

JAERI-M

7629

照射キャプセル内筒材としてのNb-1%  
Zr合金の高温強度

1978年4月

野村 靖・中田宏勝・田中三雄・深谷 清

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.

照射キャプセル内筒材としての Nb-1%Zr 合金の高温強度

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

野村 靖・中田 宏勝・田中 三雄<sup>+</sup>・深谷 清<sup>+</sup>

(1978年3月11日受理)

JMTRの被覆粒子照射キャプセルの燃料照射温度は最高1600°Cを目標としており、燃料を密封する内筒材料としては1000°C近辺の温度でも十分な強度を有し放射化断面積の小さいNb-1%Zrを選定した。

電子ビーム融解法によりインゴットを製造しスエージング加工後最終焼鈍を施して製作した管について、1000°C近辺の真空中高温引張試験及び流動ヘリウム中1000°Cクリープ試験を実施した結果、1000°C降伏応力は約6 kg/mm<sup>2</sup>、1000°C、3000 hrsのクリープ破断応力は約6 kg/mm<sup>2</sup>となった。

---

+ ) 東海研究所燃料工学部

High-temperature Strength of Nb-1%Zr Alloy for  
Irradiation-capsules Inner-shell

Yasushi NOMURA, Hirokatsu NAKATA, Mitsuo TANAKA<sup>+</sup>  
and Kiyoshi FUKAYA<sup>+</sup>

Division of JMTR Projects, Oarai Research Establishment,  
JAERI

(Received March 11, 1978)

Coated fuel particles in capsules will be irradiated at about 1600°C in JMTR. Nb-1%Zr alloy was chosen for inner shell material of the capsules because of its sufficient strength at 1000°C and low induced radioactivity.

Nb-1%Zr ingot produced by electron beam melting was formed into seamless tubes by hollowing and swaging, followed by annealing.

Creep test in helium flow and tensile test in vacuum were made to examine mechanical strength of the Nb-1%Zr tubes at 1000°C.

Following are the results;

- 1) 0.2% yield stress at 1000°C is about 6kg/mm<sup>2</sup>.
- 2) 3000 hr creep rupture stress at 1000°C is about 6kg/mm<sup>2</sup>.

Keywords: Nb-1%Zr Alloy, High Temperature, Tensile Test, Creep Test, Yield Stress, Rupture Stress, Irradiation Capsule, Seamless Tube

---

+ ) Division of Nuclear Fuel research, Tokai Research Establishment,  
JAERI

目 次

1. はじめに .....	1
2. Nb - 1% Zr 継目無管の製作と強度試験片の調製 .....	2
3. 高温引張試験 .....	8
4. 高温クリープ試験 .....	19
5. おわりに .....	35

引用文献

Contents

1. Foreword .....	1
2. Manufacturing of Nb-1%Zr Seamless Tubes and Processing of Test Specimens .....	2
3. High Temperature Tensile Test .....	8
4. High Temperature Creep Test .....	19
5. Postscript .....	35
Reference .....	35

## 1. はじめに

JMTRでは昭和44年以来多目的炉用被覆粒子燃料の照射キャプセルが設計製作され照射実験に供されてきた。多目的高温ガス炉の原子炉出口冷却材(He)温度は、1000°Cをめざしており、燃料温度は最高1350°C~1550°Cに達するのでこの温度範囲における照射挙動を調査する必要がある。JMTRにおける照射実験も1400°C~1600°Cを目途としている。

このための照射キャプセルの構造としては、試料ホルダを密閉した内筒内部に納め、この内筒の外側を真空に引き、真空度を調節することにより被覆粒子燃料温度を、1400°C~1600°Cの範囲で一定に維持できるようになっている。特に長期間にわたり照射する場合はバーンアップの進行にともなう発熱減少による大巾な温度低下を補うため、内筒外側の真空度をよくし内筒より内側の温度を上昇させる必要がある。内筒材料としては1000°C近辺の温度においても内筒が破損しないだけの十分な強度を有するものが望まれる。これの候補材料としてTa, Nb, Mo, W, Hastelloy Xなどの金属あるいは合金が考えられたが、1000°Cにおいても十分な強度を有し、機械加工性もよく、照射後放射能の問題もないNb-1%Zr合金が選定された。

Nb-1%Zr合金は米国の溶融塩炉の圧力容器材料として開発されたものであり、これに関するデータはPWAC-371<sup>(1)</sup>などのレポートに報告されている。これによれば実用される高温強度という点でNb-1%Zr合金とステンレス鋼を比較すると前者は後者より約450°C高い温度で使用可能となる。さらにTable 1に示す如くNb-1%Zrの熱伝導率Kはステンレス鋼のその約2倍であり、熱膨張率 $\alpha$ 及び縦弾性係数Eはステンレス鋼のそれらの値の約 $\frac{1}{2}$ であることから、熱応力( $\propto E \cdot \alpha \cdot \Delta T$ )、塑性ひずみ( $\propto \alpha \cdot \Delta T$ )、温度差 $\Delta T$ ( $\propto \frac{Q}{K}$ )を小さく、耐熱衝撃係数( $\propto \frac{K}{E \alpha}$ )を大きくすることができるので、Nb-1%Zr合金を用いることによりステンレス鋼を用いる場合にくらべ余裕をもった設計とすることができる。

JMTRでは照射キャプセルの内筒素材としてのNb-1%Zr管を国内のメーカーに製造させ使用するにあたり、1000°C近辺での引張強度及びクリープ強度を実測し、キャプセル設計を確実なものとするために、Nb-1%Zr合金について1200°Cまでの真空中高温引張試験、及び1000°C、約2000 hrsまでの流動ヘリウム中の高温クリープ試験を実施したので、これの内容と試験の結果について報告する。

Table 1 Mechanical Properties of Niobium-1% Zirconium<sup>(1)</sup>

	Thermal Conductivity (Btu/hr-ft <sup>2</sup> -°F)		Mean Coefficient of Thermal Expansion (in./in. x 10 <sup>-6</sup> ) 70°F to 2000°F	Elastic Modulus (10 <sup>6</sup> psi)	
	70°F	2000°F		70°F	2000°F
Ferritic Stainless Steels	14	16	8.0	30.0	10 to 20
Nb-1% Zr	28	40	4.5	15.1	14.0

## 2. Nb - 1% Zr 継目無管の製作と強度試験片の調整

キャプセルの内筒管として使用される Nb - 1% Zr 継目無管は Table 2 に示す如き工程に従って製作された。すなわち Nb と Zr の原料粉末を規定割合で混合し、電子ビーム融解法によりインゴットとし、鍛造、皮むき、穴ぐりして管素材とする。これを規定寸法どおり精度よく仕上げるためスエージング加工を行うが、40%の加工率となったところで 1150°C × 60 分の真空焼鈍を施し過度の加工による割れ及び傷の発生を防止する。中間焼鈍後約 40% のスエージング加工を施し、最終寸法の管に仕上げる。最後に 1350°C × 90 分の再結晶焼鈍を施して完成とするが、この最終焼鈍条件決定の経緯について、以下に詳細を記す。

Photo 1 は加工したままの管から軸方向及び周方向に沿って切り出した金相試験片のエッチング処理後撮った、金属組織写真を示したものである。これを見ると、スエージング加工方向の軸方向には細長い繊維状の集合組織が存在し、これと直角方向の管の周方向には繊維断面の魚鱗状組織が強くあらわれていることがわかる。このように方向によって管の組織が著しく異なっているので管の強度的性質もまた方向を有するものと推定された。

さらに強度試験を実施するための引張試験用の板状、及びクリープ試験用の棒状供試材は、管と同一のインゴットから同一の加工度を与えて製造するとしても、加工方法が異なるので管と同一の組織とすることは不可能である。そこで管は規定寸法に仕上げた後、最終焼鈍を施し再結晶させて組織の均一化をはかり、方向性のないものとし、同時に板及び棒の供試材も同じ条件で最終焼鈍を施し、管と組織が同一のものとなるようにした。Table 3 に板状試験片及び棒状試験片の製造工程を管のそれと比較しながら示す。

最終焼鈍条件としては供試材と管のそれぞれ一部をとり、温度 1250°C、1350°C、1450°C と時間 1.0 hr、1.5 hr、2.0 hr との組合わせでスクリーニングテストを行い、焼鈍後の金相試験で再結晶組織が 80% 以上発達しており、結晶粒の大きさが均一でしかも方向性なく一様に分布し、供試材と管とで金属組織が同一となる条件を選んで 1350°C × 1.5 hr とした。Photo 2、3、4 にこのときの金相試験の結果を掲げる。

Table 2 Process Flow for Nb-1%Zr Seamless Tube

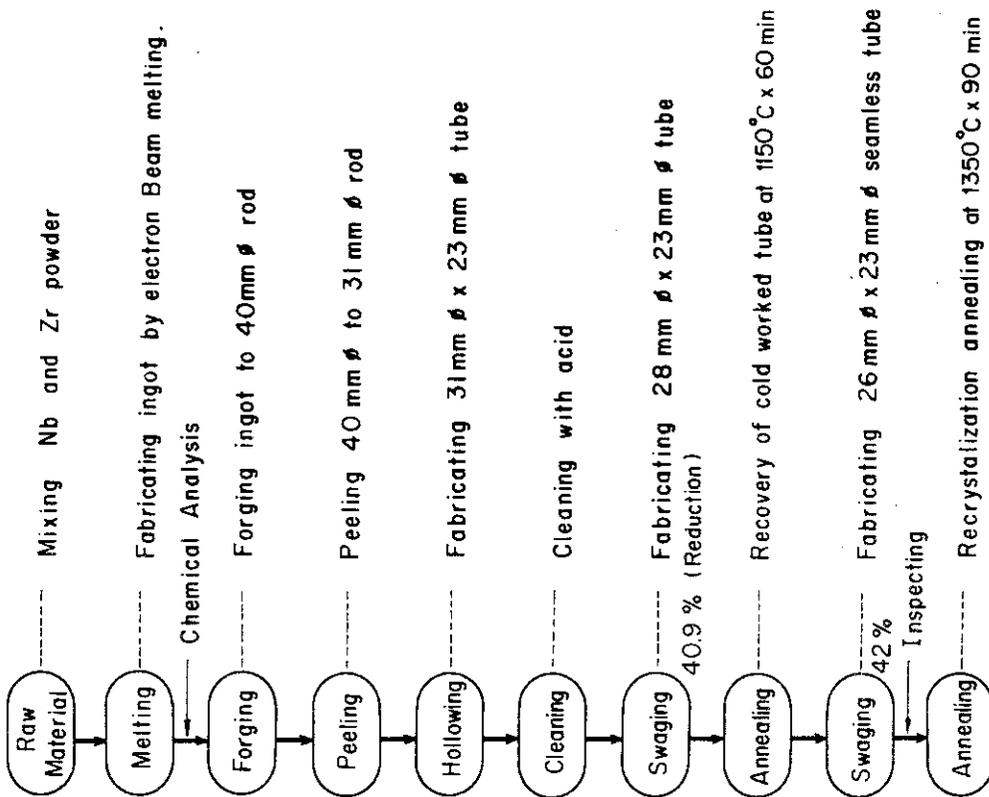
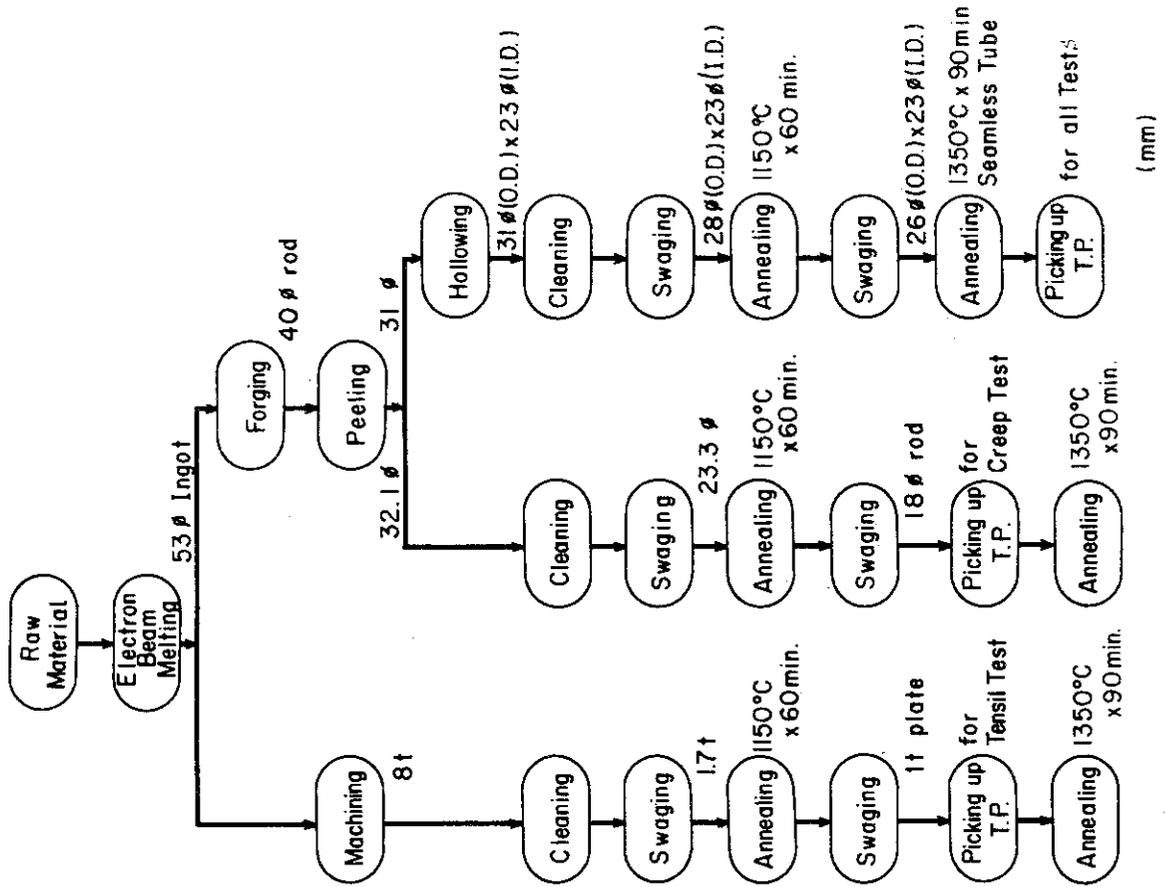


Table 3 Process Flow for Test Pieces



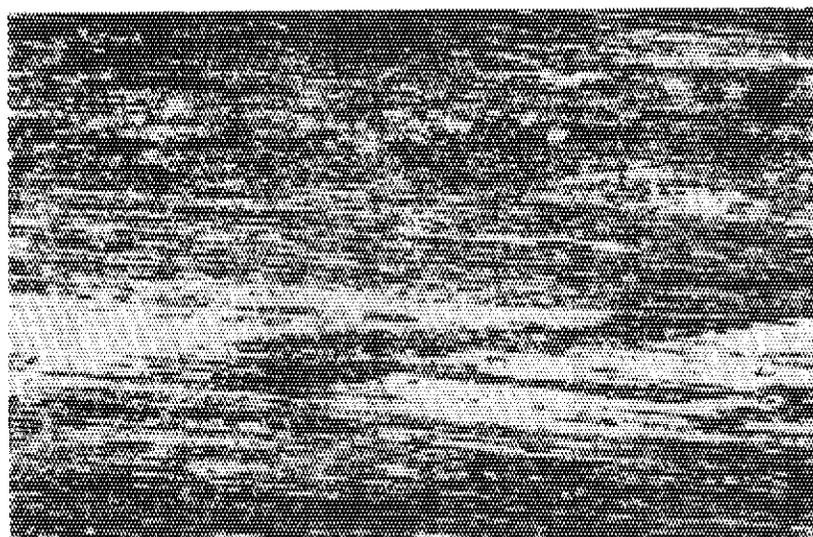


No.1

(Cut perpendicularly)



