

原子力システム研究開発事業基盤技術開発分野
革新技術創出型 事後評価総合所見

評価の概略					
研究開発課題名（研究機関名）： 第三世代耐照射性オーステナイト合金の研究開発 （株式会社神戸製鋼所） 研究期間及び予算額：平成20年度～平成22年度（3年計画） 305,893千円					
項目	要 約				
1. 研究開発の概要	高効率の発電と増殖およびマイナーアクチニド(MA) 燃焼を目指す実用高速炉の燃料被覆管には、炉心性能の確保と共に、MA入り燃料集合体や使用済燃料の保管、湿式再処理での健全性が担保できる耐食性に優れた高クロム-高ニッケル系第3世代耐照射性オーステナイト合金の開発が必要である。その最重要課題となる粒界脆化を最新の合金設計、超高純度EHP (Extra-High-Purity) 溶製法および加工熱処理により克服し、高性能材料技術を確立する。				
2. 総合評価	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="text-align: center; width: 50px; vertical-align: middle;">A</td> <td> <ul style="list-style-type: none"> ・オーステナイト合金に関する過去の開発成果を基に、実用化段階の高速炉燃料被覆管に求められる要件を満たす新合金の設計・開発及び環境適用性評価を行い、この新合金を用いた被覆管製造技術の開発を実施し、さらに核燃料サイクルへの適合性についての見通しが得られている等、優れた成果が挙げられており、今後の展開が大いに期待できる。 </td> </tr> <tr> <td colspan="2"> S) 極めて優れた成果を挙げ、今後の展開が大いに期待できる。 Ⓐ) 優れた成果を挙げ、今後の展開が期待できる。 B) 成果の一部は得られてないが、他は相応の成果を挙げている。 C) 成果の多くが得られておらず、一部についてのみ相応の成果を挙げている。 D) 成果がほとんど挙げられていない。 </td> </tr> </table>	A	<ul style="list-style-type: none"> ・オーステナイト合金に関する過去の開発成果を基に、実用化段階の高速炉燃料被覆管に求められる要件を満たす新合金の設計・開発及び環境適用性評価を行い、この新合金を用いた被覆管製造技術の開発を実施し、さらに核燃料サイクルへの適合性についての見通しが得られている等、優れた成果が挙げられており、今後の展開が大いに期待できる。 	S) 極めて優れた成果を挙げ、今後の展開が大いに期待できる。 Ⓐ) 優れた成果を挙げ、今後の展開が期待できる。 B) 成果の一部は得られてないが、他は相応の成果を挙げている。 C) 成果の多くが得られておらず、一部についてのみ相応の成果を挙げている。 D) 成果がほとんど挙げられていない。	
A	<ul style="list-style-type: none"> ・オーステナイト合金に関する過去の開発成果を基に、実用化段階の高速炉燃料被覆管に求められる要件を満たす新合金の設計・開発及び環境適用性評価を行い、この新合金を用いた被覆管製造技術の開発を実施し、さらに核燃料サイクルへの適合性についての見通しが得られている等、優れた成果が挙げられており、今後の展開が大いに期待できる。 				
S) 極めて優れた成果を挙げ、今後の展開が大いに期待できる。 Ⓐ) 優れた成果を挙げ、今後の展開が期待できる。 B) 成果の一部は得られてないが、他は相応の成果を挙げている。 C) 成果の多くが得られておらず、一部についてのみ相応の成果を挙げている。 D) 成果がほとんど挙げられていない。					

