

JAERI-M

6021

N S R R 炉心燃料の機械的および
熱的健全性確認試験

1975年2月

斎藤 伸三・塩沢 周策・川崎 了
那須 昭一・藤城 俊夫・塩沢 憲一

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

NSRR 炉心燃料の機械的および熱的健全性確認試験 日本原子力研究所東海研究所安全工学部

斎藤伸三，塩沢周策，川崎了，
那須昭一*，藤成俊夫，塩沢憲一*
(1975年2月8日受理)

要旨

原子炉安全性研究炉 NSRR では炉心燃料として $U - ZrH_{16}$ を用い、パルス運転時の被覆材温度を低く抑えて焼損を防ぐために燃料ミートと被覆材間に大きな間隙を設けてある。したがって機械的あるいは熱的影響によって燃料が破損し多量の粉末が生じ、間隙を埋めることがあつては望ましくない。又、 $U - ZrH_x$ 燃料はわが国においては使用実績が少なく、このような観点から原子力委員会の原子炉等安全審査専門部会より原子炉運転開始に先立ち炉外において機械的衝撃、熱衝撃および熱サイクルを NSRR 燃料に与えて、その変化、粉末の発生状況等を調べ実際に原子炉で使用した場合の燃料の健全性を確認する試験を行うことを要望された。

本試験はこの要望に基き機械的衝撃試験としてページ試験および実物燃料の落下試験、熱的試験としてオイルバスを用いた熱衝撃試験、1,000回の熱サイクル試験、水素の移動および透過試験を行つたものである。その結果、以下のことが明らかとなつた。

- (1) 機械的衝撃により燃料ミートに割れを生じたり、あるいは熱衝撃、熱サイクル等の熱的影響により燃料ミートにひびを生じても、粉末はほとんど発生せず、燃料ミートと被覆材間の間隙を埋めギャップコンダクタンスが著しく増し、パルス運転時に被覆管が焼損することは考え難い。
- (2) 又、種々の形態の燃料落下を考えても燃料ミートが損傷する場合は被覆材に必ず変形が見られるので外観検査により選別し、X線撮影等により詳細に検査することが可能である。
- (3) NSRR の全運転期間を通じて燃料中の H/Zr 比が 1.5 以下となることは想定されず、したがって相変態により内部応力が発生することはないものと思われる。

* 日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

Mechanical and Thermal Tests of NSRR Fuel

Shinzo SAITO, Shusaku SHIOZAWA, Satoru KAWASAKI, Shoichi NASU⁺,
Toshio FUJISHIRO and Kenichi SHIOZAWA⁺

Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received February 8, 1975)

The uranium-zirconium hydride ($U-ZrH_{1.6}$) is used as the driver core fuel in Nuclear Safety Research Reactor (NSRR), and the gap width between fuel and cladding is large to prevent burn-out of the latter in a major pulse operation. It is not desirable that large amount of powder of the fuel should be produced by the mechanical shock in fuel handling or thermal cycle and fill the gap. Uranium -zirconium hydride fuel has not been much used in Japan, and mechanical and thermal characteristics of the fuel are not well known.

Page impact and fuel rod drop tests were made to study the strength of $U-ZrH_{1.6}$ fuel compared with other ceramics and the condition under which it would break. Thermal shock test with an oil bath, thermal cycle test up to 1,000 cycles for samples at different temperatures and permeability test of hydrogen in the stainless steel cladding were also performed to examine possibility of crack formation and hydrogen release from the cladding, simulating the conditions possible in reactor operation.

The following were revealed.

- (1) Large amount of powder is hardly produced from the fuel by mechanical shock or thermal cycle, to fill the gap, resulting in increase of the gap conductance and burn-out of the cladding.
- (2) A fuel rod with the damaged fuel meat is detectable by observation of the surface when broken due to a mechanical shock, because the cladding would also be damaged in this case. The damaged fuel meat can be examined in detail by X-ray photography.
- (3) The eutectoid temperature is about 550°C , which is lower than the operating fuel temperature for the uranium-zirconium hydride with H/Zr ratio less than 1.4. The H/Zr ratio may not be less than 1.5 through the reactor life time, even considering hydrogen dissociation from the fuel and its permeation through the cladding.

+ Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

目 次

I 緒 言	1
I - 1 NSRR 燃料の概要	1
I - 2 TRIGA 燃料の開発および使用実績	1
I - 3 試験の目的および概要	3
II 機械的衝撃試験	9
II - 1 ページ試験	9
II - 1 - 1 概 要	9
II - 1 - 2 試験方法	9
II - 1 - 3 試験結果	10
II - 2 燃料落下試験	11
II - 2 - 1 概 要	11
II - 2 - 2 試験方法	11
II - 2 - 3 試験結果	12
II - 3 考 察	13
III 熱的試験	38
III - 1 熱衝撃試験	38
III - 1 - 1 概 要	38
III - 1 - 2 試験方法	38
III - 1 - 3 試験結果	39
III - 2 熱サイクル試験	40
III - 2 - 1 概 要	40
III - 2 - 2 試験方法	41
III - 2 - 3 試験結果	41
III - 3 水素の移動および透過試験	46
III - 3 - 1 概 要	46
III - 3 - 2 試験方法	46
III - 3 - 3 試験結果	46
III - 4 考 察	46
IV 結 論	72
謝 辞	73
参考文献	73

付 錄

I 水中と空気中落下の比較	75
II パルス運転時および熱衝撃試験時の熱応力	75
III 組織観察方法	76

IV 水素定量分析	77
V 燃料ミートの加熱、冷却特性	80
VI 水素放出量の検討	83

表一覧表

第II-1表 比較試験片および燃料の物性値	15
II-2 燃料試験片に欠け、割れが生じた時の落下錘の高さ	15
II-3 実物燃料落下試験内容	16
II-4 燃料落下試験検査項目	18
II-5 U-ZrH _x 燃料の機械的性質	18
III-1 熱衝撃試験条件および内容	51
III-2 熱衝撃試験後水素量分析結果	52
III-3 熱サイクル試験条件	53
III-4(a) 熱サイクル試験後燃料ミート中水素量分析結果	54
(b) 熱サイクル試験後芯棒中水素量分析結果	55
III-5 水素リーク試験後の燃料ミート中水素量分析結果	57

図一覧表

図I-1図 ジルコニウム-水素系の状態図	5
I-2 炉心燃料要素	6
I-3 平衡水素解離圧(1)	7
I-4 平衡水素解離圧(2)	8
II-1 ページ衝撃試験機(構造図)	19
II-2 割れを生じた時の落下錘の高さ	20
II-3 落下試験体構成	21
II-4 垂直落下試験時の被覆管真直度および外径の変化	22
II-5 燃料横倒し試験後被覆管のふくらみ	23
II-6 水平落下試験時の被覆管真直度の変化	24
III-1 熱サイクルおよび水素リーク試験片	59
III-2 燃料熱サイクル試験装置概念図	60
III-3 最大パルス運転時燃料温度変化	61

写 真 一 覧 表

写真 II - 1	ページ衝撃試験機	25
II - 2	切断機による切断面の相違	25
II - 3	ページ衝撃試験片(端の状態)	25
II - 4	割れの様子	26
II - 5	機械的衝撃によって入る欠け	28
II - 6	実物燃料落下試験体	28
II - 7	垂直落下試験	29
II - 8	横倒し試験	30
II - 9	水平落下試験	31
II - 10	被覆管直度測定(ダイアルゲージ使用)	32
II - 11	垂直落下試験前後の試験体	33
II - 12	横倒し試験後の被覆管のふくらみ	32
II - 13	燃料ブロックB破断状況(50cmからの水平落下後)	34
II - 14	被覆管端部のくぼみ(50cmからの水平落下後)	35
II - 15	燃料ブロックA破断状況(125cmからの水平落下後)	35
II - 16	全落下試験終了後の試験体	36
II - 17	被覆管の彎曲状況	36
II - 18	燃料ブロック破断部のX線写真	37
III - 1	オイル・バスおよび試料の取扱い状況	62
III - 2	熱衝撃試験結果	62
III - 3	光学顕微鏡組織写真	64
III - 4	熱サイクル試験装置	64
III - 5	熱サイクル試験によって入ったひび(試験片No.2)	66
III - 6	熱サイクル試験によって入ったひび(試験片No.3)	67
III - 7	ジルコニウム芯棒の割れ	67
III - 8	熱サイクル試験後の燃料ミート組織写真	68
III - 9	熱サイクル試験後のジルコニウム芯棒の組織写真	69
III - 10	水素リーク試験後の組織写真	71

I. 緒 言

I - 1 NSRR 燃料の概要

NSRR (Nuclear Safety Research Reactor, 原子炉安全性研究炉) 計画では、原子炉安全性研究の一環として原子炉の実験孔内においてカプセルあるいはループ中に装荷した試験燃料に任意の発熱量を負荷し、原子炉燃料の破損限界、破損機構、燃料破損に伴う衝撃圧力、機械的エネルギー発生挙動、その他燃料破損後の挙動等を実験的に究明することを計画している。このための原子炉として使用実績のある TRIGA 型のパルス炉 TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor) が選ばれ、現在建設中である。TRIGA 炉では減速材である水素と燃料が均一に混合したウラン水素比ジルコニウム ($U-ZrH_x$) を燃料として使用しており、NSRR は TRIGA 炉としては全世界において 50 基目である。しかし、初期の TRIGA 炉では燃料温度がそれほど高温とならないため水素化の低いものを使用していたが、パルス炉で大きい反応度を投入すると燃料最高温度は 1000°C 近くになり、低水素比のものは使用出来なくなる。これは水素比 1.4 以下のものでは第 I - 1 図に見られるように約 550°C に $\alpha + \delta$ hydride から $\beta + \delta$ hydride への変態点があり、パルス運転の度に相変態を起すことになり体積変化をもたらし、これにより燃料の振れ、彎曲を起す可能性があるためである。ウランが 10 wt% 程度入っても第 I - 1 図の状態図はほとんど変わらない。このため NSRR では温度によらず単相の δ 相である水素化 1.6 のウラン水素比ジルコニウム燃料を使用することになっている。NSRR の炉心燃料要素は第 I - 2 図に示すような全長約 73 cm、外径約 3.75 cm の棒状で、約 165 本が炉心に装荷される予定である。燃料部は長さ約 12.7 cm、直径約 3.56 cm の $U-ZrH_{16}$ ブロック 3 個より成り、各ブロックの中心部は穴が空いており、直径約 0.46 cm のジルコニウム芯材を有する。燃料部の上下には長さ約 8.7 cm の黒鉛反射体がある。被覆材は厚さ約 0.5 mm のステンレス鋼 (SUS 304) であり、被覆材、燃料体間に間隙約 0.5 mm を設け、パルス運転時の被覆材の温度を低く抑えて焼損を防ぐとともに長時間燃料体の温度を高く保持して、パルス後のラーンアウト出力を低く抑え、又、燃料の急冷による熱衝撃を避ける。被覆材には燃料体の偏心を避けるために燃料体部分の全長にわたり、千鳥足状に配列したくぼみ (ディンプル) を施してある。

NSRR では最大 300 kWまでの定出力運転も可能であるが、主として燃料破損実験のためにパルス運転が行われる予定である。パルス運転は最大 4.7 ドルまでの任意の挿入反応度量の下で 3 本のトランジエント棒の操作によって行われる。パルス運転による燃料到達最高温度は反応度挿入量によって異なるが、最大パルス運転時では局所的には約 960°C となる。しかし、被覆材温度は高々 130°C であり、熱流束も焼損熱流束に対して十分低い。

I - 2 TRIGA 燃料の開発および使用実績

TRIGA 炉は 1958 年の第 2 回ジュネーブ会議の展示において初めて公開された。TRIGA 炉は信頼性の高い研究炉として機械的あるいは電気的手段による安全装置に頼らずに固有の安全性を有すべきものとして開発され、これは大きな即効性の負の反応度温度係数を持つ $U-ZrH_x$ 燃料の開発により完全に目的が達せられた。TRIGA 炉は初期においてはアイソト-

プロ生産のための 10 kW の定出力運転炉であったが、その後、実績を積んで定出力運転に対しては数 MW まで可能な原子炉となり、パルス炉としても広く使われるようになった。

$U - ZrH_x$ 燃料要素についてはアルミニウム被覆の $U - ZrH_{16}$ （定出力用、定出力／パルス両用の 2 種類）とステンレス鋼被覆の $U - ZrH_{16 \sim 17}$ （定出力／パルス両用炉）があり、前者は前述のように約 550°C における相変態のため高出力、高パルス用としては不適当である。General Atomic 社（GA社）では 1960 年 6 月に臨界となつた TRIGA-Mark F 炉の燃料を 1962 年にアルミニウム被覆のものからステンレス鋼被覆のものにし（Advanced TRIGA Prototype Reactor、ATPR），定出力運転時 1.5 MW，パルス運転に対しては最大 5.0 ドルまでのパルスが可能な原子炉とし、現在までに 10,000 回以上のパルス運転の経験を有している。この間、ステンレス鋼被覆の $U - ZrH_{16}$ 燃料について何ら異常は認められていないと報告されている。又、ATPR では TRIGA-ACPR 用燃料（ギャップ幅の広いディンプル付被覆管燃料）開発のため、試験燃料 5 本を炉心中央部に装荷し、パルス運転を行つた。試験燃料には高い発熱量を発生させるために、他の炉心燃料に比してより高濃縮の 93% 濃縮ウランを用いた。試験は、試験燃料最高温度が 1120°C になるようなパルス出力で 426 回実施されたが、この内数回は最高温度は 1175°C に達した。試験後、5 本の試験燃料について外観検査を行なつた結果、2 本の燃料の最高点部分に張らみが認められた。2 本の燃料の内、1 本は圧力測定用計装燃料で、パルス運転時の測定圧力は 17~41 psi の範囲であった。張らみ部分を切断した結果、外周より約 1 cm の深さに稠密な細かい空洞のある組織が燃料体内に生じていることが明らかとなつた。この空洞は主に粒界に沿つて並んで発生していた。以上の検査から、張らみの原因は次のように結論された。

- (1) 張らみが生じた場所は最高温度部分であり、1175°C（測定点）以上であること。（燃料棒内半径方向発熱分布から考えると恐らく 1200°C 以上であると思われる。）
- (2) 張らみ原因是、燃料ミートの温度上昇に伴うミートからの発生水素ガスが高温のため軟化した燃料体を押し、空洞を作り、一度空洞が生じるとパルス運転の都度生じる水素ガスが空洞に溜り、高温部分の燃料の体積を増大させたためと思われる。

しかし、被覆材自体は張らみにも拘らず健全であった。又、被覆材内残留ガス圧力はほとんどなし、圧力トランジスタの指示値と良く一致し、ガス分析の結果、水素ガスの存在は認められなかつた。

以上の結果、燃料温度が 1200°C 近くなると燃料に張らみが生じる可能性が存在することが知れたが、この問題に対して現用の TRIGA-ACPR では最大パルス運転時でも燃料最高温度は 1000°C を越えないよう最大パルスを規制し、更に燃料と被覆材との間の間隙を約 0.38 mm (15 ミル) から約 0.5 mm (20 ミル) とし、万一燃料体が張らんでも被覆材への影響を小さくしている。TRIGA 型燃料において被覆材破損の一つの要因と考えられているものに $U - ZrH_x$ 燃料からの水素の解離による内圧破損がある。第 I-3 および I-4 図に ZrH_x 系の平衡解離圧を温度の関数として示す。水素比 1.6 では平衡水素解離圧は 800°C で約 1 気圧、1000°C で約 10 気圧であるが、燃料をパルス照射した場合の解離圧は平衡状態のものに比してかなり低い値となる。前述の ATPR の試験においても、燃料最高温度 1120°C ~ 1175°C で被覆管内圧は 17~41 psia (1.2~2.9 気圧) であった。同温度における水素の

平衡解離圧は約 1,000 psia (70 気圧)である。また、12 w/o U-ZrH₁₇ の燃料を用いた場合のパルス運転時の最大測定被覆管内圧は 1,000°C で 34 psia (2.4 気圧)であったが、これは平衡解離圧 620 psia (43.6 気圧)の 18 分の 1 以下である。以上の実測値および U-ZrH_x 燃料の高温における使用実績から NSRR 燃料において水素の解離による内圧破損は起らないものと推定される。

また、解離した水素が被覆材を透過して逃げ、燃料中の水素比が減少し、燃料が体積変化や割れを生ずる可能性については、ステンレス鋼の被覆材では水または水蒸気の雰囲気で 900°F (482°C) 以下の被覆材温度では十分長期間 (5 ~ 6 年) に涉って被覆材が水素の逃げの障壁となることが実証されている。

上述のように、NSRR で使用する TRIGA 型燃料は General Atomic 社において十分に試験され、また各国の TRIGA 炉において十分なる使用実績を有するものである。一方、NSRR と同種の TRIGA-ACPR は米国のサンディア研究所において 1967 年より運転され、1971 年末までに約 600 回の最大パルスを含めて 2,300 回以上のパルス運転を行なつたが、何ら燃料の破損は見られなかつたと報告されている。なお、NASA においても TRIGA 型燃料は宇宙用原子炉の燃料として研究開発され、その安全性、信頼性については十分評価されている。

以上のように十分なる実績を有する TRIGA 型燃料を NSRR において使用するが、わが国においてはこの種の燃料を用いる最初のパルス炉であることに鑑みて運転開始までに衝撃および熱サイクル等の試験を行い、その信頼性を独自に確認することとした。

I - 3 試験の目的および概要

上述のように NSRR 燃料ではパルス運転時の被覆材温度を低く抑えて焼損を防ぐために、燃料、被覆材間に大きな間隙 (約 0.5mm) を設けてある。したがつて、万一、従事者が誤って燃料を落下させたり、あるいは繰返しのパルス運転における熱衝撃、熱サイクル等により燃料が破損し多量の粉末が生じ、間隙を埋めることは望ましくない。このような観点から本試験では機械的衝撃、熱衝撃および熱サイクルを NSRR 燃料体に与えて、その変化、粉末の発生状況等を調べ、実際に原子炉で使用した場合の燃料の健全性を確認することを目的としている。

機械的衝撃試験については台上に置かれた試料に鋼球を落下させる方法あるいは直接試料を落下させる方法が考えられる。試験の目的に鑑みて燃料が破損した際の割れ方および粉末の発生状況等を調べることを第一と考え、また限られた試験体数とその試験の再現性および他の材質に対する同種の試験データとの比較が可能な点を考慮し、ページ衝撃試験を実施した。また、参考試料としてアルミナ、フォルステライト、ジルコン、ムライト、チタニアおよびステアタイトの 6 種類のセラミックスについて U-ZrH₁₆ 燃料の試験片と同一形状の試験片を製作し、同様な試験を行ない相互比較を行なつた。ページ試験はシャルピー試験と比較すると燃料の落下時に燃料に負荷される荷重をより模擬した試験といえるが、実際の燃料は被覆管中に収められ、落下時の状態も様々と考えられるので、ページ試験の結果からどの程度の高さから落下させた場合どの程度燃料が損傷するかを説明することは難しい。このような理由からページ試験

と並行して種々の高さから実物の燃料要素を垂直および水平に落下させ、被覆管、燃料ブロックおよび黒鉛反射体の変形、損傷等について調べた。

NSRR のパルス運転状態を考慮し、熱的影響により炉心燃料に起り得る変化としては二つの原因が考えられる。すなわち、

- (1) パルス運転により燃料体中に温度勾配ができ、熱応力が発生する。
- (2) 热サイクルによる水素の放出、吸収で組成が変り、体積変化を伴なう相変態により内部応力の発生を引き起す可能性がある。

これらの熱的問題について次の3種類の試験を行い、総合的に燃料の健全性を評価することとした。

(1) 热衝撃試験

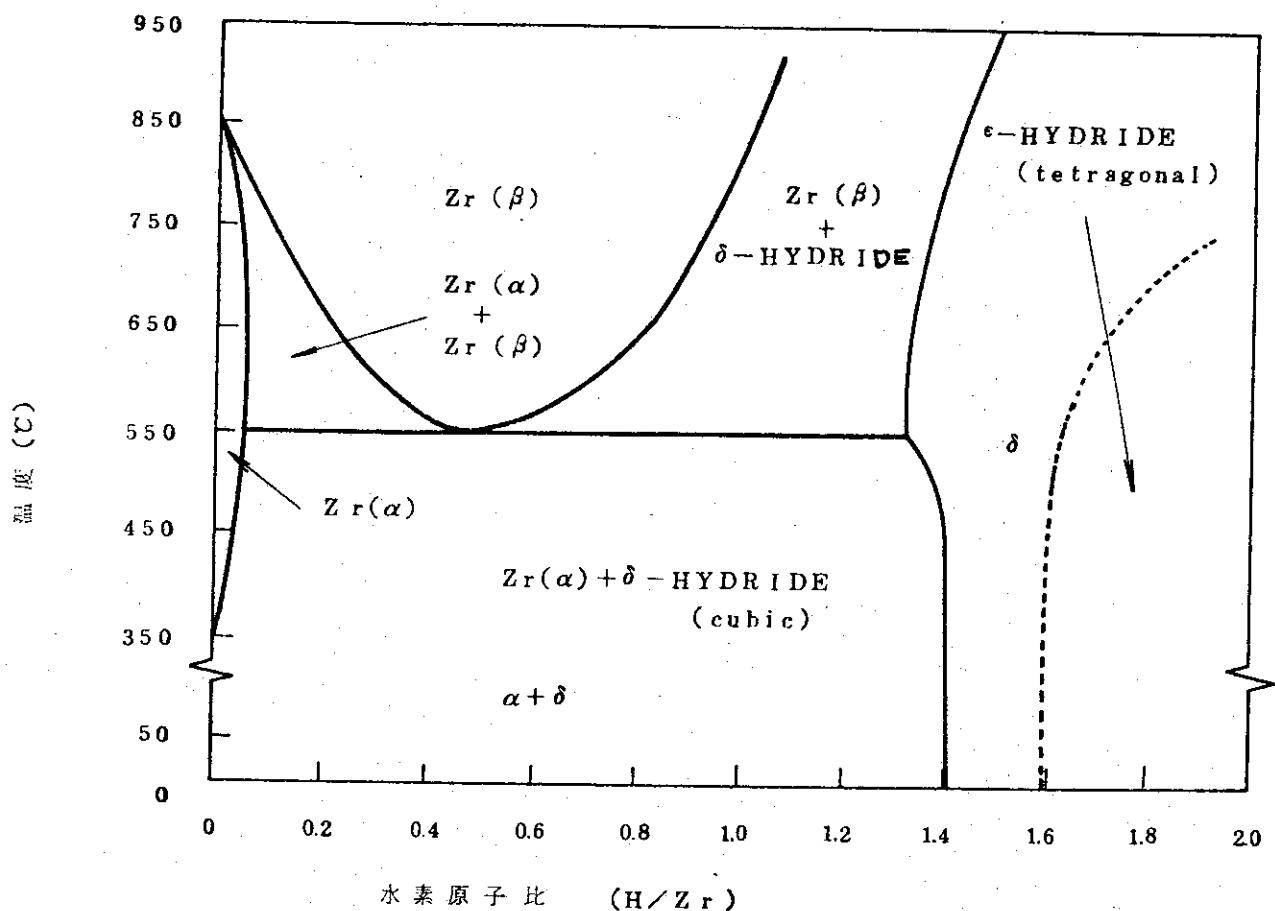
燃料体中の温度勾配による熱応力については燃料ミートを直接 250°C のオイルバス中から常温(約 25°C)の水中に浸して熱衝撃を与え、燃料のひび、欠け、割れ等の検査を行った。

(2) 热サイクル試験

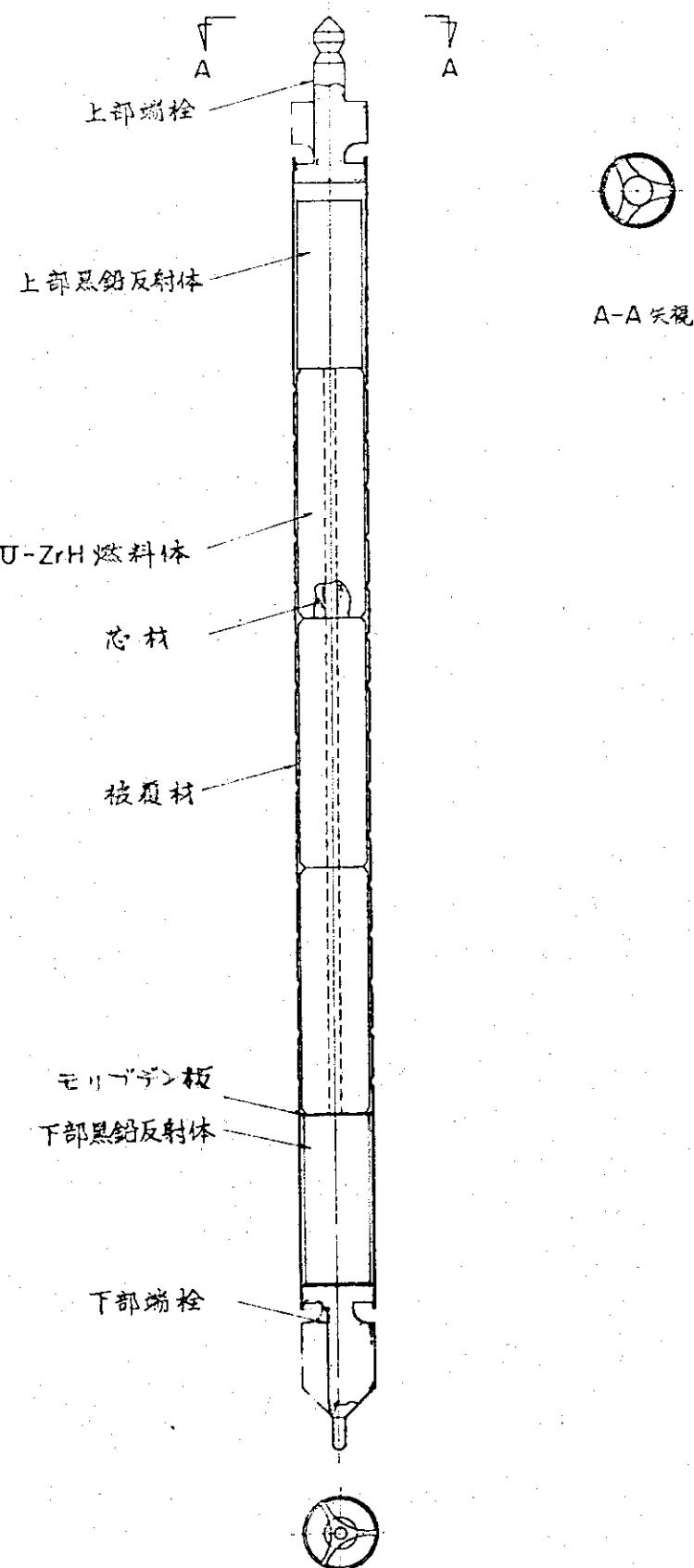
繰返しパルス運転による熱サイクルの問題については外熱方式では実際のパルス運転時の温度分布を燃料ミートおよび被覆材に同様にもたらすことは不可能であるので燃料ミート、被覆材それぞれについて温度条件を決定し、1,000 回までの熱サイクル試験を実施した。燃料ミートの加熱条件としては、繰返し熱応力による燃料の破損を考えた場合、熱応力と脆性の関連が問題になるのはむしろ低温側であるので、燃料ミート(被覆管付)は電気炉中で 600°C まで加熱し、水中で冷却するサイクルとした。被覆材については実際の運転状態における最高温度を上廻る 150°C に加熱し、水中で急冷した。

(3) 水素の移動および透過試験

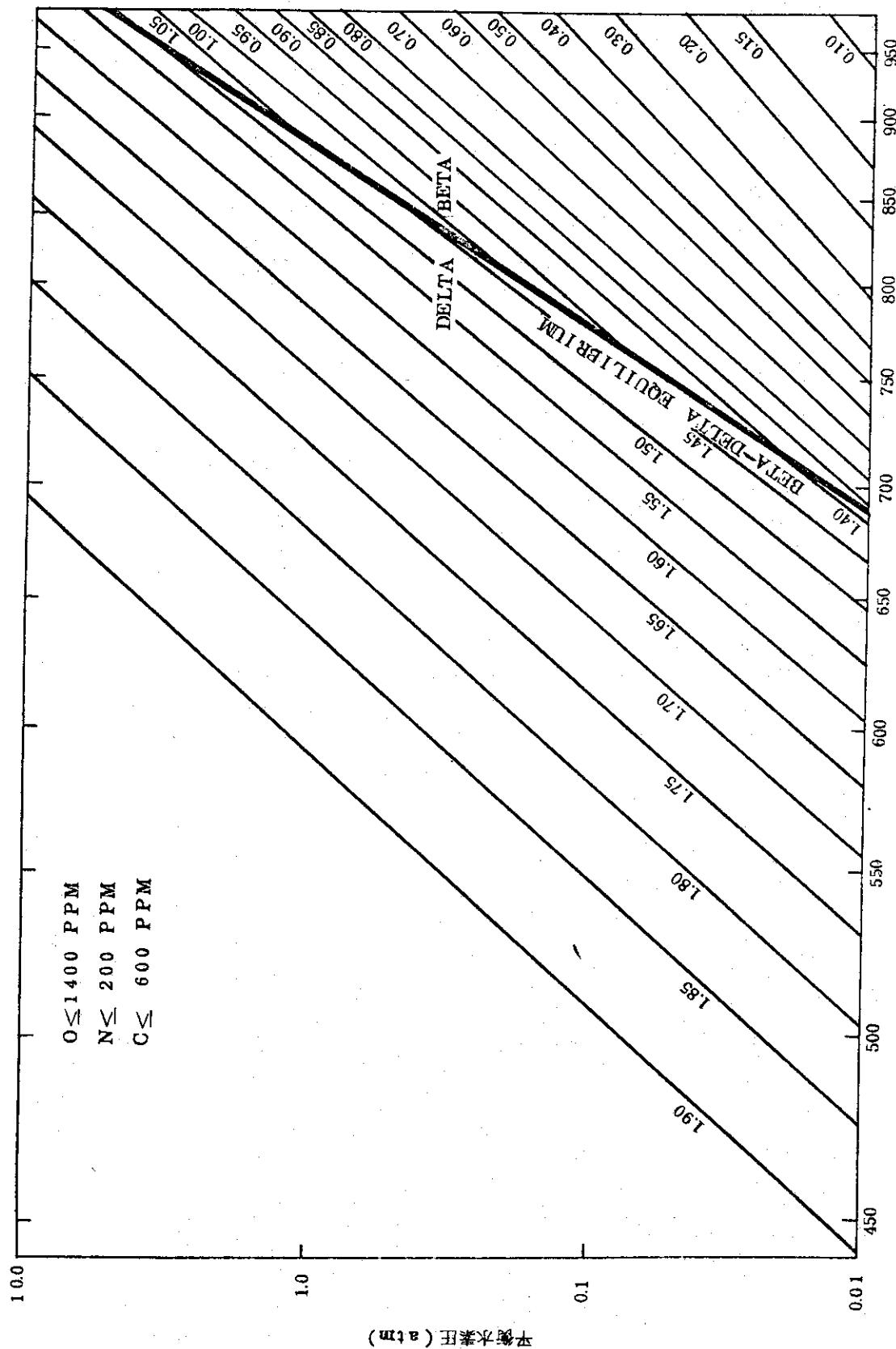
燃料体の加熱による水素の放出については、放出された水素が被覆材を透過して雰囲気中に逃げ、燃料の H/Zr 比が 1.5 以下(850°C 以上では水素比 1.4 以上でも δ 相から $\beta + \delta$ hydride へ相変化する。)になるとパルス運転により相変態を起す可能性がある。一方、燃料体から放出された水素が芯材のジルコニウムに吸収され、又、ギャップ中の水素濃度も含めて平衡状態になったと仮定しても水素比は 1.60 から 1.55 へ減少する程度で相変態の問題は起らない。したがって、ここでは被覆材を通しての水素の透過度について予測される運転状態および運転期間を勘案し、更に余裕を考慮した試験条件で実験を行った。