70x



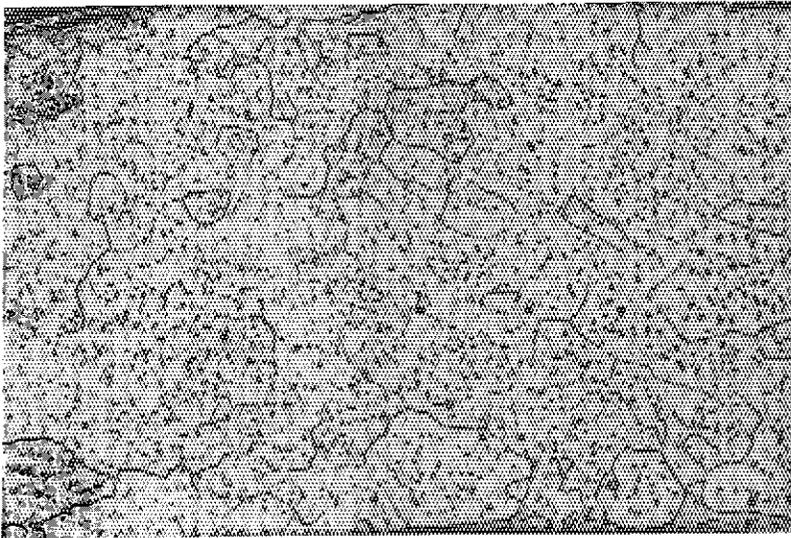
No.2

(Cut longitudinally)



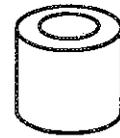
70x

Photo 1 Photomicrographs of as-cold worked Nb-1% Zr Tube

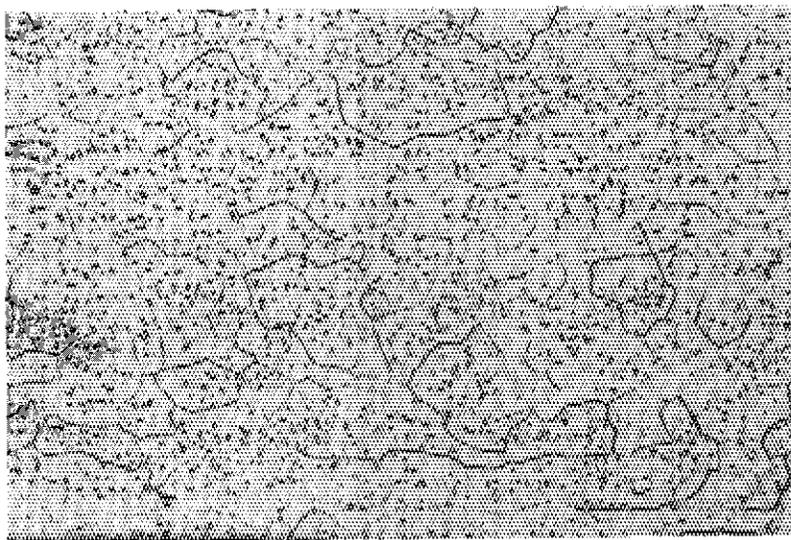


No.3

(Cut perpendicularly)



100x



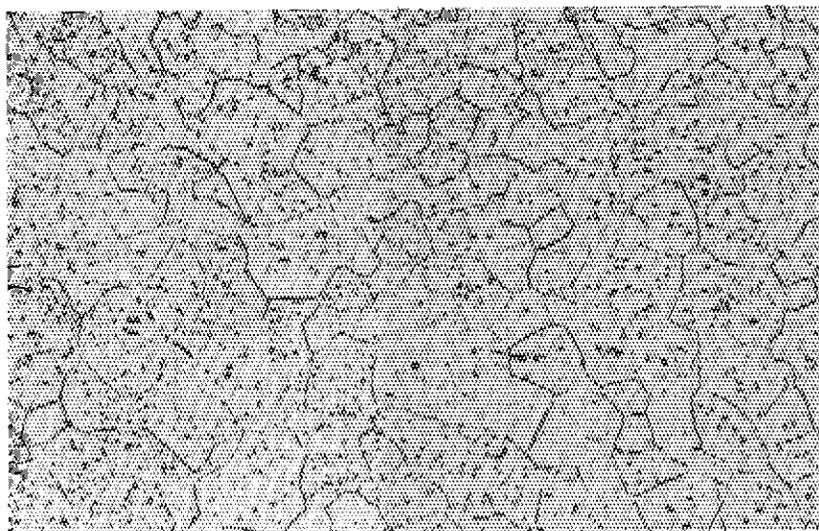
No.4

(Cut longitudinally)



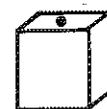
100x

Photo 2 Photomicrographs of Nb-1% Zr Tube Annealed 90 minutes at 1350°C



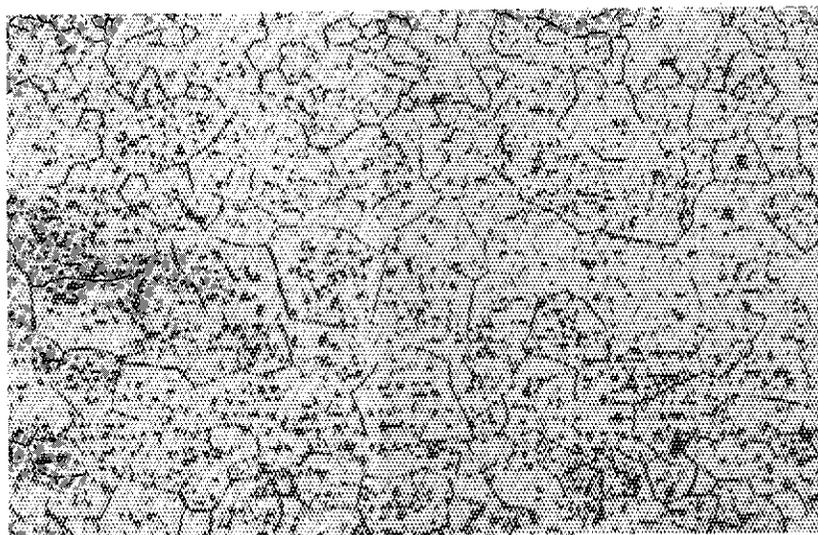
No.5

(Cut perpendicularly)



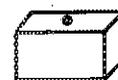
rolling

100×



No.6

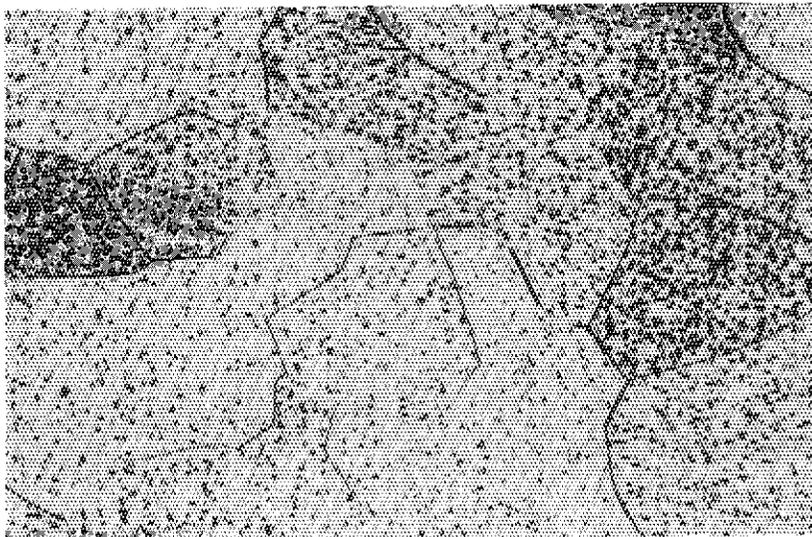
(Cut longitudinally)



rolling

100×

Photo 3 Photomicrographs of Nb-1% Zr Sheet Specimen Annealed 90 minutes at 1350°C

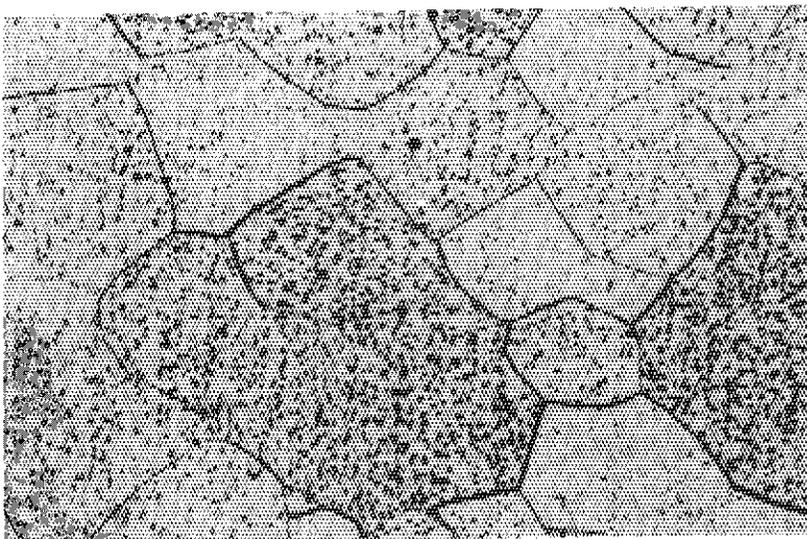


No.7

(Cut perpendicularly)



100×



No.8

(Cut longitudinally)



100×

Photo 4 Photomicrographs of Nb-1% Zr Rod Specimen Annealed 90 minutes at 1350°C

### 3. 高温引張試験

Nb-1%Zr 素管をキャプセル内筒管に使用するにあたり、まずNb-1%Zr 合金の高温強度特性を知るため、加工率及び熱処理条件をパラメータとして試作した数種類の試料について1000℃近辺の高温引張試験を実施した。次にキャプセル内筒設計のためのデータを得る目的で、Nb-1%Zr 素管と同一のインゴットから同一の加工率及び熱処理を施して製作した試料について、高温引張強度測定試験を実施した。これらの試験は、日本原子力研究所材料物性研究室にて行われた。

#### 3.1 試験方法

- |            |  |
|------------|--|
| (1) 試験機    | 高温真空引張試験機 (Fig. 1)   |
| (2) 試験雰囲気  | 真空 ( $< 10^{-6}$ Torr)   |
| (3) 試験温度   | R. T., 500℃, 800℃, 900℃, 1000℃, 1200℃  |
| (4) 引張歪速度  | $1.7 \times 10^{-2}$ /min (他に、歪速度依存性を調べるため $10^{-3} \sim 10^0$ /min の範囲で変えた。)  |
| (5) 試験片形状  | Fig. 2 に示すとおり板状  |
| (6) 試料製造条件 | Table 4 に示す如く加工率及び熱処理条件の異なる6種類の試料を製造した。このうちロット Z-053 からロット Z-057 までは Nb-1%Zr 合金の強度特性を調査するために製造したものであり、ロット Z-058 は素管の強度を調べるため、管と同一の熱処理を施して製造したものである。<br>(Table 3 参照)  |
| (7) 試験片数   | 各ロット毎12個用意し、ひとつの試験温度に2個ずつ割当てた。<br>他に管 (26φ外径×23φ内径) からハツ橋状に切り出した試験片 (Fig. 2 に示す如き外形に切り出したのち、つかみ部を平としたもの) により室温 (R. T.) と1000℃の両温度において2回引張試験を行い、その結果を板状試験片の引張結果と比較した。 |

#### 3.2 引張試験結果及び考察

##### 3.2.1 Nb-1%Zr 合金強度特性試験

###### (i) 加工材と焼鈍材の強度特性 (試験温度依存性)

Fig. 3 ~ Fig. 6 は加工材と焼鈍材について引張性質 (最大引張応力  $\sigma_{UTS}$ , 降伏応力  $\sigma_{0.2}$ , 均一伸び  $\epsilon$ ) の温度依存性をグラフにして示したものである。

これを見てわかることは、

- (i) 加工率50%の試料 (ロット Z-054) の室温における  $\sigma_{0.2}$  は  $38 \text{ kg/mm}^2$  であるのに対し加工率33.3%の試料 (ロット Z-055) では  $\sigma_{0.2}$  が  $33 \text{ kg/mm}^2$  となり、加工率の高い

試料ほど低温 (< 800 °C) で繊維組織の影響で強度が高い。

(ii) 加工材 (Z-054, Z-055) の室温の  $\sigma_{0.2}$  は 33 ~ 38 kg/mm<sup>2</sup> であるのに対し, 焼鈍材 (Z-053, Z-057) の室温の  $\sigma_{0.2}$  は 10 ~ 12 kg/mm<sup>2</sup> となり, 焼鈍することにより  $\sigma_{0.2}$  は約  $\frac{1}{3}$  ~  $\frac{1}{4}$  に減少する。同時に  $\sigma_{UTS}$  も焼鈍により減少するが, その割合は約  $\frac{1}{2}$  である。

(iii) 加工材の  $\sigma_{0.2}$  及び  $\sigma_{UTS}$ , 焼鈍材の  $\sigma_{UTS}$  は試験温度の上昇と共に減少する傾向にあるが, 800 °Cまではこの傾向が緩慢であり, この温度を過ぎると急激になる。焼鈍材の  $\sigma_{0.2}$  は全温度範囲で緩慢に減少している。

Fig. 7 は PWAC-371<sup>(1)</sup> に報告されている Nb-1%Zr 合金の引張性質の試験温度依存性を示したものであるが, これを見ると PWAC材の 1000 °Cにおける  $\sigma_{UTS}$  は約 21 kg/mm<sup>2</sup>,  $\sigma_{0.2}$  は約 19 kg/mm<sup>2</sup> であることがわかる。Fig. 8 は PWAC材と加工材 (Z-054, Z-055) と焼鈍材 (Z-053) について降伏応力の試験温度依存性を比較して示したものであるが, 加工材の場合 800 °Cより低い温度では PWAC材より約 2 倍大きい降伏応力を示しているが, 800 °Cを過ぎると激減し 1000 °Cの  $\sigma_{0.2}$  は約 15 kg/mm<sup>2</sup> となり, PWAC材の対応する値約 19 kg/mm<sup>2</sup> より約 20%も低くなってしまふ。

PWAC材は報告によると, 最終焼鈍を施してあり完全軟質に近い条件で仕上がっているものと推定される。本試料の Z-053 も最終焼鈍を施してあり完全軟質に近いと思われるので,  $\sigma_{0.2}$  を比較すると Z-053 の室温での  $\sigma_{0.2}$  は約 10 kg/mm<sup>2</sup>, 1000 °Cでの  $\sigma_{0.2}$  は約 5 kg/mm<sup>2</sup> となるのに対し PWAC材の室温での  $\sigma_{0.2}$  は約 23 kg/mm<sup>2</sup>, 1000 °Cでの  $\sigma_{0.2}$  は約 19 kg/mm<sup>2</sup> であることがわかる。すなわち Z-053 の 1000 °Cの降伏応力は, PWAC材の対応する値の約  $\frac{1}{4}$  となっている。

Fig. 9 は試料 Z-053 と PWAC材について応力-ひずみ線図を比較しつつ示したものである。これを見ると両材料で曲線の形そのものが異なり, PWAC材では伸びが少なく  $\sigma_{0.2}$  と  $\sigma_{UTS}$  の差がほとんどないのに対し, 試料 Z-053 では伸びが大きく (PWAC材の伸びの 2 倍以上)  $\sigma_{0.2}$  と  $\sigma_{UTS}$  の差も大きい ( $\sigma_{UTS} \approx 2 \sigma_{0.2}$ ) ことがわかる。試料 Z-053 と PWAC材について, これらの強度的性質の相違は加工率あるいは熱処理条件以外のたとえば, 成分組成など質的な条件の相違に起因しているものと思われるので, 本試料のインゴットから抽出した試料について化学分析を行った。その結果を PWAC材について報告されている値と比較しつつ Table 5 に示す。これから本試料の酸素, 水素, チッ素, 炭素の侵入型元素成分の含有量はそれぞれ約 10 ppm, 約 3 ppm, 約 20 ppm, 約 45 ppm となっているのに対し, PWAC材のそれらに対応する値は, 約 77 ppm, 約 4 ppm, 約 119 ppm, 約 151 ppm であり, 酸素及びチッ素については本試料の含有量は PWAC材の含有量の約  $\frac{1}{6}$  ~  $\frac{1}{8}$  となっていることがわかる。

Nb-1%Zr 合金は一種の析出強化型合金であり, 微量の酸素あるいはチッ素が Zr と反応して安定な酸化物あるいはチッ化物を形成し, これが析出することで高温引張強度を維持することがわかっている。<sup>(2)</sup> 本試料と PWAC材とで高温引張強度が違っているのは, これら侵入型元素の不純物成分含有量の相違によるものと考えられる。PWAC材は報告によると, アーク融解法によりインゴットを製造しているのに対し, 国内メーカーではこれを電子ビーム融解法により製造しているため, 本試料の場合融解温度が高く酸素などのガス成分は大部分インゴット

