

J250 77-27 (2)

配付限定

分置

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。

2001. 7. 31

[技術情報室]

ナトリウム漏洩検出器
のγ線照射高温試験
付録

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

ナトリウム漏洩検出器の γ 線照射・高温試験 付録

日本原子力研究所

原子炉計測研究室

角田 恒巳

荒 克之

原 昌雄

Ⅰ はじめに

Na冷却型高速炉の構成機器及び配管等においてNaが漏洩した場合、この漏洩を早期に発見することは安全対策上非常に重要である。

このため、原型炉「もんじゅ」一次冷却系に通電型のNa漏洩検出器(以下NLDと記す)を装着した場合を想定し、温度;550°C、 γ 線レベル;1.2×10⁶R/hr積算照射量;4.8×10⁹Rまでの γ 線照射・高温試験を行なった。

その方法、結果および検討などの詳細は別稿の「ナトリウム漏洩検出器および無残絶縁同軸ケーブルの γ 線照射・高温試験: JAERI-memo 7384 (受託報告書)」に記載しており、これによれば供試NLDは上記の苛酷な条件のもとでも十分機能を果せ、「もんじゅ」一次系への装着が可能であることが判明した。

しかしながら、高温にさらされたNLDの電極表面は酸化を防ぐために施したAuメッキ層がなくなっていること、また常温照射では青錆び状の析出物が現われるなど特異な問題も指摘されている。

そこで、このメッキ層の行方や表面腐蝕の問題を追求するため、電極残の表面および断面の材料分析および絶縁材料中への金属拡散などの追加確認試験を行なった。

本付録は、これらの追加確認試験について方法、結果とその検討などを述べたものである。

Ⅱ 試料および照射条件等

試料は、NLDの照射と同時に、電極残試料およびNLD本体の絶縁残などである。

電極材試料は、Au $2\mu\text{m}$ ヌッキ (NLD 本体と同じ) および Au $10\mu\text{m}$ ヌッキのものをそれぞれ、常温および高温で照射に供し、積算照射量は常温高温とも 4.8×10^9 R に達している。また種々の特性変化が照射によるものか、熱によるものかと比較するにため熱老化のみも行った。

以下に照射および熱老化の条件を示す (Table - 1)

Table - 1 照射および熱老化条件

	温度 (°C)	照射線量率 (R/hr)	時間 (hr)	照射量 (R)
高温照射	550	1.2×10^6	4024	4.8×10^9
常温照射	R.T.	1.7×10^6	2824	4.8×10^9
熱老化	550	—	2280	—

なお、照射および熱老化に際し試料は NLD の絶縁素材とは、無アルカリガラス繊維絶縁スリーブ (Glass) およびシリカガラス繊維絶縁スリーブ (Silica) 内に入れておいた。

また、絶縁材中への金属元素の拡散の有無を確認する試料は NLD 本体を解体している。照射条件等は Table - 1 の通りである。

3 電極材の XMA 写真分析

電極材のうち Au $10\mu\text{m}$ ヌッキの試料について XMA (X線マイクロアナライザ) による表面の写真分析を行った。

この結果を Photo-1 ~ Photo-6 に示す。

試料は、それぞれ「Glass」および「Silica」絶縁スリーブ内に挿入して照射しているため便宜上「Glass」スリーブ内のものを「G」、 「Silica」スリーブ内のものを「S」としている。

測定対象の元素成分は Ni, Si および Au についてで、O については測定装置の感度が低いため正確な情報とは取れないため行っていない。

高温照射試料 (550°C , 4.8×10^9 R) である「S」および「G」においては、その表面は殆んどが Ni であるが「G」には若干 Au が残っている。 $2\mu\text{m}$ ヌッキ厚の場合は Au は殆んど無く残っている (別稿の報告書参照) ことから、これは、ヌッキ層を厚くしたためであるか。

常温照射 (R.T., $4.8 \times 10^9 R$) の「S₄」「G₄」では、「S₄」試料の (W/PD) (電子組成像) に、マッキ剝離の形跡が見られ、この部分の Au がほとんど Ni が析出している。これは、常温照射に現われた青錆状の析出物で、この青錆の析出は常温照射だけに現われる特異な現象である。

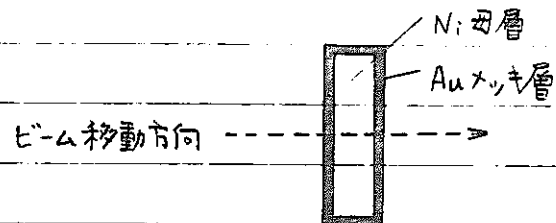
熱老化 (55°C, 2280 hr) の「S₆」「G₆」においては、Ni が析出した表面に Au は認められなかった。

4 電極枚横断面の線分析

別稿の報告書および前述するよ様に、高温に曝された電極表面には、酸化を防ぐために施した Au マッキ層が無くなるか、あるいは極く微少となっている。そこで、これらの行方や拡散の有無を確認するため、電極枚の横断面 (深さ方向) の線分析を行った。(Fig-1)

測定対象の元素成分は、マッキ層の Au および母層の Ni である。

試料は、Au 10μm マッキのもの
で、前項同様「Glass」「Silica」
絶縁スリーブ内に挿入して照射
している。



電極枚横断面

これらの測定結果を、
Fig-2 ~ Fig-8 に示す。

Fig-2 はオリジナル未照射
のものを、表面にある Ni peak は
試料研磨層の付着と思われる、拡
散 (Ni → Au, Au → Ni) はどこにも認められない。

Fig-1 電極枚横断面の線分析

高温照射 (55°C, $4.8 \times 10^9 R$) の「S₄」は、Au マッキ層が極端に薄く
なっている。Ni 母層も薄くはまっているがこれは試料のパラッキによるもの
ではなかろうか? Ni 中の Au 拡散は認められず、Au の薄くはる成分
の行方は不明と云える。(Fig-3)

常温照射 (R.T., $4.8 \times 10^9 R$) の「S₄」(Fig-4), 「G₄」(Fig-7) は、オ
ジナル試料と同様相互の拡散は認められない。また線分析位置での
青錆は付着物の析出物は煮かた。

熱老化 (55°C, 2280 hr) の「S₆」では、Au マッキ層は残っているが

オリジナル試料に較べ、いく分薄くなっている。またわずかにあるが相互拡散しているようである。(Fig-5)

一方「Glass」絶縁スリーブ内の試料では、

高温照射(550°C, $4.8 \times 10^9 R$)の「G₂」は、Au ヌッキ層は残っているが「S」試料同様薄くなっている。またわずかにあるが相互拡散が認められる。(Fig-6)

熱老化(550°C, $4.8 \times 10^9 R$)の「G₆」も同様、Au ヌッキ層が薄くなっており、Au 中へ Ni がわずかに拡散している。

以上、線分析結果をまとめると、

1) 高温に曝(エ)い(エ)、照射・非照射にかかわらず Au ヌッキ層は薄く
なっている。(試料は

$2 \mu m$ Au ヌッキの場合は殆んど Au 成分は無くなっていた(別稿報告書参照)が、 $10 \mu m$ Au ヌッキではかなりの残存が認められる。

これは、ヌッキ厚の差によるものと思われる(実例では Au $10 \mu m$ ヌッキ試料のヌッキ厚は $20 \mu m$ 程度あった)。

2) 高温に曝(エ)い(エ)る試料は、わずかにあるが Au \leftrightarrow Ni の相互拡散が認められるが、Au ヌッキ層の薄くなる部分全てについて説明できるほどの量ではない。したがって、その大部分の行方は不明と云える。

3) 常温照射では、ヌッキ層、母層への影響は見られなかった(線分析では)。

5 青錆び状析出物の定性分析

常温照射試料の特異な現象として、電極表面に青錆び状の析出物が現れた。

表面分析の結果では、この部分に Ni が析出していることが確認されているが、これは XMA の同析結晶を変え、他元素の有無を確認した。

試料は析出現象がより顕著に現れた Au $2 \mu m$ ヌッキについて行なった。

これらの結果を Fig-9 ~ Fig-12 に示す。

「S」および「G」試料とも、検出元素は Ni, Mn, Au, Cl である。Ni および Au は電極素材であり、また Mn は Ni 母層にわずかに

に含まれている (0.26 wt%)。

ここで問題となるのは、これは電極素材、絶縁素材、照射時収納した石英ガラスパイプ等には全く含まれていないものであることから、他物層から発生したものと結合であると思われる。

その1つは、NLD製作時あるいは照射カンポルとして収納する際に触れられた手汗などから分解したもので、

あるいは、照射Cave内に使用されている、ビニール系のカンポル、塗料などが分解、発生するもの、(PVCは照射により多量のHClを析出する)

などが考えられ、後者によるところが大きいと思われる。

この様に、高圧線下での照射では、思わぬところには劣化を加速する問題などが含まれており、通常の状態では起り得ない、Auとも腐蝕する現象が現われる。

6 絶縁材中のAu, Ni有無確認

別稿の報告書にその詳細を述べているが、常温照射NLDの絶縁抵抗が著しく低下したと、また前項に示すように青錆が状の析出物のあるところから、常温照射を行なったNLDを解体し、絶縁材中へのAu, Ni浸透があるかを調べた。測定を行なった絶縁材はNLDの電極間には組み込んだ材料およびせん状巻材で、その両面を測定した。

その結果をFig-13に示すが、「Silica」、「Glass」両NLDとも、

Au, Niは検出されなかった。測定箇所が部分的であり、浸透したとしても絶縁特性などが考慮すると極く微量であると思われることなどが

Au, Niを確認するには至らなかった。

では、Auメッキが飛んでしまった高温に曝されたNLDはどうであろうか? と云う問題も出て来るが、こちらは絶縁特性など電気的特性の面から絶縁材中へ拡散したとは説明できない。

7 まとめおよびあとかぎ

別稿の報告書に詳述した如く、高温に曝されたNLDの電極表面は酸化を防ぐために施したAuメッキ層がはくがらむこと、また常温照射を行なったNLD電極表面には青錆が状の析出物が現われるなど特異

は問題も指摘していた。本付録は、これらについて追って確認するために行なった試験について述べている。

試験の結果では、

1) 高温に曝された試験料は、照射・非照射にかかわらず、わずかにあるが $Au \leftrightarrow Ni$ の相互拡散が認められた。

しかし、高温下で薄くはたして行く Au ヲッキ層金について説明できるほどの量ではなく、この大部分の行方は不明である。

2) 常温照射で現われた、香蝕び状の析出物の内には、 Au 、 Ni 、 Mn 及び電極素材元素の他に、 Cl が検出された。

これは、Free air 環境での照射に対し、試験料外部で発生したものの結合である。すなわち、照射 Cave 内に使用されているビニル系のケーブル、油脂塗料などから分解発生したものが考えられる。

いずれにせよ、高圧線下での照射では、劣化を加速する要因が数多く含まれているので実装の際も十分考慮する必要がある。

本試験の場合通常では起り得ない、 Au も腐蝕・剝離する現象が現われた。

などが判明した。

これらは、問題点としても指摘でき、NLDの使用実装にあたって十分に考慮しなくてはならない注意事項となるが、別稿の報告書に詳述した結論を変えるものではない。

おわりに、本付録作成にあたり、種々の測定に御協力をいただいた大日本電線KK、原子カグループリーダー 山下忠雄氏ほか同グループ諸兄に、また同材料研究部の諸兄に、さらに同通信研究所 工藤敏夫氏ほかの諸兄に感謝いたします。

