

本資料は 2001.6.6 日付けで登録区分、
変更する。

[技術情報室]

A T R 壓力管の炉外水素富化試験

(II) 内圧負荷状態における水素化物配向の調査

Gas Hydriding Test of Pressure Tube for Advanced Thermal Reactor

(II) Investigation of Hydride Orientation under Internal Pressure

1983年1月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

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

こ配
こ

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

配布限定期
PNC-SN841-83-02
1982年12月登録区分
2001.6.6
変更表示

A T R 壓力管の炉外水素富化試験

(II) 内圧負荷状態における水素化物配向の調査

実施責任者 立石嘉徳^{*}
報告者 小笠原甲士^{*}(まとめ)
金田健一郎^{*}

期間： 1980年1月～1982年3月

目的： 内圧負荷を受けた状態における新型転換炉原型炉「ふげん」用 Zr-2.5Nb 壓力管の水素化物配向および水素吸収特性を調査する。

要旨： Zr-2.5Nb 壓力管（熱処理材）について、フープ応力 $11.4 \sim 17.0 \text{ kg/cm}^2$ (内圧 $80 \sim 120 \text{ kg/cm}^2$)、温度 $300 \sim 500^\circ\text{C}$ で内圧負荷水素富化試験を行い、水素化物の配向および水素吸収特性を調査した。

この結果、水素化物方位は、どの条件においてもほぼ半径方向に配向する傾向のあることがわかった。特に 300°C において水素化物が圧力管半径方向へ析出を開始する負荷内圧は、 70 kg/cm^2 前後 (フープ応力 9.9 kg/cm^2) であることがわかった。また、内圧負荷状態における水素吸収傾向は、減圧水素雰囲気中におけるそれと同様に、高温になるに従って水素吸収速度は速くなるが、負荷内圧の影響も大きく受けることがわかった。

* 技術部検査課

はじめに

現在、技術部検査課においては、ATR用Zr-2.5Nb圧力管の脆性特性試験に用いる水素富化試料の調製は、圧力管内・外表面をサンド・ブラストした後、高温減圧水素雰囲気中に一定時間保持することによって行っている。先に報告したように¹⁾、この方法によれば、局部水素脆化と呼ばれる局所への集中的な水素異状吸収もなく、目標量の水素を均一に吸収させることができ、試験に適した試料を作成することができる。しかし、一方では水素圧力、富化温度等の水素富化条件が圧力管の水素吸収速度、あるいは水素化物の析出状況等に大きな影響を及ぼすこともまた経験している²⁾。また、圧力管の炉内使用条件を考えると、圧力管は最高 82 kg/cm^2 の内部圧力(フープ応力 11.6 kg/mm^2)を受けながら水素を吸収することになり、このような条件下では、また違った水素吸収傾向を示す可能性がある。従って、本試験ではこの状態を模擬して、水素+ヘリウム混合ガスによる内圧負荷状態下における水素富化試験を実施し、圧力管の水素化物析出状況、水素吸収傾向等について調査したので、その結果を報告する。

目 次

はじめに

1. 供試材	1
1.1 圧力管	1
1.2 圧力管端栓材	2
1.3 水素導入管端栓	2
2. 試験用圧力管の試料調製	6
2.1 圧力管	6
2.2 水素導入管	6
2.3 圧力管端栓溶接および水素導入管端栓溶接	6
3. 試験装置	8
4. 試験方法	12
5. 試験結果と検討	17
5.1 水素吸収量と水素吸収速度	17
5.2 水素化物方位	28
5.3 水素吸収分布	56
5.4 内圧負荷水素富化試験中における圧力管ふくれ量の測定	65
6. まとめ	66
7. 謝辞	67
8. 参考文献	68
 付録 1 供試材(熱処理材)のミルシート	69
付録 2 供試材(冷間加工材)のミルシート	79
付録 3 圧力管端栓材のミルシート	85
付録 4 水素導入管端栓材の検査成績表	87

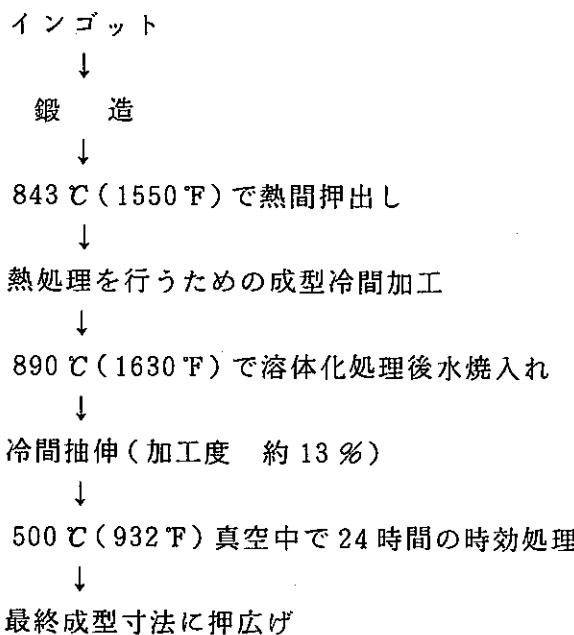
1. 供 試 材

1.1 圧 力 管

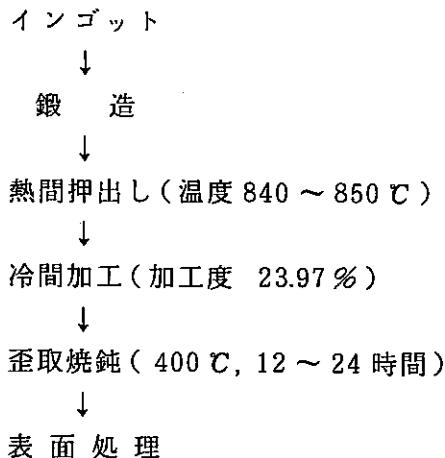
本試験に使用した圧力管は、Wah Chang Albany Corporation (U.S.A) でインゴット製造し、Chase Brass & Copper Company (U.S.A) が製管加工した公称寸法 117.8mm(内径) × 4.3mm(肉厚) × 5300mm(長さ) のものである。

試験に供した圧力管の製造履歴を以下に記し、そのミルシートの一部を付録 1 に示す。

Zr - 2.5 Nb 圧力管(熱処理材)の製造履歴



また、参考試験として冷間加工圧力管も使用した。この圧力管の主な製造工程を以下に示し、そのミルシートの一部を付録 2 に示す。



1.2 圧力管端栓材

圧力管の内圧保持のため、溶接で取りつけた第一および第二端栓は、Wah Chang Albany Corporation (U.S.A) が製造した Zr-2.5Nb 棒材から加工した。そのミルシートの一部を付録 3 に示す。

圧力管の端栓は、水素導入管取付側を第二端栓、反対側を第一端栓として加工した。その形状寸法を図 1 および図 2 に示す。

1.3 水素導入管端栓

水素導入管端栓の材料には、住友金属(株) 製造の Zry-2 棒を使用した。供試材のミルシートの一部を付録 4 に示す。また、端栓の形状寸法を図 3 に示す。

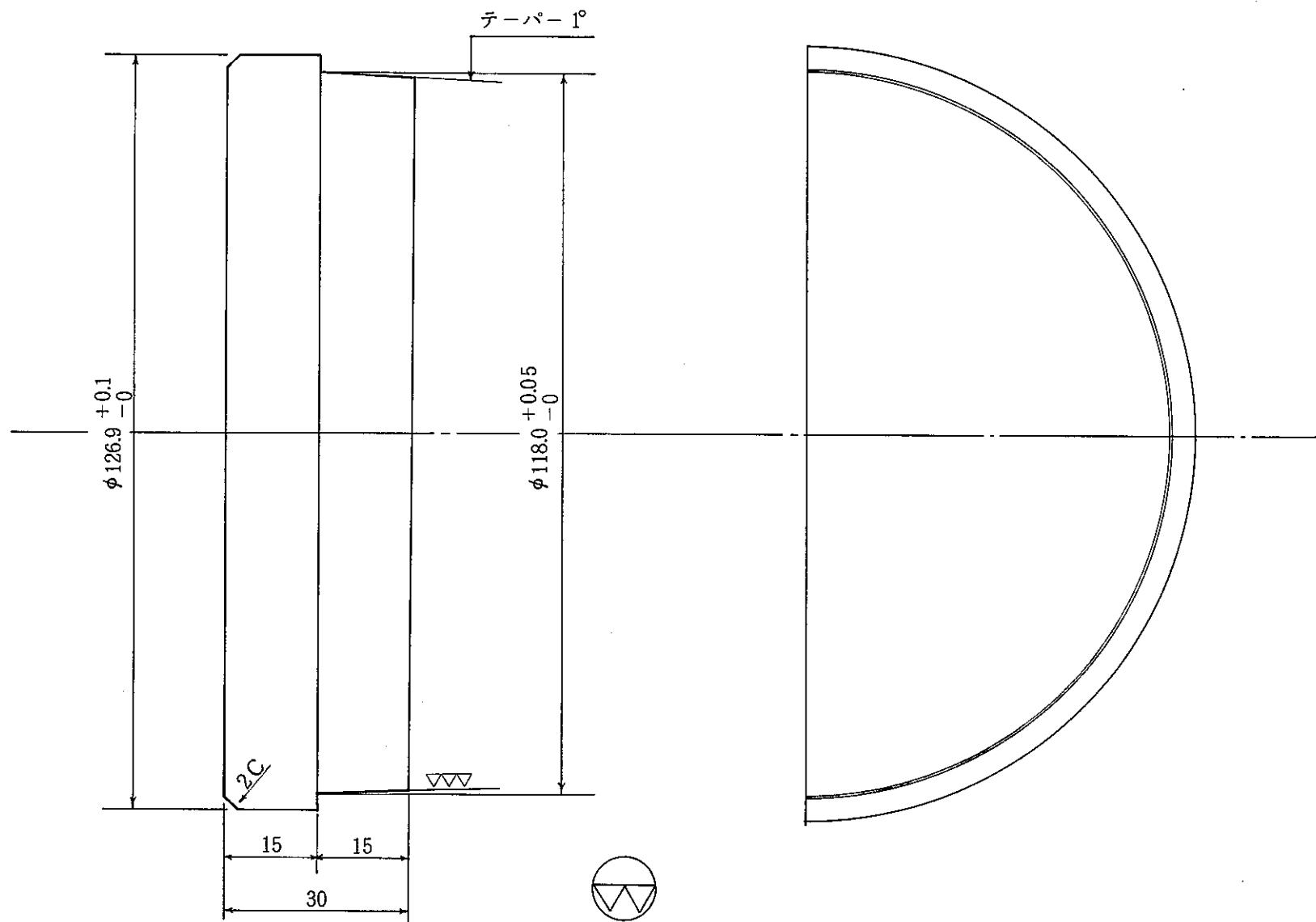


図 1 内圧負荷水素富化試験用圧力管第一端栓

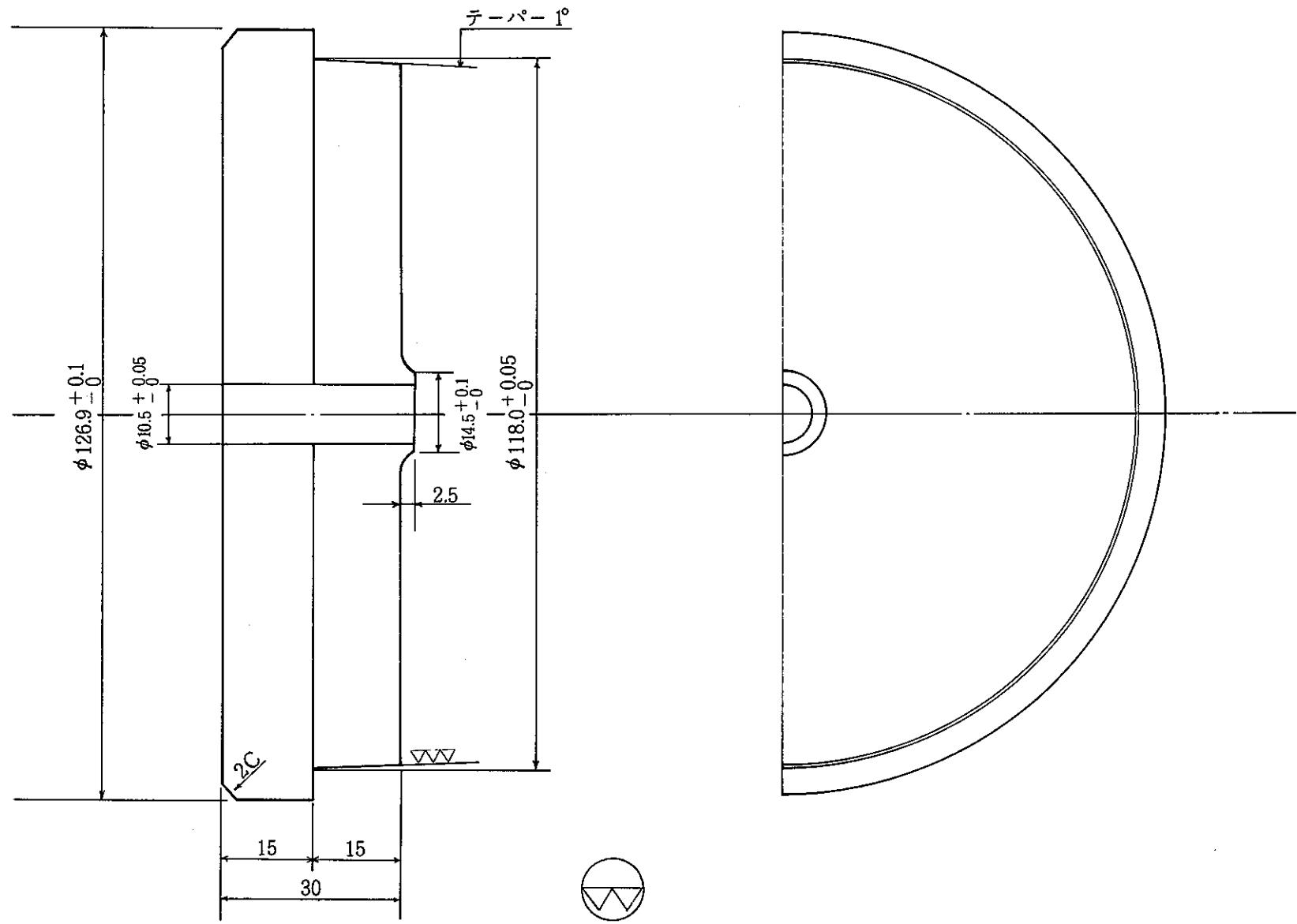


図2 内圧負荷水素富化試験用圧力管第二端栓

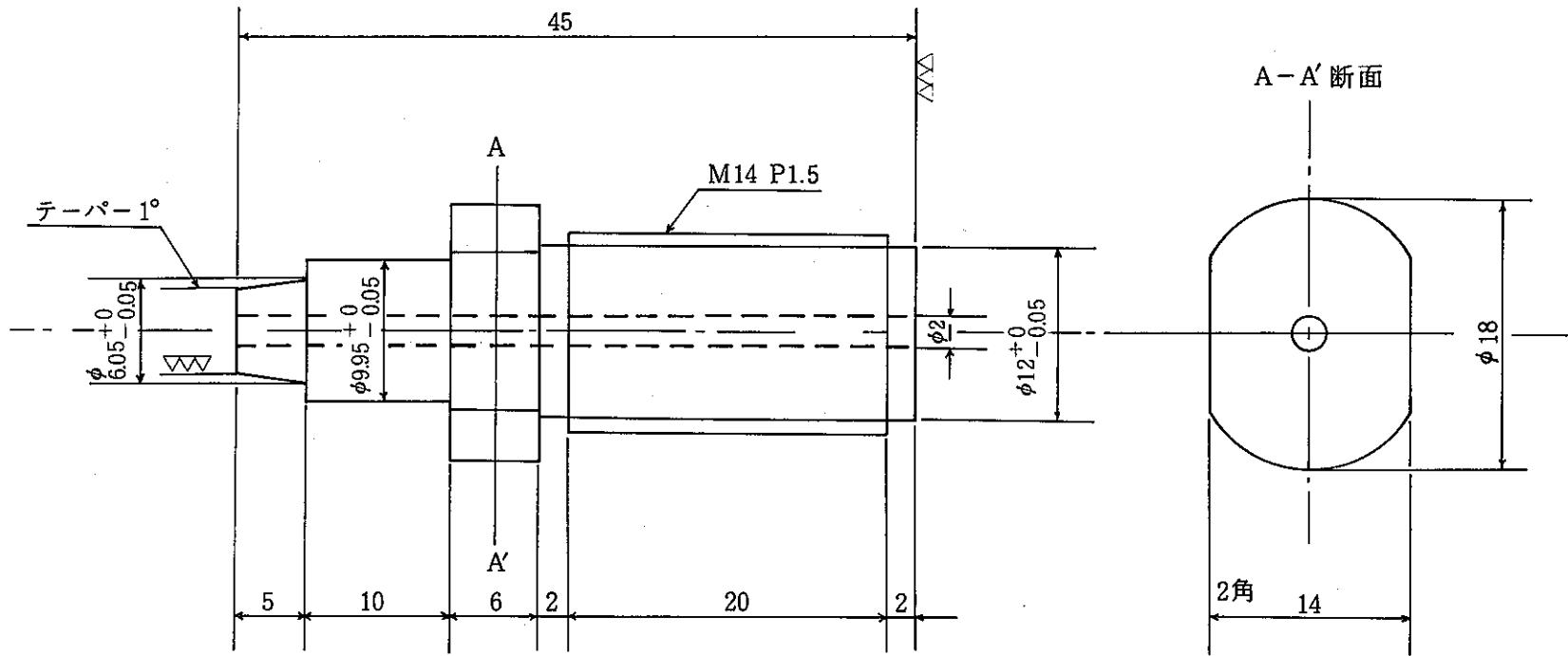


図3 内圧負荷水素富化試験用水素導入管端栓

2. 試験用圧力管の試料調製

圧力管の調製は、以下に示す方法により行った。

2.1 圧力管

圧力管は長さ 800 mm に切断し、アセトン脱脂洗浄後内表面のみを粒度 180 メッシュのシリコンカーバイドでサンド・ブラスト処理を施し、水素吸収面を調製した。次に水洗浄でカーバイド粉末を取り除き、自然乾燥した。

2.2 水素導入管

水素導入管は、圧力管と混合ガスを供給するステンレス製配管とを結ぶ連結管の役目をするものである。これには、Zr-2.5Nb 合金製の圧力管第二端栓と溶接を行う必要があるために、Zry-2 材を用いた。しかし、水素導入管は圧力管と同じジルコニウム合金であるため、水素とヘリウムの混合ガスを圧力管内に導入する過程で水素を吸収してしまう現象が頻発したので、あらかじめ、導入管表面に酸化被膜を形成し水素の吸収が起らないような前処理を施した。その前処理条件を次に示す。

- 1) アセトン脱脂洗浄後、4% 弗酸 + 46% 硝酸液で 3 分間の酸洗処理を行った。酸洗後は、水洗、沸騰純水中浸漬(30 分)を行って、十分に酸液を洗い落とした。
- 2) 次に、400 °C, 80 kg/cm² の水蒸気雰囲気中で 72 時間のオートクレーブ処理を行い、導入管内外表面に厚い酸化被膜を形成させた。

2.3 圧力管端栓溶接および水素導入管端栓溶接

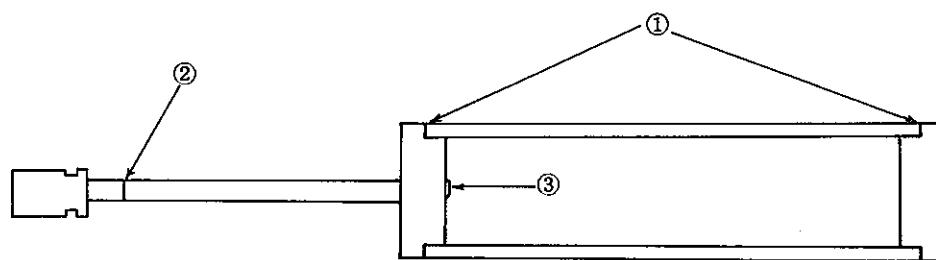
圧力管端栓溶接条件および水素導入管端栓溶接条件を次に示す。

圧力管の端栓溶接は、酸化防止を考慮し、ヘリウムガス雰囲気中で行った。また、水素導入管と水素導入管端栓および圧力管第二端栓との溶接も同様に行った。圧力管と第一および第二端栓との溶接には、300 アンペア以上の高電流を必要とするため、アルゴンガスの吹き付けを溶接開始直前から始め溶接部を保護し、溶接終了後も溶接部および電極の保護のため、充分な時間ガスを流した。これらの溶接条件の設定は、予備試験片の断面金相試験の結果から溶け込み状況等を検討した上で決定した。表 1 に溶接位置とそれぞれの溶接条件を示す。

なお、圧力管第二端栓の溶接を行う前に、圧力管内容積を小さくするためのアルミニウム製中子を挿入した。このアルミニウム製中子の外観を試験用圧力管とともに写真 6 に示す。

表 1 圧力管端栓溶接および水素導入管端栓溶接条件

溶接箇所 溶接 条件項目	圧力管と 圧力管第1,2端栓 ①	水素導入管と 水素導入管端栓 ②	水素導入管と 圧力管第2端栓 ③	備 考
回転速度 (rps)	0.05 ~ 0.07	6	7.5	
電流 (A)	330 ~ 380	30	25 ~ 30	
時間 (sec)	190 ~ 250	7	8.5	
アークギャップ (mm)	1.2 ~ 1.6	0.5	0.5	
クレータ時間 (sec)	1.00 ~ 1.40	5	5	
アルゴンガス流量 (ℓ/min)	5 ~ 6	—	—	
到達真空度 (Torr)	1×10^{-3}	1×10^{-4}	1×10^{-3}	溶接装置が異なるため、到達 真空度が異なる。



3. 試験装置

本試験に使用した装置の概要を図4に示す。試験は、まず最初に圧力管を電気炉内にセットし、ガス漏れのないことを確認した後、図中④の真空ポンプで圧力管内を排気しながら所定の試験温度に加熱、保持した。圧力管の温度は、直接圧力管に取付けたシースタイプ熱電対によって測定した。圧力管長手方向における温度差は±5°C以内であった。試験ガスおよび補給ガスは蓄圧器内に加圧蓄積してある5%H₂+95%He混合ガスである。圧力管の水素吸収による圧力管内のガス減少分は、圧力調節弁でコントロールしながら混合ガスを補給することによって、試験圧力を一定に保った。圧力管の水素吸収量は、蓄圧器内の混合ガス圧力減少量を測定することによって推定した。また、本試験は長時間連続試験を行うため、蓄圧器内あるいは圧力管までの二次側配管内のガスが周囲の温度変化によって熱膨張や収縮が起り、正確なガス圧力の測定およびコントロールができなくなる。従ってここでは、図4に示すように圧力配管系は、室内温度を設定の±2°C以内に調整できる恒温室内に収納し、外気温度の影響を受けないようにした。写真1～写真3に試験装置の一部を示す。

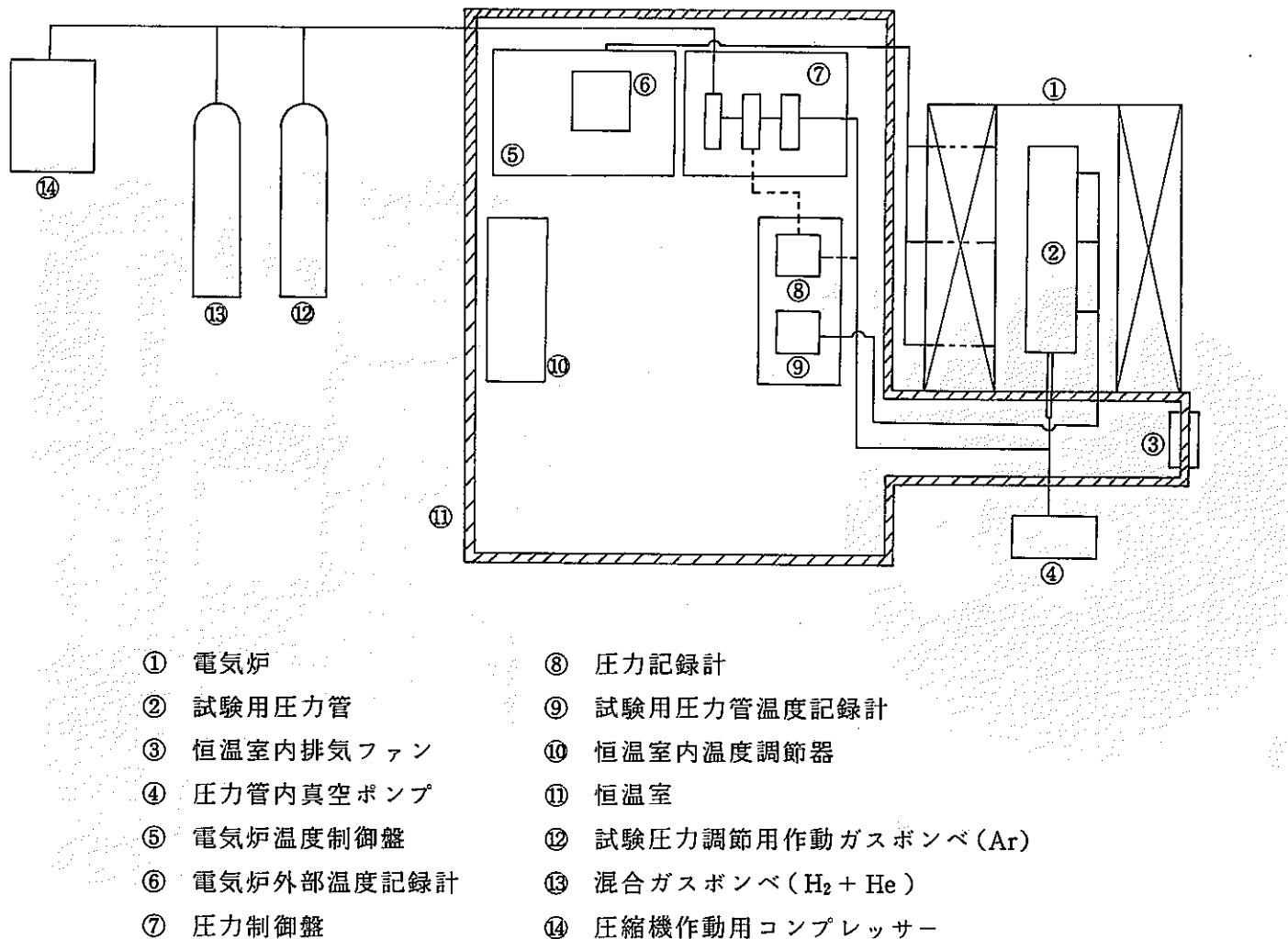


図4 内圧負荷水素富化試験装置概要

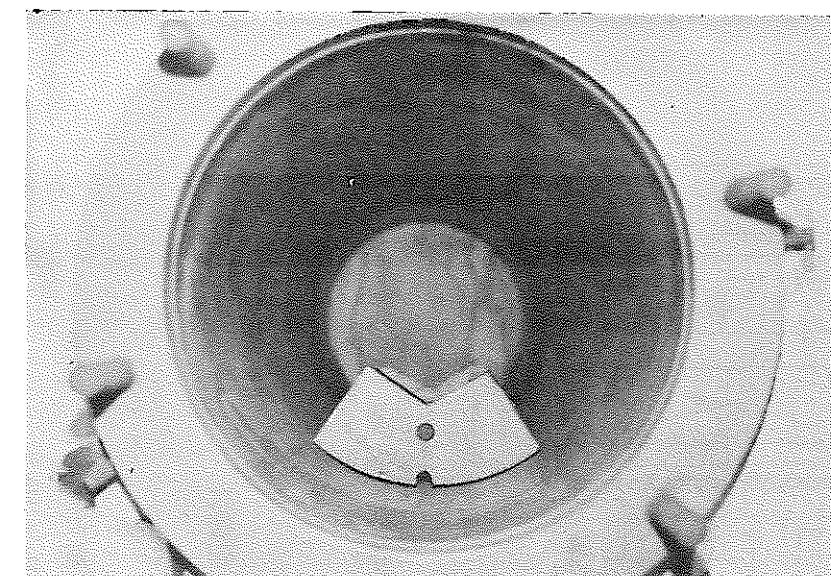


写真 1 内圧負荷水素富化試験装置（電気炉内部）

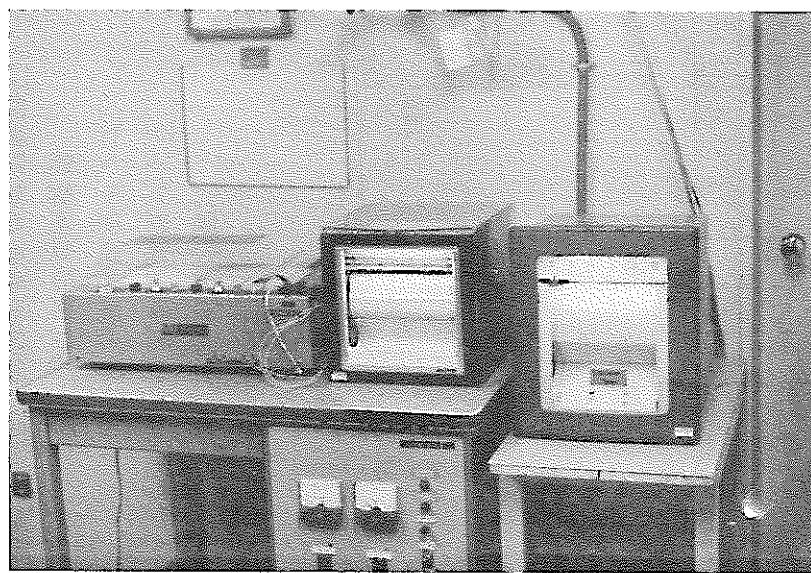


写真 2 内圧負荷水素富化試験装置
(圧力および温度記録部)

