

## 連携記事

# 核融合炉用低放射化フェライト鋼の研究開発 および関連材料技術

R&D of Reduced Activation Ferritic Steels for Fusion Reactor and Relating Materials Technology

阿部富士雄

Fujio Abe

(独)物質・材料研究機構  
新構造材料センター耐熱グループ  
グループリーダー

## 1 はじめに

1982年に米国エネルギー省が核融合炉用低放射化材料の開発を推進する方策<sup>1)</sup>を打ち出して以来、米国、日本、ヨーロッパ諸国でその研究開発が積極的に進められてきた。我が国では、当時の原研(現:日本原子力研究開発機構)、大学、金材技研(現:物質・材料研究機構)が米国の低放射化材料推進方策が出された直後いち早くその重要性を敏感に受け止め、米国とほぼ時期を同じくして低放射化フェライト鋼の研究開発を開始した。それ以来、誘導放射能の計算とそれに基づく低放射化フェライト鋼の合金元素選定、相安定性や機械的性質、中性子照射効果等の研究が続けられてきた。

現在進められている国際熱核融合実験炉(International Thermonuclear Experimental Reactor; ITER)の構造材料はオーステナイトステンレス鋼と選定されているが、低放射化フェライト鋼はその次のDEMO炉の第一壁・ブランケット構造材料として有望視されている<sup>2)</sup>。フェライト鋼はオーステナイト鋼と比較して、熱膨張が小さい上に熱伝導度が大きく熱物性に優れるだけでなく、冷却材との共存性、ボイドスエリング、照射下クリープにも優れているという特長を有する。現在は、特に日本とヨーロッパが低放射化フェライト鋼の実用化に積極的に取り組んでいる。

低放射化フェライト鋼に求められるのは、使用時は核融合炉の高エネルギー中性子照射環境中で高温構造材料としての信頼性が高く、使用後は放射能が速やかに減衰することである。材料の放射能減衰特性は、構成元素の種類と量に依存し、固溶や析出といった組織形態には依存しない。従って、低放射化を満足するために利用できる合金元素は限定されるが、火力発電プラント等で用いられてきた従来の耐熱鋼とは異なる合金成分系となるため、新しい合金成分系の相安定性や機械的性質に材料学的に見て興味ある点が多い<sup>3,4)</sup>。

以下では、放射能減衰特性、低放射化フェライト鋼の合金

成分、材料開発状況、相安定性、機械的性質、中性子照射効果、関連する材料技術について述べる。

## 2 放射能減衰特性および 低放射化フェライト鋼の合金成分

重水素(D)と三重水素(T)の核融合反応によって生成する14MeVの中性子が第一壁やブランケットといった炉心周辺材料に入射すると、材料中の原子は弾性衝突によってはじき出し損傷を受けるとともに核反応によって放射性核種を生成し、材料は放射能を帯びる。放射性核種は各々の崩壊定数に応じて崩壊するので、中性子照射を停止すれば材料の放射能レベルも減衰していく<sup>5,6)</sup>。従来の耐熱鋼のように合金元素としてMo、Nbが含まれていると、これらは長寿命の放射性核種を生じるので、材料の放射能減衰は非常に長時間を要する。MoやNbを添加せず、表1に示す放射能減衰が溶媒元素の鉄よりも速い合金元素C、Cr、W、V、Taなどを添加した鉄鋼材料を低放射化鉄鋼材料と呼んでいる<sup>3)</sup>。表2に米国NRCの10CFR61 Class C基準(100年以内に安全な放射能レベルに減衰)を満足する鉄鋼材料の合金元素許容濃度を示す<sup>1)</sup>。Mo、Nbは厳しく制限されるのに対し、Niや窒素(N)の許容濃度はかなり高い。窒素は $\gamma$ 線を放出しないが長半減期の<sup>14</sup>Cが生じ $\beta$ 線を放出するため、制限されるべきという指摘もある<sup>6)</sup>。

低放射化フェライト鋼は、従来のフェライト系耐熱鋼の主要合金元素Cr-Mo(W)-V-NbのうちMo、Nbを鉄鋼中で類

表1 低放射化フェライト鋼の合金元素と放射能の観点から制限される合金元素

低放射化合金元素	C, Cr, W, V, Ta, Ti, Mn, Si
制限される合金元素	Nb, Mo, Ni, Cu

似の挙動を示すW、Taに置換したCr-W-V-Taを主要合金元素としている。図1に、FER第一壁中性子スペクトル<sup>7)</sup>で10MWy/m<sup>2</sup>(年間1MW/m<sup>2</sup>で10年間)照射し、炉を停止した後の各種材料のγ線強度の減衰を数値計算した結果を示す<sup>4)</sup>。表面積1m×1m、厚さ10mmの壁からのγ線強度が安全なレベルの25μSv/h(鉄鋼材料では3×10<sup>-10</sup>Sv/h/gに相当)まで減衰するのに要する時間は、従来鋼の改良9Cr-1Mo鋼(9Cr-1Mo-0.2V-0.05Nb、ASME P91/T91、JIS STBA 28)や316ステンレス鋼(18Cr-12Ni-2.5Mo)では10<sup>5</sup>年程度も要するのに対し、低放射化9Cr-2W-0.1C鋼では10~20年で済む。バナジウム合金(V-4Cr-4Ti)やSiC/SiC複合材料の場合は、もっと短時間で安全なレベルに減衰する。10Cr-30Mn鋼等の低放射化高Mnオーステナイト鋼は1980年代まで研究されたが、Mnから生成する放射性元素の崩壊熱が大きいため炉停止後に冷却し難いことや、オーステナイト相安定性が劣る等の理由で、現在は検討されていない。

表2 米国NRCの10CFR61 Class C基準による鉄鋼材料の合金元素許容濃度

10CFR Class C limit For STARFIRE (after irradiation to 10 MWy / m <sup>2</sup> )	
Nb	< 0.29 ppm
Mo	< 3 ppm
Cu	< 0.12 %
N	< 0.33 %
Ni	< 0.91 %
Pb	< 3.1 %
Al	< 3.6 %