文献

「トリウム漏洩検出器および無機絶縁同軸ケーブルのγ線照射・高温試験；

JAERI-memo. 7384 (受記報告書) 1977年10月

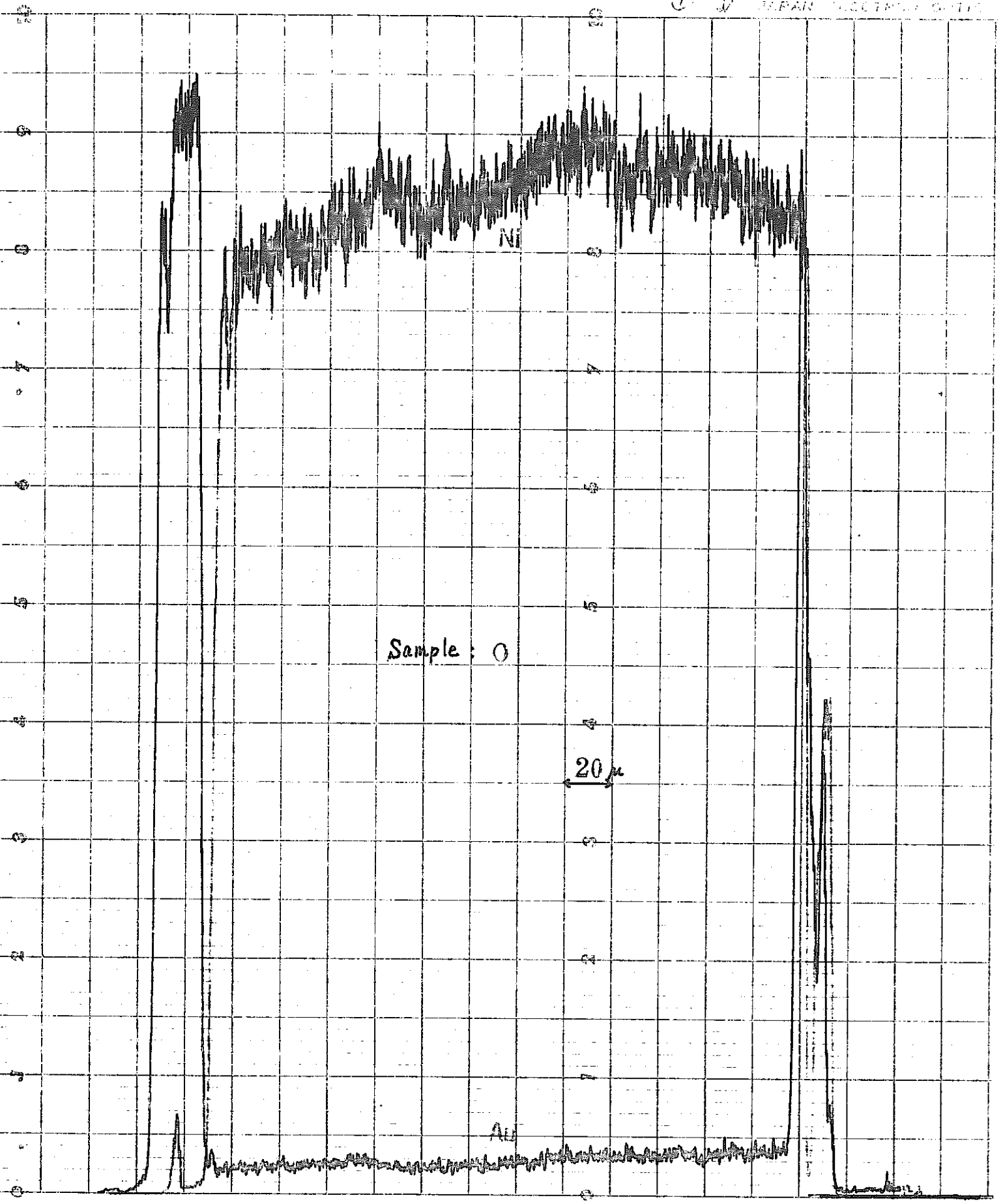


Fig-2 Au 10 μ m ヶツキ電極板横断面の線分析

オリジナル

未照射

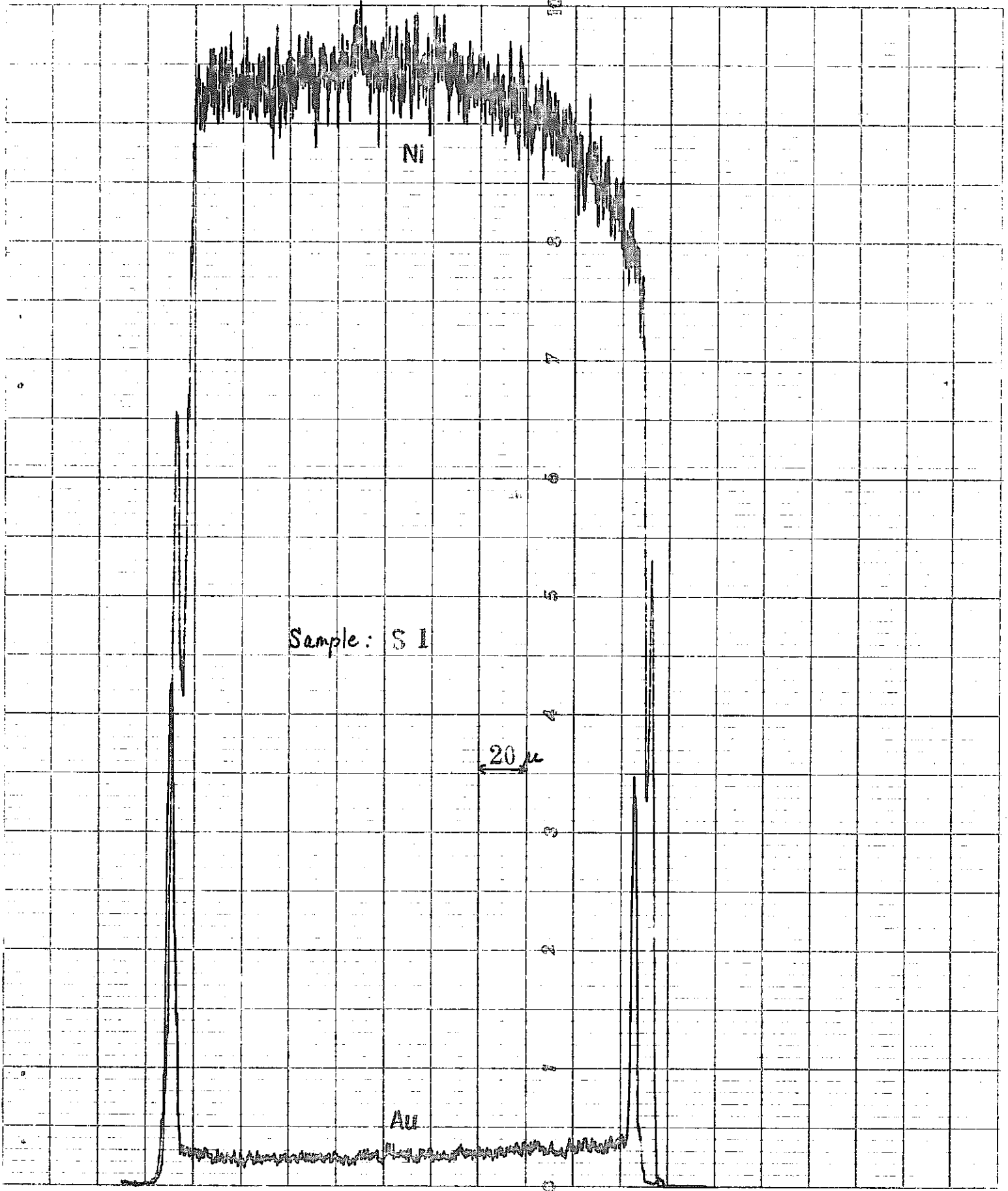


Fig-3 Au 10 μ m \times μ m 電極板横断面の線分析

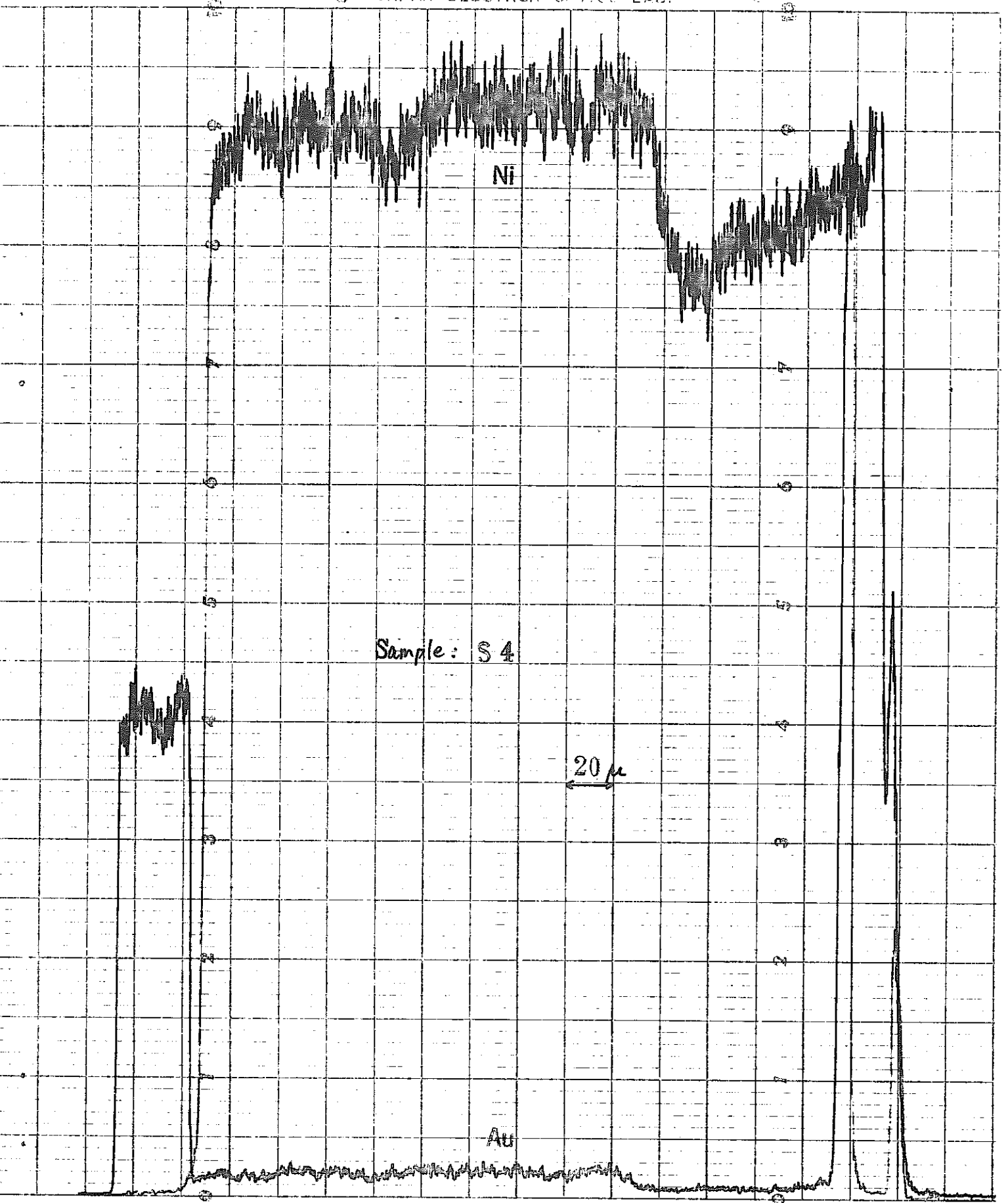


Fig-4 Au 10 μ m X μ キ電極材横断面の線分析

