

# 次世代原子力システム用事故耐性被覆管 の照射特性評価技術の開発

令和6年3月11日(月)

日本原子力研究開発機構 大塚 智史 (研究代表)  
矢野 康英

九州大学 中島 英治 (再委託機関研究責任者)  
光原 昌寿

北海道大学 大沼 正人 (再委託機関研究責任者)

東北大学 外山 健 (再委託機関研究責任者)

- 対象とするシステム：ナトリウム冷却高速炉(SFR)
- 研究対象とする技術：酸化物分散強化型(ODS)鋼の照射特性評価手法

酸化物分散強化型(ODS)鋼被覆管  
優れた耐スエリング性と高温強度

- 次世代炉の経済性向上のため開発された被覆管材料であるが、その優れた高温強度から、燃料安全性の向上にも有効。

- ナノスケール酸化物粒子  
⇒ 高温～超高温、長時間環境下での優れた安定性

・組織と強度の相関把握が  
比較的容易である可能性

- 通常の耐熱鋼の組織：転位組織、MX (X=C, N), ...  
⇒ 高温保持による組織変化が大きく組織と高温強度の相関把握が難しい。

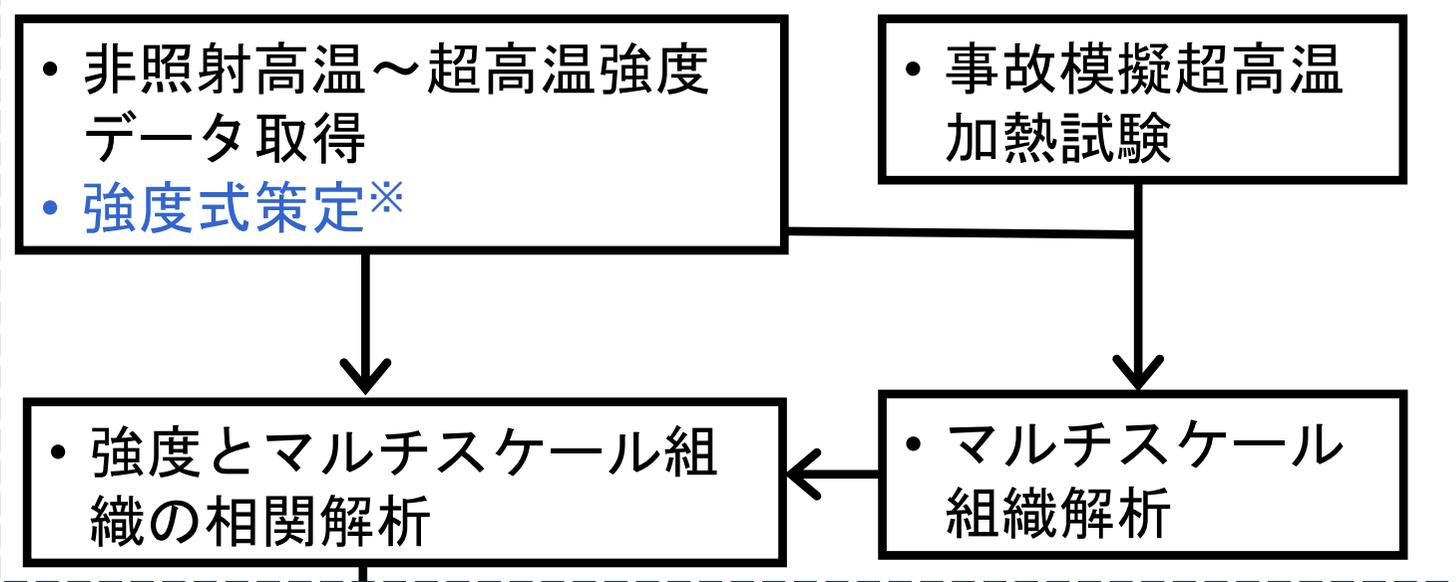
本研究では、ODS鋼被覆管の実機適用に必須となる照射特性の把握、及び材料強度基準の整備を加速するため、**ODS鋼の組織構造と機械的特性(高温～超高温)を繋げる相関式を整備する**ことを目的とする。

# 本研究の概要

## <研究項目②>

- 中性子照射材の微細組織定量評価

## <研究項目①>

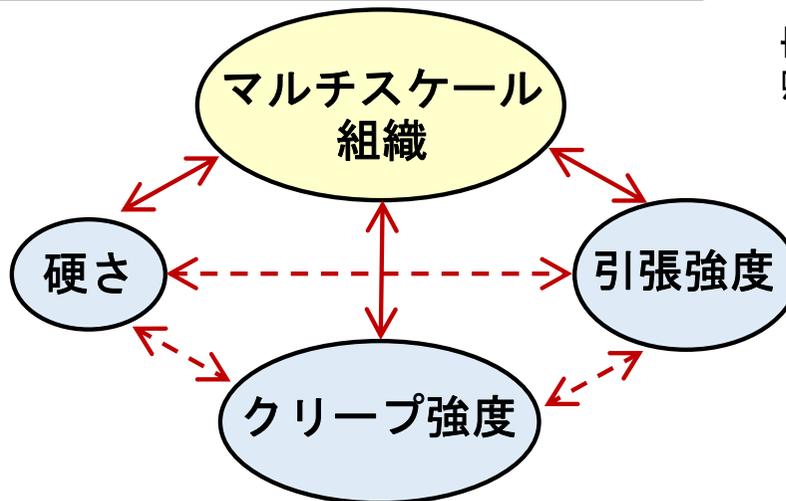


## <研究項目③>

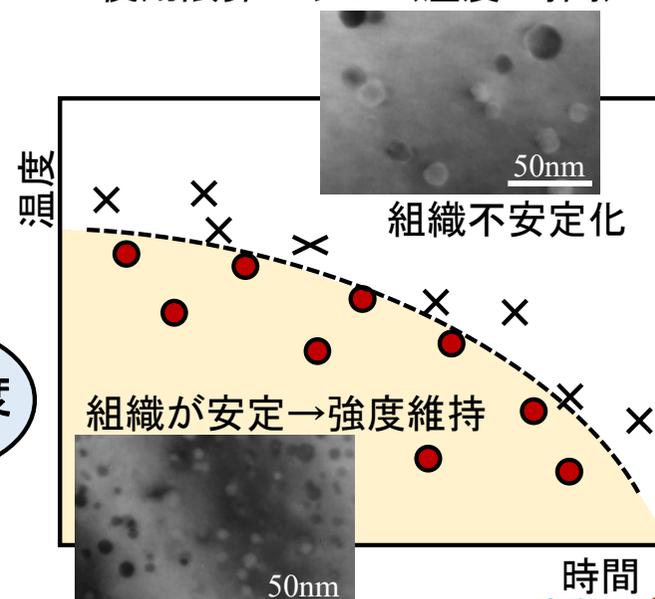
- 中性子照射下での高温強度予測

## <研究項目③>

- 定量的相関式の策定



使用限界マップ (温度-時間)



※ラーソン・ミラー・パラメータ (LMP) を用いたクリープ強度式を策定。加えて、LMPと寿命分数和 ( $CDF = \sum_i \Delta t_i / t_{ri}$ ) を用いて、異なる変形モードを統一評価する強度式<sup>[1]</sup> (LMP-Life fraction式) を策定。

