☆

1 解説

高速炉炉心材および核融合炉構造材としての フェライト鋼の照射効果

(株東芝) 福谷 耕司, 寺澤 倫孝

高速炉炉心材料や核融合炉構造材料は、高速中性子による照射損傷を受け、スエリング・照射クリープによる変形や機械的性質の劣化を生ずる。従来これらの部材にはオーステナイトステンレス鋼が使用されてきたが、耐照射性に優れた高Crのフェライト鋼が将来材料として有望視されている。

本稿では、フェライト鋼の照射効果を取り上げ、照射データ・研究の現状と問題点を紹介する。

☆

☆

I. はじめに

高速増殖炉(FBR)燃料被覆管・ラッパー管や核融合炉第1壁は、400~700°Cの高温で高速中性子の重照射を受ける。このため、スエリングや照射クリープによる部材の変形および機械的性質の劣化は、寿命を決定する最も大きな要因となっている。現在のFBR実験炉・原型炉あるいは実証炉では、燃料被覆管・ラッパー管材としてSUS316を中心とするオーステナイトステンレス鋼が使用されており、微量添加元素の調整等の改良により燃料寿命に相当する約 $2 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) (約100 dpa)*の高速中性子照射下では十分低スエリングである。核融合炉においても実験炉段階では、オーステナイト鋼が使用される予定である。

しかし、FBRにおける燃料高燃焼度化を実現するためには、燃料被覆管で150 dpa以上の照射量となり、また、核融合炉動力炉の第1壁では40 MW・yr/m² (300~400 dpa)の中性子負荷が予想されることから、現用のオーステナイト鋼では耐照射性は十分ではない。したがって、各国とも現用オーステナイト鋼の改良と他鋼種、特にフェライト鋼の開発を行なっている。

フェライト鋼は耐照射性が優れていることから注目されている。現在開発の中心となっているのは、9~12Cr-Moの商用フェライト鋼とその改良鋼である。これらは、強化元素としてV, Nb, W等を添加したマルテンサイト鋼(HT-9, 1.4914, FV 448, Mod. 9Cr-1Mo等)とフェライト/マルテンサイト2相鋼(EM-12, 9Cr-2Mo等)であり、ラッパー管や核融合炉構造材の候補材となっている。さらに、被覆管への適用を考慮し高温強度を改善した酸化物分散鋼(13Cr-2Mo-Y₂O₃, MA 957等)や金属間化合物強化鋼も検討されている。これらはオーステナイト鋼に比べて、熱膨張率が小さく熱伝導率が高いため高温部材として有利な反面、溶

接性・加工性については必ずしも十分といえない。また、照射による脆化、特に延性脆性遷移温度(DBTT; ductile-brittle transition temperature)の上昇はフェライト鋼の最大の問題とされる。

フェライト鋼の照射特性については、近年高照射量の中性子照射データが報告されるようになってきており、炉心材料としての工学的データの蓄積が進みつつある。本稿では、フェライト鋼のスエリング・照射クリープ・機械的性質の変化を中心とした照射研究の現状とその問題点を紹介する。

II. スエリング

スエリングは、高速中性子による金属格子原子のはじき出しで生じた格子間原子と空孔のうち、格子間原子が転位を形成したり、転位に吸収されることにより、過剰な空孔が集合体(ボイド)を形成するために生ずる。オーステナイト鋼を中心とする従来の研究では、スエリングは照射量に対して潜伏期をもち、その後、遷移領域を経て定常スエリングに達することが知られている。定常スエリングでのオーステナイト系合金のスエリング速度は、照射温度や材料組成等に依存せず約1%/dpaとなる⁽¹⁾⁽²⁾。照射条件・材料組成等は、スエリング潜伏期の長さを変化させる。

第1図に、フェライト鋼とオーステナイト鋼のスエリングの照射量依存性の例⁽³⁾を示す。フェライト鋼ではオーステナイト鋼のような明確な照射量依存性は報告されていない。

Irradiation Behavior of Ferritic Steels for Fast Reactor Core Materials and Fusion Reactor Structural Materials: Koji FUKUYA, Mititaka TERA-SAWA. (1986年 8月6日 受理)