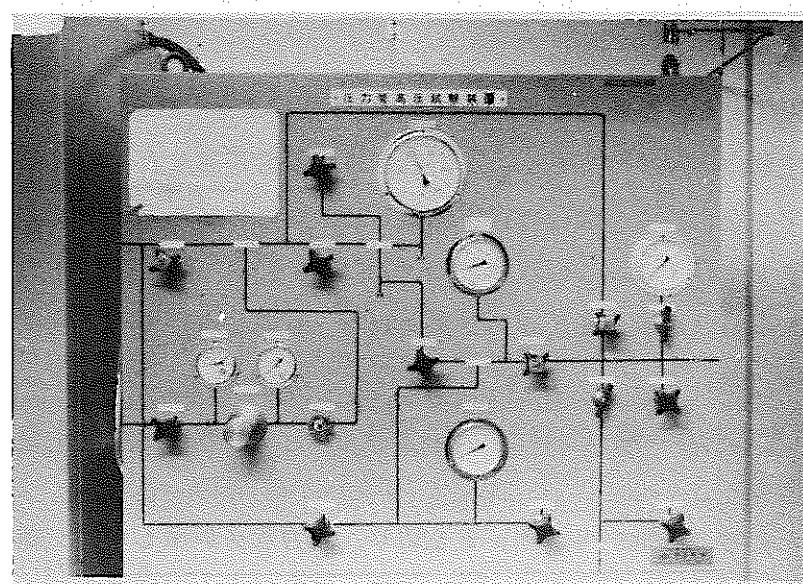


写真3 内圧負荷水素富化試験装置
(試験圧力コントロールパネル)

4. 試験方法

試験は、300°C, 400°C, 500°C の温度 3 条件、また、80 kg/cm², 120 kg/cm² の圧力 2 条件、計 6 条件で行った。

図 5 に試験温度と圧力の概略履歴モデルを示す。図中①のように混合ガス (5% H₂ + 95% He) は、あらかじめ蓄圧器内に加圧しておく。圧力管が試験温度に達したならば、圧力管内部を真空排気していたポンプを止めて、混合ガスを供給した。従って蓄圧器圧力は②まで下がり、圧力管内部圧力が③まで上昇する。この状態で 48 時間保持する。この間、圧力管の水素吸収によって蓄圧器圧力が④だけ減少する。このサイクルをくり返し合計で 260 時間の水素富化試験を行った。

48 時間毎に混合ガスの入れ替えを行うのは(図中の⑤)、試験の進行とともに水素吸収速度が遅くなるためである。

試験終了後は、ただちに電気炉のスイッチを切り、圧力管を炉冷した。しかし、試験圧力はコントロールし続け、圧力管温度が下がっても当初の試験圧力を保持できるようにした。従って、温度降下に伴うガス収縮分を蓄圧器内から補給するため蓄圧器内圧力は減少する。(図中⑥) 圧力管の冷却速度は 500°C - 400°C 間で約 35 °C/hr, 400°C - 300°C 間で 25 °C/hr, 300°C - 200°C 間で 18 °C/hr, 200°C - 100°C 間で 10 °C/hr であった。

水素分析および水素化物金相観察は図 6 に示す 5 カ所について行った。水素分析試料は、圧力管上面のおのの位置から約 5 mm 角に採取し、インパルス融解熱伝導法によって水素分析した。水素化物金相観察用試料も水素分析試料採取位置と同じ所から切り出して行った。水素化物金相観察法は、およそ次の通りである。採取試料の観察対象面をエメリー紙 #600 まで研磨し、最後に 1 ミクロンのアルミナ仕上げ研磨をする。次に弗酸 1 : 硝酸 9 のエッティング液で 3 ~ 5 秒間脱脂綿で軽く拭う程度のエッティングをする。水素化物の観察は、金属顕微鏡において 50 ~ 100 倍で行った。

写真 4 ~ 写真 8 に試験用圧力管の外観および水素分析と水素化物金相観察試料の採取位置を示す。

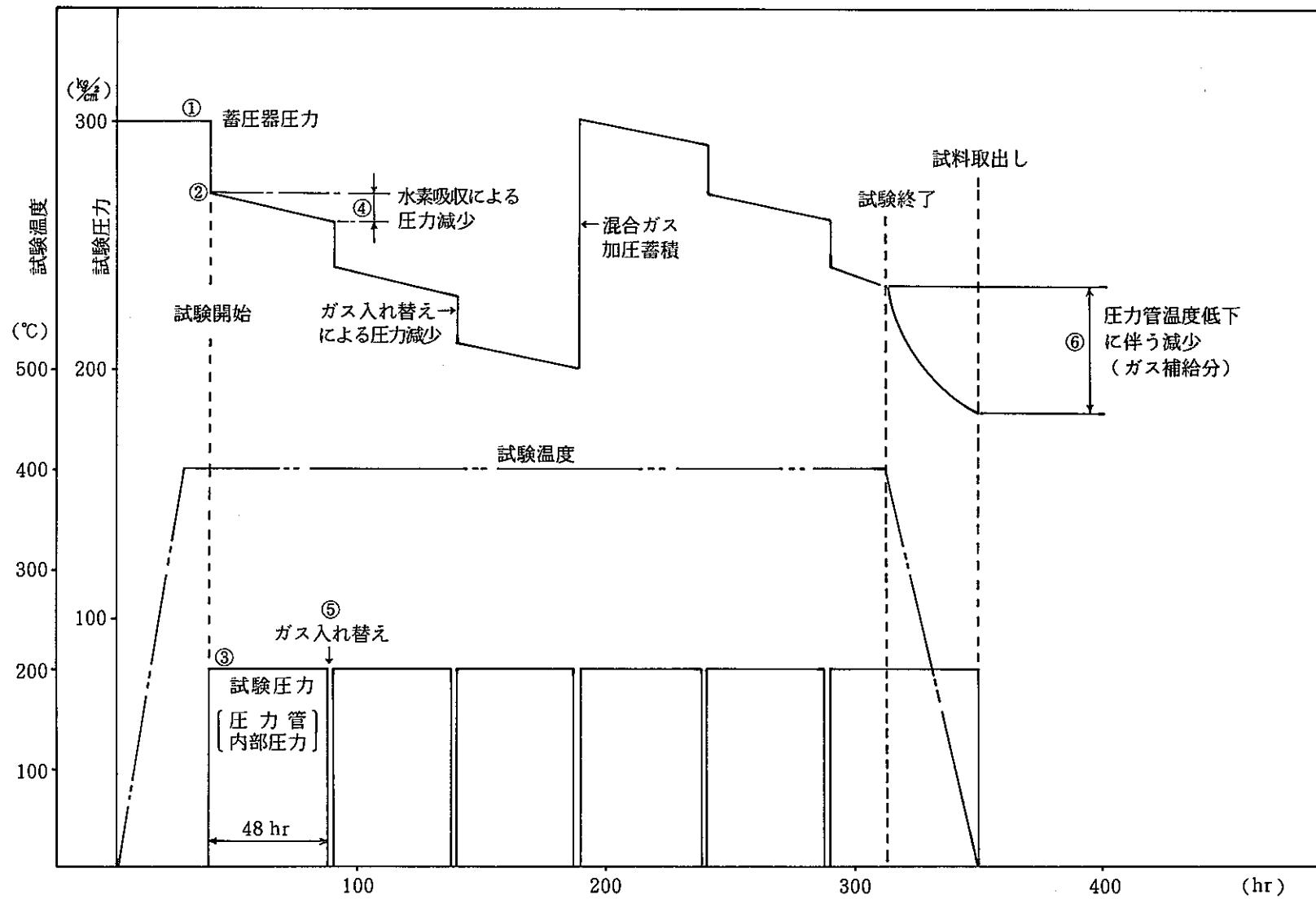


図 5 試験温度および試験圧力履歴モデル

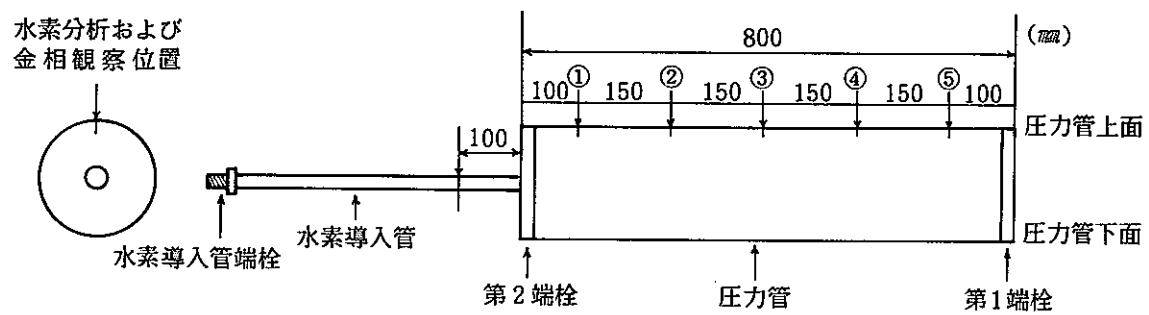


図6 水素分析および水素化物金相観察用試料採取位置

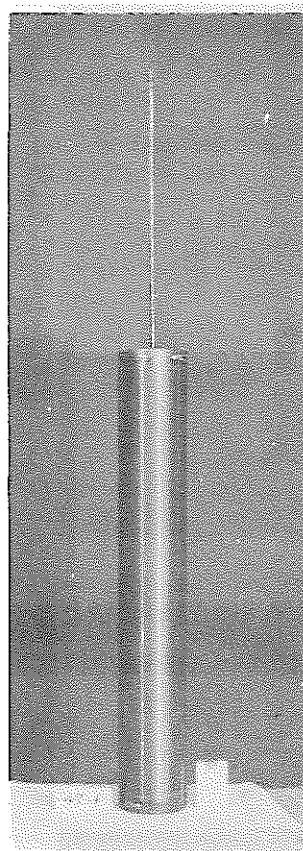


写真4 試験前圧力管

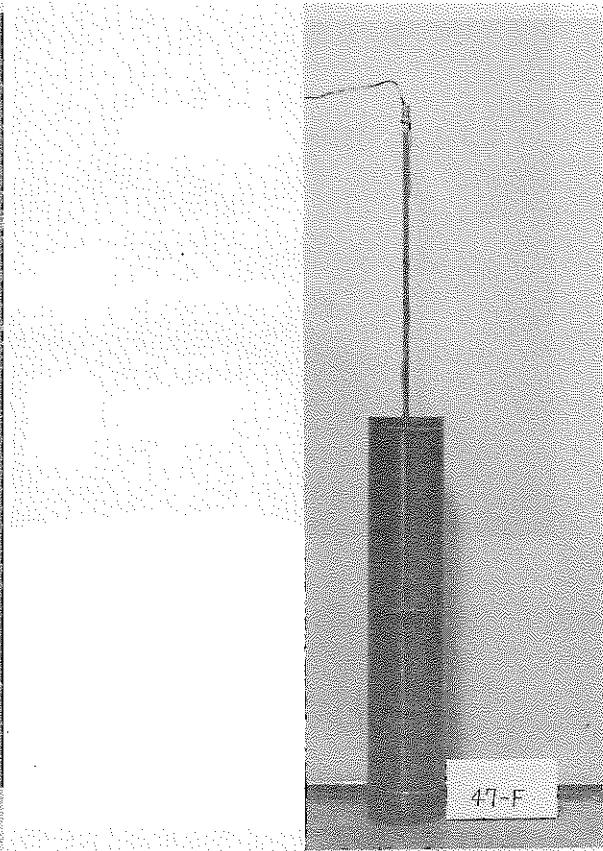


写真5 試験後圧力管

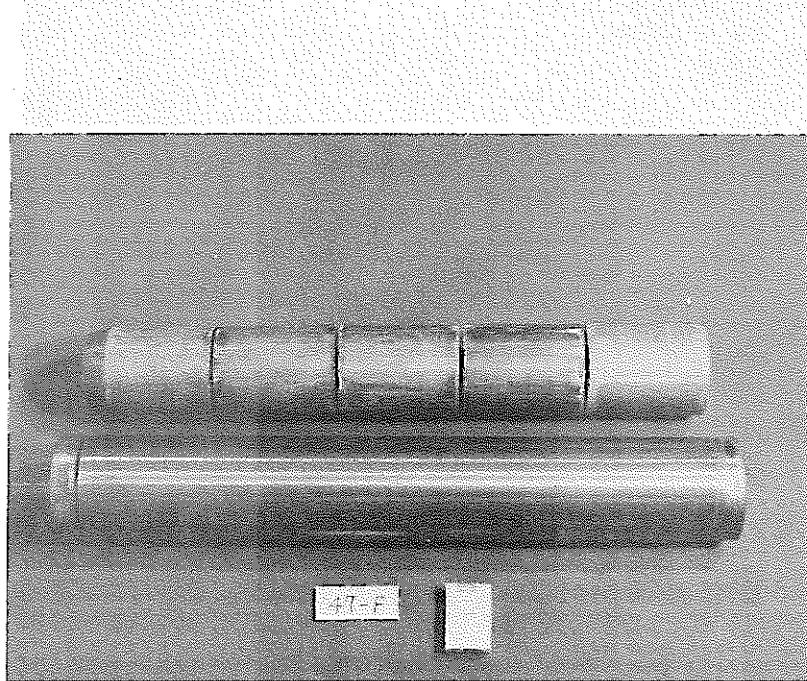


写真6 試験用圧力管とアルミニウム製中子

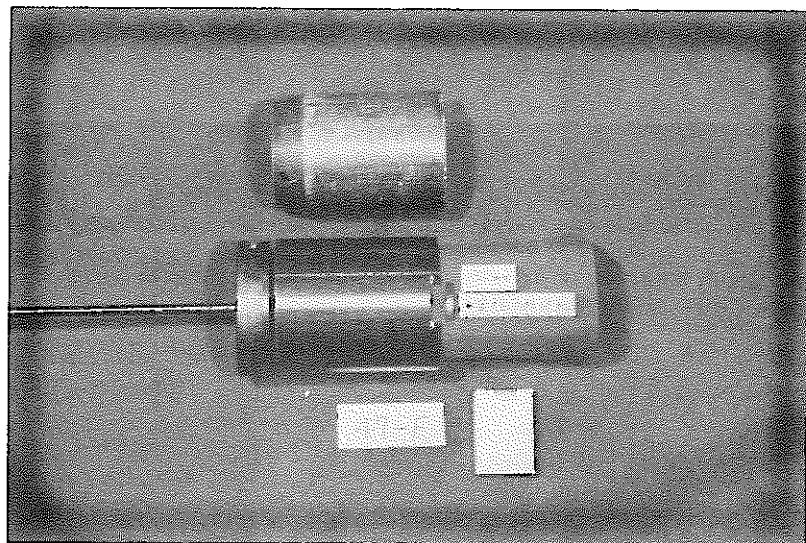


写真 7 試験後圧力管の水素分析および水素化物金相試料採取位置
(例 150 mm の位置)

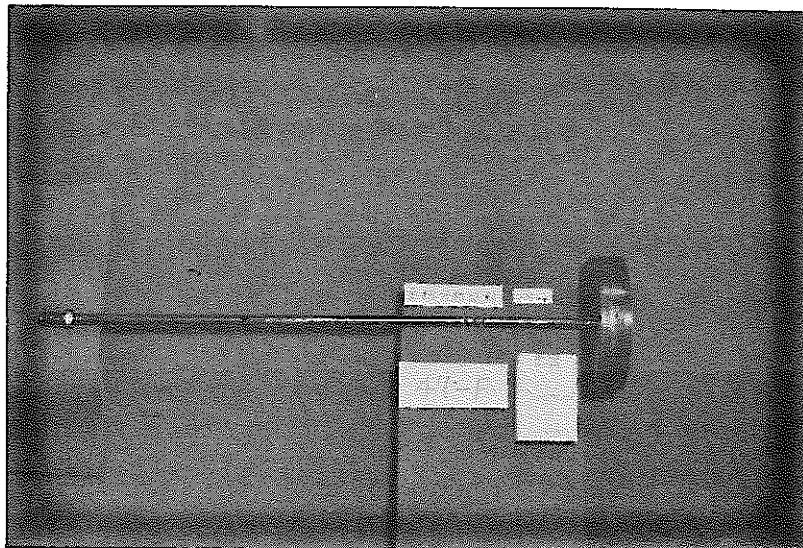


写真 8 水素導入管の水素分析および水素化物金相試料採取位置

5. 試験結果と検討

5.1 水素吸収量と水素吸収速度

各試験条件における水素吸収量と水素吸収速度を表2に示した。表中の水素吸収量は、各サイクルにおける(300°C, 400°C試験では、48時間サイクル)蓄圧器の圧力減少量より推定した水素吸収量を加算して、260時間の合計水素吸収量とした値である。また、水素吸収速度は各サイクルにおける水素吸収速度を平均した値である。図7～図9に各サイクルの水素吸収線図を示した。(300°C, 400°C試験では、6サイクル目(20時間)を省略してある。)

図7～図9中の2次曲線は(5.1)式より、回帰曲線 $Y = a + bx + cx^2$

$$\left\{ \begin{array}{l} na + (\sum x_i)b + (\sum x_i^2)c = \sum y_i \\ (\sum x_i)a + (\sum x_i^2)b + (\sum x_i^3)c = \sum x_i y_i \\ (\sum x_i^2)a + (\sum x_i^3)b + (\sum x_i^4)c = \sum x_i^2 y_i \end{array} \right. \quad (5.1)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} na + (\sum x_i)b = \sum y_i \\ (\sum x_i)a + (\sum x_i^2)b = \sum x_i y_i \end{array} \right. \quad (5.2)$$

を求める最小2乗法で得た曲線であり、その相関係数(r)を図中に示す。水素吸収量が少ない300°Cや400°Cでの試験は、測定精度等の関係で相関係数が比較的小さくなっている。また、図中に示す各サイクルの水素吸収傾向がまちまちな理由については不明である。

次に、各試験条件における48時間毎の(500°C試験についてはおのののサイクル毎の)水素吸収量を(5.2)式の連立方程式から回帰直線 $Y = a + bx$ を求める最小2乗法で整理し、水素吸収線図として図10～図14に相関係数とともにまとめて示す。図10から明らかなように試験圧力 80 kg/cm^2 、あるいは 120 kg/cm^2 のどちらにおいても $36\sim64\text{ ppm}$ と大差なく、また水素吸収速度も $0.15\sim0.25\text{ ppm/hr}$ とはほとんど変わらなかった。しかし、図11から明らかなように試験温度が400°Cになると、試験圧力による影響は大きくなった。すなわち、圧力 80 kg/cm^2 の試験では300°Cでの試験の場合と同様、水素吸収量は30 ppm前後、水素吸収速度も 0.13 ppm/hr 程度であったが、圧力が 120 kg/cm^2 になると、水素吸収量は $120\sim130\text{ ppm}$ と 80 kg/cm^2 の場合に比べて約4倍に増加した。また、水素吸収速度も $0.47\sim0.51\text{ ppm/hr}$ に増加した。図12に示すように試験温度500°Cでの水素吸収傾向は300°C, 400°C試験の場合とは著しく異なり、水素吸収速度は 80 kg/cm^2 で $6.30\sim9.67\text{ ppm/hr}$ 、 120 kg/cm^2 試験で $41.57\sim44.35\text{ ppm/hr}$ であった。これは、300°Cと400°Cの 80 kg/cm^2 試験と比較すると約55倍の水素吸収速度であり、また、 120 kg/cm^2 試験との比較では実に118倍もの速度である。500°Cでの試験では、水素吸収速度が速く、260時間後にはかなりの水素量になると思われる所以、水素吸収量が100 ppm付近に達した時点で試験を終了した。

図13と図14には、試験圧力毎にまとめた水素吸収線図を示す。また、図15は各試験温度における水素吸収速度を示したものである。

表 2 各試験条件における水素吸収量と水素吸収速度

試験温度 項目 試験圧力 (フープ応力)	300 °C		400 °C		500 °C	
	合計水素 吸収量 (ppm)	水素 吸収速度 (ppm/hr)	合計水素 吸収量 (ppm)	水素 吸収速度 (ppm/hr)	合計水素吸収量 (ppm)	水素 吸収速度 (ppm/hr)
80 kg/cm ² (11.4 kg/mm ²)	47.3	0.20	34.7	0.13	108.5 (試験時間 17.5 hr)	6.30
	36.0	0.15	28.5	0.10	99.5 (試験時間 10.8 hr)	9.67
120 kg/cm ² (17.0 kg/mm ²)	63.8	0.25	125.1	0.47	105.9 (試験時間 2.6 hr)	41.57
	53.3	0.22	130.3	0.51	102.7 (試験時間 2.3 hr)	44.35

* 合計水素吸収量および水素吸収速度の数値はガス減少量より求めた計算値である。

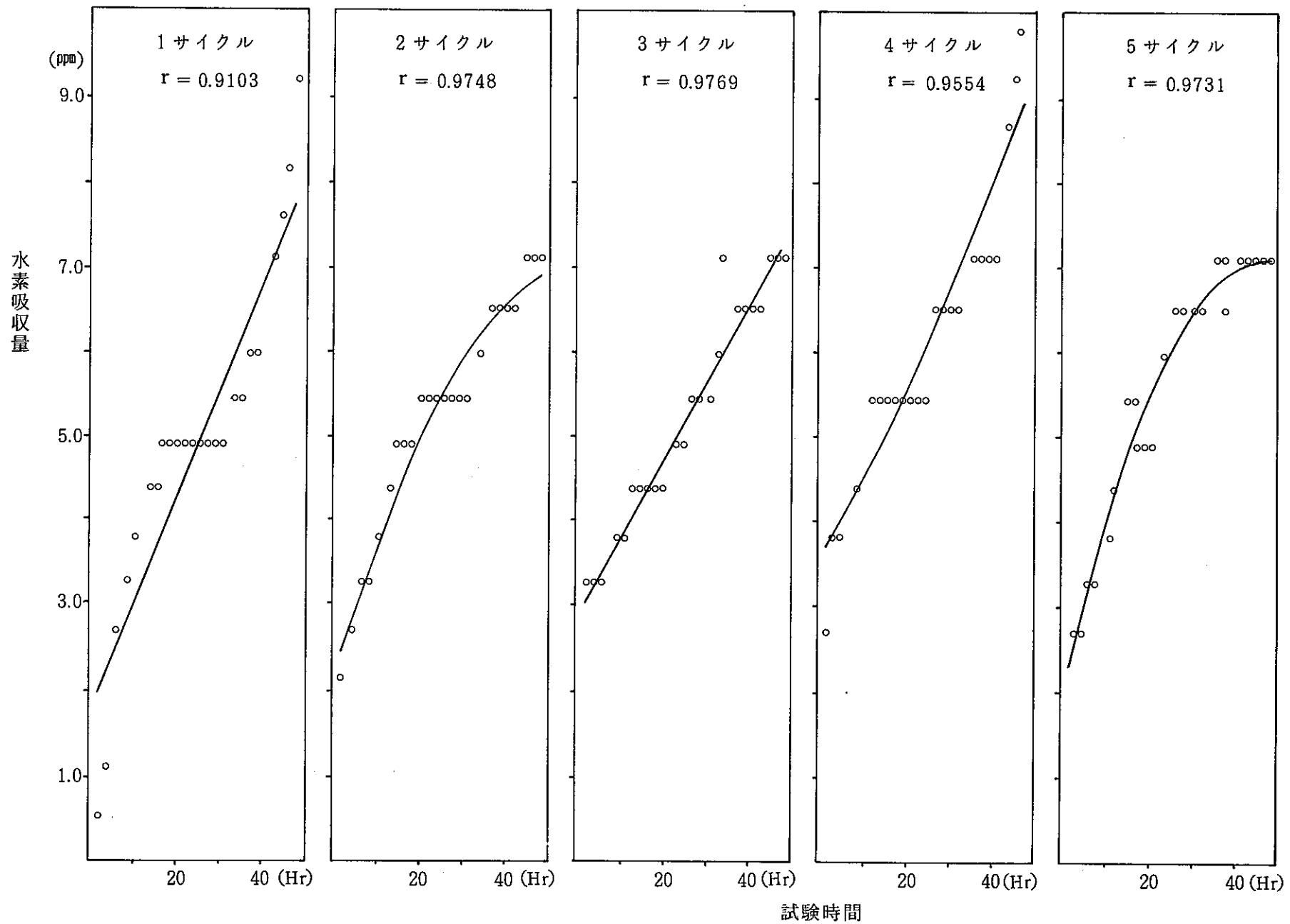


図 7 各サイクルの水素吸収線図 (300 °C, 120%, 壓力管 No. 46-D)

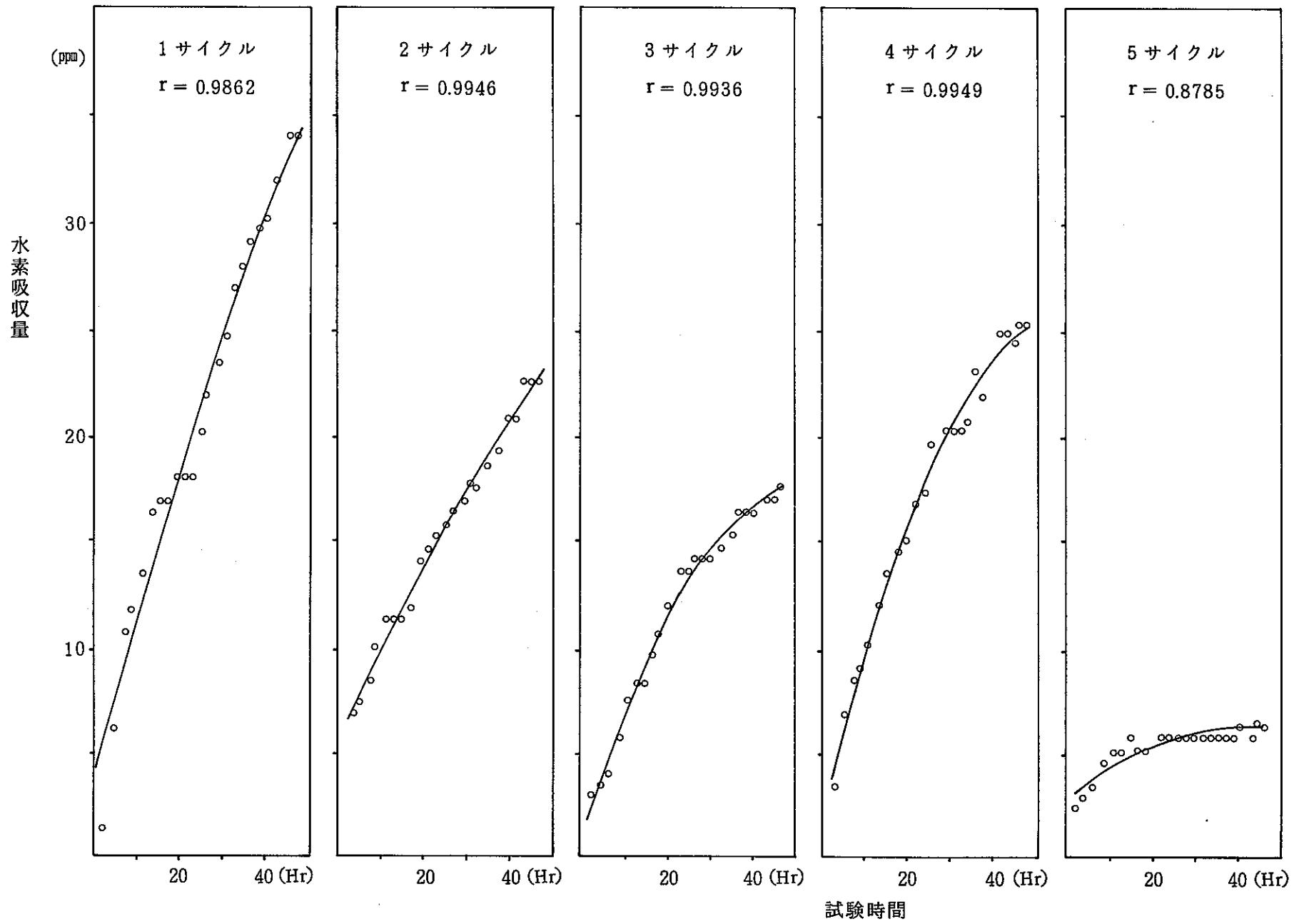


図 8 各サイクルの水素吸収線図 (400 °C, 120%, 圧力管No.46-E)