ト製造中に蒸発揮散してしまったものと推定される。

#### (ロ) 降伏応力に対する焼鈍温度及び結晶粒径の影響

加工率約 50% の試料に再結晶焼鈍を 1000 °C から 1350 °C までの温度範囲で 90 分間行った場合、1000 °C における  $\sigma_{0.2}$  及び  $\epsilon$  が焼鈍温度に対しどのように変化するかを示したのが Fig. 10 である。これを見てわかることは、1000 °C 以下の焼鈍温度では加工硬化の回復が完了せず  $\sigma_{0.2}$  が 15 kg/mm<sup>2</sup> であり、完全軟質に近いと推定される 1100 °C 以上の温度で焼鈍した材料の  $\sigma_{0.2}$ 、約 5 kg/mm<sup>2</sup> にくらべ約 3 倍も大きい。

Fig. 11 は焼鈍温度の上昇と共に結晶粒径が単調に増大していることを示すが、Fig. 10 に示した如く  $\sigma_{0.2}$  は約 1100 °C 以上の温度で焼鈍した材料では、焼鈍温度に依らずほぼ一定となる。すなわち、焼鈍材の降伏応力の値は結晶粒径に依存しないことがわかる。

#### (ハ) 歪 (ひずみ) 速度依存性

本試料の加工材と焼鈍材について、室温 (R. T.) 及び 1000 °C における引張強度性質の歪速度依存性を調べた。その結果を Fig. 12 ~ Fig. 15 に示す。これを見てわかることは、次のとおりである。

- (i) 加工材と焼鈍材の室温での  $\sigma_{UTS}$  及び  $\sigma_{0.2}$  は歪速度に殆んど依存しない。
- (ii) 加工材の 1000 °C での  $\sigma_{0.2}$  は、歪速度  $1.7 \times 10^{-3}$  /min のとき 10.5 kg/mm<sup>2</sup> なのに対し、歪速度  $6.7 \times 10^{-1}$  /min のときは 23.0 kg/mm<sup>2</sup> と増加しており、歪速度依存性が認められる。
- (iii) 焼鈍材の 1000 °C での  $\sigma_{0.2}$  あるいは  $\sigma_{UTS}$  は試験した歪速度の範囲 ( $10^{-3}$  /min ~  $10^0$  /min) ではほぼ一定であり歪速度に依存しない。

一般に体心立方金属の室温での降伏応力には、熱的成分 (パイエルスポテンシャルを熱活性化によって越える転位の運動によって決められる成分) の占める割合が大きいので、ニオブ、モリブデン、鉄などの純金属では降伏応力に著しい歪速度依存性が見られる。ところが、これらの純金属に置換型元素を含ませると降伏応力の熱的成分が減少し、歪速度にあまり依存しなくなると説明されている。<sup>(4)</sup> 本試料は Table 5 に示す如く置換型の添加元素である Zr を 1.1%、Ta を 730 ppm 含む体心立方合金であり、Fig. 12, 13, 15 に示す如く、 $\sigma_{0.2}$  が歪速度に余り依存しないのは以上述べた理由による。Fig. 14 に示す如く、加工材の 1000 °C、 $\sigma_{0.2}$  が歪速度依存性をあらわすのは、室温での  $\sigma_{0.2}$  とちがって 1000 °C では引張試験の最中に冷間加工によって得られた繊維組織が回復し、材料が軟化するからであると説明される。

#### 3.2.2 管引張強度測定試験結果及び考察

キャプセル内筒材料として用いる素管と同一のインゴットから同一の加工率、同一の熱処理を施して製造された試料 Z-058 の引張試験結果を Fig. 16 に示す。同図にはまた、管そのものから切り出したハツ橋状試験片の引張試験結果 (Table 6 参照) をも比較のためプロットしてある。これを見てわかることは、

- (i) 1350 °C で最終焼鈍した試料 Z-058 の室温での  $\sigma_{0.2}$  は約 12 kg/mm<sup>2</sup> であり、最終焼鈍温度が 1050 °C の試料 Z-053 及び最終焼鈍温度が 1300 °C の試料 Z-057 (Fig. 5 及び Fig. 6) の室温における  $\sigma_{0.2}$  の値と同程度である。しかるに Z-058 の 1000 °C での  $\sigma_{0.2}$  は約 5.9 kg/mm<sup>2</sup> であり、Z-053 あるいは Z-057 の 1000 °C での  $\sigma_{0.2}$  の値より約 1 kg

／mm<sup>2</sup>ほど高い値を示している。

(ii) 試験温度が高くなると他のロットの試料と同じく Z-058 の  $\sigma_{UTS}$  は減少する傾向にあるが、他の試料の場合 800 °C まで緩慢に変化しその温度以上では急激に減少するのに対し、Z-058 の場合、900 °C まで  $\sigma_{UTS}$  の緩慢な変化は続く。

(iii) Z-058 板状試験片とハツ橋状試験片の引張結果を比較すると、 $\sigma_{0.2}$  については両者ともほぼ一致した値を示しているが、 $\sigma_{UTS}$  については Z-058 試験片の方が管から切り出したハツ橋状試験片より約 10 % 高い値を示している。

試料 Z-058 は、他の試料と異なって最終焼鈍を施す前に 2 方向圧延により圧延集合組織が板の特定方向に発達しないように加工したものであり、Z-058 の高温引張強度が Z-053 及び Z-057 (共に焼鈍材) のそれらの値にくらべて高いのは、焼鈍により生成した再結晶粒が等方的に分布しているからであると考えられる。

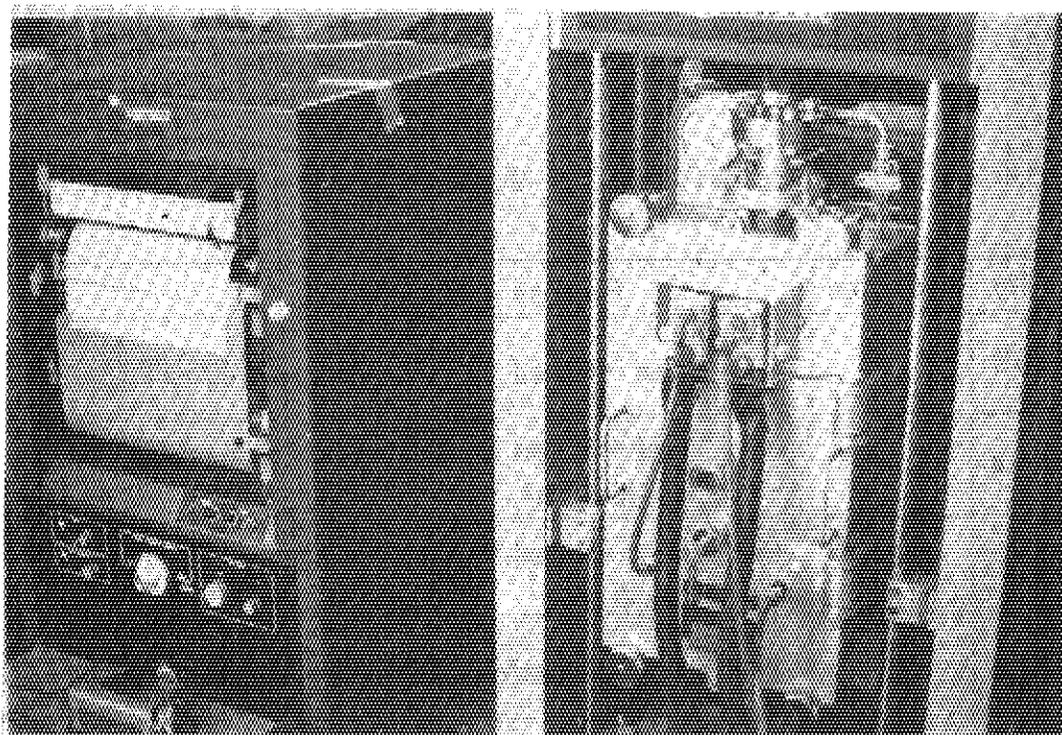


Fig. 1 Furnace for High Temperature Tensile Test of Nb-1% Zr

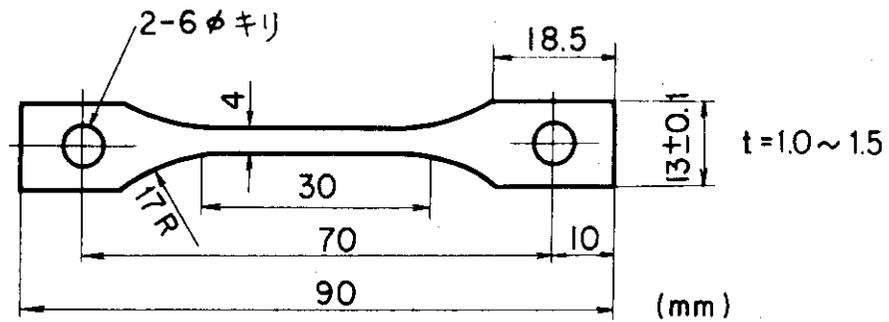


Fig. 2 Dimensions of Tensile Strength Test Piece

Table 4 Process Conditions for Nb-1% Zr Tensile Test Pieces

Lot No.	Reduction	Process Conditions
Z-053		8 <sup>t</sup> mm Sheet → Rolled to 1 <sup>t</sup> mm → Annealed 1050°C x 90min
Z-054	50 %	8 <sup>t</sup> mm Sheet → Rolled to 2 <sup>t</sup> mm → Annealed 1200°C x 90min → Rolled to 1mm <sup>t</sup>
Z-055	33.3 %	8 <sup>t</sup> mm Sheet → Rolled to 1.5 <sup>t</sup> mm → Annealed 1200°C x 90min → Rolled to 1mm <sup>t</sup>
Z-056		Z-054 → Annealed 1000 °C x 90min
Z-057		8 <sup>t</sup> mm Sheet → Rolled to 1 <sup>t</sup> mm → Annealed 1300°C x 60min
Z-058		8 <sup>t</sup> mm Sheet → Rolled to 3.5 <sup>t</sup> mm → Bilaterally Rolled to 1.7 <sup>t</sup> mm → Annealed 1150°C x 60min → Rolled to 1.0 <sup>t</sup> → Annealed 1350 °C x 90min

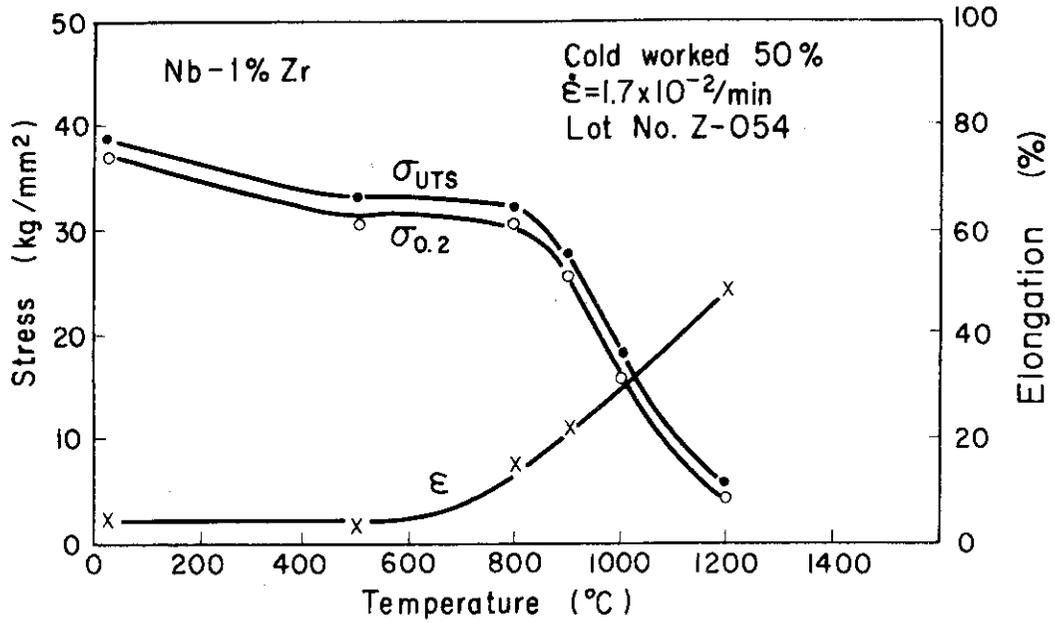


Fig. 3 Tensile Properties from R.T. to 1200°C for Nb-1% Zr Sheet Specimens Cold Worked 50%

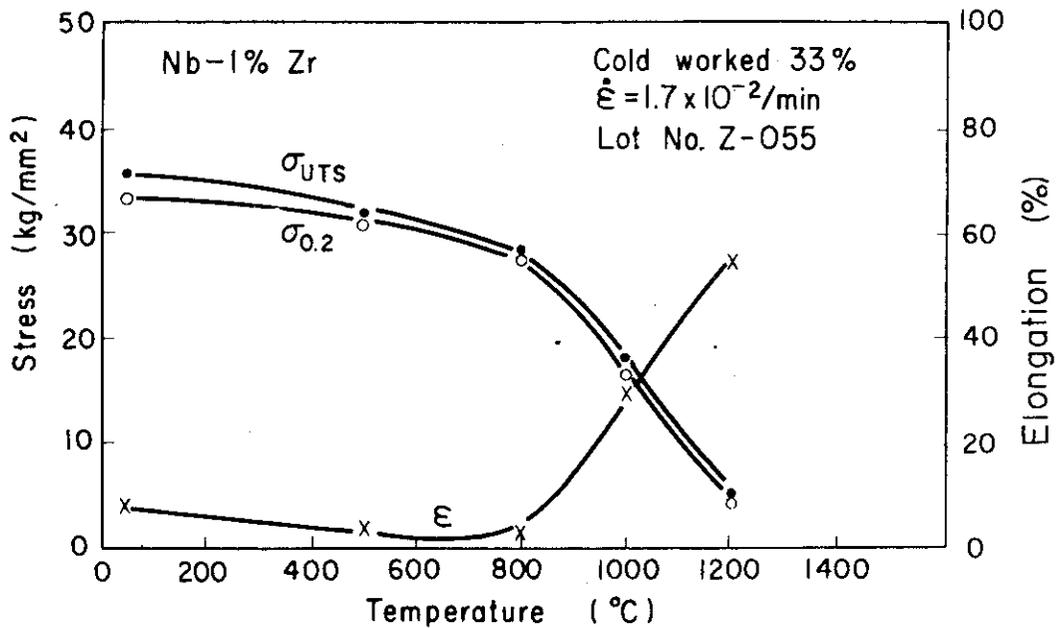


Fig. 4 Tensile Properties from R.T. to 1200°C for Nb-1% Zr Sheet Specimens Cold Worked 33%

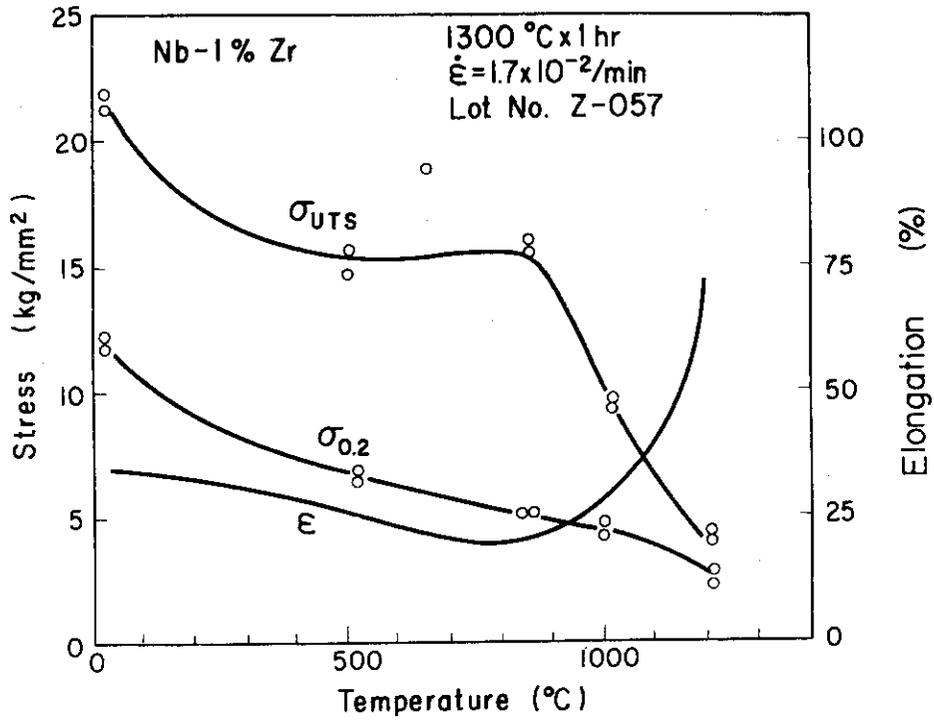


Fig. 5 Tensile Properties from R.T. to 1200°C for Nb-1% Zr Sheet Specimens Annealed 1300°C x 1hr.