* 中性子スペクトルにもよるが、高速炉炉心では $1 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) が約50 dpaに相当する。

第1図 フェライト鋼とオーステナイト鋼のスエリング⁽³⁾

Fe-Cr 2元系合金では、潜伏期はほとんどない。スエリングのピーク温度は400~450°Cであり、Cr量に依存しない⁽⁴⁾⁽⁵⁾。Cr量が3~5%の時スエリングは最も小さく、5%以上で増加する。スエリング速度は12% Crで0.06%/dpa程度となり⁽⁶⁾、これは中性子照射で得られたフェライト鋼のスエリング速度として最も大きい。Cr量が増すと α' 相(Cr濃度の高いフェライト相)の形成が大きくなり⁽⁴⁾、またCr量により転位組織が異なる⁽⁵⁾⁽⁶⁾とされる。Fe-12Cr合金へMoを添加すると、粒界での $M_{23}C_6$ ・ M_6C などの炭化物の析出を促進する⁽⁵⁾⁽⁶⁾ことが知られている。

商用フェライト鋼では、EBR-II, DFR, Rapsodie等の高速炉により最大120 dpaまで照射が行われている⁽⁴⁾⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。スエリングは、Fe-Cr 2元系合金よりさらに低く1%を越えず、定常スエリングに達していないと考えられる。ピーク温度は400°C付近とするデータが多く、オーステナイト鋼よりも100°C程度低い。スエリングが検出限界に近いこともあって鋼種間の差は明確ではない。

商用フェライト鋼のボイドは、ピーク温度付近で析出上に不均一に形成され、それ以外の温度では観察されない場合が多い⁽⁷⁾⁽⁸⁾。ボイド形成がない場合のわずかな体積変化は、照射に伴う析出物の形成が原因とされる⁽⁹⁾。析出物の形成は、フェライト鋼中の照射後ミクロ組織変化として広く観察される。これまでに、 α' 、 α 等のCr濃度の高いフェライト相、 Cr_7C_3 、 $M_{23}C_6$ 、 M_6C などの炭化物、 χ 、Laves相などの金属間化合物、G相

(ニッケルシリサイド)などが報告されている。鋼種・照射温度により異なるが、いずれも機械的性質に大きな影響を与えると考えられる。

イオン・電子線による模擬照射においてもフェライト鋼のスエリングは小さい⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁴⁾。2.8 MeV Fe^+ を照射したHT-9, EM-12では、250 dpaで数%である⁽¹¹⁾。この照射では、HT-9の方がピーク温度が低くスエリングが大きい⁽¹¹⁾が、この差が中性子照射でも有意かどうかは明らかではない。模擬照射では微小ボイドが照射初期から均一に形成されるが、成長速度が遅いためスエリングは低く保たれている。

核融合炉では、高いHe生成率(dpa当り10 appm, He/dpa=10)が特徴であるが、この場合のスエリング挙動は、混合スペクトル炉(HFIR)照射⁽¹⁵⁾⁻⁽¹⁷⁾やイオン・He同時照射⁽¹⁸⁾⁻⁽²²⁾で調べられている。フェライト鋼では、He生成の大きいNiを2%程度添加してHFIR照射する方法もとられている。いずれもピーク温度とそれ以下の温度で均一なボイド形成がみられ、Heはボイドの核生成を促進する効果をもつ。高温では、転位・粒界上にバブルが形成される。

フェライト鋼がオーステナイト鋼に比較してスエリングが低いことを説明する機構として、多くのモデルが提案されている。固溶原子の効果を考える機構⁽²³⁾⁽²⁴⁾として侵入型原子であるC, N,あるいは固溶状態のCr, Moが空孔をトラップして、点欠陥の再結合を促進することによるボイド核生成の抑制、溶質原子と転位の相互作用による転位の格子間原子の優先吸収度(転位バイアス)の減少が考えられている。また、最近ではフェライト鋼特有の機構として、転位バイアスがfcc構造のオーステナイト鋼よりも小さいこと⁽²⁵⁾、中立シンクとして働く転位が発達すること⁽²⁵⁾が提案されている。

