

JAERI-M
89-080

高温工学試験研究炉炉床部断熱用材料、
ASR-ORB 炭素材料の寸法安定性と
断熱性

1989年6月

松尾 秀人・斎藤 保・今井 久

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1989
編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 粕高野高速印刷

高温工学試験研究炉炉床部断熱用材料、ASR-ORB
炭素材料の寸法安定性と断熱性

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部
松尾 秀人・斎藤 保・今井 久

(1989年5月29日受理)

高温工学試験研究炉の炉床部断熱構造物にとって、寸法安定性は断熱性とともに重要な性質のひとつである。この材料に選定されている ASR-ORB炭素材料の原子炉寿命中における寸法と断熱性の耐久性を、これら性質に関する試験結果と微細構造に関する研究成果を使用して評価した。この結果、炉床部断熱構造物の寿命末期における寸法変化は 0.1 %以下の収縮に止まり、また、断熱性の劣化も試料間のバラツキの範囲内に止まる見通しが明らかになった。

Stabilities of dimension and thermal-resistance of ASR-ORB
carbon for thermal barrier materials of HTTR

Hideto MATSUO, Tamotsu SAITO and Hisashi IMAI

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 29, 1989)

Dimensional stability as well as thermal-resistivity is one of the important properties for thermal barrier materials to be used in the High-Temperature Engineering Test Reactor(HTTR). Changes in these properties under the reactor operation condition were estimated on ASR-ORB carbon selected as the thermal barrier material. Stabilities of these properties were evaluated from the experimental results and graphitization behavior of the carbon crystallite by heat-treatment. It is indicated that during the reactor operation the dimension shrinkage of the material will be less than 0.1 per cent and that change in the thermal-resistance will remain within the sample-to-sample variation.

Keywords: HTTR, Thermal Barrier Materials, Carbon, Dimensional Stability, Thermal-resistance

目 次

1.はじめに	1
2.実験	2
2.1 試料	2
2.2 実験装置及び測定法	2
2.2.1 高温圧縮荷重下寸法安定性試験	2
2.2.2 熱伝導度測定試験	3
3.結果と考察	3
3.1 寸法安定性	3
3.1.1 高温圧縮荷重下寸法安定性	3
3.1.2 長期の特性変化評価に用いた手法	3
3.1.3 寿命末期における寸法変化	4
3.2 断熱性	6
3.2.1 高温熱伝導度	6
3.2.2 寿命末期における断熱性の変化	6
4.まとめ	6
謝辞	7
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experiment	2
2.1 Sample	2
2.2 Apparatus and method	2
2.2.1 Measurement of dimensional change at high temperature under compressive stress	2
2.2.2 Measurement of thermal conductivity	3
3. Results and discussion	3
3.1 Dimensional stability	3
3.1.1 Dimensional stability at high temperature under compressive stress	3
3.1.2 Method for evaluation of long term change in property	4
3.1.3 Dimensional change at terminal time of the reactor	6
3.2 Thermal resistivity	6
3.2.1 Thermal conductivity at high temperatures	6
3.2.2 Change in thermal resistivity at terminal time of the reactor	6
4. Summary	6
Acknowledgments	7
References	7

1. はじめに

高温工学試験研究炉の炉床部には核熱の有効利用と、炉底部金属構造物の熱的保護を目的として断熱層が設けられる (Fig. 1 参照)¹⁾。この構造物は炉心構造物の重量により 0.3 MPa の圧縮荷重下、最高温度 950°C で原子炉の寿命中交換されることなく使用されることになっている。このため材料の様々な特性について、予め使用環境下での耐久性を評価しておくことが必要となる。材料特性の中でとくに重要と考えられるのが断熱性と高温圧縮下における寸法安定性である。これはこの構造物が炉床部にあって建物の土台のように、炉心全体を支える役目も兼ね備えているからで、原子炉の寿命中 (20 年としている) における寸法変化の許容値 (暫定値) は 1% 以下とされている²⁾。

原研ではこの構造物用材料を選定するため 1977 年から基礎的な試験を開始し、1984 年には所内に選定委員会を設置して炭素材料やセラミックスについて試験や検討を重ね、西独の SIGRI GmbH 製の炭素材料、AS R-ORB (銘柄名) を使用材料に選定した。この炭素材料が選定されたのは、試験した材料のなかで目的とする断熱構造物として最も優れた諸特性をもつことが証明されたほか、単一構造物 (平径 954 mm, 厚み 300 mm) を採取できる十分大きな素材寸法を持っていたからである。ちなみにこの材料の素材寸法は直径 1,150 mm, 厚み 550 mm である。

良く知られているように、炭素の熱的に安定な形態は黒鉛及びダイヤモンド結晶構造である。炭素の場合には、加熱によって黒鉛化が進行し、結晶の格子間距離の減少とともに結晶子径が増加する。通常このような挙動は 2,000°C 以上で顕著に進行する現象であるが、炉床部断熱構造物が使用される 1,000°C 以下の温度でも、また当該炭素の最終熱処理温度以下の温度でもゆるやかに進行する³⁾。使用材料 AS R-ORB の最終熱処理温度は 1,100°C であるが、以上の理由により構成結晶子の黒鉛化が進行して、巨視的寸法や断熱性が経時変化していく可能性がある。

このような特性変化を確認するため、AS R-ORB について実機条件と同じ環境で長期にわたる寸法安定性試験が実施されている。この試験は最大試験時間として 20,000 時間を当面の目標としている。試験終了後はこの試験片から熱伝導度測定用試料を採取して、断熱性の変化についても確認を行う計画となっている。現在、試験は目標試験時間の半分以下しか進行していないが、高温工学試験研究炉の建設が正式に認可された現時点で、これらの特性に関する中間評価を行うことが必要である。この報告は 1989 年 3 月末における AS R-ORB についての寸法安定性及び断熱性に関する試験の現状と、原子炉寿命末期におけるこれら特性の変化を評価した結果である。

2. 実験

2.1 試料

試料は使用材料 ASR-ORB のほか、SIG-B 炭素材料である。ASR-ORB に関する知見を得ることが当試験研究の目的であるから、本来ならばこの材料のみでよいわけであるが、現時点では ASR-ORB のデータは未だ十分整備されていない。このため ASR-ORB と特性が類似し、研究もよく行なわれている SIG-B 炭素材料のデータも使用した。両材料の代表的特性を Table 1 に示す。最終熱処理温度はともに 1,100°C で、両材料はかさ密度が多少異なるほかは熱的性質も結晶子径もよく類似している。なお X 線回折測定から、ASR-ORB には少量の黒鉛質成分が含有されていることがわかった。これは炭素化焼成過程における大型素材の割れや亀裂の発生を防ぐ目的でメーカーが混入しているものと思われるが、炭素質材料の特質を損う程のものではない。両材料とも異方性は小さいが、試験片はそれぞれ With Grain 及び Against Grain の両方向から採取した。高温圧縮荷重下寸法安定性用試験片の寸法は直径 30 mm、長さ 60 mm の円柱状で、荷重は長さ方向に負荷された。また断熱性評価のための熱拡散率測定には直径 10 mm、厚さ 1.5 mm の円板状試料を用いた。

2.2 実験装置及び測定法

2.2.1 高温圧縮荷重下寸法安定性試験

試験に使用した装置の全景と主要部の構成を Fig. 2 及び Fig. 3 に示した。

高温工学試験研究炉の炉床部断熱用材料の使用温度では炭素材料の寸法経時変化は極めて小さいことが予想されたため、試験装置をメーカーに特注して製作した。この装置は、試験片加熱部、荷重負荷部、温度制御記録部、雰囲気調整部に大きく分けられる。試験片加熱部にはヒーターとして 250 mm 長さの黒鉛製ヒーター 8 本を使用し、 $\phi 30 \times 60$ mm の試験片に均一な温度分布が得られるようにした。なお、試験片温度は W-Re/5-26 熱電対で試験片の上端と下端にできるだけ近い位置で測定した。試験片の負荷荷重は圧縮のみとし、荷重負荷のためのレバー比が 1 : 10 の時最大荷重は 2,000 kg となるように設計してある。

試料の試験中の寸法変化は最小目盛 1 μm のダイヤルゲージ及び精度がフルスケールの 2.5 % の差動トランスを用いて測定した。さらに、一定の加熱時間経過後に試験片を電気炉外に取り出して最小目盛 10 μm のマイクロメーターにより室温で寸法を測定し、この加熱処理と寸法測定を繰返すことによっても寸法の経時変化を求めた。

試験は不活性ガス雰囲気、真空のいずれでも可能であるが、通常の試験は純度 99.999 % 以上の高純度ヘリウムガス中で行った。

2.2.2 热伝導度測定試験

热伝導度はレーザフラッシュ法によって測定した热拡散率の値から算出した。円板状の試験片上部から最高 20 J のルビーレーザ光を照射して、試験片裏面の温度上昇履歴を In/Sb 素子を用いて測定した。この温度上昇曲線履歴から、最高温度上昇値の半分に達する時間 $t_{1/2}$ を求めて、次に示す式から熱拡散率を計算した。

$$\alpha = 0.1388 \ell^2 / t_{1/2} \quad (1)$$

ここで α は熱拡散率 (cm^2/s)、 ℓ は被測定試験片の厚さ(mm)である。なお、測定は各温度で 3 回行い、その 3 回の測定値の平均値を実測値とした。これらの測定は室温から高温まで連続的に全て自動で行い、またレーザパルス幅の影響を除くために、 $t_{1/2}$ を求める際には重心法⁴⁾を適用した。得られた熱拡散率から次式に従って熱伝導度 K ($\text{W}/\text{cm} \cdot \text{K}$) を計算した。

$$K = 4.186 \alpha \cdot C_p \cdot d \quad (2)$$

ここで C_p は比熱 ($\text{Cal}/\text{g} \cdot \text{K}$)、 d は密度 (g/cm^3) である。なお、比熱には Fig. 4 に示す ASR-ORB の実測値⁵⁾を用いた。

3. 結果と考察

3.1 寸法安定性

3.1.1 高温圧縮荷重下寸法安定性

ASR-ORB 試験片を 0.3 MPa 圧縮荷重下、850°C, 950°C 及び 1,000°C で熱処理し、常温に戻した時の寸法変化率を Table 2 に示した。この値は Against Grain 方向のもので、素材の厚み方向に相当する。断熱構造物はこの方向に圧縮荷重が負荷されるよう素材から切出される。現在までの試験時間の最高は 950°C の 8,240 時間で約 1 年の時間である。

