

JAERI-M

8296

燃料コンパクト照射キャップセル  
〔74F-2A〕の故障報告

1979年7月

中田 宏勝・野村 靖・伊藤 治彦・荒瀬 功  
村岡 進・酒井 陽之・吉田 義雄

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

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

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

燃料コンパクト照射キャップセル〔74F-2A〕の故障報告

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

中田 宏勝・野村 靖<sup>+</sup>・伊藤 治彦・荒瀬 功  
村岡 進・酒井 陽之・吉田 義雄<sup>++</sup>

( 1979 年 5 月 31 日受理 )

74F-2A キャップセルは、 JMTR において多目的高温ガス炉用コンパクト状被覆粒子燃料を 1600°C で照射するためのものであったが、照射開始直後原子炉出力が 40MW に到達したところでキャップセル内部の温度が急激に上昇するとともに、約 1 時間後の出力低下時にコンパクトを密封する内筒から核分裂生成ガスが漏洩したため、照射を中止し、原子炉から取り出すこととなったものである。各種の調査・検討の結果、これは、コンパクトを収納する黒鉛スリーブの温度が、ある特定温度以上になった時、同スリーブ表面に溶射したモリブデンが急激にガスを発生するために生じたものであることが判明した。

本報告では、温度上昇および核分裂生成ガス漏洩時の状況、キャップセルの設計・製作・検査上の観点から異常現象の検討を行った結果、ホットセル内に於ける解体点検の結果、キャップセルの各種構造材の加熱時ガス発生挙動を調べた結果、およびこれらの調査結果から推定される故障原因と同種キャップセルに対する今後の対策、などについて述べる。

+ ) 現、日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター安全解析部

++ ) 現、日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター実用燃料試験室

Failure of the capsule 74F-2A  
for fuel compacts irradiation

Hirokatsu NAKATA , Yasushi NOMURA<sup>+</sup>  
Haruhiko ITOH , Isao ARASE  
Susumu MURAOKA , Haruyuki SAKAI  
and Yoshio YOSHIDA<sup>++</sup>

Division of JMTR Project, Oarai Research Establishment, JAERI

( Received May 31, 1979 )

Capsule 74F-2A is for irradiation at 1600°C for VHTR fuel compacts in JMTR. However, an irradiation with the capsule was suspended and the capsule was taken out, because the compacts temperature suddenly rose when the reactor power had reached to 40 MW and FPs gas was released from the compacts container during a reactor power decrease about 1-hour after the temperature rise.

Subsequent examinations showed that the trouble was caused by sudden gas evolution from the flame-sprayed molybdenum coating on a graphite sleeve containing fuel compacts when the sleeve temperature exceeded a certain level.

Described are the situation of temperature rise and FPs gas release, the abnormal phenomena viewed in design, fabrication and inspection of the capsule, the results of its dismounting in a hot cell, the gas releases from various capsule structural materials at elevated temperatures, and the cause as above revealed, and countermeasures to be taken in future.

Keywords: Irradiation Capsule, Coated Particle, Fuel Compact,  
VHTR, Fission Products, Graphite Sleeve, Flame-sprayed  
Coating

---

+ ) Division of Reactor Safety Evaluation, Tokai Research  
Establishment, JAERI

++ ) Division of Reactor Fuel Examination, Tokai Research  
Establishment, JAERI

## 目 次

|                               |    |
|-------------------------------|----|
| 1 概 要 .....                   | 1  |
| 2 故 障 経 過 .....               | 2  |
| 3 74F-2Aキャップセルの設計・製作・検査 ..... | 8  |
| 4 照射後試験 .....                 | 25 |
| 5 キャップセル構造材加熱試験 .....         | 37 |
| 6 故障原因の推定と今後の対策 .....         | 42 |
| む す び .....                   | 45 |
| 文 献 .....                     | 45 |

Contents

|   |    |
|---|----|
| 1 Summary -----                                       | 1  |
| 2 Situation of failure -----                          | 2  |
| 3 Design, fabrication and inspection of capsule ----- | 8  |
| 4 Post-irradiation examination -----                  | 25 |
| 5 Heating test on capsule structural materials -----  | 37 |
| 6 Cause and countermeasures -----                     | 42 |
| Conclusion -----                                      | 45 |
| References -----                                      | 45 |

## 図 表 目 次

|   |    |
|---|----|
| Table 1 74 F-2A 温度履歴 .....                  | 4  |
| 2 照射試験（被覆粒子燃料コンパクト）諸元 .....                 | 15 |
| 3 74 F-2A キャップセル照射条件 .....                  | 19 |
| 4 74 F-2A キャップセル構造材物性値 .....                | 20 |
| 5 74 F-2A キャップセル構造材加熱試験結果 .....             | 39 |
| 6 X線回折条件 .....                              | 38 |
| 7 X線回折結果 .....                              | 41 |
| 8 黒鉛等標準脱ガス手順 .....                          | 44 |
| <br>Fig. 1 74 F-2A キャップセル装置接続図 .....        | 4  |
| 2 (a) 原子炉出力上昇時の試料温度 .....                   | 5  |
| 2 (b) 74 F-2A キャップセル 40MW時温度指示 .....        | 6  |
| 3 74 F-2A 温度上昇 .....                        | 6  |
| 4 炉プール廻りアエリアモニター指示 .....                    | 7  |
| 5 照射試料（被覆粒子燃料／コンパクト）寸法 .....                | 16 |
| 6 74 F-2A 構造概要 .....                        | 17 |
| 7 74 F-2A キャップセルの断面構造と寸法 .....              | 19 |
| 8 74 F-2A キャップセル径方向温度分布（50MW時） .....        | 20 |
| 9 74 F-2A キャップセルの構成部品写真 .....               | 21 |
| 10 74 F-2A キャップセル完成後外筒部写真 .....             | 21 |
| 11 74 F-2A キャップセル完成後全体写真 .....              | 22 |
| 12 74 F-2A キャップセル曲げ図（実績） .....              | 22 |
| 13 74 F-2A キャップセル出力上昇中温度 .....              | 23 |
| 14 74 F-2A キャップセル 40MW時キャップセル中心部温度分布 .....  | 23 |
| 15 74 F-2A キャップセル径方向温度分布（30MW, 40MW時） ..... | 24 |
| 16 74 F-2A 解体点検結果 .....                     | 28 |
| 17 74 F-2A 热電対溶着部観察結果 .....                 | 29 |
| 18 金相試料採取位置 .....                           | 30 |
| 19 热電対シースの内外筒間折損部写真 .....                   | 31 |
| 20 热電対シースの再結晶部写真 .....                      | 31 |
| 21 内筒（Nb-1%Zr），Mo溶射層および黒鉛スリーブ写真 .....       | 32 |
| 22 Mo溶射層写真 .....                            | 32 |
| 23 热電対シースの溶融破損部断面写真 .....                   | 33 |
| 24 热電対シース溶融部と热電対保持箇写真 .....                 | 33 |

|         |                                  |     |
|---------|----------------------------------|-----|
| Fig. 25 | No. 2 热電対シース先端の溶融破損部縦断面写真        | 3 4 |
| 26      | Moスリーブの炭化物形成層( $Mo_2C + MoC$ )写真 | 3 4 |
| 27      | 炉中心位置热電対シースの溶融破損部写真              | 3 5 |
| 28      | No. 3 热電対先端部断面写真                 | 3 6 |
| 29      | 加热試験装置概略図                        | 4 0 |
| 30      | 74F-2Aキャップセル構造材ガス放出挙動            | 4 0 |
| 31      | 74F-2AキャップセルFPガス漏洩経路             | 4 4 |

## 1. 概 要

74F-2Aキャップセルは、多目的高温ガス炉用コンパクト状被覆粒子燃料を JMTRにおいて 1600°Cで照射するためのものであったが、照射開始直後である第42サイクル出力上昇途中の 1977年12月13日午後10時過ぎ、原子炉出力が40MWに到達したところで、それまでは正常であったキャップセル内部の温度が急激に上昇し、約1時間後の出力低下時にコンパクトを収納する内筒から核分裂生成ガスが漏洩したため、直ちに照射を中止し、原子炉から取り出したものである。

キャップセルは、黒鉛製スリーブに収納した12個のコンパクト状燃料をニオブ合金製内筒に封入し、更にステンレス鋼製外筒に組込んだ構造をしており、コンパクト中心およびスリーブ内には温度測定のため、内筒上部端栓を貫通してシーズ型熱電対が挿入されるとともに、内外筒間のヘリウムガス圧力を調節してコンパクト温度を調整するための制御管が外筒に取りつけられている。

コンパクトは内外径がそれぞれ8mmと24mmで、高さ40mmの円筒状をしており、外径780 $\mu\text{m}$ の被覆粒子が22%の割合で含まれている。また各コンパクトには8%の濃縮度でU-235が約0.77g含まれている。

本キャップセルは、JMTRの燃料に接した反射体領域第二層目のBe反射体に明けられた内径42mmの照射孔に挿入され、50MW運転時にコンパクトの単位長さ当たり546Wの核分裂発熱があり、内外筒間のヘリウムガスの圧力調節することによりコンパクトの温度を1600°Cに維持して、第42サイクルから第45サイクルまで照射される計画のものであった。

しかし、初回出力上昇途中の上記時刻頃、原子炉出力が40MWに到達した直後、温度異常と核分裂生成ガスの漏洩を引起したため照射を中止せざるを得なくなったものである。各種の調査および検討の結果、これは、原子炉出力が40MWに達し、黒鉛スリーブの温度が約1000°Cになった時、同スリーブ表面に溶射コーティングされたモリブデンから急激にガスが発生し、スリーブと内筒間のヘリウムガスギャップに充満したことが原因となって、コンパクトおよびスリーブの温度が急激に上昇するとともに内筒内圧が過大に上昇したため、中心熱電対シーズの溶融と内筒上部端栓の変形とともに同熱電対シーズの折損を来たし、内筒内の核分裂生成ガスがシーズ内を通って漏洩したものであることが判明した。

本報告では、温度異常および核分裂生成ガス漏洩時の状況をのべた(第2章)のち、本キャップセルの設計、製作および検査上の観点から異常現象の検討を行う(第3章)。次いで、ホットセル内に於ける解体点検の結果(第4章)とキャップセルの各種構造材の加熱時ガス発生状況(第5章)から推定される故障原因と同種キャップセルに対する今後の対策について述べる。(第6章)。

## 2. 故障経過

### 2.1 炉内装荷

74F-2Aキャップセルは、第42サイクル準備中の1977年9月12日にJMTR反射体領域第2層目のL-12照射孔に装荷され、No.14ノズルから熱電対等の保護管が引出された。Fig. 1に示すように保護管上方には更に炉ループ内案内管が接続され、熱電対および真空温度制御管が炉廻りの真空温度制御装置（No.77-2）につなぎ込まれた。保護管内には $1.5 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ の圧力で、またキャップセル内には $0.4 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ の圧力でヘリウムガスが充てんされた。キャップセル内に空気が少しでも混入していると、キャップセル内部の温度が異常に上昇があるので、原子炉起動直前を含め合計3回のガス置換が行われた。

### 2.2 故障の発生

1977年12月13日9時17分に原子炉は起動し、所定のステップに従って出力上昇が行われ、同日16時23分に熱出力30MWに達した。この時点までの、本キャップセルの各熱電対指示はTable 1, Fig. 2およびFig. 3に示すようにほぼ設計どおりであり、特に異常は認められない。

次いで、同日21時55分から再度出力上昇を行い同日22時19分原子炉出力40MWに達した。この時、40MW飽和値に安定しようとしていた各熱電対指示が、全て急に上昇を始め、5本の熱電対のうちキャップセル中心部に挿入されている4本のタンクステン＝レニウム熱電対の指示値が $1500 \sim 1900^\circ\text{C}$ の範囲で激しく振動を始めた。記録計の応答を遅くしたところ各熱電対指示は安定し、Table 1およびFig. 2に示すような値を示した。各熱電対の起電力、線間抵抗および絶縁抵抗を測定したところ異常は認められなかったために、何らかの原因によりキャップセル内部が異常に温度が上昇しているものであると判断された。同日23時の時点においてキャップセル中央部に挿入された熱電対は最高 $1750^\circ\text{C}$ を指示しており、この状態のまま50MW運転を行うことは不可能であるとの判断により、熱電対指示の様子を見るため一たん30MWへ出力低下することとした。

1977年12月13日23時8分に出力降下を開始した。出力降下途中の、23時17分頃、炉ホール廻り架台の東側手摺に取りつけてあり、本キャップセルの真空温度制御装置から3m程のところにあるエリアモニタの指示が上昇し、 $0.8 \text{ mR/H}$ のアラーム点をこえた。この時点の同装置周辺の空間線量率は、盤裏面で最高 $30 \text{ mR/H}$ に達していた。キャップセル破損により、核分裂生成ガスが真空温度制御管を通って、装置へ上昇して来たためであると判断し、原子炉出力の降下を続けるとともに、盤裏面付近の空気サンプリングを行って、空気汚染のないことを確認した。

同日23時33分原子炉出力は30MWに到達したが、キャップセル破損が確実視されたので、キャップセルと温度制御装置間の弁を閉め、FPガスをキャップセル内に閉じ込める処置を行ったの

ち、同日23時50分再び原子炉出力の低下を開始した。原子炉は翌14日0時5分制御棒同時挿入により完全に停止した。

### 2.3 キャプセルの取出し

この結果、74F-2Aキャプセルを取り出すこととし、周辺の空間線量率測定および装置内のガスに含まれている核種の分析を行うこととした。

上記エリアモニタの指示記録を調べたところ、Fig. 4に示すように指示の上昇は、23時8分の出力低下開始直後の23時9分に始まっており、最高 $1\text{mR}/\text{H}$ に達したのち、原子炉停止後は徐々に低下していることがわかった。また、原子炉停止の50分後、温度制御装置にヘリウムを供給しているヘッダの表面は $70\text{mR}/\text{H}$ であり、キャプセル切離し前に一部の核分裂生成ガスが同ヘッダおよび装置内へ漏れていることが明らかとなった。

12月14日の11時過ぎ、このヘッダ内のガスをサンプリングして核種分析を行ったところ、核分裂生成物であるIの存在を確認した。同日19時30分から20時にかけ、キャプセル内の真空引き、ヘリウム充てんを7回くり返して行い、キャプセル内のFPガスを完全に除去した。この時、真空引きに使用した排気装置のモニタの指示はほとんど上昇しなかった。

翌15日に、装置との接続をはずしたのち、キャプセルを炉心から引抜き、カナルに保管した。尚、カナル内においては、最終的な熱電対チェックを行って状況を確認するとともに、ヘリウムガスによりキャプセル内を $4\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ に加圧し、外筒は健全であることを確認した。

Table 1 74 F - 2 A 温 度 履 歴

| T/C |     | 原 子 炉 出 力 (MW) |     |      |      |     |      |      |      |
|-----|-----|----------------|-----|------|------|-----|------|------|------|
|     |     | 4.4            | 6.7 | 11.9 | 16.5 | 25  | 30   | 40*  | 40** |
| 1   | WRe | 160            | 270 | 560  | 680  | 850 | 900  | 1000 | 1640 |
| 2   | WRe | 200            | 340 | 625  | 755  | 935 | 1020 | 1280 | 1730 |
| 3   | WRe | 175            | 295 | 550  | 695  | 860 | 925  | 1140 | 1750 |
| 4   | WRe | 175            | 290 | 525  | 630  | 770 | 820  | 1000 | 1510 |
| 5   | C A | 105            | 185 | 327  | 433  | 595 | 640  | 670  | 1160 |