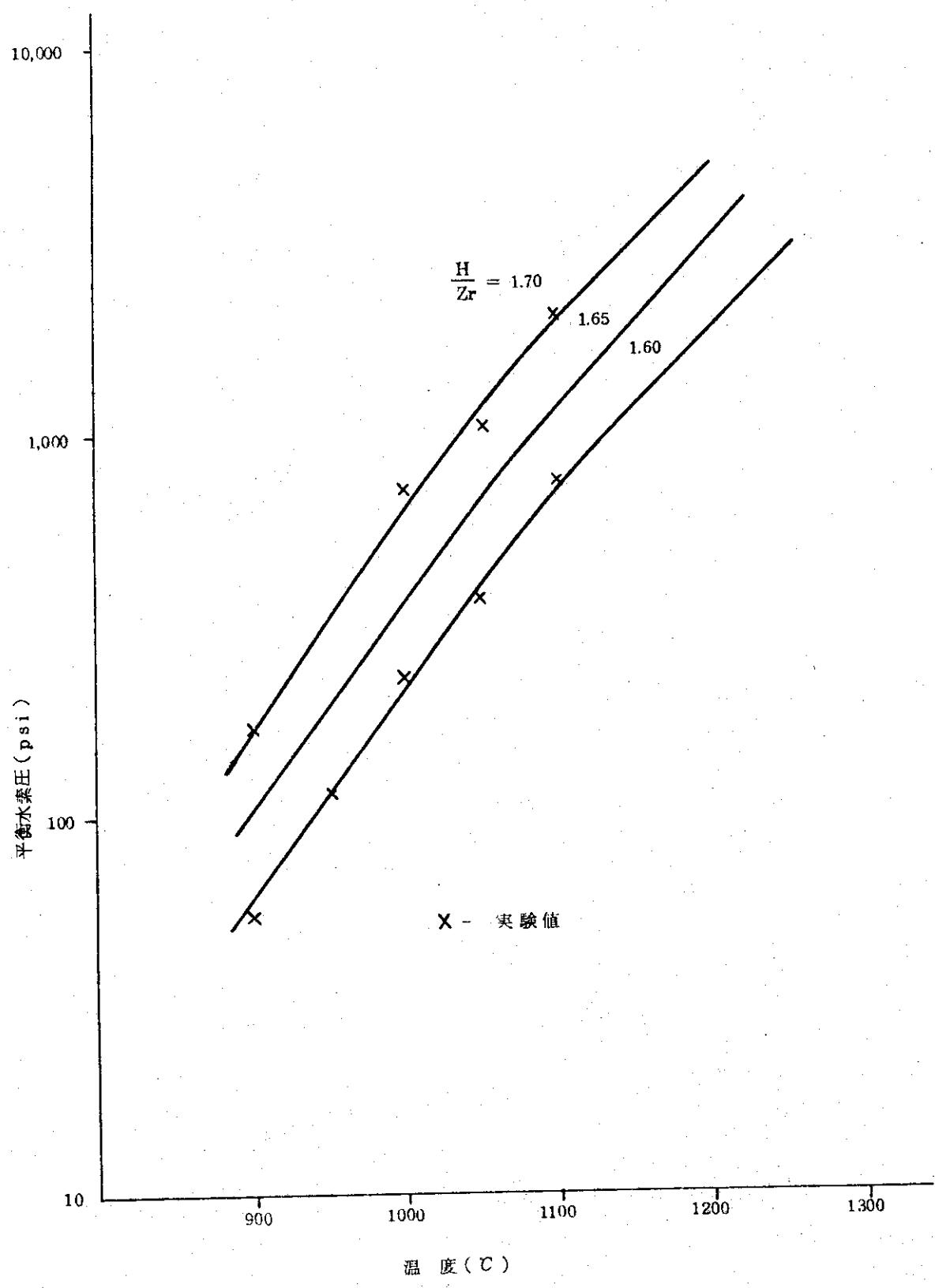
第 I - 1 図 ジルコニウム - 水素系の状態図¹⁾



第I-2図 炉心燃料要素



第 I - 3 図 平衡水素解離圧 (1) 1)

第 I - 4 図 平衡水素解離圧 (2)²⁾

II 機械的衝撃試験

II-1 ページ試験

II-1-1 概要

NSRRの心燃料は第Ⅰ章で述べたように燃料ミートと被覆管とのギャップ幅が重要な意味をもつていて、そこで、本燃料要素の運搬時や装荷時において、落下やその他の衝撃により、燃料ミートが破損し、小さい粉末状の欠けを生じ、被覆管とのギャップを埋めることができないかを確認するために本試験を実施した。更に、他のセラミックスと比較して、どの程度の耐衝撃性を有するかを調べるために、いくつかの代表的なセラミックスの試験も併せて行った。

試験方法としては、ページ試験を採用したが、

- I) 実物の燃料ミートから試験片を切出せる、
- II) 衝撃応力が落下などの燃料要素の取扱いミスによって生じる衝撃応力に比較的類似している、
- III) 脆性材料の耐衝撃試験として、既に広く行われていることなどの理由で、燃料ミートの耐衝撃性を調べる上でシャルピー試験等と比較して有力な手段であると思われる。

観察内容は、燃料ミートあるいは比較試験片に、ひび・割れ・欠けなどが生じたかどうかの外観検査のみで、特に燃料ミートと被覆管の間隙を埋めるような小さな粉末状の欠けの発生に注目して観察を行った。

II-1-2 試験方法

(1) ページ試験機

写真II-1に示すような試験機を用いた。本試験機の構造は第II-1図に図示されているように、鉄床A、プランジャP（鋼製：重量1kg）、落下錘H（重量1kg、落下高さ1cm～90cm）などからなり、図中のTの位置に試験片を置く。

(2) プランジャ

通常のページ試験では、プランジャ下面に1cmの半球が付いているが、本試験では試験燃料片中心部に小孔があるので（実際の燃料ミートの中心孔と同じもの）、この半球の代わりに半径1cmの半円柱を取付けたものを使用した。

(3) 試験片

(i) 試験燃料片

通常のページ試験では、直径2.54cm、長さ2.54cmの円柱型試験片を用いている。しかし、NSRR燃料ミートは、直径3.56cmの円柱の中心に直径0.51cmの穴があいているので、実際の燃料ミートより長さ3.56cmの穴あき円柱を切り出したものを使用した。

試験片の切断は、

- a) マイクロ・カッター（レジノイド刃）
- b) 放電切断機

により行ったが、a)のマイクロ・カッターにより切断した試験片には写真II-2aに見られ

るような欠け・ひびが切断中に生じ、一方、放電切断した試験片は写真Ⅱ-2 b のように、これらの欠け・ひびは発生せず、肉眼で見る限りきれいな面であった。

欠け・ひびのあるマイクロ・カッターで切断した試験片は、欠け・ひび等の欠陥が、のちの衝撃力による破損にどのような影響を与えるかを調べるために、欠陥のあるまゝの状態で試験を行った。

また、試料の切断面は丸味のない尖った端（以下“sharp edge”と呼ぶ）を持つので、端の状態による破損の相違を検討するために試験片の一端として実燃料の丸味のある端（以下“round edge”と呼ぶ）を使用した試験片も用意した（もう一方の端は切断したもので“sharp edge”を持つ）。これら2種の端をもつ試験片を写真Ⅱ-3に示す。

なお、燃料ミート中のジルコニウム芯棒は抜いてある。

(ii) 比較試験片

耐衝撃性を他のセラミックスと比較するために、第II-1表に示す6種類のセラミックス試験片を各々3個づつ用意した。寸法は、燃料試験片と同じで直径3.56 cm、長さ3.56 cmの円柱の中心に直径0.51 cmの穴のあいているものであり、両端とも“round edge”である。

なお、第II-1表には参考のため、これらの主な物性値と燃料試験片の物性値をも同時に示しておく。

(4) 試験手順

試験片を鉄床上にのせ、試験片の軸をプランジャの軸と一致させる。次に落下錘を試験片の上に落させて衝撃を加える。落下錘は最初1 cmの高さより開始し、1回ごとにその落下高さを約1 cmづつ増加させ、試験片にひび・欠け更に割れが生じるまで落下を続けた。ひび・欠けおよび割れは外観検査により行い、その都度写真撮影を行った。

II-1-3 試験結果

衝撃破壊後の各試験片の状況のうち代表的なものについて写真Ⅱ-4 a, b に示す。また、第II-2図に各試験片に割れが生じた時の落下錘高さを示す。同図には参考のため第II-1表に記載した曲げ強さおよび圧縮強さをも参考のため同時に示しておく。

更に、燃料試験片においては、写真Ⅱ-5に示すような欠けが下面（プランジャに接していない面）で全試験片とも“sharp edge”をもつ）に生じた。燃料試験片に欠け及び割れが生じた時の落下錘の高さを第II-2表に示す。

燃料試験片に着目して、肉眼による外観検査をまとめると次のようになる。

- (i) 燃料試験片では欠け（フチワレ）を生じてから割れを生じるものが6試験片のうち5つを占めた。
- (ii) この欠けは切断面（“sharp edge”を持つ面）の部分からのみ発生し、“round edge”の面からは欠けは全く生じなかった。また、このような欠けは、比較試験片（両端とも“round edge”）にも見られず、いきなり第II-2図に示した落下錘高さで割れた。
- (iii) 燃料試験片の割れ方は、大抵2つの縦割れで、横割れはなかつた。
- (iv) 欠けあるいは割れが発生する前に、ひびが発生している可能性はあるが、比較試験片、燃料試験片とともに肉眼での外観検査からでは、このひびを認めることはできなかつた。また同様

変形を起こした様子もなかった。

(V) 割れを生じた際、一辺 1 mm 以下のかけらは燃料試験片では発生しなかった。

(VI) 燃料試験片の割れ方は、ムライト又はステアタイトのそれと類似しており、割れを生じた時の落下錘の高さ（衝撃抵抗値）は、ムライトのそれに最も近かった。

II - 2 燃料落下試験

II - 2 - 1 概 要

U-ZrH_x 燃料の機械的衝撃試験として、一般的な耐衝撃特性を知るために前節に記したページ試験を実施した。燃料落下試験は、さらにこのページ試験と並行して実際の燃料形状に組立てられた状態で外部から機械的衝撃が作用した場合の効果を知るために行ったものである。衝撃荷重としては燃料装荷あるいは交換時に取扱い器具から外れて垂直に落下した場合、および作業台上で取扱っている際に落下した場合等を想定し垂直および水平に落下する試験および垂直支持状態からコンクリート面上に倒す試験を行った。

II - 2 - 2 試験方法

(1) 試験片

試験片としてはNSRR炉心燃料と全く同一のもの 1 体を用い、これを垂直落下、横倒しおよび水平落下試験に供した。ただし U-ZrH_x 燃料ブロックは 3 体のうち 1 体は他の試験に使用したために、外形寸法および重量を等しく作製した鉄製の模擬ブロックを使い、写真 II - 6 および第 II - 3 図に示すように被覆管内に装荷して試験を行った。また、本試験においては落下後毎回燃料ブロックを取出して検査を行ったため、片方の端栓は被覆管に溶接せず、接着テープにより固定した。

(2) 試験方法

垂直落下の場合は燃料棒の一端を細ひもに結び、アクリル製の透明案内管中を規定の高さまで持ち上げて落下させた。写真 II - 7 に情況写真を示す。なお溶接してあった端栓が上部端であったために、落下方向は上部端栓を下にして落下したが、端栓形状は上下似た形状であり燃料内部の形状は全く上下対称であるので、上下が逆になったための影響はほとんど無いと考えられる。落下衝撃面としてはコンクリート板（板厚 53 mm）およびアルミニウム合金板（Al 5052, 板厚 52 mm）を使用した。

垂直位置からの横倒し試験は写真 II - 8 に示すようにコンクリート板上に垂直に立てた燃料棒を、支えていた手を離すことにより転倒させた。接着テープの影響をできるだけ少くするために、この場合は溶接してある端栓の方を上にして転倒させた。

水平位置からの落下試験は写真 II - 9 に示すように燃料棒を規定の高さに手で水平に保ち、手を離してコンクリート板上に自然落下させた。第 II - 3 表に落下試験の内容を一覧表にして示す。試験後の検査については第 II - 4 表に示した項目について行ったが、さらに落下時の様子については 16 mm の高速度カメラに収めた。試験は垂直落下試験、横倒し試験、水平落下試験の順に行い、横倒し試験までは燃料ブロックの破損は生じず、最後の水平落下試験によって破損し、この時点での試験を終了した。

II-2-3 試験結果

(1) 垂直落下試験

垂直落下試験は先ず落下高さ 100 cmまでは 5 cmずつ高さを増加し、又、200 cmまでは 10 cmずつ高さを増加してコンクリート板上での落下を行った。次に 1 mから 50 cmずつ高さを増し、最大高さ 3.4 mまでの落下試験をアルミニウム合金板上にて行った。第 II-4 図は各回ごとの代表点での被覆管直径および真直度の測定結果を落下回数に対してプロットしたものである。この結果から 3.4 m以下の垂直落下によっては被覆材の変形は生じないことがわかる。又、写真 II-11 に落下試験前および 3.4 mからの落下後における燃料ミート、グラファイトおよび端栓部の写真を示す。このように燃料ミートにも割れや変形等の異常は生じず、又反射体のグラファイトおよび被覆管にも異常は生じなかつた。

(2) 横倒し試験

次に実験番号 36 として行なった垂直位置からのコンクリート板上への横倒し試験では、転倒後最初にコンクリート板に当った被覆管の部分がわずかに線状にふくらんだが、被覆内の燃料ミートには何らの異常も認められなかつた。写真 II-12 に被覆管のふくらみ部分の様子を示す。被覆管のふくらみは 0.06~0.2 mm で第 II-5 図に示す如くこれは燃料ブロックの縁によるものと断定される。これらの点における直角方向の直径は 0.05~0.15 mm 短くなっていた。

(3) 水平落下試験

水平落下試験については前述の方法により、高さ 50 cm から 25 cm ずつ落下高さを増加させ、同一高さで 3 回ずつ行った。ただし、第 1 回目の水平落下試験（実験番号 37）において燃料ブロック 1 個が破断したため、第 2 回目は落下高さ 25 cm で試験を行つた。

先ず第 1 回目の 50 cm の高さからの落下後、被覆管の一方の端栓を取り外し内部の燃料ミートおよびグラファイトブロックの破損状況を調べた結果、中央の燃料ブロック 1 体（第 II-3 図におけるブロック B）が切断していた。写真 II-13 に切断した燃料ブロック B の破断部、破断面、発生した粉末等を示す。破断は燃料ブロックのはう中央で起り、破断時の破断面からの粉末の発生量は極く僅かであった（写真 II-13(e)）。又、破断面から新たに粉末が発生するようなことはなかつた。グラファイトブロックについては何ら損傷は見られず、被覆管には前回と同様なふくらみと端部では僅かなくぼみが観察された（写真 II-14）。その後、破断した燃料ブロック B をそのまま同様に被覆管内に挿入し、第 II-3 表に示したステップで、燃料ブロック A が破断するまで水平落下試験を続行した。この間、毎回燃料ブロックを取出して外観検査を行い、被覆管については実験番号 38 および 41 を除いて毎回真直度および外径寸法を測定した。50 cm からの落下試験で破断した燃料ブロック B については極く少量の粉末が破断面から発生したが、高さ 100 cm からの落下試験まではそれ以上のかけ、割れは生じなかつた。高さ 125 cm からの落下でブロック B においては破断面側において 2~5 cm の破片 3 個が生じた。燃料ブロック A は高さ 100 cm からの落下試験まで何ら損傷が見られず、125 cm での試験において燃料ブロック B と同様にブロックのはう中央部において破断した。破断面を写真 II-15 に示す。グラファイト・ブロックについては全試験を通じて何ら変形、損傷は見られなかつた。被覆管の外観については燃料ブロックの両端の衝撃による局部的なふくれがさらに大きく見られ、写真 II-16 のように竹の節のような外観を呈した。又、落下の回数を増すにつれ被覆管に彎曲が生

じ、曲がりは数mmに及んだ。写真II-17に高さ100cmおよび125cmからの落下後の被覆管の弯曲の様子を示す。又、第II-6図に被覆管直度の変化を試験回数に従い示す。これより75cmの高さからの落下後は被覆管の曲りはNSRR燃料検査器具の1つであるgo-no goゲージの許容範囲である1/16インチ(=1.59mm)を越えゲージを通らないことになる。

II-3 考 察

U-ZrH_x燃料に機械的衝撃を加えた場合の燃料の破損状況についてはページ試験によってひび、欠け、割れ等の発生について観察を行い粉末の発生状況を調べた。その結果、II-1-3節に記したような実験結果が得られたが、これらの結果に基いて実際の燃料の健全性を評価してみると以下のようなものと思われる。

まず小さな欠けについて考えてみると"round edge"のところにはこのような欠けは見られず、実際の燃料ミートにおいては両端とも"round edge"なので、機械的衝撃を与えた場合このような小さい欠けが発生するとは考えにくい。更に、割れを生じてもかけらとして1mm以下のものは無いので小さな割れ(大きな縦割れの際のかけら)が燃料ミートと被覆管の間隙を埋めることもないであろう。

室温でのU-ZrH_x燃料は他のセラミックス同様延性は小さい。しかし、通常のパルス運転時の燃料温度まで温度を上昇させると相当延性を増す。第II-5表にδ相のU-ZrH_x燃料の機械的性質をUO₂, SUSと比較して示す。U-ZrH_xはUO₂と比較してヤング率は小さいが、その他の値はそれほど相違がなく、機械的強度としては金属のSUSよりもセラミックスであるUO₂に近いものであることがこの表からも知れる。このような観点からページ試験において、U-ZrH_{1.6}燃料の耐衝撃性(衝撃抵抗値)が他の主なセラミックスと比較して何に最も近いかを調べた。その結果"round edge"を持つものの衝撃抵抗値はムライトの値に非常に近いことが判った。"round edge"を一端に持つ試験片と"sharp edge"を両端に持つ試験片を比べて見た場合、明らかに"round edge"の方が耐衝撃性の面で優れているが、実際のミートは両端とも"round edge"であること、比較試験片は両端とも"round edge"であることなどを考慮すれば、本試験結果の燃料試験片の衝撃抵抗値としては"round edge"を持つもので評価すべきである。従って、燃料試験片を落下させたような場合の耐衝撃性は、比較試験片中最も劣っているムライトと同程度であると評価できる。

一般的にいって、脆弱物質の衝撃抵抗性については、圧縮強さ、曲げ強さなどに関連があると考えられていて、³⁾これらの間には直線的な関係があるようである。本試験で得られた結果も、第II-2図に見られるように上記の事実とよく一致している。

実際に燃料を落下させた場合、垂直に落下させた時は圧縮強さが問題になり、水平に落下させた場合には、(側面が全く同時に接触することは極めて考えにくいので)曲げ強さが問題になるものと思われる。そして、燃料ミートの曲げ強さの値は筆者らの知る限りでは求められていないが、上記の考察をふまえれば、ムライトのそれに近い値であることが推察される。それゆえ、U-ZrH_{1.6}の曲げ強さは、大略5kg/mm²であると予想される。この5kg/mm²の値は他のセラミックスも含めた値と比較すると著しく小さいので、曲げが働くような衝撃力に対しては特に注意が必要と思われる。

また、レジノイド刃マイクロ・カッターで切断した試験片と放電切断したものを比較した場

合、耐衝撃性の観点からは両者に全く差が認められなかつた。この事実は、燃料ミートの成形加工などの際多少の傷や欠け、あるいはひびが入つても後の耐機械的衝撃性の点に関していえば、それ程心配は要らないということを示唆している。

実物大燃料の落下試験は種々の落下形態を予測して垂直、水平、横倒しについて行い、落下床面も原子炉建家内の床面とプール底を考え、コンクリートとアルミニウム板の双方について行った。その結果、案内管を付けた垂直落下では溶接のしてある上部端栓側を下にしたものであるが、コンクリート板については2m、アルミニウム板については3.4mの試験実施高さまで燃料ブロックのひび、かけ、割れ等の変化、被覆管の変形等は見られなかつた。落下高さは実際の燃料取扱い上のミスを考え、炉室床面では高々従事者の身長を考慮すれば十分と判断し、又、プール水中での落下については水深9mであるが、水の抵抗を考えると空气中では2.8mの高さから落下させた場合が等価の衝撃力を燃料要素に与えることになり（付録1）、アルミニウム板上への最大3.4mの落下距離は十分と判断される。コンクリート板上での燃料要素の横倒し試験の結果、燃料ミートおよび黒鉛には何ら変化は見られなかつたが、被覆材には燃料ブロックによる線状のふくらみが観察された。水平落下試験では50cmおよび125cmからの落下により燃料ブロックが割れた。しかし、この場合も大きく2つに割れ、粉末はほとんど見られなかつた。水平落下の場合の燃料ブロックの割れはブロックの中央付近で円周方向に起り、ページ試験の場合の純割れと異つたが、これは落下試験の場合は燃料ブロックが長く、ブロック全長に涉り同時にコンクリート板と接触するとは考え難くブロックの一端が接触した際に曲げ応力が作用したことによると思われる。被覆材には横倒しの場合と同様なふくらみが観察され、又、相当の曲も見られた。被覆材の変形については外観検査で容易に識別出来る程度であり、又、1m前後から水平落下した場合には被覆材の変形量は先に述べたgo-no goゲージを通らない程になる。燃料ブロックの破断について被覆材の外部からの検査（非破壊検査）の可能性を確めるために、破断した燃料ブロックを破断面に間隙が生じないようにして被覆材に挿入しX線撮影を行なつた。写真II-18に示すように鮮明ではないが、破断を識別することは可能であった。又、実際の燃料要素の場合には第I-2図に示すように軸方向にはかなりのギャップがあるので破断面間にも間隙が生じ、X線写真においてもより鮮明に破断が識別出来るものと思われる。

これらの結果より、機械的衝撃により燃料ミートに割れを生じても粉末はほとんど発生せず、燃料ミートと被覆材間の間隙を粉末が埋めることは考え難いと言えよう。又、燃料要素を落下させた場合には、U-ZrH_x燃料は他のセラミックスと比較しても弱いと言えるが燃料ミートの損傷以前に被覆材の変形が起るものと考えられるので、外観検査により変形した被覆材を有する燃料要素を選別し、それらについてはX線撮影等により詳細に検査し使用するか否かを判断すれば良いものと考えられる。

第II-1表 比較試験片および燃料の物性値

試験片	組成	外観	見掛け比重	曲げ強さ (kg/mm ²)	圧縮強さ (kg/mm ²)	硬度 (モース)	吸水率 (%)
アルミニナ タルステライト	Al_2O_3	緻密	3.9	3.5	260~400	9	0
ジルコニア	$2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$	"	2.8	1.68	130	7.5	0
チタニア	$\text{ZrO}_3 \cdot \text{SiO}_2$	"	3.4	1.7	—	8	0
スチアタイト	$3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$	多孔質	3.1	4.5	—	—	20~25
燃 料	TiO_2	緻密	3.7	1.7	—	8	0
***	$\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$	"	3.1	1.57	~130	7.5	0
	$12\text{wt.\%U}-\text{ZrH}_{1.6}$	"	6.1	—	4.2	—	0

* 京都セラミックス株式会社製。物性値も同社の発表による。

** 米国 General Atomic 社製。物性値は、文献(1)による。

第II-2表 燃料試験片に欠け・割れが生じた時の落下錘の高さ

一端(上面)は"round edge"両端とも"sharp edge"		
割れ発生(欠け発生)		
レジノイド刃で 切断した試験片	3.2.8 (10.6) 2.8.2 (16.0)	16.3
放電切断した 試験片	2.6.0 (10.9)	15.9 (8.0)
		17.5 (9.5)

* ブランジャーとの接触面 (単位: cm)

第II-3表 実物燃料落下試験内容

試験番号	落下方法	落下面材質	落下高さ(cm)	変形、破損状況
1	垂直	コンクリート	5	燃料ブロック、被覆管とも 変形、破損なし
2	"	"	10	"
3	"	"	15	"
4	"	"	20	"
5	"	"	25	"
6	"	"	30	"
7	"	"	35	"
8	"	"	40	"
9	"	"	45	"
10	"	"	50	"
11	"	"	55	"
12	"	"	60	"
13	"	"	65	"
14	"	"	70	"
15	"	"	75	"
16	"	"	80	"
17	"	"	85	"
18	"	"	90	"
19	"	"	95	"
20	"	"	100	"
21	"	"	110	"
22	"	"	120	"
23	"	"	130	"
24	"	"	140	"
25	"	"	150	"
26	"	"	160	"
27	"	"	170	"
28	"	"	180	"
29	"	"	190	"
30	"	"	200	"
31	"	アルミニウム	100	"
32	"	"	200	"
33	"	"	250	"

試験番号	落下方法	落下面材質	落下高さ(cm)	変形、破損状況
34	垂直	アルミニウム	300	燃料ブロック・被覆管とも変形、破損なし
35	"	"	340	"
36	横倒し	コンクリート		燃料ブロック変化なし 被覆管に線状のふくらみ発生
37	水平	"	50	燃料ブロック1個破断 被覆管に線状のふくらみ発生
38	"	"	25	燃料ブロック・被覆管とも新たな変形、破損なし
39	"	"	50	破断した燃料ブロックから少量の破片発生、被覆管に新たなふくらみ発生、被覆管弯曲
40	"	"	50	"
41	"	"	75	"
42	"	"	75	"
43	"	"	75	"
44	"	"	100	"
45	"	"	100	"
46	"	"	100	"
47	"	"	125	他の燃料ブロック破断、被覆管弯曲

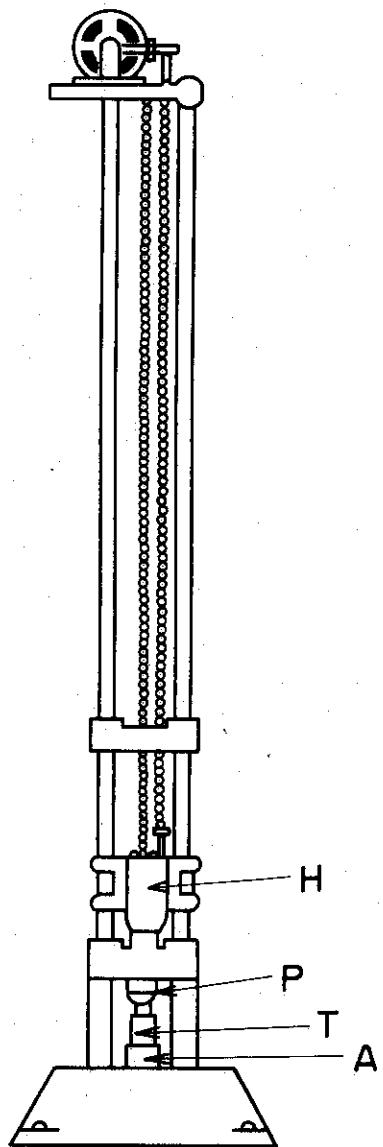
第II-4表 燃料落下試験検査項目

検査項目	測定点数	測定器	備考
被覆管外径	2方向8点	ノギス	
被覆管真直度	3個所4点	ダイヤルゲージ	写真II-10参照
燃料ミート外観	各ブロック	目視および写真	
X線撮影	アセンブリ	写真撮影	

第II-5表 U-ZrHx燃料の機械的性質

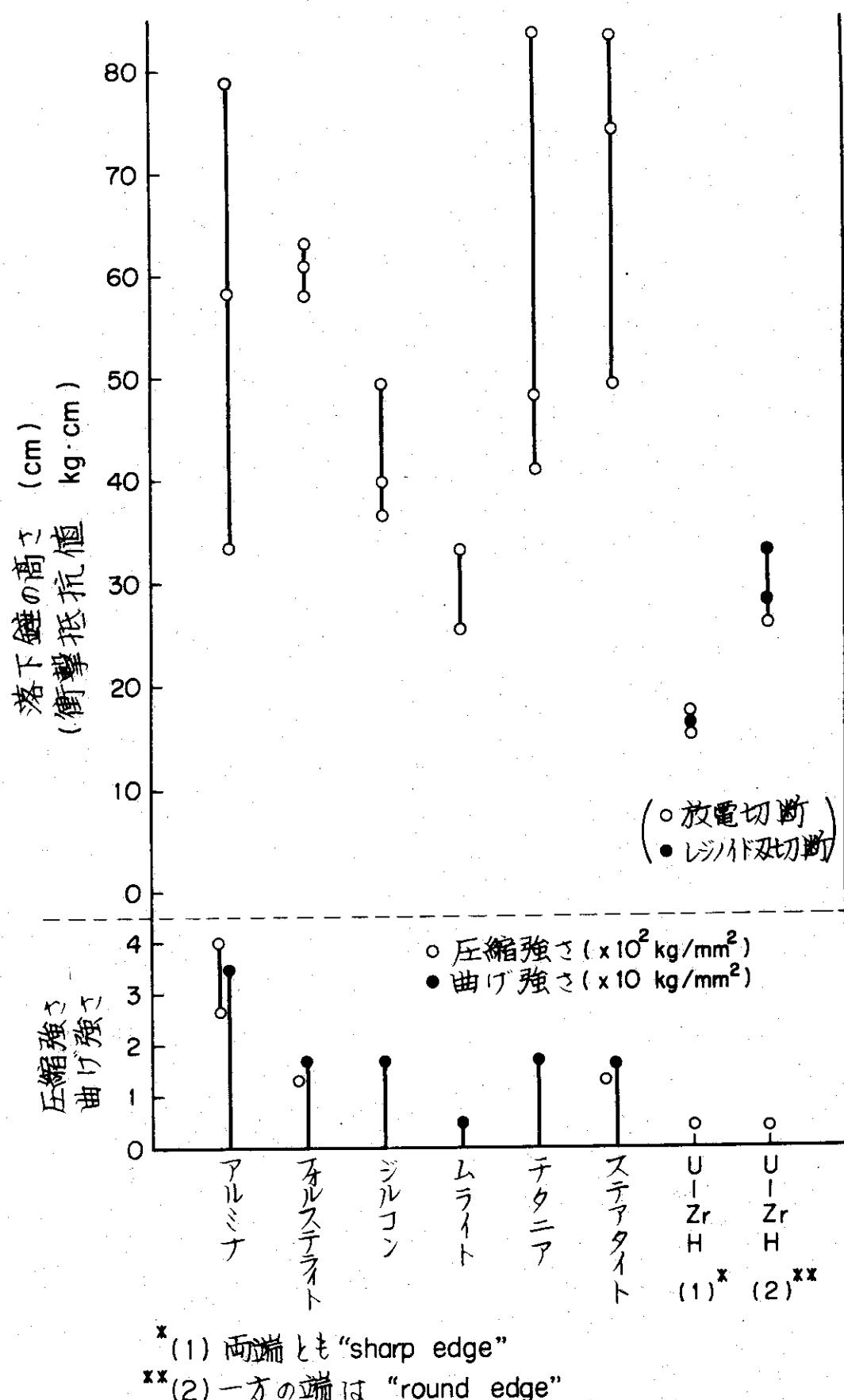
	U-ZrH _x ⁴⁾	UO ₂ ⁵⁾	SUS ⁶⁾
圧縮強さ(psi)	60,000	60,000~140,000	90,000
圧縮降伏点(psi)	35,000		30,000
引張強さ(psi)	10,000~20,000 (0~1200°F)	14,000~16,000 [*]	60,000 (400°C)
ヤング率(psi)	9.1×10^6 (20°C) 6×10^6 (650°C)	$26.5 \sim 24 \times 10^6$ (20~800°C)	28×10^6