寸法変化は 1,000°C の場合 5,000 時間で 0.2% 余の収縮を示したが、その値は 3,100 時間から変らなかった。また 950°C と 850°C ではいづれも寸法測定に用いたマイクロメーターの測定下限目盛 (10 μm) 以下の変化であった。表の中のこれらの値はゲージ目盛から目測した測定値から算出した寸法変化率である。950°C と 850°C の変化も負の記号に示されるようにともに収縮であるが、その大きさは 1,000°C の場合の 1/10 以下であった。

3.1.2 長期の特性変化評価に用いた手法

Table 2 に示したように、高温圧縮荷重下における ASR-ORB の寸法変化はきわめて微量であるが、現在までの試験時間はたかだか一年程度に過ぎない。この情況は断熱性のデータについても同様である。このためこれまでに得たデータから、20 年と言われている原子炉寿命末期または使用中の特性変化を判定しなければならない。ここでは温度に関する加速試験法を用いて評価することにした。

2.2.2 热伝導度測定試験

热伝導度はレーザフラッシュ法によって測定した热拡散率の値から算出した。円板状の試験片上部から最高 20 J のルビーレーザ光を照射して、試験片裏面の温度上昇履歴を In/Sb 素子を用いて測定した。この温度上昇曲線履歴から、最高温度上昇値の半分に達する時間 $t_{1/2}$ を求めて、次に示す式から熱拡散率を計算した。

$$\alpha = 0.1388 \ell^2 / t_{1/2} \quad (1)$$

ここで α は熱拡散率 (cm^2/s)、 ℓ は被測定試験片の厚さ (mm) である。なお、測定は各温度で 3 回行い、その 3 回の測定値の平均値を実測値とした。これらの測定は室温から高温まで連続的に全て自動で行い、またレーザパルス幅の影響を除くために、 $t_{1/2}$ を求める際には重心法⁴⁾を適用した。得られた熱拡散率から次式に従って熱伝導度 K ($\text{W}/\text{cm} \cdot \text{K}$) を計算した。

$$K = 4.186 \alpha \cdot C_p \cdot d \quad (2)$$

ここで C_p は比熱 ($\text{Cal}/\text{g} \cdot \text{K}$)、 d は密度 (g/cm^3) である。なお、比熱には Fig. 4 に示す ASR-ORB の実測値⁵⁾を用いた。

3. 結果と考察

3.1 寸法安定性

3.1.1 高温圧縮荷重下寸法安定性

ASR-ORB 試験片を 0.3 MPa 圧縮荷重下、850°C, 950°C 及び 1,000°C で熱処理し、常温に戻した時の寸法変化率を Table 2 に示した。この値は Against Grain 方向のもので、素材の厚み方向に相当する。断熱構造物はこの方向に圧縮荷重が負荷されるよう素材から切出される。現在までの試験時間の最高は 950°C の 8,240 時間で約 1 年の時間である。

寸法変化は 1,000°C の場合 5,000 時間で 0.2% 余の収縮を示したが、その値は 3,100 時間から変わらなかった。また 950°C と 850°C ではいづれも寸法測定に用いたマイクロメーターの測定下限目盛 (10 μm) 以下の変化であった。表の中のこれらの値はゲージ目盛から目測した測定値から算出した寸法変化率である。950°C と 850°C の変化も負の記号に示されるようにともに収縮であるが、その大きさは 1,000°C の場合の 1/10 以下であった。

3.1.2 長期の特性変化評価に用いた手法

Table 2 に示したように、高温圧縮荷重下における ASR-ORB の寸法変化はきわめて微量であるが、現在までの試験時間はたかだか一年程度に過ぎない。この情況は断熱性のデータについても同様である。このためこれまでに得たデータから、20 年と言われている原子炉寿命末期または使用中の特性変化を判定しなければならない。ここでは温度に関する加速試験法を用いて評価することにした。

炭素材料を長期間高温で保持した場合の寸法変化、或は断熱性変化については、加速試験が成立することの証明はこれまでない。しかしこれらの巨視的変化を誘起する原因となっている黒鉛化現象については、加速試験が成立することが証明されている⁶⁾。この方法は通常重ね合わせ法と呼ばれており、次のようなものである。すなわち、黒鉛化による微細構造の変化は、黒鉛化の機構が同じである場合、変化をもたらした温度に関係なく時間軸を移動することによって重ね合わすことができる。このことは黒鉛化の致達度が温度に依存せず、各処理温度に固有の限界黒鉛化度がないことを意味している。

以上の理由から、ここではまず目的とする時間までの黒鉛化進行度を求め、その黒鉛化進行度から巨視的性質の変化を評価することにした。しかし 2.1 の試料のところでも述べたように、現時点でも ASR-ORB の黒鉛化に関する実験データは未だ十分整備できていない。このためデータの揃っている SIG-B 炭素材料について寸法変化や断熱性変化を評価し、その結果から ASR-ORB の特性変化を推定することにした。

3.1.3 寿命末期における寸法変化

SIG-B で得られた評価を ASR-ORB に対して適用するためには、両材料の微細構造が類似し、かつ黒鉛化挙動も似ているということが証明されている必要がある。Table 1 に示したように、両材料は原料コークスが石油系、石炭系と異なるものの、結晶子径 $L_c(002)$ は 3.2 と 3.5 nm できわめて近い。また熱処理による黒鉛化挙動もきわめて類似していることが明らかになっている。Fig. 5 は両材料を色々な温度で一時間熱処理した時の層面間距離 $d(002)$ と結晶子径 $L_c(002)$ の変化を示したもので、X 線回折法によって得られた結果である。ここで ASR-ORB では 1800 °C 以下の層面間距離が記入されていないが、これはこの材料が少量の黒鉛質成分を含むため、炭素質成分の回折ピーク角度を同定することが難かしかったためである。Fig. 5 から明らかなように、両材料の 2 つの特性ともそれぞれ一本の曲線に描ける程良く似ている。この結果から、問題とする 1,000 °C 前後の長期間に及ぶ黒鉛化挙動も両材料では類似したものになると考えてもよいであろう。

炭素の黒鉛化挙動の追跡には層面間距離の変化を用いるのが一般的な手法である。しかしここでは結晶子径の変化を用いることにした。これは Fig. 4 のなかで、先程述べたように ASR-ORB の低温領域の層面間距離が求められておらず、両材料の類似性が必ずしも証明されてるとは言えないからである。結晶子径の変化は必ずしも黒鉛化現象と直接関連するパラメータとは言えないが、直接関連する層面間距離の変化と密接な連動性を示す。

Fig. 6 は SIG-B 試験片を 0.3 MPa の圧縮荷重下、1,000°, 1,100°, 1,200 °C で熱処理した時の結晶子径 $L_c(002)$ の変化である³⁾。これらのデータを重ね合わせるために、結晶子径 $L_c(002)$ の変化の原因となっている黒鉛化の進行機構がこの温度領域で同じであることが必要である。これまでの研究によれば SIG-B の場合、この温度域における $L_c(002)$ 変化の活性化エネルギーは 28.6~30.0 K Joule/mol と一定であり、黒鉛化は同じ機構で進行していると判断できた⁷⁾。Fig. 7 に 1,000 °C を基準とした場合の $L_c(002)$ の重ね合わせ曲線を示す。これによって SIG-B を 1,000 °C で長時間熱処理した場合の結晶子径変化を知ることができる。 $L_c(002)$ は未処理物の 3.2 nm から最高データ時間の 25,000 時間では 4.8 nm まで増加することがわかる。高温工学

試験研究炉の寿命とされる 20 年は時間に直せば 175,200 時間であるが、Fig. 7 においてこの時間における $L_c(002)$ の値を読みとると 4.6 nm となる。また原子炉の稼動率を 60%とした場合は 105,120 時間となり、この時の $L_c(002)$ 値は 4.3 nm となる。 $L_c(002)$ は初期の 10 万時間では 1.0 nm 以上増加するが、それ以降では 15 万時間経っても 0.5 nm しか増加せず飽和傾向である。

ここで再び Fig. 6 に戻り、1,000°C, 175,200 時間の $L_c(002)$ 値である 4.6 nm に相当する所を探してみる。その点は 1,200°C の 200 時間の所である。このことから SIG-B 炭素材料を 1,000°C で 0.3 MPa の圧縮荷重下で 20 年間使用した時の黒鉛化進行度は、1,200°C で 200 時間使用した時のそれと等価であることがわかる。したがって黒鉛化の進行によってもたらされる巨視的な特性の変化も 1,000°C, 20 年と 1,200°C, 200 時間の熱処理では同じ程度になると考えて良いであろう。Fig. 8 は SIG-B 炭素材料の 0.3 MPa 圧縮荷重下、900°, 1,000°, 1,100°, 1,200°C における巨視的寸法変化を実測した結果である⁸⁾。この図から 1,200°C, 200 時間での巨視的寸法変化は -1.1% と読み取ることができる。すなわち SIG-B 炭素材料は 0.3 MPa では、1,000°C, 20 年の使用によって 1.1% 程度の収縮を示すと考えることができる。この値は原子炉の稼動率を 60% にしてもほとんど変わらない。ASR-ORB の場合も SIG-B との類似性から同じ程度の寸法変化を起こすと考えることができるであろう。

Fig. 9 は処理時間は短かいが 1,000°C, 0.3 MPa 圧縮荷重下の ASR-ORB と SIG-B の寸法変化の実測値である。SIG-B は ASR-ORB の 2 倍程度の寸法収縮を示しており、同じとした推定結果と一致していない。これは ASR-ORB に少量含まれる黒鉛質成分のためではないかと考えられる。熱処理によっても変化することのない黒鉛結晶が、支え棒のように巨視的組織の収縮を阻害しているものと思われる。したがって ASR-ORB が黒鉛質成分を含まない場合は、SIG-B の寸法変化と同程度の変化を示すものと考えられる。しかしながら Fig. 9 の結果は ASR-ORB の寸法変化を SIG-B と同程度とする評価が安全側に立つものであることを示している。

これまでに得られているデータの関係で 1,000° における寸法変化についてのみ考察してきたが、高温工学試験研究炉の炉床部断熱構造物は、先にも述べたように最高温度 950°C で使用される。ASR-ORB の場合、950°C で実測された寸法収縮は Table 2 に示したように 1,000°C の 1/10 以下である。この事実を考慮すると ASR-ORB の 20 年後における寸法変化は -1.1% の 1/10 以下、約 0.1% 程度であろうと考えられる。また炉床部断熱構造物は全部が 950°C で使用されるわけではない。そこには外側に向って 950°C から 400°C の温度勾配がある。950°C の高温になる部分はごく一部に止まるから、全体としての寸法変化はさらに小さくなると考えてよい。原子炉運転中の断熱構造物の平均温度を $(950°C + 400°C) / 2$ の約 700°C とすると、その時の熱膨張は約 0.4% と計算される。したがって原子炉稼動中の断熱構造物は常に寸法が膨張した状態にあると考えることができる。