\* 40MWに達する直前 (22時15分頃) の T/C 指示温度

\*\* 故障発生後の T/C 指示温度

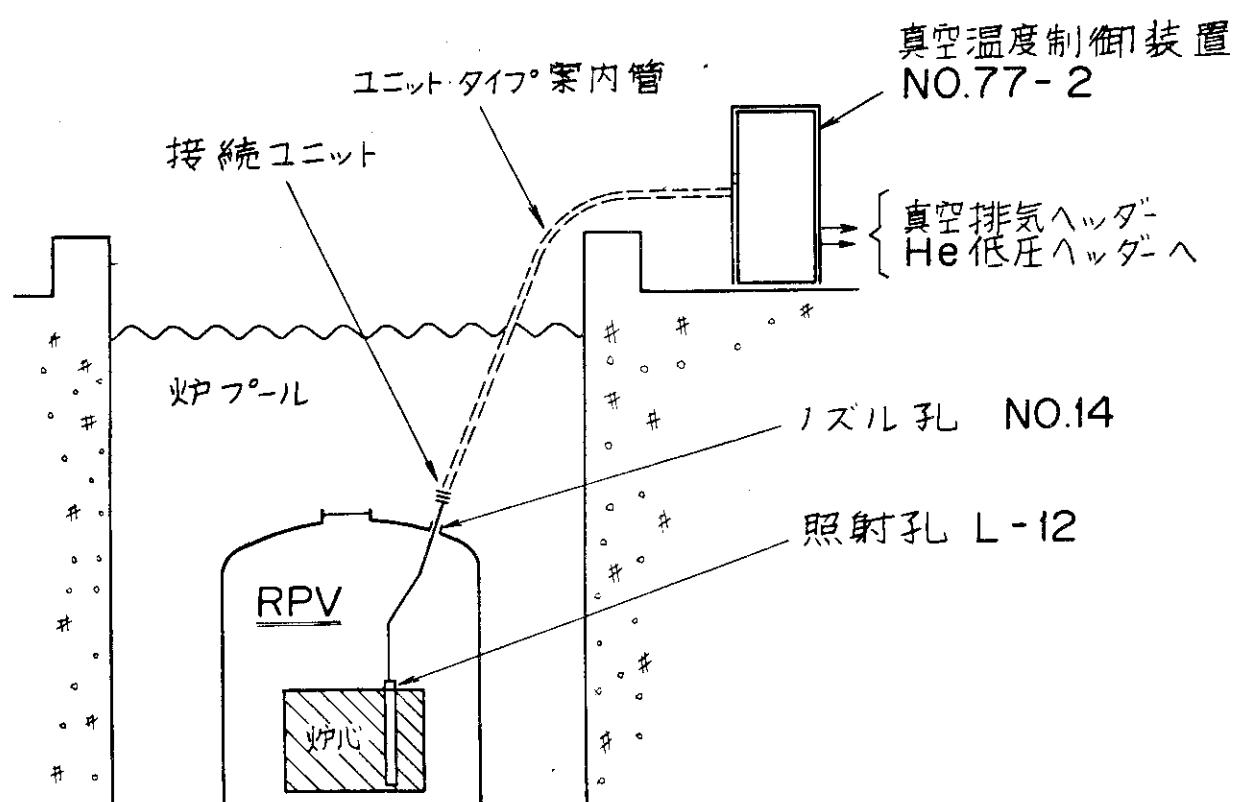


Fig. 1 74 F - 2 A キャプセル装置接続図

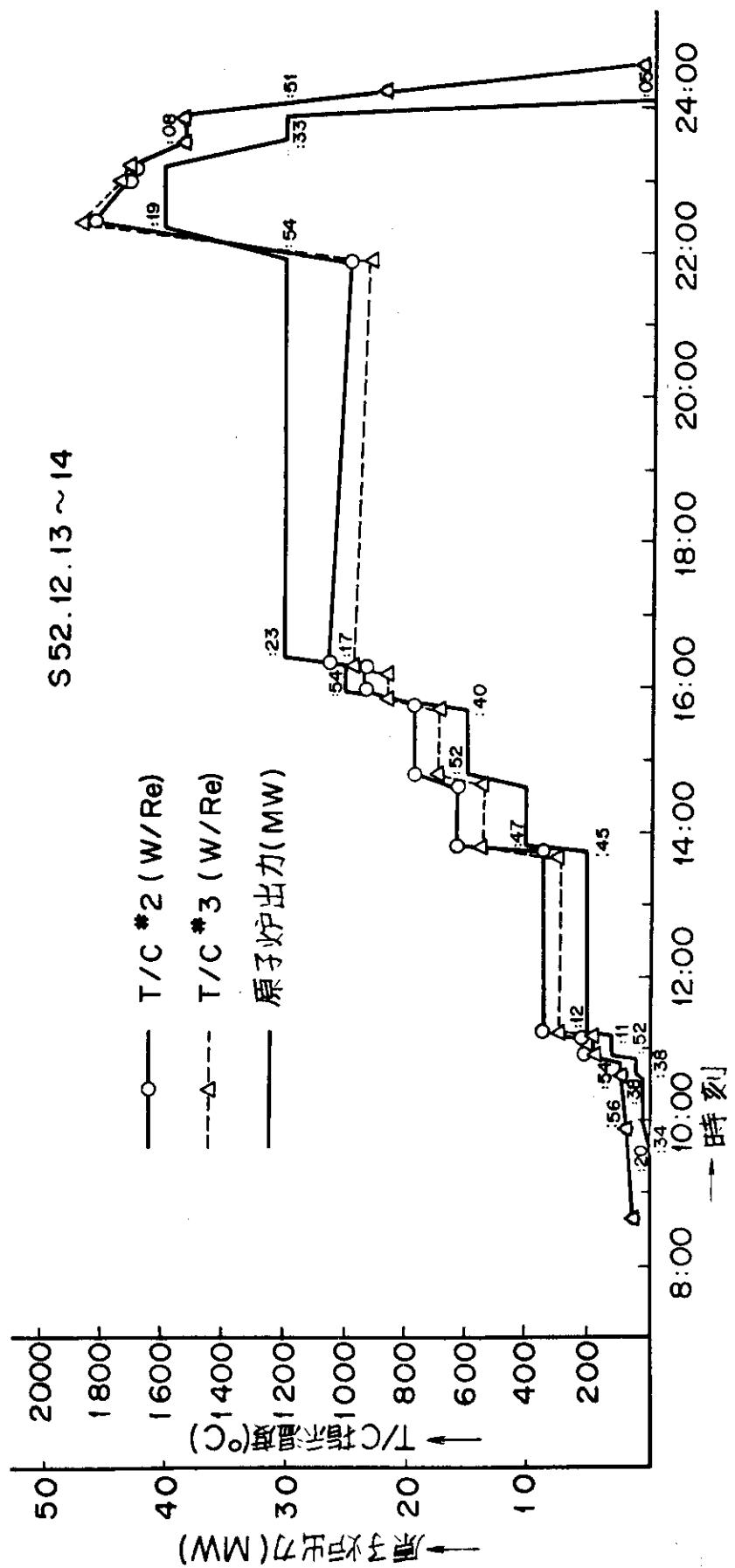


Fig. 2 (a) 原子炉出力上昇時の試料温度

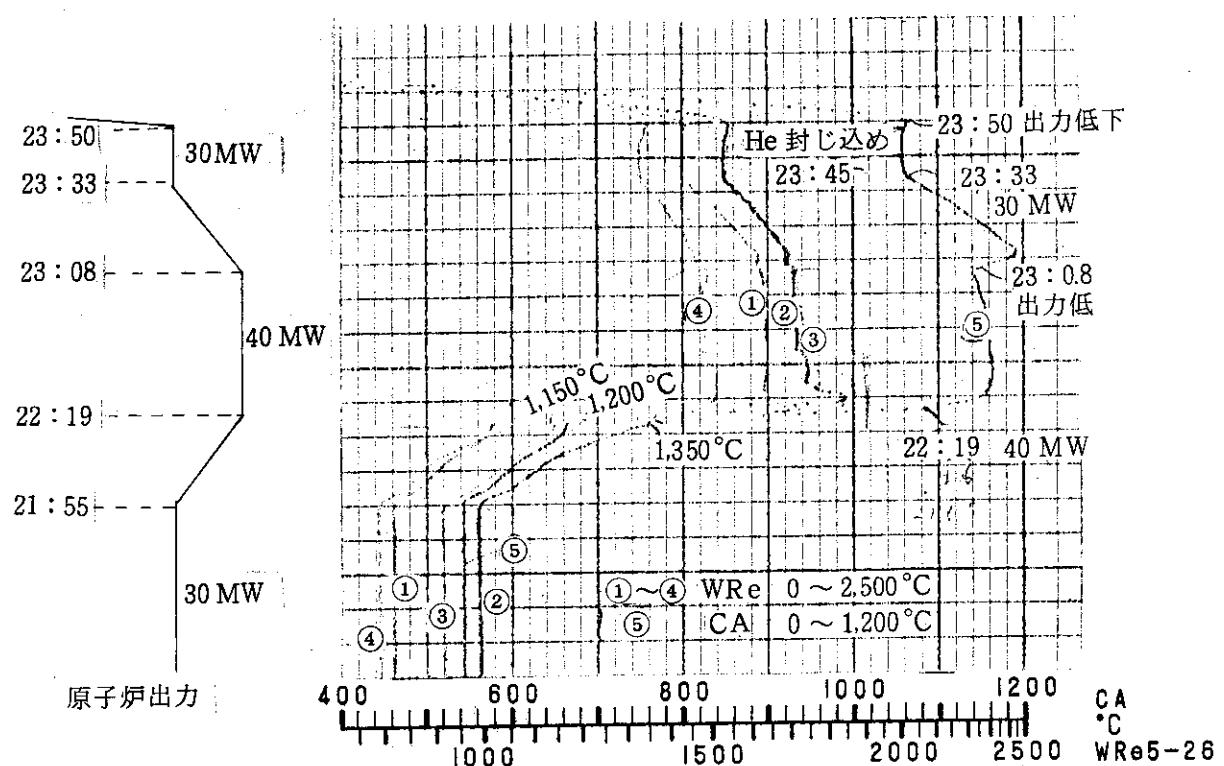


Fig. 2(b) 74 F-2 A キャップセル・40 MW 時温度指示

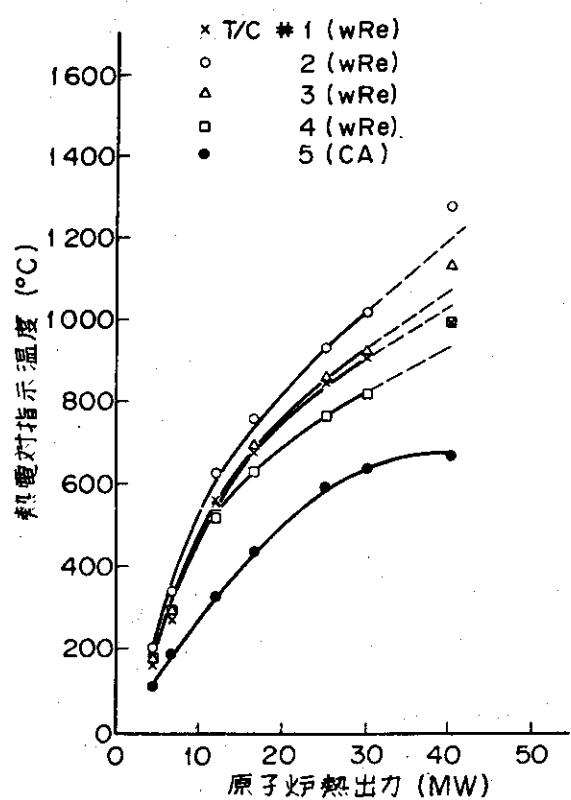
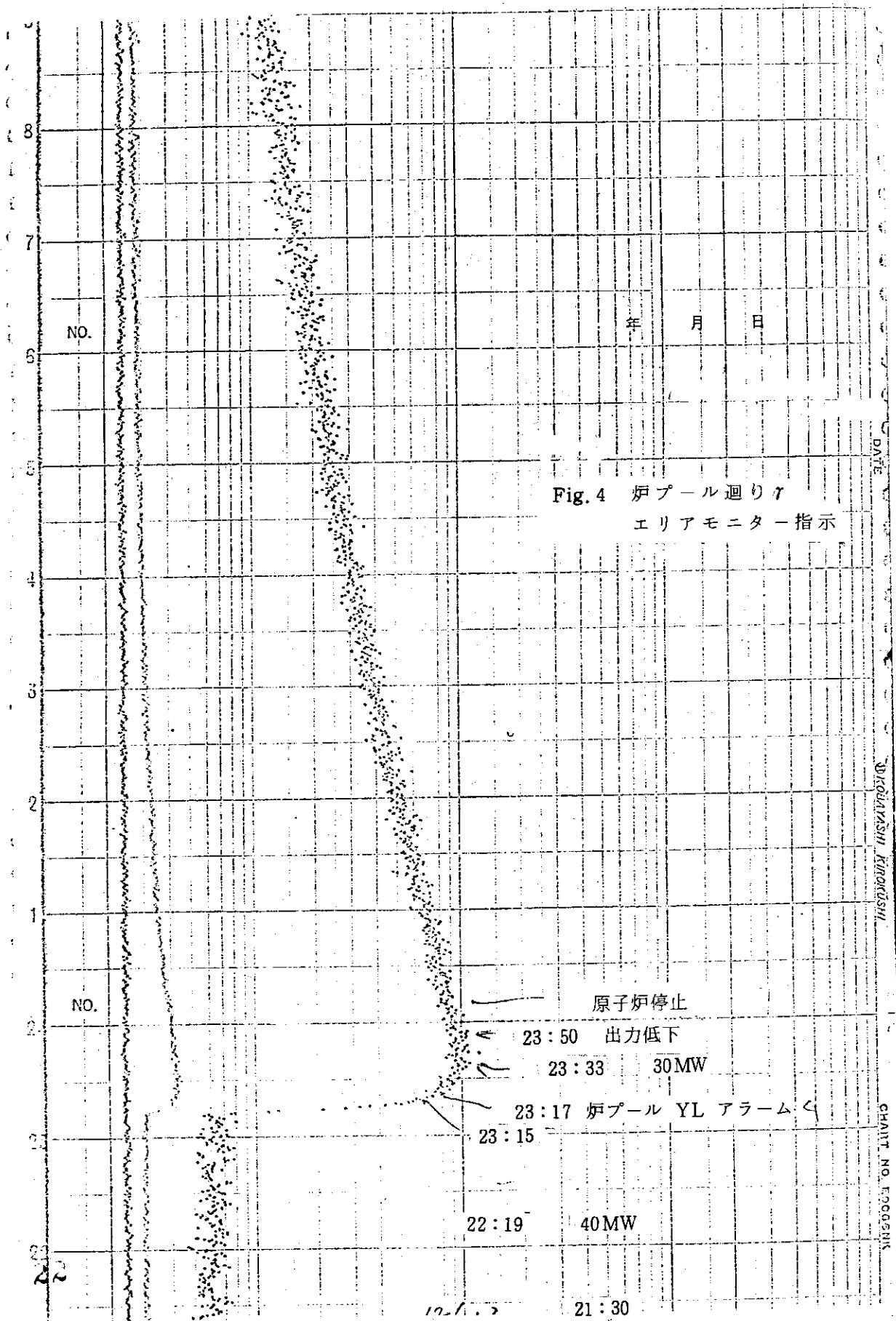


Fig. 3 74 F-2 A 温度上昇



### 3. 74F-2A キャプセルの設計・製作・検査

#### 3.1 設 計

##### 3.1.1 照射試料

本キャプセルの照射試料は、多目的高温ガス炉用コンパクト状被覆粒子燃料であり多目的高温ガス実験炉の予備設計<sup>(1)</sup>で決められたものと同一仕様のものである。Table 2に仕様諸元を、Fig. 5に形状寸法を示す。

本キャプセルには同コンパクト12個のほか、コンパクト内の被覆粒子の燃焼度を推定するためのモニタ粒子およびSiC層照射試験片を、黒鉛製ケースに納めたものも試料として装荷されている。

##### 3.1.2 照射条件

実験炉に於ける最高使用条件を実現するため、JMTR反射領域第2層目( Be )L-12照射孔( 内径42mm )において、4サイクル間( 約86日間 )、コンパクト平均温度1600°Cで照射する。Table 3に期待された発熱量、中性子照射量を示す。

##### 3.1.3 キャプセル構造

###### (1) 基本構造

コンパクトなどの照射試料を黒鉛スリーブに収納した上内筒に封入し、更に外筒に組込む。外筒外面はJMTR一次冷却水で冷却される。内筒内および内外筒間のギャップには高純度ヘリウムガスを満す。コンパクト中心およびスリーブ内に熱電対を挿入して、内外筒間のヘリウムガスの真空度を調節する方式<sup>(2)</sup>によりコンパクト温度を1600°Cに保つようとする。

Fig. 6に本キャプセルの構造概要を示す。

###### (2) 各部詳細

###### 1) 黒鉛スリーブ

内径24mm、外径33mm、全長526mmの黒鉛製で、外表面には内筒材であるニオブ合金との両立性を良くするため0.5mm厚さでモリブデン層を溶射する。スリーブ上端面から深さ370mmで熱電対插入孔と上中下の3ヶ所に合計4個のスラックスモニタ用の溝がつけられている。

###### 2) 内 筒

内径34mm、外径36.6mm、全長647mmのニオブ合金(Nb-1%Zr)製で、同材で厚さ2mmの上下端栓を溶接する。上部端栓には5本の熱電対貫通孔がある他、下部端栓にはガス封入孔がつけられている。

###### 3) 断熱材、反射板など

照射試料を収納した黒鉛スリーブの上下には、黒鉛製厚さ3mmのスペーサを介して、ジ

ルコニア製厚さ 10 mm の断熱材と、1 mm のギャップで隔てられた 8 枚の厚さ 1 mm のジルコニウム板から成る熱反射板が組込まれており、熱の上下方向への逃げによる試料温度の低下と内筒端栓付近の温度上昇を防止する。ジルコニウム製の反射板がヘリウムガス中の不純物ゲッターも兼ねている。内筒内構造物の位置決めにはタングステンスプリングを用いた。これらの材質の選定にあたっては、同種キャップセルに於ける経験<sup>(3)</sup>を十分に考慮した。

#### 4) 热電対など

コンパクト温度測定と発熱量評価のため、コンパクト中心孔に 4 本、スリーブ内に 1 本のシース型熱電対を挿入する。中心孔最上部のものを除き、他は全てニオブ合金 (Nb - 1%Zr) シース、ベリリア絶縁、非接地型の W - 5 Re / W - 26 Re の高温用熱電対で、シースは内外筒上部端栓を貫通して外筒上方に接続される保護管内に引出される。各貫通部は高温ロード材でロードするとともに、高温部でのシース破損にそなえ、外筒上部端栓直上でシースにセラミック型気密端子を挿入する。

中心孔最上部に挿入するものは、信頼度の高いステンレス鋼シース、マグネシア絶縁、非接地型のクロメル／アルメル熱電対とし、耐熱性を高めるため内筒上部端栓で熱電対シースと一緒にロードするニオブ合金製保護管をかぶせる。端栓貫通部および気密端子については他と同様である。

尚、コンパクト中心孔熱電対固定のため、中心孔全長に外径 7.8 mm、肉厚 1.0 mm の黒鉛製保護管を挿入したうえ、更に外径 5.6 mm、肉厚 0.6 mm のモリブデン製スリーブを挿入し、モリブデンフォイルを熱電対先端に巻きつける。

#### 5) 外筒

内径 37 mm、外径 40 mm、全長 749 mm のステンレス鋼 (SUS 304) 製で、同材で厚さ 2 mm の上下端栓を溶接する。上部端栓には 5 本の熱電対貫通孔と真空度制御のための細管 (真空温度制御管) の開口部がある。

#### 6) 保護管など

外筒上部端栓の上方には熱電対リード線と真空温度制御管を原子炉一次冷却水から保護しつつ原子炉圧力容器外へ導くための内径 22 mm、外径 25 mm、長さ 5760 mm でステンレス鋼 (SUS 304) 製の保護管が接続される。保護管上方で圧力容器とのシールが行われる。また外筒下部端栓の下方には外径 40 mm、長さ 191 mm のアルミニウム製スペーサーブロックが取りつけられる。

### 3. 1. 4 キャップセル内温度分布

#### (1) 計算条件と方法

本キャップセルを照射する場合に期待される発熱および冷却条件においてキャップセル内での温度分布を計算して、試料温度が目標とする値を十分満足し、かつキャップセル構造材の使用上支障ないことを確認した。Table 3 に計算に使用した発熱および冷却条件を示す。また、計算に用いた各部寸法 (製作後の実測寸法) を Fig. 7 に示す。中心部のモリブデンフォイルは、モリブデン棒で模擬した。

計算には、一次元多重円筒計算コードGENGTC<sup>(3)</sup>を用いた。本コードでは通常の伝熱計算が行われるほか、熱伝導率の温度依存、構造材の温度膨脹やガスギヤップでは輻射が考慮される。Table 4に計算に用いた照射試料およびキャップセル構造材の物性値を示した。コンパクトの熱伝導率については粒子充てん率がコンパクトの熱伝導率に与える影響を調べた実験結果<sup>(4)</sup>のデータを使用した。また、コンパクトおよびグラファイトの熱膨脹率は不明なのでなしとした。

## 2) 計算結果

Fig. 8に50MW運転時期待されるキャップセル内温度分布を示す。同図には、発熱量見積誤差を5割とした最高発熱量の場合および燃料のバーンアップにより発熱量が低下した場合に於ける温度分布も示してある。いずれの場合も、照射試料を含むキャップセル構成材の温度は十分健全性を維持出来る範囲にあり、期待される発熱量におけるコンパクト温度も真空温度制御法により目標温度に十分保ち得る程度である。また例え、バーンアップにより発熱量が半分になり、真空温度制御法により700°C程度の温度上昇を行う場合でも、ニオブ合金の使用限界と考えられる<sup>(5)</sup>1000°Cをこえない。