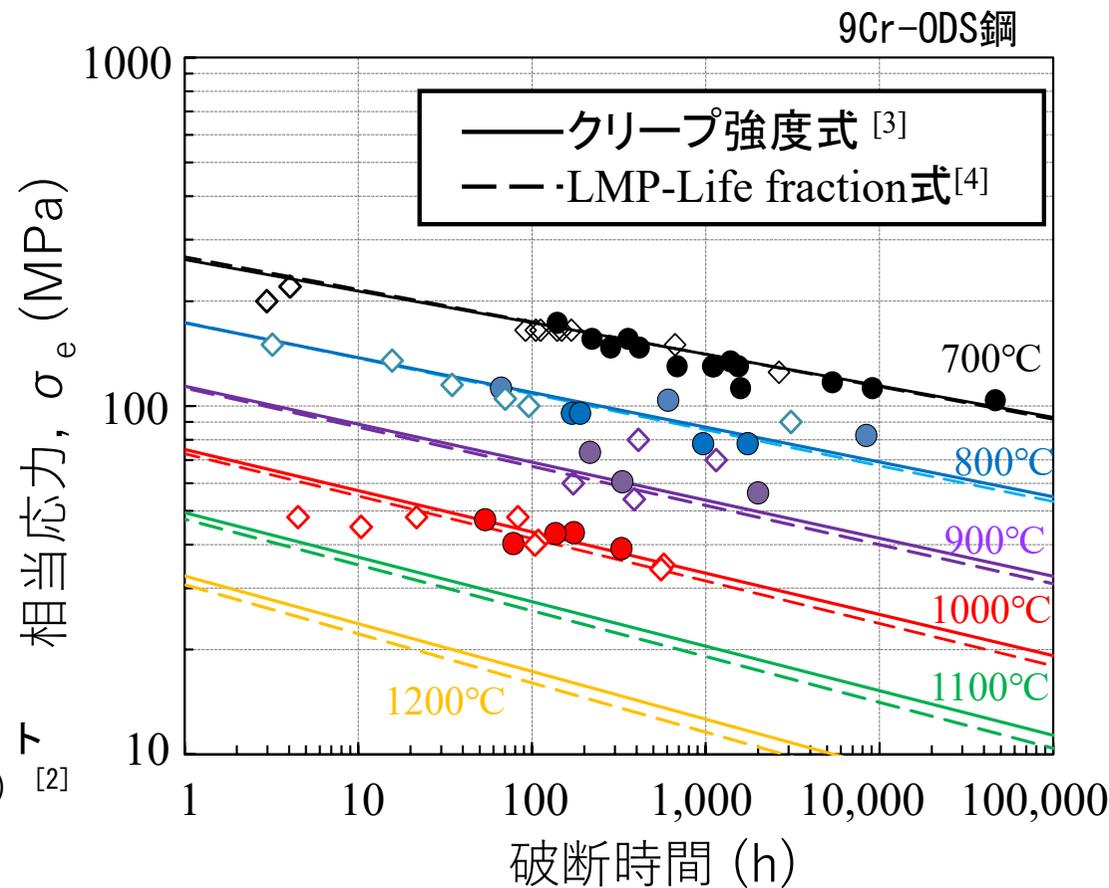
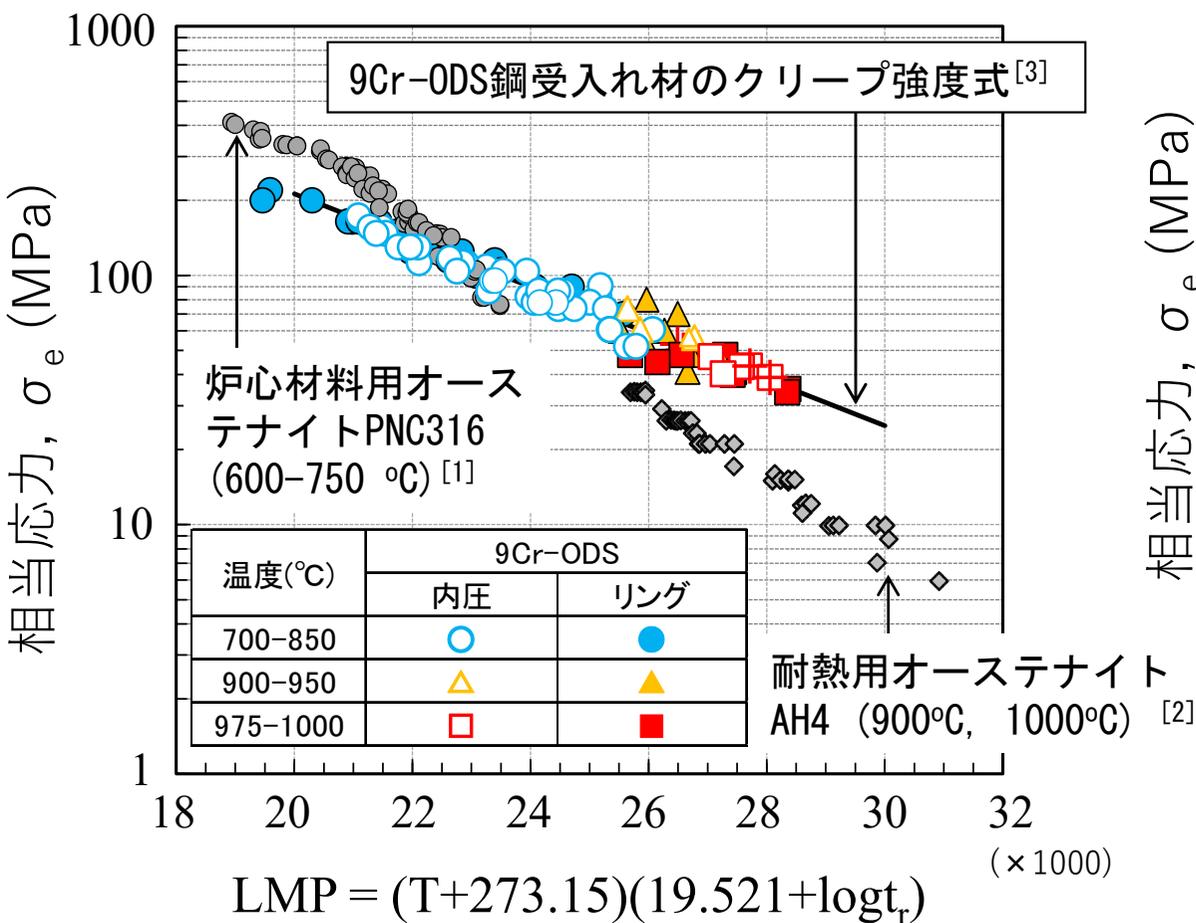
[1] J.L. Straalsund, R.L. Fish, and G.D. Johnson, Nucl. Technol. 25 (1975) 531.

	R1年度	R2年度	R3年度	R4年度
<b>(1) 非照射</b> 高温～超高温強度試験及び組織構造解析 ① 強度試験（原子力機構） ② 事故模擬高温加熱試験（原子力機構） ③ マルチスケール・マルチディメンジョン電子顕微鏡解析（九州大学） ④ SAXS及びSANSによるナノ組織の定量化（北海道大学） ⑤ アトムプローブによる3次元ナノスケール組成分布解析（東北大学）		<b>強度試験、事故模擬高温加熱試験</b>		
			<b>強度試験、超高温加熱試験材（応力負荷有・無）の組織評価</b>	
<b>(2) 照射材</b> 高温～超高温強度試験及び組織構造解析 ① 強度試験、組織評価（原子力機構） ② 事故模擬超高温加熱試験（原子力機構） ③ アトムプローブによる3次元ナノスケール組成分布解析（東北大学）		<b>製造まま材の組織評価</b>		
		<b>強度試験、超高温加熱試験</b>		<b>照射材、試験材の組織評価</b>
<b>(3) 総合評価</b>				<b>総合評価</b>

連携

連携

照射材輸送  
JAEA→東北大



$$[3] (T+273.15)(\log_{10}t_r+19.521) = 45,017 - 10,751 \log_{10}\sigma_e$$

$$[4] (T+273.15)(\log_{10}t_r+19.647) = 44,475 - 10,443 \log_{10}\sigma_e$$

- 800~1000°CでのSFR用9Cr-ODS鋼のクリープ強度データを拡充し、その優れた高温強度特性を明らかにした。

- クリープ強度式 ( $\leq 1000^\circ\text{C}$ ) に加えて、引張データ、急速加熱バースト試験データ ( $> 1000^\circ\text{C}$ ) も取り込んだLMP-Life fraction式を策定した。

- 高温強度式と寿命分数和(CDF)を用いて、温度が大きく変化する事象における9Cr-ODS鋼被覆管の破断温度を1200°C近傍まで評価可能であることを示した。
- クリープ強度式よりも、LMP-Life fraction式の方が実測値との整合性が高かった。

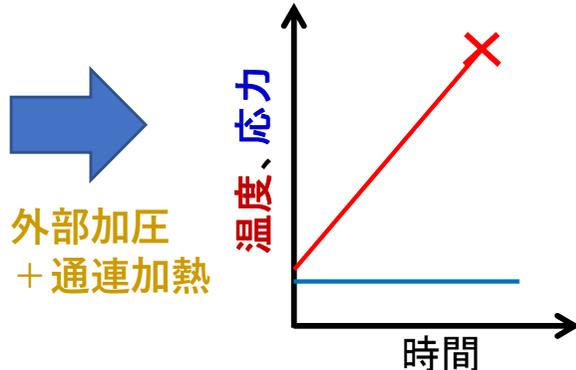
- 受入れ材(0.05°C/sec) ◆ CDF=0.548予負荷(0.1°C/sec)
- 受入れ材(0.1°C/sec) ▲ CDF=0.243予負荷(0.1°C/sec)
- 受入れ材(1°C/sec) × 熱時効材(0.1°C/sec)
- 受入れ材(5°C/sec)

## 試験の模式図

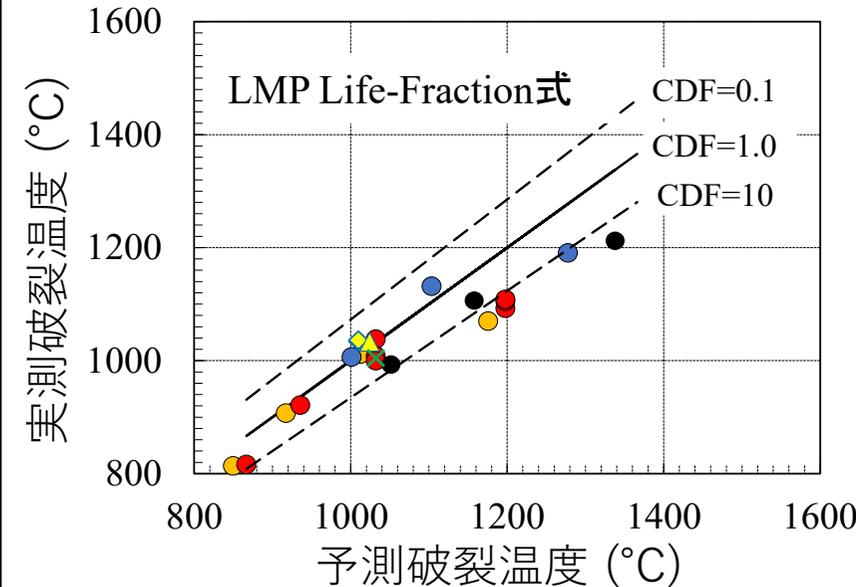
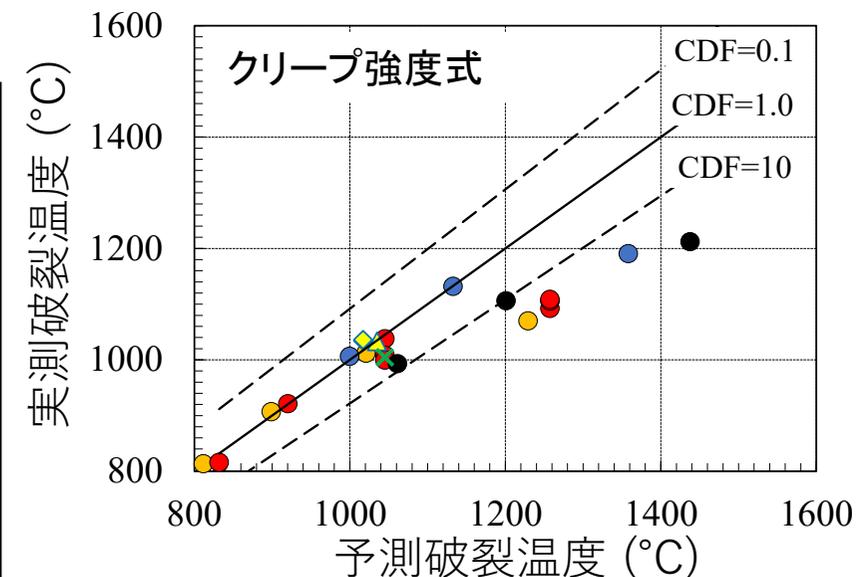
① 通常運転時を想定した  
クリープ損傷導入