3.2 断熱性

3.2.1 高温熱伝導度

Fig. 10 に ASR-ORB の素材厚み方向の熱伝導度の温度依存性の測定結果を示す。熱伝導度は測定試験片によって多少変動するが、温度が高くなるにしたがって増加する傾向は同じである。なお、熱伝導度の設計値は室温で $9.4 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下とされており、各値とも十分設計値を満している。

Fig. 11 には同じく ASR-ORB の厚み方向の熱伝導度の温度依存性に及ぼす熱処理温度の影響を示した。この図の中で表示している数字は熱処理温度 (°C) を表わし、各温度でそれぞれ 1 時間熱処理した後の測定結果である。ここでは実測値を用いて各熱処理温度での温度依存性を多項式近似で表わし、各温度で求めた熱伝導度を表示した。熱伝導度は、熱処理前には温度が高くなるにしたがって次第に大きくなる傾向を示した。しかし、熱処理温度が高くなるとともに熱伝導度は一旦増大した後は温度とともに減少して極大値を示すようになり、この極大値を示す温度は熱処理温度が高くなるにしたがって低温側へ移動した。Fig. 10 及び 11 に示したように、炭素材料の熱伝導度は黒鉛材料と違って、温度とともに増加することを留意しておく必要がある。

3.2.2 寿命末期における断熱性の変化

Fig. 12 に 3 種類の炭素材料を $1,000^{\circ}\text{C}$ で長時間熱処理した場合の電気比抵抗及び熱伝導度の変化を示す⁹⁾。また $1,100^{\circ}\text{C}$ 及び $1,200^{\circ}\text{C}$ における SIG-B の電気比抵抗の変化を Fig. 13 に示す¹⁰⁾。いづれの場合も両特性は熱処理の初期に比較的大きな変化を示すが、次第に飽和する傾向となる。ここでもまた寿命中の耐久性に関係ある熱伝導度のデータ、それも ASR-ORB に関するデータが整備されていないので、Fig. 13 の SIG-B の電気抵抗変化のデータを基に評価を進める。Fig. 13 から読みとれるように、 $1,000^{\circ}\text{C}$ 、20 年間の黒鉛化進行度と等価の $1,200^{\circ}\text{C}$ 、200 時間で、SIG-B の電気比抵抗は 12% の減少を示す。炭素材料では電気抵抗と熱抵抗は比例関係を示す。ASR-ORB と SIG-B を含む 4 種の炭素材料の実測例を Fig. 14 に示した⁹⁾。したがって電気抵抗と熱抵抗の変化割合は同じであるから、熱抵抗も $1,000^{\circ}\text{C}$ 、20 年間では 12% 減少し、断熱性は 12% 劣化するであろう。しかし炉床部断熱構造物の実機使用条件である 950°C では、寸法変化の場合と同様熱伝導度の増加割合は 12% より十分小さな値になると想定される。寸法変化の場合と同様、この SIG-B に関する結果は ASR-ORB についても適用することができる。ASR-ORB の熱伝導度は Fig. 10 に示した程度のバラツキを示すから、使用中の断熱性変化は、試験片毎のバラツキの範囲内に止まる程度と考えることができよう。

4. まとめ

- (1) 高温工学試験研究炉の炉床部断熱構造物に使用される ASR-ORB 炭素材料について、実機と同じ雰囲気、圧縮荷重下で寸法安定性を試験した。 $1,000^{\circ}\text{C}$ の場合、5,000 時間で -0.2% 余の変化が実測されたが、 950°C と 850°C では $1,000^{\circ}\text{C}$ の $1/10$ 以下の収縮であった。

3.2 断熱性

3.2.1 高温熱伝導度

Fig. 10 に ASR-ORB の素材厚み方向の熱伝導度の温度依存性の測定結果を示す。熱伝導度は測定試験片によって多少変動するが、温度が高くなるにしたがって増加する傾向は同じである。なお、熱伝導度の設計値は室温で $9.4 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下とされており、各値とも十分設計値を満している。

Fig. 11 には同じく ASR-ORB の厚み方向の熱伝導度の温度依存性に及ぼす熱処理温度の影響を示した。この図の中で表示している数字は熱処理温度 (°C) を表わし、各温度でそれぞれ 1 時間熱処理した後の測定結果である。ここでは実測値を用いて各熱処理温度での温度依存性を多項式近似で表わし、各温度で求めた熱伝導度を表示した。熱伝導度は、熱処理前には温度が高くなるにしたがって次第に大きくなる傾向を示した。しかし、熱処理温度が高くなるとともに熱伝導度は一旦増大した後は温度とともに減少して極大値を示すようになり、この極大値を示す温度は熱処理温度が高くなるにしたがって低温側へ移動した。Fig. 10 及び 11 に示したように、炭素材料の熱伝導度は黒鉛材料と違って、温度とともに増加することを留意しておく必要がある。

3.2.2 寿命末期における断熱性の変化

Fig. 12 に 3 種類の炭素材料を $1,000^{\circ}\text{C}$ で長時間熱処理した場合の電気比抵抗及び熱伝導度の変化を示す⁹⁾。また $1,100^{\circ}\text{C}$ 及び $1,200^{\circ}\text{C}$ における SIG-B の電気比抵抗の変化を Fig. 13 に示す¹⁰⁾。いづれの場合も両特性は熱処理の初期に比較的大きな変化を示すが、次第に飽和する傾向となる。ここでもまた寿命中の耐久性に関係ある熱伝導度のデータ、それも ASR-ORB に関するデータが整備されていないので、Fig. 13 の SIG-B の電気抵抗変化のデータを基に評価を進める。Fig. 13 から読みとれるように、 $1,000^{\circ}\text{C}$ 、20 年間の黒鉛化進行度と等価の $1,200^{\circ}\text{C}$ 、200 時間で、SIG-B の電気比抵抗は 12% の減少を示す。炭素材料では電気抵抗と熱抵抗は比例関係を示す。ASR-ORB と SIG-B を含む 4 種の炭素材料の実測例を Fig. 14 に示した⁹⁾。したがって電気抵抗と熱抵抗の変化割合は同じであるから、熱抵抗も $1,000^{\circ}\text{C}$ 、20 年間では 12% 減少し、断熱性は 12% 劣化するであろう。しかし炉床部断熱構造物の実機使用条件である 950°C では、寸法変化の場合と同様熱伝導度の増加割合は 12% より十分小さな値になると想定される。寸法変化の場合と同様、この SIG-B に関する結果は ASR-ORB についても適用することができる。ASR-ORB の熱伝導度は Fig. 10 に示した程度のバラツキを示すから、使用中の断熱性変化は、試験片毎のバラツキの範囲内に止まる程度と考えることができよう。

4. まとめ

- (1) 高温工学試験研究炉の炉床部断熱構造物に使用される ASR-ORB 炭素材料について、実機と同じ雰囲気、圧縮荷重下で寸法安定性を試験した。 $1,000^{\circ}\text{C}$ の場合、5,000 時間で -0.2% 余の変化が実測されたが、 950°C と 850°C では $1,000^{\circ}\text{C}$ の $1/10$ 以下の収縮であった。

- (2) ASR-ORB 断熱構造物の原子炉寿命末期における寸法変化を推定した。推定には ASR-ORB と微細構造及び黒鉛化挙動がよく似ている SIG-B のデータを使用した。黒鉛化によって増加した結晶子径 $L_c(002)$ を求め、その値から巨視的寸法変化率を推定した。ASR-ORB は 1,000 °C, 20 年間では最高 - 1.1 % 程度変化するものと思われる。しかし試験研究炉の 950 °C という条件では、- 0.1 % 程度と推定される。
- (3) 同じく断熱性変化を推定した。ここでも SIG-B の黒鉛化データと熱処理による電気抵抗変化のデータを用い、電気抵抗と熱抵抗の関係から断熱性変化を評価した。ASR-ORB の断熱性は 1,000 °C, 20 年間の使用で 12 % 程度劣化する。しかし 950 °C では炭素材料の熱伝導度のバラツキの範囲内の変化と推定される。

高温工学試験研究炉の炉床部断熱用材料、ASR-ORB の寸法安定性及び断熱性を評価した。現時点ではこの材料について各種のデータが整備されていないため、止むを得ず他の炭素材料で得られているデータを使用した。今後は使用材料である ASR-ORB のデータを整備し、評価をより確度の高いものにしていくことが必要であると考えている。

謝 辞

本研究の遂行に対して色々と御助言をいただきました燃料・材料工学部近藤部長、また考察に対して有益な示唆をいただきました野村真三氏に厚く御礼申上げます。

参 考 文 献

- 1) 日本原子力研究所、高温工学試験研究炉の現状：昭和 62 年 12 月
- 2) 塩沢周策私信：日本原子力研究所、動力炉開発・安全性管理部、昭和 63 年 12 月
- 3) 斎藤保、松尾秀人、福田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8857, 1980 年 5 月
- 4) T. Azumi, Y. Takahashi, Rev. Sci. Instr., 52, 1411 (1981)
- 5) 内藤奎爾、稻場秀明、野口和也：日本原子力研究所委託研究報告書、1985 年 3 月
- 6) D. B. Fishback: Chemistry and Physics of Carbon, Vol. 7, Marcel Dekker, 1 (1971)
- 7) 斎藤保、松尾秀人：炭素, No 112, 2 (1983)
- 8) 松尾秀人、斎藤保、稲田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8561, 1979 年 11 月
- 9) H. Matsuo, T. Saito : High Temperatures - High Pressures, 16, 695 (1984)
- 10) 松尾秀人、斎藤保、福田保昌、佐々木泰一、長谷川隆：JAERI-M8551, 1979 年 11 月

- (2) ASR-ORB 断熱構造物の原子炉寿命末期における寸法変化を推定した。推定には ASR-ORB と微細構造及び黒鉛化挙動がよく似ている SIG-B のデータを使用した。黒鉛化によって増加した結晶子径 $L_c(002)$ を求め、その値から巨視的寸法変化率を推定した。ASR-ORB は 1,000 °C, 20 年間では最高 - 1.1 % 程度変化するものと思われる。しかし試験研究炉の 950 °C という条件では、- 0.1 % 程度と推定される。
- (3) 同じく断熱性変化を推定した。ここでも SIG-B の黒鉛化データと熱処理による電気抵抗変化のデータを用い、電気抵抗と熱抵抗の関係から断熱性変化を評価した。ASR-ORB の断熱性は 1,000 °C, 20 年間の使用で 12 % 程度劣化する。しかし 950 °C では炭素材料の熱伝導度のバラツキの範囲内の変化と推定される。