### 3.1.5 強度検討

#### 1) 必要とする強度

外筒については、原子炉冷却水の最高使用圧力である18kg/cm<sup>2</sup>Gの外圧を受けても十分耐え、かつ照射試料内で最高発熱量がある場合に於ける内外面の温度差による熱応力が過大でないことが必要とされる。

内筒についても、内部に封入するヘリウムガスおよび試料を含む内部構造物から発生するガスによる内圧に十分耐え、かつ外筒と同様最高発熱量時における熱応力が過大でないことが必要である。

耐圧および熱応力の評価は、ASME SEC. IIIに準拠して行うこととし、クリープ強度が問題になる場合には同 case 1331-5に準拠して行う。<sup>(3)</sup>

#### 2) 外筒強度

外圧による胴部円周応力は2.5kg/mm<sup>2</sup>である。またFig. 7に示した温度分布から最高発熱量に対する内外面温度差は74°Cであるから熱応力は18.7kg/mm<sup>2</sup>となる。100°Cに於けるSUS 304の許容応力は14.0kg/cm<sup>2</sup>であり、円周応力<許容応力、および(円周応力+熱応力)<(許容応力×3)、なる関係を満しているので十分な強度を有している。

#### 3) 円筒強度

内部構造物から発生するガスとしては、コンパクトおよびスリーブの材料である黒鉛からの蒸発性不純物と、被覆粒子からの核分裂生成ガスを考える。

コンパクトおよびスリーブなどが使われている黒鉛の全容積は395CCであるから相当黒鉛重量は711gとなる。黒鉛からの蒸発性不純物量は製法、処理などにより大巾に値が変わるが、試料コンパクトについての測定結果0.1CC(STP)/g<sup>\*</sup>を用いると全蒸発性不純物量は71CC

(STP)である。また、被覆粒子の核分裂生成ガス放出率をR/Bで0.1とし、ガス生成速度を $4.66 \times 10^{-5} \text{ CC(STP)} / \text{W} \cdot \text{D}$ <sup>(6)</sup>として最高発熱量で予定時間照射された場合の核分裂生成ガス発生量は16 CC(STP)である。内筒内のガス容積は80 CCで、ガスの平均温度は1250°Cであるから、最高内圧は大気圧で封入されているヘリウムガスを含め $10.6 \text{ kg/cm}^2$ となる。これによる内筒の円周応力は $1.65 \text{ kg/mm}^2$ である。

一方、最高発熱量に対する内外面温度差は17°Cであるから熱応力は $1.1 \text{ kg/mm}^2$ となる。<sup>(7)</sup>尚、ここで内筒の温度はその使用限界である1000°Cとし、必要な定数は文献<sup>(7)</sup>から引用した。

1000°Cに於けるNb-1%Zrの短時間延性破壊に対する許容応力と長時間クリープ破壊に対する許容応力は、同材の高温強度試験結果<sup>(5)</sup>から1000°Cにおいて最小0.2%耐力 $4 \text{ kg/mm}^2$ 、最小2200時間ラブチャ応力 $2.7 \text{ kg/mm}^2$ となるので、それぞれ $2.7 \text{ kg/mm}^2$ 、 $1.8 \text{ kg/mm}^2$ と求められ、

円周応力 < (短時間およびクリープ許容応力) および (円周応力 + 热応力) < (クリープ許容応力 × 3) ,

なる関係を満足しているので十分な強度を有している。

### 3.2 製 作\*

#### 3.2.1 キャプセル素材

キャプセル構造材に使用する素材は、全て材料証明書付のものとした。外筒には精密引抜管を使用した。また、内筒は電子子ビーム溶解法で得られたNb-1%Zrインゴットを管状に切削加工したのち、スエージ法によって仕上げ加工したものを使用した。

#### 3.2.2 部品加工

各素材を加工し部品に仕上げた。内筒外径は外筒内径に合せ必要なギャップを確保出来るよう切削加工仕上げを行った。黒鉛スリーブについては、全長を3分割して内外径仕上および熱電対挿入孔用溝切りを行ったのち、溝にふたをかぶせて挿入孔を形成するようにしてから外表面に0.5 mm厚さでモリブデン溶射を行った。溶射は黒鉛表面の肌荒し処理を行ったのちAr-He雰囲においてプラズマ溶射方式で行った。

Fig. 9に加工を完了したキャプセルの全部品を示す。

#### 3.2.3 組 立

あらかじめセラミック型気密端子をつけた熱電対の先端から、真空温度制御管を溶接どめした外筒上部端栓、外筒スプリング、内筒上部端栓などを組込んだのち、5本の熱電対先端位置を所定の長さにそろえ、反射板、断熱材を組込む。次にモリブデンスリーブ、黒鉛保護管、コンパクトの順に順次組込んだ。熱電対の先端はモリブデンフォイルを巻きモリブデンスリーブ内に固定する。適当数のコンパクトを組んだのち黒鉛スリーブをかぶせ、全部のコンパクト

\* 本キャプセルの製作は東海研究所技術部工作課により行われた。

と黒鉛スリープの組込みを完了してから下部断熱材をはめこむ。次に内筒をかぶせ、下部反射板を組込み上下の内筒端栓をはめこむ。X線透過により熱電対位置をはじめとする各部品の位置を確認したのち上部および下部端栓をT. I. G溶接し、上部端栓熱電対貫通部を高周波誘導炉により高温ロー付する。次に下部端栓ヘリウムガス封入孔に真空ポンプと高純度(99.999%)ヘリウムボンベを接続し、 $1 \times 10^{-2}$  torr 真空引とヘリウムガス充てんを3回くり返し、最終的にはヘリウムガスを一気圧で充てんして封入孔にプラグを溶接止めする。

完成した内筒にあらかじめ下部端栓をT. I. G溶接づけした外筒をかぶせ、上部端栓を一たん仮づけしたのち、端栓熱電対貫通部を高温ロー付してから上部端栓を本溶接づけする。ついで、真空温度制御管と熱電対を必要な長さに延長したのち、保護管を外筒上部端栓上方に溶接どめするとともに下部端栓下方にスペーサブロックを取りつけてキャップセルの組立を完了する。

Fig. 10 および Fig. 11 に完成した本キャップセルの外観を示す。

尚、キャップセル保護管部は JMTR に搬入されたのち、Fig. 12 に示すように照射孔およびノズル位置で決定される形状寸法に曲げ加工され、頂部に熱電対および真空温度制御管を接続するための接続ユニットが取りつけられる。

### 3.3 検査

#### 3.3.1

照射試料としてのコンパクトについては、形状寸法、化学組成(物にウラン含有量)、高温安定性などを中心に 74 F - 2 A キャップセルに組込んで照射を行う上で支障がないことを確認するために検査を行った。

まず、 $\text{UO}_2$  燃料核について寸法、真球度、密度、O/U 比、不純物含有量、外観、断面、濃縮度などの検査を行ったのち、被覆粒子について、寸法、真球度、露出ウラン率、破壊強度、被覆層厚さ、被覆層密度、加熱試験などを行って健全性を確認した。

また、完成したコンパクトについて、外観、寸法、密度、粒子充てん率、マトリックス中不純物含有量、均一性、被覆粒子破損率、 $1800^{\circ}\text{C}$  加熱試験、蒸発性不純物量などの検査を行い、予定どおりの形状寸法を有し、必要なウランを含有し、かつ十分な高温安定性を有しており、 $1700^{\circ}\text{C}$ までの加熱では蒸発性不純物量は  $0.1 \text{ CC/gr}$  以下であることを確認した。

#### 3.3.2 キャップセル検査

キャップセルについては、形状寸法、密封性などを中心に、74 F - 2 A キャップセルが設計どうり組立てられ、JMTR の炉心に挿入して照射する上で支障のないことを確認するために検査を行った。

まず、全ての構成部品について、外観、寸法、素材検査を行った。内筒および外筒素材については材料、真直度、欠陥検査を行った。熱電対については絶縁と導通について調べた。

内筒が完成したのち、外観、寸法検査、溶接部 X 線検査、ヘリウムリーク検査を行い十分な密封性を有していることを確認した。熱電対については絶縁と導通について調べた。また、全体 X 線写真により内部が設計どおりの構造であることを確認した。

全体が完成したのちも、外筒について外観、寸法検査、真直度検査、溶接部X線検査、ヘリウムリーク検査を行った。保護管については外観寸法を調べた。熱電対については絶縁と導通について調べた。また全体X線写真により内部構造を確認した。最後に、キャップセル外表面の放射性物質汚染のないことを確認した。

### 3.4 異常現象の検討

第2章でのべたように、原子炉出力が40MWに到達した時点まではほぼ正常と考えられる全ての熱電対指示値が、その直後から500～600°C急上昇し、約1時間後30MWに出力低下開始とともに真空温度制御管内へ核分裂生成ガスの漏洩が生じたものである。

Table 1に示した出力上昇各ステップでの各熱電対指示値のうち最も発熱量の高い位置のコンパクト中心と黒鉛スリーブ内に挿入された熱電対指示値をFig. 13に炉出力に対しプロットして示す。同図の計算曲線は3.1.2でのべた50MWにおいて期待された発熱量があるとして求められた出力上昇中の熱電対指示値である。またFig. 14に急上昇直前におけるコンパクト中心に挿入された4本の熱電対の縦方向分布を示す。同図には計算によって求められた温度分布も描いてある。

これらから、急上昇直前までのキャップセルは温度指示に関する限り全く正常であると判断される。

従って、40MW到達直後においてキャップセル内で異常が生じ、内筒内の温度が上昇とともに、内圧上昇により内筒に“むり”がかかったため、30MWへの出力低下時のショックで内筒のどこかに亀裂のようなものが生じ核分裂生成ガスを含む内筒内のガスが、外筒内、従って真空温度制御管内へ漏洩したものと推定された。

キャップセル挙動を決定するパラメータは温度および圧力であり、これらのどちらか又は両方が異常を引起した要因となり得る。原子炉の出力が増せば、試料発熱およびガンマ発熱により、キャップセル各部の温度は上昇する。

Fig. 15にFig. 13に対応する各出力でのキャップセル内温度分布を示す。

外筒は、常に15kg/cm<sup>2</sup>の原子炉一次冷却水の外圧を受けているので、外筒に内部欠陥があった場合40MWにおける熱応力が加わったとき貫通欠陥となり、一次冷却水が内外筒間のガスギャップに浸入すれば、ギャップでの熱伝達が悪くなつて内筒から内側の温度が上昇するとともに、活性金属である内筒材のNb-1%Zrが酸化脆化し、出力低下時のショックで内筒が破損する可能性がある。しかし、外筒素管は厳重な内部欠陥検査と溶接部検査に合格しているので極めて考えにくいうえ、真空制御管内のガス分析で<sup>24</sup>Naなどの一次冷却水特有の核種が発見されていない、キャップセル取出時のガス置換作業において外筒内を十分真空に引き得た、更にカナル内における外筒内加圧試験で漏洩が認められなかつたなどの理由により外筒破損はないと判断した。

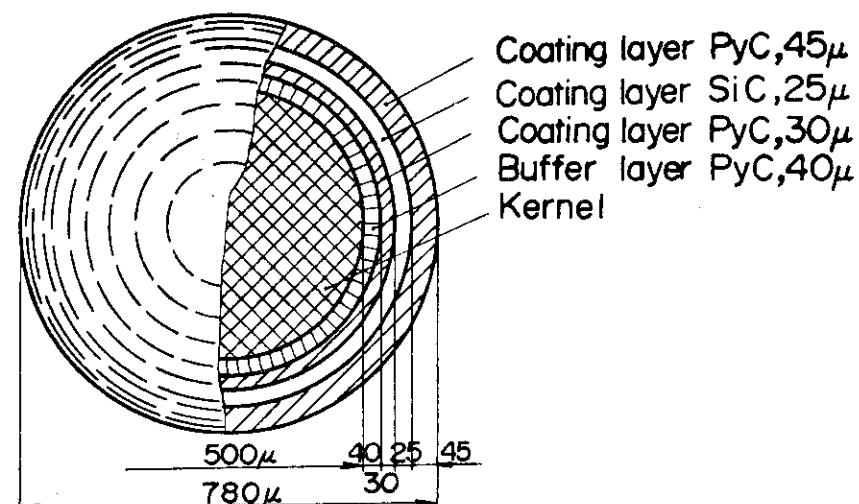
内筒は、高温となるうえ、内圧応力や熱応力が加わるので最も破損の可能性をもつてゐる。しかし、破損は核分裂生成ガスの放出を必ずともなうので、温度上昇だけ起ることはあり得ない。

一方、内筒内には試料であるコンパクトをはじめスリープなど高温においてガスを発生すると云われる黒鉛を多用しているので、もし40 MW到達時の温度になったとき内筒内構造材から急激なガス発生があれば、黒鉛スリープと内筒間のヘリウムガスギャップの熱伝達が悪くなり内部温度が上昇するとともに、ガス発生と高温化により内圧が著しく上昇し内筒の変形を来たすので出力低下時のショックで内筒破損を生ずることは十分考えられる。

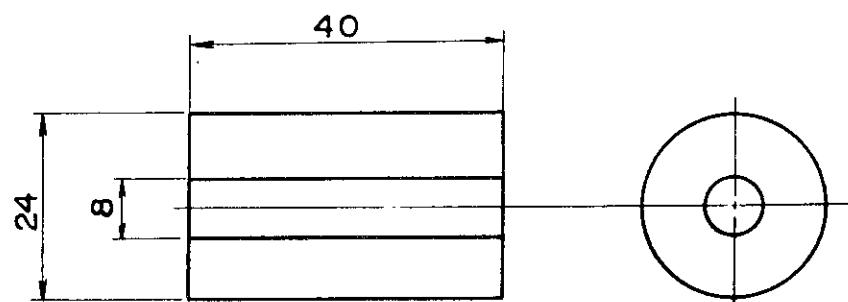
従って、本キャプセルをホットセル内において解体検査して内筒破損箇所の特定、内筒内の状況、最高到達温度の推定などを行うとともに、実験室において内筒内構造材の加熱試験を行ってガス放出挙動などを調べることとした。

Table 2 照射試料(被覆粒子燃料コンパクト)諸元

|                                  |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
|----------------------------------|--|--|-----------------------------------|------------------|--------------------------------|--|--|--|--|--|
| Coated particle fuel             |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Fuel kernel                      |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Fuel material                    |  |  |                                   |                  | Uranium dioxide                |  |  |  |  |  |
| Diameter                         |  |  |                                   |                  | 500 $\mu$                      |  |  |  |  |  |
| Density                          |  |  |                                   |                  | 96% T.D.                       |  |  |  |  |  |
| Enrichment                       |  |  |                                   |                  | 8 w/o                          |  |  |  |  |  |
| O/U ratio                        |  |  |                                   |                  | 2                              |  |  |  |  |  |
| Sphericity                       |  |  |                                   |                  | $d_{\max} / d_{\min} \leq 1.1$ |  |  |  |  |  |
| Coatings                         |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Coating type                     |  |  |                                   |                  | TRISO-II                       |  |  |  |  |  |
| Material                         | 1 st layer   |  | Porous pyrocarbon                 |                  |                                |  |  |  |  |  |
|                                  | 2 nd layer   |  | High density isotropic pyrocarbon |                  |                                |  |  |  |  |  |
|                                  | 3 rd layer   |  | Pyrolytic silicon carbide         |                  |                                |  |  |  |  |  |
|                                  | 4 th layer   |  | Hygh density isotropic pyrocarbon |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Thickness                        | 1 st layer   |  | 2 nd layer                        | 3 rd layer       | 4 th layer                     |  |  |  |  |  |
|                                  | 40 $\pm$ 5 $\mu$   |  | 30 $\pm$ 5 $\mu$                  | 25 $\pm$ 5 $\mu$ | 45 $\pm$ 5 $\mu$               |  |  |  |  |  |
|                                  | $1.1 \pm 0.1 \text{ g/cm}^3$ $1.8 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ $3.2 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ $1.8 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Density                          | $1.1 \pm 0.1 \text{ g/cm}^3$ $1.8 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ $3.2 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ $1.8 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
|                                  | $< 1.1$  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Anisotropy<br>(BAF)              |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Coated particle                  |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Diameter                         | $780 \pm 78 \mu$   |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
|                                  | $d_{\max} / d_{\min} \leq 1.2$   |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Fuel compact                     |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Type                             | Graphite-matrix  |  | annular pellet                    |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Dimensions                       |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Inner diameter                   |  |  | 8.0                               | mm               |                                |  |  |  |  |  |
|                                  |  |  | 24.0                              | mm               |                                |  |  |  |  |  |
|                                  |  |  | 40.0                              | mm               |                                |  |  |  |  |  |
| Effective density                |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Heavy metal density              |  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Packing Fraction                 | $0.20 \pm 0.01$  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| U contamination                  | $< 10^{-5}$  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Failure fraction ( fabrication ) | $< 10^{-4}$  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |
| Fabrication method               | Overcoating & warm pressing  |  |                                   |                  |                                |  |  |  |  |  |