評価の詳細

研究開発課題名（研究機関名）：

第三世代耐照射性オーステナイト合金の研究開発

（株式会社神戸製鋼所）

研究開発の実施者

機関名：株式会社神戸製鋼所

代表者氏名：能浦 毅

機関名：独立行政法人日本原子力研究開発機構

代表者氏名：芝 清之

研究期間及び予算額：平成20年度～平成22年度（3年計画） 305,893千円

研究開発予算

平成20年度 78,880千円

平成21年度 118,045千円

平成22年度 108,968千円

項目	内容
1. 目的・目標	<p>本研究は、LMFBR実用炉の MA入り低除染MOX燃料の最高燃焼度250Gwd/tと定常運転の最高表面温度700℃の炉心性能を持ち、水プール保管や湿式再処理等の燃料サイクル工程への適用性等が総合的に担保できる被覆管を念頭にした第三世代の耐照射性オーステナイト合金を開発する。オーステナイト合金は、現行炉の常陽やもんじゅ等に適用した第一世代SUS316系鋼の実績、第二世代15Cr20Ni鋼の開発の経験が数多くあり、上記の開発に係わる技術的課題が明確化している。第三世代合金では、耐スウェリング性と高温強度が担保できる析出強化型Ni基合金として英国のPE16や米国のインコネル等の世界的開発経験を踏まえて、当該合金の唯一の開発課題である延性低下が克服できる高性能合金を開発する。スーパーアロイと呼ばれる実用Ni基耐熱合金は、原子炉等の実用経験から、不純物の粒界偏析、析出物の状態変化及び核変換反応生成Heの集積等による粒界脆化が促進され易い性質を有する。本研究は、提案者らが開発した経年劣化抑制用の合金設計、粒界偏析の抑制や耐照射性の改善に有効な超高純度EHP溶製法や加工熱処理等を適用して、高Cr系の析出強化型オーステナイト合金製被覆管の製造技術を確立し、炉心性能と共に燃料集合体の健全性、使用済燃料の保管や先進再処理等を含む核燃料サイクル工程の適用性を評価して成立性を確認し、実炉照射試験に必要な材料特性データベースを整備する。</p>
2. 研究成果	<p>【研究開発項目(1) 新耐食合金設計/環境適用性評価】 [得られた成果]</p> <p>①新耐食合金設計 オーステナイト相安定性の確保とヘリウム脆性の抑制の双方からPE16のFe/Ni比をベースとして、実証炉の設計クリープ強度の達成と時効脆化の抑制のために、超高純度EHP溶製法による粒界偏析する有害不純物の除去、結晶粒界面で粗大化するM₆C炭化物形成元素のMoとCの排除、Al、Ti添加によるγ'だけの析出強化型EHP合金を選定し</p>

た。併せて、広い析出温度範囲と耐照射性の一層の確保を目的として、ステンレス鋼の重照射時効後の最終析出物であるシリサイドのG相や、Si 自体のスウエリング抑制効果に着目し、Si と化学的親和力の高いW を複合添加したシリサイド析出強化型のWSi 系 EHP 合金を開発した。開発合金は、重照射下の照射誘起偏析(RIS)に伴う結晶粒界のCr の欠乏の抑制や核燃料サイクル工程の耐食性確保のために 25wt% Cr 系とした。熱履歴は、拡散クリープ支配の粒界すべりとなる高温クリープの強度の保持として、強冷間加工と再結晶により必要となる均一な大きさの結晶粒径に制御し、金属間化合物の熱力学的安定性を考慮した時効析出処理として、 γ' 系 EHP 合金では $950^{\circ}\text{C} \times 24$ 時間 + $750^{\circ}\text{C} \times 24$ 時間、WSi 系 EHP 合金では $1225^{\circ}\text{C} \times 1$ 時間 + $850^{\circ}\text{C} \times 24$ 時間を選定した。

