 3.4.1-9 図 3.4.1-4 で得られた縦軸の切片の値(kp intercept)と Cr 濃度の関係



図 3.4.1-10 図 3.4.1-4 で得られた酸化速度定数(kp)と Cr 濃度の関係



kp×10⁻⁶

組成	(g∙cm ⁻²	•s ^{-0.5})
	~ 16h	16h~
SP7	1.68	1.30
SP8	3.30	6.36
SP9	2.76	1.85
SP10	2.68	1.61

図 3.4.1-11 Zr 添加材の 1200℃水蒸気酸化重量の放物線プロット(16 時間以前と以降)、及びそれらの酸化速度定数



図 3.4.1-12 1200℃×100 時間での水蒸気酸化試験後の EPMA による元素分布測定結果 (SP8:0.35Zr, 過剰酸素濃度 0.07 wt%)



図 3.4.1-13 Zr 添加材の 1200℃水蒸気酸化重量と過剰酸素/Zr モル比の関係



図 3.4.1-14 Zr 添加材の 1200℃×100 時間での水蒸気酸化重量増加と Zr 濃度の関係



	kp × 10⁻ ⁶						
≣# ¥1	(g•cm ⁻	² •s ^{-0.5})					
司八个十	~ 16h	16~					
SP7	0.524	0.317					
SP8	1.140	2.085					
SP10	0.717	0.473					

図 3.4.1-15 1100℃での水蒸気酸化重量の放物線プロット(SP7, SP8, SP10)



図 3.4.1-16 1000℃での水蒸気酸化重量の放物線プロット(SP7, SP8, SP10)



図 3.4.1-17 水蒸気酸化速度のアレーニウスプロット(SP7, SP8, SP10)



図 3.4.1-18 0Zr における 1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析



図 3.4.1-19 0.4Zr-0.09Ex.0における 1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析



図 3.4.1-20 0.4Zr-0.22Ex.0における 1400℃, 9h 酸化試験後の元素分析



図 3.4.1-21 0Zr における 1400℃, 25h 水蒸気酸化後の元素分析



図 3.4.1-22 0.4Zr-0.23Ex.0における 1400℃, 25h 水蒸気酸化後の元素分析



図 3.4.1-23 0.4Zr 試料における過剰酸素量と Kp の関係



図 3.4.1-24 高過剰酸素添加材における Zr 量と Kp の関係

3.4-22



図 3.4.1-25 エリンガム図



図 3.4.1-26 0.4Zr 試料における 1400℃での過剰酸素量と Po2の関係



図 3.4.1-27 1400℃での Zr 量と P₀₂の関係



図 3.4.1-28 1400℃における各試料の形成物

3.4.2 1200℃超での水蒸気酸化試験(再委託先:日本核燃料開発)

(1) 目的

製造した超高温用ODSフェライト鋼棒材と被覆管材から試験片を採取し、1200℃を超える 水蒸気雰囲気において酸化試験を行い、Zr添加が耐酸化性に及ぼす影響を評価する。

(2) 実験方法

SP7A (Zr 無添加材) と SP9、SP10A (Zr 添加材)の棒材から約 15mm×15mm×1mmt の板状 試験片を、また SP7 (Zr 無添加材) と SP9 (Zr 添加材)の被覆管材から約 8.5mm Φ ×10mmL×0.5mmt のリング状試験片を採取して水蒸気酸化試験に供した。表 3.4.2-1 には、1200℃超での水蒸気酸化試験に供した試験片の化学組成の一覧を示している。試験片 の水蒸気酸化中の形状変化を防ぐため、板材試験片には約 2mm 穴を加工して、吊り下げた状 態で水蒸気に暴露できる形状とした。さらに、端部における異常腐食が起こらないように全 ての角部は丸みをつけ、両面を機械研磨により鏡面研磨仕上げとした。図 3.4.2-1 には、試 験片を試料台に設置した状態を示している。

水蒸気酸化試験では、図 3.4.2-2 に示す雰囲気を調整可能な横型電気炉を用いた。試験 温度は 1200℃、1250℃、1300℃、1350℃、1400℃、1450℃とし、1200℃では最大 100h まで、 その他の温度では最大 25h まで水蒸気酸化した。試験では図 3.4.2-1 に示した試料台を昇温 開始前に炉心管中央部に装荷し、降温後に取り出しを行った。試料温度は、試料近傍の熱電 対によって測定した。水蒸気は、70℃に維持した水槽を経由してアルゴンガス(G2: >99.9995 vol.%)を流すことにより、炉心管内部に導入した。このときのアルゴンガス流量 は約 0.8 L/min であり、70℃における飽和水蒸気量から算出される水蒸気流量は約 0.16 g/min である。なお、1200℃の試験では、試験温度到達後に水蒸気の導入を開始し、試験時 間を終了した時点で水蒸気の導入も停止した。その他の温度では、試料部温度が約 800℃に 到達した時点で水蒸気の導入を開始し、試験後は約 800℃まで降温した時点で水蒸気の導入 を停止した。

(3) 結果と考察

図 3.4.2-3 には水蒸気酸化試験後の外観観察結果の例として、1250℃、1350℃、1450℃での水蒸気酸化試験後の外観写真を示している。1250℃では、外観上は酸化膜の剥離や損傷は確認されなかった。1350℃では、Zr 無添加材である SP7A(棒材)、SP7(被覆管材)では明確な酸化膜の剥離が確認され、1450℃では 4h 未満で反応が急激に進んで試料台に落下してしまった。一方、Zr 添加材である SP9(棒材、被覆管材)では、1450℃において軽微な酸化膜の剥離は確認されたが、試験片形状に大きな変化は見られず、Zr の添加により耐酸化性に大きな差が生じた。

図 3.4.2-4 には、水蒸気酸化試験の重量変化の例として 1350℃での測定結果を示している。重量増加(dW)が反応時間(t)の平方根に比例し、かつ水蒸気酸化開始後に dW_0 の初期 重量増加が生じると仮定すると、その関係は反応速度定数 K_p を用いて $dW = K_p \cdot t^{0.5+} dW_0$ と整理することができる。表 3.4.2-2 には、測定された K_p の一覧を示している。なお、 K_p の 算出は最大試験時間までの重量増加測定結果を用いて最小二乗法でフィッティングすること で行ったが、酸化膜の剥離が生じた試験片については剥離が起こるまでの重量測定結果を用いた。図 3.4.2-5 には、表 3.4.2-2 で示した K_pの温度依存性を図示している。これらの図表から、耐酸化性についての傾向を以下にまとめる。

- ・ Zr の添加による耐酸化性への影響:SP7A(棒材)とSP9(棒材)、SP7(被覆管材)と SP9(被覆管材)で比較すると、1250℃もしくは1350℃まではZrを添加しない方が耐 酸化性に優れているが、より高温ではその傾向が逆転する。特に、1450℃では、Zr を 添加しないと比較的短い時間で、急激な酸化反応を起こしてしまう。
- ・ 酸素添加量による耐酸化性への影響: SP9(棒材)と SP10A(棒材)で比較すると、酸素添加量が多い SP10Aの方が耐酸化性に優れている。
- 熱処理による耐酸化性への影響:SP7A(棒材)とSP7(被覆管材)、SP9(棒材)とSP9 (被覆管材)で比較すると、同等の耐酸化性であった。わずかに被覆管材(再結晶熱処 理材)よりも棒材の方が耐酸化性に優れている結果も得られているが、その差は小さい。 これらのことから、再結晶熱処理により集合組織が変化しても、耐酸化性へは大きな影響はないと思われる。

図 3.4.2-6 には SP10A(棒材) について本試験で得られた K_pを種々の材料の文献値^(3.4.2-1) と比較している。なお、本試験では K_pの算出を初期酸化があると仮定して評価したが、文 献値では初期酸化はないと仮定していると考えられるため、初期酸化がないと仮定して評価 した K_pの値を「初期酸化補正なし」として別途プロットしている。図から Zry-4 や 304SS と比較して K_pが 2~3 桁低減されており、文献で報告された他の FeCrAl フェライト鋼 (APMT)と同程度の値であることが確認される。ただし、APMT とは温度依存性が異なってお り、1400℃程度の高温においては、Zr を添加して、かつ酸素濃度を制御した SP10A(棒材) の方が耐酸化性に優れている結果が得られている。

参考文献

(3.4.2-1) K.A. Terrani, et al., "Environmental effects on advanced cladding materials under normal and accident scenarios", Proc. WRFPM 2014, Sendai, Japan, Sep. 14-17, 2014, Paper No. 100113

鋼種	Cr	Ti	A1	Y	Zr	0	Fe
SP7A(板)	14.30	0.52	6.73	0.38	<0.01	0.22	Bal.
SP9(板)	14.70	0.50	6.38	0.36	0.36	0.25	Bal.
SP10A(板)	14.77	0.51	6.34	0.37	0.37	0.33	Bal.
SP7 (管)	14.18	0.51	6.44	0.37	<0.01	0.22	Bal.
SP9(管)	14.70	0.50	6.38	0.36	0.36	0.25	Bal.

表 3.4.2-1 試験片の化学組成の一覧(1200℃超での水蒸気酸化試験)

表 3.4.2-2 1200℃超での水蒸気酸化試験で測定された K_pの一覧

温度	SP7A	SP7	SP9	SP9	SP10A
(°C)	(棒材)	(被覆管材)	(棒材)	(被覆管材)	(棒材)
1200	1.94×10^{-6}	-	_	-	2.39 $\times 10^{-6}$
1250	2.08 $\times 10^{-6}$	2.62 $\times 10^{-6}$	3. 49×10^{-6}	3.97×10^{-6}	_
1300	2.26 $\times 10^{-6}$	-	-	-	2.85 $\times 10^{-6}$
1350	3.53 $\times 10^{-6}$	3.80 $\times 10^{-6}$	3. 38×10^{-6}	5.89 $\times 10^{-6}$	_
1400	1.17×10^{-5}	-	-	-	2.65 $\times 10^{-6}$
1450	*1	*1	1.06×10^{-5}	9.78 $\times 10^{-6}$	-

(単位は g cm⁻² s^{-0.5})

*1:4h未満で急激に水蒸気と反応したため、重量増加測定できず



加湿したアルゴンガスの流れ

図 3.4.2-1 試験前の試験片設置状態(1200℃超での水蒸気酸化試験)



図 3.4.2-2 雰囲気調整電気炉の概略



^{*:}水蒸気酸化試験中に水蒸気反応が急激に進んで落下



図 3.4.2-4 水蒸気酸化試験の重量変化の例(1350°C)







図 3.4.2-6 FeCrAl-ODS 鋼の K_pとジルカロイ材との比較^(3.4.2-1)
3.4.3 水蒸気酸化基礎プロセス・機構の解明(再委託先:東京工業大学)(H25~H28)

(1)目的

本研究項目では、FeCrA-ODS 鋼の高温酸化挙動に関して、主に以下に示す4つの項目について研究を行った。

①アルミナ皮膜形成におよぼす合金中の Cr および Al 濃度の影響

②アルミナ皮膜の成長におよぼす合金中の Cr および Al 濃度の影響

③アルミナ皮膜の成長におよぼす Zr 添加、過剰酸素の影響

④アルミナ皮膜の成長挙動におよぼす水蒸気の影響

①②に関しては、本研究で提案する FeCrA-ODS 鋼は、高温における機械的特性だけでなく、 耐酸化性の確保が必須であることから、耐酸化性の観点から合金の主要添加元素である Cr および A1 の最適組成を決める際の指針とすることを目的とした。

また、③に関しては、ODS 合金の高温機械的特性向上に必須となる Zr 添加により、アル ミナ皮膜の成長速度が変化する事、またその成長速度は合金中の過剰酸素濃度に強く依存す ることが明らかになったことからそのメカニズムを解明することを目的とした。

