ジルコニウム合金管の冷間ピルガ圧延における 加工性評価方法の提案

阿部 秀明* 古堅 宗勝**

Evaluation Method of Workability in Cold Pilgering of Zirconium-based Alloy Tube

Hideaki ABE* and Munekatsu FURUGEN**

(Received on October 18, 2007)

The workability in cold pilgering of zirconium-based alloy tube was investigated. In this study, a compression test was proposed as an evaluation method of cold workability. The compression test results showed the effect of heat treatment in the fabrication process as well as the texture of tube on the cold workability of zircaloy-4 tube shell. The cold pilgering test result ascertained that the reduction in height of the circumferential-direction specimen of the tube shell at the initiation of crack in the compression test was a good indication of cold workability. The numerical analysis results of cold pilgering proved the validity of the compression test as an evaluation method of cold workability.

Key words : tube rolling, workability, compression test, numerical analysis, zirconium, zircaloy, hexagonal closed-packed metal, texture, cold pilgering.

1. 緒 言

現在、国内で稼働している商用原子炉は全て軽水減速型原子炉（以下、軽水炉）である。この軽水炉のウラン燃料を封入する燃料被覆管にはジルコニウム合金管が採用されており、国内では年間数十万本が使用されている。

ジルコニウム(Zr)は 860℃付近に変態点があり、この温度以下では稠密六方晶構造（hexagonal closed-packed 構造 以下、hcp 構造： α 相）であり、この温度以上では体心立方晶構造（bcc 構造： β 相）である。

軽水炉に用いられるジルコニウム合金は全て JIS H4751 ZrTN804D（ジルカロイ 4 と称す）のように Zr を 98%以上含有し、Zr と同様の hcp 構造を有する。hcp 構造は結晶異方性が強く、すべり系や双晶系が少ない。このため、ジルコニウム合金は金属材料としては難加工材に分類されていたが、既存のジルコニウム合金管の製造では冷間ピルガ圧延法の採用により安定した製造が行われている¹⁾。

軽水炉の燃料被覆管として、ウラン燃料の交換寿命の延長を目的に新ジルコニウム合金材料の開発が継続的に進められてきた²⁾。新材料開発では合金成分開発と製造技術開発の両面からの取り組みが必要である。新ジルコニウム合金管製造のためには、冷間ピルガ圧延工程での品質安定が重要である。そのためには冷間ピルガ圧延における加工性を推定し得る評価試験方法の開発およびこの評価法に基づ

いて材料の加工性を改善した製造技術の開発が必須である。

著者らは以前、高周波熱処理を施したジルコニウム合金管の圧縮試験を行い、熱処理により変形能（冷間加工性）が変化することを確認した³⁾。本研究では、これをさらに進めて加工性評価法としての圧縮試験の妥当性を調査した。ここでは製造工程中の熱処理条件を系統的に変化させた供試管に対して材料調査、圧縮試験および冷間ピルガ圧延試験を行った。そしてピルガ圧延の応力・ひずみ解析により、圧延疵と変形能の関係を考察し、冷間ピルガ圧延の加工性評価方法として圧延素管の周方向圧縮試験が妥当であるとの結論を得た。

2. ジルコニウム合金管の製造方法

ジルコニウム合金素管（Tube Shell、外径 63.5mm、肉厚 10.9mm）の製造工程を Fig.1 に示す。原料素材と添加元素を混合し真空溶解によりインゴットを製造し、それを熱間鍛造により中実ビレットとする。その後、1000℃以上の β 相温度域まで加熱した後、冷媒で急冷する（ β 処理）。この処理の目的は成分や組織の均質化である。次いで内外面の旋削により中空ビレットとし、 α 相温度域で熱間押出加工により押出管を造る。その後、焼鈍—冷間ピルガ圧延—焼

Fig.1 Process flow of Tube Shell

* (株)ジルコプロダクツ 〒752-0953 下関市長府港町 13-1
ZircoProducts Co.,Ltd. 1-13 Chofu Minatomachi, Shimonoseki, 752-0953, Japan
** (株)古堅・牧野技術研究所 〒662-0875 西宮市五月ヶ丘 1-26