高温工学試験研究炉の炉床部断熱用材料、ASR-ORB の寸法安定性及び断熱性を評価した。現時点ではこの材料について各種のデータが整備されていないため、止むを得ず他の炭素材料で得られているデータを使用した。今後は使用材料である ASR-ORB のデータを整備し、評価をより確度の高いものにしていくことが必要であると考えている。

謝 辞

本研究の遂行に対して色々と御助言をいただきました燃料・材料工学部近藤部長、また考査に対して有益な示唆をいただきました野村真三氏に厚く御礼申上げます。

参 考 文 献

- 1) 日本原子力研究所、高温工学試験研究炉の現状：昭和 62 年 12 月
- 2) 塩沢周策私信：日本原子力研究所、動力炉開発・安全性管理部、昭和 63 年 12 月
- 3) 斎藤保、松尾秀人、福田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8857, 1980 年 5 月
- 4) T. Azumi, Y. Takahashi, Rev. Sci. Instr., 52, 1411 (1981)
- 5) 内藤奎爾、稻場秀明、野口和也：日本原子力研究所委託研究報告書、1985 年 3 月
- 6) D. B. Fishback: Chemistry and Physics of Carbon, Vol. 7, Marcel Dekker, 1 (1971)
- 7) 斎藤保、松尾秀人：炭素, No. 112, 2 (1983)
- 8) 松尾秀人、斎藤保、稲田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8561, 1979 年 11 月
- 9) H. Matsuo, T. Saito : High Temperatures - High Pressures, 16, 695 (1984)
- 10) 松尾秀人、斎藤保、福田保昌、佐々木泰一、長谷川隆：JAERI-M8551, 1979 年 11 月

- (2) ASR-ORB 断熱構造物の原子炉寿命末期における寸法変化を推定した。推定には ASR-ORB と微細構造及び黒鉛化挙動がよく似ている SIG-B のデータを使用した。黒鉛化によって増加した結晶子径 $L_c(002)$ を求め、その値から巨視的寸法変化率を推定した。ASR-ORB は 1,000 °C, 20 年間では最高 - 1.1 % 程度変化するものと思われる。しかし試験研究炉の 950 °C という条件では、- 0.1 % 程度と推定される。
- (3) 同じく断熱性変化を推定した。ここでも SIG-B の黒鉛化データと熱処理による電気抵抗変化のデータを用い、電気抵抗と熱抵抗の関係から断熱性変化を評価した。ASR-ORB の断熱性は 1,000 °C, 20 年間の使用で 12 % 程度劣化する。しかし 950 °C では炭素材料の熱伝導度のバラツキの範囲内の変化と推定される。

高温工学試験研究炉の炉床部断熱用材料、ASR-ORB の寸法安定性及び断熱性を評価した。現時点ではこの材料について各種のデータが整備されていないため、止むを得ず他の炭素材料で得られているデータを使用した。今後は使用材料である ASR-ORB のデータを整備し、評価をより確度の高いものにしていくことが必要であると考えている。

謝 辞

本研究の遂行に対して色々と御助言をいただきました燃料・材料工学部近藤部長、また考査に対して有益な示唆をいただきました野村真三氏に厚く御礼申上げます。

参 考 文 献

- 1) 日本原子力研究所、高温工学試験研究炉の現状：昭和 62 年 12 月
- 2) 塩沢周策私信：日本原子力研究所、動力炉開発・安全性管理部、昭和 63 年 12 月
- 3) 斎藤保、松尾秀人、福田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8857, 1980 年 5 月
- 4) T. Azumi, Y. Takahashi, Rev. Sci. Instr., 52, 1411 (1981)
- 5) 内藤奎爾、稻場秀明、野口和也：日本原子力研究所委託研究報告書、1985 年 3 月
- 6) D. B. Fishback: Chemistry and Physics of Carbon, Vol. 7, Marcel Dekker, 1 (1971)
- 7) 斎藤保、松尾秀人：炭素, No 112, 2 (1983)
- 8) 松尾秀人、斎藤保、稲田保昌、佐々木泰一：JAERI-M8561, 1979 年 11 月
- 9) H. Matsuo, T. Saito : High Temperatures - High Pressures, 16, 695 (1984)
- 10) 松尾秀人、斎藤保、福田保昌、佐々木泰一、長谷川隆：JAERI-M8551, 1979 年 11 月

Table 1 Main characters of ASR-ORB and SIG-B carbons

銘柄 項目	A S R - O R B	S I G - B
メーカー	S I G R I (西独)	昭和電工 (日)
成型法	Vibration molding	molding
コークス	石炭系	石油系
焼成温度 (°C)	1100	1100
かさ密度 (kg/m³)	1680	1530
熱膨張係数 WG AG ($\alpha_{25 \sim 400} \times 10^6 \cdot K^{-1}$)	4.4 5.2	4.6 6.6
熱伝導度 WG AG (W/m·K)	10.8 9.7	11 11
圧縮強度 WG AG (MPa)	72 75	133 132
結晶子径 $L_c(002)$ (nm)	3.5	3.2

WG: With Grain

AG: Against Grain

Table 2 Dimensional change of ASR-ORB carbon
at 850°C, 950°C and 1000°C under 0.3
MPa of compressive stress

時間 (h)	温度 (°C)	寸法変化 (%)		
		850	950	1000
1400	0	-0.008	-0.19	
3100	0.002	-0.007	-0.21	
5000	-	-	-0.21	
6100	-0.003	-0.012	-	
7500	-0.012	-	-	
8240	-	-0.018	-	