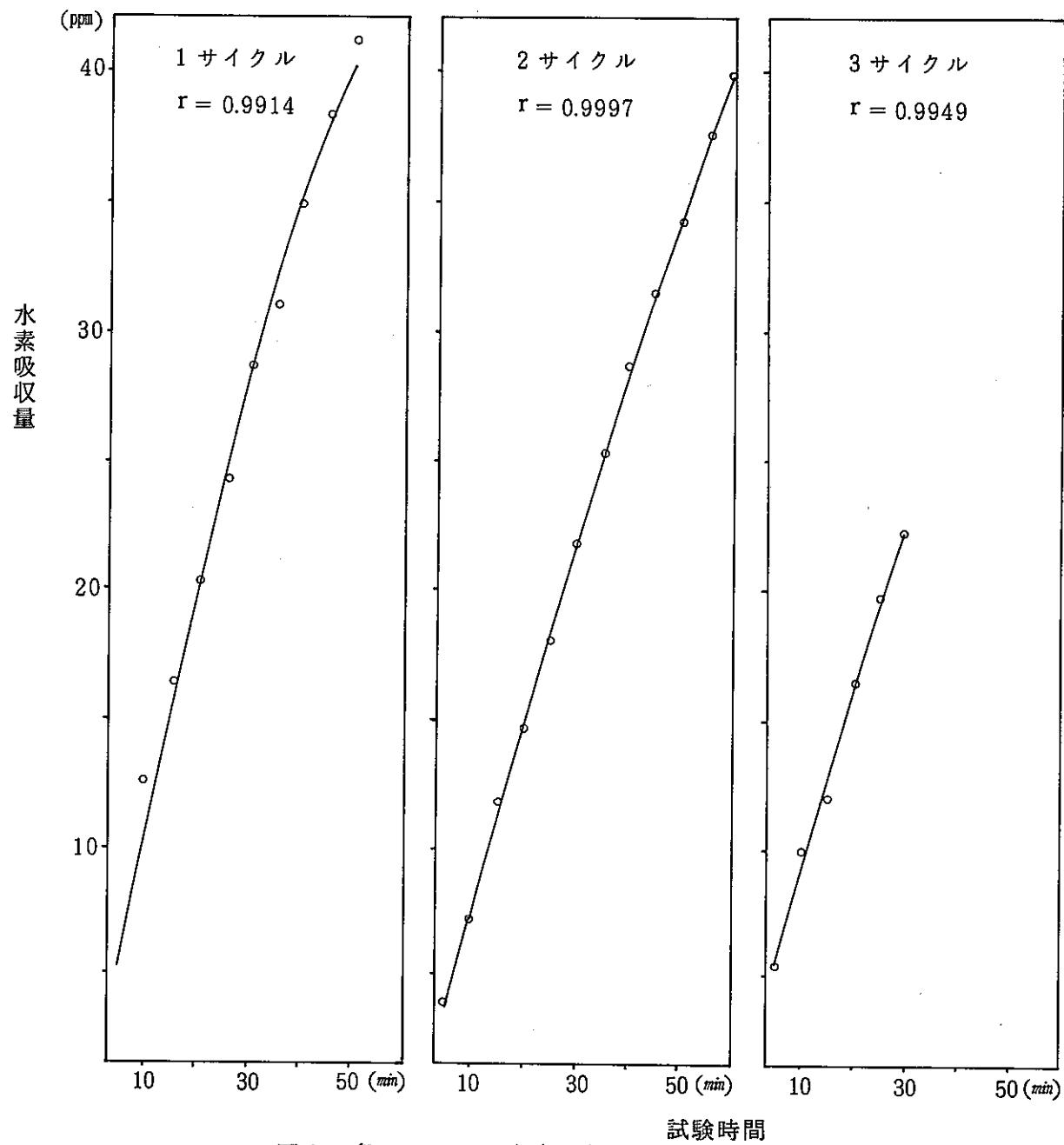


図9 各サイクルの水素吸収線図
(500 °C, 120%, 圧力管No.46-F)

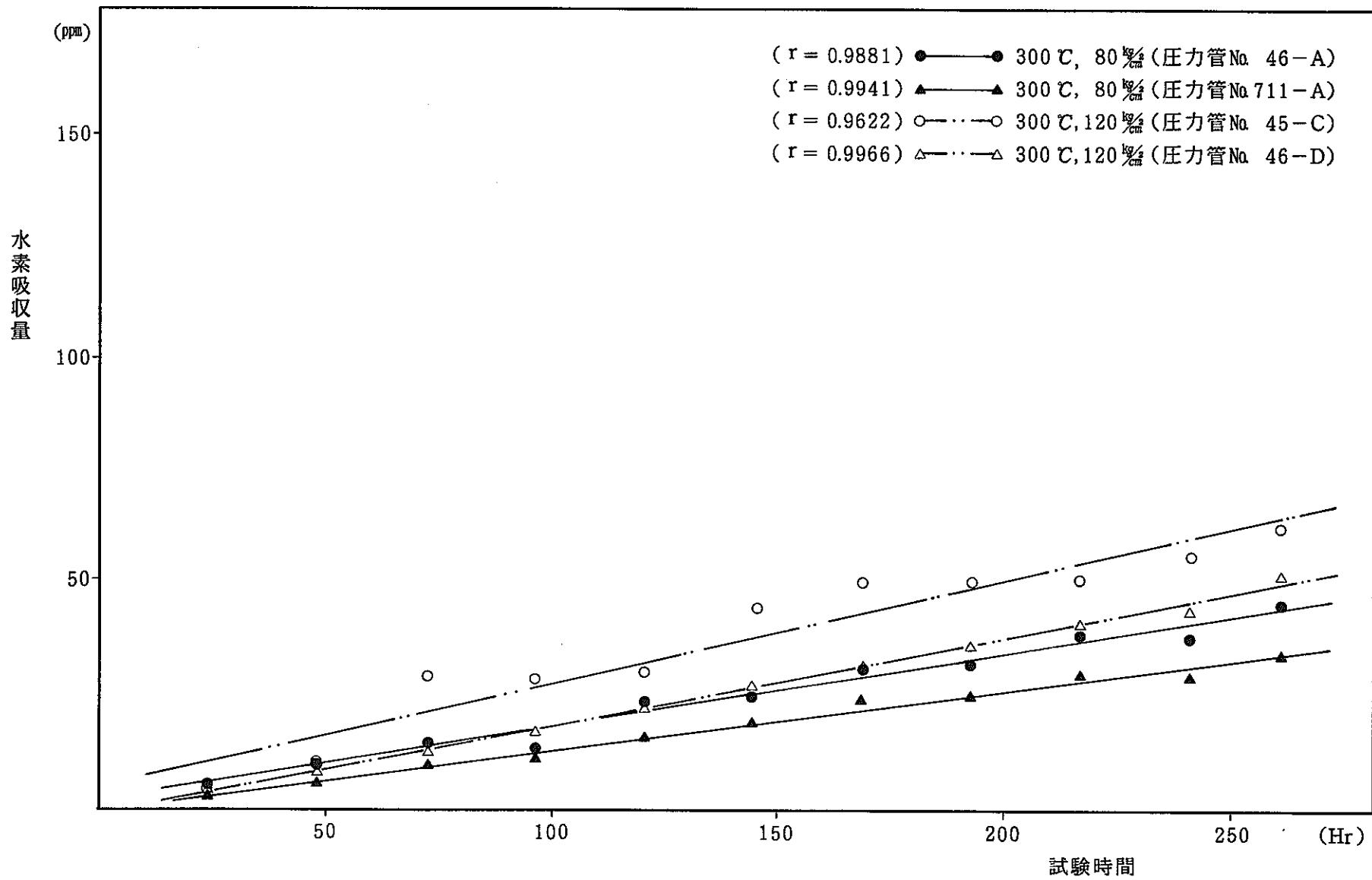


図10 300 °C 試験における水素吸収線図

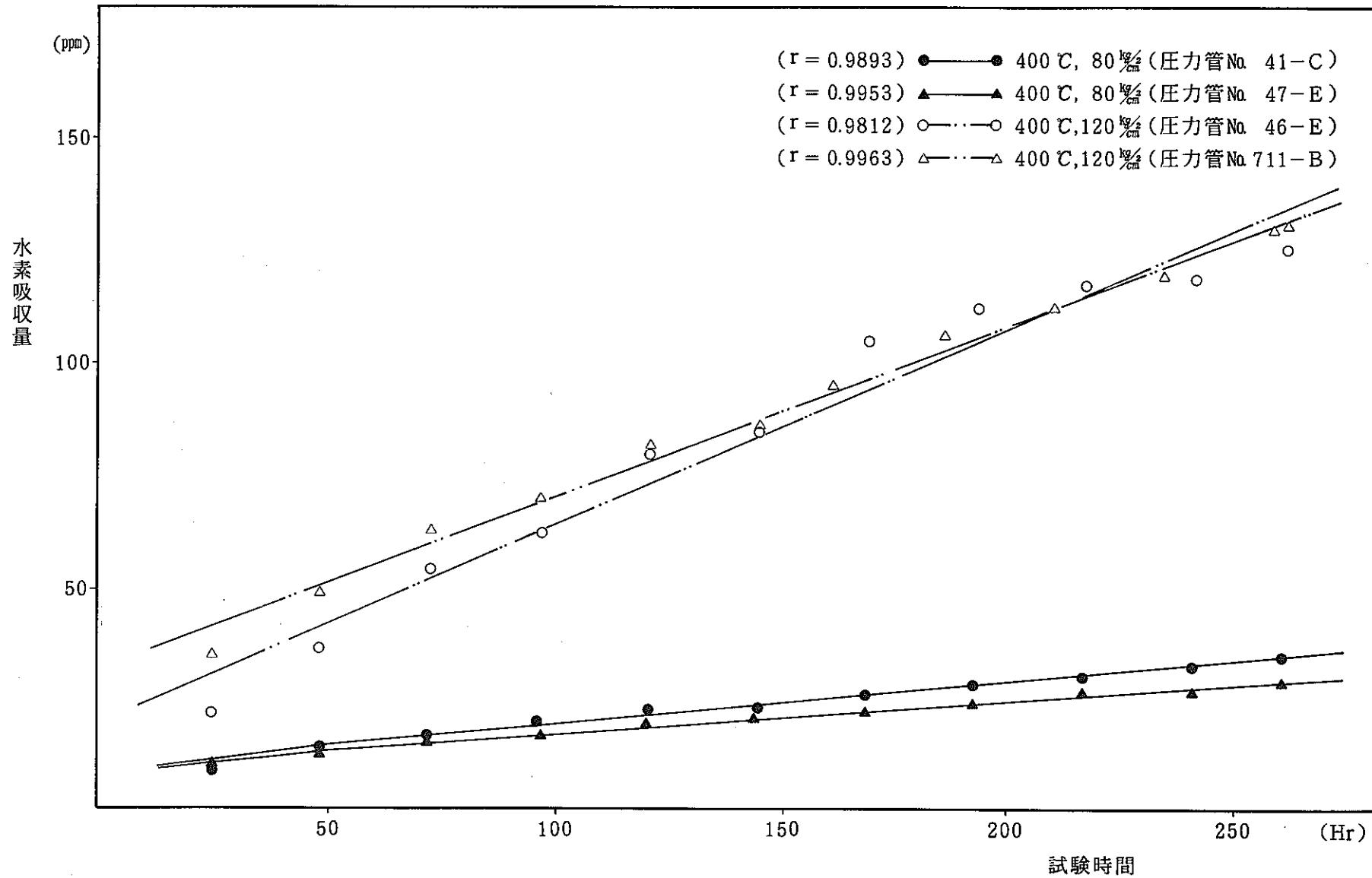


図 11 400 °C 試験における水素吸収線図

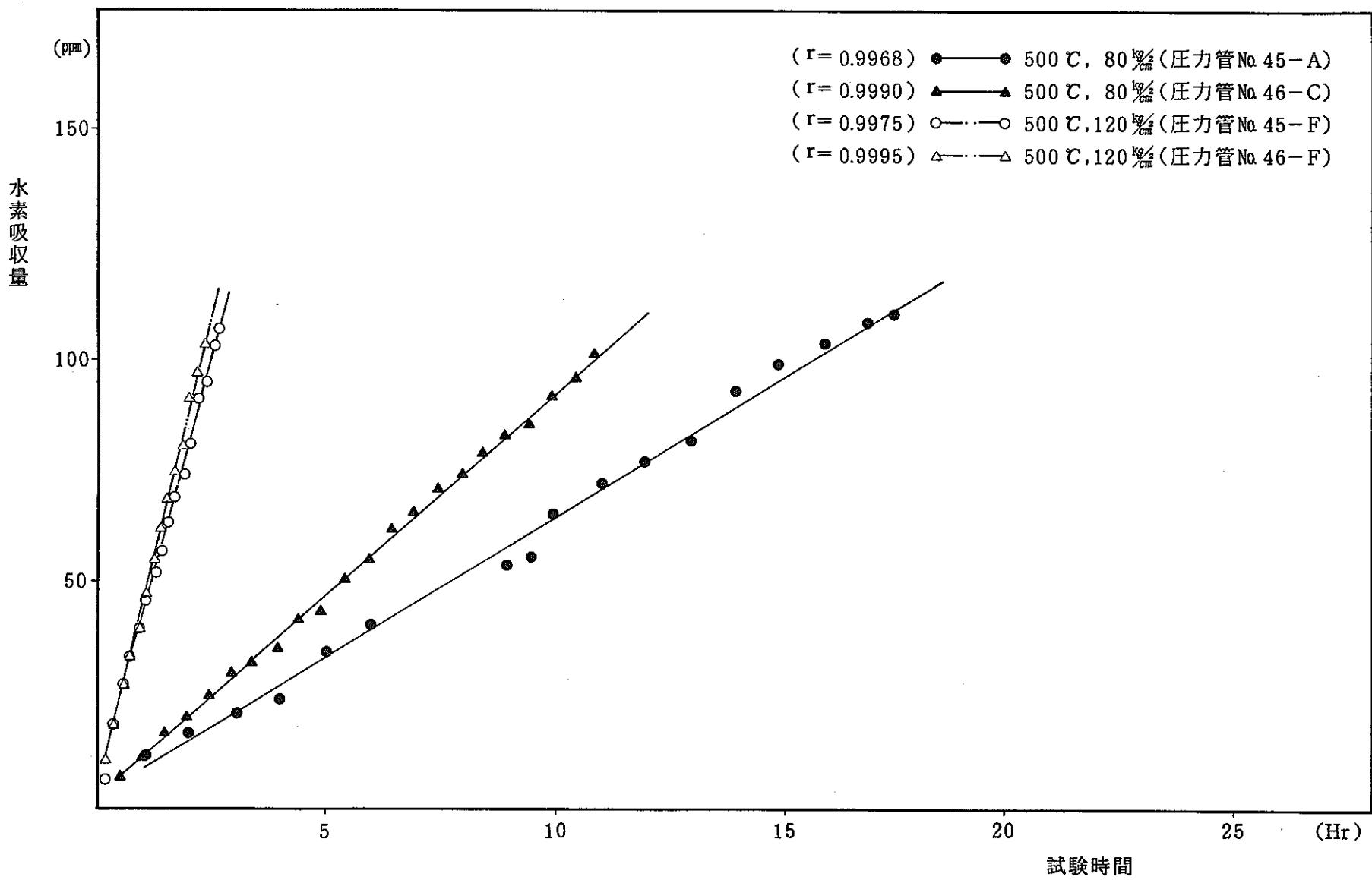


図 12 500 °C 試験における水素吸収線図

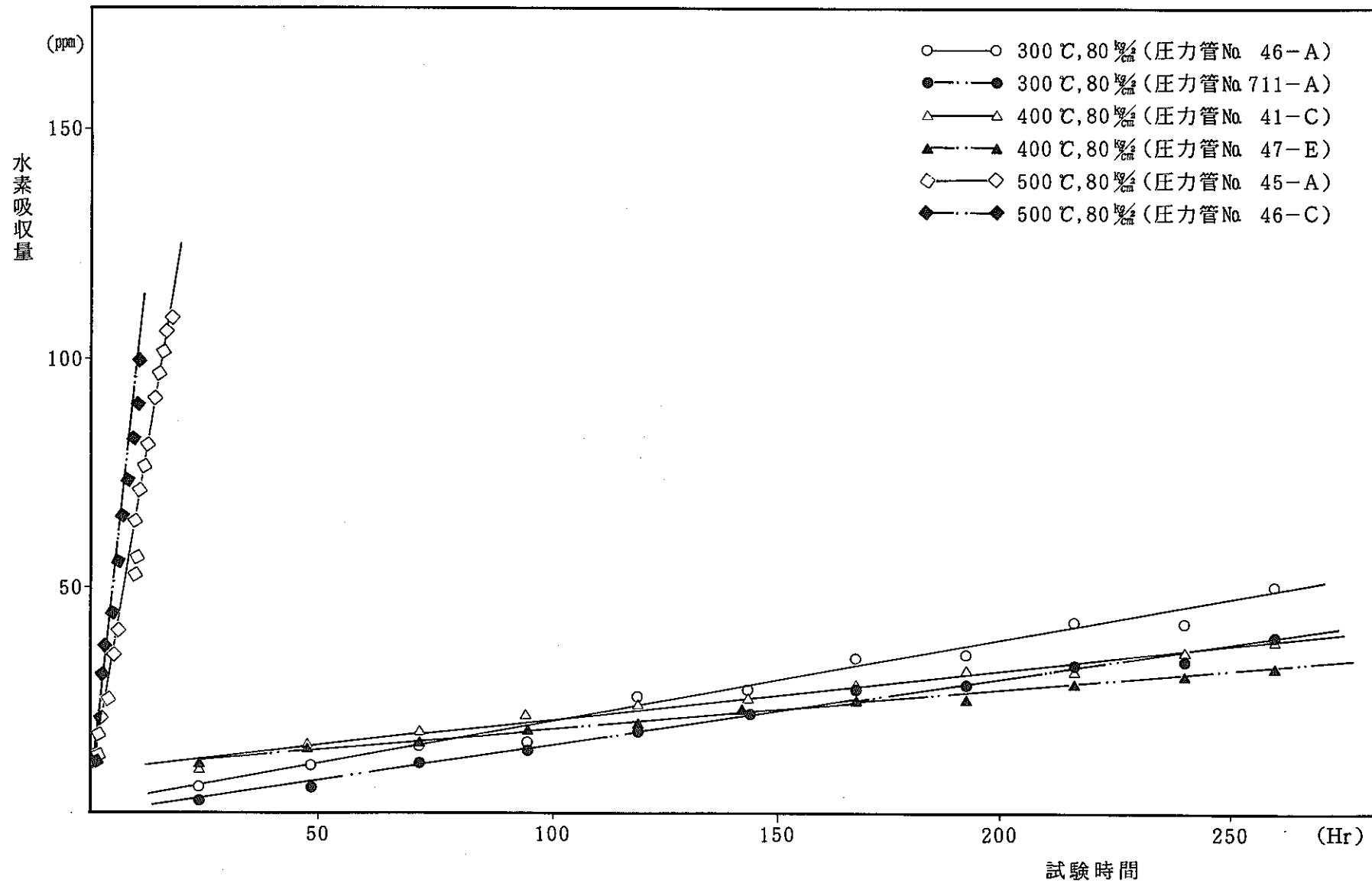
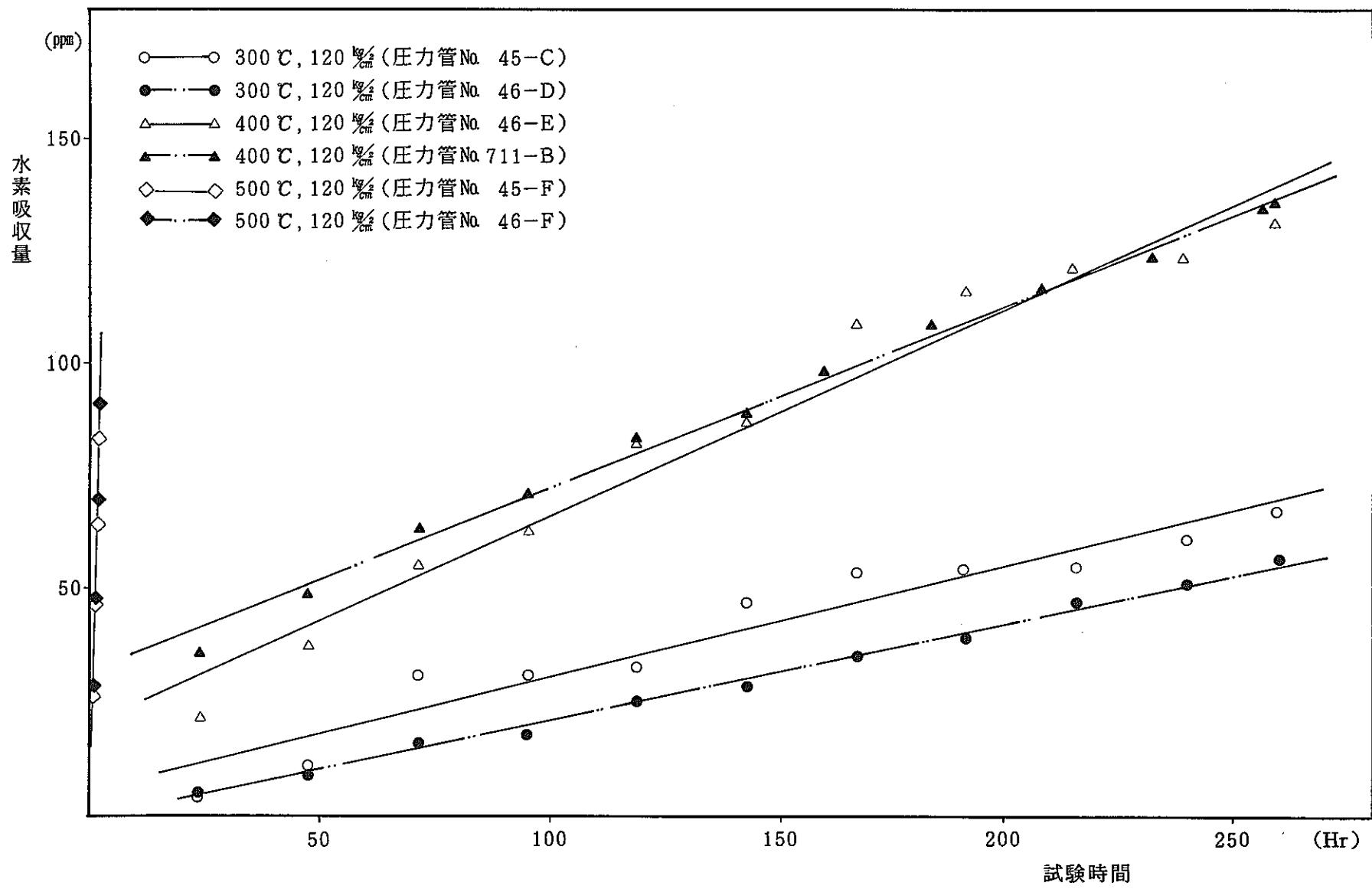


図13 80% 試験における水素吸収線図

-26-

図14 120 %_{cm}² 試験における水素吸収線図

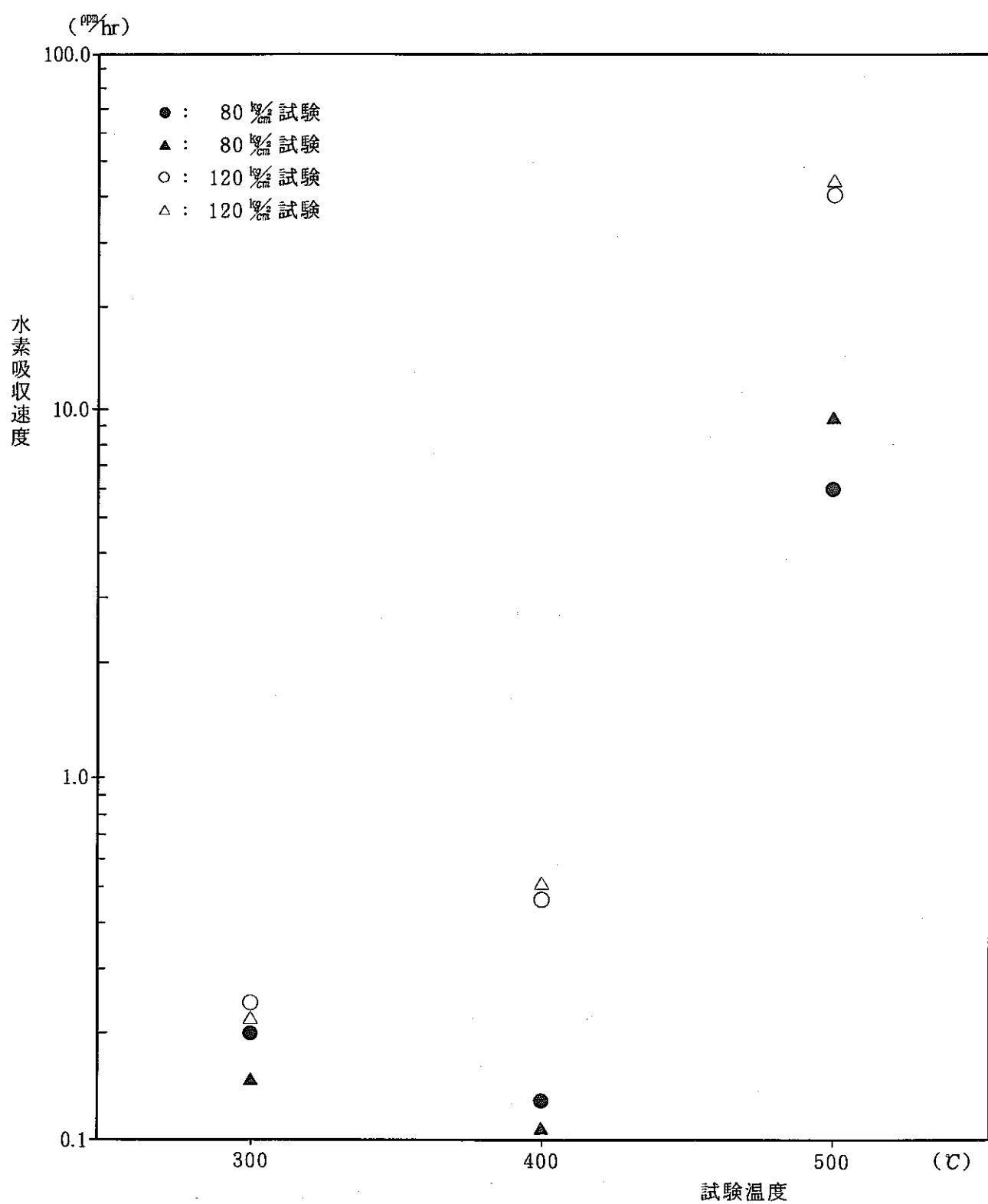


図15 水素吸収速度線図

5.2 水素化物方位

5.2.1 热処理材

(1) 水素化物配向

水素富化試験終了後、圧力管長手方向に沿った5カ所から水素化物金相試料を採取して、水素化物配向の観察を行った。その結果を写真9～写真14に示す。写真はすべて圧力管管端100 mm(図6中の①)の位置である。水素化物方位は写真9に示す300°C, 80 kg/cm²での試験において、円周方向に配向しているもののが多少認められる他は、どの試験条件においても全て半径方向に配向していることがわかった。これは、写真15に示す減圧水素雰囲気中での水素富化試験(圧力管内部への加圧が行われていない状態での水素富化試験)結果との比較から内圧負荷が原因であることは明らかである。

(2) 内圧封入放置試験

圧力管内への負荷圧力と水素化物方位との関係は、内圧負荷試験終了後圧力管が冷却するまでの間、圧力管内の圧力コントロール弁を閉じ、温度の低下に伴う内部圧力の減少を補償しないで放置する試験によって確認された。初期内圧80 kg/cm²の場合、放置後の最終圧力は20数kg/cm²でフープ応力は約3 kg/mm²であった。

この試験を行った圧力管の水素化物配向の代表例を写真16と17に示す。写真より、水素化物は半径方向と円周方向の両方向に見られ、再配向していることがわかった。従って、内部負荷圧力(フープ応力)が水素化物方位を決める原因のひとつであることが明らかとなつた。この結果は、C.E.Ellsの報告³⁾及びR.P.Marshallの報告⁴⁾とも一致している。

(3) 真空加熱処理による水素化物再配向試験

さらに具体的に水素化物再配向を開始する温度、あるいは時間との関係を調べるために次の試験を行つた。即ち、水素化物を半径方向に析出させた圧力管(写真18にその水素化物を示す)から試験片を切り出して、無負荷の状態で真空加熱処理を行つた。加熱終了後、再び水素化物の観察を行い試験前のそれと比較して水素化物の動きを調べた。この試験結果を表3にまとめて示す。

300°C, 48時間の真空加熱処理では、写真19に示すように水素化物再配向はほとんどなかつた。しかし、同じ温度で行った100時間の真空加熱処理では、写真20で明らかなように再配向のきざしが見られた。さらに長時間加熱した240時間や515時間処理結果では、写真21と22に示したように内表面に堆積していた水素化物が多少拡散している様子が見られると共に、100時間加熱処理結果と同じ程度の円周方向に析出した水素化物が認められた。この水素化物再配向の傾向は、写真23に示した300°C, 80 kg/cm²の飽和水中で500時間保持したオートクレーブ試験結果でもほぼ同様であった。

一方、写真24と25で明らかなように、400°Cや500°Cでは20数時間の短時間でも水素化物は再配向している。また、400°Cや500°C試験では、真空加熱処理前の試料内表面に

堆積していた水素化物層がなくなるほど、水素がよく拡散していることが判った。以上に述べたように 300°C でも長時間加熱処理を行えば、水素化物は僅かではあるが再配向を起こすことが判った。また、400°C や 500°C では水素拡散速度が速く^{5,6)}、短時間加熱処理でも水素化物再配向が見られた。

(4) 内圧負荷状態における水素化物再配向試験

圧力管に内部圧力を負荷した場合、負荷圧力と加熱時間が、水素化物再配向にどのような影響を及ぼすかについて調べた試験結果を表 4 および写真 26～写真 29 に示す。試験はまず、300°C, 120 kg/cm², 260 時間で行い水素化物を半径方向に析出させた。(写真 18 - 試験順序 1) 次に、表 4 に示す試験条件と順序で試験を続け、その都度試料の水素化物配向を観察した。この結果、300°C, 60 kg/cm² の内圧負荷状態で 48 時間試験した場合(試験順序 2)写真 26 に示すように、半径方向から円周方向への再配向は起らなかった。次に、この試料を 500°C, 50 kg/cm² の内圧を負荷して 22 時間試験すると(試験順序 3)，水素化物は、写真 27 に示すように半径方向から円周方向へ再配向した。さらに、この試料を 300°C, 60 kg/cm² の内圧負荷状態で 72 時間保持して(試験順序 4)，水素化物方位を再び円周方向から半径方向へ戻そうと試験したが再配向は起らなかった。(写真 28) しかし、写真 29 から明らかのように 300°C, 70 kg/cm² 190 時間の試験(試験順序 5)では、一部半径方向へ再配向が起り始めていた。