② 事故時を想定した  
急速加熱バースト



	①クリープ損傷導入	②急速加熱バースト
1	CDF=0.243 (700°C、相当応力113MPa、2,000h)	相当応力 87 MPa 昇温速度 0.1 °C/sec
2	CDF=0.548 (700°C、相当応力121MPa、2,000h)	相当応力 87 MPa 昇温速度 0.1 °C/sec
3	無し	相当応力 43~173 MPa 昇温速度 0.05~5 °C/sec

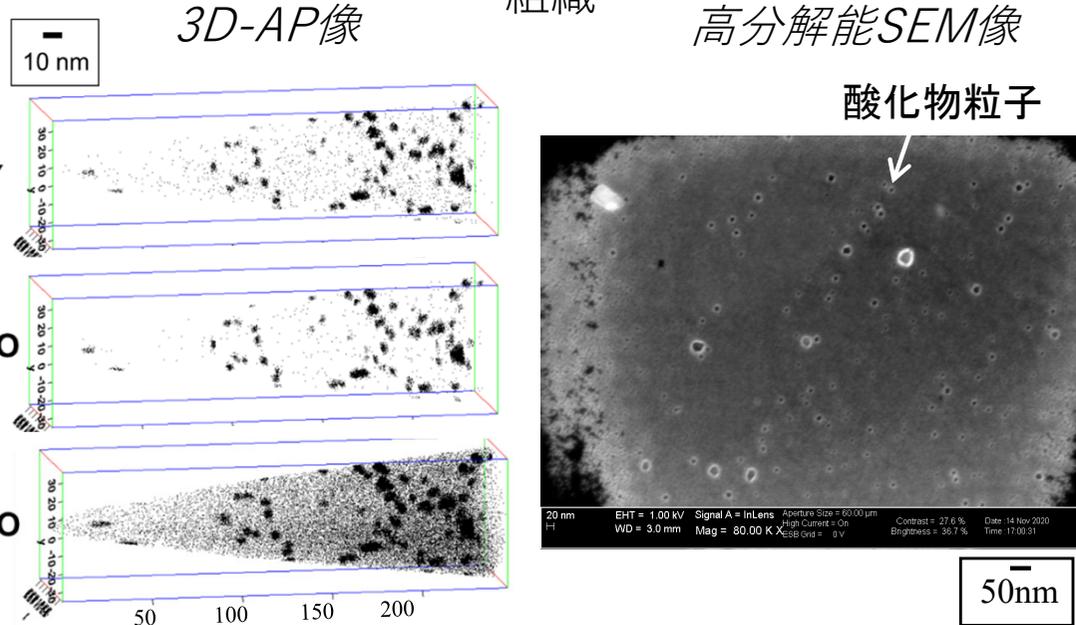


対象	従来の評価	新たな高温強度式の適用で可能となる事項
<p>通常運転時（400～700℃における破損寿命評価</p> <p>異常な過渡変化時（700～850℃）・事故時（&gt;850℃）の破損寿命評価</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>想定される温度・応力履歴に対して、CDF、クリープ強度式、引張強度式を用いて評価。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 同左（但し、<u>850℃を超える温度での強度式の信頼性が向上</u>）。</li> <li>✓ LMP-Life fraction式を用いる場合、事象に応じて、クリープ強度式、引張強度式を使い分ける必要がなくなる。</li> </ul>
<p>燃料許容設計限界の設定（被覆管温度）</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>想定される異常な過渡変化事象に対して、保守的な昇温速度での急速加熱バースト試験（照射材）を実施し、限界温度を評価。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 必要な昇温速度での<u>急速加熱バースト試験データの取得（照射材）が難しい場合、照射後クリープもしくは照射後引張試験データを取得することで、限界温度を評価可能。</u> <ul style="list-style-type: none"> <li>① 照射後クリープもしくは照射後引張データ用いて、LMP-Life fraction式に対する照射による強度補正係数を算出。</li> <li>② 想定される温度・応力履歴に対して、LMP-Life fraction式（照射による強度補正後）とCDFを用いて限界温度を評価。</li> </ul> </li> </ul>

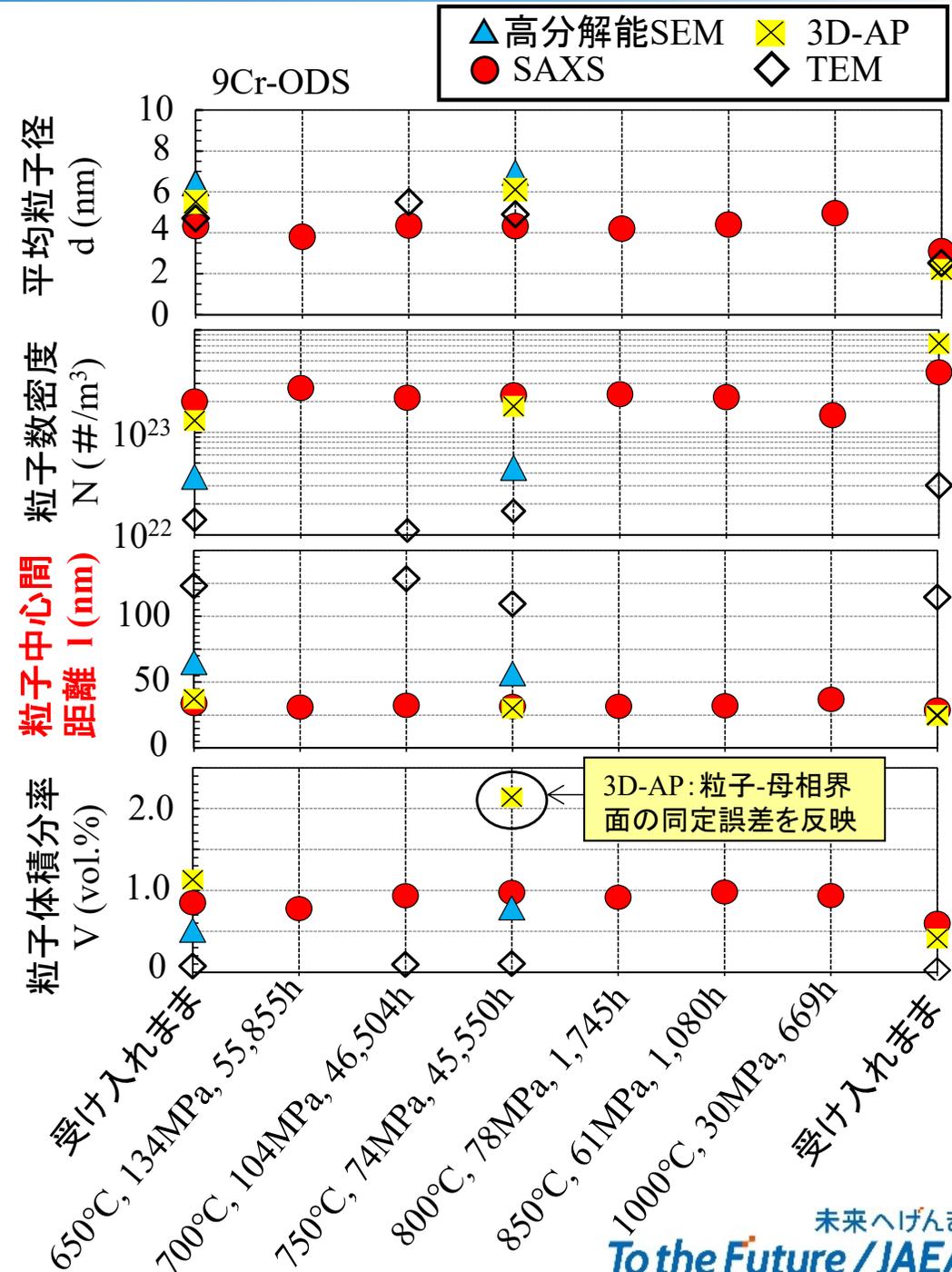
上記のLMP-Life fraction式による統一評価手法の妥当性は、「定量的相関式策定」において検証した。

- 高温長時間環境における9Cr-ODS鋼被覆管ナノスケール組織の優れた安定性を確認。
- 手法により評価結果（粒子平均径、数密度）の絶対値が異なる。強度評価の支配因子となる粒子数密度と粒子間距離は、SAXSと3D-APがよく一致。

内圧クリープ試験後（750°C、74MPa、45,550h）の組織



小角散乱 (SAXS) 解析 大体積 (直接観察の10万倍以上) の平均サイズ評価



注) SAXS (Small angle X-ray scattering): X線小角散乱、3D-AP(Three-Dimensional Atom Probe): 3次元アトムプローブ、SEM(Scanning Electron Microscope): 走査型電子顕微鏡、TEM (Transmission Electron Microscope): 透過型電子顕微鏡