Coated particle fuel



compact

Fig. 5 照射試料（被覆粒子燃料／コンパクト）寸法

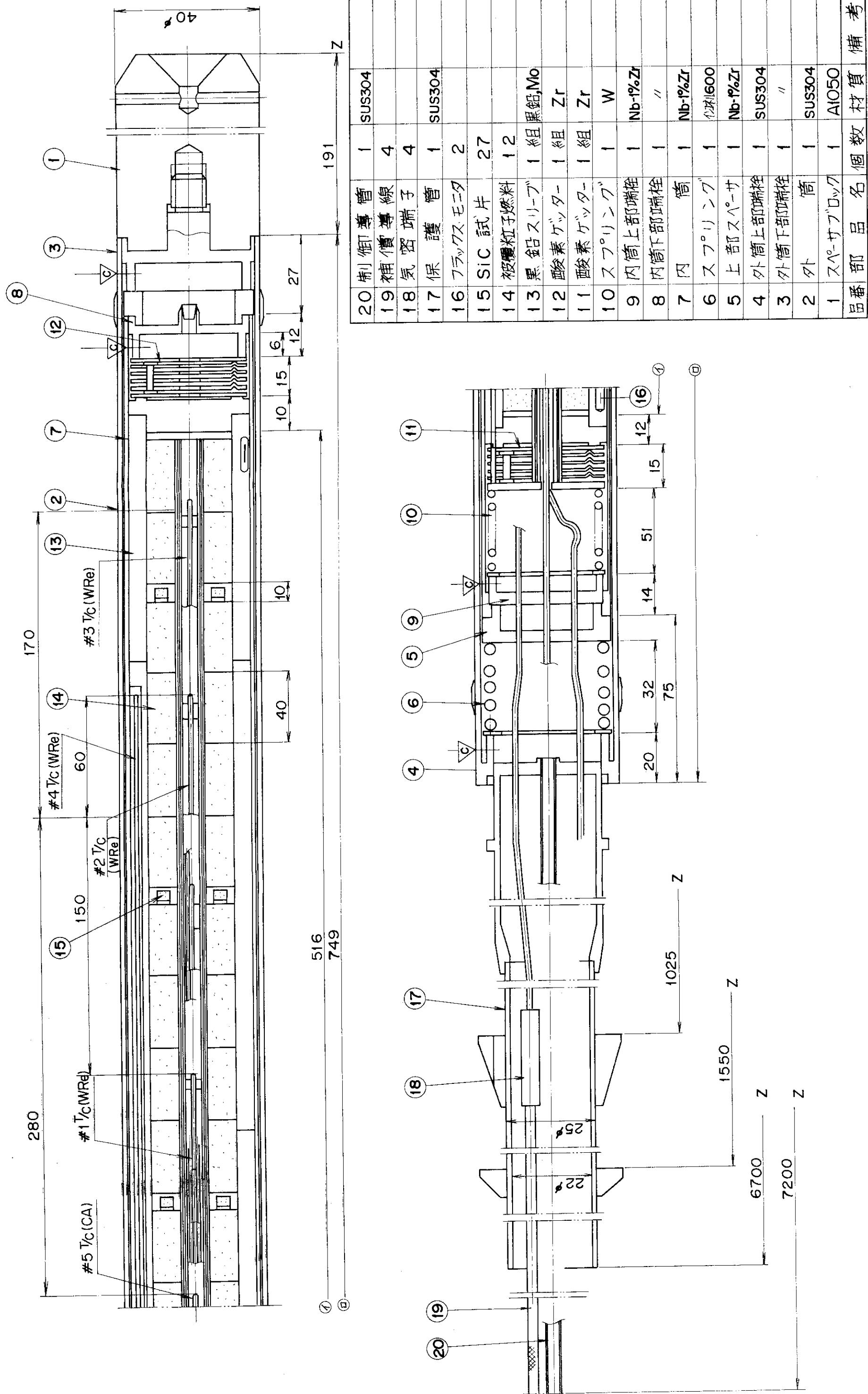


Fig. 6 74F-2A キヤプセル構造概要

Table 3 74 F - 2 A キャプセル照射条件

|                    |  |
|--------------------|--|
| 照 射 孔              | L - 12   |
| 発 热 量              | 546 w/cm (核分裂)   |
|                    | 2.2 w/g ( $\gamma$ ヒート)  |
| 中 性 子 束            | $1.0 \times 10^{14}$ nv ( $< 0.68$ eV)<br>$1.1 \times 10^{13}$ nv ( $> 1$ MeV) |
| 試 料 温 度            | 1600 °C (炉心中央, 試料平均)   |
| 照 射 サイ クル          | 42 ~ 45  |
| 冷 却 水 温 度          | 45 °C  |
| キャプセル表面<br>熱 伝 達 率 | 2.32 w/cm² °C  |

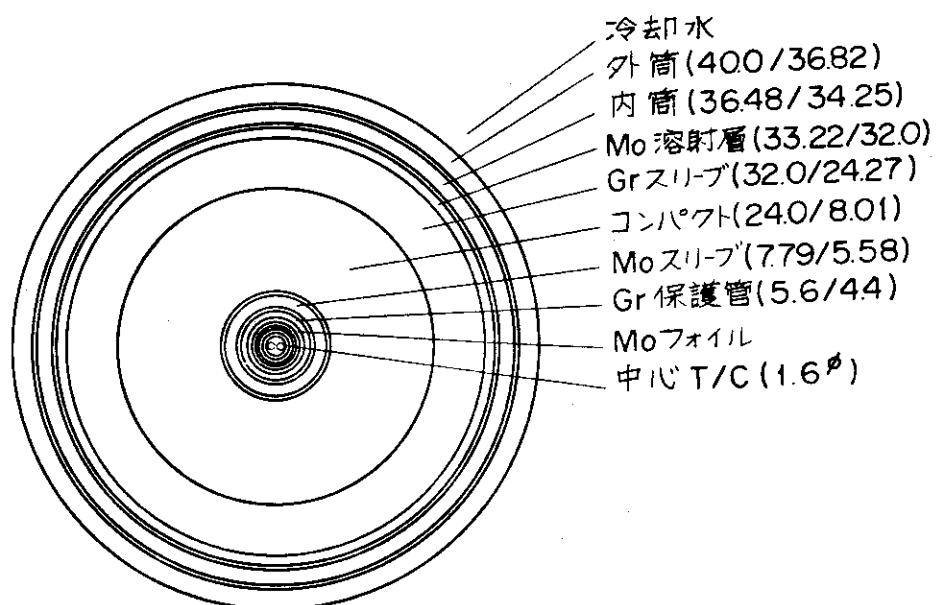


Fig. 7 74 F - 2 A キャプセルの断面構造と寸法

Table 4 74 F - 2 A キャプセル構造材物性値

| 材質             | 密度(g/cc) | 熱伝導率 (W/cm°C)   | 熱膨脹率 (1/°C) × 10 <sup>-6</sup>     |
|----------------|----------|---|------------------------------------|
| SUS 304        | 7.8      | $0.149 + 0.123 \times 10^{-3} T^*$  | $17.04 + 0.272 \times 10^{-2} T^*$ |
| Nb-1%Zr        | 8.66     | $0.453 + 0.156 \times 10^{-3} T$  | $7.392 + 0.687 \times 10^{-3} T$   |
| Mo             | 10.2     | $0.129 \times 10 - 0.614 \times 10^{-3} T + 0.491 \times 10^{-6} T^2$<br>$- 0.239 \times 10^{-9} T^3 + 0.505 \times 10^{-13} T^4$ | $5.143 + 0.752 \times 10^{-3} T$   |
| Gr             | 1.8      | $0.14 \times 10 - 0.13 \times 10^{-2} T + 0.518 \times 10^{-6} T^2$<br>$- 0.269 \times 10^{-10} T^3 - 0.249 \times 10^{-13} T^4$  | 0.0                                |
| コンパクト          | 2.3      | $0.672 - 0.21 \times 10^{-3} T$   | 0.0                                |
| Mo フォイル<br>熱電対 | Mo       | と同じとした。   |                                    |

\* ; T (°C)

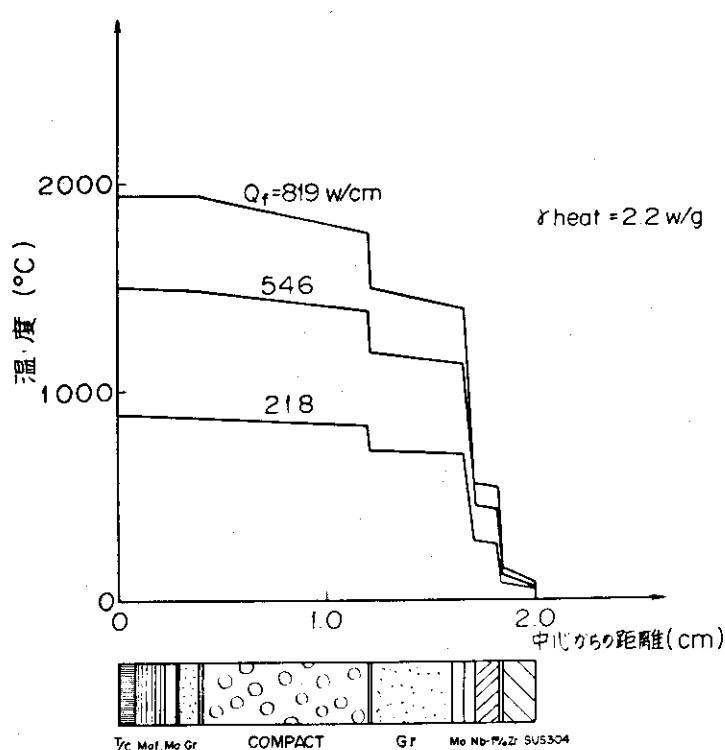


Fig. 8 74 F - 2 A キャプセル径方向温度分布 (50 MW時)

