

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

(受託者) 国立大学法人北海道大学

(研究代表者) 鶴飼重治 大学院工学研究院

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、日本核燃料開発株式会社、

国立大学法人京都大学、国立大学法人東京工業大学

(研究期間) 平成 25 年度～28 年度

1. 研究の背景とねらい

高速炉では、既存の ODS フェライト鋼（以降 ODS 鋼と記す）を含めて 1000℃を超える使用条件での高温強度評価式を構築し、事故時において燃料破損を回避あるいは遅らせることにより、シビアアクシデントに至ることなく事故を終息できる可能性を追求する。軽水炉においては、福島第一原子力発電所事故がジルカロイと水蒸気との大きな発熱を伴う酸化反応を起点にして炉心溶解に到ったことを鑑み、耐水蒸気酸化が格段に優れたアルミナスケールを有する超高温用 ODS 鋼の適用性を評価し、事故時の事象緩和程度を明らかにする。

2. これまでの研究成果

2.1 既存 ODS 鋼被覆管の事故時破損限界評価

(1) 超高温強度特性評価

既存の 9Cr, 12CrODS 鋼被覆管を対象に昨年度整備した試験技術を用いて超高温リング引張試験を行い、周方向引張特性データを取得した(図 1)。9CrODS 鋼の周方向引張特性は 12CrODS 鋼より超高温領域(900～1200℃)においても優れることが分かった。これは 9CrODS 鋼は 1000℃以上では体心立方のフェライトから面心立方のオーステナイトに変態することに起因していると考えられる。さらに 9CrODS 鋼被覆管を対象に、急速加熱バースト試験を行い、想定される周応力 100MPa 以下の応力レベルでは、9CrODS 鋼被覆管の破損温度は 1100℃以上であり、優れた高温破損抵抗を有すること、および昇温速度が低下するとクリープ損傷の寄与により破裂温度が低下することが示された。また、1000℃での単軸・内圧クリープ試験装置を設計・製作し、9CrODS 鋼の 1000℃でのクリープ強度データ取得に着手した。

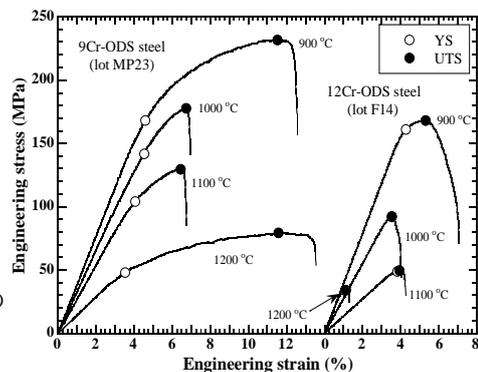


図 1 超高温引張試験で得られた既存 ODS 鋼被覆管の応力-歪曲線 (900℃～1200℃)

(2) 超高温加熱による酸化物粒子の成長速度の評価

ODS 鋼の高温強度を評価する上で重要な酸化物粒子について、事故時高温加熱を模擬するため、1200℃～1350℃の温度範囲で 最長 100 時間の高温保持後の酸化物粒子の成長挙動を TEM 観察により評価した。9CrODS 鋼中の酸化物粒子サイズは 1350℃, 27h の高温保持で約 3.5 倍にまで成長し、数密度は 1 桁減少した。オストワルド成長モデルに基づき得られた見かけの活性化エネルギーは 891kJ/mol となり、Fe 中の Y の転位拡散の活性化エネルギー(200kJ/mol)と比べると 4 倍以上大きいことが判明した。小さな酸化物粒子が溶解し大きな粒子が成長するオストワルドプロセスには

高温での酸化物粒子の安定性が大きく関与していることが示唆された。

(3) 事故時破損限界評価

9Cr, 12CrODS 鋼を対象に、今年度取得データと公開データ⁽¹⁾を用いて、任意の応力・温度上昇速度での被覆管破損寿命予測式の策定方法を検討した。9CrODS 鋼の場合、内圧クリープデータで最適化した LMP の定数 C 値を用いて、LMP-ライフ・フラクション法に基づきクリープ、引張、急速加熱バーストを一つの破損寿命予測式で表現することができた(図 2(a))。ただし、変態点を境界にして、母相構造に応じた式を策定する必要がある。一方 12CrODS 鋼の場合には、各強度データはそれぞれ異なる傾向を示し、一つの破損寿命予測式には収束しなかった(図 2(b))。特に急速加熱バースト試験の傾向が異なるのは昇温速度(歪速度と同等)の影響が顕著に現れるためと推察される。