## 14Cr-ODS鋼(MA957)の照射前後の3D-AP像

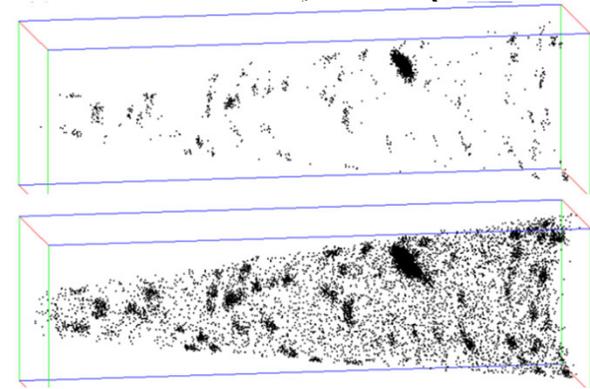
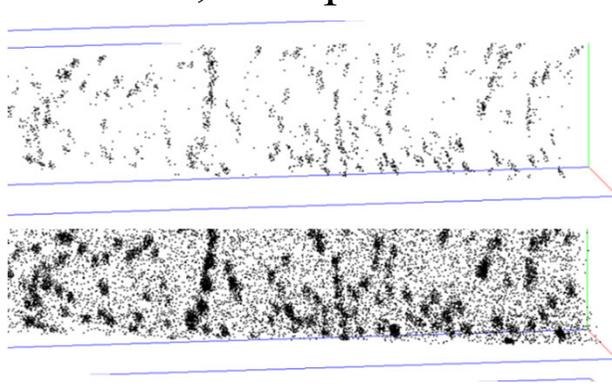
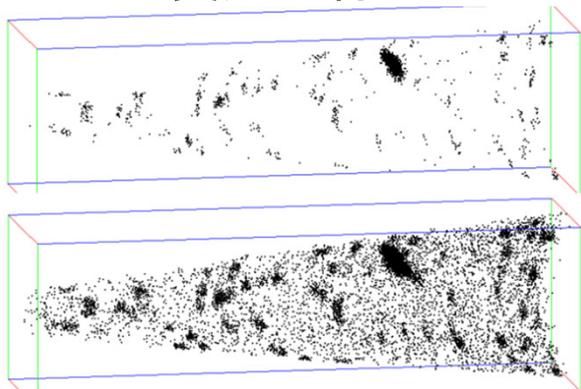
10nm

受入れ材

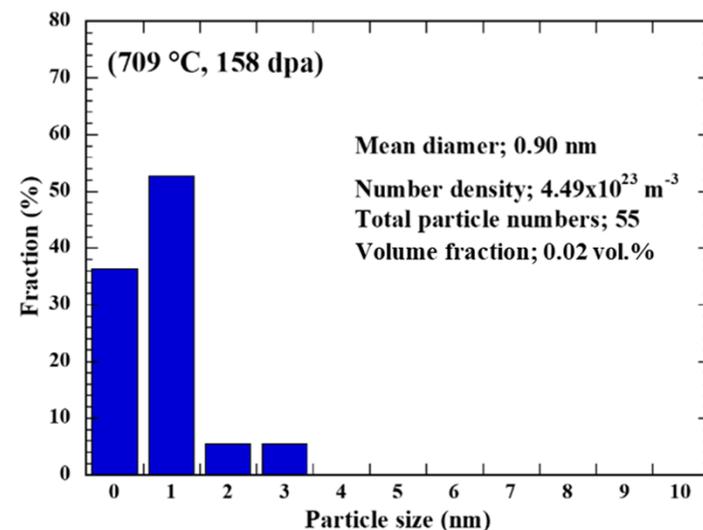
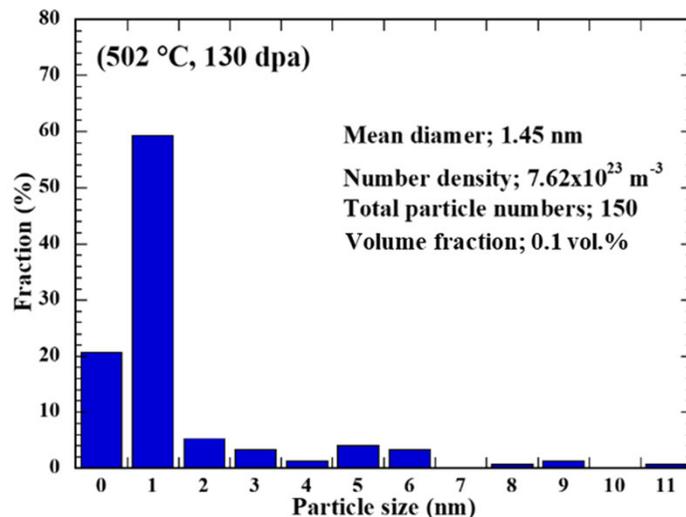
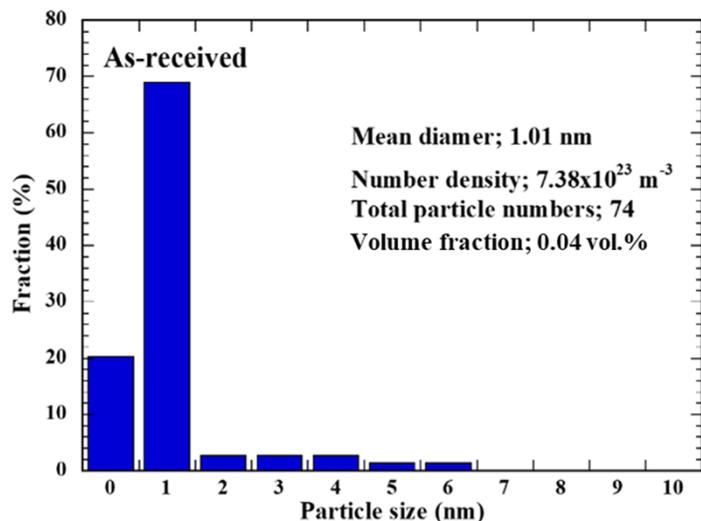
502°C, 130dpa

702°C, 158dpa

YO

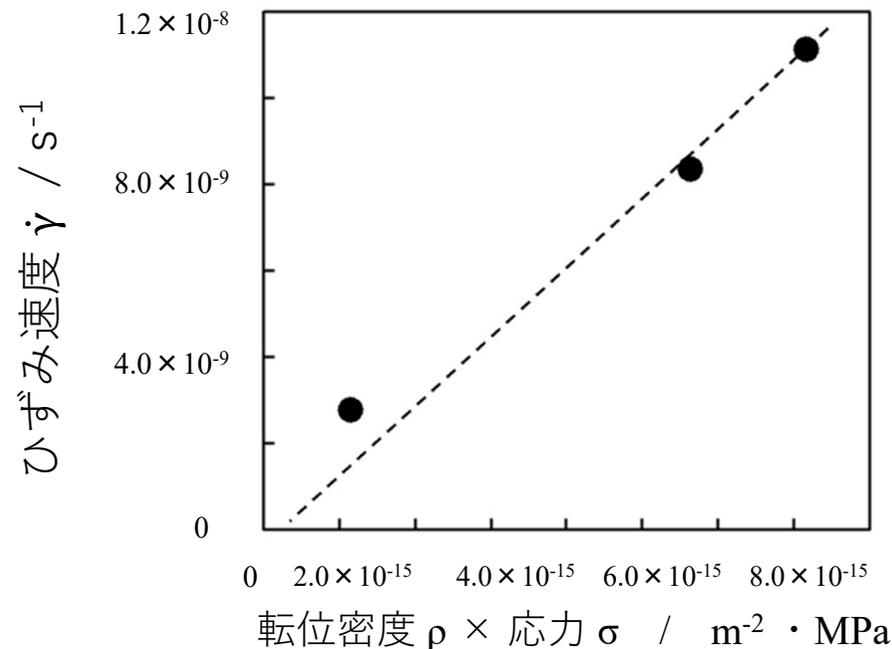
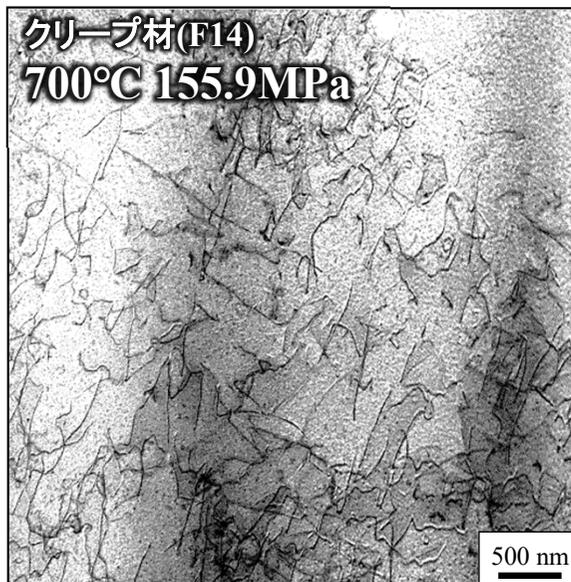
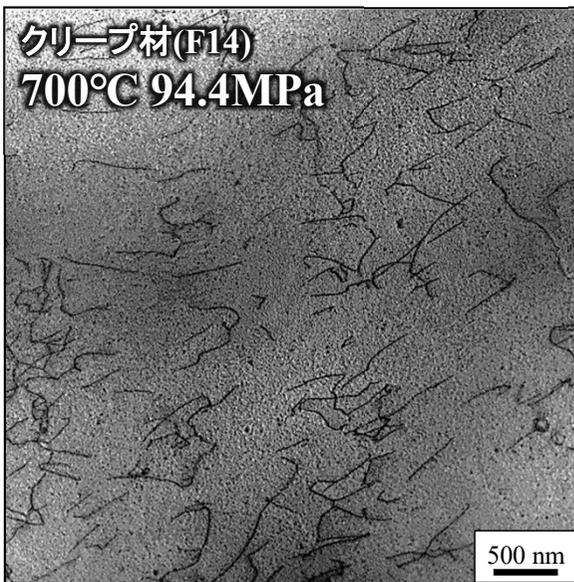


TiO



- 仏・高速原型炉Phenixでの13Cr-ODS鋼被覆管(開発機関: SCK/CEN Mol)の燃料ピン照射試験(約80dpa)で酸化分散粒子の溶解が報告されている[1]。本研究では、従来の報告(約110dpa)[2]を超える高照射量(158dpa)環境下において、9Cr-ODS鋼中の分散粒子と同じY-Ti-O分散粒子の優れた安定性を確認
- 中性子照射試験[1]、イオン照射試験[3]による既往研究から照射量によっては組織変化が生じる可能性⇒新たな照射特性評価手法(ナノスケール組織から高温強度特性を評価する方法)の開発

