

JAERI-M

6 2 5 0

被覆粒子照射用キャプセルの故障報告

(7 2 F - 7 A)

1 9 7 5 年10月

八卷治恵・野村 靖・長松谷孝昭・山原 武・酒井陽之

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、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

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.

被覆粒子照射用キャプセル(72F-7A)の故障報告

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

八巻治恵・野村 靖・長松谷孝昭・山原 武*・酒井陽之

(1975年9月4日受理)

昭和49年5月20日JMTR第27サイクル運転中、多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料の試験試料の照射キャプセル72F-7Aから微量の核分裂生成物が漏洩するという異常現象が発生した。この現象の原因究明を行った結果、照射時に試料温度を約1600℃に保持するために、キャプセル内に組込んだ熱反射板(Ni)と不純物ガス吸着を目的とした板(TiおよびZr)が接触しており、この部分の温度が照射時約1000℃となり接触点を通してこれらの金属の拡散が起き、この温度で液相をなす低融点合金ができ、燃料被覆管(Nb-1%Zr)をも溶し管壁にピン・ホールができたためであることが判った。この報告書は故障の発生状況および処置、キャプセル設計の考え方、原因究明のため行った照射後試験および模擬キャプセルを用いた再現確認試験について報告する。

* 現在：東海研究所 安全性試験研究センター，燃料試験施設準備室

Failure of the Capsule for Coated Particles Irradiation

Jikei YAMAKI, Yasushi NOMURA, Takaaki NAGAMATSUYA
Takeshi YAMAHARA⁺ and Haruyuki SAKAI

Division of JMTR Project, Oarai, JAERI

(Received September 4, 1975)

During operation cycle No. 27 of the JMTR (Japan Material Testing Reactor) on May 20, 1974, leakage of the fission product gas occurred from the capsule 72F-7A, which contained coated particles for the irradiation; the coated particles are for the development of a multi-purpose high temperature gas cooled reactor.

The capsule was designed for heat 1600°C. Three nickel plates as the heat reflector were sandwiched in between the plates of titanium and zirconium, which were adsorbents for the impurity gases in the cladding tube (Nb-1%Zr). Temperatures of the plates were about 1000°C under the irradiation, so one metal diffused into the other metal through interfaces, resulting in the formation of an alloy. Its melting point was lower than those of metals in the capsule. The cladding material Nb-1%Zr was melted by the alloy and finally a pin hole developed through the cladding.

The process of failure, design of the capsule, post-irradiation test of the capsule and the failure-reproducing experiment with a mock-up capsule are described.

⁺) Present Address: Office of Reactor Fuel Examination Facility,
Reactor Safety Research Center, Tokai, JAERI

目 次

| | |
|--------------------------------|----|
| 1. 概 要 | 1 |
| 2. 経過概況 | 2 |
| 2.1 72F-7AキャプセルおよびJMTR-第27サイクル | 2 |
| 2.2 異常発見からの経過 | 2 |
| 3. 72F-7Aキャプセルの設計 | 4 |
| 3.1 設計について | 4 |
| 3.2 構造設計 | 5 |
| 3.3 熱設計 | 7 |
| 3.4 強度設計 | 10 |
| 3.5 設計上の反省 | 28 |
| 4. 照射後試験 | 28 |
| 4.1 非破壊検査 | 28 |
| 4.2 破壊検査 | 32 |
| 4.3 照射後試験のまとめ | 38 |
| 5. 模擬キャプセルによる炉外実験 | 60 |
| 5.1 再現性確認試験について | 60 |
| 5.2 方 法 | 60 |
| 5.3 実験結果および考察 | 61 |
| 5.4 確認試験のまとめ | 62 |
| 6. 故障原因の考察と今後の対策 | 73 |
| 7. むすび | 75 |
| 8. 文 献 | 76 |

List of Figures

| | Page |
|-----------|---|
| Fig. 2-1 | Gamma Spectrum of Leakage Gases From 72F-7A Capsule ... 3 |
| Fig. 2-2 | Temperatures of the coated particles in 72F-7A Capsule . 3 |
| Fig. 3-1 | 72F-7A Capsule for High temperature irradiation of coated particle fuels 19 |
| Fig. 3-2 | 72F-7A Capsule's one Block Assembly 20 |
| Fig. 3-3 | Simplified Cross Section at the fuel Region of the 72F-7A Capsule Showing the Radii of the Components ... 21 |
| Fig. 3-4 | Linear Heat Rate and Burn up Change with irradiation cycles 22 |
| Fig. 3-5 | Temperature vs. Linear Heat Rate 22 |
| Fig. 3-6 | Estimated Radial Temperature Profile at Start up on 72F-7A Capsule 23 |
| Fig. 3-7 | Average Nb-1%Zr Alloy Tensile Strength from Room temperature to 3000°F 24 |
| Fig. 3-8 | Physical properties of Nb-1%Zr Alloy 24 |
| Fig. 3-9 | Stress rupture properties of moderate and low strength columbium alloy 25 |
| Fig. 3-10 | Creep properties (1% strain) of moderate and low strength columbium alloy 25 |
| Fig. 3-11 | Larson-Miller curve of Time to 1.0 percent Total Creep for Nb-1%Zr Alloy 26 |
| Fig. 3-12 | Nb-1%Zr Alloy Stress Rupture Data on Larson-Miller plot. 27 |
| Fig. 4-1 | Schematic drawing of visual examination of outer-tube capsule 40 |
| Fig. 4-2 | Schematic drawing of visual examination of heat transfer medium 40 |
| Fig. 4-3 | Schematic drawing of blister on outside surface of Nb-1%Zr cladding tube 41 |
| Fig. 4-4 | X-ray radiographic inspection of cladding tube 42 |
| Fig. 4-5 | Dimensional changes of cladding tube 30 |
| Fig. 4-6 | Schematic drawing of visual examination of in-side face of Nb-1%Zr cladding tube 43 |
| Fig. 4-7 | Remarkable X-ray images of Nb-1%Zr cladding tube 34 |
| Fig. 4-8 | Sampling position of metallographic specimens from cladding 46 |
| Fig. 4-9 | Sampling position of metallographic specimens from components in cladding 46 |

| | | |
|-----------|---|----|
| Fig. 4-10 | Macrograph of blister on the out-side surface of Nb-1%Zr cladding tube | 40 |
| Fig. 4-11 | Photocopy radiograph of cladding tube | 42 |
| Fig. 4-12 | Blister (A') on inside surface of Nb-1%Zr cladding tube. | 44 |
| Fig. 4-13 | Blister (B') on inside surface of Nb-1%Zr cladding tube. | 44 |
| Fig. 4-14 | External view of Mo holder showing longitudinal hair crack | 45 |
| Fig. 4-15 | External view of Nb-1%Zr well tube | 45 |
| Fig. 4-16 | Sampling position and macrograph (×3) of metallographic specimens from cladding | 47 |
| Fig. 4-17 | Transvers sections of blister (A) of cladding (74F-013) after polished and etched | 49 |
| Fig. 4-18 | Photomicrograph showing the failure of cladding (A part of Figure 4-17) | 49 |
| Fig. 4-19 | Longitudinal section of blister "B" and neighborhood (74F-016) | 50 |
| Fig. 4-20 | Longitudinal section of defects near the blister "A" (74F-014-1,2) | 51 |
| Fig. 4-21 | Microstructure of defects of cladding | 51 |
| Fig. 4-22 | Stereoscopic photograph of longitudinal section of well's top end | 52 |
| Fig. 4-23 | Microstructure of well | 52 |
| Fig. 4-24 | Microstructure of defect area of Mo specimen holder ... | 53 |
| Fig. 4-25 | Alloy phase and hair crack of Mo specimen holder | 53 |
| Fig. 4-26 | Microstructure of alloying phase of Mo specimen holder . | 54 |
| Fig. 4-27 | Stereoscopic photograph of oxygen getter, heat reflector and graphite insulator | 55 |
| Fig. 4-28 | Microstructure of melt heat reflector and oxygen getter. | 55 |
| Fig. 4-29 | Microstructure of melt heat reflector and oxygen getter. | 56 |
| Fig. 4-30 | Microstructure of annealed spring and tailed upper Zr, oxygen getter | 57 |
| Fig. 5-1 | Phase-diagram of Ti-Ni alloy | 63 |
| Fig. 5-2 | Phase-diagram of Zr-Ni alloy | 63 |
| Fig. 5-3 | Mockup capsule tested | 64 |
| Fig. 5-4 | Photograph of the apparatus | 65 |
| Fig. 5-5 | Testing schedule | 65 |
| Fig. 5-6 | X-ray radiographs of testing capsule | 66 |
| Fig. 5-7 | Cross-section of getters and well of dummy capsule after heating for 100 hours at 1000°C | 67 |

| | | |
|-----------|--|----|
| Fig. 5-8 | Cross-section of insulator of the dummy capsule after heating 100 hours at 1000°C | 67 |
| Fig. 5-9 | Interface of Nb-1%Zr and molten alloy | 67 |
| Fig. 5-10 | Nb-1%Zr alloy attacked interface by molten alloy | 68 |
| Fig. 5-11 | Interface of Nb-1%Zr alloy and Graphite insulator | 68 |
| Fig. 5-12 | Interface of Nb-1%Zr alloy, molten alloy and inconel 600 | 69 |
| Fig. 5-13 | Interface of inconel 600 and molten alloy and its X-ray images | 70 |
| Fig. 5-14 | Interface of Nb-1%Zr alloy and molten alloy and its X-ray images | 71 |
| Fig. 5-15 | Cross-section of Nb-Zr-Ni-Nb compatibility test specimens heated for 50 hours at 1000°C | 72 |
| Fig. 6-1 | Photocopy radiograph of 72F-6A capsule with outer tube and heat transfer medium | 74 |

List of Tables

| | Page | |
|-----------|---|----|
| Table 3-1 | Irradiation capsules for coated particle fuels | 14 |
| Table 3-2 | Irradiation specifications of 72F-7A capsule | 15 |
| Table 3-3 | Specifications of coated particle fuels | 15 |
| Table 3-4 | Comparison of thermal and mechanical properties of stainless steel and Nb-1%Zr alloy | 16 |
| Table 3-5 | 72F-7A Capsule design | 17 |
| Table 3-6 | Summary of Input Data Deviations on 72F-7A GENGTC calculation | 18 |
| Table 3-7 | Statistic Error Analysis on 72F-7A GENGTC calculation . | 18 |
| Table 4-1 | Preparation of metallographic specimens | 48 |
| Table 4-2 | Hardness of cladding | 58 |
| Table 4-3 | Hardness of well | 58 |
| Table 4-4 | Hardness of specimen holder | 58 |
| Table 4-5 | Hardness of upper oxygen getter (Zr) . | 59 |
| Table 4-6 | Hardness of lower oxygen getter and heat reflector ... | 59 |
| Table 4-7 | Hardness of spring | 59 |
| Table 4-8 | Recrystallized grain size of cladding | 38 |

1. 概 要

JMTR第27サイクルの運転中、昭和49年5月20日照射試料の温度制御用の真空温度制御装置の排気系に設けられた放射線モニターから警報が発生し、その排気ガスをサンプリングし核種分析の結果、炉心位置G-10にて照射を行っていた多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料キャプセル72F-7Aから微量の核分裂生成物を伴った放射性ガスの漏洩があることが判明した。漏洩量としては微量であったが、拡大性を避けて照射を中止し原子炉からキャプセルを取出した。

この72F-7Aキャプセルは、円筒状グラファイトの同一円周上に8ヶの孔をあけ、その中に被覆粒子燃料を詰め、グラファイトで蓋をしたものをモリブデンの円筒管に入れ、上下面に中側から断熱用ポーラス・グラファイトガス吸着用ジルコニウム板、熱反射用ニッケル板3枚およびガス吸着用チタン板の順に同材のパッドを用いて1mm間隔ができるように並べ、これをニオブ-1%ジルコニウム被覆管の中に封入し、さらにこれをステンレスの内筒管に入れ、このステンレス管と共引加工で密接したアルミニウム熱媒体がこの外側に着いている構造のユニットを3段組込んだものが、ステンレスの外筒管に封入された構造になっている。この72F-7Aキャプセルは、3辺が燃料要素に接し他の1辺がベリリウム反射体に接する3インチ角のアルミニウム反射体中央にある42mm ϕ の照射孔に挿入され、JMTR原子炉熱出力50MW時に熱中性子束約 1.9×10^{14} n/cm²·sec、速中性子束約 1.3×10^{14} n/cm²·secの位置で、発熱量約300w/cm、燃焼率2%FIMAまで、試料温度は中段を1600°C、上段・下段を1400°Cに制御して照射する予定のものであった。

キャプセル取出し後、この異常現象の原因究明のため昭和49年6月より、ホット・ラボにおいて照射後試験を行なった。またこれに併行して模擬キャプセルによる炉外試験およびチタン・ニッケル等の金属の高温ヘリウム条件下での両立性試験を実施した。この結果次のような原因が判明した。キャプセル被覆管内に不純物ガス吸着板として用いたチタンおよびジルコニウムと照射試料を高温に保持する目的に用いたニッケル熱反射板が接していたため、各材料がそれぞれの融点より低い温度に保持されていたにもかかわらず、異種金属の接点を通して相互に金属の拡散が起き、これらの金属間化合物が生じた。ニッケル・チタンおよびニッケル・ジルコニウムの各二元合金相図からそれぞれの共晶点の温度を求めると955°Cと961°Cが得られる。キャプセル内では3種の金属による低融点合金ができ、さらに被覆管に用いたニオブ-1%ジルコニウムをも融かし、管壁にピン・ホールを作った。被覆管内は製作時常温で1気圧のヘリウムを充填してあり、内部は1000°C以上の高温で照射しており、その外側は試料温度制御のための減圧ヘリウム層であったので、内部に発生した核分裂生成物の稀ガス、即ち主にゼノン・クリプトンが被覆管にできたピン・ホールを通して減圧側にて、真空温度制御装置の排気系に漏れ出したことによる異常現象であった。

多目的高温ガス炉用燃料の照射実験で生じた現象で、キャプセルに装荷した燃料も少ない状態であり、しかも異常現象の初期において発見し処置を行なったため大事に至らず、このキャプセルの照射中止という問題はあったが、1000°C付近の高温に使用する耐熱金属はそれぞれの融点はその使用温度より相当高いものであっても同一雰囲気異種金属を組み込むと相互に拡散現象による金属移動が生じ低融点合金を作り、構造材の強度が極端に悪化してしまうという原子炉構造材の撰択のための教訓を得た。

これを反映して、72F-7Aに続いて製作中であった同種のキャプセルに対し、直ちに設計変更を行

ない、チタンおよびニッケルの材料の使用をやめ、ジルコニウムのみにした。この結果、JMTR 第30サイクル以後問題なく照射実験を行なっており、第32サイクルで照射完了した72F-6AをX線写真で観察した結果キャプセル構造材に72F-7Aのような異常は認められなかった。

この報告では、第2章で経過概況、第3章で設計上の検討項目、第4章で照射後試験、第5章で再現性確認試験について述べる。(八巻)

2. 経過概要

2.1 72F-7A キャプセルおよびJMTR第27サイクル

72F-7Aキャプセルは、燃料工学部燃料照射研究室から依頼を受けて製作したもので、多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料の照射挙動の研究のため、実施したものである。

照射に用いた被覆粒子は燃料照射研究室の設計により原子燃料工業株式会社で製造されたものであり、キャプセルは材料試験炉部照射第1課の設計により、技術部工作課にて製作したものである。

昭和49年3月に製作完了し、72F-7Aの炉内装荷を4月12日に行なった。照射位置はG-10、ノズル番号21を通し、真空温度制御装置5号機の3・4系統を使用した。

JMTRの運転は、年間6サイクルを標準目標とし、1サイクルの運転時間は前半12日、後半12日とし、その間に2日間原子炉燃料交換のための中間停止期間が設けてある。第27サイクルは昭和49年5月12日より開始し、6月8日までの運転を計画したものであった。しかし50MW運転中5月15日21時50分原子炉微調整棒速度異常で緊急停止が起り、ゼノン毒作用効果で直後の再起動ができなくなり、5月18日20時から再起動を行なった。また5月20日10時35分より、72F-7Aよりの放射能もれが生じ、キャプセル取出しのため、再び停止を行なった。72F-7Aの原子炉出力50MW相当での照射時間は約85時間であった。第27サイクルはこのあと5月22日から26日までの運転を行なった。

2.2 キャプセル異常発見からの経過

昭和49年5月20日、原子炉出力50MWで運転中10時35分キャプセル排気モニターからアラームが発生した。正常運転時の指示値は、10CPS程度であるものが 2×10^3 CPSを示していた。直ちに可搬モニターで排気用配管を通しての接続箱の表面をサーベしたところ、通常0.05mr/hrのバックグラウンドの所が5mr/hrになっていた。同時に72F-7A用制御盤周辺の空気汚染を測定したが検出されず、系外への洩れ出しはないことが確認された。またキャプセル排気ガスが流れていく第2排気系全体のモニターの線量率は平常時の値を示し異常はなかった。これらから漏出放射能は微量で、その流量は非常に少ないものと推定された。しかし燃料試料照射用キャプセルにおける異常現象であるため11時23分原子炉出力を40MWに出力低下し、線量率の変化の監視を行なったところ、しだいに減少する傾向を示し、11時50分でキャプセル排気モニターの指示値は 7×10^2 CPSとなった。核種分析のためのガス・サンプリングを行なった後、試料温度制御のため減圧していたキャプセル内ギャップにヘリウムを封入し、圧力差で漏出する放射能がでてこないように、12時8分に処置をした。このため洩れだす放射能はほとんど無くなり、キャプセル排気モニターの指示値は 2.2×10^2 CPSに下がった。これは排気用配管内にとどまっているガスの計測を行なったものであると考えられる。この間に先に採取したサンプリング・ガスの核種分析の結果が得られ稀ガスを主にした核分裂生成物である事

ない、チタンおよびニッケルの材料の使用をやめ、ジルコニウムのみにした。この結果、JMTR 第30サイクル以後問題なく照射実験を行っており、第32サイクルで照射完了した72F-6AをX線写真で観察した結果キャプセル構造材に72F-7Aのような異常は認められなかった。

この報告では、第2章で経過概況、第3章で設計上の検討項目、第4章で照射後試験、第5章で再現性確認試験について述べる。(八巻)

2. 経過概要

2.1 72F-7A キャプセルおよびJMTR第27サイクル

72F-7Aキャプセルは、燃料工学部燃料照射研究室から依頼を受けて製作したもので、多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料の照射挙動の研究のため、実施したものである。

照射に用いた被覆粒子は燃料照射研究室の設計により原子燃料工業株式会社で製造されたものであり、キャプセルは材料試験炉部照射第1課の設計により、技術部工作課にて製作したものである。

昭和49年3月に製作完了し、72F-7Aの炉内装荷を4月12日に行なった。照射位置はG-10、ノズル番号21を通し、真空温度制御装置5号機の3・4系統を使用した。

JMTRの運転は、年間6サイクルを標準目標とし、1サイクルの運転時間は前半12日、後半12日とし、その間に2日間原子炉燃料交換のための中間停止期間が設けてある。第27サイクルは昭和49年5月12日より開始し、6月8日までの運転を計画したものであった。しかし50MW運転中5月15日21時50分原子炉微調整棒速度異常で緊急停止が起り、ゼノン毒作用効果で直後の再起動ができなくなり、5月18日20時から再起動を行なった。また5月20日10時35分より、72F-7Aよりの放射能もれが生じ、キャプセル取出しのため、再び停止を行なった。72F-7Aの原子炉出力50MW相当での照射時間は約85時間であった。第27サイクルはこのあと5月22日から26日までの運転を行なった。

2.2 キャプセル異常発見からの経過

昭和49年5月20日、原子炉出力50MWで運転中10時35分キャプセル排気モニターからアラームが発生した。正常運転時の指示値は、10CPS程度であるものが 2×10^3 CPSを示していた。直ちに可搬モニターで排気用配管を通しての接続箱の表面をサーベしたところ、通常0.05mr/hrのバックグラウンドの所が5mr/hrになっていた。同時に72F-7A用制御盤周辺の空気汚染を測定したが検出されず、系外への洩れ出しはないことが確認された。またキャプセル排気ガスが流れていく第2排気系全体のモニターの線量率は平常時の値を示し異常はなかった。これらから漏出放射能は微量で、その流量は非常に少ないものと推定された。しかし燃料試料照射用キャプセルにおける異常現象であるため11時23分原子炉出力を40MWに出力低下し、線量率の変化の監視を行なったところ、しだいに減少する傾向を示し、11時50分でキャプセル排気モニターの指示値は 7×10^2 CPSとなった。核種分析のためのガス・サンプリングを行なった後、試料温度制御のため減圧していたキャプセル内ギャップにヘリウムを封入し、圧力差で漏出する放射能がでてこないように、12時8分に処置をした。このため洩れだす放射能はほとんど無くなり、キャプセル排気モニターの指示値は 2.2×10^2 CPSに下がった。これは排気用配管内にとどまっているガスの計測を行なったものであると考えられる。この間に先に採取したサンプリング・ガスの核種分析の結果が得られ稀ガスを主にした核分裂生成物である事

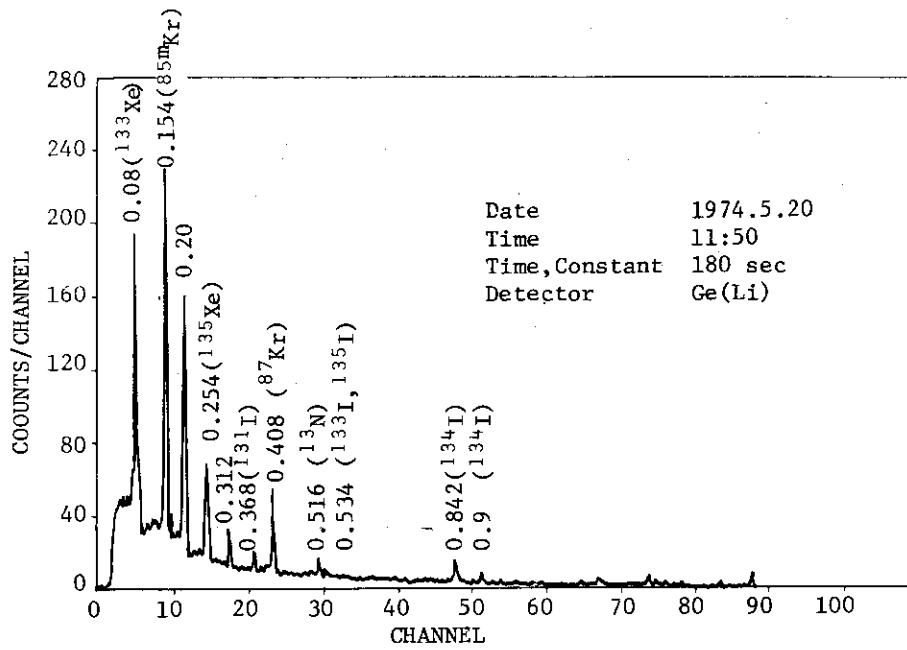


Fig. 2-1 Gamma Spectrum of Reakage Gases from 72F-7A Capsule

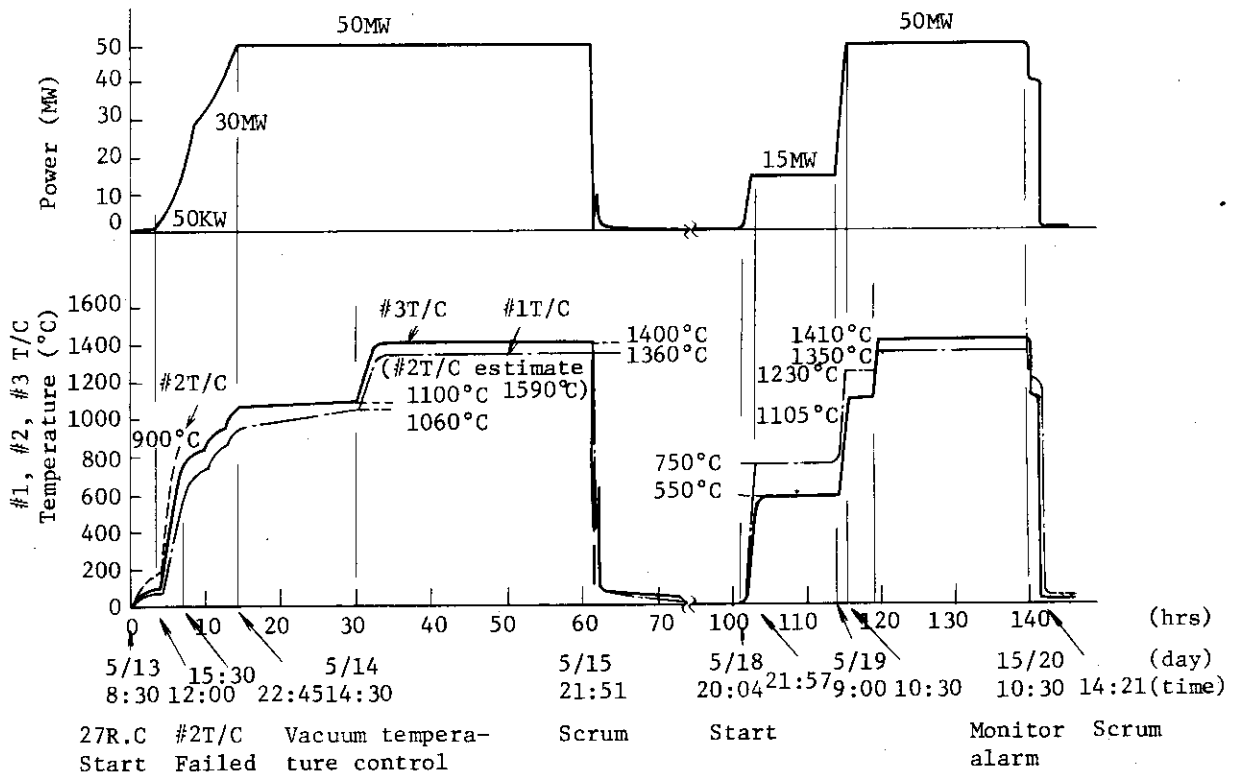


Fig. 2-2 Temperature of the Coated Particles in 72F-7A Capsule

がわかり、14時21分原子炉停止操作を行なった。サンプリング・ガスの放射能核種の測定はGe(Li)測定器で行なった。この時の記録をFig. 2.1に示した。ヘリウム封じ込みによりキャプセル内にとじ込めた放射能の減衰を5月21日朝まで待ち、同時に原子炉系、照射施設等の停止操作を行なった。21日8時30分よりヘリウム・ギャップ層の放射能測定のため、この部分のガスを引いた。この時のキャプセル排気モニターの指示値の最高は100 CPSであり、バックグラウンドの10倍程度であった。ギャップ内のヘリウム置換を行なうと放射エネルギーは減少してきた。これは燃料部分からあらたにギャップ部分へ出る放射能はほとんどなくなったためと考えられた。これは照射時の高温であった構成材が、原子炉停止により常温になり、放射能漏洩の経路が閉じる方向に変化したものであると推測された。内部のヘリウム置換を続けながら、キャプセル取出の準備作業を行ない、キャプセル上端で制御用配管はロー付により封じ、13時15分炉心より取出を行なった。

5月13日の第27サイクル出力上昇時から5月20日の原子炉停止までの出力経過とキャプセル内熱電対の指示値の変化をFig. 2.2に示した。これら熱電対は3段に組込まれた被覆粒子燃料の中央部を測定したものであり、これらはほぼ試料温度を指示しているものと考えられる。中段の温度測定を行なった熱電対#2は初期出力上昇時に切断し、その後温度指示は回復したが、不安定のため省略した。原子炉出力50MW時の中段の試料温度は縦方向ガンマ発熱分布を用い、上下段の熱電対指示値から1590℃と推定した。

原子炉から取出後カナル内でキャプセルを保管し、燃料部の放射能減衰を待ち、昭和49年6月25日ホットラボに搬入し、原因究明の照射後試験を実施した。7月上旬までにX線ラジオグラフィーで内部観察ができた。この結果、熱反射板(材料はニッケル)、不純物ガス・ゲッター(チタンおよびジルコニウム)およびポーラス・グラファイト部分における反応であることが判った。これは異常発生時に想定していた被覆破損は燃料中心部分測定のために組込んだ熱電対のウエルチューブであろうと考えていたものと異なっていた。照射中高温になった燃料装荷部分は、その構成材の変化は特になく、それらから縦方向上下に離れた部分である事が、照射前と照射後のX線ラジオグラフィーの比較から明示された。

この状況観察結果および熱解析等の検討により、ニッケル、チタンおよびジルコニウムによる低融点合金の生成が主要原因であろうと推測された。この再現性確認試験を計画し実施に移し、また照射後試験をより内部に進めることとした。

昭和49年12月には再現性確認試験で低融点合金による現象であることが明確になった。また照射後試験による原因調査も、昭和50年1月には、作業を完了した。(八巻)

3. 72F-7Aキャプセルの設計

3.1 設計について

原研においては多目的高温ガス炉用燃料の研究が行なわれており被覆粒子燃料の選別確性試験としてJMTRを用いたキャプセル照射実験が行なわれてきた。Table. 3.1に被覆粒子燃料のJMTRにおける照射実績と当面の計画を示す。72F-7Aキャプセルは比較的初期に設計されたものであり高温キャプセルとして設計上未知な問題を含みながらも最高照射温度1600℃をはじめ目標としたものである。

がわかり、14時21分原子炉停止操作を行なった。サンプリング・ガスの放射能核種の測定はGe(Li)測定器で行なった。この時の記録をFig. 2.1に示した。ヘリウム封じ込みによりキャプセル内にとじ込めた放射能の減衰を5月21日朝まで待ち、同時に原子炉系、照射施設等の停止操作を行なった。21日8時30分よりヘリウム・ギャップ層の放射能測定のため、この部分のガスを引いた。この時のキャプセル排気モニターの指示値の最高は100 CPSであり、バックグラウンドの10倍程度であった。ギャップ内のヘリウム置換を行なうと放射エネルギーは減少してきた。これは燃料部分からあらたにギャップ部分へ出る放射能はほとんどなくなったためと考えられた。これは照射時の高温度であった構成材が、原子炉停止により常温になり、放射能漏洩の経路が閉じる方向に変化したものであると推測された。内部のヘリウム置換を続けながら、キャプセル取出の準備作業を行ない、キャプセル上端で制御用配管はロー付により封じ、13時15分炉心より取出を行なった。

5月13日の第27サイクル出力上昇時から5月20日の原子炉停止までの出力経過とキャプセル内熱電対の指示値の変化をFig. 2.2に示した。これら熱電対は3段に組込まれた被覆粒子燃料の中央部を測定したものであり、これらはほぼ試料温度を指示しているものと考えられる。中段の温度測定を行なった熱電対#2は初期出力上昇時に切断し、その後温度指示は回復したが、不安定のため省略した。原子炉出力50MW時の中段の試料温度は縦方向ガンマ発熱分布を用い、上下段の熱電対指示値から1590℃と推定した。

原子炉から取出後カナル内でキャプセルを保管し、燃料部の放射能減衰を待ち、昭和49年6月25日ホットラボに搬入し、原因究明の照射後試験を実施した。7月上旬までにX線ラジオグラフィーで内部観察ができた。この結果、熱反射板(材料はニッケル)、不純物ガス・ゲッター(チタンおよびジルコニウム)およびポーラス・グラファイト部分における反応であることが判った。これは異常発生時に想定していた被覆破損は燃料中心部分測定のために組込んだ熱電対のウエルチューブであろうと考えていたものと異なっていた。照射中高温になった燃料装荷部分は、その構成材の変化は特になく、それらから縦方向上下に離れた部分である事が、照射前と照射後のX線ラジオグラフィーの比較から明示された。

この状況観察結果および熱解析等の検討により、ニッケル、チタンおよびジルコニウムによる低融点合金の生成が主原因であろうと推測された。この再現性確認試験を計画し実施に移し、また照射後試験をより内部に進めることとした。

昭和49年12月には再現性確認試験で低融点合金による現象であることが明確になった。また照射後試験による原因調査も、昭和50年1月には、作業を完了した。(八巻)

3. 72F-7Aキャプセルの設計

3.1 設計について

原研においては多目的高温ガス炉用燃料の研究が行なわれており被覆粒子燃料の選別確性試験としてJMTRを用いたキャプセル照射実験が行なわれてきた。Table. 3.1に被覆粒子燃料のJMTRにおける照射実績と当面の計画を示す。72F-7Aキャプセルは比較的初期に設計されたものであり高温キャプセルとして設計上未知な問題を含みながらも最高照射温度1600℃をはじめ目標としたものである。

不幸にも72F-7Aキャプセルは照射初期において破損事故を引きおこし照射中止の処置がとられた。本章においては72F-7Aキャプセルの設計内容，即ち構造設計，熱設計，強度設計について略述して，高温キャプセル故障原因の究明に役立たせることを目的とした。

3.2 構造設計

72F-7AキャプセルはTable. 3.3に示すような仕様を有する被覆粒子燃料⁸⁾を照射してその挙動を調べるために設計製作された。照射条件はTable. 3.2に示す如く試料の最高照射温度1600℃，燃焼率2.1%FIMA，速中性子束照射量 $0.9 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ である。これらの条件を達成するためにキャプセルはJMTRの炉心の燃料領域孔に挿入する。このときのガンマ線吸収による構造材のガンマ発熱は約10 watt/gr. 試料の核分裂による発熱は照射初期で約300 w/cm，2サイクル照射後で約200 w/cmになることがJMTR特性試験及び核計算の結果から推定された。⁹⁾

被覆粒子照射試料の被覆層材質，製造方法などをパラメータとし照射条件を変えて特性を調べるためにFig. 3.1のキャプセル全体構成図に示す如く上，中，下三段の試料ブロックに分け各段独立に温度制御が可能ないように真空中制御管を配した。各段は全く同様の構造，寸法をしておりFig. 3.2に示す如くである。¹¹⁾ キャプセル構成部材の設計主要目をTable. 3.5に一覧表として掲げてある。

次に主要部分について項目別に概略説明する。^{10),11)}

1) 黒鉛製試料ホルダー

被覆粒子燃料を1600℃近辺の高温照射時において安定に保持するために黒鉛製とする。照射試料の種類を違えたものを別々に装荷し又照射後取り出すことが可能なようにFig. 3.2の断面図に示す如く煉炭型の小孔を円周上に並べた構造とする。照射中試料がこぼれおちないように同じく黒鉛製の上，下ねじふたを設けてある。

2) ポーラスカーボン製断熱材

試料部分で発生した核発熱はできるだけ径方向に流す設計とするため試料ホルダーの上下に断熱材を設ける。この材質は1600℃以上の高温使用に対しても安定しておりかつ熱絶縁性に秀れているポーラスカーボンとする。