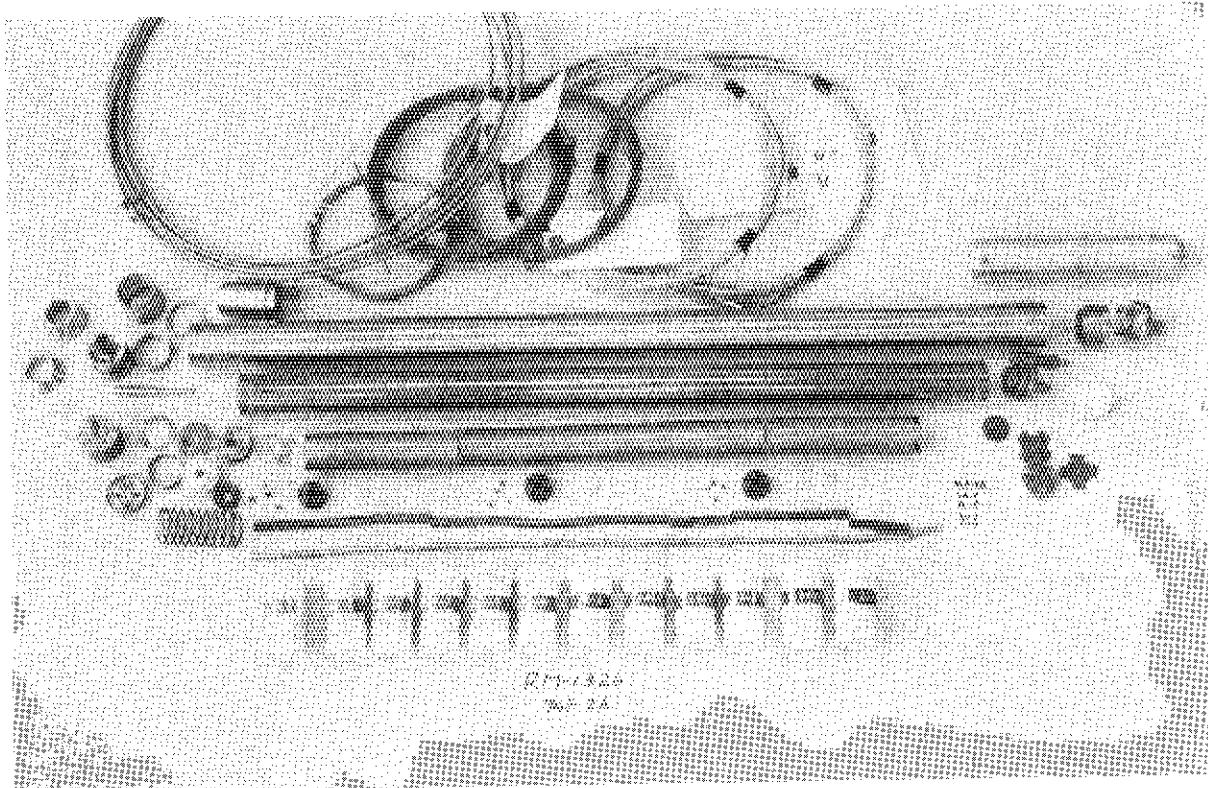


Fig. 9 74 F - 2 A キャプセルの構成部品

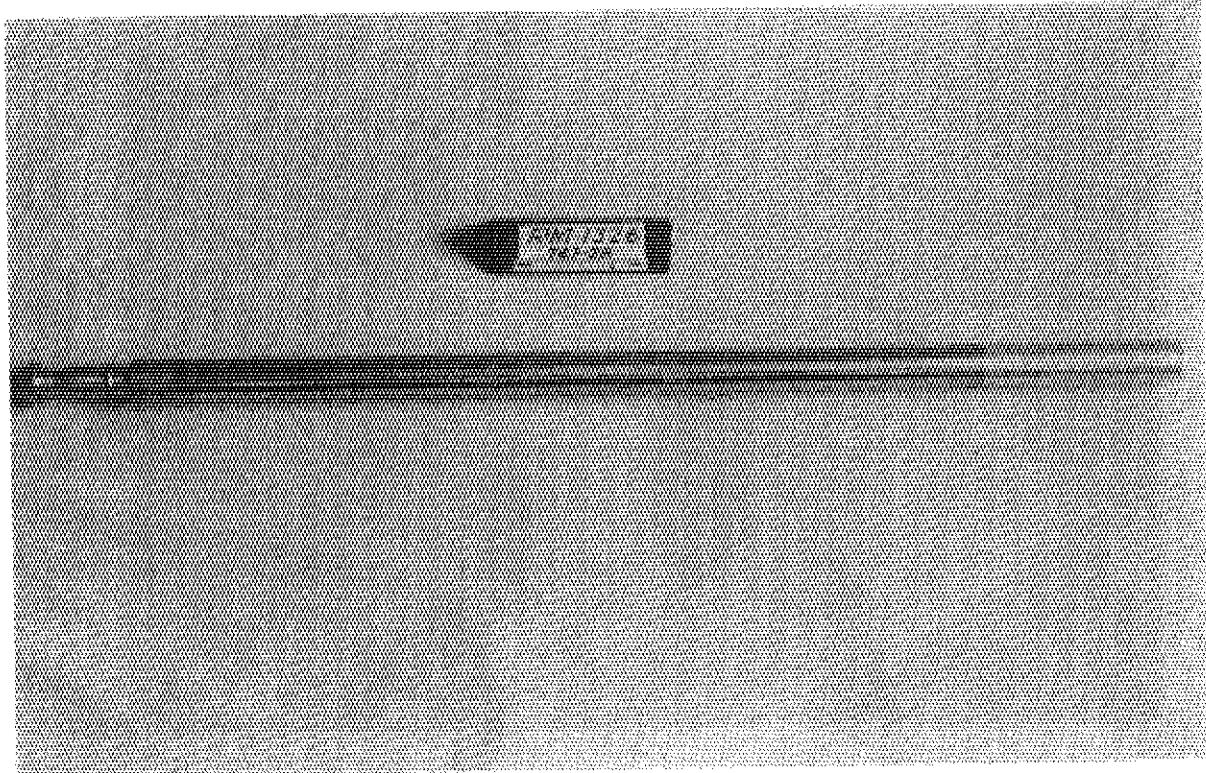


Fig. 10 74 F - 2 A キャプセル完成後外筒部

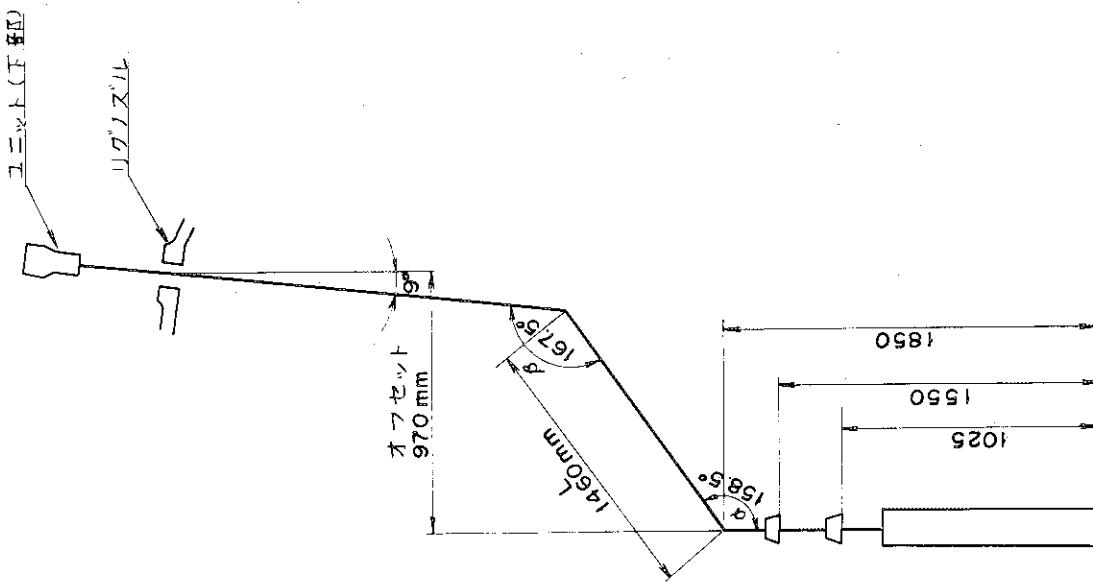


Fig. 12 74 F-2 A<sup>c</sup>キャプセル曲げ図（実績）

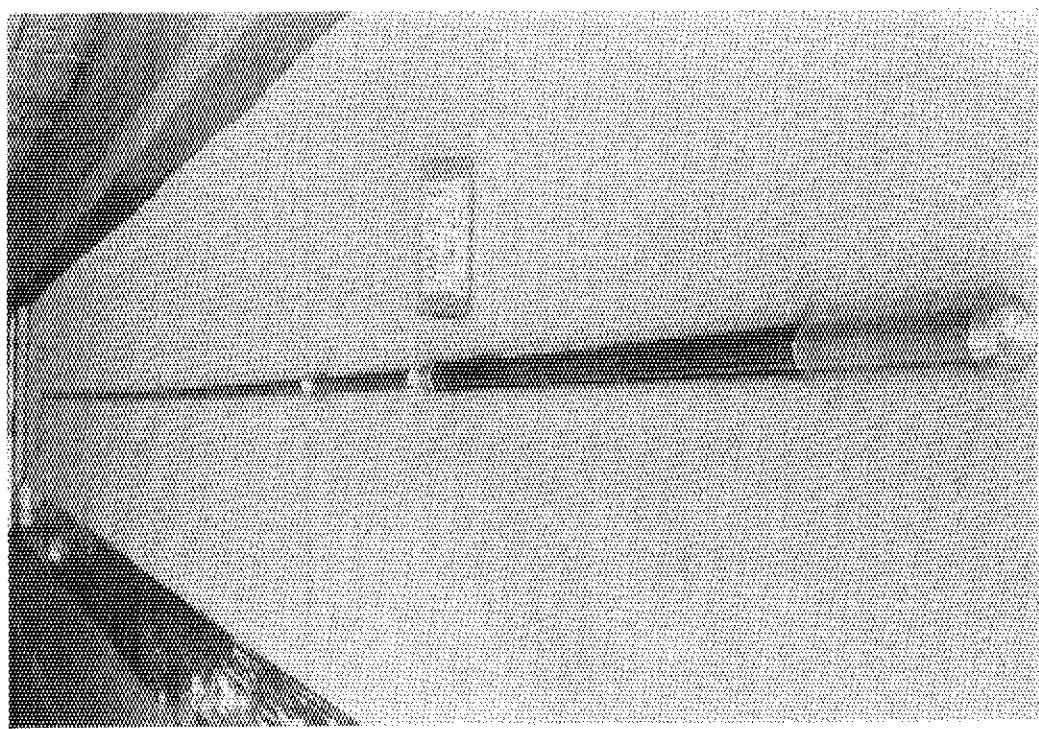


Fig. 11 74F-2Aチャップセル完成後全体

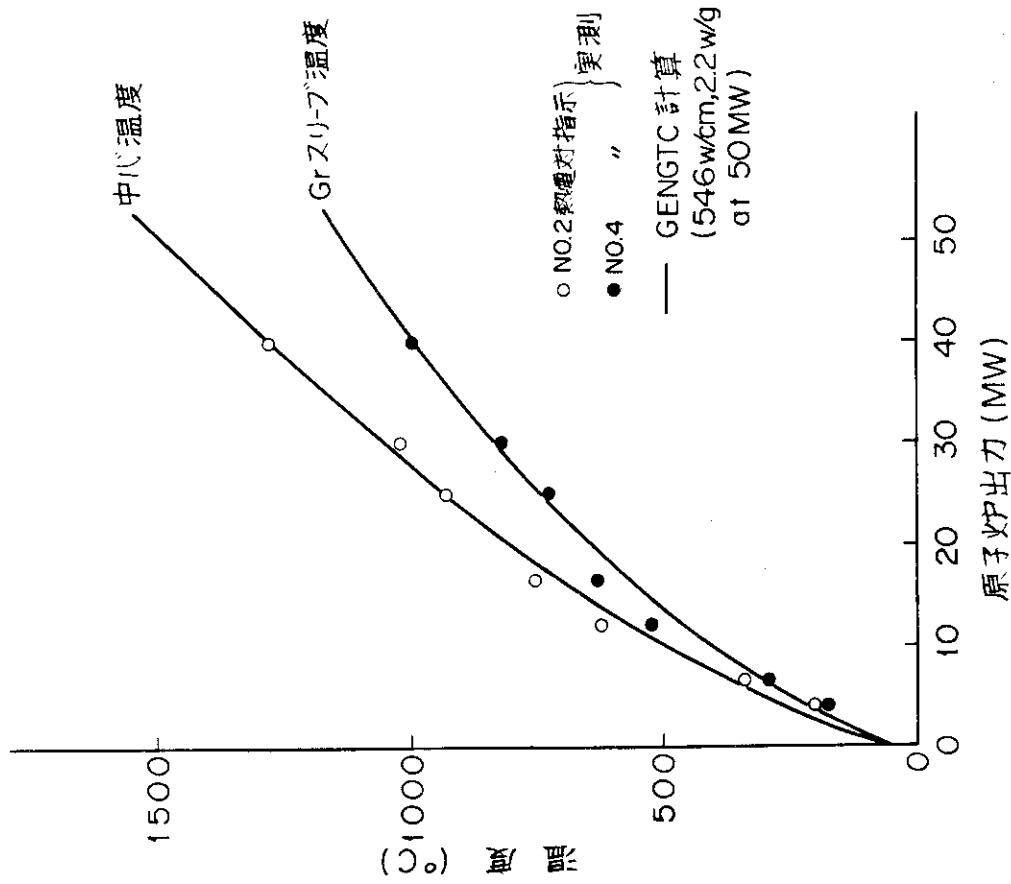


Fig. 13 74F-2A キャプセル出力上昇中温度

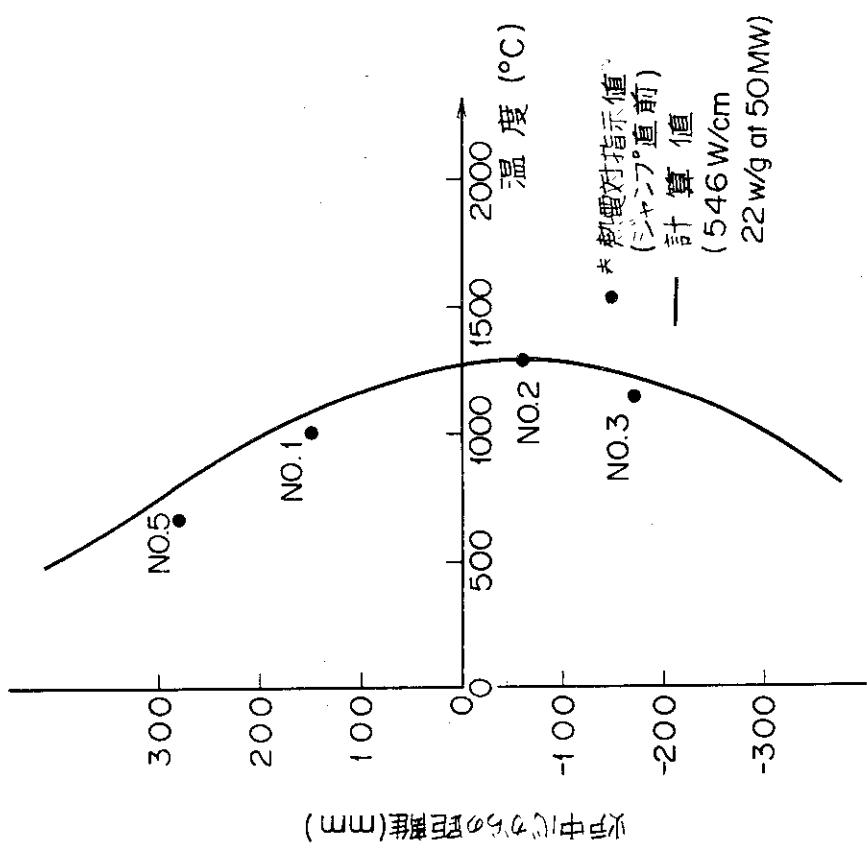


Fig. 14 74F-2A キャプセル40 MW時キャプセル中心部温度分布

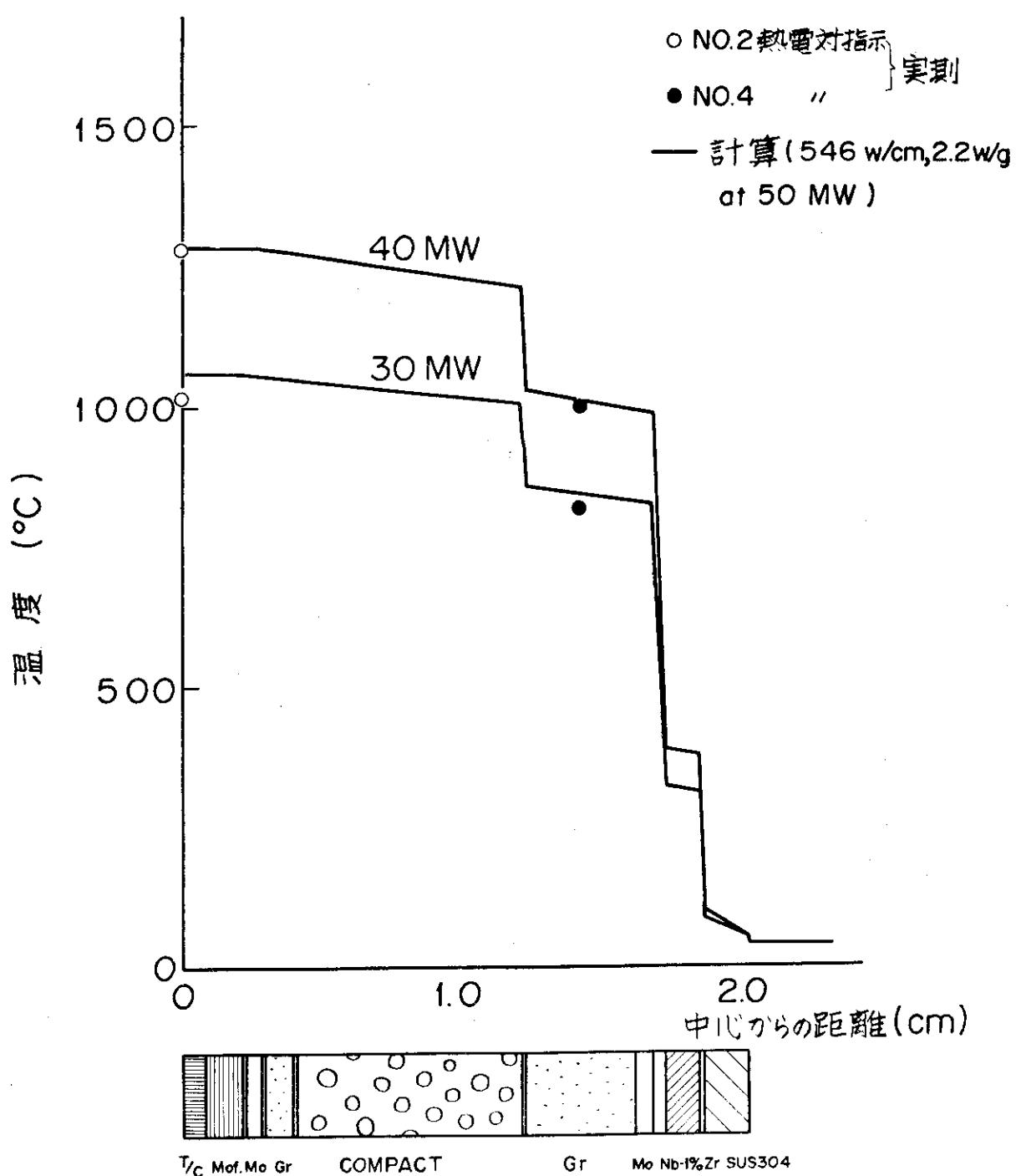


Fig. 15 74 F - 2 A キャプセル・径方向温度分布 ( 30 MW, 40 MW 時 )

## 4. 照 射 後 試 験

### 4.1 キャプセル解体および観察

#### 4.1.1 外 筒

外観には異常がなかったが、X線透過写真観察の結果、Fig. 16の⑪に示すように、内外筒上部端栓において5本の熱電対のうち4本（全てNb-1%Zrシーズ、BeO絶縁、タンゲステンレニウム素線のもの）のシーズが折損していることがわかった。また、内外筒が真空温度制御ギャップの一部で接触していた。

更に、内筒を引出すため外筒を切断したが、外筒内への水の侵入は認められなかった。

#### 4.1.2 内 筒

円筒部外表面および下部端栓には異常がなかったが、Fig. 16の⑥に示すように上部端栓が中央部で約1mm外側に膨れていた。端栓溶接部、熱電対口一付部には異常はなく、熱電対は折れやすくなっている以外特別の異常はなかった。

内筒全体をホワイト・スピリットに浸して行ったリーク・ロケーション・テストの結果、No 2熱電対（中心温度測定用のNb-1%Zrシーズのもの）のシーズ折損部より発泡が認められ、他の部分には発泡がなかった。

X線透過写真観察の結果、Fig. 16の⑤-⑦に示すように黒鉛スリーブの外表面に施したモリブデン溶射層が波打つ様に変形するとともに円周方向に多数の亀裂が生じていた。また、下のジルコニア製断熱材が破損しており、下部のジルコニウム製酸素ゲッタが著しく変形していた。更に、最下端のコンパクトが破損し被覆粒子燃料が離脱・散在していた。

#### 4.1.3 内筒内部構造物

内筒を切断し内筒内部の構造物を引出したところ、上部端栓に口一付されている熱電対が途中で折損し、No 2 および No 3 热電対の先端部は中心部と一体となって内部に残った。また、シーズの低温部表面には無光沢のうすい黒色付着物が認められた。ジルコニア製断熱材は上下とも割れており、最下端のコンパクトは周辺部分が欠けて面とりをしたようになっていた。

黒鉛スリーブ外表面のモリブデン溶射層（特に中央部）は簡単にはがれるような状態となっていた。

ほとんどの部品は容易に取り出し・分解し得たが、コンパクト中心に挿入されているNb-1%Zrシーズ熱電対、モリブデン製スリーブおよび黒鉛製保護管の3つは中央部で約20cmにわたり溶着しており分解出来なかった。X線透過写真観察の結果、Fig. 17に示すようにモリブデン製スリーブの継ぎ目（2ヶ所）で保護管部に炭化物と思われる付着物が認められた。その内の1ヶ所には数個の被覆粒子があった。また、熱電対のシーズは全体的に破損しており、特に付着物が認められた個所付近の破損・変形が著しい。この部分に挿入されているNo 2 および No 3 热電対はいずれも先端の測温部が断線していた。

## 4.2 金相試験

### 4.2.1 試験試料の採取

キャプセル内の異常箇所を更に詳細に観察するため金相試験を実施することとし、

- (1) 熱電対シースの内外筒間折損部,
- (2) 熱電対シースの内筒内上部反射板直下部,
- (3) 内筒および黒鉛スリーブの中性子束最大部,
- (4) 熱電対, モリブデンスリーブおよび黒鉛保護管が溶着した部分,

から合計14個の試料を採取した。熱電対などが溶着した部分は切出し時に破損のおそれがあつたため、樹脂固化したのち切出しを行った。Fig. 18に試料の切出し位置を示す。

試料の研磨は、耐水研磨紙#240～#1200およびダイヤモンドペースト $7\mu \sim 3\mu$ により行い、エッティングは、混酸腐食液（混合比、 $\text{HNO}_3 : \text{HF} : \text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_2\text{O} = 5 : 10 : 7 : 25$ ）により行った。また、研磨・エッティング後の顕微鏡写真撮影は10倍と100～400倍で行った。

なお、熱電対シース、モルブデンスリーブおよび内筒については部分的にマイクロビックアス硬さ試験（荷重100グラムまたは200グラム）を行った。

### 4.2.2 試験結果

#### 1) 熱電対シースの内外筒間折損部

折損部付傍にはFig. 19に示すように、シース内面に折損面に平行な数本の亀裂が認められた。この部分の硬さは $H_{MV}$  200～210であり、他の部分（ $H_{MV}$  160）より硬化していた。

#### 2) 熱電対シースの内筒内部分

内筒内の低温部では熱電対のシース表面に黒鉛が付着しており、Fig. 20に示すようにシースとの間に薄い炭化物を形成していた。シースは再結晶していた。

#### 3) 内筒および黒鉛スリーブ

内筒およびモリブデン溶射層付黒鉛スリーブの断面写真をFig. 21に示す。また、モリブデン溶射層の拡大写真をFig. 22に示す。内筒の組織、硬さ（ $H_{MV}$  120）は未照射材と同じである。モリブデン溶射層は未照射材に比べ、ポイド部分が多くなっている。

#### 4) 熱電対溶着部

No. 2 熱電対先端部付近は、Fig. 23～Fig. 26に示すようにシースが100mm以上にわたり溶融し、ほとんど原形を保っていない。シース外側の熱電対保持用モリブデン箔はほとんど変化していないが、組立て位置からずれている。モリブデンスリーブはFig. 26に示すように内側・外側とも合金層を形成している。特に、外側の合金層の厚さは0.38mmに達している\*。

合金層は極めて硬いので（ $H_{MV}$  1100～1200）、炭化物（ $\text{Mo}_2\text{C} + \text{MoC}$ ）と考えられる。

溶融した熱電対シース材は、モリブデンスリーブの突き合せ部の間隙を通って、黒鉛保護管に浸透・拡散し炭化物を形成している。一部はコンパクト試料にまで達している（Fig. 27）。

\*この炭化が最も異常な温度を示した初めの数分間で生じたとすると、この部分の温度は2100°C以上になったものと推定される。

比較的低温であったと考えられるNo 3 热電対の先端部付近は、Fig. 28に示すように上方での溶融物がシースに沿って下降している。また、シース先端が破損している。热電対保持箔はほとんど変化していない。モリブデンスリーブの外側には厚さ 0.23 mm の炭化物層が形成され脆化した組織を呈している。