II. 照射クリープ

中性子照射下でのクリープは、熱クリープとは異なる特有の変形機構であり、スエリングと並ぶ重要な変形機構である。照射クリープの測定には、原子炉内で長時間を要するため、データは多くないがHT-9, 1.4914を中心に最大50 dpa程度の照射量まで調べられている⁽⁷⁾⁽²⁷⁾⁻⁽³⁸⁾。

照射クリープ歪は照射量にほぼ比例する。熱クリープの1次クリープに相当する初期の立ち上がりがない場合が多い⁽⁷⁾⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾(第2図)。照射初期の析出挙動により1次クリープ歪に寄与する可動転位の密度が下がるためとされる。オーステナイト鋼では、スエリングの

現れる照射量以上では比例関係から外れるが⁽³⁹⁾、フェライト鋼では知られていない。

第2図 フェライト鋼(HT-9)の照射クリープおよび熱クリープ曲線⁽²⁷⁾

照射クリープの歪速度とは応力には比例しない。 $\dot{\epsilon}$ の応力依存性は $\dot{\epsilon} \propto \sigma^n$ で表わされるが、低応力では $n=1\sim 2$ の値が多く⁽²⁷⁾⁻⁽³²⁾ $n=1.5$ がよく用いられる。高応力では n は大きくなり、HT-9では $\log(\sigma/E) \approx -3.1$ (E : ヤング率)で決まる σ 以上の応力では $n=20$ である⁽²⁷⁾。低応力と高応力とはクリープ機構が異なるとされる。

照射クリープの温度依存性について熱クリープと比較したデータは少ないが、高温では熱クリープが支配的とするデータが多い⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾⁽³⁰⁾。HT-9では、照射によるクリープ速度の加速は450°C以下で起こり、それ以上の温度では50 dpaまで照射しても照射の効果はみられていない⁽²⁷⁾。一方、1.4914では600°Cの照射クリープ速度は熱クリープ速度の10~100倍であり、 n の値も5と大きく、照射による熱クリープの促進と考えられている⁽³²⁾⁽⁴⁰⁾(第3図)。この2鋼種の挙動の差の原因は明らかではない。

照射クリープ歪を表わす経験式は数多く提案されているが、オーステナイト鋼も含めて次式で表わす場合が多い⁽³¹⁾⁽³²⁾⁽³⁹⁾。

$$\dot{\epsilon} = B \bar{\sigma}^n \phi t + D S \bar{\sigma}$$

ここで、 $\dot{\epsilon}$: 実効歪, $\bar{\sigma}$: 実効応力
 ϕt : 照射量, B : クリープ係数
 S : スエリング, D : 定数

第2項はスエリングの寄与を示す項であり、オーステナイト鋼では広く認められている⁽³⁰⁾。フェライト鋼ではスエリングは低く通常無視できる。

第3図 HT-9, 1.4914のクリープ速度の応力依存性⁽⁴⁰⁾

B は500°C以下では温度・鋼種によらずほぼ一定となり、 $10^{-6} \sim 10^{-7} (\text{MPa})^{-n} (\text{dpa})^{-1}$ の範囲にある(第4図)。

第4図 HT-9の B の温度依存性

フェライト鋼の照射クリープを他鋼種と比較すると、550°C以下では一般に冷間加工したSUS 316より優れ、析出強化Ni基合金より大きい⁽²⁸⁾⁽²⁹⁾⁽³¹⁾。熱クリープが顕著となる600°C以上でのSUS 316との優劣は、鋼種・温度により異なっているが、HT-9では650°Cまで優れるとするデータがある⁽²⁹⁾。

IV. 機械的性質

金属材料では、照射により形成される転位ループ・ボイド・析出物のため転位運動が阻害され、強度増加・延

性低下とこれに伴う脆化が引き起こされる。

1. 強度

フェライト鋼は約 450°C 以下の照射により硬化し、耐力・引張強度が増加し、伸びは低下する^{(41)~(50)}。照射温度が低いほど変化は大きい(第 5 図)。低温での硬化は転位ループと微細析出物の形成によっており、G 相⁽⁴²⁾, Cr₂C⁽⁴¹⁾, α' 相⁽⁴⁵⁾, χ 相⁽⁴⁵⁾が知られている。