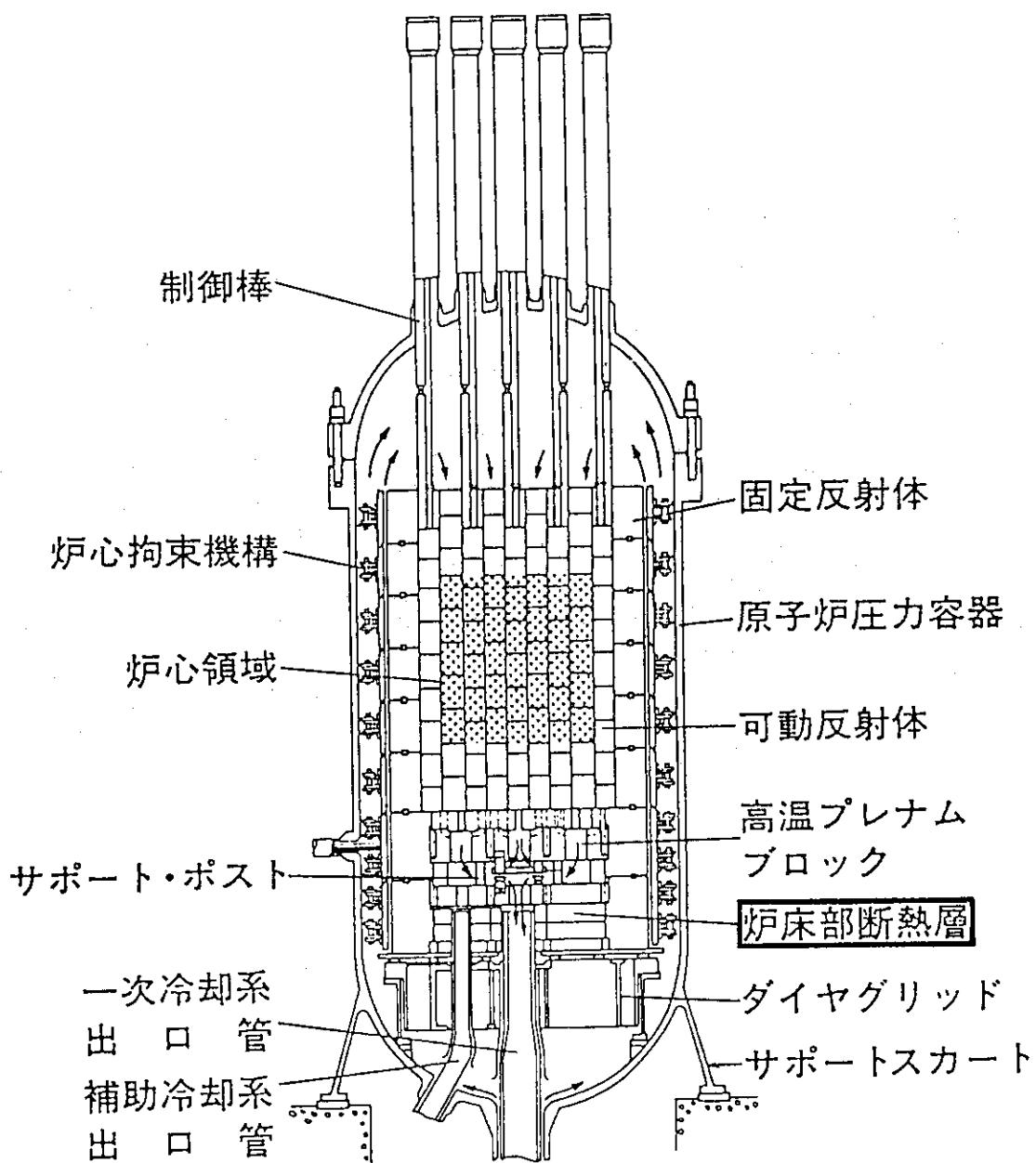


Fig. 1 Reactor core of the HTTR

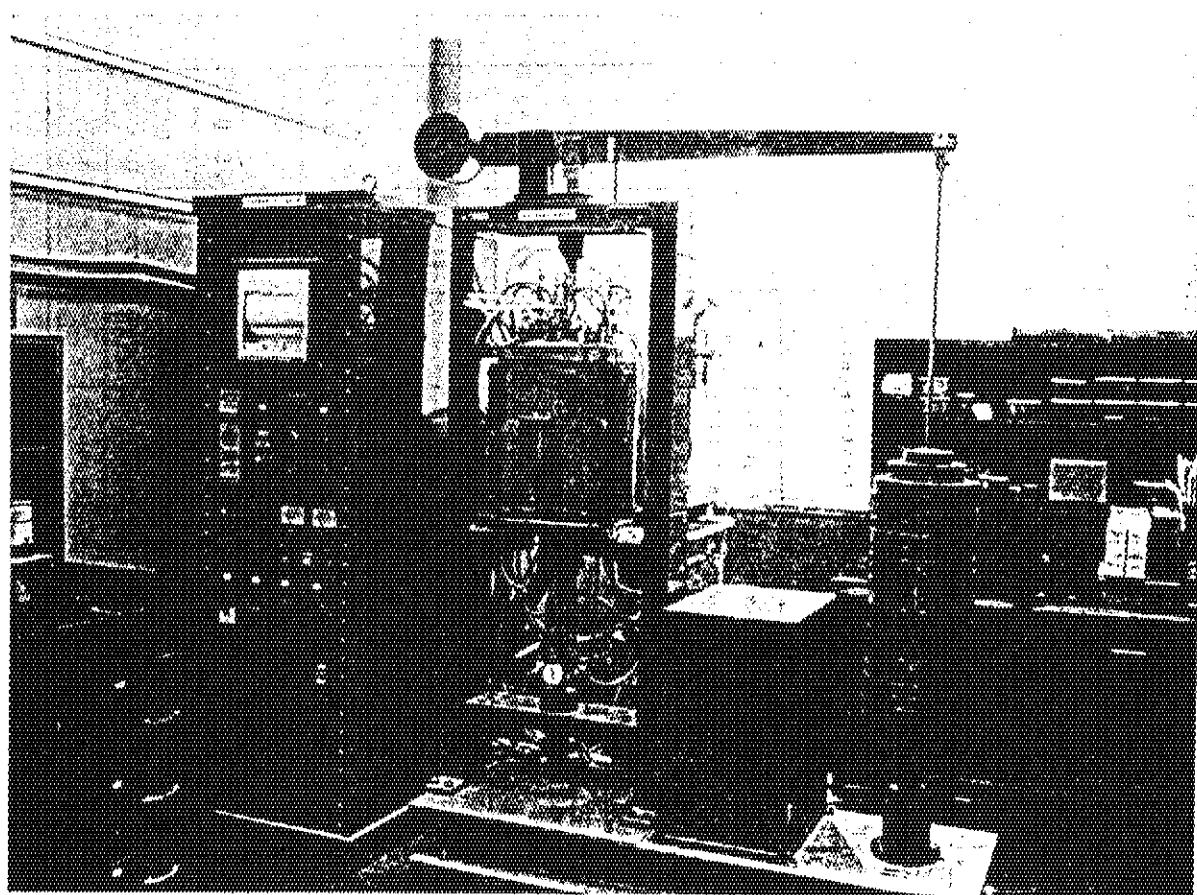


Fig. 2 Apparatus for the measurement of dimensional changes at high temperature under compressive stress

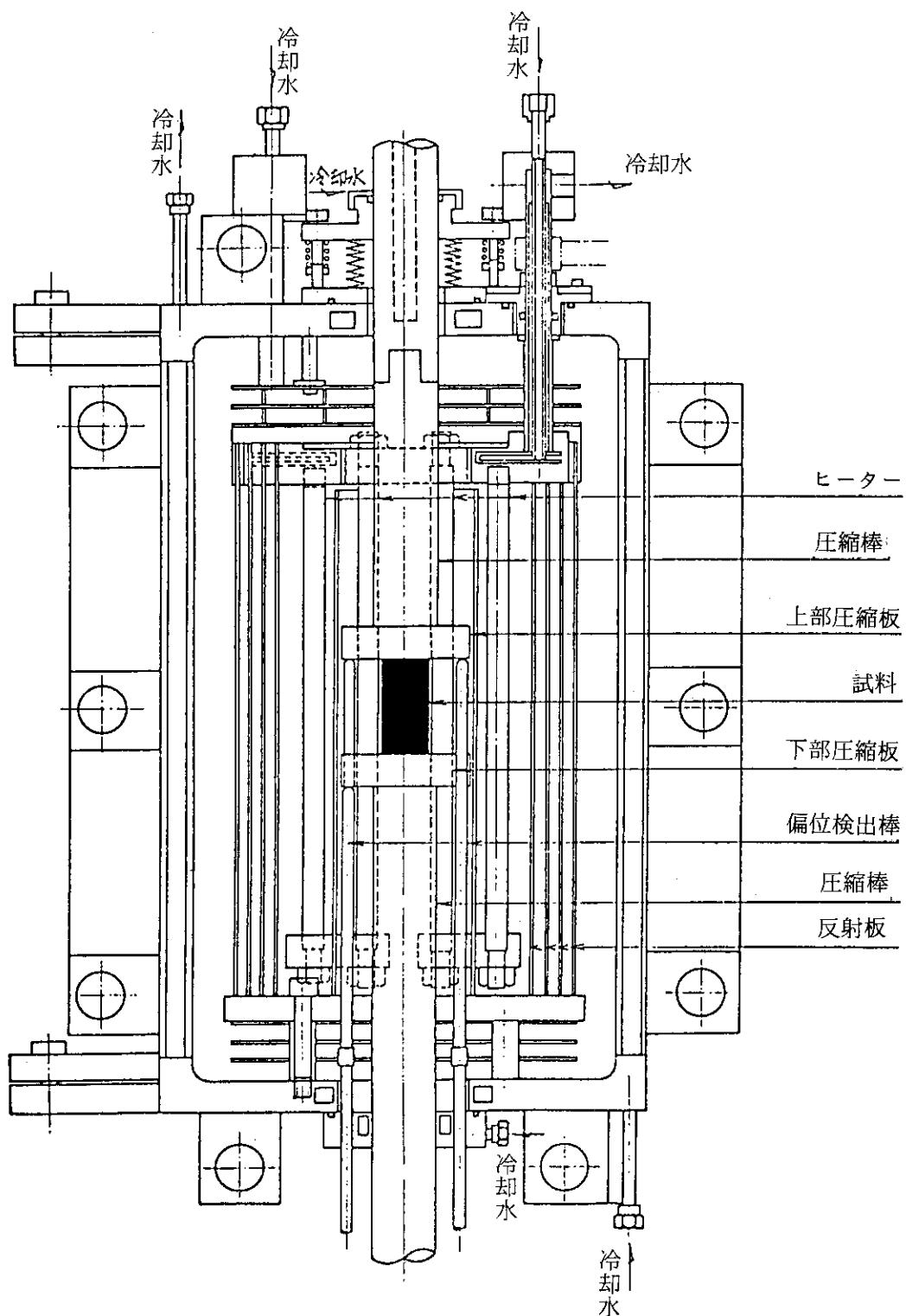


Fig. 3 Main part of the furnace for the measurement of dimensional changes at high temperature under stress

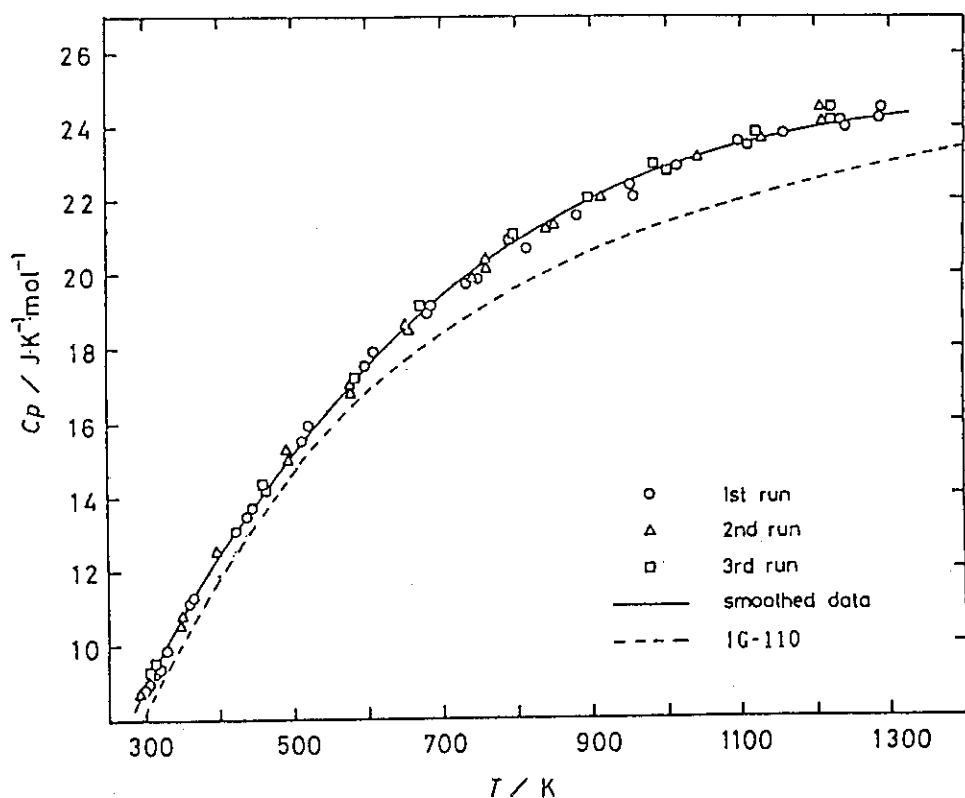


Fig. 4 Specific heat of ASR-ORB carbon as a function of temperature⁵⁾

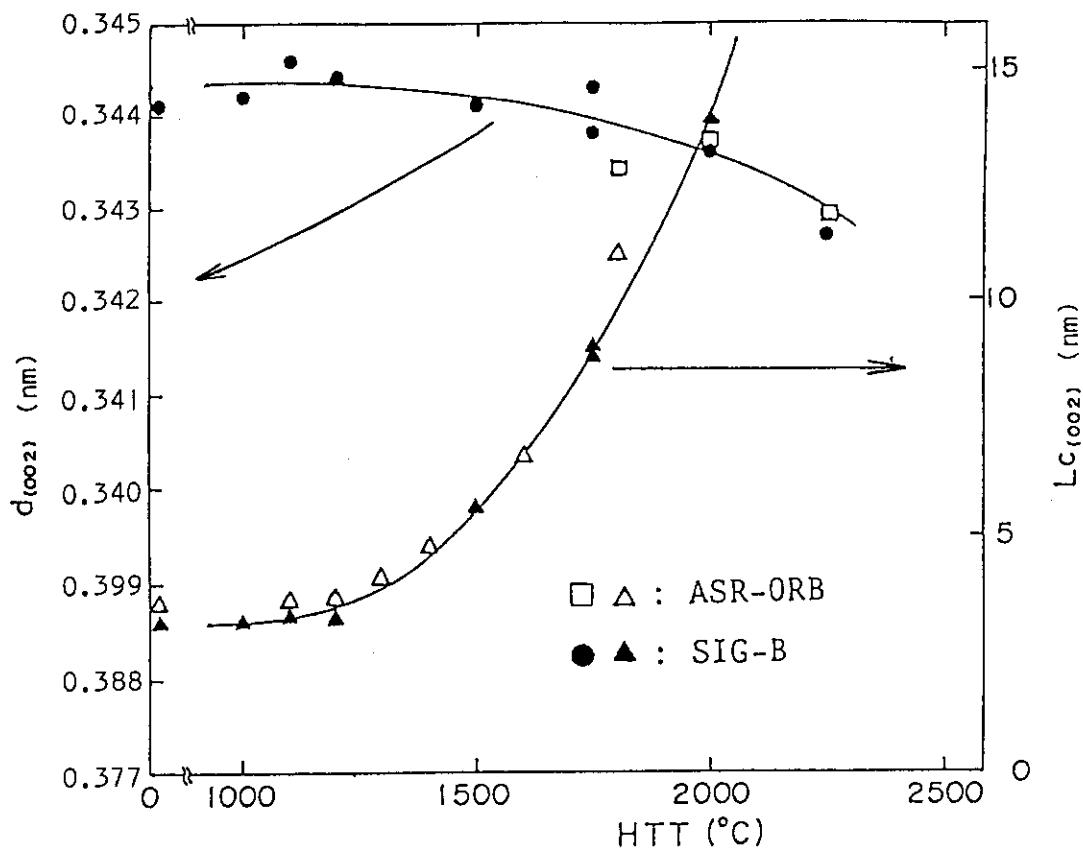


Fig. 5 Changes in $d_{(002)}$ spacing and apparent crystallite size $L_{C(002)}$ of SIG-B and ASR-ORB carbons