# ODS鋼の高温変形メカニズム



- ▶ 転位が孤立して存在
- ▶ 転位下部組織の発達は認められない

一般的な分散強化機構 (Orowan機構) ではない。

- ▶ 変形速度は転位密度と応力の積に依存

12Cr-ODSフェライト鋼	F14							
	初期材	700°C			750°C		1000°C	
		94.4 MPa	108.3 MPa	112.6 MPa	155.9 MPa	64.1 MPa	69.3 MPa	29.5 MPa
平均粒子径 / nm	6.4	6.8	7.8	6.6	6.1	6.2	6.4	5.1
平均粒子表面間距離 / nm	75	125	160	142	91	117	134	108
粒子数密度 / m <sup>-3</sup>	$3.9 \times 10^{22}$	$1.4 \times 10^{22}$	$7.2 \times 10^{22}$	$1.1 \times 10^{22}$	$2.7 \times 10^{22}$	$1.8 \times 10^{22}$	$1.3 \times 10^{22}$	$2.5 \times 10^{22}$
Orowan機構によるしきい応力 / MPa	326	199	163	174	270	211	182	211
Climbing機構によるしきい応力 / MPa	131	80	65	70	108	84	73	84

転位が酸化物を通過する機構としてClimbing機構\*が作用。

\*転位が原子空孔の吸収し、酸化物粒子周辺で上昇運動することにより酸化物粒子を通過するメカニズム。

## ● 室温強度 (引張強度、硬さ)

= (微細粒強化) + (分散強化量) + (転位強化)

$$\sigma_y = \sigma_g + \sqrt{\sigma_p^2 + \sigma_d^2}$$

## ● 高温強度 (クリープ、引張強度)

- 高温クリープと引張強度の統一評価を提案。
- 定常ひずみ速度: 古典的なクリープ構成方程式[1]について、分散強化量に応じた応力補正を行うことを提案。

$$\dot{\epsilon}_s \propto \frac{G}{T} \cdot D \cdot (d_g)^p \cdot \left( \frac{\sigma - \Delta\sigma_p'}{G} \right)^n$$

$\dot{\epsilon}_s$ : 2次クリープ変形速度、 $\sigma$ : 応力、 $\Delta\sigma_p'$ : 酸化物分散に依存する応力補正パラメータ、 $d_g$ : 結晶粒径、  
 G: 剛性率、T: 温度、D: 自己拡散係数

本事業での成立性確認

### 材料組織 ビッカース硬さ

- 析出組織 (酸化物粒子、炭化物等)
- 転位密度
- 結晶粒径

本事業で高温～超高温試験材を対象にデータ取得

Monkman-Grant則

$$\dot{\epsilon}_s \propto 1/t_r$$



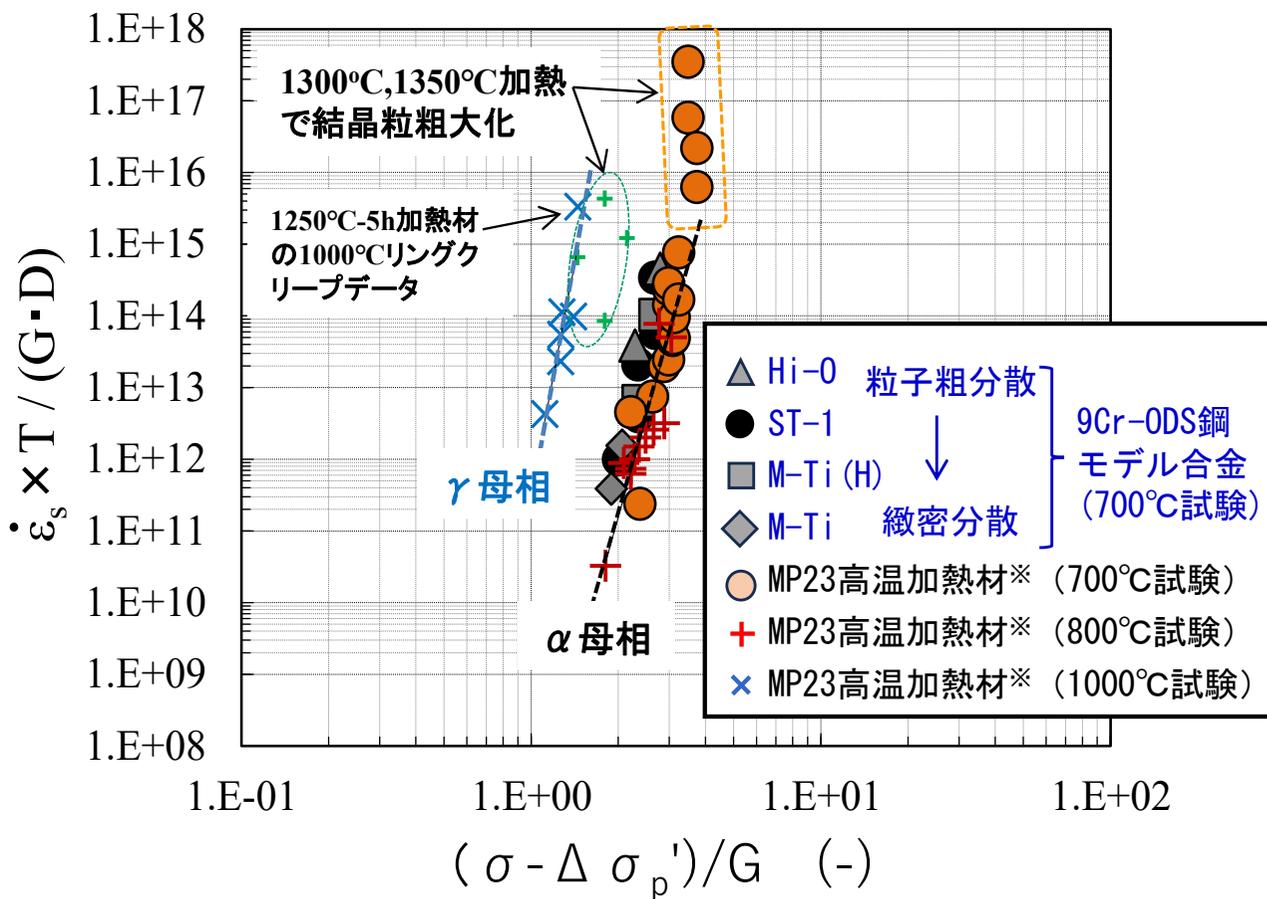
- 基準材(受入れまま材)の強度式  
 $(T + 273.15) (C + \log t_r) = F(\sigma)$



- 照射材の強度式  
 $(T + 273.15) (C + \log t_r) = F(\sigma - \Delta\sigma_p')$   
 ここで、 $\Delta\sigma_p'$ は、酸化物分散状態に依存する応力補正係数

## ● 破断寿命 (高温クリープ、高温引張)

[1] J.Weertman, Dislocation climb theory of steady-state creep, Trans.ASME 61 (1968) 681-694.

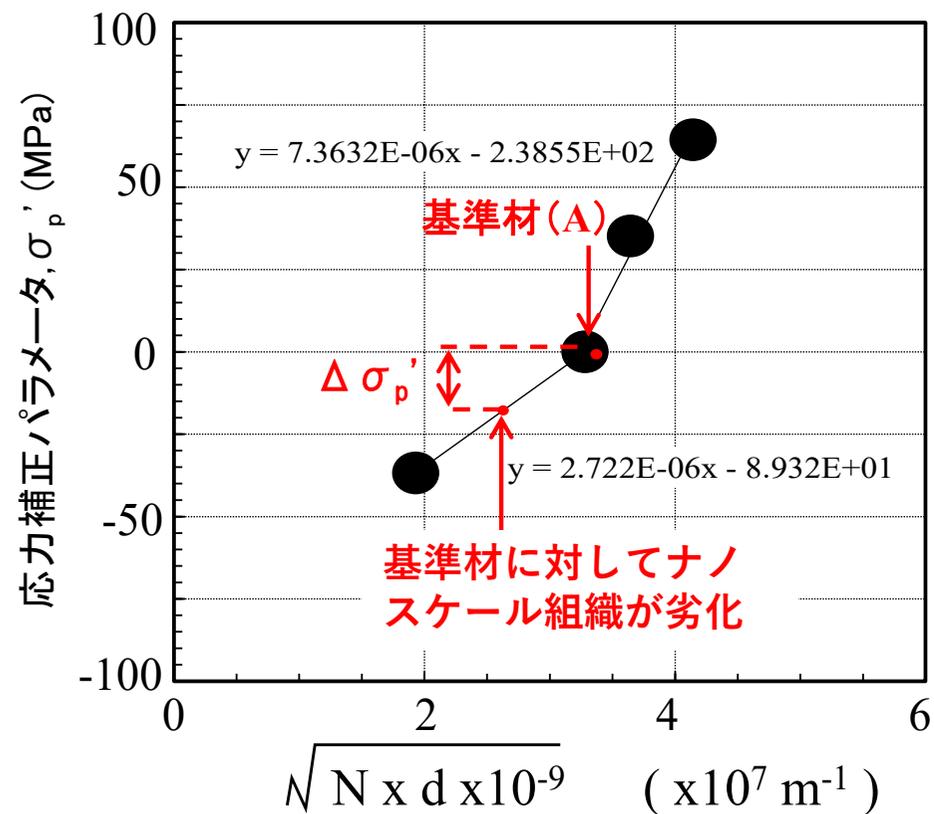


※1200~1350°Cで予加熱  
(ナノスケール組織の劣化を模擬: 4~13nm, 0.1~2 × 10<sup>23</sup> #/m<sup>3</sup>)。

● 2次クリープ変形速度の構成方程式  $\dot{\epsilon}_s \propto \frac{G}{T} \cdot D \cdot (dg)^p \cdot ((\sigma - \Delta\sigma_p')/G)^n$

構成方程式の応力をパラメータ $\Delta\sigma_p'$ で補正することで、ナノスケール組織の異なる9Cr-ODS鋼のクリープ変形速度を予測できることを明らかにした。

● ナノスケール組織に依存した応力補正量



↑  
粒子間隔に逆比例するパラメータ (N: 粒子数密度, d: 粒子平均径)