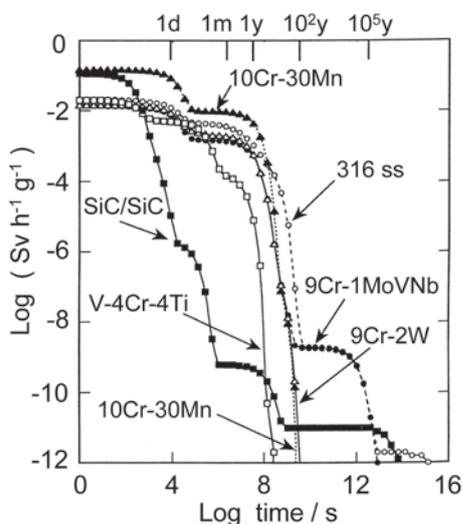


図1 核融合炉で10MWy/m<sup>2</sup>照射して炉を停止した後の各種材料のガンマ線強度の減衰

### 3 低放射化フェライト鋼の基本的機械的性質と代表的な候補材

低放射化フェライト鋼の機械的性質は、シャルピー衝撃試験による延性-脆性遷移温度(DBTT)と高温クリープ強度で代表される。DBTTは、中性子照射によるDBTT上昇を基に照射脆化挙動が研究されている。高温クリープ強度は、将来の商用核融合炉では高温で長期間の運転となるので、短時間引張試験から得られる降伏応力や引張強度ではなくクリープ強度が高温強度の指標となる。フェライト系耐熱鋼は微細組織に応じて、焼戻ベイナイトあるいは[焼戻ベイナイト+フェライト/パーライト]組織の2.25Cr系鋼、焼戻マルテンサイト組織の9Cr系鋼、焼戻マルテンサイト組織あるいは[焼戻マルテンサイト+δフェライト]の12Cr系鋼の3つのグループに大別される。図2に、Cr-W-V-Ta系の低放射化フェライト鋼の熱処理後のDBTTと600℃(873K)、1万時間のクリープ破断強度との関係を従来鋼の9Cr-1Mo-VNb鋼、12Cr-1MoWV鋼(HT-9)と比較して示す<sup>8)</sup>。(7-9)Cr系鋼および12Cr系鋼とも、Mo、NbをW、Taに置換すると、DBTTは低下(衝撃特性向上)し、高温クリープ強度は増大する。このように、元素置換によって低放射化の利点だけでなく、機械的性質も向上するので、開発初期の鉄鋼研究者を大いに勇気づけた。また、(7-9)Cr-WVTa鋼の方が12Cr-WVTa鋼より強度-靱性バランスが優れることや、W濃度が高くなると高温強度は増大するがDBTTも上昇することがわかる。9Cr-1WVTa鋼と9Cr-3WVTa鋼は物材機構で合金設計された低放射化フェライト鋼で、前者は靱性を重視する観点からWを1%と低くし、後者は高温強度重視の観点からWを3%と高く設定されている<sup>9)</sup>。

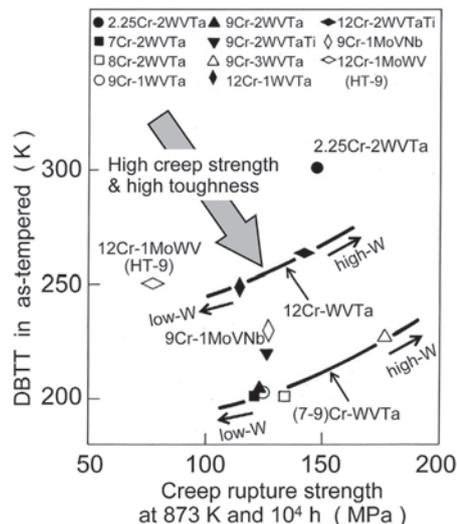


図2 Cr-W-V-Ta低放射化フェライト鋼とCr-Mo(W)-V-Nb従来鋼のDBTTと600℃、1万時間クリープ破断強度の関係

図3は(2-12) Cr-2W-0.25V-0.1C鋼について20-24dpa照射後のDBTTおよび照射によるDBTT上昇(ΔDBTT)に及ぼすCr濃度の影響を調べたもので、9%CrでDBTTおよびΔDBTTが極小となる<sup>10)</sup>。このように、非照射材、照射材とも9%Cr近傍で優れた高温強度と靱性が得られる。低放射化フェライト鋼の開発当初は、図2に示した2.25Cr系鋼や12Cr系鋼も検討されたが、その後次第に9%Cr近傍に収斂してきた。表3に、核融合 DEMO 炉構造材料の候補に挙げられている代表的な低放射化フェライト鋼の化学成分を示す。Cr濃度は8~9%である。現状の超々臨界圧火力発電プラントでは、米国オークリッジ国立研究所が1980年代前半に開発したASME P91(9Cr-1Mo-0.2V-0.5Nb-0.05N-0.08C)が蒸気温度600℃クラスの主蒸気管等に多く使用されているが、合金元素のMo、NbをW、Taに置換すると、9Cr-2W-0.2V-0.1Ta-0.05N-0.08Cとなり、表3の低放射化フェライト鋼の化学成分に近い。F82Hは旧原研と旧NKK(現：JFEスチール)との共同開発材、JLF-1は我が国の大学グループの提案材、EUROFER 97はヨーロッパ連合(EU)の提案材である。これらは、5ton程度の大型インゴットも製造され、共通試料として関係研究機関に配布され、非照射、照射データが蓄積されつつある。IEAの共同研究で溶解されたF82HのヒートはF82H-IEAと記述してF82Hと区別されている。

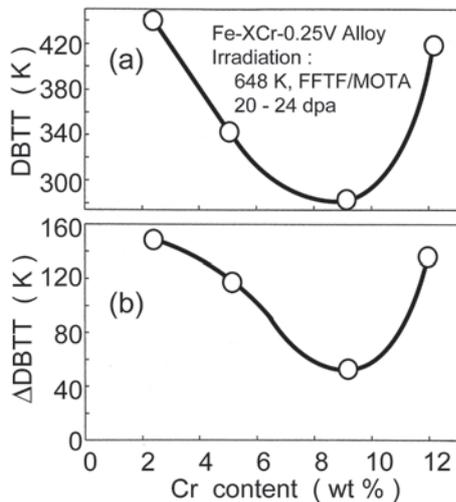


図3 FFTF/MOTAで20-24dpa照射した後の(a)DBTTおよび(b)照射によるDBTT上昇に及ぼすCr濃度の影響

表3 DEMO炉用低放射化フェライト鋼の候補材

steel	Nominal composition (mass%)
F82H	8Cr-2W-0.2V-0.04Ta-0.1C
JLF-1	9Cr-2W-0.2V-0.07Ta-0.05N-0.1C
EUROFER 97	9Cr-1W-0.2V-0.07Ta-0.03N-0.1C