燃料被覆管として使用される FeCrA-ODS 鋼は、事故時に高温の水蒸気環境下に曝されるこ ととなる。一般に、耐熱合金は水蒸気中では保護性皮膜の形成が抑制され、その結果、合金 の酸化速度が著しく増加することが知られている。一方、本研究で提案する合金組成の範囲 の合金は、水蒸気中では酸化速度は低下した。そこで水蒸気中で FeCrA-ODS 鋼上に形成する アルミナ皮膜の成長速度が低下する機構を検討した。

(2)実験方法

<酸化実験条件>

①②の実験においては、A1 および Cr 濃度を系統的に変化させる事が必要であり、そのた め、合金組成のコントロールがより容易な溶解合金 Fe-(4~24)Cr-(3~5)A1 (wt.%)を用い て実験を行った。また、実験装置の都合上、酸化実験は 1000℃,大気中にて実施した。②の 長時間酸化実験では、熱天秤(TG)を用いて大気中における酸化の動力学を連続的に測定した。 ①③の実験では、昇温時を含む短時間でのアルミナ皮膜形成に関する情報を取得する事が必 要となるため、SPring-8 の放射光を用いた in-situ 高温 X 線回折により合金表面に形成す る酸化物の短時間での構造変化を詳細に検討した。高温 X 線回折実験は、①では 1000℃、 ③では 1100℃で実施した。また、④および③の一部の実験では、本事業にて購入した高温 X 線回折装置を用いて 1200℃,大気中,比較的長時間(最大 5 時間)の酸化中における酸化 物の形成および構造変化を検討した。③および④の実験で用いた合金は、本事業で作製した ODS 鋼、SP7, SP8, SP10 であり、Fe-15Cr-7A1-0.5Ti-0.47Y₂0₃をベースとして、Zr 添加の有 無および過剰酸素濃度の異なる合金である。いずれの項目においても、形成した酸化皮膜は TEM または FIB-SEM を用いてその断面組織を観察した。

<In-situ 高温 X 線回折実験>

· 放射光実験

Spring-8 のビームライン BL19B2 にて、Huber 製多軸回折計および Anton Parr 社製 DHS110 加熱ステージを組み合わせて実験を行った。用いた X 線のエネルギーは 12.39KeV (λ =1Å)であり、入射角(試料表面と入射 X 線のなす角) α =12°, 2 θ =24°配置となるように試料を設置し、50℃/min で昇温中の試料表面から得られる回折信号を二次元検出した。

·実験室系 X 線回折実験

実験室系 X 線回折実験では、CuK α 1 を用いて、入射角 α =5°, 2 θ =35° 配置となるよう に試料を配置して、1200°C、大気中または水蒸気中で等温酸化中の酸化皮膜および母材から の回折信号を二次元検出した。

(3)結果と考察

①アルミナスケールの形成におよぼす Cr および AI 濃度の影響

図 3.4.3-1 に、1000℃までの昇温中の各合金の酸化量の時間変化を示す。Cr の添加は、 昇温中の酸化量を著しく低下させる。また、1000℃まで昇温後の酸化量は、A1 濃度が高い 方が少ない。酸化量は低 A1 合金では Cr 濃度が高いほど増加するが、高 A1 合金では Cr 濃度 依存性は殆ど認められない。

図 3.4.3-2 に示すように、650℃昇温後にはいずれの合金においても A1 の酸化物を主体 とするアモルファス層(以降アモルファス酸化物層)が酸化初期に形成した遷移酸化物層の 直下に形成した。このアモルファス層は、アルミナ皮膜が形成するまでの昇温期間中に保護 性を担うことがわかった。図 3.4.3-3 に示す 3A1 合金の 650℃での長時間酸化結果より、合 金中の Cr 濃度の増加に伴ってアモルファス層の健全性がより長時間まで維持されており、 Cr はアモルファス層の長時間安定性を向上させる効果を有することがわかった。A1 濃度が 高い合金では、アモルファスの健全性におよぼす Cr の効果は認められなかったことから、 Cr 添加は低 A1 合金の初期酸化中の酸化量抑制に有効に働くことがわかった。

図 3.4.3-4 は、3 および 5A1 合金の昇温中の In-situ 高温 X 線回折結果を示す。A1 濃度 に関わらず酸化初期には Fe₂O₃からの回折信号が検出され、それは高 Cr 合金では、Cr₂O₃リ ッチな酸化物へと遷移する。 α アルミナからの回折信号は、高 A1 合金では遷移酸化皮膜か らのピーク位置が徐々にアルミナの位置へと遷移することにより得られるのに対し、低 A1 合金では、昇温直後にアルミナからのピークが認められるようになる。図 3.4.3-5 に示す α アルミナの格子面間隔および半値幅の時間変化より、 α アルミナからの回折信号は高 A1 合 金でより短時間から確認され、また、 α アルミナの半値幅は、高 A1 合金では低 A1 合金と比 較して大きな値をとることから、高 A1 合金上に形成したアルミナは大きな面間隔を有する、 すなわち、Cr や Fe イオンが固溶していると言える。

図 3.4.3-6 から-8 に示す昇温中の皮膜の組織変化から、3A1 合金ではアモルファス外層直 下にアモルファス構造の内部酸化物が形成した後、内部酸化物の結晶化とともに粗大化が生 じ、それが互いに繋がって連続アルミナ皮膜を形成することが分かる。一方、高 A1 合金で は、アモルファス層は、外層側から結晶化が進行し連続的なアルミナ皮膜が形成している。 すなわち、連続的なアルミナ皮膜の形成挙動は合金の A1 濃度に依存して異なることがわか った。なお、合金中の Cr は低 A1 合金では内部酸化から外層皮膜形成への遷移を、図 3.4.3-9 に示すように低 A1 合金中に形成する内部酸化物の体積割合を増加することにより 促進するが、高 A1 合金への外層アルミナ皮膜形成には、顕著な影響は認められなかった。

以上の結果より、アルミナ皮膜形成におよぼす Cr および Al 濃度の影響は、図 3.4.3-10

に示すモデルにより説明される。①酸化のごく初期、500℃程度までの低温域では、合金表 面に A1 リッチなアモルファス酸化層が形成し、これが保護性を発揮して初期の酸化量は低 く抑えられる。②酸化温度の増加に伴って、アモルファス層のブレイクダウンが生じるが、 高 Cr 合金ではアモルファス層のブレイクダウンは著しく抑制される。③酸化温度の更なる 上昇により、低 A1 合金上にはアルミニウムの内部酸化層が形成し、それが互いに繋がって 最終的に連続層へと遷移する。合金中の Cr は内部酸化物の体積割合を増加させ、連続層へ の遷移を促進する。一方、高 A1 合金ではアモルファス層が結晶化することによりアルミナ 皮膜が形成する。従って、高 A1 合金ではアルミナ皮膜形成には Cr は顕著に影響しない。

本項目の検討より、低 A1 合金の場合には、アルミナ皮膜形成には合金中に十分な Cr を含 有する必要があるのに対して、高 A1 合金の場合には合金中の Cr 濃度は低減可能であること が明らかになった。

②アルミナスケールの成長におよぼす Cr および AI 濃度の影響

図 3.4.3-11 は Fe-(4, 24)Cr-(3,5)Al 合金の 1000℃、大気中における 400 時間までの等 温酸化の動力学を示す。酸化挙動は A1 および Cr 濃度に依存して異なり、同一 Cr 濃度の場 合には高 A1 であるほど、また同一 A1 濃度の場合には低 Cr 合金ほど酸化はより緩やかに進 行することがわかった。図 3.4.3-12 に示す 400 時間後に形成したアルミナ皮膜の断面組織 から、アルミナ皮膜の組織は A1, Cr 濃度に依存して異なり、特に組織におよぼす A1 濃度の 影響は顕著である。いずれの合金上に形成したアルミナ皮膜も、二層構造を呈しており、ガ ス側は等軸的、合金側は柱状的な結晶粒から構成される。一般に活性元素を含まない合金上 に形成するアルミナ皮膜は A1 の外方拡散と 0 の内方拡散の両者により成長する事が知られ ており、外層の等軸粒は A1 の外方拡散により、一方、内層の柱状粒は酸素の内方拡散によ り成長したことがわかる。また、皮膜/合金界面は平滑でなく大きな波状を呈しており、そ れは高 Al かつ高 Cr 合金でより顕著となる傾向を示すことが分かった。各合金上に形成した アルミナ皮膜の結晶粒径と外層/内層界面からの距離の関係を図 3.4.3-13 に示す。外層皮 膜を構成する結晶粒径は、同一 A1 濃度の合金で比較すると、低 A1 合金では高 Cr 合金でよ り小さく、一方、高 A1 合金では顕著な違いは認められない。また、低 A1 合金では表面側に 向かって粒径は若干増大する傾向を示すが、高 Al 合金では位置に関わらずほぼ一定である。 また、結晶粒径は高 A1 合金の方が低 A1 合金よりも小さいことが分かった。内層皮膜を構成 する結晶粒径は、いずれの合金においても合金側へと増大し、その傾きは合金組成に依存せ ずほぼ同一である。また、Cr 濃度が等しい合金では A1 濃度に依存せずその粒径はほぼ等し いが、高 Cr 合金ほど結晶粒径は小さくなることが分かった。この理由は、低 A1 合金に関し ては、図 3.4.3-14 に示すように、高 Cr 合金では初期に形成した内部酸化物の数密 度, N_{ppt}^{24Cr} = 16.2 ppts/µmが、低 Cr 合金, N_{ppt}^{4Cr}=10.1 ppt/µmと比較して増加しているこ とから、内部酸化物の連結により連続アルミナ皮膜が形成する低 A1 合金では、核生成サイ ト数が増加したためであると言える。一般に、アルミナ皮膜の成長は、粒界におけるアルミ ニウムイオンまたは酸化物イオンの拡散に支配されることから、図 3.4.3-11 に示した動力 学の結果から、高 Cr 合金で酸化速度が速かった理由は、定性的には高 Cr 合金上に形成した アルミナ皮膜の結晶粒径が小さかったためであると言える。しかしながら、高 Al 合金でよ

り酸化速度が遅くなった理由については、粒径の違いのみでは説明が困難であり、その他、 粒界拡散係数が A1 濃度の高い合金で小さくなったこと等が考えられる。

これら①および②の検討から、成長速度が遅く優れた耐酸化性を示すアルミナ皮膜を形成 させるための合金組成として、高 Al かつ低 Cr 組成が提案される。

③アルミナ皮膜の成長におよぼす Zr および過剰酸素の影響

図 3.4.3-15 は、SPring-8 にて実施した SP7, SP8, SP10 試料の 1100℃までの昇温期間中 および 1 時間の等温酸化中に表面に形成する酸化物からの X 線回折パターンを示す。Zr 添 加鋼である SP8, SP10 では、酸化前から Y₄Zr₃O₁₂または Y₂Zr₂O₇と考えられる複合酸化物か らの回折信号が観察される。すべての試料から Y₂O₃からの回折信号が観察され、Zr 添加鋼 の SP8, SP10 では、Y₂O₃からの回折位置は低角度側にシフトしており、Y₂O₃への Zr の固溶 が認められる。これらのピーク位置は昇温中に熱膨張により低角度側へとシフトする。

モデル合金の場合と同様、昇温中には、先ず Fe₂0₃からの回折が認められ、それは高角度 側へとシフトして、900[°]C付近からは α アルミナからの回折信号となる。この結果は初期に 形成した Fe₂0₃が Cr₂0₃を経て連続的に α Al₂0₃へと遷移することを示している。また、Zr 添 加鋼では、過剰酸素濃度の違いによらず、Zr 無添加鋼と比較して、 α アルミナからの回折 信号強度は高くなる傾向を示すが、Zr 添加の有無および過剰酸素の影響は初期の酸化挙動 には明確には認められない。