②環境適用性評価

耐照射性の照射試験では、高速炉の中性子エネルギースペクトルに対応した弾き出し損傷と核変換反応による He や H の同時生成効果を反映させたトリプスイオンビーム照射試験(イオン照射試験)と超高压電子顕微鏡を用いたその場観察(電子線照射試験)を実施した。イオン照射試験では、供用温度の $400^{\circ}\text{C} \sim 700^{\circ}\text{C}$ で、想定される寿命に相当する 250dpa の範囲の照射試験の結果、PE16 にポイドの生成傾向が見られ、PNC316 は 10%以上の大きなスウエリングを示したが、WSi 系 EHP 合金は全温度域で微小なキャビティーが見られる程度で、スウエリング量が 0.01%程度と極めて小さく、良好な耐スウエリング性を有することが確認された。また、電子線照射試験を 600°C から 800°C の温度範囲で、最大 20dpa 程度まで行った結果、 800°C の照射下で WSi 系 EHP 合金の Cr リッチなシリサイド相の縮小する様子が見られたが、 750°C 以下では析出物は安定であった。実用温度域では照射時効により粗大化し難いシリサイド G 相が分散析出しており、それが長時間側の高温クリープ強度に寄与することが分かった。時効処理後の常温の引張試験やシャルピー衝撃試験では、 γ' 系 EHP 合金で若干の軟化が生じ吸収エネルギーが増加したが、時効析出強化能の高い WSi 系 EHP 合金で吸収エネルギーが低下した。一方、クリープ破断試験の結果から予測される WSi 系 EHP 合金の 700°C の 10 万時間破断強度は、およそ 80~90MPa の結果が得られ、現行の設計条件範囲を満足することが確認できた。さらに、WSi 系 EHP 合金の大きな特長として、ODS や PE16 で重要な課題となる供用温度域でのクリープ伸びを大幅に改善できることが分かった。実機運転で想定した 700°C における 2%温度変動条件模擬のクリープ疲労試験では、温度変動に伴う応力変動量が小さく、寿命が疲労よりもクリープの累積損傷に支配される傾向が見出された。また、水プール保管及び湿式再処理での燃料溶解工程の適用性に関しては、放射線照射場の水溶液環境を想定した耐食性の基礎評価として、受入条件及び熱時効材を用いて、代表的な酸化電位を持つスト劳斯試験、ヒューイ試験、及びコリオ試験の3条件の浸漬試験を実施し、全条件において、WSi 系 EHP 合金の腐食速度が最も小さく、優れた耐食性を有することが確認できた。大気中の高温酸化試験の結果においても、開発材の優れた耐酸化性が確認できた。

【研究開発項目(2)被覆管製造技術開発】

[得られた成果]

①溶製技術

開発合金は、公募事業で開発した磁気浮上型高周波誘導溶解炉(GCIM)と電子ビーム溶解炉(EB)の酸化、還元、揮発の複合精錬法を適

用し、主要元素以外の金属及びPやS等の不純物を含む主要な非金属を約100ppm以下に制御するEHP仕様の高純度材とした。それにより、Ni基耐熱合金特有の不純物の係わる溶製時の凝固割れや高温割れが抑制され、成形加工性能も大幅に改善出来た。従来の溶製法では困難な可鍛性の高W-Si系Ni基合金も、EHP化により、実用被覆管の多量製造に必要な熱間の押し出しや引抜き加工に十分な温度域が得られた。

②被覆管の試作及び端栓溶接

H21年度は γ' 系EHP合金及びWSi系EHP合金各1種をEHP溶製法で各200kg溶解・鑄造した。 γ' 系EHP合金は熱間鍛造より $\phi 30 \times 1000L$ (mm)の棒材に加工し、WSi系EHP合金は $30t \times 140w \times 2,000L$ (mm)して、機械加工により $\phi 25.4 \times 3.0t \times 500L$ (mm)の素管を作製した。冷間圧延(4回)と冷間抽伸(4回)により $\phi 10.4 \times 0.7t \times 2,000L \sim$ (mm)の被覆管(最終冷間加工率43%)を試作することができた。目標寸法として外径: 10.40 ± 0.10 、肉厚: 0.70 ± 0.05 (mm)と設定し、 γ' 系EHP合金(24本)の外径: $10.40 \sim 10.43$ 、肉厚: $0.68 \sim 0.74$ (mm)、WSi系EHP合金(11本)の外径: $10.41 \sim 10.43$ 、肉厚: $0.68 \sim 0.75$ (mm)で十分に目標寸法精度をクリアできることを確認した。加えて、H22年度は、グリーンブル試験により、WSi系EHP合金の熱間押出条件を選定した。熱間押出に成功し、熱間押出した管($\phi 25.4 \times 3t$)を4回冷間圧延、4回冷間抽伸して $\phi 10.4 \times 0.7t \times 3,800L$ (mm)に仕上げることができ、量産可能であることを確認した。

溶接方法としてTIG、プラズマアーク及びレーザー溶接を比較した結果、レーザー溶接がWSi系および γ' 系EHP合金に適していることが分かった。レーザー溶接条件を調整することにより表面焼け、内部クラック、ブローホールの無い健全な端栓溶接を実現することができた。