* 破壊強度

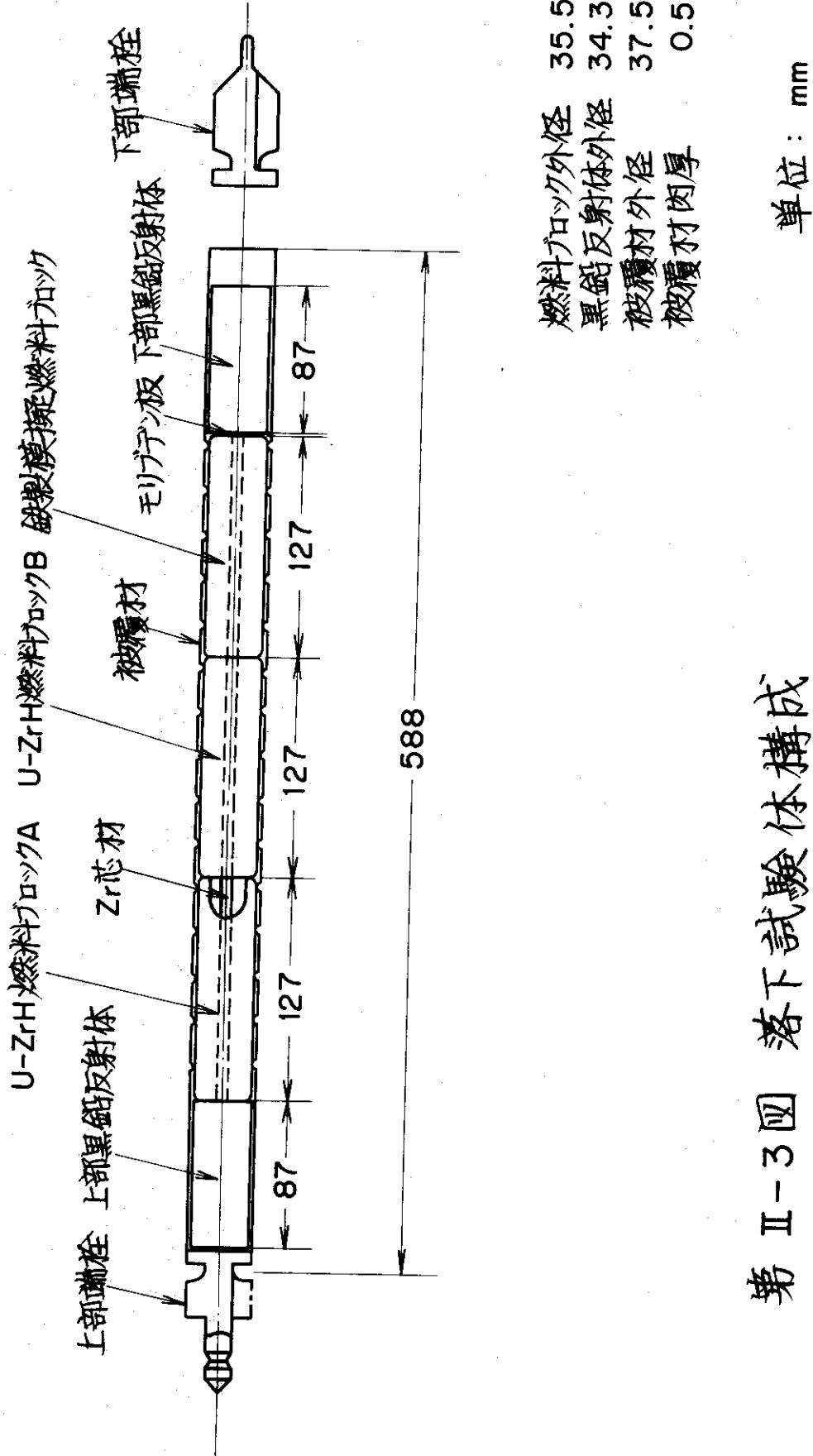


第II-1図 ページ衝撃試験機(構造図)

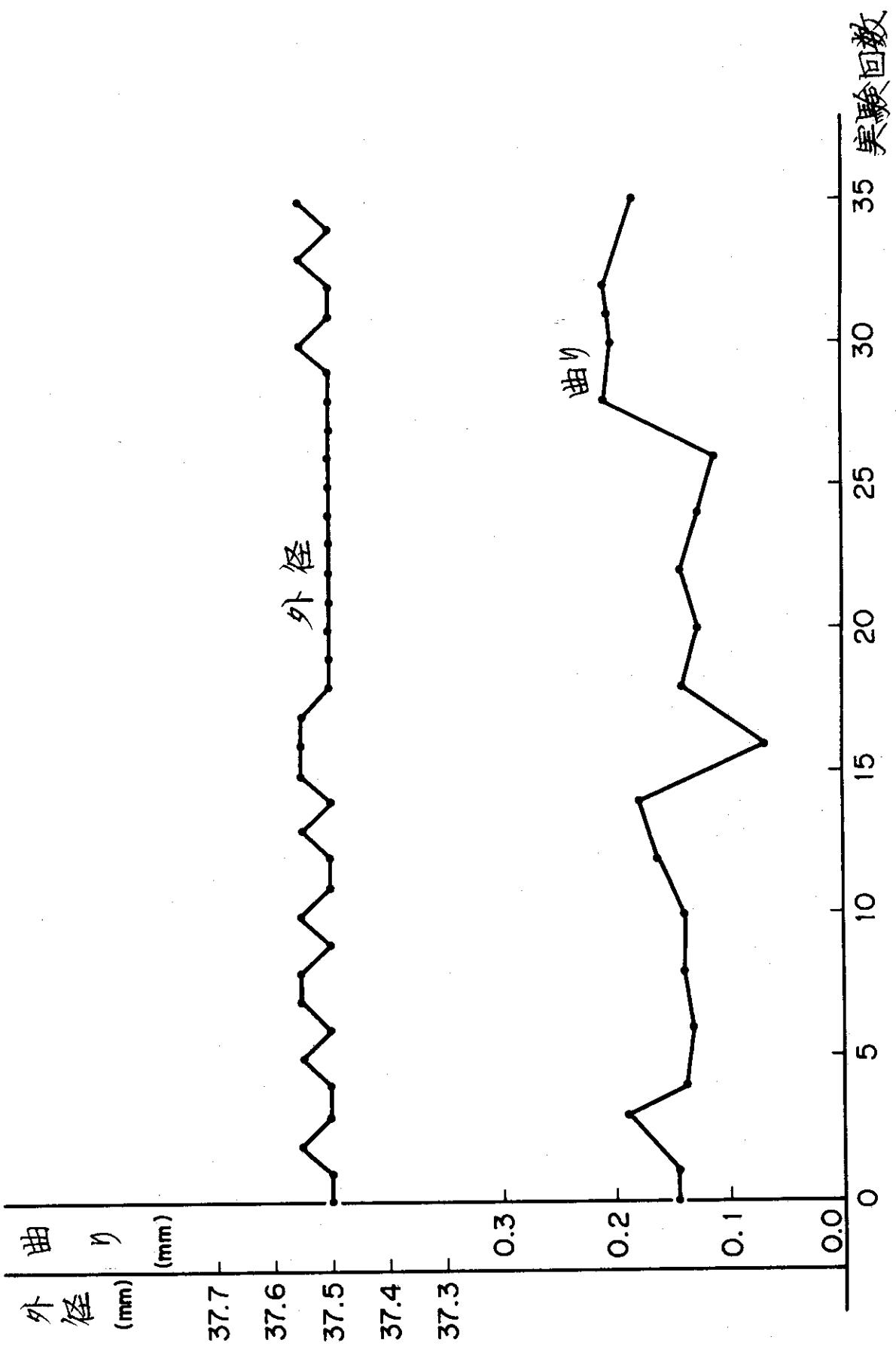
(A: 鉄床 , P: プランジャー (鋼製:重量 1 kg))
 H: 落下錘 (重量 1 kg, 落下高さ 1 cm ~ 90 cm)
 T: 試験体



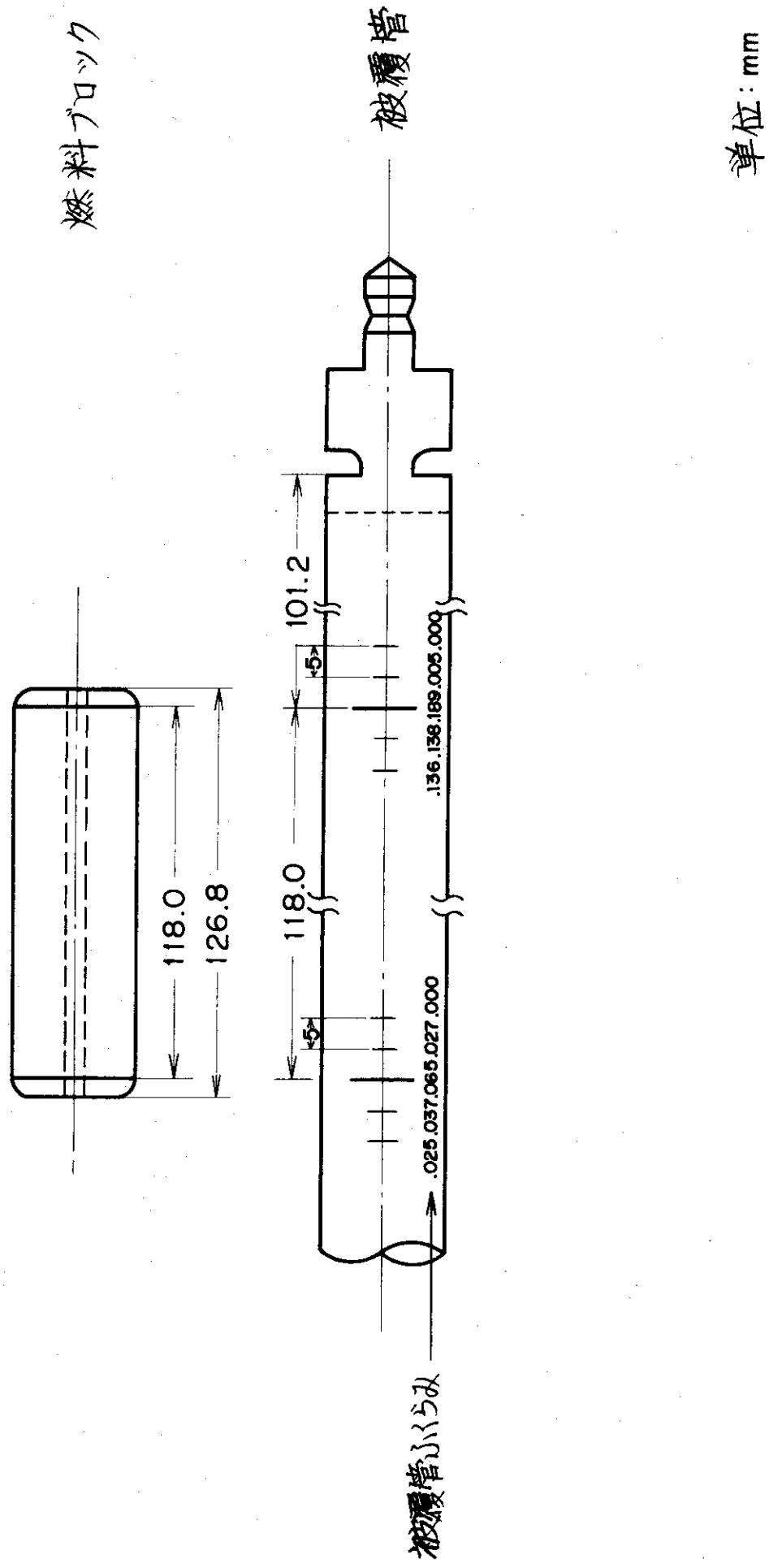
第 II-2 図 割れを生じた時の落下面の高さ



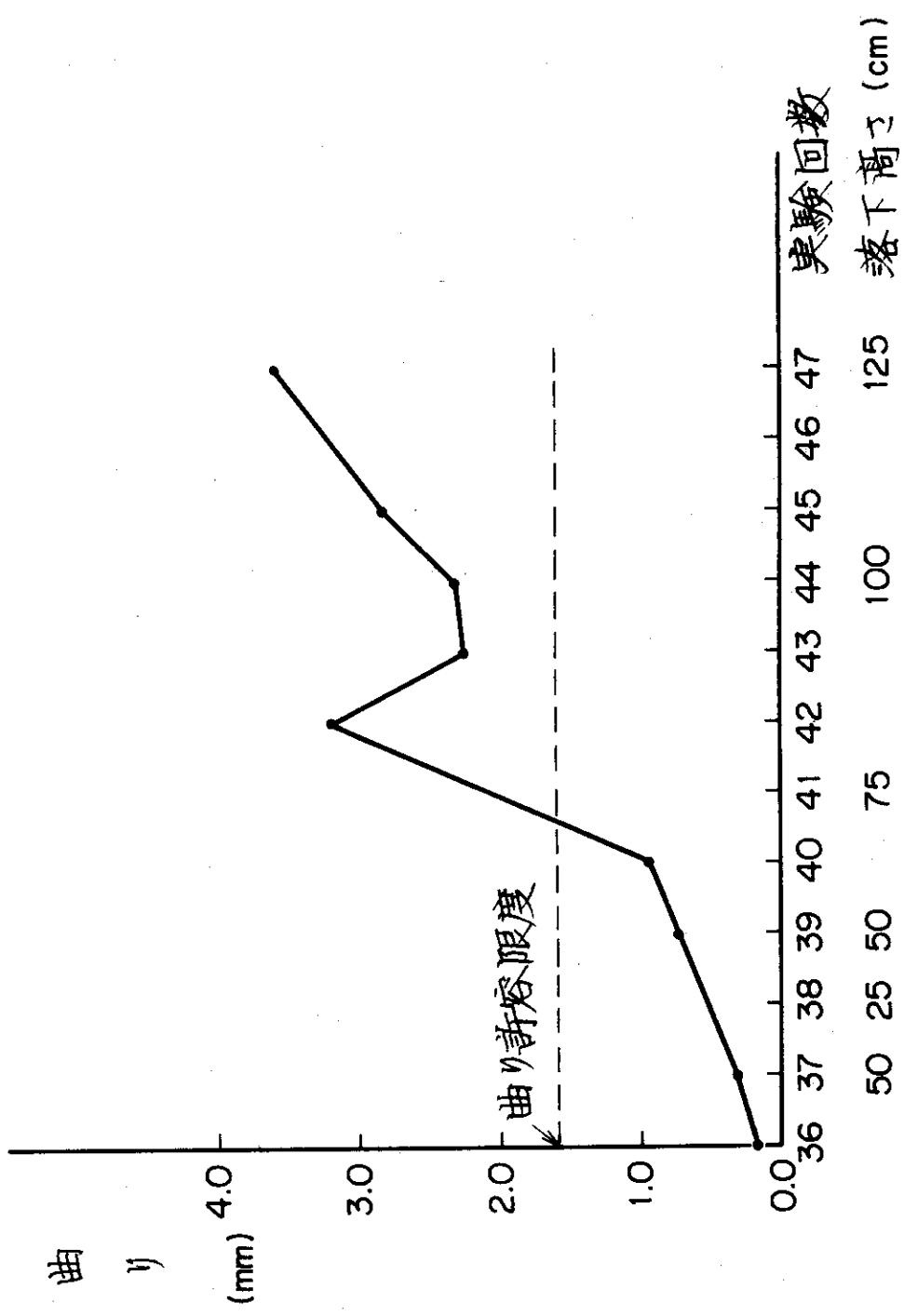
第 II-3 図 落下試験体構成



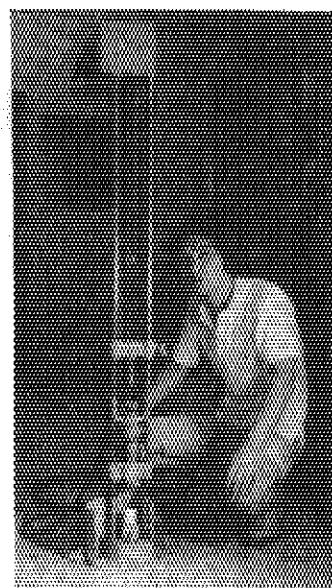
第 II-4 図 垂直落下試験時の被覆管直角度および外径の変化



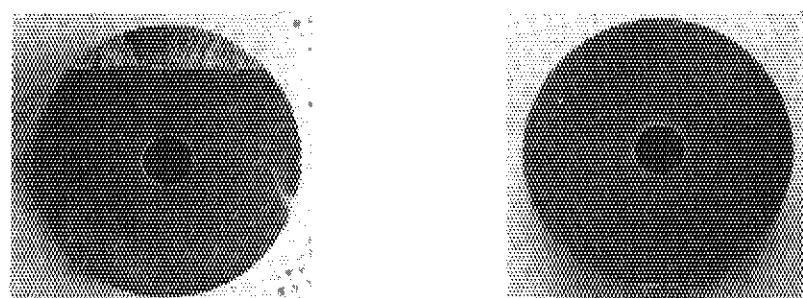
第 II-5 図 燃料横倒し試験後被覆管のかくらみ



第II-6図 水平落下試験時の被覆管真直度の変化



写真II-1 ページ衝撃試験機

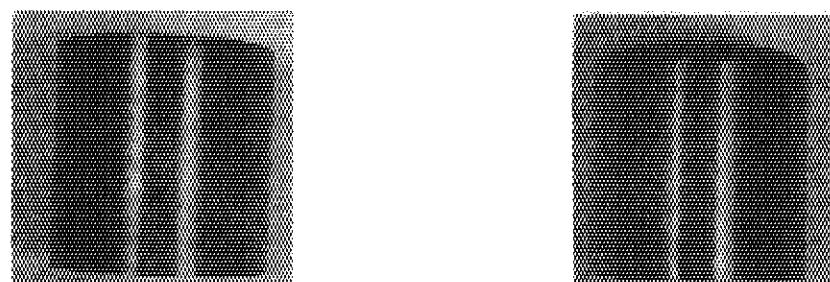


(a) マイクロ・カッター

(b) 放電切断機

写真II-2 切断機による切断面の相違

(a)のマイクロ・カッターにより切断したものには、欠け、ひびが生じている



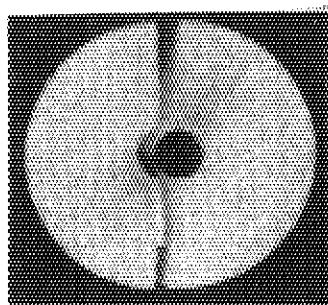
(a) 両端とも"sharp edge"

(b) 一端は"round edge"

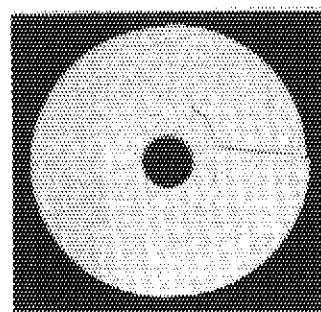
他端は"sharp edge"

写真II-3 ページ衝撃試験片(端の状態)

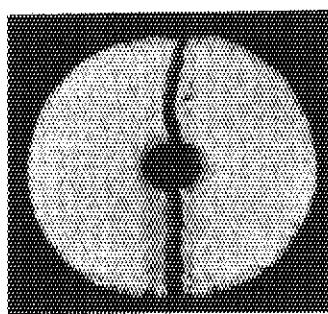
アルミナ



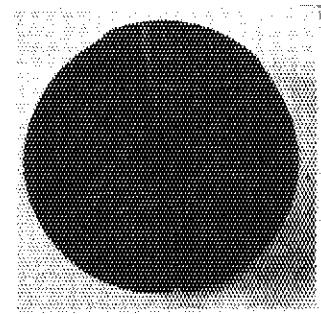
フォルステライト



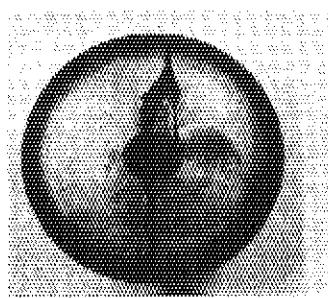
ムライト



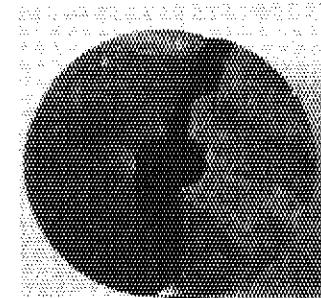
ステアタイト



U-ZrH



U-ZrH



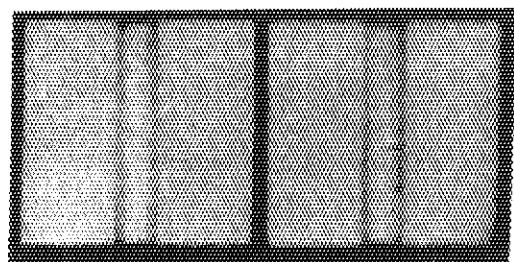
(レジノイド刃)

(放電切断)

写真II-4 a 割れの様子(上面)^{*}

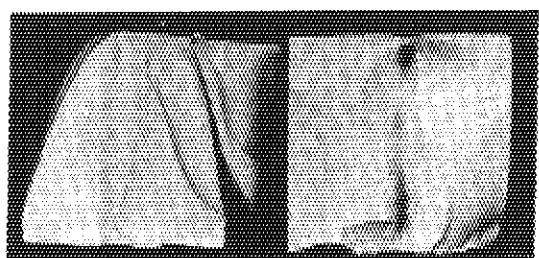
* プランジャーとの接触面

アルミナ

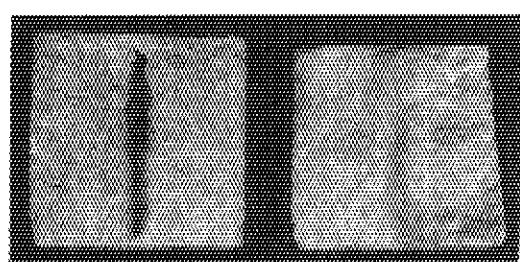


ムライト

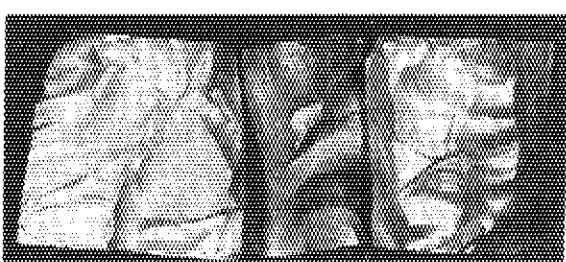
ジルコン



チタニア

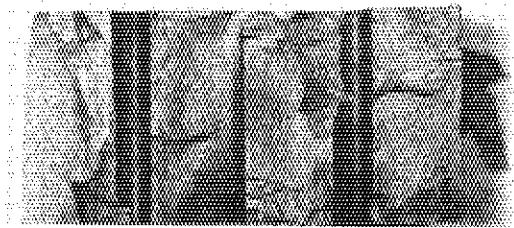
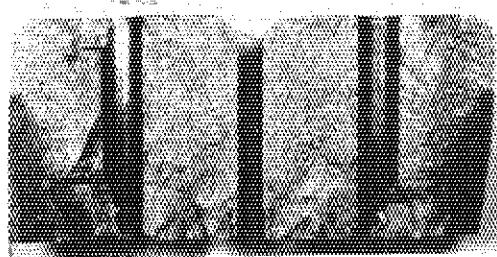


ステアタイト

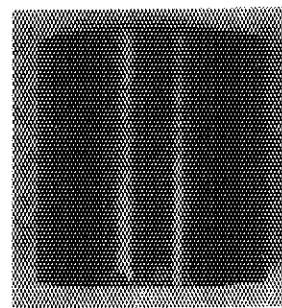


U-ZrH (レジノイド刃)

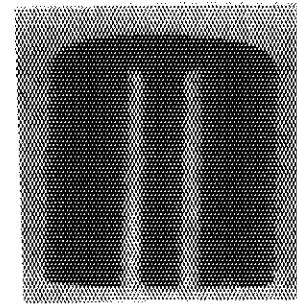
U-ZrH (放電切断)



写真II-4 b 割れの様子(割れ断面)

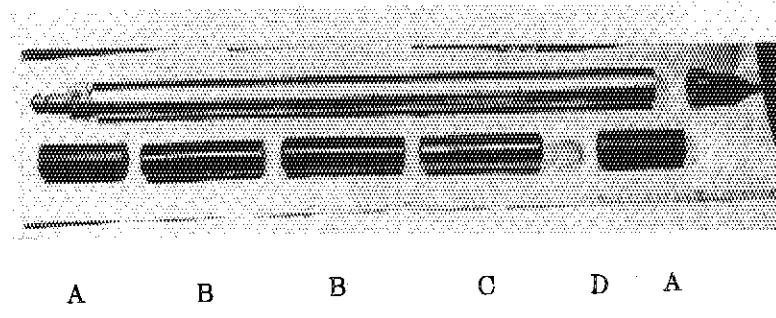


(a) 両端とも "sharp edge" の試験片



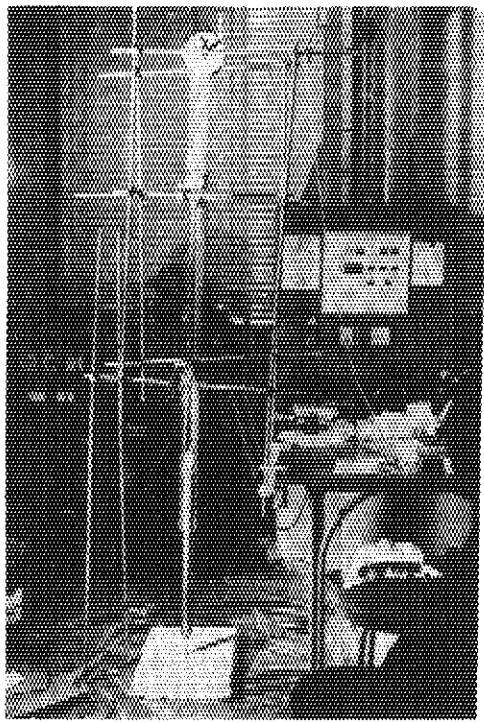
(b) 上面が "round edge" の試験片

写真II-5 機械的衝撃によって入る欠け

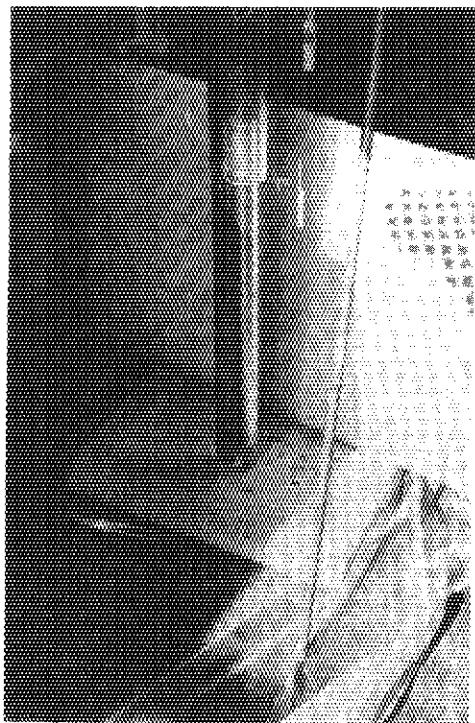


写真II-6 実物燃料落下試験体

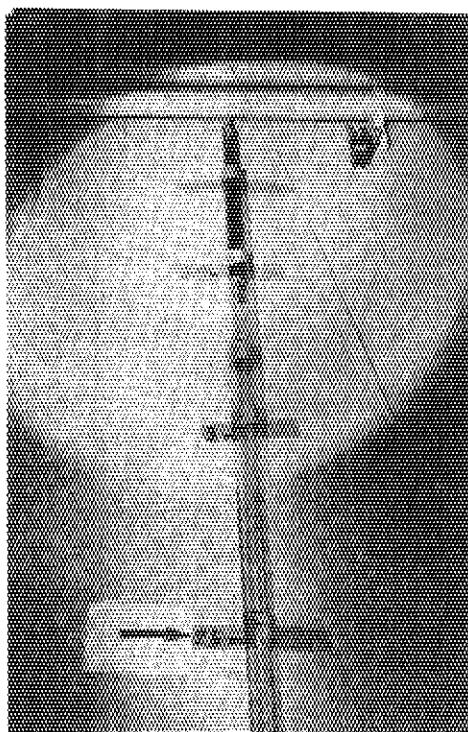
A : 黒鉛反射体
B : U-ZrH燃料ブロック
C : 鉄製模擬燃料ブロック
D : モリブデン板