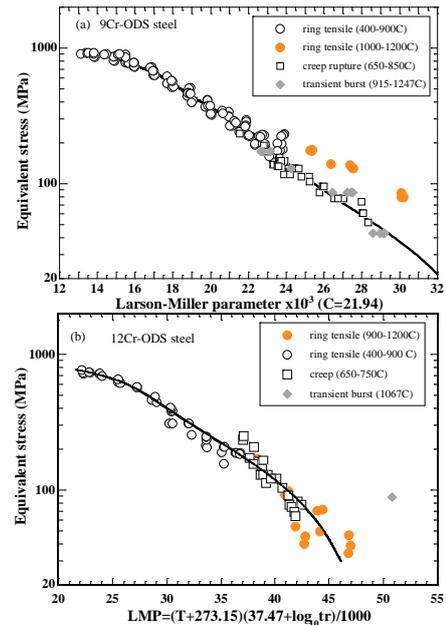


図 2 破損限界評価(例)
(a) 9CrODS 鋼被覆管
(b) 12CrODS 鋼被覆管

2.2 超高温用 ODS 鋼の製造と軽水炉燃料被覆管への適用性評価

(1) 被覆管製造

基本組成が Cr 濃度：10.1～16.8 wt%、Al 濃度：0～8.6 wt%の範囲で Zr 添加の有無、過剰酸素濃度をパラメータに 20 鋼種の超高温用 ODS 鋼押出棒を製造した。その内の 10 鋼種について、ピルガーミル圧延機を用いた製管試験を実施した。10 鋼種の化学成分(目標組成)を下記に示す。

SP1: 12Cr-2W-0.26Ti-0.23Y ₂ O ₃	SP10: 15Cr-7Al-0.5Ti-0.4Zr-0.21Ex.0-0.5Y ₂ O ₃
SP4: 15Cr-5Al-0.5Ti-0.5Y ₂ O ₃	SP13: 15Cr-9Al-0.5Ti-0.5Y ₂ O ₃
SP7: 15Cr-7Al-0.5Ti-0.5Y ₂ O ₃	SP15: 15Cr-7Al-0.5Ti-0.2Zr-0.12Ex.0-0.5Y ₂ O ₃
SP8: 15Cr-7Al-0.5Ti-0.4Zr-0.07Ex.0-0.5Y ₂ O ₃	SP18: 14Cr-7.5Al-0.5Ti-0.5Y ₂ O ₃
SP9: 15Cr-7Al-0.5Ti-0.4Zr-0.14Ex.0-0.5Y ₂ O ₃	SP19: 10Cr-7Al-0.5Ti-0.5Y ₂ O ₃

1 回の冷間圧延率を約 46%とし、軟化のための中間焼鈍を挟んで冷間圧延を 4 回繰り返して外径 8.5 mm、肉厚 0.5 mm の被覆管とした。冷間圧延には、原子力機構が国内メーカーと共同で ODS 鋼の製管用に開発した圧延技術(特許日本国第 3073981 号)を用いた。最終熱処理は 1150℃×1 時間で、再結晶仕上げとした。Al 濃度が高い SP13(15Cr-9Al)を除く 9 鋼種について、4 回目の圧延を完了することができた(図 3)。製管を完了した鋼種でも Al 濃度が高いほど、加工性が低下する傾向にあることが明らかとなった。