③寿命試験

短軸クリープ破断試験、内圧クリープ破断試験、低サイクル疲労試験の結果から、以下が明らかになった。

- ・単軸クリープ破断試験によりWSi系EHP合金は最終焼鈍温度が高いほどクリープ強度が高くなる。
- ・内圧クリープ破断試験により γ' 系EHP合金の方が短時間強度が高いこと、WSi系EHP合金は長時間側の強度低下量が小さい。
- ・低サイクル疲労環境ではWSi系EHP合金の方が γ' 系EHP合金よりも長寿命になる。

④物性試験

γ' 系EHP合金では $700^\circ\text{C} \sim 900^\circ\text{C}$ の温度範囲で熱伝導率および線膨張係数の変化率が高めになるのに対して、WSi系EHP合金は変化率が一定であることが分かった。

⑤機械的特性試験

700°C の耐力および引張強さは $\text{EHP(WSi)3} < \text{EHP(WSi)1} \approx \text{EHP(WSi)4} < \gamma'$ になっており、引張強さは改良316鋼に比べていずれの合金も高めの値になっていた。

【研究開発項目(3)実用性解析評価】

[得られた成果]

耐食性に優れたWSi系EHP合金の開発技術の確立と、今後の実炉照射試験に必要な材料特性データの整備のために、現行炉の被覆管材料の燃

燃料挙動評価との比較検証が可能な体系を構築して、材料特性データベースを整備し、燃料設計の評価解析を可能とするための構造解析コードに組み込める形式に材料データを加工・格納した。また、候補材の実機適用性の総合評価のため、実炉装荷燃料被覆管・燃料集合体への適用性ならびに核燃料サイクル上の実用燃料としての成立性の観点からの検討を行い、本研究開発で取得した材料データの範囲で、比較材としての既存材料に対する優位性、ならびに今後の継続的な材料開発上の検討課題を抽出・整理した。

燃料挙動評価結果として、開発合金はFaCTを含む実用高速炉の目標としている全塑性歪み3%以下を達成できる可能性が高いことが評価できた。併せて、開発材が優れた耐食性を有することから、現行の最適な核燃料サイクルのコンセプトとしている5%迄のMAを含むMOX燃料集合体製造の前工程、使用済み燃料集合体の水プール長期保管時の健全性や先進湿式再処理の硝酸溶解時の健全性に対しても、優れた適用性を有することが示唆された。

【研究開発項目(4)まとめ】

[得られた成果]

(成果その1)

EHP 溶製法により、以下の実用高速炉の要求仕様が満足できる WSi 系 EHP 合金の新被覆管材を開発できた。

- ① 開発合金中のシリサイド等析出物の熱力学的安定性は、約 950℃の高温側迄広くあり、最終熱処理温度を高く設定出来るので、他の合金で達成困難な過渡時の被覆管最高温度の 830℃の燃料設計条件を容易に満足できる。
- ② 加速器照射試験では、実用想定最高 700℃迄の温度範囲内の 250dpa の弾き出し損傷量内でポイド生成が見られず、粒界脆化やヘリウム脆性に関わる結晶粒界の健全性低下も生じず、優れた耐照射性が確認された。
- ③ 現行ステンレス鋼や Ni 基耐熱合金では、析出物の粗大化に伴う長時間側の高温クリープ強度の低下が実用上の重要課題となるが、開発合金では、逆に、時効に伴い粗大化し難いシリサイド相の分散析出強化が生じて、長時間側の高温クリープ強度を高水準で保持出来る新知見が得られた。
- ④ 核燃料サイクル工程への適用性として、大気酸化及び水や硝酸等の水溶液環境の耐食性の JIS 規格の浸漬試験法を用いた基礎評価から、開発合金は最も優れた耐食性を示し、実機仕様を満足する可能性が示唆された。

(成果その2)