3) 熱反射板(Ni)及び酸素ゲッター(Ti, Zr)

ポーラスカーボン製断熱材にひきつづいてさらに軸方向の断熱性をよくするためNi製の三枚組熱反射板をTiとZr製の二枚の酸素ゲッターの間にサンドイッチ状にはさんだ五枚の組板を設ける。酸素吸収性能の温度特性による違いからTi板を高温になる試料側においた。Ti, ZrとNiとの材質組合せに関して両立性検討は特に行なわなかったが過去の照射キャプセルにおいてSUS304とTiを接触した状態で1000℃照射を行なったところ安定な挙動を示した例があり，また72F-7Aキャプセルと同様な構造，照射目的を有するキャプセルで酸素ゲッター部分の温度を実測したものがあつたこの照射データから72F-7Aキャプセルの酸素ゲッター部分の温度は高々900℃と予想されたので問題はないと判断した。

4) イニコネル600製スプリング(被覆管内)

被覆管内部に収納した試料ホルダー，断熱材，熱反射板を安全に保持しかつ高温時における各部材の熱膨張を吸収するためにスプリングを設ける。この部分の温度は高々800℃と予想されるのでスプリングの材質としてはこの程度の温度で安定な性質を示した比較的入手が容易なインコネル600を

選んだ。

5) Mo 製熱媒体

黒鉛製試料ホルダーとNb-1% Zr 製被覆管の間にMo 製熱媒体を介在させ被覆管の浸炭防止用にする。

6) Nb-1% Zr 製被覆管

核分裂により発熱する被覆粒子とこれから放出される核分裂生成ガスを密封するためにNb-1% Zr 被覆管を設ける。被覆管材料としてNb-1% Zr 合金は次の如き性質をもつ。¹⁾

(1) Nb 金属はTaと同様に周期律表上V族aに属し高い融点(2450°C)と高温強度にすぐれている。しかもTaと異なり常温で酸化物が蒸発しPIEにおいて汚染が拡大するという性質がないのでNbの方がよい。純度がよければ加工性もよく中性子吸収断面積も小さいので原子炉用の高融点材料としてすぐれている。

(2) Nbに1%程度のZrを合金添加したものは上に述べた純金属としてのNbの優秀な性質を損なうことなしに著しく高温強度を高め、かつ雰囲気中の酸素、窒素に対して耐食性がよくなる。しかし活性金属であるので高温使用時は高純度不活性ガス雰囲気にする必要がある。

(3) 加工性がよいので特別な加工装置を用意することなく冷間加工にて目的の形状にすることができる。溶接加工もTIG, MIG, EBW いずれにても可能で溶接部は延性に富み脆性遷移温度も低い。ろう接に対しても従来SUS材料に用いられてきているニクロブレードに対してよい結果が得られているという報告がある。

(4) 高温強度に関してNb-1% ZrはTaと同程度の強度を有する。1000°C近辺のNb-1% Zrの引張り強さは500°Cにおけるステンレススティールの強度に匹敵するほか伸びは常温で15%程度あり充分である。

(5) 熱伝導率は大きく、熱膨張係数および弾性係数は小さいので熱応力($\sigma_t = E \cdot \alpha \Delta T$)、熱膨張による塑性変形($\epsilon_p = \alpha \Delta T$)を小さくすることができ従って照射キャプセルの如き熱的にきびしい条件下にあるものに対して大きな許容力を持つ構造材料であるといえることができる。Table. 3.4にステンレススティールとNb-1% Zrの機械的性質及び熱的性質を比較して示した。

(6) Nb-1% Zrは1960年代米国において熔融塩炉の材料として開発されたものでそのすぐれた性質のために原子力方面ばかりでなく宇宙開発、その他多方面の用途により年々増産をつづけており低価格で入手することが可能である。

7) SUS304 内筒及びA1100 熱媒体

Table. 3.2の照射条件にも掲げたとおり本キャプセルにおける被覆粒子照射は燃焼率2.1% FIMAをJMTR 2サイクル照射で達成しようとする加速照射試験であり従って核分裂による試料発熱量はFig. 3.4に示す如く2サイクル終了後ではじめの $\frac{2}{3}$ 程度に落ちてしまう。従って試料温度もFig. 3.5に示す如く燃焼が進行してゆくに従い低下してゆくことが予想されるので、何らかの方法により照射条件である1400°C、または1600°Cの試料温度を一定に維持することが必要になる。このため真空温度制御方式を用いることとした。即ち、被覆管の外側をSUS304製の内筒で包みこの間のギャップに封入した高純度ヘリウムガスを真空制御管を通して炉外装置に導き、ここで試料部に挿入した熱電対の温度指示と試料目標温度1400°Cまたは1600°Cの設定値との偏差信号により真空度を調節する。ここで炉外装置とは真空温度制御装置のことであり、キャプセル温度検出信号を一定に保つため偏差信号

によりキャプセル内の制御ガスギャップ層の真空度をPID調節するための装置でJMTRにおいて最もふつうに用いられてきているものである。

被覆管と内筒の間のガスギャップを真空に引きバーンナップによる試料温度の低下を制御ガスギャップの熱抵抗を増すことにより補う方式とするため被覆管温度上昇が見込まれこれの強度上の問題が生ずる。従って被覆管温度をできるだけ低くおさえることができるような構造設計が必要になる。この点に関し72F-7Aキャプセルは次の如き構造になっている。

- (1) 被覆管と内筒の間のギャップ巾は制御性能上必要とされる最小の値0.15 mmとした。
 - (2) SUS 304 内筒とその外側に巻くA1100熱媒体は共引き管を使用しガスギャップによる温度上昇をできるだけ小さくした。
 - (3) A1100熱媒体とSUS 304製キャプセル外筒の間隙は製作及び組立てにおいて最小限必要とされるギャップ巾0.05 mmにおさえこれによる温度上昇をできるだけ小さくした。
- 8) Nb-1%Zr製ウエル及びTaシースW-Re熱電対

試料温度を1600℃または1400℃一定に制御するため各段の試料ブロック中心にTaシースW-Re熱電対を挿入し中心温度を実測する。TaシースW-Re熱電対についてはこの程度の温度測定には定評があり両立性さえ注意すれば2000℃まで温度測定可能という報告がある。Taシースを試料中心部より被覆管、SUS内筒、SUS外筒を貫通させ外部へ引き出すときに核分裂生成ガスの気密性を維持する必要があり次の如くした。

- (1) 被覆管と同材質であるNb-1%Zr製のウエルを貫通させウエル内にTaシースW-Re熱電対を収納する。
- (2) ウエルと被覆管上端栓は同材質であり比較的容易にEB溶接にて接合することができる。
- (3) SUS内筒とNb-1%Zrウエルの接合は、内筒端栓にプラグを設けニクロブレードにてろう接する。
- (4) SUS外筒端栓部におけるTaシースの貫通部も同様なニクロブレードろう接にて気密を保つことにする。

ウエル先端が高温照射中に破損しても核分裂生成ガスが外部へ漏出することのないようにTaシースのキャプセル保護管内の部分に気密性のセラミック端子を設けた。さらにSUS内筒上端栓部のろう接はTaシース、Nb-1%Zrウエル、SUS304プラグを三者一体に行ない、ウエル先端が破損した場合でも核分裂生成ガスはこれ以上外部へ漏出しない構造とした。

9) SUS304シースC-A熱電対

中心温度測定用のW-Re熱電対が破損して働かなくなった場合の対策としてC・A熱電対を低温部のA1100熱媒体中に挿入し発熱量をモニタできるようにしてある。これは全部で四本あり、上段一本、中段二本、下段一本を配している。

3.3 熱設計

熱設計においては照射中におけるキャプセル内部の温度分布を熱計算によって推定し照射期間のすべてにわたって安全に照射でき、かつTable. 3.2に掲げた照射条件を満足することの確認を行なう。すでに構造設計で述べた如く試料照射温度1600℃または1400℃一定に維持するため内筒と被覆管の間のギャップを真空制御するので被覆管温度上昇が予想されるので、これについて検討を行なう。

1) 熱計算の方法

72F-7Aキャプセル主要部の断面はFig. 3.3に示す如く多層同心円筒状の構造を有しているので熱計算にあたっては通常、円筒形照射キャプセルの温度分布を計算するのに用いられている一次元熱計算コードGENGTCを用いる。GENGTCの計算内容は下記の如きものである。⁶⁾

(1) キャプセル外表面の伝熱

$$T_s = T_{\infty} + \frac{Q}{\alpha A}$$

ここで

T_s : キャプセル外表面温度

T_{∞} : 冷却水温度

A : 伝熱面積

α : 表面熱伝達率

(2) 固層・液層部分の伝熱

$$T_i = T_o + \frac{G(R_o^2 - R_i^2)}{4\lambda} + \left[\frac{QR_i^2}{A_i\lambda} - \frac{GR_i^2}{2\lambda i} \right] \ln \left(\frac{R_o}{R_i} \right)$$

ここで

T : 温度

R : 半径

G : 単位体積あたりの発熱量

Q : 伝熱量

λ : 熱伝導率

サフィクス i : 内側表面

サフィクス o : 外側表面

熱伝導率の温度依存は次式の如き形で考慮される。

$$\lambda = C_0 + C_1 T_m + C_2 T_m^2 + C_3 T_m^3 + C_4 T_m^4$$

$$T_m = \frac{1}{2} (T_o + T_i)$$

(3) ガス層部分の伝熱

次式の如き伝導と輻射による伝熱を考慮する。

$$Q = Q_c (\text{伝導}) + Q_R (\text{輻射})$$

$$Q_c = \frac{\lambda A_i (T_i - T_o)}{R_i \ln \left(\frac{R_o}{R_i} \right)}$$

$$Q_R = 0.174 \cdot F \cdot A_i \left[\left(\frac{T_i}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_o}{100} \right)^4 \right]$$

1

$$F = \frac{1}{\frac{1}{\epsilon_i} + \left(\frac{R_i}{R_o}\right) \cdot \left[\left(\frac{1}{\epsilon_o}\right) - 1\right]}$$

(4) 各熱計算においてキャプセル各部の寸法は熱膨張による寸法変化を考慮するようになっている。
昇温時の半径 (R') は

$$R' = R + \frac{1}{3} \{ R_{70} [1 + \beta (T_m - 20)] - R \}$$

ここで

R₇₀ : 常温 (20°C) における半径

β : 熱膨張係数

(5) 72F-7A キャプセルの如きキャプセル内部の最高温度が1600°Cにもなる場合には、原子炉冷却水との大きな温度差により熱流は径方向ばかりでなく軸方向へも何パーセントか流れることを考えるべきである。とくにGENGTCは次元熱計算コードであるので軸方向熱流による修正を行なう必要があり、ここでは核分裂による発熱、ガンマ発熱のうちに軸方向熱のにげを考慮して計算する方法をとった。

(6) GENGTCを用いてキャプセル内温度分布を計算するとき、計算に關与する入力データについて常にある一定の誤差を持つことを考慮にいれなければならない。実際問題としてGENTICを用いて求めたキャプセル内温度は実測による温度指示に対して常にある偏差を持っており、温度検出端の測定精度を除いてはGENGTC計算にかかわる入力データの誤差が原因であると考えられる。ここでは次式により評価する。

$$\sigma_T^2 = \left(\frac{\partial f}{\partial x_1} \cdot \sigma_{x_1} \right)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial x_2} \cdot \sigma_{x_2} \right)^2 + \dots + \left(\frac{\partial f}{\partial x_n} \cdot \sigma_{x_n} \right)^2$$

σ_T : GENGTC計算温度の標準偏差

σ_{x_i} (i = 1, …, n) : 入力データの標準偏差

ノード半径, 密度, 輻射率, 熱伝導度

線出力などについて実測

$\frac{\partial f}{\partial x_i}$ (i = 1, …, n) : 入力データ変化に対するGENGTC計算感度

取付方法, 取付位置に起因する温度検出端の測定精度は72F-7Aキャプセルの中心温度測定の場合熱電対が中心部の温度勾配が緩慢な部位に挿入されているのでほとんど寄与しないと考え、誤差計算においてはこれを無視した。

2) 72F-7Aキャプセル熱設計

72F-7Aキャプセルの照射条件をTable. 3.2に示す。前節(5)の軸方向熱流にげは経験により20%と仮定してGENGTC計算を行なった。

キャプセル寸法を決めるとき試料照射温度が1600°C - σ_T … (σ_Tは標準偏差) …となるようにする。

このようにすれば計算誤差により実際に実現する温度は1標準偏差の確率で高々1600°Cということになる。

試料温度に関する標準偏差 σ_T は前節(6)に述べた方法によって求める。ここで入力データの標準偏差 σ_{xi} ($i=1, \dots, n$)をTable. 3. 6, 入力データのGENGTC計算感度 $\frac{\partial f}{\partial xi}$ ($i=1, \dots, n$)をTable. 3. 7に示す。この結果から σ_T は約10%と算出されるので設計温度は1450°Cとした。

最終的なキャプセル設計寸法をFig. 3. 3に示す。キャプセル内温度分布の設計計算結果をFig. 3. 6に図示する。図からキャプセル外筒, A1100熱媒体, SUS304内筒の温度は200°C以下であり問題ないが, 制御ガスギャップ層の温度上昇は大きくNb-1%Zr被覆管温度は約500°Cになることが判る。

Nb-1%Zr合金の強度の温度特性をFig. 3. 7に示すが強度的には約1100°Cが限界になり実用上は1000°Cで使用限界ということになる。試料温度一定の真空温度制御によりFig. 3. 5に示す如くバーンナップの進行に伴ない被覆管温度は上昇し照射末期(2サイクル后)には約800°Cになることが予想されるが1000°Cに対し約200°Cの余裕があり被覆管強度に関し充分使用限界温度内にあることがわかる。

3.4 強度設計

キャプセル外筒, A1100熱媒体, SUS304内筒は照射中常に低い温度(Fig. 3. 6に示す如く200°C以下)にあるので原子炉冷却水圧力, 制御ギャップ層真空圧力, キャプセルの発生熱による熱応力, 照射損傷, 一次冷却水による腐食などに対して十分な強度を有すると考えられるのでここでは特に検討することは行なわない。問題は核分裂生成物を閉じ込める容器であるNb-1%Zr被覆管の照射時における健全性にあると思われるので以下検討を行なう。

1) 被覆管内圧応力

(1) 蒸発性不純物による分圧

被覆粒子及び黒鉛からの蒸発性不純物は実測から得られた定数 $17.6 \mu\text{l}/\text{gr}$ (黒鉛)(20°C, 大気圧)を用いて次の如く求められる。

$$P_1 = \frac{17.6 \times 10^{-3} \times w}{V_p} \times \frac{(T_G + 273)}{293}$$

ここで

P_1 : 蒸発性不純物による分圧

V_p : プレナム体積 ($\pi \times 1.3^2 \times 2 = 10.6 \text{ cm}^3$)

W : 黒鉛重量 ($\pi \times 1.1^2 \times 10.0 \times 1.8 = 68.4 \text{ gr}$)

T_G : ガス温度 (1600°Cとする。)

$$\therefore P_1 = 0.73 \text{ kg/cm}^2$$

(2) ヘリウムガスによる分圧

$$P_2 = \frac{1600 + 273}{293} = 6.39 \text{ kg/cm}^2$$

(3) 核分裂生成ガスによる分圧

被覆粒子からの核分裂生成ガス放出量はORNL-2127より $4.66 \times 10^{-5} \text{cm}^3 \text{ (STP) / watt} \cdot \text{day}$ の定数を用いて次の如く求められる。

$$P_3 = 4.66 \times 10^{-5} \times \frac{1}{V_p} \times \frac{(T_G + 273)}{273} \times \alpha_r \times Q_f \times l_s \cdot t$$

ここで

α_r : 被覆粒子の放出率 0.1 (安全側)

Q_f : 核線出力 300 w/cm

l_s : 試料長 10 cm

t : 照射時間 44 days

$$\therefore P_3 = 0.40 \text{ kg/cm}^2$$

(4) 従って運転中の被覆管内圧は

$$P_i = P_1 + P_2 + P_3 = 7.52 \text{ kg/cm}^2$$

内圧のみ作用すると考えてよくこのときの円周応力は次式により求められる。

$$\sigma = \frac{P_i D_i}{2t}$$

ここで

σ : 円周応力

P_i : 内圧 0.0752 kg/mm²

t : 肉厚 1.0 mm

D_i : 被覆管内径 26.0 mm

$$\therefore \sigma = 0.98 \text{ kg/mm}^2$$

2) 被覆管熱応力

被覆管内部に生ずる熱応力の最大値は次式の如く表わされる円周方向応力である。

$$\sigma_{tmax} = \frac{\alpha E \Delta T}{2(1-\nu)}$$

Nb-1% Zr の物性値の対温度変化はFig. 3.8 に示す如くであり、20°C (室温) と1100°C (被覆管使用限界温度) の間でどちらか σ_{tmax} の式できびしい結果を与える方をとった。上式において

α : 熱膨張率 ($8.1 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$)

E : 縦弾性係数 ($1.12 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$)

ΔT : 内外表面温度差, 照射開始時期が最も大きくなるのでFig. 3.6 より20°Cとする。

ν : Metal's Hand book より0.38とする。

故に

$$\begin{aligned} \sigma_{tmax} &= \frac{8.1 \times 10^{-6} \times 1.12 \times 10^6 \times 20.0}{2 \times (1.0 - 0.38)} \\ &= 1.46 \text{ kg/mm}^2 \end{aligned}$$

3) 短期荷重による延性破壊に対する検討

原子炉内での照射をうける Nb-1%Zr 被覆管の許容応力及び応力基準のとり方は ASME CODE SECTION III の Class I コンポーネントに対する考え方に準拠することにする。³⁾ 同コードにはフェライト系ステンレススティールに対して許容応力を

- ① $\frac{1}{3} \times (\text{引張り強さの最小規格値})$
- ② $\frac{1}{3} \times (\text{使用温度における引張り強さ})$
- ③ $\frac{2}{3} \times (\text{降伏応力の最小規格値})$
- ④ $\frac{2}{3} \times (\text{使用温度における降伏応力})$

の以上4項のうち最小値をとるように規定している。Nb-1% Zr 合金材料の機械的諸性質は PWAC-371 にくわしく述べられており、Fig. 3.7 はこれから引用した引張り強さと降伏応力の温度特性曲線である。従って上述の規定を準用すれば Nb-1% Zr 合金の許容応力として

$$\begin{aligned}\sigma_a &= 10 \times 10^3 \text{ psi} \\ &= 7.03 \text{ kg/mm}^2\end{aligned}$$

また応力基準としては次を満足することが要求される。

$$\begin{aligned}\sigma &< \sigma_a \\ \sigma + \sigma_{t\max} &< 3\sigma_a\end{aligned}$$

すでに求めたところにより

$$\begin{aligned}\sigma &= 0.98 \text{ kg/mm}^2 \\ \sigma_{t\max} &= 1.46 \text{ kg/mm}^2\end{aligned}$$

従って応力基準は充分満足されていることになる。

4) 長期荷重によるクリープ破壊に対する検討。

高温において使用する材料については時間依存の材料の性質(クリープ特性)の検討が必要である。とくに Nb-1% Zr 合金は Fig. 3.9, Fig. 3.10 に示す如く他の高融点合金に比較してクリープ特性はよいとはいえない。¹⁾ 被覆管高温設計に関しては ASME CODE SECTION III の拡張である CASE-1331-5 に記載してある設計指針が参考になる。ここではこれに従って検討を行なう。時間依存の挙動に対する材料の許容応力は次の3項のうち最小値をとるように規定している。⁵⁾ (時間として設計寿命を考える。)

- ① クリーププラプチャ応力の最小値の $\frac{2}{3}$
- ② 三次クリープが開指する応力の最小値の 80%
- ③ 1%の全ひずみ(弾性+塑性+クリープ)を生ずる応力の100%

ここで三次クリープについては信頼すべきデータが未だないのでここでは①と③について PWAC-371 のデータから温度 1100°C (被覆管使用限界温度、Fig. 3.7 参照) 時間 1100 時間 (JMTR2 サイクル) における許容応力を求めれば上記①が最小で $\sigma_{ac} = 1.41 \text{ kg/mm}^2$ となる。Fig. 3.11, Fig. 3.12 に許容応力算出の根拠となったデータを示す。また応力評価基準として CASE 1331-5 によれば

$$\begin{aligned}\sigma &< \sigma_{ac} \\ \sigma + \sigma_{t\max} &< S_q\end{aligned}$$

第2の式は弾性解析が可能な応力範囲をきめるものでありSqとして材料の使用温度における降伏応力の平均又はサイクル中最高温度、 10^4 時間におけるクリープ許容応力 σ_{ac} の25%増しの値のうち小さい方をとるものとし本キャプセルの場合は後者を取り $Sq = 1.75 \text{ kg/mm}^2$ となる。 $\sigma = 0.98 \text{ kg/mm}^2$ 、 $\sigma_{tmax} = 1.46 \text{ kg/mm}^2$ であるから第一の応力基準は満足するのでクリープ強度は十分であるが弾性解析範囲内にあるかどうかを決める第二の基準は満たされないのでひずみは塑性領域にあると考えるべきである。しかしながら $(\sigma + \sigma_{tmax})$ の大部分を占める σ_{tmax} は熱膨張による二次応力であり本質的にひずみ制御型であることから塑性ひずみが生ずるとしてもわずかであるし、キャプセルの運転方式としてサイクル中は一定温度制御であり有害な塑性変形又はラッチェティングといった現象は起らないと考えられる。

5) 雰囲気の影響

Nb-1% Zr合金は活性金属であり300℃以上の温度で使用する場合は周囲の雰囲気を高真空または不活性ガスにする必要がある。72F-7AキャプセルにおいてはNb-1% Zr被覆管は1000℃近くの高温になるので内外両面とも高純度(99.99%以上)ヘリウムガス封入とする。今封入ヘリウム中に含まれる酸素を0.01%とすれば被覆管内プレナム体積は多目にみて 10.6 cm^3 でありこれに含まれる酸素量(原子数)は、

$$6.024 \times 10^{23} \times \frac{10.6}{22400} \times 10^{-4} \times 2 = 5.70 \times 10^{16} \text{ atoms}$$

これに対して黒鉛及び被覆粒子からの蒸発性不純物をすべて酸素と仮定すれば(2-4-1)から

$$17.6 \times 68.4 \times 10^{-6} \times \frac{6.024 \times 10^{23}}{22.4} \times 2 = 6.48 \times 10^{19} \text{ atoms}$$

従ってヘリウム中の不純物は蒸発性不純物に比べてほとんど無視することができる。

以上は酸素について論じたが、窒素又は水素におきかえても同様の結果を得る。

被覆管重量から全Nb原子数を求めると、

$$\frac{\pi}{4} \cdot (2.8^2 - 2.6^2) \times 10.0 \times 8.6 \times \frac{6.024 \times 10^{23}}{92.91} = 4.73 \times 10^{23} \text{ atoms}$$

ただし被覆管長として特に高温になる試料相当長10.0cmをとった。この結果から蒸発性不純物ガスがすべて被覆管高温部に吸収されたと仮定して合金中の不純物濃度の増加は約137ppmである。文献(1)によればNb-1% Zr合金中の酸素含有量が100ppm程度増加しても機械的性質に対して何の影響もないことが報告されている。¹⁾

6) 対放射線強度

冷間加工したNb-1% Zrを $3.7 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ まで照射した材料を機械試験にかけた結果、降伏強さが 18 kg/mm^2 (未照射)から 54 kg/mm^2 まで増加したという報告がある。⁷⁾本キャプセル被覆管の高速中性子(>1 MeV)フルーエンスは $2 \times 10^{14} \times 44 \times 24 \times 3600 = 0.76 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ (原子炉を定格で44日間運転した場合)でありこの程度の照射においては一般に、引張り強さ、降伏強さ共に強くなり伸びは多少減少する。また照射脆化も問題ないとされておりこれまで強度検討を行ってきた如く非照射のデータを使ってよいことになる。

Table 3-1 Irradiation Capsules for Coated Particle Fuels

| No. | CAPSULE NAME | Type | Specimen | Cycle | Hole | Irradiation Conditions | | | Cladding Material |
|-----|--------------|------|--|--------------|--------|------------------------|------------------|------------------------------------|-------------------|
| | | | | | | Temperature (°C) | Burn up (% FIMA) | Fluence nut $\times 10^{21}$ | |
| 1 | 70F-4A | M | PARTICLES (UC, $\epsilon=0.20$) | 16 | R H-12 | 1400 | 2.0 | (ϕ_{th} 1×10^{14}) | Ta |
| 2 | 71F-6A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.2$) | 17 \sim 18 | R M-12 | 1400 | 2.0 | 0.05 | Ta |
| 3 | 71F-7A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.2$) | 17 \sim 18 | R J-12 | 1400 | 3.5 | 0.1 | Ta |
| 4 | 71F-10A | N | COATING LAMINAR | 17 \sim 22 | F H-9 | 300 | — | 0.5 2 | SUS304 |
| 5 | 72F-7A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 27 | F G-10 | 1600 | 2.0 | 0.9 | Nb-1%Zr |
| 6 | 72F-6A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 31 \sim 32 | F G-10 | 1350 | 2.0 | 0.9 | Nb-1%Zr |
| 7 | 72F-8A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 34 \sim 35 | F K-10 | 1400 | 2.0 | 1.8 | Nb-1%Zr |
| 8 | 72F-9A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 32 \sim 33 | F K-6 | 1400 | 2.0 | 1.8 | Nb-1RZr |
| 9 | 72F-14A | N | COATING LAMINAR | 24 \sim 31 | F K-6 | 300 | 2.0 | 2.0 | SUS304 |
| 10 | 73F-12A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 34 \sim 36 | F K-6 | 1600 | 3.0 | 1.5 | Nb-1%Zr |
| 11 | 73F-13A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 37 \sim 41 | F G-10 | 1600 | 4.0 | 2.5 | Nb-1%Zr |
| 12 | 73F-14A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 39 \sim 41 | F K-6 | 1600 | 3.0 | 1.5 | Nb-1%Zr |
| 13 | 74F-1A | V | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 36 \sim 39 | R M-6 | 1600 | 4.5 | (ϕ_{th} 1×10^{14}) | Nb-1%Zr |
| 14 | 74F-2A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 40 \sim 43 | R L-11 | 1600 | 4.5 | (ϕ_{th} 1×10^{14}) | Nb-1%Zr |
| 15 | 74F-3A | V | COMPACT (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 36 \sim 39 | R J-12 | 1600 | 2.0 | (ϕ_{th} 1×10^{14}) | Nb-1%Zr |
| 16 | 74F-9J | S | PARTICLES (UO ₂ , $\epsilon=0.08$) | 37 \sim 38 | F K-6 | 1600 | 2.0 | (ϕ_{th} 1×10^{14}) | Nb-1%Zr |

Note: M MIXED GAS CONTROL R REFLECTOR REGION 3 THREE SECTION CONTROL

V VACUUM CONTROL F FUEL REGION

N NO CONTROL

S GAS SWEEP CAPSULE

Table 3-3 Specifications of Coated Particle Fuels

| Attribute | Specification |
|---------------------------------|--------------------|
| 1. Kernel | |
| a) Composition | UO ₂ |
| b) U enrichment (%) | 8.0 |
| c) Density (%T.D.) | 95 ± 1 |
| d) Shape, % spherical | ≥ 90 |
| e) Diameter (μ) | 450-550 (Avg. 500) |
| 2. Buffer coating | |
| a) Composition | PyC |
| b) Thickness (μ Avg.) | 40 ± 5 |
| c) Density (g/cm ³) | 1.10 ± 0.10 |
| 3. Inner Iso coating | |
| a) Composition | PyC |
| b) Thickness (μ Avg.) | 30 ± 5 |
| c) Density (g/cm ³) | 1.80 ± 0.05 |
| d) *BAF (or OPTAF) | <1.0 (or <1.04) |
| 4. Silicon carbide coating | |
| a) Composition | SiC |
| b) Thickness (μ Avg.) | 25-30 |
| c) Density (g/cm ³) | ≥3.20 |
| 5. Outer Iso coating | |
| a) Composition | PyC |
| b) Thickness (μ Avg.) | 45 ± 5 |
| c) Density (g/cm ³) | 1.80 ± 0.05 |
| d) *BAF (or OPTAF) | <1.10 (or <1.04) |

* Anisotropy Factor

Table 3-2 Irradiation Specifications of 72F-7A Capsule

| Attribute | Specification |
|---|-----------------------------------|
| 1. Specimen Irradiation Temperature (°C) at upper block at middle block at lower block | 1400 1600 1400 |
| 2. Burn up (% FIMA) | 2.1 |
| 3. Fluence (n/cm ²) | 0.9×10^{21} (>0.185 MeV) |
| 4. Gamma Heat Density (watt/gr) | 10.0 |
| 5. Fission Heat Rate (watt/cm) at Start Up Changes as Fig. 3-4 due to burn up | 300.0 |

Tabel 3-4 Comparison of Thermal and Mechanical Properties of Stainless Steel and Nb-1%Zr Alloy

| | Ferritic Stainless Steels | Nb-1%Zr Alloy |
|--|------------------------------|----------------------|
| 1. Thermal Conductivity (Btu/hr-ft-F) | | |
| at 20°C | 14 | 28 |
| at 1100°C | 16 | 40 |
| 2. Mean Coefficient of Thermal Expansion (in/in) | | |
| 20°C 1100°C | 8.0×10^{-6} | 4.5×10^{-6} |
| 3. Elastic Modulus (10^6 psi) | | |
| at 20°C | 30.0 | 10 ~ 20 |
| at 1100°C | 15.1 | 14.0 |
| 4. 0.2% Yield Strength (10^3 psi) | | |
| at 20°C | 30 | 33 |
| at 1100°C | ~0 | 26 |

Table 3-5 72F-7A Capsule Design

| Item | Description | |
|-----------------------------|--------------------------|-------------------------------------|
| OUTER SHELL | MATERIAL DIMENSION | SUS304 40φOD × 37φID × 890L |
| THERMAL MEDIUM | MATERIAL DIMENSION | A1100 37φOD × 30φID × 207L × 3 |
| INNER SHELL | MATERIAL DIMENSION | SUS304 30φOD × 28φID × 207L × 3 |
| CLADDING | MATERIAL DIMENSION | Nb-1%Zr 28φOD × 26φID × 180L × 3 |
| THERMAL BOND | MATERIAL DIMENSION | Mo 26φOD × 22φID × 100L × 3 |
| SPECIMEN HOLDER | MATERIAL DIMENSION | GRAPHITE 18φOD × 94L × 3 |
| WELL | MATERIAL DIMENSION | Nb-1%Zr 4φOD × 2φID × 102L × 3 |
| THERMAL SHIELD | MATERIAL DIMENSION | POROUS CARBON 26φOD × 10L × 6 |
| OXYGEN GETTER | MATERIAL DIMENSION | Ti, Zr 26φOD (DISK) × 6 × 2 |
| THERMAL REFLECTOR | MATERIAL DIMENSION | Ni 26φOD (DISK) × 18 |
| SPRING (IN THE CLADDING) | MATERIAL DIMENSION | INCONEL 600 23φOD × 21L |
| SIDE THERMOCOUPLES | MATERIAL TOTAL NUMBER | SUS304 SHEATH (C-A) 7 |
| CENTER THERMOCOUPLES | MATERIAL TOTAL NUMBER | Ta SHEATH (W-Re) 3 |
| VACUUM CONTROL TUBE | MATERIAL TOTAL NUMBER | SUS304 3 |

Table 3-7 Statistic Error Analysis
on 72F-7A GENGC Calculation

| Item | Partial Variance $(\frac{\partial f}{\partial x} \cdot \sigma_{x_i})^2$ |
|--|---|
| 1. Node Radii Summation of 19 Nodes | 0.00179 |
| 2. Emissivity summation of 19 Nodes | 0.00018 |
| 3. Density summation of 19 Nodes | 0.00010 |
| 4. Thermal Conductivity summation of 19 Nodes | 0.00309 |
| 5. Thermal Expansivity summation of 19 Nodes | 0.00008 |
| 6. Fission Heat Rating | 0.02858 |
| 6. Gamma Heat Density | 0.00650 |
| 8. Surface Coefficient | 0.0 |
| 9. Coolant Temperature | 0.00001 |
| Total Variance | 0.04032 |
| Standard Deviation | 0.1004 |

Table 3-6 Summary of Input Data Deviations
on 72F-7A GENGC Calculation

| Item | Input Data Value | Relative Deviation |
|-------------------------|--|--------------------|
| 1. Node Radii | Reffer to Fig. 2-5 There are 19 Nodes | ±0.1% |
| 2. Emissivity | } prepared in GENGC or using standard value | ±20 % |
| 3. Density | | ± 5 % |
| 4. Thermal Conductivity | | ±10 % |
| 5. Thermal Expansivity | | ±10 % |
| 6. Fission Heat Rating | | ±20 % |
| 7. Gamma Heat Density | 240 w/cm | ±20 % |
| 8. Surface Coeff. | 8 w/gr | ±20 % |
| 9. Coolant Temperature | 20000 kcal/m ² ·hr°C | ±10 % |
| | 50°C | ±10 % |