図 3.4.3-16 に実験室系 XRD を用いて、大気中、1200℃にて最大 5 時間酸化中の SP7, SP8 および SP10 表面から得られた X 線回折パターンを示す。1200℃での等温酸化開始時点では、 すでに試料表面には α アルミナ皮膜が形成しており、その回折強度は時間の経過と共に増加 する。また、すべての試料で酸化初期から TiO₂の生成が認められ、その回折強度は時間の 経過に伴って増加する。Zr を含み過剰酸素濃度の低い SP8 では、ZrO₂(CaF₂構造)および Y₂Ti₂O₂からの回折信号が認められ、一方、十分な過剰酸素濃度を含む SP10 では、Y₂Ti₂O₂の みが同定された。これら ZrO₂および Y₂Ti₂O₂からの回折信号は、およそ 2 時間の酸化後から 認められ、時間の経過に伴って増加した。

図 3.4.3-17 に大気中、1200℃,5 時間酸化後の断面組織を示す。酸化皮膜の厚さは、Zr 無添加鋼→Zr 添加鋼→Zr 添加+低過剰酸素鋼の順に厚くなり、Zr 添加および過剰酸素濃度 の低下はアルミナ皮膜の成長速度を増加する。Zr 添加合金上に形成したアルミナ皮膜中に は明るいコントラストの酸化物が認められ、その形成もまた過剰酸素濃度の低い合金でより 顕著である。また、皮膜表面にも明るいコントラストの酸化物の形成が認められ、その生成 もまた Zr 添加+低過剰酸素鋼でより顕著である。これらの結果は、合金中の余剰の Zr はア ルミナ皮膜中の Zr 酸化物および表面の TiO₂の形成を促進し、アルミナ皮膜の成長速度を増 加させたことを示唆している。

④アルミナ皮膜の成長挙動におよぼす水蒸気の影響

図 3.4.3-18 に実験室系 XRD を用いて、水蒸気中、1200℃にて最大 5 時間酸化中の SP7, SP8 および SP10 表面から得られた X 線回折パターンを示す。図 3.4.3-16 と比較して各ピー クの半価幅が大きくなっているのは、入射 X 線の照射面積を大きくしたためである。水蒸気 中の酸化では、大気中の酸化で認められた Zr を含む酸化物および TiO₂からの回折ピークは 認められない。なお、水蒸気中の酸化で認められる Fe₂O₃からの回折信号は、装置を構成す る遮熱板表面に高温酸化により形成した Fe₂O₃が実験中にはく離、脱落して試料表面に付着 したためであり、ODS 合金の酸化により形成した酸化物ではない。

図 3.4.3-19 に水蒸気中、1200℃, 5 時間酸化後の断面組織を示す。すべての合金におい て、アルミナ皮膜の厚さは大気中の場合と比較して薄くなっており、水蒸気中では酸化速度 が低下することがわかった。また、Zr 添加+低過剰酸素濃度の合金(SP8)上に形成したアル ミナ皮膜中には明るいコントラストの酸化物が形成しており、その部分では皮膜の厚さは顕 著に厚くなっているが、その他の部分および他の合金では、同様の明るいコントラストの酸 化物の形成は殆ど認められず、また、表面の TiO₂の形成も認められない。これらの酸化物 が水蒸気中で形成しなかった理由については明らかでないが、水蒸気中では酸素分圧が低か ったためであると考えられる。

以上の結果より、本研究で提案する FeCrA-ODS 鋼の水蒸気中での耐酸化性は、大気中より も良好であることが明らかになった。従って、事故時の高温水蒸気環境下において優れた耐 高温酸化性が確保されることが確認された。

(4) まとめ

本研究では、①アルミナ皮膜形成におよぼす合金中の Cr および Al 濃度の影響、②アルミ ナ皮膜の成長におよぼす合金中の Cr および Al 濃度の影響、③アルミナ皮膜の成長におよぼ す Zr 添加、過剰酸素の影響、④アルミナ皮膜の成長挙動におよぼす水蒸気の影響、の四項 目について、放射光および実験室系の高温 in-situ X 線回折実験、熱天秤を用いた等温酸化 実験、TEM を用いた詳細な組織観察より検討した。本研究で得られた成果は以下の様に纏め られる。

- アルミナ皮膜の形成は、①酸化のごく初期の A1 リッチアモルファス酸化皮膜の形成、② 内部酸化物の形成(低 A1 合金)、③保護性アルミナ皮膜の形成に分けられる。A1 リッチ アモルファス酸化皮膜は保護性皮膜が形成するまで、合金を高温酸化環境から保護する。 保護性アルミナ皮膜は、低 A1 合金では内部酸化物の粗大化による連結によって形成し、 一方、高 A1 合金ではアモルファス層が結晶化することにより形成する。合金中の Cr は アモルファス層のブレイクダウンを抑制し、かつ内部酸化層の体積率を増加させる事に より、酸化の初期にはアモルファス層の保護性向上、後期には迅速な連続皮膜の形成を 促す。この Cr の効果は、主に Cr 添加による A1 の外方拡散流束の増加によるものである ことが、別途確かめられている(本報告書には記載せず)。従って、高 A1 合金において は、Cr は顕著な効果を示さない。
- 2. 一方、アルミナ皮膜の成長には、合金中の Cr 及び A1 濃度が強く依存し、高 Cr かつ低 A1 合金ではアルミナ皮膜の成長速度は速くなる。逆に、低 Cr かつ高 A1 合金の成長速度 は著しく低下する。この理由の一つは、合金中の A1 濃度に関わらず、高 Cr 合金ではア ルミナを構成する結晶粒の粒径が小さくなることであるが、結晶粒界の拡散速度が合金 組成に依存することもまた示唆された。
- 3. 0DS 鋼への Zr 添加は、アルミナ皮膜の成長速度を増大させる。これは、過剰酸素濃度の

低い合金でより顕著である。Zr 添加合金では、高温酸化中に ZrO₂, Y₂Ti₂O₂, および TiO₂ 相がそれぞれアルミナ皮膜中および皮膜表面に形成する。これは過剰酸素濃度の低い鋼 でより顕著となり、ZrO₂を主体とする酸化物が皮膜中に多数形成し、これが皮膜の成長 に悪影響を与える。従って、高温酸化の観点からは、Zr 添加量の低下が望ましいといえ る。なお、過剰酸素濃度を十分に含有した鋼では、これら酸化物の形成が抑制されてい ることから、合金中に Zr または Ti を酸化物として固定することにより、耐酸化性の悪 化は抑制することが可能である。

- 4. 水蒸気中の酸化では、アルミナ皮膜の成長に悪影響を与えると考えられる Zr または Ti を含む酸化物の形成が著しく抑制され、皮膜の成長速度は顕著に低下する。しかしなが ら、過剰酸素濃度が低い合金では、Zr や Ti の酸化を完全に抑制することができず、それ らの酸化物が形成した部分では、部分的に厚いアルミナ皮膜が形成する。事故時の燃料 被覆管の耐酸化性の観点からは、水蒸気中での酸化が抑制されることは、本合金の被覆 管への適用が好ましい事を示している。
- 5. 軽水炉燃料被覆管への ODS Fe-Cr-A1 合金の適用に関して、耐酸化性確保の観点からは、 高 A1 かつ低 Cr の合金組成がより好ましいと提案できる。また、合金中への Zr 添加量は 可能な限り低減させることが良いが、添加する場合には、Zr 添加量に応じた十分な過剰 酸素の添加が要求される。



図 3.4.3-1 異なる Cr または AI を含む Fe-Cr-AI 合金の昇温中の酸化の動力学



図 3.4.3-2 650°Cまで昇温後の Fe-Cr-AI 合金の断面組織 (a)Fe-3AI, (b) Fe-4Cr-3AI, (d)Fe-24Cr-3AI, (d)Fe-4Cr-5AI, および(e)Fe-24Cr-5AI



図 3.4.3-3 650°Cで(a)(b)(c)30min および(d)(e)(f)60min 酸化後の断面組織 (a)(d) Fe-3AI, (b)(e) Fe-4Cr-3AI および(c)(f)Fe-24Cr-3AI



図 3.4.3-4 Fe-Cr-Al 合金の昇温中および 1000°C, 1h 等温酸化中の in-situ 高温 XRD パターン (a) Fe-4Cr-3Al, (b) Fe-24Cr-3Al, (c) Fe-4Cr-5Al, および(d) Fe-24Cr-5Al



図 3.4.3-5 Fe-Cr-Al 合金上に形成した *α* アルミナスケールの (a) (c) 面間隔および (b) (d) 半値 幅の時間変化 (a) (b) Fe-Cr-3Al (d) (d) Fe-Cr-5Al



図 3.4.3-6 650°Cまで昇温後の Fe-Cr-AI 合金の断面組織(a) Fe-4Cr-5AI, (b) Fe-24Cr-3AI



図 3.4.3-7 800°Cまたは 900°Cまで昇温後の Fe-Cr-Al 合金の断面組織 (a) Fe-4Cr-5Al,900°C (b) Fe-24Cr-3Al,800°C (c) (d) はそれぞれ (a) (b) の拡大組織



図 3.4.3-8 1000°Cまで昇温後の Fe-Cr-Al 合金の断面組織 (a) Fe-4Cr-5Al (b) Fe-24Cr-3Al (c) は (a) の拡大組織



図 3.4.3-9 Fe-xCr-3AI 合金中に形成する内部酸化の体積割合の Cr 濃度依存性



図 3.4.3-10 本研究で提案するアルミナスケール形成のための AI および Cr の役割のモデル



図 3. 4. 3-11 異なる Cr または AI を含む Fe-Cr-AI 合金の 1000℃、400h までの酸化の動力学



図 3.4.3-12 大気中で 1000℃、400h 酸化した試料上に形成したアルミナ皮膜の断面組織 (a)Fe-4Cr-3AI, (b)Fe-24Cr-3AI, (c)Fe-4Cr-5AI,および(d)Fe-24Cr-5AI



図 3.4.3-13 各合金上に 400 時間酸化後に形成したアルミナ皮膜の粒径と外層/内層界面 (Original Interface) からの距離の関係



図 3.4.3-14 900℃昇温直後に(a)Fe-4Cr-3AI および(b)Fe-24Cr-3AI 合金中に形成した内部酸 化物の組織



図 3.4.3-15 SP7, SP8 および SP10 の SPring-8 における昇温中および 1100℃における In-situ 高温 X 線回折パターン (a) SP7, (b) SP8, および (c) SP10



図 3.4.3-16 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における 1200℃、大気中で等温酸化中の Insitu 高温 X 線回折パターン (a) SP7, (b) SP8, および (c) SP10



図 3.4.3-17 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における大気中、1200℃, 5 時間等温酸化後の断面組織 (a) SP7, (b) SP8, および(c) SP10



図 3.4.3-18 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における 1200°C、水蒸気中で等温酸化中の In-situ 高温 X 線回折パターン (a) SP7, (b) SP8, および (c) SP10



図 3.4.3-19 SP7, SP8 および SP10 の実験室系 XRD における水蒸気中、1200°C, 5 時間等温酸化 後の断面組織 (a) SP7, (b) SP8, および (c) SP10

3.4.4 UO₂との高温反応挙動評価(再委託先:日本核燃料開発)

(1) 目的

製造した超高温用ODSフェライト鋼棒材から試験片を採取し、不活性雰囲気においてUO2 燃料との高温反応試験を行い、UO2燃料との高温反応特性を評価する。また、Zr添加の影響 の有無についても評価する。