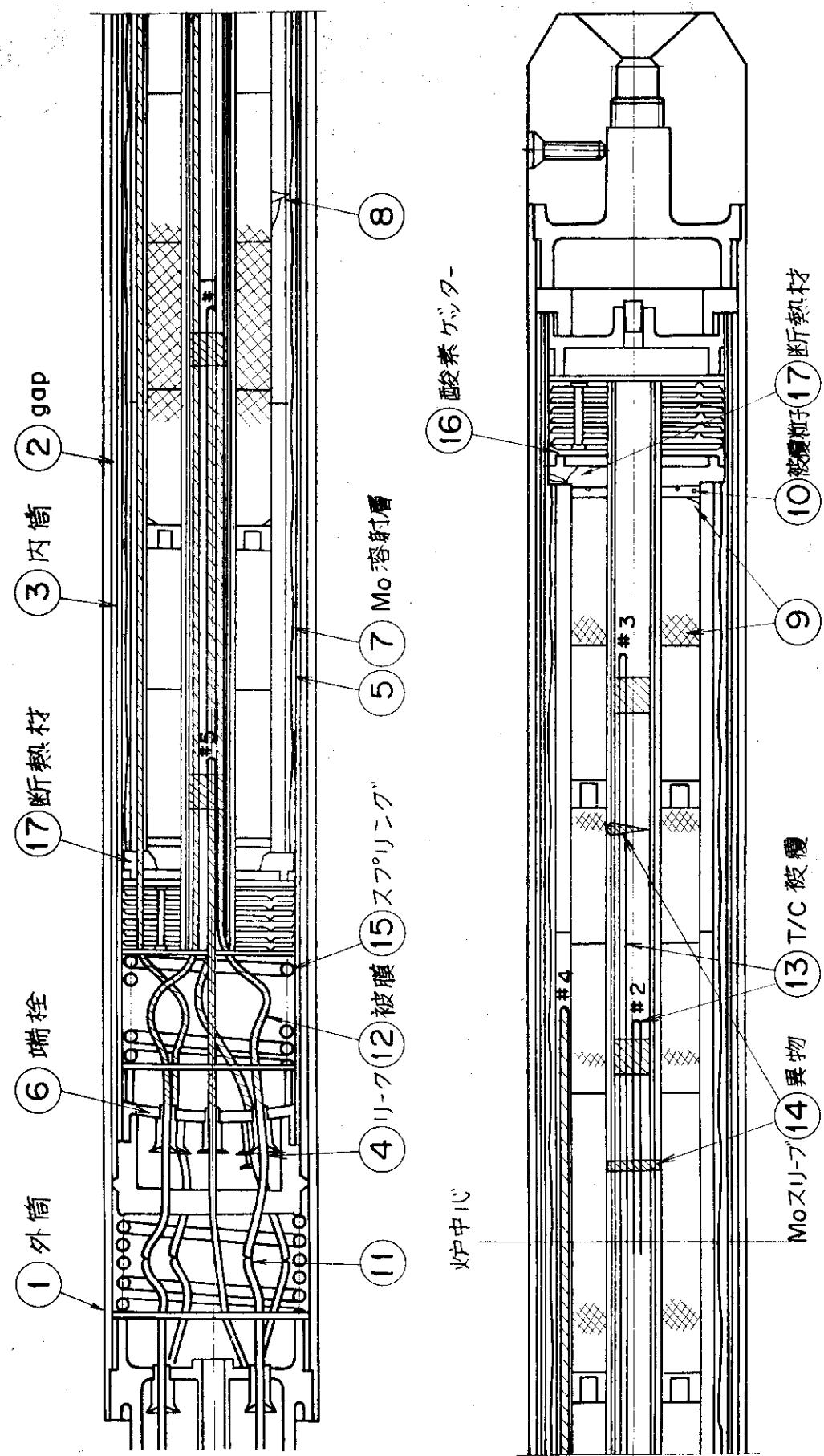


Fig. 16 74F-2A 解体点検結果

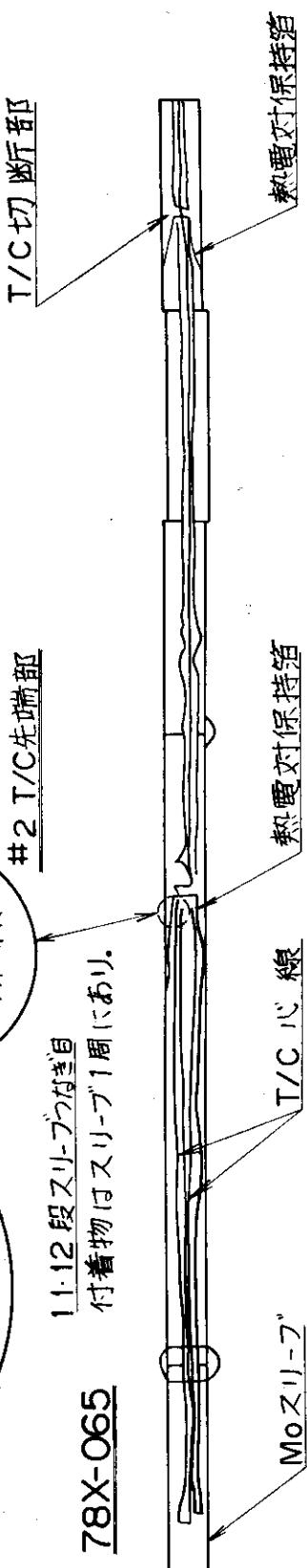
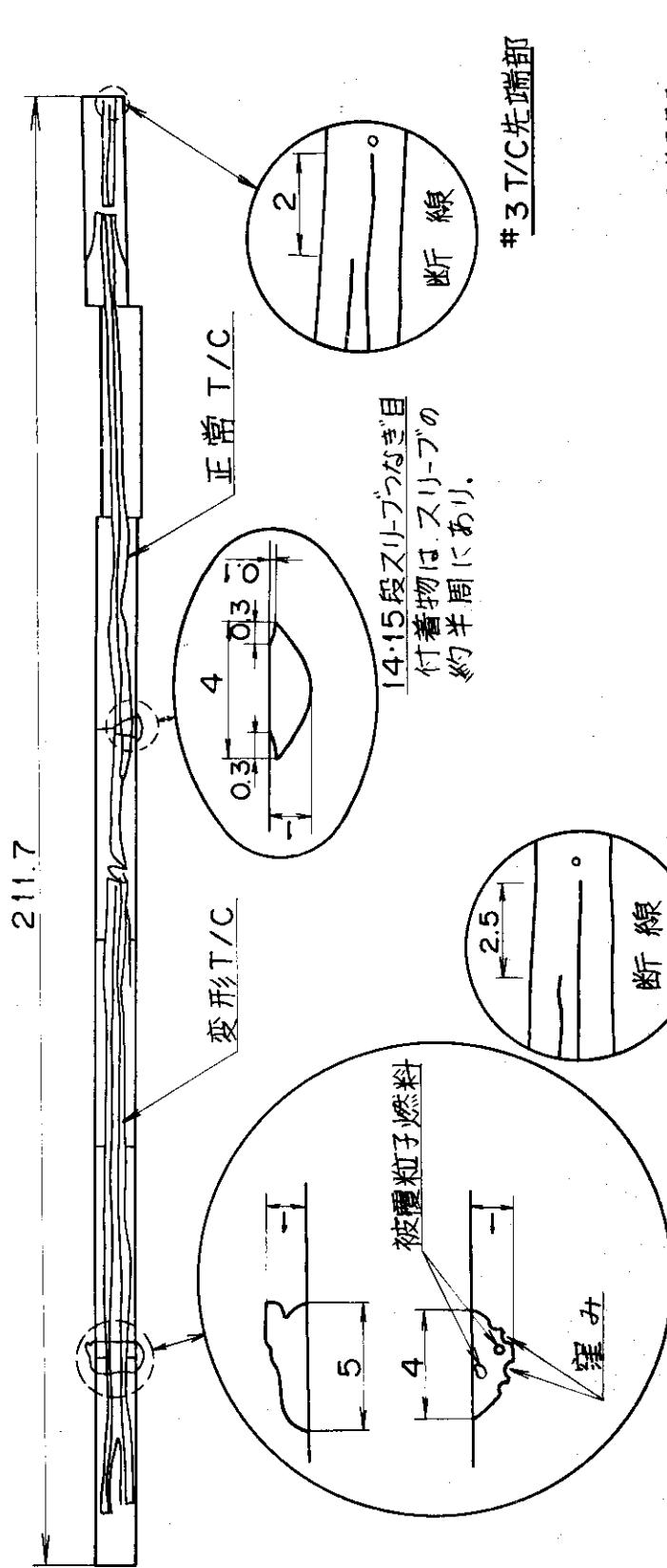
78X-064

Fig. 17 74F - 2A 热电対溶着部観察結果

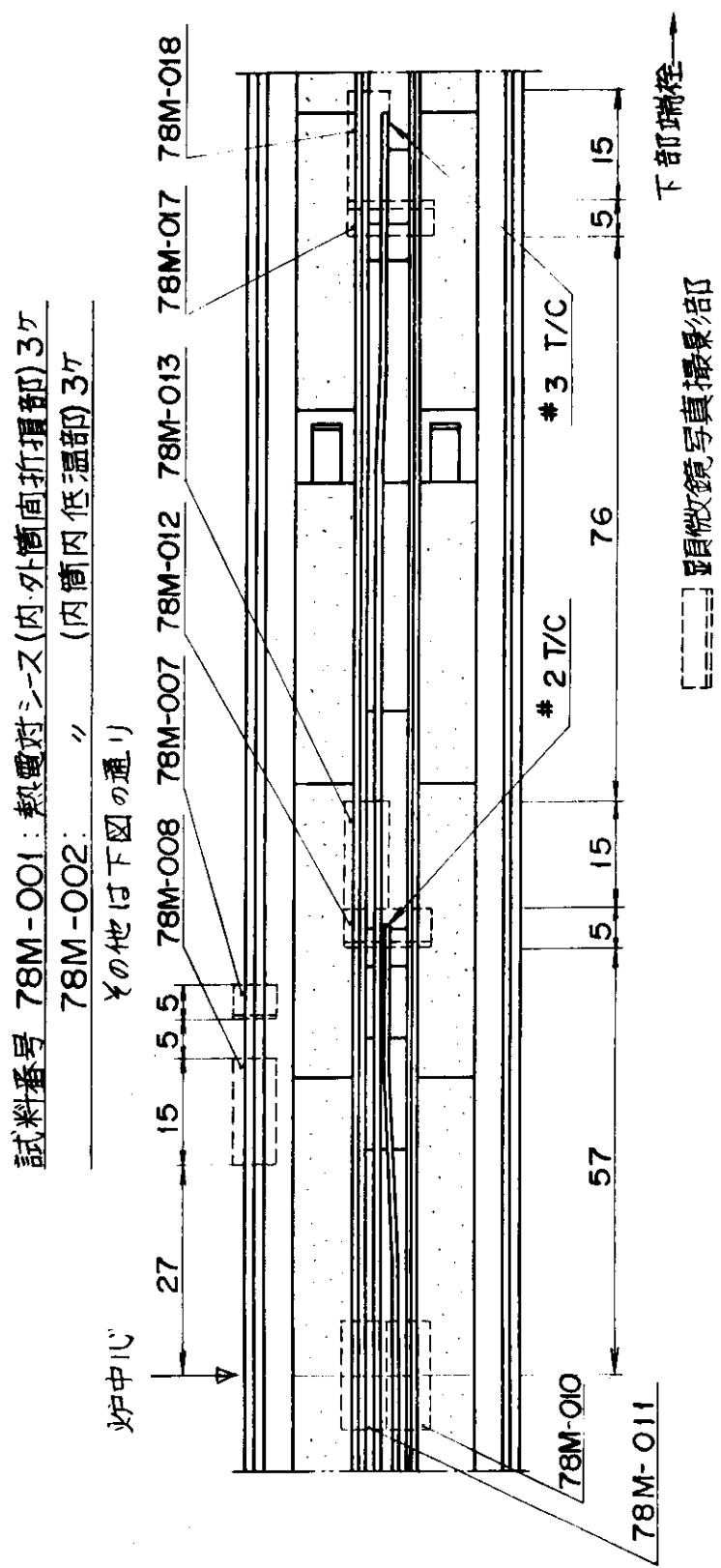


Fig. 18 金相試料採取位置

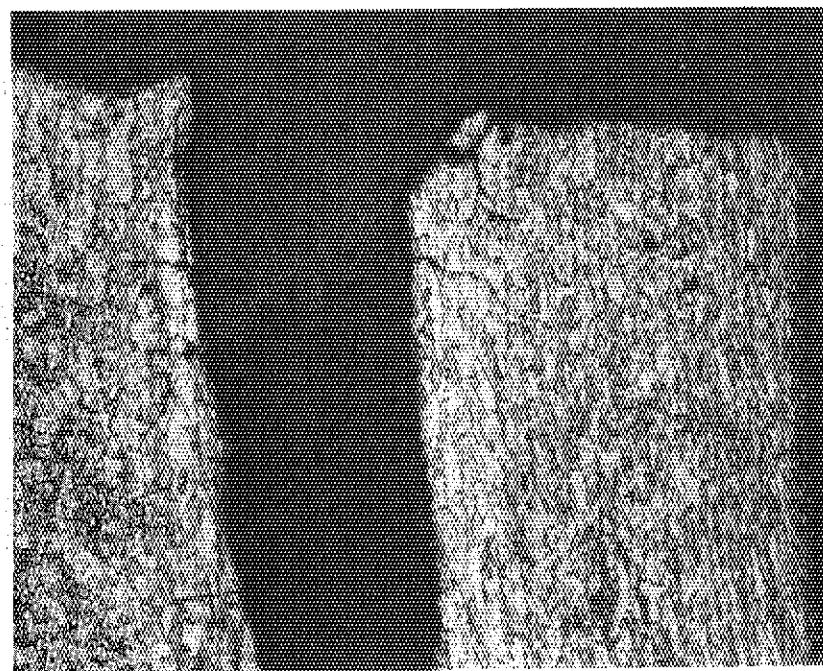


Fig. 19 热電対シースの内・外筒間析損部 ( $\times 100$ )

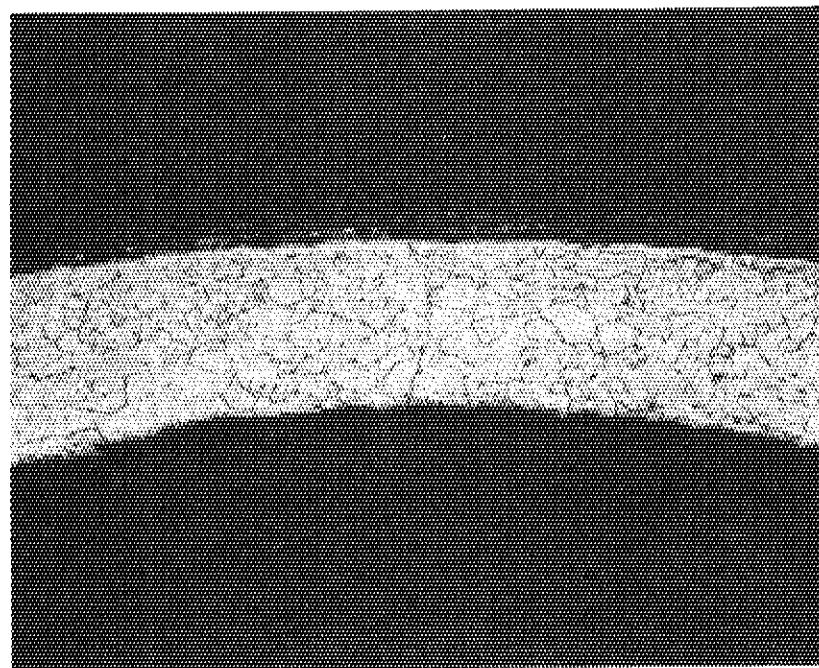


Fig. 20 热電シースの再结晶部 ( $\times 100$ )

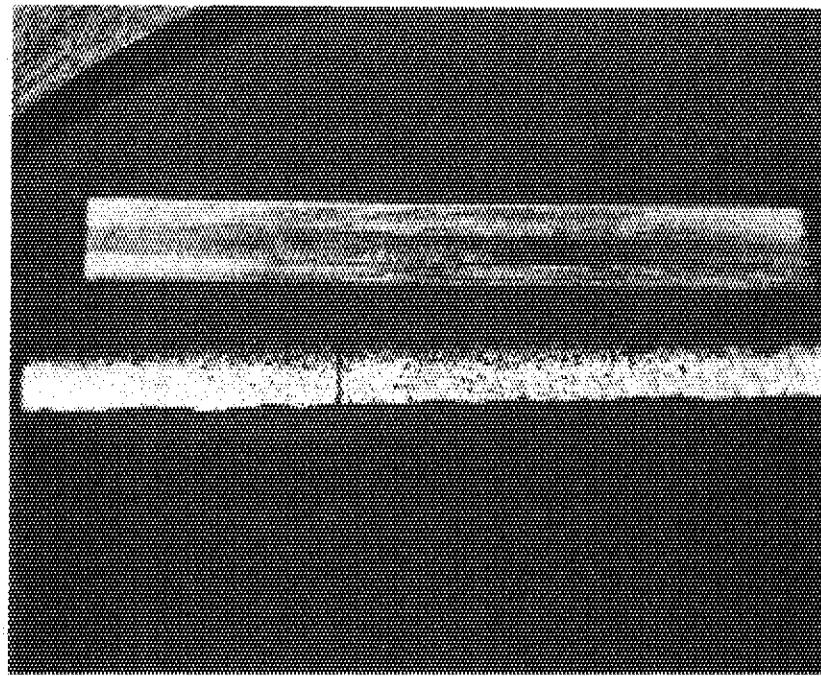


Fig. 21 内筒 (Nb - 1 % Zr), Mo 溶射層, および  
黒鉛スリーブ ( $\times 10$ )

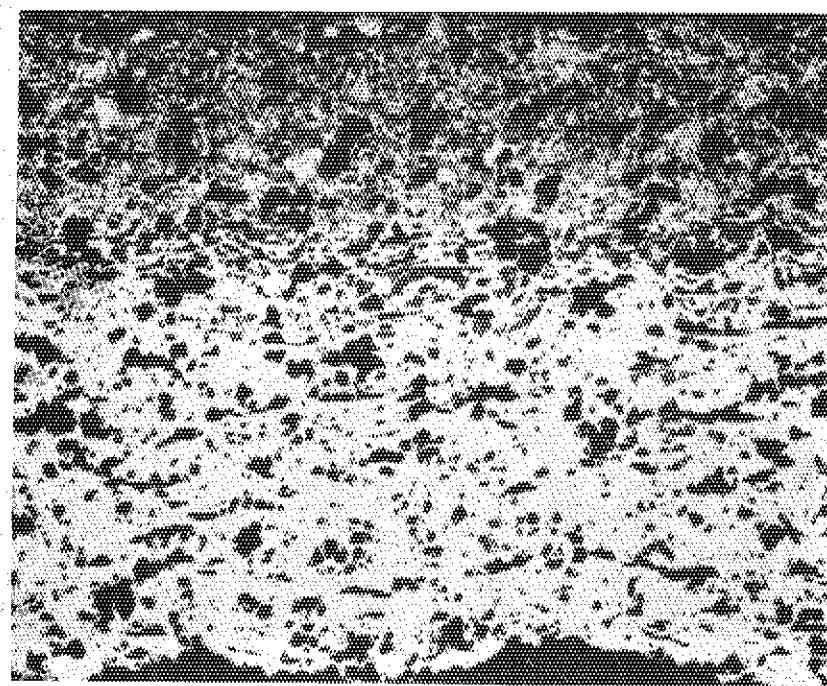


Fig. 22 Mo 溶射層 ( $\times 100$ )

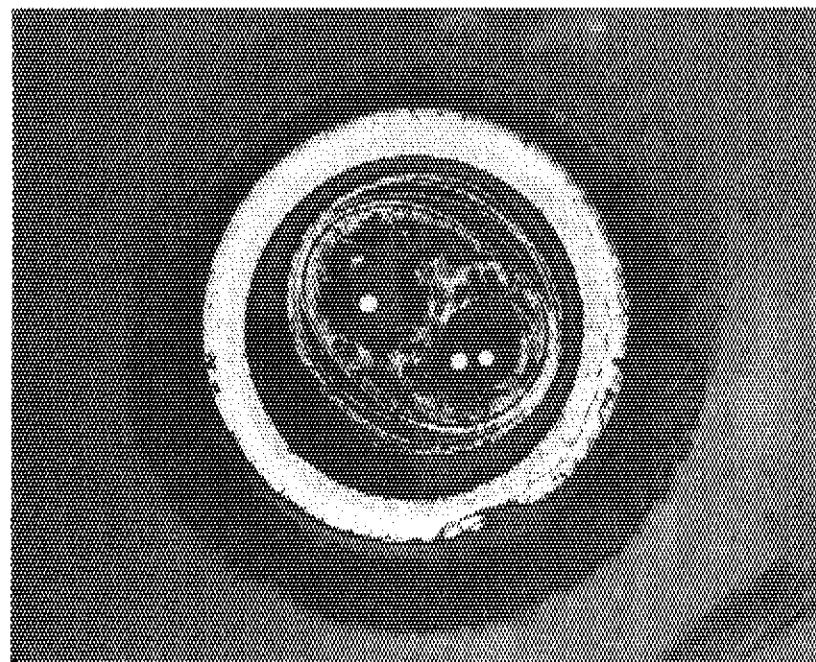


Fig. 23 热電対シースの溶液破損部断面(中心から熱電対  
(W-Re), 热电対シース(Nb-1%Zr),  
热電対保持箔(Mo), スリーブ(Mo), 保護管(黒鉛) ) ( $\times 100$ )