9%Cr近傍のフェライト鋼の焼戻マルテンサイト組織は、旧オーステナイト粒がパケット、ブロック、ラスから成り、高密度の転位と微細な析出物を含む<sup>9,11)</sup>。750~800℃の比較的高温で短時間の焼戻をすると、通常はM<sub>23</sub>C<sub>6</sub>炭化物とMX炭窒化物が析出する。Cr-W-V-Ta系フェライト鋼では、M<sub>23</sub>C<sub>6</sub>のMは主としてCr、W、Feから成り、MX炭窒化物のMはVとTa、XはCとNである<sup>9)</sup>。MX炭窒化物の析出量はJLF-1やEUROFER 97のように窒素が添加されていると多くなり、高温強化として働くが、2章で述べたように低放射化を重視する場合は窒素無添加が望ましい。焼戻熱処理後は、通常、M<sub>23</sub>C<sub>6</sub>炭化物のサイズは70~100nm、MX炭窒化物は5~20nm、転位密度は1~10×10<sup>14</sup>/m<sup>2</sup>、旧オーステナイト結晶粒径は50μm程度、ラス幅は0.3~0.5μmである。

#### 4 関連高温プラント用フェライト鋼との相互比較

図4に、高Crフェライト鋼の適用が考えられている超々臨界圧火力発電プラント、核融合炉、高速炉の高温構造物、材料課題、並びに、化学成分の変遷を示す。超々臨界圧火力

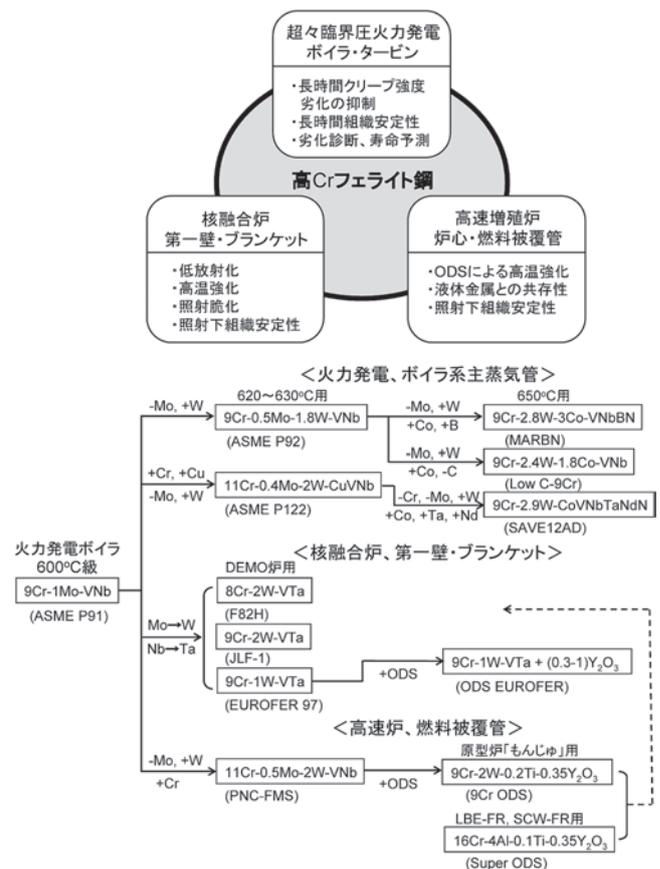


図4 高Crフェライト鋼が適用される高温構造物、材料課題、並びに、化学成分の変遷

発電用耐熱鋼の高温強度の目標値は、通常、使用温度の10万時間クリープ破断強度が100MPa以上と設定されている。600℃以上では、水蒸気中耐酸化性の確保も重要なので高Crの9～12Cr系鋼が適用される。現在のプラントの蒸気温度の最高値は約610℃である。ASME P91 (9Cr-1Mo-VNb) は600℃級であるが、クリープ強度向上の観点からMoを減じWを高めた9CrのASME P92 (9Cr-0.5Mo-1.8W-VNb) や11CrのASME P122 (11Cr-0.4Mo-2W-CuVNb) が620～630℃級材料として1990年代前半に我が国の鉄鋼メーカーで開発された<sup>12)</sup>。さらにWを高めMoを無添加とし、Coやボロン(B)を添加した9Cr-2.8W-3Co-VNbB (MARBN)<sup>13)</sup> や9Cr-2.4W-1.8Co-VNb (Low C-9Cr)<sup>13)</sup>、それに9Cr-2.9W-CoVNbTaNdN (SAVE12AD)<sup>14)</sup> の3鋼種は700℃級高効率超々臨界圧火力発電(A-USC)の主蒸気管のうち650℃温度域の候補材である。高温の700℃温度域では、Ni基超合金や高強度オーステナイト系耐熱鋼が候補材になっている<sup>15)</sup>。MARBNは、図2の低放射化9Cr-3WVTa鋼をベースに、元素制限を取り除き物材機構で高強度合金設計を行ったものである。強化元素としてフェライト安定化元素のWを2.8%も添加し、窒素を従来鋼より低くしているため、 $\delta$ フェライト生成を抑制するためオーステナイト安定化元素のCoが添加されている。

高速炉の燃料被覆管は、当初、高エネルギー中性子の照射を受けながら650℃の液体Na中での使用が考えられ、クリープ強度向上の観点からASME P91に比べてMoを減じWを高め、高温耐食性の観点からCrを高めた11Cr-0.5Mo-2W-VNb (PNC FMS) が旧動燃(現：日本原子力研究開発機構)で開発された<sup>16)</sup>。その後、高強度化と高温化に対応するために、ナノサイズのY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子を分散した氧化物分散強化(Oxide Dispersion Strengthened: ODS)フェライト鋼の開発が進められてきた<sup>17)</sup>。9Cr-2W-0.2Ti-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の9Cr-ODS鋼は、固化成形体からの冷間圧延による被覆管製造技術も確立され、実用化が期待されている。16Cr-4Al-0.1Ti-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のスーパー ODS鋼は、鉛ビスマス冷却高速炉や超臨界圧水冷却高速炉等の700℃級次世代高速炉用として、高温強度、耐食性および高照射量域での耐照射性等に関する総合的な研究開発が、現在、国家プロジェクトとして進められている<sup>18)</sup>。ODSフェライト鋼は、第4世代革新的核分裂炉(Generation IV)の燃料被覆管候補材に挙げられるとともに、高強度で耐照射特性も優れることから核融合炉ブランケット構造材料としても注目されている。図4に破線で示すように、高速炉用ODSフェライト鋼の研究開発は核融合炉への波及効果も大きいと期待されている。