(2) 実験方法

SP7A (Zr 無添加材) と SP10A (Zr 添加材)の棒材から約 15mm×15mm×1mmt の板状試験片 を採取して高温反応試験に供した。表 3.4.4-1 には試験片の化学組成の一覧を示している。 高温反応試験では、1300℃、1400℃、1450℃において不活性雰囲気(He、G1 グレード: >99.99995 vol.%)において 1h 保持することで反応特性評価を行った。反応特性は表面状態 に大きく左右されるが、特に酸化膜等が生成してしまうと反応の障壁となり、正確な特性評 価が困難となる。そのため、不活性雰囲気にわずかに含まれている酸素や水分等を除去する 目的で、図 3.4.4-1 に示す様に試験体全体をボックス形状に加工した Zr 箔に収納した状態 で加熱した。試験は、試験体を含んだ Zr 箔治具を電気炉(ケラマックス炉)の炉心管内に 設置し、その後、炉心管内を He ガスで十分に置換した時点でガスを封入し、昇温速度 360℃/h で昇温し、目標温度に到達してから 1h 保持することで実施した。

試験片が冷却してから、試験体を回収し、外観観察および断面観察を行った。断面観察 は、UO2ペレットとの接触位置で横断面観察が可能となるように切断し、樹脂に包埋、研磨 することで金相観察試験片を作製して、光学顕微鏡および SEM を用いて実施した。

(3) 結果と考察

図 3.4.4-2 に U0₂との高温反応挙動評価試験の試験後試験体の外観観察結果を示している。 各試験片の左側の図は取り出したままの状態での観察結果、右側の図は接触していた面が観 察可能なように取り外した状態で観察した結果である。図に示されるように、いずれの試験 においても接触した面の一部が固着したのみで超高温用 ODS フェライト鋼の顕著な損傷は見 られなかった。

金属顕微鏡、SEM による断面観察を行ったが、接触していた面において明確な反応層は観察されず、超高温用 ODS フェライト鋼側の接触していた表面に薄いアルミナ被膜が形成していた。図 3.4.3-3 には SP7A の 1450℃の場合を例として、横断面の観察結果を示している。 図に示されるように UO₂と超高温用 ODS フェライト鋼との界面にはアルミニウムと酸素が濃化しており、また、UO₂、超高温用 ODS フェライト鋼のいずれにも接触していた反応対の元素の侵入は認められない。現行被覆管材(ジルカロイ)との比較を行うため、このアルミナ 被膜を反応層と仮定して計測した結果を表 3.4.4-2 に示している。なお、同表にはジルカロ イと同様に反応層厚さ x と反応時間 t との間に x² = K_p・t の関係があると仮定して求めた 反応速度定数 K_pの計算値も示している。参照として本試験と同一の試験条件で得られた Zry-4 の結果を示しているが、Zry-4 と比較して 5~6 桁反応定数が低減されていることが分 かる。また、超高温用 ODS フェライト鋼で K_pを比較すると、SP7A (Zr 無添加材) と SP10A (Zr 添加材)での明確な差は見られず、Zr 添加の有無にかかわらず現行材と比較して大幅 に UO₂との反応が抑制されることが確認された。図 3.4.4-4 には、超高温用 ODS フェライト 鋼 (SP7A、SP10A) と Zry-4 の K_pの温度依存性を比較した結果を示している。本試験で測定 した Zry-4 のデータは Hofmann^(3.4.4-1)により報告されている K_pとよく一致しており、本試験 方法の妥当性が示されている。本試験では形成されたアルミナ層の厚さが数µm しかないた め、温度依存性や Zr 添加の効果については明確ではないが、Zry-4 と同程度の温度依存性 を有していると仮定しても融点程度 (1500℃程度) でも K_pは 10⁻¹⁰cm²s⁻¹程度であり、仮に 1500℃で 1h 反応しても反応層厚さは 6µm 程度に抑えられることになる。

参考文献

(3.4.4-1) P. Hofmann, "Current knowledge on core degradation phenomena, a review", J. Nucl. Mater., 270 (1999) 194-211.

表 3.4.4-1 試験片の化学組成の一覧(UO2との高温反応挙動評価)

鋼種	Cr	Ti	A1	Y	Zr	0	Fe
SP7A(板)	14.30	0.52	6.73	0.38	<0.01	0.22	Bal.
SP10A(板)	14.77	0.51	6.34	0.37	0.37	0.33	Bal.

表 3.4.4-2 反応層厚さの計測結果と反応速度定数の評価結果(U02 との高温反応挙動評

試験材	試験温度(℃)	x(μm)	K_p (cm ² s ⁻ 1)
7.00-4	1300	709	1.4×10^{-6}
ZI y ⁻ 4	1400	660	1. 2×10^{-6}
SD74	1300	0.7	1. 4×10^{-12}
SF (A	1400	2.5	1. 7×10^{-11}
(ZI 無称加)	1450	1.7	8. 0×10^{-12}
SD104	1300	1.8	9. 0×10^{-12}
SF10A (7ヵ 沃市町)	1400	2.0	1.1×10^{-11}
	1450	1.7	8. 0×10^{-12}



	試験温度 (℃)	取出しまま	取外し後
	1300		
SPTA (Zr無添加材)	1400		
	1450		
	1300		
SP10A (Zr 茶加村)	1400		
	1450		

図 3.4.4-1 U02との高温反応挙動評価試験の試験体系の概略

図 3.4.4-2 試験後試験体の外観観察結果(U02との高温反応挙動評価試験)









- (b) (a) 点線領域のEDSマッピング像
- 図 3.4.4-3 UO₂と超高温用 ODS フェライト鋼との接触面の横断面分析結果 (SP7A(棒材)、1450℃×1h)



図 3.4.4-4 K_pの温度依存性の比較(UO₂との高温反応挙動評価試験)

3.4.5 総合評価(再委託先:日本核燃料開発)

(1) 目的

通常運転時における超高温用ODSフェライト鋼の課題を評価する。また、事業で取得され る超高温用ODSフェライト鋼の試験データを、ジルカロイ及び代表的なATF候補材の既往デー タと相互比較して、事故時における超高温用ODSフェライト鋼被覆管採用の得失を定量的に 評価する。また、評価の一環として、製造した超高温用ODSフェライト鋼管材を用いて、 LOCA時を模擬した水蒸気酸化試験を実施し、試験後のリング圧縮試験を実施する。

(2) 評価方法

①L0CA模擬試験

代表的な設計基準事故であるLOCAでは、燃料被覆管は高温水蒸気への暴露と、注水による急冷を経験することになり、これら過酷な条件下において燃料被覆管の健全性を確保する 必要がある。そのため、本模擬試験では、リング状の被覆管材を1200℃の高温水蒸気に暴露 後、70℃の水で急冷し、急冷後の機械的特性をリング圧縮試験で確認することで、LOCA時を 模擬した試験を実施した。

表3.4.5-1には、試験で使用した被覆管材(Zr添加材)の化学組成を示している。試験で は、外径8.5mm、肉厚0.5mm、長さ10mmのリング状試験片を用いて、表3.4.5-2に示す試験条 件で水蒸気に暴露した。なお、保持時間は現行ジルカロイ材であれば、Baker-Justの式で計 算される酸化量が現行LOCA基準であるECR=15%を超える条件であり、最も保持時間が長い 2.0hの場合には相当ECRが40%を超える計算となる。図3.4.5-1には、高温水蒸気への暴露と 急冷までを実施した試験体系の概略図を示している。また、図3.4.5-2には、保持時間2.0h の場合のLOCA模擬試験における電気炉温度履歴を例として示している。試験では、 リング状試験片を温度が低い炉心管上部に待機させた状態で電気炉を昇温し、 1000℃程度に電気炉中央部温度が到達した時点で70℃の水でバブリングさせたAr ガスを炉心管内に導入した。この場合の水蒸気供給速度は約0.08gH20/minである。 電気炉中央部温度が1200℃に到達して約15min後にリング状試験片を電気炉中央部 にまで降下させることで高温水蒸気暴露を開始し、所定の保持時間が経過した時 点でワイヤーを切断することで70℃の水で急冷した。リング圧縮試験は、室温に おいて、リング状試験片を半径方向が押し込み方向となるように疲労試験機に設 置して、2mm/minの押し込み速度で最大5mmまで押し込むことで実施した。

②適用性評価

通常運転時では、本事業で取得されたデータ及び文献調査から通常運転時における超高 温用 ODS フェライト鋼の課題を評価する。具体的には脆化問題、海外で実施された炉水によ る腐食、反応度解析等から課題を総合的に評価する。

事故時では、設計基準事故と過酷事故における超高温用 ODS フェライト鋼被覆管採用の 得失を定量的に評価する。具体的には、設計基準事故の場合には、本事業で取得した試験結 果の成果を利用して、代表的な設計基準事故である LOCA 時の FP ガス放出が始まる温度を現 行材料(ジルカロイ)と比較した。比較に当たっては、本事業で実施した高温強度試験、 LOCA 模擬試験、高温水蒸気試験の成果を利用した。過酷事故の場合には、本事業で取得した試験結果を利用して、事故時の被覆管肉厚(健全部)の損耗速度を評価した。評価に当たっては、本事業で実施した高温水蒸気試験、UO₂との高温反応試験の成果を利用した。

(3) 結果と考察

① LOCA 模擬試験

図 3.4.5-3 には 1200℃高温水蒸気暴露による重量増加の保持時間依存性を示している。 得られた重量増加の経時変化から計算される K_pは 2.4×10⁻⁶g cm⁻² s^{-0.5}であり、1200℃超で の水蒸気酸化試験で得られた類似材(SP10A(棒材))と同程度であることから、水蒸気暴露 ではリング状試験片全体で均一に酸化できていたと考えられる。また、試験後試験片の外観 観察では、酸化膜の剥離を含めて損傷は観察されなかった。

リング圧縮試験前後の外観写真の例を図 3.4.5-4 に示している。図に示されるように、 リング状試験片は押し込み方向に対して±90°の円周方向位置において大きく変形しており、 一部では完全に破断している。図 3.4.5-5 にはリング圧縮試験で得られた押し込み変位と荷 重の変化を示している。なお、縦軸は荷重をリング状試験片の長さで除した値である。荷重 が急激に減少しているのは、押し込み方向に対して±90°の円周方向位置でき裂が発生した ためであり、いずれの保持時間においても、受取まま材と同様な約 3mm の押し込み変位まで き裂が発生していなかったと考えられる。また、最大荷重はいずれの保持時間でも約 80N/mm であり、最大荷重も受取まま材と同様な値であった。き裂が発生する押し込み変位 量は延性、最大荷重は強度を反映した値であるため、リング圧縮試験から 1200℃における 水蒸気暴露や急冷により機械的特性が劣化していないことが確認された。