450°C 以上の照射温度では、30 dpa 程度の照射量で同

温度の長時間時効材と同程度の強度を示す^{(41)~(43)}, あるいは強度が減少(軟化)する⁽⁴⁵⁾。550°C 以上の高温では軟化する場合が多い。軟化は、マルテンサイト系の鋼では、マルテンサイト相中の高密度転位のアニールが照射により促進されるため⁽⁴⁵⁾とされる。高照射量のデータは少ないが、50 dpa 照射した HT-9 では、600°C までの照射温度で一たん軟化した後すべて硬化を生ずる⁽⁷⁾。

第 5 図 フェライト鋼の照射後室温硬化⁽⁴⁵⁾

2. He 脆化

高温照射したオーステナイト鋼では、結晶粒界に生成した He バブルによる粒界脆化によって延性が著しく低下するが、フェライト鋼では、He は延性にほとんど影響しないことが示されている^{(50)~(53)}。

混合スペクトル炉で照射した HT-9, 9Cr-1Mo では、生成した He (数 10 appm) は強度・延性に全く影響がない⁽⁵²⁾。He 脆化は歪速度が低いほど著しくなるが、照射後クリープ試験でフェライト鋼とオーステナイト鋼を比較した例では、前者は 5% 以上の破断伸びで粒内破断するのに対し、後者は延性なしに粒界破断する⁽⁵³⁾ (第 6 図)。

3. 照射脆化

一方、低温では前述のように強度増加と延性低下が起こるが、これに伴う DBTT の上昇がフェライト鋼の最も重要な問題の 1 つとされる。DBTT が機器の取扱

い温度を越える場合にはその機器の使用が困難となり、FBR ラッパ管では約 200°C、水冷却の核融合炉ブランケット構造材では約 280°C、さらに冷却系の常温耐圧試験を考えれば約 100°C が上限となる。

フェライト系鋼の照射脆化については、軽水炉圧力容器としての低合金鋼の膨大なデータがあるが、ここで取り上げた高 Cr のフェライト鋼のデータはわずかである。

熱中性子炉による照射 (約 300°C, $<10^{21} \text{ n/cm}^2 (E > 1 \text{ MeV})$) では^{(54)~(56) (60)}, 35~100°C の DBTT の上昇と上部棚エネルギーの減少を示す。これは、P, Cu を比較的多く含む古い低合金鋼が、同程度の照射で 200°C 以上の DBTT 上昇を示すのに比較すれば小さい。

高速炉照射では 30 dpa までのデータがあり^{(57)~(61)}, 照射温度が低いほど DBTT の上昇 (ΔDBTT) は大きい (第 7 図)。HT-9 では、390°C 照射で 135°C の DBTT の

第6図 フェライト鋼(1.4914)とオーステナイト鋼(1.4970)の照射後クリープ破断伸びの比較⁽⁵³⁾

第7図 DBTT 上昇量の照射温度依存性⁽⁶¹⁾

第8図 HT-9のDBTTの照射量依存性⁽⁶¹⁾

上昇がある。照射量に対してDBTTは飽和傾向を有する(第8図)が、飽和する照射量は30 dpa以上であり、低合金鋼よりも大きい。

照射脆化は、材料組成・熱履歴に敏感であるが、高Crフェライト鋼では詳細には調べられていない。マルテンサイト量が多いほど脆化が小さいこと⁽⁶⁰⁾、HT-9がMod. 9Cr-1MoよりDBTT上昇が大きいこと⁽⁵⁷⁾が知られている。溶接部の挙動については、HT-9の13 dpa照射で、溶着金属・熱影響部ともに