核融合炉用低放射化フェライト鋼のうち、焼戻マルテンサイト組織のF82H、JLF-1、EUROFER 97の3鋼種は、火力

発電用9～12Cr鋼と構成元素の一部は異なるが非照射材の特性は概ね同等である。従って、現在火力発電プラントで問題となっている長時間クリープ強度劣化の抑制等に関する研究成果を低放射化フェライト鋼にも活用できる。低放射化フェライト ODS 鋼については、高速炉用 ODS 鋼の合金設計の考え方や材料製造技術を活用できる。逆に、低放射化フェライト鋼におけるWやTaによるクリープ強化を火力発電用9～12Cr鋼に活用することや、核融合炉の厳しい中性子照射による脆化、照射下クリープ、照射下相安定性の研究成果を高速炉用材料に活用することも期待される。

## 5 低放射化フェライト鋼の使用許容範囲と照射の影響

核融合炉の第一壁・ブランケット構造材料として低放射化フェライト鋼の使用許容範囲を模式的に示したdesign windowを図5に示す<sup>10)</sup>。縦軸は使用温度、横軸は中性子照射量で1年間で概ね1MW/m<sup>2</sup>である。灰色に塗りつぶした領域は使用可能な範囲で、低温側の使用限界温度は照射脆化によって、高温側は強度低下によって制限される。照射量が増すと照射脆化や高温強度低下がより厳しくなるので許容温度範囲が狭くなる。特に、照射脆化は深刻に受け止められ、これに関する研究が多く行われてきた。最近のBalucらのレビューでは、低放射化フェライト鋼の使用可能な温度域は350～550℃と指摘されて、図5のwindowより狭い<sup>19)</sup>。高温側の使用限界温度は550～600℃と考えている研究者が多い。オーステナイト鋼の場合は、照射量が増すとスエリング(照射欠陥生成による材料のふくれ)によって使用が制限される領域が現れるが、フェライト鋼ではスエリングは深刻でないため図5には示されていない。

F82H、JLF-1、Mod.JLF-1について、4～33dpaの重照

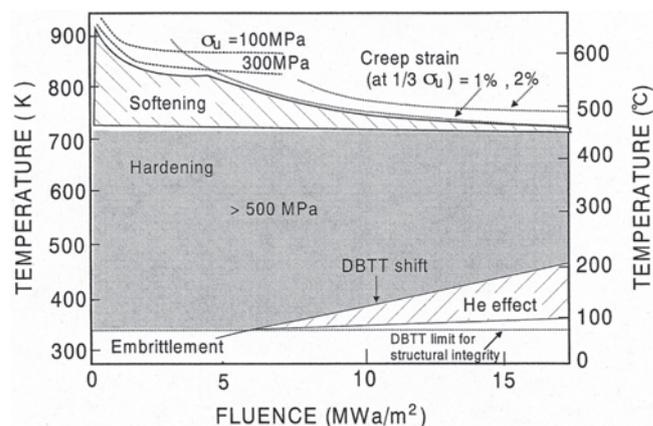


図5 水冷型のトカマク型核融合炉に低放射化フェライト鋼を適用する場合のdesign window

射による DBTT 上昇 (照射脆化) および降伏応力増大 (照射硬化) に及ぼす照射温度の影響を調べた例を図 6 に示す<sup>20)</sup>。dpa は displacement per atom の略で、材料を構成する原子当たりのはじき出し数である。FER 第一壁中性子スペクトルの場合、年間照射量は概ね  $1\text{MW}/\text{m}^2$  で、鉄では  $11.6\text{dpa}$  に相当する<sup>21)</sup>。Mod.JLF-1 は JLF-1 (表 3) に比べて V を高く、Ta を低くし、微量の Ti と B を添加し、窒素を高くしている。照射脆化、照射硬化とも、照射温度が約  $400 \sim 450^\circ\text{C}$  以下で現れ、低温ほど顕著となる。これより高温では、照射欠陥が生成しても短時間で回復する。照射脆化は照射硬化に比例して増大する。照射硬化の原因として、照射によって導入された転位ループ、照射誘起析出、マイクロボイドなどが挙げられているが、転位ループが主因と考えられている。図 7 に、各種フェライト鋼を  $300 \sim 400^\circ\text{C}$  で照射して DBTT を調べた結果を示す<sup>22)</sup>。MANET はドイツの従来鋼 DIN1.14914 相当の (10-11) Cr-MoVNb 鋼、OPTIFER はヨーロッパの 9Cr 系低放射化フェライト鋼、ORNL 9Cr はオークリッジ国立研究所が合金設計した 9Cr 系低放射化フェライト鋼 (9Cr-2W-VTa) である。各鋼とも 5dpa 以上で DBTT 上昇が飽和するが、低放射化フェライト鋼の F82H、EUROFER 97、OPTIFER、ORNL 9Cr は従来鋼 MANET に比べて照射による DBTT 上昇は少ない。照射硬化も照射脆化と同様に高照射量になると飽和する傾向がある<sup>23)</sup>。