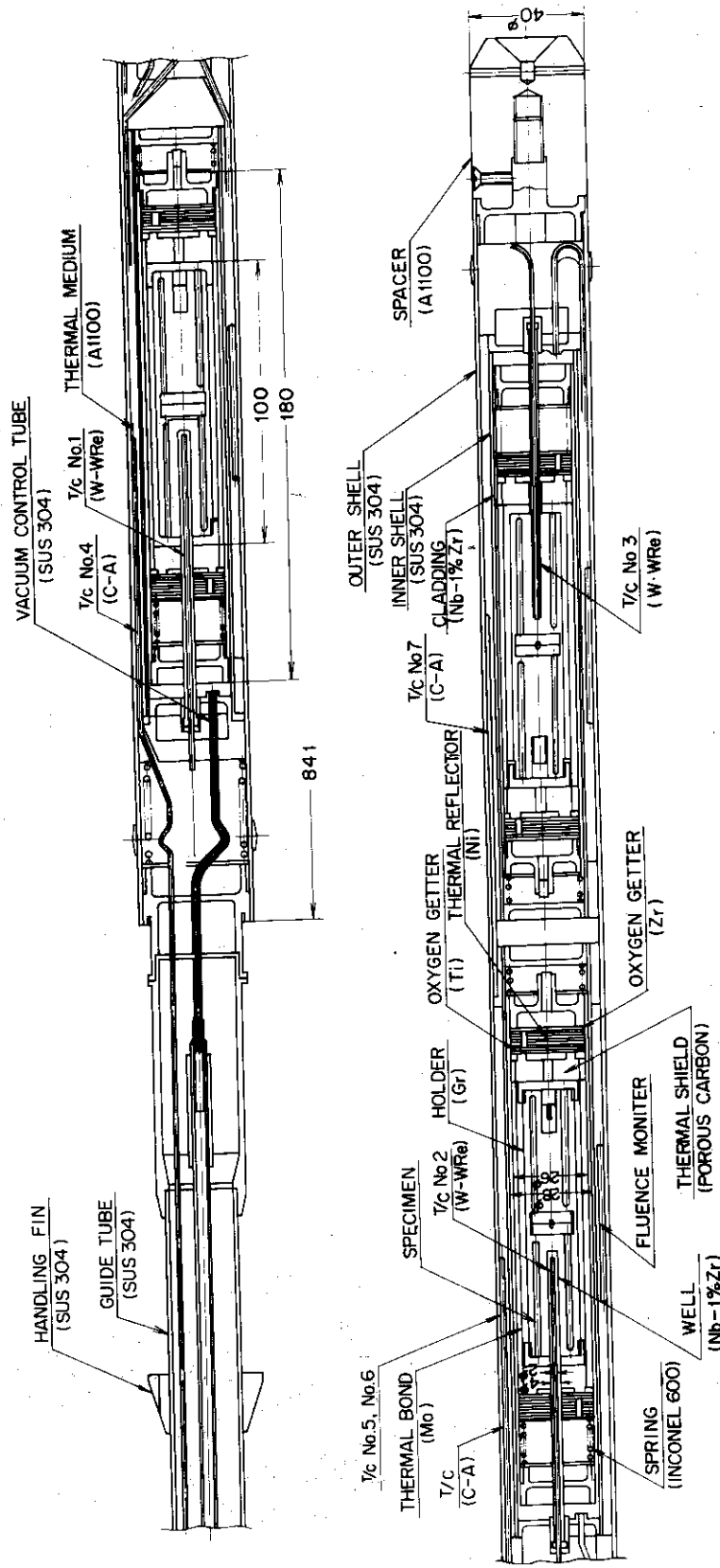


Fig. 3-1 72F-7A Capsule for High temperature irradiation of coated particle fuels

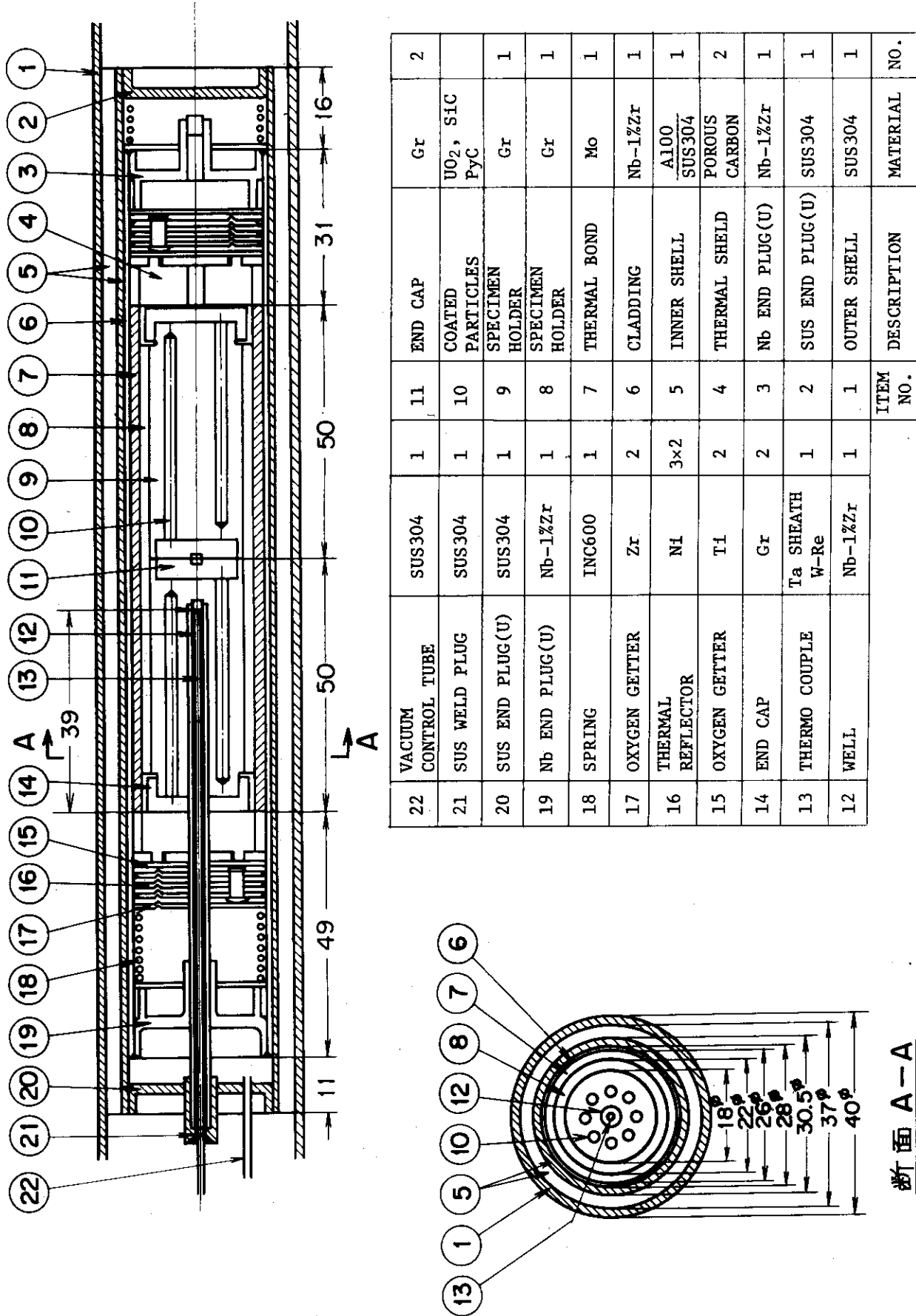


Fig. 3.2 One Block Assembly of the 72F-7A Capsule

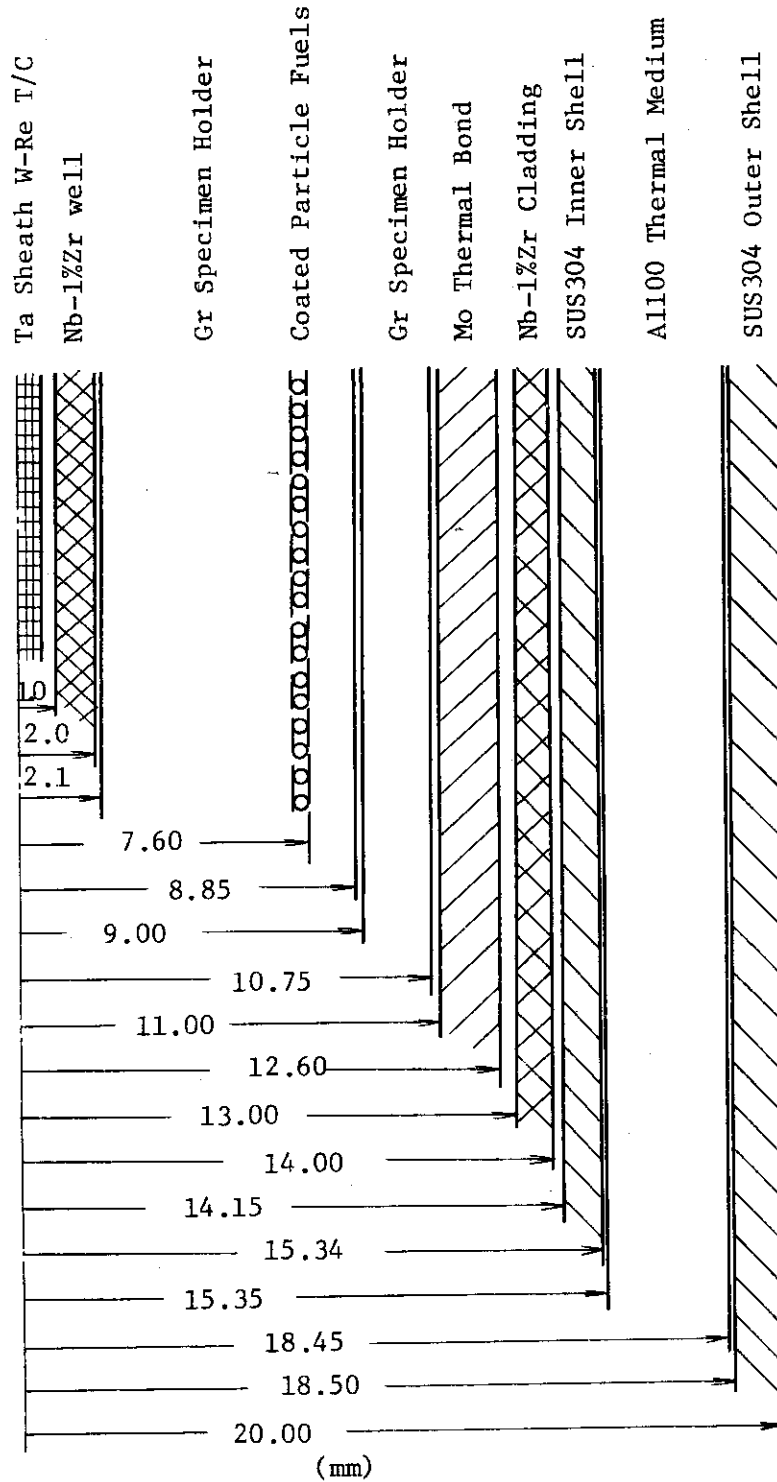


Fig.3-3 Simplified Cross Section of the Fuel Region of the 72F-7A Capsule Showing the Radii of the Components

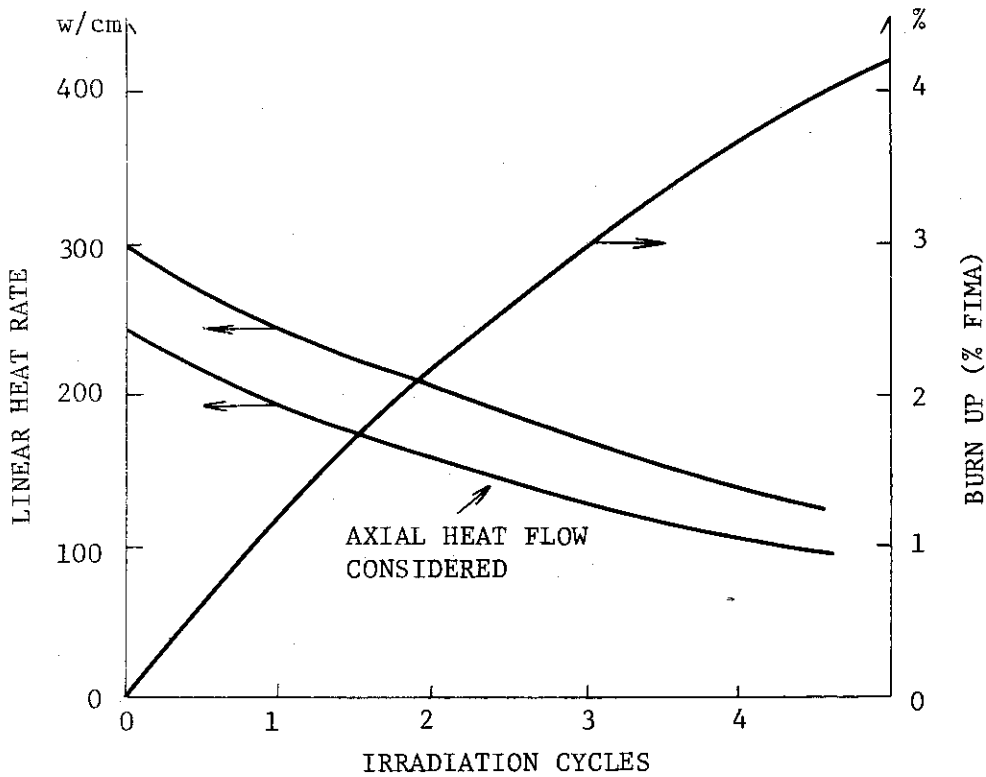


Fig.3-4 Linear heat rate and burnup change with irradiation cycles

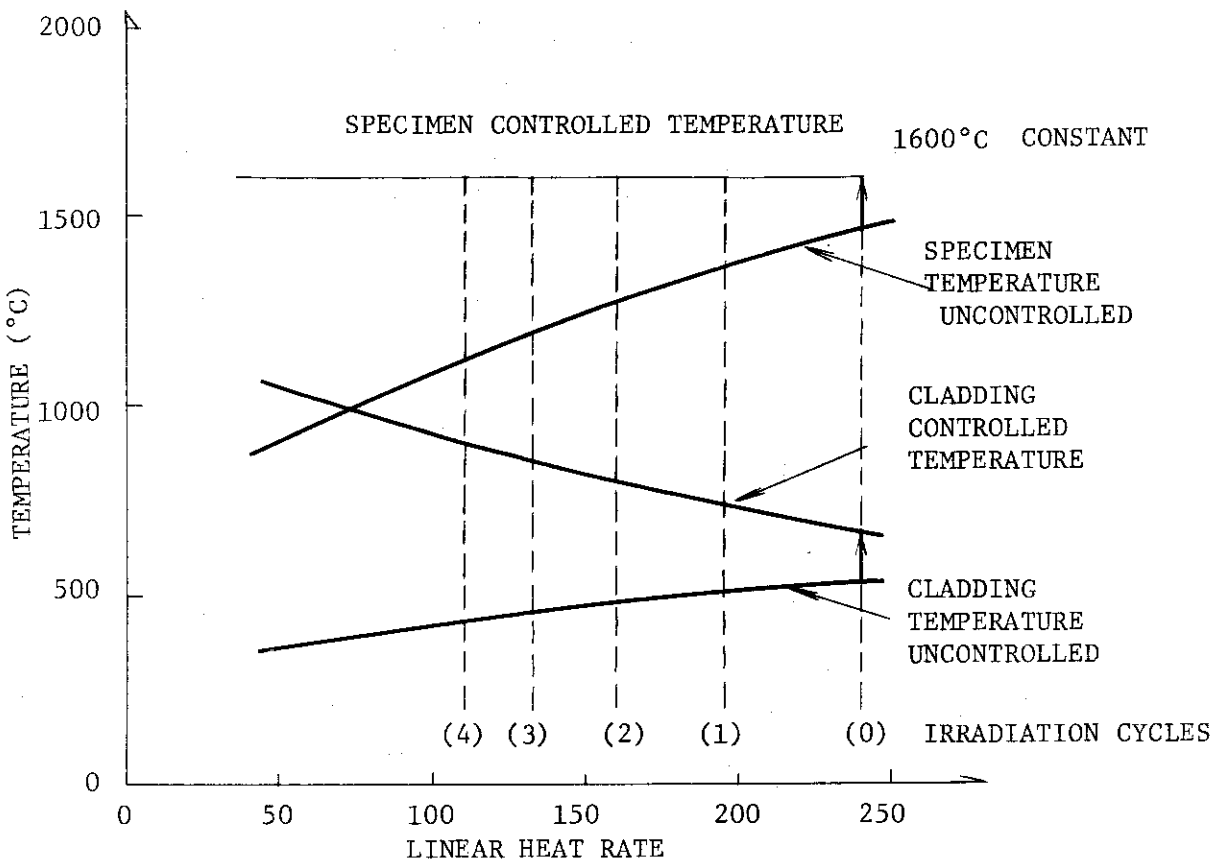


Fig.3-5 Temperature vs linear heat rate

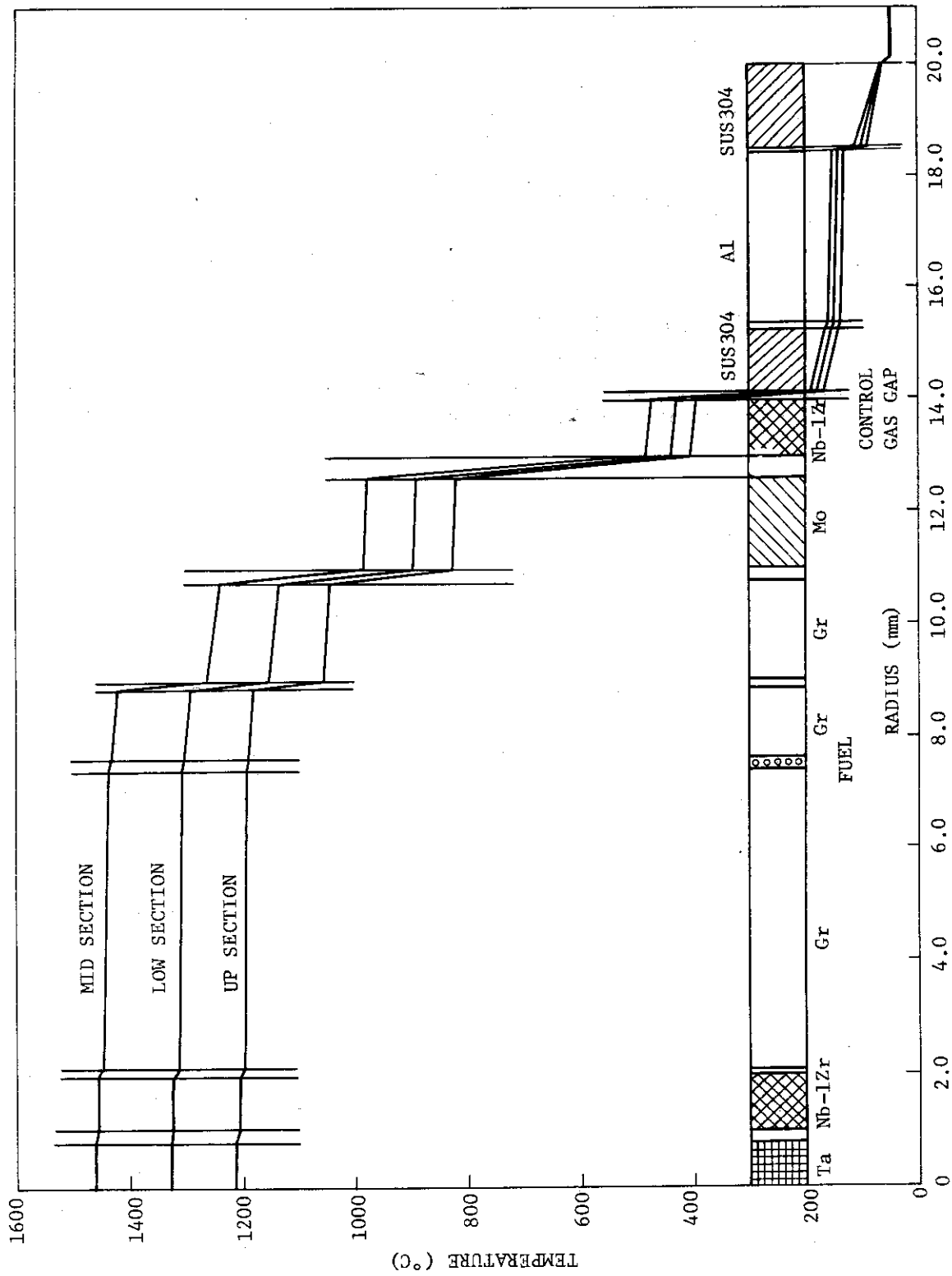


Fig. 3-6 Estimated Radial Temperature of Profile at Startup on 72F-7A Capsule

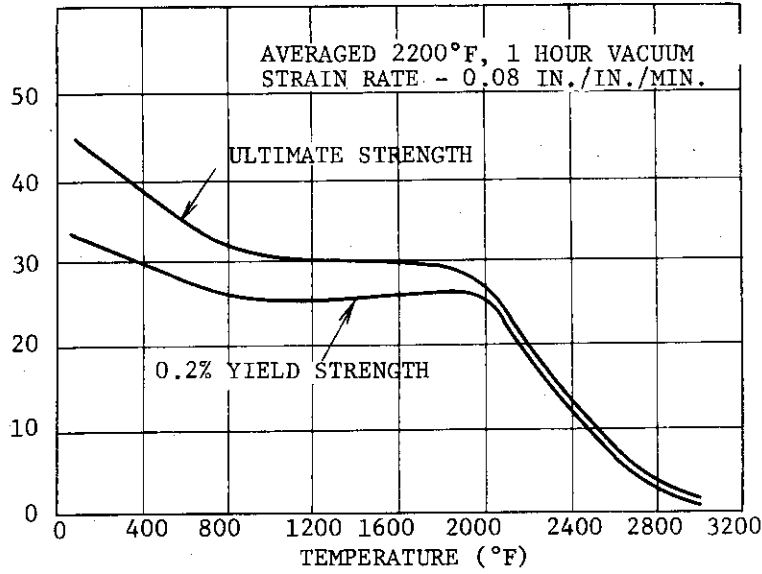


Fig. 3-7 Average Nb-1%Zr Alloy Tensile Strength from Room Temperature to 3000°F

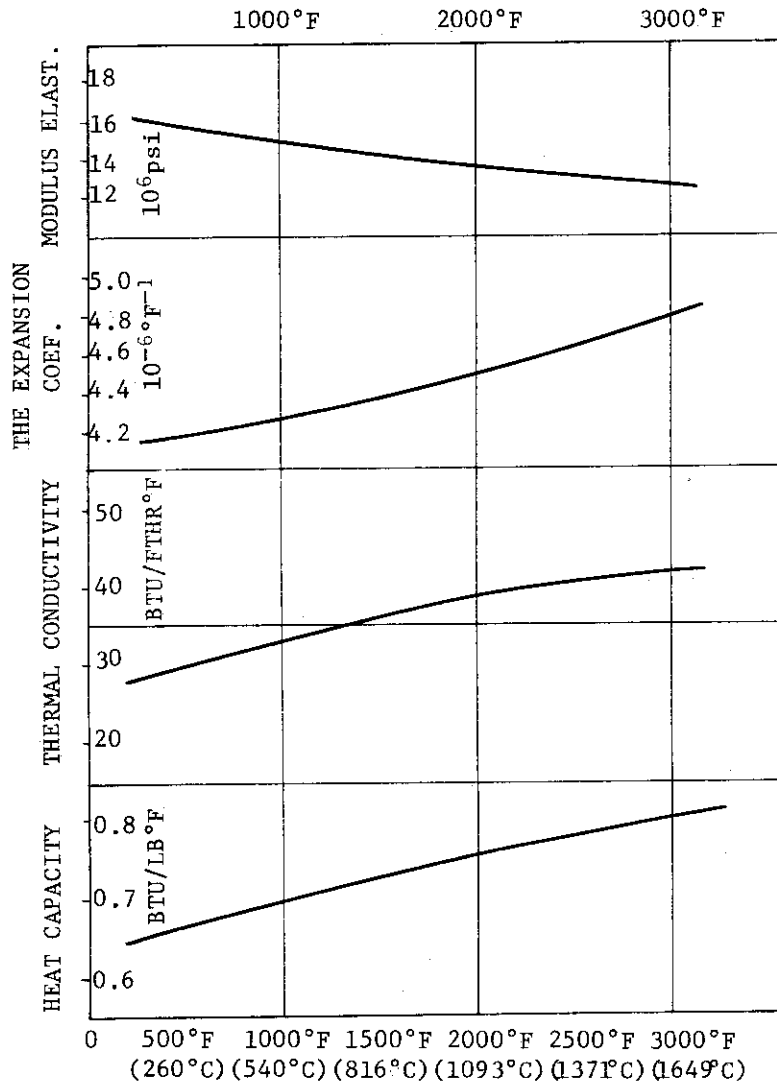


Fig. 3-8 Physical Properties of Nb-1%Zr Alloy

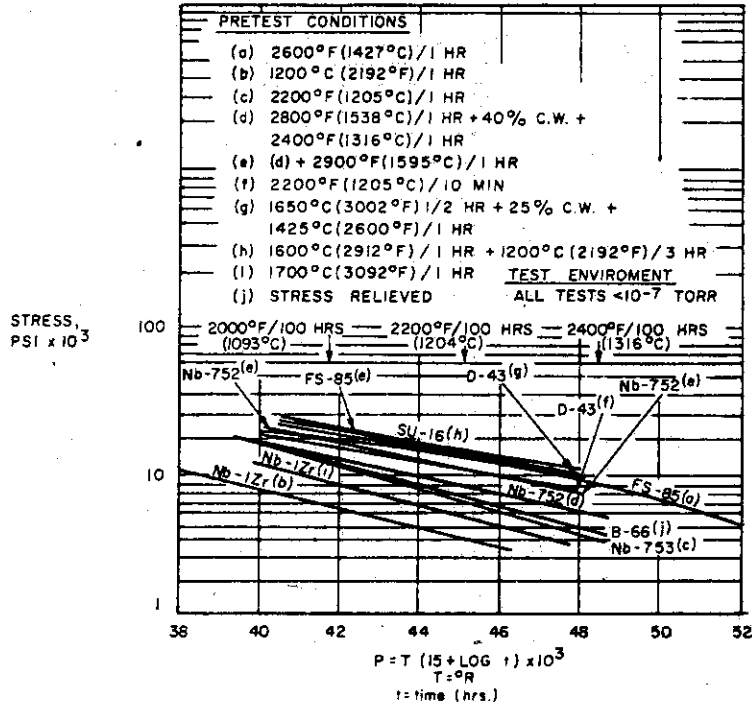


Fig. 3-9 Stress rupture properties of moderate and low strength columbium alloys.

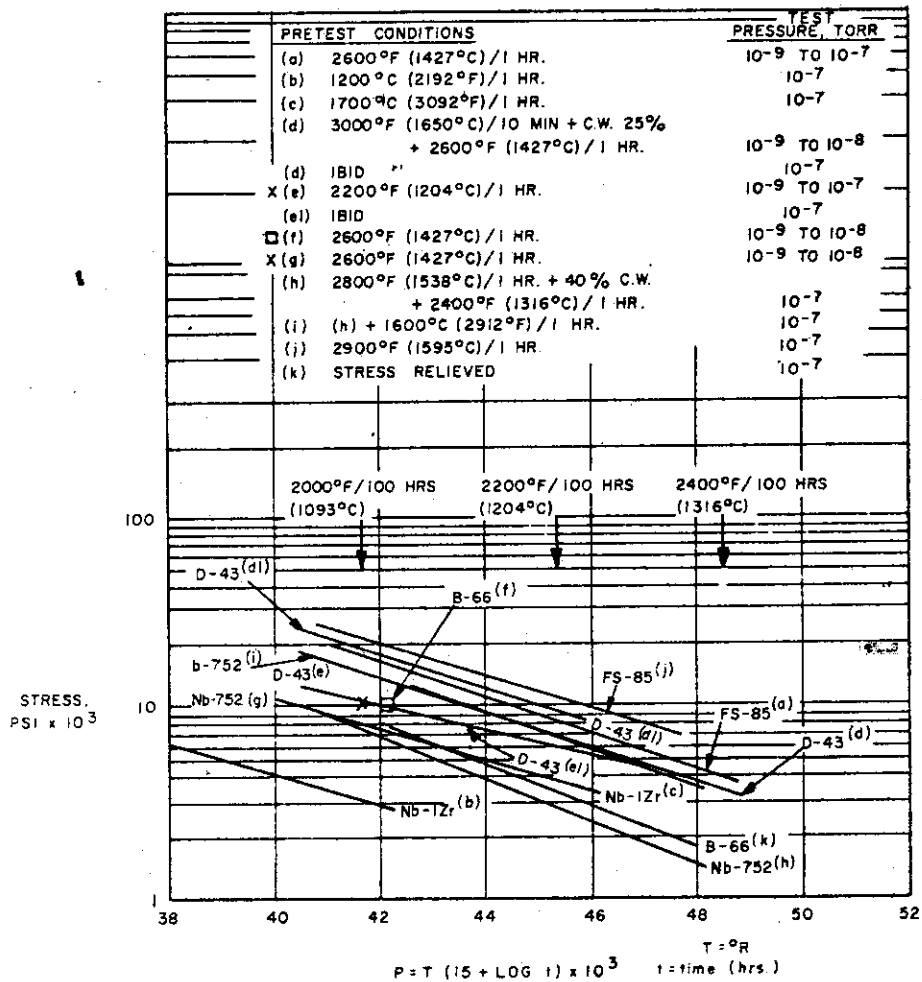


Fig.3-10 Creep properties (1% strain) of moderate and low strength columbium alloys.

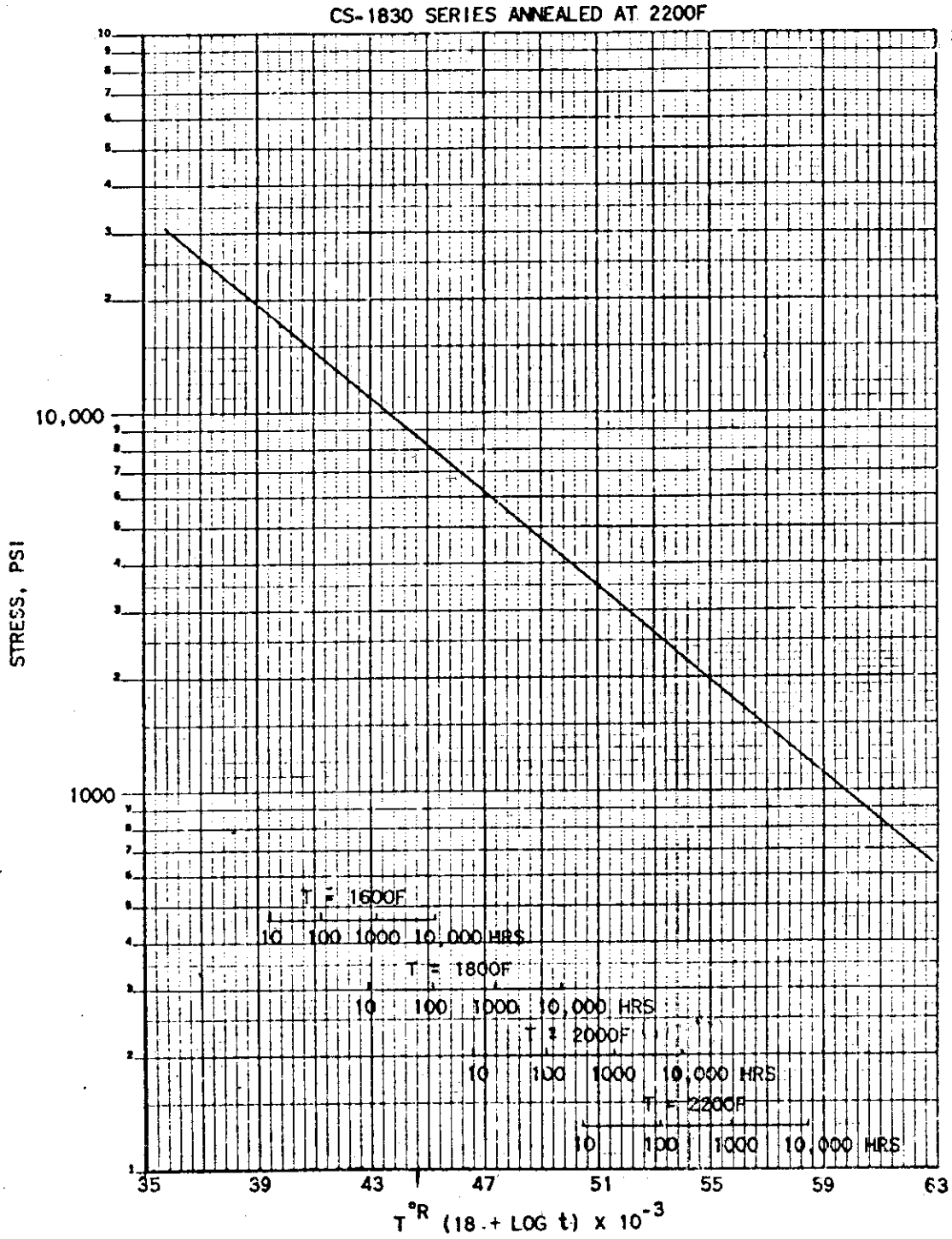


Fig.3-11 LARSON-Miller curve of time to 1.0 percent total creep for Nb-1%Zr alloy.