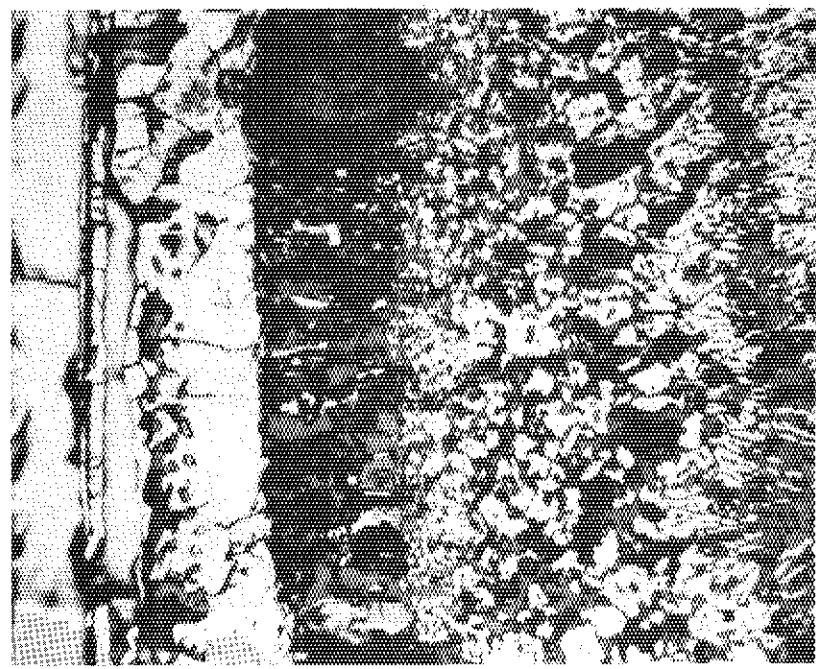


Fig. 24 热電対シース溶融部と热電対保持箔 ( $\times 400$ )

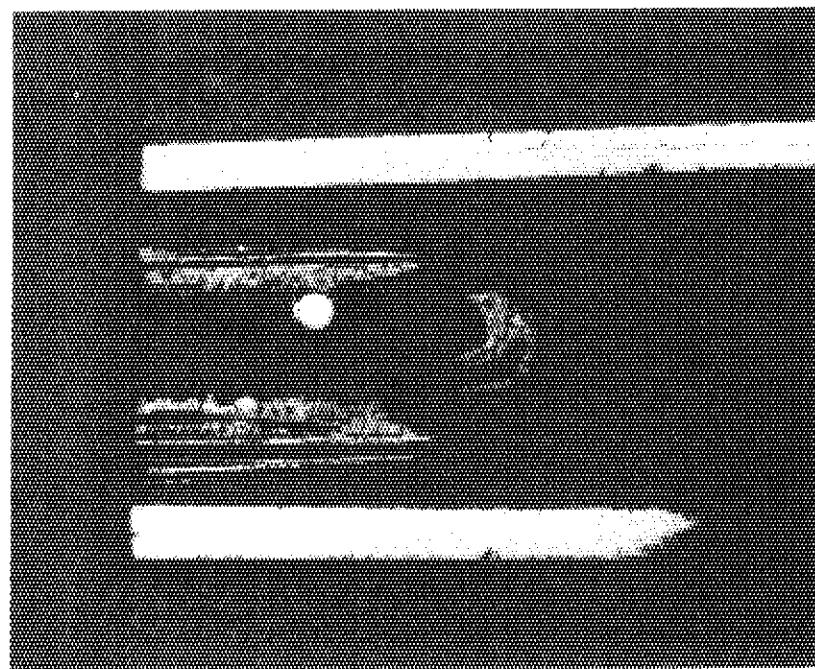


Fig. 25 No. 2 热電対シース先端の溶融破損部縦断面 ( $\times 10$ )

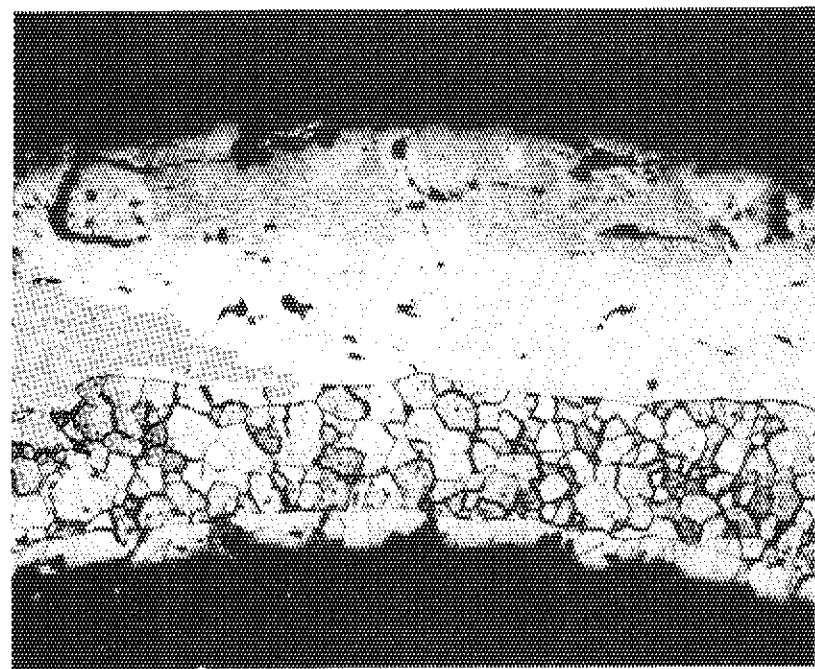
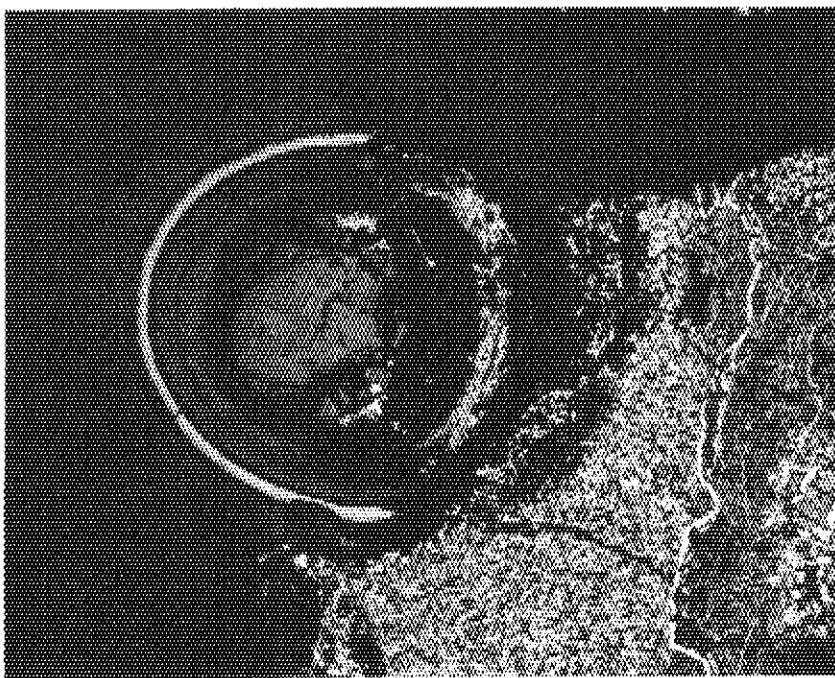
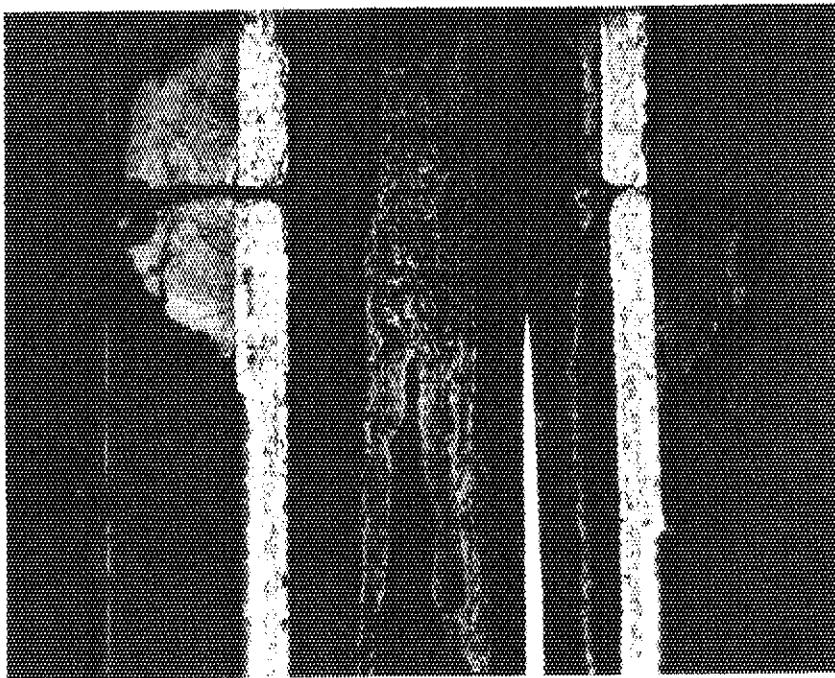


Fig. 26 Mo スリープの炭化物形成層 ( $Mo_2C + MoC$ ) ( $\times 100$ )



( $\times 100$ )



( $\times 10$ )

Fig. 27 炉中心位置熱電対シースの溶融破損部（シースの溶融物はMoスリーブ合わせ部の  
間隙を通して黒鉛保護管に浸透、拡散し被覆粒子燃料部まで達している）

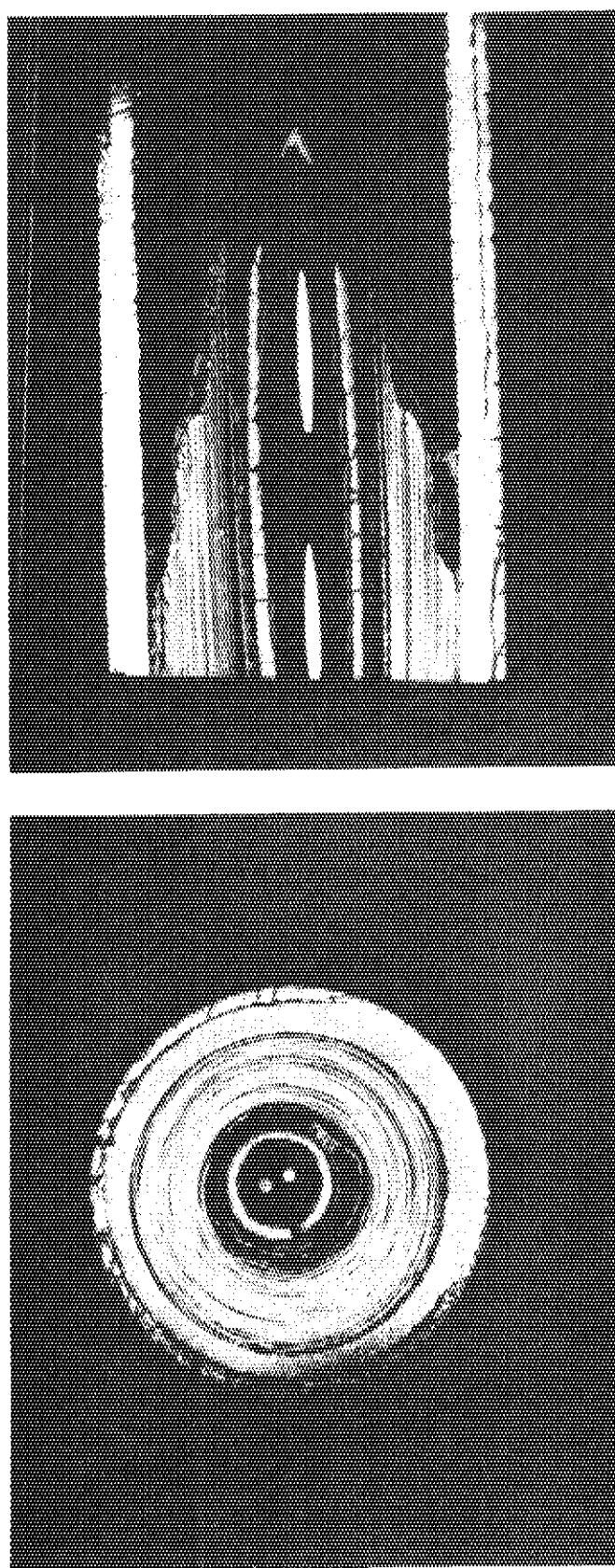


Fig. 28 No. 3 热電対先端部 ( $\times 10$ )

## 5. キャプセル構造材加熱試験

### 5.1 加熱試験対象材料

内筒内で使用されている全ての構造材（ただし試料の上下端に挿入されている断熱材、反射板などを除く）とし、Table 5 に示す材料について、加熱しがス放出挙動、形状変化の有無などについて観察した。

### 5.2 加熱試験方法

Fig. 29 に示すように連続的に真空引している誘導加熱炉の上部から加熱試料をタンクステン線で吊り下げ、石英管を通して加熱中の試料の状態を観察すると同時に、炉内の真空度変化によりガス放出挙動を監視した。また、加熱の前後に試料重量および寸法を測定し、変化を観測した。

### 5.3 加熱試験結果

Table 5 に加熱試験結果を示す。形状については特別の変化は認められなかった。

Fig. 30 に各試料におけるガス放出特性を示す。ガス放出量の測定は、試料温度をステップ状に上昇させたときの炉内圧力上昇の時間変化を真空度計により測定し、時間積分値と真空ポンプの排気速度の積を求め、各ステップにおける放出ガス量とする方法で行った。即ち、

$$V_i = S \int_0^T P_i dt$$

である<sup>(7)</sup>。積分時間 T は昇温後の真空度が昇温前と同一レベルまで回復するまでとした。ポンプの排気速度は  $150 \text{ l/sec.}$  である。 $P_i$  はステップ後の圧力 (atm.) である。 $V_i$  は atm. CC で求まるので試料重量で除して、放出率とした。

これらの結果から、コンバクトの主成分であるマトリックス材や黒鉛は予想より大量のガスを発生するうえ、溶射モリブデン層が  $800 \sim 1000^\circ\text{C}$  で急激に大量のガスを発生することがわかる。

### 5.4 溶射モリブデン層および加熱炉内付着物の分析

溶射モリブデン層は、不活性雰囲気でプラズマ溶射法により形成したものであるが、ガス放出特性から考えてモリブデン以外の不純物を多量に含んでいる疑いがあるので、X線回折法により成分分析を行った。

また、溶射モリブデン層を加熱したときに発生したガスの成分を調べるため、石英管の内面

に付着した黒色異物についてもX線回折法により分析を行った。

モリブデン溶射層は機械的に剥離したのち、めのう乳鉢で粉碎したものについて分析した。Table 6およびTable 7に回折条件と結果を示す。溶射層はモリブデン以外にピークは認められず、ほとんど不純物は含んでいないことがわかった。また、黒色付着物はMoO<sub>2</sub>およびMoO<sub>3</sub>なるモリブデン酸化物であることがわかった。

Table 6 X 線 回 折 条 件

|         | モリブデン溶射層回折時      | 黒色付着物回折時         |
|---------|------------------|------------------|
| 対 險 極   | CrK $\alpha$     | CuK $\alpha$     |
| 電 壓     |                  | 40 kV            |
| 電 流     |                  | 8 mA             |
| レートメータ  |                  | 16               |
| 倍 率     |                  | 1                |
| 時 定 数   | 1秒               | 4秒               |
| ス リ ッ ト | 1° - 1° - 0.4 mm | 1° - 1° - 0.1 mm |
| 走 査 速 度 |                  | 2°/分             |

Table 5 74F-2Aキャプセル構造材加熱試験結果

| 試料<br>No. | 材<br>料             | 形<br>状<br>寸<br>法     | 試<br>験 |   |                                      | 重<br>量<br>変<br>化  | 特<br>記      | 事<br>項 |
|-----------|--------------------|----------------------|--------|---|--------------------------------------|---|-------------|--------|
|           |                    |                      | 最高温度   | 外<br>觀  | 觀                                    |   |             |        |
| 1         | Gr 丸棒にMo溶射したもの Ⓐ   | 25φ×30ℓ<br>(溶射層0.5t) | 1600°C | Mo溶射層の端部にクラック<br>が生じた。Mo表面が銀色にな<br>った(加熱前は薄い黒色) | 前) 48.326<br>後) 47.702<br>差) 0.624 g | 1450°C, 2×10 <sup>-4</sup> Torrで放電あり。<br>1000°C→1300°C中, 石英管内面に<br>黒色付着物あり。 |             |        |
| 2         | 同 上 Ⓛ              | 22φ×46ℓ<br>(溶射層0.5t) | 1350°C | Mo表面が銀色になった。                                    |                                      | 1000°C→1100°C中, 石英管内面に<br>黒色付着物あり。  |             |        |
| 3         | 2と同じGr丸棒(800°C加熱済) |                      | 1650°C | 変化なし。   |                                      |   |             |        |
| 4         | 2と同じGr丸棒(屋外に2ヶ月放置) |                      | 1520°C | 変化なし。   |                                      |   | ガス放出特性はほぼ同じ |        |
| 5         | Moスリーブ             | 25.6 OD×23 ID×52ℓ    | 1280°C | 表面が銀色になった(加熱前<br>は黒色の金属光沢)                      | 前) 51.253<br>後) 51.242<br>差) 0.011 g |   |             |        |
| 6         | 加熱後の3と加熱後の5の組合せ    |                      | 1320°C | 変化なし。   |                                      |   | ガス放出ほとんどなし。 |        |
| 7         | 2の溶射層のみ            | 0.5tの小片              | 1430°C | 外表面が銀色となつた。内表<br>面に黒ずんだ茶色の付着物あ<br>り。            | 前) 8.842<br>後) 8.764<br>差) 0.078 g   |   |             |        |
| 8         | コンパクトマトリックス材       |                      | 1630°C | 変化なし。   | 前) 22.983<br>後) 22.809<br>差) 0.174 g |   |             |        |