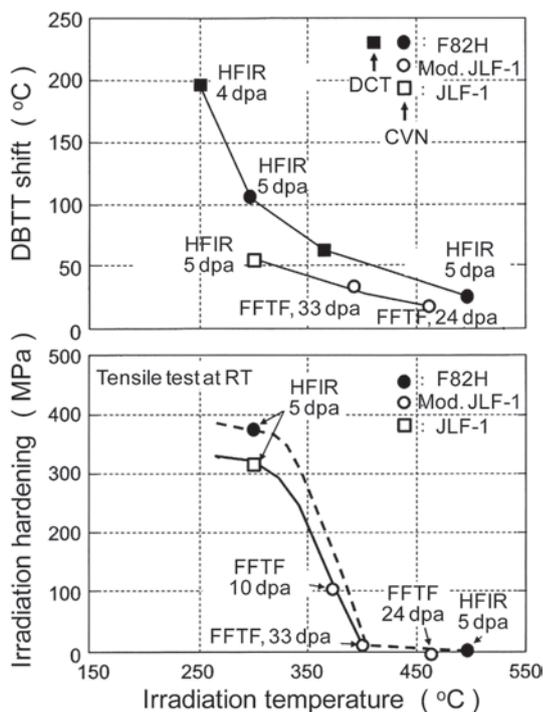


図 6 F82H、JLF-1、Mod.JLF-1 の照射による DBTT 上昇および照射硬化に及ぼす照射温度の影響

照射によって DBTT が上昇する原因としては、図 8 に模式的に示すように、照射硬化とへき開破壊応力の低下が考えられる。照射による DBTT 上昇は、照射硬化と比例関係にあることから照射硬化が主たる原因と考えられているが、F82H ではラス、ブロック境界の  $\text{M}_{23}\text{C}_6$  炭化物析出量が照射によって増すことからラス、ブロック境界に沿ったへき開破壊応力の低下も指摘されている<sup>20)</sup>。この種の材料は照射しなくても高温使用中に炭窒化物の粗大化、転位の回復、ラス、ブロックの回復が進行するが、照射すると組織変化が促進される<sup>24)</sup>。また、核融合炉のように中性子のエネルギーが大きいと (n, p)、(n,  $\alpha$ ) 反応により水素 (H)、ヘリウム (He) のガス原子の生成量が多く、脆化を助長することが懸念され、DBTT 上昇に及ぼす He の効果が検討されている<sup>11)</sup>。FER 第一壁中性子スペクトルの場合、鉄では年間  $336\text{appm}$  の水素と  $105\text{appm}$  のヘリウムが生成する<sup>21)</sup>。

高温強度特性に及ぼす中性子照射の効果として、図 9 に照射による F82H、JLF-1 の内圧クリープひずみのフープ応力依存性を示す<sup>20)</sup>。照射温度は  $300^\circ\text{C}$  で、照射量 5dpa、照射日数 526 日である。350MPa 以下の低応力では、材料間でクリープ歪みに大きな差はなく、クリープ歪みは応力に比例して大きくなる。320MPa でクリープ歪みは 0.12% である。375MPa 以上では JLF-1 に大きなクリープ歪みが生じるが、これは負荷応力が降伏応力より大きいためと指摘されてい

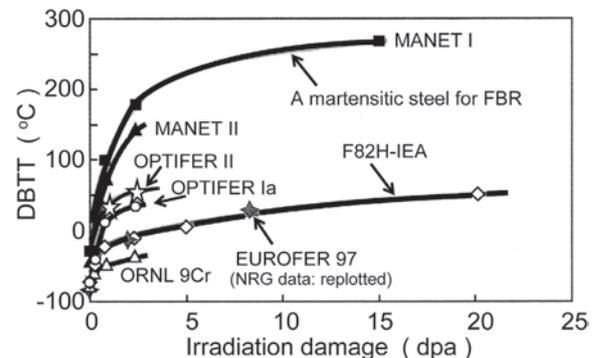


図 7 各種フェライト鋼の照射による DBTT 上昇の照射量依存性  
照射温度は  $300\sim 400^\circ\text{C}$  の範囲としている

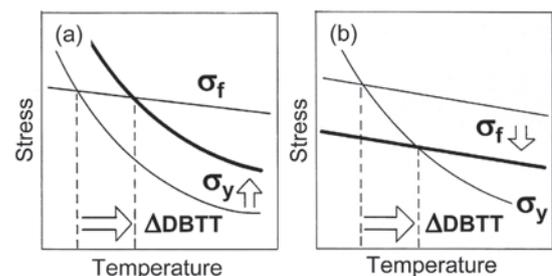


図 8 (a) 照射硬化による DBTT 上昇と、(b) へき開破壊応力の低下による DBTT 上昇の模式図

る。フェライト鋼の照射クリープ速度はオーステナイト鋼に比べてかなり小さく、図5の window 内では大きな影響はないと言われている。図10に高温クリープ破断時間に及ぼすヘリウムの効果を示すが、ヘリウムを100～1000appm注入(He/dpa ≒ 4000)したF82H、9Cr-3W-VTa鋼について、550～600℃で1000h程度までのクリープ破断試験を行った結果では、ヘリウムによる劣化は見られない<sup>25)</sup>。最小クリープ速度や破断延性にも劣化は見られず、破壊様式も粒内延性破壊で、粒界破壊は観察されていない。

Design windowの高温側の使用温度を制限する強度低下に関しては、非照射材ではあるが広い温度-時間範囲のクリープ破断データが得られている。図11に、F82Hについて、実験室規模の少量溶解材と工場レベルの5トン溶解材のクリープ破断データを示すが、500～650℃の温度範囲で最長1万時間を超えるデータが得られている<sup>26)</sup>。少量溶解材と5トン溶解材でクリープ破断強度に差はないこと、すなわち、大型材でも均質な材料が得られるがわかる。なお、F82Hのクリープ破断強度はASME P91(9Cr-1Mo-VNb)と同等である。図11で、600℃以上の高温では、数千時間以上の長時間

になると、クリープ破断強度は短時間側からの外挿値よりも低くなり、強度低下が見られる。これは、クリープ中のマルテンサイト組織の回復によるが、照射下で組織回復が促進されれば、強度低下はさらに顕著となる。このほか、中性子照射による低放射フェライト鋼の疲労寿命や破壊靱性値の低下に関する報告もある<sup>22)</sup>。

## 6 低放射化フェライト鋼の高靱性化および高温強化の取り組み

DBTTを低くして図5の低温側のwindowをより低温側へ拡張する試みとして、F82Hについて、焼きならし温度を低くして旧オーステナイト結晶粒を細粒化する処理が検討されている<sup>27)</sup>。F82Hの焼きならし条件は1040℃/40min/ACでASTM結晶粒サイズ3.3であるのに対し、920℃/1h/ACとするとASTM結晶粒サイズ6.5と細粒化する。細粒材の方がDBTTは非照射材、照射材とも約20℃低くなり、シャルピー吸収エネルギーが温度にほとんど依存しない高温域の上部棚エネルギーも増大する。このように細粒化は高靱性化にメリットがあるが、高温クリープ強度は一般に細粒化すると低下することが知られているので注意を要する。