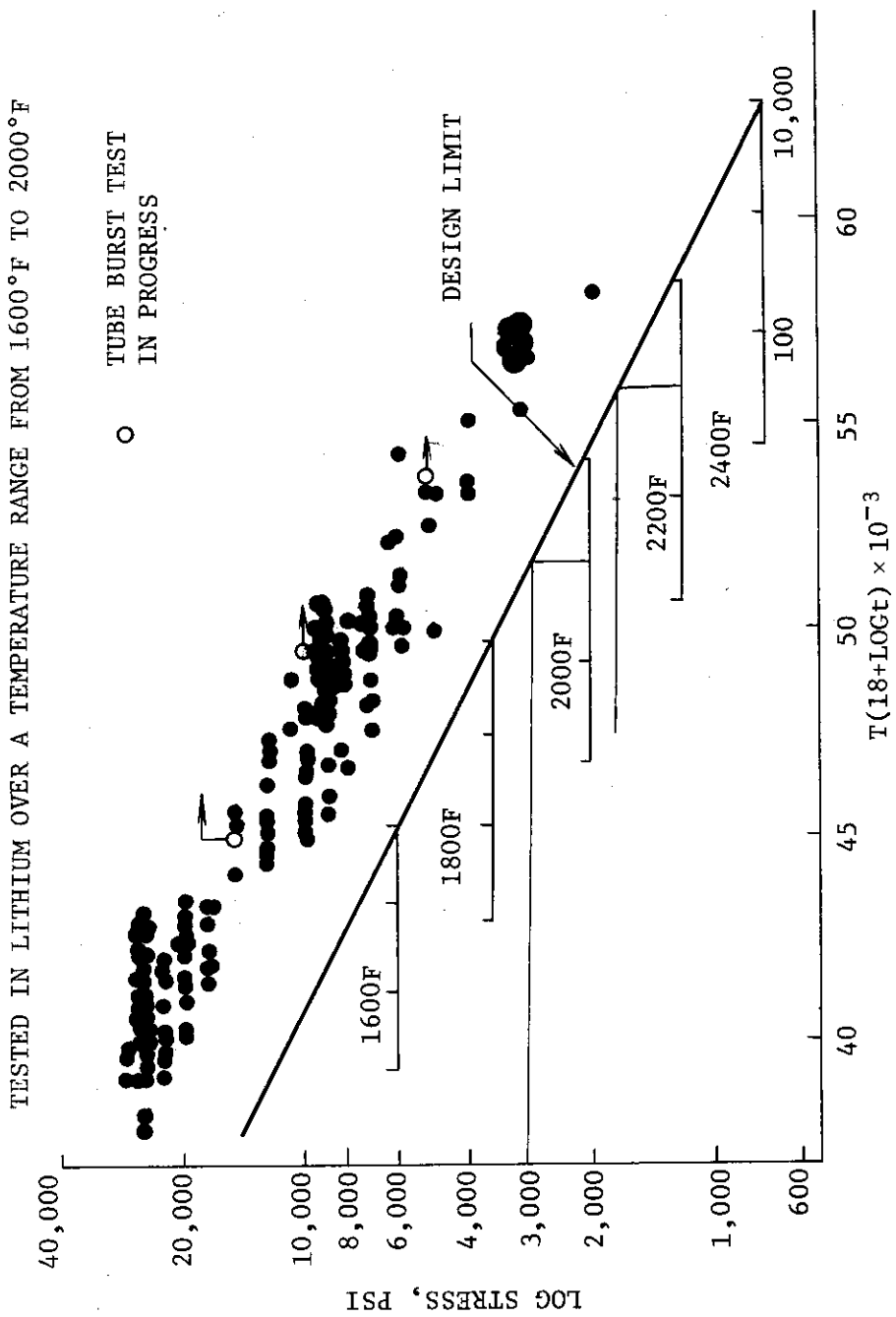


Fig. 3-12 Nb-1%Zr Alloy Stress Rupture Data on Larson-Miller Plot

3.5 設計上の反省

72F-7Aキャプセルを照射開始してみると出力上昇過程で中段試料に挿入した熱電対が破損してしまいこの部分の温度指示を得ることができなくなった。これはFig. 3.1に示す如くキャプセル全長841mmの中に三段の試料ブロックに対応する三本の内キャプセルを組込んだ結果スペーサ部分の長さが不十分になりW-Re熱電対のTaシースの曲がりの部分に無理な力がかかったためであると考えられる。

次に原子炉定格出力に達した後、試料の温度制御は上段と中段の真空制御管を結合し上段の試料温度1400°C一定制御にて制御ガスギャップ層の真空度を調節した。その結果、中段試料の温度が予想よりも上がりすぎたため被覆管が破損し核分裂生成ガスの真空制御ガス中への放出を引きおこした。これの原因としては次が考えられる。

(1) 中段試料温度測定用熱電対が破損しこの部分の温度指示を得ることができなくなったため、他の部分に挿入した残りの熱電対指示から中段試料温度を推定せざるを得なかったが、発熱分布の相違、真空制御ガスギャップ層の温度上昇の相違などのため誤差が大きくなった。

(2) その結果中段試料ブロックの温度が予想よりも上がりすぎて酸素ゲッタ、熱反射板の設計温度は900°C、スプリングは800°Cであったが、実際はこれをさらに上廻り、設計時には予想しなかった1000°C近辺でのTi-Ni-Zr系の低融点合金生成をひきおこした。

72F-7Aキャプセルの破損を貴重な経験として今後の高温キャプセル設計に反映してゆきたいと考えている。具体的には高温時における材質の安定性、即ちTi, Niなどはやめて少くとも2000°Cまで低融点合金を生成することのない材質の選択例えばNb-1%Zr被覆管に対してはNb, Zr, Moの反射板及び酸素ゲッタ、スプリング、ZrO₂の断熱材などが必要であると考えている。(野村)

4. 照射後試験

4.1 非破壊検査

1) 概要

本キャプセルの破損箇所の早期究明のため、外筒・熱媒体付内筒、熱媒体付内筒および内筒(以下外筒、熱媒体および内筒とする)の非破壊検査を行なった。

真空制御導管へのF.Pガス漏洩経路の検討結果から、キャプセルの中段部に組み込まれていた内筒(72F-7A-2)の破損が予想されたため、この内筒を中心に外観検査、X線検査および寸法測定を行なった。

外筒のX線検査の段階で、内筒に組み込まれていたTiゲッタ板、Ni反射板、Zrゲッタ板などの内筒部品に異常が認められた。

さらに、熱媒体および内筒のX線検査によって、内筒下部端栓より約20~35mmの範囲の内筒壁が内面より侵食され、薄くなっていることが認められた。

肉眼およびステレオスコープによる内筒の外観検査の結果、上記異常部の位置に相当する外表面に楕円形(1.8×3.8mm)および円形(1.2mmφ)の“ふくれ”が観察された。

内筒の寸法測定の結果、照射前の値と比較して長さには変化が認められなかったが、外径の変化が認められた。

3.5 設計上の反省

72F-7Aキャプセルを照射開始してみると出力上昇過程で中段試料に挿入した熱電対が破損してしまいこの部分の温度指示を得ることができなくなった。これはFig. 3.1に示す如くキャプセル全長841mmの中に三段の試料ブロックに対応する三本の内キャプセルを組込んだ結果スペーサ部分の長さが不十分になりW-Re熱電対のTaシースの曲がりの部分に無理な力がかかったためであると考えられる。

次に原子炉定格出力に達した後、試料の温度制御は上段と中段の真空制御管を結合し上段の試料温度1400°C一定制御にて制御ガスギャップ層の真空度を調節した。その結果、中段試料の温度が予想よりも上がりすぎたため被覆管が破損し核分裂生成ガスの真空制御ガス中への放出を引き起こした。これの原因としては次が考えられる。

(1) 中段試料温度測定用熱電対が破損しこの部分の温度指示を得ることができなくなったため、他の部分に挿入した残りの熱電対指示から中段試料温度を推定せざるを得なかったが、発熱分布の相違、真空制御ガスギャップ層の温度上昇の相違などのため誤差が大きくなった。

(2) その結果中段試料ブロックの温度が予想よりも上がりすぎて酸素ゲッタ、熱反射板の設計温度は900°C、スプリングは800°Cであったが、実際はこれをさらに上廻り、設計時には予想しなかった1000°C近辺でのTi-Ni-Zr系の低融点合金生成をひき起こした。

72F-7Aキャプセルの破損を貴重な経験として今後の高温キャプセル設計に反映してゆきたいと考えている。具体的には高温時における材質の安定性、即ちTi, Niなどはやめて少くとも2000°Cまで低融点合金を生成することのない材質の選択例えばNb-1%Zr被覆管に対してはNb, Zr, Moの反射板及び酸素ゲッタ、スプリング、ZrO₂の断熱材などが必要であると考えている。(野村)

4. 照射後試験

4.1 非破壊検査

1) 概要

本キャプセルの破損箇所の早期究明のため、外筒・熱媒体付内筒、熱媒体付内筒および内筒(以下外筒、熱媒体および内筒とする)の非破壊検査を行なった。

真空制御導管へのF, Pガス漏洩経路の検討結果から、キャプセルの中段部に組み込まれていた内筒(72F-7A-2)の破損が予想されたため、この内筒を中心に外観検査、X線検査および寸法測定を行なった。

外筒のX線検査の段階で、内筒に組み込まれていたTiゲッタ板、Ni反射板、Zrゲッタ板などの内筒部品に異常が認められた。

さらに、熱媒体および内筒のX線検査によって、内筒下部端栓より約20~35mmの範囲の内筒壁が内面より侵食され、薄くなっていることが認められた。

肉眼およびステレオスコープによる内筒の外観検査の結果、上記異常部の位置に相当する外表面に楕円形(1.8×3.8mm)および円形(1.2mmφ)の“ふくれ”が観察された。

内筒の寸法測定の結果、照射前の値と比較して長さには変化が認められなかったが、外径の変化が認められた。

PIE開始時の検討では、内筒の溶接部およびウエル部に破損が予想されたが、これらの部分に異常は認められなかった。

X線検査による内筒の肉厚減少部と、外観検査による“ふくれ”とは良く一致し、この部分が内筒の破損箇所であると推定された。

2) 外観検査

キャプセル外筒の目視による外観検査および外観写真撮影を行なった。外筒の表面は全体に光沢の強い銀色の金属色を呈していたが、外筒のほぼ中央付近から下端側に、巾約40mm、長さ約300mmにわたる赤茶色の変色が観察された。変色以外の外筒表面の異常は認められなかった。(Fig. 4.1)

熱媒体の外観検査では、その表面の変色およびスペーサ(SUS304)の黒化が観察され、その他の異常は認められなかった。(Fig. 4.2)

内筒の外観検査の結果、内筒下部端栓より約22.5mmの位置の外表面に楕円形に盛り上がった異常部が認められた。(以下A異常部とする)

さらに円周上約180°反対側の外表面(下部端栓より約30mmの位置)にも円形に盛り上がった異常部が認められた。(以下B異常部とする)

これらの異常部をステレオスコープにより詳細に観察した。(Fig. 4.3, Fig. 4.10 参照)

A異常部の形状は約1.8×3.8mmの楕円形であり、約0.2mm盛り上がっていた。その表面は光沢のある銀色を呈し、滑らかなうろこ状であった。またその周辺部は光沢のある銀色を呈し、ザラザラした粒状であった。

B異常部の形状は直径約1.2mmの円形であり、約0.1mm盛り上がっていた。その表面は光沢のある銀色を呈し、複雑な凹凸状態であった。またその円形の中央部には滑らかな表面の丸いくぼみが観察された。

上記以外に内筒の外表面に極く浅いすりきずが多少観察されたが、これは解体時のハンドリングによるものと思われ、特にその他異常は認められなかった。

内筒の部品および内筒内面の外観検査結果の詳細については4.2, 3)を参照されたい。

3) X線検査

外筒のX線撮影は45°ごと4方向とした。この場合被写体が外筒(SUS304)、熱媒体(Al-SUS304)、内筒(Nb-1%Zr)、試料ホルダ(Mo)、試料ホルダ(黒鉛)の5重被覆であったため鮮明なX線写真像を得るまでに至らなかったが、以下6項目の異常が観察された。

- (1) #2熱電対のTa被覆管が中段部熱媒体上部端栓より上方約13mmの位置で破損。
- (2) 内筒の上部スプリングが縮んだままの状態であり、スプリングとしての特性を喪失。
- (3) 内筒の上部Zrゲッタ板、Tiゲッタ板の溶融。さらにZrゲッタ板と接するコイルがZrゲッタ板と溶着。
- (4) 内筒の上部黒鉛断熱材と黒鉛試料押えおよびMo試料ホルダとの間に約3mmのギャップあり。
- (5) 内筒の下部Tiゲッタ板、Ni反射板、Zrゲッタ板の溶融一体化。
- (6) 内筒の下部黒鉛断熱材に金属が侵透。

内筒を解体除去した後、熱媒体のX線検査を行ない、

- (7) 内筒下部端栓より上方約19～24mm、29～34mmの範囲の内筒壁2カ所が、内面から侵食されたような形状で肉厚が薄くなっている。肉厚が最も薄い部分は約0.2mmであり、内筒壁を貫通

する欠陥が生じている可能性がある。

(8) 内筒上部黒鉛断熱材にも金属が侵透などの異常を認めた。(Fig. 4.4, Fig. 4.11 参照)

上段部および下段部熱媒体付内筒の状態を確認するためX線検査を行なった。両者とも中段部内筒に近い側の(高温側の)Tiゲッタ板, Ni反射板, Zrゲッタ板が反応を起こしはじめていることが認められたが, その他の異常は認められなかった。

熱媒体から内筒を取り出した後, 内筒のX線検査を行ない, 鮮明なX線写真像により前記(2)~(8)項の異常を再確認した。一方, 内筒の溶接部およびウエル部には異常が認められなかった。

内筒解体後のウエル部および内筒壁のX線検査結果は4.2, 4)を参照されたい。

4) 寸法測定

内筒の長さおよび外径測定を行ない, 内筒の照射による寸法変化を調べた。

内筒の長さ測定には定盤, マス, およびマイクロボールハイトゲージ(測定誤差 ± 0.05 mm)を使用した。測定点は約 120° ごと3点(L_1, L_2, L_3)とし, 各3回の測定を行ないその平均値を測定値とした。その結果 $L_1 = 180.49$, $L_2 = 180.48$, $L_3 = 180.45$ mmであり, 照射前の値と比較してほとんど変化が認められなかった。

内筒の外径を燃料棒寸法測定装置(測定誤差 ± 0.02 mm)によって測定した。測定方向は炉心方向(0° 方向), -50° 方向, $+40^\circ$ 方向とし, 内筒の全長にわたって1 mm間隔ごとに測定した。

0° 方向の測定の結果, 内筒の中央付近で最大外径(28.35 mm)を示し, 照射前の値と比較して0.14~0.26 mm大きくなっていた。内筒上端より30 mmの位置に最小外径(28.11 mm)を示すくぼみが認められた。(Fig. 4.5)

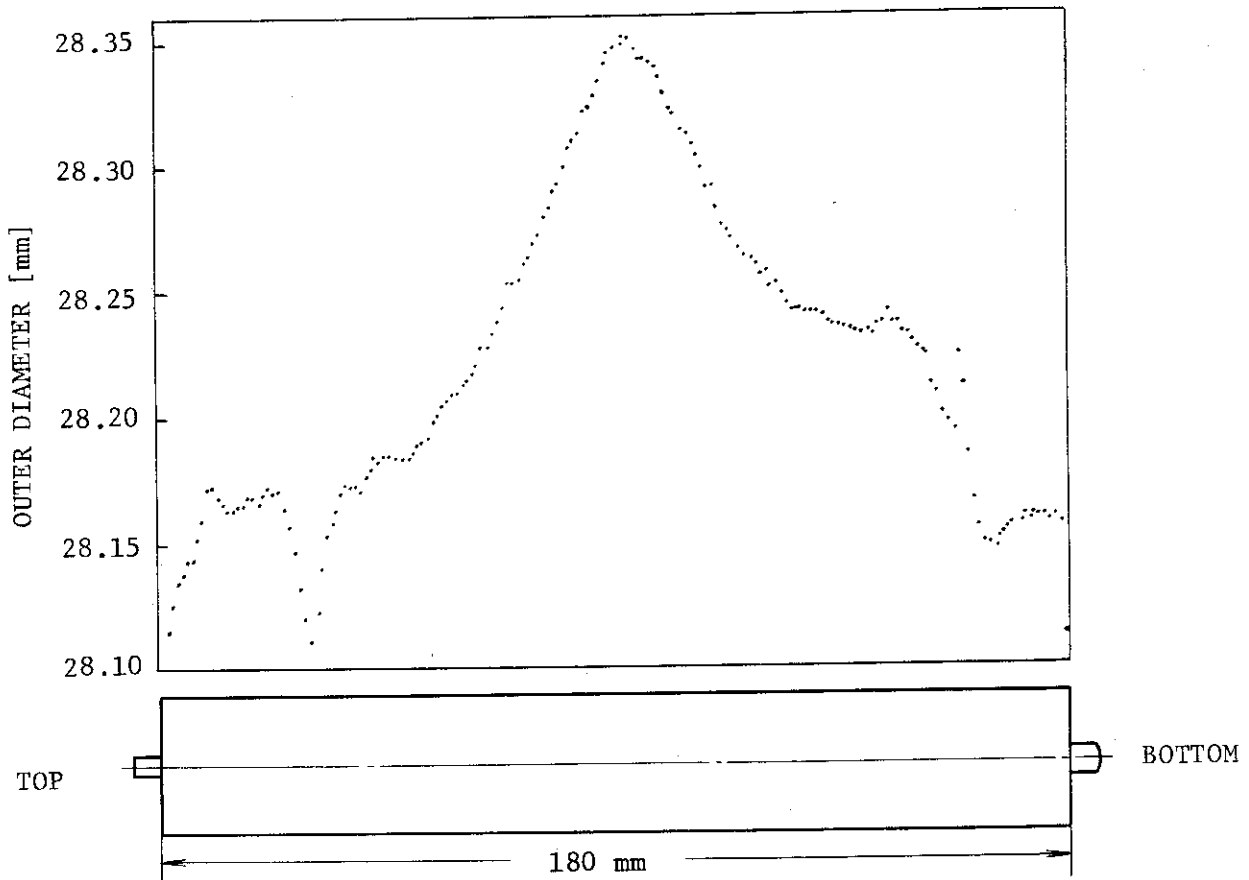


Fig. 4-5 Dimensional changes of cladding tube

-50°方向の測定では内筒の中央付近で最小外径(28.02 mm)を示し、照射前の値より0.07 ~ 0.19 mm小さくなっていた。また内筒下端より37 mmの位置が最大外径点(28.23 mm)であった。

+40°方向の測定では内筒上端より61 mmの位置に最大外径点が認められ、下端より17 mmの位置に最小外径点が認められた。最小外径は内筒のくぼみによるものと思われた。内筒の中央付近の外径は多少減少していた。

5) 非破壊検査のまとめ

非破壊検査による所見をまとめ、X線検査によって観察された現象について考察し、本キャプセルの破損箇所を推定した。

(1) 外筒および熱媒体には変色以外の異常が認められなかった。#2熱電対のTa被覆管の破損は、破損箇所が中段部熱媒体上部端栓より13 mm上方であり、かつ、ウエル部に異常が認められなかったため、F、Pガスの漏洩には関係のない破損であると思われる。

(2) 内筒上部に組み込まれていたスプリング(材質インコネル600)の位置での照射時における設計温度は約650°Cであり、スプリングはなお0.24 kg/mm程度¹²⁾のばね定数を有すると考えられるが、実際には無荷重の状態ですでにばね特性が失なわれていた。

これは、この部分の温度が設計温度よりも高くなり、インコネル600の機械的性質が急速に低下したためと思われる。

Zrゲッタ板と接していたスプリングのコイルがZrゲッタ板と溶着していた現象は、インコネル600の主成分がNi(72 w/o)であるため、NiとZrの反応によるものと思われる。

(3) Zrゲッタ板-Ni反射板-Tiゲッタ板-黒鉛断熱材(以下Zr-Ni-Ti-Grとする)が反応し、溶けあった複雑な様子がX線写真によって観察された。

上段部および下段部内筒の高温側で、Ti-Ni-Zrの反応がすでに起こりはじめていた。

中段部内筒では上部Zr-Ni-Tiが反応し、Niがろうじて原形を保っていたが、Zr、Tiは溶融した状態で変形していた。さらにZr-Ni-Tiは上部Grとも反応し、Gr中に金属が一部侵透していた。

下部Ti-Ni-Zrは完全に溶融し、下部Grに一部浸透していた。この部分は上側よりGr-Ti-Ni-Zrの構成となっているため、溶融したそれらが毛管現象によって(ポラス)黒鉛中へ侵透していったものと思われる。

上記の現象は照射によって内筒の温度が上昇し、Ti、Ni、Zrが次第に反応をはじめ、低融点合金となり、さらに黒鉛と反応したことによるものと思われる。

下部Ti-Ni-Zrが溶融し一体となったため、この部分の寸法が正常時より約3 mm短くなった。このためMo試料ホルダがおそらく自重によって下降し、上部Grとの間に約3 mmのギャップをつくったものと思われる。

(4) 内筒下部の肉厚減少は内筒がTi-Ni-Zr合金(溶融物)と接する部分から始まっているが、それが最も著しい部分は(Ti-Ni-Zrと反応した)Grが内筒と接する部分であり、かつ、両者の境界がX線写真上明瞭ではない。

以上の所見から、内筒(Nb-1% Zr)の肉厚の減少はTi-Ni-Zr、特にTi-Ni-Zr-GrとNb-1% Zrの反応によるものと推定される。

X線検査によって認められたこれらの異常部は外観検査によって内筒外表面の“ふくれ”として観

察されたA, B異常部と一致する。

従ってA, B異常部が破損箇所である可能性が高い。

(5) 当初破損が予想された内筒の溶接部およびウエル部には異常が認められなかった。

(6) 内筒の寸法測定の結果, 長さは照射前と比較して変化が認められなかったが, 外径の変化が認められた。最も顕著な変化は炉心方向に面した (0° 方向)内筒面の0.26 mmのふくれ(上端より93 mmの位置)であり, この方向の最大外径と最小外径の差は0.34 mmであった。一方, 上端より90 mm付近における -50° 方向の測定では -0.19 mmの最小外径を, $+40^\circ$ 方向の測定では -0.015 mmの外径の減少を示した。

内筒の外径変化は円周方向に一樣に生じたものではなく, 方向性をもった局所的な“ふくれ”または“くぼみ”によるものである。 (山原)

4.2 破壊検査

1) 概要

非破壊検査によりキャプセルの異常箇所がつきとめられたのに引き続き破損原因を明らかにするため, 外筒, 内筒の解体, 外観検査, X線検査, 金相試験, 硬さ試験を行なった。

解体後の外観検査, X線検査により異常箇所の状態が明らかとなった。黒鉛断熱材と接した内筒の内壁に局所的な肉厚減少箇所が見られX線写真には貫通孔と思われる部分が認められた。また下部ゲッターと反射板の溶着および黒鉛断熱材との一体化, スプリングのばね特性喪失, 試料ホルダーのヘアークラック等が観察された。

内筒と各部品金の金相試験により内筒の破損箇所, ゲッターと反射板の融解した組織, その他部品の異常状態を観察し破損に至る過程を考察した。また各所に形成された合金相の硬さ試験により合金成分の推定を行なった。

一連の破壊検査の結果より本キャプセルの破損原因は照射によって内筒内の温度が上昇し, ゲッターと反射板がまず融解を起し黒鉛断熱材に侵入するとともに内筒内壁と反応し局所的融解により内筒が侵食され, 遂には外表面まで侵食が進行し, この部分に内圧が作用したことによると考えられた。

2) 解体

(1) 外筒解体

キャプセルは保護管付全長約6.700 mmの状態でカナル経由により, コンクリートセルに搬入された。

本キャプセルは照射中止後解体までの期間が約35日であったため, F.Pガス, 特に ^{131}I の照射後試験中のセル外への漏洩に対する検討をおこない, 安全に照射後試験を実施するための対策を講じた。

キャプセルの保護管をプレスで切断し, キャプセルを放置した状態で, セル内ローカルガスモニタの指示値を観測したが異常は全く認められなかった。

外筒上部, 下部切断マーク位置をハックスウで切断し, 次にメタルソウにより外筒のみを 90° ごと4方向(軸方向)に切削した。

外筒の内, 外面に変色が認められたが, 外筒と熱媒体の“くっつき”はなく, 比較的簡単に4分割された外筒をはずすことができた。

(2) 熱媒体解体

熱媒体のX線検査完了後、中段部熱媒体の解体をおこなった。

熱媒体上部端栓および内筒に貫通しているウエルをダイヤモンドカッタで切断し、下部端栓部の熱媒体のみを回転カッタで輪切りにした。

熱媒体を構成するプレート、スプリングを取りはずし、熱媒体より内筒を押し出した。

(3) 内筒解体

内筒の非破壊検査の段階で、内筒の構成部品に異常が認められたため、被覆粒子燃料の照射後試験と並行して、内筒の構成部品の詳細検査を行なうことにした。

従がって、内筒を構成する全ての部品を損することなく、現状のまま取り出す方法を検討し、内筒の解体を行なった。

内筒の上部、下部端栓部の内筒壁のみを回転式カッタで輪切りにし、上部端栓(ウエル付)と下部端栓をはずした。次に内筒をメタルソウで軸方向に180°ごと2方向切削し、2分割された内筒をはずし、試料ホルダおよび内筒の構成部品を順次取り出した。

3) 外観検査

2分割された内筒管の内面の外観検査を行なった。内面の全域に熱影響によると思われる縞目模様が観察され、さらにFig. 4.6に示すような異常部が認められた。

下部黒鉛断熱材のパッドが内筒と接する位置に、内筒の局所的な溶融に起因すると思われるくぼみを伴った異常部(以下、A', B'異常部とする)が認められ、これらは4章の2.2で述べたA, B異常部と一致することが判明した。(Fig. 4.12, Fig. 4.13参照)

また内筒内面への上部Tiゲッタ、下部Ti-Ni-Zrの一部溶着および上部黒鉛断熱材パッドの一部付着が認められ、さらにMo試料ホルダの位置に相当する内面は(円周方向に巾約35mmにわたり)銀色のうろこ状の表面状態であった。

Mo試料ホルダには8コのパッドが設けられているが、これらのパッドに相当する痕跡(くぼみ)が内筒の内面に観察された。これはMo試料ホルダの熱膨張によるものと思われた。

Mo試料ホルダの2箇所内筒下部Ti-Ni-Zrが溶着していた。その箇所から軸方向に延びる数本のヘアークラックが観察された。(Fig. 4.14)

以下にその他の内筒構成部品の外観検査の概要を述べる。

(1) 上部端栓は光沢のある金属光沢を呈していた。溶接部の異常は認められなかった。

(2) スプリングは半光沢の灰色を呈していた。スプリングの長さは約10mm(照射前自由長21mm)であり、ばね特性が失なわれていた。コイルの内側の間隙がなくなっており、銀色の異種金属の溶着が認められた。

(3) ウエルは先端から約35mmに渡って変色(半光沢の黒色)しており、さらに先端から約20mmに渡る半周面(先端は全周面)は光沢のある銀色の粒状の表面状態であった。またウエルの中央部(黒鉛断熱材、ゲッタの位置に相当する)は約20mmに渡って半光沢の銀色を呈していた。その他の異常は認められなかった。(Fig. 4.15)

(4) 上部Znゲッタ板はスプリングと溶着していた。Ni反射板3枚は変形していたが溶融していなかった。Tiゲッタ板は溶融しNi反射板に溶着していた。

(5) 上部黒鉛断熱材にTiが溶着、侵透していた。またパッドが部分的に欠けていた。

下部黒鉛断熱材はTi-Ni-Zrと溶着し一体となり、黒鉛に溶融金属が侵透していた。

下部Tiゲッタ板は溶融していた。Ni反射板3枚が一体となっていた。Zrゲッタ板は溶融しNi反射板3枚が一体となっていた。Zrゲッタ板は溶融しNi反射板に溶着していた。

内筒下部端栓の内面にZrが溶着していたが、その他の異常は認められなかった。

以上の外観検査により、黒鉛断熱材と接する内筒の内壁が局部的に溶融し、くぼんでいることが観察され(A', B'異常部)、外表面のA, B異常部と位置的に一致することが確認された。

従って内筒外表面の“ふくれ”として観察されたA, B異常部は内面からつながった異常部であると推定される。

またスプリング、ゲッタ、Mo試料ホルダの状況から推定して、内筒の温度が設計温度よりも異常に上昇したと思われる。

4) X線検査

解体された内筒管およびウエル部のX線検査の結果は以下のものであった。

4.1. 3)の(7)項に記した内筒の肉厚減少部は、上部黒鉛断熱材が内筒の内面と接する部分に2箇所、下部黒鉛断熱材と接する部分に3箇所存在することがわかった。黒鉛断熱材は90°ごと4箇所以内筒と接するが、その接触面が源となり、合計5箇所に肉厚減少部が生じていた。

また内筒の肉厚減少部の(平面的な)X線写真像には複数の写真濃度の高い斑点が観察された。この部分の写真濃度は被写体(内筒)以外の部分の写真濃度とほぼ等しく、内筒壁を貫通するピンホールのX線写真像であると思われる。(Fig. 4.7)

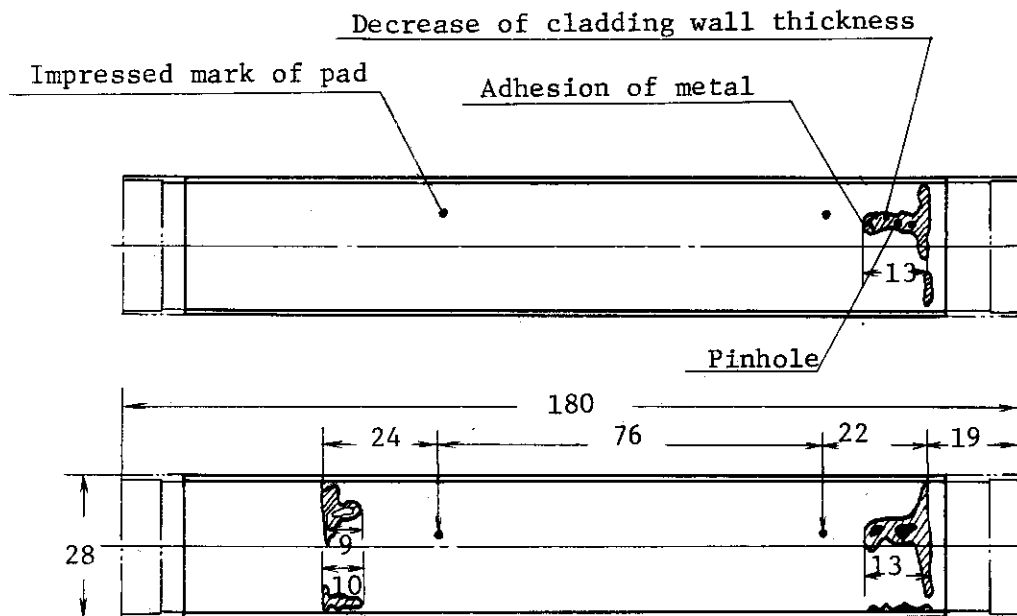


Fig. 4-7 Remarkable X-ray images of Nb-1%Zr cladding tube.

内筒の内側に挿入されていたMo試料ホルダの8個のパッドのうち4個のパッドが内筒にかなり深く食い込んだと思われるX線写真像が観察された。

キャプセル組立時における内筒の内面とMo試料ホルダのパッドとのギャップは0~0.12mmであった。⁽¹⁾パッドの食い込み深さをX線写真から測定することはできないが、片側で0.1mm程度食い込んだものと思われる。

Mo 管の熱膨張によってパッドが内筒に食い込んだと仮定すると、Mo 管の照射中の温度は約1420℃と計算される。^{13), 14)}この値は設計温度よりも約260℃高い温度である。

ウエル部のX線検査の結果、ウエル管の肉厚が多少薄くなっている部分が認められたが、破損に至るような異常は認められなかった。

また内筒の全ての溶接部についても異常は認められなかった。

4.1. 5) および上記の結果により、本キャプセルの破損箇所は中段部内筒の肉厚減少部に生じた複数個のピンホールと推定される。

ピンホールが生じた原因は、照射によって内筒の温度が上昇し、Ti-Ni-Zr-Gr と Nb-1% Zr が局所的な溶融をとまなう反応をおこし、内筒を侵食しながら反応が進行し、この部分に内筒の内圧が作用したことによると思われる。

5) 金相試験、硬さ試験

(1) 試験片の採取

内筒解体により内筒を構成するすべての部品が取り出されたので、内筒と各部品について異常部と異常の可能性のある部分から金相試験片を採取した。採取にはダイヤモンドカッターを用いたが試料ホルダー、酸素ゲッター、反射板、スプリングは切断中に破損のおそれがあったため、前処理としてエポキシ樹脂で固定してから切断した。各試験片の採取位置はFig. 4. 8, Fig. 4. 9 および Fig. 4. 16 に示してあるが、内筒については異常部を7ヶ所、ウエルについては溶接部を2ヶ所、試料ホルダーは異常部を2ヶ所、下部酸素ゲッターと反射板は5枚の円板が融着して一体となっていたのでその断面を2ヶ所、スプリングは2ヶ所をそれぞれ採取した。

(2) 試験片の調製

各試験片はそれぞれの観察面に従い当ホットラボ専用の埋込管に埋込み、研磨を行なった。研磨は耐水研磨紙#180~#600 およびダイヤモンドペースト7μ~1μを用いた。Nb-1% Zr材である内筒とウエルについては研磨後化学エッチングを行ない、Mo 試料ホルダー、酸素ゲッター、反射板、スプリングについては電解研磨、電解エッチング、化学エッチングを併用した。各試料の調製法についてはTable. 4. 1 に示す。

(3)内筒の顕微鏡組織研磨およびエッチングの終了した試験片はステレオスコープにて外観観察(倍率×8~×30)および顕微鏡にて組織観察(×100~×400)を行ない、異常部については研磨-エッチング-写真撮影-研磨…を数回繰返し異常の状態を明らかにした。また異常部の連続写真については合成写真を作成した。以下に内筒の顕微鏡組織観察結果を述べる。

Fig. 4. 17, Fig. 4. 18 は内筒のA異常部の横断面である。この部分は外観検査において内筒外表面の“ふくれ”として観察されたが顕微鏡観察では明らかに外表面に合金相の形成が認められる。この合金相は内筒が内側から侵食され遂には外表面まで達し、そこにできた貫通孔を通して熔融金属が溶け出し凝固した組織を呈している。即ち内側に付着した合金相と外表面の合金相は全く同一相であり(Fig. 4. 18)この貫通孔が内筒の破損部であることが確認された。

A, B 両異常部近傍の縦断面組織(Fig. 4. 19, Fig. 4. 20)ではいずれも内筒内壁が侵食され同様の合金相が形成されている。特にB異常部では内筒母材が完全に変質し、合金相が内側から外側まで形成され、その中心部に“ふくれ”を生じている。

内筒内壁の侵食の特にはげしいのは断熱材であるグラファイトに接した部分であるが、断熱材とMo 試料ホルダーとの境界部では内筒内側に合金相の盛り上がりが見られる(Fig. 4. 20, Fig. 4. 21)ま

た下部断熱材側の異常部周辺ではいずれも再結晶、結晶成長が見られるが上部断熱材側では全く見られない (Fig. 4.21; b)~e))。

(4) ウエルの顕微鏡組織

ウエルの溶接不良その他の異常の有無を調べるため EBW 溶接部の横断面とウエル先端部の縦断面を観察した。Fig. 4.22, Fig. 4.23 にそれぞれの溶接部を示したが、いずれも溶接不良等の欠陥は認められなかった。両試験片とも研磨、観察を3回繰返して検査し、ここに示した写真は3回目のものである。

いずれの組織も結晶粒が粗大化し、特にウエル最先端である Fig. 4.23, b)~f) で顕著である。またウエル先端から15mm以上にわたりウエル外表面に合金相が形成されており、その厚さは0.22~0.28mmである。

(5) 試料ホルダーの顕微鏡組織

試料ホルダーは焼結モリブデン管であり、外径25.2mm肉厚1.6mmである。この管の下部断熱材側の端部に異常が見られたので、その横断面を観察した。この部分の組織は数種の相が共存していたため、電解研磨、電解エッチング、化学エッチングを併用することによりそれぞれの相を観察することができた。

異常部には数ヶ所に外側から内側に向かってクラックが入りいずれも結晶粒界を伝播している (Fig. 4.24, Fig. 4.25) また外周には合金相が形成され、その表層は熔融状態から凝固したと見られる相を示し、さらに内周のモリブデン母材の相まで3~4種の相を生じている (Fig. 4.26)。外周部に熔融合金が付着し、結晶粒界あるいは粒内を拡散してモリブデンとの合金を作り、さらにモリブデン母材にくらべ合金相の方が焼結が進んでいることから低融点合金が形成されていると考えられる。