DBTTの上昇は母材とほぼ等しく、上部棚エネルギーもほぼ同じであることが示されている⁽⁵⁷⁾。

V. おわりに

高Crのフェライト鋼の照射によるスエリング、照射クリープおよび機械的性質の変化について概観した。

現在までのデータ範囲では、フェライト鋼のスエリング、照射クリープは現用オーステナイト鋼に比べて優れている。しかし、100 dpa以上での挙動については不明であり、スエリングの潜伏期とその後のスエリング速度、高He/dpaでかつ高照射でのスエリング挙動を明らかにしていく必要がある。また、添加元素・熱処理条件の影響はほとんどわかっていない。フェライト鋼の機械的性質はこれらに極めて敏感であることが知られており、照射下では照射誘起偏析・析出に伴う脆化に大きな影響をもつ。したがって、脆化の軽減とスエリング・照射クリープ抑制を両立しうる合金設計が重要と考えられる。

原子炉照射では、100 dpaを越える照射や高He/dpa・14 MeV中性子の効果を早急に明らかにするのは容易ではない。イオン照射等の模擬照射の有効な活用が期待される。

— 参考文献 —

- (1) GARNER, F.A.: *J. Nucl. Mater.*, **122&123**, 459 (1984).
- (2) GARNER, F.A., et al.: *ibid.*, **133&134**, 535 (1985).
- (3) GELLES, D.S., et al.: *DOE/ER-0045/11*, p103 (1983).
- (4) LITTLE, E.A., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **87**, 25 (1979).
- (5) GELLES, D.S.: *ibid.*, **108&109**, 515 (1982).
- (6) *idem*: *Proc. Topical Conf. on Ferritic Alloys for Use in Nuclear Energy Technologies, Snowbird*, p559 (1983).

- (7) STRAALSUND, J.S., et al.: *ibid.*
 (8) GELLES, D.S., et al.: Ref.(1), p207.
 (9) DUPOUY, J.M., et al.: Ref.(6), p125.
 (10) POWELL, R. W., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **103&104**, 969 (1981).
 (11) SMIDT, Jr., F.A., et al.: *ASTM STP* 611, p227 (1976).
 (12) LITTLE, E.A.: Ref.(6), p587.
 (13) ARKELL, D.R., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **74**, 144 (1978).
 (14) KAI, J.J., et al.: *2nd Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, Chicago, 1986.*
 (15) VITEK, J.M., et al.: *ibid.*
 (16) VITEK, J.M., et al.: Ref.(6), p551.
 (17) MAZIAZ, P.J., et al.: Ref.(4).
 (18) HORTON, L.L., et al.: Ref.(6), p569.
 (19) FARREL, K., et al.: *ASTM STP* 870, p383 (1985).
 (20) BUCKLEY, S.N.: Ref.(4).
 (21) OHNUKI, S., et al.: Ref.(4).
 (22) SUZUKI, K., et al.: Ref.(2), p632.
 (23) LITTLE, E.A., et al.: *ibid.*, **87**, 11 (1979).
 (24) HAYNS, M.R., et al.: *ibid.*, **74**, 151 (1978).
 (25) BULLOUGH, R., et al.: *ASTM STP* 725, p593 (1981).
 (26) SNIEGOWSKI, J.J., et al.: Ref.(6), p579.
 (27) CHIN, B.A.: Ref.(6), p593.
 (28) PAXTON, M.M., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **80**, 144 (1979).
 (29) GILBERT, E.R., et al.: *Nucl. Technol.*, **52**, 273 (1981).
 (30) PUIGH, R.J., et al.: Ref.(6), p601.
 (31) PUIGH, R.J.: Ref.(4), p7.
 (32) *idem*: Ref.(4).
 (33) WASSILEW, C., et al.: Ref.(6), p607.
 (34) HERSCHBACK, K.: *J. Nucl. Mater.*, **127**, 237 (1985).
 (35) HERSCHBACK, K., et al.: *Proc. Irradiation Behavior of Metallic Materials for Fast Reactor Core Components, Ajaccio*, p25 (1977).
 (36) de BREMAECKER, A., et al.: *Dimensional Stability and Mechanical Behavior of Irradiated Metals and Alloys, Brighton, BNES, 1983.*
 (37) ERHLER, J., et al.: Ref.(3), p11.
 (38) LITTLE, E.A., et al.: Ref.(3), p31.
 (39) ERHLER, K.: *J. Nucl. Mater.*, **100**, 149 (1981).
 (40) EHRLICH, K., et al.: *Int. Symp. on Fast Breeder Reactors-Experience and Future Trends, Lyons, 1985.*
 (41) KLUEH, R.L., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **132**, 27 (1985).
 (42) KLUEH, R.L., et al.: *ibid.*, **137**, 44 (1985).
 (43) LAURITZEN, T., et al.: Ref.(6), p623.
 (44) KLUEH, R.L., et al.: Ref.(4).
 (45) LITTLE, E.A.: *ASTM STP* 782, p207 (1982).
 (46) KLUEH, R.L., et al.: *ibid.*, p648.
 (47) YUKITOSHI, Y., et al.: Ref.(2), p644.
 (48) KLUEH, R.L., et al.: Ref.(6), p615.
 (49) SUGANUMA, K., et al.: *J. Nucl. Mater.*, **105**, 23 (1982).
 (50) HUET, J.J., et al.: *Nucl. Technol.*, **24**, 216 (1974).
 (51) ANDERKO, K.: *J. Nucl. Mater.*, **95**, 31 (1980).
 (52) KLUEH, R.L., et al.: *ibid.*, **117**, 295 (1983).
 (53) WASSILEW, C.: *Mechanical Behavior and Nuclear Application of Stainless Steel at Elevated Temperatures, Varese, 1981.*
 (54) LITTLE, E.A., et al.: Ref.(3), p31.
 (55) HOBSONS, R.R., et al.: *ASTM STP* 570, p103 (1976).
 (56) HAWTHORE, J.R., et al.: Ref.(4), p580.
 (57) HU, W.L., et al.: Ref.(6), p631.
 (58) HAWTHORE, J.R., et al.: Ref.(4), p883.
 (59) SMITH, Jr., F.A.: *ASTM STP* 725, 269 (1981).
 (60) KAYANO, H., et al.: Ref.(2), p649.
 (61) LECHENBERG, T.: Ref.(2), p149.