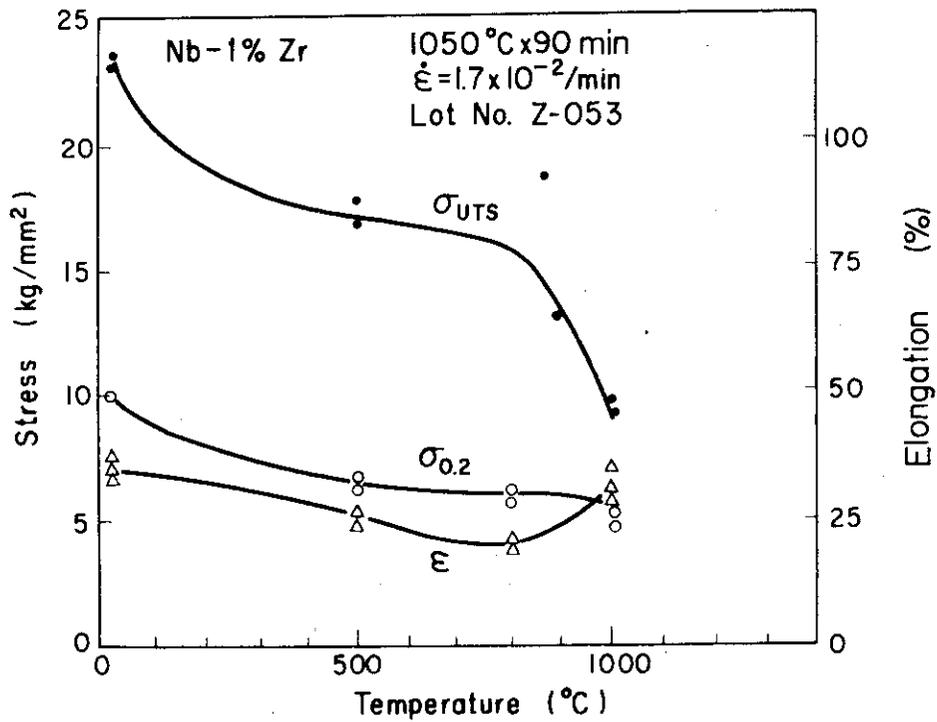


Fig. 6 Tensile Properties from R.T. to 1200°C for Nb-1% Zr Sheet Specimens Annealed 1050°C x 90min.

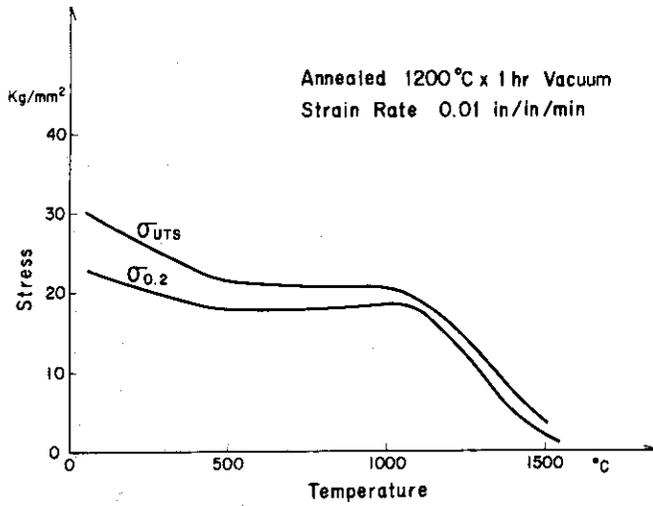


Fig. 7 Average Nb-1% Zr Alloy Tensile Strength vs Test Temperature

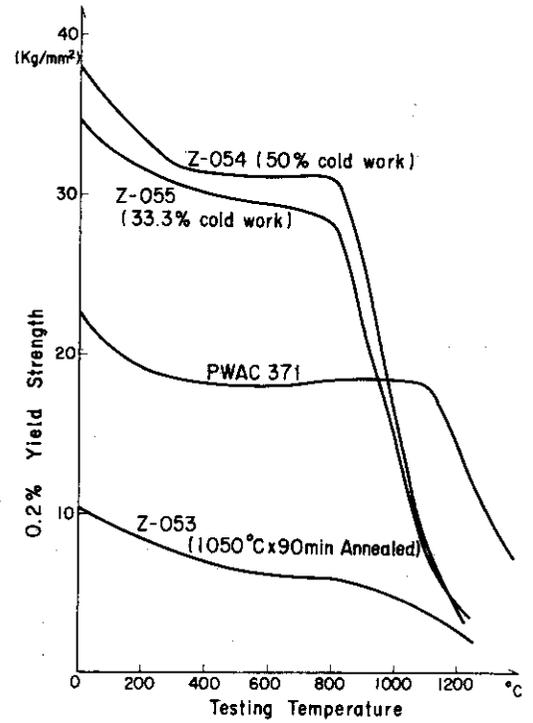


Fig. 8 Nb-1% Zr Alloy Yield Strength from R.T. to 1200°C

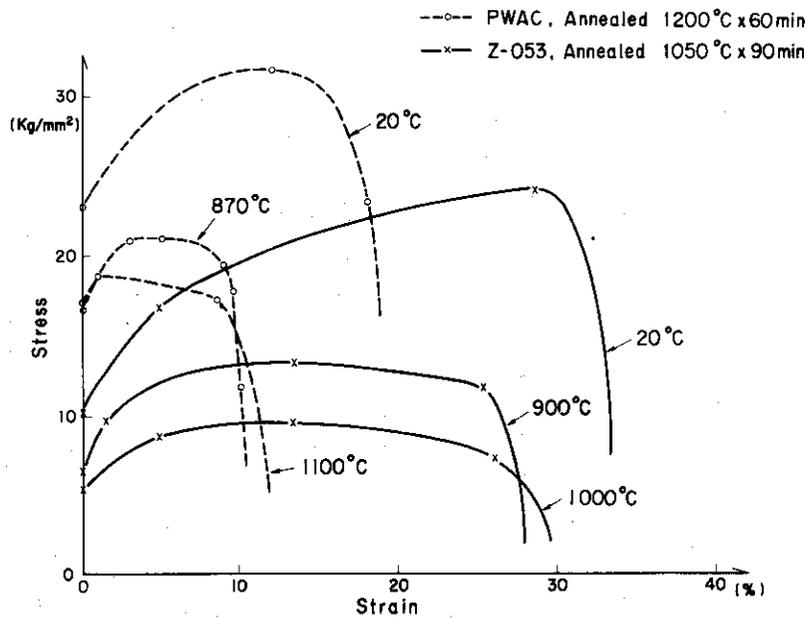


Fig. 9 Nb-1% Zr Stress-Strain Curve

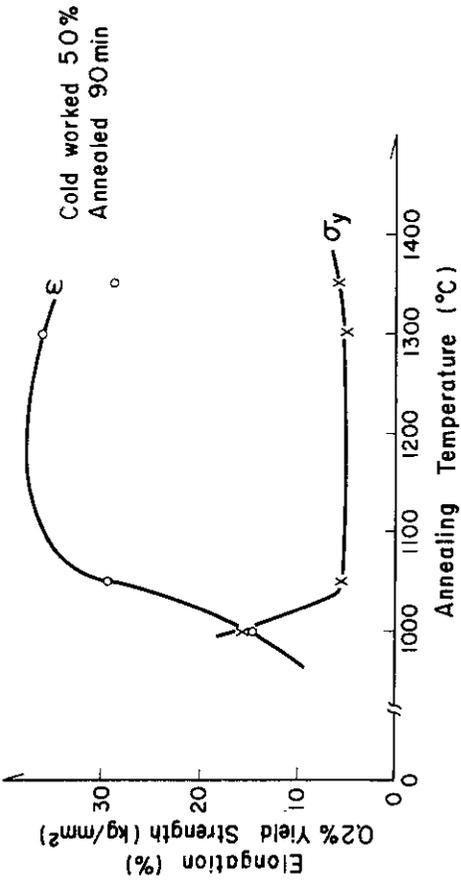


Fig. 10 Tensile Properties at 1000°C vs Annealing Temperature

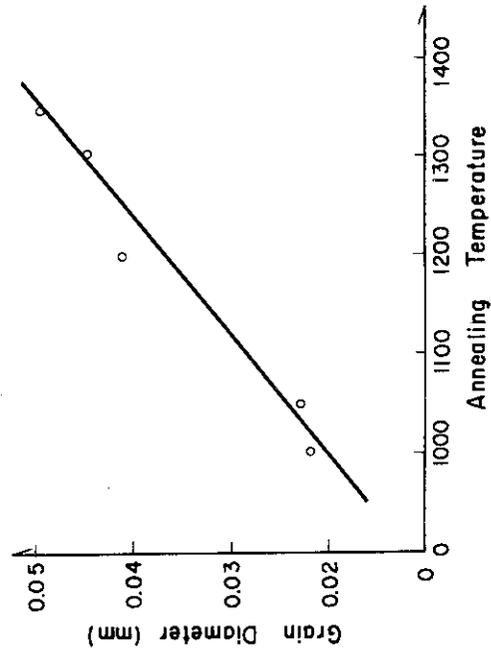


Fig. 11 Effect of Annealing Temperature on the Recrystallized Grain Size

Table 5 Chemical Analysis of Nb-1%Zr Ingot

Element	Reported in PWAC	Domestic
C	151	45
N	119	20
O	77	10
H	4	3
Zr	0.82 (%)	1.1 (%)
Fe	25	10
Ta	600	730
Ti	<10	10
Mg	<10	<10
Mo	<10	<10
Ni	<10	<10
Nb	Bal.	Bal.

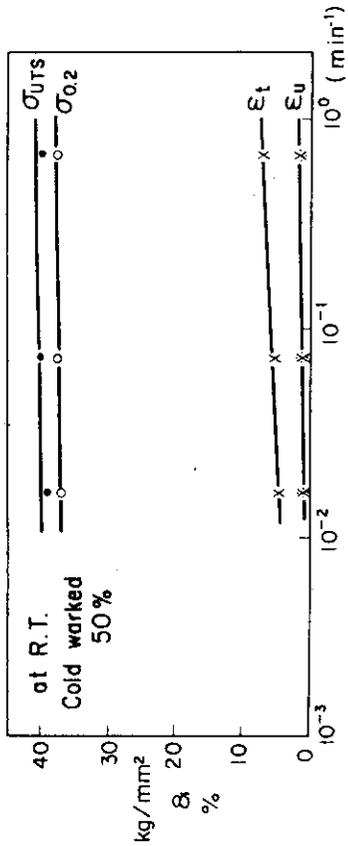


Fig. 12 R.T. Tensile Properties vs Strain Rate for Nb-1% Zr Sheet Specimens Cold Worked 50%

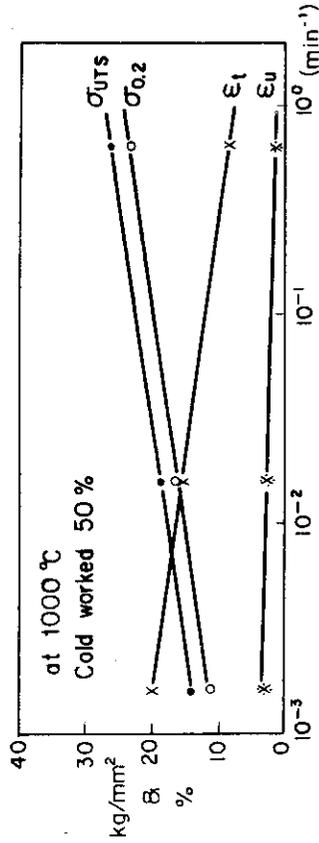


Fig. 14 1000°C Tensile Properties vs Strain Rate for Nb-1% Zr Sheet Specimens Cold Worked 50%

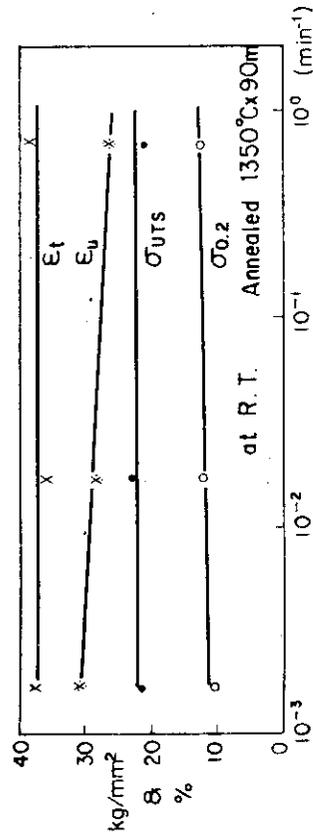


Fig. 13 R.T. Tensile Properties vs Strain Rate for Nb-1% Zr Sheet Specimens Annealed 1350°Cx90 min

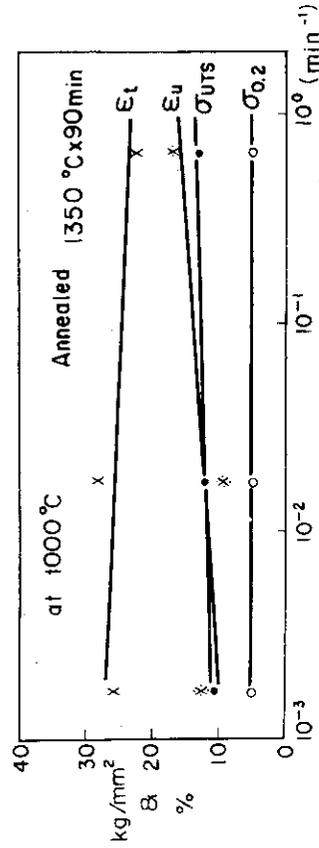


Fig. 15 1000°C Tensile Properties vs Strain Rate for Nb-1% Zr Sheet Specimens Annealed 1350°Cx90 min

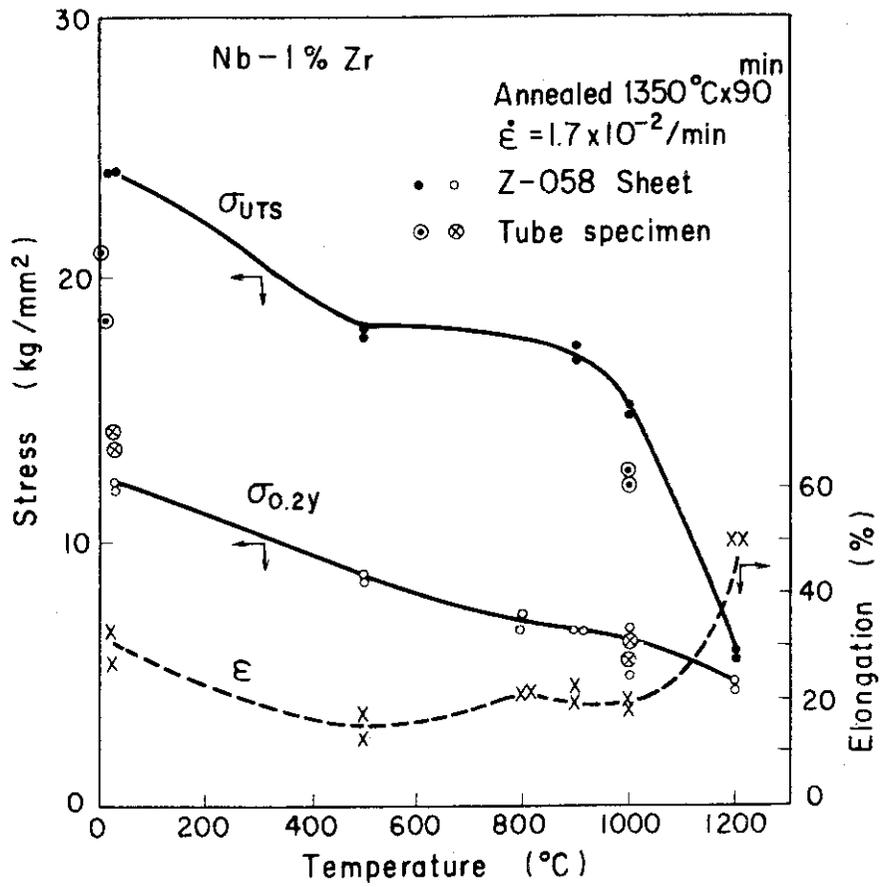


Fig. 16 Tensile Properties from R.T. to 1200°C for Nb-1% Zr Sheet and Tube Specimens Annealed at 1350°Cx90min