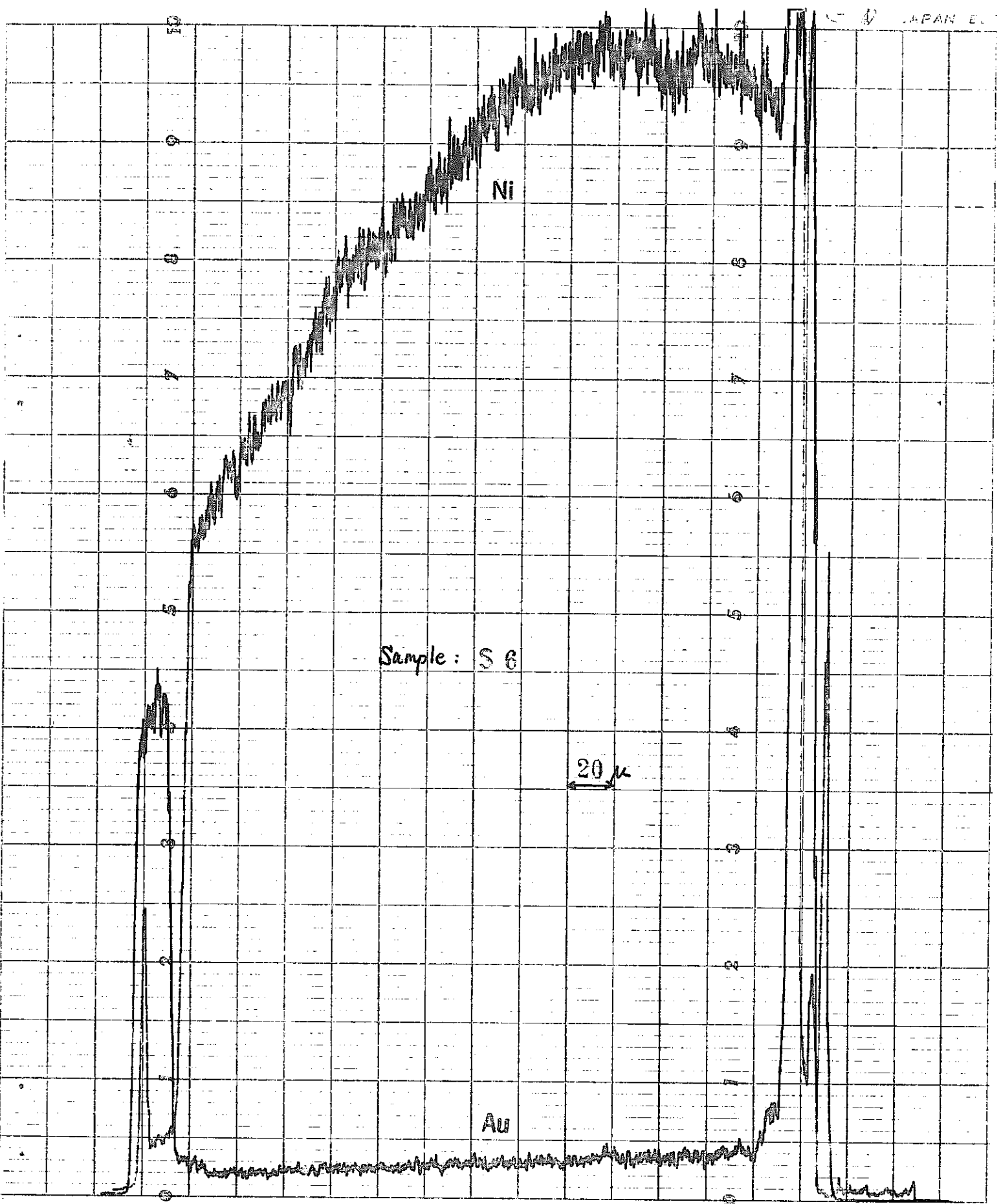


Fig-5 Au 10 μ m X μ キ電極材横断面の線分析

熱老化

Silica

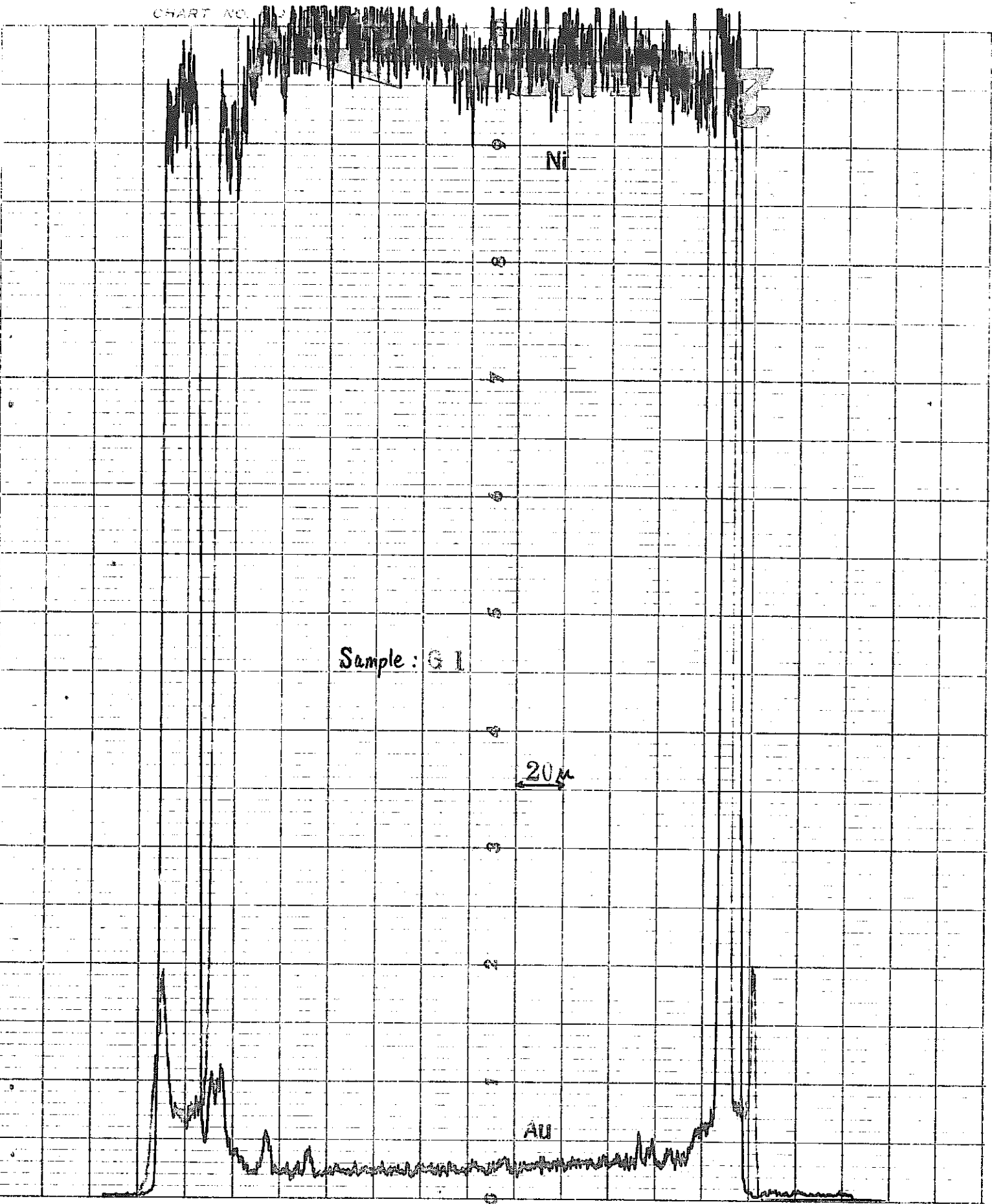


Fig-6 Au 10 μ m X μ キ電極材横断面の線分析

H.T. 照射 Glass

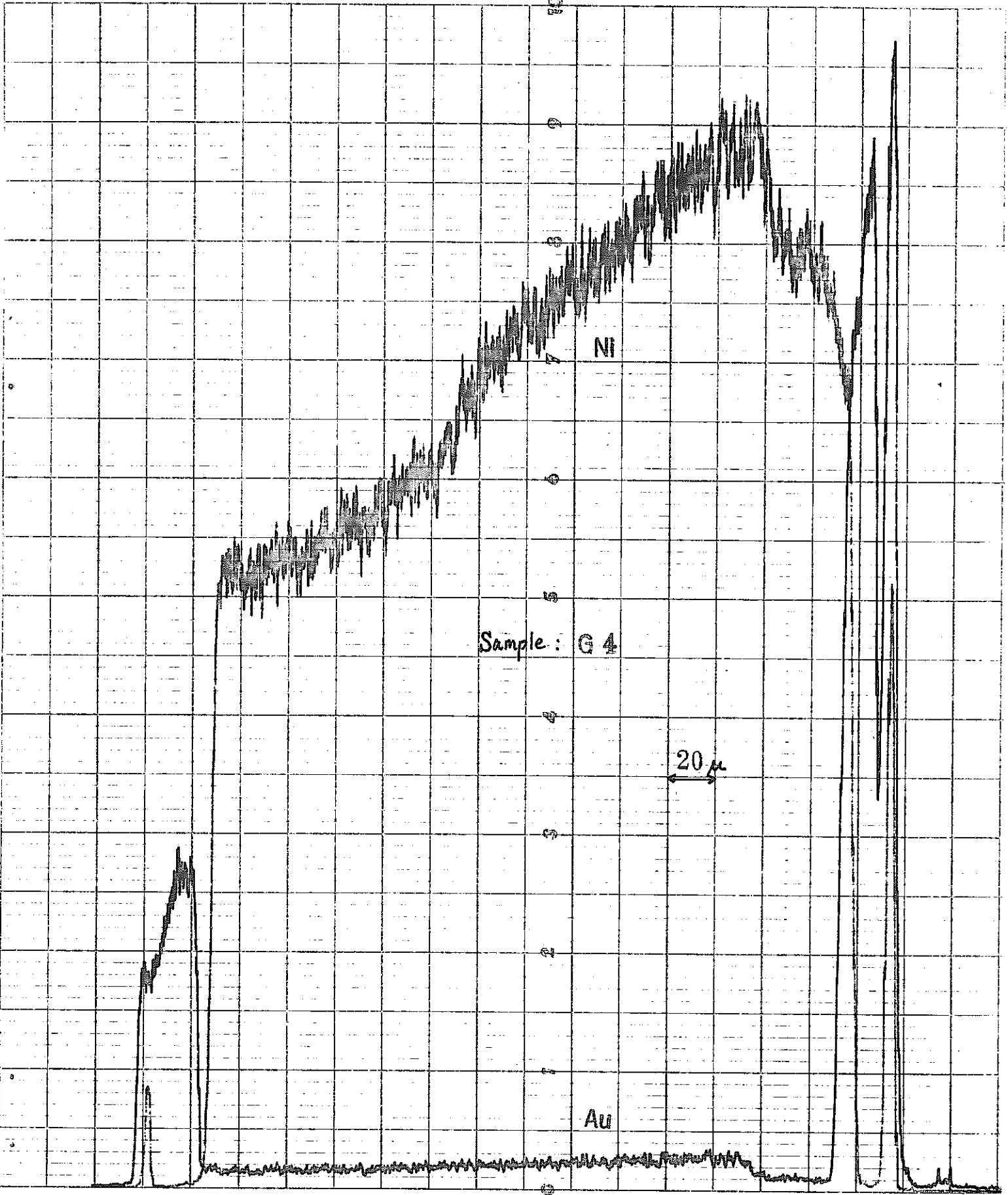


Fig-7 Au 10 μ m X μ キ電極残横断面の線分析

R.T. 照射

Glass

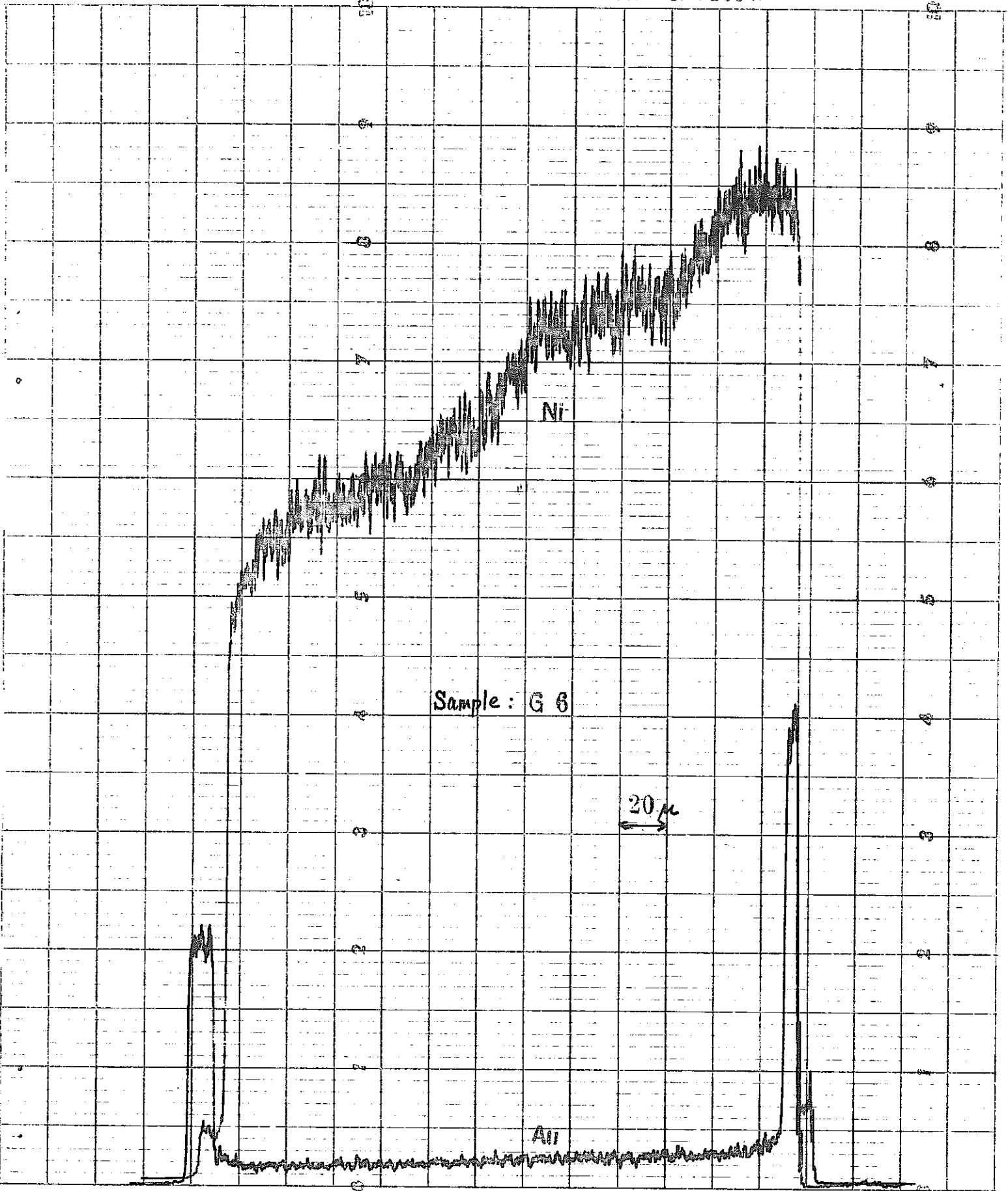
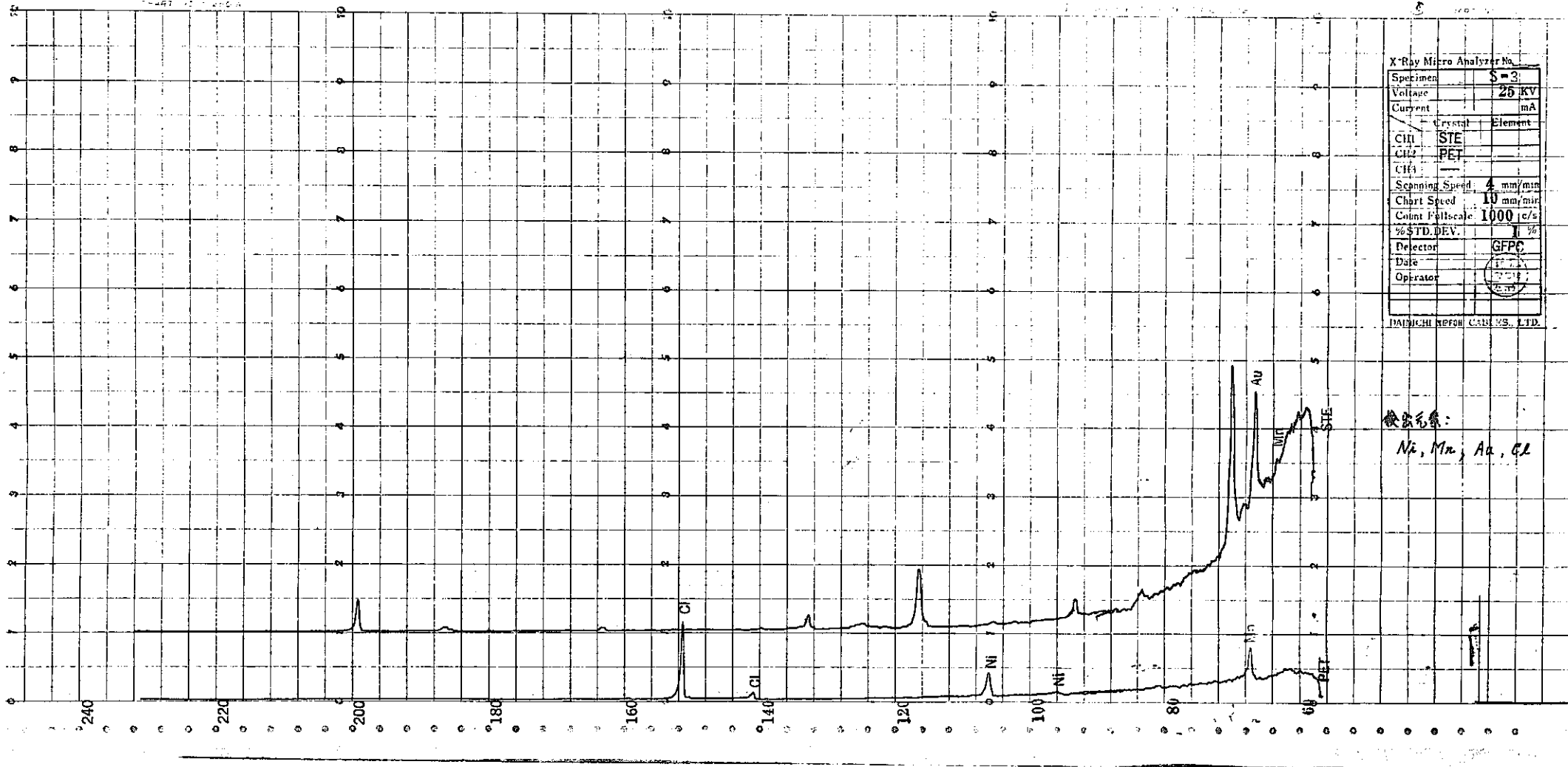