以上の結果から 300°C では、60～70 kg/cm² の内圧負荷(フープ応力 8.5～9.9 kg/mm²)で約 100 時間を越えると再配向が起り始めると考えられる。また、詳細な負荷圧力の影響については、明らかにできなかったが、同じ 500°C でも写真 13 に示す 80 kg/cm² 試験と写真 27 に示す 50 kg/cm² 試験では、析出した水素化物の方位がそれぞれ半径方向と円周方向で異なった方向に配向した。これは、負荷圧力の大きさによって水素化物方位に及ぼす影響が異なるということであり^{4,5)}、このことは「内圧封入放置試験」の項でもすでに述べたところである。また、試験時間の影響については、300°C での試験の場合加熱時間が約 100 時間を越えてから再配向の起る傾向を示したが、500°C では 20 数時間ですでに再配向している。これは、500°C における水素の拡散・移動の速度が速いためであると思われる。

5.2.2 冷間加工材

次に試験用圧力管として加工度 23.97% の冷間加工材を用いて試験を行った。その結果、冷間加工材の水素吸収傾向は熱処理材とほとんど変わることろがなかったが、水素化物については、試験条件が同一でも熱処理材とは異なった水素化物配向を示すことが明らかとなつた。

300°C での試験結果を写真 30 および 31 に示すが、写真から明らかのように試験圧力が 80 kg/cm² から 120 kg/cm² に増加しても、水素化物は無負荷時(減圧水素雰囲気中における水素富化)の配向(写真 32)とほぼ同様の傾向を示した。これは、熱処理材の試験結果とは明らかに異な

っている。また、写真33に示したように 400°C, 120 kg/cm²での試験における水素化物は、肉厚中央部で配向が多少半径方向へ乱れているものの表面近傍において、半径方向へ析出する傾向はほとんど見られなかった。これは、肉厚中央部の冷間加工度が内・外表面に比較して小さいためと思われる。

この点について、R.P.Marshall⁴⁾も冷間加工された管は、応力再配向に対する感受性が低いと述べており、本試験結果と一致する。

応力負荷した状態での水素化物の再配向については、M.R.Louthanらの報告⁷⁾、C.E.Colemanの報告⁸⁾、B.A.Cheadleらの報告⁹⁾等があるが、いずれも本試験結果と同様の結果が報告されている。

表3 真空加熱処理による水素化物再配向確認試験結果

加熱温度 (°C)	加熱時間 (Hr)	半径方向からの水素化物方位の変化	水素化物 金相写真No.
300	48	変化なし	No. 19
300	100	一部円周方向に再配向	No. 20
300	240	一部円周方向に再配向	No. 21
300	515	一部円周方向に再配向	No. 22
400	24	円周方向に再配向	No. 24
500	22	円周方向に再配向	No. 25

表4 内圧負荷状態における水素化物再配向確認試験結果

試験順序	試験温度 (°C)	試験圧力 (kg/cm ²)	試験時間 (Hr)	水素化物方位の変化	水素化物 金相写真No.
1	300	120	260	半径方向に配向	No. 18
2	300	60	48	変化なし	No. 26
3	500	50	22	円周方向に再配向	No. 27
4	300	60	72	変化なし	No. 28
5	300	70	190	一部半径方向に再々配向	No. 29

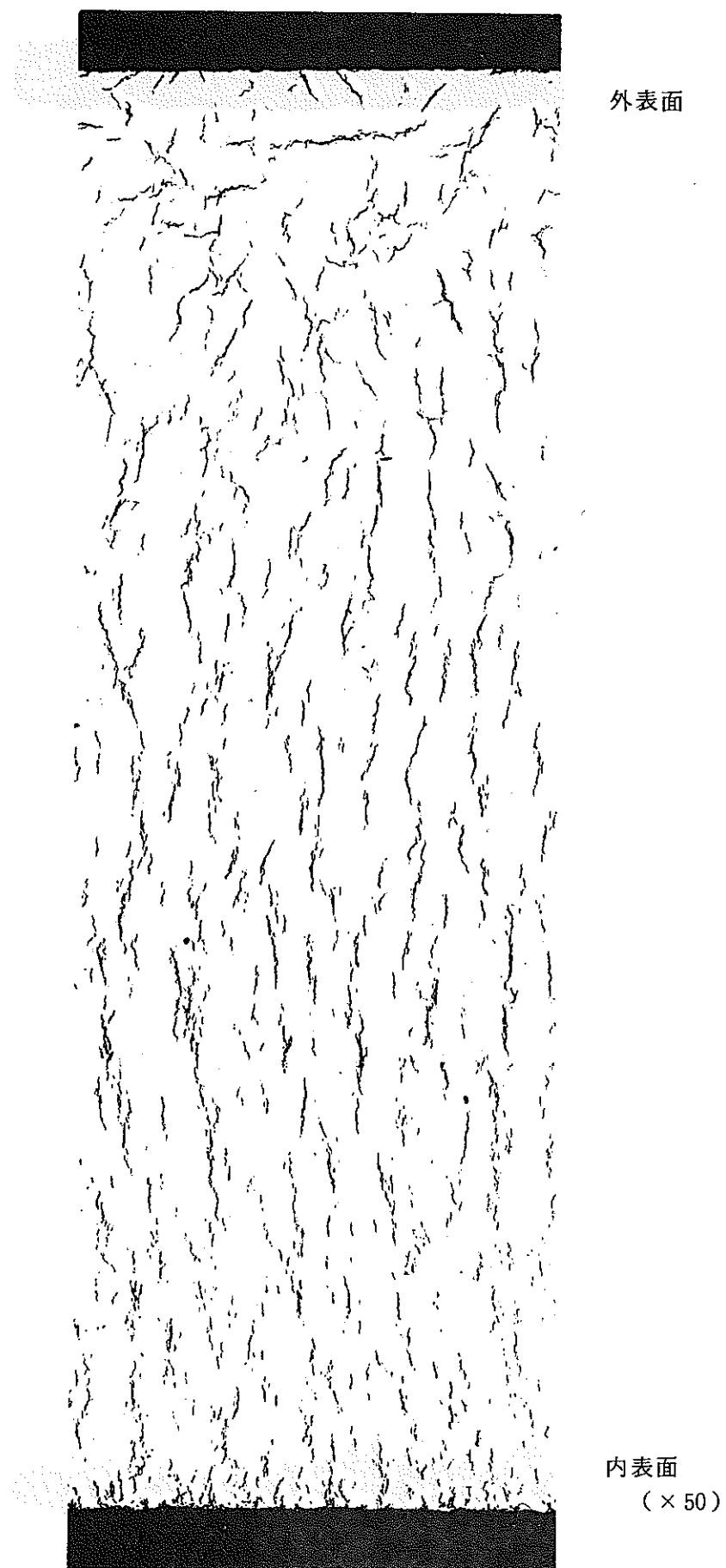


写真9 内圧負荷試験後の水素化物方位
(300℃, 80 kg/cm², 260時間, 圧力管No. 46-A)

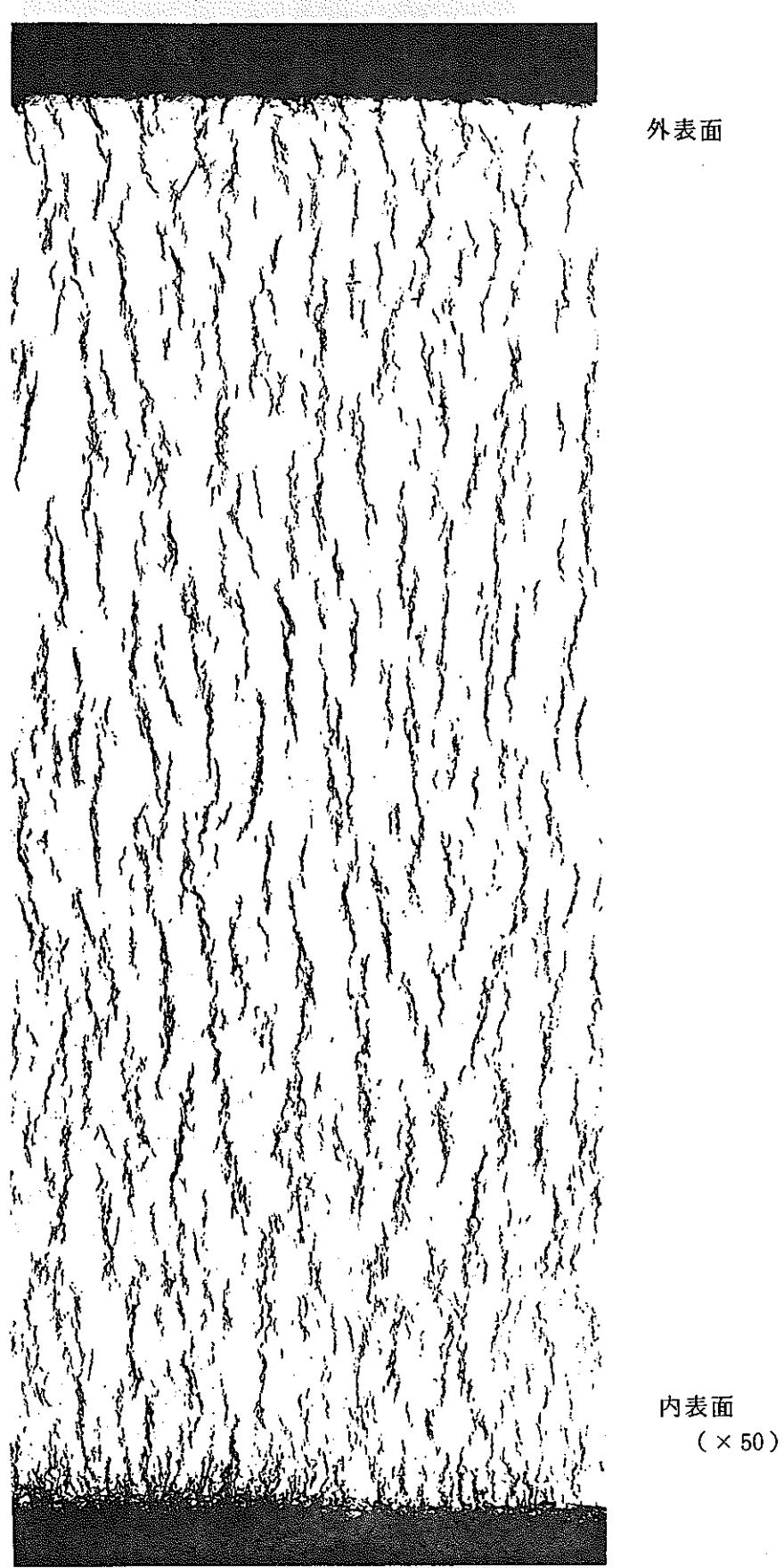


写真10 内圧負荷試験後の水素化物方位
(300℃, 120時間, 260時間, 圧力管No.46-D)

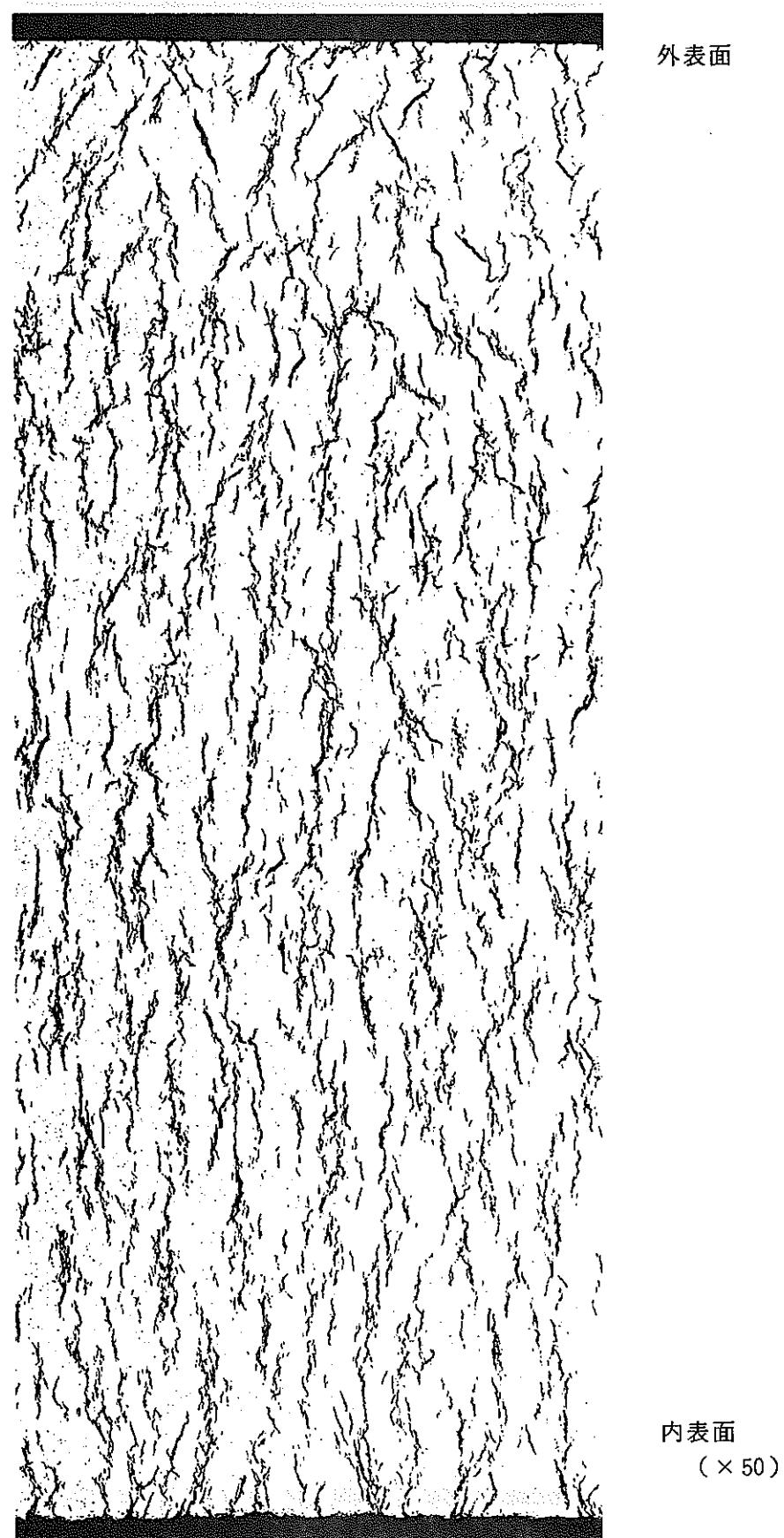


写真11 内圧負荷試験後の水素化物方位
(400°C, 80 % H_2 , 260 時間, 圧力管No. 41-C)

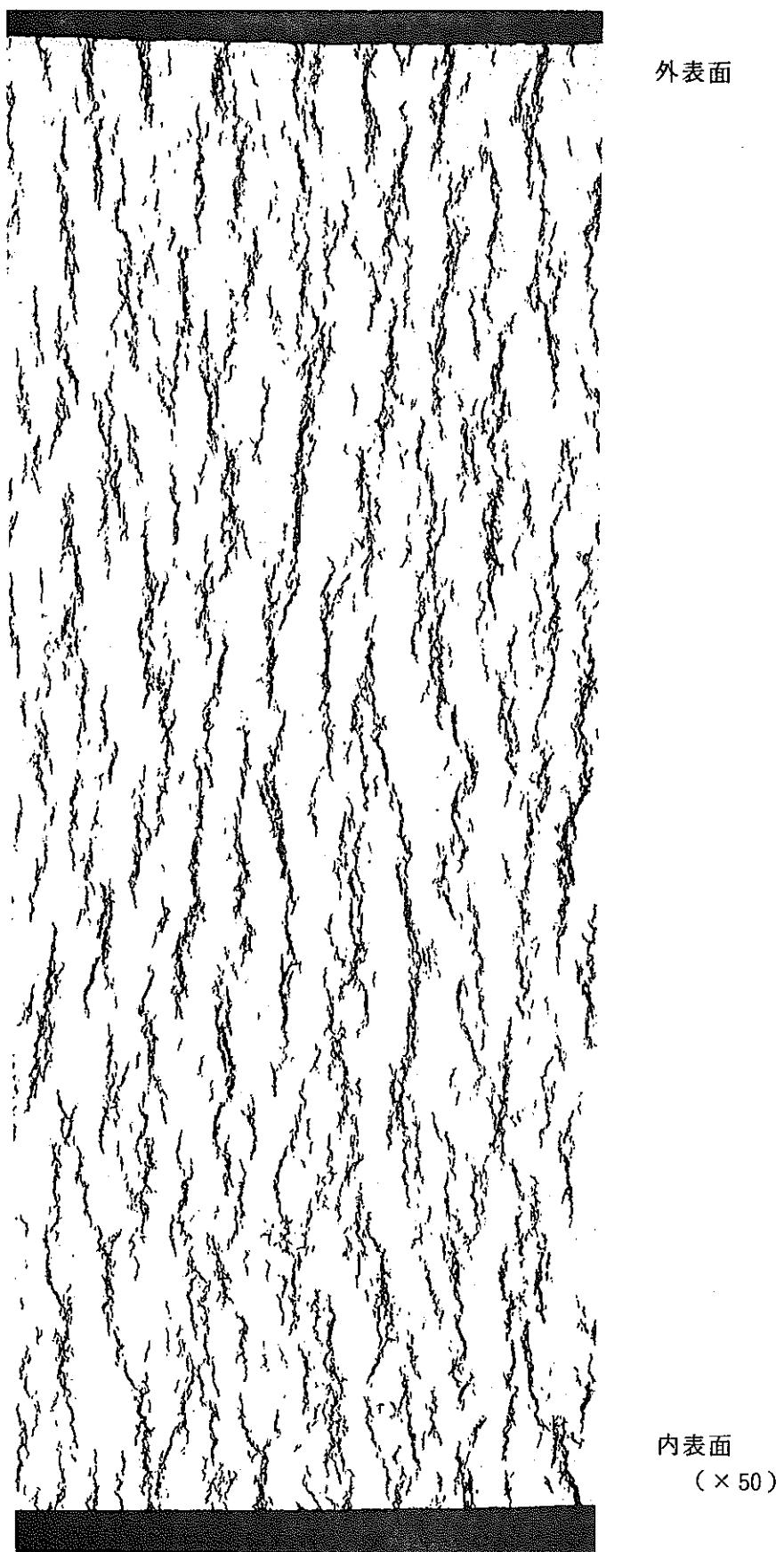


写真12 内圧負荷試験後の水素化物方位
(400°C, 120 kg/cm^2 , 260 時間, 圧力管No. 46-E)

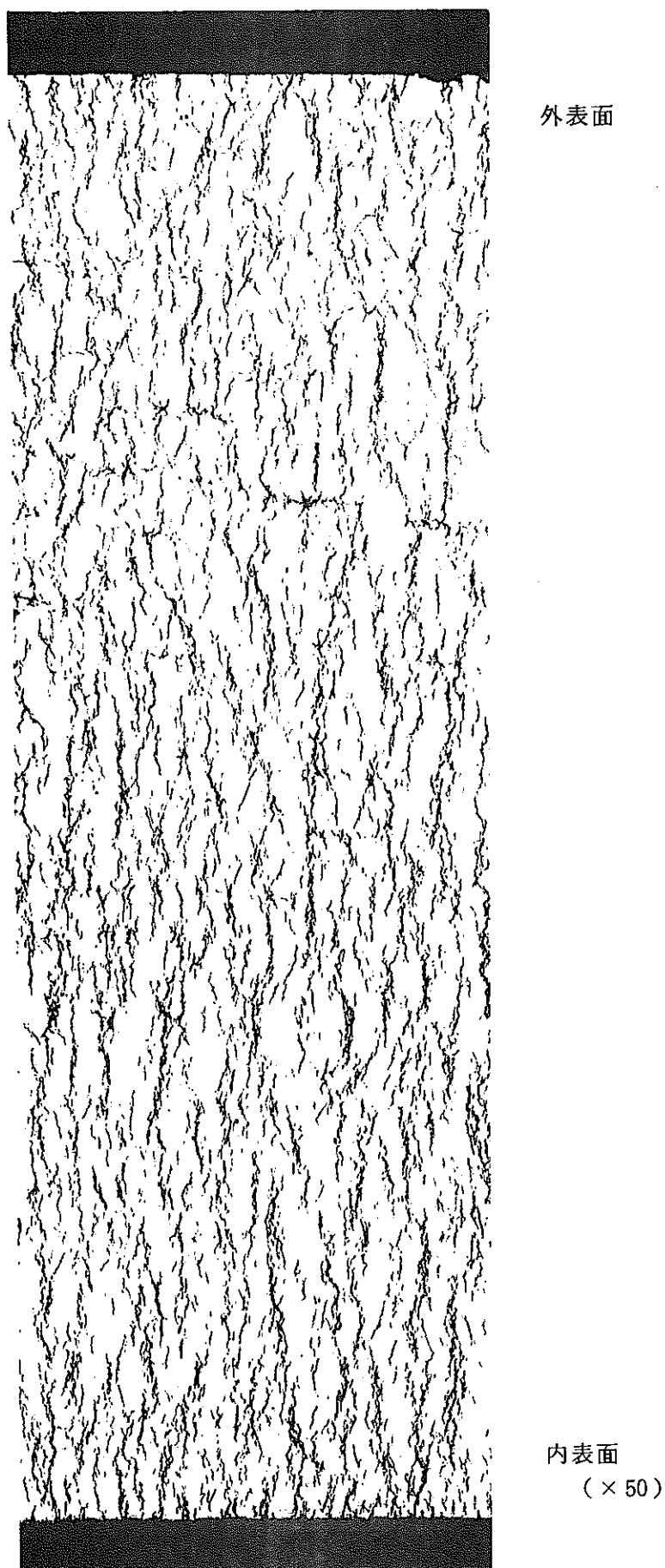


写真13 内圧負荷試験後の水素化物方位
(500°C, 80%, 10.8 時間, 圧力管No. 46-C)

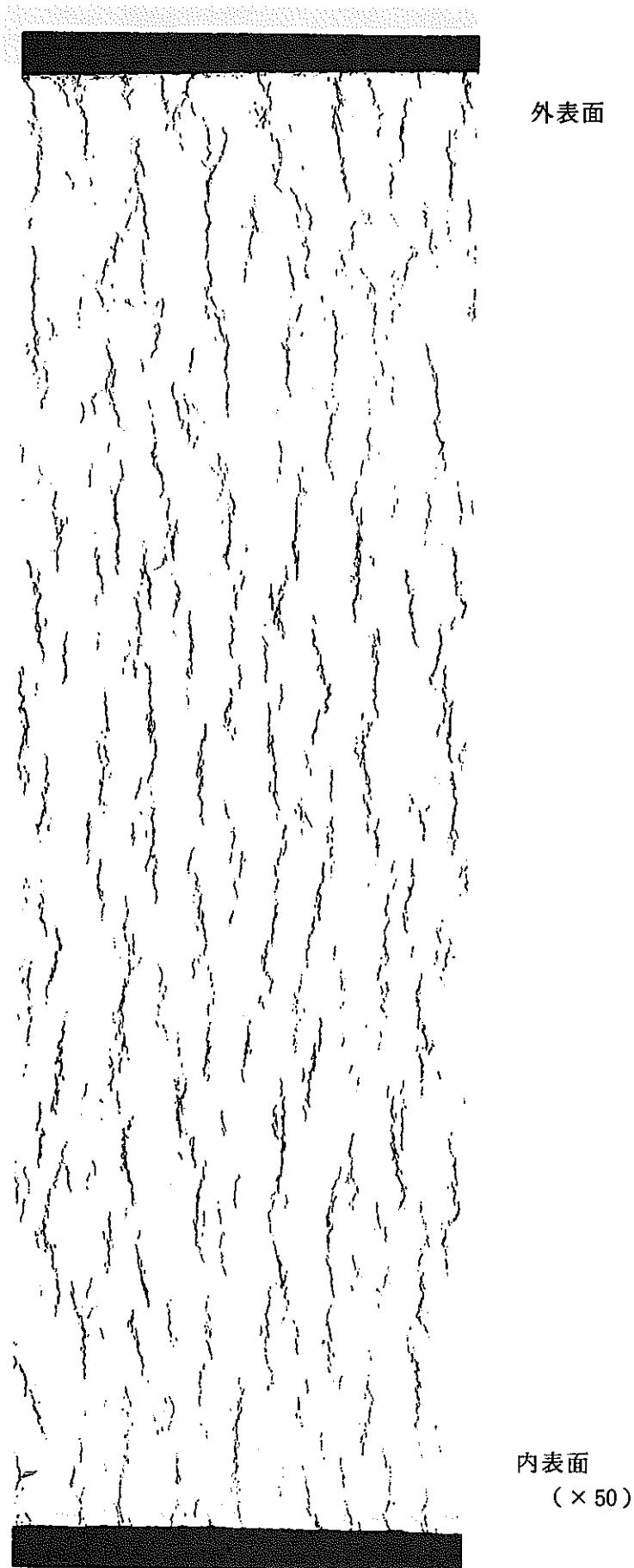


写真14 内圧負荷試験後の水素化物方位
(500°C, 120時間, 2.6 時間, 圧力管No. 45-F)

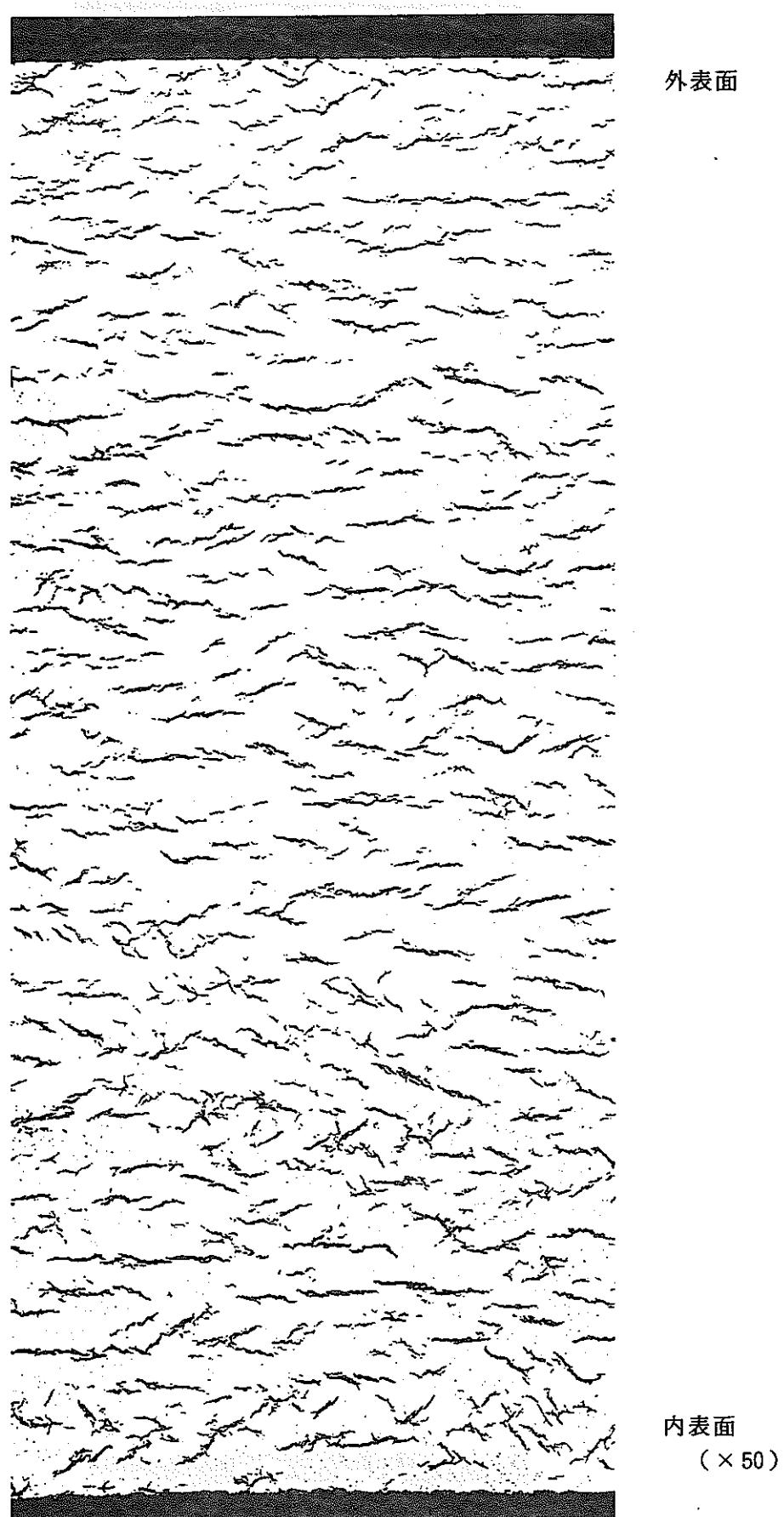


写真15 減圧水素雰囲気中水素富化試験による水素化物方位
(温度 510°C, 水素圧力 103 mmHg, 試験時間 2 時間, 圧力管No. 45-D)