②適用性評価

1) 通常運転時

a) α' による脆化挙動評価

本事業において、 α , による脆化挙動評価として熱時効硬化と照射の影響が調べられている。成分にも依存するが、BWR 条件においても α , の生成の可能性は否定できないが、超高温用 ODS フェライト鋼の場合には α , が生成して硬化はするものの延性への影響はほとんどなく、全伸びは室温であっても 10%以上確保されている。また、損傷量は 15dpa までの範囲であるが、照射による顕著な α , 生成促進は観察されておらず、照射による脆化の促進は顕著ではないと予想される。ただし、重畳効果については中性子照射により確認する必要がある。なお、Cr、A1 濃度が高い鋼種では熱時効後の DBTT が室温以上となる傾向が確認されており、このことから Cr は 15wt.%、A1 濃度は 7wt.%までに抑えることが推奨される。

b)
 炉水による腐食

炉水による腐食について、超高温用 ODS フェライト鋼と成分が類似している FeCrA1 フェライト鋼を用いた炉外腐食試験の報告^(3.4.5-1)を用いて、炉水による腐食 に関する課題を抽出する。図 3.4.5-6 には、報告されている炉外腐食試験結果を示し ている。なお、HWC は BWR で水素注入を行った場合、NWC は水素注入を行わない場合 を模擬した条件で試験が実施されたことを示している。水質により重量変化の正負が 変化するが、これは表面酸化膜の形成と溶出のバランスによるものである。すなわち、 HWC の場合には溶出の寄与が大きく、NWC の場合には形成の寄与が大きい。Cr 濃度が 10~18wt.%の範囲で変化しても、重量変化は小さく、炉水に影響を与えるものではな いと予測される。ただし、照射を受けながら長期間にわたり炉水に暴露される条件は より過酷と考えられ、炉内腐食試験による実証データが必要である。

c) 反応度ペナルティー

図 3.4.5-7 には、国内現行 BWR 燃料である 9×9 型燃料の燃料被覆管を FeCrA1-ODS 鋼に変更した場合の全炉心計算結果^(3.4.5-2)を示している。計算は、ABWR 炉心、9×9A 型燃料、ウォーターロッドとチャンネルボックスは Zry もしくは SiC、断面平均濃縮 度 4.4%、取り出し平均燃焼度 45GWd/t、炉心運転期間 13 カ月の条件で行っている。 なお、燃料被覆管の外径は現行燃料被覆管と同一の 11.2mm であるが、肉厚を現行の 約半分である 0.35mm、また、肉厚の減少分だけ UO2ペレットの外径を大きくしている (すなわち、燃料ペレット - 燃料被覆管のギャップは現行と同一)。図に示されるよ うに、運転期間末期において現行燃料と同程度の余剰反応度が得られており、燃料被 覆管の肉厚を約半分とすることで、反応度ペナルティーを大幅に低減させ、現行 Zry 燃料と同等の炉心設計成立性が得られている。同一の燃料設計条件で実施された燃料 挙動解析では、通常運転時の燃料温度、FP ガス放出率、燃料棒内圧は寿命を通じて 現行 Zrv 燃料と同等であり、過渡変化時の出力余裕にも十分な余裕があることが確認 されており、その設計成立性が確認されている^(3.4.5-3)。当然のことながら、薄肉化を 進めることで反応度ペナルティーをより低減できるが、製造性や熱機械特性の観点か らの設計成立性との両立が必要であり、最適な燃料設計を得るためには引き続き検討 が必要である。

2) 事故時(設計基準事故)

超高温用 ODS フェライト鋼を燃料被覆管に適用した場合の LOCA 時の FP ガス放出が 始まる温度の評価は、Zr を添加して、過剰酸素濃度を最適化した SP10 被覆管材を用い て評価された Larson-Miller parameter (以降、LMP と記す)を用いた強度計算により 行った。計算では、通常運転時での成立性が確認された、外径 11.2mm、肉厚 0.35mm (現行 Zry 燃料被覆管の約半分)を仮定し、室温における燃料棒内圧は 2MPa として、 1.0h 未満でクリープ破断する温度を求めた。

本事業の高温強度試験で得られた SP10 被覆管材の LMP は、温度 T($^{\circ}$ C)、破断時間 t_{R} (h)、相当応力 σ (MPa)を用いて以下と評価された。

 $LMP = (T + 273.15) (10.50 + \log_{10} t_R)$

LMP = $28312.55 - 7775.9\log_{10}\sigma$

上記の LMP を用いて相当応力が 10、50、100、150MPa の場合の t_Rの温度依存性を計 算した結果を図 3.4.5-8 に示している。図に示されるように、発生する相当応力により 破断時間は大きく変化するが、例えば相当応力が 100MPa の場合には、1h 未満で破断す るためには 950℃程度以上の温度が必要となることが分かる。表 3.4.5-3 には、800℃ ~1300℃の温度範囲において計算した、相当応力と破断時間の一覧を示している。計算 は圧力容器内の圧力が 7MPa で保持された場合と、大気圧(0.1MPa)にまで減圧された場 合の両者について実施した。外圧が大気圧の場合には、900℃-1000℃において 1h 未満 で破断する評価となっている。外圧が 7MPa の場合には、内外圧差が小さくなるため破 断に対する裕度が大きくなり、1h 未満で破断する温度は 1200℃-1300℃にまで上昇して いる。

現行 Zry 燃料被覆管の場合の計算は、肉厚を 0.7mm として実施した。なお、現行 Zry 燃料被覆管の LMP は報告されていないため、破断条件は、MATPRO^(3.4.5-4)で報告されている Zry の強度に円周方向応力が到達する温度で破断すると仮定して、破断する温度を評価した。その結果、外圧が大気圧の場合には 700℃-800℃(超高温用 ODS フェライト鋼の場合は 900℃-1000℃)、外圧が 7MPa の場合には 1000℃-1100℃(超高温用 ODS フェライト鋼の場合は 1200℃-1300℃) において破断する評価となった。なお、強度以上の応力が負荷される場合には、短時間で破断すると考えられるため、超高温用 ODS フェライト鋼の破断基準がより厳しいものとなる。

これらの計算から、反応度ペナルティーを補償するために肉厚を半分にしたとして も、超高温用 0DS フェライト鋼を燃料被覆管に適用することで破断に対する 200℃程度 の裕度を得ることが評価された。

なお、燃料棒内圧が高い場合には、1200℃程度まで燃料被覆管温度が上昇するとク リープ破断して FP が放出されてしまうが、高温水蒸気酸化試験や LOCA 模擬試験で示さ れたように、LOCA 時に経験する高温水蒸気酸化や急冷に対する耐性が高いため、機械 的特性の劣化の観点からも裕度が大幅に上昇することになる。

3) 事故時(過酷事故)

超高温用 0DS フェライト鋼の事故時の被覆管肉厚(健全部)の損耗速度の計算には、 本事業で実施した高温水蒸気酸化挙動試験と UO₂との高温反応試験の成果を用いた。具 体的には、Zr を添加した SP10A の試験結果を用いており、UO₂との高温反応については アルミナ被膜の厚さが最大となった SP7A を用いて 1400℃で評価された K_pを全ての温度 に適用した。計算では、通常運転時での成立性が確認された肉厚 0.35mm を初期肉厚と した。現行 Zry 燃料被覆管の場合には、肉厚は 9×9BWR 燃料と同様である 700 µ m とし、 報告している Zry の高温水蒸気酸化速度^(3.4.5-5)と UO₂との高温反応速度^(3.4.5-6)を用いて 損耗速度を計算した。なお、両者とも内圧破裂は考慮していない。1200、1400℃のそれ ぞれで反応層厚さを最大 24h まで計算した結果を図 3.4.5-9 に示している。現行 Zry で は、反応開始後、被覆管の内面、外面の双方から健全部の損耗が急速に進み、1200℃で は 3h 後、1400℃では 1h 未満で健全部が消失している。一方、超高温用 0DS フェライト 鋼では、反応開始後 24h 経過してもほとんど反応が進んでおらず、健全性がより長時間 確保できていることが確認される。

参考文献

(3.4.5-1) K. A. Terrani, B. A. Pint, Y. -J. Kim, K. A. Unocic, Y. Yang, C. M. Silva, H.

M. Meyer III, R. B. Rebak, "Uniform corrosion of FeCrAl alloys in LWR coolant environments," J. Nucl. Mater., 479 (2016) 36-47

- (3.4.5-2) 高野他、「改良ステンレス鋼燃料被覆管の BWR 装荷に向けた研究開発(2) 燃料断面 核特性・炉心特性評価」、日本原子力学会 2016 年秋の大会、2016 年 9 月、1B08
- (3.4.5-3) 草ヶ谷他、「改良ステンレス鋼燃料被覆管の BWR 装荷に向けた研究開発(3) 燃料挙 動解析」、日本原子力学会 2016 年秋の大会、2016 年 9 月、1B09
- (3.4.5-4) L. J. Siefken, E. W. Coryell, E. A. Harvego, J. K. Hohorst, "SCDAP/RELAP5/MOD 3.3 Code Manual MATPRO - A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis," NUREG/CR-6150, Vol. 4, Rev. 2, INEL-96/0422, 2001
- (3.4.5-5) F. Nagase, T. Omoto, H. Uetsuka, "Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 to 1573 K," J. Nucl. Sci. Tech., 40, 4 (2003) 213-219
- (3.4.5-6) P. Hofmann, D. K. Kerwin-Peck, "U0₂/Zircaloy-4 chemical interactions and reaction kinetics from 1000 to 1700 deg. C under isothermal conditions (Final report)," KfK 3552 (

鋼種	Cr	Ti	A1	Y	Zr	0	Fe
SP9(管)	14.70	0.50	6. 38	0.36	0.36	0.25	Bal.

表 3.4.5-1 試験片の化学組成の一覧(LOCA 模擬試験)

表 3.4.5-2 LOCA 模擬試験(水蒸気暴露)の試験条件一覧

試験温度 (℃)	保持時間 (h)	相当 ECR [*] (%)	員数
	0.5	22.4	1
1200	1.0	31.7	1
	2.0	44.8	2

*ECR: Equivalent Cladding Reacted (被覆管化学量論的酸化量) 現行ジルカロイ材 (肉厚約 0.7mm) で外面酸化のみが起こる場合を仮定、 Baker-Just の式で得られた酸化量 (板厚比)。LOCA 基準は ECR=15%

泪座	外圧が 7	MPa の場合	外圧が 0.1 MPa の場合		
	相当応力	破損時間	相当応力	破損時間	
(C)	(MPa)	(h)	(MPa)	(h)	
800	4	4. 21×10^{11}	97	7.20×10 ¹	
900	14	3. 22×10^{6}	106	3. $77 \times 10^{\circ}$	
1000	23	6. 74×10^3	115	3. 28×10^{-1}	
1100	32	9. 50×10^{1}	124	4. 22×10^{-2}	
1200	41	3. $77 \times 10^{\circ}$	134	7.37 $\times 10^{-3}$	
1300	50	2.90 $\times 10^{-1}$	143	1.65×10^{-3}	

表 3.4.5-3 LMP から計算した超高温用 ODS フェライト鋼の破損時間



図 3.4.5-1 高温水蒸気への暴露と急冷までを実施した試験体系の概略図



図 3.4.5-2 LOCA 模擬試験における電気炉温度履歴の例



図 3.4.5-3 1200℃高温水蒸気暴露による重量増加



図 3.4.5-4 リング圧縮試験後の試験片の外観観察例 (2.0h 保持)



図 3.4.5-5 リング圧縮試験における押し込み変位と荷重の変化



図 3.4.5-6 報告されている炉外腐食試験結果 (3.4.5-1)



図 3.4.5-8 LMP から計算される t_Rの温度、応力依存性



図 3.4.5-9 肉厚健全部の損耗速度評価結果

3.5 研究推進

研究の推進に当たっては、研究代表者の下で再委託先機関との連携を密にして研究を進める とともに、研究実施計画及び研究結果について協議するための会議を定期的に開催した。

平成 25 年 10 月に開始された本事業のスタートに際し、再委託先機関を含む研究者のほぼ全 員が参加してキックオフ会議を平成 25 年 1、19 日に北海道大学で開催した。1 日目には、高速 炉事故時と軽水炉事故時における燃料安全の観点から被覆管に要求される性能をレビューした 後、ODS フェライト鋼の高温強度、熱時時効脆化、水蒸気酸化について今後の課題を確認した。 2 日目には、各機関で計画している今年度の研究内容とスケジュールを紹介し、進め方につい て議論した。また、平成 26 年 3 月 7 日、8 日に北海道大学で年度末会議を開催した。ここでは、 各機関よりこの半年間の研究成果が報告され議論した。この間は本事業が始まって最初の半年 間であることから、実験装置の整備や超高温用 ODS フェライト鋼製造のための準備段階と位置 付けられる。合わせて、各機関から平成 26 年度の研究計画についても報告され、内容の確認を 行った。特に、来年度より製造する超高温 ODS フェライト鋼棒材の化学成分とスケジュールを 調整・確認した。