WSi 系 EHP 合金の実用燃料被覆管としての製造性及び性能を確認した。

- ① WSi 系 EHP 合金は、粒界偏析する主要不純物を 100ppm 以下に除去出来る超高純度溶製技術の適用により、凝固割れ感受性が大幅に低減され、熱間加工性を含む実用被覆管の製造に必要な製管性が得られた。
- ② 上記の開発合金に関して、実用燃料被覆管の要求仕様を念頭に長さ 3.8m の製管試験を実施し、外径:10.4±0.1mm、肉厚:0.70±0.05mm(偏肉<10%)の寸法精度を持つ、現行の実機受入条件を満足する製管性能が得られた。
- ③ 上記の開発合金製の燃料棒用の端栓溶接については、熱影響部の狭く変質領域が少ない実用性の高いレーザー溶接を選定し、端栓に共材を用いた最適施工条件を選定し、十分な溶接施工性能を有

	<p>することを確認した。</p> <p>【論文、特許等】 〔論文発表〕</p> <p>① G.H. Kim, K. Shiba, T. Sawai, I. Ioka, K. Kiuchi, J. Nakayama, “Microstructural Evolution and Void Swelling in Extra High Purity Ni-base Superalloy under Multi-ion Irradiation”, Proceedings of OECD/NEA 2nd International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-2).</p> <p>② G.H. Kim, K. Shiba, T. Sawai, I. Ioka, K. Kiuchi, “Irradiation behavior of precipitation hardened Ni-base super-alloys with EHP grade under multi-ion irradiation”, MRS Online Proceedings Library (Part of Cambridge Journals Online) (Vol.1298, 1).</p> <p>〔口頭発表〕</p> <p>① G.H. Kim, K. Shiba, T. Sawai, I. Ioka, K. Kiuchi, J. Nakayama, “Microstructural Evolution and Void Swelling in Extra High Purity Ni-base Superalloy under Multi-ion Irradiation” OECD/NEA 2nd International Workshop on Structural Materials for Innovative Nuclear Systems (SMINS-2), Daejeon, Korea, 2010.9.</p> <p>② G.H. Kim, K. Shiba, I. Ioka, T. Sawai, S. Yamashita, “Effects of radiation damage and helium on swelling and microstructure of EHP Ni-base superalloy”, 第5回高崎量子応用研究シンポジウム, 2010.11.</p> <p>③ G.H. Kim, K. Shiba, T. Sawai, I. Ioka, K. Kiuchi, “Irradiation Induced Hardening and Void Swelling in Extra High Purity Ni-base Superalloys under Multi-iron Irradiation”, MRS 2010 Fall Meeting, Boston, USA, 2010.11.</p> <p>〔特許〕 出願番号：特願2010-266047 発明の名称：析出強化型Ni基耐熱合金およびその製造方法</p>
<p>3. 事後評価</p> <p>1) 目標達成度</p> <p>2) 技術の革新性</p> <p>3) 研究開発効果</p> <p>4) 総合評価</p>	<p>【目標達成度】</p> <ul style="list-style-type: none"> 本研究は、高速炉MOX燃料被覆管への適用を念頭にした第三世代オーステナイト系耐熱性合金として、析出硬化型ニッケル基スーパーアロイを開発することを目的とした研究であり、合金設計/環境適応性評価、被覆管製造技術開発、実用性解析評価の各項目において、計画通り目標が十分達成できている。 <p>【技術の革新性】</p> <ul style="list-style-type: none"> 析出硬化型ニッケル基スーパーアロイの仕様を決定し、耐照射性試験、環境適応性試験を通して、その優れた特性を確認するとともに、候補材料の試作溶製試験や製管・端栓技術開発を行うことでその製造技術の実現性を検討している。また、得られた成果をもとに、その実用性を検討し、実用化のための今後の研究開発課題を抽出してお

	<p>り、JSFR実用化のための優れた研究開発成果が得られている。</p> <p>【研究開発効果】</p> <ul style="list-style-type: none"> ・本研究は、JSFR実用化のために重要な燃料被覆管材料に関する研究であり、本研究を発展させることにより、高性能燃料被覆管が開発できれば、JSFRはもとより、第四世代炉はもちろん次世代軽水炉開発においても大きな寄与が期待できる。
4. その他	<ul style="list-style-type: none"> ・今後、Na側の腐食など、環境適用性評価に関してまだ取得していない性能データを炉外試験等により順次取得していくことが望ましい。