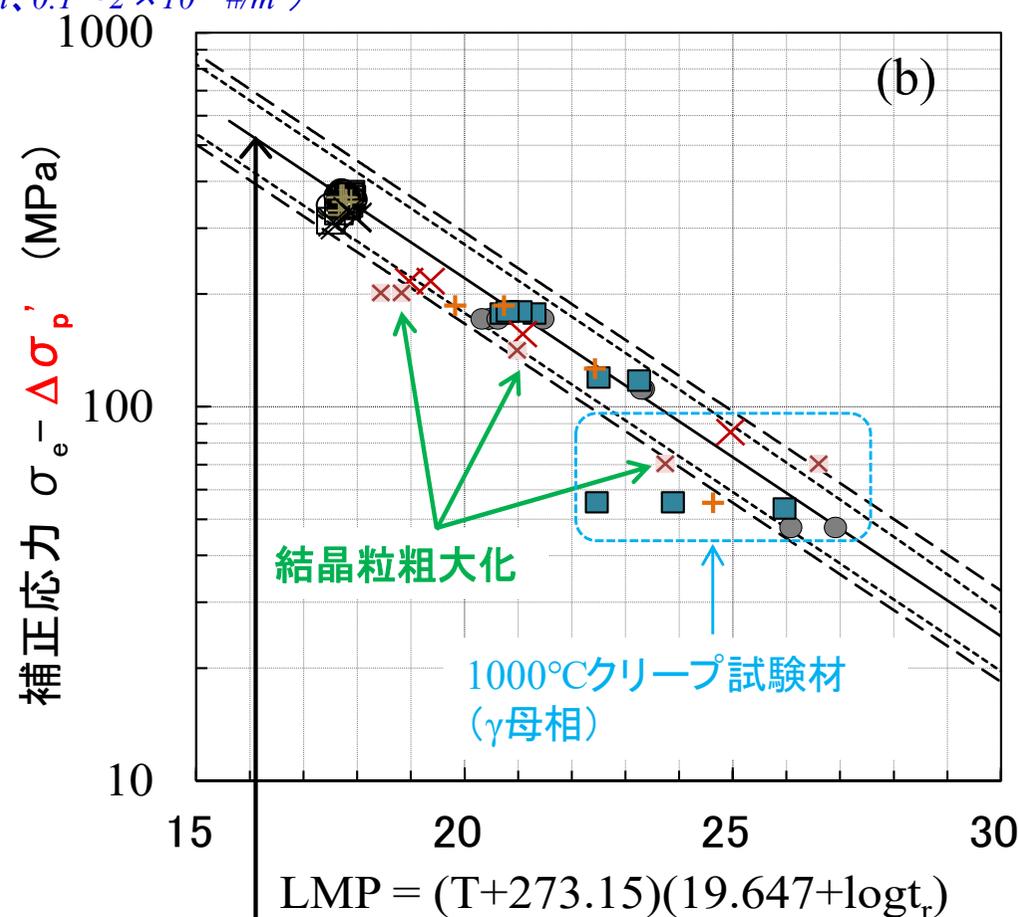
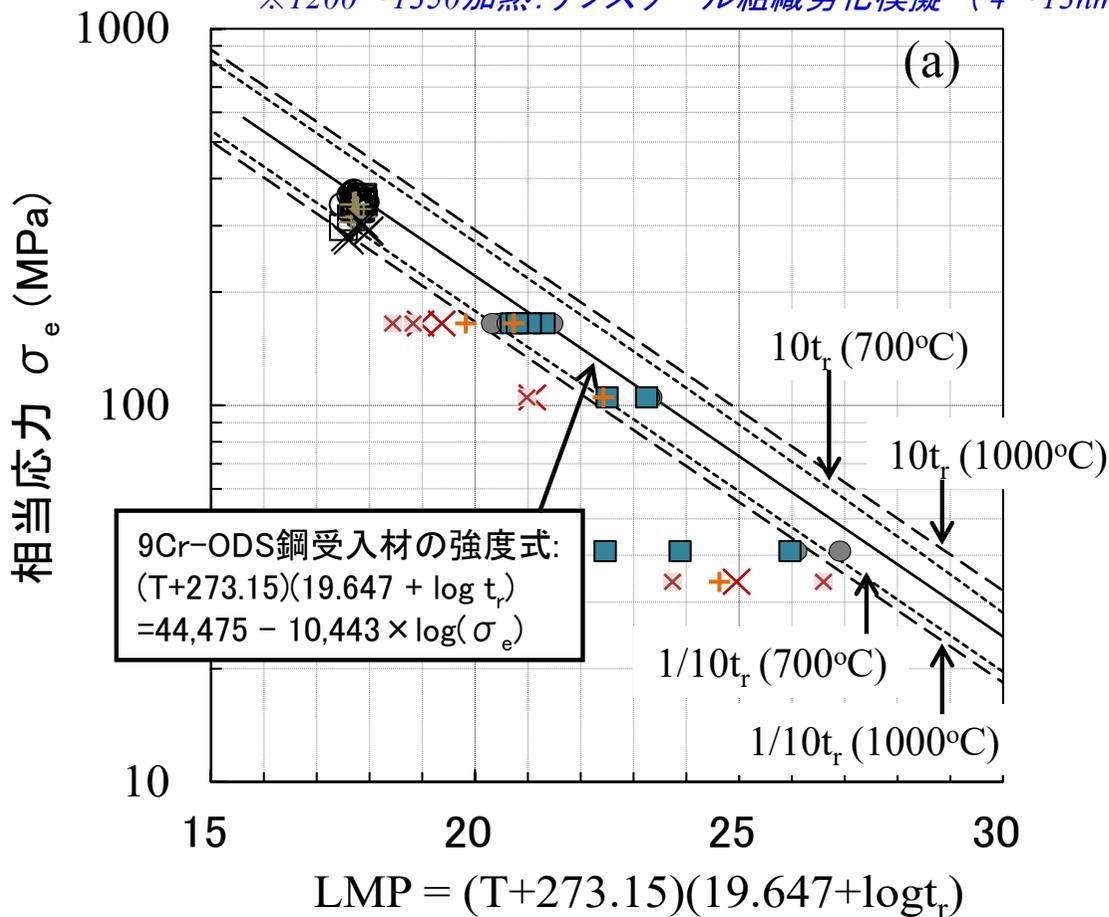
## 引張データ

- 1200°C加熱材 (10-300min)
- 1250°C加熱材 (10-300min)
- + 1300°C加熱材 (10-300min)
- × 1350°C加熱材 (10-120min)

## クリープデータ(リング)

- 1200°C加熱材 (60,300min)
- 1250°C加熱材 (60,300min)
- + 1300°C加熱材 (60min)
- × 1300°C加熱材 (300min)
- × 1350°C加熱材 (300min)

※1200~1350加熱: ナノスケール組織劣化模擬 (4~13nm、 $0.1 \sim 2 \times 10^{23} \text{ \#}/\text{m}^3$ )



### ● ナノスケール組織と破断寿命の相関評価式

$$(T+273.15)(19.647 + \log t_R) = 44,475 - 10,443 \times \log(\sigma_e - \Delta\sigma_p')$$

# まとめ (1/2)

## 1) 非照射高温～超高温強度試験および組織構造解析

- 定量的相関式の基準となる9Cr-ODS鋼被覆管受入れ材の強度式について検討を進め、当初想定していた1000°Cを大きく超える最高約1200°Cまでの温度範囲でクリープ、引張、急速加熱破裂のいずれのモードにも適用可能な単一の強度式を定めた。

⇒ 燃料健全性評価の信頼性向上に寄与。照射後試験において、クリープ試験、引張試験、急速加熱バースト試験いずれかの試験データを取得することで、照射による各モード共通の強度補正係数を定めることが可能。

- 4つの手法によるナノスケール組織解析結果を強度との相関性等の観点で比較し、SAXSデータ取得(バルク材の平均データ)および各手法の相補的な活用の重要性を明らかにした。

⇒ 定量的相関式における重要なインプット情報であるナノスケール組織について、信頼性の高いデータを取得する方法を明らかにした。

## 2) 照射影響評価

- 3D-APおよびTEMを用いて相補的なナノスケール組織解析を進め、従来の報告(約110dpa)を超える高照射量(158dpa)環境下において、9Cr-ODS鋼中の分散粒子と同じY-Ti-O粒子が優れた安定性を有することを明らかにした。

## まとめ (2/2)

### 3) 相関式策定

- マルチスケール・マルチディメンジョン組織解析により、ODS鋼において、結晶粒界近傍などの応力が集中しやすい領域を除き、転位が酸化物を通過する機構として、Orowan機構ではなくClimbing機構が支配的であることを示唆する結果を得た。
- ODS鋼の高温変形メカニズムに関する知見、9Cr-ODS鋼の高温強度とナノスケール組織の相関解析に基づいて、9Cr-ODS鋼のナノスケール組織と強度をつなぐ定量的相関式を整備した。

⇒ 中性子照射によりODS鋼被覆管のナノスケール組織が変化した場合、「SAXS/SANS等によるナノスケール組織定量解析に基づき照射による強度変化を評価する」という従来にない照射特性評価手法の見通しを得た。

以上の成果は、事故時の破損抵抗性に優れたODS鋼被覆管の次世代原子力システム適用に向けた重要課題となっている材料強度基準等整備の加速に寄与するものである。

今後の課題（新たな照射特性評価手法）

- 実際の照射材への適用経験の蓄積
- 組織と強度の相関に関する機構論研究な研究の継続（理論的に導き出すための計算科学的なアプローチ等）

# 参考資料

- 国内学会発表  
9件(日本金属学会2021年春期大会/2022年春期大会/2022年秋期大会)

- 論文投稿(国際/国内学術誌)

## 【受理】

- ① S. Ohtsuka, Y. Shizukawa, T. Tanno et al, "High-temperature creep properties of 9Cr-ODS tempered martensitic steel and quantitative correlation with its nanometer-scale structure", J.Nucl.Sci.Technol. 60(3) (2023) 288–298. <https://doi.org/10.1080/00223131.2022.2096147>
- ② 光原、栗野、矢野 他、「9Crまたは12Cr系酸化物分散強化鋼の高温力学特性と微細組織」、鉄と鋼 Tetsu to Hagané、Vol.109(No.3) (2023)189-200. <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2022-080>
- ③ Y. Imagawa, R. Hashidate, T. Miyazawa et al, " Creep deformation and rupture behavior of 9Cr-ODS steel cladding tube at high temperatures from 700° C to 1000° C ", J.Nucl.Sci.Technol. in press. <https://doi.org/10.1080/00223131.2023.2269178>

## 【査読中】

- ① T. Miyazawa, T. Tanno, Y. Imagawa et al, "Formulation of high-temperature strength equation of 9Cr-ODS tempered martensitic steels using the Larson–Miller parameter and life-fraction rule for rupture life assessment in steady-state transient, and accident conditions of fast reactor fuel", submitted to J.Nucl.Mater.