Fig-8 Au 10 μ m X μ キ電極材横断面の線分析

熱老化

Glass



X-Ray Micro Analyzer No.	
Specimen	S-3
Voltage	25 kV
Current	mA
Crystal	Element
CH1	STE
CH2	PET
CH3	
Scanning Speed	4 mm/min
Chart Speed	10 mm/min
Count Fallscale	1000 c/s
%STD. DEV.	1%
Detector	GFPC
Date	12/24/74
Operator	[signature]

DAIICHI NIPPON CALIBS., LTD.

検査対象:
Ni, Mn, Au, Cl

Fig-9 青錆が状折出物の定性分析 (Silica)

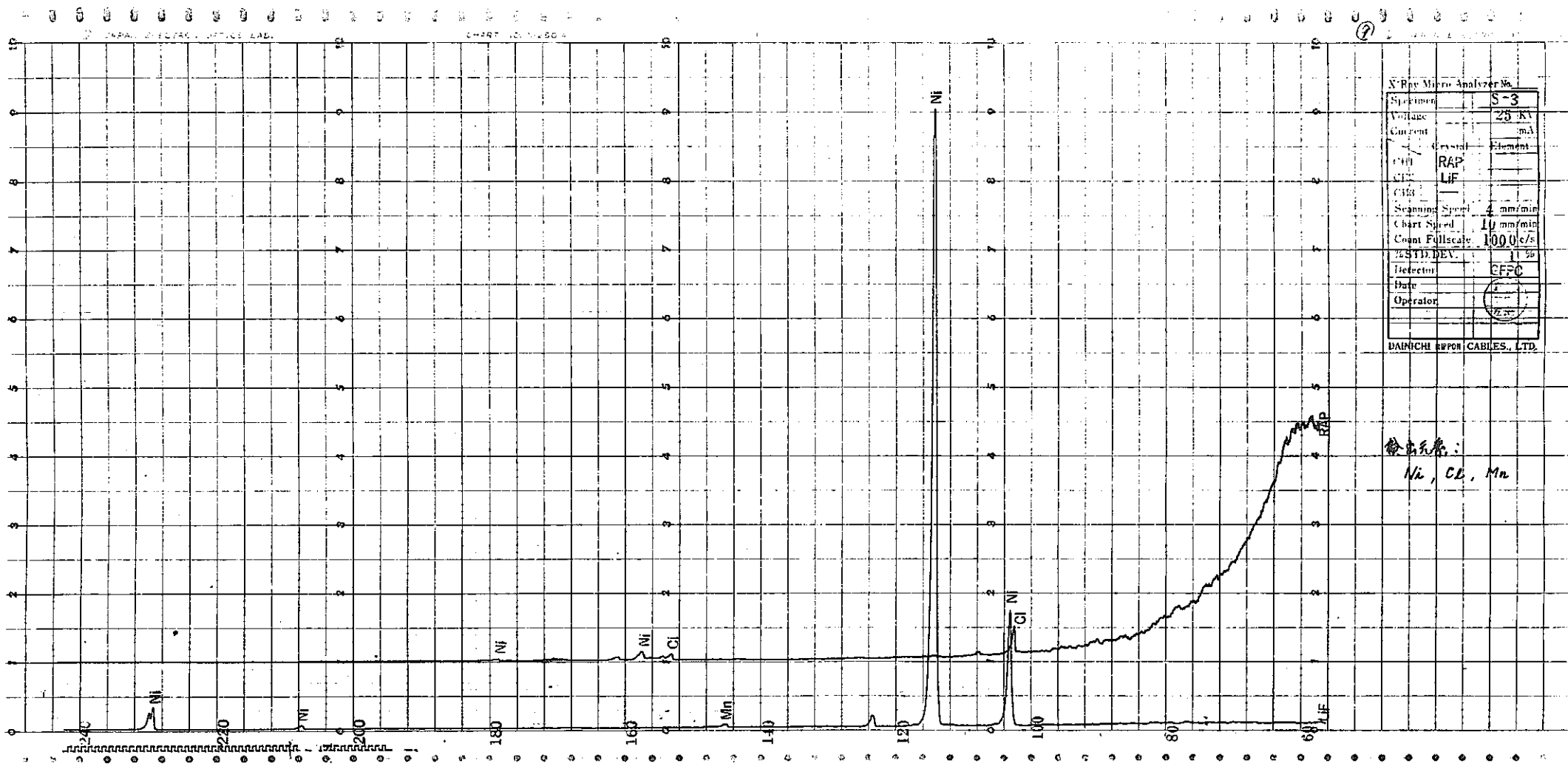


Fig-10 青錆び状析出物の定性分析 (Silica)