平成26年度の進捗会議は平成26年10月7日、8日に北海道大学において、再委託先機関 を含む研究者全員参加のもとに開催された。ここでは、第1期試作14鋼種の熱間押出棒のスク リーニング試験結果を踏まえて、被覆管試作を行う7鋼種を選定するとともに、第2期試作材 6鋼種の化学成分を決定した。平成26年3月30日、31日に日本原子力研究開発機構大洗研究 開発センターにおいて、年度末会議を開催した。ここでは、各再委託先より10月以降の半年間 の研究成果が報告され、その結果を議論した。また、次年度の研究計画を協議した。

平成 27 年度の進捗会議は平成 27 年 8 月 3 日、4 日に再委託先機関を含む研究者全員が参加 して、北海道大学で開催された。本会議では、10 鋼種の被覆管の製管状況を確認し、第1期試 作高 A1 材での異常粉砕の原因を予備試験結果に基づき議論した。また、超高温用 ODS 鋼の 1200℃での水蒸気酸化試験結果、1400℃までの UO₂ との反応試験結果を含め、各再委託先で得 られた研究成果について議論し、後期の進め方を協議した。また、秋季原子力学会でシリーズ 発表する 10 件の発表内容について確認し議論した。平成 28 年 3 月 29 日、30 日には日本原子 力研究開発機構大洗研究開発センターにおいて、年度末会議を開催した。特に、製管した 9CrODS 鋼被覆管と超高温用 ODS 鋼被覆管の 1000℃でのリング引張試験結果やリングクリープ試 験結果、及び 1400℃までの水蒸気酸化試験結果について議論した。また、次年度の研究計画を 協議するとともに、平成 28 年度に開催される国際会議への投稿論文についても協議した。

平成 28 年度の進捗会議は平成 28 年 10 月 13 日、14 日の両日、再委託先機関を含む研究者 全員が参加して、北海道大学で開催された。特に、ジルカロイとの比較で超高温用 0DS フェラ イト鋼被覆管を軽水炉に適用した場合の優位性を 1200℃以上での水蒸気酸化、事故時高温強度、 LOCA 事象緩和の観点から議論した。また残り半年間で集中的に行うべき研究課題について確認 した。また、平成 29 年 3 月 10 日に成果報告会を北海道大学フロンティア化学研究棟セミナー 室で開催した。各再委託先機関から本事業で得られた研究成果をまとめて報告するとともに、 最後に事故耐性燃料被覆管の専門家による招待講演会を行った。
4. 結言

H25 年 10 月からの 3.5 年間、再委託先機関と連携を密にして業務を進め、当所計画を上回る 研究成果を挙げることができた。

高速炉の安全性については、既存の 9/12CrODS 鋼被覆管の 1300℃までの高温強度データを取 得し、これより策定した破損寿命評価式を用いてシビアアクシデント時の燃料破損限界を評価し た。その結果、高速炉の典型的なシビアアクシデントである ULOF 事象と UTOP 事象下での累積損 傷和 (CDF) の解析から、SASS が作動するまでの期間の燃料健全性を示すことができた。このこ とは ULOF 事象や UTOP 事象において、燃料破損を回避して冷却形状を維持できることを意味して おり、シビアアクシデントに至ることなく事故を終息でき高速炉の飛躍的な安全性向上をもたら すものである。

一方、軽水炉のシビアアクシデントを想定して、水蒸気酸化抵抗性が格段に優れたアルミナ 被膜を有する超高温用 ODS フェライト鋼被覆管を開発した。特筆すべき成果は、Zr 濃度と過剰 酸素濃度を制御することにより、優れた水蒸気酸化抵抗性と高温クリープ強度を両立して達成し たことであり、これは世界で初めての技術である。これにより、1450℃でもスケール剥離の無い、 安定したアルミナ被膜の生成に成功するとともに、1000℃でのクリープ破断強度は既存 9/12CrODS 鋼被覆管の強度を凌駕するこのクラスでは世界最高レベルを達成した。Zr 添加超高温 用 ODS フェライト鋼被覆管の優れた高温強度と水蒸気酸化耐性により、中性子吸収断面積の増加 分を補償するため被覆管肉厚を約半分にしても、LOCA 時の燃料破損温度は現行ジルカロイと比 較して 200 ℃程度の上昇が期待され、事故時燃料破損のリスク低減を見込めることが示された。 被覆管肉厚を半分にすることにより、中性子吸収断面積の大きい Fe ベースにしたことによる反 応度ペナルティを補償できることも確認され、開発した超高温用 ODS フェライト鋼は事故耐性燃 料被覆管として極めて有望であることが確認された。

付録:外部発表リスト

機関名 国立大学法人 北海道大学

発表した成果(発表題目)	ロ頭・ポ スター発 表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場 所	発表月日等	国内・外 の別
9Cr0DS フェライト鋼の 1000℃以上での酸化物粒子 成長挙動	口頭	中村 顕、鵜飼 重治、大野 直 子 、皆籐 威 二、烏丸忠 彦、木村 晃 彦、林 重成	平成 26 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部冬季講演大会	2015 年 1 月 29 日	国内
9Cr0DS フェライト鋼の 1000℃以上での酸化物粒子 成長挙動	口頭	中村 顕、鵜飼 重治、大野 直 子 、皆籐 威 二、烏丸忠 彦、木村 晃 彦、林 重成	日本金属学会 2015 年春 期(第 156 回)講演大会	2015 年 3 月 19 日	国内
AI-Zr 添加 ODS 鋼に及ぼす 添加酸素の影響	口頭	静川裕太、 前 重 子、大 大 塚 藤 丸 忠 、 木 村 晃 名 、 大 重 智 史 、 、 皆 島 丸 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 、 大 国 子 の 、 、 大 国 名 、 、 大 国 子 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	日本金属学会 2015 年春 期(第 156 回)講演大会	2015 年 3 月 19 日	国内
AI-Zr 添加 ODS 鋼の高温酸化 に及ぼす過剰酸素の影響	口頭	静川裕太、鵜 飼 重子、大塚 史、大塚 と、 皆 丸 忠 忠 、 村 晃 子 、 大 家 殿 史 、 太 家 、 太 家 一 で 、 大 家 の の 、 大 家 の の の 、 大 の で の の 、 大 の の の の 、 、 大 の の の の の 、 、 、 の の の の	平成 26 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部冬季講演大会	2015 年 3 月 19 日	国内
AI-Zr 添加高 CrODS 鋼の高温 水蒸気酸化	ポスター	静川裕太、執 前重子、大丁 立子、大丁 大丁 二、 、 本 本 昭 思 、 、 皆 泉 丸 忠 、 志 、 志 志 、 志 志 、 志 志 、 、 皆 志 、 、 ち 志 、 、 、 ち 志 、 、 、 、 ち 志 、 、 、 ち 志 、 、 、 ち 志 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 丸 、 、 ち 皆 丸 忠 忠 丸 志 、 ち 志 志 志 志 志 二 、 ち 志 志 志 志 志 二 、 ち 志 志 志 二 、 ち 志 た 志 ち 志 た 志 た 志 た 志 志 志 た 志 た 志 た 志 た こ 、 ち 志 た 志 た 志 た 志 た こ こ 、 ち 志 た 志 た 志 た 志 た こ た こ た こ た こ こ 、 本 ち 一 こ た こ た こ た こ た う た こ た う た こ た う た こ た う た こ た う た こ た う た こ た う た う た う た う た う た う た う た う た う た う た う た う た う た う た こ た う た ち た た た う た う た う た う た ち た た た た た ち た う た う た た た た た う た た た た た た た た た ち た た た た た た た た た た た た た	平成 27 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両 (北 海道) 支部合同サマーセ ッション	2015 年 7 月 27 日	国内
AI 添加 18CrODS フェライト 鋼の事故時高温変形機構	ポスター	上川亮磨、鵜 飼重治、大野 直子、島丸忠 彦、木村晃 彦、林重成	平成 27 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部合同サマーセ ッション	2015 年 7 月 27 日	国内
事故時燃料健全性確保のた めの ODS フェライト鋼被覆 管の研究開発(1) 計画の概 要	口頭	鵜飼重治、皆 藤威二、鳥丸 忠彦、木村晃 彦、林重成	日本原子力学会 2015 年 秋の年会	2015 年 9 月 10 日	国内
事故時燃料健全性確保のた めの ODS フェライト鋼被覆 管の研究開発 (5) 高温加熱に よる微細組織変化	口頭	大野直子、鵜 飼重治、中村 顕、井尻祐 太、木村晃 彦、皆藤威 二、烏丸忠彦	日本原子力学会 2015年 秋の年会	2015 年 9 月 10 日	国内

事故時燃料健全性確保のた めの ODS フェライト鋼被覆 管の研究開発 (9) 高温大 気・水蒸気酸化特性	口頭	静川裕太、鵜 飼重治、大野 直子、林重 成、皆藤威 二、烏丸忠 彦、木村晃彦	日本原子力学会 2015年 秋の年会	2015 年 9 月 10 日	国内
AI 添加 18CrODS 鋼の事故時 高温変形機構	口頭	上川亮磨、鵜 飼重治、大野 直子、皆藤威 二、烏丸忠 彦、木村晃 彦、林重成	日本金属学会 2015 年秋 期(第 157 回)講演大会	2015 年 9 月 17 日	国内
Oxide particle coarsening at temperature over 1473 K in 9CrODS steel	ポスター	K. Nakamura, N. Oono, S. Ukai, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, and S. Hayashi	17th International Conference of Fusion Reactor Materials (ICFRM-17)	2015 年 10 月 14 日	国外
Grain boundary sliding associated with low strain rate at 1000 degrees C in recrystallized ODS ferritic steel	ポスター	S. Ukai, R. Kamikawa, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi, H. Masuda, E. Sato	17th International Conference of Fusion Reactor Materials (ICFRM-17)	2015 年 10 月 14 日	国外
AI 添加高 Cr フェライト鋼の 高温酸化に及ぼす Cr 量依存 性	口頭	静川 前 重 子、大 皆 馬 丸 忠 、 朱 紫 殿 忠 忠 、 志 、 志 志 、 ち 皆 永 、 ち 皆 永 、 ち 皆 永 、 大 雪 子 、 大 皆 書 子 、 大 皆 書 、 、 ち 皆 ふ 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 、 、 ち 皆 丸 丸 、 ち 皆 丸 丸 、 ち 皆 丸 丸 、 ち 皆 丸 丸 志 、 ち 皆 丸 丸 忠 志 ち 志 丸 ち ち 志 丸 ち 志 丸 ち 志 志 志 志 ち 志 た ち 志 た ち 志 た ち 志 た ち ち 志 た ち 志 た 志 た 志 た 志 た ち 志 た ち 志 た ち 志 た ち た た ち た た ち た た ち た た ち た た た ち た た た ち た た た ち た た た た た た た た た た た た た	平成 27 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部冬季講演大会	2015 年 12 月 17 日	国内
AI 添加 18Cr0DS フェライト 鋼の 1000℃における高温変 形機構	口頭	上川亮磨、鵜 飼重治、大野 直子、島丸忠 彦、木村晃 彦、林重成	平成 27 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部冬季講演大会	2015 年 12 月 17 日	国内
AI 添加高 Cr0DS 鋼の 1000℃ における 高温変形機構	口頭	上川 亮 重 子、 始 町 重 子、 佐 藤 二 、	日本金属学会 2016 年春 期(第 158 回)講演大会	2016 年 3 月 25 日	国内
事故時高温条件での燃料健 全性確保のための ODS フェ ライト鋼燃料被覆管の研究 開発(2) (2)高温加熱時の微細組織解 析	口頭	大野直子、中 村顕、鵜飼重 治、皆藤威 二、鳥丸忠 彦、木村晃 彦、林重成	日本原子力学会 2016年 春の年会	2016 年 3 月 26 日	国内