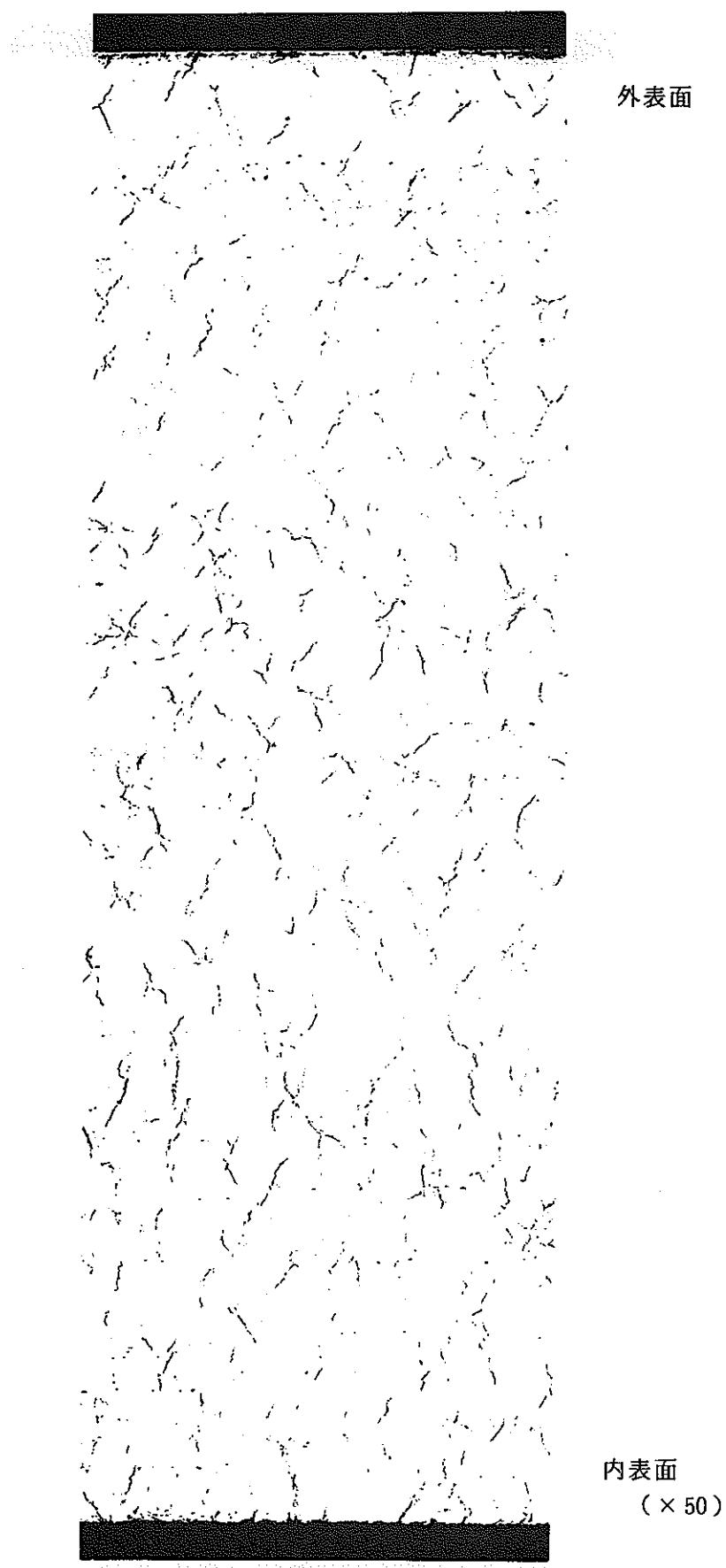


写真16 内圧封入状態放置試験後の水素化物方位
(400°C, 80 $\frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$, 最終圧力 25 $\frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$, 圧力管No. 44 - F)

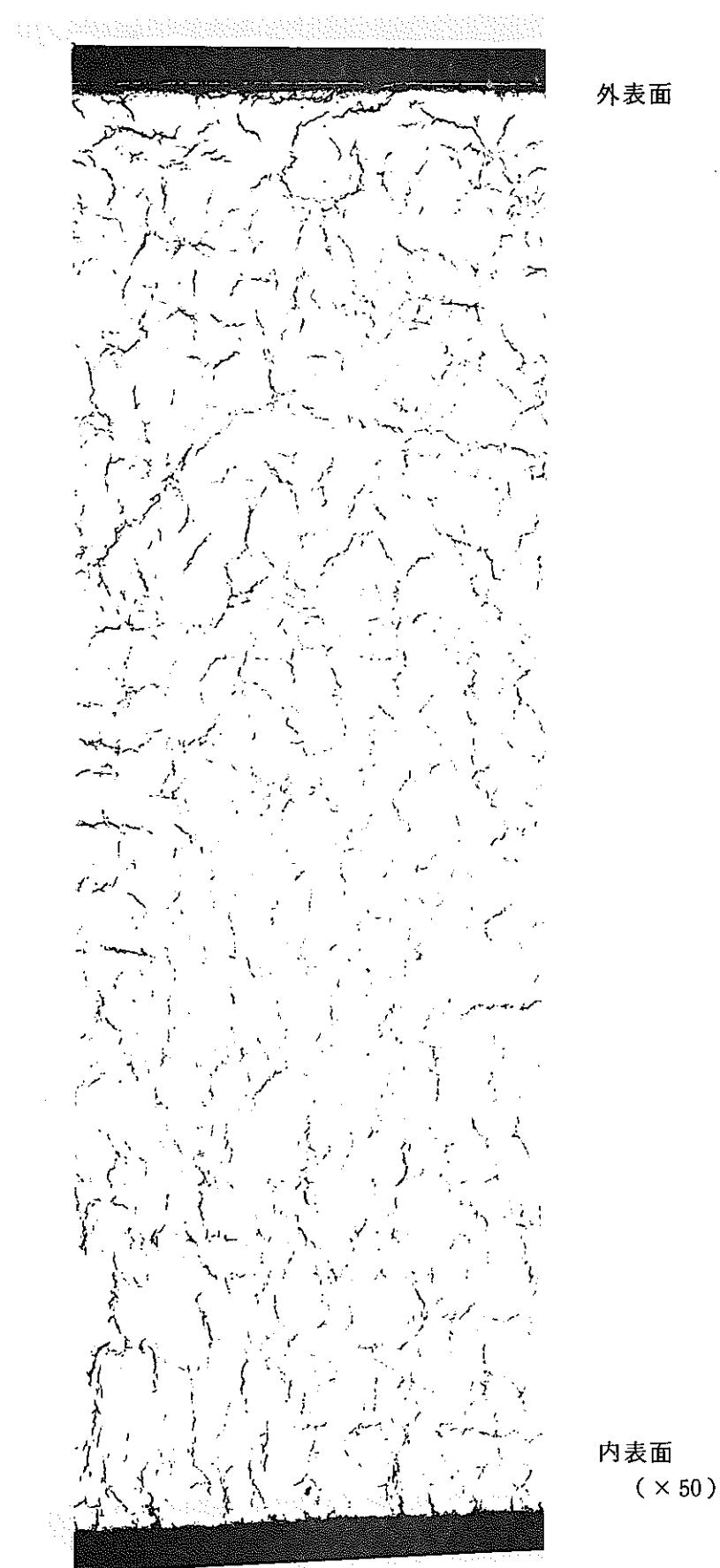


写真17 内圧封入状態放置試験後の水素化物方位
(500°C, 80%, 最終圧力 23%, 圧力管No.45-A)

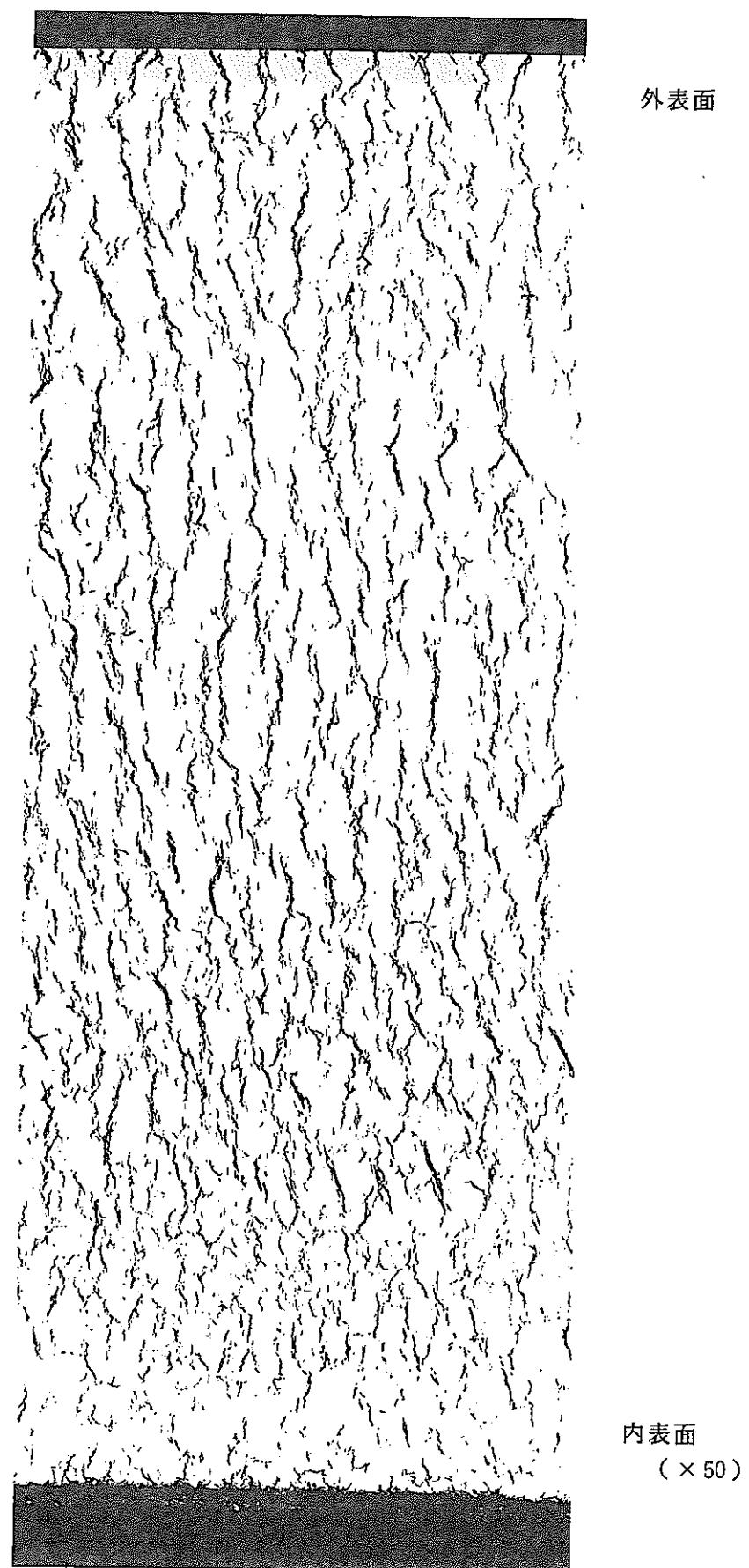


写真18 真空加熱処理による水素化物再配向試験前の水素化物方位
(300℃, 120%_{cm}, 260時間, 圧力管No.47-F)

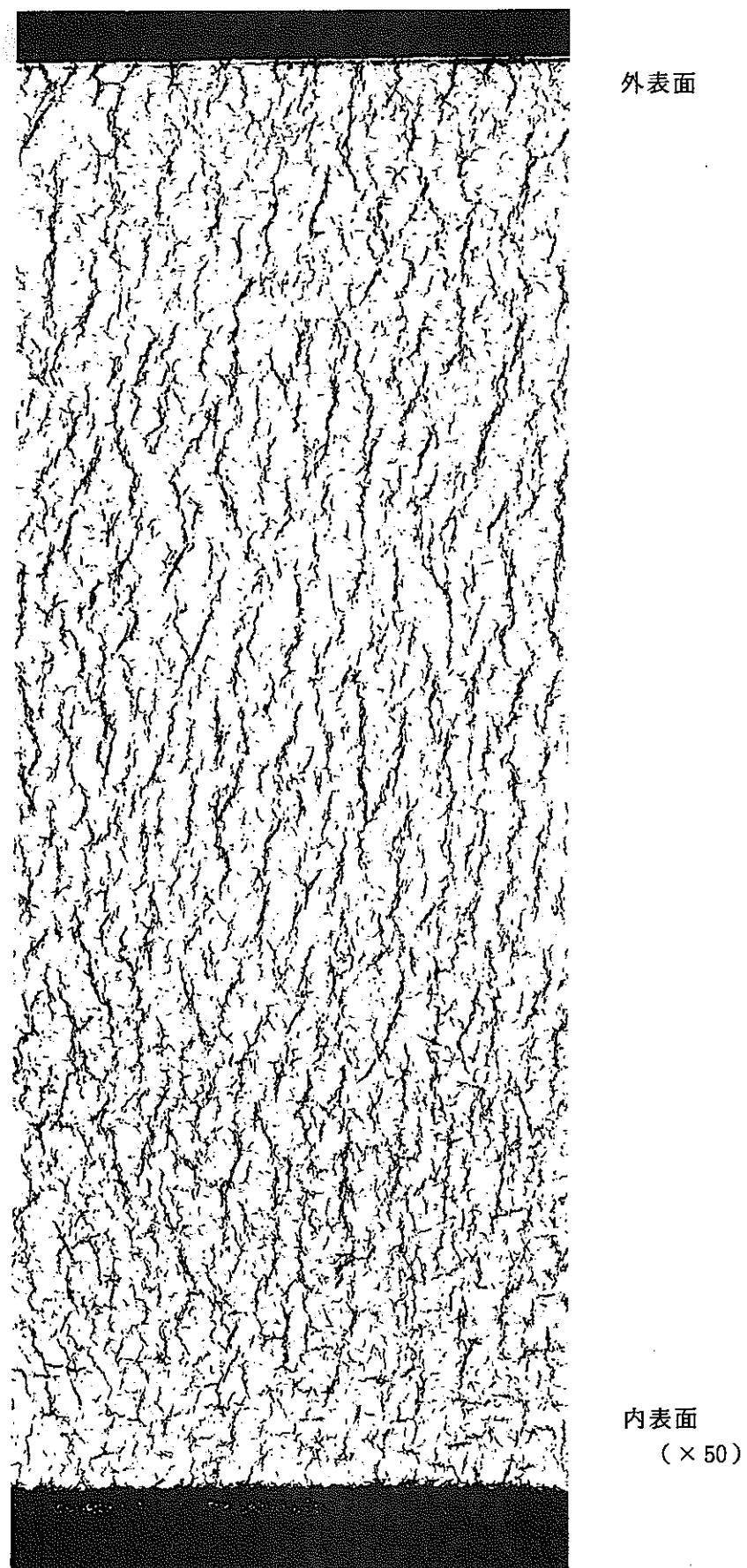


写真19 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(300°C, 48時間, 圧力管No.47-F)

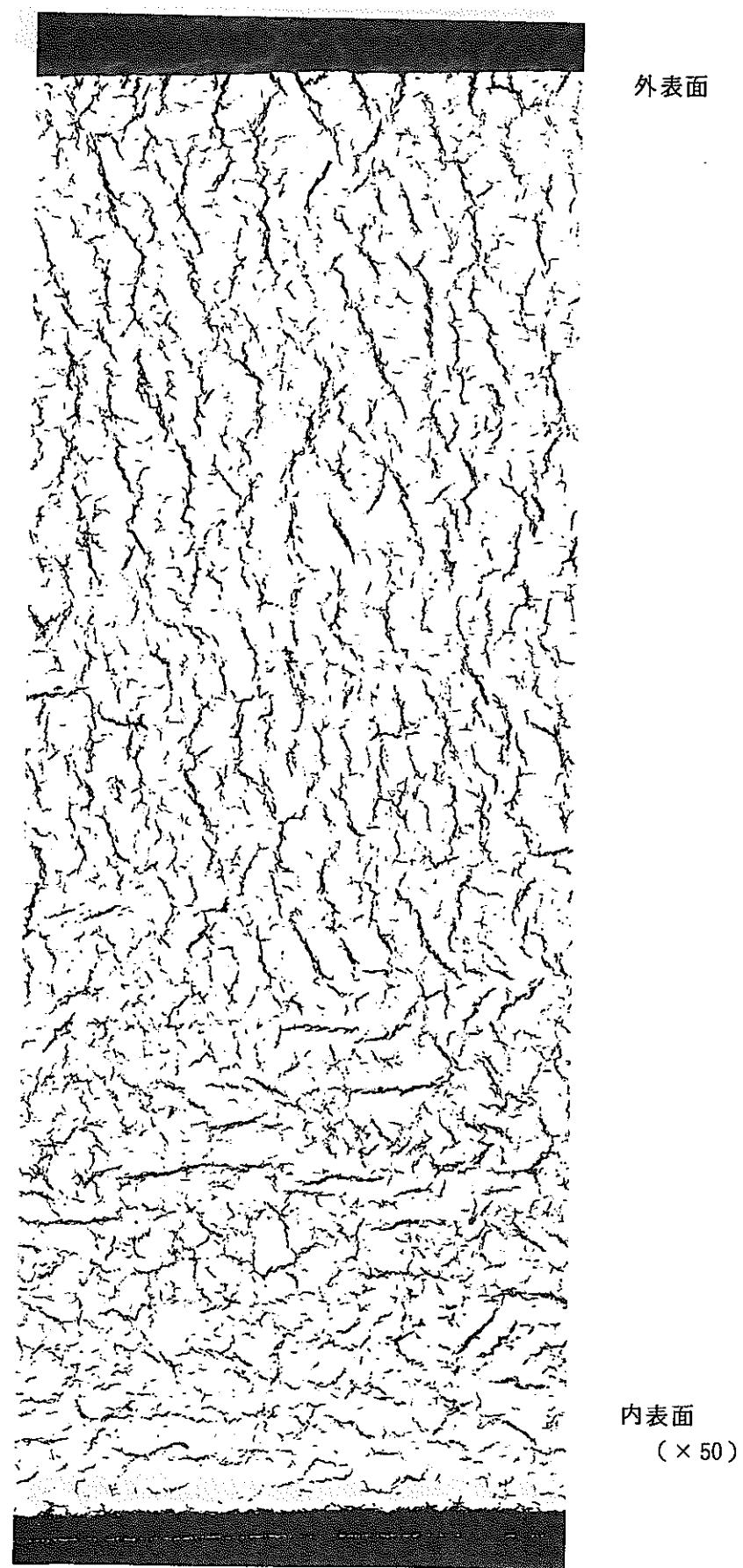


写真20 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(300°C, 100時間, 圧力管No.47-F)

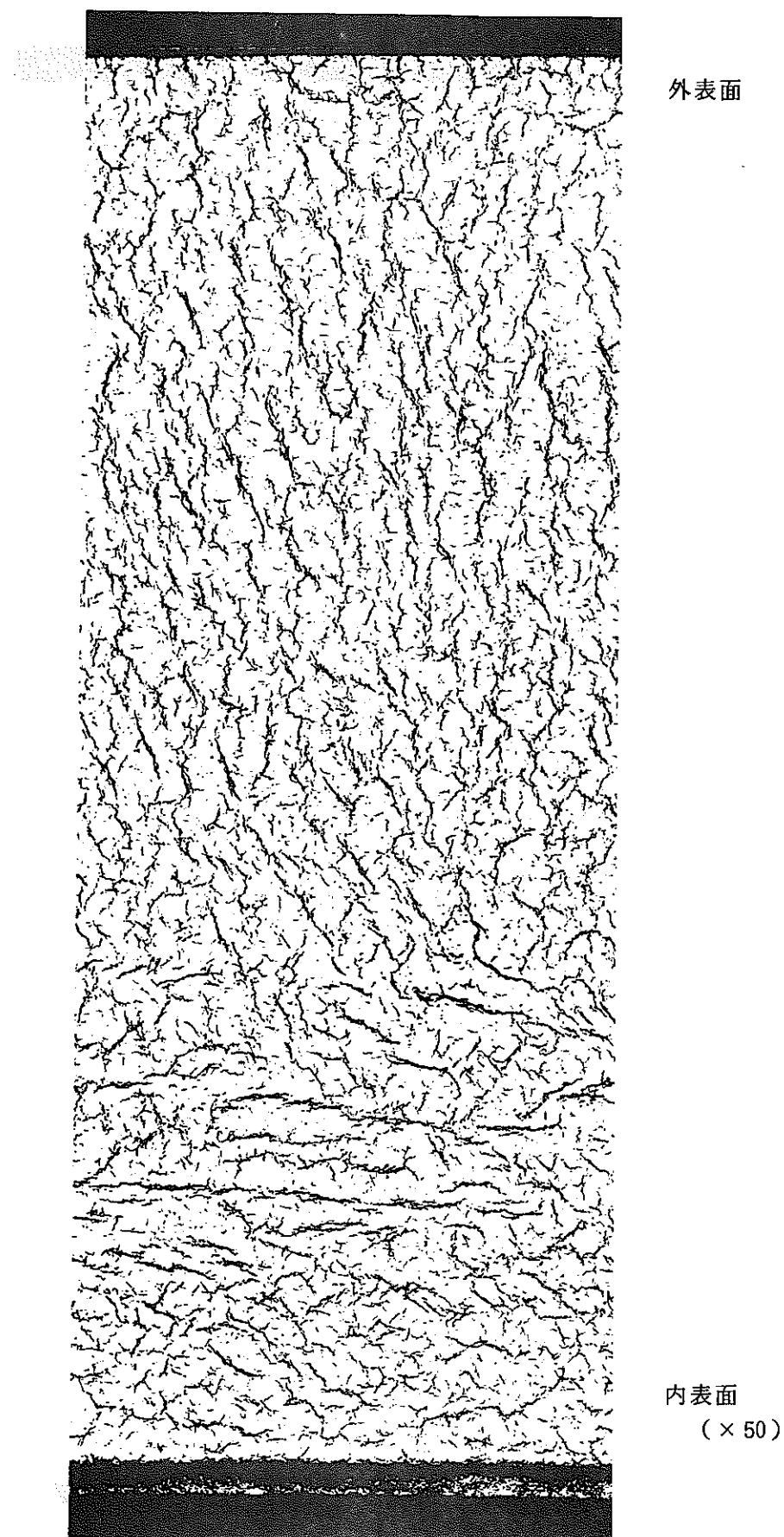


写真21 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(300°C, 240 時間, 圧力管 No. 47-F)

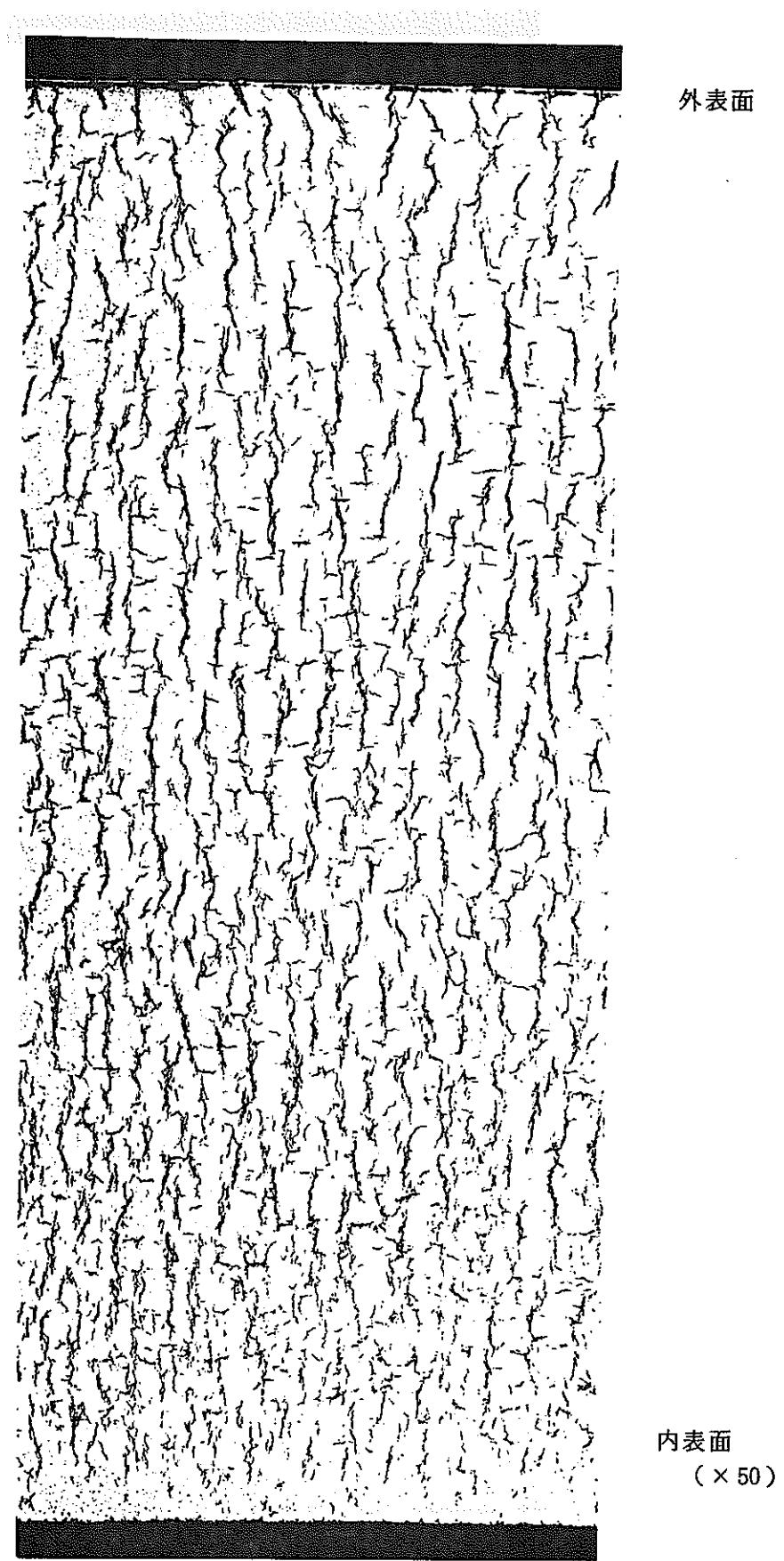


写真22 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(300 ℃, 515 時間, 圧力管 No. 47-F)

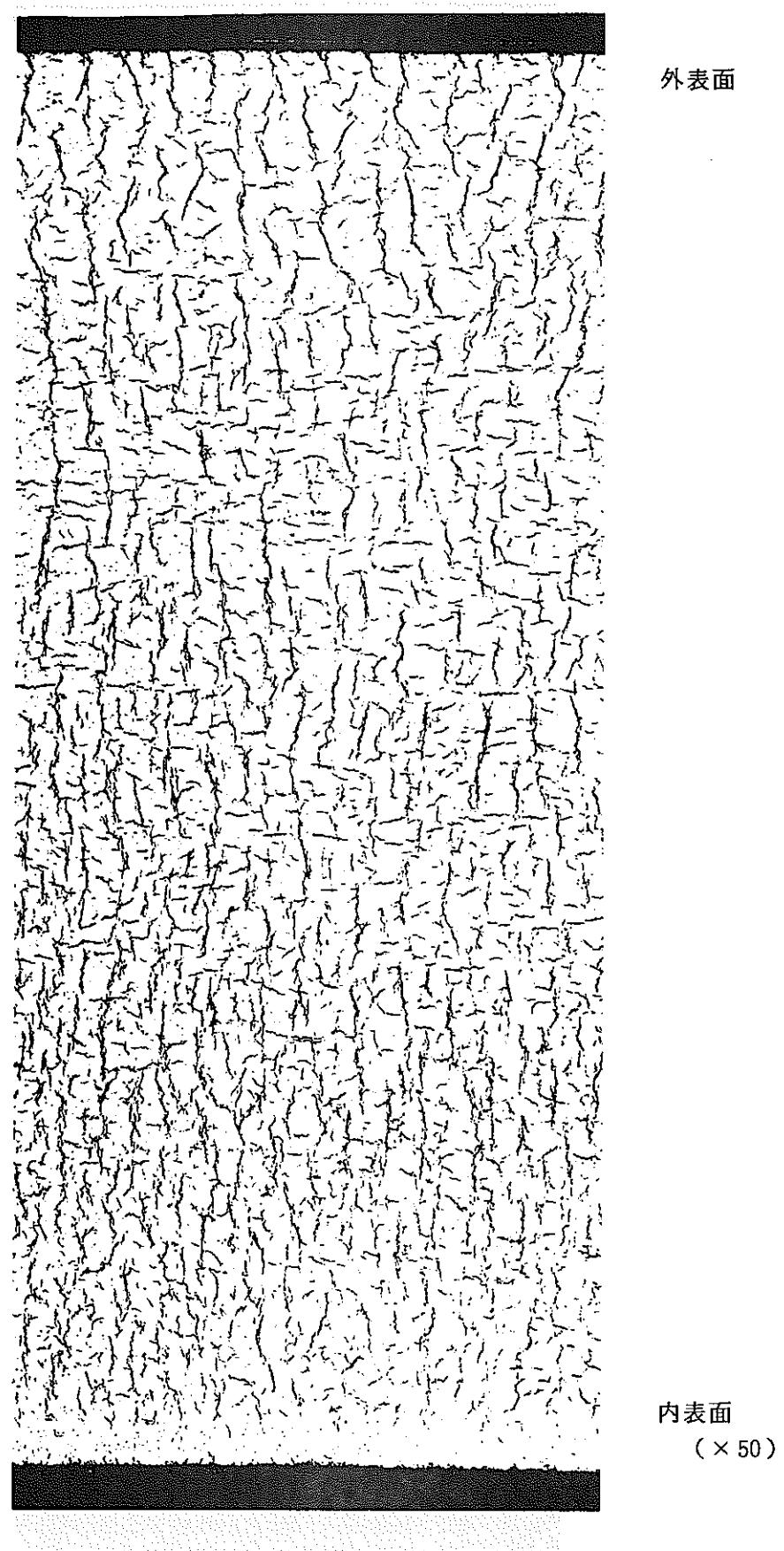


写真23 オートクレーブ試験による水素化物再配向試験結果
(300°C, 80%, 饱和水中 500 時間保持)