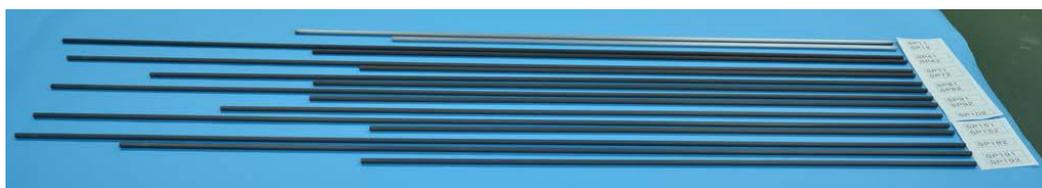


図 3 最終熱処理後の超高温用 ODS 鋼被覆管

(2) 熱時効脆化特性

α' 相生成による熱時効脆化が最も起こり易い 475°Cにおいて、最長 5000 時間までの熱時効を行った後に室温硬さ試験、引張試験および衝撃試験を実施した。Cr 濃度が 15%より低いと Al は相分離を促進するが、15%より高い場合には逆に相分離を抑制する傾向を示すこと、また Al 濃度の増大は短時間側での熱時効硬化を促進するが、一旦硬化した後の熱時効硬化量を逆に減少させることが判った。衝撃試験の結果から、9wt.%Al では 5000 時間時効後の DBTT が室温以上に上昇することが判った。注目したいのは、ODS 鋼に特徴的な熱時効硬化挙動が見いだされたことである。図 4 は 15%CrODS 鋼の時効に伴う室温での全伸びの減少を硬化量に対して示しており、Cr や Al の濃度に依存せず、ODS 鋼の全伸びの変化は通常のフェライト鋼 (SUS430 鋼-16%Cr) に比べ著しく小さく、2000 時間までの時効後も全伸びは約 8%を確保できることが判明した。すなわち、引張伸びの観点からは、超高温用 ODS 鋼の熱時効脆化は特に問題にならないと考えられる。またイオン加速器を用いた模擬照射実験 (300°Cで 3 dpa) により照射下相分離挙動を調査し、いずれの ODS 鋼においても照射硬化が観察されたが、これらの試料には α' 相は観察されず、転位ループが硬化因子の一つであることを確認した。

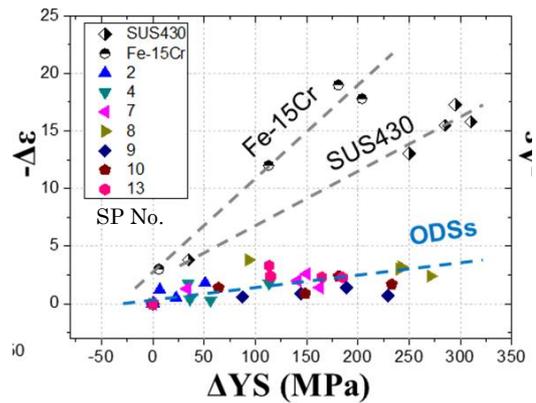


図 4 各種 ODS 鋼の 475°C、2000h 時効後の硬さ変化と全伸び変化の相関 (時効後の伸びはいずれも約 8%以上)

(3) 高温水蒸気酸化特性

20 鋼種の押出棒から試験片を作製し、1200°Cで 100 時間までの水蒸気酸化試験を実施した。酸化増量は放物線則に従うとして、酸化増量を 100 時間までの範囲で時間の 1/2 乗でフィッティングし、その傾きから反応速度定数を求めた結果をジルカロイやオーステナイト系ステンレス鋼 (304SS, 310SS) と比較して図 5 に示す。超高温用 ODS 鋼の水蒸気との反応速度はジルカロイに比べて約 3 桁低いことを確認した。ただし測定値は $0.85 \sim 5.06 \times 10^{-6} \text{ g cm}^{-2} \text{ s}^{-0.5}$ と広範囲分布している。反応速度定数が青色菱形で示した APMT (21Cr-5Al-3Mo 合金)⁽²⁾ より大きい試料は Zr 添加材であり、同時に酸素を添加して ZrO_2 の形で Y_2O_3 と反応させ酸化物粒子として固定すると、反応速度定数は APMT のそれと同程度にまで低下することを確認している⁽³⁾。