## 【国際学術誌投稿用に3件の原稿準備中】

- ① T.Toyama et al, "Oxide particles in oxide dispersion strengthened steel neutron-irradiated up to 158 dpa at Joyo" (東北大学)
- ② ODS鋼高温クリープ試験材、事故模擬超高温加熱材のSAXSによるナノ組織解析(北海道大学)
- ③ ODS鋼の高温強度とナノスケール組織の相関解析(JAEA)

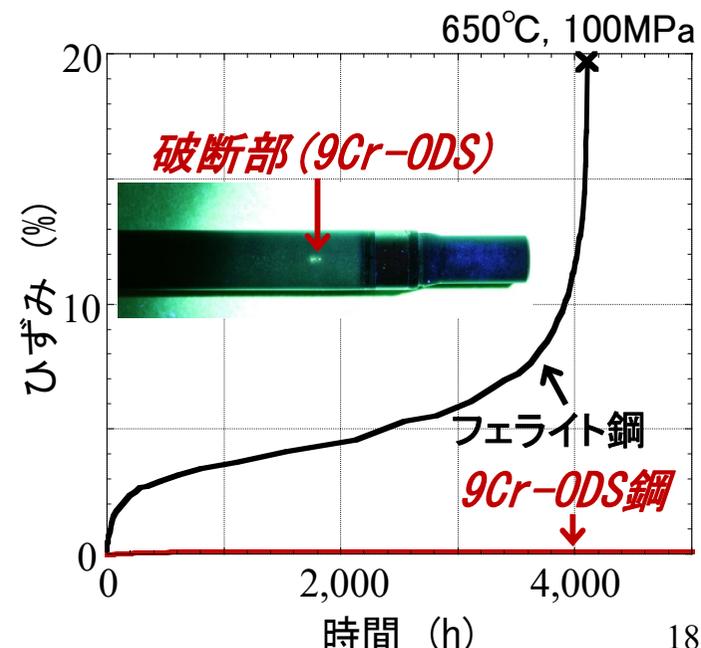
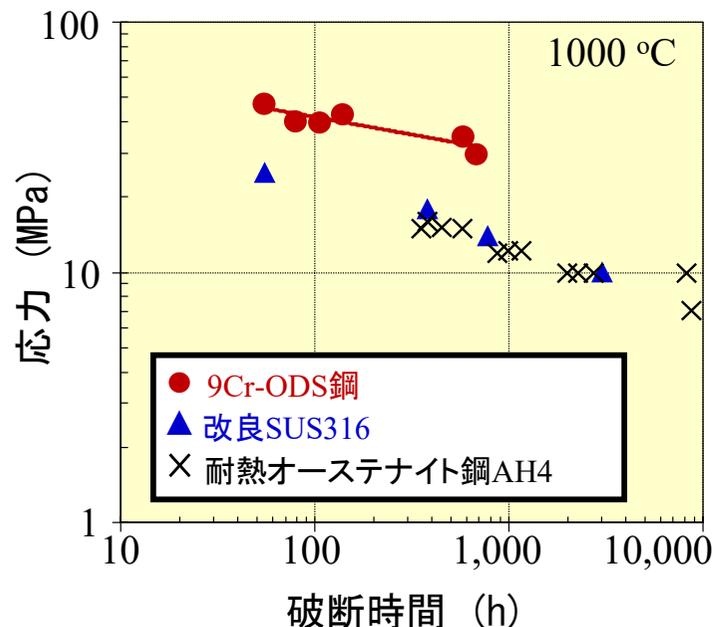
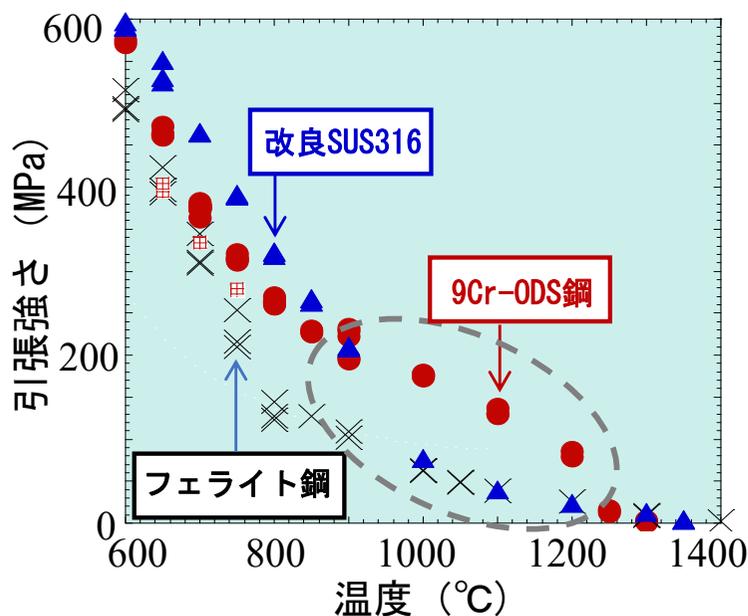
- 燃料被覆管：高温、高速中性子照射が重畳した環境下で核分裂生成物を燃料ピン内に閉じ込めるとともに、燃料集合体の冷却能力(流路)を維持する重要な安全機能を担う。

## 【ODS鋼被覆管の特性】

- ✓ 事故時に想定される超高温環境下での優れた破損抵抗性
- ✓ 耐照射変形(スエリング、照射クリープ)だけでなく、破断歪みの点でも優れた形状安定性

## ● ODS鋼被覆管適用によるプラント安全性の向上

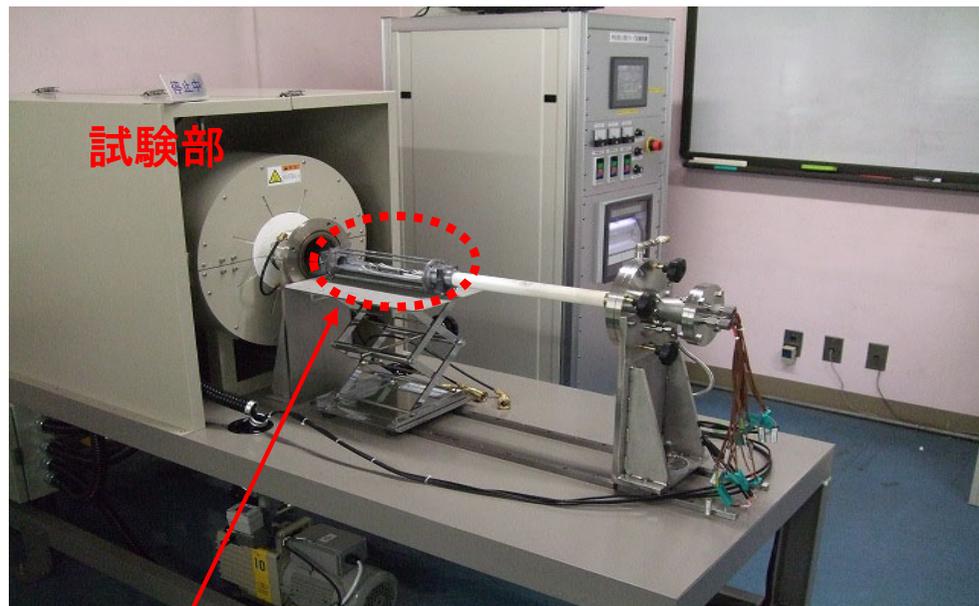
- ① 事故時に燃料破損に至るまでの時間を遅延（炉の静定のための受動型安全システムの作動や運転員による手動操作に要する時間的裕度を確保）
- ② 流路閉塞から炉心溶融等の過酷事故に至るリスクを低減



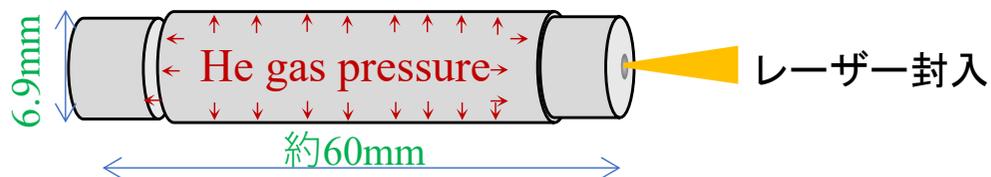
ODS鋼は強度異方性(加工集合組織)を有する場合があります、周方向強度試験が不可欠。

## ● 内圧クリープ試験

- ✓ Heガスを予封入することで高温内圧負荷する。
- ✓ 破断はHeリークディテクターで検知。

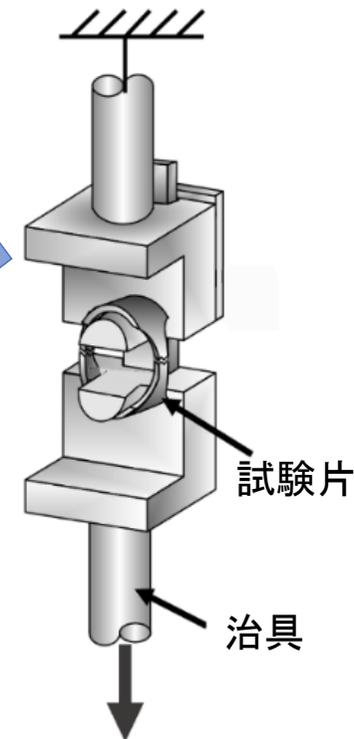


加圧抵抗溶接(PRW: Pressurized Resistance Welding)