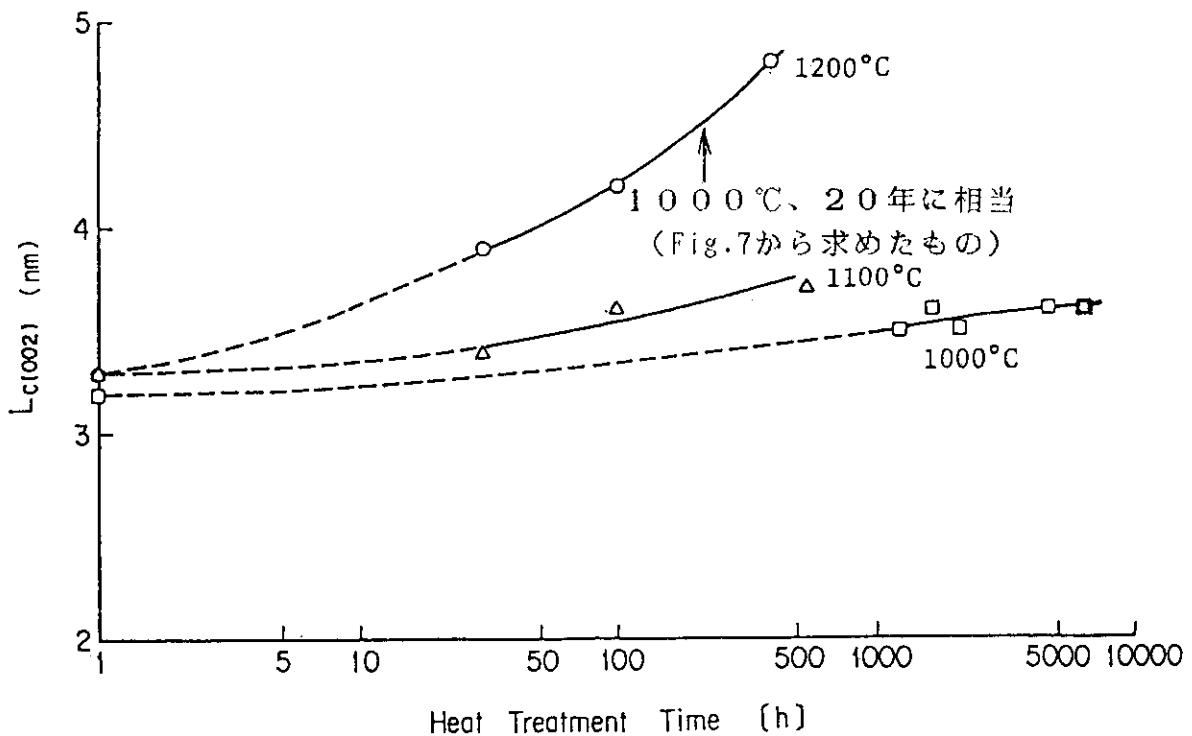


Fig. 6 Change in apparent crystallite size $L_c(002)$ of SIG-B carbon by heat-treatment at 1000°C, 1100°C and 1200°C under 0.3 MPa of compressive stress³⁾

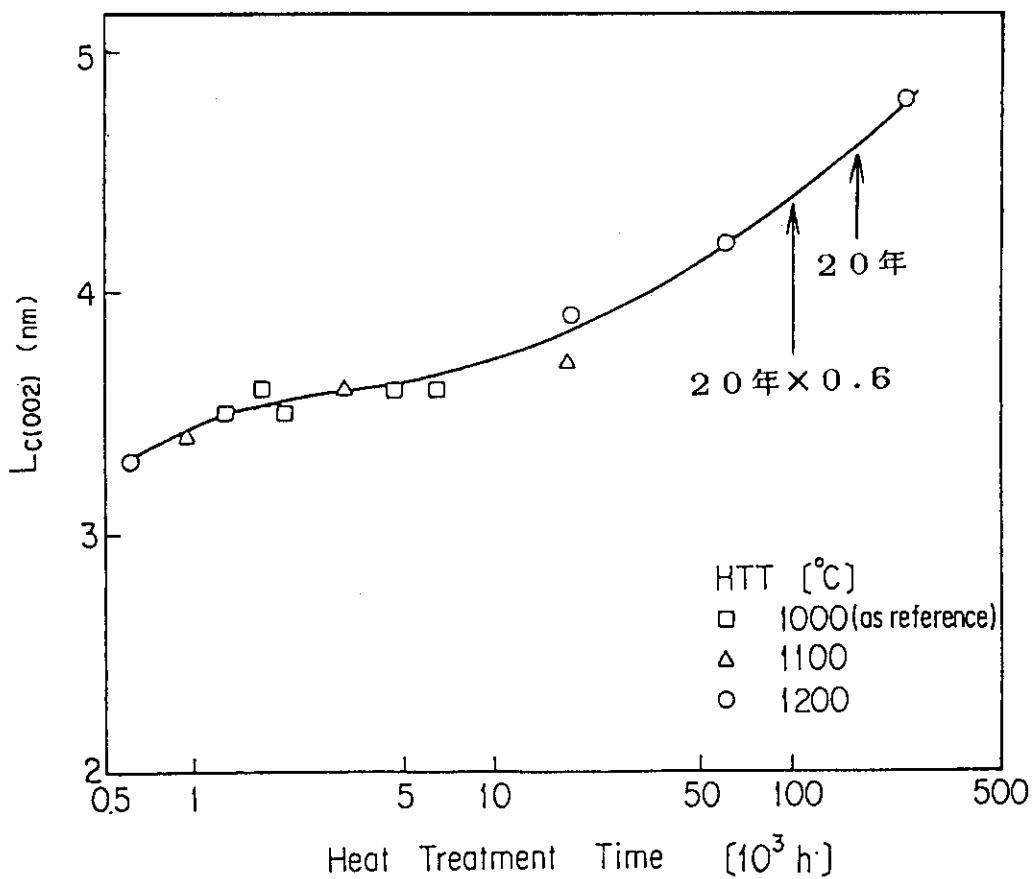


Fig. 7 Change in apparent crystallite size $L_c(002)$ of SIG-B carbon at 1000°C under 0.3 MPa of compressive stress

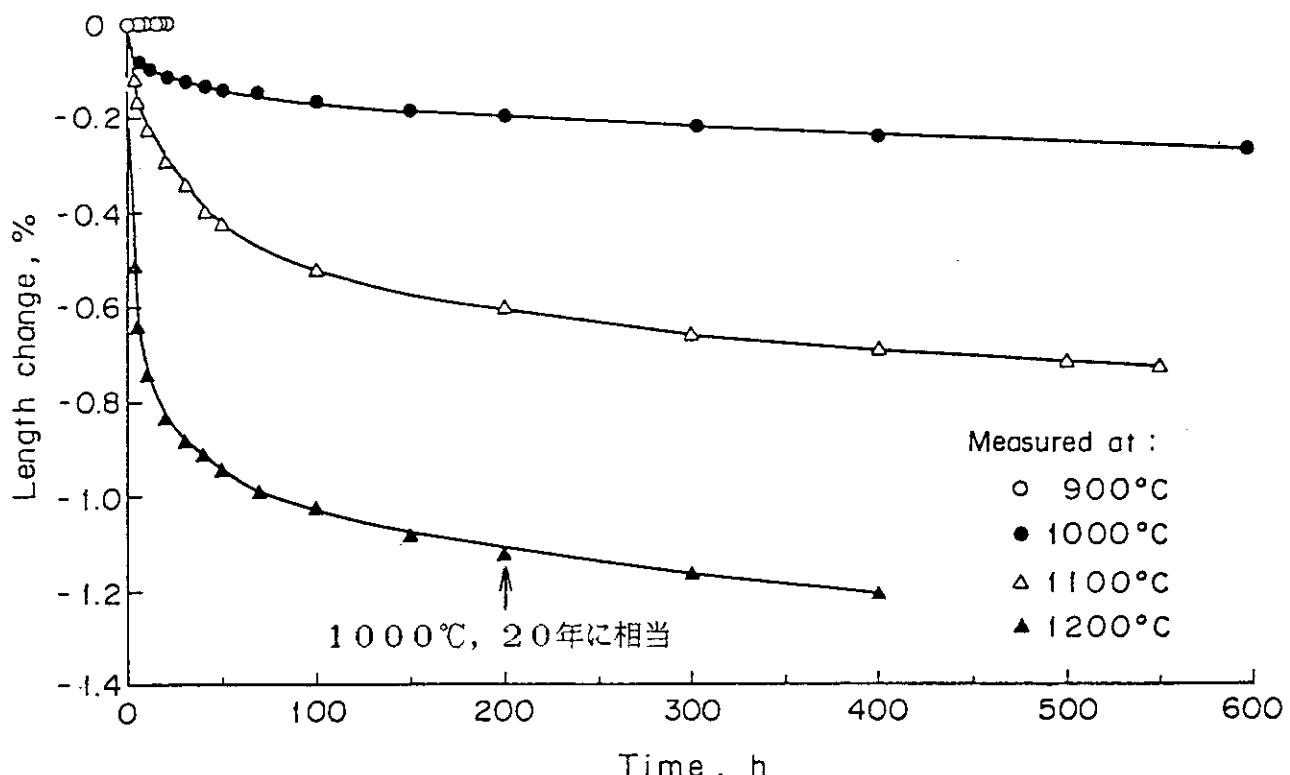


Fig. 8 Dimensional change of SIG-B carbon at 900°C, 1000°C, 1100°C and 1200°C under 0.3 MPa of compressive stress⁸⁾