Table 6 Tensile Test Results for Tube Specimens at R.T. and 1000°C

Piece No.	Temperature	0.2% Y.S. kg/mm <sup>2</sup>	U.T.S. kg/mm <sup>2</sup>	Elongation %
1	R.T.	14.54	20.42	26.8
2	R.T.	13.83	18.93	15.0
3	1000 °C	5.76	12.92	15.8
4	1000 °C	6.59	12.70	16.8

Disrupted at outer-gauge



他に管（26  $\phi$  外径  $\times$  23  $\phi$  内径）からハツ橋状に切り出した試験片（Fig. 21に示す如き外形に切り出したのち、つかみ部を平としたもの）により、11.0, 10.0, 8.4の応力レベルを試験し、その結果を棒状試験片の結果と比較した。

本試験は断続クリープ試験であり、伸びを測定する場合は試験途中で荷重を一担除去し雰囲気槽を炉から抜き出して室温に冷却後マイクロメータを用いて行い、伸び測定後は再び炉の中へ入れて試験温度に加熱し、元の応力レベルとなるように荷重を調節した。

#### 4.2 クリープ試験結果及び考察

Table 7は各雰囲気槽でのクリープ試験実績を示したものであり、1976年9月～1977年1月にわたって試験が行れた。試験応力と破断時間、最小クリープ速度、破断伸びについて得られた結果をTable 8に一覧してある。

Fig. 22～Fig. 32は棒状試験片を各応力レベルでクリープ試験したときの時間-歪曲線を示したものである。応力が11.0, 9.24, 8.4, 8.0  $\text{kg}/\text{mm}^2$ の場合には破断時間が短くて曲線を描くのに伸び測定データが十分な数だけ得られていないが、二、三のデータをもとに推定を加えて描いた。一方、応力が5  $\text{kg}/\text{mm}^2$ 以下の低応力の場合には約2000 hrs経ても一次クリープ域にあり、二次クリープ域に入っていないことがわかる。

Fig. 33はハツ橋状試験片4個のクリープ試験した結果を示したものである。これを見ると応力11.0  $\text{kg}/\text{mm}^2$ に対する破断時間が約80 hrsとなっているが、同応力の棒状試験片ではFig. 22からわかるように約7 hrsで破断しており、破断時間に関してはハツ橋状試験片の方が棒状試験片より約10倍長くなっている。

Fig. 34は各応力レベルにおける破断時間、1%クリープ到達時間、三次クリープ開始時間をプロットしてまとめて示したものである。1%クリープ到達時間をプロットした点が長時間側で応力レベルに対し右下がりの傾向を示すのは、この部分に対応する5  $\text{kg}/\text{mm}^2$ 以下の低応力の試験では約2000 hrsを越えてもまだ一次クリープの領域にあり、この場合そのクリープ速度を用いて外挿したのが原因である。

同図にはまたPWAC 371に報告されている破断時間曲線が描かれており、これを見ると本試料の破断時間のデータとよく一致していることがわかる。Gregory<sup>(3)</sup>らによるとNb-1%Zr合金の高温クリープ強度は、Nbに固溶しているZrが速やかに拡散して刃状転位のジョグを固着し結晶組織のポリゴン化を妨げることにより決められると説明されており、本試料の場合酸素などの不純物成分元素の含有量は少ないが、添加元素成分であるZrは規定どおり含まれているので、高温クリープ強度がPWAC材の値と同程度に維持されているものと考えられる。

#### 4.3 断面組織試験結果

Photo 5に応力8.4  $\text{kg}/\text{mm}^2$ 、破断時間186 hrsの棒状試験片の断面組織を示す。結晶粒径は、0.2～0.5 mmぐらいでPhoto 6に示したクリープ試験前の組織の結晶粒径と同程度である。両写真とも表面附近の粒は内部より細くなっているが、これは試験片加工時に生じた表面の変形層

が最終焼鈍を施したときに再結晶したためである。

Photo 7 はハツ橋状試験片の応力  $10 \text{ kg/mm}^2$ ，破断時間 228 hrs の断面組織である。Photo 5 の同程度の時間で破断した棒状試験片の断面組織とくらべても基本的な差異は認められない。両写真において粒径はほぼ等しく，破断部では結晶粒の変形が著しいが，結晶粒界にはほとんどボイドが発生していない。ただしハツ橋状試験片の場合は表面付近で粒が細くなることはないが，棒状試験片ではこれが観察され，しかも細くなった粒の境界に沿って多くの割れが認められる。ハツ橋状試験片と，棒状試験片のクリープ強度のちがいはしいていえばこれが一つの原因と思われる。

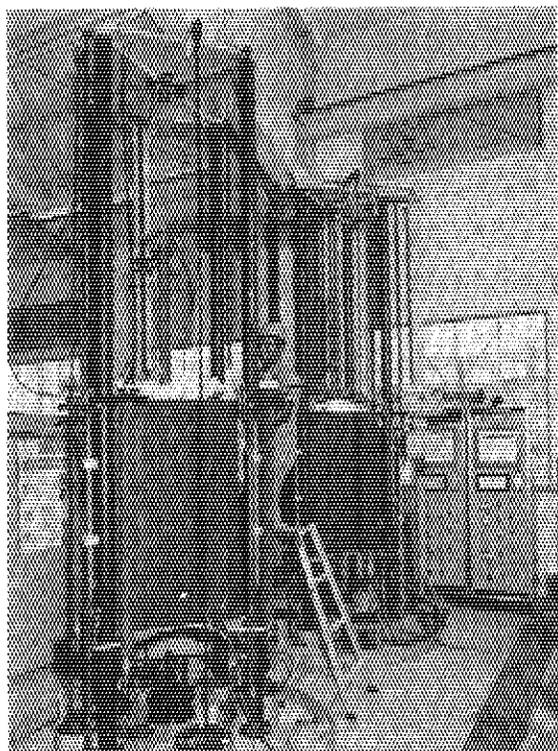


Fig. 17 Multipulated Environmental Creep Test Machine

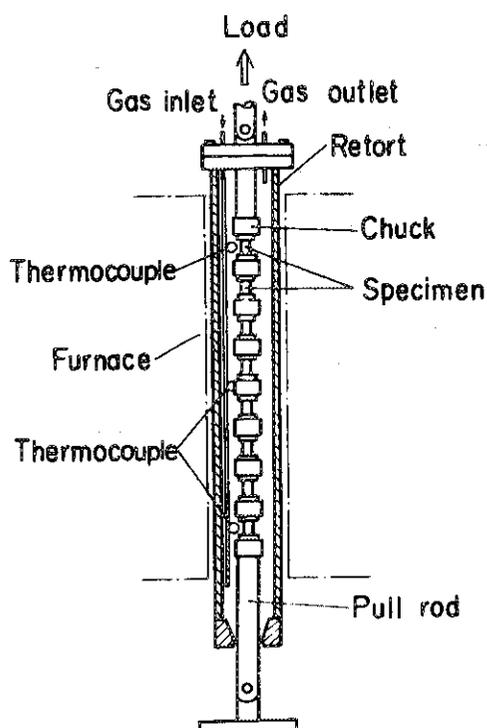


Fig. 18 A Retort in a Creep Test Machine

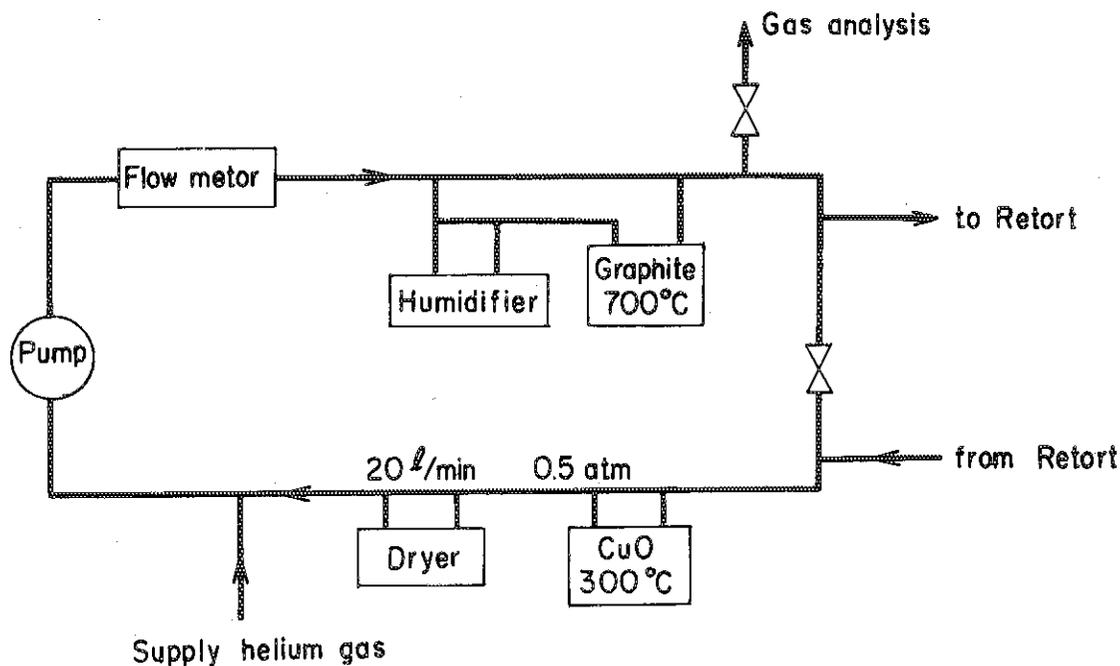


Fig. 19 Helium Gas Loop

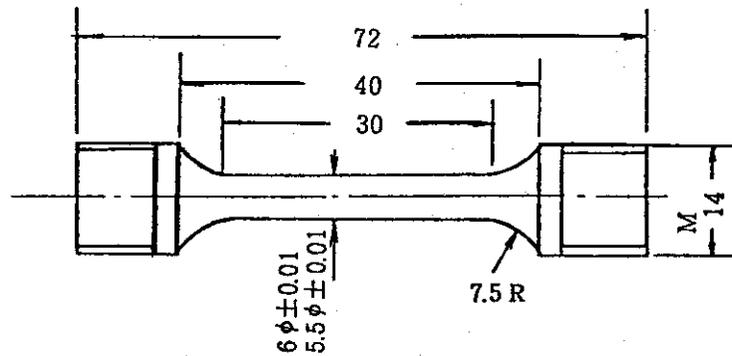


Fig. 20 Dimensions of a Creep Test Piece for Nb-1% Zr Rod Specimens

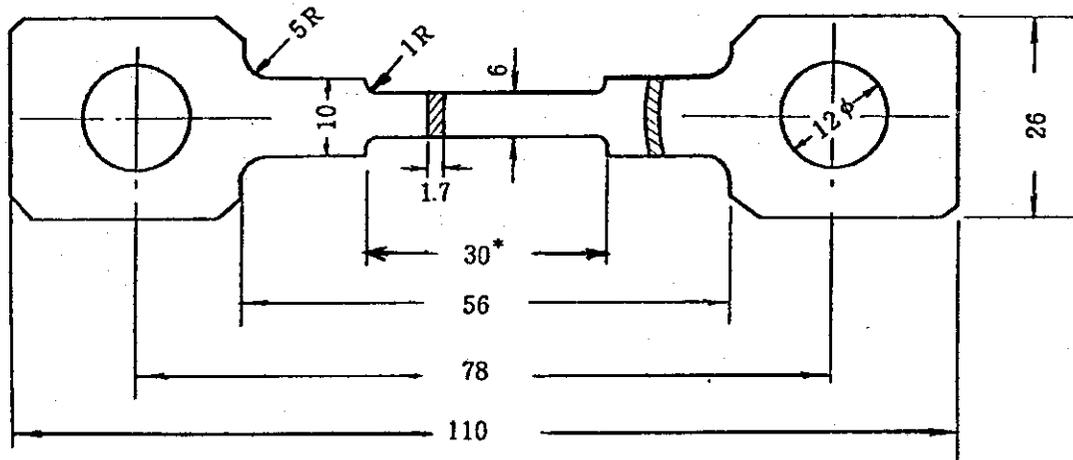


Fig. 21 Dimensions of a Creep Test Piece for Nb-1% Zr Tube Specimens

Table 8 Results of Creep Test

T. P. No.	DIA. (mm)	STRESS (kg/mm <sup>2</sup> )	RUPTURE TIME (hr)	MIN. CREEP TIME (%/hr)	ELONGATION (%)
A4	5.5	11.0	6.7*	-	42.3
B5	5.5	11.0	6.7*	-	37.0
C5	5.5	11.0	6.9*	-	38.3
D5	5.5	11.0	( 5.6*)	-	(22.3)
A5	5.5	10.0	9.2	-	36.8
A6	5.5	10.0	11.3	-	33.2
B6	5.5	10.0	15.3	-	32.0
B7	5.5	10.0	26.3	0.14	23.6
B1	6	9.2	37.4*	0.12	33.4
C1	6	9.2	(36.9*)	0.16	(21.6)
D1	6	9.2	(25.5*)	0.28	(37.5)
E1	6	9.2	(24.9*)	0.27	(33.0)
G4	6	8.4	186	0.027	32.1
B3	6	8.4	105.3	0.083	32.8
C2	6	8.4	124.3	0.047	36.0
C3	6	8.4	79.3	0.09	32.0
E8	6	8.0	336	0.015	33.0
C6	5.5	7.0	(1956)	0.0038	(11.9)
C7	5.5	7.0	(1956)	0.0030	( 7.6)
D7	5.5	7.0	(1956)	0.0030	( 6.9)
E5	5.5	7.0	(1956)	0.0009	( 3.5)
B4	6	5.9	(1959)	0.00044	( 1.84)
C4	6	5.9	(1959)	0.00065	( 2.24)
D2	6	5.9	(1959)	0.00065	( 2.10)
D3	6	5.9	(1959)	0.00044	( 1.81)
E6	5.5	5.0	(1966)	0.00007	( 0.87)
E7	5.5	5.0	(1966)	0.000075	( 0.88)
F5	5.5	5.0	(1966)	0.00014	( 1.01)
F1	6	4.2	(1966)	0.00014	( 0.78)
F2	6	4.2	(1966)	0.00014	( 0.79)
G1	6	4.2	(1966)	0.00014	( 0.68)
F6	5.5	3.5	(1966)	0.00005	( 0.48)
G5	5.5	3.5	(1966)	0.00005	( 0.47)
G6	5.5	3.5	(1966)	0.00005	( 0.41)
F3	6	3.0	(1966)	0.00009	( 0.43)
G2	6	3.0	(1966)	0.00008	( 0.38)
G3	6	3.0	(1966)	0.0001	( 0.36)
1		8.4	( 795)	0.0018	( 2.4 )
2		8.4	( 795)	0.00077	( 1.27)
3		11.0	81	-	(16.7 )
4		10.0	228	-	(21.3 )

( ) : interrupted data

\* : temperature corrected

Table 7 Creep Stress and Operating Time at Each Retort

Retort No.	1976/SEP.	OCT.	NOV.	DEC.	1977/JAN.
1	11.0, 9.2 (26)	10.0, 8.4 (186)	Tube (11.0, 10.0, 8.4) (795)		
2	8.0 (336)	17.0, 5.9 * (1959)			
3		5.0, 4.2 * (1966)			
4		3.5, 3.0 * (1966)			

Stress (kg/mm<sup>2</sup>)  
Time (hrs)

\*(Comment) Two stress levels were tested at a time in one retort using different diameters of the specimens