○(財)放射線計測協会・受講生募集○

○第5回原子力教養講座

内 容 原子力関連職場の事務職員, 原子力施設のある地方自治体職員, 原子力に関心のある一般の人が, 新聞記事などに出てくる原子力問題の基礎知識を, 講義および実演・施設見学を通じて短期間に習得できる。

期 間 昭和62年2月16日(月)~20日(金)

会 場 放射線計測協会 (茨城県東海村 原研内)

受講料 50,000円(定員 24名)

申込締切 所定申込書により2月7日(土)(先着順)

○第19回放射線計測基礎講座

内 容 放射線業務に従事される方々に, 放射線測定の必須知識を平易に解説し, 実習と演習を通じて放射線計測の基本を実際に体得することができる。

期 間 昭和62年1月26日(月)~30日(金)

会 場 放射線計測協会 (茨城県東海村 原研内)

受講料 54,000円, 懇親会費 2,000円 (定員 24名)

申込締切 所定申込書により1月17日(土)(先着順)

問合せ・申込先 (〒319-11)茨城県東海村 原研内

(財)放射線計測協会 研修部(0292-82-5546)

○原研 RI・原子炉研修所・研修生募集○

○第13回原子力入門講座

目 的 原子力一般に関する基礎的知識を, 講義・実験を通して短期間で普遍的に習得させる。

期 間 昭和62年1月7日(水)~22日(火)

授業料 80,000円(定員 24名), 締切 12月5日(金)

授業レベル 高校教科書程度の数学および物理化学の用語を一応心得ている者。

高校卒1~3年の原子力関連職場で技術的業務を経験した者, 原子力施設のある地方自治体などで技術的業務に関連する者, 原子力関連企業の技術者や管理職者などにも向いている。

申込先 (〒319-11)茨城県東海村 (Tel.0292-82-5667)

原研 RI・原子炉研修所(原子炉研修部門)