R&D of fuel cladding of ODS ferritic steel for maintaining fuel integrity at accidental high temperature condition (2) (5)Order phase formation due to 8-15 wt.% Al addition in Fe-Cr-Al ferritic steels	口頭	B. Maji, S. Ukai, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi	日本原子力学会 2016 年 春の年会	2016 年 3 月 26 日	国内
軽水炉事故時における FeCrAl-ODS 鋼の高温変形機 構	ポスター	上川重子、 「 「 完 治、 生 一 、 、 告 席 、 七 田 子、 佐 藤 藤 、 大 田 士 、 、 皆 子、 佐 告 、 、 皆 子、 、 皆 子、 、 皆 子、 、 告 、 、 告 、 、 一 二 、 一 、 二 、 、 、 一 、 、 、 、 、 、 、 、	平成 28 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部合同サマーセ ッション	2016 年 7 月 1 日	国内
9CrODS 鋼被覆管の高温リン グ引張試験時における酸化 物粒子の成長	ポスター	曽和貴史、鵜 飼重治、大野 直子 矢野康英、 皆藤威二、鳥 丸忠彦、林重成	日本金属学会 2016 年秋 期(第 159 回)講演大会	2016 年 9 月 21 日	国内
FeCrAI-ODS 鋼の軽水炉事故 時における低応力域での高 温変形機構	口頭	上川 「 」 「 重 子 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	日本金属学会 2016 年秋 期(第 159 回)講演大会	2016 年 9 月 22 日	国内
Development of FeCrAl-ODS steels for BWR/ATF cladding	口頭	S. Ukai, N. Oono, K. Sakamoto, T. Torimaru, T. Kaito, A. Kimura, S. Hayashi	13th China-Japan Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering Hefei, China	2016 年 9 月 26 日- 29 日	国外
Stability of various oxide particles in oxide dispersion strengthened (ODS) steels above 1473K	ポスター	N. Oono, S. Ukai, T. Kaito, S. Ohtsuka, T. Torimaru, K. Sakamoto, S. Hayashi, A. Kimura	Nuclear Materials Conference (NuMat2016)	2016 年 11 月 7 日	国外

Oxygen effect on steam oxidation resistance of Zr-added FeCrAl-ODS steels at 1473 K	ポスター	S. Ukai, Y. Shizukawa, N. Oono, S. Hayashi, K. Sakamoto, T. Torimaru, T. Kaito, S. Ohtsuka, A. Kimura	Nuclear Materials Conference (NuMat2016)	2016 年 11 月 7 日	国外
FeCrAI-ODS 鋼の高温クリー プ変形に及ぼす Zr 添加効果	口頭	上川亮 席、 開 子、 席 不 、 告 、 、 田 田 米 二 、 告 志 、 田 田 米 二 、 七 田 米 二 、 七 田 米 二 、 七 田 米 二 、 七 田 子 、 佐 田 来 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 、 告 末 志 、 告 末 志 二 、 告 末 志 二 、 古 本 志 二 、 告 末 志 二 、 告 末 志 二 、 告 末 志 二 、 告 末 志 志 志 志 志 志 志 志 志 志 志 志 志	平成 28 年度日本鉄鋼協 会・日本金属学会両(北 海道)支部冬季講演大会	2016 年 12 月 16 日	国内
FeCrAI-ODS 鋼の加工硬化特 性	口頭	曽和貴史、鵜 飼重子、大野 英、皆藤威 二、烏丸忠 彦、林重成 彦、林重成	日本金属学会 2017 年春 期 (第 160 回) 講演大会	2017 年 3 月 16 日	国内
事故時高温条件での燃料健 全性確保のための 0DS フェ ライト鋼燃料被覆管の研究 開発(3) (1)成果の全体概要	口頭	鵜飼重治、大 野直子、坂本 寛、皆藤威 こ、木軒 彦、林重成	日本原子力学会 2017年 春の年会	2017 年 3 月 28 日	国内
事故時高温条件での燃料健 全性確保のための ODS フェ ライト鋼燃料被覆管の研究 開発(3) (4)高温加熱による微細組織 変化の評価	口頭	大野直子、中 村顕、上川亮 磨、指歸 馬 、 皆藤威 二、鳥丸忠 彦、木重成 彦、林重成	日本原子力学会 2017年 春の年会	2017 年 3 月 28 日	国内
事故時高温条件での燃料健 全性確保のための 0DS フェ ライト鋼燃料被覆管の研究 開発(3) (6) FeCrAI-0DS 鋼の耐水蒸気 酸化特性	口頭	前田透真、鵜 飼重治、柴田 博紀、大野直 子、坂本寛、 鳥丸忠彦、皆 藤威二、木村 晃彦、林重成	日本原子力学会 2017年 春の年会	2017 年 3 月 28 日	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文(タイトル、)	発表者氏名	発表媒体(学会誌・	発表し	DOI (持っ	Ш	査
		雑誌等名 巻号ペー	た月	ており分	内	読
		ジ、発表日時 等)		かれば)	•	の
					外	有
					の	無
					別	

The effect of excess oxygen on the high temperature oxidation in Zr added FeCrAl ODS steels	Y.Shizukawa,S.Ukai, N.Oono,S.Hayashi,S. Ohtsuka,T.Kaito,T.T orimaru,A.Kimura	Proceeding on Advanced High- Temperature Materials Technology for Sustainable and Reliable Power Engineering (123HiMAT-2015), June 29-July 3, 2015, Sapporo, Japan, p. 149-152.	2015/7		国内	有
Grain boundary sliding associated with low strain rate at 1000 degrees C in recrystallized ODS ferritic steel	R. Kamikawa, S. Ukai, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi, H. Masuda, E. Sato	NUCLEAR MATERIALS AND ENERGY 9, 338- 341 (December 2016)	2016/12	10. 1016/j . nme. 2016 . 08. 006	国外	有
Oxide particle coarsening at temperature over 1473 K in 9CrODS steel	N. Oono, K. Nakamura, S. Ukai, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi	NUCLEAR MATERIALS AND ENERGY 9, 342- 345 (December 2016)	2016/12	10. 1016/j . nme. 2016 . 06. 008	国 外	有
Effect of ageing on the microstructural stability and hardness change in Fe- Cr-Al ODS ferritic steels	B.C. Maji, S. Ukai, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi	Proceeding of 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9),	2016/8		国内	有
Development of FeCrAl-ODS steels for accident tolerant fuel (ATF) cladding in light water reactors	S. Ukai, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, A. Kimura, S. Hayashi	Proceeding of 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9),	2016/8		国内	有
Growth of various oxide particles in oxide dispersion strengthened (ODS) steels	N. Oono, S. Ukai, S. Hayashi, S. Ohtsuka, T. Kaito, A. Kimura, T. Torimaru, K. Sakamoto	Proceeding of 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9),	2016/8		国内	有
Development of FeCrAl-ODS Steels for ATF Cladding	S. Ukai, N. Oono, S. Ohtsuka, T. Kaito, K. Sakamoto, T. Torimaru, A. Kimura,S. Hayashi	Proceeding of LWR Fuel with Enhanced Safety and Performance, TOPFUEL2016	2016/9		国 外	有

機関名 日本原子力研究開発機構

発表した成果(発表題目)	ロ頭・ポ スター発 表の別	発表者氏名	発表した学会 等名、場所	発表月日等	国内・外 の別
「事故時燃料健全性確保の ための ODS フェライト鋼被 覆管の研究開発(2) 押出 棒・被覆管の製造試験」	口頭	岡弘, 丹野敬嗣, 井上利 彦, 大塚智史, 矢野康 英, 皆藤威二, 鵜飼重 治, 木村晃彦, 鳥丸忠 彦, 林重成	日本原子力学 会 2015 年秋 の大会	2015 年 9 月 10 日	国内
「事故時燃料健全性確保の ための ODS フェライト鋼被 覆管の研究開発(3) 高温強 度特性」	口頭	加藤章一,古川智弘,大 塚智史,矢野康英,井上 利彦,皆藤威二,木村晃 彦,鳥丸忠彦,林重成, 鵜飼 重治	日本原子力学 会 2015 年秋 の大会	2015 年 9 月 10 日	国内
「事故時燃料健全性確保の ための ODS フェライト鋼被 覆管の研究開発(4)事故時 破損限界評価」	口頭	矢野康英,井上利彦,大 塚智史,古川智弘,加藤 章一,皆藤威二,木村晃 彦,鳥丸忠彦,林重成, 鵜飼重治	日本原子力学 会 2015 年秋 の大会	2015 年 9 月 10 日	国内
「事故時燃料健全性確保の ための ODS フェライト鋼被 覆管の研究開発(2) (1)事故 時破損限界評価」	口頭	矢野康英,加藤章一,大 塚智史,井上利彦,丹野 敬嗣,岡弘,古川智弘, 皆藤威二,木村晃彦,鳥 丸忠彦,林重成,鵜飼重 治	日本原子力学 会 2016 年春 の年会	2016 年 3 月 26 日	国内
「Ultra-high temperature tensile properties of ODS steel cladding for evaluating severe accident」	ポスター	矢野康英,丹野敬嗣,岡 弘,大塚智史,井上利彦, 加藤章一,古川智弘,上 羽智之,皆藤威二,鵜飼 重治,大野直子,木村晃 彦,林重成,鳥丸忠彦	Nuclear Materals Conference 2016, France	2016 年 11 月 7 日	国外
「High temperature creep properties of ODS steel cladding for evaluating severe accident」	ポスター	加藤章一,古川智弘,矢 野康英,丹野敬嗣,大塚 智史,岡弘,井上利彦, 皆藤威二,鵜飼重治,木 村晃彦,林重成,鳥丸忠 彦	Nuclear Materals Conference 2016, France	2016 年 11 月 7 日	国外
「Transient burst properties of ODS steel cladding for evaluating sever accident」	ポスター	井上利彦, 関尾佳弘, 大 塚智史, 矢野康英, 丹野 敬嗣, 岡弘, 古川智弘, 皆藤威二, 鳥丸忠彦, 林 重成, 木村晃彦, 鵜飼重 治	Nuclear Materals Conference 2016, France	2016 年 11 月 7 日	国外

「事故時高温条件での燃料 健全性確保のための ODS フ ェライト鋼燃料被覆管の研 究開発(3) (2) FeCr 及び FeCrAl-ODS 鋼被覆管の高温 強度特性」	口頭	加藤章一,古川智弘,大 塚智史,矢野康英,井上 利彦,皆藤威二,木村晃 彦,鳥丸忠彦,林重成, 鵜飼重治	日本原子力学 会 2017 年春 の年会	2017 年 3 月 28 日	国内
「事故時高温条件での燃料 健全性確保のための ODS フ ェライト鋼燃料被覆管の究 開発 (3) (3) FeCr 及び FeCrAI-ODS 鋼被覆管の破損 寿命評価式の策定」	口頭	矢野康英,加藤章一,大 塚智史,上羽智之,関尾 佳弘,井上利彦,古川智 弘,皆藤威二,鵜飼重 治,木村晃彦,鳥丸忠 彦,林重成	日本原子力学 会 2017 年春 の年会	2017 年 3 月 28 日	国内
「事故時高温条件での燃料 健全性確保のための ODS フ ェライト鋼燃料被覆管の研 究開発 (3) (5) 既存 ODS 鋼被 覆管の高速炉事故時破損限 界評価」	口頭	上羽智之, 矢野康英, 大 塚智史, 永沼正行, 丹野 敬嗣, 岡弘, 加藤章一, 皆藤威二, 鵜飼重治, 木 村晃彦, 鳥丸忠彦, 林重 成	日本原子力学 会 2017 年春 の年会	2017 年 3 月 28 日	国内
「Evaluation on tolerance to failure of ODS ferritic steel claddings at the accident conditions of fast reactors」	口頭	上羽智之, 矢野康英, 大 塚智史, 永沼正行, 丹野 敬嗣, 岡弘, 加藤章一, 皆藤威二, 鵜飼重治, 木 村晃彦, 鳥丸忠彦, 林重 成	2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, Kyoto	2017 年 4 月 27 日	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文(タイト	発表者氏名	発表媒体(学	発表し	DOI(持って	王	査
ル、)		会誌・雑誌等	た月	おり分かれ	内・	読
		名 巻号ペー		ば)	外の	Ø
		ジ、発表日時			別	有
		等)				無
Ultra-high temperature tensile properties of ODS steel claddings under severe accident conditions	Y. Yano, T. Tanno, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Inoue, S. Kato, T. Furukawa, T. Uwaba, T. Kaito, S. Ukai, N. Oono, A. Kimura, S. Hayashi and T. Torimaru	Journal of Nuclear Materials, Volume 487, pp. 229-237		http://dx.d oi.org/10.1 016/j.jnucm at.2017.02. 021	国外	有
-		(2017)				
Evaluation on tolerance to failure of ODS ferritic steel claddings at the accident conditions of fast reactors	T. Uwaba, Y. Yano, S. Ohtsuka, M. Naganuma, T. Tanno, H. Oka, S. Kato, T. Kaito, A. Kimura, S. Hayashi, T. Torimaru	Proceedings of ICAPP 2017, April 24-28, 2017 - Fukui and Kyoto (Japan)			国内	無