## ● リングクリープ試験

- ✓ リング試験片周方向への単軸応力負荷を行う簡易的試験手法(JAEAオリジナルの試験技術)。



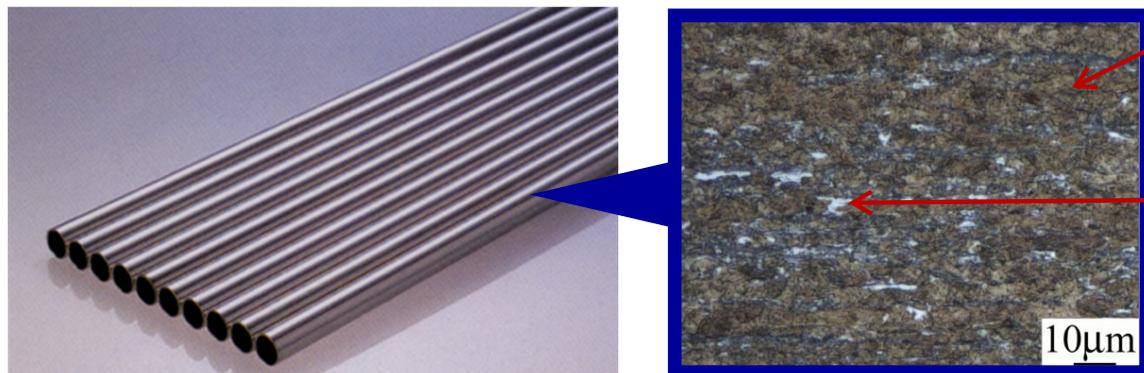
プルロード変位(クリープひずみに換算)のオンライン測定

※両試験機ともに最高試験温度は1,000°C  
(試験雰囲気：アルゴンガス)

# ナノスケール組織解析

- 複数の組織解析手法を用いてODS鋼の組織を評価
- 定量的相関式(組織-強度)の策定に必要な組織解析手法の比較
- 解析対象試料

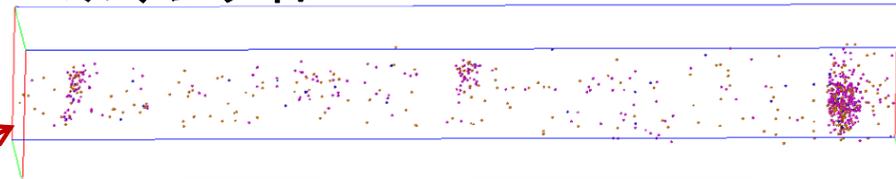
非照射材	9Cr, 12Cr-ODS高温長時間クリープ、事故模擬超高温加熱
照射材	14Cr-ODS (MA957) 最大約158dpa、9Cr-ODS最大約30dpa



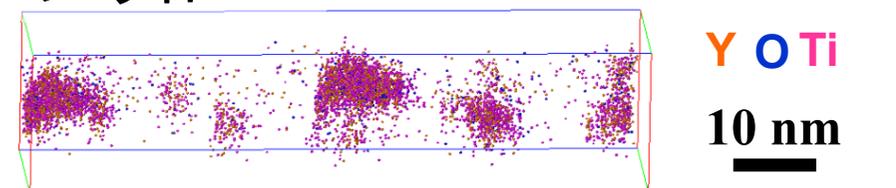
**3次元アトムプローブ (3D-AP) 法**  
 最高レベルの原子分解能元素分析  
 局所不均質性の可視化

評価体積  $\sim 10^{-5} \mu m^3$

マルテンサイト



フェライト



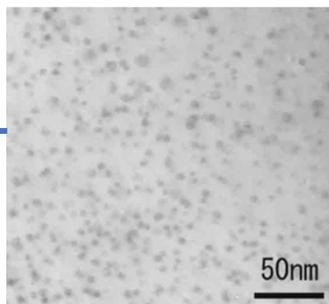
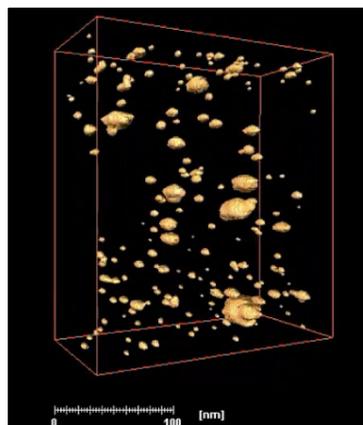
Y O Ti  
**10 nm**

\* K. Nogiwa et al, J. Nucl. Mater. 417 (2011) 201-204.

**高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM)、  
 透過型電子顕微鏡 (TEM)**

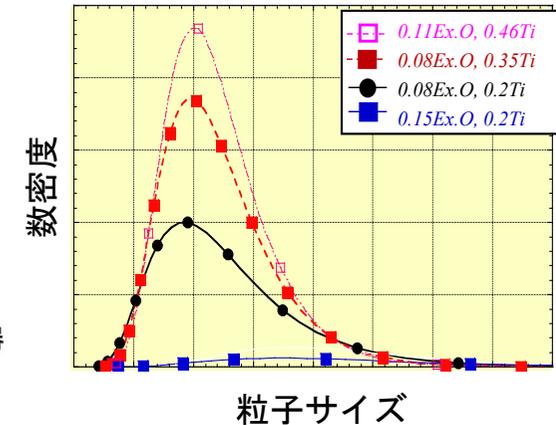
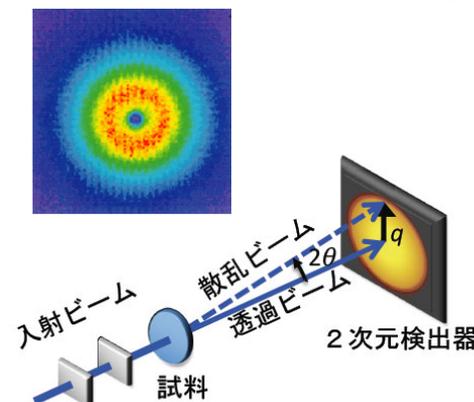
評価体積  $\div 10^{-3} \sim 10^{-2} \mu m^3$

3次元可視化



**小角散乱 (SAXS, SANS) 解析**  
 大体積(直接観察の10万倍以上)の平均サイズ評価

評価体積  $\div 10^7 \sim 10^{11} \mu m^3$



Larson-Miller Parameter(LMP)を用いたクリープ強度式の策定に加えて、LMP-Life fraction法による統一的強度式の策定も行った。

## ●内圧クリープ試験結果の解析

LMP: 温度と時間を統一的に示す指標

$$LMP = T_{test} (\log_{10} t_R + Const.) \quad (1)$$

- $T_{test}$  : 試験温度
- $t_R$  : 破断時間

## ●高温引張試験結果の解析

以下のパラメータを用いて、内圧クリープと同様な評価を実施。

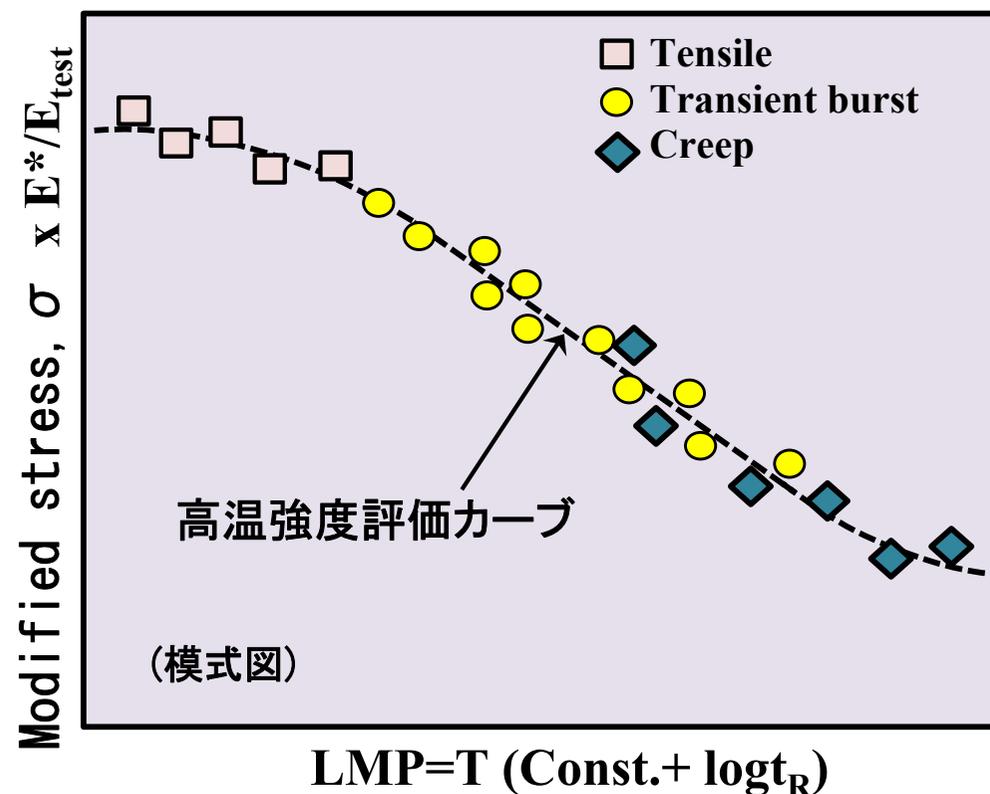
- 破断時間 = 全伸び/歪み速度
- 破断応力 = UTS

## ●急速加熱バースト試験結果の解析 (一定応力下での昇温破損試験)

Life fraction rule (寿命分数和)

$$L(t) = \int_0^{t^*} \frac{dt}{t_R(\sigma, T_{test})} = 1 \quad (2)$$

- $t^*$ : 急加バ試験での破損時間



$$(1)(2)より、L(t) = 10^{const.} \int_0^{t^*} \exp\left(-\frac{2.3LMP}{T_{test}}\right) dt = 1 \quad (3)$$

$$T_{test} = \underbrace{\dot{T}}_{\text{昇温速度}} \times t + \underbrace{T_1}_{\text{初期温度}} \quad (4)$$

(3)(4)および破損温度からLMPを評価