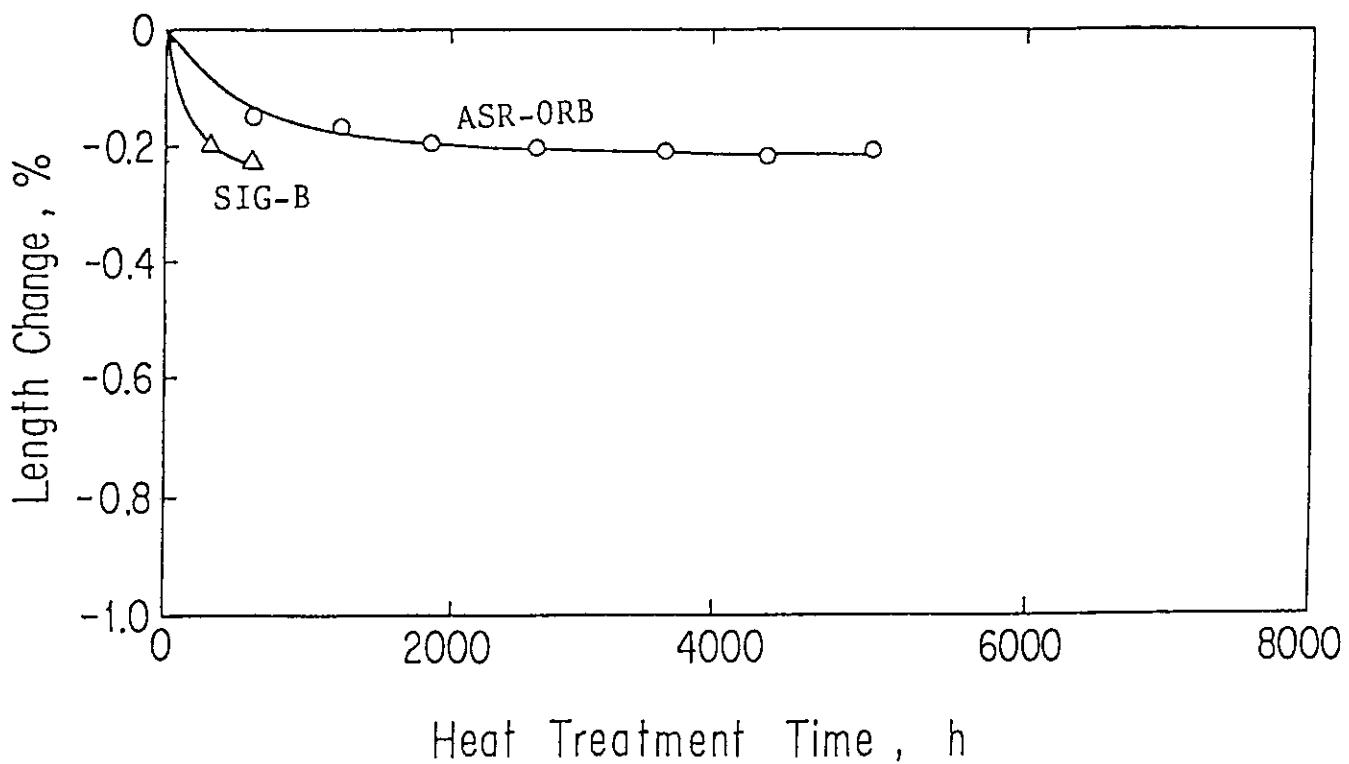


Fig. 9 Dimensional changes of ASR-ORB and SIG-B carbons at 1000°C under 0.3 MPa of compressive stress