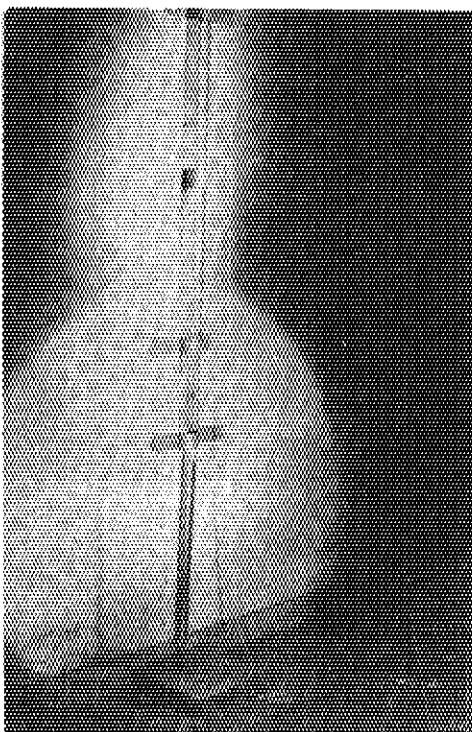
(a) 落下後, コンクリート板



(b) 落下後, コンクリート板

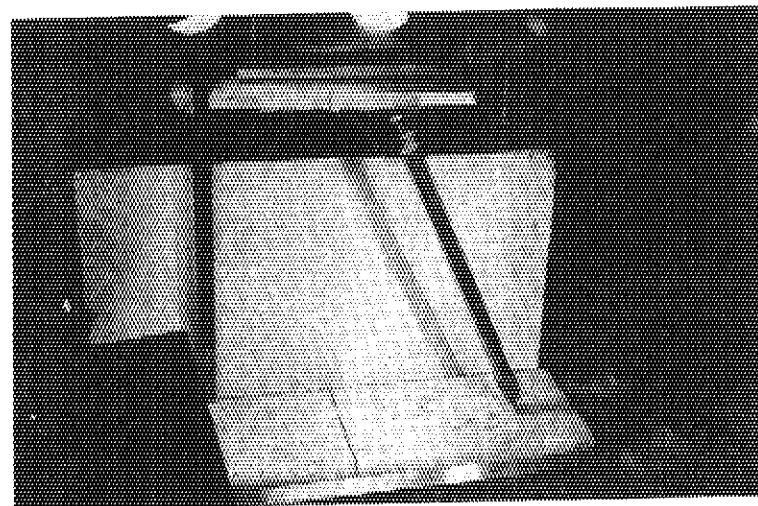


(c) 落下前, アルミニウム板 H=3.4 m

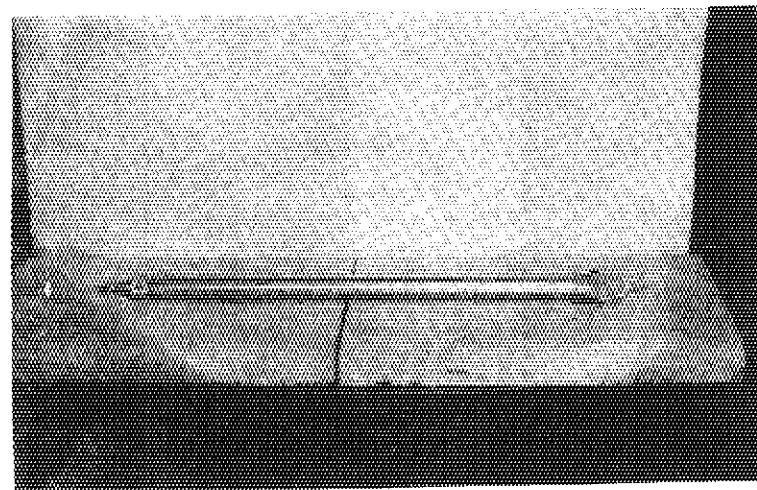


(d) 落下後, アルミニウム板

写真II-7 垂直落下試験

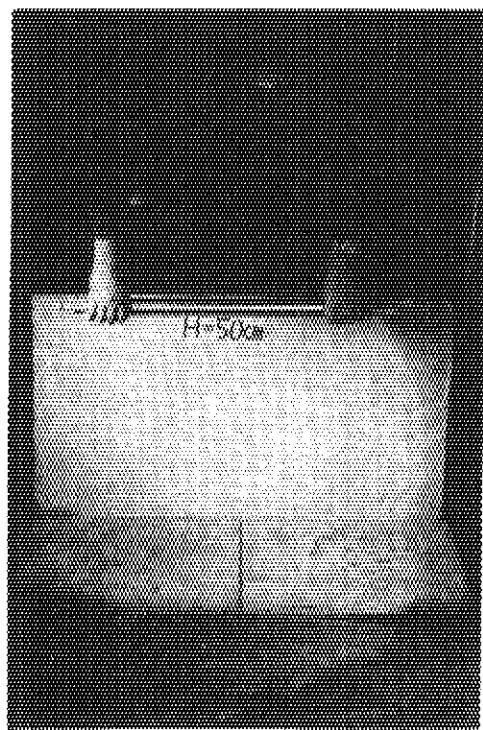


(a) 試験中

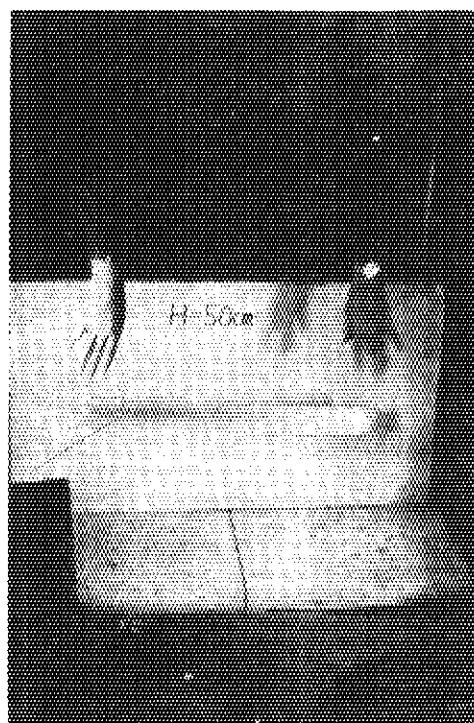


(b) 試験後

写真II-8 横倒し試験

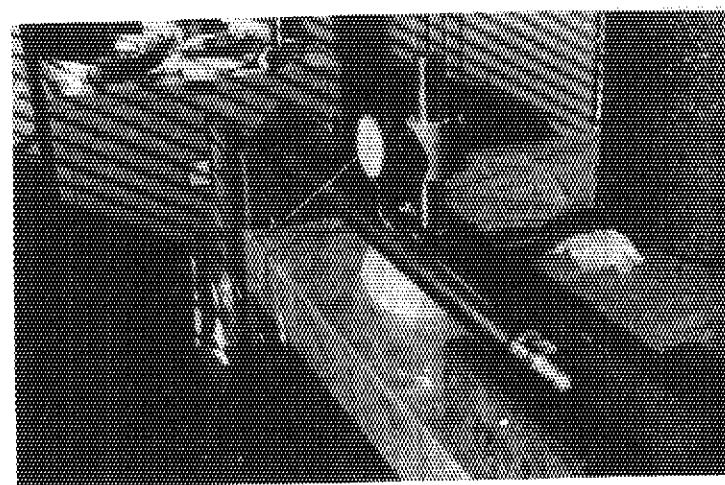


(a) 落下前, $H=50\text{cm}$

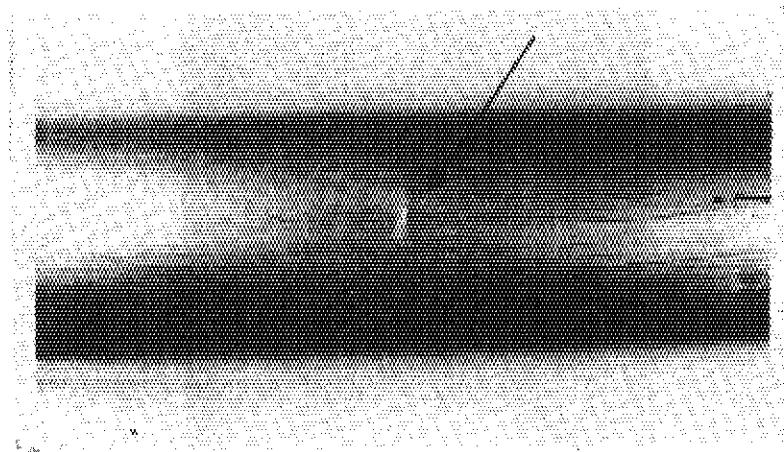


(b) 落下中, $H=50\text{cm}$

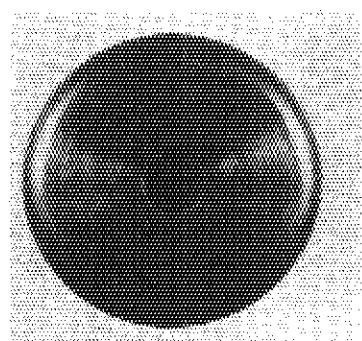
写真II-9 水平落下試験



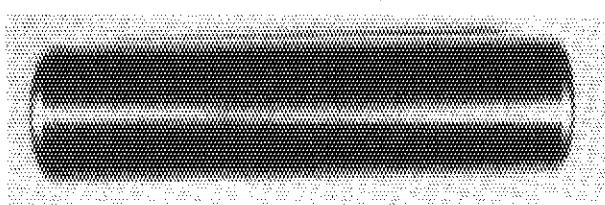
写真II-10 被覆管直度測定(ダイヤルゲージ使用)



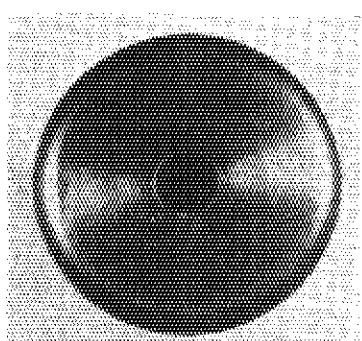
写真II-11 垂直落下試験前後の試験体



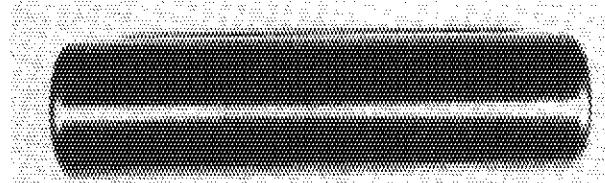
(a) 燃料ミート端面（試験前）



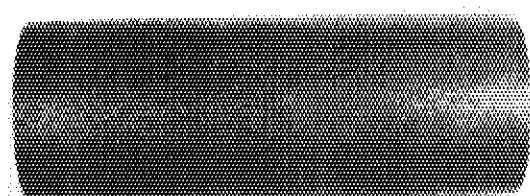
(b) 燃料ミート側面（試験前）



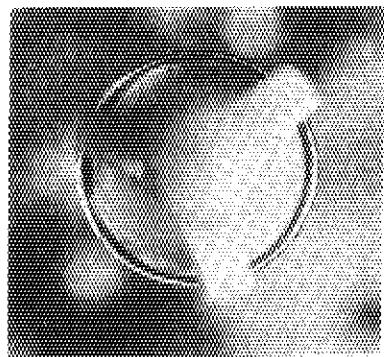
(a) 燃料ミート端面（試験後）



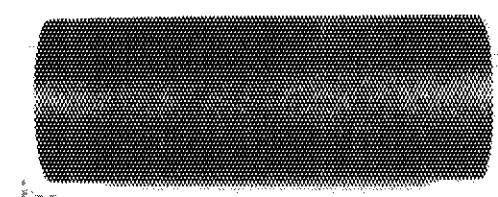
(b) 燃料ミート側面（試験後）



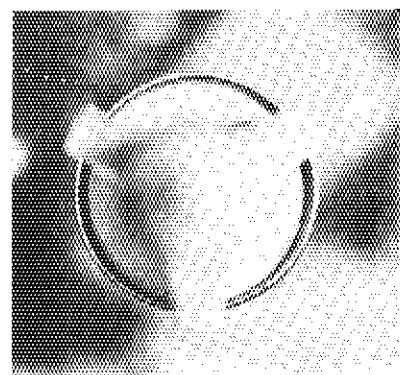
(c) グラファイト（試験前）



(d) 端栓溶接部（試験前）

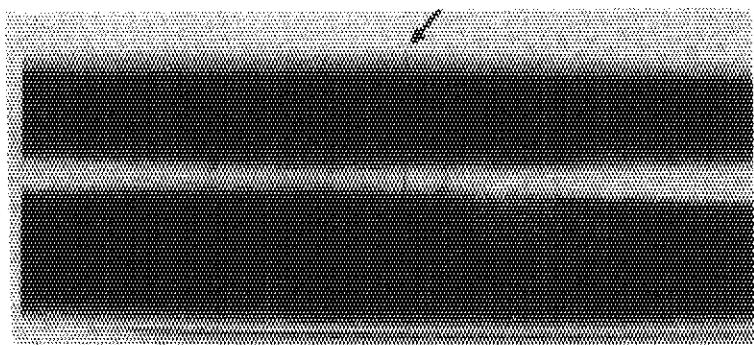


(c) グラファイト（試験後）

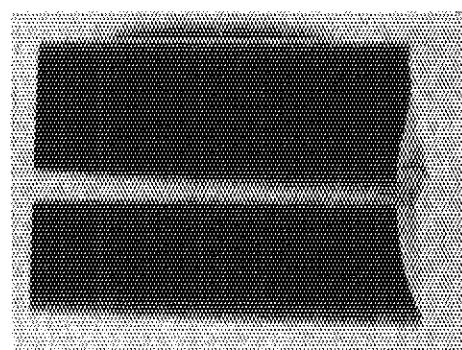


(d) 端栓溶接部（試験後）

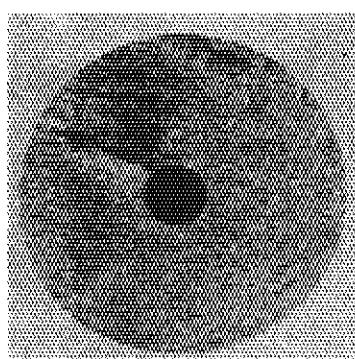
写真II-11 垂直落下試験前後の試験体



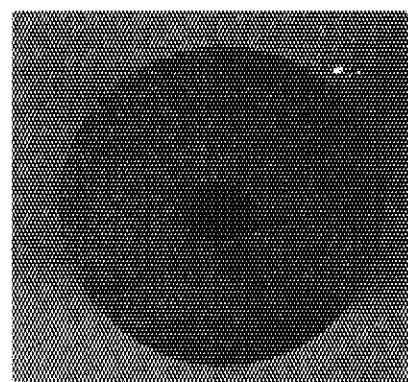
(a) 破断部



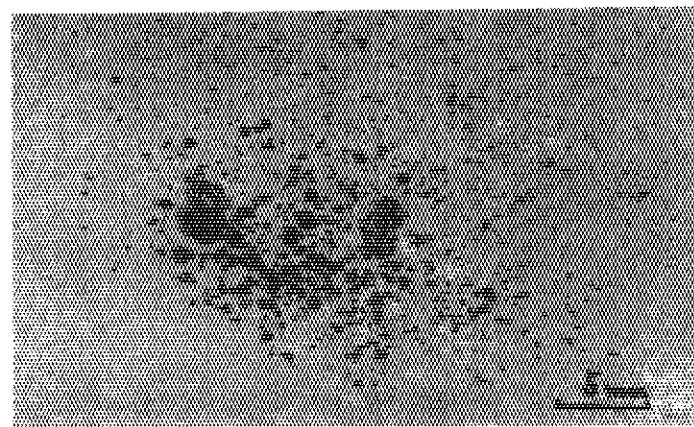
(b) 破断端



(c) 破断面 A



(d) 破断面 B



(e) 発生粉末

写真II-13 燃料ブロックB破断状況（50cmからの水平落下後）

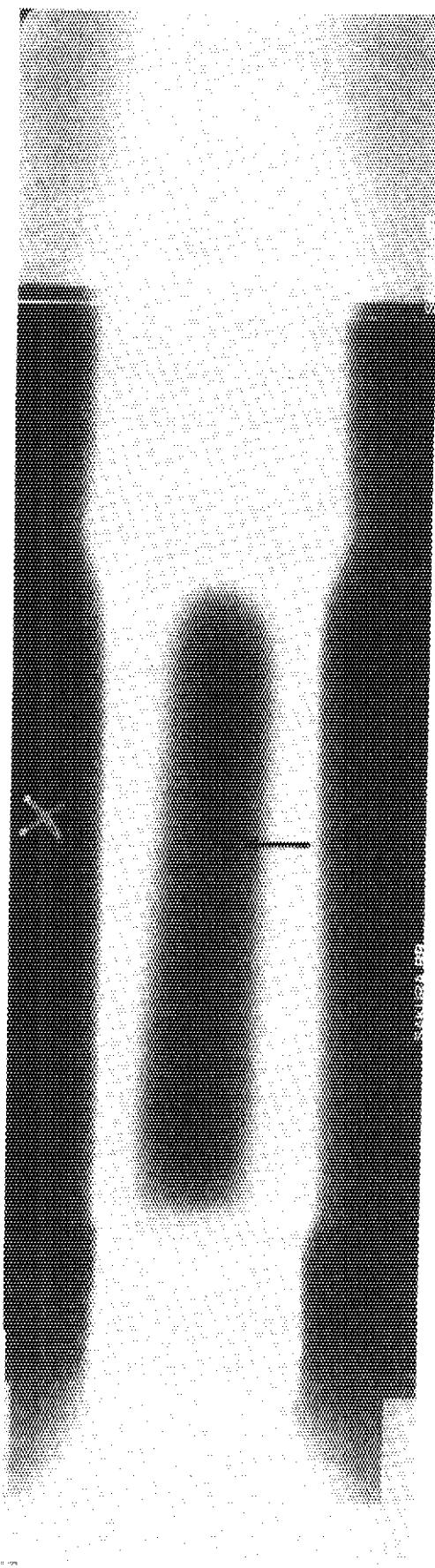


写真 II-18 燃料プロック破断部のX線写真

III 热的試験

III-1 热衝撃試験

III-1-1 概 要

NSRRの燃料体はパルス運転・定常運転において種々の熱的作用を受けるが、これらの中で熱衝撃という問題に着目してみると、実際の燃料ミートには、パルス発生直後に最も大きな温度勾配が生じ⁷⁾、それに伴いミートは熱衝撃を受けることになる。

そこで、この熱衝撃応力によってミートが変形・破損することがないか、あるいは変形・破損を生じた場合、ミートと被覆管との間隙を埋めてしまうことがないか等を調べるために熱衝撃試験を行った。

実際のパルス運転の昇温条件を完全に模擬することは出来ないので、本試験はパルス運転の直後の熱衝撃応力と同程度かそれ以上の衝撃応力を燃料ミートに与えることによって燃料の健全性の評価を行った。(発生応力値については付録II参照)

方法は、燃料ミートをオイル・バス(250°C)中から水中(室温)に急激に投入し熱衝撃を与える方法を用い、燃料ミート中の欠け・ひび・割れ等の外観検査を行った。更に、温度勾配下での水素の挙動や試験結果を幅広く解釈するために、組織観察とミート中の水素量分析も併せて実施した。

III-1-2 試験方法

(1) 試 料

直径3.6 cmの実際の燃料をジルコニウム芯棒を抜取り、厚さ約1 cmの円板(約5.1 mmの穴あき)に輪切りにしたものと試料とした。

試料の切断は、

a) マイクロ・カッター(レジノイド刃)

b) 放電切断機

により行ったが、表面の欠陥状態については、ページ衝撃試験片と同様a)のマイクロ・カッターにより切断したものには小さな欠け・ひびが切断中に生じた。しかし、この試料も欠け・ひび等の欠陥が、後の熱衝撃による破損にどのような影響を与えるかを調べるため、欠陥のあるままの状態で試験を行った。

また、端の状態による破損の相違を検討するため、本試験においても片端が“round edge”的試料と両端とも“sharp edge”的試料の両方を用意した。

(2) 試験手順

250°C、5分(シリコン・オイル)→室温、5分(水)の急熱、急冷のサイクルを試料に与え、10サイクル毎に肉眼で割れ・欠け・ひび等の発生、進展を観察した。サイクル数は、“sharp edge”を持つ試料は190回、“round edge”を持つものは100回までとした。オイル・バスおよび試料の取扱い情況を写真III-1に示す。

上記の方法で試料に熱衝撃応力を繰返し与え肉眼観察した。更に 190 サイクルまで試験した放電切断の試料については、顕微鏡観察とミート中の水素量分析を行った。(各方法については、付録Ⅲ、Ⅳに示す。)

本試験の試料、試験条件および内容は上記のとおりであるが、これらを第Ⅲ-1 表に一覧表としてまとめる。

III - 1 - 3 試験結果

(1) 外観検査

各試料の各サイクル後の代表的な外観写真を写真Ⅲ-2 に示す。

主な外観検査の結果をまとめると次のようになる。

- (i) 数 10 サイクル後から、各試料に小さな欠けが生じたが、発生場所はいずれも端部でしかも "sharp edge" のところであった。
- (ii) 試料 A (マイクロ・カッタ一切断、両端とも "sharp edge") では 170 サイクル後、試料 B (放電切断、両端とも "sharp edge") では 160 サイクル後にひびが発生し、これらのひびはサイクル数の増加に伴いやや進展したが、190 サイクルまででは割れには至らなかった。
- (iii) 試料 A に予め入っていたひび・欠けは、熱衝撃サイクルによって進展しなかった。
- (iv) 外形の寸法的な変化は全くなかった。すなわち、燃料ミートの変形は一切起こらなかった。

以上が主な外観検査の結果であるが、実際の炉の運転の場合に照らし合わせてみると、"sharp edge" に発生した欠けは、実燃料では "round edge" であり、"round edge" には欠けは生じなかった事実から考えて、問題にならないであろう。更にページ試験において "round edge" のある部分には欠けを生じないという結果および落下試験における欠けを生じないでいきなり割れるという結果から考えて、燃料ミートにひびが入り割れるということはあるても、小さな欠けが生じ、被覆管との間のギャップを埋めてしまうことはないと考えられる。次にひびの問題であるが、実際の運転条件と同じか、少し厳しい熱衝撃においては 100 サイクル以上でひびが入り、このひびが進展していることから考えて、実際の繰返しパルス運転において燃料ミートが割れる可能性があると考えられる。このひび又は割れに関する考察はⅢ-4 節考察のところで述べる。

(2) 組織観察

試料 B (放電切断、両端とも "sharp edge") について、光学顕微鏡組織観察を行ったが、写真Ⅲ-3 に見るように未試験試料と比較して組織的に大きな差は認められなかった。当初心配されたような結晶粒界の移動、水素の偏析・水素量の極端な減少といった事態は、組織写真に見る限り起こらなかったと考えられる。

従って実際の炉の運転においても熱衝撃によっては、水素の偏析・相変化・結晶粒界の移動はないものと思われる。

(3) 水素量分析

試料 B について、付録Ⅳに示す方法で水素量の分析を行ったが、その結果を第Ⅲ-2 表に

示す。

本試料の試験前の分析値は G A 社の測定によると 1.59 ~ 1.62 なので(第Ⅲ-2表中, 脚註参照), 試験前後の微量な変化はわからないが, H/Zr 比の平均値が 1.59 で, 各採取位置の値も 1.56 ~ 1.64 の範囲にあるので, 分析誤差を考えると熱衝撃試験によって, 大きな水素の逃げ, 偏析は起らなかったものと考えられる。

III-2 熱サイクル試験

III-2-1 概要

NSRR の炉心燃料ミートは, 繰返しパルス運転によって, 加熱・冷却の熱サイクルが多数回繰返され, それに伴う繰返し熱応力がミートに作用することになる。そして, この繰返し熱応力が燃料ミートの疲れ限度を越す時は, 長期の繰返し後熱疲労に至り, ミートの変形, 破損が起こる。

従って, 繰返しパルス運転によって, 燃料ミートが変形・破損することがないか, 更に被覆管との間隙が十分保てるかを確認する必要がある。

ここで, III-1節で前述したように加熱(昇温)の場合には, 加熱条件を実際の運転条件に似せることは技術上困難であるので, 同程度かそれ以上の熱衝撃応力を低温でミートに与える試験で代用した。一方, 本試験では冷却時の熱サイクルを模擬した試験を目的として遂行された。この場合, 発生熱応力は昇温時に比べると小さいが, 热応力と脆性との関連が問題になってくるのはあくまでも低温側であるので,^{8,9)} 燃料の健全性を評価する上では必要な試験である。実際の炉の運転ではミートは最高 960°C から冷却されることになるが, この時低温に比較してミートは軟化しているので, 必ずしも最高温度(960°C)から冷却する必要はなく, 脆性が問題になってくるだろうと思われる 500°C 近辺からの冷却で本試験の目的は達せられると考えられる。

その他の条件はできるだけ実際の場合に近い条件を選ぶ方が望ましいので, 半径方向に関しては NSRR の燃料要素と同じ寸法の試料を用い(長さ方向に関しては実燃料要素より短い), この試料を被覆管ごと高温の電気炉中から低温の水中に投入することによって冷却速度を炉の運転条件に似せた試験を行った。

炉を繰返しパルス運転させた時, 熱サイクルはステンレス被覆管にも発生することになり, 安全な原子炉運転のためには, この被覆管についても同様な健全性確認試験が必要である。そこで, 本試験は被覆管に着目した同様の試験も行った。

試験後の測定および観察項目は,

- i) 被覆管を通しての内部構造確認のための X 線撮影
- ii) 被覆管, 燃料ミート, ジルコニウム芯棒の外形寸法測定および外観検査
および, 水素の挙動を調べ, 結果の幅広い考察のための
- iii) 燃料ミートおよびジルコニウム芯棒の顕微鏡組織観察と水素量分析
である。

III-2-2 試験方法

(1) 試験片

第III-1図に示すような試験片をNSRR燃料要素製作会社である米国General Atomic社にて製作し使用した。

この試験片は、実際の燃料要素を輪切りにし、上下に断熱材としてアルミナを封入し、蓋をつけたものである。燃料ミートの長さは、実際のミートの半分の長さであり（実際の燃料要素は、第I-2図に示すようにこの試験片の2倍の長さのミートが3個被覆管中に収められている），半径方向に関しては実際の燃料要素と全く同じ寸法である。

(2) 試験装置

試験装置の主要部は加熱のための電気炉および冷却用の水プールからなり、電気炉には温度を一定に保つための制御器が付随しており、更に電気炉温度・水温を測定・記録できるような仕組みになっている。また、試験片の電気炉—水間の往復が自動的に行われるよう、タイマー、駆動モータ、リミット・スイッチ等が付属設備として取付けられている。これらの概念図を第III-2図および装置の主要部を写真III-4に示す。

(3) 試験条件

試験は、被覆管の健全性を確認するためのものを含めて、4個の試験片についてなされたが、各々試験条件は第III-3表に示すとおりである。

ここで、高温側温度は水中に投入する直前の燃料ミート温度で、燃料要素はここに示された温度から付録Vの付V-2図に示されるように冷却されると考えてよい。被覆材の温度はダミー試験片に熱電対を取り付け、電気炉中および水中での加熱・冷却特性を求め、この特性から実際の試験片の被覆材温度を算出したものである。また、燃料ミート温度は、この算出された被覆材温度に基づいて計算したものである。（詳細は付録Vに示す。）

(4) 試験手順

試験片を上記の装置を用いて、高温の電気炉中から、水中に投入することによって燃料ミートに熱応力を与え、これを何度も繰返すことによって、熱疲労の模擬試験を行う。試験を終えた試験片は、外観検査（外形寸法測定を含む）、X線撮影した後、解体し燃料ミートおよび芯棒の外観検査、組織観察、水素分析される。組織観察、水素分析の方法は熱衝撃試験と同じ方法である。

III-2-3 試験結果

(1) 試験片No.1（被覆管の健全性試験）

燃料被覆管は、実際のパルス運転においても、最高130°Cまでしか達しないので、¹⁰⁾本試験は被覆管に関しては、十分冷却条件を満足している（試験条件は第III-3表参照）。

外観検査の結果を列記すると以下のとおりである。

- (i) 外形寸法は被覆管の各部において、試験前と比較して変化はなかった。
- (ii) ディンブル部も明瞭であり、ディンブルがつぶれたり変形した形跡は全くなかった。
- (iii) 酸化がやや起こり、表面が褐色化したが、酸化膜の剝離といったことはなく、この褐色部分は乾式のバフ研磨をすることによって簡単に取れ、金属光沢が現われた。

(IV) 腐食(酸化)の程度は、上部端栓のところで最も著しかったが、これは上部端栓の凹部のところに水がたまり、電気炉中でこの水が蒸発するため、他の部分に比較して水蒸気酸化が多く起こったためと考えられる。しかし、端栓部に穴があき、内部に発生する水素ガスがリークするといったことはない程度の酸化であった。また、この端栓部は実際の炉の運転では、100°Cよりはるかに低いので(最高でも70°Cと推定される⁷⁾)、端栓部が実際の炉の運転で水蒸気酸化することはない。

(V) X線撮影の結果、内部の燃料ミート(および断熱材)と被覆管との間隙は十分に保たれていることが確認された。このことは、試験片を上、下した時燃料ミートがスムーズに上、下することによっても認められた。

以上の結果、燃料被覆材は1000サイクルまでの熱サイクルでは十分健全で燃料との間に十分なギャップ幅が保てる(燃料が健全ならば)との結果が得られた。

(2) 試験片No.2(低温の高サイクル熱疲労試験)

本試験では、燃料ミート健全性確認を目的としたものであるから被覆管については詳しい観察を行わなかったが、被覆管は相当酸化し、特に上部端栓部の腐食は著しかった。しかし、試験中は健全に燃料ミートを被覆し、内部に水が入るといったことはなく、内部で発生した水素ガスもリークすることはなかったと推察される。

本試験は、約500サイクル時に燃料ミートの外観を調べるために、519サイクル後に被覆管より取り出し、外観検査後、再び同じ被覆管中に封入した(この際、端栓は新しいものに取換えた)。

(i) 外観検査(519サイクル後)

燃料ミートの表面は、解体直後真黒になっており、アセトン洗浄によってこの黒色の部分が取れ、暗緑色の部分が現われた。これは、表面が薄く酸化し、その酸化膜が取れたためと思われる。

ミートの表面に欠けは全くなく、ミートの外形寸法も設計仕様寸法内であった(GA社で製作したため試験前の寸法は不明)。また、被覆管とミートの間のギャップ幅も十分であった。

しかし、表面を詳しく観察すると、それ程深くないひびが3箇所発生していた。このひびは欠けが全くなく、機械的衝撃が与えられた形跡もないで熱的作用によって発生したものと考えられる。機械的衝撃試験の結果では、燃料ミートにはひびが入ることなく、いきなり割れもしくは欠けが生じるので、このことからも本試験のひびは熱的作用によるものと推察される。

これらのひびのうち代表的なものの状況を写真III-5aに示す。

(ii) 外観検査(1015サイクル後)

燃料ミート表面は519サイクル後同様、黒色化しており、これはアセトン洗浄によつてもほとんど取れなかった。519サイクル後と比較して更に酸化が進行したためと考えられる。

表面の欠けは全くなく、外形寸法も519サイクル後と比較して変化はなかった。また、被覆管とのギャップ幅も十分であった。

ひびに関して記述すると、519サイクル後に認められたひびはやや進展し、深さも肉眼観察では1mm以下であろうと思われるが深くなっていた。また、新たなひびもいくつか存在し、これらのひびも519サイクル後同様熱的作用によるものと思われる。

これらのひびのうち代表的なものの状況を写真III-5b, cに示す。

(iii) ジルコニウム芯棒外観検査

芯棒は、酸化して暗青色を呈していたが、寸法的な変化は全く認められず、欠け・ひび・割れ等は全くなく外観的には健全であった。

以上の外観検査の結果をまとめると次のようになる。

燃料ミートには熱的作用(繰返し熱疲労)によってひびが入り、これらのひびは繰返しの回数が増えてくるにしたがって進展し、更に数も増えてくる。しかし、1000サイクル程度では、深さも1mm以下でこれらが直ちに割れに至るとは考えにくい。そして、燃料ミート自身の変形や、欠けがないことから被覆管とのギャップを埋めるといった事態は避けられるものと考えられる。

本試験片については更に組織観察と水素量分析を行ったが、この結果については(5), (6)で他の試験片と一緒に取扱う。

(8) 試験片No.3(高温の中サイクル熱疲労試験)

本試験は燃料ミート温度を約600°Cの高温から冷却した場合の熱疲労を調べる目的で実施し、1000サイクルまでを目標としたが、上部端栓部の蒸気腐食が激しく起こり、端栓部が剥離してしまったので、高サイクル試験は不可能となってしまった。しかし、前述したように実際の運転では、端栓部は高々70°Cどまりであり、被覆材自身の健全性は試験片No.1で実証すみであるので、この剥離という事態自身は、これだけでは燃料要素の健全性を否定することにはならない。