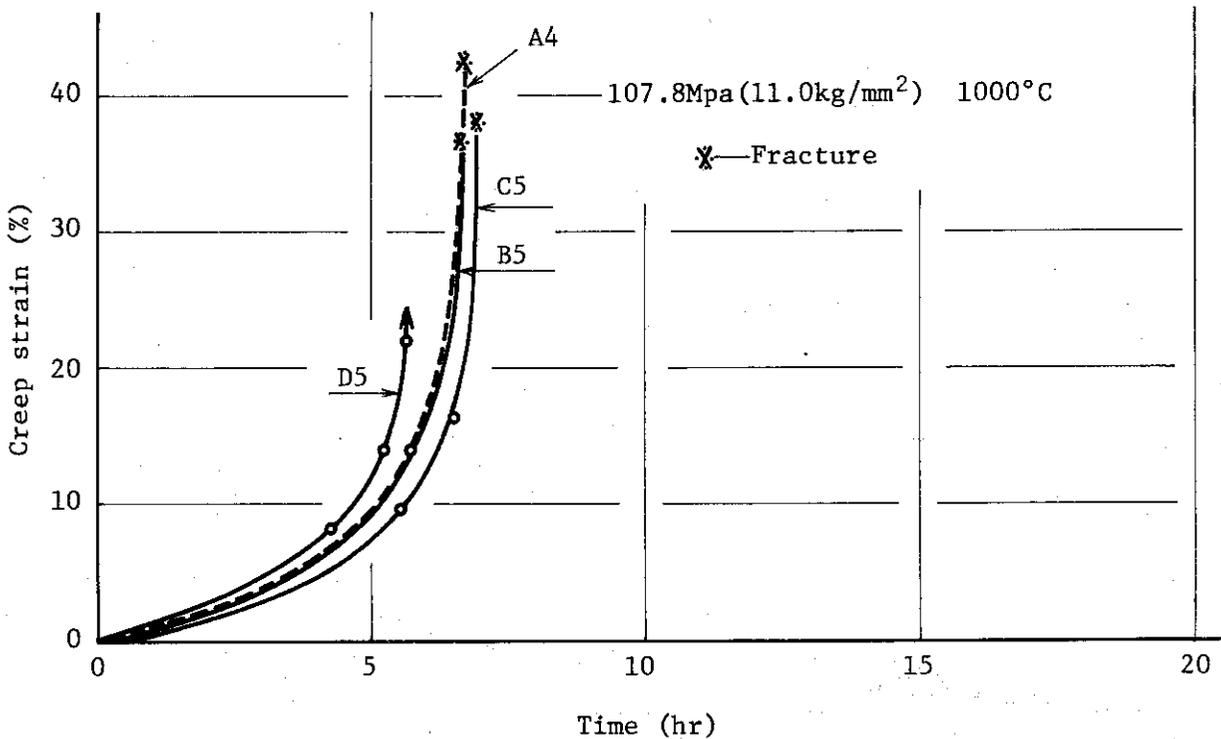


Fig. 22 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 11.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

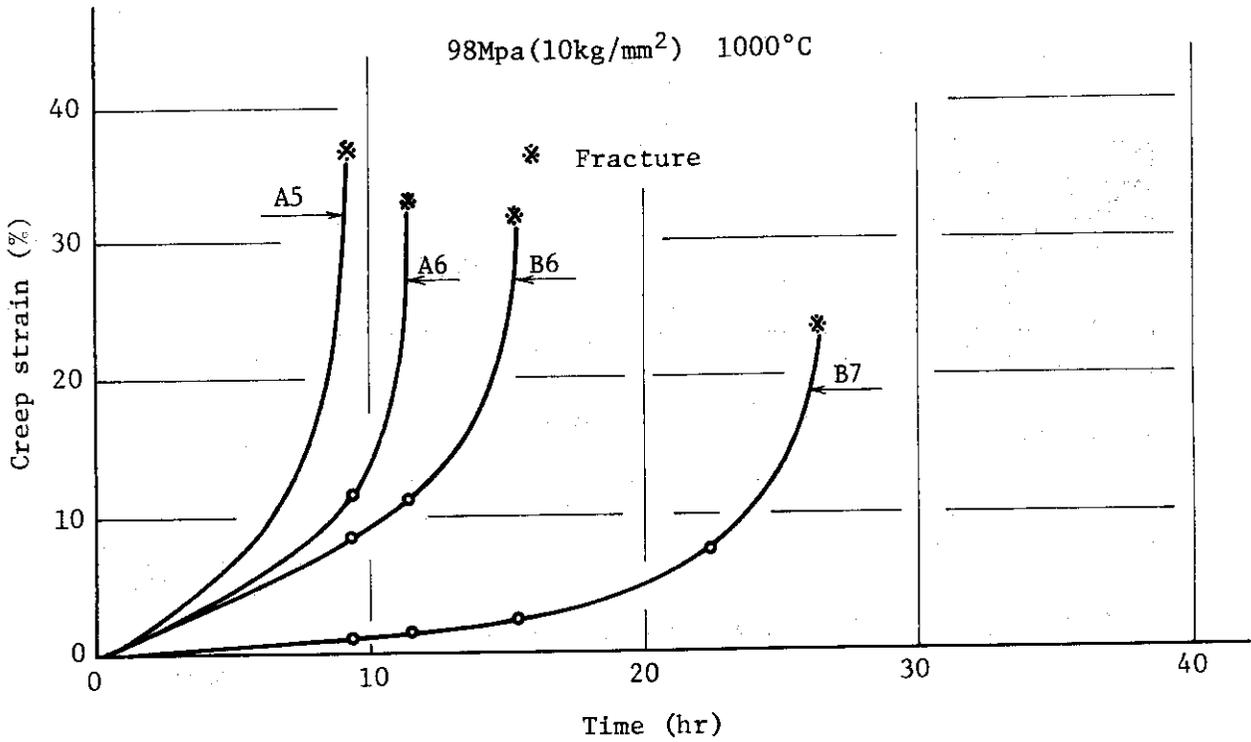


Fig. 23 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 10.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

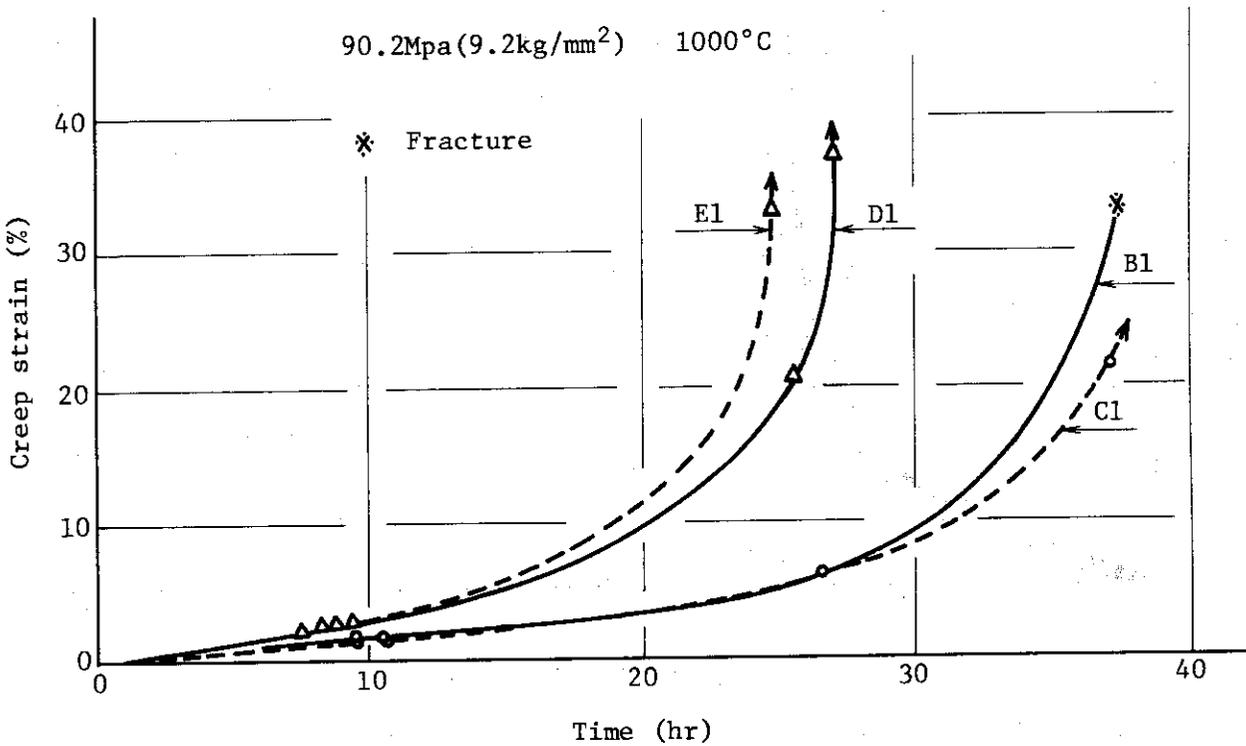


Fig. 24 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 9.2 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

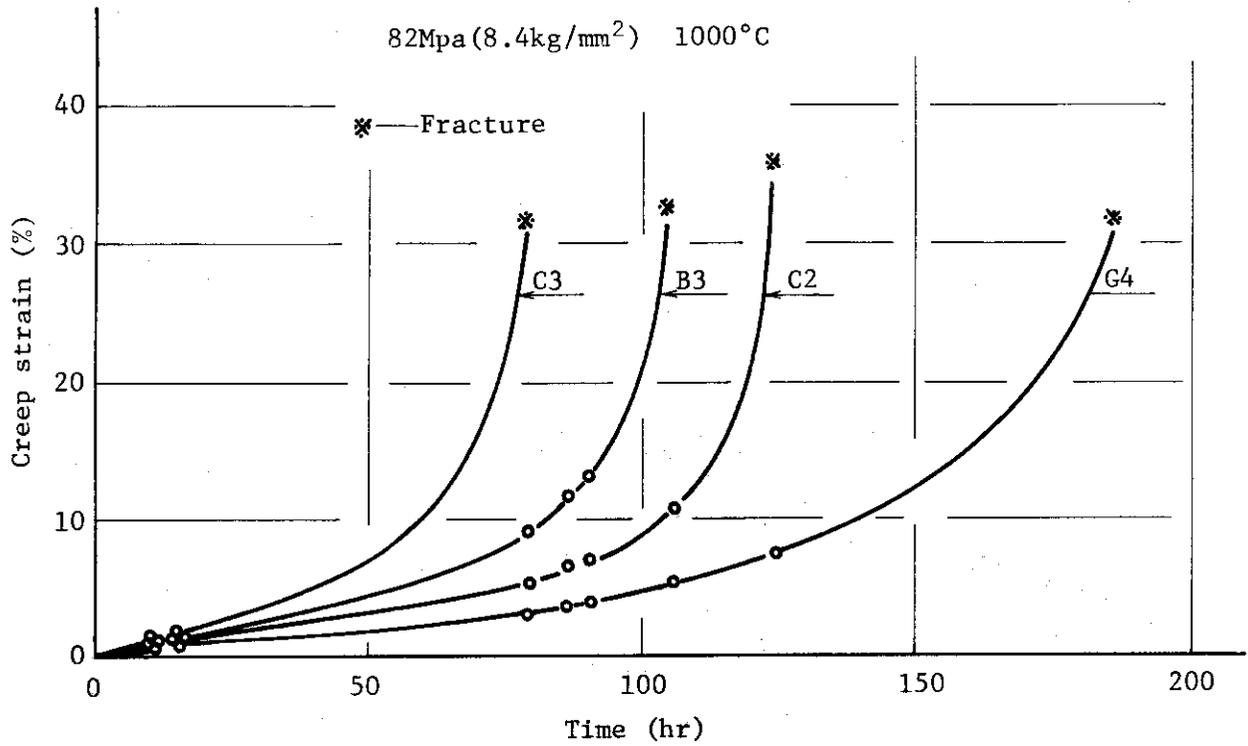


Fig. 25 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 8.4 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

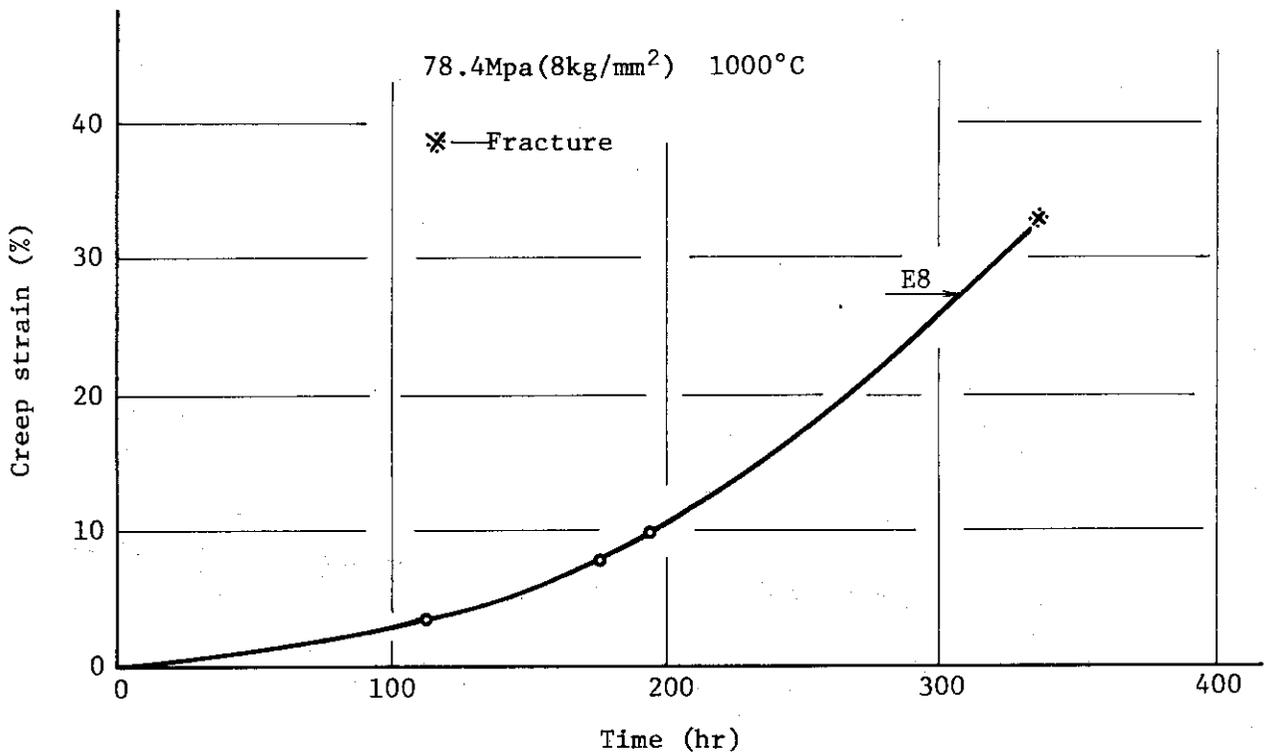


Fig. 26 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 8.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

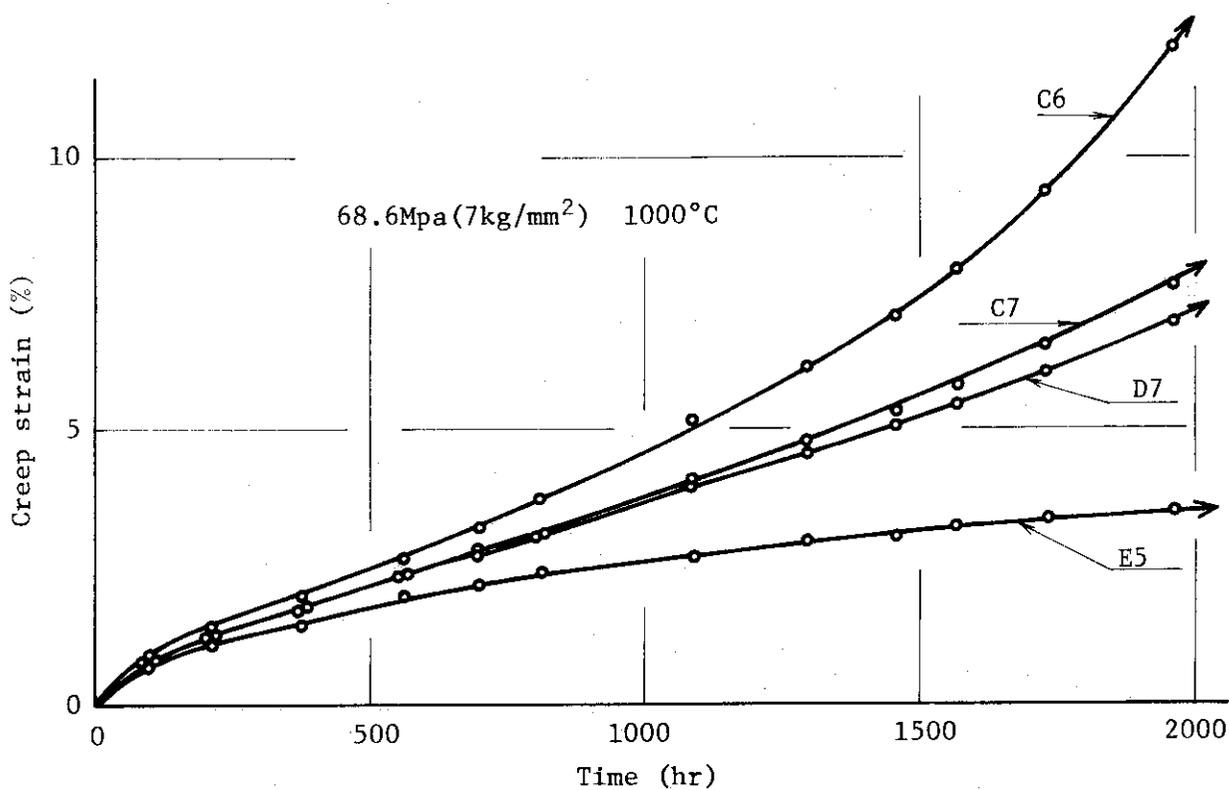


Fig. 27 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 7.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