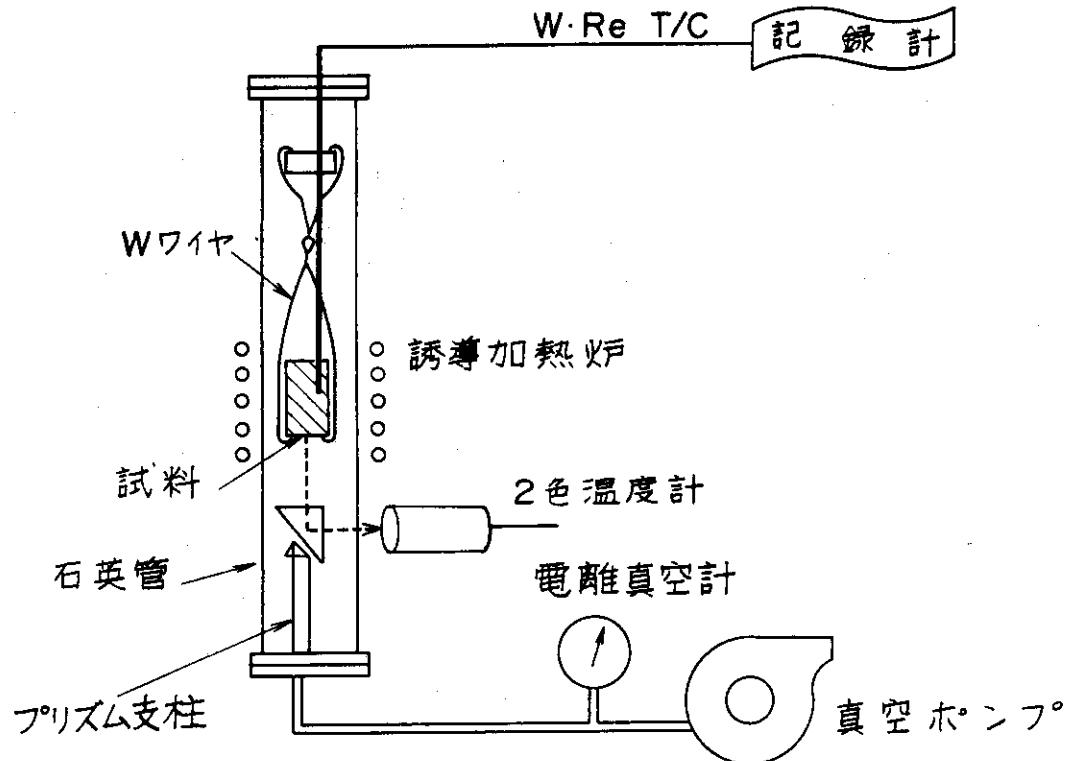


Fig. 29 加熱試験装置概略図

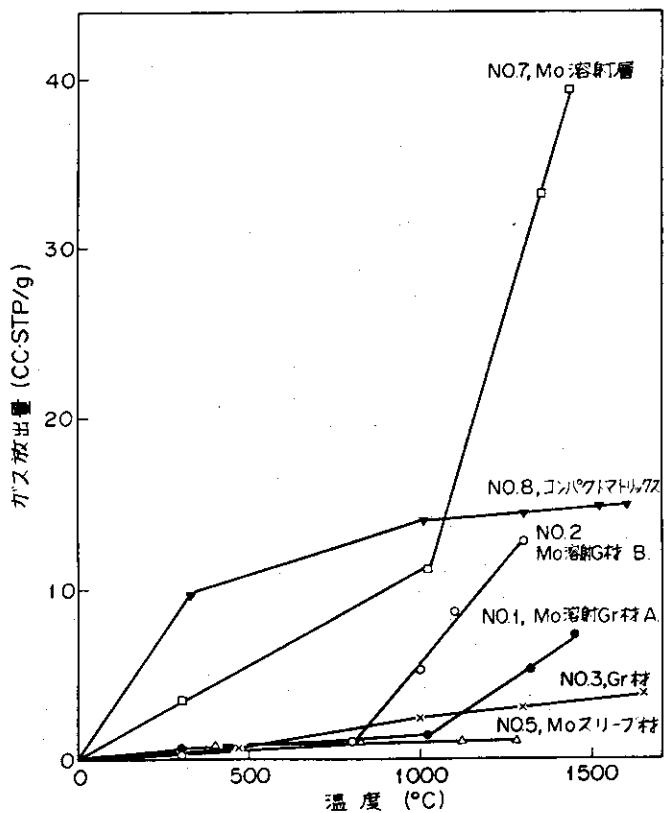


Fig. 30 74 F - 2 A キャップセル構造材ガス放出挙動

Table 7 X 線回折結果

## 1) モリブデン溶射層

| ピ - ク   |      | ASTM 同定カードとの対比 |
|---------|------|----------------|
| 2θ (Cr) | d    | Mo (4-0809)    |
| 61.8    | 2.23 | ○              |
| 93.6    | 1.57 | ○              |
| 125.1   | 1.29 | ○              |

## 2) 黒色付着物

| ピ - ク   |      | ASTM 同定カードとの対比            |                           |                  |
|---------|------|---------------------------|---------------------------|------------------|
| 2θ (Cu) | d Å  | MoO <sub>2</sub> (5-0452) | MoO <sub>3</sub> (5-0513) | Graphite(8-0415) |
| 23.3    | 3.81 |                           | ○                         |                  |
| 25.7    | 3.46 |                           | ○                         |                  |
| 26.1    | 3.41 | ○                         |                           |                  |
| 26.4    | 3.37 |                           |                           | ○                |
| 27.3    | 3.26 |                           | ○                         |                  |
| 33.1    | 2.70 |                           | ○                         |                  |
| 33.7    | 2.66 |                           | ○                         |                  |
| 36.9    | 2.43 | ○                         |                           |                  |
| 37.1    | 2.42 | ○                         |                           |                  |
| 37.4    | 2.41 | ○                         |                           |                  |
| 37.5    | 2.40 | ○                         |                           |                  |
| 44.5    | 2.04 |                           |                           | ○                |
| 49.3    | 1.85 |                           | ○                         |                  |
| 49.7    | 1.83 | ○                         |                           |                  |
| 53.3    | 1.72 | ○                         |                           |                  |
| 53.7    | 1.70 | ○                         |                           |                  |
| 54.1    | 1.69 | ○                         |                           |                  |
| 60.0    | 1.54 |                           |                           | ○                |
| 60.4    | 1.53 | ○                         |                           |                  |
| 60.8    | 1.52 | ○                         |                           |                  |
| 66.9    | 1.40 | ○                         |                           |                  |
| 77.4    | 1.23 |                           |                           | ○                |
| 78.8    | 1.21 | ○                         |                           |                  |

## 6. 故障原因の推定と今後の対策

### 6.1 故障原因の推定

ホットセル内の解体検査の結果、

- (1) 外筒は正常である、
  - (2) 内筒上部端栓が 1 mm 膨れている以外は正常である、
  - (3) 内筒内ではコンパクト中心孔の構造材が一部溶融している、
  - (4) 黒鉛スリーブ表面の溶射モリブデン層は金相的には正常であるが、亀裂の発生や剥離がみられる、
  - (5) 内外筒間で熱電対シースが破損しており、シースを通しての内筒内ガス漏洩がある、
- などのことがわかった。また、構造材加熱試験の結果、
- (1) コンパクトマトリックスおよび黒鉛から予想以上のガス発生がある、
  - (2) 800 ~ 1000 °C 以上において、溶射モリブデン層から急激なガス発生がある、
- などがわかった。

これらの結果と、故障発生時の状況から故障の直接原因は、溶射モリブデン層からの急激なガス発生であると考えられ、これにより温度と内圧の急上昇をまねいたため、中心熱電対シースが溶融するとともに、内筒上部端栓の変形を来たし、その結果熱電対シースが内外筒間ににおいて限度をこえて折り曲げられたため、出力低下とともに内筒の収縮時に折損し、内筒内の核分裂生成ガスを含んだガスが Fig. 31 に示すようにシースを通って外筒内に漏洩したものと推定される。

黒鉛スリーブ表面へのモリブデン溶射は不活性雰囲気中でプラズマ溶射法により行われたものであるが、T.I.G 溶接と同様不活性ガスは溶融モリブデン粒子流および溶射面のみを覆うので空気の巻込みによる酸化はさけられない。また、巻込んだ空気が溶射層中に気泡の形で閉じこめられる<sup>(8)</sup>。

モリブデンの酸化物は比較的低温で揮発する、特に三酸化モリブデンは 795 °C で昇華する、ので溶射層の温度がこの温度以上になると酸化モリブデンガスを放出する。黒鉛から放出される水分などによる酸化でこの現象は促進される。

酸化モリブデンガスはヘリウムガスに比べ熱伝導率が小さいので、内筒内に充満するとガスギャップに於ける熱伝達が悪くなり試料を含む内部構造物の温度が上昇する。

内筒内の大量ガス発生と温度上昇は、内圧を著しく上昇させる。本キャップセルの場合、内筒端栓には内筒胴部に比べ約 3 倍の内圧応力が発生するうえ、熱電対貫通部の口一付のため時的ではあるが 1200 °C 程度の高温に晒され強度が低下している可能性があるので、同端栓が外側に膨れる。なお、構造材からのガス放出挙動は、連続的に真空引しているときと、密封状態とではかなり異なると考えられるので、温度および圧力の定量的評価は困難である。

## 6.2 今後の対策

直接の原因であるモリブデン溶射層からのガス発生に鑑み、当面この方法で行われるモリブデン溶射はキャップセル内では使用しないこととし、やむを得ない場合には使用温度を800°C以下とする等の考慮をはらうこととする。他金属の溶射層についても、酸化物の有無やガス放出挙動に十分な検討を行って使用するようとする。

また、他の構造材についても、ガス放出挙動について十分な検討を行うこととし、特に黒鉛やセラミックスのような多孔質のものについては十分な脱ガス処理を行うこととする。

黒鉛の場合、加熱試験の結果、予想よりはるかに大量のガスを放出することがわかった。試験に使用したものはキャップセルと同様、特別の処理をしなかったものであり、内筒内圧上昇の一因を成していることも考えられるので十分な脱ガスを行うようにすべきである。

従来においても黒鉛からのガス発生については設計上必要な配慮を行っていたが、必ずしも徹底していなかった面があるので脱ガス手順の標準化や設計上用いるガス発生量の規格化を図ることとし、一連の検討を行った。

キャップセル組込前の脱ガスは、照射温度以上で行われることが望ましいが、加熱炉の性能上1200°Cとし、連続真空引で5時間とする。組込までの保管は真空引の出来るデシケータ中で行うこととする。また、組込に際し大気に晒される時間は48時間以内に制限する。更に、キャップセル組込後は、内筒ごと300°Cに加熱し5時間真空引したのち、ヘリウムガスを充てんして密封する。これらの一連の作業を全ての黒鉛を使用するキャップセルについて適用することとする。

いくつかのコンパクト用マトリックス材および黒鉛について、この手順により脱ガスを行い、加熱試験で用いたのと同じ方法により1600～1700°Cに加熱して発生ガス量を測定したところ、いずれの場合も1cc(STP)/grをこえることはなかった。従って、今後、黒鉛を使用するキャップセルを設計する場合、Table 8に示した標準脱ガス手順に従うことを条件として、照射中のガス発生量を1cc(STP)/grとすることとする。この手順の1つでも満足しない場合は、加熱試験によりガス発生量を別に測定し実測することとする。

熱電対シーズ先端については、1600°C程度であっても黒鉛との両立性その他により、その健全性が失われシーズ内に裂分裂生成ガスが浸入することを予想して、外筒上部端栓上方でセラミック型気密端子を用いて放射性ガスが外部へ漏洩しないような対策を施しているが、本キャップセルの場合のように内外筒間で折損してシーズが気密性を失うような場合には、十分その機能が発揮されないので、内外筒間における“たわみ”を十分とるなどしてむりがかり折損することのない様な考慮を払うこととする。

また、端栓の厚みなどについても胴部と同等の強度をもつ様にし、バランスのとれた設計をこころがけるようにする。

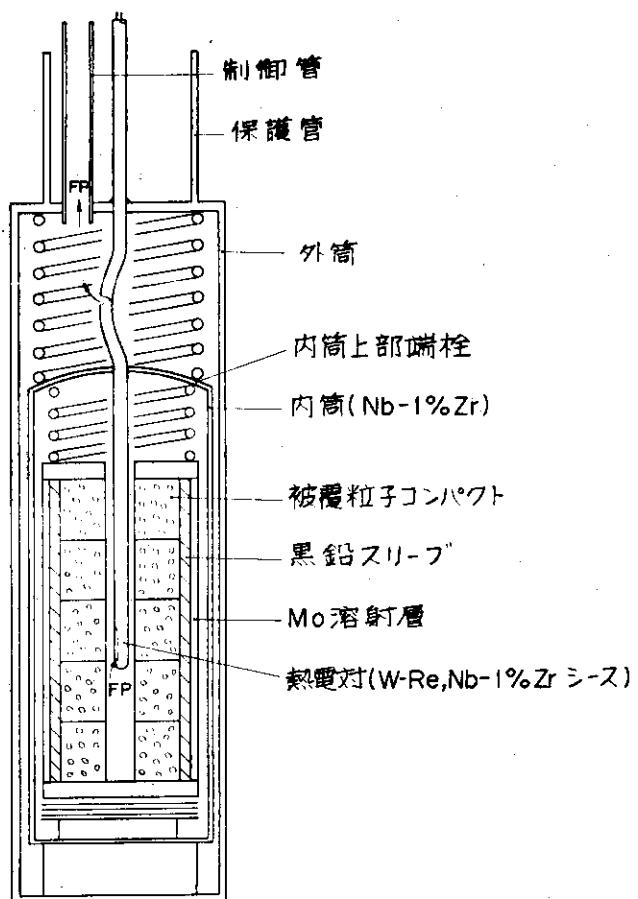


Fig. 31 74 F - 2 A キャプセル FP ガス漏洩経路

Table 8 黒鉛等標準脱ガス手順

| 手 順 | 作 業      | 条 件                |
|-----|----------|--------------------|
| 1   | 組込前脱ガス   | 1,200°C以上, 真空, 5時間 |
| 2   | 組込前保管    | デシケータ内, 真空         |
| 3   | 組込       | 大気中は48時間以内         |
| 4   | 組立中保管    | 内筒ごと真空中            |
| 5   | 内筒密封時脱ガス | 300°C, 真空, 5時間     |

## む　す　び

本キャップセルでは、高温における黒鉛とニオブ合金の反応を防止するため黒鉛表面に溶射したモリブデンからの特定温度以上の急激なガス発生が原因となった温度の急上昇と、核分裂生成ガスの外部漏洩を経験した。溶射中に生成した少量の酸化モリブデンが800～1000°Cで蒸発することが直接の原因であった。

多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料照射キャップセルでは照射温度が高いため種々の技術上の問題に遭遇するため仲々完成した技術となりにくい。1600°C以上の高温を長時間（数千時間）安定に測定する熱電対の問題や、72F-7Aキャップセルで経験した低融点合金の問題<sup>(3)</sup>などキャップセル設計上考慮すべき点は多い。本キャップセルで経験した急激なガス発生もまた重要な問題となるので、今後におけるキャップセル設計では、この点を含め今まで以上に十分な検討を行う必要がある。

JMTRでは、被覆粒子燃料の異常時挙動を調べるために同燃料を一時的ではあるが2200°Cで照射するキャップセルを設計・製作する計画があるが、本キャップセルを含め過去における経験を活かし、十分目的を達するようにしたい。

最後に、本キャップセルのトラブルの原因調査に関し、御指導御協力いただいた前当研究所材料試験炉部長高田 稔氏\*、現同部長大内信平氏をはじめ同部関係各位、東海研究所燃料工学部燃料照射研究室長岩本多実氏ほか室員の各位、更には同研究所技術部工作課の各位に厚く御礼申し上げます。

## 文 献

- (1) 動力炉開発管理室熱中性子炉設計班；“多目的高温ガス実験炉予備設計”，JAERI-memo 4419（公開），1971年5月
- (2) 林 喬雄，工藤光雄；“薄いガス層の真空の熱抵抗とその利用”，日本機械学会誌，第37巻，第618号（1970）
- (3) 八巻治恵，野村 靖，長松谷孝昭，山原 武，酒井陽之；“被覆粒子照射用キャップセル（72F-7A）の故障報告”，JAERI-M 6250，1975年10月
- (4) W.V. Goeddel, et al ; “The influence of coated particles on the physical properties of graphite-matrix fuel compacts”, GAMD-4441, (1963)
- (5) 野村 靖，中田宏勝，田中三雄，深谷 清；，“照射キャップセル内筒材としてのNb-1%Zr合金の高温強度”，JAERI-M 7629，1978年4月

\* 現原子力エンジニアリング（K.K.）

## む　す　び

本キャップセルでは、高温における黒鉛とニオブ合金の反応を防止するため黒鉛表面に溶射したモリブデンからの特定温度以上の急激なガス発生が原因となった温度の急上昇と、核分裂生成ガスの外部漏洩を経験した。溶射中に生成した少量の酸化モリブデンが800～1000°Cで蒸発することが直接の原因であった。

多目的高温ガス炉用被覆粒子燃料照射キャップセルでは照射温度が高いため種々の技術上の問題に遭遇するため仲々完成した技術となりにくい。1600°C以上の高温を長時間（数千時間）安定に測定する熱電対の問題や、72F-7Aキャップセルで経験した低融点合金の問題<sup>(3)</sup>などキャップセル設計上考慮すべき点は多い。本キャップセルで経験した急激なガス発生もまた重要な問題となるので、今後におけるキャップセル設計では、この点を含め今まで以上に十分な検討を行う必要がある。

JMTRでは、被覆粒子燃料の異常時挙動を調べるために同燃料を一時的ではあるが2200°Cで照射するキャップセルを設計・製作する計画があるが、本キャップセルを含め過去における経験を活かし、十分目的を達するようにしたい。

最後に、本キャップセルのトラブルの原因調査に関し、御指導御協力いただいた前当研究所材料試験炉部長高田 稔氏\*、現同部長大内信平氏をはじめ同部関係各位、東海研究所燃料工学科燃料照射研究室長岩本多実氏ほか室員の各位、更には同研究所技術部工作課の各位に厚く御礼申し上げます。

## 文　　献

- (1) 動力炉開発管理室熱中性子炉設計班；“多目的高温ガス実験炉予備設計”，JAERI-memo 4419（公開），1971年5月
- (2) 林 翁雄，工藤光雄；“薄いガス層の真空の熱抵抗とその利用”，日本機械学会誌，第37巻，第618号（1970）
- (3) 八巻治恵，野村 靖，長松谷孝昭，山原 武，酒井陽之；“被覆粒子照射用キャップセル（72F-7A）の故障報告”，JAERI-M 6250，1975年10月
- (4) W.V. Goeddel, et al; “The influence of coated partides on the physical properties of graphite-matrix fuel compacts”, GAMD-4441, (1963)
- (5) 野村 靖，中田宏勝，田中三雄，深谷 清；，“照射キャップセル内筒材としてのNb-1%Zr合金の高温強度”，JAERI-M 7629，1978年4月

\*現原子力エンジニアリング（K.K.）

- (6) ORNL - 2127
- (7) 上田 良二, “真空技術”, 岩波全書 204
- (8) PWAC - 371, “Design and Testing of Columbium-1 Zirconium Reactor Pressure Vessels”, 1962
- (9) 蓮井 淳, 森垣 修, “肉盛溶接・溶射”, 溶接全書 15, 産報出版