高速炉燃料被覆管用 ODS フェライト-マルテンサイト鋼の開発

鵜飼 重治* 奥田 隆成**
萩 茂樹*** 藤原 優行****

1. はじめに

ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料を装填して高速炉燃料要素を形成する被覆管は、高速中性子照射環境下において400~700°Cの温度条件で使用される。高速炉の実用化段階では200 dpa以上の極めて高いはじき出し損傷に耐える被覆管材料が要求されており、その場合の対象材料はボイドスエリング抵抗性に優れたフェライト系耐熱鋼に絞られる。しかしフェライト系鋼は600°C以上での高温強度に劣るため、フェライト鋼をベースに酸化物を微細分散して高温強度を高めたODS(Oxide Dispersion Strengthened)フェライト鋼が注目される。

これまでに高速炉用燃料被覆管材料として開発されたODSフェライト鋼には米国のMA957⁽¹⁾がある。MA957は14Crフェライト鋼にY₂O₃を分散した合金であり、難加工性であるため被覆管への製管は800°C程度の温間圧延を必要とし、作製した被覆管は燃料要素として重要な周方向の内圧クリープ強度が極端に低下するという課題があった。

そこで筆者らは、高速炉燃料被覆管への適用を目指して、ODSフェライト鋼に特有の難加工性と低延性、および圧延加工材に有する強度異方性を克服して、冷間圧延による被覆管への優れた加工性と世界最高レベルの内圧クリープ強度を有するODSフェライト-マルテンサイト鋼を開発したので、その概要を報告する。

2. 組織制御技術開発

(1) 製造プロセスと基本成分

上記課題を克服するため、合金設計から粉末のメカニカル

アロイング(MA)処理、固化成形、被覆管圧延に至る一連のODSフェライト-マルテンサイト鋼被覆管製造技術を確立した。図1は製造プロセスを模式的に示したものである。アトライターボールミルを用いてフェライト-マルテンサイト鋼粉末とY₂O₃粉末を48時間MA処理した後、それらを軟鋼キャプセルに封入し1150°Cでの熱間押し出しにより固化成形する。このようにして作製した素管から、室温での冷間圧延と熱処理を繰り返して外径8.5mmで肉厚0.5mm、長さ2m程度の被覆管に製管する。冷間圧延には2ロール型のビルガーミルの適用が有効であることを明らかにして、圧延条件の最適化を図った。

基本成分に関しては、Tiを添加した場合にMA処理中に鋼中に強制固溶に近い状態となったY₂O₃が熱間押し出し段階でTiとの複合酸化物を形成して析出することにより、酸化物分散粒子がナノメートルサイズにまで超微細化することを見い出した⁽²⁾⁽³⁾。図2に示した透過電顕写真から、酸化物分散

図1 ODS フェライト-マルテンサイト鋼被覆管の製造プロセス。

* 核燃料サイクル開発機構、大洗工学センター、研究主幹

** 神鋼特殊鋼管株式会社、研究開発室、主任研究員

*** 住友金属工業株式会社、関西製造所、担当課長

**** コベルコ科研株式会社、受託研究本部、主席研究員；核燃料サイクル開発機構、非常勤客員研究員

Development of ODS Ferritic-Martensitic Steels for Fast Reactor Fuel Cladding; Shigeharu Ukai*, Takanari Okuda**, Shigeki Hagi*** and Masayuki Fujiwara**** (*Japan Nuclear Cycle Development Institute. **Kobe Special Tube Co. Ltd. ***Sumitomo Metal Industries Ltd. ****Kobelco Research Institute Inc.)

1999年10月27日受理

粒子は平均粒径が5 nm 程度にまで超微細化していることが分かる。高温強度を向上させる上で酸化物分散粒子の微細化(粒子間隔の減少)が重要であるため、基本成分はFe-Crベースに Y_2O_3 と微細化促進のためのTi, および固溶強化元素としてのWを添加した成分系とした。

低延性・難加工材であるODSフェライト-マルテンサイト鋼の加工性を改善し、作製した被覆管の内圧クリープ強度を向上させるために開発した加工熱処理による材料の組織制御技術について以下に述べる。

(2) フェライト系再結晶による組織制御

冷間圧延で硬化した組織を軟化させる手段として、フェライト系ODS鋼については回復・再結晶に着目し、その熱処理技術を開発した。ODSフェライト鋼では粒内の酸化物分散粒子に妨げられて回復・再結晶は起こり難い。そこで、13Cr-3W-0.4Tiの基本成分系において、被覆管製管を模擬した60%冷間圧延とその後の1200°C/1 h/ACの焼鈍条件で再結晶組織が得られる Y_2O_3 量の成分範囲を示す再結晶領域図を作成した⁽⁴⁾⁽⁵⁾。これを図3に示す。再結晶の起こり易さは Y_2O_3 量に依存し、Tiとの複合酸化物形成に供給可能な酸素量(過剰酸素量)にも僅かに影響されることを明らかにした。再結晶組織が得られ、かつ高い高温クリープ強度を維持するための Y_2O_3 量は0.25 mass%程度に存在することを示した。0.23 mass%の Y_2O_3 を有するODSフェライト鋼の被覆管製造過程における硬さ変化を図4中の実線で示す。ビルガーマルによる冷間圧延で加工硬化した組織を再結晶熱処理により十分軟化させることができ、冷間圧延による被覆管製造を達成した⁽⁶⁾。

図5の光学顕微鏡写真に示すように、冷間圧延により作製したODSフェライト鋼被覆管は圧延方向に沿って細かく伸びた針状結晶粒形態となる。その結果、被覆管周方向に応力が付加する内圧クリープモードでは、粒界すべりが優先的に