高温側のwindowをより高温側へ拡張するための高温強化の試みとしては、加工熱処理プロセスによる析出物微細分散化や強化機構の全く異なるODSフェライト鋼の検討が行われている。加工熱処理プロセスに関しては、650℃までwindowを拡張することを目標として、窒素を0.05%程度含有する9Cr従来鋼の改良9Cr-1Mo鋼(ASME T/P91)および12Cr従来鋼のASME T122について、オーステナイト化後700～1000℃まで冷却して熱間圧延し、その後室温まで空冷する処理(TMT: thermo-mechanical treatment)が考案されている<sup>28)</sup>。熱間圧延により高密度の転位が導入され、転位を優先核生成サイトとして非常に微細なV、NbのMX窒

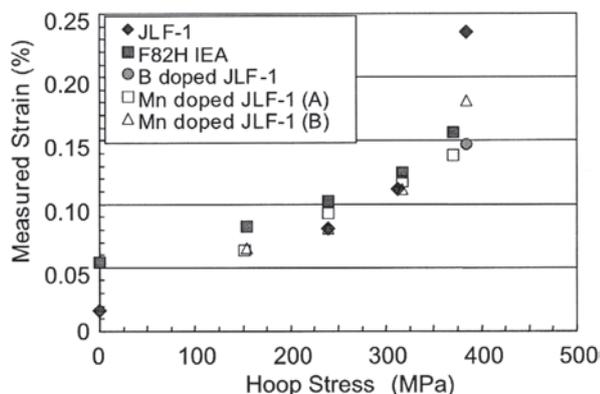


図9 照射による内圧クリープひずみのフープ応力依存性  
照射温度300℃、照射量5dpa、照射日数526日としている

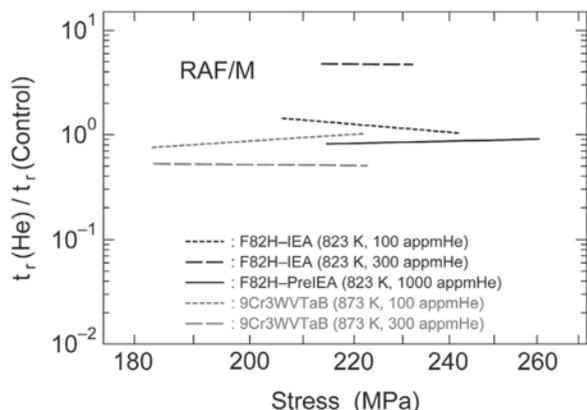


図10 F82H、9Cr-3WVTa鋼のクリープ破断時間に及ぼすHeの効果

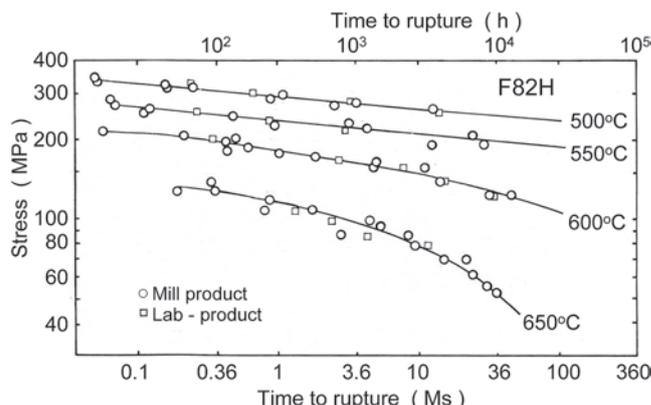


図11 F82Hのクリープ破断データ

化物が高密度に析出する。TMT材は通常の焼きならし焼戻熱処理材に比べて、600～700℃の降伏応力が60～90%も増大する。650℃でのクリープ試験は数千時間まで実施され、10万時間に外挿したクリープ破断応力はTMT材では約60MPaで、通常の熱処理材の約40MPaの1.5倍、クリープ寿命は約80倍にもなる。この処理はF82Hのように窒素濃度が非常に低い材料では効果が少ないと予想され、また、高転位密度の材料では組織回復が加速され長時間でクリープ強度の急激な劣化が懸念されるなど、低放射化フェライト鋼に適用するには課題も残っている。

ODSフェライト鋼に関しては、高速炉燃料被覆管用に高温強度の高い9Cr-ODSフェライト鋼が開発されている。その一例として9Cr-0.13C-2W-0.2Ti-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の結果を図12に示す。微細なY-Ti複合酸化物の生成に寄与する過剰酸素量の最適化、Y-Ti複合酸化物粒子のナノスケール微細分散化、母相組織のマルテンサイト/残留フェライト複相化制御等により粒界すべりを抑制して、700℃でも優れた高温クリープ強度が得られている<sup>17)</sup>。照射特性も詳しく調べられ、Y-Ti複合酸化物粒子は照射下でも安定なこと、照射硬化や延性低下は従来の9～12Cr鋼に比べてわずかであること等が明らかになってきた。

## 7 長時間クリープ強度劣化と劣化抑制の合金設計

低放射化フェライト鋼の高温クリープデータは1万時間程度まで取得されているが(図11)、最近、火力発電プラントにおいて数年程度の早期破断による破損事例が多く報告されている。高強度9～12Crフェライト系耐熱鋼では、1年程度は強化機能が有効に働くものの、長時間使用中にマルテンサイト組織の回復が進行して強化機能が急速に喪失し、クリープ強度が急激に低下する現象がしばしば見られ深刻な問題に