(6) 酸素ゲッター、反射板の顕微鏡組織

酸素ゲッターと反射板の構成は黒鉛断熱材に接する側からTiゲッター1枚-Ni反射板3枚-Zrゲッター1枚の計5枚の円板から成り、いずれも厚さ1mm、間隙1mmとなるように組立てられていた。照射後取出されたときは5枚が一体となって溶着し、黒鉛断熱材もくっついた状態になっていた。これらの一体となった試験片を4等分しその1ヶの断面を金相試験片とした。

ステレオスコープによる試験片の形状をFig. 4.27に、酸素ゲッターと反射板とが熔融、凝固した部分の顕微鏡組織をFig. 4.28, Fig. 4.29に示す。Ni反射板とTiゲッターとはほとんど融解し、特に黒鉛と接した部分で顕著である。融解した一部は黒鉛断熱材に侵入している。Zrゲッターは板厚の約 $\frac{1}{3}$ 付近で横方向に割れ (Fig. 4.28) 表面には2~3層の合金相が生じている (Fig. 4.28, Fig. 4.29)。熔融状態から凝固に至った相、合金相ともそれぞれの位置により組織の様相が異なることから融解して凝固するまでに温度勾配等複雑な変化を経たと考えられる。

(7) 上部ゲッターおよびスプリングの顕微鏡組織

上部Zrゲッターとスプリング (インコネル-600) とは内筒から取出したときは一体となっていたが、顕微鏡観察の結果では両者は離れており溶着状態ではないことがわかった。Fig. 4.30に示すように上部Zrゲッターは下部ゲッターとは異なった組織であり、全体にわたり合金化していたが、下部ゲッターと同じように横方向の割れが生じていた。スプリングは全体にわたり再結晶しておりゲッターに接していた側の外周部には結晶成長が見られる。

(8) 硬さ試験

金相試験ののちマイクロビッカース硬さ試験機により各試験片の硬さ測定を行なった。合金相等の

微細な組織の測定のため、試験荷重は100g~500gとし、内筒とウエルの測定にはヌープ圧子を用いた。なお試験に先立ち硬さ基準片による測定を行ない試験機の校正を行なった。

内筒、ウエル、試料ホルダー、ゲッター、反射板およびスプリングの硬さ測定結果をTable 4.2~7に示す。

6) 破壊検査のまとめ

解体後の外観検査、X線検査、金相試験、硬さ試験の結果をまとめ、異常部の状況および破損に至る過程を考察する。

(1) 外観検査により黒鉛断熱材と接する内筒の内壁に局部的なくぼみが観察され、外表面のA、B異常部と一致することがわかった。また下部ゲッターと反射板の溶着および黒鉛断熱材との一体化、内筒へのゲッター、反射板の一部溶着、試料ホルダーの軸方向ヘアークラック、スプリングのばね特性喪失等が観察された。

(2) X線検査により内筒の肉厚減少部は5箇所あり、そこには貫通孔と思われる写真濃度の高い斑点が観察された。またウエルは肉厚が多少薄くなっている部分が認められたが破損に至るような異常は認められなかった。

(3) 試料ホルダーのパッドの内筒への食い込みから照射中の温度を推定したところ、設計値より約260℃高い値となった。

(4) 内筒A異常部の顕微鏡写真では、内壁から大きく侵食されその一部には外表面に達する貫通孔ができていた。そこには明らかに熔融状態から凝固したと見られる合金が付着し、貫通孔を通して内筒の外側まで溶け出していた。この合金の硬さはHk 520~700であり金属間化合物であると考えられる。破損部は黒鉛断熱材と接する位置にあたり、破損に至る過程を推定すると、まず反射板とゲッター(Ti板、Zr板)は軟化して互いに接触し、拡散により合金を作りつゝ融解して流れ出し、黒鉛断熱材中に侵入するとともに内筒と接して反応し、さらに多元合金(Ni-Ti-Zr-Nb)を作つて融解し内筒を侵食したものと考えられる。反射板とゲッターの融解部の硬さ平均がHv 380であることから上記過程は推定できる。

またNiの融点は1453℃であるが、Ni-Ti、Ni-Zr、Ni-Nb系ではいずれも金属間化合物を作りその共晶点での温度はそれぞれ955℃¹⁵⁾、961℃¹⁶⁾、1175℃¹⁷⁾でありこれらが拡散により多元合金を作つた場合1000℃付近の融解は十分考えられることである。

(5) 内筒の侵食された部分の周辺には再結晶が見られその結晶粒度は異常部周辺でASTM粒度No. 3.5~4.5であった(Table 4.8)。J. R. Stewart et al¹⁸⁾はNb-1% Zrの板材について加工度と再結晶温度、結晶粒度との関係を示しているが、本内筒の照射前の加工度52%を適用すると再結晶開始温度は1150℃、再結晶粒度は6.5となることから異常部周辺では再結晶後さらに結晶成長したと考えられる。

内筒異常部周辺では1150℃付近に達したと推定されるがこの値は試料ホルダー表面温度の設計値(1157℃)に近い値である。内筒の縦断面試験片にはいずれも合金相が0.3~0.4 mm盛り上った部分があるがこれは黒鉛断熱材と試料ホルダーの境界にあたり、内筒と試料ホルダーの間隙が0.4 mmである。このことは溶融合金が黒鉛断熱材の4ヶ所のパッドに沿って黒鉛に溶け込みあるいは内筒を侵食しつゝ流れ試料ホルダーの端部に溜まって止まったと推定すると、内筒と試料ホルダーは接触状態となり異常部付近の内筒温度が試料ホルダーの表面温度に近い値であったことは十分推察できる。

Table 4-8 Recrystallized grain size of cladding

| Specimens | Measuring position | ASTM grain size |
|-----------|-------------------------|-----------------|
| 74F-014 | Sound section | 4.5 |
| | Circumference of defect | 3.5 ~ 4 |
| 74F-015 | Inside | 4 |
| | Outside | 5.5 |
| 74F-016 | Circumference of defect | 4.5 |
| 74F-017 | Circumference of defect | 3.5 |

事実試料ホルダーの端部に合金の付着が見られ、そこでモリブデンとの合金を形成していた。合金相の硬さはHv 326, 390でありNi-Ti融解部の硬さに相当する。

(6) Mo 試料ホルダーのヘアークラックは結晶粒界破断であり外周で始まり内周に向かって伝播していた。粒界破断の見られるのは合金部だけでなくMo母材部でも同様であることからクラック発生の際の試料ホルダーの温度は $T_M/2$ (= E. C. T., $T_M = 2898^\circ\text{K}$)以上すなわち 1176°C 以上であったと推定される。

(7) ウェル先端部には結晶成長とともに表面に化合物層が形成されていた。化合物は硬さがHv 1300 ~ 2000であることから黒鉛との接触反応により生成した炭化物(NbC, Nb₂C)である。Brizes et al.¹⁹⁾ および藤川 et al.²⁰⁾ はニオブの炭化物成長速度から炭化物中の炭素の拡散係数を求めているが、これらのデータから炭化物生成温度を推定すると、本ウェルの保持時間100 hrでの炭化物層の厚さは0.22 ~ 0.28 mmであり温度は $1700\sim 1750^\circ\text{C}$ となる(設計値 1620°C)。

(8) 内筒の内壁に形成された合金の硬さを比較すると2種類あることがわかる。一つは主に内筒の侵食された部分にありHv 520 ~ 760の硬さを示し、もう一つは内側に盛り上った部分でありHv 230 ~ 480である。前述したようにこれらの合金はNi-Ti-Zr-Nbの多元合金であるが、前者はこれに黒鉛の寄与が大であり後者は少ないと考えられる。

(9) 以上の結果および考察から破損原因として考えられることは、反射板として用いたNiとゲッターとして用いたTiおよびZrとが合金化すると共晶点を下げ融解しやすい組合せであったため、さらに内筒まで侵食して破損に至らしたものである。内筒の侵食には黒鉛も何らかの寄与をしていたと考えられる。また内筒内各部の温度は設計値より高くなっていたと推定される。

4.3 照射後試験のまとめ

高温照射を行なった72F-7Aキャプセルの破損原因を明らかにするためJMTRホットラボにおいて非破壊検査および破壊検査を行ない次のことがわかった。

(1) 内筒は下部黒鉛断熱材付近で外側に2ヶ所の“ふくれ”があり内側から侵食されて貫通孔を生じていた。

(2) 内筒およびウエルの溶接部には溶接不良等の欠陥は認められなかったが、ウエル先端付近に厚さ0.22~0.28 mmの炭化物層が生じていた。

(3) Ni反射板と酸素ゲッターであるTi板、Zr板とは融解して一体となり黒鉛断熱材に侵入するとともに内筒の侵食に寄与していた。

(4) Mo 試料ホルダーの下端2箇所に反射板-ゲッターの合金が溶着し、そこから軸方向に粒界破断による数本のヘアークラックが生じていた。また試料ホルダーには外周に8箇のパッドが設けられているが熱膨張によりこれらに相当する“くぼみ”が内筒の内面に生じていた。

(5) インコネル600のスプリングはバネ特性を喪失していた。

(6) 上部黒鉛断熱材のパッドが部分的に欠けていた。

(酒井)

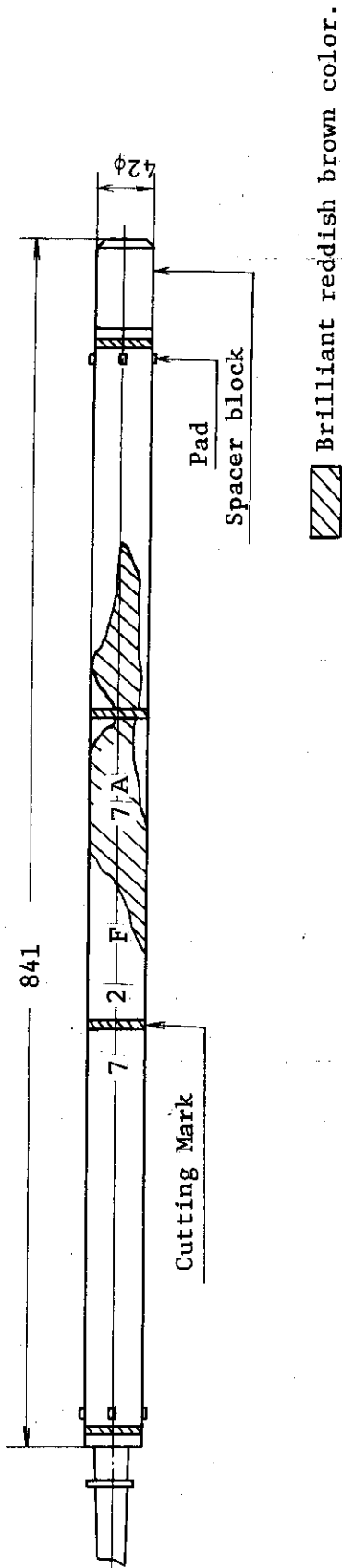


Fig. 4-1 Schematic drawing of visual examination of outer-tube capsule.

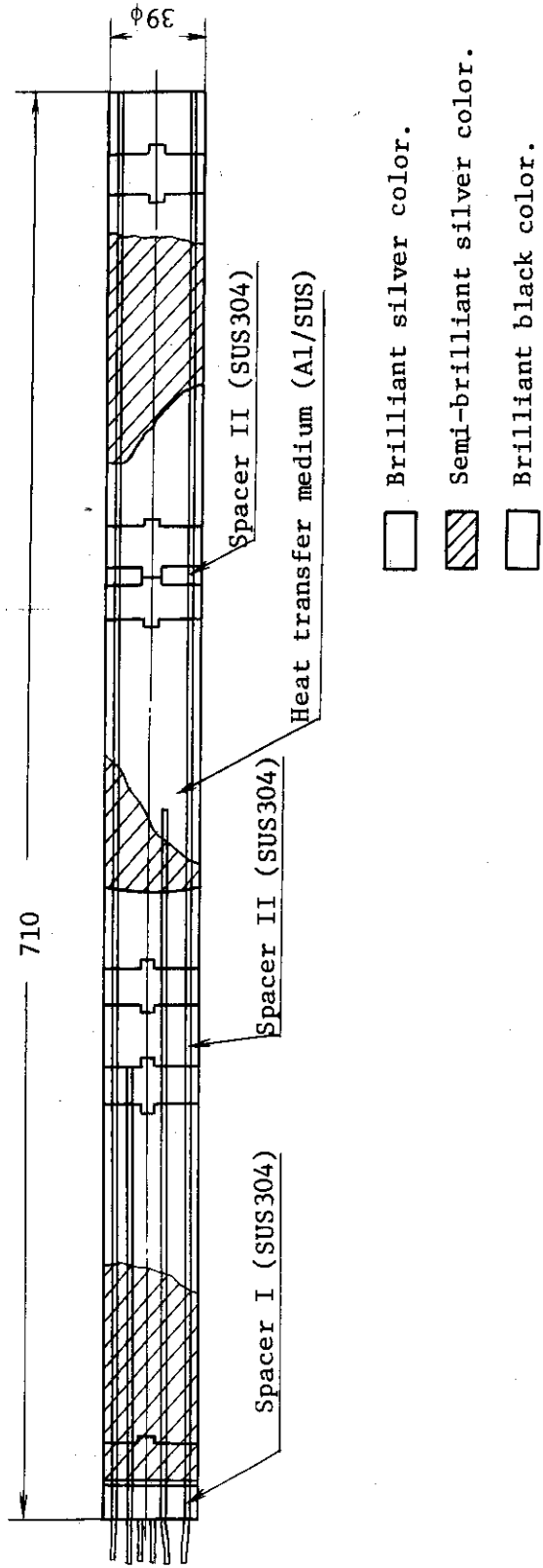
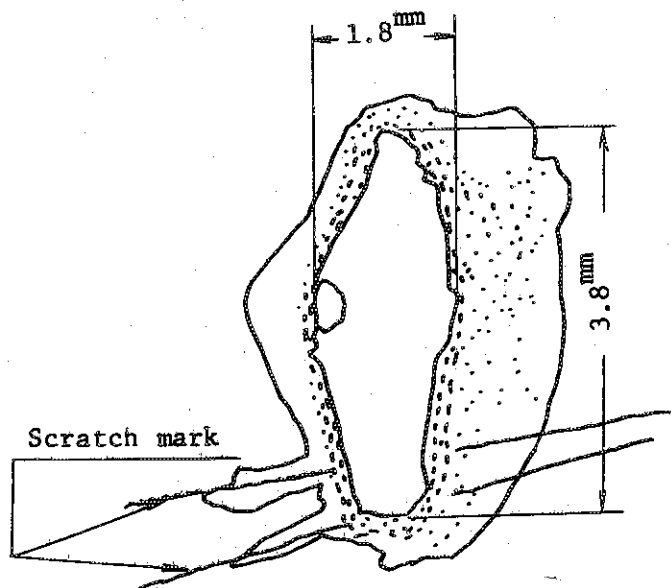


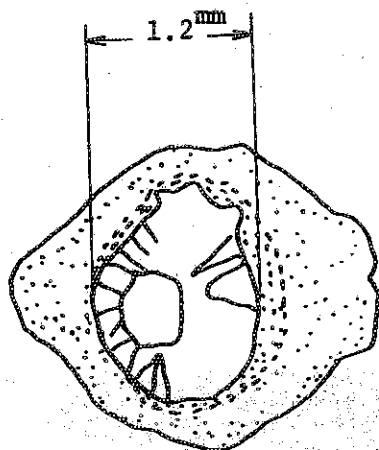
Fig. 4-2 Schematic drawing of visual examination of heat transfer medium.



Elliptic shape blister "A"



Elliptic shape blister. "A" ($\times 17$)



Circular shape blister "B"



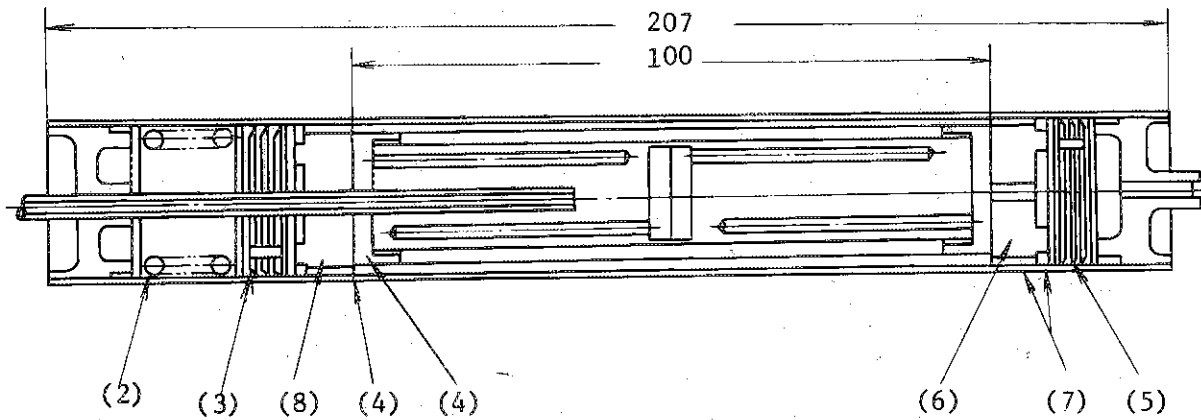
Circular shape blister. "B" ($\times 32.3$)

Fig. 4-3

Schematic drawing of blister on out-side surface of Nb-1%Zr cladding tube.

Fig. 4-10

Macrograph of blister on out-side surface of Nb-1%Zr cladding tube.



Note

- (2) Spring annealed perfectly during irradiation.
- (3) Melted Zr, Ti oxygen getter and spring connected with Zr getter.
- (4) About 3 mm gaps between Graphite insulator and Mo holder.
- (5) Melted Ti, Zr oxygen getter and Ni heat reflector.
- (6) Permeation of metal in Graphite heat insulator.
- (7) Decrease of cladding-wall thickness.
- (8) Permeation of metal in Graphite heat insulator.

Fig. 4-4 X-ray radiographic inspection of cladding tube

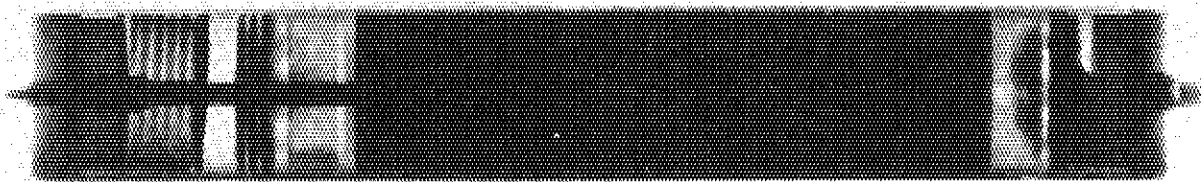


Fig.4-11 Photocopy radiograph of cladding tube.

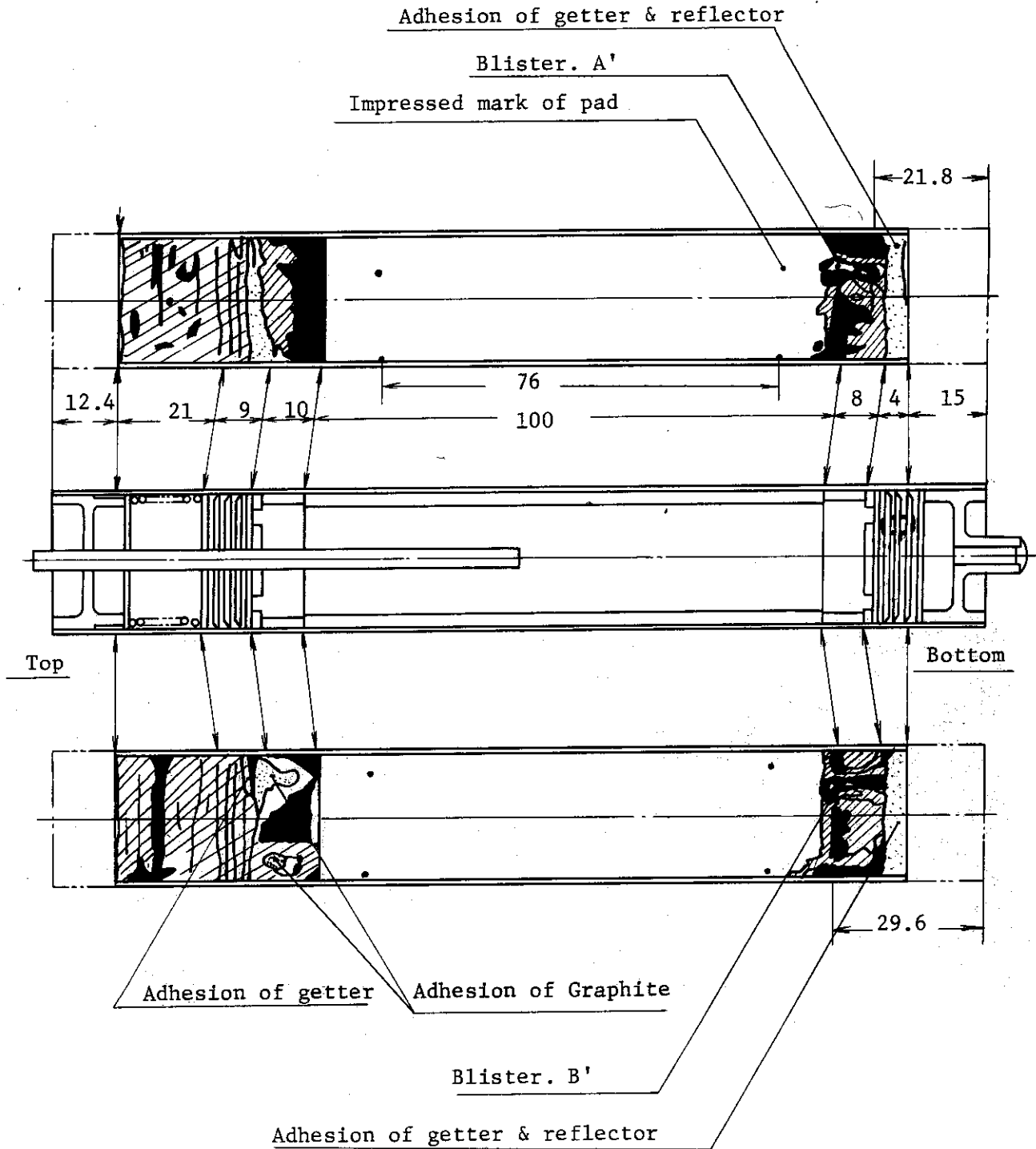
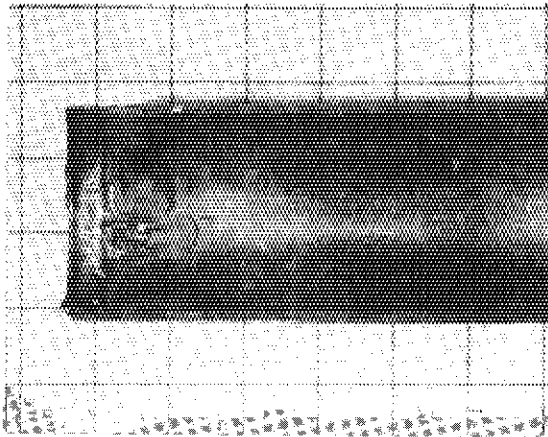
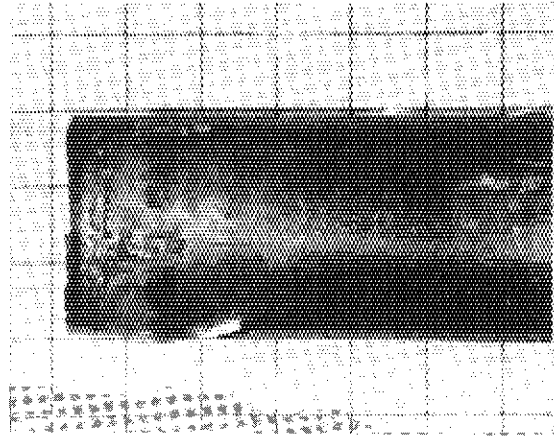


Fig. 4-6 Schematic drawing of visual examination of in-side face of Nb-1%Zr cladding tube.



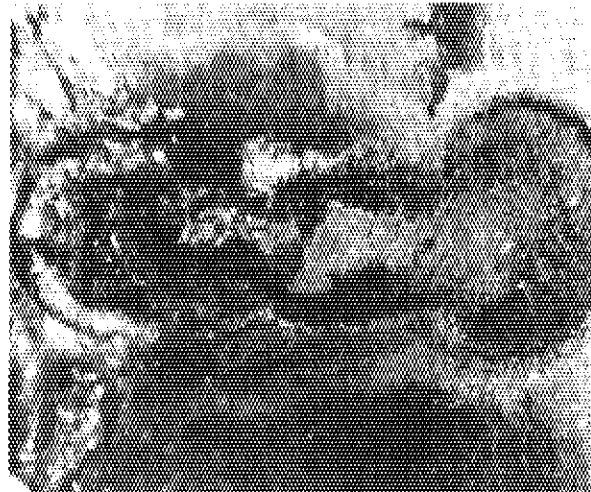
View of blister "A" (×1)



View of blister "B" (×1)



Macrograph of blister "B" (×6.5)



Macrograph of blister "A" (×6.5)

Fig.4-12

Blister "A" on in-side surface of Nb-1%Zr cladding tube.

Fig.4-13

Blister "B" on in-side surface of Nb-1%Zr cladding tube.

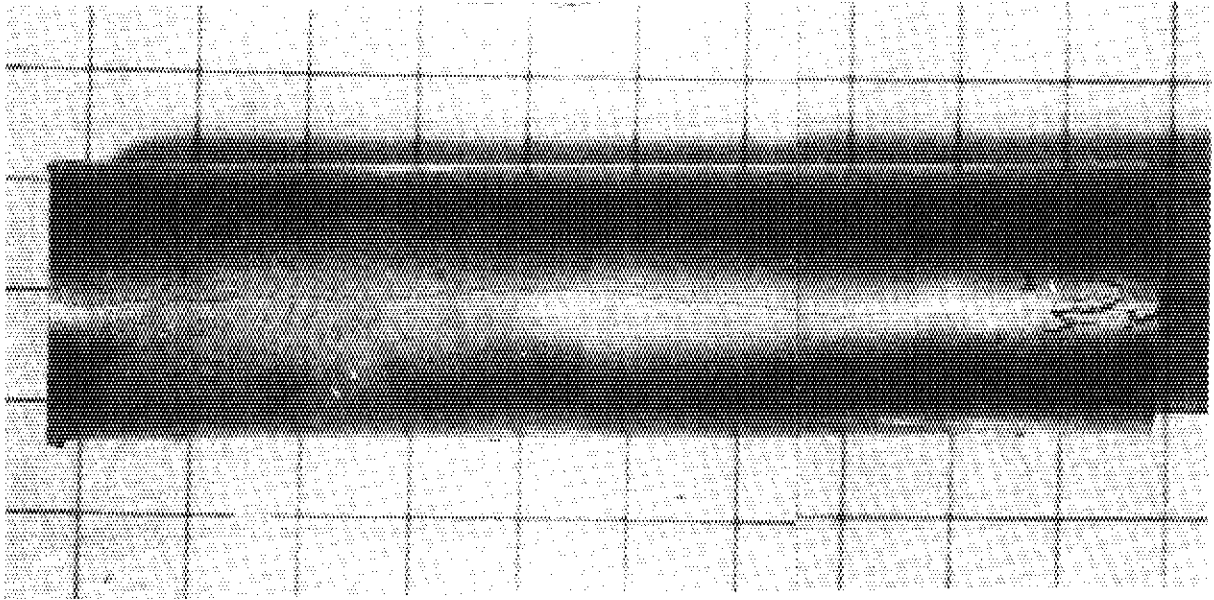


Fig.4-14 External view of Mo holder showing longitudinal hair crack.

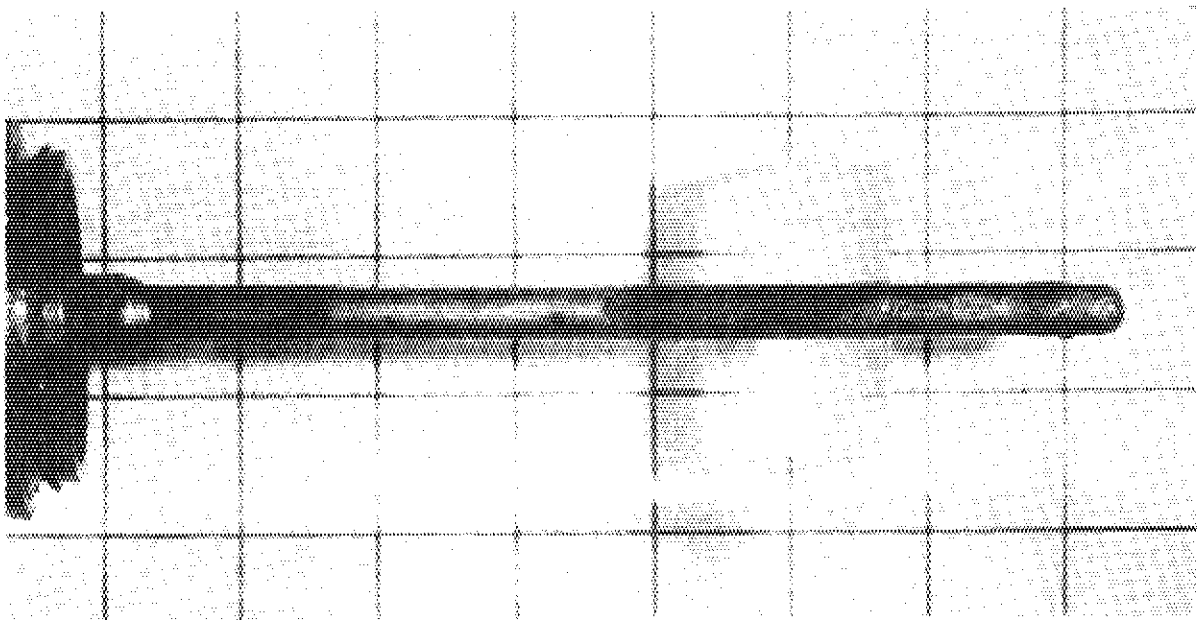


Fig.4-15 External view of Nb-1%Zr well tube.

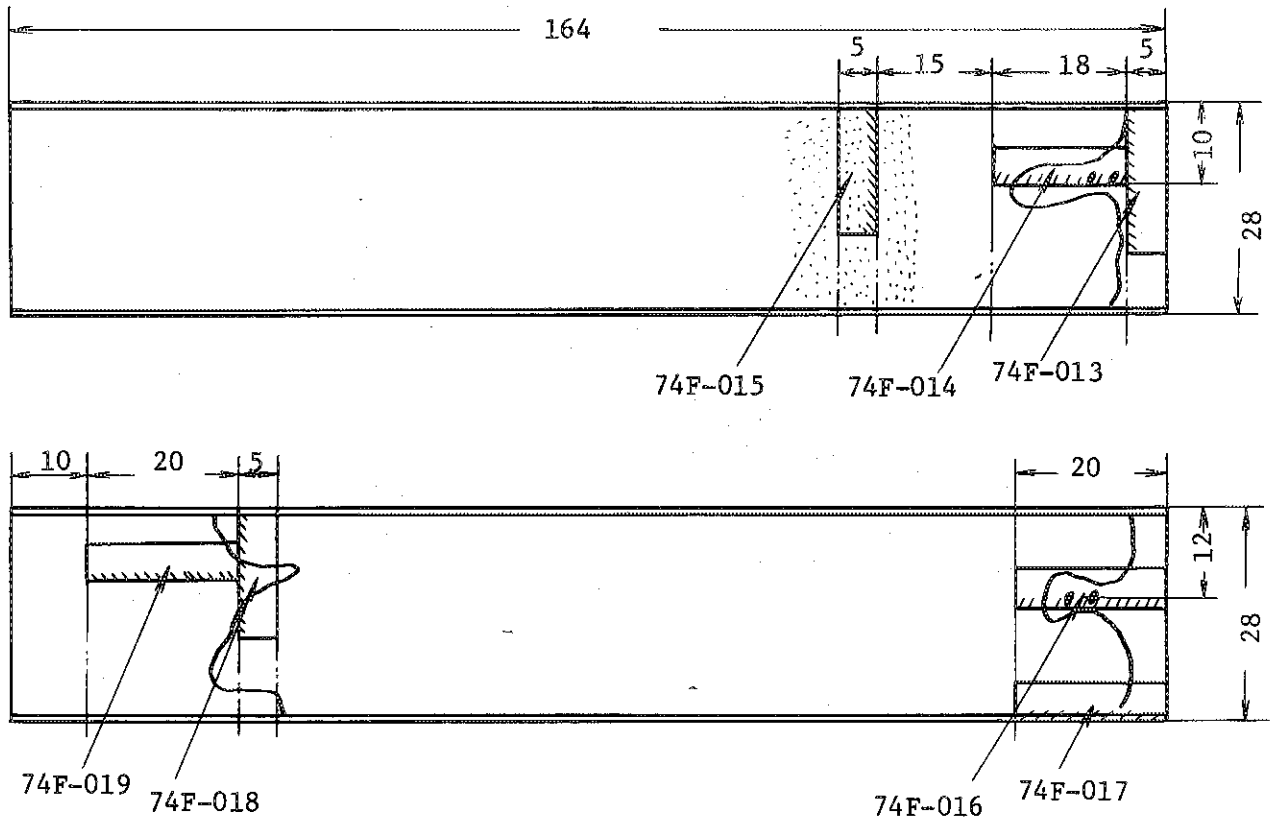


Fig. 4-8 Sampling position of metallographic specimens from cladding

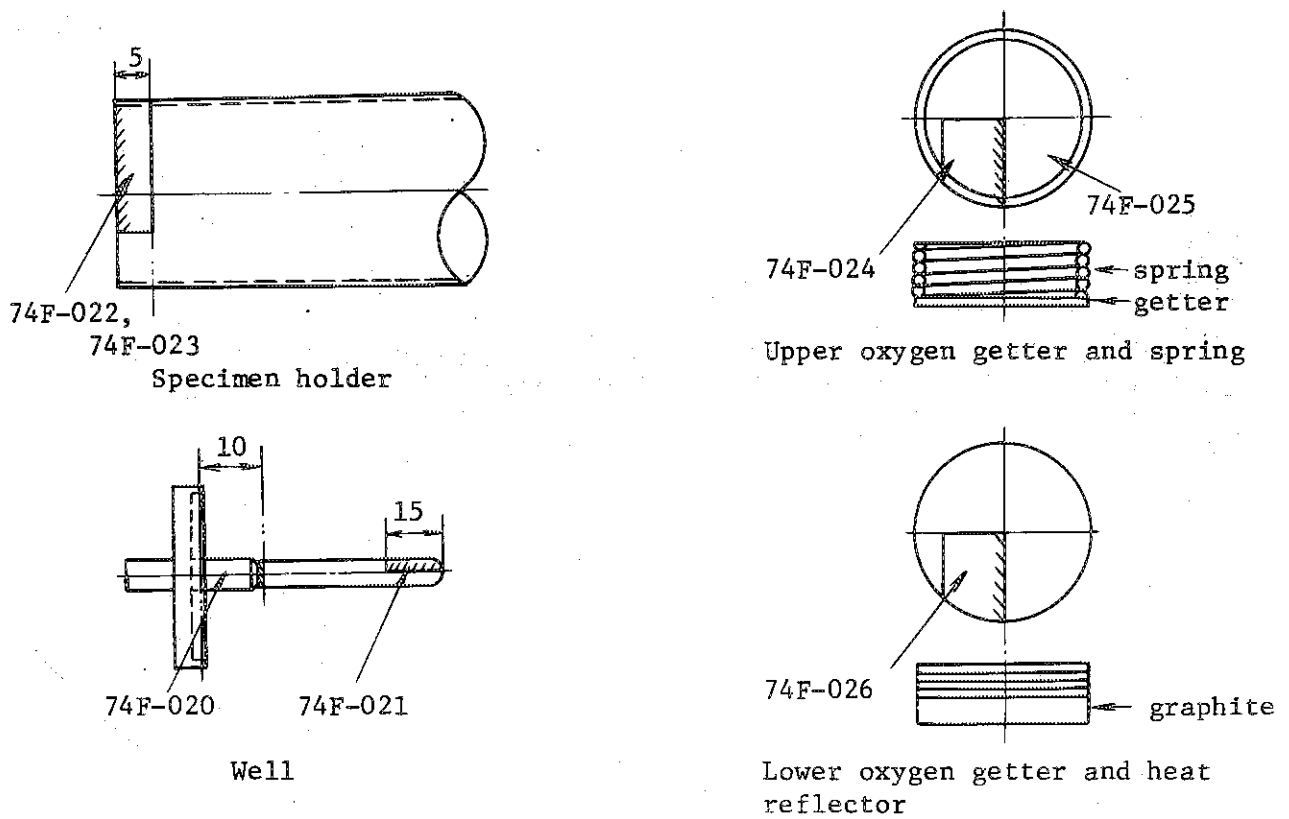


Fig. 4-9 Sampling position of metallographic specimens from components in cladding

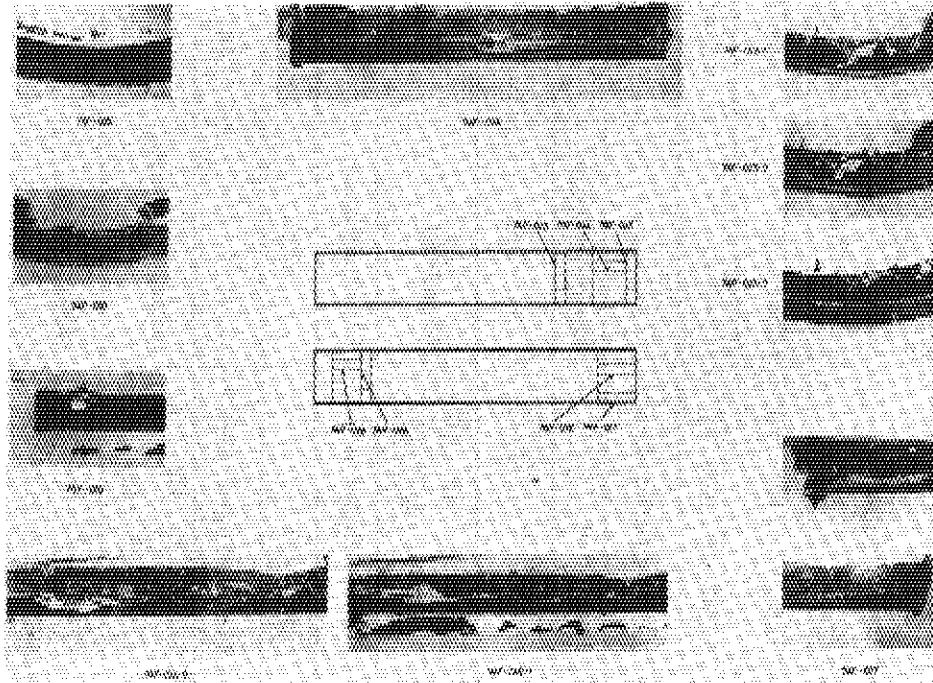


Fig.4-16 Sampling positions and macrographs ($\times 3$) of metallographic specimens from cladding.