生じるため、圧延方向に比べて内圧クリープ強度が低下するという、強度異方性を示す。そこで、図5に示すように最終被覆管に対して再結晶熱処理による結晶粒の粗大化・等軸化を施すことにより粒界すべりを抑制することができ、 Y_2O_3 量が再結晶可能な0.25%程度でも酸化物分散による強化作用で内圧クリープ強度を大幅に改善できることを見出した⁽⁷⁾。

(3) マルテンサイト系 α/γ 変態による組織制御

マルテンサイト組成にすれば α/γ 変態を利用することがで

図3 ODSフェライト鋼(13Cr-3W-0.4Ti)での60%冷間圧延後1200°C/1 h/ACにおける再結晶領域図。

図4 ODSフェライト-マルテンサイト鋼被覆管の製造過程における硬さ変化。

図2 酸化物分散粒子の透過電子顕微鏡写真。

図5 圧延組織からの再結晶熱処理(フェライト系)と α/γ 変態(マルテンサイト系)により粗大化・等軸化した結晶粒の光学顕微鏡写真。

図6 開発した ODS フェライト-マルテンサイト鋼の 700°Cでの内圧クリープ破断強度と HT9, SUS316 との比較.

き, A_{C3} (約1000°C)以上の温度でオーステナイト化することにより圧延方向に伸長した結晶粒組織を完全に等軸化できることを見出した. 図5に等軸化した ODS マルテンサイト鋼被覆管組織の光学顕微鏡写真を示した. このような等軸組織とすることにより, 強度異方性は完全に消失することを確認している⁽⁸⁾.

ODS マルテンサイト鋼は硬いため, 冷間圧延による被覆管製造は極めて困難である. そこで, ODS マルテンサイト鋼の連続冷却変態線図(CCT 線図)を作成して, オーステナイト域からの冷却速度を M_s 点を横切らない 100°C/h 以下(炉冷)に制限すれば軟化したフェライト組織が得られることに着目して, 冷間圧延の途中でこのような炉冷却処理を施すことにより, ODS マルテンサイト鋼においてもピルガミルによる冷間圧延を可能とした. このような炉冷却処理を施した ODS マルテンサイト鋼被覆管の製造過程における硬さ変化を図4中に破線で示した. 最終の被覆管段階において, 焼きならし・焼き戻し熱処理を施し冷間圧延で圧延方向に細かく伸びた針状結晶粒を等軸化すると共に, 焼き戻しマルテンサイト組織とする.

3. 開発鋼の機械的特性

冷間圧延により作製したフェライト系とマルテンサイト系 ODS 鋼被覆管の燃料要素として重要な700°Cでの内圧クリープ破断強度を図6に示す. ここでは, これらの結果を代表的な ODS フェライト鋼である MA957, 従来材のマルテンサイト系耐熱鋼である HT9, およびオーステナイト鋼 SUS316 のクリープ破断強度と比較して示した. 開発した ODS フェライト-マルテンサイト鋼被覆管のクリープ破断強度は, フェライト系耐熱鋼としては世界最高の内圧クリープ強度を達成しており, また通常のオーステナイト鋼以上の強度レベルにあることが分かる. この内圧クリープ強度は, 実用化段階の高速炉用燃料被覆管が設計で必要とする700°C, 1万時間で 120 MPa の強度レベルに到っている.

ODS フェライト-マルテンサイト鋼被覆管のリング引張試験により求めた周方向の引張特性を図7に示す. 開発材の一樣伸びは設計上必要な1%を十分に満足し, 延性が確保されている. また引張強さも十分な強度レベルにあることが分かる.

図7 開発した ODS フェライト-マルテンサイト鋼の引張特性.

4. ま と め

高速炉燃料要素の高燃焼度化と冷却材温度の高温化を達成する上で重要な高性能被覆管材料として, 耐照射性に優れたフェライト-マルテンサイト鋼基地に高温強度を高めるため酸化物粒子を超微細分散した ODS フェライト-マルテンサイト鋼を開発した. 難加工材である ODS 鋼の実用化にとって不可欠な冷間圧延による被覆管への製管加工性と延性改善は, フェライト系では再結晶熱処理の利用, およびマルテンサイト組成にして α/γ 変態を利用した組織制御を図ることにより達成できることを確認した. また組織制御した ODS フェライト-マルテンサイト鋼被覆管はフェライト系のみならずオーステナイト系ステンレス鋼と比べても, 世界最高レベルの内圧クリープ破断強度を有していることを確認した.

本研究により開発した ODS フェライト-マルテンサイト鋼は高速炉燃料被覆管としてだけでなく, 高温強度が要求される核融合炉の低放射化フェライト鋼第一壁材料として, また超々臨界圧ボイラやタービンロータ用材料としての適用も大いに期待されている.

5. 特 許

ODS フェライト-マルテンサイト鋼被覆管の成分と製造法に関わる9件の特許を出願済み⁽⁹⁾である.

文 献

- (1) J. J. Fischer: U. S. Patent 4075010, 1978.
- (2) T. Okuda *et al.*: J. Materials Science Letters, **14**(1995), 1600.
- (3) S. Ukai *et al.*: J. Nucl. Mater., **204**(1993), 65.
- (4) 奥田隆成: 鉄と鋼, **83**(1997), 797.
- (5) S. Ukai *et al.*: J. Nucl. Scie. and Technol., **34**, No. 3, (1997), 256.
- (6) S. Ukai *et al.*: J. Nucl. Mater., **258-263**(1998), 1745.
- (7) S. Ukai *et al.*: J. Nucl. Scie. and Technol., **36**, No. 8, (1999), 710.
- (8) S. Ukai *et al.*: J. Nucl. Scie. and Technol., **35**, No. 4, (1998), 294.
- (9) 特開平 7-278696号「酸化物分散強化型合金の製造方法」他.