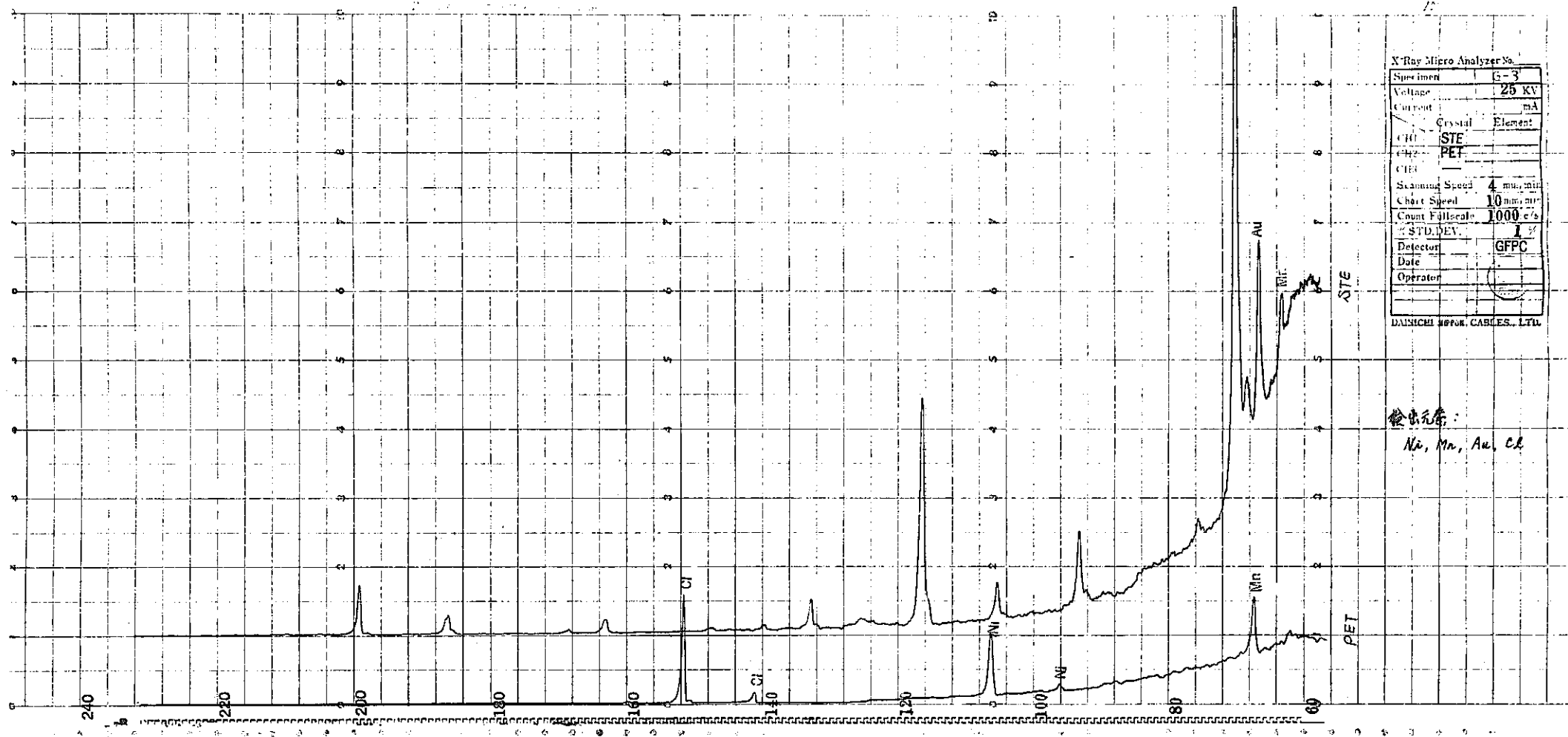
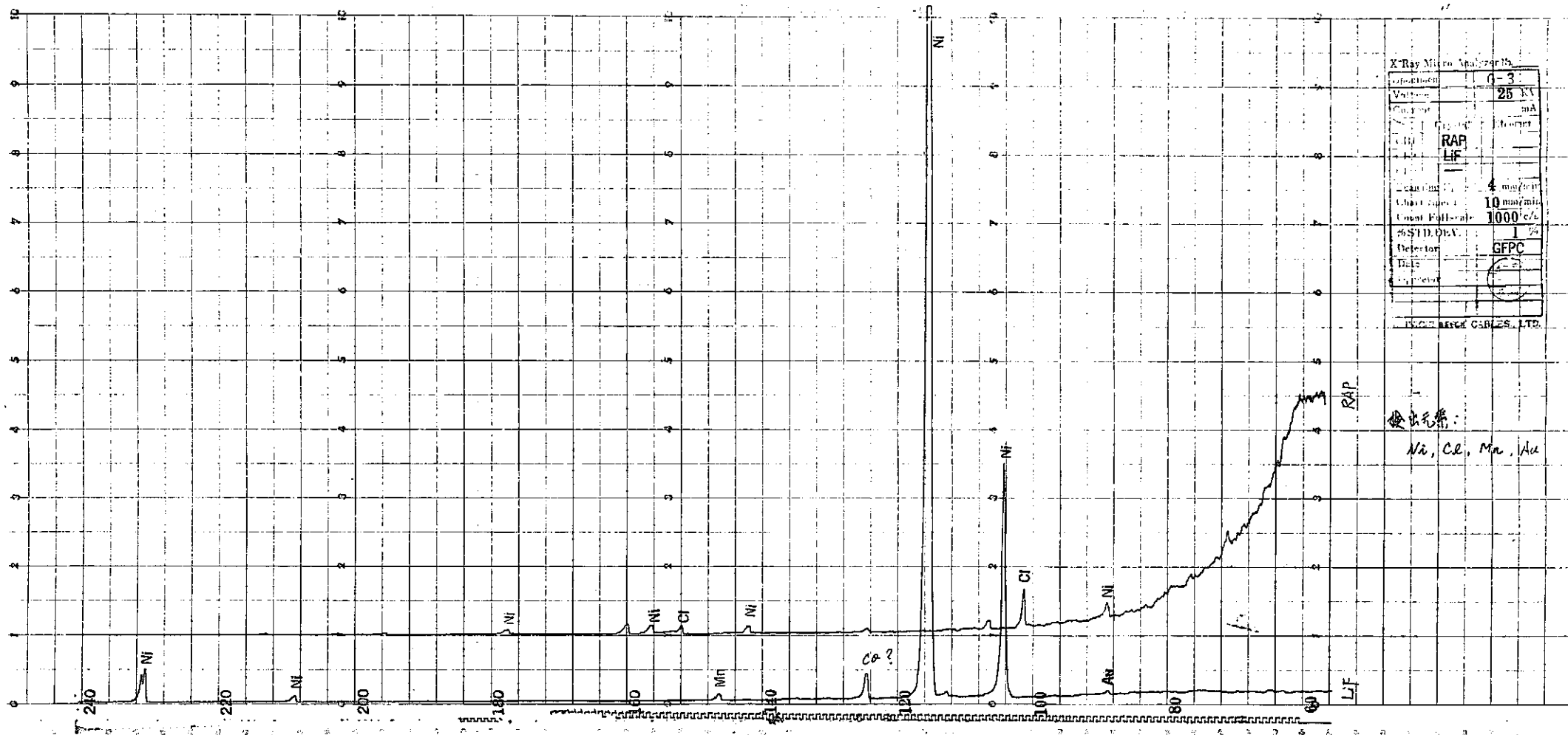
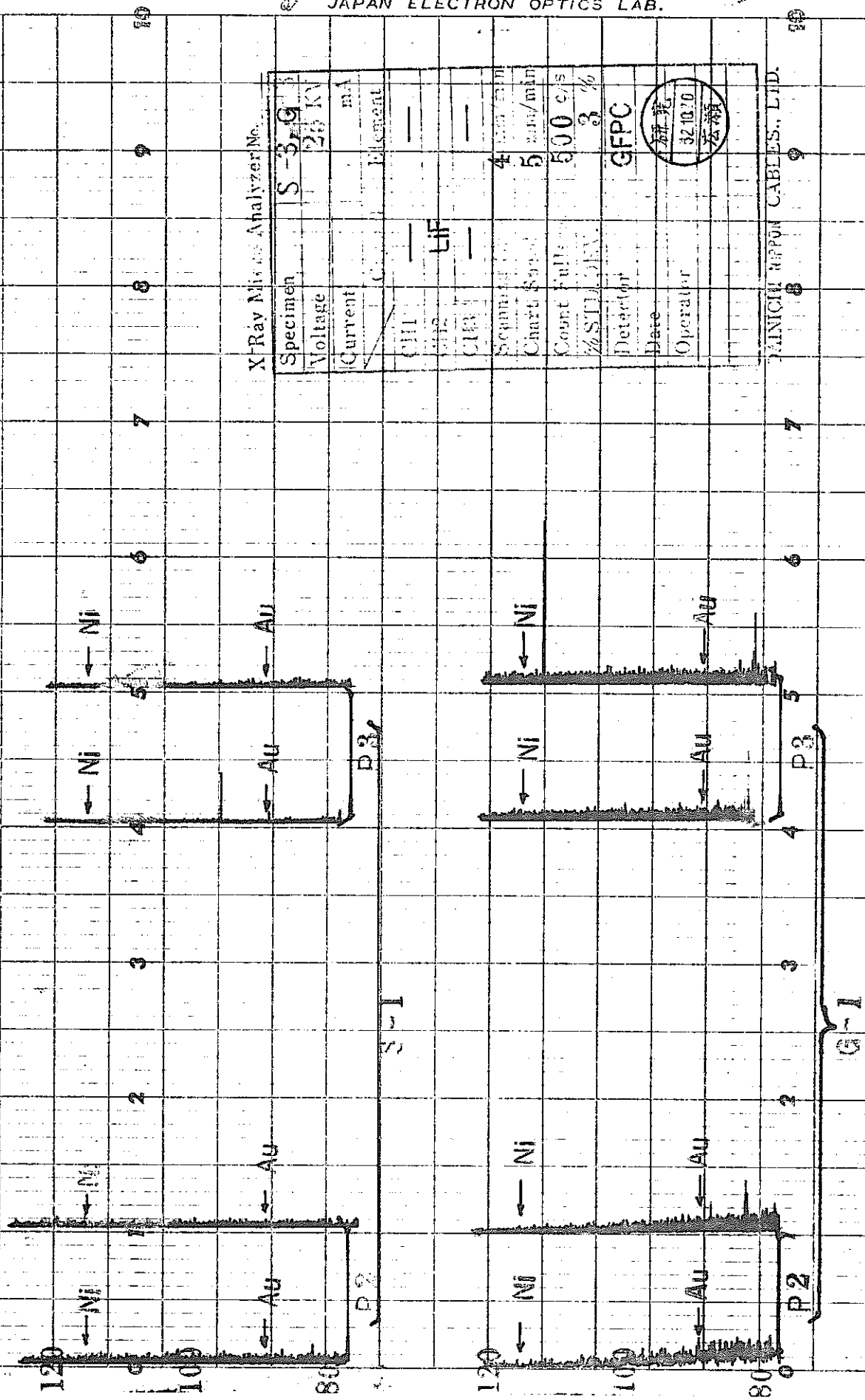


Fig-11 青錆が状析出物の定性分析 (Glass)



抽出元素:
Ni, Cl, Mn, Au

Fig-12 青錆び状析出物の定性分析 (Glass)

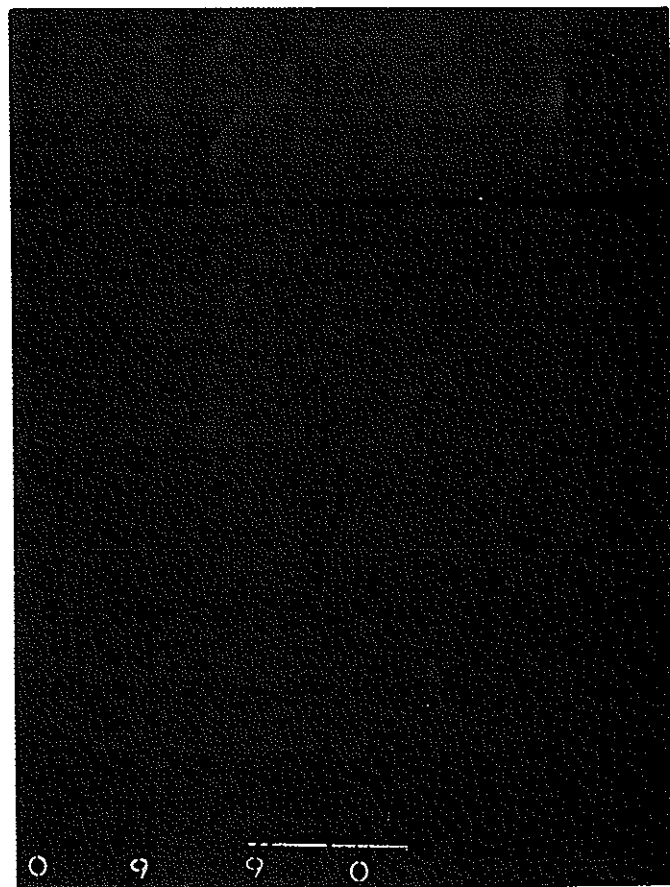
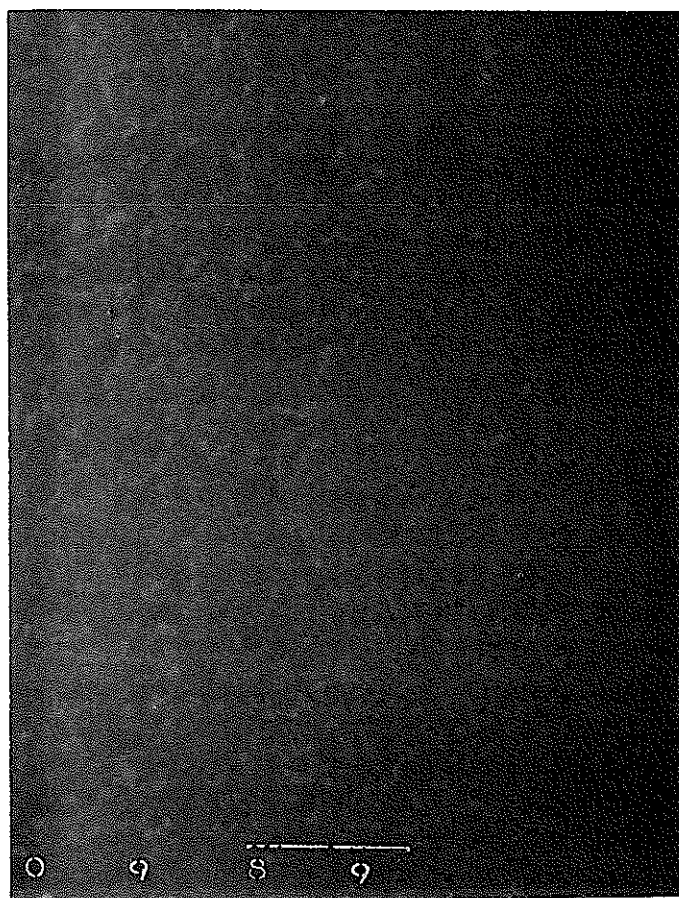
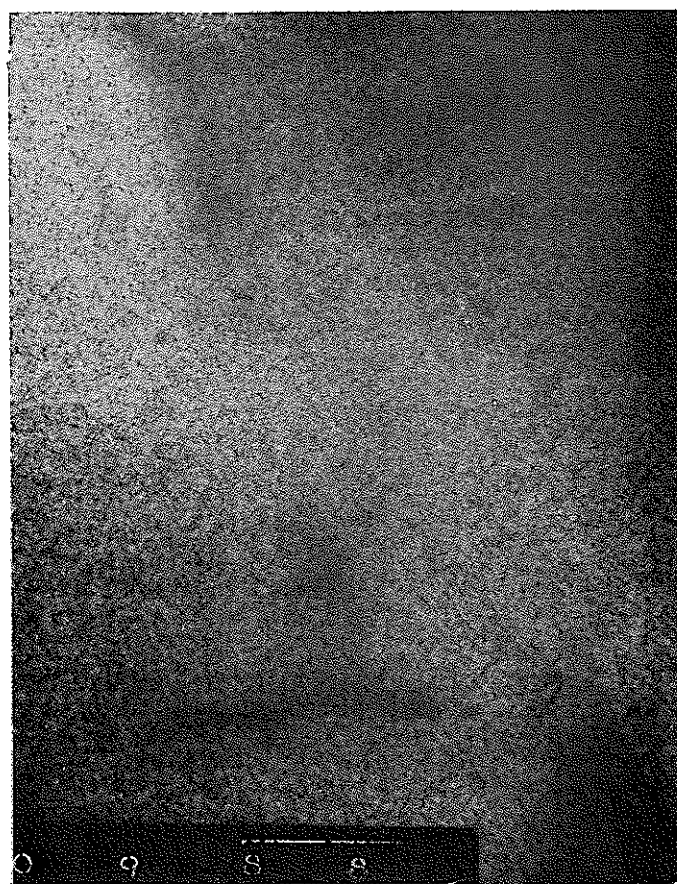
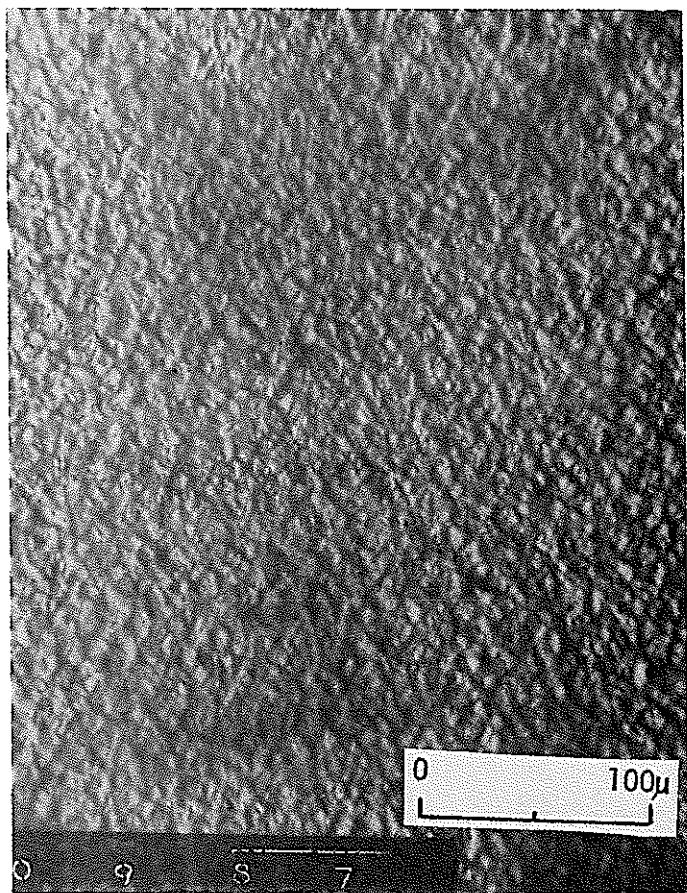


MINICHI RIPPON CABLES, LTD.