Table 4-1 Preparation of metallographic specimens

| Specimens | Preparation No. | Final polishing | Etchant | Etching conditions | |
|---|-----------------|---------------------------|--|--------------------|-----------|
| | | | | Method | Time(sec) |
| Cladding (Nb-1%Zr) | | Diamond paste 1 micron | HNO ₃ 5 HF 10 | Chemical | 45~60 |
| | | " | H ₂ SO ₄ 7 H ₂ O 25 | " | 45~60 |
| Well (Nb-1%Zr) | 1 | Electrolytic polishing | Electrolyte A-3 ¹⁾ | — | — |
| | 2 | " | " | Electrolytic | 5 |
| | 3 | Diamond paste 1 micron | " | " | 7 |
| | 4 | " | HNO ₃ 5 HF 10 H ₂ SO ₄ 7 H ₂ O 25 | Chemical | 280 |
| Spring (Inconel 600) | | " | Electrolyte A-2 ²⁾ | Electrolytic | 30 |
| | 1 | " | " | " | 40 |
| Oxygen getter (Zr,Ti) and heat reflector (Ni) | 2 | " | Electrolyte A-3 ¹⁾ | " | 40 |
| | 3 | " | HNO ₃ 30 HF 4 H ₂ O ₂ 15 H ₂ O 50 | Chemical swab | 20 |
| | 4 | " | HCl 92 H ₂ SO ₄ 5 HNO ₃ 3 | Chemical | 45 |

1) 2) Common electrolyte by Struers.

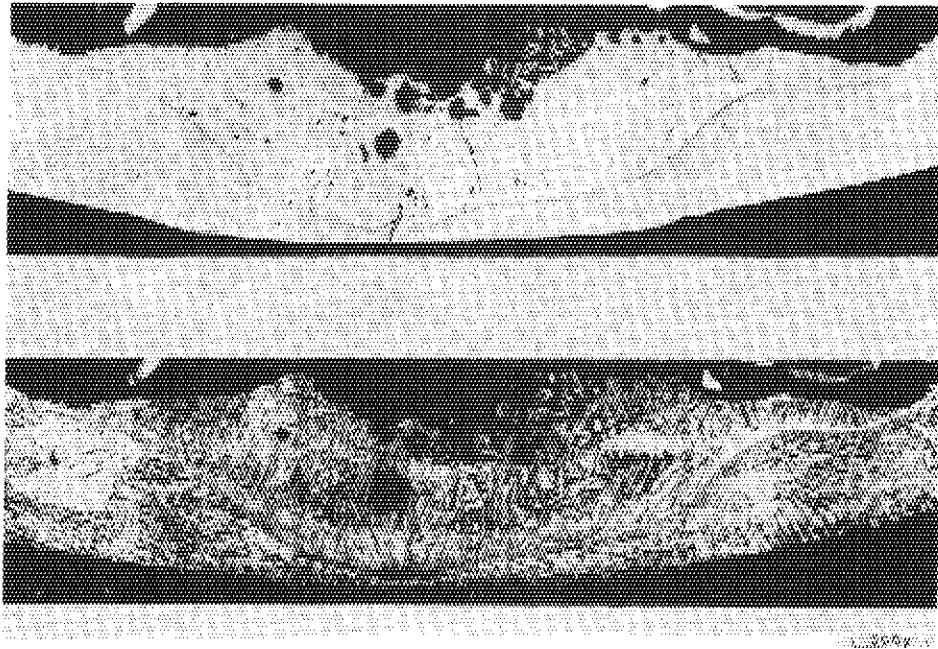


Fig.4-17 Transverse section of blister "A" of cladding (74F-013)
After polished and etched.

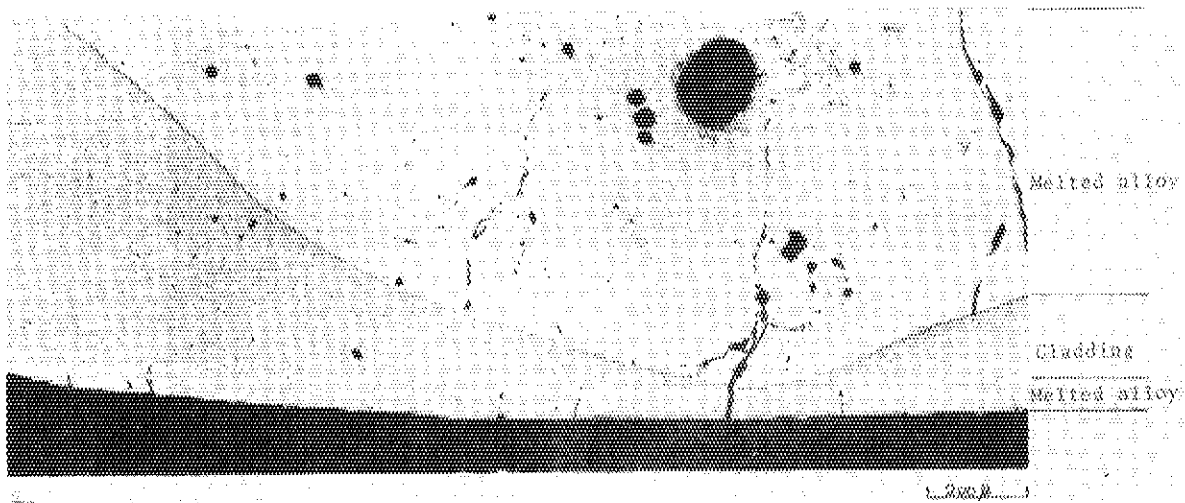
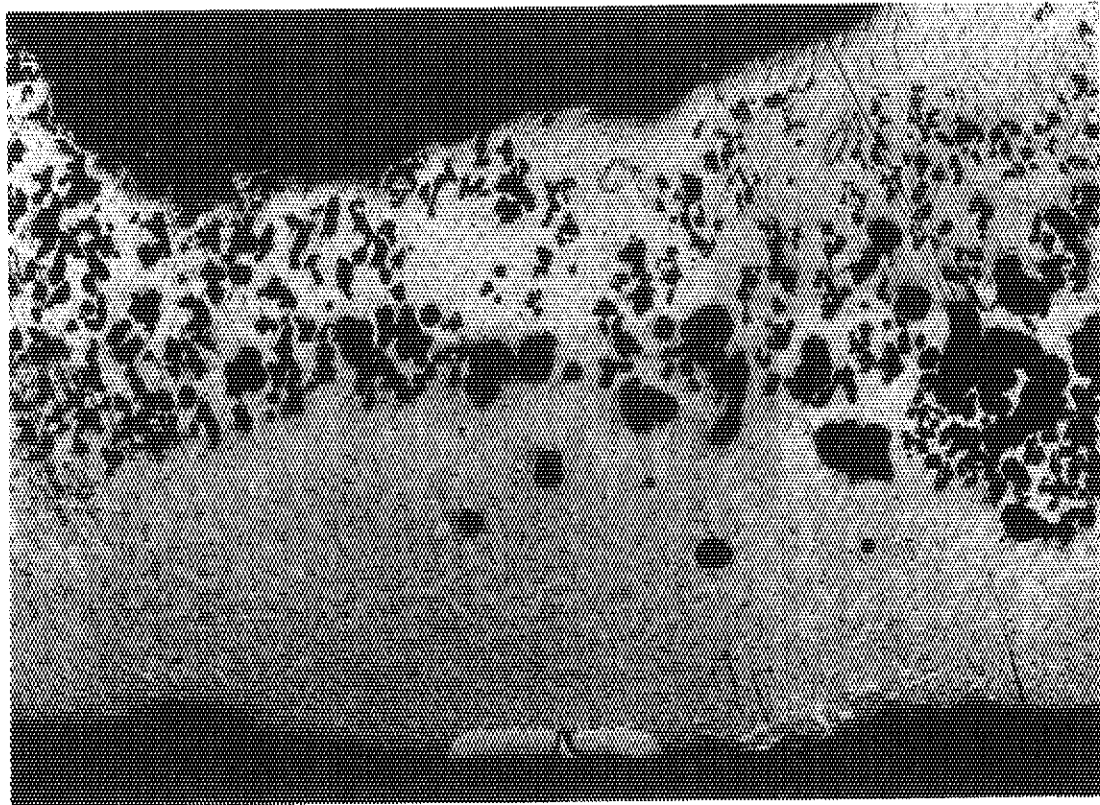
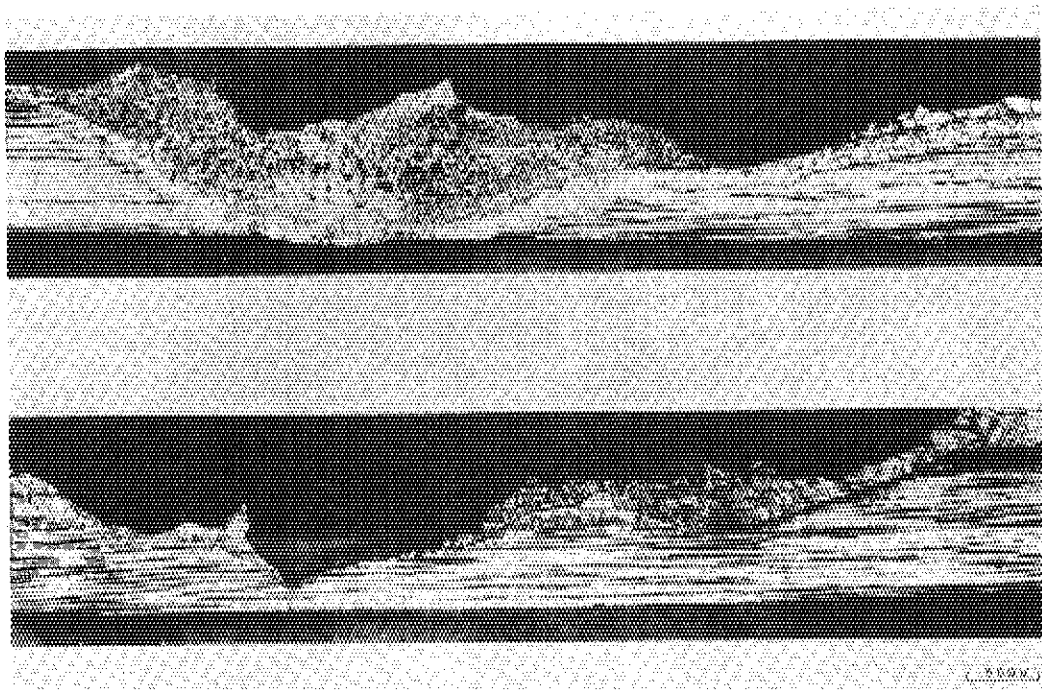


Fig.4-18 Photomicrograph showing the failure of cladding (A part of Fig.4-17).



Blister "B" ↑
↓

As polish, 200μ



Etched

Fig.4-19 Longitudinal section of blister "B" and neighborhood (74F-016).

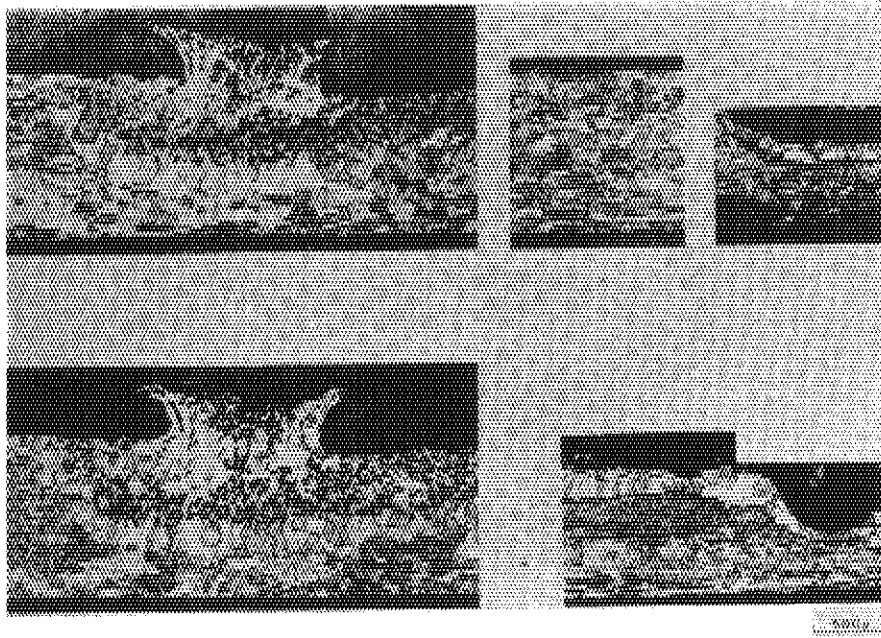


Fig.4-20 Longitudinal section of defects near the blister "A" (74F-014-1,2).

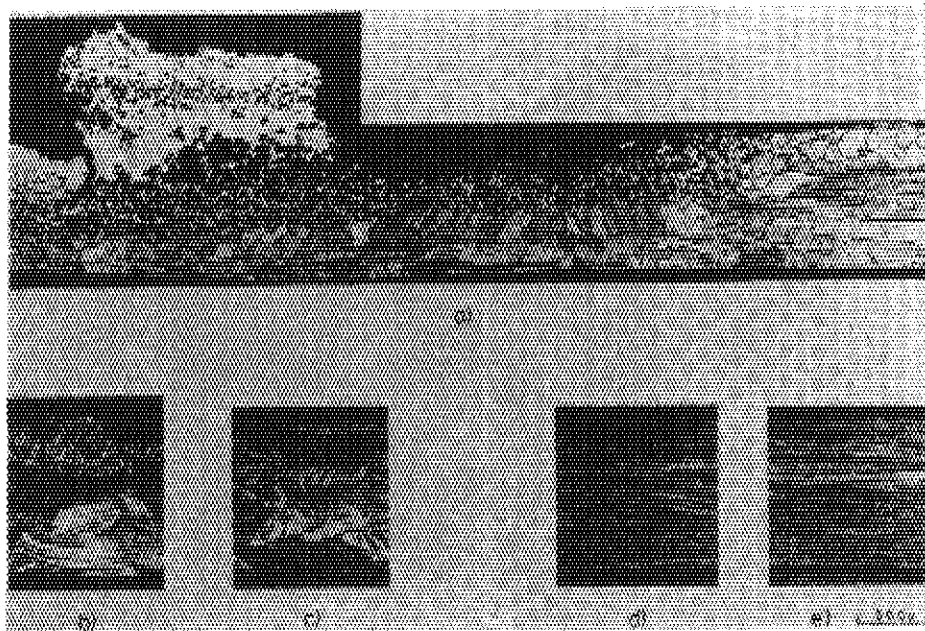


Fig.4-21 Microstructure of defects of cladding.
a) 74F-017 longitudinal section
b) c) 74F-018 transvers section
d) e) 74F-019 longitudinal section

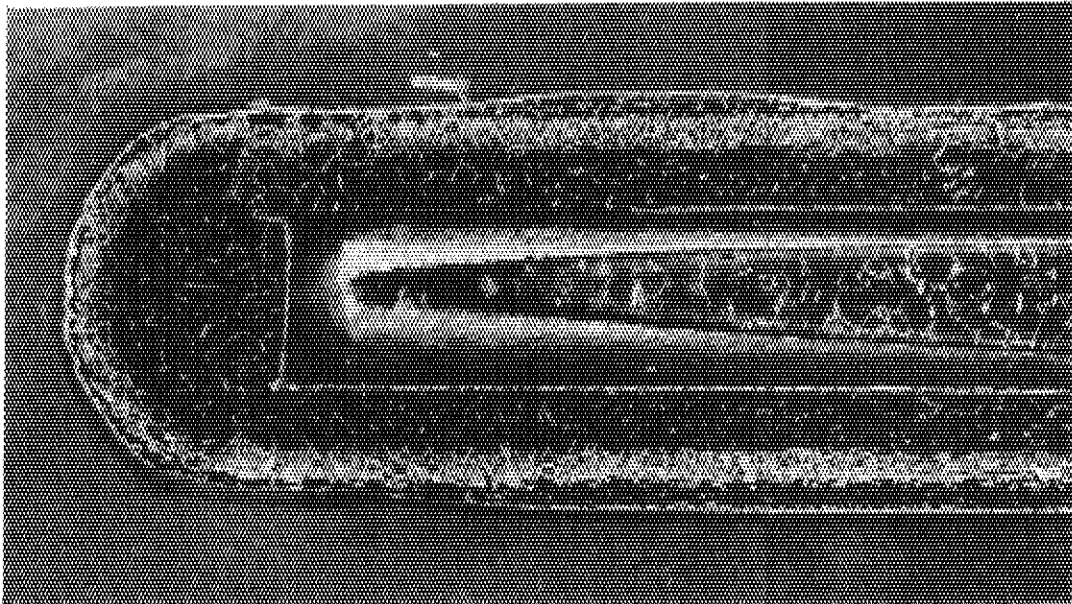


Fig. 4-22 Stereoscopic photograph of longitudinal section of well's top end ($\times 14$).

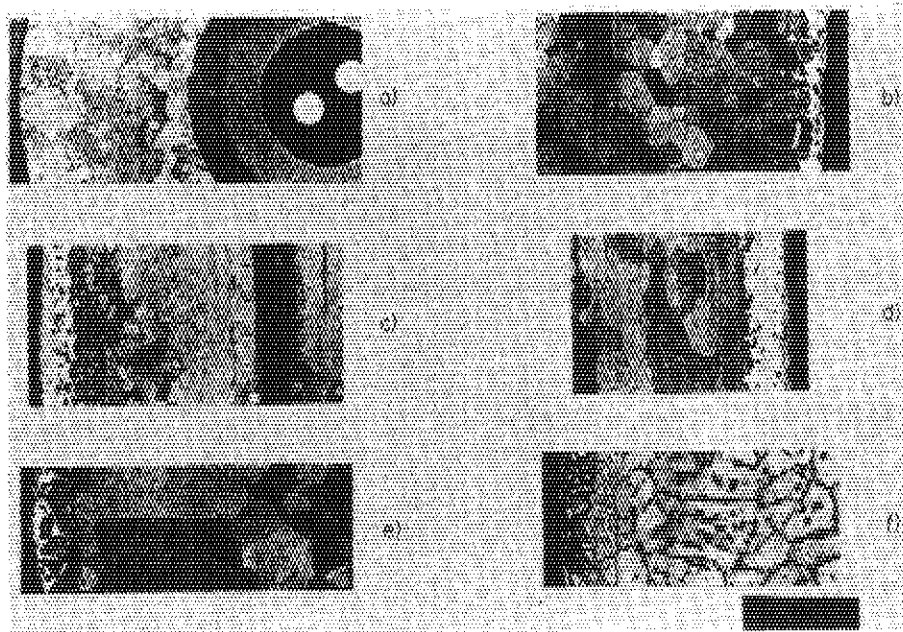


Fig.4-23 Microstructure of well
a) Transvers section of electron beam welded area
b)~f) Longitudinal section of well's top end

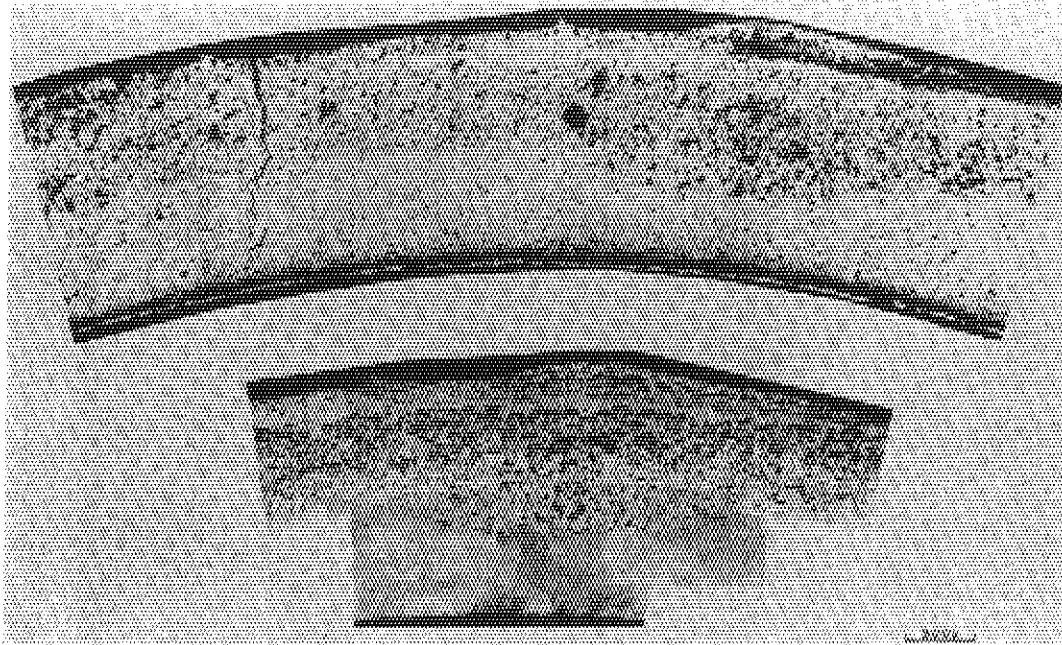


Fig.4-24 Microstructure of defect area of Mo specimen holder
above: electrolytic polishing
below: electrolytic and chemical etching

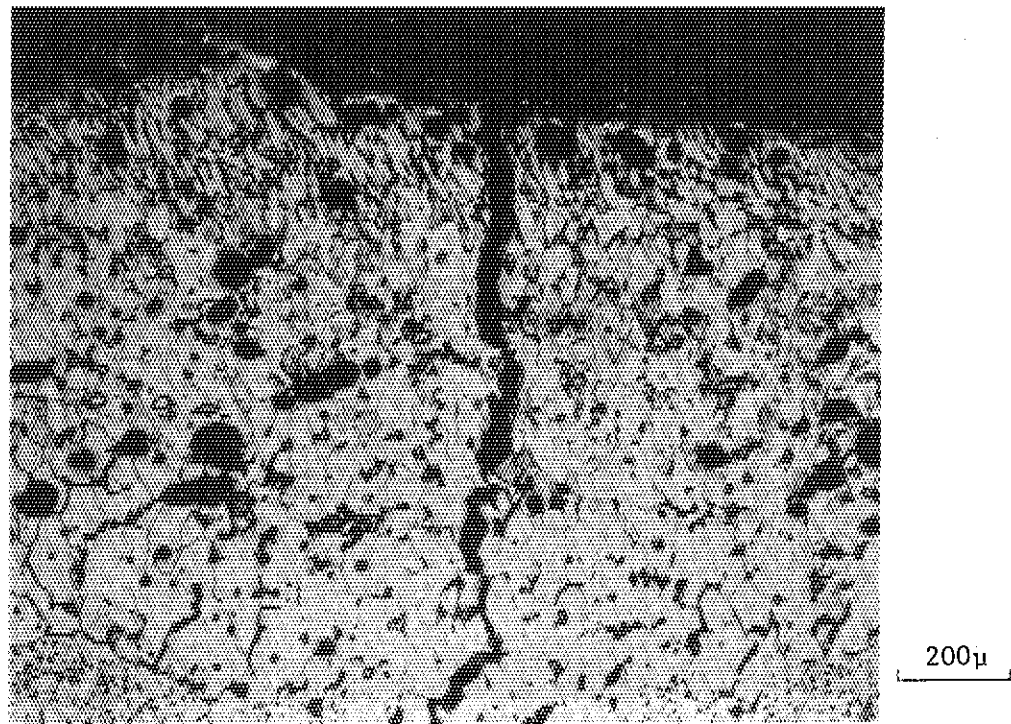


Fig.4-25 Alloy phase and hair crack of Mo specimen holder.

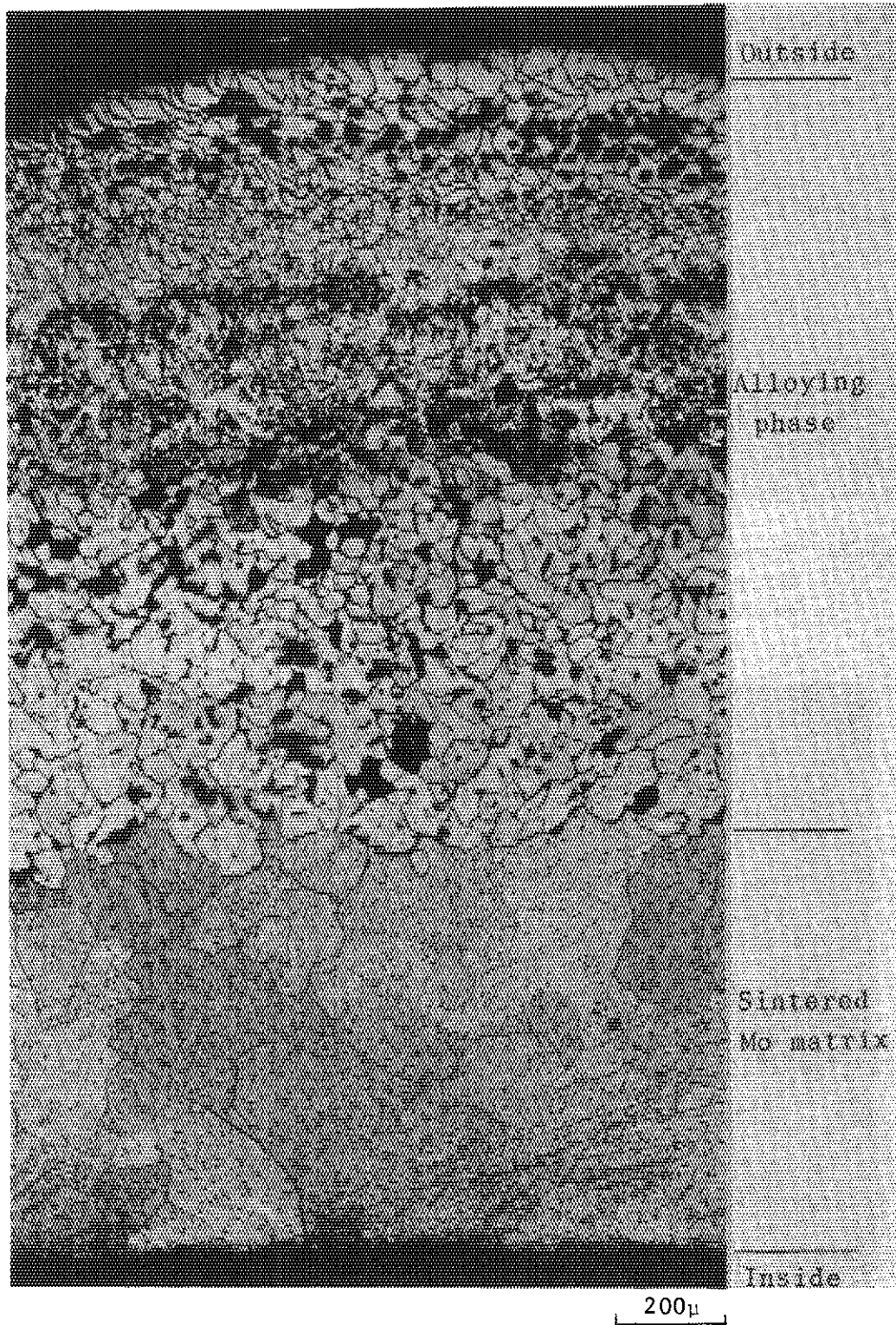


Fig.4-26 Microstructure of alloying phase of Mo specimen holder.

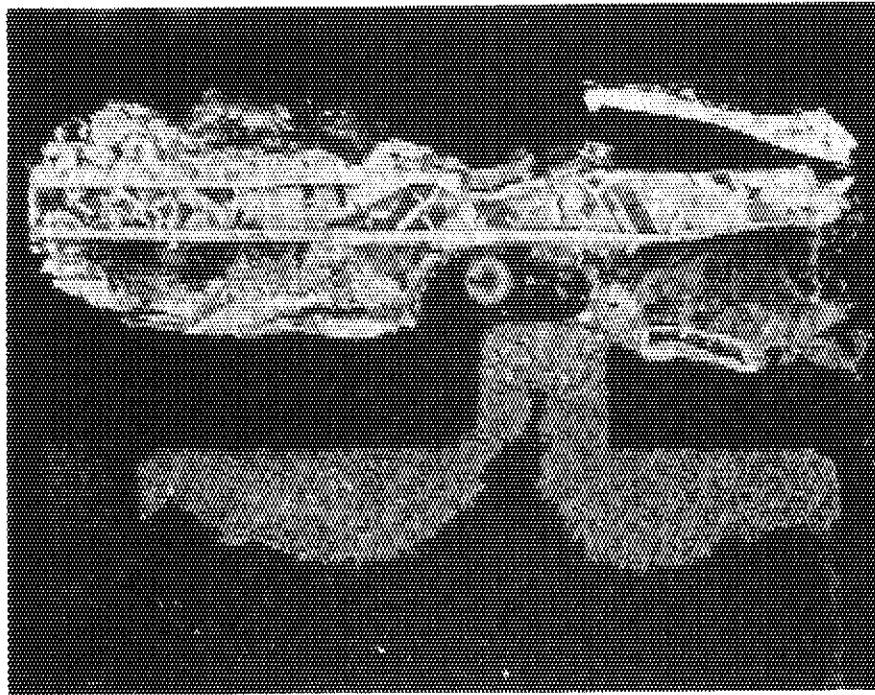


Fig.4-27 Stereoscopic photograph of oxygen getter, heat reflector and graphite insulator ($\times 8$).