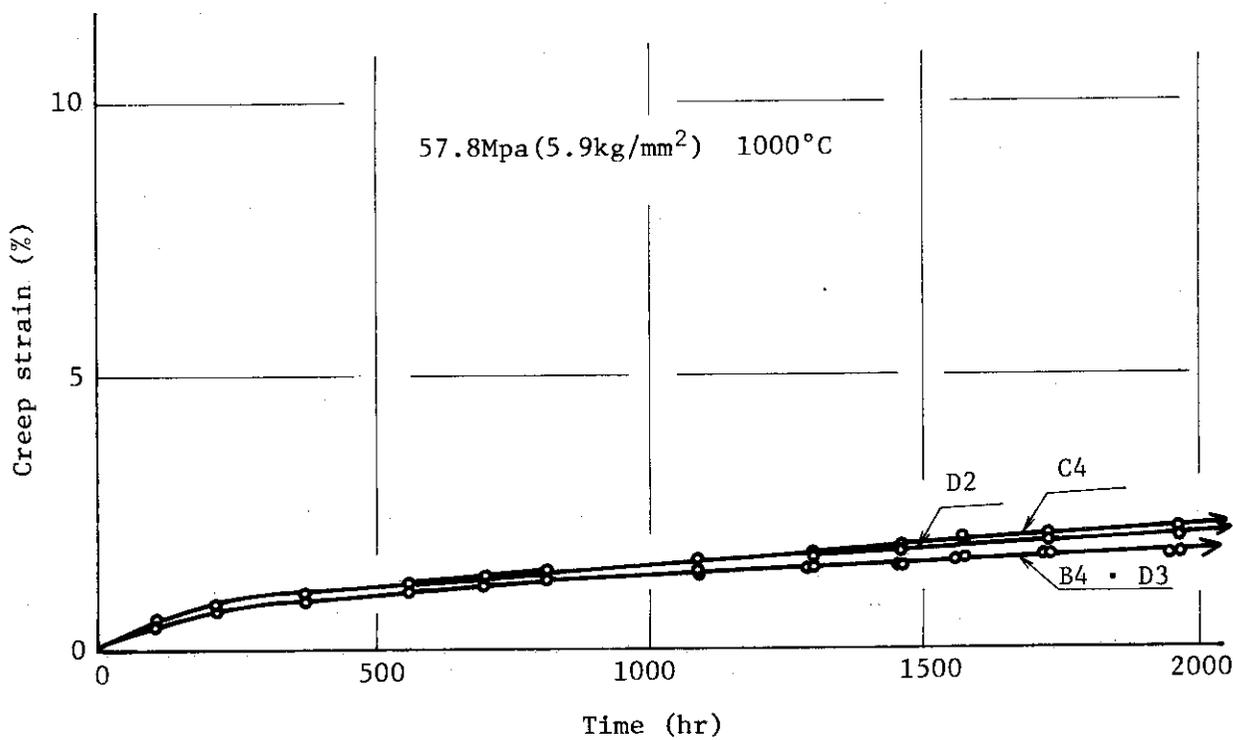


Fig. 28 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 5.9 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

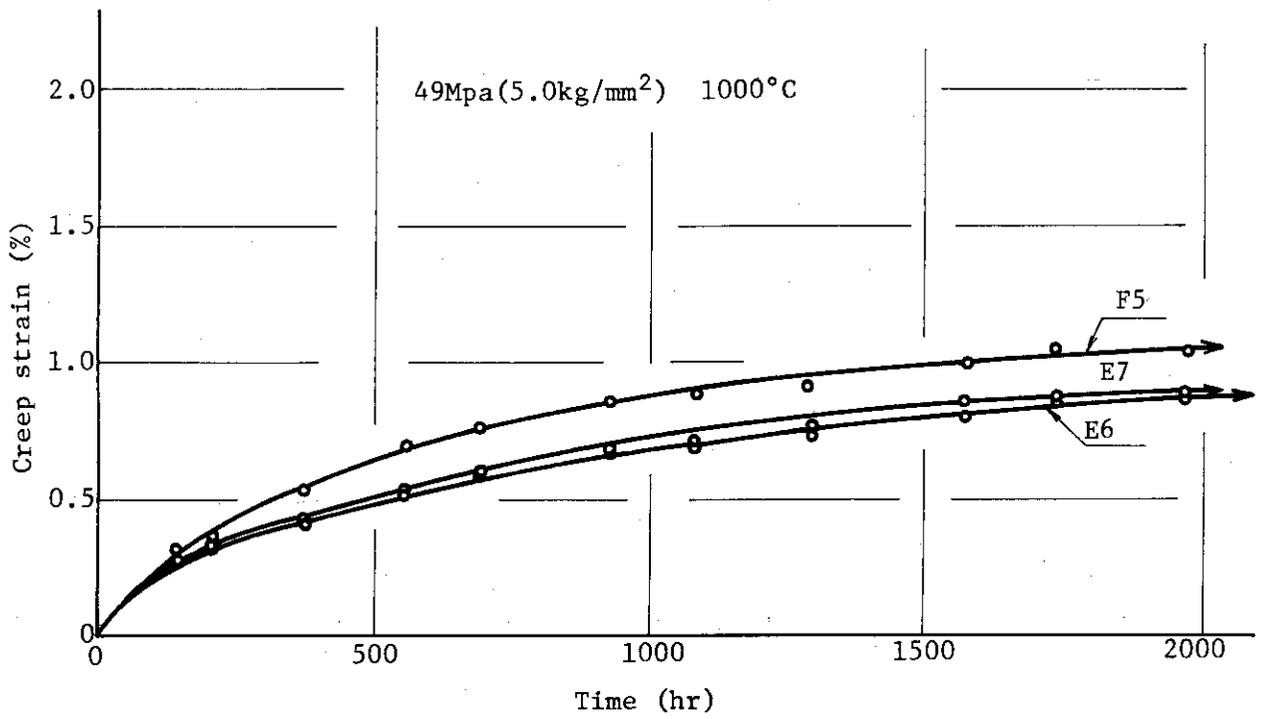


Fig. 29 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 5.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

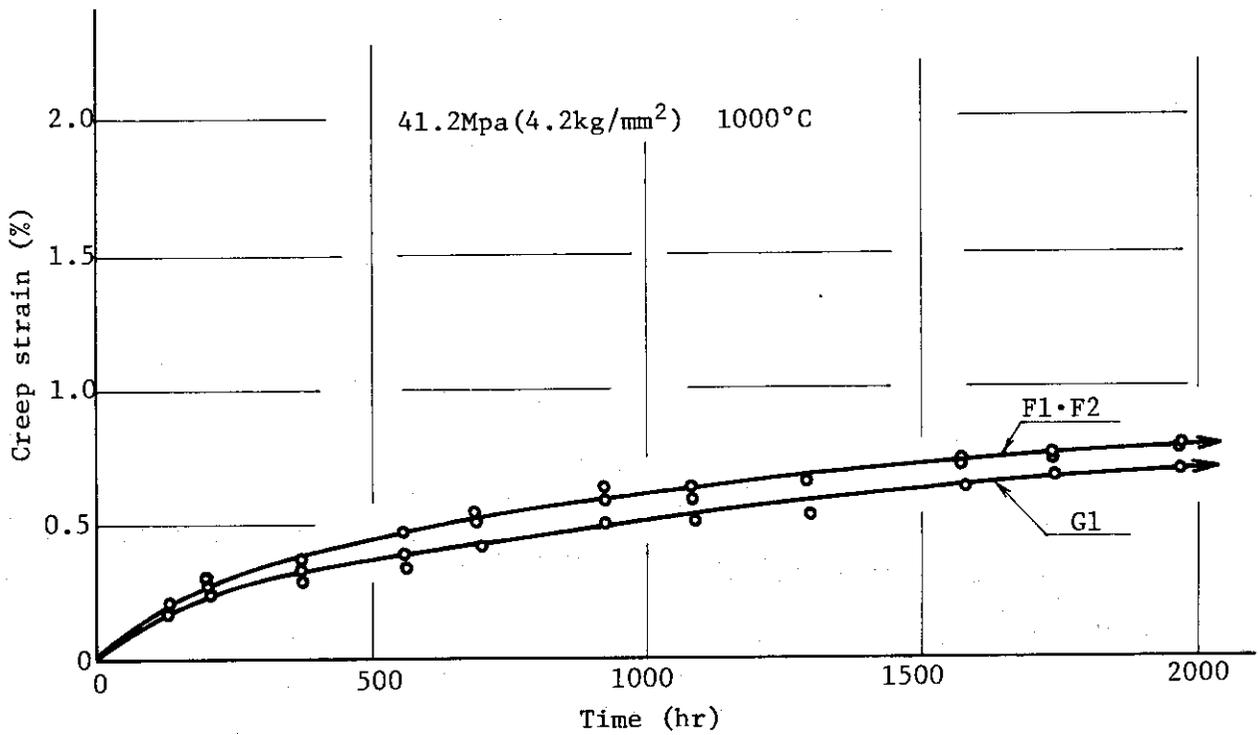


Fig. 30 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 4.2 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

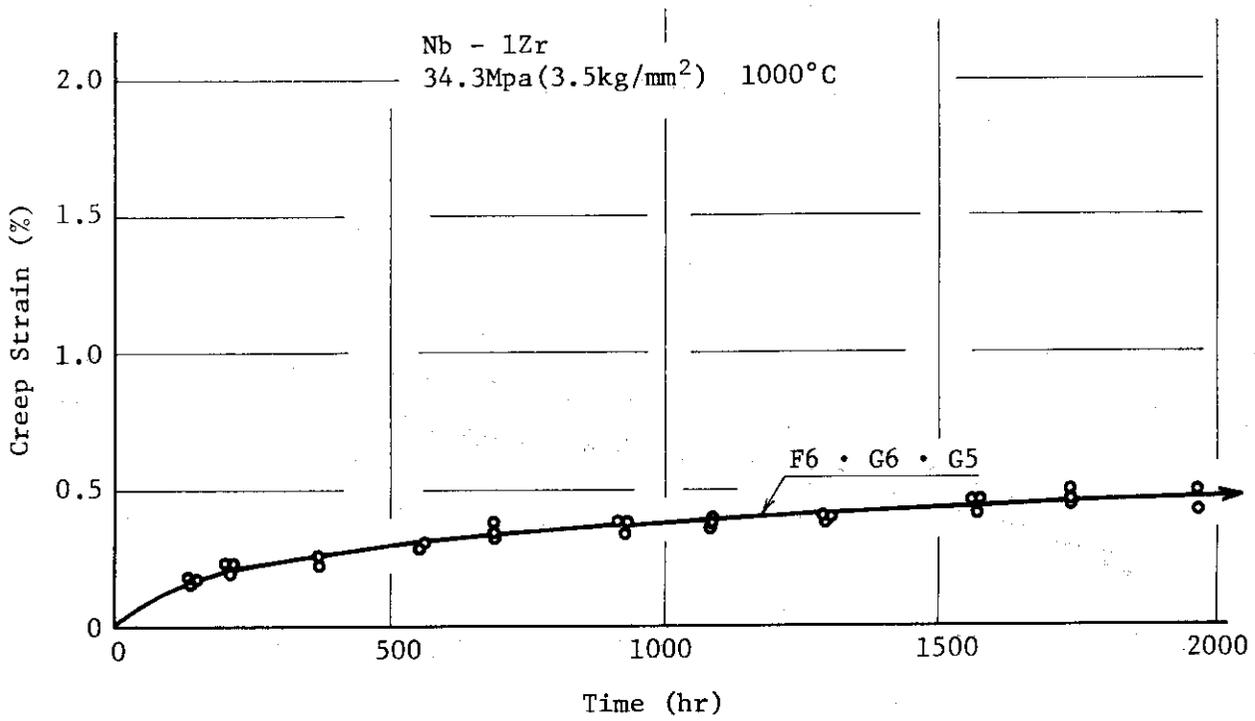


Fig. 31 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 3.5 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