Fig-13 絶縁材中の Au, Ni 確認

NLD 解体試料

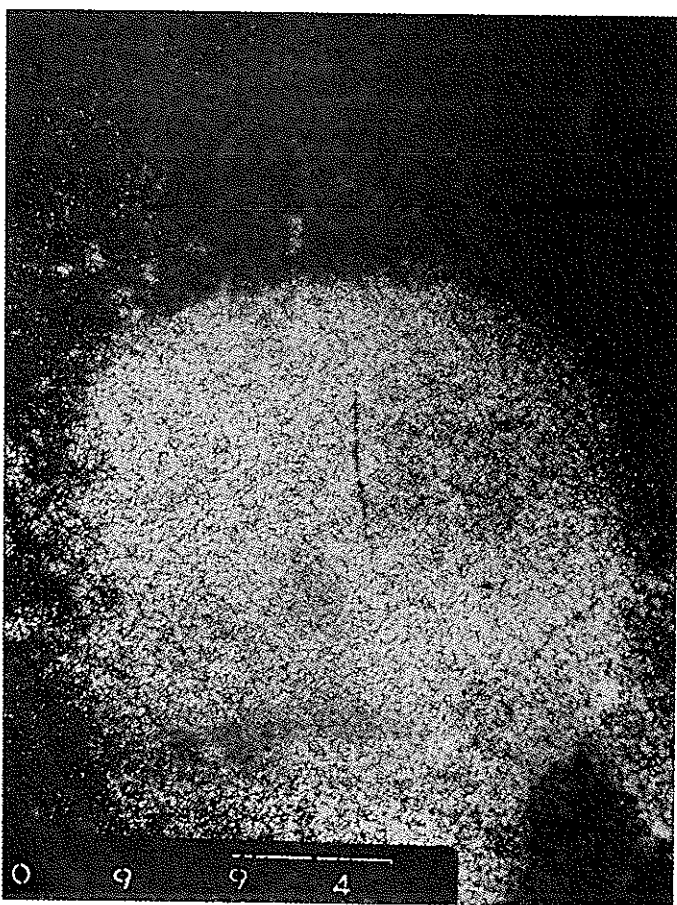
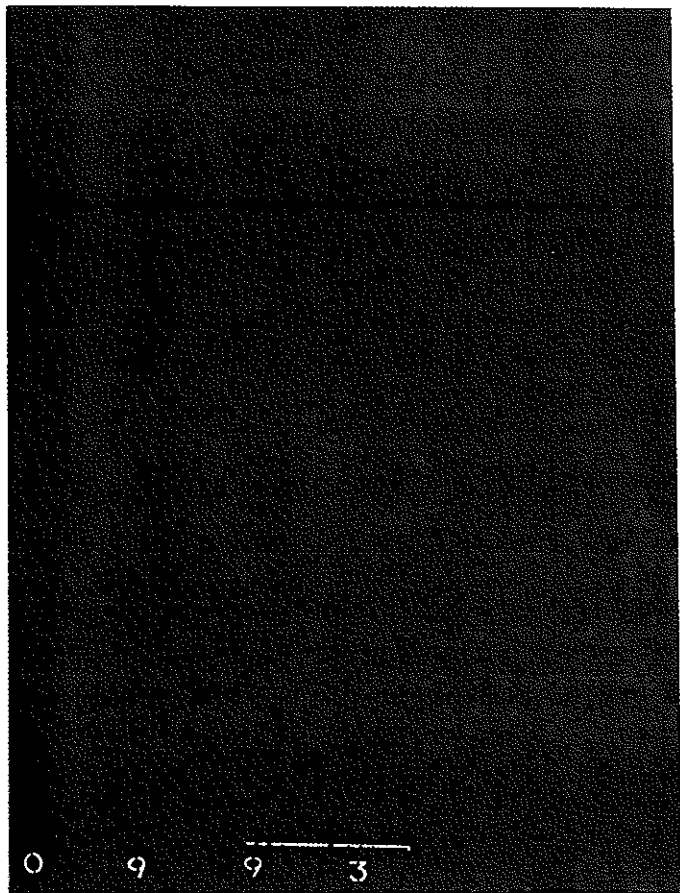
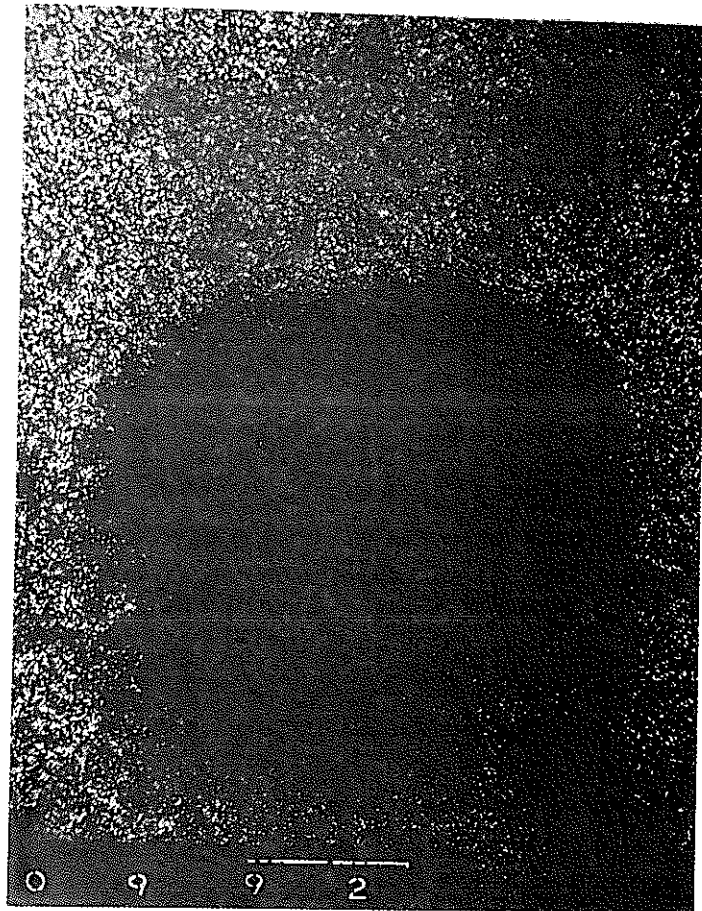
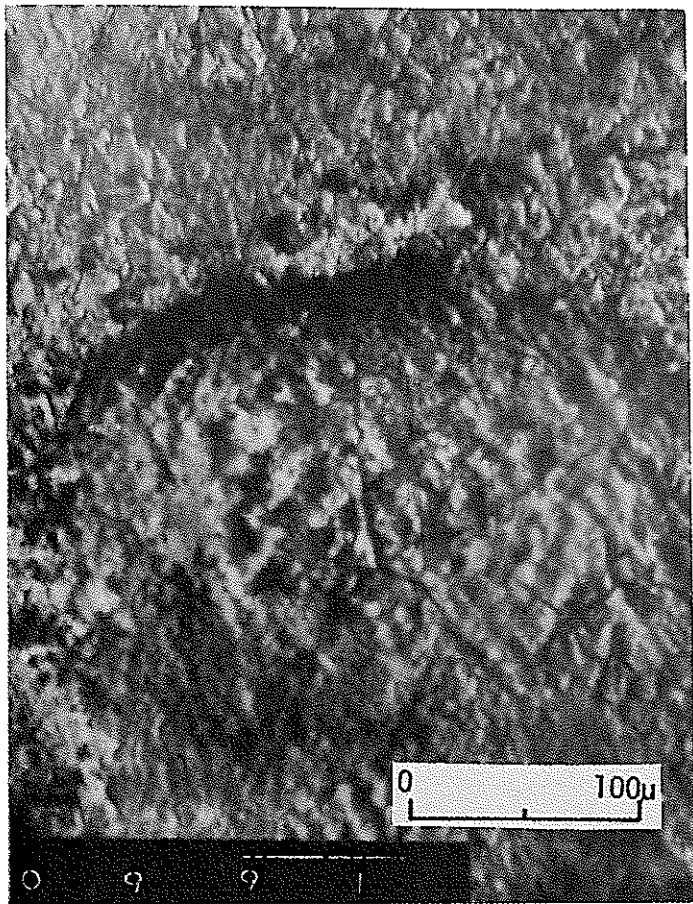
R.T. 照射



H.T. Irrad. Silica
 Au 10 μ m Plat.

0987 COMPO 0988 Ni
 0989 Si 0990 Au

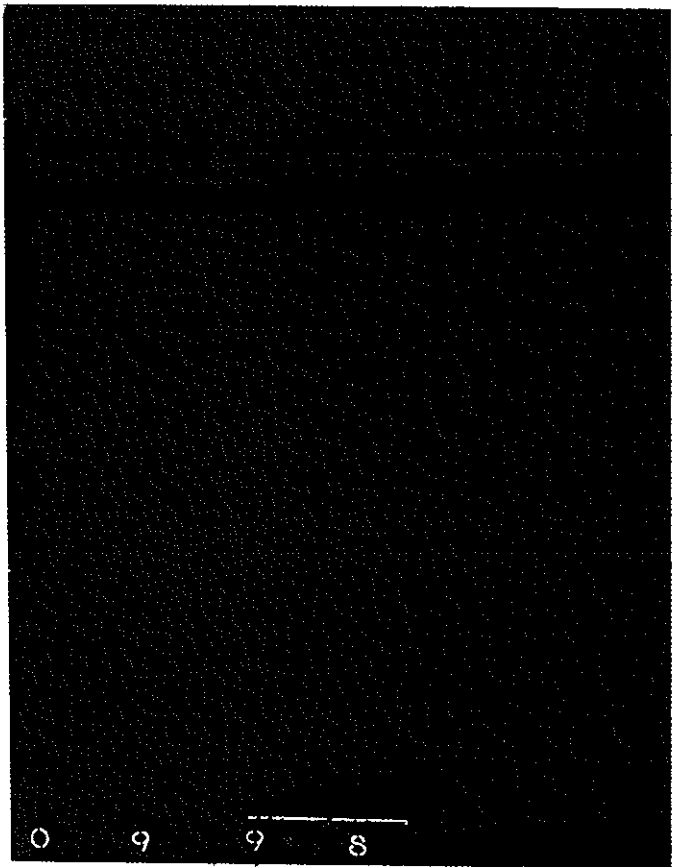
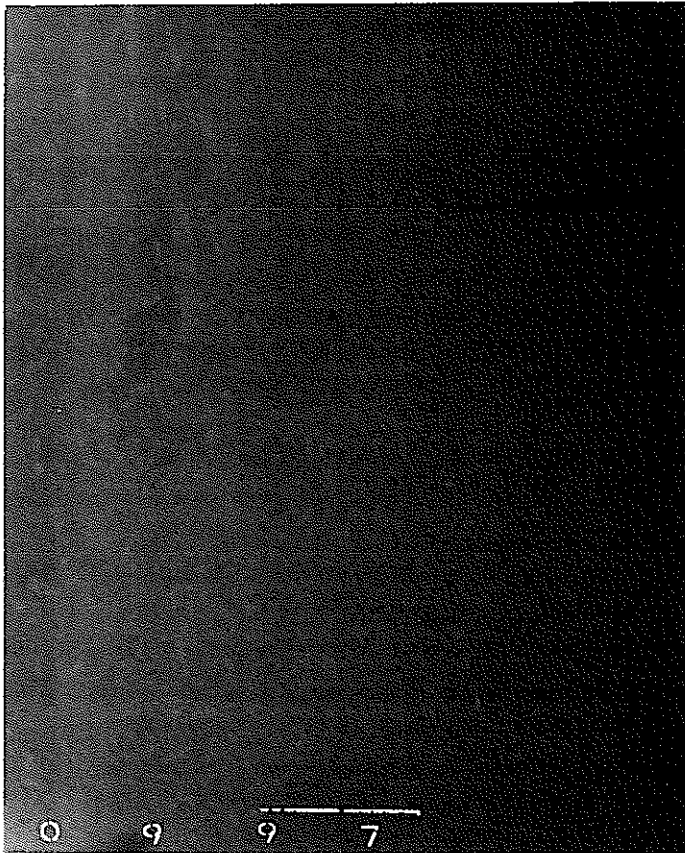
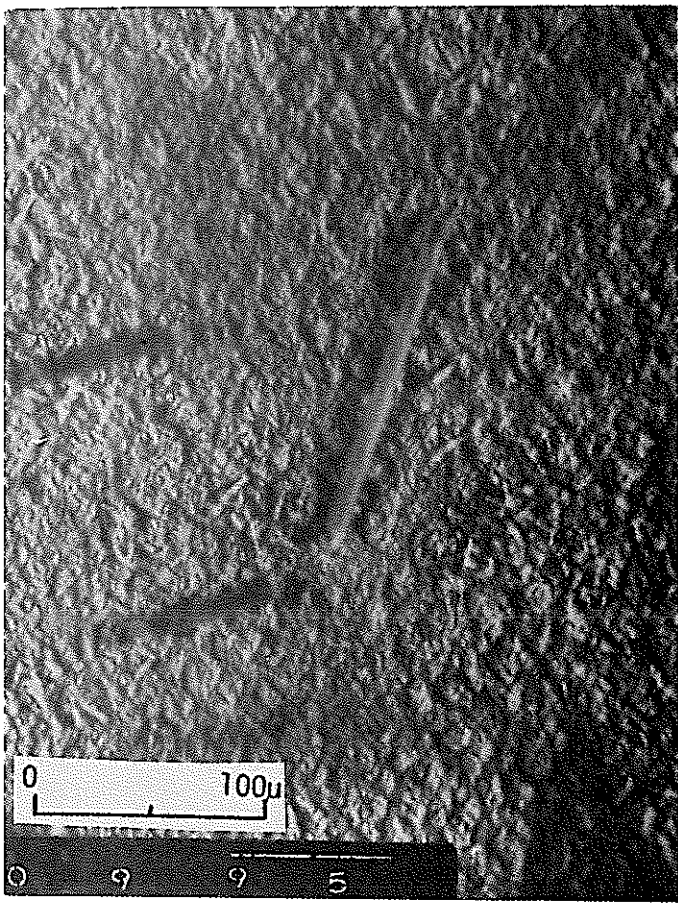
Photo-1 Au 10 μ m タッキ電極材のXMA写真