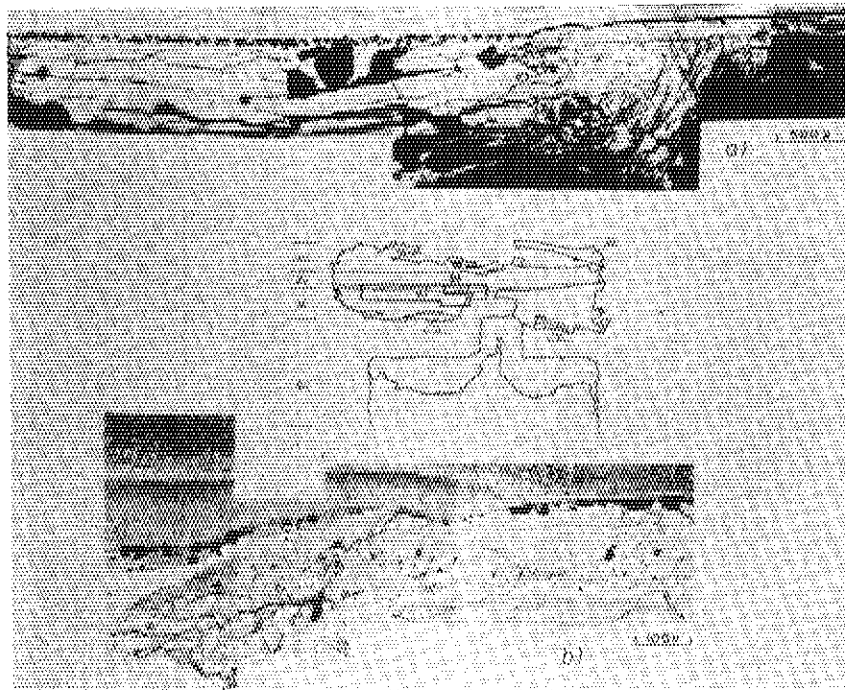


Fig.4-28 Microstructure of melt heat reflector and oxygen getter.

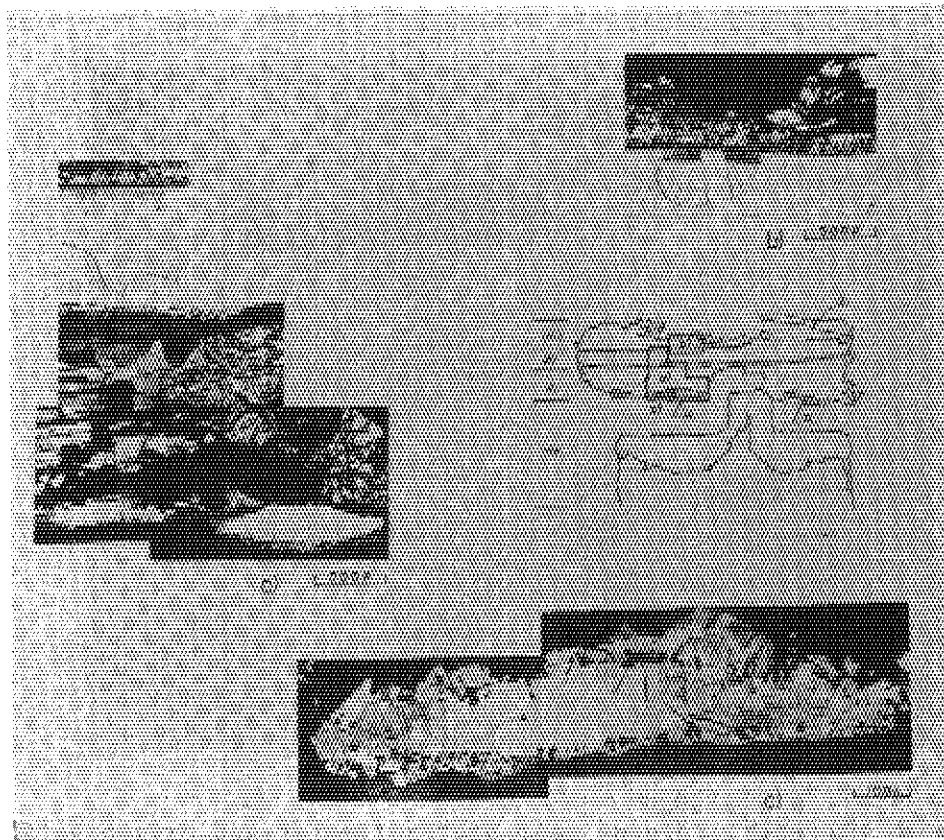
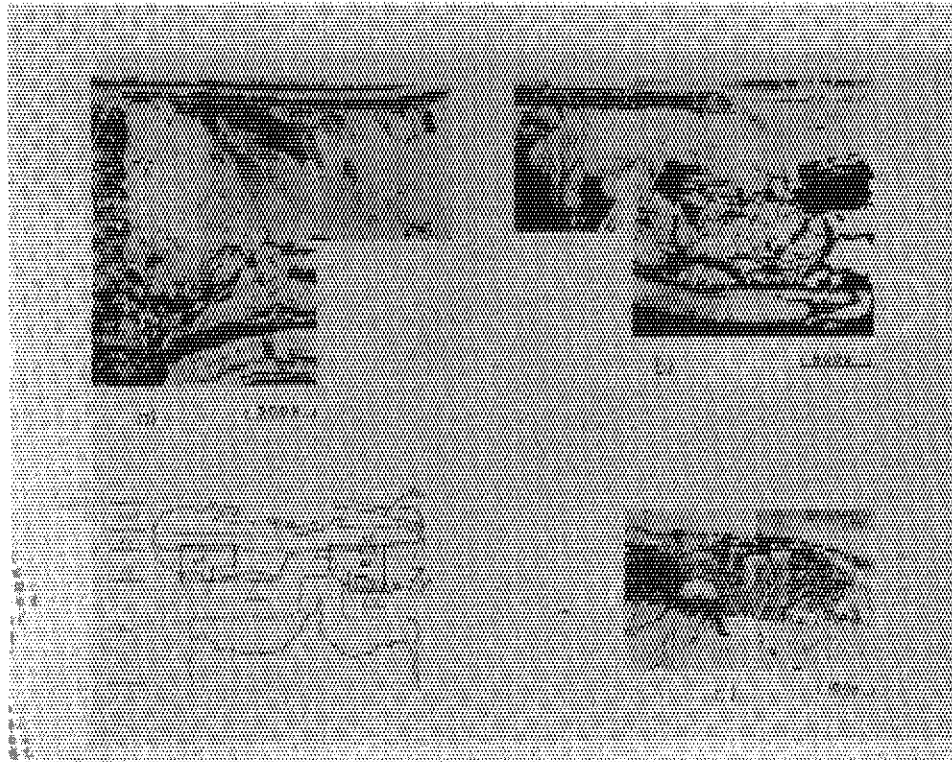
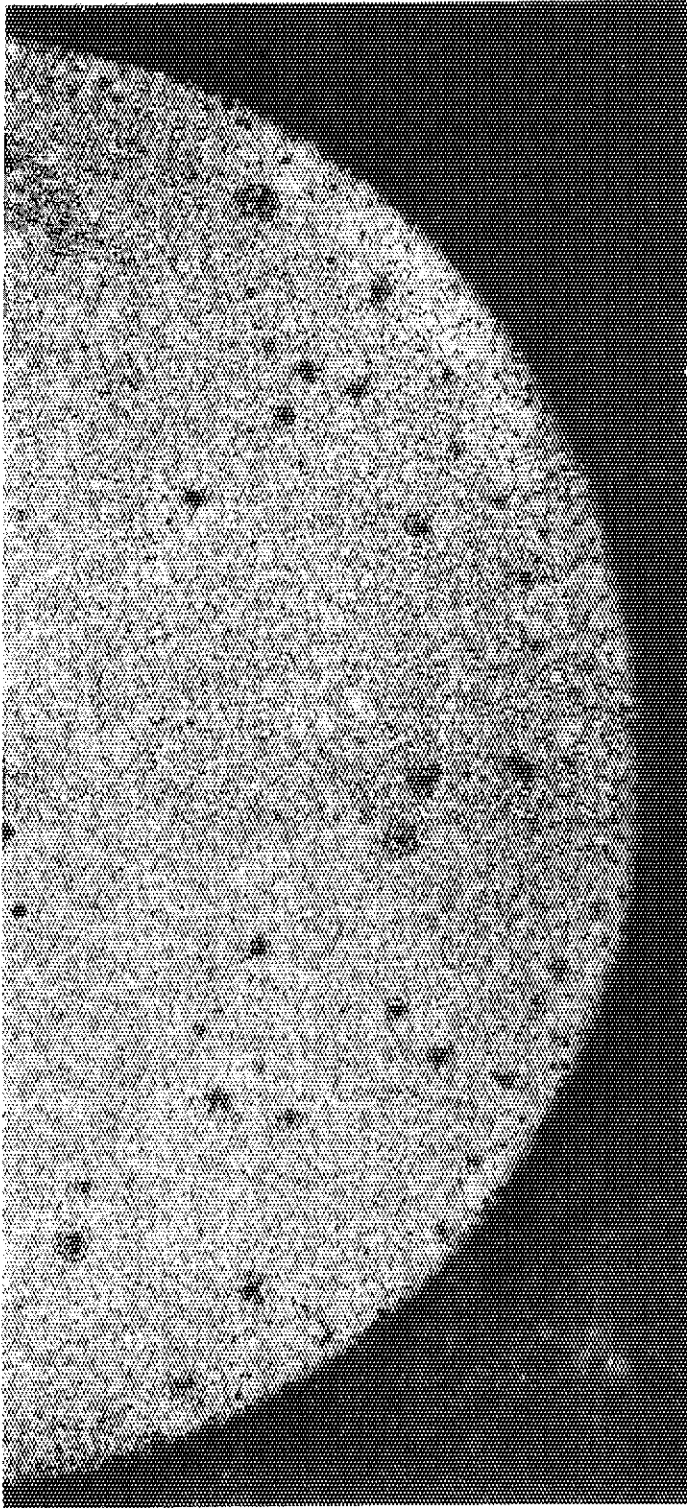


Fig.4-29 Microstructure of melted heat reflector and oxygen getter.



200 μ

Fig. 4-30 Microstructure of annealed spring and failed upper Zr oxygen getter.

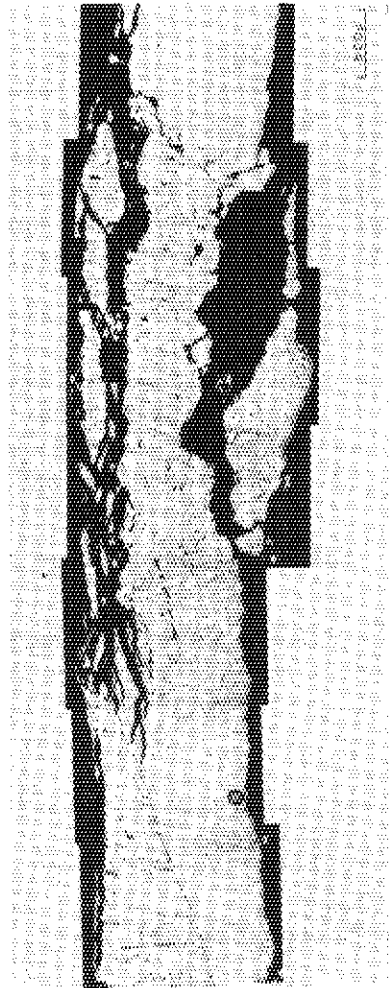


Table 4-2 Hardness of cladding

| Specimens | Matrix of cladding | | Alloying phase | Remarks ³⁾ |
|-------------------------------|----------------------|-----------------------|------------------------|---|
| | Inside ¹⁾ | Outside ²⁾ | | |
| 74F-013 (Trans) ⁴⁾ | 134 | 137 | 520 ~ 700 | |
| 74F-014 (Long) ⁵⁾ | 146 | 128 | 230 ~ 290 | Alloying phase is protuberant position. |
| 74F-015 (Trans) | 130 | 126 | — | Recrystallization structure |
| 74F-016 (Long) | 143 | 126 | 620 ~ 760 370 ~ 480 | Protuberant position |
| 74F-017 (Long) | 124 | 128 | 150 ~ 330 300 ~ 460 | Mix structure of matrix and alloying phase Alloying phase is protuberant position. |
| 74F-018 (Trans) | 129 | 129 | — | |
| 74F-019 (Long) | 138 | 148 | — | |

- 1) Mean value of 10 points located 50 micron from alloying phase.
- 2) Mean value of 10 points located 200 micron from surface.
- 3) Note the photomicrograph (Fig.4.19, 4.20, 4.21)
- 4) Transverse cross section
- 5) Longitudinal cross section

Table 4-3 Hardness of well

| Specimens | Hardness (Hk) | Remarks |
|-----------------------------------|---------------------------|---------|
| Transverse section of welded area | 114 | 70F-020 |
| Longitudinal section of top end | Inside 109 Outside 105 | 70F-021 |
| Carbide phase (surface layer) | 1300 ~ 2000 | " |

Table 4-4 Hardness of specimen holder

| Specimens | Measuring position | Hardness (Hv) |
|-----------------------------------|----------------------------|---------------|
| 74F-022 (Transvers section) | Mo matrix | 194 |
| | Alloying phase 1 (outside) | 326 |
| | 2 (inter mediate) | 390 |
| | 3 (inside) | 343 |
| 74F-023 (Longitudinal section) | Circumference of cracks | 270~300 |

Table 4-5 Hardness of upper oxygen getter (Zr)

| Specimen | Measuring position | Hardness (Hv) |
|----------|--------------------|---------------|
| 74F-025 | Zr matrix | 170 |
| | Alloying phase | 306 |

Table 4-6 Hardness of lower oxygen getter and heat reflector

| Measuring positions | | Specimens | Hardness (Hv) | |
|----------------------|----------------|-----------|---------------|---------|
| | | | Mean value | Range |
| Zr oxygen getter | Matrix | 74F-026 | 123 | 60~180 |
| | | 74F-027 | 137 | 100~203 |
| | Alloying phase | 74F-026 | | 230~320 |
| | | 74F-027 | | 390~460 |
| Melted area of Ni-Ti | | 74F-026 | 384 | 295~584 |
| | | 74F-027 | 379 | 343~436 |
| Ti oxygen getter | Matrix | 74F-026 | | 84~178 |
| | Alloying phase | 74F-027 | | 372~408 |

Table 4-7 Hardness of spring

| Measuring position | Hardness (Hv) | Remark |
|--|---------------|--------------|
| Center of cross section | 158 | |
| Surface contacted with Zr oxygen getter | 184 | Grain growth |

5. 模擬キャプセルによる炉外実験

5.1 再現性確認試験について

72F-7Aキャプセルはホットラボにおける解体途中のX線透過検査の結果、燃料試料近傍には異常はみられず、むしろキャプセル内筒の酸素除去用TiおよびZrゲッターと熱反射板用Ni反射板に第4章で述べた様な異常が発見された。TiおよびZrはNiとFig. 5.1, Fig. 5.2の状態図に示すように低融点合金をつくることは知られている。この異常の原因はTiゲッターとNi反射板およびZrゲッターとNi反射板の各接触部で、照射中、相互拡散がすすみ、接触界面におけるTiおよびZr中のNi濃度が増加するに従い、融点が低下し、一方照射中この部分の温度が950℃を越えていたため、低融点合金の生成とともに液相部が発生し、低融点合金の生成が加速され、ついには大部分が液相となってmelt downしたものと判断された。

また第4章で述べたごとく、被覆管のNb-1%Zr合金の異常部については、断熱材として使用したポラス黒鉛に接した個所であることから、Nbの炭化物が生成し、内圧による脆性破壊が生じたものと推定された。

本実験はこの推定を確認するため、キャプセル被覆管を模擬したキャプセルを製作し、加熱によるキャプセル破損の再現実験を行なうとともに、加熱後、解体して金相およびX線マイクロアナライザ（以下EPXMAという。）による成分分析によりキャプセル破損の原因を調べた。

5.2 方法

模擬キャプセルはFig. 5.3に示すように燃料試料の代わりに黒鉛ブロックを挿入した以外はキャプセルと同材料、同構造のものを製作した。製作後、外観、寸法、溶接部X線透過およびヘリウムリーク等の諸検査を行ない、すべて合格であった。

模擬キャプセルは電気炉の中央部に横置きし、Fig. 3に示した模擬キャプセルのウエル内に熱電対を挿入し、試験温度である970℃および1000℃に制御した。試験装置の外観をFig. 5.4に示してある。

試験雰囲気は照射条件を模擬してヘリウム雰囲気とした。

試験は模擬キャプセルの内部構造の変化を、主としてX線透過検査により調べるためFig. 5.5に示す加熱-冷却サイクルで行ない、970℃で100時間、1000℃で100時間の加熱を行なった。

模擬キャプセルは1000℃、100時間の試験終了後、X線透過検査、ヘリウムリーク検査および染色浸透検査の非破壊検査を実施し、非破壊的に破損の有無を確認してのち解体し、内部構造の変化、被覆管と溶融金属界面の金相およびEPXMAによる合金層の金属の分布を調べた。なお、エッチング液は10H₂O:5HNO₃:1.8HFを使用し、EPXMAは日本電子製JSM-U3で行なった。

5.3 実験結果および考察

加熱試験の各ステップで撮影した模擬キャプセルの上部端栓側の内部構造を示すX線透過写真の代表例をFig. 5.6に示す。aは加熱前、bは970℃で50時間加熱後、cは1000℃で100時間の最終加熱後の写真である。

970℃、5時間までの加熱では内部構造に異常は認められなかったが、970℃、50時間の加熱ではFig. 5.6:bに示すように、ゲッター部に異常な変形が認められた。さらに970℃、100時間の加熱に

より、ゲッター部の変形が著しくなり、断熱材中に熔融金属が浸透したと思われる濃淡が透過写真上に認められた。この模擬キャプセルをさらに1000°Cに上げて、100時間加熱した結果Fig. 5.6 ; cに示すように、ゲッター部の5枚の板が3枚になり、被覆管の肉厚が局部的に減少していることが認められ、またスプリング部およびモリブデン試料ホルダー部にも熔融金属が流入したと思われる現象が観察された。

1000°C, 100時間の加熱試験後、ヘリウムリーク検査を行なった結果、リーク量は加熱前 6.2×10^9 atm-cc/secであったものが 2.8×10^3 atm-cc/secに増大しておりキャプセルの破損がヘリウムリーク試験によって確認された。しかしながら外観検査では変形および破損個所の確認は出来ず、また染色浸透検査によっても破損個所を確認することは出来なかった。なお、この破損までの加熱時間は72 F-7 Aキャプセルの破損時間とほぼ一致していた。

これらの非破壊検査後、キャプセルを解体した。解体後のゲッターおよびウエルの外観をFig. 5.7に示す。ゲッター部は5枚の板が3枚に減少し、附近には熔融したと思われる金属が付着していた。また被覆管およびウエルは局部的に肉厚が減少していた。Fig. 5.8に断熱材の外観を示す。ここでも熔融したと思われる金属が断熱材表面に付着していた。その他の個所には特に異常は認められなかった。

以上の結果、970°C, 100時間および1000°C, 100時間の加熱により、当初予想していたごとく、TiゲッターとNi反射板およびZrゲッターとNi反射板の各接触部は、Ti-NiおよびZr-Niの低融点合金をつかって熔融して変形し、さらに熔融金属がNb-1%Zr合金の被覆管を侵食することがわかった。このことはその後に行なわれたホットラボの解体検査の結果ともよく一致していた。

さらにこの事実を金属組織学的な観察を行なうため金相試験およびEPXMAによる観察を行なった。

ゲッター部、スプリング部および断熱材部の金属組織をFig. 5.9~11に示す。いずれも被覆管のNb-1%Zr合金と熔融金属との境界部は舌状組織を示し、後述のごとく、熔融金属層内にはNb-1%Zr合金と思われる組織が分散していた。これらの組織のうちFig. 5.12に示すスプリング部についてEPXMAにより金属の分布を調べた。Fig. 5.13 aはFig. 5.12のうちスプリングと熔融金属との境界部の金属組織を示す。この組織中のNi, Zr, TiおよびNbのX線像を撮影した。Fig. 5.13 ; bはNi, Fig. 5.13 ; cはZr, Fig. 5.13 ; dはNbのそれぞれX線像である。またFig. 5.14 ; aはFig. 5.12のうち被覆管と熔融金属との境界部の金属組織で、この部分についてもNi, Zr, TiおよびNbのX線像を撮影した。Fig. 5.14 ; bはNi, Fig. 5.14 ; cはZr, Fig. 5.14 ; dはNbのそれぞれX線像である。なおTiはバックグラウンド程度であった。

これらの結果から熔融金属はZrとNiが主成分である組織で大部分がしめられ、局部的にNbが主成分である組織が分散していることがわかった。この事実は熔融金属によってNb-1%Zr合金が侵食されることを示すものである。またFig. 5.15に示すように別途行なったクーポン試験片のNb-Zr-Ni-Nbの組合せによる両立性実験によってもZr-Niの熔融金属がNbを侵食し、熔融金属中にNbが分散した。

以上の模擬キャプセルによる加熱試験から、970°C, 100時間および1000°C, 100時間の加熱で、ゲッターとして使用したZrとTiは反射板として使用したNiとの接触部で、Zr-NiおよびTi-Niの低融点合金となって熔融し、この熔融金属がNb-1%Zr合金の結晶粒界を選択的に腐食し破損に到ったものと推定される。また72 F-7 Aキャプセルの場合、破損はポラス黒鉛に接した部分であることから、黒鉛によるNb炭化物の生成が破損に大きく寄与しているものと推定されたが、模擬キャプセルの

加熱試験および別途行なったクーポン試験片による両立性実験では、必ずしも黒鉛が存在していなくても、熔融金属によりNb-1%Zr合金が侵食されることがわかった。

以上の模擬キャプセル加熱試験より72F-7Aキャプセルの破損の原因は、

- 1) 照射開始後、キャプセルの温度上昇とともにゲッターのTiおよびZrと反射板のNiとの接触部で相互拡散が進行し、Ti-NiおよびZr-Niの低融点合金を生成した。
- 2) ゲッター部近傍の温度が950°Cを越えたため（推定では1000°C）、これらの低融点合金に液相部が発生し、低融点合金の生成が加速され、ついには大部分が液相になってキャプセル内に流出した。
- 3) 熔融金属の一部はポラス黒鉛内を浸透し、ポラス黒鉛のパッドに接した被覆管部分に達した。
- 4) 熔融金属と被覆管のNb-1%Zr合金との境界部でNb-1%Zr合金の結晶粒界に沿って熔融金属が浸入し、被覆管肉厚を減少させ、ついには内圧に耐えられなくなって、キャプセルが破損した。

5.4 確認試験のまとめ

キャプセル破損の原因は、ゲッター部の温度が950°Cを越えて低融点合金を生成したことにある。従ってNb合金を高温で使用する場合、Ti, ZrおよびNiを組合せて使用してはならない。

さらに、高温キャプセルや高温装置を製作する場合、“くっつき”の問題に加えて、“くっつき”が進行して低融点合金となって、高融点合金を腐食する可能性があることを考慮して、材料の選定は充分慎重に行なう必要がある。

（長松谷）

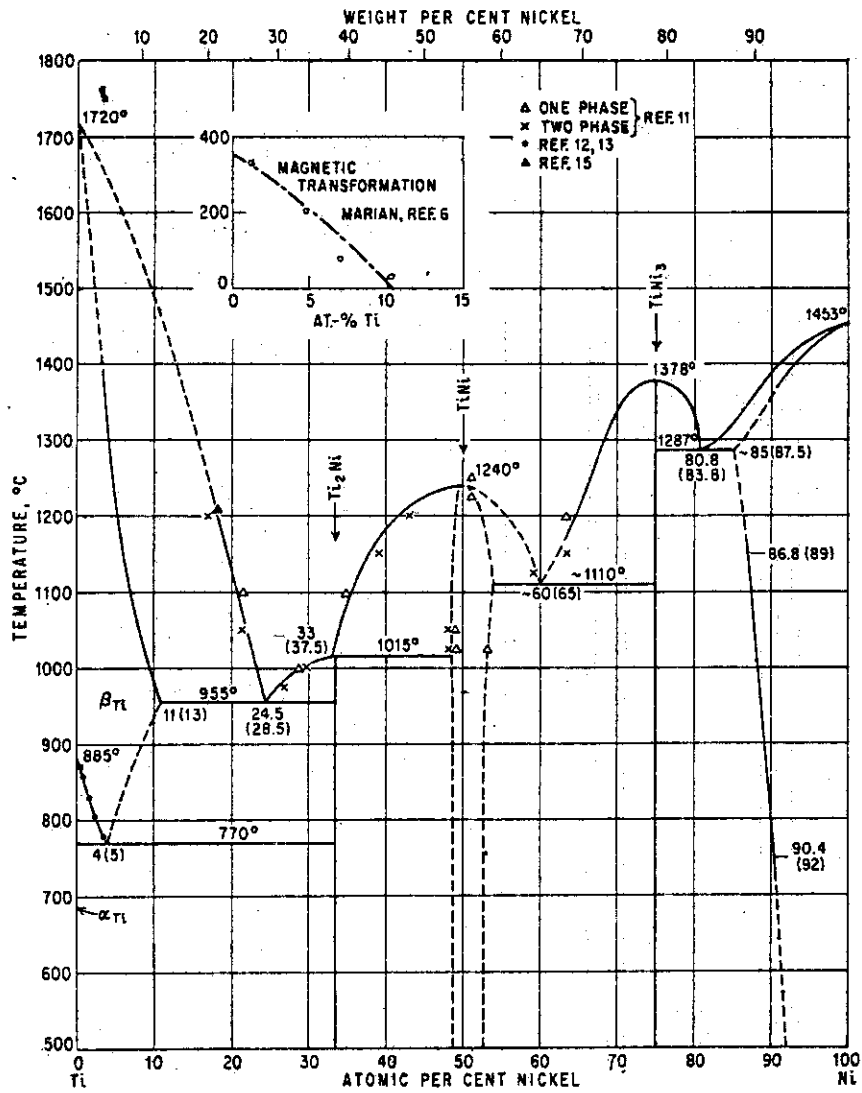


Fig. 5-1 Phase diagram of Ti-Ni alloy.

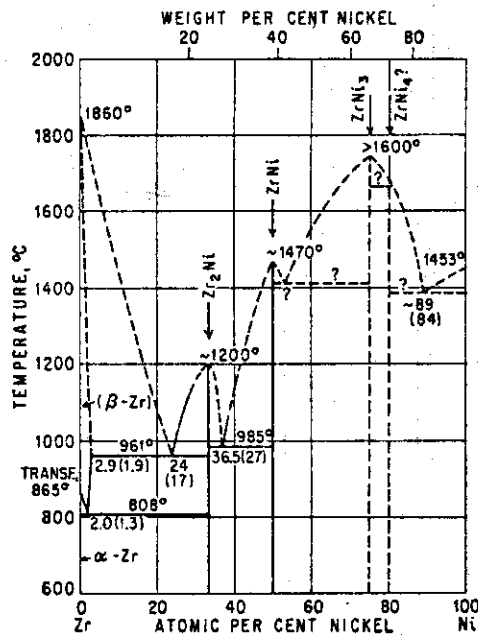


Fig. 5-2 Phase diagram of Zr-Ni alloy.

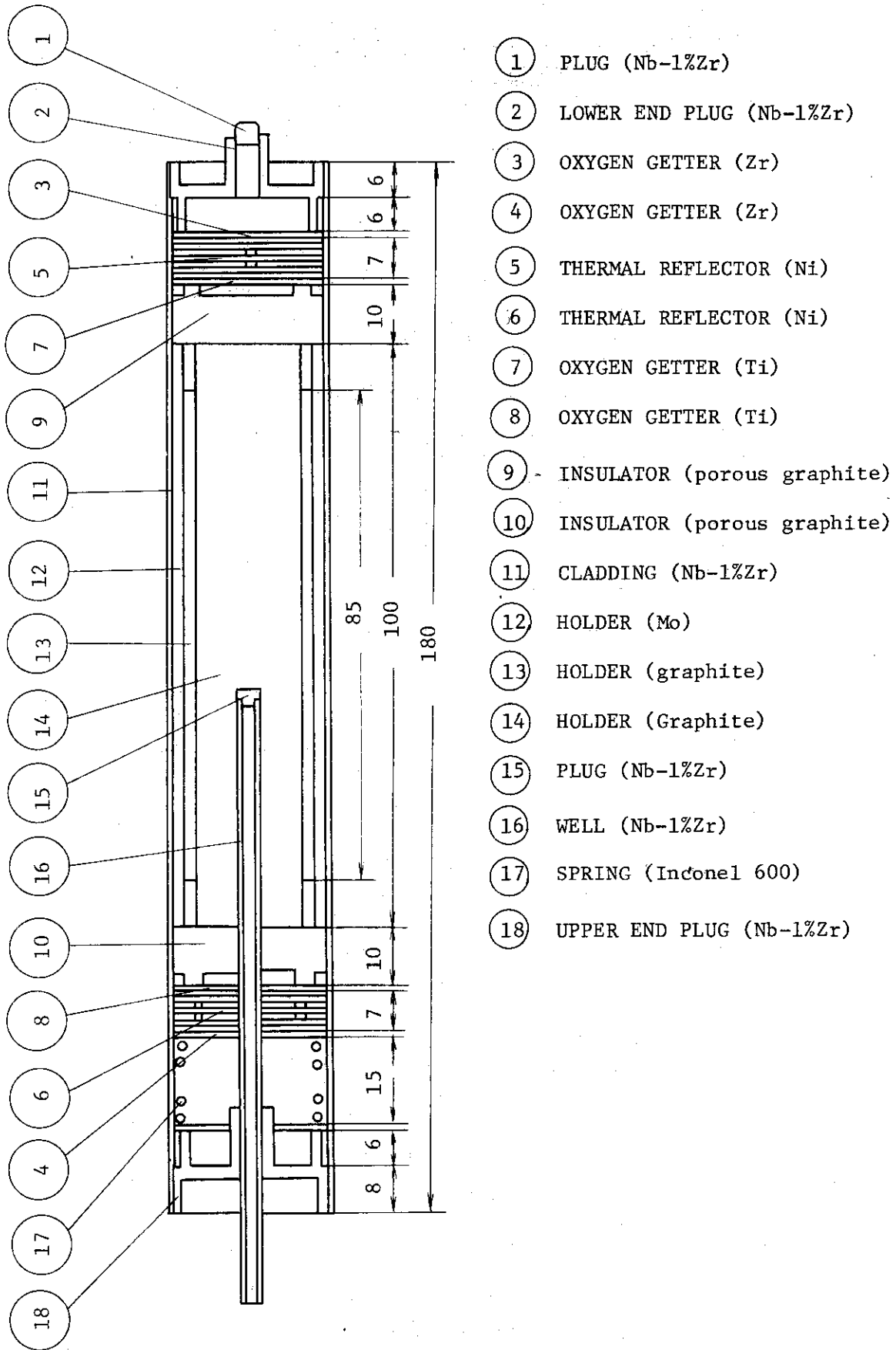


Fig. 5-3 Mockup capsule tested

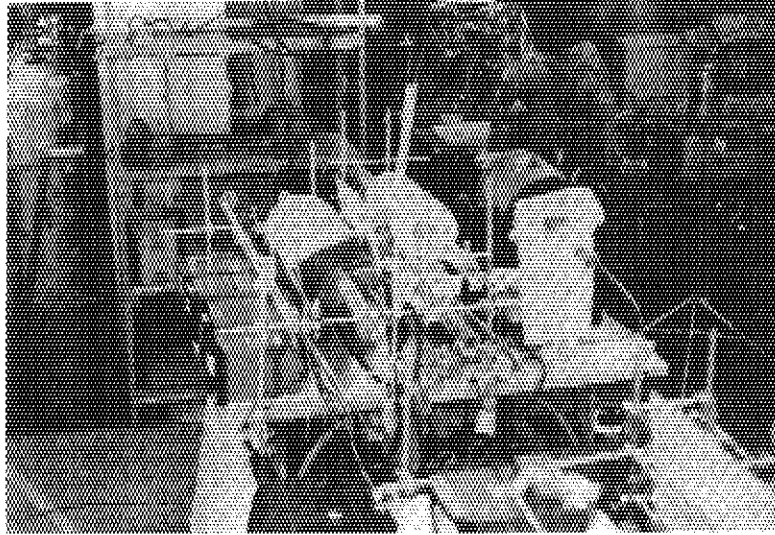


Fig. 5-4 Photograph of the apparatus.