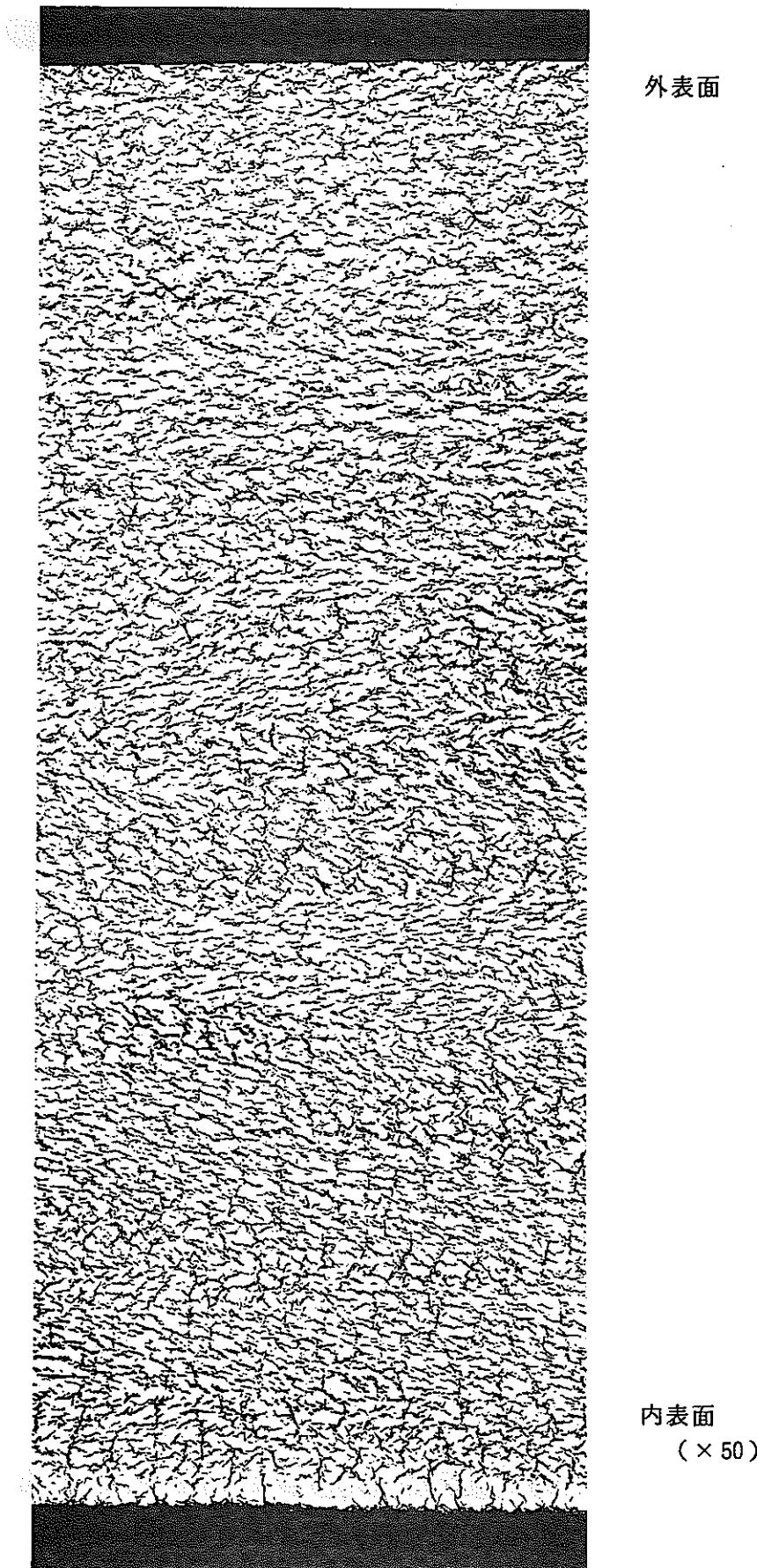


写真24 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(400 ℃, 24 時間, 圧力管 No. 47-F)

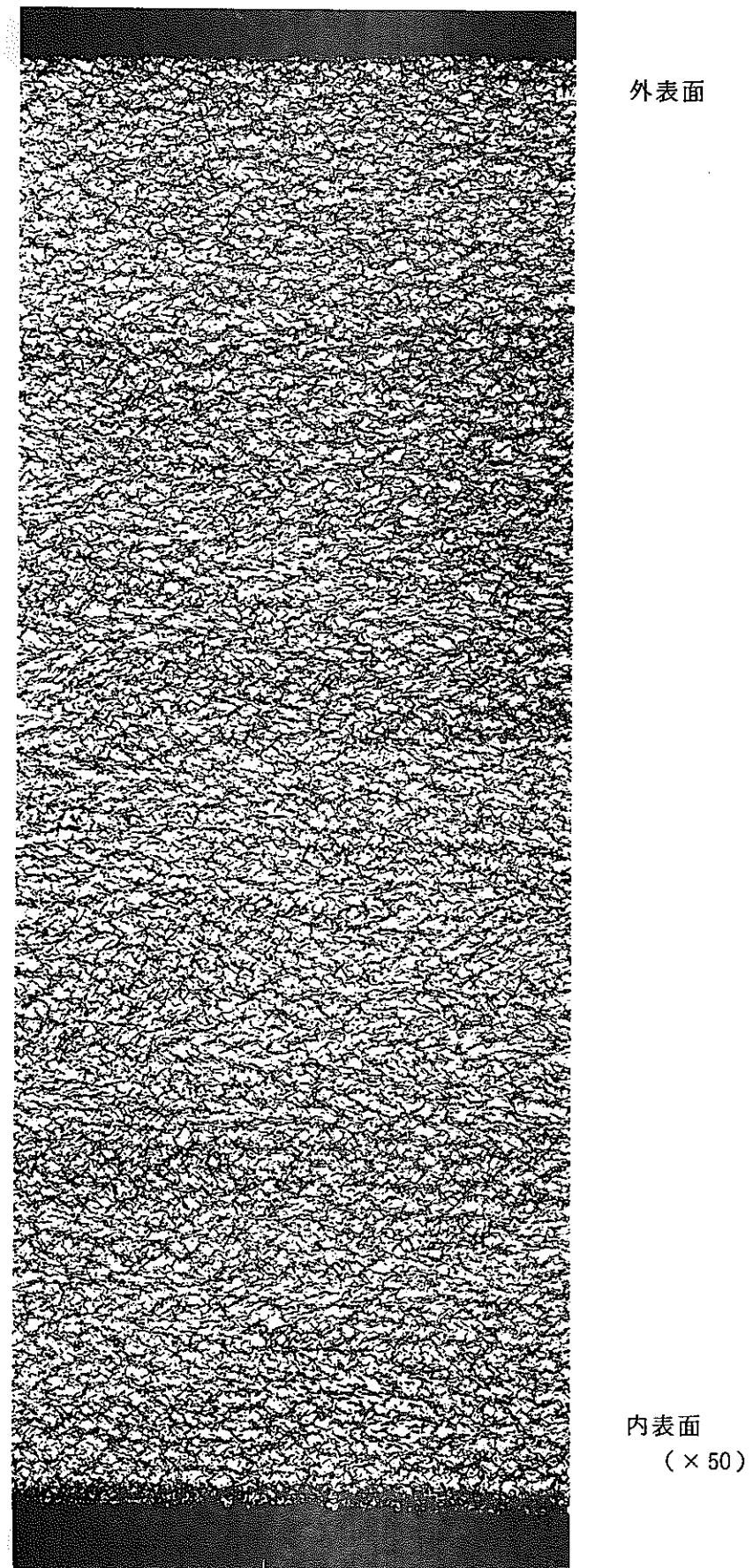


写真25 真空加熱処理による水素化物再配向試験結果
(500 ℃, 22 時間, 圧力管No. 47-F)

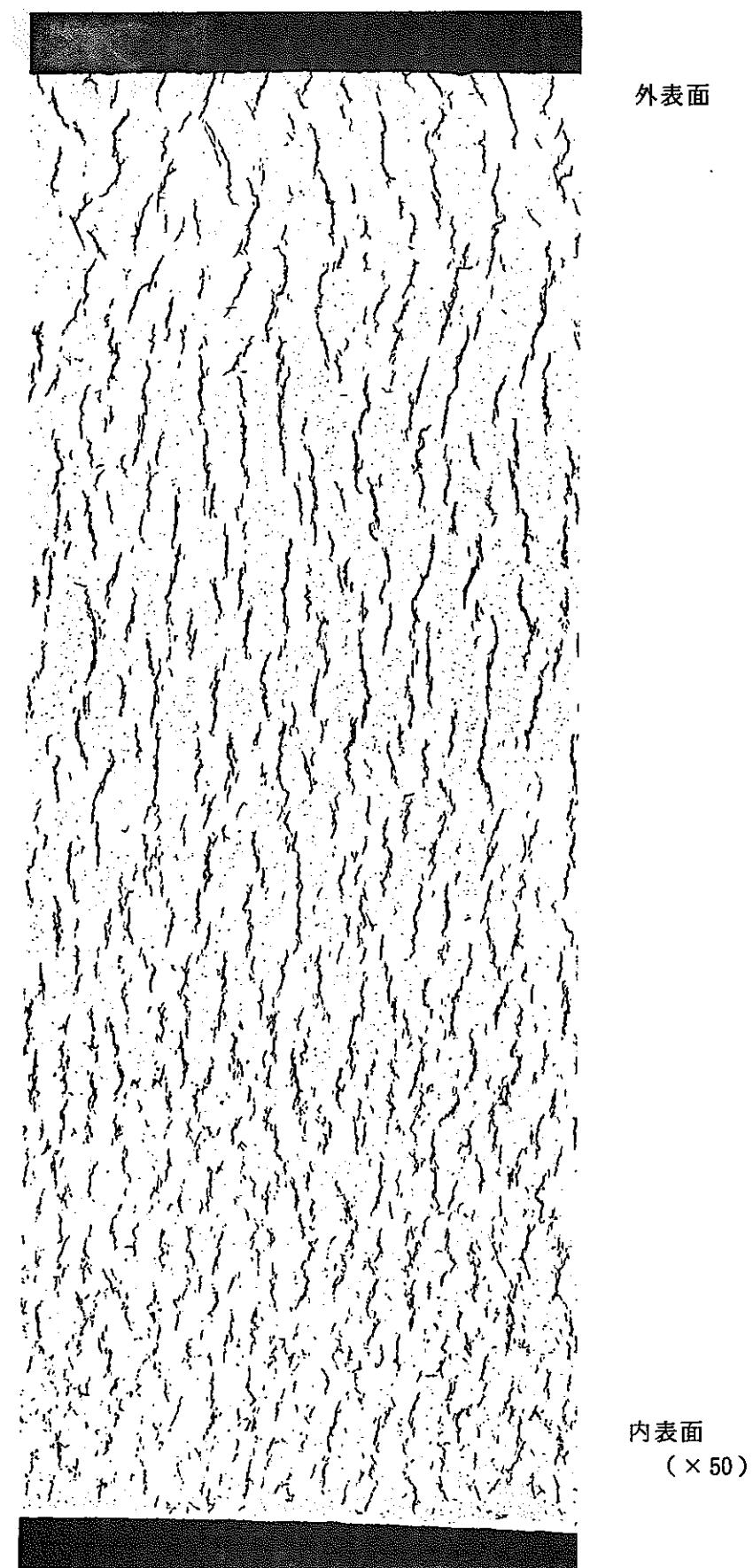


写真26 内圧負荷状態における水素化物再配向試験結果
[写真18の試料を300℃, 60%, 48時間試験]
(試料No.47-F-2)]

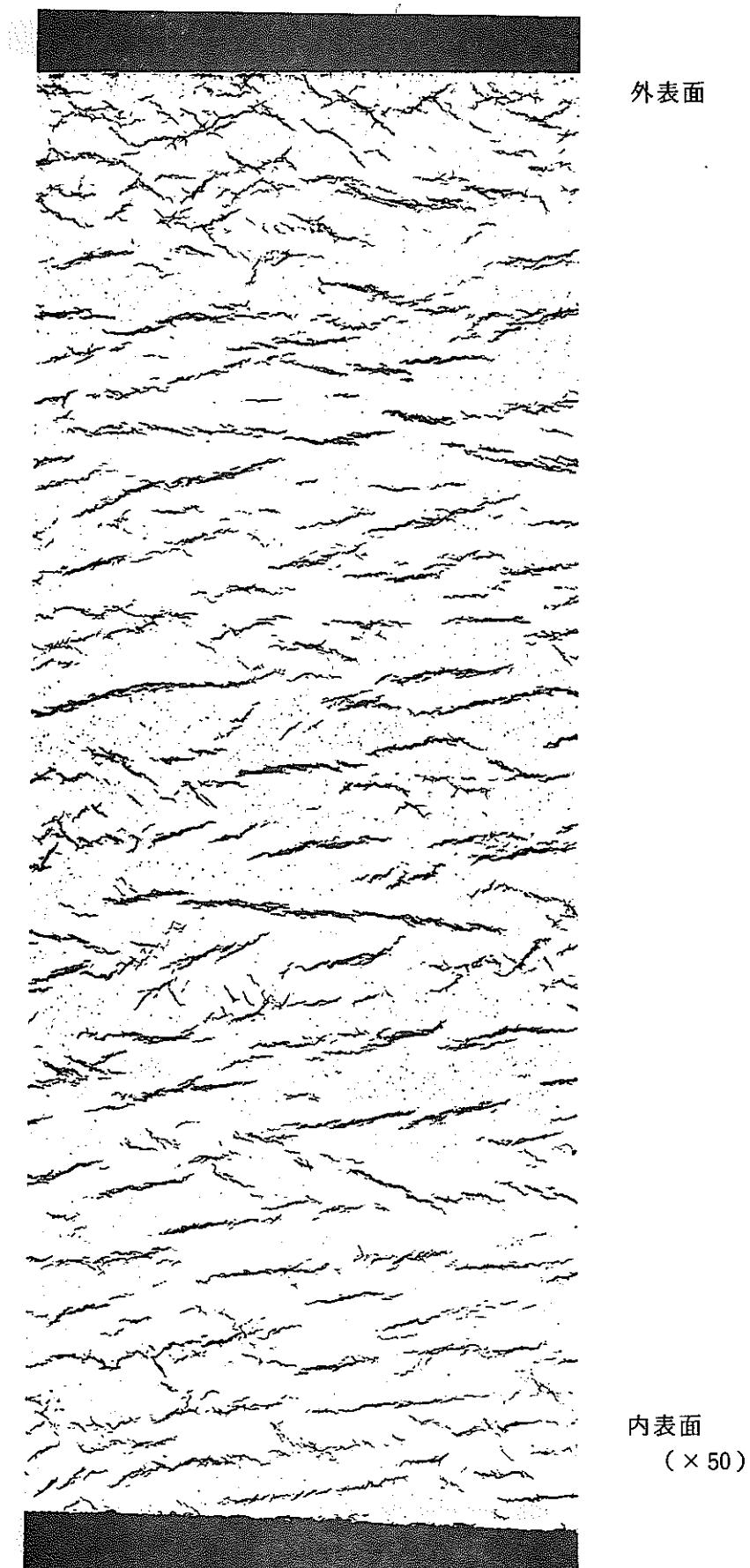


写真27 内圧負荷状態における水素化物再配向試験結果
[47-F-2(写真26)の試料を500°C, 50%, 22時間試験]
(試料No. 45-F-3)]

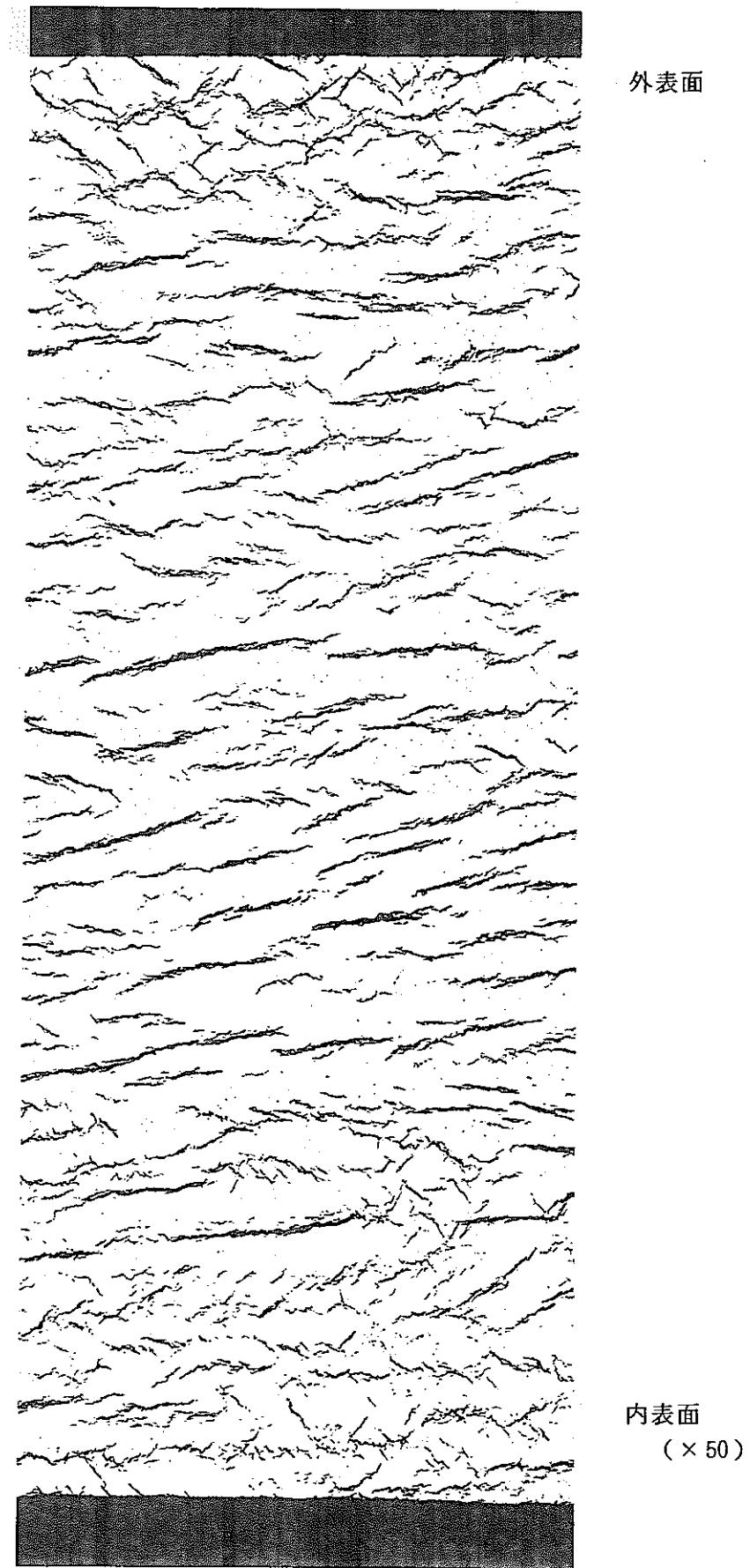


写真28 内圧負荷状態における水素化物再配向試験結果

[47-F-3(写真27)の試料を300°C, 60%, 72時間試験]
(試料No. 47-F-4)]

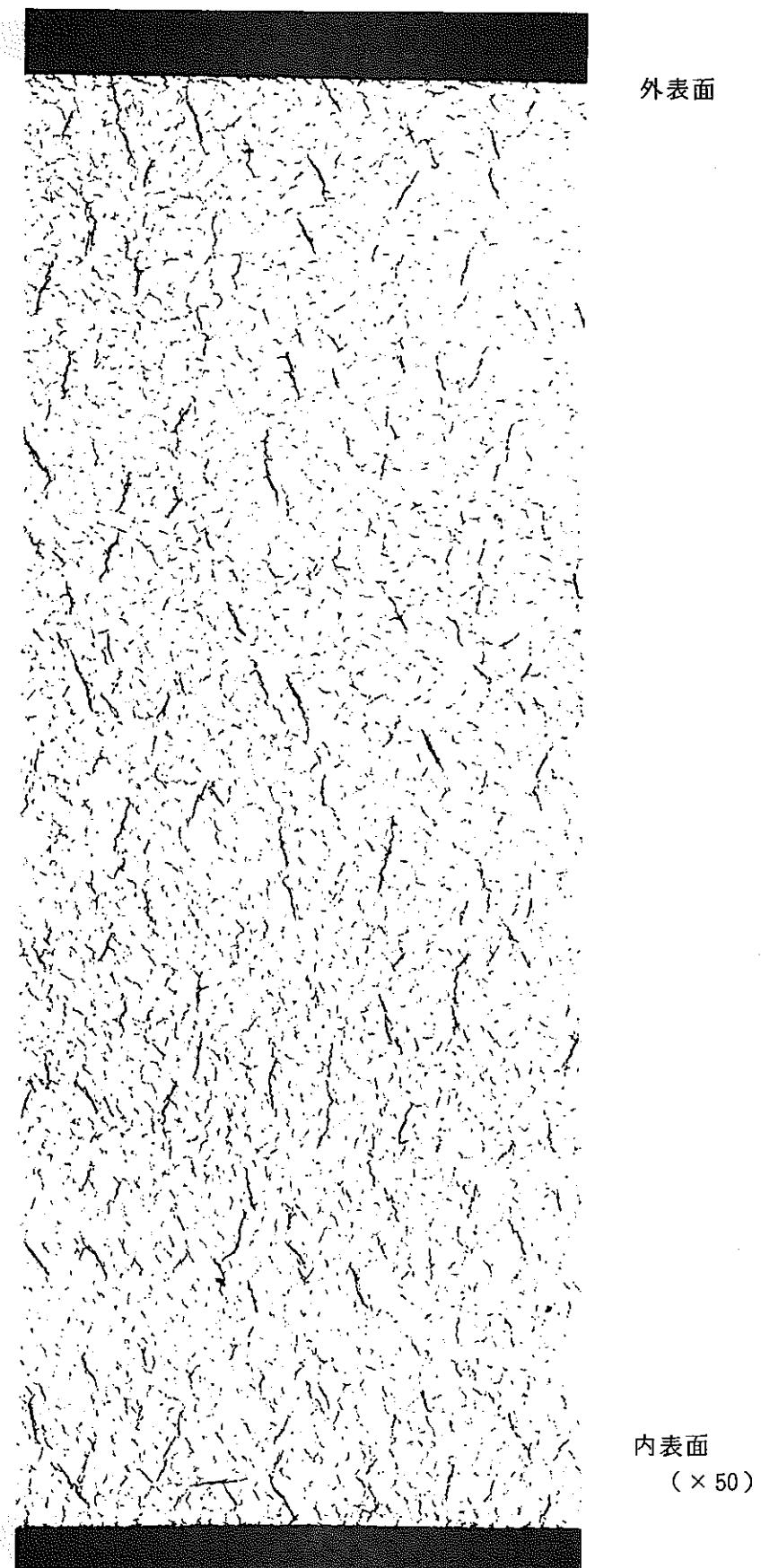


写真29 内圧負荷状態における水素化物再配向試験結果

[47-F-4(写真28)の試料を300°C, 70%, 190時間試験]
(試料No.47-F-5)

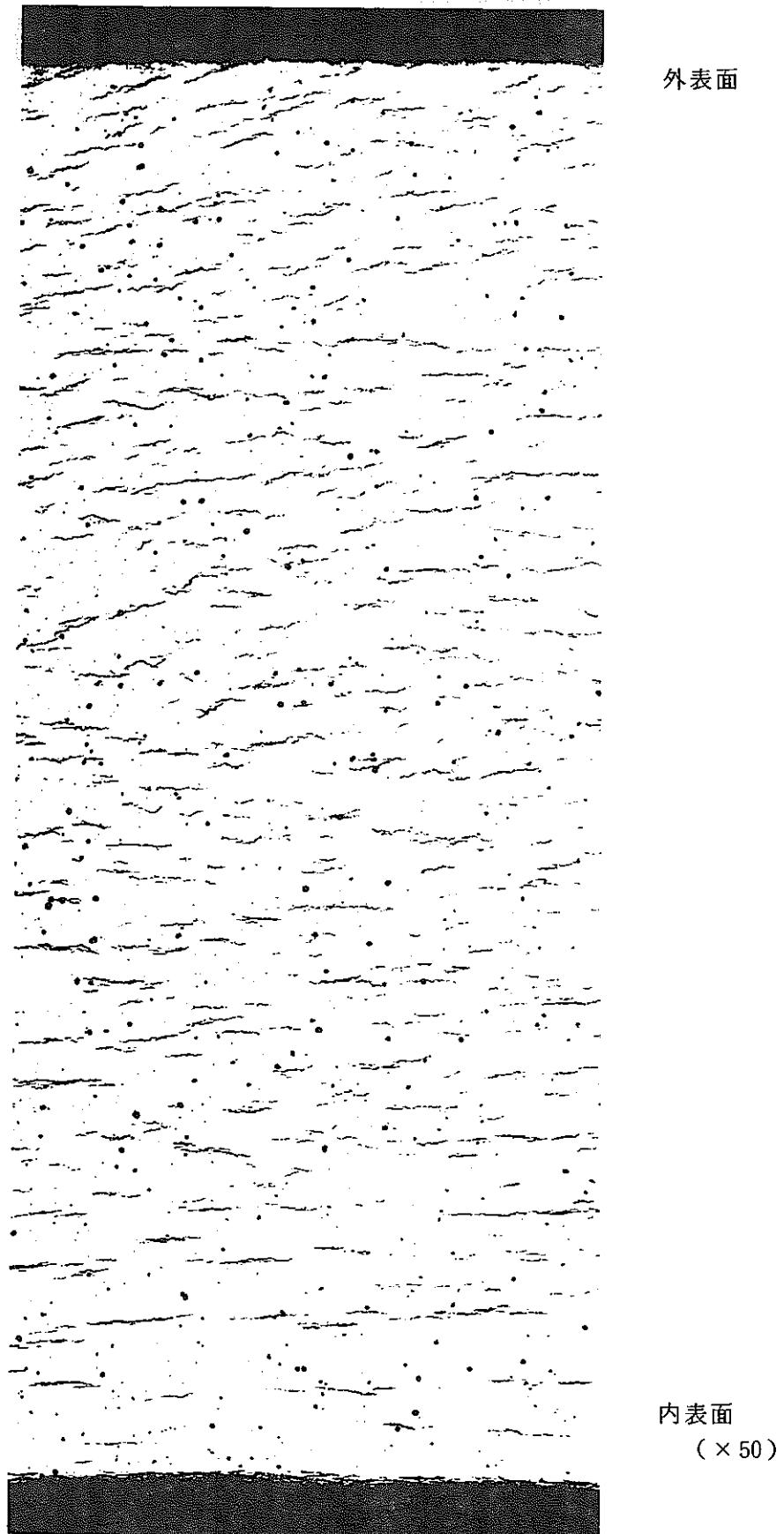
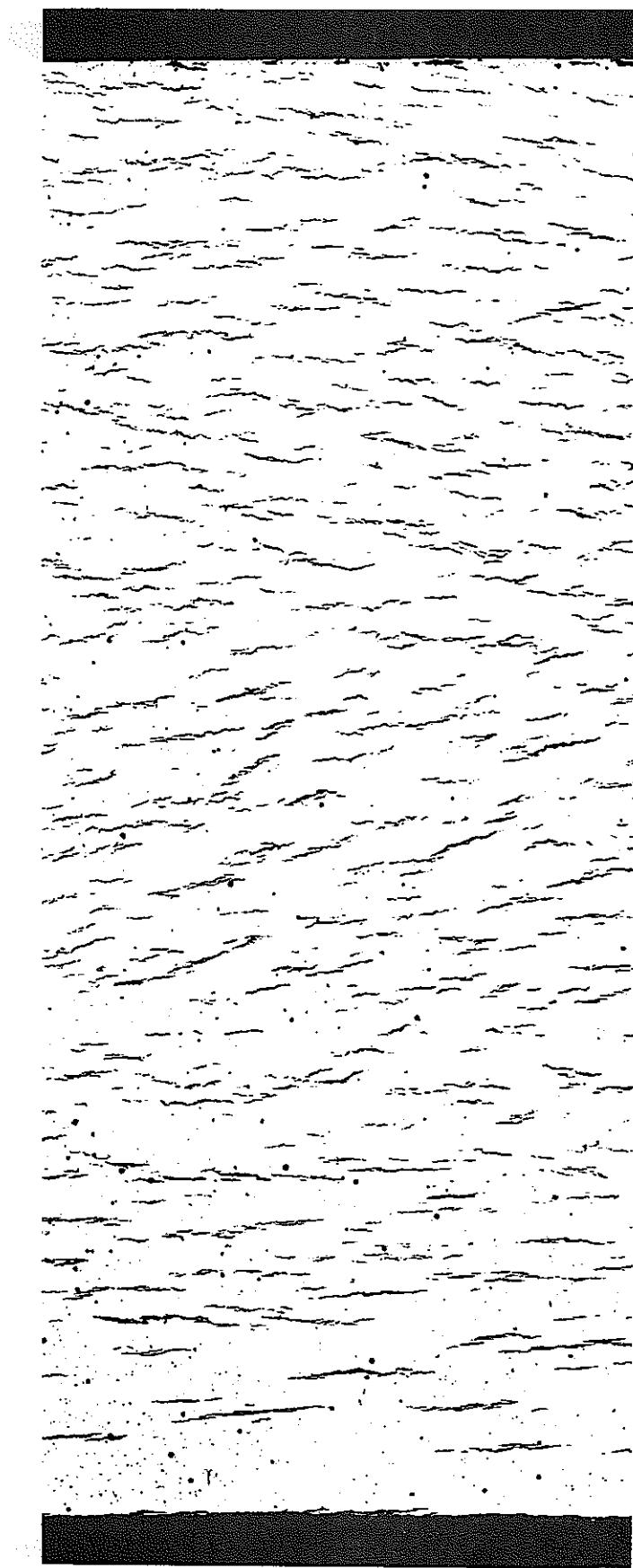


写真30 冷間加工材内圧負荷試験後の水素化物方位
(300°C, 80%, 260 時間, 圧力管No. 711-A)



外表面

内表面
(×50)

写真31 冷間加工材内圧負荷試験後の水素化物方位
(300°C, 120時間, 260時間, 圧力管No. 711-C)

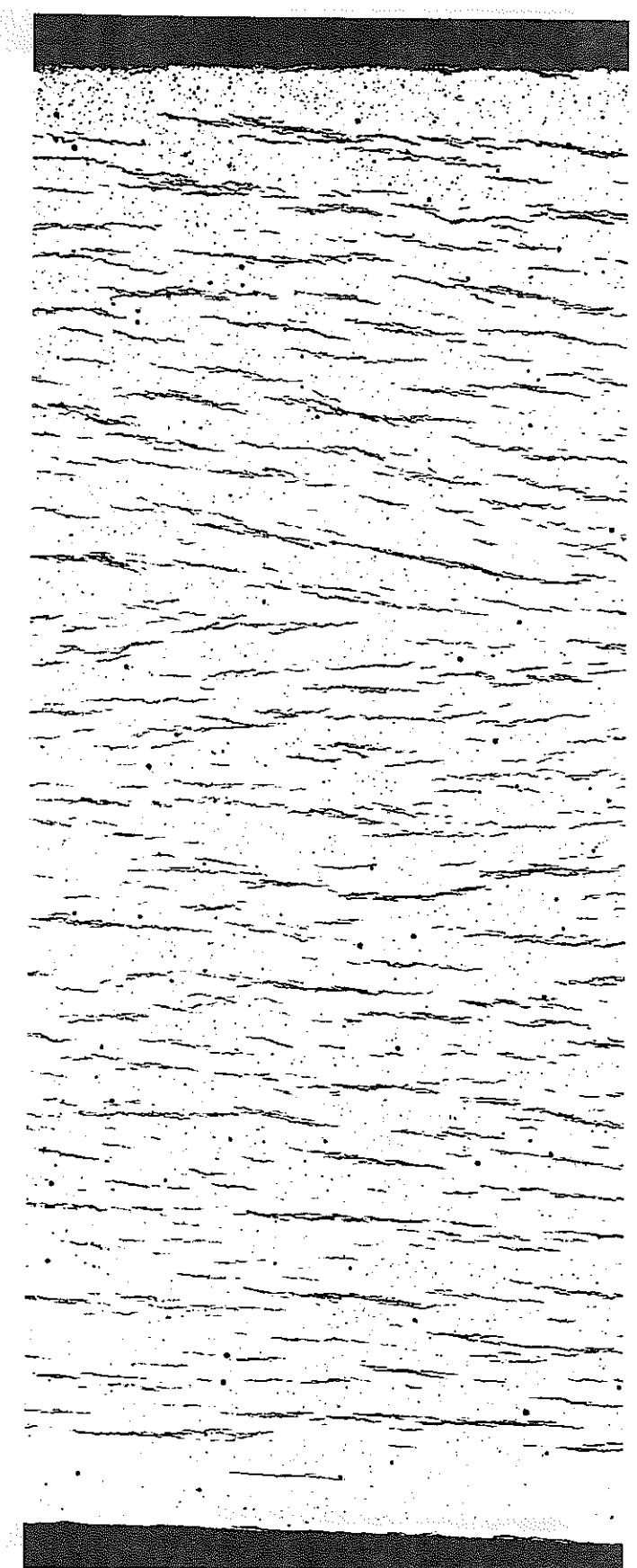


写真32 冷間加工材無負荷時の水素化物方位

[温度 500°C, 水素圧力 91 mmHg, 試験時間 1.8 時間]
[圧力管 No. 711, 23.97 %, C.W.]