鈍を経て素管 (Tube Shell) を製造する。

この素管に数回の冷間ピルガ圧延と焼鈍を繰り返し、研磨や酸洗の表面仕上げを施して、燃料被覆管とする。

Fig.2 Schematic illustration of cold pilgering

冷間ピルガ圧延の模式図を Fig.2 に示す。工具は上下一対のロールダイスとマンドレルから構成される。ロールダイスは外周部に素管から仕上げ管までの外径寸法が徐々に小さくなる孔型を有する。圧延加工中、ロールダイスは回転しながら水平方向に往復運動し、孔型で管を外側から圧下する。マンドレルは直径が曲線状に変化する円錐形状を有し、管内面を拘束する。ロールダイスとマンドレルにより管の外径、内径そして肉厚が圧下され、管は軸方向に延伸される。ロールダイス1往復毎に、所定の送りと回転が管に与えられ、断続的に加工が繰り返される。

冷間ピルガ圧延は加工度を大きく設定できる利点はあるが、加工中に管を偏平変形させるため圧延条件によっては管内面に疵が発生することがある⁴⁾。著者らは圧延疵の要因の中で加工モードQ値 (=肉厚加工度/径加工度)の影響⁵⁾や工具孔型の影響⁶⁾について明らかにした。

3. 実験方法

3.1 供試材

供試材はジルカロイ-4である。その成分組成を Table 1 に示す。供試素管は Fig.1 に示した工程により製造した。

Table 1 Chemical composition / mass%

Sn	Fe	Cr	O	C	Zr
1.30	0.21	0.11	0.10	0.01	Balance

3.2 試験工程条件

Fig.1 の工程中のピレットβ処理、熱間押出前加熱そして冷間ピルガ圧延後の焼鈍の3工程について、工程条件を変化させた Table 2 に示す10種類の供試素管を製造した。

ピレットβ処理は冷媒種類や方法を変えることで、変態点での冷却速度を3条件とした。高速冷却は中空ピレットで、中間、低速冷却は中実ピレットで処理を行った。

熱間押出前加熱温度は2条件とし、押出後の焼鈍温度は649℃とした。冷間ピルガ圧延後の焼鈍温度は5条件とした。こうして得られた素管 (外径 63.5mm, 肉厚 10.9mm) は内外面とも研磨、酸洗処理により平滑に仕上げられ、材料調査、圧縮試験そして冷間ピルガ圧延試験に供された。

3.3 材料調査

素管の材料調査として、①結晶方位(集合組織)測定、②ミクロ組織観察、③硬度測定の3項目を行った。

Table 2 Experimental process conditions of Tube Shell

No.	Process condition		
	Billet β-Quench Cooling Rate	Preheat Temperature of Extrusion	Anneal Temperature after pilgering
1	Rapid : 100°C/s	649°C	649°C .2h
2		750°C	649°C .2h
3		649°C	649°C .2h
4	Medium : 30°C/s	649°C	700°C .2h
5		649°C	732°C .2h
6		649°C	750°C .2h
7		649°C	788°C .2h
8		750°C	732°C .2h
9	Slow : 15°C/s	649°C	649°C .2h
10		750°C	732°C .2h

集合組織の測定は管の肉厚中央部から採取した試料に対してX線回折法により、hcp構造の(0002)面について行った。測定結果は正極点図で表記すると同時に集合組織の定量評価(f値計算)⁷⁾を行った。ミクロ組織はピレットから素管までの工程の進行に伴う変化を偏光顕微鏡観察によって調査した。硬度についても工程の進行に伴う変化を横断面のロックウェル硬度で調査した。

3.4 圧縮試験

本研究は圧縮試験法を冷間ピルガ圧延における加工性の評価方法として提案するものである。試験片の採取と試験方法の模式図を Fig.3 に示す。試験片は素管の半径、円周そして軸方向から採取した。試験片は円柱状 (4mmD×8mmH または 8mmD×8mmH) で、表面は平滑に仕上げた。