機関名 日本核燃料開発

1. 学会等における口頭・ポスター発表

発表した成果(発表題目)	口頭・ポ	発表者氏名	発表した学会等	発表月日等	国内・
	スター発		名、場所		外の別
	表の別				
軽水炉用事故耐性 FeCrAl-ODS	口頭	坂本 寛	第 15 回材料部会	2016/7/5	国内
鋼の開発			夏期セミナー、		
			北海道		
High-temperature steam	ポスター	坂本 寛,鳥丸忠彦、	NuMat2016、モン	2016/11/7	国外
oxidation of		鵜飼重治、大野直子、	ペリエ、フラン		
FeCrAl-ODS ferritic steels		皆藤威二、木村晃彦、	ス		
up to 1723 K		林重成			
材料部会セッション「事故耐	口頭	坂本 寛	原子力学会 2016	2017/3/28	国内
性燃料被覆管及び制御棒開発			年春の年会、東		
の現状と今後の展望」(1)			海大学湘南キャ		
FeCrAl-ODS 鋼被覆管の開発			ンパス		
事故時高温条件での燃料健全	口頭	鳥丸忠彦、坂本 寛,	原子力学会 2016	2017/3/28	国内
性確保のための		鵜飼重治、大野直子、	年春の年会、東		
ODS フェライト鋼燃料被覆管の		皆藤威二、木村晃彦、	海大学湘南キャ		
研究開発(3)		林重成	ンパス		
(9) UO2 との高温反応、LOCA					
模擬試験					
事故時高温条件での燃料健全	口頭	坂本 寛,鳥丸忠彦、	原子力学会 2016	2017/3/28	国内
性確保のための		鵜飼重治、大野直子、	年春の年会、東		
ODS フェライト鋼燃料被覆管の		皆藤威二、木村晃彦、	海大学湘南キャ		
研究開発(3)		林重成	ンパス		
(10) 軽水炉燃料被覆管への適					
用性評価					
Preliminary performance	口頭	坂本 寛,鳥丸忠彦、	ICAPP2017 、 福	2017/4/24-	国内
evaluation of FeCrAl-ODS		鵜飼重治、大野直子、	井・京都	28(予定)	
steel fuel cladding under		皆藤威二、木村晃彦、			
accident conditions of BWRs		林重成			

機関名 国立大学法人 京都大学

発表した成果(発表題目)	口頭・ポ	発表者氏名	発表した学会等	発表月日等	国内・
	スター発		名、場所		外の別
	表の別				
Effects of	口頭	Zhexian Zhang,	金属学会 2016	2017/3/17	国内
recrystallization on the		Akihiko Kimura, Oono	春期大会、首都		
aging embrittlement of		Naoko, Ukai Sigeharu	大学東京		
FeCrAl-ODS ferritic steels					
事故時高温条件での燃料健全	口頭	藪内聖皓,木村晃彦,	原子力学会 2016	2017/3/28	国内
性確保のための ODS フェライ		鳥丸忠彦,鵜飼重治,	年春の年会、東		
ト鋼燃料被覆管の研究開発		大野直子,皆藤威二,	海大学湘南キャ		
(3)(7)熱時効影響評価(熱時		林重成	ンパス		
効硬化・脆化)					
事故時高温条件での燃料健全	口頭	木村晃彦、藪内聖皓,	原子力学会 2016	2017/3/28	国内
性確保のための		鳥丸忠彦,鵜飼重治,	年春の年会、東		
ODS フェライト鋼燃料被覆管		大野直子,皆藤威二,	海大学湘南キャ		
の研究開発(3)(8)α/α'相		林重成	ンパス		
分離影響評価(まとめ)					

事故時燃料健全性確保のため の ODS フェライト鋼被覆管の 研究開発;(6) α'による 脆化挙動評価(1:引張特性)	口頭	韓 文妥, 藪内聖皓, 木村晃彦, 鵜飼重治, 皆藤威二, 鳥丸忠彦, 林 重成	日本原子力学会 「2015 年秋の大 会」	2015年9 月10日	国内
事故時燃料健全性確保のため の ODS フェライト鋼被覆管の 研究開発;(7) α'による 脆化挙動評価(2:衝撃特性と 熱時効のまとめ)	口頭	木村晃彦, 韓 文妥, 藪内聖皓, 鵜飼重治, 皆藤威二, 鳥丸忠彦	日本原子力学会 「2015 年秋の大 会」	2015年9 月10日	国内
「事故時燃料健全性確保のた めの ODS フェライト鋼被覆管 の研究開発;(8) 照射影響評 価」	口頭	藪内聖皓,韓 文妥, 木村晃彦,皆藤威二, 鳥丸忠彦,林 重成, 鵜飼重治	日本原子力学会 「2015 年秋の大 会」	2015年9 月10日	国内
「事故時高温条件での燃料健 全性確保のための ODS フェラ イト鋼燃料被覆管の研究開発 (2) (3)熱時効によるα/α′相分 離挙動」	口頭	木村晃彦, 藪内聖皓, 韓 文妥, 大野直子, 鵜飼重治, 皆藤威二, 鳥丸忠彦, 林 重成	日本原子力学会 2016 年春の年会	2016 年 3 月 26 日	国内
事故時高温条件での燃料健全 性確保のための ODS フェライ ト鋼燃料被覆管の研究開発(2) (4)イオン照射影響評価	口頭	藪内聖皓, 韓 文妥, 木村晃彦, 皆藤威二, 鳥丸忠彦, 林 重成, 大野直子, 鵜飼重治	日本原子力学会 2016 年春の年会	2016 年 3 月 26 日	国内
Effect of Thermal Aging on Microstructure and Mechanical Property of High-Cr Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels	ポスター	W. Han, A. Kimura, S. Ukai, N. Oono, T. Kaito, T. Torimaru, S. Hayashi	17th International Conference on Fusion Reactor Materials	2015 年 10 月 14 日	国外
Progress in Oxide Dispersion Strengthened Steels R&D towards Applications to Fusion Blankets	ポスター	A. Kimura, W. Han, Y. S. Ha, R. Kasada, K. Yabuuchi, D. S. Chen, T. Okuda, S. Ukai, S. Ohtsuka, P. Dou, S. H. Noh	17th International Conference on Fusion Reactor Materials	2015 年 10 月 15 日	国外

機関名 国立大学法人 東京工業大学

発表した成果(発表題目)	ロ頭・ポス ター発表の	発表者氏名	発表した学会等 タ 場所	発表月日 等	国内・ 外の別
	別			* J	1 02 111
The effect of Cr on	口頭	Suzue Yoneda,	International	2014年6	国内
formation and growth of		Shigenari Hayashi,	Symposium on	月 25 日	
Al2O3 scale on Fe-Cr-Al		Shigeharu Ukai	High-temperature		
alloys at 1000°C			Oxidation and		
			Corrosion 2014,		
			Hakodate		

In-situ X-ray diffraction analysis of Fe-Cr-Al alloys during initial oxidation using synchrotron radiation	口頭	Suzue Yoneda, Shigenari Hayashi, Shigeharu Ukai, Masao Takeyama	Advanced High- Temperature Materials Technology for Sustainable and Reliable Power Engineering, Sapporo	2015年7 月2日	国内
Development of transient oxide scale ant its role for a protective Al2O3 scale formation on Fe-Cr-Al alloys in air", Gordon Research Seminar, New London		Suzue Yoneda, Shigenari Hayashi, Shigeharu Ukai, Masao Takeyama	Gordon Research Seminar, New London, NH, USA	2015 年 7 月 25 日	国外
Combined effect of Cr and Al on the initial Al2O3 scale formation on Fe-Cr-Al alloys	ポスター	Suzue Yoneda, Shigenari Hayashi, Isao Saeki, Shigeharu Ukai, Masao Takeyama	European Federation of Corrosion Workshop, Frankfurt, Germany	2015 年 10 月 28 日	国外
The effect of Cr on oxidation of Fe-Cr-Al alloys at lower temperatures	ポスター	Suzue Yoneda, Shigenari Hayashi	9th International Symposium on High-Temperature Corrosion and Protection of Materials, France	2016 年 5 月 16 日	国外
Fe-Cr-AI 合金上に形成する保 護性酸化皮膜形成におよぼす Cr/AI 比の影響	口頭	米田鈴枝,林重成, 鵜飼重治	日本金属学会 春 期講演大会,東工 大	2014 年 3 月 22 日	国内
Fe-Cr-Al 合金上への保護性ア ルミナ皮膜形成挙動	口頭	米田鈴枝,林重成, 佐伯功,佐藤眞直, 鵜飼重治	日本金属学会 秋 期講演大会,名古 屋	2014 年 9 月 25 日	国内
Fe-Cr-Al 合金上へのアルミナ 皮膜形成におよぼすアモルフ ァス内層の影響	口頭	米田鈴枝,林重成, 鵜飼重治,竹山雅夫	日本金属学会 秋 期講演大会,九州 大	2015 年 9 月 17 日	国内
Al-rich アモルファス酸化物 層から保護性アルミナ皮膜へ の遷移挙動	口頭	米田鈴枝,林重成, 鵜飼重治	日本金属学会 春 期講演大会,東京 理科大	2016 年 3 月 24 日	国内
Fe-Cr-AI 合金上の保護性アル ミナ皮膜の成長と初期酸化挙 動の関係	口頭	米田鈴枝,林重成, 鵜飼重治	日本金属学会 秋 期講演大会,大阪 大	2016年9 月22日	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文(タイト	発表者氏名	発表媒体(学会誌・雑	発	DOI(持っており	玉	査
ル、)		誌等名 巻号ページ、	表	分かれば)	内・	読
		発表日時 等)	し		外の	の
			た		別	有
			月			無

Investigation of initial	Suzue Yoneda,	Oxidation of Metals,	8	10.1007/s11085-	国外	有
transient oxidation of	Shigenari	Vol.86, pp. 357-370	月	016-9641-0		
Fe-xCr-6at.%Al alloys	Hayashi, Isao	(2016)				
using synchrotron	Saeki, and					
radiation during heating	Shigeharu Ukai					
to 1000°C in air						
The effect of Cr on the	Suzue Yoneda,	Oxidation of	2	10.1007/s11085-	国外	有
life time of Al-rich	Shigenari	Metals, (2017)	月	017-9761-1		
amorphous oxide layer	Hayashi, Isao					
formed on Fe-Cr-Al	Saeki, and					
alloys at 650°C	Shigeharu Ukai					
The Transition from	Suzue Yoneda1,	Oxidation of Metals,	4		国外	有
Transient Oxide to	Shigenari	Accepted	月			
Protective Al2O3 Scale	Hayashi, and					
on Fe-Cr-Al Alloys	Shigeharu Ukai					
during Heating to 1000°						
С						