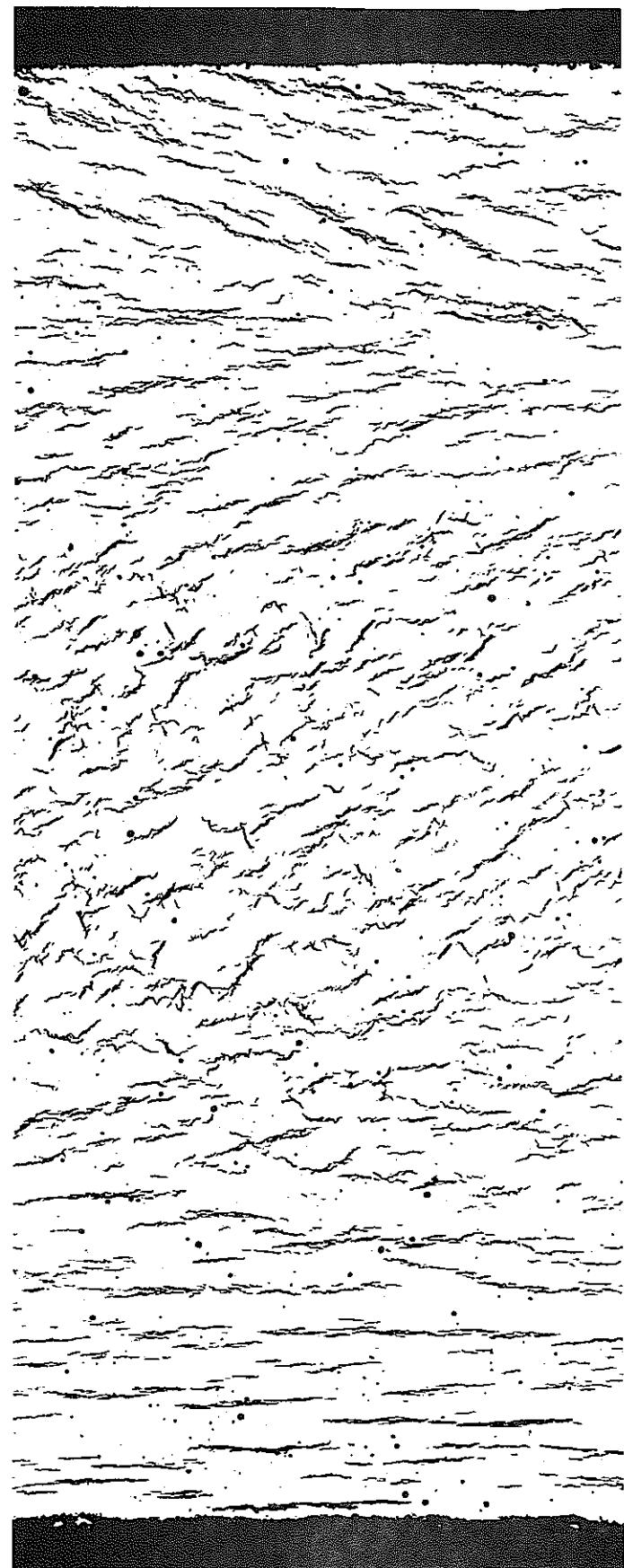


写真33 冷間加工材内圧負荷試験後の水素化物方位
(400 ℃, 120 %, 260 時間, 圧力管No. 711-B)

5.3 水素吸収分布

5.3.1 圧力管軸方向の水素吸収分布

試験後、圧力管軸方向の水素吸収分布を調査した。水素分析方法は「試験方法」の項で述べたとおりである。この分析結果を表5および図34～図36に試験温度条件毎にまとめて示す。これらの図から明らかなように水素導入管側（混合ガス入口側）の水素吸収量は、反対側に比べてどの条件でも多くなっている。これは、圧力管内に送り込まれる水素ガス分圧が5%と小さく、また水素ガスが一方向（水素導入管側）から送り込まれるために圧力管内の水素濃度の高い入口側の水素吸収量が多くなるためと考えられる。

300°Cでの試験と400°C, 500°Cでの試験結果を比較すると、圧力管両端における水素吸収分布に違いが認められた。即ち、300°Cでの試験における圧力管両端の水素吸収量の差は、400°C, 500°Cでの試験結果のそれと比較して小さい。これは表2から明らかなように300°Cにおける水素吸収速度が遅いために、圧力管内での水素濃度差が比較的小さくなつたためと思われる。また400°C, 120 kg/cm²での試験における水素吸収速度が約0.49 mm/hr（平均値）であるのに対し、500°C, 120 kg/cm²での試験の水素吸収速度は、約42.96 mm hr（平均値）と400°Cでの試験の約88倍であるが、水素導入管側管端100 mm付近の水素吸収量は、400°C, 120 kg/cm²での試験結果の方が500°Cでの試験におけるそれよりも遥かに大きかった。これは、圧力管内での水素濃度差、即ち水素吸収速度が大きいときには水素吸収分布にも大きな影響を与えるとした先に述べたことと矛盾する結果であるが、この500°Cでの試験では水素導入管部での水素吸収量が400°Cでの試験に比較して多くなつたために、その先の圧力管まで行き届いた水素ガスの量が少なくなり、このような結果になったものと思われる。即ち、500°Cでの試験では、圧力管が水素を吸収する前に水素導入管がその多くを吸収してしまったものと考えられる。また、2.2で示した水素導入管への水素吸収を抑制する目的のオートクレーブ処理は、写真34～写真36に示す水素導入管部の水素化物金相写真より300°C, 400°Cでの試験においては多少効果が有つたものの500°Cでの試験では、ほとんど効果のないことが明らかとなった。従って表2に示した水素吸収速度は、水素導入管への水素吸収の影響を含んでおり、特に500°Cでの試験ではその影響が大きいと思われる。

5.3.2 圧力管円周方向の水素吸収分布

圧力管円周方向の水素吸収分布を調査するために、圧力管横断面において45°間隔で水素分析試料を採取して水素分析を行った。この結果を表6に示す。表より明らかなように圧力管円周方向の水素吸収分布は圧力管上面の水素吸収量が多く、逆に圧力管下面是少ないという傾向のあることがわかった。また、水素吸収分布に及ぼす試験温度の影響は、前述した圧力管軸方向の水素吸収分布と同様、円周方向においても300°Cでは水素吸収分布の差が比較的小さく、400°C, 500°Cでは大きいということが明らかとなつたが、これらの原因については、不明である。

表 5 圧力管軸方向の水素吸収分布

単位: ppm

試験条件		水素分析位置 水素導入管	① (100 mm)	② (250 mm)	③ (400 mm)	④ (550 mm)	⑤ (700 mm)
300°C	80 kg/cm ²	30	63	55	61	50	44
		22	93	53	52	59	38
	120 kg/cm ²	23	59	36	27	22	17
		55	105	85	71	69	70
400°C	80 kg/cm ²	139	79	47	19	16	14
		44	93	60	37	22	17
	120 kg/cm ²	72	116	90	80	73	46
		48	213	155	105	52	24
500°C	80 kg/cm ²	231	74	54	28	24	14
		333	181	118	76	44	23
	120 kg/cm ²	236	77	50	38	25	19
		314	80	54	38	20	14

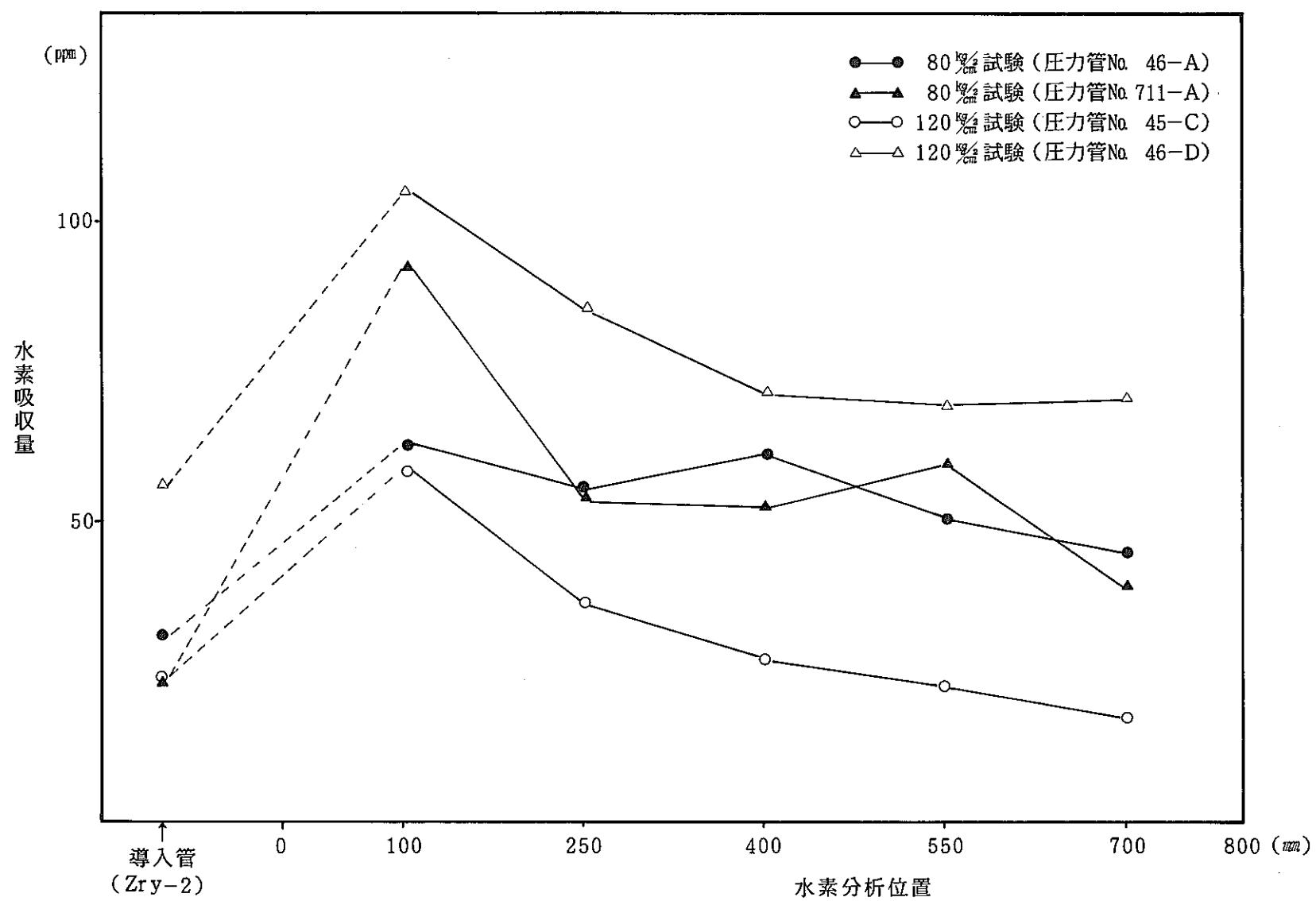


図34 300°C試験における水素吸収分布

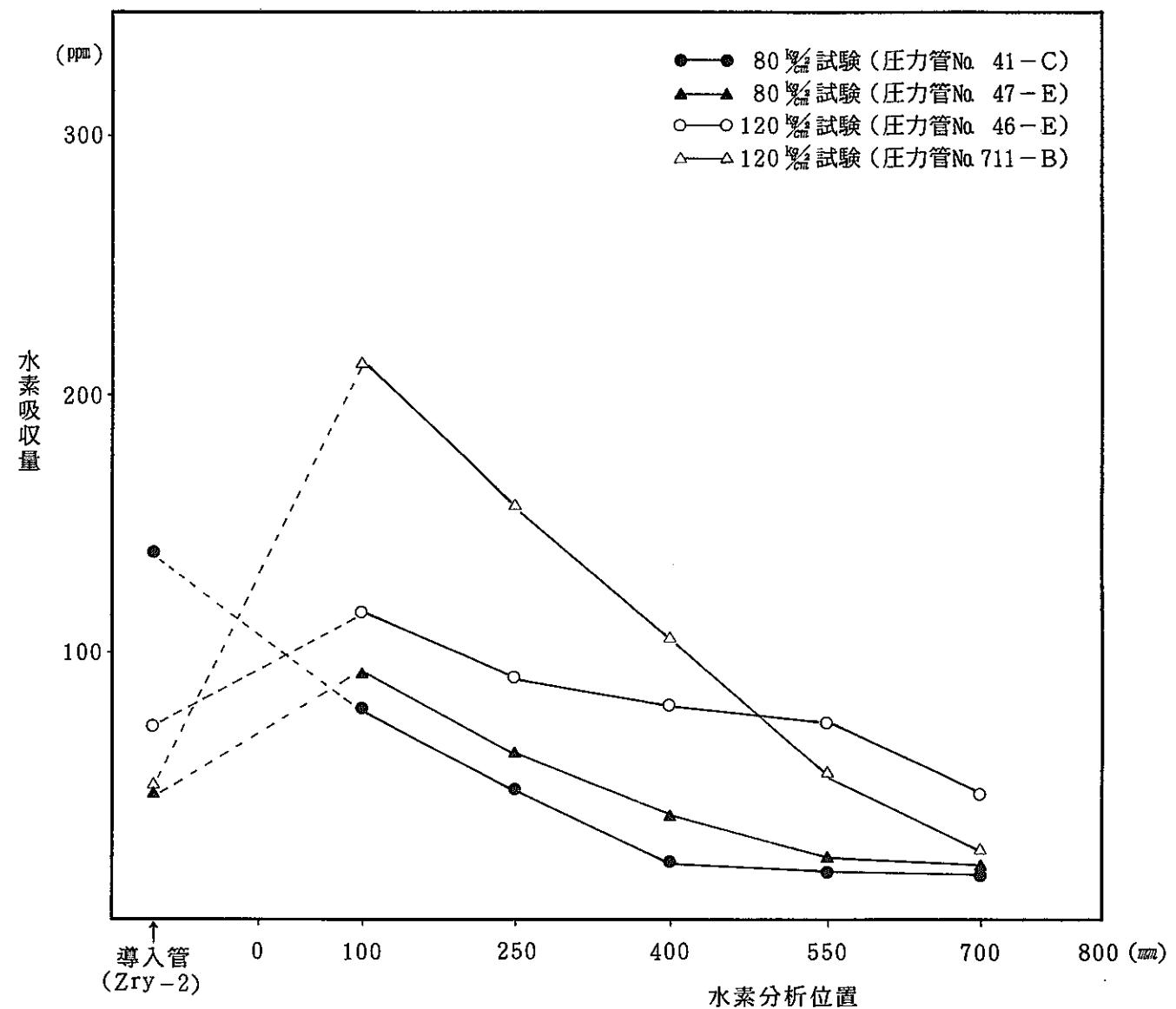


図35 400°C 試験における水素吸収分布

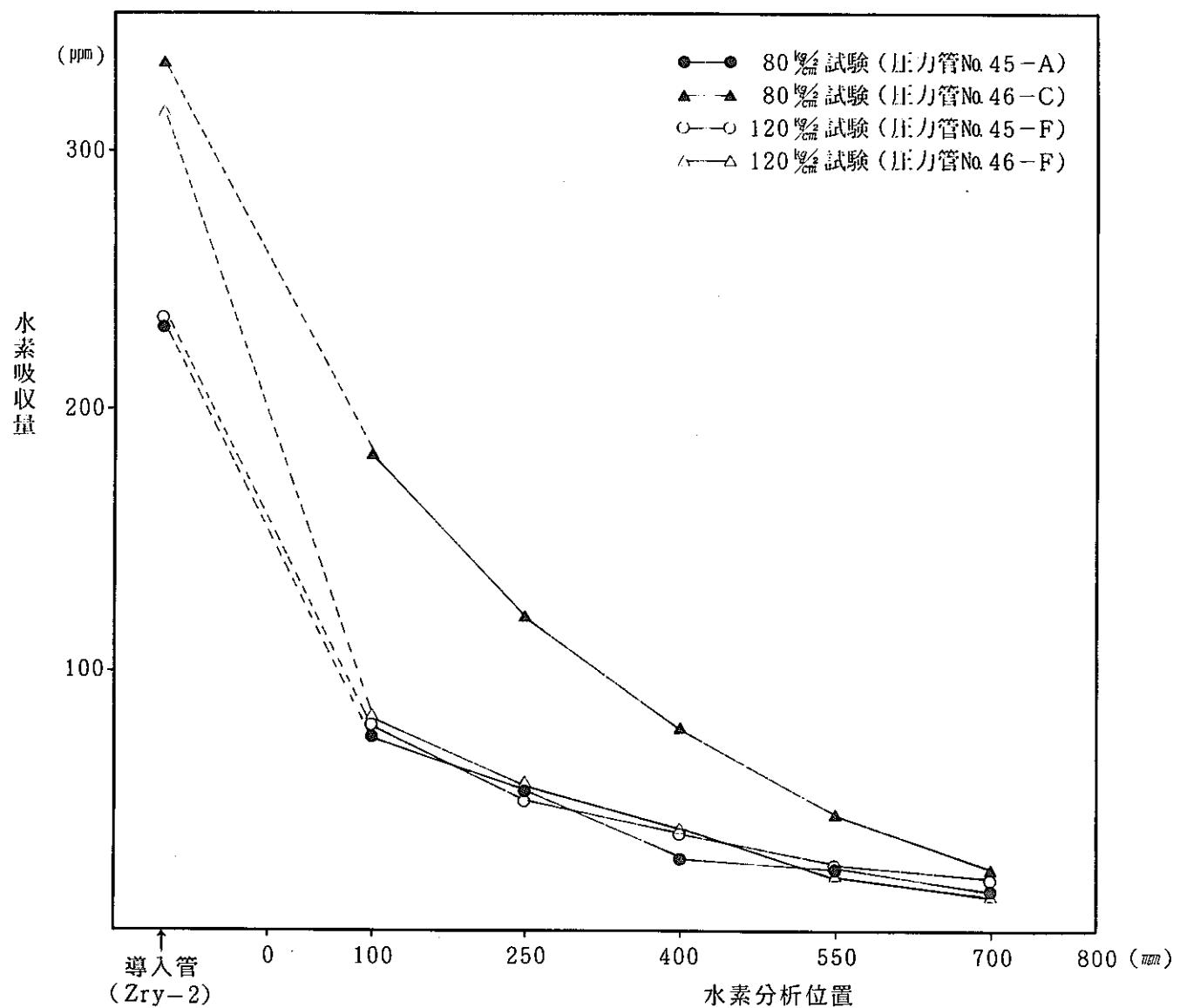
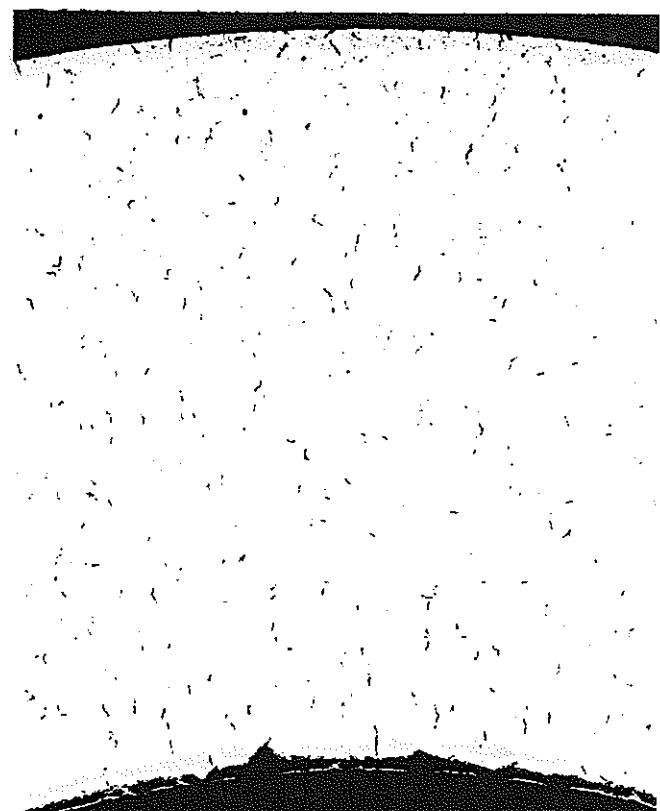


図 36 500°C 試験における水素吸収分布



(× 50)

写真34 水素導入管部の水素化物配向

[300°C, 120 atm, 260時間試験]
[水素吸収量 23 ppm, 圧力管 No.45]



(× 50)

写真35 水素導入管部の水素化物配向

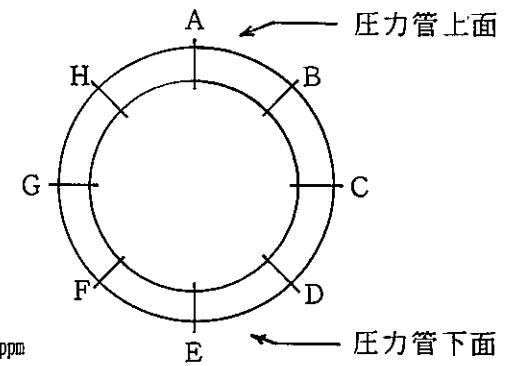
[400°C, 120 atm, 260 時間試験]
[水素吸收量 72 ppm, 圧力管 No.46]



(× 50)

写真36 水素導入管部の水素化物配向

[500°C, 120%, 260時間保持]
[水素吸収量 236 ppm, 圧力管 No. 45]



单位: ppm

表 6 圧力管円周方向の水素吸収分布

試験条件 分析位置	A	B	C	D	E	F	G	H
300°C, 120 % _{cm³}	71	33	14	15	49	56	59	65
400°C, 120 % _{cm³}	80	56	39	10	6	9	24	45
500°C, 120 % _{cm³}	38	29	11	11	8	6	9	21

※ 水素分析値はいづれも圧力管軸方向 400 mm (③) の位置

5.4 内圧負荷水素富化試験中における圧力管ふくれ量の測定

参考データとして、内圧負荷試験前・後の圧力管外径を測定し、試験によるふくれ量を求めた。測定には、歯厚式歯車マイクロメータ（最少読み取り 0.01 mm ）を用い、 100 mm 間隔で 7か所を測定した。測定した結果を表 7 に示す。

表 7 内圧負荷水素富化試験中の圧力管ふくれ量（平均値）

試験温度 ふくれ量・ 時間 試験圧力	300 °C		400 °C		500 °C	
	ふくれ量 (%)	試験時間 (Hr)	ふくれ量 (%)	試験時間 (Hr)	ふくれ量 (%)	試験時間 (Hr)
$80 \frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$ 〔フープ応力 $11.4 \frac{\text{kg}}{\text{mm}^2}$ 〕	0.04	260	0.19	260	1.13	17.5
	0.06	260	0.20	260	0.89	10.8
$120 \frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$ 〔フープ応力 $17.0 \frac{\text{kg}}{\text{mm}^2}$ 〕	0.06	260	0.45	260	1.21	2.6
	0.09	260	0.84	260	1.15	2.3

6. ま　と　め

5%水素 + 95%ヘリウム混合ガスを用いたATR圧力管の内圧負荷水素富化試験結果を以下にまとめる。

- (1) 内圧負荷水素富化試験の一定時間における水素吸収量は、減圧水素雰囲気中におけるそれと同様に試験温度が高くなるにつれて増加した。特に500°Cではそれ以下の温度と比べて極端に大きな値を示した。
- (2) 300°Cでの試験において、試験圧力を 80 kg/cm^2 から 120 kg/cm^2 へ増加しても水素吸収速度にはほとんど影響を及ぼさなかった。しかし、400°Cでの試験になると、試験圧力の影響は大きくなり、水素吸収速度は急激に増加した。さらに、500°Cでの試験の場合には、試験圧力 120 kg/cm^2 での試験の方が 80 kg/cm^2 での試験よりも約5倍もの速度で水素吸収された。即ち、水素吸収速度は、300°Cよりも高い温度において、試験圧力の影響を大きく受ける傾向のあることが明らかとなった。
- (3) 水素化物方位は、ほとんどすべての試験条件において半径方向へ配向した。しかし、300°C、 80 kg/cm^2 での試験においては、円周方向へ析出した水素化物も多少認められた。一方、圧力管の温度を試験温度から炉冷する過程で負荷内圧を減少させると、冷却中に水素化物が半径方向から円周方向へ再配向することが明らかとなった。また、冷間加工材圧力管では、試験条件が同じでも半径方向への水素化物配向感受性の低いことが明らかとなった。
- (4) 圧力管の水素吸収分布は、軸方向・円周方向ともに不均一で、軸方向においてはガス入口側に多く、円周方向においては、圧力管上面に多いという傾向を示した。この傾向は水素吸収速度の速い400°C、500°Cでの試験に顕著に現われており、試験圧力の影響は受けなかった。
- (5) 水素化物方位が半径方向に析出を開始する負荷内圧は、300°Cでは 70 kg/cm^2 前後(フープ応力 9.9 kg/mm^2)と思われる。

7. 謝 辞

本試験の実施にあたり有益な助言と資料の提供を頂いた永木 裕，大森拓郎，五十嵐 幸，
神谷和明の各氏に対して厚く御礼申し上げます。

また，圧力管端栓加工，端栓溶接および水素分析に多くの協力をいただいた照沼宏明，吉村
光彦，技術部分析課の各氏をはじめとする関係者に感謝致します。

8. 参考文献

- (1) 立石, 小笠原, 金田, "ATR圧力管の炉外水素富化試験-(I)水素富化時における局部水素脆化発生原因の調査", 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所, SN841-82-57 (1982)
- (2) 三浦, 永木, 金田, 小笠原, "新型転換炉圧力管の水素富化試験", 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所, SN843-73-09 (1973)
- (3) C.E.Ells, "Hydride Precipitates in Zirconium Alloys", Journal of Nuclear Materials, 28 (1968), 129-151
- (4) R.P.Marshall, "Influence of Fabrication History on Stress-Oriented Hydrides in Zircaloy Tubing", Journal of Nuclear Materials, 24 (1967), 34-48
- (5) A.Sawatzky and B.J.S.Wilkins, "Hydrogen Solubility in Zirconium Alloys Determined by Thermal Diffusion", Journal of Nuclear Materials, 22 (1967), 304-310
- (6) J.J.Kearns, "Terminal Solubility and Partitioning of Hydrogen in the Alpha Phase of Zirconium, Zircaloy-2, and Zircaloy-4", Journal of Nuclear Materials, 22 (1967), 292-303
- (7) M.R.Louthan, Jr. and R.P.Marshall, "Control of Hydride Orientation in Zircaloy", Journal of Nuclear Materials, 9, No.2 (1963), 170-184
- (8) C.E.Coleman, "Effect of Texture on Hydride Reorientation and Delayed Hydrogen Cracking in Cold-Worked Zr-2.5Nb", Zirconium in the Nuclear Industry : Fifth Conference, ASTM STP 754, 1982, 393-411
- (9) B.A.Cheadle, C.E.Coleman, and H.Licht, "CANDU-PHW Pressure Tubes: Their Manufacture, Inspection, and Properties", Nuclear Technology, 57 (1982), 413-425

付録 1 供試材(熱処理材)のミルシート

Chase Brass & Copper Co.