なっている。低放射化フェライト鋼の開発においても、長時間特性の把握が不可欠である。クリープ強度が長時間経過後に急激に低下するメカニズムを列挙すると、(a) Z相等の新しい相の析出と微細なM<sub>2</sub>X、MXの再固溶、(b) Fe<sub>2</sub>(Mo、W)ラーベス相やM<sub>23</sub>C<sub>6</sub>炭化物の粗大化、(c) 粒界近傍組織の優先回復、(d) 低温焼戻による高密度転位の回復、(e) クリープ脆化、(f) δフェライトに起因する組織不均一化、などが提案されている<sup>12,29)</sup>。一例として、図13に12Cr系鋼のTAF650に見られる長時間クリープ強度劣化を示す<sup>30)</sup>。長時間クリープ強度劣化の原因はZ相の析出と報告されている。Z相はCr-V-Nbの複合窒化物で、微細なM<sub>2</sub>X、MXを再固溶させながら成長するので、M<sub>2</sub>X、MXによる析出強化が低下する。Cr含有量が高い場合(9Cr鋼より12Cr鋼)、およびNiが添加されている場合にZ相の析出が促進されることがわかってきた。一方、劣化を抑制して長時間クリープ強度を向上させる合金設計として、ボロン添加による粒界近傍組織の長時間安定化<sup>31)</sup>、Re添加によるマルテンサイト組織回復の抑制<sup>32)</sup>、Al、Ni低減化<sup>33)</sup>等が検討されている。

長時間クリープ強度劣化は母材よりも溶接継手の方が深刻である。溶接継手では、溶接熱影響部(HAZ)の母材側細粒部で脆性的に破断する、いわゆるType IV破壊により母材に比べてクリープ破断寿命が著しく低下することが図4のASME P91、P92、P122等の高強度フェライト系耐熱鋼で示され世界的に問題になっている。Type IV破壊を抑制するには、細粒HAZの生成を抑制すること、すなわち、母材とHAZで均一な組織となるような合金設計が必要である。最近の研究結果で特筆すべき点は、Type IV破壊を抑制できることがボロン添加によって示されたことである<sup>34,35)</sup>。それをP92の結果と比較して図14に示す<sup>35)</sup>。高ボロン-低窒素ではHAZに細粒域が生じず、結晶粒径は母材とHAZでほぼ同じであるが、P92のように0.05%も窒素が添加されていると、高温の熱処理中に粗大なBNが多数生成し固溶ボロンが

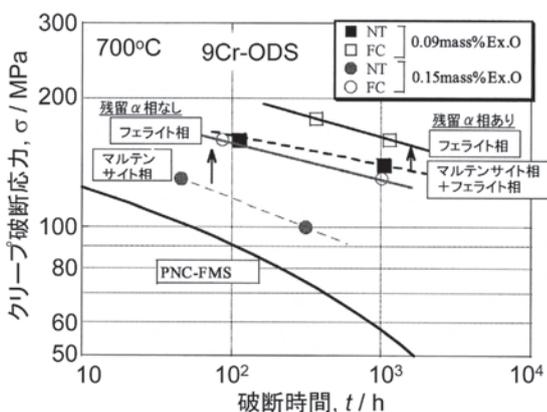


図12 9Cr-ODSフェライト鋼の700℃におけるクリープ破断データ

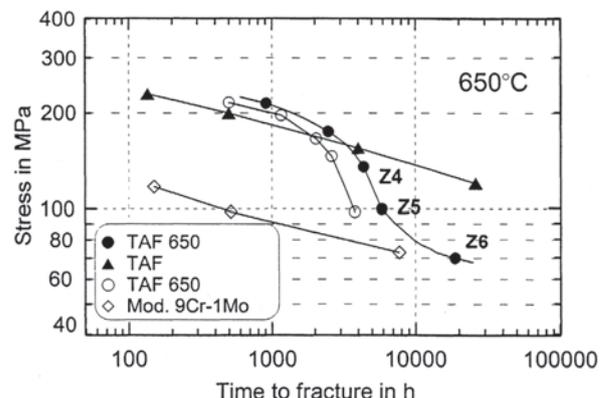


図13 650℃における長時間クリープ強度の劣化

激減するため、細粒化する。図中のポロン鋼のNbをTaに置換すれば低放射化フェライト鋼となる。自然界のポロンは約20%の<sup>10</sup>Bと約80%の<sup>11</sup>Bから成るが、<sup>11</sup>Bに同位体調整すれば高エネルギー中性子照射による(n, α)反応も抑制できる。

以上のような火力発電分野の合金設計の考え方は低放射化フェライト鋼の長時間クリープ強度向上にも活用できると思われる。

## 8 おわりに

国際協力の後押しもあって、低放射化フェライト鋼の重照射実験とその解析は最近目覚ましく進展している。それらのデータは、低放射化フェライト鋼が核融合炉用構造材料としてのポテンシャルを十分有していることを示している。ITERに低放射化フェライト鋼製のテストモジュールが組み込まれることになっており、そこで得られるデータは低放射化フェライト鋼の実用化に向けた大きなステップアップにつながると思われる。一方、低放射化フェライト鋼は高温で長時間使用されることになるので、長時間にわたる材料信頼性の確保も不可欠である。火力発電プラントで最近経験した高Crフェライト鋼の早期破損は、長時間使用中に組織回復が進行して強化機能が急速に喪失するとクリープ強度が急激に低下すること、従って長時間試験を基にした材料信頼性の検証、確立が必要であることを我々に教えてくれた。このため、材料科学に立脚した合理的な長時間挙動予測手法の確立が必要とされている。低放射化フェライト鋼の場合は、中性子照射の効果も加わるので現象が複雑であるが、核融合炉を信頼性高いプラントとするためには、長時間データの蓄積と合理的な長時間挙動予測手法の確立に向けた取り組みが今後必要とな

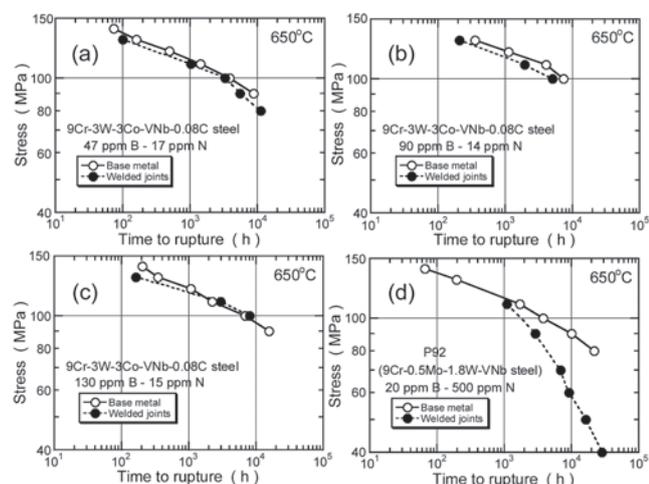


図14 窒素無添加でポロンレベルを変えた9Cr-3W-3Co-VNb鋼およびASME P92溶接継手の650℃におけるクリープ破断データ

る。ODSフェライト鋼は、DEMO炉よりさらに将来の核融合炉に向けた材料で、現時点では大型構造材料として不透明な部分もあるが、長期的基礎基盤研究と位置づけて着実な進展が望まれる。