圧縮試験は室温で、インストロン試験装置で行った。試験片の両端面には潤滑油を塗布し、圧縮速度は 5mm/min. で一定とした。変位と荷重は連続測定記録をし、割れ発生時期を記録チャートで確実に把握できるようにした。割れ発生の限界圧縮率 Rc (%)を下式で求めた。

$$Rc (\%) = \frac{H-h}{H} \times 100 \quad (1)$$

ここで、H:試験前の試験片高さ、h:割れ発生時の高さである。また、変位-荷重チャートから圧縮変形の0.2%耐力と限界圧縮強度を求めた。

Fig.3 Compression test

3.5 冷間ピルガ圧延試験

冷間ピルガ圧延試験の圧延スケジュールを下に示す。

【圧延スケジュール(OD:外径, WT:肉厚)】

63.5 OD×10.9 WT→44.4 OD×7.6 WT, 減面率 51%

試験には標準的な圧延機である MEER 社製 75VMR 冷間ビルガ圧延機 (ロールダイス外径: 370mm, 加工領域の長さ: 760mm) を用いた。圧延管の疵検出は超音波探傷試験, 浸透探傷試験, 表面目視観察によって行った。

4. 実験結果

4.1 材料調査結果

素管の(0002)面の集合組織の正極点図を Fig.4 に示す。同図には正極点図を基に, c 軸の配向状態を模式的に示してある。対象素管は No.5 で, β 処理冷却速度は中間, 押出前加熱は 649°C, そして圧延後焼鈍は 732°C である。集合組織を定量値で示すと半径(r), 円周(θ)そして軸(l) 方向の c 軸配向率は各々 $f_r=0.35$, $f_\theta=0.58$, $f_l=0.07$ であった。素管では円周方向の c 軸配向率が大きく, 軸方向には小さかった。素管での異方性が極めて強いことが確認された。c 軸配向率の傾向は他の工程条件でも同様であった。ビレット β 処理冷却速度が高速と低速の 2 種類のマイクロ組織観察結

Fig.4 Pole figure and texture of Tube Shell (Tube Shell No.5)

Fig.5 Change of microstructure in the process
(Outer side of billet and tube, Transverse)

果を Fig.5 に示す。観察部位は β 処理の影響が顕著な外面側の横断面である。

ビレット β 処理直後では針状組織が認められる。そして押出およびその後の焼鈍までは部分的に混粒や粗大粒が認められる。しかしいずれの条件でも冷間圧延, 焼鈍を経た後の素管では整粒組織となっていた。またビレット β 処理中間冷却速度の場合は低速冷却とはほぼ同様の組織であった。

硬度測定は横断面の外面, 内面側 2 箇所に対して行った。硬度測定結果を Fig.6 に示す。ビレット β 処理が高速冷却の場合は急冷処理による硬度の顕著な上昇が認められた。これに対して中間, 低速冷却 β 処理では硬度上昇は小さかった。しかしいずれの条件でも冷間圧延, 焼鈍を経た後の素管段階では硬度の差は認められなかった。

以上のように素管の段階ではマイクロ組織, 硬度とも工程条件の影響は認められなかった。

Fig.6 Change of hardness in the process

4.2 素管の圧縮試験結果

(1) 圧縮試験結果の異方性 最初に素管の 3 方向の圧縮試験結果の違いを調査した。試験片は Fig.4 に集合組織測定結果を示した素管より採取した。圧縮試験後の試験片を Fig.7 に示す。円周と半径方向試験片においては斜め割れが発生したが, 軸方向試験片に割れは発生しなかった。

Fig.7 Specimens after compression test (8mmD×8mmH)

3 方向の圧縮試験結果の比較を Fig.8 に示す。0.2%耐力は円周方向が最も大きく, 次が半径方向で, 軸方向は他の 2 方向に比べてかなり小さかった。一方, 限界圧縮強度と限界圧縮率は 0.2%耐力と逆の傾向を示しており, 円周方向が最も小さく, 次に半径方向で, 軸方向では圧縮率が 70%を超えても割れ発生が認められなかった。