したがって、ここでは燃料ミートの高温での熱疲労試験の観点から結果について記載する。
(端栓部の剥離は130~216回の間で起こり、正常に試験が行われたサイクル数もこの範囲にあるということだけで正確な回数はわからない)

(i) 燃料ミートの外観検査

ミートの表面に欠けは全くなく、ミートの外形寸法も設計仕様寸法内であった。また、被覆管とミートの間のギャップ幅も十分であった。

しかし、試験片No.2と同じようなひびが2箇所入っており、かなり深いものであった。このひびの状況を写真III-6に示すが、これを試験片No.2と比較すると、中央の芯棒に入る穴のところまで続いていること、側面でみると口を開いたように大きく、深いひびであること、軸方向だけではなく周方向にも入っていることなどが特徴としてあげられる。

これらのひびも熱的作用によるものと考えられ、本試験では割れには至らなかったものの、サイクル数の増加に伴い、割れに至る可能性は十分ある。しかし、ひびは入っても欠けは皆無であり、ミート自身の変形も認められなかったので、本試験のサイクル数程度では直ちに燃料の安全性に影響を及ぼすほどのものではないであろう。

(ii) ジルコニウム芯棒の外観検査

表面の酸化は認められたものの、外形的には異常はなかった。

本試験片についても組織観察と水素分析を行ったが、これらの結果は(5)、(6)に示す。

(4) 試験片 No.4 (高温の低サイクル熱疲労試験)

本試験は、試験片 No.3と同じ目的で開始されたが、同様の理由で90サイクルどまりとなってしまった。被覆管の温度は第III-3表に見られるように、約700°Cの高温に至ったので被覆管の変形が起り、アルミナ断熱材と強く接触し、腐食も相当進行したのでこれ以上の試験続行が不可能となったものである。

したがって、ここでも(3)の試験片 No.3の場合と同様、燃料ミートだけに着目した高温低サイクル熱疲労試験ということで結果を述べる。

(i) 燃料ミートの外観検査

ミート表面の外観は全く無傷で、欠け・割れ・ひびなどの欠陥は全く無かった。また寸法的にも設計仕様寸法どおりで変形なども起きなかつた。

被覆管とのギャップ幅は、被覆管が変形してしまったために小さくなり、場所によっては強く接触しており、被覆管から取出す際苦労を要した。しかし、燃料ミート自身の変形は全く無かつたので、もし被覆管が健全であったならば十分なギャップ幅が保たれていたものと推察される。

燃料ミートの温度に関しては、試験片 No.3とほとんど変わらないので、この No.3の結果と併せて考えると次のことが結果としていえるであろう。

約550°Cからの冷却サイクルを燃料に与えた場合、100サイクルぐらいまでは外観に異常がなく、ひびなどが入ることはない。しかし、サイクル数が増えてくると(約150サイクル)変形はないが、ひびが生じてくる。そしてこのひびはより高いサイクルになると進展し、大きなひびになってくるであろう。

(ii) ジルコニウム芯棒の外観検査

ジルコニウム芯棒は、約5%（軸方向に約3mm、半径方向に約0.3mm）膨脹し、上部アルミナ断熱材を押上げており、そして上部において大きな割れが入っていた（写真III-7参照）。これは、ジルコニウム芯棒が燃料ミートから発生した水素ガスを吸収し、水素化したために体積の膨脹が起り、それに伴い割れが発生したものと考えられる。更に割れを促進する可能性として、ジルコニウム芯棒が断熱材を押上げたことにより応力が作用したことなどを挙げることができる。また、追加実験として、ジルコニウム芯棒のみを真空の石英ガラス管に封入し、同じ熱サイクルを与えたところ、芯棒の外観に変化はなかった。このことは、ジルコニウム芯棒が単なる熱的作用によって、伸びたのではなく、水素化という過程が入ったため体積膨脹が起きたということを示している。これに関する詳しい考察は、組織観察・水素量分析の結果とも関連してくるので後述することにする。

燃料ミートおよび芯棒の組織観察および水素分析の結果については、次項以下に他の試験片の結果と併せて記述する。

(5) 頭微鏡組織観察

試験片 No.2～No.4の3つの試験片および熱的試験を行っていない試験片の燃料ミートとジルコニウム芯棒についての頭微鏡組織観察を行った。

ミートの結果を未試験のものも含めて写真Ⅲ-8に示す。これによると未試験のものと比較して組織的にはそれ程大きな変化が見られなかった。但し、試験片No.3のものは結晶粒が少し小さくなっているようであるが、多分再結晶が起こり、完全に粒成長をしていない状態のためと思われる。

以上のことにより、熱サイクルにより水素の逃げ・偏析といったことは生じないであろうが、高温になると再結晶→粒成長といったことが起こるので実際の炉の運転の場合、燃料ミートは結晶粒界の移動する可能性があり、応力の存在下では変形・損傷といった事態も起こり得ると推定される。

次に、ジルコニウム芯棒の組織写真を写真Ⅲ-9に示す。これによると、試験片No.4以外は組織的には全く変化していないようである。No.4は高温低サイクル試験片であるが、明らかに水素を吸収しており、水素化物の相が現われている。偏光をかけての観察でも偏光の効果はなく、このことは、このNo.4の芯棒がα-ジルコニウム（稠密六方晶系）でないことを示している。外観検査や後述する水素量分析結果から、この芯棒は多量に水素を吸収してδ相になったことが判明したが、実際の炉の運転条件を考えた時、やはり芯棒は水素を吸収してδ-ジルコニウム水素化物になると考えられる。

(6) 水素量分析

試験片No.2, 3, 4についての水素量分析結果をミートに関しては第Ⅲ-4 a表に、芯棒に関しては第Ⅲ-4 b表に示す。

この結果より、試験片No.2については、分析誤差範囲内でミート中の水素量に変化はなく、均一分布をしているといえる。また芯棒は燃料ミートから発生する水素を吸収しなかったことが判った。

次に試験片No.3においては、ミート中の水素量が著しく減少している。この理由としては、本試験片は上部端栓溶接部の剥離が起った試験片であるので、試験中途においてはピン・ホールのような小さい穴があいている時期があった筈で、この時期にこの穴を通しての水素の逃げがあったためであると考えられる。従って、本試験片中のジルコニウム芯棒が水素を吸収しなかった理由としては、水素の逃げが起こり、試験体中には予想されただけの水素圧がなかったことの理由が挙げられるであろう。

最後に試験片No.4についての結果をまとめると次のようになる。試験片中の芯棒は水素を吸収し、その量がH/Zr比で燃料ミートとほとんど同じ値になるまで吸収し続けた。従って、当然燃料ミート中の水素量は芯棒に吸収された分だけ少なくなる。もし、芯棒がH/Zrでミートと同じ値になるまで水素を吸収したとすると、初期のミート中のH/Zr比が1.66(GA測定値)の場合、吸収後の両者の値は、1.61となる。この値を本試験後のミート中の値1.58と比較すると、実験誤差内で一致していることになる。(付録IVに示してあるように本分析値の標準偏差は水素比で±0.02であり、更にGA測定値より約0.02程度低くでている。)

III-3 水素の移動および透過試験

III-3-1 概要

N S R R の熱的な問題は熱歪（又は応力）と水素の移動であるが、もし既述の熱サイクル試験の条件を選ぶ時に技術上の制約がなければ、熱サイクル試験のみで水素の放出の問題も同時に調べることができる。しかし被覆管（その中でも特に溶接部）の腐食のために熱サイクルの温度幅を余り大きくとることができず、このため水素放出の試験を別に行つた。

水素の放出は燃料ミート中の水素量減少をもたらし、H/Zr 原子比が 1.4 を下回ると高温での相変態のため、ミートの変形・破損が起こる可能性がある。従って、本試験は、実際の運転条件より 20 倍以上苛酷な条件で水素リーク試験を行つた。（付録 IV 参照）

水素の放出はステンレス被覆管中の水素の透過過程が律速していると考えられるので、N S R R 炉の運転条件と既報のステンレス鋼中の水素の透過度から試験条件を決定した（付録 VI 参照）。また、この実験においても被覆管の腐食を避けねばならないので、試料の加熱は真空中で行つた。

III-3-2 試験方法

第 III-1 図に示すような熱サイクル試験に用いたものと同じ試料を用い、600°C の真空炉で加熱を行つた。試料は約 30 分で 600°C に昇温され、30 時間保持後炉冷された。真空度は昇温中は約 5×10^{-5} mmHg であったが、600°C 到達後は $2 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-5}$ mmHg に保持された。加熱試験後ステンレス被覆管は金属光沢をしていた。

試験後、被覆管は解体され、第 III-5 表補足図に示すミート中の位置の水素含有量が分析された。また燃料ミートおよび芯棒の組織も観察した。

III-3-3 試験結果

加熱試験後の水素分析結果を第 III-5 表に示す。表中の試験前の分析は G A 社で行ったものであるが、本分析結果と比べると、試験後の水素量はやや少な目にでているようである。しかし、付録 IV に述べられているように、この差は分析法の違いあるいは分析誤差によるものと考えた方が良いようである。更に、場所による水素量の違いも測定誤差範囲内であり、その差はない見るのが妥当であろう。

また、リーク試験後ジルコニウム芯棒の水素分析も行つたが、含有量は検出感度 0.01 wt% 以下であった。

リーク試験後の燃料ミートおよび芯棒の組織を写真 III-10 に示す。燃料ミートの組織は試験前と変わったところは見られないが、芯棒には粒界に沿つた割れが各所に認められる。原因については十分な解析を行わなかつたので不明である。

III-4 考察

パルス運転の時、燃料要素に大きな熱応力が発生すると考えられるが、パルス運転の温度勾配を炉外試験で完全に再現して燃料の健全性評価を行うことは不可能である。しかし、III-1 節、III-2 節で述べた熱衝撃、熱サイクル試験はパルス運転時の燃料の温度分布を部分的に再

現しており（又はそれ以上の厳しい温度勾配になっており），下記の理由と相まって熱的な問題に対する燃料の健全性評価が可能と考えられる。

- (a) 燃料ミート中の温度勾配が最大になるのは，パルス発生直後の昇温時であり，最大パルス時には燃料ミートは第Ⅲ-3図に示すような温度変化・温度分布を持つ。この図より，ミートは一瞬の間に全体が700°C以上になり，約0.1 sec後に最大の温度勾配を持ち，それ以後ではミート温度は均一な方向に向かうことがわかる。（尚，0.1 sec以前には，ミートには余り大きな温度勾配は発生しない。⁷⁾）一方，熱衝撃試験ではパルス運転時の最大熱衝撃応力と同程度かそれ以上の応力を発生するが（付録Ⅱ参照），この場合は250°C以下なので脆性との関連がより深くなる。従って，本試験では温度および応力の両方とも実際の運転より，より厳しい試験条件となる。
- (b) 熱サイクル試験の冷却時はパルス運転の降温の後期に温度勾配が似てくるが，U-ZrH_{1.6}燃料は低温になる程脆くなるので，低温側で条件が似てくるのは都合が良い。また，水素リーク試験に関しても付録VIに記したように20倍以上厳しい試験条件となっている。但し，ジルコニウム芯棒の水素化による体積変化の影響はパルス運転の条件の方が厳しいので，この点のみは十分な注意を払った考察が必要である。

以上のような条件で熱的試験を行ったが燃料の健全性を評価する上で問題になってくるのは次の項目である。

- (i) 被覆材の変形・破損
- (ii) 燃料ミートの変形・破損
- (iii) 燃料ミート中の水素の被覆管を通しての逃げおよびミート内の水素の挙動
- (iv) ジルコニウム芯棒の影響

以下この順序に各項目について，実際の炉の運転条件と対比させながら健全性の評価を試みることにする。

(1) 被覆材の変形・破損

被覆材に関しては，実際のパルス運転で上がると思われる最高温度以上の150°Cからの急冷熱サイクルを1,011サイクルまで行ったが何ら異常は認められなかった。実際のパルス運転では，被覆管表面温度は最高130°Cまで上昇し，その後プール水温も上昇することもあってかなりゆっくり冷却されることになる。¹⁰⁾ 従って本試験では冷却条件に関しては，実際の冷却条件以上苛酷な試験をしているので，実際の運転においても冷却サイクルによっては被覆材は十分健全であると思われる。昇温（加熱）の場合，炉外で模擬実験することは不可能であるが，実際のパルス運転では約1秒後に130°Cに達し，被覆管の内外壁温度差は最高でも15°C程度⁷⁾なので熱応力としてはそれ程大きくななく，本試験で生じたと思われる熱応力以下であると推察される。

更に，高速中性子照射量が燃料使用期間を通じて 1×10^{19} nvt程度で，そのため被覆管はかなり韌性を残していること，被覆材のSUS304は，200°C以上で熱処理していると思われる（詳細はGA社製作のため不明）ので，150°Cの熱サイクルでは，組織的にも変化がないこと等から，被覆管自身は燃料ミート等の相互作用を受けない限り，全使用期間を

通じて健全であると推論される。

(2) 燃料ミートの変形・破損

燃料ミートは本試験において、ひびが発生する以外は変形・破損等の事態に至らなかった。当初、懸念された燃料ミートに小さな欠けが生じ、被覆管との間隙を埋めてしまうのではないかという事態は、本試験に関する限り全く認められず、機械的衝撃試験およびその他GA社等の報告においても、この小さな欠けの発生は起きていないので、実際のパルス運転でもこの問題はないと考えられる。

次に変形・割れの問題について考察する。U-ZrH_x燃料体は温度上昇に伴って水素を放出し、平衡圧力状態を保つ。TRIGA型燃料の内圧限界は約100kg/cm²といわれ¹¹⁾、これに相当する平衡圧力の温度は第I-4図より約1200°Cである。従って、燃料の破壊は熱衝撃応力以外にも水素の平衡内圧が関係してくる可能性がある。TRIGA型燃料の使用経験では、稀に膨脹等の変形や割れ等が見られるが、これらの中にはI-2節に述べたように燃料体が1200°C近辺（局部的には、1200°C以上になっている部分もあると思われる）にまで達し、この平衡水素圧が原因であると考えられるのが幾つかある。

燃料の変形・破損には、上述した平衡水素圧によるもの以外、急激な温度勾配に伴う熱衝撃およびその繰返しによる熱疲労によるものが考えられる。そして、これらの原因による変形・破損は平衡水素圧と違って脆性が問題となる低温側でより顕著になってくると思われる。U-ZrH_xの機械的性質について温度をパラメータにした試験は比較的多くなされており、いずれも温度は機械的性質に正常な効果を与えていた。^{8), 9), 12), 13), 14)} 例えば、SNAP4燃料の引張試験の結果、427°C(800°F)以下では燃料は0.2%の伸びを生じる前に破断し、538°C(1000°F)では約0.65%の破断伸びを示している。⁹⁾ その他短時間の衝撃引張試験の結果でも同様の結果が得られている。⁸⁾ 従って、低温側での熱衝撃および熱サイクル試験は、燃料ミートの脆性と熱応力の関連を調べる上では有益な方法であると思われる。

本試験においては、低温での熱衝撃、熱サイクルによる変形・破損の有無を調べたが変形は全く無く、ひびが入った程度にとどまった。ひびの発生については、ほとんど温度条件が同じである試験片No.3(130~216サイクル)とNo.4(90サイクル)を比較して、No.4にひびがなかったことから考えて、百数十サイクル後に浅いひびが入ることが予想される。試験片No.2(低温、高サイクル)の結果より、これらのひびは進展し、数も増えてくる。従って、ひびは水素の平衡圧に関係なく熱的作用によって発生、進展することが十分考えられ、これは熱衝撃試験の結果とも一致している。しかし、都合の良いことは熱衝撃試験の結果、予め入っている小さい欠けやひびなどの欠陥は進展しなかった。すなわち、実際の燃料ミートを考えた場合、ミートの成形加工中に小さな欠陥を生じても、これらの欠陥は機械的衝撃同様熱的衝撃によっても進展せず、燃料の寿命が著しく短くなることはないと考えられる。試験中に入ったひびは1000サイクル程度までは燃料の健全性にとって何ら害はないであろうが、更にサイクル数が増えていくと、ひびが進展し、やがては割れに至る可能性がある。しかし、この場合でも小さい欠けは生じないと思われる（機械的衝撃試験結果より）ので、ミートと被覆管の間隙が埋められることはないとであろう。

燃料ミートが熱的作用等によって運転中割れた場合でも、機械的衝撃試験結果、および熱的試験でのひびの入り方などから、割れの破片は大きなものでほとんどミートの原形を保っていると推察される。実際TRIGAパルス炉の使用経験でも、これらのミートの割れは稀に観察されているが、割れ片は大きくほとんどミートの原形を保っている。勿論、被覆管との間隙を埋めてしまうような小さい割れ片は生じていない。そして、これらの割れが燃料の健全性を非常に危うくするといった報告もなされていない。

次に、ミートの変形・破損のもう1つの原因であると考えられる平衡水素圧について考察する。先に述べたように水素圧が問題になるのは、約1200°C以上からであり、一方、NSRRでは、燃料ミート温度は最大パルス運転時でも最高960°Cである。この時の平衡水素圧は約7kg/cm²であり、ミートの内圧限界値100kg/cm²と比べて十分余裕がある。従って、熱衝撃応力と水素圧が同時に与えられるような場合には、より少ない水素圧あるいは応力で変形・破損が起こるであろうが、NSRRの場合、先に述べたような水素圧による変形・破損はないと推察される。

更に、TRIGA型燃料の使用実績では、燃料ミートが変形（膨脹）して被覆管が押しひろげられたり、ミートが破損（割れ）している例が少数見られるが（これらの中には、NSRRの条件よりはるかに厳しい条件を燃料体に課したもののが大部分である。），USAECおよびサンディア研究所両方の見解とも、熱の繰返しによるある程度の変形・破損は仕方のない問題とし、炉心燃料が一時に破壊する等の不安全な事態は生じないと考えている。¹¹⁾ また、事実、TRIGA炉においては実際に炉心燃料の破損やそれに伴うFPの放出等原子炉の安全性上問題となる事故は一度も経験していない。以上の考察より、本燃料は繰返しパルス運転によって燃料ミートにひびが入り、更に数多くの繰返し後、割れる可能性が考えられるが、被覆管の破損に至ることは考え難く大事に至ることはないと結論されるであろう。

(3) 燃料ミート中の水素の被覆管を通しての逃げおよびミート内の水素の挙動

まず、水素の逃げについて考えてみる。付録VIの前半に示したように、従来のステンレス鋼中の透過度を信頼して計算すると逃げの量は極く僅かな量である。但し、従来の報告では透過度を求めている実験が200°C以上でなされているのが大部分であり、実際の原子炉運転の際の130°Cの透過度は本計算では外挿して求めていること、更にステンレス鋼の表面状態によっても異なること等から本燃料要素の水素リーク試験を遂行した。この場合も種々の不確定要素を考慮して、付録VIに示すように実際の運転条件より20倍以上厳しい条件を課した。その結果、水素の被覆管を通しての逃げはほとんど観察されなかった。NSRRとほとんど同じ燃料要素を用いているSNAP燃料においては、この水素の逃げを懸念して被覆管の内側を薄いセラミックス等の膜でコーティングするといった工夫がなされて例がいくつか見られる。^{14), 15)} ミート中の水素が減少するとミートの種々の特性・性質が変わり、燃料の健全性を危うくする可能性がある。この種の実験は、J.T.Berlingらが幅広く行っているが¹⁶⁾ 、その中で最も問題になるのはH/Zr比（原子比）が1.40を下回ると第I-1図にあるように約550°C（図には、Zr-H系の状態図が示してあり、ウランが混じると共析温度は537～550°Cに拡がる¹⁷⁾）以上で共析相変態が起こり、それに伴う体積変化等により（この時、温度勾配も同時に発生する）ミートの変形・曲がり等が生じることである。⁴⁾

しかし、本試験の結果被覆管を通しての水素の逃げは、NSRR燃料に関する限り認められず、NSRRの全使用期間を通じて上述の問題はないといえる。

但し、試験片M.4においては芯棒の水素吸収が起こり、その分だけミート中の水素量は減少していた。試験片M.4の結果から判断して、実際の燃料要素では、芯棒の水素化はミート中の水素比に等しくなるまで続くと十分考えられる。この時、ミート中の水素量はH/Zr原子比で約0.05だけ減じるであろう。しかし、この場合でも芯棒の水素化はミートと平衡状態になった以後は進まないので、ミート中の水素比は逃げの分を含めても、更に初期の水素比が1.60より低いもの(NSRR用燃料ではH/Zr比は最小でも1.57である)を使用したとしても1.50より低くなることは考えにくい。

また、水素の移動(migration)を考えた場合にも、ミート中の温度勾配を $100\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ に保ち、 $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで700hr保持しても水素の大きな移動はないとの報告があり¹⁷⁾、本試験においても組織観察および水素分析の結果から水素の移動→局部的な偏析は起らなかつた。実際のパルス運転では温度勾配はパルス発生直後において約 $170\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ となるが、1秒以内に $100\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ 以下になつてしまふので、大きな水素の移動が起こり、局部的な膨張(あるいは収縮)・変形等の事態はまず起こり得ないと思われる。しかし、実際の運転で水素の移動が問題になるのは、大きな温度勾配が生じる時間の短いパルス運転時よりも、むしろ温度勾配そのものは余り大きくないが、時間の長い定常運転時であろう。NSRRの特性解析の結果⁷⁾、300KW定常運転では最大温度勾配は燃料中心部の半径方向で約 $40\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ となる。この値は先に述べた文献17)の $100\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ の値より小さいが、Toyら¹⁸⁾の研究によると $22\text{ }^{\circ}\text{C/cm}$ ($100\text{ }^{\circ}\text{F/in}$)でも時間が長くなると(1,344時間)水素比で約0.16/ 5 cm の差ができると報告されている。この場合の燃料の水素比は初期において1.71と高いものを使用しており、NSRRの場合水素比は1.60と低く、定常運転時間も5年間積算で高々1,500時間程度なので、水素の移動が多少起こり、局部的な水素の不均一が生じても、最少のところでもH/Zr比が1.50を下回ることはないと推察できる(更にパルス運転時の逆の温度勾配や炉の停止による回復も期待できるであろう)。

しかし、試験片M.3の結果は次の意味で重要な示唆を与えている。すなわち、試験中に上部端栓部の剥離が起きたが、それ以前に小さいピン・ホールのような穴があいていた筈で、この穴を通して水素が逃げ、ミート中の水素量が減少している。従つて、もし実際の運転の際、小さいピン・ホールのような穴が燃料要素に生じた際、FPの流出は勿論、水素の逃げも起こるであろう。そして、それに伴いミート中の水素量が減少し、やがてはH/Zr<1.4となり、550 $^{\circ}\text{C}$ 以上の使用では相変態を誘起し、燃料ミートの変形・破損が起こる可能性が生じてくる。それゆえ、実際の炉の運転に当つてはプール水中のFPに十分な監視を行い、燃料被覆管の極くわずかな小さい穴を見落さないよう配慮すべきであろう。

(4) ジルコニウム芯棒の影響

ジルコニウム芯棒は実際の炉の運転の場合、水素を吸収し体積膨張する。そして、この吸収はH/Zr原子比がミート中のそれと平衡状態に達するまで続くであろう。この時の線膨張はジルコニウム芯棒中のH/Zr原子比が1.4まではほぼ直線的に増加し、1.4以上(δ 相)では密度の変化はなくなり、 α ジルコニウム(水素量0)と比べて約5~6%膨張すること

になる。^{4), 17)} そして、水素化の速度が大きい場合には、この芯棒は水素の濃度差で変形や割れを起こす。¹⁷⁾ 本試験でもこれと同じ結果が試験片 A-4において得られている。この膨脹の問題を実際の炉の安全性から考えてみると、軸方向に伸びても上部の黒鉛反射体を少し押上げる程度であり、一方上部にはプレナムを十分取ってあるので、燃料要素内でつかえるといったことはない。また、半径方向にも十分な間隙（約 0.6 mm - これは芯棒が H/Zr 比 1.6 まで吸収し、膨脹した時の約 2 倍の間隙である）があるので、燃料ミートに機械的な作用をすることも考えられない。しかし、芯棒に割れが生じて口を開くような事態には、ミートの内壁に芯棒が接触することはあるかも知れないが、この場合でもミートにそれ程大きな機械的作用を与えるとは考えにくく、ミートの強度から考えて何ら害はないと評価できる。更に、ジルコニウム芯棒の役割が主として、万一燃料要素が破損した時ミートの中心孔への多量の水の混入を防ぐことにあるので、実際の運転中にジルコニウム芯棒が水素化により膨脹し多少の割れが入っても、この事態だけでは安全な炉の運転の障害にはならないと考えられる。また、芯棒の水素吸収によるミート中の水素量減少に対しても安全であることは、先に述べたとおりである。

以上の考察より、熱的な問題に関して燃料の健全性を総合的に評価すると、ひび・割れが生じても粉末を発生することではなく、H/Zr 比も 1.50 を下回ることはないので、被覆管が破損するような事態は考えにくいと推察される。

第III-1表 热衝撃試験条件および内容

試料名	切断方法	端の状態	最 高 サイクル数	試験および観察項目		
				外観検査	組織写真	水素分析
A	マイクロ・カッター	両端とも "sharp edge"	190	○		
B	放電切断	"	"	○	○	○
C	"	一端は "round edge" 他端は "sharp edge"	100	○		

温度条件；

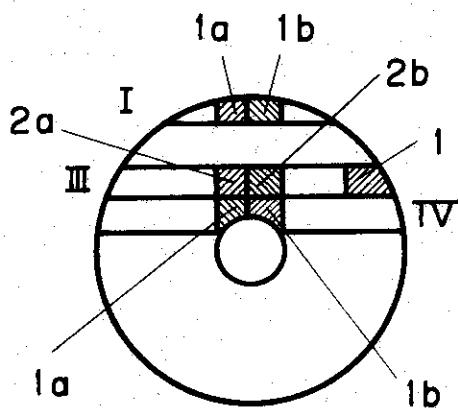
各試料とも高温側 250°C、低温側 室温にそれぞれ 5 分間保持する。

5 分の保持時間で燃料ミートは十分媒質中の温度に等しくなる。

III - 2 表 热衝撃試験後水素量分析結果

採取位置	H (wt, %)	H/Zr
I - 1 a	1.50	1.58
1 b	1.52	1.60
III - 1	1.48	1.56
2 a	1.49	1.57
2 b	1.49	1.57
IV - 1 a	1.56	1.64
1 b	1.51	1.59
平均	1.51	1.59 *

採取位置補足図



* G A 社の測定値は、ミートによって異なるが 1.59 ~ 1.62 の範囲にある。本試料は 1.59 ~ 1.62
内にあるどのミートから切出したかは不明。

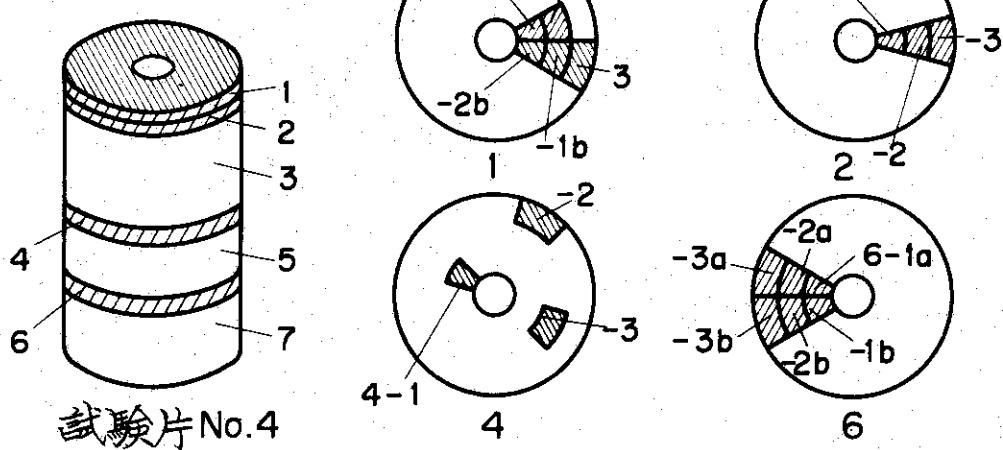
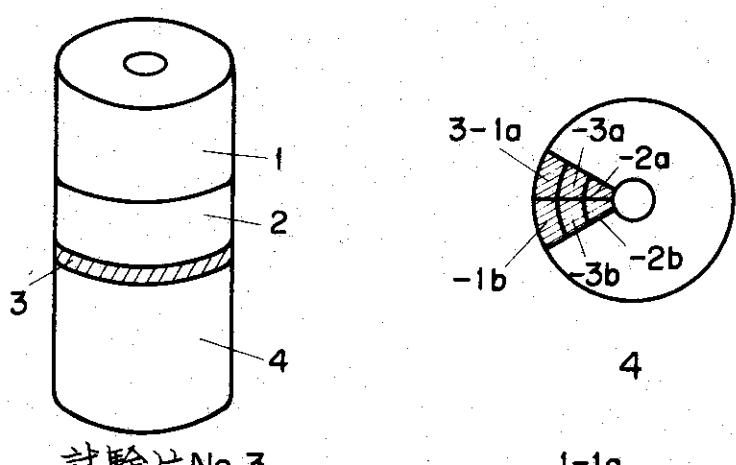
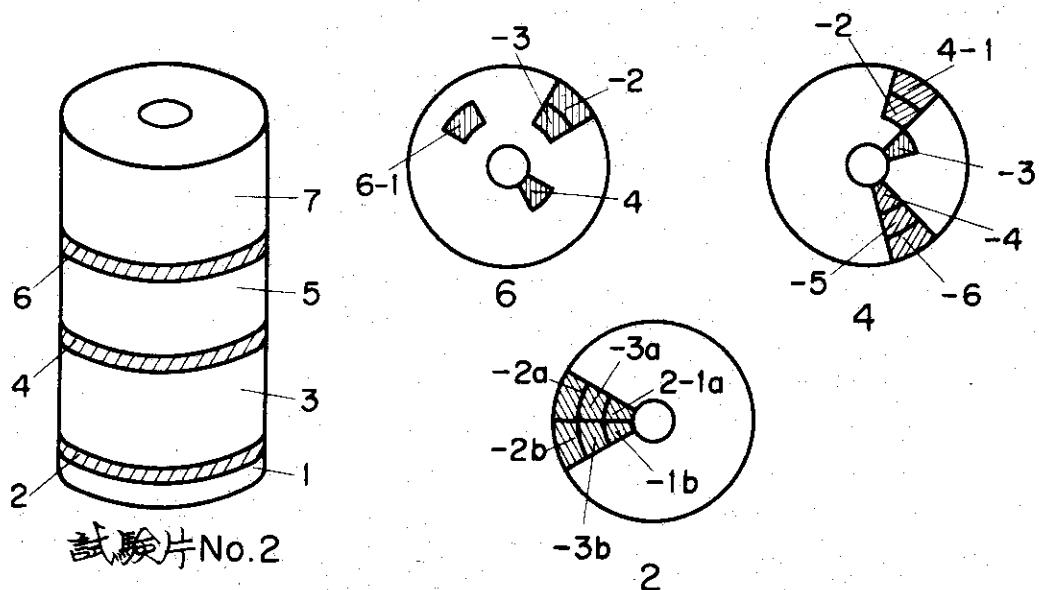
第三表 热サイクル試験条件