R.T. Irrad. Silica
Au 10μm Plat.

0991 COMPO 0992 Au
0993 Si 0994 Ni

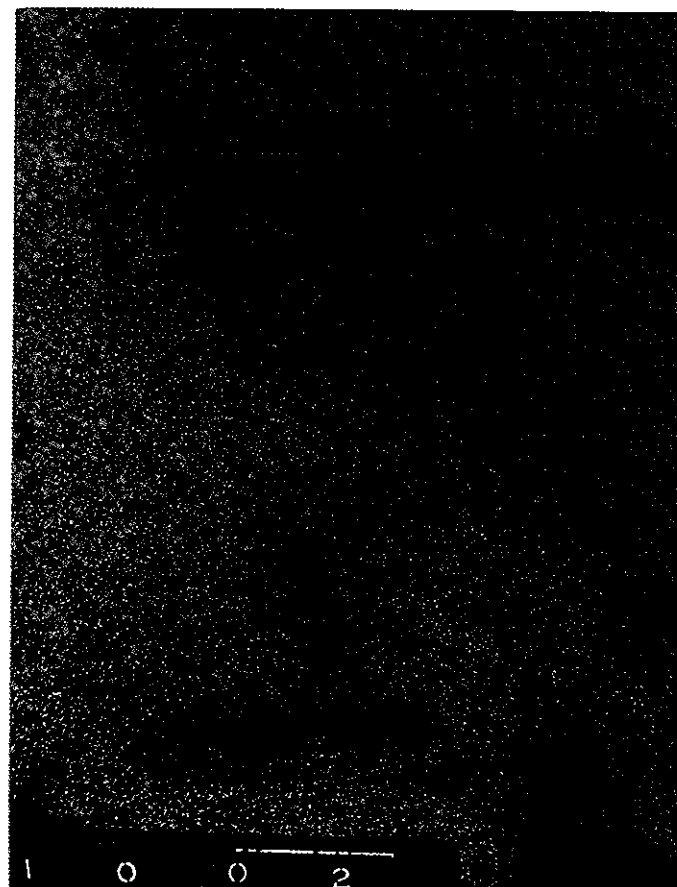
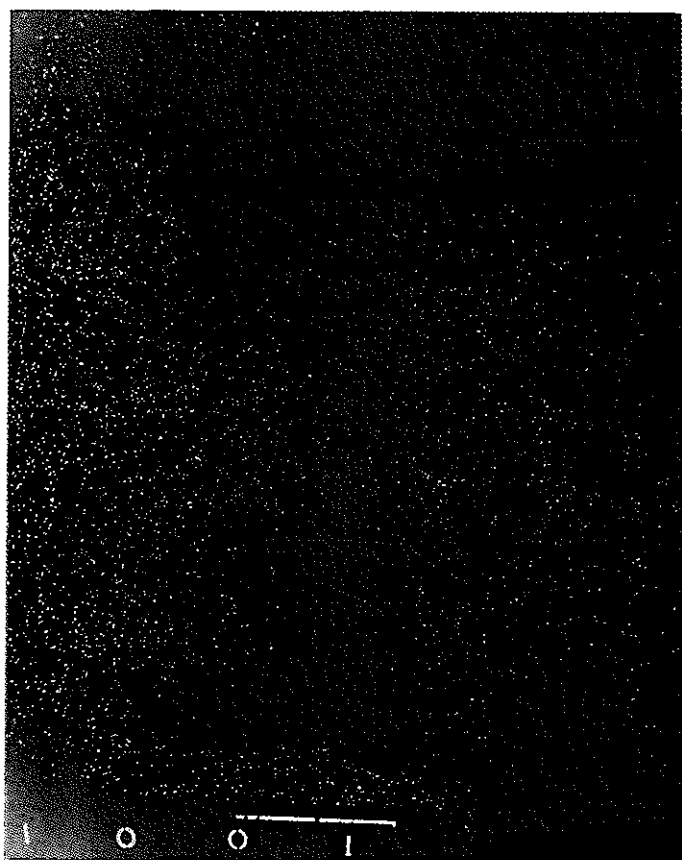
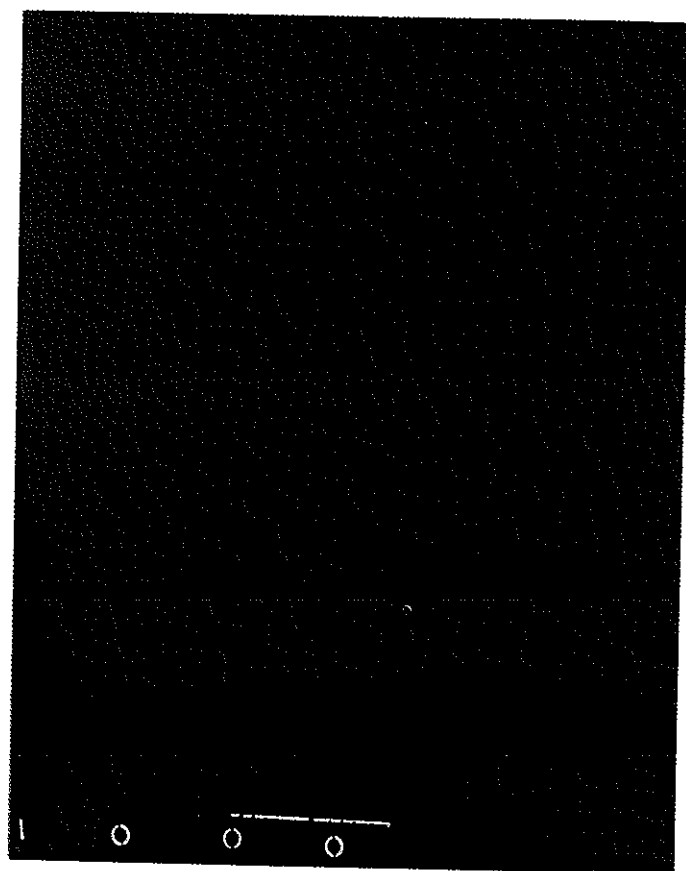
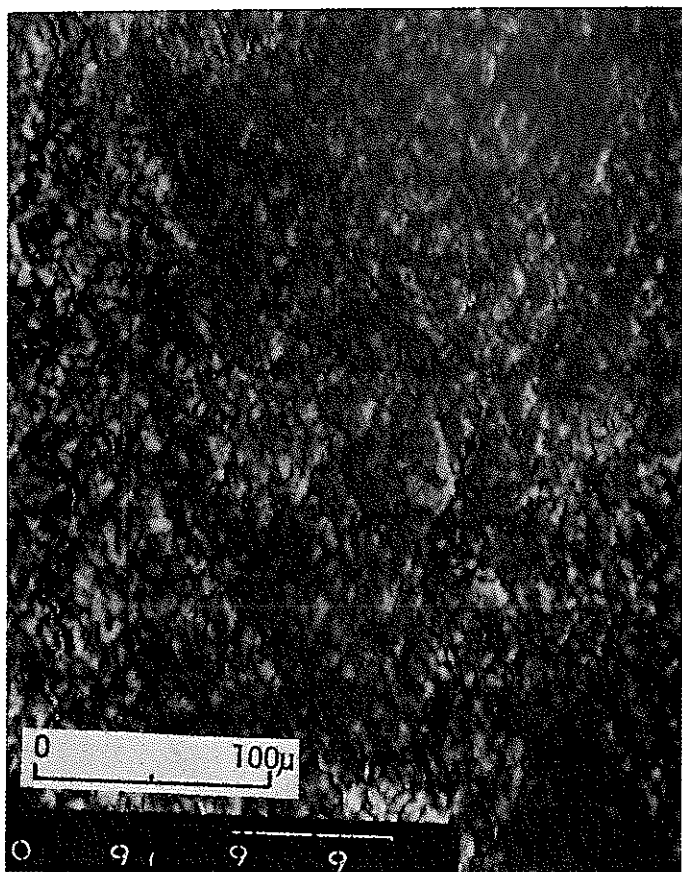
Photo-2 Au 10μmメッキ電極材のXMA写真



H.T. Aging Silica
Au 10μm Plat.