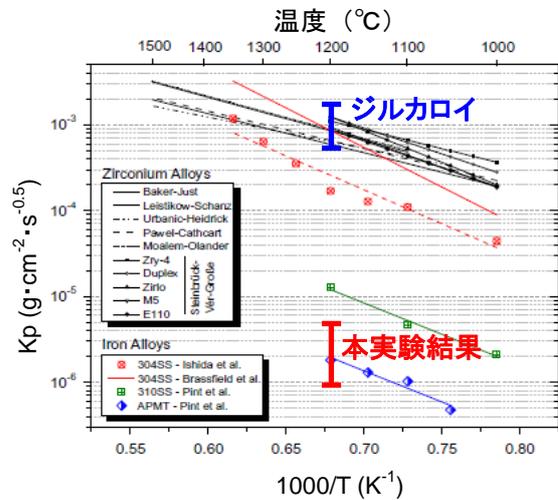


図 5 超高温用 ODS 鋼の 1200°Cでの水蒸気酸化速度定数

このような超高温用 ODS 鋼の優れた耐水蒸気酸化特性は、アルミナ保護被膜の生成に因るものであることから、アルミナ保護被膜生成に及ぼす Cr の効果をモデル合金を用いて調べた。昇温過程の初期酸化中に、合金表面に $(\text{Fe, Cr})_2\text{O}_3$ からなる遷移酸化スケールが形成するが、650°C付近から遷移酸化スケール/合金界面に薄い非晶質構造のアルミナが形成し、これが酸化初期の急激な温度上昇中の遷移酸化スケールの成長を著しく抑制していることを明らかにした。合金中の Cr は非

晶質アルミナを長時間安定に維持させる事により、アルミナ保護被膜の形成を促進していることを新たに見出した。

(4) UO₂との反応試験

超高温用 ODS 鋼 (15Cr-7Al-0.5Ti-0.5Y₂O₃) を用いて、シビアアクシデントを模擬した超高温時の UO₂ との反応試験を 1300°C、1400°C の不活性ガス雰囲気で行った。超高温用 ODS 鋼では 1 μm 程度のアルミナ層が形成されるのみで顕著な反応は見られなかった。図 6 には、形成されたアルミナ層を反応層として評価した反応層の成長速度をジルカロイ⁽⁴⁾と比較した。超高温用 ODS 鋼を用いることで大幅に UO₂ との反応を抑制できることを確認した。

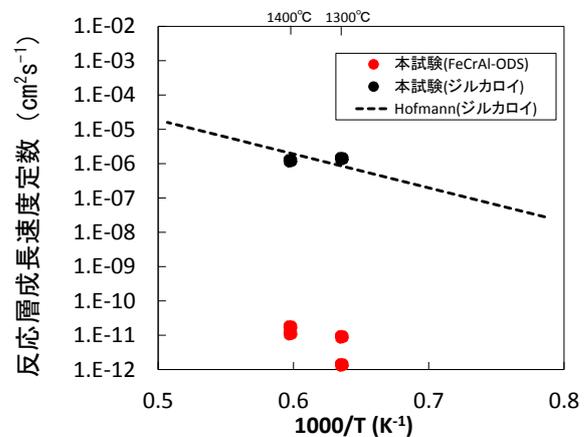


図 6 UO₂との反応層成長速度定数の比較

(5) 総合評価

シビアアクシデント時には、燃料被覆管は外面側では水蒸気との反応、内面側では UO₂ との反応が起こり、また内圧上昇による内圧破裂が問題となるが、本事業で取得したデータから評価すると、大幅に事故耐性を向上できるとの見通しが得られた。通常運転時には、Zr と比較して中性子吸収断面積が大きな Fe、Cr を使用することに伴う反応度ペナルティーを受けるため、核設計と熱機械解析に基づく設計上の工夫が必要である。

3. 今後の展望

既存 ODS 鋼(9Cr, 12CrODS 鋼)および超高温用 ODS 鋼を対象として、超高温環境下でのクリープ破断データ、リング引張強度データおよび急速加熱バーストデータを取得して、事故時高温条件における任意の応力・温度上昇速度で燃料破損の予測が可能な高温強度評価式を策定する。超高温用 ODS 鋼については、今年度に水蒸気に対する優れた耐酸化性 (1200°C) や UO₂ と殆ど反応しないこと (1300°C, 1400°C) を確認にしたが、さらに 1200°C 超での水蒸気酸化データを取得するとともにイオン照射下でも α' 相生成の促進が無いことを確認して、超高温用 ODS 鋼の適用による事故時安全性の向上をジルカロイとの比較で評価する。また、これらの成果は積極的に国内外の学会で発表するとともに、専門誌に投稿する予定である。

4. 参考文献

- (1) T. Kaito, et al., “The Tentative Materials Strength Standard of ODS Ferritic Steel Claddings”, JNC 研究報告書, JNC TN9400 2005-015 (in Japanese).
- (2) K.A. Terrani, S.J. Zinkle, L.L. Snead, J. Nucl. Mater., 448, p.420-435 (2014)
- (3) 鶴飼重治他、“鉄-クロム-アルミニウム系酸化物分散強化型鋼およびその製造方法、特願 2015-039891
- (4) P. Hofmann, J. Nucl. Mater., 270, p.194-211 (1999).