試験片 No.	高 温 側 温 度		保 持 時 間		高 目 的	
	電 气 炉	被 覆 材	燃 料 ミート	電 气 炉	水 プ - ル	サ イ ク ル 数
1	223°C	145 ~150°C	120 ~125°C	35分	25分	1,011回 被覆管の健全性を確認
2	490°C	430 ~435°C	~400°C	35分	15分	1,015回 比較的低温からの高サイクル熱疲労に対する燃料ミートの健全性を確認
3	650°C	~610°C	580 ~590°C	35分	15分	130~ 216回 高温の中サイクル熱疲労に対する燃料ミートの健全性を確認
4	770°C	~675°C	~550°C	20分	15分	90回 高温からの低サイクル熱疲労に対する燃料ミートの健全性を確認

低温側温度は、いずれの場合も室温で(20~25°C)、15分の冷却時間で燃料ミートは35°C以下に冷却される。

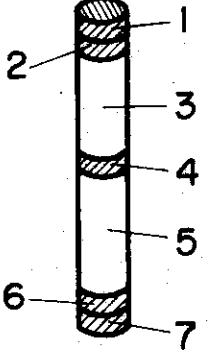
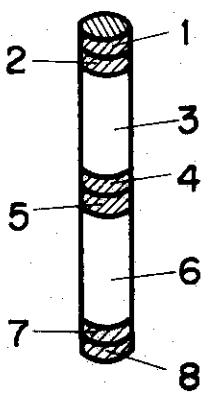
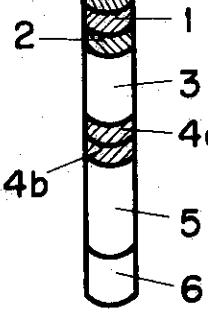
第III-4a表 热サイクル試験後の燃料ミート中水素量分析結果

試験片 No.	採取 位置	H (wt. %)	H/Zr (原子比)	G A 測定値 (試験前 H/Zr)
No. 2 (低温高サイクル)	2-1 a	1.53	1.61	
	1 b	1.54	1.62	
	2 a	1.52	1.60	
	2 b	1.51	1.59	
	3 a	1.54	1.62	
	3 b	1.51	1.59	
	4-1	1.53	1.61	
	2	1.53	1.61	
	3	1.52	1.60	
	4	1.56	1.64	
	5	1.52	1.60	
	6	1.49	1.57	
	6-1	1.52	1.60	
	2	1.54	1.62	
	3	1.55	1.63	
	4	1.53	1.61	
平均		1.53	1.61	1.62
No. 3 (高温中サイクル)	3-1 a	1.44	1.52	
	1 b	1.35	1.43	
	2 a	1.52	1.60	
	2 b	1.48	1.56	
	3 a	1.51	1.59	
	3 b	1.41	1.49	
平均		1.45	1.53	1.60
No. 4 (高温低サイクル)	1-1 a	1.51	1.59	
	1 b	(1.46)	(1.54)	
	2 a	1.50	1.58	
	2 b	(1.32)	(1.40)	
	3	1.51	1.59	
	2-1	1.52	1.60	
	2	1.51	1.59	
	3	(1.46)	(1.54)	
	4-1	1.42	1.50	
	2	1.53	1.61	
	3	1.48	1.56	
	6-1 a	1.51	1.59	
	1 b	1.47	1.55	
	2 a	1.50	1.58	
	2 b	1.51	1.59	
	3 a	1.49	1.57	
	3 b	1.50	1.58	
平均		1.50	1.58	1.66



燃料ミスト採取位置図(第III-4a表補足図)

第III-4 b 表 热サイクル試験後芯棒中水素量分析結果

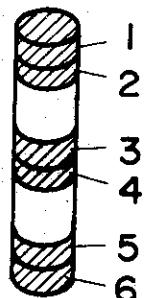
試験片 No.	採取 位置	H (wt. %)	H/Zr (原子比)	採取位置図	
No 2	1	<0.01			
	2	<0.01			
	4	<0.01			
	6	<0.01			
	7	<0.01			
平均		<0.01	<0.01		
No 3	1	<0.01			
	2	<0.01			
	4	<0.01			
	5	<0.01			
	7	<0.01			
	8	<0.01			
	平均	<0.01			
No 4	1	1.71	1.59		
	2	1.66	1.54		
	4a	1.70	1.58		
	4b	1.67	1.55		
	平均	1.69	1.57		

第 III-5 表 水素リーク試験後の燃料ミート, 芯棒中
水素分析結果

採取位置	H (wt. %)	H/Zr (原子比)	GA 測定値 (試験前 H/Zr 比)
2 - 1	1.52	1.60	
- 2	1.51	1.59	
- 3a	1.52	1.60	
3b	1.53	1.61	
- 4a	1.51	1.59	
4b	1.52	1.60	
4 - 1a	1.47	1.55	
1b	1.51	1.59	
- 2	1.52	1.60	
- 3	1.52	1.60	
- 4	1.48	1.56	
- 5	1.48	1.56	
7 - 1a	1.48	1.56	
1b	1.52	1.60	
平均	1.51	1.59	1.61

ジルコニウム芯棒

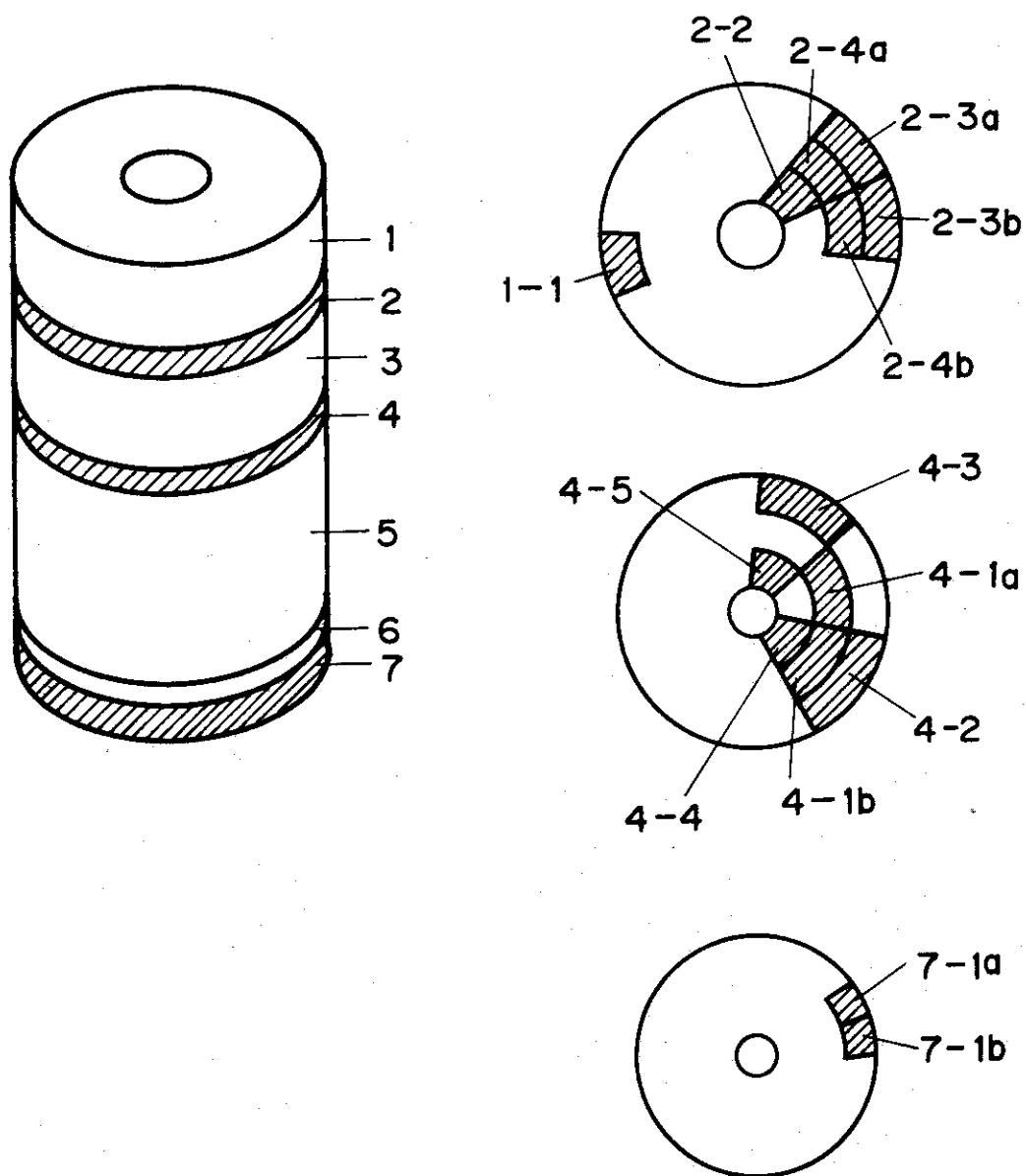
採取位置 分析結果

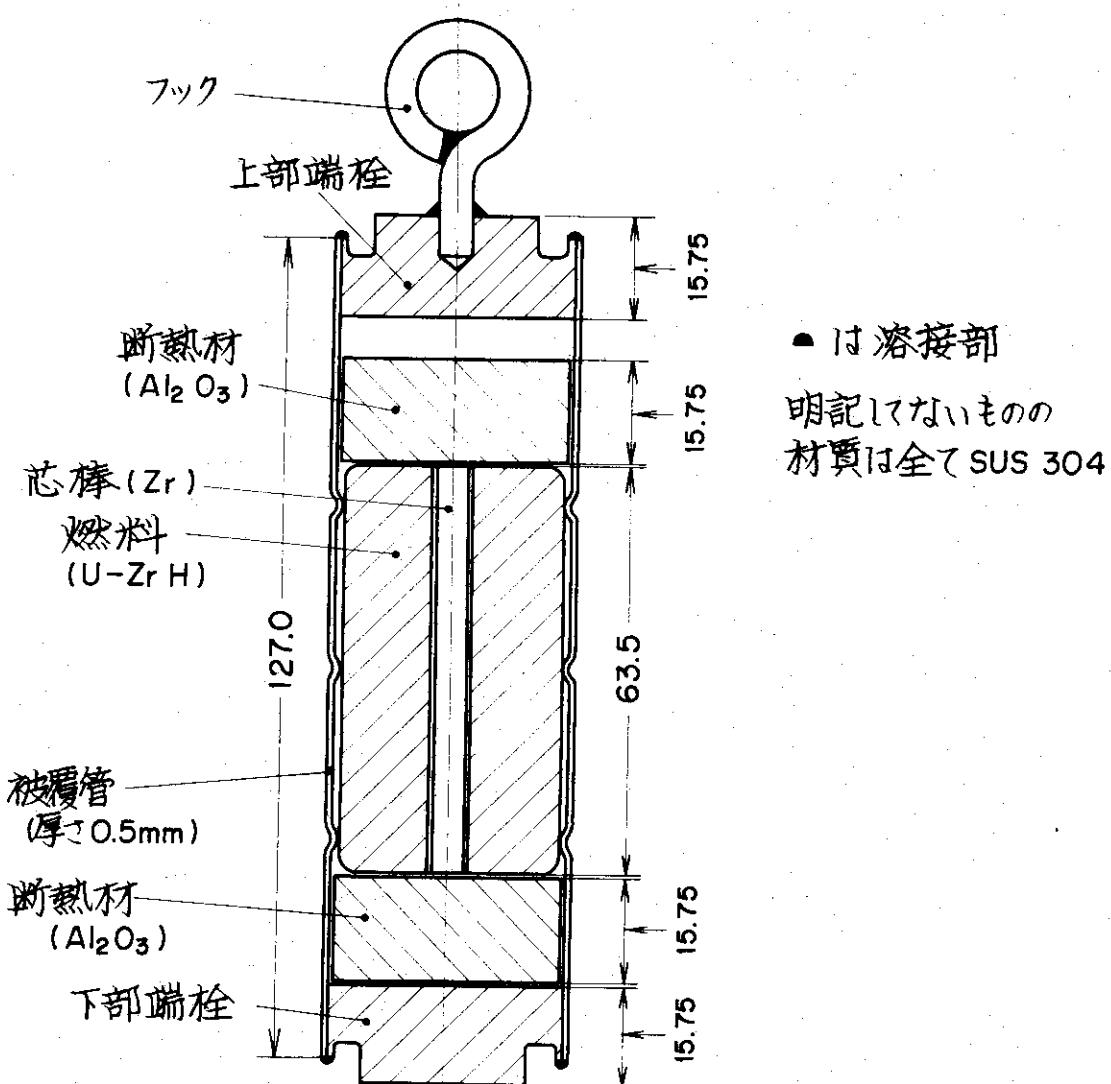


0.01 wt.% 以下

 H/Zr 原子比 < 0.01

燃料三一ト採取位置図(第III-5表 補足図)

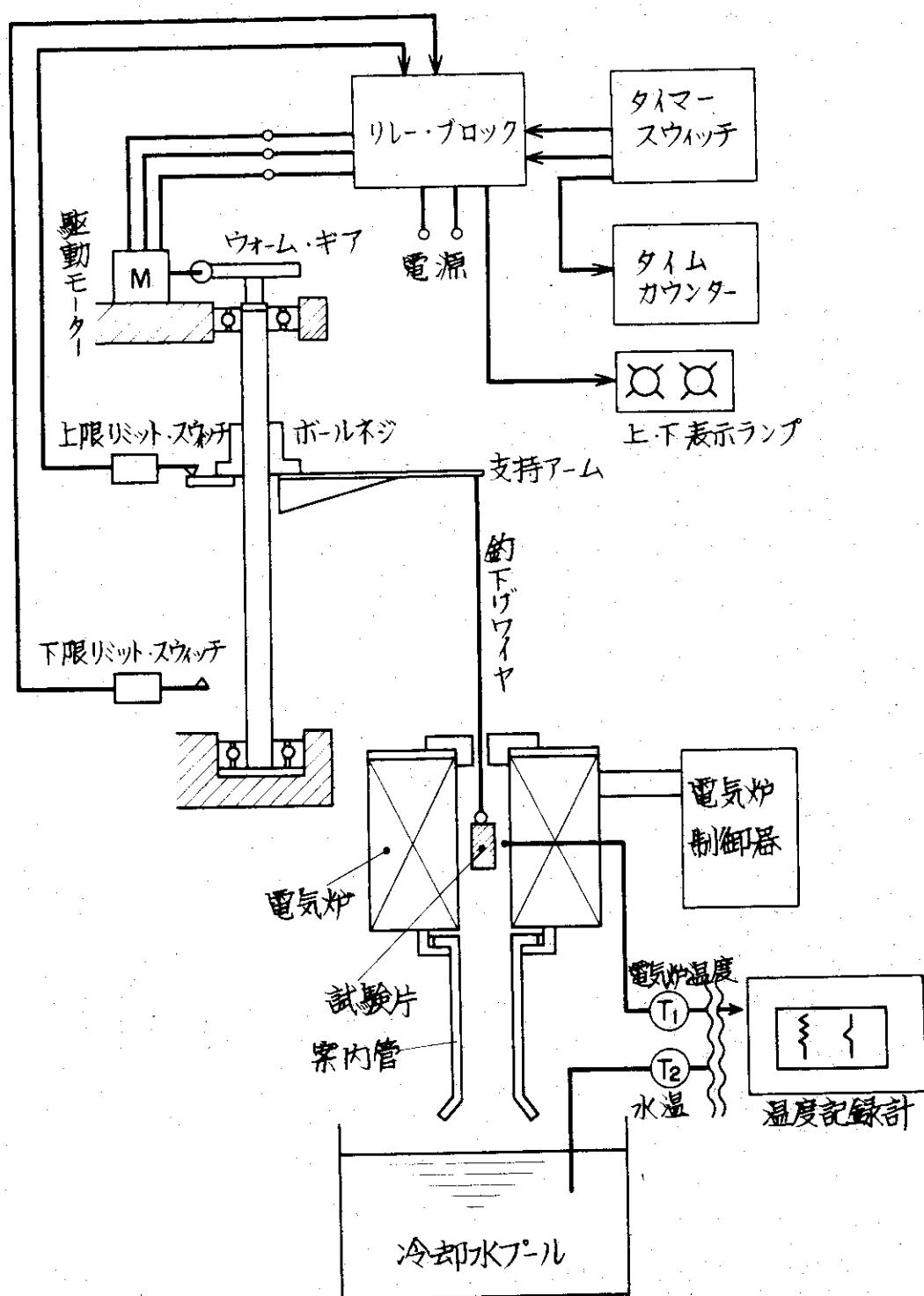




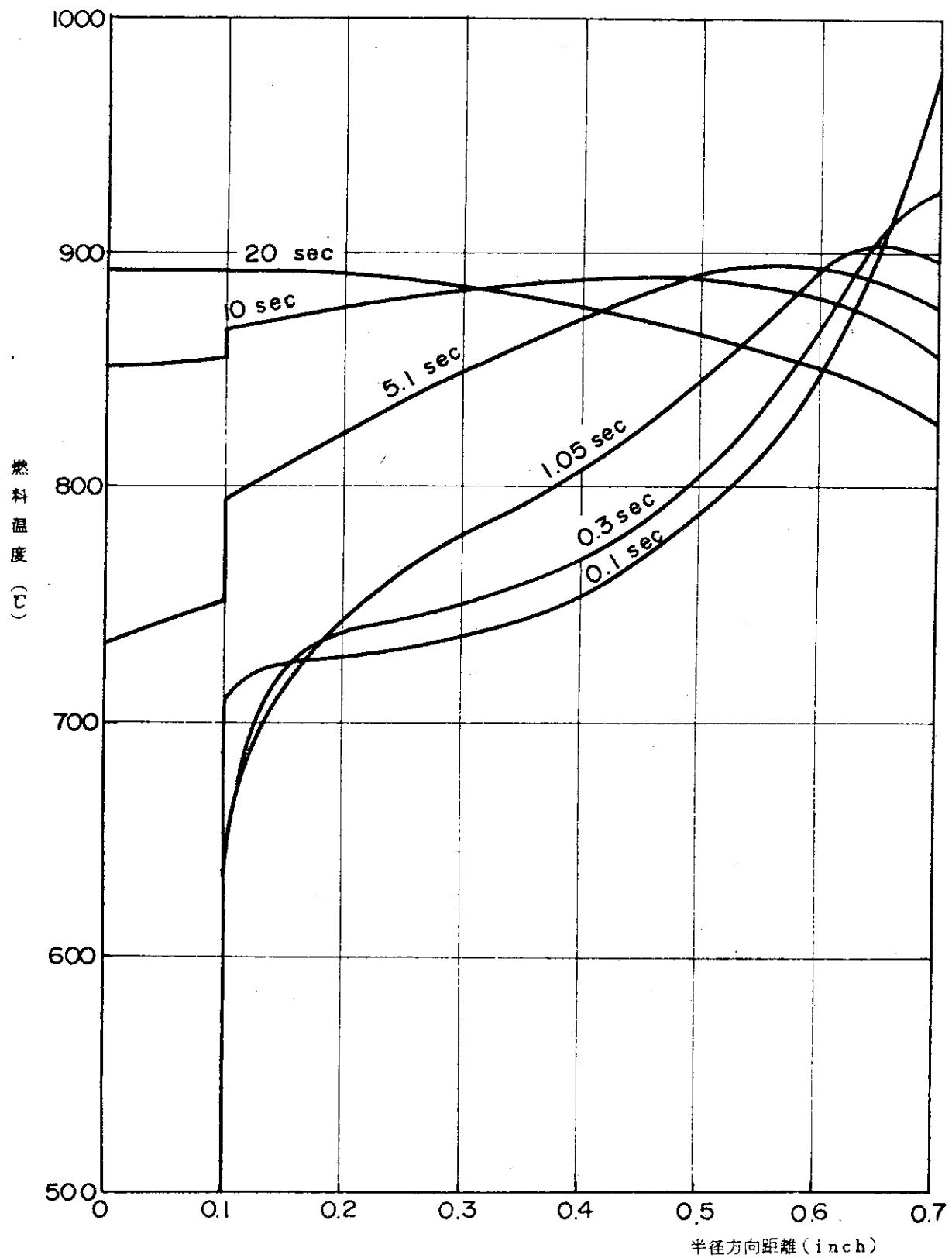
直 径	室温における値	600°Cにおける値 ¹⁾
被覆管 外径	37.54	37.95
" 内径	36.53 (36.02) ²⁾	36.93 (36.40)
燃料 外径	35.56	35.78
" 内径	6.35	6.39
ジルコニウム芯棒	5.72	5.75
断熱材	36.27	36.45

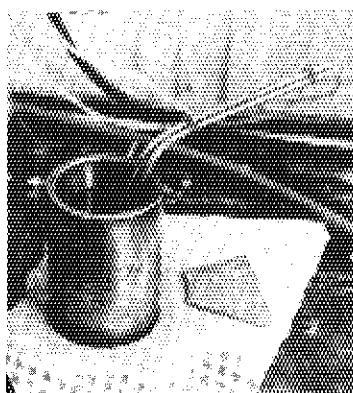
1) 平衡状態の値(代表的な熱膨脹率を用いて計算)
2) dimple-dimple 間の距離

第 III-1 図 热サイクルおよび水素リーク試験片
(単位 mm)

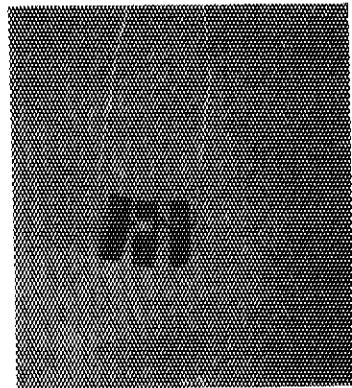


第 III-2 図 燃料燃サイクル試験装置概念図

第Ⅲ-3図 最大パルス運転時燃料温度変化¹⁰⁾



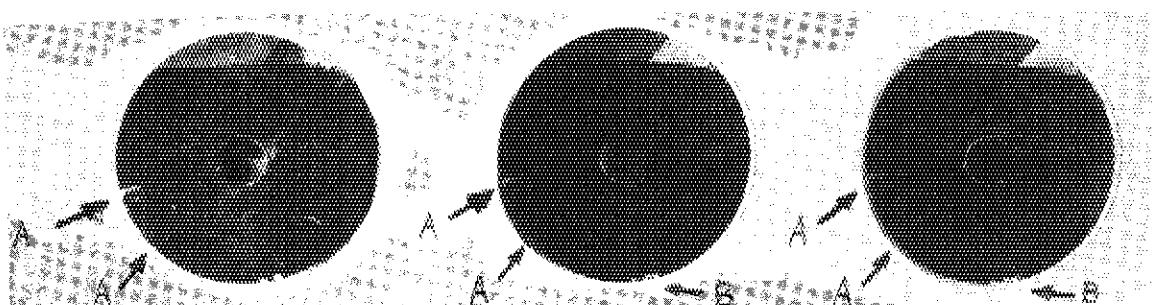
a) オイル・バス
(ヒーターが挿入してある)



b) 試料の取扱い
(ステンレス線で吊るす)

写真III-1 オイル・バスおよび試料の取扱い状況

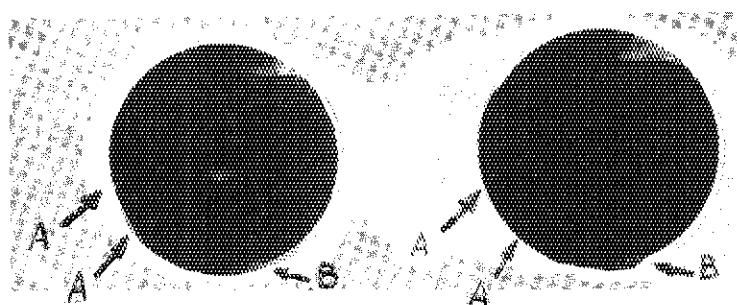
a) 試料A（両端ともマイクロ・カッター切断の“sharp edge”）



試験前

50サイクル後

100サイクル後



150サイクル後

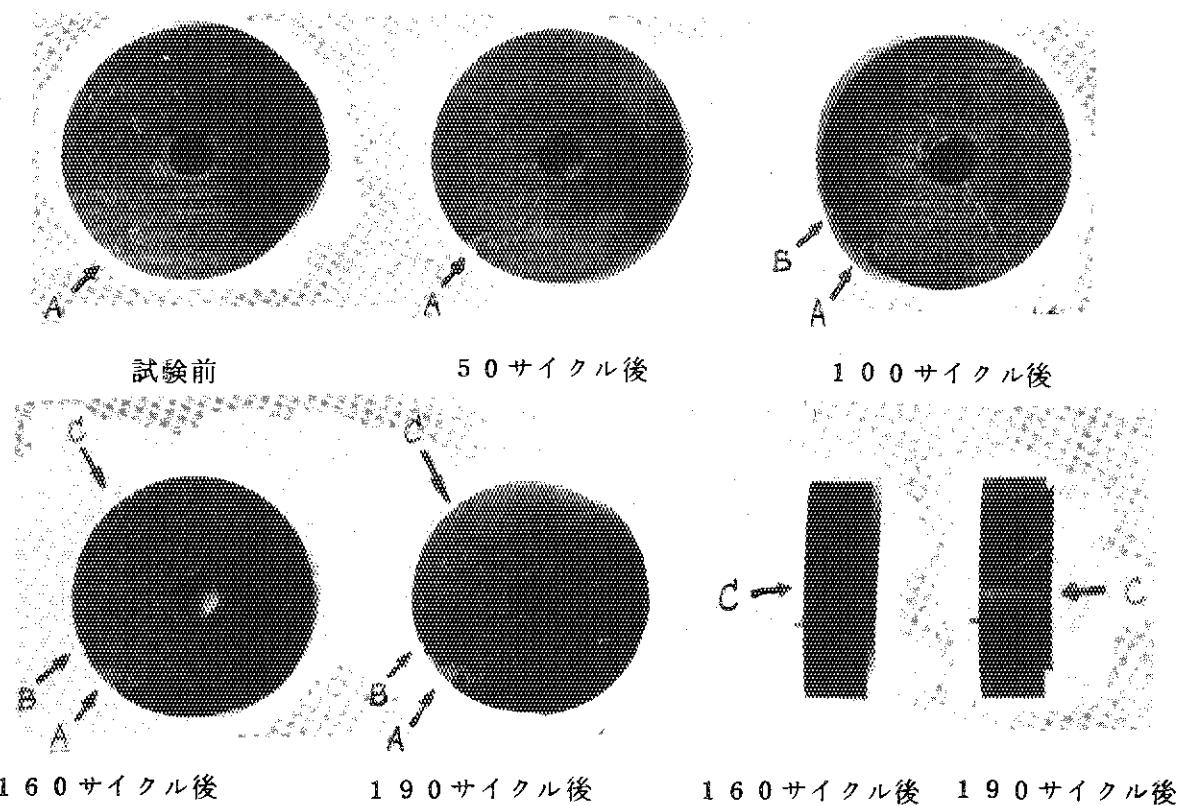
190サイクル後

A : 切断中に入ったと思われる欠け。ひび（サイクル数の増加に伴い、
進展している様子なし）

B : 試験中にに入った欠け

写真III-2 热衝撃試験結果（各サイクル後の試料の状態）

b) 試料 B (両端とも放電切断 "sharp edge")

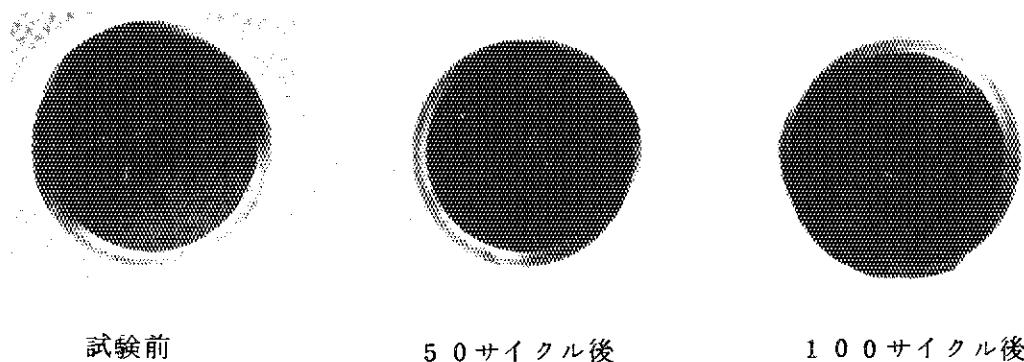


A : ミート中に入っていたと思われる欠陥（切断時に入ったものとは考えにくい）

B : 試験中にに入った欠け

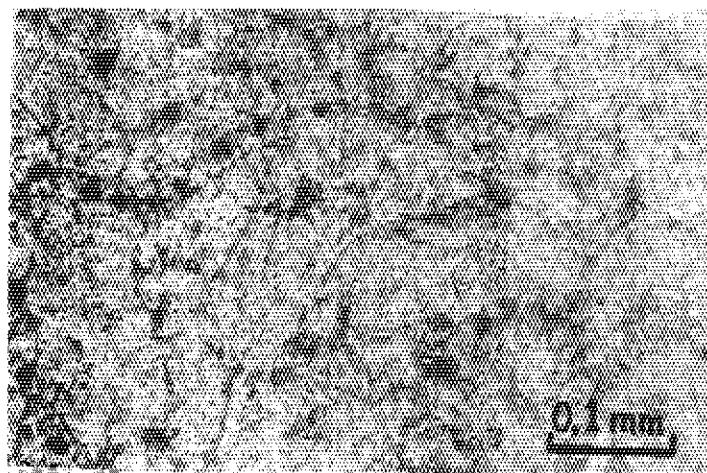
C : 試験中にに入ったひび

c) 試料 C (一端は "round edge" もう一端は "sharp edge")