Zr は結晶方位により機械的性質が異なり, c 軸方向には変形しにくいことが知られている⁸⁾。Fig.4 で示したように c 軸配向率の大きさの順は円周, 半径方向そして大きく離れて軸方向の順であった。c 軸方向の変形のしにくさが限界圧縮強度と限界圧縮率の大小に対応している。圧縮試験の異方性は集合組織の影響を受けたものと考えられる。

Fig.8 Compression test result in 3-directions of Tube Shell
(Specimen : 8mmD×8mmH)

(2) 製造条件と圧縮性能 引き続き供試素管全ての圧縮試験を行った。圧縮試験の結果、全ての供試素管で円周方向の限界圧縮率が他の2方向に比べて小さかった。以下では円周方向の限界圧縮率で評価する。各工程条件と円周方向限界圧縮率 R_c との関係を Fig.9 に示す。

ビレットの β 処理条件と限界圧縮率 R_c との関係をみると冷却速度の小さい方が限界圧縮率は大きい傾向が認められた。熱間押出前加熱温度については低温の 649℃の方が750℃よりも限界圧縮率は大きかった。冷間ピルガ圧延後の焼鈍温度については高温の方が限界圧縮率は大きい傾向があり、732℃以上では安定していた。

各工程の条件が圧縮変形能に影響することが確認された。変形能の観点からは、ビレット β 処理は低速冷却が、熱間押出しは低温押出しが、最終の焼鈍温度は 732℃以上の比較的高温側の α 相域での処理が望ましい。

4.3 冷間ピルガ圧延試験結果

10 種類の供試素管 (長さ 2m) 各 1 本について、冷間ピルガ圧延試験を行った。圧延条件としては、管の送り量は 5mm で、管の回転角は 57 度とした。素管の工程条件と円周方向限界圧縮率 R_c および冷間ピルガ圧延試験結果を Table 3 に示す。

圧延後の内表面はほとんどの素管で良好であった。ただ 1 種類、すなわちビレット β 処理は高速冷却、押出前の高温加熱(750℃)を行った素管(No.2)のみに圧延後の管内表面に軸方向のしわ疵が認められた。そのしわ疵深さは約 0.02mm であった。このしわ疵の認められた素管の限界圧縮率は 10 種類の中でも、他と比較して著しく小さかった。

この結果から円周方向限界圧縮率と圧延疵発生とは関連があると判断できる。

Fig.9 Relationship between the process condition and R_c in the circumferential-direction of Tube Shell

Table 3 Cold pilgering test results

No.	Process condition			R_c (%)	Cold pilgering test result
	Billet β -Quench	Preheat of Ext.	Anneal after pilg.		
1	Rapid	649℃	649℃	44.0	good
2		750℃	649℃	35.0	defects
3	Medium	649℃	649℃	43.0	good
4		649℃	700℃	45.5	good
5		649℃	732℃	52.0	good
6		649℃	750℃	51.0	good
7		649℃	788℃	51.0	good
8		750℃	732℃	44.0	good
9	Slow	649℃	649℃	47.0	good
10		750℃	732℃	44.0	good

5. 考 察

5.1 ジルコニウム合金素管の圧縮変形能

圧縮試験は鉄鋼材料 (S45C, 焼鈍材) において、応力状態と破断形態に関する詳細な研究⁹⁾が行われている。

今回の圧縮試験で認められた斜め割れは上記文献によれば Fig.10 に示すように、試験片側面中央部の垂直方向の圧縮応力 σ_z と円周方向の 2 次的引張応力 σ_θ によるものと考えられる。なお今回のジルコニウム合金素管の円周方向の限界圧

Fig.10 Crack in compression test

縮率は 35~52%と、上記文献の S45C 鋼材における実績値 75~80%と比べて、著しく低いものである。ジルコニウム合金素管の円周方向圧縮変形能が低いことが、この試験によって確認された。

5.2 冷間ピルガ圧延の応力・ひずみ解析¹⁰⁾

冷間ピルガ圧延の応力・ひずみ解析を行った。結果を Fig.11 に示す。ピルガ圧延ではロールダイスが 1 往復する毎に管を約 60° 回転するために非軸対称の加工となる。そこでこの解析では Fig.11(a)に示すように管の横断面を 4 つのセクションに分けて、半径(r)、円周(θ)そして軸(l)の 3 方向それぞれの平均応力 σ とひずみ ε を求めた。Fig.11(b) に圧延中の応力を、Fig.11(c) にひずみ ($\varepsilon_r - \varepsilon_\theta$ 線図) を示す。