## 謝辞

有益な討論を頂いた物質・材料研究機構 山本徳和氏、低放射化フェライト鋼研究でご指導頂いた物質・材料研究機構 野田哲二氏に感謝します。

## 参考文献

- 1) 例えば, E.E.Bloom, R.W.Conn, J.W.Davis, R.E.Gold, R.Little, K.R.Schultz, D.L.Smith and F.W.Wiffen : J.Nucl.Mater., 122 (1984), 17-26.
- 2) R.Andreani, E.Diegele, R.Laesser and B.van der Schaaf : J.Nucl.Mater., 329-333 (2004), 20-30.
- 3) 阿部富士雄, 野田哲二, 岡田雅年 : 日本金属学会報, 32 (1993), 543-552.
- 4) F.Abe and T.Noda : Encyclopedia of Materials : Science and Technology, Elsevier Science, ed.by K.H.J.Buschow, R.W.Cahn, M.C.Flemings, B.Ilschner, E.J.Kramer and S.Mahajan, (2001), 3418-3422.
- 5) T.Noda, T.Hirano, H.Araki and M.Okada : Trans. NRIM, 27 (1985), 195-210.
- 6) T.Noda, H.Araki, F.Abe and M.Okada : Trans. NRIM, 30 (1988), 185-215.
- 7) Y.Seki, I.Yamauchi, K.Yamada and J.Kawasaki : J.Fusion Energy, 3 (1984), 241-251.
- 8) F.Abe, T.Noda, H.Araki and M.Okada : J.Nucl.Sci Technol., 31 (1994), 279-292.
- 9) F.Abe, T.Noda and M.Okada : J.Nucl.Mater., 195 (1992), 51-67.
- 10) A.Hishinuma, A.Kohyama, R.L.Klueh, D.S.Gelles, W.Diez and K.Ehrlich : J.Nucl.Mater., 258-263 (1998), 193-204.
- 11) F.Abe : Science and Technology of Advanced Materials, 9 (2008) 013002.
- 12) 例えば, 阿部富士雄 : ふえらむ, 11 (2006), 197-207.
- 13) 岩崎淳, 椎橋啓, 高野伸一, 佐藤恭, 岡田浩一, 阿部富士雄 : 火力原子力発電, 58 (2007), 649-655.
- 14) K.-H.Czychon, K.Metzger, E.Roos and K.Maile : Proc.of 34<sup>th</sup> MPA-Seminar, Stuttgart, Germany, 7-9 October (2008), 48.1-48.12.
- 15) 佐藤幹夫, 屋口生次, 田中良典, 岩崎淳, 福田雅文, 斎

- 藤英治, 中川博勝, 椎橋啓, 和泉栄: 火力原子力発電, 57 (2006), 821-838.
- 16) 鹿倉栄, 野村茂雄, 鶴飼重治, 瀬下一郎, 加納洋一, 桑島幸夫, 伊藤卓志, 葛木浩一, 藤田利夫: 日本原子力学会誌, 33 (1991), 1157-1170.
- 17) 鶴飼重治, 大塚智史: まてりあ, 44 (2005), 749-756.
- 18) 木村晃彦ほか: 日本金属学会講演概要, 2008年秋期大会, (2008), 316.
- 19) N.Baluc, D.S.Gelles, S.Jitsukawa, A.Kimura, R.L.Klueh, G.R.Odette, B.van der Schaaf and J.Yu: J.Nucl.Mater., 367-370 (2007), 33-41.
- 20) A.Kimura, R.Kasada, A.Kohyama, H.Tanigawa, S.Hirose, K.Shiba, S.Jitsukawa, A.Ohtsuka, T.Yamamoto and G.R.Odette: J.Nucl.Mater., 367-370 (2007), 60-67.
- 21) 核融合炉材料, 井形直弘編, 培風館, (1986), 41-98.
- 22) S.Jitsukawa, A.Kimura, A.Kohyama, R.L.Klueh, A.A.Tavassoli, B.van der Schaaf, G.R.Odette, R.W.Rensman, M.Victoria and C.Petersen: J.Nucl.Mater., 329-333 (2004), 39-46.
- 23) A.Alamo, J.L.Bertin, V.K.Shamardin and P.Wident: J.Nucl.Mater., 367-370 (2007), 54-59.
- 24) H.Tanigawa, H.Sakasegawa and R.L.Klueh: Mater. Trans., 46 (2005), 469-474.
- 25) N.Yamamoto, Y.Murase and J.Nagakawa, Fusion Eng.Des., 81 (2006), 1085-1090.
- 26) N.Yamanouchi, M.Tamura, H.Hayakawa, A.Hishinuma and T.Kondo: J.Nucl.Mater., 191-194 (1992), 822-826.
- 27) H.Tanigawa, K.Shiba, M.A.Sokolov and R.L.Klueh: Fusion Science and Technology, 44 (2003), 206-210.
- 28) R.L.Klueh, H.Hashimoto and P.J.Maziasz: J.Nucl.Mater., 367-370 (2007), 48-53.
- 29) 例えば, 阿部富士雄: 西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会, (2008), 27-54.
- 30) V.Sklenicka, K.Kucharova, M.Svoboda, L.Kloc, J.Bursik and A.Kroupa: Mater Character., 51 (2003), 35-48.
- 31) F.Abe: Intern.J.Materials Research, 99 (2008), 387-394.
- 32) 橋詰良吉, 田村理, 三木一宏, 東司, 石黒徹, 村田純教, 森永正彦: 耐熱金属材料123委員会研究報告, 48 (2007), 117-132.
- 33) 朝倉健太郎, 小関敏彦, 藤田利夫, 佐藤恭: 耐熱金属材料123委員会研究報告, 47 (2006), 329-344.
- 34) 田淵正明, 近藤雅之, 本郷宏通, 渡部隆, 殷福星, 阿部富士雄: 材料, 54 (2005), 162-167.
- 35) F.Abe, M.Tabuchi, M.Kondo and H.Okada: Materials at High Temperatures, 23 (2006), 145-154.

(2008年12月5日受付)