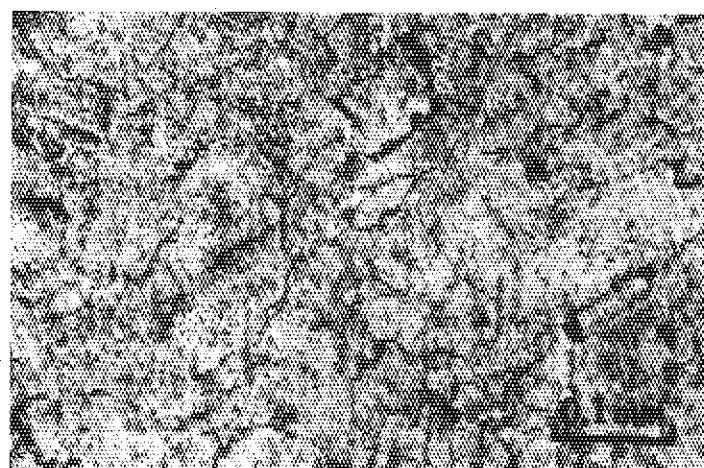


"round edge" の面には、100 サイクルまでは欠け・ひびなど
欠陥は生じない

写真 III-2 热衝撃試験結果（各サイクル後の試料の状態）

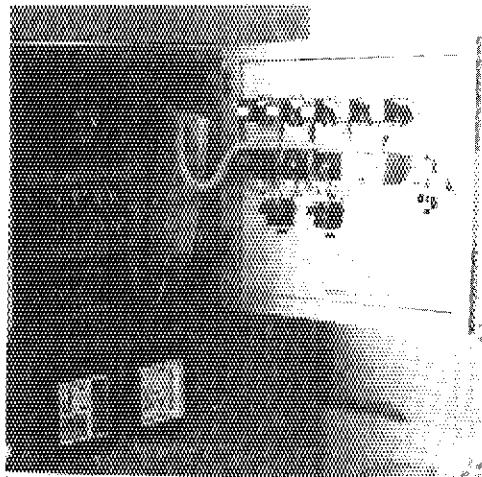


(a) 未試験試料

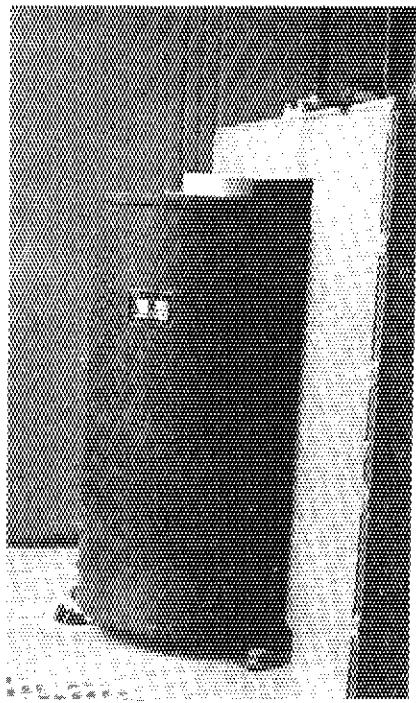


(b) 热衝撃試験後（試料 B）
放電切断，両端とも“sharp
edge” 190 サイクル後

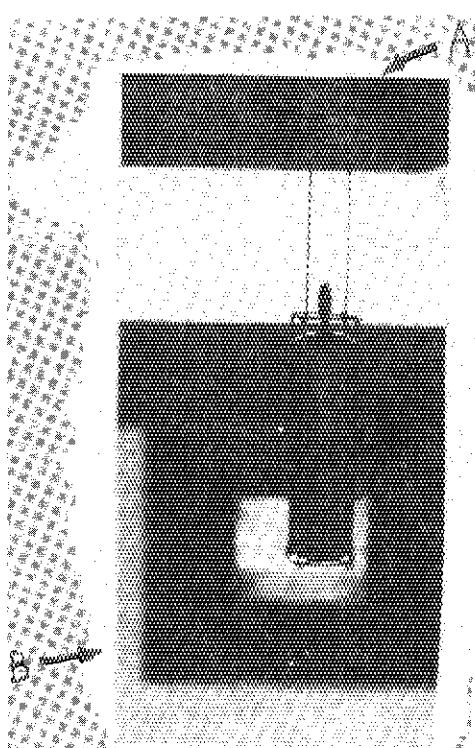
写真Ⅲ-3 光学顕微鏡組織写真



a) 溫度、駆動制御部

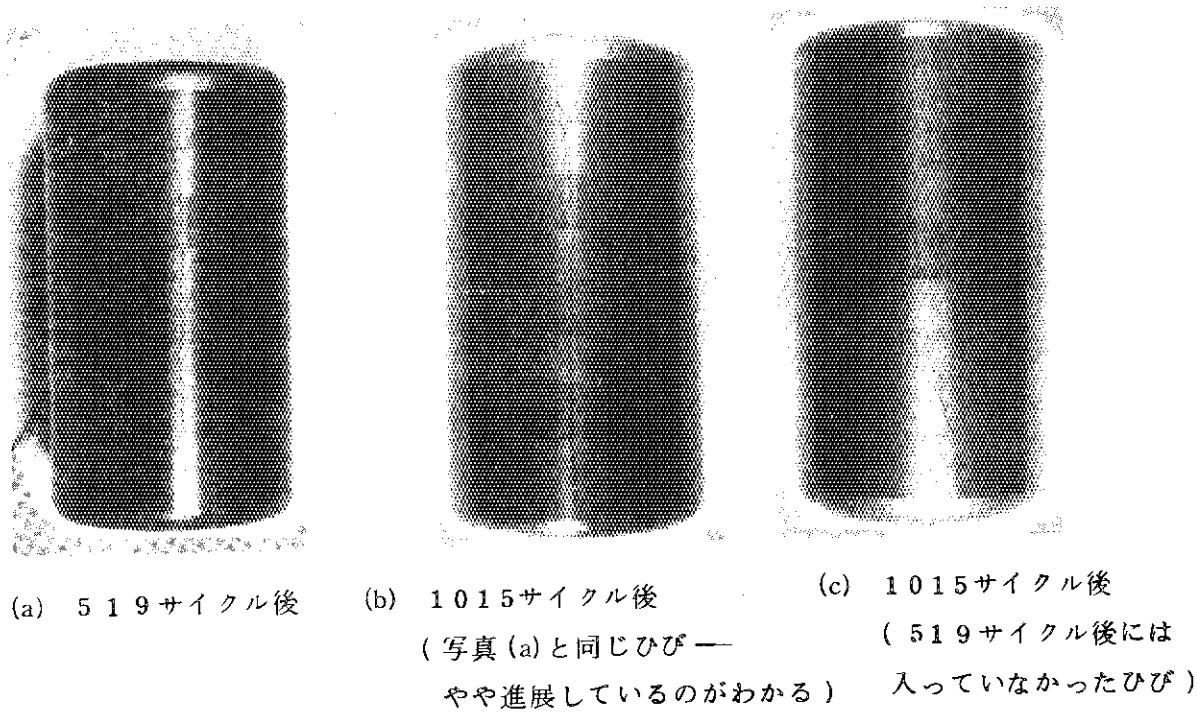


b) 電気炉

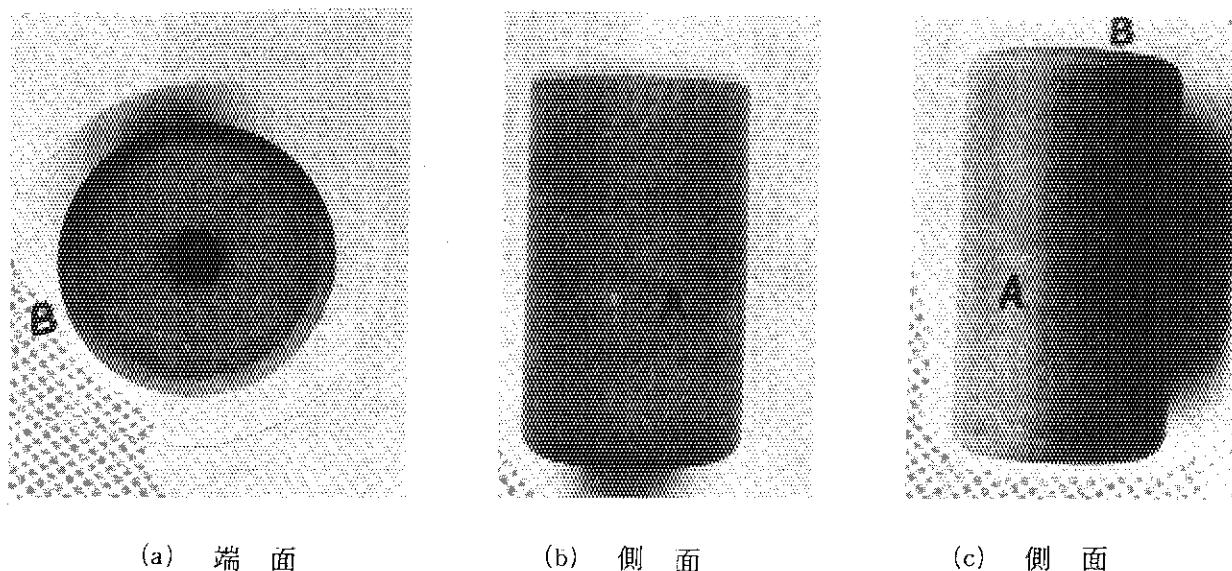


c) 試験片の入れ
(A : 電気炉入口 , B : 水プール外壁)

写真III-4 热サイクル試験装置



写真Ⅲ-5 热サイクル試験によって入ったひび
(試験片No.2 低温 高サイクル)

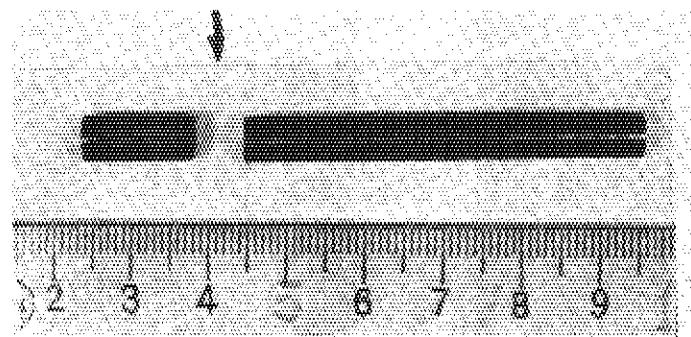


写真Ⅲ-6 热サイクル試験によって入ったひび

(試験片No.3 高温中サイクル 130~216サイクル後)

A, Bは同一点を示しているが、長く深いひびが入っているのが観察される。

切断箇所

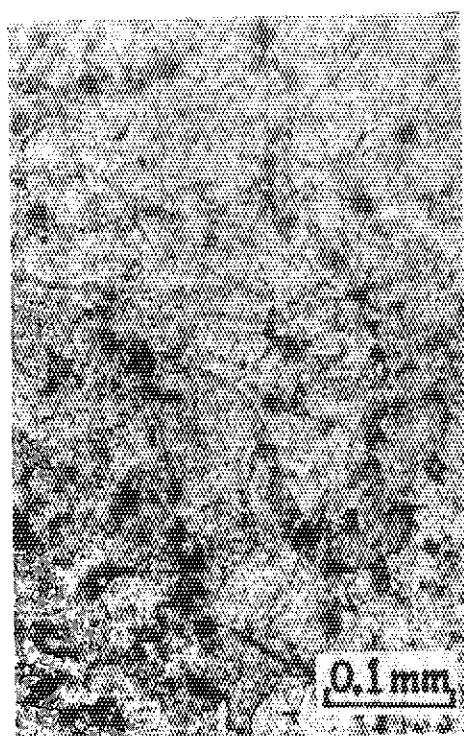


写真Ⅲ-7 ジルコニウム芯棒の割れ

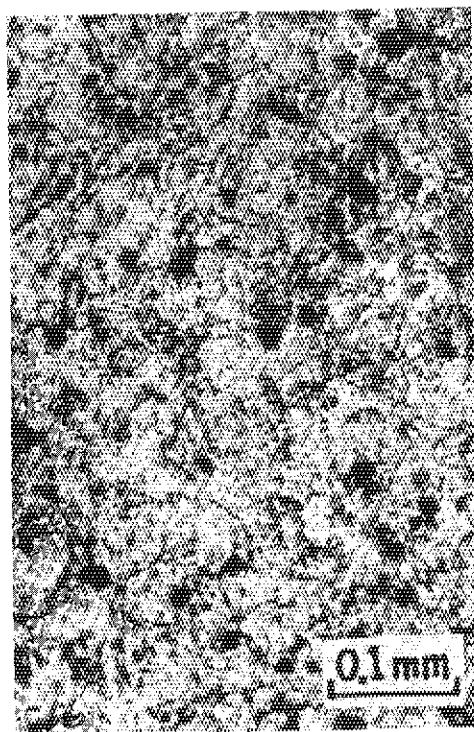
(試験片No.4 高温低サイクル 90サイクル後)

被覆管から取出すため、写真に示した位置で切断した。

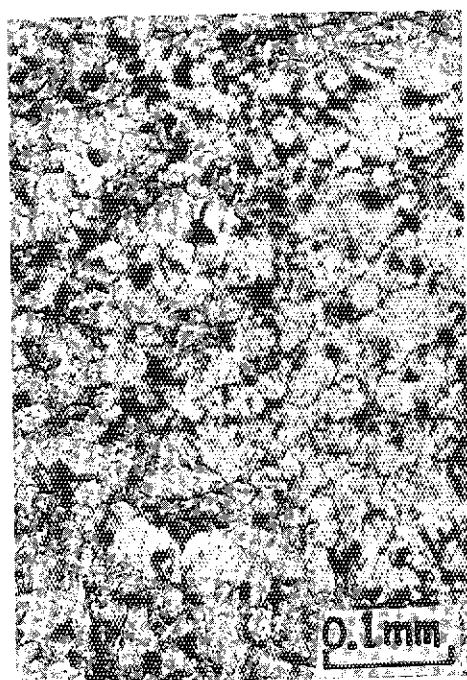
大きな縦割れが左側の部分に入っているのが観察される。



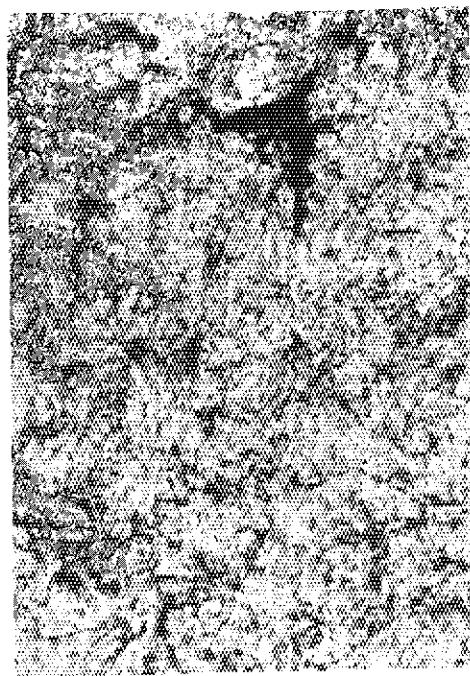
(a) 未試験燃料ミート



(b) 試験片 No. 2 燃料ミート (低温 1,015 サイクル後)

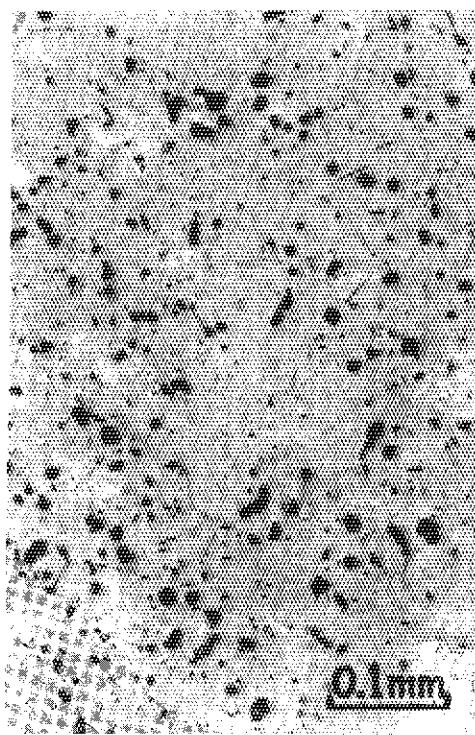


(c) 試験片 No. 3 燃料ミート
(高温 130~216 サイクル後)

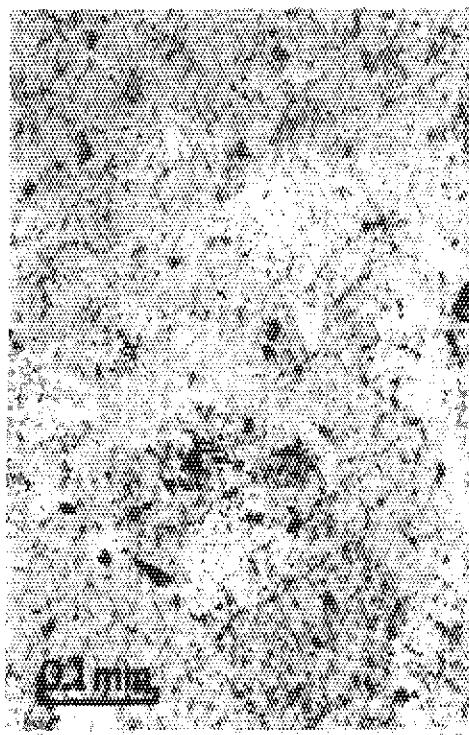


(d) 試験片 No. 4 燃料ミート
(高温 90 サイクル後)

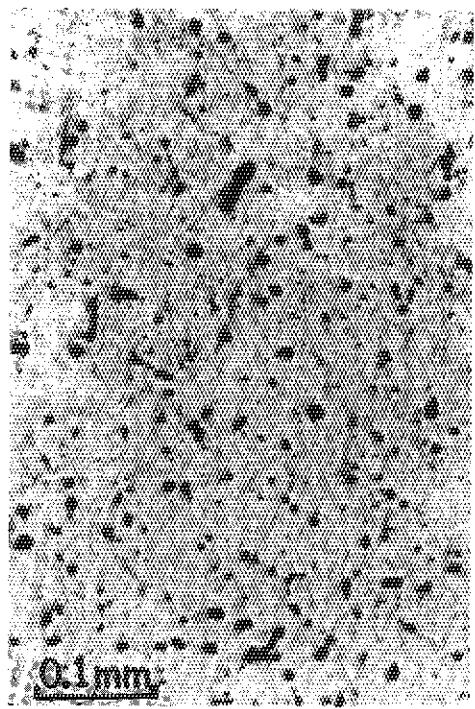
写真Ⅲ-8 热サイクル試験後の燃料ミート組織写真



(a) 未試験片の芯棒



(b) 試験片 No. 2 芯棒（低温 1,015 サイクル後）



(c) 試験片 No. 3 芯棒
(高温 130~216 サイクル後)

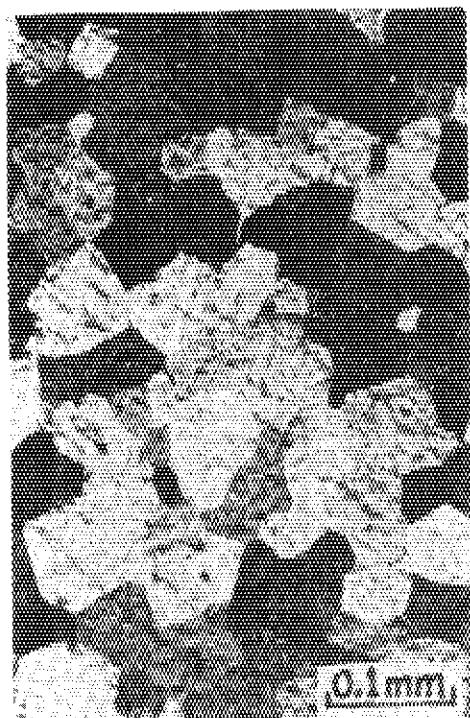


(d) 試験片 No. 4 芯棒
(高温 90 サイクル後)

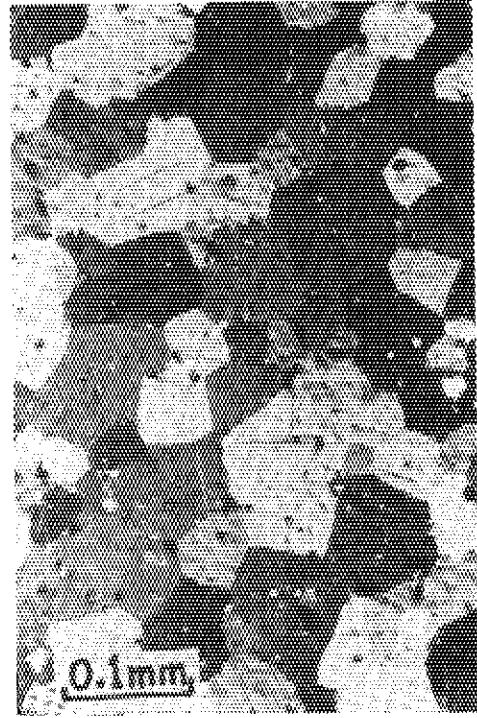
写真III-9 a 热サイクル試験後のジルコニウム芯棒の組織写真
(偏光かけず)



(a) 未試験片の芯棒

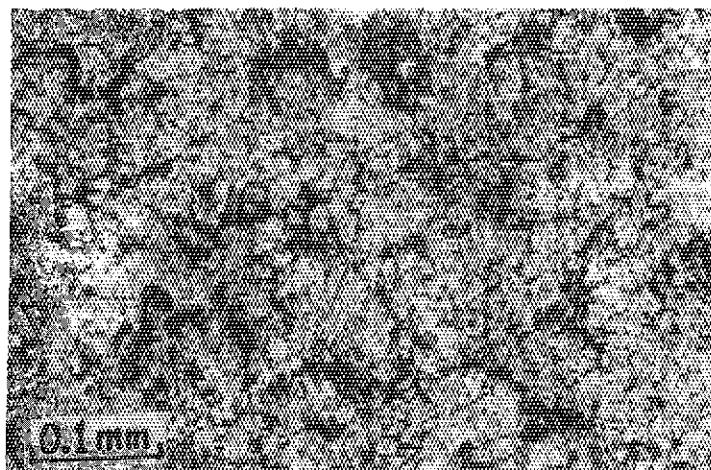


(b) 試験片 No. 2 芯棒
(低温 1,015 サイクル後)

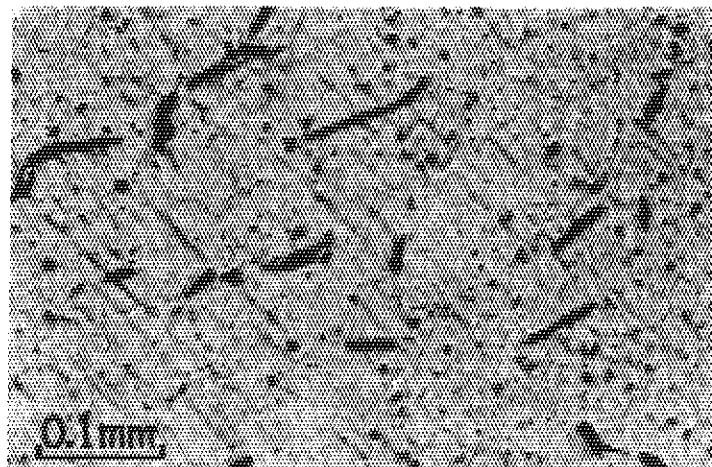


(c) 試験片 No. 3 芯棒
(高温 130~216 サイクル後)

写真 III-9 b 热サイクル試験後のジルコニウム芯棒の組織写真(偏光)
(試験片 No. 4 は偏光の効果がないので示してない)



(a) 燃料ミート



(b) ジルコニウム芯棒（割れが観察される）



(c) ジルコニウム芯棒（偏光）（割れは粒界に沿っている）

写真Ⅲ-10 水素リーク試験後の組織写真

（試験前の組織写真は写真Ⅲ-3 a, Ⅲ-8 a, Ⅲ-9 a, b を参照）

IV. 結 論

NSRR では炉心燃料としてウラン・水素化ジルコニウム ($U-ZrH_{16}$) を使用することにあっており、原子炉運転開始に先立ちこの燃料をパルス運転において繰返し使用した場合の健全性を確認するために炉外において機械的衝撃、熱衝撃、熱サイクルおよび水素の移動、透過等の試験を行い、更に熱的試験については試験体中の水素の挙動を調べるために実験後の試料について組織観察、水素量の分析を行った。その結果、以下のことが明らかとなつた。

- (1) 機械的衝撃により燃料ミートに割れを生じても粉末はほとんど発生しなかつた。又、割れに先立ち、欠けが生ずることもなかつた。一方、グラファイトは燃料ミートに割れが生ずるまでに欠けたり割れたりすることはなかつた。
- (2) ウラン・水素化ジルコニウムはセラミックスの中でも脆い方であり、その割れ方はムライト又はステアタイトの割れ方と類似している。又、衝撃抵抗値はムライトのそれに近い。
- (3) 実物燃料を種々の形態で落下させた場合、燃料ミートが損傷する場合には被覆材に必ず変形が見られた。又、燃料の割れは被覆管を通して外部からの X 線撮影でも検知可能である。
- (4) 熱衝撃、熱サイクル等により燃料ミートにひびが入つたが、粉末の発生は見られなかつた。又、予め存在した機械的に生じたひびは熱衝撃、熱サイクル等により進展することはなかつた。
- (5) 被覆材を通しての水素の透過については実際の運転状態および運転期間を上廻る試験条件で実験を行つたが、被覆材からの水素の逃げ量は無視し得る範囲であった。

これらの結果より、NSRR 燃料に機械的あるいは熱的原因によりひび、割れが生じても粉末はほとんど発生せず、燃料ミートと被覆材間の間隙を埋めギャップコンダクタンスが著しく増し、パルス運転により被覆材が焼損することは考え難い。一方、燃料を落下させた場合等機械的衝撃により燃料ミートが損傷する場合は被覆材に変形が生ずるので、外観検査により選別し、詳細に検査することが可能である。又、NSRR の全運転期間を通じて燃料中の H/Zr 比が 1.5 以下となることは想定されず、したがつて相変態により内部応力が発生し、このために燃料が破損することはないものと思われ、これらより $U-ZrH_{16}$ 燃料を NSRR の炉心燃料として使用してもその健全性は確保されるものと結論される。

謝　　辞

本試験を遂行するにあたり有益なる御助言を賜った東京大学工学部三島教授ならびに大久保助教授に深甚なる謝意を表します。

また、試験体の切断、加工、溶接およびX線検査については技術部工作課の方々に設計および作業をして頂いた。分析センターの大西寛室長、星野昭氏、磯修一氏には多数の試験片の水素含有量の分析について分析方法の検討を含め全面的に実施をお願いした。又、名古屋大学工学部桐原研究室の大学院学生中江延男氏にはページ試験に御協力を頂き、燃料物性研究室の菊地武雄室長、倉沢利昌氏にはページ試験、放電切断等に御配慮および御助力を願った。又、反応度安全開発室の石川廸夫室長、星薫雄氏、大西信秋氏はじめ室員の多くの方々には試験実施上種々の御配慮、御協力を頂き、特に岩田耕司氏には写真撮影および水素量分析用試料作成等に多くの時間を割いて御助力願った。本稿をまとめるにあたり、以上の方々の御助力に衷心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Raymond, J.W. ; "Equilibrium Dissociation Pressures of the Delta and Epsilon Phases in the Zirconium - Hydrogen System," NAA-SR-9374, May, 1964.
- 2) Simnad, M., and J. B. Dee; "Equilibrium Dissociation Pressures and Performance of Pulsed U-ZrH Fuels at Elevated Temperatures," GA-8129, 1967.
- 3) 例えば、耐熱材料ハンドブック(朝倉書店)
- 4) West, G. B. et al; Kinetic Behavior of TRIGA Reactors, GA-7882, 1967.
- 5) USAEC, Uranium Dioxide; properties and nuclear applications, 1967.
- 6) 金属便覧
- 7) 斎藤伸三; NSRRの特性解析, 室内メモ
- 8) Lundberg, L. B. ; Parametric Studies on the Short-Term Tensile Mechanical Properties of Zr-10U Alloy Hydrides, NAA-SR-9875.
- 9) Lundberg, L. B. ; Tensile Properties of SNAP4 Fuel Material at Elevated Temperatures, NAA-SR memo 6957
- 10) 原子炉設置変更許可申請書(原子炉安全性研究炉の設置)昭和47年7月, 日本原子力研究所
- 11) 反応度事故研究の概要と安全性研究炉(NSRR)計画, JAERI-memo 4031
(1970年)
- 12) Bokros, J. C. ; Creep Properties of a Zirconium-Hydrogen Uranium Alloy, J. Nucl. Mater. 3 (1961) 216

謝 辞

本試験を遂行するにあたり有益なる御助言を賜った東京大学工学部三島教授ならびに大久保助教授に深甚なる謝意を表します。

また、試験体の切断、加工、溶接およびX線検査については技術部工作課の方々に設計および作業をして頂いた。分析センターの大西寛室長、星野昭氏、機修一氏には多数の試験片の水素含有量の分析について分析方法の検討を含め全面的に実施をお願いした。又、名古屋大学工学部桐原研究室の大学院学生中江延男氏にはページ試験に御協力を頂き、燃料物性研究室の菊地武雄室長、倉沢利昌氏にはページ試験、放電切断等に御配慮および御助力を願った。又、反応度安全開発室の石川健夫室長、星薫雄氏、大西信秋氏はじめ室員の多くの方々には試験実施上種々の御配慮、御協力を頂き、特に岩田耕司氏には写真撮影および水素量分析用試料作成等に多くの時間を割いて御助力願った。本稿をまとめるにあたり、以上の方々の御助力に衷心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Raymond, J.W. ; "Equilibrium Dissociation Pressures of the Delta and Epsilon Phases in the Zirconium - Hydrogen System," NAA-SR-9374, May, 1964.
- 2) Simnad, M., and J. B. Dee; "Equilibrium Dissociation Pressures and Performance of Pulsed U-ZrH Fuels at Elevated Temperatures," GA-8129, 1967.
- 3) 例えば、耐熱材料ハンドブック(朝倉書店)
- 4) West, G. B. et al.; Kinetic Behavior of TRIGA Reactors, GA-7882, 1967.
- 5) USAEC, Uranium Dioxide; properties and nuclear applications, 1967.
- 6) 金属便覧
- 7) 斎藤伸三; NSRRの特性解析, 室内メモ
- 8) Lundberg, L. B. ; Parametric Studies on the Short - Term Tensile Mechanical Properties of Zr - 10U Alloy Hydrides, NAA-SR-9875.
- 9) Lundberg, L. B. ; Tensile Properties of SNAP4 Fuel Material at Elevated Temperatures, NAA-SR memo 6957
- 10) 原子炉設置変更許可申請書(原子炉安全性研究炉の設置)昭和47年7月, 日本原子力研究所
- 11) 反応度事故研究の概要と安全性研究炉(NSRR)計画, JAERI-memo 4031 (1970年)
- 12) Bokros, J. C. ; Creep Properties of a Zirconium - Hydrogen Uranium Alloy, J. Nucl. Mater. 3 (1961) 216

- 13) Raymond, J. W. and Toy, S. M. ; Mechanical Strength of Hydrides of Zirconium and Zirconium - Base Alloys, NAA-SR 6732
- 14) Johnson, D. E. ; SNAP Fuel Element Status, NAA-SR memo 10536
- 15) Olson, P. S. ; Evaluation of Fuel Elements From SNAP2 Development Reactor Core, NAA-SR 9648
- 16) Berling, J. T. and Culley, G. E. ; Strength Properties of SNAP Fuel Materials Under Hydrogen Loss Conditions, NAA - SR 11728
- 17) Wallace, W. P. and Simnad, M. T. ; Metallurgy of TRIGA Fuel Elements, GA - 1949
- 18) Toy, S. M. and Vetrano, J. B. ; Properties of Zirconium Hydride and Zirconium - Uranium Alloy Hydride, NAA - SR 4244

付録 I. 水中と空気中落下の比較

燃料要素を原子炉プール内で落下させた時、水の抵抗があるため大気中の落下とは速度が異なる。ここでは、原子炉プール内の落下（最高 9 m）がその速度において空気中の何 m と等価かを求める。