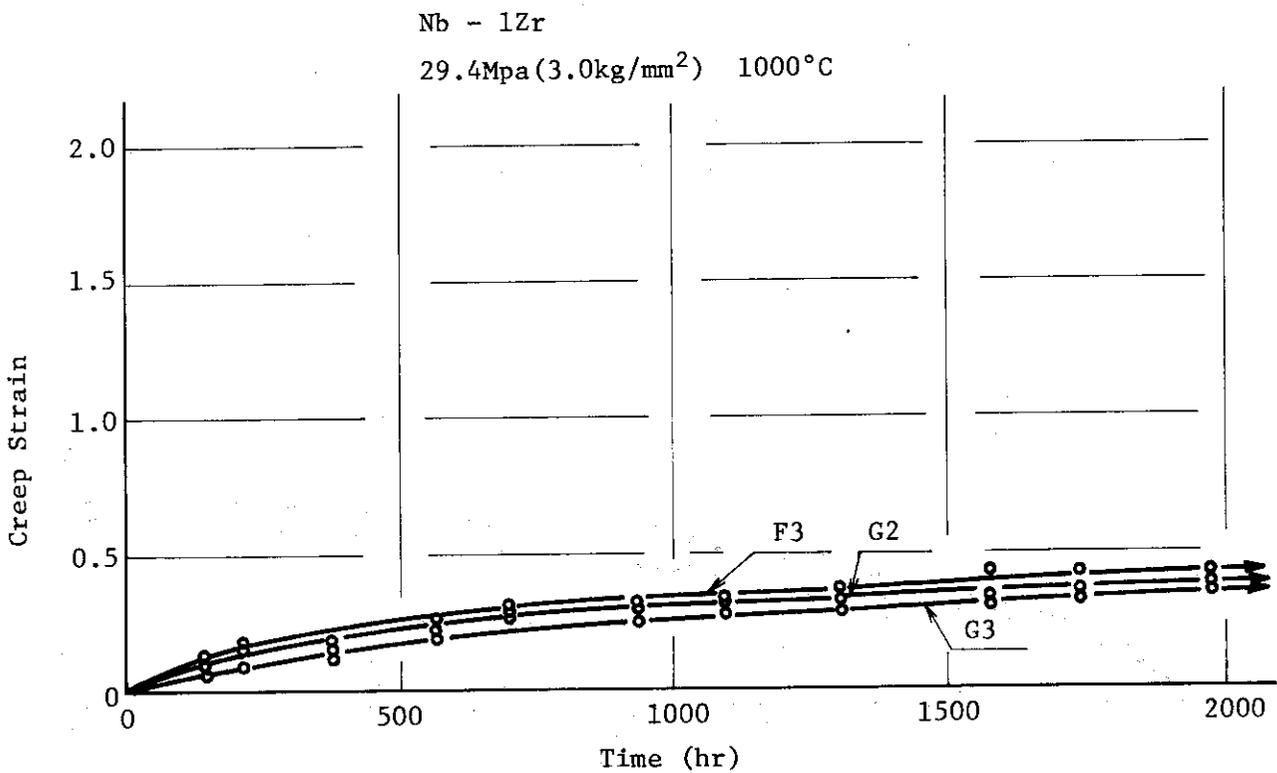


Fig. 32 Creep Curves for Nb-1%Zr Rod Specimens at 3.0 kg/mm<sup>2</sup>, 1000°C

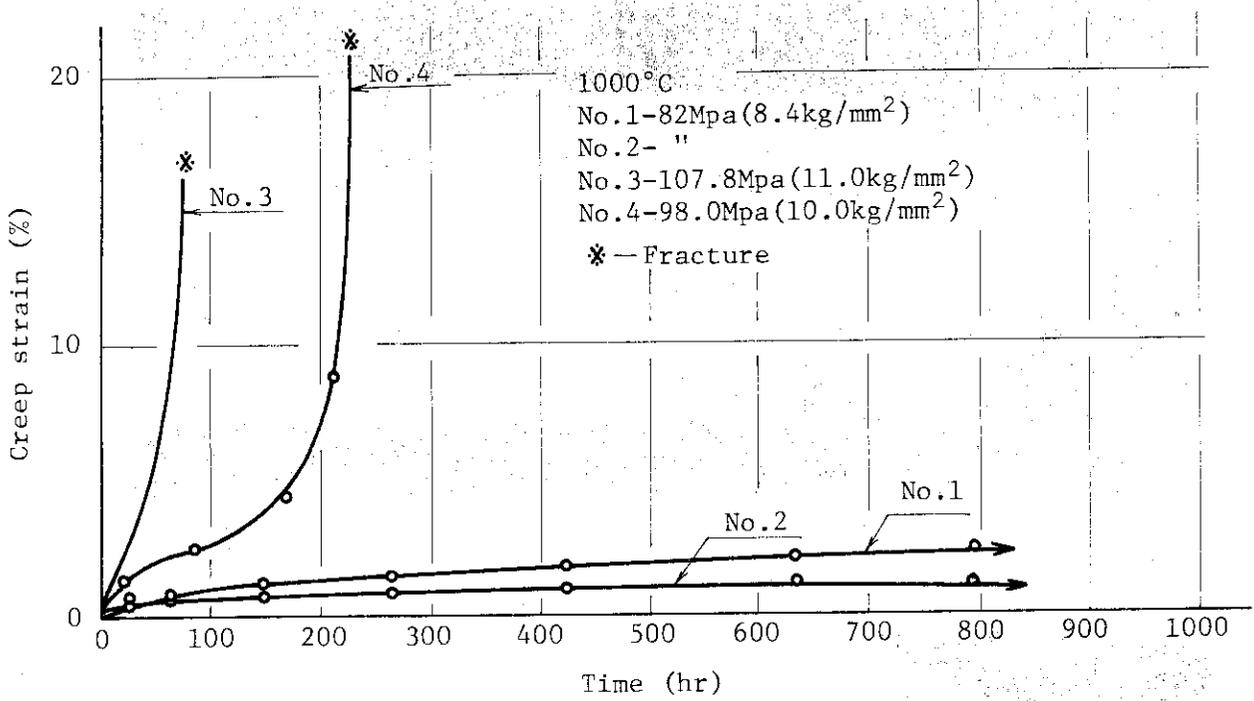


Fig. 33 Creep Curves for Nb-1%Zr Tube Specimens at 1000°C

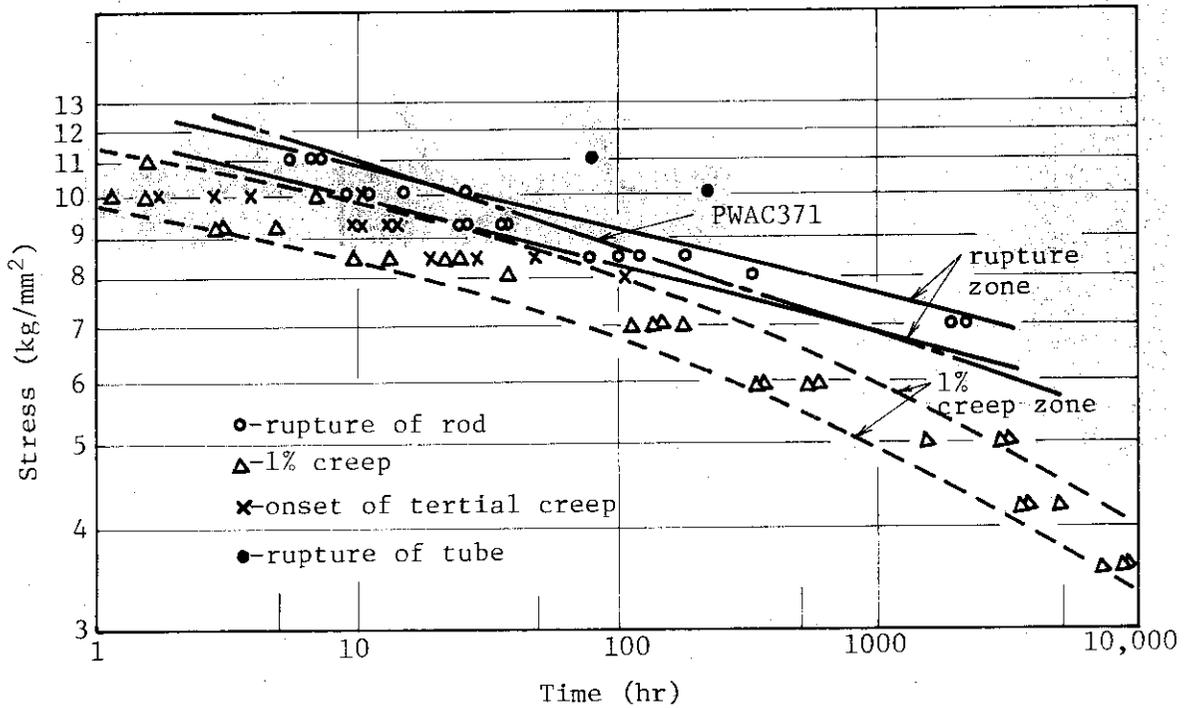


Fig. 34 Creep Characteristics for Nb-1%Zr Alloy at 1000°C

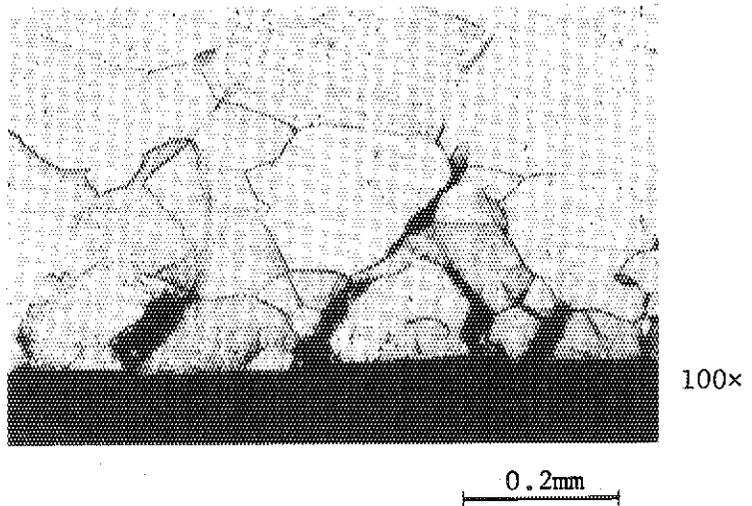
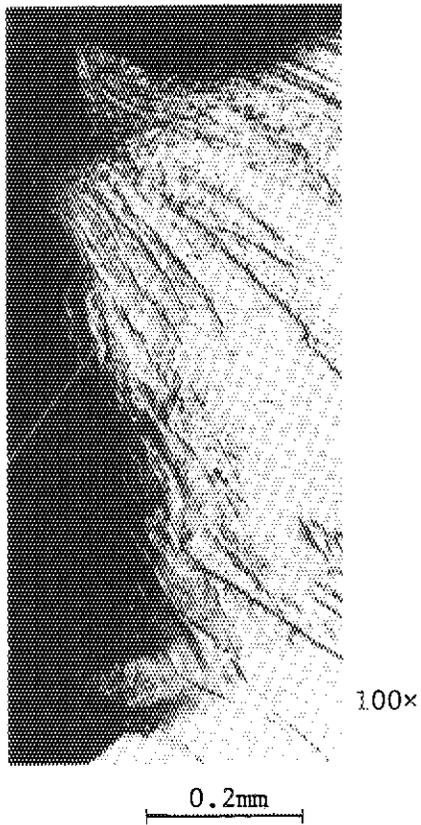
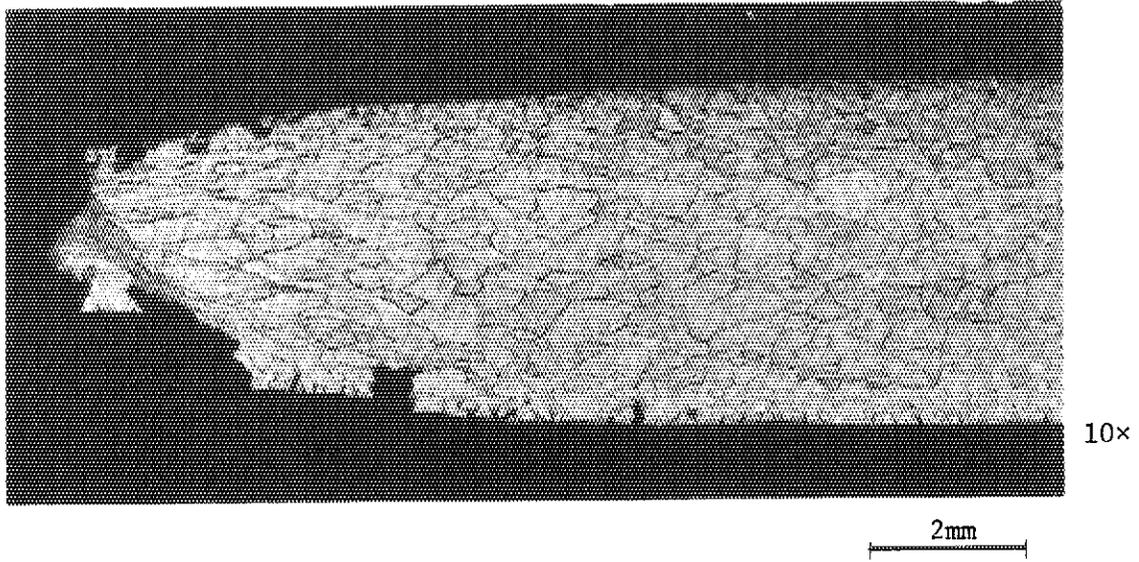
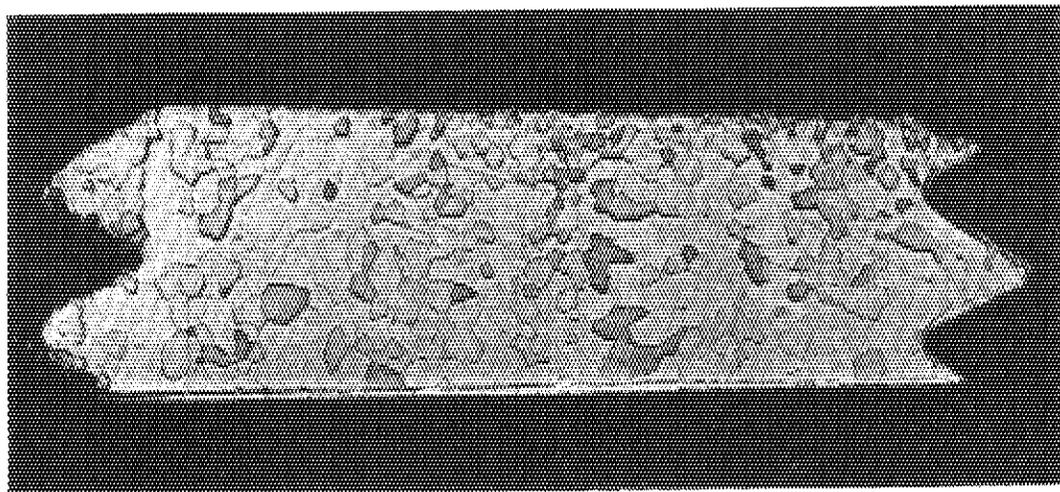
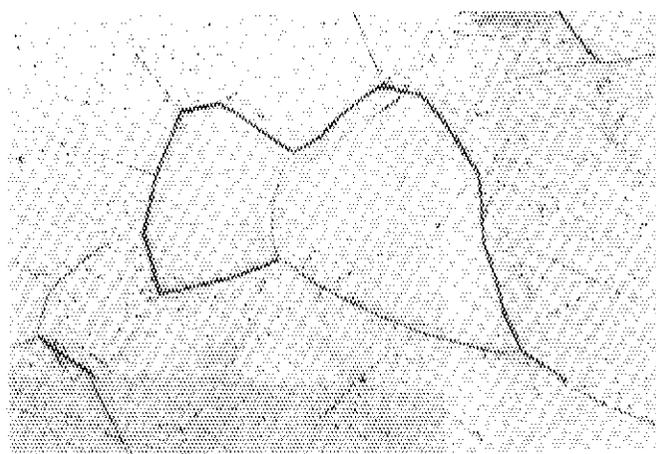


Photo 5 Structure of a Nb-1% Zr Rod Specimen after Rupture at  $8.4 \text{ kg/mm}^2$ , 186hrs



10x

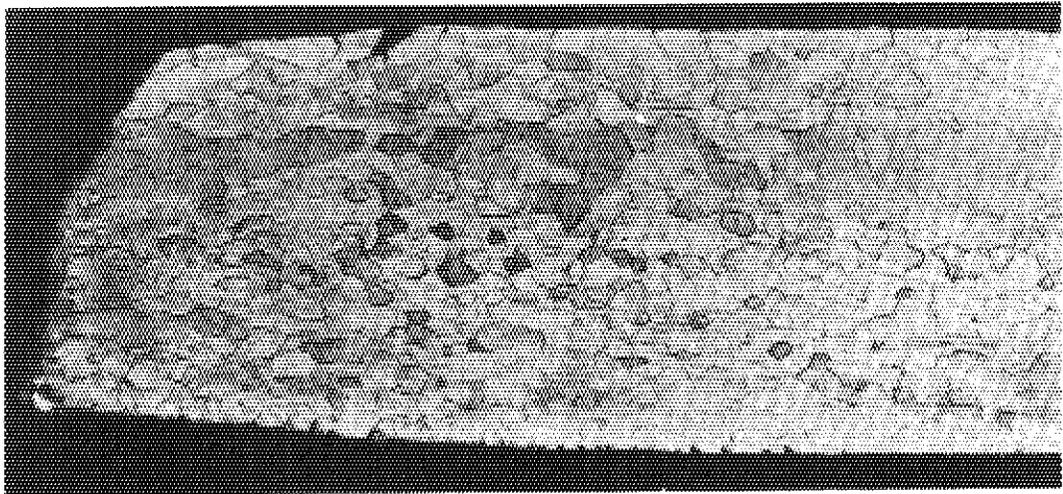
2mm



100x

0.2mm

Photo 6 Pre-Test Structure of a Nb-1% Zr Rod Specimen



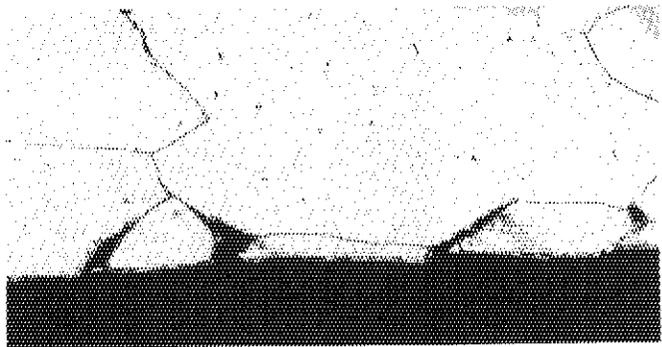
10×



100×

0.2mm

2mm



100×

0.2mm

Photo 7 Structure of a Nb-1% Zr Tube Specimen after Rupture at 10 kg/mm<sup>2</sup>, 228hrs

## 5. お わ り に

Nb-1%Zr 管のキャプセル内筒としての最高使用条件、1000℃、3000 hrs における破断応力はクリープ試験の結果約  $6 \text{ kg/mm}^2$  と推定される。また 1000℃における管の降伏応力は引張試験の結果、同じく約  $6 \text{ kg/mm}^2$  と推定される。これに対してたとえばガススイープキャプセルの内筒管内部に生ずる一次応力は約  $0.6 \text{ kg/mm}^2$  であるので Nb-1%Zr を用いる場合強度は十分確保されていることがわかる。

最後に本報告書を作成するにあたり、日本原子力研究所東海研究所材料物性研究室 白石健介氏、<sup>(註)</sup>同大洗研究所照射一課 松永朔郎氏、及び八巻治恵氏、金属材料研究所 横井 信氏から適切な助言と協力をいただいたので、ここに深く感謝の意を表します。

## 引 用 文 献

- 1) C.C. Bigelow, PWAC-371 (1962) "Design and Testing of Columbium-1% Zirconium Reactor Pressure Vessels"
- 2) G.H. Rowe, Columbium Metallurgy (1961) "Recovery and Recrystallization of Columbium-1% Zirconium Alloy"
- 3) D.P. Gregory, Columbium Metallurgy (1961) "Mechanism of Creep in Columbium and Columbium -1% Zirconium Alloy"
- 4) R.W. Armstrong, Refractory Metals and Alloys II (1962) "Mechanism of Alloy Strengthening in Refractory Metals"
- 5) 高温構造安全技術研究組合, ISES 7705 "ガススイープキャプセル用ニオブ合金の高温クリープ強度に関する調査"

---

注) 現在 東海研究所 JT-60 第2開発室  
元 材料物性研究室長