SUBSIDIARY OF KENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720



TELEPHONE: 756-9444

April 13, 1973

Mr. J. A. Buonocore
Assistant General Manager
Nuclear Fuel
Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc.
200 Park Avenue
New York, New York 10017

Ref: Contract No. 130436
Chase W.O. 80-2909

Dear Sir:

In connection with item 1 on the above order which was shipped on March 20, 1973 I am enclosing two copies each of the following:

1. Ingot analysis
2. Tube inspection certificates containing data and results of measurements
3. Chemical analysis results

The following material has already been supplied:

1. "Vidigage" charts of wall thickness before cutting for expanding (1 copy)
2. Air gage charts of inside diameter before cutting for expanding (1 copy)
3. Ultrasonic test chart records before cutting for expanding (1 copy)

Corrosion test coupons will be forwarded as soon as received.

The fabrication history was as follows:

1. Extrude at 1550°F
2. Draw to intermediate size for heat treatment
3. Solution heat treat by water quenching from 1630°F
4. Cold draw
5. Age 24 hours at 932°F in vacuum
6. Expand to final inside diameter and straighten

Very truly yours,

James L. Baker
General Manager
Chase Nuclear Division

James L. Baker/ar
Enclosures

TO Chase Brass & Copper Co., Inc.
 ADDRESS Waterbury
 Connecticut 06720

DEC 4 1972
TELEDYNE WAH CHANG ALBANY

P. O. BOX 460
 ALBANY, OREGON 97321
 (503) 926-4211 TWX (510) 505-0973

ATTENTION OF: J. L. Baker

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO W-29516

ITEM NO 1
 DESCRIPTION Zirconium-2.5 Cb Machined Billets
 DIMENSIONS 8.380" O.D.x4.920" I.D.x21.34" L
 SPECIFICATIONS AECL MET-52, Issue 4 & P. O.

DATE November 28, 1972
 DATE SHIPPED Ref. P.L.# 3
 QUANTITY SHIPPED 12 pcs. 2227.5 lbs.
 PRODUCTION ORDER NO 1865
 HEAT NO 387852Q Zr 2.5% Cb

THE TEST REPORT FOLLOWS:

INGOT ANALYSIS
COMPOSITION IN PERCENT

Element	Spec.	Top	Middle	Bottom
Cb	2.40-2.80	2.6	2.6	2.6
B A L A N C E				
Zr				
IMPURITIES IN PPM				
Al	75	53	55	57
B	0.5	0.2	0.2	0.2
Cd	0.5	<0.2	<0.2	<0.2
C	270	180	170	180
Cr	200	50	51	58
Co	20	<10	<10	<10
Cu	50	<25	<25	<25
Hf	200	31	34	32
H	25	9	<5	10
Fe	1500	468	543	571
Pb	130	<50	<50	<50
Mg	20	<10	<10	<10
Mn	50	<25	<25	<25
Mo	50	<25	<25	<25
Ni	70	<35	<35	<35
O	900-1300	1180	1220	1300
N	65	43	40	53
Si	120	45	56	61
Ta	200	<200	<200	<200
Sn	100	25	10	25
Ti	50	<40	<40	<40
W	100	<25	<25	<25
U	3.5	2.1	0.8	1.5
V	50	<25	<25	<25

INGOT HARDNESS, BHN

Range	183 - 192
Average	189

INGOT ULTRASONIC TEST RESULTS

Acceptable

"Lay-out Sheet Attached"

ANALYSIS
 CERTIFIED BY *J. R. Sutherlin*
R. C. B. J. R. Sutherlin
C. G. H. Quality Assurance Mgr.

LAYOUT SHEET FOR ZIRCALOY WROUGHT PRODUCT

S.O. # 155-1 & 2

Ht. # 337352

Zr 2.5Cb

Date

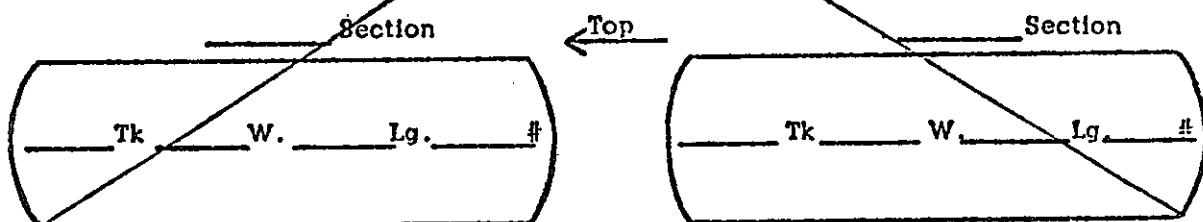
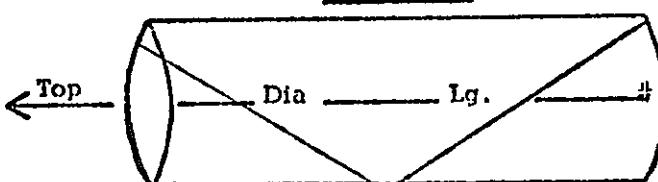
11/21/72

Certified By

A. H. LangenDenotes
Sample Area

AS Shipment 12 pcs. Item 1

AS Shipment 6 pcs. Item 2



Top												<u>A</u>	Section	<u>8.8"</u> Tk.X dia <u>W.</u>			
A1A	A1B	A1C	A1D	A2A	A2B	A2C	A2D	A3A	A3B	A3C	A3D						
AS 001	AS 002	AS 003	(AS) 004	(AS) 005	(AS) 006	AS 007	AS 008	AS 009	AS 010	AS 011	AS 012						
41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52						

Top						<u>B2</u>	Section	<u>7.2"</u> Tk.X dia <u>W.</u>								
B2A	B2B	B2C	B2D	B2E	B2F											
AS 013	AS 014	AS 015	AS 016	AS 017	AS 018											

TUBE INSPECTION CERTIFICATE**Chase Brass & Copper Co.**

SUBSIDIARY OF KENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720

TELEPHONE 750-9444

W.O. 80-2909-1

Zr-2.5% Nb Heat Treated Pressure Tube

Customer: Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc. Contract No. 130436 Item 1

Specification No. ATR-M-300 April 10, 1971

Ingot Identification 3878520 Lot No. A Tube No. 41

Solution Heat Treatment:

	Front End	Back End
Hardness-VPN	<u>248</u>	<u>252</u>
Percent Alpha	<u>7.00%</u>	<u>7.33%</u>

Amount of Cold Work - After Soln. H.T. 13.78 % After Aging H.T. Exp. 0.80 %Chemical Analysis of Tube Completed Yes X No _____ Attached Yes _____ No XTensile Test: Temp. °F U. T. S. 0.2% Y.S. Elong. in 4.5 $\sqrt{\text{A}}$
Front End 572 92,300 psi 70,200 psi 13.0 %
Back Ends " 94,300 psi 69,800 psi 14.0 %Hydrostatic Test: Test Pressure 3,600 psi Duration 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes _____ No X

Corrosion Test:

Duration 72 hours Weight Gain Mg./Dm.² 24 Appearance O.K.Dimensions: Length 209 InchesInternal Diameter: Air Gage Chart Attached Yes _____ No X
Wall Thickness: Vidigage Chart Attached Yes _____ No XStraightness: Max. Bow .063 " In 197"Ultrasonic Inspection: Free from Defects Greater than 3% Standard Yes X No _____Weight 128.28 lbs.Date APR 13 1973
James L. Baker

Gen. Mgr., Chase Nuclear Division

Comments:

TUBE INSPECTION CERTIFICATE**Chase Brass & Copper Co.**

SUBSIDIARY OF KENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720

TELEPHONE 756-9444

W.O. 80-2909-1

Zr-2.5% Nb Heat Treated Pressure Tube

Customer: Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc. Contract No. 130436 Item 1

Specification No. ATR-M-300 April 10, 1971

Ingot Identification 387852Q Lot No. A Tube No. 44

Solution Heat Treatment:

	Front End	Back End
Hardness-VPN	<u>260</u>	<u>252</u>
Percent Alpha	<u>11.33%</u>	<u>13.33%</u>

Amount of Cold Work - After Soln. H.T. 13.90 % After Aging H.T. Exp. 0.80 %Chemical Analysis of Tube Completed Yes _____ No X
(H, N & O) Attached Yes _____ No XTensile Test: Temp. °F U. T. S. 0.2% Y.S. Elong. in 4.5 √A
Front End 572 89,100 psi 62,900 psi 18.0 %
Back Ends " 94,700 psi 66,400 psi 19.0 %Hydrostatic Test: Test Pressure 3,600 psi Duration 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes _____ No X

Corrosion Test:

Duration 72 Hours Weight Gain Mg./Dm.² 22 Appearance O.K.Dimensions: Length 209 InchesInternal Diameter: Air Gage Chart Attached Yes _____ No X
Wall Thickness: Vidigage Chart Attached Yes _____ No XStraightness: Max. Bow .044 " In 197"Ultrasonic Inspection: Free from Defects Greater than 3% Standard Yes X No _Weight 128.55 lbs.Date APR 13 1973

 James L. Baker
 Gen. Mgr., Chase Nuclear Division

Comments:

TUBE INSPECTION CERTIFICATE

Chase Brass & Copper Co.
A SUBSIDIARY OF KENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720

TELEPHONE 756-0444

W.O. 80-2909-1

Zr-2.5% Nb Heat Treated Pressure Tube

Customer: Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc. Contract No. 130436 Item 1
 Specification No. ATR-M-300 April 10, 1971
 Ingot Identification 3878520 Lot No. A Tube No. 45
 Solution Heat Treatment:

	Front End	Back End
Hardness-VPN	<u>255</u>	<u>252</u>
Percent Alpha	<u>11.66%</u>	<u>10.66%</u>

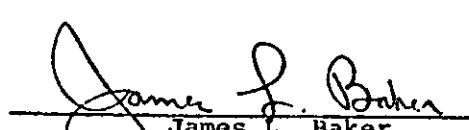
Amount of Cold Work - After Soln. H.T. 13.66% After Aging H.T. Exp. 0.80%

Chemical Analysis of Tube Completed Yes No X
 (H, N & O) Attached Yes No X

Tensile Test: Temp. °F U.T.S. 0.2% Y.S. Elong. in 4.5 √A
 Front End 572 89,800 psi 66,300 psi 21.0%
 Back Ends " 72,300 psi 67,700 psi 18.0%

Hydrostatic Test: Test Pressure 3,600 psi Duration 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes No X

Corrosion Test:

Duration 72 Hours Weight Gain Mg./Dm.² .25 Appearance O.K.Dimensions: Length 209 InchesInternal Diameter: Air Gage Chart Attached Yes No X
 Wall Thickness: Vidigage Chart Attached Yes No XStraightness: Max. Bow .015" In 197"Ultrasonic Inspection: Free from Defects Greater than 3% Standard Yes X No Weight 128.18 lbs.Date APR 13 1973

 James L. Baker
 Gen. Mgr., Chase Nuclear Division

Comments:

TUBE INSPECTION CERTIFICATE

Chase Brass & Copper Co.
A Division of Kennecott Copper Corporation

SUBSIDIARY OF KENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720

TELEPHONE 755-9444

W.O. 80-2909-1

Zr-2.5% Nb Heat Treated Pressure Tube

Customer: Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc. Contract No. 130436 Item 1

Specification No. ATR-M-300 April 10, 1971

Ingot Identification 387852Q Lot No. A Tube No. 46

Solution Heat Treatment:

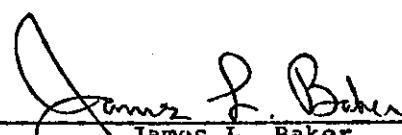
	Front End	Back End
Hardness-VPN	<u>248</u>	<u>255</u>
Percent Alpha	<u>10.00%</u>	<u>10.33%</u>

Amount of Cold Work - After Soln. H.T. 13.32 % After Aging H.T. Exp. 0.80%Chemical Analysis of Tube Completed Yes _____ No X
 (H, N & O) Attached Yes _____ No XTensile Test: Temp. °F U. T. S. 0.2% Y.S. Elong. in 4.5%
 Front End 572 87,300 psi 65,200 psi 19.0%
 Back Ends " 90,700 psi 69,000 psi 20.0%Hydrostatic Test: Test Pressure 3,600 psi Duration 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes _____ No X

Corrosion Test:

Duration 72 Hours Weight Gain Mg./Dm.² 23 Appearance O.K.Dimensions: Length 209 InchesInternal Diameter: Air Gage Chart Attached Yes _____ No X
 Wall Thickness: Vidigage Chart Attached Yes _____ No XStraightness: Max. Bow .076" In 197"Ultrasonic Inspection: Free from Defects Greater than 3% Standard Yes X No _Weight 128.62 lbs.Date APR 13 1973

Comments:


 James L. Baker
 Gen. Mgr., Chase Nuclear Division

TUBE INSPECTION CERTIFICATE

Chase Brass & Copper Co.
INcorporated 1873

SUBSIDIARY OF KENYECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720

TELEPHONE 780-9444

W.O. 80-2909-1

Zr-2,5% Nb Heat Treated Pressure Tube

Customer: Mitsui & Co. (U.S.A.), Inc. Contract No. 130436 Item 1

Specification No. ATR-M-300 April 10, 1971

Ingot Identification 3878520 Lot No. B Tube No. 47

Solution Heat Treatment:

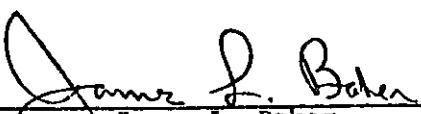
	Front End	Back End
Hardness-VPN	<u>248</u>	<u>252</u>
Percent Alpha	<u>10.33%</u>	<u>10.60%</u>

Amount of Cold Work - After Soln. H.T. 12.85% After Aging H.T. 0.80%Chemical Analysis of Tube Completed Yes _____ No Attached Yes _____ No Tensile Test: Temp. °F U. T. S. 0.2% Y.S. Elong. in 4.5 √A
 Front End 572 85,000 psi 66,600 psi 16.0%
 Back Ends " 22,900 psi 64,900 psi 20.0%Hydrostatic Test: Test Pressure 3,600 psi Duration 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes _____ No

Corrosion Test:

Duration 72 Hours Weight Gain Mg./Dm.² 2.3 Appearance O.K.Dimensions: Length 209 InchesInternal Diameter: Air Gage Chart Attached Yes _____ No
 Wall Thickness: Vidigage Chart Attached Yes _____ No Straightness: Max. Bow .067" In 197"Ultrasonic Inspection: Free from Defects Greater than 3% Standard Yes No Weight 128.52 lbs.Date APR 13 1973

Comments:


 James L. Baker
 Gen. Mgr., Chase Nuclear Division

TO Chase Brass & Copper Co., Inc.
 ADDRESS Waterbury
 CT 06720

ATTENTION OF: J. L. Baker

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO W 30551
 ITEM NO 1
 DESCRIPTION Chemical Analysis on customer
 DIMENSIONS supplied Zr2.5% Cb
 SPECIFICATIONS ---
 THE TEST REPORT FOLLOWS:

APR 5 1973
TELEDYNE WAH CHANG ALBANY

P. O. BOX 460
 ALBANY, OREGON 97321
 (503) 926-4211 TWX (510) 695-0973

DATE	March 30, 1973
DATE SHIPPED	---
QUANTITY SHIPPED	---
PRODUCTION ORDER NO	C 8266
HEAT NO	---

ANALYSIS IN PPM		
	41F	52F
O	1180	1210
N	38	40
H	18	15

ANALYSIS CERTIFIED BY

kb
LP
JA

Ray Matthews
Quality Assurance Dept.

付録 2 供試材（冷間加工材）のミルシート



WAH CHANG ALBANY CORPORATION

A TELEDYNE COMPANY

P.O. BOX 860 • ALBANY, OREGON 97321 • TELEPHONE 503-926-4211

TO Chase Brass & Copper Co., Inc.
ADDRESS Waterbury,
Connecticut 06720

ATTENTION OF: J. L. Baker

DATE December 18, 1969
DATE SHIPPED December 12, 1969
QUANTITY SHIPPED As Listed
PRODUCTION ORDER NO 2426-7
HEAT NO 378677 Zr-2.5 CB

ITEM	DIMENSIONS	QUANTITY SHIPPED
1	8.380"OD x 4.920"ID x 21.34"	4 pcs. - 733.0 lbs.
2	8.380"OD x 4.920"ID x 18.75"	4 pcs. - 646.0 lbs.

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO W-15484

ITEM NO. As Listed
DESCRIPTION Zirconium-2.5% Niobium Machined Billets
DIMENSIONS As Listed
SPECIFICATIONS AFCL MET 52, and Purchase Order

THE TEST REPORT FOLLOWS:

INGOT ANALYSISCOMPOSITION IN PERCENT

	Top	Center	Bottom
Cb	2.6	2.7	2.6
BALANCE			
IMPURITY CONTENT, PPM			
Al	50	51	48
B	0.3	0.2	0.2
C	220	230	220
Cd	<0.3	<0.3	<0.3
Co	<5	<5	<5
Cr	110	100	110
Cu	<5	<5	<5
Fe	980	940	1020
H	2.0	4.5	1.8
Hf	135	83	73
Mg	<10	<10	<10
Mn	<10	<10	<10
Mo	<10	<10	<10
N	47	41	37
Na	<10	<10	<10
Ni	18	16	16
O	1280	1170	1290
Pb	10	10	10
Si	79	94	95
Sn	40	40	40
Ta	<200	<200	<200
Ti	<50	<50	<50
U	0.8	0.6	0.8
V	<5	<5	<5
W	35	35	35

INGOT ULTRASONIC TEST RESULTS

Acceptable

HARDNESS IN BRINELL
Range: 197-207 Average: 201

SUBSCRIBED AND SWEORN TO BEFORE ME
ON

NOTARY PUBLIC FOR OREGON
MY COMMISSION EXPIRES

ANALYSIS
CERTIFIED BY

G. L. Frederic
Quality Assurance Mgr.



WAI CHANG ALBANY CORPORATION

A TELEDYNE COMPANY

P.O. BOX 400 • ALBANY, OREGON 97321 • TELEPHONE 503-926-4211

To Chase Brass & Copper Co., Inc.
 ADDRESS Waterbury
 Connecticut 06720

DATE February 2, 1970
 DATE SHIPPED ---
 QUANTITY SHIPPED ---
 PRODUCTION ORDER NO C 8407
 HEAT NO ---

ATTENTION CPI J. L. Baker

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO W 17418

ITEM NO

1

DESCRIPTION

Perform chemical analysis on customer supplied
Zirconium-2.5% Niobium tubing
Per Purchase Order

DIMENSIONS

SPECIFICATIONS

THE TEST REPORT FOLLOWS:

ANALYSIS IN PPM

	708-F	712-F
O	1280	1130
N	46	33
H	3.6	3.2

SUBSCRIBED AND SWORN TO BEFORE ME,
ON

NOTARY PUBLIC FOR OREGON
My COMMISSION EXPIRES

ANALYSIS
CERTIFIED BY *Harold J. Reed*
Harold J. Reed
Quality Assurance Dept.



**WAN CHANG ALBANY CORPORATION
A TELEDYNE COMPANY**

P.O. BOX 480 - ALBANY, OREGON 97321 - TELEPHONE 503-926-4211

To	Chase Brass & Copper Co., Inc.	DATE	March 2, 1970
ADDRESS	Waterbury Connecticut 06720	DATE SHIPPED	---
		QUANTITY SHIPPED	---
		PRODUCTION ORDER NO	C 8496
		HEAT NO	---

ATTENTION OF: J. L. Baker

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO W 17417

ITEM NO	1
DESCRIPTION	Perform elevated temperature tensile test of customer supplied samples from cold worked Zirconium-2.5% Niobium
DIMENSIONS	Per Purchase Order
SPECIFICATIONS	

THE TEST REPORT FOLLOWS:

TENSILE TEST RESULTS @ 572°F MLAT

Sample	Tensile Strength	Yield Strength (0.2% Offset)	Elongation % in 0.85"
B708	82,400	62,300	18.0
F708	74,200	56,400	15.0
B710	80,300	60,600	16.0
F710	77,200	59,200	18.0
F711	74,400	58,000	15.0
E711	61,100	59,800	15.0
B712	80,900	61,300	18.0
F712	76,900	58,500	13.0

SUBSCRIBED AND SWORN TO BEFORE ME
on

.....
NOTARY PUBLIC FOR OREGON
My commission expires

ANALYSIS CERTIFIED BY
Harold J. Reed
Quality Assurance Dept



WAN CHANG ALBANY CORPORATION

A TELEDYNE COMPANY

P.O. BOX 460 • ALBANY, OREGON 97321 • TELEPHONE 503-962-4211

TO ADDRESS	Chase Brass & Copper Co., Inc. Waterbury Connecticut 06720	DATE DATE SHIPPED QUANTITY SHIPPED PRODUCTION ORDER NO HEAT NO	February 25, 1970 --- --- C 8495 ---
---------------	--	--	--

ATTENTION OF: J. L. Baker

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO. W 17414

ITEM NO	1	Corrosion test samples of Zirconium-2.5% Niobium
DESCRIPTION		tubes per purchase order instructions.
DIMENSIONS		
SPECIFICATIONS		Per Purchase Order

THE TEST REPORT FOLLOWS:

CORROSION TEST RESULTS per PS-CT-1 Rev. 5 Run No. 218-3

3 Days @ 750°F and 1500 psi

Wt. Gain

<u>Sample</u>	<u>Nt. Gain</u> <u>kg/cm²</u>	<u>Appearance</u>				
708	24	Acceptable, no visible corrosion defects.	"	"	"	"
710	22	"	"	"	"	"
711	23	"	"	"	"	"
712F	23	"	"	"	"	"

SUBSCRIBED AND SWORN TO BEFORE ME
ON

.....
NOTARY PUBLIC FOR OREGON
My commission expires

kg
lb

ANALYSIS
CERTIFIED BY
Harold J. Reed
Quality Assurance Dept.

TUBE INSPECTION CERTIFICATE

Chase Brass & Copper Co.

SUBSIDIARY OF BENNECOTT COPPER CORPORATION

Waterbury, Connecticut 06720



TELEPHONE 780-5444

Customer: Mitsui & Co., (U.S.A.), Inc.

Contract No. 130070 Specification No. ATR-M-227 Chase W.O. 80-2789

Ingot Identification 317617Amount of Cold Work 23.97Tube No. 711Chemical Analysis of Tube: Completed Yes _____ No Attached Yes _____ No

Tensile Test: Temperature of Test: 572°F

	Front	Back
Ultimate Tensile Strength	74,400 psi ±2.0%	81,100 psi ±6.7%
0.2% Yield Strength	56,000 " " ±0.6	59,700 " " ±4.8%
Elongation in 4.5 √A	15.0 %	15.0 %

Hydrostatic Test: Test Pressure: 3,000 psi Duration: 30 secondsCracks, Deformation or Leaks Yes _____ No

Corrosion Test:

Test	Duration	Weight Gain Mg./Dm. ²	Appearance
1	72 Hours	2.3	OK
2	14 Days	—	—
3	14 Days	—	—

Dimensions: Length 2.07 InchesInternal Diameter, Air Gage Chart Attached Yes No _____
Wall Thickness, Vidigage Chart Attached Yes No _____Straightness: 0.072 in 197"Ultrasonic Inspection: Free from defects greater than 30 standard Yes No _____
Weight 126.14 lbs.

Comments:

Date March 10, 1970Signed James L. Baker
James L. Baker
Gen. Mgr. Zirconium Division

付録3 圧力管端栓材のミルシート

TO Mitsui & Co. (USA), Inc.
 ADDRESS 200 Park Avenue
 New York, NY 10017

ATTENTION OF: J. Buonocore

IN REGARD TO YOUR PURCHASE ORDER NO 130392
 ITEM NO 1
 DESCRIPTION Zirconium-2.5 Cb Bars
 DIMENSIONS 5.315" dia. x 19.685" L
 SPECIFICATIONS PNG Spec. dtd 1/20/71 & P.O.
 THE TEST REPORT FOLLOWS:

(1.25" x 500" L)

TELEDYNE ATR
WAH CHANG ALBANY

P. O. BOX 460
 ALBANY, OREGON 97321
 (503) 866-4911 TWX (810) 866-6073

Zr-2.5%Nb

DATE	May 10, 1972
DATE SHIPPED	May 10, 1972
QUANTITY SHIPPED	20 pcs. 2127.8 lbs.
PRODUCTION ORDER NO	1342- /
HEAT NO	386124Q Zr-2.5 Cb

INGOT ANALYSIS
COMPOSITION IN PERCENT

	Top	Middle	Bottom
Cb	2.5	2.5	2.5
IMPURITIES IN PPM			
Al	39	38	32
B	<0.2	<0.2	<0.2
Cd	<0.2	<0.2	<0.2
C	170	150	150
Co	<10	<10	<10
Cu	<10	<10	14
Hf	29	27	33
V	<25	<25	<25
H	<5	5	11
Pb	<50	<50	<50
Mg	<10	<10	<10
Mn	<25	<25	<25
Mo	<25	<25	<25
Fe	458	487	500
Ni	<35	<35	<35
O	1040(R) 1080(R)	1080	1200
Sn	10	<10	<10
Cr	51	57	<50
N	31	31	39
Si	42	42	42
Ti	<40	<40	<40
W	<25	<25	<25
U	0.9	0.6	0.7
HARDNESS IN BHN			
Range	179-189		
Average	183		

PRODUCT SURFACE FINISH, RMS
<125

PRODUCT CHEMISTRY, PPM

	1	2
O	1140	1230
N	47	35
H	<5	6

CORROSION TEST RESULTS Run No. 646-4

Sample	Wt. Gain Mg/dm ²	Appearance	
		3 days @ 750°F, 1500 psi	Acceptable, no visible corrosion defects.
1	20		
2	19		

TENSILE TEST RESULTS @ ROOM TEMP.

Room Temp.	Tensile Sample STR psi	Yield Strength (0.2% Offset)psi	Elong. in %
Long. #1	82,400	64,800	24
Long. #2	80,400	62,600	20
300°C			
Long. #1	57,200	35,800	29
Long. #2	49,400	32,700	27

*For information only

BILLET ULTRASONIC TEST RESULTS

LP-UI-4 RO

Results: Acceptable

東京都港区西新橋1丁目2番9号
 三井物産株式会社
 非鉄金属部原子燃料室

ANALYSIS CERTIFIED BY
 J. R. Sutherland
 fh J. R. Sutherland
 Quality Assurance Mgr.
 Cuff

付録4 水素導入管端栓材の検査成績表

検査成績表

整理番号 495

昭和49年6月25日

注文先 動力炉・核燃料
福井市第一殿

種別 ジルカロイ-2丸棒

公称寸法 $18\phi \times 1000^L$

製作番号 BCW076076 ロット番号B1271

製品番号 S151 - S200 計50本

備考

住友金属工業株式会社
中央技術研究所
尼崎市西長洲本通1の3(〒660)
電話大阪(06) 401-6201

検査責任者	
-------	--

抜取検査結果(抜取率:特記なき限り1ロットにつき2本)

項目	試験条件	規格値	成績		備考
引張力 (kg/mm^2)		≥ 42	51.0	50.1	
引耐力 (kg/mm^2)	常温	≥ 24.5	31.8	31.1	
張伸び (%)		≥ 14	30	32	
抗張力 (kg/mm^2)					
耐力 (kg/mm^2)					
伸び (%)					
内圧破裂試験	破裂圧力 (kg/cm^2)				
	周伸び (%)				
	破裂圧力 (kg/cm^2)				
	周伸び (%)				
押抜け試験	常温				
扁平試験	常温				
硬さ試験	常温				
<hr/>					
金相試験	組織および介在物				
	結晶横断面	ASTMNo.7より細粒	No 8	No 8	
	粒度長手断面	ASTMNo.7より細粒	No 8	No 8	
<hr/>					
水素化物方位					
<hr/>					
腐食試験	腐食増量 ($%/dm^2$)	≤ 22	15.6	14.8	
	表面状況	黒色光沢	良好	良好	
	O (ppm)	700 - 1500	1160	1160	
	H (ppm)	≤ 25	11	12	
製品分析	N (ppm)	≤ 80	15	17	

品 名 シルカライト-2 棒

製品全数検査結果

項目		規 格	成 績	備 考
寸 法	外 径 ϕ	18 (+3 -0.0)	合 格	
	長 さ mm	1000 (+5 -0)	合 格	
超音波探傷		—	—	
表 面	外 観	割れ、毛穴、飛出物等 $<0.3\text{mm}$ 以下を有する	合 格	
	粗 さ	12S JX以下	合 格	

化学成分分析値（使用鋳塊の頭部(T) 中央部(M) 底部(B) についての分析値）

項 目	規 格 値	成 績			備 考
		T	M	B	
合 金 元 素 (%)	S n	1.20-1.70	1.50	1.48	1.47
	F e	0.07-0.20	0.16	0.15	0.15
	C r	0.05-0.15	0.11	0.10	0.10
	N i	0.03-0.08	0.06	0.06	0.06
	F e + C r + N i	0.18-0.38	0.33	0.31	0.31
不 純 物 元 素 (ppm)	A l	≤ 75	55	55	42
	B	≤ 0.5	<0.5	<0.5	<0.5
	C d	≤ 0.5	<0.5	<0.5	<0.5
	C	≤ 270	80	80	70
	C o	≤ 20	<5	<5	<5
	C u	≤ 50	10	10	10
	H f	≤ 100	71	83	75
	M n	≤ 50	10	10	10
	S i	≤ 120	20	30	30
	T i	≤ 50	14	13	12
	W	≤ 100	<5	<5	<5
	U	≤ 3.5	<3.5	<3.5	<3.5
	P b	≤ 130	<10	<10	<10
	C l	≤ 20	<20	<20	<20
	C a	≤ 30	<5	<5	<5
	M g	≤ 20	<5	<5	<5