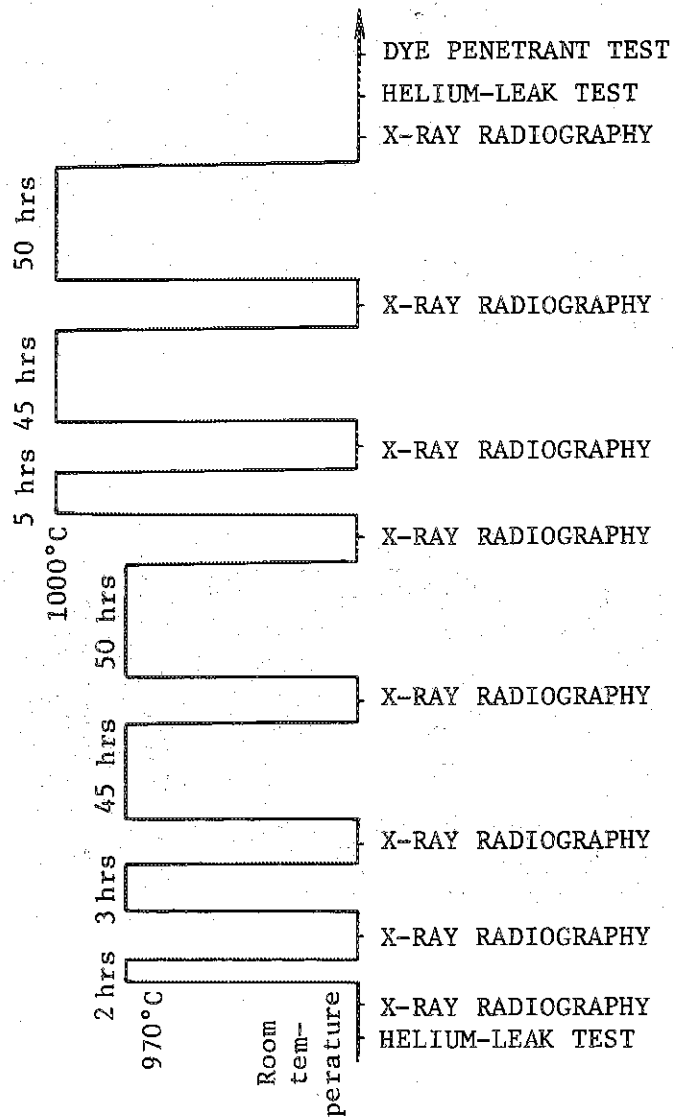
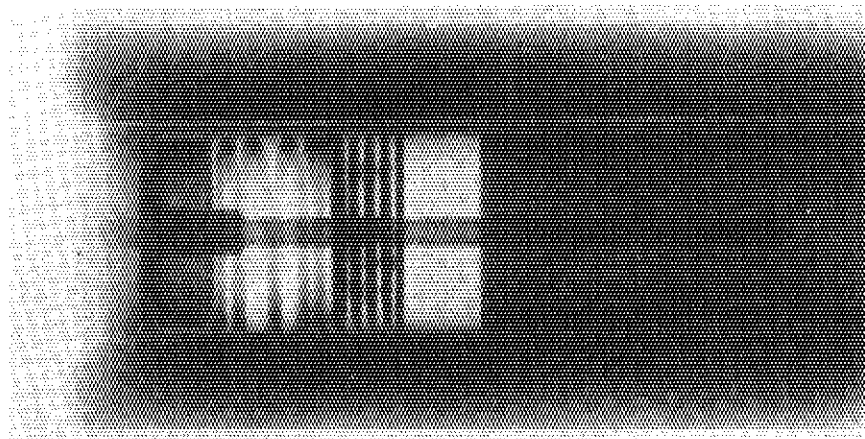
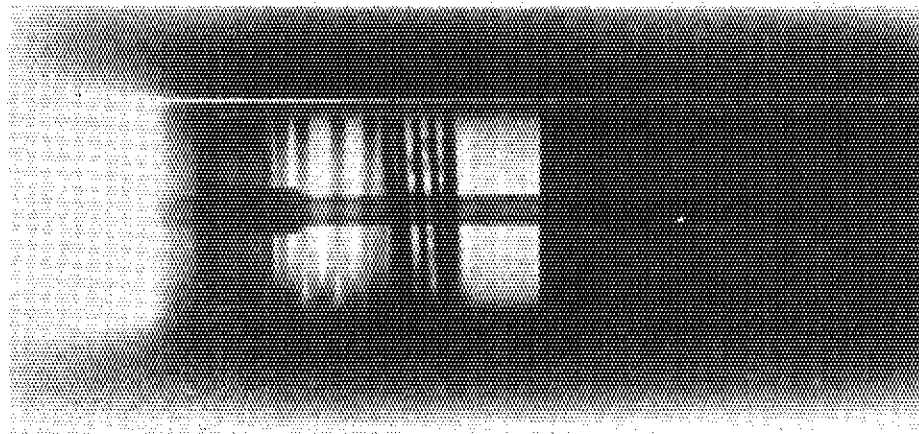


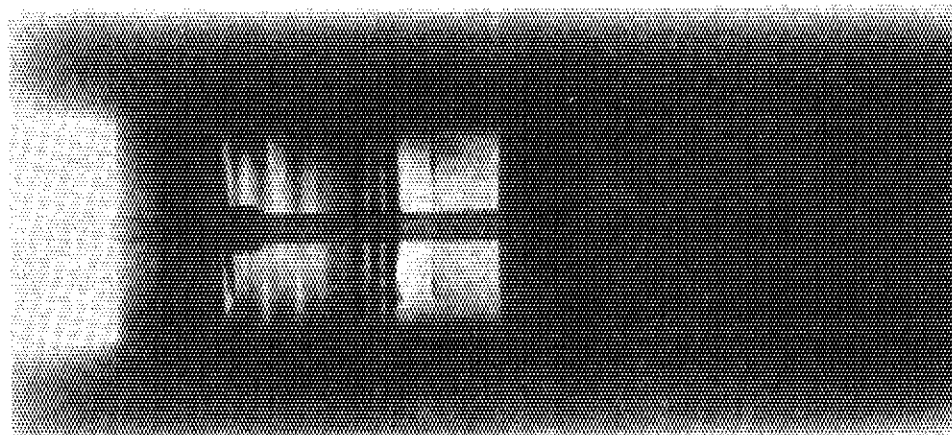
Fig. 5-5 Testing Schedule



a) before heating



b) after heating for 50 hrs at 970°C



c) after heating for 100 hrs at 1000°C

Fig. 5-6 X-ray radiographs of testing capsule.

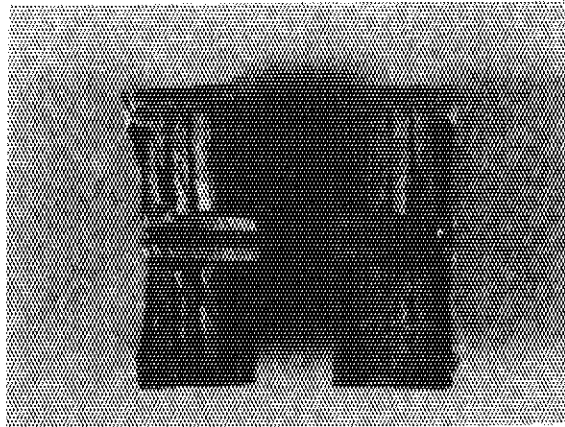


Fig. 5-7 Cross-section of getters and well of the mockup capsule after heating for 100 hours at 1000°C.

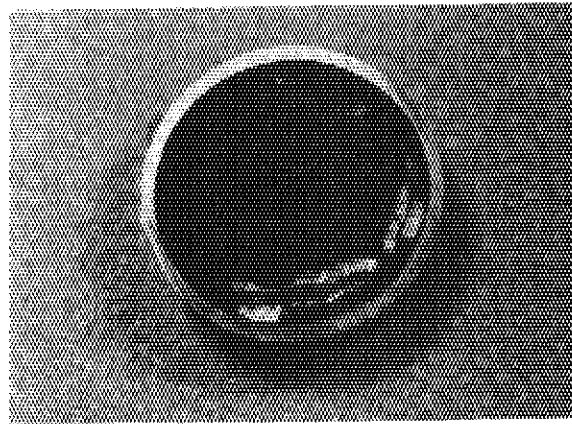
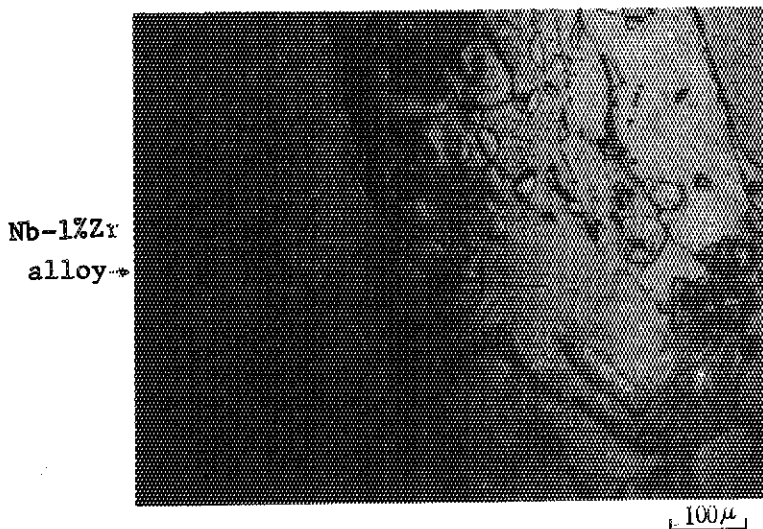


Fig. 5-8 Cross-section of insulator of the mockup capsule after heating for 100 hours at 1000°C.

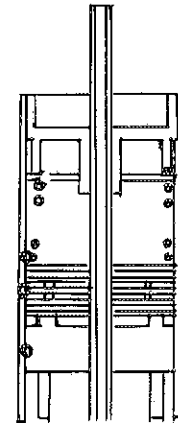


Nb-1%Zr
alloy →

← Molten alloy

100μ

Fig. 5-9
Fig. 5-10
Fig. 5-11



positions of photographs

Fig. 5-9 Interface of Nb-1%Zr and molten alloy ($\times 110$).

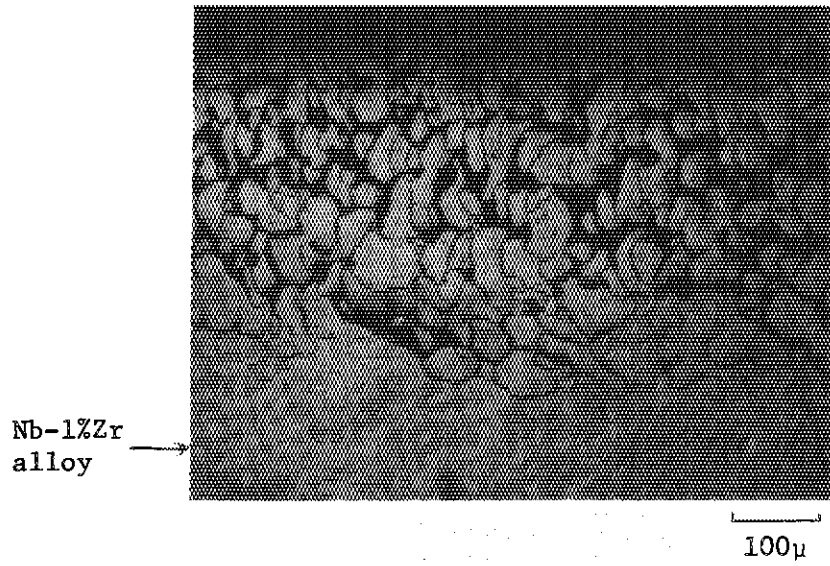


Fig.5-10 Nb-1%Zr alloy attacked interface by molten alloy ($\times 110$).

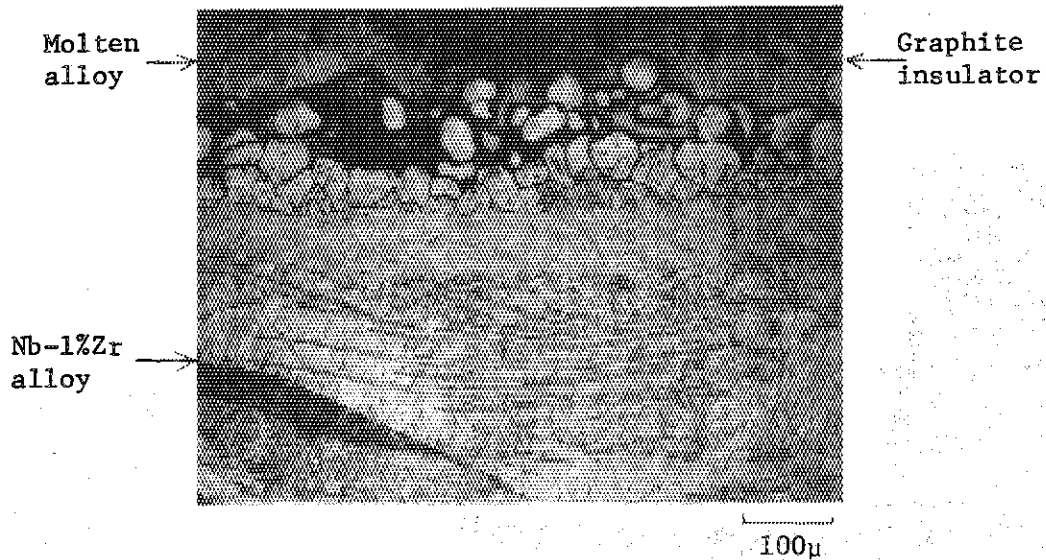


Fig.5-11 Interface of Nb-1%Zr alloy and graphite insulator ($\times 110$)

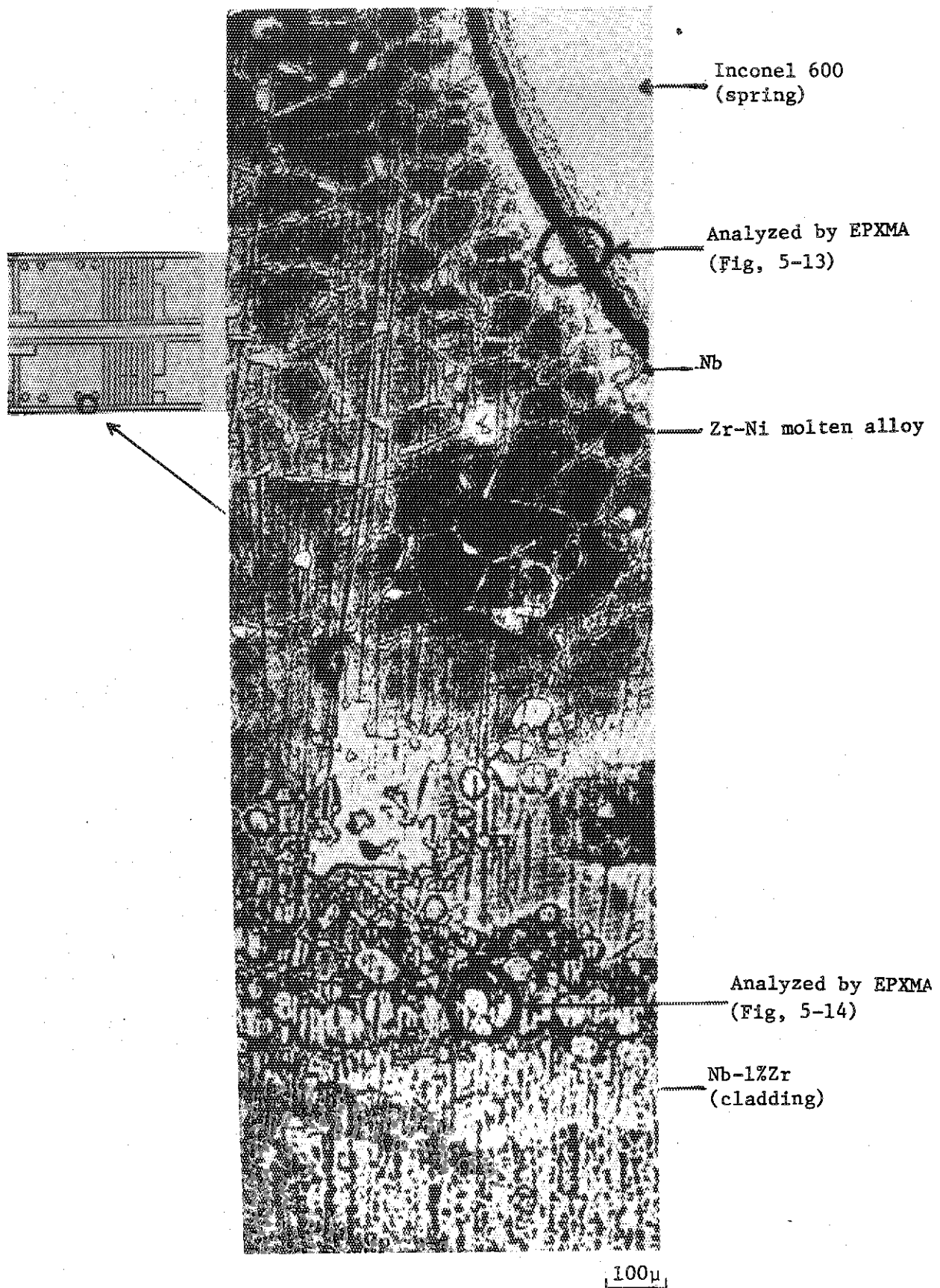
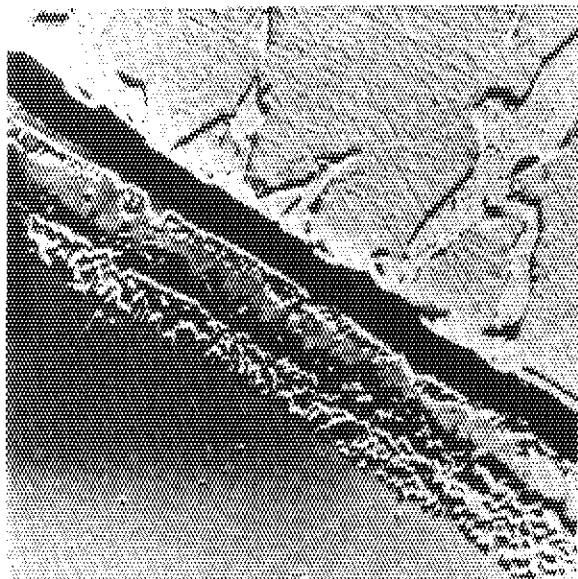
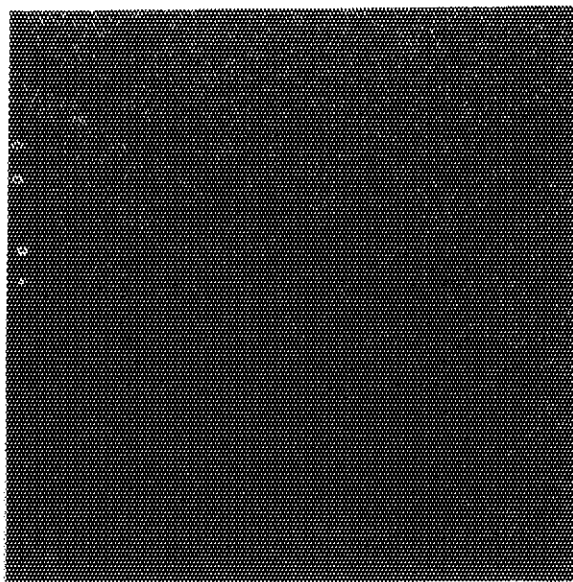


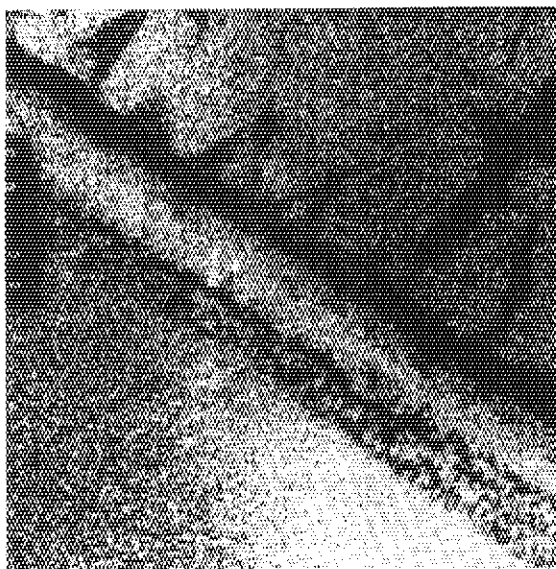
Fig.5-12 Interface of Nb-1%Zr, molten alloy and inconel 600.



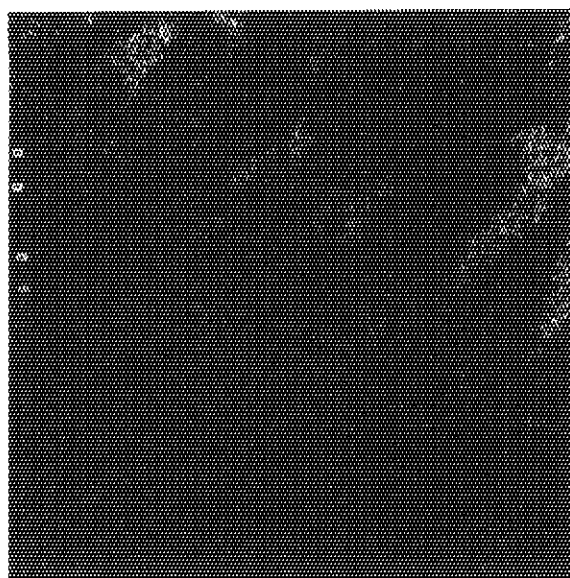
(a) (x500)



(c) Zr K α X-ray image

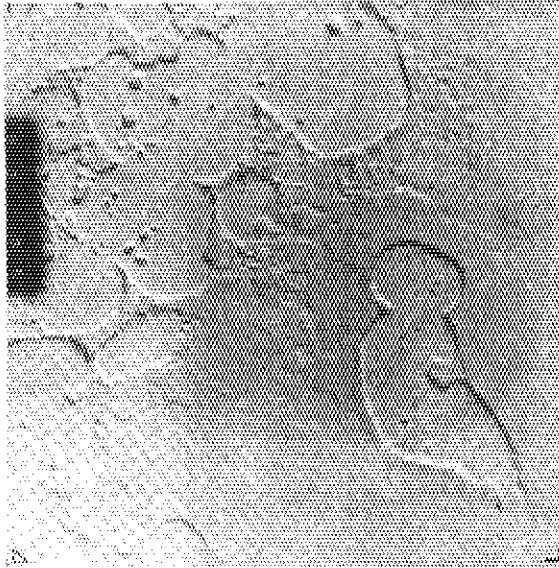


(b) Ni K α X-ray image

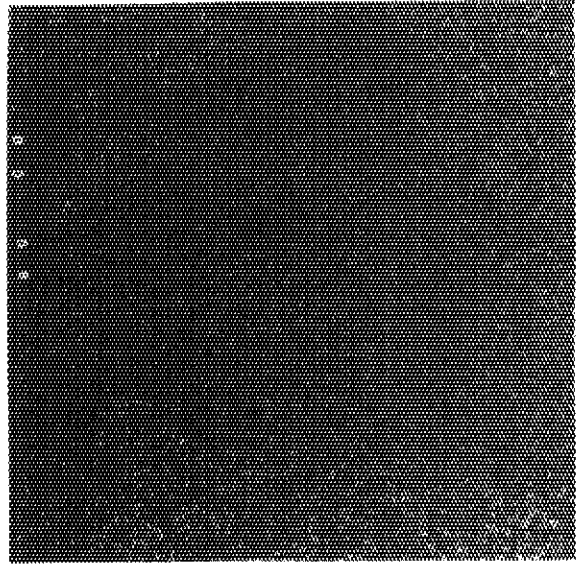


(d) Nb K α X-ray image

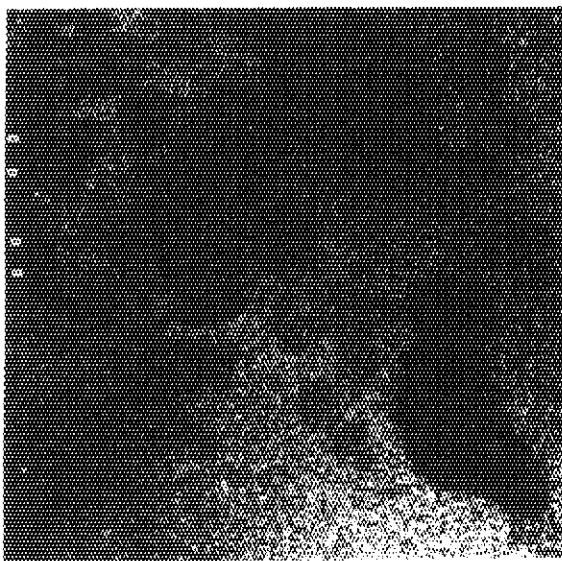
Fig.5-13 Interface of inconel 600 and molten alloy (a) and its X-ray images (b,c,d).



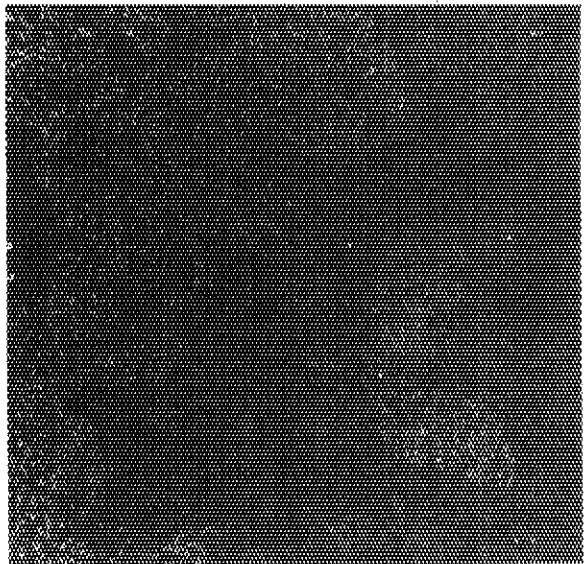
(a) Interface of Nb-1%Zr alloy and molten alloy ($\times 500$)



(c) Zr $K\alpha$ X-ray image

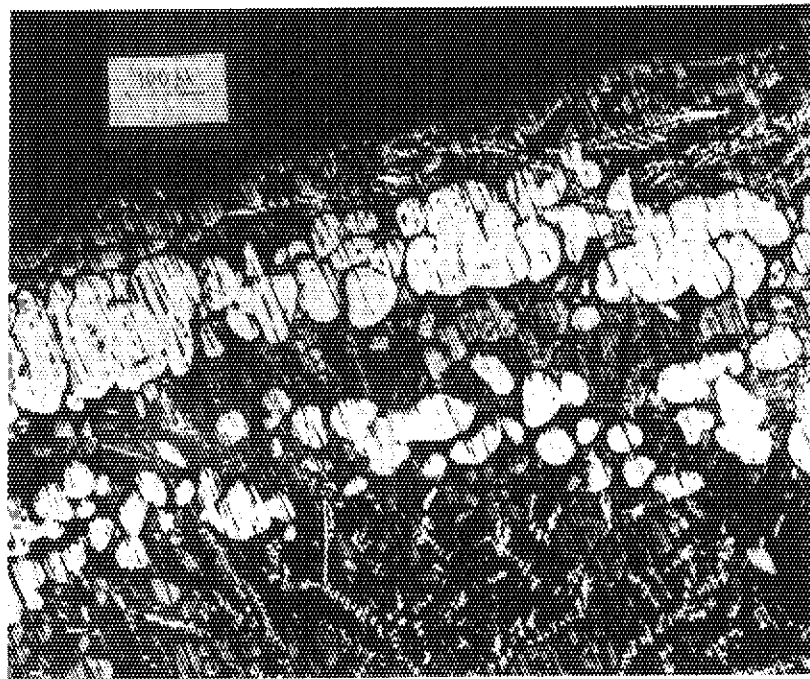


(b) Ni $K\alpha$ X-ray image



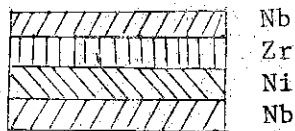
(d) Nb $K\alpha$ X-ray image

Fig.5-14 Interface of Nb-1%Zr alloy and molten alloy (a) and its X-ray images (b,c,d).



Nb coupon

before heat



Nb
Zr
Ni
Nb

Fig.5-15 Cross-section of Nb-Zr-Ni-Nb compatibility test specimens heated for 50 hours at 1000°C.

6. 故障原因の考察と今後の対策

多目的高温ガス炉の燃料・材料に関する試験照射を行なうためには、その目的より高い温度での照射挙動を経験し究明しておく必要を感じる。今日まで燃料工学部から基礎研究の遂行のための照射依頼を受け、多くのキャプセルによりJMTRで照射実験を実施してきている。ここに報告する72F-7Aの故障はその中の1本のキャプセルで生じたものである。異常が起った部分は依頼試料のところではなく、その照射温度条件を満そうとして組込んだ熱反射部分であった。一つの研究項目を実現するためには、それを実現するための諸技術が確立されている必要があり、高温照射技術をJMTRで開発確立することが多目的高温ガス炉開発の必須条件であろう。

キャプセル設計にあたって、使用する材料のくっつきに対する安定性・不安定性に関して配慮する要領に基づいて実施して来たにも関わらず、故障に到ってしまった。故障発生後の設計の反省検討・ホット・ラボでの原因究明の作業・現象の再確認試験とこれまで報告したようにその金属の融点は十分に高いものであっても、合金状態になると非常に低い温度でも融けて、他の安定金属にまで影響を及ぼし、予想もできない異常状態が起ることが判った。

今回の故障は、熱反射板に用いたニッケルとそれを上下にはきんでいた不純物ガス吸着材のチタンとジルコニウムの板とが接しており、それぞれの融点より低い温度で保持されていたにもかかわらず、金属間の相互拡散の現象が生じて、低融点合金をつくり、周辺を次第に溶して行ったものと考えられる。このことはNi-TiおよびNi-Zrの金相図からも判ることである。設計時にはこの部分の温度は900°Cと考えており、Ni-Tiの955°C、Ni-Zrの961°Cの液相温度より低いわけであるが、設計計算の誤差範囲内であり、また実際のキャプセル内では、溶けた部分はNi-ZrおよびNbの組合せであって二元合金だけでなく、三元・四元の複雑な現象が起っていた事になる。しかし第1ステップのNi-Tiの955°C以上になったことは結果から見て確かである。

大型プロジェクトの中で計画される照射実験等において、研究目的である主題は計画的にも急がれる。しかし今回のように結果から見れば安易な撰択違いから生じたことであっても、これによって主題を遅らせる事になってしまう。材料試験炉での照射実験で要求される主題の周辺をとりまく諸技術も主題と同様に相当期間を掛けて開発し、確固たる照射技術として確立されるべきものとする。今回の経験はその一部分をなすものになると考えられる。JMTRの照射と外国照射がよく比較され時間的にも議論されるが、今回のような経験をすると外国の照射実験のレポートの裏に長い年月の経験が積み重ねられている事が理解できる。

今後の対策として、直接的なものとして、再びこの様な材料組合せをしない事を設計上で配慮することであるが、上述のような広いしかも間接的なものとして、照射技術をより経験豊かなものとする必要を感じる。

72F-7Aの直後に製作していたキャプセル72F-6Aは、この故障時に製作中であつたので直ちに主要点だけ設計変更を行ない照射を行なった所、この様な問題は起さずに照射を完了した。この72F-6Aの照射後試験でのX線ラジオグラフィ-をFig. 6.1に示した。72F-7Aで、Ti-Ni-Zrと3種の金属を重ねていたものを72F-6AではZrの板5枚を重ねて用いた。この写真では製作時の構造を保持していることが読とれる。

(八巻)

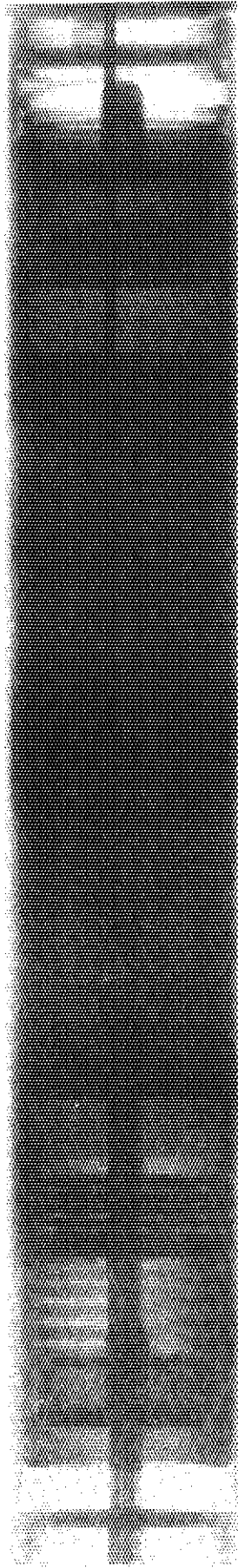


Fig. 6-1 Photocopy radiograph of 72F-6A capsule with outer-tube and heat transfer medium.

7. む す び

72F-7Aの故障は異種金属を同一環境で接触して使用し、くっつき等の生ずる温度より高く保持した事によるものである。非常に貴重な経験を得たわけであるが結果から見ると非常に簡単な間違いであったとも考えられる。

JRR-2の運転初期に冷却系のポンプにステライトを用いてあって、その微片が炉内に入りコバルト-60が系内に広がった経験があった。当時は特に広報するに値いするとは考えなかったが、1971年のジュネーブ会議でカナダからの報告として全く同種の内容が知らされた。

この報告書は同じ事を他の炉で繰り返さないようにあえて公開メモで発表報告するものである。

このための業務を行なった者は下記の通りである。

| | | | |
|-------|---------|---------|----------------|
| 設 計 | 照射第1課 | 野 村 靖 | |
| | | 田 中 勲 | |
| | 照射第2課 | 清 水 正 亜 | |
| 照射後試験 | ホット・ラボ課 | 大 内 正 博 | 岩 井 孝 |
| | " | 富 田 衛 佐 | 井 川 勉 |
| | " | 山 原 武 雄 | 大 和 田 功 |
| | " | 吉 田 義 雄 | |
| | " | 中 倉 優 一 | |
| | " | 中 川 哲 也 | |
| | " | 寺 門 正 吾 | |
| | " | 宮 田 精 一 | |
| | " | 相 馬 知 彦 | |
| | " | 酒 井 陽 之 | |
| | " | 木 崎 実 次 | |
| | " | 須 藤 健 次 | |
| | " | 宇 井 泰 紀 | |
| | " | 清 水 道 雄 | |
| | " | 小野崎 勉 | |
| | " | 金 子 広 久 | |
| | " | 相 沢 静 男 | |
| 再現性試験 | 照射第3課 | 伊 丹 宏 治 | |
| | | 長松谷 孝 昭 | |
| | | 馬 場 信 一 | |
| 編 集 | 照射第1課 | 八 卷 治 恵 | |

なお燃料工学部燃料照射研究室長岩本多実氏と室員の方々および技術部工作課の方々に、検討に参加していただき、有益な教示をいただいた事を感謝します。

科学技術庁金属材料研究所原子炉材料部の永田徳雄氏には耐熱高温金属材料の御教示をいただいた事を感謝いたします。

8. 参 考 文 献

- 1) D. C. Goldberg et al.; "Niobium and Niobium Alloys in Nuclear Power" Nuclear Engineering and Design vol.22 (1972) p.95 p.123.
- 2) PWAC-371, "Design and Testing of Columbium-1 Zirconium Reactor Pressure Vessels" 1962.
- 3) ASME CODE SECTION III.
- 4) PROPOSED CODE CASE 1331-5.
- 5) L. D. Blackburn et al.; "Materials Creep Behavior and Elevated Temperature Design" Nuclear Technology vol.16 (1972) p.278 p.286.
- 6) Hall C. Roland; ORNL-TM-1942 "GENGTC, A One-Dimensional CEIR Computer Program for Capsule Temperature Calculations in Cylindrical Geometry" 1967.
- 7) F. W. Wiffen; "Neutron Irradiation Damage in Niobium and Nb-1%Zr" Trans. Amer. Nucl. Soc. vol.17 (1973) p.140.
- 8) 岩本他; "高温ガス炉の燃料技術に関する調査" 昭和50年
- 9) 日本原子力研究所大洗研究所計画課; "JMTR 運転計画書作成マニュアル" 昭和49年
- 10) 日本原子力研究所大洗研究所照射一課; "キャプセル設計マニュアル" 昭和48年
- 11) 日本原子力研究所東海研究所工作課; "72F-7A キャプセル部品図, 組立図" "72F-7A キャプセル検査成績書" 昭和48年
- 12) 日本原子力研究所東海研究所工作課; 72F-7A 製品検査成績書, 1974年4月
- 13) REACTOR HANDBOOK, SECOND EDITION, VOL.I MATERIALS: INTERSCIENCE PUBLISHERS LTD, LONDON, 1960.
- 14) 日本原子力研究所大洗研究所照射1課; キャプセル設計マニュアル, 1973年
- 15) Brick, Gordon and Phillips; Structure and Properties of Alloys, 491.
- 16) Max Hansen; Constitution of Binary Alloys, 1062.
- 17) Frank T. Sisco and Edward Epreman; Columbium and Tantalum, 463.
- 18) J. R. Stewart et al.; Columbium Metallurgy, 407-434.
- 19) W. F. Brizes, L. H. Cadott and J. M. Tobin; J. Nucl. Mat., 20 (1966), 57-67.
- 20) 藤川, 孫, 三宅, 佐野; 日本金属学会誌, 34 (1970), 1259-1263