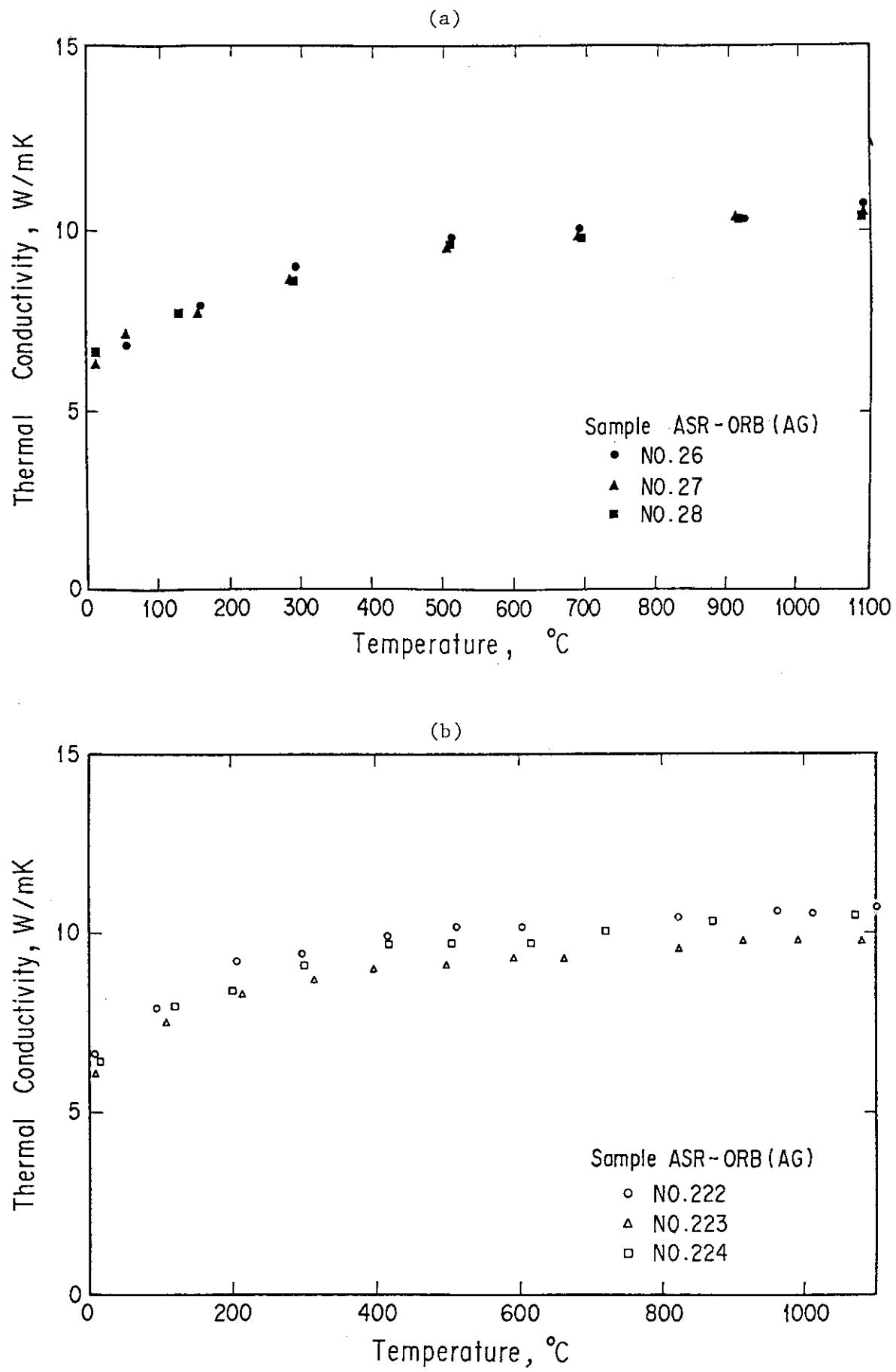


Fig. 10 Thermal conductivity of ASR-ORB carbon as a function of temperature

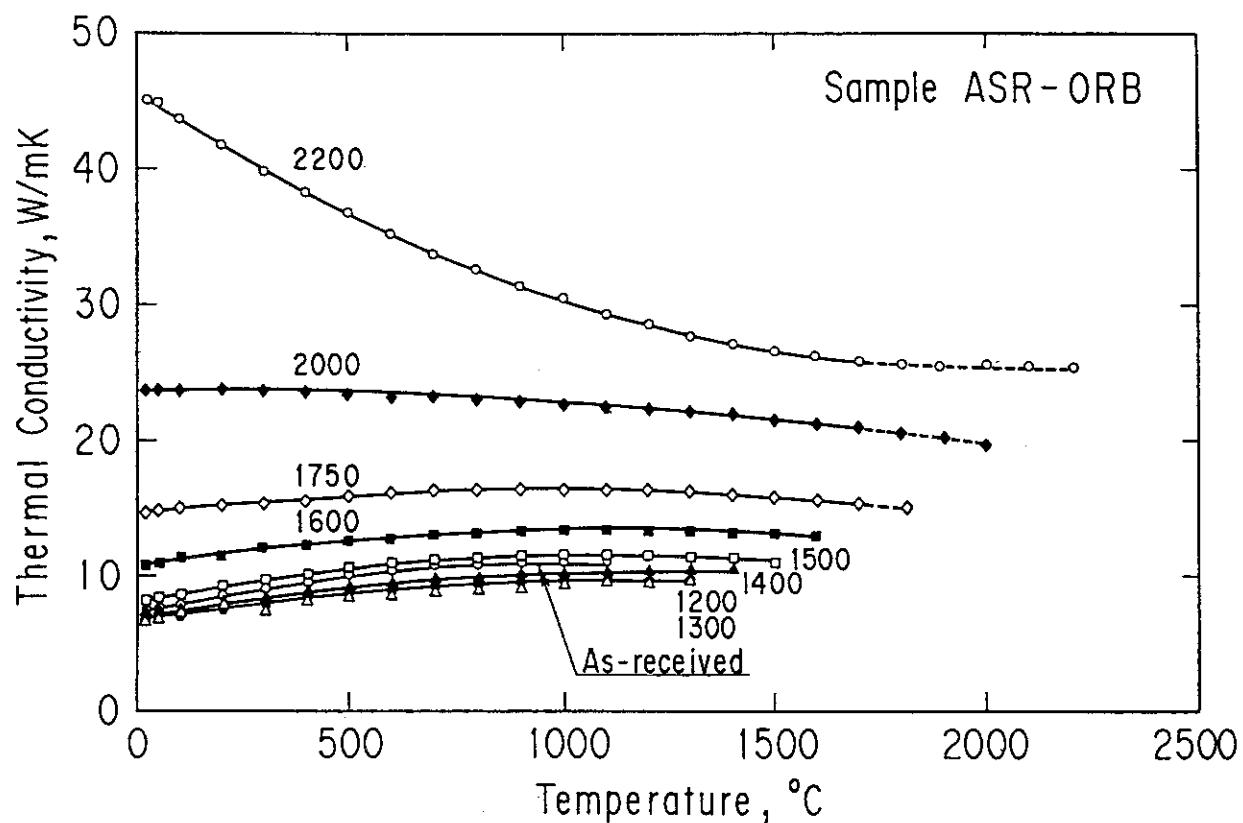


Fig. 11 Thermal conductivity of ASR-carbon heat-treated at various temperatures

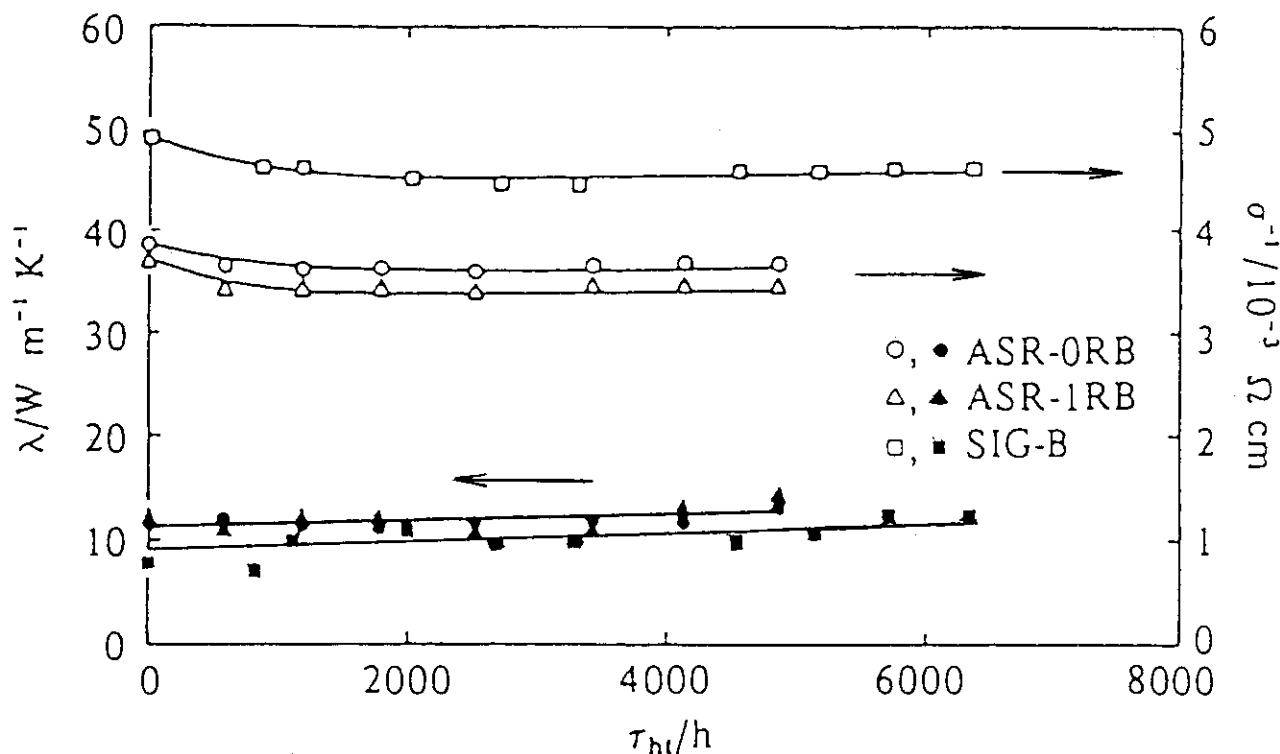


Fig. 12 Effect of heat-treatment at 1000°C on thermal conductivity and electrical resistivity of carbons⁹⁾

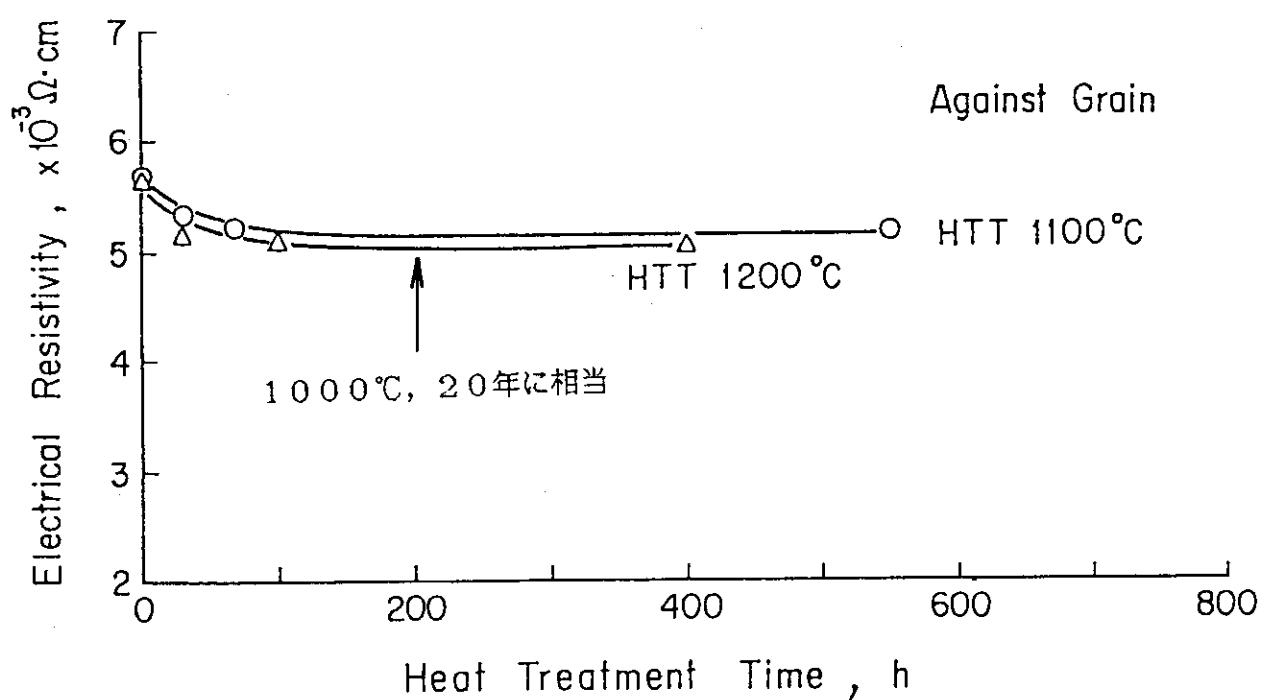


Fig. 13 Changes in electrical resistivity of SIG-B carbon
heat-treated at 1100°C and 1200°C¹⁰⁾

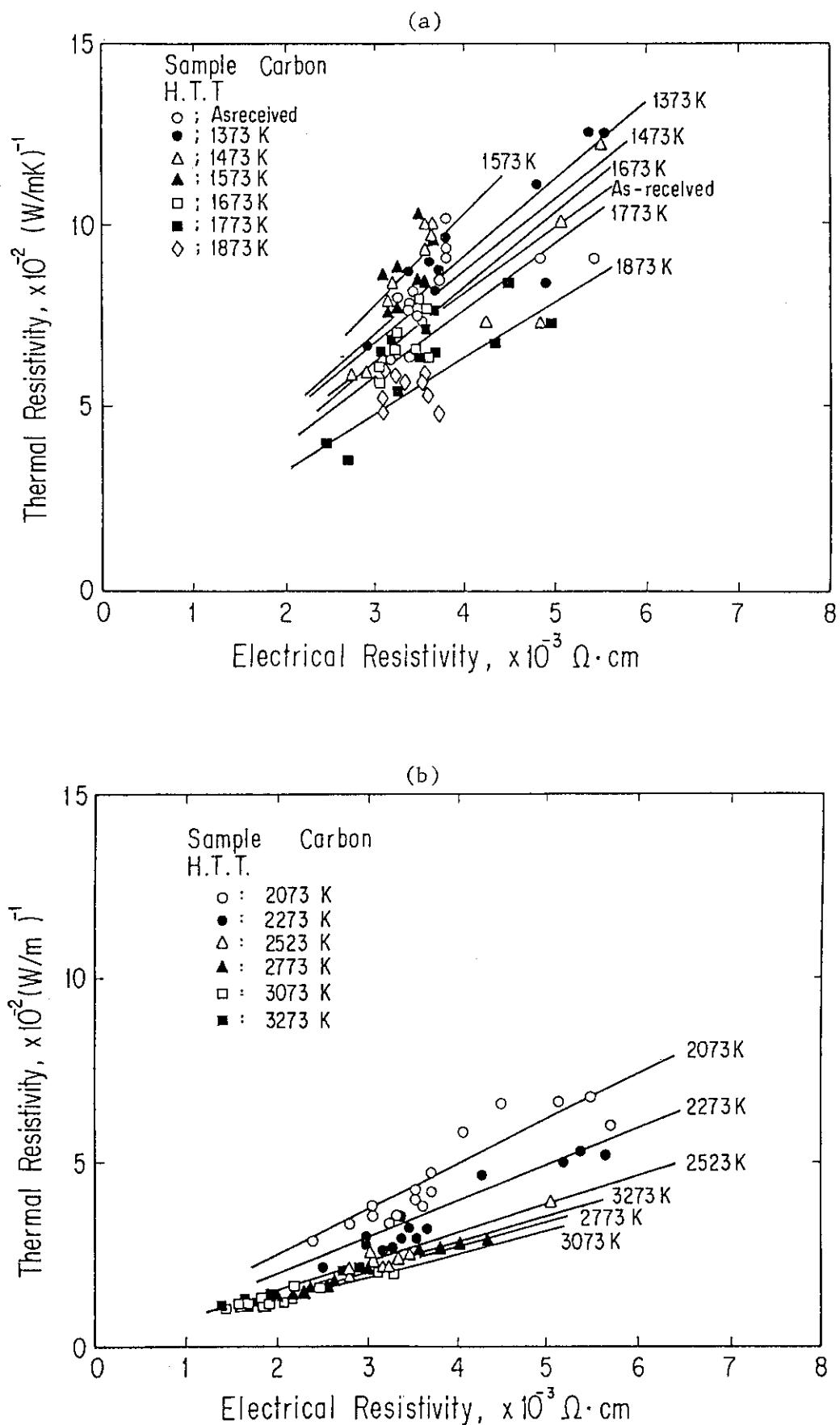


Fig. 14 Relation between thermal resistivity and electrical resistivity for carbons heat-treated at various temperature for 1 hour⁹⁾