0995 COMPO 0996 Ni
0997 Si 0998 Au

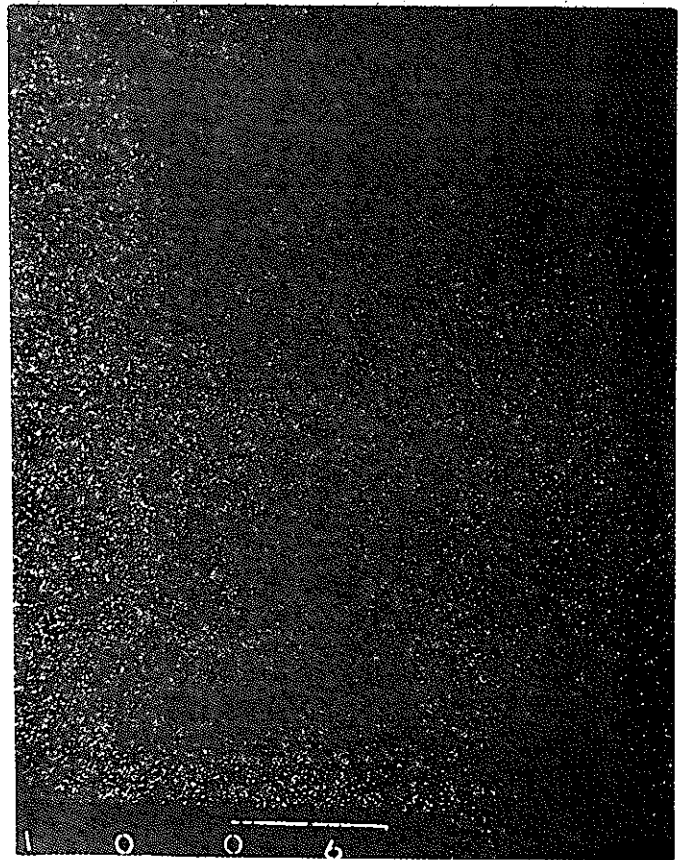
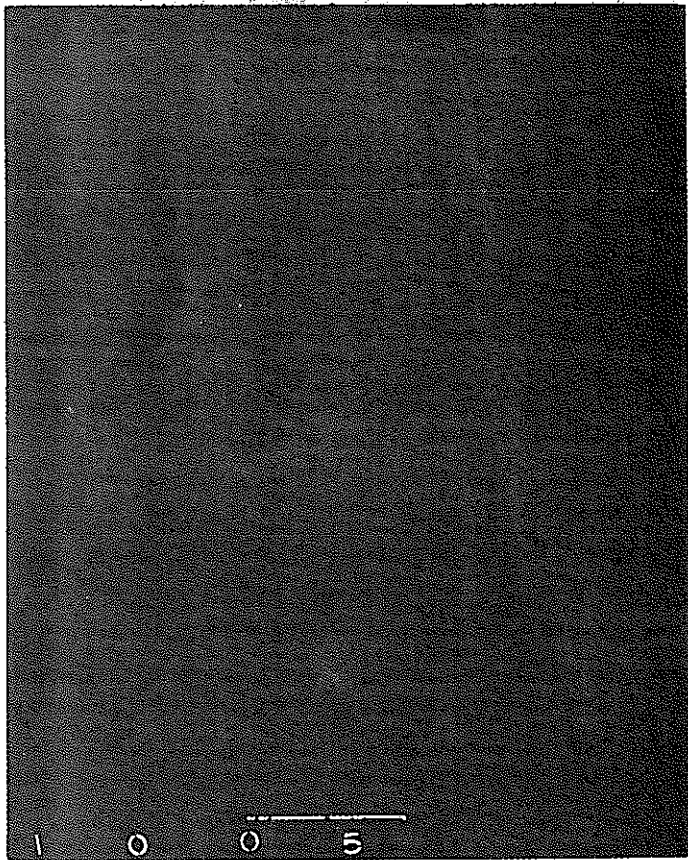
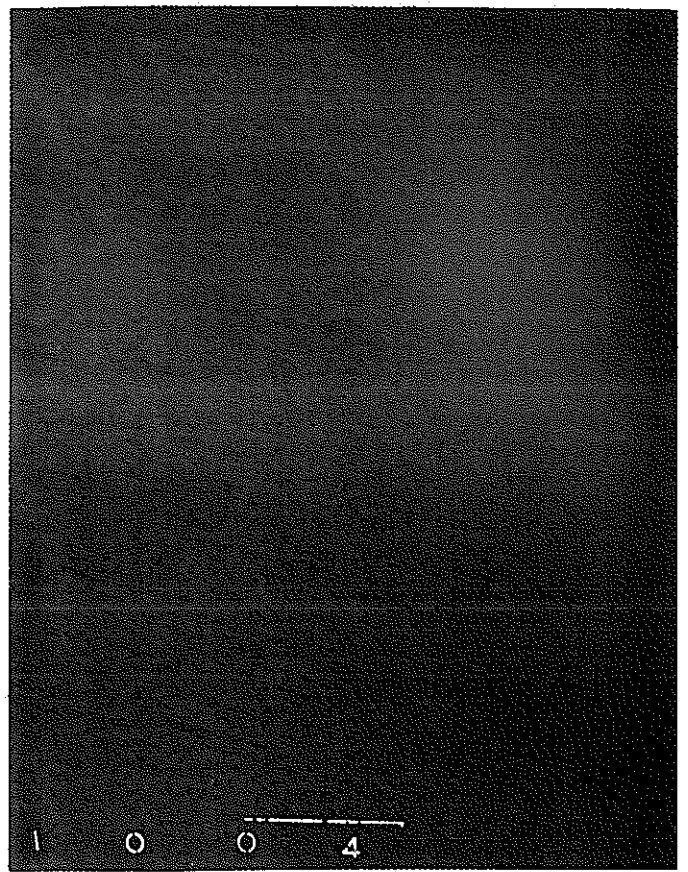
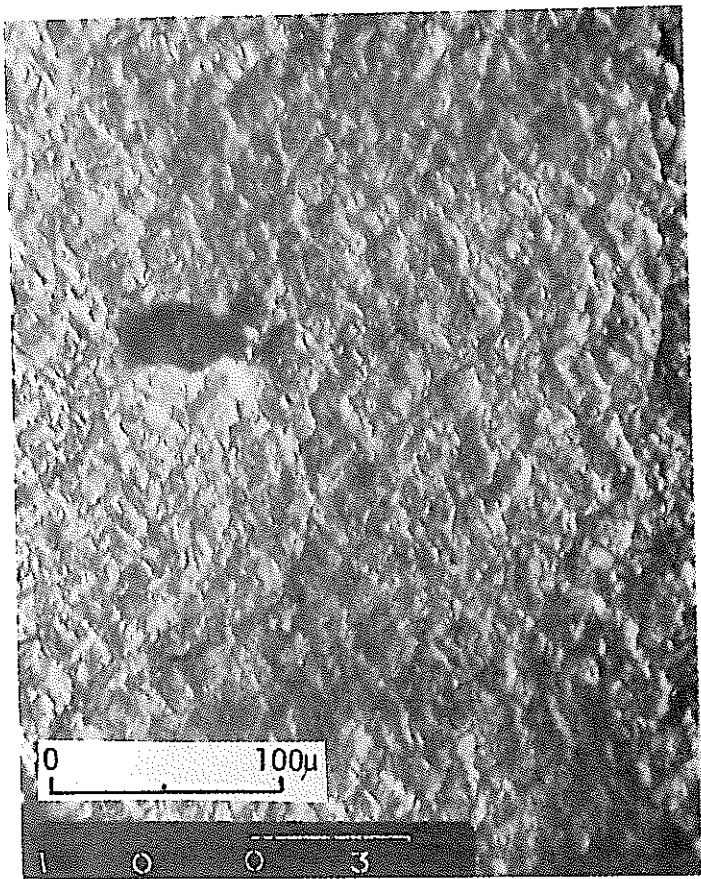
Photo-3 Au 10μm メッキ電極材の XMA写真



H.T. Irrad. Glass
 Au 10μm Plat.

0999 COMPO 1000 Si
 1001 Au 1002 Ni

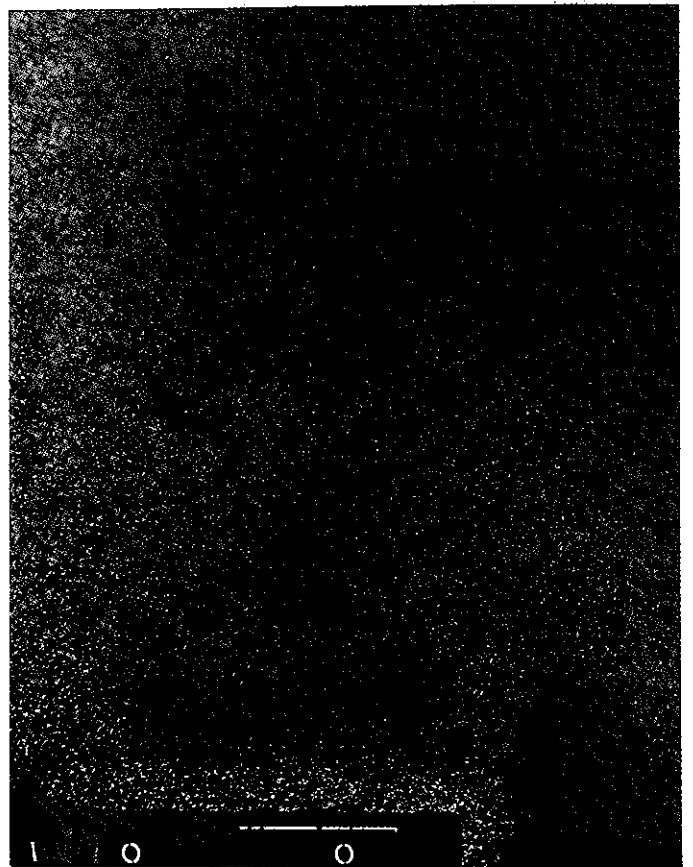
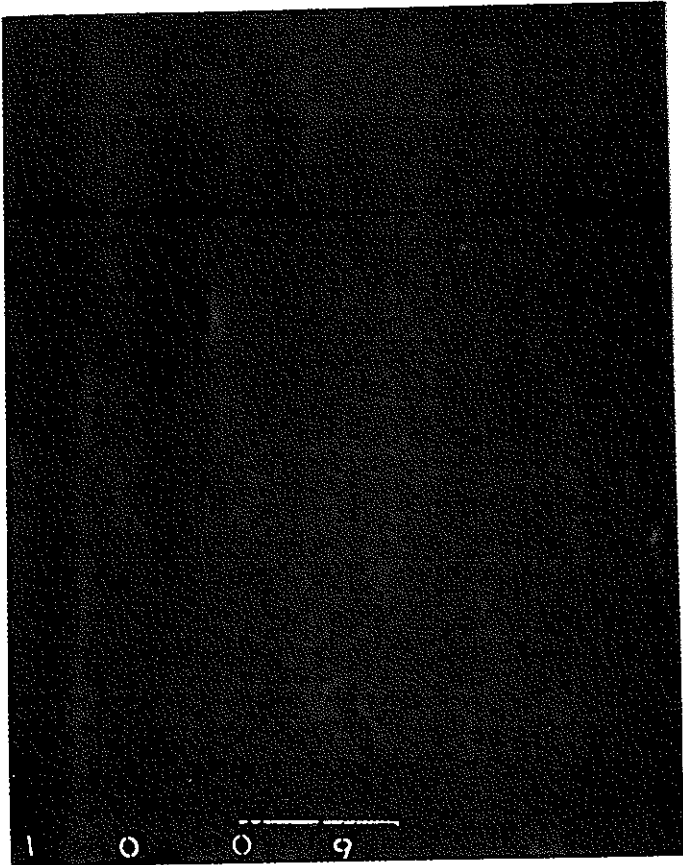
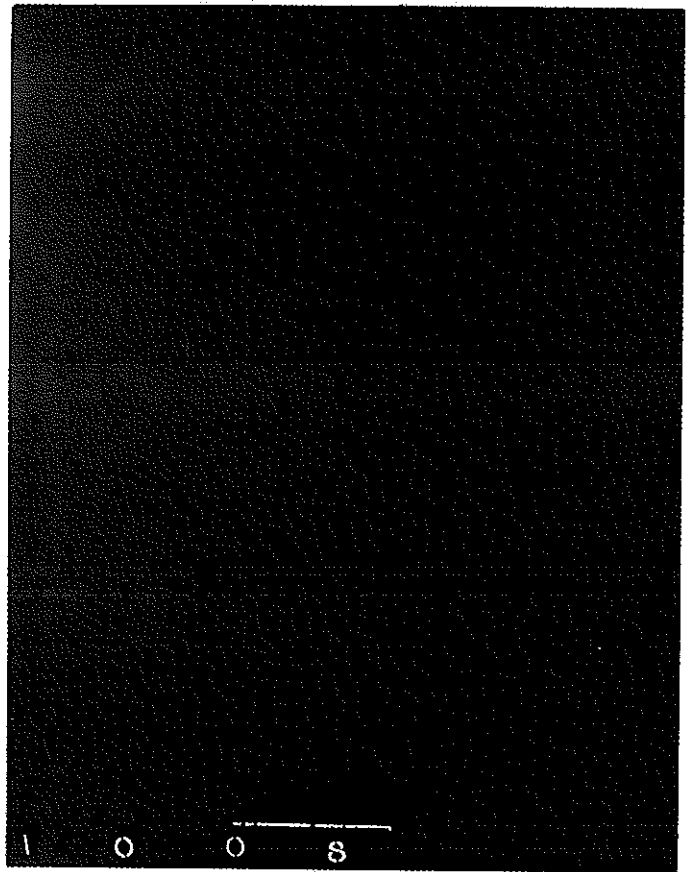
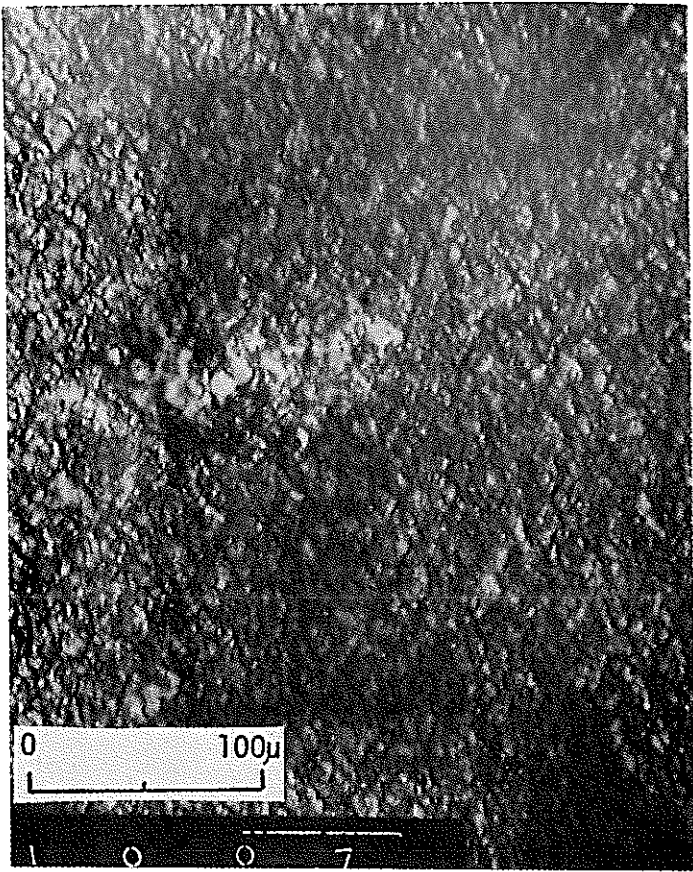
Photo-4 Au 10μmメッキ電極材のXMA写真



R.T. Irrad. Glass
 Au 10 μ m Plat.

1003 COMPO 1004 Ni
 1005 Si 1006 Au

Photo-5 Au 10 μ m ェッキ電極材のXMA写真



H.T. Aging Glass
 Au 10μm Plat.

1007 COMPO 1008 Au
 1009 Si 1010 Ni

Photo - 6 Au 10μm ヌツキ電極材のXMA写真