解析で得られた圧延中の応力とひずみの特徴点を、管内面がマンドレルと接触しているウェブ部 (セクション 1,4) と非接触のフランジ部 (セクション 2,3) に分けて説明する。

(a) Partition of a tube-section in analysis

(b) Variation of stress during cold pilgering

(c) Variation of strain during cold pilgering

Fig.11 Numerical analysis results of the cold pilgering

ウェブ部 (特にセクション 1) の応力は、半径、円周、軸方向の 3 方向いずれも圧縮応力である。またひずみは半径方向に大きな圧縮ひずみ (肉厚圧下)、円周方向に引張ひずみ (幅広がり) となっている。これに対してフランジ部 (セクション 2,3) の応力は、円周方向圧縮、軸方向引張の状態である。またひずみは円周方向に大きな圧縮ひずみ (幅縮み)、半径方向には若干の引張ひずみ (増肉) となっている。

5.3 圧縮試験と冷間ピルガ圧延の関連

圧縮試験とピルガ圧延解析から、圧延時の内面疵発生メカニズムそして圧縮変形能と圧延疵発生に関連を考察した。

ウェブ部では上記のように 3 方向とも圧縮応力であり、また肉厚圧下、幅広がり状態となっている。従い、ウェブ部ではしわや疵の発生は起こりにくい。一方、フランジ部では円周方向に大きな圧縮応力と幅縮み、かつ管内面は自由面であるから、軸方向のしわや疵が発生しやすい。

このため円周方向圧縮変形能の低いジルコニウム合金素管においては、圧延中にフランジ部で内面にしわ疵が発生しやすいと考えられる。

これを評価手法の観点からみると、ジルコニウム合金管の冷間ピルガ圧延において、素管の円周方向限界圧縮率は加工性の評価指標として妥当なものと判断してよい。

6. 結 言

ジルコニウム合金管の冷間ピルガ圧延における加工性評価方法として、圧縮試験の有効性を調査した。集合組織と素管製造工程中の熱処理条件が素管の変形能に影響することを圧縮試験によって明らかにした。冷間ピルガ圧延試験により素管の限界圧縮率と圧延疵発生との間に関連のあることを確認した。そしてピルガ圧延解析結果から圧縮変形能と圧延疵との関係を考察し、素管の円周方向の限界圧縮率が冷間ピルガ圧延の加工性評価指標として妥当であることを示すことができた。

著者らはすでに、この圧縮変形能が低いジルコニウム合金素管に対しても、適切な圧延条件を適用し、安定した製造を実現している³⁾。本方法は今後開発される新材料に対しても加工性評価の有効な手段になりうると考えられる。

参 考 文 献

- 1) 小西隆男：塑性と加工，19—207 (1978), 302-307.
- 2) 日本原子力学会 2006 年春の年会要旨集(2006), 205-213.
- 3) Abe, H., Matsuda, K., Hama, T., Konishi, T. & Furugen, M. : ASTM STP1245(1994), 285-306.
- 4) Bembenek, Z., Wiesner, H. & Starek, J.:Proc.3rd.Jpn.-Czech. Jt. Symp.(1981), 135-153.
- 5) 古堅宗勝・阿部秀明・垂井博明・小林十思美：41 回塑加連講論，(1990), 347-350.
- 6) Abe, H., Takeda, K., Uehira, A., Anada, H. & Furugen, M. : ASTM STP1354(2000), 425-459.
- 7) Kearns, J. J. : Report WAPD-TM-472 WH (1965), 2-4.
- 8) Tenckhoff, E. : ASTM STP966(1988), 55-56.
- 9) 工藤英明・青井一喜：塑性と加工，8—72 (1967), 17-27.
- 10) Furugen, M. & Hayashi, C. :J.mech.Work.Tech.,10-3(1984), 273-286.