一般に流体中を進行する物体における抵抗係数 C_D は、

$$C_D = \frac{R}{\frac{1}{2} \rho V^2 S} \quad \dots \dots \dots (1)$$

¹⁾

で表わされる。ここで、R : 物体の抵抗、 ρ : 流体の密度、V : 物体の進行速度、S : 基準面積である。

計算の簡潔化のため水の抵抗と物体に働く落下力（自重から浮力を差引いた値）がつり合って、物体の進行速度が一定になった時の値（最終速度）を求めることがある。なお C_D としては、燃料要素を円柱と考え、その軸方向への進行を考えて、 $C_D = 1$ とする（この値はレイノルズ数や物体の直径と長さによって変わるが、その中でも最も大きなVを与える値とした）。こうして得られたVは、実際の速度より大きくなることがあっても小さくなることはない。

次に、このプール水中での最終速度は大気中での何 m の高さから落下させた時の値に相当するかを求める。

その結果 $V = 7.4 \text{ m/sec}$ で、等価高さは 2.8 m となる。従って、本落下試験で行った 3.4 m の高さは、プール水中での落下（最高 9 m から）条件より十分厳しいといえる。

参考文献

- (1) 機械工学便覧

付録 II. パルス運転時および熱衝撃試験時の熱応力

実際のパルス運転の際発生する最大熱衝撃応力と本熱衝撃試験時の熱衝撃応力の大きさを比較するために、簡単なモデルで両者の熱応力を求めた。

(1) 実際のパルス運転時の熱応力¹⁾

パルス運転で生じる温度勾配は、パルス発生直後が最も大きく、燃料ミートの外表面で 960 °C、内側表面（ジルコニウム芯棒に面した表面）で 710 °C であり、ほとんど直線分布をしている（第III-3 図）。従って温度勾配は約 170 °C/cm となり燃料ミート部を厚肉円筒と考えると、内外温度差による熱応力は、

$$\sigma_r = \frac{\alpha E}{3(1-\nu)} (T_2 - T_1) \left\{ (k^2 + k + 1) - (k + 1) \left(\frac{r}{a} \right) - \left(\frac{b}{r} \right)^2 \right\} / (k^2 - 1) \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$\sigma_{\theta} = \frac{\alpha E}{3(1-\nu)} (T_2 - T_1) \left\{ (k^2 + k + 1) - 2(k+1) \left(\frac{r}{a} \right) + \left(\frac{b}{r} \right)^2 \right\} / (k^2 - 1) \quad \dots \dots \dots (2)$$

$$\sigma_z = \sigma_r + \sigma_{\theta} \quad \dots \dots \dots (3)$$

で表わされる。但し、軸方向両端自由、半径方向直線型温度分布を仮定して、

r : 任意半径, α : ミートの線膨張係数

E : 縦弾性係数, ν : ポアソン比, a : 内半径

b : 外半径, k : b/a 外内径比

T_1 : 内周の温度, T_2 : 外周の温度 とする。

上記の(1)(2)(3)式に通常使われている値を代入して最大値を求めると、内側表面で周方向、軸方向ともに約 3 kg/mm^2 となる。

(2) 热衝撃試験時の熱応力¹⁾

一様な初温度（オイル・バス温度で 250°C ）にあった広い円板が一定温度（水温で 25°C ）の媒質中に投入され、両表面から急激に冷却される時の熱衝撃応力として求める。この時の最大熱応力は板表面において、投入後少時を経て発生し、その値は、

$$\sigma_r = \sigma_{\theta} = \{ \alpha E T_0 / (1-\nu) \} \sigma_{\max}^* \quad \dots \dots \dots (4)$$

で与えられる。ここに σ_{\max}^* : Biot の係数 $\beta = h\mu/k$ によって変わる量で無次元熱衝撃応力の最大値, $2h$: 板厚, μ : 板表面における熱伝達率, k : 板材料の熱伝導率, T_0 : 投入前後の温度差、その他は一般的に用いられている記号である。

上記の(4)式に通常使われている値を代入して、最大値を求めると、 μ （板表面における熱伝達率）の値によって異なり、 μ としては種々の不確かさの要因を考慮して、 $3 \times 10^3 \sim 3 \times 10^4 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{hr} \cdot {}^\circ\text{C}$ とすると、最大熱衝撃応力は $3 \sim 10 \text{ kg/mm}^2$ となる。

以上の結果より、熱衝撃応力としては、実際のパルス運転時と比較して、本試験は同程度かそれ以上厳しい条件を課したと結論できる。

参考文献

- (1) 機械工学便覧

付録 III. 組織観察方法

熱的試験を行った燃料試験体について光学顕微鏡観察したが、ここではこの方法について記載する。

(1) 研磨及び腐食

まず試料の観察面をエメリーリー紙で表面が光沢をもち、ほとんど傷等のなくなるまで機械研磨

した。エメリー紙は No. 120 から順次細かいものを使用し、最終的には No. 1200 で磨いた。

次に、付III-1表に示す腐食液で化学腐食し、顕微鏡観察を行った。化学腐食の方法は、腐食液をやわらかい布又は綿にしみ込ませ、その布又は綿で観察面を拭うようにして腐食した。

尚、ジルコニウム芯棒は細くて取扱いが困難であるので直径約 3 cm、高さ約 3 cm の円筒形樹脂に埋め込んで研磨、観察を行った。

(2) 顕微鏡観察

オリンパス製倒立型光学顕微鏡を用いて、倍率 100 倍で観察した。水素をそれ程吸収していないジルコニウム芯棒 (α -ジルコニウム、稠密六方晶系) は、偏光をかけての観察も行った。

観察に際しては、主として結晶粒の大きさ・形状及び第2相の存在の有無などに着目して、未試験試料との比較において観察した。

付III-1表 化学腐食液組成

乳 酸	$C_2H_4(OH)(CO_2H)$	45 vol. %
硝 酸	HNO_3	45 vol. %
沸 酸	HF	10 vol. %

付録IV. 水素定量分析

IV-1 概 要

$U-ZrH_{16}$ 中の水素量の分析法に関しては、現在のところ信頼できる一般的な方法は確立していない。普通ジルコニウム中の水素の定量には真空加熱一定容測定法が用いられており^{1), 2)}、この方法は比較的水素量の少ない試料の場合に適している。しかし、水素量が本燃料ミートのように 1 wt. % を越えるような場合には別な方法を検討しなければならない。

$U-ZrH_x$ 中の水素は、ジルコニウムと水素化物を作つており、ウラン水素化物の存在は確認されていない³⁾。また、H/Zr 比が 1.50 を越えると ZrH は δ 相単相であることが多くの研究で分っている(ウラン存在下でも⁴⁾)。従って、 $U-ZrH_x$ 中の水素の定量は本質的にジルコニウムの水素の定量と同じと予想され、本試験においては、この試験のために特に開発されたキャリアーガス抽出法を用いて定量を行つた。

具体的な方法、結果、開発された分析法の妥当性等に関しては文献(5)に記されているが、ここでは未試験試料についての分析方法の概要と分析結果および考察についてのみ記載する。

IV-2 方 法

試料を 200 ml/min のヘリウムキャリヤー中で 1200°C、20 分加熱して水素ガスとし

抽出し、その水素ガスを酸化した後、アンヒドロンに吸収させ、その重量変化から水素を定量する（詳細は文献(5)参照）。

IV - 3 分析結果

未試験試料についての定量結果を付IV-1表に示す。

この結果、約2%の誤差（標準偏差）で燃料ミート中の水素量が正しく分析されることが確認されたが、この値を燃料製造会社である General Atomic Company（略してGA社）の測定値と比較してみると原子比で0.02程度低くでているようである。この結果は、付IV-1表に示した結果以外の予備試験でも同じ傾向を示しているので、GA測定値より本分析法はやや少ない水素量を与えるものと思われる。

IV - 4 考 察

まず、GA社の水素量測定法について簡単に述べる。

$U-ZrH_{16}$ の製造は、 $U-Zr$ の合金に水素を吸収させる方法を取っている。そして、この水素化の過程の前後での重量を測定することによって、その重量差から吸収された水素量を求めている。

従って、温度・時間・雰囲気ガスの純度など水素化の条件は定かではないが、もし水素以外のガス、例えば酸素や窒素などが水素化の過程で水素と一緒に吸収されたとすると（微量ではあろうがその可能性は十分考えられる）、その酸素や窒素など余分に吸収された分だけ測定値は大きくでる筈である。一方、本分析法が低値を与える要因としては水素ガスの抽出不完全、水の吸着などが考えられるが、後者は水素ガスによる回収実験の結果、問題ないことが明らかにされた。以上の考察より、本分析法による分析値はGA測定値と比較して、やや小さな値を示す可能性があるが、その差はわずか2%以下なので、本分析法で得られた結果は、2%誤差内で信頼できるとの確信を得た（詳細については文献(5)を参照のこと）。

次に、燃料ミートの場所的な水素の偏在について考えてみると、付IV-1表では、採取位置1, 4の中央部から採取した試料は少ない水素量を示している。燃料ミートの水素化の方法を考慮すると、水素の吸収はミート表面で行われるので内部の水素量は平均値より低い値を示す可能性は十分考えられる。しかし、水素化の条件がわからないので明確なことはいえないが、多分水素化の温度は800°C前後の高温でかなり長時間かけて水素化を行うのではないかと思われる。このような条件下では、水素は燃料ミート中を容易に移動できるので、^{6), 7)} 水素の偏在はそれほど顕著ではないであろう。また、付IV-1表に示した結果以外の予備試験でも採取位置による水素量に実験誤差の範囲内（原子比で標準偏差±0.02）で差がないとの結果を得ている。更に顕微鏡組織観察においても、特に水素が偏在しているという事実はなかつたので、燃料ミートはH/Zr比が±0.02の範囲内で均一分布をしていると考えられる。

参考文献

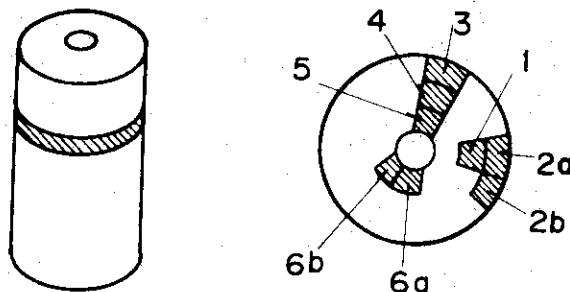
- 1) 核燃料・炉材料等分析委員会： JAERI 4050(1969)
- 2) 同上 ; JAERI-M 4663(1971)

付IV-1表 燃料三一中水素量分析結果

ミート NO.	採取位置	H (wt. %)	H/Zr (原子比)	GA測定値 (H/Zr 原子比)
不明	同一ミート 中より	1.51	1.59	
		1.50	1.58	
		1.48	1.56	
	任意抽出	1.51	1.59	
		1.48	1.56	
		1.49	1.57	
		1.48	1.56	
	平均	1.49±0.02*	1.57±0.02*	1.59~1.61
S-1217-3	1	1.45	1.53	
	2a	1.48	1.56	
	2b	1.51	1.59	
	3	1.51	1.59	
	4	1.46	1.54	
	5	1.46	1.54	
	6a	1.52	1.60	
	6b	1.50	1.58	
	平均	1.49±0.03*	1.57±0.03*	1.59

*標準偏差

〔試料採取位置補足図〕



- 3) A. T. Mcmain, Jr : Private Communication
(unpublished work performed at General Atomic, 1967)
- 4) 例えば, J. W. Raymond : USAEC - Report NAA-SR-9374 (1961)
- 5) 星野昭, 磯修一, 塩沢周策 : JAERI-memo (to be published)
- 6) S. D. Harkness and W. A. Young : NAA-SR-10516 (1965)
"The Diffusion Coefficient of Hydrogen in Delta - Phase Zirconium Hydride"
- 7) V. L. Gelezunas, et al. : J. Electrochem. Soc. 110 (1963) 799

付録 V. 燃料ミートの加熱・冷却特性

燃料試験片に熱サイクルを与えた場合、燃料ミートの加熱・冷却特性がどのようになるかを計算によって求めた。方法は、被覆材温度をダミー試験片で実測することにより、被覆材と燃料ミート間の熱伝達の式より算出した。ここでは、その計算の方法と、それによって算出された燃料ミート温度の加熱・冷却特性の一例について述べる。

一般に、燃料ミートと被覆管の間の熱伝達式は、

$$\rho_F C_F V_F \frac{dT_F}{dt} = U \cdot S (T_c - T_F) \quad \dots \dots \dots (1)$$

但し、
 ρ_F : 燃料密度 C_F : 燃料ミート比熱
 V_F : 燃料ミート体積 T_F : 燃料温度
 T_c : 被覆管温度 S : 伝熱面積
 U : 被覆管 - 燃料ミート間の熱伝達率

で表わされる。ここで U に関しては、ACPR 燃料要素について、J. B. Rivard が実験的に求めている¹⁾。これは、パルス運転直後、被覆管外壁と燃料ミート（ミートの平均温度を与える位置に熱電対を埋め込んでいる）の温度を時間を函数として実測し、(1)式を最もよく満足するよう熱伝達率 U を算出したものである。従って、この値は厳密にはミートの冷却特性を求める時にのみ利用できるものであるが、加熱の場合にもほとんど差がないと考えられるので、冷却・加熱の両方とも文献(1)の値

$$U = 1.437 \times 10^{-8} + 2.895 \times 10^{-6} T_F \text{ (cal/cm}^2 \cdot \text{sec. } ^\circ\text{C}) \quad \dots \dots \dots (2)$$

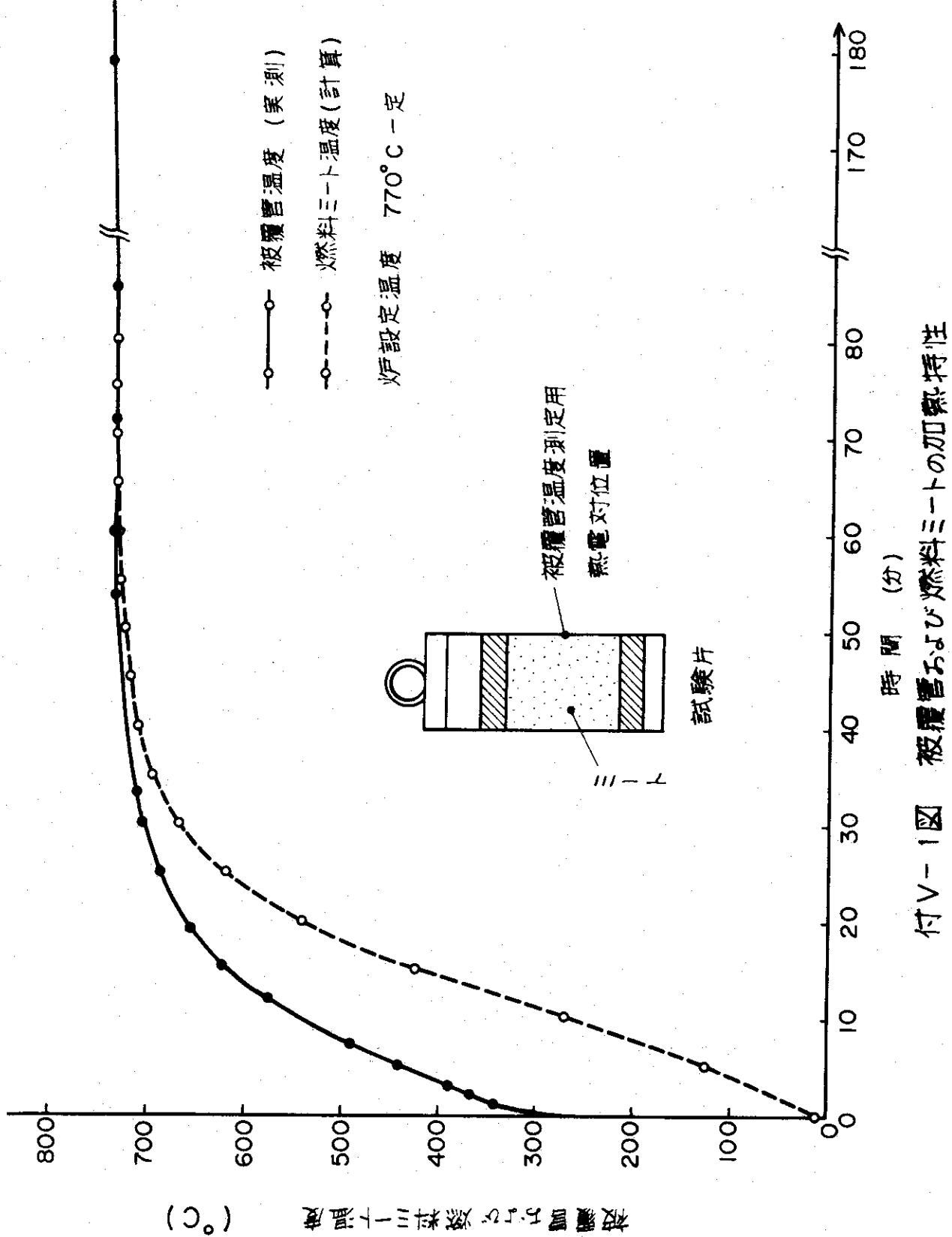
を用いることとする。

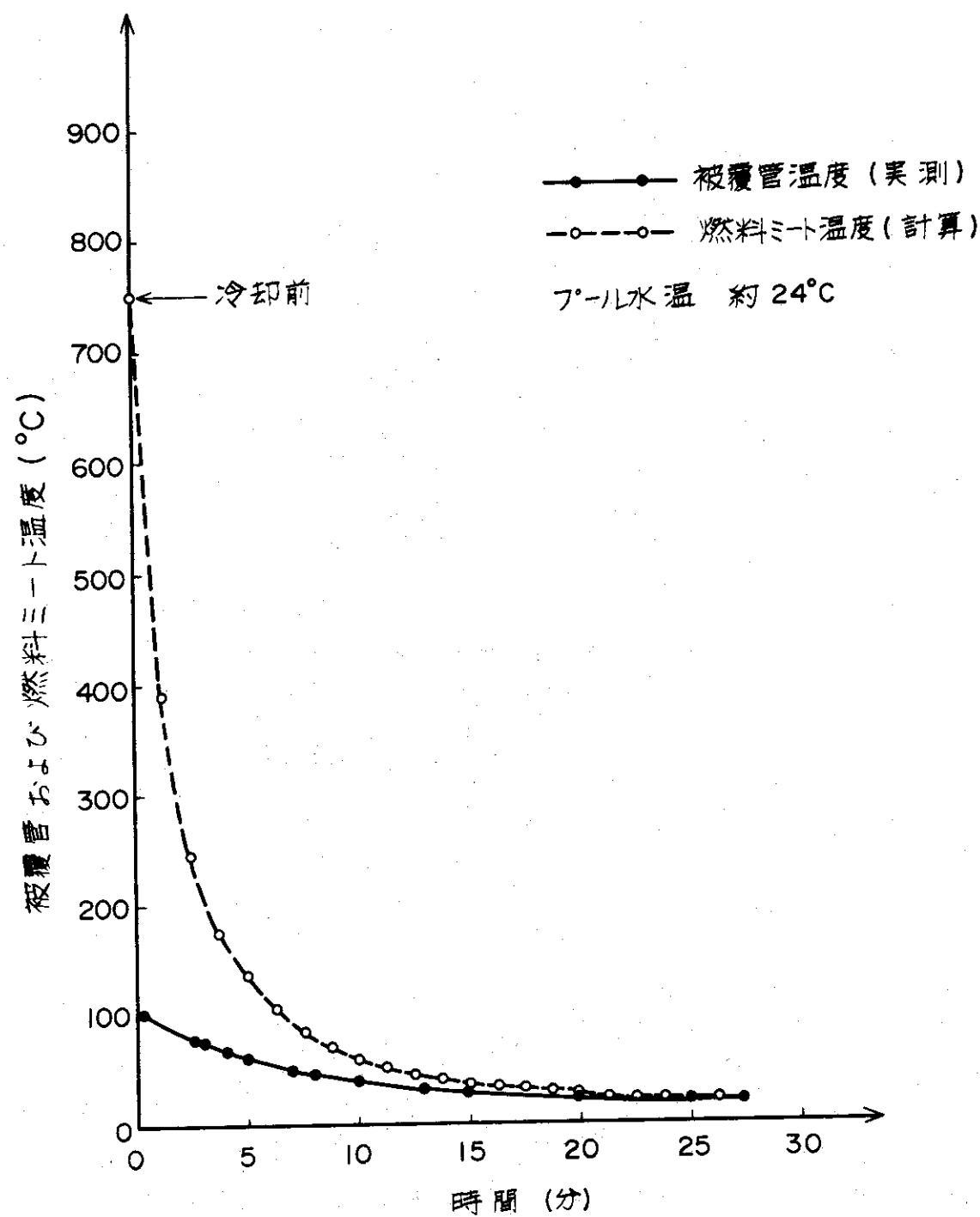
(1)式を解くに当つて、簡単のために T_c , U を時間に対して階段近似する。ある時間 T_c , U が一定として(1)式を解くと、

$$T_F = T_c - (T_c - T_{F_0}) \exp \left(- \frac{U \cdot S}{\rho_F C_F V_F} t \right) \quad \dots \dots \dots (3)$$

となる。

一例として、炉温度を 770°C 一定に保った時の被覆管の加熱特性（実測）を付V-1図に





付V-2図 被覆管および燃料ミートの冷却特性

示す。この実測値に基いて(3)式よりミート温度（平均値）を計算すると付V-1図のようになる。

同様に冷却の場合について求めると付V-2図のようになる。

燃料ミート温度を求めるに際し、ギャップ熱伝達率 h を被覆管とミートの間の空気（大気圧）熱伝導度をギャップ幅で除した値として求めると、

$$h = 1.208 \times 10^{-3} + 3.803 \times 10^{-6} T_g + 1.2665 \times 10^{-9} T_g^2 \quad \dots \dots \dots (4)$$

$(\text{cal/cm}^2 \cdot \text{sec.} \cdot {}^\circ\text{C})$

となる。但し、 T_g はミートと被覆管の間隙の平均温度である。したがって総括伝熱係数 U は、

$$U = \frac{1}{\frac{1}{h} + \frac{1}{(k/d)_{\text{fuel}}} + \frac{1}{(k/d)_{\text{clad}}}} \quad \dots \dots \dots (5)$$

となる。この値を用いて、加熱した場合の燃料ミート温度を求めると、やや高めの値となり、例えば炉設定温度を $770 {}^\circ\text{C}$ に保った時、20分後のミート温度は $590 {}^\circ\text{C}$ になる。

従って、計算上の近似による誤差や熱伝達率の不確定さなどを考慮すると、本文中第III-3表に示した燃料ミートの高温側温度は10%程度の誤差を含むものと思われる。

また、冷却の方は15分以上冷却すれば、ミート温度は $50 {}^\circ\text{C}$ 以下になるので十分冷却されることになる。

参考文献

- Rivard, J. B. ; ACPR Transient heat transfer measurements, SC-DR-68-625 (1968)

付録VI. 水素放出量の検討

水素の被覆管を通しての透過量 F は

$$F = RS (\sqrt{P_1} - \sqrt{P_2}) / \ell \quad \dots \dots \dots (1)$$

で与えられる。但し、

$$R : \text{水素の透過度で, } R = R_0 \exp \left(-\frac{Q}{RT} \right) \quad \dots \dots \dots (2)$$

S : 被覆管の表面積

P_1, P_2 : 被覆管の内面および外面の水素圧

ℓ : 被覆管の厚さ

である。ここで、 R に関しては比較的多く調べられているが、そのうち代表的なものを付VI-1図に示す。ここでは、これらの中で最も大きい透過度を用いることとする。更に、NSRRの定常運転およびパルス運転の条件を付VI-1表のように仮定して、全運転期間を通じての水素の放出量を求める。

定常運転時 0.11 ml/element

パルス運転時 2.5 ml/element

従って、両方で最高 3 ml/element である。一方ミート中の水素量は、 380 l/element であるから約 7×10^{-6} しか被覆管を通して逃げていかなることになるので、ほとんど無視できる量である。

次に本水素リーク試験条件と実際の運転の場合の水素放出量の比較を行つてみる。

本試験での水素放出量を F_t 、実際の定常運転およびパルス運転時の放出量をそれぞれ F_s 、 F_p とすると(1)式より、

$$F_t/F_s = 0.14 \times \frac{R_{600}}{R_{130}} \quad \dots \dots \quad (3)$$

$$F_t/F_p = 6.2 \times 10^{-3} \times \frac{R_{600}}{R_{130}} \quad \dots \dots \quad (4)$$

となる。ここで、 R_{600}/R_{130} は、 600°C の透過度と 130°C のそれとの比で(2)式より求まる。水素透過の活性化エネルギー Q は、付 VI - 2 表に示すように、 $12 \sim 16 \text{ cal/mol}$ である。従つて、(3)、(4)式より

$$F_t/F_s = 4.6 \times 10^2 \sim 6.9 \times 10^3$$

$$F_t/F_p = 2.0 \sim 3 \times 10^2$$

となる。

以上の結果より、本リーク試験は水素の逃げに関して 20 倍以上苛酷な条件を課したことになる。

付VI-1表 NSRR 運転条件*

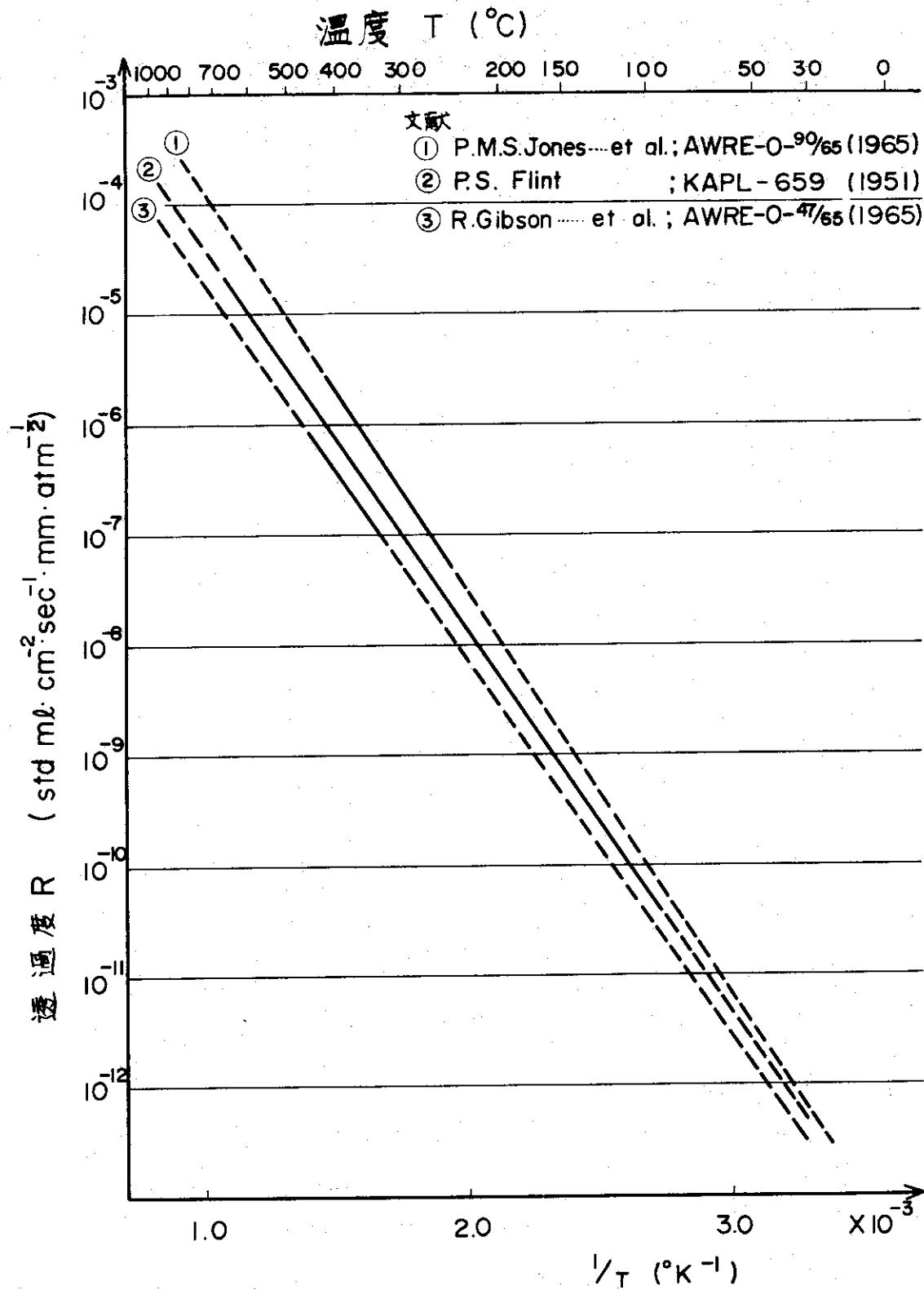
運転モード	燃料表面 温度(°C)	被覆材 温度(°C)	被覆管内 水素圧(atm)	積算運転時間** (sec)	備考
定常運転	500	130	4.5×10^{-4}	7.48×10^6	
パルス運転	960	130	1.0	8.20×10^5	パルス発生後 0~2.5 min
	"	100	"	"	" 2.5~5 min
	"	75	"	1.64×10^6	" 5~10 min
	"	50	"	3.29×10^6	" 10~20 min

* この条件は、透過水素量が最も多くなるよう仮定した。

** 使用期間を5年とした。

付VI-2表 水素透過度の活性化エネルギー

研究者	材料	温 度(°C)	Q kcal/mol	表面状態	文 献
Yu. I. Belyakov			13.9	両面が粗い	Fiz. khim. #22 (1970)
Yu. I. Zuezdin	Fe - 18Cr - 10Ni - Ti	500~700	15.0	H ₂ の侵入側を 研磨	
A. A. Kurdyumov			16.1	両面研磨	
V. I. Suhbotin et al.	Fe - 18Cr - 10Ni - Ti	650	12.0 ± 3.0 16.4 ± 3.2	表面が金属光沢 表面が酸化	At. Energ. 30 (1971)
J. R. Phillips et al.	Fe - 18Cr - 8Ni	300~600	12.5		A. I. Ch. E. J. (1968)
R. Gibson	S110 S.S (Nb安定化オーステナイト鋼)	350~450	13.2~13.4		AWRE-O-47/65 (1965)
P. M. S. Jones	304L S.S	250~400	16.1		AWRE-O-90/65 (1965)



付VI-1図 ステンレス鋼中の水素の透過度

正 言 異 奏

行	手	音	奏者	備考
1	上から4行目	藤 盛 俊 夫	藤 盛 俊 夫	ウラン水素化 ミルコニウム
1	上から9行目	ウラン水素化 ミルコニウム	水素化 1.6% ウラン水素化	ミルコニウム
1	上から17行目	水素化 1.6% ウラン水素化	ミルコニウム	操作によって行一換算
2	下から8行目	1まんどなし、	1まんどなし、	ほとんどなし、圧力、
2	下から12行目	1曲を	1曲を	相当の変曲も
2	下から14行目	(付録Ⅵ参照)	(付録Ⅵ参照)	(付録Ⅵ参照)
2	上から9行目	工芸がんじかく	工芸がんじかく	工芸がんじかく
2	下から7行目	水素一倉分析結果	水素一倉分析結果	水素量分析結果
46	上から6行目	(奏多音トリ)	(奏多音トリ)	石川 達夫 常長
49	上から9行目			
57	上から9行目			
73	上から9行目			